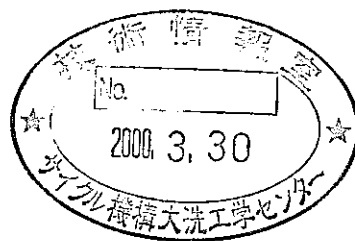


点熱源法による緩衝材の熱物性値の測定 (Ⅱ)

(核燃料サイクル開発機構 研究委託内容報告書)

1999年2月



北海道大学大学院工学研究科

熊田 俊明

本資料は、委託契約業務に基づいて作成されたものです。したがって、その利用は限られた範囲としており、その取扱には十分な注意を払ってください。この資料の全部または一部を複写・複製・転載あるいは引用する場合は特別な許可を必要としますので、下記にお問い合わせ下さい。

〒319-1194 茨城県那珂郡東海村大字村松4-33
核燃料サイクル開発機構 東海事業所
運営管理部 技術情報室

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:

Technical Information Section
Administration Division,
Tokai Works,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-33 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, 319-1194

点熱源法による緩衝材の熱物性値の測定 (II)

熊 田 俊 明*

要 旨

本報告では、本研究シリーズの第2年度（1997年度）に提案した点熱源熱物性値測定法により、ベントナイトやベントナイトと珪砂の混合材（分散物質）の熱伝導率の測定を行った。さらに、本測定と既存の測定値と、ベントナイトと珪砂の混合材を分散物質として、既存の分散物質の熱伝導率推算式と測定値を比較することにより、より精度良い推算式を特定した。

既存の熱伝導率推算式では、Frickeの回転楕円体をランダムに分散した場合の推算式と熊田の考案した任意の形状の分散体を回転楕円体に換算する方法を用いれば、実用上十分な精度で混合材の熱伝導率を推算できる。また、球状分散体に適用する推算式であるBruggemanの式も実用上十分な精度で熱伝導率の推算ができる。

*本報告書は、熊田俊明が、核燃料サイクル開発機構の委託により実施した研究内容の結果である。

COMERCIAL PROPRIETARY

JNC ZJ 8400-065

Feb..1999

Measurements of Thermal Conductivity of Bentonites
and Its Mixtures with Silica Sand

Toshiaki Kumada*

Abstract

The report concerns the measurement of thermal conductivity of compacted bentonite and its mixture with silica sand using a proposed point source method⁽¹⁾ and the evaluation of conventional correlations predicting thermal conductivity of mixtures. The calculated values of the conventional correlations was compared with the existing and present data of thermal conductivity of mixtures. Fricke correlation and Bruggeman correlation are fitted with the data with practical accuracy.

目 次

1. 緒 言	1
2. 測定法	2
2.1 試料の作成法	2
2.2 測定回路・体系	4
3. 数値計算法	7
3.1 熱伝導モデル	7
3.2 熱伝導モデルによる影響因子の検討	8
3.2.1 リード線の太さの影響	
3.2.2 サーミスタの寸法の影響	
3.2.3 ガラス被覆の影響	
3.3 熱伝導モデルの較正	11
4. ベントナイトと珪砂混合物の熱伝導率の測定	14
4.1 数値計算による熱伝導率の算出法	14
4.1.1 入力データ	
4.1.2 熱伝導率の算出方法	
4.2 各種推算式とその特徴	15
4.3 回転楕円対による近似	19
4.3.1 近似法	
4.3.2 珪砂の場合	
4.4 測定結果	20
4.5 測定値と計算値の比較	22
5. 結言	27
文献	28

1. 緒 言

高レベルガラス固化体を深地層に埋設する際には、オーバパケットと呼ばれる容器（鋳鉄製の厚さ30cmの容器を使用する案がある）に入れ、オーバパケットと岩石の間に緩衝材としてベントナイトなどが使用される。このベントナイトの物理・化学的特性の把握は、ベントナイトの閉じ込め機能を評価する上で重要である。とくにベントナイト中に水分が含まれる場合の放射性核種の移動に関する吸着、拡散、水分移動、温度分布に関係するベントナイトの熱伝導率や水分移動およびオーバパケットの腐食に関する水分中の溶解物などを、種々の条件下で詳細に調べる必要がある。また、ベントナイトに珪砂を混合して使用する計画があり、この場合には、さらに混合材についてベントナイトと同様に、主として物理的性質を知る必要がある。

本研究では、すでに本研究シリーズの第2年度（1996年度）に提案した点熱源法により、ベントナイトと珪砂からなる緩衝材の熱物性値を測定し、既存の測定値と併せて既存の熱伝導率推算式による値と比較することにより、精度良い推算式を特定する。

2. 測定法

本章では、先に著者らが提案したサーミスタを点熱源とする熱伝導率の測定法と測定結果について述べる。ベントナイトに珪砂を混合した緩衝材の熱伝導率の測定では、サーミスタにリード線やガラス被膜がついているため、無限媒質中の点熱源の条件が満たされないため、解析解に基づいて熱物性値を決定することができない。このため従来は、測定時間を長くして、サーミスタの温度が一定となった時点での試料の熱伝導率とサーミスタの温度の関係式を求め、この式の未定係数を標準物質の測定値より決め、測定に用いていた。本測定法では、実験により試料中のサーミスタの温度上昇と発熱率を測定し、試験部周辺を模擬した熱伝導モデルを数値計算することにより、試料中のサーミスタの温度上昇を計算し、この測定値と計算値を合うように数値計算内の入力データである熱伝導率を決める。

2.1 試料の作成法

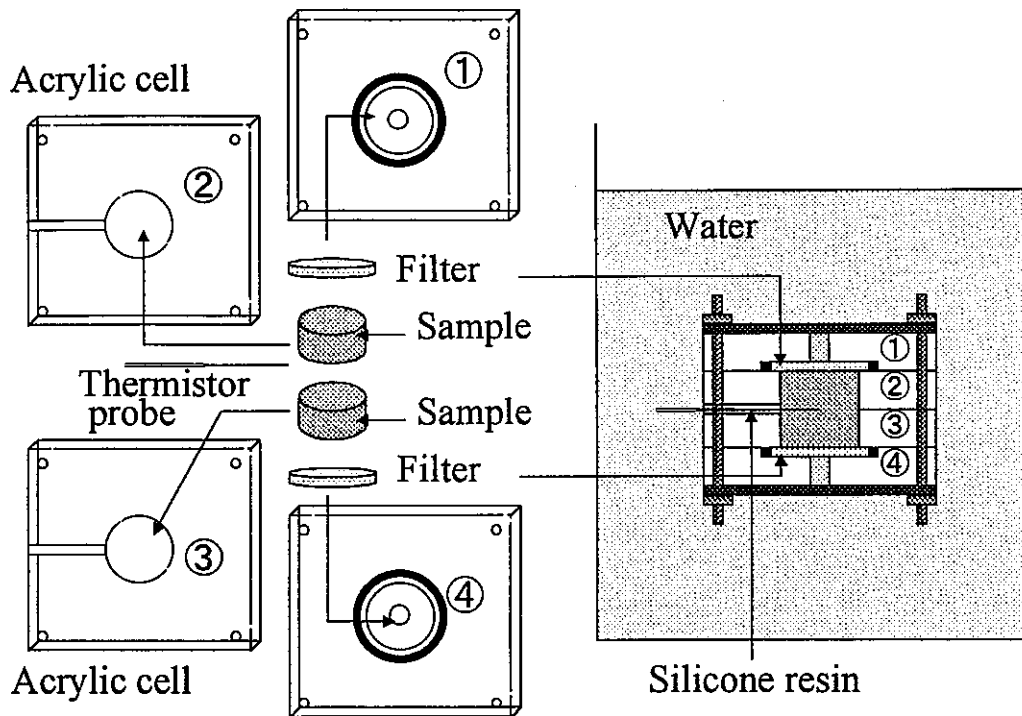


Fig.2-1 Method of soaking a sample with water

試料の作成法を Fig. 2-1 に示す。まず、一定重量のベントナイトと珪砂を十分に混合した後、Fig. 2-1 のアクリルセル②、③にそれぞれ2分の1ずつ圧密する。これによって外径20mm、厚さ10mmの円柱状試料ができる。次に、Fig. 2-1にあるように、サーミスタプローブを②、③で上下から挟み込むように重ねる。ベントナイトの水分含有率を変える（膨潤）には、外側のアクリル板を、ステンレススチールの焼結体の円板（膨潤

用フィルター)をつけたアクリル板(中央に孔が空いている)①、④を重ねボルトで締める。なお、サーミスタプローブとアクリルセルとの間に水が侵入しないように、サーミスタプローブが挟まれるアクリルセル②、③の溝にはシリコン樹脂を埋めている。試料に一定量の水を含ませるために、5日から10日ほどアクリル容器を水中に浸す。次に、水の中から取り出してアクリル板の①、④を取り外し、中央に孔があいてないアクリル板に付け替える。次に、Fig. 2-2に示すように容器を密閉し測定中に外気の温度の影響を受けないように、周囲を断熱材(ファイナフレックス)および断熱壁(発泡スチロール)によって覆い保温器に入れ器内を一定の温度とした。試料の温度が保温器内の温度と同じになるように、試料を保温器に入れて半日以上経ってから測定を行った。また、試料の平均密度は、測定が終了した後、試料を取り出し質量を測定する。その後、試料を乾燥器に数日間入れておき、質量を測定して乾燥密度と含水率を算出した。

