

# 花崗岩不連続面における 透水実験と鉱物溶解機構の検討

廣惠 なつ美<sup>1\*</sup>・安原 英明<sup>1</sup>・木下 尚樹<sup>1</sup>

<sup>1</sup>愛媛大学大学院 理工学研究科 (〒790-0825 愛媛県松山市道後樋又10番13号)  
 \*E-mail: hiroe.natsumi.13@cee.ehime-u.ac.jp

高レベル放射性廃棄物は地下 300 m 以深への地層処分が義務付けられている。地層処分施設近傍では、廃棄体からの発熱により高温・高圧状態となり、施設に用いられたセメント系材料の溶出による地下水の高アルカリ化が考えられる。周辺岩盤の水理学特性の変化が予想されることから、岩盤不連続面における透水特性変化に及ぼす影響を評価する必要がある。本研究では、廃棄体の高温状態・岩盤の高圧状態を実験的に再現した連続透水試験と循環透水試験の 2 種類の透水試験を行い、花崗岩の透水特性変化について評価した。また、透水特性変化の要因であるとされる岩石構成鉱物の溶解現象を考慮した概念モデルを作成し、予測式を導出することで、水理学特性変化のメカニズムについて検討した。

**Key Words :** granite, permeability, fracture surface, mineral dissolution

## 1. はじめに

原子力発電によって排出された使用済み核燃料を再処理する過程で高レベル放射性廃棄物が発生する。現在日本では、高レベル放射性廃棄物の処分法として、地下 300 m 以深で長期保存する地層処分が定められている。地層処分では、人工的に作製された人工バリアと天然岩盤の天然バリアによる多重バリア構造を採用している。処分施設周辺では、廃棄体からの発熱により高温・高圧状態となり、人工バリアに用いられたセメント系材料の溶出により地下水の高アルカリ化が予想される。その結果、周辺岩盤における水理学特性の変化が想定されるため、岩盤不連続面の透水特性変を長期的に把握し評価することが必要不可欠である。

既往研究<sup>1)~6)</sup>では、処分施設周辺環境（高温・高圧）を様々に再現した透水試験が行われているが、地下水環境を再現した透水試験はほとんど行われていない。そこで本研究では、透過した溶液を連続的に採取する連続透水試験と、地下水を再現した鉱物飽和水を用いた循環透水試験の2種類の試験を行い比較した。さらに、透水特性変化の原因とされる鉱物溶解を考慮した水文学的開口幅変化の概念モデルを作成し、温度・pH・ラフネスを考慮した予測式を導出することで、透水特性変化のメカニズムについて検討した。

## 2. 透水試験

### (1) 試験方法

本研究では瑞浪花崗岩を用いた2種類の透水試験を行った。各実験条件を表-1に示す。実験で用いた供試体は、単一不連続面を有する円柱供試体を使用し、直径約30 mm、高さ約60 mmとした。透水試験では高温高圧三軸透水試験装置を用い、さらにシリンジポンプを用いて透水圧を制御した。循環透水試験では、図-1に示すように

表-1 境界条件

供試体	不連続面形状	温度 [°C]	拘束圧 [MPa]	透過水
E-15	圧裂 (tension)	25-90	5.0	脱イオン水
E-16	平滑 (saw-cut)	20	5.0	鉱物飽和水

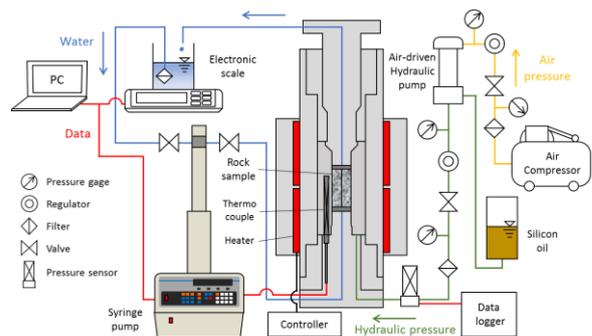


図-1 循環透水試験模式図

採取した透過水を循環させて連続的に透水試験を実施できる機構となっている。また、循環透水試験では、前述の通り透過水として鉱物飽和水を用いている。鉱物飽和水は、90℃の脱イオン水に粒子状に粉碎した花崗岩試料を投入し、マグネツトスターラーを用いてSiO<sub>2</sub>濃度が過飽和状態となるまで攪拌して作製した。

