

## 緩衝材の地球化学プロセスに着目した熱-水-化学連成挙動に関する 工学規模の人工バリア試験と解析評価

鈴木英明<sup>\*1</sup> 藤崎淳<sup>\*1,2</sup> 藤田朝雄<sup>\*1</sup>

高レベル放射性廃棄物の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、廃棄体からの放熱、人工バリア内への地下水の浸潤、緩衝材の膨潤、間隙水組成の変化など、熱的、水理学的、力学的および地球化学的プロセスが相互に影響を及ぼし合う連成現象が生じることが予想される。このようなニアフィールド環境の理解と予測を目的に、ニアフィールドの連成現象を表現する熱-水-応力-化学連成挙動解析モデルの開発を行っている。

本研究では、人工バリア内で生じる連成現象を定量的に把握することを目的に、工学規模の人工バリア試験を実施した。さらに、開発中の連成解析モデルによる解析評価を通じて、解析モデルの現状レベルを確認し今後の課題を抽出した。

工学規模での人工バリア試験は、廃棄体の発熱を模擬した温度勾配条件下において、コンクリート支保を想定したモルタルから高アルカリ性間隙水が不飽和状態の緩衝材へ浸潤する条件で実施した。そして、埋設した計測センサーにより温度や含水比の変化を把握した。また、緩衝材のサンプリング試料を対象とした鉱物分析によって、モルタルとの接触界面近傍でシリカを主成分とする非晶質物質の生成を示唆する結果が得られた。

さらに、開発中の連成解析モデルにより緩衝材中への高アルカリ性間隙水の浸潤にともなう地球化学プロセスに着目した熱-水-化学連成解析を実施した。そして、緩衝材中の温度変化や再冠水挙動を試験結果と比較し、解析モデルの妥当性を確認した。また、ポルトランダイドが溶解して高いCa濃度のモルタル間隙水が不飽和緩衝材中へ浸潤し、一方、緩衝材中ではカルセドニが溶解することから、モルタルとの接触界面近傍での析出物がC-S-Hゲルである可能性を示し、試験結果と整合する結果が得られた。

本研究を通じて、開発中の連成解析モデルが、緩衝材とコンクリート支保の地球化学プロセスの相互作用を考慮した連成現象の評価に適用できる可能性を示した。さらに、緩衝材中の水蒸気移動による間隙水の濃縮や、不飽和状態におけるモンモリロナイトの保水形態を考慮した地球化学反応の取扱いの必要性など、より現実的な連成解析モデルを構築するための課題を抽出することができた。

**Keywords :**高レベル放射性廃棄物、地層処分、人工バリア、熱-水-応力-化学連成挙動、連成解析モデル

It is anticipated that thermal - hydraulic - mechanical - chemical (THMC) processes will be coupled in the bentonite buffer material of a high-level radioactive waste repository. The main contributors to these processes are heat arising from the radioactive decay of the vitrified waste, infiltration of groundwater from the host rock and/or leachate from the cementitious component of the repository, and the consequent increase in swelling pressure and chemical reactions. In order to evaluate these coupled processes in the bentonite buffer material, it is necessary to take steps towards the development of a credible and robust THMC model.

The current paper describes the measured data of an engineering-scale coupled THC process experiment and the calculated results of a THC model undergoing development. The coupled experiment used an electric heater, bentonite blocks and a mortar block, subjected to infiltrating water to simulate a high-alkaline porewater derived from the concrete tunnel support seeping into the bentonite buffer material under a thermal gradient provided by the vitrified waste.

Temperature and water content of the bentonite buffer material were measured by several sensors continuously for several months. After this time, the buffer material was sampled. The results of mineral analysis of the samples suggested that the precipitate of amorphous hydrate with silica was found in the buffer material in contact with the mortar. The developing THC model simulated C-S-H gel precipitation as a secondary mineral in the exact same locality because of the solution being saturated with respect to portlandite and chalcedony, thereby providing some confidence in the chemical feature of the developing THC model.

Some important issues in the future development of the model were also identified, including the concentration of porewater being influenced by vapor movement in the bentonite buffer material due to heating from the vitrified waste and geochemical reactions being affected by the water retention feature of the bentonite buffer material.

**Keywords:** high-level radioactive waste, geological disposal, engineered barrier system, coupled thermo-hydro -mechanical -chemical (THMC) processes, coupled numerical model

### 1 はじめに

高レベル放射性廃棄物の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、廃棄体からの放熱、人工バリア内への地下水の浸潤、緩衝材の膨潤、間隙水組成の変化など、熱的、水理学的、力学的および地球化学的プロセスが相互に影響を及ぼし合う連成現象が生じること

Engineered barrier experiments and analytical studies on coupled thermal - hydraulic - chemical processes in bentonite buffer material by Hideaki Suzuki (suzuki.hideaki@jaea.go.jp), Kiyoshi Fujisaki, Tomoo Fujita

\*1 日本原子力研究開発機構 地層処分研究開発部門 地層処分基盤研究ユニット  
Geological Isolation Research Unit Geological Isolation Research and Development Directorate, Japan Atomic Energy Agency  
〒319-1194 茨城県那珂郡東海村村松 4-33

\*2 現所属 原子力発電環境整備機構  
Nuclear Waste Management Organization of Japan

(Received 17 March 2009; accepted 15 October 2009)

が予想される。

このようなニアフィールド環境条件を理解し予測することは、オーバーパックの腐食や核種移行の環境条件を明確にするうえで重要である。また、海水系地下水環境や、コンクリート支保を想定した場合、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となる。しかしながら、このような長期挙動を実験によって把握することは困難であるため、数値解析によるアプローチが有効な評価手法になると考えられる。このようなことから、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の連成現象を表現する熱-水-応力-化学連成挙動解析モデル(以下、連成解析モデルという)の開発を行っている[1,2]。

他方、人工バリアおよびその周辺で生じる連成現象を定量的に把握し、開発中の連成解析モデルの適用性を確認することを目的として、工学規模の人工バリア試験設備(COUPLE)を使用したデータ取得を進めている[3,4]。これまでに、大気下における180日間の試験を実施し、温度場、再冠水挙動および緩衝材間隙水pHを取得し[3,4]、連成解析モデルによる解析評価が行われている[5]。

本研究では、実際の地下深部により近い環境として大気の影響を排除するため窒素ガスを供給した低酸素濃度条件下で830日間の人工バリア試験を実施した。そして、計測センサーにより温度や水分変化を測定した。また、緩衝材中の物質移行および地球化学プロセスに関する情報を得るために、試験終了後に緩衝材をサンプリングして化学分析や鉱物分析を実施した。そして、開発中の連成解析モデルにより、温度勾配条件下におけるモルタルからの高アルカリ性間隙水の浸潤による緩衝材構成鉱物の溶解や二次鉱物の沈殿などを考慮した熱-水-化学連成解析を実施した。さらに、実験結果との比較を通じて、連成解析モデルの現状レベルの確認と今後の開発に向けた検討事項について考察した。

## 2 人工バリア試験

### 2.1 試験設備

COUPLEの概要をFig. 1に示す。試験体は、コンクリート支保を想定したモルタルブロック(幅1m×奥行1m×高さ1m)、圧縮ベントナイトで製作した緩衝材(直径0.3m、高さ1m)および廃棄体を模擬したステンレス製の電気式ヒーター(直径0.1m、長さ1m、以下、中心ヒーターという)から構成される。試験体の寸法は、設備の制限からモルタルブロックの寸法が、「第2次取りまとめ」の廃棄体堅置き方式の場合に設定された廃棄体1本あたりの占有面積の1/7程度であることから[6]、ここでは、緩衝材厚さおよび中心ヒーターの直径を、「第2次取りまとめ」人工バリア仕様の1/7スケールとした。緩衝材およびモルタルブロックの仕様をTable 1に示す。試験体の側面には、温

度の境界条件を与えるパネルヒーターを設置した。このパネルヒーターは、計8機のジャッキで固定し試験体の変形を拘束した。試験体上部は、モルタルブロックの水分を飽和状態に保つため、温度を制御した浸潤水で満たした。試験体の下部には断熱材を充填した。また、低酸素濃度状態

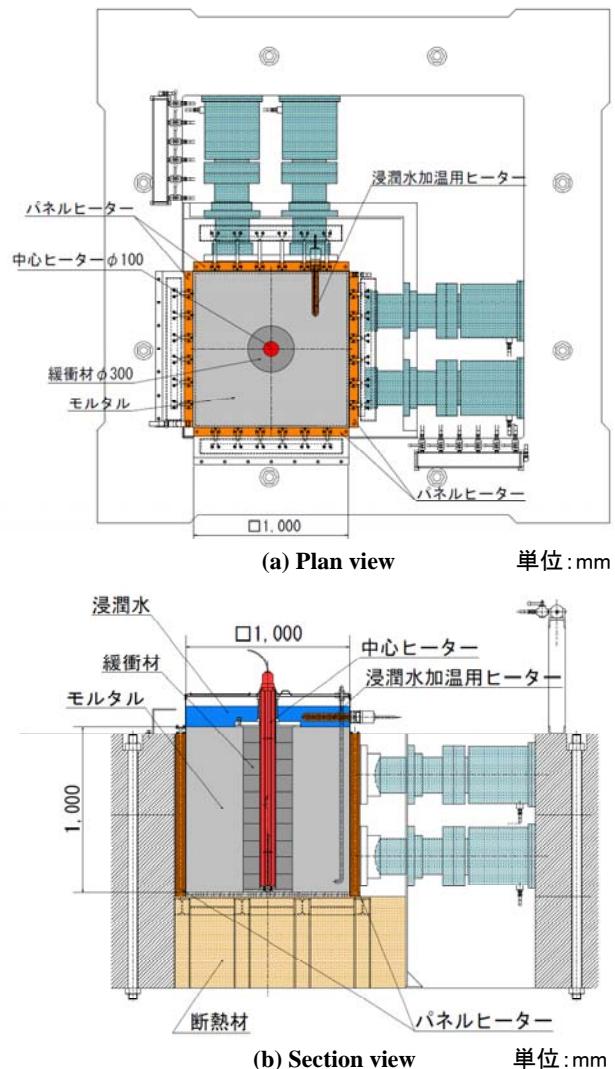


Fig. 1 Schematic view of COUPLE equipment

Table 1 Properties of buffer material and mortar block

	緩衝材(圧縮ベントナイト)	モルタル
材 料	クニゲル V1(70wt%) とケイ砂(30wt%)の混合材	水/セメント比=55%、骨材/セメント比=3 セメント:OPC(比重3.16) 骨材:人工軽量骨材(比重1.68)
乾燥密度(kg/m <sup>3</sup> )	1600	1230
間隙率(-)	0.403	0.311
真密度(kg/m <sup>3</sup> )	2680	1785
初期水分飽和度(-)	0.5	1.0

