カ学ー化学の相互作用に着目した花崗岩不連続面の透水解析

西日本高速道路株式会社 正会員 西山曜平 愛媛大学大学院 学生会員 〇川下慧 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

原子力発電の再処理過程で高レベル放射性廃棄物が発生し、日本では地下 300m 以深の岩盤中に処分する計 画が進められている.その際、廃棄体からの発熱による周辺岩盤の温度・応力の上昇から、岩石構成鉱物の溶 解・沈殿等の化学作用が卓越し、岩盤の力学・水理学特性が変化することが想定される.既存の研究では結晶 質性岩盤で弱面となる不連続面に関して温度・応力を考慮した任意の時間における透水性・濃度を評価できる モデルの構築を行っているが、透水性の物質移行特性の評価が不十分である.そこで、本研究では Debye-Hückel 理論式により活量を考慮したモデルに拡張し、そのモデルの妥当性について検討した.

2. 解析モデル概要

安原ら¹⁾は,非静水圧,非平衡状態における熱力学を考慮することにより,圧力溶解,拡散,自由表面溶解の一連の現象について質量フラックス(1)~(3)式を用いて定義している.

式中にある *i*, *m*, *j*, *n* はそれぞれ対象とする鉱物,全鉱物数,対象とする溶解物質イオン,全溶解物質数である.また式(3)については Debye-Hückel 理論式を用いて,活量を時系列で追えるようモデルの拡張を行っている.

$$\dot{M}_{diss}^{PS} = \sum_{i}^{m} \dot{M}_{diss,i}^{PS} = \frac{3(\sigma_{a} - \sigma_{c})A_{c}}{RT} \sum_{i}^{m} f_{i,r} x_{i}^{V} V_{m,i}^{2} k_{+,i} \rho_{g,i} \quad (1) \qquad \dot{M}_{diff} = \frac{8\pi D_{b}\omega}{\tau} \left(C_{int} - C_{por}\right) (2)$$

$$\dot{M}_{diss}^{FF} = A_{pore} \sum_{i}^{m} f_{i,r} x_{i}^{V} V_{m,i} k_{+,i} \rho_{g,i} \left(1 - \frac{Q_{i}}{K_{i}}\right) \quad (3) \qquad f_{r,i} = \frac{S_{BET,i} \overline{d}_{i} \rho_{g,i}}{6} \quad (4)$$

ここで、 $M_{diss}^{A_{iss}}$:全圧力溶解質量フラックス、 M_{diff} :全拡散質量フラックス、 $M_{diss}^{A_{iss}}$:全自由表面溶解質量フ ラックス、 σ_a :接触部応力、 σ_c :臨界応力、 A_c :接触部面積、R:気体定数、T:絶対温度、 f_r :ラフネスファク ター、 χ_i^{V} :鉱物 i の体積含有割合、 V_m :モル体積、 $k_{+\prime}$:溶解/沈殿速度定数、 ρ_g :粒子固体密度、 D_b :分子拡 散係数、 ω :接触面での拡散膜厚、 τ :溶解物質イオンの迂回倍率、 $(C_{int})_{x=s}$:接触面内物質濃度(ただし、 $0 < \varepsilon < 1$)、 $(C_{pore})_{x=dc/2}$: 間隙内物質濃度、 A_{pore} : 不連続面内自由表面積、 Q_i :イオン活量積、 K_i :平衡定数、 S_{BET} :比表 面積、 \bar{d} :粒子平均直径である.

3. 透水試験概要

透水試験は、不連続面を有する岐阜県瑞浪市産の花 崗岩円柱供試体を用いて実施した.試験条件を表1 に示す.透水試験より得られた溶液は、ICP 発光分 光分析により鉱物構成元素の定量評価を行った.測 定対象元素は岩石供試体の構成主元素と考えられる Si, Al, K, Fe, Ca, Na, Mg の7種類である.

表1 透水試験(5種類)の各試験条件

条件	E1	E2	E3	E4	E5
不連続面形状	圧裂	圧裂	圧裂	平滑	平滑
温度[℃]	20-90	25-90	25-90	25-90	25-90
拘束圧[MPa]	10	5	5	5	10
透水圧[MPa]	0.5	0.1-0.04-0.1	0.04-0.1	0.1-0.13	0.05

4. 花崗岩不連続面の透水解析

本研究で提案しているモデルでは、応力によるアスペリティ接触部の変形や破壊、サブクリティカル亀裂進 展などの力学的なクリープ現象は取り扱っていない.つまり、実際の変形挙動を過小評価している可能性もあ るが、ここでは温度・応力に依存する鉱物溶解の影響のみに着目し、透水性経時変化を評価する.

本章では、モデル内の不連続面開口幅と接触面積割合の関係を示す式中のパラメータを変化させる事で解析 を実施した.不連続面の幾何学的な平均開口幅と接触面積割合の関係式を以下で表す.

$$\langle b \rangle = b_r + (b_0 - b_r) \exp(-(R_c - R_{c0})/a)$$
 (5)

ここで、 $\langle b \rangle$:平均開口幅、 b_0 :初期開口幅、 b_r :残留開口幅、 R_{c0} :初期接触割合、a:定数である. 今回は、式(5)にあるパラメータaの基本値を0.03とし、他に0.04、0.05と値を変化させて解析を行った.不連続面開口幅の経時変化を比較した解析結果を図1に示す.図1より、解析結果は実験結果をある程度精度よく再現できていることが確認できる.しかし、不連続面開口幅の急激な変化について十分に再現できておらず、前述に説明した要素の影響が原因として考えられるが明確な判断はできていない.また、温度20-25℃におい



図1 不連続面開口幅の経時変化 (A)E1、(B)E2&E3、(C)E4、(D)E5 て3つの値に大きな違いはなく,温度を90℃に上昇させてからは時間と共に若干の差異が生じたが,最大でも 1µmとあまり違いは現れなかった.このことから,*a*=0.03~0.05と本研究の解析期間では開口幅にそれほど影 響を及ぼさないことが分かった.

次に,透水試験(E2)における Si 溶出濃度の実験値と解析値を比較した結果を図2に示す.図2より解析値は 実験結果を1オーダーほど過小評価する結果となった.これは,不連続面開口幅においては解析値が実験値の

挙動をある程度再現できていることから,自由表面溶 解速度・量を過小評価している可能性があると考えら れる.しかし, *a* =0.03~0.05 とパラメータを変化させ た時の溶出濃度の値については,不連続面開口幅の結 果と同様にあまり影響を及ぼさず,濃度値の差異は最 大でも1オーダー未満という結果を得られた.

5. 結論

本研究では、力学ー化学の相互作用現象に着目して、 花崗岩溶解機構をより精度良く評価できるよう Debye-Hückel理論を組み込み、物質濃度について精度 の高い解析を行えるようモデルの拡張を行った.解析 結果として、不連続面開口幅については、透水試験結 果の全体な挙動を概ね再現することができた.一方、 溶解物質濃度については、解析値が実験値を過小評価 する結果となった.そこで不連続面開口幅と接触面積



割合の関係式のパラメータである定数*a*の値を変化させることにより,溶解機構に与える影響を検証したが, 解析結果は若干の差異を生じる程度となり,それほど影響を及ぼさないことが確認された.これらから,本研 究で用いた透水実験の境界条件下では溶解現象に起因する物質濃度は,自由表面の寄与度が非常に高く,応力 によるアスペリティ接触部の溶解に依存性を持つことが考えられる.

【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