

地質媒体における物質移行特性の 評価手法について

張 銘¹⁾・竹田 幹郎¹⁾

1. はじめに

原子力の安全及び平和利用は政治政策, 経済産業, 社会倫理及び自然科学等多くの分野に関連し, 特に環境問題と持続的発展が重要視される今, 原子力発電所から排出される高レベル放射性廃棄物の安全処理・処分は関心の極めて高い社会問題となっている。

高レベル放射性廃棄物の処理・処分に関する議論は, 1950年代からアメリカで開始され(たとえば, National Research Council, 1957), 1970年代後半以降欧米の主要先進諸国において本格的な研究が展開されてきている(OECD/NEA, 1984; 1995; 1999; 2000a)。これら研究を重ねた結果, 高レベル放射性廃棄物を安全に処分するための最も有力な方策として考えられているのは多重バリアシステムに基づく“地層処分”であり(OECD/NEA, 1984), 日本でもこの方式を採用することになっている(法律第百十七号: 特定放射性廃棄物の最終処分に関する法律)。この“地層処分”の基本概念は, 放射性廃棄物を地下数百メートルの安定地層に建設される処分場において, 再び地表に取り出す意志なしに永久に収納し, 人間による管理から外した状態におくことをいう。すなわち, 地層で構成される天然バリアに固化体, 容器, 施設等の人工的に造る人工バリアを加えた多重バリアにより, 放射性廃棄物を生活圏から隔離するものである(原子力安全委員会, 2004)。

放射性廃棄物の地層処分を安全に実施及び評価するためには, 数多くの特徴・事象・プロセスを考慮しなければならないが(OECD/NEA, 2000b), 地球科学分野における重要課題は, 主に変動シナ

リオ及び地下水移行シナリオに基づく天然バリアの長期的安定性, もしくは長期的隔離性能の評価に分けることが可能である(鹿園, 1995)。

本稿では, 地下水シナリオ, すなわち地層における物質移行理論に基づく高レベル放射性廃棄物地層処分施設の長期的安全性評価という観点から, 地層水理と移動現象の基礎理論, 地層水理特性の変遷要因, 透水特性の測定・評価手法及び拡散・吸着特性の測定・評価手法等について室内試験の概念と理論を中心に現状概観を行い, 今後の研究展開に関する筆者らの私見を述べさせていただきます。

2. 地層水理と移動現象の基礎理論

一般に, 地質媒体もしくは地層における物質の移行は移流, 分散, 吸着及び化学平衡等の現象に支配され, 放射性核種の移行でも, 基本的に同じ考えの基で評価を行うことが可能である。本章ではこれら現象を評価するための基礎理論について概説を行う。

2.1 浸透流

1856年, ダルシー(Darcy)は砂層中を動く地下水について, 次式のような実験式をたてた。

$$Q = KA \frac{\Delta H}{L} = KAi \quad (1)$$

ここで, Q は砂を入れた管内における水の流入・流出量; A は管の断面積; K は透水係数; ΔH は水頭差; L は砂柱の長さ; i は動水勾配。

その後, この式は通常の設定水位法の解析理論と

1) 産総研 深部地質環境研究センター

キーワード: 地質媒体, 物質移行, 廃棄物処分, 透水試験, 拡散試験

して用いられてきている。その際、 Q は定常状態の流量； A と L はそれぞれ試験体の断面積と長さとなる。また、変水位法の場合でも、各微小計測時間の間隔にダルシー則が成り立つと仮定することで変水位透水試験の式も立てられる。

流量(Q)と動水勾配(i)が線形関係にあると仮定するダルシー則は層流のときのみ成り立つが、実際の流れは動水勾配が大きくなるにつれ層流から乱流へ遷移し、 Q は \sqrt{i} に比例するようになる。この遷移状態を表す基準は流体の平均間隙流速、有効間隙直径及び流体の動粘性係数により定義されるレイノルズ(Reynolds)数が指標となるが、実際に有効間隙直径の計算などは比較的複雑であるため、レイノルズ数の正確な評価は難しいと思われる。逆に、粘土や泥岩のような細かい粒径の場合には、ダルシー則が成り立つ下限の流速があると言われている。したがって流れの状態としては、ある動水勾配以下では、水が流れない、ダルシー則より速い流速が生じる、ダルシー則より遅い流速が生じるという3つのパターンが考えられるが、詳細は関連文献(たとえば、地盤工学会, 1999)を参照されたい。

飽和状態における水流の一次元連続式は

$$S_s \frac{\partial H}{\partial t} = - \frac{\partial Q}{\partial z} \quad (2)$$

である。ここに、 S_s は比貯留率； H は水頭； z は水の流入端面からの距離； t は時間である。

ダルシー則と上記の連続式より、また、 z を流出端面からの距離に変換すれば、次式(3)で表される飽和浸透流の一次元基礎方程式が求められる。

$$\frac{\partial^2 H}{\partial z^2} - \frac{S_s}{K} \frac{\partial H}{\partial t} = 0 \quad (3)$$

この基礎方程式とそれぞれの透水試験における試験体の初期及び境界条件を用い、各種室内透水試験の厳密解を導くことが可能であり、詳細は4章で紹介する。

2.2 拡散と吸着

式(4)に多孔質媒体中における x 軸方向への放射性物質の拡散と吸着の一次元方程式を示す(Moridis, 1998)：

$$\begin{aligned} & D_m \frac{\partial^2 C_m}{\partial x^2} + D_i \frac{\partial^2 C_i}{\partial x^2} + \phi D_F \frac{\partial^2 F}{\partial x^2} \\ &= \phi_c \frac{\partial C_m}{\partial t} + (\phi - \phi_c) \frac{\partial C_i}{\partial t} + (1 - \phi) \rho \frac{\partial F}{\partial t} \\ &+ \phi_c \lambda C_m + (\phi - \phi_c) \lambda C_i + (1 - \phi) \rho \lambda F \quad (4) \end{aligned}$$

