

岩石中の有効拡散空隙に関する研究

1986年3月

東京大学工学部原子力工学科
原子力化学工学研究室

複製又はこの資料の入手については、下記にお問い合わせ下さい。

〒107 東京都港区赤坂1-9-13

動力炉・核燃料開発事業団
技術協力部 技術管理室

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to: Technical Evaluation and Patent Office, Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation 9-13, 1-chome, Akasaka, Minato-ku, Tokyo 107, Japan

動力炉・核燃料開発事業団 (Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation)

1986年 3月

岩石中の有効拡散空隙に関する研究*

鈴木 篤之**, 梅木 博之**, 榎田 洋一**, 岡本 毅**

要 旨

放射性廃棄物を花崗岩のような亀裂状媒体に地層処分する場合の安全評価は、従来、各種の移行を亀裂と岩体とに分けて取り扱い、岩体の部分では、核種が均一に拡散するとして解析が行われている。しかし昨年度の研究の一部として実施された、 C_s の花崗岩への吸着実験から、岩体中の拡散空隙が核種の移行に対して必ずしも均一に寄与していないという結果が得られた。本研究では、花崗岩中の拡散空隙の構造を調べるため、非吸着性核種としてトリチウム、ヨウ素を用いて拡散実験を行った。さらに花崗岩を電解質溶液で飽和させ、その抵抗を測定することにより空隙の構造を調べる実験を併せて行った。

花崗岩は直径20mmの円盤で、厚さ0.7 mmから7 mmまで変化させそれぞれの厚さに対して、室温で拡散実験と抵抗測定を行った。その結果、得られた実効拡散係数は、花崗岩の厚さが厚くなるに従い $\sim 10^{-11}$ m²/s から $\sim 10^{-12}$ m²/s に減少することが確かめられた。また、抵抗測定より得られたフォーメーション・ファクターの値も同様に $\sim 10^{-2}$ から $\sim 10^{-3}$ に減少した。

* 本報告書は、東京大学が動力炉、核燃料開発事業団の委託により実施した研究の成果である。

** 東京大学工学部原子力工学科

実験結果に基づき空隙の非均質性を考慮するため、空隙の平均長 ξ を仮定したモデルを実験結果に適用すると $\xi = 2.16 \times 10^{-3} \sim 8.90 \times 10^{-3}$ (m) が得られた。

次に従来の亀裂状媒体における核種移行モデルに空隙の非均質性を考慮し、均質モデルとの比較を行った。モデルに含まれるパラメタの中では、亀裂幅の影響が最も大きく、処分場から 100m離れた地点における亀裂内の核種相対濃度は、5000年後の時点で非均質モデルの方が均質モデルに比べて 400倍も大きくなるケースもある。これら解析結果から、安全評価上、非均質性を考慮することが重要であることが示された。

March 1986

A Basic Study on Nuclide Migration through Diffusion Pores
in Granite*

Atsuyuki SUZUKI**, Hiroyuki UMEKI**, Yoichi ENOKIDA** and
Tsuyoshi OKAMOTO**

SUMMARY

Two kinds of experiment were made in order to examine the structure of effective diffusion pores in granitic rock. Granite samples are sliced as thin as 0.7 to 7.0 mm and saturated with distilled water.

Firstly diffusion of non-sorbing ions such as H^3 and I^- were examined for all kinds of thickness of granite samples. A piece of granite was placed in the diffusion cell. The solution including non-sorbing ion was poured in one side of the cell and solution not including the ion was in the other side. The total amount of ion which has diffused through granite sample were measured at different time. From the results of measurement effective diffusion coefficient is calculated. The effective diffusion coefficient decreases from $10^{-11} m^2/sec$ to $10^{-12} m^2/sec$ with sample thickness.

Secondly electrical resistivity of granite samples saturated with NaCl solution was measured and then the formation factor was determined. The formation factor decreases from 10^{-2} to 10^{-3} with sample thickness, too.

* Work performed by the University of Tokyo under contract with Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation

** Department of Nuclear Engineering, The University of Tokyo

The model assuming that the diffusion pores decrease with the distance from the wall was proposed to explain these experimental results. And this heterogeneous model was applied for the nuclide migration model in fissured geological media. Numerical analysis shows that the normalized nuclide concentration in fissure at 100 m from the repository after 50,000 years calculated by heterogeneous model is 400 times larger than that calculated by homogeneous porous media model.

目 次

第1章	序 論	
1-1	目的	1
1-2	既往の研究	2
1-3	非均質性に関する研究	6
第2章	非吸着性核種を用いた拡散実験	
2-1	花崗岩試料の調整	8
2-2	トリチウムを用いた拡散実験	10
2-3	NaIを用いた拡散実験	26
第3章	抵抗測定による空隙構造の研究	
3-1	実験方法	37
3-2	実験結果	37
第4章	実験結果についての考察	
4-1	非均質モデルの導出	42
4-2	非均質モデルの実験結果への応用	43
4-3	非均質モデルにおける問題点	44

第5章 安全評価への適用

5-1	基礎方程式	49
5-2	無次元化	52
5-3	非均質モデルの偏微分方程式への適用	54
5-4	有限要素法による解法	55
5-5	解析方法	62
5-6	解析結果	63

第6章 結論 77

参考文献

第 1 章

序 論

1-1 目的

放射性廃棄物の処分が考えられている花崗岩のような亀裂状媒体における核種の移動現象は、

(1) 地下水の流れによる移動が支配的な領域……亀裂

(2) 拡散による移動が支配的な領域 ……岩体内の拡散空隙

という2つの領域に分けて考えられている。⁽¹⁾ 天然バリアに期待される核種の遅延効果は、特に(2)における核種の岩体への吸着作用に依存している。従って、岩体内における核種の移動経路となる拡散空隙について調べることは安全評価上重要である。

昨年度は、 C_s を用いた収着実験を行ない、平衡収着量の花崗岩試料厚さ依存性を調べることにより、拡散空隙が核種の移動に必ずしも均一に寄与していないという結果を得た。⁽²⁾ 本年度はさらに①非吸着性核種を用いた拡散実験②電解質溶液で飽和した花崗岩の比抵抗の測定を行ない、花崗岩中の有効拡散空隙について調べることを目的とする。

1-2 既往の研究

これまでの結晶性岩体中の空隙構造に関する実験的研究を分類すると下のよ
うな3種類に分けられる。

- (1) 拡散実験によるもの
- (2) 吸着実験 "
- (3) 抵抗測定 "

これらの実験的研究では岩体中の核種移動を拡散係数という概念で取り扱って
いる。本節では上の(1)~(3)のそれぞれについて既往の研究を紹介することにす
る。

1-2-1 拡散実験における空隙構造の研究

通常、拡散係数の測定においては次のような理論により実験値が解析される。

(3) (4) (5)

一次元の系におけるある点での濃度変化は次の Fick の第2法則により与え
られる。(ただし、崩壊、流れは考えない)

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D \cdot \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} \quad 1-(1)$$

ここにDは拡散係数であり、多孔質媒体中の空隙率 (porosity) , 空隙の屈
曲度 (tortuosity) , 及び吸着の効果を考慮に入れると次のように表わされる。

$$D = \frac{D_e}{\alpha} = \frac{D_p \cdot \epsilon_p}{\epsilon_p + K_d \cdot \rho} \quad 1-(2)$$

ここに D_p : 空隙中の拡散係数

ϵ_p : 空隙率

K d : 吸着係数

ρ : 密度

D e : 有効拡散係数 = D p · ϵ p

上の1-(1)を多孔質平板において次のような初期・境界条件のもとで解く。

初期条件: C (0, x) = 0 (0 ≤ x ≤ l)

境界条件: C (t, 0) = C o

C (t, l) = C z

すると解は次のように求まる。

$$\frac{C(x, t)}{C_1} = 1 - \frac{x}{l} - \frac{2}{\pi} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n} \sin \frac{n \pi x}{l} \exp \left(- \frac{De \cdot n^2 \cdot \pi^2 \cdot t}{l^2 \cdot \alpha} \right) \quad 1-(3)$$

ここで $x = l$ における拡散フラックス N は Fick の第1 法則により次のようになる。

$$N = -D e \left. \frac{\partial c}{\partial x} \right|_{x=l} \quad 1-(4)$$

そこで1-(4)を t に関して積分することにより、平板を通しての全移動量 Q は次のように求まる。

$$\frac{Q}{l \cdot C_1} = \frac{De \cdot t}{l^2} - \frac{\alpha}{6} - \frac{2 \alpha}{\pi} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(-1)^n}{n^2} \exp \left(- \frac{De \cdot n^2 \cdot \pi^2 \cdot t}{l^2 \cdot \alpha} \right) \quad 1-(5)$$

この1-(5)において $t \rightarrow \infty$ とすることにより次式を得る。

$$Q = \frac{C_1 \cdot De}{l} \cdot t - \frac{C_1 \cdot l \cdot \alpha}{6} \quad 1-(6)$$

すなわち、ある程度の時間がたつと、直線的に移動量が増加するようになる。

この関係から、岩石中の実効拡散係数： D_e を求めることができる。

次に⁽³⁾ ⁽⁴⁾ 拡散実験において用いられているいくつかの定義について説明する。

①フォーメーション ファクター： F

実効拡散係数と水中の拡散係数： D_v の間には次のような関係が導かれている。

$$D_e = \frac{\varepsilon_p \cdot \delta_D}{\tau^2} \cdot D_v \equiv F \cdot D_v \quad 1-(7)$$

ε_p ：空隙率

δ_D ：constrictivity

τ ：空隙の屈曲率

F の値は岩体中の空隙構造を表す上で重要なものである。

② A'/l' - 比

岩石薄片の両側で濃度差 ΔC の2つの溶液が接しており、岩石内の濃度分布がすでに定常状態に到達している場合を考える。

このとき、初期濃度差 ΔC_0 と、時間 t での濃度差 ΔC_f との間には次のような式が成り立つ。

$$\frac{A'}{l'} = \frac{l_n \Delta C_0 / \Delta C_f}{2 \cdot D \cdot t} \cdot V \quad 1-(8)$$

ここに A' ：実効断面積

l' ：空隙の実効長

V ：岩石の両側にある溶液それぞれの体積

この A'/l' の値は、フォーメーションファクター： F に相当する。

実際に非吸着性核種を用いたフィールドテストも行われている。⁽⁶⁾

1-2-2 吸着実験による空隙構造の研究

吸着実験から拡散係数を計算した例⁽⁷⁾では、岩石中での吸着を考慮し、次のような一次元拡散方程式を用いている。

$$\varepsilon_P \cdot \frac{\partial C_P}{\partial t} + \rho_s \frac{\partial q}{\partial t} = D_P \cdot \varepsilon_P \cdot \frac{\partial^2 C_P}{\partial x^2} \quad 1-(9)$$

吸着実験の(表面積A, 厚さ2ℓの薄片をn枚用いた場合)の物質収支より

$$V \cdot \frac{\partial C}{\partial t} = -n \cdot A \cdot D_P \cdot \varepsilon_P \cdot \frac{\partial C_P}{\partial x} \quad x = \pm \ell$$

ここに C_ρ : 液相中の核種濃度

q : 固相中の "

C : 溶液全体の濃度

V : 溶液の体積

$$\left. \begin{aligned} C_P(x, 0) &= q(x, 0) = 0 \\ C(0) &= C_0 \\ C_P(\pm \ell, t) &= C \\ \frac{\partial C_P}{\partial x}(0, t) &= \frac{\partial q}{\partial x}(0, t) = 0 \end{aligned} \right\} 1-(10)$$

このとき、微視的な化学的平衡があらわれる点で成り立つとしており、C_ρとqの間には次の Freundlich 型の吸着平衡を仮定している。

$$q = K f \cdot C_P^\beta \quad 1-11$$

この1-11式を1-9式に代入すれば1-9は C_P について解くことができ実験によって C_P の時間変化を調べ、これを1-9をといた式でフィッティングしてやれば $D_P \cdot \varepsilon_P$ を求めることができる。また岩石中の核種濃度を直接測定し、 D_e を求めている例もある。⁽⁸⁾

1-2-3 抵抗測定による空隙構造の研究

拡散実験、吸着実験により実効拡散係数を求める方法は非常に時間のかかるものである。従って実験時間を短縮するという意味で抵抗を測定する方法も用いられている。^{(9) (10) (11) (12) (13) (14)}

いま、電解質溶液で飽和された岩石の比抵抗 R_s ($\Omega \cdot m$) と、その電解質の

比抵抗 R_o ($\Omega \cdot m$) の間には次のような関係があることが導かれている。⁽⁹⁾

$$F = \frac{D_P \cdot \varepsilon_P}{D_V} = \frac{\varepsilon_P \cdot \delta_D}{\tau^2} = \frac{R_o}{R_s} \quad 1-12$$

従ってこの式を用いれば抵抗測定によっても、岩石の空隙の様子を知ることができる。(Fは1-2-1において述べたフォーメーションファクターと同じものである。)

1-3 岩体の非均質性に関する研究

1-2において述べたように、岩体中の空隙に関する研究はこれまでに多くのものが行われている。そして、それらの多くは岩体が均質であることを前提と

したものである。しかし中には岩体が必ずしも均質媒体ではないと考えられるような研究結果を報告しているものもある。本節においてはそのような既往の研究について述べておくことにする。

K. Skagius 等⁽³⁾ は 1-2-3 に述べたような抵抗測定により、花崗岩等の岩石の空隙構造について研究している。その結果彼らは、岩石のフォーメーションファクター：F が、岩石の厚さが厚い場合 ($l = 30-100$ mm) にくらべ、薄い場合 ($l = 10$ mm) の方が大きいと報告している。この結果についての彼らの考察は以下のようなものである。

1) 薄いサンプルには、厚いサンプルにくらべ貫通している空隙 (pore) が多く存在している。

2) 抵抗測定の際にサンプルの外面に沿って、何らかの電気伝導が生じた。フォーメーションファクターが厚さとともに小さくなったことの原因が 1) ならば、このことから、岩体が必ずしも均質とはいえないということが出来る。昨年度の研究では Cs の吸着実験を花崗岩サンプルの厚みを変えることにより行った。

その結果、単位質量当たりの Cs 平衡吸着量は、厚みの増加とともに減少した。これは、花崗岩サンプル中の空隙が均一に Cs の吸着に寄与していないことを示すものである。

この実験からも、花崗岩のような結晶性岩体が、常に均質であるということは難しい。

第 2 章

非吸着性核種を
用いた拡散実験

2-1 花崗岩試料の調整

拡散実験を行う前に Fig. 2-1-(1)に示す装置により花崗岩試料を水で飽和した。(3) (1) 手順は、

- ① 真空容器中に花崗岩薄片を入れ、真空ポンプにより $\sim 15\text{mmHg}$ 程度まで圧力を下げる。容器を 75°C に加熱し、2日間放置する。
- ② 真空ポンプを止め、給水器のバルブを開いて、真空容器内に脱イオン水を導く。
- ③ バルブを閉じて真空容器を密封し、窒素ガスを充填する。圧力は30気圧とし、室温で1日保持した後、サンプルを取り出す。

である。この手順に従って脱イオン水で飽和したサンプルを拡散実験に用いた。また、抵抗測定では、同じ手順により②の脱イオン水の代わりに NaCl 溶液を用いた。

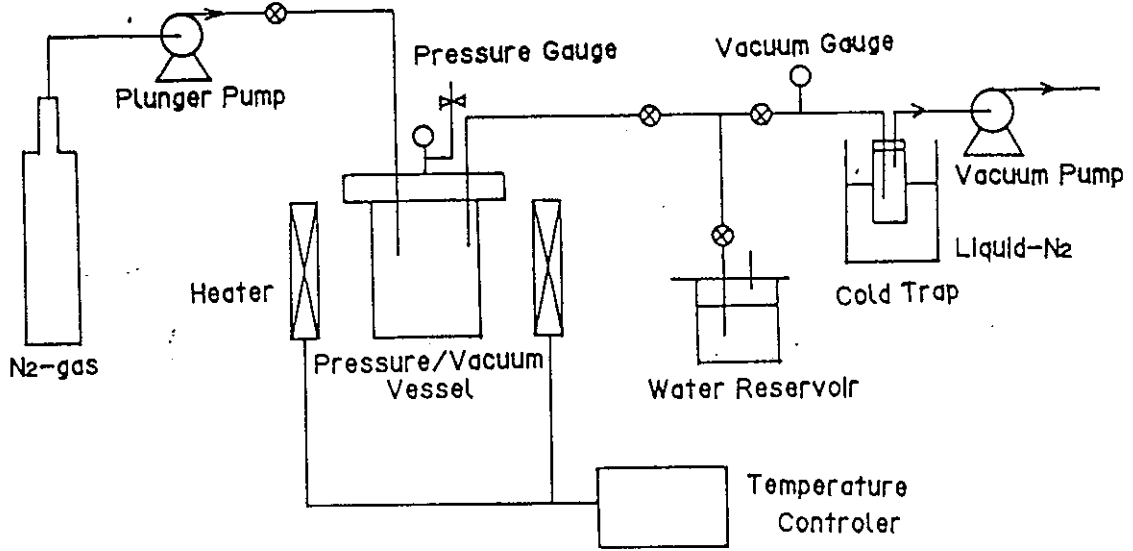


Fig.2-1-(1) Apparatus for water saturation

2-2 トリチウムを用いた拡散実験

2-2-1 実験方法

Fig. 2-1-(1)に示すような拡散セル⁽¹⁵⁾⁽³⁾を用いた花崗岩サンプルを通してのトリチウムの移動量を液体シンチレーションカウンターを用い測定した。花崗岩サンプルは茂城県稲田産のもので、直径~20mmの円板に加工してある。またサンプルの厚みは0.7~7.0 mmであり、これらを用いて移動量の厚み依存性を調べた。(各サンプルの厚さをTable 2-2-(1)~(2)に示す。)

拡散セルの高濃度側には3.5~5.0 [$\mu\text{Ci}/\text{ml}$] のトリチウム水を用い、体積は高、低それぞれの濃度側でともに40mlとした。サンプリングの際にはマイクロ(マクロ)ピペットを用いて0.1 mlあるいは0.5 ml ずつ、両側で液位差ができないように注意しながら行った。

またセルへの岩石の固定は、シリコンOーリング及びエポキシ樹脂を用いた。またエポキシ樹脂を通してのもれがないことは予備実験により確かめてある。実験は室温で200~400 時間行った。

また拡散セルにはガラス製のものとアクリル製ものを考えたが、アクリル製セルを用いた場合には容器表面への付着、容器壁へのトリチウムの浸入が懸念されるので、この2種類の容器についての比較を1.2 mm厚のサンプルについて行うことにした。

実験は2-1の手順により、空隙をイオン交換水で飽和させたサンプルと、そのような処理をしていないサンプルの2種類について行い、その違いを見ることにした。

2-2-2 実験結果

低濃度側のHTO濃度の時間変化をFig. 2-2-(2)~Fig. 2-2-(9)にまとめてある。ある程度の時間が経過すると、HTOの総移動量は直線的に増加することがわかる。

ここで、核種の移動量については近似的に次式が成り立つ。

$$\frac{\partial q}{\partial t} = D_e \cdot A \cdot (C_1 - C_2) / \ell \quad 2-2-(1)$$

ここに q : 総移動量 (μCi)

D_e : 実効拡散係数 (m^2/s)

ℓ : サンプルの厚さ (m)

A : サンプル断面積 (m^2)

C_1, C_2 : 高, 低濃度側濃度 ($\mu\text{Ci}/\text{m}^3$)

$C_1 \gg C_2$

この2-2-(1)を用いて計算した D_e の値をTable 2-2-(3), 2-2-(4)にプロットしたのがFig. 2-2-(10)である。

これをみると厚さ ℓ の全測定範囲にわたって D_e が減少する傾向があることがわかる。

次にイオン交換水で飽和させたサンプルと、そうでないサンプルを比較してみる。Table 2-2-(3), 2-2-(4)で*印をつけたものが、飽和サンプルであるが、他のサンプルの D_e の値とのちがいは認められない。

またT-1.2-(7), (8), (9)はガラス製容器を用いたものであるが、アクリル製容器を用いたT-1.2-(1), (2), (3), (4), (5)とくらべても顕著なちがいは認められない。

Table 2-2-(1) Sample Specification

Sample Number	Thickness [mm]
T - 0.7 - (1)	0.78
*T - 0.7 - (2)	0.78
T - 1.2 - (1)	1.21
*T - 1.2 - (2)	1.18
*T - 1.2 - (3)	1.17
T - 1.2 - (4)	1.19
T - 1.2 - (5)	1.20
*T - 1.2 - (6)	1.20
T - 1.2 - (7)	1.20
T - 1.2 - (8)	1.22
T - 1.2 - (9)	1.19
T - 1.7 - (1)	1.68
*T - 1.7 - (2)	1.70

Table 2-2-(2) Sample Specification

Sample Number	Thickness [mm]
* T - 2.2 - (1)	2.27
T - 2.2 - (2)	2.27
* T - 3.2 - (1)	3.22
T - 3.2 - (2)	3.22
T - 5.0 - (1)	4.98
* T - 5.0 - (2)	4.98
T - 5.0 - (3)	4.98
T - 7.0 - (1)	7.00
* T - 7.0 - (2)	6.99
T - 7.0 - (3)	7.00

