

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 5 月 24 日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2013～2015

課題番号：25630425

研究課題名(和文)再冠水過程のダイナミクスに基づく地層処分システムのコンパクト化

研究課題名(英文) Compactification of geological disposal system based on dynamics of groundwater saturation processes

研究代表者

新堀 雄一 (Niibori, Yuichi)

東北大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：90180562

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、地層処分システムのコンパクト化を目的として、マイクロフローセルや充填層を用い、また、セメントの溶出による高アルカリ地下水の存在をも想定し、再冠水過程の特徴を整理した。その結果、再冠水過程は、液相への気相の物質移動速度ではなく、液相側に溶け込むガス成分の拡散や地下水流による液相自体の置換に大きく依存することが明らかになった。また、残留している気相を考慮した地下水流速の分布を設定し、地層処分のガラス固化体1本当たりの必要面積を数値解析により求め、地層処分の占有面積が従来の設定されている面積より1割程度小さくなる場合を示すとともに、今後の課題を整理した。

研究成果の概要(英文)：This study examined the groundwater saturation processes, in order to compact the geological disposal system, by using the micro-flow cell and the packed bed. Here, high alkaline groundwater due to cement utilization was also considered. As the result, the saturation processes depended on not the mass transfer rate of gas component from gas phase to liquid phase but the diffusion of dissolved gas in groundwater and/or the mixing of the groundwater itself. Besides, considering the permeability distribution due to residual gas, this study calculated the underground area required for the disposal of vitrified radioactive waste, by using a numerical model. The results suggested a compacted case 10% smaller than the area of the present design. Furthermore, the future issues were also discussed.

研究分野：工学

キーワード：地層処分 放射性廃棄物 原子力エネルギー 不飽和帯 冠水過程

### 1. 研究開始当初の背景

従来の不飽和帯の解析手法は、比較的浅い土壌において空気相が抜ける経路の存在を前提に、水相のみを拡散によって表すか、空気相と地下水相の二相流を考慮して、地下水の流動に伴って空気相が全体的に下流に押し出される事象を想定している。一方、処分場では、操業および管理期間中の通気により地下水により満たされない不飽和帯が一時的に形成され、その周囲には流速の小さい地下水が存在している。その再冠水過程は、上述のメカニズムとは異なり、主に地下水相への空気相の溶存にも支配される。また、ここでは廃棄体からの発熱やその経時変化、さらに地温勾配も考慮する必要がある。これらの再冠水過程のダイナミクスはこれまで学術的に全く解明されていない。

### 2. 研究の目的

処分場の建設および管理には100年程度の通気がなされ、地下水によって満たされない不飽和帯が処分場周辺に形成される。処分場が埋め戻された後に不飽和帯は次第に周囲の地下水によって飽和していくが、この現象は気相の逃げる通路がないために、地下水への気相の溶存によって飽和(冠水)が主に進行する。

本研究では、この現象を再冠水過程のダイナミクスと呼称し、その学術的構築を行うとともに、それらを考慮することにより、これまで以上の多くの廃棄体が限られた処分面積に定置できるか否かを検討し、処分場面積の最小化を図ることを目的とする。

### 3. 研究の方法

本研究では、不均質な流路を持つ地下媒体における空気相の溶存過程を室内実験により検討し、そのモデル化を行う。その際、不飽和帯における地下水の流路の形成過程とその後の冠水過程、固相存在下における液相への気相の溶存速度(固相のない状態との違い)およびその温度依存性に着目する。さらに、放射性廃棄物の発熱を考慮するために、熱移動と冠水過程との連成化を行う。これにより、冠水までの期間における処分システムの廃棄体間隔と最大温度との関係を求め、地層処分システムのコンパクト化(廃棄体の高密度化)が可能であることを検討する。これらを進めるにあたり、次の5つの課題を設定する。

課題1として「室温環境下における冠水過程の評価」を行う。ここでは、亀裂表面の同定、不飽和帯における水の流路の形成過程、気液界面の変化、液相への気体の溶存過程の評価およびこれらの過程のモデル化を行う。また、課題2として「高温環境下における冠水過程の評価」を行う。そして、以上の結果を、課題3として「非等温環境下における冠水過程の評価」に発展させ、放射性廃棄物の発熱量の変化を考慮した熱移動を伴う場

