

熱－水－応力－化学連成解析による緩衝材の地球化学環境の変遷に着目した ニアフィールド長期挙動評価の一例

鈴木英明*¹ 中間茂雄*¹ 藤田朝雄*¹ 今井久*¹ 九石正美*¹

高レベル放射性廃棄物の地層処分における長期安全性の評価を行うためには、ニアフィールドで生じるプロセスの定量化が必要となる。そこで、開発された熱－水－応力－化学連成解析モデルを用いて、具体的地質環境条件に基づく地層処分システムを想定した数値解析を実施し、ガラス固化体の放熱と人工バリア内への地下水の浸潤に伴うニアフィールドの化学的な環境の変化を定量的に例示した。海水系地下水環境下での緩衝材中では、一時的に、オーバーパック周辺で塩が析出することや、支保コンクリートとの境界近傍でスメクタイトがカルシウム型化するものの長期的には安全評価上設定されたシナリオと整合する傾向が得られた。さらに、オーバーパックの腐食評価のための基盤情報として、オーバーパックに接触する緩衝材の間隙水組成の変遷を示した。

Keywords: 地層処分, THMC モデル, 坑道掘削影響, 緩衝材間隙水組成, カルシウム型化

For the safety assessment of a geological disposal system for high-level radioactive waste, it is necessary to quantify coupled thermo-hydro-mechanical-chemical (THMC) processes in the near-field. The current study investigated the geochemical changes arising from the infiltration of groundwater into the bentonite buffer under a thermal regime of radiogenic heating arising from the vitrified waste with the computer simulated assistance of a developed THMC model. In the case of infiltration by a saline groundwater, sulfate precipitates as gypsum around the overpack in the bentonite buffer and the Na-type bentonite changes to Ca-type by exposure to Ca ions released from concrete supports. In addition, the temporal evolution of the bentonite buffer porewater composition can be obtained to assess its contribution to the corrosion of the overpack.

Keywords: geological disposal system, THMC model, EDZ, pore water composition of the bentonite buffer, change to Ca-type bentonite

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とその周辺岩盤を含むニアフィールド環境は、ガラス固化体からの放熱、人工バリア内への地下水の侵入と物質移行、間隙水の地球化学反応などが相互に影響し合う場が形成される。人工バリア性能の不確実性を低減し、地層処分の信頼性を高めていくために、ニアフィールドで生じるプロセスの理解と定量化の重要性が高まってきている [1,2]。とくに、緩衝材間隙水の pH や溶存酸素などの化学組成は、放射性核種の溶解度や、オーバーパックの腐食形態や腐食速度に影響を及ぼすことから [例えば、3-5]、ガラス固化体の崩壊熱の発生による高温環境下における間隙水と鉱物との過渡期の反応を含めた地球化学環境の明確化は重要な課題の 1 つになっている [例えば、6-8]。さらに、海水系地下水環境下では、ガラス固化体の崩壊熱により温度勾配が生じた緩衝材内で間隙水が濃縮し、塩類の析出が生じて局所的に化学環境が変化すると報告もあり [例えば、9-12]、ベントナイトの一種である国産のクニゲル V1 を対象に実施した温度勾配を形成させた供試体への浸潤試験を通して、緩衝材中に硫酸塩が析出することも確認されている [13]。しかしながら、このような塩類の析出は、長期的には溶解逸散するものとして、第 2 次取りまとめにおける安全評価での FEP (Feature Event Process) からは除外されており [14]、安全評価の信頼性を高めるためには、設定されたシナリオの妥当性を検証することが求められている。

ニアフィールドの長期的なプロセスの理解と定量化には、数値実験的アプローチが有効な手法と考えられている [15,16]。第 2 次取りまとめ以降、ニアフィールドで生じる熱 (Thermal)－水 (Hydro)－応力 (Mechanical)－化学 (Chemical) (以下、THMC という) 連成挙動評価モデルの開発を開始し [17,18]、近年においては、緩衝材中の地球化学環境に重きを置いた THMC モデルの高度化を進めてきている [19]。THMC モデルを用いた数値解析によるニアフィールドで生じるプロセスの定量化は、シナリオ上選択された FEP との整合性を確認するとともに、オーバーパック腐食評価や核種移行評価の基盤情報を提供する有効なツールとして期待できると考えられる。

これまでの THMC 解析によるニアフィールド長期挙動解析は、廃棄体および緩衝材定置後からの変遷評価であり、処分場建設段階における坑道掘削にともなう地下水位や地下水組成の変化を考慮した例はない。

本論では、ニアフィールドで生じるプロセスの定量化や、第 2 次取りまとめにおいて安全評価上選択された FEP の妥当性の検証を目的とした数値実験の例示として、幌延深地層研究計画で得られている知見に基づき具体的地質環境条件を設定し、処分場建設段階における地下水環境の変化を考慮した地層処分システムを想定したニアフィールド環境の数値解析結果について述べる。解析には、これまでに開発された THMC 解析モデルを用い、ガラス固化体の放熱と人工バリア内への地下水の浸潤にともなうニアフィールドの化学的な環境の変化に着目し、第 2 次取りまとめの安全評価における FEP 除外事象である緩衝材中での塩類の析出や、緩衝材の変質 (カルシウム型化) などを包含した評価を行った。さらに、オーバーパックの腐食評価のための基盤情報として、オーバーパックに接触する緩衝材の間隙水組成の変遷について定量的に例示するものである。

A long-term THMC assessment on the geochemical behavior of the bentonite buffer by Hideaki SUZUKI (suzuki.hideaki@jaea.go.jp), Sigeo NAKAMA, Tomoo FUJITA, Hisashi IMAI, Masami SAZARASHI

*1 日本原子力研究開発機構 地層処分研究開発部門 ニアフィールド研究グループ

Near-Field Research Group, Geological Isolation Research and Development Directorate, Japan Atomic Energy Agency (JAEA)

〒319-1194 茨城県那珂郡東海村村松 4-33

(Received 30 May 2012; accepted 28 August 2012)

2 連成解析モデルの概要

THMC モデルは、人工バリアを設置した時点から緩衝材が飽和に至るまでの過渡的な期間を対象として、廃棄体－緩衝材（埋め戻し材）－支保コンクリート－周辺岩盤のニアフィールドで生じる熱的作用（熱輸送、熱膨張）、水理的作用（地下水浸透、温度勾配水分移動等）、力学的作用（掘削影響、緩衝材の膨潤）、化学的作用（物質移行、ガスの発生消費、間隙水濃縮希釈、鉱物の溶解沈澱等）のプロセスに主眼を置いて、これらが相互に影響を及ぼす連成モデルを構築している（Fig.1 参照）。本モデルは、多孔質媒体を対象としており、地下水浸透モデルについては、最高温度が 100℃を超えないことを前提条件としている。ガラス固化体およびオーバーパックについては、崩壊熱の発生と熱膨張および熱輸送のみを考慮するものとし、オーバーパックの腐食や緩衝材中の微生物活動、核種の移行等については適用範囲外としている。熱膨張や膨潤変形といった力学挙動については、弾性モデルのみを採用している。また、個々のプロセスがおおむね定常状態にあるような、岩盤や緩衝材の圧密やクリープ現象などは連成モデルの対象外としている。本モデルでは、Fig.1 に示す Thermal（以下、T）、Hydrological（以下、H）、Mechanical（M）および Chemical（以下、C）の間で考慮する作用として、 $T \rightarrow H$ は、温度勾配による水分移動および透過流体の粘性係数、密度、透水特性の温度依存性、 $H \rightarrow T$ は、水移動にともなう熱輸送と熱物性の水分飽和度依存性、 $T \rightarrow M$ は、熱膨張と弾性係数の温度依存性、 $H \rightarrow M$ は、緩衝材の膨潤圧の発生と力学特性の水分飽和度依存性、 $T \rightarrow C$ は、化学定数の温度依存性、 $H \rightarrow C$ は、水分変化にともなう間隙水濃度の変化、 $C \rightarrow H$ は

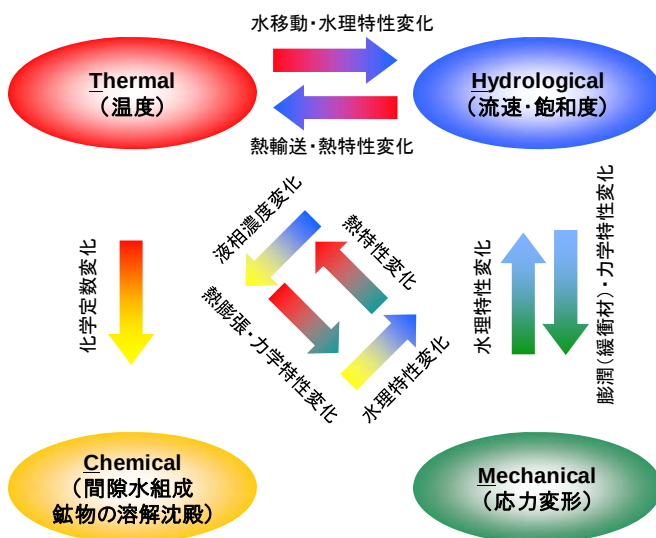


Fig.1 Conceptual model for the coupled THMC processes in the near-field

水理特性へ及ぼす間隙水組成の影響、 $M \rightarrow T$ と $M \rightarrow H$ は、応力変形から来る密度変化に伴う熱物性と透水特性の変化がそれぞれ考慮される。 $C \rightarrow T$ また C と M の相互作用については、調査が進んでいないことから、本解析システムではこれらの関係についてはモデル化に至っていない。

