

圧力溶解現象を考慮した珪藻質岩石の透水性評価

安原 英明^{1*}・操上 広志²・木下 尚樹¹・岸田 潔³

¹愛媛大学大学院 生産環境工学専攻 (〒790-8577 愛媛県松山市文京町3番)

²日本原子力研究開発機構 地層処分研究開発部門 (〒098-3207 北海道天塩郡幌延町宮園町1番地8)

³京都大学大学院 都市社会工学専攻 (〒615-8530 京都府京都市西京区京都大学桂)

*E-mail: hide@dpc.ehime-u.ac.jp

高レベル放射性廃棄物処分坑道近傍では、廃棄体からの発熱により化学作用が活発化し、岩盤の力学・水理学特性に大きな影響を及ぼすことが考えられる。本報告では、圧力溶解現象を考慮した概念モデルを用いて、熱・水・応力下における化学作用を定量化し、珪藻質岩石の透水性評価を行った。特に、珪藻質岩石の構成主要素である石英、クリストバライト、アモルファスシリカの溶解特性に着目し、深地層下における圧力、廃棄体からの発熱作用を考慮し、透水特性の変化を定量的に評価した。その結果、90°C以下の温度条件下でも時間と共に透水性が低くなる傾向が得られた。また、クリストバライト、アモルファスシリカを多く有する珪藻質岩石は、石英系岩石よりも透水性の変化がより顕著となることが確認された。

Key Words : nuclear waste repository, pressure solution, permeability, dissolution

1. はじめに

高レベル放射性廃棄物の地層処分を考える上で、天然バリアとなる処分空洞周辺の岩盤の力学・水理学特性の変化を長期的に予測評価することは非常に重要である。処分空洞近傍では廃棄体からの発熱により化学作用が卓越し、岩盤の力学・水理学特性に大きな影響を及ぼすことが予想されるが、その影響を精度よく評価することは容易でない。例えば力学・水理特性の近い岩盤に対して、同じ応力・温度を作用させたとしても、岩盤を構成する岩石の化学組成、間隙水の化学的性質（塩分濃度、pH、Eh等）などの違いにより、結果として現れる変化（間隙率・透水性の増減、岩石の変形性・強度の増減等）は各々違った値を示すであろう。

本研究では、圧力溶解現象を考慮した概念モデルを用いることにより、温度および応力を介した化学作用による岩石の透水特性の経時変化を定量的に評価する。特に、珪藻質岩石を対象とし、構成主要素である石英、クリストバライト、アモルファスシリカの溶解特性に着目し、解析的検討を行う。なお、石英はpHおよび塩分濃度の増加とともに溶解速度も増加することが知られているが¹⁾、本研究では、間隙水として中性 (pH=7) の真水を想定して解析を行う。

2. 圧力溶解を考慮した概念モデル

圧力溶解現象²⁾³⁾⁴⁾を考慮した多孔質体の圧縮過程を表現する概念モデルの構築を行った⁵⁾。本解析モデルは、圧力溶解現象の主プロセスである、1) 岩石構成粒子間の接触面における溶解現象、2) 接触面から間隙への溶解物質の拡散、3) 間隙自由表面への沈殿現象を定量的に評価することができる。粒子間接触面では、応力集中により粒子表面が溶出する。溶出された物質は、接触面から拡散作用により粒子間の間隙内へと移動する。最終的に間隙水内物質の過飽和により間隙表面 (=接触面以外) へ再沈殿が起こる (図-1)。この一連の微視的プロセスを定量的に評価することにより巨視的な圧縮挙動 (間隙率あるいは透水性変化) を表現することが可能である。

溶解、拡散、沈殿の一連の過程は、質量フラックスを用いることにより、次式で表される⁵⁾。

$$\frac{dM_{diss}}{dt} = \frac{3\pi V_m^2 (\sigma_a - \sigma_c) k_+ \rho_g d_c^2}{4RT} \quad (1)$$

$$\frac{dM_{diff}}{dt} = \frac{2\pi\omega D_b}{\ln(d_c/2a)} (C_{int} - C_{pore}) \quad (2)$$