に対応した再冠水過程のダイナミクスを明らかにする。更に、この機構解明を利用して、課題4として「処分システムにおける冠水に要する期間の算出」の手法を検討するとともに、課題5として「再冠水の期間を考慮した廃棄体間隔の算出」を行い、処分場における廃棄体の高密度化の可能性を示す。

### 4. 研究成果

#### (1) 課題1: 室温環境下における冠水過程の評価

本課題について得られた知見をまとめる。

亀裂表面の同定: 花崗岩試料(非研磨試料、鏡面研磨試料)を用いてその表面の起伏を原子間力顕微鏡(AFM)により定量化した。その結果、図1に示すように非研磨の場合4 $\mu\text{m}$ 程度の起伏が存在した。これに対し、研磨した場合、その起伏は0.5 $\mu\text{m}$ 未満であった。しかし、最も低い高さを基準として単位体積あたりの表面積(比表面積)として評価すると前者は後者に比較して大きいもののその差は無視できるほど小さい。それは起伏による高低差の絶対値が表面積に比較して小さいことに起因する。

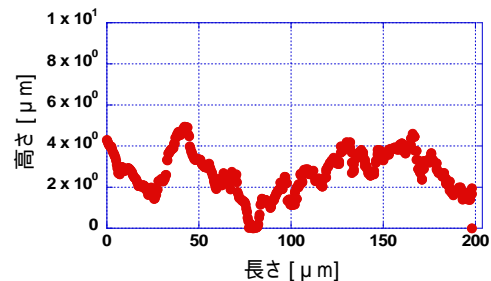


図1 原子間力顕微鏡による非研磨花崗岩試料の表面高さ

不飽和帯における水の流路の形成過程のモデル化: 図2に流動系実験装置(マイクロフローセル装置)を示す。本研究ではこの装置により水路の形成過程を調査した。この装置は、前述の岩石試料にテフロンシートを挟み、0.1 mm未満の亀裂幅の流路を再現できる。本研究では、地下水が処分場の建設に用いられるセメントにより高アルカリ化( $\text{pH} > 12$ )していることを想定して、連続的に高アルカリ水溶液(淡水系模擬地下水および海水系模擬地下水)を所定流量により供給し、出口までの液相の破過現象および流路表面への析出現象を、圧力変化および液の化学分析により追跡した。その結果、流路には析出物が観察され、連続的に析出物が系外に流出することおよびその流出に表面の起伏が影響することが見かけの析出速度を左右することが明らかになった。

図4にエネルギー分散型蛍光X線分析装置(EDX)により確認した花崗岩表面の元素分布を示す。ここで、各色が濃い方が、各々の元素の存在量大きいことを示す。SEMにより石英が図3(b)の右上(Siの図)に示すように存在する。一方、図3(b)のCa分布において、

石英の場所には Ca は相対的に少なく、析出が少ないことが分かる。pH が 11.5 以上で Ca および Si 系での最も安定な物質はカルシウムシリケート水和物であり、その存在と、Si (ケイ素) の花崗岩からの供給は主に石英からであることが確認された。

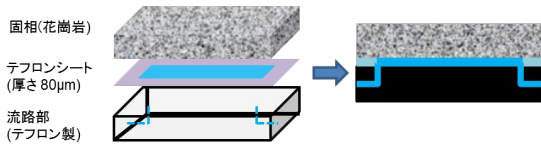
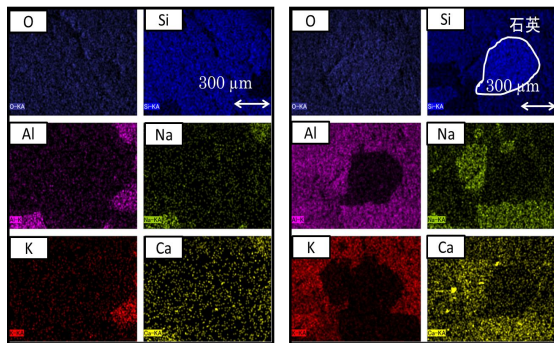


