

大阪大学工学部

学生員 ○西羅 瑛太

大阪大学大学院工学研究科

正会員 緒方 奨

大阪大学大学院工学研究科

正会員 乾 徹

愛媛大学大学院理工学研究科

正会員 安原 英明

1. はじめに

高レベル放射性廃棄物地層処分システムの核種閉じ込め性能を評価するためには、廃棄体周辺岩盤に存在する亀裂の透水性を数値解析により長期予測する必要がある。廃棄体周辺岩盤では、廃棄体からの放熱、深地層下の地圧、処分空洞の支保工からのセメント系材料の溶出に起因する高温・高圧・アルカリ環境が形成される。こういった複合環境下では、岩石鉱物と亀裂内間隙水の相互作用（溶解・沈殿反応）が促進され、亀裂の透水性が経時変化することが予想される。既往研究では、中性環境下で種々の温度・応力条件を考慮した岩石亀裂の透水性変化予測解析は行われているが（例えば、Ogata et al. (2018)¹⁾）、アルカリ環境下での予測解析を行い、その再現性が確認された事例はほとんどない。

そこで本研究では、温度・応力・pH条件と連動した岩盤鉱物の溶解・沈殿反応とそれに伴う透水性変化機構を考慮した岩石亀裂内の透水一反応一輸送連成数値シミュレータを構築する。また、それを用いて温度・拘束圧・透過水pHを実験条件とした花崗岩単一亀裂への長期透水試験の再現解析を行うことによって、構築したシミュレータの妥当性を検証する。

2. シミュレータ概要

本シミュレータは、Ogata et al.(2018)¹⁾にて提案された有限要素法ベースの数値シミュレータをより詳細な地化学計算ができるように改良したシミュレータである。この改良によってこれまで考慮できなかった空隙中のpH変化や鉱物の沈殿の影響を包含した岩石亀裂における透水性経時変化の記述を可能としている。本シミュレータは水飽和状態の岩石亀裂を対象とし、流体流れは連続式とダルシー則を用いて計算する。流体中の化

学種輸送挙動は移流拡散方程式で計算する。亀裂の開口幅及び透水性の経時変化については、亀裂内の自由表面での溶解・沈殿と、接触部での鉱物溶解（圧力溶解）による影響を考慮する。圧力溶解、自由表面溶解・沈殿による開口幅変化速度 $\dot{b}^{PS}$ 、 $\dot{b}^{FF}$ は次式で表される。

$$\dot{b}^{PS} = - \sum_j^m \frac{3f_{r,j}\chi_j k_{+,j} V_{m,j}^2}{RT} \left(\frac{\sigma_{eff}}{R_c} - \sigma_c \right) \quad (1)$$

$$\dot{b}^{FF} = \sum_j^m 2f_{r,j}\chi_j (1 - R_c) k_{+,j} V_{m,j} \left(1 - \frac{Q_j}{K_{eq,j}} \right) \quad (2)$$

ここで、 $f_{r,j}$ ：ラフネスファクター [-]、 $k_{+,j}$ ：鉱物 j の溶解速度定数 [mol/m²/s]、 R_c ：亀裂接触率 [-]、 T ：岩石の作用温度 [K]、 χ_j ：鉱物 j の体積含有割合 [-]、 $V_{m,j}$ ：鉱物 j のモル体積 [m³/mol]、 b ：亀裂の幾何学的開口幅 [m]、 R ：気体定数 [kJ/mol/K]、 σ_{eff} ：亀裂に作用する有効拘束圧 [MPa]、 σ_c ：臨界応力 [MPa]、 Q_j ：鉱物 j のイオン活量積 [-]、 $K_{eq,j}$ ：鉱物 j の平衡定数[-]である。pHと温度に対する依存性を有する溶解速度定数 $k_{+,j}$ は以下の式で定義される²⁾。

$$k_{+,j} = k_{1,j} a_{H^+}^{n_{1,j}} + k_{2,j} + k_{3,j} a_{H^+}^{n_{3,j}} \quad (3)$$

$$k_{i,j} = k_{i,j}^{298.15K} \exp \left[\frac{-E_{i,j}}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{298.15K} \right) \right] \quad (4)$$

ここで、 $k_{i,j}^{298.15K}$ ($i=1,2,3$)：頻度因子 [mol/m²/s]、 $E_{i,j}$ ：活性化エネルギー [kJ/mol]、 $n_{i,j}$ ($i=1,3$)：鉱物依存の定数 [-]、 a_{H^+} ： H^+ の活量 ($\approx 10^{-pH}$) [-]である。式(1)(2)から導出した開口幅変化速度 $\dot{b}^{PS}(t)$ 、 $\dot{b}^{FF}(t)$ を用いて、任意時間 t における亀裂の開口幅 $b(t)$ を求める。

$$b(t) = b_0 + \int_0^t \dot{b}^{PS}(t) dt + \int_0^t \dot{b}^{FF}(t) dt \quad (5)$$