Table 2 - 2 - (3)
Effective Diffusivity of HTO

Sample Number	De [m ² /s]
T - 0.7 - (1)	3.30E-12
T - 0.7 - (2)	1.82E-12
T - 1.2 - (1)	6.21E-12
T - 1.2 - (2)	1.62E-12
T - 1.2 - (3)	2.42E-12
T - 1.2 - (4)	1.37E-12
T - 1.2 - (5)	1.13E-12
T - 1.2 - (6)	1.61E-12
T - 1.2 - (7)	1.94E-12
T - 1.2 - (8)	2.32E-12
T - 1.2 - (9)	1.14E-12
T - 1.7 - (1)	2.51E-12
T - 1.7 - (2)	2.01E-12

Table 2 - 2 - (4)

Effective diffusivity of HTO

Sample Number	D _e [m ² /s]
*T - 2.2 - (1)	5.43 _E -12
T - 2.2 - (2)	1.37 _E -12
*T - 3.2 - (1)	4.57 _E -13
T - 3.2 - (2)	2.06 _E -12
T - 5.0 - (1)	4.88 _E -13
*T - 5.0 - (2)	4.53 _E -13
T - 5.0 - (3)	1.62 _E -12
T - 7.0 - (1)	7.15 _E -13
*T - 7.0 - (2)	1.22 _E -12
T - 7.0 - (3)	6.60 _E -13

