

## 崩壊連鎖に伴う人工バリア中核種移行への影響要因の検討†

大井貴夫 ††

梅木博之 †††

宮原要 †††

緩衝材中を移行する核種の濃度が親核種の崩壊に伴って溶解度を越え、移行途中で沈澱が生じる現象を、その場所での核種の同位体存在比を考えた溶解度の割り当てによる効果を含めて解析した。解析に当たっては、崩壊連鎖に含まれる核種の移行パラメータの影響を考慮した。その結果、沈澱現象や同位体存在比の時間的・空間的変化を考慮しない従来の多くの解析モデルは、人工バリアからの核種放出率を高めに与えるという意味で、安全評価上の保守性の観点から受け入れられるものであることが示された。また、これらの効果を含めた、より現実的なモデルによって、システムの安全裕度が大きく高まる可能性があることも確認された。

The migration of radionuclide through the buffer material was analyzed by considering the precipitation caused by decay-chain ingrowth. In the analysis, the temporal and spacial isotopic ratio in the buffer material was taken into account for determining the shared solubility for each radionuclide. The release rate of radionuclide from the outer surface of buffer material to surrounding rock is generally lower in such realistic analysis considering precipitation in the buffer material than calculated by the model neglecting precipitation. This result shows the model not considering such effects is more conservative for the safety assessment. It is also shown that the realistic analysis considering precipitation defined by the shared solubility can provide a large margin in the safety assessment.

## 1. はじめに

放射性核種が緩衝材中を移行する際、親核種の崩壊によって娘核種の濃度が溶解度を越え、移行途中で沈澱を生じる可能性がある。特に、個々の核種の溶解度はその場に存在する同位体の存在比によって元素の溶解度が割り当てられる(分割溶解度)ため、核種によっては溶解度が小さくなり、沈澱が生じやすくなると考えられる。沈澱現象を無視して解析を行うと、過飽和となった濃度プロファイルに従って核種が緩衝材中を移行する。また、同位体存在比の時間的・空間的変化(以下、同位体存在比の変化と記す)を無視すると、分割溶解度は元素の溶解度となり、沈澱は生じにくくなる。そのため、沈澱現象及び同位体存在比の変化を無視した解析を行う場合、これらを考慮した場合に比べて緩衝材からの核種の放出率が過剰に与えられる可能性がある。

これまで、緩衝材中の核種移行解析において、崩壊連鎖に伴う沈澱現象または同位体存在比の変化を考慮して扱うモデル、コードが開発され[1-4]、これらの影響に対する検討が行われてきた。その結果、沈澱現象を無視する場合は、放出率が高く見積もられることが示され

ている[5-6]。また、沈澱現象に加えて同位体存在比の変化を考慮した研究によっても、これらの現象を無視した場合と比べて、緩衝材からの核種の放出率が低くなることが示されている[7]。さらに、沈澱距離(ガラス固化体/緩衝材境界から沈澱物の先端までの距離)の進展による核種の放出率への影響が、解析解を用いて緩衝材中での親核種の崩壊量及び溶解度の違いの観点から定量的に検討された[8]。

沈澱現象や同位体存在比の変化を考慮した場合、核種移行解析の結果に及ぼす影響の程度は、核種移行パラメータにも依存する。そのため、これらの核種移行パラメータの変動についても併せて検討しておくことが重要と考えられる。例えば、沈澱現象や同位体存在比の変化を無視することによって親核種の緩衝材からの放出率が高目に与えられた場合、緩衝材中での親核種の崩壊量は少なくなり、核種移行パラメータによってはその娘核種の放出率がこれらの現象を考慮する場合に比べて低く見積もられる可能性がある。娘核種に注目すれば、この場合、沈澱現象や同位体存在比の変化を考慮しないモデルの方が安全評価上保守的とはならない。

本研究では、[9]の検討をさらに発展させ、溶解度と分配係数をパラメータとした解析を行い、沈澱現象及び同位体存在比の変化を考慮する場合としない場合の緩衝材からの核種放出率を解析した。それに基づき、沈澱が発生する核種の娘核種への影響を含め、沈澱現象及び同位体存在比の変化をモデル上で考慮することが、性能評価上どのような意味を有するかについて検討した。

† The Effects of Decay Chain-Ingrowth on Nuclide Migration in the Engineered Barrier System, by Takao Ohi, Hiroyuki Umeki and Kaname Miyahara

†† 動力炉・核燃料開発事業団東海事業所 Tokai Works, Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation

††† 動力炉・核燃料開発事業団 Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation

## 2. 評価方法

### 2.1 概要

緩衝材中での沈殿現象及び同位体存在比の変化を考慮できる1次元の円筒座標系の解析コード(有限差分法)を用い、溶解度、分配係数をパラメータとし、沈殿現象及び同位体存在比の変化を考慮することによる緩衝材からの核種の放出率への影響を評価した。

評価においては、このような影響が特徴的に現れるものとして、主に以下の2種類の核種に注目した。

1. 過飽和が生じる核種
2. 過飽和が生じる核種の娘核種

娘核種の緩衝材からの放出率は親核種の崩壊・移行挙動によって変化する。そこで1.では、過飽和が生じる核種の放出率に着目し、親核種の分配係数が変化した場合の沈殿現象の影響を検討した。

2.では、緩衝材中で過飽和が生じる核種の娘核種の放出率に着目し、溶解度、分配係数が変化した場合の沈殿現象及び同位体存在比の変化の影響を検討した。

### 2.2 評価モデル

円筒型のガラス固化体、緩衝材からなる人工バリアを考え、核種の放出は円筒の半径方向に一樣に起こるとした。人工バリアの構成要素であるオーバーバックは、核種の溶出開始時期(処分後1000年)のみを規定するものとした。核種のガラス固化体からの溶出に関しては、溶解度制限を考えた。また、緩衝材/岩盤境界では、濃度が0となる境界条件を採用した。緩衝材中での物質移動は拡散のみによって起こり、核種の緩衝材中での吸着は瞬時局所平衡が成り立つものとし、線型吸着を仮定した。沈殿現象を考慮する場合は、過飽和が瞬時に沈殿し、沈殿物は拡散・吸着しないことを仮定した。また、沈殿した核種の崩壊についても考慮した。緩衝材中での同位体存在比の変化を考慮する場合は、緩衝材の液相中に存在する同位体のみを考慮して同位体存在比を任意の位置、時間毎に算出した。この場合、沈殿物の生成/再溶解はこの値から求められる分割溶解度によって判定され、ガラス固化体からの核種の溶出はガラス固化体中の核種の同位体存在比の変化を用いて得られる分割溶解度で制限される(緩衝材中の同位体存在比の影響は無視)。以下にこのモデルの数学的定式化を示す。