ここで、 b_0 ：初期開口幅 [m]である。本研究では、式(5)により求めた開口幅から透過率を算出し、実験結果と比較する。

3. 解析対象とする透水試験の概要

木下ら³⁾によって行われた温度・拘束圧・透過水 pH を制御した花崗岩単一亀裂への透水試験のうち、E4 (直径: 29.8 mm, 高さ: 57.4 mm) と E7 (直径: 29.7 mm, 高さ: 62.1 mm) の 2 つの供試体を用いた実験ケースの再現解析を行う。この 2 ケースは透過水 pH が異なり、E4 は超純水 (pH~7.0), E7 は NaOHaq (pH~11) を用いている。両ケースの実験条件を表 1 に示す。

表 1 解析対象とする透水試験の条件

	拘束圧 [MPa]	透過水 pH	温度 [°C]	透水差圧 [MPa]
E4	5.0	7 (超純水)	25~90	0.10~0.13
E7	5.0	11 (NaOHaq)	25~90	0.015~0.050

4. 再現解析結果

E4, E7 とともに、実験同様の約 800 時間を解析期間としていたが、本稿作成時点で解析が終了していないため、今回は得られた時間までの解析結果を実験結果と比較する。図 1, 2 はそれぞれ E4, E7 の透過率変化の解析結果と実験結果の比較であり、図中の背景が白い領域は供試体内温度が 25°C, 黄色領域は 90°C の時間帯を示す。まず、E4 と E7 の実験結果を比べると、温度が 25°C から 90°C に上昇するタイミングでの透過率減少量とその減少速度が E4 よりも E7 で大きいことが分かる。図 2 より、前述した pH の差に起因した変化挙動は精度よく追跡できていることが分かる。しかし、E7 における実験開始直後の、急激な透過率低下は再現できていない。この透過率低下は拘束圧による亀裂の弾性変形や粒子破碎等のシミュレータで考慮していない力学現象に起因していると考えられる。一方で、E4, E7 とともに、鉱物反応に起因するとされる経時的な透過率変化は概ね良く予測できている。特に E4 については、25°C 領域に限った予測ではあるが、実験結果を非常によく再現できていることが分かる。

5. まとめ

本研究では、温度・応力・pH 条件に依存した鉱物反応による岩石亀裂の透水性経時変化を記述可能な数値シミュレータを構築した。また、温度・拘束圧・透過水 pH を実験条件とした花崗岩亀裂透水試験の再現解析を実施した結果、シミュレータは実験条件に関わらず実測された透水性変化を精度よく再現できおり、地層処分時に想定されるような高温・高圧・アルカリ環境下での亀裂性岩盤の核種閉じ込め性能の長期予測において有用なツールとなる可能性があると考えられる。

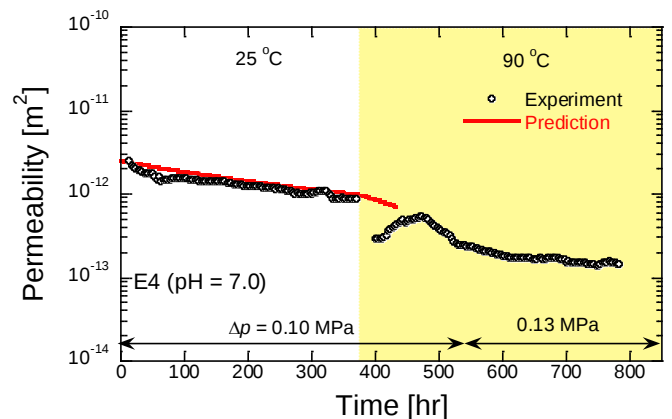


図 1 E4 の透過率変化に関する比較

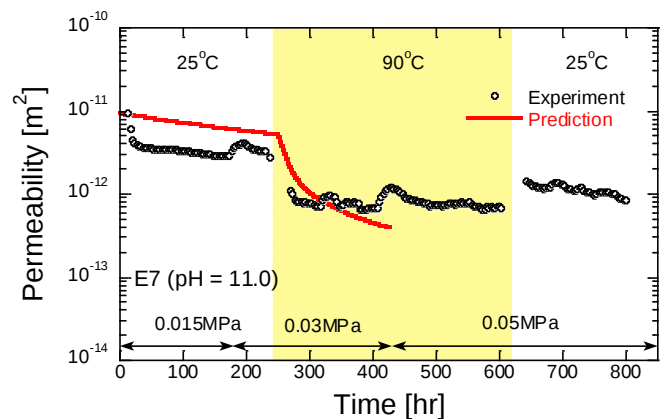


図 2 E7 の透過率変化に関する比較

参考文献

- 1) Ogata, S., Yasuhara, H., Kinoshita, N., Cheon, D.S. and Kishida, K.: Modeling of coupled thermal-hydraulic-mechanical-chemical processes for predicting the evolution in permeability and reactive transport behavior within single rock fractures, *Int.J.Rock.Mech.Min.Sci*, Vol.107, pp.271-281, 2018
- 2) Palandri, J.L. Kharaka, Y.K.: A compilation of rate parameters of mineral-water interaction kinetics for application to geochemical modelling, 2004
- 3) 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