

泥岩の化学的浸透現象把握に向けた室内実験・原位置試験の条件設定に関する研究

2017年3月環境システム学専攻修士 学生証番号：47-156659 宇治原 慶彦

指導教員：徳永 朋祥 教授

キーワード：化学的浸透，反射係数，拡散係数，地層処分，半透膜

1. はじめに

原子力発電により生じた高レベル放射性廃棄物は、放射能が強く半減期が長いためとても危険であり、長期にわたり人間社会から隔離しなければならない。その中で1つの選択肢として、透水性の低い泥岩層への地層処分が考えられている[1]。この場合、長期間においての安全性を考えることが必要となるので、泥岩中の非常に遅い地下水の流れに関して十分に理解をしなければならない。泥岩は、主要な構成鉱物である粘土鉱物の表面電荷によって溶質の移動を妨げる可能性があるため、移流・拡散現象に加えて、化学的浸透による流れを考慮する必要がある[2]。化学的浸透という現象は反射係数や拡散係数といったパラメータから検討することができる[3]。日本においては化学的浸透に関して室内実験が数件行われている[3]、[4]が、原位置試験は行われた事例がない。しかし、実際に日本で実際に泥岩層に高レベル放射性廃棄物を処分することが決定したときに、化学的浸透に関する測定方法に関する知見がないことは問題になりかねない。そこで本研究では室内実験と原位置試験のそれぞれの方法で化学的浸透現象に関するパラメータを測定するための条件を決定することを目的とした。

2. 理論

泥岩は、粘土鉱物の表面が負の電荷を帯びて電気二重層を形成し、イオンの移動を部分的に妨げるため、不完全な半透膜として挙動することがある[5]。半透膜の不完全性を示す変数として、溶媒のみを通す理想的な半透膜で発生する圧力と不完全な半透膜で発生する圧力の比である反射係数 σ が用いられる[6]。

化学的浸透現象について、溶液と溶質のフラックスを表す式は、溶液フラックス $q(\text{m/s})$ 、浸透率 $k(\text{m}^2)$ 、粘性率 $\mu(\text{Pa}\cdot\text{s})$ 、圧力 $P(\text{Pa})$ 、発生圧力 $\pi(\text{Pa})$ 、反射係数 $\sigma(-)$ 、拡散係数 $D(\text{m}^2/\text{s})$ 、比貯留率 $S_s(\text{Pa}^{-1})$ 、間隙率 $n(-)$ を用いて(1)、(2)

式、反射係数 σ は(3)式でそれぞれ表される[3]。

$$S_s \frac{\partial p}{\partial t} = -\nabla \cdot \left(-\frac{k}{\mu} \cdot \nabla P + \frac{k}{\mu} \cdot \sigma \cdot \nabla \pi \right) \dots(1)$$

$$n \frac{\partial C}{\partial t} = -\nabla \cdot \left((1-\sigma)Cq - (1-\sigma)D\nabla C \right) \dots(2)$$

$$\sigma = \left(\frac{\nabla P}{\nabla \pi} \right)_{q=0} \dots(3)$$

式(1)はダルシー則に従う動水勾配と化学的浸透の勾配によって溶液フラックスが説明できることを示している。式(2)において、 $(1-\sigma)$ は溶質の通りやすさを表しており、溶液の流れに伴う溶質の流れと濃度勾配による拡散の $(1-\sigma)$ 倍が溶質のフラックスになることを示している。

本研究で用いたパラメータについて濃度変化は拡散係数が主に決定し、圧力変化の大きさは反射係数、圧力のピークに達するまでの時間は拡散係数がそれぞれ効いてくる。岩石中の溶液濃度に比べて高濃度溶液であれば置換した側の圧力は増加し、低濃度溶液であれば置換した側の圧力が下がることが期待される。

3. 室内実験

室内実験では泥岩を介して濃度の異なる溶液が存在するときの圧力・濃度変化についての計測を行った。ここではその方法と結果、考察を示す。今回用いた解析ソフトはCOMSOL MULTIPHYSICSである。

3.1. 室内実験手順

今回用いた岩石は北海道天塩郡幌延町にある幌延深地層研究センターの350m坑道内で採取した稚内層の珪質泥岩であり、約500～400万年前の新第三紀に堆積したものである[4]。このボーリングコアを成形し、直径50mm、厚さ30mmに作製したものをを用いた。実験装置の概要を図1に示す。泥岩の上下は

