

## 地層処分された高レベル廃棄物による臨界現象発生のメカニズムとその可能性<sup>†</sup>

安俊弘<sup>††</sup> Ehud Greenspan<sup>††</sup> Paul L. Chambre<sup>††</sup>

地下水で飽和した花崗岩中に40,000本の高レベル廃棄物ガラス固化体を処分した場合の自己触媒的臨界シナリオの可能性とメカニズムについて解析を行った。解析は、理論上最大の濃集量と最小の臨界質量を得られるよう保守的に行つた。

理論上の最大の濃集量を得られるよう、他の固化体の干渉を受けずに各固化体から核種が放出され地下水水流下流に設定した濃集点に集積すると仮定して物質輸送／濃集モデルを立てた。ウランが花崗岩地下水中に溶けにくく、かつ、吸着により輸送が大きく遅延される場合、たとえ、処分場に埋設された40,000本の固化体から放出された核種がすべて1点に濃集すると仮定しても、ウランの濃集量は高々数モル程度である。しかし、ウランの花崗岩中での動きやすさが仮定した幅の最大限にある場合、1,000mの輸送距離でも約1モルの12%濃縮ウランを1本の固化体から供給できる。この濃縮度は再処理段階におけるウランとプルトニウムの回収率(それぞれ99.3%と99.85%と仮定)に依存する。

濃集点の花崗岩空隙率が30%のとき、過減速状態の臨界のためにすくなくとも280kgの12%濃縮ウランが必要である。濃集が花崗岩亀裂に沿うような非均質な場合、温度に対する正のフィードバックメカニズムが存在する。また、母岩の空隙率が重要なパラメータであることがわかった。

このシナリオの発生確率を定量的に評価するためには、母岩の空隙率、核種移行経路の形状、核種濃集の地球化学的メカニズムなど処分サイト特有の情報が必要であるため、サイト選定のための特性調査／性能評価には臨界安全評価を加えることが望ましい。

**Key words:** 自己触媒的臨界、高レベル廃棄物、地層処分

An analysis of underground autocatalytic criticality has been performed for vitrified high-level radioactive wastes arising from reprocessing of spent nuclear fuel that are placed in a water-saturated fractured geologic formation. We estimate by mass transport analyses the mass and  $^{235}\text{U}$ -enrichment of accumulated uranium in the host rock originated from multiple failed waste canisters, for which static neutronic analyses are performed. Uranium accumulation with 12% enrichment (denoted as U(12)) can be created. With 30% porosity of the host rock, the minimum critical mass of U(12) required for over-moderated criticality is 280 kg. Heterogeneous U(12) depositions can exhibit positive reactivity feedback due to medium temperature increase.

**Key words:** autocatalytic criticality, high-level radioactive wastes, geologic disposal

### 1 序論

#### 1.1 はじめに

Bowman and Venneri [1] は、地層処分された核分裂性物質が地層中で再分布した後、温度に対する正のフィードバックを伴う核分裂連鎖反応(Autocatalytic criticality, 1.2節参照)により、短時間に多大のエネルギーが放出される可能性のあることを指摘した。彼らの提起したシナリオは、主として、核兵器解体に伴って発生する兵器級プルトニウム( $^{239}\text{Pu}93\%$ ,  $^{240}\text{Pu}7\%$ )と研究炉及び海軍の船用炉から発生する高濃縮のウランを Yucca Mountain の処分場に埋設した場合を対象としている。

地中における臨界現象は Bowman and Venneri が全く新たに提起したわけではなく、古くは、1979年に Clayton [2] が、また、1981年に Gore ら[3]が、使用済燃料の埋設に関して解析を行っている。Bowman and Venneri の指摘は、温度フィードバック効果による爆発的なエネルギーの放出という点で注目を集めた。彼らの研究とは独立に、これらのシナリオに関する詳細な解析[4,5,6]が行なわれた。

本報では、彼らの主張するような温度に対する正のフィ

ードバックを伴う核分裂連鎖反応が高レベル放射性廃棄物を地層処分した場合にも想定可能であるかどうかを解析した結果を報告する。ここで対象となる高レベル廃棄物とは、商業用軽水炉からの使用済燃料を再処理して得られる高レベル廃液をホウケイ酸ガラスで固化したものである(2.1節参照)。このような高レベル廃棄物を処分する場所は今のところ世界のどの国においても定まっていないため、本研究では、地下水水面下にあって地下水で飽和した亀裂性の花崗岩を仮定し、動燃事業団の平成3年度報告書[7]で想定された処分システム(2.2節に概要)を想定して解析を行った。

解析のポイントは次の2点である：

- 埋設された多数の廃棄物固化体を起源として、地層中に形成される得る濃集量と核分裂性物質濃度(以後、濃縮度という)の理論上の最大値は、臨界シナリオの可能性を懸念させるほど大きいかどうか？
- 地層中で温度に対する正のフィードバックを伴う核分裂連鎖反応が可能か？またそのときに必要な核分裂性物質の最小質量はどの程度か？

前者に対しては、物質輸送解析を行った(第3節参照)。解析には、放射性崩壊系列を考慮した並行平板亀裂モデルを用いた。処分場が未定であるため、解析は処分場の詳細に依存しないで理論上最大の質量の濃集が得られるよう適宜仮定を設けて行った。後者に対しては、前者で得られ

† Mechanisms and Possibility of Autocatalytic Criticality by High-Level Wastes Buried in Water-Saturated Geologic Formation, by Joonhong Ahn (ahn@nuc.berkeley.edu), Ehud Greenspan and Paul L. Chambre

本稿は、日本原子力学会1997春の年会放射性廃棄物部会企画セッションでの総合講演を基に加筆したものである。

†† カリフォルニア大学バークレー校工学部原子力工学科 Department of Nuclear Engineering, University of California, Berkeley

た濃集の濃縮度と理想化した幾何学的形状をもとに、正のフィードバックの可能性とそのために必要な臨界質量の最小値を解析した(第4節参照)。

次節では、地中における Autocatalytic criticality について概説し、本研究の狙いを絞り込む。

## 1.2 地中における臨界現象

本研究では、核分裂性物質の濃集に対して、実効中性子増倍係数  $k_{eff}$  が 1 を越え、体系の温度上昇と共に  $k_{eff}$  がさらに増加する状態を自己触媒的臨界 Autocatalytic criticality と定義する。岩盤、なかんずく、それ的主要成分であるシリカ  $\text{SiO}_2$  は、軽い酸素原子を含んでおり、有効な中性子減速材である。また、岩盤空隙中に存在する水もそうである。したがって、 $^{235}\text{U}$  や  $^{239}\text{Pu}$  の様な熱核分裂性物質(Thermally Fissile Material, TFM)が地層中で核分裂反応を起こした場合、高速中性子が熱エネルギー領域まで減速され連鎖反応が維持される可能性がある。どのような自己触媒的臨界状態も、いずれ負のフィードバック機構が働き、連鎖反応は収束する。

Bowman and Venneri[1]は、正のフィードバックがかかる場合をいくつか指摘している。そのうち、高レベル廃棄物のように、1 本の固化体に含まれる TFM の量が小さい場合は、埋設地点で発生するシナリオを除外して考えることができるので、以下、複数の固化体からの輸送と濃集を伴う場合のうち、どのような場合に、自己触媒的になるか見てみることにする。

### 1.2.1 水による過減速

水は、有効な減速材であると同時に、無視できない中性子吸収能がある。したがって、もし、体系内の水が連鎖反応維持に必要な量以上ある場合(この状態を、過減速状態(overmoderated)という)、体系内から水を排除すると、水に吸収されて失われる中性子が減り、その分、TFM に吸収され核分裂を起こす中性子の数が増え、 $k_{eff}$  は増加する(図 1 左図 "Water removal" 矢印参照)。

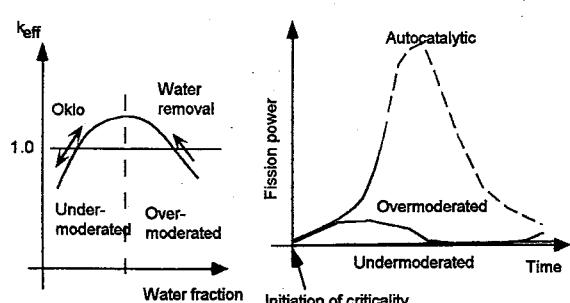


図 1 水による overmoderation と undermoderation

処分場に埋設された複数の固化体から TFM が漏えいし、岩盤中を地下水流れによって輸送される。輸送途中のなんらかの環境変化により、岩盤中のある地点で TFM が水相から析出して蓄積はじめる。以後、繰々と TFM が流れ着き、時間の経過と共に濃集量が増える、という場合が想定される。

TFM の蓄積点には地下水も存在し、濃集量が少ない状態では、過減速、且つ未臨界( $k_{eff} < 1$ )であると考えられる。その体系が何らかの理由(たとえば、地下水汲み上げなどによる体系からの水の排除、あるいは、体系への TFM の付加)により臨界に達したとすると、核分裂による熱の発生(体系の温度の上昇)がおき、さらに水が排除され  $k_{eff}$  が増大する。続いて、次のようなシナリオが考えられる：

- もし、「体系からの水の排除」の他にも温度に対する正のフィードバック機構が体系に備わっていれば、核分裂連鎖反応は自己触媒的になる。
- もし、「体系からの水の排除」しか温度に対する正のフィードバック機構が体系に備わっていないければ、核分裂による熱の発生で体系内の水がさらに排除される。ある程度の水の排除は、連鎖反応を増進するが、さらに、水が排除されると、中性子減速に必要な水も排除されることになり、水の排除は負のフィードバック機構に変わる(図 1 左図参照)。水が排除され過ぎると、連鎖反応が止まり、温度が下がるため、周囲の水が再び侵入し、再度、臨界となる。以後、このバランスのとれた状態で臨界が維持され、TFM の濃縮度がある限界を下回るまで、連鎖反応が維持される。これは、20 億年前 Oklo 天然原子炉現象[8]で実際おきたことであろうと推定される。

以上のことから、水の排除以外の正のフィードバック機構が系の温度上昇に伴って働くことが、自己触媒的臨界を起こすために必要であることがわかる。また、本報で対象とするのは、前者の場合である。

### 1.2.2 地層中で想定される温度フィードバック機構

Yucca Mountain に埋設される兵器級 plutoniウムや高濃縮ウランに対して行なわれた解析[4]の結果、地層中で想定される温度フィードバック機構について、「体系からの水の排除」の他に次のものが確認されている：

TFM の温度上昇：もし、TFM の蓄積が岩盤中で非均質におきるとすると、核分裂で発生する熱は、まず、TFM を熱する。TFM 原子による中性子吸収は、ドップラー効果により増加するが、同時に、中性子吸収能の大きい  $^{238}\text{U}$  や  $^{240}\text{Pu}$  の様な核種による吸収も増加する。TFM 成分が 90% 以上のような高濃縮の場合でも、TFM 温度上昇に対するフィードバックは負になることが知られている[4]。

岩盤の温度上昇：中性子エネルギーが充分に熱平衡に

達している体系では、岩盤(中性子減速材)の温度が上昇することにより、中性子エネルギースペルトルが高エネルギー側にシフト(硬化)する。この効果は、均質体系と非均質体系で分けて考える必要がある[4]。

高濃縮ウランが均質に岩、水と混合している体系では、熱中性子利用率  $f$  や 1 個の熱中性子が  $^{235}\text{U}$  に吸収されたときに放出される核分裂中性子の平均個数  $\eta$  が、減速材の温度上昇と共に減少するために、フィードバックは負になることが知られている。一方、兵器級プルトニウムの場合には、 $^{239}\text{Pu}$  が 0.3eV 付近にもつ吸収ピークのため、均質体系でもフィードバックは正になる。

岩盤中の亀裂壁面に岩とウラン層が区別されるような非均質な濃集をした場合には、ウランも正のフィードバックを示すことが高濃縮ウランを用いた解析で判明している。それは、中性子エネルギーの増加によりウランの実効中性子吸収断面積が減少し、減速材中にいる中性子から見ると、ウラン層の厚みが見かけ上減少したことになるため、TFM 層の自己遮蔽が減少し、体系の熱中性子利用率  $f$  が増大するからである。

