

亀裂性岩石の物質輸送特性に対する 高アルカリ性間隙水の影響解析方法-1

— 単一亀裂 —

Analysis Method for Impacts of Hyper-alkaline Pore Water
on the Mass Transport in Fractured Rock-1
- Single Fracture -

本田 明 山口 耕平 稲垣 学 小田 治恵

Akira HONDA, Kohei YAMAGUCHI, Manabu INAGAKI and Chie ODA

地層処分研究開発部門

地層処分基盤研究開発ユニット

Geological Isolation Research Unit

Geological Isolation Research and Development Directorate

August 2010

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

本レポートは独立行政法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。
本レポートの入手並びに著作権利用に関するお問い合わせは、下記あてにお問い合わせ下さい。
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ホームページ (<http://www.jaea.go.jp>)
より発信されています。

独立行政法人日本原子力研究開発機構 研究技術情報部 研究技術情報課
〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2 番地 4
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail: ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency
Inquiries about availability and/or copyright of this report should be addressed to
Intellectual Resources Section, Intellectual Resources Department,
Japan Atomic Energy Agency
2-4 Shirakata Shirane, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan
Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail: ird-support@jaea.go.jp

亀裂性岩石の物質輸送特性に対する高アルカリ性間隙水の影響解析方法-1

- 単一亀裂 -

日本原子力研究開発機構

地層処分研究開発部門 地層処分基盤研究開発ユニット

本田 明, 山口 耕平^{※1}, 稲垣 学^{※2}, 小田 治恵

(2010 年 5 月 28 日 受理)

TRU 廃棄物の地層処分の安全評価において線量を支配する放射性核種は、I-129 及び C-14 等の可溶性で貧収着性の放射性核種である。このような放射性核種の移行は、場の物理的な物質輸送特性に支配されることとなり、特に天然バリア部分は核種の移行経路としての距離が大きいため、最大被ばく線量は、天然バリアの物理的物質輸送特性の変化に対して鋭敏に変化する。しかし、天然バリアは、不均質であり、かつ計測により得られる情報も限定的で、人工バリアのように人の制御を及ぼすことができない。これらの評価困難性のために、重要と認識されているにもかかわらず、高アルカリ性間隙水による天然バリアの物理的物質輸送特性変化の評価方法が確立しているとは言い難い状況である。

そこで、亀裂性媒体と見なせる岩石を対象として、まず現象理解のために、1 枚の亀裂の物質輸送特性に対する高アルカリ性水溶液の影響を解析する方法について検討を行った。モデルの考え方や亀裂の状況に応じて、物質輸送場の設定がフレキシブルに行なえるように、汎用技術計算ソフトウェア Mathematica を用いて種々の物質輸送場を発生させ、その場を対象として、2 次元化学/物質輸送連成解析コード PHREEQC-TRANS により解析を行うことにより、多様な場の設定に対応して高アルカリ性間隙水による岩盤の変質とそれに伴う物質輸送特性変化を評価する方法を考案した。

この方法で実験結果の試解析を実施したが、情報の不十分性のため、恣意的に設定した解析条件もあり、現時点では実験結果と良い一致を示さなかった。今後、実験的検討により、さらに情報を取得し、解析側の条件を実験的証拠・観察事実に基づき設定するとともに、実験的に確認できないことについては、本手法を用いて作業仮説の立案とその検証を繰り返して、実験結果を整合的に説明できるプロセスを探索することにより、現象の理解を深めることができると考えられる。

核燃料サイクル工学研究所(駐在)：〒319-1194 茨城県那珂郡東海村村松 4-33

※1 技術開発協力員(現、三菱マテリアル(株))

※2 技術開発協力員

Analysis Method for Impacts of Hyper-alkaline Pore Water on the Mass Transport in Fractured Rock-1
- Single Fracture -

Akira HONDA, Kohei YAMAGUCHI^{※1}, Manabu INAGAKI^{※2} and Chie ODA

Geological Isolation Research Unit
Geological Isolation Research and Development Directorate
Japan Atomic Energy Agency
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received May 28, 2010)

Soluble and poorly sorbing radionuclides, such as I-129 and C-14, are considered to dominate the maximum radiation dose of a geological disposal system of TRU waste. The migration behaviors of such radionuclides are controlled by the physical mass transport properties of the disposal system, particularly those of the host rock because of its relative spatial scale. There are, however, difficulties in estimation of a hyper-alkaline fluid impacts on mass transport properties of host rocks due to their uncontrollable heterogeneous nature and limited availabilities of information acquired from measurements. Due to such difficulties, a reliable estimation method of the impact of a hyper-alkaline pore water on the mass transport properties in a host rock has not yet been established.

As a first step towards phenomenological understanding, an analysis method for the impact of hyper-alkaline pore water on the mass transport properties of a single fracture of a host rock was developed. Initial mass transport fields were generated using the computer program “Mathematica”, which were then used for the chemistry-mass transport coupling analyses by the computer program “PHREEQC-TRANS”.

Several trace analyses were attempted using this approach, but the calculated results did not show good agreement with available experimental data. This discordance was likely due to the arbitrary manner in which missing computer analysis conditions were determined. It is therefore necessary to determine these missing analysis conditions by further experiments and observations. Processes which cannot be experimentally identified, can be verified by exploratory sensitivity analysis using the approach presented here. Progress in the phenomenological understanding of hyper-alkaline pore water impacts on the mass transport in a fractured host rock can be achieved through these research activities.

Keywords : Analysis Method, Hyper-alkaline Pore Water, Fractured Rock, Single Fracture

※1 Collaborating Engineer (Now MITSUBISHI MATERIAL Co.)

※2 Collaborating Engineer

目次

1. 緒言	1
2. 解析方法	2
2.1 場の設定	2
2.1.1 場の設定の概要	2
2.1.2 場の離散的表現と離散化された場の初期等価透水係数 $K_{\theta,ave}$ の算定	2
2.1.3 多孔質媒体ケースの初期物質移動場の設定	3
2.1.4 亀裂性媒体ケースの初期物質移動場の設定	4
2.2 化学反応/物質輸送連成解析の方法	6
2.2.1 支配方程式と基本的な解析方法	6
2.2.2 化学反応の取扱	7
2.2.3 化学平衡定数及び溶解速度定数	8
3. 解析例	9
3.1 解析対象実験	9
3.2 媒体モデルと空間的離散化	9
3.3 共通的化学的解析条件の設定	10
3.4 均一多孔質媒体ケース	11
3.4.1 解析条件	11
3.4.2 解析結果	12
3.5 不均一多孔質媒体ケース	16
3.5.1 解析条件	16
3.5.2 解析結果	17
3.6 均一亀裂性媒体ケース	21
3.6.1 解析条件	21
3.6.2 解析結果	22
3.7 不均一亀裂性媒体ケース	26
3.7.1 解析条件	26
3.7.2 解析結果	27
4. 結言	31
参考文献	32
Appendix-1～4	

Contents

1. Introduction -----	1
2. Analysis method -----	2
2.1 Set up of fields -----	2
2.1.1 Outline of field set up -----	2
2.1.2 Discretized expressions of fields and determination of its equivalent hydraulic conductivity $K_{0,ave}$ -----	2
2.1.3 Set up of initial conditions of the fields as porous media -----	3
2.1.4 Set up of initial conditions of the fields as fractured media -----	4
2.2 Coupled analysis method of chemical reactions and mass transports -----	6
2.2.1 Governing equations and basic solution technique -----	6
2.2.2 Handling of chemical reactions -----	7
2.2.3 Chemical equilibrium constants and kinetic constants -----	8
3. Examples of analyses -----	9
3.1 Experiments for trace analyses -----	9
3.2 Media models and spatial discretization -----	9
3.3 Set up of common chemical conditions among cases -----	10
3.4 Case of homogeneous porous media -----	11
3.4.1 Analytical conditions -----	11
3.4.2 Analytical results -----	12
3.5 Case of heterogeneous porous media -----	16
3.5.1 Analytical conditions -----	16
3.5.2 Analytical results -----	17
3.6 Case of homogeneous fractured media -----	21
3.6.1 Analytical conditions -----	21
3.6.2 Analytical results -----	22
3.7 Case of heterogeneous fractured media -----	26
3.7.1 Analytical conditions -----	26
3.7.2 Analytical results -----	27
4. Conclusion -----	31
References -----	32
Appendix-1 ~4	

表目次

Table.1	均一多孔質媒体ケースの解析条件	11
Table.2	不均一多孔質媒体ケースの解析条件	16
Table.3	均一亀裂性媒体ケースの解析条件	21
Table.4	不均一亀裂性媒体ケースの解析条件	26

図目次

Fig. 1	亀裂性媒体としてのセル断面の表現（平行平板状の亀裂を1本含む）	4
Fig. 2	多孔質媒体モデルケースにおける花崗岩コアの模式図	10
Fig. 3	均一多孔質媒体近似におけるトレーサ試験の排出溶液中の NaCl 濃度比の経時変化（計算値及び実験値）	12
Fig. 4	均一多孔質媒体近似における高 pH 溶液通水による流量の経時変化（計算値及び実験値）	13
Fig. 5	均一多孔質媒体近似における高 pH 溶液通水の排出溶液中の各元素濃度（計算値）	13
Fig. 6	均一多孔質媒体近似における高 pH 溶液通水の排出溶液中の Si 濃度（計算値及び実験値）	14
Fig. 7	均一多孔質媒体近似における高 pH 溶液通水の排出溶液中の Ca 濃度（計算値及び実験値）	14
Fig. 8	均一多孔質媒体近似における高 pH 溶液通水の排出溶液中の Al 濃度（計算値及び実験値）	15
Fig. 9	均一多孔質媒体近似における高 pH 溶液通水の排出溶液中の Na/K 濃度比（計算値及び実験値）	15
Fig. 10	不均一多孔質媒体近似におけるトレーサ試験の排出溶液中の NaCl 濃度比の経時変化（計算値及び実験値）	17
Fig. 11	不均一多孔質媒体近似における高 pH 溶液通水による流量の経時変化	18
Fig. 12	不均一多孔質媒体近似における高 pH 溶液通水の排出溶液中の各元素濃度（計算値）	18
Fig. 13	不均一多孔質媒体近似における高 pH 溶液通水の排出溶液中の Si 濃度（計算値及び実験値）	19
Fig. 14	不均一多孔質媒体近似における高 pH 溶液通水の排出溶液中の Ca 濃度（計算値及び実験値）	19
Fig. 15	不均一多孔質媒体近似における高 pH 溶液通水の排出溶液中の Al 濃度（計算値及び実験値）	20
Fig. 16	不均一多孔質媒体近似における高 pH 溶液通水の排出溶液中の Na/K 濃度比（計算値及び実験値）	20
Fig. 17	均一亀裂性媒体近似におけるトレーサ試験の排出溶液中の NaCl 濃度比の経時変化（計	

算値及び実験値)	-----	22
Fig. 18 均一亀裂性媒体近似における高 pH 溶液通水による流量の経時変化 (計算値及び実験値)	-----	23
Fig. 19 均一亀裂性媒体近似における高 pH 溶液通水の排出溶液中の各元素濃度 (計算値)	-----	23
Fig. 20 均一亀裂性媒体近似における高 pH 溶液通水の排出溶液中の Si 濃度 (計算値及び実験値)	-----	24
Fig. 21 均一亀裂性媒体近似における高 pH 溶液通水の排出溶液中の Ca 濃度 (計算値及び実験値)	-----	24
Fig. 22 均一亀裂性媒体近似における高 pH 溶液通水の排出溶液中の Al 濃度 (計算値及び実験値)	-----	25
Fig. 23 均一亀裂性媒体近似における高 pH 溶液通水の排出溶液中の Na/K 濃度比 (計算値及び実験値)	-----	25
Fig. 24 不均一亀裂性媒体近似におけるトレーサ試験の排出溶液中の NaCl 濃度比の経時変化 (計算値及び実験値)	-----	27
Fig. 25 不均一亀裂性媒体近似における高 pH 溶液通水による流量の経時変化 (計算値及び実験値)	-----	28
Fig. 26 不均一亀裂性媒体近似における高 pH 溶液通水の排出溶液中の各元素濃度 (計算値)	-----	28
Fig. 27 不均一亀裂性媒体近似における高 pH 溶液通水の排出溶液中の Si 濃度 (計算値及び実験値)	-----	29
Fig. 28 不均一亀裂性媒体近似における高 pH 溶液通水の排出溶液中の Ca 濃度 (計算値及び実験値)	-----	29
Fig. 29 不均一亀裂性媒体近似における高 pH 溶液通水の排出溶液中の Al 濃度 (計算値及び実験値)	-----	30
Fig. 30 不均一亀裂性媒体近似における高 pH 溶液通水の排出溶液中の Na/K 濃度比 (計算値及び実験値)	-----	30

1. 緒言

地層処分相当の TRU 廃棄物は高レベル放射性廃棄物に比して、廃棄物量は格段に多く、崩壊熱の発生速度は小さい。このため、これらの廃棄物を地層処分する場合には、大空洞に集積配置することが合理的である。そのような大空洞を深部地下に建設するためには、地圧を支持するためなどにセメント系材料が必要とされる。またセメント系材料は TRU 廃棄物の固化マトリックスとしても一般的である。

一方、TRU 廃棄物の地層処分の安全評価において線量を支配する放射性核種は、I-129 及び C-14 等の可溶性で貧収着性の放射性核種である。このような放射性核種の移行は、溶解度制限が働かず、固相への収着分配の影響が小さいため、場の物理的な物質輸送特性に支配されることとなる。したがって TRU 廃棄物の地層処分においては、セメント系材料を使用することによって生じる、移行経路の物理的物質輸送特性変化を性能評価に反映させることが重要である。特に天然バリア部分は核種の移行経路としての距離が大きいため、最大被ばく線量は、天然バリアの物理的物質輸送特性の変化に対して鋭敏に変化する(電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構, 2005a)。このため、セメント系材料由来の高アルカリ性間隙水による天然バリアの物質輸送特性の変化は、TRU 廃棄物の地層処分においては重要な検討課題となっている。しかし、天然バリアは、不均質であり、かつ計測により得られる情報も限定的で、人工バリアのように人の制御を及ぼすことができない。このような評価の困難性のために、重要と認識されているにもかかわらず、高アルカリ性間隙水による天然バリアの物理的物質輸送特性変化の評価方法が確立しているとは言い難い状況である。

そこで、亀裂性媒体と見なせる岩石を対象として、まず現象理解のために、1 枚の亀裂の物質輸送特性に対する高アルカリ性水溶液の影響を解析する方法について検討を行うこととした。大規模な亀裂ネットワークでの評価に、この 1 枚の亀裂での検討を如何に反映させるかという点は課題であるが、いかなる評価を行うにせよ、少なくともこの「アルカリ性間隙水による亀裂性岩盤の変質とこれに伴う物質輸送特性変化」という現象を理解し、この理解に基づき評価を実施せねばならないことは確かである。

現時点では、1 枚の亀裂であってもアルカリ性間隙水による物理的物質輸送特性変化を適切に表現する方法に関して国際的なコンセンサスがあるわけではないこと及び現象理解が作業仮説の立案(モデル化)とその検証(モデルの妥当性検討)の繰り返しであることを考えあわせると、探索的にモデル化方法を検討していくことが必要不可欠である。また亀裂の様相も多様で、ヘアークラック様の線状のものから **gauge** の詰まった幅の広いものまで存在する。このため、モデルの考え方や亀裂の状況に応じて、物質輸送場の設定がフレキシブルに行えるような評価方法が望ましい。そこで、汎用技術計算ソフトウェア Mathematica(Wolfram, 1999)を用いて種々の物質輸送場を発生させ、その場を対象として、2

次元化学/物質輸送連成解析コード PHREEQC-TRANS(電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構, 2005b)により解析を行うことにより, 多様な場の設定に対応して高アルカリ性間隙水による岩盤の変質とそれに伴う物質輸送特性変化を評価する方法を考案した。本書は, この方法について示すものである。

2. 解析方法

2.1 場の設定

2.1.1 場の設定の概要

ここでは, 初期条件としての場の設定は, **gauge** が充填された幅の広い亀裂を想定して, 均一または不均一な間隙率を持つ多孔質シートとして表現した多孔質媒体モデル, あるいは充填物のない単一亀裂を想定して2次元の均一または不均一な開口幅を持つ単一亀裂として表現した亀裂性媒体モデルを選択できるようにした。無論, これ以外の場の設定も, **Mathematica** 上のプログラムを書き換えれば可能であるが, 本書では, すでにプログラミングを実施したこれらの物質輸送場のモデルに限定して示す。

物質輸送場をいくつかのセルの集合体で表現することとする。このセルは, ある間隙率を持つ多孔質岩あるいはある亀裂開口幅を持つ単一亀裂を含む岩石と仮定した。不均一場は, セル毎に異なる間隙率または亀裂開口幅を与えることにより表現された。ただし, 2次元化学/物質輸送連成解析コード PHREEQC-TRANS の制約から, 実際の化学/物質輸送連成解析では, 亀裂性媒体ケースでも, 多孔質媒体ケース同様に, 間隙充填に伴う場の透水性の変化を, 間隙率 ε と透水係数 K の関係で表現することとした。したがって単一亀裂の亀裂開口幅と亀裂透水量係数との関係を, 等価な間隙率 ε と透水係数 K の関係に置き換えて解析に用いることとした。

2.1.2 場の離散的表現と離散化された場の初期等価透水係数 $K_{0,ave}$ の算定

評価対象となる場を, $X \times Y \times Z$ の直方体と仮定する。地下水の流向は, マクロには y 軸方向とする。これを2次元体系で表現するのであるが, 亀裂面に垂直な方向を z 方向とし, z 方向の物質輸送は瞬時に起こると仮定した。よって, z 方向のセル分割は行なわない。すなわち評価対象の直方体は, x 方向及び y 方向の2次元体系で表現された長方形となる。この長方形の場を, x 軸方向に M 個に等分割し, y 軸方向に N 個に等分割することにより, $M \times N$ 個の同じ大きさの長方形セルの集合体として表現した。セル $C_{(i,j)}$ について一定の規則に従い, それぞれのセルに初期間隙率 $\varepsilon_{0,(i,j)}$ を与える。セル $C_{(i,j)}$ の初期間隙率 $\varepsilon_{0,(i,j)}$ が決定されれば, 各セルの初期透水係数 $K_{0,(i,j)}$ も間隙率と透水係数との関係に従い決定される。この系全体の流量 Q_{tot} は(1)式のようになる。

$$Q_{TOT} = S_{CS} \cdot K_{0,AVE} \cdot I_{AVE} \quad (1)$$

ここに、 S_{cs} 、 $K_{0,AVE}$ 及び I_{AVE} は、それぞれモデル化領域の流れ方向に垂直な断面積($X \times Z$)、体系全体の初期等価透水係数及び体系全体の平均動水勾配である。この体系全体の等価透水係数 $K_{0,AVE}$ は、各セルの初期透水係数 $K_{0,(i,j)}$ を合成することにより算定される。 $K_{0,AVE}$ の算定方法を Appendix-1 に示す。

