

TRU 廃棄物処分の人工バリアシステム

における物質移行—地球化学連成挙動解析に関する研究

— 概 要 —

技 術 資 料		
開示区分	レポ ー ト No.	受 領 日
Σ	J1458 94-004	1995.1.5
この資料は技術管理室保存資料です 閲覧には技術資料閲覧票が必要です 動力炉・核燃料開発事業団 技術協力部技術管理室		

1994 年 3 月

コンピュータソフト開発株式会社

この資料は、動燃事業団の開発業務を進めるため、特に限られた関係者だけに開示するものです。ついては、複製、転載、引用等を行わないよう、また第三者への開示又は内容漏洩がないよう管理して下さい。また今回の開示目的以外のことには使用しないよう特に注意して下さい。

本資料についての問い合わせ下記に願います。

〒107 東京都港区赤坂1-9-13

動力炉・核燃料開発事業団

技術協力部 技術管理室

TRU廃棄物処分の人工バリアシステムにおける 物質移行—地球化学連成挙動解析に関する研究

根山敦史*1 郡 正治*2 西村和哉*1
明石浩一*1 石川裕一*1 渡辺健一*1

要 旨

本研究は、TRU廃棄物の処分システムの挙動を長期にわたって予測するための個別現象のうち、化学反応と物質移行現象を結合した評価コードを対象として、以下の研究を実施した。

- (1) 化学反応と物質移行モデルの連成に関する文献を対象として、モデルの概要、解析コードの長短所、適用例について検討する。本研究では、これらの調査研究から米国で開発されたHYDROGEOCHEMコードを選定した。
- (2) 地球化学モデルによる結果は、適切な熱力学データの量と品質に依存している。本研究では、広く使用され且つ高品質である動燃殿所有のPHREEQE熱力学データベースをHYDROGEOCHEM用の熱力学データベースに変換するプログラムを作成した。
- (3) 解析コードの適用性に関する検討として、一般的な手順に基づき検証・確認解析を実施した。物質移行モジュールの検証は、FEMWATER/FEMWASTE、解析解とのベンチマーク解析を行い、化学モジュールの検証は、PHREEQEとのベンチマーク解析を行った。また、確認は動燃殿で実施した室内実験に基づく解析を行った。
- (4) TRU廃棄物処分システムの人工バリアを対象として、核種移行挙動の試解析を実施した。

本報告書は、コンピュータソフト開発株式会社が動力炉・核燃料開発事業団の委託により実施した研究の成果である。

契 約 番 号 : 0 5 0 D 0 3 0 5

事業団担当部課室及び担当者 : 環境技術開発部地層処分開発室 (間野 正)

*1 技術本部 科学技術部

*2 技術本部

Studies on Coupling Analysis of Transport and Geochemical to Engineered Barrier System for TRU Waste Isolation

Atsushi Neyama*¹ , Masaharu Kohri*²
Kazuya Nishimura*¹, Koichi Akashi*¹
Yuichi Ishikawa *¹, Kenichi Watanabe*¹

Abstract

In this study, the following tasks have performed in order to take in consideration of coupling of transport and geochemical for performance assessment of engineered barrier system for TRU waste isolation.

- (1) We have reserched on the literature for coupling of transport and geochemical models/codes, and discussed their applicability to performance assessment for engineered barrier system of TRU waste isolation. And we have selected coupling code for engineered barrier system of TRU waste isolation. This code is HYDROGEOCHEM which is developed by Dr.Yeh of the Pennsylvania State University under contract with U. S. DOE.
- (2) We have studied on method of operation to thermodynamic database for some models and codes. And we have developed interface program in order to generate thermodynamic database of HYDROGEOCHEM code from data of PHREEQE.
- (3) We have analyzed on verification and validation to confirm applicability of HYDROGEOCHEM code. We have verified FEMWATER/FEMWASTE as benchmark analyses , PHREEQE and analytical equation. And we have refer small scale experimental data which is interaction with water and pure concrete.
- (4) We have analyzed on long term evolution of bentnite and nuclide migration of engineered barrier system for TRU waste isolation by using HYDROGEOCHEM code.

Work performed by Computer Software Development Co., Ltd. under contract with Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation.

PNC Liaison : Waste Technology Development Division , Geological Isolation Section, Tadashi Mano

*1 Scientific Engineering Department Engineering Division.

*2 Engineering Division.

目 次

	項
▪ 要 旨	i
▪ 要 旨	iii
▪ 目 次	v
▪ 表目次	vii
▪ 図目次	ix
1. まえがき	1
2. 実施内容	2
3. 検討結果	
3-1 既存コードの調査	2
3-2 熱力学データベースの効率的な運用方法の検討	3
(1)標準データを作成してこれを使用する方法	3
(2)HYDROGEOCHEM熱力学データ作成用のジェネレータ	4
3-3 モデルの適用性の検討	5
(1)氷理モデルのベンチマーク解析	5
(2)物質移行モジュールのベンチマーク解析	5
(3)地球化学モジュールのベンチマーク解析	5
(4)検証解析	7
3-4 人工バリアの長期挙動解析および核種移行解析の試解析	8
4. あとがき	57

表 目 次

	頁
表 3-1 既存連成コードの調査結果	11
表 3-2 水理・物質移行ベンチマーク解析で使用するパラメータ	12
表 3-3 HYDROFLOW(水理モジュール) 検証結果	13
表 3-4 HYDROGEOCHEM (移行モジュール) 検証結果	14
表 3-5 HYDROGEOCHEM (移流機能) 検証結果	15
表 3-6 HYDROGEOCHEM ver. 1-1ベンチマーク解析結果	16
(純水中における方解石の溶解・沈澱平衡)	
表 3-7 HYDROGEOCHEM ver. 1-1ベンチマーク解析結果	17
(純水中におけるCSH(1.8)の溶解・沈澱平衡)	
表 3-8 HYDROGEOCHEM 改良版ベンチマーク解析結果	18
(純水中における方解石の溶解・沈澱平衡)	
表 3-9 HYDROGEOCHEM 改良版ベンチマーク解析結果	19
(純水中におけるCSH(1.8)の溶解・沈澱平衡)	
表 3-10 HYDROGEOCHEM 改良版ベンチマーク解析結果	20
(純水中における黄鉄鉱の溶解・沈澱平衡)	
表 3-11 HYDROGEOCHEM 改良版ベンチマーク解析結果	21
(純水中における黄鉄鉱・方解石の溶解・沈澱平衡)	
表 3-12 HYDROGEOCHEM 改良版の適用性の検討	22
(酸化還元平衡の入力に対する解の安定性)	
表 3-13 確証解析結果のまとめ	23
表 3-14 ベントナイトの変質解析条件	24
表 3-15 核種移行試解析に関する入力条件 (その1)	25
表 3-16 核種移行試解析に関する入力条件 (その2)	26
表 3-17 核種移行試解析に関する入力条件 (濃度条件)	27

目 次

	頁
図 3-1 移行と化学モジュールの関係(その1)	28
図 3-2 移行と化学モジュールの関係(その2)	29
図 3-3 移行と化学モジュールの関係(その3)	30
図 3-4 移行と化学モジュールの関係(その4)	31
図 3-5 HYDROGEOCHEM熱力学データベース作成用シレクターチャート(その1)	32
図 3-6 HYDROGEOCHEM熱力学データベース作成用シレクターチャート(その2)	33
図 3-7 HYDROGEOCHEM熱力学データベース作成用シレクターチャート(その3)	34
図 3-8 HYDROGEOCHEM熱力学データベース作成用シレクターチャート(その4)	35
図 3-9 HYDROGEOCHEM熱力学データベース作成用入力データ	36
図 3-10 HYDROGEOCHEM熱力学データベース作成用出力データ	37
図 3-11 検証・確認解析に関する手続きのフロー	38
図 3-12 水理・物質移行ベンチマーク解析モデル	39
図 3-13 ベンチマーク解析(拡散)結果	40
図 3-14 ベンチマーク解析(移流)結果	41
図 3-15 円柱供試体浸漬試験結果	42
図 3-16 確認解析モデル	43
図 3-17 確認解析結果	44
図 3-18 核種移行解析モデル概念	45
図 3-19 核種移行解析モデル	46
図 3-20 ベントナイトの変質試験解析例(ベントナイト成分濃度)	47
図 3-21 ベントナイトの変質試験解析例(ベントナイト中の方解石量)	48
図 3-22 ベントナイトの変質試験解析例(間隙水中のpH)	49
図 3-23 U-234の核種移行試験解析例(酸化物系、1000年)	50
図 3-24 U-234の核種移行試験解析例(酸化物系、1000年)	51
図 3-25 U-234の核種移行試験解析例(水酸化物系、1年)	52
図 3-26 U-234の核種移行試験解析例(水酸化物系、1000年)	53
図 3-27 U-234の核種移行試験解析例(水酸化物系、1年)	54
図 3-28 U-234の核種移行試験解析例(水酸化物系、1000年)	55
図 3-29 U-234の核種移行試験解析例(水酸化物系)	56

1. まえがき

T R U 廃棄物の処分システムの挙動を長期にわたって予測するには、処分環境において考えられる様々な個別現象についてモデル化を行い、それらを適切に連成させて評価を行う必要がある。考えられる主な個別現象としては人工バリア（廃棄体、コンクリート、ベントナイト）と地下水との化学反応や人工バリア中の物質移行がある。

本研究では、化学反応と物質移行とを連成させたモデルを対象として既存コードの調査・分析を行いモデルの現状を明確にし、解析コード運用に際して必要となる熱力学データベースの効率的な運用方法を検討する。さらにモデルの適用性の検討を踏まえて人工バリアの長期挙動解析および核種移行の試解析を行う。

2. 実施内容

本年度は以下の範囲について研究を実施した。

- (1)既存連成コードの調査
- (2)熱力学データベースの効率的な運用方法の検討
- (3)モデルの適用性の検討
- (4)人工バリアの長期挙動解析および核種移行の試解析

3. 検討結果

3-1 既存連成コードの調査

既存連成コードの調査においては、化学反応と物質移行とのモデルの連成に関する入手可能な文献を対象として、モデルの概要、解析コードの調査を行った。本研究では、以下の

- ① CHEMTRAN
- ② CHEQMATE
- ③ HYDROFLOW/HYDROGEOCHEM
- ④ ChemXport

コードを対象とした。既存連成コードの調査結果を表 3-1に示すが、化学モジュールの機能、解析次元および入手の可能性に関して充実しているコードは、HYDROFLOW/HYDROGEOCHEMであると判断した。従って、本研究では、HYDROFLOW/HYDROGEOCHEMを採用した。

HYDROFLOW は広く使用されているFEMWATERを簡素化したプログラムであり、HYDROGEOCHEMで必要としている水理情報（任意の時間における圧力水頭の空間分布、全水頭、含水比、ダルシー流速）を計算するコードである。支配方程式、境界条件は、FEMWATERと同じである。

HYDROGEOCHEMは、物質移行の機能としては移流・分散を考慮しており、化学反応においては、固相の沈澱／溶解、イオン交換、表面錯体、化学種分配、酸化還元などの機能を持っている。HYDROGEOCHEMの連成手法は、物質移行と化学反応の支配方程式を同時に

解法するのではなく、最初に任意の時間において空間的な溶液中の物質移動について解法し、次に計算された濃度に基づき固液間の平衡計算を行う。参考のため、HYDROGEOCHEMの物質移行と化学平衡モジュールをコントロールしているサブルーチンGM2DXZのフローを図 3-1～図 3-4に示す。

また、HYDROFLOW/HYDROGEOCHEMの詳細な分析を目的として、HYDROFLOW/HYDROGEOCHEMの取扱い説明書を邦訳した。さらに、文献調査結果の詳細は、別冊の文献集に添付した。

3-2熱力学データベースの効率的な運用方法の検討

地球化学モデルの解析結果は、膨大な熱力学データベースの量と品質に依存する。一般的には、熱力学データベースの統一的な管理はされておらず、熱力学データベースは解析コード毎に管理（PHREEQE, EQ3/6）されるか、または解析コードが熱力学データベースを持っていない場合は、その都度膨大な時間を費やして熱力学データベースを作成しなければならない（HYDROGEOCHEM, CHEMTRAN）。従って、熱力学データベースの品質維持と解析作業の効率性の観点から、熱力学データベースの整備に関する検討を実施した。検討結果を以下に示す。

(1)標準データを作成してこれを使用する方法

標準データとは、HYDROGEOCHEM用の熱力学データベースを先ず作成して、これを標準データベースと呼ぶこととする。先ず、PHREEQE の熱力学データベースを全てHYDROGEOCHEM用に変換しておく。次に、解析に応じて変換された熱力学データベースを入力条件として実行する方法、または変換された熱力学データベースから、解析に関与するデータのみを自動選択させる方法が考えられる。以上の方法は、インターフェイスプログラム（PHREEQE ⇒HYDROGEOCHEM）、解析に関与するデータを自動選択するためのインターフェイスプログラムまたは、HYDROGEOCHEM本体のプログラム修正などの作業が必要となる。

(2)HYDROGEOCHEM熱力学データ作成用のジェネレーター

熱力学データ作成用のジェネレーターとは、ユーザーはHYDROGEOCHEMのデータセット19まで（要素化学種の指定）を作成し、これ以降のデータを自動的に作成するプログラムのことである。ユーザーは、HYDROGEOCHEMのデータセット19までを作成し、このファイルを一旦保存する。ただし、データセット19では、予めPHREEQE の熱力学データベースにおいて登録されている親化学種の認識番号（例えば、Caは 4、Feは 8）を59～60カラムの位置で指定する。その後で、ユーザーは熱力学データ作成用のジェネレーターを実行することにより、PHREEQE の熱力学データベースとHYDROGEOCHEMのデータセット19までのデータに基づき、データセット 1～19を含むデータセット20以降のデータを作成するものである。

以上の検討により、早急に対処可能となる方法としては、HYDROGEOCHEM熱力学データ作成用のジェネレーター作成であると考え、この方針に基づきプログラムを作成した。作成したプログラムのフローチャートを図 3-5～図 3-8に示す。また、本プログラムに起動した際の入力データ、作成したHYDROGEOCHEM用の熱力学データの一例を図 3-9、図3-10に示す。

3-3モデルの適用性の検討

TRU廃棄物処分システムの性能を評価するに際しては、まずモデルの適用性について検討する必要がある。モデルの適用性に関する判断基準としては、一般的にモデルの検証および確認を実施しておく必要がある。検証および確認の一般的な手続きの概念を図3-11に示す。本研究の検証では、HYDROFLOW/HYDROGEOCHEMの水理・物質移行・地球化学モジュール各々について検証を実施した。検証解析の方法としては、一般的に広く採用されているベンチマーク解析を行った。検討内容としては、水理モデルは、FEMWATERとHYDROFLOW の比較を実施し、物質移行モジュールは、拡散、移流機能に対してそれぞれFEMWASTEとHYDROGEOCHEMの比較および解析解とHYDROGEOCHEM（拡散機能のみ）の比較を行った。地球化学モジュールは、PHREEQE とHYDROGEOCHEMの比較を行った。

(1)水理モデルのベンチマーク解析

水理モデルのベンチマーク解析は、図3-12に示すカラムモデルとした。解析で用いた物性値は、表 3-2に示すデータを採用した。また、境界条件はディリクレ条件にて水頭圧力を入力しており、節点1、2 において0.317(cm)、節点41、42において0(cm)とした。解析の結果を表3-3 に示すが、FEMWATERとHYDROFLOW の結果（ダルシー流速および水頭圧力）は一致していることを確認した。

(2)物質移行モジュールのベンチマーク解析

物質移行の検証として拡散機能に着目した解析は、水理情報においてダルシー流速を 0とした。解析で用いた物性値は、表 3-2に示すデータを採用した。また、境界条件はディリクレ条件にて濃度を入力しており、節点1、2 において 10^{-11} (mol/L)とし、外側の節点41、42において 10^{-30} (mol/L)のディリクレ条件を与えた。解析の結果を

表 3-4に示すが、FEMWASTEとHYDROGEOCHEMの結果は時間の増加とともに一致するが、初期段階（本研究では40日）では差が大きくなる。一方、解析解とHYDROGEOCHEMの解は、時空間における濃度がほぼ一致することを確認した。また、参考のためカラム内の濃度分布を図3-13に示す。

移流機能に着目した解析は、3-3 (1)で得られた水理情報に基づき実施した。解析で用いた物性値は、表 3-2に示すデータを採用した。また、境界条件はディリクレ条件にて濃度を入力しており、節点1、2 において 10^{-11} (mol/L)とし、外側の境界条件はFEMWASTEではノイマンの条件を設定し、HYDROGEOCHEMでは外方向にダルシー流速のみ設定した。解析の結果を表 3-5に示すが、FEMWASTEとHYDROGEOCHEMはほぼ一致していることを確認した。また、参考のためカラム内の濃度分布を図3-14に示す。

(3)地球化学モジュールのベンチマーク解析

地球化学モジュールのベンチマーク解析は、地球化学の現象に応じて溶解、沈澱、酸化還元の検証解析を実施した。溶解・沈澱の機能確認を行うため、方解石／純水およびCSH(1.8)／純水系の平衡計算を行った。ベンチマーク解析結果を表 3-6、3-7 に示すが、HYDROGEOCHEMはPHREEQE の結果と著しく異なることが確認できた。従って、米国の

著者に確認すること及びHYDROGEOCHEMに関する情報を入手する目的として、打合せを行った（打合せ議事録の詳細は、文献集に記載）。結論としては、現バージョンのHYDROGEOCHEMでは溶解問題が解析出来ないため、すでに米国では改良したとのことであった（詳細は成果報告書に記載）。ただし、沈澱後の再溶解機能は使用可能であることから、溶解現象を取り扱う場合は、初期条件において沈澱させる必要がある。以上のことから、純粋な溶解機能を可能にするため、地球化学モジュールのみの改良を行った。

改良バージョンを用いて、ベンチマーク解析を行った結果を表 3-8～3-11に示す。

表 3-8は、方解石／純水系の平衡計算結果であり、HYDROGEOCHEMとPHREEQE は一致することを確認した。また、このケースの沈澱問題においてはオリジナルのHYDROGEOCHEMも同一の解を与える。

表 3-9は、CSH(1.8)／純水系の平衡計算結果であり、HYDROGEOCHEMとPHREEQE は一致することを確認した。

表3-10は、黄鉄鉱／純水系の平衡計算結果である。先ず、鉄と硫黄の初期濃度を 0 とした場合は、PHREEQE のイオン濃度よりも大きめの解を得る。一方、鉄と硫黄の初期濃度を 10^{-20} (mol/l)にした場合において、各イオン濃度はPHREEQE の結果と同一のオーダーとなるが、PHREEQE よりも低めの値となる。

表3-11は、黄鉄鉱・方解石／純水系の同時平衡計算結果である。結果の傾向としては、方解石との平衡は両者とも一致するが、黄鉄鉱との平衡に関連し、鉄および硫黄の濃度は前記の傾向と同様にHYDROGEOCHEMの方が低めの値となっている。

また、表3-12は、酸化還元平衡の計算（例えば、黄鉄鉱／純水系）において、入力で指定する p_e の範囲を変化させた場合の結果の一例を示している。 p_e を20～-20. とした場合は、地球化学モジュールの中で処理しているヤコビアンマトリックスの計算においてエラーが発生した。これらのことから、酸化還元平衡に関与する化学種を取り扱う場合は、 p_e の範囲指定に際して十分に注意する必要がある。一般的に、 p_e を20～-20. は水の安定限界を含むが、現実的な数値とは言えないことから、 p_e の範囲指定は-10. ～10程度が適切であると思われる。

(4) 確証解析

確証解析においては、動燃殿が別途実施している「コンクリートの変質挙動に関する研究」で取得した実験データに基づく解析を実施した。実験は、溶液中にコンクリートを充填した円柱供試体を浸漬するものであり、得られた結果の一例として、図 3-15 は浸漬 1 年後における円柱供試体内部の CaO の分布を示す。今回の確証解析においては、円柱供試体内部の残存 Ca を計算し、実験値と比較するものである。本報告では、現在バージョンの HYDROGEOCHEM が純粋な溶解機能を持たないことから、HYDROGEOCHEM の再溶解機能を用いて実施した。解析モデルを図 3-16 に示す。尚解析で使用した物性値を以下に示す。

・固相側のデータ

ダルシー流速	:	0.0 (m/sec)
分散長	:	0.0 (m)
実効拡散係数	:	1×10^{-10} (m ² /sec)
空隙率	:	0.34 (-)
乾燥密度	:	2.35 (g/cm ³)
鉱物	:	方解石

・溶液側のデータ

ダルシー流速	:	0.0 (m/sec)
分散長	:	0.0 (m)
実効拡散係数	:	1×10^{-10} (m ² /sec)
空隙率	:	0.99 (-)
境界濃度	:	1×10^{-05} (mol/L)
水溶性化学種	:	方解石 / 純水相互作用で支配的な化学種

解析による一年後の残存 Ca 量（最大値で無次元化）の分布を図 3-17 に示す。定性的には分析値と同一の傾向を示すが、定量的には分析値よりも残存 Ca 量は少ない。この差は、以下のことが考えられる。また、参考のため、360 日後における残存 Ca 量（最大値で無

次元化)を表 3-8に示す。

- ・固相の設定において、CSH シリーズ及び $\text{Ca}(\text{OH})_2(\text{s})$ よりも溶解度の低い方解石を設定している。
- ・実験の液固比に対して解析モデルの液固比は小さめとなっていることから、本解析モデルの溶液側は短時間で濃度が均一となる。

3-4人工バリアの長期挙動解析および核種移行解析の試解析

(1)人工バリアの長期挙動試解析

ここでは、人工バリアの長期挙動試解析を図 3-19 に示す一次元カラムモデルにより、カラム内に充填されているベントナイト/間隙水の相互作用を考慮した試解析を実施することとする。ベントナイト/間隙水の相互作用では、ベントナイト中の方解石の溶解および方解石の溶解によって浸出したCaとベントナイトに含有しているナトリウムモンモリロナイトのNaとのイオン交換を考慮している。また、物質移行は拡散を考慮している。解析で考慮した境界条件(境界濃度)のうち、廃棄体側はコンクリートによって間隙水が支配されていると考え、高pH条件、高Ca濃度条件としている。これらの値は、別途、地球化学平衡モデルPHREEQEにより、CSH(1.8)との平衡を考慮して設定した。ベントナイトの変質試解析を実施する際の境界濃度、地球化学、移行に関する条件の詳細を表 3-14 に示す。