[基本方程式]

$$R_i \frac{\partial C_i}{\partial t} = D_{p_i} \left( \frac{\partial^2 C_i}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial C_i}{\partial r} \right) - \lambda_i R_i C_i + \lambda_{i-1} R_{i-1} C_{i-1} - k_i (C_i - C_i^*) U(C_i - C_i^*, P_i) \quad (1)$$

$$\frac{dP_i}{dt} = k_i (C_i - C_i^*) U(C_i - C_i^*, P_i) - \lambda_i P_i + \lambda_{i-1} P_{i-1} \quad (2)$$

$R_i$ : 核種  $i$  の遅延係数 [-]

$C_i$ : 核種  $i$  の液相中の濃度 [g/m<sup>3</sup>]

$D_{p_i}$ : 核種  $i$  の空隙水中の拡散係数 [m<sup>2</sup>/y]

$\lambda_i$ : 核種  $i$  の崩壊定数 [1/y]

$k_i$ : 核種  $i$  の沈殿、再溶解の反応速度 [1/y]

$U$ : 沈殿の評価式 [-]

$C_i^*$ : 核種  $i$  の分割溶解度 [g/m<sup>3</sup>]

$$C_i^*(t, r) = C^* I_i(t, r)$$

$C^*$ : 核種  $i$  が属する元素の溶解度 [g/m<sup>3</sup>]

$I_i$ : 緩衝材液相中の核種  $i$  の同位体存在比 [-]

$$I_i(t, r) = C_i(t, r) / \sum C_i(t, r)$$

$P_i$ : 核種  $i$  の沈殿物の濃度 [g/m<sup>3</sup>]

$t$ : 溶出開始後の経過時間 [y]

$r$ : ガラス固化体中心からの距離 [m]

#### ・遅延係数

$$R_i = 1 + (1 - \varepsilon) \rho K d_i / \varepsilon \quad (3)$$

$\varepsilon$ : 緩衝材の空隙率 [-]

$\rho$ : 緩衝材の真密度 [g/m<sup>3</sup>]

$K d_i$ : 核種  $i$  の緩衝材に対する分配係数 [m<sup>3</sup>/g]

#### ・沈殿の評価式

$$U(C_i - C_i^*, P_i) = \begin{cases} 1, & C_i - C_i^* > 0 \text{ 又は } P_i > 0 \\ 0, & C_i - C_i^* \leq 0 \text{ かつ } P_i = 0 \end{cases} \quad (4)$$

[境界条件]

・内側(ガラス固化体/緩衝材)境界: 溶解度制限

$$C_i^*(t, r) = C^* I_{0_i}(t), \quad (r = r_1) \quad (5)$$

$r_1$ : ガラス固化体中心からガラス固化体/緩衝材境界までの距離 (m)

$I_{0_i}$ : ガラス固化体中での核種  $i$  の同位体存在比 (-)

・外側(緩衝材/岩盤)境界: 濃度 0

$$C_i(t, r) = 0, (r = r_2) \quad (6)$$

$r_2$  : ガラス固化体中心から緩衝材/  
岩盤境界までの距離 (m)

[インベントリの経時変化]

$$\frac{dm_i}{dt} = -\lambda_i m_i + \lambda_{i-1} m_{i-1} - \varepsilon A J_{0i} \quad (7)$$

$$J_{0i} = -D_{pi} \frac{\partial C_i}{\partial r} (r = r_1) \quad (8)$$

$m_i$  : ガラス固化体中の核種  $i$  の量 [g]

$A$  : 緩衝材内側表面積 [m<sup>2</sup>]

$J_{0i}$  : 核種  $i$  の溶出率 [g/m<sup>2</sup>/y]

このモデルに基づいた解析コードが、既存の沈殿現象を考慮できるコード [4] を改良することによって作成された。このコードは 4 崩壊系列 5 連鎖の複数崩壊系列核種の移行を沈殿現象及び液相中の同位体存在比の変化を考慮して同時に解析する機能を有するものである。

2.3 評価ケースの設定

沈殿現象及び同位体存在比の変化の考慮の仕方について、5 つの評価ケースを設定した。単独核種の解析では沈殿が発生しないため、沈殿現象を考慮することによる違いは生じない。これらの組み合わせを表 1 に示す。

表 1 評価ケース

	沈殿無視	沈殿考慮
同位体存在比無視 単独	ケース 1	
同位体存在比無視 3 連鎖 1 系列	ケース 2	ケース 3
同位体存在比考慮 5 連鎖 4 系列	ケース 4	ケース 5

2.4 評価核種の設定

Pu-239, Np-237, U-235, U-233 を評価核種として選択した。これらは、沈殿が発生する可能性のある核種及びその娘核種である。また、同位体存在比の変化を詳細に考慮するため、計算対象核種として上記核種の同位体を崩壊連鎖に含めた。これらの核種を表 2 に示す。

表 2 評価及び解析に用いた核種

系列	崩壊連鎖
4N	<sup>248</sup> Cm → <sup>244</sup> Pu → <sup>240</sup> Pu → <sup>236</sup> U
4N+1	<sup>245</sup> Cm → <sup>241</sup> Pu → <sup>241</sup> Am → <sup>237</sup> Np → <sup>233</sup> U
4N+2	<sup>248</sup> Cm → <sup>242</sup> Pu → <sup>238</sup> U → <sup>234</sup> U
4N+3	<sup>247</sup> Cm → <sup>243</sup> Am → <sup>239</sup> Np → <sup>235</sup> Pu → <sup>231</sup> U