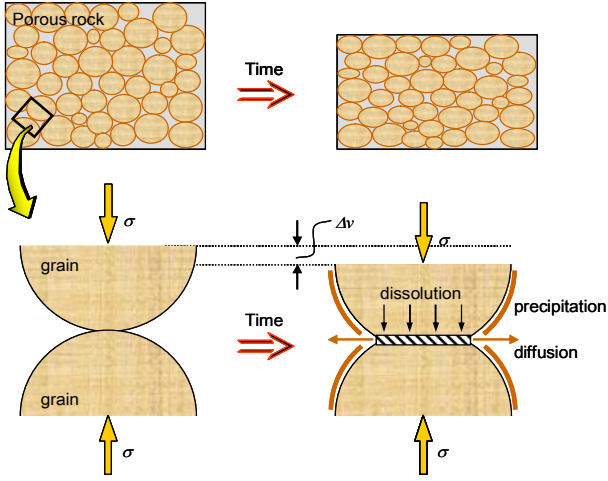


図-1 圧力溶解現象の模式図

$$\frac{dM_{prec}}{dt} = V_p \frac{A}{M} k_- (C_{pore} - C_{eq}) \quad (3)$$

ここで、 dM/dt : 質量フラックス (*diss*: 溶解, *diff*: 拡散, *prec*: 沈殿), V_m : モル体積, σ_a : 接触部応力, σ_c : 臨界応力, $k_{+/-}$: 溶解沈殿速度定数, ρ_g : 固体密度, d_c : 接触部直径, R : ガス定数, T : 絶対温度, D_b : 拡散係数, ω : 拡散膜幅, $C_{int/pore}$: 接触面内/間隙内溶質濃度, V_p : 間隙体積, A : 粒子表面積, M : 間隙水質量, C_{eq} : 溶解度である。接触部応力は、巨視的な作用応力より算定される⁶⁾。また、溶解・沈殿速度定数, 拡散係数は、作用温度に左右され、Arrheniusタイプの関数で表される⁴⁾。つまり、圧力溶解速度は、温度上昇とともに指数関数的に増大する。

式(1)-(3)を連続的に解くためには、粒子間接触部および間隙内の物質濃度経時変化を求める必要がある。接触部および間隙内物質濃度は、接触部における物質の溶解・拡散速度, 間隙内の沈殿速度に支配されるため、すべての影響を包括的に考慮し評価しなければならない。そこで、間隙を2分割し、それぞれの要素が拡散および沈殿のみに支配されると仮定し(図-2)、接触部および間隙内物質濃度変化を以下の式で表した⁵⁾。

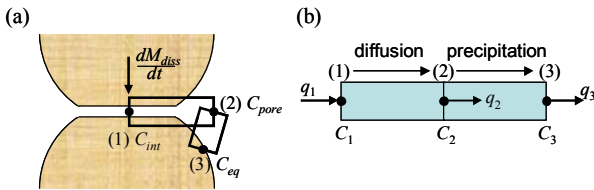


図-2 解析モデルにおける要素分割方法

$$\begin{cases} C_{int} \\ C_{pore} \end{cases}_{t+\Delta t} = \begin{bmatrix} D_1 + V_p / 4\Delta t & -D_1 \\ -D_1 & D_1 + D_2 + V_p / 2\Delta t \end{bmatrix}^{-1} \cdot \left[\begin{cases} dM_{diss} / dt \\ D^2 C_{eq} \end{cases}_{t+\Delta t} + \frac{1}{4\Delta t} \begin{bmatrix} V_p & 0 \\ 0 & 2V_p \end{bmatrix} \begin{cases} C_{int} \\ C_{pore} \end{cases}_t \right] \quad (4)$$

ここで、

$$D_1 = \frac{2\pi\omega D_b}{\ln(d_c / 2a)}, \quad D_2 = V_p \frac{A}{M} k_- \quad (5)$$

閉じた系において、時間ステップ Δt 間の溶解, 拡散, 沈殿量は、式(1)-(3)より算出される。その結果、接触部における粒子間貫入(圧縮)および沈殿作用により、粒子の幾何学形状および間隙体積が変化する(詳細な幾何学モデルは、文献4)を参照)。変化後の間隙体積を用いることにより、新たな接触部および間隙内の物質濃度が算出される(式(4),(5))。この一連の手順(図-3)を各時間ステップで繰り返すことにより、応力, 温度条件に依存する間隙率, 物質濃度の経時変化を評価することが可能である。