2.1.3 多孔質媒体ケースの初期物質移動場の設定

ここでは多孔質媒体(均一媒体ケース及び不均一媒体ケース)について物質輸送場の設定方法を示す。多孔質媒体における間隙率 ε と透水係数 K の関係の表現には、通常、式(2)に示すような Kozeny-Carman の式(Bear, 1972)が用いられる。

$$K = k(\varepsilon^3 / (1 - \varepsilon)^2) \quad (2)$$

ここに、 k は定数である。解析解が存在する体系では、トレーサ通水試験の結果に解析解を fitting させることにより、定数 k 、初期間隙率 ε_0 及び試料の初期透水係数 K_0 を定めることができる。以下では、これらが既知であるとして議論を進める。均一多孔質媒体ケースでは、全てのセルに初期間隙率 ε_0 及び初期透水係数 K_0 を与えればよい。不均一多孔質媒体ケースでは、セル毎に異なる初期間隙率を与える必要がある。そこで、間隙率の空間分布を仮定してセル $C_{(m,n)}$ に初期間隙率 $\varepsilon_{0,(m,n)}$ を与えた。この各セルへの初期間隙率の与え方は Appendix-2 に示した。

このとき、各セルの透水係数 $K_{0,(m,n)}$ は、(3)式のようなものである。

$$K_{0,(m,n)} = k \cdot \varepsilon_{0,(m,n)}^3 (1 - \varepsilon_{0,(m,n)})^{-2} \quad (3)$$

このようにして生成させた場の初期透水係数 $K_{0,AVE}$ は、 $K_{0,(m,n)}$ を Appendix-1 に示す方法で合成することにより決定される。間隙率の分布は、後述する不均一亀裂性媒体ケースと整合させるため対数正規分布と仮定し、全セル配列から、概ね等間隔となるようセルを選択し、そのセルに間隙率の対数正規分布から random sampling により間隙率を与えた。残りのセルには、地球統計的手法による空間補完を行い、間隙率を与えた。その詳細は Appendix-2 に示すとおりである。このような統計的手法により各セルに間隙率を与えており、またセルの配列にも依存するため、初期等価透水係数 $K_{0,AVE}$ を、完全に制御して目的の値にすることはできない。そこで、多数の物質輸送場を発生させ、その中から、場の平均間隙率 $\varepsilon_{0,AVE}$ が、実験的に決定された初期間隙率 ε_0 に近く、かつ場の初期等価透水係数 $K_{0,AVE}$ が実験的に決定した初期透水係数 K_0 に近いものを選定して、アルカリ性水溶液通水試験の化学反応/物質輸送解析に使用した。

分散係数 D_L [m^2/s] は、以下の式(4)で与えられる。

$$D_L = \alpha_L \cdot v + D_e \quad (4)$$

ここで、 v 、 α_L 及び D_e は、それぞれ Darcy 流速 [m/s]、分散長 [m] 及び実効拡散係数 [m²/s] である。均一ケースでは、1次元解析解の fitting により縦分散長が与えられている場合は、その値を用い、与えられていない場合には、多孔質媒体、亀裂性媒体ともに縦分散長は、流向の体系長さの 1/10 とした。また横分散長は縦分散長の 1/10 とした。不均一ケースでは、多孔質媒体、亀裂性媒体ともに縦分散長は、x 方向、y 方向とも、それぞれの方向のセル長さの 1/10 とし、横分散長は縦分散長の 1/10 とした。実効拡散係数 D_e は、全ての液相種について同一の値を与えることとし、間隙率 ε のみの関数であると仮定した。既往の花崗岩亀裂に関する拡散実験の結果(佐藤ほか,1999)を用いて式(5)を導き、解析に使用した。

$$D_e = 2.0 \times 10^{-9} \varepsilon^{1.44} \quad (5)$$

2.1.4 亀裂性媒体ケースの初期物質移動場の設定

亀裂開口幅 τ で亀裂長さ x の一枚の亀裂があるとする、動水勾配が γ であるとき、この亀裂内の平均流量は、(6)式(登坂, 2006)のようである。

$$Q = k' x \tau^3 \gamma \quad (6)$$

ここで k' は定数である。一方、亀裂開口幅 τ で亀裂長さ x の亀裂を 1 枚だけ含む断面(断面積 S)であって、当該平面で流路になるのは亀裂のみという場(Fig.1 参照)を考えると、この場のダルシー流速 Q' ((7)式参照)は(6)式の Q と等しい。

$$Q' = KS\gamma \quad (7)$$

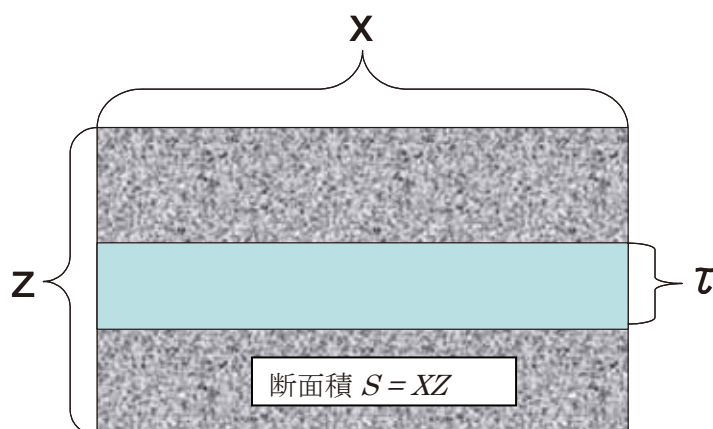


Fig. 1 亀裂性媒体としてのセル断面の表現 (平行平板状の亀裂を 1 本含む)

ここで K は透水係数である。したがって $Q=Q', S = xz$ であるから、(6)式及び(7)式より透水係数 K は(8)式のように表すことができる。

$$K = \frac{k' x \tau^3}{S} = \frac{k' \tau^3}{Z} = k' \varepsilon^3 Z^2, \quad \because \varepsilon = \frac{\tau}{Z} \quad (8)$$

したがって、 Z はモデル化領域の厚さであるから一定と設定すれば、 k'/Z^2 は定数と見なすことができ、これを k'' と置けば、亀裂性媒体の透水係数を K は(9)式のようなである。

$$K = k'' \varepsilon^3 \quad (9)$$

したがって、亀裂性媒体の透水係数は多孔質媒体における(2)式に替えて(9)式を用いればよい。

均一亀裂性媒体ケースでは、均一多孔質媒体と同様に、全てのセルに実験結果への解析解の fitting により決定した、初期間隙率 ε_0 及び初期透水係数 K_0 を与えた。このときモデル体系の z 方向の厚さを Z と置くと、初期亀裂開口幅 τ_0 は(10)式のようなである。

$$\tau_0 = Z \varepsilon_0 \quad (10)$$

不均一亀裂性媒体ケースでは、セル $C_{(m,n)}$ の初期間隙率 $\varepsilon_{0,(m,n)}$ を、不均一多孔質媒体と同様に、Appendix-2 に従い与えた。この場合、亀裂開口幅の分布が、対数正規分布に従っていたという観察結果(佐藤・澤田, 2008)に基づき、初期間隙率の分布には対数正規分布を与えた。その理由及び初期間隙率の分布パラメータの決定方法を、Appendix-3 に示す。したがって、初期間隙率の付与方法は、不均一多孔質媒体とまったく同じである。

このとき各セルの初期透水係数 $K_{0,(m,n)}$ は、(11)式のようなである。

$$K_{0,(m,n)} = k'' \cdot \varepsilon_{0,(m,n)}^3 \quad (11)$$

このようにして生成させた場の初期等価透水係数 $K_{0,AVE}$ は、(11)式を Appendix-1 の方法で合成することにより決定される。この初期等価透水係数 $K_{0,AVE}$ は、不均一多孔質媒体ケースと同様の理由から、完全に制御して目的の値にすることはできない。そこで、これも不均一多孔質媒体ケースと同様の操作により場の生成・選定を行い、アルカリ性水溶液通水試験の化学反応/物質輸送解析に使用した。分散係数についても、均一亀裂性媒体及び不均一亀裂性媒体は、それぞれ、均一多孔質媒体及び不均一多孔質媒体と同様の取り扱いを行った。

2.2 化学反応/物質輸送連成解析の方法

2.2.1 支配方程式と基本的な解析方法

評価対象としての場合は、上記 2.1 章に示したように、セルの 2 次元配列として離散化された均一または不均一な多孔質媒体または亀裂性媒体である。場の輸送特性は、多孔質媒体、亀裂性媒体とも間隙率 ε の関数として表現された。これらの場に対して、化学反応/物質輸送連成解析を行う。すなわち、セルの 2 次元配列として空間的に離散化された場について、式(12)の非線形の支配方程式を、数値計算により解くことで、解を得る。

$$\nabla \cdot [K \nabla H] = 0$$

$$\mathbf{v} = -K \nabla H$$

$$\varepsilon \frac{\partial C_n}{\partial t} = \nabla \cdot [\varepsilon \mathbf{D}_L \nabla C_n + \mathbf{v} C_n] + R_n$$

$$\mathbf{D}_L = \begin{bmatrix} \alpha_L \frac{v_x^2}{|\mathbf{v}|} + \alpha_T \frac{v_y^2}{|\mathbf{v}|} + \varepsilon \tau_L D_m & (\alpha_L - \alpha_T) \frac{v_x v_y}{|\mathbf{v}|} \\ (\alpha_L - \alpha_T) \frac{v_x v_y}{|\mathbf{v}|} & \alpha_L \frac{v_y^2}{|\mathbf{v}|} + \alpha_T \frac{v_x^2}{|\mathbf{v}|} + \varepsilon \tau_L D_m \end{bmatrix} \quad (12)$$

C_n : 化学種濃度

K : 透水係数

H : 水頭

$\mathbf{v}$: 流速ベクトル

$\mathbf{D}_L$: 分散テンソル (2次元)

α_L : 縦方向分散長

α_T : 横方向分散長

ε : 間隙率

τ_L : 屈曲係数

D_m : 分子拡散係数

R_n : 反応項

反応項 R_n は、液相化学種の source/sink term ($\text{mol m}^{-3} \text{s}^{-1}$) に対応し、溶解、沈殿、収着、脱着、溶液反応による局所的な液相化学種の消費速度及び生成速度を示している。この支配方程式を解くために化学反応・物質輸送計算コード PHREEQC-TRANS が使用された。

溶解・沈殿反応が起こっている媒体について考える。この媒体の時刻 t_c における間隙率

の状態を定式化する。この多孔質媒体の固相部分は、初生鉱物も二次鉱物も含め N 種の鉱物から構成されると仮定する。また、 N 種中 i 番目の鉱物を m_i と呼ぶ。ある時刻 tc における、媒体単位体積中での N 種中 i 番目の鉱物の量を $M_{tc,i}$ [mol/m³] とする。また、そのモル体積を V_i [m³/mol] とする。 tc 時点の間隙率 ε_{tc} は、式(13)式のようなである。

$$\varepsilon_{tc} = 1 - \sum_{i=1}^N M_{tc,i} \cdot V_i \quad (13)$$

ここで、 V_i は、鉱物の組成式、構成元素の原子量及び真比重から決定することができる。一方、 $M_{tc,i}$ は、式(14)のように、時刻 0 から時刻 tc までの溶解・沈殿反応の帰結として決定される。

$$M_{tc,i} = M_{0,i} + V_i \int_0^{tc} (v_{p,i} - v_{d,i}) dt \quad (14)$$

ここで、 $v_{p,i}$ 及び $v_{d,i}$ は、それぞれ m_i の媒体単位体積中でのバルクの溶解速度及び沈殿速度である。また $M_{0,i}$ は媒体単位体積中での m_i の初期量($t = 0$ での量)である。もし、溶解・沈殿反応に瞬時平衡を仮定すると、各時間ステップにおいて平衡点まで溶解・沈殿が進むことになるため、溶解速度 $v_{d,i}$ 及び沈殿速度 $v_{p,i}$ に替わって各時間ステップにおいて平衡点までに溶解・沈殿する鉱物 m_i の量が入ることとなる。

このようにして間隙率を鉱物の溶解・沈殿反応速度の関数として表現し、間隙率の関数として表現された物質輸送特性値を、溶解・沈殿反応に対応させて時間と共に変化させながら化学反応/物質輸送連成解析を実施する。これにより、支配方程式に非線形性をもたらすフィードバックループ(e.g., 溶解・沈殿反応が間隙率の変化に影響を与え、それが媒体の物質輸送特性に影響を与えることで、液相の組成が影響を受けて、結局、溶解・沈殿反応に影響がフィードバックされるというようなループ)が解析に反映される。

2.2.2 化学反応の取扱

PHREEQC-TRANS は、輸送問題を取り扱う計算コードに、化学計算モジュールとして、PHREEQC を組み込んだものであり、化学計算部分は PHREEQC そのものである。したがって化学反応の計算方法の詳細については、Parkhurst and Appelo (1999)に譲る。

ここで考慮した化学反応は、初生鉱物の溶解反応、二次鉱物の沈殿/溶解反応及び液相化学種同士の反応である。液相反応、二次鉱物の溶解・沈殿反応については局所瞬時化学平衡を仮定した。したがってこれらの反応は、化学平衡が成立するまで無限大の速度で進行することとなる。主要な初生鉱物には、(15)式の形の速度式に従い溶解すると仮定した。含

有割合の小さい初生鉱物については、空間は占有するが化学的には *inert* と見なし、化学反応には与らないと仮定した。また、初生鉱物に関しては、不可逆な溶解過程と見なし、例え過飽和になったとしても逆反応(沈殿反応)は進行しないと仮定した。

$$R_{dis} = kA(a_{H^+})^n(1-Q/K) \quad (15)$$

R_{dis} : 初生鉱物の溶解反応速度

k : 反応速度定数,

A : 鉱物表面積

a_{H^+} : 水素イオンの活量

n : 水素イオンの反応次数

Q : 活量積

K : 平衡定数

ここで、(15)式は、鉱物の溶解沈殿の一般式である(16)式(Lasaga,1998)の“反応に直接与らない化学種の正負の触媒効果のファクタ”を、常に $\prod a_i^{m_i}=1$ と仮定し、また、一般化された溶解反応の自由エネルギー変化の関数 $f(\Delta G)$ ((17)式参照) (Lasaga,1998)の θ を 1 と仮定した式である。これらの単純化(情報の不十分性により決定できない部分を仮に 1 と置くこと)により、 k 及び n をパラメータとする溶解反応速度式の形を決定した。

$$R_{dis} = kA \prod_i a_i^{m_i} f(\Delta G) \quad (16)$$

$$f(\Delta G) = -[1 - \exp(-\Delta G/RT)], \quad \Delta G = RT \ln(Q/K_{eq}) \quad (17)$$

この(15)式を用いる場合に、 k 及び n という速度式パラメータとは別に、鉱物の表面積 A が必要となる。ここでは、鉱物に比表面積(単位重量あたりの表面積)を設定し、各セルでの溶解反応に伴う鉱物量の減少と比例させて鉱物の表面積を減少させた。初期の鉱物毎の比表面積は、BET 法などで測定された岩石の全比表面積にモード分析により決定した初期鉱物割合を乗じて決定した。なお、各セルにおける初期鉱物量は、各セルの初期充填率($1-\epsilon_{0,(n,m)}$)に比例し、初期鉱物割合は全てのセルで一定とした。

2.2.3 化学平衡定数及び溶解速度定数

前述のように、液相の溶存化学種同士の反応、二次鉱物の溶解・沈殿反応については局所瞬時化学平衡を仮定した。したがってこれらの反応の平衡状態を算定するためには、これらの反応の平衡定数 K (或いはその対数値 $\log K$) のデータベースが必要とされる。これは PHREEQC のフォーマットにしたがって書かれたものであれば PHREEQC-TRANS で使用することができる。以下の解析で利用した化学反応の平衡定数及び速度論的に扱った初生鉱物の溶解反応については、そのパラメータ(k 及び n)を Appendix-4 に示した。

3.解析例

3.1 解析対象実験

ここでは、グリムゼルサイトの花崗岩を用いて行われたアルカリ性水溶液の流動実験(Mäder et al., 2006; Pfingsten et al., 2006; Solar and Mäder, 2005; Solar et al., 2006)を解析対象として選定し、均一多孔質媒体ケース、不均一多孔質媒体ケース、均一亀裂性媒体ケース及び不均一亀裂性媒体ケースを設定してトレース解析を実施した。ここで検討対象とする実験の方法及び結果は、Mäder et al., (2006)に詳述されている。Solar and Mäder(2005)は、ここで検討対象とする実験結果のうち、トレーサ試験結果を用いて、均質多孔質媒体近似の1次元体系における解析解のフィッティングにより、間隙率、透水係数及び分散長を、それぞれ 0.21, 3.3×10^{-9} m/s, 0.014 m と決定した。

3.2 媒体モデルと空間的離散化

媒体モデルとして、以下の4種類の場を設定した。

- ・ 均一多孔質媒体モデル
- ・ 不均一多孔質媒体モデル
- ・ 均一亀裂性媒体モデル
- ・ 不均一亀裂性媒体モデル

これらの媒体モデルでは、いずれも、fault gauge 部分を Fig.1 に示すように、x, y 及び z の3軸の3次元直交座標系に置かれた 5.9 cm×7.8 cm×0.8cm の直方体と見なした。この直方体を、Fig.2 における x 方向及び y(マクロな流れ方向)方向にセル分割を行なった。fault gauge 部分を x 方向に 14 等分、y 方向に 20 等分し、280 個の直方体のセル配列で表現した。また fault gauge の厚さ方向である z 方向にはセル分割は行なわなかった。したがって、1 個のセルは、4.2mm(x 方向)×3.9mm(y 方向)×8mm(z 方向)というサイズの直方体である。

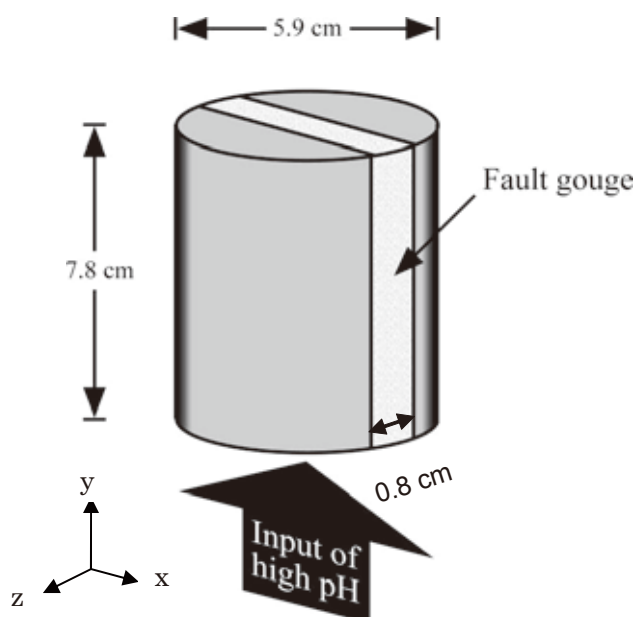


Fig. 2 多孔質媒体モデルケースにおける花崗岩コアの模式図

3.3 共通的化学的解析条件の設定

初生鉱物として, Quartz, K-feldspar, Plagioclase, Biotite, Muscovite, Epidote, Titanite, Smectite (hydroth.), Chlorite (clay min.)及び随伴鉱物を考慮したが, 前述のように含有割合の小さい Epidote, Titanite, Smectite (hydroth.), Chlorite (clay min.)及び随伴鉱物については, 空間は占有するが, 化学反応には与らないと仮定した。主要な鉱物である Quartz, K-feldspar, Plagioclase, Biotite 及び Muscovite については, (15)式の形の速度式に従い溶解すると仮定した。