Table 2 List of sensors used in COUPLE experiment

	機器名称	メーカー	仕様	数量	備考
緩衝材	熱電対	助川電気工業	シース熱電対 T35	32	
	熱電対	助川電気工業	シース熱電対 T35	34	
	サイクロメータ	WESCOR	PST-55-3D-SF	15	キャリブレーション結果より、含水比 $\omega \geq 11.7\%$ に適用
			VAISALA HMP233	6	キャリブレーション結果より、含水比 $\omega \leq 13.6\%$ に適用
	静電容量式湿度計	TDK	CHS-UPS	3	キャリブレーション結果より、含水比 $\omega \leq 13.6\%$ に適用
		ST 研究所	PS25-20	10	定格容量 2.0 MPa
	pH 計	藤原製作所	PHS-1型, ガラス電極	3	緩衝材中に埋設
		大起理化工業	IQ-200PH, ISFET 電極	4	測定毎に緩衝材試験体に挿入して計測

で試験を実施するため、試験体を密閉し窒素ガスによって浸潤水のバブリングを実施した。

試験に使用した計測機器の仕様を Table 2 に示す。温度計測には、シース熱電対を使用した。緩衝材中の水分量の変化は、釜石鉱山での原位置試験でも実績のあるサイクロメータおよび静電容量式湿度計を用いた[7]。これらのセンサーは、所定の温度条件の下で含水比が既知の供試体を用いて測定を実施し、出力値と温度の関係から含水比を推定するための定式化を行った[8]。緩衝材間隙水 pH を計測するために、土壤埋設型のガラス電極 pH 計を緩衝材中に設置した。また、別途、ISFET 電極タイプ pH 計の緩衝材試験体への挿入による測定も実施した。緩衝材の膨潤応力を測定するための土圧計は、中心ヒーターと緩衝材との境界および緩衝材とモルタルの境界面に設置した。

## 2.2 試験条件

「第 2 次取りまとめ」では、緩衝材の制限温度を 100°C 未満に設定している。また、上述した廃棄体一本あたりの占有面積を設定した場合、その境界温度は約 70°C であることから[6]、本研究では、このような温度環境に従い試験温度を設定した。すなわち、中心ヒーターの温度を 90°C に設定し、試験体の側面に配置した 4 枚のパネルヒーターの温度および試験体上部の浸潤水の温度を 70°C に設定した。この温度条件で 476 日間のモニタリングを実施した。その後、中心ヒーターの設定温度を 5°C ずつ 3 段階で低下させ、温度変化に伴う緩衝材の浸潤挙動の変化を 354 日間モニタリングした。水理学的な境界条件としては、試験体上部の浸潤水を 0.1 m の水位で管理した。この浸潤水は、蒸留水とモルタルとが反応した溶液であり、試験開始時の浸潤水の pH は約 12 であった。試験期間中は、試験体を密閉し、試験体上部の浸潤水 0.1 m<sup>3</sup> を流量 0.2 m<sup>3</sup>/min の窒素ガスでバブリングを継続して実施した。窒素ガスは、純度 99.999 % 以上の液化窒素を気化させて使用した。

## 2.3 試験結果

### 2.3.1 埋設センサーによる計測結果

熱電対による試験体中の温度および静電容量式湿度計とサイクロメータによる緩衝材の水分量の時間的、空間的な分布を把握することができた。試験開始から 476 日間、中心ヒーターと緩衝材が接触する部分で 95°C、パネルヒーター壁面とモルタルが接触する部分で 75°C となった。その後の中心ヒーターの温度低下にともない、それに追従して試験体中の温度勾配も小さくなつた。また、中心ヒーターの温度を低下させ始めた時期を境に水分量の上昇率が増加している挙動を計測した。

pH 計による緩衝材間隙水の計測は、間隙水が極めて少ないと考えられる理由によって適正なデータが得られなかつた。

### 2.3.2 緩衝材サンプリング試料の分析結果

試験終了後、試験体の温度を室温まで低下させた後に、緩衝材のサンプリングを実施した。サンプリング箇所は、境界の影響を最も受けにくいと考えられる中間深度(緩衝材の上部から 0.5 m 程度)とした。緩衝材の地球化学的な変化は、特に、モルタルとの接触界面近傍で生じると考えられるため、緩衝材とモルタルとが接触した状態でのコアを採取した。そして、緩衝材の部分を厚さ 2 mm の薄片にスライスして分析試料とした。

#### (1) 間隙水 pH の測定

緩衝材間隙水の pH の測定結果を Fig. 2 に示す。間隙水は、試料を圧密して排水させる方法により取得した。測定には pH 試験紙を用い、目視による標準変色表との比較により求めた。本作業は、大気の影響を防止するため、酸素濃度 1 ppm 以下の雰囲気制御グローブボックス内で実施した。図中には大気中での測定結果も合わせて示しているが、両者の結果に差異は見られなかつた。緩衝材間隙水の pH は、モルタル側で高くなる空間分布を持つことが分つた。

#### (2) メチレンブルー吸着量、陽イオン交換容量および浸出陽イオン組成測定

メチレンブルー吸着量の測定結果を Fig. 3 に、陽イオン

交換容量の測定結果を Fig. 4 に、浸出陽イオンのうち  $\text{Ca}^{2+}$  イオン量の測定結果を Fig. 5 に示す。図中には、ブランク試料の測定値(測定回数 5 回)の上下限値を合わせて示す。これらの測定は、日本ベントナイト工業会標準試験方法に基づいて実施した。

モンモリロナイト含有量の指標となるメチレンブルー吸着量および陽イオン交換容量は、特にモルタルとの接触界面から約 5 mm の範囲で約 15 % 低下していることから、この部分でモンモリロナイトの変質や溶解が生じた可能性がある。また、中心ヒーター近傍で、イオン交換サイト

からの  $\text{Ca}^{2+}$  イオンの浸出量が多くなっている。なお、本測定は、抽出液に酢酸アンモニウム溶液を用いた標準的な方法に替わって、カルサイトなどの随伴鉱物の溶解が生じないようにベンジルトリメチルアンモニウムクロライド 6 % 溶液を使用する SFSA 法にて実施した[9]。この方法によって得られた交換性陽イオン量の総計は、陽イオン交換容量とほぼ一致することから、共存鉱物や可溶性塩などの溶解が含まれていないイオン交換サイトからの浸出量を表していると考えられる。

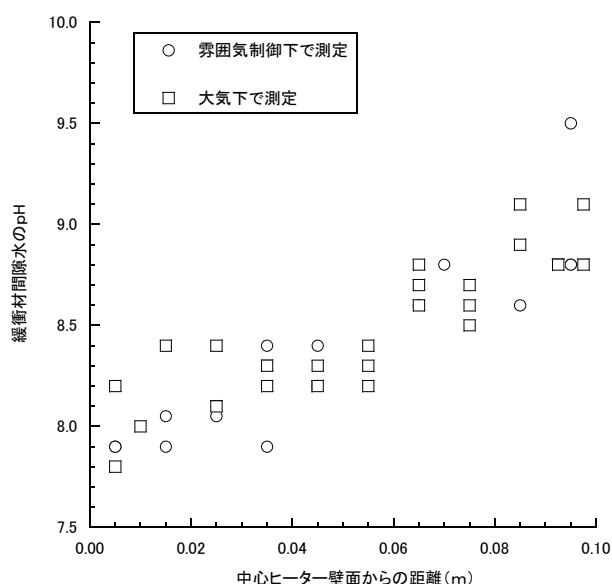


Fig. 2 Distribution of pH of pore water in buffer material

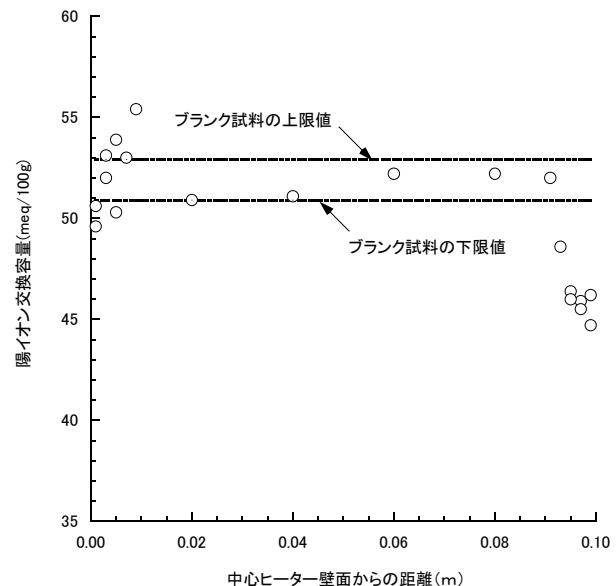


Fig. 4 Variation of cation exchange capacity of buffer material from initial condition

