

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
連成モデル / 解析コードの開発
(研究報告)

2004 年 2 月

核燃料サイクル開発機構
東海事業所

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村村松 4 番地 49
核燃料サイクル開発機構
技術展開部 技術協力課

電話:029-282-1122(代表)
ファックス:029-282-7980
電子メール:jserv@jnc.go.jp

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:
Technical Cooperation Section,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1184,
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)
2004

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-化学連成モデル / 解析コードの開発 (研究報告)

伊藤 彰*、川上 進*、油井 三和*

要 旨

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、ガラス固化体の発熱、周辺岩盤から人工バリアへの地下水浸潤、地下水浸潤による緩衝材の膨潤圧の発生、緩衝材 / 間隙水化学の変化など、熱的、水理学的、力学的、化学的なプロセスが相互に影響することが予想される。

核燃料サイクル開発機構は、オーバーパ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、「第2次取りまとめ」以降、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。

本稿は、熱-水-応力-化学連成モデル / 解析コードの開発について、これまでの成果と高度化に向けた取り組みを報告するものである。

* 東海事業所 環境保全・研究開発センター 処分研究部 処分バリア性能研究グループ

Model and Code Development for Numerical Experiments on the Coupled Thermo -Hydro -Mechanical and Chemical Processes in the Near-Field of a High-Level Radioactive Waste Repository (Research Document)

Akira ITO*, Susumu KAWAKAMI*, Mikazu YUI*

ABSTRACT

The expected processes in the near-field of a high-level radioactive waste (HLW) repository after emplacement of engineered barrier system (EBS) are the coupled processes among radioactive decay heat from vitrified waste, infiltration of groundwater into buffer material, swelling pressure of buffer material due to saturation, and chemical reaction between EBS material and porewater.

After the second progress report on research and development for the geological disposal of HLW in Japan (H12 report), Japan Nuclear Cycle Development Institute has initiated the model and code development for numerical experiments on the coupled thermo -hydro -mechanical and chemical (THMC) processes, in order to understand and predict the near-field long-term evolution. The focal point of this research is to predict (1) near-field chemistry for overpack corrosion and radionuclide migration; and (2) near-field long-term integrity by chemical degradation.

This report presents the status and future activities on the model and code development for numerical experiments on the coupled THMC processes in the near-field of a HLW repository.

* Tokai Works, Waste Management and Fuel Cycle Research Center,
Waste Isolation Research Division, Barrier Performance Group

目 次

1 .	はじめに	1
2 .	熱-水-応力-化学連成モデル / 解析コード開発に関するこれまでの成果	2
2 . 1	連成モデルの開発	2
2 . 2	連成解析コードの開発	5
2 . 3	連成モデル / 解析コードの検証・確認	6
2 . 4	ニアフィールド連成挙動の事例解析	9
2 . 4 . 1	簡易 1 次元事例解析	9
2 . 4 . 2	3 次元事例解析	12
2 . 5	まとめ	15
3 .	熱-水-応力-化学連成モデル / 解析コードの高度化に向けた取り組み	18
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	18
3 . 1 . 1	概要	18
3 . 1 . 2	緩衝材再冠水段階におけるガスの移動	19
3 . 1 . 3	ガス拡散の構成方程式	20
3 . 1 . 4	緩衝材再冠水段階におけるガスの溶解 / 脱ガス, ガス拡散を考慮した物質移行の支配方程式	22
3 . 1 . 5	緩衝材再冠水段階におけるガスの溶解 / 脱ガスを考慮した地球化学反応の支配方程式	23
3 . 1 . 6	緩衝材再冠水段階におけるガスの溶解 / 脱ガス, ガス拡散を考慮した化学現象の支配方程式	25
3 . 2	鉱物の溶解 / 沈殿に関する速度論モデルの導入	28
3 . 2 . 1	概要	28
3 . 2 . 2	鉱物の溶解 / 沈殿に関する速度論モデル	29
3 . 3	地球化学解析の並列処理による連成解析の高速化	31
3 . 3 . 1	概要	31
3 . 3 . 2	地球化学解析の並列処理	31
3 . 4	まとめ	32
4 .	おわりに	36
5 .	参考文献	37

目 次

図 1-1	ニアフィールドにおける熱-水-応力-化学連成挙動の模式図	1
図 2-1	熱-水-応力-化学連成挙動の概念モデル	2
図 2-2	熱-水-応力-化学連成解析コードの概要	5
図 2-3	連成モデル/解析コードの検証・確認に関する取り組み	6
図 2-4	Drift Scale Test の連成解析結果（試験開始 4 年後）	7
図 2-5	ニアフィールド連成挙動に関する簡易 1 次元事例解析条件	9
図 2-6	ニアフィールド連成挙動に関する簡易 1 次元事例解析結果	11
図 2-7	ニアフィールド連成挙動に関する 3 次元事例解析条件	12
図 2-8	ニアフィールド連成挙動に関する 3 次元事例解析結果（その 1）	13
図 2-9	ニアフィールド連成挙動に関する 3 次元事例解析結果（その 2）	13

目 次

表 2-1	熱-水-応力-化学連成モデルの支配方程式系	3
表 2-2	支配方程式中の記号一覧表	4
表 2-3	Drift Scale Test の連成解析で考慮した鉱物の溶解 / 沈殿に関する 熱力学データ	8
表 2-4	ニアフィールド連成挙動の事例解析で考慮した鉱物の溶解 / 沈殿に関する 熱力学データ	10
表 2-5	「第 2 次取りまとめ」と 3 次元事例解析結果の比較	14
表 2-6	「第 2 次取りまとめ」のレファレンスケースにおける 地下水 (降水系還元性高 pH (FRHP) 型) と緩衝材間隙水の組成 ^{14), 15), 16)}	16
表 2-7	「第 2 次取りまとめ」のレファレンスケースにおける 地下水化学 (降水系還元性高 pH (FRHP) 型) で設定された地球化学反応 ^{14), 15)}	16
表 2-8	「第 2 次取りまとめ」のレファレンスケースにおける 緩衝材間隙水化学で設定された地球化学反応 ^{14), 16)}	17
表 3-1	流体流動, 物質移行に関するモデルの比較	19
表 3-2	多孔質媒体中のガスの拡散係数 D_g に係わる定数	21
表 3-3	(式 3-12) ~ (式 3-20) 中の記号一覧表	27
表 3-4	(式 3-31) ~ (式 3-43) 中の記号一覧表	34

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、ガラス固化体の発熱、周辺岩盤から人工バリアへの地下水浸潤、地下水浸潤による緩衝材の膨潤圧の発生、緩衝材/間隙水化学の変化など、熱的、水理的、力学的、化学的なプロセスが相互に影響することが予想される（図 1-1）。

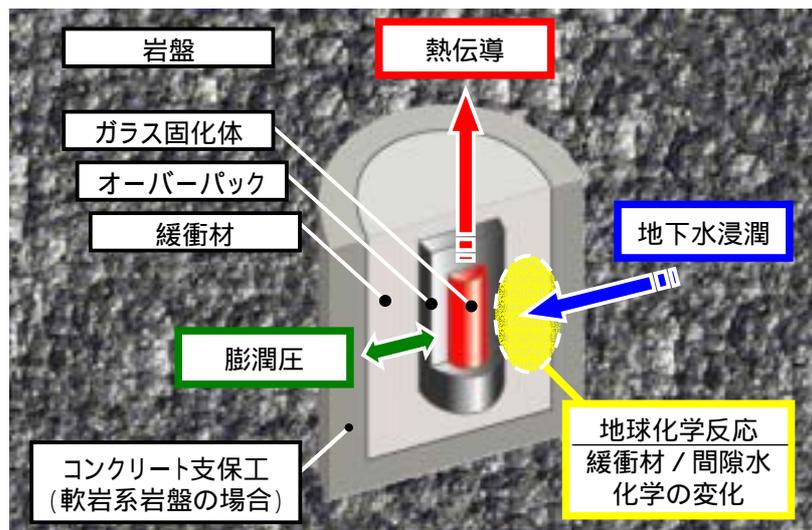


図 1-1 ニアフィールドにおける熱-水-応力-化学連成挙動の模式図

現実の地層処分システムにおける緩衝材/間隙水化学の時間的/空間的変遷を把握することは、人工バリア設計評価（オーバーパック腐食など）や性能評価（核種移行など）の信頼性向上のためにニアフィールド環境条件のリアリティを向上する上で重要である。また、海水系地下水環境や軟岩系岩盤におけるコンクリート支保工を想定した場合、ニアフィールドの健全性を長期に渡って評価するためには、人工バリアを中心とした化学的変遷がニアフィールドの水理場や力学的安定性に与える影響を考慮し、ニアフィールドの全体挙動を定量的に捉えることが肝要である。

「第2次取りまとめ」以降、開発に着手した熱-水-応力-化学連成モデル/解析コード^{1), 2)}を用いたニアフィールドの将来挙動に関する数値実験は、室内/原位置試験で得られる短期の情報とナチュラルアナログで得られる長期の情報の間を結ぶ重要な基盤技術であり、本研究の成果は、人工バリア設計評価や性能評価の信頼性向上のためのニアフィールド環境条件（緩衝材間隙水化学等）のリアリティ向上、実際の地質環境におけるニアフィールドの時間的/空間的変遷の理解・予測、長期的かつ複雑な現象について異なる専門家間での理解共有、に反映が可能である。

本稿は、熱-水-応力-化学連成モデル/解析コードの開発について、これまでの成果と高度化に向けた取り組みを報告するものである。

2. 熱-水-応力-化学連成モデル / 解析コード開発に関するこれまでの成果

2.1 連成モデルの開発

サイクル機構は、国際共同研究 DECOVALEX³⁾等を通じて、緩衝材中最高温度、緩衝材再冠水時間、処分坑道および処分孔の掘削から緩衝材再冠水の間力学的安全性について、現象に立脚した評価を目指し、熱-水-応力連成モデル / 解析コードの開発を進め、その成果を「第2次取りまとめ」の再冠水時の人工バリア挙動評価に反映した⁴⁾。しかしながら、オーバーパ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のためには、図 2-1 の概念モデルに示すように化学的プロセスも含めた個別現象間の相互作用を考慮する必要がある。

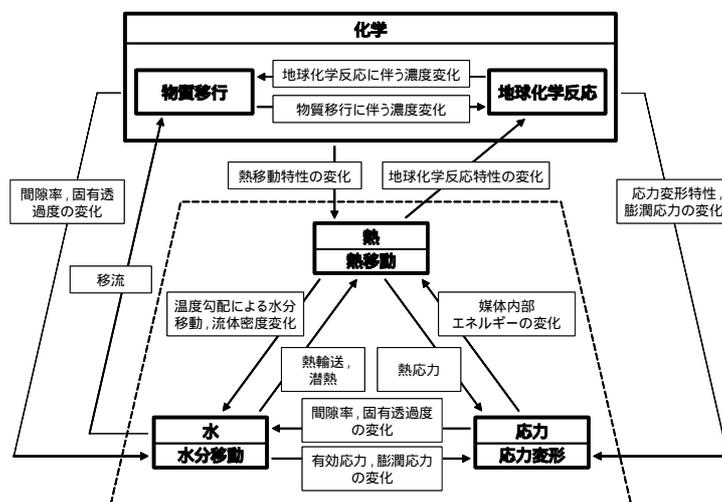


図 2-1 熱-水-応力-化学連成挙動の概念モデル

これら個別現象間の相互作用，および熱-水-応力連成モデル（図 2-1 中の破線内部），物質移行モデル，地球化学モデルの構成方程式，支配方程式を基に開発した熱-水-応力-化学連成モデル²⁾は，熱移動，水分移動，応力変形，化学現象（物質移行，地球化学反応）について，温度 T ，圧力水頭（水分ポテンシャル） ψ ，変位 u_i ，親化学種の総溶解濃度 $C_{<n>}$ ，親化学種の総濃度 $T_{<n>}$ を未知数とした支配方程式系である（表 2-1，表 2-2）。なお，鉱物相の溶解 / 沈殿および水溶性化学種の詳細組成は，地球化学反応の支配方程式群から導出可能となっている。