主要な鉱物である Quartz, K-feldspar, Plagioclase, Biotite 及び Muscovite について, 溶解速度式のパラメータである k ($\log k$ として記載)及び n を, Appendix-4 の TableA-4-1 に, 比表面積を Table A-4-2 に, それぞれ示した。また, 2次鉱物としては Appendix-4 の TableA-4-3 に示した鉱物を全て仮定した。これら2次鉱物の溶解・沈殿反応の平衡定数($\log K$ で記載)も併せて TableA-4-3 に示した。2次鉱物の溶解・沈殿反応及び液相反応については瞬時平衡を仮定した。液相反応の平衡定数($\log K$ で記載)を Appendix-4 の TableA-4-4 に示した。

3.4 均一多孔質媒体ケース

3.4.1 解析条件

均一多孔質媒体を仮定したアルカリ性水溶液通水試験の解析条件を Table.1 に示す。

Table.1 均一多孔質媒体ケースの解析条件

ケース番号			225
物質移行に関する条件	花崗岩コア中の fault gauge 部分のメッシュ数		通水方向 20×通水に直交方向 14（2次元）
	初期の間隙割合と透水係数		均一媒体 間隙割合 0.21（Soler and Mäder, 2005） 透水係数 3.3×10^{-9} m/s（Soler and Mäder, 2005）
	間隙割合と透水係数の関係式		セル C(i,j)の間隙率と透水係数の関係(Kozeny-Carman の式) $K_{w,(i,j)} = K_{w0,(i,j)} \left(\frac{\varepsilon_{(i,j)}^3 / (1 - \varepsilon_{(i,j)})^2}{\varepsilon_{0,(i,j)}^3 / (1 - \varepsilon_{0,(i,j)})^2} \right)$ （ $K_{w,(i,j)}$ ：セル C(i,j)の透水係数, $K_{w0,(i,j)}$ ：セル C(i,j)の初期の透水係数, $\varepsilon_{(i,j)}$ ：セル C(i,j)の間隙割合, $\varepsilon_{0,(i,j)}$ ：セル C(i,j)の初期の間隙割合）
	間隙割合と実効拡散係数の関係式		$D_e = 2 \times 10^{-9} \times \varepsilon^{1.44}$ （ D_e ：実効拡散係数, ε ：間隙割合）
	分散長	縦分散長	0.014m（Soler and Mäder, 2005）
		横分散長	0.0014m（縦分散長の 1/10）
	初期の実効拡散係数		初期の間隙割合及び間隙割合と実効拡散係数の関係式から得られる数値
	初生鉱物の表面積		$10 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$ Surface (EGME)（Mazurek, 2003）
	動水勾配		94（Mäder et al., 2006）
境界条件	上流側	濃度固定（pH13, Na 6.5×10^{-2} mol/L, K 1.3×10^{-1} mol/L, Ca 2.3×10^{-3} mol/L）	
	下流側	ゼロフラックス	
化学条件	温度		25°C
	初生鉱物	初期の組成割合	クォーツ(22 wt.%), アルバイト(8.5 wt.%), アノーサイト(8.5 wt.%), カリ長石(18 wt.%), フロゴパイト(12 wt.%), マスコパイト(27 wt.%)
		溶解速度に関するパラメータ値	文献調査に基づく平均値
	二次鉱物		C-S-H ゲル, アナルサイム, 水酸化物

3.4.2 解析結果

均一多孔質媒体ケースの解析結果として、トレーサ試験における排出溶液中の NaCl 濃度比の経時変化(計算値及び実験値), 高 pH 溶液通水による流量の経時変化(計算値及び実験値), 高 pH 溶液通水の排出溶液中の各元素濃度(計算値), 高 pH 溶液通水の排出溶液中の Si 濃度(計算値及び実験値), 高 pH 溶液通水の排出溶液中の Ca 濃度(計算値及び実験値), 高 pH 溶液通水の排出溶液中の Al 濃度(計算値及び実験値)及び高 pH 溶液通水の排出溶液中における Na/K 濃度比(計算値及び実験値)を, それぞれ Fig.3～Fig.9 に示す。

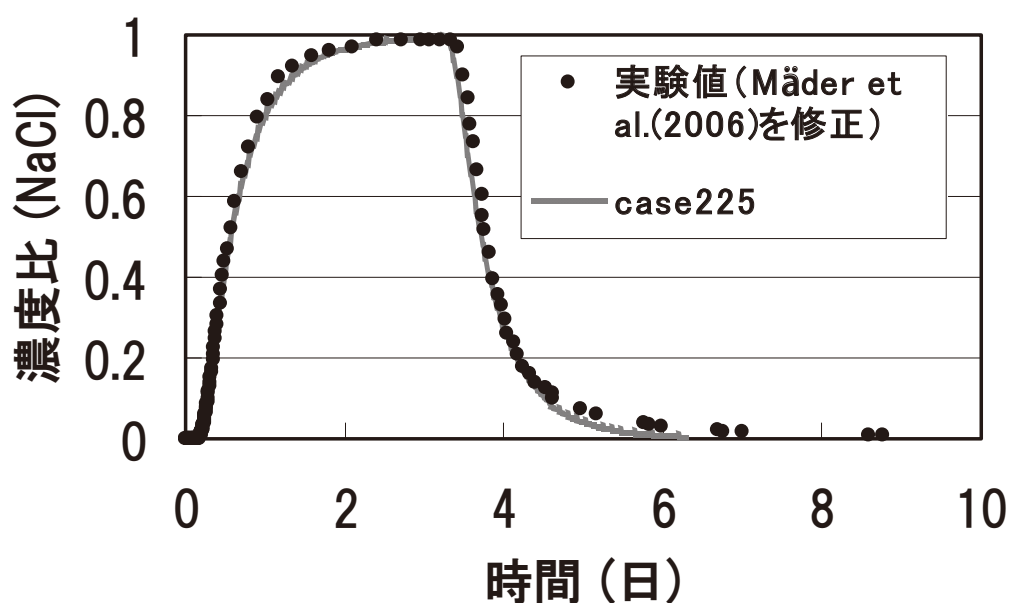


Fig.3 均一多孔質媒体近似におけるトレーサ試験の排出溶液中の NaCl 濃度比の経時変化
(計算値及び実験値)

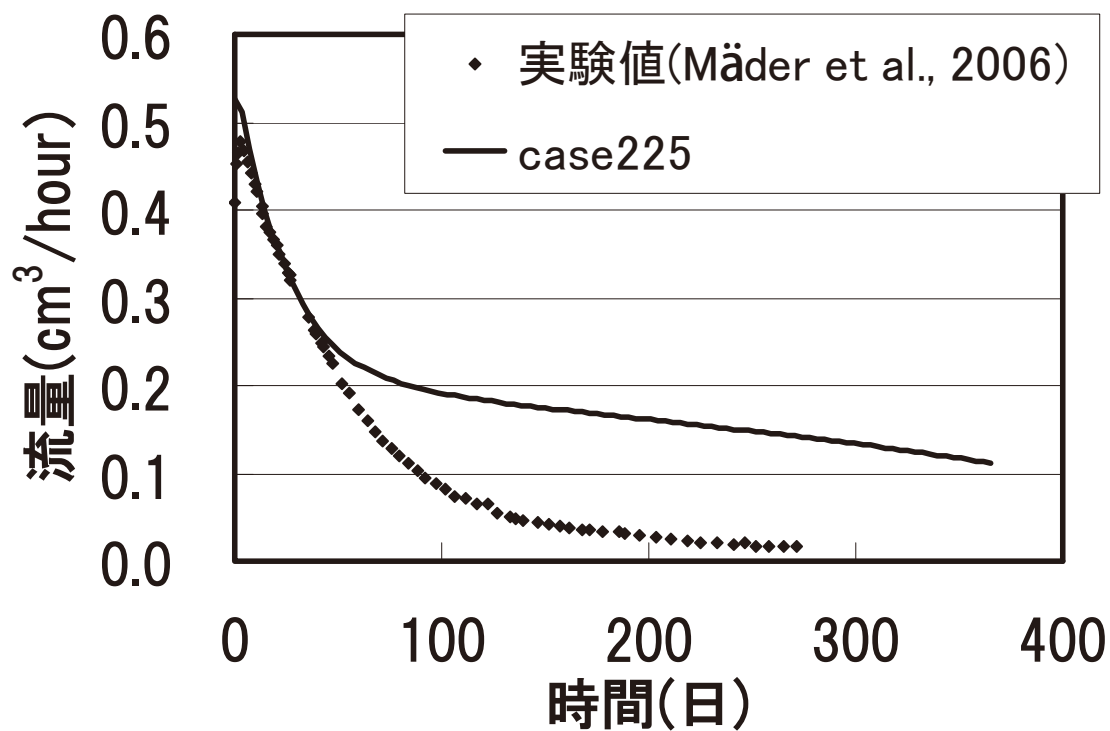


Fig.4 均一多孔質媒体近似における高 pH 溶液通水による流量の経時変化
(計算値及び実験値)

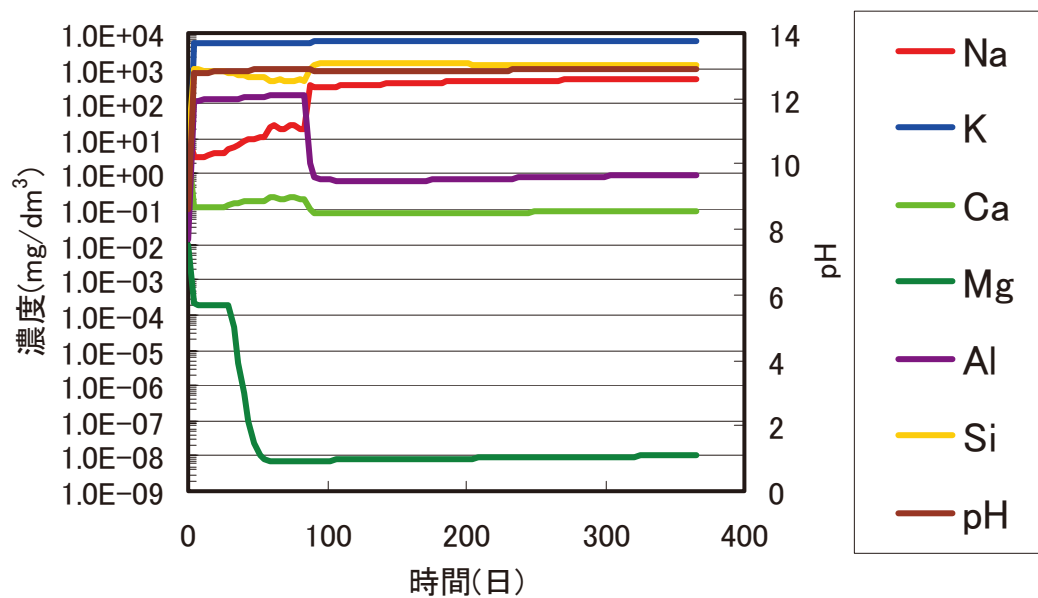


Fig.5 均一多孔質媒体近似における高 pH 溶液通水の排出溶液中の各元素濃度(計算値)

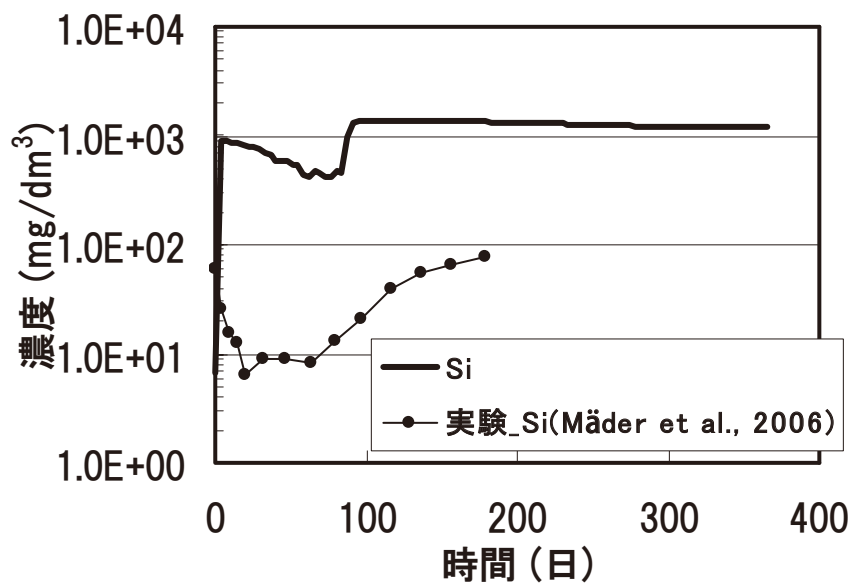


Fig.6 均一多孔質媒体近似における高 pH 溶液通水の排出溶液中の Si 濃度（計算値及び実験値）

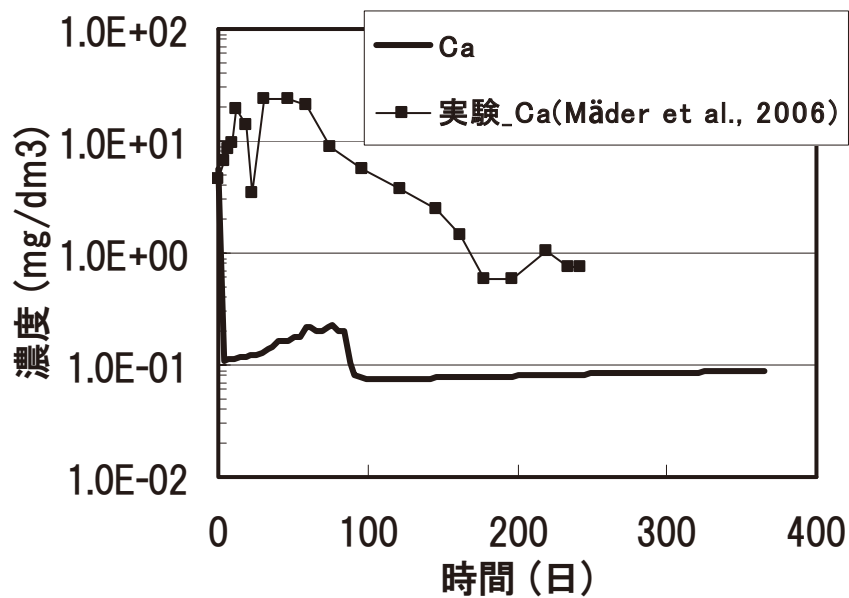


Fig.7 均一多孔質媒体近似における高 pH 溶液通水の排出溶液中の Ca 濃度（計算値及び実験値）

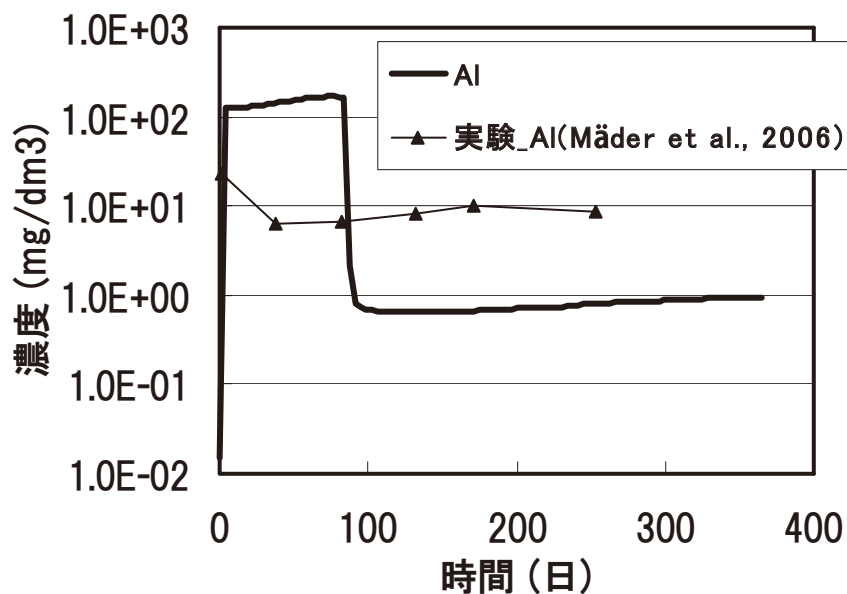


Fig.8 均一多孔質媒体近似における高 pH 溶液通水の排出溶液中の Al 濃度（計算値及び実験値）

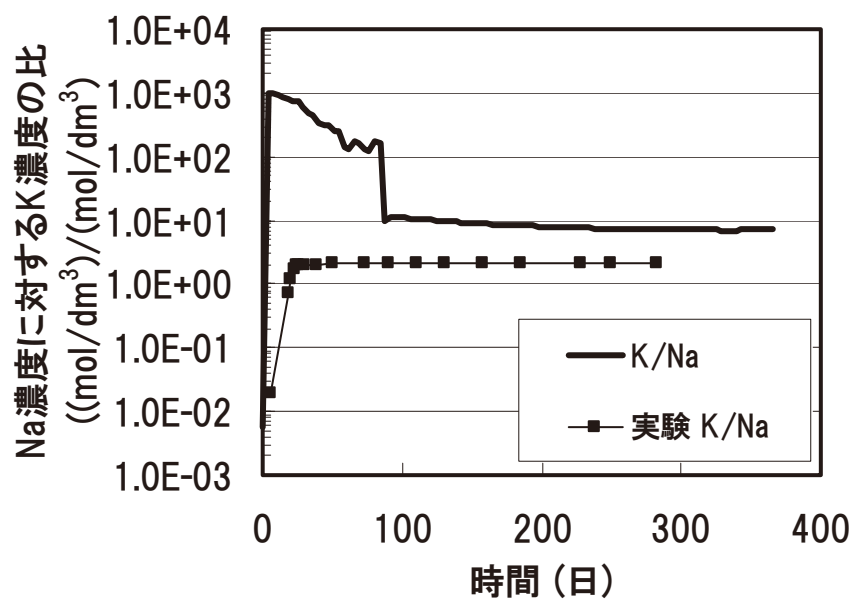


Fig.9 均一多孔質媒体近似における高 pH 溶液通水の排出溶液中の Na/K 濃度比（計算値及び実験値）

3.5 不均一多孔質媒体ケース

3.5.1 解析条件

不均一多孔質媒体を仮定したアルカリ性水溶液通水試験の解析条件を Table.2 に示す。

Table.2 不均一多孔質媒体ケースの解析条件

ケース番号		233
物質移行に関する条件	花崗岩コア中の fault gauge 部分のメッシュ数	
	初期の間隙割合と透水係数	
	間隙割合と透水係数の関係式	
	間隙割合と実効拡散係数の関係式	
	分散長	縦分散長
		横分散長
	初期の実効拡散係数	
	初生鉱物の表面積	
	動水勾配	
	境界条件	上流側
	下流側	
化学条件	温度	
	初生鉱物	初期の組成割合
		溶解速度に関するパラメータ値
	二次鉱物	

3.5.2 解析結果

不均一多孔質媒体ケースの解析結果として、トレーサ試験における排出溶液中の NaCl 濃度比の経時変化(計算値及び実験値)、高 pH 溶液通水による流量の経時変化(計算値及び実験値)、高 pH 溶液通水の排出溶液中の各元素濃度(計算値)、高 pH 溶液通水の排出溶液中の Si 濃度 (計算値及び実験値)、高 pH 溶液通水の排出溶液中の Ca 濃度 (計算値及び実験値)、高 pH 溶液通水の排出溶液中の Al 濃度 (計算値及び実験値) 及び高 pH 溶液通水の排出溶液中における Na/K 濃度比(計算値及び実験値)を、それぞれ Fig.10～Fig.16 に示す。

