熱・水・応力・化学連成解析モデルによる岩盤 の長期透水特性評価

緒方奨1*·安原英明¹·木下尚樹¹

1愛媛大学大学院 理工学研究科生産環境工学専攻(〒790-8577 愛媛県松山市文京町3番) *E-mail: sho.ogata.11@cee.ehime-u.ac.jp

放射性廃棄物地層処分システムにおいて, 天然バリアである廃棄体周辺岩盤における水理学 特性の長期挙動予測は必要不可欠である.周辺岩盤を含むニアフィールドでは熱・水・応力・ 化学に関する複数の物理・化学現象が相互に影響し合う場が形成される.これらのうち,特に, 岩石を構成する鉱物の溶解・沈殿反応による地化学作用が岩盤の水理学特性に大きな影響を及 ぼすと考えられる.本研究では,岩石内自由表面における鉱物溶解・沈殿現象と共に粒子接触 部での鉱物溶解現象を考慮した熱・水・応力・化学連成解析モデルを開発し,周辺岩盤の透水 特性の長期挙動予測を行うとともに,圧力溶解現象が岩盤の透水特性に与える影響を評価した.

Key Words : HLW repository, natural barrier, rock permeability, pressure solution, THMC coupling

1. はじめに

放射性廃棄物地層処分システムの性能を考える上で, 天然バリアである廃棄体周辺岩盤における水理学特性の 長期挙動予測は必要不可欠である. 周辺岩盤を含むニア フィールドでは、ガラス固化体からの放熱、地下水流動 特性や、岩盤の応力環境、空隙水と鉱物の反応等が相互 に影響し合う場が形成される). したがって、周辺岩盤 の水理学特性の長期挙動の予測には、熱・水・応力・化 学に関する各現象を包括的に考慮した連成数値解析が必 要である.特に、対象岩盤の水理学特性の長期挙動を予 測する上で重要となるのが, 岩石空隙部および粒子接触 部で発生する地化学現象である.熱・水・応力・化学連 成解析モデルを用いて、実際の地質環境条件に即した数 値解析を実施し、ガラス固化体の放熱や地化学反応を考 慮した人工バリアと周辺岩盤を含むニアフィールドの長 期挙動を予測する研究が実施されてきた^{2)~7}.しかし, それらはいずれも人工バリアの化学環境変化に焦点を当 てており、周辺岩盤の水理学特性変化については詳細な 予測が試みられていない. また, それらの数値解析モデ ルでは、岩石内自由表面における鉱物の溶解・沈殿現象 は考慮されているが、粒子接触部での鉱物溶解現象は考 慮されていない.既往研究^{8~12}から,粒子接触部におけ る鉱物溶解現象は、対象岩盤の水理学特性の長期的変化 に影響を及ぼすことが判明しており、天然バリアの長期 性能を評価する上で、考慮すべき事項と言える.

そこで本研究では、岩石内自由表面における鉱物溶 解・沈殿現象と共に粒子接触部での鉱物溶解現象を考慮 した熱・水・応力・化学連成解析モデルを開発し、周辺 岩盤の水理学特性の長期挙動予測を行うとともに、圧力 溶解現象が水理学特性変化に及ぼす影響を評価する.

2. THMC連成解析モデル

(1) THMC連成解析モデルの概要

本研究で用いた熱(Themal)-水(Hydro)-応力 (Mechanical)-化学(Chemical)(以下,THMCという)連 成解析モデルは,周辺岩盤におけるガラス固化体からの 放熱や地下水流動特性,岩盤の応力環境,空隙水と鉱物 の反応等の熱・水・応力・化学に関する各現象が相互に 影響し合う場を記述する連成モデルである.本モデルの 解析対象は天然バリアである多孔質岩盤であり,人工バ リア内の物理現象は解析対象外としている.なお,本解 析モデルは,粒子接触部に作用する圧力溶解現象を陽な 形式で組み込んだモデルであり,その点が既往研究で提 案されている連成解析モデルと最も異なる点である.

