

緩衝材の熱物性試験（Ⅱ）

（試験報告）

1999年3月

核燃料サイクル開発機構
東 海 事 業 所

本資料の全部または一部を複写・複製・転写する場合は、下記にお問い合わせください。

〒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
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)
1999

緩衝材の熱物性試験（II）

報告者 鈴木英明** 谷口航*

要旨

高レベル放射性廃棄物の地層処分における処分場レイアウトのうち、廃棄体の埋設レイアウトは、ニアフィールドの温度、空洞安定性、人工バリアに必要な寸法、地質環境特性などから来る制限や条件を満足し、合理的な処分坑道離間距離および廃棄体ピッチの組み合わせによって設定される。このうち、ニアフィールドの温度については、廃棄体が核種の崩壊により熱を発生するため、ガラス固化体、緩衝材および周辺岩盤の熱的影響の観点から最大上昇温度が制限される。このため、廃棄体埋設レイアウトに関する検討として、処分周辺の温度を把握するために、廃棄体埋設レイアウト、廃棄体の定置方式、処分深度など、種々の条件でのニアフィールド熱解析が行われている。

熱解析に必要となる緩衝材の熱物性、すなわち熱伝導率、比熱については、測定手法の開発とともに、緩衝材の密度や水分含有率および温度依存性等に関する研究が進められている。

本報告書は、第2次取りまとめにおけるニアフィールド熱解析に用いる緩衝材の熱物性値を整理することを目的に、実験により緩衝材材料の熱物性値を測定し、その結果を取りまとめたものである。実験は、供試体の含水比および測定温度をパラメータとして熱拡散率と熱伝導率の測定を実施し、両者の関係から比熱を求めた。その結果、熱伝導率、比熱とともに供試体の含水比に依存して大きく変化し、比熱については、緩衝材の構成成分から求められる理論的な予測値と良く一致する結果であった。また、これらの熱物性値は90°C以下の条件では温度による変化は小さいことが分かった。以上のことから、緩衝材の熱伝導率および比熱について緩衝材材料の含水比の関数として定式化を行った。また、人工バリアに生じる隙間対策の一例として用いられることを考えられているパウダー状ベントナイトの熱物性の取得を行ったので合わせて報告する。

* 核燃料サイクル機構 処分研究部 処分バリア性能研究グループ

** 檢査開発（株）

目 次

第1章 はじめに	1
第2章 実験材料	2
第3章 実験方法	5
3.1 热伝導率の測定	5
3.1.1 測定原理	5
3.1.2 測定方法	6
3.1.3 実験条件	7
3.2 热拡散率の測定	8
3.2.1 測定原理	8
3.2.2 測定方法	9
3.2.3 実験条件	13
第4章 実験結果	15
4.1 緩衝材	15
4.1.1 热伝導率の測定結果	15
(1) 热伝導率の含水比依存性	15
(2) 热伝導率の温度依存性	17
4.1.2 热拡散率の測定結果	19
4.1.3 比熱	20
(1) 比熱の含水比依存性	23
(2) 比熱の温度依存性	26
4.2 パウダー状ベントナイト	27
第5章 まとめ	28
【引用文献】	29

第1章 はじめに

高レベル放射性廃棄物の地層処分における処分場レイアウトのうち、廃棄体の埋設レイアウトは、ニアフィールドの温度、空洞安定性、人工バリアに必要な寸法、地質環境特性などから来る制限や条件を満足し、合理的な処分坑道離間距離および廃棄体ピッチの組み合わせによって設定される。このうち、人工バリアを含むニアフィールドの温度は、廃棄体が核種の崩壊により熱を発生するため、ガラス固化体、緩衝材および周辺岩盤の熱的影響の観点から最大上昇温度が制限される。このため、廃棄体埋設レイアウトに関する検討として、処分周辺の温度を把握するために、廃棄体埋設レイアウト、廃棄体の定置方式、処分深度など、種々の条件でのニアフィールド熱解析が行われている（谷口ほか、1997）。

また、廃棄体定置後は、廃棄体の放熱以外に緩衝材中に地下水が浸潤することによって、ニアフィールドの温度、水理、応力環境が変化することが予想される。特に、緩衝材中への地下水の浸潤は、緩衝材の伝熱性を大きく変化させるため、地下水の浸潤の程度が温度に及ぼす影響は大きい。このため、廃棄体の放熱と地下水の浸潤が相互に作用した連成挙動を評価するための熱-水-応力連成モデルの開発や、解析評価が進められている（Ohnishi,Y.et al.,1985）（Jing,L.et al.,1996）。

一方、熱解析に必要となる緩衝材の熱物性、すなわち熱伝導率、比熱については、測定手法の開発とともに、緩衝材の密度や含水比および温度依存性等に関する研究が進められている（藤田ほか、1992）。

第1次取りまとめにおいては、廃棄体一体当たりの専有面積と最大温度との関係に関する概略的なニアフィールド非連成熱解析が行われている（動燃事業団、1992）。ここで用いた緩衝材の熱物性のうち、比熱に関しては、実験により求めた比熱から緩衝材材料の固相の比熱を求め、比熱の含水比依存性については、緩衝材内の水分量の増加にともなう水の比熱の影響を考慮した理論値を用いた。また、実験結果より比熱に及ぼす温度の影響が小さいことから温度依存性はないものとして扱った（藤田ほか、1992）。一方、熱伝導率については、緩衝材材料の含水比および測定温度をパラメータとして迅速熱伝導率計を用いて測定した実測値を用いている（鈴木ほか、1992）。これら熱物性値は、細線のヒートプローブを利用した線熱源法で取得したものである。

その後、球状のヒートプローブを利用した点熱源法が開発された（熊田、1997）。球状ヒートプローブの寸法は非常に小さいため、測定試料との熱的な接触抵抗による測定誤差を低減できることや、線熱源法に比べて短時間で、しかも低い温度上昇で測定できることなどから、緩衝材材料内の水分の再配分を小さくできるため、より精度の高い測定ができるものと考えられている。

本論は、第2次取りまとめにおけるニアフィールド熱解析に用いる緩衝材の熱物性値を整理することを目的に、球状のヒートプローブを利用した点熱源法により熱拡散率を測定し、熱拡散率と熱伝導率との関係から比熱を求め、緩衝材の熱伝導率と比熱の含水比および温度依存性についてまとめたものである。さらに、人工バリアの密閉性向上のため、人工バリアに生じる隙間対策の一例として用いることが検討されているパウダー状態のベントナイトの熱物性を取得したので合わせて報告する。

第2章 実験材料

地層処分システムにおける人工バリアは、ガラス固化体、オーバーパック、緩衝材を基本として構成され、このうち、緩衝材にはベントナイトを用いることが考えられている。緩衝材は、ベントナイトを高密度に圧縮して製作されるが、施工性あるいは経済性さらには熱伝導性に関する改善の可能性の観点から、ベントナイトを主成分とし、これにケイ砂を混合した仕様も考えられている。

本報告書における緩衝材の熱物性試験は、第一次取りまとめ（動燃事業団、1992）において緩衝材の仕様例として挙げられた乾燥密度 1.8g/cm^3 のベントナイト単体、および第二次取りまとめの仕様例として挙げられている乾燥密度 1.6g/cm^3 のケイ砂混合体（ベントナイトにケイ砂を30wt%混合したもの）の二種類の緩衝材仕様を対象とした。

ベントナイトおよびケイ砂の各原料は以下の通りである。なお、ケイ砂は粒度の異なる3号と5号を質量比で1対1で混合したものを用いた。

	名称	産地
ベントナイト	クニゲルV1	山形県月布産、クニミネ工業
ケイ砂3号（粗）	標準砂	愛知県瀬戸市産
ケイ砂5号（細）	パール5号	西濠州産

クニゲルV1の鉱物組成を表2.1（伊藤ほか、1993）に、ケイ砂の化学組成を表2.2（佐藤ほか、1990）に示す。また、クニゲルV1の粒度分布を表2.3（松本ほか、1997）に、ケイ砂の粒度分布を表2.4（佐藤ほか、1990）に、それぞれの材料の通過重量百分率をまとめて図2.1に示す。尚、クニゲルV1の粒度は、レーザー回折式粒度分布測定装置（島津製作所社製）によって測定したものである。

表 2.1 クニゲルV1の鉱物組成

鉱物種	wt%
モンモリロナイト	46~49
石英、玉髄	29~38
斜長石	2.7~5.5
方解石	2.1~2.6
苦灰石	2.0~2.8
方沸石	3.0~3.5
黄鉄鉱	0.5~0.7

表2.2 ケイ砂の化学組成

成分	wt%	
	3号(粗)	5号(細)
SiO ₂	94.6	99.78
Al ₂ O ₃	3.32	0.05
Fe ₂ O ₃	0.13	0.01
TiO ₂	-	0.03
MgO	-	<0.01
Na ₂ O	-	0.01
K ₂ O	-	0.01
Igloss	-	0.12

表2.3 クニゲルV1の粒度分布

粒径[μm]	wt[%]	粒径[μm]	wt[%]
0.22	0.000	5.60	6.644
0.27	0.013	6.85	6.349
0.34	0.080	8.38	5.401
0.41	0.446	10.25	4.974
0.50	0.672	12.53	5.572
0.61	1.210	15.32	6.062
0.75	1.801	18.73	5.476
0.92	2.336	22.91	4.245
1.12	2.740	28.01	3.296
1.37	3.036	34.25	3.081
1.68	3.299	41.89	3.247
2.05	3.587	51.22	3.074
2.51	3.940	62.63	2.212
3.07	4.442	76.59	1.090
3.75	5.194	93.65	0.337
4.58	6.090	114.51	0.055

表2.4 ケイ砂の粒度分布

MESH (MICRON)	wt%	
	3号（粗）	5号（細）
14(1190)	38.4	-
20(840)	59.6	0.5
28(590)	1.7	16.0
35(420)	0.2	37.8
48(297)	0.1	29.6
65(210)	-	11.2
100(140)	-	3.8
150(105)	-	0.9
200(74)	-	0.2