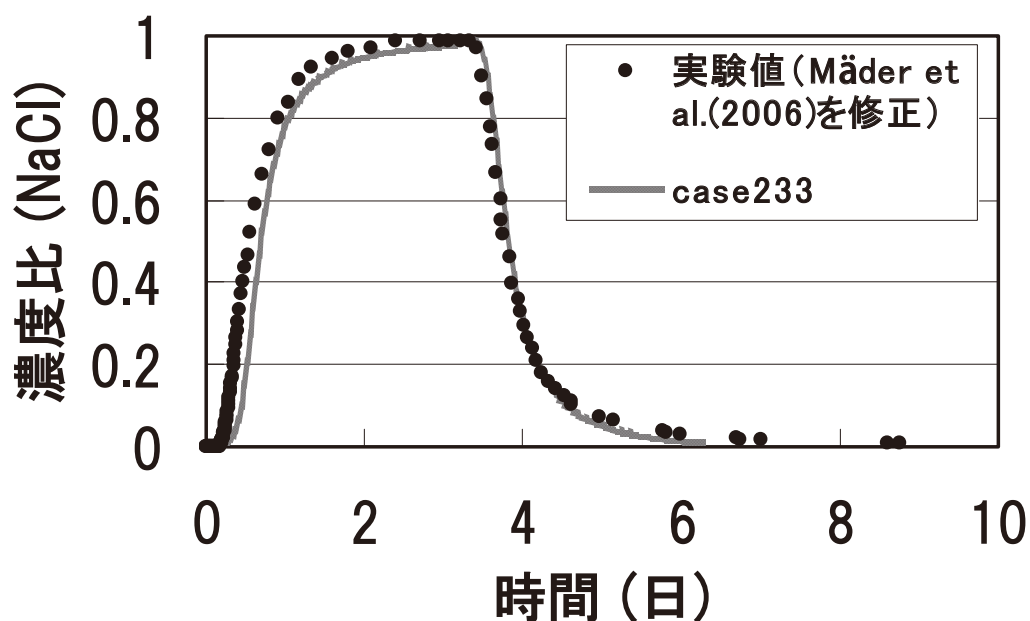


Fig.10 不均一多孔質媒体近似におけるトレーサ試験の排出溶液中の NaCl 濃度比の経時変化 (計算値及び実験値)

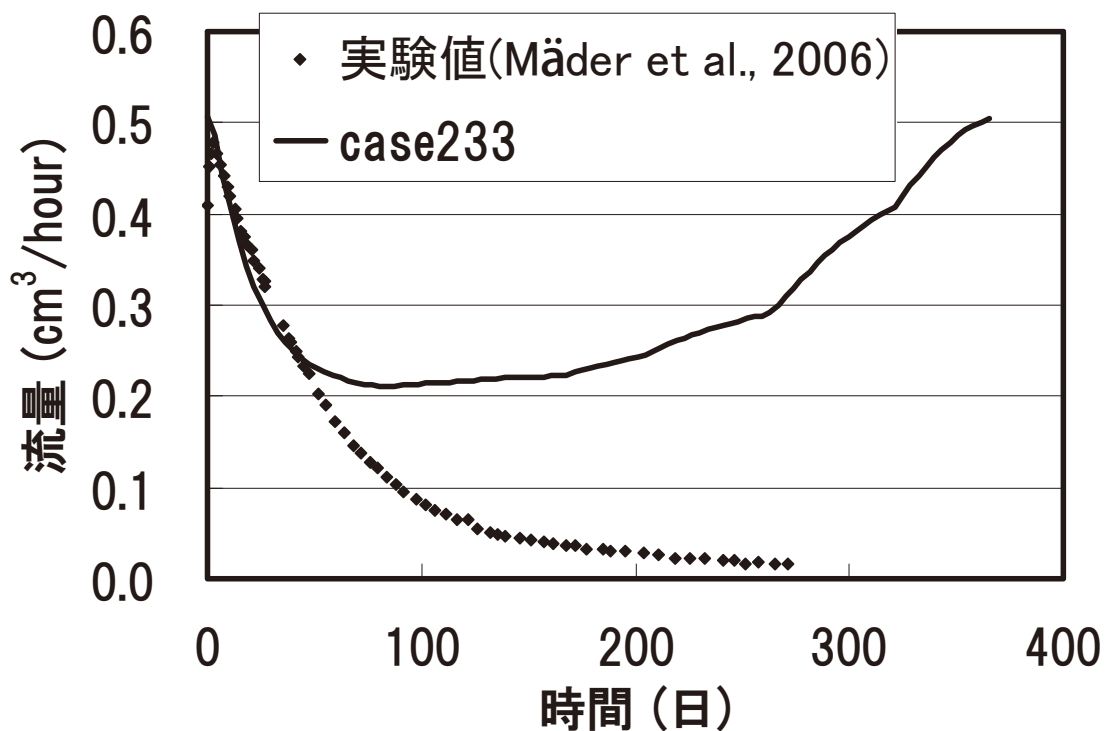


Fig.11 不均一多孔質媒体近似における高 pH 溶液通水による流量の経時変化

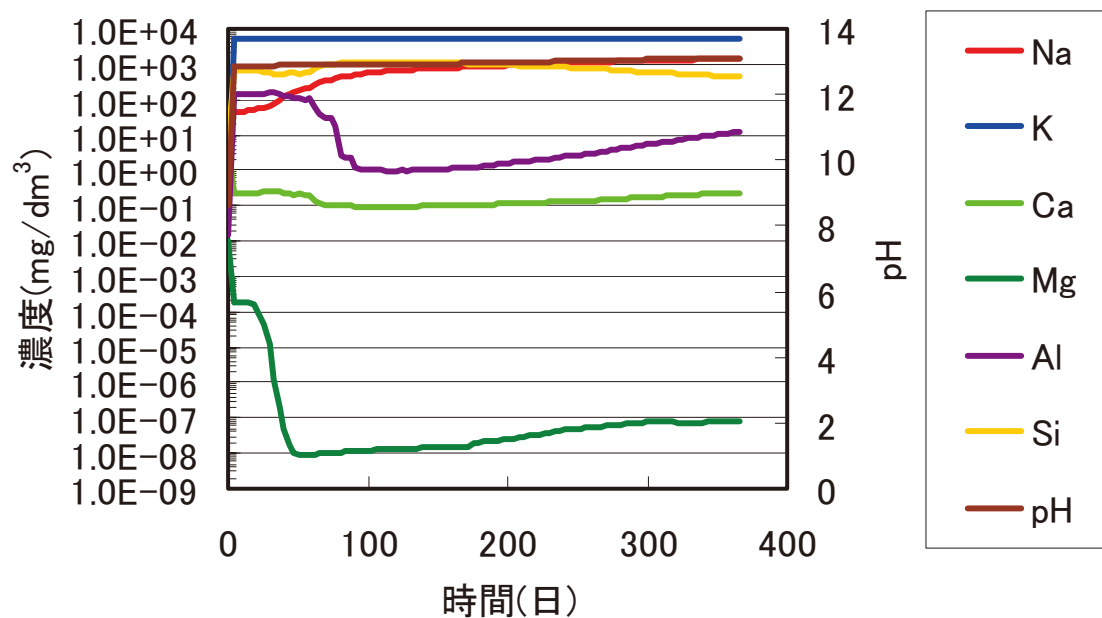


Fig.12 不均一多孔質媒体近似における高 pH 溶液通水の排出溶液中の各元素濃度(計算値)

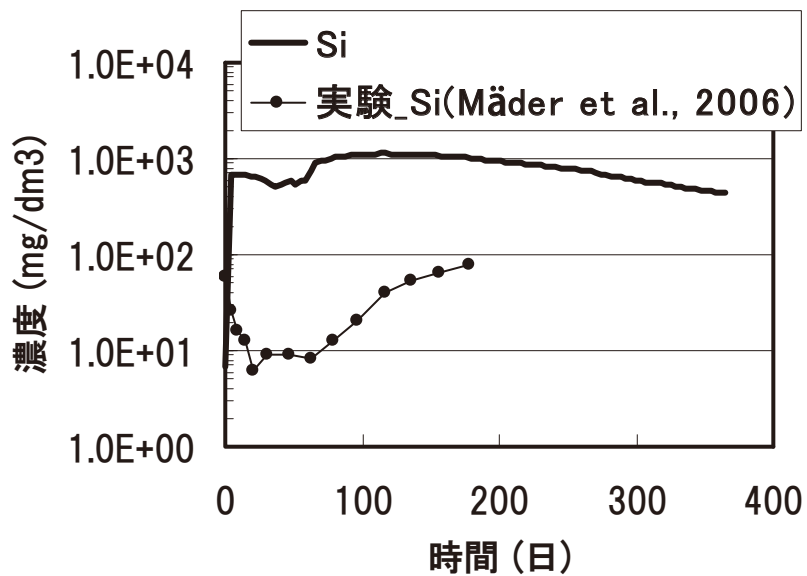


Fig.13 不均一多孔質媒体近似における高 pH 溶液通水の排出溶液中の Si 濃度
(計算値及び実験値)

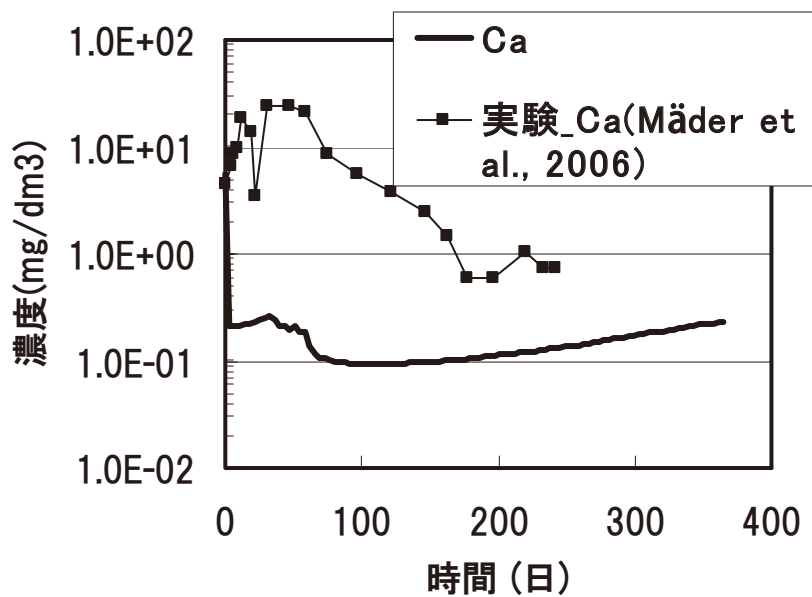


Fig.14 不均一多孔質媒体近似における高 pH 溶液通水の排出溶液中の Ca 濃度
(計算値及び実験値)

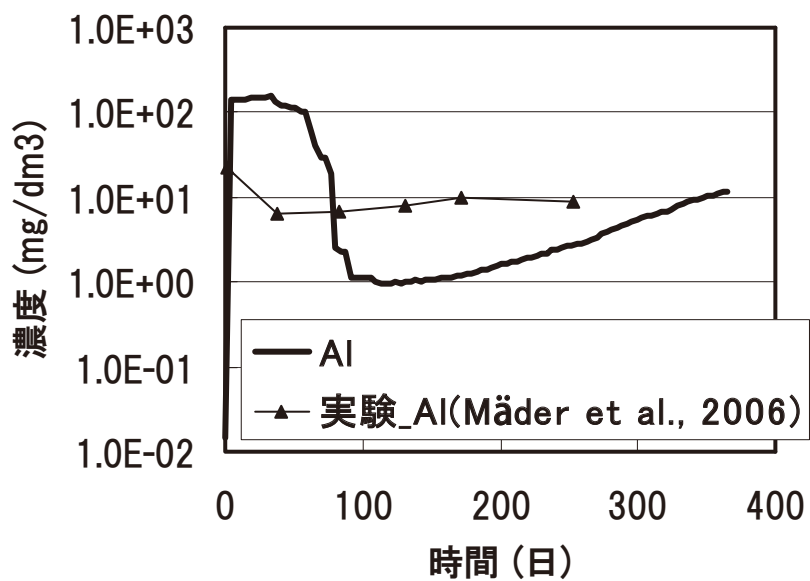


Fig.15 不均一多孔質媒体近似における高 pH 溶液通水の排出溶液中の Al 濃度
(計算値及び実験値)

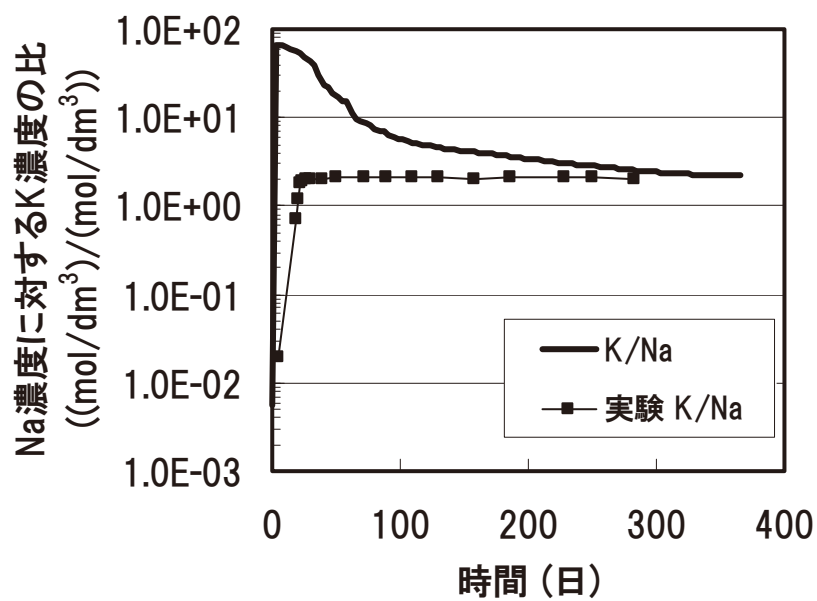


Fig.16 不均一多孔質媒体近似における高 pH 溶液通水の排出溶液中
の Na/K 濃度比
(計算値及び実験値)

3.6 均一亀裂性媒体ケース

3.6.1 解析条件

均一亀裂性媒体を仮定したアルカリ性水溶液通水試験の解析条件を Table.3 に示す。

Table.3 均一亀裂性媒体ケースの解析条件

ケース番号		237
物質移行に関する条件	花崗岩コア中の fault gauge 部分のメッシュ数	通水方向 20×通水に直交方向 14 (2次元)
	初期の間隙割合と透水係数	均一媒体 間隙割合 0.21 (Soler and Mäder, 2005) 透水係数 $3.3 \times 10^{-9} \text{ m/s}$ (Soler and Mäder, 2005)
	間隙割合と透水係数の関係式	セル C(i,j)の間隙率と透水係数の関係(三乗則) $K_{w,(i,j)} = K_{w0,(i,j)} \left(\frac{\varepsilon_{(i,j)}^3}{\varepsilon_{0,(i,j)}^3} \right)$ $(K_{w,(i,j)} : \text{セル C(i,j)の透水係数}, K_{w0,(i,j)} : \text{セル C(i,j)の初期の透水係数}, \varepsilon_{(i,j)} : \text{セル C(i,j)の間隙割合}, \varepsilon_{0,(i,j)} : \text{セル C(i,j)の初期の間隙割合})$
	間隙割合と実効拡散係数の関係式	$D_e = 2 \times 10^{-9} \times \varepsilon^{1.44}$ (D_e : 実効拡散係数, ε : 間隙割合)
	分散長	縦分散長
		横分散長
	初期の実効拡散係数	初期の間隙割合及び間隙割合と実効拡散係数の関係式から得られる数値
	初生鉱物の表面積	$10 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1} \text{ Surface (EGME)}$ (Mazurek, 2003)
	動水勾配	94 (Mäder et al., 2006)
	境界条件	上流側
		下流側
化学条件	温度	25°C
	初生鉱物	初期の組成割合
		溶解速度に関するパラメータ値
	二次鉱物	C-S-H ゲル, アナルサイム, 水酸化物

3.6.2 解析結果

均一亀裂性媒体ケースの解析結果として、トレーサ試験における排出溶液中の NaCl 濃度比の経時変化(計算値及び実験値), 高 pH 溶液通水による流量の経時変化(計算値及び実験値), 高 pH 溶液通水の排出溶液中の各元素濃度(計算値), 高 pH 溶液通水の排出溶液中の Si 濃度(計算値及び実験値), 高 pH 溶液通水の排出溶液中の Ca 濃度(計算値及び実験値), 高 pH 溶液通水の排出溶液中の Al 濃度(計算値及び実験値)及び高 pH 溶液通水の排出溶液中における Na/K 濃度比(計算値及び実験値)を, それぞれ Fig.17～Fig.23 に示す。

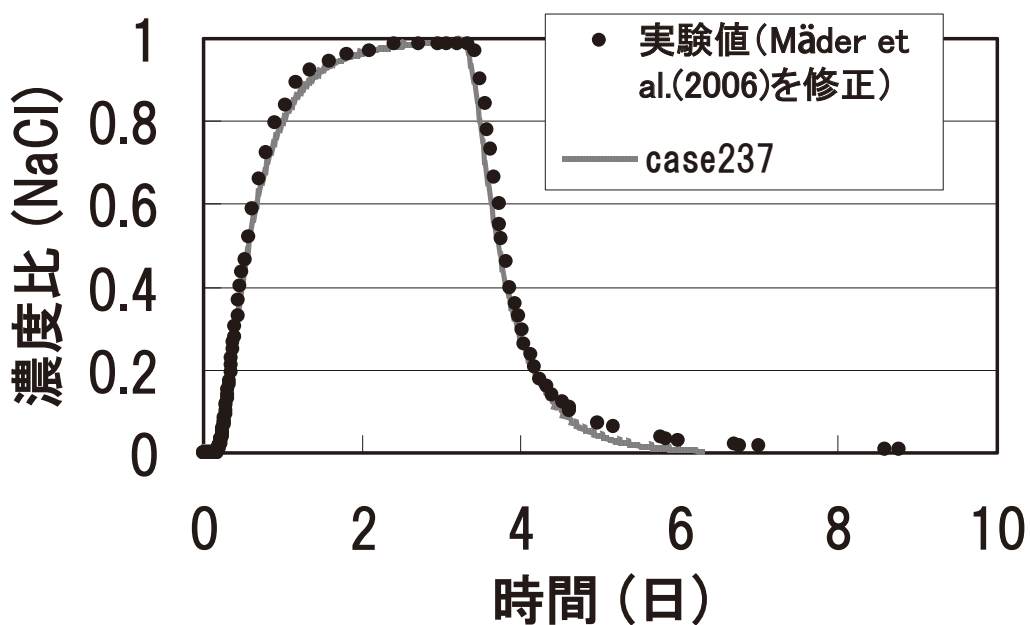


Fig.17 均一亀裂性媒体近似におけるトレーサ試験の排出溶液中の NaCl 濃度比の経時変化
(計算値及び実験値)