THMC 解析コードの計算フローを Fig.2 に示す。過渡期における連成挙動を評価するための本解析コードは、熱移動、水分移動、物質移行、地球化学反応について、温度、圧力水頭、親化学種の総溶解濃度、固相を含む親化学種の総濃度を未知数とした支配方程式系で構築され、既存の熱－水－応力連成解析コードの THAMES [20]、移流分散解析コードの Dtransu-3D・EL [21]、地球化学解析コードの PHREEQC [22] を母体として、各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た解析システムを構築している[17,18]。

THAMES は移流・拡散による熱移動、不飽和－飽和浸透流に基づく地下水移動、力学挙動を連成させた熱－水－応力連成解析コードであり、これまでに国際共同研究（DECOVALEX）等を通じた他解析コードとの比較 [24,25] や、原位置における実規模での熱－水－応力連成試験を通じた解析評価を行い、解析コードの適切性が示されてきている[26,27]。

Dtransu-3D・EL は密度勾配を考慮した不飽和－飽和浸透流および液相化学種の移流・分散問題を対象とした解析コードである。地下水中の移流分散に関する支配方程式は次式で表され、移流に対して用いられる流速は、THAMES の地下水移動式によって得られるダルシー流速を体積含水率で除した実流速が用いられる。

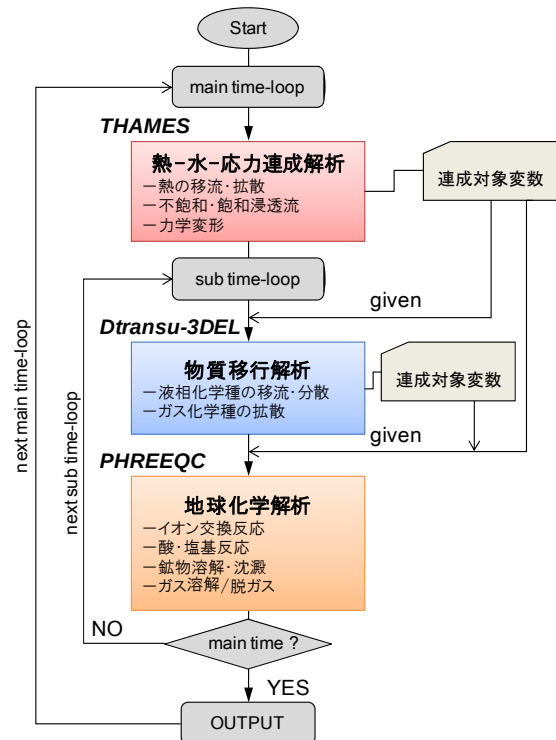


Fig.2 Configuration and flow of coupled THMC calculation

$$c_{\langle n \rangle} \frac{\partial}{\partial t} (\theta \rho_l) + \theta \rho_l \frac{\partial c_{\langle n \rangle}}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\theta \rho_l D_{ij} \frac{\partial c_{\langle n \rangle}}{\partial x_j} \right) - c_{\langle n \rangle} \frac{\partial}{\partial x_i} (\theta \rho_l V_i) - \theta \rho_l V_i \frac{\partial c_{\langle n \rangle}}{\partial x_i} - R \theta \rho_l \lambda c_{\langle n \rangle} \quad (1)$$

$$D_{ij} = a_T \|V\| \delta_{ij} + (a_L - a_T) \frac{V_i V_j}{\|V\|} + \tau D_m \delta_{ij} \quad (2)$$

ここに、 ρ_l は地下水の密度、 $c_{\langle n \rangle}$ は化学種 n の濃度、 V_i は実流速、 θ は体積含水率、 R は遅延係数、 λ は減衰定数、 a_L は縦分散長、 a_T は横分散長、 τ は屈曲率、 D_m は分子拡散係数、 δ_{ij} はクロネッカのデルタである。本解析では、緩衝材などへの吸脱着や化学的作用による地下水流速に対する遅れについては、地球化学解析コードとの連成を実現することで考慮するものとする。また、Dtransu-3D・EL には考慮されていない気相ガスについては、次式に示す Fick の拡散則に基づく拡散方程式をプログラムに付加している。

$$\frac{\partial}{\partial t} (a c_{G\langle n \rangle}) = \frac{\partial}{\partial x_i} \left(a D_{Gij} \frac{\partial c_{G\langle n \rangle}}{\partial x_j} \right) \quad (3)$$

ここに、 a は気相率、 $c_{G\langle n \rangle}$ は気相化学種 n の濃度、 D_G は気相化学種の拡散係数である。本解析では、間隙が水分で満たされていない不飽和状態時において、気相中のガス成分として酸素および二酸化炭素の拡散を考慮している。なお、本 THMC モデルでは、移行元素の質量保存を満足させるため、移流項については、各時間の要素内濃度から変換した質量粒子を実流速で移動させ、THAMES で計算される移動先要素の水分状態に応じて濃度に再変換する質量粒子法を採用している[19]。

PHREEQC は、地球化学分野等において汎用性の高い地球化学解析コードであり、イオン交換反応や、酸・塩基反応、鉱物の溶解沈殿、ガスの溶解やガスの遊離などの反応を扱うことができる。さらには、日本原子力研究開発機構が開発を進めている熱力学データベースが活用可能である。

これまでに、開発された THMC モデルを用いて、緩衝材を対象とした温度勾配条件下での浸潤試験における間隙水組成の評価を行い、移行元素濃度が再現可能なことや[19]、工学規模の人工バリア試験を対象とした解析評価を実施し、緩衝材とモルタルとの境界部での鉱物の溶解沈殿挙動の整合性を確認している[23]。また、具体的な地質環境条件に基づく処分システムの事例解析を実施し、ニアフィールド環境の変遷を例示している[19]。

なお、地球化学解析コードの PHREEQC は、イオン強度が比較的低い状態に適用可能な水溶性モデルであり、水溶性化学種の活量係数の補正方法として、拡張 Debye-Hückel 式を用いることで、イオン強度が 0.10~0.50 以下の計算に対応している。本研究では、後述するように、温度勾配による水分移動によって約一年後に緩衝材中の水分量は最小値となり間隙水が最も濃縮した状態となる。このときのイ

オン強度は約 2.6 となっており、一時的に PHREEQC の適用範囲を超える場合がある。このようなことから、本 THMC モデルでは、溶液の余剰ギブスエネルギー式と浸透係数式を用いてイオン強度が 6 程度までの高濃度溶液中の活量係数補正計算が可能となる Pitzer モデル[28,29]を適用できるよう整備を進めているが[19]、処分システムを想定したニアフィールド環境の評価を対象とした場合、現時点の Pitzer モデルでは取得されていないパラメータが多く、データベースで使用可能な元素が限られていることから、本研究での適用には至っていない。

3 解析条件

坑道掘削にともない周辺岩盤では、応力状態の変化や間隙水圧の変化が生じ、周辺岩盤の破壊特性や変形特性などの力学特性、透水係数などの水理特性、さらには、地下水の pH や酸化還元電位などの地球化学特性が変化することが予想される [30]。処分坑道の開放期間における地下水位の低下は、緩衝材の再冠水時間に影響を及ぼすことや、坑道周辺での不飽和領域の発生や地下水中への大気への侵入は、オーバーパックの腐食量を増大させるなど、バリア性能に影響を及ぼすことも考えられる。このようなことから、本研究では、処分システムを含むニアフィールド長期挙動評価を実施するにあたり、処分場建設作業段階での坑道周辺の地下水環境変化を考慮した。

処分システムは第 2 次取りまとめに示されている横置き方式とし[31]、深度 450m に設置するものとした。解析領域は Fig.3 に示すように深度 700m までを対象とし、ガラス固化体を中心として、ガラス固化体ピッチと坑道離間距離の 1/2 を水平方向に想定した 1/4 領域で形成する三次元モデルとした。ガラス固化体ピッチは第 2 次取りまとめに示された値の 3.13m とした。坑道離間距離については、緩衝材中の最高温度が 100℃以下となる条件として、処分坑道径 (D=2.22m) の整数倍の 11D に設定した。