NOTE

*印はイオン交換水飽和サンプル

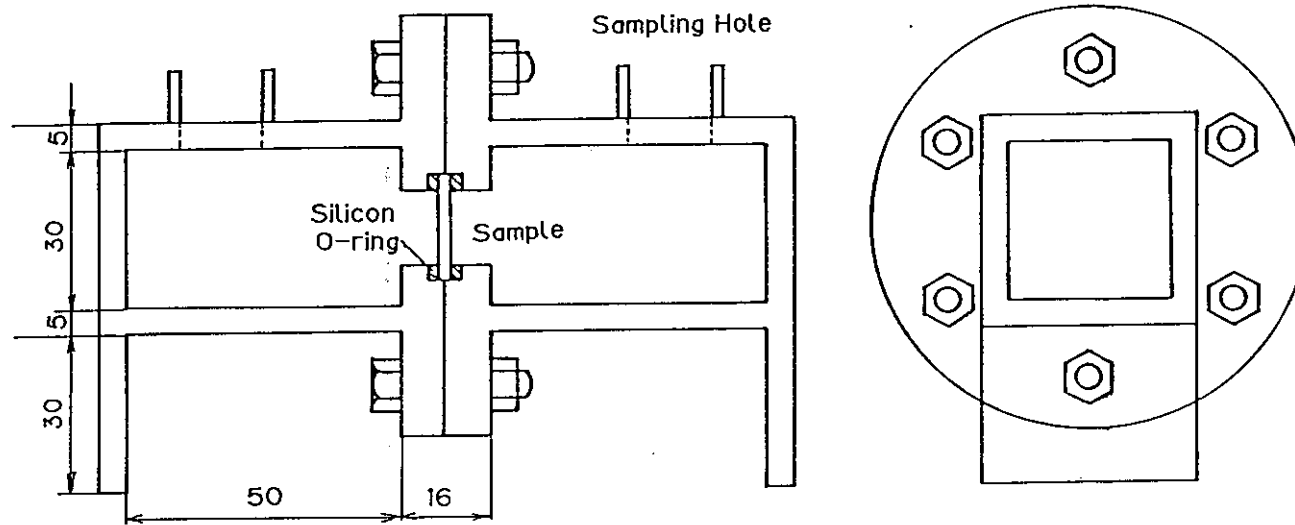


Fig.2-2-(1) Diffusion Cell

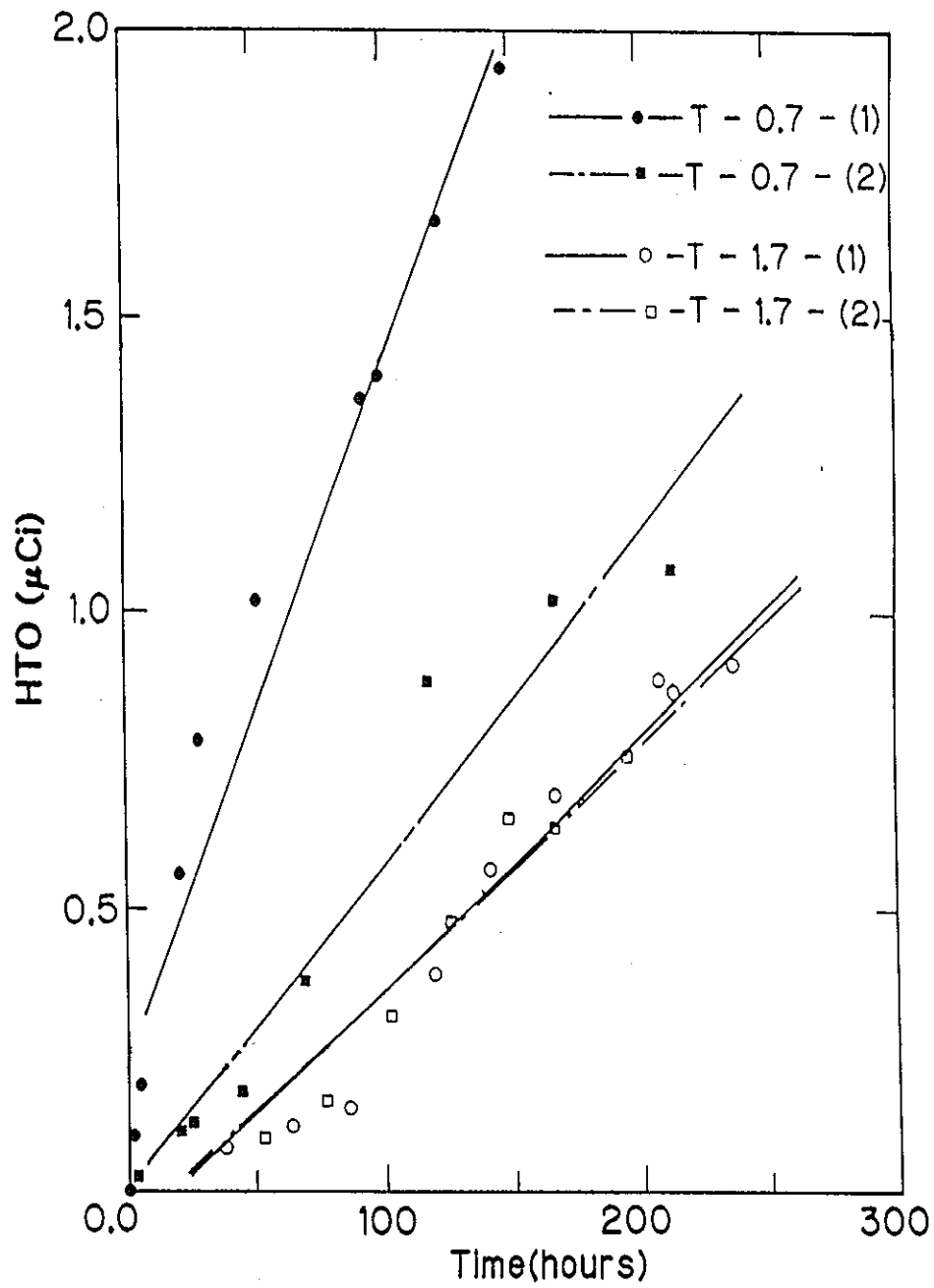


Fig.2-2-(2) Diffusion of HTO through granite samples

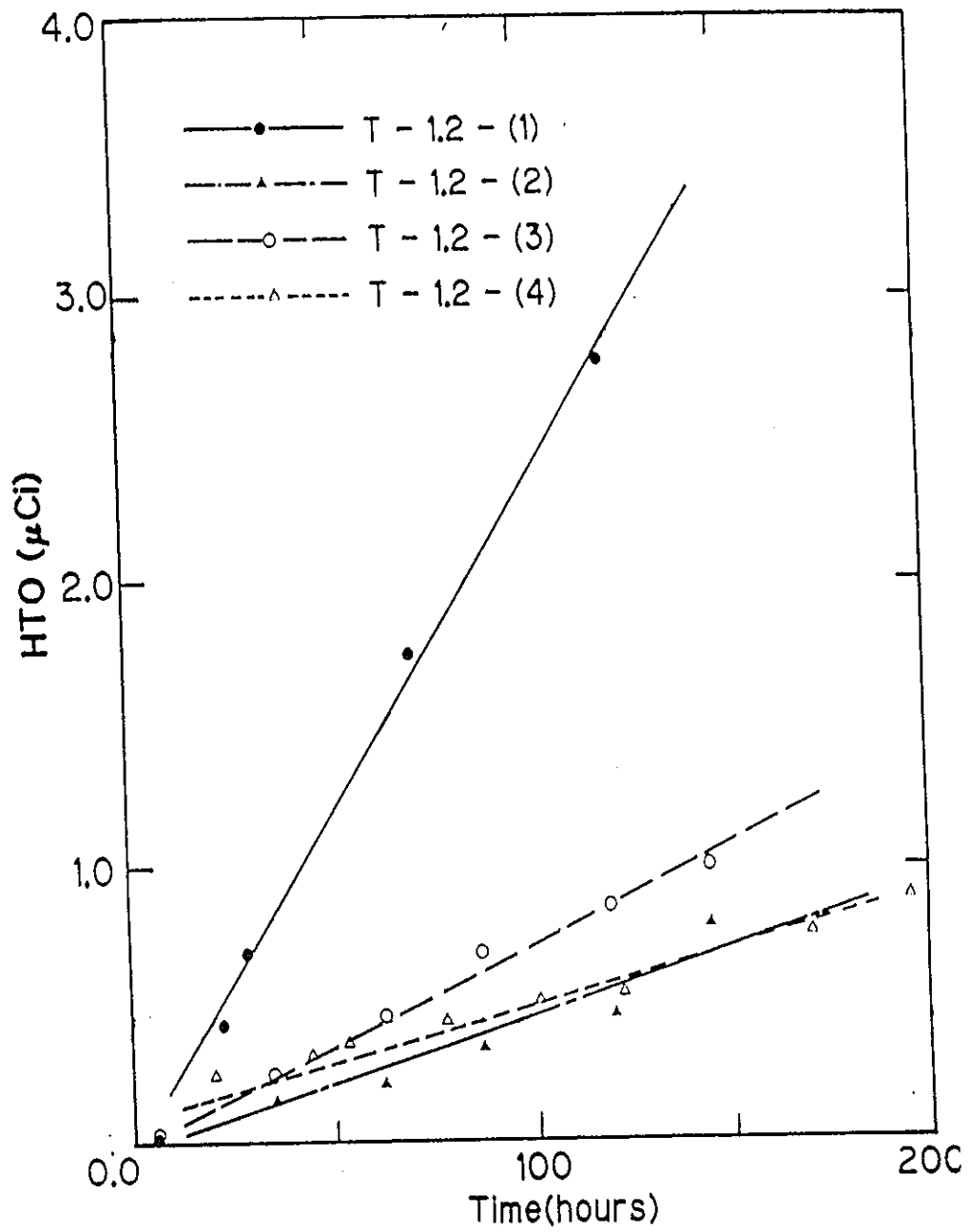


Fig.2-2-(3) Diffusion of HTO through granite samples

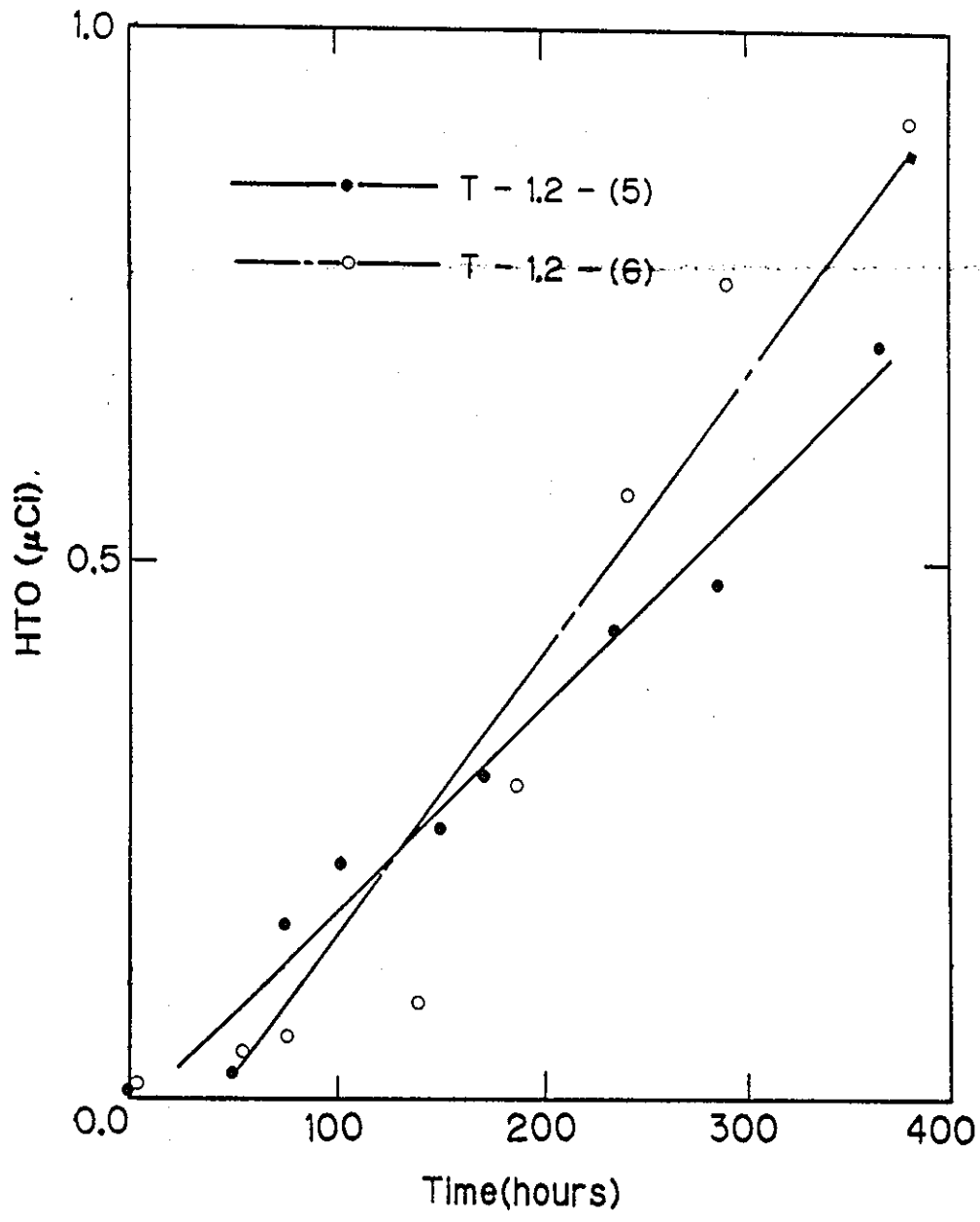


Fig.2-2-(4) Diffusion of HTO through granite samples

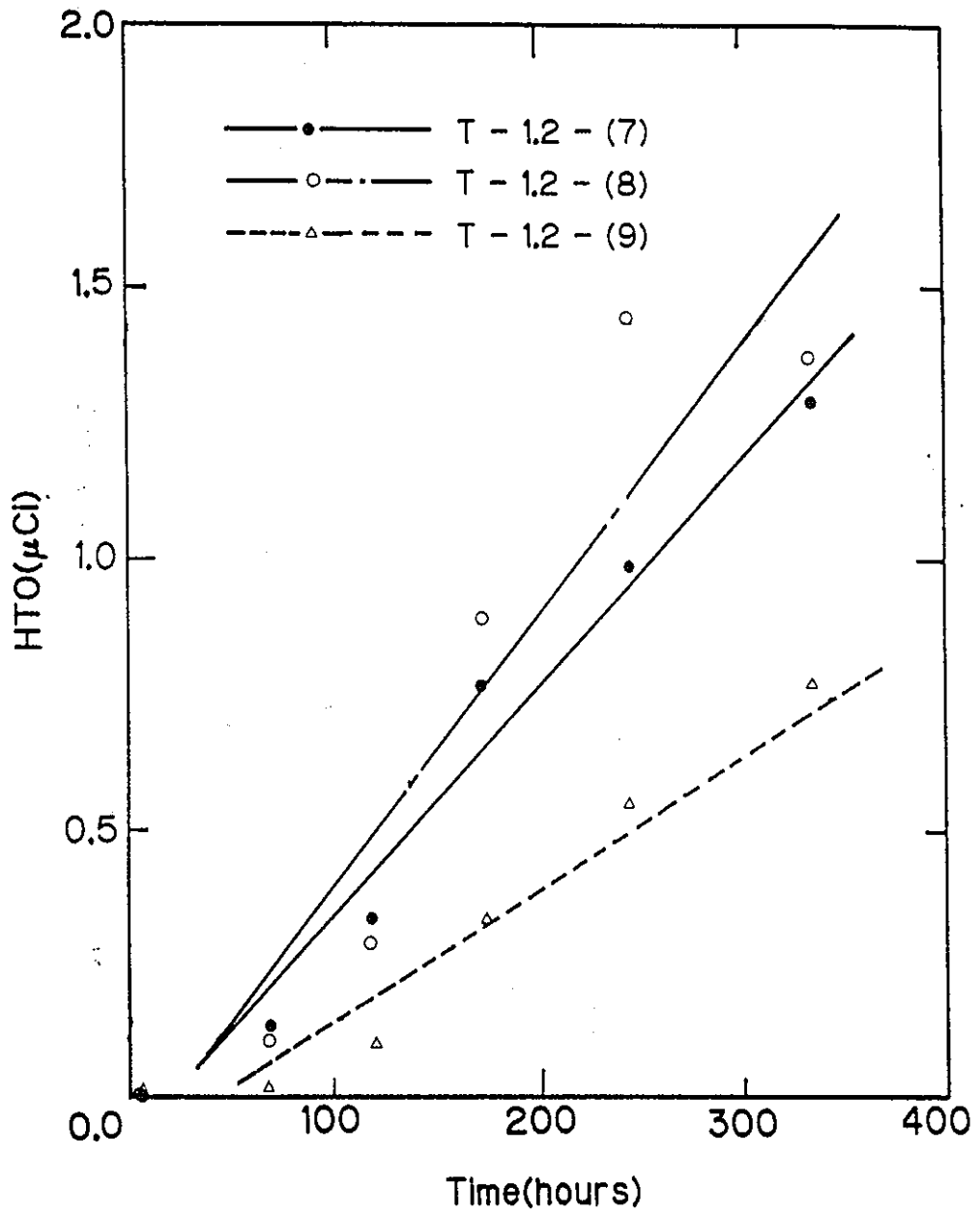


Fig.2-2-(5) Diffusion of HTO through granite samples

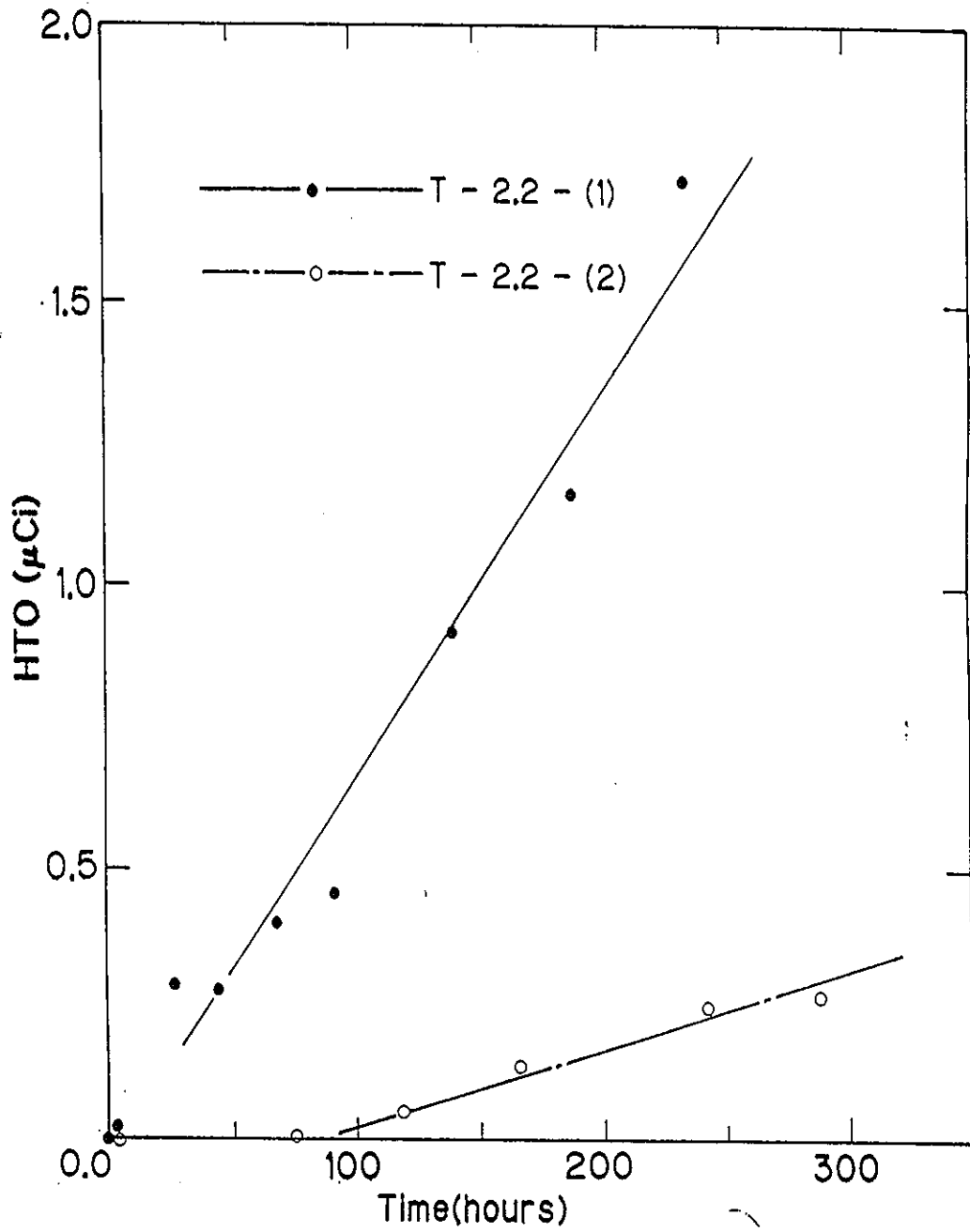


Fig.2-2-(6) Diffusion of HTO
through granite samples

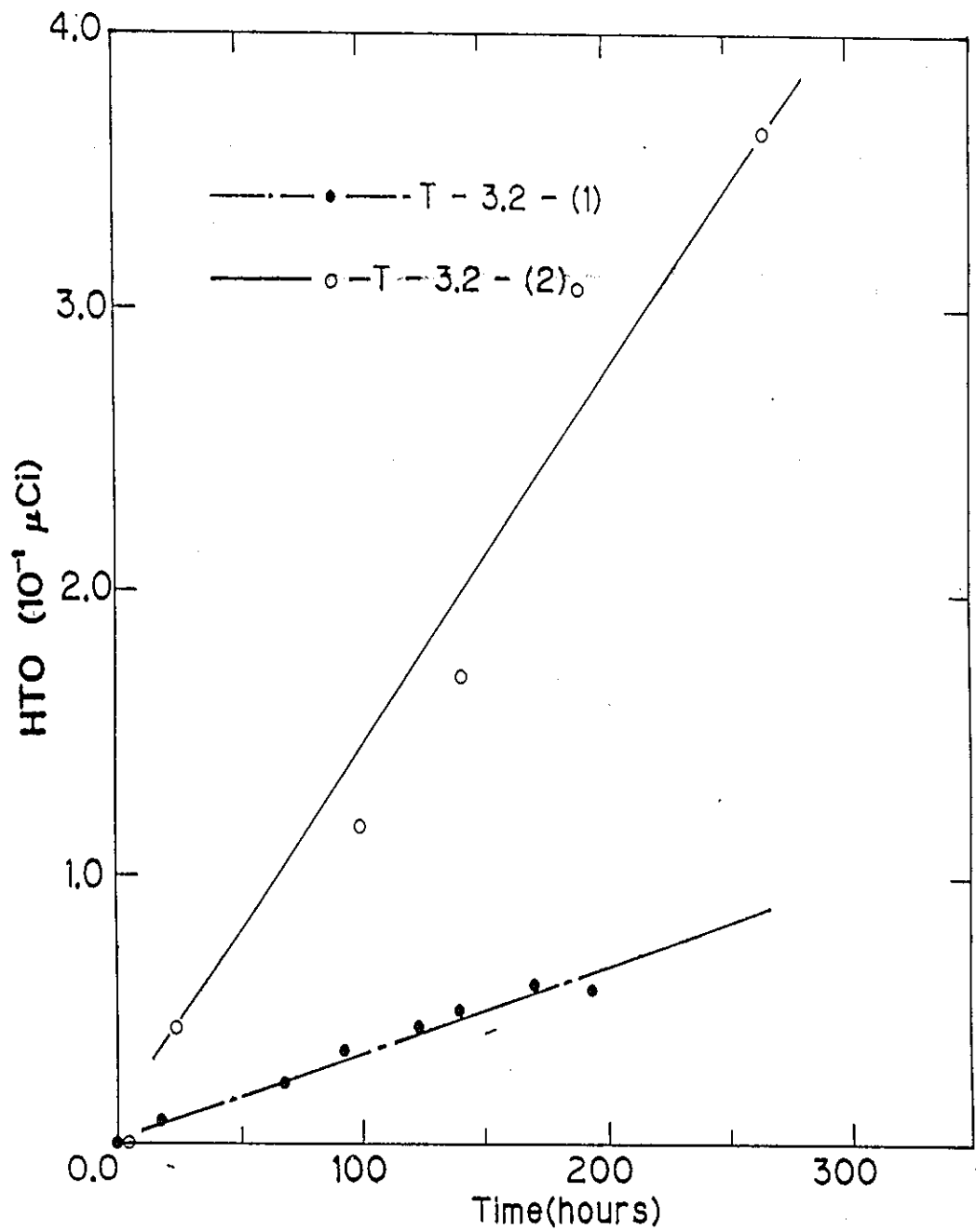


Fig.2-2-(7) Diffusion of HTO
through granite samples

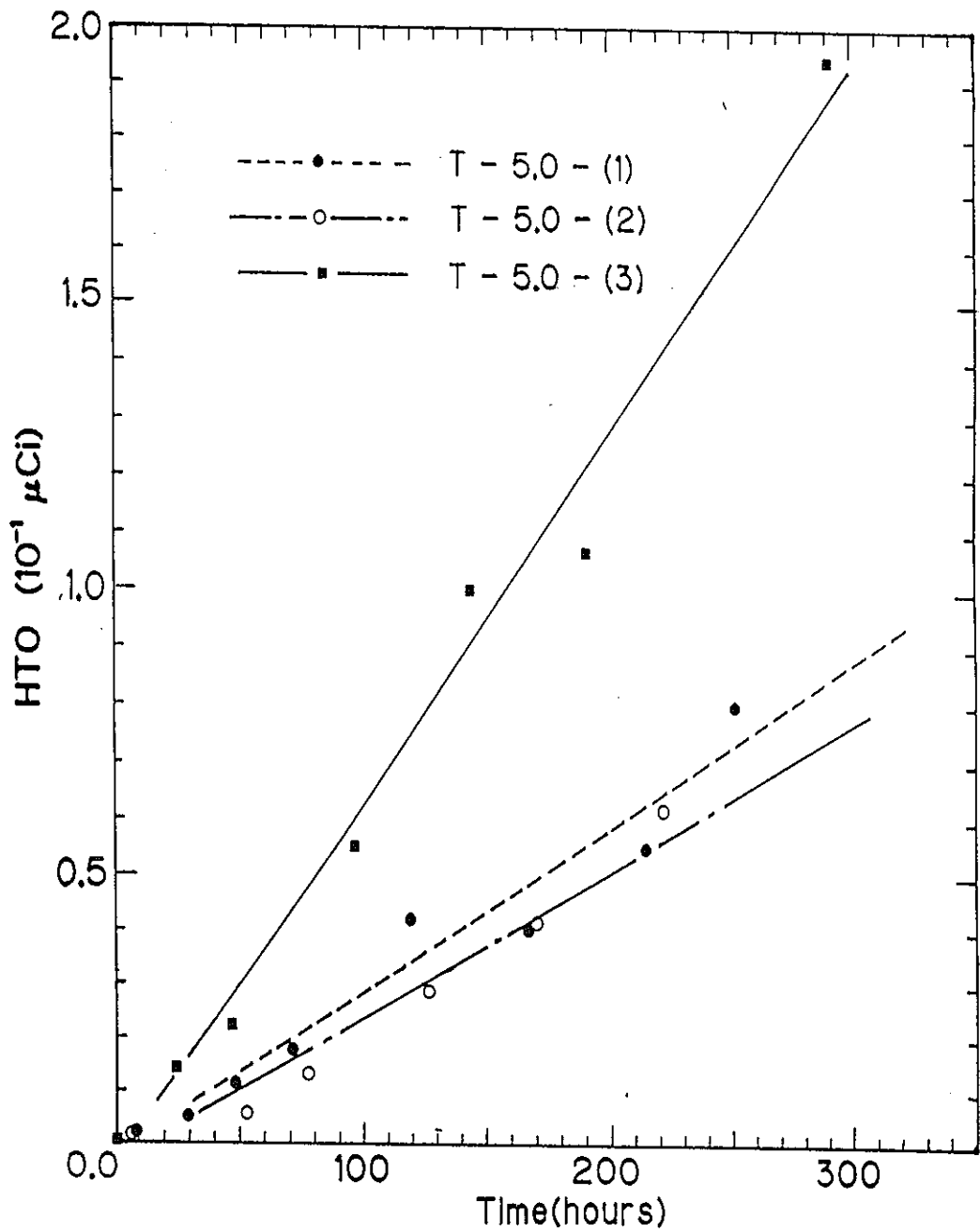


Fig.2-2-(8) Diffusion of HTO
through granite samples

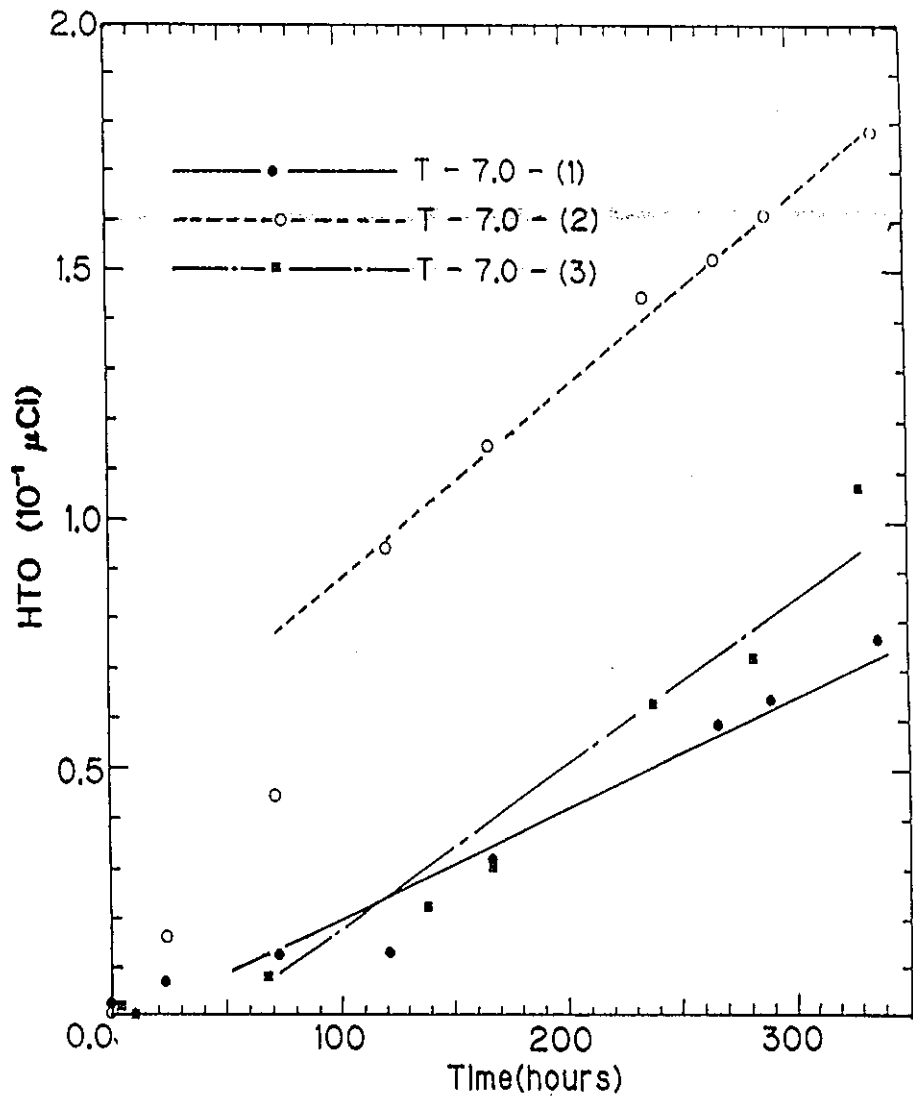


Fig.2-2-(9) Diffusion of HTO through granite samples

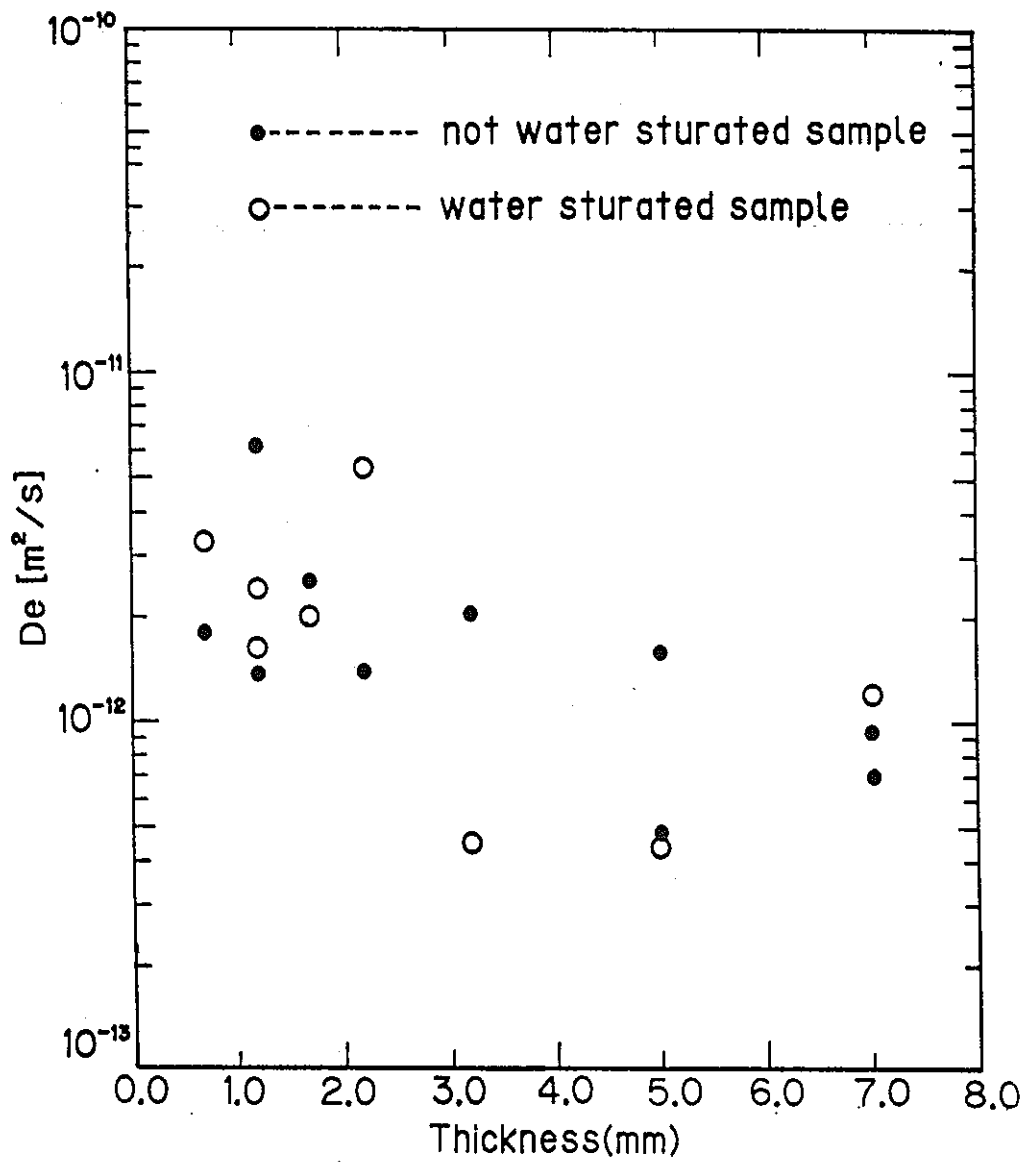


Fig.2-2-(10) Effective pore diffusivity of HTO

2-3 NaIを用いた拡散実験

2-3-1 実験方法

用いたサンプルを Table 2-3-(1)にまとめておく。トリチウム拡散実験と同様に0.7 mm~7.0 mmの厚さをもつ円板状の花崗岩サンプルを用い、すべてのサンプルを2-1で述べたような手順で、イオン交換水で飽和させておいた。

また装置は Fig. 2-2-(1)に示すアクリル製容器で、トリチウムの場合よりも寸法の大きいものを用いた。これはI⁻濃度をサンプリングによってではなく、酸化還元電位をイオン電極によって測定するためである。

いま、酸化還元電位 (ORP) : E と I⁻ 濃度 : C [mol/l] の間には次のような関係がある。

$$E = A \cdot \log C + B \quad \dots\dots 2-3-(1)$$

従って、あらかじめ標準溶液の測定により E と C の関係を知っておけば、2-3-(1)を用いて、濃度を測定することができる。

溶液は高、低濃度側ともに150 mlとし、高濃度側には1 mol / l の NaI 溶液を用いた。(ただしサンプル I-1.2-(1)については、濃度の差による影響をみるために0.1 mol / lとした。) また低濃度側には1 mol / l (I-1.2-(1)については0.1 mol/l) の NaNO₃ 溶液を用いた。これは次のような理由によるものである。⁽¹⁶⁾

まず、溶液の平均活量係数 : γ_{\pm} とイオン強度 : I の間には次のような関係がある。

$$\log \gamma_{\pm} = - \frac{A |Z_+ \cdot Z_-| \sqrt{I}}{1 + B \cdot \frac{a}{a_0} \cdot \sqrt{I}} \quad \dots\dots 2-3-(2)$$

ただし, A, B : const

$$I = \frac{1}{2} \sum Z_i^2 \cdot m_i$$

m_i : i 種イオンの重量モル濃度

a : 最近接イオン間距離

また化学ポテンシャル: μ_i と活量係数 γ_i の間には次のような関係がある。

$$\mu_i = \mu_i^* (m_i) + RT \cdot \ln \cdot \gamma_i \cdot m_i \quad \dots\dots 2-3-(3)$$

μ_i^* : 希薄に電解質が解けた場合の化学ポテンシャル

従って 2-3-(2), 2-3-(3)式により, 花崗岩の両側のイオン強度に差があると, 両側の化学ポテンシャルに差ができることになり, このため浸透が起こり易くなる可能性がある。従って, このような浸透を排除するために高濃度側に NaNO_3 溶液を用いた。

また実験は室温で行い, 300 ~ 400時間継続して測定した。

2-3-2 実験結果

総移動量の時間変化を Fig. 2-3-(1)~ Fig. 2-3-(7)にまとめておく。

NaI を使った場合も, ある程度の時間が経過すると, 総移動量: q は直線的に増加している。

そこでトリチウムの場合と同様に 2-2-(1)式を用いて計算した各サンプルについての D_e の値を Table 2-3-(2)にまとめておく。またこれらの値を厚さ l に対してプロットしたのが Fig. 2-3-(8)である。

これをみると, トリチウムのように全測定範囲についてはではないが 3.2mm以下については D_e の減少がみられる。

Table 2-3-(1) Sample Specification

Sample Number	Thickness [mm]
I - 0.7 - (1)	0.65
I - 0.7 - (2)	0.66
I - 0.7 - (3)	0.73
I - 1.2 - (1)	1.24
I - 1.2 - (2)	1.23
I - 1.2 - (3)	1.23
I - 2.2 - (1)	2.30
I - 2.2 - (2)	2.28
I - 2.2 - (3)	2.28
I - 3.2 - (1)	3.30
I - 3.2 - (2)	3.28
I - 3.2 - (3)	3.28
I - 5.0 - (1)	5.11
I - 5.0 - (2)	5.11
I - 5.0 - (3)	5.08
I - 7.0 - (1)	7.07
I - 7.0 - (2)	7.06
I - 7.0 - (3)	7.01