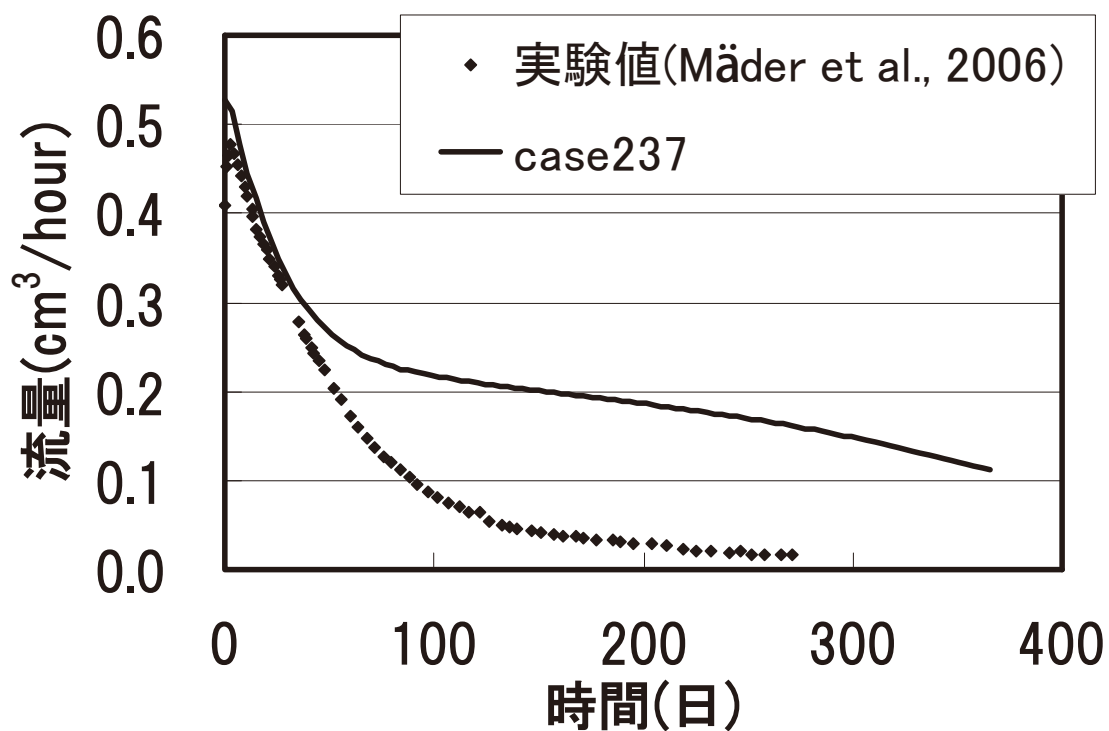


Fig.18 均一亀裂性媒体近似における高 pH 溶液通水による流量の経時変化
(計算値及び実験値)

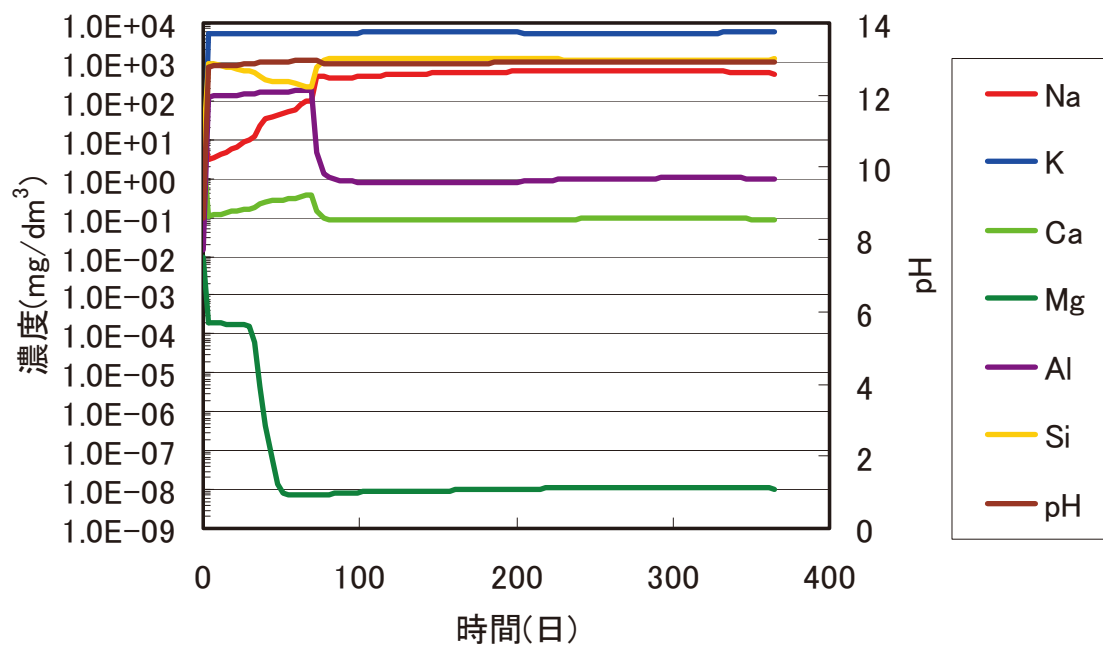


Fig.19 均一亀裂性媒体近似における高 pH 溶液通水の排出溶液中の各元素濃度(計算値)

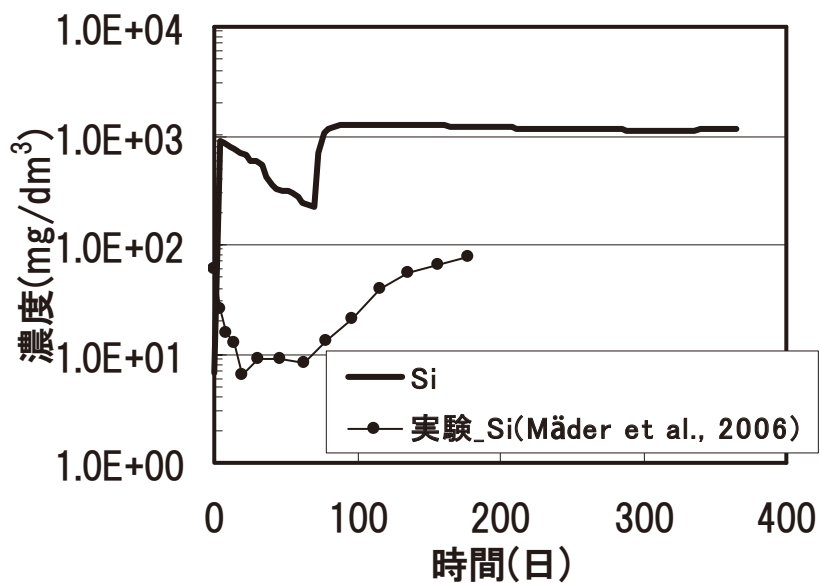


Fig.20 均一亀裂性媒体近似における高 pH 溶液通水の排出溶液中の Si 濃度（計算値及び実験値）

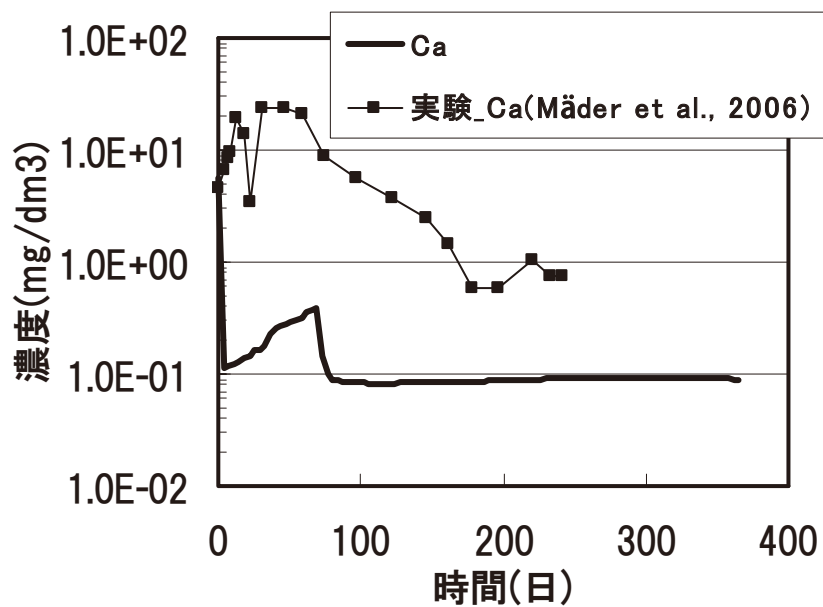


Fig.21 均一亀裂性媒体近似における高 pH 溶液通水の排出溶液中の Ca 濃度（計算値及び実験値）

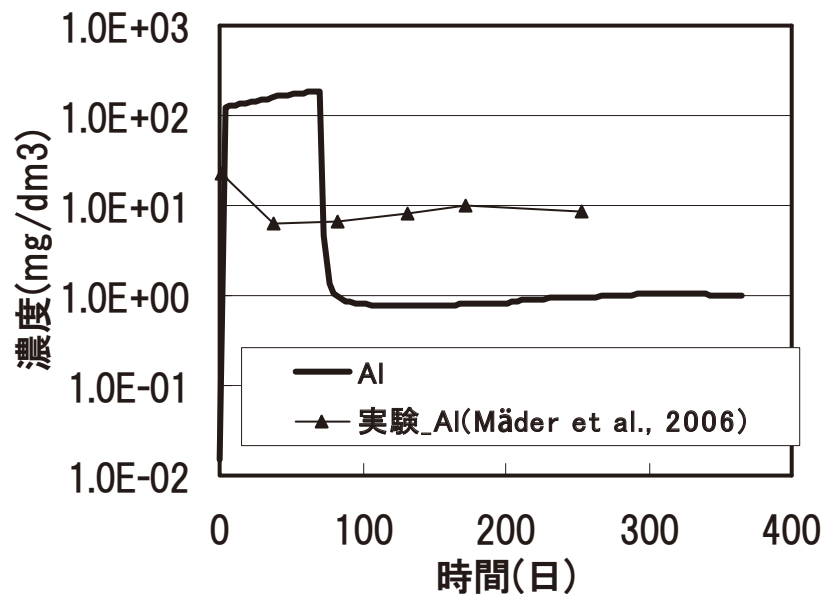


Fig.22 均一亀裂性媒体近似における高 pH 溶液通水の排出溶液中の Al 濃度（計算値及び実験値）

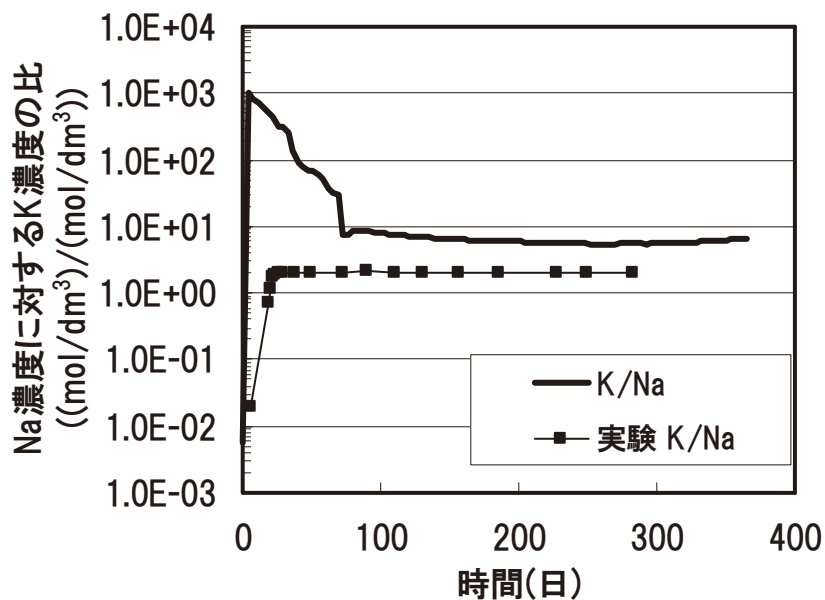


Fig.23 均一亀裂性媒体近似における高 pH 溶液通水の排出溶液中の Na/K 濃度比（計算値及び実験値）

3.7 不均一亀裂性媒体ケース

3.7.1 解析条件

不均一亀裂性媒体を仮定したアルカリ性水溶液通水試験の解析条件を Table.4 に示す。

Table.4 不均一亀裂性媒体ケースの解析条件

ケース番号		234
物質移行に関する条件	花崗岩コア中の fault gauge 部分のメッシュ数	通水方向 20×通水に直交方向 14 (2次元)
	初期の間隙割合と透水係数	不均一媒体 平均の間隙割合 0.21 (Soler and Mäder, 2005) 全体の透水係数 3.3×10^{-9} m/s (Soler and Mäder, 2005)
	間隙割合と透水係数の関係式	セル C(i,j)の間隙率と透水係数の関係(三乗則) $K_{w,(i,j)} = K_{w0,(i,j)} \left(\frac{\varepsilon_{(i,j)}^3}{\varepsilon_{0,(i,j)}^3} \right)$ $(K_{w,(i,j)} : \text{セル C(i,j)の透水係数}, K_{w0,(i,j)} : \text{セル C(i,j)の初期の透水係数}, \varepsilon_{(i,j)} : \text{セル C(i,j)の間隙割合}, \varepsilon_{0,(i,j)} : \text{セル C(i,j)の初期の間隙割合})$
	間隙割合と実効拡散係数の関係式	$D_e = 2 \times 10^{-9} \times \varepsilon^{1.44}$ (D_e : 実効拡散係数, ε : 間隙割合)
	分散長	縦分散長 4×10^{-4} m (メッシュの1辺長さの 1/10)
		横分散長 4×10^{-5} m (縦分散長の 1/10)
	初期の実効拡散係数	初期の間隙割合及び間隙割合と実効拡散係数の関係式から得られる数値
	初生鉱物の表面積	$10 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$ Surface (EGME) (Mazurek, 2003)
	動水勾配	94 (Mäder et al., 2006)
	境界条件	上流側 濃度固定 (pH13, Na 6.5×10^{-2} mol/L, K 1.3×10^{-1} mol/L, Ca 2.3×10^{-3} mol/L) 下流側 ゼロフラックス
化学条件	温度	25°C
	初生鉱物	初期の組成割合 クォーツ(22 wt.%), アルバイト(8.5 wt.%), アノーサイト(8.5 wt.%), カリ長石(18 wt.%), フロゴパイト(12 wt.%), マスコパイト(27 wt.%)
		溶解速度に関するパラメータ値 文献調査に基づく平均値
	二次鉱物	C-S-H ゲル, アナルサイム, 水酸化物

3.7.2 解析結果

不均一亀裂性媒体ケースの解析結果として、トレーサ試験における排出溶液中の NaCl 濃度比の経時変化(計算値及び実験値)、高 pH 溶液通水による流量の経時変化(計算値及び実験値)、高 pH 溶液通水の排出溶液中の各元素濃度(計算値)、高 pH 溶液通水の排出溶液中の Si 濃度 (計算値及び実験値)、高 pH 溶液通水の排出溶液中の Ca 濃度 (計算値及び実験値)、高 pH 溶液通水の排出溶液中の Al 濃度 (計算値及び実験値) 及び高 pH 溶液通水の排出溶液中における Na/K 濃度比(計算値及び実験値)を、それぞれ Fig.24～Fig.30 に示す。

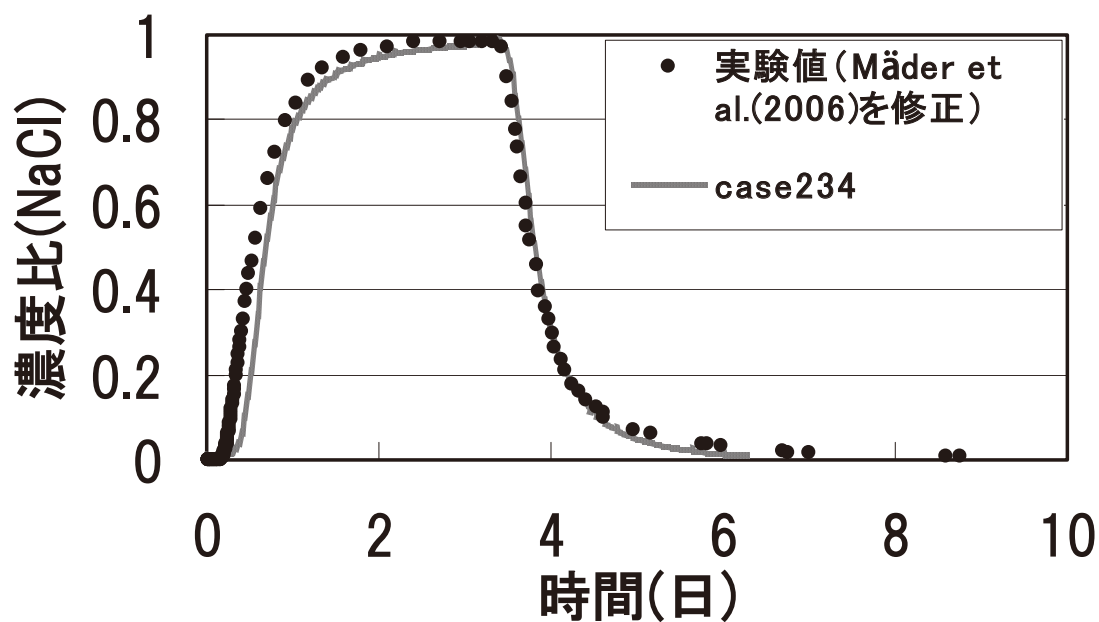


Fig.24 不均一亀裂性媒体近似におけるトレーサ試験の排出溶液中の NaCl 濃度比の経時変化
(計算値及び実験値)

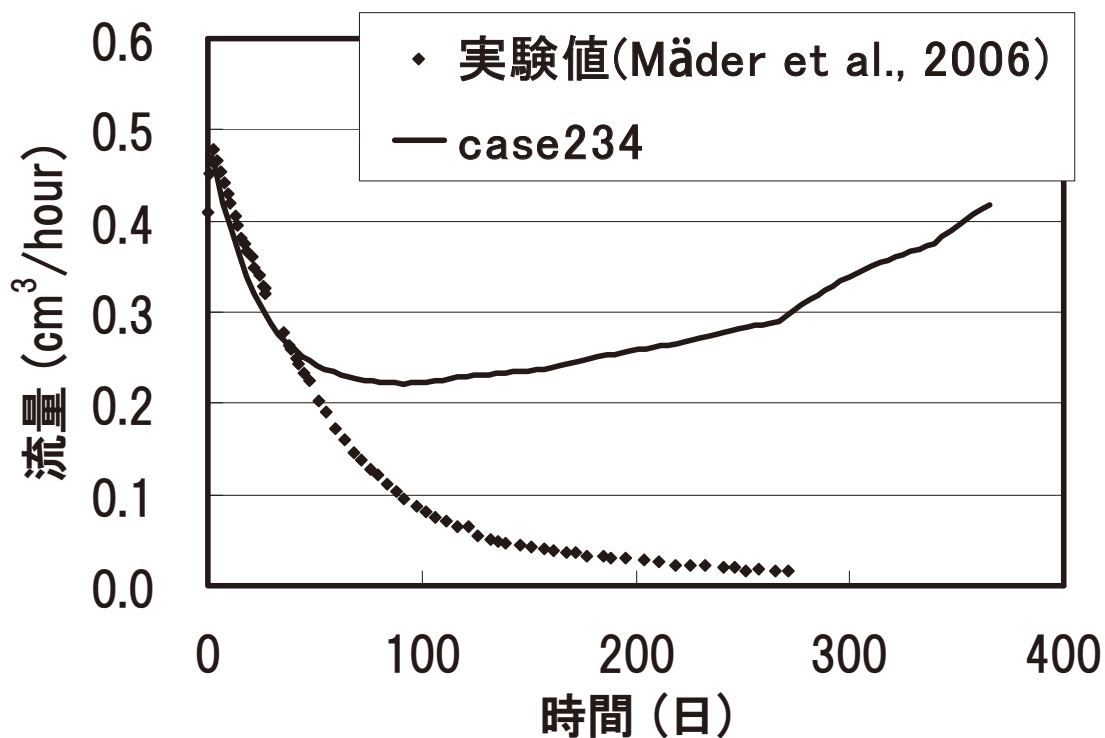


Fig.25 不均一亀裂性媒体近似における高 pH 溶液通水による流量の経時変化
(計算値及び実験値)

