

## ニア・フィールドにおける核種の挙動と安全評価へのかかわり†

安 俊弘 ††

## 1. はじめに

高レベル放射性廃棄物の地層処分に対する「安全評価」という場合、「シナリオ解析」によって地層処分の安全性に対して影響を持つ事象を選定することから始まり、それらを数学的に記述したモデルに基づいて地層処分の持つ影響を定量的に評価し、その結果をある安全基準と比較し解釈または判定を下すことまでが含まれる。「性能評価」という場合には、この最終段階における安全に対する判定が含まれない。また地層処分全体ばかりでなく、処分システムを構成する部分を評価の対象とする場合も性能評価という。「安全解析」という場合には、安全評価、性能評価の中で行われる定量的な解析をさすことが多い。本稿では、「安全評価」の中でも重要な部分と考えられる人工バリアに対する安全解析を中心に取り上げることにする。また、必要に応じて、天然バリアとのかかわりについても言及する。

80年代の欧米各国とわが国における集中的な研究開発は主に地層処分概念の確立を目指したものであった。当初、岩塩層や花崗岩層のような特定の地質環境を想定して始まった地層処分の考え方が、その後の主として地球化学の分野での研究の進展と共に、実はある条件を満たせば広範な地質環境に適用可能な考え方であることが確認されたと言える。すなわち、高レベル放射性廃棄物を地層処分した場合、

- 廃棄物を埋設する地層が長期に安定であること、
- 深地層における地下水が弱アルカリ性、還元性雰囲気中に保たれていること、
- 岩盤中の地下水流速が小さいこと、さらにベントナイト緩衝材の止水効果により事実上人工バリア内で流れを無視できること

の3つの条件が満たされるならば、その安全性は、長期にわたり確保されるとのコンセンサスが研究者の間で得られるようになった [1,2]。

90年代初頭までに各国が到達した段階は、複雑多岐にわたる諸現象のモデル化という観点からは依然として「第0近似」とでも言うべきレベルに留まっているが、それは、「地層処分概念の確立」という当時の目標に対しては十分であったと考えられる。「地層処分概念の確立」を受けて、各国は、「現象のより詳細な理解」、「モデルの精緻化」、「不確実性の取り扱い」等に取り組んでいる [3]。

本稿では、これまでの安全評価に用いられた概念を数学モデルに基づいて概説すると共に、今後のモデルの拡張について言及する。

## 2. 理論

## 2.1 解析の対象となる体系と解析上の仮定

図1に示すような体系を考慮する。廃棄体は坑道の床面から垂直に掘られたピットに1体ずつ埋設される。熱的影響、岩盤の強度などを考慮して、 $10 \times 10 \text{ m}^2$ に1体の廃棄体を埋設する。廃棄体は、ガラス固化体、炭素銅製オーバーバックからなり、廃棄体と岩盤の間にベントナイトを充填する。

廃棄体を埋設した直後は、ベントナイトは乾燥しており、ガラス固化体も発熱しているために、人工バリア内部及び周囲の岩盤における地下水の流れは複雑であるが、これまでの解析 [4]によると、およそ100年程度で、人工バリアの温度は埋設前の地温に戻り、ベントナイト空隙も地下水で飽和することが知られている。その後、オーバーバックが腐食し、ガラス固化体が地下水と接触する。本解析では、それ以降を対象とし、オーバーバックは、一様な多孔質媒体と見做すことができると仮定する。

このような定常状態を仮定すると、地下水流動は多孔質媒体におけるポテンシャル流れを仮定することによって解析することができる。つまり、温度は人工バリア内で一様であるので、地下水の密度変化などを考慮する必

† Radionuclide Behaviour in the Near Field and Safety Assessment, by Joonhong Ahn

†† 東海大学工学部原子力工学科 Department of Nuclear Engineering, Tokai University

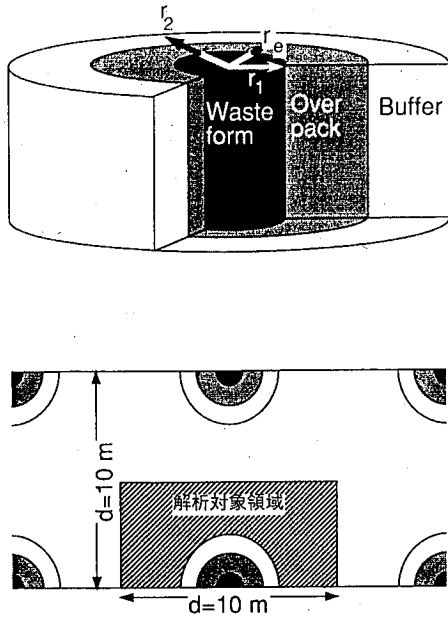


図1 解析の対象となる領域

要はない。

地下水と接触したガラス固化体は溶解し、次節以降で述べるように、それに伴って放射性核種が空隙内の地下水に放出される。溶解したケイ酸や放射性核種は人工バリア内を、拡散と移流によって輸送される。このとき従来のモデルではベントナイトの物理的・化学的性質が時間的に変化しないと仮定している。ここでは、後ほど、スメクタイトがイライトに変化することを考慮したモデルを検討するため、スメクタイトのイライト化を含めたより一般的な形でモデルを記述しておく。

まとめると、人工バリア性能評価のための解析モデルは、

- 地下水流動モデル
- ガラス固化体溶解モデル
- 放射性核種輸送モデル

の3つの部分からなり、それぞれの部分はベントナイトの安定性に大きく影響される。

## 2.2 人工バリア周囲の地下水流れ場の計算

地下水の流速分布を決定するために、図1のように、3層に分けて考える。一番内側に、腐食したオーバーパック層、次に、緩衝材層（スメクタイトとイライトの混合物）、その外側に岩盤があると仮定する。Darcyの法則が

成立すると仮定し、それぞれの透水係数を内側から  $k_c$ 、 $k_b$ 、 $k_r$  [m/yr] とする。流れは、円柱の軸と垂直な方向と仮定する。それぞれの領域における流れのポテンシャルを  $\phi_c$ 、 $\phi_b$ 、 $\phi_r$  [m] とし、廃棄体を無限円柱で近似すると、軸方向に対称な2次元円柱座標系において半径方向および周方向の速度成分 [m/yr] は、それぞれ

$$u_j(r, \theta) = -k_j \frac{\partial \phi_j}{\partial r}, \quad j = c, b, r \quad (1)$$

$$v_j(r, \theta) = -\frac{k_j}{r} \frac{\partial \phi_j}{\partial \theta}, \quad j = c, b, r \quad (2)$$

と表すことができる。ここで、式(1)(2)において、各層の透水係数は等方的であることを仮定している。また、透水係数  $k_j$  は空間依存性を持ち  $k_j = k_j(r, \theta)$  で表されるものとする。

