

地下深部岩盤中の放射性核種移行過程のモデル化に関する研究

東京大学 工学系研究科 正会員 小野 誠、登坂博行、徳永朋祥、草場周作

1.はじめに

高レベル放射性廃棄物の地層処分における長期安全評価では、埋設後の廃棄体の腐食などにより、核種が地下水に溶解し、人工バリアを通過した後の岩盤中の移流・拡散を考慮する必要がある。本研究では核種の崩壊などで生じる化学的雰囲気の変化に伴う沈殿・溶解現象の基礎的な検討を行ない、核種移行の主要なファクターを網羅したシミュレータを作成して、より信頼性の高い安全評価を行なうための手法を開発することを目的とした。

2.岩盤中の核種移行モデル

2.1 化学的雰囲気による沈殿・溶解モデル

各元素の化学変化に伴う pH、Eh の変化は Nernst の式で表され、水の安定領域を表す式と共にプロットして Eh-pH 図が作成できる。沈殿や溶解が起こるにつれ Eh、pH は変化し、反応が平衡状態に達すると終了するが、反応終了時の Eh、pH、濃度の値は、各々を軸とする 3 次元座標で考えると、Nernst の式によって決定される平面と、反応の仕方によって決まる方向ベクトルを持った直線との交点で定まる(図 1)。これを元に沈殿・溶解量を平衡計算で求めるコードを作成した。

2.2 移流・拡散、吸着モデル

地下水の流れは Darcy の法則と質量保存則に、拡散は Fick の法則に従うとして定式化した。また吸着は線形吸着と仮定している。これに 2.1 のモデルを加え、1 次元モデルを作成した (図 1)。

3.沈殿・溶解現象を含む移流・拡散過程の室内実験

コードの再現性を確認するために Ca を用いた室内実験を行なった。今回の実験は表 1 のように行ない、アルカリ溶液の注入で沈殿が起こり(図 2)、次に酸性溶液を注入して再溶解が起こることが確認できた(図 3)。図 3 では約 600 秒後から Ca 濃度が増加しており、沈殿していた Ca が注入溶液に溶解したと考えられる。

またマッチングの結果、沈殿ケースでは実験値に近い解析結果を得られたが後半の溶存濃度は実際よりも少ない値となっている(図 3)。これは水素イオンが少ないときのコードの再現性に問題があるためであると考えられる。

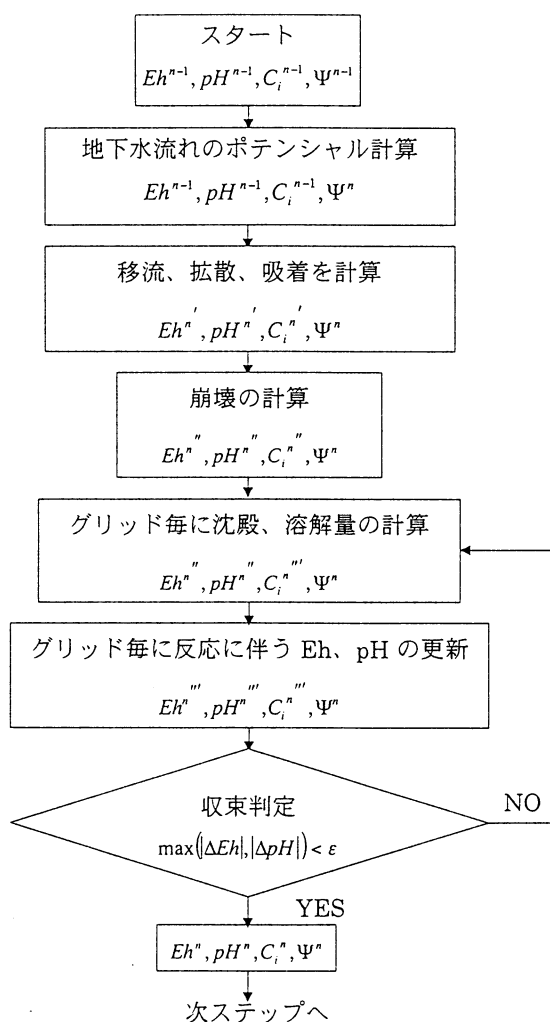


図1 移行解析フローチャート

キーワード：核種移行、化学的雰囲気、Nernst の式、Eh-pH 図、平衡計算

連絡先：東京都文京区本郷 7-3-1 地球システム工学専攻 TEL：03-5841-7082

以上の結果、化学的雰囲気考慮した沈殿・溶解計算は、実験に追従できる可能性があることが示された。しかし、水素イオン、水和電子の移流・分散現象の正確なモデリングが難しく、さらに水素イオン消費型の反応の場合、実際の反応量を再現できていないことから部分的な改良の必要があると考えられる。