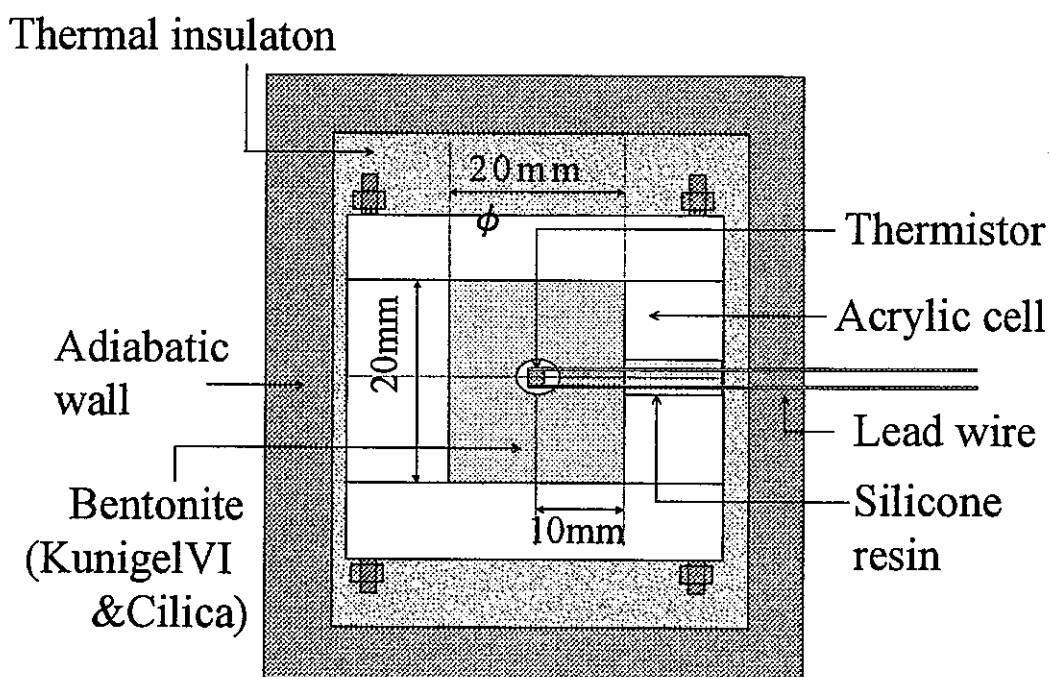


Fig.2-2 Detailed structure of sample and shutting processing

2.2 測定回路・体系

本測定では、サーミスタの発熱率を逐一入力して数値解析によりサーミスタの温度上昇を求めるため、サーミスタのステップ発熱の条件が厳密に満たされなくても誤差要因とはならない。しかし、サーミスタの発熱率は、パルスやステップ状変化の方が緩慢な変化の場合より熱物性値を精度よく決定できる。そこで、できるだけ簡単な回路でステップ状に近いサーミスタの発熱率となる次の回路を用いた。Fig. 2-3に測定体系を示す。

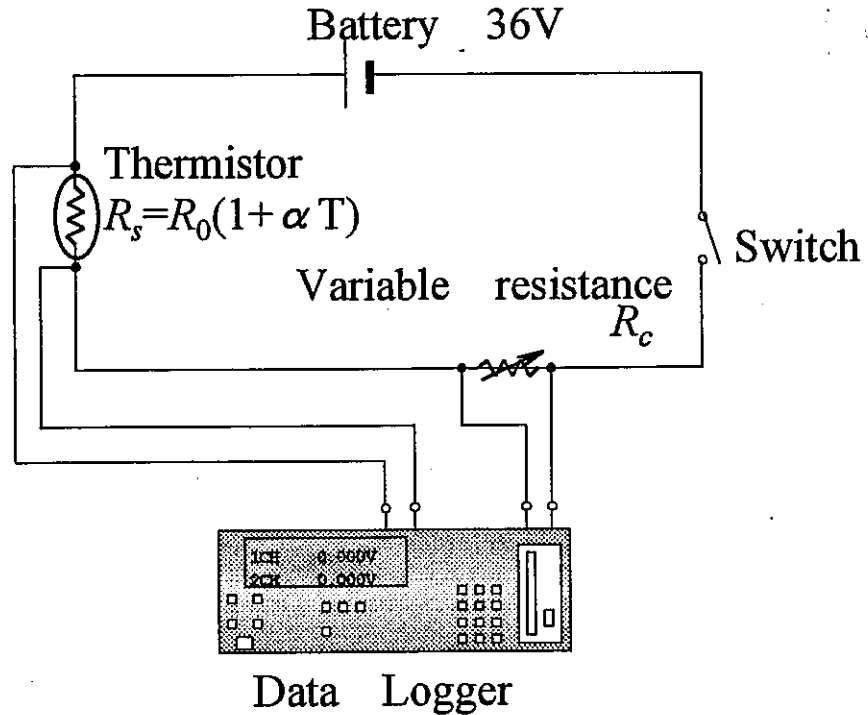


Fig.2-3 System for measurement

サーミスタ端子間の電圧を V_s 、抵抗を R_s とするとサーミスタの発熱率 W_s は、

$$W_s = \frac{V_s^2}{R_s} = C(\text{const}) \quad (2-1)$$

となり、電源の電圧を V 、固定抵抗を R_0 、温度を T として電池の内部抵抗を無視すると

$$V_s = \frac{VR_0(1 + \alpha T)}{R_0(1 + \alpha T) + R_c} \quad (2-2)$$

となる。ここで、 $R_s = R_0(1 + \alpha T)$ で、 R_0 はサーミスタの基準温度の電気抵抗、 α は電気抵抗の温度係数である。

(2-2) 式を (2-1) 式に代入し、サーミスタの温度上昇を小さいとすると、 αT の値は微小であるので、固定抵抗 R_c (k Ω) は次式で表される。

$$R_c = \left\{ \frac{1}{2} \sqrt{\frac{R_c}{C}} V - R_0 \right\} \alpha T + \sqrt{\frac{R_0}{C}} V - R_0 \quad (2-3)$$

ここで、発熱量一定の条件では、 αT の項が0であればよい。よって、サーミスタの発熱量率は、

$$W_s = \frac{V}{4R_0} = C(\text{const}) \quad (2-4)$$

となり、このときの固定抵抗は、

$$R_c = \sqrt{\frac{R_0}{V^2/4R_0}} V - R_0 = R_0 \quad (2-5)$$

であればよい。

したがって、 $R_c = R_0$ (k Ω) (サーミスタの初期抵抗) のとき、 αT が十分小さければ、この回路では、 αT の値に無関係にサーミスタの発熱量 W_s は電源電圧 V によって決まり一定となる。

電源に3.6Vの電池を用い、サーミスタ、可変抵抗およびスイッチを直列につないだ簡単な回路を使用する。スイッチON後のサーミスタと可変抵抗の電圧降下をデータログにより測定し、データをパソコン内に取り込む。データ処理には、Microsoft社のソフトExcelを使い、あらかじめ測定しておいた可変抵抗値とデータログにより測定した電圧から、オームの法則を使ってサーミスタの電流を計算し、サーミスタの抵抗値と発熱量を求めた。この抵抗値から、サーミスタのメーカーである芝浦電子(株)社のサーミスタ特性式(2-6)式を用いて、サーミスタの温度を求めた。

$$T = \left\{ \frac{1}{(1/B)(\ln R - \ln R_0)} + \frac{1}{T_0} \right\} - 273 \quad (2-6)$$

(2-6)式において、 B は B 定数といわれ、抵抗-温度特性における任意の2温度間の温度に対する抵抗変化の大きさを表わす定数であり、次式の関係がある。

$$B = \frac{\ln R_1 - \ln R_2}{\frac{1}{T_1} - \frac{1}{T_2}} \quad (2-7)$$

ここで、 R_1 : 絶対温度 T_1 (K)における抵抗値(Ω)

R_2 : 絶対温度 T_2 (K)における抵抗値(Ω) である。

Fig2-4にデータ処理の流れを示す。

データ処理の例

	A	B	C	D	E	F	G
1							
2	1	15.921	18.784	21.40995	7.81815	0.011839	
3	2	15.876	18.826	21.3018	7.93756	0.011832	
4	3	15.856	18.848	21.25014	7.994861	0.011831	
5	4	15.844	18.864	21.21604	8.03276	0.011832	
6	5	15.836	18.877	21.19073	8.060948	0.011834	
7	6	15.831	18.887	21.17282	8.08091	0.011837	
8	7	15.827	18.896	21.15739	8.098129	0.01184	
9	8	15.825	18.904	21.14576	8.111111	0.011843	
	
	