また，連成モデルの支配方程式系から，熱-水-応力-化学連成挙動に係わる物性値の相互依存性について，緩衝材に関する既存の知見およびデータを取りまとめた。熱移動特性として熱伝導率，比熱，水分移動特性として固有透過度，水分特性曲線，水分勾配水分拡散係数，温度勾配水分拡散係数，応力変形特性として弾性係数，膨潤応力，化学現象特性として化学反応の平衡定数，化学種の拡散係数を取り上げ，各々の温度依存性，含水比依存性，乾燥密度依存性，化学条件依存性の整理を実施した²⁾。

表 2-1 熱-水-応力-化学連成モデルの支配方程式系

1) 熱移動の支配方程式
$\frac{\partial}{\partial x_i}(\rho_l C_l q_l T) - \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\lambda_m \frac{\partial T}{\partial x_i} \right) + \frac{\partial}{\partial t}(\rho_m C_m T) = 0$
2) 水分移動の支配方程式
$-\frac{\partial}{\partial x_i} \left\{ \xi \rho_l D_\theta \frac{\partial \theta}{\partial x_i} + (1-\xi) \frac{\rho_l^2 g K}{\mu_l} \frac{\partial(\psi+z)}{\partial x_i} + \rho_l D_T \frac{\partial T}{\partial x_i} \right\} + \frac{\partial}{\partial t}(\rho_l n S) = 0$
3) 応力変形の支配方程式
$\frac{\partial}{\partial x_j} \left\{ \frac{1}{2} C_{ijkl} \left(\frac{\partial u_k}{\partial x_l} + \frac{\partial u_l}{\partial x_k} \right) - \pi' \delta_{ij} - \frac{E}{1-2\nu} \delta_{ij} \alpha_s (T - T_0) + \chi \delta_{ij} \rho_l g \psi \right\} + \rho_m b_i = 0$
4) 化学現象(物質移行, 地球化学反応)の支配方程式
4-1) 物質移行の支配方程式 (n 番目親化学種の質量保存の式)
$\frac{\partial}{\partial x_i}(\rho_l q_l C_{(n)}) - \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\rho_l n S D_{ij} \frac{\partial C_{(n)}}{\partial x_j} \right) + \frac{\partial}{\partial t}(\rho_l n S T_{(n)}) = 0$
4-2) 地球化学反応の支配方程式(平衡論モデル)
4-2-1) 電気的中性の式
$\sum_{a=1}^{N_A} (z_a m_a) = 0$
4-2-2) 電子保存の式
$\sum_{a=1}^{N_A} (v_a m_a) = OPV + \sum_{p=1}^{N_p} (u_p MIN_p)$
4-2-3) 質量保存の式 (n 番目親化学種の質量保存の式)
$C_{(n)} = \sum_{a=1}^{N_A} (c_{a,n} m_a)$
$C_{(n)} = T_{(n)} + \sum_{p=1}^{N_p} (b_{p,n} MIN_p)$
4-2-4) 鉱物相の溶解/沈殿の式 (p 番目鉱物相の溶解/沈殿の式)
$\sum_{n=1}^N \{ b_{p,n} \log(a_n) \} = \log(K_p)$
4-2-5) 水溶性化学種の質量作用の式 (親化学種を除く a 番目水溶性化学種の質量作用の式)
$\log(a_a) = \log(K_a) + \sum_{n=1}^N \{ c_{a,n} \log(a_n) \}$

表 2-2 支配方程式中の記号一覧表

a_a	a 番目水溶性化学種の活量	OPV	系の総実効原子価
a_n	n 番目親化学種の活量	q_l	液相ダルシー流速
b_i	物体力	S	飽和度
$b_{p,n}$	p 番目鉱物相に対する n 番目親化学種の化学量論係数	T	温度
$c_{a,n}$	a 番目水溶性化学種に対する n 番目親化学種の化学量論係数	T_0	初期温度
C_{ijkl}	弾性マトリクス	$T_{(n)}$	n 番目親化学種の総濃度
C_l	液相比熱	u_i	変位
C_m	媒体比熱	u_p	p 番目鉱物相の実効原子価
$C_{(n)}$	n 番目親化学種の総溶解濃度	v_a	a 番目水溶性化学種の実効原子価
D_{ij}	分散テンソル	z	位置水頭
D_T	温度勾配水分拡散係数	z_a	a 番目水溶性化学種の電荷
D_θ	水分勾配水分拡散係数	α_s	固相の熱線膨張係数
E	ヤング率	δ_{ij}	クロネッカデルタ
g	重力加速度	θ	体積含水率
K	固有透過度(絶対浸透率)	λ_m	媒体熱伝導率
K_a	a 番目水溶性化学種の質量作用の式に対する化学反応の平衡定数	μ_l	液相粘性係数
K_p	p 番目鉱物相の溶解 / 沈殿の式に対する化学反応の平衡定数	ν	ポアソン比
m_a	a 番目水溶性化学種の重量モル濃度	ξ	不飽和パラメータ: 飽和領域で $\xi = 0$, 不飽和領域で $\xi = 1$
MIN_p	p 番目鉱物相の溶解量	π'	膨潤応力に寄与する膨潤圧
N	親化学種の総数	ρ_l	液相密度
n	間隙率	ρ_m	媒体密度
N_A	水溶性化学種の総数	χ	有効応力に関するパラメータ
N_p	鉱物相の総数	ψ	圧力水頭(水分ポテンシャル)

2.2 連成解析コードの開発

熱-水-応力-化学連成解析コード開発に際しては，地球化学モデル導入に伴う複雑な連成解析に対応可能な解析体系の構築，地質環境条件や人工バリア仕様に応じた連成挙動に柔軟に対応可能な解析体系の構築が肝要と考え，柔軟な連成解析体系を実現する連成解析コード開発基盤を活用し，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開発を進めている^{2), 5), 6)}。

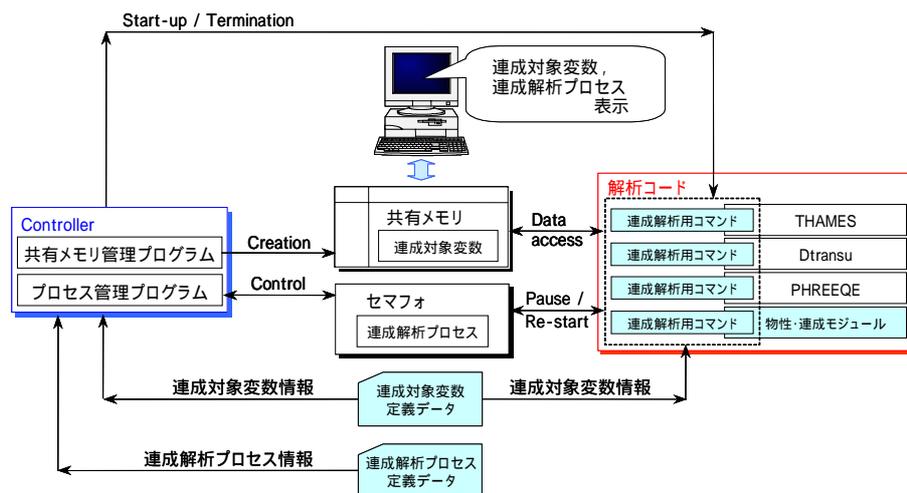


図 2-2 熱-水-応力-化学連成解析コードの概要

本内容を簡潔に説明すると，熱-水-応力連成解析コード THAMES⁷⁾，物質移行解析コード Dtransu⁸⁾，地球化学解析コード PHREEQE⁹⁾の3つの解析コード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となっている（図 2-2）。連成解析を実現するために必要な手続きは，各解析コード中の連成解析用コマンド記述，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・連成モジュール作成，連成対象変数を定義する共有メモリ管理プログラムの入力データ作成，連成解析のプロセス（シーケンス）を定義するプロセス管理プログラムの入力データ作成となっており，連成解析コード開発の作業効率を大きく向上させるものである。

2.3 連成モデル/解析コードの検証・確認

サイクル機構は、連成挙動に関する国際共同研究に参画し、連成モデル/解析コードの検証・確認に取り組んでいる(図2-3)。

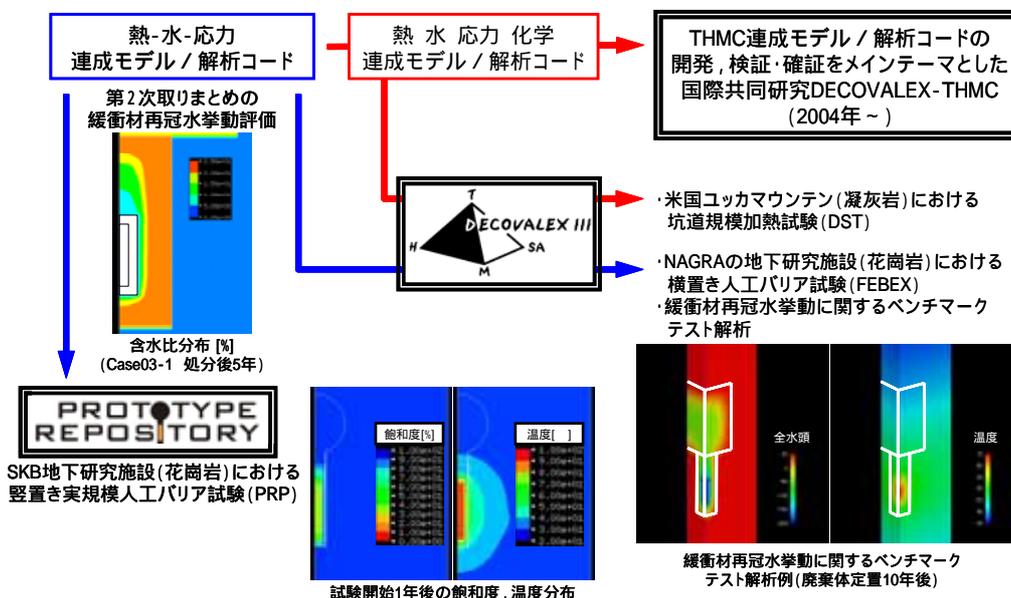


図 2-3 連成モデル/解析コードの検証・確認に関する取り組み

「第2次取りまとめ」の再冠水時の人工バリア挙動評価に用いた熱-水-応力連成モデル/解析コードについては、原位置人工バリア試験への適用性確認を通じた確認として、国際共同研究 Prototype Repository Project にて SKB 地下研究施設で実施されている縦置き実規模人工バリア試験、国際共同研究 DECOVALEX にて NAGRA 地下研究施設で実施されている横置き実規模人工バリア試験の予測・再現解析に取り組んでいる。また、国際共同研究 DECOVALEX では各国の連成モデル/解析コードの比較・検証として、仮想地質環境/人工バリアを想定した緩衝材再冠水挙動に関するベンチマークテスト解析にも取り組んでいる。

一方、現在開発を進めている熱-水-応力-化学連成モデル/解析コードについては、国際共同研究 DECOVALEX で唯一化学現象を含めた連成挙動をテーマとしているユッカマウンテン Drift Scale Test の連成解析に取り組んでいる。Drift Scale Test は、アメリカ・ユッカマウンテンの深度約 250mの地下坑道で実施されている坑道規模の加熱試験で、廃棄体の発熱によって生じる連成挙動を模擬するものである。本試験では、坑道および坑道からのボーリング孔に設置されたヒーターに坑道 1m 当りで約 4kW の熱が負荷されており、国際共同研究 DECOVALEX では本試験の熱-水-化学連成解析が 1 タスクとなっている。本解析タスクには、サイクル機構の他に、DOE のリサーチチームとしてローレンス・バークレー国立研究所が参画しており、熱-水-化学連成解析コード TOUGH-REACT による解析を実

