Pitzer 式を考慮した力学-化学連成数値モデルによる花崗岩不連続面の溶解機構の検討

愛媛大学大学院　学生会員　○川下慧　　愛媛大学大学院　学生会員　橋本克樹
愛媛大学大学院　正会員　安原英明　愛媛大学大学院　正会員　木下尚樹

1．緒論

放射性廃棄物の地層処分を熟考する上で，天然バリアとなる処分施設近傍の岩盤では，廃棄体からの発熱による温度変化・熱応力が発生する．また，処分施設に使用されるセメント系材料の溶出により地下水の高アルカリ化も想定される．そのため，熱・水・応力・化学の相互作用を考慮した岩盤の透水・溶解機構の評価が必要不可欠である．本研究では，単一不連続面を有する花崗岩供試体において，地層処分時の拘束圧，廃棄体からの発熱作用を考慮した温度条件，地下水の高アルカリ化を想定した透水試験を実施し，不連続面開口幅の経時変化およびその変化に起因する鉱物溶解現象を定量的に評価した．さらに，応力・温度・pH 条件に依存する鉱物溶解現象を記述する力学-化学連成数値モデルに，物質濃度を精緻に評価可能な Pitzer 式を組み込み，解析モデルの拡張を行った．拡張解析モデルについては，透水試験の再現解析を行うことで，モデルの有用性を検討した．

2.　温度・pH を制御した花崗岩不連続面の透水試験

本実験には，単一の圧裂・平滑不連続面を有する花崗岩円柱供試体を用いた．透水試験(E6，E7)は，拘束圧 5MPa，温度 25-90℃の境界条件で，pH~11 の透過水を用いて実施した．**図 1** に圧裂不連続面供試体を用いた透水試験 E6 の結果を示す．不連続面開口幅は実験開始直後の 30μm から徐々に低下し，300 時間程度で 7.5μm となり，定常に至った．その後，温度を 90℃に上昇させると，さらなる開口幅の低下を確認し，最終的な開口幅は初期開口幅の 10%程度まで減少した．透水試験の結果，不連続面開口幅の透水性変化は作用温度に大きく依存することが確認された．

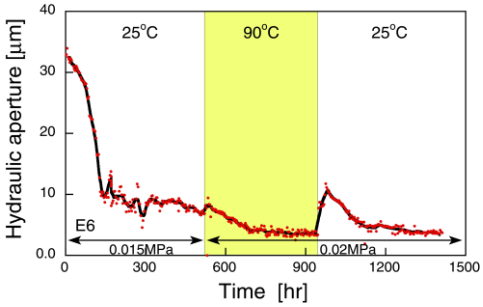

図 1 不連続面開口幅の経時変化

また，pH 条件の違いが透水性変化に及ぼす影響に着目して検討を行った．**図 2** に pH~7，pH~11 条件で実施した透水試験結果(不連続面開口幅経時変化)を示す．図より，アルカリ条件における不連続面開口幅の低下率は中性条件と比較して大きくなることが観察された．一方，アルカリ条件の方が中性条件よりも鉱物溶解現象が卓越するため，最終的な不連続面開口幅の定常値は相対的に大きくなることが確認された．

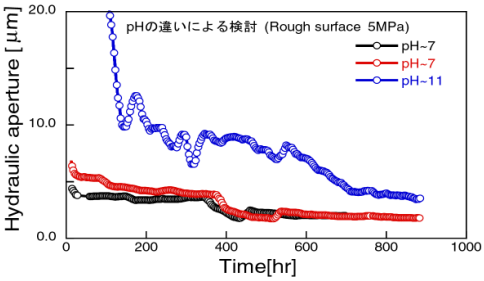

図 2 pH の違いによる透水性の検討

透水試験中には透過水をサンプリングしており，溶存する物質濃度を ICP 発光分光分析により定量的に評価した．**図 3** は透水試験 E6 の分析結果であり，Si 濃度が他の元素よりも高いことが判明した．また，温度および pH を上昇させた場合，全ての物質濃度が増加したことから，透水性の低下は鉱物の溶解現象に起因していることが明確となった．この透水性の変化を及ぼす誘因として二次鉱物の生成も想定される．そこで，走査型電子顕微鏡を用いて透水試験前後の供試体不連続面の微視構造観察を行った．その結果，溶出した Si の再沈殿により生成されるシリカ鉱物を 1 種類確認することができたが，沈殿量は少なく透水性の変化には影響を及ぼさないと考えられる．

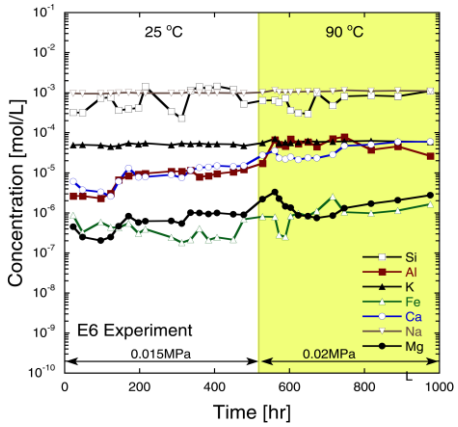

図 3 物質濃度の経時変化

キーワード　花崗岩不連続面，透水性，溶解，高アルカリ性，活量，Pitzer 式，
連絡先　〒790-8577　愛媛県松山市文京町 3　ＴＥＬ089-927-9000