図 2 マイクロフローセルの概要図



(a)実験前 (b)実験後

図 3 花崗岩表面のエネルギー分散型蛍光 X 線分析装置(EDX)による 2 次元元素マップ

固相存在下における脱気水への空気の溶存速度の評価：固相存在下における空気の溶存速度を、鏡面研磨試料を用いて求め、固相のない場合との比較を行った。その結果、見かけの溶存速度は、気液界面の形成(濡れ性)に依存するものの、単位界面面積あたりの溶存速度はほぼ統一的に表されることが確認できた。

室温環境下における不飽和帯の冠水過程のモデル化：以上の結果を基に、等温環境下における不飽和帯の冠水過程のモデル化を溶存速度および液相内の溶存ガスの拡散過程を考慮して行い、実験結果をおおよそ再現できることを確認した。

カラム充填層とマイクロフローセルとの比較：比較のために高アルカリ水によるカラム実験を実施した。その結果、カラムの充填粒子の溶解は顕著であり、図 4 に示すような粒子内部に存在する間隙(2次間隙)に大きく依存することが明らかになった。ここでは、図 4 の右上に示すように、充填粒子 1 つの任意の表面を見ている。流体は主に充填粒子間の間隙(1次間隙)を利用して移動する。しかし、表面積については、2次間隙の存在による表面積が、充填粒子径から得られる見かけの表面積より圧倒的に大きく、溶解挙動に大きく関与する。このような挙動は、マイクロフローセルを用いた花崗岩の変質挙動では見られなかったが、亀裂ではなく、多孔質媒体とみなせる場合、不飽和状態を考える上で

も 2 次間隙の存在が、気相の残留に大きく関与することが示唆される。

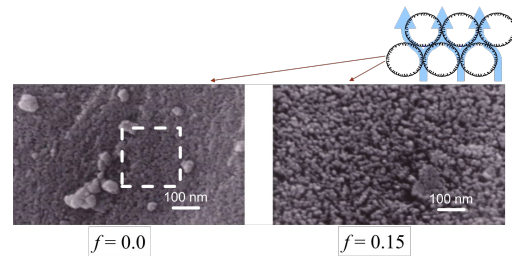


図 4 充填粒子(アモルファスシリカ)の溶解に伴う粒子表面の変化(二次間隙の存在が溶解に従って顕著となる。ここで  $f$  は溶解分率(-)であり、1 のとき完全に溶解する。)

## (2) 課題 2: 高温環境下における冠水過程の評価

高温環境下(室温以上の 100 未満を想定)の流動実験を、マイクロフローセル装置を利用し、所定温度に設定しながら Ca 含有高アルカリ水の冠水過程を追跡した。この装置より、出口までの液相の破過現象および流路表面への析出現象を、圧力変化および液の化学分析により追跡した。その結果、固相表面への析出物の生成は、温度が高くなるほど顕著になり、浸透率の変化からみかけの析出速度定数を評価したところ 275 K から 313 K の温度範囲において、0.6 mm/s から 3.0 mm/s であった(この値は固相の比表面積およびカルシウム濃度を掛けることにより析出速度となる)。さらに、そのみかけの活性化エネルギーは 32.0 kJ/mol であった。この値は、前述に流路からケイ酸を供給する主要な鉱物として挙げた石英の溶解速度の活性化エネルギー 45.5 kJ/mol よりやや小さい値であった。この原因は、析出挙動において物質移動を無視することはできず、若干でも析出物が系外に流出していることにある。このことは課題 1 において流量を上げた実験の結果とも矛盾しない。

なお、析出速度定数  $k_R$ (m/s) は浸透性の次式によって求めた。

$$\int_0^t s k_R c dt = \rho_s s (b_0 - b_t)$$

ここで、 $s$  は表面積( $m^2$ )、 $c$  はカルシウムイオン濃度( $mol/m^3$ )、 $b$  は有効亀裂幅(m)、 $\rho_s$  は析出物の密度( $mol/m^3$ )、 $t$  は時間(s)、そして添え字の 0 および  $t$  は初期および着目する時間を示す。実験により浸透率  $k(m^2)$  が分かり、 $k=b^2/12$  から有効亀裂幅を得る。 $\rho_s$  は析出した水和物(カルシウムシリケート水和物)を想定すると水の密度よりやや大きい程度である。本研究では、析出速度定数  $k_R$  を算定するにあたり水の密度を与えた。この値については今後さらに検討を要する。なお、この値を小さく見積もることは、上式からもわかるように亀裂幅の変化を大きく見積もることに繋がる。また、カルシウムは、析出によ