- A : Voltage drop on thermistor (V)
- B : Voltage drop on resistance (V) } [from data logger]
- C : Temperature of thermistor (°C)

$$= (1 / ((1/B)(\ln(\text{span style='background-color: #cccccc; border: 1px solid black; padding: 2px; display: inline-block; width: 1em; height: 1em; vertical-align: middle;'})) - \ln(R_0)) + (1/T_0))) - 273$$
- D : Resistance of thermistor (kΩ)

$$= \text{span style='background-color: #cccccc; border: 1px solid black; padding: 2px; display: inline-block; width: 1em; height: 1em; vertical-align: middle;'} \times (\text{Resistance at 0sec}) / \text{span style='background-color: #cccccc; border: 1px solid black; padding: 2px; display: inline-block; width: 1em; height: 1em; vertical-align: middle;'}]$$
- E : Heating Value of thermistor (W)

$$= \text{span style='background-color: #cccccc; border: 1px solid black; padding: 2px; display: inline-block; width: 1em; height: 1em; vertical-align: middle;'} \times \text{span style='background-color: #cccccc; border: 1px solid black; padding: 2px; display: inline-block; width: 1em; height: 1em; vertical-align: middle;'} / (\text{Resistance at 0sec}) / 1000$$

Fig.2-4 Data Processing by Excel[®]

また、今回本研究に使用した芝浦電子(株)社製⁽⁵⁾のサーミスタ PB7-43-S2 の抵抗-温度とB定数を Table. 2-1 示す。B定数は先ほど述べたように、2点間の温度と抵抗により決まるので、(2-6)式からサーミスタの温度を求めるときは、実際に測定したときの温度の範囲のB定数を用いた。

Table.2-1 Temperature vs resistance of thermistor

Temperature of thermistor (°C)	Resistance of thermistor (k Ω)	B fixed number
-10	47.344	} 3265.667
-05	37.554	
-00	(30.000)	} 3286.271
+05	24.128	} 3306.313
+10	19.531	} 3325.865
+15	15.907	} 3345.636
+20	13.033	} 3363.199
+25	10.739	} 3380.844
+30	8.897	} 3399.100

3. 数値計算法

本測定法では、実際の熱源とその周辺を正確に模擬した数値計算用熱伝導モデルを数値解析して正確な温度を計算する。このことにより、既存のサーミスタを熱源とする測定法の誤差を避け、小さな試料により短時間に熱伝導率を測定する。サーミスタプローブが小さければ、サーミスタや被覆の寸法およびリード線の影響をほとんど受けないので、市販のサーミスタプローブを使用することができる。本研究では、サーミスタには芝浦電子(株)社製の Pb7-43-S2 を用いた。このサーミスタが個体毎に寸法や電気抵抗に差があれば、それぞれについて校正をする必要があるが、測定の結果、個体差は小さく無視できることが分かった。

3.1 熱伝導モデル

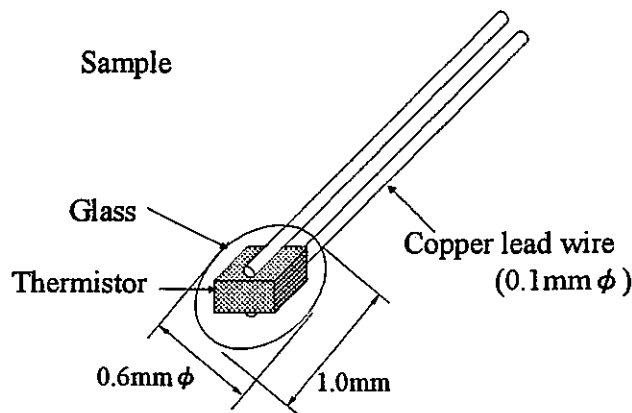


Fig.3-1 Structure of probe

本測定法に点熱源として使用するサーミスタおよびプローブ構造と寸法を Fig. 3-1 に示す。このサーミスタを含む一定範囲の対称な2分の1を Fig. 3-2 に示すように円柱座標系の熱伝導モデルにより模擬した。温度勾配の大きいプローブ周辺の領域ではメッシュを細かくし、それ以外の領域では粗いメッシュとした。サーミスタおよびガラス被膜の実際の形状はほぼ回転楕円形であり、これを円柱形状で近似した。この近似による誤差は、加熱後の極く初期の時間帯のみである。計算範囲は試験部の寸法より十分大きくした。また、試料周辺の境界条件は断熱としたが、計算範囲を大きくしてあるので、必要な時間の範囲では境界条件によってサーミスタの温度上昇に差はない。

実際のガラス被膜とサーミスタの寸法(容積)の測定を精密に行うのは困難である。そこで、熱伝導率の正確な値が既知で、その値がベントナイトの熱伝導率の範囲(およそ $0.5 < \lambda_s < 2.3$ W/mK)をカバーする水と氷を用いて実測したサーミスタの温度と計算値が一致するように寸法を決定した。サーミスタの温度は電気抵抗の温度変化を利用して決定しているが、実際にはサーミスタ内の電流分布により決まる発熱分布があるため一様温

度ではない。ここでは、サーミスタが十分小さく熱伝導率がガラスや試料より20～30倍大きいので、計算では Fig. 3-2 に示すサーミスタ部の平均温度とした。

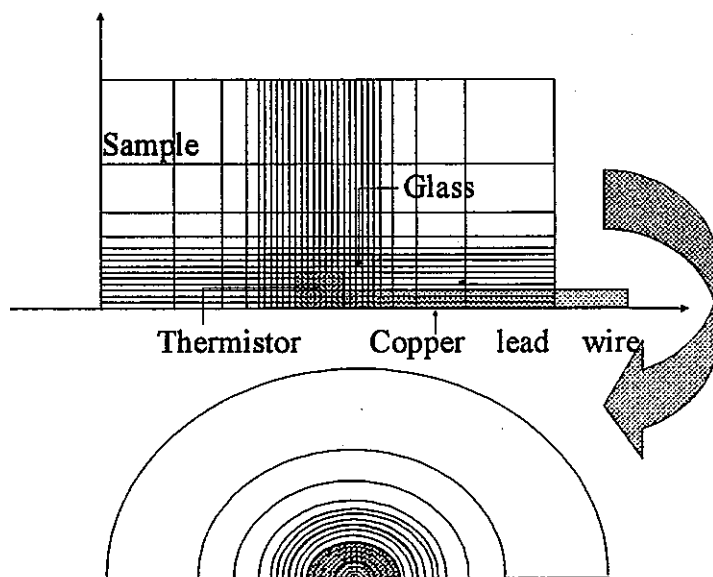


Fig.3-2 Thermal conductivity model of a thermistor probe in a sample

3.2 熱伝導モデルによる影響因子の検討

プローブは、0.3mm の立方体のサーミスタを保護し絶縁するため、サーミスタを包むように回転楕円体状のガラスにより被覆され、サーミスタの両側面にはリード線が対称に取り付けられた構造になっている。プローブの形状を模擬する際の寸法誤差によるサーミスタの温度上昇に対する影響を知るため、リード線の太さ、サーミスタの寸法、ガラス被膜の寸法をパラメーターとして、サーミスタの温度の数値計算を行なった。試料は熱物性値が正確に知られている水を用いた。それぞれの計算結果を Fig. 3-3～Fig. 3-5 に示す。

3.2.1 リード線の太さの影響

Fig. 3-3 に数値計算におけるサーミスタの温度上昇に対するリード線の太さの影響を示す。リード線がない場合とリード線の半径が 0.15、0.27mm について計算した。また、リード線の熱伝導率を 372W/mK、比熱を 0.386KJ/KgK、密度を 8880Kg/m³ とした。Fig. 3-3 にあるようにリード線が太くなると、温度上昇率が大きく下がっている。これは、リード線の熱伝導率が周囲のものに比べて非常に大きいため、サーミスタで発生する熱がリード線を伝わって逃げていくためである。よって、リード線の太さは、サーミスタの温度上昇に大きな影響を及ぼすパラメーターの一つである。

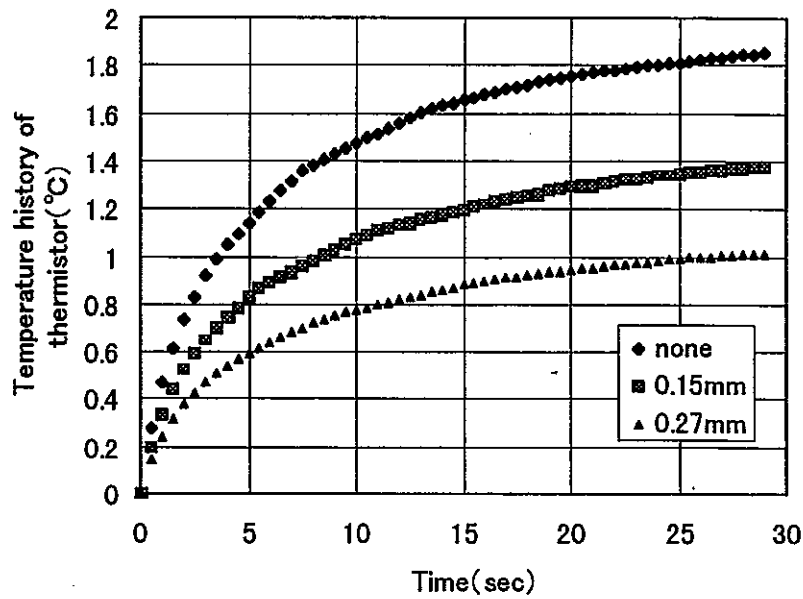


Fig.3-3 Effect of lead wire diameter on thermistor temperature

3.2.2 サーミスタの寸法の影響

Fig. 3-4にサーミスタの温度上昇に対するサーミスタの体積の違いによる影響を示す。数値計算では、体積をそれぞれ 0.0139 mm³、0.0229 mm³、0.478 mm³として、熱伝導モデル内のサーミスタを円筒状に近似して半径を変えて計算した。