ベントナイトの変質試解析の結果の一例を図 3-20 ~図 3-22 に示す。図 3-20 は、ベントナイトの成分濃度として、Z-Na(ナトリウムモンモリロナイトに相当)と $\text{Z}_2\text{-Ca}$ (カルシウムモンモリロナイトに相当)に着目し、0年と1000年の時点における分布を示したものである。イオン交換の効果により、Z-Naはカラム全体に渡って減少し、それに対して $\text{Z}_2\text{-Ca}$ は時間とともに増加する傾向を示している。 $\text{Z}_2\text{-Ca}$ のカラム内の分布は、岩体側でピークを示しており、これは、カラム内において岩体側の方がCa濃度が低く、ベントナイト中の方解石の溶解が促進されていると考える。

図3-21は、ベントナイト中の方解石の濃度分布を示している。ベントナイト中の方解石は、前述の様に岩体側のCa濃度がコンクリート側に比べて低いことから、時間の経過

につれて消費されていく。一方、コンクリート側の方解石濃度は、廃棄体として考えているコンクリートからの高Ca濃度の流入の影響により、沈澱する傾向にある。

図3-22は、ベントナイト間隙水中のpHの分布を示したものである。間隙水中のpHは時間の経過に従って増加する傾向にある。ここで、pH分布のピーク(pH=12.2)は、イオン交換によりCa型のベントナイトが最も多くなる位置を示している。

なお、参考のためベントナイトの変質試験解析を行った際の入力データリストを付録-Dに示す。

(2)人工バリアの核種移行試験解析

核種移行試験解析は、人工バリアの長期挙動試験解析で使用した一次元モデルにて行った。また、ベントナイト/間隙水相互作用のモデル化についても人工バリアの長期挙動試験解析と同一の条件・方法を用いている。核種移行試験解析では、TRU 廃棄物処分において代表的な核種としてCs-135, I-129, Tc-99, U-234を採用した。さらに、これらの核種のうち、Cs-135, I-129はセメント固化体、アスファルト固化体のケースを考慮し、Tc-99, U-234 は、酸化物、水酸化物のケースを対象として、計 8ケースの試験解析を行った。

本試験解析では、各核種の吸着メカニズムとして、Cs-135はイオン交換モデル、I-129はKdモデル、Tc-99、U-234 は表面錯体モデルをそれぞれ採用した。

試験解析の入力条件のうち、各々の核種の溶解度(境界濃度)、その他の元素の境界濃度、使用した水溶性化学種および鉱物種、使用した吸着化学種の条件を、表 3-15 および表 3-17(核種以外の境界濃度)に示す。また、表面錯体モデルのパラメータ、ベントナイト/間隙水相互作用の情報、ベントナイトの物性、水理、その他の条件を表 3-16に示す。

U-234(酸化物系、水酸化物系)の試験解析結果の一例を、それぞれ図3-23~図3-29に示す。図3-23は、酸化物系における1000年時点での全溶解濃度と全吸着濃度をプロットしたものである。全吸着濃度分布は全溶解濃度とほぼ同一の分布傾向を示すが、カラム

の全域にわたって約 1～2桁全吸着濃度が低いことから、ここで取り扱った条件では、吸着の効果が小さいと言える。

図3-24は、酸化物系における1000年時点での吸着化学種分布を示す。岩体のごく近傍では、 $\text{SOHU}(\text{OH})_4$ が支配的となるが、ほぼ全域にわたって、 $\text{SOCaOHU}(\text{OH})_4$ が支配的な吸着化学種となる。

図3-25は、水酸化物系における1年時点での全溶解濃度と全吸着濃度の分布を示したものである。カラム全域にわたって、全吸着濃度は全溶解濃度に比べて約3桁低い。

図3-26は、水酸化物系における1000年時点での全溶解濃度と全吸着濃度の分布を示したものである。全吸着濃度は、カラムの中央よりやや岩体側で顕著となり、酸化物系で見られない傾向を示している。

図3-27は、水酸化物系における1年時点での吸着化学種濃度の分布を示したものである。カラム全域にわたって、 $\text{SOCaOHU}(\text{OH})_4$ が支配的な吸着化学種となっている。一方、 $\text{SOH}(\text{UO}_2)_3(\text{OH})_8$ 、 $\text{SOH}(\text{UO}_2)(\text{OH})_2$ は 支配的な吸着化学種となっていないが、カラム内で急激な増減挙動を示している。

図3-28は、水酸化物系における1000年時点での吸着化学種濃度の分布を示したものである。カラムの岩体近傍から中央部よりコンクリート側までは $\text{SOH}(\text{UO}_2)_3(\text{OH})_8$ が支配的な吸着化学種となっており、コンクリート側の近傍では $\text{SOCaOHU}(\text{OH})_4$ が支配的な吸着化学種となっている。これら、両方の吸着化学種ともカラム内において顕著な増減分布を示している。また、 $\text{SOH}(\text{UO}_2)(\text{OH})_2$ 、 $\text{SOHU}(\text{OH})_4$ は、支配的な吸着化学種となっていないが、カラム内全域にわたってほぼ均一な分布を示している。

図3-29は、水酸化物系における100年、1000年時点における $\log(K_d)$ 分布をプロットしたものである。1000年時点での K_d は、カラムの両端で低くなり、カラム内で不均一な分布をしており、表面錯体モデルの特徴を表している。

表 3-1 既存連成コードの調査結果

対象コード	化学モジュール機能	次元	動燃殿所有	入手可能性	拡張性	検証	確証	熱力学データ	適用例	総合評価
CHEMTRAN	△ 酸化還元、溶解の機能チェック必要 ----- 沈澱、イオン交換機能あり。	△ 1D	○	○	○	不明	不明	×	(1)原位置トレーサ試験解析	△
CHEQMATE	△ 収着の機能なし。 ----- 溶解・沈澱、イオン交換、酸化還元 の機能あり。	△ 1D	×	△ 高価 AEA, UK	○	○	○	○	(1)コンクリート中の酸化還元 フロント解析 (文献集 2.2引用)	◎
HYDROFLOW HYDROGEOCHEM	○ 溶解・沈澱、イオン交換、収着、酸化還元 の機能あり	○ 1D } 2D	○	○	○	不明	不明	×	(1)カラム解析 (2)ミルティング解析 (文献集 2.1引用)	○
CHEMXPOR	○ 溶解・沈澱、イオン交換、収着、酸化還元 の機能あり	○ 1D } 2D	×	△ 高価 MMC, JP	○	不明	×	不明	(1)PNC殿委託研究 TRU性能評価	○

表 3-2 水理・物質移行ベンチマーク解析で使したパラメータ

水理パラメータ	パラメータの設定根拠	設定数値	単位
透水係数 K	日本の地層で考えられる透水係数は、多孔質媒体を対象とした場合、 $10^{-8} \sim 10^{-4}$ cm/sec である。以上のことから中間値を採用する。	10^{-6}	cm/sec
水頭差 ΔH	多孔質媒体中の空隙内ダルシー流速 V は、動燃殿の性能評価解析において $5.3 \times 10^{-5} \sim 6.3 \times 10^{-1}$ m/year である。中間値の 10^{-2} m/year を採用し、ダルシーの法則 $V=K(\Delta H)/L$ に基づき透水係数 $K=10^{-6}$ cm/sec, $V=10^{-2} = 3.17 \times 10^{-8}$ cm/sec, 1次元長さ $L=10$ cm とすると水頭差 ΔH は 0.317 cm となる。	0.317	cm
物質移行パラメータ	パラメータの設定根拠	設定数値	単位
実効拡散係数 D_e	実効拡散係数は花崗岩、凝灰岩、泥岩、玄武岩に対してトリチウム水を用いたスルーディフュージョン試験に基づき $5 \times 10^{-10} \sim 5 \times 10^{-11}$ m ² /sec である。中間値 10^{-10} m ² /sec = 10^{-6} cm ² /sec を採用している。	10^{-6}	cm ² /sec
分散係数 D_L	分散係数を $D_L = \alpha_L \cdot V + D_e$ と定義する。ただし、FEMWASTEの分散係数の拡散項は分子拡散係数と屈曲度の積で表示されており、これらを入力する必要がある。従って、便宜的に分子拡散係数=実効拡散係数とし、屈曲度=1としている。	—	—
分子拡散係数 a_m	分散係数 D_L に記載済	10^{-6}	cm ² /sec
屈曲度 T	分散係数 D_L に記載済	1.0	—
分散長 α_L	分散長は現在のところ経験的に設定されるパラメータであるが、 $\alpha_L = L/10$ (評価地点までの距離; m) の関係式が用いられていることから、本検討においても採用した。 $L=0.1$ m	1.0	cm
空隙率 ϕ	花崗岩、凝灰岩、泥岩、玄武岩に対して水中飽和法による測定データに基づき、多孔質媒体における設定範囲は、0.3~0.6 である。本検討では中間値を採用する。	0.45	—
濃度 C	還元条件下の希薄系地下水で考えられ得る元素濃度を設定することとする。対象元素としてはTRU 廃棄物処分システムにおいて重要な元素であるPuを考える。PuO ₂ (cr)を溶解度制限固相とした場合、溶解度は約 2.5×10^{-11} (mol/L) となる。従って、設定溶解度は 10^{-11} (mol/L) とした。	10^{-11}	mol/L

表 3-3 HYDROFLOW(水理モジュール)検証結果

評価項目	FEMWATERの解	HYDROFLOWの解	備考
ダルシー流速 (cm/sec) 節点 1～節点 42	3.17×10^{-8}	3.17×10^{-8}	
節点 1の全水頭 (cm)	3.1700×10^{-1}	3.1700×10^{-1}	
節点 7の全水頭 (cm)	2.6945×10^{-1}	2.6945×10^{-1}	
節点13の全水頭 (cm)	2.2190×10^{-1}	2.2190×10^{-1}	
節点19の全水頭 (cm)	1.7435×10^{-1}	1.7435×10^{-1}	
節点25の全水頭 (cm)	1.2680×10^{-1}	1.2680×10^{-1}	
節点31の全水頭 (cm)	7.9250×10^{-2}	7.9250×10^{-2}	
節点37の全水頭 (cm)	3.1700×10^{-2}	3.1700×10^{-2}	
節点41の全水頭 (cm)	0.0000×10^{-0}	0.0000×10^{-0}	

表 3-4 HYDROGEOCHEM(移行モジュール)検証結果

[] : 解析解 () : FEMWASTE

経過時間 (日)	節点濃度 (mol/L)					
	3	5	13	21	31	39
40	8.488 e-12 [8.492 e-12] (8.988 e-12)	7.031 e-12 [7.037 e-12] (7.993 e-12)	2.538 e-12 [2.538 e-12] (4.454 e-12)	5.822 e-13 [5.720 e-13] (2.030 e-12)	4.805 e-14 [4.332 e-14] (5.450 e-13)	2.977 e-15 [2.371 e-15] (7.993 e-14)
120	9.125 e-12 [9.126 e-12] (9.398 e-12)	8.260 e-12 [8.262 e-12] (8.799 e-12)	5.096 e-12 [5.098 e-12] (6.473 e-12)	2.711 e-12 [2.712 e-12] (4.349 e-12)	9.360 e-13 [9.350 e-13] (2.040 e-12)	1.587 e-13 [1.584 e-13] (3.983 e-13)
240	9.371 e-12 [9.371 e-12] (9.490 e-12)	8.745 e-12 [8.745 e-12] (8.980 e-12)	6.332 e-12 [6.334 e-12] (6.946 e-12)	4.175 e-12 [4.178 e-12] (4.933 e-12)	1.918 e-12 [1.919 e-12] (2.453 e-12)	3.713 e-13 [3.716 e-13] (4.896 e-13)
320	9.435 e-12 [9.435 e-12] (9.498 e-12)	8.871 e-12 [8.872 e-12] (8.996 e-12)	6.662 e-12 [6.664 e-12] (6.988 e-12)	4.582 e-12 [4.584 e-12] (4.985 e-12)	2.205 e-12 [2.206 e-12] (2.490 e-12)	4.347 e-13 [4.350 e-13] (4.977 e-13)
360	9.453 e-12 [9.454 e-12] (9.499 e-12)	8.908 e-12 [8.907 e-12] (8.998 e-12)	6.760 e-12 [6.761 e-12] (6.995 e-12)	4.703 e-12 [4.704 e-12] (4.993 e-12)	2.290 e-12 [2.291 e-12] (2.495 e-12)	4.535 e-13 [4.538 e-13] (4.989 e-13)
400	9.467 e-12 [9.467 e-12] (9.500 e-12)	8.935 e-12 [8.935 e-12] (9.000 e-12)	6.829 e-12 [6.830 e-12] (6.997 e-12)	4.789 e-12 [4.790 e-12] (4.997 e-12)	2.350 e-12 [2.351 e-12] (2.498 e-12)	4.669 e-13 [4.671 e-13] (4.995 e-13)
440	9.476 e-12 [9.477 e-12] ()	8.953 e-12 [8.954 e-12] ()	6.878 e-12 [6.879 e-12] ()	4.849 e-12 [4.851 e-12] ()	2.394 e-12 [2.394 e-12] ()	4.765 e-13 [4.766 e-13] ()
480	9.483 e-12 [9.483 e-12] ()	8.967 e-12 [8.967 e-12] ()	6.913 e-12 [6.914 e-12] ()	4.893 e-12 [4.894 e-12] ()	2.424 e-12 [2.425 e-12] ()	4.832 e-13 [4.834 e-13] ()
520	9.488 e-12 [9.488 e-12] ()	8.976 e-12 [8.977 e-12] ()	6.938 e-12 [6.939 e-12] ()	4.924 e-12 [4.924 e-12] ()	2.446 e-12 [2.447 e-12] ()	4.881 e-13 [4.882 e-13] ()
560	9.492 e-12 [9.492 e-12] ()	8.983 e-12 [8.983 e-12] ()	6.956 e-12 [6.957 e-12] ()	4.946 e-12 [4.946 e-12] ()	2.462 e-12 [2.462 e-12] ()	4.915 e-13 [4.916 e-13] ()
600	9.494 e-12 [9.494 e-12] ()	8.988 e-12 [8.988 e-12] ()	6.969 e-12 [6.969 e-12] ()	4.961 e-12 [4.962 e-12] ()	2.473 e-12 [2.473 e-12] ()	4.940 e-13 [4.940 e-13] ()
640	9.496 e-12 [9.496 e-12] ()	8.992 e-12 [8.992 e-12] ()	6.978 e-12 [6.978 e-12] ()	4.973 e-12 [4.973 e-12] ()	2.481 e-12 [2.481 e-12] ()	4.957 e-13 [4.958 e-13] ()
680	9.497 e-12 [9.497 e-12] ()	8.994 e-12 [8.994 e-12] ()	6.984 e-12 [6.984 e-12] ()	4.980 e-12 [4.981 e-12] ()	2.486 e-12 [2.486 e-12] ()	4.969 e-13 [4.970 e-13] ()
720	9.498 e-12 [9.498 e-12] ()	8.996 e-12 [8.996 e-12] ()	6.989 e-12 [6.989 e-12] ()	4.986 e-12 [4.986 e-12] ()	2.490 e-12 [2.490 e-12] ()	4.978 e-13 [4.979 e-13] ()

表 3-5 HYDROGEOCHEM(移流機能)検証結果

[] : FEMWASTE

経過時間 (日)	節点濃度 (mol/L)					
	3	5	13	21	31	39
400	9.606 e-12 [9.617 e-12]	9.035 e-12 [9.065 e-12]	5.337 e-12 [5.454 e-12]	1.810 e-12 [1.854 e-12]	2.011 e-13 [1.760 e-13]	1.985 e-14 [1.097 e-14]
600	9.808 e-12 [9.811 e-12]	9.522 e-12 [9.532 e-12]	7.316 e-12 [7.383 e-12]	4.085 e-12 [4.172 e-12]	1.136 e-12 [1.144 e-12]	2.884 e-13 [2.634 e-13]
800	9.896 e-12 [9.897 e-12]	9.740 e-12 [9.744 e-12]	8.413 e-12 [8.447 e-12]	5.966 e-12 [6.040 e-12]	2.670 e-12 [2.719 e-12]	1.129 e-12 [1.126 e-12]
1000	9.941 e-12 [9.941 e-12]	9.850 e-12 [9.852 e-12]	9.037 e-12 [9.053 e-12]	7.304 e-12 [7.354 e-12]	4.316 e-12 [4.379 e-12]	2.468 e-12 [2.501 e-12]
1200	9.965 e-12 [9.965 e-12]	9.911 e-12 [9.911 e-12]	9.403 e-12 [9.410 e-12]	8.209 e-12 [8.239 e-12]	5.775 e-12 [5.832 e-12]	3.986 e-12 [4.040 e-12]
1400	9.978 e-12 [9.978 e-12]	9.945 e-12 [9.945 e-12]	9.623 e-12 [9.626 e-12]	8.810 e-12 [8.828 e-12]	6.945 e-12 [6.990 e-12]	5.414 e-12 [5.471 e-12]
1600	9.986 e-12 [9.986 e-12]	9.966 e-12 [9.965 e-12]	9.759 e-12 [9.760 e-12]	9.208 e-12 [9.218 e-12]	7.833 e-12 [7.864 e-12]	6.616 e-12 [6.666 e-12]
1800	9.991 e-12 [9.991 e-12]	9.978 e-12 [9.978 e-12]	9.844 e-12 [9.844 e-12]	9.472 e-12 [9.476 e-12]	8.482 e-12 [8.503 e-12]	7.561 e-12 [7.600 e-12]
2000	9.994 e-12 [9.994 e-12]	9.986 e-12 [9.986 e-12]	9.898 e-12 [9.898 e-12]	9.647 e-12 [9.649 e-12]	8.947 e-12 [8.960 e-12]	8.272 e-12 [8.300 e-12]
2200	9.996 e-12 [9.996 e-12]	9.991 e-12 [9.991 e-12]	9.933 e-12 [9.933 e-12]	9.763 e-12 [9.764 e-12]	9.274 e-12 [9.283 e-12]	8.791 e-12 [8.810 e-12]
2400	9.998 e-12 [9.998 e-12]	9.994 e-12 [9.994 e-12]	9.956 e-12 [9.955 e-12]	9.841 e-12 [9.841 e-12]	9.503 e-12 [9.507 e-12]	9.161 e-12 [9.174 e-12]
2600	9.998 e-12 [9.998 e-12]	9.996 e-12 [9.996 e-12]	9.971 e-12 [9.970 e-12]	9.893 e-12 [9.893 e-12]	9.660 e-12 [9.663 e-12]	9.422 e-12 [9.430 e-12]
2800	9.999 e-12 [9.999 e-12]	9.997 e-12 [9.997 e-12]	9.980 e-12 [9.980 e-12]	9.928 e-12 [9.928 e-12]	9.769 e-12 [9.770 e-12]	9.591 e-12 [9.608 e-12]
3000	9.999 e-12 [9.999 e-12]	9.998 e-12 [9.998 e-12]	9.987 e-12 [9.987 e-12]	9.952 e-12 [9.951 e-12]	9.843 e-12 [9.843 e-12]	9.729 e-12 [9.732 e-12]
3200	1.000 e-11 [1.000 e-11]	9.999 e-12 [9.999 e-12]	9.991 e-12 [9.991 e-12]	9.967 e-12 [9.967 e-12]	9.893 e-12 [9.893 e-12]	9.816 e-12 [9.817 e-12]
3400	1.000 e-11 [1.000 e-11]	9.999 e-12 [9.999 e-12]	9.994 e-12 [9.994 e-12]	9.978 e-12 [9.978 e-12]	9.928 e-12 [9.927 e-12]	9.875 e-12 [9.875 e-12]
3600	1.000 e-11 [1.000 e-11]	9.999 e-12 [9.999 e-12]	9.996 e-12 [9.996 e-12]	9.985 e-12 [9.985 e-12]	9.951 e-12 [9.951 e-12]	9.915 e-12 [9.915 e-12]
3800	1.000 e-11 [1.000 e-11]	1.000 e-11 [1.000 e-11]	9.997 e-12 [9.997 e-12]	9.990 e-12 [9.990 e-12]	9.967 e-12 [9.967 e-12]	9.942 e-12 [9.942 e-12]
4000	1.000 e-11 [1.000 e-11]	1.000 e-11 [1.000 e-11]	9.998 e-12 [9.998 e-12]	9.993 e-12 [9.993 e-12]	9.978 e-12 [9.977 e-12]	9.961 e-12 [9.961 e-12]

表 3-6 HYDROGEOCHEM ver. 1-1 ベンチマーク解析結果
(純水中における方解石の溶解・沈澱平衡)

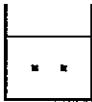
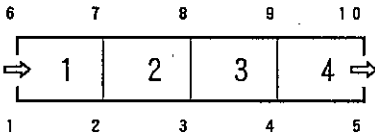
入力条件				
コード	PHREEQE	HYDROGEOCHEM	オリジナルバージョン	
初期溶液条件	純水			
pH	7.0	7.0	7.0	
Eh	pe=4.0	—	—	
Ca	—	0.0 (mol/l)	10 ²⁰ (mol/l)	
C	—	0.0 (mol/l)	10 ²⁰ (mol/l)	
解析モデル	バッチ系 	カラム系 		
熱力学データベース	PHREEQE PNC ver. 熱力学データベース - Aqueous species - Mineral 1. Ca ²⁺ 7. CaOH ⁺ 1. Calcite 2. CO ₃ ⁻² 8. CaCO ₃ 3. H ⁺ 9. CaHCO ₃ ⁺ 4. OH ⁻ 5. HCO ₃ ⁻ 6. H ₂ CO ₃			
解析結果				
	PHREEQE	HYDROGEOCHEM	オリジナルバージョン	
pH	9.8080	0.0000	6.0990	
pe	4.0000	—	—	
濃度	Ca全溶解濃度	1.2232e-4	0.0	2.4802e+3
	Ca ²⁺	1.165 e-4	0.0	2.480 e+3
mol/l	CaCO ₃	5.519 e-6	0.0	5.559 e-6
	C全溶解濃度	1.2232e-4	0.0	7.3973e-4
	HCO ₃ ⁻	8.294 e-5	0.0	2.542 e-8
	CO ₃ ²⁻	3.371 e-5	0.0	1.598 e-12
	CO ₂ (aq)	2.251 e-8	—	—
	溶解量	—	溶解量	沈澱量
	Calcite	1.2232e-4	0.0	1.000 e+20

