

高レベル放射性廃棄物地層処分におけるニアフィールドの熱-水-応力-化学連成挙動に関する数値解析の取り組み（第2報）

核燃料サイクル開発機構 正会員 ○伊藤彰，藤田朝雄，非会員 小田好博，川上進，油井三和
三菱重工業(株) 非会員 石原義尚，ハザマ 正会員 千々松正和
コンピュータソフト開発(株) 非会員 根山敦史，(株)ダイヤコンサルタント 正会員 菱谷智幸

1. はじめに

高レベル放射性廃棄物地層処分における人工バリア定置後のニアフィールドの挙動は、熱的、水理学的、力学的、化学的なプロセスが相互に影響を及ぼし合う連成挙動と捉えることが肝要である。「第2次取りまとめ」における人工バリアの長期健全性評価では、熱-水-応力連成モデル／解析コードによる再冠水時の人工バリア挙動評価で、緩衝材の再冠水時間を推定した¹⁾。「第2次取りまとめ」以降、オーバーバック腐食や核種移行の重要な環境条件となる緩衝材／間隙水化学の時間的／空間的変遷の把握や人工バリアを中心とした化学的変遷を考慮したニアフィールド長期健全性評価に向けて、ニアフィールド連成挙動の時間的／空間的変遷のより現実的な理解、予測を目的とする熱-水-応力-化学連成モデル／解析コードの開発を進めている²⁾。

本稿では、既報の連成モデル／解析コード²⁾を用いて実施したニアフィールド連成挙動の事例解析、および連成モデル／解析コードの高度化に関する取り組みについて報告する。

2. ニアフィールド連成挙動の事例解析

既報の連成モデル／解析コード²⁾による解析を例示すべく、ニアフィールド連成挙動に関する3次元事例解析（熱-水-化学連成解析）を実施した。解析領域は「第2次取りまとめ」の硬岩系岩盤における処分孔縦置き方式を基とし、対称性を考慮した廃棄体1体当りの占有面積の1/4を対象としたニアフィールド3次元領域とした（図1）。初期条件は、緩衝材（ベントナイト70wt%/ケイ砂30wt%混合体、乾燥密度1.6Mg/m³）の飽和度40%、岩盤（熱伝導率2.8W/m/K、比熱1.0kJ/kg/K、固有透過度1.0×10⁻¹⁵m²、間隙率0.005）の全水頭50m、温度は全域45℃とし、間隙水組成は純水と構成鉱物の平衡溶液とした。境界条件は、解析領域上面および下面を、熱移動について45℃の規定境界、水分移動について全水頭50mの規定境界、物質移行について初期値の規定境界とし、解析領域側面を、熱移動について閉境界（断熱）、水分移動、物質移行についても閉境界（流入出なし）としている。また、本解析では、応力変形を考慮せず、解析領域の全節点を変位固定した。なお、本解析では試行として、緩衝材中で方解石、玉髄、スメクタイト、岩盤中で方解石、玉髄を考慮し、これら構成鉱物の溶解／沈殿のみを鉱物-水反応として取り扱っている。

事例解析の結果を図2に示す。ガラス固化体の発熱量は時間の経過と共に減少するため、ニアフィールドの温度は図2に示すように、人工バリア定置後1,000年の時点ではほぼ定常に至る結果が得られた。また、pHの解析結果は人工バリア定置後1,000年の間、過渡的