(2) 支配方程式

THMCモデルの解析フローを図-1に示す.本解析では,

地下水流動,熱輸送,化学種輸送,化学反応(鉱物溶 解・沈殿現象)を考慮し,それぞれの現象を流動方程式, 熱エネルギー方程式,線形弾性則,化学種輸送方程式, 鉱物反応式といった複数の支配方程式(構成則)で記述 する.なお,本解析モデルは,連成数値解析ソフトウェ アのCOMSOL MULTIPHYSICS¹³を用いて構築した.

a) 地下水流動

本解析では、水飽和条件の多孔質岩盤を解析対象とし ており、地下水の流動方程式は空隙率や水の密度変化を 考慮し、ダルシー則により表される¹³.この流動方程式 は、空隙内の水圧や水の流速を算出し、岩盤空隙内の水 の流れを記述するものである。空隙内の水は、岩盤内の 熱や化学種を輸送する働きを持っており、空隙水の流速 は岩盤内の化学種濃度や温度分布を算出する際の重要な パラメータとなる。また、水の密度と粘性係数は、温度 依存性を持っており、解析内では文献値を多項式近似す ることで評価している。

b) 応力解析

応力解析では、平面ひずみ状態を仮定して岩盤に作用 する応力を評価している.また、時間依存ではなく、定 常解析により掘削に伴う応力解放を模擬した岩盤内応力 を算出する.本解析では、熱応力や粒子の破壊等は考慮 していない.なお、岩盤は弾性体と仮定して応力変化を 評価している.本解析で対象岩盤に作用する応力は全て 自重によるものである.

c) 化学種輸送

岩盤空隙水中の物質濃度の輸送過程を記述する化学種 輸送方程式を式(1)に示す¹³.本解析では溶解物質の空 隙水中における移流と拡散を考慮し、岩石への吸着作用 と空隙水中の分散現象については考慮しない.



図-1 解析フロー

$$\frac{\partial(c_i\phi)}{\partial t} + \boldsymbol{u} \cdot \nabla_{C_q} = \nabla \cdot (\boldsymbol{D}_{i,e} \nabla_{C_i}) + R_i \qquad (1)$$

$$\boldsymbol{D}_{i,e} = \boldsymbol{\phi} \tau \, \boldsymbol{D}_{i,b} \tag{2}$$

ここで、 c_i :化学種 i の空隙水中の濃度 $[mol/m^3]$, $D_{i,e}$:化学種 i の実効拡散係数 $[m^2/s]$, R_i :鉱物溶解・ 沈殿速度 $[mol/(m^3 \cdot s)]$, τ :液相屈曲率[-] ($\tau = 1$), $D_{i,b}$:空隙水中の拡散係数行列 $[m^2/s]$ である.また、空 隙水中の拡散係数は、温度依存性を持っており、 Arheniusの式に基づき、次式で定義される.

$$D_{i,b} = D_{i,b}^0 \exp(-E_D / RT) \tag{3}$$

ここで、 $D_{i,b}^0$:頻度因子 $[m^2/s]$ 、 E_D :活性化エネルギ -[kJ/mol], R:気体定数 $[kJ/(mol \cdot K)]$ である.

d) 自由表面溶解・沈殿

空隙水と鉱物間の反応について、本解析では空隙内自 由表面での溶解・沈殿と粒子接触部での鉱物溶解(圧力 溶解現象)を考慮する.したがって、ある鉱物 *i* の鉱物 溶解・沈殿速度 *R_i* は次式で定義される.

$$R_i = R_i^{FF} + R_{diss,i}^{PS} \tag{4}$$

ここで、 R_i^{FF} :自由表面溶解・沈殿速度 [mol/(m³·s)], $R_{diss,i}^{PS}$:粒子接触部での圧力溶解速度 [mol/(m³·s)]であり、 単位時間・単位体積当たりの鉱物溶解・沈殿量を表す物 理量である.

つぎに、考慮する鉱物反応のうち空隙内自由表面溶 解・沈殿反応はLasagaの溶解速度式¹⁴により下記で表さ れる.

$$(SI = Q / K < 1) R_i^{FF} = k_+ \cdot A \cdot (a_{H^+})^n \cdot (1 - Q / K)$$
(5)

$$(SI = Q / K > 1) R_i^{FF} = k_- \cdot A \cdot (a_{H^+})^n \cdot (1 - Q / K)$$
(6)

ここで, k_+ : 鉱物溶解速度定数 [mol/(m²·s)], k_- : 鉱物 沈殿速度定数 [mol/(m²·s)], A: 単位溶液当たりの鉱物 表面積 [m²/m³], a_{H^+} : H⁺の活量 [-], n: 反応次数 [-], Q: イオン活量積 [-], K: 平衡定数 [-], SI: 飽和指 数 [-]である.