ペDESTALでは含まれている。ペDESTALにはサンプルの変形を防ぐためにガラスフィルターを入れている。泥岩とペDESTALはゴムスリーブで覆い、Oリングで固定して拘束圧を200 kPaかけて密着させ、ゴムスリーブと泥岩の間を溶液が流れないようにしている。操作手順は次に示すとおりである。まず、サンプルの下側のバルブを閉じて上側に50 kPaの背圧をかけ、下側が一定の圧力になるまで静置した。その後、上側のラインの片方をポンプにつなぎ、上側のレザバーの溶液を流量10 ml/minでNaCl溶液に置換した。このとき、低濃度側に置換するときは0.03 g/L、高濃度側に置換するときは37 g/LのNaCl溶液を用いた。置換開始から濃度と圧力を30秒毎に計測した。

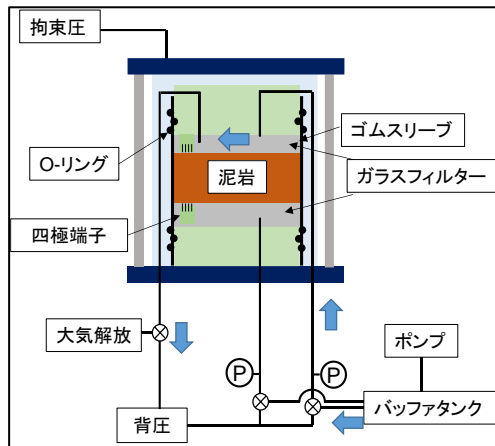


図1 室内実験装置図

3.2. 実験結果と考察

図2～図5に室内実験と数値解析の濃度変化、圧力差変化を示す。

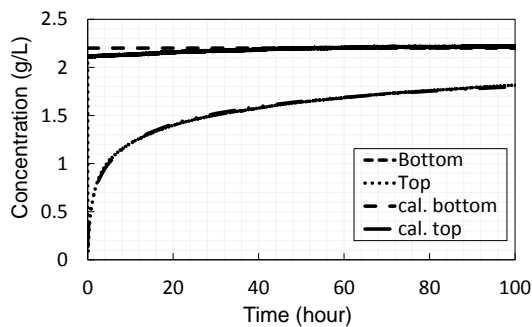


図2 低濃度溶液で置換したときの濃度変化

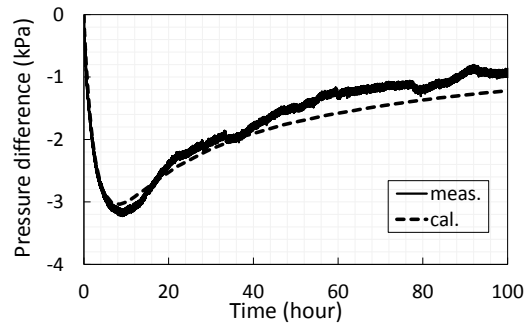


図3 低濃度溶液で置換したときの圧力差変化

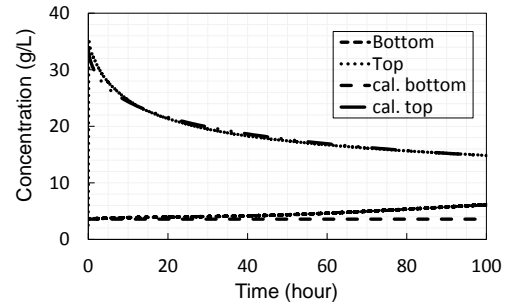


図4 高濃度溶液で置換したときの濃度変化

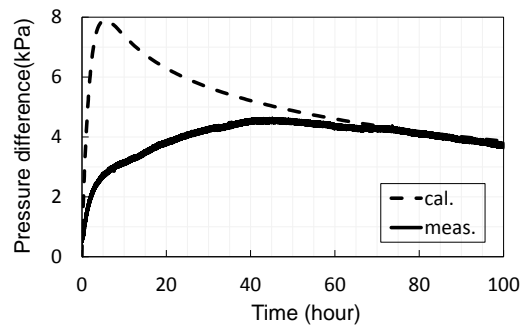


図5 高濃度溶液で置換したときの圧力差変化

数値解析の結果は、低濃度溶液を使用した場合、拡散係数は $5 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$ 、反射係数は0.035、高濃度溶液を使用した場合、拡散係数は $1 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$ 、反射係数は0.004となった。想定していた通り、低濃度の場合は圧力が減少し、高濃度の場合は圧力が増加した。どちらの実験でも下部の濃度変化が数値解析と合っていなかった。これは濃度を測定しているレザバーの濃度と岩石の含有濃度が若干異なっていたこと原因であると考えられる。高濃度での圧力差のピーク点は観測することができなかった。これは装置上の問題であると考えられる。また、Breslerモデル[5]を用いると反射係数は $b\sqrt{c}$ に反比例することが知られている。ここに、 b は平均間隙径の半分