って消費されるものの、流入口と出口ではほぼ等しいことを確認できたことから、流入濃度が流路において一様であるとした。その場合、図5のような時間に対する亀裂幅の減少（傾き）から析出速度定数  $k_R$  を求めることができる。

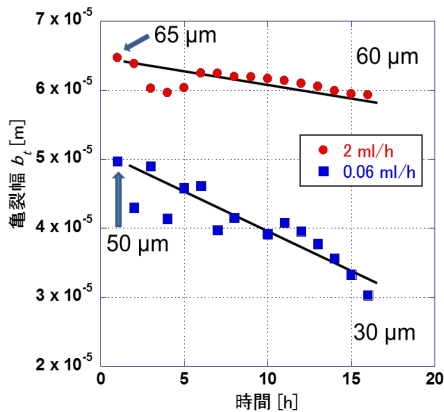


図5 マイクロフローセルにおける有効亀裂幅の変化

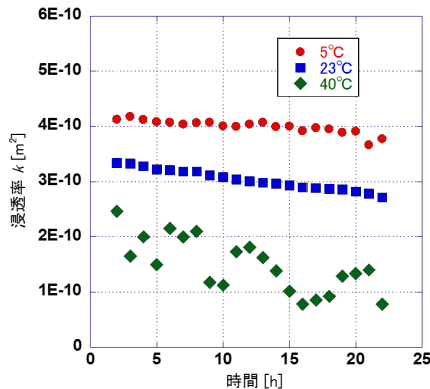


図6 マイクロフローセルにおける浸透率変化の温度依存性

なお、図6はマイクロフローセルにおける浸透率変化の温度依存性であり、前述のように有効亀裂幅に変換し、その時間に対する傾きから見かけの速度定数を求めて、算出している。具体的な値は前述の通りであり、そのアレニウスプロットから見かけの活性化エネルギーが得られる。但し、この浸透性の低下が空間的に処分場周辺にどの程度まで広がるかについては、今後更なる検討を要する。

### (3) 課題 3 非等温環境下における冠水過程の評価

気体の溶存速度をカラムおよびマイクロフローセルにより整理したところ、溶存した気相の液相中における拡散過程がみかけの溶存速度を律速していることが示唆された。そこで、溶存気相の液相側における拡散過程およびその環境温度を考慮した冠水過程のモデル化を行った。そのモデルは1次元の拡散モデルと気相と液相との二重境膜を仮定した界面からの着目気相の液相への溶存を考慮するもので、実験結果からみかけの拡散

係数の値を評価したところ、固相がない場合の文献値に比較して2桁大きい値となった。これは、毛管力による界面形成が固相により複雑となり、溶存界面の面積が増加することに起因すると考えられる。以上を踏まえ、気相の溶解度および拡散挙動の温度依存性を考慮した固相共存下における気相成分の溶存・移行モデルを構築するとともに、地下水が静止している場合、非等温環境においても冠水過程は溶存ガスの液相内の拡散係数により支配されることが明らかになった。

### (4) 課題 4 処分システムにおける再冠水に要する期間の算出

図7にカラム実験において重量法から求めた飽和率の回復挙動（不飽和状態から冠水状態への移行挙動）の例を示す。ここで重量法とは、カラムの総重量の変化から、間隙率(1次間隙)に液相が存在し得るとして、飽和率を算出している。この図から分かるように、流れによって飽和率は上昇するが完全な飽和状態には長い時間を要することが分かる。これは、残留した気相は、流体への溶存によって取り除かれることを示唆する。