地質環境条件については、第 2 次取りまとめに示された軟岩系岩盤グループの堆積岩を想定し[31]、幌延深地層研究計画における地上からの調査研究結果に基づき設定した。大曲断層西側領域は地質学的、物性的な観点から深度約 700m までの範囲で鉛直方向におおむね深度 0~275m、深度 275~375m、深度 375~700m の 3 つのゾーン構成で表現できることから[32]、ここでは、処分システムの設定深度が属するゾーンの物性値を岩盤の値として設定した。

地温勾配は、地表面から 4.7℃/100m で線形勾配とし、地表面は年間の平均的な気温として 15℃を仮定した[32]。

3.1 解析手順

(1) 坑道掘削解析

処分場建設期間における坑道周辺での地下水環境の変化について、地球化学反応を考慮した水理－物質移行連成解析として実施した。解析条件を Fig.4 に示す。坑道掘削後、直ちに厚さ 10cm の支保コンクリートが設置され、その後、人工バリアが設置されるまでの 10 年間は坑道が開放されているものと仮定した。第 2 次取りまとめで示された

坑道掘削影響モデルでは、掘削損傷領域として、坑道壁面より 1m の範囲でマイクロクラックが発生し、力学特性や透水係数などの水理特性が変化するとされていることから [30]、ここでは、この範囲の透水係数が 2 オーダー大きくなるものと仮定した。坑道壁面周辺は、坑内換気により湧水量が少ない場合にはその全量が蒸発し、坑壁は乾いた状態になるとの報告がある [33]。このような状態を表現するために、坑内の相対湿度 h_r と坑道壁面の水分ポテンシャル Ψ (J/kg) が熱力学的に平衡状態にあると仮定し、次式により求められる水分ポテンシャルで坑道壁面の値を拘束して地下水の蒸発を表現した。

$$\Psi = \frac{RT}{M} \ln \frac{P_v}{P_s} \quad (4)$$

ここで、 P_v : 水蒸気圧 (Pa) , P_s : 飽和水蒸気圧 (Pa) , M : 水の分子量 (kg/mol) , R : 一般気体定数 (J/mol K) , T : 絶対温度 (K) であり、 P_v/P_s は相対湿度である。ここでは、坑道内の相対湿度を 95% (20℃) と仮定した。また、坑道岩盤底面の圧力水頭を 0 とし、坑道内への地下水の湧水を考慮した。さらに、坑道周辺の地下水は、坑道壁面からの大気の影響を受けるものとして、坑道壁面の地下水は、大気分圧の二酸化炭素および酸素と平衡状態にあると仮定して境界条件を設定した。

(2) ニアフィールド長期挙動解析

上記の坑道掘削解析によって得られた坑道周辺での地下水位および地下水組成を岩盤の初期条件として、Fig.1 で示した連成モデルおよび Fig.3 の解析ジオメトリに基づき、人工バリア定置後のガラス固化体の発熱と人工バリア内への地下水の浸潤に伴うニアフィールドの化学的な環境の変

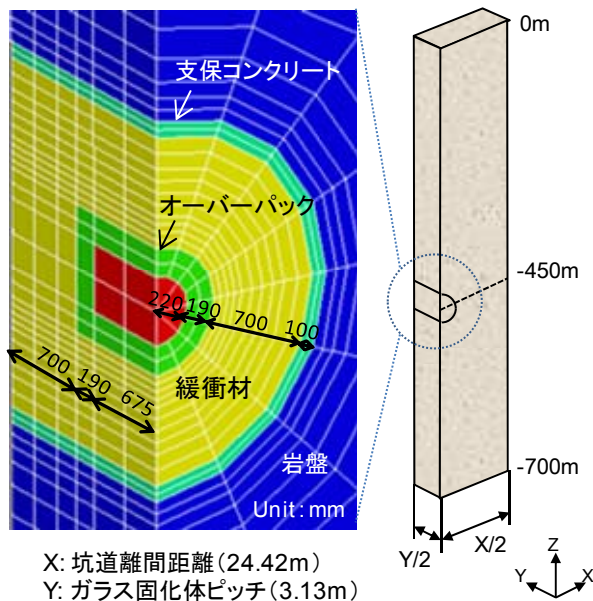


Fig.3 Near-field geometry of three-dimensional demonstration analysis (Conceptual design of hypothetical repository by JNC)

化について評価を実施した。評価は 1000 年後までを対象とした。

ガラス固化体は、第 2 次取りまとめにおける処分場の温度評価と同様に、再処理までの冷却期間を 4 年、中間貯蔵期間を 50 年とした発熱量の時間変化を考慮している [31]。

なお、本評価は、Fig.1 で示した相互作用のうち、応力変形にともなう熱特性および水理特性の変化、また、間隙水組成が水理特性におよぼす影響に関する情報が整理できていないことから、これらについては考慮していない。

3.2 物性値の設定

岩盤および人工バリアの物性を Table 1 に示す。なお、オーバーパックとガラス固化体については、水移動、物質移行および地球化学反応からは対象外領域とした。

岩盤物性については、前述したように、幌延深地層研究計画における地上からの調査研究結果に基づき深度 450m の値を設定した [39,40]。

支保コンクリートについては、第 2 次 TRU レポートにおいて軟岩系岩盤に対する吹き付けコンクリートの仕様に準じて設定した [34]。ポアソン比については、コンクリート標準示方書では、弾性範囲内であれば一般的に 0.2 としており、これに準じた [35]。

緩衝材、オーバーパックおよびガラス固化体の物性については、第 2 次取りまとめに準じた設定とした。

Table 1 の熱伝導率、比熱 $(\rho C)_m$ 、固有透過度 κ 、温度勾配水分拡散係数 D_T 、水分特性曲線および比透水係数 K_r を式 (5) ~ (11) に示す。

熱物性は次式で表される [31]。

$$\lambda_m = p_1 + p_2 w + p_3 w^2 + p_4 w^3 \quad (5)$$

$$\text{ただし, } \lambda_m = \theta \lambda_f + \lambda_s (1 - n) \quad (6)$$

$$(\rho C)_m = \rho_m \frac{p_6 + p_7 \cdot w}{p_5 + w} \quad (7)$$

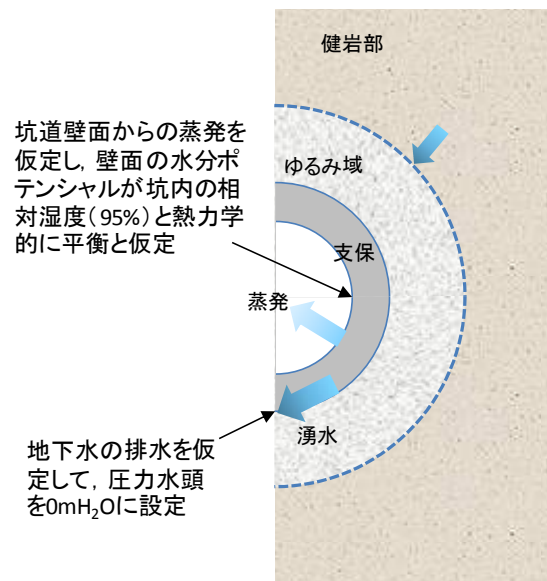


Fig.4 Boundary conditions for excavated disposal tunnel calculation

Table 1 Properties of host rock and engineered barrier system of THMC analysis

パラメータ	単位	岩盤	支保	緩衝材[31]	オーバーパック [31]	ガラス固化体 [31]
真密度	kg/m ³	2481 [39]	2620 [34]	2680	7860	2800
乾燥密度	kg/m ³	1520 [39]	2280 [34]	1600	-	-
空隙率	-	0.386 [39]	0.13 [35]	0.403	-	-
初期飽和度	-	1.0	1.0	0.28(含水比 7%)	-	-
熱伝導率	W/mK	式 5, 式 6[19]	2.56 [35]	式 5, 式 6	5.30×10 ¹	1.20×10 ⁰
比熱	J/kgK	式 7[19]	1.05×10 ³ [35]	式 7	4.60×10 ²	9.60×10 ²
弾性係数	Pa	1.71×10 ⁹ [39]	2.94×10 ¹⁰ [34]	3.44×10 ⁷	2.10×10 ¹²	8.20×10 ¹⁰
ポアソン比		0.17[39]	0.2 [35]	0.4	0.2	0.3
固有透過度	m ²	4.60×10 ⁻¹⁶	9.20×10 ⁻¹⁸	4.00×10 ⁻²⁰	-	-
温度勾配水分拡散係数	m ² /sK	-	-	式 9[36]	-	-
不飽和水理特性	-	式 10, 式 11 θ _r =0.00, α=0.003 n=1.08 [41]	式 10, 式 11 θ _r =0.00, α=0.380 n=1.11 [36]	式 10, 式 11 θ _r =0.00, α=0.012 n=1.40 [31,36]	-	-
縦分散長	m	0.02			-	-
横分散長	m	0.002			-	-
液相中の分子拡散係数	m ² /s	5.4×10 ⁻¹⁰ [14]			-	-
気相中の分子拡散係数	m ² /s	5.0×10 ⁻⁶ [43]			-	-

[39]山本ほか(2005), [19]木村ほか(2010), [40]太田ほか(2007), [41]下茂ほか(1982), [34]電気事業連合会・サイクル機構(2005), [35]土木学会(1996), [36]藤崎ほか(2008), [14]サイクル機構(1999) [43]大江(1985), [31] サイクル機構(1999)

ここで, λ_f : 水の熱伝導率 (0.6W/mK), λ_s : 固相の熱伝導率 (W/mK) であり, 岩盤に対しては, $p_1=7.38\times10^1$, $p_2=2.57\times10^2$, $p_3=0$, $p_4=0$, $p_5=1.0\times10^2$, $p_6=5.32\times10^1$, $p_7=2.8[19]$, 緩衝材に対しては, $p_1=4.44\times10^1$, $p_2=1.38\times10^2$, $p_3=6.14\times10^3$, $p_4=-1.69\times10^4$, $p_5=1.0\times10^2$, $p_6=3.41\times10^1$, $p_7=4.18[31]$ である.

