

ベントナイト中の拡散現象の多段階均質化解析

産業技術総合研究所
名古屋大学大学院
名古屋大学大学院

正会員
正会員

○藤井 直樹
市川 康明
ソムチャイ プラヨンハン

1. はじめに

高レベル放射性廃棄物の地層処分において緩衝材として考えられているベントナイトは、その物理的性質に支配的である nm オーダーのス멕タイト系粘土鉱物（モンモリロナイト）と μm オーダーのマクロ粒子（石英等）、空隙に存在する水、空気で構成されている（図1）。このような多重階層構造を持つ物質にミクロ、メソ、マクロの3座標系を導入した多段階均質化法を適用した。ここではベントナイト中の拡散挙動について多段階均質化解析を行い、ベントナイト中のHTOの実効拡散係数について考察する。

2. 多段階均質化法

ベントナイトが図2のような多重構造を持つとし、ミクロ・メソ・マクロスケールの座標系を導入して、モンモリロナイトを対象としたミクロレベルのユニットセル、マクロ粒子を対象としたメソレベルのユニットセル、全体構造物をそれぞれ規定します。これらの座標系はスケールファクター ε で関連付けられる。

ベントナイト中の物質移動の支配方程式である移流拡散方程式において、未知関数である濃度 $c(\mathbf{x}; t)$ をスケールファクター ε で摂動展開し、これを支配方程式に代入し $\varepsilon \rightarrow 0$ の極限をとることにより、 ε の各項において以下に表されるミクロ、メソ、マクロ方程式が得られる。

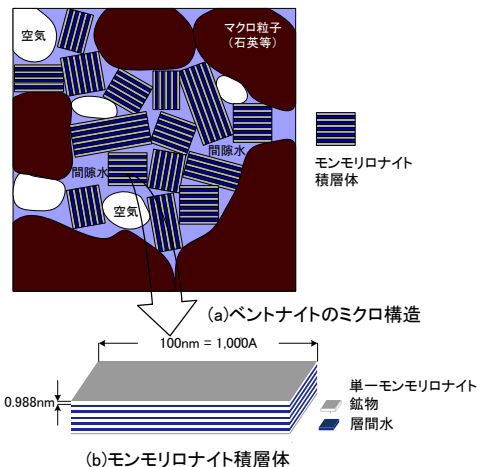


図1 ベントナイトのミクロ構造

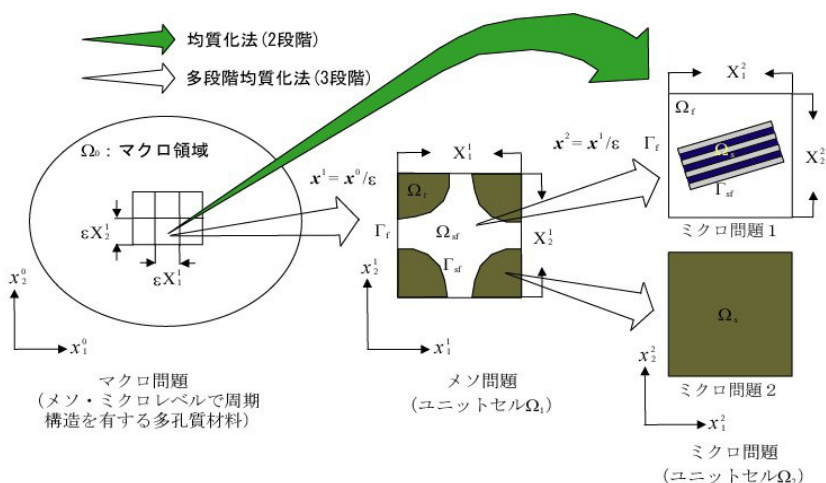


図2 多段階均質化法概念

$$\text{ミクロ方程式: } \frac{\partial}{\partial x_j^2} \left\{ D_{ij}^\varepsilon \left(\delta_{jk} - \frac{\partial N_2^k}{\partial x_j^2} \right) \right\} = 0 \quad \text{in } \Omega_2$$

$$\text{メソ方程式: } \frac{\partial}{\partial x_i^1} \left\{ D_{ik}^{H_2} \left(\delta_{kl} - \frac{\partial N_1^l}{\partial x_k^1} \right) \right\} = 0 \quad \text{in } \Omega_1, \quad D_{ik}^{H_2} = \frac{1}{|\Omega_2|} \int_{\Omega_2} D_{ij}^\varepsilon \left(\delta_{jk} - \frac{\partial N_2^k}{\partial x_j^2} \right) d\mathbf{x}^2$$

$$\text{マクロ方程式: } \frac{\partial c^0}{\partial t} + \mathbf{v}_I^H \frac{\partial c^0}{\partial \mathbf{x}_I^0} - \frac{\partial}{\partial \mathbf{x}_I^0} \left(D_{il}^{H_2} \frac{\partial c^0}{\partial \mathbf{x}_I^0} \right) + f^H = 0 \quad \text{in } \Omega_0, \quad D_{il}^H = \frac{1}{|\Omega_1|} \int_{\Omega_1} D_{ik}^{H_2} \left(\delta_{kl} - \frac{\partial N_1^l}{\partial x_k^1} \right) d\mathbf{x}^1$$

