

## 放射性廃棄物処分におけるセメント系人工バリアの Ca 溶脱現象の 既存数値解析モデルを用いた超長期予測の検討

埼玉大学大学院 学生会員 ○嘉数 孝志

埼玉大学大学院 正会員 浅本 晋吾

### 1. はじめに

日本では、比較的低レベルの放射性廃棄物の処分については、周辺をベントナイトやセメント系材料を適用した人工バリアで覆った地層処分が検討されている。人工バリアは、放射性核種の半減期によっては数千年や数万年といった超長期的な耐久性が求められる。本検討では、Ca 溶脱に関する既存の数値解析モデルを利用して、10000 年といった超長期に渡る Ca 溶脱現象の感度解析を行い、温度によって変化する拡散係数、他種イオンの影響について検討した。また、不確かさを持つパラメータにばらつきを与え、モンテカルロシミュレーションで溶脱開始点の分布について検討した。

### 2. 質量保存則に基づいた Ca 溶脱モデル

(1)Ca 溶脱モデル：横関の研究<sup>[1]</sup>のもと、Ca 溶脱の評価式として、質量保存則に基づいた Ca イオンに関する拡散方程式 (式(1)) を用いた。Ca イオンの固相液相平衡関係は図 1 左に示す Buil モデルを用いた。また、複数のイオンの移動を考慮した Nernst-Planck 式 (式(2)) も用いて、Ca 溶脱における Ca 以外のイオンが共存したときの影響を評価した。拡散係数 (式(3)) に関しては、横関と同様に空隙率の粗大化に伴う拡散係数の増加関数  $f(d)$  (図 1 右)、アレニウス則に従った基本拡散係数 (式(4)) を用いて、空隙の粗大化及び温度による拡散係数の変化も考慮した。Ca 溶脱に伴う空隙率の変化は、横関のモデルを用いた。

(2)解析条件：横関の実構造物から得たデータをもとに、ペースト中や境界での Ca イオン濃度を表 1 のように仮定した。10000 年という超長期では、一部の核種の崩壊熱によりセメント系人工バリアが高温履歴を受けることが想定されている。ここで、廃棄体による発熱特性変化の既往のシミュレーションを参考に、初期温度を 80℃として、1000 年まで 60℃まで線形的に温度低下し、その後 60℃一定の高温履歴を保つと仮定したときの拡散係数を用いた計算も行った。

表 1 解析条件

|                     |      |
|---------------------|------|
| 初期 Ca イオン濃度[mmol/L] | 20.0 |
| 境界 Ca イオン濃度[mmol/L] | 0.22 |
| 初期空隙率               | 0.41 |

$$\frac{\partial(\theta \cdot C)}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left( D \cdot \theta \cdot \frac{\partial C}{\partial x} \right) - \frac{\partial C_p}{\partial t} \quad (1)$$

$$J_i = -k \cdot T \cdot B_i \cdot \left( 1 + \frac{\partial \ln \gamma_i}{\partial \ln C_i} \right) \cdot \frac{\partial C_i}{\partial x} - e \cdot Z_i \cdot B_i \cdot C_i \cdot \frac{\partial \phi}{\partial x} \quad (2)$$

$$D = D_0 \cdot f(\theta) \cdot P_{vol} \quad (3)$$

$$D_0 = a \cdot \exp(-b/T) \quad (4)$$

$t$ : 溶脱開始後の経過時間[s],  $x$ : 境界面からの深さ[m],  $d$ : 空隙率,  $C$ : 細孔溶液中 Ca イオン濃度[mmol/L],  $D$ : 拡散係数[m<sup>2</sup>/s],  $C_p$ : ペースト中固相 Ca 濃度[mmol/L],  $i$ : イオン種,  $J_i$ : イオンフラックス[mol/cm<sup>2</sup>sec],  $k$ : ボルツマン定数[=1.38×10<sup>-23</sup>J/K],  $T$ : 絶対温度[K],  $B_i$ : 絶対移動度[cm<sup>2</sup>/sec/dyne],  $\gamma_i$ : イオン活量係数,  $e$ : 電気素量[=1.60×10<sup>-19</sup>C],  $Z_i$ : イオンの電荷数,  $\phi$ : 静電ポテンシャル[V],  $P_{vol}$ : ペースト体積比補正係数[0.5],  $a, b$ : 回帰係数[a=1.69e-6, b=2.09e+3]

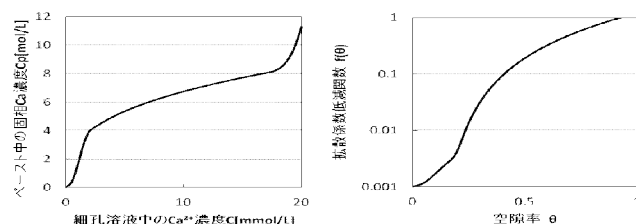


図 1 Buil モデル(左)、空隙率低減関数  $f(\theta)$  (右)

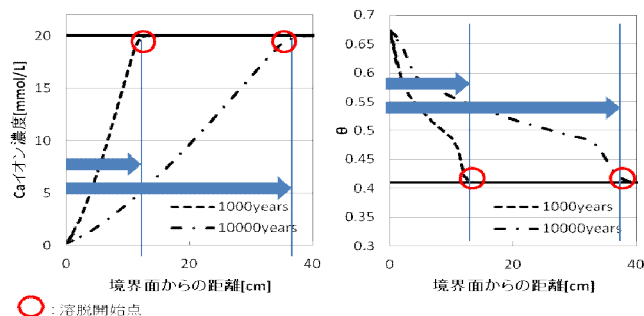


図 2 Ca 溶脱に伴う Ca 濃度変化(左)と空隙率変化(右)

