

緩衝材中の塩濃縮・析出現象評価に向けた数値実験システムの開発

(独) 日本原子力研究開発機構 正会員 ○木村 誠
 同上 正会員 藤田 朝雄
 同上 非会員 九石 正美

1. はじめに

高レベル放射性廃棄物処分におけるニアフィールド環境では、廃棄体からの発熱、緩衝材の再冠水とこれに伴う緩衝材の膨潤や変質など、熱的、水理的、力学的、化学的作用が相互に影響し合うことが想定される。近年、廃棄体による発熱条件の下、塩水が緩衝材内へ浸潤した場合にオーバーパック近傍で塩の濃縮・析出が生じることが指摘されており¹⁾²⁾、これらの現象を表現可能な数値実験システムの構築が不可欠となっている。筆者らは、この要件に応えるために、独立した3種類の解析コード(熱-水-応力連成解析コード: THAMES, 物質移行解析コード: Dtransu 3D-EL, 地球化学解析コード: PHREEQC)と、コード間で変数の授受を行う連成プラットフォーム(Couplys)から構成される熱-水-応力-化学(以下, THMC)連成解析モデルの改良・高度化を行っている³⁾。本稿は、温度勾配が存在する不飽和緩衝材中で生じる地球化学反応に関するモデルの改良と、塩濃縮室内試験に対して行った THMC 連成解析の結果を報告するものである。

2. 不飽和緩衝材中の地球化学反応モデルの改良

緩衝材候補材料のベントナイトは、スメクタイト層間に高い保水能力を有することが知られているが、従来の地球化学反応モデルには、不飽和緩衝材中の保水形態について実際の現象との整合を図る必要性が指摘されていた³⁾。そこで、緩衝材の不飽和領域で生じていると考えられる保水形態や浸潤履歴を取り入れた地球化学モデルの構築を行った。緩衝材中の間隙水は層間水と粒子間隙水に分離し、イオン交換や表面錯体の形成といった地球化学反応に寄与する水分量について粒子間隙水が担うものとした。また、地下水の浸潤プロセスでは、層間水が優先的に保水され、層間が満たされた後に粒子間隙への浸潤が開始するとともに、この時点で地球化学反応が生じることを仮定した。解析では、層間が飽和する際の飽和度(層間飽和度 a)を地球化学反応の生起の判断指標として設定し、解析の実行制御を用いた。地球化学反応について、従来の取扱いと本報告のものを表-1に示す。さらに、不飽和緩衝材中の交換性陽イオン(ZNa, Z₂Ca, ZK, Z₂Mg, ZH)濃度の更新方法についても改良を行い、粒子間隙部分を全間隙とした場合の仮想飽和度(粒子間隙飽和度 S_r')と時間ステップ間の浸潤履歴を考慮してこの更新を行うこととした。図-1に地球化学反応のフロー概要を示す。

表-1 緩衝材中の浸潤過程のモデル化

粒子間隙 層間 概念図							
飽和度 S_r		0%	...	a %	100%
層間水	水分	ゼロ	不飽和	飽和	飽和	飽和	飽和
	連続性	-	-	-	不連続	連続	連続
粒子間隙水	水分	ゼロ	ゼロ	ゼロ	不飽和	不飽和	飽和
	飽和度			0%	...	S_r'	100%
地球化学反応	理想	-	-	-	なし	あり	あり
	従来	なし	あり	あり	あり	あり	あり
	代替法	なし	なし	なし	あり	あり	あり

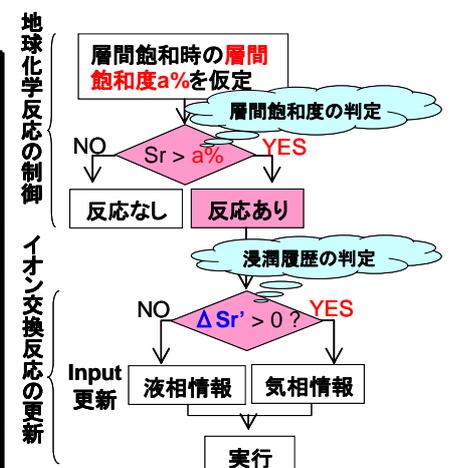


図-1 地球化学反応のフロー概要

キーワード 高レベル放射性廃棄物処分, 数値解析, 緩衝材, 塩濃縮, 不飽和

連絡先 〒319-1194 茨城県那珂郡東海村村松 4-33 (独) 日本原子力研究開発機構 TEL 029-287-0928

3. 室内試験概要と解析条件

数値モデルとしての妥当性を確認するため、改良した THMC 連成解析コードを用いて、既往の3次元塩濃縮室内試験¹⁾を対象とした解析を実施した。3次元塩濃縮室内試験の概要を図-2に示す。試験では、写真-1に示すように90°Cのヒーター表面の緩衝材に析出物が生じており、XRD分析の結果、析出物は Gypsum(CaSO₄・2H₂O)や Anhydrite(CaSO₄)といった硫酸塩であることが確認されている。熱や含水比分布、間隙水組成などは緩衝材の垂直方向において違いが僅かであることから、緩衝材の中心高さ位置を対象に解析を行うこととした。表-2に解析で設定した条件を示す。