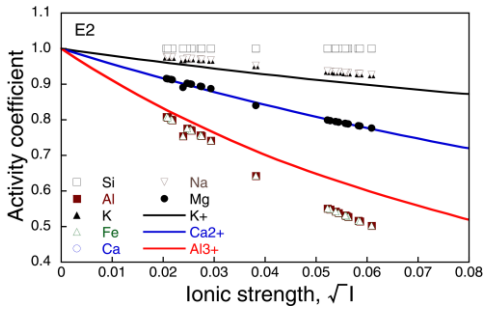

図 4 活量係数とイオン強度の関係

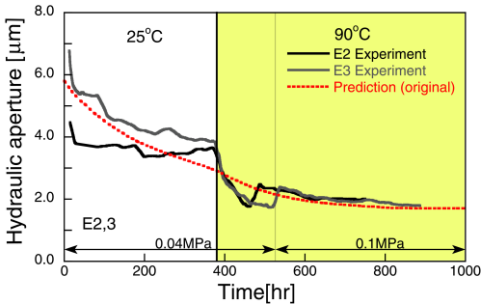

図 5 不連続面開口幅の実験値と解析値

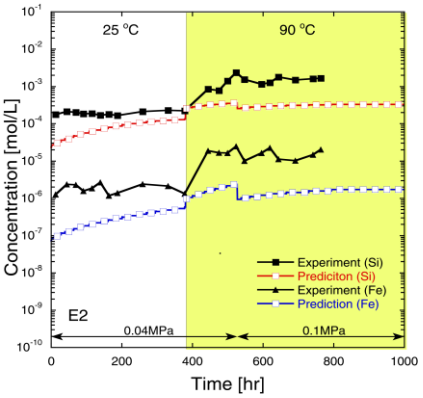

図 6 物質濃度の実験値と解析値

3. 力学-化学連成数値モデル

本モデルは，作用する応力・温度に依存する圧力溶解，境界面拡散，自由表面溶解を記述できる．本研究では，透過水中の物質濃度(活量)を精緻に評価可能な Pitzer 式をモデル内に組み込み，さらに鉱物溶解現象の pH 依存も考慮できる解析モデルに拡張を行った．**図 4** に Pitzer 式により算出した活量係数とイオン強度の関係を示す．図中の実線は K，Ca，Al の文献値であり，プロットは計算値である．計算値は文献値を概ね再現できており，Pitzer 式が妥当であることが確認できた．

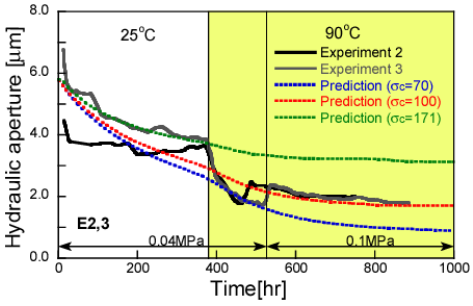

図 7 不連続面開口幅(σ_c)

4. 解析モデルの有用性の検討

拡張された解析モデルを用いて，花崗岩不連続面の透水試験の再現解析を試み，拡張解析モデルの有用性を検証した．解析では，作用応力，温度および pH 条件に依存する鉱物溶解現象を詳細に評価し，透水性および物質濃度の経時変化を予測した．**図 5** に不連続面開口幅，**図 6** に物質濃度(Si，Fe)の実験値と解析値を示す．**図 5，6** より，不連続面開口幅および物質濃度の解析結果は実験結果を概ね再現することができた．

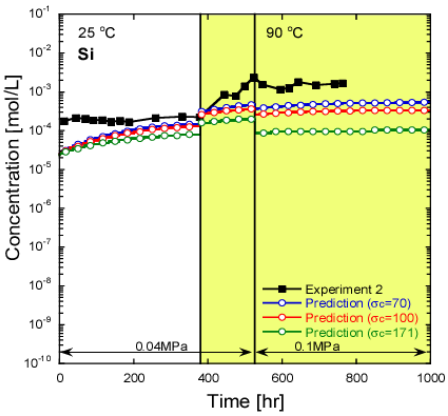

図 8 物質濃度(σ_c)

さらに解析モデルに用いるパラメータのうち不確実性を有する要素の一つである臨界応力の値をσ_c=70 ，100，171 MPa と変化させ，臨界応力の影響を検証した．ここで，臨界応力は接触部での圧力溶解が活性となる臨界の応力を指す．**図 7** に不連続面開口幅，図 8 に物質濃度(Si)の実験値と臨界応力を変化させた解析値を示す．解析結果より，不連続面開口幅はσ_c=100MPa，物質濃度はσ_c=70MPa において最も再現性が高いことが確認された．以上の結果より，本研究の解析に用いた境界条件下では，溶解現象に起因する不連続面開口幅・物質濃度の変化は，不連続面接触部における圧力溶解に大きく依存することが確認された．

5. 結論

本研究では温度・pH を制御した花崗岩不連続面の透水試験を実施した．また，透過水の化学分析，不連続面表面の微視構造観察により，温度・pH 変化に伴う不連続面透水性の変化と，不連続面内の鉱物溶解現象を評価した．

また，力学-化学連成モデルに鉱物の溶解機構をより詳細に評価できるようPitzer式を組み込み，さらには pH依存も考慮できるよう拡張を行った．拡張解析モデルを用いた解析結果は，不連続面開口幅・物質濃度ともに透水試験結果を概ね再現することができた．以上の結果より，本研究の解析に用いた境界条件下では，不連続面開口幅・物質濃度の変化は圧力溶解に大きく依存することが明確となった．

【参考文献】

1)安原英明，木下尚樹，操上広志，中島伸一郎，岸田潔，土木学会論文集 C, Vol.63, No.4, pp.1091-1100, 2007
2)安原英明，木下尚樹, Dae Sung LEE，中島伸一郎，岸田潔: 力学―化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 C， Vol.65, No.1, pp.41-52, 2009