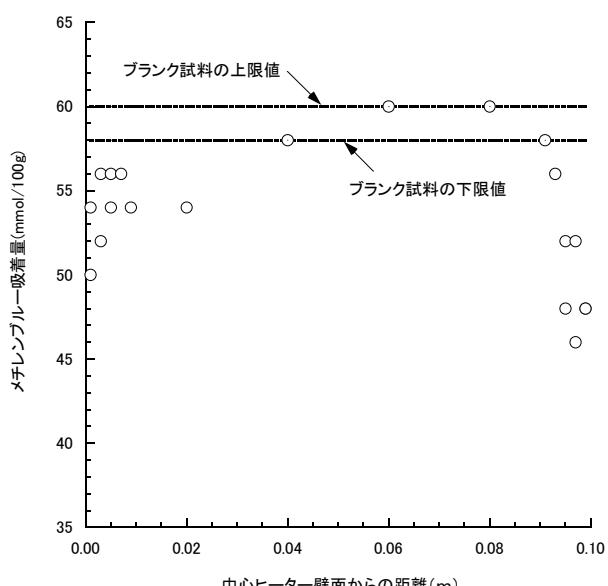


Fig. 3 Variation of methylene blue adsorption of buffer material from initial condition

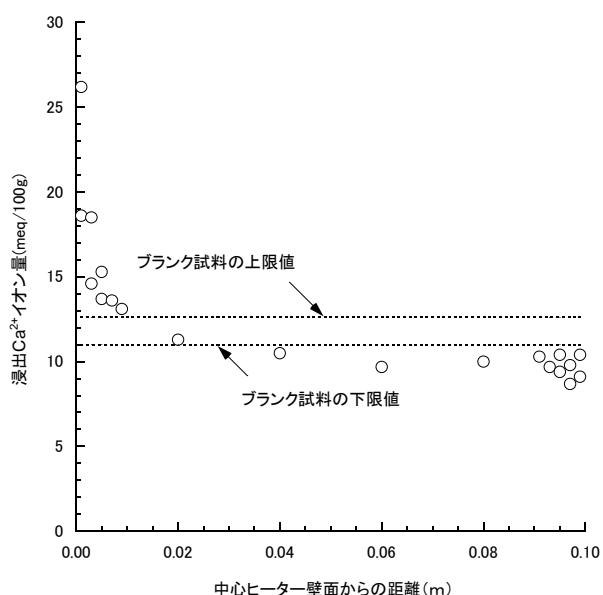


Fig. 5 Variation of leaching  $\text{Ca}^{2+}$  of buffer material from initial condition

Table 3 Fluorescent X-ray analysis (XRF), X-ray diffraction analysis (XRD) and SEM/EDX analysis methods of buffer material

分析装置		測定目的	前処理	備考
蛍光 X 線分析 (リガク製 RIX1000)		全岩化学組成の確認	試料を乾燥後、乳鉢で粉碎し、圧縮成型する	化学組成の空間分布から鉱物の溶解沈殿の有無を把握する。特に、X 線回折では検出できない非晶質物質の生成の可能性を把握する
X 線回折 (リガク製 RINT2100)	不定方位	粘土鉱物種の同定 二次鉱物種の同定	試料を乾燥後、乳鉢で粉碎しガラス板に詰める	粘土鉱物種および二次鉱物種の定性分析を行う
	湿度制御測定(定方位)	層間陽イオンの確認	ガラス板上で試料を水ひませる	層間イオンの価数を確認し、モンモリロナイトが初期の Na 型から変化しているかどうかを調べる
SEM 観察/EDX 分析 (明石製作所 ISI-DS130/日本フィリップス EDAX9100)		二次鉱物種の同定	試料を乾燥後、カーボンホルダーにカーボン蒸着を施す	SEM 観察により試料表面の結晶などの形状を観察し、EDX で元素分析を行う。形状および元素から鉱物種を推測する

### (3) 機器分析

緩衝材中における二次鉱物の生成や、モンモリロナイトの変質などを確認するため、蛍光 X 線分析、X 線回折分析、走査型電子顕微鏡による観察(以下、SEM 観察)およびエネルギー分散型 X 線分光分析(以下、EDX 分析)を実施した。機器分析方法などを整理して Table 3 に示す。

蛍光 X 線分析により全岩化学組成分析を実施した。分析試料は、不均一性を軽減するため、メノウ乳鉢で粉碎した後に、圧縮成型して X 線の照射面を平滑にする処理を行った。その結果、中心ヒーター近傍で、CaO と SO<sub>3</sub> の割合が上昇しており、硫酸カルシウムなどが沈殿した可能性が示唆された(Fig. 6)。モルタルとの接触界面近傍では、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の割合が減少していることから(Fig. 7)、モンモリロナイトの溶解が生じた可能性が考えられるが、一方で、CaO と SiO<sub>2</sub> の割合が上昇していることから(Fig. 8)、セメント水和生成物のカルシウムシリケート水和物(以下、C-S-H ゲル)などが生じたために、試料中に含まれる Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の割合が低く見積もられた可能性もある。

次に、X 線回折による定性分析と SEM 観察/EDX 分析を行った。しかしながら、中心ヒーター近傍での硫酸カルシウム系の鉱物や、モルタルとの接触界面近傍での C-S-H ゲルなどの二次鉱物の生成、さらには、モンモリロナイトの溶解や変質を確認することはできなかった。また、モンモリロナイト層間の陽イオン種を確認するために、相対湿度を変化させながら X 線回折による底面間隔の測定を実施し、既往の研究結果[10]と比較した(Fig. 9)。その結果、相対湿度に対する底面間隔の変化が、層間イオン種が Na 型のベントナイトと同様な挙動を示したことから、モンモリロナイトが初期の Na 型から Ca 型に変化するような変質は生じていないと考えられる。

### 2.4 考察

既往の研究では、温度勾配環境下において、高温側で硫

酸カルシウムなどの塩の沈殿が確認されている[11,12]。本試験においても、蛍光 X 線分析結果から高温側で硫酸カルシウムの沈殿が示唆された。硫酸カルシウムの沈殿は、温度の上昇とともに溶解度が低下する特性と、水分飽和度の空間分布に起因する間隙水の濃縮による濃度の上昇が考えられる[13]。Ca および S の供給源としては、原料であるクニゲル VI 中に含有する可溶性塩(CaSO<sub>4</sub>)[14]、黄鉄鉱の酸化溶解とイオン交換反応による陽イオン交換サイトからの Ca<sup>2+</sup> の浸出などが考えられる。

一方、モルタルとの接触界面近傍においては、モンモリロナイトの溶解あるいは C-S-H ゲルの沈殿が示唆された。この部分では、セメント系材料の溶解により形成される pH が 12 程度の溶液と接触していると考えられ、このような高 pH 条件下では Al, Si の溶存化学種の加水分解によってモンモリロナイトや随伴鉱物のカルセドニの溶解が生じる可能性がある[15]。また、緩衝材間隙水中の Si 濃度が上昇し、緩衝された pH 条件に応じて、二次鉱物が過飽和となり C-S-H ゲルなどが沈殿する可能性がある[15]。全岩化学組成分析の結果より、モルタルとの接触界面近傍で Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の比率は 11.5 wt% から 10 wt% へと変化しているが、二次鉱物が生成したために Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の比率が低下したと仮定すると、初期の鉱物量に対して 15% 程度の二次鉱物が生じたことになる。この仮定は、メチレンブルー吸着量やイオン交換容量の低下量と整合する。また、二次鉱物としては、SiO<sub>2</sub> の比率の増加が大きいことから、シリカを主成分とする非晶質物質の可能性がある。

## 3 熱-水-化学連成解析

### 3.1 連成解析モデルの概要

連成解析モデルは、「第 2 次取りまとめ」において、緩衝材の再冠水時間の推定に使用した熱-水-応力連成解析コードの THAMES[16]、不飽和を扱える地下水流动と移

流分散解析コードの Dtransu-3D・EL[17]、そして、地球化学解析コードの PHREEQC[18]から構成される。これらの個別の解析コードは、プロセス管理プログラムと、各解析コード間の連成対象変数の受け渡しを行う共有メモリ管理プログラムによって制御される[19]。本解析では、熱移動、水分移動、物質移行、地球化学反応について、(1)式～(6)式に示すように、温度  $T$ 、圧力水頭  $\psi$ 、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となる[19]。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。本モデルの大きな特徴とし

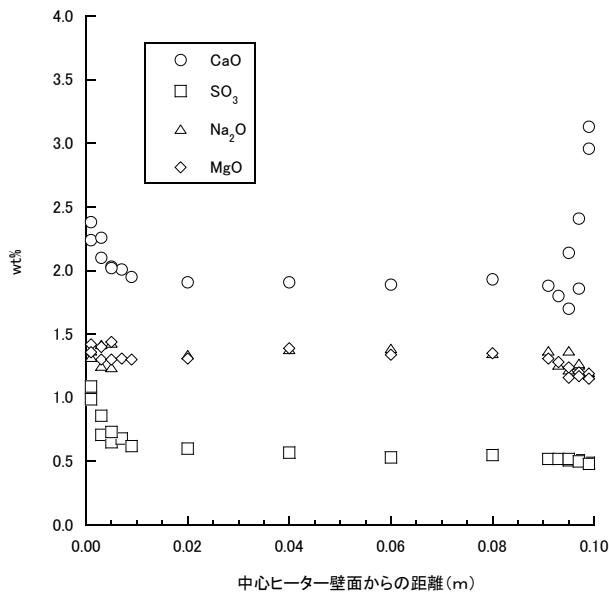


Fig. 6 Analysis of  $\text{CaO}$ ,  $\text{SO}_3$ ,  $\text{Na}_2\text{O}$  and  $\text{MgO}$  % of part weight with the fluorescent X-ray analysis