そのほか、岩盤の温度が上昇することにより、岩が膨張し、原子密度が低下するため、減速能が低下する。結果として、より多くの中性子が体系から漏れることになる。これは、負のフィードバックとして働くことが予想される。

TFM と岩の均質混合：TFM の温度が上昇し、非均質に濃集した TFM が近傍の岩を溶かして岩と TFM が均質な混合物層を作ると、高濃縮ウランの場合、均質化によって中性子が体系から逃げる確率が減少する効果が、その他の負の機構の効果を凌駕するため、正のフィードバック効果となることが知られている。

### 1.2.3 本研究のねらい

以上のように、高濃縮ウランの場合には、地層中で体系の温度上昇に伴う正のフィードバック機構が存在することが知られている。高レベル廃棄物の場合、前例となった研究のような 90%以上の高濃縮ウランの発生はありえない。しかし、固化体の中には、放射性崩壊によってウランを生成するアクチニドが含まれているため、まず、固化体からの漏えい、地層中の輸送を経て、どのような濃縮度の濃集が理論上可能か、また、それがどの程度の量発生する可能性があるか、解析する必要がある。この際、実際の処分場が定まっていないため、解析を保守的なものとし、得られた結果が理論上の最悪ケース(“現実”よりも大きめの濃縮度、濃集質量)となるようにしておく。

さらに、得られた濃縮度を前提として臨界解析を行い、まず、過減速状態での臨界質量の最小値を求める。処分場に埋設されるアクチニド全質量のうち相当量を集めなければこの量にはならないと判明した場合、自己触媒的臨界現象の可能性は無視できるくらい小さい、として、解析を

終了することが出来る。しかし、得られた臨界質量がそれほど大きくなかった場合、さらに、上述のようなフィードバック機構が成立するかどうかを調べる必要がある。

この様な見通しの基に、本研究では、まず、アクチニドの物質輸送解析を行い、さらに、臨界解析を行う。

## 2 想定された地層処分システムと高レベル廃棄物

### 2.1 高レベル廃棄物

濃縮度 4.5%、比出力 38 MW/MTU、燃焼度 45,000 MWD/MT の PWR 使用済燃料 1 トンを 4 年間冷却のち再処理して発生する高レベル放射性廃棄物が 1 本のガラス固化体になるとする。再処理段階において、99.3%の Pu, 99.85%の U が回収される[9]。したがって、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た。固化体からの核種の漏洩は埋設後 1,000 年目からとした。再処理段階における各核種の回収率をもとに燃焼解析コード ORIGEN2 [10]を用いて、固化体に含まれる放射性核種のインベントリを計算した(表1)。

表 1 によると、1 本の固化体に含まれる TFM(表中最左欄で v マークを付けた核種)の量は、それのみでは臨界量にはるかに及ばない。しかし、 $^{245}\text{Cm}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{237}\text{Np}$  や  $^{243}\text{Am}$ , および再処理の回収を免れたプルトニウムはいずれ、ウランに崩壊する。これらの半減期は、 $^{235}\text{U}$  や  $^{238}\text{U}$  の半減期に比べて充分短く、後述するガラス固化体の溶解／変質に要する時間と同程度かそれよりも短いものが多い。また、岩盤中の濃集点までの到達時間がこれらの半減期よりも充分長い場合も想定される。そのような場合、ウランの親核種であるアクチニド核種は、濃集点に到達するまでにウランになっている。そこで、親核種の固化体中の初期インベントリをそれぞれの崩壊系列中に存在するウランの同位体のインベントリに加算すると、理論上 1 本の固化体から供給可能なウランの質量がそれぞれの同位体に対して求められる。たとえば、 $^{235}\text{U}$  に対しては、 $^{243}\text{Am}$  と  $^{239}\text{Pu}$  の初期インベントリ 0.486 mol と 0.254 mol を  $^{235}\text{U}$  の初期インベントリ 0.07 mol に足しあわせて、0.81 mol となる。同様に、 $^{238}\text{U}$  に対しては、5.85 mol,  $^{233}\text{U}$  に対しては、4.31 mol,  $^{236}\text{U}$  に対しては、0.26 mol がえられる。これらの値を基に、濃縮度を計算すると、

$$\frac{^{235}\text{U} + ^{233}\text{U}}{^{235}\text{U} + ^{233}\text{U} + ^{238}\text{U} + ^{236}\text{U}} = \frac{0.81 + 0.431}{0.81 + 4.31 + 5.85 + 0.26} = 0.46$$

となり、46%という高濃縮度が得られる。また、 $^{233}\text{U}$  の比較的短い半減期を考慮して、この同位体の寄与を含めない場合でも、12%という比較的高い濃縮度が得られる。同様の計算を使用済燃料について行うと、 $^{238}\text{U}$  の桁違いに大き

表 1 1トンの使用済燃料を再処理して得られる高レベル廃棄物ガラス固化体に含まれる核種の量(ガラス固化体の溶解／変質開始時)

	核種	2200 m/s 断面積 [11]		半減期 [yr]	インベントリ			
		核分裂	吸収		HLW		使用済燃料	
		[barn]			[mol]	[kg]	[mol]	[kg]
	Pu-240	—	289.5	6.57E+3	2.00E-1	4.8E-2	2.86E+1	7.2
	U-236	—	5.2	2.34E+7	5.59E-2	1.3E-2	3.73E+1	8.8
v	Cm-245	2020	345	9.30E+3	7.55E-3	1.8E-3	7.55E-3	1.8E-3
	Am-241	3.15	916	4.58E+2	2.82E-1	6.8E-2	2.82E-1	6.8E-2
	Np-237	0.02	169	2.14E+6	4.02	0.95	4.02	0.95
v	U-233	531.1	47.7	1.62E+5	1.24E-3	2.9E-4	8.27E-1	1.9E-1
	Pu-242	<0.2	18.5	3.76E+5	1.80E-2	4.4E-3	2.57	6.5E-1
	U-238	—	2.70	4.46E+9	5.83	1.4	3.87E+3	9.3E+1
	U-234	—	100.2	2.45E+5	1.11E-2	2.6E-3	7.40	1.7
	Am-243	—	154.5	7.37E+3	4.86E-1	1.2E-1	4.86E-1	1.2E-1
v	Pu-239	742.5	268.8	2.44E+4	2.54E-1	6.1E-2	3.63E+1	9.1
v	U-235	582.2	98.6	7.04E+8	7.00E-2	1.6E-2	4.67E+1	1.1E+1

v マークのついているものは TFM。それ以外は中性子吸収材であり、連鎖反応を終息させる。

い初期インベントリのために、高々 2.2%という濃縮度に過ぎないことがわかる。

ウランの濃縮度は、再処理段階でのウランとプルトニウムの回収率に依存する。たとえば、ウランとプルトニウムの回収率が向上し、高レベル廃棄物に残るこれらの元素の量が半減する(つまり回収率をウラン 99.925%, プルトニウム 99.65%にする)と、濃縮度は 16%とかえって高くなる。これは、ウランとプルトニウムが回収されたために、回収されないアクチニド核種の寄与が相対的に大きくなるためである。本報では、再処理条件も含めて現在想定されている条件で懸念すべき事象が起きるかどうかに着目するため、前述の回収率に基づいたケースのみを解析する。

このように、現在の再処理条件に基づけば、高レベル廃棄物ガラス固化体の埋設に伴って、比較的濃縮度の高いウラン濃集形成が理論上可能であるため、詳細な物質輸送解析が必要であることが指摘される。

## 2.2 地層処分システム

処分場の母岩の選択は、アクチニドの輸送と臨界の両面に影響する。ここでは花崗岩を対象とする。日本国内で見られる代表的な花崗岩として表 2 に示される成分を仮定する[12]。これは、第 4 節の臨界解析で用いられる。既

往の研究[4]により、TFM が非均質に濃集した場合、温度に対するフィードバック効果が可能であるので、本報では、物質輸送は花崗岩亀裂中を流れる地下水によると仮定する。表 2 に示される成分には、水よりもよく中性子を吸収するもの(K, Mn, Fe, Ti)が含まれている。

処分場の詳細は依然未定であるため、ここでは、文献[7]にしたがって、次のように処分場の仕様を仮定する。

計 40,000 本の固化体が、深さ約 1,000m のところに埋設されるものとする。固化体は 15 m 間隔で掘削された処分トンネル内に 7m 間隔で定位される。したがって、1 本の固化体当たり、約 100m<sup>2</sup> の処分面積が割り当てられることになり、40,000 本を処分する処分場では 400 万 m<sup>2</sup> = 2,000m × 2,000m の広がりを持つ。

それぞれの固化体の周りには、図 2 で示されるような人工バリア(Engineered Barrier System, EBS)を仮定する。固化体は処分トンネル内に水平に定位されており、その周りに、炭素鋼のオーバーパック、さらにその外側を粘土鉱物の一種であるベントナイト緩衝材が取り巻いている。オーバーパックは腐食に数千年要すると見られるが、ここでは、表 1 の計算で仮定したように、1,000 年で腐食が完了し、内部のガラス固化体から緩衝材へ核種が漏えいすると仮定する。腐食が起きる埋設直後の 1,000 年間に、外部岩盤か

表 2 日本における標準的な花崗岩の組成[12]

酸化物	重量 %	酸化物	重量 %
SiO <sub>2</sub>	69.17	MgO	1.15
TiO <sub>2</sub>	0.39	CaO	3.15
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	15.00	Na <sub>2</sub> O	3.45
FeO	2.48	K <sub>2</sub> O	3.01
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1.05	P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.13
MnO	0.10		

ら地下水がベントナイト領域に侵入し、ベントナイトはすでに飽和していると仮定する。また、同じ時間領域で、固化体の発熱は收まり、人工バリアの温度は周囲岩盤と同じになっていると仮定する[13]。

オーバーパックの腐食とベントナイトと地下水の反応により、人工バリア内部の環境は還元性であると仮定する。このため、アクチニドの溶解度は低く抑えられ、ベントナイトへの吸着が強くなる。

地下水で飽和したベントナイトは膨潤する。ベントナイトの透水係数は、花崗岩中のそれと比べても数桁低いため、人工バリア中の物質移動は分子拡散のみと仮定する。また、たとえガラス固化体領域でコロイドが生成しても、緩衝材を通過することはないと仮定し、以降の物質輸送解析は地下水中の溶質のみに着目する。

### 3 HLWからのアクチニドの放出と地中での輸送と濃集

処分場とその母岩の詳細が不明であるため、40,000 本の固化体から放出された物質がどのようなメカニズムで輸送され、さらに濃集するか、具体的な情報はない。しかし、適切な仮定を置くことにより、濃集量の理論上の最大値を求めることはできる。以下、その仮定を述べる。

仮定 1 : 1 本の固化体から放出された物質は分散などにより途中で散逸することなく、すべて地下水の下流に仮定された濃集点まで運ばれる。ただし、輸送途中の放射性崩壊による損失は考慮する。

仮定 2 : 仮定された濃集点まで生き残った核種は、そこですべて濃集する。さらに下流へ運ばれないものとする。

仮定 3 : 処分場の固化体から放出された物質は、すべて、1 点の濃集点に向けて運ばれる。

仮定 4 : <sup>233</sup>U や <sup>238</sup>U のような長寿命核種の場合、地下水 上流の固化体から放出された核種はあまり崩壊しないで下流に運ばれるため、下流の固化体からの放出は抑制される可能性がある。処分場内の地下水流れを巧妙に利用す

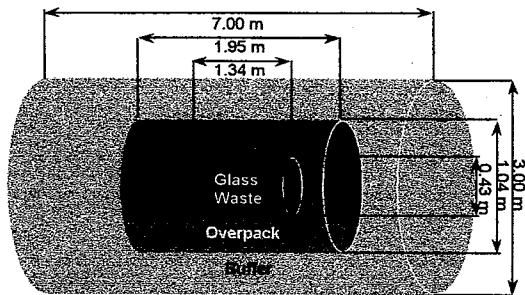


図 2 仮定された人工バリア仕様

ることにより、固化体からの核種の放出を低減することができるが、ここでは、隣接する固化体が当該固化体からの核種の放出に影響せず、それぞれを独立に取り扱えると仮定する。

