

# 放射性廃棄物処分環境におけるセメント 硬化体の化学的変質評価

- セメント鉱物の溶解沈殿による物質移行特性変化を考慮した改良型化学平衡-物質移行連成解析コードの開発 -

## 背景

放射性廃棄物処分において廃棄物の固化媒体、処分場の構造材、廃棄体間の充填材として使用されるセメント系材料は、地下処分環境において地下水との接触により長期にわたり化学的に変質する。しかしながら長期にわたる変質データを直接取得することは不可能なため、性能評価では、セメント系材料に生じる化学反応をモデル化し、地下水による物質移行と連成した計算により長期変質を予測評価することとなる。そこで当所では、セメント系材料を構成する水和鉱物に特有の化学反応モデル<sup>(1)</sup>とコンパートメント間の移行を表現した簡易な物質移行モデルを連成した解析コード<sup>(2)</sup>を開発した。一方で、セメント硬化体中で構成元素の溶脱や二次鉱物の沈殿が起こると、溶脱による変質の進行が影響されることを示す実験結果も得られている<sup>(3)</sup>。これは、固体内部の空隙率の空間的な分布が生じ、その結果として拡散係数などの物質移行係数にも空間分布が生じる可能性を示すもので、長期変質予測評価でこのような現象を詳細に考慮するためには解析コードの物質移行モデルを改良する必要がある。

## 目的

鉱物の溶解沈殿に伴う固相内の空間的な物質移行係数の不均質な分布を再現するモデルの組み込みにより、化学平衡-物質移行連成解析コードを改良する。

## 主な成果

### (1) 改良型化学平衡-物質移行連成解析コードの開発

セメント硬化体中の溶解/沈殿による鉱物量の増減から空隙率を算出し、これを拡散係数と遅延係数の変化に反映させたモデルを構築した。このモデルを組み込むと同時に、移流拡散/分散型の微分方程式の数値解を得るという手法を採用することによって、物質移行計算部を改良した。これにより、空間的な不均質性を生じた場合の変質挙動を現象に即して記述することが可能となった。

### (2) セメント硬化体変質データとの比較による解析コードの検証と現象の考察

改良コードによる解析結果は、セメント硬化体試料をイオン交換水、重炭酸ナトリウム( $\text{NaHCO}_3$ )溶液中に長期間浸漬した場合の変質挙動の違いを再現し、コードの妥当性が示された(図(a)、(b))。また本コードの解析から、イオン交換水に浸漬した試料の表面近傍でカルシウム(Ca)濃度が低下して生成する変質層では空隙率の増大に伴い物質移行が促進されることと、 $\text{NaHCO}_3$ 溶液中に浸漬した場合の溶脱抑制は固相から溶脱したCaが再び炭酸カルシウム( $\text{CaCO}_3$ )となり沈殿して固相空隙が閉塞してその領域の拡散係数が低下することが一因であることが示された。

## 今後の展開

二次鉱物の沈殿によるセメント硬化体表面の化学反応の変化などに関してより詳細な機構解明とモデル化を実施し、定量的な予測性能をさらに向上する。

- (1) 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(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 -、電力中央研究所研究報告、T01007、2001.
- (2) 藤田智成、杉山大輔、塚本政樹: TRU 廃棄物処分環境におけるセメント系水和物の化学的変質評価(その3) - カルシウムシリケート水和物の非調和溶解モデルを考慮した化学平衡-物質輸送連成計算コードの開発 -、電力中央研究所研究報告、T02003、2002.
- (3) 蔵重勲、廣永道彦、関口陽、庭瀬一仁: 地下水含有成分がセメント硬化体の溶脱に及ぼす影響(4) - 重炭酸イオンによる溶脱抑制現象のメカニズム -、土木学会第 61 回年次学術講演会講演概要集、pp.289-290.