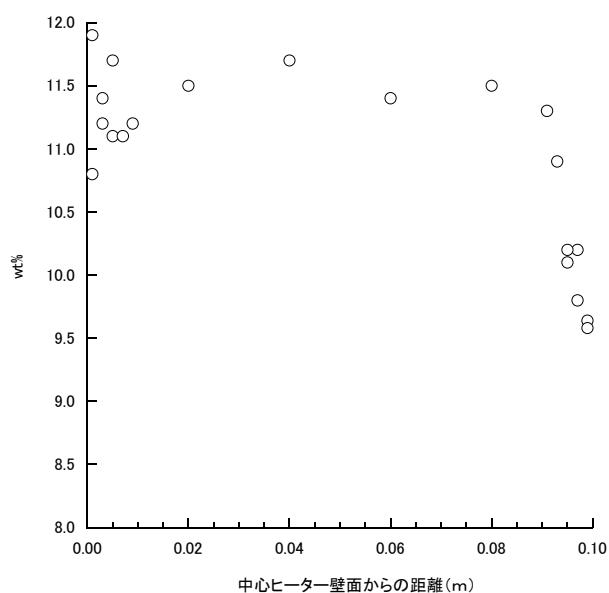


Fig. 7 Analysis of  $\text{Al}_2\text{O}_3$ % of part weight with the fluorescent X-ray analysis

ては、非等温下での温度勾配による水分移動を考慮しており、また、移流分散解析と地球化学解析を連成させ、気相、液相、固相間の地球化学反応と物質移行を考慮した解析が可能となっている。化学反応モデルについては、PHREEQC の機能として、水溶性錯体、ガスの溶解・脱ガス、イオン交換反応、鉱物の溶解・沈殿の平衡反応のほか、速度反応も考慮できる。

#### (1) 热移動の支配方程式

$$\frac{\partial}{\partial x_i} (\rho_l c_l q_l T) - \frac{\partial}{\partial x_i} \left( \lambda_m \frac{\partial T}{\partial x_i} \right) + \frac{\partial}{\partial t} (\rho_m c_m T) = 0 \quad (1)$$

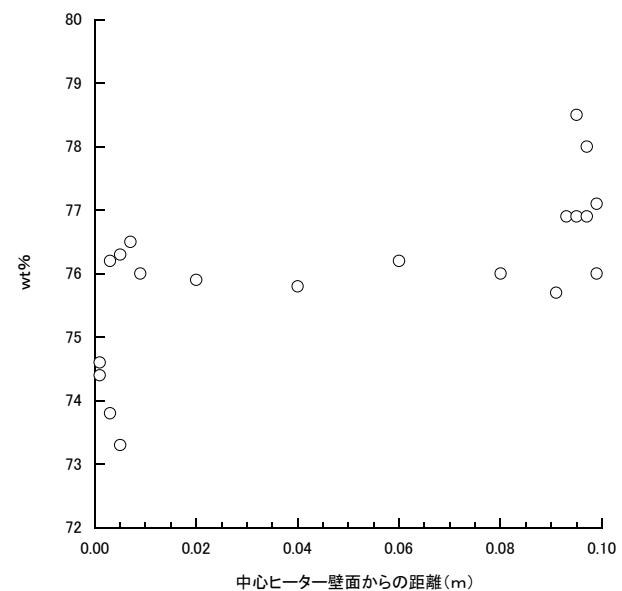


Fig. 8 Analysis of  $\text{SiO}_2$ % of part weight with the fluorescent X-ray analysis

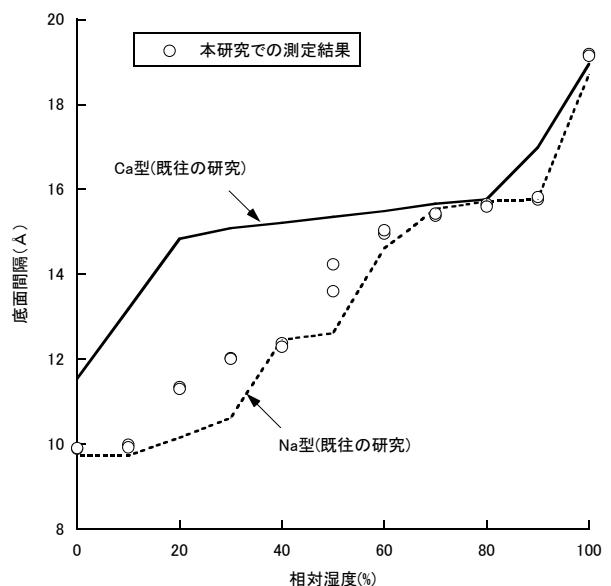


Fig. 9 Basal spacings of buffer material at various relative humidity conditions measured by X-ray diffraction method [10]

ここに,  $\rho$  : 密度( $\text{kg}/\text{m}^3$ ),  $c$  : 比熱( $\text{J}/\text{kg K}$ ),  $q_l$  : 液相ダルシー流速( $\text{m}/\text{s}$ ),  $\lambda$  : 热伝導率( $\text{W}/\text{m K}$ ),  $T$  : 温度( $\text{K}$ )であり, 添え字の  $l$  と  $m$  はそれぞれ液相と媒体を表す.

(2) 水移動の支配方程式

$$-\frac{\partial}{\partial x_i} \left\{ \xi \rho_l k \frac{\partial \psi}{\partial \theta} \frac{\partial \theta}{\partial x_i} + (1-\xi) \frac{\rho_l^2 g K}{\mu_l} \frac{\partial(\psi + z)}{\partial x_i} + \rho_l D_T \frac{\partial T}{\partial x_i} \right\} + \frac{\partial}{\partial t} (\rho_l n S_r) = 0 \quad (2)$$

ここに,  $k$  : 不飽和透水係数( $\text{m}/\text{s}$ ),  $\theta$  : 体積含水率(-),  $\xi$  : 不飽和パラメータ(飽和で 0, 不飽和で 1),  $K$  : 固有透過度( $\text{m}^2$ ),  $\psi$  : 圧力水頭( $\text{m}$ ),  $z$  : 位置水頭( $\text{m}$ ),  $\mu_l$  : 液相粘性係数( $\text{Pa s}$ ),  $g$  : 重力加速度( $\text{m}/\text{s}^2$ ),  $D_T$  : 温度勾配水分拡散係数( $\text{m}^2/\text{s K}$ ),  $n$  : 間隙率(-),  $S_r$  : 水分飽和度(-)である.

(3) 物質移行の支配方程式( $n$  番目の親化学種の質量保存式)

$$\frac{\partial}{\partial x_i} \left( \rho_l q_l C_{\langle x \rangle} \right) - \frac{\partial}{\partial x_i} \left( \rho_l n S_r D_{ij} \frac{\partial C_{\langle x \rangle}}{\partial x_j} \right) + \frac{\partial}{\partial t} \left( \rho_l n S_r T_{\langle x \rangle} \right) = 0 \quad (3)$$

ここに,  $C_{\langle x \rangle}$  :  $x$  番目の親化学種の総溶解濃度( $\text{mol}/\text{kg}$ ),  $D_{ij}$  : 分散テンソル( $\text{m}^2/\text{s}$ ),  $T_{\langle x \rangle}$  :  $x$  番目の親化学種の総濃度( $\text{mol}/\text{kg}$ )である.

(4) 地球化学反応の支配方程式

①質量保存式( $x$  番目の親化学種の質量保存式)

$$C_{\langle x \rangle} = \sum_{a=1}^A (c_{a,x} m_a), \quad C_{\langle x \rangle} = T_{\langle x \rangle} + \sum_{p=1}^P (b_{p,x} MIN_p) \quad (4)$$

②固相の質量保存式( $p$  番目の親化学種の質量保存式)

$$\sum_{x=1}^N [b_{p,x} \log(a_x)] = \log(K_p) \quad (5)$$

③水溶性化学種の質量保存式(親化学種を除く  $a$  番目水溶性化学種の質量作用式)

$$\log(a_a) = \log(K_a) + \sum_{x=1}^N [c_{a,x} \log(a_x)] \quad (6)$$

ここに,  $A$  : 水溶性化学種の総数,  $m_a$  :  $a$  番目水溶性化学種の重量モル濃度( $\text{mol}/\text{kg}$ ),  $p$  : 鉱物相総数,  $c_{a,x}$  :  $a$  番目水溶性化学種に対する  $x$  番目親化学種の化学量論係数,  $b_{p,x}$  :  $x$  番目鉱物相に対する  $p$  番目親化学種の化学量論係数,  $MIN_p$  :  $p$  番目鉱物相溶解量( $\text{mol}/\text{kg}$ ),  $N$  : 親化学種の総数,  $a_x$  :  $x$  番目親化学種の活量( $\text{mol}/\text{kg}$ ),  $K_p$  :  $p$  番目鉱物相の質量作用の式に対する化学反応の平衡定数,  $a_a$  :  $a$  番目水溶性化学種の活量( $\text{mol}/\text{kg}$ ),  $K_a$  :  $a$  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である.