緩衝材の透水係数に見られる温度依存性は, 温度変化にともなう水の粘性係数と密度の変化で説明でき, 次式に示す多孔質体の透過抵抗を表す固有透過度 κ (m²) を用いて整理されている [31].

$$k = \frac{\kappa \rho g}{\mu} \quad (8)$$

ここで, k : 透水係数 (m/s), ρ : 水の密度 (kg/m³), g : 重力加速度 (m/s²), μ : 水の粘性係数 (Pa s) である. 岩盤および支保コンクリートの透水性の温度依存性についても緩衝材と同様に扱うこととし, それぞれの透水係数を, 5.00×10^9 m/s [40], 1.00×10^{-10} m/s [19]とし, これらが室温条件下 (ここでは 25°C と仮定) で得られたものとして固有透過度を設定した.

緩衝材中の温度勾配による水分移動フラックスは, 温度勾配水分拡散係数で表され, 温度や水分飽和度の依存性を考慮したいくつかの関数が提案されている. ここでは, 藤崎らが設定した温度勾配水分拡散係数を [36], 次式の Börgesson らが提案した関数でフィッティングさせて用いた [37].

$$S_r \leq 0.2 \quad : D_T = D_{T0} \cdot \sin^b \left(\frac{S_r - 0.75}{0.2} \frac{\pi}{2} \right)$$

$$0.2 \leq S_r \leq 0.25 \quad : D_T = D_{T0} \quad (9)$$

$$S_r \geq 0.25 \quad : D_T = D_{T0} \cdot \cos^a \left(\frac{S_r - 0.75}{0.25} \frac{\pi}{2} \right)$$

ここで, $D_{T0} = D_{TV} \exp(\alpha T)$ $D_{TV} = 1.0 \times 10^{-12} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$, $\alpha = 0.0603$, $a = 1$, $b = 8.0$, T : 温度 (°C), S_r : 水分飽和度 (-) である.

不飽和一飽和浸透流に基づく水移動評価に必要な水分特性曲線および比透水係数の不飽和水理特性は, 次式で表される van Genuchten モデルにより定義した [38].

$$S_e = \frac{\theta - \theta_r}{\theta_s - \theta_r} = \left[1 + |\alpha \psi|^n \right]^{-m} \quad m = 1 - \frac{1}{n} \quad (10)$$

$$K_r = \frac{K}{K_s} = \sqrt{S_e} \left[1 - \left(1 - S_e^{1/n} \right)^n \right]^2 \quad (11)$$

ここで, S_e : 有効水分飽和度, ψ : サクシオン (mH₂O), θ : 体積含水率, θ_s : 飽和体積含水率, θ_r : 最小体積含水率, α (m⁻¹) と n (-) はパラメータ, K_r : 比透水係数, K_s : 飽和透水係数, K : 不飽和透水係数である. このうち, 岩盤の不飽和水理特性については, 地上からの調査によって知見が得られていないことから, ここでは, 泥岩を対象として実験によって得られた値に基づき設定した [41]. 支保コンクリートについては, 水/セメント比 (以下, W/C) が 55% のモルタル供試体を対象とした遠心法により測定した値に基づき設定した [36]. 緩衝材については, 第 2 次取りまとめで示された水分特性曲線に基づき設定した [31,36].

物質移行パラメータの縦分散長については、観測規模への依存性が認められており、移行距離の 1/10~1/100 程度、横分散長は、縦分散長の 1/10 程度になる傾向があると言われている[42]。本研究では、人工バリアを中心とする 2 メートルの範囲が物質移行距離とし、これに準じた設定とした。

液相中の分子拡散係数は、元素や温度によって異なると考えられるが、本解析システムでは、元素ごとに拡散係数を設定可能な仕様となっていないことから、ここでは、第 2 次取りまとめの安全評価解析で設定された値の中から最大値を採用した[14]。

3.3 地球化学特性の設定

地下水組成は、幌延深地層研究計画の深層ボーリング調査におけるボーリング孔 HDB-6 で取得された地下水分析結果に基づきモデル化された深度 450m の地下水組成を用いた[32]。この地下水の塩分濃度は、現在の海水の 1/2 程度であり、起源が過去の海水と考えられる海水系地下水である[40]。また、この地下水組成を支配していると考えられる鉱物として石英、黄鉄鉱、方解石を考慮した[32]。

支保コンクリートの固相は、第 2 次 TRU レポートで示された軟岩系岩盤に対して施工させる吹き付けコンクリート (W/C=45%) のモデル固相に準じて設定した[34]。カルシウムシリケート水和物 ($\text{CaO-SiO}_2\text{-H}_2\text{O}$ 系水和物) である CSH ゲルの溶解モデルとして、杉山らのモデルを用いた[44]。また、モデル固相に示された KOH、NaOH および Cl は可溶性塩として設定し、間隙水に瞬時溶解すると仮定した。

緩衝材は、第 2 次取りまとめの仕様例として示された Na 型ベントナイト 70wt% とケイ砂 30wt% の混合材、初期含水比 7% とし[31]、間隙水組成のモデル計算で考慮された黄鉄鉱、方解石および玉髄、また、スメクタイトのイオン交換反応、および酸・塩基反応を考慮した[14]。緩衝材に含まれる可溶性塩の CaSO_4 、KCl、NaCl [45] は、初期含水比 7% の間隙水中に全量が瞬時溶解するものと仮定した。本研究では、緩衝材中での塩類の析出を確認するため、実験的研究で析出が確認されている炭酸塩として、岩塩 (Halite: NaCl) および硫酸塩 (Gypsum: CaSO_4) [例えば、9-13] を二次鉱物として設定した。

上記で設定した鉱物の溶解沈殿によって固相の密度が変化するものとし、これ以外の固相部分については、地球化学反応に関与しないものとしてモデル化している。なお、本解析では、密度変化にともなう熱特性や透水特性などの物性の変化は考慮していない。

人工バリア設置時の緩衝材は不飽和であり、不飽和間隙中には地上より持ち込まれると考えられる大気分圧の二酸化炭素および酸素を考慮した。また、黄鉄鉱が酸素を消費する反応は、速度モデルで考慮した[46]。

これらの初期間隙水組成は、設定した鉱物との平衡を仮定し PHREEQC による解析により求めた。熱力学データには、解析的温度補正式の係数が整備された JAEA TDB 990900c1.tdb を使用し[47]、これに記述のない支保コンクリートのモデル固相 (ハ

イドロガーネット、ブルーサイト、エトリングサイト) の反応については、高アルカリ環境に対応した熱力学データベースに基づき別途定義した[48]。

岩盤、支保コンクリートおよび緩衝材の初期状態における鉱物濃度および間隙水組成を Table 2 に示す。なお、設定鉱物濃度が 0 とは、二次鉱物の設定を意味する。

4 解析結果と考察

地球化学反応を考慮した水理-物質移行連成解析により、坑道掘削から人工バリアが設置されるまでの坑道開放期間中の坑道周辺における地下水環境の変化に関する評価を実施した。坑道開放から 10 年後の解析結果を Fig.5 に示す。図中には、坑道周辺の水分飽和度の解析結果をコンターで整理したものを示しており、コンター図中の出力ライン上の値を、坑道壁面からの距離としてグラフ横軸に示している。これより、坑道開放期間の 10 年間に坑道周辺の地下水位は低下し、坑道周辺には不飽和領域が生じている。この不飽和領域に対して坑道壁面から大気分圧の酸素 ($10^{0.7}\text{atm}$) が入り込むことにより、坑道壁面より約 2.5m の範囲で地下水の酸化還元電位 (pe) が上昇している。また、地下水中に高い濃度で溶存している炭酸ガスが遊離し、不飽和領域での気相中の二酸化炭素濃度が上昇している。