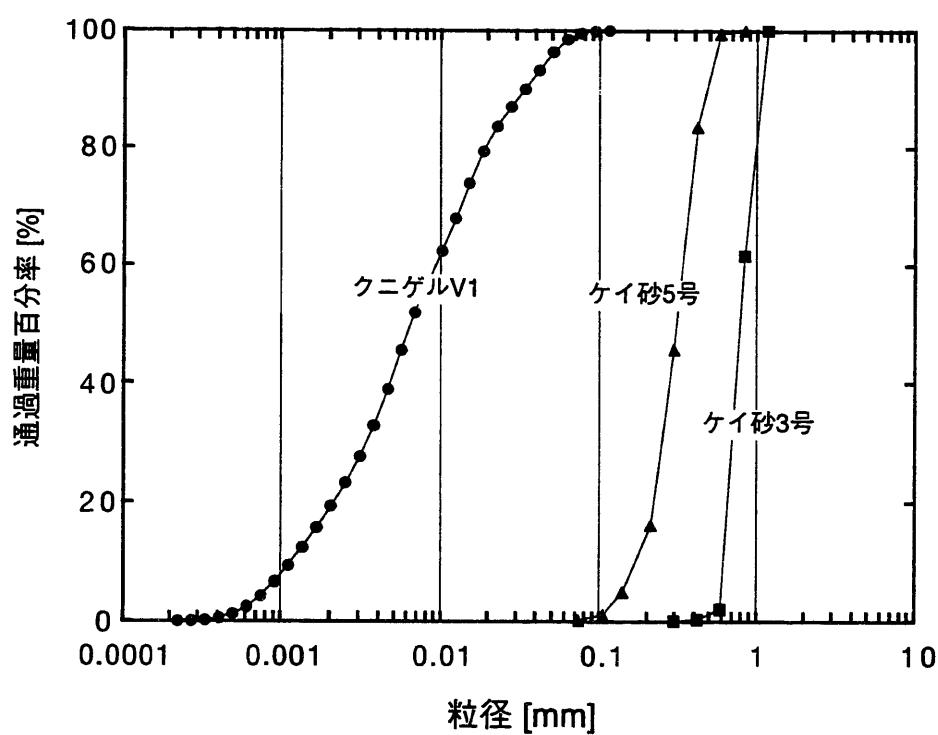


図2.1 クニゲルV1およびケイ砂の粒度分布

第3章 実験方法

3.1 热伝導率の測定

3.1.1 測定原理

熱伝導率の測定方法としては、大きく定常法と非定常法の二つに分けられる。

定常法は、測定物質中に水分が含有されていない場合には精度が良い測定方法となるが、緩衝材材料のように水分を含有している場合には、定常の温度勾配によって、測定物質中の水分の再配分が生じる可能性がある。

これに対し、非定常法は測定物質中の水分の再配分が起こらない程度の短い時間で測定を行うものであり、非定常法として最も一般的であるのがプローブ法という線熱源を利用する方法である。土壤の熱伝導率の測定はプローブ法により行われるのが通例である。

測定物質中にある十分に細くて長い線熱源に一定電力（熱量）を継続的に与えると線熱源の温度は時間とともに指数関数的に上昇し、この間の時間($t_2 - t_1$)に対する温度上昇割合($T_2 - T_1$)から、次式により測定物質の熱伝導率を求めることができる（ただし、 $r / 2\sqrt{\alpha t} < 1$ 、 α ：熱拡散率、 t ：時間、 r ：半径）。

$$\lambda = \frac{q \ln(t_2 - t_1)}{4\pi(T_2 - T_1)} \quad (3.1)$$

q ：線熱源の単位長さ当たりの発熱量

ここで、

$$q = RI^2 \quad (3.2)$$

である。そして、熱電対の熱電能 η [V/°C]が既知ならば、(3.1) 式は次のように書き改めることができる。

$$\lambda = \frac{R\eta}{4\pi} \frac{I^2 \ln(t_2 - t_1)}{V_2 - V_1} \quad (3.3)$$

3.1.2 測定方法

本研究における熱伝導率の測定には、迅速熱伝導率計（昭和電工社製）を用いた。迅速熱伝導率計は、コンクリートや木材など熱伝導率が0.02~10kcal/m h Kの材料の測定に有効であるとされている。本装置での測定時間は、加熱線に電流を与えてから60秒程度であり、その間の温度上昇は20°C程度である。そして、測定できる温度範囲は-10~200°Cである。

通常の非定常熱線法は、供試体に孔を開けそこに線熱源を挿入するか、もしくは二つの供試体で線熱源を挟む方法によって設置するが、迅速熱伝導率計は、図3.1に示すように、一方の熱伝導率が既知の断熱性に富んだ材料に置き換えて測定するものであり、通常の線熱線法による解析結果の(3.3)式に類似した形で次式で表すことができる。

$$\lambda = K \frac{I^2 \ln(t_2 / t_1)}{V_2 - V_1} - H \quad (3.4)$$

K, H : 热伝導率計のプローブによって定まる定数（ヒータ線の抵抗、熱電対の熱電能、熱伝導率既知の基材の熱伝導率等を含む）

I : ヒーター線を流れる一定電流[A]

t : サンプリング時間[s]

V : 热電対の出力[mV]

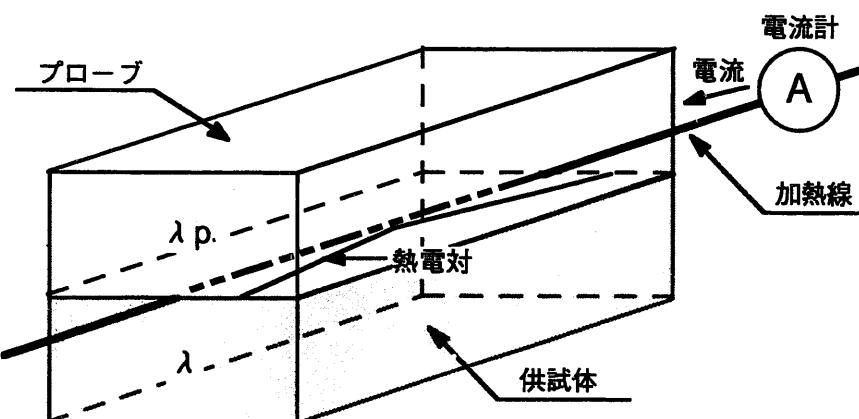


図3.1 热伝導率計の測定原理

3.1.3 実験条件

熱伝導率の測定は、ベントナイト単体（乾燥密度 1.8g/cm^3 ）とケイ砂混合体（ベントナイトにケイ砂を30wt%混合した材料、乾燥密度 1.6g/cm^3 ）を対象に、供試体の含水比および測定温度をパラメータとして実施した。供試体の含水比は0%～飽和含水比とし、ベントナイト単体（乾燥密度 1.8g/cm^3 ）の場合の飽和含水比は約18.5%，ケイ砂混合体（乾燥密度 1.6g/cm^3 ）の場合の飽和含水比は約25%とした。実験条件をまとめて表3.1に示す。

表3.1 热伝導率の実験条件

	ベントナイト単体	ケイ砂混合体
乾燥密度 [g/cm ³]	1.8	1.6
含水比 [%]	0～18.5 (0, 7, 14)	0～25 (0, 7, 15)
測定温度[°C]	室温 (20, 60, 90)	
供試体寸法 [mm]	W100×D50×H50	

() 内は、試験温度をパラメータとして測定を行った場合の条件を示す

3.2 热拡散率の測定

3.2.1 測定原理

熱拡散率の測定は、球状のプローブによる点熱源法（熊田，1997）により行った。

点熱源法は、針状のプローブを用いた線熱源法に比べて短時間で、しかも低い温度上昇で測定できることや、測定試料との熱的接触抵抗による測定誤差を低減できること等により、より精度の高い測定ができるものと考えられている。

測定法の基本的な原理は、無限媒体中の点熱源を発熱させ、点熱源の温度を測定することにより媒体の熱物性値を決定するものである。

球状点熱源の熱伝導率が、測定試料のそれに比べて十分に大きい場合、一定温度の無限媒体中で球状点熱源をステップ加熱したときの温度上昇 T は次式で与えられる。

$$T = \frac{q}{4\pi a \lambda_x} \left\{ 1 - \frac{2a^2 k^2}{\pi} \int_0^\infty \frac{e^{-\kappa_x u^2 t/a^2}}{(au^2 - ka)^2 + (aku)^2} du \right\} \quad (3.5)$$

ここで、 $k = 3 \frac{\rho_x C_p_x}{\rho_s C_p_s}$ (ρ は単位体積重量、 C_p は比熱、添え字の x , s はそれぞれ試料と球状点熱源を表す) であり、時間 t が十分に大きい場合には (3.5) 式は次のように近似することができる。

$$T = \frac{q}{4\pi a \lambda_x} \left\{ 1 - \frac{a}{(\pi \kappa_x t)^{1/2}} - \frac{a^3 (2 - k)}{\left[2k\pi^{1/2} (\kappa_x t)^{3/2} \right]} + \dots \right\} \quad (3.6)$$

ここで、

q : 発熱量

λ_x : 測定試料の熱伝導率

a : 球状点熱源の半径

κ_x : 測定試料の熱拡散率

である。そして、球状点熱源の半径が十分に小さければ、(3.6) 式を簡素化することができ、次式のようになる。

$$T = \frac{q}{4\pi a \lambda_x} \left[1 - \frac{a}{(\pi \kappa_x t)^{1/2}} \right] \quad (3.7)$$

この場合、点熱源の半径が既知であり、測定開始後直ちに発熱量が一定となるのであれば、発熱量と点熱源の温度を測定することにより、測定試料の熱伝導率を決定することができる。しかし、点熱源に用いた球状プローブのうち、熱源にあたるサーミスタは球状ではなく、さらにサーミスタにはガラス被膜やリード線が取り付けられているため、媒体中に完全な球状点熱源がある場合の解析解を利用すると誤差を生じることになる。そこで、球状プローブを構成するサーミスタ、ガラス被膜、リード線そして測定試料を考慮した複合系モデルでの非定常熱伝導方程式を数値解析により解くことによって、測定試料の熱拡散率を決定することとした。また、これら数値解析を行ううえで、精密な実測が不可能であるサーミスタおよびガラス被膜の寸法を与えるに当たっては、物性値が正確に知られている水を用いて数値解析によるサーミスタの温度上昇と実測値が一致するように寸法を決定した。尚、本数値解析におけるサーミスタ、ガラス被膜、リード線の比熱、熱伝導率および単位体積重量は文献値を用いた。