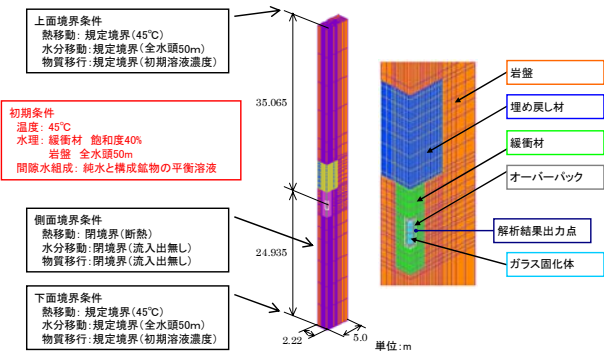


図1 ニアフィールド連成挙動の事例解析条件

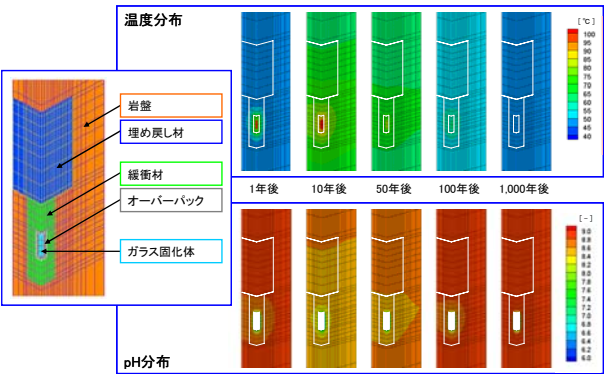


図2 ニアフィールド連成挙動の事例解析結果

表1 「第2次取りまとめ」と事例解析結果の比較

	「第2次取りまとめ」	事例解析結果(熱-水-化学連成解析)
緩衝材中の最高温度	82℃(熱-水-応力連成解析) / 98℃(熱解析)	90℃
緩衝材の再冠水時間	50年以下(熱-水-応力連成解析)	20年
人工バリア定置後1,000年の緩衝材間隙水のpH	8.4(地球化学解析)	8.9

な温度の変遷を受けて非定常な挙動を示している。これは、温度変化に伴う鉱物の溶解度の変化、および間隙水中の水溶性化学種組成の変化に起因する挙動である。図 1 中の解析結果出力点（オーバーパックと緩衝材の境界）における温度と pH については、人工バリア定置後 10～20 年の時点で温度が 90℃のピークに達し、人工バリア定置後 1,000 年の間、pH は約 0.8 の幅で変動し、ニアフィールドの温度がほぼ定常となる人工バリア定置後 1,000 年の時点で、pH も同様にほぼ定常となり、約 8.9 を示す結果となった。本事例解析結果に関しては、緩衝材中の最高温度、緩衝材の再冠水時間、人工バリア定置後 1,000 年の緩衝材間隙水の pH について、「第 2 次取りまとめ」との比較を実施し、概ね整合していることを確認した（表 1）。

3. 熱-水-応力-化学連成モデル／解析コードの高度化に関する取り組み

3. 1 緩衝材再冠水段階において地球化学反応に寄与するガスの挙動に関するモデルの構築

人工バリア定置時に緩衝材中に残存する酸素や二酸化炭素は、液相への溶解、さらに鉱物の溶解／沈殿等の地球化学反応に費やされ、緩衝材間隙水化学に影響を与える。したがって、緩衝材再冠水段階における化学現象を忠実に表現するためには、地球化学反応に寄与するガスの挙動に関するモデルが必要となる。以上の観点から、緩衝材再冠水段階において地球化学反応に寄与するガスの溶解／脱ガス、ガス拡散を考慮した化学現象の支配方程式を構築した。

3. 2 鉱物の溶解／沈殿に関する速度論モデルの導入

緩衝材には、長期にわたりその性能が著しく変化しないことが期待されている。緩衝材に期待される膨潤性、低透水性等の性能は、主成分鉱物であるスメクタイトの物理化学的特性に依存することから、アルカリ性環境での変質に伴う緩衝材性能の長期安定性を予測するためには、速度論モデルに基づくスメクタイトの溶解／沈殿挙動の把握が肝要である。以上の観点から、緩衝材／間隙水化学の時間的／空間的変遷を予測する上で重要となる鉱物の溶解／沈殿挙動について、速度論モデルの採用を視野に入れることとした。

3. 3 熱-水-応力-化学連成モデル／解析コードの概要

緩衝材再冠水段階において地球化学反応に寄与するガスの挙動に関するモデル、および鉱物の溶解／沈殿に関する速度論モデルを導入した熱-水-応力-化学連成モデルの支配方程式系を表 2 に示す。なお、熱移動、水分移動、応力変形の支配方程式については、既報²⁾を参照されたい。本連成モデルに基づき、連成解析コード開発基盤²⁾を活用し、既存解析コードをベースとした熱-水-応力-化学連成解析コードの高度化を進めている。本連成解析コードは、熱-水-応力連成解析コード THAMES、物質移行解析コード Dtransu、地球化学解析コード PHREEQC、および連成挙動に係わる物性値の相互依存性等を定義する物性・連成モジュールを制御するプロセス管理プログラムと、各解析コード間で連成対象変数の授受を行う共有メモリ管理プログラムを用いて、熱-水-応力-化学連成解析を行うものである。また、連成解析の高速化に向けて、地球化学解析の並列処理を可能とする連成解析体系を構築した。