## (2) 透水特性評価

透水試験によって得られた結果から透過率を計算する。ダルシー則を基に式(1)より算出した水理的開口幅 $b$  [m]から透過率 $k$  [m<sup>2</sup>]は式(2)で表される。

$$b = \left\{ \frac{12\mu Ql}{w(P_0 - \rho_w g l)} \right\}^{1/3} \quad (1)$$

$$k = \frac{b^2}{12} \quad (2)$$

ここで、 $\mu$  : 粘性係数 [Pa s],  $Q$  : 流量 [m<sup>3</sup> s<sup>-1</sup>],  $l$  : 供試体高さ [m],  $w$  : 供試体直径 [m],  $P_0$  : 透水差圧 [Pa],  $\rho_w$  : 流体密度 [kg m<sup>-3</sup>],  $g$  : 重力加速度 [m s<sup>-2</sup>]である。また、実験開始時の透過率 (初期透過率) が各実験によって異なるため、次式を用いて正規化透過率を算出した。

$$k_n(t) = \frac{k(t)}{k(t_i)} \quad (3)$$

ここで、 $k_n(t)$  : 正規透過率 [-],  $k(t)$  : 時間 $t$ における初期透過率 [m<sup>2</sup>],  $k(t_i)$  : 時間 $t_i$ における透過率 [m<sup>2</sup>]である。正規化透過率の計算結果から、既往研究との比較を行う。

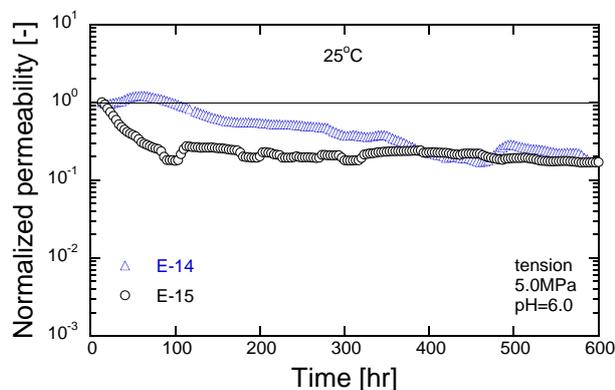


図-2 正規化透過率の比較 (同様条件)

図-2より、連続透水試験E-15と同様の条件で行ったE-14<sup>9)</sup>を比較すると、E-15の方が短時間で透過率が低下していることが分かる。しかし、最終的な透過率の減少量は同じであることから既往研究との再現性が得られたと考えられる。また、図-3より、循環透水試験E-16と透過水として脱イオン水を用いたE-4<sup>9)</sup>を比較すると、E-16の方が透過率が減少していることが確認できた。

## (3) ICP発光分光分析

透水試験時に透過した溶液を採取し、ICP発光分光分析により、花崗岩の主要構成元素である、Si, Al, K, Fe, Na, Ca, Mgの7元素<sup>7)</sup>の濃度を測定した。E-15の測定結果を図-4、図-5に示す。Si, Al, Na, Caの濃度が比較的大きい値を示しており、Siに着目すると、25℃では1.0×10<sup>4</sup> mol/L付近で定常状態となっているが、温度を90℃に上昇させると6.0×10<sup>4</sup> mol/Lまで上昇した。また、Alに着目すると、初期値1.0×10<sup>5</sup> mol/Lから2.0×10<sup>4</sup> mol/Lまで上昇し、90℃条件では最終的に2.7×10<sup>4</sup> mol/Lまで上昇した。各元素に変動はあるものの時間経過に伴い緩やかな上昇が見られ、温度上昇によって元素濃度も上昇していることが確認できる。また、K, Mg, Fe濃度は他の元素濃度に比べて小さい値を示しており、特にK, Feの濃度はSiと比較して1オーダー程度小さい値を示している。KやMg, Feは黒雲母の含有元素であることから、黒雲母による鉱物元素の溶解量が全溶解量に比べて少ないことが原因として考えられる。