本研究では、圧力溶解現象による透水性変化を定量評価するため、Carman-Kozeny式⁷⁾を用いて相対浸透率を算出した。初期浸透率からの変化率を表す相対浸透率は、以下の式で表される。

$$k_r = \frac{k(t)}{k_i} = \frac{(1-\phi_i)^2}{(1-\phi(t))^2} \left(\frac{\phi(t)}{\phi_i} \right)^3 \quad (6)$$

ここで、 k_r : 相対浸透率, k_i , ϕ_i : 初期浸透率, 間隙率である。

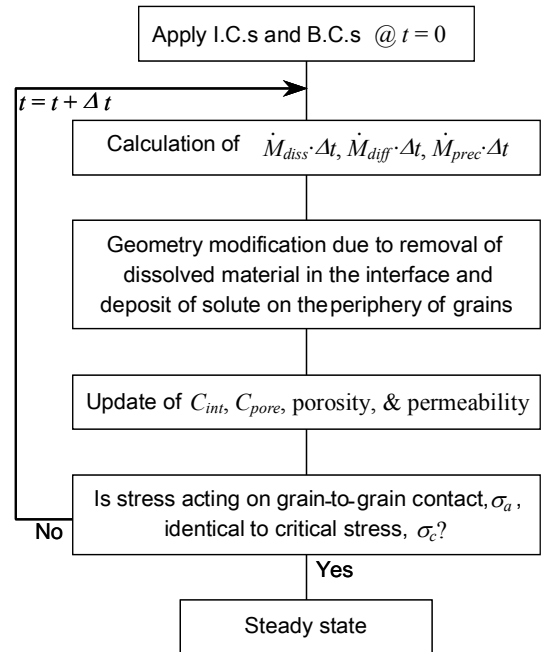


図-3 解析フロー

本概念モデルは、微視的な代表要素の挙動を巨視的なものへとアップスケールすることから、対象領域は等方・均質であると仮定する。また、本モデルは応力による骨格粒子の変形や破壊は考慮しておらず、Subcritical crack growth⁸⁾のような、より力学的なクリープ現象も考えていない。つまり、実際の変形挙動を過小評価している可能性もあるが、ここでは一次近似的に、圧力溶解の影響のみに着目し、透水性経時変化を評価する。

3. 解析結果

本解析モデルを用いて、石英、クリストバライト、アモルファスシリカを構成主要素とする珪藻質岩石の透水性を評価する。石英、クリストバライト、アモルファスシリカは同じ化学組成 (SiO_2) であるが、それぞれ生成過程が異なる。溶解性 (溶解速度・溶解度) は、石英、クリストバライト、アモルファスシリカの順に高くなる⁹⁾。

本研究では、作用圧力・温度の影響を検討するため、拘束条件は時間に依存せず一定として解析を行った。拘束圧力5, 10 MPaで温度20, 90 °Cの条件に対する相対浸透率の解析結果を図-4に、また、解析に用いたパラメータの一例を表-1に示す。図より明らかなように、温度が20 °Cの時は、拘束圧に関わらず、ほとんど透水性に変化は見られないが、90 °Cでは、拘束圧の高いほうがより透水性が低下する傾向が得られた。これは、圧力溶解現象がより進行し、圧縮および沈殿作用による間隙の減少が顕著となったためである。また、石英、クリストバライト、アモルファスシリカの順に透水性が低下することが確認された。つまり、石英、クリストバライト、アモルファスシリカを構成主要素とする珪藻質岩石の透水性は、それぞれの成分の含有割合によって、図に示された石英とアモルファスシリカに挟まれた領域内で変化すると予想される。

90 °Cにおける定常状態までの長期予測結果を図-5に示す。拘束圧が5および10 MPaの条件下では、最終的にそれぞれ60 %および1オーダー程度の透水性の低下が予測された。それ程大きな変化が得られていないが、前章でも述べたように、本解析モデルは化学作用のみに着目している。つまり、(熱)応力による変形や粒子の破壊等、力学のみによる影響は考慮しておらず、実現象を過小評価している可能性がある。また、定常状態になるまで、非常に長い時間を必要とすると予測されたが、粘土鉱物の介在等により実際は、解析結果よりも速く変化が進むものとする。