これらの仮定が同時に満たされたとして物質輸送/濃集モデルを立て、それぞれの廃棄体からの放出、岩盤中の輸送、濃集点での蓄積を独立に算出した。さらに、40,000 本の効果を重ね合わせることによって濃集量の理論上の最大値を求めた。

もちろん、これらの仮定は、実際おきるであろう現象から遠く離れたものであり、結果の解釈には注意を要する。しかし、処分場の詳細がわからない段階で恣意的な仮定を設けると、結果の解釈に困難を来す。むしろ、特定の処分場に依存しない generic で保守的な仮定を設けることで、シナリオの蓋然性を検討することができ、幸運(たとえば、濃集量の理論上の最大値ですら自己触媒的臨界にははるかに不足するというような結果が得られる場合)であれば、自己触媒的臨界シナリオを generic な解析のみで完全に否定することも期待できる。

図 3 に輸送・濃集モデルの概要を示す。

3.1 節では、まず、岩盤中の物質輸送と濃集の定式化について述べ、さらに、3.2 節では岩盤中の物質輸送の入り口側境界条件となる人工バリアからの核種の放出をモデル化する。人工バリアからの放出と岩盤中の物質輸送については既報のモデル化[14]に基づいた。

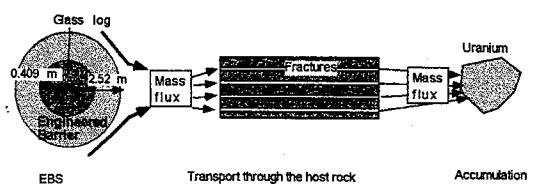


図 3 物質輸送／濃集モデルの概要

### 3.1 岩盤中のアクチニド輸送と濃集

#### 3.1.1 岩盤中のアクチニド輸送

図4に示すような並行平板亀裂モデルを用いる。花崗岩の岩盤中に、幅 $2b$  [m]の並行平板亀裂が間隔 $2a$  [m]で走っている。亀裂に挟まれる岩盤マトリックスは空隙率が $\epsilon_p$ であり、亀裂内部と岩盤空隙内は地下水で満たされている。地下水は、亀裂中を速さ $v$  [m/yr]で流れるが、岩盤中では静止している。地下水水流速 $v$ は一定で、亀裂内部のあらゆる地点で等しいものとする。

人工バリアから放出された放射性核種は、図4の亀裂左端から注入され、まず、亀裂中を地下水流れに乗って運ばれる。さらに、亀裂から分子拡散により、静止した岩盤空隙中の水に入っていく。このときの拡散係数 $D_{e(k)}^I$  [m<sup>2</sup>/yr]は

$$D_{e(k)}^I = \epsilon_p \tau D_{e(k)}^F \quad (1)$$

のようにかかれ。ここで、 $\tau$ は岩盤空隙が屈曲することによる拡散の遅れを表す係数、は $D_{e(k)}^F$ 自由水相中の分子拡散係数 [m<sup>2</sup>/yr]、 $e(k)$ はそれぞれが元素 $e$ の同位体 $k$ の量であることを示す。

実際の亀裂壁面は凸凹であるし、また、岩盤中の着目する二点間を結ぶ亀裂は必ずしも一本ではないかもしれない。あるいは、亀裂壁面近傍では亀裂中央部よりも地下水水流速が遅い。これらさまざまの理由により、同時に注入された溶質粒子は必ずしも同時に同じ地点に到達することは限らない(むしろ、地層のもつ非均質性から、常に異なると考えるほうが自然である)。これらを総称して、「分散」と呼び、しばしば、フィック型の分子拡散と同じ数学モデルを当てはめる。ここでも、亀裂中の輸送には流れ方向の分散が伴うものと仮定し、分散係数 $D^L$  [m<sup>2</sup>/yr]を導入する。地下水水流速と分散係数は主に媒体の幾何学的形状で定まるので、元素及び核種に依存しないと仮定した。

亀裂中の放射性核種の輸送は、亀裂内部に存在する物質(固相)との吸着分配平衡により遅延される。また、岩盤中の拡散も、岩との吸着分配平衡により遅延される。その分配係数を、岩盤内部に対して $K_{dp}^e$  [m<sup>3</sup>/kg]、亀裂内部に対して $K_{df}^e$  [m<sup>3</sup>/kg]とすると、それぞれの領域における輸送の遅延係数は、

$$\alpha_{e(k)} = \epsilon_p + \rho_p (1 - \epsilon_p) K_{dp}^e, \quad (2)$$

$$R_{e(k)} = 1 + \frac{\rho_f (1 - \epsilon_f) K_{df}^e}{\epsilon_f}, \quad (3)$$

と定義される。ここで、 $\rho_f$ 、 $\rho_p$ はそれぞれ、亀裂充填物質、岩盤の密度 [kg/m<sup>3</sup>]である。また、 $\epsilon_f$ は亀裂の空隙率である。

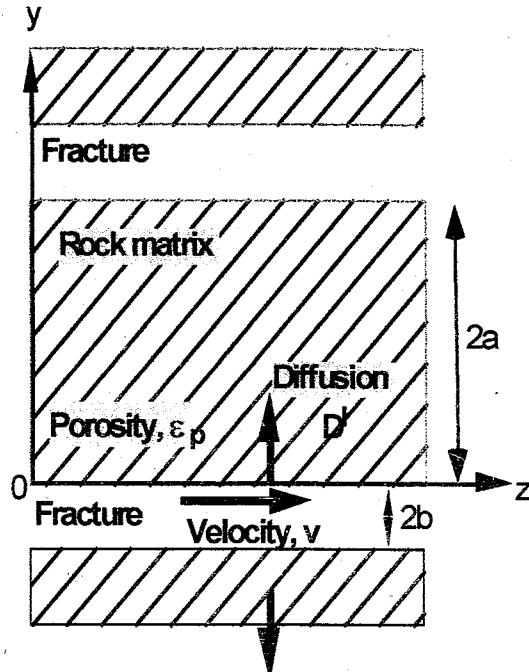


図4 並行平板亀裂モデル

輸送の途中、放射性核種は崩壊により娘核種に変換する。

以上のメカニズムを定式化すると、亀裂及び岩盤空隙内部の水相中の放射性核種濃度 $C_k(z, t)$ 、 $C_p(y, t, z)$  [mol/m<sup>3</sup>]に対して、次のような支配方程式が得られる：

$$R_{e(k)} \frac{\partial C_k}{\partial t} + v \frac{\partial C_k}{\partial z} - D^L \frac{\partial^2 C_k}{\partial z^2} - \frac{D_{e(k)}^I}{b} \frac{\partial C_k^p}{\partial y} \Big|_{y=0} + R_{e(k)} \lambda_k C_k - R_{e(k-1)} \lambda_{k-1} C_{k-1} = 0, \quad t > 0, z > 0, \quad (4)$$

$$\alpha_{e(k)} \frac{\partial C_k^p}{\partial t} = D_{e(k)}^I \frac{\partial^2 C_k^p}{\partial y^2} - \alpha_{e(k)} \lambda_k C_k^p + \alpha_{e(k-1)} \lambda_{k-1} C_{k-1}^p, \quad t > 0, 0 < y, z > 0. \quad (5)$$

ここで、 $\lambda_k$ は放射性崩壊系列中 $k$ 番目の核種の崩壊定数 [yr<sup>-1</sup>]である。

これらの支配方程式を次の初期、境界条件のもとで解く。

$$C_k(z, 0) = 0, z > 0, \quad (6)$$

$$C_k^p(y, 0; z) = 0, 0 < y < a, z > 0, \quad (7)$$

$$S_f \epsilon_f \left[ v C_f(0, t) - D^L \frac{\partial C_k}{\partial z} \right]_{z=0} = S_2 Q_k(t), \quad t > 0, \quad (8)$$

$$C_k(\infty, t) = 0, t > 0, \quad (9)$$

$$C_k^P(0, t; z) = C_k(z, t), t > 0, z > 0, \quad (10)$$

$$\left. \frac{\partial C_k^P}{\partial y} \right|_{y=a} = 0, t > 0, z > 0. \quad (11)$$

(6)(7)式は初期条件であり、初期状態で媒体中に核種が存在しないことを仮定した。(8)は亀裂入り口における境界条件であり、亀裂入り口でのフラックス(左辺)が既知の時間依存の関数  $Q_k(t)$  で与えられることを示している。この関数は後に人工バリアからの放出率を求めるによって与えられる。

$S_f$  は一個の固化体に割り当てられる亀裂の総断面積 [m<sup>2</sup>]、 $S_2$  は人工バリア外側境界表面積 [m<sup>2</sup>](図 5 参照)である。 $S_f$  は、処分場の広がり  $L_R \times L_R$  [m<sup>2</sup>]、処分される固化体の総数  $n_w$ 、処分場に交差する亀裂の総数  $n_f$  により、

$$S_f = \frac{2bL_R n}{n_w} \quad (12)$$

とあらわされる。

### 3.1.2 アクチニドの濃集

亀裂中を距離  $\ell$  [m] だけ輸送された放射性核種は、そこですべて水相中から析出し濃集すると仮定すると、亀裂入り口から距離  $\ell$  の地点に発生する核種  $k$  の濃集  $\Omega_k(t)$ [mol] は次の常微分方程式で表される:

$$\frac{d\Omega_k}{dt} = -\lambda_k \Omega_k(t) + \lambda_{k-1} \Omega_{k-1}(t) + S_f j_k(L_j, t), \quad t > 0, \Omega_k(0) = 0, \quad (13)$$

ただし、 $k = 1, 2, \dots, i, \lambda_o = 0$  であり、

$$j_k(L_j, t) = v C_k(L, t) - D^L \left. \frac{\partial C_k}{\partial z} \right|_{z=L}, \quad t > 0, \quad (14)$$

は濃集点へ流れ込む放射性核種のフラックスである。

## 3.2 人工バリアからの放出

### 3.2.1 人工バリア内部の輸送

式(13)を解いて固化体一本を起源とする濃集量  $\Omega_k(t)$  を求めるためには、式(4)(5)を解いて岩盤亀裂中を輸送される核種の濃度  $C_k(z, t)$  を求めなければならないが、そのためには、関数  $Q_k(t)$  を決定しなくてはならない。ここでは、人工バリア内部の物質輸送をモデル化することで、 $Q_k(t)$  を決定する。

まず、図 2 の様な円柱形状のガラス固化体及び人工バリアを図 5 に示すような球状の体系に変換する。さらに、オーバーパックの存在を無視する。ガラス固化体と緩衝材

外側の表面積は両体系で同じに保たれている。

緩衝材中の地下水は静止していると仮定する(2.2 節)ので、ガラス固化体の変質によって放出される放射性核種は緩衝材空隙中の水相を分子拡散(係数  $D_{e(k)}$  [m<sup>2</sup>/yr])によって輸送される。また、緩衝材固相との吸着分配平衡(分配係数  $K_d^e$  [m<sup>3</sup>/kg])により、拡散は遅延される。放射性崩壊を考慮する。これらのプロセスは緩衝材空隙中の放射性核種の濃度  $N_k(r, t)$  [mol/m<sup>3</sup>]に対して後述するような拡散方程式(16)を解くことで解析できるが、仮に、濃度  $N_k(r, t)$  が求められると、濃集量の算出に必要であった関数  $Q_k(t)$  は

$$Q_k(t) = -\epsilon D_{e(k)} \left. \frac{\partial N}{\partial r} \right|_{r=r_2} \quad (15)$$

と求められる。

濃度  $N_k(r, t)$  に対する支配方程式は次のように求められる:

$$\begin{aligned} K_{e(1)} \frac{\partial N_1}{\partial r} + \lambda_1 K_{e(1)} N_1 &= D_{e(1)} \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left( r^2 \frac{\partial N_1}{\partial r} \right), \\ K_{e(2)} \frac{\partial N_2}{\partial r} + \lambda_2 K_{e(2)} N_2 &= D_{e(2)} \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left( r^2 \frac{\partial N_2}{\partial r} \right) + \lambda_1 K_{e(1)} N_1, \\ K_{e(i)} \frac{\partial N_i}{\partial r} + \lambda_i K_{e(i)} N_i &= D_{e(i)} \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left( r^2 \frac{\partial N_i}{\partial r} \right) + \lambda_i K_{e(i)} N_i, \end{aligned} \quad t > 0, r_1 < r < r_2, \quad (16)$$