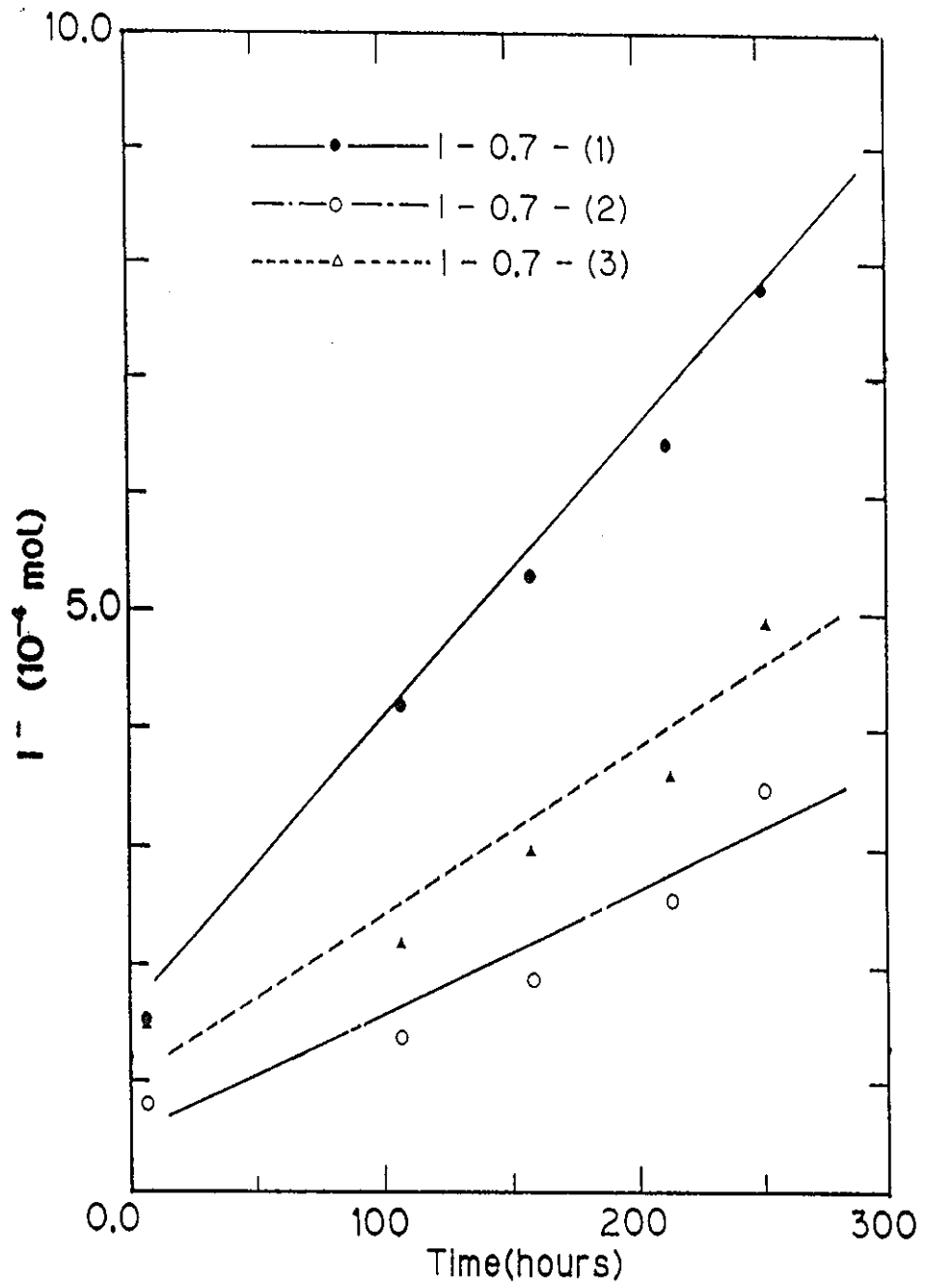


Fig.2-3-(1) Diffusion of I⁻
through granite samples

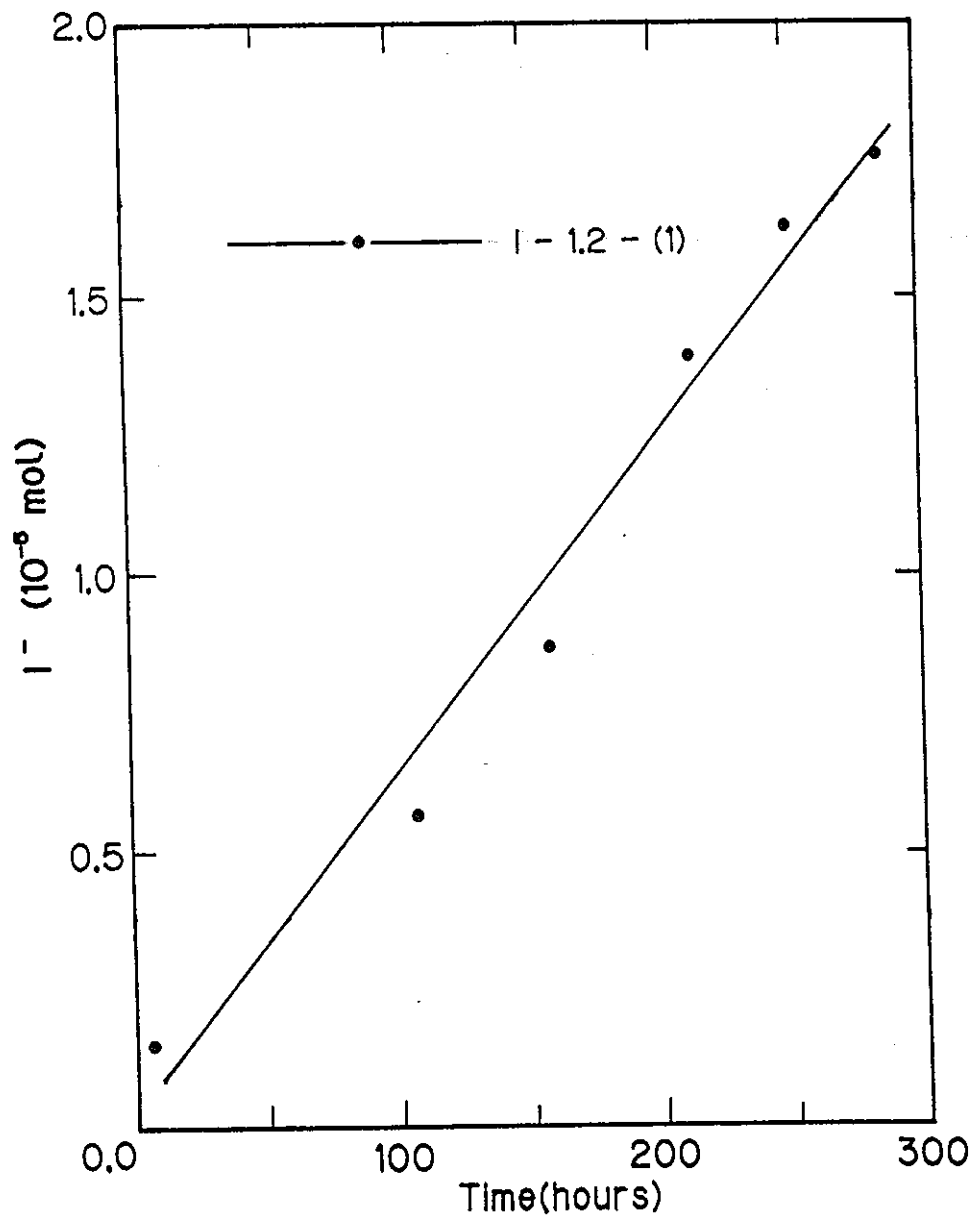


Fig.2-3-(2) Diffusion of I^-
through granite samples

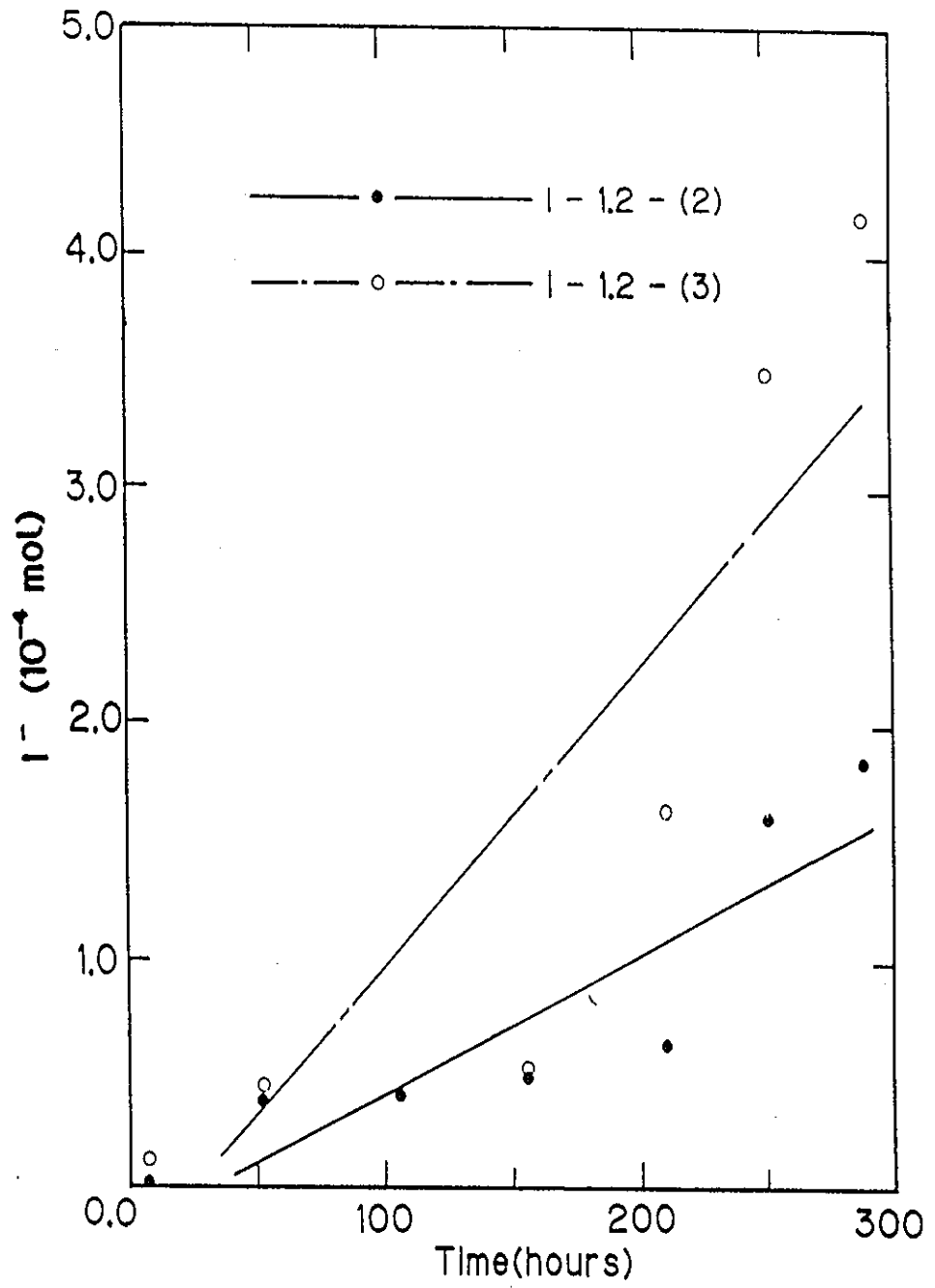


Fig.2-3-(3) Diffusion of I⁻ through granite samples

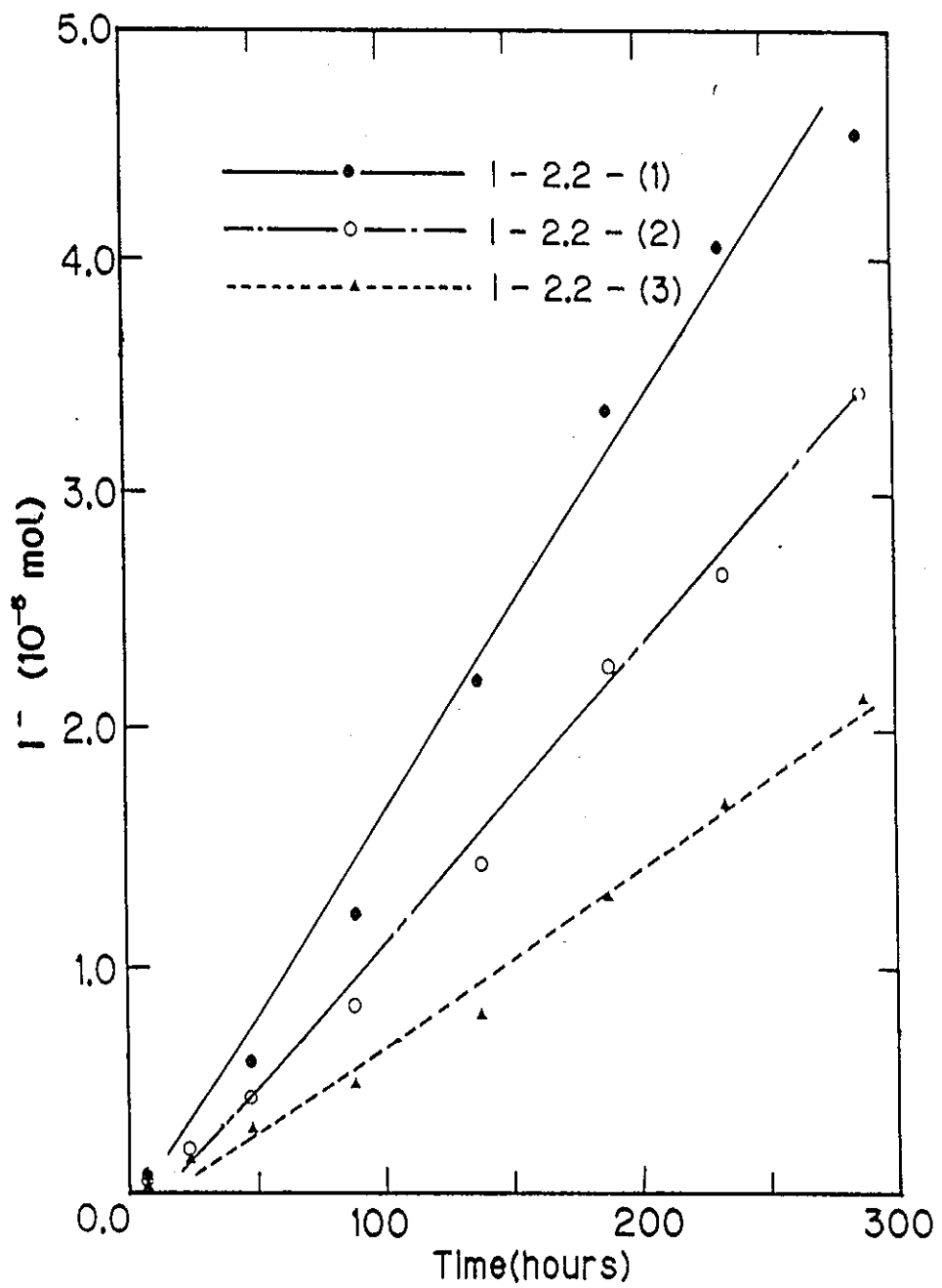


Fig.2-3-(4) Diffusion of I⁻
through granite samples

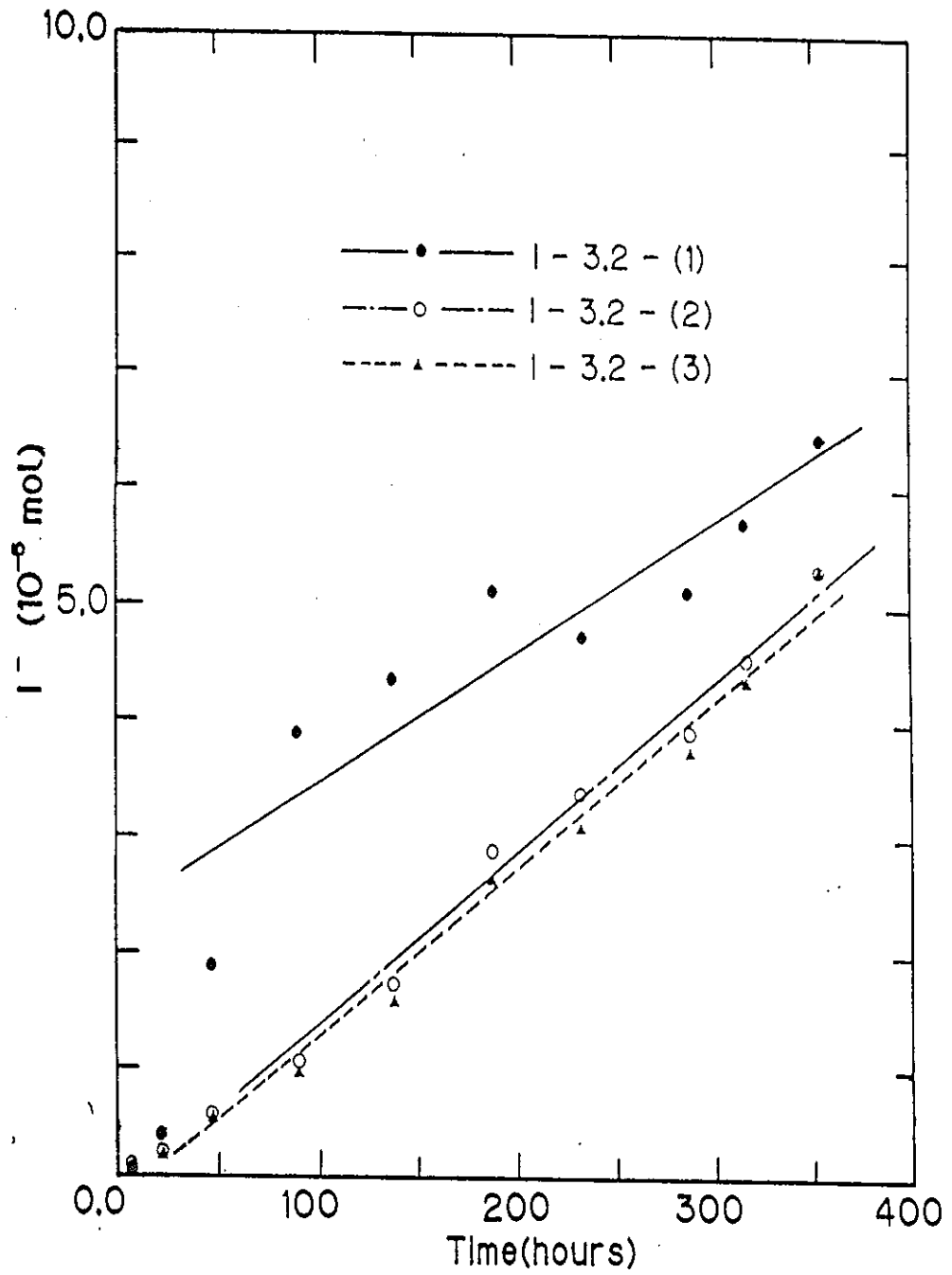


Fig.2-3-(5) Diffusion of I⁻
through granite samples

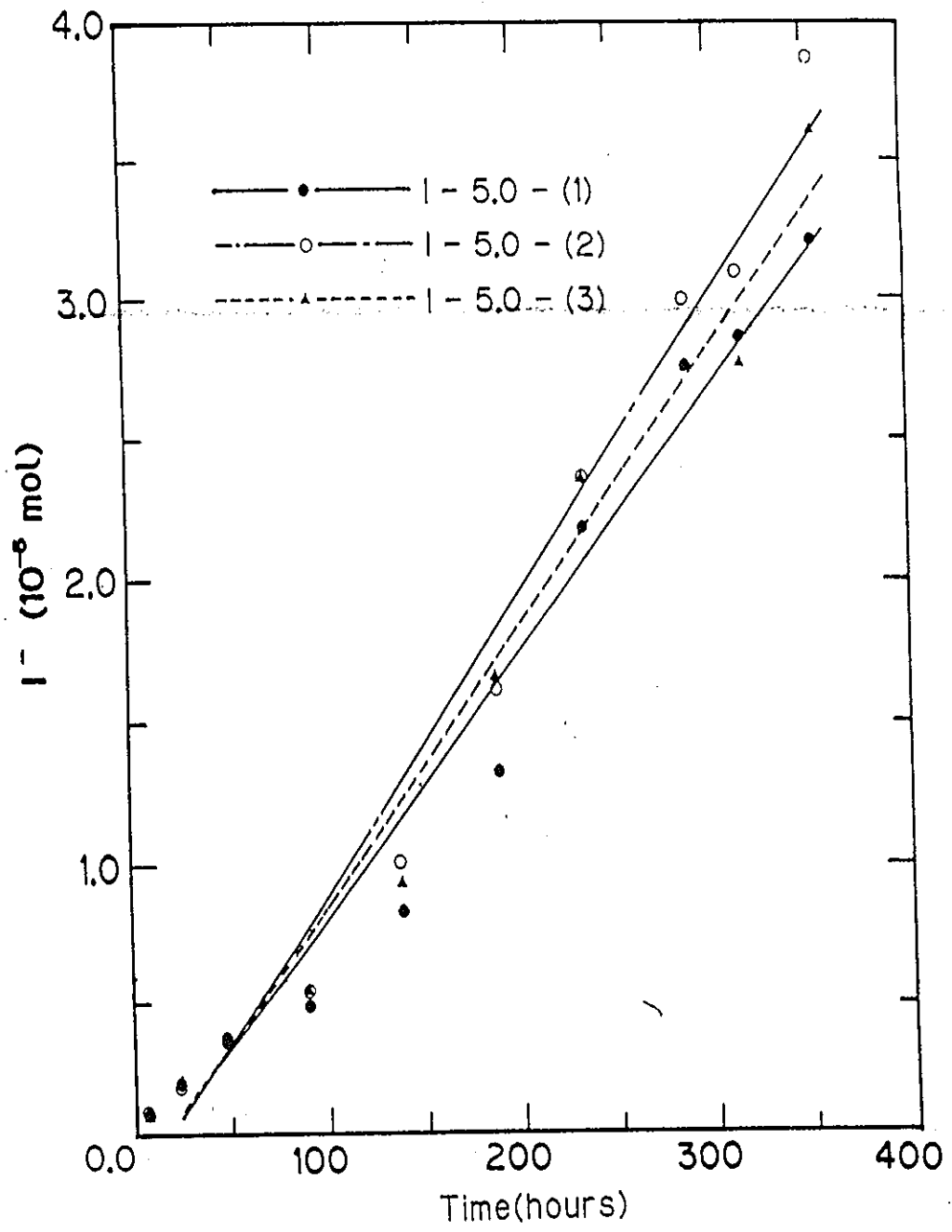


Fig.2-3-(6) Diffusion of I⁻ through granite samples

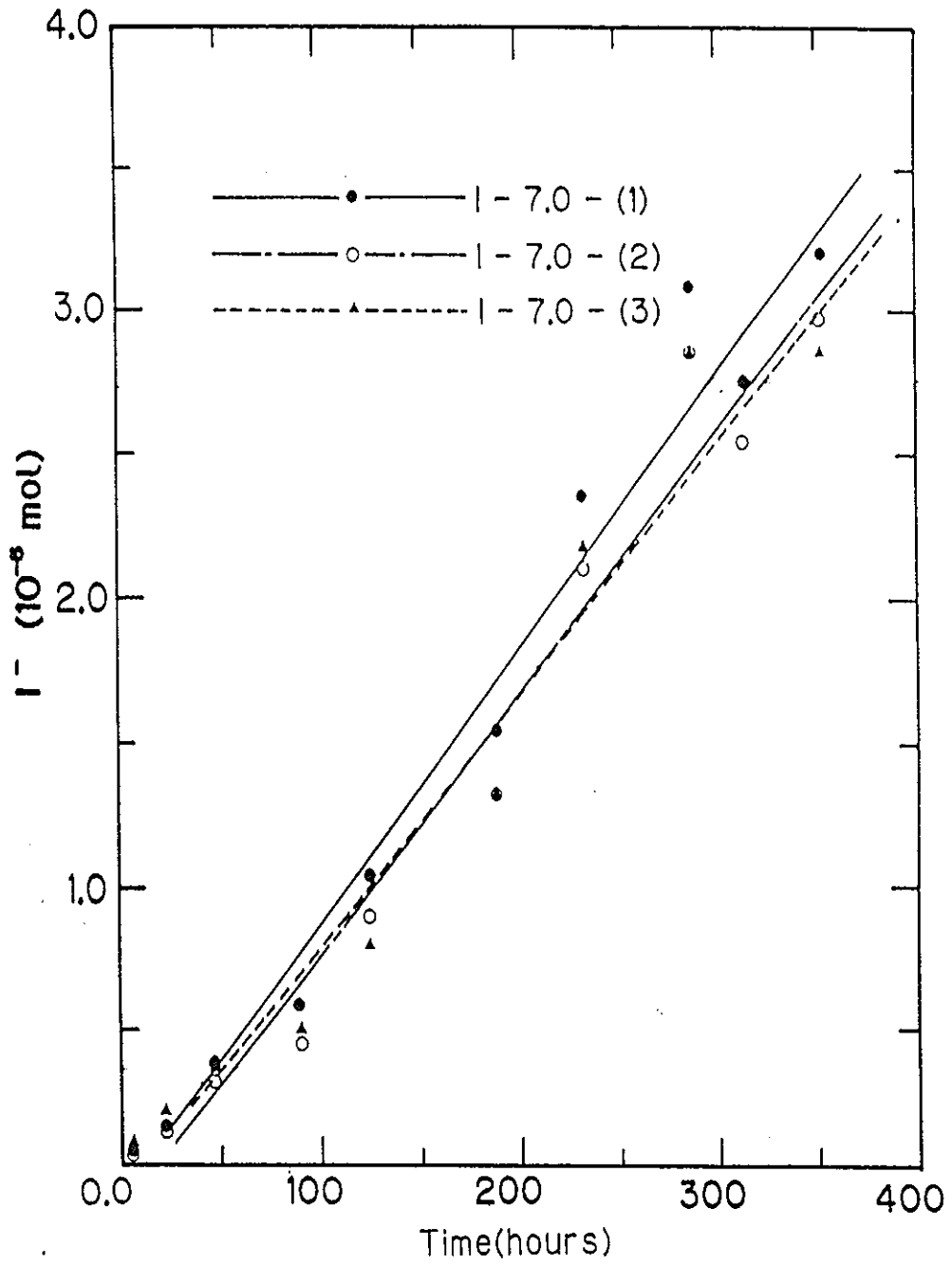


Fig.2-3-(7) Diffusion of I^-
through granite samples

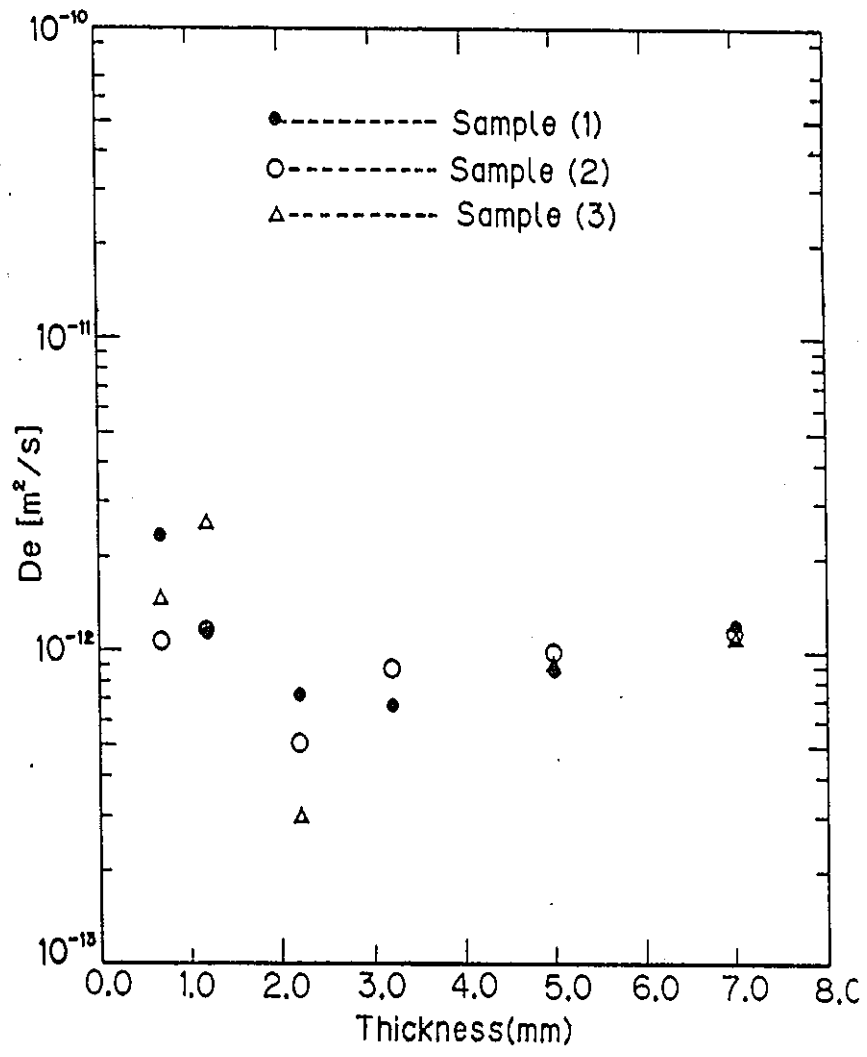


Fig.2-3-(8) Effective pore diffusivity of I⁻

第 3 章

抵抗測定による 空隙構造の研究

3-1 実験方法

序論でも述べたように電解質で飽和させた岩石の比抵抗 R_s ($\Omega \cdot m$) と、その電解質の比較抵抗 R_o ($\Omega \cdot m$) の間には次のような関係が成り立つ。⁽³⁾

$$\frac{R_o}{R_s} = \frac{\epsilon_p}{\tau^2} \equiv F \quad 3-(1)$$

ϵ_p : 空隙率

τ : 空隙の屈曲度

F : formation factor

従って R_s を測定し、Fを知ることは空隙のつながり方を知る上で意義あることである。

まず、第2章の拡散実験で用いた花崗岩サンプルと同様の円板状 (直径20mm, 厚さ1.2 ~ 5.0 mm) を Fig. 3-(1)のように、銅板で作った電極ではさみこんだ。銅板とサンプルの間に入っているフィルターペーパーはサンプルの上下面全体が均一に銅板と接するようにするためのものである。

電解質溶液としては 5% NaCl 水溶液を用い、2-1で述べた手順でサンプルをこの溶液で飽和させておいた。また、フィルターペーパーにも同じ溶液を吸わせて銅板と岩石表面のギャップをなくすようにしてある。

3-2 実験結果

5% NaCl 水溶液の比伝導度 σ_o は $18^\circ C$ で 672×10^{-4} ($\Omega^{-1} \cdot cm^{-1}$)⁽¹⁷⁾ であるので、比抵抗はその逆数をとることにより求められる。

$$\therefore R_o = 0.149 (\Omega \cdot m) \quad 3-(2)$$

また測定した岩石サンプルの抵抗をR〔Ω〕，岩石サンプルの断面積，厚さをそれぞれA〔m²〕，ℓ〔m〕とすれば，formation factor は次のようにして計算できる。

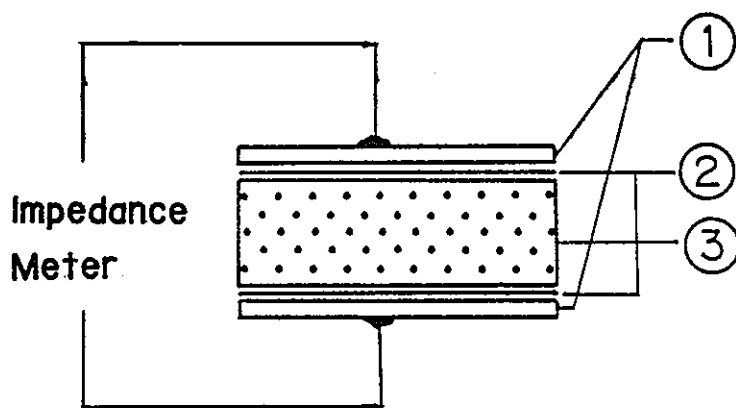
$$F = \frac{R_0}{R \cdot \frac{\ell}{A}} = \frac{R_0 \cdot \ell}{R \cdot A} \quad 3-(3)$$

3-(3)式を用いて計算したFの値を Table. 3-(1)にまとめておく。またこれをプロットしたのが Fig. 3-(2)である。

これをみると，厚さが増すにつれFが減少する傾向が顕著に現れている。このことから，岩体を常に均質媒体として取り扱うことが難しいことがわかる。

Table 3 - (1) Formation factor of granite samples measured by electrical resistivity

Thickness (mm)	Frequency (Hz)		
	100	500	1000
1.2	1.46×10^{-4}	1.99×10^{-4}	5.52×10^{-4}
1.7	1.71×10^{-5}	1.75×10^{-5}	1.77×10^{-5}
2.2	8.56×10^{-6}	8.82×10^{-6}	9.49×10^{-6}
3.2	4.66×10^{-6}	5.27×10^{-6}	6.77×10^{-6}
5.0	8.97×10^{-7}	9.03×10^{-7}	9.03×10^{-7}



- ① Copper plate
- ② Filter paper
- ③ Granite sample

Fig.3-(1)Apparatus for resistivity measurement

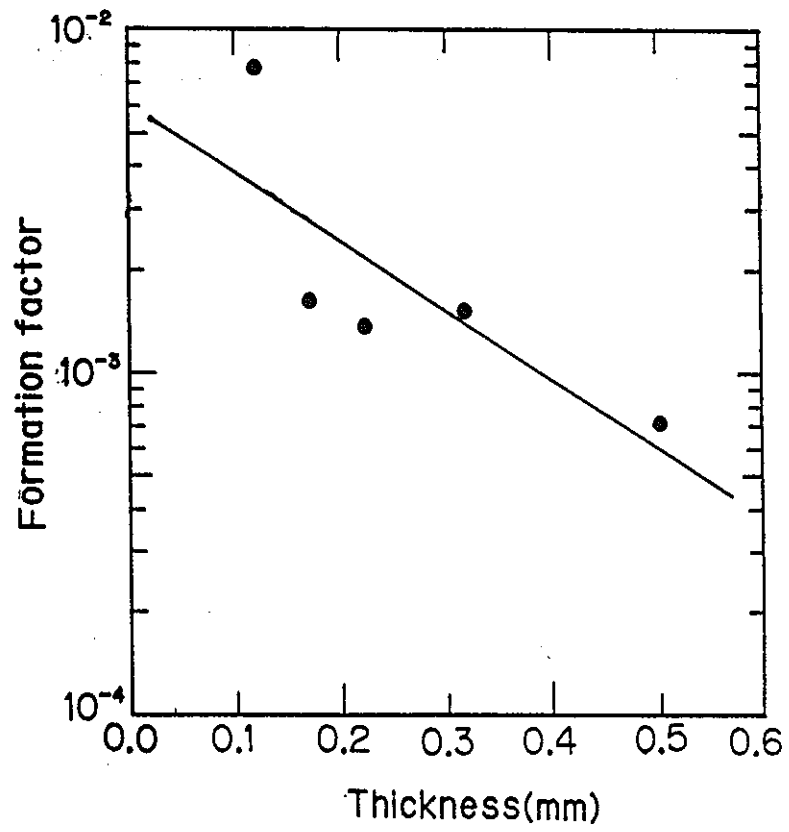


Fig.3-(2) Formation factor
versus sample thickness

第 4 章

実験結果について
の考察

4-1 非均質モデルの導出

第3章で述べたように岩体を常に均質媒体として取り扱うことは難しい。

そこで岩体のもつ非均質性を説明するために、次のような簡単なモデルを考えた。⁽²⁾

まず拡散空隙に厚さ方向の平均長： ξ を考える。すると空隙が厚さ x から $x + dx$ の間に終端のくる確率 P は次式のように表される。

