

PNC ZJ1277 98-001

限定資料

溶存水素ガスの拡散移行に関する研究

(動力炉・核燃料開発事業団 委託研究成果報告書)

技 術 資 料		
開示区分	レポート No.	受領日
Σ	J1277 98-001	1998.6.23
この資料は技術管理室保存資料です 閲覧には技術資料閲覧票が必要です 動力炉・核燃料開発事業団 技術協力部技術管理室		

1998年2月

東洋エンジニアリング株式会社

この資料は、動燃事業団の開発業務を進めるため、特に限られた関係者だけに開示するものです。ついては複製、転載、引用等を絶対に行わないよう、また第三者への開示又は内容漏洩がないよう管理して下さい。また今回の開示目的以外のことには使用しないよう特に注意して下さい。

本資料についての問合せは下記に願います。

〒319-1112 茨城県那珂郡東海村大字村松4-33
動力炉・核燃料開発事業団
東海事業所
技術開発推進部・技術管理室

要 目

溶存水素ガスの拡散移行に関する研究

村上 文啓*

太田 正博*

鈴木 雅之*

樋口 和弘*

要 旨

炭素鋼オーバーパックの腐食によって発生する水素ガスが、ベントナイト緩衝材中の間隙水に溶存した形態にて拡散移動していく現象を把握するため、諸外国において提案されている代表的な拡散試験方法について調査した。その結果、溶存水素ガスを対象としたベントナイト中のみかけの拡散係数は $1 \times 10^{-11} \sim 1 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ であることがわかった。

また、拡散方程式を用いた溶存水素ガスの移動量について解析・評価を行い、試験装置の設計検討に反映させるためのシミュレーションを実施した。その結果、みかけの拡散係数を $2 \times 10^{-11} \sim 2 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$ 、水素発生速度を $2.7 \times 10^{-1} \sim 2.7 \text{ Nm}^3/\text{y}$ とした場合、みかけの拡散係数が大きく水素発生速度が小さい場合には、オーバーパック周辺でのガス蓄積はなく、拡散支配であることがわかった。また、みかけの拡散係数が $2 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$ の場合、水素発生速度が $0.0181 \text{ Nm}^3/\text{y}$ 以下であればガス蓄積はなく、拡散支配となることがわかった。

さらに、これらを踏まえて、我が国のベントナイト材料を対象とした拡散試験手法を選定し、試験装置の設計検討を実施した。

この本報告書は、東洋エンジニアリング株式会社が動力炉・核燃料開発事業団の委託により実施した研究内容である。

契約番号：090D0246

事業団担当部及び担当者：東海事業所環境技術開発部地層処分開発室 室長 石川 博久

*原子力設計部

COMMERCIAL PROPRIETARY

PNC ZJ1277 98-001

February 1998

Investigation of Diffusion Migration of Hydrogen Dissolved
in Pore Water of Bentonite Buffer Materials

Tomohiro Murakami*

Masahiro Ota*

Masayuki Suzuki*

Kazuhiro Higuchi*

A b s t r a c t

The aim of this investigation is to grasp the phenomena that hydrogen gas generated by corrosion of carbon steel over-pack will be dissolved and migrated by diffusion through pore of bentonite buffer materials.

To achieve this aim ,overseas and domestic typical measurement methods of diffusion of dissolved hydrogen were surveyed based on bibliographies. The result of survey about apparent diffusion coefficient shows the range of 1×10^{-11} - 1×10^{-9} m²/s.

Also,3-D numerical simulations were carried out using γ - θ diffusion differential equation to research which among diffusion parameters will influence the diffusion migration .The result shows that in case of apparent diffusion coefficient: 2×10^{-11} m²/s the criteria of gas accumulation around over-pack is gas generation rate:0.0181Nm³/y.

Finally ,the conceptual design for diffusion measurement apparatus and measuring method were produced for future experimental studies as the aim of measuring domestic bentonite materials.

Work performed by Toyo Engineering Corporation under contract with Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation.

PNC Liaison :Isolation System Research Program (Hirohisa Ishikawa)

*Nuclear and Electric Power Engineering Dept.

まえがき

まえがき

高レベル放射性廃棄物地層処分に向けた研究開発の取り組みは、2,000年前までに処分の技術的信頼性を明らかにするという目標に向けて、動力炉・核燃料開発事業団を中核として着実に進められている。

この「第2次取りまとめ」の成果については、国によって処分の技術的信頼性等の評価がなされるため、記載される研究開発項目は技術に高度な成果の明示が必要となっている。

処分システム内で、炭素鋼オーバーパックの腐食によって発生する水素ガスが、ベントナイト緩衝材中の間隙水に溶存した形態にて拡散移動していく現象についても、「第2次取りまとめ」に向けて検討される必要がある。

しかし、現在のところ溶存水素ガスの移動についての処分システム内での定量的な評価をするための測定データ取得、及びそれらを基にした解析については実施されていない。

このような背景からこの研究では、2,000年までの限られた期間内に数多くの測定データを取得し、それらデータを用いた解析を実施することで溶存水素ガスの拡散問題に対処することを目的として、溶存ガスの拡散試験のための現状調査、拡散方程式によるシミュレーション、及び拡散試験手法の検討・概念設計を検討した。

目 次

目 次

1. ガス拡散・移行試験研究の調査	1
1.1 ガス拡散試験に関わる調査	1
1.1.1 MEGAS のガス拡散研究 (G.Volckaert ら)	1
1.1.2 スウェーデンのガス拡散研究 (I.Neretnieks)	20
1.1.3 石油開発分野におけるガス拡散研究 (その1, G.N.Pandey ら)	27
1.1.4 石油開発分野のガス拡散研究 (その2, B.M.Kross ら)	35
1.1.5 日本におけるガス拡散研究	41
1.1.6 イギリスにおけるガス拡散研究	47
1.1.7 Clay Club (OECD/NEA)におけるガス拡散研究	48
1.1.8 まとめ	50
1.2 ガス移行試験に関わる調査	52
1.2.1 BGS のガス移行研究 (S.T.Horseman ら)	52
1.2.2 GAMBIT Club のガス移行研究 (W.R.Rodwell ら)	109
1.2.3 まとめ	127
2. 拡散方程式を用いた評価	141
2.1 拡散解析モデル	141
2.1.1 モデル化の対象	141
2.1.2 支配方程式	141
2.1.3 シミュレーション用コンピュータプログラム	141
2.1.4 解析領域の設定	141
2.1.5 解析用差分格子と各種条件設定	142
2.2 拡散解析結果	143
2.2.1 横置方式の場合	143
2.2.2 処分孔縦置方式の場合	144
2.2.3 処分坑道横置方式, 水素発生速度= 5.7×10^{-2} (Nm ³ /yr)の場合	144
2.2.4 処分坑道横置方式でオーバーバックの腐食速度が経時変化する場合	145
2.3 考察と評価	147
2.3.1 濃度分布の面から見た考察	147

2.3.2	水素の岩盤への溶出、及びO.B.界面への蓄積の点から見た考察	147
2.3.3	オーバーバックと緩衝材間に蓄積するガス圧	149
3	拡散試験手法の検討及び概念設計	183
3.1	拡散試験装置の概念設計	183
3.2	拡散試験の手法と仕様	186
3.3	次年度に向けた拡散試験の手法と仕様の検討	187
3.3.1	試料寸法の検討	188
3.3.2	検出方法の検討	188
3.3.3	膨潤の検討	189
3.3.4	拡散セルの材質・定置の検討	189
3.3.5	トラブル防止の検討	189
3.4	まとめ	192
4	今後の課題	201

参考文献

表 目 次

目 次

表 1.1.1-1	水素ガスの拡散関連データ (MEGAS プロジェクト)	15
表 1.1.2-1	約 25°Cにおける圧縮 Na-ベントナイト中の拡散係数	23
表 1.1.2-2	種々の化合物の拡散係数	24
表 1.1.3-1	溶存状態の拡散係数	34
表 1.1.5-1	水素拡散解析におけるパラメータ (動燃事業団)	46
表 1.2.1-1(1)	高膨潤(HS)、中膨潤(MS)試料のブロック	90
表 1.2.1-1(2)	BGS 装置を用いた 7 種類の試料物性(試験前)	90
表 1.2.1-2	BGS 装置を用いた 7 種類の試料物性(飽和度に及ぼす拘束圧の影響を考慮)	90
表 1.2.1-3	MX80 ベントナイトの吸着-脱着等温線による計算値	91
表 1.2.1-4	試料の軸方向物性	91
表 1.2.1-5	BGS 装置による測定パラメータ	92
表 1.2.1-6	ASG 装置を用いたベントナイトペースト物性	100
表 1.2.1-7	BGS 装置を用いた測定におけるポンプ速度、ガス透過係数、 みかけのマトリックスサクシオン	102
表 1.2.2-1	毛管密度、毛管半径、毛管圧力、間隙率(透過係数: $1 \times 10^{-20} \text{ m}^2$)	128
表 1.2.2-2	だ円クラックパラメータ(透過係数: $1 \times 10^{-20} \text{ m}^2$)	129
表 1.2.2-3(1)	単一だ円クラックの過剰圧力(透過係数: $1 \times 10^{-20} \text{ m}^2$)	129
表 1.2.2-3(2)	線形弾性フラクチャー力学(LEFM)ガス移行モデルのパラメータ	132
表 1.2.2-4	MX80-4A の定常状態でのポンプ流速と注入圧力	133
表 1.2.2-5	MX80-6 の定常状態でのポンプ流速と注入圧力	134
表 1.2.2-6	MX80-4A と MX80-6 のパラメータ	136
表 1.2.2-7	MX80-4A と MX80-6 のクラックサイズとクラック密度	136
表 2.1.3-1	Roet Nottrot らの厳密解と拡散方程式	154
表 2.1.3-2	異なる Fourier 数 $ Fo $ における無次元半径 $ r/r_0 $ に依存した無次元温度	155
表 2.1.3-3	異なる Fourier 数 $ Fo $ における無次元半径 $ r/r_0 $ に依存した無次元水素濃度 格子間隔=0.333m の場合	155
表 2.1.3-4	異なる Fourier 数 $ Fo $ における無次元半径 $ r/r_0 $ に依存した無次元水素濃度 格子間隔=0.0333m の場合	156
表 2.1.5-1	差分格子 1 つ分の寸法	159
表 2.1.5-2	パラメータ設定(ベントナイトの厚さ 0.98m)	159

表 2.1.5-3	パラメータ設定(ベントナイトの厚さ 0.33m).....	159
表 2.1.5-4	パラメータ設定(水素発生速度 0.057m ³ /y).....	159
表 2.1.5-5	拡散収束時の水素溶出量(ベントナイトの厚さ 0.98m).....	160
表 2.1.5-6	拡散収束時の水素溶出量(ベントナイトの厚さ 0.33m).....	160
表 2.1.5-7	拡散収束時の水素溶出量(水素発生速度 0.057m ³ /y).....	160
表 3.3.1-1	試験ケース(案).....	198

目 次

目 次

図 1.1.1-1	In-diffusion 法(左)と Through-diffusion 法(右)の概略	14
図 1.1.1-2	In-diffusion 法システム	14
図 1.1.1-3	試料 No.H21IND1(Boom clay)の In-diffusion 法による水素消費量 と解析解(スリーブの漏気は考慮し、水素の化学反応は無視)	16
図 1.1.1-4	試料 No.H21IND2(Boom clay)の In-diffusion 法による水素消費量 と解析解(スリーブ漏気は考慮し、水素の化学反応は無視)	16
図 1.1.1-5	試料 No.H21IND3(Boom clay)の In-diffusion 法による水素消費量 と解析解(スリーブ漏気は考慮し、水素の化学反応は無視)	17
図 1.1.1-6	試料 No.H21IND4(Boom clay)の In-diffusion 法による水素消費量 と解析解(スリーブ漏気は考慮し、水素の化学反応は無視)	17
図 1.1.1-7	試料 No.H21IND5(Boom clay)の In-diffusion 法による水素消費量 と解析解(スリーブ漏気は考慮し、水素の化学反応は無視)	18
図 1.1.1-8	試料 No.H2THRD1(Boom clay)の Through-Diffusion 法による 水素消費量と解析解 (入口側セル中の水素濃度を一定、水素の化学反応は無視)	18
図 1.1.1-9	試料 No.H2THRD1(Boom clay)の Through-Diffusion 法による 水素消費量と解析解 (入口側セル中の水素濃度を一定、水素の化学反応は無視)	19
図 1.1.1-10	Boom clay 内を通過するガス移動の 3 区分概念	19
図 1.1.2-1	KBS-3 トンネルの解析モデル	25
図 1.1.2-2	ガス発生速度経時変化(腐食速度 $1 \times 10^{-4} \text{m/y}$, $3 \times 10^{-4} \text{m/y}$, $10 \times 10^{-4} \text{m/y}$)	26
図 1.1.3-1	バルク拡散(オープンスペース)、バルク拡散(乾燥多孔質)、 平均自由行程より小さい間隙を有する多孔質、及び溶存した 場合の拡散方程式	31
図 1.1.3-2	定常状態(Through-Diffusion 法) 測定装置(乾燥試料を対象)	32
図 1.1.3-3	非定常法(In-diffusion 法) 測定装置(低透過乾燥試料と 飽和試料を対象)	33
図 1.1.4-1	Lag-Time 法による hidrocarbon 拡散概念 (C_1' : 上流側 水素濃度、 C_1 : 試料の濃度、 l : 試料厚さ)	39
図 1.1.4-2	Lag-Time 法による拡散係数の求め方	39

図 1.1.4-3	拡散試験装置概念(B.M.Krooss ら)	40
図 1.1.4-4	拡散セル (1. 試料、2. 合金、3. 貯水槽) (B.M.Krooss ら)	40
図 1.1.5-1	乾燥密度 $1.0 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$ 、 303° K におけるモンモリロナイト 試料の He ガス吸収率の時間依存性	43
図 1.1.5-2	オーババックと緩衝材寸法	44
図 1.1.5-3	地下応力下と溶存水素ガスの拡散移行速度の関係	44
図 1.1.5-4	HLW 処分システム (動燃事業団)	45
図 1.1.8-1	諸外国の拡散係数実測値	51
図 1.2.1-1	ガス移行測定装置概念(BGS 装置)	87
図 1.2.1-2(1)	BGS 装置の圧力容器と試験セル	88
図 1.2.1-2(2)	ASG 装置の圧力容器と試験セル	89
図 1.2.1-3	MX80-1 の試験結果(経過時間と流速と過剰ガス圧力の関係)	93
図 1.2.1-4	MX80-1 の試験結果(経過時間と過剰ガス圧力の関係)	93
図 1.2.1-5	MX80-4A part1 の試験結果(経過時間と流速と過剰ガス圧力の関係) ..	94
図 1.2.1-6	MX80-4A part1 の試験結果(経過時間と過剰ガス圧力の関係)	94
図 1.2.1-7	MX80-4A part2 の試験結果(経過時間と流速と過剰ガス圧力の関係) ..	95
図 1.2.1-8	MX80-4B の試験結果(経過時間と流速と過剰ガス圧力の関係)	96
図 1.2.1-9	MX80-4C の試験結果(経過時間と流速と過剰ガス圧力の関係)	96
図 1.2.1-10	MX80-4D の試験結果(経過時間と流速と過剰ガス圧力の関係)	97
図 1.2.1-11	MX80-6 part1 の試験結果(経過時間と流速と過剰ガス圧力の関係) ..	97
図 1.2.1-12	MX80-6 part2 の試験結果(経過時間と流速と過剰ガス圧力の関係) ..	98
図 1.2.1-13	MX80-7 part1 の試験結果(経過時間と流速と過剰ガス圧力の関係) ..	98
図 1.2.1-14	MX80-7 part2 の試験結果(経過時間と流速と過剰ガス圧力 の関係、その 1)	99
図 1.2.1-15	MX80-7 part2 の試験結果(経過時間と流速と過剰ガス圧力 の関係、その 2)	99
図 1.2.1-16	ASG-1A の試験結果(経過時間とガス圧力と圧密速度の関係)	100
図 1.2.1-17	ASG-1B の試験結果(経過時間とガス圧力と圧密速度の関係)	100
図 1.2.1-18	ASG-2A の試験結果(経過時間とガス圧力と圧密速度の関係)	101
図 1.2.1-19	ASG-2B の試験結果(経過時間とガス圧力と圧密速度の関係)	101
図 1.2.1-20	MX80-1 の試験結果(正味平均有効応力とガス透過係数)	103
図 1.2.1-21	MX80-4A の試験結果(正味平均有効応力とガス透過係数)	103
図 1.2.1-22	MX80-4B の試験結果(正味平均有効応力とガス透過係数)	104

図 1.2.1-23	MX80-4C の試験結果(正味平均有効応力とガス透過係数)	104
図 1.2.1-24	MX80-6 の試験結果(正味平均有効応力とガス透過係数)	105
図 1.2.1-25	MX80-7 の試験結果(正味平均有効応力とガス透過係数)	105
図 1.2.1-26	MX80-1 の試験結果(ブレイクスルー後の経過時間と 注入ガス圧力の関係)	106
図 1.2.1-27	MX80-4A の試験結果(ブレイクスルー後の経過時間と 注入ガス圧力の関係)	106
図 1.2.1-28	MX80-4B の試験結果(ブレイクスルー後の経過時間と 注入ガス圧力の関係)	107
図 1.2.1-29	MX80-1 の試験後 105°C24 時間経過後の上端面 (典型的な乾燥収縮クラック)	108
図 1.2.1-30	MX80-1 の試験後 105°C24 時間経過後の上端面 (拡大図:0.05~0.5mm 亀裂幅)	108
図 1.2.1-31	ブレイクスルー後の試料概念	108
図 1.2.2-1	Ridley & Burland の試験概要	130
図 1.2.2-2	流れ方向に垂直断面でのフラクチャー配列	131
図 1.2.2-3	伸張する Griffith クラックモデル	131
図 1.2.2-4	多孔質媒体中の流れ	133
図 1.2.2-5	MX80-4A のガス圧とガス流速のフィッティング	133
図 1.2.2-6	MX80-6 のガス圧とガス流速のフィッティング	134
図 1.2.2-7	MX80-4A の試料の長さ方向のクラックオープニング (最良フィッティング)	135
図 1.2.2-8	MX80-4A の試料の長さ方向のクラックオープニング (σ を減少させた方法)	135
図 1.2.2-9	典型的なガス透過係数と正味平均有効応力の関係	137
図 1.2.2-10	ガス圧とクラックダイラタンシーの関係	137
図 1.2.2-11	単一モデルによるガス透過係数と正味平均有効応力の関係	138
図 1.2.2-12	Firmo 粘性材料	138
図 1.2.2-13	ガス圧の経時変化	139
図 1.2.2-14	正味平均有効応力と全透過係数	139
図 2.1.5-1	拡散解析シミュレーションモデル(横置方式)	157
図 2.1.5-2	拡散解析シミュレーションモデル(縦置方式)	158

図 2.2.1-1	1000 年後のベントナイト中の水素濃度分布 (坑道横置方式、拡散係数： 2×10^{-10} m ² /s、発生速度： 2.70 m ³ /y、ベントナイト厚：0.98 m、キャニスタ面 の水素濃度 1.6 m ³ /m ³ 、岩盤面の水素濃度：0 m ³ /m ³)	161
図 2.2.1-2	50～1000 年ベントナイト中の水素濃度分布 (坑道横置方式、拡散係数： 2×10^{-10} m ² /s、発生速度： 2.70 m ³ /y、ベントナイト厚：0.98 m、キャニスタ面 の水素濃度 1.6 m ³ /m ³ 、岩盤面の水素濃度：0 m ³ /m ³)	161
図 2.2.1-3	1000 年後のベントナイト中の水素濃度分布 (坑道横置方式、拡散係数： 2×10^{-10} m ² /s、発生速度： 0.27 m ³ /y、ベントナイト厚：0.98 m、キャニスタ面 の水素濃度 1.6 m ³ /m ³ 、岩盤面の水素濃度：0 m ³ /m ³)	162
図 2.2.1-4	50～1000 年ベントナイト中の水素濃度分布 (坑道横置方式、拡散係数： 2×10^{-10} m ² /s、発生速度： 0.27 m ³ /y、ベントナイト厚：0.98 m、キャニスタ面 の水素濃度 1.6 m ³ /m ³ 、岩盤面の水素濃度：0 m ³ /m ³)	162
図 2.2.1-5	1000 年後のベントナイト中の水素濃度分布 (坑道横置方式、拡散係数： 2×10^{-10} m ² /s、発生速度： 0.027 m ³ /y、ベントナイト厚：0.98 m、キャニスタ面 の水素濃度 1.6 m ³ /m ³ 、岩盤面の水素濃度：0 m ³ /m ³)	163
図 2.2.1-6	50～1000 年後のベントナイト中の水素濃度分布 (坑道横置方式、拡散係数： 2×10^{-10} m ² /s、発生速度： 0.027 m ³ /y、ベントナイト厚：0.98 m、キャニスタ 面の水素濃度 1.6 m ³ /m ³ 、岩盤面の水素濃度：0 m ³ /m ³)	163
図 2.2.1-7	5000 年後のベントナイト中の水素濃度分布 (坑道横置方式、拡散係数： 2×10^{-11} m ² /s、発生速度： 2.70 m ³ /y、ベントナイト厚：0.98 m、キャニスタ面 の水素濃度 1.6 m ³ /m ³ 、岩盤面の水素濃度：0 m ³ /m ³)	164
図 2.2.1-8	100～5000 年ベントナイト中の水素濃度分布 (坑道横置方式、拡散係数： 2×10^{-11} m ² /s、発生速度： 2.70 m ³ /y、ベントナイト厚：0.98 m、キャニスタ面 の水素濃度 1.6 m ³ /m ³ 、岩盤面の水素濃度：0 m ³ /m ³)	164
図 2.2.1-9	5000 年後のベントナイト中の水素濃度分布	

- (坑道横置方式、拡散係数： 2×10^{-11} m²/s、発生速度：
0.27 m³/y、ベントナイト厚：0.98 m、キャニスタ面
の水素濃度 1.6 m³/m³、岩盤面の水素濃度：0 m³/m³) 165
- 図 2.2.1-10 100～5000 年ベントナイト中の水素濃度分布
- (坑道横置方式、拡散係数： 2×10^{-11} m²/s、発生速度：
0.27 m³/y、ベントナイト厚：0.98 m、キャニスタ面
の水素濃度 1.6 m³/m³、岩盤面の水素濃度：0 m³/m³) 165
- 図 2.2.1-11 5000 年後のベントナイト中の水素濃度分布
- (坑道横置方式、拡散係数： 2×10^{-11} m²/s、発生速度：
0.027 m³/y、ベントナイト厚：0.98 m、キャニスタ面
の水素濃度 1.6 m³/m³、岩盤面の水素濃度：0 m³/m³) 166
- 図 2.2.1-12 100～5000 年ベントナイト中の水素濃度分布
- (坑道横置方式、拡散係数： 2×10^{-11} m²/s、発生速度：
0.027 m³/y、ベントナイト厚：0.98 m、キャニスタ面
の水素濃度 1.6 m³/m³、岩盤面の水素濃度：0 m³/m³) 166
- 図 2.2.1-13 50000 年後のベントナイト中の水素濃度分布
- (坑道横置方式、拡散係数： 2×10^{-12} m²/s、発生速度：
2.70 m³/y、ベントナイト厚：0.98 m、キャニスタ面
の水素濃度 1.6 m³/m³、岩盤面の水素濃度：0 m³/m³) 167
- 図 2.2.1-14 500～50000 年後のベントナイト中の水素濃度分布
- (坑道横置方式、拡散係数： 2×10^{-12} m²/s、発生速度：
2.70 m³/y、ベントナイト厚：0.98 m、キャニスタ面
の水素濃度 1.6 m³/m³、岩盤面の水素濃度：0 m³/m³) 167
- 図 2.2.1-15 50000 年後のベントナイト中の水素濃度分布
- (坑道横置方式、拡散係数： 2×10^{-13} m²/s、発生速度：
0.27 m³/y、ベントナイト厚：0.98 m、キャニスタ面
の水素濃度 1.6 m³/m³、岩盤面の水素濃度：0 m³/m³) 168
- 図 2.2.1-16 500～50000 年後のベントナイト中の水素濃度分布
- (坑道横置方式、拡散係数： 2×10^{-13} m²/s、発生速度：
0.27 m³/y、ベントナイト厚：0.98 m、キャニスタ面
の水素濃度 1.6 m³/m³、岩盤面の水素濃度：0 m³/m³) 168
- 図 2.2.1-17 50000 年後のベントナイト中の水素濃度分布
- (坑道横置方式、拡散係数： 2×10^{-13} m²/s、発生速度：

	0.027 m ³ /y、ベントナイト厚：0.98 m、キャニスタ面 の水素濃度 1.6 m ³ /m ³ 、岩盤面の水素濃度：0 m ³ /m ³) 169
図 2.2.1-18	500～50000 年後のベントナイト中の水素濃度分布 (坑道横置方式、拡散係数：2×10 ⁻¹¹ m ² /s、発生速度： 0.027 m ³ /y、ベントナイト厚：0.98 m、キャニスタ面 の水素濃度 1.6 m ³ /m ³ 、岩盤面の水素濃度：0 m ³ /m ³) 169
図 2.2.2-1	2000 年後のベントナイト中の水素濃度分布 (処分孔立置方式、拡散係数：2×10 ⁻¹¹ m ² /s、発生速度： 0.27 m ³ /y、ベントナイト厚：0.33 m、キャニスタ面 の水素濃度 1.6 m ³ /m ³ 、岩盤面の水素濃度：0 m ³ /m ³) 170
図 2.2.2-2	50～2000 年後のベントナイト中の水素濃度分布 (処分孔立置方式、拡散係数：2×10 ⁻¹¹ m ² /s、発生速度： 0.27 m ³ /y、ベントナイト厚：0.33 m、キャニスタ面 の水素濃度 1.6 m ³ /m ³ 、岩盤面の水素濃度：0 m ³ /m ³) 170
図 2.2.2-3	2000 年後のベントナイト中の水素濃度分布 (処分孔立置方式、拡散係数：2×10 ⁻¹¹ m ² /s、発生速度： 0.027 m ³ /y、ベントナイト厚：0.33 m、キャニスタ面 の水素濃度 1.6 m ³ /m ³ 、岩盤面の水素濃度：0 m ³ /m ³) 171
図 2.2.2-4	50～2000 年後のベントナイト中の水素濃度分布 (処分孔立置方式、拡散係数：2×10 ⁻¹¹ m ² /s、発生速度： 0.027 m ³ /y、ベントナイト厚：0.33 m、キャニスタ面 1.の水素濃度 1.6 m ³ /m ³ 、岩盤面の水素濃度：0 m ³ /m ³)171
図 2.2.2-5	200 年後のベントナイト中の水素濃度分布 (処分孔立置方式、拡散係数：2×10 ⁻¹⁰ m ² /s、発生速度： 0.27 m ³ /y、ベントナイト厚：0.33 m、キャニスタ面 の水素濃度 1.6 m ³ /m ³ 、岩盤面の水素濃度：0 m ³ /m ³) 172
図 2.2.2-6	10～200 年後のベントナイト中の水素濃度分布 (処分孔立置方式、拡散係数：2×10 ⁻¹⁰ m ² /s、発生速度： 0.27 m ³ /y、ベントナイト厚：0.33 m、キャニスタ面 の水素濃度 1.6 m ³ /m ³ 、岩盤面の水素濃度：0 m ³ /m ³) 172
図 2.2.3-1	1000 年後のベントナイト中の水素濃度分布 (坑道横置方式、拡散係数：2×10 ⁻¹⁰ m ² /s、発生速度： 0.057 m ³ /y、ベントナイト厚：0.98 m、キャニスタ面	

	の水素濃度 $1.6 \text{ m}^3/\text{m}^3$ 、岩盤面の水素濃度： $0 \text{ m}^3/\text{m}^3$) 173
図 2.2.3-2	50～1000 年後のベントナイト中の水素濃度分布 (坑道横置方式、拡散係数： $2 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$ 、発生速度： $0.057 \text{ m}^3/\text{y}$ 、ベントナイト厚： 0.98 m 、キャニスタ面 の水素濃度 $1.6 \text{ m}^3/\text{m}^3$ 、岩盤面の水素濃度： $0 \text{ m}^3/\text{m}^3$) 173
図 2.2.3-3	5000 年後のベントナイト中の水素濃度分布 (坑道横置方式、拡散係数： $2 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$ 、発生速度： $0.057 \text{ m}^3/\text{y}$ 、ベントナイト厚： 0.98 m 、キャニスタ面 の水素濃度 $1.6 \text{ m}^3/\text{m}^3$ 、岩盤面の水素濃度： $0 \text{ m}^3/\text{m}^3$) 174
図 2.2.3-4	100～5000 年後のベントナイト中の水素濃度分布 (坑道横置方式、拡散係数： $2 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$ 、発生速度： $0.057 \text{ m}^3/\text{y}$ 、ベントナイト厚： 0.98 m 、キャニスタ面 の水素濃度 $1.6 \text{ m}^3/\text{m}^3$ 、岩盤面の水素濃度： $0 \text{ m}^3/\text{m}^3$) 174
図 2.2.3-5	50000 年後のベントナイト中の水素濃度分布 (坑道横置方式、拡散係数： $2 \times 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$ 、発生速度： $0.057 \text{ m}^3/\text{y}$ 、ベントナイト厚： 0.98 m 、キャニスタ面 の水素濃度 $1.6 \text{ m}^3/\text{m}^3$ 、岩盤面の水素濃度： $0 \text{ m}^3/\text{m}^3$) 175
図 2.2.3-6	500～50000 年後のベントナイト中の水素濃度分布 (坑道横置方式、拡散係数： $2 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$ 、発生速度： $0.057 \text{ m}^3/\text{y}$ 、ベントナイト厚： 0.98 m 、キャニスタ面 の水素濃度 $1.6 \text{ m}^3/\text{m}^3$ 、岩盤面の水素濃度： $0 \text{ m}^3/\text{m}^3$) 175
図 2.2.4-1	1000 年後のベントナイト中の水素濃度分布 (坑道横置方式、拡散係数： $2 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$ 、発生速度： $0.0113 \text{ m}^3/\text{y}$ 、ベントナイト厚： 0.98 m 、キャニスタ面 の水素濃度 $1.6 \text{ m}^3/\text{m}^3$ 、岩盤面の水素濃度： $0 \text{ m}^3/\text{m}^3$) 176
図 2.2.4-2	5000 年後のベントナイト中の水素濃度分布 (坑道横置方式、拡散係数： $2 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$ 、発生速度： $0.000212 \text{ m}^3/\text{y}$ 、ベントナイト厚： 0.98 m 、キャニスタ面 の水素濃度 $1.6 \text{ m}^3/\text{m}^3$ 、岩盤面の水素濃度： $0 \text{ m}^3/\text{m}^3$) 176
図 2.2.4-3	腐食速度が経時変化(減少)する場合のオーバーパック周辺に 蓄積される積算ガス量の経時変化 177
図 2.2.4-4	腐食速度が経時変化(減少)する場合の岩盤へ逃げ去るガス量の 経時変化 178

図 2.3.2-1	岩盤へ逃げ去るガス量の経時変化	179
図 2.3.2-2	オーバーパック周辺に蓄積されるガス量経時変化(その1)	180
図 2.3.2-3	オーバーパック周辺に蓄積されるガス量経時変化(その2)	181
図 2.3.3-1	オーバーパックと緩衝材間に蓄積するガスの圧力 ($E=4.0 \times 10^4 \text{g/cm}^2$, $\nu=0.4$, 初期内部応力(膨潤圧)= 40kg/cm^2)	182
図 3.2-1	拡散試験概念設計(拡散セル)	193
図 3.2-2	拡散試験概念設計(拡散セル1個の場合システム)	194
図 3.2-3	拡散試験概念設計(拡散セル3個の場合システム)	195
図 3.3-1	簡易型拡散試験概要図	196
図 3.3-2	簡易型拡散試験概念設計	197
図 3.3-3	Megas Project での測定時間と排出水素量	199

第 1 章

1 ガス拡散・移行試験研究の調査

炭素鋼オーバーパックスの腐食によって発生する水素ガスは、廃棄体周辺のベントナイト緩衝材中の間隙水を徐々に移動することが想定される。その際、ガス発生速度が小さい場合は、緩衝材中の間隙水に溶存した形態での拡散移動が支配的となると考えられる。

そこで、ここでは諸外国において実施されている溶存水素ガスの拡散試験手法を調査するとともに、諸外国の研究で得られた溶存水素ガスの拡散データを整理した。

併せて、諸外国でのガス移行試験結果を調査するため、BGSレポート(Feb,1997)¹⁾及びGAMBIT Clubレポート(June,1997)¹⁾を基にその現状調査を実施した。

なお、文献に示される拡散係数には、さまざまな種類・定義があるが、基本的には下記のような関係がある。

バルク拡散係数 D_b :自由水中の溶存水素の拡散係数である(D_v や D_o の表記もある)。

みかけの拡散係数 D_a :多孔質中の拡散係数で $D_a = D_p/R$ で示される。

空孔拡散係数 D_p :多孔質の間隙中の拡散係数で $D_p = D_b \cdot \varepsilon / \tau^2$ で示される。

実効拡散係数 D_e : $D_e = D_p \cdot \varepsilon$ で示される。

ここで、

R :遅延係数($=1+K \cdot \rho \cdot (1-\varepsilon)/\varepsilon$)

ε :間隙率

K :吸着定数

ρ :乾燥密度

τ^2 :屈曲度

1.1 ガス拡散試験に関わる調査

1.1.1 MEGAS のガス拡散研究 (G.Volckaert ら)³⁾

(1) 目的

この実験の目的は、Boom Clay の飽和試料を用いて水素ガスの拡散移動パラメータである ηR , D , $\eta R D$ を測定することにあるとしている。ここで、 η は拡散に関する間隙率(diffusion accessible porosity, (-)), R は遅延係数(retardation factor, (-)),

Dはみかけの拡散係数(apparent diffusion coeff.,(m²/s))である。2種類の測定方法を用いている。1つはIn-Diffusion法、もう1つはThrough-Diffusion法である。

In-Diffusion法とは、一定ガス圧条件下で一方向(試料下部)にて水素ガス含有溶液を接触させ、粘土試料内を移動(上昇)する水素量を圧力データから換算して測定すること、一方Through-Diffusion法とは、25°C、3,160Pa(31.6mbar)の飽和水蒸気圧を初期圧として、排出側まで移動した水素量を圧力データから換算する方法であるとしている。

(2) 実験

両方法の実験装置は図1.1.1-1に示される。試験の準備は両方法とも下記のようにほぼ同じとしている。

- ① 38mm直径の粘土サンプルをドリルコアから削り取る。そして測定セル内に据えつける(図1.1.1-2)。
- ② 粘土試料に17kg/cm²の圧力で水を注入させ、システム及び試料内に吸着しているガスを追い出す。
- ③ 粘土試料の体積の約3倍の水量の注入によってガスを追い出した後、注入を止め、出口側バルブを閉める。
- ④ 排水量が0になったら、試料内の静水圧を均質とするため、平衡に必要な時間の間放置する。
- ⑤ ここで、Through-Diffusion法の場合、脱気のため試料の底部は真空引きする。
- ⑥ 水がガスと平衡になった後水素をシステム内に入れるために、入口側バルブが再び開けられ、拡散が開始する。

(i) In-Diffusion法

この実験装置の主要部分はステンレス(SS)製透気セルであり、3主要部分から成るとしている。

- ① 焼結SSフィルターを入れるボトムフランジ。
- ② ボトムフランジに連結される試料定置用円筒容器(6種類のねじにて連結)。
- ③ 焼結SSフィルター端部と固定フレームを連結するピストン。これにより膨潤を制御することができる。

水素の漏洩対策として、2対のBuna O-ringを用いている。第一のO-ringはピスト

ンの周り、第2の0-ringはボトムフランジの上部のフィルター周囲に設置している。なお、最後の(5番目の)試験では、この0-ringを通る水素拡散漏れを避けるため単一銅製0-ringに替えられている。

粘土サンプルの底面は水素溶存水に接触している。注入圧力は、注入ポンプのピストン変位によって規則的に制御される。In-Diffusion法実験においては、2種類のピストンが使用されている。第一には圧気ピストン(Bimba型0074-D)、第2は水圧ピストン(Emac型Z100-101-10/6/100-206/S3)である。これらは内部リークの問題はなく、高精度である。ピストンロッドは変位センサー(Fernsteuergerate型sp150-03/18(アナログ)、又はみつとよ製(デジタル))に連結されることにより変位が読み取れるとしている。

ピストンロッドは、入口側の水素圧力を一定に保つよう手動にて調整している。変位センサーによりピストンの位置を連続的にキャッチでき、その結果時間に依存した拡散水素量が測定され、フィット用プログラムDFIT33SL内にインプットされて、拡散パラメータを算出している。位置、温度はチノーモデルAAレコーダーによってモニターされている。

(ii) Through-Diffusion法

In-Diffusion法との装置構造上の主な相違点は、円筒形容器及びボトムフランジが一体形となっていることにあるとしている。粘土試料と水素溶存水は試料上面で接触している。ここで水素圧は常時 5 kg/cm^2 以下であるとしている。出口側では、まず真空がかけられ、出口側初期圧は水蒸気圧に平衡にしている。水素は粘土試料を通過して拡散するので、徐々に出口側圧力は増加することになり、その増加量は圧カトランスデューサ(Druck PTX610)によって測定される。拡散パラメータは出口側の圧力の上昇によって求められ、フィット用プログラムDFIT36S2内にインプットされ算出している。

(3) 結果

In-Diffusionテストのうち最初の4種類については、内部リークが発見されている。そこで圧気ピストンから水圧ピストンに置き換えている。また水圧ピストンは圧気ピストンより小さい直径であるので精度も高いとしている(水圧ピストン: 0.075 ml/mm 、圧気ピストン: 0.16 ml/mm)。

この実験では、サンプルをより薄くすることにより時間短縮が可能としている。

また、長期間経過後もリーク値は $1.7 \pm 0.4 \times 10^{-6}$ Nml/s (即ち 20 年で 1 Nl 程度) と小さく、この量は水素検知器で測定することはできないとしている。ブランクテストにより、リーク源は、ピストンの周囲及びボトムフランジ内のゴム製 O-ring であるとしている。(1.1.1-1)式はシールを通過する拡散量を示す式である。

もし、O-ring がだ円形に変形するなら(1.1.1-2)式となり、ここで a と b は(1.1.1-3)式の関係としている。

$$Q_{\text{exp}} = \eta RDC_0 \frac{S}{L} \quad (1.1.1-1)$$

ここで、

Q_{exp} : 実験的に得られたリーク速度 ($= 2 \times 10^{-6}$ Nml/s)

η RD : Buna O-ring の実効拡散係数 ($= 1 \times 10^{-5}$ cm²/s)

C_0 : 濃度 (0.3MPa の時 3Nml/cm³)

S : 表面積 (cm²)

L : O-ring の厚さ (cm)

$$\frac{S}{L} = \pi d \frac{a}{b} \quad (1.1.1-2)$$

ここで、

d: O-ring の直径 (4.2cm)

a: だ円の半短軸 (semi-minor axis: だ円の短軸の半分)

b: だ円の長短軸 (semi-major axis: だ円の長軸の半分)

$$\frac{a}{b} = 1.7 \times 10^{-2} \quad (1.1.1-3)$$

O-ring を通るリークの η R と D が導出されている (リークプログラム: DFIT33SL)。

しかし、この試験以降は、柔らかい銅製 O-ring をボトムフランジに用いている。

温度を安定にするため、水槽内に拡散セルを浸し、サーモスタットが約 25°C となるようにセットしている。

第5番目の In-Diffusion テストが実施され、この場合 Buna-O-ring の代わりに柔らかい銅製 O-ring を用いている。従って、リークはなくよい結果を得たとしている。

その他、3種類の Through-Diffusion 法が実施された。まず第1番目のテストでは、実験開始時には、予期せぬことが発生したとしている。

それは、真空にした結果圧力の上昇が突然起きたが、これは溶存CO₂によるとしている。

この対策として、水素溶存水を直接粘土に接触するようにしている。

第2番目の Through-Diffusion テストでは、焼結フィルターへの粘土粒子の目詰りのため、予想とは異なったものとなっている（従ってデータは得られなかった）。

第3番目のテストでは水素溶存水を入口側で粘土試料に接触するようにし、出口側の圧力安定性を確認した。

溶存CO₂についてはモデル化で対処している。即ち、CO₂の初期除去分を第3パラメータとして追加・考慮している。

この計算プログラムは DFIT36S2 であり、粘土中の拡散に係わる結果に合うようにフィットできるとしている。

このフィッティングでは下記のような条件としている。

1. 反応速度パラメータは無視
2. 濃度は一定
3. 入口側水素ボリュームはかなり大きい

5種類の In-Diffusion 法及び2種類の Through-Diffusion 法のテスト結果を表 1.1.1-1 及び図 1.1.1-3~1.1.1-9 に示す。

表 1.1.1-1 をみると ηR , D について大きなバラツキがあるにもかかわらず、 $\eta R D$ (実効拡散係数)はオーダー的には $10^{-4} \sim 10^{-7} \text{cm}^2/\text{s}$ とほぼ同じとしている。

(4) モデル化

(i) In-Diffusion 法

In-Diffusion 法の実験では、入口濃度は一定である。これは水素ガスの分圧を一定にすることにより達成され、水素ガスの消費量($Q(t)$)は、時間の経過とともに測定されている。

ここで出口側はブラインド(袋小路)であるとしている。

Boom clay を対象に、溶存水素の拡散移動に対して拡散、吸着、及び一次反応が考慮される場合、一次元移動方程式は(1.1.1-4)式のようになるとしている。

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - kC \quad (1.1.1-4)$$

ここで

C : 間隙水中に溶存した水素ガス濃度

D : みかけの拡散係数

k : 一次反応定数 (反応速度)

t : 時間

x : 入口側からの距離

入口のフラックス : $\phi(0, t)$ は(1.1.1-5)式で与えられる。

$$\phi(0, t) = -\eta RD \left(\frac{\partial C}{\partial x} \right)_{x=0} \quad (1.1.1-5)$$

ここで η : 拡散可能間隙率

R : 遅延係数

粘土サンプル内を移動する水素量 $Q(t)$ は(1.1.1-6)式となるとしている。

$$Q(t) = S \int_0^t \phi(0, t') dt' = -\eta RDS \int_0^t \left(\frac{\partial C}{\partial x} \right)_{x=0} dt' \quad (1.1.1-6)$$

ここで

S : 断面積

式(1.1.1-4)は Laplace 変換によって解かれる。

短時間の場合の解は(1.1.1-7)式となる。

$$Q(t) = \eta RC_0 SL [(\xi T - 0.5/\xi) \operatorname{erf}(\xi\sqrt{T}) - \sqrt{T/\pi} \exp(-\xi^2 T)] \quad (1.1.1-7)$$

ここで、

L : サンプル長さ

$\xi^2 : kL^2/D$

T : $D \times t / L^2$

(1.1.1-7)式は誤差関数と指数関数を用いれば(1.1.1-8)式となる。

$$Q(t) = \eta RC_0 SL / \sqrt{\pi} (T^{1/2} - \xi^2 T^{3/2} / 3 - \xi^4 T^{5/2} / 30 - \dots) \quad (1.1.1-8)$$

方程式(1.1.1-8)式から、実験の初期は反応速度:kに影響されず、 \sqrt{t} に比例することがわかる。時間すべてに対しては(1.1.1-9)となる。

$$Q(t) = \eta RC_0 SL \left[\frac{2\xi - \sinh 2\xi}{2\xi(1 - \cosh 2\xi)} - T\xi \tanh \xi - 2 \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\alpha_n^2 \exp[-(\alpha_n^2 - \xi^2)T]}{(\alpha_n^2 - \xi^2)^2} \right] \quad (1.1.1-9)$$

ここで

$$\alpha_n = \pi(2n-1)/2$$

式(1.1.1-9)は、Boom clayを用いた場合の拡散、吸着、及び化学的反応が同時に発生した場合の In-Diffusion 法の水素消費量を示している。この式は反応速度が全体規模で卓越しない限り有効であるとしている。コンピュータプログラム: DFIT33S は、実験データを(1.1.1-7)と(1.1.1-9)式にフィットするものであるとしている。

間隙水中の水素濃度: $C(x, t)$ は Laplace 変換により計算され、時間が短いときは(1.1.1-10)式となるとしている。

$$C(x, t) = 0.5 C_0 \left[\exp(-X\xi) \operatorname{erfc}\left(\frac{X}{2\sqrt{T}} - \xi\sqrt{T}\right) - \exp(X\xi) \operatorname{erfc}\left(\frac{X}{2\sqrt{T}} + \xi\sqrt{T}\right) \right] \quad (1.1.1-10)$$

すべての時間に対しては(1.1.1-11)式となるとしている。

$$C(x, t) = C_0 \left[\frac{\cosh(\xi(1-X))}{\cosh \xi} - 2 \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(-1)^{n-1} \alpha_n \cos(\alpha_n(1-X)) \exp(-(\alpha_n^2 - \xi^2)T)}{\alpha_n^2 - \xi^2} \right] \quad (1.1.1-11)$$

単位体積粘土当りの水素量: $H(x, t)$ は(1.1.1-11)式を用いれば(1.1.1-12)のよ

うになるとしている。

$$H(x, t) = \eta k \int_0^t C(x, t') dt' \quad (1.1.1-12)$$

この In-Diffusion テストでは、Boom clay 内の H_2 の化学反応はないとし、 H_2 のリークの検討は必要であるとしている。そこで、ダミーテストにより、リークを調査しリーク定数：F を導出し、それを用いている。

このリーク定数：F と拡散量： Q_D から全体の消費量 Q_T を示すのが(1.1.1-13)式であるとしている。

$$Q_T(t) = Q_D(t) - Ft \quad (1.1.1-13)$$

Boom clay のテストでは、 H_2 反応量は存在しないとしているが、リークによりはっきりしないところもあるとしている。

第一の H_2 テストでは反応なしとしている。こうすれば DFIT33S と DFIT33SL(反応なしの場合のコンピュータプログラム)は同じとなるとしている。

(ii) Through-Diffusion 法

飽和した Boom clay を通過する H_2 ガスの拡散移行では、拡散、溶存、吸収、及び一次反応が考えられ、一般に一次元移動方程式は(1.1.1-14)式となるとしている。

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - kC \quad (1.1.1-14)$$

ここで、

C : 拡散による間隙水中の H_2 濃度

D : みかけの拡散係数

k : 一次反応定数

t : 時間

x : 円筒試料内の距離(高い濃度側を起点とする)

最初、粘土内の濃度：0 であり、出口 ($x=L$) での濃度はすべての時間に対して 0

である。入側の濃度は一定濃度 C_0 、距離： x での時間： t 後のフラックスは(1.1.1-15)式となるとしている。

$$\Phi(x, t) = -\eta RD \frac{\partial C}{\partial x} \quad (1.1.1-15)$$

距離 x を時間 t 後に通過する量は、断面積： S についてフラックスを積分することで(1.1.1-16)式のようになるとしている。

$$Q(x, t) = -\eta RDS \int_0^t \frac{\partial C}{\partial x} dt' \quad (1.1.1-16)$$