ここで、 $r$  は球状ガラス固化体の中心部からの距離、 $r_1$  と  $r_2$  はそれぞれガラス固化体、緩衝材の半径である。また、 $K_{e(k)}$  は緩衝材中の吸着分配による輸送の遅延係数であり、

$$K_{e(k)} = 1 + \frac{\rho(1-\varepsilon)}{\varepsilon} K_d^e \quad (17)$$

と定義される。ここで、 $\rho$  と  $\varepsilon$  はそれぞれ緩衝材の密度 [kg/m<sup>3</sup>] と空隙率である。

(16)式に対する初期条件は、

$$N_k(r, 0) = 0, r_1 < r < r_2, k = 1, 2, \dots, i. \quad (18)$$

緩衝材外側境界では、境界条件 :

$$N_k(r_2, 0) = 0, t > 0, k = 1, 2, \dots, i. \quad (19)$$

を仮定する。

緩衝材とガラス固化体の界面における境界条件は、ガラス固化体の変質とそれに伴う放射性核種の放出のメカニズムを考慮して決定する必要がある。ここでは、次の 2 ケースを取り上げる。

ガラスマトリックスと水との化学反応、あるいはガラスマトリックスのアモルファス構造から結晶質への変換などにより[15]、マトリックスにとらわれている放射性核種は開放され近傍に存在する水相中に溶解しようとするが、

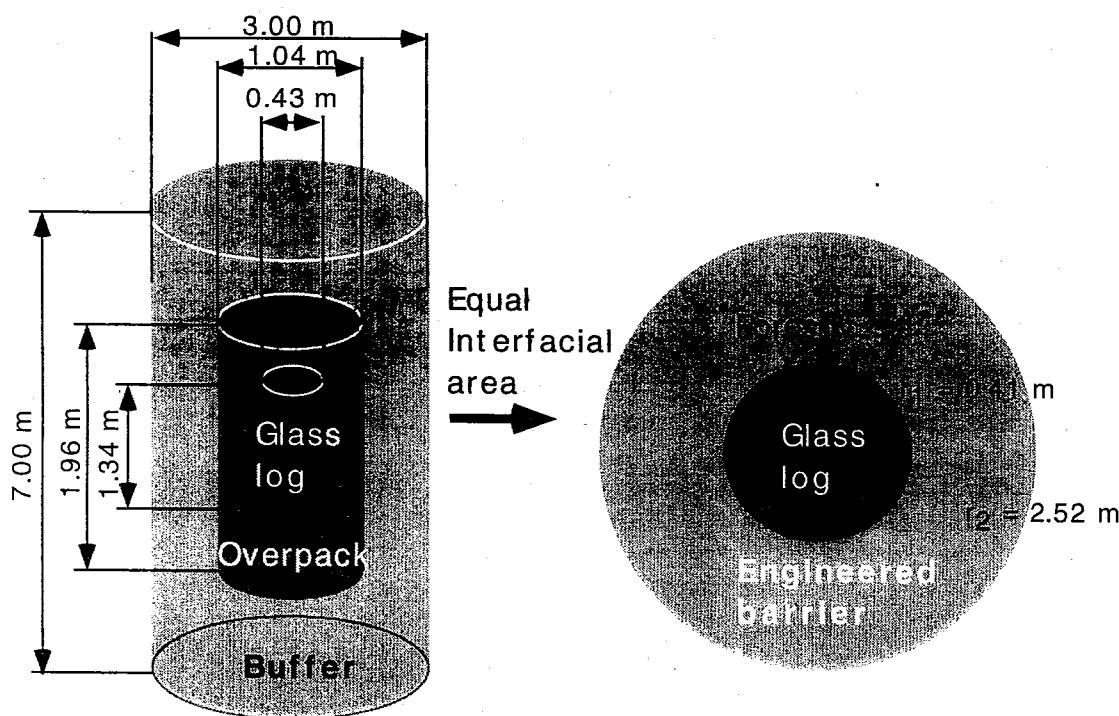


図5 物質輸送計算のために球形に変換されたガラス固化体と人工バリア

核種の溶解度が小さい場合、すべてが溶け込むことができず、残りは析出物となって固相を形成する。この場合、ガラスの溶解/変質の発生している近傍の水相には溶解度まで放射性核種が溶けていると考えられる。

したがって、ガラスの溶解変質点での物質収支を検討し、析出が発生していると判定された場合、緩衝材中の放射性核種の拡散に対する内側( $r = r_1$ )における境界条件は、溶解度境界条件となり、次式で表される：

$$N_k(r_1, t) = \gamma_k(t) N_e^* \{h(t) - h(t - t_k^*)\}, \quad t > 0, k = 1, 2, \dots, i \quad (20)$$

ここで、 $N_e^*$  は元素  $e$  の溶解度 [ $\text{mol}/\text{m}^3$ ]、 $r_k(t)$  は元素  $e$  の析出物中に占める同位体  $k$  の割合であり、

$$\gamma_k(t) = \frac{P_k(t)}{\sum P_k(t)}, \quad k = 1, 2, \dots, i. \quad (21)$$

で表される。 $P_k(t)$  は同位体  $k$  のガラス固化体表面における析出物量 [mol] であり、後に求められる。(20)式中の  $t_k^*$  は析出物の存在している時間 [yr] である。 $h(t)$  は Heaviside のステップ関数である。

一方、ガラスの溶解/変質で放出された核種の溶解度が充分大きい場合、放出された全量が水相中に移行する。この場合、ガラスの溶解/変質速度で規定される放出率で境界条件が記述されるので、 $r = r_1$  における境界条件は、

$$-D_{e(k)} \epsilon \frac{\partial N_k}{\partial r} \Big|_{r=r_1} = m_k(t) \{h(t) - h(t - T_L)\}, \quad t > 0, k = 1, 2, \dots, i, \quad (22)$$

と書くことができる。ここで、 $T_L$  は 1 本のガラス固化体がすべて溶解/変質するのに要する時間 [yr] である。 $m_k(t)$  [ $\text{mol}/\text{m}^2 \cdot \text{yr}$ ] は核種  $k$  の放出率であり、毎年初期量の  $1/T_L$  のガラス固化体が溶解/変質し、その中に含まれるすべての核種  $k$  が放出されるという調和溶解を仮定している。 $m_k(t)$  は後に求められる。

### 3.2.2 ガラス固化体からの放出

緩衝材内側における境界条件が(20)か(22)かを決定するために、析出物が発生するかどうかを決定する必要がある。それは、次式の常微分方程式を解くことで判定できる：

$$\frac{dP_k}{dt} = \begin{cases} S \{m_k(t) - q_k(t)\} - \lambda_k P_k + \lambda_{k-1} P_{k-1}, & 0 < t < T_L, \\ -S q_k(t) - \lambda_k P_k + \lambda_{k-1} P_{k-1}, & t > T_L, \end{cases} \quad P_k(0) = 0, k = 1, 2, \dots, i, \quad (23)$$

ここで、 $S$  はガラス固化体の表面積 [ $\text{m}^2$ ]、 $q_k(t)$  は析出物  $k$  が溶解し緩衝材中に拡散することで失われる速さ [ $\text{mol}/\text{m}^2 \cdot \text{yr}$ ] で、

$$q_k(t) = -\epsilon D_{e(k)} \frac{\partial N_k}{\partial r} \Big|_{r=r_1}, \quad t > 0, k = 1, 2, \dots, i. \quad (24)$$

と定義される。 $N_k$ は式(16)を、初期条件(18)、境界条件(19)と

$$N_k(r_1, t) = \gamma_k(t) N_{e(k)}^*, t > 0, k = 1, 2, \dots, i, \quad (25)$$

の下で解いて得られる解を、 $r$ に関して1回微分し $r_1$ を代入して得られる。その解はすでに、

$$\begin{aligned} q_k(t) = & \varepsilon D_{e(k)} \phi_k(t) \left\{ \frac{1}{r_1} + \sqrt{\nu_k} \coth(\sqrt{\nu_k} L) \right\} \\ & + \frac{2\varepsilon D_{e(k)}}{L} \sum_{m=1}^{\infty} \alpha_m \left( \frac{\phi_k(t)}{\delta_k} - \int_0^t \exp(-\delta_k(t-\tau)) \phi_k(\tau) d\tau \right) \\ & - \frac{2\varepsilon D_{e(k)}}{L} \left[ \sum_{j=1}^{k-1} \frac{D_{e(j)}}{K_{e(k)}} \left\{ \prod_{n=j}^{k-1} \lambda_n \right\} \right. \\ & \times \left. \sum_{n=j}^k \frac{\sum_{m=1}^{\infty} \beta_m^2 \int_0^t \exp(-\delta_n(t-\tau)) \phi_j(\tau) d\tau}{\prod_{l=j, l \neq n}^k (\delta_l - \delta_n)} \right], \\ & t > 0, k = 1, 2, \dots, i, \end{aligned} \quad (26)$$

$$\begin{aligned} \nu_k &= \frac{K_{e(k)} \lambda_k}{D_{e(k)}}, L = r_2 - r_1, \alpha_m = \beta^2 \frac{K_{e(k)}}{D_{e(k)}}, \delta_k = \lambda_k + \alpha_m, \\ \beta_m &= \frac{m\pi}{L}, \phi_k(t) = \gamma_k(t) N_{e(k)}^*, k = 1, 2, \dots, i. \end{aligned} \quad (27)$$

と求められている[16]。

析出物の量 $P_k(t)$ は、ガラスの溶解/変質によって放出される核種によって増加する。ガラスからの放出を調和的とすると、 $m_k(t)$ は

$$\begin{aligned} \frac{dm_k}{dt} &= -\lambda_k m_k + \lambda_{k-1} m_{k-1}, 0 < t < T_L, \\ m_k^0 &= \frac{M_k^0}{ST_L}, k = 1, 2, \dots, i, \\ \lambda_0 &= 0, \end{aligned} \quad (28)$$

を解くことで求められる[17]。ここで、 $M_k$ はガラス溶解/変質開始時点におけるガラス固化体中の放射性核種 $k$ の量[mol]である。(28)に対する解はすでに次のように求められている[11]：

$$\begin{aligned} m_k(t) = & m_k^0 e^{-\lambda_k t} + \sum_{l=1}^{k-1} m_l^0 \left[ \prod_{j=l}^{k-1} \lambda_j \left\{ \sum_{n=l}^k \frac{\exp(-\lambda_j t)}{\prod_{p=l, p \neq n}^k (\lambda_p - \lambda_n)} \right\} \right], \\ & 0 \leq t \leq T_L, k = 1, 2, \dots, i. \end{aligned} \quad (29)$$

これらの結果を用いて、ガラス表面における核種 $k$ の析出量 $P_k(t)$ は次のように求められる：

$$P_k(t) = F_k(t) \otimes \exp(-\lambda_k t) + \sum_{l=1}^{k-1} \left\{ \prod_{n=l}^{k-1} \lambda_n \right\} F_l(t) \otimes \sum_{n=l}^k \frac{\exp(-\lambda_n t)}{\prod_{j=l, j \neq n}^k (\lambda_j - \lambda_n)}, \\ 0 \leq t < T_L, k = 1, 2, \dots, i, \quad (30)$$

ただし、

$$f(t) \otimes g(t) \equiv \int_0^t f(t) g(t-\tau) d\tau,$$

$$F_k(t) = S \left[ m_k(t) \{ h(t) - h(t-T_L) \} - q_k(t) \right], k = 1, 2, \dots, i. \quad (31)$$

