

## 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熱・水・応力・化学連成解析モデルを用いた連成試験(COUPLE)の解析評価

日本原子力研究開発機構 正会員 鈴木 英明\*, 藤崎 淳, 藤田 朝雄  
非会員 油井 三和

### 1. はじめに

高レベル放射性廃棄物の地層処分における人工バリア長期安定性評価のため、ニアフィールドの熱的、水理的、応力および化学的プロセスの連成挙動の時間的・空間的変遷のより現実的な理解と予測を目的とする熱・水・応力・化学連成モデル/コードの開発が進められている<sup>1)</sup>。これまでに、本解析コードによるニアフィールド連成挙動に関する解析が例示されており、「第2次取りまとめ」<sup>2)</sup>で示された緩衝材中の最高温度、再冠水時間、間隙水のpHについて概ね整合が取れていることが確認されている。さらに、緩衝材再冠水段階における地球化学反応に寄与するガスの挙動に関するモデル化や鉱物の沈殿・溶解に関する速度論の導入など連成モデル/コードの高度化への取り組みが行なわれている。他方、連成解析モデルの検証を目的として、人工バリアおよびその周辺の熱、水、応力および化学場の明確化のために、工学規模での連成試験(COUPLE)が実施されており、温度、緩衝材の水分量、緩衝材間隙水pHなどのデータが取得されている<sup>3)</sup>。本稿では、これまでに開発された連成モデル/コードを用いて、連成試験(COUPLE)に関する熱・水・化学連成解析を実施したので報告する。

### 2. 連成試験(COUPLE)概要

試験は、モルタル(水251/普通ポルトランドセメント193/人工軽量骨材1001kg/m<sup>3</sup>)で製作した模擬岩体の中心に、廃棄物を模擬したステンレス製のヒーターおよび緩衝材(70wt%クニゲルV1と30wt%ケイ砂の混合体、乾燥密度1600kg/m<sup>3</sup>、初期含水比約13%)を設置し、中央のヒーターの表面温度を90、模擬岩体の周辺温度を70に設定して実施した(図1)。ヒーターおよび緩衝材の外径は、それぞれ0.1mと0.3mである。緩衝材中に浸潤する水はモルタルと反応した高pHの溶液である。模擬岩体中には熱電対、間隙水圧計を、緩衝材中には、熱電対、サイクロメータ、湿度計、土圧計、pH計を配置して連続的な計測を行なった<sup>3)</sup>。試験開始から180日後に緩衝材のサンプリングを行い、緩衝材の間隙水pH、陽イオン交換容量、交換性陽イオン組成、メチレンブルー吸着量、X回折、SEM観察などの化学分析を実施した。なお、これらの化学分析からは、緩衝材の変質や二次鉱物の生成は確認できなかった<sup>4)</sup>。

