

高温・高圧環境における 塩水を用いた花崗岩不連続面の透水実験

佐古 大地^{1*}・緒方 奨²・大西 史記¹・木下 尚樹¹・安原 英明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)

²大阪大学大学院 工学研究科 地球総合工学専攻 (〒565-0871 大阪府吹田市山田丘 2-1)

*E-mail: sako.daichi.17@cee.ehime-u.ac.jp

高レベル放射性廃棄物地層処分を実施する際、処分施設周辺岩盤は海水由来の塩分を含む地下水や廃棄体からの発熱などによる複合的な影響を受け、透水特性が長期にわたり変化する可能性がある。そのため、岩盤の長期的な透水特性評価が必要不可欠である。本研究では、透過水に塩水を用いた連続透水試験を行い、既往研究と比較することで、境界条件の違いが花崗岩不連続面の透水特性に与える影響を精査した。また、透水特性変化の要因を考察するため、ICP 発光分光分析による透過水の物質濃度評価や、SEM-EDX による不連続面の微視構造観察を行った。その結果、塩水条件下では高温条件よりも室温条件の方が透水率が減少することが確認され、塩結晶の沈殿が透過率低下に影響を与えることが確認された。

Key Words : granite, fracture, permeability, simulated seawater

1. はじめに

高レベル放射性廃棄物は、地下300 m以深へ地層処分されることが義務付けられている¹⁾。地層処分は、地下水の流れが遅い、酸素濃度が低く金属が腐食されにくい等のメリットを持ち、有効な処分方法として世界各国で進められている。しかし、懸念すべき点として処分施設周辺岩盤の変化が挙げられる。沿岸部への建設による海水由来の塩分を含んだ地下水や、廃棄体からの発熱によって、岩盤の透水特性が大きな影響を受けると考えられている。また、高レベル放射性廃棄物は数万年といった長期間の保管を想定しているため、地下岩盤の長期的な透水特性の評価が必要不可欠である。これまで、温度変化による花崗岩の透水特性変化に関する研究^{2),3)}は数多く行われており、透過率を減少させる要因として、圧力溶解や沈殿現象が考えられている⁴⁾。また、塩水条件の実験で、透過率が約700時間で2オーダー程減少する結果も得られている⁵⁾。

本研究では、透過水として模擬海水を用いることで、海水由来の塩分を含んだ地下水を模擬し、高温・高圧環境で、不連続面を有した花崗岩供試体を対象に連続透水試験を行った。透過率の経時変化から温度、透過水、拘束圧の違いが透水特性に与える影響を評価した。また、透水特性変化の要因を評価するため、ICP発光分光分析

を用いて、通水前後で透過水の物質濃度を測定し、不連続面における溶解・沈殿等の地化学作用を分析した。さらに、連続透水試験前後の供試体に対して、SEM-EDXを用いて微視構造観察を行い、不連続面における沈殿物を観察した。

2. 透水試験

(1) 試験方法

本研究では、不連続面を有する花崗岩を用いて連続透水試験を行った。連続透水試験で用いた平滑な不連続面を有する円柱供試体を図-1に、連続透水試験装置概略図を図-2に示す。また、各供試体における境界条件を表-1に示す。本実験で用いた瑞浪市産土岐花崗岩は、気乾状態での有効空隙率が1.0%であるため、岩石実部でほとんど透水しない⁶⁾。つまり、水の流れは不連続面内で支配的となる。本研究では、供試体は平滑な不連続面を有する円柱供試体を作製し使用した。ここで、供試体の作製方法について説明する。まず、室内ボーリングマシンを用いて、コアリングによりφ50 mmの供試体を作製した。つぎに、不連続面はダイヤモンドカッターを用いて平滑に作製したものと、圧裂引張試験の圧裂により作製したものを準備した。その後、φ30 mmで再度コアリン

グを行い、研磨機を用いて円柱の両端面を研磨し、供試体高さが約60 mmとなるよう成形した。透過水の模擬海水（八洲薬品株式会社製）は実際の海水と異なり、プランクトン等の有機物を含んでいないため、数か月間におよぶ連続透水試験に適していると判断し使用した。花崗岩に含まれる主要な7つの元素⁴⁾、Na, Mg, Ca, Fe, Al, Si, Kに着目した模擬海水の濃度を表-2に示す。また、透水試験では、後にICP発光分光分析を行うため、通水後の透過水を約24時間ごとに採取した。