ここで、 C_m は自由間隙水中の物質濃度； D_m は自由間隙水中での固有拡散係数(intrinsic diffusion coefficient)； C_i は結合水中の物質濃度； D_i は結合水中での固有拡散係数； F は吸着物質の相対濃度(粒子表面に存在する物質の粒子単位質量当たりの質量で表される無次元濃度)； D_F は見かけ表面拡散係数； ρ は粒子密度； ϕ は媒体の全間隙率； ϕ_c は有効間隙率； $\lambda = \ln(2)/T_{1/2} = 0.693/T_{1/2}$ は放射性物質の壊変もしくは崩壊定数； $T_{1/2}$ は放射性物質の半減期； x は拡散源からの距離である。

式(4)左辺の3項はそれぞれ自由間隙水中での拡散、粒子表面の結合水中での拡散及び表面拡散を記述し(Skagius and Neretnieks, 1986a ; Skagius and Neretnieks, 1986b ; de Marsily, 1986)、右辺の第1項と4項、第2項と5項、第3項と6項はそれぞれ物質の自由間隙水中での溶解と壊変による減衰、結合間隙水中での溶解と減衰及び鉱物粒子表面での吸着と減衰を記述する(de Marsily, 1986)。

室内拡散試験において用いられる試験物質が自然減衰しない、あるいは半減期が試験に要する期間と比べ十分長い場合は、式(4)右辺後半の3項は考慮しなくても良い。また、鉱物粒子表面での拡散と吸着を考慮しない場合、その関連項を式(4)より取り除くことが可能である。式(5)にフィックの第二法則(Fick's second law)と呼ばれる拡散方程式を示す：

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} \quad (5)$$

ここに、 C は物質の濃度であり、後述する D の定義により媒体全体が液相中の濃度となる。広義では、 D を拡散係数(diffusion coefficient)と呼ぶ。実際の観測または実験では、媒体全体における濃度分布とその時間的変化を調べることもあり、このようにして求められる拡散係数はみかけの拡散係数

(apparent diffusion coefficient, D_{app})と呼ばれる。後で示すように、みかけの拡散係数は間隙率や屈曲度などのパラメータを含んでおり、粒子表面の結合水中や鉱物粒子表面における拡散等も等価的に評価されることになる。一方、透過拡散試験 (through diffusion experiment) では、媒体の間隙を透過してくる溶液 (液相) 中の物質の濃度を測定するため、得られる拡散係数は実効もしくは有効拡散係数 (effective diffusion coefficient, D_e) と呼ばれる。この「実効」拡散係数は間隙率や物質の媒体への吸着効果を除去したことを意味し、「みかけの」拡散係数との間には次式 (6) に示すような相互関係が考えられている (Skagius and Neretnieks, 1986a)。

$$D_e = \alpha D_{app} \quad (6)$$

ここで、 α は保持因子 (rock capacity factor) と呼ばれ、岩石に保持される物質の量と定義される。このため、媒体に吸着しない物質であれば、岩石中に保持される物質の量は間隙水中に存在する物質のみであり、間隙率と同じ値をとるが、媒体に吸着する物質であれば、間隙率に吸着量を加えたものとなる (Skagius and Neretnieks, 1986a)。

$$\alpha = \phi + \rho R_d \quad (7)$$

R_d は物質の岩石と水への分配比 (distribution or partition coefficient) であり、吸着係数 (sorption coefficient) とも呼ばれる。また、「みかけの」拡散係数 (D_{app}) と粒子を含まない純水中での物質の拡散係数 (D_0) の関係は屈曲度 (tortuosity or tortuosity factor, τ) を用い次式のように考えられている。

$$D_{app} = \tau \cdot D_0 \quad (8)$$

一般に屈曲度 (τ) は、次式 (9) に示すように、直線距離 (L) と実際の拡散経路の長さ (L_e) の比の二乗で定義され、1 より小さい値をとる。

$$\tau = (L / L_e)^2 \quad (9)$$

なお、屈曲度は上記の距離比の逆数 (L_e / L) で定義されるケースもあり、式 (8) に対応した変換も必要となる (たとえば、中嶋, 1995 ; Bear 1972)。

式 (5) で表す拡散方程式を各種室内拡散試験の初期及び境界条件と連立することによって、各種室内拡散試験の理論解を導くことが可能であるが、詳

細は第5章に示す。なお、式 (5) のほかに、濃度や拡散係数の定義及び吸着の有無などの違いによって、形式が異なる複数のフィックの第二法則が存在することに留意されたい (Shackelford and Daniel, 1991a, b)。

2.3 移流分散

地下水流 (浸透流) 中の溶存物質 (溶質) の移動は、水の圧力勾配による移流、水流の乱れ (乱流や渦) による物理的分散、溶質の濃度勾配による拡散及び化学反応等の現象に依存する。式 (10) に移流分散現象を表す次元方程式を示す。

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \frac{D_h}{R} \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} - \frac{v_s}{R} \frac{\partial c}{\partial x} \quad (10)$$

式中 c は液相中の物質濃度； D_h は水力学的分散 (hydrodynamic dispersion) 係数； v_s は地下水の実流速； R は遅延係数である。

水力学的分散は機械的分散 (mechanical dispersion, $\alpha_s v_s$) とマクロな分子拡散 (diffusion dispersion, D_e) の和であり次式により定義される。

$$D_h = D_e + \alpha_s v_s \quad (11)$$

ここで、 α_s は分散定数である。地下水の実流速は透水係数と動水勾配で決定されるダルシー流速を有効間隙率で除した値をとる。また、遅延係数 (R) は式 (12) に示すように、粒子密度 (ρ)、空隙率 (ϕ) 及び吸着係数 (R_d) により決定される。

$$R = 1 + \frac{1 - \phi}{\phi} \rho R_d \quad (12)$$

空隙率及び粒子密度は比較的容易に測定されるが、吸着係数は地層の構成鉱物や共存イオン、pH、温度及び対象とする溶質によって異なるので、移流分散解析においては非常に重要なパラメータであると考えられる。吸着もしくは化学反応が生じない場合では遅延係数が1の値をとり、式 (10) は以下のように簡略化される。

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D_h \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} - v_s \frac{\partial c}{\partial x} \quad (13)$$