一方、流れのポテンシャルに対しては次のような偏微分方程式が成立する。スメクタイトがイライト化する速度が十分に遅いため、各時刻の透水係数に対して定常状態の速度場が瞬時に成立していると仮定する。

$$r \frac{\partial}{\partial r} \left( r k_c(r, \theta) \frac{\partial \phi_c}{\partial r} \right) + \frac{\partial}{\partial \theta} \left( k_c(r, \theta) \frac{\partial \phi_c}{\partial \theta} \right) = 0,$$

$$r_1 < r < r_e, \quad 0 < \theta < 2\pi \quad (3)$$

$$r \frac{\partial}{\partial r} \left( r k_b(r, \theta) \frac{\partial \phi_b}{\partial r} \right) + \frac{\partial}{\partial \theta} \left( k_b(r, \theta) \frac{\partial \phi_b}{\partial \theta} \right) = 0,$$

$$r_e < r < r_2, \quad 0 < \theta < 2\pi \quad (4)$$

$$r \frac{\partial}{\partial r} \left( r k_r(r, \theta) \frac{\partial \phi_r}{\partial r} \right) + \frac{\partial}{\partial \theta} \left( k_r(r, \theta) \frac{\partial \phi_r}{\partial \theta} \right) = 0,$$

$$r_2 < r, \quad 0 < \theta < 2\pi \quad (5)$$

これらの方程式を次のような境界条件の下で解く。

$$\frac{\partial \phi_c}{\partial r} \Big|_{r=r_1} = 0, \quad 0 \leq \theta \leq 2\pi, \quad (6)$$

$$k_c \frac{\partial \phi_c}{\partial r} \Big|_{r=r_e} = k_b \frac{\partial \phi_b}{\partial r} \Big|_{r=r_e}, \quad 0 \leq \theta \leq 2\pi, \quad (7)$$

$$\frac{\partial \phi_c}{\partial \theta} \Big|_{r=r_e} = \frac{\partial \phi_b}{\partial \theta} \Big|_{r=r_e}, \quad 0 \leq \theta \leq 2\pi, \quad (8)$$

$$k_b \left. \frac{\partial \phi_b}{\partial r} \right|_{r=r_2} = k_r \left. \frac{\partial \phi_r}{\partial r} \right|_{r=r_2}, \quad 0 \leq \theta \leq 2\pi, \quad (9)$$

$$\left. \frac{\partial \phi_b}{\partial \theta} \right|_{r=r_2} = \left. \frac{\partial \phi_r}{\partial \theta} \right|_{r=r_2}, \quad 0 \leq \theta \leq 2\pi, \quad (10)$$

$$-k_r \left. \frac{\partial \phi_r}{\partial r} \right|_{r \rightarrow \infty} = U \cos \theta. \quad (11)$$

ここで、 $U$  [m/yr] は人工バリアから十分離れたところでの地下水間隙流速である。

### 2.3 ガラス溶解モデル— $\text{SiO}_2$ の物質移動—

オーバーバックおよび岩盤の物性値（空隙率、密度、吸着分配係数、透水係数）は時間的に変化しないと仮定すると、これらの領域における溶解したケイ酸の移流・分散は次の方程式で表される。

$$R_c \frac{\partial C_c}{\partial t} + u_c \frac{\partial C_c}{\partial r} + \frac{v_c}{r} \frac{\partial C_c}{\partial \theta} = D_c \nabla^2 C_c, \quad (12)$$

$$t > 0, \quad r_1 < r < r_e,$$

$$R_r \frac{\partial C_r}{\partial t} + u_r \frac{\partial C_r}{\partial r} + \frac{v_r}{r} \frac{\partial C_r}{\partial \theta} = D_r \nabla^2 C_r, \quad (13)$$

$$t > 0, \quad r_2 < r.$$

一方、緩衝材中は空隙率、密度、流速、吸着分配係数が時間的に変わるので、次のような支配方程式になる。

$$\varepsilon_b R_b \frac{\partial C_b}{\partial t} + (1 - \varepsilon_b) C_b \frac{\partial K_b}{\partial t} + \varepsilon_b u_b \frac{\partial C_b}{\partial r} + \varepsilon_b \frac{v_b}{r} \frac{\partial C_b}{\partial \theta} = \varepsilon_b D_b \nabla^2 C_b, \quad t > 0, \quad r_e < r < r_2, \quad (14)$$

但し、

$$\nabla^2 = \frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2}{\partial \theta^2} \quad (15)$$

である。また、 $R_j$  はケイ酸の媒体  $j$  における遅延係数であり、

$$R_j = 1 + \frac{1 - \varepsilon_j}{\varepsilon_j} \rho_j K_{d_j} \quad (16)$$

で表される。 $\varepsilon_j$  は媒体  $j$  の空隙率、 $\rho_j$  [kg/m<sup>3</sup>] は媒体  $j$  の密度、 $K_{d_j}$  [m<sup>3</sup>/kg] はケイ酸の媒体  $j$  における吸着分配係数である。また、 $D_j$  [m<sup>2</sup>/yr] はケイ酸の媒体  $j$  における拡散係数、 $C_j(r, \theta, t)$  [mol/m<sup>3</sup>] は媒体  $j$  の水相中におけるケイ酸濃度である。また、下付き添え字

$j = c, b, r$  は、それぞれ、オーバーバック、緩衝材、岩盤を表す。

以上の方程式を次のような初期条件、境界条件の下で解く。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水相中のケイ酸濃度は  $\bar{C}$  で一様であると仮定する。

$$C_c(r, \theta, 0) = C_b(r, \theta, 0) = C_r(r, \theta, 0) = \bar{C}, \quad (17)$$

$$0 < \theta < 2\pi,$$

$$j_o \left( 1 - \frac{C_c(r_1, \theta, t)}{C_s^*} \right) + j_{res} = -\varepsilon_c D_c \left. \frac{\partial C_c}{\partial r} \right|_{r=r_1}, \quad (18)$$

$$0 < \theta < 2\pi, \quad t > 0,$$

$$C_c(r_e, \theta, t) = C_b(r_e, \theta, t), \quad 0 < \theta < 2\pi, \quad t > 0, \quad (19)$$

$$-\varepsilon_c D_c \left. \frac{\partial C_c}{\partial r} \right|_{r=r_e} = -\varepsilon_b D_b \left. \frac{\partial C_b}{\partial r} \right|_{r=r_e}, \quad (20)$$

$$0 < \theta < 2\pi, \quad t > 0,$$

$$C_b(r_2, \theta, t) = C_r(r_2, \theta, t), \quad 0 < \theta < 2\pi, \quad t > 0, \quad (21)$$

$$-\varepsilon_b D_b \left. \frac{\partial C_b}{\partial r} \right|_{r=r_2} = -\varepsilon_r D_r \left. \frac{\partial C_r}{\partial r} \right|_{r=r_2}, \quad (22)$$

$$0 < \theta < 2\pi, \quad t > 0,$$

$$C_r(\infty, \theta, t) = 0, \quad 0 < \theta < 2\pi \quad (23)$$

ここで、 $j_o$  [mol/m<sup>2</sup>yr] はガラスマトリックスの可逆な溶解反応の速度、 $j_{res}$  [mol/m<sup>2</sup>yr] は不可逆な溶解反応の速度、 $C_s^*$  [mol/m<sup>3</sup>] はケイ酸の溶解度である [5]。