2.5 パラメータの設定

変動パラメータとして扱う溶解度、分配係数の値の範囲は、高レベル放射性廃棄物地層処分研究開発の技術報告書 [10] での検討を参考にして設定した (表 3, 4)。設定においては、崩壊連鎖上位核種のパラメータの変動による下位核種への影響を検討するため、上位核種のパラメータを細かく設定した。

表 3 溶解度 (mol/l)

	Pu	Np	U	Cm, Am
溶解度	10 <sup>-11</sup>	10 <sup>-12</sup>	10 <sup>-10</sup>	10 <sup>-9</sup>
	10 <sup>-11</sup>	10 <sup>-12</sup>	10 <sup>-10</sup>	10 <sup>-7</sup>
	10 <sup>-7</sup>	10 <sup>-12</sup>	10 <sup>-10</sup>	10 <sup>-5</sup>

2.6 計算条件

解析期間を 10<sup>6</sup> 年とした。拡散係数等の解析に用いる他のパラメータは [10] での設定に準じた。また、溶出開始時期の核種インベントリは、崩壊コード ORIGEN 2[11] を用いて計算した (表 5)。ケース 1 の単独核種での評価の場合は、初期インベントリとして崩壊連鎖上位核種のインベントリを全て加えた値を用いた。

3. 結果及び考察

沈殿現象及び同位体存在比の変化の影響を溶解度、分配係数を変化させてそれぞれ解析し様々な結果を得た。以下、これらを示し検討を行う。

3.1 過飽和が生じる核種への影響

3.1.1 Pu-239 の放出率への影響

表 4 分配係数 (m<sup>3</sup>/Kg)

	Pu	Np, U	Cm, Am
分配係数	0.1	0.01	0.01
			0.1
			1.0
			10.0
	10.0	0.1	0.01
			0.1
			1.0
			10.0

表 5 計算条件

核種の溶出開始時期		処分後1000年(オーバーバックの寿命を1000年と仮定)	
拡散係数		3.0×10 <sup>-10</sup> m <sup>2</sup> /s	
緩衝材の厚さ		98 cm	
緩衝材の空隙率		0.33	
緩衝材の真密度		2.7 g/cm <sup>3</sup>	
核種	半減期 y	初期量 g	同位体比
<sup>248</sup> Cm	3.4×10 <sup>5</sup>	3.5×10 <sup>-5</sup>	4.11×10 <sup>-5</sup>
<sup>247</sup> Cm	1.6×10 <sup>7</sup>	7.8×10 <sup>-4</sup>	9.05×10 <sup>-4</sup>
<sup>246</sup> Cm	4.7×10 <sup>3</sup>	8.0×10 <sup>-2</sup>	9.33×10 <sup>-2</sup>
<sup>245</sup> Cm	8.5×10 <sup>3</sup>	7.8×10 <sup>-1</sup>	9.05×10 <sup>-1</sup>
<sup>243</sup> Am	7.4×10 <sup>3</sup>	8.7×10 <sup>1</sup>	6.11×10 <sup>-1</sup>
<sup>241</sup> Am	4.3×10 <sup>2</sup>	5.5×10 <sup>1</sup>	3.88×10 <sup>-1</sup>
<sup>244</sup> Pu	8.3×10 <sup>7</sup>	1.6×10 <sup>-4</sup>	1.54×10 <sup>-6</sup>
<sup>242</sup> Pu	3.8×10 <sup>5</sup>	3.8×10 <sup>0</sup>	4.05×10 <sup>-2</sup>
<sup>241</sup> Pu	1.4×10 <sup>1</sup>	1.3×10 <sup>-3</sup>	1.37×10 <sup>-5</sup>
<sup>240</sup> Pu	6.5×10 <sup>3</sup>	3.8×10 <sup>1</sup>	3.96×10 <sup>-1</sup>
<sup>239</sup> Pu	2.4×10 <sup>4</sup>	5.3×10 <sup>1</sup>	5.63×10 <sup>-1</sup>
<sup>239</sup> Np	6.4×10 <sup>-3</sup>	7.5×10 <sup>-5</sup>	8.90×10 <sup>-6</sup>
<sup>237</sup> Np	2.1×10 <sup>6</sup>	8.4×10 <sup>2</sup>	9.99×10 <sup>-1</sup>
<sup>238</sup> U	4.5×10 <sup>9</sup>	1.9×10 <sup>3</sup>	9.82×10 <sup>-1</sup>
<sup>236</sup> U	2.3×10 <sup>7</sup>	1.3×10 <sup>1</sup>	6.55×10 <sup>-3</sup>
<sup>235</sup> U	7.0×10 <sup>8</sup>	2.1×10 <sup>1</sup>	1.05×10 <sup>-2</sup>
<sup>234</sup> U	2.5×10 <sup>5</sup>	2.4×10 <sup>0</sup>	1.19×10 <sup>-3</sup>
<sup>233</sup> U	1.6×10 <sup>5</sup>	2.5×10 <sup>-1</sup>	1.25×10 <sup>-4</sup>

図 1、2 に、親核種である Am の分配係数を変化させた場合の Pu-239 の放出率を、ケース 4(沈澱現象無視)及びケース 5(沈澱現象考慮)について比較した結果を示す。図 1、2 のパラメータの組み合わせの違いは Pu の分配係数である。

図 1 では、ケース 4 の放出率が、ケース 5 の放出率に比べてかなり高くなっているのに対して、図 2 では、その違いは小さい。また、図 1 から、ケース 4 の場合は、Am の分配係数が 10[m<sup>3</sup>/Kg] の場合に Pu-239 の放出率が最も高くなり、ケース 5 の場合は、Am の分配係数が 1.0[m<sup>3</sup>/Kg] の時に最も高くなるのがわかる。一方、図 2 では、Am の分配係数が 1.0[m<sup>3</sup>/Kg] の時に Pu-239 の放出率が最も高くなるのがわかる。設定した値の範囲内で Pu、Am の溶解度の組み合わせを変えた場合及び、同位体存在比の変化を無視した場合についても、ケース 4 とケース 5 において、Pu、Am の分配係数を変化させた場合の放出率への影響の違いが同様に見られた。これらの結果については以下のように説明できる。