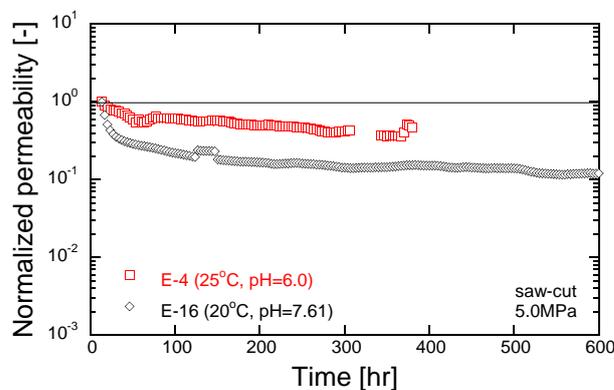


図-3 正規化透過率の比較 (透過水の違い)

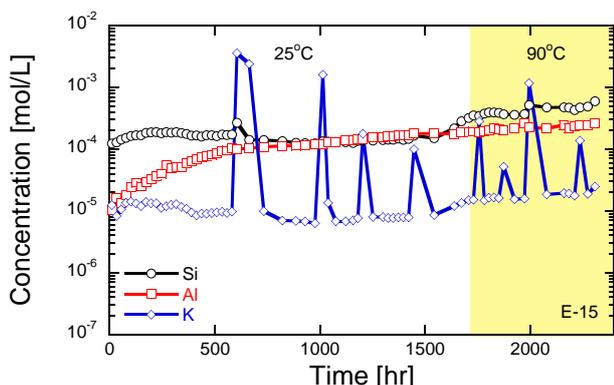


図-4 溶出濃度変化 (Si, Al, K)

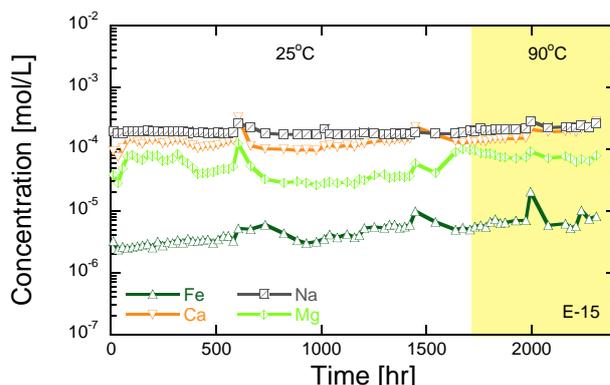


図-5 溶出濃度変化 (Fe, Na, Ca, Mg)

### 3. 水理学特性変化のメカニズムの検討

#### (1) 鉱物溶解

既往研究により、温度変化に依存する不連続面における鉱物の溶解現象が花崗岩の透水特性変化に影響を及ぼしていると考えられている。鉱物溶解は、アスペリティ接触部における溶解（圧力溶解）と自由表面による溶解（自由表面溶解）に分けられる。それぞれ透過率の減少・増加に起因している。不連続面内の模式図を図-6に示す。図-3に示すように、循環透水試験E-16の透過率が、脱イオン水を用いた結果よりも低い値を示したのは、透過水として鉱物飽和水を用いたことにより、自由表面溶解が抑制されたことが要因として考えられる。

#### (2) 水理的開口幅変化率予測

鉱物溶解を考慮した水理的開口幅変化率の概念モデルを作成し（図-7）、予測式を導出する<sup>7)</sup>。実験で用いた試料が石英、正長石、曹長石、灰長石、黒雲母の5つの鉱物のみで構成されていると想定し、沈殿の影響が無視できると仮定すると、予測式は次式のように表せる。

$$\dot{b} = \frac{1-R_c}{\rho_{rock} A_f} \left( -\frac{\dot{M}_c}{R_c} + \frac{\dot{M}_f}{1-R_c} \right) \quad (4)$$