以上の方程式を解くことにより、ガラス固体の溶解速度  $\dot{m}_{silica}(\theta, t)$  [mol/m<sup>2</sup>yr]

$$\dot{m}_{silica}(\theta, t) = j_o \left( 1 - \frac{C_c(r_1, \theta, t)}{C_s^*} \right) + j_{res} \quad (24)$$

が求められる。

## 2.4 放射性核種移行モデル

ガラス固化体から放出された核種の輸送は前節で示したケイ酸の輸送とよく似た支配方程式で表される。但し、放射性核種の場合、崩壊の項が加わる。

$$R_c^i \frac{\partial N_c^i}{\partial t} + v_c \frac{\partial N_c^i}{\partial r} + \frac{v_c}{r} \frac{\partial N_c^i}{\partial \theta} = D_c^i \nabla^2 N_c^i$$

$$+ \lambda_{i-1} R_c^{i-1} N_c^{i-1} - \lambda_i R_c^i N_c^i, \quad t > 0, \quad r_1 < r < r_e, \quad (25)$$

$$R_b^i \frac{\partial N_b^i}{\partial t} + \frac{(1-\varepsilon_b)}{\varepsilon_b} N_b^i \frac{\partial K_b^i}{\partial t} + v_b \frac{\partial N_b^i}{\partial r} + \frac{v_b}{r} \frac{\partial N_b^i}{\partial \theta} = D_b^i \nabla^2 N_b^i + \lambda_{i-1} R_b^{i-1} N_b^{i-1} - \lambda_i R_b^i N_b^i,$$

$$t > 0, \quad r_e < r < r_2, \quad (26)$$

$$R_r^i \frac{\partial N_r^i}{\partial t} + v_r \frac{\partial N_r^i}{\partial r} + \frac{v_r}{r} \frac{\partial N_r^i}{\partial \theta} = D_r^i \nabla^2 N_r^i$$

$$+ \lambda_{i-1} R_r^{i-1} N_r^{i-1} - \lambda_i R_r^i N_r^i, \quad t > 0, \quad r_2 < r, \quad (27)$$

但し、 $\lambda_i$  [ $\text{yr}^{-1}$ ] は核種  $i$  の崩壊定数、 $N_j^i(r, \theta, t)$  [ $\text{mol}/\text{m}^3$ ] は媒体  $j = c, b, r$  の水相中における核種  $i$  の濃度である。 $R_j^i, K_j^i, D_j^i$ 等は、ケイ酸の場合と同様である。

以上の方程式を次のような初期条件、境界条件の下で解く。

$$N_c^i(r, \theta, 0) = N_b^i(r, \theta, 0) = N_r^i(r, \theta, 0) = 0,$$

$$0 < \theta < 2\pi, \quad (28)$$

$$N_c^i(r_e, \theta, t) = N_b^i(r_e, \theta, t), \quad 0 < \theta < 2\pi, \quad t > 0, \quad (29)$$

$$-\varepsilon_c D_c^i \frac{\partial N_c^i}{\partial r} \Big|_{r=r_e} = -\varepsilon_b D_b^i \frac{\partial N_b^i}{\partial r} \Big|_{r=r_e},$$

$$0 < \theta < 2\pi, \quad t > 0, \quad (30)$$

$$N_b^i(r_2, \theta, t) = N_r^i(r_2, \theta, t), \quad 0 < \theta < 2\pi, \quad t > 0, \quad (31)$$

$$-\varepsilon_b D_b^i \frac{\partial N_b^i}{\partial r} \Big|_{r=r_2} = -\varepsilon_r D_r^i \frac{\partial N_r^i}{\partial r} \Big|_{r=r_2},$$

$$0 < \theta < 2\pi, \quad t > 0, \quad (32)$$

$$N_r^i(\infty, \theta, t) = 0, \quad 0 < \theta < 2\pi, \quad t > 0. \quad (33)$$

ガラスのマトリックスと congruent に放出される放射性核種は、その溶解度が十分大きい場合、放出された全量が水相中に溶ける。一方、溶解度が小さい場合は、放出された直後にその場で析出する。前者の場合、ガラス固化体表面における境界条件はガラス固化体の溶解速度で記述される第2種境界条件となる。後者の場合は、ガラス固化体表面において核種の溶解度で一定となる第1種境界条件となる。ガラス固化体表面での境界条件を定めるために析出物の有無を次の常微分方程式により判定する。

$$\frac{dP_i}{dt} = \dot{m}_i - \dot{Q}_i - \lambda_i P_i + \lambda_{i-1} P_{i-1}, \quad t > 0, \quad (34)$$

ここで、 $P_i(\theta, t)$  [ $\text{mol}/\text{m}^2$ ] はガラス固化体表面に存在する核種  $i$  の析出物の量、 $\dot{m}_i(\theta, t)$  [ $\text{mol}/\text{m}^2 \text{yr}$ ] は、核種  $i$  がガラスマトリックスと congruent に放出されるとときの放出率である。また、 $\dot{Q}_i(\theta, t)$  [ $\text{mol}/\text{m}^2 \text{yr}$ ] はガラス表面の核種  $i$  の拡散フラックスである。式(34)を初期条件  $P_i(\theta, 0) = 0$  の下でといて、 $P_i(\theta, t) > 0$  となる期間において析出物が存在する。

高さ  $L$  [m] の円柱状ガラスマトリックスが初期  $M_{\text{silica}}^0$  [mol] あったとして、時刻  $t$  におけるガラスマトリックスの残存量  $M_{\text{silica}}(t)$  [mol] は

$$M_{\text{silica}}(t) = M_{\text{silica}}^0 - r_1 L \int_0^{2\pi} \int_0^t \dot{m}_{\text{silica}}(\theta, t) dt d\theta \quad (35)$$

と、求めることができるので、ガラスマトリックスの fractional dissolution rate [1/yr] は

$$\dot{f}_{\text{silica}}(t) = \frac{r_1 L \int_0^{2\pi} \dot{m}_{\text{silica}}(\theta, t) d\theta}{M_{\text{silica}}^0 - r_1 L \int_0^{2\pi} \int_0^t \dot{m}_{\text{silica}}(\theta, t) dt d\theta} \quad (36)$$