$$P = \frac{1}{\xi} \cdot dx \quad 4-(1)$$

従って、厚さ x での核種の移動量を $f(x)$ とすれば、 $f(x)$ と $f(x + dx)$ の間には次式が成り立つ。

$$\begin{aligned} f(x + dx) &= (1 - P) \cdot f(x) \\ &= \left(1 - \frac{1}{\xi} \cdot dx\right) \cdot f(x) \end{aligned} \quad 4-(2)$$

従って次のような微分方程式が得られる。

$$\frac{df(x)}{dx} = -\frac{1}{\xi} \cdot f(x) \quad 4-(3)$$

よって4-(3)式より移動量は $\exp\left(-\frac{1}{\xi} \cdot x\right)$ に比例して減少することになる。

4-2 非均質モデルの実験結果への適用

4-2-1 トリチウム拡散実験

4-1で考えた簡単な非均質モデルをトリチウム拡散実験の結果へ適用してみる。

まず、各サンプルについてのフラックス： ϕ の値、及び各厚さでの ϕ の平均値を Table 4-(1), 4-(2)にまとめておく。

いま、 ϕ は均質媒体中でも厚さ l に反比例して減少していくので、 ϕ をそのまま評価することはできない。そこで $f(l) \equiv \phi(l) \cdot l$ と $f(l)$ を定義し、 $f(l)$ の厚さによる減少をみる。すなわち、 ϕ を次式のように回帰計算してやればよい。

$$\phi(l) = \phi \cdot (C_1 - C_2) \cdot \frac{\exp\left(-\frac{1}{\xi} \cdot l\right)}{l} \quad 4-(4)$$

4-(5)を用いてトリチウム拡散実験の結果を回帰してみると、 $1/\xi \equiv 112.4$ [1/m] が得られる。従ってこの場合の空隙の平均長は

$$\xi = 8.89 \times 10^{-3} \text{ [m]} \quad 4-(5)$$

と表わすことができる。これは Fig. 4-(1)のように、かなりよく実験結果を表現している。

4-2-2 抵抗測定

トリチウムの場合と同様に、抵抗測定から得られたFの値に、4-1の非均質モデルを適用してみる。ただしこの場合は、Fがそのまま空隙のつながりを表

すものであるから、単純な指数回帰を行えばよい。

計算の結果 $1/\xi = 463.5 \text{ (m}^{-1}\text{)}$ が得られる。従って、この場合は

$$\xi = 2.16 \times 10^{-3} \text{ (m)}$$

となる。

4-3 非均質モデルにおける問題点

4-1で述べた平均長 ξ を考えるモデルは、4-2で述べたように我々の行ったトリチウム拡散実験及び抵抗測定の結果については、よく説明しているといえる。

しかし、拡散実験についても次式からフォーメーションファクター：Fを計算し、我々の行った抵抗測定実験及び既往の文献の拡散実験⁽³⁾、抵抗測定⁽³⁾実験の結果と合わせてプロットすると Fig. 4-(2)のようになる。

$$F = \frac{\varepsilon_p}{\tau^2} = \frac{De}{Dv} \quad 4-(6)$$

Dv : 水中の拡散係数 $\text{(m}^2/\text{s)}$

これをみると、 ℓ がある程度大きくなると、4-1のモデルでは説明できなくなることがわかる。このことに対する理由としては次のようなことが考えられる。

我々が考えたモデルでは平均長として一つの値を考えているだけであるが、空

隙の長さの分布が2つ、またはそれ以上のピークを持つものとすれば、4-1
のように単一の平均長で表わすことはできない。
従って、このような空隙の長さの分布について研究を進めることが今後の課題
といえよう。

Table 4 - (1) Diffusion flux of HTO

Sample Number	F [$\mu\text{Ci}/\text{m}^2/\text{s}$]	mean
*T - 0.7 - (1)	2.36 _E -02	1.83 _E -02
T - 0.7 - (2)	1.30 _E -02	
*T - 1.2 - (1)	2.59 _E -02	1.21 _E -02
T - 1.2 - (2)	6.75 _E -03	
T - 1.2 - (3)	1.01 _E -02	
T - 1.2 - (4)	5.74 _E -03	
T - 1.2 - (5)	4.69 _E -03	
T - 1.2 - (6)	6.69 _E -03	
T - 1.2 - (7)	8.08 _E -03	
T - 1.2 - (8)	9.70 _E -03	
T - 1.2 - (9)	4.74 _E -03	
*T - 1.7 - (1)	7.39 _E -03	
T - 1.7 - (2)	5.94 _E -03	

Table 4 - (2) Diffusion flux of HTO

Sample Number	F [$\mu\text{Ci}/\text{m}^2/\text{s}$]	mean
T - 2.2 - (1)	1.24 _E -02	7.48 _E -3
T - 2.2 - (2)	3.12 _E -03	
T - 3.2 - (1)	7.14 _E -04	1.23 _E -3
T - 3.2 - (2)	3.22 _E -03	
T - 5.0 - (1)	4.88 _E -04	8.54 _E -4
T - 5.0 - (2)	4.53 _E -04	
T - 5.0 - (3)	1.62 _E -03	
T - 7.0 - (1)	5.11 _E -04	6.08 _E -4
T - 7.0 - (2)	8.71 _E -04	
T - 7.0 - (3)	4.41 _E -04	