図-1 平滑な不連続面を有する円柱供試体

(2) 透水特性評価

透水試験より得た結果から透過率を算出した。本研究では、不連続面での流れがダルシー則に従い、流量が開口幅の三乗に比例すると仮定した。したがって、式(1)より算出された水理学的開口幅 b [m]を用いて、透過率 k [m²]は式(2)で表され、算出される。

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

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

ここで、 μ ：粘性係数 [Pa s]、 Q ：流量 [m³ s⁻¹]、 l ：供試体高さ [m]、 w ：供試体直径 [m]、 P_0 ：透水差圧 [Pa]、 ρ_w ：流体密度 [kg m⁻³]、 g ：重力加速度 [m s⁻²]である。また、各透水試験結果を比較する際、供試体ごとに試験開始時の透過率を意味する初期透過率が異なる。そのため、経過時間ごとの透過率を初期透過率で除すことで、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、 $k_n(t)$ ：正規化透過率 [-]、 $k(t)$ ：初期透過率 [m²]、 $k(t_i)$ ：時間 t_i における透過率 [m²]である。また、十分な時間経過後に正規化透過率が定常状態に到達すると仮定し、式(4)を用いて回帰分析を行った。

$$\bar{K}(t) = \bar{K}(\infty) - (\bar{K}(\infty) - \bar{K}(0)) \exp(-\alpha t) \quad (4)$$

ここで、 $\bar{K}(0)$ ：正規化透過率初期値、 $\bar{K}(\infty)$ ：定常時の透過率、 α ：変化速度を支配する変数 [h⁻¹]、 t ：時間 [h]である。さらに、得られた α を用いて式(5)、(6)により正規化透過率が99.9%定常状態に達するまでの時間 t_s を算出した。表-3に回帰分析結果を示す。

$$\exp(-\alpha t_s) = 1 - 0.999 \quad (5)$$

$$t_s = 3 \ln 10 / \alpha \quad (6)$$

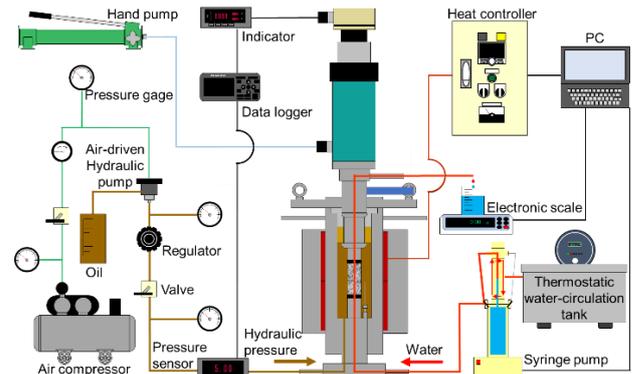


図-2 連続透水試験概略図

表-1 各供試体における境界条件^{5),6),7),8)}

供試体	不連続面形状	温度 [°C]	拘束圧 [MPa]	透過水
E-3	圧裂	25-90	5.0	脱イオン水
E-5	平滑	25-90	10.0	脱イオン水
E-8	平滑	25-90	5.0	オイル
E-16	平滑	20	5.0	鉱物飽和水
E-18	平滑	90	5.0	鉱物飽和水
E-22	平滑	20	5.0	模擬海水
E-23	平滑	90	5.0	模擬海水
E-25	平滑	20	10.0	模擬海水

表-2 模擬海水の元素濃度

	Si	Al	K	Fe
元素濃度 [mol L ⁻¹]	1.85×10 ⁻⁵	1.42×10 ⁻⁴	1.25×10 ⁻²	1.86×10 ⁻⁵
	Ca	Na	Mg	
	2.25×10 ⁻²	4.58×10 ⁻¹	5.99×10 ⁻²	

表-3 回帰分析結果

供試体	温度 [°C]	pH	$\bar{K}(\infty)$ [-]	t_s [h]
E-3	25	6.00	0.348	464
E-3	90	6.00	0.551	254
E-16	20	7.61	0.124	224
E-18	90	7.84	0.225	606
E-22	20	8.26	0.011	559
E-23	90	8.26	0.211	3313
E-25	20	8.26	0.003	1810