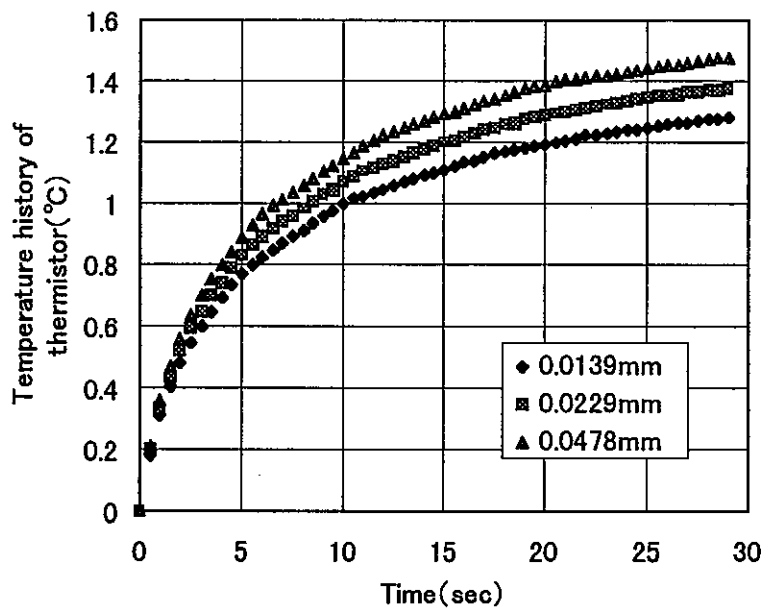


Fig.3-4 Effect of thermistor size on thermistor temperature

Fig. 3-4に示すように、サーミスタの寸法誤差はサーミスタの温度上昇に大きな影響を与える。

3.2.3 ガラス被膜の影響

Fig. 3-5にサーミスタの温度上昇に対するガラス被膜の寸法の影響を示した。ここで、ガラス被膜を円筒状のものとして近似したときの体積を、 0.442mm^3 、 0.204mm^3 、ガラス被膜無しの場合について計算した。また、ガラス被膜の熱伝導率を 1.5W/mK 、比熱を 0.7KJ/KgK 、密度を 2200Kg/m^3 とした。

Fig. 3-5に示すようにガラス被膜が厚くなると、サーミスタの温度上昇率が下がっていることが分かる。このことは、ガラスの熱伝導率が水の熱伝導率よりも大きいため、ガラス被膜の体積が大きいと熱の移動が速いことからサーミスタの温度が上がらないためである。

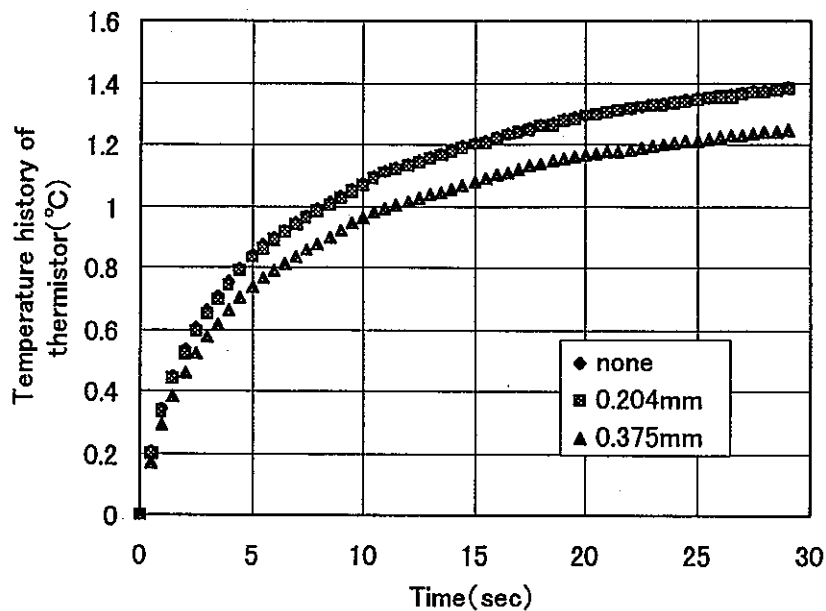


Fig.3-5 Effect of glass size on thermistor temperature

以上の様に、サーミスタの温度上昇には、リード線とサーミスタならびにガラス被膜の寸法の影響がある。リード線、サーミスタ、ガラス被膜の寸法については、熱伝導率が既知の水と氷によって熱伝導モデルの較正により、この2つの未定係数を決定した。

3.3 熱伝導モデルの較正

3.1 で述べたように、サーミスタの温度を精度良く決定するには、サーミスタ、ガラスの被膜、リード線の寸法（熱容量）を精度良く決定することが重要である。この寸法もしくは熱容量がプローブ製作時に測定されていれば、水や氷を用いた較正の必要はないが、これらの値は正確に知られていない場合が多い。ここでは、熱物性値が正確に測定されていて、かつ本研究で対象としているベントナイトと珪砂の混合材の熱伝導率のほぼ下限値と上限値に相当している水と氷を標準試料として、二つの試料の熱伝導率の測定値と計算値が良く一致するようにサーミスタとガラス被膜の寸法を決定した。なお、水については、自然対流を防ぐために少量のゼラチンを添加し、凝固させた。ゼラチンの添加量による水の熱伝導率への影響は、ゼラチンの添加量を1%、2%、3%と変えて測定を行った結果、ゼラチンの添加量によりサーミスタの温度上昇に差はなく、ゼラチン添加の影響は極めて小さいことを確かめた。

まず、実験により水と氷を試料としたときのサーミスタの温度上昇を測定した。この測定値と3.1で説明した熱伝導モデルによる数値計算の計算値がそれぞれ合うように、サーミスタ、ガラス被膜およびリード線の寸法を決定した。Fig. 3-6、Fig. 3-7に水と氷を用いたサーミスタの温度上昇の測定値と計算値の比較をそれぞれ示す。Table.3-1に計算コードに入力した水、氷、およびサーミスタ、ガラス被膜、銅リード線の熱物性値を示す。

Table.3-1 Thermal properties

	Thermal conductivity (W/mK)	Density (Kg/m ³)	Heat capacity (KJ/KgK)
Water	0.585	1000	4.20
Ice	2.50	920	2.00
Thermistor	20.0	5000	0.25
Glass	1.50	2190	0.70
Lead wire	372.0	8880	0.386

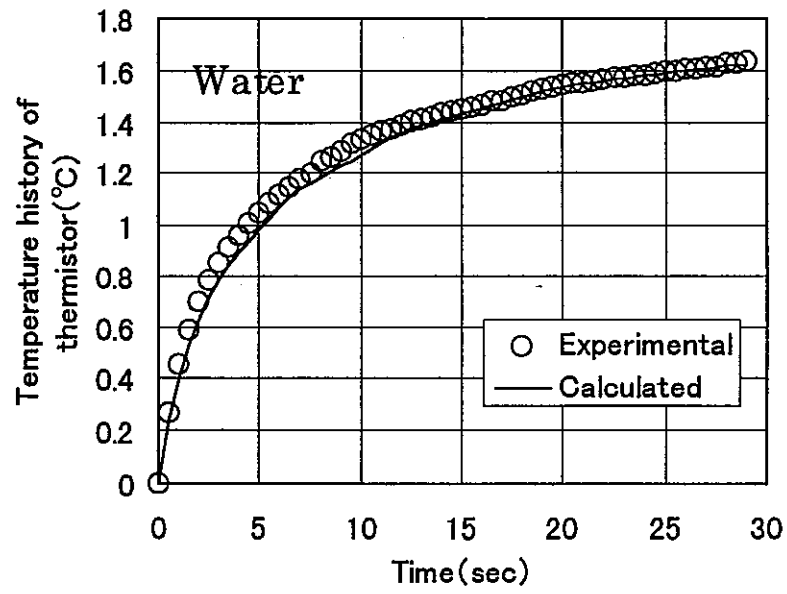


Fig.3-6 Experimental and calculated temperature histories

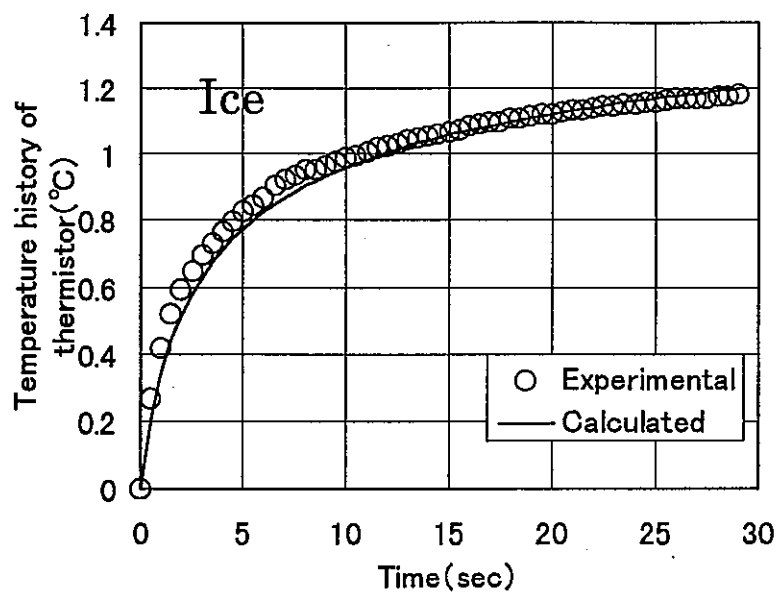


Fig.3-7 Experimental and calculated temperature histories

水と氷について較正を行った結果、サーミスタ、ガラス被膜、リード線の各寸法は Table.3-2 のように求められた。また、Table.3-2 には実際のプローブをマイクロメータにより測定した寸法も掲載した。