表 3-7 HYDROGEOCHEM ver.1-1 ベンチマーク解析結果
(純水中におけるCSH(1.8)の溶解・沈澱平衡)

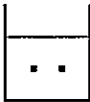
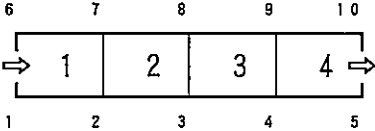
入力条件				
コード		PHREEQE	HYDROGEOCHEM	オリジナルバージョン
初期溶液条件		純水		
pH		9.0	9.0	9.0
Eh		pe=4.0	—	—
Ca		—	10.0 (mol/l)	10 ⁻² (mol/l)
Si		—	10.0 (mol/l)	10 ⁻² (mol/l)
解析モデル		バッチ系 	カラム系 	
熱力学データベース		PHREEQE PNC ver. 熱力学データベース - Aqueous species 1. Ca ²⁺ 7. CaOH ⁺ 13. SiO ₂ (OH) ₂ ⁻² 2. Si(OH) ₄ (aq) 8. Si ₃ O ₅ (OH) ₅ ⁻³ 3. H ⁺ 9. Si ₃ O ₆ (OH) ₃ ⁻³ - Mineral 4. OH ⁻ 10. Si ₄ O ₃ (OH) ₁₃ ⁻³ 1. Calcite 5. Si ₂ O ₂ (OH) ₅ ⁻ 11. Si ₄ O ₇ (OH) ₅ ⁻³ 6. Si ₂ O ₃ (OH) ₄ ⁻² 12. SiO(OH) ₃ ⁻		
解析結果				
		PHREEQE	HYDROGEOCHEM	オリジナルバージョン
pH		11.5798	3.0466	5.8139
pe		4.0000	—	—
濃度	Ca全溶解濃度	3.0504e-3	1.0000e+1	1.0000e-2
	Ca ²⁺	2.845 e-3	1.000 e+1	1.000 e-2
	CaOH ⁺	2.059 e-4	2.373 e-13	1.019 e-9
mol/l	Si全溶解濃度	1.6960e-3	1.0000e+1	1.0000e-2
	Si(OH) ₄ (aq)	2.462 e-5	1.000 e+1	9.9998e-3
	Si ₂ O ₃ (OH) ₄ ⁻²	1.297 e-5	1.260 e-11	8.018 e-12
	SiO(OH) ₃ ⁻	1.601 e-3	1.456 e-10	1.184 e-6
	SiO ₂ (OH) ₂ ⁻²	3.808 e-5	9.125 e-17	5.810 e-14
	CSH(1.8)	溶解量 3.0504e-3	沈澱量 0.00	沈澱量 0.00

表 3-8 HYDROGEOCHEM 改良版ベンチマーク解析結果
(純水中における方解石の溶解・沈澱平衡)

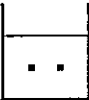
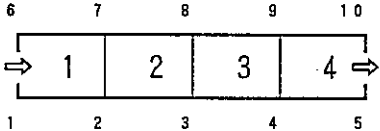
入力条件				
コード		PHREEQE	HYDROGEOCHEM 改良バージョン	
初期溶液条件		純水		
pH		7.0	7.0	7.0
Eh		pe=4.0	—	—
Ca		—	1.0 (mol/l)	0.0 (mol/l)
C		—	1.0 (mol/l)	0.0 (mol/l)
解析モデル		バッチ系 	カラム系 	
熱力学データベース		PHREEQE PNC ver. 熱力学データベース - Aqueous species - Mineral 1. Ca ²⁺ 7. CaOH ⁺ 1. Calcite 2. CO ₃ ⁻² 8. CaCO ₃ 3. H ⁺ 9. CaHCO ₃ ⁺ 4. OH ⁻ 5. HCO ₃ ⁻ 6. H ₂ CO ₃		
解析結果				
		PHREEQE	HYDROGEOCHEM 改良バージョン	
pH		9.8080	9.9101	9.9101
濃度 mol/l	pe	4.0000	—	—
	Ca全溶解濃度	1.2232e-4	1.2287e-4	1.2287e-4
	Ca ²⁺	1.165 e-4	1.170 e-4	1.170 e-4
	CaCO ₃	5.519 e-6	5.559 e-6	5.559 e-6
	C全溶解濃度	1.2232e-4	1.2287e-4	1.2287e-4
	HCO ₃ ⁻	8.294 e-5	8.330 e-5	8.330 e-5
	CO ₃ ²⁻	3.371 e-5	3.387 e-5	3.387 e-5
	CO ₂ (aq)	2.251 e-8	—	—
	溶解量	—	溶解量	溶解量
	Calcite	1.2232e-4	1.2287e-4	1.2287e-4

表 3-9 HYDROGEOCHEM 改良版ベンチマーク解析結果
(純水中におけるCSH(1.8)の溶解・沈澱平衡)

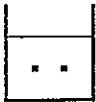
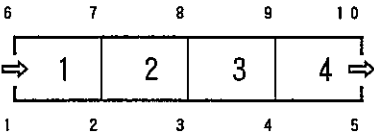
入力条件			
コード	PHREEQE	HYDROGEOCHEM 改良バージョン	
初期溶液条件	純水		
pH	9.0	9.0	
Eh	pe=4.0	—	
Ca	—	0.0 (mol/l)	
Si	—	0.0 (mol/l)	
解析モデル	バッチ系 	カラム系 	
熱力学データベース	PHREEQE PNC ver. 熱力学データベース - Aqueous species 1. Ca ²⁺ 7. CaOH ⁺ 13. SiO ₂ (OH) ₂ ⁻² 2. Si(OH) ₄ (aq) 8. Si ₃ O ₅ (OH) ₅ ⁻³ 3. H ⁺ 9. Si ₃ O ₆ (OH) ₃ ⁻³ - Mineral 4. OH ⁻ 10. Si ₄ O ₃ (OH) ₁₃ ⁻³ 1. Calcite 5. Si ₂ O ₂ (OH) ₅ ⁻ 11. Si ₄ O ₇ (OH) ₅ ⁻³ 6. Si ₂ O ₃ (OH) ₄ ⁻² 12. SiO(OH) ₃ ⁻		
解析結果			
	PHREEQE	HYDROGEOCHEM 改良バージョン	
pH	11.5798	11.5800	
濃度	pe	4.0000	
mol/l	Ca全溶解濃度	3.0504e-3	3.0500e-3
	Ca ²⁺	2.845 e-3	2.845 e-3
濃度	CaOH ⁺	2.059 e-4	2.052 e-4
	Si全溶解濃度	1.6960e-3	1.6947e-3
	Si(OH) ₄ (aq)	2.462 e-5	2.468 e-5
	Si ₂ O ₃ (OH) ₄ ⁻²	1.297 e-5	1.292 e-5
	SiO(OH) ₃ ⁻	1.601 e-3	1.600 e-3
	SiO ₂ (OH) ₂ ⁻²	3.808 e-5	3.794 e-5
	CSH(1.8)	溶解量 3.0504e-3	溶解量 3.049 e-3

表 3-10 HYDROGEOCHEM 改良版のベンチマーク解析結果
(純水中における黄鉄鉱の溶解平衡)

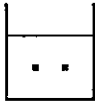
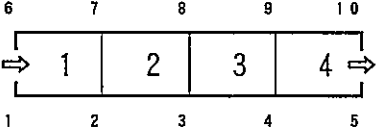
入力条件				
コード	PHREEQE	HYDROGEOCHEM 改良バージョン		
初期溶液条件	純水			
pH	7.0	7.0	7.0	7.0
Eh	pe=7.0	7.0	7.0	7.0
Fe	—	0.0 (mol/l)	10 ⁻²⁰ (mol/l)	10 ⁻²⁰ (mol/l)
S	—	0.0 (mol/l)	10 ⁻²⁰ (mol/l)	10 ⁻²⁰ (mol/l)
解析モデル	バッチ系 	カラム系 		
熱力学データベース	PHREEQE PNC ver. 熱力学データベース			
	- Aqueous species			
	1. Fe ⁺²	8. HSO ₄ ⁻	15. Fe(HS) ₂	22. H ₂ S(aq)
	2. H ⁺	9. S ⁻²	16. Fe(HS) ₃ ⁻	23. H ₂ SO ₃ (aq)
	3. e ⁻	10. HS ⁻	17. Fe ⁺³	24. HS ₂ O ₃ ⁻
	4. SO ₄ ⁻²	11. FeOH ⁺	18. FeOH ⁺²	25. HSO ₃ ⁻
	5. H ₂ O	12. Fe(OH) ₂	19. Fe(OH) ₂ ⁺	26. S ₂ O ₃ ⁻²
	6. OH ⁻	13. Fe(OH) ₃ ⁻	20. Fe(OH) ₃	27. SO ₃ ⁻²
	7. H ₂ (aq)	14. FeSO ₄	21. Fe(OH) ₄ ⁻	28. O ₂ (aq)
				- Mineral
				1. Pyrite
解析結果				
		PHREEQE	HYDROGEOCHEM 改良バージョン	
	pH	7.0062	7.0000	6.9983
濃度 mol/l	pe	-3.7393	-4.8517	-3.7673
	Fe全溶解濃度	4.5266e-9	1.4214e-8	2.9709e-9
	Fe ⁺²	4.512e-9	1.417e-8	2.962e-9
	FeOH ⁺	1.446e-11	4.474e-11	9.317e-12
	S全溶解濃度	9.0532e-9	2.8428e-8	5.9417e-9
	HS ⁻	3.832e-9	2.843e-8	5.138e-9
	SO ₄ ⁻²	1.183e-9	9.713e-18	8.038e-10
	H ₂ (aq)	2.071e-10	3.579e-8	2.444e-8
	O ₂ (aq)	1.072e-76	3.255e-78	6.979e-74
		溶解量	溶解量	溶解量
	Pyrite	4.5266e-9	1.421e-8	2.971e-9

表 3-11 HYDROGEOCHEM 改良版のベンチマーク解析結果
(純水中における黄鉄鉱・方解石の溶解平衡)

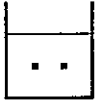
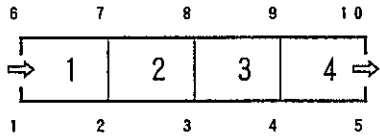
入力条件			
コード	PHREEQE	HYDROGEOCHEM 改良バージョン	
初期溶液条件	純水		
pH	7.0	7.0	
Eh	pe=4.0	pe=20.0	
Ca	—	$10^{-2.0}(\text{mol/l})$	
C	—	$10^{-2.0}(\text{mol/l})$	
Fe	—	$10^{-2.0}(\text{mol/l})$	
S	—	$10^{-2.0}(\text{mol/l})$	
解析モデル	バッチ系 	カラム系 	
熱力学データベース	PHREEQE PNC ver. 熱力学データベース		
	- Aqueous species		
	1. Fe ⁺²	10. HS ⁻	19. Fe(OH) ₂ ⁺
	2. H ⁺	11. FeOH ⁺	20. Fe(OH) ₃ ⁻
	3. e ⁻	12. Fe(OH) ₂	21. Fe(OH) ₄ ⁻
	4. SO ₄ ⁻²	13. Fe(OH) ₃ ⁻	22. H ₂ S(aq)
	5. H ₂ O	14. FeSO ₄	23. H ₂ SO ₃ (aq)
	6. OH ⁻	15. Fe(HS) ₂	24. HS ₂ O ₃ ⁻
	7. H ₂ (aq)	16. Fe(HS) ₃ ⁻	25. HSO ₃ ⁻
	8. HSO ₄ ⁻	17. Fe ⁺³	26. S ₂ O ₃ ⁻²
	9. S ⁻²	18. FeOH ⁺²	27. SO ₃ ⁻²
		28. O ₂ (aq)	29. Ca ²⁺
			30. CO ₃ ⁻²
			31. HCO ₃ ⁻
			32. H ₂ CO ₃
			33. CaOH ⁺
			34. CaCO ₃
			35. CaHCO ₃ ⁺
			- Mineral
			1. Pyrite
			2. Calcite
解析結果			
	PHREEQE	HYDROGEOCHEM 改良バージョン	
pH	9.9089	9.9097	
濃度 mol/l	pe	-6.8647	-7.0422
	Ca全溶解濃度	1.2234e-4	1.2274e-4
	Ca ²⁺	1.165e-4	1.168e-4
	Fe全溶解濃度	1.7823e-8	8.3832e-9
	FeOH ⁺	1.180e-8	5.561e-9
	C全溶解濃度	1.2234e-4	1.2274e-4
HCO ₃ ⁻	8.293e-5	8.324e-5	
S全溶解濃度	3.5646e-8	1.6773e-8	
	SO ₄ ⁻²	2.852e-8	2.417e-9

表 3-12 HYDROGEOCHEM 改良版の適用性の検討
(酸化還元平衡の入力に対する解の安定性)

入力条件				
コード	HYDROGEOCHEM 改良バージョン			
初期溶液条件				
pH	7.0	7.0	7.0	7.0
pe	20.0	20.0	20.0	20.0
Fe	10^{-20} (mol/l)	10^{-20} (mol/l)	10^{-20} (mol/l)	10^{-20} (mol/l)
S	10^{-20} (mol/l)	10^{-20} (mol/l)	10^{-20} (mol/l)	10^{-20} (mol/l)
最大pe	7.0	10.0	20.0	20.0
最小pe	-5.0	-10.0	-20.0	-20.0
解析モデル				
カラム系 6 7 8 9 10 ⇒ 1 2 3 4 ⇒ 1 2 3 4 5				
熱力学データベース				
PHREEQE PNC ver. 熱力学データベース				
- Aqueous species				
1. Fe ⁺² 8. HSO ₄ ⁻ 15. Fe(HS) ₂ 22. H ₂ S(aq) - Mineral 2. H ⁺ 9. S ⁻² 16. Fe(HS) ₃ ⁻ 23. H ₂ SO ₃ (aq) 1. Pyrite 3. e ⁻ 10. HS ⁻ 17. Fe ⁺³ 24. HS ₂ O ₃ ⁻ 4. SO ₄ ⁻² 11. FeOH ⁺ 18. FeOH ⁺² 25. HSO ₃ ⁻ 5. H ₂ O 12. Fe(OH) ₂ 19. Fe(OH) ₂ ⁺ 26. S ₂ O ₃ ⁻² 6. OH ⁻ 13. Fe(OH) ₃ ⁻ 20. Fe(OH) ₃ 27. SO ₃ ⁻² 7. H ₂ (aq) 14. FeSO ₄ 21. Fe(OH) ₄ ⁻ 28. O ₂ (aq)				
解析結果				
HYDROGEOCHEM 改良バージョン				
pH		6.9983	6.9983	
pe		-3.7673	-3.7673	
濃度	Fe全溶解濃度	2.9709e-9	2.9709e-9	ヤコビアンマトリックス において 計算不能
	Fe ⁺²	2.962 e-9	2.962 e-9	
	FeOH ⁺	9.317 e-12	9.317 e-12	
mol/l	S 全溶解濃度	5.9417e-9	5.9417e-9	
	HS ⁻	5.138 e-9	5.138 e-9	
	SO ₄ ⁻²	8.038 e-10	8.038 e-10	
	H ₂ (aq)	2.444 e-8	2.444 e-8	
	O ₂ (aq)	6.979 e-74	6.979 e-74	
	溶解量	溶解量	溶解量	
	Pyrite	2.971 e-9	2.971 e-9	

表 3-13 確証解析結果のまとめ

円柱供試体 軸方向距離 (mm)	EPMA面分析値	CaO 残存量 EPMA面分析値 無次元量	解析結果 360日後の残存ト-列Ca量 (-)	
			CaCO ₃ 溶解の場合	CSH(1.8)溶解の場合
0.0	—	—	0.470	—
0.5	9.551	0.489	0.591	—
1.0	16.004	0.820	0.686	—
1.5	18.047	0.924	0.761	—
2.0	18.856	0.966	0.818	—
2.5	19.135	0.980	0.864	—
3.0	19.184	0.983	0.898	—
3.5	19.280	0.988	0.925	—
4.0	19.312	0.989	0.946	—
4.5	19.375	0.992	0.961	—
5.0	19.390	0.993	0.973	—
5.5	19.400	0.994	0.982	—
6.0	19.402	0.994	0.988	—
6.5	19.413	0.994	0.993	—
7.0	19.424	0.995	0.997	—
7.5	19.435	0.995	—	—
8.0	19.446	0.996	—	—
8.5	19.457	0.997	—	—
9.0	19.468	0.997	—	—
9.5	19.477	0.998	—	—
10.0	19.486	0.998	—	—
10.5	19.495	0.999	—	—
11.0	19.504	0.999	—	—
11.5	19.513	0.999	—	—
12.0	19.524	1.000	—	—

表 3-14 ベントナイトの変質解析条件

元 素	濃度 (mol/l)		
	初期 (全節点)	岩 体 境 界	廃棄体側境 界
Ca	1.0e+01	4.6 e-05	3.0 e-03
C	1.0e+01	1.9 e-03	1.9 e-03
H	1.0e-07	1.0 e-09	3.16e-12
Z	1.0e-01 (1 -19) 1.0e-20 (21, 22)	1.0 e-01	1.0 e-20
Na	1.0e+00	2.7 e-03	6.0 e-02
ベントナイトのモデル化			
(1)ベントナイトの交換性陽イオン量 $Na = 1.079 \text{ (meq/g)}$ $Ca = 0.183 \text{ (meq/g)}$ (2)イオン交換平衡定数 $Z^- + Na^+ = ZNa \quad (\log K = 20.0)$ $2Z^- + Ca^{2+} = Z_2Ca \quad (\log K = 41.8)$ (3)固相の溶解 $CaCO_3(\text{方解石}) + H_2O = Ca^{2+} + HCO_3^- + OH^-$			
ベントナイトの物性			
(1)空隙率 : 0.33 (-) (2)乾燥密度 : 1.8 (g/cm ³) (3)実効拡散係数 : $3. \times 10^{-10} \text{ (m}^2/\text{sec)}$			

表 3-15 核種移行試解析に関する入力条件 (その1)

解析ケース 入力項目	Cs-135		I-129		Tc-99		U-234	
	セメント固化体	アスファルト固化体	セメント固化体	アスファルト固化体	酸化物系	水酸化物系	酸化物系	水酸化物系
(1)溶解度 (mol/l)	1.50 e-05	1.30 e-07	8.60 e-06	3.80 e-04	7.10 e-24	3.30 e-08	3.40 e-10	3.40 e-05
(2)他の元素濃度	表 3-17 にまとめて示す							
(3)使用した水溶性化学種、鉱物	$Ca^{2+}, CO_3^{2-}, H^+, Z^-, Na^+, Cs^+$; $OH^-, HCO_3^-, H_2CO_3, CaOH^+, CaCO_3, CaHCO_3^+, ZNaZ_2Ca, NaHCO_3, NaCO_3^-, ZCs$ Calcite 熱力学データは動燃殿所有の PHREEQE データベースを引用	$Ca^{2+}, CO_3^{2-}, H^+, Z^-, Na^+, I^-$; $OH^-, HCO_3^-, H_2CO_3, CaOH^+, CaCO_3, CaHCO_3^+, ZNaZ_2Ca, NaHCO_3, NaCO_3^-$ Calcite 熱力学データは動燃殿所有の PHREEQE データベースを引用	$Ca^{2+}, CO_3^{2-}, H^+, Z^-, Na^+, H_2O, e^-, TcO^{+2}, SOH$ $OH^-, HCO_3^-, H_2CO_3, CaOH^+, CaCO_3, CaHCO_3^+, ZNaZ_2Ca, NaHCO_3, NaCO_3^-$ $TcO(OH)_2, TcO_4^-, Calcite$ 熱力学データは動燃殿所有の PHREEQE データベースを引用	$Ca^{2+}, CO_3^{2-}, H^+, Z^-, Na^+, H_2O, e^-, UO_2^{+2}, SOH$ $OH^-, HCO_3^-, H_2CO_3, CaOH^+, CaCO_3, CaHCO_3^+, ZNaZ_2Ca, NaHCO_3, NaCO_3^-$ $U(OH)_4(aq), Calcite$ 熱力学データは動燃殿所有の PHREEQE データベースを引用				
(4)使用した吸着化学種	Csのイオン交換を考慮 $Z^- + Cs^+ = ZCs \quad \log K = 20.83$	仮想化学種 I-SORB を仮定 $I = I-SORB \quad \log K = 0.73667$ $K_d = 10^{-3} (m^3/kg)$ 相当	$SOH = SO^- + H^+ \quad \log K = -9.52$ $SOH + H^+ = SOH_2^+ \quad \log K = 5.57$ $SOH + TcO^{2+} + 2H_2O = SOH_2TcO(OH)_2^+ + H^+ \quad \log K = 10.40$ $SOH + TcO^{2+} + 3H_2O = SOH_2TcO_4 + 5H^+ + 3e^- \quad \log K = -18.90$	SO^-, SOH_2^+ はTc-99 と同様 $SOH + U^{4+} + 4H_2O - 4H^+ = SOHU(OH)_4 \quad \log K = -4.00$ $SOH + U^{4+} + 5H_2O + Ca^{2+} = SOCaOHU(OH)_4 + 6H^+ \quad \log K = -18.50$ $SOH + U^{4+} + 3H_2O - 2e^- = SOUO_2(OH) + 6H^+ \quad \log K = -17.04$ $SOH + 3U^{4+} + 11H_2O - 6e^- = SO(UO_2)_3(OH)_5 + 18H^+ \quad \log K = -17.04$ $SOH + UO_2^{+2} - 2(OH)^- = SOH(UO_2)_2(OH)_3 \quad \log K = -7.10$ $SOH + 3UO_2^{+2} - 8(OH)^- = SOH(UO_2)_3(OH)_5 \quad \log K = -31.00$				

表 3-16 核種移行試解析に関する入力条件 (その2)