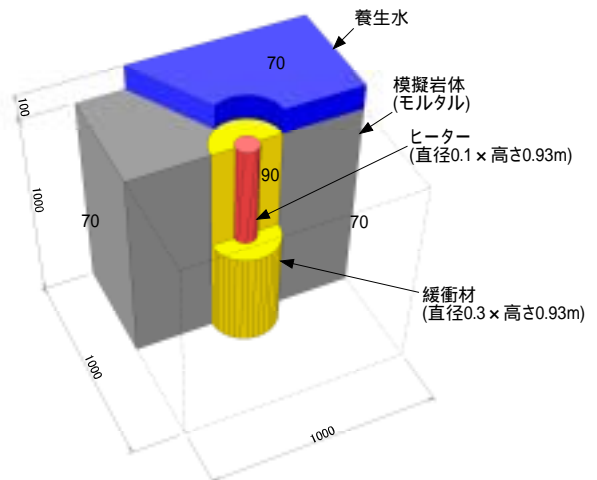


図1 人工バリアを模擬した連成試験(COUPLE)概略

### 3. 熱・水・化学連成解析条件

本解析コードは、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を母体とし、連成挙動に係わる物性値の相互依存性など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システムと、各解析コード間で連成対象変数の授受を行なう共有メモリ管理プログラムによって熱・水・応力・化学連成解析を行なうものである<sup>1)</sup>。解析領域は、連成試験において境界の影響が最も少ないと考えられる深度0.5mを対象に、ステンレス製のヒーターが化学的に不活性として、緩衝材とモルタルの2領域を一次元でモデル化した(図2)。初期条件は、緩衝材(間隙率0.403)の飽和度を0.52、モルタル(間隙率0.460、熱伝導率0.92W/mK、比熱1.67kJ/kg/K、固有透過度 $1.7 \times 10^{-16} \text{m}^2$ )を飽和とし、全領域を20とした。地球化学の初期条件として、緩衝材の平衡反応を考慮する鉱物は、玉髄と方解石とし、連成試験で変質が認められなかったスメクタイトおよびその他の鉱物は化学的に不活性なものとして扱った。また、スメクタイトのイオン交換反応、表面錯体反応は考慮した<sup>2)</sup>。緩衝材の不飽和領域には大気相当の炭酸ガス(分圧 $10^{-3.5} \text{atm}$ )を設定した。緩衝材の初期水は、分圧 $10^{-3.5} \text{atm}$ の炭酸ガスと純水の平衡溶液を仮定した。モルタルの構成鉱物は、普通ポルトランドセメントに含まれる酸化物が全量セメント水和生成物になると仮定し、割付計算によって求めた $\text{C}_3\text{AH}_6$  ( $(\text{CaO})_3\text{Al}_2\text{O}_3(\text{H}_2\text{O})_6$ 、ハイドロガーネット)、 $\text{C}_3\text{FH}_6$  ( $(\text{CaO})_3\text{Fe}_2\text{O}_3(\text{H}_2\text{O})_6$ 、アイアンハイドロガーネット)、 $\text{Mg}(\text{OH})_2$  (ブルーサイト)、 $\text{C}_6\text{As}_3\text{H}_{32}$  ( $(\text{CaO})_6\text{Al}_2\text{O}_3(\text{SO}_3)_3(\text{H}_2\text{O})_{32}$ 、エトリンガイド)、 $\text{KOH}$ 、 $\text{NaOH}$ 、 $\text{CSH}$ ゲルおよび $\text{Ca}(\text{OH})_2$  (ポルトランドアイト)であり<sup>3)</sup>、初期間隙水は、これら水和生成物と純水の平衡反応溶液とした。また、大気系の試験であることから二次鉱物として方解石を考慮した。境界条件としては、中心ヒーター側の温度を90、模擬岩体外側の温度を70の固定境界、それ以外は断熱境界とした。水分移動については、モルタルの全水頭を0.6mの固定境界とし、それ以外は閉境界とした。物質移行に関する境界は全て閉境界とした。熱力学データは、第2次取りまとめの溶解度計算に使用したデータベース991231c0.tdb(<http://migrationdb.jaea.go.jp/>)を採用した<sup>5)</sup>。本解析では、解析全領域の節点変位を拘束し応力変形は考慮しない熱・水・化学連成解析として実施した。

4. 熱 - 水 - 化学連成解析結果

図3に温度および飽和度の解析結果を示す。温度が約10日で定常状態になることや、緩衝材中に約1/cmの温度勾配が形成されること、また、緩衝材が90日程度で飽和することなど、解析結果は連成試験（COUPLE）の計測結果<sup>3)</sup>と概ね一致している。

図4は180日後の鉱物濃度変化の解析結果である。グラフ縦軸は、単位体積当りの鉱物の沈殿/溶解量であり、正が沈殿、負が溶解を表す。これより、緩衝材とモルタルとの境界部分を中心として、モルタル中では、セメント水和生成物として設定したポルトランドライド、エトリンガイドが溶解しており、ハイドロガーネットおよび二次鉱物として考慮した方解石の沈殿が生じている。また、緩衝材中では、方解石が沈殿する結果となっている。モルタル中のポルトランドライドおよびエトリンガイドの溶解によってモルタル間隙水中の水溶性化学種 Ca 濃度が上昇し、この溶液が不飽和状態の緩衝材に浸潤して緩衝材の水飽和度を上昇させる。同時に、緩衝材の不飽和領域（気相）に設定した炭酸ガスが被圧されて間隙水中に溶解して拡散するため、緩衝材とモルタルとの境界部分を中心として方解石の沈殿が生じる結果となっている。そして、方解石の沈殿反応およびスメクタイトの表面錯体反応によって緩衝材間隙水の pH は低下し、180日後の間隙水 pH の解析結果は、連成試験（COUPLE）の緩衝材サンプリング試料から得られた測定値<sup>3)</sup>と良く一致している（図5）。

5. おわりに

熱 - 水 - 応力 - 化学連成モデル/コードの検証を目的として、人工バリアおよびその周辺岩盤を模擬した連成試験（COUPLE）の熱 - 水 - 化学連成解析を実施した。その結果、緩衝材中における支配的な地球化学反応は方解石の沈殿反応と考えられ、連成試験（COUPLE）で得られた緩衝材間隙水の pH、温度分布、緩衝材の冠水時間を再現しており、本解析モデル/コードによって人工バリアを模擬した連成試験の評価が可能であることを確認した。今後は、緩衝材の冠水段階における過渡的な化学現象を忠実に表現すべく黄鉄鉱の酸化反応や、アルカリ性環境におけるスメクタイトの溶解・沈殿反応など速度論モデルを導入し、より現実的な解析を通じて、熱 - 水 - 応力 - 化学連成モデル・解析コードの高度化および検証を行なっていく予定である。