### 3.2 解析条件

解析幾何学形状および境界条件を Fig. 10 に示す. 本解析では, モルタルからの高アルカリ性間隙水の浸潤による緩衝材の地球化学プロセスに着目するため, 水平方向の物質移行のみを考慮することとし, 試験体上下の境界条件の影響を最も受けにくいと考えられる中間深度を評価対象とした. そして, 中心ヒーター, 緩衝材およびモルタルの三領域を均質多孔質媒体とし, 試験体の対称性を考慮して水平断面の 1/8 を節点数 1146, 要素数 515 の有限要素でモ

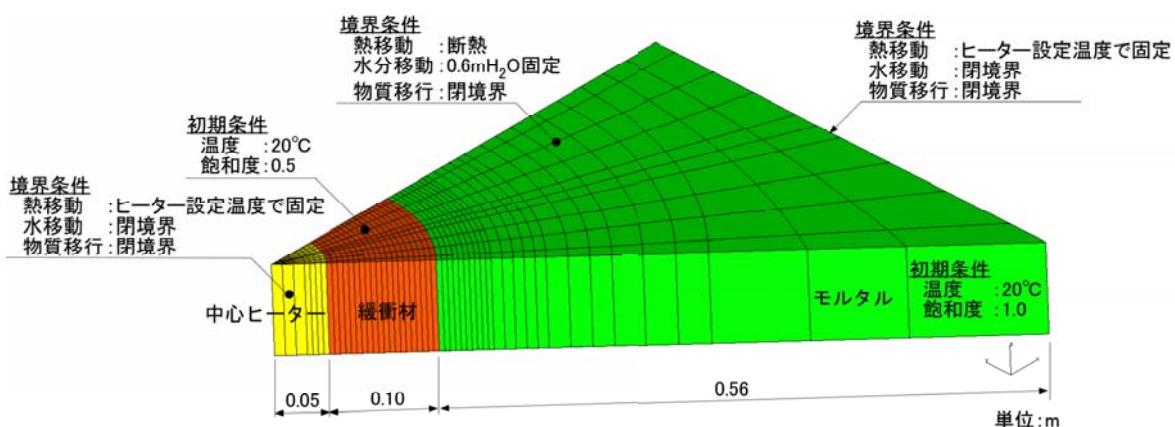


Fig. 10 Analytical model and boundary condition of THC simulation

デル化した。解析評価期間は、中心ヒーターの設定温度を90°Cとした476日間と、それに続いて、85°C、80°C、75°Cと5°Cずつ3段階で温度を低下させた期間を含む計800日間とした。実際に計測された中心ヒーターおよびモルタル側面のパネルヒーターの表面温度は、対象深度において設定温度に対して最大で5°C程度異なったが[8]、ここでは、ヒーターの設定温度を境界条件として与えた。モルタルは、飽和が保たれていたと仮定し、浸潤水の水位を考慮した対象深度の水頭圧0.6mH<sub>2</sub>Oで固定した。モデル上下面および側面は、熱移動、水移動および物質移行に対して閉境界とした。中心ヒーター領域の地球化学反応は考慮しないものとし、また、水移動および物質移行への影響が無視できるように間隙率および透水係数を小さく設定した。初期条件として、温度は全領域で20°C、緩衝材の水分飽和度は0.5、モルタルは飽和とした。初期間隙水は、後述する設定鉱物との平衡反応溶液を仮定した。また、緩衝材の初期は不飽和状態であり、この部分には、大気分圧の酸素および炭酸ガスを考慮した。

### 3.3 熱および水理解析パラメータの設定

#### 3.3.1 緩衝材

緩衝材の熱伝導率 $\lambda_{ml}$ (W/m K)および比熱 $c_{ml}$ (kJ/kg K)は、含水比 $\omega$ (%)の関数として次式を用いた[20]。

$$\begin{aligned} \lambda_{ml} = & 4.44 \times 10^{-1} + 1.38 \times 10^{-2} \omega \\ & + 6.14 \times 10^{-3} \omega^2 - 1.69 \times 10^{-4} \omega^3 \end{aligned} \quad (7)$$

$$c_{ml} = (34.1 + 4.18\omega) / (100 + \omega) \quad (8)$$

緩衝材の水分特性曲線は、緩衝材のサクションの測定データに基づき[20]、飽和-不飽和浸透流解析の際に一般的に用いられているvan Genuchtenモデルで表した[21]。有効飽和度 $S_e$ はサクション $\psi$ (mH<sub>2</sub>O)の関数として次式で表される。

$$S_e = \frac{\theta - \theta_r}{\theta_s - \theta_r} = \left[ 1 + |\alpha\psi|^\beta \right]^{-\beta'} \quad \beta' = 1 - \frac{1}{\beta} \quad (9)$$

ここで、 $\theta$ ：体積含水率、 $\theta_s$ ：飽和体積含水率、 $\theta_r$ ：最小体積含水率、 $\alpha$ (m<sup>-1</sup>)と $\beta$ (-)はパラメータである。ここでは、サクションの測定値にフィッティングする曲線を与える値として、 $\theta_r = 0$ 、 $\alpha = 0.012$ 、 $\beta = 1.4$ と設定した[8]。なお、本研究では、 $\theta_r = 0$ に設定していることから、有効飽和度 $S_e$ と水分飽和度 $S_r$ は同じ値となる。

緩衝材の飽和透水係数 $k_s$ (m/s)は、固有透過度 $K$ (m<sup>2</sup>)により次式で表される。本解析での緩衝材の固有透過度は、

$4.00 \times 10^{-20}$ (m<sup>2</sup>)とした[20]。

$$k_s = \frac{K\rho_l g}{\mu_l} \quad (10)$$

飽和透水係数 $k_s$ に対して不飽和透水係数 $k$ の比を表す比透水係数 $k_r$ については、緩衝材への水の浸潤試験を実施し、浸潤挙動を再現する値を不飽和浸透流解析による感度解析で導出した[8]。比透水係数 $k_r$ と有効飽和度 $S_e$ の関係は次式の通りである。

$$k_r = \frac{k}{k_s} = \frac{k_{ra}}{S_{eb}} S_e \quad (S_e \leq S_{eb}) \quad (11)$$

$$k_r = \frac{k}{k_s} = k_{ra} + \frac{1 - k_{ra}}{1 - S_{eb}} S_e \quad (S_e \geq S_{eb}) \quad (12)$$

ここで、 $k_{ra} = 0.551$ 、 $S_{eb} = 0.99$ である。

温度勾配による水分の移動は、緩衝材中の水分を温度勾配によって移動させる実験に基づき[8]、次式に示す温度勾配水分拡散係数 $D_T$ (m<sup>2</sup>/s K)によって与えた[22]。

$$D_T = a\tau D_{va}vh_r \frac{d(\rho_v / \rho_l)}{dT} \quad (13)$$

ここで、 $a$ ：気相率(-)で $a = \theta_s - \theta$ 、 $\tau$ ：土中のガス拡散による屈曲率(-)で $\tau = 0.66^a$ 、 $D_{va}$ ：空気中の水蒸気拡散率(cm<sup>2</sup>/s)で $D_{va} = 2.16 \times 10^{-5} (T / 273)^{1.8}$ 、 $v$ ：マスフローファクタ(-)で、 $v = P / (P - P_v)$ であり、全圧 $P$ に対する水蒸気分圧 $P_v$ が十分に小さいので $v = 1$ 、 $h_r$ ：相対湿度(-)、 $\rho_v$ ：飽和水蒸気密度(kg/m<sup>3</sup>)、 $\rho_l$ ：水の密度(kg/m<sup>3</sup>)である。

#### 3.3.2 モルタル

モルタルの熱物性については、水分飽和度の低下量が小さいと考えられるため、ここでは、一定値として飽和状態における実測値を用いた[8]。

モルタルの水分特性曲線もvan Genuchtenモデルで表し[21]、浸潤試験によって $\alpha = 0.380$ 、 $\beta = 1.11$ と設定した[8]。また、比透水係数 $k_r$ は、次式のvan Genuchtenモデルによって設定した。

$$k_r = \frac{k}{k_s} = \sqrt{S_e} \left[ 1 - \left( 1 - S_e^{1/\beta} \right)^\beta \right]^2 \quad (14)$$

### 3.4 物質移行パラメータ

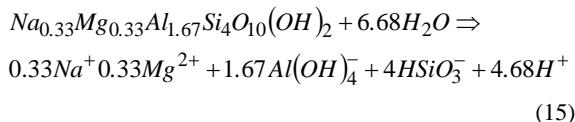
緩衝材の実効拡散係数は、「第2次取りまとめ」の地層処分システムの安全評価で設定された  $3 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$  とした[23]。モルタルについては、TRU廃棄物処分技術検討書において、処分施設周辺岩盤のアルカリ変質の影響評価解析で用いられた  $8 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$  とした[15]。縦分散長は、一般的な設定方法として用いられている移行距離の 1/10 倍とした。減衰係数および遅延係数は、単純化のため考慮していない。気相中で考慮する酸素および二酸化炭素の拡散係数は、それぞれ、 $1.80 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ 、 $1.35 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$  に設定した[24]。

### 3.5 地球化学のモデル化

#### 3.5.1 緩衝材の地球化学モデル

緩衝材中で考慮する鉱物は、クニゲル V1 に含有するモンモリロナイト(49 wt%), カルセドニ(38 wt%), カルサイト(2.6 wt%), 黄鉄鉱(0.7 wt%)とし[20]、沈殿の可能性が示唆された硫酸カルシウム(本研究ではジプサムを仮定する)および C-S-H ゲルを二次鉱物として考慮した。このうち、カルセドニ、カルサイト、ジプサムおよび C-S-H ゲルについては、水-鉱物の平衡反応を仮定した。

モンモリロナイトは、(15)式で示すように、高 pH 条件下における Al や Si の溶存化学種の加水分解の溶解反応を考慮し、温度および pH の関数として (16)式の溶解速度式を用いた[25]。



$$\begin{aligned} r = & \left( 4.74 \times 10^{-6} e^{-39.57/RT} \frac{177e^{20.37/RT} a_{OH^-}}{1 + 177e^{20.37/RT} a_{OH^-}} \right. \\ & \left. + 1.70e^{-69.67/RT} \frac{0.0297e^{23.53/RT} a_{OH^-}}{1 + 0.0297e^{23.53/RT} a_{OH^-}} \right) A_{min} \end{aligned} \quad (16)$$