施している。また、本解析タスクには参画していないが、ローレンス・リバモア国立研究所も熱-水-化学連成解析コード NUFT-C によりユッカマウンテンを対象とした解析を実施している。このように、アメリカではユッカマウンテンを対象として、間隙水化学や間隙率変化の評価のために熱-水-化学の連成解析が実施されている。

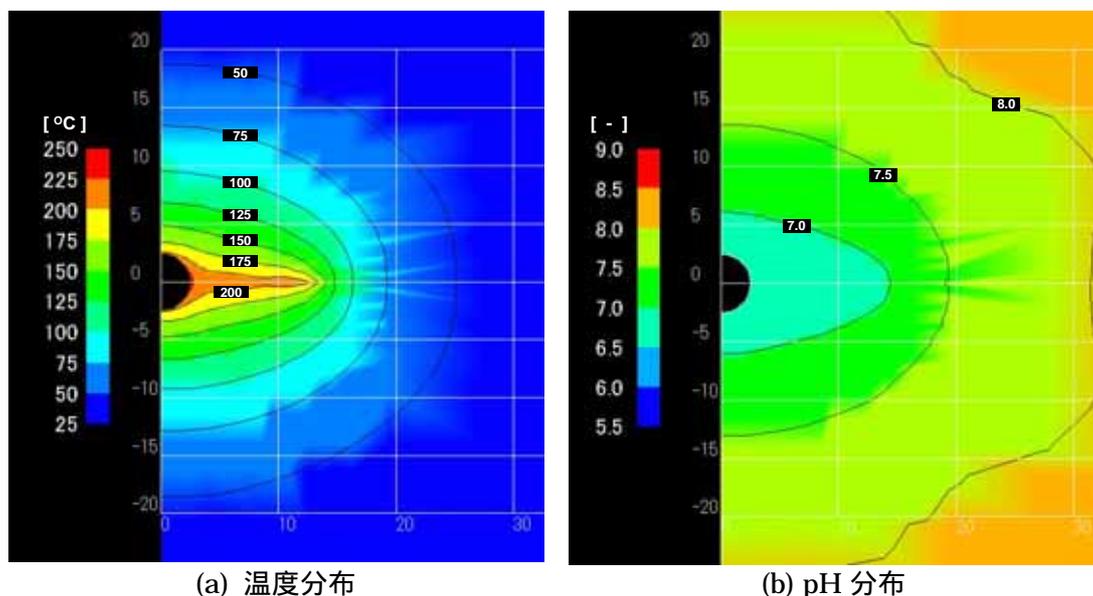


図 2-4 Drift Scale Test の連成解析結果 (試験開始 4 年後)

図 2-4 はサイクル機構が実施した Drift Scale Test の試験開始 4 年後の連成解析結果である。解析領域の初期温度は 25 で、試験開始 4 年後で 200 程度となっており、実測値とも良好な一致を示す結果が得られている。なお、本解析では原位置の鉱物 - 水反応を単純化し、アモルファスシリカ、方解石、石膏の溶解 / 沈殿のみを考慮している。方解石の溶解 / 沈殿、および水溶性化学種の質量作用に関する熱力学データは、温度依存性を考慮した熱力学データベース SPRONS.JNC¹⁰⁾から採用、石膏の溶解 / 沈殿に関する熱力学データは、「第 2 次取りまとめ」の地下水化学の解析で使用された熱力学データベース¹¹⁾から採用、アモルファスシリカの溶解 / 沈殿に関する熱力学データは、ローレンス・バークレー国立研究所が Drift Scale Test の解析で使用しているデータ¹²⁾を採用した (表 2-3)。本解析による試験開始 4 年後の pH は、温度の影響を強く受けて、空間的な変化を示す結果が得られた。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ものである。このように、廃棄体定置後のニアフィールド間隙水化学を把握するためには、個別現象間の相互作用を考慮した連成解析が重要である。今後は、熱-水-応力-化学連成挙動をメインテーマとする国際共同研究 DECOVALEX の次期フェーズの取り組みの中で、連成モデル / 解析コードの開発、検証・確認を進めていく計画である。

表 2-3 Drift Scale Test の連成解析で考慮した鉱物の溶解 / 沈殿に関する
熱力学データ

アモルファスシリカの 溶解 / 沈殿	$\text{silica(am)} + 2\text{H}_2\text{O(l)} = \text{H}_4\text{SiO}_4(\text{aq})$ $\log K_p = A_1 + A_2 T + A_3 / T + A_4 \log T + A_5 / T^2$ $A_1 = -3.8480 \times 10^{-1}$ $A_2 = 0.0000 \times 10^{+0}$ $A_3 = -6.7919 \times 10^{+2}$ $A_4 = 0.0000 \times 10^{+0}$ $A_5 = 0.0000 \times 10^{+0}$
方解石の溶解 / 沈殿	$\text{calcite} = \text{Ca}^{2+} + \text{CO}_3^{2-}$ $\log K_p = A_1 + A_2 T + A_3 / T + A_4 \log T + A_5 / T^2$ $A_1 = -1.5995 \times 10^{+3}$ $A_2 = -2.7099 \times 10^{-1}$ $A_3 = 8.5520 \times 10^{+4}$ $A_4 = 5.8250 \times 10^{+2}$ $A_5 = -5.0108 \times 10^{+6}$
石膏の溶解 / 沈殿	$\text{gypsum} = \text{Ca}^{2+} + \text{SO}_4^{2-} + 2\text{H}_2\text{O(l)}$ $\log K_p = A_1 + A_2 T + A_3 / T + A_4 \log T + A_5 / T^2$ $A_1 = 8.2090 \times 10^{+1}$ $A_2 = 0.0000 \times 10^{+0}$ $A_3 = -3.8539 \times 10^{+3}$ $A_4 = -2.9812 \times 10^{+1}$ $A_5 = 0.0000 \times 10^{+0}$

2.4 ニアフィールド連成挙動の事例解析

開発コード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簡易 1 次元事例解析，および 3 次元事例解析を実施した^{5), 6)}。

2.4.1 簡易 1 次元事例解析

解析領域はニアフィールドをイメージした 1 次元媒体とし (図 2-5)，緩衝材は長さ 0.7 m でベントナイト/ケイ砂混合体 (30wt%，乾燥密度 1.6Mg/m³)，岩盤は長さ 10.0m で硬岩系を想定した (熱伝導率 2.8W/m/K，比熱 1.0kJ/kg/K，固有透過度 $1.0 \times 10^{-15} \text{m}^2$ ，間隙率 0.005)。初期条件は，緩衝材飽和度 40%，岩盤全水頭 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，緩衝材内側を，熱移動について 80 の規定境界，水分移動，物質移行について閉境界 (流入出なし)，岩盤外側を，熱移動について閉境界 (断熱)，水分移動，物質移行について初期値の規定境界としている。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。方解石，玉髄の溶解/沈殿，および水溶性化学種の質量作用に関する熱力学データは，温度依存性を考慮した熱力学データベース SPRONS.JNC¹⁰⁾から採用，スメクタイトの溶解/沈殿に関する熱力学データは，地球化学解析コード EQ3/6¹³⁾の熱力学データベース data0.3245R54 から smectite-high-Fe-Mg のデータを採用した (表 2-4)。

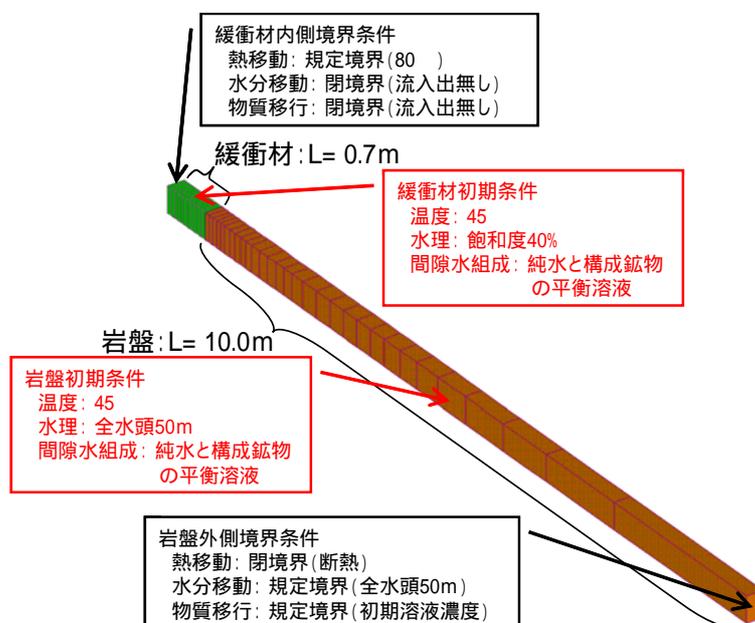


図 2-5 ニアフィールド連成挙動に関する簡易 1 次元事例解析条件

表 2-4 ニアフィールド連成挙動の事例解析で考慮した鉱物の溶解 / 沈殿に関する熱力学データ

方解石の溶解 / 沈殿	calcite = $\text{Ca}^{2+} + \text{CO}_3^{2-}$
	$\log K_p = A_1 + A_2 T + A_3 / T + A_4 \log T + A_5 / T^2$ $A_1 = -1.5995 \times 10^3$ $A_2 = -2.7099 \times 10^{-1}$ $A_3 = 8.5520 \times 10^4$ $A_4 = 5.8250 \times 10^2$ $A_5 = -5.0108 \times 10^6$
玉髄の溶解 / 沈殿	chalcedony + 2H ₂ O(l) = H ₄ SiO ₄ (aq)
	$\log K_p = A_1 + A_2 T + A_3 / T + A_4 \log T + A_5 / T^2$ $A_1 = -3.1238 \times 10^3$ $A_2 = -4.6569 \times 10^{-1}$ $A_3 = 1.7269 \times 10^5$ $A_4 = 1.1300 \times 10^3$ $A_5 = -1.0348 \times 10^7$
スメクタイトの溶解 / 沈殿	smectite-high-Fe-Mg + 8H ⁺ = 0.025Ca ²⁺ + 1.15Mg ²⁺ + 0.1Na ⁺ + 0.2K ⁺ + 0.5Fe ²⁺ + 0.2Fe ³⁺ + 1.25Al ³⁺ + 3.5H ₄ SiO ₄ (aq) + 5H ₂ O(l)
	$\log K_p = A_1 + A_2 T + A_3 / T + A_4 \log T + A_5 / T^2$ $A_1 = -2.6440 \times 10^3$ $A_2 = -3.6000 \times 10^{-1}$ $A_3 = 1.6270 \times 10^5$ $A_4 = 9.4093 \times 10^2$ $A_5 = -9.2540 \times 10^6$

事例解析の結果を図 2-6 に示す。1 年後の結果は、緩衝材内側から岩盤外側に向けた熱伝導、緩衝材への地下水浸潤の段階にあり、Ca 溶液濃度と pH は温度の影響を強く受けて、空間的な変化を示している。解析に使用した境界条件や岩盤物性により、10 年後の結果は、温度の伝播、緩衝材の飽和を終了した段階にあり、Ca 溶液濃度と pH は温度が均一になったことに伴い、空間的に一定の値を示す結果が得られた。