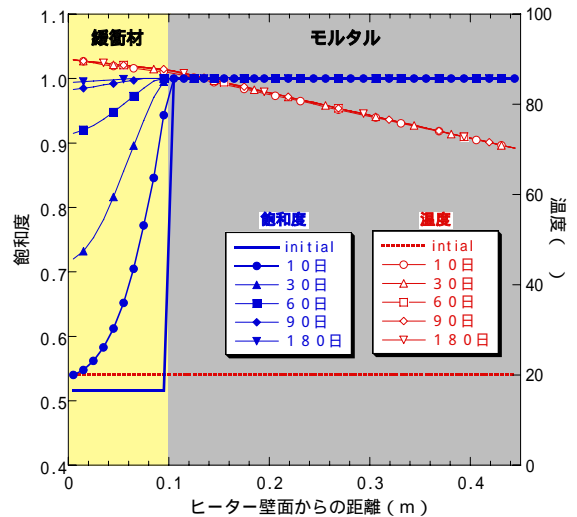


図3 温度および飽和度の解析結果

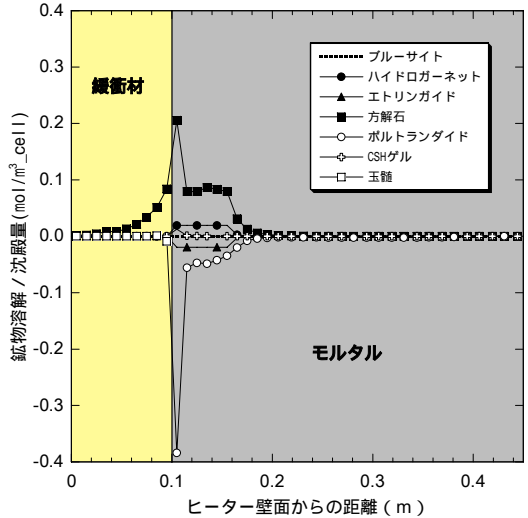


図4 鉱物濃度変化量の解析結果(180日後)

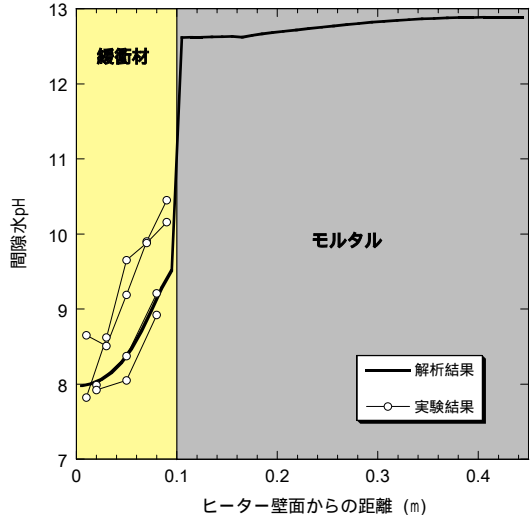


図5 pHの測定結果と解析結果の比較(180日後)

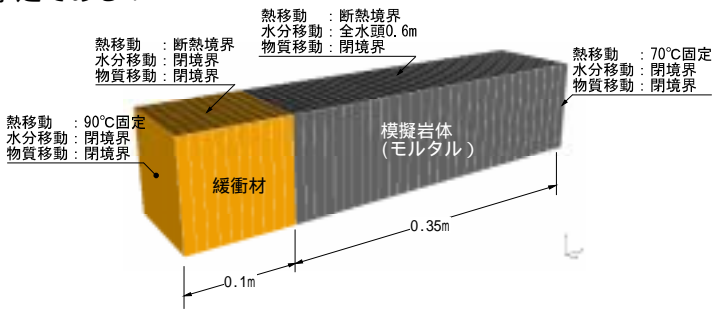


図2 熱 - 水 - 化学連成解析条件

【参考文献】1)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. 2)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の技術的信頼性 - 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. 3)鈴木英明, 伊藤彰, 吉田泰, 陶山忠宏, 川上進, 笹本広, 油井三和(2003):熱 - 水 - 応力連成試験設備(COUPLE)における熱 - 水 - 応力 - 化学連成試験(Ⅰ), サイクル機構技術資料, JNC TN8400 2003-033. 4)小田好博, 鈴木英明, 川上進, 油井三和(2004):熱 - 水 - 応力連成試験設備(COUPLE)における熱 - 水 - 応力 - 化学連成試験(Ⅱ), サイクル機構技術資料, JNC TN8400 2004-024. 5)吉田泰, 油井三和(2003):地球化学計算コードで利用可能なJNC熱力学データベース, サイクル機構技術資料, JNC TN8400 2003-005.