

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 (その2)

(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
 同上 正会員 鈴木 英明

1. はじめに

高レベル放射性廃棄物処分のニアフィールド環境において、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いる¹⁾。また、オーバーパックと接触する可能性のある間隙水化学は、放射性核種の溶解度や金属の腐食等に影響を及ぼすことが知られている。このことから筆者らは塩濃縮・析出現象に焦点を当て、緩衝材中の化学プロセスを表現可能な数値実験システムの構築を目的として3種の独立したコード (THAMES, Dtransu-3D・EL, PHREEQC) を用いた熱-水-応力-化学連成解析モデルを高度化してきている²⁾。本稿は、不飽和緩衝材中で生じる不飽和保水形態に基づく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検証解析の結果を報告する。

2. 不飽和保水形態に基づく緩衝材中の地球化学反応モデル

緩衝材中の地球化学反応はスメクタイト層間と、モンモリロナイト粒子と他の鉱物間の粒子間隙 (バルク) を分離し、層間の優先的な保水を仮定した浸潤過程に基づく化学反応モデルとしている²⁾。但し、従来のモデルでは不飽和から飽和に至る過程で固液比の変化を考慮していない点や、層間が満たされ後の反応寄与水分量の取扱いに精緻化が求められていた。そこで、低飽和度状態では優先的に保水された層間水の一部は粒子間隙と連続することなく孤立して存在することを仮定した。反応寄与水分量としては低飽和度状態で存在する孤立層間水も考慮して粒子間隙と等量の層間の総和量が担い、粒子間隙水量が総層間水量に比べて多い場合は全水分量が反応に寄与することを仮定した³⁾。また、反応寄与水分量に準じて不飽和から飽和に至る過程での固液比の変化も考慮した。図1に不飽和-飽和過程の地球化学反応モデルの概要を示す。



図1 保水形態に基づく不飽和-飽和過程の地球化学反応モデルの概要

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

1次元塩濃縮室内試験³⁾を対象にモデルの検証解析を実施した。試験は、緩衝材を締め固めた円柱供試体(φ50mm h100mm)の下部をヒーターで90°Cに温度管理し、上部から70°Cに温度調整した3.0wt%のNaCl溶液を30cmの圧力水頭のもと浸潤させる試験である。試験は複数の試験期間(1, 2, 4, 8, 12, 21週間)で実施し、試験後の試料の含水比やpH測定、可溶性元素濃度分析を行っている。

表1 緩衝材中の物質移行-地球化学条件

緩衝材仕様	初期温度	70°C	物質移行	縦分散長	m	0.02
	初期pH	7.30		横分散長	m	0.002
	ベントナイト含有率	70 wt%		分子拡散係数	m ² /sec	5.39×10 ⁻¹⁰
	ケイ砂含有率	30 wt%		陽イオン交換容量	meq/100g	60.1
	スモクタイト含有量	48 wt%		イオン交換	イオン組成	ZNa
乾燥密度	1600 kg/m ³		Z ₂ Ca		7.4	
可溶性塩	CaCl ₂	6.140×10 ⁻⁷ mol/g			ZK	0.6
	CaSO ₄	1.790×10 ⁻⁵ mol/g			Z ₂ Mg	0.7
層間飽和度	S _{int}	31.5%	反応選択係数	2ZNa-Z ₂ Ca	0.69	
平衡鉱物	Calcite(CaCO ₃)	2.6wt%			ZNa-ZK	0.42
	Chalcedony(SiO ₂)	38.0wt%		log K _{G&T}	2ZNa-Z ₂ Mg	0.67
	Pyrite(FeS ₂)	0.7wt%			ZNa-ZH	1.88
	その他、未反応鉱物	58.7wt%	酸解離定数	logK(-)	-7.92	
二次鉱物	Anhydrite, Gypsum, Halite		酸・塩基反応	塩基解離定数	logK(-)	5.67
浸潤溶液組成(濃度固定)	Na ⁺	5.13×10 ⁻¹ mol/l		表面サイト密度*	mol/g	6.50×10 ⁻⁵
	Cl ⁻	5.13×10 ⁻¹ mol/l		有効比表面水*	m ² /g	29

*: スモクタイト単位重量あたり

解析条件として設定した緩衝材中の物質移行、地球化学条件を表1に示す。層間飽和度は、正方形近似の板状層状体8枚がモンモリロナイト粒子を構成し、層間の飽和状態は水分子3層分を仮定して算定した。