坑道掘削による地下水位の低下および地下水組成の変化を考慮した人工バリア定置後のニアフィールドの長期挙動解析結果として、温度、pH、pe、間隙水中のカルシウム濃度、ケイ素濃度および方解石濃度の時間変化を Fig.6 に示す。また、Fig.7 には、緩衝材中における玉髄および二次鉱物として設定した硫酸塩の濃度、イオン交換サイトにおける交換性陽イオンのナトリウムとカルシウム濃度および酸・塩基反応における表面サイト SO 濃度の時間変化を示している。

坑道掘削にともなう地下水位低下を考慮した本解析では、緩衝材は約 5 年で完全飽和に至る結果になった。岩盤を飽和条件と仮定し、静水圧相当の間隙水圧が緩衝材に作用するとした場合の解析結果の約 4 年よりも再冠水時間が遅くなっている[19]。

第 2 次取りまとめ仕様の廃棄体の発熱特性に基づく本解析では、人工バリア内の温度は、20 年までの間に最高温度に達し、緩衝材中とオーバーパックとの境界部における最高温度は約 95°C、支保コンクリートでは 80°C となった。20 年以降は、初期条件として設定した地温の約 36°C に向かって徐々に低下し、1000 年後には、人工バリアおよび周辺岩盤の温度は約 50°C まで低下している。

ニアフィールドの化学環境は、支保コンクリートを中心に高い pH の領域が広がっている。地下水の浸潤にともない緩衝材中の pH は、20 年後に最大で約 10.5 まで上昇しているが、それ以降は低下する方向となり、500 年後は、初期の pH に近い値まで低下している。また、人工バリア設置初期は、坑道掘削段階における坑道周辺の地下水への大気の影響および地上より持ち込まれることを想定した緩衝材中の不飽和気相中の酸素によって人工バリアおよびその周辺は酸化性の環境となっているが、

Table 2 Initial minerals and porewater composition of THMC analysis

	岩盤[32]		支保コンクリート[34]		緩衝材[14]		
	石英 (SiO ₂)	2559.5	ポルトランドイト (Ca(OH) ₂)	3446.0	玉髄 (SiO ₂)	7083.4	
設定鉱物*	方解石 (CaCO ₃)	15.2	アモルファスシリカ (SiO ₂)	1318.0	方解石 (CaCO ₃)	290.9	
	黄鉄鉱 (FeS)	76.2	ハイドロガーネット (C ₃ AH ₆)	164.0	黄鉄鉱 (FeS)	65.3	
			ブルーサイト (MgO)	180.0	岩塩 (Halite : NaCl)	0.0	
			エトリンサイト (C ₆ As ₃ H ₃₂)	30.0	硫酸塩 (Gypsum:CaSO ₄)	0.0	
			方解石 (CaCO ₃)	0.0	イオン組成 meq/100g***	ZNa	51.4
						Z ₂ Ca	7.4
						ZK	0.6
						Z ₂ Mg	0.7
					反応選択係数 logK _{G&T}	2ZNa- Z ₂ Ca	0.69
						ZNa-ZK	0.42
						2ZNa- Z ₂ Mg	0.67
						ZNa-ZH	1.88
pH		6.80		12.79	酸解離定数 塩基解離定数 表面サイト密度**** 有効比表面積****	logK(-)	-7.92
						logK(-)	5.67
						mol/g	6.5×10 ⁻⁵
						m ² /g	29
pe**		-2.80		7.90			-2.67
mol/l_water	Al	1.00×10 ⁻⁷		1.00×10 ⁻⁷			1.00×10 ⁻⁷
	C	4.10×10 ⁻²		1.25×10 ⁻⁵			1.99×10 ⁻³
	Ca	2.10×10 ⁻³		7.74×10 ⁻³			9.29×10 ⁻²
	Cl	2.20×10 ⁻¹		9.99×10 ⁻⁴			7.78×10 ⁻³
	K	2.10×10 ⁻³		2.80×10 ⁻²			2.98×10 ⁻³
	Mg	5.80×10 ⁻³		1.70×10 ⁻⁸			2.08×10 ⁻³
	Na	2.30×10 ⁻¹		4.40×10 ⁻²			3.77×10 ⁻¹
	S	6.30×10 ⁻⁶		1.85×10 ⁻³			2.79×10 ⁻¹
	Si	1.10×10 ⁻³		2.68×10 ⁻⁵			2.75×10 ⁻⁴
	O ₂ (aq)	1.00×10 ⁻⁷		2.04×10 ⁻⁴			1.00×10 ⁻⁷

[32]藤田ほか (2007), [34]電気事業連合会・サイクル機構(2005), [14]サイクル機構(1999)

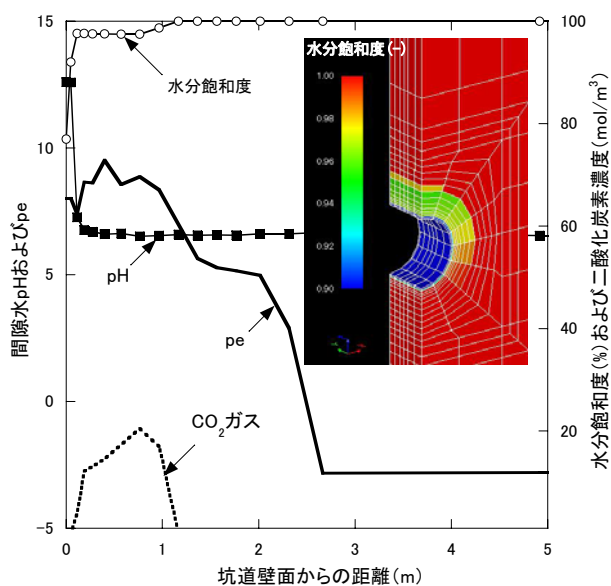
*鉱物濃度の単位は mol/m³, **pe=16.9Eh, ***ベントナイト 100g 当たり, ****ス멕タイト単位重量当たり

Fig.5 Analytical results of excavated disposal tunnel

緩衝材および岩盤中で考慮した黄鉄鉱による酸素を消費する反応によって数年後には還元性の環境となっている。

間隙水中のカルシウム濃度およびケイ素濃度は、10 年から 30 年後にかけて濃度が上昇している。カルシウム濃度の上昇は、後述するように、支保コンクリートのモデル固相として設定したポルトランドイトの溶解、また、ケイ素濃度の上昇は、緩衝材中の玉髄および岩盤中の石英の溶解に伴うものである。セメント反応溶液が浸潤する緩衝材中では、玉髄や石英の溶解反応により緩衝された pH 条件に応じて二次鉱物が過飽和となり CSH ゲルなどが沈殿と言われている[34]。本解析における支保コンクリート近傍での緩衝材間隙水中のカルシウムおよびケイ素の濃度の上昇は、二次鉱物として CSH ゲルなどの沈殿が生じることを示唆する結果となっている。