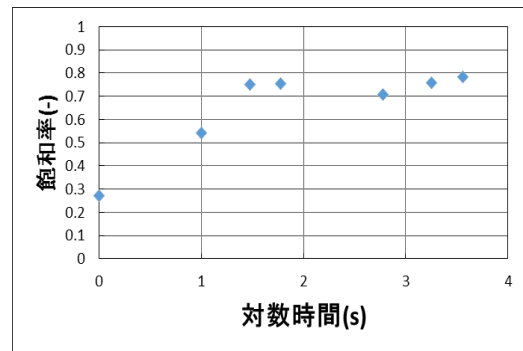


図7 カラム試験における飽和率の回復挙動の一例

初期不飽和帯の体積（掘削影響領域の大きさと関連すると仮定）や、サイトの浸透性に対する不確実性を含むものの、前述のように冠水までに要する期間は溶存ガスの液相内の拡散係数により支配される。このことは、地下水流動が伴う場合、不飽和体における気液界面において、気体の溶存速度自体は律速せず、ガスを溶存した液相の入れ替えが冠水時間を左右することを意味する。

一般に、気相の存在による液相の流れへの阻害効果は、浸透率  $k(m^2)$  の補正係数である相対浸透率  $k_r$  (0から1の区間にその値があり、単位は無次元である) を用いて表す。液相の有効浸透率を  $k_e$  は  $k_r k$  となり、これを液相のダルシー流速の浸透率として用いる。ここで相対浸透率  $k_r$  は水の飽和率  $S_w$  (この値も相対浸透率と同様に0から1の区間にその値があり、単位は無次元) の関数として表される。

図8は相対浸透率 (g: 気相, w: 液相) と飽和率との関係を示した例である。ここで飽和率とは単位間隙体積あたりの着目する相

の体積により表され、図8の横軸は液相の飽和率を採っている。また、図中の実線はその飽和率が局所的にも一様でなく、分布がある場合の相対浸透率の上限と下限を、均一の場合  $k_{rw}=S_w^4$ ,  $k_{rg}=(1-S_w^2)(1-S_w)^2$  を仮定して求めたものである。これらの相対浸透率曲線は Corey の 式と呼ばれる半実験式であり、しばしば用いられる。実験値は、飽和率の4乗にほぼ従い、そのばらつきは飽和率の局所的な分布に依存することが示唆される。すなわち、地下水流速に不飽和な状態は大きく効き、液相側に溶け込んだ溶存ガスの入れ替えの速度に強く影響を及ぼす。その極端な状態が、 $S_w=0$  の地下水の静止と  $S_w=1$  の地下水の流速であり、後者はその絶対値が問題になる。

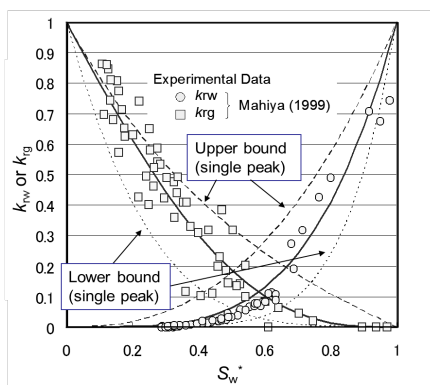


図8 相対浸透率と飽和率との関係の例<sup>1)</sup>

以上を整理すると、ガスを溶存した液相の入れ替えが冠水時間を左右すること、また、不飽和層では地下水の流動が阻害されることから、再冠水に要する期間の算出は不飽和帯を伴う地下水の有効浸透性の空間的分布(地下水の滞留時間)に依存する。本研究では、この知見を次の課題5に反映させる。

(5) 課題5 再冠水の期間を考慮した廃棄体間隔の算出

課題1から課題4までの知見および高レベル放射性廃棄物(ガラス固化体)の発熱量の変化に伴う処分場周辺の温度推移(従来の計算結果)を基に、地下水流を無視した場合(課題2において析出によって地下水流が制限された場合に相当)および、これまでの性能評価において設定された最大の地下水流速を考慮した場合のそれぞれにおいて、埋め戻し領域における不飽和帯を考慮して処分場における廃棄体1体あたりの必要面積を評価した。その結果、前者は32 m<sup>2</sup>/本、後者は20 m<sup>2</sup>/本と算出された。ここで「/本」とはガラス固化体1本あたりを意味する。後者は従来の値より1割小さい。この算出の精度を上げるためには、さらに不飽和層における緩衝材のイライ化速度の評価が重要になる。