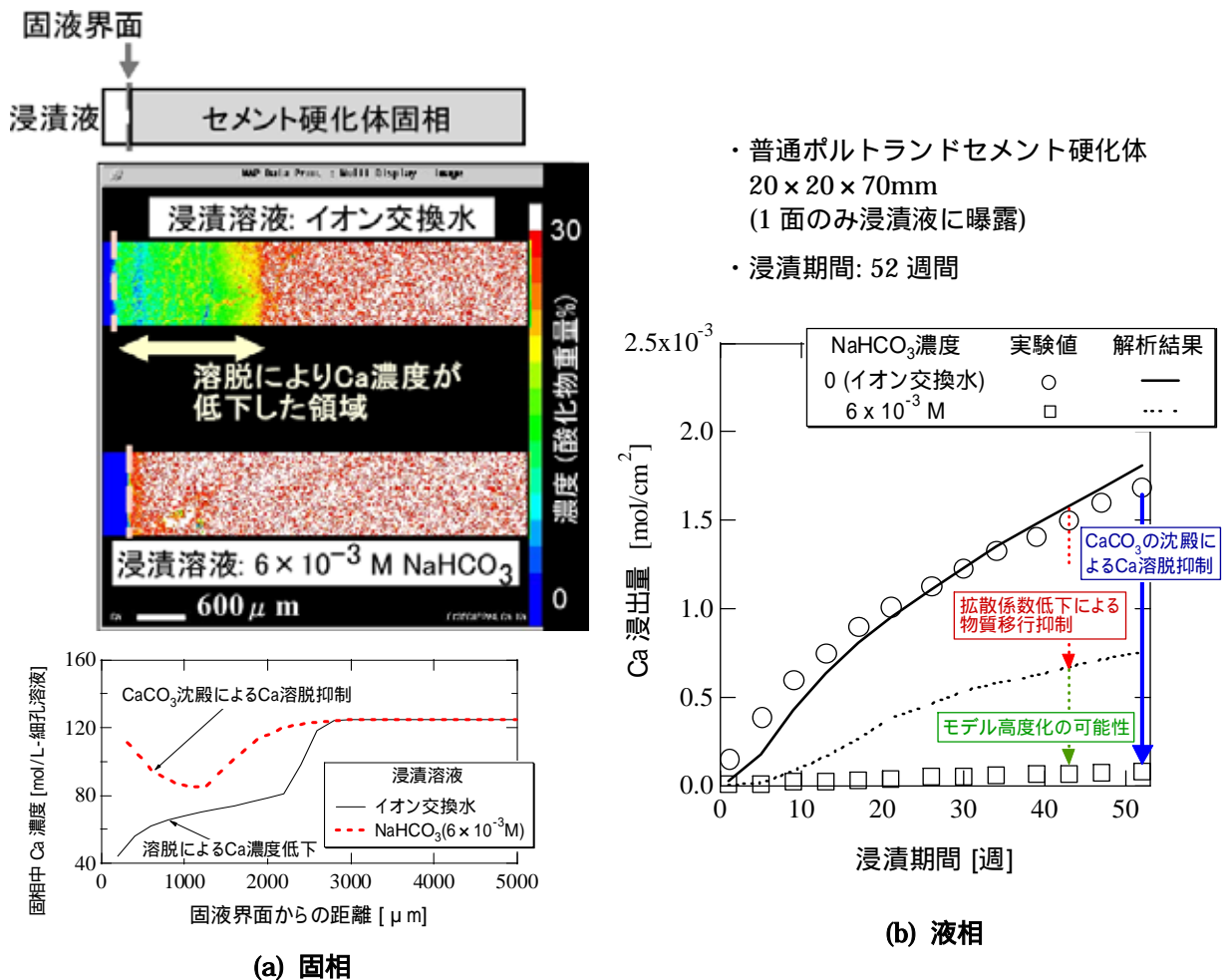


図. 拡散によるセメント硬化体の変質挙動とモデル解析結果

研究報告 L06003	キーワード: 放射性廃棄物処分、性能評価、セメント硬化体、化学平衡-物質移行連成解析コード、非調和溶解モデル
担当者	杉山 大輔 (原子力技術研究所・放射線安全領域)
連絡先	(財)電力中央研究所 原子力技術研究所 Tel. 03-3480-2111(代) E-mail: ntrl-rr-ml@criepi.denken.or.jp