解析ケース 入力項目	Cs-135		I-129		Tc-99		U-234	
	セメント固化体	アスファルト固化体	セメント固化体	アスファルト固化体	酸化物系	水酸化物系	酸化物系	水酸化物系
(5)表面錯体モデルのパラメータ	<ul style="list-style-type: none"> ・モンモリロナイトの表面積 : 85 (m²-g⁻¹) ・Triple layer parameter : C₁ = 140 (μF-cm²) ・Triple layer parameter : C₂ = 20 (μF-cm²) 							
(6)ベントナイト中のイオン交換 および溶解モデル	<ul style="list-style-type: none"> ・ベントナイトの交換性陽イオン量 : Na = 1.079 (meq/g) , Ca = 0.183 (meq/g) ・イオン交換平衡定数 : Z⁻ + Na⁺ = ZNa (log K = 20.0) 2Z⁻ + Ca²⁺ = Z₂Ca (log K = 41.8) ・固相の溶解 : CaCO₃(方解石) + H₂O = Ca²⁺ + HCO₃⁻ + OH⁻ 							
(7)ベントナイトの物性	<ul style="list-style-type: none"> ・空隙率 : 0.33 (-) ・乾燥密度 : 1.8 (g/cm³) ・実効拡散係数 : 3. × 10⁻¹⁰ (m²/sec) 							
(8)核種移行計算時間 (時間) (タイムステップ)	1000年 (1 年)							
(9)出力時間 (時間)	0, 100, 200, 100, 200, 300, 400, 500, 900, 1000	0, 100, 200, 100, 200, 300, 400, 500, 900, 1000	0, 100, 200, 300, 400, 500, 800, 900, 1000	0, 1, 100, 200, 300, 400, 500, 800, 900, 1000	0, 1, 100, 200, 300, 400, 500, 800, 900, 1000	0, 1, 100, 200, 300, 400, 500, 800, 900, 1000	0, 1, 100, 200, 300, 400, 500, 800, 900, 1000	0, 1, 100, 200, 300, 400, 500, 800, 900, 1000
(10)水理条件	<ul style="list-style-type: none"> ・ダルシー流速 : 0.0 (cm/yr) ・分散長 : 0.0 (cm) 							
(11)入力データ	報告書付録-D	報告書付録-E	報告書付録-F	報告書付録-G	報告書付録-H	報告書付録-I	報告書付録-J	報告書付録-K
(12)結果のまとめ	報告書 図 3-23	報告書 図 3-24	報告書 図 3-25	報告書 図 3-26	報告書 図 3-27	報告書 図 3-28 図 3-29 図 3-30	図 3-23 図 3-24	図 3-25 図 3-26 図 3-27 図 3-28 図 3-29

表 3-17 核種移行試解析に関する入力条件 (濃度条件)

解析ケース 入力項目			Cs-135		I-129		Tc-99		U-234		備 考
			セメント固化体	アスファルト固化体	セメント固化体	アスファルト固化体	酸化物系	水酸化物系	酸化物系	水酸化物系	
初期濃度 (全節点)	Ca	(mol/l)	1.00 e+01	1.00 e+01	1.00 e+01	1.00 e+01	1.00 e+01	1.00 e+01	1.00 e+01	1.00 e+01	
	C	(mol/l)	1.00 e+01	1.00 e+01	1.00 e+01	1.00 e+01	1.00 e+01	1.00 e+01	1.00 e+01	1.00 e+01	
	H	(mol/l)	1.00 e-07	1.00 e-07	1.00 e-07	1.00 e-07	1.00 e-09	1.00 e-09	1.00 e-09	1.00 e-09	
	Z	(mol/l)	1.e-1(1-20), 1.e-20(21,22)		1.e-1(1-20), 1.e-20(21,22)		1.00 e-30		1.00 e-30		()node
	Na	(mol/l)	1.00 e+00	1.00 e+00	1.00 e+00	1.00 e+00	1.00 e+00	1.00 e+00	1.00 e+00	1.00 e+00	
	Cs	(mol/l)	1.00 e-20	1.00 e-20	—	—	—	—	—	—	
	I	(mol/l)	—	—	1.00 e-20	1.00 e-20	—	—	—	—	
	U	(mol/l)	—	—	—	—	—	—	1.00 e-30	1.00 e-30	
	Tc	(mol/l)	—	—	—	—	1.00 e-50	1.00 e-30	—	—	
	e	(mol/l)	—	—	—	—	1.00 e+05	1.00 e+05	1.00 e+05	1.00 e+05	
境界濃度 (岩体側)	Ca	(mol/l)	4.60 e-05	4.60 e-05	4.60 e-05	4.60 e-05	4.60 e-05	4.60 e-05	4.60 e-05	4.60 e-05	
	C	(mol/l)	1.90 e-03	1.90 e-03	1.90 e-03	1.90 e-03	1.90 e-03	1.90 e-03	1.90 e-03	1.90 e-03	
	H	(mol/l)	1.00 e-09	1.00 e-09	1.00 e-09	1.00 e-09	1.00 e-09	1.00 e-09	1.00 e-09	1.00 e-09	
	Z	(mol/l)	1.00 e-01	1.00 e-01	1.00 e-01	1.00 e-01	1.00 e-01	1.00 e-01	1.00 e-01	1.00 e-01	
	Na	(mol/l)	2.70 e-03	2.70 e-03	2.70 e-03	2.70 e-03	2.70 e-03	2.70 e-03	2.70 e-03	2.70 e-03	
	Cs	(mol/l)	1.00 e-20	1.00 e-20	—	—	—	—	—	—	
	I	(mol/l)	—	—	1.00 e-20	1.00 e-20	—	—	—	—	
	U	(mol/l)	—	—	—	—	—	—	1.00 e-30	1.00 e-30	
	Tc	(mol/l)	—	—	—	—	1.00 e-50	1.00 e-30	—	—	
	e	(mol/l)	—	—	—	—	1.00 e+05	1.00 e+05	1.00 e+05	1.00 e+05	
境界濃度 (廃棄体側)	Ca	(mol/l)	3.00 e-03	3.00 e-03	3.00 e-03	3.00 e-03	3.00 e-03	3.00 e-03	3.00 e-03	3.00 e-03	
	C	(mol/l)	1.90 e-03	1.90 e-03	1.90 e-03	1.90 e-03	1.90 e-03	1.90 e-03	1.90 e-03	1.90 e-03	
	H	(mol/l)	3.16 e-12	3.16 e-12	3.16 e-12	3.16 e-12	3.16 e-12	3.16 e-12	3.16 e-12	3.16 e-12	
	Z	(mol/l)	1.00 e-20	1.00 e-20	1.00 e-20	1.00 e-20	1.00 e-20	1.00 e-20	1.00 e-20	1.00 e-20	
	Na	(mol/l)	6.00 e-02	6.00 e-02	6.00 e-02	6.00 e-02	6.00 e-02	6.00 e-02	6.00 e-02	6.00 e-02	
	Cs	(mol/l)	1.50 e-05	1.30 e-07	—	—	—	—	—	—	
	I	(mol/l)	—	—	8.60 e-06	3.80 e-04	—	—	—	—	
	U	(mol/l)	—	—	—	—	—	—	3.40 e-10	3.40 e-05	
	Tc	(mol/l)	—	—	—	—	7.10 e-24	3.30 e-08	—	—	
	e	(mol/l)	—	—	—	—	1.00 e+05	1.00 e+05	1.00 e+05	1.00 e+05	

サブルーチン GM2DXZ

DATAHT 水理学データ

LNDGEN

Vx(1) X方向の流速

Vz(1) Z方向の流速

TH 含水率

AFABTA 重み係数

DATACS 地球化学データ

INTERP NPの濃度を求める

TP(NP, K)=CDB

OCSPIT 各NPのTOTDC, TOTSC, TOTPCを求める。

SFLOW

CALKD

STORE

(定常の場合)

ASEMBLE 全体マトリクス

HYDROT 移行式を解きConserv. Chems. の全濃度を求める

OCSPIT

HYTRNI 移行式を解きNonconserv. Chems. の全濃度の一回目の推定をする。

→ NON-LINER LOOP

新しいTW(NP, K)=1~NON を決める。

OCSPIT*

HYTRNC 移行式を解きNonconserv. Chems. の全濃度を求める

CONVERGENCE CHECK

OCSPIT*

SFLOW

CALKD

PRINTT

STORE

図3-1 移行と化学モジュールの関係 (その1)

(非定常の場合)

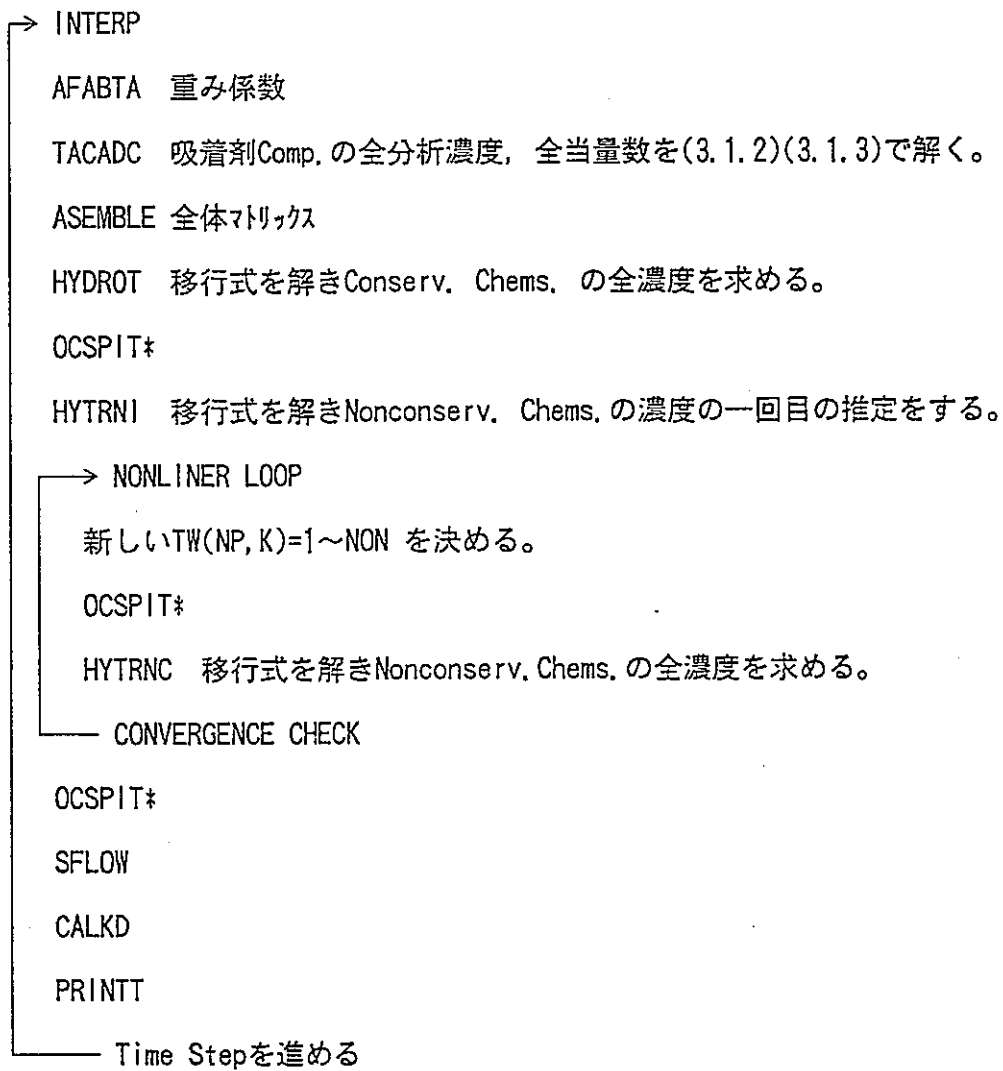


図3-2 移行と化学モジュールの関係(その2)

OCSPIT 全濃度から各NPでのTOTDC, TOTSC, TOTPCを求める。

濃度假定 K=1~NON

EQMOD

全Sp. 濃度を推定 CN(I) I=1~NON

EQUIL

NPPT

→ PPT-DISS LOOP

ACOEFF 活量係数

MODIFK 平衡定数の修正

RESIDU* RE(I)

JACOBI

DGELG

CN=CW-RE

CONVERGENCE CHECK

新しいComp. Sp. 濃度を決め、それからComplex, 吸着Sp. の濃度を決める。

またイオン交換, 沈澱Sp. 濃度を決める。

TOTSP

LPOUT

INDEXX

NPPT

TOTDSP

LPOUT

C=TOTDC

S=TOTSC

P=TOTPC

図 3 - 3 移行と化学モジュールの関係 (その 3)

RESIDU

aq. Comp. Mole Balance

Comp. Sp.

Complexed, Adsorbent, Ion-Ex.

沈澱

Adsorbent Comp. Mole Balance

RADAC Adsorbent

RIES イオン交換

沈澱Sp.

TOTDSP

Aq. Comp.

TORDC=Aq. Comp. 濃度 + Complex. Comp. 濃度

TOTSC=吸着Sp. 濃度 + イオン交換Sp. 濃度

TOTPC=沈澱Sp. 濃度

Adsorbent Comp.

TOTSC=吸着Sp. 濃度 + Adsorbent Comp. Sp. 濃度

図 3 - 4 移行と化学モジュールの関係 (その 4)

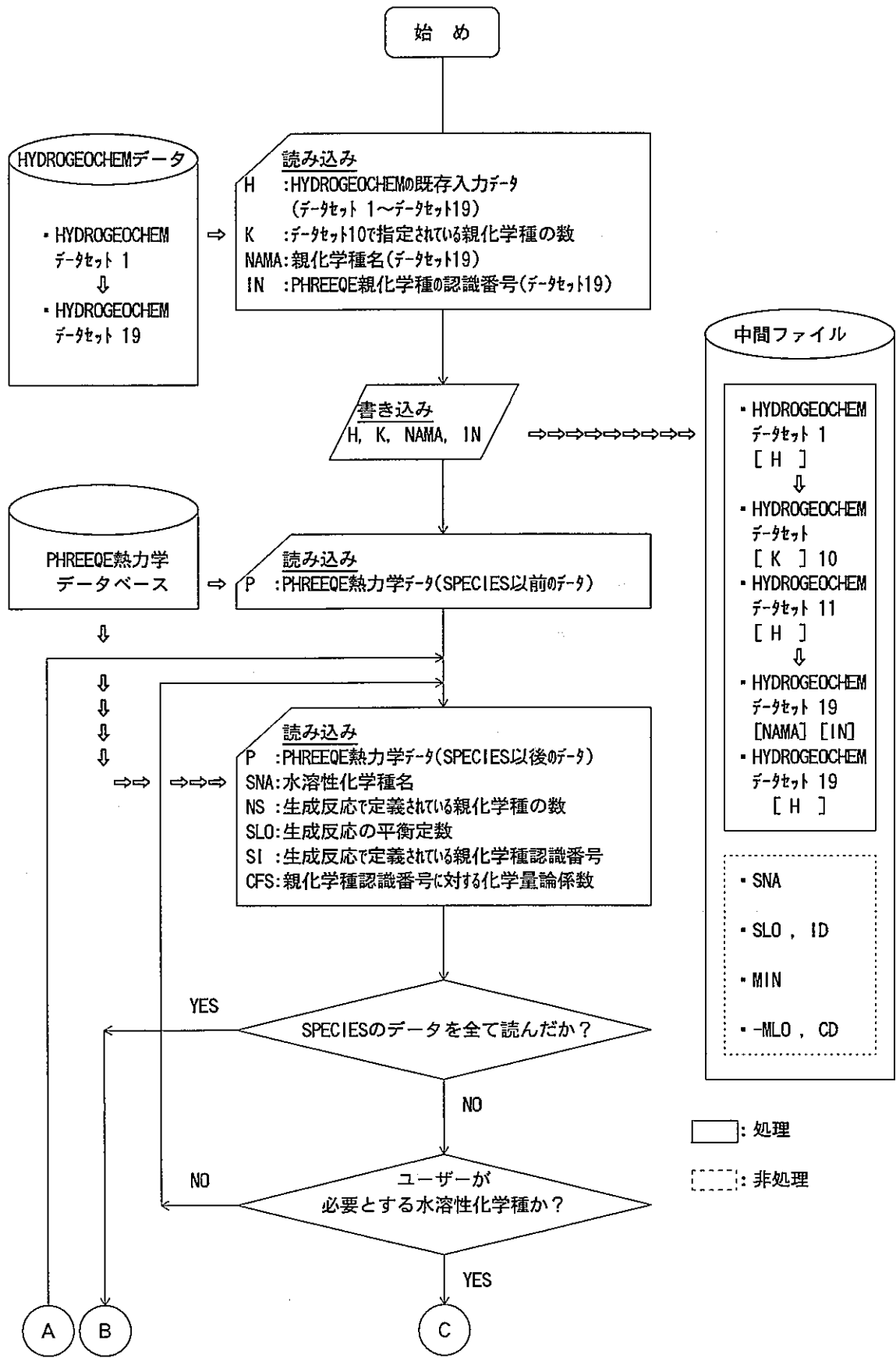


図 3-5 HYDROGEOCHEM熱力学データベース作成用フローチャート (その1)

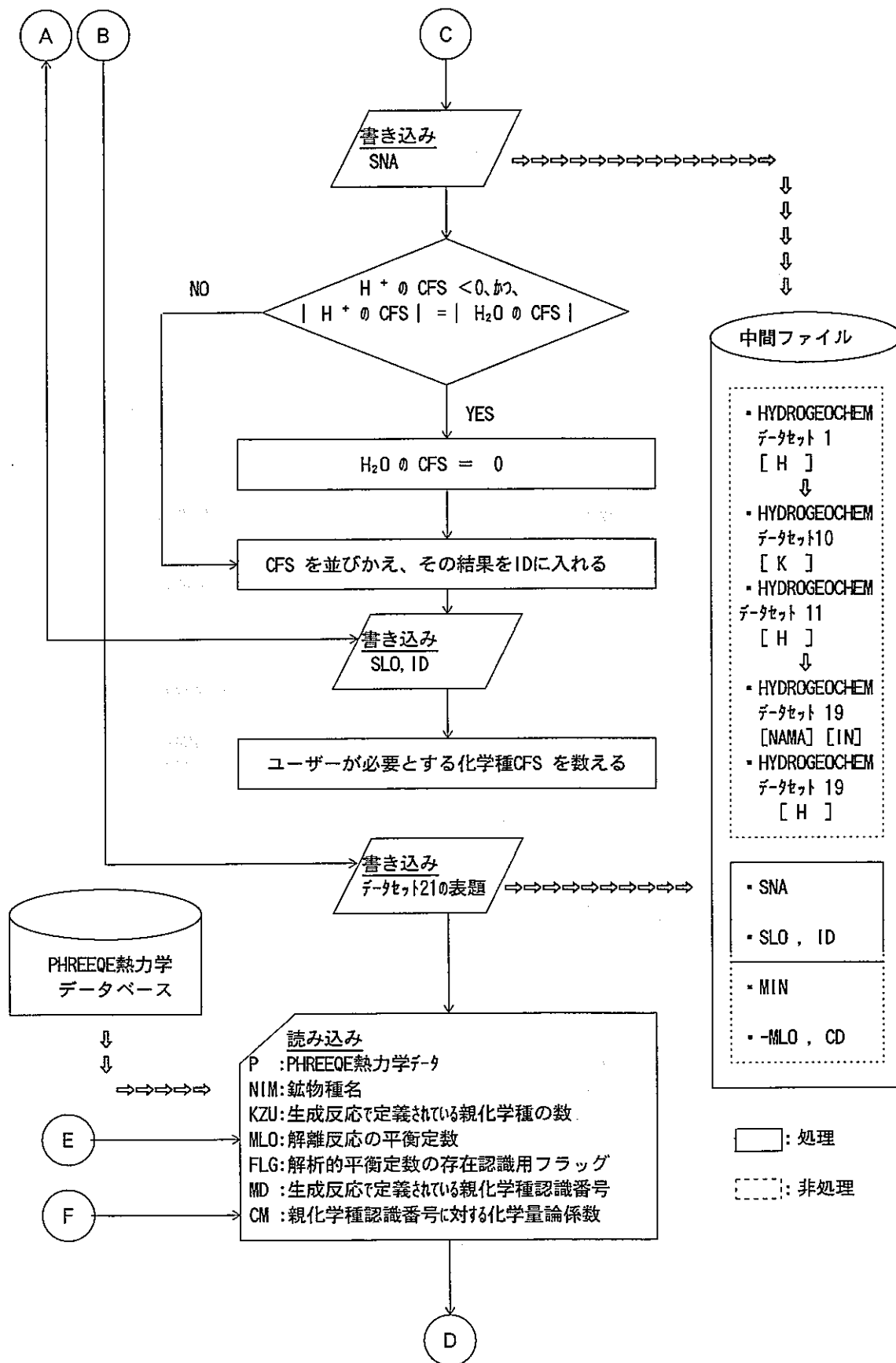


図 3-6 HYDROGEOCHEM熱力学データベース作成用ジェネラトフローチャート (その2)