自然状態の地層においては動水勾配が比較的小さく、特に、廃棄物地層処分に望まれる難透水

性地層においては水流の乱れによる機械的分散が顕著でないと考えられる。この場合、式(11)中の機械的分散を表す項は消去され、式(10)で示される移流分散方程式は実質的に移流拡散方程式となる。また、節5.2に示すように、式(10)は室内関連拡散試験の基礎方程式としても用いられる。

2.4 化学反応

地層水中の化学反応は大きく3つに分類される。第1は鉱物粒子表面での反応である。これは、鉱物粒子と間隙中の溶液との間の反応であり、吸脱着反応とイオン交換反応がある。例えば、式(4)右辺の第3項はこの反応を表している。第2は一様反応と呼ばれ、液相中で生じる反応であり、酸化・還元反応や錯体形成反応がある。第3は非一様反応と呼ばれ、溶解・沈殿反応のように固相と液相の間に物質輸送を伴う反応である。これらの化学反応に要する時間が物質移行に要する時間より短い場合には平衡モデル、長い場合には非平衡モデルが適用される(Bahr and Rubin, 1987; 竹野, 1995)。

化学反応を伴う吸着現象は地層の遅延効果を考慮する上で非常に重要な要素であり、また、これまでに平衡、非平衡、線形、非線形を組み合わせた種々の吸着モデルが提案されているが、これらの詳細については関連文献を参照されたい(Marczewsk, 2002)。

2.5 核種の崩壊

式(4)の右辺の後半3項に示すように、核種の崩壊による物質の減少量は物質濃度と崩壊定数の積となり、液相に溶解している物質と固相に吸着される物質の両方に起こる。

一般的に、化学物質の崩壊でその物質の濃度は減少していく傾向にあるが、放射性核種の場合では崩壊連鎖が生じる。すなわち、親核種の崩壊で親核種自身の濃度は減少するが、娘核種の濃度は増加傾向になる。

2.6 核種移行の概念モデル

以上の検討より、ある核種、 i を対象とした一次元移行評価を行う際に、次式(14)に示す概念モデルが適用される。

$$\frac{\partial c_i}{\partial t} = -v_s \frac{\partial c_i}{\partial x} + D_{hi} \frac{\partial^2 c_i}{\partial x^2} - \lambda_i c_i + \lambda_{i-1} c_{i-1} \pm R_i \quad (14)$$

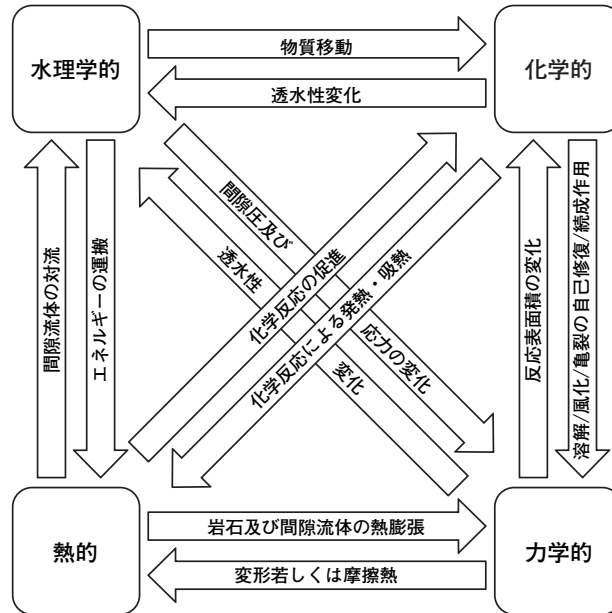
ここで、式の左辺は地下水中の対象核種 i の濃度変化率；右辺第1項は移流による変化；第2項は分散による変化；第3項は i 核種の崩壊による濃度低下；第4項は i 核種の親核種の崩壊による濃度増加；第5項は化学反応による濃度変化であり、濃度増加(例えば、溶解等)の場合には正の符号、濃度低下(例えば、沈殿等)の場合には負の符号をとる。

3. 地層水理特性の変遷要因

上述の概念モデルを核種移行の評価に適用するためには、式(14)の右辺各項の計算に対応した物性値が必要となる。移流については地下水の実流速を支配する地層の透水係数、動水勾配及び有効間隙率；分散については対象核種の分散係数；核種の崩壊については定数となる半減期；化学反応については反応の種類と速度等を支配する鉱物及び地下水の組成等(鉱物種類や共存イオン、pHなど)があげられる。高レベル放射性廃棄物地層処分施設の長期的安全性もしくは性能評価を行う際には、さらにこれら物性の変動要因も考慮する必要もある。これは10万年にも及ぶ長期間の間に、地層における熱的、力学的及び化学的な変化が地層の水理学的特性と影響しあうことが考えられるためである(第1図)。以下これら要素間の相互影響について簡略に説明を行う。

地層における化学的变化はその水理学的特性を変化させ、逆に地下水の流動に伴う物質の移行は連鎖的に化学反応を引き起こすこともある。例えば、鉱物の沈殿・結晶化は岩盤の空隙に生成鉱物を充填し、透水性を低下させ、天然バリアとしての隔離性能を向上させることになるが、地下水の流動は化学平衡を崩し、これに誘発された鉱物の溶解は逆に岩盤の空隙率を増加させ、沈殿と相反の効果が生じることになる。

地層の力学的特性変化、もしくは地層の変形は地層の透水性を変化させ、逆に地下水の存在と流動は間隙水圧及び有効応力の変化を引き起こし、地層の力学的特性に影響を与える。例えば、地層



第1図 熱力学的、力学的及び化学的な変化が地層の水理学的特性に及ぼす影響。

の圧縮、圧密は地層の空隙率を減少させ、透水係数の低下や、場合によっては異常水圧も引き起こす。逆に、地層変形に伴うダイラタンシーや岩盤の破壊は地層の透水性を増加させ、場合によっては流体の流れ道となる亀裂や断層なども生じさせる。