Table.3-2 Dimension of each part of probe

	Calculated	Measurement
Thermistor	0.27×0.40 (mm φ)	0.30×0.30 (mm φ)
Glass	1.00×0.51 (mm φ)	1.00×0.55 (mm φ)
Lead wire	0.09 (mm φ)	0.1 (mm φ)

4. ベントナイトと珪砂の混合物質の熱伝導率の測定

これまで、サーミスタを用いた点熱源法の実験方法、実験からのサーミスタの温度変化導出方法、熱伝導モデル、モデルの較正などについて説明してきた。この章では、ベントナイトと珪砂の混合物質の熱伝導率の測定を行い、測定結果を中心に熱伝導率を求めるまでの一連の流れについて説明する。

4.1 数値計算による熱伝導率算出方法

4.1.1 入力データ

Table.4-1 に、水と氷で較正をしたプログラムに代入するプローブ各部の寸法と熱物性値の入力データを示す。なお、熱伝導モデルにおけるサーミスタプローブの形状は、円柱座標系で近似している。サーミスタとガラス被膜とリード線の寸法以外の入力データには、文献値を用いた。試料の密度 A は、測定終了後の試料の質量と体積から算出した。また、試料の比熱 B は文献からのベントナイトと珪砂の比熱に基づいて、それぞれの体積割合から算出した。

Table.4-1 Dimensions of each part of probe and sample input data

	Length (mm)	Radius (mm ϕ)	Thermal conductivity (W/mK)	Density (Kg/m ³)	Heat capacity (KJ/K g K)
Thermistor	0.40	0.27	20.0	5000	0.25
Glass	1.00	0.51	1.5	2190	0.70
Lead wire	—	0.09	372.0	8880	0.39
Sample	Infinite	Infinite	—	A	B

4.1.2 熱伝導率の算出方法

熱伝導モデルの数値計算コードに、実験により得られたサーミスタの温度上昇の測定値と発熱率を Table.4-1 に示した入力データと共に入力する。これまで、点熱源法により測定したベントナイトの熱伝導率の測定結果の一例を Fig.4-1 に示す。Fig.4-1 からわかるように、測定開始から数秒間から 30 秒間近くまでの熱伝導率に差はほとんど見られなく、この間であれば試料の無限媒質の条件が満たされる。そこで、これまで各時間ごとに熱伝導率を算出していたものを、ある時刻における熱伝導率を求め、それを試料の熱伝導率とした。本測定においては、25 秒後の熱伝導率とした。

熱伝導率の算出方法は、計算コードにおおよその熱伝導率を入力し、計算値が測定値に収束するように熱伝導率を変化させるプログラムを作り、計算値と測定値のサーミスタの温度の誤差が 1% 以内になったら、その熱伝導率を試料の熱伝導率とした。

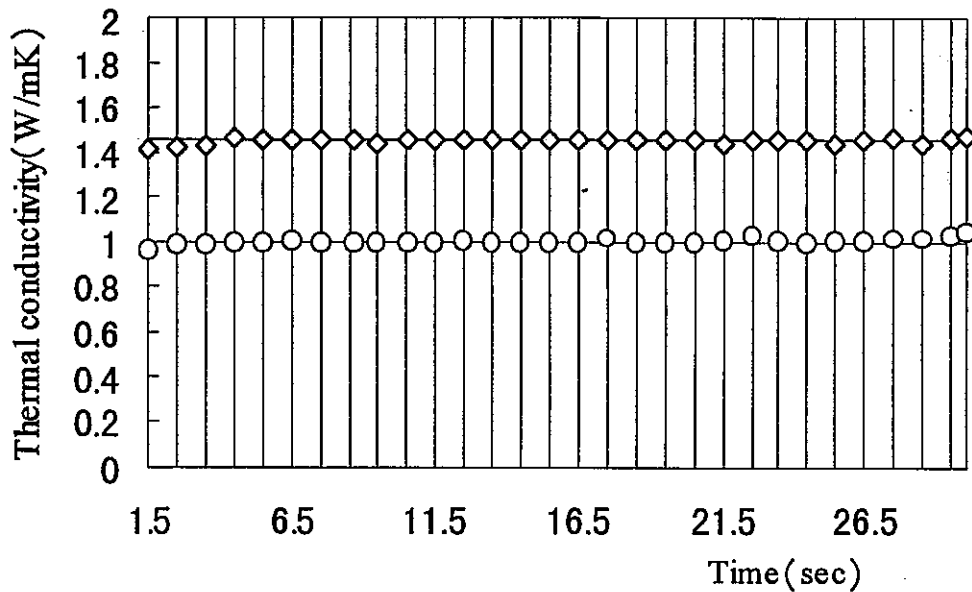


Fig.4-1 Thermal conductivity of bentonite

4.2 各種推算式とその特徴⁽²⁾

$$\text{基礎式} : \lambda_t = \lambda_b \frac{x + \kappa - xPd(1 - \kappa)}{x + \kappa + Pd(1 - \kappa)} \quad (4-1)$$

ここで、 λ_t 、 λ_b 、 λ_c はそれぞれ計算値、ベントナイト、珪砂の熱伝導率、 κ は媒質と分散体の熱伝導率比 λ_c/λ_b 、 x は分散体の形状係数、 Pd は分散体体積率である。

(1) Maxwellの式 : (4-1)式において $x=2$ とする式

Maxwellの式は、球状分散体を母材中にランダムに希薄に分散した場合の推算式である。球状分散体を母材に1個分散した場合の温度場の変化は、無限の遠方まで達するが、ある程度希薄に分散している場合には、個々の球状分散体が形成する温度場への影響は独立で、他の分散体による影響は受けないと近似している。したがって、低分散体積率に適用できる式で、熱伝導率比が1に近ければ、より高い分散体積率まで適用できることになる。

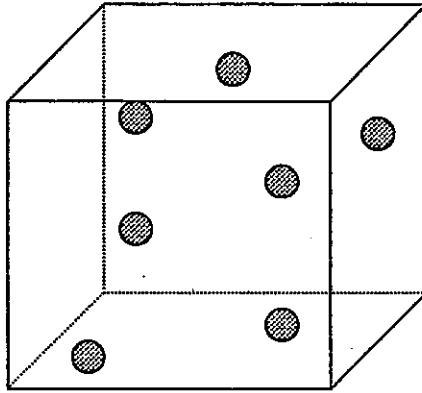


Fig.4-2 Model of suspension by Maxwell

(2) Bruggeman の式 :
$$\left(\frac{\lambda_t}{\lambda_c}\right)^{1/3} (1 - Pd) = \frac{\kappa - (\lambda_t/\lambda_c)}{\kappa - 1} \quad (4-2)$$

Bruggeman の式は、Maxwell の式を高分散体積率まで適用できるように改良した式で、微量の分散体を連続媒質に分散し、Maxwell の式により分散物質の熱伝導率を求め、この求めた熱伝導率を母材の熱伝導率として、さらに微量の分散体を分散して、Maxwell の式により熱伝導率を求める。このような方法を繰り返し、高い分散体積率まで適用できる式を導いた。この方法では、Maxwell の式で無視した分散体の形成する温度場が重なる効果を一部考慮しているが、微量の分散体を分散することに分散体の効果を平均化して連続媒質の熱伝導率に考慮することで、分散体の効果を幾分過大に評価することになっている。したがって、熱伝導率比が1と著しく異なる場合で分散体積率が高くなると分散体の効果を過大に見積もることになる。

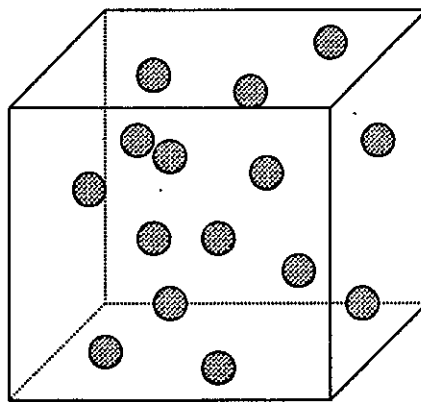


Fig.4-3 Model of suspension by Bruggeman

(3) Fricke の式 : $\kappa > 1$ の場合は、基礎式 (4-1) の x に次式を用いる。

$$x = -\frac{(\kappa-1) - \kappa\beta}{(\kappa-1) - \beta}$$

$$\beta = \frac{1}{3} \left\{ \frac{2}{1 + (\kappa-1)M/2} + \frac{1}{(\kappa-1)(1-M)} \right\} (\kappa-1)$$

$$\cos\theta = \frac{a}{b}, M = \left\{ \frac{\theta - (1/2)\sin\theta}{(\sin\theta)^3} \right\} \cos\theta \quad (4-3)$$