4. おわりに

既報の連成モデル／解析コード²⁾を用いて実施したニアフィールド連成挙動の事例解析、および連成モデル／解析コードの高度化に関する取り組みについて報告した。今後は、「第 2 次取りまとめ」の地下水化学、緩衝材間隙水化学を忠実に表現した事例解析を通じて、緩衝材再冠水段階における過渡的な化学現象や、アルカリ性環境での変質に伴う緩衝材性能の長期安定性についてより現実的な予測を目指していく。

【参考文献】1) 核燃料サイクル開発機構(1999)：わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分技術的信頼性—地層処分研究開発第 2 次取りまとめ—分冊 2 地層処分の工学技術，サイクル機構技術資料，JNC TN1400 99-022.，2) 核燃料サイクル開発機構(2003)：高レベル放射性廃棄物の地層処分技術に関する研究開発—平成 14 年度報告—，サイクル機構技術資料，JNC TN1400 2003-004.

表 2 熱-水-応力-化学連成モデルの支配方程式系

化学現象（物質移行，地球化学反応）の支配方程式
1) 物質移行の支配方程式 (<i>n</i> 番目親化学種の質量保存の式) $\frac{\partial}{\partial x_i}(\rho_i q_i C_{(i)}) - \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\rho_i n S D_{ij} \frac{\partial C_{(i)}}{\partial x_j} \right) - \frac{\partial}{\partial x_i} \left(D_g \frac{\partial G_{(i)}}{\partial x_i} \right) + \frac{\partial}{\partial t} (\rho_i n S T_{(i)}) = 0$
2) 地球化学反応の支配方程式
2-1) 電気的中性の式 $\sum_{a=1}^{N_A} (z_a m_a) = 0$
2-2) 電子保存の式 $\sum_{a=1}^{N_A} (v_a m_a) = OPV + \sum_{p=1}^{N_P} (u_p MIN_p)$
2-3) 質量保存の式 (<i>n</i> 番目親化学種の質量保存の式) $C_{(i)} = \sum_{a=1}^{N_A} (c_{a,n} m_a)$ $C_{(i)} = T_{(i)} + \sum_{p=1}^{N_P} (b_{p,n} MIN_p)$
2-4) 鉱物相の溶解／沈殿，ガス相の溶解／脱ガスの式
2-4-1) 鉱物相の溶解／沈殿の式 (<i>p</i> = 1 ~ <i>N_{p,mineral}</i>) (<i>p</i> 番目鉱物相の溶解／沈殿の式) 平衡論モデル $\sum_{n=1}^N [b_{p,n} \log(a_n)] = \log(K_p)$ 速度論モデル $\frac{\partial MIN_p}{\partial t} = A_p k_p \left(\prod_i a_i^{a_i} \right)_p \left\{ 1 - \left(\frac{IAP_p}{K_p} \right)^{r_p} \right\}^{1/r_p}$
2-4-2) ガス相の溶解／脱ガスの式 (<i>p</i> = <i>N_{p,mineral}</i> + 1 ~ <i>N_{p,mineral}</i> + <i>N_{p,gas}</i>) (<i>p</i> 番目ガス相の溶解／脱ガスの式) $\sum_{n=1}^N [b_{p,n} \log(a_n)] = \log(K_p) + \log(p_p / p_p^0)$ $p_p = \frac{G_{(i)}}{b_{p,n}} RT$
2-5) 水溶性化学種の質量作用の式 (親化学種を除く <i>a</i> 番目水溶性化学種の質量作用の式) $\log(a_a) = \log(K_a) + \sum_{i=1}^N [c_{a,i} \log(a_i)]$