地層における熱的变化は間隙流体（地下水）の対流などを引き起こし、水理学的特性に影響を与える。逆に、地下水の流動に伴うエネルギーの伝播は地層中の温度勾配を変化させ、地層の熱的特性に影響を与える。

以上、地層の水理学的特性に対する化学的、力学的及び熱的特性の直接な影響について簡略に説明し、代表的な影響事象を紹介したが、同様に、それぞれの特性間にも直接的あるいは間接的な相互作用がある。例えば、地下水の流動に伴う熱エネルギーの伝播は、前述の対流を引き起こすだけでなく、地層における温度勾配の変化により、化学反応にも影響を及ぼす。また、岩盤や間隙流体の熱膨張によって岩盤の力学的特性も変化する。これらの化学反応への影響と地層の力学的特性の変化は最終的に地層の透水性を変化させ、水理学的特性に影響を及ぼすことになる。

このように、地層中の物質移動を支配する水理学的特性は多くの要因に影響を受ける。高レベル

放射性廃棄物地層処分施設の長期的安全性を評価するためには、様々な変化要因を考慮した信頼性の高い水理学的物性データを蓄積していく必要があると考えられる。次章では、室内における岩石試験体の水理学的物性値を取得するための透水試験について概説を行う。

4. 室内透水試験

透水係数を直接的に計測する室内透水試験法として主に定水位法、変水位法（土質工学会，1980）、フローポンプ法とも呼ばれる定微流量法（Olsen 1966）及びトランジェントパルス法（Brace *et al.*, 1968）がある。そのほか、遠心力透水試験法（Nimmo and Mello, 1991）及び間隙水圧振動法（Kranz *et al.*, 1990）等も提案されているが、未だ一般的な手法として用いられていない。一般的に、定水位法は比較的高い透水係数の試験体（ $10^{-2} \sim 10^{-3}$ cm/s）、変水位透水試験は比較的低い透水係数の試験体（ $10^{-3} \sim 10^{-6}$ cm/s）に用いられる（土質工学会，1980）。試験方法が簡単であるため、実際に定水位法で 10^{-3} cm/s、変水位法で 10^{-9} cm/sまで計測したケースも多い。しかし、変水位法で 10^{-6} cm/sよりも小さい透水係数を計測する場合、水頭の低

第1表 各種室内透水試験の概念図, 初期条件, 境界条件.

試験法	定水位法	定微流量法	トランジェントパルス法
概念図			
初期条件	$H(z,0)=0$	$H(z,0)=0$	$H(L,0)=H_0$ $H(z<L,0)=0$
境界条件	$H(0,t)=0$ $H(L,t)=\Delta H$	$H(0,t)=0$ $\frac{\partial H}{\partial z}(L,t)=\frac{1}{KA}(q-C_e \frac{\partial H}{\partial t}(L,t))$	$\frac{S_d}{KA} \frac{\partial H}{\partial t}(0,t) - \frac{\partial H}{\partial z}(0,t)=0$ $\frac{S_u}{KA} \frac{\partial H}{\partial t}(L,t) + \frac{\partial H}{\partial z}(L,t)=0$

ΔH = 水頭差; q = フローポンプからの一定流量; $Q(t)$ = 時刻 t における試験体への流入量; C_e = フローポンプ透水試験システムの圧縮貯留率; S_u, S_d = トランジェントパルス試験システムの上流及び下流側貯留槽の圧縮貯留率

下が小さいため、定水位法の式、すなわちDarcy式で透水係数を求めることが殆どである。また、変水位法はトランジェントパルス法の特例としても考えられる(張ほか, 1998)。定微流量法及びトランジェントパルス法は低い透水係数 (10^{-8} cm/s以下)を計測でき、難透水性岩石に適した試験法である。ここでは、定水位法、定微流量法及びトランジェントパルス法の厳密解析理論について紹介する。

第1表に各種室内透水試験の概念、初期及び境界条件を示す。それぞれの透水試験の初期条件及び境界条件と式(3)で表されている飽和浸透流の一次元基礎方程式より、各種試験の水頭 H に関する厳密解を求めることができる(第2表)。それぞれの試験法の厳密解をさらに z に対して微分すれば、試験体中の動水勾配の分布も求められる(Zhang *et al.*, 1998; Esaki *et al.*, 1996; Hsieh *et al.*, 1981; Zhang *et al.*, 2000a)。比較のため、従来の簡易解も同表にまとめる(土質工学会, 1980; Olsen, 1966; Brace *et al.*, 1968)。

第2表に示す各種室内透水試験の厳密解を用い、筆者らは室内透水試験法に対する総合的な比

較・検討を行った(Zhang *et al.*, 2002)。その結果、以下に示す幾つかの結論が得られた。

- 1) 難透水性岩石の透水係数をより短時間で計測するためには、試験体の高さを適切に短くし、断面積を適切に大きくすることが有効である。
- 2) 透水試験の初期の非定常状態の測定結果とそれに対応した厳密解析理論を用いることによって、透水試験に必要な時間を大幅に短縮できるだけでなく、試験体の透水係数と比貯留率の両方を同時に算出することが可能となる。
- 3) 定微流量法は他の2つの透水試験法に比べ試験中に試験体内での動水勾配の変化が小さく、また、最大動水勾配の発生は人為的に制御できる点において優位性を持つ。
- 4) トランジェントパルス透水試験に必要な時間は他の2つの透水試験に比べ短い(1/3~1/4程度)、貯留槽の圧縮貯留率は透水試験と同じ条件下で、実験的もしくは透水試験より直接的に求める必要がある。純水の圧縮率を用いると、透水係数は数倍~数十倍まで小さく評価される可能性があり、十分な注意を払う必要がある。以上の理論的研究成果に基づき、最近、筆者ら

第2表 各種室内透水試験の簡易解及び厳密解.