e) 圧力溶解

本節では、岩石内の粒子接触部で生じる圧力溶解によ る鉱物溶解現象について述べると共に、その溶解速度の 理論式の導出過程を記す.圧力溶解とは、上部地殻にお ける延性および可塑性変形を及ぼすメカニズムとして広 く知られており、理論的・実験的な研究が種々行われて きた.Yasuhara et al.¹⁵は、圧力溶解について、接触部と自 由表面での化学ポテンシャルを評価することにより、そ の差から粒子接触部での溶解質量フラックスを次式で定 義している.

$$\dot{M}_{diss}^{PS} = \frac{3V_m^2(\sigma_a - \sigma_c)k_+\rho_g A_c}{RT}$$
(7)

ここで、 \dot{M}_{diss}^{PS} : 圧力溶解質量フラックス [kg/s], V_m : モル体積 [m³/mol], σ_a :接触部応力 [N/m²], σ_c :臨界応力 [N/m²], ρ_g : 粒子密度 [kg/m³], A_c : 粒 子接触部面積 [m²]である.臨界応力 σ_c は、圧力溶解を支 配するパラメータで、接触部応力 σ_a が臨界応力 σ_c を超過 する場合のみ圧力溶解が発生する.

式(7)を基に、導出された連成解析モデルに組み込む 圧力溶解速度式 $R_{dis,i}^{PS}$ は以下の式で定義される.また、 導出に用いた解析モデルにおける代表要素には、図-2 に示すように直径dの粒子1つと空隙を含む一辺がdの 体心立方格子を仮定している.

$$R_{diss}^{PS} = \frac{3V_m k_+}{RTd} \left(\frac{\sigma_{VM}}{(12/\pi)(1-\phi) - 2} - \sigma_c \right)$$
(8)

(3) 空隙率·透過率変化

本解析では、空隙率変化について、熱応力や粒子破壊 等の力学作用による影響は考慮せず、鉱物溶解・沈殿反 応等の化学作用による影響のみを評価する.空隙内の自 由表面溶解・沈殿反応、圧力溶解反応による空隙率変化 はそれぞれ次式で表される.

$$\dot{\phi}^{FF} = V_m \cdot R^{FF} \tag{9}$$

$$\dot{\phi}_{diss}^{PS} = -V_m \cdot R_{diss}^{PS} \tag{10}$$

ここで、 ϕ^{FF} :自由表面溶解・沈殿による空隙率変化率 [1/s]、 ϕ^{PS}_{diss} :圧力溶解による空隙率変化率[1/s]である.

透過率変化については、自由表面溶解・沈殿、圧力溶 解反応による空隙率変化に伴う透水性変化を評価するた め、Kozeney-Carman 式¹⁰を用いて透過率を評価する.

$$k_r = \frac{k(t)}{k_i} = \frac{(1 - \phi_i)^2}{(1 - \phi(t))^2} \left(\frac{\phi(t)}{\phi_i}\right)^3$$
(11)

ここで, k_r :相対透過率 [-], k(t):時間 t における透 過率 [m²], k_i :初期透過率 [m²]である.



図-2 解析モデルにおける代表要素

3. 解析例

(1) 解析条件

本解析モデルで想定した処分システムは、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-第 2 次取りまとめ¹⁾- (以下, 第 2 次取りまとめと記す) に示されている横置き方式であり、深度 450m に設置す るものとした. 解析領域(ジオメトリ)は鈴木ら³を参 照し、図-3 に示したような地表から深度 700m までを対 象としており、坑道直径は、2.22m であり、坑道を中心 とし、坑道離間距離の 1/2 の 12.2m を水平方向に想定し た二次元モデルとした. 坑道離間距離に関しては、緩衝 材中の最高温度が100℃以下となる条件として、処分坑 道直径 (D=2.22m) の整数倍の 11D に設定した. 解析対 象岩盤は Ouartz のみで構成される珪質堆積岩であり、初 期空隙率は40%とし、深度依存しない形で岩盤全体に均 一に設定した. 地質環境条件については、幌延地域の地 質環境を参照し、地下岩盤の動水勾配は 1/1000、地温勾 配は 5℃/100m とし、地表面は年間の平均的な気温とし て 15℃ に設定した ¹⁷. また, 岩盤の物理特性に関して は、幌延地域の稚内層の物性値を参照した.本解析では、 坑道掘削による坑道周辺の地下水位の変化や地下水組成 の変化は考慮していないが、岩盤内応力に関しては、空 洞掘削に伴う応力再配分を考慮した自重解析を実施した. 次に、廃棄体からの放熱については、第2次取りまとめ において温度解析から得られた緩衝材外側の温度変化 (図-4)をモデルの坑道壁面の温度として与えた.本モ デルの解析期間は廃棄体設置後から 10000 年間を設定し ている. なお, 詳細は安原ら¹⁸を参照されたい.