3.2.2 測定方法

熱源には、図3.2に示す球状プローブ（芝浦電子社製 PBT-43-S2）を用いた。球状プローブは、サーミスタ微粒子に白金リード線を取り付け、それをガラスで保護した構造となっている。サーミスタは熱源であるとともに、温度変化による電気抵抗の変化を利用して温度センサーとして使用する。

実験に使用した測定回路を図3.3に示す。回路は、サーミスタと可変抵抗を直列に繋ぎ、サーミスタの発熱によって変化するサーミスタ端子間と可変抵抗間の電圧を測定する構造である。電圧変化はデータロガにより記録した。

記録された電圧からオームの法則に従い、サーミスタの電気抵抗値と発熱量を求め、サーミスタの抵抗一温度特性曲線（図3.4）を用いてサーミスタの温度変化を求めた。

次に、次式に基づき熱拡散率をパラメータにして数値解析を行い、実験によって得られたサーミスタの温度上昇のプロファイルと数値解析結果の偏差が最小となる熱拡散率を実験における供試体の熱拡散率と同定した。

$$\frac{\partial T}{\partial t} = \alpha \nabla^2 T \quad (3.8)$$

T : 温度

α : 热拡散率

t : 時間

この数値解析における熱伝導モデルでは、前記したように図3.2に示すサーミスタの熱伝導率および寸法等の厳密解が求められていないので、物性値が正確に知られている水（約15°C）の中でサーミスタを発熱させて温度上昇を測定し、これと(3.8)式による数値解析結果が一致するようにサーミスタの物性値を決定している。この際、サー

ミスターの発熱による水の自然対流を防止するために、水には1%のゼラチンを添加して凝固している。

今回は、温度をパラメータとして熱拡散率の測定を行う。本来ならば、上記と同様に、測定温度に応じてサーミスターの物性値を校正するべきであるが、ゼラチン等で高い温度の水を凝固するのが不可能であり、これに変わって物性値が正確に知られている適当な校正用の物質がないため、数値解析に用いた球状プローブの各部の物性値は約15°Cの水で校正した値を用いた。

球状プローブ各部の物性値をまとめて表3.2に示す。

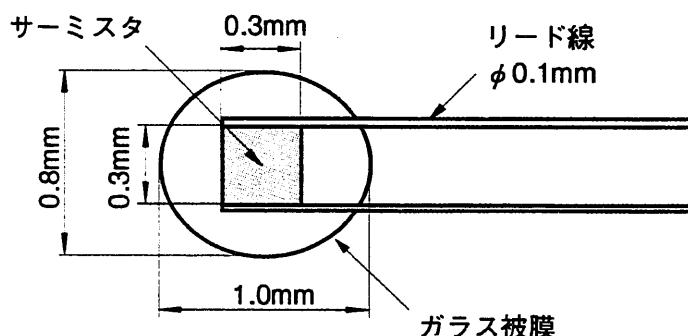


図3.2 球状プローブ

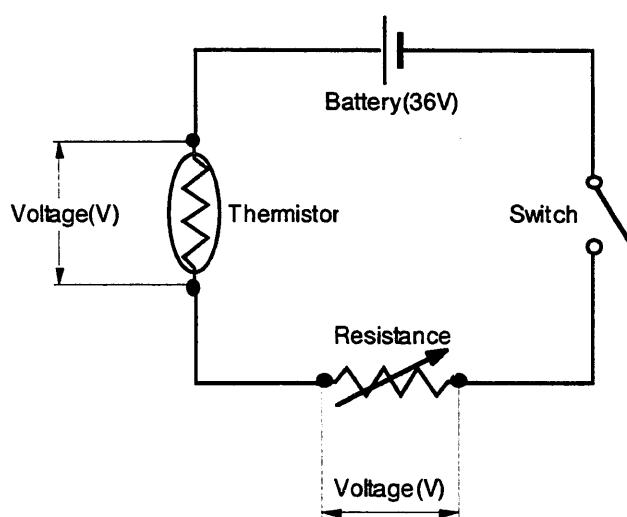


図3.3 測定回路

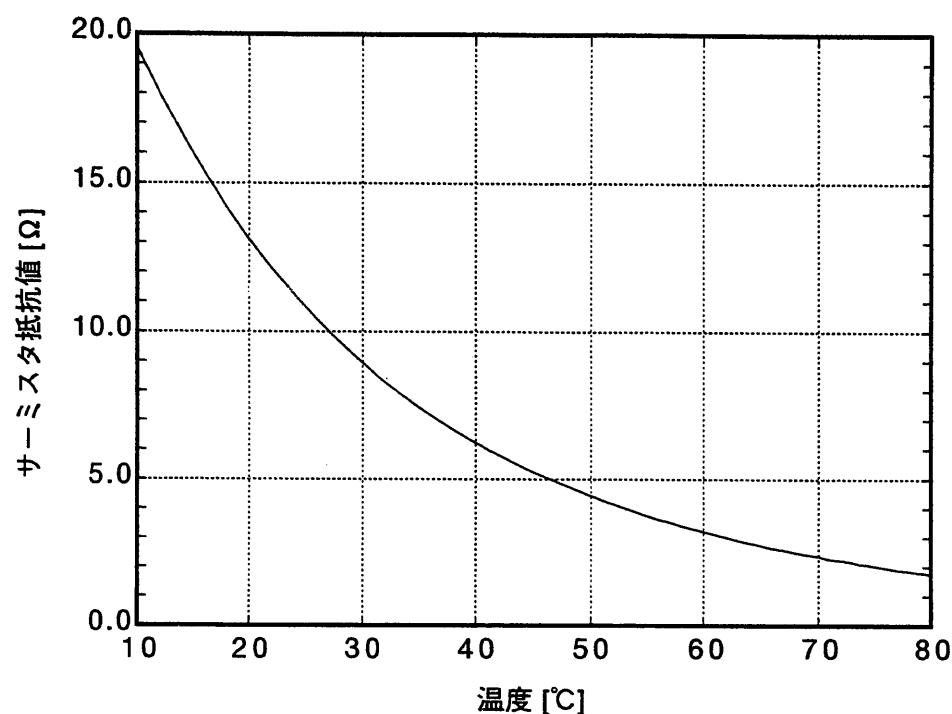


図3.4 サーミスタの抵抗-温度曲線

表3.2 数値解析に用いた球状プローブの熱物性値

	ガラス被膜	サーミスタ	白金
熱伝導率[W/m°C]	1.5	20	71
密度[kg/m ³]	2190	5000	21000
比熱[J/kgK]	700	250	130

測定装置を図3.5に示す。供試体は、含水比を調整した緩衝材材料を、直径20mm、厚さ10mmのアクリル製セル内に所定の乾燥密度に圧縮充填して作製した。サーミスターは二つの供試体の間に挟んで設置し、サーミスターのリード線を取り出すための空間はシリコン製の樹脂を充填した。

セルを断熱材で覆い、恒温槽内に設置し、槽内を一定温度とした。緩衝材が所定の温度に保たれていることをサーミスターの電気抵抗値を測定して確認した。

測定温度は、20, 60, 90°Cとし、同一供試体で測定温度を変化させて熱拡散率の測定を行った。

熱拡散率の測定後、常温まで冷却し供試体の乾燥密度および含水比を測定した。

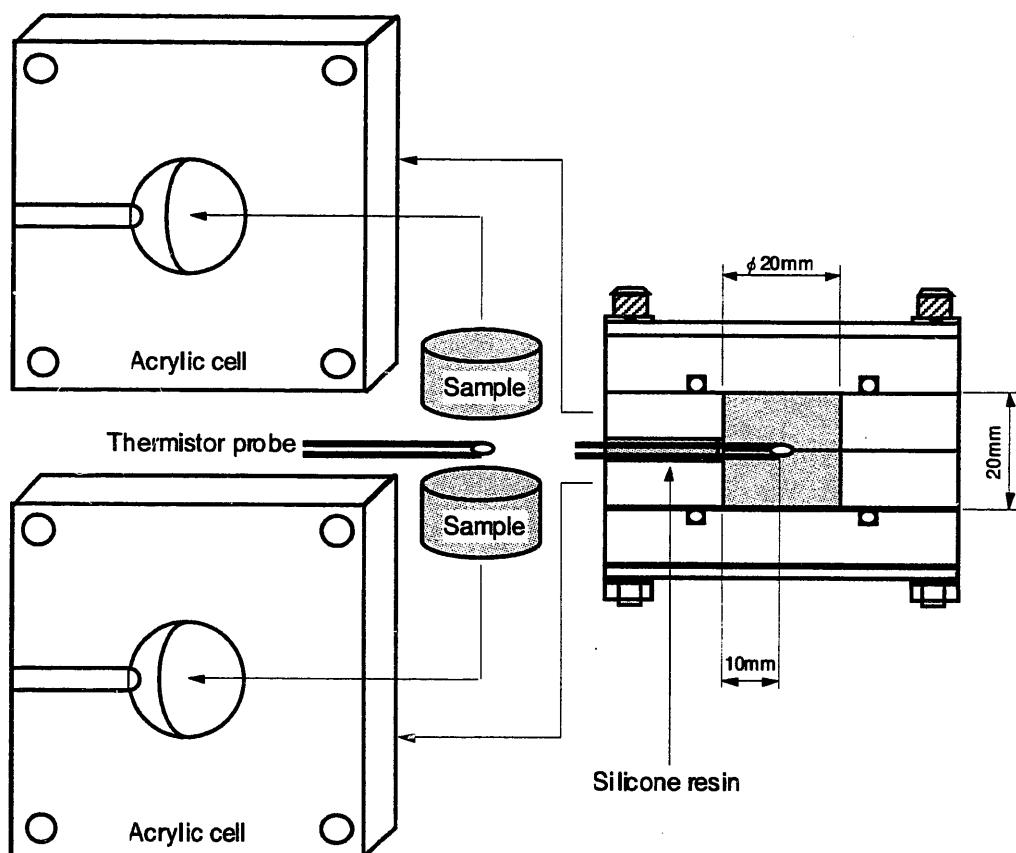


図3.5 測定装置

3.2.3 実験条件

(1) サーミスタの発熱量

ヒートプローブを利用した熱物性値の取得は、緩衝材材料中の水分の再配分を防止するために温度上昇量を極力小さく抑えることが望ましい。しかし、温度上昇量が小さすぎる場合には、データロガの分解能力の問題や測定中の外気温の変化などにより測定誤差を生じる可能性がある。そこで、サーミスタの発熱量を決定するため、熱拡散率におけるサーミスタの温度上昇量の影響を確認するための予備実験を実施した。