図-6は、間隙内のシリカ濃度の経時変化を表しているが、20 °Cと90 °Cでは、シリカ濃度が大きく異なり、特にアモルファスシリカでは、200 ppm以上の濃度差が確認された。これは、20 °Cおよび90 °Cにおける溶解度に起因している。つまり、実地盤では廃棄体から離れるに従って温度は低下することから、沈殿現象がより顕在化すると考えられる。その結果、さらなる透水性の低下が予測される。

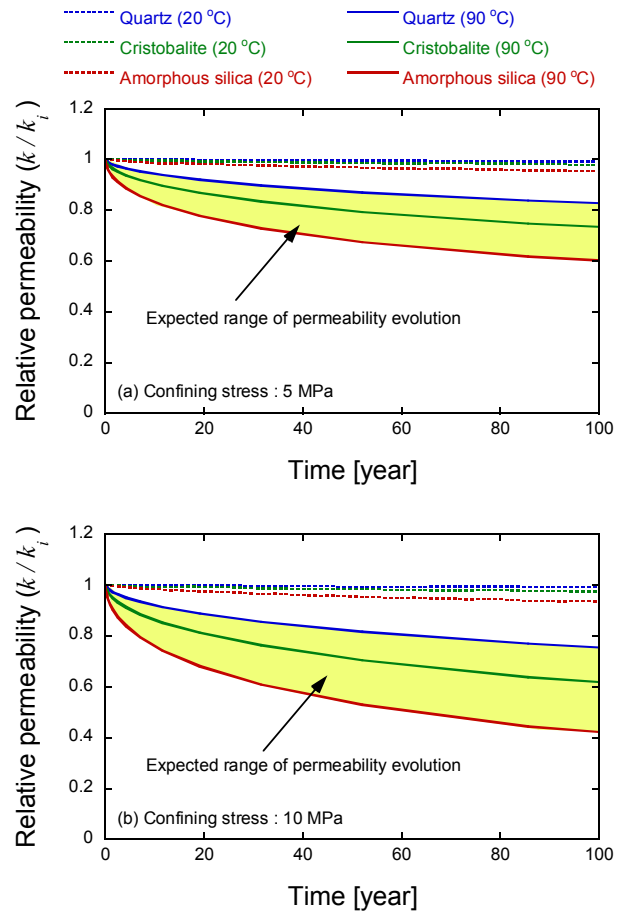


図-4 解析結果 (相対浸透率経時変化)

表-1 解析パラメータ例(石英, 90 °C の場合)

パラメータ	値
温度	[°C] 90.0
拘束圧力	[MPa] 5.0, 10.0
臨界応力	[MPa] 20.0
モル体積	[mol m ⁻³] 2.27×10^5
シリカ溶解度	[ppm] 42.4
拡散膜幅	[m] 4.0×10^9
拡散係数	[m ² s ⁻¹] 5.94×10^{10}
溶解速度定数	[s ⁻¹] 9.72×10^{12}
沈殿速度定数	[s ⁻¹] 1.38×10^8

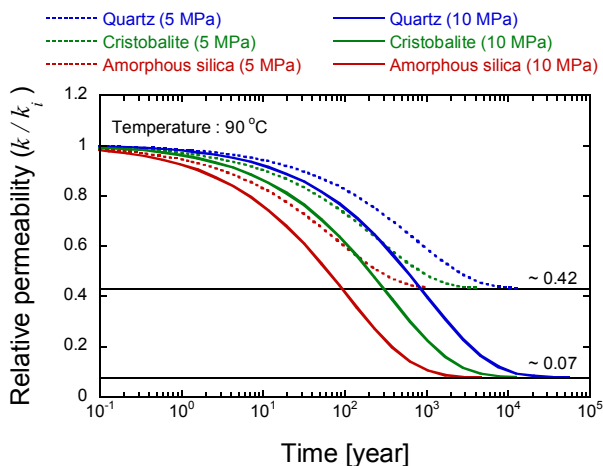


図-5 解析結果 (長期相対浸透率経時変化)