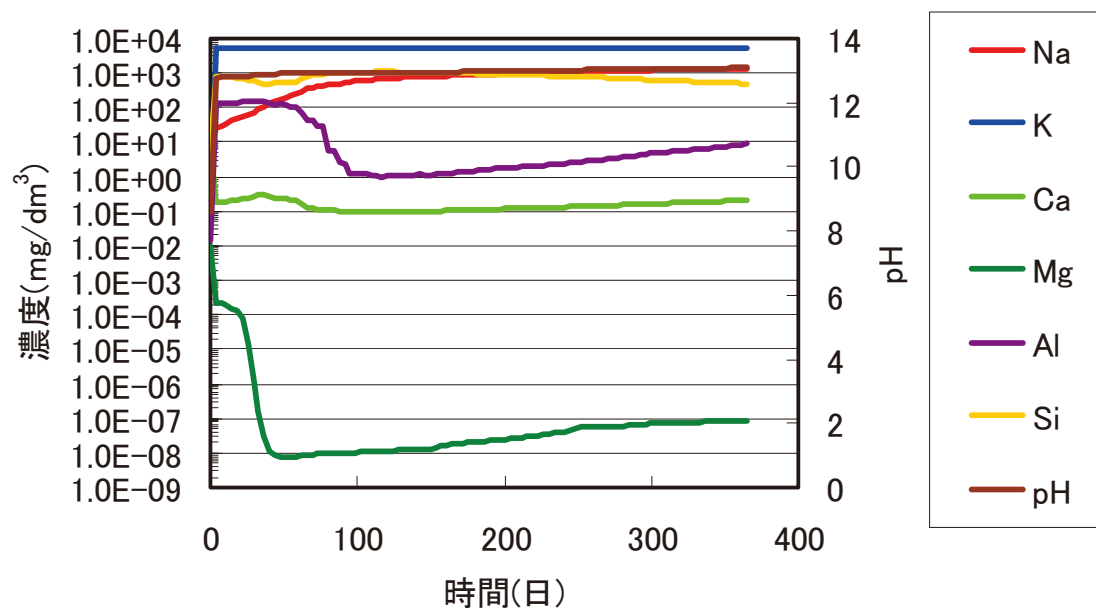


Fig.26 不均一亀裂性媒体近似における高 pH 溶液通水の排出溶液中の各元素濃度(計算値)

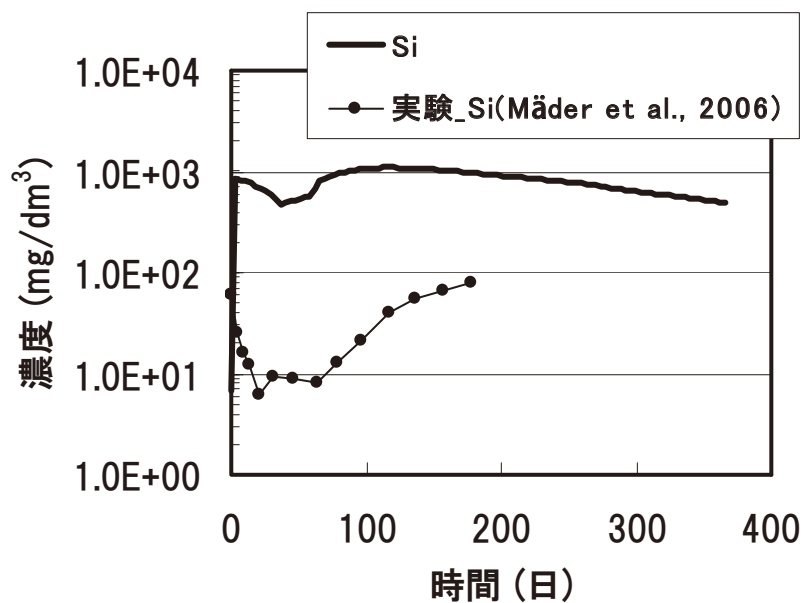


Fig.27 不均一亀裂性媒体近似における高 pH 溶液通水の排出溶液中の Si 濃度（計算値及び実験値）

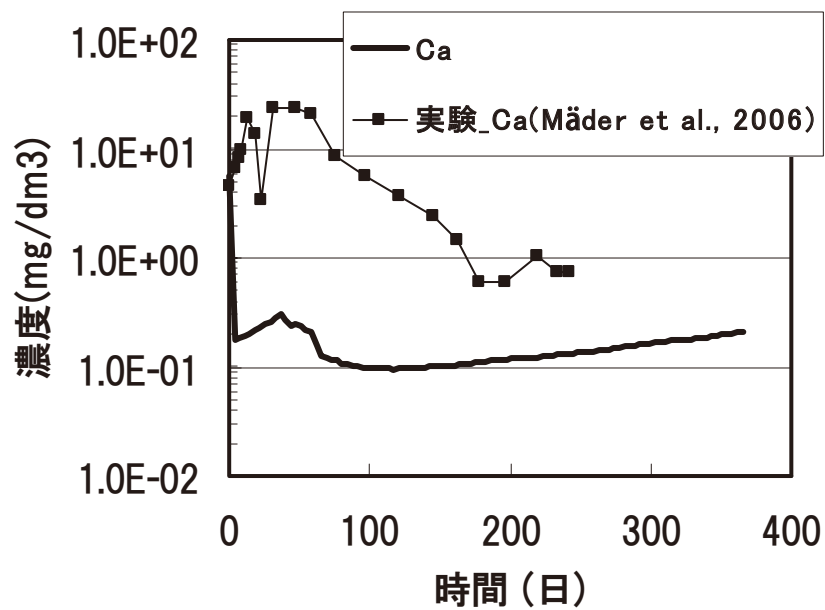


Fig.28 不均一亀裂性媒体近似における高 pH 溶液通水の排出溶液中の Ca 濃度（計算値及び実験値）

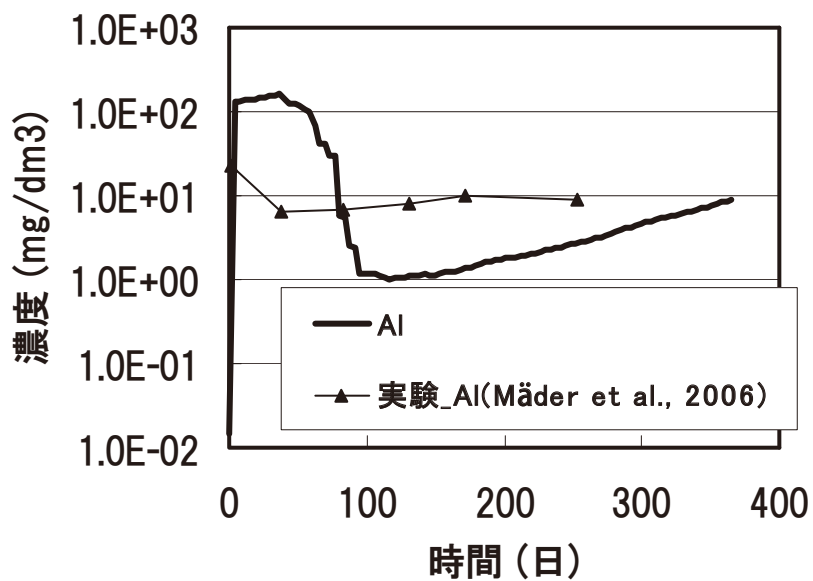


Fig.29 不均一亀裂性媒体近似における高 pH 溶液通水の排出溶液中の Al 濃度（計算値及び実験値）

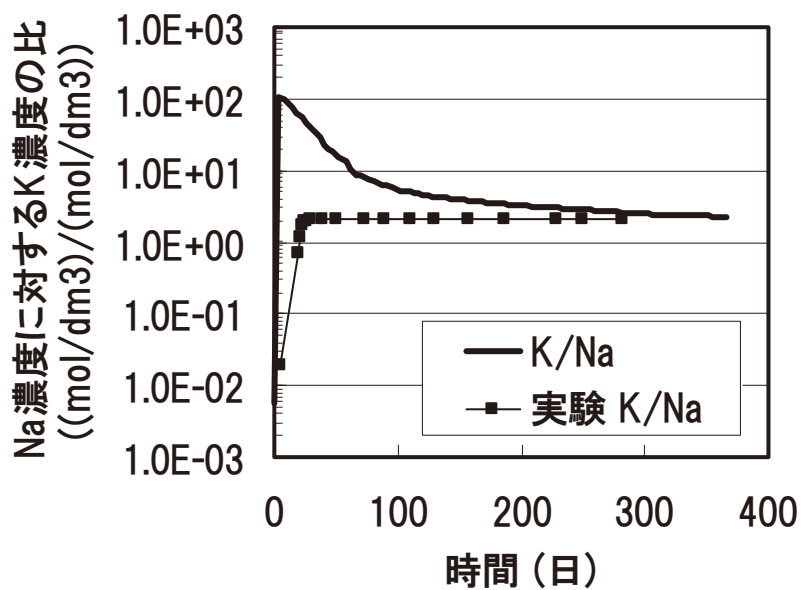


Fig.30 不均一亀裂性媒体近似における高 pH 溶液通水の排出溶液中の Na/K 濃度比（計算値及び実験値）

4. 結言

汎用技術計算ソフトウェア Mathematica を用いて種々の物質輸送場を発生させ、その場を対象として、2次元化学/物質輸送連成解析コード PHREEQC-TRANS により解析を行うことにより、多様な場の設定にフレキシブルに対応して、高 pH 間隙水による岩盤の変質とそれに伴う物質輸送特性変化を評価する方法を考案した。

また、グリムゼルサイトの花崗岩を用いて行われたアルカリ性水溶液の流動実験を解析対象として選択し、この考案した手法を用いて均一多孔質媒体ケース、不均一多孔質媒体ケース、均一亀裂性媒体ケース及び不均一亀裂性媒体ケースについてトレース解析を実施した。フレキシブルな評価手法であるために、解析側の自由度が大きくなり、解析条件設定のために、実験側から得るべき情報が非常に多くなったが、得られない情報も多数あり、恣意的に設定した解析条件も多かった。このため、結果として実験結果と良い一致を示したケースはなかった。これは当然の結果であり、さらに詳細な評価対象亀裂の情報が必要であることを示唆している。

今後、実験的検討により、このような情報を取得し、解析側の条件を実験的証拠・観察事実に基づき設定するとともに、実験的に確認できないことについては、作業仮説の立案(モデル化)とその検証(モデルの妥当性検討)の繰り返しを行い、実験結果を整合的に説明できるプロセスを探索することにより、現象の理解を深めることが重要である。本書で紹介した方法は、そのための解析手法・ツールとして有用と考えられる。

参考文献

Bear, J. (1974): *Dynamic of Fluids in Porous Media*, DOVER PUBLICATIONS, INC., New York, pp.165-167.

電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構(2005a): TRU 廃棄物処分技術検討書, 第2次 TRU 廃棄物処分研究開発取りまとめ, JNC TY1400 2005-013, FEPC TRU-TR2-2005-02, p.4-188.

電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構(2005b): TRU 廃棄物処分技術検討書, 第2次 TRU 廃棄物処分研究開発取りまとめ, 根拠資料集, 分冊 2, JNC TY1450 2005-001(2), FEPC TRU-TR-2005-04, 4-2 化学反応物質移行連成解析コードの内容と検証, pp.1-23.

Lasaga, A.C. (1998): *Kinetic Theory in the Earth Science*, Princeton University Press, Princeton, pp.611-613.

Mäder, U. K., Fierz, T., Frieg, B., Eikenberg, J., Ruthi, M., Albinsson, Y., Mori, A., Ekberg, S. and Stille, P. (2006): Interaction of hyperalkaline fluid with fractured rock: Field and laboratory experiments of the HPF project (Grimsel Test Site, Switzerland). *Journal of Geochemical Exploration*, 90, pp.68-94.

Parkhurst, D. L. and Appelo, C. A. J. (1999): *Users guide to PHREEQC (Version 2): A computer program for speciation, batch-reaction, one-dimensional transport, and inverse geochemical calculations; United States Geological Society*: Denver, CO.

Pfingsten, W., Paris, B., Soler, J. M. and Mäder, U. K. (2006): Tracer and reactive transport modeling of the interaction between high-pH fluid and fractured rock: Field and laboratory experiments. *Journal of Geochemical Exploration*, 90, pp.95-113.

佐藤 治夫, 舘 幸男, 澁谷朝紀 (1999): 亀裂性結晶質岩におけるイオンのマトリックス拡散, サイクル機構技報, No.4, pp.75-85.

佐藤 久, 澤田 淳 (2008): 光学的手法による単一亀裂内測定データに基づく水理物質移行特性評価手法の検討, JAEA-Research 2008-067, p.6.

Soler, J. M. and Mäder, U. K. (2005): Interaction between hyperalkaline fluids and rocks hosting repositories for radioactive waste: reactive transport simulations. *Nuclear Science and Engineering*, 151, pp.128-133.

Soler, J. M., Pfingsten, W., Paris, B., Mäder, U. K., Frieg, B., Neall, F., Kallvenius, G., Yui, M., Yoshida, Y., Shi, P., Rochelle, C. A. and Noy, D. J. (2006): Grimsel test site investigation Phase V

HPF-Experiment: Modeling report. *NAGRA Technical Report 05-01*.

登坂博行 (2006): 地圏水循環の数理, 流域水環境の解析法, 東京大学出版会, p.163.

Wolfram, S. (1999): THE MATHEMATICA BOOK, 4th edition, WOLFRAM MEDIA, CAMBRIDGE UNIVERSITY PRESS.

Appendix-1 不均一場の初期等価透水係数 $K_{0,AVE}$ の算定方法

不均一場の初期等価透水係数 $K_{0,AVE}$ の算定方法を、Fig. A-1-1 を用いて示す。まずセル $C_{(i,j)}$ について透水係数 $K_{(i,j)}$ とともに各セルの水頭 $P_{(i,j)}$ を定義する (Fig. A-1-1(b), (c) 参照)。また透水係数は各セル内部では均一、水頭の評価点はセル中央、流速評価点はセル境界とする (Fig. A-1-1(a) 参照)。すなわち、セル $C_{(i,j)}$ まわりの流速評価点での水のフラックスは、 $Q_{(i-1/2,j)}$, $Q_{(i+1/2,j)}$, $Q_{(i,j-1/2)}$ および $Q_{(i,j+1/2)}$ (Fig. A-1-1(d) 参照) となる。ここで、境界条件として水頭が与えられ、流動媒体の特性として各セルの透水係数 $K_{(i,j)}$ が与えられたときに、各セルの水頭 $P_{(i,j)}$ およびセル $C_{(i,j)}$ まわりの水のフラックス $Q_{(i-1/2,j)}$, $Q_{(i+1/2,j)}$, $Q_{(i,j-1/2)}$ および $Q_{(i,j+1/2)}$ を算定し、最終的にこの体系全体の平均透水係数 (体系全体の等価透水係数) $K_{0,AVE}$ を算定する。

- 圧力評価点
- 流速評価点

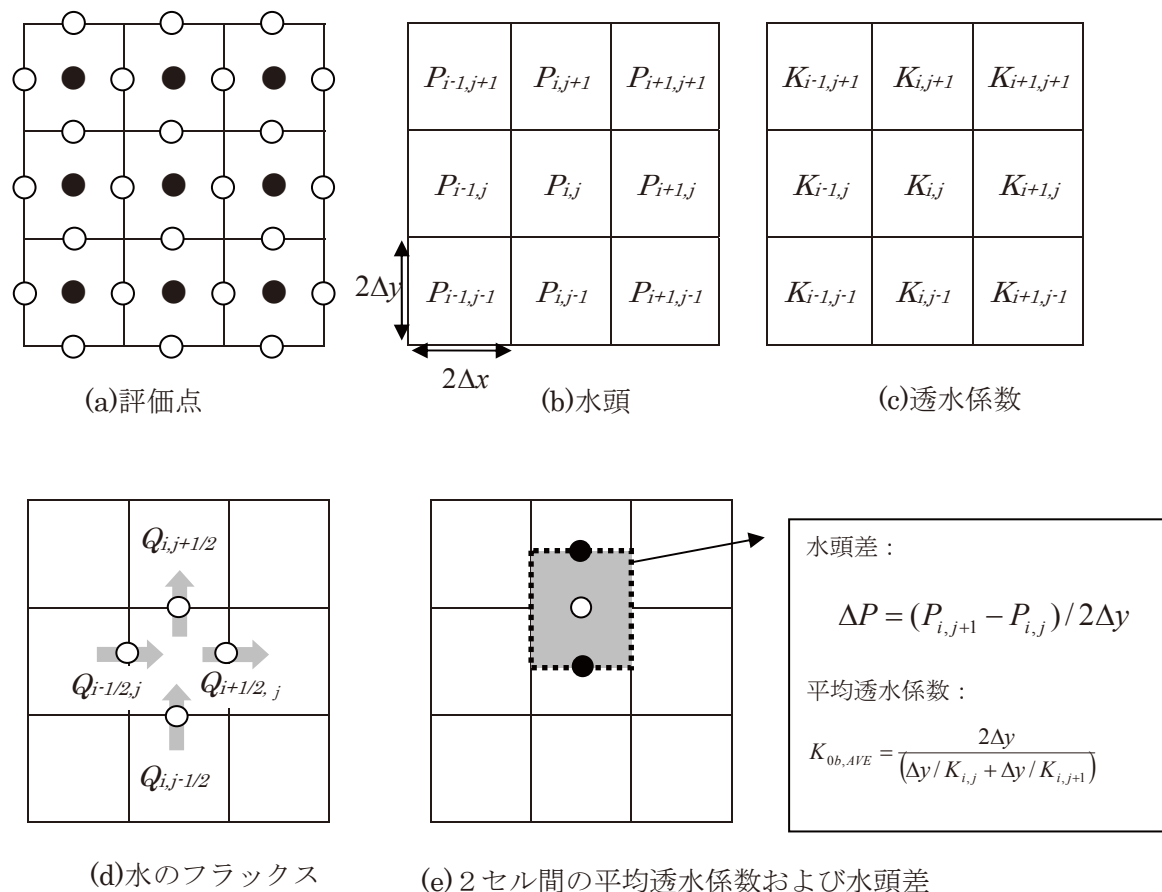


Fig. A-1-1 長方形セルの2次元配列体系により表現された不均一場

Fig. A-1-1 の(e)のように、2セル間の平均透水係数 $K_{0b,AVE}$ を、各セルの透水係数の調和平均

と定義すると、Darcy 則セル境界の水のフラックスは式(A-1-1)のように定義される。

$$Q_{i,j+1/2} = -\Delta x \times Z \times (\Delta P \times K_{0b,AVE}) = -\Delta x \times Z \times \frac{(P_{i,j+1} - P_{i,j})}{2\Delta y} \times \frac{2\Delta y}{(\Delta y / K_{i,j} + \Delta y / K_{i,j+1})} \quad (\text{A-1-1})$$