温度の上昇量は、回路に与える電圧で調整し、9Vの電池を直列につなぎ、9Vから36Vの範囲で実験を行った。

予備実験に用いた緩衝材材料は、ベントナイト単体で、乾燥密度が 1.8g/cm^3 、含水比は0%と10%の二種類に対して行った。測定温度は 20°C とした。

熱拡散率の測定結果を表3.3に示す。また、発熱量と熱拡散率の関係を図3.6に示す。

その結果、9~36Vの電圧によって、発熱量は約0.0016~0.026Wと変化し、温度上昇量は含水比が0%の場合には約0.04~0.7°C、含水比が10%の場合には約0.08~0.26°Cであった。

緩衝材材料中に水分が存在しない含水比0%の場合は、発熱量によらず測定された熱拡散率は一定の値を示し、熱拡散率における発熱量の影響はないことが分かった。

次に、緩衝材中に水分が存在する含水比10%の場合であるが、発熱量に依存して、緩衝材中の水分の蒸発熱の影響、あるいは熱源近傍の水分移動の影響により熱拡散率が変化すると予想された。しかし、18~36Vの電圧で行った熱拡散率はほぼ一定であり、この範囲では発熱量の影響がないことが分かった。9Vの電圧で行った場合には、温度上昇はスムーズではなく、これはデータロガの測定限界の可能性が考えられる。

以上の結果より、以後の実験は36Vで行うことに決定した。尚、サーミスタおよび可変抵抗の電圧の測定は0.5秒毎とし測定時間は30秒間とした。

表3.3 発熱量をパラメータとした熱拡散率の測定結果

含水比 [%]	乾燥密度 [g/cm ³]	電圧 [V]	発熱量 [W]	温度上昇量 [°C]	熱拡散率 [m ² /s]
0.98	1.77	9	0.00163	0.03723	1.13×10^{-6}
		18	0.00682	0.18501	1.13×10^{-6}
		27	0.01526	0.39827	1.15×10^{-6}
		36	0.02629	0.66619	1.17×10^{-6}
10.70	1.79	9	0.00157	0.07615	7.30×10^{-7}
		18	0.00693	0.07104	2.51×10^{-6}
		27	0.01489	0.11600	2.60×10^{-6}
		36	0.02574	0.25590	2.38×10^{-6}

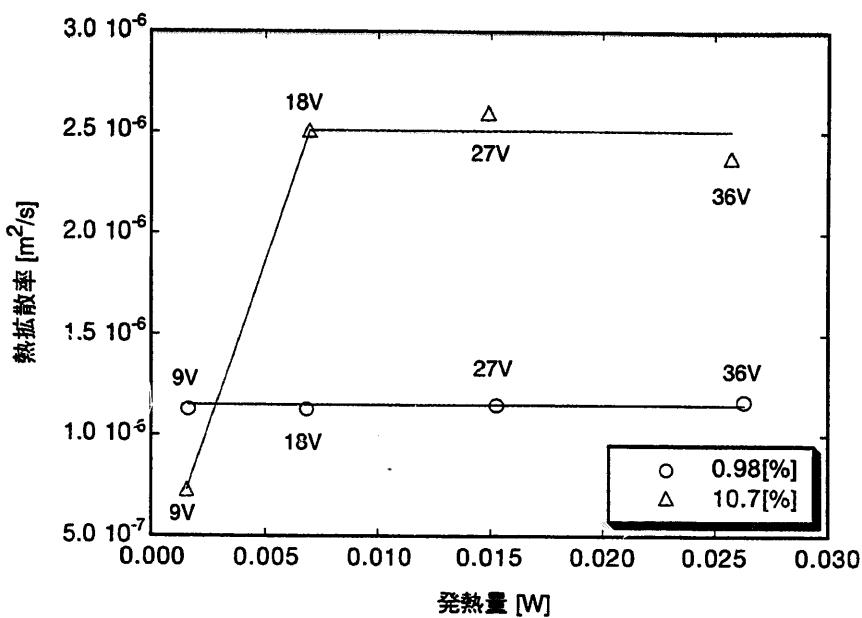


図3.6 発熱量と熱拡散率の関係

(2) 実験パラメータ

緩衝材材料の熱拡散率の測定は、ベントナイト単体（乾燥密度 1.8g/cm^3 ）とケイ砂混合体（乾燥密度 1.6g/cm^3 ）を対象に、供試体の含水比および測定温度をパラメータとした。供試体の含水比は、0%～飽和含水比とし、ベントナイト単体（乾燥密度 1.8g/cm^3 ）の場合の飽和含水比は約18.5%，ベントナイトとケイ砂の混合体（乾燥密度 1.6g/cm^3 ）の場合の飽和含水比は約25%とした。

測定温度は 20°C , 60°C , 90°C とし、同一供試体の温度を変化させて測定を行った。熱拡散率の測定条件をまとめて表3.4に示す。

表3.4 热拡散率の実験条件

	ベントナイト単体	ケイ砂混合材
乾燥密度 [g/cm^3]	1.8	1.6
含水比 [%]	0～18.5	0～25
試験温度 [$^\circ\text{C}$]	$20, 60, 90$	
供試体寸法[mm]	$\phi 20 \times 20$	

第4章 実験結果

4.1 緩衝材

4.1.1 热伝導率の測定結果

(1) 热伝導率の含水比依存性

热伝導率の測定結果を、ベントナイト単体（乾燥密度 1.8g/cm^3 ）の場合を図4.1に、ケイ砂混合体（乾燥密度 1.6g/cm^3 ）の場合を図4.2に示す。図4.1には、本測定方法とは異なる非定常線熱源プローブ法によって取得した値（藤田ほか, 1992）を比較して示す。これより、異なる測定方法でも热伝導率はよく一致しており、これは迅速热伝導率計によって測定した緩衝材材料の热伝導率が妥当であることを示すものである。

一般に、土の热伝導率は、固相率、含水率、石英含量、有機物含量に依存して変化すると言われている（Gaylon S.Campbell著、中野政詩、東山勇訳、1987）。ベントナイト単体（乾燥密度 1.8g/cm^3 ）の供試体は、ケイ砂混合体（乾燥密度 1.6g/cm^3 ）の供試体よりも固相率が大きいが、ケイ砂混合体にはケイ砂の主成分である石英が多く含まれるため、これらの影響により両者の热伝導率に大きな差異はない結果となった。

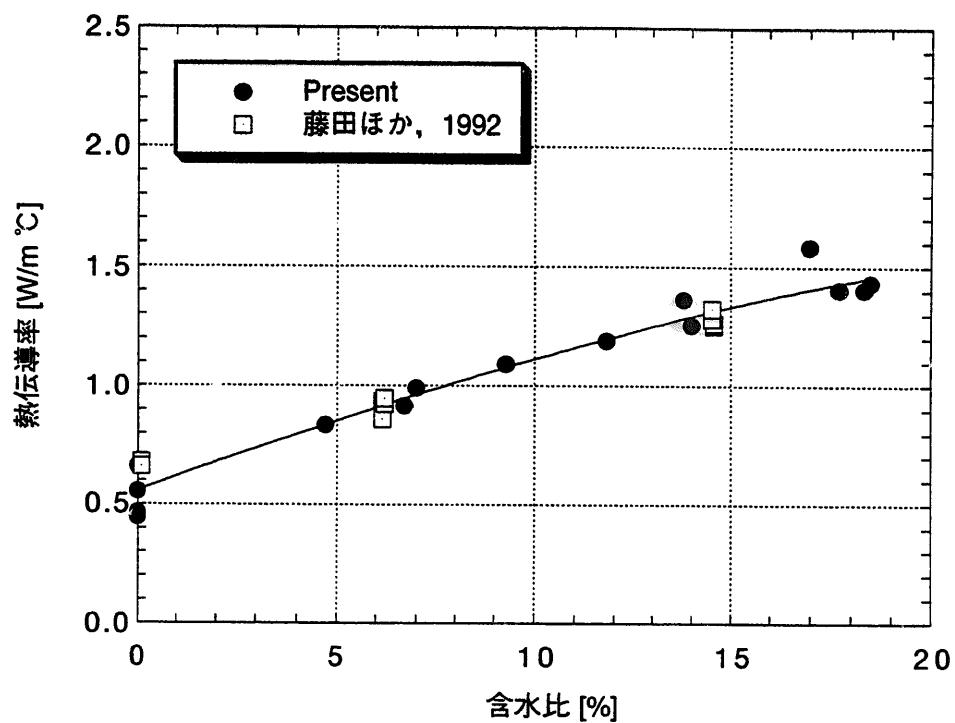
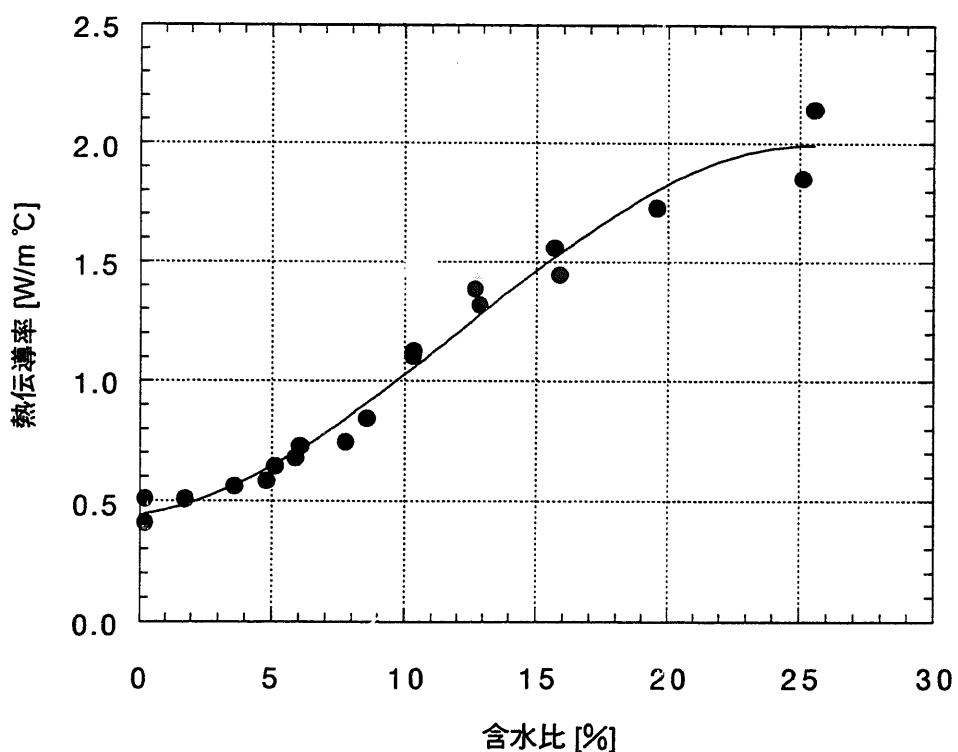
また、土の热伝導率は低水分領域では空気間隙が、高水分領域では固相の効果が大きくなり、热伝導率が低い値から高い値へと移る水分域が存在すると言われている（Gaylon S.Campbell著、中野政詩、東山勇訳、1987）。これは図4.2に示すケイ砂混合体の測定結果に顕著に見られる。このような現象を再現する近似曲線として、热伝導率 $\lambda[\text{W/mK}]$ と含水比[%]の関係を定式化すれば、ベントナイト単体（乾燥密度 1.8g/cm^3 ）の場合、供試体の含水比が0%から飽和含水比の約18.5%の間で、