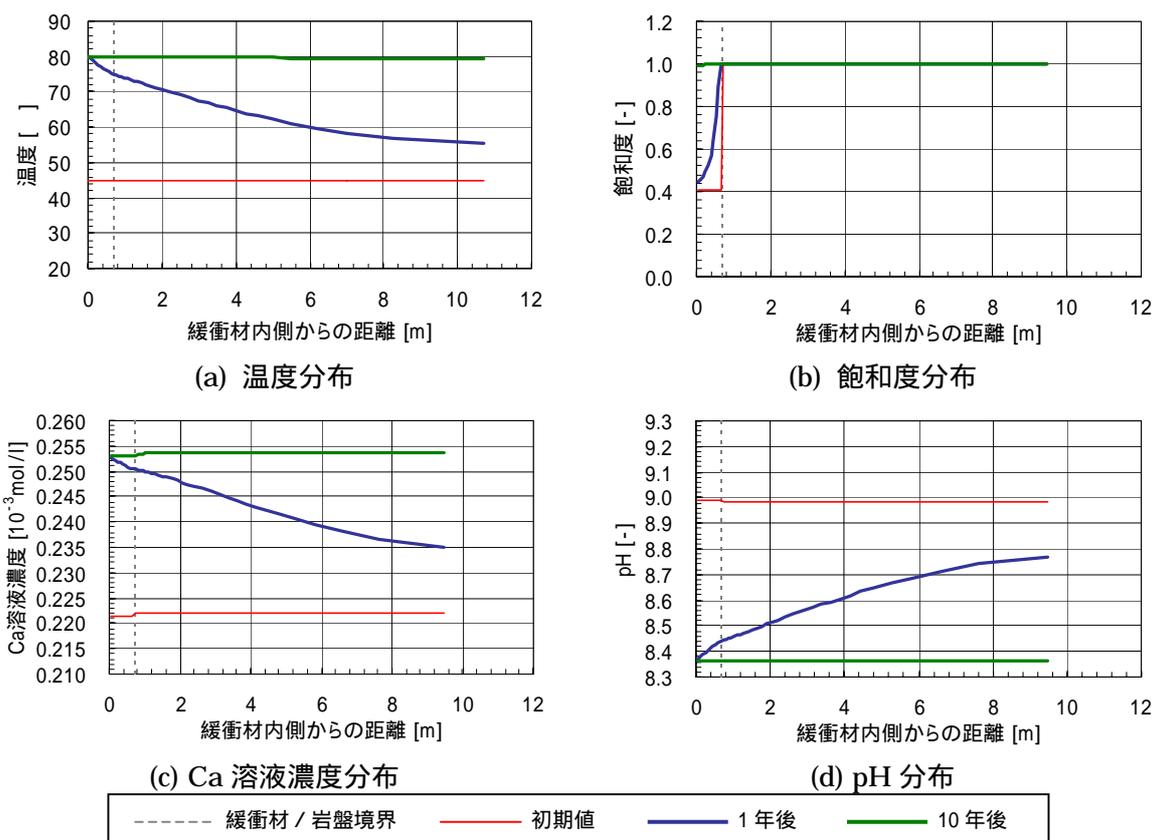


図 2-6 ニアフィールド達成挙動に関する簡易 1 次元事例解析結果

2.4.2 3次元事例解析

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2-7)。初期条件は、緩衝材(ベントナイト/ケイ砂混合体:30wt%,乾燥密度 1.6Mg/m^3)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 $1.0 \times 10^{-15}\text{m}^2$,間隙率0.005)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。なお,本解析では簡易1次元事例解析と同様に,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。鉱物の溶解/沈殿,および水溶性化学種の質量作用に関する熱力学データは,簡易1次元事例解析と同様とした。

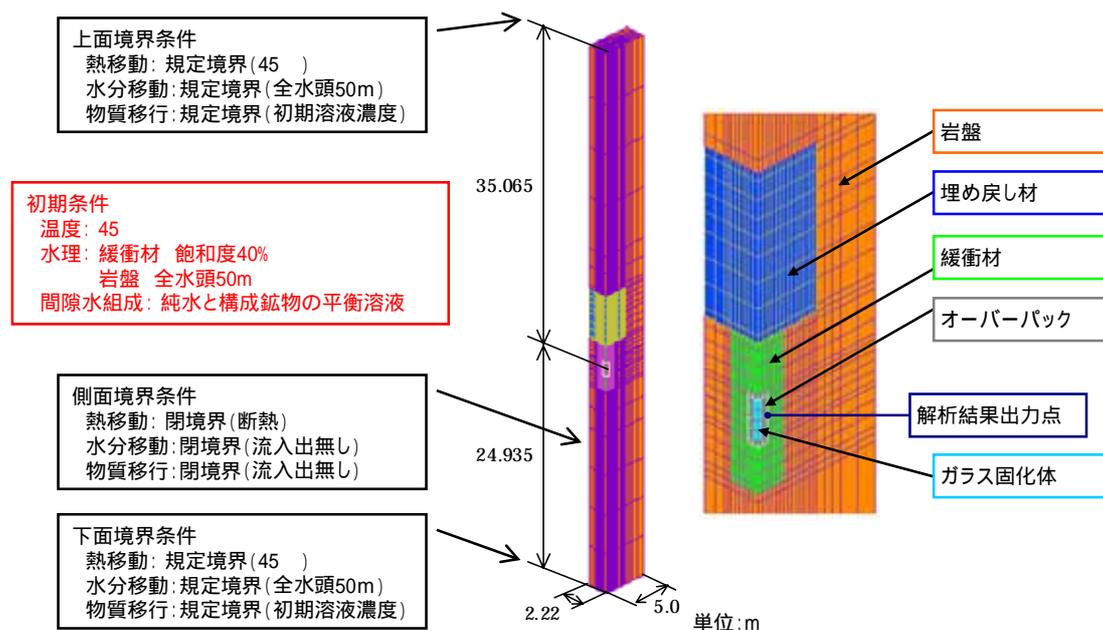


図 2-7 ニアフィールド連成挙動に関する 3次元事例解析条件

事例解析の結果を図2-8および図2-9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2-8に示すように,人工バリア定置後1,000年の時点でほぼ正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,過渡的な温度の変遷を受けて非定常な挙動を強く示している。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2-9は,図2-7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の経時変化である。本図で示されているように,本事例解析では人工バリア定置後

10～20年の時点で、緩衝材中温度が90のピークに達している。また、本出力点におけるpHは人工バリア定置後1,000年の間、約0.8の幅で変動し、ニアフィールドの温度がほぼ定常に至る人工バリア定置後1,000年の時点で、pHも同様にほぼ定常に至り、約8.9を示す結果となった。

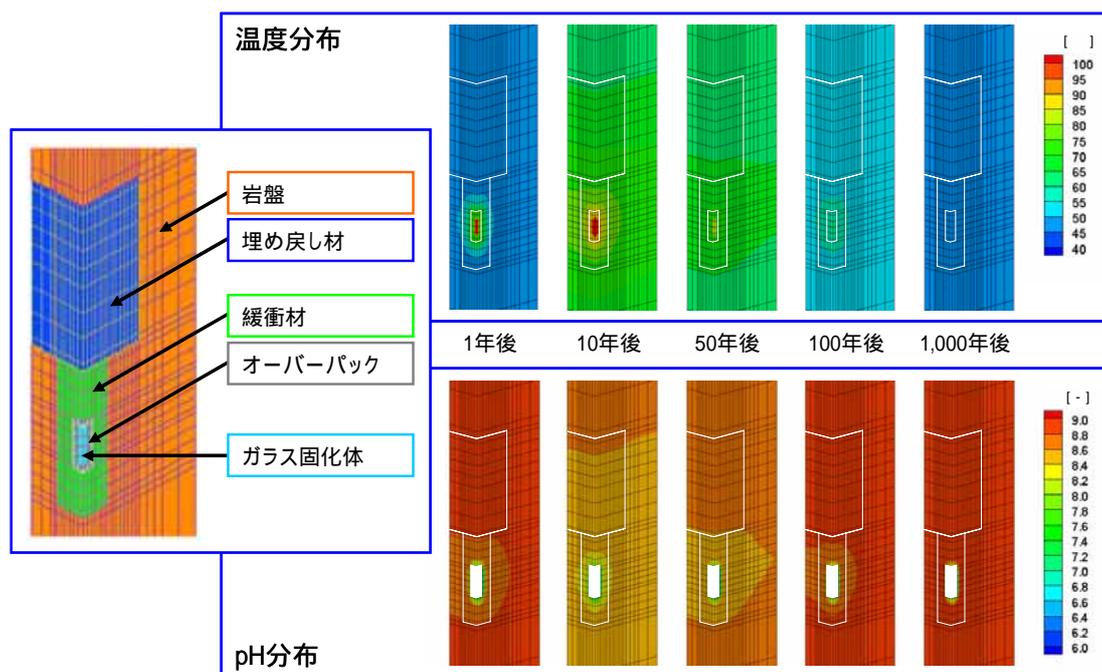


図 2-8 ニアフィールド連成挙動に関する 3次元事例解析結果（その 1）

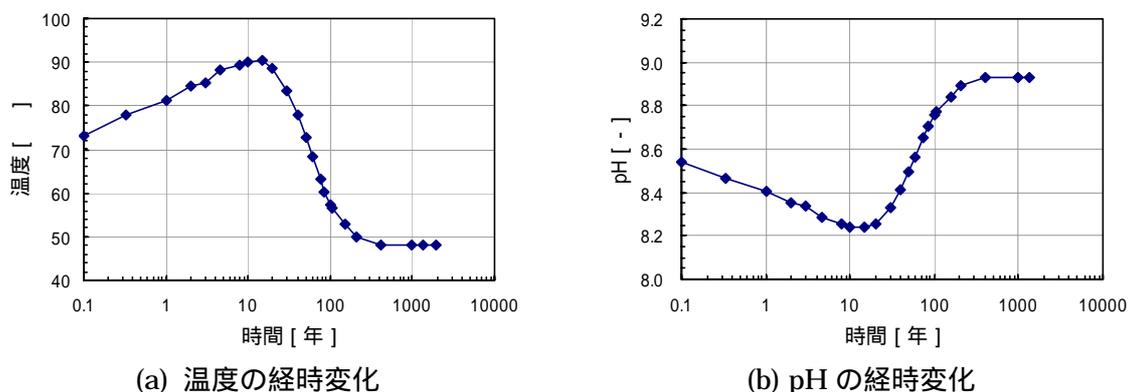


図 2-9 ニアフィールド連成挙動に関する 3次元事例解析結果（その 2）

また、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 1,000 年後の緩衝材間隙水の pH について、「第 2 次取りまとめ」との比較を実施し、概ね整合を得ていることを確認した（表 2-5）。

表 2-5 「第 2 次取りまとめ」と 3 次元事例解析結果の比較

	「第 2 次取りまとめ」	3 次元事例解析結果 (THC 連成解析)
緩衝材中の最高温度	82 (THM 連成解析) ~ 98 (熱解析)	90
緩衝材の再冠水時間	5 年 (THM 連成解析： 高岩盤水圧環境下) ~ 50 年 (THM 連成解析： 低岩盤水圧環境下)	20 年
人工バリア定置 1,000 年後の 緩衝材間隙水の pH	8.4 (地球化学解析： 降水系還元性高 pH (FRHP) 型 モデル地下水環境下)	8.9

2.5 まとめ

本章では、熱-水-応力-化学連成モデル/解析コード開発に関するこれまでの成果として、2.1節にて連成モデルの開発、2.2節にて連成解析コードの開発、2.3節にて連成モデル/解析コードの検証・確認、2.4節にてニアフィールド連成挙動の事例解析、に関する現状をまとめた。

2.4節の事例解析結果から、ニアフィールド間隙水化学は温度の影響を強く受けることが示唆された。「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た3次元事例解析では、ニアフィールドの温度がほぼ定常に至る人工バリア定置後1,000年の時点で、ニアフィールド間隙水化学も同様にほぼ定常に至る結果となった。ニアフィールド温度の時間的/空間的変遷は、廃棄体の発熱仕様、人工バリア仕様、地質環境に左右されるため、現実の地層処分システムにおける緩衝材/間隙水化学の時間的/空間的変遷を把握するためには、個別現象間の相互作用を考慮した連成解析が必要となる。