4. ケーススタディ

このシミュレータを用いて1次元モデルによる核種(Pu)移行のケーススタディを行なった。Puの付近は放射性崩壊によって $[H^+]$ が上昇したと仮定すると、溶解度を一定としたものより Eh-pH を考慮した沈殿・溶解モデルを用いた方が溶存 Pu の濃度が高く、それに伴って移動距離が長くなる結果が得られた。pH の低下に伴う溶解量の増加は安全評価上考慮する必要があると考えられる。

表1 実験ケース設定

	初期	作業1	作業2
作業内容	CaCl ₂ 水溶液でコアを満たす	Na ₂ CO ₃ 溶液注入	塩酸注入
コア内の変化		Ca(OH) ₂ が沈殿 ＜沈殿ケース＞	Ca ²⁺ が溶解 ＜溶解ケース＞

コアサイズ 長さ 29.7cm 直径 3.75cm
 孔隙率 45% 絶対浸透率 約 14Darcy
 CaCl₂ 水溶液: 1.36×10^{-2} mol/l, pH=7
 塩酸: 2.72×10^{-2} mol/l, pH=1.5
 Na₂CO₃ 水溶液: 1.42×10^{-2} mol/l, pH=12

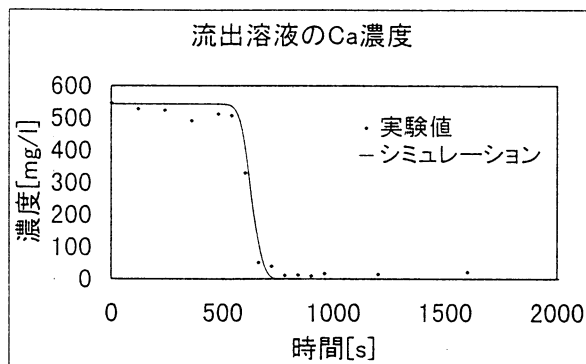


図2 沈殿ケースの実験結果と計算値

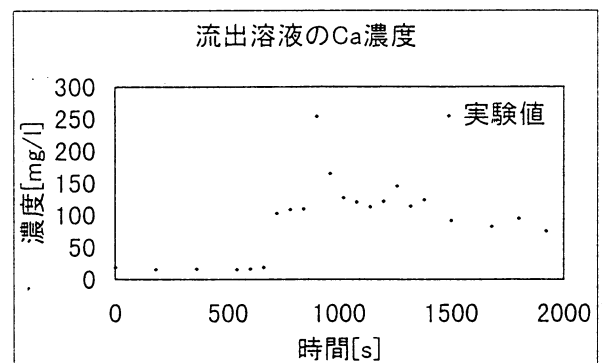


図3 溶解ケースの実験結果

5. 結論

- (1) Eh-pH を用いた平衡論による沈殿・溶解量の計算手法について検討し、多くの元素に対する Eh-pH 図の作成と沈殿・溶解量を求める平衡計算のコードの開発を行なった。
- (2) 移流・拡散と平衡計算のカップリングにより、1次元核種移行モデルを作成した
- (3) モデルの妥当性を検討するために Ca を用いた実験を行ない、シミュレータの適用性を検討した。その結果、Ca の移流・拡散、沈殿の状態をある程度再現することができた。
- (4) 地層処分場規模のケーススタディを行ない、溶解度一定のモデルと比較した。その結果、pH が減少することにより溶解度が上昇し溶質の移動距離が伸びることがわかった。

今後はより詳細な Eh-pH 図を組み込んだ平衡計算手法の開発を行なうとともに、3次元地下水流動とのカップリングによる信頼性のある長期予測の実現を目指した研究を行ないたい

(参考文献)

1. Douglas G. Brookes (1988) ; Eh-pH Diagrams for Geochemistry, Springer-Verlag
2. 日本アイソトープ協会 (1990) ; 改訂 2 版ラジオアイソトープ、丸善