$$\lambda = 5.58 \times 10^{-1} + 6.17 \times 10^{-2} \omega - 5.28 \times 10^{-4} \omega^2 - 9.67 \times 10^{-6} \omega^3 \quad (4.1)$$

ケイ砂混合体（乾燥密度 1.6g/cm^3 ）の場合、供試体の含水比が0%から飽和含水比の約25%の間で、

$$\lambda = 4.44 \times 10^{-1} + 1.38 \times 10^{-2} \omega + 6.14 \times 10^{-3} \omega^2 - 1.69 \times 10^{-4} \omega^3 \quad (4.2)$$

となる。

図4.1 热伝導率の測定結果（ベントナイト単体，乾燥密度 1.8g/cm^3 ）図4.2 热伝導率の測定結果（ケイ砂混合体，乾燥密度 1.6g/cm^3 ）

(2) 热伝導率の温度依存性

供試体の温度は、恒温槽を用いて制御を行った。この際、供試体からの水分の蒸発を防止するため供試体を食品用包装フィルムで包んで測定を行った。供試体の測定面と包装フィルムが密着している場合には、包装フィルムが及ぼす熱伝導率への影響がないことを事前の試験で確認している。

熱伝導率の測定結果を、ベントナイト単体の場合を図4.3に、ケイ砂混合体の場合を図4.4に示す。その結果、測定温度の20°C~90°Cの範囲では温度によらず熱伝導率はほぼ一定の値を示し、これは、通常の非定常線熱源法によって取得した結果（藤田ほか、1992）と同じ傾向であった。ただし、図4.4に示すケイ砂混合体の高含水比の測定結果は、20°Cに比べ60°Cの熱伝導率が低下している。これは、供試体からの水分の蒸発により供試体含水比が低下したため、あるいは、ヒートプローブの発熱によりヒートプローブ近傍の含水比が低下したためと考えられる。

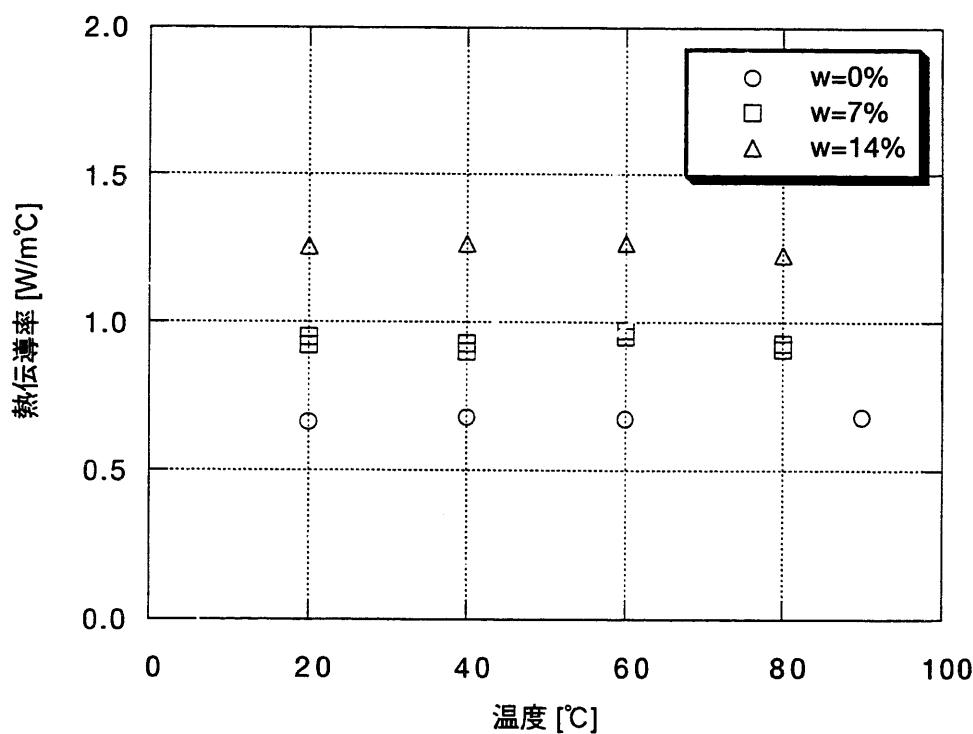


図4.3 热伝導率の測定結果（ベントナイト単体、乾燥密度1.8g/cm³）

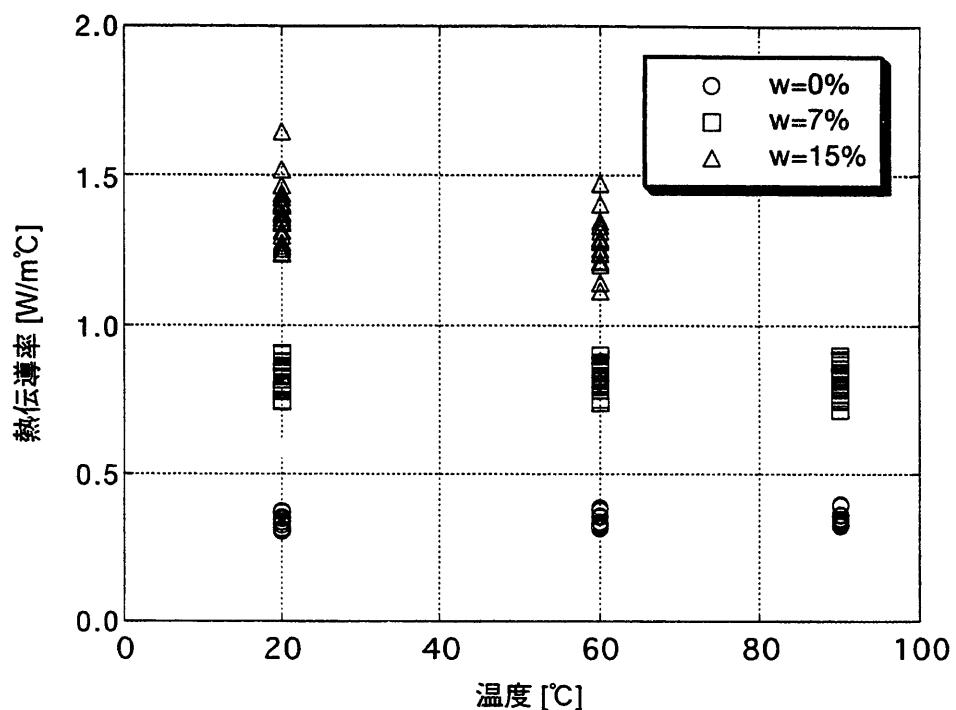


図4.4 热伝導率の測定結果（ケイ砂混合体，乾燥密度 1.6g/cm^3 ）

4.1.2 热拡散率の測定結果

热拡散率の測定結果を、供試体含水比の関係で整理し、ベントナイト単体の場合を図4.5に、ケイ砂混合体の場合を図4.6に示す。その結果、热拡散率は供試体の含水比によらずほぼ一定の値を示し、また、温度が高くなるにつれ若干ではあるが熱拡散率は大きくなる結果となった。

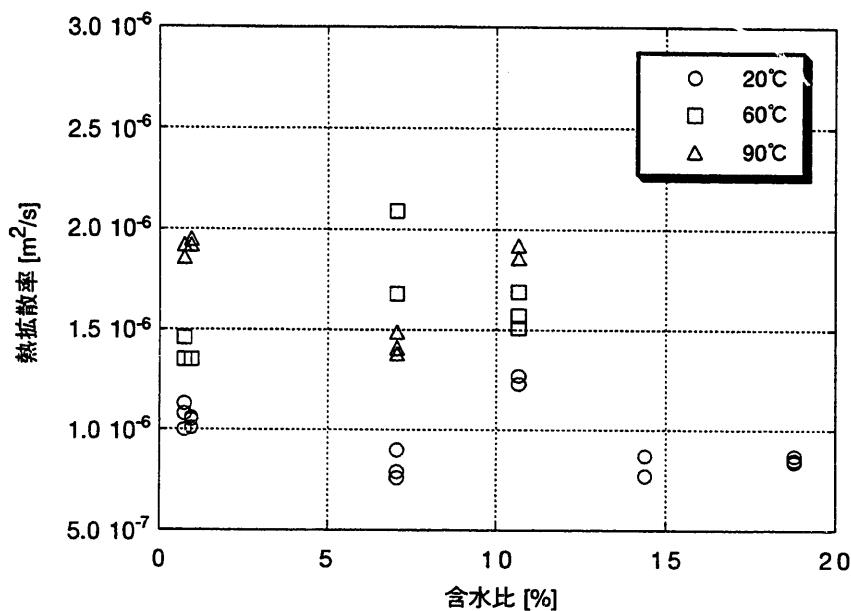


図4.5 热拡散率の測定結果
(ベントナイト単体, 乾燥密度1.8g/cm³)