である。

ここで、 $P_k(t)$ を求めるためには、 $\gamma_k(t)$ が必要であり、逆に $\gamma_k(t)$ は $P_k(t)$ が必要であるため、このままでは陽に解くことができない。そこで、次のような近似を導入し、2つの問題を切り離す：

$$\gamma_k \approx \frac{\int_0^{T_L} m_k(t) dt}{\sum_{e=0}^i \int_0^{T_L} m_e(t) dt}, k = 1, 2, \dots, i. \quad (32)$$

析出物中の同位体比が、ガラス固化体からの全放出量の比に置き換えられている。

$P_k(t)$ は初期条件により、最初はゼロである。もし、ガラス固化体からの放出量が多く、溶解度が小さくて少ししか緩衝材中に拡散していかなければ、 $P_k(t)$ は時間と共に増加する。しかし、いずれ、最大値を迎える後は放射性崩壊と緩衝材中への拡散のため減少し、再びゼロになる。この時点が式(20)で用いられた $t_k^*$ である。逆に、もし、ガラス固化体からの放出が少ないか、溶解度が大きくて、緩衝材中に溶けていく量が大きければ、 $P_k(t)$ は正になることはない。これは物理的には析出物が発生しないことを示しており、この場合、境界条件(22)が適用される。

### 3.3 解析解

式(4)から(11)で表される岩盤亀裂中の輸送に対しては、すでに、ラプラス変換された解析解が得られている[18]。ここでは、それを用いて、(14)の濃集量の解をラプラス変換解で(33)のように求めた。

$$\tilde{\Omega}_k = S_f \sum_{l=1}^k \left[ \frac{\tilde{j}_l(l; s)}{\lambda_k} \prod_{p=l}^k \frac{\lambda_p}{s + \lambda_p} \right], k = 1, 2, \dots, i, \quad (33)$$

ここで

$$\tilde{j}_k(z; s) = \sum_{m=1}^k \sum_{n=1}^m u_{mk}(s) v_{nm}(s) \exp[-b_m(s)z] \frac{\tilde{Q}_n(s)}{\varepsilon_f A}, \quad k = 1, 2, \dots, i, \quad (34)$$

$$\zeta_m(s) = \sqrt{\frac{(s + \lambda_m)\alpha_{e(m)}}{D_{e(m)}^I}}, \quad (35)$$

$$b_m(s) = \frac{\nu}{2D^L} \left\{ -1 + \sqrt{1 + \frac{4D^L g_m(s)}{\nu^2}} \right\}, \quad (36)$$

$$g_m(s) = R_{e(m)}(s + \lambda_m) + \frac{D_{e(m)}^I}{b} \zeta_m(s) \tanh[\zeta_m(s)a], \quad (37)$$

$$[g_k(s) - g_m(s)]u_{mk}(s) = R_{e(k-1)}\lambda_{k-1}u_{mk-1}(s) + \sum_{n=m}^{k-1} B_{nk}(s)u_{nm}(s), \quad (38)$$

$$ukk(s) = 1, \quad (39)$$

$$B_{nk}(s) = -\frac{D_{e(k)}^I}{b} \left( \prod_{l=n}^{k-1} \frac{\alpha_{e(l)}\lambda_l}{D_{e(l+1)}^I} \right) \sum_{l=n}^k \frac{\zeta_l(s) \tanh[\zeta_l(s)a]}{\prod_{\substack{j=n \\ j \neq l}}^k [\zeta_j^2(s) - \zeta_l^2(s)]}, \quad (40)$$

$$a_m(s) = \frac{1}{\nu_I + D_I^L b_m(s)} \sum_{n=1}^m v_{nm}(s) \frac{\tilde{Q}_n(s)}{\varepsilon_f A}, \quad (41)$$

$$v_{nm}(s) = -\sum_{j=n}^{m-1} u_{jm}(s) v_{nj}(s), \text{ for } m > n, \quad (42)$$

$$v_{mm}(s) = 1. \quad (43)$$

(34)式で、亀裂入り口での入力フランクス  $\tilde{Q}_k(t)$  のラプラス変換が必要となるが、これは支配方程式(16)を初期条件(18)、境界条件(19)と(20)または(22)のもとで解いてラプラス変換解を求めた[14]。その解をもとに(15)によって  $\tilde{Q}_k(t)$  のラプラス変換を次のように求めた。

$$\begin{aligned} \tilde{Q}_k = & \frac{\varepsilon D_{e(k)} r_1}{r_2} \left\{ \frac{\tilde{\Psi}_k \varphi_k}{Q_{kk}} \exp(-\varphi_k L) \right. \\ & \left. + \sum_{j=1}^{k-1} \tilde{\Psi}_j \left[ \prod_{m=j}^{k-1} (\chi_{m+1} v_m) \right] \sum_{m=j}^k a_m^{(j)} \frac{\varphi_m \exp(-\varphi_m L)}{\prod_{\substack{l=j \\ l \neq m}}^k (\varphi_l^2 - \varphi_m^2)} \right\}, \\ & k = 1, 2, \dots, i, \end{aligned} \quad (44)$$

ここで

$$Q_{kj} = \frac{1}{2} \left\{ (H_k \varphi_j + J_k) + (H_k \varphi_j - J_k) \exp(-2\varphi_j L) \right\}, \quad (45)$$

$$H_k = (1 - \sigma_k) \varepsilon D_{e(k)}, \quad J_k = \sigma_k + \frac{H_k}{r_1}, \quad \varphi_j = \sqrt{\frac{K_{e(j)}}{D_{e(j)}}(s + \lambda_j)},$$

$$\chi_k = \frac{D_{e(k-1)}}{D_{e(k)}}, \quad (46)$$

$$a_n^{(j)} = \sum_{m=j}^{n-1} a_m^{(j)} \frac{Q_{nm}}{Q_{nn}} \frac{\prod_{\substack{l=j \\ l \neq m}}^n (\varphi_l^2 - \varphi_n^2)}{\prod_{\substack{l=j \\ l \neq m}}^n (\varphi_l^2 - \varphi_n^2)}, \quad a_j^{(j)} = \frac{1}{Q_{jj}},$$

$$a_n^{(j)} = 0, \quad n \leq j-1, \quad (47)$$

$$\nu_k = \frac{K_{e(k)} \lambda_k}{D_{e(k)}}, \quad v_0 = 0, \quad (48)$$

ただし、析出物解析の結果、核種  $k$  の析出が発生していると判定された場合、

$$\sigma_k = 1, \text{ かつ } \tilde{\Psi} = N_e^* \frac{1}{s} (1 - \exp(-st_k^*)) \quad (49)$$

であり、析出がなくガラスからの調和溶解であると判定された場合、

$$\sigma_k = 0, \text{ かつ } \tilde{\Psi} = \tilde{m}_k, \quad (50)$$

である。

### 3.4 入力データと計算コード

表 3 に各核種共通のパラメータの値を列挙する。亀裂内輸送の分散係数はゼロに設定した。また、亀裂内輸送の遅延係数は 1 とした。つまり、遅延がない、という仮定である。処分場に交差する全亀裂数は、亀裂の平均間隔が  $2a = 1 [m]$ 、処分場の広がりが 2,000m であると仮定したので、2,000 と見積もられた。

表 4 には各元素の溶解度及び吸着分配係数とそれに対応する遅延係数がまとめられている。それぞれの量には、現在のところ妥当と考えられる不確実性の幅も示してある。

それぞれの核種の半減期とガラス固化体が溶解/変質に要する時間を考えると、大部分のアクチニド核種はガラス固化体内部、あるいは濃集点に到達する以前の輸送段階で崩壊し、ウランの同位体になっていることが予想される。そこで、モデルを用いた計算においては、次の 3 つのケースに着目することにした。

ケース(a)では、ウラン以外のアクチニド核種に対して溶解度の上限値、吸着分配係数の下限値を設定し、ウランに対して溶解度の下限値、吸着分配係数の上限値を設定した。ケース(b)では、その逆に、アクチニド核種に対して

表 3 仮定された輸送パラメータの値(各核種共通分)

球形に変換されたガラス固化体の半径, $r_1$	0.409 m #
球形に変換された人工バリア外側半径, $r_2$	2.52 m #
ガラス固化体表面積, $S = 4\pi r_1^2$	2.10 m <sup>2</sup>
人工バリア表面積, $S_2 = 4\pi r_2^2$	79.8 m <sup>2</sup>
ガラス固化体溶解／変質時間, $T_L$	$4 \times 10^4$ yr §
緩衝材領域空隙率, $\epsilon$	0.3 §
緩衝材密度, $\rho$	2100 kg/m <sup>3</sup> §
母岩空隙率, $\epsilon_p$	0.001 ~ 0.5 ‡
緩衝材中の拡散係数, $D_e = D_{e(t)}$	$3 \times 10^{-2}$ m <sup>2</sup> /yr #§
母岩密度, $\rho_p$	2600 kg/m <sup>3</sup> §
亀裂内空隙率, $\epsilon_f$	1
亀裂内地下水流速, $v$	1.0 m/yr §
流れ方向分散係数, $D^L$	0
亀裂開口幅, $2b$	$6.3 \times 10^{-4}$ m §
亀裂間隔, $2a$	1 m #
亀裂内輸送に対する遅延係数, $R_e$	1
母岩マトリックス中の拡散係数, $D_{eff}^v = \epsilon_p \epsilon_f D_{e(t)}^v$	$10^{-5}$ m <sup>2</sup> /yr *
処分場の1辺の長さ, $L_R$	2000 m
ガラス固化体1本あたりの亀裂開口総断面積, $S_f$	0.063 m <sup>2</sup>
処分場に埋設されるガラス固化体総数, $N_p$	40,000 #
処分場領域に交差する亀裂総数, $n$	2,000

§: 文献[9]. #: 文献[7]. ‡: 文献[19]. ここでは0.01を用いた.

\*: 文献[20]. \*: 文献[9]では,  $t_p/t = 0.055$  を採用している.

溶解度の下限値, 吸着分配係数の上限値を, ウランに対して溶解度の上限値, 吸着分配係数の下限値を与えた. ケース(c)では, すべての核種に対して, 不確実性幅の中間値を設定した.

ケース(a)では, 緩衝材中及び岩盤中で, 水相中に存在する核種の量が, ウラン以外のアクチニド核種に対して最大化されているのに対して, ウランについては最小化されている. つまり, ウランはガラス固化体からの放出後も, 考えられるパラメータの範囲内でもっとも動きにくく設定されているのに対して, ウラン以外のアクチニド核種はもっとも動きやすく設定されている. ケース(b)はその逆で, ウランがもっとも動きやすく設定され, それ以外はもっとも動きにくいように設定されている.

計算コードは, 式(33)に基づいて書かれた. そのために必要な  $t_k^*$  は(30)式により析出物量の経時変化を計算し, それがゼロになる値を数値的[25]に求めた. ラプラス変換解の逆変換は既存のコードを用いて数値的[26,27]を行った.

### 3.5 解析結果

表 5 に緩衝材内側境界での境界条件を解析した結果を示す. Cm や Am をのぞくすべての核種で溶解度限界境界条件(20)が適用されることがわかる.

図 6 には 1 本の固化体から放出されそれぞれ 100 m および 1,000 m の距離だけ離れた濃集点に留まる核種の量  $\Omega_k(t)$  の時間変化を示す. 前述の 3 ケースについて結果が示してある.

ケース(a)では, ウランが媒体中で動きにくいため, 100 m および 1,000 m の濃集点で観測されるのは  $^{242}\text{Pu}$  と  $^{237}\text{Np}$  及びそれらの娘である  $^{238}\text{U}$  と  $^{233}\text{U}$  である. これらのウラン同位体はもともとガラス固化体にあったものではなく, それらの親核種である  $^{242}\text{Pu}$  と  $^{237}\text{Np}$  が輸送される途中あるいは濃集した後で崩壊して発生したものである. たとえば,  $^{233}\text{U}$  の濃集はいったん  $^{237}\text{Np}$  が濃集したあと, その崩壊によって生成したものと考えられる.