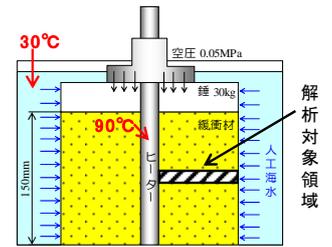


図-2 3次元塩濃縮室内試験



写真-1 ヒーター表面¹⁾

表-2 解析条件

境界条件【ヒーター側】		初期溶液条件	
温度:90°C		温度:30°C	・Fe 1.000×10 ⁻¹⁰
半透過境界		pH 9.0[-]	・O(0) 0.4807
		pe 4.0[-]	ガス濃度:[mol・m ⁻³ _air]
境界条件【水槽側】		溶液濃度:[mol・m ⁻³ _water]	・O ₂ _gas 8.05 (0.2atm相当)
温度:30°C		・Ca 352.1	・PCO ₂ 0.0127 (0.0003atm相当)
水頭(固定):20cm		・K 21.78	飽和度 44.615[%] 間隙率 0.403[-]
溶液濃度(固定):[mol・m ⁻³ _water]		・Mg 48.77	平衡鉱物:[mol・m ⁻³ _cell]
・Na 439.30	・S 26.441	・Na 1260	・Calcite 279.745
・Cl 513.00	・Si 0.0216	・Cl 1403	・Pyrite 93.3116
・K 10.178	・C 0.01155	・C 0.01155	・Chalcedony 6522.46
・Ca 8.1337	・Fe 1.000×10 ⁻¹⁰	・S 370.4	二次鉱物
・Mg 48.124	・O(0) 0.4807	・Si 0.0216	・Anhydrite, Halite

4. 熱-水-応力-化学連成解析結果

室内試験での塩の含有量分析は、蒸留水を用いて緩衝材中に含まれていたイオンを抽出(浸出分析値)する方法が採られ、塩の析出量としての同定が困難であることから、浸出分析値に基づいた可溶性塩を用いて PHREEQC で解析的に決定した不飽和間隙水組成値(確認用データ)と比較した。主要な解析結果を図-3に示す。pH や溶液中の S 濃度は浸出分析値と概ね一致した濃縮傾向を示し、THMC 連成解析での溶質移動の適切性を確認できた。但し、Anhydrite は確認用データでは高温側で顕著に析出したが、THMC 連成解析では分布形状は整合しているものの1桁近く低い値となった。この違いの主な原因は連成解析において、不飽和緩衝材中での地球化学反応に資する固液比の変化を考慮していないことによるものと考えられ、不飽和緩衝材中の保水形態を考慮した上での固液比の更新を精緻化する必要性が示唆された。

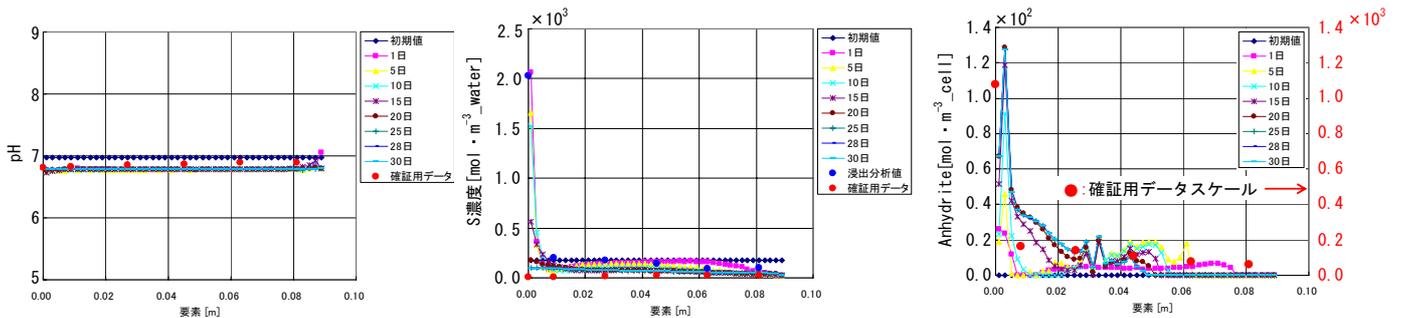


図-3 塩濃縮室内試験に対する熱-水-応力-化学連成解析結果

5. まとめ

塩濃縮・析出現象を表現する数値実験システムの構築を目的として、THMC 連成解析における地球化学モデルの改良を行うとともに、3次元塩濃縮室内試験結果と解析結果との比較から溶質移動の適切性を確認した。一方、塩の析出量の定量評価には不飽和緩衝材での地球化学反応モデルの更なる高度化が必要であり、緩衝材中の保水形態に基づくモデルの改良が不可欠である。尚、本報告は、平成20年度 経済産業省委託事業「処分システム化学影響評価高度化開発」において得られた成果の一部である。

参考文献

- 1) 藤田ら:塩濃縮シミュレーションに関する研究(共同研究), JAEA-Research 2007-017, 2007.
- 2) O.Karmland et al.: Long Term Test of Buffer Material Final Report on the Pilot Parcels, SKB TR 00-22, 2000.
- 3) 日本原子力研究開発機構:平成19年度 処分システム化学環境影響評価高度化開発 報告書, 2008.3.