(1.1.1-16)式は Laplace 変換により、(1.1.1-17)式のように解くことができるとしている。

$$C(x, t) = \frac{C_0}{2} \left[\exp(-x\sqrt{k/D}) \operatorname{erfc}\left(\frac{x}{2\sqrt{Dt}} - \sqrt{kt}\right) - \exp(x\sqrt{k/D}) \operatorname{erfc}\left(\frac{x}{2\sqrt{Dt}} + \sqrt{kt}\right) \right] \quad (1.1.1-17)$$

すべての時間に対しては(1.1.1-18)式のようになるとしている。

$$C(x, t) = C_0 \left[\frac{\sinh \beta X}{\sinh \beta} - 2 \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(-1)^n \alpha_n \sin(\alpha_n X) \exp(-(\alpha_n^2 - \beta^2) T)}{\alpha_n^2 - \beta^2} \right] \quad (1.1.1-18)$$

多孔質媒体内の濃度： $C_b(x, t)$ は(1.1.1-19)式で与えられ、Boom clayの単位体積当りの通過量は(1.1.1-20)式となり、また(1.1.1-21)式のようにも表現できるとしている。これから距離： x を通過する全量： $Q(x, t)$ は(1.1.1-22)式となり、粘土の高濃度側($x=0$)で移動する量は(1.1.1-23)式、 $x=L$ での移動全量は(1.1.1-24)式となるとしている。

もし化学的反応を考えなければ、 $\beta=0$ となり、(1.1.1-25)式で表わされるとしている。

$$C_b = \eta RC(x, t) - C_r(x, t) \quad (1.1.1-19)$$

$$C_r(x, t) = \eta k \int_0^t C(x, t') dt' \quad (1.1.1-20)$$

ここで、

$$X = 1 - x/L$$

$$T = D \times t / L^2$$

$$\beta^2 = kL^2 / D$$

$$\alpha_n = n\pi$$

$$C_r(x, t) = \eta k C_0 \left[\frac{\sinh \beta X}{\sinh \beta} t \right.$$

$$\left. - \frac{2L^2}{D} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(-1)^n \alpha_n \sin(\alpha_n X) [1 - \exp(-(\alpha_n^2 - \beta^2) T)]}{(\alpha_n^2 - \beta^2)^2} \right] \quad (1.1.1-21)$$

$$Q(x, t) = \eta RC_0 SL \left[\frac{X \sinh(\beta X) \sinh \beta - \cosh(\beta X) \cosh \beta}{2 \sinh^2 \beta} \right.$$

$$\left. - \left(\frac{1}{2\beta} - \beta T \right) \frac{\cosh(\beta X)}{\sinh \beta} \right]$$

$$\left. - 2 \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(-1)^n \alpha_n^2 \cos(\alpha_n X) \exp(-(\alpha_n^2 - \beta^2) T)}{(\alpha_n^2 - \beta^2)^2} \right] \quad (1.1.1-22)$$

$$Q(0, t) = \eta RC_0 SL \left[\frac{1}{2} (1 - \coth^2 \beta) - \left(\frac{1}{2\beta} - \beta T \right) \coth \beta \right. \\ \left. - 2 \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\alpha_n^2 \exp(-(\alpha_n^2 - \beta^2) T)}{(\alpha_n^2 - \beta^2)^2} \right] \quad (1.1.1-23)$$

$$Q(L, t) = \eta RC_0 SL \left[\frac{1}{\sinh \beta} \left(\frac{1}{2\beta} - \frac{\coth \beta}{2} - \beta T \right) \right. \\ \left. - 2 \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(-1)^n \alpha_n^2 \exp(-(\alpha_n^2 - \beta^2) T)}{(\alpha_n^2 - \beta^2)^2} \right] \quad (1.1.1-24)$$

$$\lim_{\beta \rightarrow 0} Q(L, t) = \eta RC_0 SL \left[T - 2 \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(-1)^n \exp(-\alpha_n^2 T)}{\alpha_n^2} \right] \quad (1.1.1-25)$$

また、G.Volckaertらは別に「処分場母岩内のガス移動に関するモデリングと実験」と題した拡散研究を発表している。⁴⁾

Boom clay に対して水素反応能力(hydrogen reaction capacity)に関するバッチ実験が行なわれ、10 μeq/g が測定されている。しかし、O₂を調整・制御することにより水素反応は見られなかったとしている。

水素の消費量測定は数カ月を費やしたとしている。

図 1.1.1-10 において、ガスエントリー圧力以下を Zone 1，ガスエントリー圧力から土被り圧までの期間を Zone 2，ガス圧と土被り圧が等しい時の二相流現象の場合を Zone 3 に示している。Zone 1 では $P_g < P_w - \Psi_{m_0}$ であり、この領域ではガス分子は拡散及び対流によってのみ移動するとしている。

ここで、

P_w : 間隙圧力

Ψ_{m_0} : マトリックスポテンシャル (Boom clay で、-1.2MPa)

P_g : ガス圧

α : 全圧 (土被り圧)

結論としてガス圧力が低い場合、水素は拡散によってのみ移動し、高い場合 2 相流現

象が発生するとしている。

酸素との反応は省略でき、たとえ酸化した粘土を用いた場合でさえ、反応は限定され
るとしている。

MEGAS プロジェクトのガス拡散の考え方をまとめると次のようになる。

① 水中へのガス溶存量の考え方

ガスが多孔質中を流れる時、そのいく分かは間隙水に溶存し、一般に水素溶存量は
Henry 則に従って、圧力に線形的に増加するとしている。

従って一定圧力条件では、ある上限値以上にはガスは溶存せず一般にガスの溶存量は
小さいとしている。しかし、2相流挙動に関わる重要な役割を果しているので無視でき
ないとしている。拡散について実験に従ったモデル化も可能であるが、ガスの流れが大
きいならば、溶存ガスの影響はガス及び水の流れ挙動を変える程にはならず、この場合
は無視できるとしている。(Travis(1984)他)

② 溶存ガスの移流・吸着現象の考え方

間隙水に溶存したガスは移流、吸着、そして流体力学的分散の過程をとり、これに関
する理論的実験的研究は多くなされている。モデリングは比較的簡単であるがプロセス
を考慮するとむづかしいとしている。

吸着は一般的には吸着等温線によって示され、この関係は温度一定条件下で溶存した
質量濃度と吸着相濃度との比で示されるとしている。このうち最も簡単なものは線形吸
着モデルであり、また非線形等温モデルも数多く存在する (de Marsily(1986)) として
いる。例えば、これらには Langmuir 等温モデル, Freundlich 等温モデル, 第二オーダー
等温モデル、指数等温モデルがあり、これらは多孔質媒体の屈曲、流路スプリッティン
グ、Taylor 拡散及びトランジットタイムズによる分子拡散の遅延現象を説明している。

多孔質媒体の屈曲とは屈曲度により遅延を表わすモデル(Travis(1984))、流路スプリ
ッティングとは流路間の交さを含むとしている。Taylor 拡散は間隙壁でスリップがない
場合速度に平行方向に広がる拡散、トランジットタイムズは隣接流路の流速の差により
速度群をつくるものであるとしている。

③ Boom Clay へのバルク拡散と knudsen 拡散の適用の考え方

一般に、拡散現象はバルク拡散と knudsen 拡散の組合せであるとし、バルク拡散では
間隙壁をたたく分子の影響が分子間の衝突に比べて無視できる場合であり、knudsen 拡

散は無視できない場合であるとしている。Knudsen 拡散は低圧ガス条件下で又は小さい間隙半径を有する媒体での拡散であり、分子の平均自由行程が間隙半径より大きい場合であるとしている。

Boom clay では、間隙半径が 1×10^{-8} m (Lineham(1989)) なので、低圧下では Knudsen 拡散を適用する方がよいとし、Knudsen 拡散係数を用いて（厳密に言えばテンソル）モデル化している。なお、Pandey ら(1974)は、バルク拡散係数 D と Knudsen 拡散係数 D_k は(1.1.1-26)式のようになるとしている。

$$D = c_1 \frac{k}{3} \left[\frac{kT}{\pi \sqrt{2} P d^2} \right] \left[\frac{8k'T}{\pi M} \right]^{\frac{1}{2}}, \quad D_k = c_2 \frac{2}{3} k r \left[\frac{8k'T}{\pi M} \right]^{\frac{1}{2}} \quad (1.1.1-26)$$

ここで、

k : 媒体の透過係数

k' : Boltzman 定数

P : ガス圧

d : 分子直径

r : 間隙半径

T : 温度

M : モル重量

C_1 と C_2 : スカラー定数

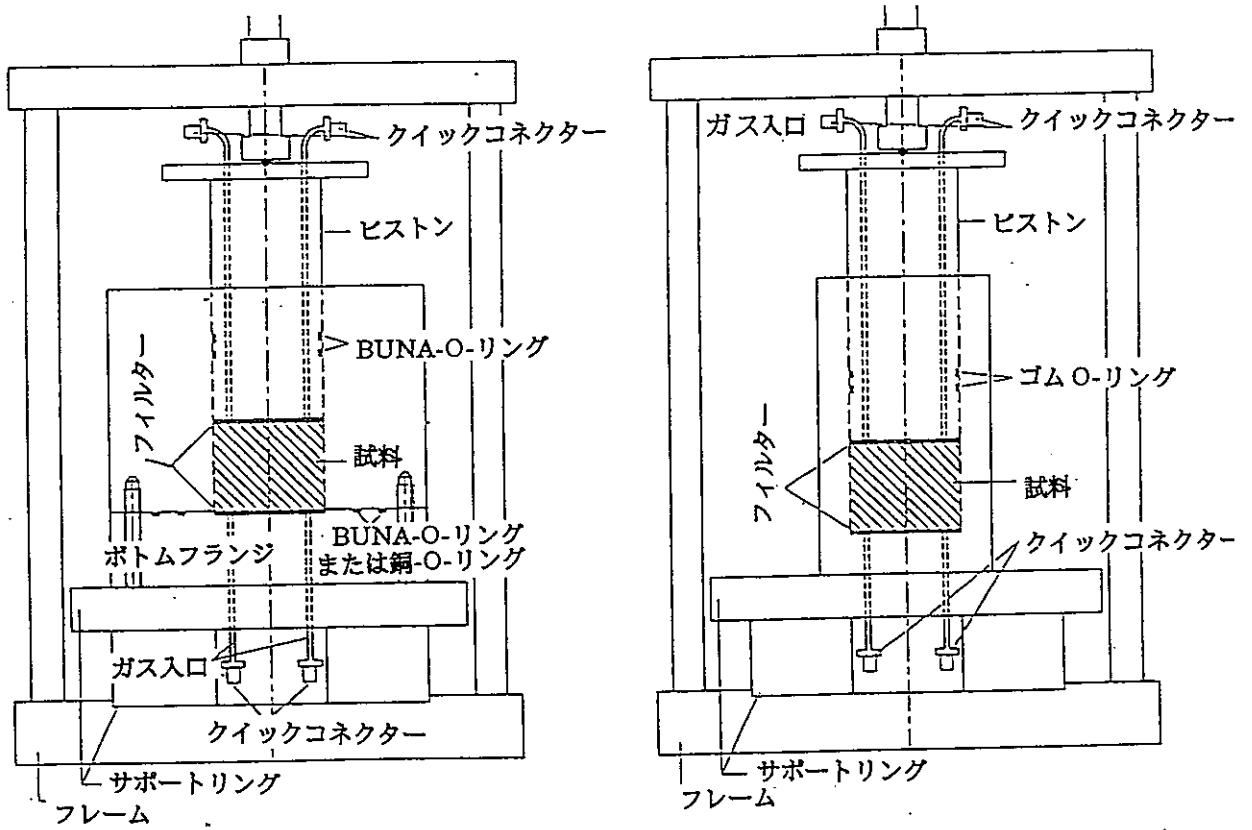
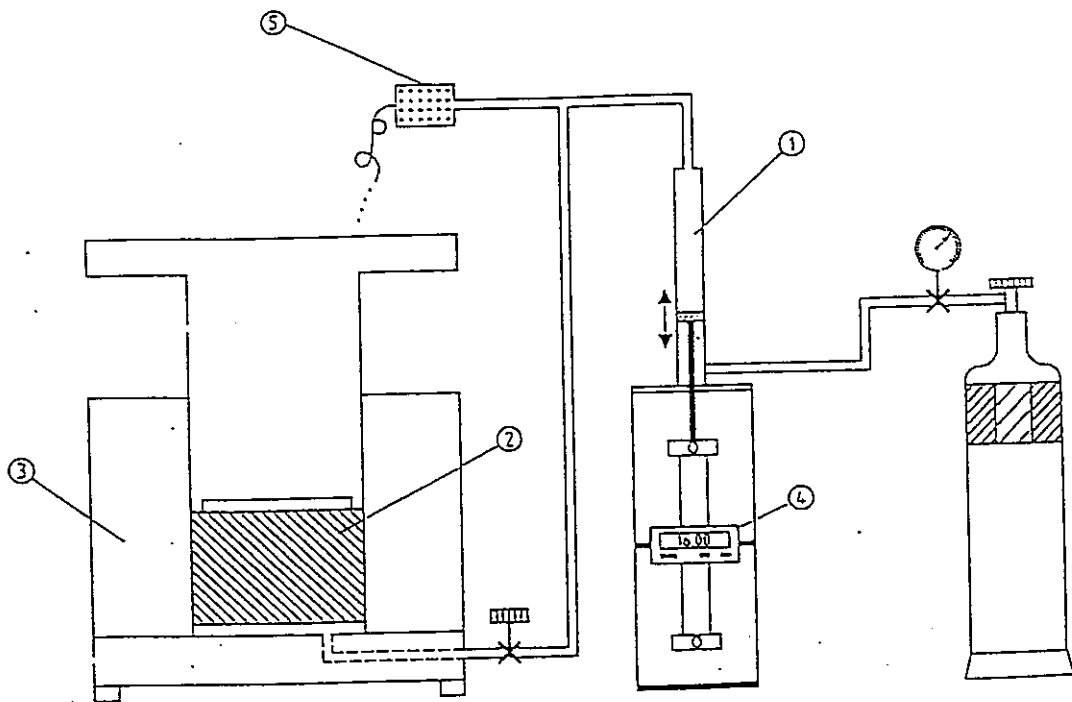


図 1.1.1-1 In-diffusion 法(左)と Through-diffusion 法(右)の概略



1. 水素 2. 試料 3. In-diffusion セル
 4. 変位トランスデューサー 5. 圧力トランスデューサー

図 1.1.1-2 In-diffusion 法システム

表 1.1.1-1 水素ガスの拡散関連データ (MEGAS プロジェクト)

Code	Sample length (cm)	Total porosity (-)	Density (g.cm ⁻³)	ηR (-)	D (cm ² .s ⁻¹)	ηRD (cm ² .s ⁻¹)	Leak (NmL.s ⁻¹)
H2IND1	3.93	-	-	2.0	5.9×10^{-7}	1.2×10^{-6}	1.7×10^{-6}
H2IND2	1.14	0.403	2.014	17.2	4.2×10^{-8}	7.2×10^{-7}	1.2×10^{-6}
H2IND3	1.17	0.416	1.993	6.1	1.6×10^{-6}	9.8×10^{-6}	2.2×10^{-6}
H2IND4	1.255	0.426	1.975	4.1	1.9×10^{-6}	7.7×10^{-6}	1.6×10^{-6}
H2IND5	4.365	0.412	2.002	2.0	4.8×10^{-6}	9.7×10^{-6}	0.9×10^{-6}
H2THRD1	3.975	0.365	2.079	0.22	3.1×10^{-6}	6.9×10^{-7}	0
H2THRD3	3.975	0.365	2.079	7.4	2.3×10^{-7}	1.7×10^{-6}	0

η : 拡散に関わる間隙率(diffusion accessible porosity)

R : 遅延ファクター(retardation constant)

D : みかけの拡散係数(apparent diffusion constant)

ηRD : 実効拡散係数

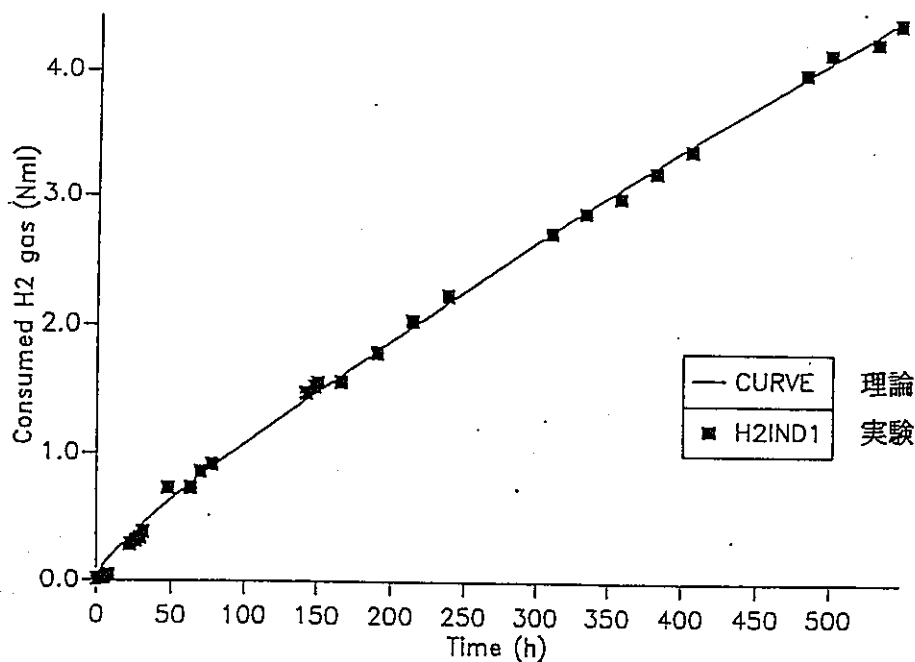


図 1.1.1-3 試料 No.H21IND1(Boom clay)の In-diffusion 法による水素消費量と解析解
(スリーブの漏気は考慮し、水素の化学反応は無視)

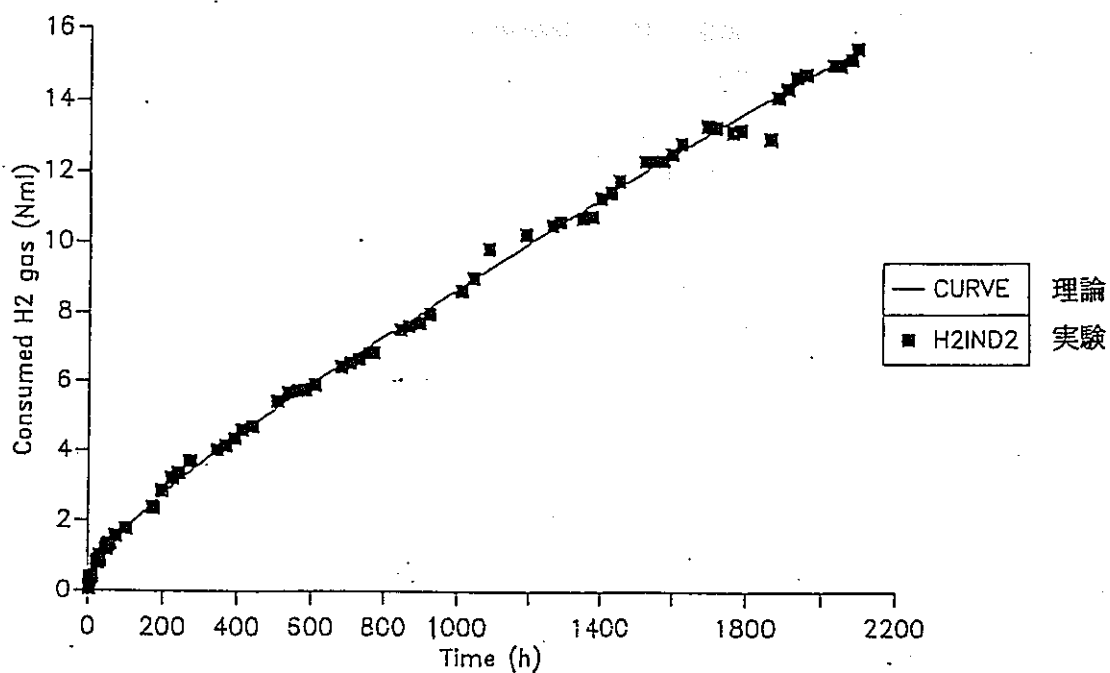


図 1.1.1-4 試料 No.H21IND2(Boom clay)の In-diffusion 法による水素消費量と解析解
(スリーブ漏気は考慮し、水素の化学反応は無視)

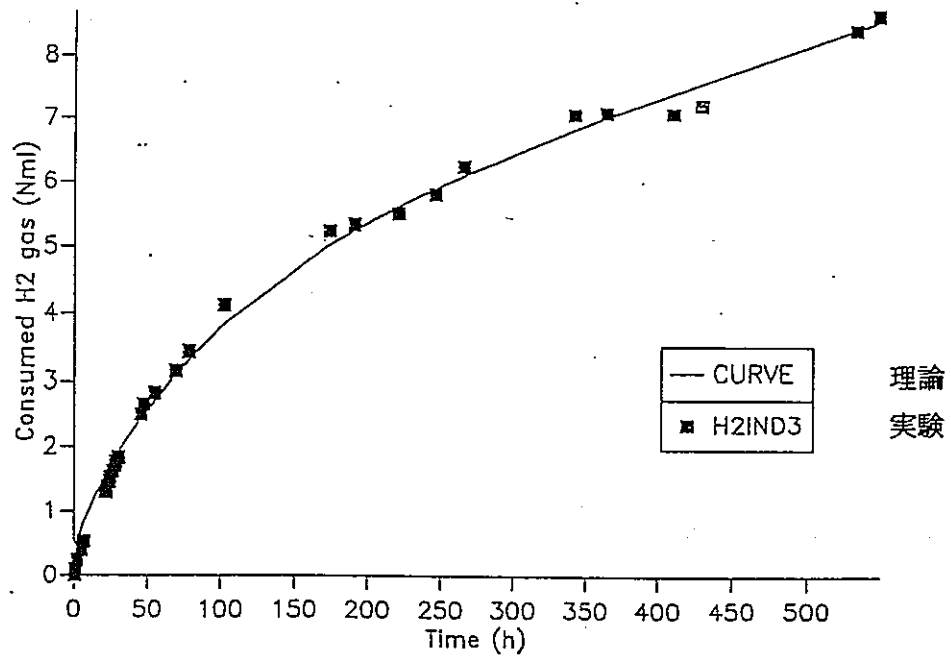


図 1.1.1-5 試料 No.H21IND3(Boom clay)の In-diffusion 法による水素消費量と解析解
(スリープ漏気は考慮し、水素の化学反応は無視)

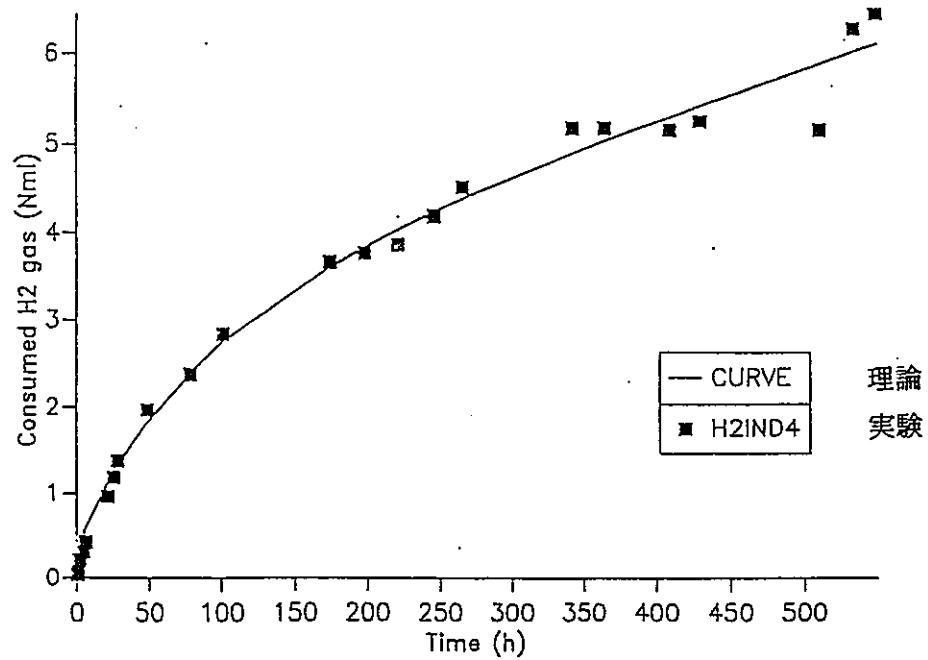


図 1.1.1-6 試料 No.H21IND4(Boom clay)の In-diffusion 法による水素消費量と解析解
(スリープ漏気は考慮し、水素の化学反応は無視)

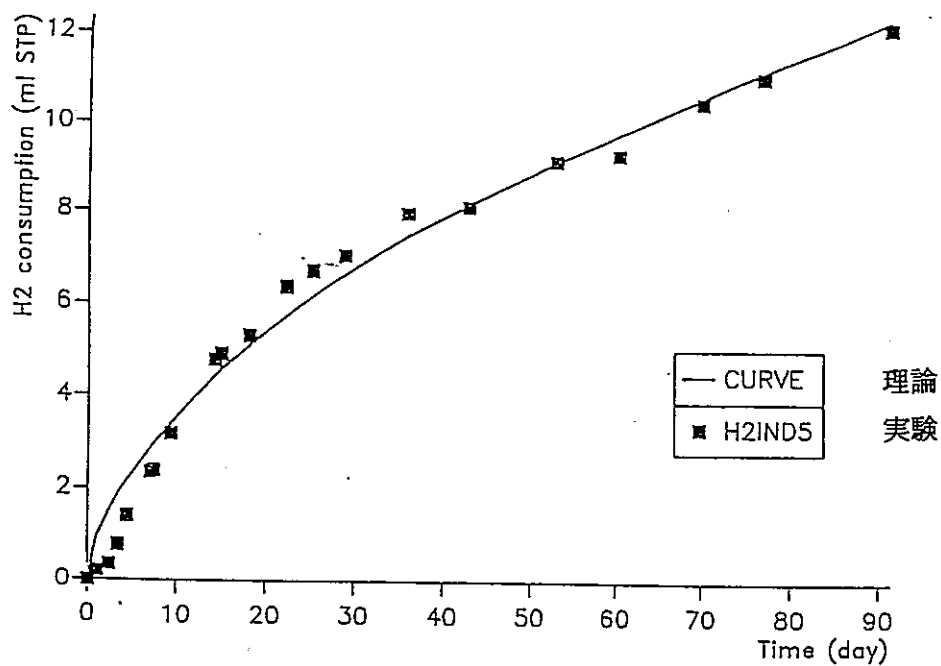


図 1.1.1-7 試料 No.H21IND5(Boom clay)の In-diffusion 法による水素消費量と解析解
(スリーブ漏気は考慮し、水素の化学反応は無視)

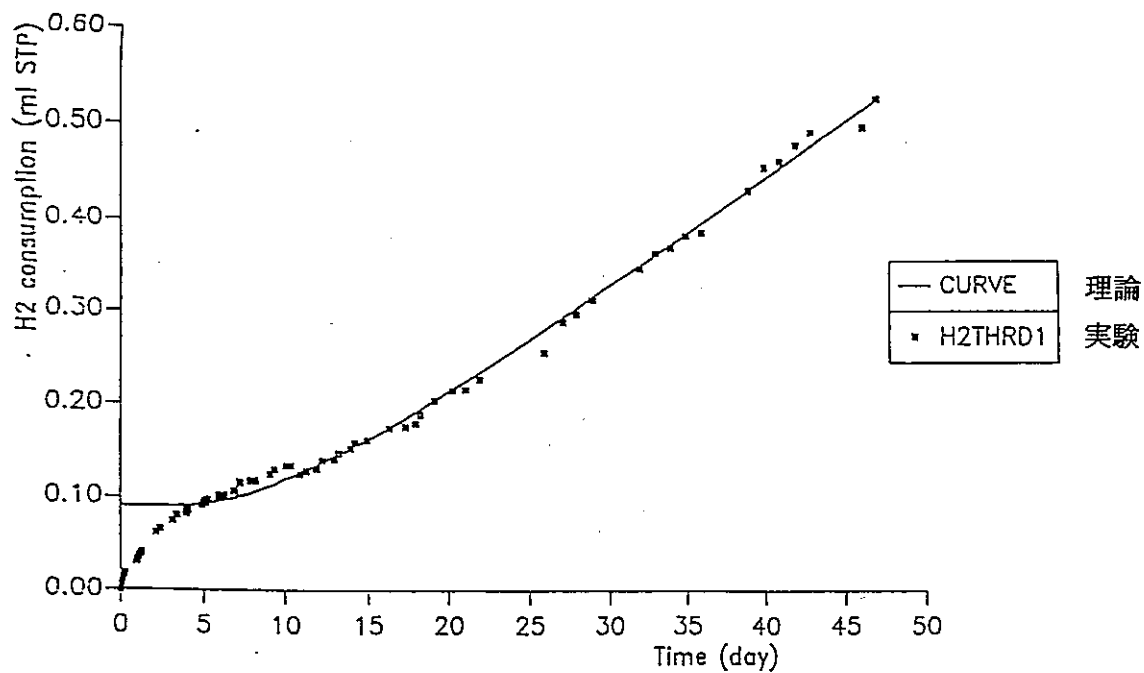


図 1.1.1-8 試料 No.H2THRD1(Boom clay)の Through-Diffusion 法による水素消費量と
解析解

(入口側セル中の水素濃度を一定、水素の化学反応は無視)

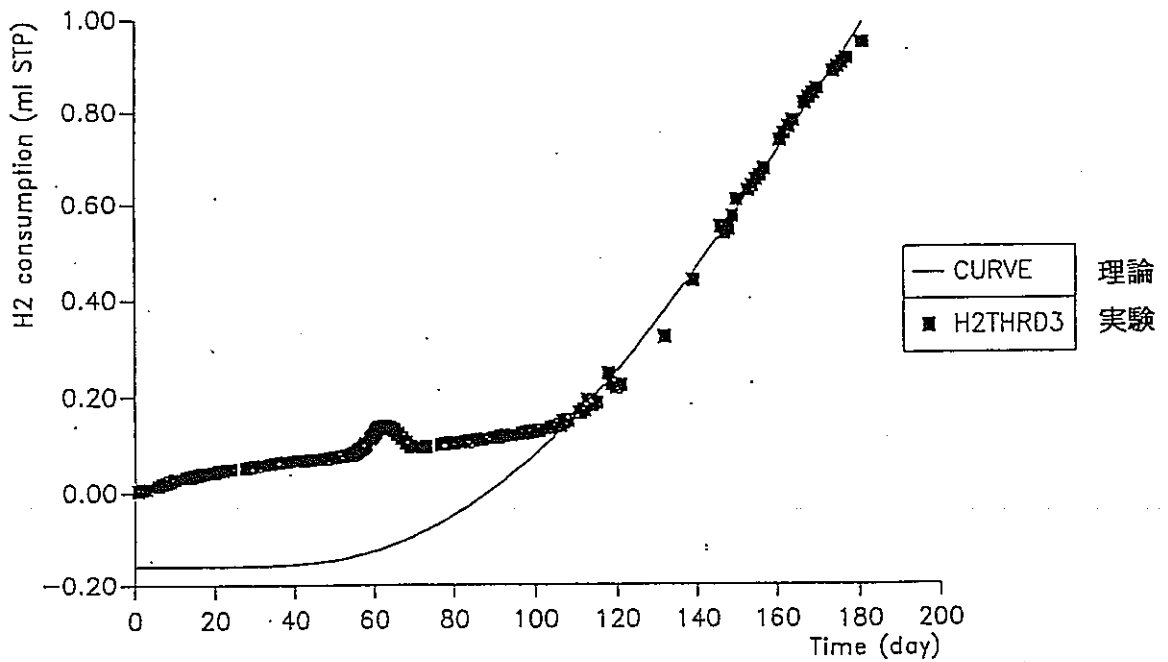


図 1.1.1-9 試料 No.H2THRD1(Boom clay)の Through-Diffusion 法による水素消費量と解析解

(入口側セル中の水素濃度を一定、水素の化学反応は無視)

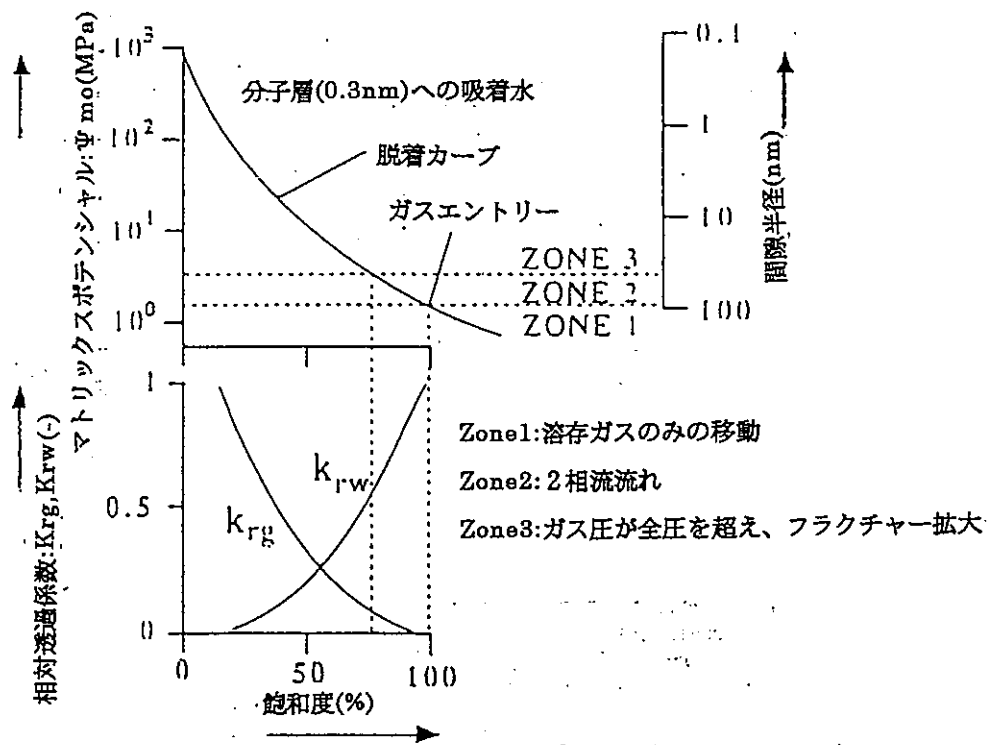


図 1.1.1-10 Boom clay 内を通過するガス移動の 3 区分概念

1.1.2 スウェーデンのガス拡散研究 (I.Neretnieks ら)⁹⁾

「圧縮飽和ベントナイト内の拡散と緩衝材中の核種移行の影響」と題した拡散研究について調査した。以下のとおりである。

2種類の測定方法が用いられ、1つは固定法(stationary technique), もう1つは非固定法(unstationary technique)である。

固定法は、2つの多孔質板の間に圧縮ベントナイト試料を定置し、トレーサ溶液を片のみみ接触させる方法である。他の片面は、トレーサ濃度0である。この時のトレーサのフラックスから空孔拡散係数(pore diffusivity): D_p は、バルク拡散係数: D_v との関係を示す Fick の法則を用いて(1.1.2-1)式のように示している。

$$D_p = \frac{D_v \delta_D}{\tau^2} \quad (1.1.2-1)$$

ここで、

δ_D : 圧縮率

τ : 屈曲度

もう1つの実験法(非固定法)は、飽和ベントナイトの片面を時間0でトレーサ含有溶液に接触させ、ある時間を経て、トレーサがベントナイト中に拡散するのでスライス状に切断することにより濃度プロファイル測定する。これには2種類の方法がある。1つの方法は、ぶ厚いベントナイト試料内にトレーサ溶液を完全に浸み込ませ、もう1つの試料をこれに圧着させる方法、もう1つの方法は1つの試料面にトレーサ溶液をたらし、もう1つの試料を接着させる方法である。これによって、トレーサは対称的に両試料に移動し、濃度プロファイルが測定されることになるとしている。

非固定法は、時間的に変化する面を測定するもので、低い拡散係数を有する物質に対して優れ、また、強い収着を示す物質にも適しているとしている。

一方「固定法」はかなり長い時間を要するとしている。

拡散現象では収着した物質が動かず定着していると仮定して、式(1.1.2-2)で示している。

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \frac{D_p}{1 + \frac{(1 - \epsilon_p) K_s \rho_s}{\epsilon_p}} \cdot \frac{\partial^2 c}{\partial z^2} \quad (1.1.2-2)$$

厚さ a の飽和ベントナイトスラブから他のスラブへの拡散を考え、式(1.1.2-3)で示している。

$$c/c_0 = 0.5 \left\{ \operatorname{erf} \left[\frac{(1 - z/a)}{2 \left(\frac{D_a t}{a^2} \right)^{1/2}} \right] + \operatorname{erf} \left[\frac{(1 + z/a)}{2 \left(\frac{D_a t}{a^2} \right)^{1/2}} \right] \right\} \quad (1.1.2-3)$$

接合部から両ベントナイトスラブへの拡散を考え、式(1.1.2-4)で示している。

これから D_a を決定している。

$$c = \frac{m}{2A(\pi D_a t)^{1/2}} \cdot \exp\left(\frac{-z^2}{4D_a \cdot t}\right) \quad (1.1.2-4)$$

内部でほとんど反応がない多孔質物質に対して、バルク水中の拡散係数: D_v と空孔中の拡散係数: D_p の関係を(1.1.2-5)式で示している。ここで δ_D は圧縮率、 τ^2 は屈曲度である。

$$D_p = \frac{D_v \delta_D}{\tau^2} \quad (1.1.2-5)$$

表 1.1.2-1~2 に測定結果を示している。ここで湿ったベントナイト密度は 2,000~2,100 kg/m^3 、間隙率は 0.35 である。溶存メタン及び溶存水素のみかけの拡散係数は $10 \sim 100 \times 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$ であることがわかる。

一方、スウェーデン KBS-3 では、処分場レイアウトに及ぼすガス拡散について以下のように検討している。(図 1.1.2-1~2)¹⁾

ベントナイト中の溶存ガス拡散移動量は、ガス発生速度に比べて小さいが、もしガス発生速度が小さいならば拡散移行によって移動量の寄与の割合は大きくなるとしている。

ガスはベントナイトを 1 度貫通すると、トンネルエリア及び破壊ゾーンを通過して流れるが、このゾーンにガストラップがあれば、地表へのガス移動に遅れが生じることになるとしている。拡散によって溶存ガスが移動するが、これが通路を決定づけるとは思われないとしている。

ガス発生速度はキャニスター腐食に必要な水量に依存し、キャニスターに接する水量は、

もし亀裂が小さいならば少量であるとしている。

将来の研究は、水量によってガス発生速度がどのように変わるのか、またキャニスター周辺の H^3 が水との接触により H^3H 元素となるのかどうか注目されるとしている。下記の試算結果を示している。

① 溶存ガス拡散

圧縮ベントナイト中の溶存水素ガスの実効拡散係数は過去にいくつかの報告がある。例えば、 $2 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{S}$ 、 $3.6 \times 10^{-11} \sim 1.8 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{S}$ 等が報告されている。処分場レイアウト研究では $2 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{S}$ をベースケースとしている。溶存ガス量はHenry則に従うが、圧力(15MPa)は地下水圧力と膨張圧の和であるとしている。そして、キャニスター周辺のガス濃度は $2.49 \text{ m}^3/\text{m}^3$ の飽和濃度となるとしている。ここでベントナイトの外側の境界濃度は0としている。

② 垂直方向の一次元拡散

ベントナイトは半径0.75 m、高さ2.75 mの円筒形とする。

解析の結果 $1.81 \times 10^{-11} \text{ m}^3/(\text{m}^2 \cdot \text{S})$ のガスクラックスで流れる。ここで拡散断面積を 1.77 m^2 とすると全流量は $1.01 \times 10^{-3} \text{ m}^3/\text{y}$ となるとしている。

③ 半径方向の一次元拡散

キャニスターの半径を0.4 m、ベントナイトの半径を0.75 mとし、定常状態の一次元拡散方程式を用いると、キャニスター単位長さ当りのガス流速は、 $1.57 \times 10^{-1} \text{ m}^3/\text{m} \cdot \text{y}$ 、キャニスター全長では、ガス流速は $6.91 \times 10^{-1} \text{ m}^3/\text{y}$ としている。

表 1.1.2-1 約 25 °C における圧縮 Na-ベントナイト中の拡散係数

Compound	$D_a \cdot 10^{12}$ Measured Values ^a (m ² /s)	R_d	$D_p \cdot 10^{12}$ from D_a (m ² /s)	$D_p \epsilon_p \cdot 10^{12b}$ (m ² /s)	$D_p \cdot 10^9$ (m ² /s)	δ_D / r^2 Evaluated with $\epsilon_p = 0.35$
I ⁻	4 ^c	1	4	0.2 ^d	1.5 ^e	0.38 to 2.7 × 10 ⁻³
Cl ⁻	6 ^c	1	6	0.3 ^d	1.5 ^e	(0.57 to 4) × 10 ⁻³
SH ⁻	9 ^c	---	(9)	0.018 ^d	1.5 ^e	0.034 to 10 ⁻³
H ₂		1		3.6 ^d	10	1.0 × 10 ⁻³
		1		18 ^d		5.0 × 10 ⁻³
CH ₄		1		39 ^d	4	0.028
Strontium	23	1200	30 × 10 ³	10 × 10 ³		
	8 to 14 ^c	1200	(10 to 14) × 10 ³	(3 to 5) × 10 ³	1.3 ^e	8 to 51
	2.6	5800	31 × 10 ³	11 × 10 ³		
	1.8 to 12	5800	(10 to 67) × 10 ³	(3 to 23) × 10 ³		
Cesium	7.5	1200	9 × 10 ³	3 × 10 ³		
	1.5 to 3	1200	(2 to 4) × 10 ³	(0.7 to 1.5) × 10 ³	2.0	0.1 to 4.5
	0.9 ^c	2800	1.8 × 10 ³	0.6 × 10 ³		
	1.4 to 2	2800	(3.9 to 5.7) × 10 ³	(1.5 to 2) × 10 ³		
Technetium	53 ^c oxidizing conditions					
Thorium	(4.6 to 8.5) × 10 ^{-3c}	≥12000	55 to 100	20 to 35	1 ^f	0.055 to 0.1
Protactinium	>0.06 ^c	10000	>6 × 10 ³	2.1 × 10 ³	1 ^f	6
Uranium	0.58 to 0.82 ^c (600 mg/l HCO ₃ ⁻ in aq)	---				
	0.19 to 0.32 ^c (10 mg/l humic acid in aq)	---				
	0.57 to 0.94 ^c [1% Fe ₃ (PO ₄) ₂ in clay]					
Neptunium	0.22 to 0.37	240	52 to 88	18 to 31	1 ^f	0.05 to 0.09
Plutonium	(6.9 to 30) × 10 ^{-3c}	7000	48 to 210	17 to 74	1 ^f	0.05 to 0.21
Americium	(4.0 to 14) × 10 ^{-3c}	13300	53 to 180	19 to 63	1 ^f	0.05 to 0.18
Eosin <i>M</i> = 548 ^g		---		0.6 × 10 ^{-3d}		
ASQS ⁻ <i>M</i> = 240		---		2 × 10 ^{-3d}		
LS ⁻	---		1	>10 ⁻⁴ to 10 ^{-3d}		
	---		1	≤0.003 ^d		

$${}^a D_a = \frac{D_p}{1 + K_d \rho}$$

$${}^b \epsilon_p = 0.3 \text{ to } 0.35, \rho = 2000 \text{ to } 2100 \text{ kg/m}^3.$$

^cObtained from nonstationary measurements.

^dObtained from stationary measurement.

^eDilute solutions with sodium as cation.

^fGeneral value for small ions.

^g*M* = molecular weight.