試験法	簡易解	水頭	厳密解	動水勾配
定水位法	$K = -\frac{q}{Ai} = -\frac{qL}{A\Delta H}$	$H(z,t) = \Delta H \left\{ \frac{z}{L} + \frac{2}{\pi} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\cos(n\pi z)}{n} \sin\left(\frac{n\pi z}{L}\right) \exp\left(-\frac{K}{S_s} \frac{n^2 \pi^2}{L^2} t\right) \right\}$ Zhang <i>et al.</i> , 1998, Geotech. Testing J., 21(1), 52-57	$i(z,t) = \frac{\Delta H}{L} \left\{ 1 + 2 \sum_{n=1}^{\infty} \cos(n\pi) \cos\left(\frac{n\pi z}{L}\right) \exp\left(-\frac{K}{S_s} \frac{n^2 \pi^2}{L^2} t\right) \right\}$	
定微流量法	$K = -\frac{q}{Ai} = -\frac{qL}{A\Delta H}$ Olsen, 1966, Water Resour. Res., 2(6), 287-295.	$H(z,t) = \frac{qL}{AK} \left\{ \frac{z}{L} - 2 \sum_{n=0}^{\infty} \frac{\exp\left(-\frac{K}{S_s} \beta_n^2 t\right) \sin(\beta_n z)}{L\beta_n \cos(\beta_n L) \left[L\left(\beta_n^2 + \frac{1}{\delta^2}\right) + \frac{1}{\delta} \right]} \right\}$ Esaki and Zhang <i>et al.</i> , 1996, Geotech. Testing J., 19(3), 241-246. Zhang <i>et al.</i> , 1998, Geotech. Testing J., 21(1), 52-57.	$\delta = \frac{C_c}{AS_s}$ $\tan(\beta L) = \frac{1}{\beta \delta}$	$i(z,t) = \frac{qL}{AK} \left\{ \frac{1}{L} - 2 \sum_{n=0}^{\infty} \frac{\exp\left(-\frac{K}{S_s} \beta_n^2 t\right) \cos(\beta_n z)}{L\delta \cos(\beta_n L) \left[L\left(\beta_n^2 + \frac{1}{\delta^2}\right) + \frac{1}{\delta} \right]} \right\}$
トランジェントバルス法	$h_u - h_f = H_0 \frac{V_d}{V_u + V_d} \exp(-\theta t)$ $K = \frac{\theta \rho \lambda V_u V_d}{A(V_u + V_d)}$ Brace <i>et al.</i> , 1968, J. Geoph. Res., 73(6), 2225-2236.	$\frac{H(z,t)}{H_0} = \frac{1}{1 + \beta + \gamma} + 2 \sum_{m=0}^{\infty} \frac{\exp\left(-\alpha \phi_m^2\right) \left\{ \cos(\phi_m \xi) - \left(\frac{\gamma \phi_m}{\beta}\right) \sin(\phi_m \xi) \right\}}{\left(1 + \beta + \gamma - \frac{\gamma \phi_m^2}{\beta}\right) \cos \phi_m - \phi_m \left(1 + \gamma + \frac{2\gamma}{\beta}\right) \sin \phi_m}$ $\xi = \frac{z}{L}, \quad \alpha = \frac{Kt}{L^2 S_s}, \quad \beta = \frac{S_s AL}{S_u}, \quad \gamma = \frac{S_d}{S_u}, \quad \tan \phi = \frac{\gamma + 1}{\gamma \phi^2 / \beta - \beta}$ Hsieh, <i>et al.</i> 1981, Int. J. Rock Mech. Min. Sci., 18(3), 245-252.	$\frac{i(z,t)}{H_0} = 2 \sum_{m=0}^{\infty} \frac{\exp\left(-\frac{Kt}{L^2 S_s} \phi_m^2\right) \left\{ \sin\left(\phi_m \frac{z}{L}\right) - \left(\frac{\gamma \phi_m}{\beta}\right) \cos\left(\phi_m \frac{z}{L}\right) \right\}}{\left(1 + \beta + \gamma - \frac{\gamma \phi_m^2}{\beta}\right) \cos \phi_m - \phi_m \left(1 + \gamma + \frac{2\gamma}{\beta}\right) \sin \phi_m}$ Zhang <i>et al.</i> , 2000, Geotech. Testing J., 23(1), 83-90.	

は難透水性岩石を対象とした高精度汎用室内透水試験システムの開発を行い、その有効性と実用性についても代表的岩石試験体を用いた試験より実証してきている。また、岩石の異方性や応力及び載荷履歴などがその透水特性に及ぼす系統的な実験も実施してきているが、誌面の制限より、これらの詳細については関連文献 (Zhang *et al.*, 2000b; Zhang *et al.*, 2002; 張ほか, 2002; Zhang and Takeda, 2003) を参照していただきたい。

5. 室内拡散試験

拡散現象は移流と同様に地層における物質移行に影響を与え、特にバリア機能が期待される難透水性地層においては物質移行の1つの支配的な要因と考えられている。本章では、既存の各種室内拡散試験を分類・整理し、各種拡散試験の解析理論と利点及び欠点等を簡潔にまとめる。

第3表に示すように、室内拡散試験法は多数存在するが、基本的に定常法 (Steady-state method) と非定常法もしくはトランジェント法 (Transient

method) の2種類に大きく分類できる。以下それぞれの試験法について2つの節に分けて簡略に説明を行う。

5.1 定常法

定常法は試験体の両端にそれぞれ溶液槽 (reservoir) を設置し、高い濃度の溶液槽 (Source reservoir) から試験体を介して低濃度槽 (Collection reservoir) へ透過していく溶質量の経時的な変化を定常状態に達した以降まで測定し、試験体の有効拡散係数を求めるものである。

定常状態では、試験体に吸着する物質の量が変化しないため、定常状態における物質の透過速度 ($-\Delta m_1 / \Delta t = \Delta m_2 / \Delta t = \Delta m / \Delta t$) を用いることによって簡単に有効拡散係数 (D_e) を算出することが可能である (第3表に示す関連式を参照)。しかし、定常状態に達するための時間が長く、また、両溶液槽内の濃度差を一定に維持するために多くの手間がかかる。試験をより管理しやすくするために、高い濃度の溶液槽を十分に大きくし、低い濃度の溶液槽における濃度を常に0状態に保つ改善策

第3表 各種室内拡散試験.