と表される。

一方、congruency を仮定しているので、

$$\dot{f}_{\text{silica}}(t) = \dot{f}_i(t) \quad (37)$$

であり [6]、 $\dot{f}_i(t)$  [1/yr] は、

$$\dot{f}_i(t) = \frac{r_1 L \int_0^{2\pi} \dot{m}_i(\theta, t) d\theta}{M_i(t)} \quad (38)$$

と定義されるので、

$$\dot{m}_i(\theta, t) = \frac{M_i(t) \dot{m}_{\text{silica}}(\theta, t)}{M_{\text{silica}}^0 - r_1 L \int_0^{2\pi} \int_0^t \dot{m}_{\text{silica}}(\theta, t) dt d\theta} \quad (39)$$

と表される。ここで、 $M_i(t)$  [mol] は核種  $i$  のガラス固化体中のインベントリである。これは、

$$\frac{dM_i(t)}{dt} = -\lambda_i M_i(t) + \lambda_{i-1} M_{i-1}(t) - r_1 L \int_0^{2\pi} \dot{m}_i(\theta, t) d\theta \quad (40)$$

を解くことで得られる。

以上によって、析出量  $P_i(\theta, t)$  を求めるための諸量が定義できた。これらにより、人工バリア中の核種濃度分布を求めるためのガラス固化体表面における境界条件は次のように定めることができる。

$$N_c^i(r_1, \theta, t) = N_{e_i}^* \gamma_i(t), \text{ if } P_i(t) > 0 \quad (41)$$

$$- \varepsilon_c D_c^i \left. \frac{\partial N_c^i}{\partial r} \right|_{r=r_1} = \dot{m}_i(\theta, t), \text{ if } P_i(t) < 0 \quad (42)$$

ここで、 $N_{e_i}^*$  は核種  $i$  を含む放射性元素  $e$  の溶解度 [mol/m<sup>3</sup>]、 $\gamma_i(t)$  は同位体  $i$  が元素  $e$  の析出物に占める割合である。

## 2.5 多数の固化体の影響

図1のような規則正しい配列で埋設されることが予想される場合、互いに隣り合う固化体の影響を調べておく必要がある。埋設直後の機械的、熱的影響については既に詳細な検討がなされている例もあるが、漏洩した放射性核種の輸送という観点からはどうかであろうか。

各人工バリアから放出された放射性核種は、図2の様な汚染領域 (plume) を形成して下流方向に運ばれていく。従って、下流側に埋設された固化体周囲の人工バリア外側境界における濃度は、上流から運ばれた放射性核種によって既に0より大きくなっていると考えられる。

この効果は、2つの極端な場合に分けて考えることが出来る。まず、人工バリア内部の物質移動が拡散支配である場合、人工バリア内部で形成される濃度勾配は、人工バリア外側境界での濃度が0の場合よりも小さくなり、下流に存在する固化体からの放射性核種の放出は上流のそれに比べて抑制される。一方、地下水流れの方が拡散よりも支配的である場合、ガラス固化体からの物質の溶

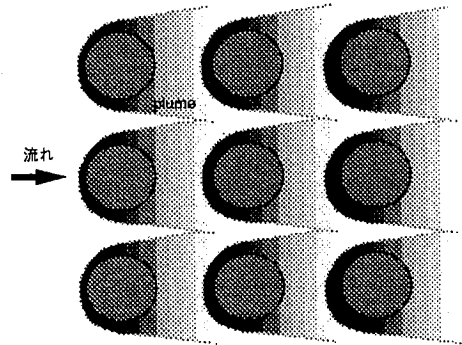


図2 各人工バリアから形成される plume

解放出は人工バリア内部の濃度勾配にあまり依存しなくなり、それぞれの固化体からの放出がほぼ独立に加算されていくことが予想される。

前者の場合、それぞれの人工バリア外側境界での放射性核種の濃度を仮に0とおいた場合、人工バリア内部の濃度勾配を現実に対して大きめに見積ることになるため、保守的な評価結果を得ることが保証される。従って、人工バリアの性能を解析する場合、人工バリア外側境界で放射性核種の濃度を0とおく境界条件を用いることが一般的である。但し、この仮定は、人工バリア内部の物質移動が拡散支配である場合に成立し、ベントナイト緩衝材が劣化して移流が支配的な場合には、前節までのような一般的な数学モデルに基づく必要がある。

## 3. 従来のモデルによる評価結果

### 3.1 地下水流れ場

簡単のために、透水係数は各領域内部で一様であると仮定すると、式(3)から(11)で表される問題の解析解は次のように書くことが出来る：

$$\phi_c(R, \theta) = -U \frac{r_1}{k_r} A \left( R + \frac{1}{R} \right) \cos \theta \quad (43)$$

$$\phi_b(R, \theta) = -U \frac{r_1}{k_r} D \left( R + \frac{B}{R} \right) \cos \theta \quad (44)$$

$$\phi_r(R, \theta) = -U \frac{r_1}{k_r} \left( R + \frac{C}{R} \right) \cos \theta \quad (45)$$

ただし

$$A = D \frac{2s_e^2}{(1 + \alpha_1)s_e^2 + (1 - \alpha_1)}$$

$$B = s_e^2 \frac{(1 - \alpha_1)s_e^2 + (1 + \alpha_1)}{(1 + \alpha_1)s_e^2 + (1 - \alpha_1)}$$

$$C = s_e^2 \frac{(1 - \alpha_2)s_e^2 + (1 + \alpha_2)B}{(1 + \alpha_2)s_e^2 + (1 - \alpha_2)B}$$

$$D = \frac{2s_2^2}{(1 + \alpha_2)s_2^2 + (1 - \alpha_2)B}$$

$$R = \frac{r}{r_1}, \quad s_e = \frac{r_e}{r_1}, \quad s_2 = \frac{r_2}{r_1}$$

$$\alpha_1 = \frac{k_e}{k_b}, \quad \alpha_2 = \frac{k_b}{k_r}$$

これより、式(1)(2)を用いてニアフィールド各地点における地下水流れの速度成分が求められる。また、ラプラス方程式の解が共役な流線関数をもつことを利用してニアフィールドでの地下水流線を描いたものが、図3である。3つのうち、上の図はベントナイト緩衝材が止水性を維持している場合、中の図はオーバーパックは止水性を保っているもののベントナイトが岩盤に比べて大きな透水係数をもつ場合、下の図はベントナイトは岩盤よりも透水係数が小さいがオーバーパックの透水係数が岩盤の透水係数よりも大きい場合を示している。人工バリアの最も外側にあるベントナイトの透水性が劣化すると、岩盤から地下水を吸い込むような流線を示すことがわかる。また、ベントナイトの透水性がある程度維持できている、腐食したオーバーパックの透水係数が大きい場合には、その影響が無視できないことが示される。