(3) 透水試験結果

透過水として模擬海水を用いた透水試験 (E-22, E-23, E-25) と既往研究 (E-5, E-16, E-18) ^{6),8)} の正規化透過率を比較した結果を図-3(a)に、透水試験中に温度を上昇させた既往研究 (E-3, E-8) ^{6),7)} を図-3(b)に示す。ここで、図-3(a)には式(4)を用いた回帰曲線を同時に示している。図-3(a)から、塩水条件と鉱物飽和条件のどちらも、90°C条件下の方が20°C条件下よりも透過率の減少幅が小さいことが確認できる。また、回帰曲線による定常時の透過率から塩水条件で拘束圧10 MPaのE-25が、同透過水で拘束圧5 MPaのE-22よりも透過率が減少することが確認できる。また、脱イオン水を用いた拘束圧10 MPaのE-5と比較すると、E-25の方が透過率が減少することが確認できる。回帰分析より得た定常時の透過率 $\bar{K}(\infty)$ の比較結果を図-4に示す。図-4(a)から、鉱物飽和水及び模擬海水を用いた供試体では20°C条件下の方が90°C条件下よりも透過率が減少することが確認できる。しかし、図-3(b)に示す脱イオン水及びオイルを用いた供試体では温度上昇により透過率が減少している。これは、鉱物飽和水及び模擬海水を用いた供試体では温度上昇による沈殿現象の抑制、脱イオン水及びオイルを用いた供試体では圧力溶解の促進が影響していると考えられる。また、図-4(b)から脱イオン水及び模擬海水を用いた供試体のどちらも拘束圧の上昇で定常透過率が減少していることが確認できる。

3. ICP発光分光分析

本研究では、透水試験期間中、約24時間ごとに採取した透過水を対象にICP発光分光分析を行い、元素濃度の変化を評価した。対象元素は前述した花崗岩に含まれる主要7元素とした。本研究では、透水後から透水前を差し引いた濃度を溶出濃度と定義することで、正の値となれば溶解現象、負の値となれば二次鉱物の沈殿現象が不連続面内で卓越していると判断した。図-5にE-23のICP発光分光分析結果を示す。透水試験開始後800時間までは正負を往來したが、それ以降は負の値を多く示した。20°C条件では透水試験中のほとんどで負の値を示すことが確認されているため、20°C条件の方が90°C条件よりも沈殿現象が卓越していると考えられる⁹⁾。

4. 微視構造観察

本研究では、透水試験後の不連続面における沈殿物を分析するため、SEM-EDXを用いた微視構造観察を行った。20°C条件のE-22 (図-6(a)) では立方体型の沈殿物の