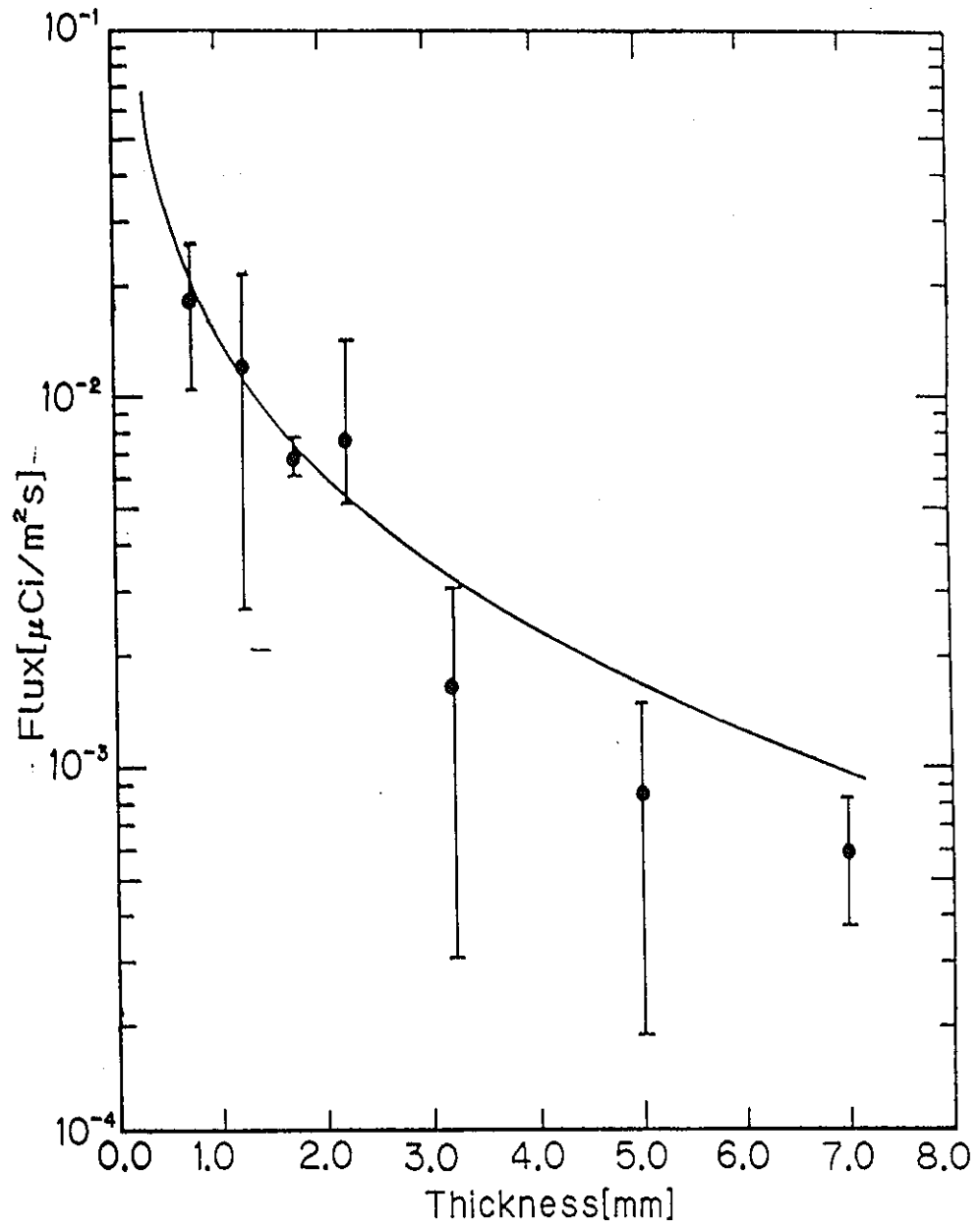


Fig.4-(1) Diffusion flux(mean value)
of HTO versus sample thickness

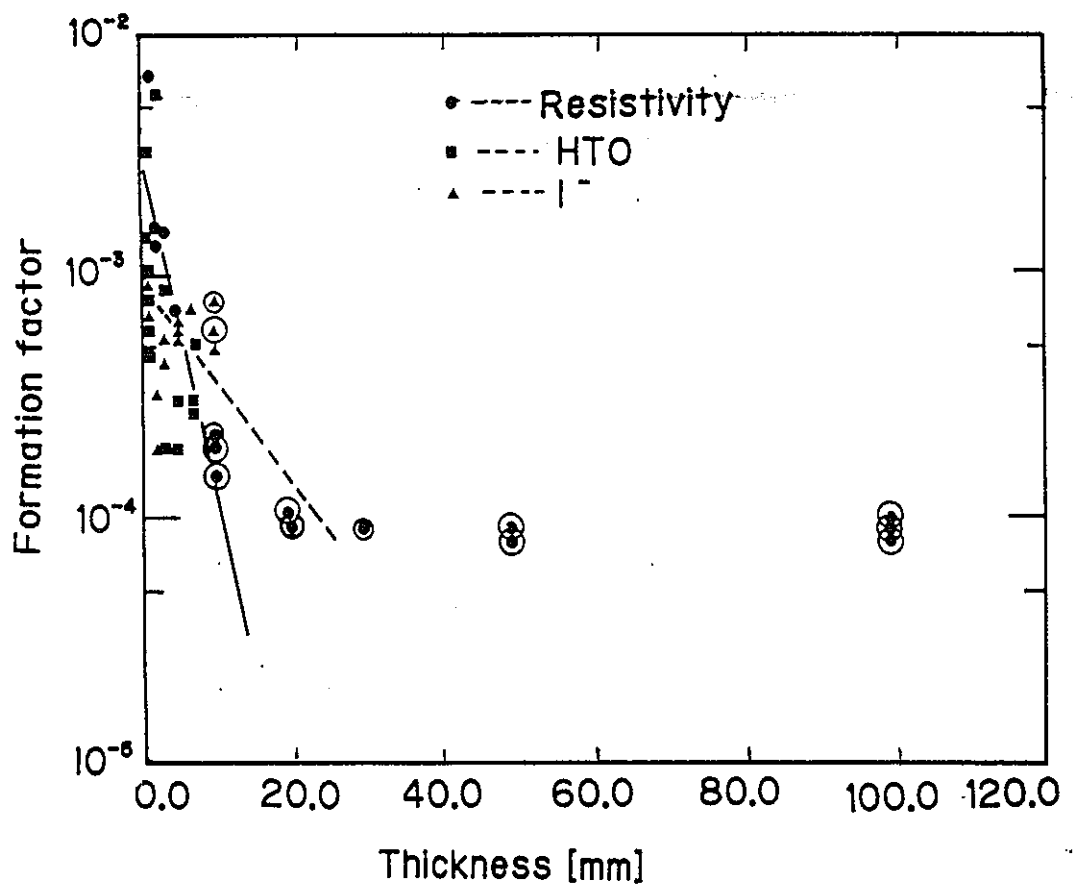


Fig.4-(2) Formation factor versus thickness

○--- Results from the experiments

by K.Skagius et al.

第 5 章

安全評価への適用

5-1 基礎方程式^{(18), (19)}

地層中の亀裂域での物質移動を Fig. 5-1)のような系で考えることにする。
 岩体が均質媒体であるとした場合には、亀裂内、岩体内のそれぞれについて次のような偏微分方程式を導くことができる。

$$\text{亀裂内: } V \frac{\partial C}{\partial Z} - D \frac{\partial^2 C}{\partial Z^2} + \frac{\partial C}{\partial t} + \frac{1}{b} \frac{\partial S}{\partial t} + \lambda C + \frac{\rho b}{b} S + \frac{q}{b} = 0$$

$$(0 \leq Z \leq \infty) \quad \dots\dots 5-1)$$

$$\text{岩体内: } -D \left(\frac{\partial^2 C'}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 C'}{\partial z^2} \right) + \frac{\partial C'}{\partial t} + \frac{\rho b}{\epsilon_P} \frac{\partial S'}{\partial t} + \lambda C' + \frac{\rho b}{\epsilon_P} \lambda \cdot S' = 0$$

$$(0 \leq x \leq L_M) \quad \dots\dots 5-2)$$

- ここに C : 亀裂内液相濃度 (M/L³)
 C' : 岩体 " (M/L³)
 S : 亀裂の単位長さ当りの表面への吸着量 (M/L²)
 S' : 岩体の単位質量当りへの吸着量 (M/M)
 λ : 崩壊定数 (1/T)
 2b : 亀裂幅 (L)
 2 · L_M : 亀裂の間隔 (L)
 ρb : 岩体の密度 (空隙を含む) (M/L³)
 D = α_L · V + D_v

$$D' = \frac{1}{\tau^2} \cdot D_v$$

V : 流速

α_L : dispersivity

D_v : 水中の拡散係数 (L²/T)

τ : 屈曲度 (> 1)

ここで S と C, S' と C' の間には次の関係を仮定する。

$$S = K_f \cdot C \quad 5-(3)$$

$$S' = K_m \cdot C' \quad 5-(4)$$

K_f : 亀裂における分配係数 (L)

K_m : 岩体 " (L³/M)

$$R \equiv 1 + \frac{K_f}{b} \quad \dots\dots 5-(5)$$

$$R' \equiv 1 + \frac{\rho b}{\epsilon_p} \cdot K_m \quad \dots\dots 5-(6)$$

5-(3)~5-(6)式を用い、また5-(1)において

$$q = -\epsilon_p \cdot D' \cdot \frac{\partial C'}{\partial x} \Big|_{x=b} \quad \dots\dots 5-(7)$$

を代入すると、次のような連立偏微分方程式が得られる。

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \frac{V}{R} \frac{\partial C}{\partial z} - \frac{\alpha_L \cdot V + D \tau}{R} \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} + \lambda \cdot C - \frac{\epsilon_p \cdot D_v}{b \cdot R \cdot \tau^2} \frac{\partial C'}{\partial x} \Big|_{x=b} = 0 \quad \dots\dots 5-(8)$$

$$\frac{\partial C'}{\partial t} - \frac{D_v}{R' \cdot \tau^2} \frac{\partial^2 C'}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 C'}{\partial z^2} + \lambda C' = 0 \quad \dots\dots 5-(9)$$

ここで初期・境界条件は次のようなものである。

$$C(0, t) = C_0 \quad (a)$$

$$C(\infty, t) = 0 \quad (b)$$

$$C(Z, 0) = 0 \quad (c)$$

$$C(b, Z, t) = C(b, t) \quad (d)$$

$$\left. \begin{array}{l} \frac{\partial c}{\partial x} \\ \frac{\partial c}{\partial x} \end{array} \right|_{x=L_M} = 0 \quad (e)$$

$$C'(x, Z, t) = 0 \quad (f)$$

(e) は系の対称性から、このような境界条件を用いる。

また導き出した亀裂内の偏微分方程式は、Zの方向の一次元的なものとなっているが、これは次のような仮説に基づいている。

- 仮説
- 1) 亀裂の幅はその長さにくらべ非常に小さい。
 - 2) 亀裂内のx方向の拡散、分散により、任意の時刻tにおいて、亀裂内ではx方向に完全に混合されている。

このような仮説により、亀裂内では物質移動を一次元で取り扱うことにした。

5-2 無次元化

まず次のような無次元化量を定義する。

$$t^* = \frac{V_\infty}{Lf} t \quad \dots\dots 5-10$$

$$Z^* = \frac{Z}{Lf} \quad \dots\dots 5-11$$

$$\chi^* = \frac{\chi}{C} \quad \dots\dots 5-12$$

$$C^* = \frac{C - C_0}{C_0} \quad \dots\dots 5-13$$

$$C'^* = \frac{C'}{C_0} \quad \dots\dots 5-14$$

$$V^* = \frac{V}{V_\infty} (= 1) \quad \dots\dots 5-15$$

5-10~5-15のような無次元化量を5-8, 5-9に代入すると次のような連立偏微分方程式が得られる。

$$\frac{\partial c^*}{\partial t^*} + \frac{1}{R} \frac{\partial c^*}{\partial z^*} - \frac{1}{R \cdot Pe} \frac{\partial^2 c^*}{\partial z^{*2}} + \frac{Lf \cdot \lambda}{V_\infty} C^* - \frac{\varepsilon_P \cdot Dv}{\tau^2 R b V_\infty} \cdot \frac{\partial c^*}{\partial \chi} \Big|_{\chi = \frac{b}{4}} = 0 \quad \dots\dots 5-16$$

$$\frac{\partial c'^*}{\partial t^*} - \frac{Dv}{R' Lf \cdot V_\infty \tau^2} \left(\frac{\partial^2 c'^*}{\partial z^{*2}} + \frac{\partial^2 C^*}{\partial \chi^{*2}} \right) + \frac{Lf \cdot \lambda}{V_\infty} C'^* = 0 \quad \dots\dots 5-17$$

初期・境界条件は次のようになる。

$$C^* (0, Z^*) = 0$$

$$C^* (t^*, 0) = 1.0$$

$$C^* (t^*, \infty) = 0$$

$$C'^* (0, \chi^*, Z^*) = 0$$

$$C'^* \left(t^* \frac{b}{L_f}, Z^* \right) = C^* (t^*, Z^*)$$

$$\left. \frac{\partial C'^*}{\partial \chi^*} \right|_{\chi^* = \frac{L_M}{L_f}} = 0 \quad (\text{系の対称性より})$$

$$C'^* (t^*, \chi^*, \infty) = 0$$

また 4-(17)式の Pe はペクレ数で、次のように定義されている。

$$Pe \equiv \frac{V_\infty \cdot L_f}{\alpha_L \cdot V_\infty + D_v}$$

5-3 非均質モデル偏微分方程式への適用

5-2で最終的に得られた5-(16), 5-(17)に, 4-1で述べた非均質モデルを適用することを考える。

非均質モデルの適用により変化するのは岩体内における拡散項であり, これは5-(17)の第2項にあたる。この第2項を次のように変形する。

$$\begin{aligned}
 \frac{Dv}{R \cdot Lf \cdot V \infty \cdot \tau^2} &= \frac{Dv}{\left(1 + \frac{\rho_b \cdot Km}{\varepsilon_p}\right) \cdot Lf \cdot V \infty \cdot \tau^2} \\
 &= \frac{Dv \cdot \varepsilon_p}{(\varepsilon_p + \rho_b \cdot Km) \cdot Lf \cdot V \infty \cdot \tau^2} \\
 &= \frac{Dv}{\rho_b \cdot Km \cdot Lf \cdot V \infty} \cdot \frac{\varepsilon_p}{\tau^2} \\
 &= \frac{Dv}{\rho_b \cdot Km \cdot Lf \cdot V \infty} \cdot F \qquad 5-(18)
 \end{aligned}$$

従って, 4-1のモデルを適用する場合には, この第2項を $\exp(-1/\xi \cdot x)$ に比例して減少するようにしてやればよい。また, この際, 拡散の等方性を仮定して計算を行うことにする。

5-4 有限要素法による解法⁽²⁰⁾

5-3のように偏微分方程式に非均質性を考慮する場合、5-(16), 5-(17)の連立偏微分方程式は解析解を求められなくなる。そこで本研究においては、有限要素法を用いて数値的に解くことにした。

ここで、与えられた連立偏微分方程式を有限要素法によって解く手順について述べておくことにする。

5-4-1 有限要素式の導出

(1) 亀裂内

亀裂内では、5-1で述べた仮説 1), 2) により一次元の偏微分方程式となっている。従って要素も一次元要素となる。

いま要素 e について、接点 1, 2 の座標をそれぞれ Z_1^{*e} , Z_2^{*e} とするとき、要素内の任意の点の濃度を次のように表す。

$$C^{*e}(Z^*) = N_1^e(Z^*) \cdot C_1^{*e} + N_2^e(Z^*) \cdot C_2^{*e} \quad \dots\dots 5-19$$

ここで、 N_1^e , N_2^e : 内挿関数

C_1^{*e} , C_2^{*e} : 要素 e の接点 1, 2 の相対濃度

内挿関数は $N_1(Z_1^{*e}) = 1$, $N_1(Z_2^{*e}) = 0$

$N_2(Z_1^{*e}) = 0$, $N_2(Z_2^{*e}) = 1$

Z_1^{*e}, Z_2^{*e} : 接点 1, 2 の相対 Z 座標

という性質を有する。従って N_1 , N_2 は次のように決めることができる。

$$N_1(Z^*) = 1 - \frac{Z^*}{\Delta Z}$$

5-20

$$N_2(Z^*) = \frac{Z^*}{\Delta Z}$$

$$(0 \leq Z^* \leq \Delta Z)$$

ここに $\Delta Z = Z_2^* - Z_1^*$

このようにして内挿関数マトリックス〔N〕は上の N_1, N_2 を用い、

$$〔N〕 = \{ N_1, N_2 \} \quad 5-(21)$$

と決定された。

次に与えられた偏微分方程式 5-(16)に左から〔N〕^Tをかけて $0 \leq Z^* \leq \Delta Z$ で積分すると次式が得られる。

$$\int_0^{\Delta Z} (N)^T (N) dZ^* \cdot \frac{d}{dt} \begin{bmatrix} C_1^{*e} \\ C_2^{*e} \end{bmatrix} + \frac{1}{R} \int_0^{\Delta Z} (N)^T \frac{d(N)}{dZ^*} dZ^* \cdot \begin{bmatrix} C_1^{*e} \\ C_2^{*e} \end{bmatrix}$$

$$- \frac{1}{R \cdot Pe} \int_0^{\Delta Z} (N)^T \frac{d^2(N)}{dZ^{*2}} dZ^* \cdot \begin{bmatrix} C_1^{*e} \\ C_2^{*e} \end{bmatrix}$$

$$+ \frac{Lf \cdot \lambda}{V \infty} \int_0^{\Delta Z} (N)^T \cdot (N) dZ^* \cdot \begin{bmatrix} C_1^{*e} \\ C_2^{*e} \end{bmatrix}$$

$$- \frac{\epsilon p \cdot Dv}{\tau^2 \cdot R \cdot b \cdot V \infty} \cdot \frac{dc^*}{d\chi^*} \Big|_{\chi=b} = 0 \quad \dots\dots 5-(12)$$

ここで上式を実際に計算するにあたって、第3項の積分は次のように部分積分を行う。

$$\int_0^{\Delta Z} (N)^T \frac{d^2(N)}{dZ^{*2}} dZ^*$$

$$= (N)^T \frac{d(N)}{dZ^*} \Big|_0^{\Delta Z} - \int_0^{\Delta Z} \frac{d(N)^T}{dZ^*} \cdot \frac{d(N)}{dZ^*} dZ^*$$

$$\dots\dots 5-(23)$$

右辺第1項は要素間のフラックスを表す項で、後に全体マトリックスを作る時に加え合わせれば打ち消されるので、境界に接する要素以外は考慮する必要はない。また、境界に接する要素についても、他に固定境界条件が与えられてい

る今回のような場合には考慮する必要はない。従って次式が成り立つ。

$$\int_0^{\Delta Z} (N)^T \cdot \frac{d^2 (N)}{dZ^{*2}} dZ^* = - \int_0^{\Delta Z} \frac{d(N)^T}{dZ^*} \cdot \frac{d(N)}{dZ^*} dZ^* \quad \dots\dots 5-(24)$$

このような関係を用い、積分を実効すると次のような式が得られる。

$$[KF] \begin{bmatrix} C_1^{*e} \\ C_2^{*e} \end{bmatrix} + [EF] \frac{d}{dt} \begin{bmatrix} C_1^{*e} \\ C_2^{*e} \end{bmatrix} = 0 \quad \dots\dots 5-(25)$$

ここに

$$[KF] = [KF1] + [KF2] + [KF3]$$

$$[KF1] = \frac{1}{R} \int_0^{\Delta Z} (N)^T \cdot \frac{d(N)}{dZ^*} dZ^* = \frac{1}{2R} \begin{bmatrix} -1 & 1 \\ -1 & 1 \end{bmatrix}$$

$$[KF2] = \frac{1}{RPe} \int_0^{\Delta Z} \frac{d(N)^T}{dZ^*} \cdot \frac{d(N)}{dZ^*} dZ^* = \frac{1}{R \cdot Pe \cdot \Delta Z} \begin{bmatrix} -1 & 1 \\ -1 & 1 \end{bmatrix}$$

$$[KF3] = \frac{Lf \cdot \lambda}{V_\infty} \int_0^{\Delta Z} (N)^T \cdot (N) dZ^* = \frac{Lf \cdot \lambda \cdot \Delta Z}{6 \cdot V_\infty} \begin{bmatrix} 2 & 1 \\ 1 & 2 \end{bmatrix}$$

$$[EF] = \int_0^{\Delta Z} (N)^T \cdot (N) dZ^* = \frac{\Delta Z}{6} \begin{bmatrix} 2 & 1 \\ 1 & 2 \end{bmatrix}$$

(5-(22)式の第5項は、(2)において説明する。)

最後に、時間微分については、クランク=ニコルソンの差分式により次のよう

に扱う。

$$\left(\frac{1}{2} \cdot [KF] + \frac{1}{\Delta t} [EF] \right) \begin{bmatrix} C_1^{*e}(t+\Delta t) \\ C_2^{*e}(t+\Delta t) \end{bmatrix}$$

$$= \left(-\frac{1}{2} (KF) + \frac{1}{\Delta t} (EF) \right) \begin{bmatrix} C_1^{*e}(t) \\ C_2^{*e}(t) \end{bmatrix} \quad \dots\dots 5-(26)$$

この式より、各要素について

$$[A^e] = \frac{1}{2} [KF] + \frac{1}{\Delta t} [FE]$$

$$[B^e] = -\frac{1}{2} [KF] + \frac{1}{\Delta t} [EF]$$

を計算し、加えあわせれば、亀裂内についての全体マトリックス $[AF]$ 、
 $[BF]$ が得られる。

(2) 岩体内

岩体内では x 、 Z 方向の 2 次元拡散となっているので、要素としては三角形要素を用いた。

内挿関数 N_i ($i = 1 \sim 3$) を次のように定義する。

$$C^{*e} = N_1 \cdot C_1^{*e} + N_2 \cdot C_2^{*e} + N_3 \cdot C_3^{*e} \quad 5-(27)$$

C^{*e} : 要素 e 内の任意の点での相対濃度

C_i^{*e} : 要素 e の接点 i での相対濃度

このとき、 N_i ($i = 1 \sim 3$) は次のように表される。

$$N_i = \frac{1}{2\Delta} (a_i + b_i \cdot x^* + c_i \cdot Z^*) \quad (i = 1 \sim 3) \quad 5-(28)$$

$$a_1 = x_2^* Z_3^* - x_3^* Z_2^*, \quad b_1 = Z_2^* - Z_3^*, \quad c_1 = x_2^* - x_3^*$$

$$a_2 = x_3^* Z_1^* - x_1^* Z_3^*, \quad b_2 = Z_3^* - Z_1^*, \quad c_2 = x_3^* - x_1^*$$

$$a_3 = x_1^* Z_2^* - Z_2^* x_1^*, \quad b_3 = Z_1^* - Z_2^*, \quad c_3 = x_1^* - x_2^*$$