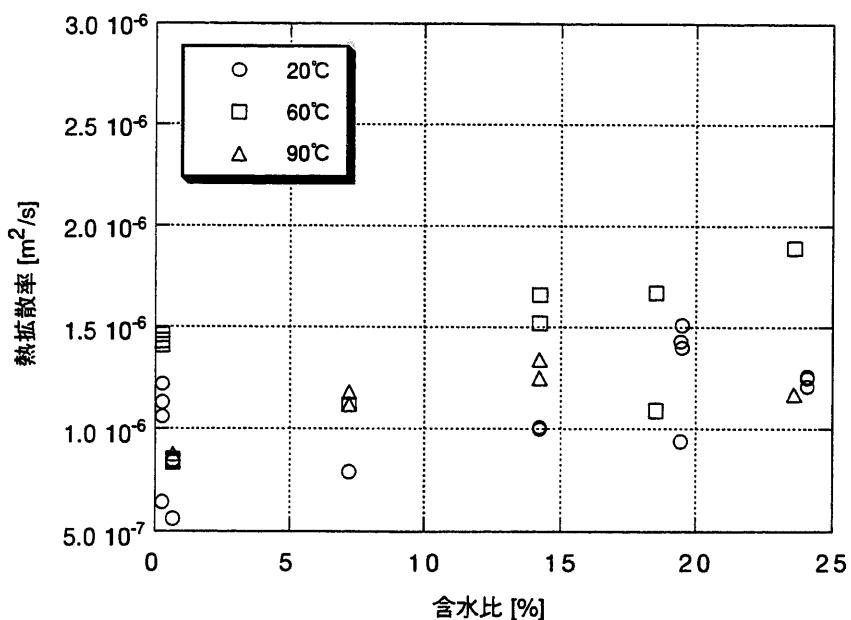


図4.6 热拡散率の測定結果
(ケイ砂混合体, 乾燥密度1.6g/cm³)

4.1.3 比熱

比熱と熱拡散率および熱伝導率の間には次式の関係がある。

$$\alpha = \frac{\lambda}{c\rho} \quad (4.3)$$

ここで、熱拡散率 α [m²/s] は、熱伝導率 λ [W/m K] を比熱 c [kJ/kg K] および単位体積重量 ρ [kg/m³] で除したものであり、物質内の温度が非定常状態分布となる場合の熱拡散性の程度を表す係数である。

したがって、第4.1章および第4.2章で求めた熱伝導率と熱拡散率から緩衝材材料の比熱を求めることができる。熱伝導率と熱拡散率の測定結果を表4.1～4.2に示す。比熱を供試体の含水比との関係で整理すれば図4.7～4.8のようになる。

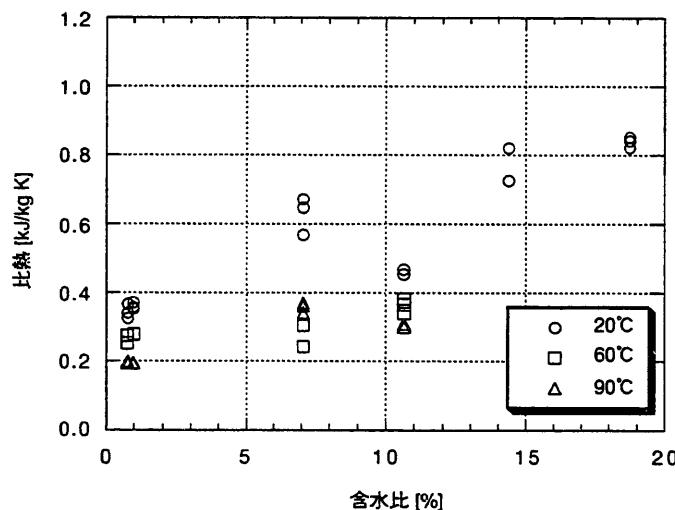


図4.7 含水比と比熱の関係 (ペントナイト単体, 乾燥密度1.8g/cm³)

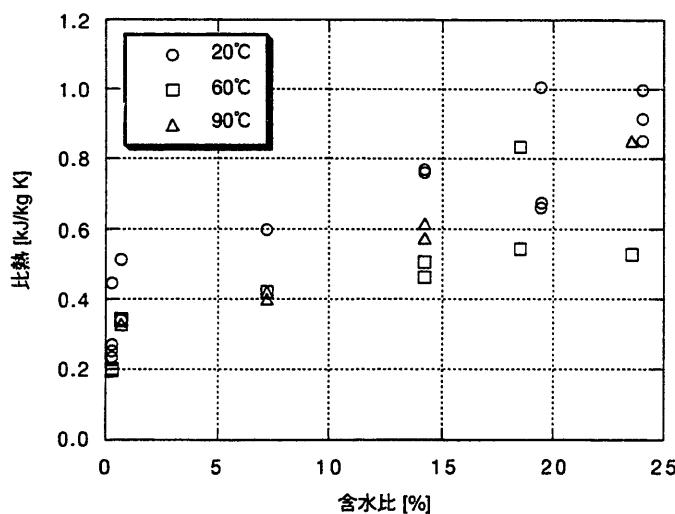


図4.8 含水比と比熱の関係 (ケイ砂混合体, 乾燥密度1.6g/cm³)

表4.1 ベントナイト単体の熱物性値測定結果

温度 [°C]	含水比 [%]	乾燥密度 [g/cm ³]	湿潤密度 [g/cm ³]	α [m ² /s]	λ [W/mK]	c [kJ/kgK]
20	0.76	1.79	1.80	1.08E-06	0.605	0.311
20	0.76	1.79	1.80	1.13E-06	0.605	0.297
20	0.76	1.79	1.80	1.00E-06	0.605	0.335
20	0.98	1.78	1.80	1.01E-06	0.618	0.341
20	0.98	1.78	1.80	1.05E-06	0.618	0.328
20	0.98	1.78	1.80	1.06E-06	0.618	0.325
20	7.07	1.77	1.90	9.00E-07	0.965	0.566
20	7.07	1.77	1.90	7.60E-07	0.965	0.670
20	7.07	1.77	1.90	7.90E-07	0.965	0.645
20	10.65	1.79	1.98	1.27E-06	1.144	0.455
20	10.65	1.79	1.98	1.27E-06	1.144	0.455
20	10.65	1.79	1.98	1.23E-06	1.144	0.470
20	14.38	1.81	2.07	7.70E-07	1.308	0.821
20	14.38	1.81	2.07	8.70E-07	1.308	0.726
20	18.75	1.80	2.14	8.50E-07	1.466	0.807
20	18.75	1.80	2.14	8.70E-07	1.466	0.788
20	18.75	1.80	2.14	8.40E-07	1.466	0.817
60	0.76	1.77	1.78	1.46E-06	0.605	0.232
60	0.76	1.77	1.78	1.35E-06	0.605	0.251
60	0.76	1.77	1.78	1.35E-06	0.605	0.251
60	0.98	1.77	1.79	1.35E-06	0.618	0.256
60	0.98	1.77	1.79	1.35E-06	0.618	0.256
60	0.98	1.77	1.79	1.35E-06	0.618	0.256
60	7.07	1.77	1.90	2.09E-06	0.965	0.244
60	7.07	1.77	1.90	1.68E-06	0.965	0.303
60	7.07	1.77	1.90	1.68E-06	0.965	0.303
60	10.65	1.79	1.98	1.51E-06	1.144	0.383
60	10.65	1.79	1.98	1.57E-06	1.144	0.368
60	10.65	1.79	1.98	1.69E-06	1.144	0.342
90	0.76	1.77	1.78	1.86E-06	0.605	0.182
90	0.76	1.77	1.78	1.92E-06	0.605	0.177
90	0.76	1.77	1.78	1.92E-06	0.605	0.177
90	0.98	1.77	1.79	1.92E-06	0.618	0.180
90	0.98	1.77	1.79	1.92E-06	0.618	0.180
90	0.98	1.77	1.79	1.95E-06	0.618	0.177
90	7.07	1.77	1.90	1.49E-06	0.965	0.342
90	7.07	1.77	1.90	1.41E-06	0.965	0.361
90	7.07	1.77	1.90	1.38E-06	0.965	0.369
90	10.65	1.79	1.98	1.92E-06	1.144	0.301
90	10.65	1.79	1.98	1.92E-06	1.144	0.301
90	10.65	1.79	1.98	1.86E-06	1.144	0.311

表 4.2 ケイ砂混合体の熱物性測定結果

温度 [°C]	含水比 [%]	乾燥密度 [g/cm ³]	湿潤密度 [g/cm ³]	α [m ² /s]	λ [W/mK]	c [kJ/kg K]
20	0.29	1.57	1.57	6.40E-07	0.449	0.445
20	0.29	1.57	1.57	1.06E-06	0.449	0.269
20	0.29	1.57	1.57	1.22E-06	0.449	0.234
20	0.29	1.57	1.57	1.13E-06	0.449	0.252
20	0.70	1.58	1.59	8.45E-07	0.457	0.340
20	0.70	1.58	1.59	8.45E-07	0.457	0.340
20	0.70	1.58	1.59	5.60E-07	0.457	0.512
20	7.21	1.58	1.69	7.90E-07	0.799	0.597
20	14.23	1.59	1.82	1.01E-06	1.397	0.762
20	14.23	1.59	1.82	1.00E-06	1.397	0.769
20	19.45	1.59	1.90	1.43E-06	1.797	0.660
20	19.45	1.59	1.90	9.40E-07	1.797	1.005
20	19.50	1.66	1.98	1.40E-06	1.797	0.647
20	24.05	1.60	1.98	1.26E-06	1.981	0.792
20	24.05	1.60	1.98	1.25E-06	1.981	0.798
20	24.05	1.60	1.98	1.21E-06	1.981	0.825
60	0.29	1.57	1.57	1.41E-06	0.449	0.202
60	0.29	1.57	1.57	1.43E-06	0.449	0.199
60	0.29	1.57	1.57	1.46E-06	0.449	0.195
60	0.70	1.58	1.59	8.35E-07	0.457	0.344
60	0.70	1.58	1.59	8.45E-07	0.457	0.340
60	0.70	1.58	1.59	8.50E-07	0.457	0.338
60	7.21	1.58	1.69	1.12E-06	0.799	0.421
60	7.21	1.58	1.69	1.12E-06	0.799	0.421
60	14.23	1.59	1.82	1.52E-06	1.397	0.506
60	14.23	1.59	1.82	1.66E-06	1.397	0.463
60	18.52	1.61	1.91	1.09E-06	1.734	0.834
60	18.52	1.61	1.91	1.67E-06	1.734	0.544
60	23.56	1.60	1.98	1.89E-06	1.971	0.528
90	0.29	1.57	1.57	2.24E-06	0.449	0.127
90	0.29	1.57	1.57	2.45E-06	0.449	0.116
90	0.29	1.57	1.57	2.25E-06	0.449	0.127
90	0.70	1.58	1.59	8.75E-07	0.457	0.328
90	0.70	1.58	1.59	8.75E-07	0.457	0.328
90	7.21	1.58	1.69	1.12E-06	0.799	0.421
90	7.21	1.58	1.69	1.18E-06	0.799	0.400
90	14.23	1.59	1.82	1.34E-06	1.397	0.574
90	14.23	1.59	1.82	1.25E-06	1.397	0.615
90	23.56	1.60	1.98	1.17E-06	1.971	0.852