緩衝材中での Pu の濃度が過飽和となる程度は、Am の分配係数が大きいほど高いと考えられる。沈澱現象を無視する場合、Pu-239 の放出率は、過飽和となる Pu の濃度プロファイルの影響を受け高くなる。従って、Am

の分配係数が大きいほど Pu-239 の放出率は高くなる。

沈澱現象を考慮する場合、Pu-239 の過飽和部分は沈澱物に置き換えられ移行しなくなる。Am の分配係数が大きい場合は、Pu-239 の沈澱量が増加し、沈澱距離は長くなる。この結果、緩衝材中の Pu-239 の濃度勾配が急になり、放出率が増加する。さらに Am の分配係数が大きくなると拡散による Am-243 の移行が抑制され、Am-243 の崩壊がガラス固化体/緩衝材境界近傍で起こるようになり、沈澱距離は短くなる。この結果、緩衝材中の Pu-239 の濃度勾配は緩やかになり、Pu-239 の放

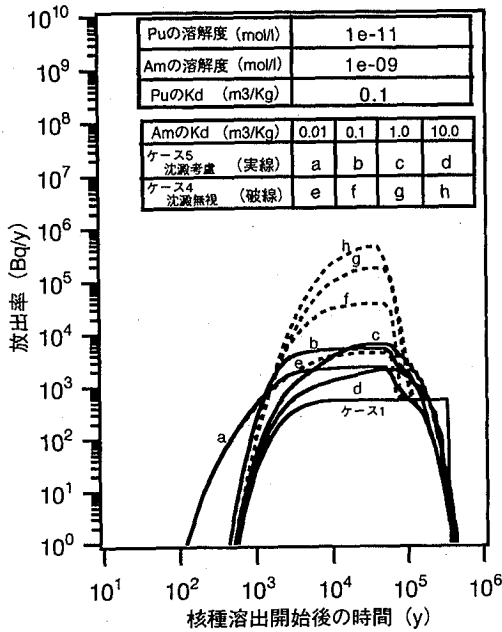


図1 沈澱現象の Pu-239 の放出率への影響

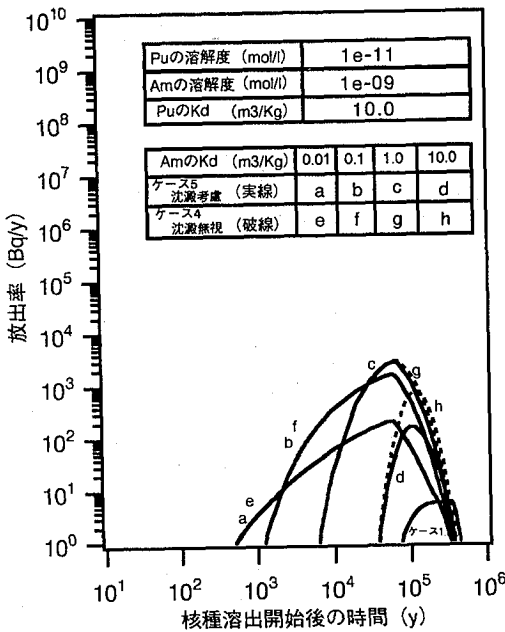


図2 沈澱現象の Pu-239 の放出率への影響

率は逆に低くなる。このことは図3のPu-239の沈澱距離とAmの分配係数との関係から確かめられる。図3

より、Pu-239の沈澱距離は、設定したPu、Amの溶解度、Puの分配係数の組み合わせに関わらず、Amの分配係数が1.0[m<sup>3</sup>/Kg]のときに最大になることがわかる。

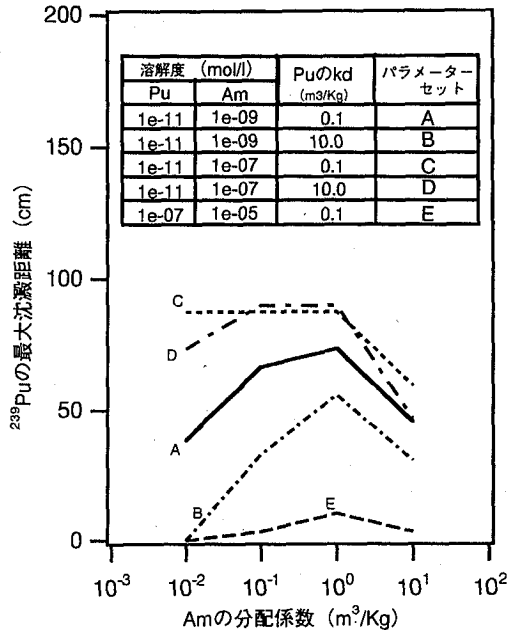


図3 <sup>239</sup>Puの最大沈澱距離とAmの分配係数の関係

Puの分配係数が大きい場合は、緩衝材中へのPu-239の吸着量が増加するため、Am-243の崩壊によって生成するPu-239の過飽和部分の移行が抑制され、過飽和状態のPuによる濃度プロファイルへの影響は小さくなる。従って、過飽和が生じる核種自身の分配係数が大きい場合は、沈澱現象の影響は小さい。

### 3.1.2 Np-237の放出率への影響

図4に、Np-237の放出率をケース4及び5について比較した結果を示す。また、Np-237の沈澱距離と親核種であるAmの分配係数の関係を図5に示す。図5のA~Eは、図3のA~Eのパラメータの組み合わせと各々同じ組み合わせを示している。図4からNp-237の場合も、ケース4の放出率がケース5の放出率に比べてかなり高くなっていることがわかる。またケース4の場合は、Amの分配係数が10[m<sup>3</sup>/Kg]の時にNp-237の放出率が最も高くなり、ケース5の場合はAmの分配係数が0.1[m<sup>3</sup>/Kg]の時に最も高くなる。この違いは、Pu-239の場合と同様に説明できる。