Δ : 三角形要素 e の面積

このような内挿関数を用いて亀裂内についてと同様の操作をしてやれば、次の

ような式が得られる。

$$[KM] \cdot \begin{bmatrix} C'_{1 *e} \\ C'_{2 *e} \\ C'_{3 *e} \end{bmatrix} + [EM] \cdot \frac{d}{dt} \begin{bmatrix} C'_{1 *e} \\ C'_{2 *e} \\ C'_{3 *e} \end{bmatrix} = 0 \quad 5-(29)$$

ここで $[KM] = [KM1] + [KM2]$

$$[KM1] = \frac{Dv}{R' Lf V \infty \tau^2} \iint_e \left(\frac{d(N)^T}{dZ^*} \cdot \frac{d(N)}{dZ^*} + \frac{d(N)^T}{d\chi^*} \cdot \frac{d(N)}{d\chi^*} \right) d\chi^* dZ^*$$

$$= \frac{Dv}{R' Lf V \infty \tau^2} \cdot \frac{1}{4\Delta} \begin{bmatrix} b_1^2 + c_1^2 & b_1 b_2 + c_1 c_2 & b_1 b_3 + c_1 c_3 \\ \text{対称} & b_2^2 + c_2^2 & b_2 b_3 + c_2 c_3 \\ & & b_3^2 + c_3^2 \end{bmatrix}$$

$$[KM2] = \frac{Lf \cdot \lambda}{V \infty} \iint_e (N)^T (N) d\chi^* dZ^*$$

$$= \frac{Lf \cdot \lambda \cdot \Delta}{12 \cdot V \infty} \begin{bmatrix} 2 & 1 & 1 \\ 1 & 2 & 1 \\ 1 & 1 & 2 \end{bmatrix}$$

$$[EM] = \iint_e (N)^T (N) d\chi^* dZ^*$$

$$= \frac{\Delta}{12} \begin{bmatrix} 2 & 1 & 1 \\ 1 & 2 & 1 \\ 1 & 1 & 2 \end{bmatrix}$$

これらの式を導くに当たっては、次のような面積座標の積分公式を用いている。

$$\iint_{\Delta ABC} L_1^p L_2^q L_3^r d\chi dz = 2 \Delta \cdot \frac{p! q! r!}{(p+q+r+2)!}$$

L_1, L_2, L_3 : ΔABC の面積座標

p, q, r : 非負の整数

また、式5-(22)の第5項は次のように表せる。

$$-\frac{\varepsilon p \cdot Dv}{\tau^2 R b V_\infty} \cdot \frac{\partial c^*}{\partial \chi^*} \left| \chi^* = \frac{b}{Lf} \right.$$

要素e

1	χ^e_{11}	χ^e_{12}
2	χ^e_{12}	χ^e_{22}

$$= \frac{\Delta Z \varepsilon p Dv}{2b R \Delta \chi \tau^2} \begin{bmatrix} 1 & -1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & -1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \chi^e_{11} \\ \chi^e_{12} \\ \chi^e_{21} \\ \chi^e_{22} \end{bmatrix} \quad (上図参照) \quad 5-(30)$$

5-4-2 全体マトリックス

亀裂内、岩体内、そして亀裂から岩体へのフラックスのそれぞれを表すマトリックスが次のように作られた。

$$AF, BF : N \times N$$

$$AM, BM : M \times M$$

$$G : N \times M$$

(Gは5-4-1の最後で述べた亀裂から岩体への拡散を表すマトリックス)

ここに N : 亀裂内接点数, M : 岩体内接点数

このようなマトリックスを次のように配置し、全体マトリックスを作った。

$$A = \left[\begin{array}{c|c} AF & G \\ \hline O & AM \end{array} \right], \quad B = \left[\begin{array}{c|c} BF & O \\ \hline O & BM \end{array} \right]$$

5-4-3 境界条件

5-4-2で作った全体マトリックス：Aに Fig. 5-(2)に示すような境界条件を導入する。

方程式5-(6), 5-(7)では, 無限遠で相対濃度が0になるという境界条件があるが, 数値解法を用いる場合, これを何らかの方法で近似しなくてはならない。そのため本研究では, 着目点よりも十分に遠い点における濃度を0とする境界条件をおいた。(着目点を Source から10mあるいは100 mとしたので, 亀裂の長さ1000mとし, そこで0となるようにした。)

5-4-4 有限要素への分割

岩体内でのx方向の分割は1 mm, 3 mm, 5 mm, 1 cm, 3 cm……という規則性をもたせ5 mまで12個のメッシュを切った。

またZ方向へは

$$Z = (\beta - 1) \cdot \beta^{\gamma} \quad (\gamma = 1 \sim 19)$$

という規則をもたせ19個のメッシュに切った。

本研究では亀裂を 1000 mとしたので

$$(\beta - 1) \beta^{19} = 1000$$

より, $\beta = 1.41$ とした。

等メッシュにせず, このようなメッシュにしたのは, 吸着項の存在により濃度プロファイルにおいて, 急激な落ちこみが考えられるからである。

理想的には, 急激な濃度減少の起こる地点付近では常に非常に細かいメッシュとなっていることが望まれる。

5-5 解析方法

実験により認められた非均質性の影響を調べるために本研究ではまず次のような方法を用いた。

まず対象核種を ^{234}U とし、参考文献(21)等を参考として方程式の中の各パラメータに相当と思われる範囲を定めた。その後、ある1つのパラメータのみを、その範囲内で変化させ、数ケースについて計算を実行する。その結果から、そのパラメータが濃度にいかなる影響を与えるかを、均質モデルと非均質モデルを比較することにより考察した。

また、実際の計算では亀裂長を1000 mとし、Source から 10 m、または100mの点でのそれぞれ1万年後、5万年後の相対濃度に注目した。計算によってその影響を調べたパラメータは V_{∞} 、 b 、 K_m 、 ϵ_p 、 Pe の5個で、それぞれについて次のような範囲を与えた。

$$V_{\infty} : 5 \sim 20 \quad (\text{m/ year})$$

$$b : 5.0 \times 10^{-4} \sim 5.0 \times 10^{-2} \quad (\text{m})$$

$$K_m : 5.0 \times 10^{-3} \sim 5.0 \times 10^0 \quad (\text{m}^3 / \text{kg})$$

$$\epsilon_p : 1.0 \times 10^{-4} \sim 1.0 \times 10^{-1}$$

$$Pe : 1.0 \times 10^2 \sim 1.0 \times 10^4$$

また非均質モデルで計算する際は、HTO拡散実験、抵抗測定実験のそれぞれから求めた $1/\xi$ のうち、抵抗測定より得た $1/\xi = 463.5$ ($1/\text{m}$)を用いた。これは、より安全側の評価を目ざすためである。

5-6. 解析結果

5-6-1 濃度分布の違い

均質、非均質の2つのモデルについて、亀裂内、岩体内での濃度分布を求めた。

この時、用いたパラメータは以下に示す通りである。

$$V_{\infty} = 20.0 \quad (\text{m/year})$$

$$R = 3.0E + 4$$

$$K_m = 5.0E - 2 \quad (\text{m}^3 / \text{kg})$$

$$\epsilon_p = 0.01$$

$$b = 5.0E - 3 \quad (\text{m})$$

$$P_e = 5.0E + 3$$

これらの値を用い、1万年後の亀裂内及び岩体内の $Z = 0.0$ (m) 上の濃度分布を計算した結果を、Fig. 5-(3)、Fig. 5-(4)に示す。

Fig. 5-(4)をみると、非均質モデルでは岩体内に入りこむ核種の量が均質モデルにくらべ、非常に小さいことがわかる。

ところで均質な場合には、偏微分方程式中の R' に値を与え、それを用いて計算すればよいが、非均質の場合は ϵ_p が定数として取り扱えなくなるので、 R' を用いることはできない。そこで前述したように今後は R' ではなく、 K_m を用いて評価をすることにした。

5-6-2 亀裂幅の影響—その1

亀裂幅を $5.0 \times 10^{-4} \text{m} \sim 5.0 \times 10^{-2} \text{m}$ で変化させ、2つのモデルについて1万年後の処分場から10mの点での亀裂内相対濃度を計算した。またこのとき他のパラメータには5-6-1の値を与えておいた。その結果を Fig. 5-(5)に示す。

これをみると $b = 5.0 \times 10^{-2} \text{ [m]}$ のときは2つのモデル間の濃度比は1.03で2つのモデルではほとんど差がないが、 b が小さくなるとともにモデル間に差が生じ、 $5.0 \times 10^{-4} \text{ [m]}$ では比が13.4にまで達することがわかる。

このことから、亀裂幅を小さく見積もって安全評価を行う場合には、非均質性に注意を払うべきである。

5-6-3 流速の影響

流速 V_{∞} を5~20 (m/yr)で変化させ、2つのモデルについてそれぞれ相対濃度を計算した。その結果を Fig. 5-(6)に示す。これをみると、流速をこの範囲で変えても2つのモデルにおける濃度比は1程度の小さな値であり、非均質性の影響の大小に対する流速の寄与は、 V_{∞} がこの範囲であればそれほど大きくないといえる。

5-6-4 岩体中の分配係数： K_m の影響

K_m の影響を調べた計算の結果を Fig. 5-(7)に示す。これをみると K_m が小

さい間は2つのモデル間の濃度比は1程度だが、 $K_m = 5.0$ (m^3/Kg) まで大きくなると、濃度比も 2.01 となっている。このことから、 K_m の寄与も、亀裂幅ほどではないが大きいといえよう。

5-6-5 空隙率の影響

2つのモデルを用いた同様の計算結果を Fig. 5-(8)に示す。 ϵ_p が大きくなるに従って2つのモデル間の濃度比が大きくなる傾向はあるようである。しかし、 ϵ_p が0.1となるのはかなり非現実的であろうから、花崗岩のような結晶質の岩体中では ϵ_p の寄与はそれほど大きくないということができよう。(ここでいう ϵ_p の値は一般的に用いられている ϵ_p の値である。)

5-6-6 Pe の影響

本研究では V_∞ , D_v , L_f に値を与えるので、 Pe は dispersivity : α を反映したものとなる。

2つのモデルについて行った計算結果を Fig. 5-(9)に示す。これをみると Pe の増加に伴って非均質性の影響が大きくなるという傾向が認められる。しかし、2つのモデル間の比の最大値が 1.04 であるということから、 Pe がこの範囲であれば、非均質性の影響に対する Pe の寄与は小さいといえることができる。

5-6-7 亀裂幅の影響—その2

5-6-2~6の結果から、処分場から10mの点での一万年後の濃度を指標と

して用いると、亀裂幅の寄与が最も大きい。

そこで亀裂幅の影響を、処分場からもっと離れた地点（100m）での5万年後の濃度を指標として調べてみた。

その結果を Fig. 5-10)に示す。これをみると、 b が小さいほど非均質性の影響が大きいという対応関係は変わっていない。またこの場合の方が $b = 5.0E-4$ [m]のときのモデル間の濃度比が大きくなっていることがわかる。

以上の計算から、次のような場合に、安全評価の際非均質性に注意しなくてはならない。

(1) 亀裂幅が小さい場合。

(2) 岩体中の分配係数 K_m が大きい場合。

特に(1)は重要であり、安全評価の際には、亀裂幅についてよく調べる必要がある。

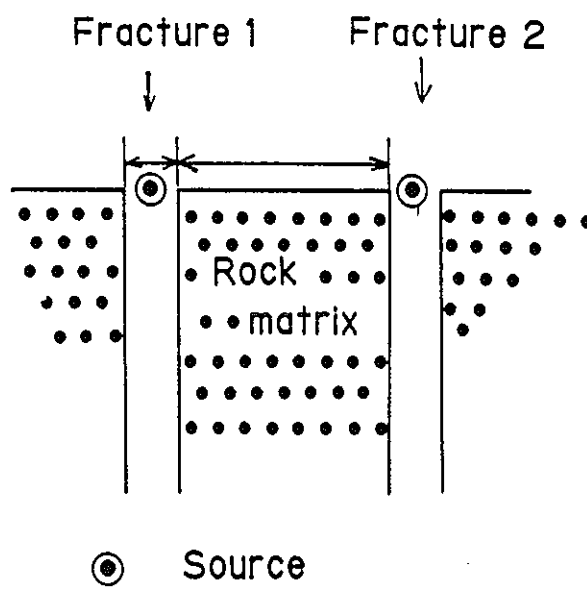
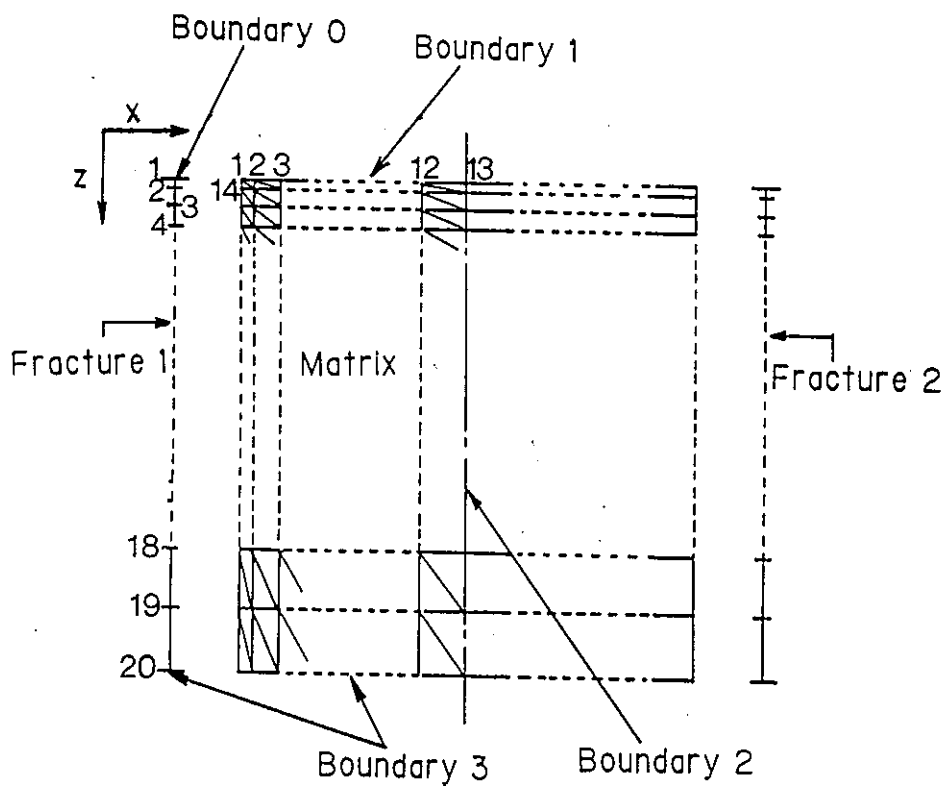


Fig.5-(1) Fracture - Matrix system



Boundary 0	Concentration=1.0
1	Flux=0.0
2	Flux=0.0
3	Concentration=0.0

Fig.5-(2) Finite elements for numerical analysis

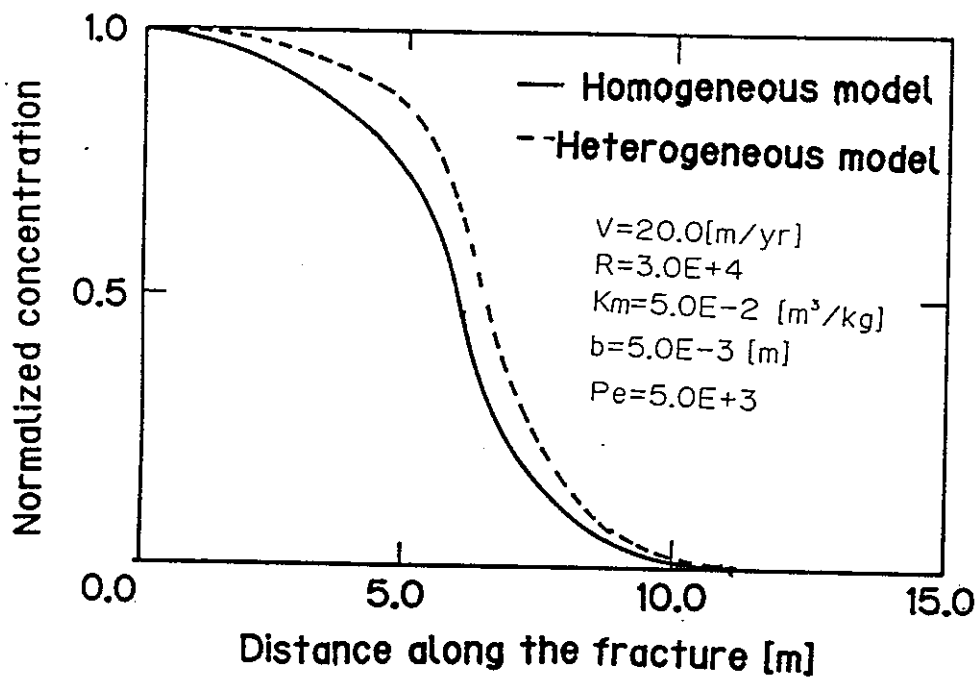


Fig.5-(3) Concentration profile in the fracture

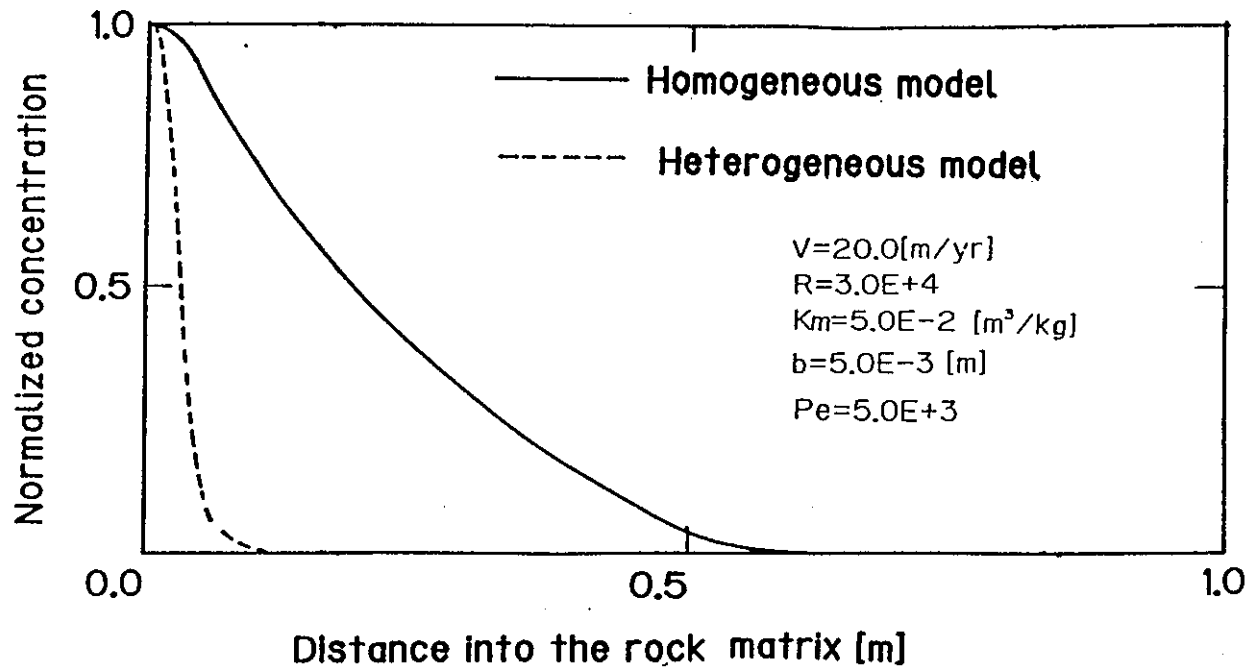


Fig.5-(4) Concentration profile in the rock matrix (at Z=0.0)