ここで、 a は回転軸方向半径、 b はそれに垂直な方向の半径である。

Fricke の式は、回転楕円体の分散体をランダムに分散した場合の式で、ランダムな分散を x, y, z 軸に分散体の 3 分の 1 の回転軸をそろえた場合の分散状態に置き換え、Maxwell の式に相当する解を求め、これらの効果を重ね合わせた式である。Fricke の式は回転楕円体を対象としているので、任意の形状の分散体では、分散体の形状を回転楕円体に換算することが必要である。また、形状が回転楕円体である違いはあるが、基本は Maxwell の式と同じ考え方で導かれており、形状を別として分散体積率や熱伝導率比についての適用範囲は Maxwell の式と差がない。

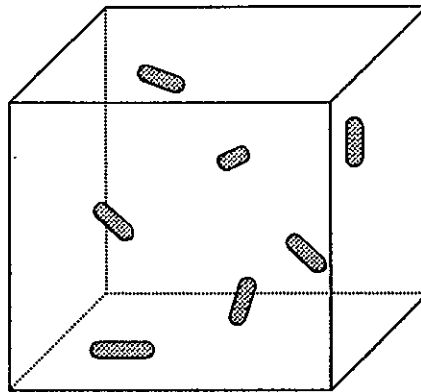


Fig.4-4 Model of suspension by Fricke

(4) Johnson の式 : $\left(\frac{\lambda_t}{\lambda_c}\right)^{1/(x+1)} (1-Pd) = \frac{\kappa - (\lambda_t/\lambda_c)}{\kappa-1}$ (4-4)

ここで、 x は Fricke の式における x と同じ値を用いる。

Johnson の式は、Fricke の式を Bruggeman と同様の方法で高分散体積率まで適用できるように改良した式である。この式は、分散体の形状を別とすれば Bruggeman の式と同様の性質を持つ。

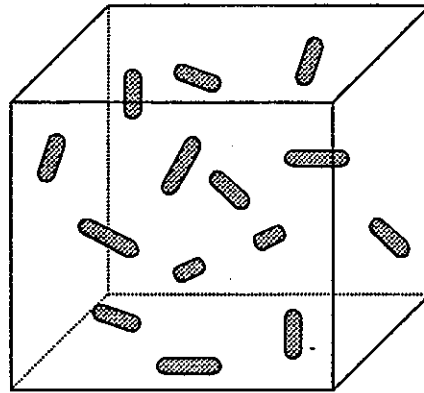


Fig.4-5 Model of suspension by Johnson

(5) Yamada の式⁽³⁾: 式 (4-1) の x に次式を用いる。

$$x = 2.0 \left(\frac{a}{K} \right)^{n1} \left(\frac{b}{K} \right)^{n2} \left(\frac{c}{K} \right)^{n3} \quad (4-5)$$

$$K = \left(\frac{a \cdot b \cdot c}{Pd} \right)^{1/3}, \quad n1 = -1.4, \quad n2 = 1.3, \quad n3 = 1.3$$

ここで、 a , b , c はそれぞれ直方体の辺長である。

Yamada の式は、形状が直方体の分散体を 1 個、立方体状の電解質中に入れて、種々の向きについて導電率を測定したり、数値計算によって形状効果や熱伝導率比の分散物質の熱伝導率への影響を調べて求めた式である。

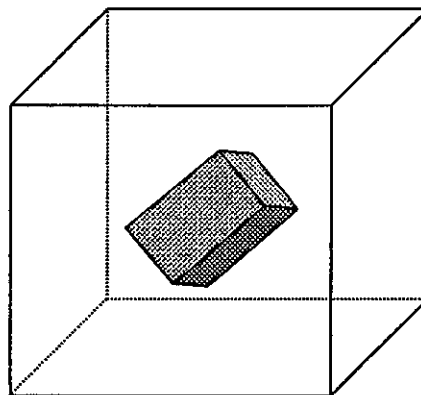


Fig.4-6 Model of suspension by Yamada

4.3 回転楕円体による近似

4.3.1 近似法

Fricke の式は、回転楕円体の回転軸が、全体の熱流の方向と平行または垂直におかれた場合について、Maxwell の解析手法により熱伝導率を求め、得られた形状係数を回転軸が熱流に平行な場合を 1 として、垂直な場合を 2 の割合で合成して求めた式である。実際の分散体は複雑な形状をしている場合が多く、これを回転楕円体近似する場合に形状の近似による誤差、一定方向にそろえることによる誤差、さらに低分散体積率の仮定に対して高い分散体積率まで適用する誤差が複雑に影響する。また、分散体を回転楕円体の回転軸とそれに垂直な軸の比 $a/b < 1$ か $a/b > 1$ の何れによって近似するかの問題が起きる。Fig. 4-6 は分散体の熱伝導率比が $\lambda_d/\lambda_c < 1$ か $\lambda_d/\lambda_c > 1$ によって、形状効果の特徴が現れるように、分散体の形状を回転楕円体に近似する方法を示したものである。できるだけ実際の形状に近い回転楕円体で近似するが、 $\lambda_d/\lambda_c < 1$ では円柱状の分散体以外は扁平 ($a < b$) な楕円体で近似する。実際の分散体から a や b を決定する場合には、分散体の最大の長さやそれに直角方向の平均寸法を求め、残りの b または a は分散体の平均体積から決定する。突起のある分散体では、突起の影響で円柱状分散体なら a/b がより大きく、扁平な分散体なら a/b がより小さくなり、突起の影響を表わすことができる。

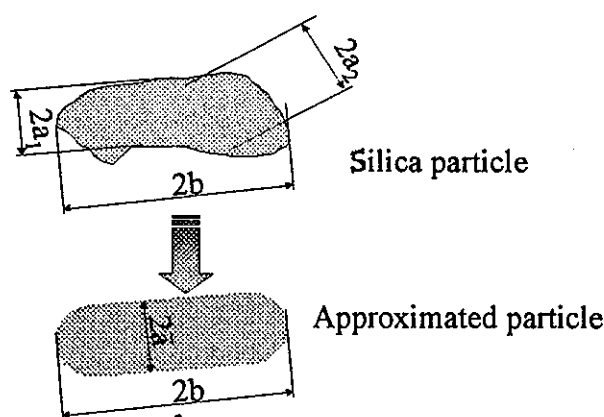


Fig.4-7 Approximation model of dispersion shape

4.3.2 珪砂の場合

珪砂には、粒子の平均寸法の異なるものがあるが、ベントナイトに混入した場合の熱伝導率への影響は、珪砂の平均的な形状と熱伝導率に影響するのであって、寸法は試料の寸法に比べて珪砂の寸法が十分に小さければ影響はない。また、珪砂とベントナイトの熱伝導率比 λ_d/λ_c が 1 に比べて極端に大きくないために、珪砂の形状を回転楕円体に近似する場合の、分散物質の熱伝導率への影響は小さい。珪砂の形状は 4 面体のようであり、

顕微鏡により観察しながら求めた平均的な形状 $a/b=0.386$ である。

4.4 測定結果

ベントナイトと珪砂の混合物質を種々の乾燥密度、水分含有率、珪砂の体積率についてサーミスタを用いた点熱源法により熱伝導率を測定した。今回使用したベントナイトはクニゲル VI で、珪砂には 5 号珪砂（平均粒径約 0.5mm）を用いた。

Table. 4-2 に測定した試料の乾燥密度、含水率、分散体積率についてまとめたものを示す。

Table.4-2 Samples

sample number #	dry density (g/cm ³)	saturation degree (%)	dispersion volume ratio (%)	thermal conductivity (W/mK)
1	2.00	30.0%	44.0%	1.35
2	2.00	91.0%	44.0%	2.18
3	1.80	3.0%	39.6%	0.69
4	1.80	3.0%	26.4%	0.63
5	1.80	98.0%	26.4%	1.93
6	1.80	99.0%	19.7%	1.85
7	1.80	2.0%	13.2%	0.61
8	1.80	62.0%	13.2%	1.33
9	1.80	99.0%	13.2%	1.72
10	1.60	2.0%	35.2%	0.54
11	1.60	94.0%	35.2%	1.78
12	1.60	98.0%	35.2%	1.91
13	1.60	3.0%	23.4%	0.48
14	1.60	90.0%	23.4%	1.62
15	1.60	98.0%	23.4%	1.71
16	1.60	98.0%	17.6%	1.70
17	1.60	2.0%	11.7%	0.44
18	1.60	78.0%	11.7%	1.55
19	1.60	97.0%	11.7%	1.66

