

III-248 岩石間隙水中の放射性核種の 拡散と間隙の性質

榊熊谷組 原子力開発室 正員 ○西山勝栄
日本原子力研究所 中嶋 悟

1. はじめに

高レベル放射性廃棄物の深地層処分において、処分施設から岩盤地山へ漏洩した核種は岩盤中の大きな割れ目からその周辺にある微小間隙を有する岩石マトリックス部に向かって拡散する。こういった現象は、核種の遅延・希釈に対して効果があると言われており¹⁾、岩盤中の核種挙動の評価上重要なテーマの一つとなっている。本研究では、12種類の岩石試料を用いて非収着性のヨウ素イオンをトレーサ元素とした拡散実験を行い、間隙率や間隙の存在状態が拡散係数にどういった影響を与えるかを検討した。いくつかの興味ある知見が得られたのでここに報告する。

2. 岩石の間隙構造

岩石中の間隙の存在状態を知るために、水銀圧入法を用いて岩石試料の間隙孔径分布を測定した。本実験で用いた岩石試料は、花崗岩、安山岩、石灰岩、珪質堆積岩および凝灰岩で、間隙率は0.1~48%の12種類である。図-1にそれらの試料のうち珪質堆積岩と花崗岩の間隙孔径分布について示す。同図で横軸は円筒状間隙半径 r 、縦軸は試料1gあたりの間隙累積体積 V_p と $dV_p/d\log r$ 値を同時に示している。 $dV_p/d\log r$ は間隙体積を間隙半径の対数を微分し $V_p-\log r$ 線図の傾きを表したもので、半径 r をもつ間隙の頻度の目安となるものである。これより、珪質堆積岩は間隙孔径の大きさが10nm以下の間隙がもっとも多く、100nm以上の間隙はほとんど存在していない。また、間隙孔径の存在幅が狭くなっていることが認められるが、これは岩石の構成粒子が均質で、かつ焼成作用の過程での間隙の変化が一様であることによるものと推定される。一方、花崗岩は珪質堆積岩に比して大きな間隙孔径が存在していることが認められ、間隙率が小さいにもかかわらず10 μ mから10nmまで幅広く存在している。20nm~10nmの間隙孔径が全体の約25%ぐらいあるが、それ以下の間隙はほとんど存在していない。このように、間隙孔径分布は岩石の種類によってかなり異なったものとなり、間隙孔径の大きさは間隙率に依存しないことが分った。

3. 拡散実験と有効拡散係数 D_0 の測定法

拡散実験は岩石試料とそれによって仕切られた2つの貯留槽からなる拡散セルを用いて行った。2つの貯留槽の片側に高濃度のトレーサ元素を含む溶液、もう一方に脱イオン水を入れてある。トレーサ元素は時間が経過するに従って高濃度側の貯留槽より岩石試料の間隙水中を拡散移行し、さらに脱イオン水側(低濃度側)の貯留槽に浸出していくことになる。トレーサ元素は岩石に収着しにくいと言われているヨウ素を選び、1mol/l (I^- =127000ppm)のヨウ化カリウム(KI)溶液で非放射性のものとした。ヨウ素イオンの濃度は低濃度側より溶液を0.5ml採取して、イオンクロマトグラフを用いて測定した。

拡散方程式と岩石中の拡散フラックスが一定となったときの低濃度側の濃度 $C_2(t)$ は次式で与えられる¹⁾。

$$\alpha \frac{\partial C}{\partial t} = D_0 \frac{\partial^2 C}{\partial X^2} \cdots (1), \quad C_2(t) = A \ell C_1 / V \cdot (D_0 t / \ell^2 - \alpha / 6) \cdots (2)$$

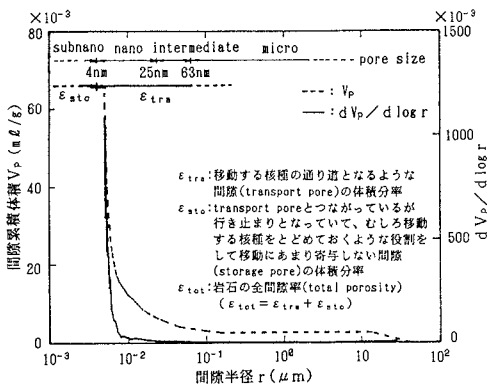
ここに、 D_0 :有効拡散係数、 α :rock capacity factor、 C :岩石間隙水中の濃度、 X :距離、 t :時間、 A :断面積、 ℓ :岩石の試料長、 C_1 :高濃度側の濃度、 V :セルの容量である。