方解石は、緩衝材、支保コンクリートおよび周辺岩盤において、経年的に濃度が上昇しており、とくに、pH が低下し始める 100 年以降で沈殿が顕著となっている。

緩衝材の玉髄は、支保コンクリートの近傍で溶解し濃度が低下している。

硫酸塩 (Gypsum : CaSO₄) は、緩衝材とオーバーパックとの境界近傍で沈殿が生じており、不飽和環境下での温度

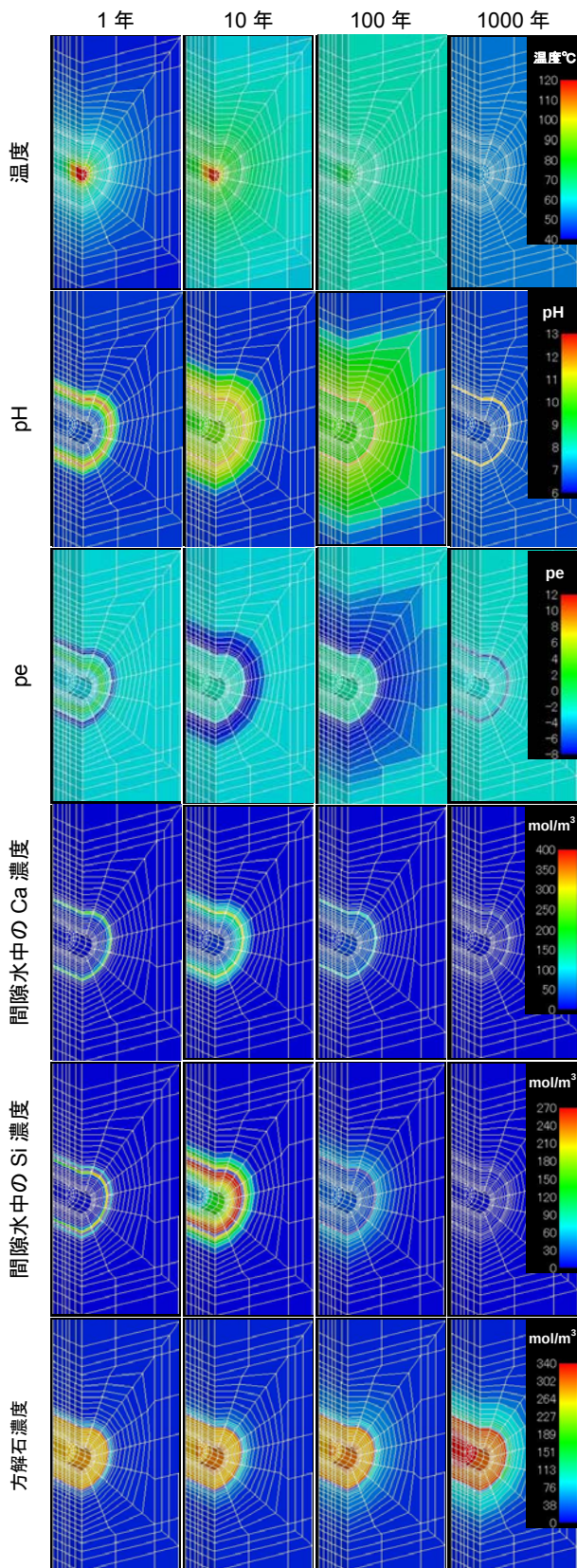


Fig.6 Analytical results of Temperature, pH, pe, Calcium and Silicon concentration in pore water and precipitated concentration of Calcite distribution in the near-field

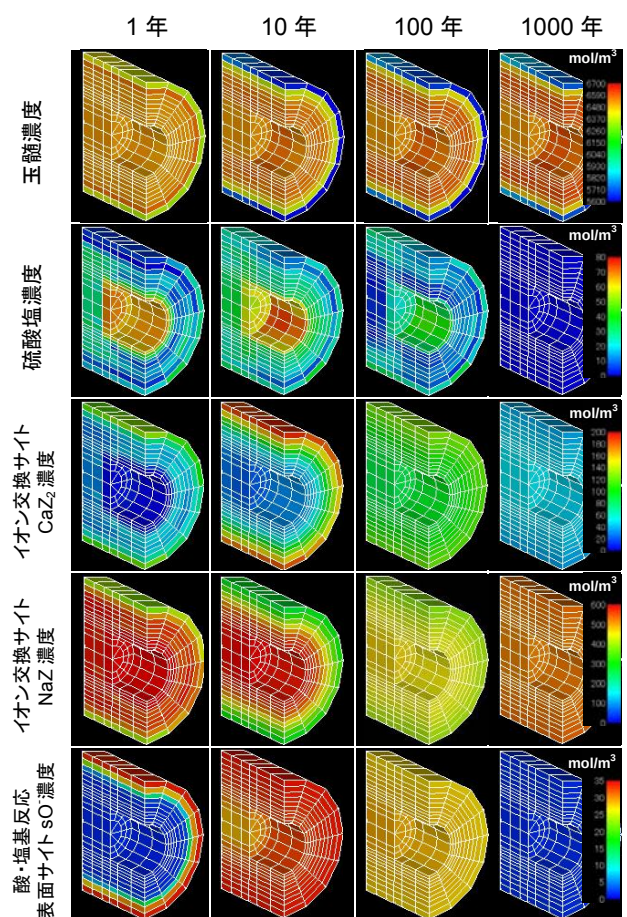


Fig.7 Analytical results of concentration of Chalcedony, Gypsum, CaZ_2 , NaZ of ion-exchange site and sO^- of surface complexation distribution in the bentonite buffer

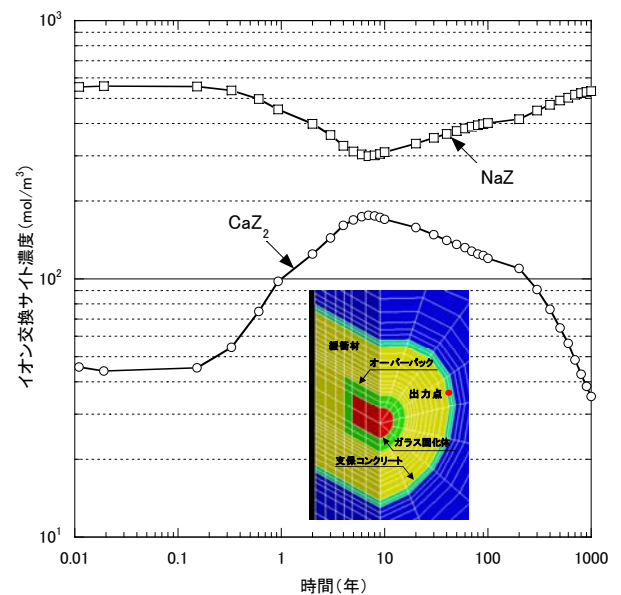


Fig.8 Time history of concentration of ion-exchange site in the bentonite buffer

勾配による水分移動にともなう間隙水の濃縮と、温度の上昇にともなう溶解度の低下と考えられる理由により、5年から10年後にかけて最大で約 80 mol/m^3 の析出を生ずるが、温度が低下する10年以降は溶解傾向となり、約200年後には消滅している。硫酸塩の析出量については、岩盤を完全飽和条件と仮定し、静水圧相当の間隙水圧が緩衝材に作用するとした場合の解析結果の約 20 mol/m^3 よりも多くなる結果となった[19]。この要因としては、坑道掘削による地下水位の低下を考慮することにより緩衝材の再冠水時間が遅くなり、オーバーパック周辺への Ca^{2+} イオンおよび SO_4^{2-} イオンの移流量が多くなったためと考えられる。一方、緩衝材中で二次鉱物として考慮した岩塩（Halite: NaCl ）の析出は生じなかった。

緩衝材の酸・塩基反応による表面サイト SO^- 濃度は、支保コンクリートからの高い pH の影響を受ける100年間は、その濃度が高くなっており、pH を緩衝するために H^+ を放出する反応となっている。

支保コンクリートから溶脱したカルシウムは緩衝材中へ移行することにより、とくに、支保コンクリート近傍で緩衝材のイオン交換サイトにおけるナトリウム濃度が低下し、カルシウム濃度が上昇している。支保コンクリートと接触している緩衝材のイオン交換サイト濃度の時間変化を Fig.8 に示す。これより、約10年後にイオン交換サイトにおけるナトリウム濃度が初期の1/2程度まで低下する一方でカルシウム濃度は初期の約4倍になっており、緩衝材のカルシウム型化が促進している。その後、支保コンクリートからのカルシウムの溶脱が減少し、人工バリア内にナトリウムを含む地下水の浸潤が進むにつれてイオン交換サイトのナトリウム濃度は上昇し、1000年後には初期のイオン交換サイトにおけるそれぞれの濃度に近い値まで回復する結果となっている。

支保コンクリートのモデル固相濃度の時間変化を Fig.9 に示す。支保材料は、CSH ゲルをポルトランドイドとアモルファスシリカをモデル固相とした杉山モデルを適用しているが[44]、経年的にポルトランドイド濃度が低下する一方でアモルファスシリカ濃度が上昇している。その他、モデル固相として考慮したセメント水和生成物のハイドロガーネットは減少し、ブルーサイトおよびエトリンガイトの濃度は上昇している。なお、本解析モデルでは、 Ca/Si 比に応じてポルトランドイドとアモルファスシリカの平衡定数を更新するための機能を付加している。

Fig.10 は、オーバーパックと接する緩衝材の温度と水分飽和度および間隙水組成の変遷を示す。間隙水組成は、オーバーパックの候補材料である炭素鋼、チタンおよび銅の腐食に影響を及ぼす可能性があると考えられている化学種について示した[31]。温度勾配にともなう水分移動により、1年後までは水分が低下している。その後、水分は上昇する方向に転じ、約5年で飽和する結果となっている。塩化物イオン (Cl^-) は、人工バリア定置後の廃棄体の発熱にともなう水分が低下し、間隙水が濃縮することによって一時的に濃度が高くなるが、その後、人工バリア内への地下水の浸潤が進むにつれ最終的には地下水中の濃度と同じとな