2.4節の事例解析では試行として、ニアフィールドの地球化学反応を単純化しており、「第2次取りまとめ」の地下水化学(表2-6および表2-7)、緩衝材間隙水化学(表2-6および表2-8)を忠実には取り扱っていない。また、緩衝材再冠水段階における黄鉄鉱(緩衝材構成鉱物)や磁鉄鉱(腐食生成物)の溶解/沈殿挙動を忠実に表現するためには、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の溶解/脱ガス挙動を考慮する必要がある。「第2次取りまとめ」の地下水化学、緩衝材間隙水化学で設定された鉱物の溶解/沈殿、および酸素や二酸化炭素の溶解/脱ガスについては、SPRONS.JNC¹⁰⁾で温度依存性を考慮した熱力学データベースが整備されている。

本章で述べた熱-水-応力-化学連成モデル/解析コードを基盤として、緩衝材再冠水段階における酸素や二酸化炭素の溶解/脱ガス挙動等に関する連成モデル/解析コードの拡張を図ることにより、緩衝材/間隙水化学の時間的/空間的変遷についてより現実的な連成解析が可能となる。

表 2-6 「第 2 次取りまとめ」のレファレンスケースにおける
地下水（降水系還元性高 pH (FRHP) 型）と緩衝材間隙水の組成^{14), 15), 16)}

	地下水 (FPHP 型)	緩衝材間隙水
pH	8.5	8.4
Eh [mV]	-281	-276
単位 : [mol / l]		
Na (Total)	3.6×10^{-3}	2.8×10^{-2}
Ca (Total)	1.1×10^{-4}	5.3×10^{-5}
K (Total)	6.2×10^{-5}	1.2×10^{-4}
Mg (Total)	5.0×10^{-5}	4.2×10^{-6}
Fe (Total)	9.7×10^{-10}	2.0×10^{-9}
Al (Total)	3.4×10^{-7}	3.4×10^{-7}
C (Total)	3.5×10^{-3}	1.6×10^{-2}
S (Total)	1.1×10^{-4}	1.1×10^{-4}
B (Total)	2.9×10^{-4}	2.9×10^{-4}
P (Total)	2.9×10^{-6}	2.9×10^{-6}
F (Total)	5.4×10^{-5}	5.4×10^{-5}
N (Total)	2.3×10^{-5}	2.3×10^{-5}
Cl (Total)	1.5×10^{-5}	1.5×10^{-5}
Si (Total)	3.4×10^{-4}	3.4×10^{-4}

表 2-7 「第 2 次取りまとめ」のレファレンスケースにおける
地下水化学（降水系還元性高 pH (FRHP) 型）で設定された地球化学反応^{14), 15)}

玉髄の溶解 / 沈殿	$\text{SiO}_2(\text{chalcedony}) + 2\text{H}_2\text{O}(\text{l}) = \text{H}_4\text{SiO}_4(\text{aq})$
方解石の溶解 / 沈殿	$\text{CaCO}_3(\text{calcite}) = \text{Ca}^{2+} + \text{CO}_3^{2-}$
曹長石の溶解 / 沈殿	$\text{NaAlSi}_3\text{O}_8(\text{albite}) + 8\text{H}_2\text{O}(\text{l}) = \text{Na}^+ + \text{Al}(\text{OH})_4^- + 3\text{H}_4\text{SiO}_4(\text{aq})$
カオリナイトの溶解 / 沈殿	$\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_5(\text{OH})_4(\text{kaolinite}) + 6\text{H}^+ = \text{H}_2\text{O}(\text{l}) + 2\text{H}_4\text{SiO}_4(\text{aq}) + 2\text{Al}^{3+}$
微斜長石の溶解 / 沈殿	$\text{KAlSi}_3\text{O}_8(\text{microcline}) + 4\text{H}^+ + 4\text{H}_2\text{O}(\text{l}) = \text{K}^+ + \text{Al}^{3+} + 3\text{H}_4\text{SiO}_4(\text{aq})$
黄鉄鉱の溶解 / 沈殿	$\text{FeS}_2(\text{pyrite}) + 2\text{H}^+ + 2\text{e}^- = \text{Fe}^{2+} + 2\text{HS}^-$
磁鉄鉱の溶解 / 沈殿	$\text{Fe}_3\text{O}_4(\text{magnetite}) + 8\text{H}^+ = 2\text{Fe}^{3+} + \text{Fe}^{2+} + 4\text{H}_2\text{O}(\text{l})$

表 2-8 「第 2 次取りまとめ」のレファレンスケースにおける
緩衝材間隙水化学で設定された地球化学反応^{14), 16)}

玉髄の溶解 / 沈殿	$\text{SiO}_2(\text{chalcedony}) + 2\text{H}_2\text{O}(\text{l}) = \text{H}_4\text{SiO}_4(\text{aq})$
方解石の溶解 / 沈殿	$\text{CaCO}_3(\text{calcite}) = \text{Ca}^{2+} + \text{CO}_3^{2-}$
黄鉄鉱の溶解 / 沈殿	$\text{FeS}_2(\text{pyrite}) + 2\text{H}^+ + 2\text{e}^- = \text{Fe}^{2+} + 2\text{HS}^-$
磁鉄鉱の溶解 / 沈殿	$\text{Fe}_3\text{O}_4(\text{magnetite}) + 8\text{H}^+ = 2\text{Fe}^{3+} + \text{Fe}^{2+} + 4\text{H}_2\text{O}(\text{l})$
スメクタイトのイオン交換反応	$n\text{ZNa} + \text{M}^{n+} = \text{Z}_n\text{M} + n\text{Na}^+$
	Z ⁻ : スメクタイトの層電荷 M ⁿ⁺ : 陽イオン(Ca ²⁺ , K ⁺ , Mg ²⁺ , H ⁺)
スメクタイトの表面酸・塩基解離反応	$\text{Surf_sOH} = \text{Surf_sO}^- + \text{H}^+$ $\text{Surf_sOH} + \text{H}^+ = \text{Surf_sOH}_2^+$
	Surf_sOH: スメクタイトの表面サイト

3 . 熱-水-応力-化学連成モデル / 解析コードの高度化に向けた取り組み

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

3 . 1 . 1 概要

第2章に記した熱-水-応力-化学連成モデルは、緩衝材再冠水段階における化学現象について、気相 - 液相間の相互作用を考えない“液相 - 固相の閉鎖系”の取り扱いである。人工バリア定置時の緩衝材中には大気が残存するため、緩衝材再冠水段階における化学現象には気相 - 液相間の相互作用が伴う。緩衝材中の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ついて新たなモデルが必要となる。

3.1.2 緩衝材再冠水段階におけるガスの移動

不飽和媒体におけるガスの移動量は、気相流動に伴う移流フラックス、分散フラックスとガス濃度勾配による拡散フラックスの和と考えられる。本研究で取り扱う緩衝材再冠水段階におけるガスの移動については、緩衝材中最高温度 100 未満の環境下では、局所的で急激なガスの発生は想定されず、大きな気相圧力勾配は存在しないと見込まれること、緩衝材の固有透過度が非常に小さいことから、気相圧力勾配に起因する緩衝材中の気相流動は緩慢なもので、気相流動に伴う移流フラックス、分散フラックスに比して、ガス濃度勾配による拡散フラックスが支配的と考えられる。

以上の観点から、本研究で取り扱う緩衝材再冠水段階におけるガスの移動については、ガス濃度勾配による拡散フラックスのみをモデル化の対象とする。流体流動、物質移行に関する本研究のモデルと代表的な多成分多相流解析コードである TOUGH2¹⁷⁾のモデルの比較を表 3-1 に示す。TOUGH2 は、気相中の物質移行に関して気相流動に伴う移流フラックス、分散フラックスをモデル化の対象としているが、これらは 100 を超える熱水貯留層や天然ガスを含む油層等において、局所的で急激なガスの発生が想定され、大きな気相圧力勾配の存在が見込まれる場合に考慮すべきものと言える。

表 3-1 流体流動，物質移行に関するモデルの比較

		本研究のモデル	TOUGH2 のモデル
流体流動	気相	-	
	液相		
物質移行	気相中	ガス濃度勾配による 拡散フラックス	気相流動に伴う 移流フラックス、分散フラックス + ガス濃度勾配による 拡散フラックス
	液相中	液相流動に伴う 移流フラックス、分散フラックス + 溶解濃度勾配による 拡散フラックス	液相流動に伴う 移流フラックス、分散フラックス + 溶解濃度勾配による 拡散フラックス

3.1.3 ガス拡散の構成方程式

多孔質媒体中のガス拡散の構成方程式は、気相を構成するガス成分それぞれに対して、フィックの法則を基に(式 3-1)で表現される¹⁸⁾。

$$F_{g\langle n \rangle} = -D_g \frac{\partial}{\partial x_i} (\rho_g X_{g\langle n \rangle}) = -D_g \frac{\partial \rho_{g\langle n \rangle}}{\partial x_i} \quad (\text{式 3-1})$$

ここで、 $F_{g\langle n \rangle}$ ：多孔質媒体単位面積を通過する n 番目親化学種から成るガス成分の濃度勾配による拡散フラックス [kg/m²/s]、 D_g ：多孔質媒体中のガスの拡散係数 [m²/s]、 ρ_g ：気相密度 [kg/m³]、 $X_{g\langle n \rangle}$ ：気相中の n 番目親化学種から成るガス成分の質量分率 [-]、 $\rho_{g\langle n \rangle}$ ：気相中の n 番目親化学種から成るガス成分の密度 [kg/m³] である。

なお、気相中の n 番目親化学種から成るガス成分の密度 $\rho_{g\langle n \rangle}$ と n 番目親化学種のガス濃度（気相単位体積に存在する n 番目親化学種のモル数） $G_{\langle n \rangle}$ [mol/m³]の間には、(式 3-2)の関係が成り立つ。本関係を用いれば、(式 3-1)は(式 3-3)で表現できる。

$$G_{\langle n \rangle} = \frac{\rho_{g\langle n \rangle}}{M_{g\langle n \rangle}} b_{g\langle n \rangle, n} \quad (\text{式 3-2})$$

$$f_{\langle n \rangle} = -D_g \frac{\partial G_{\langle n \rangle}}{\partial x_i} \quad (\text{式 3-3})$$

ここで、 $M_{g\langle n \rangle}$ ： n 番目親化学種から成るガス成分の 1mol あたりの質量 [kg/mol]、 $b_{g\langle n \rangle, n}$ ： n 番目親化学種から成るガス成分に対する n 番目親化学種の化学量論係数（ n 番目親化学種から成るガス成分 1mol に含まれる n 番目親化学種の mol 数）[-]、 $f_{\langle n \rangle}$ ：多孔質媒体単位面積を通過する n 番目親化学種のガス濃度勾配による拡散フラックス [mol/m²/s] である。

多孔質媒体中のガスの拡散係数 D_g は(式 3-4)で表現され、表 3-2 に示す定数が採用されている。

$$D_g = m(1-S)D_g^0 \frac{P_g^0}{P_g} \left(\frac{T}{T^0} \right)^{l_g} \quad (\text{式 3-4})$$

ここで、 τ ：屈曲率 [-]、 n ：間隙率 [-]、 S ：飽和度（液相が間隙を占める割合）[-]、 D_g^0 ：標準状態における大気中のガスの拡散係数 [m²/s]、 P_g ：気相圧力（全圧）[Pa]、 P_g^0 ：標準状態気相圧力（全圧）[Pa]、 T ：温度 [K]、 T^0 ：標準状態温度 [K]、 l_g ：ガスの拡散係数の温度依存係数 [-] である。

表 3-2 多孔質媒体中のガスの拡散係数 D_g に係わる定数

	D_g^0 [m ² /s]	l_g [-]	P_g^0 [Pa]	T^0 [K]
酸素 ¹⁸⁾	1.80×10^{-5}	1.67	101,325	273.15
二酸化炭素 ¹⁸⁾	1.35×10^{-5}	1.71	101,325	273.15
窒素 ^{18), 19)}	1.78×10^{-5}	1.67	101,325	273.15
水素 ¹⁹⁾	6.65×10^{-5}	1.66	101,325	273.15
Vapor-Air Mixtures ¹⁷⁾	2.13×10^{-5}	1.80	101,325	273.15