キーワード 余裕深度処分, Ca 溶脱現象, 質量保存則, モンテカルロシミュレーション

連絡先 〒338-8570 埼玉県さいたま市桜区下大久保 255 埼玉大学大学院理工学研究科 建設材料工学研究室

### 3. 解析結果および考察

図2左は、1次元解析で溶脱の開始から10000年経過後までの細孔溶液中のCaイオン濃度の分布を境界面からの深さで表したものである。濃度の低い境界面(境界濃度)付近から溶脱現象が起こり、濃度が徐々に低下している。また、初期濃度20.0mmol/Lから濃度が低下している点がCa溶脱の開始点である。溶脱開始点は時間経過に従って徐々に内部まで進行し、本解析条件では、10000年で約40cmの進行が確認された。図2右に示すように、10000年経過までの空隙率は、Ca溶脱に伴って空隙率が徐々に増加していることが分かる。

表2に、10000年後のCa溶脱に対する温度履歴に関する感度解析結果を示す。高温履歴を考慮した場合、式(4)に従い拡散係数が大きくなるため溶脱が進むことになるが、20℃一定に比べ、10000年後でも溶脱開始点が2cm深くなっただけであった。

さらに、式(2)を用い、共存イオンとして6種類( $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Na}^+$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{OH}^-$ ,  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ )が存在する場合と上記のCaイオンの移動のみを考えた場合で比較解析した結果を表3に示す。ここで、Caイオンの解析条件は同一で、空隙率低減に伴う拡散係数の増加はどのイオンも同じ増加関数 $f(d)$ を用いた。複数イオンの存在した場合、電気泳動速度の中和効果と溶解度の抑制効果が影響し、溶脱の進行が遅くなった。Ca溶脱解析を行う上で複数イオンの考慮の方が精緻であると考えられるが、溶脱進行は10000年でも単一イオンの解析とさほど大きな差はなく、不確かさの多い超長期の計算では、計算負荷が小さくパラメータの少ないCa単一イオンによる解析の方が、様々なケーススタディーを行う上では有効だと思われる。

### 4. 確率論を用いたCa溶脱解析

セメント系人工バリアの初期空隙率は、構成材料の品質、施工の品質、養生期間中の環境変化などで変動し得る。また、余裕深度処分施設のセメント系人工バリアの外周にはベントナイト層があり、ベントナイトのイオン交換性や、負電荷のベントナイト成分へのカルシウムイオンの吸着により境界面におけるCa濃度は不確かさが多い。

表2 温度変化による溶脱開始点

|         | 20℃一定  | 高温履歴   |
|---------|--------|--------|
| 1000年後  | 11.0cm | 13.0cm |
| 10000年後 | 37.0cm | 39.5cm |

表3 イオン数による溶脱開始点

|         | Caイオンのみ | 複数イオン  |
|---------|---------|--------|
| 1000年後  | 13.0cm  | 12.6cm |
| 10000年後 | 39.5cm  | 38.9cm |

表4 モンテカルロシミュレーション条件

|              |           |
|--------------|-----------|
| 初期空隙率        | 0.36~0.46 |
| 境界濃度[mmol/L] | 0.22~5.0  |

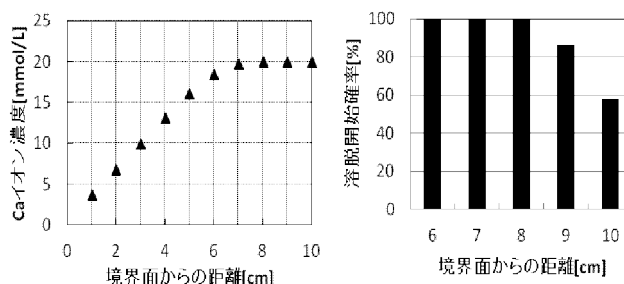


図3 モンテカルロシミュレーションによる溶脱開始点分布と溶脱開始確率

以上から、初期空隙率と境界Ca濃度をランダムに入力し、1000年後の溶脱解析を繰り返し計算する単純なモンテカルロシミュレーションを行った。初期空隙率と境界濃度のばらつき範囲は、表1の条件から10%程度のばらつきとし、表4のように与えた。

図3に、1000回のモンテカルロシミュレーションによって得られた1000年後のCaイオンの平均濃度分布、及び6cm以上の深さに溶脱が達する確率を示す。境界面から8cmまではCa溶脱は確実に進行していると予想される。一方で、1000年で10cmまで溶脱が達する可能性は、ばらつきを考慮した場合、約60%である。つまり、本条件においては、安全性を考えても、人工バリアの厚さを最低でも10cm以上にしておく必要がある。

### 5. まとめ

セメント系人工バリアにおけるCa溶脱は、アレニウス則に従えば、高温履歴による拡散係数増加の影響はさほどなく、複数イオンを考慮すると抑制されることが分かった。また、Ca溶脱予測モデルの精度を高めるには、Ca溶脱の実験的検討から、解析に用いるパラメータのばらつきなどの把握が重要である。

参考文献：[1]横関康祐：コンクリートからの成分溶出を対象とした千年レベルの長期耐久性設計に関する研究，東京工業大学学位論文，2004