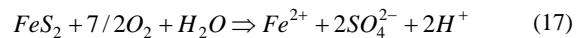
ここで、 $r$  : モンモリロナイト溶解速度(mol/s)、 $A_{min}$  鉱物の反応表面積(m<sup>2</sup>)、 $T$  : 温度(K)、 $R$  : 気体定数(kJ/K/mol)である。また、モンモリロナイトのイオン交換反応および表面錯体反応は、水分量に応じて反応に寄与するサイト数が線形的に変化する仮定を置いてモデル化を行った。飽和状態でのサイト濃度は、「第2次取りまとめ」の安全評価で設定した値とした[23]。

黄鉄鉱は、次式の酸化挙動を溶解速度モデルで考慮した。反応速度  $r$  (mol/s) は、文献値より次式を使用した[26]。ここで、 $m_{DO}$  : 溶存酸素濃度(mol/l)、 $m_{H^+}$  : 溶液中の水素

イオン濃度(mol/l)である。

**Table 4 Initial pore water composition of buffer material and mortar used in THC analysis**

	緩衝材	モルタル
Al (mol/l)	$1.00 \times 10^{-7}$	$1.29 \times 10^{-5}$
C (mol/l)	$1.91 \times 10^{-3}$	$1.31 \times 10^{-5}$
Ca (mol/l)	$9.28 \times 10^{-2}$	$5.33 \times 10^{-3}$
Cl (mol/l)	$7.78 \times 10^{-3}$	$2.28 \times 10^{-3}$
K (mol/l)	$2.98 \times 10^{-3}$	$5.79 \times 10^{-2}$
Mg (mol/l)	$2.08 \times 10^{-3}$	$6.06 \times 10^{-9}$
Na (mol/l)	$3.77 \times 10^{-1}$	$3.75 \times 10^{-2}$
S (mol/l)	$2.79 \times 10^{-1}$	$4.05 \times 10^{-4}$
Si (mol/l)	$2.75 \times 10^{-4}$	$1.19 \times 10^{-6}$
pH	6.95	12.90
Eh (mV)	80.9	6.51
温度 (°C)	20	20



$$r = 10^{-8.19} \frac{m_{DO}^{0.5}}{m_{H^+}^{0.11}} A_{min} \quad (18)$$

緩衝材の初期隙水は、緩衝材中に含有する可溶性塩を考慮し[14]、イオン交換反応、表面錯体反応を考慮したカルサイト、カルセドニの平衡反応水を仮定し、地球化学計算コード PHREEQC により求めた。熱力学データには、「第2次取りまとめ」の溶解度計算で用いたデータベース(991231c1.tdb, <http://migrationdb.jaea.go.jp/>)[27]を使用した。緩衝材の初期隙水組成を Table 4 に示す。

また、緩衝材の初期は不飽和状態であり、気相部分は大気を想定し、分圧  $10^{-0.7} \text{ atm}$  の酸素および分圧  $10^{-3.5} \text{ atm}$  の炭酸ガスを考慮した。

#### 3.5.2 モルタルの地球化学モデル

モルタルの初期セメント水和生成物は、TRU廃棄物処分技術検討書に従い[15]、ポルトランダイド、C-S-H ゲル、ハイドロガーネット、エトリンガイド、ブルーサイトおよび可溶性塩の KOH、NaOH とし、普通ポルトランドセメントに含まれる酸化物が全量セメント水和生成物になると仮定し、割付計算によって含有量を求めた[3]。Ca/Si 比に対応した C-S-H ゲルの反応式および平衡定数は Atkinson のモデルで考慮し[28]、初期の Ca/Si 比は 1.8 とした。また、二次鉱物としてカルサイトを考慮した。水和生成物の熱力学データについては、モルタル隙水組成の評価を実施した既報に詳しい[3]。モルタルの初期隙水組成を Table 4 に示す。

### 3.6 解析結果

中心ヒーターの設定温度を 90°C、85°C、80°C、75°C と変化させ、温度が定常となった時の空間分布を計測値と比

較して Fig. 11 に示す。実際に計測された境界の温度が境界条件で設定した値と異なったため、両境界で最大 5°C の差異が生じた。

緩衝材中の水分はモルタル側から増加し、一方、中心ヒーター近傍では、温度勾配による水分移動によって、一時的に初期の水分飽和度よりも低下する挙動を示した。このような挙動は、緩衝材中に設置した一部の湿度計によっても確認された[8]。Fig. 12 は、中心ヒーター壁面からそれぞれ 1 cm, 2 cm および 4.5 cm の位置に設置したサイクロメータによる計測値と解析結果を比較したものである。なお、サイクロメータで測定できる含水比は 11.7 % 以上で

ある[8]。中心ヒーターの温度を低下させ始めた時期を境に水分が増加している。これは、温度勾配と水分勾配を駆動力とする水分移動が生じていることを示唆するものである。また、中心ヒーター壁面から 4.5 cm の位置に設置したサイクロメータは、含水比が 20 % になった時点で故障により計測不能となった。

鉱物の溶解沈殿に関する解析結果を Fig. 13 に示す。グラフ縦軸は、初期密度からの変化量であり、正は沈殿、負は溶解である。緩衝材中では、モルタルとの接触界面近傍でカルサイトが沈殿、カルセドニが溶解している。また、モンモリロナイトの溶解量は、モルタルとの接触界面近傍

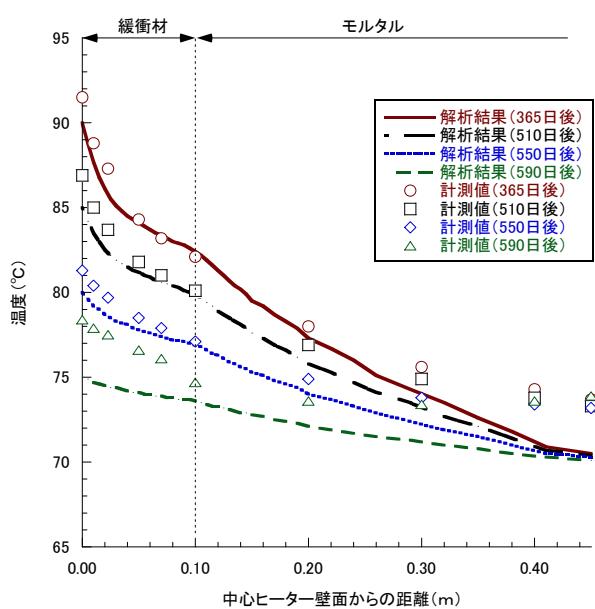


Fig. 11 Comparison of calculated and measured temperatures after 365 days

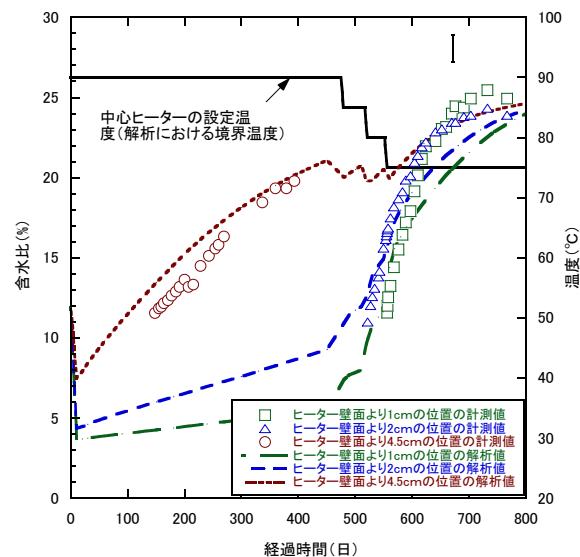
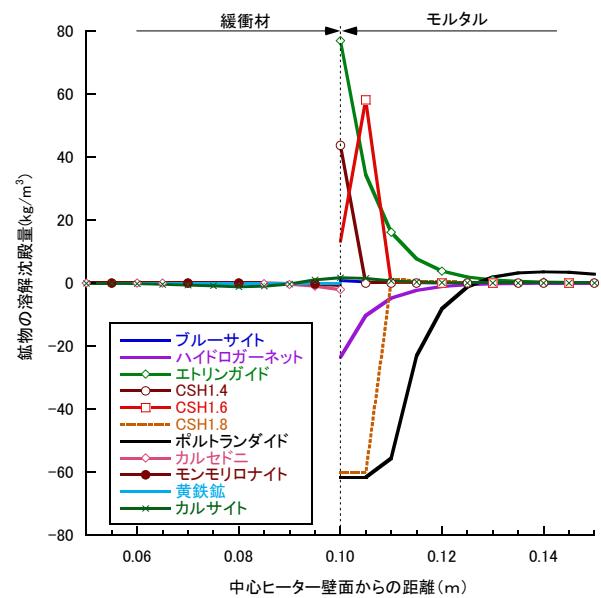


Fig. 12 Comparison of calculated and measured water content of the buffer material at the depths indicated as a function of elapsed time