### 3.2 ガラス固化体の溶解解析の結果

2.3節で記述されたモデルにおいて、次のような単純化を行った場合について結果が得られている。すなわち、

- オーバーパックと緩衝材を1つの均一な層とし、緩衝材の物性値を用いる、
- 緩衝材内部での移流を無視する、
- ベントナイトの変質を無視する、
- 緩衝材外側において、溶解したシリカの濃度を0と置く、
- 球座標1次元とする。

以上の問題に対する解析解はラプラス変換を用いて次のように求められる：

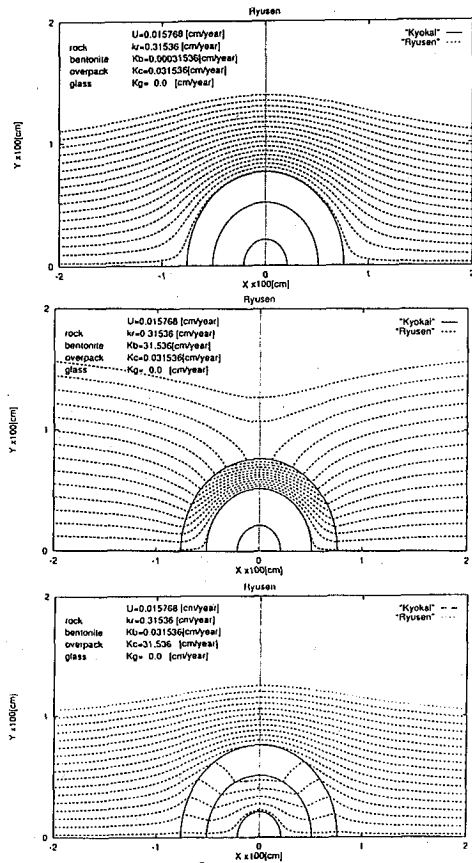


図3 ニアフィールドにおける地下水流線

$$\frac{C(\rho, \tau) - \bar{C}}{C^* - \bar{C}} = \frac{1}{\rho} \sum_{m=1}^{\infty} \{1 - \exp(-\beta_m^2 \tau)\} \frac{2}{\beta_m} (\alpha_0 + \alpha_{res}) \times \frac{\beta_m \cos(\beta_m(\rho - 1)) + (\alpha_0 + 1) \sin(\beta_m(\rho - 1))}{\{\beta_m^2 + (\alpha_0 + 1)^2\}(\rho_2 - 1) + \alpha_0 + 1}$$

$$\tau \geq 0, \quad 1 \leq \rho \leq \rho_2 \quad (46)$$

ここで

$$\tau = \frac{D_{silica} t}{K_{silica} r_1^2}, \quad \rho = \frac{r}{r_1}, \quad \rho_2 = \frac{r_2}{r_1}$$

$$\alpha_0 = \frac{j_0 r_1}{\epsilon D_{silica} C^*}, \quad \alpha_{res} = \frac{j_{res} r_1}{\epsilon D_{silica} (C^* - \bar{C})}$$

であり、 $\beta_m$ は次の超越方程式の解である：

$$\tan(\beta_m(\rho_2 - 1)) + \frac{\beta_m}{\alpha_o + 1} = 0, \quad m = 1, 2, 3, \dots$$

この解によりガラスの溶解速度  $\dot{m}_{\text{silica}}(t)$  [mol/m<sup>2</sup>/yr] が、求められ、ガラス固化体の浸出時間  $T_L$  [yr] は

$$M_{\text{silica}}^o = S \int_0^{T_L} \dot{m}_{\text{silica}}(t) dt \quad (47)$$

を解くことで求められる。但し、 $M_{\text{silica}}^o$  [kg] は溶解前のガラスの質量である。 $S = 4\pi r_1^2$  [m<sup>2</sup>] はガラス固化体と人工バリアの境界面積である。ここでは、その時間的変化は考慮しない。

表 1 30°C におけるガラス溶解反応のデータ [5]

可逆反応	$j_o = 1.9 \times 10^{-11} \text{ kg/m}^2/\text{s}$
不可逆反応	$j_{\text{res}} = 6.7 \times 10^{-13} \text{ kg/m}^2/\text{s}$
シリカの溶解度	$C^* = 5.1 \times 10^{-2} \text{ mol/m}^3$
平衡ベントナイト間隙水中のケイ酸濃度	$\bar{C} = 4.5 \times 10^{-2} \text{ mol/m}^3$
ケイ酸の拡散係数	$D_{\text{silica}} = 1.4 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$
ケイ酸の遅延係数	$K_{\text{silica}} = 1$

図 1 に示す人工バリア構成に於て表 1 で示す数値を用いると、約 10 年程度の比較的短い時間で溶解速度が一定になることが式 (46) を用いた計算によりわかる。そこで、ガラスは一定な定常溶解速度、 $\dot{m}_{\text{silica}}^{ss}$  で溶解するとして、式 (47) を次のように簡単化する：

$$T_L = \frac{M_{\text{silica}}^o}{S \dot{m}_{\text{silica}}^{ss}} \quad (48)$$

すでに報告されている  $j_o$ ,  $j_{\text{res}}$ ,  $C^*$ ,  $\bar{C}$  [5] に対する熱力学的データから、浸出時間  $T_L$  を処分場温度の関数で表した (図 4)。この図は、ガラス固化体の溶解速度は 2.3 節で示したようにこのほかにも地下水流速等を考慮にいられて検討する必要があるものの、処分場の温度がガラス固化体の溶解に要する時間に大きな影響をもっていることを示している。次節では、この図を基に  $T_L = 400$  万年と設定した。また、処分場温度が高い場合として  $T_L = 4$  万年も比較のため検討した。

### 3.3 放射性核種移行解析の結果

2.4 節において記述された解析モデルに対して次のような簡単化をした場合、解析解が求められている。

- オーバーバックと緩衝材を 1 つの均一な層とみなし、そこでの物性 (遅延係数、空隙率、密度、拡散係数

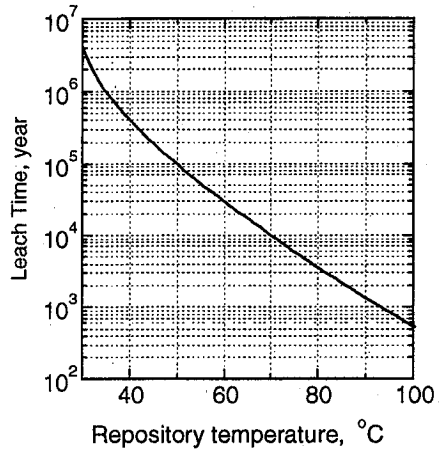


図 4 浸出時間と温度の関係

- など) はベントナイトに対するそれらを仮定する、
- 緩衝材内部での移流を無視する、
  - ベントナイトの変質を無視する、
  - 球座標 1 次元とする、
  - 緩衝材/母岩境界における放射性核種濃度を 0 とする、
  - ガラス固化体の溶解に対しては、3.2 節の解析を適用する。