表 1.1.2-2 種々の化合物の拡散係数

Type of Compound	Apparent Diffusivity, $D_a \times 10^{12}$ (m ² /s)	Pore Diffusivity, $D_p \times 10^{12}$ (m ² /s)	Effective Diffusivity, $D_p \epsilon_p \times 10^{12}$ (m ² /s)	Diffusivity in Water, $D_w \times 10^9$ (m ² /s)
Dissolved gases, e.g., CH ₄ , H ₂	10 to 100	10 to 100	4 to 40	4 to 10
Small anions noninteracting, e.g., I ⁻ , Cl ⁻ , (SH ⁻), SO ₃ ²⁻ , CO ₃ ²⁻	4 to 9	4 to 9	0.2 to 0.3	-1.5
Large anions noninteracting, e.g., LS ⁻ , AQS ⁻			(0.5 to 2) × 10 ⁻³	<1
Colloids			(0.1 to 3) × 10 ⁻³	≪1
Alkali metal ions, e.g., Cs ⁺ , Na ⁺	1 to 8	(2 to 10) × 10 ³	(0.7 to 3) × 10 ³	-2
Alkaline earth metal ions, e.g., Sr ²⁺ , Ca ²⁺ , Ra ²⁺	2 to 25	(10 to 70) × 10 ³	(3 to 25) × 10 ³	-1.5
The actinides, thorium, uranium, neptunium, plutonium, americium		50 to 200	15 to 70	-1
Protactinium	>0.6	>6 × 10 ³	2 × 10 ³	-1
Technetium oxidizing conditions	53	53	15	-1

D_v : バルク拡散係数

D_a : みかけの拡散係数

D_p : 空孔拡散係数

$D_p \cdot \epsilon$: 実効拡散係数

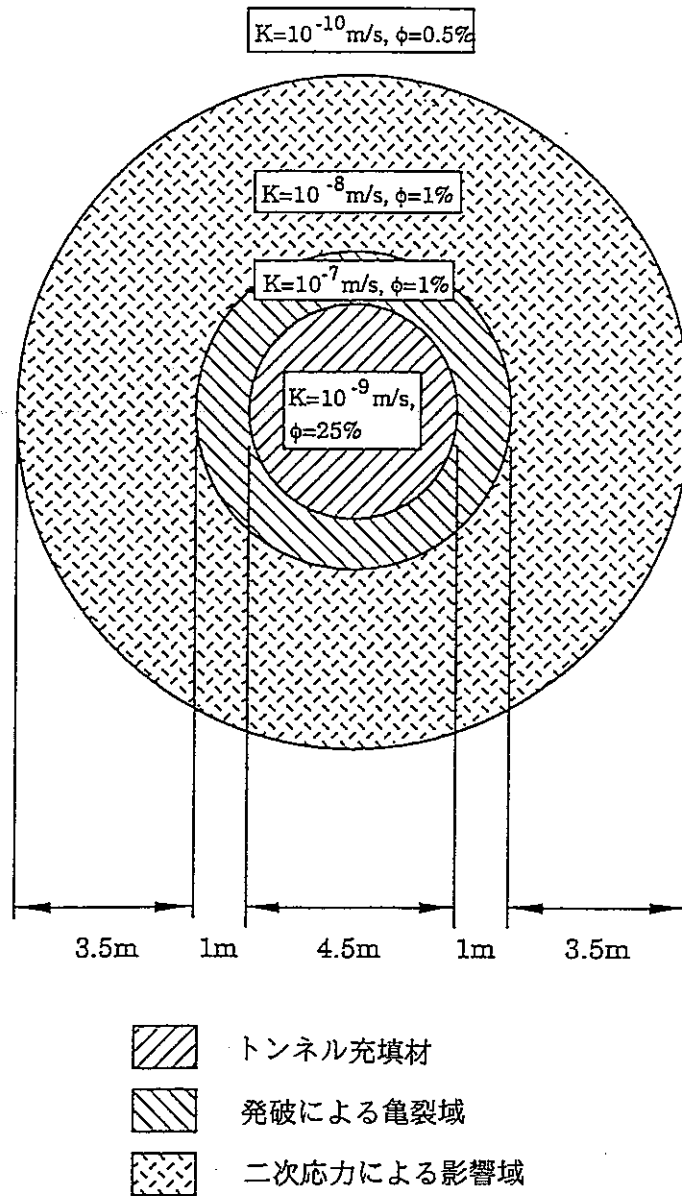


図 1.1.2-1 KBS-3 トンネルの解析モデル

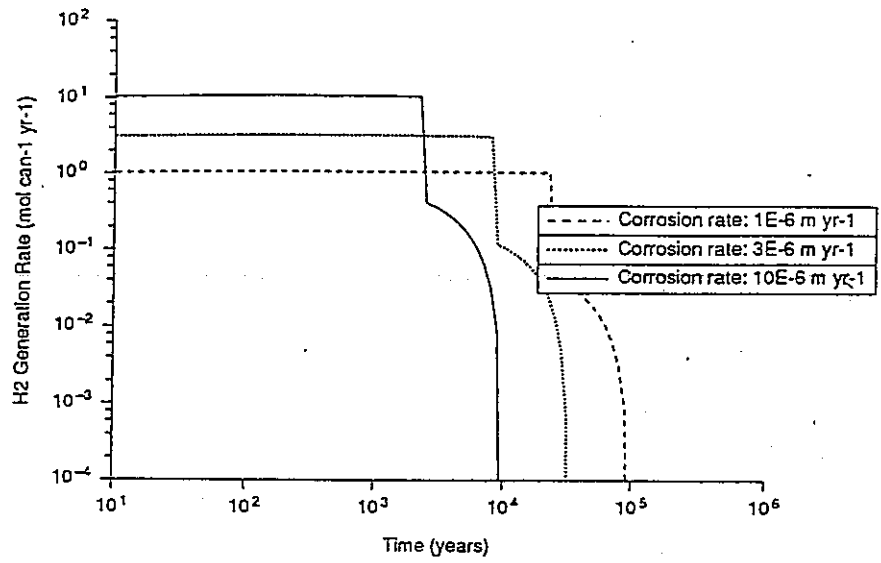


図 1.1.2-2 ガス発生速度経時変化(腐食速度 $1 \times 10^{-6} \text{m/y}$, $3 \times 10^{-6} \text{m/y}$, $10 \times 10^{-6} \text{m/y}$)

1.1.3 石油開発分野におけるガス拡散研究（その1, G.N.Pandey ら）⁷⁾

「石油分野における多孔質媒体中の液体の拡散」と題する拡散研究である。

(1) はじめに

キャップロックなどの多孔質岩石を用いて、気体ヘリウムの拡散係数と透過係数の測定を実施し、乾燥ガス状態の実効拡散係数(effective diffusivity)がガス透過係数の減少とともに減少すること、及び溶存ヘリウムについても同じ傾向にあることを示している。また、 N_2 については、threshold 圧が増加すると拡散係数(diffusivity)が減少する関係を得ている。これらの関係から間隙に対して圧縮変形に影響を与えるパラメータが拡散をも制限することを確認したとしている。

(2) 拡散理論

3種類の拡散現象が考えられている。

第1はバルク拡散であり、オープンスペースの場合の拡散係数は(1.1.3-1~2)式、乾燥多孔質中の場合は(1.1.3-3~4)式により求められる。(ここで各式は図1.1.3-1中を参照、以下式(1.1.3-7b)まで図1.1.3-1中に記載)

第2は、Knudsen 拡散であり、多孔質の場合の孔の形状による制約を考慮し、固体部分の大きさによって実効拡散係数が求められることになり、固体部分の構造影響を考慮した拡散である。

Knudsen 拡散係数については、分子の平均自由行程が孔径より大きい場合、壁の影響が無視できないため、孔の壁に当たる分子の動作は slip 又は molecular streaming (分子ストリーミング) と呼ばれ、式(1.1.3-5)及び(1.1.3-6)に示している。

これら Knudsen 拡散係数はバルク拡散係数以上に圧力と温度の影響を受ける。実際には多くの固体中の拡散現象はバルク及び Knudsen 拡散の組合せであるとしている。

第3は、溶存ガスの拡散現象であり、気泡の拡散現象とは異なるとしている(式(1.1.3-7a)、(1.1.3-7b)参照)。拡散による広がり乾燥固体より小さく、バルク拡散係数の場合でも液体内のバルク拡散として考える必要があり、その値は減少するとしている。

(3) 実験

乾燥試料及び水飽和試料に対してヘリウムと N_2 を用いて拡散係数を測定している。

定常法では乾燥試料を対象としている(図 1.1.3-2)。試料サイズは 3.8 cm 直径×1.3~2.7 cm 長である。ヘリウム及び N_2 がそれぞれ試料の両側から供給され、ヘリウム濃度はマススペクトロメータによって観察され、ヘリウムフラックスは流出速度から計算されている。

非定常法では、飽和試料及び低透過性乾燥試料を対象としている(図 1.1.3-3)。

0.01ml のガス分析精度を有するマイクロサンプラーにより一定の時間間隔にてサンプリングされ測定されている。

(4) 試料の準備

サンプルは 1.5in(3.8 cm)内径、2in 長の円筒容器にセットされる。サンプルはダイヤモンドカッターで湿式切断している。端面は 600 μ そのあと 15 μ 材で研磨し、その後、105°C(220° F)で 24 時間乾燥している。

(5) 定常法実験(乾燥試料を対象)

ガス透過係数を測定した後、定常状態での拡散測定が実施された。まずヘリウムを試料の片面に接触させるため、図 1.1.3-2 の V_1 , V_2 , V_5 , V_7 を開ける。次に N_2 に対して同じく V_{10} , V_{11} , V_{15} , V_{17} を開ける。その後背圧レギュレータ: B P R 1 及び B P R 2 が両サイドの圧力を一定にするためにセットされる。この時試料両端の差圧測定は、差圧計: D P T で読みとる。両サイドの圧カトランスデューサにて背圧設定値がわかるとしている。

V_1 , V_{10} , ニードルバルブ, V_{13} の調整によって N_2 流速を安定供給できる。この流速は大気圧下で気泡流量計で測定している。

N_2 中のヘリウム濃度を測定するため、 V_9 と V_{19} を操作し、またヘリウム中の N_2 の濃度も同様に測定している。

これら 2 つのサンプル値がマススペクトロメータで同じピークの比率を示すならば定常となっているとしている。

(6) 非定常実験(飽和試料及び低透過性乾燥試料を対象)

・前処理・パージ

拡散セルの両サイドをヘリウムとN₂でパージした後、ヘリウムシリンダーは低圧約1.4kg/cm²(20psi)にセットされる。10分間両サイドからのガス供給を実施したのち、マススペクトロメータによる分析によってN₂側が定期的にチェックされ、ヘリウムがどのようなパージ状態であるかをみる。

・測定開始

システムのパージが完了したら、ヘリウムとN₂はマニピュレータバルブによって必要な圧力にセットされる。両圧力はT-1とT-2トランスデューサーで測定される。この時試料両サイドは等圧としている。

マススペクトロメータによってヘリウム濃度を測定する。これはSVバルブの開閉によって測定可能となる。システムは事前に真空引きされている。非定常状態の試験結果を表1.1.3-1に示す。この結果、種々の岩石の溶存ヘリウムの拡散係数が $7.47 \times 10^{-4} \sim 1.90 \times 10^{-6} \text{ cm}^2 / \text{ s}$ であることがわかる。

(7) キャップロックを通るヘリウムの拡散

実規模実験がU.S.DOEにより実施され、水飽和石灰岩岩盤121m(400ft)厚さに対して実効拡散係数が $4.1 \times 10^{-6} \text{ cm}^2 / \text{ s}$ であることを示している。

計算でも同じく121m(400ft)を通るヘリウム+N₂(27%:73%)、52kg/cm²(740psi)、33°C(92°F)の温度条件下で実施した。その式は(1.1.3-8~9)式のようなものである。

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D_{\alpha} \frac{\partial^2 C}{\partial X^2} \quad (1.1.3-8)$$

$$C = C_0 \left(1 - \frac{X}{L} \right) - \frac{2C_0}{\pi} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\sin(n\pi X/L)}{n} \times \exp \left[-D_{\alpha} \left(\frac{n\pi}{L} \right)^2 t \right]. \quad (1.1.3-9)$$

ここで、

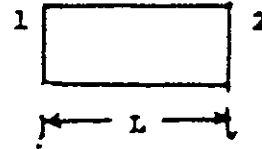
$C=C_0$ ($X=0$ においてすべての時間 t に対して)

$C=C_0$ ($0 < X < L$ において時間 0 に対して)

$C=C_1$ ($X=L$ においてすべての時間 t に対して, C_1 は 0 近傍)

計算は 50 年～100 万年まで行なわれた。そしてヘリウム拡散量は 50 年間で 11,000 エーカーの面積では、 $7.73 \times 10^3 \text{ m}^3$ ($2.78 \times 10^5 \text{ cf}$)であるとしている。

Bulk Diffusion in an Open Space



Equation:

$$N_A = -D_{AB} \frac{dc_A}{dL} \quad (1.1.3-1)$$

$$D_{AB} = \frac{1}{3} \bar{v} = \frac{1}{3} \left[\frac{k'T}{r \sqrt{2} P d^2} \right] \left[\frac{8k'T}{rM} \right]^{1/2} \quad (1.1.3-2)$$

Bulk Diffusion in Dry Porous Solid



Equation:

$$N_A = -D_e \frac{dc_A}{dL} \quad (1.1.3-3)$$

$$D_e = K \left(\frac{1}{3} \bar{v} \right) = \frac{K}{3} \left[\frac{k'T}{r \sqrt{2} P d^2} \right] \left[\frac{8k'T}{rM} \right]^{1/2} \quad (1.1.3-4)$$

where K characterizes the solid material.

Porous Solid Containing Pores Smaller Than Mean-Free Path

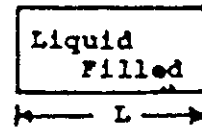


Equation:

$$N_A = -D_{e,x} \frac{dc_A}{dL} \quad (1.1.3-5)$$

$$D_{e,x} = K \frac{2}{3} r \bar{v} = K \frac{2}{3} r \left(\frac{8k'T}{rM} \right)^{1/2} \quad (1.1.3-6)$$

Diffusion of Dissolved Constituents in Liquid



Equation:

$$N_A = -D_l \frac{dc_A}{dL} \quad (1.1.3-7a)$$

$$N_A = -K D_{e,l} \frac{dc_A}{dL} \quad (1.1.3-7b)$$

図 1.1.3-1 バルク拡散（オープンスペース）、バルク拡散（乾燥多孔質）、平均自由行程より小さい間隙を有する多孔質、及び溶存した場合の拡散方程式

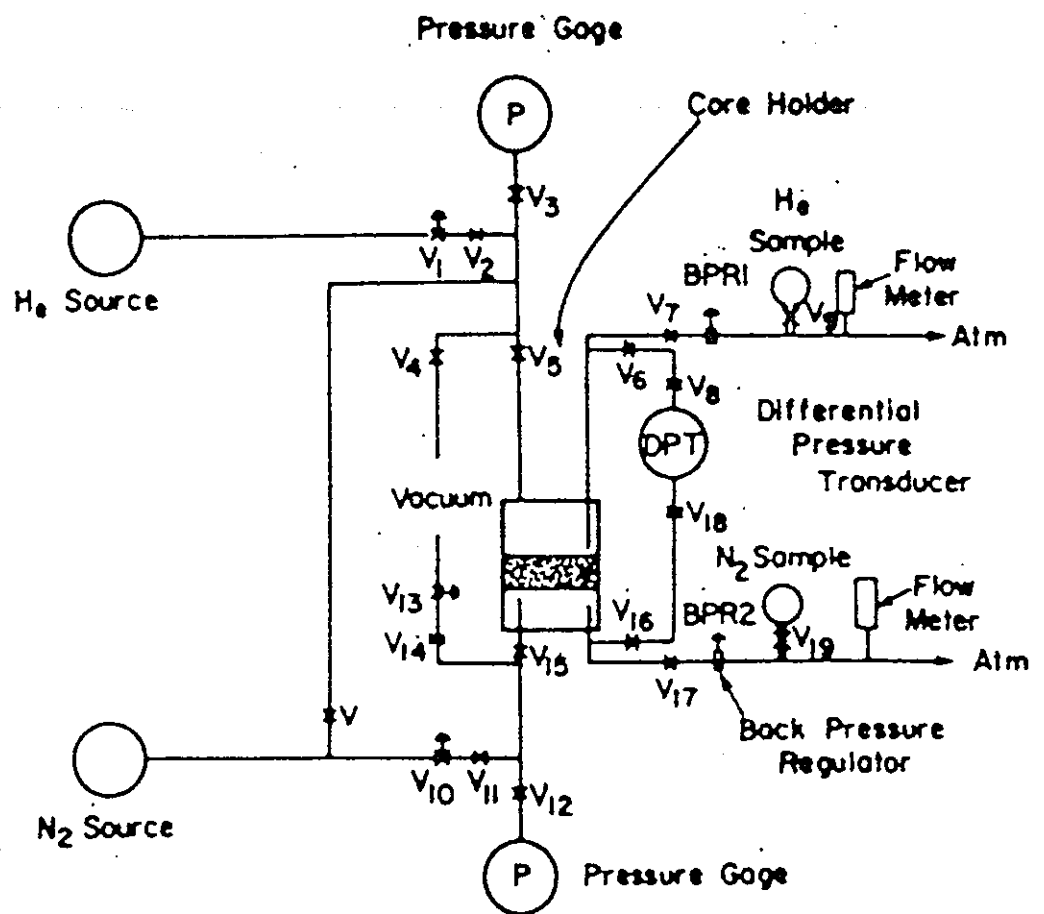


図 1.1.3-2 定常状態 (Through-Diffusion 法) 測定装置(乾燥試料を対象)

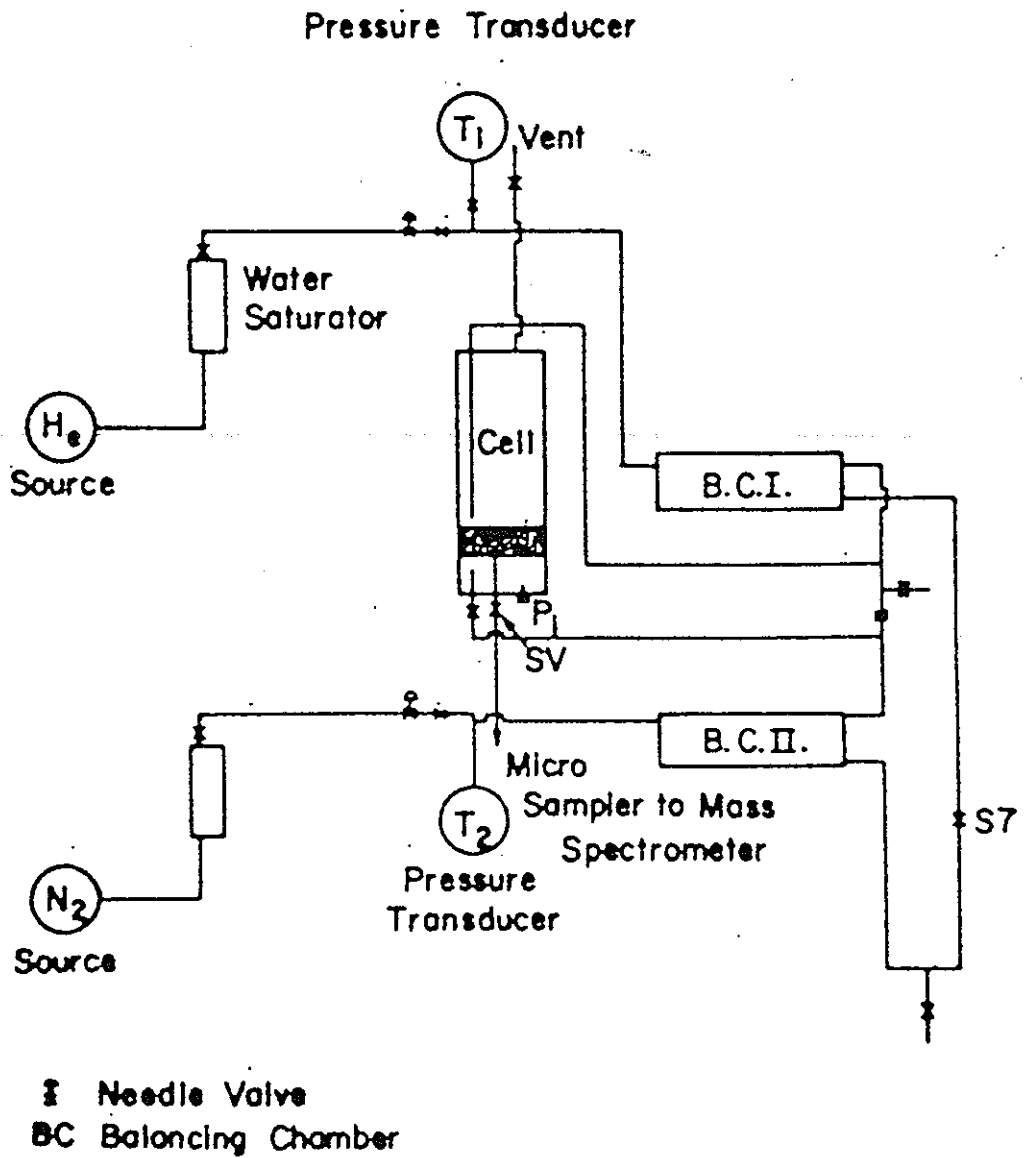


図 1.1.3-3 非定常法 (In-diffusion 法) 測定装置 (低透過乾燥試料と飽和試料を対象)

表 1.1.3-1 溶存状態の拡散係数

Sample No.	Material	Permeability (md)	Diffusivity, sq cm/sec		
			*Steady-State Dry	Unsteady-State Dry	Wet
1	Carbonate	1.1×10^{-2}	3.15×10^{-4}	--	4.34×10^{-4}
2	Shale	1.0×10^{-3}	--	4.47×10^{-5}	8.53×10^{-6}
3	Carbonate	1.19×10^{-2}	3.75×10^{-4}	3.33×10^{-4}	1.90×10^{-6}
4	Sandstone	44.84	1.08×10^{-2}	--	6.72×10^{-4}
5	Dolomite	1.725	5.12×10^{-4}	--	1.46×10^{-4}
6	Dolomite	3.26×10^{-4}	--	7.61×10^{-6}	3.99×10^{-6}
7	Shale and Carbonate	4.5×10^{-2}	2.07×10^{-4}	2.16×10^{-4}	7.47×10^{-4}
8	Carbonate	8.1×10^{-1}	2.09×10^{-3}	1.82×10^{-3}	--
9	Carbonate	9.25×10^{-2}	3.25×10^{-3}	--	4.04×10^{-6}
10	Carbonate	1.05×10^{-4}	--	5.30×10^{-5}	9.45×10^{-5}
11	Anhydrite	4.41×10^{-5}	--	3.00×10^{-6}	--
12	Shale	7.07×10^{-1}	2.28×10^{-3}	1.71×10^{-3}	2.72×10^{-4}

*He in He-N₂ system, dry cores, 1 atm normalized.

1.1.4 石油開発分野のガス拡散研究（その2, B.M.Krossら）⁸⁾

「飽和推積岩中の軽い炭化水素の拡散パラメータ実験-I, 新しい手法」と題する拡散研究を調査した。

(1) 概要

ガスクロマトグラフィーを用いて、飽和岩石試料中を通る炭化水素の拡散量を測定している。パラメータとして拡散係数、溶解度に着目し、ラグタイム法を用いてそれらを導出し、拡散係数は2~10 mm厚さの試料を用いた場合 $1 \times 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$ となったとしている。また、誤差は20%, 再現性は10~20%以内としている。

実験中における自動サンプリング手法、データ収集法、サンプリング頻度、水飽和サンプルの濃度維持方法について述べている。

ラグタイム法のベースとなる解析には、Fickの第2法則を用いた数学的モデルを用いている。従来メタンを用いた文献はあるものの、ここでは炭化水素(ヒドロカーボン)についてこの第2法則を基にラグタイム法を用いた計算法、及び非定常実験法を述べ、粘土も適用可能であることを示している。

(2) 理論

非定常拡散解析には、一次元モデルを対象にFickの第2法則を用いている。(図1.1.4-1参照)

飽和試料中の濃度は接触する両端(ガス相)の境界条件 C_1', C_2 を設定すれば(1.1.4-1)式により導出され、この場合の C_1 (=係数 $\times C_1'$) は試料の一方の端の溶存濃度、 C_2 は他端の濃度で常に0としている。

$$dC/dt = D d^2C/dx^2 \quad (1.1.4-1)$$

非定常時は(1.1.4-2)式で与えられる。拡散による移動量は図1.1.4-2に示されている。

$$Q(t) = D\beta C_1' \left[\frac{t}{l} + \frac{2l}{D\pi^2} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(-1)^n}{n^2} \times \left\{ 1 - \exp\left(-\frac{Dn^2\pi^2 t}{l^2}\right) \right\} \right] \quad (1.1.4-2)$$

この直線の t 軸の切片がラグタイム(Lag-Time)と呼ばれ(1.1.4-3)式で示されている。
これを用いて(1.1.4-4)式から拡散係数 D を得ている。

$$t_0 = l^2/6D \quad (1.1.4-3)$$

$$D = l^2/6t_0 \quad (1.1.4-4)$$

(3) 実験

図 1.1.4-3 は水飽和した堆積岩の拡散実験の概要を示している。3つのパート、即ち拡散セル、コールドトラップ、分析部から構成されている。

配管の多くは外径 1/8 インチのステンレススチール管であるが、一部屈曲部では 1/16 インチも用いている。クロマトグラフィその他バルブの制御は H P インテグレーター (3,390A シリーズ) で実行されている。

(i) 拡散セル(図 1.1.4-4)

拡散セルは2つの半円盤状セルを合わせたもので、スチール製であり夫々20ml の容積を有している。

2つのチャンバーにより、飽和した試料をはさみ、その試料は低合金(Bi/Sn/Pb)真ちゅうリングでモールドされている。6コのボルト/ナットにより2つの半円盤状セルを接合し、ソフトメタルの中にリムが押込まれて2つのチャンバーからのリークを防止する構造である。

拡散セルは実験中、乾燥しないように工夫されている。拡散セルは大気圧下のソースチャンバーから連続的に hidrocarbon ガスを流し(約 1 ml/分)、一方シンクまたは収集器は、通常バルブ閉であるが1~3時間に1回だけ3分間サンプリングするために開とする。サンプリングの後 hidrocarbon をコールドトラップに移すが、この時はヘリウムを流してフラッシングする。

(ii) コールドトラップ

コールドトラップは20 cm長のS S製チューブ(外径1/8インチ, 固相10%DC 200 on Chromosorb 60 NAW)から成り、その外側は1 cm内径の円筒形ジャケットで囲まれている。

液体N₂は上に向かって円筒形ジャケットを通過する。そして、-196°Cまで温度を下げる。

拡散セルからの hidroカーボンの排出が完了したあと、コールドトラップ内では、No.7のスイッチングバルブを経由して分析ユニットへ送るためにヘリウムキャリアガスが用いられ、温められたのち hidroカーボンは分析ユニット(ガスクロマイグラフィ)へ移される。

(iii) 分析ユニット

このユニットは3 m長のスチールカラムからなり(同上10% DC 200 on Chromosorb 60 NAW), 炎イオン検出器(FID)とバックフラッシュ装置により精度よく分析が可能であるとしている。

(iv) 試料の準備

試料は3 cm直径の円筒形で乾燥させた後、真ちゅうリングにセットされる。

70°Cで数日間サンプルを温めた後、低分子 hidroカーボンを含有したサンプルを作成する。その後脱気水で飽和させるため、真空引きする。

(v) 実験手順

サンプルをセットした後、拡散セルをサーモスタット付ウォーターバスに入れ、一定間隔で hidroカーボンガスを収集チャンバーに送り、コールドトラップを経て分析ユニットに送るとしている。

ソースチャンバー内の hidroカーボンが一定量分析ユニットへ送られ、定常拡散流れが達成されれば、実験は終了するとしている。

排出量の経時変化を図示し、式(1.1.4-3)を用いてラグタイムから拡散係数が得られることになるが、もし定常状態が達成されていないなら、この近似はいくらかの誤差を含むことになるとしている。

(4) 拡散実験の限界・精度

この方法による限界・精度について述べている。

試料の厚さは、力学的安定性のため、また不均質な試料のため2 mm以下にするべきではないとし、式(1.1.4-5)を用いると拡散係数は $1 \times 10^{-13} \text{ m}^2/\text{s}$ であるとしている。

10 日間の測定期間の間、拡散係数は $1 \times 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$ であったとしている。試料厚から生ずるエラーを5%、またラグタイムによるエラーを10%として、(1.1.4-6)式を用いて真の値を決定する必要があるが、エラーは最大でも20%としている。

$$\begin{aligned}
 Q(t) = & DC_1 \frac{t}{l} + \frac{2lC_1}{\pi^2} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(-1)^n}{n^2} \\
 & \times \left\{ 1 - \exp\left(-\frac{Dn^2\pi^2 t}{l^2}\right) \right\} \\
 & + \frac{4C_0 l}{\pi^2} \sum_{m=0}^{\infty} \frac{1}{(2m+1)^2} \\
 & \times \left\{ 1 - \exp\left(-\frac{D(2m+1)^2\pi^2 t}{l^2}\right) \right\}
 \end{aligned} \tag{1.1.4-5}$$

$$\begin{aligned}
 f(D) = & |D_m - D| \\
 = & |f(l)| |dD/dl| + |f(t_0)| |(dD/dt_0)| \\
 = & |0.05 * l * 2l/(6t_0)| + |-0.1 * t_0 * l^2/(6t_0^2)| \\
 = & (0.05 * 2 + 0.1)D \\
 = & 0.20D
 \end{aligned} \tag{1.1.4-6}$$

ここで、

l : 試料厚さ

t_0 : lag-time

D_m : 拡散係数(測定値)

D : 拡散係数(補正值)

$f(D)$: D と D_m の偏差

$f(l), f(t_0)$: 試料厚さと lag-time に起因した最大誤差

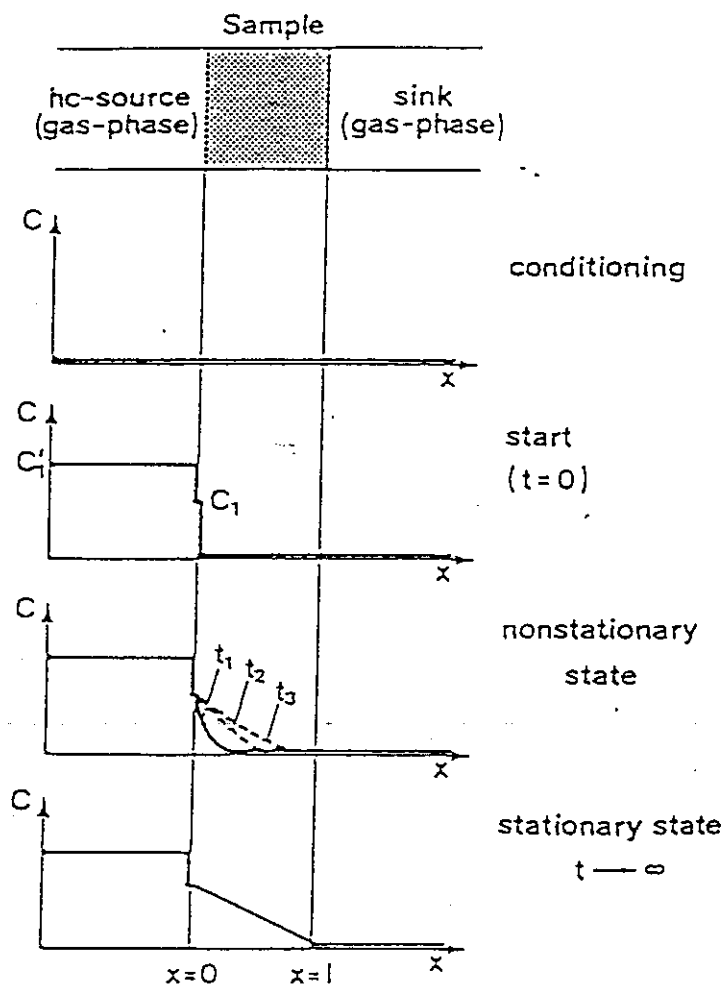


図 1.1.4-1 Lag-Time 法による hidrocarbon 拡散概念 (C_1' : 上流側水素濃度、 C_1 : 試料の濃度、 l : 試料厚さ)

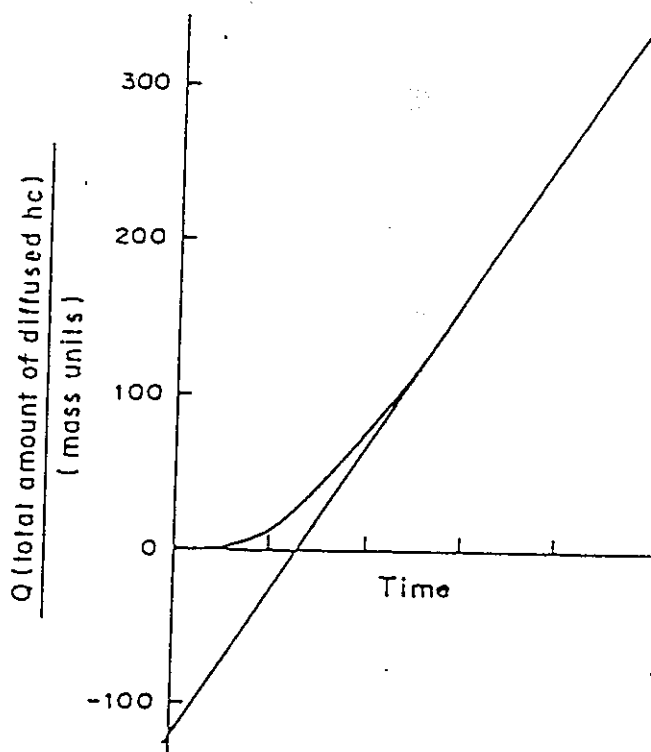


図 1.1.4-2 Lag-Time 法による拡散係数の求め方

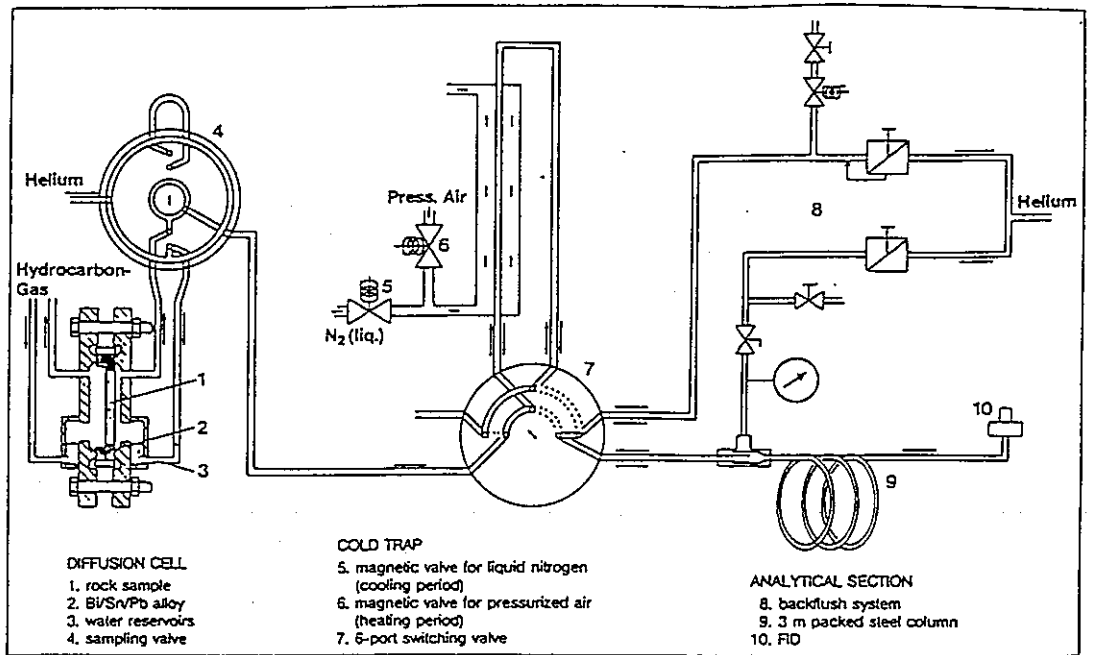


図 1.1.4-3 拡散試験装置概念(B.M.Krooss ら)

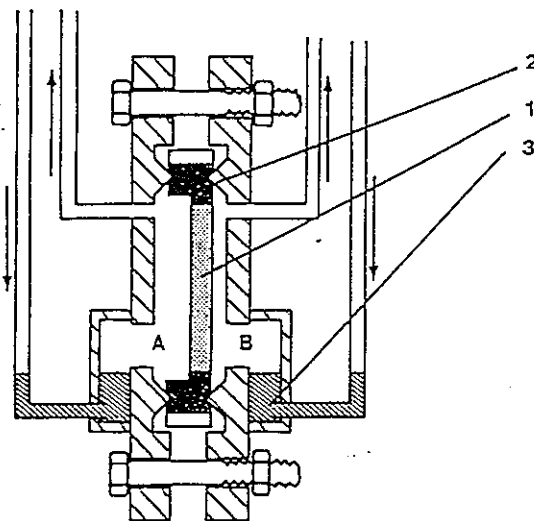


図 1.1.4-4 拡散セル (1. 試料、2. 合金、3. 貯水槽) (B.M.Krooss ら)

1.1.5 日本におけるガス拡散研究

北海道大学量子エネルギー工学専攻佐藤研究室では、モンモリロナイト中のヘリウムガス拡散・吸収試験を実施中である。⁹⁾

・測定手順

試料は直径 20.0 mm ϕ \times 5.0 mm 厚サイズで乾燥密度： $\rho = 1.0\text{g}/\text{cm}^3$ としている。

試料はクニピア F を用いている。105°C オープンで 24 時間乾燥した試料に対して、脱気を行ないつつ（フィルター 2 μm ）飽和させ、その後ヘリウムガスを溶液へバブリングにより供給し、試料への吸収量を測定している（温度：30°C）。環境を一定とするためマグネチックスターラ攪拌機を用いて約 7 日間で飽和させて実施している。

実験終了後セクションングにより試料を 1mm 程度に切断し、液体 N_2 に投入した後、加熱してヘリウムを追い出し、ガス分析により定量している。排出量分析には、四重極質量分析計を用いている。

ヘリウムガスを用いる理由は、移行中の化学反応を無視できるためとしている。

以上、試験手法をまとめると下記のようなになる。

- ・試料 : クニピア F (Na モンモリロナイト)
- ・試料サイズ : 20.0 mm ϕ \times 5.0 mm 厚
- ・乾燥密度 : $\rho = 1.0\text{g}/\text{cm}^3$
- ・測定手段 : バッチ法
- ・ガス : ヘリウムガス使用
- ・分析計 : ヘリウムガス吸収量を四重極質量分析計

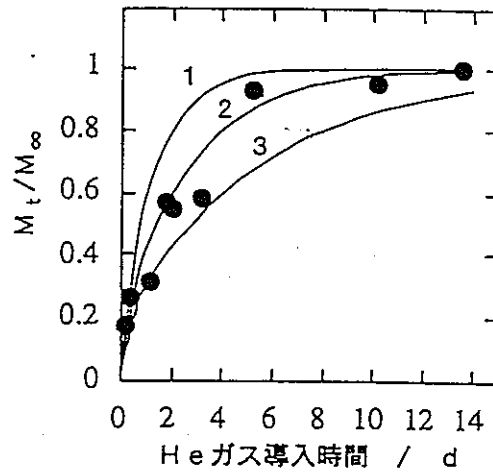
実験の結果、Neretnieks ($\rho = 2.0 \sim 2.1\text{g}/\text{cm}^3$ 、25°C で水素ガス) の拡散係数 $1 \times 10^{-11} \sim 10 \times 10^{-11} \text{m}^2/\text{s}$ と同じオーダーとなったとしている。(図 1.1.5-1)

一方、動力炉・核燃料開発事業団では、ガス発生速度及び溶存水素ガスの定常状態における拡散移行速度を計算し、オーバーパックと緩衝材の界面における水素ガス蓄積の可能性を評価している。¹⁰⁾ 評価の前提条件は下記のようなである。(図 1.1.5-2~4、表 1.1.5-1)

- ・処分形態 : 坑道横置き方式
- ・腐食生成物 : Fe_3O_4
- ・腐食速度 : 0.01 mm/y
- ・水素ガス発生速度 : 0.27N m³/y

- ・ 拡散係数： $1 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{S}$
- ・ 1atm での水素溶存量： $0.016 \text{ N m}^3/\text{m}^3$
- ・ 拡散計算式： 定常解（一次元）

この結果、拡散移行速度 $0.018 \text{ Nm}^3/\text{y}$ はガス発生速度 $0.27 \text{ N m}^3/\text{y}$ に比較して小さく、オーバパックと緩衝材間にガスが蓄積する可能性が高いとしている。



乾燥密度 $1.0 \times 10^3 \text{ kg m}^{-3}$ 、
 303Kにおけるモンモリロナイト試料
 のHeガス吸収率の時間依存性（図中
 の1、2、3はそれぞれ拡散係数 2.0 、
 1.0 、 $0.5 \times 10^{-11} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ の理論曲線）

図 1.1.5-1 乾燥密度 $1.0 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$ 、 303° K におけるモンモリロナイト試料の He ガス
 吸収率の時間依存性

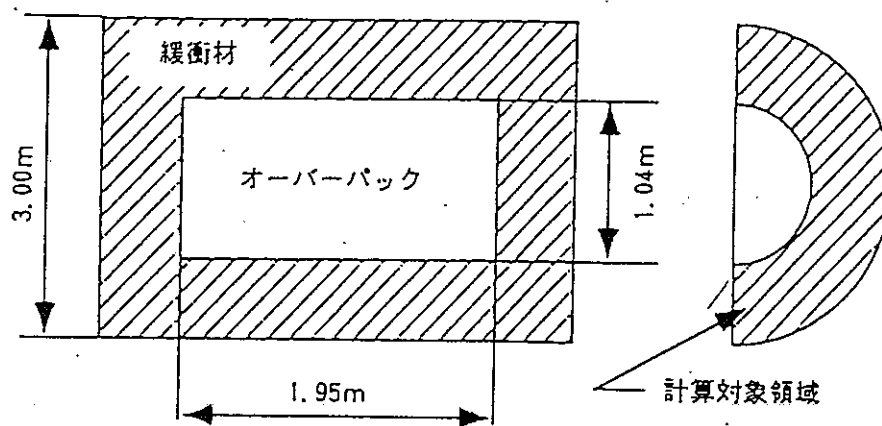
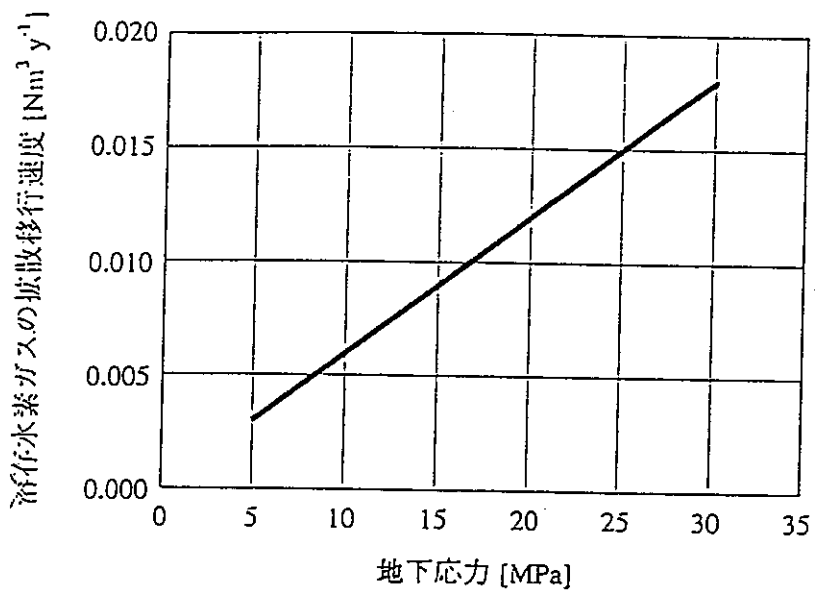
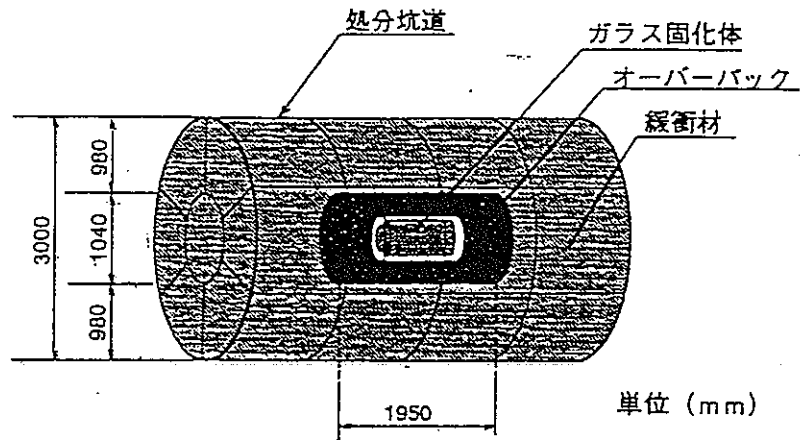


図 1.1.5-2 オーババックと緩衝材寸法

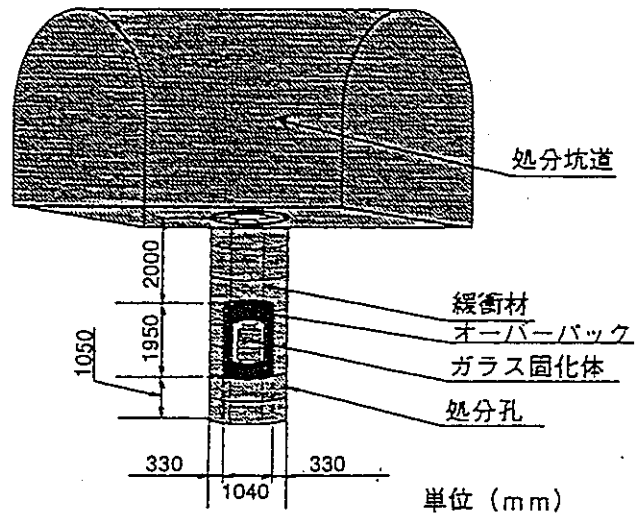


各地下応力条件下における溶存水素ガスの拡散移行速度

図 1.1.5-3 地下応力下と溶存水素ガスの拡散移行速度の関係



(a) 坑道横置方式



(b) 処分孔縦置方式

図 1.1.5-4 HLW 処分システム (動燃事業団)

表 1.1.5-1 水素拡散解析におけるパラメーター

水素ガス発生速度	0.27Nm ³ /y
オーバーパックの表面積	6.37m ²
腐食速度	0.01mm/y
鉄の密度	7.8×10 ⁶ g/m ³
鉄の分子量	55.9g/mol
拡散係数	1×10 ⁻¹¹ m ² /s
水素の溶解度	0.016Nm ³ /m ³
緩衝材内側の濃度(50℃)	
5MPa	0.8Nm ³ /m ³
10MPa	1.6Nm ³ /m ³
15MPa	2.4Nm ³ /m ³
20MPa	3.2Nm ³ /m ³
25MPa	4.0Nm ³ /m ³
30MPa	4.8Nm ³ /m ³
単位長さ当りの流量: $q=2 \pi D(C1-C2)/\log_e(b/a)$	
ここで、 D: 拡散係数 C1: 緩衝材内部の溶存濃度 C2: 緩衝材外部の濃度条件(=0) b: オーバーパック中心から緩衝材外側までの距離(=1.5m) a: オーバーパックの半径(=0.52m)	

1.1.6 イギリスにおけるガス拡散研究¹¹⁾¹²⁾

拡散によるガスフラックスの定常状態の評価は、Fick 則に従うと(1.1.6-1)式になるとしている。

$$Q_g = -D^* \nabla x \quad (1.1.6-1)$$

ここで、

Q_g : ガスフラックス ($m^3/(m^2 \cdot S)$)

D^* : 実効 (分子) 拡散係数 (m^2/S)

x : 濃度 (m^3/m^3)

実効拡散係数は、絶対拡散係数とも呼ばれているが、自由(バルク)水中での水素の拡散係数は $4.5 \times 10^{-1} m^2/S$ なので、多孔質岩石内の実効拡散係数 D^* (1.1.6-2) 式のようになっているとしている。

$$D^* = \frac{D \phi}{\tau} \quad (1.1.6-2)$$

ここで、

D : バルク水内の拡散係数

ϕ : 間隙率 (< 0.5)

τ : 屈曲度 (> 2)

D^* の最大値は $1 \times 10^{-1} m^2/S$ となるとしている。一方、粘土中の I^- 及び D_2O の実効拡散係数は 1×10^{-10} 、砂岩では $1 \times 10^{-11} m^2/S$ と提案している。London Clay については溶存 N_2 の実効拡散係数は $1 \sim 5 \times 10^{-11} m^2/S$ であるとしている。 I^- の花崗岩中のテストでは $1 \times 10^{-12} \sim 10^{-13} m^2/S$ ($10^{-14} m^2/S$ もある) であるとしている。

1.1.7 Clay Club (OECD/NEA)におけるガス拡散研究¹³⁾

OECD NEA(Clay Club)によれば、溶存ガスの拡散について次のように検討している。

① 自由水中のガス拡散

バルク水中の分子拡散係数は(1.1.7-1)式のように示されている。

$$D_0 = \frac{kT}{6\pi \eta_w r} \quad (1.1.7-1)$$

ここで、

r : 有効分子水力学的半径(effective hydrodynamic radius of molecule)

η_w : 水の粘性係数

D_0 : 拡散係数

T : 絶対温度

Wilkieら(1955)は同様に(1.1.7-2)式によって示されている。

$$D_0 = 5.06 \times 10^{-13} \frac{T}{\eta (V_b)^{0.6}} \quad (\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}) \quad (1.1.7-2)$$

ここで、

V_b : ガスのモル体積(cm^3/mol)

η : 水の粘性係数

② 遅延係数

遅延現象とは、溶存した分子が媒体内を通過する時、化学的/生物学的プロセスによる障害で遅延/消耗するメカニズムである。SCK/CENによれば Boom clayでのバッチ反応では 1.2 mg(水素)/kg (酸化している粘土)であり、もし酸化した粘土ならばさらに大きくなるとしている。

Volckaertら(1994)は遅延係数： R 及び拡散に関係する間隙率： η_d を用いて拡散係数とみかけの拡散係数の差を示している。Neretnieks(1985)は粘土における R は1として