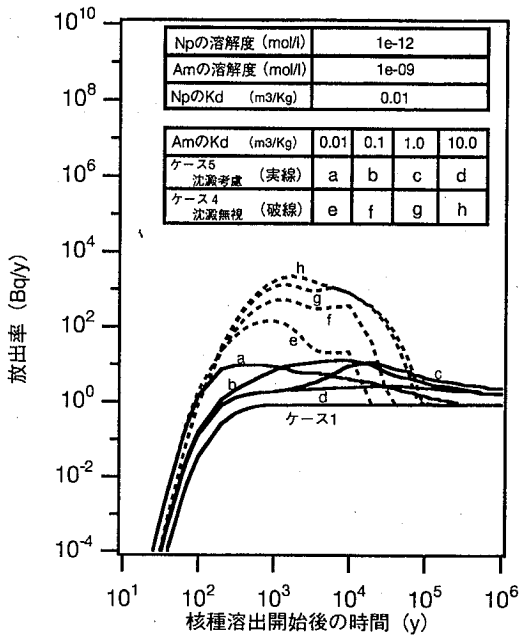


図4 沈澱現象の Np-237 の放出率への影響

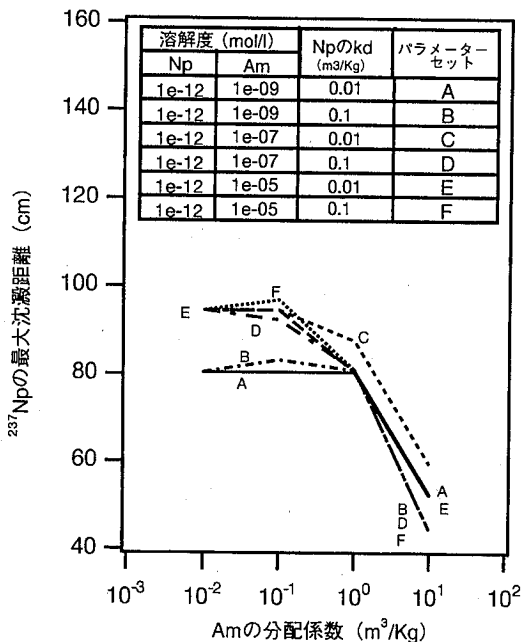


図5 <sup>237</sup>Np の最大沈澱距離と Am の分配係数の関係

Np-237 自身の分配係数の違いによる変化は見られな

かった。これは、設定した Np-237 の分配係数の範囲が小さかったためと考えられる。Np-237 の最大放出率を与える Am の分配係数値は、Pu-239 に比べて小さいものとなっている。これは、親核種である Am-241 の半減期が短いため、分配係数が相対的に小さい場合でも Am-241 が緩衝材中で多量に崩壊し、また、その分布が緩衝材/岩盤境界近傍にまで達し、放出率への影響が現われやすくなるためと考えられる。

3.2 過飽和が生じる核種の娘核種への影響

3.2.1 U-233 の放出率への影響

図6、7に、Np-237 の娘核種である U-233 の緩衝材からの放出率を各ケースについて比較した結果を示す。図6、7のパラメータの組み合わせの違いは Am の溶解度のみである。また、図6のパラメータの組み合わせに相当する Np-237 の結果が図4に示されている。

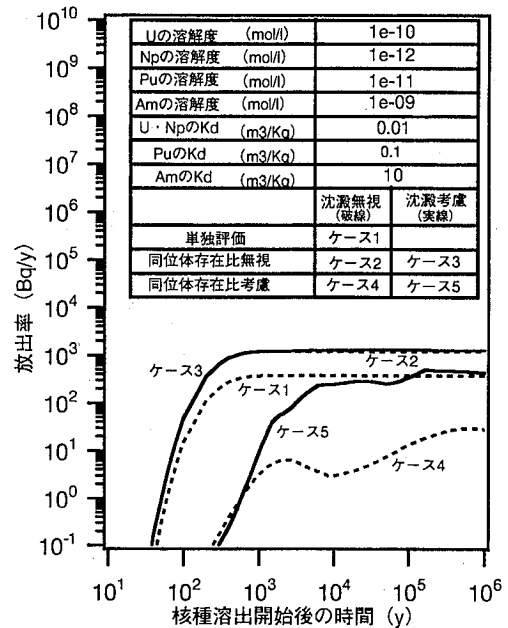


図6 沈澱現象及び同位体存在比の U-233 の放出率への影響

図6から、ケース5の場合の U-233 の最大放出率がケース4の結果よりも約20倍大きくなるのがわかる。また図7から、ケース4の場合の U-233 の放出率が 10<sup>3</sup> 年前後でピークを形成することがわかる。Np-237 の崩壊挙動と U-233 の放出率の関係に対する沈澱現象の影響は以下のようなものと考えられる。

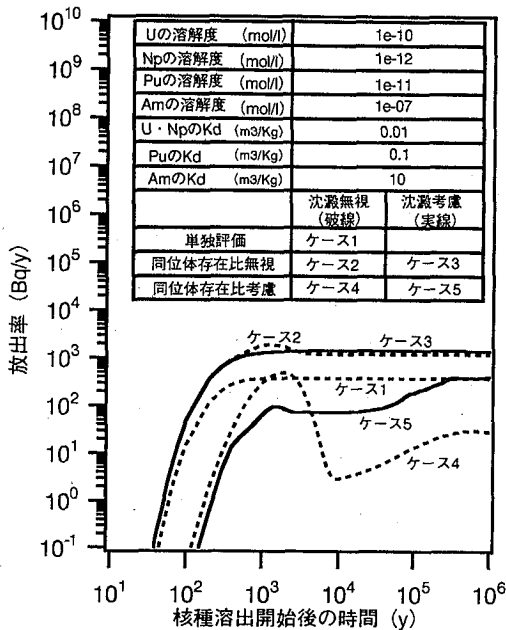


図7 沈澱現象及び同位体存在比の U-233 の放出率への影響

Np-237 の緩衝材中の濃度が過飽和となる場合に沈澱現象を無視すると、Np-237 は過飽和状態の濃度プロファイルに従って拡散移行し、緩衝材から放出される。一方、沈澱現象を考慮する場合は Np-237 の過飽和部分が沈澱に置き換えられ緩衝材中に留まるため、緩衝材中での Np-237 の崩壊量は沈澱現象を無視する場合に比べて増加する。Np-237 の緩衝材中での崩壊量の増加による U-233 の放出率への影響は、Np-237 の緩衝材中での崩壊量の空間分布に応じて変化する。Np-237 の崩壊量の空間分布はその沈澱距離によって変化し、沈澱距離が長い場合は、緩衝材/岩盤境界近傍での U-233 の生成量が増加し、放出率への影響は大きくなり、短いとその影響は小さい。