分類	定常法	トランジェント法		
		コラム法	ハーフェル法	溶解槽法
概念図				
支配方程式	式(10)但し, $D_h = D_e, V_s = 0$	式(10)	式(10)但し, $D_h = D_e, V_s = 0$	式(10)但し, $D_h = D_e, V_s = 0$
初期条件	任意	$C(x \geq 0, 0) = 0$	$C(x \leq 0, 0) = C_0$ $C(x > 0, 0) = 0$	$C(x = 0, 0) = C_0$ $C(x > 0, 0) = 0$
境界条件	$C(0, t) = C_1 = \text{Const.}$ $C(L, t) = C_2 = \text{Const.}$	$C(x \leq 0, t) = C_0 = \text{Const.}$ $C(\infty, t) = 0^*$	$C(-\infty, t) = C_0$ $C(\infty, t) = 0^*$	$V_1 \frac{\partial C}{\partial t}(0, t) = AD_e \frac{\partial C}{\partial x}(0, t)$ $V_2 \frac{\partial C}{\partial t}(L, t) = -AD_e \frac{\partial C}{\partial x}(L, t)$
解析解 または 解析法	$D_e = -\frac{L}{A(C_2 - C_1)} \frac{\Delta m}{\Delta t}$ $T_L = \frac{RL^2 \phi}{6D_e}$	$\frac{C(L, t)}{C_0} = \frac{1}{2} \left\{ \text{erfc} \left(\frac{L - V_s t}{2\sqrt{D_h t/R}} \right) + \exp \left(\frac{V_s L}{D_h} \right) \text{erfc} \left(\frac{L + V_s t}{2\sqrt{D_h t/R}} \right) \right\}$	$\frac{C(x, t)}{C_0} = \frac{1}{2} \text{erfc} \left(\frac{x}{2\sqrt{D_e t/R \phi}} \right)$ or $D_e = \left(\frac{M_t}{A \phi C_0} \right)^2 \left(\frac{\pi}{\phi R t} \right)$ $= \frac{L^2}{4} \left(\frac{M_t}{M_0} \right)^2 \left(\frac{R \pi}{\phi t} \right)$	数値解析又は半解析法により DeとRを求める
備考	Δm : 定常状態における Δt 時間内の物質透過量 Δt : 時間間隔 T_L : 時間 t 軸の切片	*実際のものとは異なるが, 納得できる範囲内で適用可	拡散物質が境界に達していない場合のみ適用可 M_t : t 時間内での透過物質質量 M_0 : 拡散物質の総量	実施例はないが, 岩石への適用が有望と考えられる

で試験が行われているケースが多い。この場合、試験体を透過してくる物質の総量と時間をそれぞれ縦及び横軸にプロットし、定常状態の曲線の接線が時間軸における切片を求める。この切片と有効拡散係数より、試験体の吸着係数を求めることが可能である。この方法はタイムラグ法 (Time-lag method) とも呼ばれる (Jakob et al., 1999)。

5.2 トランジェント法

トランジェント法では定常法のように簡易な解析によって試験体の有効拡散係数を求めることが不可能である。試験法 (移流の有無) 及び試験物質の特性 (吸着の有無) の違いによって、式 (10)、式 (13) あるいは式 (5) を基礎方程式とし、それぞれの試験法の初期及び境界条件によって理論解を求め、数値解析法などより有効拡散係数を逆算する必要がある。測定原理の違いによって、トランジェント法はコラム法 (Column method)、ハーフェル法 (half-cell method) 及び液槽法 (Reservoir method) に分類することができる。

5.2.1 コラム法

コラム法は多孔質媒体における物質移行特性の測定法として広く用いられてきている。一般に、コラム法は先ず試験体全長に渡る一定の移流場を作り、その後、上流の溶液槽 (Source reservoir) に一定濃度の物質を投入し、試験体の下流側から流出する溶液の流量と濃度の経時的な変化を計測し分散係数を算出する。測定結果は一般に破過曲線 (breakthrough curve) と称されるグラフでプロットする。この場合、縦軸に下流側で測定される濃度を上流側で一定に保たれる物質濃度 (初期濃度とも称される) で除した比を、横軸に経過時間をそれぞれプロットする。研究者によっては横軸に透過溶液の体積量と試験体内部空隙の体積との比をプロットする場合もある。

第3表に示す濃度比の式より分かるように、測定結果から逆算する未知パラメータは分散係数、実流速及び吸着係数の3つである。もし、非吸着性物質であれば、吸着係数は1の値を取る。また、有効空隙率も分かれば、実流速の計算も可能であるが、実際に有効空隙率は試験条件に依存するため、同

時に逆算するケースが多い。しかし、分散係数は流速に依存する機械的分散も含まれているため、有効拡散係数の算出は不可能であって、この試験法の実用性について疑問を持っている研究者も少なくない。この問題を解決するために、試験体を透過させる溶液の流速をできるだけ小さく制御し、分散係数を等价的に有効拡散係数として評価する事例もある(例えば、Shackelford and Daniel, 1991b)。

慣例的に上述の試験体の上流側の物質濃度を常に一定(Constant source concentration)に保つ試験法を、コラム法と称することが多い。この他、上流側の物質濃度が低下していく(Decreasing source concentration)条件下で試験を行うケースもあり(例えば、Rowe *et al.*, 1988)、この場合は改良コラム法と称されている。

コラム法は古くから用いられてきており、かなりの適用事例がある。また、原位置の流速を模擬した条件下での試験も可能である。一方、コラム法では有効拡散係数を求めることが困難である。流速を小さく制御し、分散係数を有効拡散係数とみなして評価する場合には、試験に必要な計測時間がかかなり長くなる。また、有効空隙率も同時に逆算する必要があり、計算は比較的複雑になる。

5.2.2 ハーフセル法

ハーフセル法では、試験体を二つのセル内に充填もしくは装着し、片方の試験体に一定濃度の拡散物質を浸透させる。拡散試験は二つの試験体を密着させることにより開始され、有効拡散係数と吸着係数は一定時間後における試験体内の濃度分布(スライスする必要がある)より算出される。試験物質が非吸着性である場合、あるいは吸着係数が分かっている場合では、試験体をスライスせずに、両試験体の接触面より拡散してきた物質の総量より有効拡散係数を求めることも可能である。