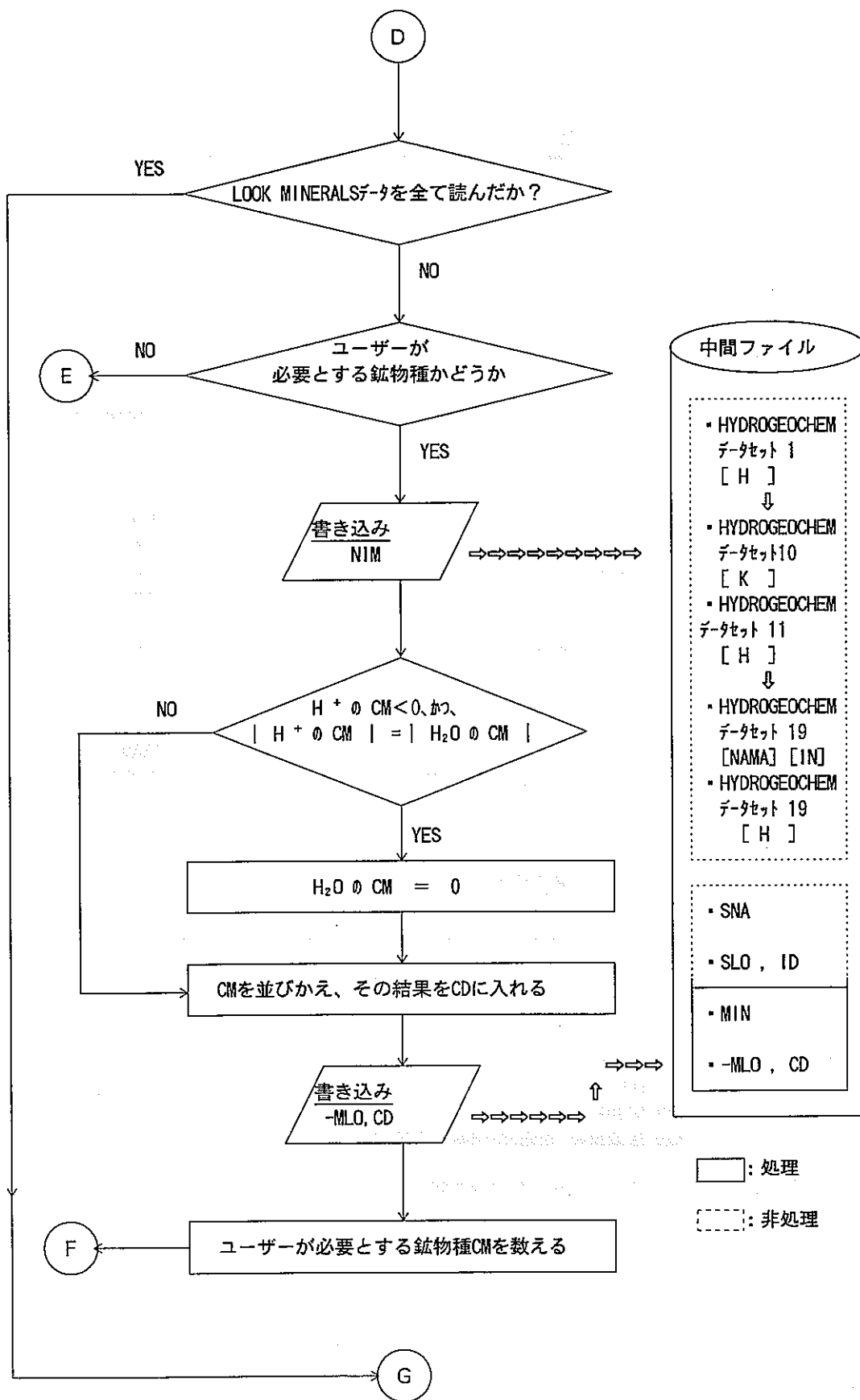


図 3-7 HYDROGEOCHEM熱力学データベース作成用フローチャート (その3)

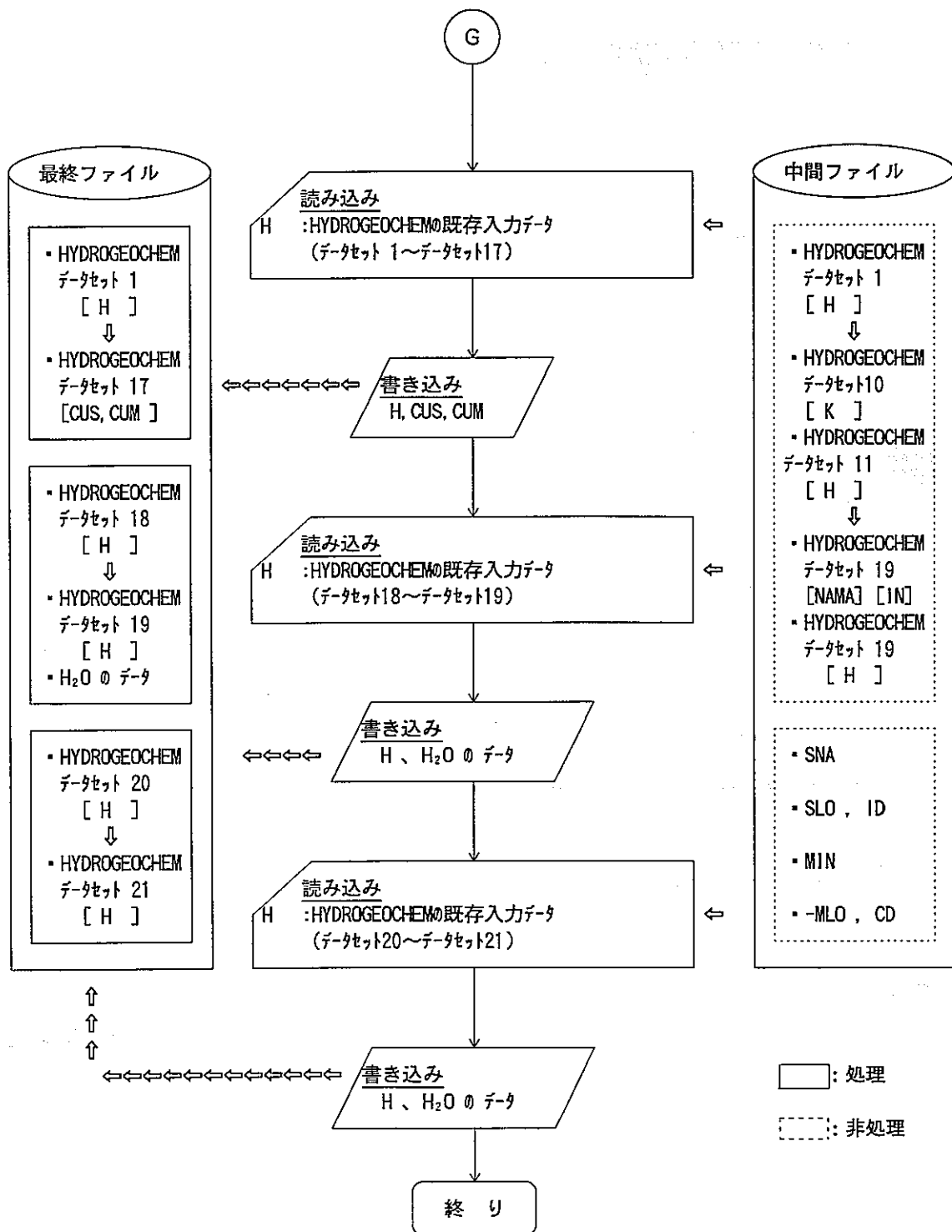


図 3-8 HYDROGEOCHEM熱力学データベース作成用フローチャート (その4)

```

1      1 HGC VERIFICATION TEST OF CHEMICAL MODULE VS. PHQ                00091
2 C ***** DATA SET 2: BASIC INTEGER PARAMTERS
3 10 4 1 0 1 0 8 -1 1 0 1 0 10 1 300 0 1 0
4 C ***** DATA SET 3: BASIC REAL PARAMETERS
5 1.0000 0.000 1.00000 1.0000 1.000 1.000 1.000 1.0000 1.0D-2 1.0D0
6 C ***** DATA SET 4: PRINT AND AUXILIARY STORGE CONTROL
7 33
8 11
9 B
10 1.0D38
11 C ***** DATA SET 5: CHEMICAL PRINTOUT AND CHEMICAL PROPERTY TYPE INDICATOR
12 5
13 1 2 3 4 5
14 C ***** DATA SET 6: MATERIAL PROPERTIES
15 0.000 0.000 1.0D-20 1.000 0.0 0.0 0.0 0.0
16 C ***** DATA SET 7: NODE COORDINATES
17 1 4 1 0.0 10.0 0.0
18 6 4 1 0.0 10.0 0.0
19 0 0 0 0.0 0.0 0.0          END OF X-COORD
20 1 4 1 0.0 0.0 0.0
21 6 4 1 10.0 0.0 0.0
22 0 0 0 0.0 0.0 0.0          END OF Z-COORD
23 B
24 C ***** DATA SET 8: ELEMENT CONNECTIVITY
25 1 1 2 7 6 1 4 1
26 C ***** DATA SET 10: CHEMICAL COMPONENT INFORMATION
27 4
28 CALCIUM 1 1
29 CARBONATE 2 1
30 HYDROGEN 3 1
31 SILICATE 4 1
32 C ***** DATA SET 11: INITIAL CONDITIONS
33 1 9 1 5.1D-4 0.0 0.0
34 0 0 0 0.0 0.0 0.0          END OF I.C. CA
35 1 9 1 5.1D-4 0.0 0.0
36 0 0 0 0.0 0.0 0.0          END OF I.C. CO3
37 1 9 1 1.0D-7 0.0 0.0
38 0 0 0 0.0 0.0 0.0          END OF I.C. H
39 C ***** DATA SET 12: CONTROL INTEGERS FOR TRANSIENT SOURCE/SINK AND B.C.
40 0 0 0 0 0 0 2 1 2 0 0 0 0
41 C ***** DATA SET 15: DIRICHLET BOUNDARY CONDITIONS
42 0.000 5.1D-4 1.0D38 5.1D-4
43 1 1 1 1 1 0
44 0 0 0 0 0 0          END OF B.C. CA
45 0.000 5.1D-4 1.0D38 5.1D-4
46 1 1 1 1 1 0
47 0 0 0 0 0 0          END OF B. C. CO3
48 0.000 1.0D-7 1.0D38 1.0D-7
49 1 1 1 1 1 0
50 0 0 0 0 0 0          END OF B.C. H
51 1 1 1 1 1 5
52 0 0 0 0 0 0          END OF NPDE
53 C ***** DATA SET 16: HYDROLOGICAL VARIABLES
54 1 9 1 0.0 0.0 0.0 0.0
55 0 0 0 0.0 0.0 0.0 0.0          END OF VELOCITY
56 1 3 1 0.3 0.0 0.0
57 0 0 0 0.0 0.0 0.0          END OF TH
58 C ***** DATA SET 17: NUMBER OF COMPONENTS AND PRODUCT SPECIES
59 3 0 6 0 0 1 250 10 1.0 1.0D-6
60 C ***** DATA SET 18: H+, E-, IONIC STRENGTH AND SORPTION INFORMATION
61 0.0004 1 3 0
62 298.0 1.0 0 0 0 0
63 -20.0 20.0 0.0 20.0
64 C ***** DATA SET 19: COMPONENT SPECIES AND THEIR ION-EXCHANGE INDEX
65 FREE CA++ 0 4
66 1.0D-9 2 0
67 FREE CO3-- 0 15
68 1.0D-9 -2 0
69 FREE H+ 0 1
70 1.0D-7 1 0
71 H4SiO4(A) 0 13
72 1.0D-7 0 0

```

```

1      1 HGC VERIFICATION TEST OF CHEMICAL MODULE VS. PHQ
2 C ..... DATA SET 2: BASIC INTEGER PARAMETERS
3 10 4 1 0 1 0 8 -1 1 0 1 0 10 1 300 0 1 0
4 C ..... DATA SET 3: BASIC REAL PARAMETERS
5 1.0000 0.000 1.00000 1.0000 1.000 1.000 1.000 1.0000 1.00-2 1.000
6 C ..... DATA SET 4: PRINT AND AUXILIARY STORE CONTROL
7 33
8 11
9 B
10 1.0D38
11 C ..... DATA SET 5: CHEMICAL PRINTOUT AND CHEMICAL PROPERTY TYPE INDICATOR
12 5
13 1 2 3 4 5
14 C ..... DATA SET 6: MATERIAL PROPERTIES
15 0.000 0.000 1.0D-20 1.000 0.0 0.0 0.0 0.0
16 C ..... DATA SET 7: NODE COORDINATES
17 1 4 1 0.0 10.0 0.0
18 6 4 1 0.0 10.0 0.0
19 0 0 0 0.0 0.0 0.0
20 1 4 1 0.0 0.0 0.0
21 6 4 1 10.0 0.0 0.0
22 0 0 0 0.0 0.0 0.0
23 B
24 C ..... DATA SET 8: ELEMENT CONNECTIVITY
25 1 1 2 7 6 1 4 1
26 C ..... DATA SET 10: CHEMICAL COMPONENT INFORMATION
27 4
28 CALCIUM 1 1
29 CARBONATE 2 1
30 HYDROGEN 3 1
31 SILICATE 4 1
32 C ..... DATA SET 11: INITIAL CONDITIONS
33 1 9 1 5.1D-4 0.0 0.0
34 0 0 0 0.0 0.0 0.0
35 1 9 1 5.1D-4 0.0 0.0
36 0 0 0 0.0 0.0 0.0
37 1 9 1 1.0D-7 0.0 0.0
38 0 0 0 0.0 0.0 0.0
39 C ..... DATA SET 12: CONTROL INTEGERS FOR TRANSIENT SOURCE/SINK AND B.C.
40 0 0 0 0 0 2 1 2 0 0 0
41 C ..... DATA SET 15: DIRICHLET BOUNDARY CONDITIONS
42 0.000 5.1D-4 1.0D38 5.1D-4
43 1 1 1 1 0
44 0 0 0 0 0
45 0.000 5.1D-4 1.0D38 5.1D-4
46 1 1 1 1 0
47 0 0 0 0 0
48 0.000 1.0D-7 1.0D38 1.0D-7
49 1 1 1 1 0
50 0 0 0 0 0
51 1 1 1 1 5
52 0 0 0 0 0
53 C ..... DATA SET 16: HYDROLOGICAL VARIABLES
54 1 9 1 0.0 0.0 0.0 0.0
55 0 0 0 0.0 0.0 0.0 0.0
56 1 3 1 0.3 0.0 0.0 0.0
57 0 0 0 0.0 0.0 0.0
58 C ..... DATA SET 17: NUMBER OF COMPONENTS AND PRODUCT SPECIES
59 3 0 13 0 0 8 250 10 1.0 1.0D-6
60 C ..... DATA SET 18: H+, E-, IONIC STRENGTH AND ADSORPTION INFORMATION
61 0.0004 1 3 0 0
62 298.0 1.0 0 0 0 0
63 -20.0 20.0 0.0 20.0
64 C ..... DATA SET 19: COMPONENT SPECIES AND THEIR ION-EXCHANGE INDEX
65 FREE CA++ 0
66 1.0D-9 2 0
67 FREE CO3- 0
68 1.0D-9 -2 0
69 FREE H+ 0
70 1.0D-7 1 0
71 H4SiO4(A) 0
72 1.0D-7 0 0
73 H2O(L) 1
74 1.0000 0 0
75 C ..... DATA SET 20: AQUEOUS SPECIES
76 OH- 0
77 1.0D-7 -14.000 0 0 -1 0 0 0 0 0 -1 0 0
78 HCO3- 0
79 1.0D-7 10.330 0 0 1 1 0 0 0 0 0 1 1 0 0
80 H2CO3 0
81 1.0D-7 16.681 0 0 1 2 0 0 0 0 0 1 2 0 0
82 CAOH+ 0
83 1.0D-7 -12.598 1 0 -1 0 0 0 0 1 0 -1 0 0
84 CACO3 0
85 1.0D-7 3.225 1 1 0 0 0 0 1 1 0 0 0
86 CARCO3- 0
87 1.0D-7 11.435 1 1 1 0 0 0 1 1 1 0 0
88 SI2O2(OH) 0
89 1.0D-7 -8.100 0 0 -1 2 -1 0 0 0 -1 2 -1
90 SI2O3(OH) 0
91 1.0D-7 -19.001 0 0 -2 2 -1 0 0 0 -2 2 -1
92 SI3O3(OH) 0
93 1.0D-7 -27.501 0 0 -3 3 -2 0 0 0 -3 3 -2
94 SI3O6(OH) 0
95 1.0D-7 -28.601 0 0 -3 3 -3 0 0 0 -3 3 -3
96 SI4O3(OH) 0
97 1.0D-7 -34.901 0 0 -3 4 0 0 0 0 -3 4 0
98 SI4O7(OH) 0
99 1.0D-7 -25.501 0 0 -3 4 -4 0 0 0 -3 4 -4
100 SiO(OH)3 0
101 1.0D-7 -9.810 0 0 -1 1 0 0 0 0 -1 1 0
102 SiO2(OH) 0
103 1.0D-7 -23.141 0 0 -2 1 0 0 0 0 -2 1 0
104 CO3(AQ) 0
105 1.0D-7 16.681 0 1 2 0 -1 0 0 1 2 0 -1
106 C ..... DATA SET 21: LOOK MINERALS
107 CALCITE 0
108 0.0 8.48 1 1 0 0 0 1 1 0 0 0
109 ARAGONIT 0
110 0.0 8.34 1 1 0 0 0 1 1 0 0 0
111 SIL GEL 0
112 0.0 2.70 0 0 0 1 -2 0 0 0 1 -2
113 SIL GLAS 0
114 0.0 3.02 0 0 0 1 -1 0 0 0 1 -1
115 LINE, QU 0
116 0.0 -32.70 1 0 -2 0 1 1 0 -2 0 1
117 CHALCEDO 0
118 0.0 3.49 0 0 0 1 -2 0 0 0 1 -2
119 QUARTZ 0
120 0.0 3.78 0 0 0 1 -2 0 0 0 1 -2
121 SILI(AM) 0
122 0.0 2.71 0 0 0 1 -2 0 0 0 1 -2
123