一方、U-233 自身の濃度が過飽和となる場合は、前述したように沈澱現象を無視した場合の放出率が高くなる。以上のことから、図 6、7 の結果は以下のように説明できる。

Am の溶解度が低い場合は、緩衝材中での U-233 の生成量は少なく、U-233 の濃度が過飽和となる程度は小さい。そのため、図 6 のケース 4 の場合の放出率の上昇は小さい (10<sup>3</sup> 年前後の放出率のピークが、Am-241 の崩壊によって生成する U-233 の過飽和の影響を示す)。沈澱現象を考慮する場合としない場合とで Np-237 の緩衝

材中での崩壊量の違いが顕著に現れるため、ケース 5 の U-233 の放出率はケース 4 に比べて高くなる。

Am の溶解度が高い場合は、緩衝材中での U-233 の生成量は多く、U-233 の濃度が過飽和となる程度は大きくなり、U-233 の過飽和状態での拡散による影響が放出率に顕著に現れる。そのため、図 7 のケース 4 の場合には、ピークがより高くなる。

沈澱現象及び同位体存在比の変化を無視するケース 2 の場合は、U-233 の溶解度が高く設定されることから、U-233 の濃度が過飽和となる程度は小さい。そのため、ケース 2 のピークの形状は目立たない。また、図 6、7 を見るとわかるように、Am の崩壊の影響が少なくなる 10<sup>3</sup> 年以降、沈澱現象を考慮し同位体存在比の変化を無視したケース 3 の結果が、ケース 2 の結果に比べてわずかに高くなる。これは、緩衝材中での Np-237 の崩壊量の違いによるものである。図 5 の E の Am の分配係数が 0.01 [m<sup>3</sup>/Kg] の場合のように、Np-237 の沈澱距離がより長くなるようなパラメータの組み合わせではこの違いが大きくなる。図 8 に、この場合の U-233 の結果を示す (ケース 2 とケース 3 の違いは約 1.5 倍)。

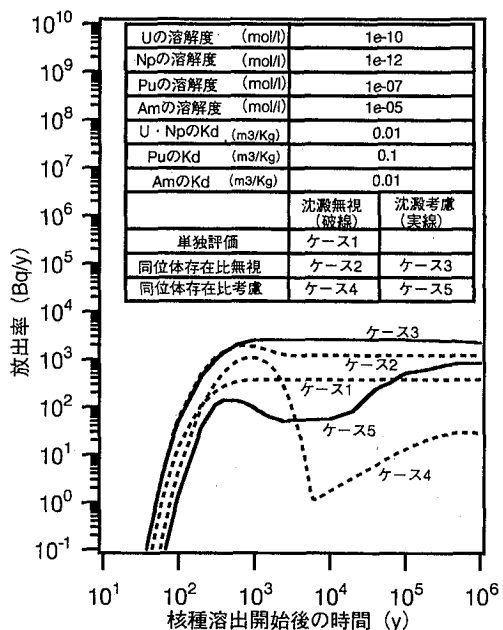


図8 沈澱現象及び同位体存在比の U-233 の放出率への影響

図 9 に U-233 の放出率を示す。これは、図 6、7 の場合に比べて Am と Pu の溶解度が高く、図 8 に比べ

て Am の分配係数が大きい場合の結果を示したものである。図 9 の結果は、ケース 5 の U-233 の放出率が  $10^4$  年前後に著しく低下することを示している ( ケース 5 の場合の  $10^4$  年での放出率は、単独評価のケース 1 に比べて約 5 桁、ケース 2、3 に比べて約 6 桁、ケース 4 に比べて 3~4 桁小さい)。同位体存在比の変化を考慮すると、U-233 の緩衝材からの放出率は、緩衝材中の U-235 の存在量の変化によって影響を受ける。 $10^4$  年前後には、Am-243、Pu-239 の緩衝材中での崩壊により U-235 の生成量が増加する。従って、この時期には、U-233 の同位体存在比が小さくなり、U-233 の分割溶解度が小さくなることによって、U-233 の放出率が低下すると考えられる。

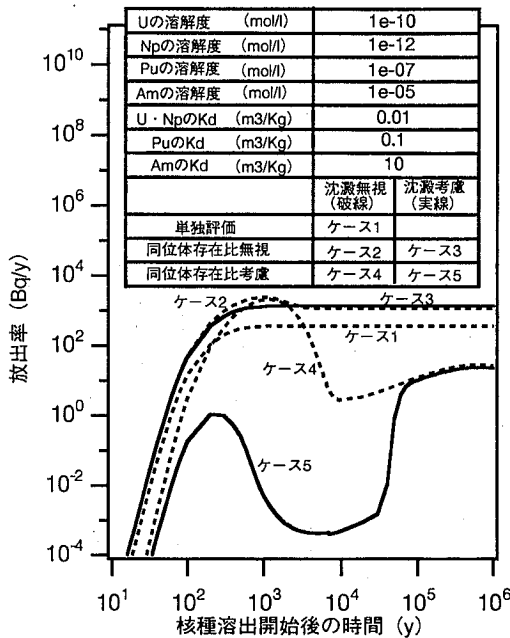


図 9 沈澱現象及び同位体存在比の U-233 の放出率への影響

Am-243、Pu-239 の緩衝材中での崩壊量は、Am、Pu の溶解度が小さいほど少なくなる。このような場合は、緩衝材中の U-235 の生成量の増加は少なく、U-233 の放出率への影響は小さくなる。従って、図 9 に比べて Am、Pu の溶解度が小さい図 6、7 の場合は、図 9 の結果に比べて、ケース 5 の U-233 の放出率の変化は小さい。また、図 3、5 の E の各々の結果から、図 8 の Am の分配係数が小さいパラメータの組み合わせの場合は、図 9 の Am の分配係数が大きい場合に比べて、Pu-239 の沈