(a) All minerals in THC analysis

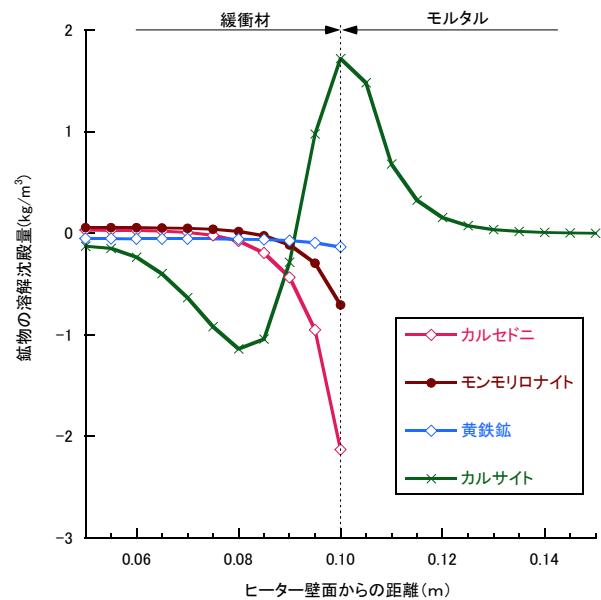


Fig. 13 Results of calculated mineral dissolution/precipitation after 800 days

でわずかに 0.09 wt% であった。黄鉄鉱は、初期隙水中の溶存酸素および不飽和時の気相中に設定した酸素を消費することにより酸化溶解した。また、二次鉱物として設定したジブサムおよび C-S-H ゲルの沈殿は生じなかった。一方、モルタル中では、ポルトランダイド、ハイドロガーネットが緩衝材との接触界面近傍で溶解し、エトリンガイトおよびブルーサイトは沈殿した。また、C-S-H ゲルは、時間の経過とともに骨格内の Ca/Si 比が小さくなつた。緩衝材とモルタルとの接触界面近傍でポルトランダイドが溶解するため、隙水中の Ca 濃度が高くなっている (Fig. 14)。また、緩衝材中のカルセドニの溶解によって、モルタルとの接触界面近傍で隙水中の Si 濃度が上昇する。そして、濃度勾配によりモルタル側に拡散し、C-S-H ゲルの沈殿によって Si 濃度は低下する。

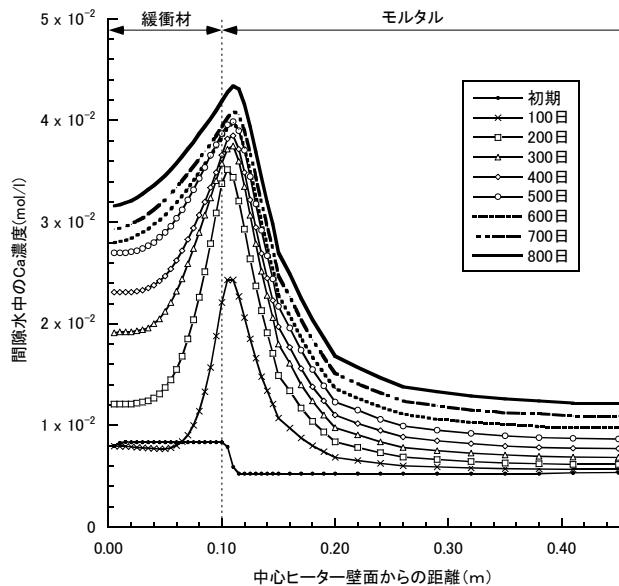


Fig. 14 Distribution of concentration of calcium in pore water

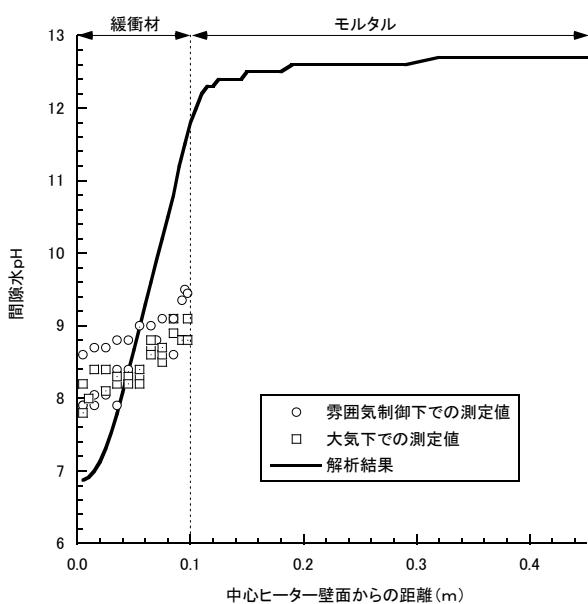


Fig. 15 Comparison of calculated and measured pH of pore water after 800 days

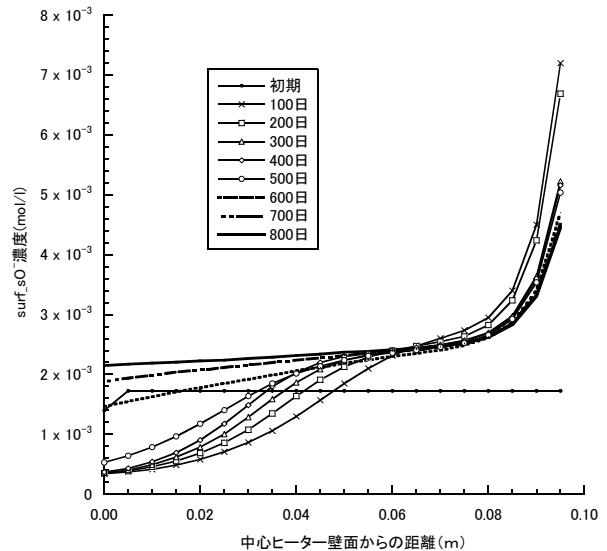


Fig. 16 Distribution of concentration of  $\text{surf}_{\text{sO}}^-$  in surface complex

タルとの接触界面近傍で隙水中の Si 濃度が上昇する。そして、濃度勾配によりモルタル側に拡散し、C-S-H ゲルの沈殿によって Si 濃度は低下する。

緩衝材の隙水 pH の空間分布を Fig. 15 に示す。測定値は、中心ヒーター側で pH=8 程度、モルタルとの境界側で pH=9 程度であるのに対し、解析では、それぞれ、pH=6.8、pH=11.6 であった。本解析モデルにより、不飽和な緩衝材中に高 pH 溶液が浸潤することによって、緩衝材中に pH の勾配が形成される挙動を表現できた。なお、緩衝材隙水の pH は、表面錯体反応に支配される結果であった。表面サイトの  $\text{surf}_{\text{sO}}^-$  濃度は、高 pH 溶液が浸潤してくるモルタル側で高く (Fig. 16)、 $\text{H}^+$  を放出して pH を緩衝する反応となっている。

### 3.7 考察

緩衝材とモルタルとの接触界面近傍でポルトランダイドが溶解するため、高い Ca 濃度のモルタル隙水が緩衝材中へ浸潤する (Fig. 14)。一方、緩衝材中ではカルセドニが溶解し (Fig. 13)、隙水中の Si 濃度が高くなっている。このため、モルタルとの接触界面近傍で C-S-H ゲルなどの非晶質物質が生じていた可能性がある。これは、緩衝材サンプリング試料の化学分析結果と整合する。また、緩衝材とモルタルとの接触界面近傍におけるポルトランダイドおよびカルセドニの溶解および C-S-H ゲルの生成は、ベントナイトとセメントを接触させた既往の実験的研究と一致する [29]。解析では、緩衝材中で二次鉱物として考慮した C-S-H ゲルは生成せず、モルタル領域のみで、Ca/Si 比の変化を伴ながら C-S-H ゲルが生成している。これは、水-セメント水和生成物の反応を瞬時局所平衡反応として扱っているためであり、速度反応モデルで扱うことにより、緩衝材中での C-S-H ゲルの沈殿を再現可能と考え

る。なお、解析結果からは、モンモリロナイトはほとんど溶解していないことから、メチレンブルー吸着量や陽イオン交換容量の低下は、モンモリロナイトが溶解したのではなく、C-S-H ゲルが生成したため、分析試料中に含まれるモンモリロナイトの比率が低下したことが要因と考えられる。

浸出陽イオン量の測定結果および全岩化学組成分析の結果から、中心ヒーター近傍において陽イオン交換サイトにおける Ca 濃度の上昇を確認し、また、硫酸カルシウムの沈殿を示唆する結果が得られている。このような現象は、温度勾配による連続的な水蒸気の移動に伴う間隙水の濃縮によって生じるものと考えられる。温度勾配による水分移動は、主に水蒸気による移動と推測されているが[30]、本解析モデルは、液状水と水蒸気とを分離せず(2式参照)、液状水に対して移流分散方程式を解くことで物質移行を求めており(3式参照)、水蒸気移動による間隙水の濃縮現象を表現できるモデルではない。実際の処分場における緩衝材中では、廃棄体近傍での温度上昇によって飽和水蒸気圧が上昇し、温度勾配によって相対的に温度の低い部分へ水蒸気が移動して間隙水が濃縮し、硫酸カルシウムなどの塩が析出する可能性もある。このような挙動を評価するためには、温度勾配による水蒸気の移動にともなう間隙水の濃縮を表現可能なモデルの導入が必要である。

イオン交換反応および表面錯体反応は、水分量に応じて反応に寄与するサイト数が線形的に変化する仮定を置いてモデル化しており、低水分状態でもこれらの反応は生じることになる。緩衝材の間隙構造は、モンモリロナイト層間と、鉱物の間に生じる粒子間隙から成るものと考えられており[24]、粒子間隙に比べて層間が優先的に保水すると推測されている[31]。イオン交換反応は、層間に存在する陽イオンが、粒子間隙水中の他のイオンを含む溶液と接触した際に、層間水と粒子間隙水の間で生じると考えられること、表面錯体反応についても、モンモリロナイト結晶端と粒子間隙水との間で生じる反応と考えられることから、粒子間隙水が存在しないような低水分領域では、このような反応が生じない可能性も考えられる。今回の試験では、中心ヒーター近傍の緩衝材は低水分状態であり、かつ、緩衝材の間隙水 pH は、表面錯体反応に支配されている解析結果となっている。このような理由によって、実測された間隙水 pH との間に差異が生じたと考えられる。より現実的な評価を行うためには、不飽和状態におけるモンモリロナイトの保水形態を考慮した地球化学反応モデルの導入も必要と考えられる。