Fig. 4-8 に Sample 1 の測定値と計算値を示す。

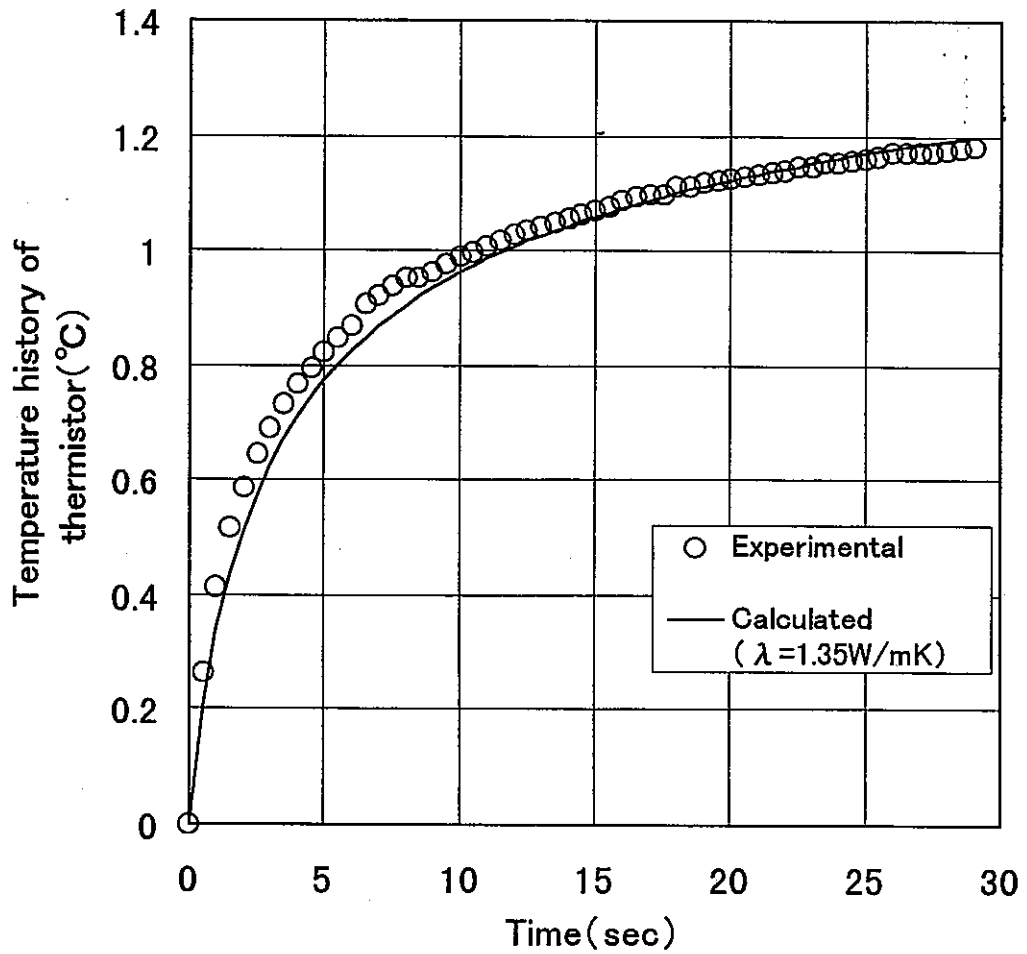


Fig.4-8 Experimental and calculated temperature histories of sample 1

4.5 測定値との比較

3章でも求めた混合物質の熱伝導率の測定値と推算式により求めた値を比較する。本研究におけるベントナイトと珪砂の混合物質は、ベントナイトを連続媒質、珪砂を分散体として先ほどの推算式により熱伝導率を求めた。混合物質の熱伝導率を推算するためには、ベントナイトと珪砂の熱伝導率、分散体積率がわからなくてはならない。珪砂の熱伝導率は文献から 3.4 (W/mK) とした。分散体積率は、珪砂の密度を 2730 (kg/m³) とし、作成した試料に混入した質量から計算した。しかし、ベントナイトの熱伝導率は密度や水分含有率によって大きく異なる。このため、ベントナイトの熱伝導率は、試料毎に推算しなくてはならない。そこで坂下・熊田らが提案した次の近似式⁽⁴⁾を用いてベントナイトの熱伝導率を推算した。

$$\lambda = \lambda_0 \left[1 + \{(9.75n - 0.706)Sr\}^{0.285n+0.731} \right] \quad (4-6)$$

ここで、 λ_0 は乾燥ベントナイトの熱伝導率、 n は空隙率、 Sr は含水率であり、 λ_0 は次式で与えられる。

$$\lambda_0 = 0.0497 + 0.222(1-n) + 0.968(1-n)^3 \quad (4-7)$$

この推算式は、ベントナイトの粒子や充填状態を考えた熱伝導モデルと、種々の乾燥密度と水分含有率で測定されたベントナイトの熱伝導率に基づいて求めた推算式の近似式である。この式からわかるように、ベントナイトの熱伝導率を求めるには、空隙率 n とは含水率 Sr を知る必要がある。空隙率はベントナイトの乾燥密度から次式により得られる。

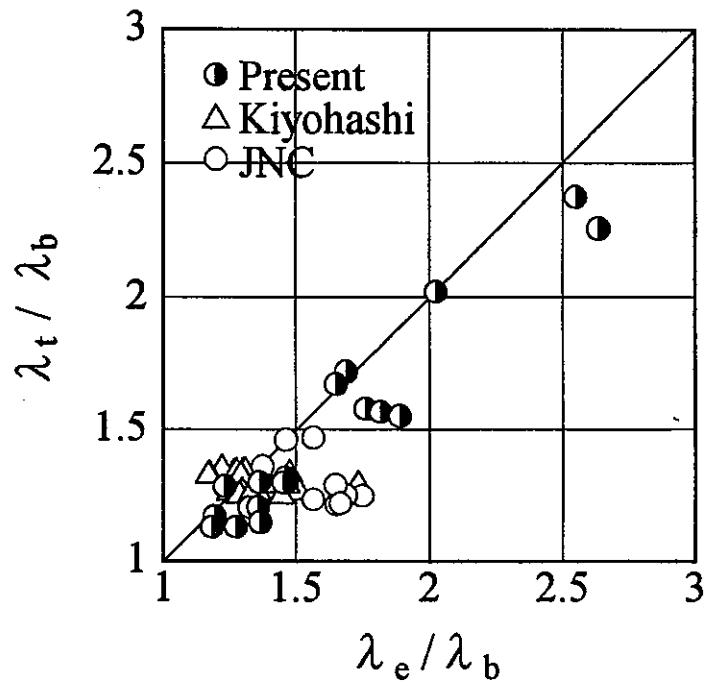
$$n = 1 - \frac{\rho_b}{\rho_t} \quad (4-8)$$

ここで、 ρ_b はベントナイトの乾燥密度で、 ρ_t としてベントナイトの真密度 2.7 (g/cm³) を用いた。作成した試料のベントナイトの体積を分散体積率と密度の関係から求め、ベントナイトの乾燥密度を求めた。

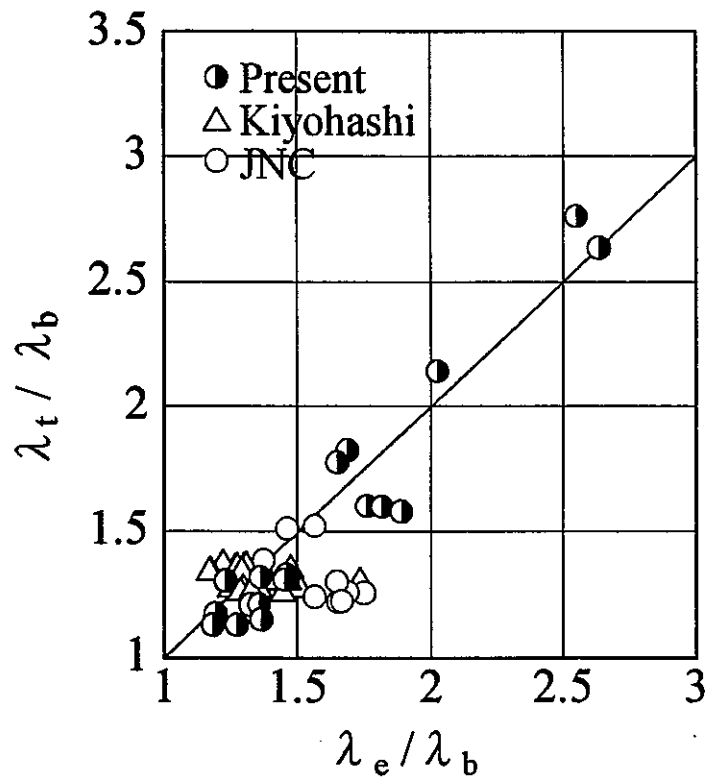
Fig. 4-9 に、各推算式による値と本測定値および幾世橋ら⁽⁵⁾と鈴木ら⁽⁶⁾の測定値との比較を示す。