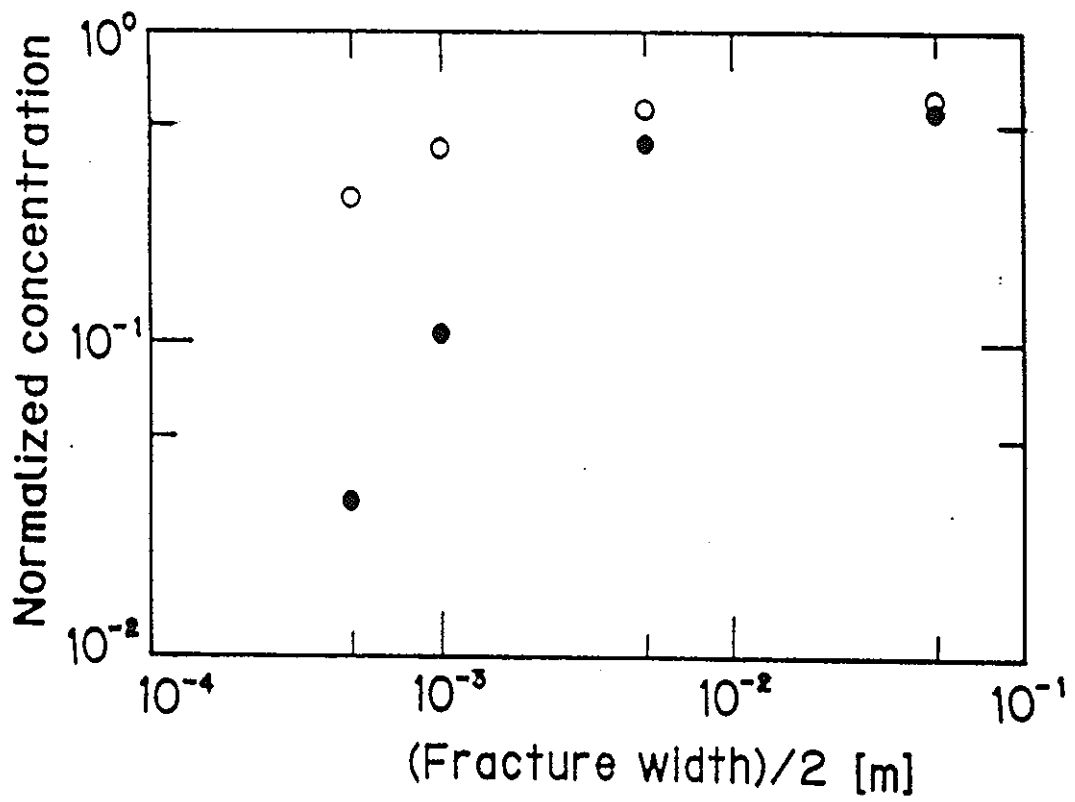


Fig.5-(5) Dependence of fracture width
on normalized concentration

● Homogeneous model

○ Heterogeneous model

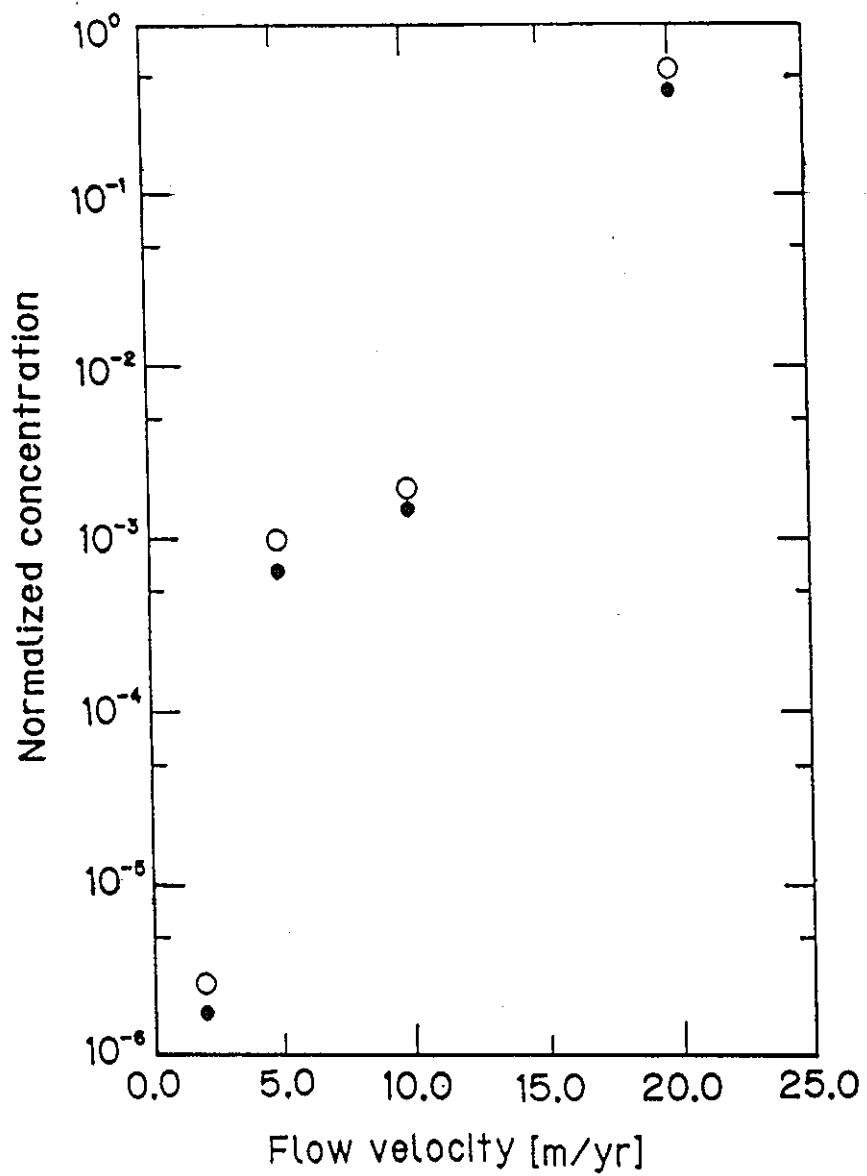


Fig.5-(6) Dependence of flow velocity
on normalized concentration

- Homogeneous model
- Heterogeneous model

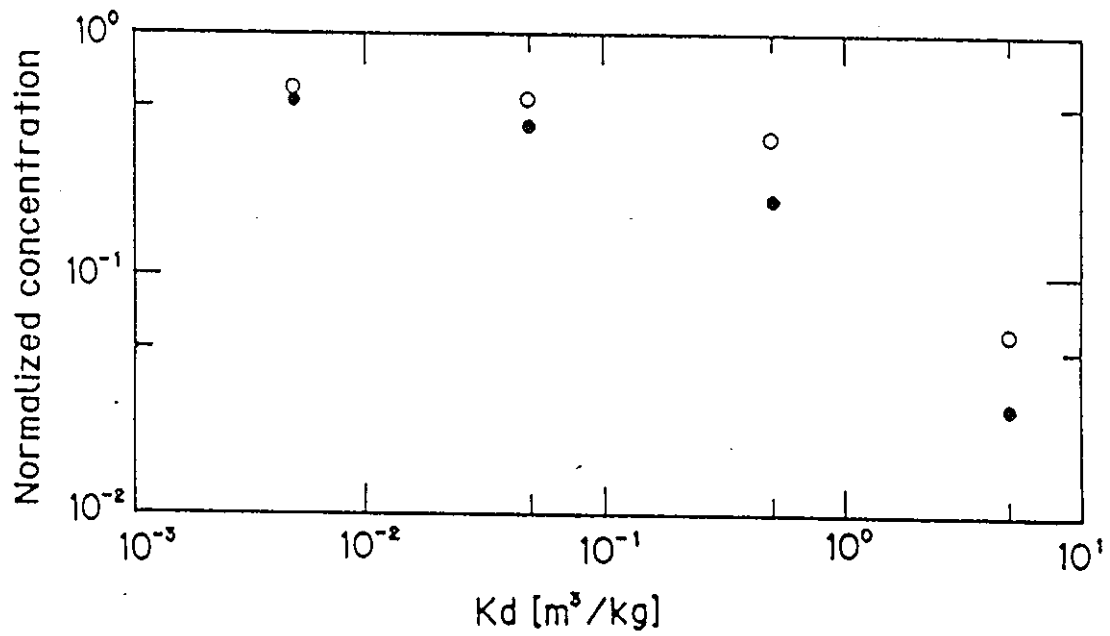


Fig.5-(7) Dependence of Kd

on normalized concentration

- Homogeneous model.
- Heterogeneous model

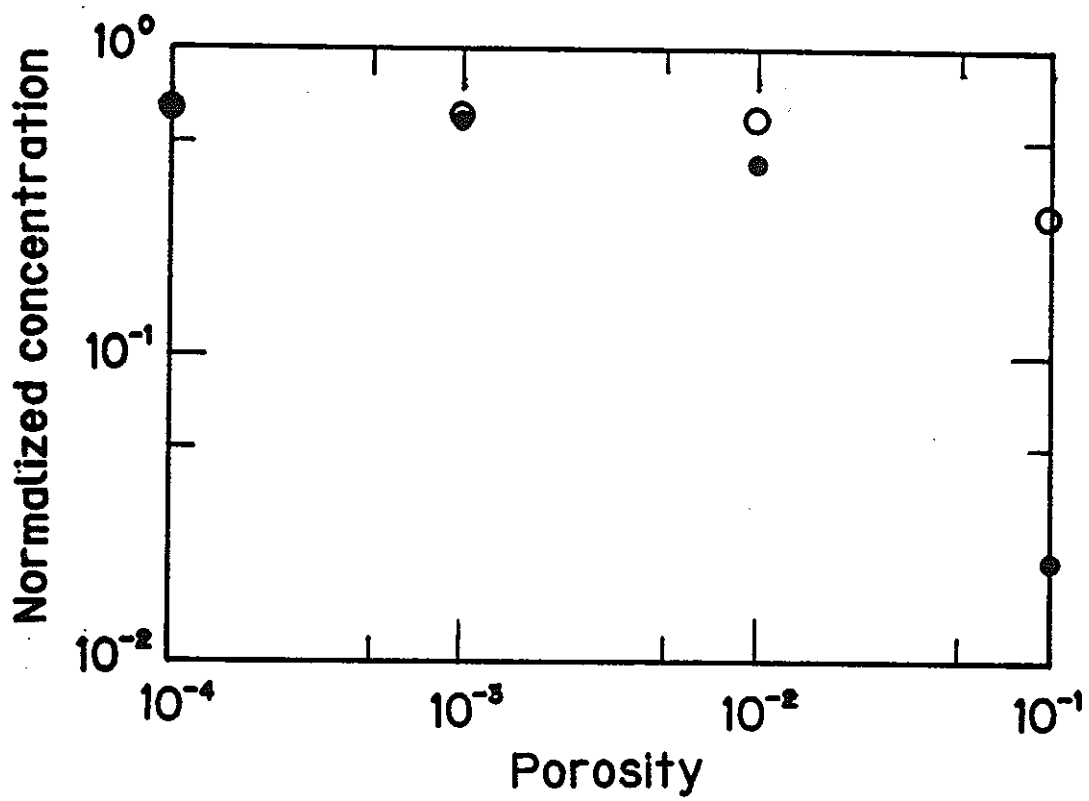


Fig.5-(8) Dependence of porosity
on Normalized concentration

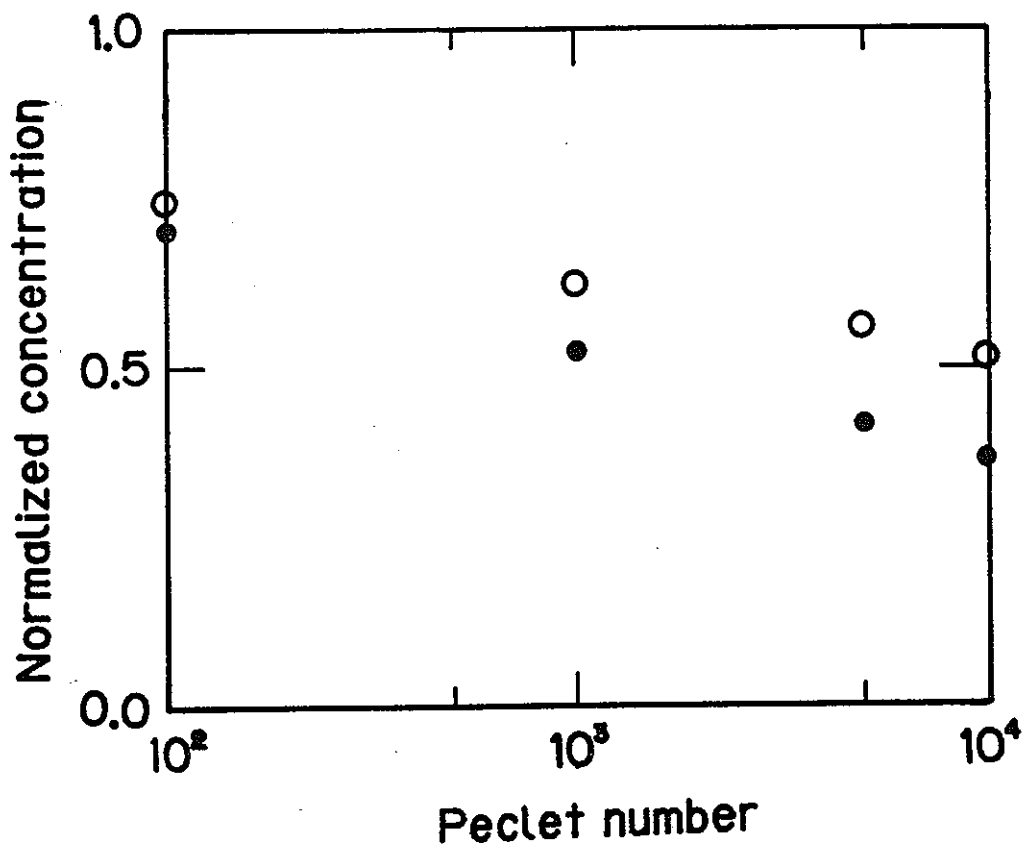


Fig. 5-(9) Dependence of Pe
on Normalized concentration.

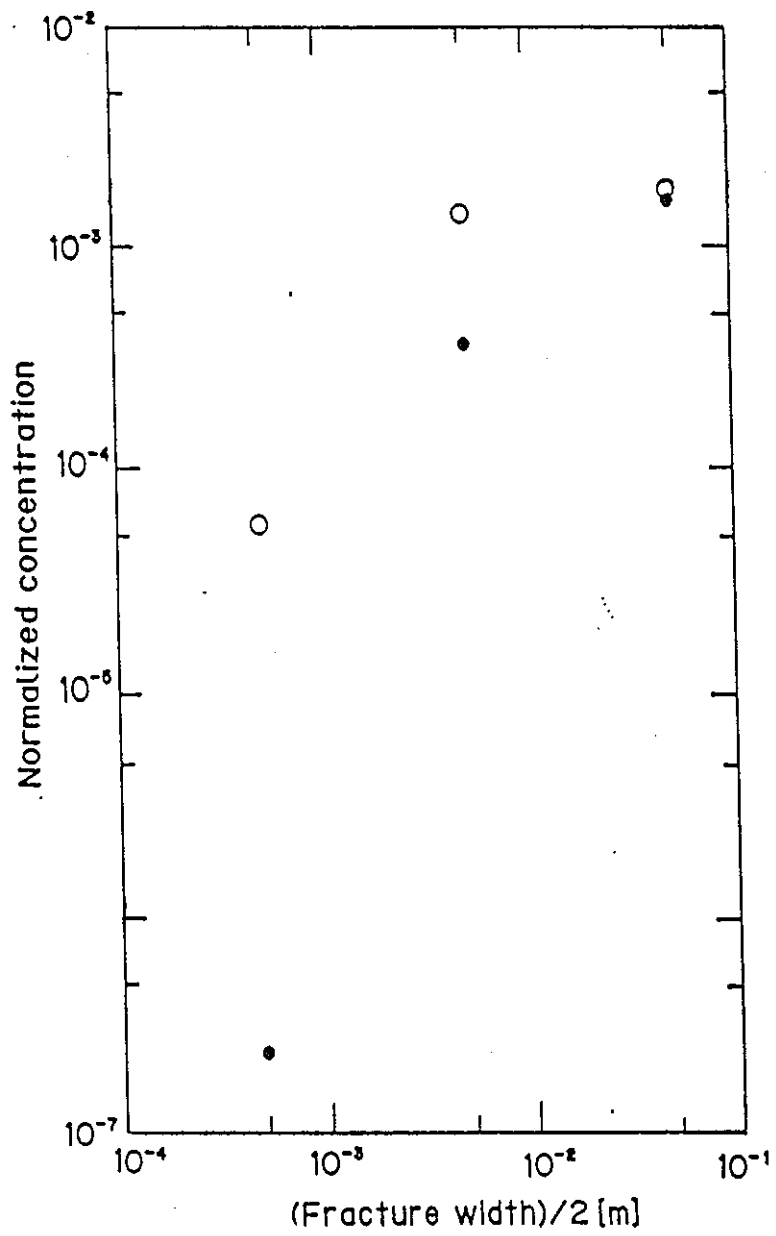


Fig.5-(10) Dependence of fracture width
on normalized concentration

- Homogeneous model
- Heterogeneous model

第 6 章

結 論

以上の結論として、

- (1) 厚さの異なる花崗岩資料を用いて、空隙内核種移動に関する実験を行ったところ、岩体を必ずしも均質媒体をして取り扱うことのできない結果が得られた。

そこで、空隙に厚さ方向の平均長： ξ を考えるモデルを導入した。このモデルによると、核種の移動量は $\exp(-1/\xi \cdot \ell)$ に比例して減少する。

このモデルを実験結果に適用すると $1/\xi = 112.4 \sim 463.5$ (1/m) という値が得られた。

- (2) 次にこのモデルを安全評価に適用した。

処分場から10mの点での1万年後の濃度を均質、非均質の2つのモデルで計算したところ、次のような結論が得られた。

- 1) 亀裂幅 b を $b = 5.0 \times 10^{-4}$ (m) まで小さくすると、非均質モデルを用いた場合の相対濃度は、均質モデルで計算した場合の 13.4 倍になる。また、処分場から 100mの点の 5 万年後の濃度を比較すると 400 倍近い値となる。
- 2) 岩体中の分配係数が 5.0×10^{-4} まで大きくなると 2つのモデル間の濃度の比が 2.01 となる。

以上のことから、安全評価において亀裂幅を小さく、また K_m を大きく見積もる場合には非均質性を十分考慮しなくてはいけないことがわかった。

参 考 文 献

- (1) I. Neretnieks, "Diffusion in the Rock Matrix, an Important Factor in Radionuclide Transport," *J. Geophys. Res.*, 85, 4379 (1980)
- (2) 鈴木 篤之他、"高レベル廃液ガラス固化体の熱水反応条件下における安全性に関する研究、" 昭和59年度研究成果報告書、PNC SJ 160 85-05 (1985)
- (3) K. Skagius and I. Neretnieks, "Diffusion in Crystalline Rocks of Some Sorbing and Non-Sorbing Species," *KBS TR 82-12* (1982)
- (4) K. Skagius and I. Neretnieks, "Diffusion Measurements in Crystalline Rocks," *KBS TR 83-15* (1983)
- (5) M. H. Bradbury, D. Lever and D. Kinsey, "Aqueous Phase Diffusion in Crystalline Rock," *Sci. Basis for Nucl. Waste Management*, V, 569 (1982)
- (6) L. Birgersson and I. Neretnieks, "Diffusion in the Matrix of Granitic Rock. Field Test in the Stripa Mine," *Sci. Basis for Nucl. Waste Management*, V, 519 (1982)
- (7) K. Skagius and I. Neretnieks, "Diffusion in Crystalline Rocks," *Sci. Basis for Nucl. Waste Management*, V, 509 (1982)
- (8) B. Torstenfelt, T. Eliasson, B. Allard, K. Andersson, S. Hoglund, T. Ittner and U. Olofsson, "Radio-Nuclide Migration into Natural Fracture Surfaces of Granitic Rock," *Sci. Basis for Nucl. Waste Management*, VII, 247 (1984)
- (9) L. J. Klinkenberg, "Analogy between Diffusion and Electrical Conductivity in Porous Rocks," *Bull. Geolog. Soc. America*, 62, 559 (1951)
- (10) G. E. Archie, "The Electrical Resistivity Log as an Aid in Determining

- Some Reservoir Characteristics," *Petroleum Technol.*, 1422 (1942)
- (11) W. F. Brace, J. B. Walsh and W. T. Frangos, "Permeability of Granite under High Pressure," *J. Geophys. Res.*, 73, 6, 2225 (1968)
- (12) W. F. Brace, "Permeability from Resistivity and Pore Shape," *J. Geophys. Res.*, 82, 23, 3343 (1977)
- (13) W. F. Brace, A. S. Orange and T. R. Madden, "The Effect of Pressure on the Electrical Resistivity of Water-Saturated Crystalline Rocks," *J. Geophys. Res.*, 70, 22, 5669 (1974)
- (14) T. J. Shankland and H. S. Waff, "Conductivity of Fluid-Bearing Rocks," *J. Geophys. Res.*, 79, 32, 4863 (1974)
- (15) R. M. Garrels, R. M. Dreyer and A. L. Howland, "Diffusion of Ions through Intergranular Spaces in Water-Saturated Rocks," *Bull. Geolog. Soc. America*, 60, 1809 (1949)
- (16) 藤代 享一他、"溶液の性質Ⅱ、" 東京化学同人 (1968)
- (17) 化学便覧、基礎編Ⅱ、日本化学会編、丸善 (1966)
- (18) D. H. Tang, E. O. Frind and E. A. Sudicky, "Contaminant Transport in Fractured Porous Media : Analytical Solution for a Single Fracture," *Water Resources Res.*, 17, 3, 555 (1981)
- (19) G. E. Grisak and J. F. Picketts, "Solute Transport through Fractured Media 1. The Effect of Matrix Diffusion," *Water Resources Res.*, 16, 4, 719 (1980)
- (20) 矢川 元基、"流れと熱伝導の有限要素法入門、" 培風館 (1983)
- (21) J. Ahn, A. Suzuki and R. Kiyose, "Numerical Analysis of Nuclide Migration through Fissured Geological Media," *Nucl. Technol.*, 64, 2, 154 (1984)