ここで質量保存則から(A-1-2)の式が成り立つ。

$$Q_{i,j-1/2} - Q_{i,j+1/2} + Q_{i-1/2,j} - Q_{i+1/2,j} = 0, (i=1 \sim N, j=1 \sim M) \quad (\text{A-1-2})$$

変数である水頭 $P_{i,j}$ は、定常状態における質量保存則に基づき、式(A-1-1)を式(A-1-2)に代入し、未知数 $P(i,j)$ について解くことにより求められる。ここで、未知数 $P(i,j)$ および方程式の数は、同じ（セル数 $M \times N$ ）であるから、未知数を決定することができる。すなわち、数学的には連立 $M \times N$ 元 1 次代数方程式を解くことになり、Mathematica により目的変数 $P(i,j)$ を求めることができる。 $P(i,j)$ が求まれば $Q_{i,j+1/2}$ も決定することができる。ここで、側壁の境界条件は、式(A-1-3)のように、ゼロフラックス条件とする。

$$Q_{1/2,j} = 0, Q_{N+1/2,j} = 0, j = 1 \sim M \quad (\text{A-1-3})$$

流入点と流出点の境界条件は、それぞれ仮想セルを設け、そのセルの条件を式(A-1-4)のように設定することにより与えた。仮想セルの透水係数 K_h は、計算の収束の妨げにならない範囲で、 $K(i,j)$ より十分大きな値を与えて、誤差要因にならないようにすればよい。

$$P_{i,0} = H, P_{i,M+1} = 0, i = 1 \sim N \quad (\text{A-1-4})$$

ここに H は水頭とする。

非圧縮流体の定常流では、系の任意の断面で、単位時間あたりの流量が一定となることから、例えば、一番下流側のセル群の下流側境界を通過するフラックスを足し上げれば単位時間当たりの全流量となり、系全体の平均等価透水係数 $K_{0,AVE}$ は式(A-1-5)により決定される。

$$K_{0,AVE} = \frac{1}{H \times (2\Delta y N)} \left(\sum_{i=1}^N Q_{i,M+1/2} \right) \quad (\text{A-1-5})$$

Appendix-2 不均一系における各セルへの間隙率付与方法

ここでは、不均一系において各セルに間隙率を与える方法を示す。

地球統計学的(geostatistics)手法を用いて、間隙率等の特性値を 2 次元配列されたセル群に与えることとした。まず 2 次元の長方形セルの配列として表現された媒体から、各々の空間的距離が等しくなるようにセルを飛び石状に選定し、これらのセルについては、間隙率の頻度分布関数に一致する乱数を発生させ、at random に間隙率を与え、つぎに、これら以外のセルについて、上記により、すでに間隙率または亀裂開口幅を与えられたセルの値を用いて通常クリギング法による補間によって決定するというものである。補間するためのパラメータは、特性の空間分布を示すセミバリオグラムに基づき決定する。この具体的方法は以下のようなものである。

- a. 透水係数を設定する解析上のメッシュサイズを決定する ($n \times m$)。
- b. l 個($l < n \times m$)の任意のメッシュを選択し、これらのメッシュの間隙率が想定される分布関数に従うものとして、乱数を利用してリアライゼーションを作成する。

$$\varepsilon_1, \varepsilon_2, \dots, \varepsilon_l \in \Omega_\varepsilon$$

$$\varepsilon_1, \varepsilon_2, \dots, \varepsilon_l : \text{サンプリングされた間隙率}$$

$$\Omega_\varepsilon : \text{間隙率の母集団分布}$$

- c. サンプルされた間隙率を確率場 $Z(s)$ (s は、空間位置)からの実現値とみなし、確率場 $Z(s)$ は本質的定常性(intrinsic stationarity)をもつものと仮定する。すなわち、期待値及び分散は(A-2-1)式で与えられる。相対位置のみに依存する関数 2γ をバリオグラム(variogram), γ はセミバリオグラム(semi variogram)と呼ばれる。

$$\begin{aligned} E\{Z(s_1) - Z(s_2)\} &= 0 \\ Var\{Z(s_1) - Z(s_2)\} &= 2\gamma(s_1 - s_2) \end{aligned} \quad (A-2-1)$$

- d. バリオグラムを既知であると仮定し、サンプリングされたメッシュ以外のメッシュの確率場をバリオグラムを用いて予測する。位置 s_0 における確率場 $Z(s_0)$ の算出は、通常クリギング(ordinary kriging: 最良線形不変予測)を用い実施する。通常クリギングでは線形予測量に適当な重みを $\vec{w} = [w_1, w_2, \dots, w_l]$ として、

$\vec{r}_0 = [\gamma(s_1 - s_0), \gamma(s_2 - s_0), \dots, \gamma(s_l - s_0)]$ 及び $\Gamma = \{\gamma(s_i - s_j)\}_{ij}$ として、(A-2-2)式を解くことにより予測量の重み $\vec{w}$ を算出する。

$$\begin{bmatrix} \Gamma & 1 \\ 1 & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \vec{w} \\ \lambda \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \gamma_0 \\ 1 \end{bmatrix} \quad (\text{A-2-2})$$

ここで、 λ は条件付き極値問題を解くために用いるラグランジュ法のラグランジュ乗数である。ここで得られる $\vec{w}$ から、位置 s_0 における予測値は、(A-2-3)式のようなのである。

$$\hat{Z}(s_0) = \sum_{i=1}^l w_i Z(s_i) \quad (\text{A-2-3})$$

なお、本検討において想定したバリオグラムは、澤田・鐵(2009)による亀裂媒体において観測された指数型モデルである((A-2-4)式参照)。

$$\gamma(h; \theta) = \begin{cases} \theta_0 + \theta_1 (1 - \exp(-|h|/\theta_2)), & |h| > 0 \\ 0, & |h| = 0 \end{cases} \quad (\text{A-2-4})$$

h : 相対距離

$\theta_0, \theta_1, \theta_2$: ナゲット効果, シル, レンジ

バリオグラムの関数系や $\theta_0, \theta_1, \theta_2$ は、実測に基づき決定される。ここでは澤田・鐵(2009)の値 ($\theta_0 = 0$, $\theta_1 = 0.25$, $\theta_2 = 0.01$) を用いた。

参考文献

澤田淳, 鐵桂一 (2009): 50cm スケールの花崗岩試料の研削による亀裂形状計測について, 第 38 回岩盤力学に関するシンポジウム講演集, 土木学会, pp.266-271.

Appendix-3 単一亀裂の亀裂開口幅 τ の間隙率 ε への変換 t と不均一媒体の設定

亀裂性媒体について、単一亀裂の亀裂開口幅 τ を間隙率 ε への変換し、間隙率 ε と透水係数 K との関係に整理するため、まず以下の検討を行う。不均一亀裂性媒体において、セル群の亀裂開口幅分布 τ が対数正規分布に従うと仮定した場合に、亀裂開口幅分布 τ と間隙率 ε について検討する。ここで離散化した亀裂性媒体の1セルの断面(本文 Fig. 1 参照)を考える。このとき間隙は亀裂のみとする。

また、 τ が対数正規分布をするとしたとき、 μ 及び σ を、それぞれ対数値 $\log \tau$ の正規分布の平均値と標準偏差とし、この正規分布を $N_{\log}(\mu, \sigma)$ と標記することとする。各セルの亀裂開口幅 τ が対数正規分布すると、その確率密度関数 $f(\tau)$ を上記の μ 及び σ で表すと、(A-3-1)式のようなである。

$$f(\tau) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma\tau} \exp\left\{-\frac{(\log \tau - \mu)^2}{2\sigma^2}\right\}, \quad \tau > 0 \quad (\text{A-3-1})$$

ここで、亀裂開口幅 τ と間隙率 ε は $\tau = Z\varepsilon$ の関係にあることから、(A-3-1)式の τ に $Z\varepsilon$ を代入すると(A-3-2)式となる。

$$\begin{aligned} f(\tau) &= f(z\varepsilon) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma Z\varepsilon} \exp\left\{-\frac{(\log Z\varepsilon - \mu)^2}{2\sigma^2}\right\}, \quad Z\varepsilon > 0 \\ &= \frac{1}{Z} \left[\frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma\varepsilon} \exp\left\{-\frac{(\log \varepsilon - (\mu - \log Z))^2}{2\sigma^2}\right\} \right], \quad Z\varepsilon > 0 \end{aligned} \quad (\text{A-3-2})$$

ここで、 τ の累積確率を考える。まず、 $\tau = Z\varepsilon$ の両辺を ε で微分すると、 $d\tau/d\varepsilon = Z$ であるから、 $d\tau = Zd\varepsilon$ となる。対数正規分布する τ の確率密度関数 $f(\tau)$ を $0 < \tau < \infty$ で積分したときの累積確率 $F(\tau)$ は(A-3-2)式より以下のようなである。

$$\begin{aligned}
& [F(\tau)]_{+0}^{\infty} \\
&= \int_{+0}^{\infty} f(\tau) d\tau \\
&= \int_{+0}^{\infty} \frac{1}{Z} \left[\frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma\varepsilon}} \exp\left\{ \frac{-(\log \varepsilon - (\mu - \log Z))^2}{2\sigma^2} \right\} \right] d\tau \\
&= \int_{+0}^{\infty} \frac{1}{Z} \left[\frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma\varepsilon}} \exp\left\{ \frac{-(\log \varepsilon - (\mu - \log Z))^2}{2\sigma^2} \right\} \right] Z d\varepsilon \quad (\text{A-3-3}) \\
&= \int_{+0}^{\infty} \left[\frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma\varepsilon}} \exp\left\{ \frac{-(\log \varepsilon - (\mu - \log Z))^2}{2\sigma^2} \right\} \right] d\varepsilon \\
&= \int_{+0}^{\infty} g(\varepsilon) d\varepsilon \\
&= [G(\varepsilon)]_{+0}^{\infty} \\
&= 1
\end{aligned}$$

ここに $f(\tau)$ 及び $F(\tau)$ は、それぞれ $N_{\log \tau}(\mu, \sigma)$ となる対数正規分布の確率密度関数及び累積確率であり、 $g(\varepsilon)$ 及び $G(\varepsilon)$ は、それぞれ $N_{\log \varepsilon}(\mu - \log Z, \sigma)$ となる対数正規分布の確率密度関数及び累積確率である。したがって $f(\tau)$ なる亀裂開口幅 τ の対数正規分布が与えられた場合には、 τ に代えて $g(\varepsilon)$ なる対数正規分布の確率密度関数にしたがって間隙率 ε を与えればよい。

上記のように、亀裂開口幅 τ が対数正規分布のとき、 ε にも対数正規分布を与えればよい。しかし本書では、 $f(\tau)$ と $g(\varepsilon)$ を用いて τ の ε への変換は行っておらず、fitting によって得られた平均間隙率と対数正規分布 $g(\varepsilon)$ の平均値が一致し、かつセミバリオグラムを再現できるように、 $N_{\log \varepsilon}(\mu - \log Z, \sigma)$ の $\mu - \log Z$ 及び σ を設定した。

具体的には、不均一多孔質媒体ケース、不均一亀裂性媒体ケースとも、2次元配列された280個のセルから離間距離がほぼ等しく、かつセル群全体に満遍なく分布するように13個のセルを選択し、この13個のセル群に対して、対数正規分布からのランダムサンプリングにより間隙率を与え、残りのセルには、通常クリギングにより選定された13個のセル間を補間することにより、間隙率を与えた。このように設定したセル群の平均間隙率がおおよそ、トレーサ試験から求めた平均間隙率と一致するように、13個のセル群の間隙率の分布として与えた対数正規分布の平均値が0.21となるよう設定した。実際の分布の取り扱いでは、間隙率の対数値が正規分布するとして、当該正規分布の平均値 μ と標準偏差 σ を制御パラメータとして用いた。対数正規分布の平均値 M を正規分布の平均値 μ と標準偏差 σ で表現すると(A-3-4)式のようなである。

$$M = \exp(\mu + \sigma^2 / 2) \quad (\text{A-3-4})$$

したがって $M=0.21$ となるように、 μ と σ を決定することになる。このとき、方程式がひとつで、変数(μ 及び σ)が二つであるから、 μ と σ は一意に決まらない。そこで、 $M=0.21$ と

置いたときの μ と σ との関係式を満足するように μ と σ とを連動させて変化させながら不均質媒体を生成させ、そのセミバリオグラムを描いて、空間補完に用いた澤田・鐵(2009)のセミバリオグラムと比較した。これが良好な一致を示せば、生成させた場の空間距離と間隙率の分散の関係が、空間補完のために仮定した関係と整合していることとなる。澤田らのセミバリオグラムと μ 及び σ の組み合わせを変えたときの不均質媒体のセミバリオグラムをFig.A-3-2に示す。Fig. A-3-2 からわかるように澤田・鐵(2009)のセミバリオグラムと良好な一致を示した $\mu=-1.08$ 及び $\sigma=0.9$ なる組み合わせを選定した。この μ 及び σ を用いて多数の不均質多孔質媒体或いは不均質亀裂性媒体を発生させて、その中から媒体全体の平均間隙率及び等価透水係数がトレーサ試験で求められた値と良い一致を示すものを選択し、地球化学/物質輸送解析に使用した。

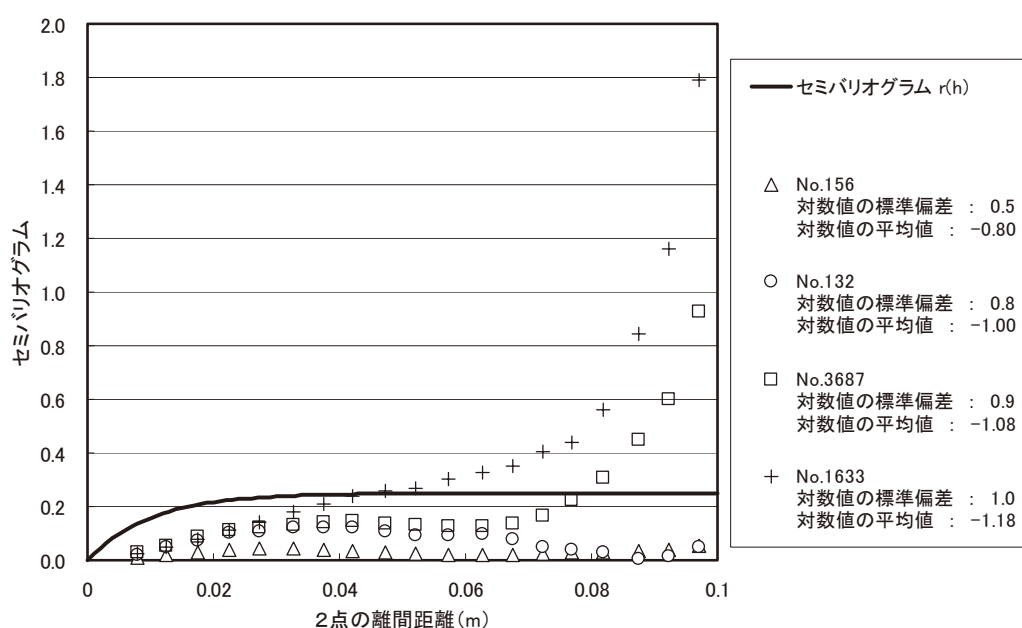


Fig. A-3-2 モデル媒体のセミバリオグラムと通常クリギングに用いた
実測セミバリオグラムの比較

参考文献

澤田淳, 鐵桂一 (2009): 50cm スケールの花崗岩試料の研削による亀裂形状計測について, 第38回岩盤力学に関するシンポジウム講演集, 土木学会, pp.266-271.

Appendix-4 主要初生鉱物の溶解速度定数、比表面積及び溶解沈殿反応の平衡定数並びに 2 次鉱物の溶解沈殿反応の平衡定数及び液相反応の平衡定数

Table A-4-1 主要鉱物(Quartz、K-feldspar、Albite、Anorthite、Phlogopite 及び Muscovite)の溶解速度式のパラメータ $k(\log K$ として記載)及び n ⁱ⁾

Primary minerals	Temp (°C)	Log k	n
Quartz	25	-14.03	-0.29
K-feldspar	25	-20.09	-0.739
Plagioclase	Albite	25	-15.80
	Anorthite	25	-0.462
Phlogopite	25	-11.56	0.011
Muscovite	25	-14.04	-0.222

Table A-4-2 主要鉱物(Quartz、K-feldspar、Albite、Anorthite、Phlogopite 及び Muscovite)の比表面積

Primary mineral	wt. %	Molar mass	Specific surface area (m ² mol ⁻¹)
Quartz	22	60.08	600.8
K-feldspar	18	278.33	2783.3
Albite	8.5	262.22	2622.2
Anorthite	8.5	278.21	2782.1
Phlogopite	12	417.26	4172.6
Muscovite	27	398.31	3983.1

i) Gaus, I., Rueedi, J. and Blaser, P. (Ed.): Comparative Modelling of Cement Experiments, NAGRA NAB10-07, p101(2010).