#### 4 おわりに

人工バリアおよびその周辺で生じる連成現象を定量的に把握することを目的として工学規模の人工バリア試験を実施した。さらに、開発中の連成解析モデルを用いて緩

衝材中の地球化学反応に着目した熱－水－化学連成解析を実施した。以下に本研究で得られた知見をまとめる。

- (1) 温度および緩衝材中の水分変化を、緩衝材中に埋設した計測機器によって測定した。しかしながら、サイクロメータ、静電容量式湿度計とともに、緩衝材の含水比の測定範囲に制限があることや耐久性にも問題があった。緩衝材の水分変化は、化学場や応力場に及ぼす影響が大きく、連成挙動を評価する上で重要な情報である。今後、原位置での人工バリア試験が計画されていることや[32]、地層処分のモニタリングの可能性についても検討されていることから[33]、緩衝材中の相対湿度を測定する上記のセンサーに代わって、例えば、誘電率の変化を利用する方法[34]などの計測技術の開発が必要である。
- (2) 緩衝材のサンプリング試料を対象とした鉱物分析、機器分析などにより、高 pH 溶液の浸潤により緩衝材の間隙水に pH の勾配が生じていたことや、モルタルとの接触界面近傍では、二次鉱物として C-S-H ゲルなどのシリカを主成分とする非晶質物質が生じていた可能性など、緩衝材中の地球化学反応および物質移行を理解するための情報が得られた。そして、地球化学プロセスを考慮した熱－水－化学連成解析からは、セメント水和生成物のポルトランダイドが溶解して高い Ca 濃度のモルタル間隙水が不飽和緩衝材中へ浸潤し、また、緩衝材中では随伴鉱物のカルセドニが溶解するため、接触界面近傍で C-S-H ゲルが生成する可能性が示唆された。本研究を通じて、開発中の連成解析モデルが、緩衝材とコンクリート支保の地球化学プロセスの相互作用を考慮した連成現象の評価に適用できる可能性を示した。さらに、緩衝材中での水蒸気移動による間隙水の濃縮や、モンモリロナイトの保水形態に基づく地球化学反応の取扱いの必要性など、より現実的な連成解析モデルを構築するための課題を抽出することができた。
- (3) 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となる。コンクリート支保を設置した場合には、長期的なセメント系材料の影響によりモンモリロナイトの溶解や、Ca 型化による透水係数の変化、コンクリート支保の固相 Ca の溶脱による透水係数や弾性係数が変化することが考えられる。今後は、本研究で得られた知見に基づき、化学的な材料の劣化と水理さらには応力変形挙動の相互作用を考慮した連成解析モデルを構築し、人工バリアを中心としたニアフィールド全体挙動の定量的な把握を行っていく。

## 参考文献

[1] 伊藤彰, 川上進, 油井三和: 热-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).

[2] 伊藤彰, 川上進, 油井三和: 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, サイクル機構技術資料, JNC TN8400 2003-032 (2004).

[3] 鈴木英明, 伊藤彰, 吉田泰, 陶山忠宏, 川上進, 笹本広, 油井三和: 热-水-応力連成試験設備(COUPLE)における熱-水-応力-化学連成試験(I), サイクル機構技術資料, JNC TN8400 2003-033 (2003).

[4] 小田好博, 鈴木英明, 川上進, 油井三和: 热-水-応力連成試験設備(COUPLE)における熱-水-応力-化学連成試験(II), サイクル機構技術資料, JNC TN8400 2004-024 (2004).

[5] Fujisaki, K., Suzuki, H., Fujita, T., Ito, A. and Oda, Y. : Experimental Studies on the Coupled THMC Processes by COUPLE Equipment, Proceedings of the GEOPROC2006 international symposium 2<sup>nd</sup> International Conference on Coupled Thermo - Hydro - Mechanical - Chemical Process in Geosystems and Engineering, pp.213-219 (2006).

[6] 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, 総論レポート, サイクル機構技術資料, JNC TN1400 99-020 (1999).

[7] 核燃料サイクル開発機構: 釜石原位置試験総括報告書, 核燃料サイクル開発機構 JNC TN7410 99-001 (1999).

[8] 藤崎淳, 鈴木英明, 藤田朝雄: 热-水-応力連成試験設備(COUPLE)を用いた室内試験結果に基づく熱-水連成モデルの信頼性確認, JAEA-Research 2008-020 (2008).

[9] クニミネ工業私信

[10] Sato, T., Watanabe, T. and Otuka, R. : Effects of layer charge, charge location, and energy change on expansion properties of dioctahedral smectites, *Clays Clay Mineral.*, 40, 103-113 (1992).

[11] Karnland O., Sanden T., Johannesson L.E., Eriksen T. E., Jansson M., Wold S., Pedersen K. and Motamedi M. : Long Term Test of Buffer Material Final Report on the Pilot Parcels, SKB TR 00-22 (2000).

[12] Fernandez A. M., Villar M. V. and Gomez - Espina R. : Geochemical behavior of a bentonite barrier : Results up to 8 years of thermo - hydraulic treatment in the laboratory, *Clays in Natural & Engineered Barriers for Radioactive Waste Confinement* pp.179-180 (2007).

[13] 藤田朝雄, 油井三和, 鈴木英明, 藤崎淳, 九石正美: 塩濃縮シミュレーションに関する研究(共同研究), JAEA-Research 2007-017 (2007).

[14] 小田治恵, 柴田雅博: ベントナイト-水相互作用の実験とモデル化, サイクル機構技術資料, JNC TN8400 99-032 (1999).

[15] 電気事業連合会, 核燃料サイクル開発機構: TRU廃棄物処分技術検討書-第2次TRU廃棄物処分研究開発取りまとめ, JNC TY14002005-013, FEPCTR-TR-2005-02 (2005).

[16] Ohnishi, Y., Shibata, H. and Kobayashi, A. : Development of Finite Element Code for the Analysis of Coupled Thermo - Hydro - Mechanical Behaviors of a Saturated - Unsaturated Medium, Proc. of Int. Symp. on Coupled Process Affecting the Performance of a Nuclear Waste Repository, Berkley, pp.263-268 (1985).

[17] Nishigaki, M., Hishiya, T. and Hashimoto, N. : 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).

[18] Parkhurst, D. L. : User's Guide to PHREEQC-A Computer Program for Speciation, Reaction-Path, Advection-Transport, and Inverse Geochemical Calculations, U.S. geological Survey, Water-Resources Investigations Report 95-4227 (1995).

[19] Fujita, T., Fujisaki, K., Suzuki, H., Kawakami, S., Yui, M., Chijimatsu, M., Neyama, A., Ishihara, Y and Hishiya, T. : Development on Computer System of the Coupled Thermo - Hydro - Mechanical and Chemical Process in the Near-Field of the High-Level Radioactive Waste Repository, Proceedings of the GEOPROC2006 international symposium 2<sup>nd</sup> International Conference on Coupled Thermo - Hydro - Mechanical - Chemical Process in Geosystems and Engineering, pp.416-421 (2006).

[20] 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, JNC TN1400 99-022 (1999).

[21] van Genuchten, M. : A closed-form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils, *Soil Sci. Soc. Am. J.*, Vol. 44, pp.892-898 (1980).

[22] Philip, J.R. and de Vries, D.A. : Moisture movement in porous material under temperature gradients, *EOS Trans* 38, pp.222-232 (1990).

[23] 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, JNC TN1400 99-023 (1999).

[24] 中野政詩: 土の物質移動学, 東京大学出版会 (1991).

[25] Sato, T., Kuroda, M., Yokoyama, S., Tsutsui, M., Fukushi, K., Tanaka, T. and Nakayama, S. : Dissolution mechanism and kinetics of smectite under alkaline

conditions, NUMO-TR-04-05(2004)

- [26] Williamson, M. A. and Rimstidt, J. D. : The kinetics and electrochemical rate-determining step of aqueous pyrite oxidation, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, Vol.58, No.24, pp. 5443-5454 (1994).
- [27] 吉田 泰, 笹本 広 : OECD/NEA で整備された熱力学データベース利用環境の整備 その 1, Np および Pu の熱力学データ, サイクル機構技術資料, JNC TN8400 2003-027 (2004).
- [28] A. Atkinson, J.A. Hearne and C.F. Knights : Aqueous chemistry and thermodynamic modeling of CaO-SiO<sub>2</sub> - H<sub>2</sub>O gel, AERER12543 (1987).
- [29] 原子力環境整備促進・資金管理センター : 平成 18 年度地層処分技術調査等 TRU 廃棄物関連処分技術調査, 一人工バリア長期性能確認試験－報告書(2007).
- [30] 鈴木英明, 千々松正和, 藤田朝雄, 中野政詩 : 不飽和圧縮ベントナイト中の水分移動パラメータに関する考察, 土木学会論文集 No.701/III - 58 , 107-120(2002).
- [31] 竹内真司, 原 啓二, 中野政詩 : 圧縮ベントナイトの水分特性曲線および水分拡散係数と水の移動形態, 地盤工学会論文報告集, Vol.35, No.3, 129-137, Sept. (1995).
- [32] 松井裕哉 : 幌延深地層研究計画地下施設を利用した第 2, 第 3 段階における調査試験計画案, サイクル機構技術資料, JNC-TN5400 2005-014(2005).
- [33] 竹ヶ原竜大, 虎田真一郎, 朝野英一, 大内仁, 坪谷 隆夫 : 地層処分にかかるモニタリングの研究, 位置付け及び技術的可能性, 原環センター技術報告書, RWMC-TRJ-04003(2004).
- [34] 西垣誠, 小松満, 金萬鎰 : FDR 法による土壤・地下水汚染のモニタリング手法に関する基礎的研究, 地下水学会誌, 第 46 卷第 2 号, 145~157(2004).