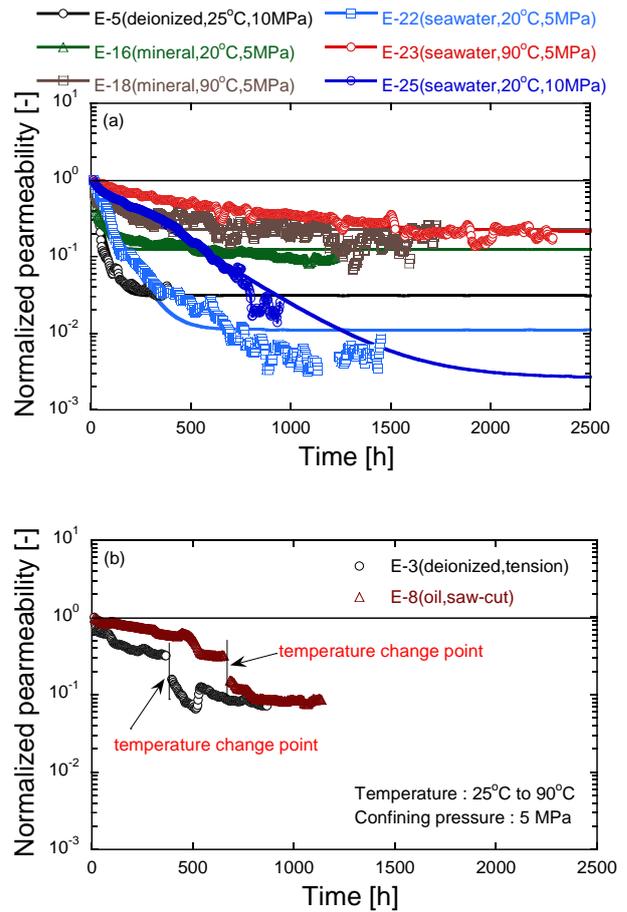


図-3 正規化透過率比較

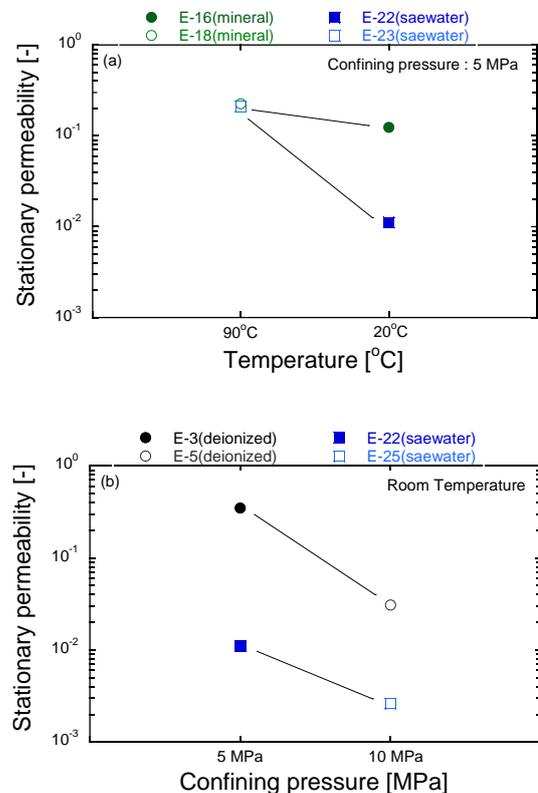


図-4 透過率変化量速さ比較

点存在が観察でき、EDXの結果から塩結晶と判断した。しかし、90°C条件のE-23 (図-6(b)) では同様の沈殿物は確認されなかった。また、図-7(a), 図-7(b)に示すNa濃度のマッピング分析からもE-22ではNaの点存在が確認されたが、E-23では確認されなかった。

5. まとめ

本研究では、高温・高圧環境下における塩水を用いた連続透水試験を実施し、花崗岩不連続面の透水特性変化について評価した。透水試験結果を既往研究と比較すると、塩水条件下では20°C条件下の方が90°C条件下よりも透過率が低下することが確認された。また、回帰分析による透過率変化速さを用いると、透過率を減少させる影響力は、圧力溶解の卓越により透過率が減少すると考えられる供試体では高温条件の方が、沈殿現象の卓越により透過率が減少すると考えられる供試体では室温条件の方が高いと確認できた。また、ICP発光分光分析を用いた透過水中の元素濃度変化、SEM-EDXを用いた沈殿物の分析結果からも、90°C条件では20°C条件よりも塩結晶の沈殿現象が抑制されていることが確認できた。このことから、塩水条件下では90°C条件より20°C条件の方が透過率が減少することが確認できた。これは、温度上昇に伴い透過率が減少した脱イオン水やオイルを用いた透水試験とは異なる結果となった。今後は、塩結晶の析出挙動とそのメカニズムの把握、境界条件の異なる透水試験の実施によるデータ蓄積が必要である。

参考文献

- 1) 特定放射性廃棄物の最終処分に関する法律，第一章 総則，第二条
- 2) R. Summers, K. Winkler, and J. Byerlee : Permeability Changes During the Flow of Water Through Westerly Granite at Temperatures of 100°-400°C, *Journal of geophysical research*, Vol.83, No.B1, pp.339-344, 1978.
- 3) Kenichirou Suzuki, Masanobu Oda, Toru Kuwahara, and Kunioki Hiram : Material property changes during long-term immersion in hot water, *Engineering Geology*, 40, pp.29-39, 1995.
- 4) 安原英明, 木下尚樹, Dae Sung LEE, 中島伸一郎, 岸田潔 : 力学-科学連成概念モデルによる花崗岩不連続面の透水・物質輸送経時解析, *土木学会論文集*, Vol.65, No.1, pp.41-52, 2009.
- 5) 大西史記, 安原英明, 木下尚樹 : 塩水条件下における花崗岩不連続面の透水特性評価, 第15回岩の力学国内シンポジウム講演集, pp.211-214, 2021.