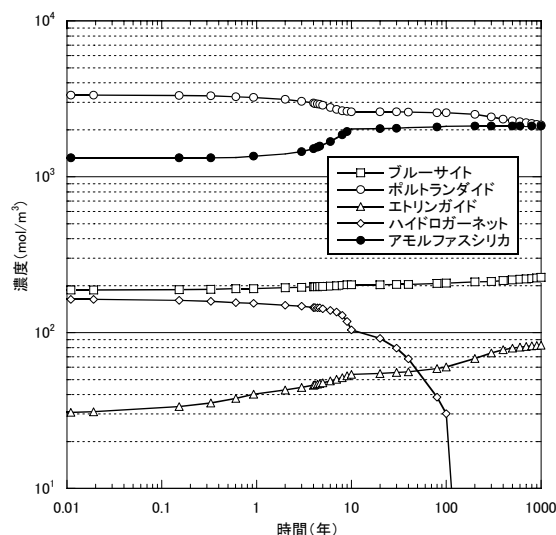
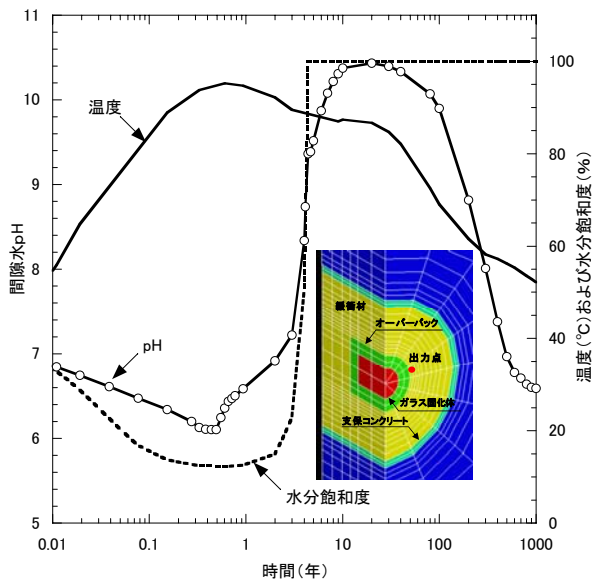


Fig.9 Time history of cement minerals concentration

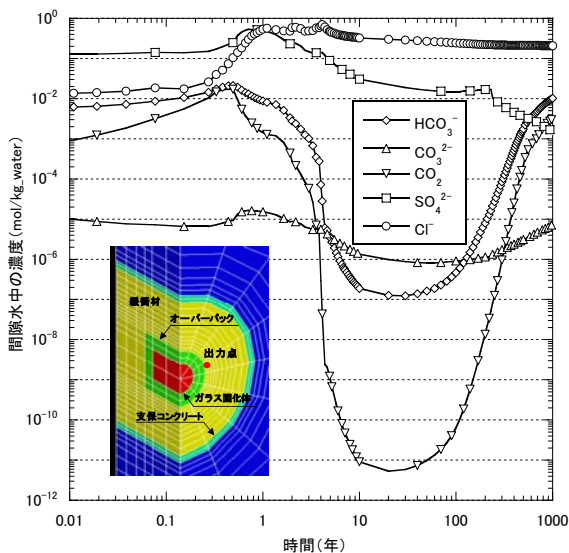
っている。 SO_4^{2-} は、硫酸塩の沈殿との平衡反応に支配されるため、間隙水中のカルシウム濃度に対応して変化している。200年以降は、硫酸塩の沈殿は溶解し、 SO_4^{2-} の濃度は低下している。 CO_2 (H_2CO_3) および HCO_3^- 濃度は、緩衝材および周辺岩盤での方解石の沈殿に伴い初期から急速に低下し、方解石の溶解平衡に支配された CO_3^{2-} 濃度になっており、約100年までその状態が続いている。100年以降は支保コンクリートの影響が徐々に緩和され、pH が低下し、 CO_2 (H_2CO_3) と HCO_3^- の濃度が上昇する結果となっている。

5 おわりに

ニアフィールドで生じるプロセスの定量化や、第2次取りまとめにおいて安全評価上選択されたFEPの妥当性の検証を目的とした数値実験の例示として、幌延深地層研究計画で得られている知見に基づき具体的地質環境条件を設定し地層処分システムを想定した THMC 数値解析を実施した。そして、ガラス固化体の放熱と地下水の浸潤に伴うニアフィールドの化学的な環境の変化を定量的に例示した。その結果、海水系地下水環境下における緩衝材中では、一時的にオーバーパック周辺で硫酸塩が析出することや、支保コンクリートとの境界近傍でス멕タイトのイオン交換サイトにおけるカルシウム濃度が上昇し、緩衝材がカルシウム型化する傾向を示した。しかしながら、長期的には、析出した塩は散逸し、また、イオン交換サイトは、初期のナトリウム濃度の値に戻ることから、第2次取りまとめの安全評価上設定されたシナリオと整合する傾向を示す結果となった。また、支保コンクリートのカルシウムシリケート水和物の溶解沈殿モデルによりセメント系材料や pH 環境の変遷を示した。セメント反応溶液の緩衝材への影響については、高い pH による鉱物の加水分解によって間隙水の溶存化学種が過飽和となることから、二次鉱物の沈殿が示唆された。さらに、オーバーパックの腐食評価に資するための基盤情報として、オーバーパックの腐食シナリオで



(a) pH, temperature and water saturation



(b) pore water composition

Fig.10 Time history of pore water composition contact with over pack

示されたように[31], 炭素鋼が不動態化し, 孔食, 隙間腐食などの局部腐食を生じるかどうかの環境条件として重要となる間隙水 pH や, 不動態化を促進し不動態化臨界 pH を低下させるといわれている炭酸塩濃度を温度環境の変化とともに示した. 炭酸塩濃度については, 実験的に炭素鋼の不動態化が認められた条件 (炭酸塩濃度 0.1mol/l , $\text{pH}=9.5$ 以上) や, 応力腐食割れが生起する下限界と考えられている 0.5mol/l よりも十分に低い値を示した[31].

処分場建設段階における坑道周辺での地下水位の低下が緩衝材の再冠水時間に影響を及ぼすことや, オーバーパック周辺での塩の析出挙動に感度を持つことも明らかとなった. 処分坑道開放時に不飽和領域が広範囲に生じた場合に

は, さらに再冠水時間が遅くなり, 塩の析出量が増加することや, 地下水流動がある環境下では, 人工バリア内に不均一な濃度分布が形成され, 部分的に塩の析出量が増大することや緩衝材のカルシウム型化がさらに促進する可能性も考えられる. また, 廃棄体竖置き方式の場合には, 埋め戻し材が設置されることによる酸素量の増大や, それによる間隙水化学環境への影響など, 処分場の地質環境, 廃棄体定置方法や人工バリアの仕様などによりニアフィールド環境が変動することが予想される. このようなニアフィールドの長期的なプロセスの定量化には, 数値実験的アプローチが有効な手法と考えられていることから, 今後は, さまざまな条件に対して比較事例を蓄積して不確実性の幅を定量的に把握することが望まれる.

他方, 本解析モデルの適用範囲については, 高いイオン強度条件下での活量係数の補正方法を含めた PHREEQC の適用範囲を確認する必要があることや, 緩衝材が不飽和状態にあるときの間隙水化学についての現象理解および層間水を有する緩衝材間隙水の保水形態や浸潤履歴を考慮した地球化学反応モデルの検討などが課題となる.

謝辞

本研究における熱-水-応力-化学連成モデルの高度化については, 株式会社間組 木村誠氏の貢献が大きく, 記して感謝の意を表します.

また, 株式会社間組 千々松正和氏, 株式会社ダイヤコンサルタント 菱谷智幸氏, MHI 原子力エンジニアリング株式会社 根山敦史氏, 河内進氏には多くの助言やご協力を頂いたことに厚く謝意を表します.

本研究は, 経済産業省資源エネルギー庁から受託した平成 19 年度~21 年度地層処分技術調査等委託費 (高レベル放射性廃棄物処分関連: 処分システム化学影響評価高度化開発) のうち, バリア複合化学環境影響調査として実施した成果である.

参考文献

- [1] Seetharam, S.C., Cleall, P.J. and Thomas, H.R.: Modelling some aspects of ion migration in compacted bentonite clay, *Engineering Geology* 85, pp.221-228 (2006).
- [2] Villar, M. V., Martín, J. M., Barcala, J. M.: Modification of physical, mechanical and hydraulic properties of bentonite by thermo-hydraulic gradients, *Engineering Geology* 81, 284-297(2005).
- [3] Xie, M., Bauer, S., Kolditz, O., Nowak, T., Shao, H.: Numerical simulation of reactive processes in an experiment with partially saturated bentonite, *Journal of Contaminant Hydrology* 83, pp.122-147(2006).
- [4] Villar, M. V., Fernández, A. M., Gómez, P. and Martín, P. L.: Pore water extracted from compacted bentonite subjected to simultaneous heating and hydration, *Applied Geochemistry*, Vol. 12, pp.473-481(1997).