4. 解析結果とまとめ

実験環境条件での不飽和間隙水組成を室内試験で直接計測することは困難であるため、可溶性塩元素濃度の分析値を用いてPHREEQCで解析的に決定した不飽和間隙水組成値と比較した。主要な解析結果を図2に示すが、温度分布や浸潤状況、pH, pe, 浸潤溶液中やイオン交換に寄与する移行元素がヒーター近傍で生じる濃縮傾向は比較的良く一致した。沈殿が予見されていたAnhydrite(CaSO₄)も傾向やオーダーは再現可能な範囲となっている。CalciteやAnhydriteの溶解沈澱に起因する液相C濃度やS濃度は検証データとの差が若干見られるが、塩濃縮・析出現象に着目した間隙水化学プロセスは概ね表現可能であることを示唆する結果を得た。但し、保水形態に基づく反応モデルは多くの仮定に基づく高い不確実性を内包していることが予想され、今後は不飽和緩衝材中の微視的構造観察等を通じてモデルの信頼性向上に努めていくことが望まれる。尚、本報告は、平成21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」で得られた成果の一部である。

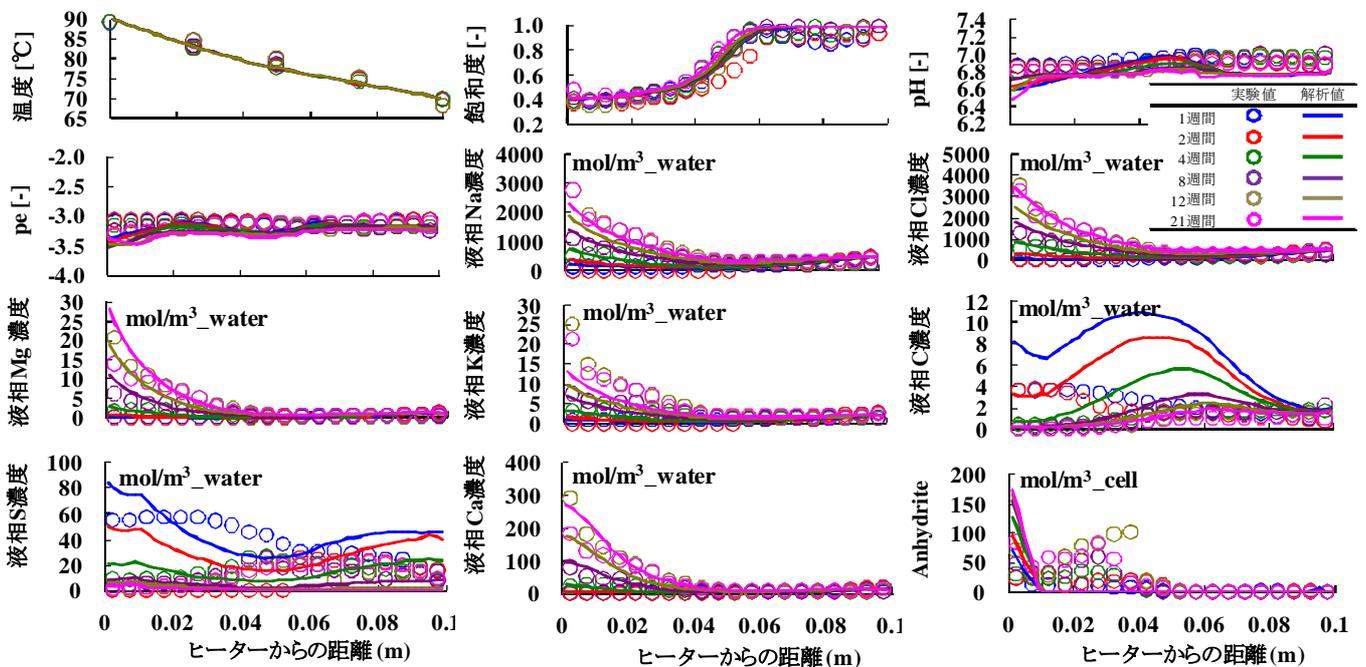


図2 検証解析の代表的な結果

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)木村ら：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, 土木学会第64回年次学術講演会, pp.211-212, 2009.9. 3)日本原子力研究開発機構：平成21年度 処分システム化学環境影響評価高度化開発 報告書, 2010.3.