図9にその計算体系を示す。ここではH12レポート<sup>2)</sup>および神代ら<sup>3)</sup>を参照し、岩盤等の物性値を定めるとともに、埋め戻し領域の厚みを5 mとした。また、地下水流速も同レ

ポートで検討している最大値50 m/yと、完全に動いていない場合(0 m/y)を基本とした。不飽和層は埋め戻し領域に広がっており、ここでは  $S_w=0$  とする。この仮定の妥当性については改めて後述する。

一方、緩衝材の水の飽和率は1.0とし、浸透率に分布を与えて、岩盤と緩衝材との違いを近似した。処分場の面積は、周辺温度が100を超えないことを制約条件とする。そのためには、熱収支の方程式を、流動場において解く必要がある。本研究では神代ら(2011)<sup>3)</sup>が開発した有限要素法によるコード(ガラーキン法による)を用いた。なお、温度差による浮力の効果は Boussinesq 近似を使用して表した。

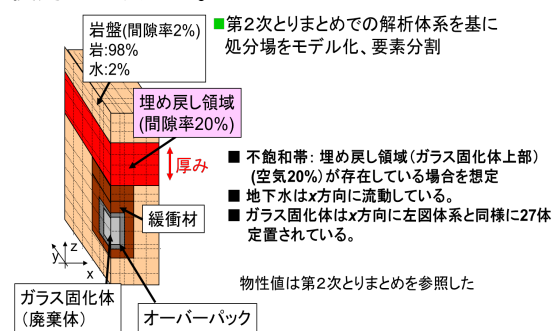


図9 参照した計算体系の概要<sup>2,3)</sup>

熱収支式は次の通りである。

$$(\rho c)_e \frac{dH}{dt} = \frac{\partial}{\partial x} \left( \lambda_e \frac{\partial H}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left( \lambda_e \frac{\partial H}{\partial y} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left( \lambda_e \frac{\partial H}{\partial z} \right) - (\rho c)_i \left\{ u_x \frac{\partial H}{\partial x} + u_y \frac{\partial H}{\partial y} + u_z \frac{\partial H}{\partial z} \right\}$$

ここで、 $(\rho c)$  は密度と比熱を掛けた熱容量 (J/(m<sup>3</sup>・K)) を示す。添え字 e は固相と流体(液相または気相)との共存を考慮した有効値を意味する。また、添え字 i は各相を指す。有効熱伝導率 (W/(m・K)),  $H$  は温度 (K),  $u$  は地下水流速であり、流体を非圧縮と仮定した連続の式にダルシー則を代入して得られる圧力分布を基に算出する。ただし、不飽和帯、緩衝材および岩盤では異なる有効浸透率(飽和率を考慮)を与え、飽和帯と不飽和帯が共存する系における熱移動を計算した。一方、境界条件として上流から  $x$  方向に地下水が流れることを想定した。 $x$  方向には図9のような廃棄体が27本並び、地下水の温度が多くて廃棄体を横切るほど上昇することを考慮した。 $y$  および  $z$  方向には断熱境界を設定し、このような体系が  $y$  方向にも設置される(廃棄体の埋設がある)ことを想定している。 $z$  方向の距離は、温度の最大値が変化しないほど十分に大きく設置した。なお、廃棄体の処分時発熱量は350 Wと設定し、核種崩壊によってその発熱量が減衰することを考慮した。

計算の結果は前述のようにガラス固化体1本あたりの必要な面積は、地下水流速によって20 m<sup>2</sup>/本から32 m<sup>2</sup>/本の間であり、不飽和

帯の断熱効果により、地下水流速によっては、従来に比較して広い面積を必要とする場合もある。なお、計算結果から最大温度の到達は廃棄体を定置後 10 年から 20 年後の間にあり、この時点では換気が行われていることから、本研究では埋め戻し領域における  $S_w$  を 0 とした。これは熱移動の観点からも除熱が最も進まない保守的な仮定になる。

今後、さらに処分場のコンパクト化の詳細を進めるためには、不飽和帯を含む地下水流動場において、緩衝材へのカリウムの供給速度、温度および緩衝材の変質速度（イライト化速度）について併せて評価する必要がある。

#### <引用文献>

Y.Niibori, J. Ahn, and H. Mimura, Uncertainty of relative permeability to describe two-phase flow in geological disposal system, Nuclear Technology, **175**, 641-651 (2011).