3.1.4 緩衝材再冠水段階におけるガスの溶解/脱ガス、ガス拡散を考慮した物質移行の支配方程式

緩衝材再冠水段階で溶解/脱ガスするガスの拡散を考慮した物質移行の支配方程式は、気相 - 液相間の相互作用を考えない“液相 - 固相の閉鎖系”の取り扱いである第2章の物質移行の支配方程式(式3-5)に、多孔質媒体単位面積を通過する n 番目親化学種のガス濃度勾配による拡散フラックス $f_{<n>}$ の構成方程式(式3-3)を導入することにより、(式3-6)のように導くことができる。

$$\frac{\partial}{\partial x_i}(\rho_l q_l C_{(n)}) - \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\rho_l n S D_{ij} \frac{\partial C_{(n)}}{\partial x_j} \right) + \frac{\partial}{\partial t} (\rho_l n S T_{(n)}) = 0 \quad (\text{式 3-5})$$

$$\frac{\partial}{\partial x_i}(\rho_l q_l C_{(n)}) - \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\rho_l n S D_{ij} \frac{\partial C_{(n)}}{\partial x_j} \right) - \frac{\partial}{\partial x_i} \left(D_g \frac{\partial G_{(n)}}{\partial x_i} \right) + \frac{\partial}{\partial t} (\rho_l n S T_{(n)}) = 0 \quad (\text{式 3-6})$$

(式3-6)において、左辺第1項は液相流動に伴う移流効果(液相中)、左辺第2項は液相流動に伴う分散効果(液相中)、溶解濃度勾配による拡散効果(液相中)、左辺第3項はガス濃度勾配による拡散効果(気相中)、左辺第4項は多孔質媒体中の貯留効果を表現するものであり、物質移行におけるガスの溶解/脱ガス効果は、鉱物の溶解/沈殿効果と同様に、(式3-6)の左辺第4項で表現可能である。

3.1.5 緩衝材再冠水段階におけるガスの溶解 / 脱ガスを考慮した 地球化学反応の支配方程式

人工バリア定置時に緩衝材中に残存するガスの濃度は、気相 - 液相間の相互作用により変化する。緩衝材中の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。

ガスの溶解 / 脱ガス平衡は、液相に作用するガス成分の分圧を規定することで、地球化学解析コード (PHREEQE⁹), PHREEQC²⁰) により計算可能となっており、温度依存性を考慮した熱力学データベース SPRONS.JNC¹⁰) で、ガスの溶解 / 脱ガスの平衡定数が整備されている。

気相単位体積に存在する n 番目親化学種から成るガス成分のモル数 $n_{g\langle n \rangle}$ [mol/m³] は、(式 3-7) で算出され、 n 番目親化学種から成るガス成分の分圧 $p_{g\langle n \rangle}$ [Pa] は、理想気体の状態方程式により (式 3-8) で表現される。

$$n_{g\langle n \rangle} = \frac{\rho_{g\langle n \rangle}}{M_{g\langle n \rangle}} \quad (\text{式 3-7})$$

$$p_{g\langle n \rangle} = n_{g\langle n \rangle} RT \quad (\text{式 3-8})$$

ここで、 R : 気体定数 [J/mol/K], T : 温度 [K] である。

(式 3-2), (式 3-7), (式 3-8) より、 n 番目親化学種から成るガス成分の分圧 $p_{g\langle n \rangle}$ と n 番目親化学種のガス濃度 $G_{\langle n \rangle}$ の間には、(式 3-9) の関係が成り立つ。

$$p_{g\langle n \rangle} = \frac{\rho_{g\langle n \rangle}}{M_{g\langle n \rangle}} RT = \frac{G_{\langle n \rangle}}{b_{g\langle n \rangle, n}} RT \quad (\text{式 3-9})$$

緩衝材再冠水段階における気相 - 液相 - 固相間の相互作用を考慮した地球化学反応は、(式 3-9) で導かれる分圧を持つガス相、および鉱物相を、液相に作用する相として設定した地球化学解析で表現可能となる。

ガス相の溶解 / 脱ガスの式は、地球化学反応の支配方程式群の中で、 n 番目親化学種から成るガス成分を液相に作用する p 番目ガス相と設定し、 n 番目親化学種から成るガス成分の分圧 $p_{g\langle n \rangle}$ 、 n 番目親化学種から成るガス成分に対する n 番目親化学種の化学量論係数 $b_{g\langle n \rangle, n}$ を p_p , $b_{p, n}$ と書き改めることにより、(式 3-10) および (式 3-11) で表現することが出来る。

$$\sum_{n=1}^N \{b_{p, n} \log(a_n)\} = \log(K_p) + \log(p_p / p_p^0) \quad (\text{式 3-10})$$

$$p_p = \frac{G_{\langle n \rangle}}{b_{p, n}} RT \quad (\text{式 3-11})$$

ここで、 N : 親化学種の総数、 $b_{p, n}$: p 番目ガス相に対する n 番目親化学種の化学量論係

数, a_n : n 番目親化学種の活量, K_p : p 番目ガス相の溶解 / 脱ガスの式に対する化学反応の平衡定数, p_p : p 番目ガス相の分圧 [Pa], p_p^0 : 基準圧力 [Pa] (101,325 [Pa]) である。

緩衝材再冠水段階におけるガスの溶解 / 脱ガスを考慮した地球化学反応の支配方程式は, 鉱物相の溶解 / 沈殿の式に加えて, (式 3-10)および(式 3-11)で表現されるガス相の溶解 / 脱ガスの式を導入したものとなる。

3.1.6 緩衝材再冠水段階におけるガスの溶解/脱ガス, ガス拡散を考慮した 化学現象の支配方程式

緩衝材再冠水段階におけるガスの溶解/脱ガス, ガス拡散を考慮した化学現象の支配方程式は, 前項までに構築した 緩衝材再冠水段階におけるガスの溶解/脱ガス, ガス拡散を考慮した物質移行の支配方程式, 緩衝材再冠水段階におけるガスの溶解/脱ガスを考慮した地球化学反応の支配方程式の統合により, (式 3-12) ~ (式 3-20) で表現されるものとなる。(式 3-12) ~ (式 3-20) 中の記号一覧表を, 表 3-3 に示す。

本節では, 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として, 緩衝材再冠水段階におけるガスの溶解/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。本モデルは, 緩衝材再冠水段階における気相 - 液相 - 固相間の相互作用を考慮した地球化学反応を表現可能であり, 今後のニアフィールド連成挙動の事例解析において本モデルを採用することにより, 緩衝材再冠水段階における過渡的な化学現象をより現実的に予測することが可能になるものと考えられる。

1) 物質移行の支配方程式

(n 番目親化学種の質量保存の式)

$$\frac{\partial}{\partial x_i} (\rho_l q_l C_{\langle n \rangle}) - \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\rho_l n S D_{ij} \frac{\partial C_{\langle n \rangle}}{\partial x_j} \right) - \frac{\partial}{\partial x_i} \left(D_g \frac{\partial G_{\langle n \rangle}}{\partial x_i} \right) + \frac{\partial}{\partial t} (\rho_l n S T_{\langle n \rangle}) = 0 \quad (\text{式 3-12})$$

2) 地球化学反応の支配方程式 (平衡論モデル)

2-1) 電気的中性の式

$$\sum_{a=1}^{N_A} (z_a m_a) = 0 \quad (\text{式 3-13})$$

2-2) 電子保存の式

$$\sum_{a=1}^{N_A} (v_a m_a) = OPV + \sum_{p=1}^{N_P} (u_p MIN_p) \quad (\text{式 3-14})$$

2-3) 質量保存の式

(n 番目親化学種の質量保存の式)

$$C_{\langle n \rangle} = \sum_{a=1}^{N_A} (c_{a,n} m_a) \quad (\text{式 3-15})$$

$$C_{\langle n \rangle} = T_{\langle n \rangle} + \sum_{p=1}^{N_P} (b_{p,n} MIN_p) \quad (\text{式 3-16})$$

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 ($p = 1 \sim N_p^{mineral}$)

(p 番目鉱物相の溶解 / 沈殿の式)

$$\sum_{n=1}^N \{ b_{p,n} \log(a_n) \} = \log(K_p) \quad (\text{式 3-17})$$

2 - 4 - 2) ガス相の溶解 / 脱ガスの式 ($p = N_p^{mineral} + 1 \sim N_p^{mineral} + N_p^{gas}$)

(p 番目ガス相の溶解 / 脱ガスの式)

$$\sum_{n=1}^N \{ b_{p,n} \log(a_n) \} = \log(K_p) + \log(p_p / p_p^0) \quad (\text{式 3-18})$$

$$p_p = \frac{G_{(n)}}{b_{p,n}} RT \quad (\text{式 3-19})$$

2 - 5) 水溶性化学種の質量作用の式

(親化学種を除く a 番目水溶性化学種の質量作用の式)

$$\log(a_a) = \log(K_a) + \sum_{n=1}^N \{ c_{a,n} \log(a_n) \} \quad (\text{式 3-20})$$

表 3-3 (式 3-12) ~ (式 3-20)中の記号一覧表

a_a	a 番目水溶性化学種の活量	N_p	鉱物相とガス相の総数 ($N_p^{mineral} + N_p^{gas}$)
a_n	n 番目親化学種の活量	N_p^{gas}	ガス相の総数
$b_{p,n}$	p 番目鉱物相 (ガス相) に対する n 番目親化学種の化学量論係数	$N_p^{mineral}$	鉱物相の総数
$c_{a,n}$	a 番目水溶性化学種に対する n 番目親化学種の化学量論係数	OPV	系の総実効原子価
$C_{(n)}$	n 番目親化学種の総溶解濃度	p_p	p 番目ガス相の分圧
D_g	多孔質媒体中のガスの拡散係数	p_p^0	基準圧力
D_{ij}	分散テンソル	q_l	液相ダルシー流速
$G_{(n)}$	n 番目親化学種のガス濃度	R	気体定数
K_a	a 番目水溶性化学種の質量作用の式に対する化学反応の平衡定数	S	飽和度
K_p	p 番目鉱物相の溶解 / 沈殿 (ガス相の溶解 / 脱ガス) の式に対する化学反応の平衡定数	T	温度
m_a	a 番目水溶性化学種の重量モル濃度	$T_{(n)}$	n 番目親化学種の総濃度
MIN_p	p 番目鉱物相 (ガス相) の溶解量	u_p	p 番目鉱物相 (ガス相) の実効原子価
N	親化学種の総数	v_a	a 番目水溶性化学種の実効原子価
n	間隙率	z_a	a 番目水溶性化学種の電荷
N_A	水溶性化学種の総数	ρ_l	液相密度

3.2 鉱物の溶解 / 沈殿に関する速度論モデルの導入

3.2.1 概要

人工バリアの構成要素である緩衝材には、長期にわたりその性能が変化しないことが期待されている。「第2次取りまとめ」における緩衝材の長期安定性評価では、緩衝材温度を100℃以下とすること、および低アルカリ性セメントを利用し高アルカリ環境を回避することにより、緩衝材の顕著な変質を避けることができ、所期の緩衝材性能が長期にわたり維持されると推定している²¹⁾。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、本研究では、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。

3.2.2 鉱物の溶解 / 沈殿に関する速度論モデル

鉱物の溶解量 MIN_p の時間微分を，反応速度 $RATE_p$ と定義する。

$$\frac{\partial MIN_p}{\partial t} = RATE_p \quad (\text{式 3-21})$$

鉱物の溶解 / 沈殿に関する速度論モデルは，様々な形式で提案されているが，総体的なモデルとして(式 3-22)が示されている²²⁾。

$$RATE_p = Ak \prod_i a_i^{n_i} f(\Delta G) \quad (\text{式 3-22})$$

ここで， A ：反応面積， k ：反応速度定数， $\prod_i a_i^{n_i}$ ：水溶性化学種が反応速度に及ぼす影響を示す項， $f(\Delta G)$ ：平衡状態への到達の度合いが反応速度に及ぼす影響を示す項である。