Fig. 4-9 の比較で、珪砂の粒子の平均形状に基づいて、熊田の方法で等価な回転楕円体に置き換えて、Fricke の式を用いる推算法が最も測定値と良く一致している。Bruggeman の式も測定値に良く一致しているが、分散体の形状は球であり、分散体の効果を低く見積もる分を、4.2 で述べたように分散体積率が高くなるにつれて、分散体の効果を高く見積もる効果が相殺して良く一致したものと考えられる。Maxwell の式は球状粒子で低分散体積率の場合であり、分散体の熱伝導率への影響を低く評価している。Johnson の式は分散体積率が高くなるにつれて分散体の効果を高く見積もっているため、高分散体積率において計算値が測定値よりも高くなっている。また、Yamada の式は詳細な実験と数値計算

によって、任意の形状の分散体がランダムに分散されている場合の式を求めているが、Johnson の式と同様に分散体の効果を過大に見積もっている。

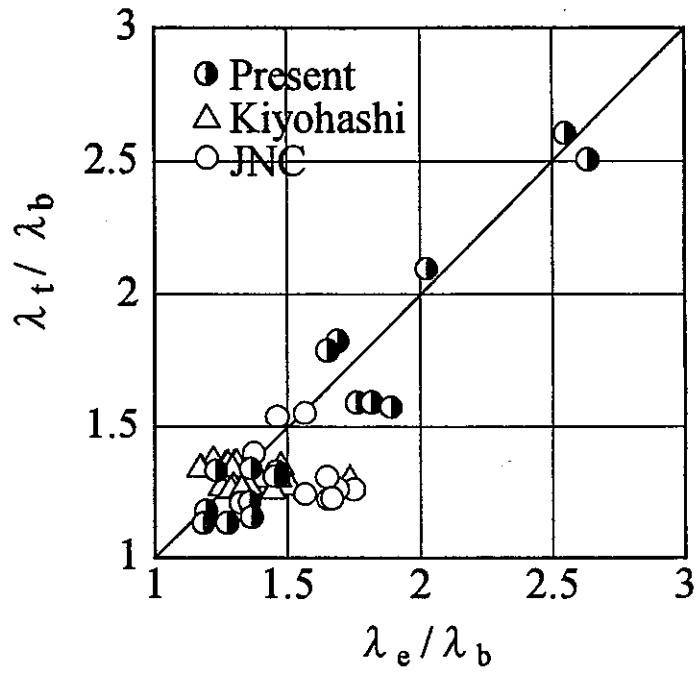


(a) Maxwell correlation

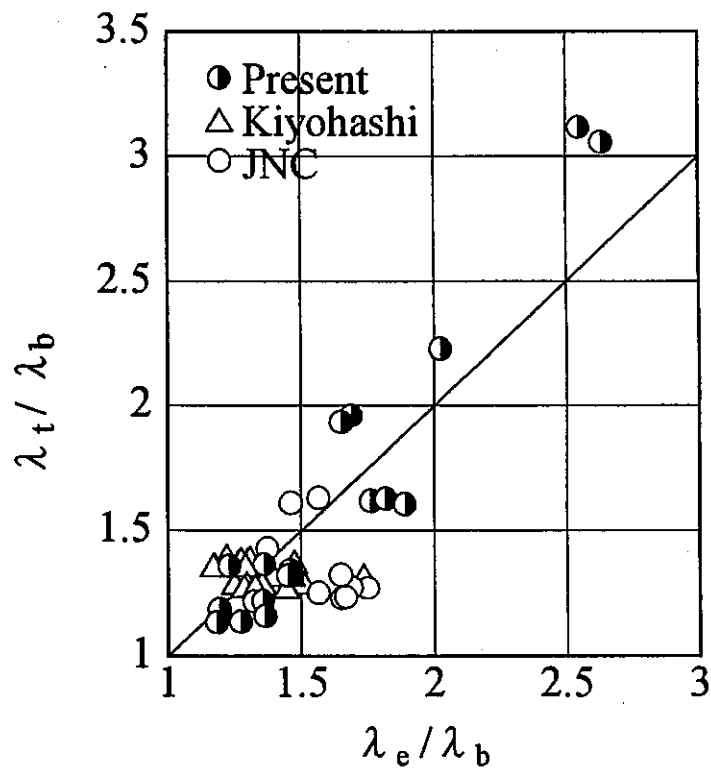


(b) Bruggeman correlation

Fig.4-9 Comparison between the measured and calculated values

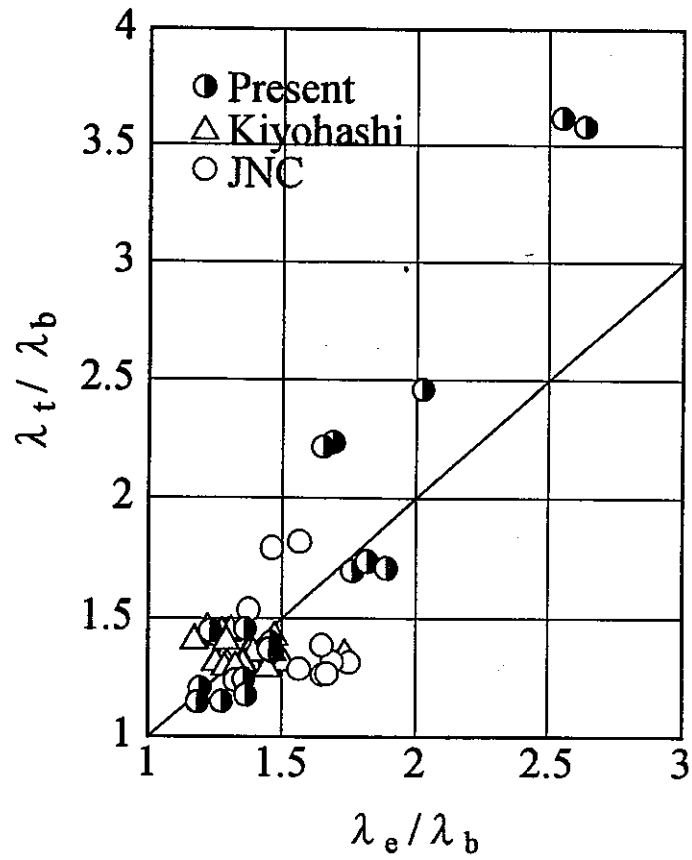


(c) Fricke correlation



(d) Johnson correlation

Fig.4-9 Comparison between the measured and calculated values



(e) Yamada correlation

Fig.4-9 Comparison between the measured and calculated values

5. 結 言

サーミスタを点熱源とする熱伝導率測定法により、ペントナイトと珪砂の混合する緩衝材の熱伝導率を測定した。また、既存の測定値と本測定値を用いて、既存の分散物質の熱伝導率推算式による計算値と比較し、より精度良く熱伝導率を推算する式を特定した。比較した推算式は、Maxwell、Bruggeman、Fricke、Johnson および山田の式である。珪砂の形状を熊田の方法で回転楕円体に近似し、Frickeの式を用いれば、ペントナイトに珪砂を混合した場合の熱伝導率を実用上必要な精度で求められる。また、Bruggemanの式は球状分散体の分散体積率が高い場合の式であるが、Frickeの式と同等の精度で熱伝導率を求めることができる。

本報告では、本測定値の他に幾世橋らや鈴木らのデータと各種推算式の計算値を比較した。幾世橋らや鈴木らのデータは、乾燥状態で珪砂の重量比が30%で体積率が22.1%から25.7%、乾燥密度が1.49から2.01(kg/m³)、水の飽和度が41.6%から94.6%と比較的珪砂による熱伝導率の増加の効果が小さい領域の測定データである。これに対して、本測定値は、珪砂の体積率は、11.7%から44.0%、乾燥密度が1.49~2.0(kg/m³)、水の飽和度は1%から94%と、データは少ないが広い範囲にまたがっている。幾世橋らや鈴木らのデータは、珪砂の重量混合率が30%と一定として、各種乾燥密度の混合物質の熱伝導率への水分含有率の影響を測定したデータである。図4-9の比較ではいずれもこれらの測定値は水平方向に拡散しており、むしろ混合物質の熱伝導率への水分含有率の影響の推算の精度が悪いことを示している。珪砂混合の場合の水分含有率の熱伝導率への影響については、深地層に処分した後の時間経過とともに、乾燥状態から水の飽和状態まで含水率が変化する可能性があり、このような広範囲のペントナイトと珪砂の混合物質の熱伝導率を正しく推算する必要がある。

ペントナイトやペントナイトと珪砂の熱伝導率の推算法を整理すれば、以下のようである。まず、ペントナイトの熱伝導率を坂下・熊田の次の近似式により求める。

$$\lambda_B = \lambda_o [1 + \{(9.7n - 0.706)Sr\}^{0.285n + 0.731}] \quad (5-1)$$

ここで、 $\lambda_o = 0.0497 + 0.222(1-n) + 0.968(1-n)^3$ で乾燥ペントナイトの熱伝導率、 n は空隙率、 Sr は含水率である。このようにして求めたペントナイトの熱伝導率を分散物質の熱伝導率として、分散体の珪砂の体積率、熱伝導率(3.4W/mK)およ

び回転楕円体の回転軸 a と垂直方向の軸の長さの比 $a/b=0.386$ を用いて、Fricke または Bruggeman の式 ($a/b=0.386$ は必要がない) を用いて計算すればよい。なお、式 (5-1) には温度に関わる因子が含まれていないが、常温から 100°C の範囲では緩衝材の熱伝導率の温度への依存性は小さく無視している。