Table A-4-3 初生鉱物の溶解・沈殿反応の化学平衡定数

Database	Mineral	Dissolution reaction	Log K_{eq}	$\Delta H(\text{kcal/mol})$
050700c0.td b	Quartz	$\text{SiO}_2 + 2\text{H}_2\text{O} = \text{H}_4\text{SiO}_4$	-3.78	none
	K-Feldspar	$\text{KAlSi}_3\text{O}_8 + 4\text{H}^+ + 4\text{H}_2\text{O} = \text{K}^+ + \text{Al}^{3+} + 3\text{H}_4\text{SiO}_4$	-0.45	none
	Albite	$\text{NaAlSi}_3\text{O}_8 + 4\text{H}^+ + 4\text{H}_2\text{O} = \text{Na}^+ + \text{Al}^{3+} + 3\text{H}_4\text{SiO}_4$	3.54	none
	Anorthite	$\text{CaAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8 + 8\text{H}^+ = \text{Ca}^{2+} + 2\text{Al}^{3+} + 2\text{H}_4\text{SiO}_4$	26.7	none
	Phlogopite	$\text{KMg}_3\text{AlSi}_3\text{H}_2\text{O}_{12} + 10\text{H}^+ = \text{K}^+ + \text{Al}^{3+} + 3\text{Mg}^{2+} + 3\text{H}_4\text{SiO}_4$	36.33	none
	Muscovite	$\text{KAl}_3\text{Si}_3\text{H}_2\text{O}_{12} + 10\text{H}^+ = \text{K}^+ + 3\text{Al}^{3+} + 3\text{H}_4\text{SiO}_4$	14.6	none

Table A-4-4 2次鉱物の溶解・沈殿反応の化学平衡定数

Database	Mineral	Dissolution reaction	Log K_{eq}
050700c0.tdb	BRUCITE	$\text{Mg}(\text{OH})_2 = 2\text{H}_2\text{O} + \text{Mg}^{2+} - 2\text{H}^+$	16.300
	GIBBSITE	$\text{Al}(\text{OH})_3 = 3\text{H}_2\text{O} + \text{Al}^{3+} - 3\text{H}^+$	7.760
	PORTLANDITE	$\text{Ca}(\text{OH})_2 = 2\text{H}_2\text{O} + \text{Ca}^{2+} - 2\text{H}^+$	22.710
C-S-H gel	Analcime	$\text{NaAlSi}_2\text{H}_2\text{O}_7 + 4\text{H}^+ + \text{H}_2\text{O} = \text{Na}^+ + \text{Al}^{3+} + 2\text{H}_4\text{SiO}_4$	6.95
	CSH(1.8)	$\text{CaO}(\text{SiO}_2)_{0.556} \cdot 1.047\text{H}_2\text{O} + 2\text{H}^+ = \text{Ca}^{2+} + 0.556\text{H}_4\text{SiO}_4 + 0.935\text{H}_2\text{O}$	17.597
	CSH(1.5)	$\text{CaO}(\text{SiO}_2)_{0.667} \cdot 1.056\text{H}_2\text{O} + 2\text{H}^+ = \text{Ca}^{2+} + 0.667\text{H}_4\text{SiO}_4 + 0.722\text{H}_2\text{O}$	16.643
	CSH(1.3)	$\text{CaO}(\text{SiO}_2)_{0.769} \cdot 1.064\text{H}_2\text{O} + 2\text{H}^+ = \text{Ca}^{2+} + 0.769\text{H}_4\text{SiO}_4 + 0.526\text{H}_2\text{O}$	15.870
	CSH(1.1)	$\text{CaO}(\text{SiO}_2)_{0.909} \cdot 1.076\text{H}_2\text{O} + 2\text{H}^+ = \text{Ca}^{2+} + 0.909\text{H}_4\text{SiO}_4 + 0.258\text{H}_2\text{O}$	14.983
	CSH(1.0)	$\text{CaOSiO}_2 \cdot 1.0833\text{H}_2\text{O} + 2\text{H}^+ = \text{Ca}^{2+} + \text{H}_4\text{SiO}_4 + 0.0833\text{H}_2\text{O}$	14.514
	CSH(0.9)	$\text{CaO}(\text{SiO}_2)_{1.111} \cdot 1.092\text{H}_2\text{O} + 2\text{H}^+ = \text{Ca}^{2+} + 1.111\text{H}_4\text{SiO}_4 - 0.130\text{H}_2\text{O}$	14.061
	CSH(0.833)	$(\text{CaO})_{0.833}(\text{SiO}_2) \cdot 0.917\text{H}_2\text{O} + 1.666\text{H}^+ = 0.833\text{Ca}^{2+} + \text{H}_4\text{SiO}_4 - 0.250\text{H}_2\text{O}$	11.436
	CSH(0.8)	$(\text{CaO})_{0.8}(\text{SiO}_2) \cdot 0.88\text{H}_2\text{O} + 1.6\text{H}^+ = 0.8\text{Ca}^{2+} + \text{H}_4\text{SiO}_4 - 0.320\text{H}_2\text{O}$	10.819
	CSH(0.6)	$(\text{CaO})_{0.6}(\text{SiO}_2) \cdot 0.66\text{H}_2\text{O} + 1.2\text{H}^+ = 0.6\text{Ca}^{2+} + \text{H}_4\text{SiO}_4 - 0.740\text{H}_2\text{O}$	7.312
	CSH(0.4)	$(\text{CaO})_{0.4}(\text{SiO}_2) \cdot 0.44\text{H}_2\text{O} + 0.8\text{H}^+ = 0.4\text{Ca}^{2+} + \text{H}_4\text{SiO}_4 - 1.160\text{H}_2\text{O}$	3.907

Table A-4-5 液相反応とその化学平衡定数

Reaction	Log K (25°C)
$\text{H}_2\text{O} - \text{H}^+ = \text{OH}^-$	-14.000 ⁱ⁾
$2\text{H}^+ + 2\text{e}^- = \text{H}_2$	-3.150 ⁱ⁾
$2\text{H}_2\text{O} - 4\text{H}^+ - 4\text{e}^- = \text{O}_2$	-86.080 ⁱⁱ⁾
Calcium, master species = Ca^{2+}	
$\text{Ca}^{2+} + \text{H}_2\text{O} - \text{H}^+ = \text{CaOH}^+$	-12.598 ⁱⁱ⁾
$\text{Ca}^{2+} + \text{F}^- = \text{CaF}^+$	0.940 ⁱⁱ⁾
Magnesium, master species = Mg^{2+}	
$\text{Mg}^{2+} + \text{H}_2\text{O} - \text{H}^+ = \text{MgOH}^+$	-11.794 ⁱⁱ⁾
$\text{Mg}^{2+} + \text{F}^- = \text{MgF}^+$	1.820 ⁱⁱ⁾
Aluminium, master species = Al^{3+}	
$\text{Al}^{3+} + \text{H}_2\text{O} - \text{H}^+ = \text{AlOH}^{2+}$	-4.990 ⁱⁱ⁾
$\text{Al}^{3+} + 2\text{H}_2\text{O} - 2\text{H}^+ = \text{Al}(\text{OH})_2^+$	-10.100 ⁱⁱ⁾
$\text{Al}^{3+} + 3\text{H}_2\text{O} - 3\text{H}^+ = \text{Al}(\text{OH})_3$	-16.000 ⁱⁱ⁾
$\text{Al}^{3+} + 4\text{H}_2\text{O} - 4\text{H}^+ = \text{Al}(\text{OH})_4^-$	-23.000 ⁱⁱ⁾
$\text{Al}^{3+} + \text{F}^- = \text{AlF}^{2+}$	7.010 ⁱⁱ⁾
$\text{Al}^{3+} + 2\text{F}^- = \text{AlF}_2^+$	12.750 ⁱⁱ⁾
$\text{Al}^{3+} + 3\text{F}^- = \text{AlF}_3$	17.020 ⁱⁱ⁾
$\text{Al}^{3+} + 4\text{F}^- = \text{AlF}_4^-$	19.720 ⁱⁱ⁾
Silicon, master species = H_4SiO_4	
$\text{H}_4\text{SiO}_4 - 2\text{H}^+ = \text{H}_2\text{SiO}_4^{2-}$	-23.141 ⁱ⁾
$\text{H}_4\text{SiO}_4 - \text{H}^+ = \text{H}_3\text{SiO}_4^-$	-9.810 ⁱ⁾
$\text{H}_4\text{SiO}_4 + 4\text{H}^+ + 6\text{F}^- - 4\text{H}_2\text{O} = \text{SiF}_6^{2-}$	30.180 ⁱⁱ⁾
Chlorine, master species = Cl^-	
$\text{Cl}^- + \text{H}_2\text{O} - 2\text{H}^+ - 2\text{e}^- = \text{ClO}^-$	-57.935 ⁱ⁾
$\text{Cl}^- + 2\text{H}_2\text{O} - 4\text{H}^+ - 4\text{e}^- = \text{ClO}_2^-$	-107.877 ⁱ⁾
$\text{Cl}^- + 3\text{H}_2\text{O} - 6\text{H}^+ - 6\text{e}^- = \text{ClO}_3^-$	-146.242 ⁱ⁾
$\text{Cl}^- + 4\text{H}_2\text{O} - 8\text{H}^+ - 8\text{e}^- = \text{ClO}_4^-$	-187.791 ⁱ⁾
$\text{Cl}^- + \text{H}_2\text{O} - \text{H}^+ - 2\text{e}^- = \text{ClOH}$	-50.515 ⁱ⁾
$\text{Cl}^- + 2\text{H}_2\text{O} - 3\text{H}^+ - 4\text{e}^- = \text{ClHO}_2$	-105.916 ⁱ⁾
Fluorine, master species = F^-	
$\text{F}^- + \text{H}^+ = \text{HF}$	3.180 ⁱ⁾
$2\text{F}^- + \text{H}^+ = \text{HF}_2^-$	3.620 ⁱ⁾
Potassium, master species = K^+	
Sodium, master species = Na^+	

i) Silva, R. J., Bidoglio, G., Rand, M. H., Robouch, P. B., Wanner, H. and Puigdomenech, I. (1995). Chemical Thermodynamics of Americium, OECD/NEA, Elsevier.

ii) PHREEQE original database Parkhurst, D.L., Thorstensen, D.C. and Plummer, L.H. (1980); PHREEQE -A Computer Program for Geochemical Calculations, U.S.Geological Survey, Water-Resources Investigations 80-96.

国際単位系（SI）

表 1. SI 基本単位

基本量	SI 基本単位	
	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質량	モル	mol
光度	カンデラ	cd

表 2. 基本単位を用いて表されるSI組立単位の例

組立量	SI 基本単位	
	名称	記号
面積	平方メートル	m ²
体積	立法メートル	m ³
速度	メートル毎秒	m/s
加速度	メートル毎秒毎秒	m/s ²
波数	毎メートル	m ⁻¹
密度, 質量密度	キログラム毎立方メートル	kg/m ³
面積密度	キログラム毎平方メートル	kg/m ²
比体積	立方メートル毎キログラム	m ³ /kg
電流密度	アンペア毎平方メートル	A/m ²
磁界の強さ	アンペア毎メートル	A/m
量濃度 ^(a) , 濃度	モル毎立方メートル	mol/m ³
質量濃度	キログラム毎立法メートル	kg/m ³
輝度	カンデラ毎平方メートル	cd/m ²
屈折率 ^(b)	(数字の) 1	1
比透磁率 ^(b)	(数字の) 1	1

(a) 量濃度 (amount concentration) は臨床化学の分野では物質濃度 (substance concentration) ともよばれる。
(b) これらは無次元量あるいは次元 1 をもつ量であるが、そのことを表す単位記号である数字の 1 は通常は表記しない。

表 3. 固有の名称と記号で表されるSI組立単位

組立量	SI 組立単位			
	名称	記号	他のSI単位による表し方	SI基本単位による表し方
平面角	ラジアン ^(b)	rad	1 ^(b)	m/m
立体角	ステラジアン ^(b)	sr ^(c)	1 ^(b)	m ² /m ²
周波数	ヘルツ ^(d)	Hz		s ⁻¹
力	ニュートン	N		m kg s ⁻²
圧力, 応力	パスカル	Pa	N/m ²	m ⁻¹ kg s ⁻²
エネルギー, 仕事, 熱量	ジュール	J	N m	m ² kg s ⁻²
仕事率, 工率, 放射束	ワット	W	J/s	m ² kg s ⁻³
電荷, 電気量	クーロン	C		s A
電位差 (電圧), 起電力	ボルト	V	W/A	m ² kg s ⁻³ A ⁻¹
静電容量	ファラド	F	C/V	m ⁻² kg ⁻¹ s ⁴ A ²
電気抵抗	オーム	Ω	V/A	m ² kg s ⁻³ A ⁻²
コンダクタンス	ジーメンズ	S	A/V	m ⁻² kg ⁻¹ s ³ A ²
磁束	ウェーバ	Wb	Vs	m ² kg s ⁻² A ⁻¹
磁束密度	テスラ	T	Wb/m ²	kg s ⁻² A ⁻¹
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A	m ² kg s ⁻² A ⁻²
セルシウス度 ^(e)	セルシウス度 ^(e)	°C		K
光束度	ルーメン	lm	cd sr ^(c)	cd
照射度	ルクス	lx	lm/m ²	m ⁻² cd
放射性核種の放射能 ^(f)	ベクレル ^(d)	Bq		s ⁻¹
吸収線量, 比エネルギー分与, カーマ	グレイ	Gy	J/kg	m ² s ⁻²
線量当量, 周辺線量当量, 方向性線量当量, 個人線量当量	シーベルト ^(g)	Sv	J/kg	m ² s ⁻²
酸素活性化	カタール	kat		s ⁻¹ mol

(a) SI接頭語は固有の名称と記号を持つ組立単位と組み合わせても使用できる。しかし接頭語を付した単位はもはやコヒーレントではない。
(b) ラジアンとステラジアンは数字の 1 に対する単位の特別な名称で、量についての情報をつたえるために使われる。実際には、使用する時には記号rad及びsrが用いられるが、習慣として組立単位としての記号である数字の 1 は明示されない。
(c) 測光学ではステラジアンという名称と記号srを単位の表し方の中に、そのまま維持している。
(d) ヘルツは周期現象についてののみ、ベクレルは放射性核種の統計的過程についてののみ使用される。
(e) セルシウス度はケルビンの特別な名称で、セルシウス温度を表すために使用される。セルシウス度とケルビンの単位の大きさは同一である。したがって、温度差や温度間隔を表す数値はどちらの単位で表しても同じである。
(f) 放射性核種の放射能 (activity referred to a radionuclide) は、しばしば誤った用語で"radioactivity"と記される。
(g) 単位シーベルト (PV.2002,20,705) についてはCIPM勧告2 (CI-2002) を参照。

表 4. 単位の中に固有の名称と記号を含むSI組立単位の例

組立量	SI 組立単位		
	名称	記号	SI 基本単位による表し方
粘着力のモーメント	パスカル秒	Pa s	m ⁻¹ kg s ⁻¹
表面張力	ニュートンメートル	N m	m ² kg s ⁻²
角速度	ニュートン毎メートル	N/m	kg s ⁻²
角加速度	ラジアン毎秒	rad/s	m m ⁻¹ s ⁻¹ =s ⁻¹
熱流密度, 放射照度	ラジアン毎秒毎秒	rad/s ²	m m ⁻¹ s ⁻² =s ⁻²
熱容量, エントロピー	ワット毎平方メートル	W/m ²	kg s ⁻³
比熱容量, 比エントロピー	ジュール毎ケルビン	J/K	m ² kg s ⁻² K ⁻¹
比エネルギー	ジュール毎キログラム毎ケルビン	J/(kg K)	m ² s ⁻² K ⁻¹
熱伝導率	ジュール毎キログラム	J/kg	m ² s ⁻²
体積エネルギー	ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m K)	m kg s ⁻³ K ⁻¹
電界の強さ	ジュール毎立方メートル	J/m ³	m ⁻¹ kg s ⁻²
電荷密度	ジュール毎平方メートル	V/m	m kg s ⁻³ A ⁻¹
表面電荷	クーロン毎立方メートル	C/m ³	m ⁻³ s A
電束密度, 電気変位	クーロン毎平方メートル	C/m ²	m ⁻² s A
誘電率	クーロン毎平方メートル	C/m ²	m ⁻² s A
透磁率	ファラド毎メートル	F/m	m ⁻³ kg ⁻¹ s ⁴ A ²
モルエネルギー	ヘンリー毎メートル	H/m	m kg s ⁻² A ⁻²
モルエントロピー, モル熱容量	ジュール毎モル	J/mol	m ² kg s ⁻² mol ⁻¹
照射線量 (X線及びγ線)	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol K)	m ² kg s ⁻² K ⁻¹ mol ⁻¹
吸収線量率	クーロン毎キログラム	C/kg	kg ⁻¹ s A
放射線強度	グレイ毎秒	Gy/s	m ² s ⁻³
放射輝度	ワット毎ステラジアン	W/sr	m ⁴ m ⁻² kg s ⁻³ =m ² kg s ⁻³
酵素活性濃度	ワット毎平方メートル毎ステラジアン	W/(m ² sr)	m ² m ⁻² kg s ⁻³ =kg s ⁻³
	カタール毎立方メートル	kat/m ³	m ⁻³ s ⁻¹ mol

表 5. SI 接頭語

乗数	接頭語	記号	乗数	接頭語	記号
10 ²⁴	ヨ	Y	10 ⁻¹	デ	d
10 ²¹	ゼ	Z	10 ⁻²	セ	c
10 ¹⁸	エ	E	10 ⁻³	ミ	m
10 ¹⁵	ペ	P	10 ⁻⁶	マイ	μ
10 ¹²	テ	T	10 ⁻⁹	ナ	n
10 ⁹	ギ	G	10 ⁻¹²	ピ	p
10 ⁶	メ	M	10 ⁻¹⁵	フェ	f
10 ³	キ	k	10 ⁻¹⁸	ア	a
10 ²	ヘ	h	10 ⁻²¹	ゼ	z
10 ¹	デ	da	10 ⁻²⁴	ヨ	y

表 6. SIに属さないが、SIと併用される単位

名称	記号	SI 単位による値
分	min	1 min=60s
時	h	1h =60 min=3600 s
日	d	1 d=24 h=86 400 s
度	°	1°=(π/180) rad
分	′	1′=(1/60)°=(π/10800) rad
秒	″	1″=(1/60)′=(π/648000) rad
ヘクタール	ha	1ha=1hm ² =10 ⁴ m ²
リットル	L, l	1L=1l=1dm ³ =10 ³ cm ³ =10 ⁻³ m ³
トン	t	1t=10 ³ kg

表 7. SIに属さないが、SIと併用される単位で、SI単位で表される数値が実験的に得られるもの

名称	記号	SI 単位で表される数値
電子ボルト	eV	1eV=1.602 176 53(14)×10 ⁻¹⁹ J
ダルトン	Da	1Da=1.660 538 86(28)×10 ⁻²⁷ kg
統一原子質量単位	u	1u=1 Da
天文単位	ua	1ua=1.495 978 706 91(6)×10 ¹¹ m

表 8. SIに属さないが、SIと併用されるその他の単位

名称	記号	SI 単位で表される数値
バール	bar	1 bar=0.1MPa=100kPa=10 ⁵ Pa
水銀柱ミリメートル	mmHg	1mmHg=133.322Pa
オングストローム	Å	1 Å=0.1nm=100pm=10 ⁻¹⁰ m
海里	M	1 M=1852m
バイン	b	1 b=100fm ² =(10 ⁻¹² cm)2=10 ⁻²⁸ m ²
ノット	kn	1 kn=(1852/3600)m/s
ネーパ	Np	SI単位との数値的な関係は、 対数量の定義に依存。
ベレル	B	
デジベール	dB	

表 9. 固有の名称をもつCGS組立単位

名称	記号	SI 単位で表される数値
エル	erg	1 erg=10 ⁻⁷ J
ダイン	dyn	1 dyn=10 ⁻⁵ N
ポアズ	P	1 P=1 dyn s cm ⁻² =0.1Pa s
ストークス	St	1 St=1cm ² s ⁻¹ =10 ⁻⁴ m ² s ⁻¹
スチルブ	sb	1 sb=1cd cm ⁻² =10 ⁴ cd m ⁻²
フオット	ph	1 ph=1cd sr cm ⁻² 10 ⁴ lx
ガリ	Gal	1 Gal=1cm s ⁻² =10 ⁻² ms ⁻²
マクスウェル	Mx	1 Mx=1 G cm ² =10 ⁻⁸ Wb
ガウス	G	1 G=1Mx cm ⁻² =10 ⁻⁴ T
エルステッド ^(c)	Oe	1 Oe ≡ (10 ³ /4π) A m ⁻¹

(c) 3 元系のCGS単位系とSIでは直接比較できないため、等号「 ≡ 」は対応関係を示すものである。

表10. SIに属さないその他の単位の例

名称	記号	SI 単位で表される数値
キュリー	Ci	1 Ci=3.7×10 ¹⁰ Bq
レントゲン	R	1 R = 2.58×10 ⁻⁴ C/kg
ラド	rad	1 rad=1cGy=10 ⁻² Gy
レム	rem	1 rem=1 cSv=10 ⁻² Sv
ガンマ	γ	1 γ=1 nT=10 ⁻⁹ T
フェルミ	f	1フェルミ=1 fm=10 ⁻¹⁵ m
メートル系カラット		1メートル系カラット = 200 mg = 2×10 ⁻⁴ kg
トル	Torr	1 Torr = (101 325/760) Pa
標準大気圧	atm	1 atm = 101 325 Pa
カロリ	cal	1cal=4.1858J (「15°C」カロリー) , 4.1868J (「IT」カロリー) 4.184J (「熱化学」カロリー)
マイクロン	μ	1 μ =1μm=10 ⁻⁶ m