ケース(a)の 2 つの輸送距離の結果を比べて, 重要な結論が導かれる. すなわち, 輸送距離 1,000 m の位置にあるガラス固化体 1 本からは, 高々,  $10^{-5}$  mol 程度の  $^{233}\text{U}$  しか供給されない. また, 100 m の輸送距離で最大 0.02 mol 程度の  $^{233}\text{U}$  が供給される. そこで, 濃集点が図 7 にあるように, 処分場の一辺の直近にあり, かつ, そこから 100 m 以内の領域にあるすべてのガラス固化体(およそ 160 本)から放出される核種がその濃集点に運ばれると仮定しても, 高々, 3 mol 程度の濃集しかできない. さらに遠方の固化体からの寄与はもっと小さい. したがって, 処分場にある全固化体が関与しても最大数モル程度の濃集であるため, ケース(a)は以後の検討から除外できる.

同様のことがケース(c)でも言える. ケース(c)では, 100 m の濃集点では,  $^{235}\text{U}$  の濃縮度が 10% 弱というウラン同位体の混合した濃集が形成されるが, その量は 1 本の固化体から約 1 mol である. それが, 1,000 m では, 高々 0.001 mol であり, 濃集がはじまる時刻も 1 億年より先と遅い. ケース(a)と同様の議論により, 濃集点から 100 m 以内の固化体から供給され得るウランの総量は高々 200 mol 程度(約 5 kg)である. したがって, この場合も以後の検討から除外できる.

それに対し, ケース(b)の結果は, 1,000 m 離っていても, 1 本の固化体からおよそ 1 mol のウランを供給することができる事を示している. これは固化体 1 本に初期含まれる全アクチニド核種質量 11.2 mol のおよそ 1 割弱に相当する. そのときの濃縮度は約 12% である. 処分場の広がりが 2,000 m × 2,000 m であることを考えると, おそらく処分場内のどの固化体からも同程度の寄与が考えられる.

表 4 各元素に仮定されたパラメータの値

溶解度	$N_e^*$ [mol/m <sup>3</sup> ]	ケース (a)	ケース (b)	ケース (c)
Cm	$10^{-4} \sim 10^{-6}$ (1)	$10^{-4}$	$10^{-6}$	$10^{-5}$
Am	$10^{-4} \sim 10^{-6}$ (2)	$10^{-4}$	$10^{-6}$	$10^{-5}$
Pu	$10^{-5} \sim 10^{-7}$ (3)	$10^{-5}$	$10^{-7}$	$10^{-6}$
Np	$10^{-5} \sim 10^{-9}$ (2)	$10^{-5}$	$10^{-9}$	$10^{-7}$
U	$10^{-5}$ (4) ~ $10^{-7}$ (2)	$10^{-7}$	$10^{-5}$	$10^{-6}$

緩衝材	$K_d^e$ [m <sup>3</sup> /kg]	$K_e$ [無次元]	ケース (a)	ケース (b)	ケース (c) (9)
Cm	10 (1)	$4.9 \times 10^4$	$4.9 \times 10^4$	$4.9 \times 10^4$	$4.9 \times 10^4$
Am	10 (2)(5)	$4.9 \times 10^4$	$4.9 \times 10^4$	$4.9 \times 10^4$	$4.9 \times 10^4$
Pu	10 (2)(5)	$4.9 \times 10^4$	$4.9 \times 10^4$	$4.9 \times 10^4$	$4.9 \times 10^4$
Np	0.1 (2)(5) ~ 100 (7)	$4.9 \times 10^2 \sim 4.9 \times 10^5$	$4.9 \times 10^2$	$4.9 \times 10^5$	$1.5 \times 10^4$
U	0.1 (2)(5) ~ 100 (6)	$4.9 \times 10^2 \sim 4.9 \times 10^5$	$4.9 \times 10^5$	$4.9 \times 10^2$	$1.5 \times 10^4$

母岩	$K_{dp}^e$ [m <sup>3</sup> /kg]	$\alpha_e^{(8)}$ [無次元]	ケース (a)	ケース (b)	ケース (c) (9)
Cm	0.01 ~ 25	$26 \sim 6.4 \times 10^4$	26	$6.4 \times 10^4$	$1.3 \times 10^3$
Am	0.01 ~ 25 (1)	$26 \sim 6.4 \times 10^4$	26	$6.4 \times 10^4$	$1.3 \times 10^3$
Pu	0.025 ~ 25 (2)(5)	$64 \sim 6.4 \times 10^4$	64	$6.4 \times 10^4$	$1.3 \times 10^3$
Np	0.001 (2)(5) ~ 100 (7)	$2.6 \sim 2.6 \times 10^5$	2.6	$2.6 \times 10^5$	$8.2 \times 10^2$
U	0.0001 (2)(5) ~ 100 (6)	$0.26 \sim 2.6 \times 10^5$	$2.6 \times 10^5$	0.26	$2.6 \times 10^2$

(1): Amと同じ値が適用できると仮定した. (2): 文献[7]. (3): 文献[21]. (4): 文献[22]. (5): 文献[23]. (6): 文献[24]. (7): 文献[24]で報告されている Uに対する値を用いた. (8): 母岩空隙率  $\epsilon_p = 0.01$  を仮定. (9): 不確実性幅の(最大値 × 最小値)の平方根をとった.

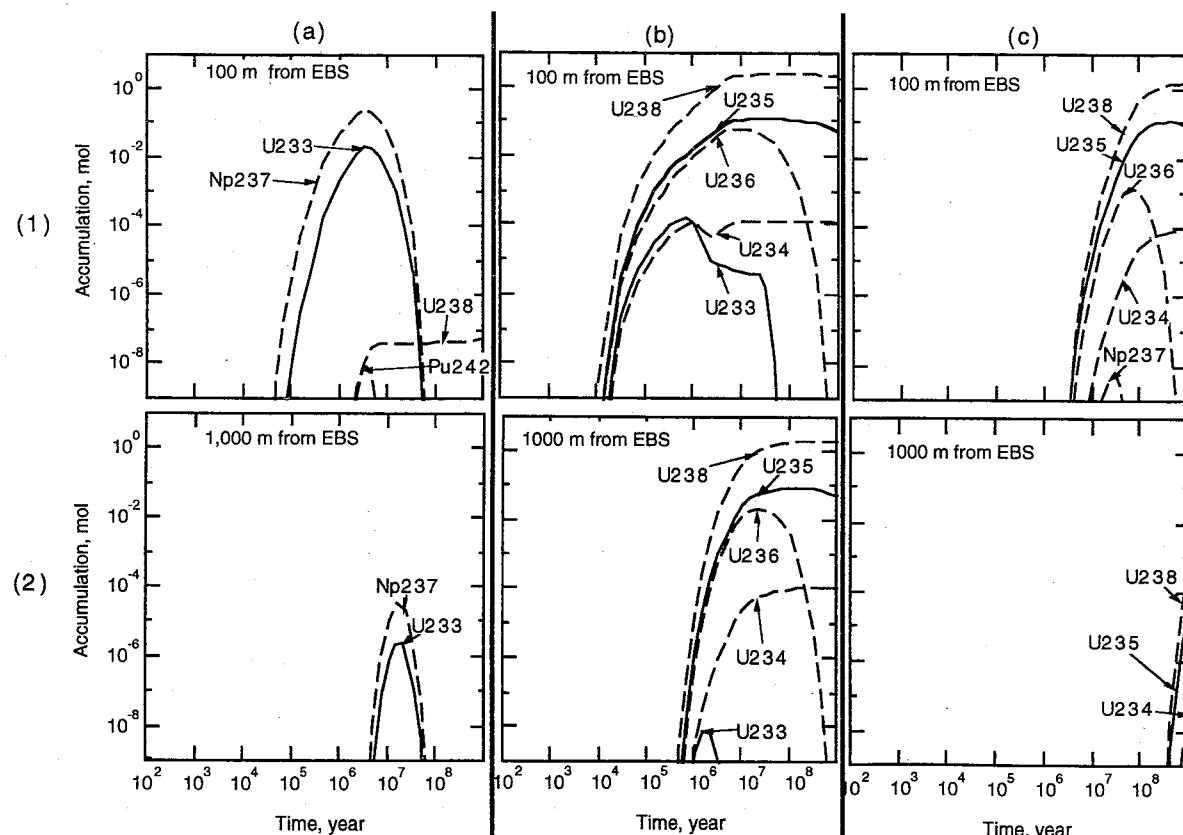


図 6 母岩中の濃集点における濃集量の時間変化

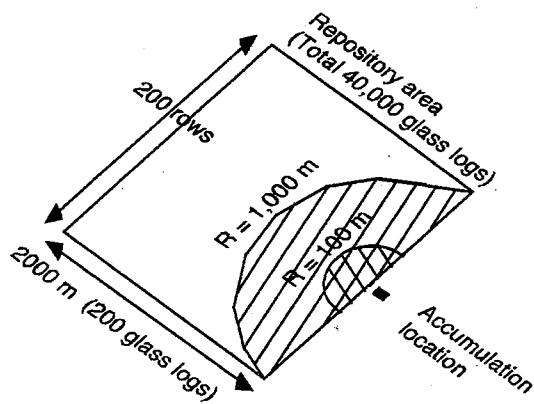


図 7 濃集に関するガラス固化体

### 3.6 まとめ

ウランの媒体中での動きやすさ(溶解度と吸着分配係数で定量化した)がここで仮定した幅の中間値よりも小さい場合、たとえ、処分場に埋設された 40,000 本の固化体ウランの媒体中での動きやすさ(溶解度と吸着分配係数で定量化した)がここで仮定した幅の中間値よりも小さい場合、たとえ、処分場に埋設された 40,000 本の固化体から放出された核種がすべて 1 点に濃集したと仮定しても、発生できる濃集量は無視できるくらいに小さい。

しかし、ウランの媒体中での動きやすさが仮定した幅の最大限にある場合、1,000m 離れていても 1 本の固化体から約 1 mol の 12% 濃縮ウランを供給できる。処分場の大きさ( $2,000 \times 2,000 \text{ m}^2$ )を考慮すると、処分場内の各固化体から同程度の量は供給可能である。つまり、濃集可能なウランの質量は 40,000 mol と 0 の間にあり、上記のような放出された物質がすべて一点に集まると仮定する保守的物質輸送解析のみでは、シナリオの可能性を議論できない。

そこでつぎに、12% 濃縮ウランが花崗岩に蓄積した場合、どの程度の質量で過減速状態の臨界になり、さらに自己触媒的臨界になるかどうか、調べることにする。臨界達成に必要な質量を求めることにより、何本の固化体からウランが供給されなければならないかを見積もることができ、残されたケース(b)がどの程度実現可能な状態かを判断できる。

## 4 濃集したウランに対する臨界解析

### 4.1 はじめに

たとえ 12% 濃縮ウランが蓄積しても、(1)臨界に要する質量が非現実的に大きいか、(2)温度に対する正のフィードバック機構がなければ、前節の解析で生き残ったケース(b)の場合も懸念するに及ばない。

そこで、本節では、12% 濃縮ウランの花崗岩中における臨界量を求め、さらに、温度に対する正のフィードバック機構が存在するかどうか、解析する。

表 5 ガラス固化体表面から析出物の消失する時間

核種	$t_k^* [\text{yr}]$		
	ケース (a)	ケース (b)	ケース (c)
Pu-240	3.8 E+04	8.2 E+04	6.0 E+04
U-236	9.5 E+07	4.9 E+06	3.2 E+07
Cm-245	C	C	C
Am-241	C	5.3 E+03	2.9 E+03
Np-237	2.4 E+06	2.8 E+07	1.5 E+07
U-233	2.4 E+06	7.7 E+05	1.3 E+06
Pu-242	2.2 E+05	2.2 E+06	1.0 E+06
U-238	5.0 E+08	5.2 E+06	5.0 E+07
U-234	2.4 E+06	9.9 E+05	1.8 E+06
Am-243	C	5.2 E+04	2.2 E+04
Pu-239	8.8 E+04	2.4 E+05	1.6 E+05
U-235	5.5 E+08	5.3 E+06	5.6 E+07

'C'は析出が発生しないことを示す。このとき境界条件

(22)が適用される。

1.2.2 節で指摘したように、高濃縮ウランについて、岩、水、ウランが均質に混合した系では臨界が自己触媒的にならない。しかし、非均質に混合した場合、体系の温度上昇によるいくつかの正のフィードバック機構が確認されている([4]あるいは 1.2.2 節)。