いる。

③ 実験結果

Neretnieksら(1978)は、圧縮ベントナイト中の溶存水素のみかけの拡散係数は、間隙率0.3~0.35、密度2.0~2.1Mg/m³で 1.8×10^{-11} m²/Sとしている。この場合、定常状態でR=1とすると実効拡散係数も 1.8×10^{-11} m²/Sとなるとしている。バルク拡散係数D_oを 6×10^{-1} m²/S(25° , Wiseら1966)とするとD_o/D_a=333、D_pを間隙水拡散係数とするとD_o/D_p=1,000としている(間隙率0.35、D_o= 1×10^{-1} m²/sの場合)。

Eriksenら(1981)は同様のベントナイトでD_a= 3.6×10^{-11} m²/Sとしている。もし、D_o= 6×10^{-1} m²/SとするとD_o/D_a=1,670になるとし、メタンについてはD_a= 3.9×10^{-11} m²/Sとなるとしている。

Rebour(1995)らは粘土泥岩中のヘリウムD_aを $(5 \pm 1) \times 10^{-11}$ m²/Sとしている。

VolckaertらのBoom clayの飽和粘土中の水素の拡散実験によれば Through-diffusion法によりD_aは $3.1 \times 10^{-10} \sim 2.3 \times 10^{-11}$ m²/Sとなり、In-diffusion法では1.6, 1.8, 4.8×10^{-10} m²/Sとなるとしている。D_oを 6.0×10^{-1} m²/SとしてD_o/D_a=35となるとしている(間隙率=0.40の場合)。

1.1.8 まとめ

以上、諸外国の拡散試験手法について調査した。その結果、次のことが考えられる。

従来、石油開発業界では石油系天然ガスの岩盤への拡散問題に対処している。しかし、この分野における試験手法は、ハイドロカーボン等を対象とした加圧条件下でのセル内溶存量をガスクロマトグラフィー及び質量分析計で測定する方法であり、溶存水素ガスについては見当たらない。

MEGAS Project で実施されている拡散試験は 4.9 cm ϕ \times 1.1~4.3 cm L の Boom clay 試料を用いてそれぞれ In-Diffusion 法と Through-Diffusion 法による測定を実施している。しかしその測定手法の詳細は不明であり、また水素拡散量の同定には、水素消費量を上流側(In-Diffusion 法)もしくは下流側(Through-Diffusion 法)の圧カトランスデューサの変化量で測定していることから、その換算法についてさらに調査する必要がある。

諸外国の拡散係数測定結果から、ベントナイトを含む低透過性媒体の実効拡散係数は溶存水素ガスの場合 $1 \times 10^{-12} \sim 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ であり、岩石を対象としたヘリウムガスの実効拡散係数については $1 \times 10^{-10} \sim 10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$ と 2 オーダー大きいことがわかった。

また、溶存水素ガスの場合、みかけの拡散係数と実効拡散係数はほぼ同値であり、このことから $\eta \times R$ (間隙率 \times 遅延係数) はほぼ 1 であることがわかった。図 1.1.8-1 には、諸外国の溶存ガスの拡散係数のまとめを示す。

これらを参考に拡散試験を実施するに当たり、短時間で測定可能な In-Diffusion 法、Lag-Time 法あるいは吸収法等があるが、処分システムでの溶存ガスの挙動を模擬した試験として、理想的には Through-Diffusion 法による測定法がより再現性が高く、適用可能と考えられる。しかし、測定時間の長さ及びその間のガス漏洩について十分に考慮する必要があるため、1 試料に対して比較的短期間に多くの試料に対して測定可能な上流側計測(In-diffusion 法)を用いた測定が最適と考えられる。

1.2 ガス移行試験に関わる調査

1.2.1 BGS のガス移行研究 (S.T.Horseman ら)¹⁾

(1) ガス流速試験

ガス透過係数テストが圧縮 Volclay MX80 ベントナイト試料(円筒形)を対象に実施されている。試験方法は、試料に拘束圧及び背圧を作用させ、飽和に近い状態からガス透過試験が行われている。ガスには、水素の代用としてヘリウムが用いられている。実験は 20±0.2°C の一定温度で行われ、特別なチャンバーを有した圧力容器を使用している。

(i) 軸方向流れ装置 (BGS 装置)

図 1.2.1-1 に軸方向流れ装置の全体システムを示している。これは 5 つの主構成からなる。即ち

- ① 試料
- ② 圧力容器
- ③ 流体注入システム
- ④ 背圧・拘束圧システム
- ⑤ マイクロコンピュータとデータ収集システム

試料はあらかじめ純水にて飽和になるように平衡化されている。

(a) 試料と圧力容器

図 1.2.1-2(1) に示す圧力容器は、316SS 製の単一型密閉容器であり、70MPa (714kg/cm²、以下文献に忠実に MPa 単位とする) までの耐圧性がある。4.90cm φ × 4.90 cm 長の円筒形粘土試料は、拘束圧用液体を遮断しガス拡散を防止する銅シース (厚さ 0.2 mm) で囲まれ、焼結金属 (SS 製) ポーラスフィルター (ディスク状) を上下に有している。

試料は上下端のエンドキャップの中にはさまれる。テーパ型リングはガスタイトシールを有している。粘土試料と銅シース間のフィット性は保障されている。注入用エンドキャップは中央に管路を、またその端面は円形状かつ放射状溝を有し、試料が荷重により密着するのを防ぎつつ、ガスによるフラッシング作業中もポーラスディスクを通して放射状に流動することができる構造になっている。

(b) 流体注入、背圧、拘束圧システム

注入流体の流速及び圧力は ISCO-500,D シリーズシリンジポンプによって制御・圧送される。このポンプはペアータイプ(複動式)であり、制御ユニットにより操作できる。圧カトランスデューサはポンプ吐出圧力をモニターし、その値をコンピュータへフィードバックする。また、ピストンの移動量によってポンプ内外へどのくらいの水量が移動したかを測定することができる。ポンプは一定圧力の他に一定流速にも設定可能である。ポンプの駆動流体の種類を選定については、ガスの場合ピストンを通してリークするかも知れないので、水を選んでいる。アキュムレーターを通してヘリウムを一定量だけ試料へ送るが、ヘリウムは事前に加湿しているので試料を乾燥させることはないとしている。

(c) マイクロコンピュータ・データ収集システム

ISCO ポンプコントローラーは RS232 シリアルポートを有し、32 ビットコンピュータへ圧力/流速データ等が伝送される。

QBASIC で組まれたプログラムがコントローラにインストールされている。

データ収集は 15 分に 1 回である。拘束圧は、Druck DPI-203 デジタル圧力インジケータに連結された圧カトランスミッタでモニターされる。

(ii) もう一つの装置 (ASG 装置)

図 1.2.1-2(2)にもう一つの試験装置を示している。これは滑腔 (smooth bored) の管状圧力容器からなる。上部及び底部はエンドクロージャー(行き止まりタイプ)となっている。o-ring を有するピストンによって、チャンバーを上部及び底部に分離する。粘土試料は底部チャンバーに設置される。上部チャンバーは水で加圧され、その圧力は粘土試料上面に作用させることができる。ピストンと底部エンドキャップは間隙圧力測定管及び焼結金属フィルターを有し、試料の圧密の間、上下2方向への排水を可能としている。

6つの配管の先端ポートが底部エンドキャップを貫通している。これらの管の先端は粘土試料中に入り、おのおの小さな焼結金属フィルターを有している。中央のソースポートフィルター(注入口)を介してガスが注入される。この管の内部には同心円状配列の小孔をもち、水をフラッシュすることもできるし、ガスの注入孔ともなる。

他の3つのポートもフィルターを有し、ソースフィルターと同じ高さに設置され、等しい距離に置かれている。このうち第1と第2は注入面での間隙圧をモニターし、第3

のフィルターはガスに対して「sink(排出口)」として働くように作られている。

第4と第5のポートもフィルターを有し、ソースフィルター面の上下に置かれ、間隙圧力の垂直分布を測定できるようになっている。

間隙圧力は、上記4台(第1, 第2, 第4, 第5)の Sensotec 歪ゲージ式圧力トランスデューサによって測定される。この配列により、応答時間も短い。トランスデューサは、4台の Newport Electronics デジタルディスプレイに連結され AD コンバータによってマイクロコンピュータへ伝送される。

上部チャンバーにはシリンジポンプによって圧力がかけられるが、ピストン変位とサンプル体積を連続的に記録できる。多孔質板を介して背圧制御も可能である。ポンプ残容量の表示から圧密の間、粘土からの排出水量をキャリブレーションでき、これによってシリンジポンプのチェックにもなる。ガス注入は前述の BGS 装置と同じ方法でシリンジポンプを使って実施されている。

(iii) キャリブレーション

すべての圧力センサー及び関連電気部品は Druck PTX-610 トランスミッタを用いてキャリブレーションされている。これらは±6.895kPa までの圧力に対して実施されている。これらのデータを最小二乗法により処理し、傾きと切片を求めている。すべての表示圧力はゲージ圧としている。

(iv) 試料準備 (BGS 装置用)

Volclay の MX80 ベントナイト粉末を、モールドに入れすばやく一軸圧縮している。これは、Clay Technology AB(Lund, Sweden)社によって作成されている。この技術は、Johannesson ら(1995)によって詳しく記載されている。この試料ブロックは2つのバッチ(塊)に分けられる。即ち中程度の膨潤を示す試料(MS)と高い膨潤を示す試料(HS)である。MS ブロックの平均乾燥密度は 1.558 Mg/m^3 、HS ブロックは 1.638 Mg/m^3 である。表 1.2.1-1(1)に試料の特性を示している。各ブロックは帯ノコギリを用いて直角ブロックに切断された後、4.9 cm 内径の鋭利刃付き鋼製リングを用いて、円筒形試料を作成している。その後、上下端面は完全にフラットとするため、研磨により整えられている。

粘土試料は、銅シース内に定置され、ポーラスディスクは試料セット前に Purite(蒸留水)によって飽和される。

(v) 基本的物理特性

表 1.2.1-1(2)は含水比及びかさ密度に関するテスト前の試料物性を示している。含水比は 24 時間以上 105°Cで乾燥した後決定している。間隙比、間隙率、飽和度は鉱物の比重 2.77 に基づいて計算している。試料に拘束圧を載荷する場合、飽和度及び他の特性が変化するとしている。ガスは理想ガスとしている。表 1.2.1-1(2)では、例えば MX80-3 は大気圧下で 0.934 の飽和度、0.684 の間隙比である。拘束圧条件下では間隙比は 0.640、飽和度は小数点以下 2 桁以内でわずかに上昇している。表 1.2.1-2 は試料の再計算結果であるが、この場合拘束圧によって飽和が達成されるとしている。

(vi) ベントナイトペーストの準備(ASG 装置内)

含水比 197wt%となるように、Volclay MX80 粘土粉末と脱気蒸留水を混合し、塑性ペーストを作成している。その後、昇圧しつつ容器内に詰めている。気泡をとり除くため、各ステップで締め固めを行ったのち、ピストンを用いて下向きに押込まれている。

(2) 材料特性

(i) 平均内部層空間

モンモリロナイトの平均内部層間隔(average inter layer spacing) $\delta_{i^{av}}$ は含水比 W から計算できるとしている。

乾燥したモンモリロナイトの内部層間隔は、約 0.96×10^{-1} m である。MS 粘土の場合 $S_i = 700 \text{ m}^3/\text{g}$, $\nu = 0.7$ 、0.28 の含水比であるので $\delta_{i^{av}} = 1.48 \times 10^{-1}$ m であり、Hs 粘土の場合、0.24 の含水比であるので $\delta_{i^{av}} = 1.40 \times 10^{-1}$ m としている。

(ii) 平均内部堆積水フィルム(average inter-stack water film)の厚さ

同様に平均内部堆積水フィルム $\delta_{s^{av}}$ も含水比から示されるとしている。

MS 粘土の場合、含水比 0.28 であるので $\delta_{s^{av}} = 4.3 \times 10^{-1}$ m となり、HS 粘土の場合、0.24 含水比であるので $\delta_{s^{av}} = 3.8 \times 10^{-1}$ m としている。また薄いフィルムは 10~14 水分子層から成るとしている。

(iii) 吸着-脱着等温線

水と粘土の吸着・脱着等温線は、相対蒸気圧 R と、乾燥試料内の単位質量あたりに吸収した水量によって算出される。ここで R は自由水の蒸気圧に対する吸着部分の蒸気圧の比である。吸着-脱着サイクルにヒステリシスが存在するとしている。

吸着-脱着はモンモリロナイトのようなけい酸塩層をベースにした場合、内部層内カチオンと水和特性に強く依存するとし、各内部層内カチオンの水和錯体は基本的には、層内に 0, 1, 2, 3 層の水分子層を構成し、1.0, 1.2~1.3, 1.4~1.5, 1.9 nm の基本間隔となるとしている(Newman, 1987)。表 1.2.1-3 は Kahrs(1986)のデータに基づき、MX80 に対する吸着-脱着等温線の内挿点を示している。これにより、モンモリロナイト内部層は水分子が約 2 層であるとし、膨潤圧は蒸気圧を用いて計算されている。

(iv) 膨潤圧

ベントナイトの膨潤圧は Bucher & Spiegel, 1984 他の方法に基づいて評価できるとしている。

圧縮した状態での膨潤圧を予知する方法は現在のところ存在せず、Borgesson ら(1990)の式によると、2,220MPa が最大膨潤圧となるとしている。この値は、単位体積当りの内部エネルギー U (MJ/m^3) に一致するとしている。各パラメータは最小二乗法によって計算されている。

表 1.2.1-4 は軸方向に発生する膨潤圧の計算値を示している。吸収したカラム水 (Water sorbed column) が含水比に匹敵すると仮定すると、膨潤圧は水フィルムの平均厚さによって決められるとしている。

(v) 絶対透過係数(Intrinsic Permeability)

Borgesson ら(1996)のデータにより示される。

表 1.2.1-4 には軸方向流れについての評価された絶対透過係数を示している。

この表によると MX80 が膨潤圧 3.5MPa で、絶対透過係数 $2 \times 10^{-11} \text{ m}^2$ であるという事実によく一致するとしている。(Johannesson ら(1995))

(3) 解析モデル

ガス注入試験の主なステージ（試験中の各段階）は次のようであるとしている。

- ① 圧力上昇ステージ
- ② ガスエントリー及び通路伸張 (pathway propagation) ステージ
- ③ ブレークスルーステージ
- ④ 第1ピーク圧力応答
- ⑤ 非定常状態負圧(negative transient)ステージ
- ⑥ 定常状態ステージ
- ⑦ 「shut-in」 応答
- ⑧ 第2ピーク圧力応答

その他、付加的ステージも追加されている(Ortizら1997)。

実験により得られた挙動を解析し、上流側ガス圧の変化を微分方程式で示し、データから導出したモデルを開発している。これにより、ブレークスルー前及び後のステージ、非定常状態での負圧ステージ、定常状態及び shut-in 応答を示すことができるとしている。(Senら1996, Ortizら1997)。ただし、このモデルでは有効ガス透過係数(effective gas permeability)が一定であると仮定しており、ブレークスルー後の応答、ガス移動パラメータの定量化及び得られた実験データには完全にフィットすることができるものの、ガスエントリー及び通路伸張ステージ、ブレークスルーステージ、第一及び第二ピーク圧力応答ステージを示すモデルではないとしている。

(i) ブレークスルー後の基本的流れ

断面積 A_s を通るブレークスルー後のガスフラックス(層流)は、試料長さを L_s とすると下式のようなになるとしている。

$$Q_{st} = \frac{v_{mst} k_g A_s}{2RT \eta_g L_s} (p_{gi}^2 - p_{go}^2)$$

ここで、 Q_{st} は標準状態での温度及び圧力(STP)条件下でのガスフラックス(m^3/s)である。 $v_{mst}(=0.0224 m^3)$ は STP 条件下でのガスのモル体積、 $k_g(m^2)$ はベントナイトの有効ガス透過係数である。 R はガス定数 ($=8.314j/mol/K$)、 T は温度(K)、 η_g はガスの粘性係数 ($Pa \cdot s$)、 $p_{gi}(Pa)$ は上流側端面で試料内へ注入するガス圧である。 p_{go} は下流

側端面で試料からガスが排出される圧力である(Horseman & Harrington, 1994)。2相流概念を用いれば有効ガス透過係数は絶対透過係数 K_i (m^2) と相対透過係数 K_{rg} から次式のように示されている。

$$k_g = k_{rg} k_i$$

下流側圧力 P_{go} は実験では直接測定することはできないが、この値は下流側の背圧と次の式の間接関係があるとしている。

$$P_{go} = P_{wo} + P_{co}$$

ここで P_{co} はマトリックスサクシオン値である。従って下式のように示すことができる。

$$Q_{st} = \frac{v_{mst} k_g A_s}{2 RT \eta_g L_s} \left[P_{gi}^2 - (P_{wo} + P_{co})^2 \right]$$

(ii) 微分方程式

軸方向装置に対する微分方程式は下式で示されている。

$$V_{gi} \frac{dp_{gi}}{dt} + P_{gi} \frac{dV_{gi}}{dt} = B (P_{go}^2 - P_{gi}^2)$$

ここで、 P_{gi} と V_{gi} は上流側のガス圧及びガス体積である。B は移動パラメータである。ベントナイトを通過する流れは、前もって存在する通路が主体的であることを基本とすれば、等価キャピラリーハンドルモデルによってシミュレートでき、任意の断面でキャピラリーを有するとすれば、B は下式のように示すことができるとしている。

$$B = \frac{k_g A_s}{2 \eta_g L_s} = \frac{N A_c R_H^2 A_s}{2 \Gamma \tau^2 \eta_g L_s}$$

ここで、N は流れに垂直断面の単位面積当りのキャピラリー数である。 A_c と R_H は各通路の断面積と水力学的半径である。 A_s と L_s はサンプルの断面積と長さ、 Γ は形状係数とクター、 τ^2 は通路の屈曲度である。この微分方程式の解析解は B を一定とすることから導出できるとしている(Sen ら 1996 他)。

(iii) ガスブレイクスルー前の圧力上昇

ブレイクスルー前に、一定ガス速度 ($C = \text{一定}$) にて上流側圧力を上昇させると、下式のようになるとしている。

$$P_{gi} = P_{gi0} \left(\frac{V_{gi0}}{V_{gi0} - Ct} \right)$$

ここで V_{gi0} と P_{gi0} は、上流側ガス注入時の初期体積と初期圧力である。 C はポンプの一定送り速度である (m^3/S)。 t は経過時間である。このように上流圧は、上流側の初期のガス体積及び圧力とポンプ送り速度に依存することがわかるとしている。

(iv) ポンプ送り速度に従う非定常挙動

もし、シリンジポンプが $C = \text{一定}$ の送り速度であるなら下式のように記載できるとし、この解は下式となるとしている。

$$V_{gi} = V_{gi0} - Ct \quad \text{and} \quad \frac{dV_{gi}}{dt} = -C$$

$$(V_{gi0} - Ct) \frac{dP_{gi}}{dt} = B(P_{go}^2 - P_{gi}^2) + CP_{gi}$$

$$P_{gi} = \frac{\left[E(P_{gi0} - D) - D(P_{gi0} - E) \left(\frac{V_{gi0}}{V_{gi0} - Ct} \right)^G \right]}{\left[(P_{gi0} - D) - (P_{gi0} - E) \left(\frac{V_{gi0}}{V_{gi0} - Ct} \right)^G \right]}$$

$$D = \frac{C}{2B} + \sqrt{\left(\frac{C}{2B} \right)^2 + P_{go}^2}$$

$$E = \frac{C}{2B} - \sqrt{\left(\frac{C}{2B} \right)^2 + P_{go}^2}$$

$$G = \frac{B(D - E)}{C}$$

上記の関係は $t = 0$ からスタートした場合の上流ガス圧の時間経過を示している(ブレイクスルー後のある一定期間も示すことができる)。

(v) 定常状態応答

C = 一定での上流側ガス圧 P_{gi} は、定常状態については下式のように記載できるとしている。

$$\frac{dP_{gi}}{dt} = 0$$

$$P_{gi} = \frac{C}{2B} + \sqrt{\left(\frac{C}{2B}\right)^2 + P_{go}^2}$$

B = 定数として、定常状態での上流ガス圧は C (ポンプ送り速度) と P_{go} (下流側ガス圧) に依存するとしている。定常状態での実験のためには、それぞれのパラメータは独立である必要があるとしている。

(vi) shut-in 応答

もし、ブレークスルー後に $C = 0$ とするならば、上流ガス圧は時間経過とともに下がり、微分方程式の解は下式となるとしている。

$$P_{gi} = P_{go} \left[\frac{(P_{gi0} + P_{go}) \exp(Ht) + (P_{gi0} - P_{go})}{(P_{gi0} + P_{go}) \exp(Ht) - (P_{gi0} - P_{go})} \right]$$

$$H = \frac{2B P_{go}}{V_{gi0}}$$

上流ガス圧 P_{gi} は、漸近的に下流ガス圧 P_{go} に近づくことを示している。

$$P_{gi}(\infty) = P_{go} = (P_{co} + P_{wo}) = \text{const.}$$

P_{wo} は実験の間一定であるので、上流ガス圧は漸近的に P_{co} となる。非定常状態による時間遅れは、初期体積と上流ガス圧とガス透過係数に依存するパラメータ H によって決定されるとし、もし上流側の初期体積が大きいならば非定常状態は長く続くとしている。

(4) ガスブレイクスルーとブレイクスルー後のピーク後挙動

(i) 軸方向流れテスト結果 (BGS 装置)

試料を飽和させ、1.01MPaの背圧と8.0~22.0MPa拘束圧を载荷しガス注入している。

圧縮と膨張に関わるデータはポンプ流量の変化をモニターすることでわかるとし、ヘリウムをアキュムレータのシリンダー内に充填したのち、配管とフィルター(ポーラスディスク)をフラッシュさせている。シリンダー内の初期ガス圧はレギュレーターを用いて所定圧にセット後、注入ポンプを一定流速にセットしている。それぞれのテストの目的に応じて、ポンプ流速を変化させ、そのつどガス透過係数を調べている。Shut-inテストではマトリックスサクションを評価している。

全部で7種類のガステストが実施された。そのうち4種類は実験ヒストリー(試験状況経時変化)を示している。この4種類のうち2種類(MX80-1とMX80-4)は、試料の軸がブロック作成の際载荷した方向と平行になるように試料を作成し、別の2種類(MX80-6とMX80-7)は垂直になるように試料を作成している。また、MX80-6は人工的にJointを作り、その影響をみている。表1.2.1-5に測定パラメータを示している。

(a) MX80-1(ブロック BGS2)

図1.2.1-3はHS(High Swelling)粘土を用いた試験ケース:MX80-1の実験ヒストリーを示している。拘束圧は16.00MPa,背圧は1.01MPaとし、従って有効応力は14.99MPaとしている。試料の軸は圧縮軸に平行である。初期段階で、ガス送り速度は $375 \mu\text{L/hr}$ ($6.25 \times 10^{-3} \text{cc/min.}$)としている。そして、時間とともに上流側圧力が上昇している。これは上流側ガスの等温圧縮によるガス圧上昇である。図1.2.1-4はガス圧上昇の理論式によく合致することを示している。理論線からのズレ開始の圧力:13.46MPaの過剰ガス圧($P_{gi}-P_{wo}$)では、初期ガスエントリーが発生しているが、他の微小なテスト条件にもセンシティブであるので不明確な点もあるとしている。

ガスブレイクスルーは14.92MPaの過剰ガス圧($P_{gi}-P_{wo}$)の時発生し、この圧力は試料の長さ方向へ伸張するガス通路の形成に必要となる圧力でもあるとしている。ガス流速の変化は、ブレイクスルー点に近いところで発生し、このことは他の粘土でもみられるとしている。

ブレイクスルー後、ガス排出流速はすばやく上昇し、過剰圧力のピークの後 $1.1 \times 10^4 \text{s}$ で $2.5 \times 10^{-4} \text{m}^3/\text{s}$ のピーク値に達している。ブレイクスルー点以降もガス圧は上昇し続け、15.17MPaのピークを形成し、これは膨潤圧と背圧の和をわずかに越え

ている。

ピークののち過剰ガス圧は自然に低下し非定常負圧となる。このカーブは漸近的に0勾配となるとしている。このテストでは0勾配ではないけれども、漸近線は定常状態であるとしている。

定常状態での過剰ガス圧($P_{gi}-P_{wo}$)は、13.74MPaであり、その後ガス注入ポンプを $C=0$ (ガス流速を0)にセットし、第2の負圧非定常状態となり、shut-in条件としている。カーブの漸近線はみかけのマトリックスサクシオン P_{co} =約11.8MPaに近づくとしている。

(b) MX80-2(ブロック BGS-2)

MX80-2 試料は、圧縮成形された方向と試料の軸方向が垂直になるように作成されている。全応力は16.00MPa,背圧は1.01MPaとしている。テストでは理想ガス状態の圧縮曲線としてスタートしたが、8.0MPaのガス圧でリークが発生し、その結果上流ガス圧はブレイクスルーに到達しなかったとしている。最終的にはこのテストは、拘束圧システムへ向かう漏気が発生し中止している。

(c) MX80-3(ブロック BGS-2)

この試料はMX80-2と同様にカットされている。375 μ L/hrの一定流速によって上流側のガス圧は増加を続けたが、拘束圧より2.05MPa程大きくなったところで銅シースの引張破壊が発生している。ガス圧力が拘束圧をこの圧力分だけ超えることにより粘土内の応力が増加し、銅シースに過剰応力が作用し拘束圧以上がかかったことになり、その結果、銅に放射状の引張応力が発生して破壊に至ったとしている。

下流側ポンプデータの分析により、試料は銅シースが破壊する以前には、1.2%の体積歪を生じたものの、銅シース破壊後は拘束圧システムからの加圧水は下流側へ流れ込んでいなかったとしている。即ち試料は流れ通路に沿っては閉鎖していたとしている。

(d) MX80-4(ブロック BGS-2)

MX80-4 試料を用いて、多段階ステージ実験を実施している。試料の軸方向はブロックに対する圧縮方向に平行にカットされたとしている。

① ステージ MX80-4A

図1.2.1-5にMX80-4Aの実験ヒストリーの第1ステージを示している。このテストでは拘束圧16.0MPa,背圧1.01MPaとしている。まず、初期には一定ポンプ速

度:375 μ L/hr が流された。図 1.2.1-6 はガス圧上昇式とのフィット性を示し、MX80-1 と同様に実験データと理論的關係の間にはよい關係が示されている。ブレークスルー点まで2本の線は完全に一致している。ガスブレークスルーは 15.19MPa の過剰ガス圧($P_{gi}-P_{wo}$)で発生している。このあとピーク過剰ガス圧($P_{gi}-P_{wo}$)は 15.29MPa となっている。

MX80-1 と同様に、この MX80-4A の実験結果から最大ガス圧は膨張圧と背圧の和よりわずかに大きいことがわかり、ブレークスルー後は 14.22MPa の漸近値に非定常負圧状態は近づくことになるとしている。

次に、ガス注入ポンプ速度を $C = 0$ とし、過剰ガス圧力は第2の非定常負圧状態となっている。この傾向はみかけのマトリックスサクシオン P_{co} 値: 12.5MPa 値まで近づいていることを示している。

さらに、同じ試料を用いてガス注入速度を再び 375 μ L/hr に上げている。図 1.2.1-7 にその実験ヒストリーを示している。これをみると、最初のテストよりかなり低い過剰ガス圧力にて再度ガスの流れが発生し、ブレークスルーしている。14.25MPa の過剰圧力($P_{gi}-P_{wo}$)でなだらかなピークを示している。これは図 1.2.1-6 のピークより 1.04MPa ほど小さく、ピーク後の非定常負圧はあまり明確な定義はできないが、14.11MPa の定常状態の漸近値($P_{gi}-P_{wo}$)を示し、以前の値より少しだけ小さくなっているとしている。排出ガス量の変化がなだらかなことから、明確なブレークスルーではないこと及びピーク時の過剰ガス圧力が減少する理由については、shut-in の期間中、通路のリシール(reseal)が十分になされていないことを示している。たぶんこれはガス通路に沿って、気泡がとり残された結果であるとしている。

その後、流速変化による過剰圧力の關係を評価するために、ポンプ速度を徐々に減少(180 , 90 , 45 , 0 μ L/hr)させている。それぞれのテストでは shut-in の期間中、非定常負圧を示している。各ステージで流速を 1/2 にすると、定常状態の過剰ガス圧は等しい減少分を示すとしている。ガスの流れは非線形であり(ダルシー則ではなく)有効ガス透過係数は定数でないとしている。特に shut-in の期間中は非線形であり、shut-in の後 24 日経過で、過剰圧力は 11.60MPa に低下している。これは図 1.2.1-5 の値 12.64MPa より小さいことを示し、約 11.0MPa が P_{co} を評価する上での参考値であるとしている。

② ステージ MX80-4B

MX80-4A の後、同じ試料を用いて拘束圧を 18.0MPa に増加させ、平衡状態を待った後、375 μ L/hr の一定ポンプ流速をかけている。これも同様にその後、shut-in を行っている。(図 1.2.1-8)。このテストの重要な点は第 1 ピーク応答が顕著に見られ、全応力が大きい場合、通路のリシールがなされているものの、375 μ L/hr の定常状態に関わるピークは初期のものより小さいことから、このリシール効果は部分的なものであるとしている。ブレイクスルー、ピーク、定常状態での過剰圧力はそれぞれ 15.37 , 15.78 , 15.47MPa となり、粘土試料内の最大ガス圧は、全応力よりかなり小さいとしている。過剰圧力は約 13.2MPa のマトリックスサクシオンまで低下している。

③ ステージ MX80-4C

MX80-4B のテストの後、拘束圧を 20.0MPa に増加させ、再平衡状態の後、ステージ MX80-4B と同様のサイクルがくり返されている(図 1.2.1-9)。すべてのテストは以前に見られるものと同じであるが、ガス圧のピーク後のすばやいドロップ、下流側でのガス排出量のパルスが顕著に見られる。これはガス通路がベントナイト長さ方向に伸張するものの、通路は圧力を下げると突然閉じ、ブレイクスルー、ピーク、定常状態の過剰圧力は 17.01 , 17.01 , 16.01MPa となり、その後過剰圧力は約 13.0MPa に下がり以前のステージよりわずかに小さくなるとしている。

④ ステージ MX80-4D

上記と同様に、拘束圧 22.0MPa でサイクルがくり返されている(図 1.2.1-10)。ピーク後の非定常負圧はむしろ他のステージと異なり最初は下がり、そのあと上昇している。これは非定常挙動を決定づける動力的挙動に起因するものとしている。ブレイクスルー、ピーク、定常状態の過剰圧力は 17.91 , 17.95 , 16.79MPa としている。過剰ガス圧力は約 14.1MPa のマトリックスサクシオンまで下がるが、この 14.1 MPa がステージの最後に本当に見られるかどうかはむづかしいとしている。

(e) MX80-5(フロック BGS6)

拘束圧 4.0MPa, 背圧 1.01MPa として実験したが失敗したとしている。かなり大きな体積増加(伸張性歪)があり、体積歪 1.2% で銅シースは引張破壊となり、MX80-3 の場合と同様破壊に至る結果となっている。

この体積変化に対処するため拘束圧を 8.00MPa とし、ポンプ送り速度を 375 μ L/hr と一定としたが、上流側ガス圧が拘束圧を超え 8.83MPa でピークの過剰ガス圧力となり、この時点で銅シースは破れ、ガス圧は低下している。その後注入ポンプをストップし、7.9MPa の一定圧力としたところ、きわめて小さい流れが観察されている。これは銅シースの亀裂を水が侵入することによるものであり、体積歪についてはシース破壊時に約 1.5%であったとしている。

(f) MX80-6(ブロック BGS6)

この試料は人工ジョイントをもつ試料であり、2つの半円筒形試料を分割してジョイントを作成したものである。この平面ジョイントは上流側と下流側の端部が合致するように作成されている。試料の軸は圧縮方向に垂直である。試料は Teflon で巻かれている。拘束圧は 8.00MPa, 背圧は 1.01MPa で、初期には 375 μ L/hr の一定ポンプ送り速度でガステストが実施され、ブレイクスルーは 7.04MPa の過剰ガス圧力(Pgi-Pwo)で発生している(図 1.2.1-11)。この場合、第1ピークとブレイクスルー圧は一致し、膨潤圧と背圧の和をまさに越えようとする圧力であることが示されている。ピーク後の圧力降下はすばやく、このことからガス通路ができていることを意味するとしている。MX80-4D と同様に、非定常負圧状態では単に定常状態に近づくことはなく、上向きの傾向を示しているところもあり、定常状態での過剰ガス圧(Pgi-Pwo)は 6.82MPa としている。shut-in 応答はきわめて長く約 4.00MPa に漸近するとしている。カーブフィットはかなりよいとしている。図 1.2.1-12 には引き続き 2 回目のガス注入サイクルを示している。6.84MPa の過剰ガス圧力(Pgi-Pwo)でブレイクスルーが発生し、第1回の時より 0.2MPa 小さいとしている。ガス圧のピークはその後 6.87MPa で発生し、定常状態では約 6.79MPa であるとしている。引き続き、ガス流速変化による過剰圧力の依存性を評価するため、180, 90, 45, 0 μ L/hr のポンプ速度で試験が実施されている。各ステージともに通常の非定常負圧ヒストリーを示している。流量を 1/2 にすると定常状態の過剰ガス圧力の圧力降下値が等しいことがわかり、流れは非線形性であり、shut-in で安定する期間は長く shut-in 開始後 43 日で過剰圧力は 5.50MPa まで低下し、みかけのマトリックスサクション Pco は約 4.0MPa となったとしている。

(g) MX80-7(ブロック BGS6)

MX80-7の試験は、MX80-6と同様であるがジョイントは存在しない試料を用いている。試料はTeflonで巻いている。拘束圧は8.00MPaであり一定ポンプ速度は375 μ L/hrであったとしている(図1.2.1-13)。6.94MPaでブレイクスルーが発生し、6.96MPaで過剰圧力の傾きに変化が現れている。この点において、上流側ガス圧は拘束圧におよそ等しいとしている。ピーク後は非定常負圧状態が存在しないので、シースの漏れの可能性があるとしている。その後拘束圧を9.00MPaまで上げている(図1.2.1-14)が、この場合でもポンプ送り速度は同じであったとしている。ブレイクスルーが7.89MPaにて発生している。ガス圧は7.92MPaまで上昇し、その後7.89MPaまで低下している。図1.2.1-14の再テストの際、蒸留水を5日間の間1.01MPaの圧力で押し込み続け、膨潤によるシースへの引張応力がかかったとしている。テストは図1.2.1-14のように以前と同様の送り速度で行われ、ブレイクスルー、ピーク、定常状態が8.01, 8.02, 7.98MPaで発生したとしている。

180, 90, 45, 0 μ L/hrのポンプ速度を用いて透過係数を求めている。図1.2.1-15の応答(拡大図)はMX80-6と同様であるとしている。

shut-in開始後37日間で過剰圧力は5.10MPaまで低下し、みかけのマトリックスサクシオン P_{co} は4.0MPaであるとしている。

MX80-6とMX80-7を比較すると、人工ジョイント含有緩衝材粘土であってもガス移動特性に差は認められなかったとしている。Teflonを用いたテストではピーク後、非定常負圧がかなり減少することが認められ、シースが過剰内部応力に影響することがわかるとしている。銅シース(0.2mm厚)は過剰内部応力を2MPaの拘束圧以上の圧力まで維持できるものの、Teflonの場合は0.1MPaより小さいとし、流速の変化に影響を及ぼす非定常負圧について両シースを用いて実施し、Teflonを用いたテストでも一定応力条件下ならばガス移動挙動により結果を与えるとしている。

(ii) ベントナイトペーストの結果(ASG装置)

表1.2.1-6は各応力条件、及び背圧ポンプへの排水量からの換算値(カッコ内の値)での圧密後の粘土の物理特性を示している。これらはシリンジポンプのピストン変位と排水量の結果が一致していることを前提として導出したものとしている。

一般に、圧密には長期間が必要である。従って、各ステージにおいては100%圧密達成はできないが、試料(粘土ペースト)が完全に飽和しているかどうかをチェックするためSkemptonのB値を評価している。試料の軸方向に圧力を少しずつ増加させ、3種類

の間隙圧をモニターし、すべてのモニター値により $B = \Delta P / \Delta \sigma_v$ で $B = 1.0$ となったとしている。Skempton 手法がこの高膨潤粘土にも適用できるとするならば、試料はこのように 100%飽和していると述べている。

(a) ステージ ASG-1 ($\sigma = 0.8\text{MPa}$)

ASG-1 試料では、ベントナイトペーストに対して垂直方向に全応力 $\sigma_v = 0.8\text{MPa}$ が載荷されている。この時、背圧は上部及び底部ポーラスディスクにおいて 0.5MPa と一定にセットしている。初期において、サンプル内のエアートラップを取り除くようにしたがエアは特に下流側では見られず、圧密試験でも見られなかったとしている。圧密ステージの終了時に平均間隙比は $5.361(-)$ に低下し(表 1.2.1-6 参照)、平均内部間隙圧はフィルター部 (P_{wi}) で約 0.59MPa となり、背圧に比べて 0.09MPa 程大きいとしている。

(b) ステージ ASG-1A ($\sigma = 1.5\text{MPa}$)

引き続き、垂直応力を 1.5MPa まで上げている。圧密により平均間隙比を $4.525(-)$ まで低下した。ガスで水分を取り去るようにフラッシュしたのち、ガス圧を $450 \mu\text{L/hr}$ ($1.25 \times 10^{-10} \text{m}^3/\text{s}$) のポンプ送り速度で徐々に昇圧させている。

図 1.2.1-16 は、絶対ガス圧 P_{gi} 、軸方向応力制御ポンプでモニターされる圧密速度、モニター部における間隙圧 (PT4) の実験ヒストリーを示している。圧密速度が「正」とは粘土体積の「減少」を意味している。

まず、絶対ガス圧を徐々に上昇させた結果、圧密速度は約 $6.5 \times 10^{-11} \text{m}^3/\text{s}$ でほぼ一定であり、間隙圧も 1.22MPa で一定であったとしている。この間隙圧 1.22MPa は背圧が 0.50MPa なので過剰間隙水圧は 0.72MPa を意味している。フィルターにおけるガス圧が上昇を開始するとともに圧密速度は減少している。圧密速度減少の傾向は、ガス圧が約 1.05MPa の時であり、ガス圧が間隙圧を超えればさらに顕著となる。この挙動はガス-水のメニスカスが正 (水側に弦) となり試料の垂直伸張歪が発生している挙動と解釈できるとしている。

ガス圧 1.38MPa で圧力曲線の勾配が鈍化している。この時は正味圧密速度も低下し、 $+0.05\text{MPa}$ 程度間隙圧が上昇している。この理由はガス通路が伸張していることを意味するとしている。ガス圧は 1.39MPa まで上昇を継続するが、この間圧密速度は負になり粘土の体積は増加を開始するが、これはガスの多くがサンプル内に入っていることを意味し、サンプルはガス含有率が大きくなると体積増加することを示している。

次に注入システムのガス供給がなくなる($C=0$)とシリンジポンプはストップし、ガス圧と間隙圧は低下することになり、この挙動は shut-in ステージの間の非定常負圧応答に似ているとしている。

(c) ステージ ASG-1B ($\sigma=1.5\text{MPa}$)

その後、上流側ガス圧を4時間で0.5MPaまで減少させている。ガス源となるフィルターは水を取り去るためガスでフラッシングし、ガス圧はポンプ速度 $100\ \mu\text{L/hr}$ ($2.78 \times 10^{-11}\ \text{m}^3/\text{s}$) で一定量送ることによって上昇させている。図 1.2.1-17 に実験ヒストリーを示している。ガス圧が徐々に上昇し、それにつれて間隙圧力も上昇し、圧密速度は減少している。これは前述のように試料が垂直方向へ伸張するためのメニスカス曲率の変化であるとしている。 $P_{gi}=1.31\text{MPa}$ (これは ASG-1A の場合より 0.10MPa 小さい) が、ガス通路伸張が発生するクリティカル圧力であるとしている。ガスエントリーは正味圧密速度が低下した時であり、この時試料中のガス移動により膨張が発生しているとしている。

図中(a)と(b)の間の平行線は安定した通路伸張期間を示し、(b)において急激な圧力低下となっている。これはガスブレイクスルーを意味し、 0.81MPa の過剰ガス圧 ($P_{gi}-P_{wo}$) で発生している。この点では圧密速度が一時上昇していることもわかる。(b)~(c)は安定したクラックが成長している期間である。(d),(e),(k)は、リシール現象を示すとしている。ガス通路は不安定なのでブレイクスルー後の試料内部の圧力変化により、ガス流れは一時中断することもあるとしている。

このガス圧縮、エントリー、通路伸張、排出量といったプロセスはサイクリックである。間隙圧のピークはガス圧力のピーク以前に発生しており、また間隙圧はガス圧のピーク以前に降下を開始している。このように間隙圧が上昇すればメニスカス曲率の変化を引き起こすことになり、このことが粘土試料内へのガスエントリーに関係するとしている。

ガス通路の伸張は、ガス圧が間隙圧以上になった時、発生の可能性があるとしている。この推測は実験の前半の部分については説明することができるが、後半部分については間隙圧はガス圧より大きいのでむづかしいとしている。

(d) ステージ ASG-2A ($\sigma=2.70\text{MPa}$)

全応力を 2.70MPa まで増加させた場合、圧密により粘土試料の平均間隙比は 3.426 まで低下している。ガス圧上昇は $375\ \mu\text{L/hr}$ ($1.042 \times 10^{-10}\ \text{m}^3/\text{s}$) の一定ポンプ

送り速度によって達成させている。実験ヒストリーは図 1.2.1-18 に示している。

ASG-1A の場合と同様に、ガス圧の上昇により正味圧密速度は減少するが、約 2.50MPa の絶対ガス圧で正味圧密速度は負となり、試料が膨張している。モニターの間隙水圧はこの点で急に増加を開始し、ガス圧と同じ速度の上昇となっている。これは、ガス圧と局部間隙水圧がともに等しいからであるとしている。

Threshold 圧を越えると、ガス・水メニスカスの曲率が負から正に変化するが、間隙水圧曲線の不規則性と圧密速度の変化により、ブレイクスルー以前に不安定通路が存在するとしている。

ガス圧は 2.91MPa になるまで上昇している。これは圧密圧力より 0.21MPa 程大きい。この場合過剰圧力($P_{gi}-P_{wo}$)は 2.41MPa であることを示している。この圧力は引張破壊をひき起こす圧力に相当するとし、ピーク以後は 2.85MPa まで低下している。ピーク後はピストンシールのすべり挙動によって圧密速度は不安定な値を示している。

その後、軸方向応力ポンプが止められ($C=375$ はそのままで圧密速度=0)、圧密ピストンの位置を固定し、境界条件を一定応力から一定体積に変化させている。この一定体積条件下では、ガスブレイクスルーは sink フィルターには全く見られなかったとしている。

このように、一定体積条件下では伸張歪の可能性はなく、過剰間隙水圧はガス圧と全く同じとなるとしている。伸張歪がないのでメニスカス曲率が変化する可能性はなく、このように粘土サンプルの体積を拘束することで、ガスエントリーの発生をむづかしくするとしている。

(e) ステージ ASG-2B ($\sigma=2.70\text{MPa}$)

以前の実験と同じ条件であるが、750 $\mu\text{L/hr}$ の早い速度でガス圧を増加させている。この実験ヒストリーを図 1.2.1-19 に示している。絶対ガス圧が 2.50MPa の間隙水圧 (PT2 にて測定) と等しくなると、それ以降ガス圧上昇とともにすべての内部間隙圧トランスデューサは上昇を開始している。

絶対ガス圧のピークは 2.91MPa であり、ASG-2A と同じ圧力であったが、ピークの形は鋭く、MX80-4C の軸方向流れに見られる形と同じであったとしている。ピークは上向きであり、圧密速度の大きな負のピークも見られ、ASG-1B のピーク後の形に類似しているとしている。圧密速度一定条件下では 2.85MPa のガス圧力になっている。

その後、ポンプ送り速度を $375 \mu\text{L/hr}$ まで低下しているが、ガス圧は 2.84MPa となり、間隙圧力(PT2)は 2.81MPa まで低下している。これはある種の水力学的効果によると考えられるとし、この間 $1.5 \times 10^{-10} \sim 0.5 \times 10^{-10} \text{m}^3/\text{s}$ の体積変化速度となったとしている。

その後、注入ポンプが止められ、非定常 shut-in 負圧となったとしている。間隙圧もガス圧とともに低下し、ほぼ同じ圧力ラインを示している。カーブの勾配は徐々に減少し、その後 2.58MPa で勾配は 0 となったとしている。

このように、非定常状態では粘土試料中へガスの流れが存在し、試料の体積が減少しているとしている。

排出口(シンクフィルター)へのガスの流れについては説明可能であるが、突然のガス排出現象は説明できないとしている。試料はガス通路内の間隙水を外側に押し出すようにして膨張し、供給口(ソースフィルター)とガス通路がつながっていると仮定すると、shut-in カーブは圧力と体積の一定関係を示しつつ、取り込まれたガス体積は時間依存性をも示すとしている。このカーブは、ガス通路がソースフィルターと連結しなくなった時に勾配 0 となるとしている。しかし、ガス圧は粘土内部のポイド内のガス圧と一致しないと、その理由として表面張力により内部で連結しているガス通路の気泡が分割されるからであるとしている。このように、気泡の形成によりガスの再分配が発生するとしている。

もし、このガス注入テストがハイドロフラクチャーテストと同等とみなされれば、shut-in 圧力は最小主応力によって決まるとしている。ここで、全応力とは間隙水圧と膨潤圧の和としている。

しかし、このテストでは注入ガスによって間隙水圧は上昇している。ガス注入により垂直及び水平応力ともに増加しているが、半径方向拘束状態(K_0)においては、水平応力を上昇させることはできるが、垂直応力増加をさせることはできない。にもかかわらず、垂直応力が増加している理由は、摩擦と伸張歪によって引き起こされる中央平面水分子による内部引張応力によるにちがいないとしている。

間隙圧力が上昇することは、最大及び最小主応力の方向を一時的に変化させ、最小主応力はガスの存在により方向が決定し、応力状態が変わり、この現象がフラクチャーメカニズムの重要な点であるとしている。応力状態は、間隙圧が熱力学的に平衡になる時、再編成されるとしている。

半径方向拘束状態では、ガス注入によって垂直方向のガスフラクチャーを作り出すことはできないとし、その理由として水平方向の歪を許さない構造であるからであるとしている。逆に水平方向のガスフラクチャーは簡単に作るができるとし、ASG装置によって水平方向のガスフラクチャーができるとしている。

さて、実験ヒストリーに戻って考察を続けるが、その後注入ポンプは $750 \mu\text{L/hr}$ で再スタートし、ガス圧及び間隙圧力は 2.85MPa のピークまで同時に上昇している。そのピークは前のものより丸くなっているため、既に通路が存在する場合の挙動であるとしている。ガス圧力は 2.84MPa 、間隙圧力は 2.87MPa で一定となっているとしている。その差は 0.03MPa であるが、たぶん測定誤差であるとしている。その後、ガス注入ポンプ速度を半分の $375 \mu\text{L/hr}$ としている。