ここで、 $\dot{b}$ ：開口幅変化率 [ $\text{m s}^{-1}$ ]、 $R_c$ ：不連続面内の接触率 [-]、 $\rho_{rock}$ ：岩石のかさ密度 [ $\text{kg m}^{-3}$ ]、 $A_f$ ：不連続面のみかけの表面積 [ $\text{m}^2$ ]、 $\dot{M}_c$ ：圧力溶解に起因する質量変化率 [ $\text{kg s}^{-1}$ ]、 $\dot{M}_f$ ：自由表面溶解に起因する質量変化率 [ $\text{kg s}^{-1}$ ]である。不連続面内のアスペリティ接触率と圧力溶解および自由表面溶解の全溶解質量に寄与する割合の2つのパラメータを変動させることで、水理的開口幅の変化率を推定できるが、さらにより精度良く解析を行うためには、2つのパラメータの内どちらかを時系列で変化させる必要がある。そこで、花崗岩の溶解速度定数を用いて溶解速度の予測を行った。

#### (3) 花崗岩の溶解速度定数式

橋本ら<sup>8)</sup>は、花崗岩粉末を用いたフロースルー試験を実施し、アレニウスの式を用いて温度・pHに依存する花崗岩の溶解速度定数を定義しており、次式で表される。

$$\text{Rate} = A_{neut} \exp\left(-\frac{E_a^{neut}}{RT}\right) + A_{base} \exp\left(-\frac{E_a^{base}}{RT}\right) \cdot a_{H^+}^{n_{base}} \quad (5)$$

ここで、 $\text{Rate}$ ：溶解速度定数 [ $\text{mol m}^{-2} \text{s}^{-1}$ ]、 $A_{neut}$ ：中性域頻度因子、 $E_a^{neut}$ ：中性域活性化エネルギー [ $\text{J mol}^{-1}$ ]、 $R$ ：気体定数 [ $\text{J K}^{-1} \text{mol}^{-1}$ ]、 $T$ ：絶対温度 [ $\text{K}$ ]、 $A_{base}$ ：塩基性域頻度因子 [ $\text{mol m}^{-2} \text{s}^{-1}$ ]、 $E_a^{base}$ ：塩基性域活性化エネルギー [ $\text{J mol}^{-1}$ ]、 $a_{H^+}$ ：水素イオン活量 [-]、 $n_{base}$ ：塩基性域水素イオン活量の係数 [-]である。このとき、頻度因子、活性化エネルギー、水素イオンの活量係数は未知であり、安

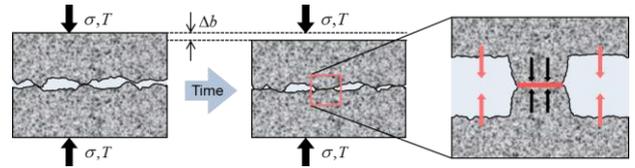


図-6 不連続面内の模式図

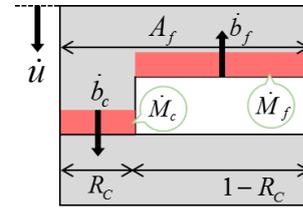


図-7 水理的開口幅変化率の概念モデル

原ら<sup>7)</sup>が溶解速度定数と温度、pHとの関係から回帰分析により導出した値を代入して求めた。

#### (4) 溶解速度予測

式(5)によって導出された花崗岩の溶解速度定数を用いて、透水試験条件下での元素濃度の経時変化予測を行うことができ、次式で表せる。

$$C_i = \frac{\text{Rate}(2wl)v_i f_r}{Q} \quad (6)$$

ここで、 $C_i$ ：Output溶液中の元素*i*の平均濃度 [ $\text{mol m}^{-3}$ ]、 $w$ ：透水方向に直行する不連続面幅 [ $\text{m}$ ]、 $l$ ：透水方向に平行な不連続面長さ [ $\text{m}$ ]、 $v_i$ ：化学量論係数<sup>7)</sup>、 $f_r$ ：ラフネスファクター<sup>7)</sup>、 $Q$ ：流量 [ $\text{m}^3 \text{s}^{-1}$ ]である。また、ラフネスファクターとは、表面のラフネスを考慮した微視的な表面積と、巨視的な表面積の比のことであり、式(7)で示される。