まず,空洞掘削前後の応力状態を比較した岩盤内応力 解析結果を図-5に示す.図-5より,空洞掘削に伴う応力 再配分により,空洞周辺のEDZでVon Mises応力(圧縮応 力)が増加していることが明らかである. つぎに,空 洞掘削後の応力分布を周辺岩盤の初期応力分布に設定し, 10⁴年間応力状態は初期状態のまま不変と仮定して連成 解析を実施した.





図-5 空洞掘削前後の応力状態(Von Mises 応力)

本研究では、圧力溶解の有無で解析結果を比較する. 圧 力溶解を考慮しない場合と考慮した場合の透過率の経時 変化を図-6 および図-7 に示す. 圧力溶解を考慮した場 合,空隙率および透過率は,時間の経過とともに減少す る傾向が確認できる.この空隙率および透過率の減少は, とりわけ、空洞周辺の EDZ で特に顕著である.これは、 空洞掘削に伴う応力再配分により、空洞周辺の EDZ で Von Mises 応力(圧縮応力)が増加し、その結果として、 EDZ で圧力溶解現象が顕在化するためである. さらに、 圧力溶解により連続的に溶解シリカが空隙中に供給され、 空隙内で過飽和状態となり、長期に渡り、自由表面沈殿 現象が持続し、空隙率および透過率を低下させていると 考えられる.空隙率(透過率)の変化度に関しては、特 に, EDZ に着目すると, スプリングライン (空洞上半 と下半の境界)の空洞最近傍の空隙率(透過率)変化が 最も大きく, 空洞から離れるほど, その低下程度は小さ くなっている. 圧力溶解の影響度をより詳細に把握する ため、スプリングライン上の観測点を図-8 のように No. 1~No.4の4点抽出し、空隙率・透過率の経時変化につ いて言及する. 圧力溶解を考慮した場合の空隙率・透過 率変化を図-9 に示す.前述の通り,圧力溶解を考慮し ない場合は、出力4点での空隙率・透過率の変化はなく、 自由表面溶解・沈殿現象のみでは空隙率(透過率)変化 に影響を及ぼさないことは明らかである.一方,圧力溶 解を考慮した場合は、空洞最近傍点において、10000年

で、空隙率は約14%、透過率は約1オーダー程度の低下 が観察されている.しかし、その影響は限定的で空洞か ら離れるほど小さくなり、坑道離間距離の1/4の距離で ある6.1m離れるとその影響はほぼ無くなっている.



図-6 透過率の経時変化コンター図(圧力溶解ナシ)



図-7 透過率の経時変化コンター図(圧力溶解アリ)



図-8 透過率変化の観測点



本研究では、岩石内自由表面における鉱物溶解・沈殿 現象と共に粒子接触部での圧力溶解現象を考慮した熱・ 水・応力・化学連成解析モデルを開発し、放射性廃棄物 地層処分施設の周辺岩盤の水理学特性(透水性)の長期 挙動予測を行った.自由表面溶解・沈殿現象と共に圧力 溶解現象を考慮した条件と、圧力溶解現象を考慮せず、 自由表面溶解・沈殿現象のみを考慮した条件における透 水性経時変化を比較し、圧力溶解現象による透水性変化 への影響度を評価した.その結果、圧力溶解を考慮しな い場合は、自由表面溶解・沈殿現象による影響のみでは 透過率の変化は確認されず、圧力溶解を考慮した条件で は、時間の経過に伴い空隙率および透過率が低下する傾 向が確認された.特に、空洞周辺 EDZ で圧力溶解現象 による透過率低下が顕著であり、空洞から離れるほど その影響は小さくなることが判明した.