最後に、shut-in が以前と同様に行われ、 2.58MPa の圧力でカーブの勾配が 0 となり間隙水圧 (PT2) は 2.60MPa となっている。

ガス流れが止まれば、ガスと水の平面メニスカスは 3 次元的にガス通路がとぎれとぎれの気泡に分離されるとしている。これら気泡は過剰ガス圧を有しており、過剰ガス圧と過剰間隙水圧は関係しているため、減少していく傾向も同じであるとしている。この変化を把握するには、長い圧密時間が必要であることを示している。

ガス圧が減少するのに 2 つのメカニズムがあり、第 1 は間隙水へのガス拡散、第 2 は粘土試料の変形であるとしている。ガスエントリー発生の際、伸張歪が生じ、水フィルム分子間の内部引張応力が緩和され、その時のガス圧は減少する。

(5) ガス透過係数と流れの挙動

「ガス通路」とは、粘土試料を通るソース（ガス源、注入口）からシンク（排出口）に延びる様子が確認できるガス道であり、「伸張(ストレッチ)」とは、ガス通路を疑似弾性構造とした場合の挙動状態を示すとしている。通路の内表面は複雑な形状を有し、ガスと水のメニスカスからなり、最小表面積及び最小曲率半径に依存した表面張力の作用によって、収縮する方向に力が働いているとしている。ガス通路がかなり不安定であることは実験で示されており、あるガス圧条件下では、気泡の不連続チェーンを形成する場合もあり、その時ガス通路は不成立であるとしている。表面張力に抗して粘土試料を貫通する連続ガス通路を維持するためには、一定量のガス流れが必要であるとしている。ベントナイト試料のガス透過係数は、材料特性よりむしろ変数依存性であるとする理由は、ガス流れが流れに垂直断面に存在するマイクロクラックの数、通路の幅や間隙分布に依存するからであるとしている。これらパラメータはガス移動の変数である一方で、境界条件と粘土の特性によっても決定されるものであるとしている。ベントナイト試料以外のガス透過係数も測定しているが、これらはかなり複雑に挙動するものの、一定のメカニズムで応答していると述べている。

(i) 有効ガス透過係数 (Effective Gas Permeability)

有効ガス透過係数： k_g は下式にて計算できるとしている。

$$k_g = \frac{2Q_{st}RT \eta_g L_s}{v_{mst} A_s [P_{gi}^2 - (P_{co} + P_{wo})^2]}$$

この式で計算される透過係数はモデルとみかけの毛管圧力によって変わるとしている。ここでヘリウムの粘性係数は $1.94 \times 10^{-4} \text{Pa} \cdot \text{S}$ (20°C)である。 Q_{st} は、ガスフラックスでありSTP(標準)状態に補正されている。注入ポンプ速度と背圧ポンプ速度から試料前後の2つの Q_{st} を測定している。有効ガス透過係数は表 1.2.1-7 に示すが、この2つの Q_{st} を用いて計算したところ、排出量（背圧ポンプ）に基づく透過係数が流入量（注入ポンプ）より常にわずかに小さく、その理由として恐らく注入システムからのガス漏気が考えられ、またガスが粘土試料内に貯留して、不均衡を示すのかも知れないとしている。

透過係数は、狭いレンジ内ではあるがガス流速に依存することが明らかとなったとしている。16.00MPaの拘束圧、1.01MPaの背圧条件下では、HS粘土(MX80-1,2,3,4)は 2.7×10^{-10}

m^2 , $1.7 \times 10^{-10} m^2$ の有効ガス透過係数が計算され、その時のガス注入流速は $375 \mu L/hr$ の定常状態であったとしている。一方、 $8.00MPa$ と $9.00MPa$ 拘束圧で $1.01MPa$ の背圧条件下で MS 粘土 (MX80-5,6,7) は $2.2 \times 10^{-10} m^2$, $1.7 \times 10^{-10} m^2$ であり、この場合のガス流速は HS と同じ値であったとしている。絶対透過係数は、HS 粘土で $0.6 \times 10^{-10} m^2$ 、MS 粘土で $1.1 \times 10^{-10} m^2$ であり、ガスの透過係数が水の絶対透過係数よりやや大きいとしている。相対透過係数 K_{rg} は理論的な限界を超え $2 \sim 4$ となったが、水とガスの透過係数の関係は 2 相流の正常なメカニズムとして解釈されるべきではないとし、このガステストにおける水の透過係数はガスのメカニズムに用いる数式によって決定されるべきであるとしている。

(ii) 水の変位

流入データに基づいて計算された有効透過係数は排出データのものより大きい事実から、試料内の水にはわずかな変位があることが想像できるとしている。その理由は、水の変位が絶対に 0 であるということを書けないからとしている。しかし、もし水の変位があればこの装置では測定できないくらい小さいものであるとしている。

(iii) ガス透過係数の傾向

Horseman & Harrington (1994 年) のデータに基づき、ガス透過係数と正味平均応力 (Net average stress) $\sigma'' = (\sigma - P_g')$ の関係をプロットしている。ここで P_g' は試料内の平均ガス圧であり $(P_{gi} + P_{go})/2$ である。

MEGAS Project の Boom Clay を対象としたガス移動研究では、ガス圧の変化に基づきガス通路が膨張するか収縮するかを示している。

ガス透過係数と正味平均応力の関係について、MX80-1 の場合を図 1.2.1-20 に示している。この実験ヒストリーはブレイクスルー発生時をスタートとし、shut-in 後の定常状態までのプロットであるが、その測定結果では初期にはガス透過係数の増加即ち流れ抵抗が減少することを意味している。従って、この増加は通路の膨張あるいは通路数の増加であろうと考えている。最大透過係数はピーク圧後一定時間を経て達成され、定常状態の後には、ガス透過係数は徐々に減少するとしている。この理由は、通路が shut-in 期間を経て減少しているからであるとしている。

図 1.2.1-21 は MX80-4A のガス透過係数を示している。ブレイクスルー後の挙動は MX80-1 と同じであるが、ピーク後の非定常負圧の後半部分ではガス透過係数が減少している。さらに shut-in 後の非定常負圧状態期間中は透過係数がかなり低下するが、非定常負圧の後半部

分は約 $1 \times 10^{-11} \text{ m}^3$ で安定している。また、ガス流速が 0 になることはなく、引き続いて再度ガス注入が行われている。この場合の最大透過係数は定常状態にて達成され、第 1 サイクルにて示される値と同じであるとしている。その後、流速を変化させた実験結果(ステップヒストリー)により透過係数が低下していることがわかる。透過係数は、shut-in ステージの間減少し、みかけの Capillary-threshold 値において流れは止まることになるとし、くり返しサイクルが行われ、kg と σ の関係はヒステリシスループをつくるとしている。

図 1.2.1-22 は MX80-4B の関係を示している。ガス圧のピークはカーブの左半分が発生し(胴のふくらみ部に相当)、またピークの再発生によりガス通路が部分的にリシールしていることがわかるとしている。

透過係数はピークのあとも増加しているが、ピーク後の非定常負圧状態及び shut-in 後すぐに透過係数が鋭く低下している。このことは ASG 装置でみられる不安定さと同じ現象を示すものであるとしている。shut-in 後のカーブは S 字カーブを呈している。

図 1.2.1-23 は MX80-4C のガス透過係数を示している。ピークとピーク後の挙動ははっきりと区別できないけれども、ピーク後はガス透過係数の急激な減少を示し、MX80-4D の後半部分は課題を残す実験結果であると指摘している。

図 1.2.1-24 は MX80-6 の結果であり、ピーク及びピーク後の挙動ははっきり区別できないが、shut-in 後の挙動と第 2 番目のガスサイクルは MX80-4A と同様であり、shut-in 後の非定常負圧状態はこの場合は非常に長くなっている。最後の段階での shut-in 状態での残留透過係数は約 $2.0 \times 10^{-11} \text{ m}^3$ であるとしている。

図 1.2.1-25 に MX80-7 の場合を示すが、ピーク後の非定常負圧状態は示されず、shut-in 状態が終了する時の残留透過係数は約 $3.0 \times 10^{-11} \text{ m}^3$ としている。

(iv) 解析モデルを用いたフィット

図 1.2.1-26~28 は MX80-1, 4A, 4B のブレイクスルー後の実験ヒストリーのフィッティングを示している。このモデルはブレイクスルー後の挙動の傾向を示すことが可能であるが、流量変化直後において常に計算値の方が勾配は小さい値となっていることを示している。このフィットは、Ortiz ら(1997)が Boom Clay にフィットしたものより良くなかったが、ズレの理由は粘土試料の有効ガス透過係数が非定常負圧状態の期間、一定値ではないためであるとしている。既に示したようにガス透過係数は、断面積当りの通路の数、通路の大きさ、水力学的半径、形状ファクター、屈曲度の関数として示されるとしている。

実験から、ガス透過係数はガス圧と正味平均応力の関数であることを示している。

(6) 伸張性破壊メカニズム

圧縮飽和粘土試料の理論的引張強度は、間隙水の引張強度に等しいとしている。すべての材料に見られるように、実際の引張強度は理論的引張強度より何オーダーも小さいが、その理由は、Griffithクラック理論によれば、クラック端部の応力集中による強度の相違のためであるとしている(Griffith 1921 他)。飽和粘土試料では内部粒子水フィルム及び縁のガス・水メニスカスに対して局部的応力集中を引き起こすとし、圧縮粘土試料の伸張性破壊メカニズムでは恐らく内部粒子間の水分子の水素結合が破壊し、その結果、蒸気又はガスで充満された二次元間隙あるいはマイクロクラックを形成するとしている。これらは間隙に関わる Griffith クラック伸張理論と共通であり、線形弾性破壊力学 (LEFM) がこれに適用できるとしている。

応力集中個所であるガス・水メニスカスについては、その吸着水フィルムは液状でなく固体状になっていると仮定し、2つの主要圧力 P_1 と P_2 すなわち、薄いフィルムの力学的維持能力及び薄いフィルムの圧力テンソルがマイクロクラック先端で局部的弾性応力分布を示していると仮定している。これによって、クラックが伸張することは説明できるにしても、将来は薄いフィルム内の水があるせん断強度を有し、何年も維持できる能力を持つモデルが必要になるとしている(Pusch, 1976)。MX80 を対象に流速を制御した今回の実験結果から、過剰ガス圧と時間の関係プロットから明らかにハイドロフラクチャー反応が示されるとしている。

Murdoch(1993a, b)はフラクチャー液としてグリコールを用いて、粘土のハイドロフラクチャーについて研究しているが、彼の試験結果はMX80 と Boom Clay に対して行われた今回のガス注入テストと定性的には同じものであり、LEFM をベースにしたモデル化が適用され得るとしている(Murdoch, 1993C)。このハイドロフラクチャー理論では、カーブのピークは引張強度がある限界を越える点であり、そこでフラクチャーが発生することを示している。これをベースにすると引張強度は、過剰ガスのピークと shut-in 後の過剰ガス圧の差であるとしている。この値は、Boom Clay に対しては 0.38~1.22MPa の幅であり、過剰圧密粘土の引張強度(Ortiz ら 1996)より大きいことがわかる。LEFM を適用すると、Griffith 理論におけるクリティカル応力によって、マイクロフラクチャーが伸張するとしている。

ハイドロフラクチャー理論の適用に際して、難点は shut-in 応答の解釈であるとしている。shut-in カーブの漸近線で近づく応力値は3次元応力状態における最小主応力の考え方に等しいとし、この等方均質境界応力条件下では、shut-in 漸近線で近づく応力値はみかけのマトリックスサクションであり、境界応力より常に小さい値となっているとしている。

Boom Clay ではガス圧のピーク値は全応力より小さいが、このことから粘土試料に対して全応力に近いガス圧をかければガスフラクチャーの可能性があるとしている。(Sen ら,1996 他)

(i) 軸方向に沿ったガス移動原理

試料の軸方向へのガス移動原理は、不飽和土質の室内研究において進歩してきた(Fredlund & Rahardjo,1993)とし、マトリックスサクシオンはガス圧と測定可能間隙水圧の相対的差であり、お互いの絶対量には関係ないとしている。即ち、ある土質では大気圧以下の間隙水圧(負圧)をもちつつガス圧は大気圧状態であるとし、もう1つは大気圧に等しい間隙水圧であるもののガス圧は大気圧より大きい状態のものとは、マトリックスサクシオンは同値であるとしている。

マトリックスサクシオンは体積含水比の関数であり、体積含水比即ち飽和度がガス圧と外部平衡水圧との差を決定するとしている。軸方向に沿ったガス移動原理により、体積含水比(飽和度)の影響は、外部水圧を固定してガス圧を上昇させた場合と、ガス圧を固定して外部水圧を減少させた場合では同じ現象であるとしている。

(ii) 収縮性クラック

2つの飽和試料が初期に同一含水比を持つと仮定し、一方向からガス圧を上げ、他の方向では外部水圧を固定すると、ガス圧はマトリックスサクシオンのあるクリティカル値で粘土に侵入する。もう1つの飽和試料については、一方向からのガス圧を一定にし、他の方向では水圧を下げているとすると、ガスは同じクリティカル値で粘土試料中に入るようになるとしている。

後者の場合、測定可能な間隙水圧の低下の方法として、相対蒸気圧法があり、そのためには外部蒸気圧と平衡するように薄いフィルム(水分子フィルム)から蒸発させなければならないとしている。これは乾燥メカニズムと同じであり、体積を一定した場合、内部粒子の水分子の水素結合間引張応力が増加することになるとしている。このようにして大気圧以下の間隙水圧ができ、間隙水圧がガス圧に比べてかなり低くなると、内部粒子結合は破壊するとしている。この破壊には2つのプロセスがあり、1つは内部粒子水フィルムの粘着性の崩壊、もう1つは液体から蒸気へと変わる際の化学的相変化である。このプロセスは液体の空洞化(cavitation of bulk liquid)現象であるとしている。

粘土試料の乾燥現象は良く知られている。マトリックスサクシオンがある限界を超えると、粘土試料は収縮クラックを形成し破壊するとしている(Horseman & McEwen,1996)。通常2次

元及び3次元引張破壊により均質媒体内に多角形を形成するとしている(Lachenbruch,1962)。

図1.2.1-29~30は、MX80-1をオープン乾燥器内にて乾燥したあとに上流面に発生した多角形収縮クラックを示している。これら写真は反射光顕微鏡を用い、隣接クラックの間隙は約6mmであることが示されている。また、間隙幅は0.05~0.5mmの膨張クラックをつくっている。

内部引張応力が収縮クラックを形成するのに十分大きい場合は空気が粘土試料に入り、この時できるクラックが粘土中のエアージェット通路を代表することになる。軸方向のガス移動原理に基づけば、ガスがクラックに沿って緩衝材粘土中に入る可能性は高く、このクラックは乾燥サンプルの収縮クラックと同じものとしている。収縮クラックは伸張性であり、ガス移動のための通路は、緩衝材中で伸張できるとしている。ただし、クラック間隙は乾燥サンプルよりかなり小さいと考えられる。なお、現在のところ粘土媒体の伸張性破壊について確立された理論は存在しないとしている。

(7) 結論

圧密ベントナイト緩衝材の挙動は、非常にち密なコロイド状懸濁液と同じようなものであることが確認されている。

- ベントナイト中の薄いフィルム

モンモリロナイトの層間距離は、Hs-batch(高膨潤性)ベントナイトで 1.40×10^{-1} m、Ms-batch(中膨潤性)ベントナイトで 1.48×10^{-1} m であり、吸着-脱着等温線によればモンモリロナイト層間は水分子2層からなることが明らかであるとしている。

一方、ベントナイト粒子間はそれぞれ 3.8×10^{-1} m, 4.3×10^{-1} m であり、これは水分子10~14層に相当し、ベントナイト中の水分子のほとんどが表面の相互作用に影響されることを示している。

- 熱力学

薄い水フィルムの熱力学を考える場合は、標準自由エネルギーが適用できるとしている。さらに、粘土-水-溶質で構成される系については、連成機構モデルによる感度解析手法が物質移行の基本的なアプローチであり、そのための熱力学的解析が必要があるとしている。

- Disjoining pressure

薄い水フィルムによって隔てられた2つの粘土結晶板全体が、多量の液体中に浸漬されるモデルを仮定すると、薄膜中の水圧は同じ深度のバルク水圧とは異なり、この圧力差が disjoining pressure である定義としている。

disjoining pressure は薄層中に吸着した水分子の化学ポテンシャルが外部のバルク水の化学的ポテンシャルと平衡状態になった時、粘土結晶板平面に対し直角方向に作用する単位面積当りの力であり、それは結晶板に水分子が物理的に吸着するために作用する力に等しく、ベントナイト中の水フィルムの最大 disjoining pressure は、単位体積当りの水の内部エネルギー U によって与えることもできるとしている。

- 力のバランス

粘土-水-粘土の蒸気-水メニスカスでの Laplacian 圧降下は、disjoining pressure の絶対値に等しいとし、disjoining pressure は粘土結晶板を離れさせる傾向にあるが、逆に Laplacian 圧降下は引き合う傾向があるとしている。Laplacian 圧降下は水分子相互間の水素結合(内部張力)を表したものであるとしている。

- ・ 状態方程式

簡潔なモデルを使って、今回実験したバルク水とガスの挙動を示している。ここでは、正味圧力は動圧力と内部圧から導出され、ベントナイトの薄膜中の正味圧力は系の熱力学によって決定されるとしている。粘土粒子が有限であるための補正はしないが、ベントナイト系の状態方程式とバルク水の状態方程式は同じ形であるとしている。

この状態方程式を適切に近似する方法が見出せれば、粘土含有率の大きい媒体の力学、熱力学及び移行挙動を古典熱力学を用いて解析することができるとしている。

- ・ 有効応力

土質材料は、ある種の応力を支持する格子または骨格を有すると推測され、Terzaghi は粘土に作用する全応力: σ を、骨格によって伝播される有効応力: σ_e と測定可能な間隙水圧: u (ゲージ圧) に分けることを提案した。MX-80 を用いたこの研究では、未固結粘土は骨格によって有効応力は伝播せず、むしろ、有効応力の代わりに薄膜の disjoining pressure が作用するとしている。これは、水とコロイド状粘土粒子との相互作用によるものであるとしている。

- ・ 圧密と膨潤

ベントナイトの圧密は、水分子が粘土結晶板間やコロイド粒子の外部表面から脱着する現象であると見なすことができ、ベントナイトの膨潤は水分子が吸着する現象とみなしている。

- ・ 膨潤と毛管圧力

試験に用いたベントナイトブロックの膨潤圧は、公開データに基づいている。HS-batch 及び MS-batch ベントナイトの膨潤圧は、結晶板間及び粒子間の disjoining pressure の平均値に等しく、圧密粘土は膨潤圧を有し、以下のように定義している。

$$\text{全応力} = \text{膨潤圧} + \text{外部水圧(ゲージ圧)}$$

周知のようにマトリクスサクションが毛管圧に等しいとすれば、上の関係は以下の重要な関係を導くことができるとしている。

$$\text{有効応力} \equiv \text{毛管圧} \equiv \text{膨潤圧}$$

これらの関係は、粘土鉱物の含有率が大きい未固結粘土に対して特に成立しやすいとしている。

- 測定可能な間隙水圧

飽和圧密粘土内の間隙水圧を測定すれば、結晶板間膜内の水分子の水素結合力がわかり、そして粘土内応力状態は境界応力と disjoining pressure の値が引張から圧縮まで変化するとしている。

- 平衡

全応力は、水分の水素結合による引張応力の減少によって変化し、実際の粘土試料では、粒子の大きさによるとしている。熱力学的平衡は、全応力と内部圧力が等しい場合に達成されるとしている。この場合サクシオンが一様でなければならないが、よく知られた不飽和土質力学の基準に基づけば、浸潤面以下の飽和した粘土と泥岩においてもこの関係が成立するとしている。

- ガス-水メニスカスの曲率

大気圧下では、圧密粘土内の薄膜中の水-ガスのメニスカス曲率半径は以下の関係によって与えられる。

$$\gamma_c \approx \frac{\gamma_{wg}}{\Pi_D - \sigma}$$

γ_c ; メニスカスの曲率半径, γ_{wg} ; 水/水蒸気ガス境界の表面張力

Π_D ; disjoining pressure σ ; 全応力

$\Pi_D > \sigma$ の場合、メニスカスは正(positive)の曲率を有し、粘土はサクシオン状態(すなわち、負の間隙水圧)にあるといえる。土質力学ではこの状態は自由水面上部の毛管の状態にあるとしている。 $\Pi_D = \sigma$ の場合、メニスカスの曲率半径は無限大となり、これはサクシオンが0となる自由水面の状態であるとしている。 $\Pi_D < \sigma$ の場合、メニスカスは負の曲率を有し、これはベントナイト緩衝材が完全飽和した状態であり、ガス移行状態が出現する以前の状態である。この状態は浸潤面より深部の飽和粘土及び飽和泥岩の状態であるとしている。

- 内部応力によって生じるメニスカスの曲率

メニスカスの曲率半径は、水分の水素結合の内部引張あるいは圧縮に応じて決定されるとし、これらは自由水面より深部の飽和粘土中でも発生するとしている。即ち、毛管内の水の移動に係る理論は間隙圧力が正の場合と同様に負の場合も適用できるとしている。

- ・ 高いガス圧の影響

粘土に作用するガス圧力が大気圧以上の時、粘土は伸張し、ガス-水のメニスカスは正方向に変化するとしている。粘土の伸張はメニスカスを内側に引き入れる効果を持ち、ガスの絶対圧力が全圧力以上となり、その差が大気圧と等しくなるまで増加したとき、正の曲率半径を有するとしている。この条件においては、ガス-水間の Laplacian 降下圧力は膨潤圧に等しいとしている。

- ・ ガス侵入

一定体積の境界条件下において、飽和粘土試料中へのガス侵入圧は、一定応力の境界条件下における同じ粘土試料へのガス侵入圧とは事実上異なると考えている。

一定応力境界条件下における飽和粘土中のガスの透過は、ガス圧力が外部の水圧+膨潤圧を僅かに超えれば可能であるとしている。高い乾燥密度に圧密されたベントナイトは大きな膨潤圧を持つことが予測され、それに相当する大きなガス侵入圧が必要であるとしている。

一方、一定体積境界条件下でのガス侵入圧については課題が多いとしている。

- ・ 伸張歪み

一定応力境界条件下で粘土に作用するガス圧が上昇するに伴い、粒子間の内部応力が圧縮から引張へと変化するが、この現象は粒子間の水膜の体積増加と粘土構造の伸張を伴っているとしている。

従って、ガス圧力の上昇効果は、ほとんどの場合境界応力の減少効果に等しいものの、間隙水圧はガス圧の増加にしたがって上昇するとしている。弾性ひずみエネルギーは試料にかかる差圧と非排水条件下のバルク弾性係数によって計算することができるとしている。

- ・ ガス通路の伸張

ガス通路（すなわち微小亀裂）の伸張は、弾性ひずみエネルギーの減少が表面エネルギーの増加とバランスしたとき発生するとしている。

ガス通路の先端部における引張応力は、水の理論的引張強度に等しいとしている。通路先端部の形成は、恐らく高引張り応力状態から水分子を追い出す毛管蒸発機構に関係するが、亀裂伸張が開始されるためには、時間に対するプロット、傾きの変化が関係するとし、

この傾きが負になったとき（すなわちピークの後）通路の伸張は不安定になるとしている。

- ・ ガス通路の形状と数量

引張歪は、同時に多くの微小亀裂を形成するとし、微小亀裂の内部表面でガス-水メニスカスを形成するためには、一定量のエネルギーが必要であるとしている。微小亀裂（クラック）密度とその形状は、弾性ひずみエネルギーと表面エネルギー間のバランスによって決定されるとしている。

粘土の収縮クラックに関する研究に基づけば、ガスは恐らく引張破壊による多角形状の微小亀裂の規則的な列を通して流れるであろうとしている。

コンクリートの収縮の研究に基づけば、亀裂幅と特徴的な割れ目の隣接間隔は材料及び応力に依存したパラメータであり、これに基づきベントナイト中のガス移行通路の幅とその隣接間隔との理論的關係を導くことができるとしている。

- ・ ガス透過係数

微小亀裂がない場合には、飽和ベントナイトはガスに対して不透過性であるとしている。一方、ベントナイトのガス透過係数は、通路となる亀裂の幅や間隔の分布、流れに直角な面の圧力及び微小亀裂の数に依存するとしている。従ってベントナイトのガス透過性はそれが有する物性というよりは亀裂状態で決まる従属変数であるとしている。

測定されたガス透過係数は、全体的には定量化が可能であるが非常に複雑な応答であるとしている。ベントナイトにおけるガス透過係数は流速に依存するが、そのバラツキは狭い範囲であるとしている。HS-batch 粘土は 16MPa 以下の拘束圧、1.01MPa の背圧、定流量条件下で 2.7 及び $1.7 \times 10^{-20} \text{ m}^2$ であり、MS-batch 粘土は 8 及び 9MPa 以下の拘束圧、1.01MPa の背圧、定流量条件下で 2.2 及び $1.7 \times 10^{-20} \text{ m}^2$ であるが、これらは HS-batch 粘土及び MS-batch 粘土の水の固有（絶対）透過係数 0.6 及び $1.1 \times 10^{-20} \text{ m}^2$ と比較すると大きいとしている。

- ・ ガス通路のリシール

1 度ガス透過した試料に再度ガスが透過する際、ブレイクスルー圧は最初の透過時の圧力と比較して著しく小さく、このことから通路は完全に閉塞していないことを示している。概念モデルに従えば、ガス圧を低下させ、臨界(Critical)Threshold 圧を下回ると、だ円形断面のガス通路は表面張力に従って円形断面に変形し、移行通路は不連続な気泡の列に分裂し、ガス流れは停止し、これが shut-in 挙動の物理的な解釈であるとしている。一方、

試料内の圧力を上昇し続けると気泡は延びて引張応力下でだ円形に変形し、軸方向へ伸張することによってガス通路が再度形成されるとしている。

shut-in 状態の期間が非常に長い場合には、ガスが粘土中に拡散し得ると考えられるが、ガスの通路全体が閉塞した場合、粘土構造中に何らかの影響を残すかどうかについては現在不明であるし、ジョイントの有無についてガス透過試験結果に差異はないことから、潜在的ガス移行通路(Potential Flow Pathway)は閉塞されているとしている。

- ・ ガス移動のための最小過剰圧力

試料中のガス圧力差が shut-in 曲線の漸近線（みかけのマトリックスサクシオン）を下回るとき、ガス移行は生じないとしている。この値は Hs-batch 粘土について 11~14MPa, Ms-batch 粘土について 4MPa であり、膨潤圧とは直接関係ないとしている。通路の安定性については表面張力がガス透過を不可能にするとしている。

- ・ ガス移動の力学

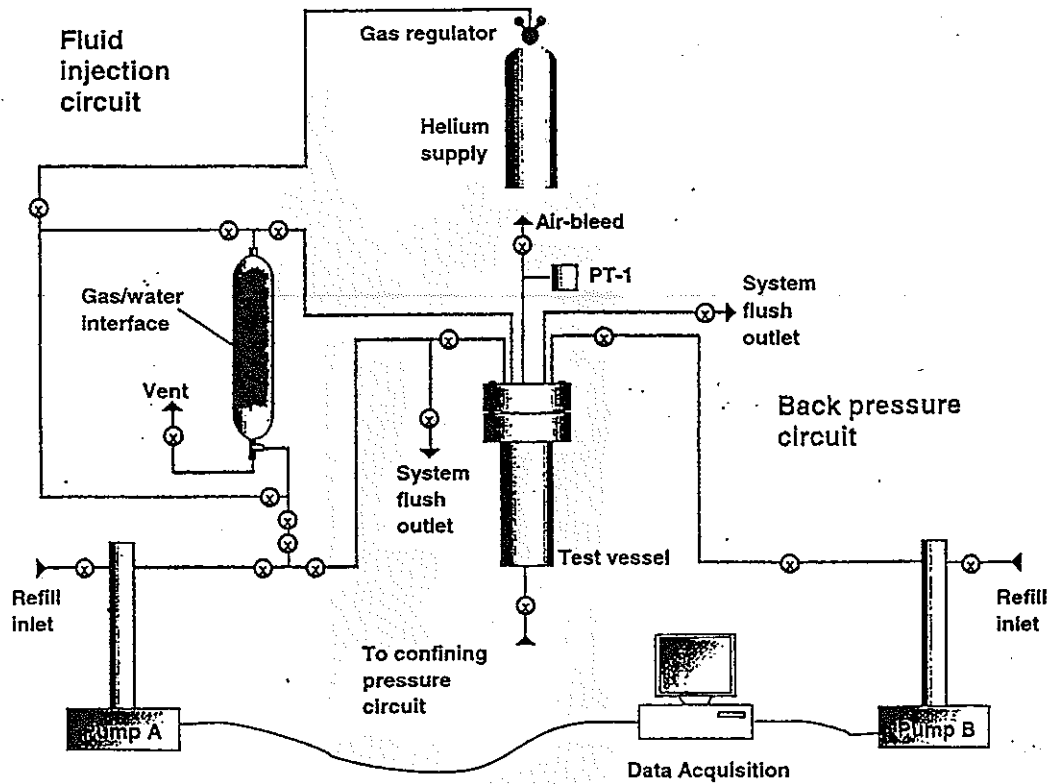
ASG(軸対称形状試料)装置における試験結果は、ガスの移行挙動が間欠的、突発的であり、ベントナイト中のガスの通路が極めて不安定であることを示している。この挙動は上流側のガス体積に非常に敏感であり、ガス移行のためのエネルギーは上流側でのガスの圧縮によってもたらされるが、それは系の体積に比例するとしている。また、一定流速条件下におけるピーク後の挙動は、不安定な亀裂伸張期間によるものであり、HLW ギャニスタ周辺にガスに占められた空隙が、ガス放出のための十分なエネルギーを有しているかどうかは適切なモデルを用いることによって、解決する必要があると述べている。

- ・ モデリング

ガス侵入挙動、ピーク後の挙動、shut-in 挙動に対するモデリングについては現状可能であるとしている。1次元のガス移行挙動は有限差分法により数値的に解くことが可能であり、拡散による移行をこれに包含させることも困難ではないとしている。ベントナイト中のガス移行挙動もこの方法によって可能であり、このようなモデルによって圧縮ベントナイトのガス移動がシミュレートできるとしている。内部応力を有するベントナイト円筒形試料の応力状態については、現在、ガス通路の3次元形状に対する情報がほとんどなく、ガス侵入の際にベントナイトのダイラタンシー(膨張)が示されていることから、境界条件が最重要課題であり、金属表面と処分対象岩盤の間の粘土の体積(膨張の容量)が今後の研究の優先的課題の一つであるとしている。

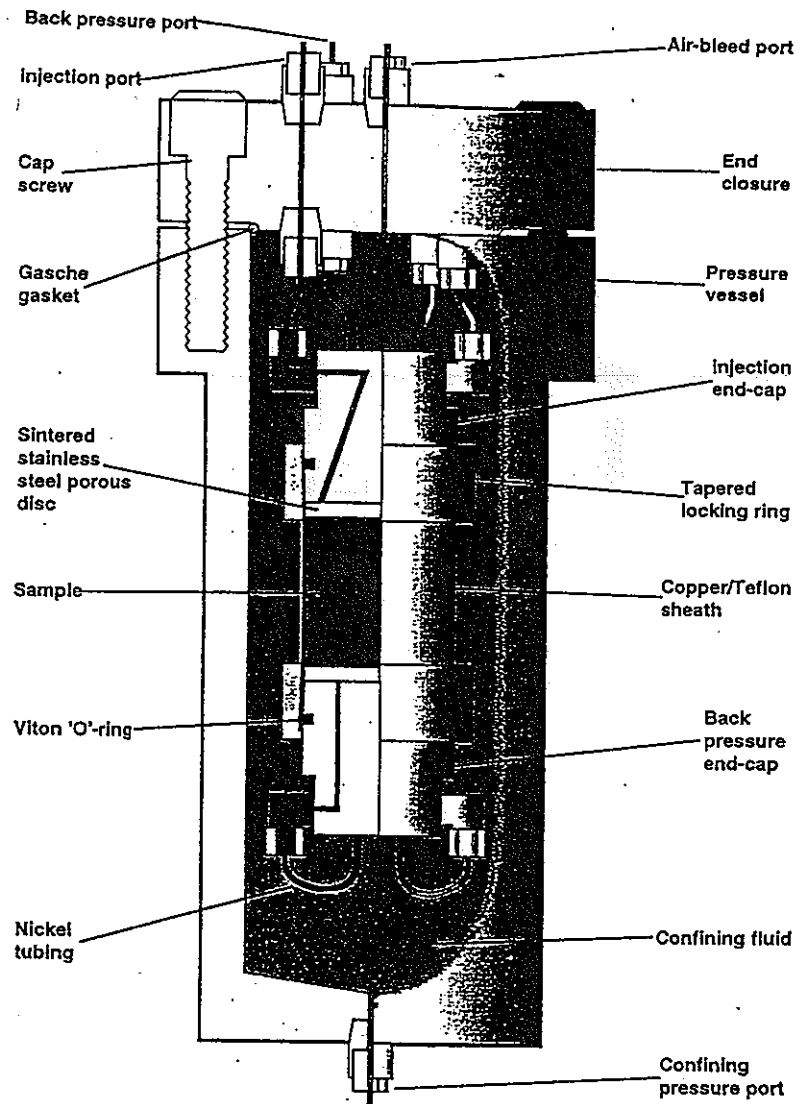
- ・ 相変化

粘土-水系の力学的、水理学的、物理化学的挙動は、圧密及び熱力学的効果も含めて、吸着水、自由水、及び水蒸気の間の変化によって説明可能であるとしている。粘土系中の水の沸点上昇、凝固点降下もこれによって説明でき、毛管凝縮、毛管蒸発の計算から、粘土-水系における重要な物理化学的変化を示すこともできるとしている。



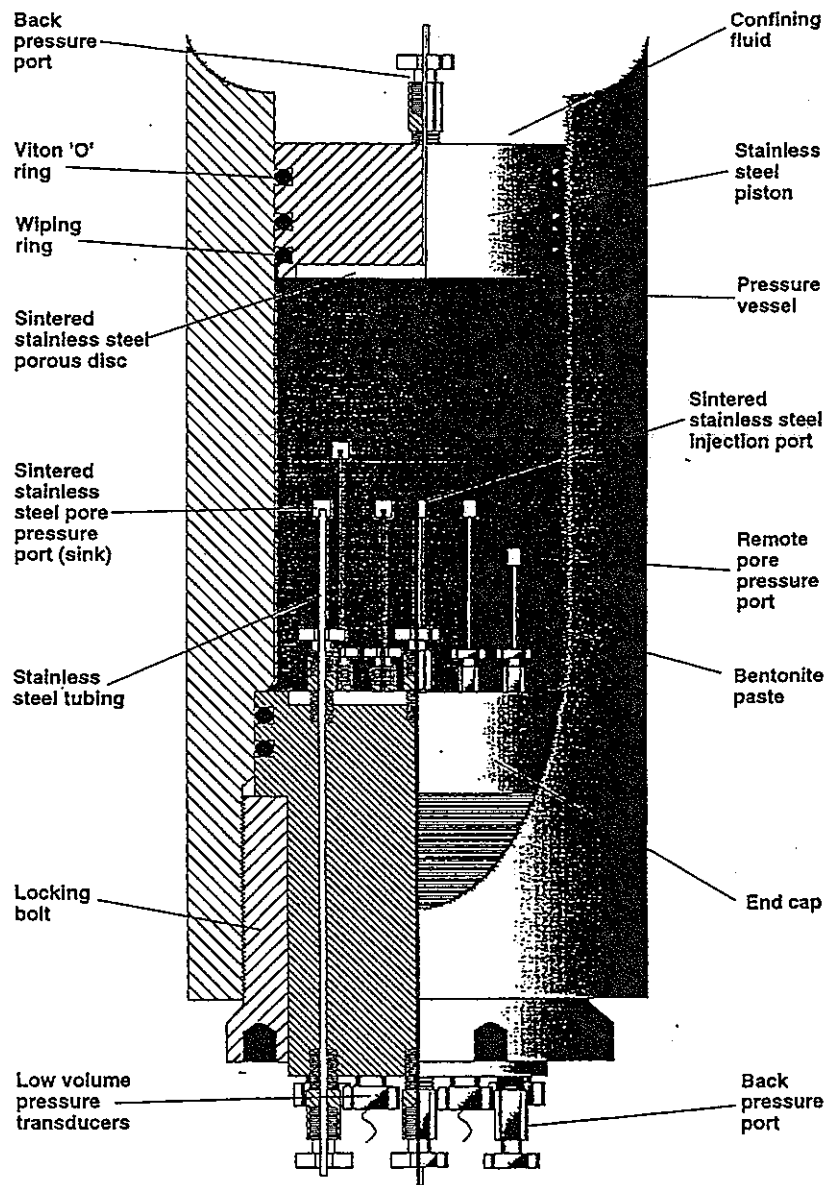
Schematic of the BGS controlled flow-rate gas migration apparatus. The five main components are: (a) a specimen assembly, (b) a pressure vessel together with its associated control equipment, (c) a fluid injection system, (d) a backpressure system and (e) a microcomputer-based data acquisition system.

図 1.2.1-1 ガス移行測定装置概念(BGS 装置)



Schematic of the pressure vessel and sample assembly. The pressure vessel is a custom-built single closure vessel rated to 70 MPa. The cylindrical clay specimen is sandwiched between two tapered end-caps, each with a sintered stainless porous disc, and jacketed in a thin-walled copper sheath to exclude confining fluid and prevent diffusional losses of gas. The injection end-cap has a central inflow duct and a circular groove cut into its load-bearing surface and linked to an outflow duct, allowing the gas to sweep radially through the porous disc during preliminary flushing operations.

図 1.2.1-2(1) BGS 装置の圧力容器と試験セル



Schematic of the ASG apparatus. The bentonite paste is placed in the lower chamber. The upper chamber can be pressurised with water so that piston exerts a known total stress on the clay. Top and bottom drainage filters allow the material to consolidate. The central or "source" filter is used for gas injection. Four additional filters are embedded in the clay and linked to transducers to provide measurements of porewater pressure. The remaining filter is intended to act as a "sink" for gas migration.

図 1.2.1-2(2) ASG 装置の圧力容器と試験セル

表 1.2.1-1(1) 高膨潤(HS)、中膨潤(MS)試料のブロック

Block number	Batch (*)	Water content (wt-%)	Bulk density (Mg.m ⁻³)	Dry density (Mg.m ⁻³)	Void ratio
BGS 2	HS	23.0	2.01	1.634	0.701
BGS 3B	HS	23.0	2.02	1.642	0.693
BGS 4	MS	27.4	1.99	1.562	0.780
BGS 6	MS	27.4	1.98	1.554	0.789

Basic physical property data supplied by Clay Technology AB for the pre-compacted bentonite blocks. (*) HS = "high swelling" and MS = "medium swelling".

表 1.2.1-1(2) BGS 装置を用いた 7 種類の試料物性(試験前)

Specimen number	Block number	Water content (wt-%)	Bulk density (Mg.m ⁻³)	Dry density (Mg.m ⁻³)	Void ratio	Degree of saturation
Mx80-1*	BGS 2	23.5	2.027	1.642	0.687	0.947
Mx80-2	BGS 2	23.5	2.018	1.634	0.695	0.936
Mx80-3	BGS 2	23.1	2.023	1.643	0.686	0.934
Mx80-4*	BGS 2	23.8	2.013	1.626	0.704	0.937
Mx80-5*	BGS 6	28.2	1.991	1.553	0.783	0.997
Mx80-6	BGS 6	26.2	1.981	1.570	0.764	0.949
Mx80-7	BGS 6	27.5	1.996	1.566	0.769	0.990

Basic physical properties of the test specimens from pre-test measurements of bulk density and water content assuming an average specific gravity for the mineral phases of 2.77 Mg.m⁻³. Specimens marked * were cut parallel to the major compression axis of block fabrication.

表 1.2.1-2 BGS 装置を用いた 7 種類の試料物性(飽和度に及ぼす拘束圧を考慮)

Specimen number	Block number	Water content (wt-%)	Bulk density (Mg.m ⁻³)	Dry density (Mg.m ⁻³)	Void ratio
Mx80-1	BGS 2	23.5	2.072	1.678	0.651
Mx80-2	BGS 2	23.5	2.072	1.678	0.651
Mx80-3	BGS 2	23.1	2.079	1.689	0.640
Mx80-4	BGS 2	23.8	2.067	1.669	0.659
Mx80-5	BGS 6	28.2	1.994	1.555	0.781
Mx80-6	BGS 6	26.2	2.026	1.605	0.726
Mx80-7	BGS 6	27.5	2.004	1.572	0.762

Basic physical properties of axial flow test specimens corrected for the probable effect of confining pressure on degree of saturation (S_r taken as 1.00).

表 1.2.1-3 MX80 ベントナイトの吸着-脱着等温線による計算値

Relative vapour pressure	Calculated swelling pressure (MPa)	Adsorption			Desorption		
		Water sorbed (g.g ⁻¹)	δ_i av. (nm)	No. of layers sorbed	Water sorbed (g.g ⁻¹)	δ_i av. (nm)	No. of layers sorbed
0.1	312	0.009	0.98	0-1	0.036	1.03	0-1
0.2	218	0.018	1.00	0-1	0.064	1.09	0-1
0.3	163	0.032	1.02	0-1	0.079	1.12	0-1
0.4	124	0.050	1.06	0-1	0.089	1.14	0-1
0.5	94	0.063	1.09	0-1	0.113	1.19	0-1
0.6	69	0.094	1.15	0-1	0.148	1.26	1
0.7	48	0.130	1.22	1	0.165	1.29	1-2
0.8	30	0.155	1.27	1-2	0.179	1.32	1-2
0.9	14	0.186	1.33	1-2	0.200	1.36	1-2
0.95	7	0.230	1.42	1-2	0.245	1.45	1-2
0.97	4	0.250	1.46	2	0.250	1.46	2

Interpolated adsorption-desorption isotherms for Mx80 bentonite (data from Kahr et al., 1986). Swelling pressures are calculated using (6) and are probably underestimated for the stated reasons. Average interlayer spacings are estimated using (81). The isotherms suggest that the montmorillonite interlayers in the buffer bentonite test specimens comprise around two molecular layers of water ($T = 293.15$ K, $R = 8.31441$ J.mol⁻¹.K⁻¹, $v_w = 1.8 \times 10^{-5}$ m³.mol⁻¹, $S_T = 700$ m².g⁻¹, $\nu = 0.7$).

表 1.2.1-4 試料の軸方向物性

Specimen number	Bulk density (Mg.m ⁻³)	Dry density (Mg.m ⁻³)	Void ratio	Estimated swelling pressure (MPa)		Estimated intrinsic permeability (m ²)
				Equ. (83)	Equ. (84)	
Mx80-1	2.072	1.678	0.651	15.7	15.9	5.5 x 10 ⁻²¹
Mx80-2	2.072	1.678	0.651	15.7	15.9	5.5 x 10 ⁻²¹
Mx80-3	2.079	1.689	0.640	17.1	17.0	5.1 x 10 ⁻²¹
Mx80-4	2.067	1.669	0.659	14.8	15.2	5.8 x 10 ⁻²¹
Mx80-5	1.994	1.555	0.781	6.4	7.5	1.2 x 10 ⁻²⁰
Mx80-6	2.026	1.605	0.726	9.3	10.3	8.8 x 10 ⁻²¹
Mx80-7	2.004	1.572	0.762	7.3	8.4	1.1 x 10 ⁻²⁰

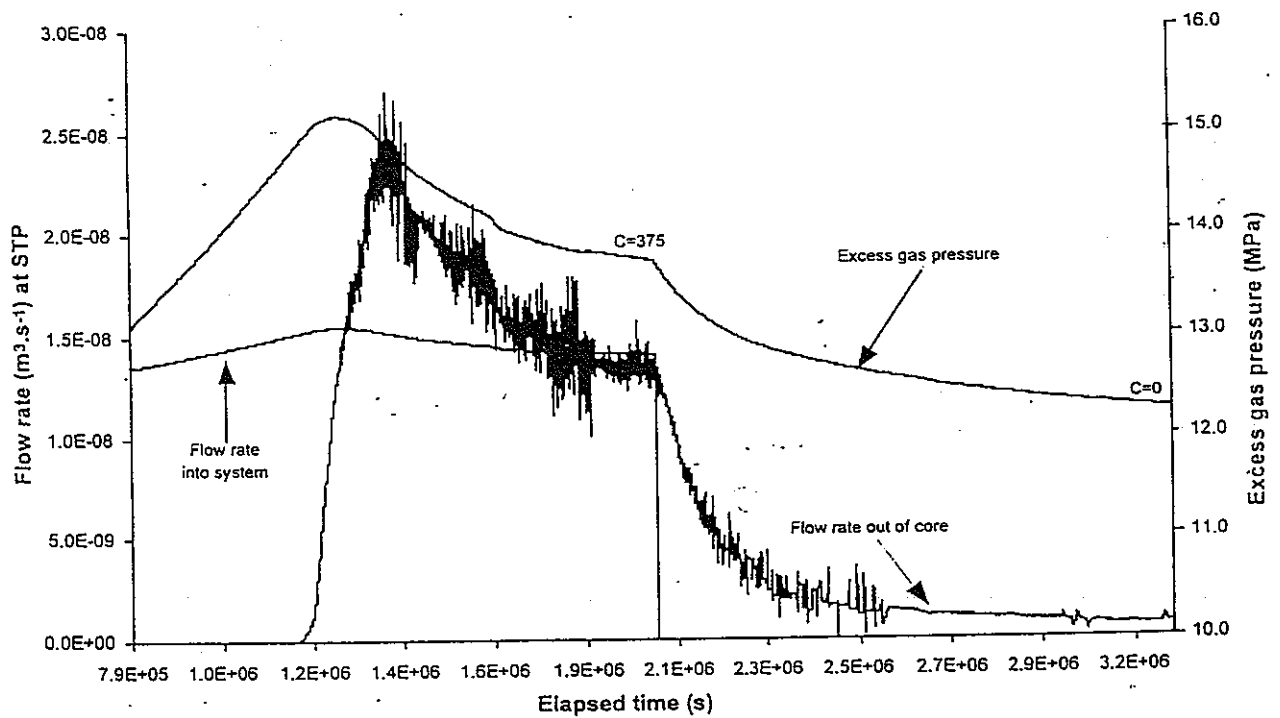
Calculated physical properties of axial flow test specimens. Swelling pressures and intrinsic permeability are estimated from void ratio by curvfitting the experimental data presented in Börgesson et al. (1996) using linear least squares regression of the transformed data. The probable error of the estimate is around $\pm 25\%$ for both parameters.