そこで、本節では、果たして同様のことが 12% 濃縮ウランについても起きるかどうか、に着目して解析することにする。

### 4.2 解析コード

解析には、Los Alamos 国立研究所で開発された Monte Carlo Neutron-Photon (MCNP) コード[28]を用いる。断面積ライブラリには ENDF/B-IV を用いた。

MCNP の自由気体モデルを用い、水以外の構成原子による熱中性子の上方散乱を考慮した。MCNP には、系の温度上昇による共鳴吸収のドップラー効果を含むためのアルゴリズムが組み込まれていないので、高温領域については別途断面積ライブラリを用意した。

これらのコードとライブラリを用いて、既報の実験及び計算結果[29]と同条件でベンチマーク計算を行い比較した。比較計算には、本報で興味の対象となっている 12% を挟む値として、5% と 30.3% の 2 ケースについて行った。

共に水で減速される場合である。それらのどの場合についても、文献値と非常に良い一致を見た。また、12%濃縮ウランを水で減速した場合の臨界量の最小値は、 $^{235}\text{U}$ が1.5kg、半径19cmの球であることもわかった。

#### 4.3 12%濃縮ウラン-岩-水系の臨界質量の最小値

図8は12%濃縮ウランが水で飽和した岩と均質に混合して「炉心」を形成した場合、臨界に達する最小のウランの質量を求めるために想定した体系である。炉心は同じ空隙率をもつ岩(空隙は同様に水で飽和している)の反射体で覆われている。反射体の厚さは1.2mである。

臨界質量の最小値は、炉心の半径Rと炉心内部の $^{235}\text{U}$ 濃度をパラメータとして臨界点をサーベイすることで求められる。表2に示したように、花崗岩にはシリカのほかに中性子をよく吸収する不純物が含まれているため、体系を構成する「岩」としてシリカを仮定すると、実際よりも小さい臨界質量が得られて保守的になる。そこで、ここでは、まず、体系を構成する岩が10%の空隙をもつシリカと仮定した場合と、同じく10%の空隙をもつ花崗岩(成分は表2に示すもの)と仮定した場合について、臨界質量の最小値を求めた。その結果、シリカの場合、最小値が $^{235}\text{U}$ で17kg(12%濃縮ウランで142kg)、そのときの半径が71cmと求められた。また、花崗岩の場合、 $^{235}\text{U}$ で60kg(12%濃縮ウランで480kg)、そのときの半径が90cmと求められた。

40,000本の廃棄体から始まって、半径90cmの球の中に約0.5トンものウランが濃集することは、考えにくい。そこで、花崗岩の空隙率が10%から30%になった場合、臨界量がどの程度になるか計算した。いずれにせよ、まとまった量のウランが集積するためには空隙が必要であるし、花崗岩のような密な岩盤でも破碎帯のように比較的空隙率の高い領域は想定可能だからである。さらに付け加えるならば、そのような破碎帯は周辺の岩盤と化学的環境の異なることがしばしば観察されており、濃集に必要な化学的プロセスの起りやすい場所であるとも言える。しかし、これらのこととは、処分場を特定しない現段階ではすべて推論の域を出ない。

30%の水で飽和された空隙をもつ花崗岩の場合、臨界質量の最小値は $^{235}\text{U}$ で7kg(12%濃縮ウランで57kg)、そのときの半径が57cmと求められた。このように、岩盤空隙のもつ効果は非常に大きいことがわかる。また、この程度の質量であれば、依然として、臨界は懸念の対象と言える。

ただし、これらの臨界質量は、図1でいえば、負のファードバック領域の臨界量である。図8の様な体系が過減速状態で臨界になるためには、さらに多くのウランが集積する必要がある。そこで、まず、図8の体系で臨界状態をつくり、そこから体系内の水を減らすことによって中性子

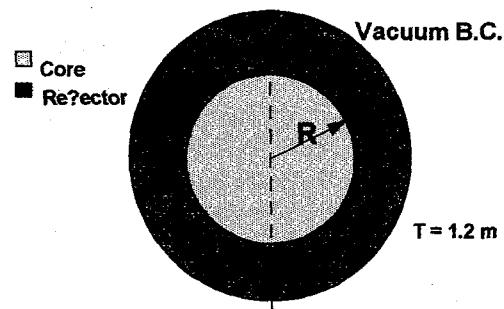


図8 臨界解析における球状「炉心」体系

増倍係数が1から増えるか減るかを観察して、過減速状態における臨界質量の最小値を求めた。

図9は30%空隙の花崗岩に12%濃縮ウランが臨界質量まで蓄積している状態から水を30%除去したときの中性子増倍係数の変化を示している。炉心の半径が90cm以下の場合、水の除去は連鎖反応を終息させる。90cm以上の場合、水が除去されると、逆に連鎖反応が増大する。このことから、過減速状態で体系が臨界になるための最小質量は $^{235}\text{U}$ で35kg(12%濃縮ウランで280kg)、そのときの半径が90cmであるということがわかった。

同様の計算を空隙率10%のシリカ、空隙率10%の花崗岩についても行って、表6にまとめてある。空隙率10%の花崗岩では過減速にならないため、自己触媒的臨界シリオの可能性は否定できる。

空隙率30%の花崗岩の場合、12%濃縮ウランで280kgが必要となる。3.6節で論じたように、1本の固化体から1molの12%濃縮ウランが供給されるとすると、約1,000本の固化体からウランが集積すればよいことになる。これ

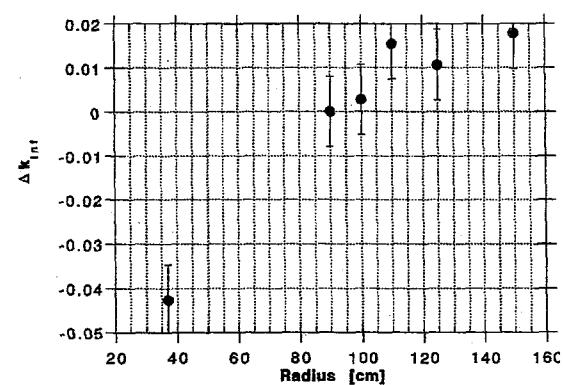


図9 水で満たされた30%空隙率を持つ花崗岩中に臨界状態にある12%濃縮ウランの体系から水を排除したときの中性子増倍係数の変化

表 6 均質球状で反射体を伴う 12%濃縮  $\text{UO}_2$  + 岩 + 水「炉心」が臨界となるための  $^{235}\text{U}$  の最小質量とその時の「炉心」半径

媒体(空隙率)	$^{235}\text{U}$ 臨界質量の最小値と炉心半径	過減速状態における $^{235}\text{U}$ 臨界質量の最小値と炉心半径
水	1.5kg 19 cm	—
$\text{SiO}_2$ (10%)	17 kg 71 cm	48 kg 130 cm
花崗岩 (10%)	60 kg 90 cm	—
花崗岩 (30%)	7.0 kg 37 cm	35 kg 90 cm

が、非現実的なほど大きい値かどうか現段階では判断がつかない。40,000 本のうちのたった 2.5% の固化体という見方もできる。

そこで、さらに、非均質に濃集した 12%濃縮ウランが温度に対するフィードバック効果を持つかどうか、調べることにする。

#### 4.4 連鎖反応の温度フィードバック効果

##### 4.4.1 花崗岩の温度上昇と自己遮蔽効果

非均質なウランの濃集に対する温度フィードバック効果を調べるために、図 10 の様な体系を想定した。並行平板亀裂は、0.2mm, 1.0mm, 10mm の厚さの 12%濃縮ウラン層で充填されている。花崗岩部は、空隙率 30% で水で満たされている。

それぞれのウラン層の厚さに対して、体系が臨界となるように花崗岩部の厚さを求めた。その結果、それぞれ、2.18cm, 6.0cm, 9.96cm と決定された。

臨界となったそれぞれの体系の花崗岩温度を室温から上昇させたときの中性子増倍計数の変化を示したもののが図 11 である。どの場合も、温度上昇に伴って、中性子スペクトルが硬化し、ウラン層の自己遮蔽効果が減少することによって、増倍係数が増加している。すなわち、12%濃

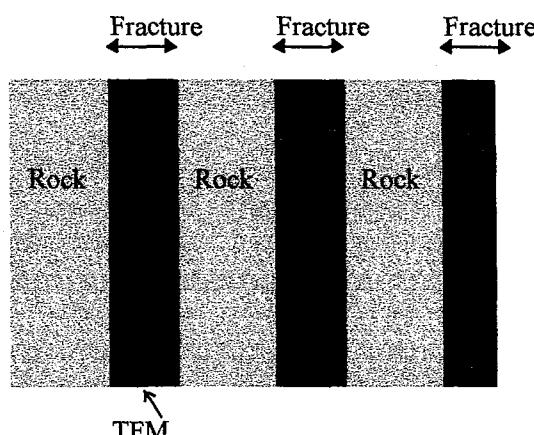


図 10 並行平板亀裂をもとにした非均質なウランの濃集の概念図

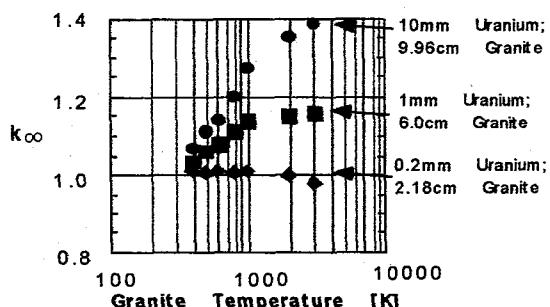


図 11 水で飽和した 30%空隙を持つ花崗岩中の並行平板亀裂に 12%濃縮ウランが濃集した場合の花崗岩温度上昇による中性子増倍係数  $k_{\infty}$  の変化

縮ウランの場合も、高濃縮ウランの場合と同様に、非均質に濃集した場合には正のフィードバック効果がみられるということがわかる。

##### 4.4.2 ウラン層のドップラー効果

体系の温度上昇はまずウラン層からおきるはずなので、ここでは、その温度上昇によるドップラー効果(負のフィードバック機構)がどの程度かをまず調べ、つぎに、前節で議論した自己遮蔽効果との複合効果が正のフィードバックになりうるかどうかを調べる。

表 7 には、ウラン層の温度上昇の効果とシリカ層の温度上昇の効果がまとめられている。13.8 cm の厚みをもつシリカ(空隙率 10%)に 1mm の厚さで 12%濃縮ウランが張り付いた体系は図 11 のウラン層 1mm、花崗岩層 6.0mm の場合とほとんど同じ挙動を示すので、ここでは、その体系を用いて計算した。

表中、同じ縦の列の値を比べることによりウラン層温度上昇のドップラー効果が見て取れる。ウラン層、シリカ層ともに常温(293K)で臨界になっている体系はウラン層の温度を上昇させることで、未臨界になっている。一方、横の列の値を比べると、シリカ層の温度上昇の効果が見て

表 7 13.8 cm の厚みをもつシリカ(空隙率 10%)に 1 mm 厚の 12%濃縮ウランが張り付いた体系の温度上昇による中性子増倍係数の変化

ウラン層温度 [K]	シリカ温度 [K]		
	293	587	881
293	1.000	—	—
587	0.997	1.068	—
881	0.989	—	1.090

表 8 亀裂壁面に濃集した 12%濃縮ウランがシリカと均質混合することによる中性子増倍係数の増大

$\text{SiO}_2$ 密度 [g/cm <sup>3</sup> ] (空隙率)	ウラン層 初期厚さ [mm]		
	0.2	1.0	10
2.20 (0.1)	1.054	1.265	1.387
1.96 (0.2)	1.071	1.319	1.491
1.71 (0.3)	1.084	1.347	1.526

取れる。図 11 でみたように、シリカの温度上昇と共に中性子増倍係数が増大している。

表中の対角線上の値(太字)はそれらの複合効果を考えることができる。わずかながら、増加しており、自己遮蔽効果がウラン層のドップラー効果に打ち勝つて全体として正のフィードバック効果になっていることがわかる。