(1) 比熱の含水比依存性

比熱は、前記したように実験的に求めることもできるが、土の物理的特性から予測したほうが便利であり、熱伝導解析の際のモデル化にはよく用いられている方法である。土の比熱は、土を構成する固相、液相、気相の単位体積当たりの重量比と各々の比熱の積の総和で表せることが知られており（例えば、Gaylon S.Campbell著、中野政詩、東山勇訳、1987）,

$$c = c_s \rho_s + c_w \rho_w + c_a \rho_a \quad (4.4)$$

である。ここで添字 s, w, a は各相を表す。このうち、気相の項は他に比べて十分小さいので無視することができる。

すなわち、

$$\begin{aligned} c &= c_s \frac{m_s}{m_s + m_w} + c_w \frac{m_w}{m_s + m_w} = c_s \frac{1}{1 + \frac{m_w}{m_s}} + c_w \frac{1}{1 + \frac{m_s}{m_w}} = c_s \frac{1}{1 + \omega} + c_w \frac{1}{1 + \frac{1}{\omega}} \\ &= \frac{c_s + c_w \omega}{1 + \omega} \end{aligned} \quad (4.5)$$

となる。ここで、 m は質量を、 ω は含水比 [-] を表す。

したがって、固相の比熱を求めれば、緩衝材材料中の水分の増加にともなう比熱の変化を予測することができる。

固相の比熱は、水分を含まない供試体で測定した熱拡散率および熱伝導率より求めることができ、熱伝導率は、(4.1)，(4.2) 式より求められる値を用いた。一方、熱拡散率は、サーミスタの校正を行っている測定温度20°Cでの結果を用いると、表4.1～4.2に示すように、ベントナイト単体で、 1.00×10^{-6} ～ 1.13×10^{-6} m²/s、ケイ砂混合体で、 5.60×10^{-7} ～ 1.22×10^{-6} m²/sである。

これより、緩衝材の固相の比熱は、ベントナイト単体の場合、0.297～0.341kJ/kgK、ケイ砂混合体の場合、0.234～0.512kJ/kgKとなる。ベントナイト単体に比べてケイ砂混合体のほうがデータのばらつきがみられる。これはベントナイトとケイ砂の混合状態に起因するものと考えられるが、両材料の固相の比熱は非常にばらつきの少ないものである。

これより、緩衝材の固相の比熱の平均は、ベントナイト単体で0.323kJ/kgK、ケイ砂混合体で0.341kJ/kgKとなる。

緩衝材の固相の熱物性値をまとめて表4.3に示す。

さらに、(4.5) 式に基づき、緩衝材中の水分の増加にともなう比熱を求め、含水比の関係で表せば図4.9～4.10のようになる。ここでの実測値は、測定温度20°Cの熱拡散

率から求めた比熱である。水の比熱は文献値より4.18kJ/kgK (20°C)とした(日本機械学会, 1986)。

緩衝材の材料に比べて水の比熱が大きいため、供試体中の水分の増加にともない予測される比熱は含水比に大きく依存して変化し、実験によって求めた比熱は、構成成分より予測される比熱と概ね一致していることが分かる。そして、熱伝導率と同様に両緩衝材材料の比熱に大きな差異はない結果となった。

各材料の構成成分より予測される比熱 c [kJ/kgK]と含水比 ω [%]の関係は以下のようになる。

クニゲルV1単体(乾燥密度1.8g/cm³)の場合,

$$c = \frac{32.3 + 4.18\omega}{100 + \omega} \quad (4.6)$$

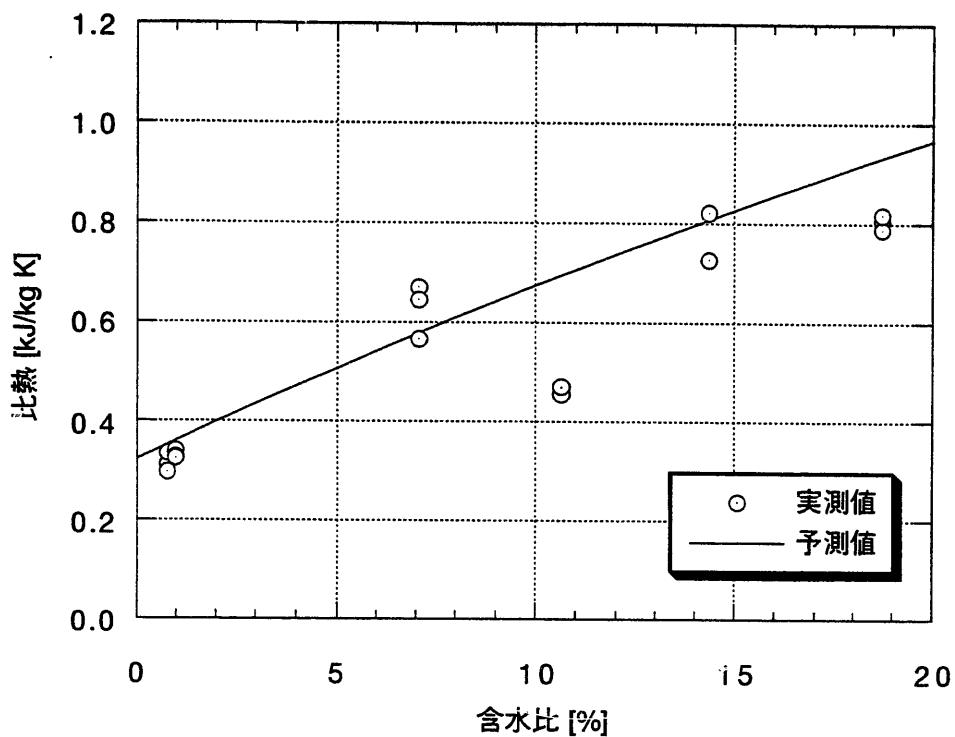
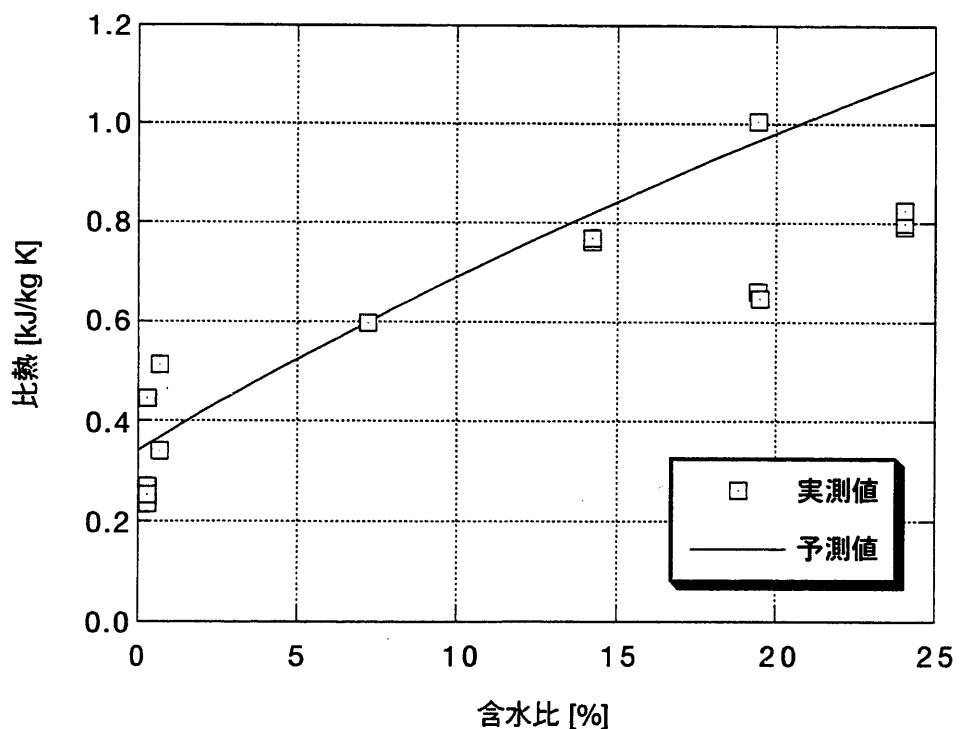
ケイ砂混合体(乾燥密度1.6g/cm³)の場合,

$$c = \frac{34.1 + 4.18\omega}{100 + \omega} \quad (4.7)$$

表4.3 緩衝材の固相の比熱

	乾燥密度 [g/cm ³]	熱伝導率 [W/m°C]	熱拡散率 [m ² /s]	比熱 [kJ/kgK]
ベントナイト単体 (乾燥密度1.8g/cm ³)	1.78	0.605	1.00×10^{-6}	0.297~0.341 (0.323)
	~	~	~	
	1.79	0.618	1.13×10^{-6}	
ケイ砂混合体 (乾燥密度1.6g/cm ³)	1.57	0.449	5.60×10^{-7}	0.234~0.512 (0.341)
	~	~	~	
	1.59	0.457	1.22×10^{-6}	