$$f_r = \frac{A_{BET} \phi \rho_{rock}}{6} \quad (7)$$

ここで、 $A_{BET}$ ：BET法による花崗岩の比表面積 [ $\text{m}^2 \text{g}^{-1}$ ] (=0.093)、 $\phi$ ：花崗岩粉末粒子の直径 [ $\text{m}$ ] (=178×10<sup>-9</sup>)、 $\rho_{rock}$ ：花崗岩の密度 [ $\text{kg m}^{-3}$ ] (=2580)である。この式により、本研究で使用した供試体のラフネスファクターは7.1であると算出される。よって、ラフネスファクターを考慮した不連続面のみかけの表面積は式(8)で計算できる。

$$A_{f'} = f_r A_f \quad (8)$$

ここで、 $A_{f'}$ ：不連続面のみかけの表面積 [ $\text{m}^2$ ]である。

#### (5) 温度・pH・ラフネスを考慮した水理的開口幅変化率予測

安原ら<sup>7)</sup>が実施したフロースルー溶解試験で用いた岩石試料は粉末であることから、自由表面溶解のみを考慮していると考えられる。したがって、ICP発光分光分析の結果を用いて、不連続面の接触率を任意に変化させることにより、時系列の自由表面溶解割合を算出すること

ができる。自由表面溶解割合は式(9)で表せる。

$$F_{rate}(R_c) = \frac{\sum C_j^p}{\sum C_j^m} (1 - R_c) \quad (9)$$

$$= F_{rate}(0)(1 - R_c)$$

ここで、 $F_{rate}(R_c)$ : 自由表面溶解割合 [-],  $R_c$ : 不連続面の接触率 [-],  $C_j^p$ : 溶解速度定数を用いて算出した予測元素濃度を酸化物に換算した濃度[ $\text{mol m}^{-3}$ ],  $C_j^m$ : ICP 発光分光分析で得られた濃度を酸化物に換算した濃度 [ $\text{mol m}^{-3}$ ]である。ただし、 $j = \text{SiO}_2, 1/2(\text{Al}_2\text{O}_3), \text{FeO}, \text{MgO}, \text{CaO}, 1/2(\text{Na}_2\text{O}), 1/2(\text{K}_2\text{O})$ である。自由表面割合  $F_{rate}$  を用いると、接触部における溶解に起因する質量変化率  $\dot{M}_c$ , 自由表面溶解に起因する質量変化率  $\dot{M}_f$  は以下の式(10), 式(11)で表わされる。

$$\dot{M}_c = \dot{M}(1 - F_{rate}(0)(1 - R_c)) \quad (10)$$

$$\dot{M}_f = \dot{M}F_{rate}(0)(1 - R_c) \quad (11)$$

ここで、 $\dot{M}$ : 鉱物溶解質量変化率 [ $\text{kg s}^{-1}$ ]である。式(3)に式(9)~(11)を代入すると、温度・pH・ラフネスを考慮した水理学的開口幅変化率予測式は次式で表すことができる。

$$\dot{b} = \frac{1 - R_c}{R_c} \frac{\dot{M}(F_{rate}(0) - 1)}{\rho_{rock} f_r A_f} \quad (12)$$

この式から得られたE-15の解析結果を図-8に示す。図中には透水試験によって得られた水理学的開口幅の経時変化も示している。式(1)によって得られた水理学的開口幅の前後1時間ずつの移動平均を算出し、さらにその数値を24時間平均し変化率とした。解析結果と実験結果を比較すると、25 °C (0~1700時間)では接触率が0.04以下のとき、90 °Cでは0.04~0.2のとき、実験値を概ね再現できた。セル内の温度の上昇に伴い各温度条件下での最大接触率は0.04から0.2に上昇しており、温度の上昇に伴う各温度条件下での最大接触率の増加が確認された。これらの結果により、概ねの再現を行うことができたが、特に25 °Cのときの解析結果は十分に再現できていないと言えない。これは、本概念モデルを構築するにあたって鉱物溶解のみを考慮しており、沈殿現象を考慮していないことが要因として考えられる。