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, JNC TN1400 99-020 (1999).

神代洋明, 新堀雄一, 岩崎智彦, HLW 処分面積に及ぼす不飽和帯および地下水熱対流の影響, 日本原子力学会春の年会講演要旨 CD-ROM (2011).

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者, 研究分担者及び連携研究者には下線)

#### [雑誌論文](計 4 件)

Yuichi Niibori, Hideo Usui, Taiji Chida, Double porosity model to describe both permeability change and dissolution processes, Mechanical Engineering Journal, 査読有, **2**(5), 2015, 1-11.

DOI: 10.1299/mej.15-00210

Takenori Ozutsumi, Yuichi Niibori, Taiji Chida, Migration Rates of Some Cations in Unsaturated Layer around the Near-Surface Disposal Facilities of Radioactive Wastes, Proceedings of WM2016 (HLW, TRU, LLW/ILW, Mixed, Hazardous Wastes & Environmental Management), 査読有, Paper No.16116, 2016, 1-8.

Taiji Chida, Daiki Kurata, Yuichi Niibori, Hitoshi Mimura, Influences of Temperature on Permeability Changes of Flow-paths Altered by Highly Alkaline Ca-rich Groundwater, Proceedings of WM2015 (HLW, TRU, LLW/ILW, Mixed, Hazardous Wastes & Environmental Management), 査読有, Paper No. 15192, 2015, 1-7.

Daiki Kurata, Taiji Chida, Yuichi

Niibori, Hitoshi Mimura, Estimation of Permeability Changes due to Contact with Highly Alkaline Ca-rich Solution by Micro Flow-Cell of Granite Chip, Proceedings of WM2014 (HLW, TRU, LLW/ILW, Mixed, Hazardous Wastes & Environmental Management), 査読有, Paper No.14094, 2014, 1-9.

#### [学会発表](計 5 件)

小堤健紀, 新堀雄一, 千田太詩, カラム充填層を用いた地下水不飽和帯における核種遅延効果の評価, 日本原子力学会秋の大会, 2015 年 9 月 9 日, 静岡大学(静岡県静岡市)

根本 匠, 小堤健紀, 千田太詩, 新堀雄一, カラム充填層を用いた再冠水に伴う不飽和条件流動場における物質移動の評価, 日本原子力学会秋の大会, 2015 年 9 月 9 日, 静岡大学(静岡県静岡市)

小堤健紀, 新堀雄一, 千田太詩, 不飽和層を伴う浅地中貯蔵および処分システムにおけるセシウム等陽イオンの移行速度, 日本原子力学会バックエンド部会第 31 回バックエンド夏季セミナー, 2015 年 8 月 5 日, 道北経済センタービル(北海道旭川市)

小堤健紀, 新堀雄一, 千田太詩, 三村 均, 地下水のよって飽和されていない条件における遅延効果の変化, 日本原子力学会秋の大会 2014 年 9 月 10 日, 京都大学(京都府京都市)

倉田大輝, 千田太詩, 新堀雄一, 三村 均, 水酸化カルシウム水溶液流動場における花崗岩表表面の変質過程の評価, 日本原子力学会バックエンド部会第 29 回バックエンド夏季セミナー, 2013 年 8 月 7 日, コラッセふくしま(福島県福島市)

#### [図書](計 0 件)

#### [産業財産権]

出願状況(計 0 件)

取得状況(計 0 件)

#### [その他]

ホームページ等

<http://db.tohoku.ac.jp/whois/detail/a0f21740a16e2fd1eeab1f9ef0b882de.html>

#### 6. 研究組織

##### (1) 研究代表者

新堀 雄一 (NIIBORI YUICHI)

東北大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号: 90180562

##### (2) 研究分担者

千田 太詩 (CHIDA TAIJI)

東北大学・大学院工学研究科・助教

研究者番号: 30415880