第3表に示すハーフセル法の初期条件、境界条件及び理論解は拡散による濃度変化が両試験体接触面の遠端まで達していない場合に適用されるものである。拡散による濃度変化が両試験体接触面の遠端まで及んでいた場合では、異なる式を用いる必要があるが、詳細は関連文献を参照されたい(例えば、Gillham *et al.*, 1984)。

ハーフセル法は地盤工学分野でよく用いられている。しかし、両試験体を完全に密着させることが困難な場合もある。また、スライスによって濃度分布を分析しなければ、適切な境界条件を判断するのも困難である。

5.2.3 溶液槽法

溶液槽法の装置構成は基本的に定常法と同じである。試験は拡散物質投入槽(高い濃度槽)における濃度の低下及び低い濃度槽における濃度の増加を測定し、数値解析(例えば、Rowe *et al.*, 1988)あるいは半解析法(例えば、Moridis, 1998)により試験体の有効拡散係数を求める。未だ実施例はないが、室内透水試験のトランジェントパルス法の厳密解のパラメータを読み替えることにより、溶液槽を用いたトランジェント拡散試験の厳密解も求められると考えられる。

トランジェント法は定常状態に達さなくても試験結果の解釈が可能であるため、定常法に比べ試験に必要な計測時間を大幅に短縮することが可能となる。また、両溶液槽内の濃度を一定に調整・制御する必要がないため、試験の管理が行いやすい。さらに、試験体をスライスせずに試験が可能であるため、岩石のような硬い試験体の試験に有利であると考えられる。

5.3 室内拡散試験の現状

前述した各種室内拡散試験法のほか、ヘリウムガスを用いた拡散試験法(例えば、Hartikainen *et al.*, 1996)や試験体の片方のみ溶液槽を設置するシングルリザーバー(Single reservoir)法(例えば、Idemitsu *et al.*, 1990; Shackelford and Daniel, 1991a)なども存在する。誌面の制限により、これらの詳細は関連文献を参照されたい。

放射性廃棄物地層処分分野において、岩石を対象とした拡散試験の多くは定常法を採用している(例えば、Jakob *et al.*, 1999; 喜多ほか, 1989)。この方法は計測に長い時間を要し、試験管理にも手間がかかる。また、ごく一部の例(Skagius and Neretnieks, 1986b)を除いた殆どどの計測では、岩石試験体は大気圧条件下に置かれていた。さらに、計測時間を短縮するために、円盤形の試験体を用い、その厚さは1~2cmほどしかなく、試験結

果の代表性に疑問が残されている。

拡散試験をできるだけ迅速に実施するために、最近では試験体の両端に電位差を加え、イオンの移動を加速させる方法が用いられるようになった(例えば, Lofgren and Neretnieks, 2004; Idemitsu *et al.*, 2004)。この方法をさらに発展させ、溶液槽法と組み合わせることによって、拡散試験を従来の数百倍以上も速く実施することが可能と考えられる。また、地下深部岩石の存在状態を再現した条件下での拡散試験も実現できるようになると考えられる。高レベル放射性廃棄物地層処分施設の長期的安全性を評価するためには、さらに変動要因を考慮した条件下での拡散試験が必要と考えられるが、これは今後の重要課題として残されている。

6. あとがき

地質媒体における物質移行特性の評価に関する研究は高レベル放射性廃棄物を含む各種有害物質の地層処分や汚染された地層の修復・洗浄などに代表される新しい分野において非常に重要な課題となっている。本稿では、物質移行に関する基礎理論を概説し、地層の水理学的、化学的、熱力学的及び力学的特性間の影響要因図を作成し、要因間の相互影響について簡略に説明した。また、各種室内透水試験の最新解析理論を紹介し、各種室内拡散試験についてもそれぞれの概念、測定手法、解析理論及び特徴等について要約・整理を行った。しかし、限られた時間と誌面により、本稿では均質、飽和及び一次元の問題しか触れていない。地層処分施設の安全性評価を含む多くのプロジェクトでは、地層の特質である非均質性、異方性、不連続性及び地層中の流体の賦存あるいは存在状態である混相と不飽和問題等を考慮しなければならない。これらの要素及び関連変遷要因を考慮した岩盤の物質移行特性変化を予測するためのデータを蓄積していくことが非常に重要である。このような研究は現代の地球科学者に与えられた一つ大きな使命でもあり、多くの地質科学者の寄与と貢献が期待されている。また、このような研究は地球科学分野に今後新たな発展をもたらすことにもなると確信している。

謝辞：本稿をまとめるに際し、同センター磯部一洋 統括研究員、竹野直人地質情報チーム長及び渡部芳夫地質総括チーム長により有益なご意見と議論をいただきましたことに心より深く感謝の意を表します。