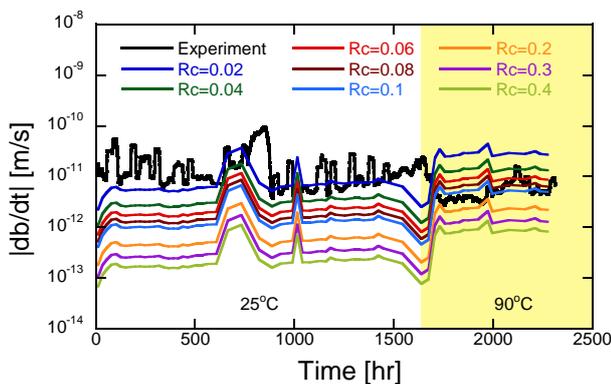


図-8 水理学的開口幅変化率の解析値と実験値

## 4. まとめ

本研究では、連続透水試験・循環透水試験の2種類の透水試験を実施し、花崗岩不連続面における透水特性変化について評価した。

連続透水試験では、同様の条件で行った既往研究と比較し、再現性を得ることができた。また、循環透水試験では、脱イオン水を透過水として用いた結果よりも透過率が減少していることが確認できた。これは、鉱物飽和水を用いたことにより、透過率増加の原因となる自由表面溶解が抑制されたことが理由と考える。

また、鉱物溶解を考慮した水理学的開口幅変化率の概念モデルを作成し、予測式を導出することで、透水特性変化のメカニズムの検討を行った。温度・pH・ラフネスを考慮した予測式を導出し、解析を行ったが十分な結果は得られなかったため、今後はさらに条件を変えた透水試験を行い、沈殿現象を考慮した新たな予測式を導出することで透水特性変化のメカニズムの解明を試みる必要がある。

## 参考文献

- 1) Morrow, C.A., Moore, D.E., and Lockner, D.A. : Permeability reduction in granite under hydrothermal conditions, *Journal of geophysical research*, Vol.106, No.B12, pp.551-560, 2001.
- 2) Morrow, C., Lockner, D., Moore, D., and Byerlee, J. : Permeability of Granite in a Temperature Gradient, *Journal of geophysical research*, Vol.86, No.B4, pp.3002-3008, 1981.
- 3) Hideaki Yasuhara, Naoki Kinoshita, Sho Ogata, Dae-Sung Cheon, and Kiyoshi Kishida : Coupled thermo-hydro-mechanical-chemical modeling by incorporating pressure solution for estimating the evolution of rock permeability, *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences*, 86, pp.104-114, 2016.
- 4) Yasuhara, H., N. Kinoshita, H. Ohfuji, M. Takahashi, K. Ito, and K. Kishida: Long-term observation of permeability in sedimentary rocks under high-temperature and stress conditions and its interpretation mediated by microstructural investigations, *Water Resources Research*, Volume 51, Issue 7, pp.5425-5449, 2015.
- 5) 前田健太：天然バリア周辺の模擬環境における花崗岩不連続面の透水特性評価，愛媛大学大学院理工学研究科学位論文，26pp，2016。
- 6) 木下尚樹，安原英明：熱・拘束圧環境下における不連続面を有する花崗岩の透水性評価，*Journal of MMIJ*, Vol.128, pp.72-78, 2012.
- 7) 安原英明，橋本克樹，木下尚樹：温度・pHを制御したフロースルー溶解試験による花崗岩溶解速度式の提案とその妥当性の検討，*Journal of MMIJ*, Vol.128, pp.79-85, 2012.
- 8) 橋本克樹，安原英明，木下尚樹：温度・pHを制御したフロースルー試験による岩石溶解機構の検討，第41回岩盤力学に関するシンポジウム講演集，pp.327-331, 2012.

# PERMEABILITY TEST AND INVESTIGATION OF MINERAL DISSOLUTION MECHANISM IN GRANITE FRACTURE

Natsumi HIROE, Hideaki YASUHARA and Naoki KINOSHITA

High-level radioactive wastes are planned to bury underground by Geological disposal. Around the isolation area, heat from waste body may promote geological reaction, and ground water is expected to be high alkaline induced by cement used as artificial barrier. So it is necessary to evaluate hydraulic property of rock. In this study, we conducted two kinds of permeability tests (continuous flow-through test and circulation flow-through test) reproduced condition around the isolation area and compared results with past experiments. Also we discussed mechanism of permeability change by making a simple model predicting aperture change.