澱距離は短く、Np-237 の沈澱距離は緩衝材/岩盤境界近傍に達していることがわかる。この場合、緩衝材/岩盤境界近傍での U-233 の生成量は、U-235 の生成量に比べて相対的に多く、この位置での U-233 の同位体存在比は増加する。そのため、図 9 の結果と比べてケース 5 の U-233 の放出率の変化は小さい。図 10 に Am の分配係数を変化させた場合の  $10^4$  年時点での U-235 と U-233 の緩衝材中での濃度プロファイルを示す。この図から、U-233 の同位体存在比が Am の分配係数の違いによって約 4 桁も変化することが確認でき、その影響が大きいことがわかる。

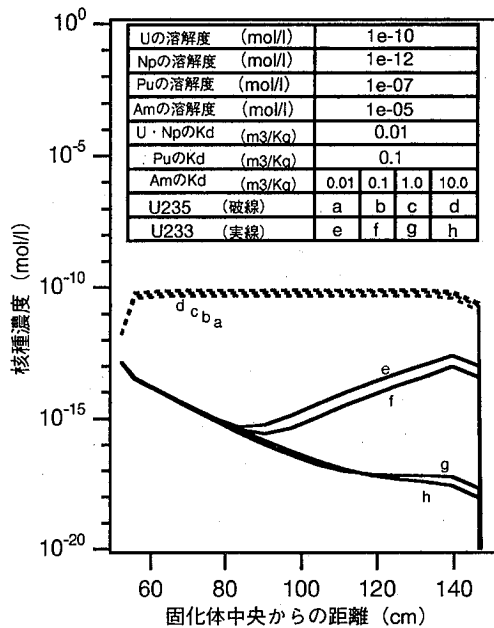


図 10  $10^4$ 年後の U-233、U-235 の濃度プロファイル

一方、同位体存在比の変化を考慮し、沈澱現象を無視する場合は、緩衝材液中中に存在する U-233 の濃度は溶解度によって制限されない。そのため、緩衝材液相中の同位体存在比の変化は、親核種の崩壊挙動を直接反映したものとなり、沈澱現象を考慮した場合に比べて、同位体存在比の変化の影響は小さい。

3.2.2 U - 235 の放出率への影響

図 11 に、図 9 と同じパラメータの組み合わせの場合の U-235 の放出率を示す。図 11 からわかるように、Pu-239 の娘核種である U-235 の場合は、図 7 で示した U-233



の結果と同様に、沈澱現象を無視した場合に U-235 の過飽和によるピークが出現し、Am-243、Pu-239 の崩壊の影響がなくなると、沈澱現象を無視した場合の放出率のカーブが沈澱現象を考慮した場合の放出率のカーブを下回る結果となった。

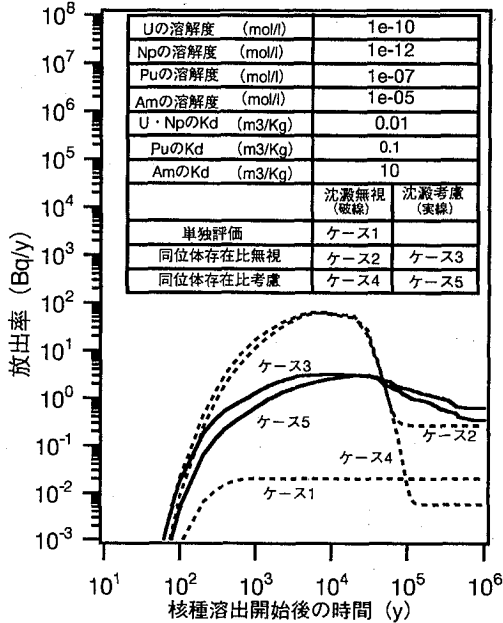


図 11 沈澱現象及び同位体存在比の U-235 の放出率への影響

3.2.3 同位体存在比が大きい娘核種への影響

Am-243、Np-239 の娘核種である Pu-239 に関しては、ケース 5 の最大放出率が、他のケースの最大放出率よりも高くなる (約 1.7 倍) 結果が得られた。この結果を図 12 に示す。これは、Pu の溶解度、分配係数が大きく、Am の分配係数が小さい場合の結果である。

Pu-239 は同位体存在比が大きいいため、同位体存在比の変化を考慮することによる影響は小さい。一方、親核種である Np-239 は同位体存在比が小さいため、同位体存在比の変化を考慮することによる影響は大きい。同位体存在比の変化を考慮する場合、Np-239 の溶解度は著しく低下し、濃度は過飽和状態となる。そのため、沈澱現象を考慮する場合、緩衝材中での Np-239 の崩壊量が多くなる。Np-239 の半減期は極めて短いことから、移行過程で崩壊し、沈澱現象を考慮するしないの違いはほとんどないと考えられる。しかし、Am の分配係数が小さく、