参考文献

- Bahr, J. M. and Rubin, J. (1987) : Direct comparison of kinetic and local equilibrium formations for solute transport affected by surface reactions, *Water Resources Research*, 23, 438-452.
- Bear, J. (1972) : *Dynamics of fluids in porous media*, American Elsevier, 764p.
- Brace, W. F. *et al.* (1968) : Permeability of granite under high pressure, *Journal of Geophysical Research*, 73, 2225-2236.
- De Marsily, G. (1986) : *Quantitative hydrogeology: Groundwater hydrology for engineers*, Academic Press, 440p.
- 土質工学会 (1980) : 土質試験法, 757p.
- Esaki, T. *et al.* (1996) : Rigorous theoretical analysis of a flow pump permeability test, *Geotechnical Testing Journal*, 19, 241-246.
- 原子力安全委員会 (2004) : 原子力百科事典ATOMICA (<http://mext-atm.jst.go.jp/atomica/index2.html>).
- Gillham, R. W. *et al.* (1984) : Diffusion of nonreactive and reactive solutes through fine-grained barrier materials, *Canadian Geotechnical Journal*, 21, 541-550.
- Hartikainen, J. *et al.* (1996) : Helium gas methods for rock characteristics and matrix diffusion, Department of Physics, University of Jyväskylä, 58p.
- 法律第十七号 (2000) : 特定放射性廃棄物の最終処分に関する法律.
- Hsieh, P. A. *et al.* (1981) : A transient laboratory method for determining the hydraulic properties of tight rocks-I. Theory, *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences & Geomechanics Abstracts*, 18, 245-252.
- Idemitsu, K. *et al.* (1990) : Plutonium diffusivity in compacted bentonite, *Engineering Geology*, 28, 455-462.
- Idemitsu, K. *et al.* (2004) : Migration behavior of plutonium in compacted bentonite under reducing condition by using electromigration, *Scientific Basis for Nuclear Waste Management XXVII*, 591-596.
- Jakob, A. *et al.* (1999) : Diffusion and sorption on hardened cement pastes - experiments and modeling results, *Waste Management Laboratory*, Paul Scherrer Institute, 194p.
- 地盤工学会 (1999) : 地盤工学ハンドブック, 14-50.
- 喜多治之ほか (1989) : 花崗岩及び凝灰岩間隙水中のイオンの拡散係数の測定, *応用地質*, 30, 84-90.
- Kranz, R. L. *et al.* (1990) : Hydraulic diffusivity measurements on laboratory rock samples using an oscillating pore pressure method, *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences & Geomechanics Abstracts*, 27, 345-352.
- Lofgren, M. and Neretnieks, I. (2004) : A conceivable technique of measuring sorption coefficients in intact rock using an electrical potential gradient as the driving force for migration, *Scientific Basis for Nuclear Waste Management XXVII*, 683-688.
- Marczewski, A. W. (2002) : A practical guide to isotherms of adsorption on heterogeneous surfaces, <http://adsorption.org/>.

- Moridis, G. J. (1998) : A set of semianalytical solutions for parameter estimation in diffusion cell experiments, LBNL Report no. 41857, 75p.
- 中嶋 悟 (1995) : 岩石中の物質移動と岩石・水反応機構, 放射性廃棄物と地質科学: 地層処分 の現状と課題, 東京大学出版社, 389p.
- National Research Council (1957) : The disposal of radioactive waste on land, National academy of sciences, no. 519, 146p.
- Nimmo J. R. and Mello, K. A. (1991) : Centrifugal techniques for measuring saturated hydraulic conductivity, Water Resources Research, 27, 1263-1269.
- OECD/NEA (1984) : Geological disposal of radioactive waste, An overview of the current status of understanding and development.
- OECD/NEA (1995) : The environmental and ethical basis of geological disposal of long-lived radioactive wastes, A collective opinion of the radioactive waste management committee of the OECD Nuclear Energy Agency.
- OECD/NEA (1999) : Geological disposal of radioactive waste: Review of developments in the last decade.
- OECD/NEA (2000a) : Regulatory reviews of assessments of deep geologic repositories: Lessons learnt.
- OECD/NEA (2000b) : Features, events and processes (FEPs) for geological disposal of radioactive waste: An international database.
- Olsen, H. W. (1966) : Darcy's law in saturated kaolinite, Water Resources Research, 2, 287-295.
- Rowe, R. K. *et al.* (1988) : Laboratory determination of diffusion and distribution coefficients of contaminants using undisturbed clayey soils, Canadian Geotechnical Journal, 25, 108-118.
- Shackelford, C. D. and Daniel, D. E. (1991a) : Diffusion in saturated soil. I: Background, Journal of Geotechnical Engineering, 117, 467-484.
- Shackelford, C. D. and Daniel, D. E. (1991b) : Diffusion in saturated soil. II: Results, Journal of Geotechnical Engineering, 117, 485-506.
- 鹿園直建 (1995) : 地下水・熱水移行シナリオとナチュラルアナログ研究, 放射性廃棄物と地質科学: 地層処分 の現状と課題, 東京大学出版社, 389p.
- Skagius, K. and Neretnieks, I. (1986a) : Porosities and diffusivities of some nonsorbing species in crystalline rocks, Water Resources Research, 22, 389-398.
- Skagius, K. and Neretnieks, I. (1986b) : Diffusivity measurements and electrical resistivity measurements in rock samples under mechanical stress, Water Resources Research, 22, 570-580.
- 竹野直人 (1995) : 熱水系における岩石-水相互作用の数値シミュレーション, 放射性廃棄物と地質科学: 地層処分 の現状と課題, 東京大学出版社, 389p.
- 張 銘ほか (1998) : 室内変水位透水試験法に関する理論的評価, 北海道応用地学合同研究会論文集, no. 9, 15-20.
- Zhang, M. *et al.* (1998) : Theoretical evaluation of the transient response of constant head and constant flow rate permeability tests, Geotechnical Testing Journal, 21, 52-57.
- Zhang, M. *et al.* (2000a) : Evaluation and application of the transient-pulse technique for determining the hydraulic properties of low-permeability rocks-part 1: Theoretical evaluation, Geotechnical Testing Journal, 23, 83-90.
- Zhang, M. *et al.* (2000b) : Evaluation and application of the transient-pulse technique for determining the hydraulic properties of low-permeability rocks-part 2: Experimental application, Geotechnical Testing Journal, 23, 91-99.
- Zhang, M. *et al.* (2002) : Determining the hydraulic properties of saturated, low-permeability geological materials in the laboratory: Advances in theory and practice, ASTM Standard Technical Publication no. 1415, 83-98.
- 張 銘ほか (2002) : 難透水性岩盤材料を対象とした高精度汎用室内透水試験システムの開発, 応用地質, 43, 83-91.
- Zhang, M. and Takeda, M. (2003) : Physical, mechanical and hydraulic properties of Inada granite and Shirahama sandstone in Japan, Fusion Technology, CIR Communication, Seoul, Korea, 206-213.
-
- ZHANG Ming and TAKEDA Mikio (2004) : On Methodologies for Determining the Mass Transport Properties of Geologic Media in the Laboratory.
-

< 受付: 2004年7月5日 >