ただし、 D_{ij} : 拡散係数、 $\mathbf{v}_j$: 流速、 f : 吸着、 N_1 : メソ特性関数、 N_2 : ミクロ特性関数

キーワード 多段階均質化法, ベントナイト, 拡散, 地層処分

連絡先 〒305-8567 茨城県つくば市東1-1-1 中央第7 (独) 産業技術総合研究所 TEL 029-861-3786

3. 数値解析

多段階均質化法によって導出したマイクロ方程式，マクロ方程式の数値解を FEM によって解き，ベントナイト中のトリチウム水 HTO の実効拡散係数 DH_{ij} を評価する．ベントナイトはマクロ粒子と粘土粒子の微視的周期構造（メソモデル）をもち，さらに粘土粒子がモンモリロナイトの積層構造で表される微視的周期構造（マイクロモデル）をもつと仮定する（図3）．HTO のマイクロレベルの拡散係数は分子動力学法により求めた．

図4に乾燥密度 $2.0[\text{Mg}/\text{m}^3]$ ， 25°C の飽和ベントナイト中の HTO の実効拡散係数とマイクロモデルで示したモンモリロナイト積層体の層状体数を示す．Kunigel-V1 は体積比でマクロ粒子を $1/3$ ほど含むのに対して，Kunipia-F はほとんどマクロ粒子を含まない精製スメクタイトである．Kunigel-V1 について解析結果と定常拡散実験による結果¹⁾を比較したところよく一致することが確かめられた．Kunigel-V1 と Kunipia-F との比較では Kunigel-V1 のほうが拡散係数が大きくなった．これは非定常拡散実験による見かけの拡散の結果とも一致する．層状体数との関係では両者とも層状体数の増加とともに拡散係数が大きくなった．これは間隙率一定の条件で層状体数が増えると外部水の平均間隔が広くなりこの影響によるものである．図5には 25°C ，8 層モデルにおける実効拡散係数とベントナイトの乾燥密度との関係を示す．両者とも乾燥密度に依存することが確認できるが，乾燥密度 1.5 以下の領域においては両者の関係が逆転し Kunipia-F の実効拡散係数のほうが大きくなっている．この原因は，メソモデルの構造によるものと考えられる．解析で用いたメソモデルはマクロ粒子とモンモリロナイト水和物のみで構成され拡散移動に支配的な間隙がメソレベルでは存在しないことを仮定している．しかしながら，低密度領域においては間隙がマイクロレベルにおいて平均的に存在するのではなく，スケールの大きい間隙が存在することが考えられるため，間隙率の大きい場合にはメソレベルの間隙構造も考慮する必要がある．

4. おわりに

多重階層構造をもつベントナイトの拡散現象に多段階均質化法を適用し，実効拡散係数が評価できることを示した．現状では経済性や安定性の面からベントナイトにケイ砂を混合した材料を緩衝材として使うことが検討されている．このような粒径の違うケイ砂混合ベントナイトにも多段階均質化法を適用することが可能であり，今後さらに研究を進める予定である．

参考文献

- 1) 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，動力炉・核燃料開発事業団技術資料，PNC TN8410 97-202，1998．

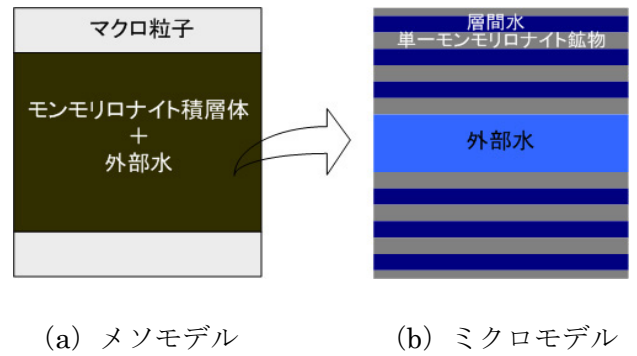


図3 ユニットセル

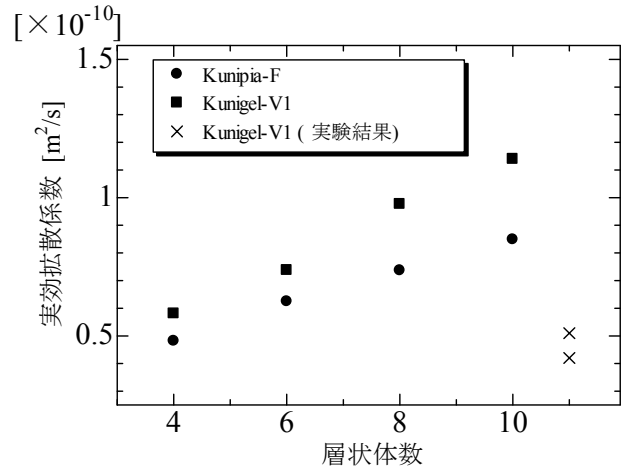


図4 ベントナイト中の HTO の実効拡散係数とマイクロモデルの層状体数

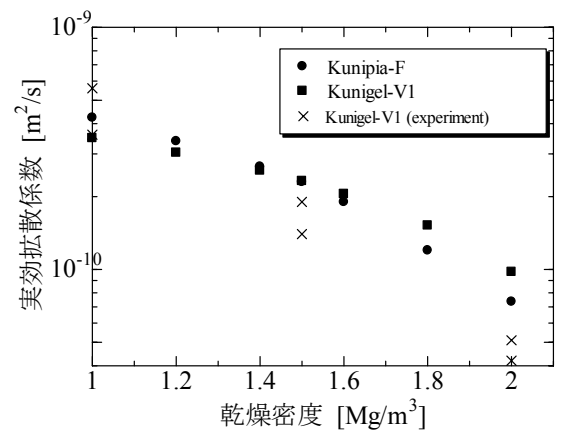


図5 ベントナイト中の HTO の実効拡散係数と乾燥密度