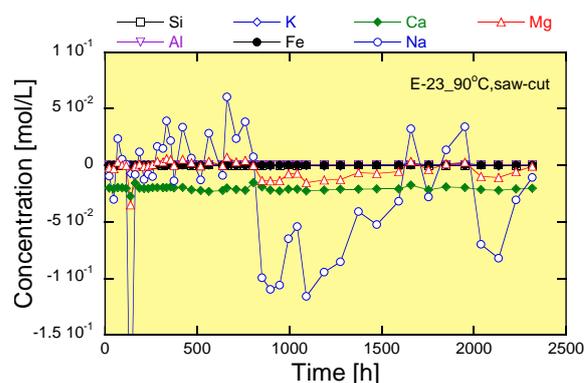


図-5 ICP発光分光分析結果 (E-23)

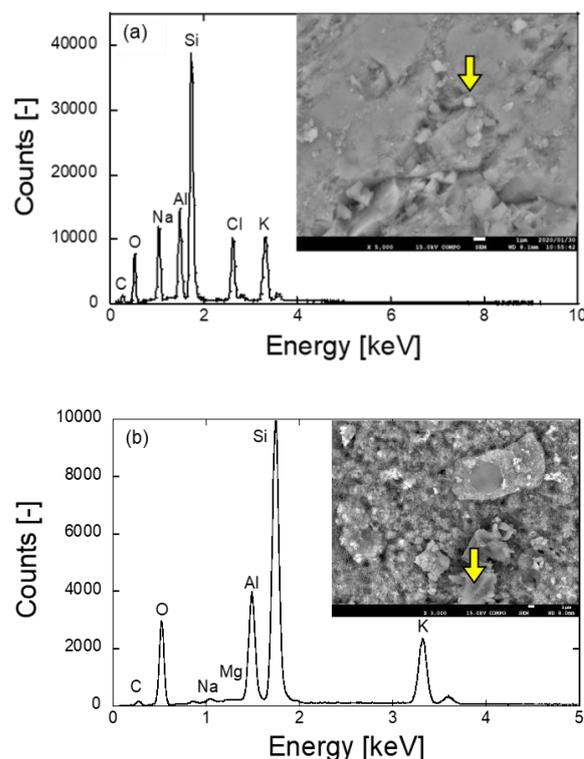


図-6 SEM-EDX 結果 (a) E-22 (b) E-23

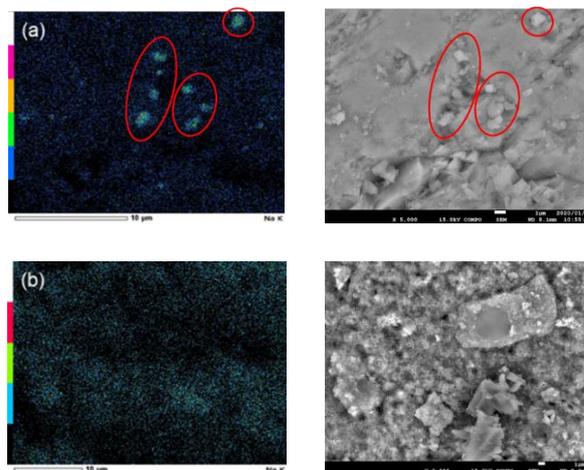


図-7 マッピング分析結果_Na (a) E-22 (b) E-23

- 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 MMLJ*, Vol.128, pp.72-78, 2012.
- 7) 木下尚樹, 安原英明, 橋本克樹: 熱環境下における岩石不連続面の透水特性に及ぼす化学・力学連成作用, *Journal of MMLJ*, Vol.129, pp.485-491, 2013.
- 8) 廣惠なつ美, 安原英明, 木下尚樹: 高温・高圧条件下の鉱物飽和水を使用した花崗岩不連続面の透水実験, 地盤工学会四国支部平成 30 年度技術研究発表会講演概要集, pp.55-56, 2018.

PERMEABILITY TEST OF GRANITE FRACTURES USING SALT WATER UNDER HIGH TEMPERATURE AND HIGH PRESSURE CONDITIONS

Daichi SAKO, Sho OGATA, Fuminori OHNISHI, Naoki KINOSHITA and Hideaki YASUHARA

In the geological disposal of high-level radioactive waste (HLW), the permeability of the rock mass around the disposal facility may change over a long term due to the combined effects of groundwater containing salt from seawater and heat generated by the waste. Therefore, it is essential to evaluate the long-term hydraulic properties of the rock mass. In this study, a permeability tests using salt water as the permeate were conducted and compared with previous studies to investigate the effect of different boundary conditions on the permeability of granite fractures. In addition, ICP spectroscopy and SEM-EDX were used to observe the microstructure of the fractures. As a result, it was confirmed that the permeability decreased more under room temperature conditions than under high temperature conditions, and that the precipitation of salt crystals affected the permeability decrease.