これらの仮定により、「2. 理論」において 2 層からなる人工バリアとその周辺の岩盤に対して考慮した放射性核種移行モデルは、均質な 1 層の人工バリア内移行モデルとして解くことが出来る。

人工バリアに対しては、

$$R_i \frac{\partial N_i}{\partial t} + \lambda_i R_i N_i = D_i \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left( r^2 \frac{\partial N_i}{\partial r} \right) + \lambda_{i-1} R_{i-1} N_{i-1}, \quad t > 0, \quad r_1 < r < r_2, \quad (49)$$

が成立する。但し、 $N_i(r, t)$ : 崩壊系列  $i$  番目の核種の水相中における濃度 [mol/m<sup>3</sup>]、 $R_i$ : 核種  $i$  の遅延係数、 $\lambda_i$ : 核種  $i$  の崩壊定数 [yr<sup>-1</sup>] である。これを、次のような初期・境界条件の下で解く。

$$N_i(r, 0) = 0, \quad r_1 < r < r_2, \quad (50)$$

$$-A_k D_{i\epsilon} \frac{\partial N_i}{\partial r} \Big|_{r=r_1} = -B_i N_i(r_1, t) + \psi_i(t), \quad t > 0, \quad (51)$$

$$N_i(r_2, t) = 0, \quad (52)$$

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

$$A_i \equiv 0, B_i \equiv 1, \psi_i(t) = \gamma_i(t) N_{e_i}^* [h(t) - h(t - t_i^*)] \quad (53)$$

調和溶解境界条件が適用される場合、

$$A_i \equiv 1, B_i \equiv 0, \psi_k(t) = m_i(t) [h(t) - h(t - T_L)] \quad (54)$$

のように与えられる。

$N_i(r, t)$  のラプラス変換された解は文献 [7] に示されている。

ガラス固化体から放出された放射性核種の析出を解析し、人工バリア内側  $r = r_1$  における境界条件を求めた上で、人工バリア外側での核種放出量を計算した。比較のために、(1) 浸出時間 400 万年、人工バリアでの放射性核種の収着がある場合、(2) 400 万年、収着がない場合、(3) 4 万年、収着がある場合、の 3 つの場合について算出した。

人工バリアの性能をバリア外側から 1 年間に放出される全放射性核種のもつ放射能が年摂取限度の何倍になるかで示した。現実にはバリア外側全表面から放出される核種を全量集めて体内に摂取することはありえないから、ここで示される指標 (ハザード) は各バリアを通過した後で発生しうる影響の理論上の上限値であると考えられる。

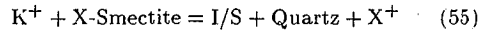
図 5 は、人工バリア外側境界における全ハザードと元素別の内訳を示す。また、比較のため、調和溶解でガラスから放出される全ハザードを示した。右図に示した浸出時間 400 万年の場合には人工バリア内の収着がない場合の全ハザードも示している。

収着による遅延効果がない場合、人工バリア通過後の全ハザードはガラス固化体から調和溶解で放出される放射能を摂取したときの全ハザードとほとんど変わらない。このことから、人工バリアのバリア機能において収着による遅延効果が本質的に重要であることがわかる。

収着による遅延がある場合、どちらの浸出時間でも人工バリア外側における全ハザードの最大値はガラス固化体の溶解で放出される放射能をそのまま摂取した場合に比べて 2 桁以上低減されている。また、人工バリアのハザードを支配しているのは Pu、なかでも  $^{239}\text{Pu}$  であることが計算結果からわかる。

#### 4. イライト化の影響

ベントナイトはスメクタイトを主体とする微粒の粘土であり、止水性、膨潤性、核種吸着性に優れた特性をもっている。しかし、地下水中の溶存  $\text{K}^+$  イオンや高温等の環境に置かれたとき、イライトに変化して緩衝材として期待される性能を著しく劣化させる。ここでは、スメクタイトのイライト化反応として



に基づき [8]、イライト化がどの程度の速さで進むのを見積ることとする。ここで、I/S はイライト/スメクタイト混合層鉱物、 $\text{X}^+$  は、 $\text{Ca}^{2+}$  または  $\text{Na}^+$  のような可換な陽イオンである。

イライト化の影響は次の様に考えられる。イライトは、スメクタイトに比べて膨潤性が著しく劣り、透水係数と空隙率が大きくなる。したがって、人工バリア中の地下水流速はイライト化の進行に伴って大きくなり、ガラス固化体の溶解が拡散律速から溶解反応律速となるため、溶解が促進されることも考えられる。また、鉱物に変化することによって放射性核種に対する吸着分配係数も変化する。イライト化率は時間の関数であるので、空隙率、密度、流速、分配係数、したがって、遅延係数も時間の関数となる。

##### 4.1 仮定

解析体系として、中心部に球状のガラス固化体がありその周囲をベントナイトが取り巻く構成を考え、以下の仮定を設定する。

1. 球 1 次元座標系とする。
2. 空隙は水で飽和し、水は静止している。
3.  $\text{K}^+$  イオンはベントナイト外側に存在する地下水から供給され、拡散によりベントナイト中を輸送される。
4. ベントナイトは、初期状態で 100% スメクタイトとする。
5. 純粋なイライトの  $\text{K}_2\text{O}$  含有量は、文献 [9] から 9.07% とする。
6. ベントナイトと周囲岩盤との境界でカリウム濃度は常に一定とする。
7. ガラスとベントナイトとの境界で  $\text{K}^+$  イオンの行き来はないものとする。
8. 各々のモデルの計算において、諸物性値は一定とする。