反応速度定数 k の温度依存性は，アレニウスの式(式 3-23)で表現される。

$$k = k_0 \exp\left(-\frac{E_a}{RT}\right) \quad (\text{式 3-23})$$

ここで， k_0 ：頻度因子， E_a ：活性化エネルギー， R ：気体定数， T ：温度である。

平衡状態への到達の度合いが反応速度に及ぼす影響を示す項 $f(\Delta G)$ については，遷移状態理論に基づくものとして(式 3-24a)が示されている²²⁾。また，多様な鉱物の反応速度を表現すべく(式 3-24a)を発展させたものとして，(式 3-24b)に示すような形式が採用されている^{23), 24)}。

$$f(\Delta G) = 1 - \exp\left(\frac{\Delta G}{RT}\right) \quad (\text{式 3-24a})$$

$$f(\Delta G) = \left\{ 1 - \exp\left(\frac{r_1 \Delta G}{RT}\right) \right\}^{r_2} \quad (\text{式 3-24b})$$

$$\Delta G = RT \ln\left(\frac{IAP_p}{K_p}\right) \quad (\text{式 3-25})$$

ここで， ΔG ：反応のギブスの自由エネルギー， IAP_p ：活量度積， K_p ：平衡定数， r_1, r_2 ：平衡状態への到達の度合いが反応速度に及ぼす影響を示す係数である。

多様な鉱物の反応速度を包括的に表現するために，平衡状態への到達の度合いが反応速度に及ぼす影響を示す項 $f(\Delta G)$ に(式 3-24b)を採用すれば，反応速度 $RATE_p$ は(式 3-26)のようになる。

$$RATE_p = Ak \prod_i a_i^{n_i} \left\{ 1 - \left(\frac{IAP_p}{K_p} \right)^{r_1} \right\}^{r_2} \quad (\text{式 3-26})$$

活量度積 IAP_p ，飽和指数 SI_p は，それぞれ(式 3-27)，(式 3-28)で表現される。熱力学的平衡状態では，鉱物の溶解 / 沈殿に関する平衡論モデルの関係式(式 3-29)が成立し，“飽和

指数 $SI_p = 0$ ”である。このとき，(式 3-26)では“反応速度 $RATE_p = 0$ ”となり，熱力学的平衡状態を表現する平衡論モデルとの整合が確保される。また，熱力学的非平衡状態において，(式 3-26)は，“飽和指数 $SI_p < 0$ (未飽和)”の時に溶解挙動を，“飽和指数 $SI_p > 0$ (過飽和)”の時に沈殿挙動を示すものとなっている。

$$IAP_p = \prod_{n=1}^N a_n^{b_{p,n}} \quad (\text{式 3-27})$$

$$SI_p = \log \left(\frac{IAP_p}{K_p} \right) \quad (\text{式 3-28})$$

$$\sum_{n=1}^N \{b_{p,n} \log(a_n)\} = \log(K_p) \quad (\text{式 3-29})$$

ここで， N ：親化学種の総数， a_n ： n 番目親化学種の活量， $b_{p,n}$ ：鉱物相に対する n 番目親化学種の化学量論係数である。

地球化学解析のための反応速度データについては，Arthur らが平衡状態からかけ離れた非平衡状態における遷移状態速度側に適合するデータを収集している²⁵⁾。また，スメクタイトの溶解 / 沈殿に関する速度論モデルは，様々な形式で提案されているが，遷移状態理論に基づいた代表的なものとして Cama らの報告(式 3-30)²⁶⁾がある。

$$RATE_p = Ak(a_{H^+})^{n_{H^+}} \left\{ 1 - \left(\frac{IAP_p}{K_p} \right) \right\}$$

$$k = 10^{-14.7} [\text{mol} / \text{m}^2 / \text{s}] \quad (\text{式 3-30})$$

$$n_{H^+} = -0.22 [-]$$

鉱物の溶解 / 沈殿に関する速度論モデルの導入に際しては，反応速度式の収集・整備の限界を考慮し，平衡論モデルと速度論モデルの併用を可能とする解析体系が肝要である。また，スメクタイトの溶解 / 沈殿等，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 / 沈殿挙動については，最新の研究成果を基とした反応速度式を採用可能とする解析体系を確保しておかなければならない。

地球化学解析における鉱物の溶解 / 沈殿のモデル化については，地球化学解析コード PHREEQC²⁰⁾で平衡論モデルと速度論モデルの併用が可能となっている。また，本解析コードでは，ユーザーが反応速度式を任意に定義できる“BASIC インタープリター”が整備されており，反応速度のモデル化について解析コード側から制約を受けることなく，最新の研究成果を解析に反映することが可能である。

以上の観点から，本研究では，鉱物の溶解 / 沈殿に関する速度論モデルの導入に際して，地球化学解析コード PHREEQC を採用することとした。

3.3 地球化学解析の並列処理による連成解析の高速化

3.3.1 概要

第2章に記したように、本研究では、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 PHREEQE をベースとした熱-水-応力-化学連成解析コードの開発している。本開発コードによる事例解析では試行として、ニアフィールドの地球化学反応を単純化しており、今後の事例解析においては、「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採用していく必要がある。また、前節までに示したとおり、本研究では、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、鉱物の溶解/沈殿に関する速度論モデルを、熱-水-応力-化学連成モデル/解析コードに導入する計画である。これら考慮事象の拡張は、連成解析の計算時間を増大させる要因となることから、実用的な数値実験体系を確保していくためには、連成解析の高速化に向けた取り組みが必要となる。

3.3.2 地球化学解析の並列処理

連成解析の高速化には、計算負荷を複数のプロセッサに分散し、計算時間を短縮する並列計算が有効である。

有限要素解析の並列計算に関しては、解析領域を各プロセッサに分割し、計算負荷の分散を図る領域分割法が主流となっている。本研究で開発を進めている熱-水-応力-化学連成解析コードを構成する既存解析コードの内、熱-水-応力連成解析コード THAMES、物質移行解析コード Dtransu が、有限要素解析コードに該当するが、領域分割法による並列計算に際しては、既存解析コードのソルバや入出力体系の並列化が必要なことに加えて、並列ソルバや領域分割手法の最適化が必要となる。また、領域分割法による並列計算では、各プロセッサ間の通信に起因するオーバーヘッド（並列計算により生じる間接的な計算の処理時間で、計算目的とは直接的な関係が無いもの）が発生するため、並列化性能の事前評価は容易ではない。

一方、地球化学解析は、連成解析で対象とする解析領域に対して、有限要素毎に個別の計算を逐次実施するものである。したがって、地球化学解析の並列計算は、有限要素を各プロセッサに均等分配することで実現可能であり、並列計算の過程においてプロセッサ間の通信が不要である。このため、地球化学解析の並列処理による計算時間は、利用可能なプロセッサ数にほぼ反比例の関係を示すものと考えられ、有限要素解析の並列計算に比して高い並列化性能が期待できる。

以上の観点から、本研究では、連成解析の高速化に向けて、比較的簡易に実現可能で高い並列化性能が期待できる地球化学解析の並列処理に取り組むこととした。3.2節に示したように、本研究では、鉱物の溶解/沈殿に関する速度論モデルの導入に際して、地球化学解析コード PHREEQC を採用することとしており、これと同時に、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する計画とした。

3.4 まとめ

本章では、熱-水-応力-化学連成モデル/解析コードの高度化に向けた取り組みとして、3.1節にて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、3.2節にて鉱物の溶解/沈殿に関する速度論モデルの導入、3.3節にて地球化学解析の並列処理による連成解析の高速化、に関する検討をまとめた。

本章の検討で得られた熱-水-応力-化学連成モデルの支配方程式系を、(式 3-31) ~ (式 3-43) に総括する。(式 3-31) ~ (式 3-43)中の記号一覧表を、表 3-4 に示す。

本連成モデルは、緩衝材再冠水段階における気相 - 液相 - 固相間の相互作用を考慮した地球化学反応、速度論モデルに基づく鉱物の溶解/沈殿挙動、を表現可能である。

今後の二アフィールド連成挙動の事例解析において本連成モデルを採用することにより、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をより現実的に予測することが可能になるものと考えられる。

1) 熱移動の支配方程式

$$\frac{\partial}{\partial x_i} (\rho_l C_l q_l T) - \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\lambda_m \frac{\partial T}{\partial x_i} \right) + \frac{\partial}{\partial t} (\rho_m C_m T) = 0 \quad (\text{式 3-31})$$

2) 水分移動の支配方程式

$$-\frac{\partial}{\partial x_i} \left\{ \xi \rho_l D_\theta \frac{\partial \theta}{\partial x_i} + (1 - \xi) \frac{\rho_l^2 g K}{\mu_l} \frac{\partial (\psi + z)}{\partial x_i} + \rho_l D_T \frac{\partial T}{\partial x_i} \right\} + \frac{\partial}{\partial t} (\rho_l n S) = 0 \quad (\text{式 3-32})$$

3) 応力変形の支配方程式

$$\frac{\partial}{\partial x_j} \left\{ \frac{1}{2} C_{ijkl} \left(\frac{\partial u_k}{\partial x_l} + \frac{\partial u_l}{\partial x_k} \right) - \pi' \delta_{ij} - \frac{E}{1 - 2\nu} \delta_{ij} \alpha_s (T - T_0) + \chi \delta_{ij} \rho_l g \psi \right\} + \rho_m b_i = 0 \quad (\text{式 3-33})$$

4) 化学現象 (物質移行, 地球化学反応) の支配方程式

4-1) 物質移行の支配方程式

(n 番目親化学種の質量保存の式)

$$\frac{\partial}{\partial x_i} (\rho_l q_l C_{(n)}) - \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\rho_l n S D_{ij} \frac{\partial C_{(n)}}{\partial x_j} \right) - \frac{\partial}{\partial x_i} \left(D_g \frac{\partial G_{(n)}}{\partial x_i} \right) + \frac{\partial}{\partial t} (\rho_l n S T_{(n)}) = 0 \quad (\text{式 3-34})$$

4 - 2) 地球化学反応の支配方程式

4 - 2 - 1) 電気的中性の式

$$\sum_{a=1}^{N_A} (z_a m_a) = 0 \quad (\text{式 3-35})$$

4 - 2 - 2) 電子保存の式

$$\sum_{a=1}^{N_A} (v_a m_a) = OPV + \sum_{p=1}^{N_p} (u_p MIN_p) \quad (\text{式 3-36})$$

4 - 2 - 3) 質量保存の式

(n 番目親化学種の質量保存の式)

$$C_{\langle n \rangle} = \sum_{a=1}^{N_A} (c_{a,n} m_a) \quad (\text{式 3-37})$$

$$C_{\langle n \rangle} = T_{\langle n \rangle} + \sum_{p=1}^{N_p} (b_{p,n} MIN_p) \quad (\text{式 3-38})$$

4 - 2 - 4) 鉱物相の溶解 / 沈殿 , ガス相の溶解 / 脱ガスの式

4 - 2 - 4 - 1) 鉱物相の溶解 / 沈殿の式 ($p = 1 \sim N_p^{mineral}$)(p 番目鉱物相の溶解 / 沈殿の式)

$$\text{平衡論モデル} \quad \sum_{n=1}^N \{ b_{p,n} \log(a_n) \} = \log(K_p) \quad (\text{式 3-39})$$

$$\text{速度論モデル} \quad \frac{\partial MIN_p}{\partial t} = A_p k_p \left(\prod_i a_i^{n_i} \right)_p \left\{ 1 - \left(\frac{IAP_p}{K_p} \right)^{r_{1p}} \right\}^{r_{2p}} \quad (\text{式 3-40})$$