表 1.2.1-5 BGS 装置による測定パラメータ

Test	Pumping rate, C		Excess gas pressure (MPa)				Conf. pressure (MPa)
	$\mu\text{L}\cdot\text{hr}^{-1}$	$\text{m}^3\cdot\text{s}^{-1} \cdot 10^{12}$	Entry	Break-through	Peak	Steady-state	
Mx80-1	375 0	104.2 0	13.46 -	14.92 -	15.17 -	13.74 11.8	16.00 16.00
Mx80-2	375	104.2	-	> 15.05	-	-	16.00
Mx80-3	375	104.2	-	> 17.05	-	-	16.00
Mx80-4A	375 0 375 180 90 45 0	104.2 0 104.2 50.0 25.0 12.5 0	15.19 - - - - - -	15.19 - - - - - -	15.30 - 14.25 - - - -	14.22 12.5 14.11 13.64 13.27 12.91 11.0	16.00 16.00 16.00 16.00 16.00 16.00 16.00
Mx80-4B	375 0	104.2 0	- -	15.37 -	15.78 -	15.47 13.2	18.00 18.00
Mx80-4C	375 0	104.2 0	- -	17.01 -	17.01 -	16.01 13.0	20.00 20.00
Mx80-4D	375 0	104.2 0	- -	19.91 -	17.95 -	16.79 14.1	22.00 22.00
Mx80-5	375	104.2	-	> 8.83	-	-	8.00
Mx80-6†	375 0 375 180 90 45 0	104.2 0 104.2 50.0 25.0 12.5 0	- - - - - - -	7.04 - 6.84 - - - -	7.04 - 6.87 - - - -	6.92 = 4.0 6.79 6.71 6.64 6.56 = 4.0	8.00 8.00 8.00 8.00 8.00 8.00 8.00
Mx80-7	375 375 375 180 90 45 0	104.2 104.2 104.2 50.0 25.0 12.5 0	6.53 - - - - - -	6.94 7.89 8.01 - - - -	6.96 7.92 8.02 - - - -	6.93 7.89 7.98 7.87 7.80 7.71 = 4.0	8.00 9.00 9.00 9.00 9.00 9.00 9.00

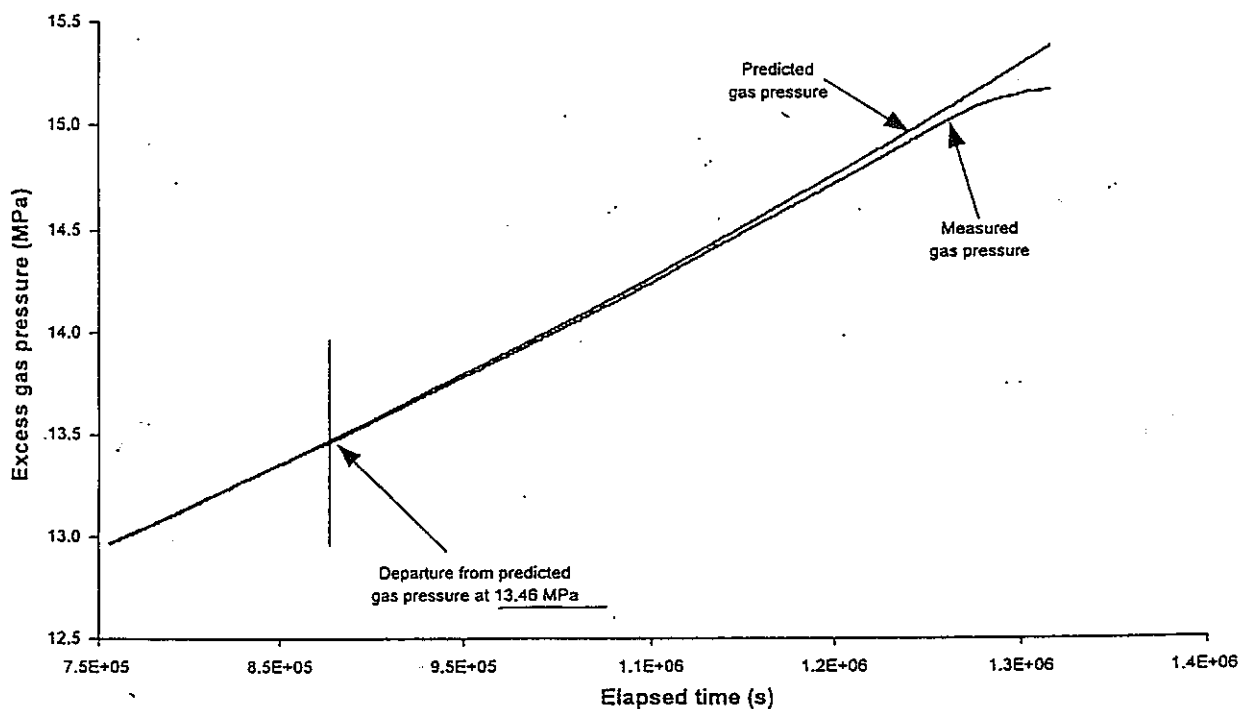
† signifies that the specimen contained a fabrication joint.

Gas injection results showing test number, gas pumping rate (C), excess gas pressure at entry, breakthrough, peak and steady-state, where the latter quantity for zero flow-rate (C=0) is the extrapolated asymptote of the "shut-in" curve, referred to here as the "apparent matrix suction". The rather lengthy transient in some tests make extrapolation problematic, leading to uncertainties in quantifying this parameter.



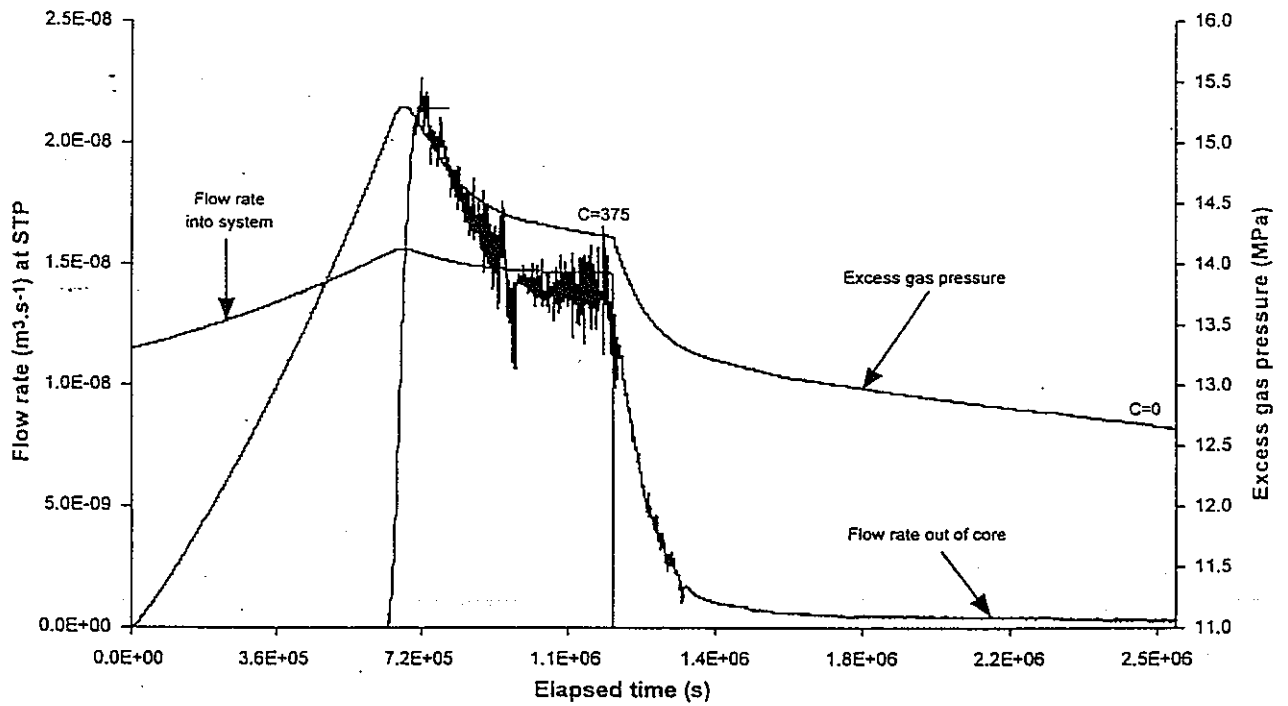
Experimental history Mx80-1, (Block BGS 2) on HS-batch clay with an average dry density of 1.638 Mg.m^{-3} and a swelling pressure close to 15 MPa . Excess gas pressure ($p_g - p_{wo}$) and volumetric flow rates (STP) into the testing system and out of the specimen plotted against elapsed time. The peak pressure response is probably indicative of the propagation of microcracks.

図 1.2.1-3 MX80-1 の試験結果(経過時間と流速と過剰ガス圧力の関係)



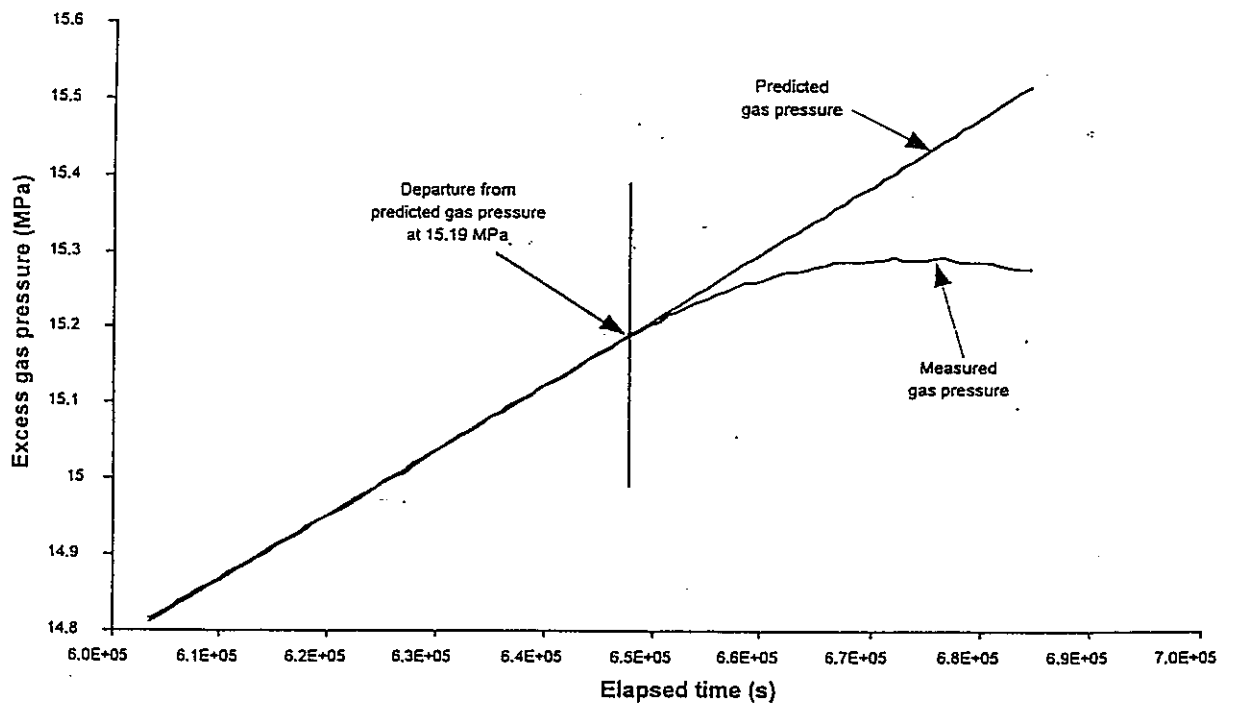
Experimental history Mx80-1 (Block BGS2). Fit to the initial compression curve assuming the ideal gas law. The departure of the data points from the theoretical relationship at an excess gas pressure of 13.46 MPa is suggestive of minor gas entry at a pressure less than breakthrough pressure, although this was not confirmed in subsequent experiments.

図 1.2.1-4 MX80-1 の試験結果(経過時間と過剰ガス圧力の関係)



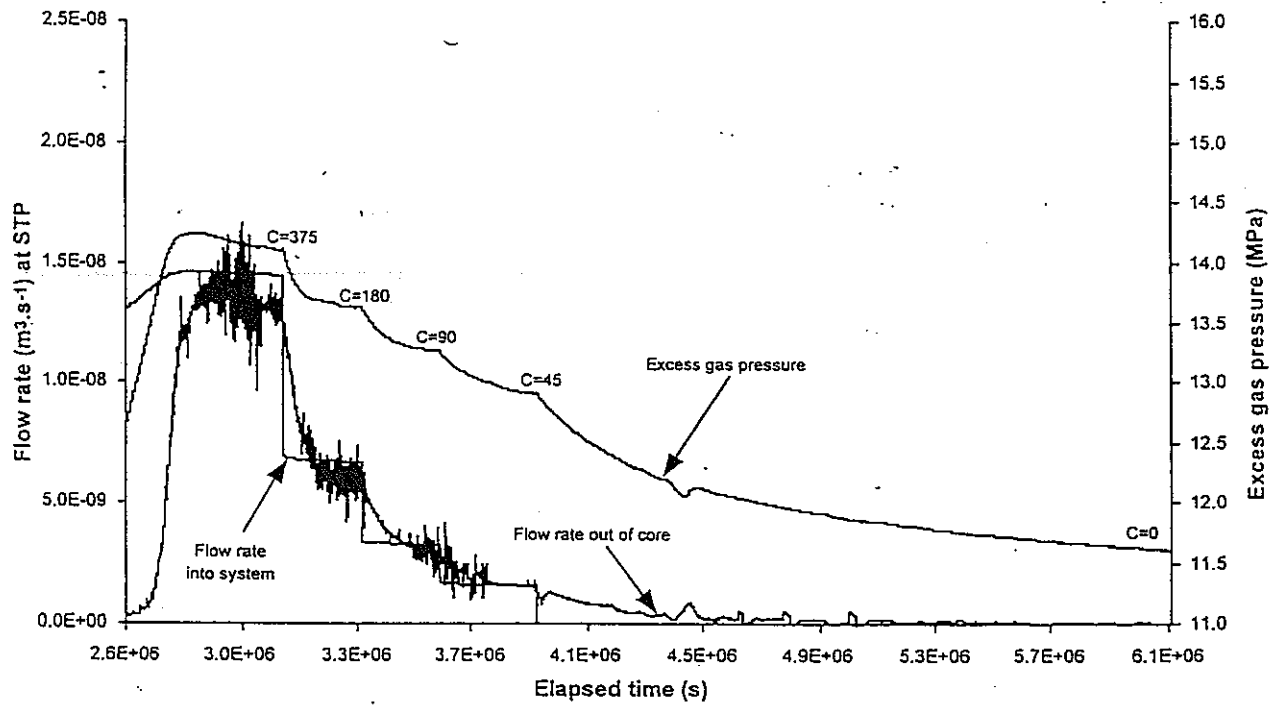
Experimental history Mx80-4A Part 1 (Block BGS 2) on HS-batch clay with an average dry density of 1.638 Mg.m^{-3} and a swelling pressure close to 15 MPa. Excess gas pressure ($p_{gr}-p_{wo}$) and volumetric flow rates (STP) into the testing system and out of the specimen plotted against elapsed time.

図 1.2.1-5 MX80-4A part1 の試験結果(経過時間と流速と過剰ガス圧力の関係)



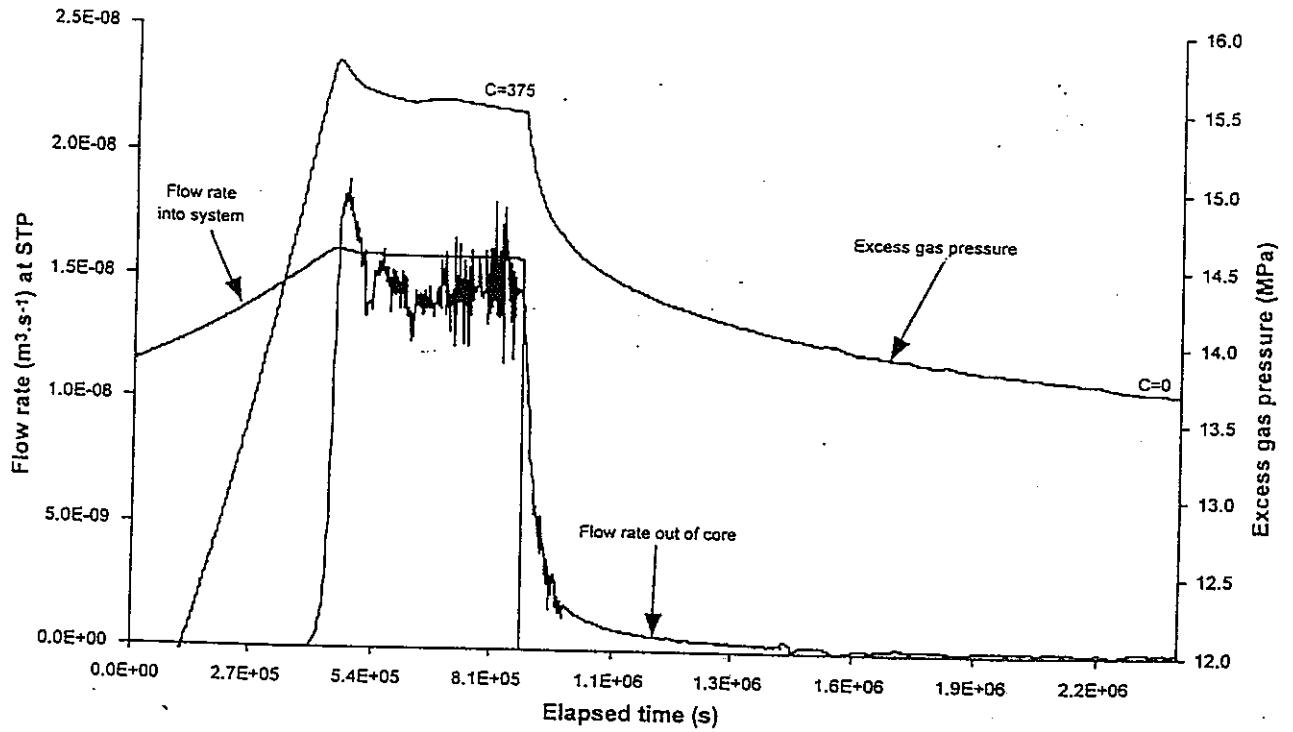
Experimental history Mx80-4A Part 1 (Block BGS2). Fit to initial compression curve assuming the ideal gas law. The departure of the data points from the theoretical relationship at an excess gas pressure of 15.19 MPa suggests that gas entry occurs at a pressure very close to the breakthrough pressure. This contrasts with the behaviour seen in Mx80-1.

図 1.2.1-6 MX80-4A part1 の試験結果(経過時間と過剰ガス圧力の関係)



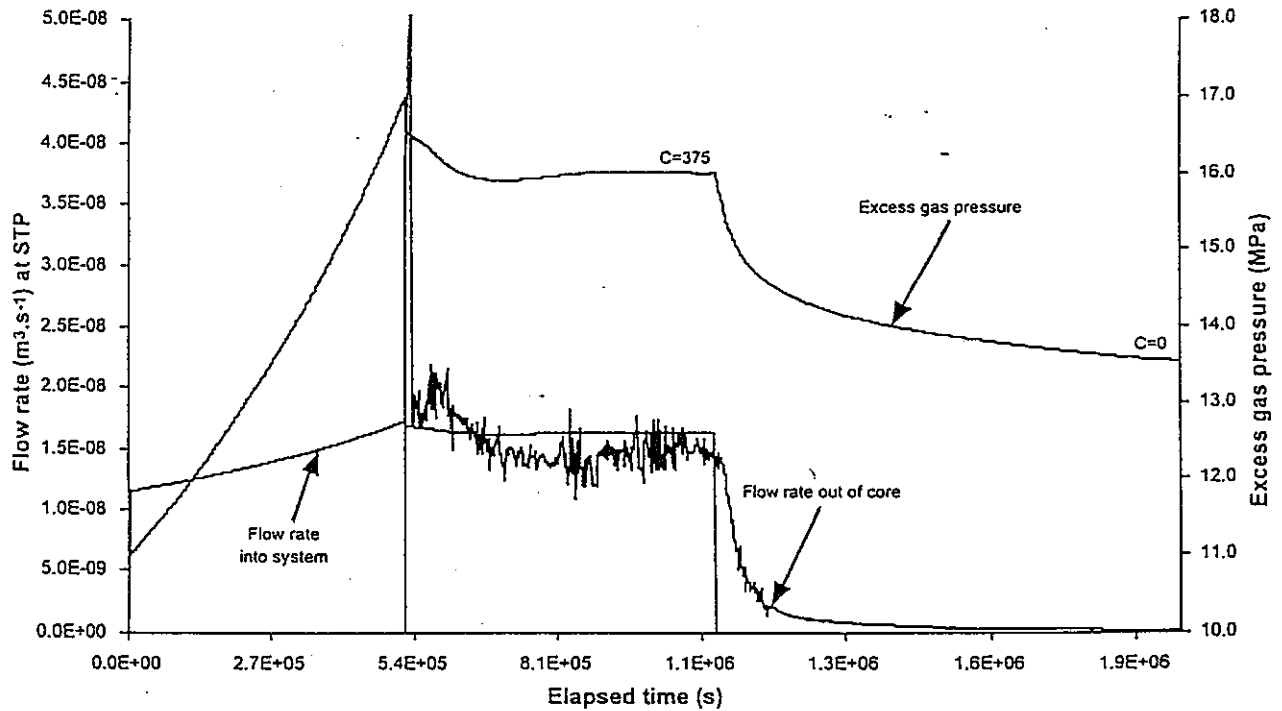
Experimental history Mx80-4A Part 2 (Block BGS 2) on HS-batch clay with an average dry density of 1.638 Mg.m^{-3} and a swelling pressure close to 15 MPa. Excess gas pressure ($p_g - p_{wo}$) and volumetric flow rates (STP) into the testing system and out of the specimen plotted against elapsed time.

図 1.2.1-7 MX80-4A part2 の試験結果(経過時間と流速と過剰ガス圧力の関係)



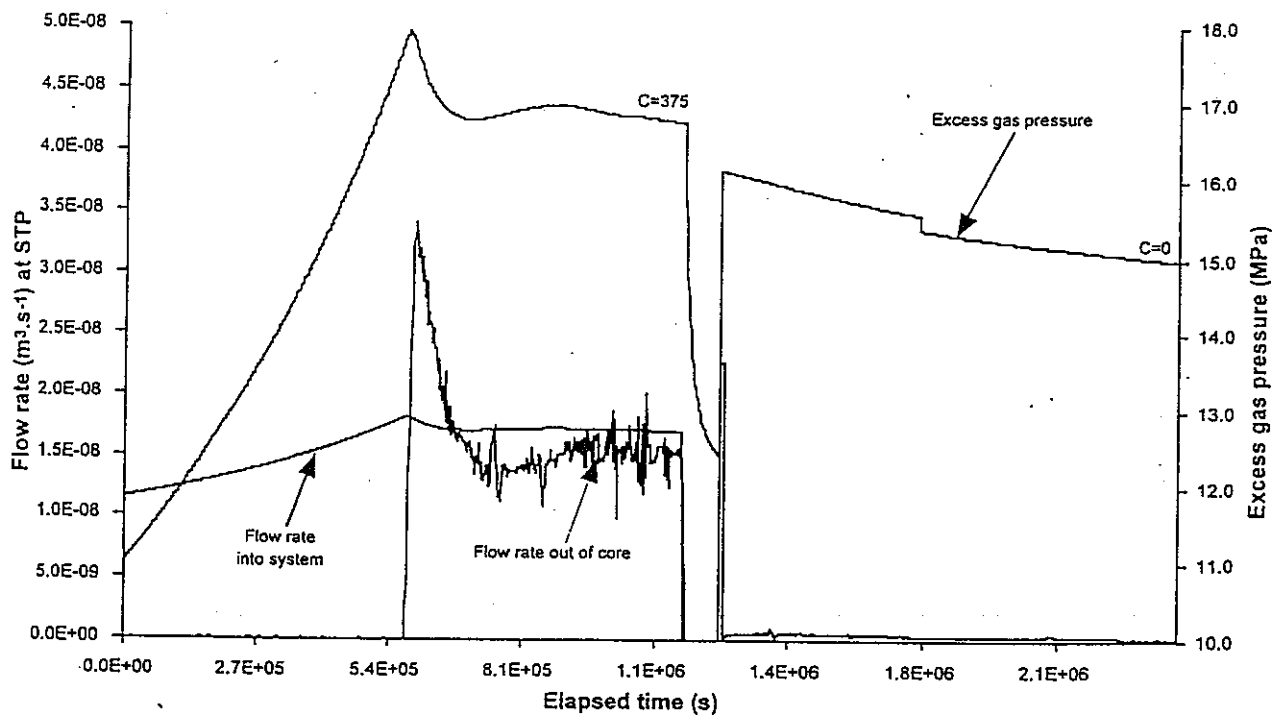
- Experimental history Mx80-4B (Block BGS 2) on HS-batch clay with an average dry density of 1.638 Mg.m⁻³. The confining pressure is 18 MPa. Excess gas pressure ($p_{g1}-p_{w0}$) and volumetric flow rates (STP) into the testing system and out of the specimen plotted against elapsed time.

図 1.2.1-8 MX80-4B の試験結果(経過時間と流速と過剰ガス圧力の関係)



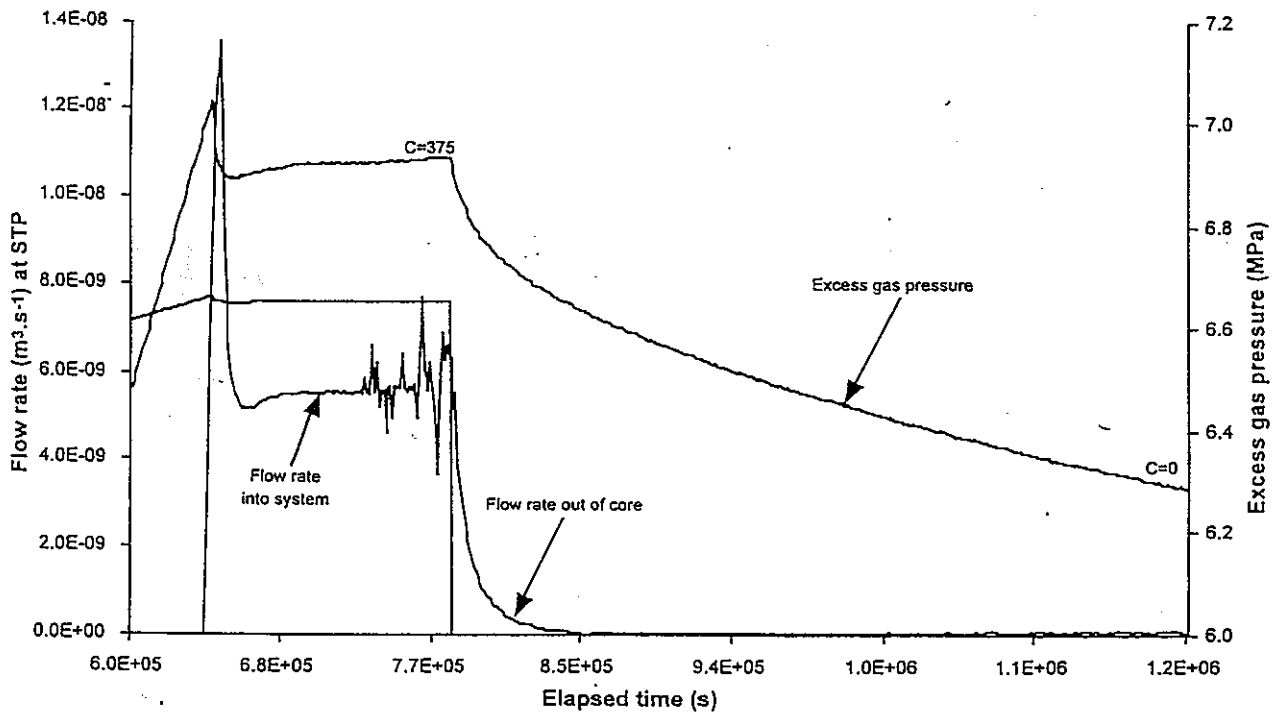
Experimental history Mx80-4C (Block BGS 2) on HS-batch clay with an average dry density of 1.638 Mg.m⁻³. The confining pressure is 20 MPa. Excess gas pressure ($p_{g1}-p_{w0}$) and volumetric flow rates (STP) into the testing system and out of the specimen plotted against elapsed time.

図 1.2.1-9 MX80-4C の試験結果(経過時間と流速と過剰ガス圧力の関係)



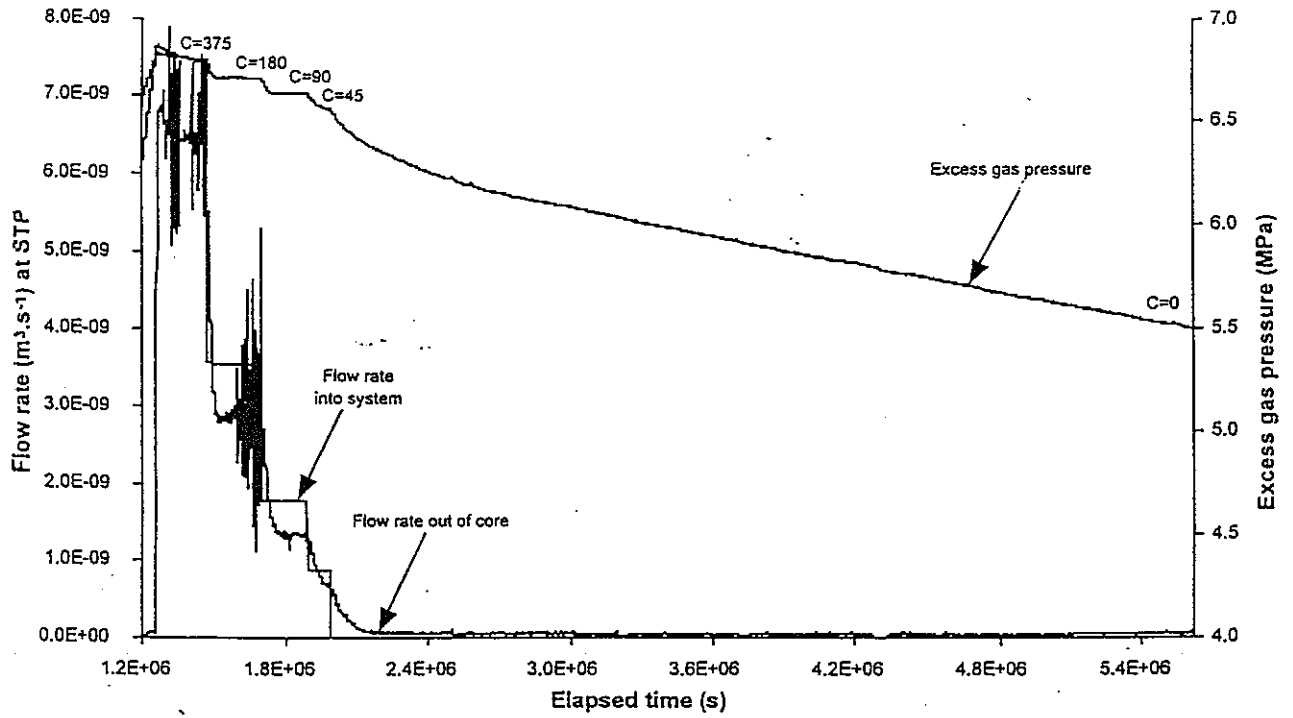
Experimental history Mx80-4D (Block BGS 2) on HS-batch clay with an average dry density of 1.638 Mg.m⁻³. The confining pressure is 22 MPa. Excess gas pressure ($p_{qi}-p_{wo}$) and volumetric flow rates (STP) into the testing system and out of the specimen plotted against elapsed time.

図 1.2.1-10 MX80-4D の試験結果(経過時間と流速と過剰ガス圧力の関係)



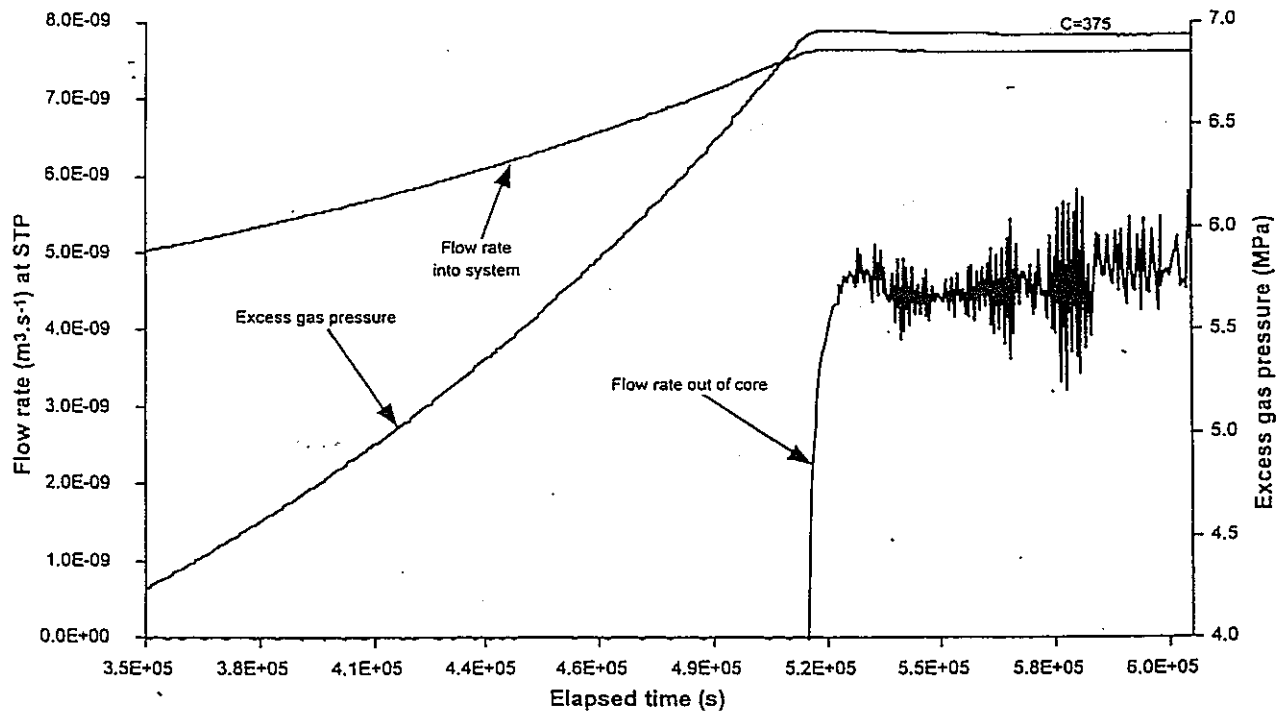
Experimental history Mx80-6 Part 1 (Block BGS 6) on MS-batch clay with an average dry density of 1.558 Mg.m⁻³. The swelling pressure is around 7 MPa. The specimen contained a block fabrication joint. Excess gas pressure ($p_{qi}-p_{wo}$) and volumetric flow rates (STP) into the testing system and out of the specimen plotted against elapsed time.

図 1.2.1-11 MX80-6 part1 の試験結果(経過時間と流速と過剰ガス圧力の関係)



Experimental history Mx80-6 Part 2 (Block BGS 6) on MS-batch clay with an average dry density of $1.558 \text{ Mg} \cdot \text{m}^{-3}$. The specimen contained a block fabrication joint. Excess gas pressure ($p_{\text{g}} - p_{\text{wo}}$) and volumetric flow rates (STP) into the testing system and out of the specimen plotted against elapsed time. There is no indication that the joint has any effect on the gas transport properties of the clay.

図 1.2.1-12 MX80-6 part2 の試験結果(経過時間と流速と過剰ガス圧力の関係)



Experimental history Mx80-7 Part 1 (Block BGS 6) on MS-batch clay with an average dry density of $1.558 \text{ Mg} \cdot \text{m}^{-3}$. The confining pressure is 8 MPa. Excess gas pressure ($p_{\text{g}} - p_{\text{wo}}$) and volumetric flow rates (STP) into the testing system and out of the specimen plotted against elapsed time.

図 1.2.1-13 MX80-7 part1 の試験結果(経過時間と流速と過剰ガス圧力の関係)

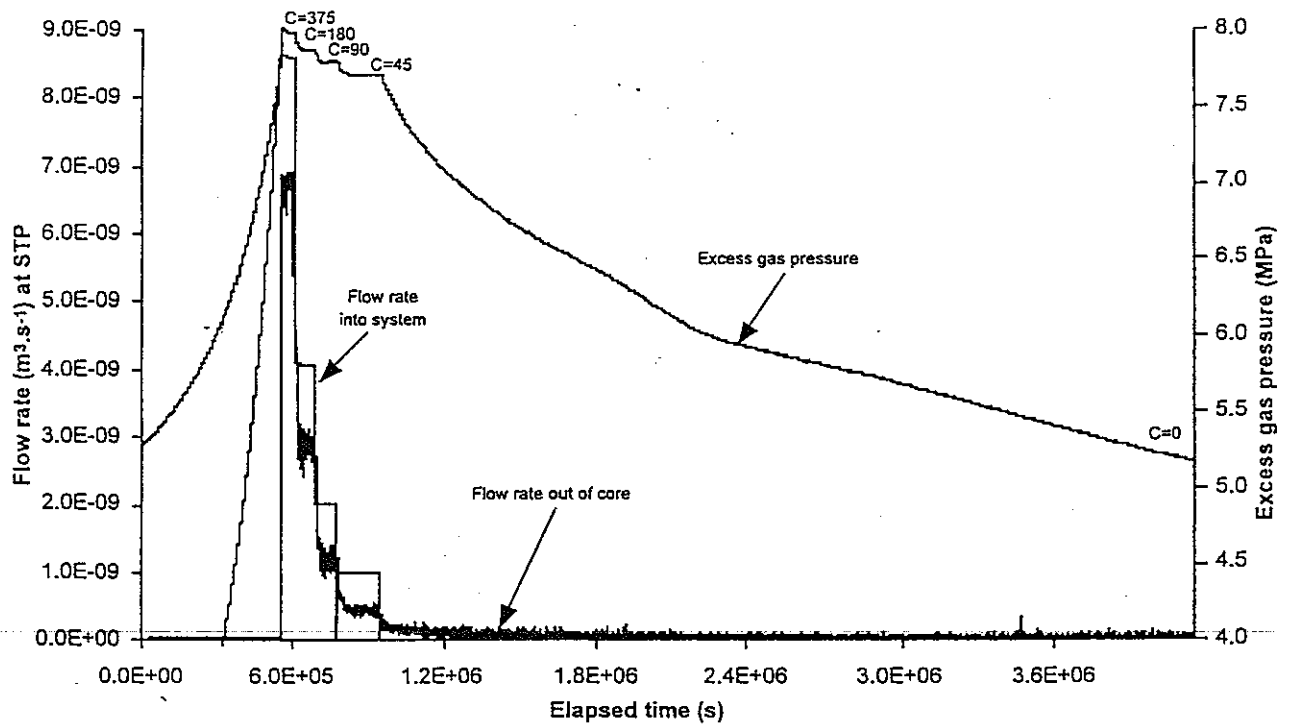


Figure 1.2.1-14 Experimental history Mx80-7 Part 2 (Block BGS 6) on MS-batch clay with an average dry density of 1.558 Mg.m⁻³. The confining pressure is 9 MPa. Excess gas pressure ($p_{gr}-p_{wo}$) and volumetric flow rates (STP) into the testing system and out of the specimen plotted against elapsed time.

図 1.2.1-14 MX80-7 part2 の試験結果(経過時間と流速と過剰ガス圧力の関係、その 1)

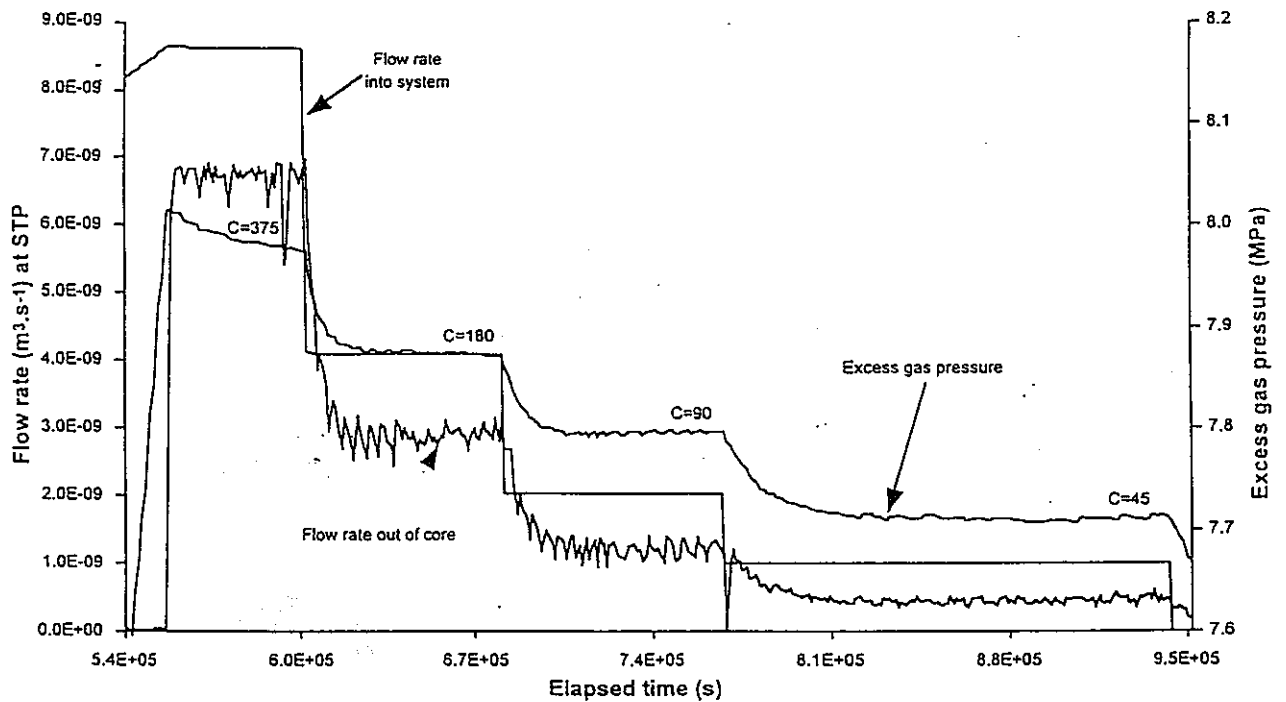


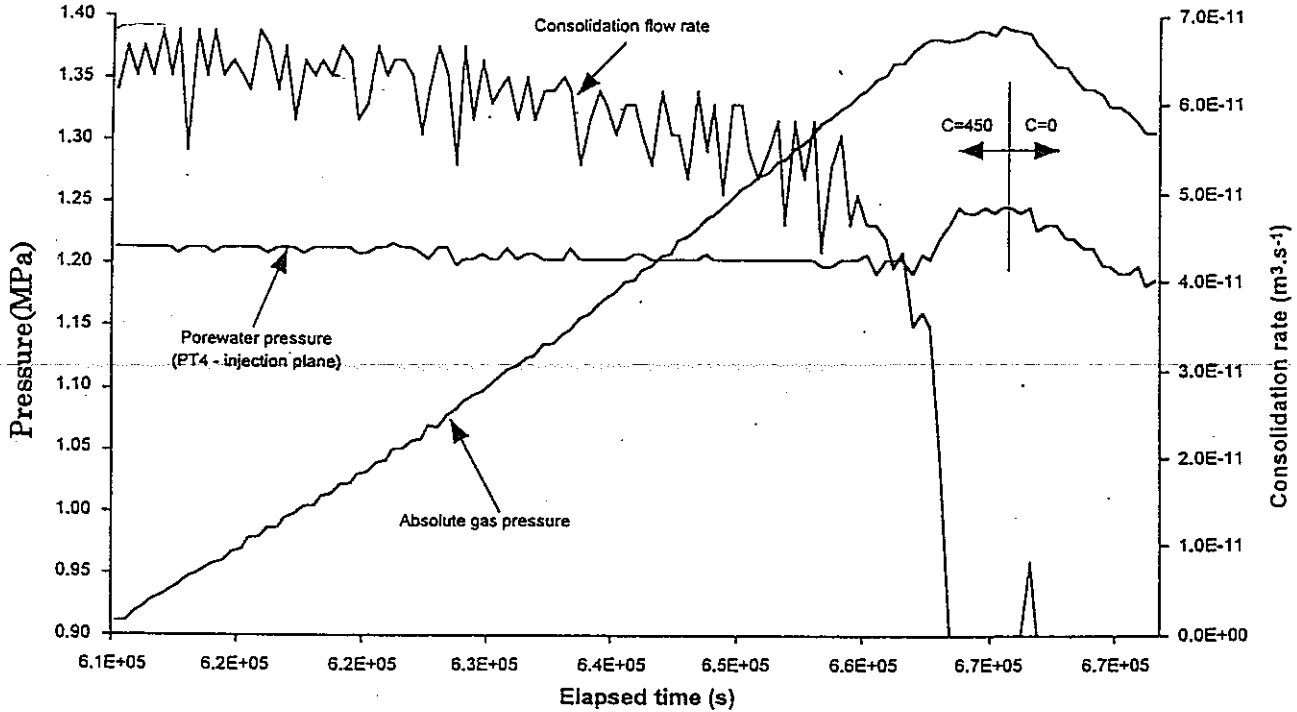
Figure 1.2.1-15 Experimental history Mx80-7 Part 2 (Block BGS 6). Response to the descending history of gas flow rates plotted on an enlarged scale.

図 1.2.1-15 MX80-7 part2 の試験結果(経過時間と流速と過剰ガス圧力の関係、その 2)

表 1.2.1-6 ASG 装置を用いたベントナイトペースト物性

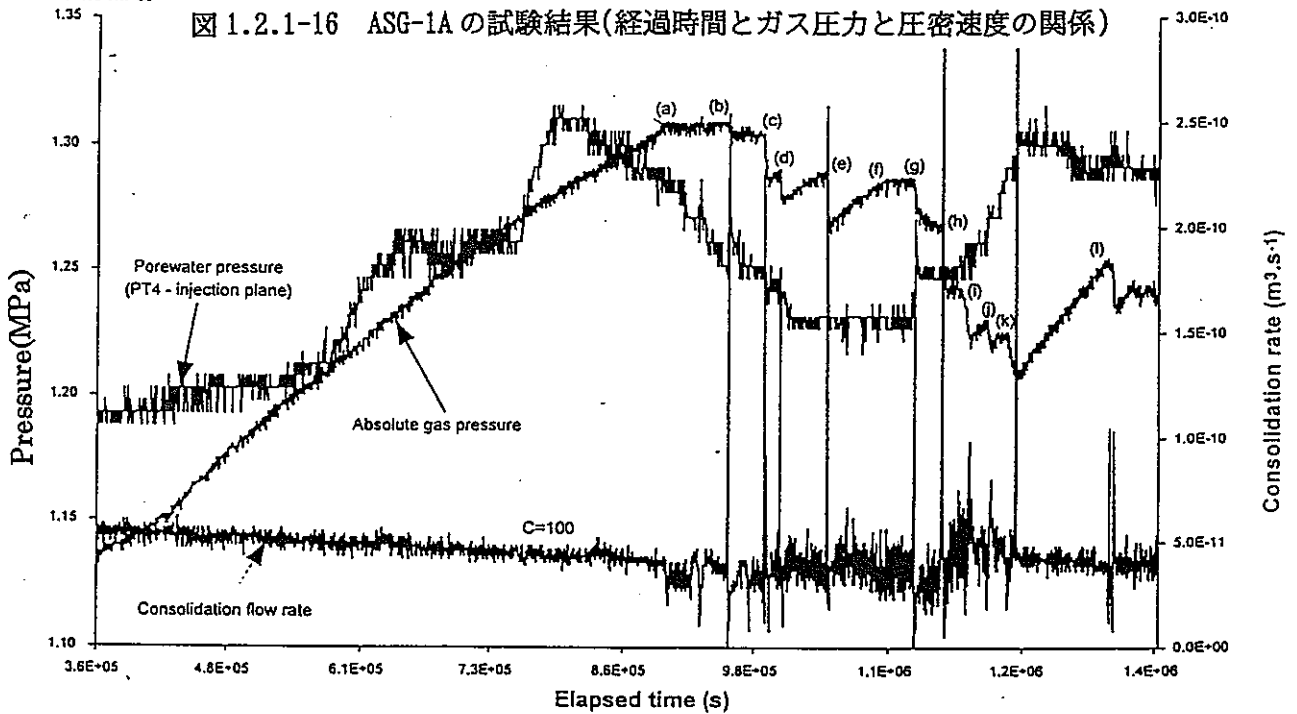
Total stress (MPa)	Water content (wt-%)	Bulk density (Mg.m ⁻³)	Dry density (Mg.m ⁻³)	Fractional porosity	Void ratio
0	197	1.274	0.429	0.845	5.454
0.8	194 (194)	1.278 (1.278)	0.435 (0.435)	0.843 (0.843)	5.361 (5.361)
1.5	163 (163)	1.320 (1.321)	0.501 (0.503)	0.819 (0.818)	4.525 (4.507)
2.7	124 (126)	1.400 (1.395)	0.626(0.618)	0.774 (0.777)	3.426 (3.480)

Physical properties of bentonite paste used in the ASG apparatus (based on an average specific gravity of 2.77). Numbers in parentheses represent equivalent values based on water expelled to the backpressure pump.