[Å], c は濃度[N]である．これに従うと高濃度の溶液を用いたほど反射係数は小さくなるので本実験はこの傾向にも一致している．なお，拡散係数は稚内層の泥岩で行われた既往研究[3]の結果と調和的であった．

4. 原位置試験

室内実験のコアサンプルを採取したのと同じ場所で原位置試験を行った．試験を行った地点は深度 350 m の健岩部とされる坑道内である．原位置試験の手順と結果について示す．

4.1. 試験手順

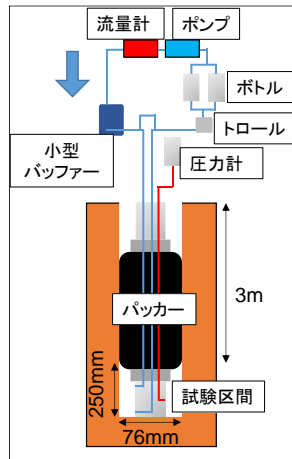


図 6 原位置試験装置

高濃度置換用と低濃度置換用にボーリング孔を掘削した．各孔に図 6 のような実験装置を投入した．まず，実験前に，試験区間周辺にこの地域の地下水と同じ組成で作成した溶液（模擬地下水）を注入した．その後，圧力が安定したとことを確認

した後に，試験区間内にある模擬地下水を高濃度への置換には 10%NaCl 溶液で，低濃度への置換にはイオン交換水で置換した．

4.2. 原位置試験結果と考察

高濃度溶液・低濃度溶液で置換したときの濃度変化をそれぞれ図 7, 図 8 に示す．なお，装置の都合上高濃度側は 15 日間，低濃度側は 36 日間の測定となっている．

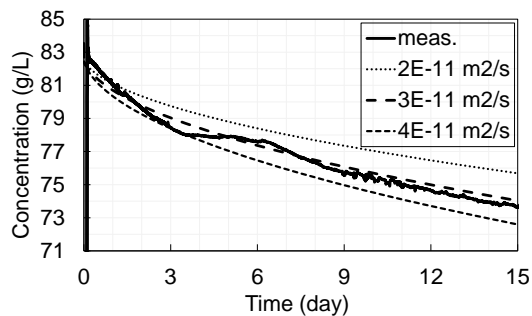


図 7 高濃度溶液で置換したときの濃度変化

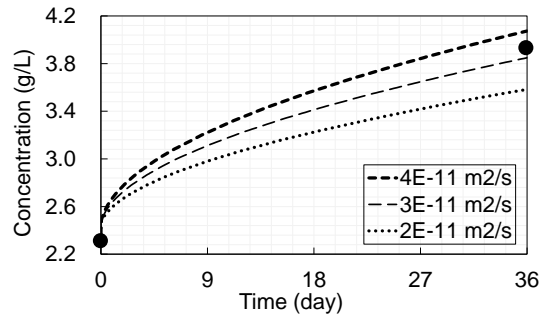


図 8 低濃度溶液で置換したときの濃度変化

高濃度で置換した場合の数値解析の結果は，拡散係数 $3 \times 10^{-11} \text{ (m}^2/\text{s)}$ となったので，濃度変化に関しては概ね実験結果を再現できていると考えられる．次に，低濃度で置換した実験では，装置故障のため，経時的な濃度計測はできなかった．そのため，試験開始前と終了後に直接測った濃度により検討を行った．初期濃度は 2.3 g/L ，最終濃度は 3.9 g/L であった（図 8 の黒点）．この結果から拡散係数を推定すると $3 \times 10^{-11} \text{ (m}^2/\text{s)}$ であった．この結果は高濃度の溶液で置換したときとほぼ同じであったので拡散係数に関しては試験結果と数値解析が一致していると考えられる．これは室内実験と同様に既往研究[3]と調和的である．それに対して，圧力変化からは反射係数は求めることができなかった．この原因として，各孔内でガスが発生していたため，圧力が上がり傾向であったため，高濃度溶液で置換する場合は，化学的浸透による圧力増加とガス発生による圧力上昇の影響が混同してしまう．また，低濃度溶液で置換した場合，濃度差が小さいため，今回の測定時間では数値解析上， 3 kPa 程度の圧力低下しか見られないと想定された．それに比べてガスによる圧力増加の影響の方が大きかったため観測できなかったのではないかと想定される．

5. 室内実験と原位置実験の結果の比較

5.1. 境界条件の違い

3, 4 の結果，室内実験では期待される圧力変化が観測できたが，原位置試験では期待される圧力変化は観測できなかった．室内実験では境界が有限でありコントロールできるのに対して，原位置試験では無限遠の境界が存