参考文献

- 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,JNC TN1400 99-022, p.634, 1999.
- 2) 鈴木英明,中間茂雄,藤田朝雄,今井久,九石正美:熱 一水一応力一化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,原子力バック エンド研究, Vol. 19, No. 2, pp.39-50, 2012.
- Nasir, O., Fall, M., and Evgen, E.: A simulator for modeling of porosity and permeability changes in near field sedimentary host rocks for nuclear waste under climate change, *Tianneling and Underground Space Technology*, Vol. 42, pp. 122-135, 2014.
- Fall, M., Nasir, O, and Nguyen, T. S.: A coupled hydro-mechanical model for simulation of gas migration in host sedimentary rocks for waste repositories, *Engineering Geology*, Vol. 176, pp. 24-44, 2014.
- 6) Liu, Y., Ma, L., Ke, D., Cao, S., Xie, J., Zhao, X., Chen, L., Zhang, P.: Design and validation of the THMC China-Mock-Up test on buffer material for HLW disposal, *Journal of Rock Mechanics and*

Geotechnical Engineering, Vol. 6, pp. 119-125, 2014.

- 7) Liu, Y., Ma, L., Ke, D., Cao, S., Xie, J., Zhao, X., Chen, L., Zhang, P.: Design and validation of the THMC China-Mock-Up test on buffer material for HLW disposal, *Journal of Rock Mechanics and Geotechnical Engineering*, Vol. 6, pp. 119-125, 2014.
- Elias, B. P., and Hajash, A.: Change in quartz solubility and porosity change due to effective stress: An experimental investigation of pressure solution, *Geology*, Vol. 20, pp. 451-454, 1992.
- Polak, A., Elsworth, D., Yasuhara, H., Grader, A., and Halleck, P.: Permeability reduction of a natural fracture under net dissolution by hydrothermal fluids. *Geophys. Res. Lett.*, Vol. 30, 2020, doi:10.1029/2003GL017575, 2003.
- 10) Polak, A., Elsworth, D., Liu, J., and Grader, A.S.: Spontaneous switching of permeability changes in a limestone fracture with net dissolution. *Water Resour. Res.*, Vol. 40, W03502, doi:10.1029/2003WR002717, 2004.
- Yasuhara, H., Polak, A., Mitani, Y., Grader, A., Halleck, P., and Elsworth, D.: Evolution of fracture permeability through fluid-rock reaction under hydrothermal conditions. *Earth Planet. Sci. Lett.*, Vol. 244, pp. 186-200, 2006.
- 12) Yasuhara, H., Kinoshita, K. Ohfuji, H., Lee, D. S., Nakashima, S., and Kishida, K.: Temporal alteration of fracture permeability in granite under hydrothermal conditions and its interpretation by coupled chemomechanical model. *App. Geochem.*, Vol. 26, pp. 2074-2088, 2011.
- 13) COMSOL2014 : COMSOL MULTIPHYSICS. Version 5.0, Available from <u>www.comsol.com</u>.
- Lasaga A.C.: Chemical Kinetics of Water-Rock Interactions, J. Geophys. Res., Vol. 89, pp. 4009-4025, 1984.
- 15) Yasuhara, H., Elsworth, D., and Polak, A.: A mechanistic model for compaction of granular aggregates moderated by pressure solution, *J. Geophys. Res.*, Vol. 108, No. B11, 2530, doi:10.1029/2003JB002536, 2003.
- Bear, J. : Dynamics of Fluids in Porous Media, p.166, Dover Publications, Inc., 1972.
- 17) 亀井玄人,本多明,三原守弘,小田恵,村上裕,増 田賢太,山口耕平,松田節郎,市毛悟,高橋邦明, 目黒義弘,山口大美,榊原哲郎,佐々木紀樹:TRU 廃棄物処理・処分技術に関する研究開発,JAEA-Reseach 2008-082, pp. 1-84, 2008.
- 18) 安原英明,緒方奨,木下尚樹,岸田潔:圧力溶解現象を考慮した数値解析モデルによる岩盤の長期透水特性評価,土木学会論文集C,2015(印刷中).

Evaluation of long-term permeability change of rocks by THMC numerical simulation model

Sho Ogata, Hideaki Yasuhara, Naoki Kinoshita

While considering performance of radioactive waste disposal system, it is necessary to examine hydraulic properties of rocks near the facility in detail, because a thermo-hydro-mechanical-chemical processes may be active under such conditions. In this study, a long-term rock permeability change is predicted by developing a THMC numerical model that considers pressure dissolution at grain contacts in the rock. Then, the influence of pressure dissolution is examined by comparing calculation results with and without pressure dissolution. As a result, in the cases considering pressure dissolution, it is observed that there is a permeability reduction by one order of magnitude within 10,000 years. This change may be significant and further investigation is required.