Experimental history ASG-1A on bentonite paste showing absolute gas pressure, p_{gl} , the consolidation rate monitored by the axial stress-control pump, and the pore pressure at one of the internal monitoring filters (PT4). The vertical stress on the bentonite is 1.5 MPa.

図 1.2.1-16 ASG-1A の試験結果(経過時間とガス圧力と圧密速度の関係)



Experimental history ASG-1B on bentonite paste showing absolute gas pressure, p_{gl} , the consolidation rate monitored by the axial stress-control pump, and the pore pressure at one of the internal monitoring filters. The vertical stress on the bentonite is 1.5 MPa.

図 1.2.1-17 ASG-1B の試験結果(経過時間とガス圧力と圧密速度の関係)

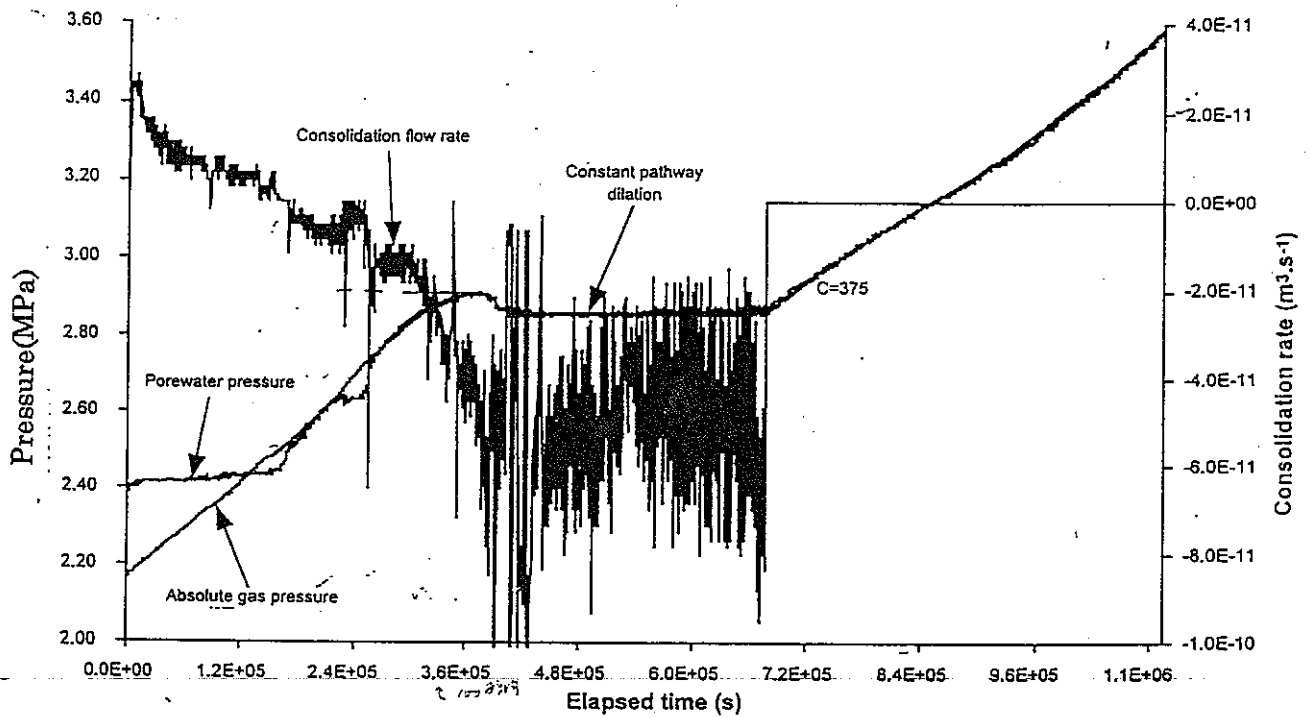


Fig. 1.2.1-18 - Experimental history ASG-2A on bentonite paste showing absolute gas pressure, p_{gi} , the consolidation rate monitored by the axial stress-control pump, and the pore pressure at one of the internal monitoring filters. The vertical stress on the bentonite is 2.7 MPa.

図 1.2.1-18 ASG-2A の試験結果(経過時間とガス圧力と圧密速度の関係)

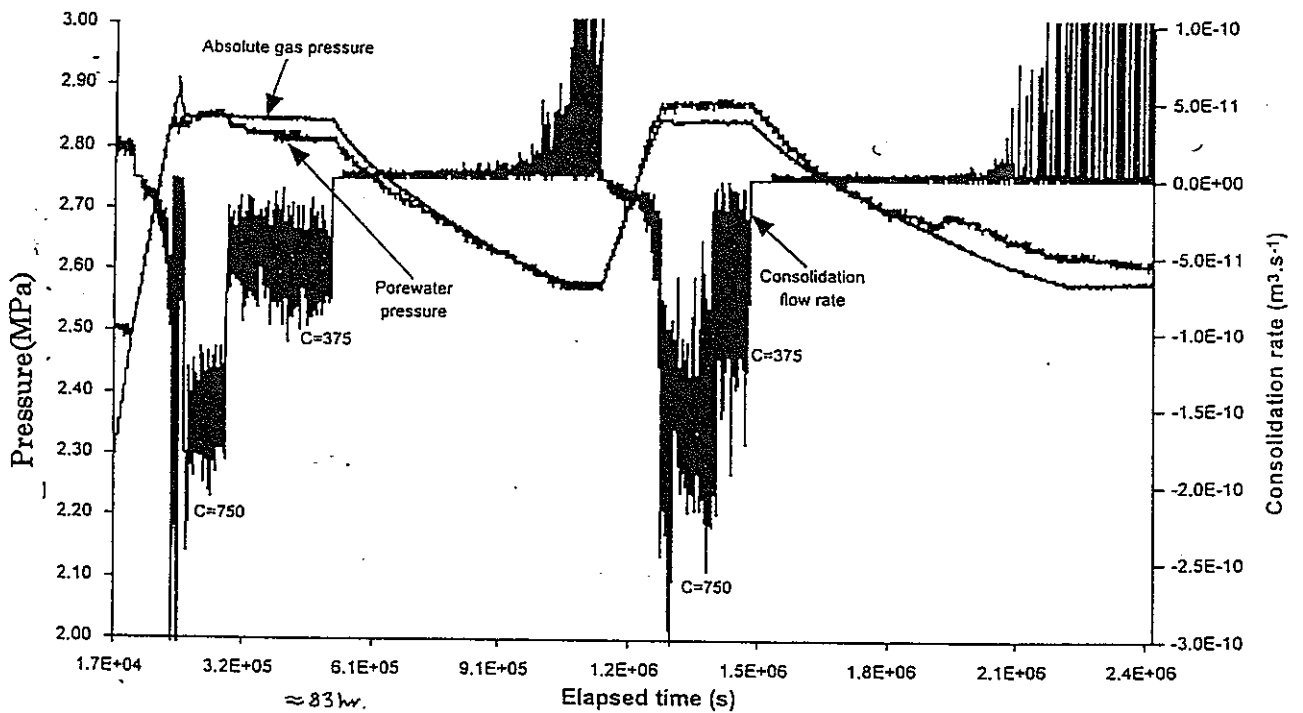


Fig. 1.2.1-19 - Experimental history ASG-2B on bentonite paste showing absolute gas pressure, p_{gi} , the consolidation rate monitored by the axial stress-control pump, and the pore pressure at one of the internal monitoring filters. The vertical stress on the bentonite is 2.7 MPa.

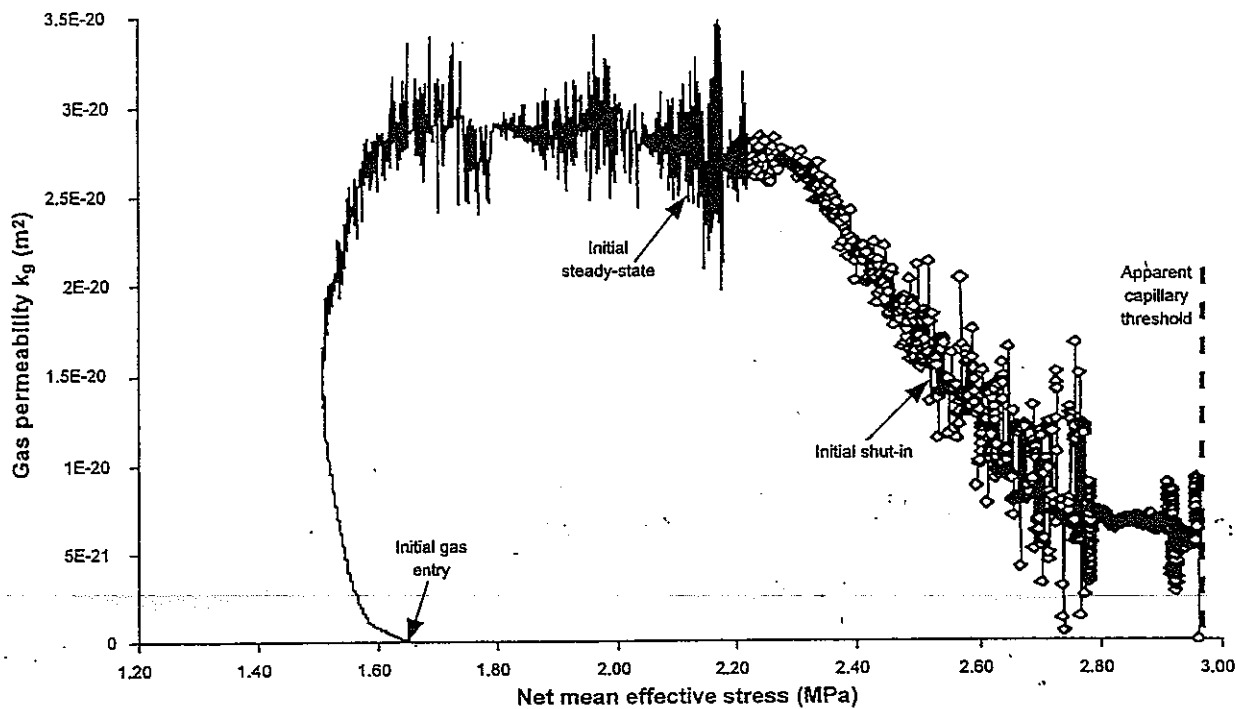
図 1.2.1-19 ASG-2B の試験結果(経過時間とガス圧力と圧密速度の関係)

表 1.2.1-7 BGS 装置を用いた測定におけるポンプ速度、ガス透過係数、みかけのマトリックスサクシオン

Test	Pumping rate, C		Gas permeability (m ²) / 10 ²⁰		Apparent matrix suction (MPa)
	(μL.hr ⁻¹)	(m ³ .s ⁻¹) / 10 ¹²	From flow in	From flow out	
Mx80-1	375	104.2	2.90	2.70	11.8
	0	0	-	-	11.8
Mx80-4A	375	104.2	1.82	1.68	12.5
	0	0	-	-	12.5
	375	104.2	1.88	1.65	11.0
	180	50.0	1.05	0.93	11.0
	90	25.0	0.60	0.50	11.0
	45	12.5	0.36	0.33	11.0
Mx80-4B	0	0	-	-	11.0
	375	104.2	2.49	2.20	13.2
Mx80-4C	0	0	-	-	13.2
	375	104.2	1.92	2.00	13.0
Mx80-4D	0	0	-	-	13.0
	375	104.2	2.11	1.70	14.1
Mx80-6†	0	0	-	-	14.1
	375	104.2	2.20	1.60	≈ 4.0
	0	0	-	-	≈ 4.0
	375	104.2	2.29	1.97	≈ 4.0
	180	50.0	1.13	0.90	≈ 4.0
	90	25.0	0.58	0.45	≈ 4.0
Mx80-7	45	12.5	0.30	0.23	≈ 4.0
	0	0	-	-	≈ 4.0
	375	104.2	-	-	-
	375	104.2	1.73	-	≈ 4.0
	375	104.2	1.70	1.35	≈ 4.0
	180	50.0	0.83	0.60	≈ 4.0
Mx80-7	90	25.0	0.42	0.25	≈ 4.0
	45	12.5	0.22	0.10	≈ 4.0
	0	0	-	-	≈ 4.0
	0	0	-	-	≈ 4.0

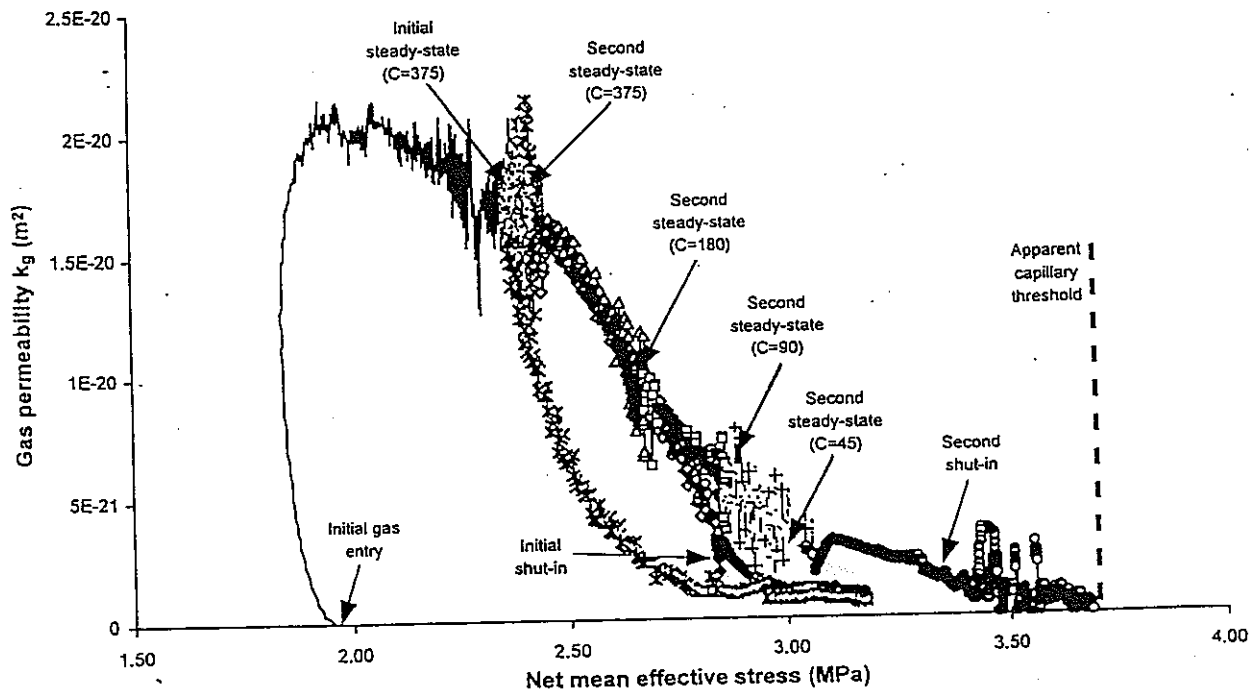
† signifies that the specimen contained a fabrication joint.

Gas permeabilities and apparent capillary pressures from the axial flow tests. Two values of permeability are quoted, the first based on the flow rate of gas into the specimen and the second on the flow rate out of the specimen. All values are somewhat modal-dependent.



Gas permeability plotted against net mean effective stress for MX80-1, based on the experimental history. The plot is indicative of pathway dilatancy after the breakthrough event and partial pathway closure during periods of declining gas pressure.

図 1.2.1-20 MX80-1 の試験結果(正味平均有効応力とガス透過係数)



Gas permeability plotted against net mean effective stress for MX80-4A, based on the experimental histories. The plot is indicative of pathway dilatancy after the breakthrough event and partial pathway closure during periods of declining gas pressure. The shut-in transients are each characterised by a substantial fall in permeability.

図 1.2.1-21 MX80-4A の試験結果(正味平均有効応力とガス透過係数)

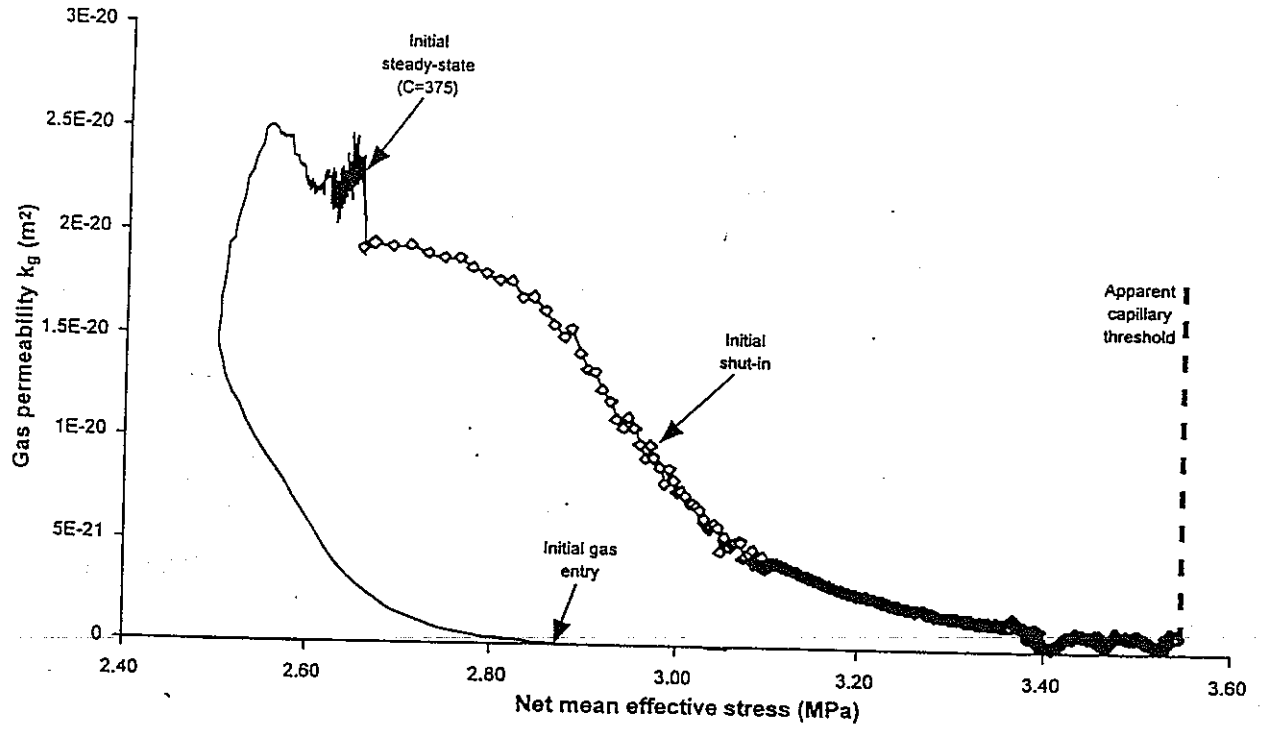


図 1.2.1-22 MX80-4B の試験結果(正味平均有効応力とガス透過係数)

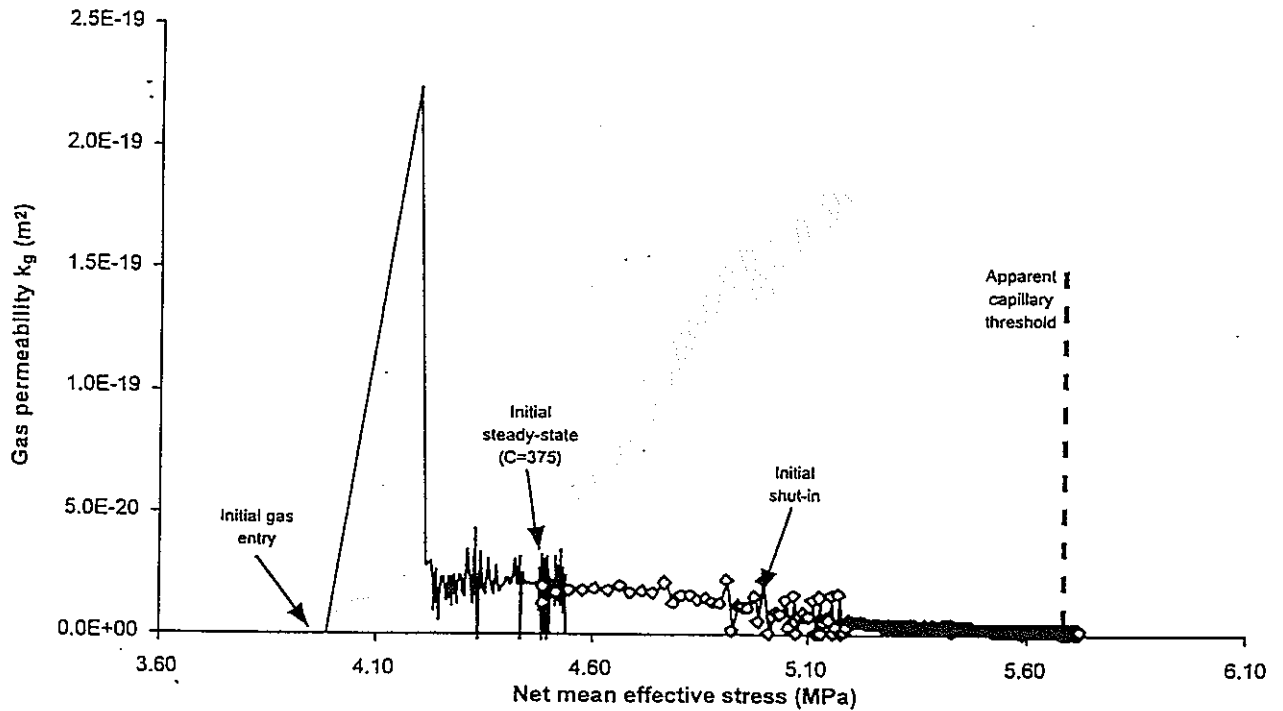
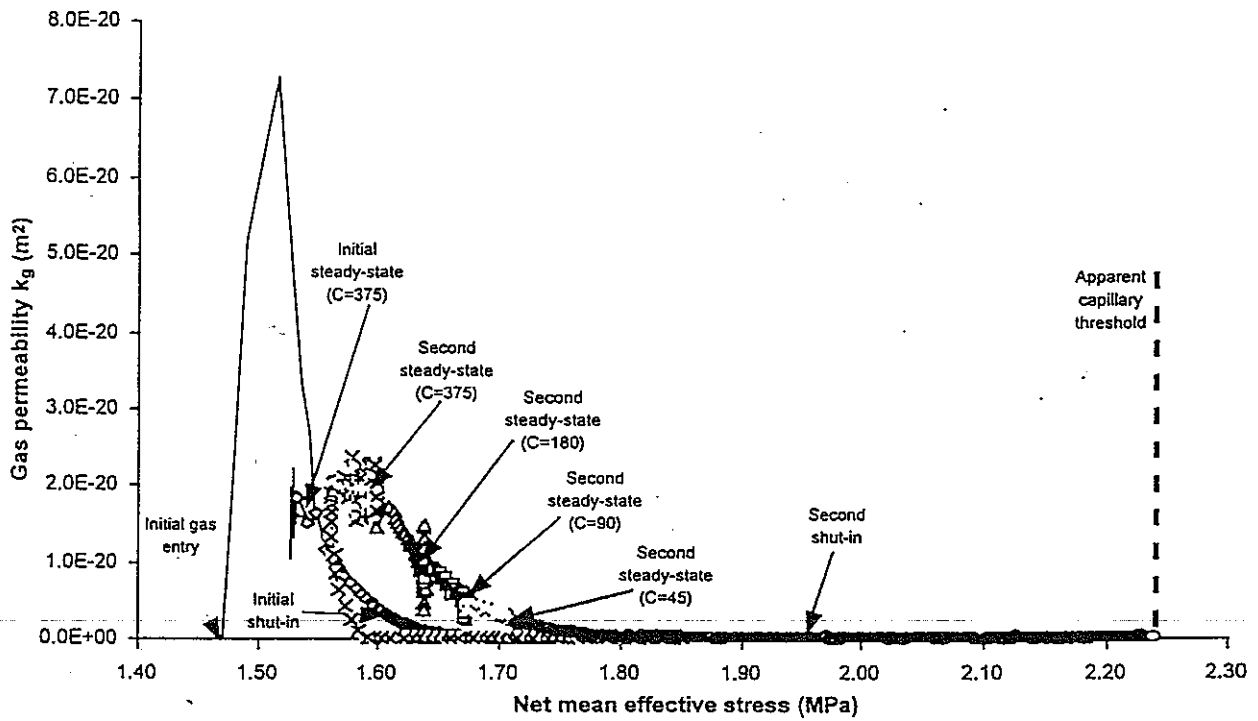
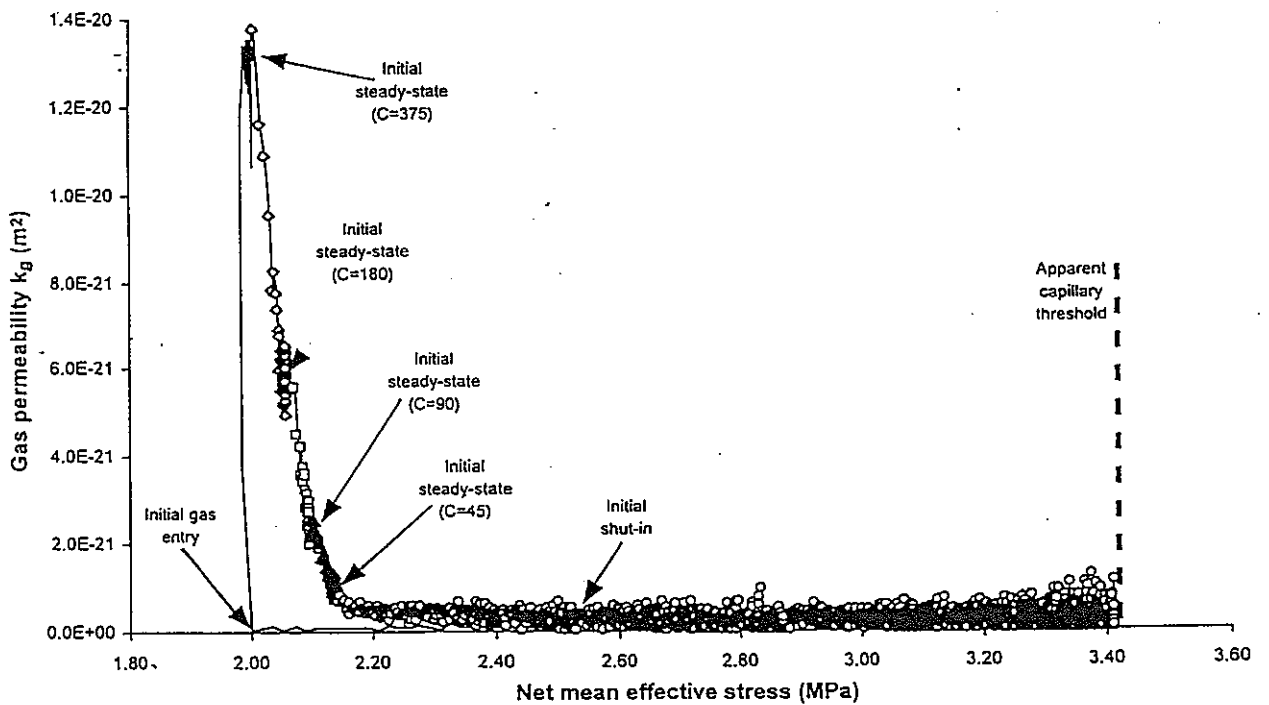


図 1.2.1-23 MX80-4C の試験結果(正味平均有効応力とガス透過係数)



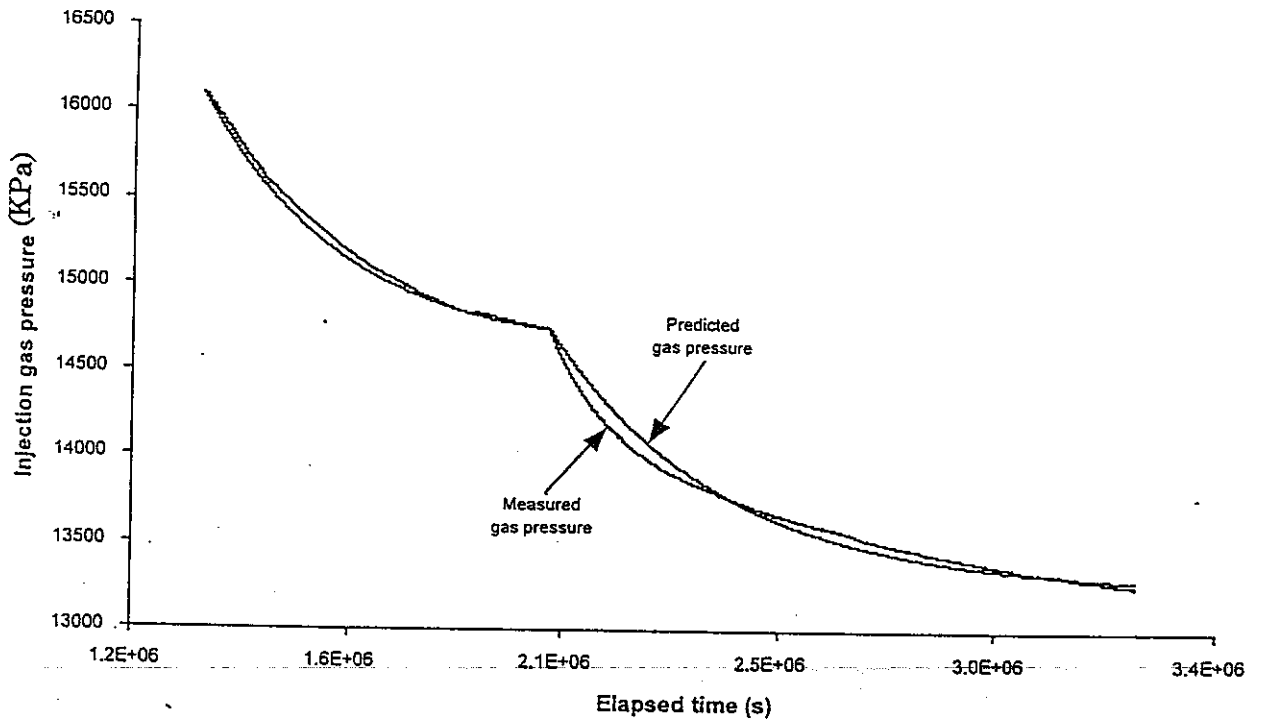
Gas permeability plotted against net mean effective stress for Mx80-6, based on the experimental histories
The specimen contained a fabrication joint.

図 1.2.1-24 MX80-6 の試験結果(正味平均有効応力とガス透過係数)



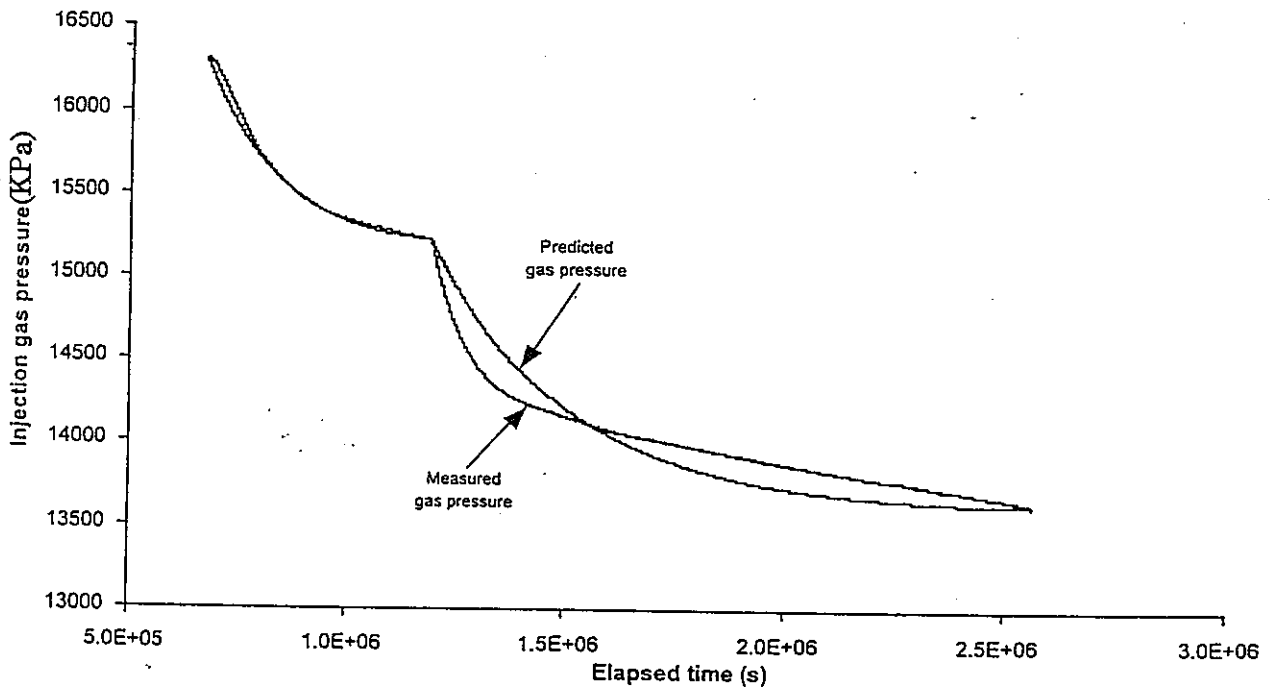
Gas permeability plotted against net mean effective stress for Mx80-7, based on the experimental history

図 1.2.1-25 MX80-7 の試験結果(正味平均有効応力とガス透過係数)



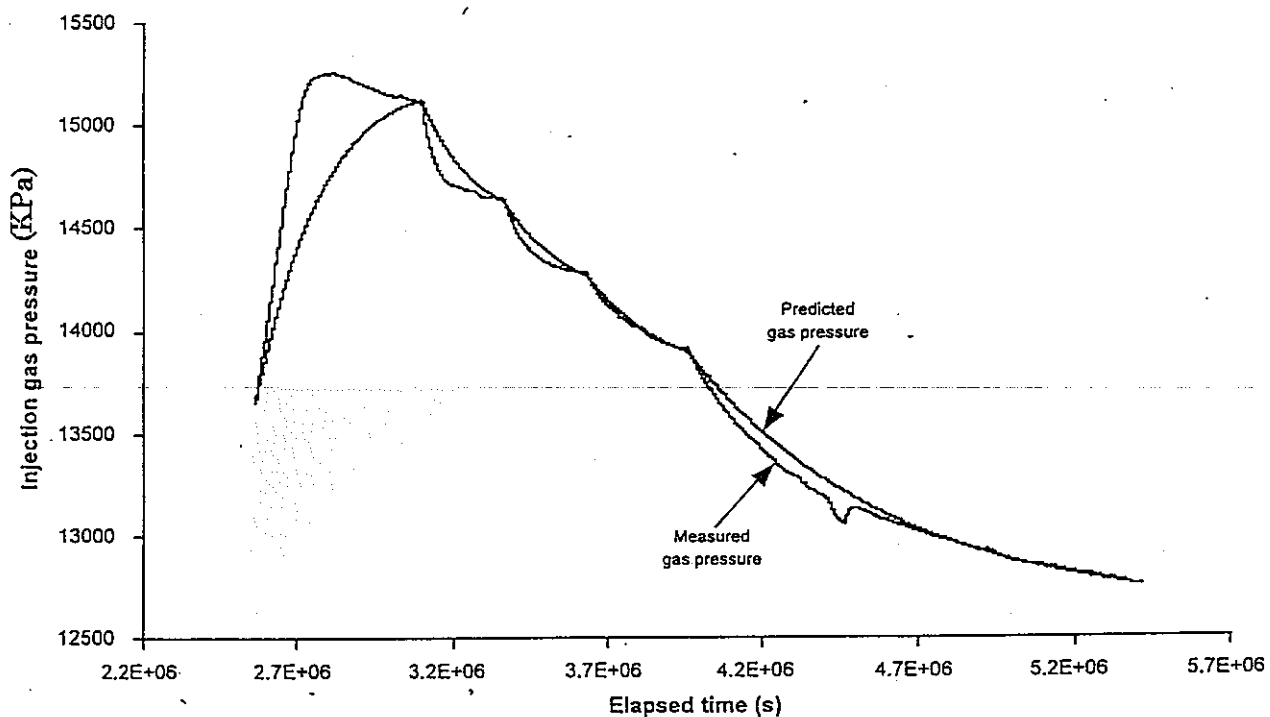
Provisional fit to the post-breakthrough stages of experimental history Mx80-1. The model clearly underestimates the change in slope when the flow rate was set to zero.

図 1.2.1-26 MX80-1 の試験結果(ブレイクスルー後の経過時間と注入ガス圧力の関係)



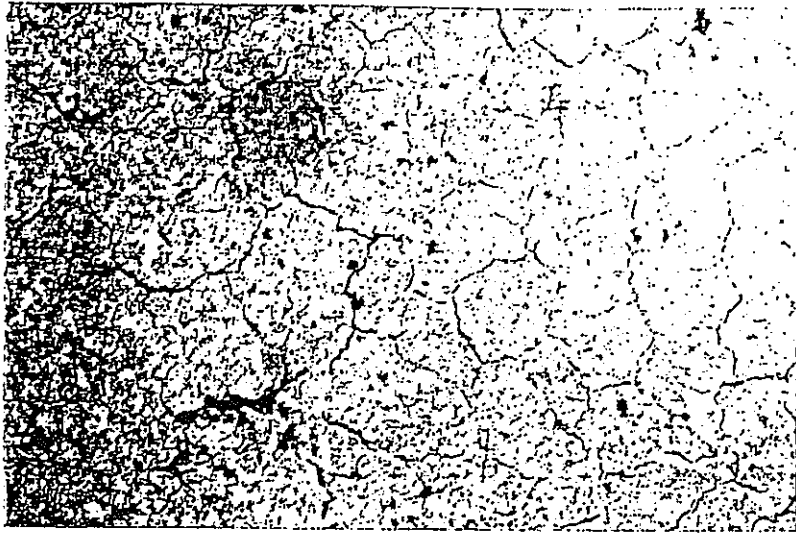
Provisional fit to the post-breakthrough stages of experimental history Mx80-4A. This model gives a poor fit to the two negative transients.

図 1.2.1-27 MX80-4A の試験結果(ブレイクスルー後の経過時間と注入ガス圧力の関係)



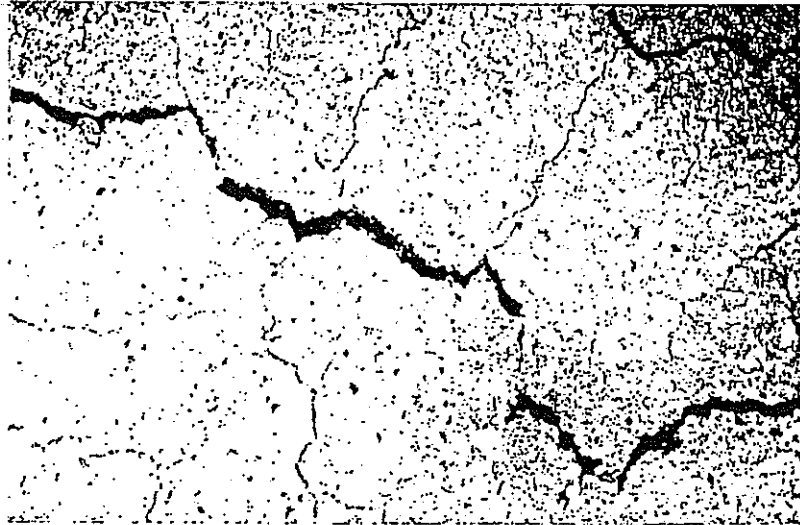
Provisional fit to the post-breakthrough stages of experimental history Mx80-4B. Although the overall history is reasonably represented, the model underestimates the changes in slope when the flow rate is decreased.

図 1.2.1-28 MX80-4B の試験結果(ブレイクスルー後の経過時間と注入ガス圧力の関係)



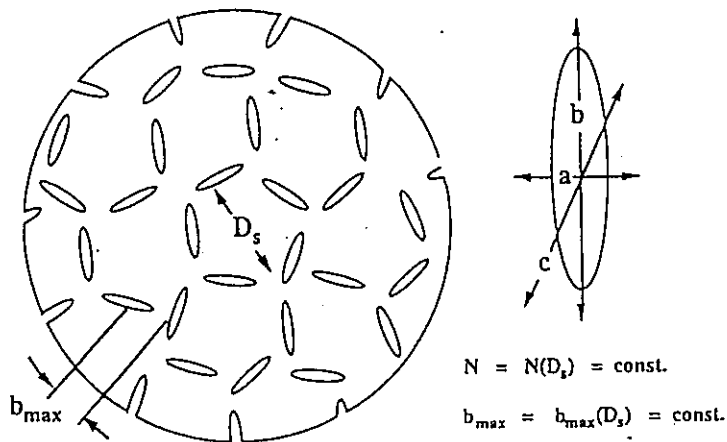
Low magnification view of the upstream face of specimen Mx80-1 after testing and oven drying at 105 °C for 24 hours, showing a typical polygonal arrangement of extensile shrinkage cracks. The characteristic repeat spacing is around 6 mm. The photograph was obtained using a reflected light microscope (x3.5).

図 1.2.1-29 MX80-1 の試験後 105°C24 時間経過後の上端面(典型的な乾燥収縮クラック)



Upstream face of specimen Mx80-1 at a higher magnification. The shrinkage cracks are dilated by extreme desiccation of the bentonite and have typical apertures in the range 0.05 to 0.5 mm (x6.3).

図 1.2.1-30 MX80-1 の試験後 105°C24 時間経過後の上端面(拡大図:0.05~0.5mm 亀裂幅)



Schematic cross-section of a test specimen of bentonite during a controlled flow rate experiment, illustrating a conceptual model of the gas migration process.