D_0 は岩石間隙水中を溶質が拡散する速度を評価する目安となるもので、溶質の岩石への収着などによって影響を受けないものとして定義し、低濃度側貯留槽の溶質濃度 $C_2(t)$ の経時変化が直線的に増加するところの直線勾配から得られる。 α は溶質が岩石の間隙にとどまったり、岩石に収着したりする割合を示すものであり、 $\alpha = \varepsilon_{\text{tot}} + \rho K_d$ (ε_{tot} :岩石の全間隙率、 ρ :岩石の密度、 K_d :分配係数)で表される。

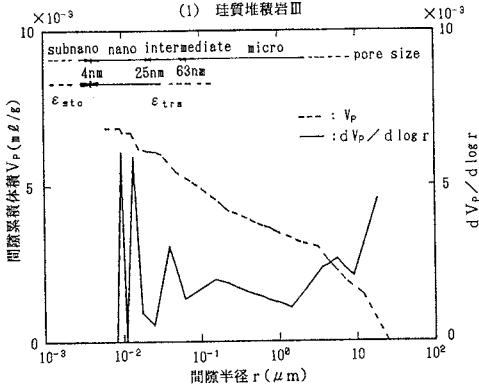
4. 実験結果と考察

珪質堆積岩の間隙水中を拡散し、低濃度側に浸出してきたヨウ素イオンの濃度変化を図-2に示す。同図に

は代表的な4ケースについて実測値をプロットしてあるが、各ケースとも濃度 C_2 は実験開始直後(0~0.5日ごろ)は緩やかに増加するが、それ以降は多少のばらつきはあるものの濃度上昇率がほぼ一定となり直線的に増加していることが認められる。また、その濃度上昇率(直線勾配)は岩石試料の間隙率が大きいほど大きくなっていることがわかる。図中の実線はそれらの測定点を使って最小2乗法によって求めた回帰直線(相関係数 >0.99)である。その直線勾配から D_e を、切片の値から α を計算した。つぎに、岩石の有効間隙率 ε_{tra} とヨウ素イオンの有効拡散係数 D_e の関係を両対数グラフ上にプロットしたものが図-3である。 ε_{tra} は拡散に寄与する有効間隙率(transport porosity)であり、全間隙率 ε_{tot} から拡散に寄与しない貯留間隙率 ε_{sto} (storage porosity)を差し引いたものである。ここでは、 ε_{sto} は4nm以下の微小間隙を対象とした²⁾。一般的な傾向として、有効間隙率が小さくなると有効拡散係数も小さくなり、直線的に分布していることが分かる。図中の実線は最小2乗法を用いて近似したものである。この直線を有効間隙率が1となるまで外挿すると D_e は $5.3 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$ となるが、これは水中でのヨウ素イオンの自己拡散係数($D_0 = 2 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$)に対応すると考えられ、ほぼそれに近い値となっている。つまり、このことは有効間隙率を知ることにより、有効拡散係数を推定することが可能であることを示しているものと言える。



(1) 珪質堆積岩Ⅲ



(2) 花崗岩

図-1 珪質堆積岩と花崗岩の間隙孔径分布

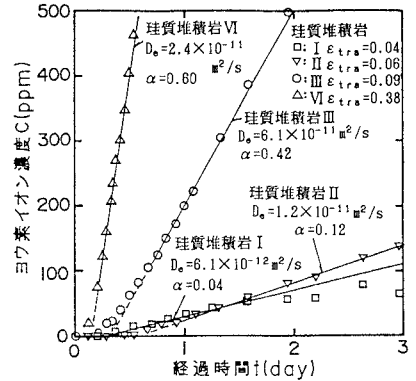


図-2 珪質堆積岩間隙水中のヨウ素イオンの拡散

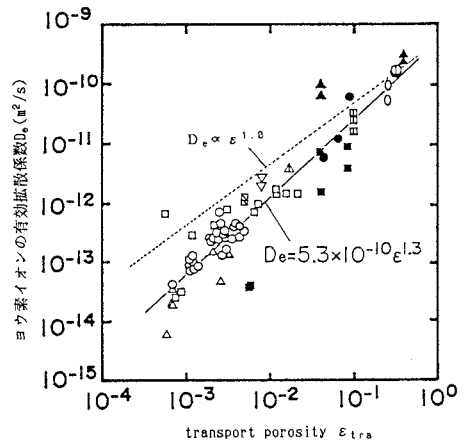


図-3 有効間隙率 ε_{tra} と有効拡散係数 D_e の関係

参考文献

- 1) K. Skagius et al., Water Resources Research, Vol. 22, No. 3, pp. 389-398, 1986.
- 2) T. J. Katsube, Proc. Tech. Prog., Int. Power and Bulk Solids Handling and Processing, Rosemont III, pp. 394-409, 1981.
- 3) M. H. Bradbury et al., Harwell Report AERE R 11995, 51p., 1986.