() 内は平均値

図4.9 比熱の実測値と予測値の比較（ベントナイト単体，乾燥密度 $1.8\text{g}/\text{cm}^3$ ）図4.10 比熱の実測値と予測値の比較（ケイ砂混合体，乾燥密度 $1.6\text{g}/\text{cm}^3$ ）

(2) 比熱の温度依存性

実験によって得られた比熱を測定温度との関係で整理すれば図4.11～4.12のようになる。比熱は概ね0.2～0.6kJ/kg Kの範囲内であった。

前述したように緩衝材の比熱は、供試体中に含有する水の比熱の影響が支配的であること、そして、20～90℃の範囲で水の比熱の温度による変化がほとんどないことから、緩衝材材料の比熱の温度依存性は小さいと言える。

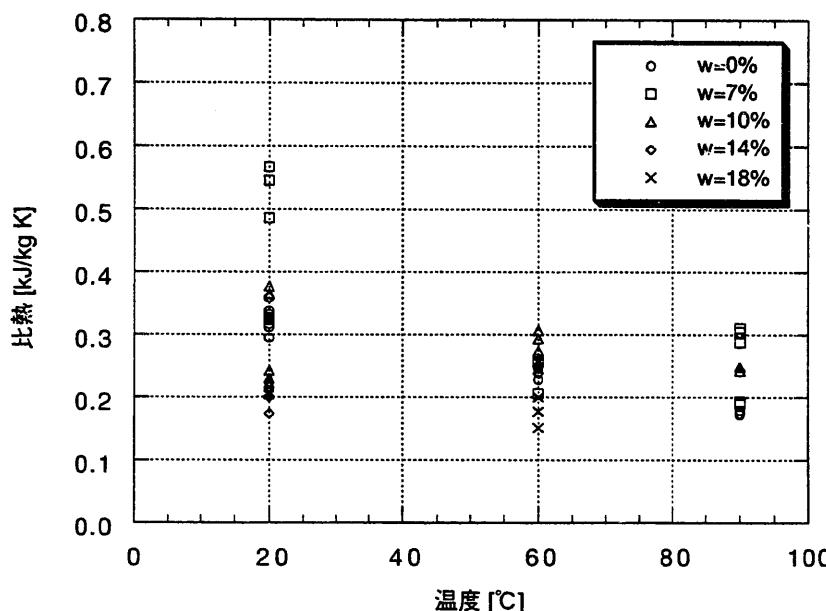


図4.11 溫度と比熱の関係（ペントナイト単体，乾燥密度1.8g/cm³）

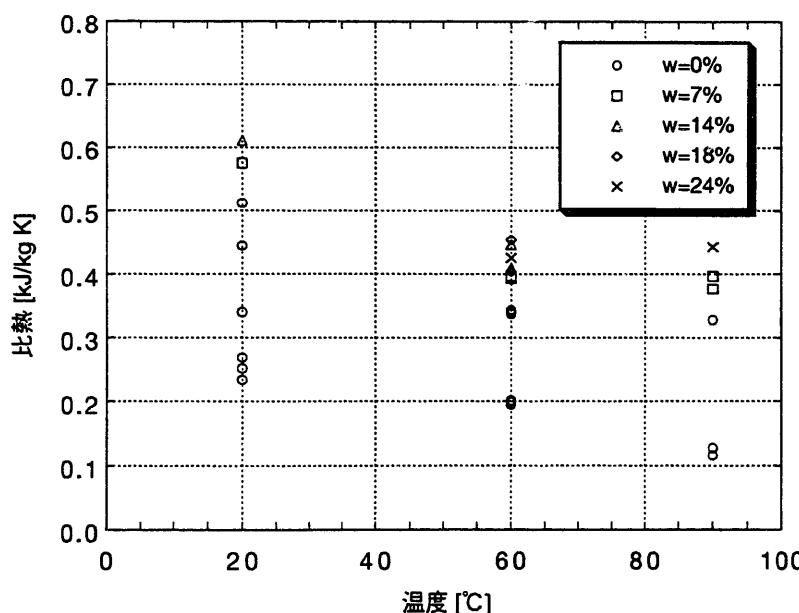


図4.12 溫度と比熱の関係（ケイ砂混合体，乾燥密度1.6g/cm³）

4.2 パウダー状ベントナイト

緩衝材の施工方法の一つであるブロック方式においては、施工上の問題として、ブロック化したベントナイト成型体の間に、あるいは周辺岩盤と人工バリア各部材間にエアギャップが生じることが予想される。このため、物質移行抑制の観点から人工バリアの密閉性向上のためエアギャップの処置が必要となる。ここでは、すき間対策の一例として用いることが検討されているパウダー状態のベントナイトの熱物性を取得した。測定手法は、前述した緩衝材と同様に、熱伝導率は線熱源法の迅速熱伝導率計、熱拡散率は点熱源法である。試験条件としては、前述の緩衝材の測定結果から、供試体の含水比に関しては熱伝導率の保守性を考慮し自然含水比、乾燥密度に関しても熱伝導率の保守性を考慮し、供試体製作上の最低密度とした。

熱伝導率測定条件および測定結果を表4.4に、熱拡散率測定条件および測定結果を表4.5に示す。表4.4および表4.5で示した熱伝導率および熱拡散率の平均値から(4.3)式に従い比熱を算出すると、乾燥密度約 1.0g/cm^3 、含水比約6%の条件において、 0.27kJ/kg K となる。

表4.4 パウダー状態ベントナイトの熱伝導率測定条件と測定結果

No.	乾燥密度[g/cm ³]	含水比[%]	熱伝導率[W/m°C]
1	0.98	6.12	0.158
2	0.97	6.21	0.155
3	0.93	6.18	0.160
平均	0.96	6.17	0.158

表4.5 パウダー状態ベントナイトの熱拡散率測定条件と測定結果

No.	乾燥密度[g/cm ³]	含水比[%]	熱拡散率[m ² /s]
1	0.98	6.22	5.8×10^{-7}
2	0.98	6.14	5.5×10^{-7}
3	0.98	6.20	5.8×10^{-7}
平均	0.98	6.19	5.7×10^{-7}

第5章 まとめ

第2次取りまとめにおけるニアフィールド熱解析で用いる緩衝材の熱伝導率および比熱を整理することを目的に、供試体の含水比および測定温度をパラメータとして熱物性試験を実施した。実験では、球状のヒートプローブを用いた点熱源法によって熱拡散率を測定し、また、線熱源法の測定原理を利用した迅速熱伝導率計を用いて熱伝導率を測定した。そして、熱拡散率と熱伝導率の関係より比熱を求めた。また、人工バリアに生じる隙間対策の一例として用いられることが考えられているパウダー状ベントナイトの熱物性の取得を行った。その結果、以下の知見が得られた。

- (1) 緩衝材の熱伝導率は、含水比とともに増加する。また、温度依存性はほとんどないことが分かった。これより、ニアフィールド熱解析のためのデータとして、緩衝材材料の熱伝導率を含水比の関数として定式化を行った。
- (2) 热拡散率と熱伝導率の関係から求めた比熱は、緩衝材を構成する固相、液相、気相の各成分の質量比から求められる理論的な予測値と良く一致する結果となった。緩衝材材料の比熱の含水比依存性については、基質部の比熱に比べて液相の比熱が大きいため、供試体の含水比に大きく依存することが分かった。
- (3) 比熱の温度依存性については、熱拡散率を計算する際のサーミスタの物性値の校正が不十分であるため、実験結果からは議論することはできないが、前述したように緩衝材の比熱は、供試体中に含有する水の比熱の影響が支配的であること、そして、20~90℃の範囲で水の比熱の温度による変化がほとんどないことから、緩衝材材料の比熱の温度依存性は小さいと言える。これより、緩衝材材料の比熱を含水比の関数として定式化を行った。
- (4) 人工バリアに生じる隙間対策の一例として用いられることが考えられているパウダー状ベントナイトの熱物性は、乾燥密度約 1.0g/cm^3 、含水比約6%の条件下において、熱伝導率が約 $0.16\text{W/m}\cdot\text{C}$ 、比熱が約 0.27kJ/kg K であった。

【引用文献】

動力炉・核燃料開発事業団（1992）；「高レベル放射性廃棄物地層処分研究開発の技術報告書—平成3年度—，PNC TN 1410 92-081.

藤田朝雄ほか（1992）；「緩衝材の熱物性試験」，動燃技術資料，PNC TN 1410 92-052.

Gaylon S.Campbell著，中野政詩，東山勇訳（1987）；「パソコンで学ぶ土の物理学」，鹿島出版会。

伊藤雅和ほか（1993）；「ベントナイトの鉱物組成分析」，動燃技術資料，PNC TN 8430 93-003.

Jing,L. et al. (1995) ; DECOVALEX - mathematical models of coupled T-H-M processes for nuclear waste repositories, Phase III report, SKI Report 95:80.

熊田俊明（1997）；点熱源法による緩衝材の熱物性値測定方法の開発，（社）日本原子力学会 1997 秋の大会要旨集E86.

松本一浩ほか（1997）；「緩衝材の飽和透水特性」，動燃技術資料，PNC TN 8410 97-296.

日本機械学会（1986）；「伝熱工学資料 改訂第4版」，社団法人日本機械学会。

Ohnishi,Y. et al. (1985) ; Development of Finite Element Code for the Analysis of Coupled Thermo-Hydro-Mechanical Behaviors of a Saturated-Unsaturated Medium, Proc. of Int. Symp.on Coupled Process Affecting the Performance of a Nuclear Waste Repository, Berkeley , pp.263 - 268.

佐藤信二ほか（1990）；「緩衝材の熱-水-応力連成試験，—緩衝材大型試験設備の概要および加熱試験計画について—」，動燃技術資料，PNC N 8410 90-060.

昭和電工株式会社，Shotherm QTM 迅速熱伝導率計 D II，取扱説明書。

鈴木英明ほか（1992）；「緩衝材の特性試験（I）」，動燃技術資料 PNC TN 1410 92-057.

谷口航，藤田朝雄（1997）；「地層処分場設計研究における熱解析～ニアフィールド熱解析による処分場設計仕様（処分坑道横置き方式）の概略的検討～」，動燃技術資料，PNC TN 8410 97-212.