- [5] 川崎学, 本田明: ベントナイト中における溶存酸素の実効拡散係数測定, PNC TN8410 94-143 (1994).
- [6] Muurinen, A., Lehtikoinen, J.: Porewater chemistry in compacted bentonite, *Engineering Geology* 54, 207-214(1999).
- [7] Wersin, P.: Geochemical modelling of bentonite porewater in high-level waste repositories, *Journal of Contaminant Hydrology* 61, 405-422(2003).
- [8] Villar, M. V., Cuevas, J., Martín, P.L.: Effect of heat/water flow interaction on compacted bentonite: Preliminary results, *Engineering Geology* 41, 257-267 (1996).
- [9] Cuevas, J., Villar, M. V., Martín, M., Cobeña, J. C., Leguey, S.: Thermo-hydraulic gradients on bentonite: distribution of soluble salts, microstructure and modification of the hydraulic and mechanical behavior, *Applied Clay Science* 22, 25-38(2002).
- [10] Seetharam, S.C., Cleall, P.J. and Thomas, H.R.: Modelling some aspects of ion migration in compacted bentonite clay, *Engineering Geology* 85, pp.221-228(2006).
- [11] Samper, J., Zheng, L., Montenegro, L., Fernández, A. M., Rivas, P.: Coupled thermo-hydro-chemical models of compacted bentonite after FEBEX in situ test, *Applied Geochemistry* (2008) .
- [12] Karnland, O., Sandén, T., Johannesson, L.E., Eriksen, T.E., Jansson, M., Wold, S., Pedersen, K., Motamedi, M., Rosborg, B.: Long term test of buffer material Final report on the pilot parcels, SKB TR 00-22(2000).
- [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] 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, JNC TN1400 99-023(1999).
- [15] Gens, A., Garcia-Molina, A.J., Olivella, S., Alonso, E., and Huertas, F.: ANALYSIS OF FULL SCALE IN SITU TEST SIMULATING REPOSITORY CONDITIONS, *INTERNATIONAL JOURNAL FOR NUMERICAL AND ANALYTICAL METHODS IN GEOMECHANICS*, Int. J. Numer. Anal. Meth. Geomech., 22, 515-548 (1998).
- [16] Akira Ito, Yui Mikazu, Sugita Yutaka, Kawakami Susumu : A research program 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 the GEOPROC 2003 International Conference on Coupled T-H-M-C Processes in Geo-systems : Fundamentals, Modelling, Experiments & Applications, PART 1, Stockholm Sweden 13-15 October*, pp.346-351(2003).
- [17] 伊藤彰, 川上進, 油井三和: 高レベル放射性廃棄物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, JNC TN8400 2003-032(2004).
- [18] 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 GEOPROC 2006 International Symposium 2nd International Conference on Coupled Thermo-Hydro-Mechanical-Chemical Process in Geo systems and Engineering, Nanjing, China, May 22-25*, pp.416-421 (2006).
- [19] 木村誠, 九石正美, 藤田朝雄, 中間茂雄, 鈴木英明 : 緩衝材中の化学影響評価に向けた熱－水－応力－化学連成解析モデルの開発, JAEA-Research 2010-034(2010).
- [20] 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*(1985).
- [21] 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).
- [22] Parkhurst D. L.: 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 Report 99-4259*(1999).
- [23] 鈴木英明, 藤崎淳, 藤田朝雄: 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試験の人工バリア試験と解析評価, 原子力バックエンド研究, Vol.16 No.1 2009年12月(2009).
- [24] Rutqvist, J., Chijimatsu, M., Jing, L., Millard, A., Nguyen, T.S., Rejeb, A., Sugita, Y., and Tsang, C.F. : A numerical study of THM effects on the near-field safety of a hypothetical nuclear waste repository – BMT1 of the DECOVALEX III project. Part 3: Effects of THM coupling in sparsely fractured rocks, *International Journal of Rock Mechanics & Mining Sciences* 42, pp.745-755(2005).
- [25] Jing, L., Stephansson, O., Tsang, C-F. and Kautsky, F.: DECOVALEX – Mathematical models of couples T-H-M processes for nuclear waste repositories, *Executive Summary for Phases I, II and III*(1996).
- [26] Rutqvist, J., Börgesson, L., Chijimatsu, M., Nguyen, T.S., Jing, L., Noorishad, J., and Tsang, C.-F. : *International Journal of Rock Mechanics & Mining Sciences* 38,

- pp.129-142 (2001).
- [27] 千々松正和, 杉田裕, 藤田朝雄, 雨宮清, 小林晃, 大西有三: 原位置試験場における熱-水-応力連成試験結果および解析評価, 土木学会論文集 No.652 / III-51, pp.125-139(2000).
- [28] Plummer, L.N., Parhurst, D.L., Fleming, G.W. and Dunkle, S.A.: A COMPUTER PROGRAM INCORPORATING PITZER'S EQUATIONS FOR CALCULATION OF GEOCHEMICAL REACTIONS IN BRINES, U.S GEOLOGICAL SURVEY, Water-Resources Investigations Report 88-4153(1988).
- [29] 吉田泰, 笹本広, 神徳敬: 高イオン強度条件下における活量係数補正パラメータの整備 (研究報告), JNC TN8400 2003-043(2004).
- [30] 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1 わが国の地質環境, JNC TN1400 99-021(1999).
- [31] 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, JNC TN1400 99-022(1999).
- [32] 藤田朝雄, 谷口直樹, 松井裕哉, 棚井憲治, 西村繭果, 小林保之, 平本正行, 前川恵輔, 澤田淳, 牧野仁史, 笹本広, 吉川英樹, 柴田雅博, 若杉圭一郎, 濱克宏, 操上広志, 國丸貴紀, 石井英一, 竹内竜史, 中野勝志, 太田久仁雄, 瀬尾俊弘, 宮原要, 内藤守正, 油井三和: 幌延深地層研究計画における地上からの調査研究段階 (第1段階) 研究成果報告書 分冊「地層処分研究開発」, JAEA-Research 2007-045(2007).
- [33] 渡辺邦夫, 藍沢稔幸, 小野誠, 柳沢孝一, 佐久間秀樹, 山本肇, 神田信之: 蒸発量計測によるトンネル壁面からの湧水量の測定, - (その1) 測定方法と室内試験 -, 応用地質 30 巻第4号(1999).
- [34] 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 TY1400 2005-013, FEPC TRU-TR2-2005-02(2005).
- [35] 土木学会(1996): コンクリート標準示方書「設計編」(平成8年制定)
- [36] 藤崎淳, 鈴木英明, 藤田朝雄: 熱-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).
- [37] Börgesson, L. and Hernelind, J.: Coupled thermo-hydro-mechanical calculations of the water saturation phase of a KBS-3 deposition hole Influence of hydraulic rock properties on the water saturation phase, SKB Technical Report TR-99-41(1999).
- [38] van Genuchten, M. Th.: A Closed-Form Equation for Predicting the Hydraulic Conductivity of Unsaturated Soils, *Soil Sci. Soc.*, Vol. 44, pp.892-898(1980).
- [39] 山本卓也, 下茂道人, 藤原靖, 服部弘道, 各合牧人, 田所照夫, 中垣真一: 幌延深地層研究計画における試験調査(HDB-6,7,8)のうち HDB-6 孔, JNC TJ5400 2005-004(2005).
- [40] 太田久仁雄, 阿部寛信, 山口雄大, 國丸貴紀, 石井英一, 操上広志, 戸村豪治, 紫野一則, 濱克寛, 松井裕哉, 新里忠史, 高橋一晴, 丹生屋純夫, 大原英史, 浅森浩一, 森岡宏之, 舟木泰智, 茂田直孝, 福島龍朗: 幌延深地層研究計画における地上からの調査研究段階 (第1段階) 研究成果報告書 分冊「深地層の科学的研究」, JAEA-Research 2007-044(2007).
- [41] 下茂道人, 西垣誠, 鍵富淳: 瞬時水分計測法の適用限界と泥岩の保水特性について, 第17回土質工学研究発表会 E-7, pp.2385-2388(1982).
- [42] 上田年比古: パソコンによる地下水解析 W.キンツェルバッハ著, pp.170 (1990).
- [43] 大江修造: 設計者のための物性定数推算法, 日刊工業新聞社(1985)
- [44] 杉山大輔, 藤田智成, 中西潔: TRU 廃棄物処分環境におけるセメント系材料の化学的変質評価 (その1) - カルシウムシリケート水和物の熱力学的溶解沈殿モデルの提案 -, 電力中央研究所報告, T01007 (2001).
- [45] 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, JNC TN8400 99-032(1999).
- [46] Mark A. Williamson and J. Donald Rimstidt: The kinetics and electrochemical rate-determining step of aqueous pyrite oxidation, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, Vol.58, No.24, pp.5443-5454(1994).
- [47] Randolph C Arthur, Hiroshi Sasamoto, Masahiro Shibata, Mikazu Yui, Atushi Neyama: Development of Thermodynamic Databases for Geochemical Calculations, JNC TN8400 99-079(1999).
- [48] Randolph C Arthur, Hiroshi Sasamoto, Chie Oda, Akira Honda, Masahiro Shibata, Yasushi Yoshida Yui Mikazu: Development of Thermodynamic Database for Hyperalkaline, Argillaceous Systems (Research Document), JNC TN8400 2005-010(2005).