在する。そのため、境界の影響というのが大きな違いであると考えられる。これに関して、室内実験においてサンプルの厚さを変えたときの圧力差と時間の関係を図9に示す。この数値解析では泥岩の上部濃度を泥岩に対して高濃度の溶液で置換し、上部の圧力を増加させた場合の室内実験を想定している。

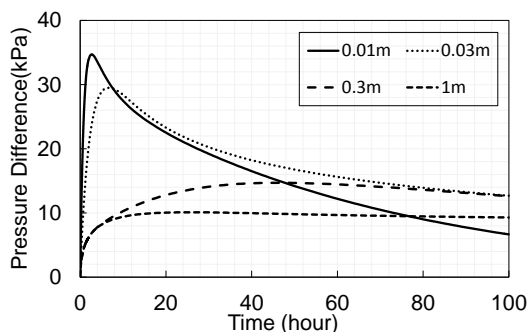


図9 厚さを変えたときの圧力変化

この結果から境界との距離が近いほど圧力変化が早く起こり、圧力変化は濃度変化に比べて伝播速度が速いので境界まで伝わるまでの時間が圧力発生に大きな影響を与えている。圧力の伝播である水頭拡散率を求めると $3.2 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ であった。これは濃度変化と比較すると 10^5 倍の速度である。そのため、境界までの距離が近いと境界の端まで圧力が瞬時に伝わり、発生圧力が大きく圧力差のピークの点を観測できるので、その後の圧力差の解消過程が観測しやすくなる。この結果から境界が近いほど反射係数の決定が容易であることがわかる。

5.2. 装置の貯留性

ここでは装置の貯留性について述べる。原位置試験において圧力変化を計測するためには、装置の貯留性が重要である。事前の試験において装置セット直後は装置の貯留性が $1 \times 10^{-11} \text{ m}^3/\text{Pa}$ であったが、3日後には $6 \times 10^{-11} \text{ m}^3/\text{Pa}$ 、20日後には $3 \times 10^{-10} \text{ m}^3/\text{Pa}$ と時間とともに大きくなった。装置の貯留性毎の圧力変化と時間の関係は図10のようになっている。装置の貯留性が小さいときは圧力変化が早くピーク後の圧力減少を観測することができるが、装置の貯留性が大きいときには圧力の上昇がなだらかでありピークに達するまでの時

間が多い。

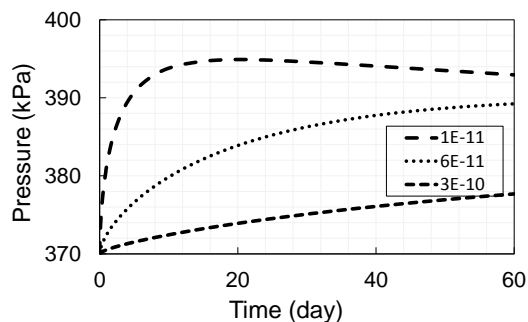


図10 圧縮率を変えたときの圧力経時変化

今回圧縮率が大きくなったのはガスが試験区間に入ることによって装置全体が柔らかくなっていることが原因である。貯留性が上がるほど圧力が上がりにくくなり、ピークの圧力を見ることが難しくなっている。

6. 結論

- 1) 圧力と濃度では伝播速度が異なるため、境界条件によって発生圧力の大きさや、圧力変化の速度が異なる。本研究の検討から室内実験で化学的浸透現象を測定してパラメータを決定する際は基本的にはサンプル厚さが薄いほどよい。
- 2) 岩石の溶液濃度に対して高濃度・低濃度それぞれの溶液と触れたときの化学的浸透による圧力変化を計測・評価でき、各パラメータを算出するための実験条件と手法が得られた。
- 3) 原位置試験において装置の貯留性を小さくすることで反射係数を決定できることがわかった。

7. 参考文献

- [1]JAEA 地層処分の工学技術 (1999)
- [2]C. E. Neuzil, Nature. 403(2000)182-184
- [3]Takeda J. Geography 122.1(2013): 192-213.
- [4]Tokunaga J. of Japanese Association for Petroleum Technology. 76(2011) 27-31
- [5]Fritz, A review. Clays Clay Minerals, 34, 214-232.
- [6]Marine and Fritz, Water Resources, 17, 73-82. (1981)
- [7]Bader et. Al. Advances in Water Resources. 28 (2005)203-214.
- [8] 木方建造, et al 電力中央研究所/日本原子力研究開発機構共同成果報告.(2006)