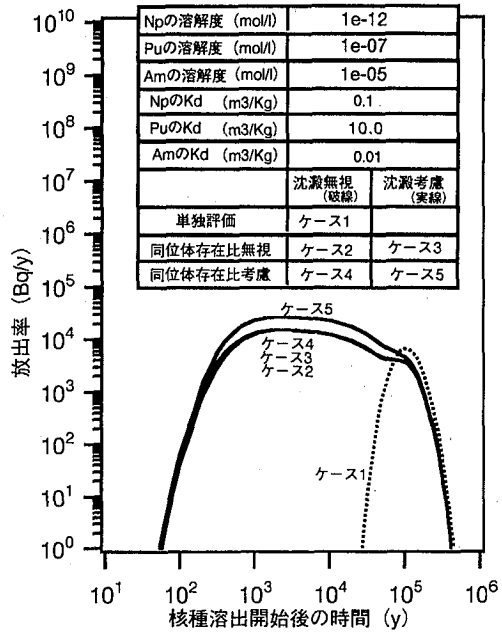


図 12 沈澱現象及び同位体存在比の Pu-239 の放出率への影響

Am-243 の崩壊が緩衝材 / 岩盤境界近傍で起こる場合はその影響が現れる可能性がある。図 12 の結果は、Pu-239 自身の濃度の過飽和が少なく、親核種である Np-239 の緩衝材 / 岩盤境界近傍での崩壊量の違いが顕著に現れることから、沈澱現象及び同位体存在比の変化を考慮した場合の放出率が他のケースの放出率よりも高くなったと考えられる。Pu-241 の娘核種である Am-241 についても、Pu-239 の場合と同様に Pu-241 の崩壊挙動の違いによって、ケース 5 の最大放出率が他のケースの最大放出率よりも高くなった (約 3.2 倍)。この結果を図 13 に示す。

4. まとめ

人工バリア中の核種移行解析において、沈澱現象または同位体存在比の変化を考慮することの影響を調べ、以下の結論を得た。

1. 親核種の崩壊の影響を受ける娘核種の緩衝材からの放出率は、親核種の崩壊量だけでなく、崩壊量の空間分布にも依存する。沈澱現象を無視する場合は、親核種の崩壊量のみが考慮され、崩壊量の空間分布の影響は考慮されにくい。そのため、親核種の崩壊の影響によって過飽和となる娘核種の

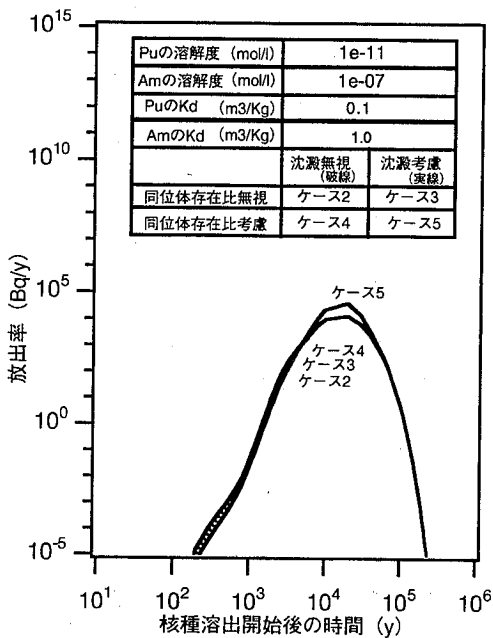


図 13 沈澱現象及び同位体存在比の Am-241 の放出率への影響

放出率を現実的に表すことができない。この傾向は過飽和となる娘核種自身の分配係数が小さい場合ほど顕著に現れる。

- パラメータの組み合わせによっては、同位体存在比の変化を考慮するしないに関わらず、沈澱現象を無視する場合の娘核種の放出率は、沈澱現象を考慮する場合の放出率に比べて低めに評価されることがある。このような結果は、親核種の過飽和の発生量が多く、娘核種自身の過飽和の程度が小さい場合に顕著に見られる。また、親核種の過飽和の発生量が多く、娘核種自身の過飽和の程度が小さいという条件に加えて、娘核種の同位体存在比が大きい場合には、沈澱現象と同位体存在比の変化を考慮して計算した最大放出率が、他のケースの結果よりも大きくなることもある。また、沈澱現象及び同位体存在比の変化を考慮する場合は、同位体存在比の小さい核種の放出率がパラメータの変動によって大きく変化する。沈澱現象及び同位体存在比の変化を無視する場合はこのような変化を表すことはできない。

今回設定した解析の範囲内では、多くの場合、沈澱現象及び同位体存在比の変化を考慮した場合の放出率が、

これらを無視した結果に比べて小さくなることが示された。特に同位体存在比が小さい核種の場合はこれらの影響により放出率が大きく減少することが示された。

一方、パラメータの値によっては、これらを考慮した場合の最大放出率が、これらを無視した場合に比べて高くなることが示されたが、その差は約2~3倍程度であった。

以上のことから、ここでの解析範囲内では、沈澱現象及び同位体存在比の変化を考慮しない評価体系においても安全評価上の保守性がほぼ維持されることが示された。また、沈澱現象及び同位体存在比の変化を考慮した、より現実的な解析によって放出率が数桁も小さくなる場合があり、システムの安全裕度が大きく高まる可能性があることが確認された。

## 5. 謝辞

本研究を実施するにあたり、有益な助言を頂いた石黒勝彦博士、同位体存在比の変化を考慮するための解析コードの改良及び解析の実行、後処理に御協力頂いた青山康夫氏、鈴木祐二氏に感謝の意を表します。

## 6. 参考文献

- [1] Hopkirk, R. J. et al.: Nagra NTB 85-26 (1986).
- [2] Hartley, R. W.: Nagra NTB 85-41 (1985).
- [3] Robinson, P. and Worgan, K.: SKI-TR 91:18 version 3 (1992).
- [4] 大井貴夫 他: 動燃事業団技術資料 PNC TN 8410 92-060 (1992).
- [5] 大井貴夫 他: 日本原子力学会秋の大会予稿集, p559 (1991).
- [6] 大井貴夫 他: 動燃事業団技術資料 PNC TN 8410 92-061 (1992).
- [7] Worgan, K. and Apter, M.: *Sci. Basis Nucl. Waste Manage.* XV, p705-712 (1992).
- [8] Ahn, J. and Suzuki, A.: *Nucl. Technol.*, **101**, 79 (1993).
- [9] 大井貴夫 他: 日本原子力学会春の年会予稿集, p436 (1993).
- [10] 動力炉・核燃料開発事業団: 動燃事業団技術資料, PNC TN 1410 92-081 (1992).
- [11] Croff, A. G.: ORNL-5621 (1980).