```

図 3-10 HYDROGEOCHEM熱力学データベース作成用出力データ

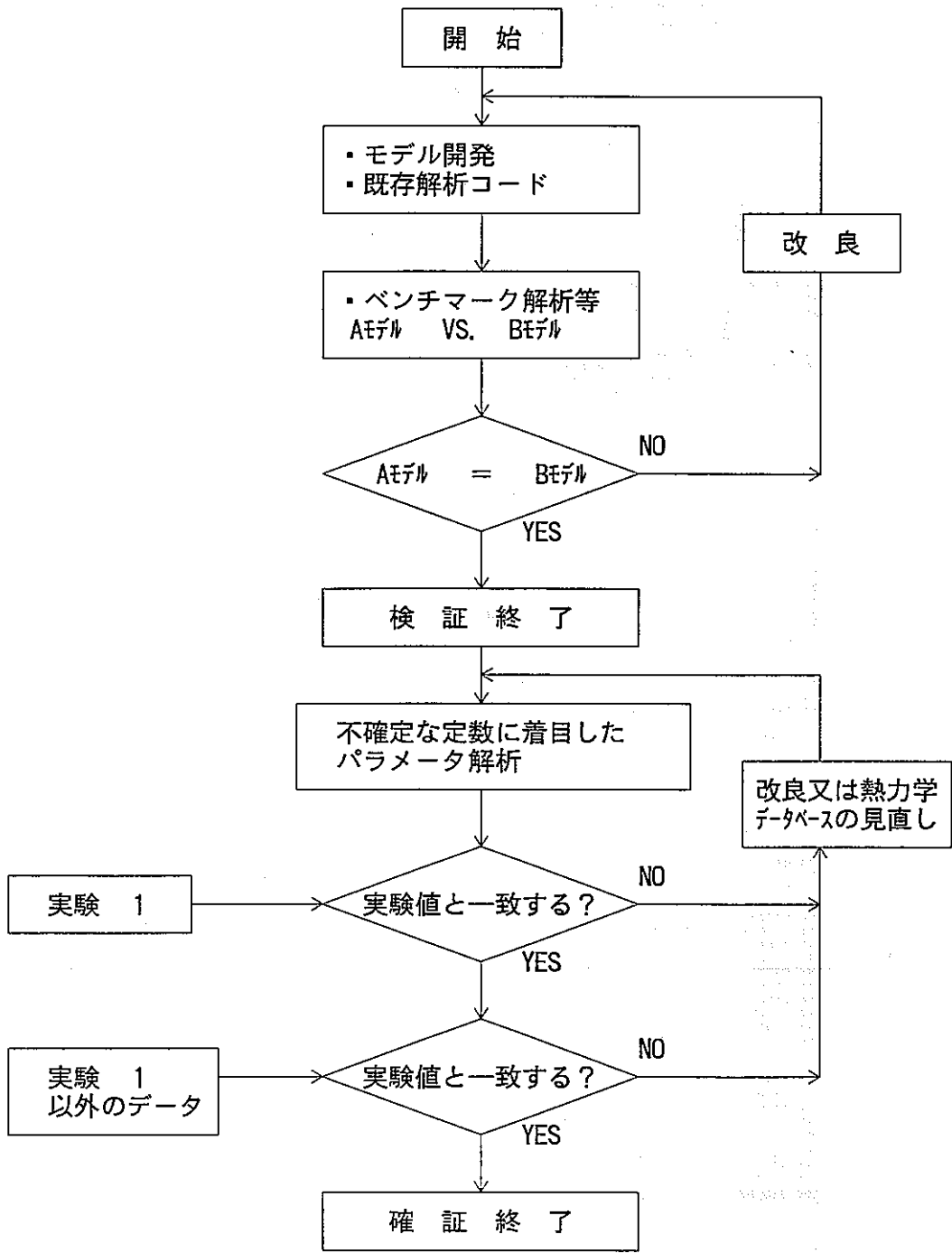


図 3-11 検証・確認解析に関する手続きのフロー

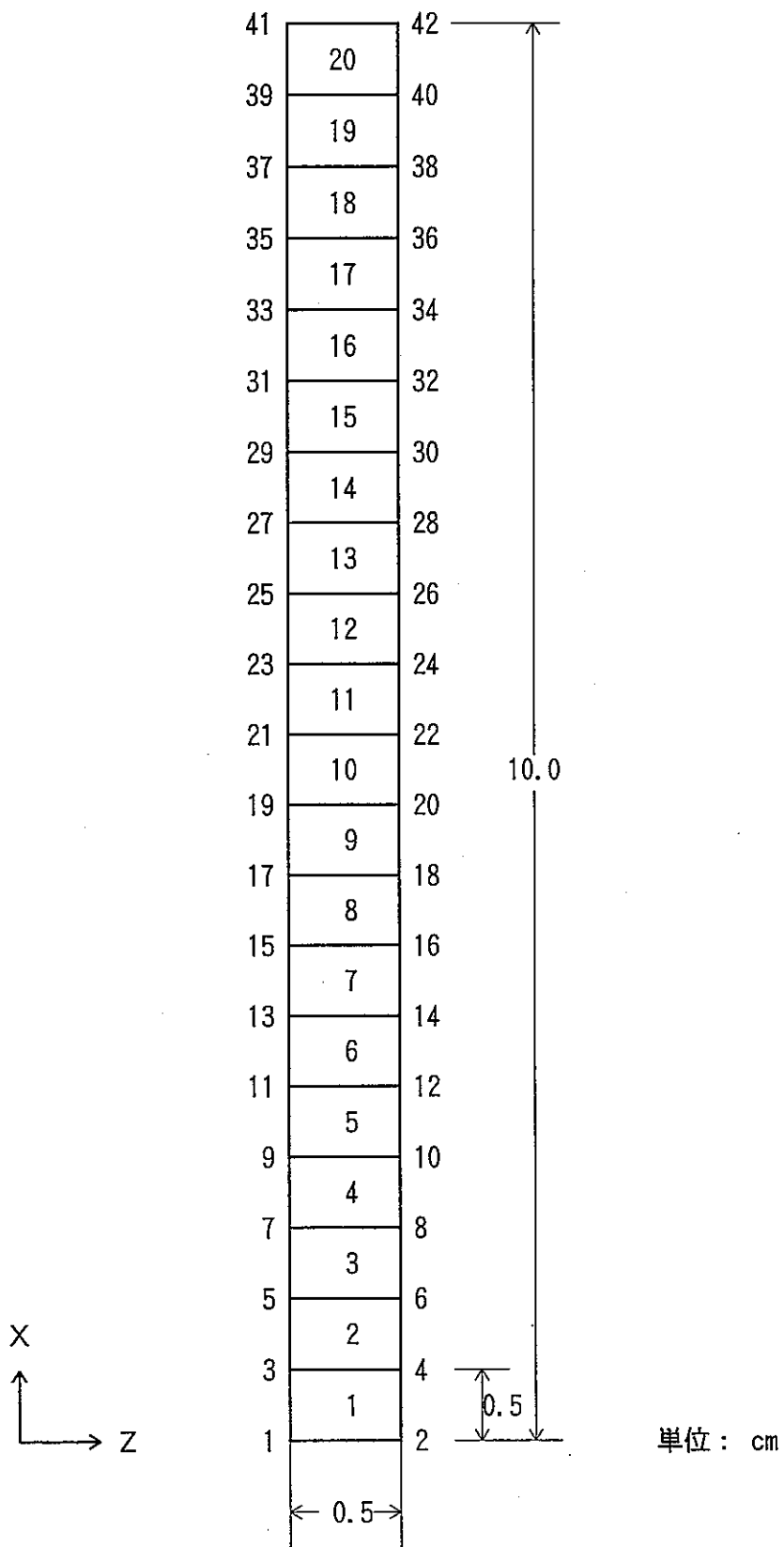


図 3-12 水理・物質移行ベンチマーク解析モデル

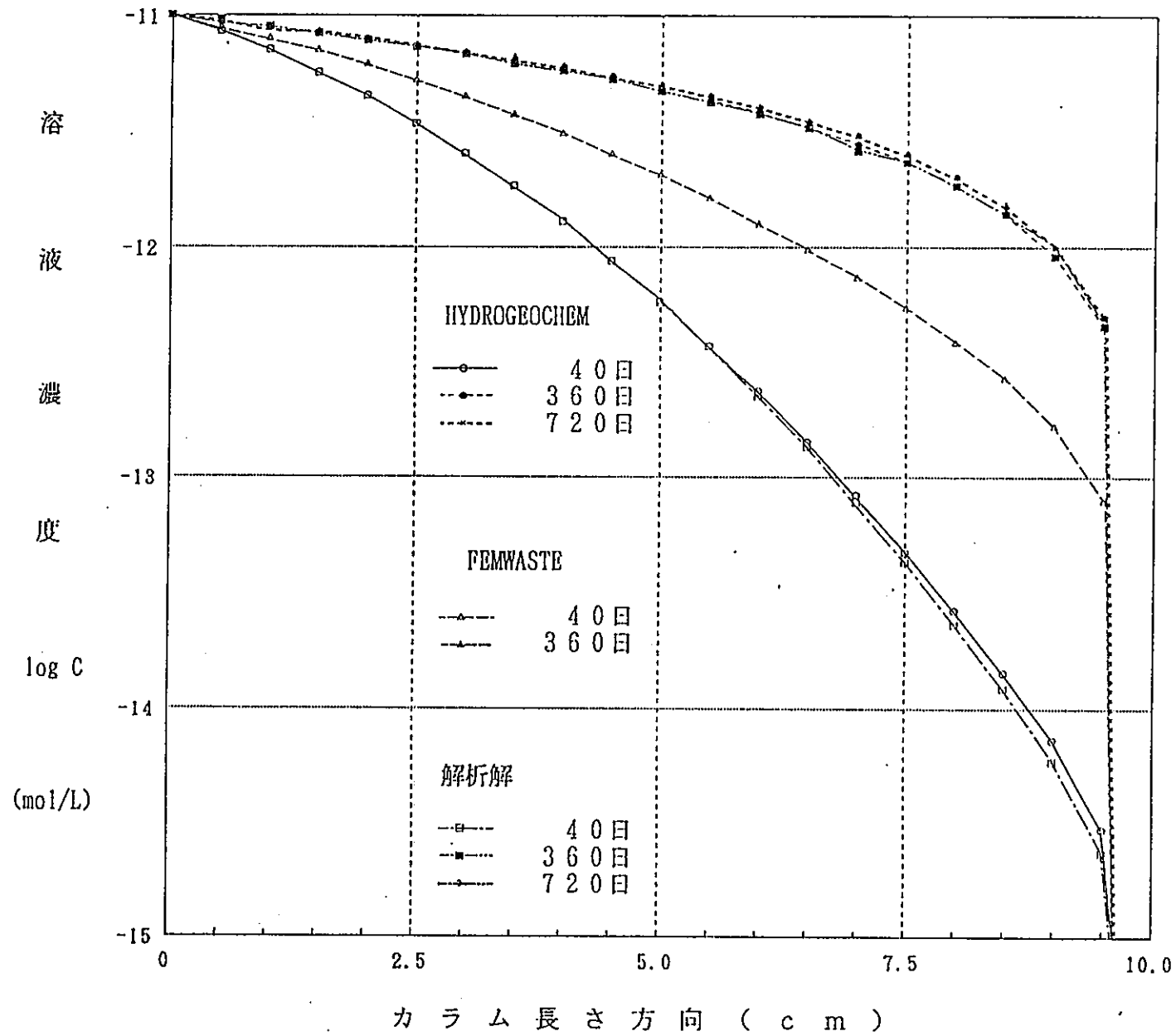


図 3-13 ベンチマーク解析 (拡散) 結果

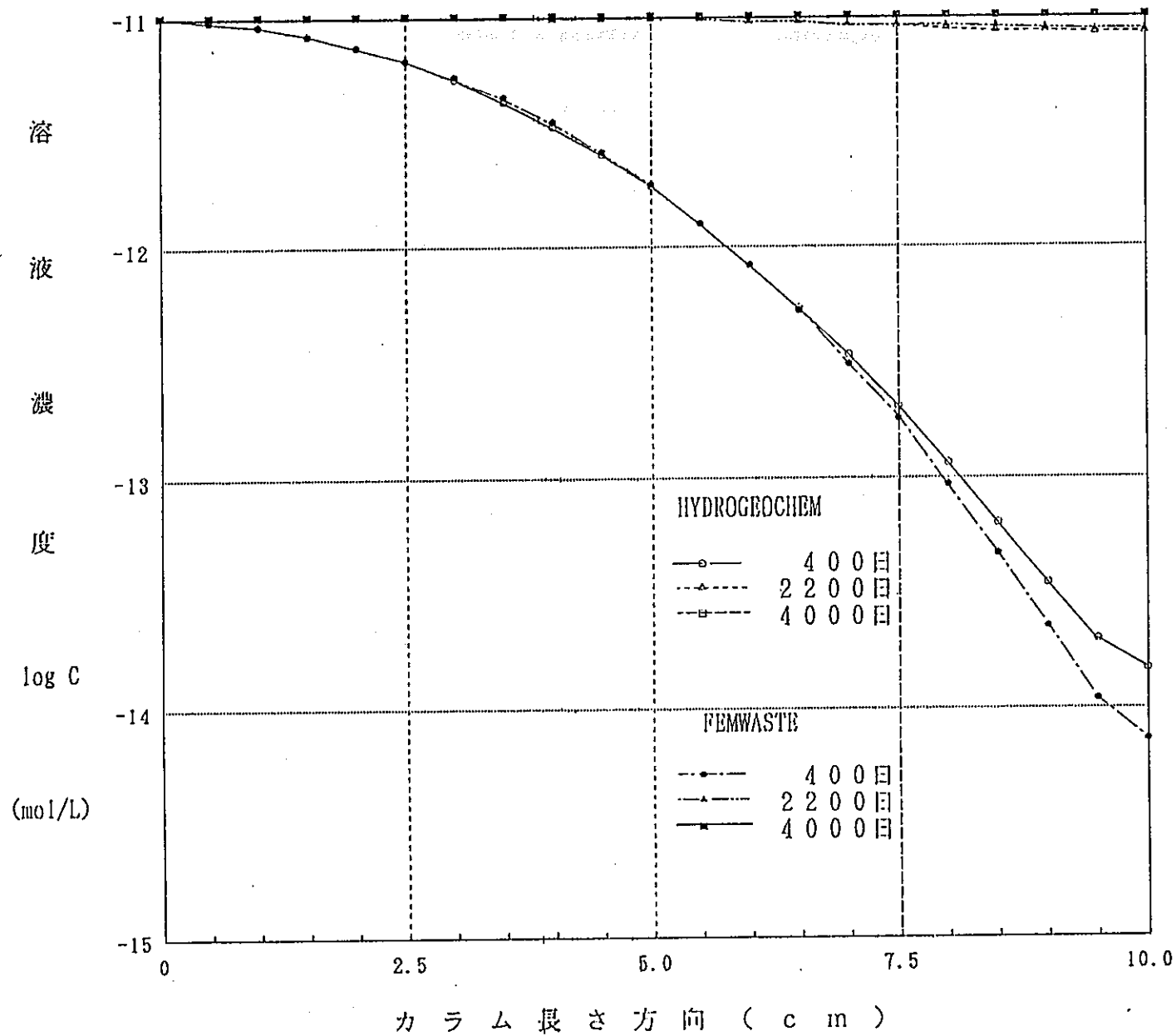


図 3-14 ベンチマーク解析 (移流) 結果

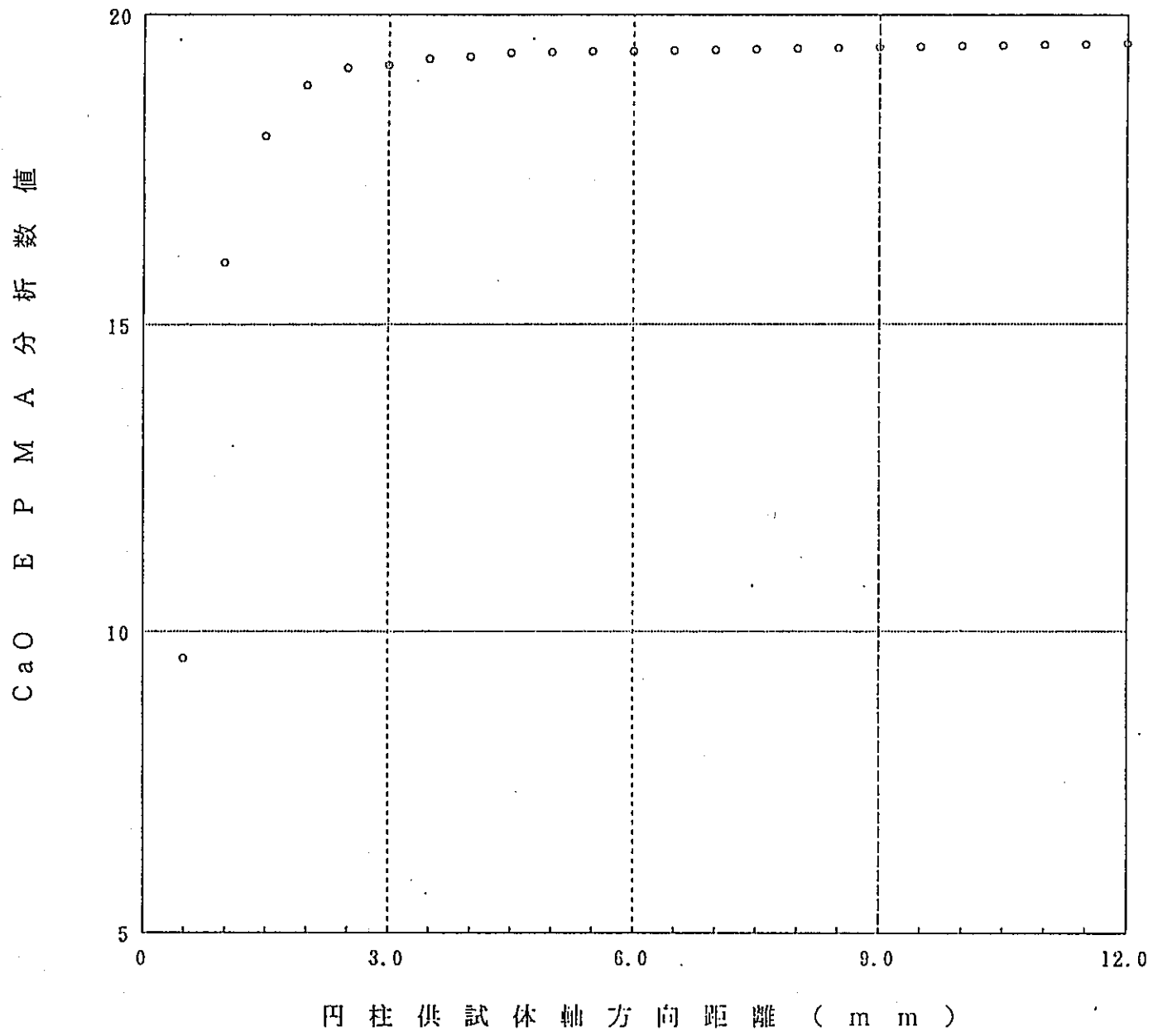


图 3-15 圆柱供试体浸渍试验结果 (CaO : EPMA分析结果)