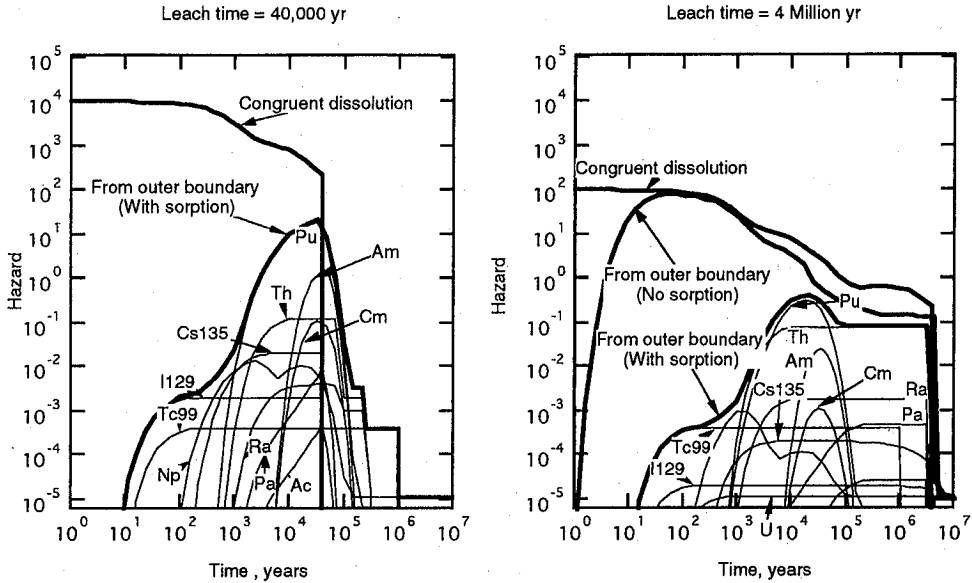


図5 人工バリア外側境界での全ハザード

4.2 数学モデル

イライト化によるスメクタイトの割合の減少を表わす式を以下に示す [9]。

$$\frac{\partial c^{sm}}{\partial t} = -k(c^{sm})^\alpha \left(\frac{c^K}{c^{Na}}\right)^\beta \left(\frac{c^K}{c_0^K}\right), \quad t > 0 \quad (56)$$

ここで、 $c^{sm}$ : ベントナイト中のスメクタイトの割合、 $k$ : イライト化速度定数 [ $\text{sec}^{-1}$ ] ( $k = Ae^{-E/RT}$ ,  $A$  = 頻度因子,  $E$  = 活性化エネルギー,  $T$  = 絶対温度,  $R$  = ガス定数),  $\alpha + \beta$ : 反応次数,  $c^K$ : 空隙水中のカリウム濃度 [ppm],  $t$ : 時間 [sec],  $c^K/c^{Na}$ : 空隙水中のカリウムとナトリウムの濃度比,  $c_0^K$ : ベントナイト層の外側に存在する地層間隙水中の  $K^+$  濃度である。ベントナイト中では  $c^K$  が  $C_0$  よりも小さいことを考慮して、イライト化速度の減少を表わす  $c^K/c_0^K$  項を加えた。

ベントナイト中のスメクタイトの割合と  $K_2O$  濃度は、仮定 5. により、

$$c^{sm} = 1 - \frac{c^{K_2O}}{9.07[\% K_2O]} \quad (57)$$

ここで、 $c^{K_2O}$ : ベントナイト中の  $K_2O$  濃度 [wt%] である。

従って、

$$\delta c^{sm} = -\frac{\delta c^{K_2O}}{9.07[\% K_2O]} \quad (58)$$

質量保存則より、ベントナイト空隙水中から反応によって消費されたカリウムの量は、ベントナイト固相に加えられたカリウムの量と等しくなければならない。固相と液相間の密度、体積、濃度の単位の相違を考慮し、上式を式 (56) に代入するとイライト化による空隙水中のカリウム濃度の変化の式が次のように得られる：

$$\frac{\partial c^K}{\partial t} = W(c^{sm})^\alpha \quad (59)$$

$$W = 9.07[\% K_2O] \left(\frac{\rho_s}{\rho_w}\right) \left(\frac{1-\epsilon}{\epsilon}\right) \left(\frac{2W_K}{W_{K_2O}}\right) \left(\frac{10^6[\text{ppm}]}{10^2[\text{wt}\%]}\right) k \left(\frac{c^K}{c^{Na}}\right)^\beta \quad (60)$$

ここで、 $\rho_s$ : ベントナイトの固相の密度 [ $\text{g}/\text{cm}^3$ ]、 $\rho_w$ : ベントナイトの空隙水の密度 [ $\text{g}/\text{cm}^3$ ]、 $\epsilon$ : 空隙率、 $W$ : 原子質量、である。

球 1 次元座標系における支配方程式は以下のように記述される [9]。

$$\frac{\partial c^K}{\partial t} = D \frac{1}{r^2} \cdot \frac{\partial}{\partial r} \left( r^2 \frac{\partial c^K}{\partial r} \right) - W(c^{sm})^\alpha \left( \frac{c^K}{c_0^K} \right),$$

$$r_1 < r < r_2 \quad (61)$$

ここで、 $D$ はカリウムの半径方向の拡散係数 [ $\text{cm}^2/\text{sec}$ ] である。

$c^K/c^{Na}$ は、文献[10]からの熱力学データと van't Hoff 方程式を使うことにより計算することができる。

$$d \ln \left( \frac{c^K}{c^{Na}} \right) = - \left( \frac{\Delta H}{R} \right) d \left( \frac{1}{T} \right) \quad (62)$$

ここで、 $\Delta H$ はエンタルピーの変化であり、100℃のとき、 $c^K/c^{Na}$ は、0.095である[10]。

(56)式と(61)式は、以下の初期、境界条件で解く。

空隙水中において、

$$c^K(r, 0) = c_0^K, \quad r_1 < r < r_2,$$

固相中において、

$$c^{sm}(r, 0) = 1, \quad r_1 \leq r \leq r_2,$$

ガラス/ベントナイト境界において、

$$\left. \frac{\partial c^K}{\partial r} \right|_{r=r_1} = 0, \quad t > 0,$$

ベントナイト/岩盤境界において、

$$c^K(r_2, t) = c_0^K, \quad t > 0.$$

これらの問題を有限差分法で解いた。

#### 4.3 計算結果

表2に数値計算で用いたパラメータの値をまとめる。

図6に、100℃の条件下において計算されたカリウム濃度、イライト化率を示す。

カリウム濃度の変化のグラフをみると、ある時間以後ベントナイト中のカリウム濃度は定常状態になると見なせる。イライト化率のグラフをみると、時間経過にともないイライト化はどの場所においてもほぼ一様に進行していくという結果になった。これは、ベントナイトの空隙水中へのカリウムの輸送に比べイライト化が非常に遅いからであると考えられる。

そこで、ガラス固化体から50cmの場所におけるイライト化率を横軸に時間をとりプロットした(図7)。人工バリア設置後1万年経過後におけるイライト化率は150℃で約50%、100℃で約0.6%、そして50℃では約0.06%である。廃棄物の埋設後、100年経つと、高々40℃程度になるという報告[7]もあるのでベントナイトは緩衝材としての安定性を満たしていると考えられるが、