#### 4.4.3 ウランと岩の均質混合効果

表 8 には臨界状態にある図 10 のようなウランの非均質な濃集が周辺の岩と完全に混合して均質化していく過程で中性子増倍係数が増加するか、を調べたものである。岩としてシリカを仮定し、3 つの異なるウラン層の厚みと 3 つの異なる空隙率に対して計算を行った。

その結果、シリカの空隙率の大きいものほど(すなわち含水量の多いものほど)、また、初期のウラン層の厚みの大きいものほど、均質化後の増倍率は大きくなることがわかった。

#### 4.5 まとめ

12%濃縮ウランに対して臨界解析を行い、花崗岩が 30% の空隙率をもち水で満たされている場合には、過減速状態の臨界になるためにすくなくとも 280 kg の 12%濃縮ウランが必要であることがわかった。空隙率が 10%の花崗岩に対しては過減速状態で臨界になる場合を見いだせなかつた。

12%濃縮ウランが花崗岩などに非均質に濃集した場合には、体系の温度上昇によってさらに中性子増倍係数が大きくなる正のフィードバック効果を持つメカニズムの存在が指摘された。

### 5 結論と今後の研究

地下水で飽和した花崗岩中に高レベル廃棄物を処分した場合の自己触媒的臨界シナリオの可能性とメカニズムについて解析を行った。

解析の対象として、動燃平成 3 年度報告書[7]に記述されている地質環境及び処分場仕様を想定した。母岩には亀裂性花崗岩、処分場に 40,000 本のガラス固化体を設置すると仮定し、

- 核分裂性物質である  $^{233}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  とそれらを

放射性崩壊により生成する親核種も含めた物質輸送解析

- 濃集した核分裂性物質に対する臨界解析を行った。

物質輸送解析の結果、次のことがわかった。

ウランの媒体中での動きやすさが、ここで仮定した幅の中間値よりも小さい場合、たとえ、処分場に埋設された 40,000 本の固化体から放出された核種がすべて 1 点に濃集したと仮定しても、ウランの濃集量は高々数モル程度と無視できるくらいに小さい。

しかし、ウランの媒体中での動きやすさが仮定した幅の最大限にある場合、1,000m 離れた 1 本の固化体から約 1 mol の 12%濃縮ウランを供給できる。この場合、濃集に関与可能なウランの総質量は最大 40,000 mol となる。これは、40,000 本の固化体に初期含まれる全アクチナイド核種質量 45 万 mol(表 1 左から 6 棚目の値の総合計 11.2 mol が 1 本あたりの質量で、その 40,000 倍が処分場に初期存在する全質量)に比べると 1 術小さくなっているが、依然、臨界シナリオの可能性を否定できるほど小さいとはいえない。

そこで、12%濃縮ウランが花崗岩に蓄積した場合、どの程度の質量で過減速状態の臨界になり、さらに自己触媒的臨界になるかどうか、を調べた結果、

- 濃集点における花崗岩の空隙率が 10%以下のとき、12%濃縮ウランによる過減速状態での臨界の可能性はない、したがって自己触媒的臨界の可能性もない、
  - 濃集点における花崗岩の空隙率が 30%のとき、過減速状態の臨界になるためにすくなくとも 280 kg の 12%濃縮ウランが必要である、
  - 亀裂表面に濃集するような非均質な場合、高濃縮ウランの場合と同様、12%濃縮ウランでも温度に対する正のフィードバックメカニズムが存在する、
- ことがわかった。

本研究では、以上のごとく、処分場仕様の詳細、輸送された核種の濃集の地球化学的プロセスの詳細を知らなくても、generic な思考実験により、臨界を達成する濃集が不可能な場合(ウランが媒体中で動きにくい場合)のあることを示した。また、臨界事象発生の可能性を判定するために処分場の詳細、周辺母岩に置ける水理条件の詳細、濃集メカニズムの詳細を知る必要のある場合(ウランが媒体中で動きやすい場合)の存在することも示した。さらに、仮に濃集が起きた場合でも、母岩である花崗岩の空隙率が 30%を越えない場合、臨界事象の可能性は事実上否定できるが、非均質に濃集した 12%濃縮ウランが一度過減速状態

で臨界になると正の温度フィードバック機構が働き、核分裂連鎖反応が自己触媒的になりうることを示した。

このシナリオがどの程度の確率をもって発生するか、がつぎの疑問である。最終的な結論を下すために必要な情報の中には、上述のように実際の処分地が選定されなくては確定できない情報もあり、今後、処分場のサイト選定のために行う特性調査/性能評価には、臨界安全評価を加えることが望ましい。genericな仮定の下でもできる今後の課題としては、動特性中性子輸送/反応解析、統計的不確実性解析が指摘できる。

また、工学的な方策(たとえば、劣化ウランのガラス固化体への混合、ウランの再処理段階での回収率の調整、高レベル廃棄物からのアメリシウムの除去、など)を講じたり、処分場選定の際の条件を適切に設定する(たとえば、処分場境界から1,000m以内の領域で30%を越える高い空隙率をもつ母岩を含まない、など)ことにより臨界現象可能性を根絶することも可能であると考えられる。しかし、その前に、自己触媒的臨界シナリオの確率がどの程度かもう少し見極め、それに見あった対応が必要であることは言うまでもない。

## 6 謝辞

本研究は、動力炉・核燃料開発事業団の協力により行なわれた。

## 参考文献

- [1] Bowman, C. D., and Venneri, F.: *Underground Autocatalytic Criticality from Plutonium and Other Fissile Material*, Los Alamos National Laboratory, LA-UR-94-4022A, March (1995).
- [2] Clayton, E. D.: *Anomalies of Nuclear Criticality*, Pacific Northwest Laboratory, Richland, WA, PNL-SA-4868 Rev. 5, June (1979).
- [3] Gore, B. F., Jenquin, U. P., and Serne, R. J.: *Factors Affecting Criticality for Spent-Fuel Materials in a Geologic Setting*, Pacific Northwest Laboratory, PNL-3791, April (1981).
- [4] Kastenberg, W. E., Peterson, P. F., Ahn, J., Burch, J., Casher, G., Chambré, P. L., Greenspan, E., Olander, D. R., Vujic, J., Bessinger, B., Cook, N. G. W., Doyle, F. M., and Hilbert, B.: *Mechanisms for Autocatalytic Criticality of Fissile Materials in Geologic Repositories*, UCB-NE-4214 (1996).
- [5] Kastenberg, W. E., Peterson, P. F., Ahn, J., Burch, J., Casher, G., Chambré, P. L., Greenspan, E., Olander, D. R., Vujic, J., Bessinger, B., Cook, N. G. W., Doyle, F. M., and Hilbert, B.: *Consideration of Autocatalytic Criticality of Fissile Materials in Geologic Repositories*, *Nuclear Technology*, 115, 298-310 (1996).
- [6] Kastenberg, W. E., Peterson, P. F., Ahn, J., Burch, J., Casher, G., Chambré, P. L., Greenspan, E., Olander, D. R., Vujic, J., Bessinger, B., Cook, N. G. W., Doyle, F. M., and Hilbert, B.: *Scenario Assessment of Autocatalytic Criticality in the Yucca Mountain Geologic Repository*, *Waste Management* 97, Tucson, Arizona, March 2-6, 1997 (1997).
- [7] 動力炉・核燃料開発事業団、*高レベル放射性廃棄物地層処分研究開発の技術報告書—平成3年度*、動燃事業団技術資料 PNC TN 1410 92-08 (1992).
- [8] Cowan, G. A.: *A Natural Fission Reactor*, *Scientific American*, 235, 36 (1976).
- [9] 安俊弘、池田孝夫、大江俊昭、菅野毅、坂本義昭、千葉保、塚本政樹、中山真一、長崎晋也、坂野且典、藤田智成、*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卷1号, 59-77(1995).
- [10] Croff, A. G.: *A User's Manual for the ORIGEN 2 Computer Code*, ORNL/TM-7175, Oak Ridge National Laboratory (1980).
- [11] Benedict, M., Pigford, T. H., and Levi, H. W.: *Nuclear Chemical Engineering*, 2nd Ed., McGraw-Hill (1981).
- [12] 地学事典、増補改訂版、平凡社、東京 (1981).
- [13] 大江俊昭、安俊弘、池田孝夫、菅野毅、千葉保、塚本政樹、中山真一、長崎晋也、*高レベル放射性廃棄物地層処分システムの初期過渡状態の解析*、日本原子力学会誌, 35卷5号, 420-437(1993).
- [14] Ahn, J.: *Integrated Radionuclide Transport Model for an HLW Repository in Water-Saturated Geologic Formations*, *Nuclear Technology*, 121, 24-39 (1998).
- [15] Grambow, B.: *Nuclear Waste Glass Dissolution: Mechanism, Model and Application*, Report to JSS Project Phase IV, SKB, JSS Project Report 87-02, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Company (1987).
- [16] Chambré, P. L., Pigford, T. H., Lee, W. W.-L., Ahn, J., Kajiwara, S., Kim, C. L., Kimura, H., Lung, H., Williams, W. J., and Zavoshy, S. J.: *Mass Transfer and Transport in a Geologic Environment*, Lawrence Berkeley Lab., LBL-19430 (1985).
- [17] Ahn, J., and Suzuki, A.: *Diffusion of the  $^{241}\text{Am} \rightarrow ^{237}\text{Np}$  Decay Chain Limited by Their Elemental Solubilities in the Artificial Barriers of High-Level Radioactive Waste Repositories*, *Nuclear Technology*, 101, 79-91 (1993).
- [18] Hodgekinson, D. P., and Maul, P. R.: *1-D Modelling of Radionuclide Migration Through Permeable and Fractured Rock for Arbitrary Length Decay Chains Using Numerical Inversion of Laplace Transforms*, *Ann. Nucl. Energy*, 15(4), 175-189 (1988).
- [19] 佐藤稔紀、石丸恒在、杉原弘道、清水和彦、文献調査によるわが国の岩石の物理特性に関するデータの収集、動燃事業団技術資料 PNC TN 7410 92-018 (1992).

- [20] 佐藤治夫, 芦田敬, 小原幸利, 油井三和, 梅木博之, 石黒勝彦, ベントナイト及び岩石中での核種の実効拡散係数, 動燃事業団技術資料 PNC TN 8410 92-164 (1992).
- [21] 黒羽光彦, 芦田敬, 渋谷朝紀, 乾真一, 岡崎充宏, 油井三和, Pu 含有ガラスからの Pu の溶解挙動, 日本原子力学会 1995 秋の大会予稿集 H73 (1995).
- [22] Rai, D., Felmy, A. R., Ryan, J. L.: Uranium (IV) Hydrolysis Constants and Solubility Product of  $\text{UO}_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}$  (am), *Inorg. Chem.*, **29**, 260-264 (1990).
- [23] 渋谷朝紀, 吉川英樹, 佐藤治夫, 油井三和, 梅木博之, ベントナイト及び岩石中での核種の分配係数, 動燃事業団技術資料 PNC TN 8410 92-163 (1992).
- [24] Baston, G. M. N., Berry, J. A., Brownsword, M., Cowper, M. M., Heath, T. G., and Tweed, C. J.: The Sorption of Uranium and Technetium on Bentonite, Tuff and Granodiorite, *Sci. Basis Nuc. Was. Man.*, **XVIII**, 989-996 (1995).
- [25] IMSL, Math Library, FORTRAN Subroutines for Mathematical Applications, IMSL Inc., Houston, Texas.
- [26] Talbot, A.: The Accurate Numerical Inversion of Laplace Transforms, *J. Inst. Math. Applic.*, **23**, 97-120 (1979).
- [27] Barker, J. A.: Laplace Transform Solutions for Solute Transport in Fissured Aquifers, *Adv. Water Resources*, **5**, 98-104 (1982).
- [28] Briesmeister, J. F.: MCNP - A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 4A, Los Alamos National Laboratory, Los Alamos National Laboratory Report LA-12625 (1993).
- [29] Paxton, H. C., and Pruvost, N. L.: Critical Dimensions of Systems Containing  $^{235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  and  $^{233}\text{U}$ , Los Alamos National Laboratory Report LA-10860-MS (1987).