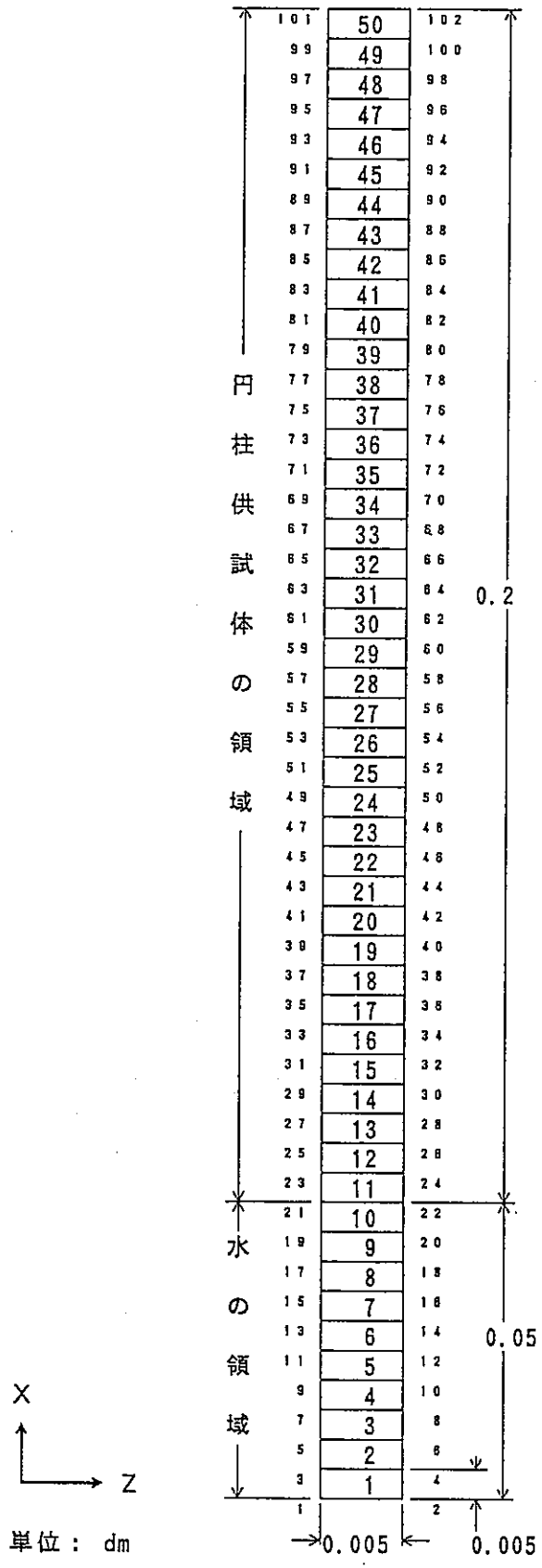


図 3-16 確認解析モデル

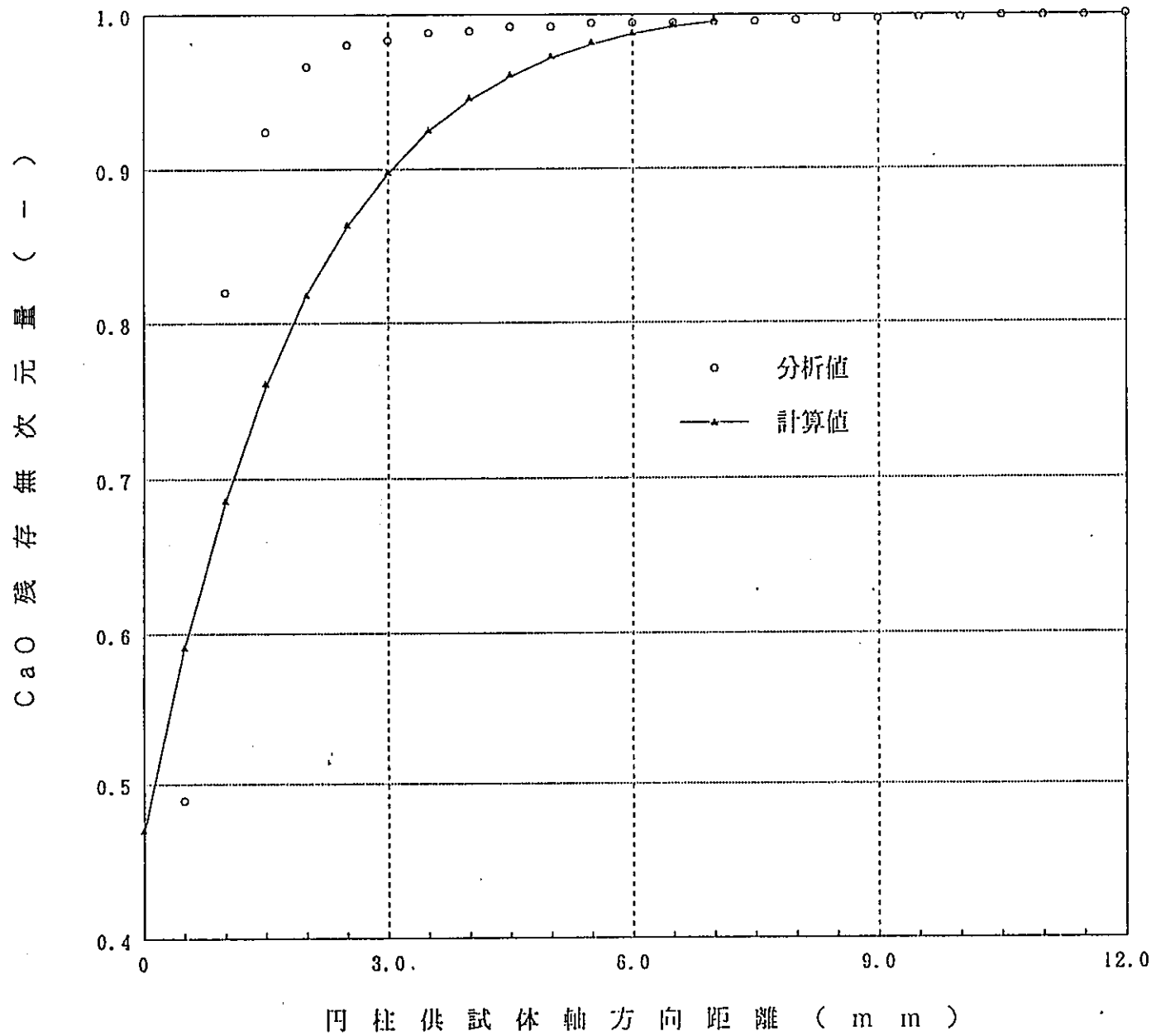


圖 3-17 確証解析結果

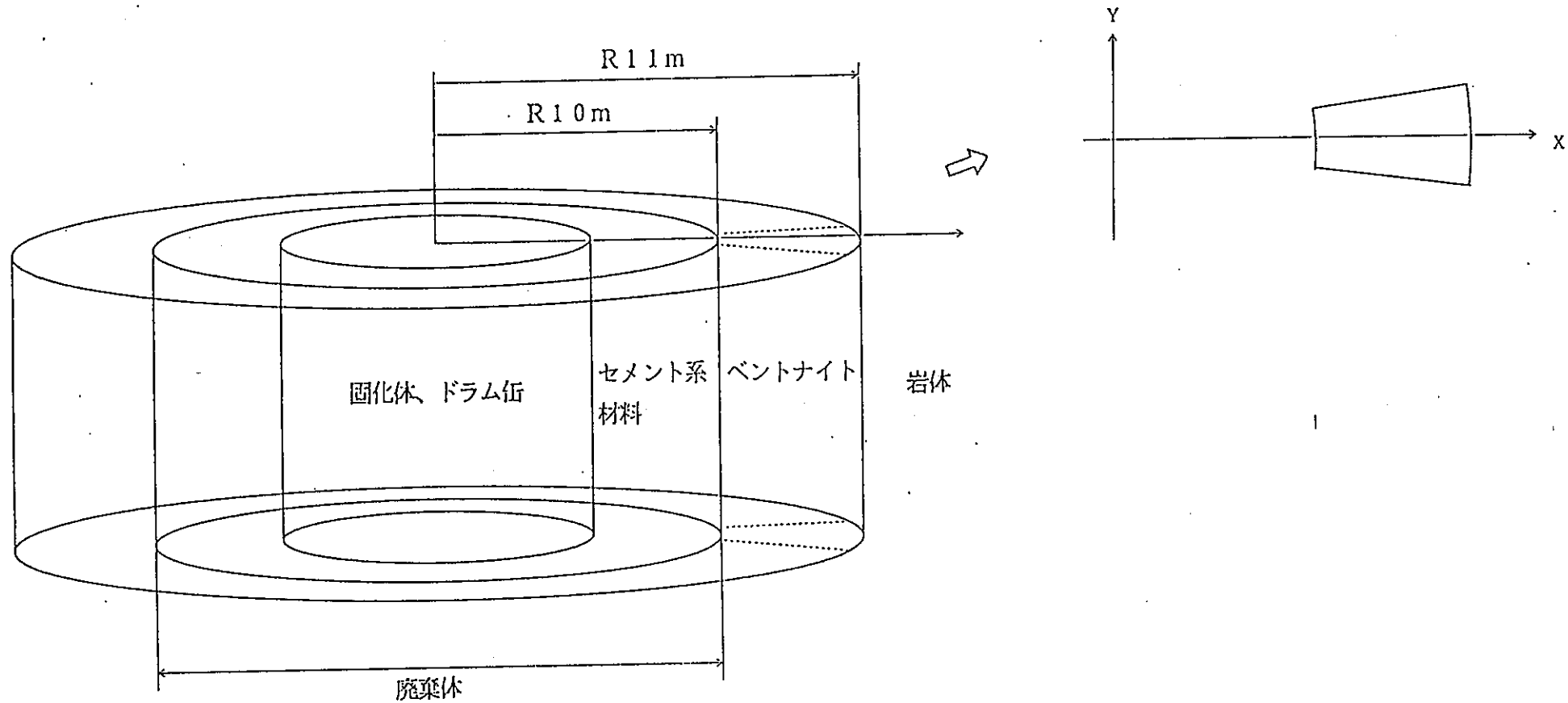


図 3-18 核種移行解析モデル概念

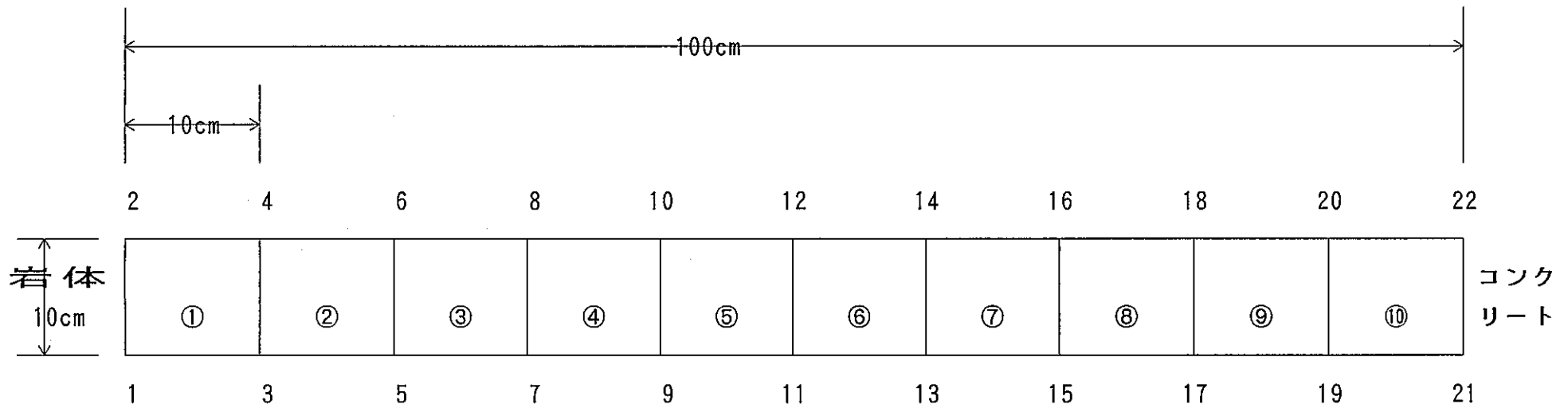


図 3-19 核種移行試験解析モデル

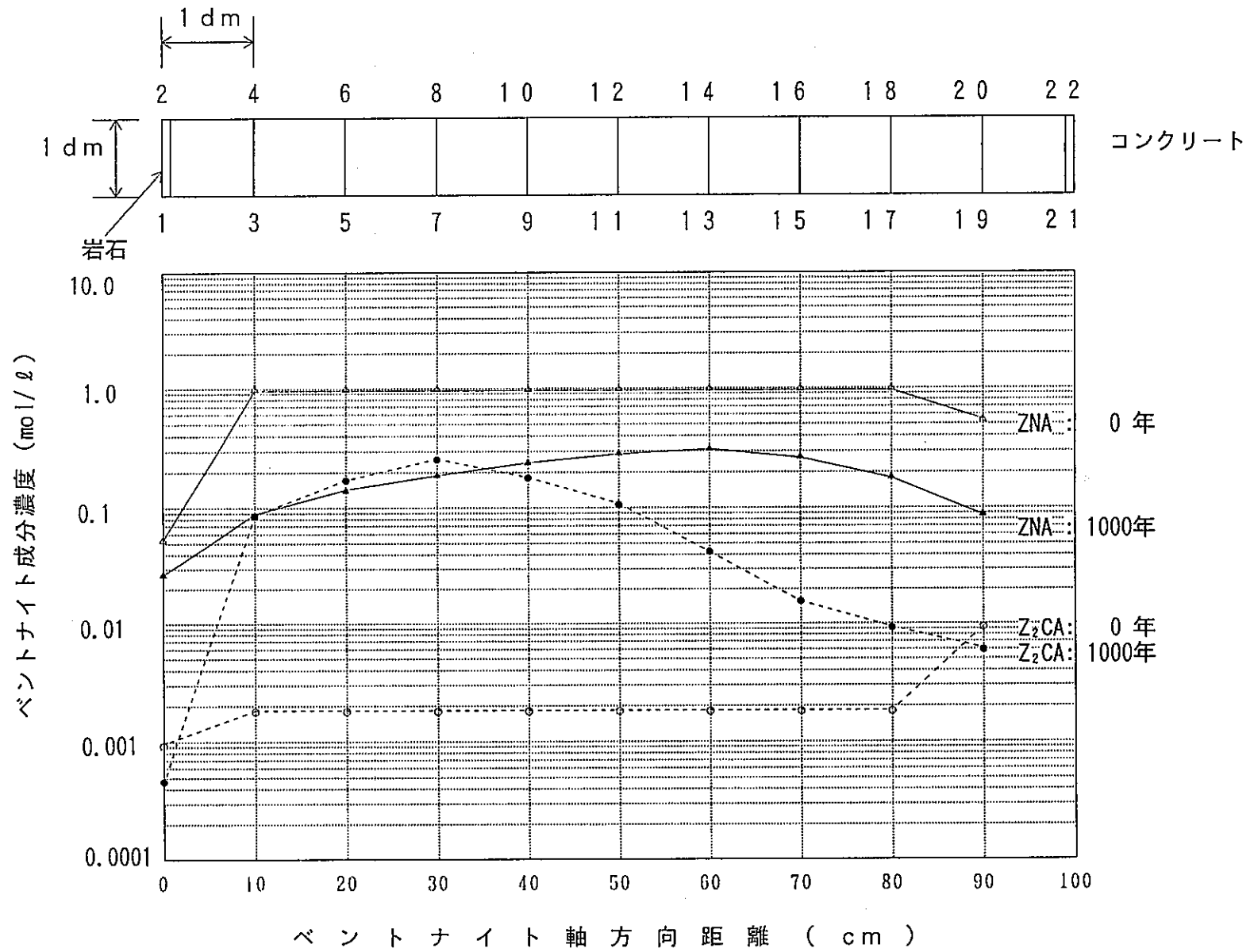


図 3-20 ベントナイトの変質試験解析例 (ベントナイト成分濃度)

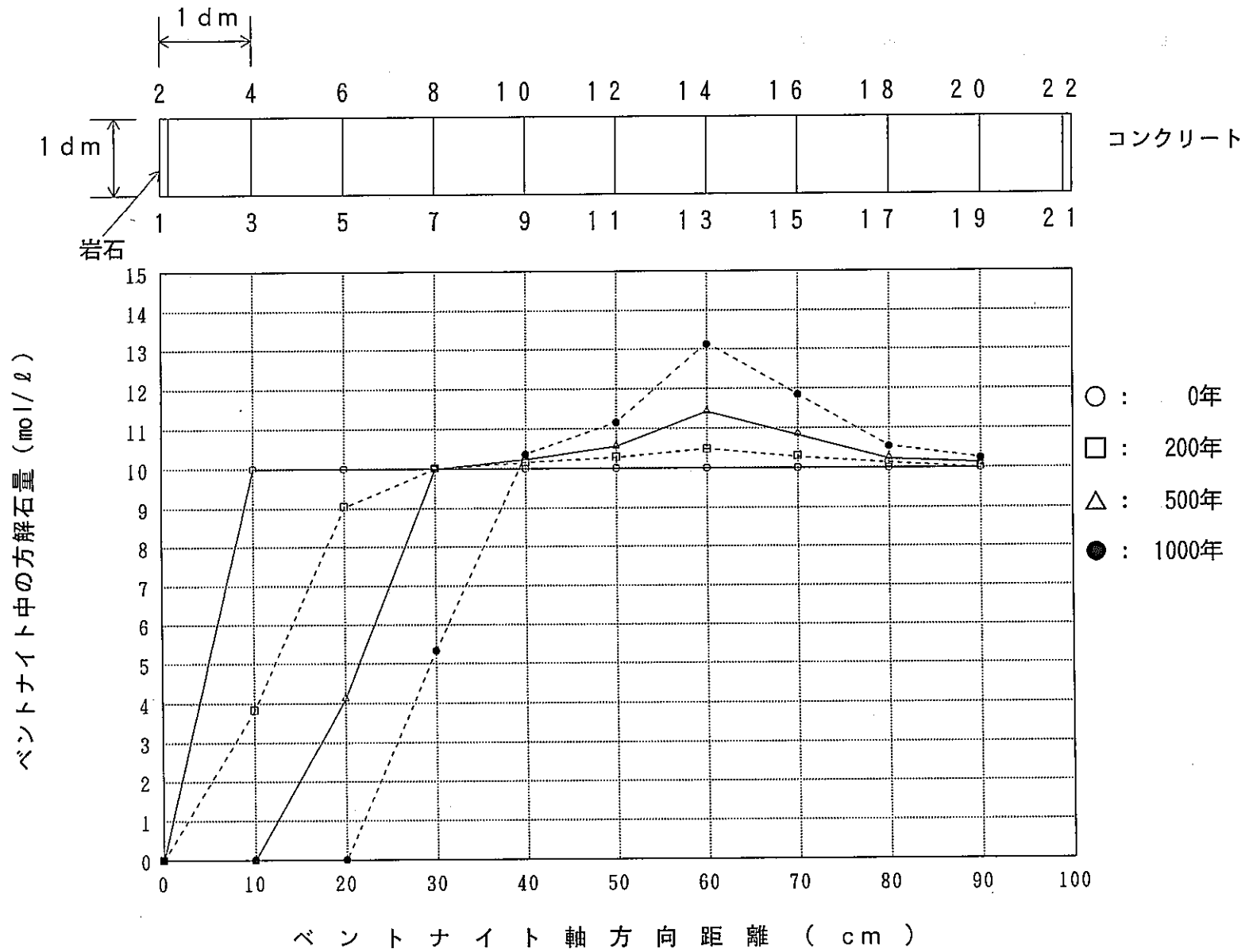


図 3-21 ベントナイトの変質試験解析例(ベントナイト中の方解石量)

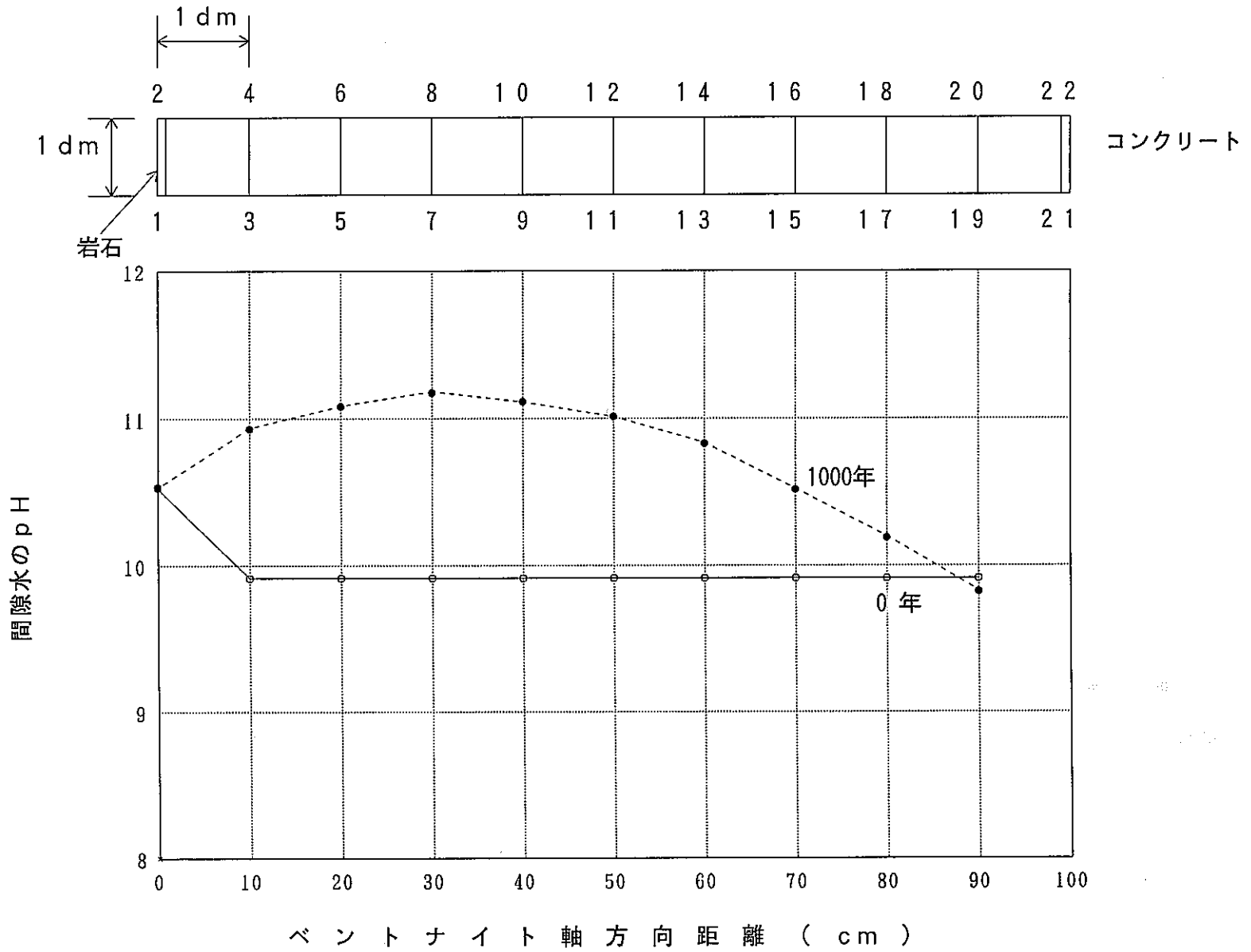


図 3-22 ベントナイトの変質試験解析例 (間隙水中のpH)

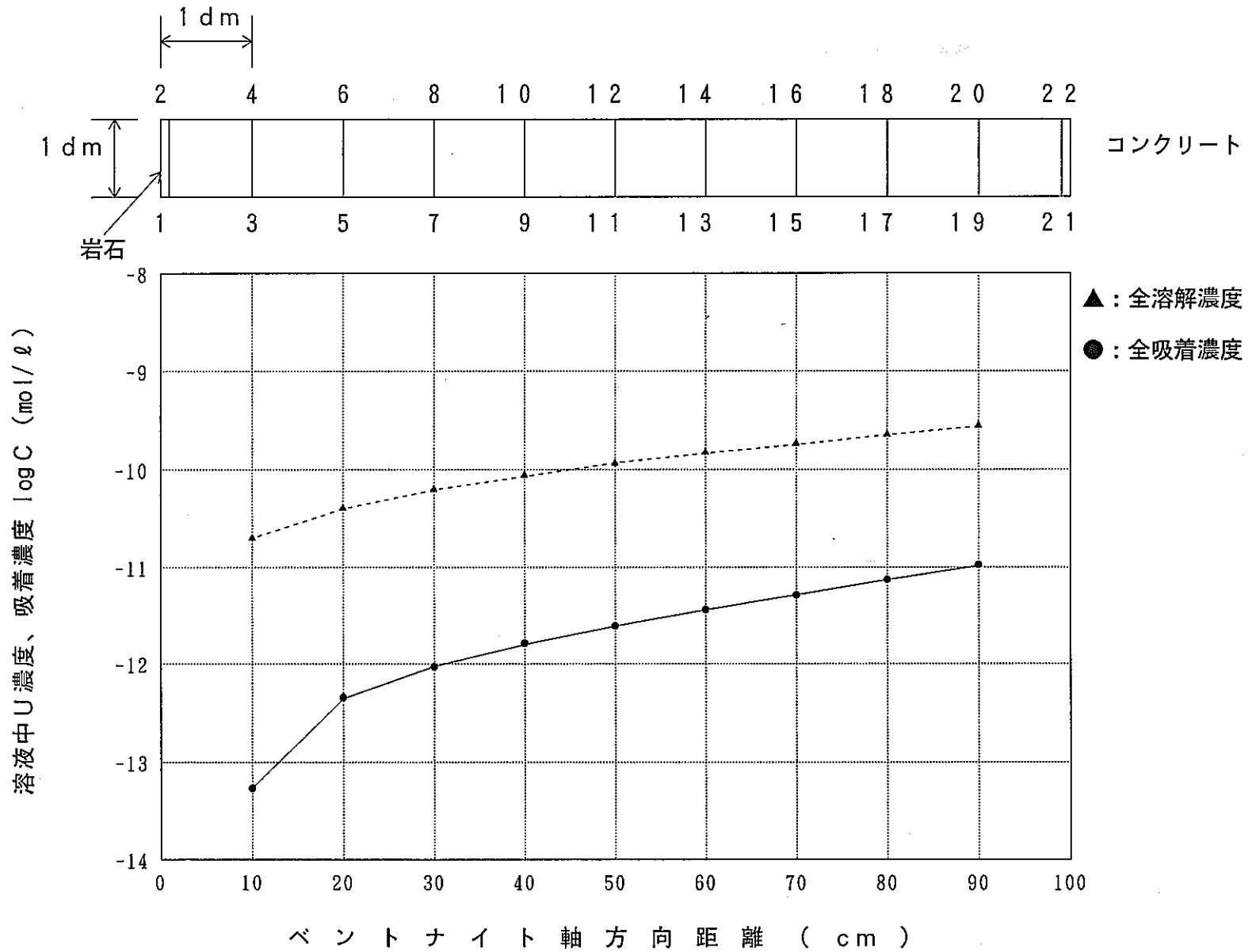


図 3-23 U-234 の核種移行試解析例 (酸化物系、1000年)

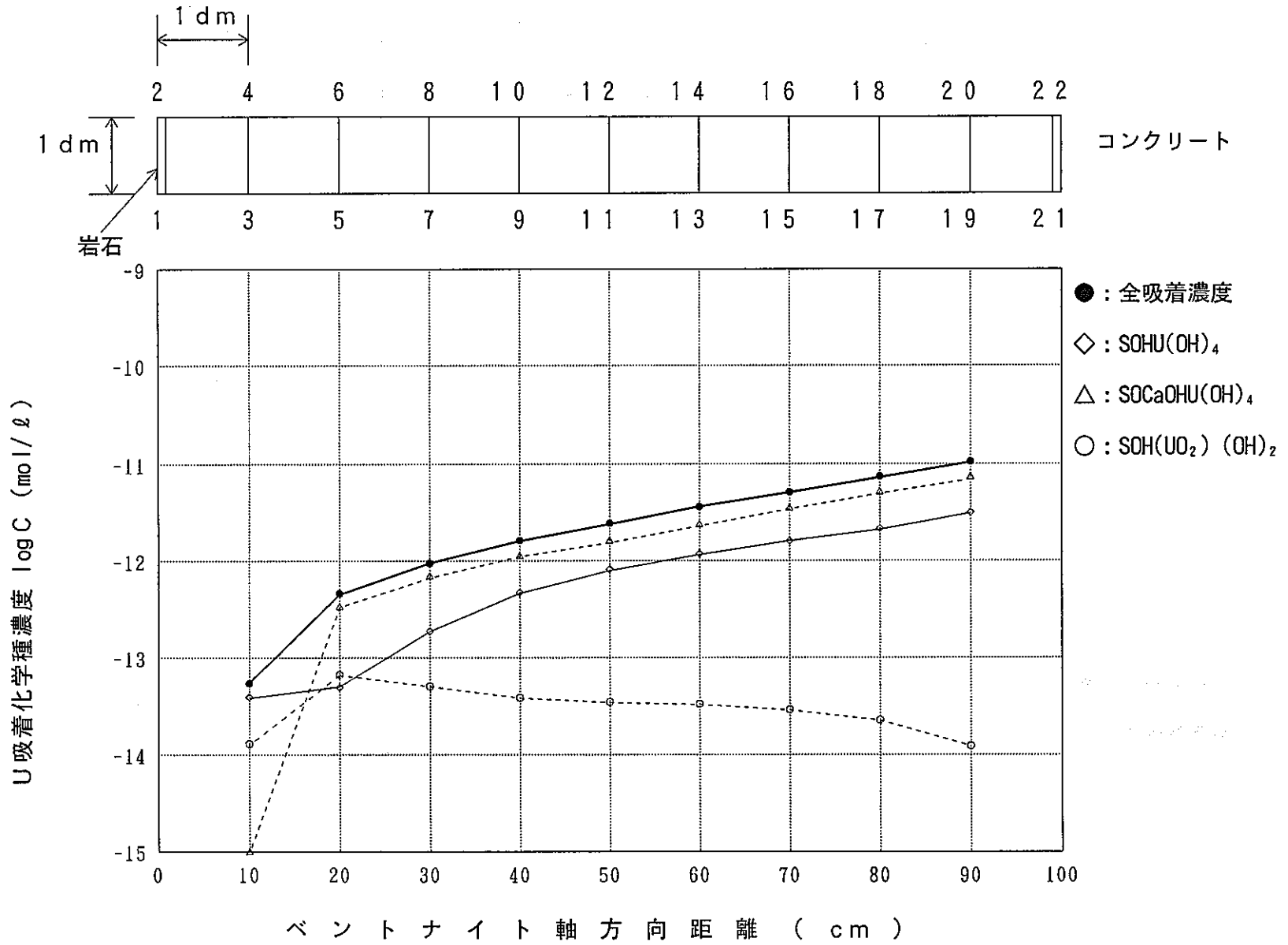


図 3-24 U-234 の核種移行試解析例 (酸化物系、1000年)