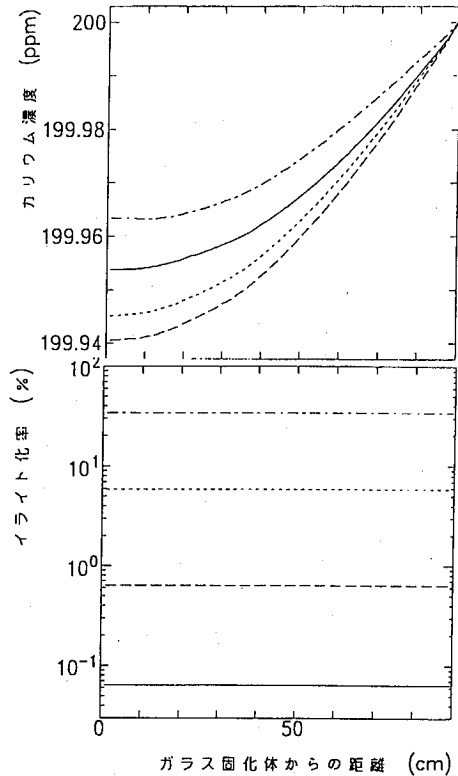


図6 100℃におけるカリウム濃度とイライト化率の変化

処分場の温度が緩衝材の性能に大きく依存していることがわかる。

#### 5. まとめにかえて一人工バリア性能評価上の課題一

本稿で示した安全評価の実例は、冒頭にも述べたように、初期段階から比べて格段の精緻化が図られたとはいえ、地層処分システムの挙動に大きな影響を与える現象やパラメータをすべて取り込んだものとはなっていない。今後の課題と思われるものを、思い付くまま指摘して本稿を締めくくりたいと思う。

1. 既存のモデルに更に改良が必要と思われるもの  
地球化学的プロセスの複合した核種移行モデル、例えば、前節でもふれたように、ベントナイトの経時変化とそれに伴う人工バリアの性能の変化は不確実性の検討にも大きな意味をもつであろう。また、近年詳しい研究が進んでいる吸着メカニズムや放射性核種の溶解度決定のメカニズムに対し

表 2 入力データ

パラメータ	表記	入力値
活性化エネルギー	$E$	30 kcal/mol *
頻度因子	$A$	$1.0 \times 10^6 \text{ sec}^{-1}$ *
反応速度定数	$k = Ae^{E/RT}$	
50 °C のとき	$k$	$4.2 \times 10^{-15} \text{ sec}^{-1}$
100 °C のとき	$k$	$2.3 \times 10^{-12} \text{ sec}^{-1}$
150 °C のとき	$k$	$2.8 \times 10^{-10} \text{ sec}^{-1}$
50 °C のとき	$c^K/c^Na$	0.070
100 °C のとき	$c^K/c^Na$	0.095
150 °C のとき	$c^K/c^Na$	0.120
ベントナイトの空隙率	$\epsilon$	0.1
ベントナイトの密度	$\rho_a$	$2.5 \text{ g/cm}^3$
空隙水の密度	$\rho_w$	$1.0 \text{ g/cm}^3$
岩盤中の濃度	$c_0^K$	200 ppm
反応次数	$\alpha + \beta$	5
ガラス固化体からの距離	$r_1$	33.7 cm
	$r_2$	123.3 cm
$K^+$ の拡散係数	$D$	$1.3 \times 10^{-7} \text{ cm}^2/\text{sec}$
タイムステップ	$\Delta t$	$10^3 \text{ year}$

\*:[11]

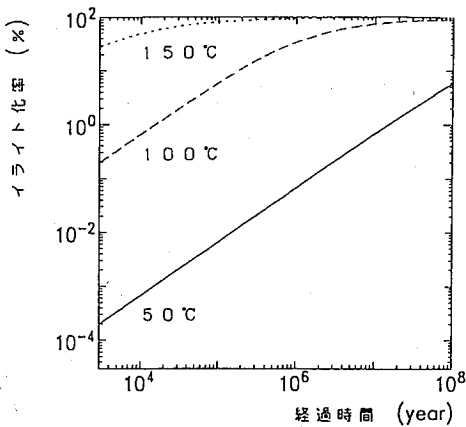


図 7 イライト化率の時間変化

ては、モデル開発の側から更に積極的にアプローチして統合化安全評価モデルに取り込んでいくことが必要である。

2. 新たなモデルの開発が必要と思われるもの

例えば、オーバーパックの腐食に伴う人工バリア内部の環境変化について更に解析が必要である。腐食生成物の空隙率、透水性、機械的特性、密度、核種吸着性能、腐食に伴う水素ガスの発生とそれによる酸化還元雰囲気の変化、ベントナイトへの影響、等、人工バリアの性能に直接影響を与えるもので、統合化された安全評価モデルの中に取り込まれていない事象がまだまだ多い。

また、人工バリアと直接接するニアフィールド領域の岩盤における地下水流動と物質移行は、従来あまり詳しく解析されていないが、人工バリアと天然バリアをつなぐ部分であり、特に人工バリアの性能評価結果に影響を及ぼす可能性がある。坑道周辺の弛み領域の影響、擾乱を受けた地球化学的環境の処分場閉鎖後の推移、等が項目として考えられる。

3. 不確実性の取り扱い

不確実性の取り扱いは、従来からの懸案である。しかし、人工バリアにおけるさまざまなメカニズムが解明され、人工バリアと天然バリアが担う役

割も変化している。具体的には、人工バリアに重点が移り、天然バリアに対しては人工バリアが十分な隔離性能を発揮できる環境維持を期待するようになっている。この考え方を更に進めると、不確実性についても、人工バリアが期待される機能を発揮する期間における不確実性とそれを越えた期間における不確実性とに分けることによって、不確実性と時間の関係に対する考え方を整理できるかも知れない。

## 6. 参考文献

- [1] *Disposal of Radioactive Waste: Review of Safety Assessment Methods*, OECD/NEA (1991)
- [2] 安：「放射性廃棄物処分の安全評価」、エネルギーレビュー、**12**, 28 (1989).
- [3] Bjurström, S., and J. Y. Barre: *Proc. Int. Conf. Safe Management Disp. Nucl. Waste, Safewaste 93*, Avignon, pp.22-42, **1** (1993).
- [4] 大江、他：日本原子力学会誌、**35**(5), 420 (1993).
- [5] Ohe, et al.: *Waste Management*, **11**, 191 (1991).
- [6] P. L. Chambré, et al.: *Analytical Performance Models for Geologic Repositories*, Lawrence Berkeley Lab., LBL-14842 (1982).
- [7] 安、他：日本原子力学会誌投稿中
- [8] Hoffman, J., and J. Hower: *Aspects of Diagenesis: Soc. Econ. Paleont. Mineral. Spec. Paper*, **26**, 55 (1979).
- [9] Altaner, S. P.: *Geochim. Cosmochim. Acta*, **53**, 923 (1989).
- [10] Robie, R. A., et al.: *Geol. Survey Bull.*, **1452**, 456 (1978).
- [11] Pytte, A. M., and R. C. Reynolds: *Soc. Econ. Paleont. Mineral. Spec. Paper*, (1988)