4 - 2 - 4 - 2) ガス相の溶解 / 脱ガスの式 ($p = N_p^{mineral} + 1 \sim N_p^{mineral} + N_p^{gas}$)(p 番目ガス相の溶解 / 脱ガスの式)

$$\sum_{n=1}^N \{ b_{p,n} \log(a_n) \} = \log(K_p) + \log(p_p / p_p^0) \quad (\text{式 3-41})$$

$$p_p = \frac{G_{\langle n \rangle}}{b_{p,n}} RT \quad (\text{式 3-42})$$

4 - 2 - 5) 水溶性化学種の質量作用の式

(親化学種を除く a 番目水溶性化学種の質量作用の式)

$$\log(a_a) = \log(K_a) + \sum_{n=1}^N \{ c_{a,n} \log(a_n) \} \quad (\text{式 3-43})$$

表 3-4 (式 3-31) ~ (式 3-43)中の記号一覧表

a_a	a 番目水溶性化学種の活量	g	重力加速度
a_n	n 番目親化学種の活量	$G_{\langle n \rangle}$	n 番目親化学種のガス濃度
A_p	p 番目鉱物相の反応面積	IAP_p	p 番目鉱物相の溶解 / 沈殿の式に対する化学反応の活量度積
b_i	物体力	K	固有透過度(絶対浸透率)
$b_{p,n}$	p 番目鉱物相(ガス相)に対する n 番目親化学種の化学量論係数	K_a	a 番目水溶性化学種の質量作用の式に対する化学反応の平衡定数
$c_{a,n}$	a 番目水溶性化学種に対する n 番目親化学種の化学量論係数	K_p	p 番目鉱物相の溶解 / 沈殿(ガス相の溶解 / 脱ガス)の式に対する化学反応の平衡定数
C_{ijkl}	弾性マトリクス	k_p	p 番目鉱物相の反応速度定数
C_l	液相比熱	m_a	a 番目水溶性化学種の重量モル濃度
C_m	媒体比熱	MIN_p	p 番目鉱物相(ガス相)の溶解量
$C_{\langle n \rangle}$	n 番目親化学種の総溶解濃度	N	親化学種の総数
D_g	多孔質媒体中のガスの拡散係数	n	間隙率
D_{ij}	分散テンソル	N_A	水溶性化学種の総数
D_T	温度勾配水分拡散係数	N_p	鉱物相とガス相の総数 ($N_p^{mineral} + N_p^{gas}$)
D_θ	水分勾配水分拡散係数	N_p^{gas}	ガス相の総数
E	ヤング率	$N_p^{mineral}$	鉱物相の総数

表 3-4 (式 3-31) ~ (式 3-43) 中の記号一覧表 (続き)

OPV	系の総実効原子価	z_a	a 番目水溶性化学種の電荷
p_p	p 番目ガス相の分圧	α_s	固相の熱線膨張係数
p_p^0	基準圧力	δ_{ij}	クロネッカデルタ
q_l	液相ダルシー流速	θ	体積含水率
R	気体定数	λ_m	媒体熱伝導率
r_{1p} r_{2p}	飽和指数が p 番目鉱物相の反応速度に及ぼす影響を示す係数	μ_l	液相粘性係数
S	飽和度	ν	ポアソン比
T	温度	ξ	不飽和パラメータ：飽和領域で $\xi = 0$, 不飽和領域で $\xi = 1$
T_0	初期温度	π'	膨潤応力に寄与する膨潤圧
$T_{(n)}$	n 番目親化学種の総濃度	ρ_l	液相密度
u_i	変位	ρ_m	媒体密度
u_p	p 番目鉱物相 (ガス相) の実効原子価	χ	有効応力に関するパラメータ
v_a	a 番目水溶性化学種の実効原子価	ψ	圧力水頭 (水分ポテンシャル)
z	位置水頭	$\left(\prod_i a_i^{n_i} \right)_p$	水溶性化学種が p 番目鉱物相の反応速度に及ぼす影響を示す項

4. おわりに

本稿では、オーバーパ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、「第2次取りまとめ」以降、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、予測を目的として開発を進めている熱-水-応力-化学連成モデル/解析コードについて、これまでの成果と高度化に向けた取り組みを報告した。

第2章のニアフィールド連成挙動の事例解析結果からは、ニアフィールド間隙水化学が温度の影響を強く受けることが示唆された。「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た3次元事例解析では、ニアフィールドの温度がほぼ定常に至る人工バリア定置後1,000年の時点で、ニアフィールド間隙水化学も同様にほぼ定常に至る結果となった。ニアフィールド温度の時間的/空間的変遷は、廃棄体の発熱仕様、人工バリア仕様、地質環境に左右されるため、現実の地層処分システムにおける緩衝材/間隙水化学の時間的/空間的変遷を把握するためには、個別現象間の相互作用を考慮した連成解析が必要となる。

第2章の連成モデルは、緩衝材再冠水段階における化学現象について、気相-液相間の相互作用を考えない“液相-固相の閉鎖系”の取り扱いである。人工バリア定置時の緩衝材中には大気が残存するため、緩衝材再冠水段階における化学現象には気相-液相間の相互作用が伴う。緩衝材中の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ついて新たなモデルが必要となる。

第3章では、上記を受けて、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を構築した。また、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上で重要となる鉱物の溶解/沈殿に関する速度論モデルの概要をまとめた。以上の検討を通じて、緩衝材再冠水段階における気相-液相-固相間の相互作用を考慮した地球化学反応、速度論モデルに基づく鉱物の溶解/沈殿挙動、を表現可能な熱-水-応力-化学連成モデルを構築し、その支配方程式系を示した。加えて、実用的な数値実験体系を確保していく上で重要となる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する計画を示した。

今後は、第3章で示した熱-水-応力-化学連成モデルを連成解析コードに反映し、「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採用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。

5 . 参考文献

- 1) 伊藤彰 , 川上進 , 油井三和 : “ 熱-水-応力-化学連成挙動研究の現状と今後の計画 ” , サイクル機構技術資料 , JNC TN8400 2001-028 (2002)
- 2) 伊藤彰 , 川上進 , 油井三和 : “ 熱-水-応力-化学連成挙動に関する数値解析コードの開発 ” , サイクル機構技術資料 , JNC TN8400 2002-022 (2003)
- 3) 大西有三 , 杉田裕 , 伊藤彰 , 川上進 , 油井三和 , 小林晃 , 操上広志 , 千々松正和 , 雨宮清 : “ 人工バリアおよび周辺岩盤における連成モデルの開発プロジェクト 国際共同研究「DECOVALEX」” , 土木学会第 57 回年次学術講演会講演概要集 , CS10-051 , pp.483-484 (2002)
- 4) 核燃料サイクル開発機構 : “ 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 (1999)
- 5) 伊藤彰 , 杉田裕 , 川上進 , 油井三和 , 石原義尚 , 千々松正和 , 根山敦史 , 菱谷智幸 : “ 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 ” , 土木学会第 58 回年次学術講演改講演概要集 , CS7-041 , pp.359-360 (2003)
- 6) Atsushi Neyama, Akira Ito, Masakazu Chijimatsu, Yoshinao Ishihara, Tomoyuki Hishiya, Mikazu Yui, Yutaka Sugita and Susumu Kawakami: “Prototype Code Development for Numerical Experiments on the Coupled Thermo -Hydro -Mechanical and Chemical Processes in the Near-Field of a High-Level Radioactive Waste Repository”, Proceedings of GeoProc2003 (International Conference on Coupled T-H-M-C Processes in Geo-Systems: Fundamentals, Modelling, Experiments & Applications), Part 1, pp.358-363 (2003)
- 7) Masakazu Chijimatsu, Tomoo Fujita, Akira Kobayashi and Yuzo Ohnishi: “Coupled Thermo-Hydro-Mechanical Experiment at Kamaishi Mine, Technical Note 16-99-03, Analyses of Task 2C, DECOVALEX II”, JNC Technical Report, JNC TN8400 99-031 (1999)
- 8) Makoto Nishigaki, Tomoyuki Hishiya and Naro Hashimoto: “Density Dependent Groundwater Flow with Mass Transport in Saturated-Unsaturated Porous Media”, Proceedings of the First Asian-Pacific Congress on Computational Mechanics, pp.1375-1380 (2001)
- 9) David L. Parkhurst, Donald C. Thorstenson and L. Niel Plummer: “PHREEQE - A Computer Program for Geochemical Calculations”, U.S. Geological Survey, Water-Resources Investigations 80-96 (1980)

- 1 0) Randolph C Arthur, Hiroshi Sasamoto, Masahiro Shibata, Mikazu Yui and Atsushi Neyama: “Development of Thermodynamic Databases for Geochemical Calculations”, JNC Technical Report, JNC TN8400 99-079 (1999)
- 1 1) Mikazu Yui, Jiro Azuma and Masahiro Shibata: “JNC Thermodynamic Database for Performance Assessment of High-Level Radioactive Waste Disposal System”, JNC Technical Report, JNC TN8400 99-070 (1999)
- 1 2) Eric Sonnenthal, Nicolas Spycher, John Apps and Ardyth Simmons: “Thermo-Hydro-Chemical Predictive Analysis for the Drift-Scale Heater Test”, Yucca Mountain Site Characterization Project Level 4 Milestone SPY289M4, Lawrence Berkeley National Laboratory (1998)
- 1 3) Thomas J. Wolery: “EQ3/6NR a Computer Program for Geochemical Aqueous Speciation-Solubility Calculations, User’s Guide and Documentation”, UCRL-MA-110662 PT-I, Lawrence Livermore National Laboratory (1983)
- 1 4) 核燃料サイクル開発機構: “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3 地層処分システムの安全評価”, サイクル機構技術資料, JNC TN1400 99-023 (1999)
- 1 5) Mikazu Yui, Hiroshi Sasamoto and Randolph C Arthur: “Groundwater Evolution Modeling for the Second Progress Performance Assessment (PA) Report”, JNC Technical Report, JNC TN8400 99-030 (1999)
- 1 6) 小田治恵, 柴田雅博, 油井三和: “地層処分研究開発第2次取りまとめにおける緩衝材間隙水化学の評価”, サイクル機構技術資料, JNC TN8400 99-078 (1999)
- 1 7) Karsten Pruess, Curt Oldenburg and George Moridis: “TOUGH2 User’s Guide, Version 2.0”, LBNL-43134, Lawrence Berkley National Laboratory (1999)
- 1 8) 中野政詩: 土の物質移動学, 東京大学出版会 (1991)
- 1 9) Kazunori Shimamura: “Gas Diffusion through Compacted Sands”, Soil Science, Vol. 153, No. 4, pp.274-279 (1992)
- 2 0) David L. Parkhurst and C.A.J. Appelo: “User’s Guide to PHREEQC (Version 2) - A Computer Program for Speciation, Batch-Reaction, One-Dimensional Transport and Inverse Geochemical Calculations”, U.S. Geological Survey, Water-Resources Investigations 99-4259 (1999)
- 2 1) 核燃料サイクル開発機構: “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 (2003)
- 2 2) Antonio C. Lasaga: Kinetic Theory in the Earth Sciences, Princeton University Press (1998)

- 2 3) David Savage, David Noy and Morihiro Mihara: "Modelling the Interaction of Bentonite with Hyperalkaline Fluids", Applied Geochemistry, Vol. 17, pp.207-223 (2002)
- 2 4) Josep M. Soler: "Reactive Transport Modeling of the Interaction Between a High-pH Plume and a Fractured Marl: the Case of Wellenberg", Applied Geochemistry, Vol. 18, pp.1555-1571 (2003)
- 2 5) Randolph C Arthur, David Savage, Hiroshi Sasamoto, Masahiro Shibata and Mikazu Yui: "Compilation of Kinetic Data for Geochemical Calculations", JNC Technical Report, JNC TN8400 2000-005 (2000)
- 2 6) J. Cama and C. Ayora: "Modelling the Dissolution Behaviour of a Clayey Barrier", V.M. Goldschmidt Abstracts, pp.271-272 (1998)