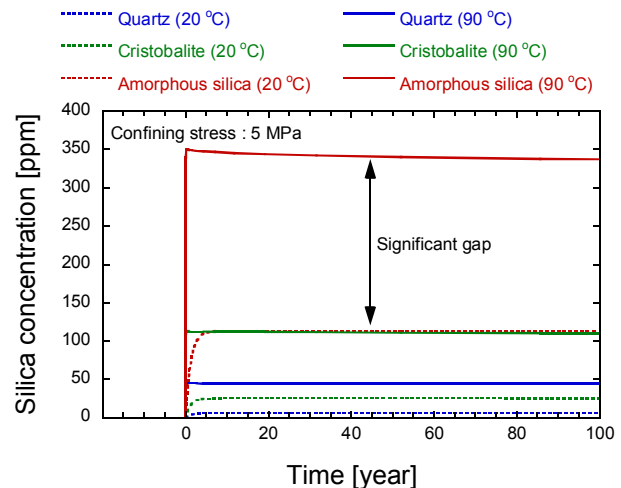


図-6 解析結果 (シリカ濃度経時変化)

4. まとめ

本報告では、圧力溶解現象を考慮した概念モデルを用いて、応力、温度の作用による珪藻質岩石の透水性評価を行った。解析結果は総じて、時間とともに透水性が低下する傾向が得られた。つまり処分坑道周辺岩盤における透水性の経時変化のみに着目すると、廃棄体から発せられる発熱により天然バリアは、より安全側に進むと予測される。

しかしながら本解析モデルは、ある応力、温度条件下の化学作用による透水特性の変化を予測評価しているに過ぎず、実際の処分坑道周辺の岩盤・岩石の水理学特性を長期にわたり予測するためには、熱-水-応力-化学の影響を連成し、評価しなければならない。今後は、温度・応力条件を制御した透水試験を行い、概念モデルの有用性を詳細に検討するとともに、概念モデルを組み入れた連成数値解析シミュレータの構築を目指す。

参考文献

- 1) Dove, P. M. and Elston, S. F. : Dissolution kinetics of quartz in sodium chloride solutions: Analysis of existing data and a rate model for 25 °C. *Geochim. Cosmochim. Acta* 56, pp.4147-4156, 1992.
- 2) Rut ter, E. H. : The kinetics of rock deformation by pressure solution. *Philos. Trans., R. Soc. London, Ser. A* 283, pp. 203-219, 1976.
- 3) Raj, R. : Creep in polycrystalline aggregates by matter transport though a liquid phase. *J. Geophys. Res.* 87, pp. 4731-4739, 1982.
- 4) Revil, A. : Pervasive pressure solution transfer in a quartz sand. *J. Geophys. Res.* 106, pp. 8665-8686, 2001.
- 5) Yasuhara, H., Elsworth, D. and Polak, A. : A mechanistic model for compaction of granular aggregates moderated by pressure solution. *J. Geophys. Res.* 108(B11), 2530, doi:10.1029/2003JB002536, 2003.
- 6) Heidug, W. K. : Intergranular solid-fluid phase transformations under stress: The effect of surface forces. *J. Geophys. Res.* 100, pp. 5931-5940, 1995.
- 7) Bear, J. : *Dynamics of Fluids in Porous Media*, p. 166, Dover Publications, Inc., 1972.
- 8) Atkinson, B. K. : Subcritical crack growth in geological materials. *J. Geophys. Res.* 89(B6), pp. 4077-4114, 1984.
- 9) Rimstidt, J. D. and Barnes, H. L. : The kinetics of silica-water reactions. *Geochim. Cosmochim. Acta*. 44, pp. 1683-1699, 1980.

EVOLUTION OF PERMEABILITY IN DIATOMACEOUS ROCKS MEDIATED BY PRESSURE SOLUTION

Hideaki YASUHARA, Hiroshi KURIKAMI, Naoki KINOSHITA and Kiyoshi KISHIDA

A conceptual model is presented to follow the evolution of permeability in diatomaceous rocks mediated by pressure solution. The progress of compaction and the evolution of permeability may be followed with time. Specifically, the main minerals of diatomaceous rocks that are quartz, cristobalite, and amorphous silica, are focused to examine differences of the permeability evolutions among them at effective stresses of 5, and 10 MPa, and temperatures of 20 and 90 °C. The rates and magnitudes of permeability reduction increase with increase of the dissolution rate constants. Ultimate permeabilities reduces to the order of 90 % at the completion of dissolution-mediated compaction.