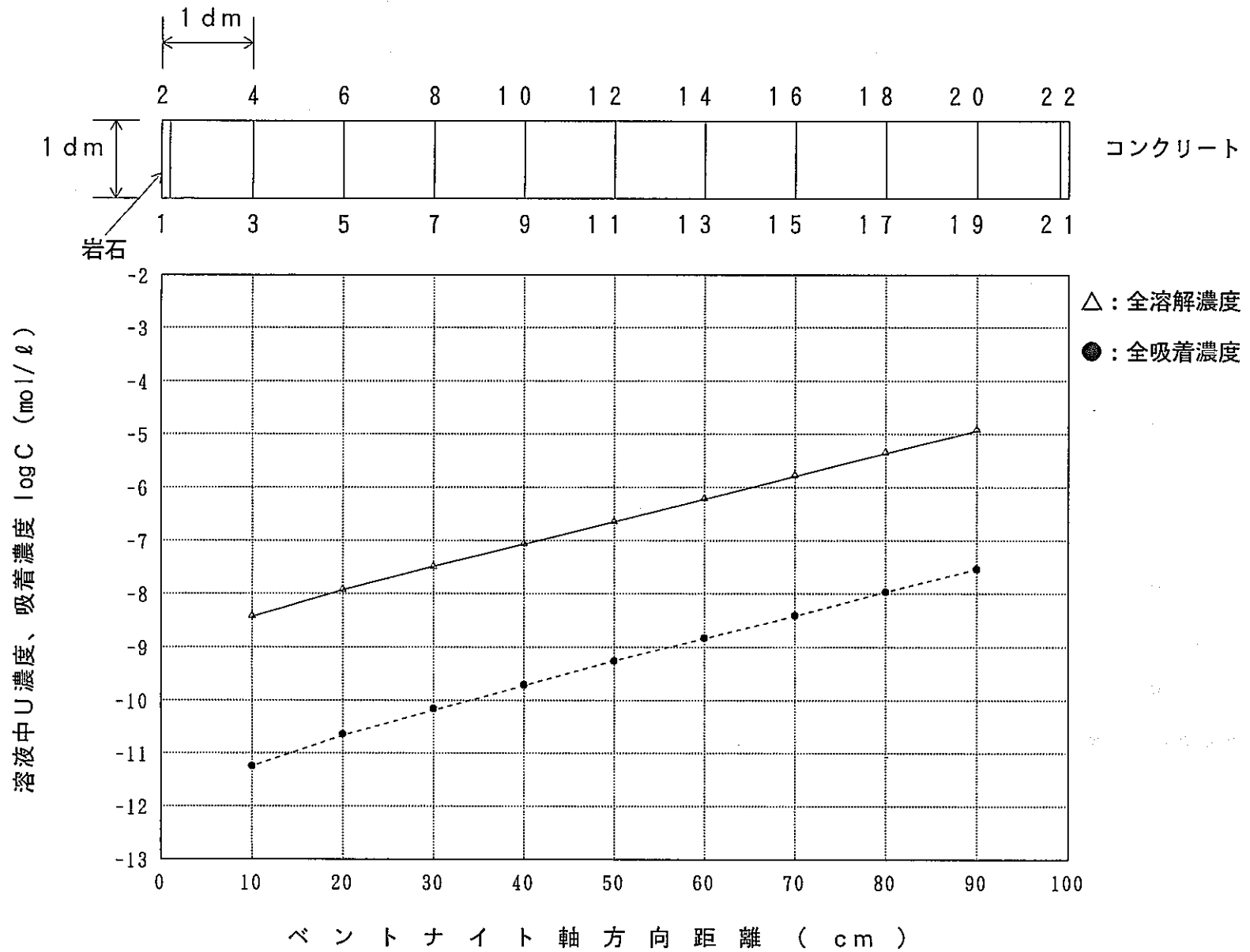


図 3-25 U - 234 の核種移行試験解析例 (水酸化物系、1年)

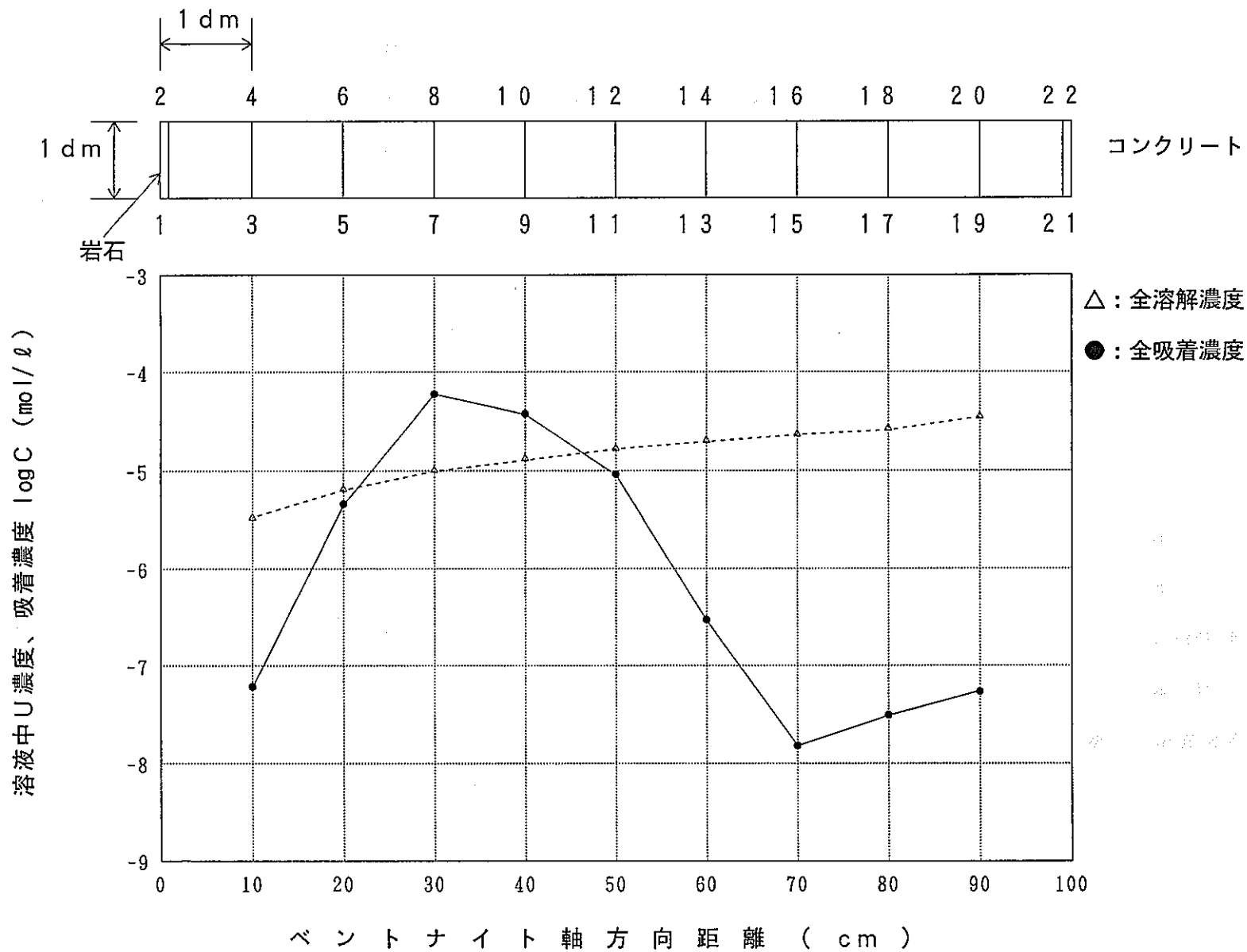


図 3-26 U-234 の核種移行試験解析例 (水酸化物系、1000年)

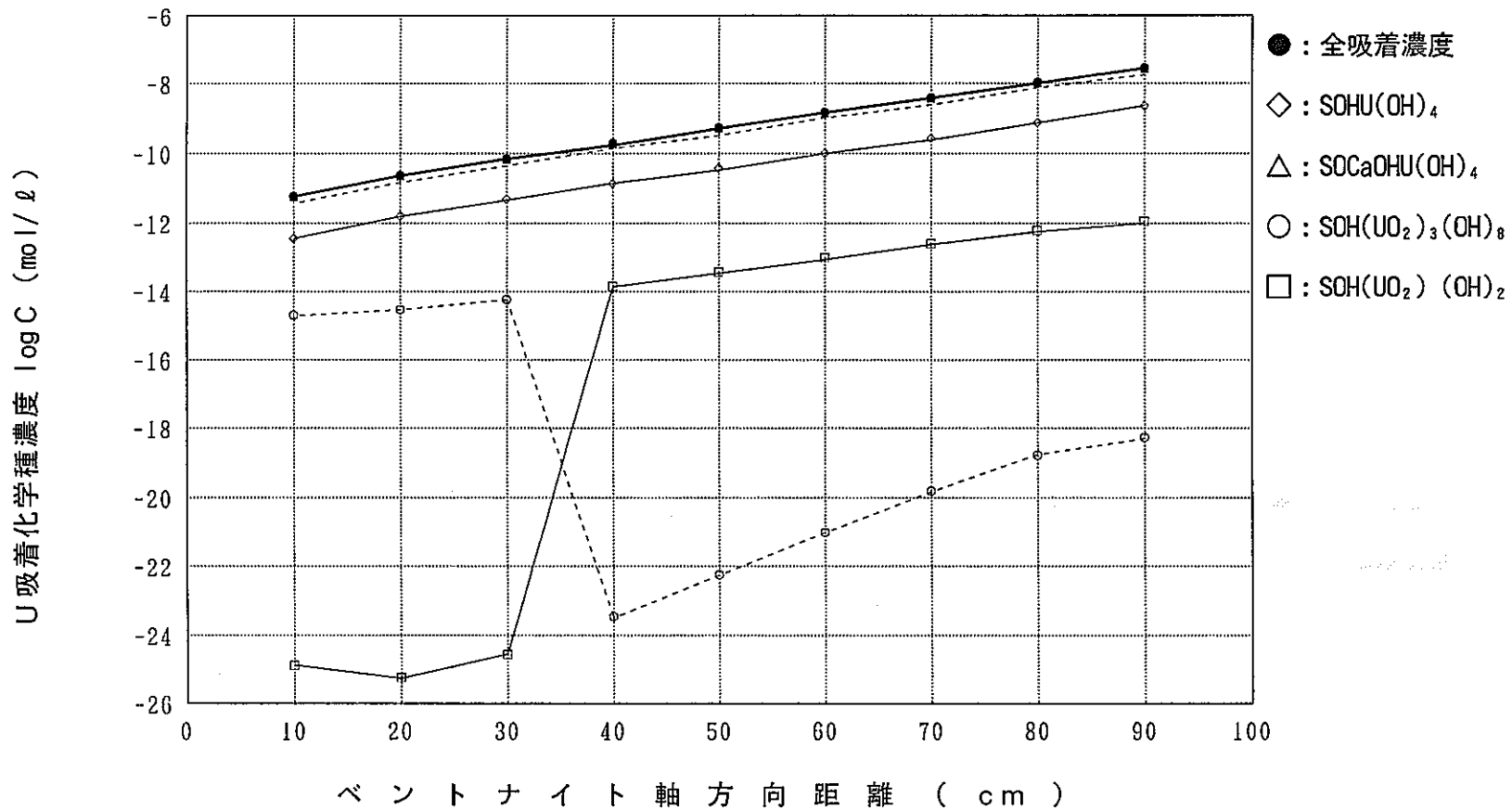
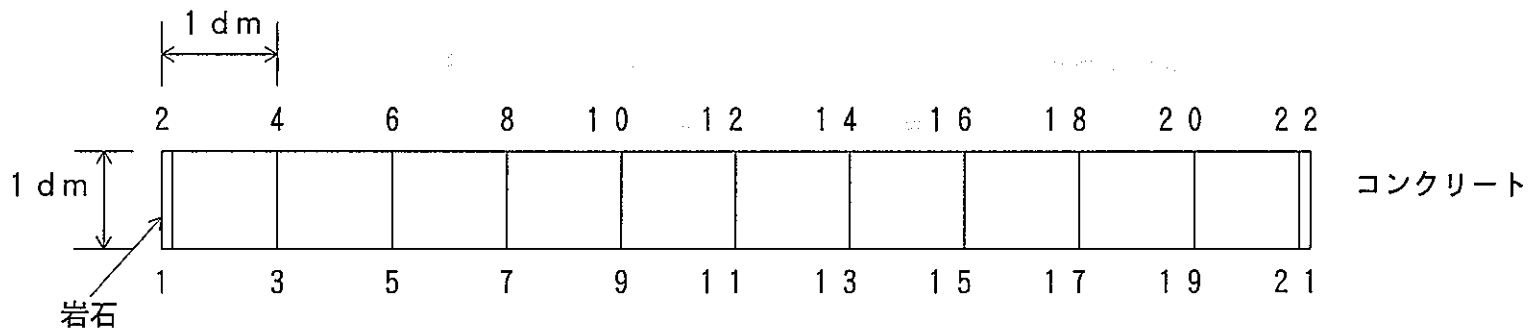


図 3-27 U-234 の核種移行試験解析例 (水酸化物系、1年)

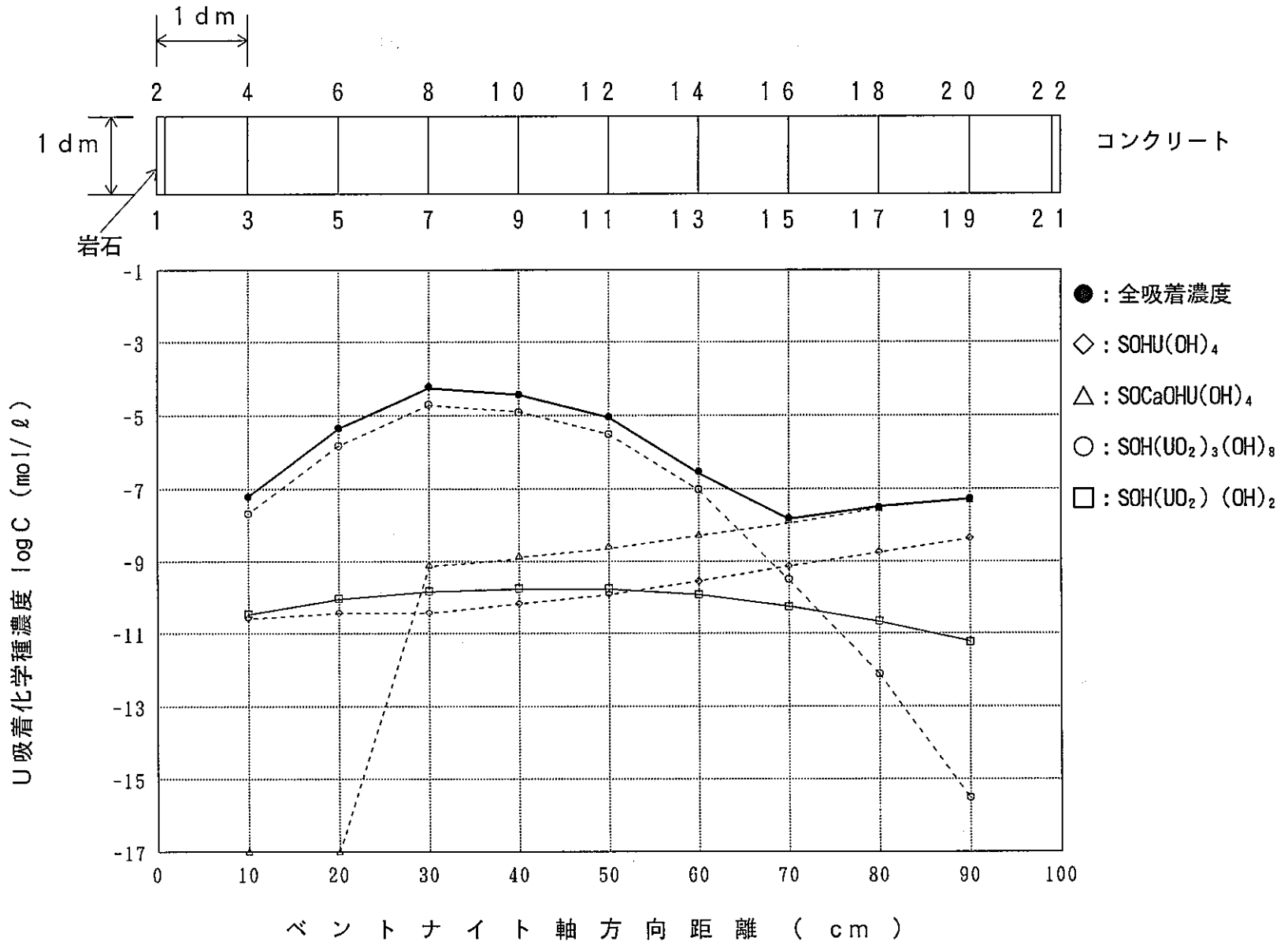


図 3-28 U-234 の核種移行試解析例 (水酸化物系、1000年)

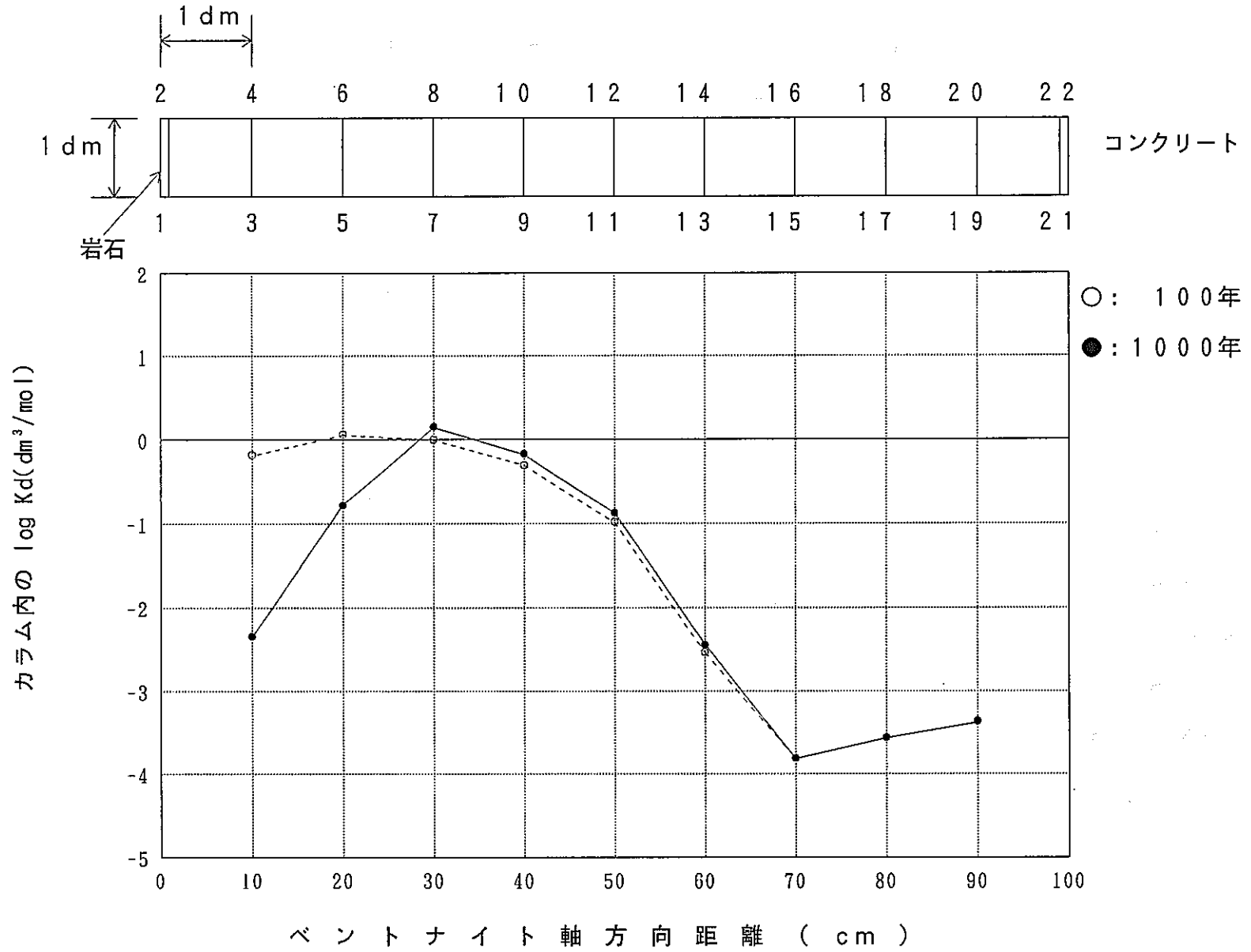


図 3-29 U - 234 の核種移行試解析例 (水酸化物系)

4. あとがき

TRU廃棄物処分システムの長期挙動を化学反応と物質移行とを連成させたモデルにより解析するための研究として、

- 既存連成コードの調査
- 熱力学データベースの効率的な運用方法の検討
- モデルの適用性の検討
- 人工バリアの長期挙動解析および核種移行の試解析

を実施した。これらの検討により、現在のHYDROGEOCHEMコードの能力が明確となった。今後、更にHYDROGEOCHEMを性能評価モデルとして充実させるため、以下に示す改良が必要であると考える。

- 溶解機能の追加、検証、確証
- イオン交換、収着機能の検証
- 媒体毎の固相データの指定
- 崩壊機能の追加
- 後処理（結果のビジュアル化）