図 1.2.1-31 プレークスルー後の試料概念

1.2.2 GAMBIT Club のガス移行研究(W.R.Rodwell ら)

(1) はじめに

この研究の目的は、飽和した圧縮ベントナイト中のガス移動に関するコンピュータモデルの開発手法 (GAMBIT Club プログラム Phase I) の説明である。このモデルは BGS:Horseman & Harrington(以後 HH とする)(1997)の実験結果をベースにしている。

粘土試料に対して、膨潤圧以上のガス圧が作用する時マイクロクラッキングを経てガス侵入が起きる現象について、線形弾性フラクチャーメカニズムに基づくガス通路伸張モデル(gas pathway propagation model)を開発している。

post-breakthrough では透過係数が減少しているが、その原因はフラクチャー間隙幅の弾性的減少によるものであるとしている。

ガス圧が初期フラクチャーのオープニング圧以下まで低下した場合、クラックは閉じ、透過係数は 0 になることが簡単な弾性挙動理論で説明されている。

しかし、粘土の場合はこの挙動理論が適用できない理由は、ガス流れがある圧力以下になっても継続しているからであり、このことはクラック近傍の応力場がクラックを閉じる傾向を示しつつ、粘弾性挙動を考慮した応力と時間の変化及びヒステリシス理論を拡張して適用した理論の必要性を説明している。

この現象については、塑性特性によく一致するし、実験結果に基づいてフィッティングすることにより定量的評価も可能であるとしている。

しかし、まだ未確定要素は存在し、ソフト開発には新たな調査の必要があるとしている。既に通路が存在し、そこでガス移動の発達が始まることとした考え方は、圧縮ベントナイトには本来適用できず、むしろガス圧が層間水フィルム(interlayer water film)を破壊し、その個所でガス移動が発生すると考えられるとしている。これは弾性材料を対象とした Griffith クラック伸張モデルと同様の現象としている。従って、モデル開発は線形弾性フラクチャーメカニズム(LEFM)からスタートするものの、その中にガス通路形成過程の組み込みを実施している。しかし、実験結果とは完全には一致しないので、実験挙動を精度よく示すような手法も提案している。

(i) GAMBIT Club ワークショップの概要

GAMBIT Club ワークショップでは、HHによって実験されたデータをシミュレートするばかりでなく、最近動力炉・核燃料開発事業団棚井ら(Tanai ら、1997)が行なったよ

うな考察や Pusch ら(1983 他)によって考えられた数多くのモデル解釈についても、対象としている。

乾燥密度 1.9Mg/m^3 を超える飽和圧縮ベントナイトの場合は、内部層間に 3 層の水層をもち、この水分が大部分の水量を占めていることは同意されているところであるとしている。

このように、大部分の水が内部層に存在するので、ガスが侵入するためには、まずこの薄いフィルムを破壊する必要があるとしている。

しかし、下記のようにいくつかの問題もあるとしている。

- ① 多数の通路が形成される場合、それは 1 つのネットワークなのかまたは、小数通路の集まりであるのか？
- ② 通路形成は、最初の位置で発生するのだろうか？
- ③ 粘土粒子板間でのガス通路のダイラタンシー（広がり）はどのように制御されるのか？
- ④ ガス通路の伸張と時間の関係はどうなるのか？

定常状態では通路を何がコントロールしているのか、また、境界条件と定常状態がどのように釣り合っているのかという疑問は残るとしている。

ブレークスルー後の非定常負圧挙動では、ガス圧が減少するとともに透過係数も小さくなるが、これは通路の収縮なのかあるいは閉塞物体が存在するのか不明であるとしている。

ブレークスルー圧と膨潤圧の関係は親密であることが BGS の実験からわかるものの、不明な点が多く、一定応力と一定歪では異なった挙動を示すとしている。

(2) 実験データの検討

ここでは、HHによる実験データを用いたモデル開発のための仮定を述べている。

(i) 定常状態でのガス透過係数に相当する通路

HHによれば、圧縮ベントナイト中へのガス侵入により形成されるガス通路は、粘土試料中に広範囲に存在するフラクチャーが元になって引き起こされると仮定されている。

以前は、2～3の通路のみが粘土中に形成されるとしていた。実験データとの比較でこれらの説のどちらが本当なのかを検討する必要があるとしている。

HHによれば、ガス透過係数は $0.1 \times 10^{-10} \text{ m}^2$ と $2.9 \times 10^{-10} \text{ m}^2$ であるが、この値は実験中の流速やサイクルに依存している。最も速い流速でブレイクスルーさせる場合、 $1.3 \times 10^{-10} \text{ m}^2 \sim 2.9 \times 10^{-10} \text{ m}^2$ となり、ベントナイト中の定常ガス透過係数は $1 \times 10^{-10} \text{ m}^2$ であると評価している。

以下に、ブレイクスルー後の通路について検討した結果を述べている。

試料の直径は 4.9 cm なので断面積は $1.89 \times 10^{-3} \text{ m}^2$ である。この断面積に少なくとも 1 つの通路は形成されているので、試料を通る通路密度（毛管密度） n は 530 m^{-1} であるとしている。 n と r （毛管半径）をパラメータとした可能な組合せは表 1.2.2-1 によるとしている。毛管密度が 530 m^{-1} のとき 1 本の通路を意味し、毛管密度 10^4 m^{-1} では 2,000 通路に等しいとしている。毛管密度から判断して、通路が 2～3 本のみとは考えにくいとしている。

また、通路の大きさは粘土粒子サイズと同程度の大きさとなることが考えられることから、円筒形通路が形成されているとは思われずとしている。

もし、ガス通路が粘土間の拡張によって形成されるとすれば、毛管通路が存在する可能性は、通路が開くための内部ガス圧が存在するかどうかを調べることによりわかるとしている。これについては、以下のように検討している。

まず、半径 R の時の応力 σ 条件下で、初期平衡が維持されると仮定する。

HHによれば、圧縮ベントナイト中の内部堆積層スペース（外部水を含む）は 4 nm であるとしている。だからもし、毛管通路の半径を 2 nm であると仮定し、毛管半径の 2～3 オーダー大きい拡張が発生すると仮定すると、ヤング率を 200MPa、ポアソン比を 0.45 (Daeman & Ran, 1996) として、拘束圧を超える過剰内圧は、 $1.4 \times 10^4 \sim 1.4 \times 10^5 \text{ MPa}$ であり、これは明らかに大きすぎるし、実験で適用させた圧力をはるかに超えているとしている。実験では、小さい半径の場合の毛管伸張に要求される圧力は、 $10^3 \sim 10^4 \text{ MPa}$

であるとしている。もちろんヤング率やポアソン比のような弾性定数が微小スケールでも計算に適用できるかどうかは疑問があり、特に局部的に弱点がある疑問は残るとしている。この理由は、ベントナイト粘土が塑性及び弾性挙動を呈しているからである。にもかかわらず、結果は次のように仮定される。

即ち、もし通路形成が発生するならば、2～3の円筒形毛管が形成されるというよりむしろ通路の幾可学的配置が関係すると考えられるとしている。

HHによると、これはマイクロフラクチャーの伸張配列であり、また多角形配列の典型的な多くの収縮クラックを形成している可能性を提案している。

HHは、だ円断面を仮定し、透過係数を決定づけるマイクロフラクチャーの配列の大きさと密度が円筒形毛管の考え方に似ているとしている。1/2の幅:c, 1/2の間隙:bのだ円フラクチャーの密度 n (m^{-1})の配列について透過係数とともに示されている。

フラクチャー密度はフラクチャーの幾可学的配列に依存するが、ここでは六角形配列が仮定されている。表1.2.2-2は透過係数に合った幅とフラクチャー配列、フラクチャー間隙幅を示している。

この表には、フラクチャー密度及びガスで充填した間隙率(gas filled porosity)もまた示されている。この範囲以外のフラクチャー幅はサンプルサイズ及び粘土粒子板サイズからみて不可能であるとしている。

たとえば1.7mmのmajor semi-axis(だ円の長半軸)長さは、HHによって示された乾燥した試料のマイクロフラクチャーの多角形フラクチャーパターンにみられる寸法と一致するとしている。また、無限媒体内での独立だ円フラクチャーが内部流体の圧力に依存することを示している。

このような弾性定数及び関係式を用いることによって、クラック間隙を維持するために要求される内部圧力は $10^3 \sim 10^6 Pa$ になるとしている。

この状況下では、フラクチャーがはっきりと独立したものか、あるいは内部六角形フラクチャー配列がサンプル軸に直角方向に存在するかは不明であるが、もしフラクチャーが内部で連結していないと仮定するならば、この説による結果のモデル適用が可能であるとしている。

単一だ円フラクチャーが形成される可能性については、表1.2.2-3(1)に示している。この表は、だ円フラクチャーの形状で弾性材料内クラックがオープンするための過剰ガス圧(これは拘束圧以上である)について示している。例えば、これは $10 \mu m$ 幅のフ

ラクチャーのみ開けておくために必要な圧力であるとしている。

このように単一だ円フラクチャー説によって計算された透過係数にみ合う過剰ガス圧については、妥当な値のように思われるとしている。

まとめとして、定常状態でのガス透過係数にみ合う通路特性については、多くの通路の存在及び特性を含めた広い視野を考える必要があるとしている。

応力の観点からは、初期に円筒形毛管が形成しているとは考えられず、平行あるいはだ円形クラックのような幾可学的配置が考えられるとしている。そのような通路の数は幅広いレンジをもつため、透過係数及び圧力に直接結びつけて考えることはできないとしている。

(ii) ブレークスルーと流動ガスの圧力

HH及びその他の研究者によれば、ガスがベントナイトを通過するためには、ガス圧が粘土試料の膨潤圧と平衡になっている外部水圧を超える必要があるとしている。

もし、粘土試料が平衡状態にあるならば、拘束圧=膨潤圧+背圧としている。その結果、ガスエントリー/ブレークスルー圧も拘束圧=膨潤圧+背圧になるとしている。

もし、注入圧が拘束圧を超えれば試料を囲むシースを破壊する可能性があるので、実験上はかなりむづかしくなるとしている。

3軸試験では、拘束圧として8, 9, 16MPaを作用させ、ブレークスルー圧は拘束圧の±0.2MPaであったとしている。さらに、ガスが再度同じサンプルに注入された時にガスが流れ出す圧力は最初の圧力より低いとし、ガスエントリーは拘束圧以下であったとしている。この時、拘束圧を上げればガスエントリー圧は上昇するが、拘束圧と同じ上昇率ではなく拘束圧よりかなり低いとしている。

18, 20, 22MPaの拘束圧条件下では、ブレークスルー圧は16.4, 18.0, 18.9MPaであり、その他の3つの実験では、シースが破壊したが、その時はガス圧=拘束圧及びガス圧=拘束圧+2MPaであったとしている。

HHは、銅シースの場合について注入ガス圧が拘束圧より2MPa以下までなら測定可能としている。従ってブレークスルー圧と拘束圧の差が2MPa以下なら測定可能であることを示している。なお、最後の2試験はTeflonを用いて小さい差圧で実施している。

もし、ガスが粘土試料に侵入し通路を形成した場合、果たして拘束圧以下でどのようにそれが形成されるのかは明らかではないが、通路形成メカニズムとして考えられることは、拘束圧がサンプル内まで及ばず、部分的に低応力域が存在し、試料内部で局部的

体積伸張を吸収し、その伸張は試料境界までは及ばないという考え方が妥当のようであるとしている。このことは、ガスが注入された場合ガスエントリー圧力が低いならば、不完全な通路部分が存在していることを意味している。

ブレークスルー後の上流側ガス圧の挙動は、簡単に説明することはできないが、HHの結果によれば上流ガス圧と下流ガス圧の変化によって、ベントナイトにブレークスルーが発生し、間隙内でガス流速の段階的変化がみられるとしている。

ブレークスルー後の現象はサンプルとその測定条件に依存するものの、すべての場合において圧力が減少しつつ定常状態に向かい、定常状態の圧力は拘束圧よりかなり小さい結果となっているとしている。

ガスエントリーによって閉じていた部分が開くような弾性通路伸張モデルを考えると、ガス圧が拘束圧以下の時には通路が閉じるようなモデルにしなければならないとしている。もちろん、拘束圧はサンプル全体に対して均一と仮定し、ガス通路が圧縮ベントナイト内に発生している定常状態の時は、拘束圧よりかなり小さいガス圧で通路は開いたまま、最小ガス注入速度での定常状態ガス圧は拘束圧より1.3~2.1MPa程小さく、またガス圧はガス注入ポンプをスイッチオフとした後やや遅れて減少するとしたモデルが必要であり、そして実験の終了時までには試料からのガス流出は完全に止まらないものとしている。このことの根拠として、拘束圧より3~6MPa以下でもゆっくりとガスは流れていることが観察されているからであるとしている。

これらの観察結果をモデル化するためには、従来の平行型だ円クラックの弾性モデルではなく、他のメカニズムを用いる必要があるとしている。下記のようなモデルが考えられるとしている。

- ① 通路伸張後の粘土のそ性クリープ特性モデルを考慮する。特に通路は、フラクチャー形成プロセスにおいて密着性の少ないものが採用される必要があり、たとえば円筒形断面のなかから、だ円断面のものが再度クラックを生じるモデルなどが考えられる。このためには、弾性変形によって閉じる現象ではなく、ガス圧による粘土のそ性応答性及び時間依存性を考慮する必要があるとしている。ブレークスルー後、上流からのガス流を止めた後、サンプル内のガスの広がりやどのような応答を示すかについても考慮する必要があるとしている。
- ② 含水比が局部的に小さくなるが、これは粘土の局部的体積減少と、クラック閉そくが遅れることを考慮する必要があるとしている。

③ 通路の閉塞には、あるエネルギーバリアがある。たとえば、内部層間フィルムの再形成のような結合が、透過係数をほぼ0にするとは考えられず、ここで言うエネルギーバリアとは、層状形成を元に戻すために要求される塑性変形の1つであると考えている。恐らく、粘土のフラクチャリングは想像以上に破壊的であり、新しい粘土表面のせん断及び破壊を含む塑性変形を示すクラックまたはその再形成はかなりむずかしい現象であると考えている。

下流側においても、同様な議論を必要とする。常に背圧 1.01MPa が適用され、拘束圧は 8~22MPa となっている。もし背圧が試料に残留するガス圧と同じとするならば、拘束圧の影響条件下では、連続したガス流の維持は困難であるとしている。

下流側ガスフラックスの変動の解釈はかなりむずかしく、ガス通路は開いたままとはならず下流側におけるフィルターケーキ層のようなエンドエフェクトが下流側境界域における通路特性を複雑にしているとしている。ただし、粘土粒子を含むフィルターケーキ層が圧縮ベントナイト材料に元来形成されているとは考えられないとしている。

(iii) ガス侵入に対する粘土の非定常応答

実験結果をみると、ガス侵入と粘土試料の応答には時間依存性が示されている。

このことは、流量の変化から明らかであるとしている。

この現象には、下記の特徴があるとしている。

① ガスエントリーとブレイクスルーの間にタイムラグがあるとしている。HHの実験によるとこの時間は、 3×10^5 秒（約 83 時間）としている。

② ブレイクスルー後上流側ガス圧力の変化にオーバーシュート(飛び越し)現象が見られる。ガス圧は定常状態となる前に最小値を示している。このことはガス圧が変化し、それとともにベントナイトの応答速度が影響を及ぼすことを意味している。

時間とともに圧力がどのように変化するかを詳細に調査するため、粘土変形挙動の時間依存性をみる必要性を示している。

(iv) ガスエントリーの条件

HHによれば、圧縮ベントナイト中へのガス侵入は、粘土の乾燥破壊に似ていると指摘している。

この類似性を調べるため、図 1.2.2-1 に示す実験を用いて検討している。

端部が開いた状態の飽和粘土が拘束圧 (σ) 条件下にあると仮定し、この拘束圧は等方均質に作用し、膨潤も作用するとしている。

バックプレッシャーを P_e とする。この場合飽和粘土は平衡になろうとするため、外部水は粘土の間隙水と平衡になり、その結果 disjoining pressure: Π が下式のようになるとしている。

$$\sigma = \Pi + p_c$$

ここですべての応力 (圧力) は絶対圧表示としている。また、応力は「圧縮」を「正」としている。

もし、 $\Delta\sigma$ だけ応力が減少すると (ただしここで体積は一定である)、 Π は一定であるので、HH によって提案された軸方向に作用する応力は下式のようになるとしている (Ridley & Burland, 1993)。

$$\begin{aligned}\sigma' &= \sigma - \Delta\sigma = \Pi + p_c - \Delta\sigma \\ &= \Pi + p'_c\end{aligned}$$

もし、 $\Delta\sigma > P_e$ ならば $P'_c < 0$ となる。これは、熱力学的には外部水圧が存在しないことを意味するとしている。

式の展開は次のようになるとしている。

$$\sigma - p_c = \Pi = \sigma' - p'_c$$

もし応力が除荷され、 $\sigma' = P_0$ (大気圧) となると下式となるとしている。

$$P_0 - p'_c = \sigma' - p'_c$$

これは、土質力学でいうマトリックスサクションを意味し、有効応力 $\sigma - P_e$ はマトリックスサクションに等しいとしている (Ridley & Burland, 1993)。ここで「負」の大き

なマトリックスサクシオンが圧縮ベントナイトに存在する理由は依然不明であり、みかけの「負」の圧力が超薄フィルムまたは間隙内で安定的に発生しているとしている。

土質科学 (soil science) では、大気条件下での乾燥に伴うクラックは、マトリックスサクシオンによって形成される引張応力が、土質の引張強度を超えたとき発生しているとしている。そのようなクラックは、収縮が妨げられた時、局部的に発生するものであり、たとえば、乾燥は表面(上)から地下(下)へ向って発生するが、そのさらに深部(下)に乱されない土質があればその境界上部で発生しているとしている。この乾燥破壊状況は、外部圧縮応力の除荷メカニズムとは異なるとしている。即ち、膨張 (dilation) による破壊は自然破壊ではないことを示している。

次に、適応応力(外部圧) σ' 条件下で P_e の圧力で水に接触しているならば、サンプルは吸水しながら膨潤するが、ガス圧 : P_g' が存在しガスの取り入れ口がオープンしている時何が起きているかについて以下に検討している。この時ガス圧 P_g' は外部圧 σ' と同じではないと仮定する。

もし P_g' が約 0 ならば、ガスは粘土中に入らない。

もし粘土の内部引張強度を τ とすると、ガスエントリー条件は下記のようになっている。

$$P_g' - \sigma' > \tau$$

この式は、流体のハイドロフラクチャリング条件であり、粘土サンプル内のガスエントリーに対しても適用可能としている。

もしガスと間隙水間に化学的反応があれば、それによってフラクチャーに侵入するガスの毛管抵抗があるかどうかの問題となるとしている。HHはこのような付加的項目はないとしている。

膨潤する粘土のサクシオン力は、ガスエントリーとメニスカス面が原因であるとしている。

もし、ガス圧がフラクチャーを開けておくほど十分に大きな圧力であり、内部層間水を置換できる程度大きいならば、サクシオン条件で取り扱うことができるとし、ガスエントリーの発生は毛管圧力に関係する可能性があるとしている。

ガス-水接触面でのガスエントリー及びフラクチャ開口現象が容易にわかるような相互作用及びその広がりについては、3軸試験の巨視的現象からははっきりいえないとしている。

HHはガスエントリーメカニズムは、ガス・水接触面内の毛管圧力の変化及びガスが粘土中に入る時の間隙水圧の上昇によるとしている。

圧縮ベントナイトは薄い水フィルムを有するが、毛管圧力をどのように定義するかは難しいとしている。HHは適用応力： σ と粘土内の水圧： P_e との差と定義している。もちろん、この場合の水は、薄い内部層間水と空隙内に存在する水であるとしている。この場合、異方性応力場はテルソル量で示され、このうち水フィルムに垂直な応力が disjoining pressure と定義している。ここで、粘土試料の間隙平均水圧は利用できるとは考えられず、毛管圧力をどのように測定するかは明確ではないとしている。

HHはまた、毛管圧力と disjoining pressure の相関関係について述べている。即ち disjoining pressure は内部層間フィルム内の水と外部水との間の化学ポテンシャルの差から生じるとしている。そして内部層間水と水蒸気間の毛管凝縮はこの薄いフィルム内での化学ポテンシャルの低下量から生じているとしている。この差の計算については Kelvin 方程式を用いている。化学ポテンシャルを用いてこれらの差を等しいとすることで毛管圧力と disjoining pressure の関係を示している。このように毛管圧力は水蒸気と間隙水が平衡になるような圧力であるとしている。

ガスエントリーについては、HHが軸対称ロードセル内のベントナイトペーストを用いた ASG 実験によって示している。

このベントナイトペーストは圧縮ベントナイトの特性とは本質的に異なるとしている。(特に、圧縮ベントナイトの場合は、通常含水比が 23~28%であるにもかかわらず、これは 124~197%であり、また乾燥密度は圧縮ベントナイトが $1.5\sim 1.7\text{Mg}/\text{m}^3$ であるにもかかわらず $0.43\sim 0.63\text{Mg}/\text{m}^3$ であるとしている。このペーストは平衡状態にはないと考えている。)

これらの差があるにもかかわらず、このペーストのガス移動特性は圧縮ベントナイトの挙動を代表しているとしている。

その根拠は下記のようなものであるとしている。

- ① ガス注入により圧密特性が変化するが、特にガスエントリーによるサンプル膨張(フラクチャーの開口)が示されている。
- ② 4回の実験のうち3回までが、一度ガス圧が間隙水圧と同じとなると間隙水圧とガス圧がほぼ等しい挙動を示している。このことは、一度ガス圧と間隙水圧が等しくなると、サンプル内の毛管圧力は存在しないことを意味し、これはガスがサンプルに入

る前には発生しない現象であるとしている。

なお、ペースト試料は平衡でないこと及び低い膨潤圧（約 500KPa）が生じることにより、disjoining pressure に関するガスエントリーの議論をむずかしくしているとしている。

なお、ガスエントリー圧は適用応力によって大きく影響を受けるとしている。

(3) モデル化のための要求事項

データの再検討を行ない、圧縮ベントナイト内のガス移動の一般的な定量的特性をモデル化するために次のようにまとめている。

- ① ガスが粘土試料中を流れるには、ガス圧があるクリティカル圧に到達する必要がある。
このクリティカル圧力は膨潤圧＋平衡外部水圧である。
- ② 粘土試料中へのガスエントリー及びブレイクスルー以降ガスの流れが生ずるが、それによって不飽和はほとんど生じない。
- ③ 注入ガス圧が低下すれば、ガス流れ及び透過係数は低下する。そして注入ガス圧があるレベル以下に落ちた時流れは止まる。この流れが止まる点についてはHHの実験では不明である（HHによると、流れはある値まで低下することが示されている）。一般に、ガス圧が初期のクリティカル圧に近い圧力値まで戻るならば、ガス流れは再スタートする。
- ④ 途中の突発性（burst-type）即ち短期間のパルス状ガス流れが観察されている（Volckaertら,1995）。

さて、開発モデルは、特性①～③を示すような定量的シミュレーションが要求されるべきであるとしている。しかし、④についてはHHによって測定結果は示されているものかなりバラツキがあり、この原因としてガスエントリーとブレイクスルーの間の挙動に原因があるとし、このような④の挙動のモデル化は、通常の代表的挙動のシミュレーションとは異なっているとしている。④の観察のモデル化のためには、性能評価に関係がある特性と考えるにはあまりにも短いし、下流側境界が代表的平均挙動を示すようにモデル化するにはむずかしい面が生じてくるとしている。

(4) クラック伸張と弾性変形に基づくモデル

この節では、Griffithクラック伸張理論とクラック開口（crack opening）サイズを示す線形弾性理論をベースに、圧縮ベントナイト内のガス移動モデルを説明している。

(i) クラック密度 (crack density)

HHによれば、クラックは流れに垂直断面に六角形に配列しているとしている。これは図1.2.2-2に示すとおりであり、この場合のクラック密度： δ は前述のように導出できる。

(ii) ガス移動モデル

飽和した圧縮ベントナイト内の、単一伸張クラックを通るガス流れの数学的モデルを以下に示している。

図1.2.2-3はクラック幅を $2c$ とし、無限場所から作用する一定応力： σ と内部間隙圧： $p(x)$ の作用により、 x 方向にクラックが伸張する場合を仮定している。 $y-z$ 面のクラック伸張方向に垂直断面のクラックはだ円形と仮定している。 $x-z$ 断面のクラックの形状は応力場により決定されるとしている。

X 方向へのクラック伸張速度は、Griffithクラック伸張理論において平衡に達する時、下式が成立つとしている (Goodier, 1968)。

$$\sqrt{2a} \left(\int_0^a \frac{P(x)}{\sqrt{a^2 - x^2}} dx - \frac{\pi}{2} \sigma \right) = K_{Ic}$$

ここで、

K_{Ic} : 弾性体のクリティカル応力強度 (critical stress intensity)

a : クラック伸張方向のフラクチャーの長さ (fracture length)

Griffith基準 (criterion) は、クラック伸張による歪エネルギー変化と新しいクラック形成による表面積エネルギーの形成のバランスから導出されている。この基準を粘土サンプル内のクラック伸張速度を決定するために用いている。クラック伸張速度は、Griffith基準を満足しつつガスの流れ速度に一致しなければならないとしている。

(iii) モデル化の前提条件

圧縮粘土試料内のガス移動モデル開発には、通路形成とガス移動を説明できる条件及び方法をいくつか考える必要があり、非線形微分方程式に基づく数値解析が満足できかつ予知できる必要があるとしている。

ここでは、そのための前提条件のいくつかを示している。

- (a) 圧縮粘土試料は弾性体とする。
- (b) クラックはだ円形であり、幅は固定する。(y方向の幅を固定)
- (c) y-z面にて切断したスライスに作用する応力は同一とする。(即ち平面歪状態とする)
- (d) サンプル内のクラックは初期にある微小な長さを有する。(既存クラックが伸張するものとする)
- (e) Griffith基準に基づきクラック伸張は決定される。
- (f) 多くのクラックが独立にとり扱われる。即ち交さしていない。(クラック相互の影響は、フラクチャー密度が大きい場合影響すると考えられるが、弾性定数等を考慮して、材料の不確定性のため、それに含ませることにする)

(iv) データの要求

上記のような前提条件に基づくガス移動モデルのための、必要データは表1.2.2-3(2)のとおりであるとしている。

これらパラメータは標準値を採用しているが、実験により得られることもできるとしている。ただし、クラック密度： ρ と初期クラック長： a_0 は設定の必要があるとしている。

(5) 線形弾性モデルによる定常流れの解析

実験データを用いて、モデルの適用性チェックをする必要があるとしている。このモデルを完全なものとするためには確認テストを行なう必要があるけれど、実験データからモデルの本質的要素を抽出しかつチェックし、合致するかどうかをみることは可能であるとしている。

(i) 定常状態でのガス流れ

ガス移動実験のうち、モデルアプローチが可能な実験データのみ抽出している。3軸装置で実施された圧縮ベントナイトのガス流れ実験のうち step-down(流量低下及び shut-in)により生じる定常状態ガス流れのうち、MX80-4A, MX80-6, MX80-7 の試料を用いている。これらは、定常状態達成まで $375 \mu\text{L/hr}$ のポンプ送り速度で実験を行ない、その後送り速度を $180, 95, 45 \mu\text{L/hr}$ に減少し、各々定常状態を達成している。

定常状態ガス流れは多孔質媒体内流れとしては簡単に図 1.2.2-4 に示されている。ここでは、単一通路が存在する場合を考えている。

MX80-4A テストでは、上流側ガス圧と定常状態ガス流速の変化は、図 1.2.2-5 に示されている。この図は、多孔質媒体フローモデル(Porous Medium-flow Model)で k を一定値にした場合、及び変形可能なクラックモデル(Linear Elastic Model と Exponential Model)を用いた場合のフィッティングである。これらから、多孔質媒体モデルは実験データを全く満足していないことがわかるとしている。

そこで、最初と最後のデータをフィットさせるようにして、モデルを作成している。線形弾性モデル(Linear Elastic Model)では、 P_2 (下流圧) = σ (全圧力または拘束圧)として代入し、 σ は拘束圧以下の値としている。これによって流れが止まらないようにしている。

指数モデル(exponential model)は図 1.2.2-5 に \times で示されている。これは実験データとよく一致している。しかし、流れ速度と圧力の指数形表示では、圧縮粘土試料を通るガス移動の幾可学モデルについては不明であるとしている。この指数関数式は下式のようになる。ここで A と B は指数フィット定数であるとしている。

$$Q_s = A(P_1^2 - P_2^2)e^{Bp}$$

表 1.2.2-4 には MK80-4A の実験データが示されている。

MX80-6 試料の上流側ガス圧と定常状態ガス流速の変化を図 1.2.2-6 に示している。この図も MX80-4 と同様のモデルを適用している。

この図も、多孔質媒体モデルの場合が最も悪いフィットであるとしている。このことからこの多孔質媒体モデルは幾可学的内部関係を示すものではなく、また通路の膨張を説明するようなものでもないとしている。

線形弾性モデルとデータのフィッティングは、指数関数的にフィットすればよく合っているが、モデルの改良は必要であるとしている。

表 1.2.2-5 には MX80-6 の実験データを示している。

(ii) 開口モデル(Elastic crack-opening model)を用いた定常状態の透過係数の変化

クラック開口はフラクチャーの長さ、入口から出口までのガス圧の変化によるとしている。このため、定常状態での通路内の圧力分布を把握するため、クラック断面を調査する必要があるとしている。MX80-4A 試料に対して、前述した解析方法にフィット係数をもちいた線形弾性モデルパターンを図 1.2.2-7 に示している。

MX80-4A のクラックは、 P_2 (下流圧) = σ (全圧力あるいは拘束圧) と仮定した結果、試料下流端に近い所にて鋭くカーブが落ち込んでいる。もし $\sigma < P_2$ ならば、カーブの形は、図 1.2.2-8 に示されるようになるとしている。ここで用いた拘束圧は実験で作用させた拘束圧とみなすことはできず、むしろ線形弾性クラック開口モデルでクラック開きが 0 になる時のガス圧とみなすとしている。

図 1.2.2-7 に示したように、クラック開口長と試料長さから、平均透過係数が下流端の状態によって支配されることを示している。図 1.2.2-8 で示されるカーブでは、透過係数に及ぼすエンドエフェクトが小さいことを示している。

(iii) 定常状態でのガス流れのモデルパラメータ

圧縮ベントナイト中を通る定常状態のガス流れについて実験データにフィットするモデル用パラメータについて述べている。パラメータはオリジナルデータのままでモデルパラメータとしては無理があるため、フィット値となるようにしつつ MX80-4A, MX80-6 試料の結果に基づいて、表 1.2.2-6 のような値を採用している。ここで、多孔質流れモデルの絶対透過係数は $1 \times 10^{-20} \text{ m}^2$ としている。

もしヤング率： $E = 2 \times 10^8 \text{ Pa}$ 、ポアソン比： $\nu = 0.45$ と仮定すると (Daeman & Ran, 1996) , 線形弾性モデル中でガスが通路を均等に流れているとして、多数クラック

又は単一クラックの場合に対してこのモデルで計算でき、クラックサイズは圧縮粘土試料によって決定されるとしている。異なるクラック密度に対して c (た円長半軸長) は表 1.2.2-7 に示されるとしている。

クラックサイズ (particular crack size) についてフラクチャー数は、六角配列フラクチャーで得られるフラクチャー密度より小さくなっている。この表から、MX80-6 試料のクラックは、トータル通路数に依存するもののおよそ数 10mm のオーダーであることを示している。MX80-4A のクラックは MX80-6 の約 1/5 倍程であり、このことは MX80-4A が高いバルク密度と小さい間隙比の結果であるとしている。

(6) ヒステリシス挙動

HH の実験結果から、上流ガス圧が拘束圧より小さい条件でガス流れが発生するとしている。たとえば MX80-4A では拘束圧又は全圧は 1.2×10^7 Pa であったとしている。

ガスがサンプル中に入る現象は、粘土試料の破壊による明らかな通路形成であると考えられ、この場合ガス圧が拘束圧とほぼ等しいとしている。

また、HH はガス透過係数と正味平均有効応力 (net mean effective stress) のグラフから、ガス圧とクラック膨張にはヒステリシスの関係があることを示している (図 1.2.2-9)。

この図で、初期の点 A でガス流れが開始し、そこから透過係数がすばやく上昇し、点 B まで行き、点 C の第 1 の定常状態にゆっくり移動している。この点で、ガス注入は止められている。そして、shut-in 条件となりガス透過係数とガス間隙圧が第 2 の定常状態 (点 D 以降) まで減少している。

ガス透過係数の変化がクラックオープニングあるいはクロージングによるものと仮定すると、点 A から点 B の期間は粘土試料下流端のブレークスルー後の通路伸張であり、または通路膨張であるとしている。

点 C での定常状態では、クラックの収縮に基づくものであるとしている。

Shut-in では試料中のガス流れが 0 に向っている時であり、クラック閉塞により透過係数が低下しているものの、試料の軸方向に沿った圧力差については下流側圧力が種々存在するため、任意に設定する以外ないとしている。しかし、このことは図 1.2.2-9 に示すグラフ特性に影響するものではないとしている。

実験結果から、粘土試料は非可逆的変形を示すとしている。実験結果は弾性特性でない
ので、クラック膨張関係式(前述)は本質的挙動の説明には不十分であるとしている。

この挙動の解釈としては、初期弾性変形の後、直ちにガス圧が増加し、非弾性変形によ
り粘土内に変形を残すように発生していると推定している。この現象は、ガス通路の形成
及び膨張とともに、試料下流端からの間隙水の移動によるとしている。下記のような可能
性を述べている。

(i) ガス圧によるクラック開口の依存性のヒステリシス

変形が残っているならば、その原因は間隙ガス圧と拘束圧の差圧であり、この差圧こ
そがクラックを閉塞するものである。拘束圧は実験中一定なので間隙ガス圧がガスエン
トリー発生時に減少するとしている。

クラック膨張(crack dilation)と間隙ガス圧の関係は図 1.2.2-10 に示す挙動を考え
ている。

この図は、1 度ガス圧がピーク値になり最大通路が発生した後、ガス圧の減少が生じ
第二通路に沿った挙動としている。この関係から、拘束圧以下のガス圧でガスは流れる
ことを示している。

この図はクラック膨張モデル(前述)の応用であり、ヒステリシスが考慮されていると
している。

このモデルから正味平均有効応力とガス透過係数の変化は図 1.2.2-11 のようになる
としている。

この図は本質的には図 1.2.2-9 のヒストリーと同じであるとしている。

ガス透過係数は、正味平均有効応力減少にともない上昇し、ピーク後その後正味平均
有効応力の増加とともに減少するとしている。ピークガス圧における透過係数のプラト
ー(フラット部)は図 1.2.2-10 で不明であるので、これが完全なモデルでないこと及
び粘土内のガス流れに関わる動力学的効果を考えていないこと、また通路伸張プロセス
を反映できるようなデータとのマッチングを行っていないことを挙げている。

(ii) ガス圧の変化によるクラック開口に及ぼす時間依存の影響

ガスが拘束圧より小さい圧力で粘土試料中を流れつづける説明として、間隙ガス圧と
クラック透過係数の時間依存の影響が考えられるとしている。

ここで、定常状態での全透過係数(Total permeability) : $K_{\infty}(=K \times A)$ は圧力の関
数であるとしている。

$$K_{\infty} = c_1(p - \sigma)^3$$

C_1 を定数として、時間とともに透過係数が変化する式を次に示している。

$$\frac{\partial K}{\partial t} = -c_2(K - K_{\infty})$$

C_2 も定数である。

この式で、クラック内のガス圧は時間とともに変化している。一定圧に対しては、 K_{∞} は漸近的に定常の透過係数となり、 C_2 に比例するとしている。

このモデルは、スプリングとダッシュポットを有した、図 1.2.2-12 に示されるものであるとしている (Kelvin 物体又は Voigt 物体)。

この結果を用いた透過係数と正味平均有効応力の関係は図 1.2.2-13 のようになるとしている。

図 1.2.2-13 に示される 2 つのサイクルは、時間と圧力の変化を異にしたものであり、正味平均有効応力と全透過係数の変化は図 1.2.2-14 のようになるとしている。

第一の圧力サイクルで、ガス圧が増加すると全透過係数も増加するが、時間依存性の影響により、定常状態での値より小さくなるとしている。圧力がピークに到達しても全透過係数は定常状態の値より小さいが、このピーク以後は定常状態(図の……印)の方が全透過係数はすばやく低下している。

第 2 の圧力サイクルは、同じ挙動であるが、全透過係数と正味平均有効応力の関係はガス圧の速度が上昇又は下降する時得られるとしている。

全透過係数と正味平均有効応力の関係は HH のものとほぼ同じであるが、全透過係数が増加する間の初期クラック開口は、HH でみられたものほど鋭くはないとしている。これはクラック膨張モデルというより動力学的クラック伸張の方が適していると思われ、クラック膨張に時間依存性を取り込むことは、このメカニズムがなぜ拘束圧以下のガス圧でガスが流れるかの理由を説明できるとしている。

1.2.3 まとめ

英国 BGS の S.T.Horseman & J.F.Harrington が実施した MX80 ベントナイト中のガス移行試験 (Feb, 1997)、及びこの実験結果の解釈を述べた GAMBIT Club の W.R Rodwell & P.G.Nash が報告した考え方・モデルについて示した。

BGS レポートによれば、7 種類の 3 軸セルを用いた試験 (BGS 装置を用いた試験シリーズ)、及び 1 種類の放射状間隙圧・圧密変化実験結果を示している (ASG 装置を用いた試験シリーズ)。

その結果、有効応力 (即ち disjoining pressure) と同程度の過剰ガス圧が作用する時、ブレークスルーが発生すること、及びブレークスルー後のガス透過係数と正味平均有効応力の関係から shut-in 後の圧力挙動については、ダルシー則に基づくガス移動式に Griffith 破壊基準を加えたモデルを提案し、shut-in 後の定常値はマトリックスサクシオン即ち毛管圧力に等しいことを述べている。

また、ガス通路は潜在時に存在する微小なクラックがガス圧増加により試料の軸方向に伸張し、そこでブレークスルーが発生すると仮定したモデルを提案し、ガス通路は乾燥収縮時に発生する六角形亀裂形状と同じ形状であり、個々の亀裂形状がだ円体であるモデルとしている。

また GAMBIT Club レポートでは、BGS の実験結果をクラック伸張モデルと考え、ガス圧とガス流速の非線形性は Griffith 理論と弾性理論及び指数関数を導入することで近似できること、さらにガス透過係数と正味平均有効応力の挙動をヒステリシスモデルを用いる近似手法を示している。

しかし、これらの実験で、拘束圧とガスブレークスルー圧がほぼ等しいことから、試料周囲面からのリークの可能性については検討する必要があると考えられる。

表 1.2.2-1 毛管密度、毛管半径、毛管压力、間隙率(透過係数: $1 \times 10^{-20} \text{ m}^2$)

Capillary Density (m^{-2})	Capillary Radius (m)	Capillary Pressure (Pa)	Porosity
$1.00 \cdot 10^1$	$7.10 \cdot 10^{-6}$	$2.11 \cdot 10^4$	$1.585 \cdot 10^{-9}$
$1.00 \cdot 10^2$	$3.99 \cdot 10^{-6}$	$3.75 \cdot 10^4$	$5.013 \cdot 10^{-9}$
$5.30 \cdot 10^2$	$2.63 \cdot 10^{-6}$	$5.70 \cdot 10^4$	$1.154 \cdot 10^{-8}$
$1.00 \cdot 10^3$	$2.25 \cdot 10^{-6}$	$6.68 \cdot 10^4$	$1.585 \cdot 10^{-8}$
$1.00 \cdot 10^4$	$1.26 \cdot 10^{-6}$	$1.19 \cdot 10^5$	$5.013 \cdot 10^{-8}$
$1.00 \cdot 10^5$	$7.10 \cdot 10^{-7}$	$2.11 \cdot 10^5$	$1.585 \cdot 10^{-7}$
$1.00 \cdot 10^6$	$3.99 \cdot 10^{-7}$	$3.75 \cdot 10^5$	$5.013 \cdot 10^{-7}$
$1.00 \cdot 10^7$	$2.25 \cdot 10^{-7}$	$6.68 \cdot 10^5$	$1.585 \cdot 10^{-6}$
$1.00 \cdot 10^8$	$1.26 \cdot 10^{-7}$	$1.19 \cdot 10^6$	$5.013 \cdot 10^{-6}$

Capillary density / radii combinations giving a permeability of 10^{-20} m^2

表 1.2.2-2 だ円クラックパラメータ(透過係数: $1 \times 10^{-20} \text{ m}^2$)

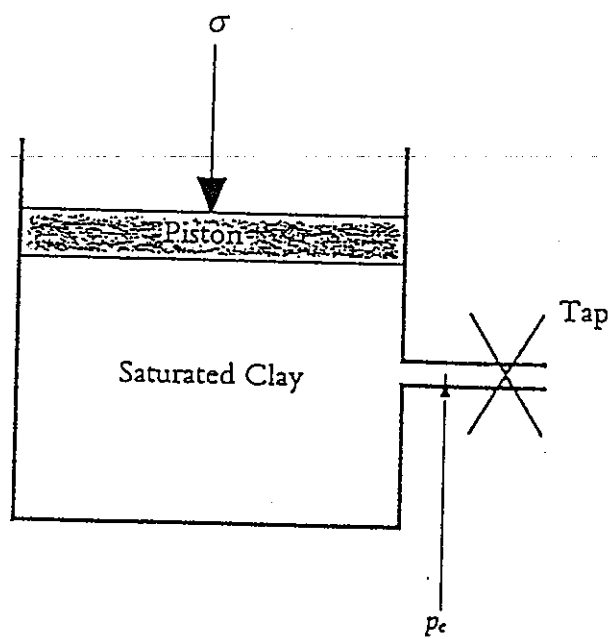
Major semi-axis (m)	Minor semi-axis (m)	Fracture density (m^{-2})	Porosity
1.00×10^{-2}	7.61×10^{-8}	$2.89 \times 10^{+03}$	6.90×10^{-6}
1.70×10^{-3}	4.22×10^{-8}	$9.99 \times 10^{+04}$	2.25×10^{-5}
1.00×10^{-3}	3.53×10^{-8}	$2.89 \times 10^{+05}$	3.20×10^{-5}
1.00×10^{-4}	1.64×10^{-8}	$2.89 \times 10^{+07}$	1.49×10^{-4}
1.00×10^{-5}	7.61×10^{-9}	$2.89 \times 10^{+09}$	6.90×10^{-4}

Parameters for elliptic cracks giving a permeability of 10^{-20} m^2

表 1.2.2-3(1) 単一だ円クラックの過剰圧力(透過係数: $1 \times 10^{-20} \text{ m}^2$)

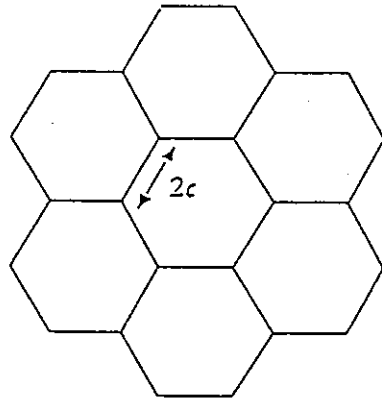
Major semi-axis (m)	Minor semi-axis (m)	Excess pressure (Pa)
1.00×10^{-2}	1.34×10^{-7}	1.68×10^3
1.00×10^{-3}	2.89×10^{-7}	3.62×10^4
1.00×10^{-4}	6.22×10^{-7}	7.80×10^5
1.00×10^{-5}	1.35×10^{-6}	1.69×10^7

Excess pressures required to provide a permeability of 10^{-20} m^2 from a single elliptical crack



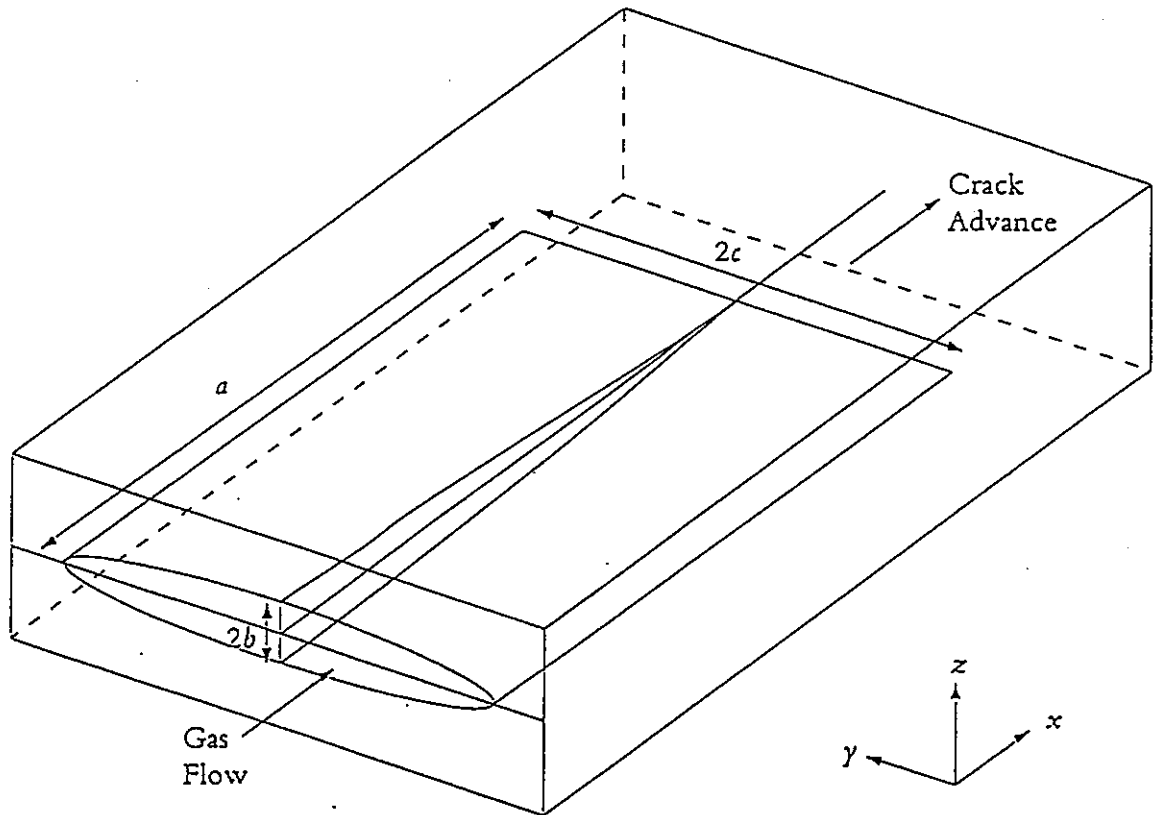
Schematic of Ridley and Burland Experiment

図 1.2.2-1 Ridley & Burland の試験概要



Possible arrangement of fractures normal to flow direction

図 1.2.2-2 流れ方向に垂直断面でのフラクチャー配列



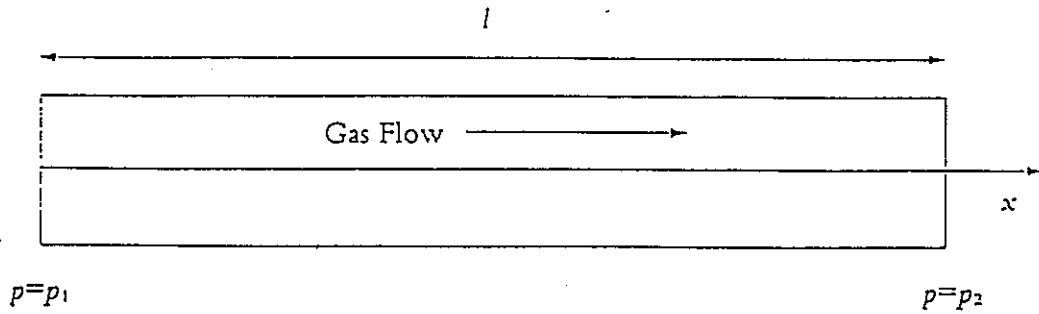
Schematic of propagating Griffith crack

図 1.2.2-3 伸張する Griffith クラックモデル

表 1.2.2-3(2) 線形弾性フラクチャー力学(LEFM)ガス移行モデルのパラメータ

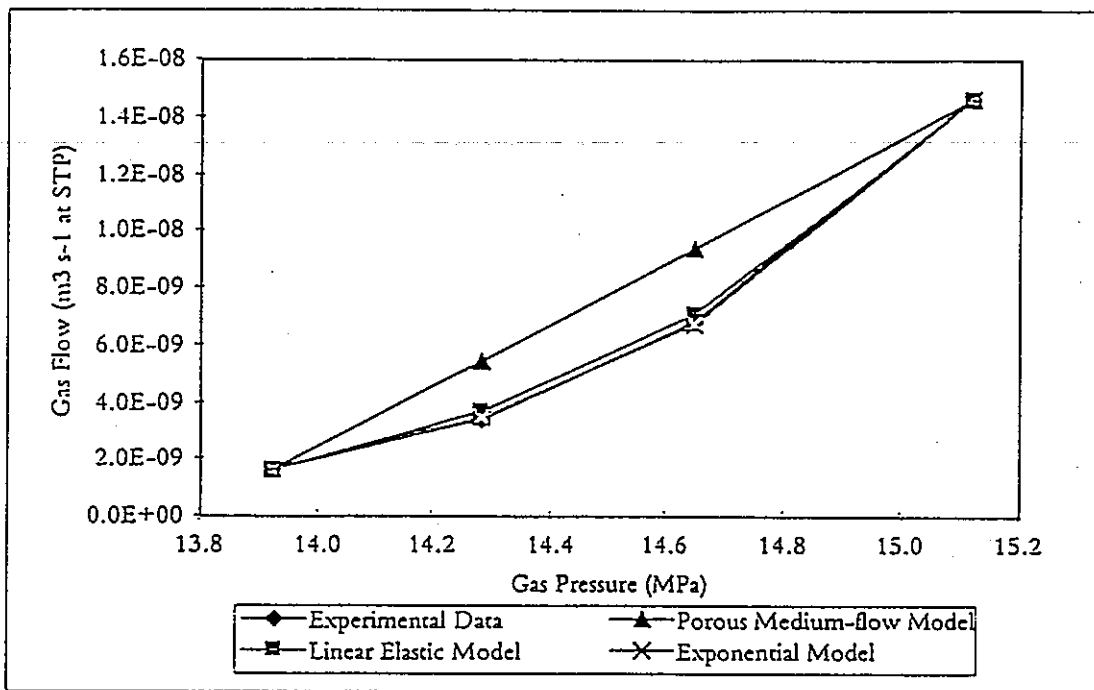
Parameter	Explanation	Comment
c	Fixed crack width (m)	Determined from crack density, assuming a particular fracture geometry
ρ	Crack density (centres per m ³)	Free model parameter
μ	Gas viscosity (Pa s)	Standard value
K_{Ic}	Critical stress intensity (Pa m ^{1/2})	Obtained by experimental procedure
E	Young's modulus (Pa)	Obtained by experimental procedure
ν	Poisson's ratio	Obtained by experimental procedure
M, R, T	Ideal gas law constants	Standard values
σ	Total stress or confining pressure (Pa)	Obtained from experiment
a_0	Initial crack length (m)	Free model parameter

Data Requirements for Linear Elastic Fracture Mechanics Model of Gas Migration



Schematic of porous medium flow domain

図 1.2.2-4 多孔質媒体中の流れ



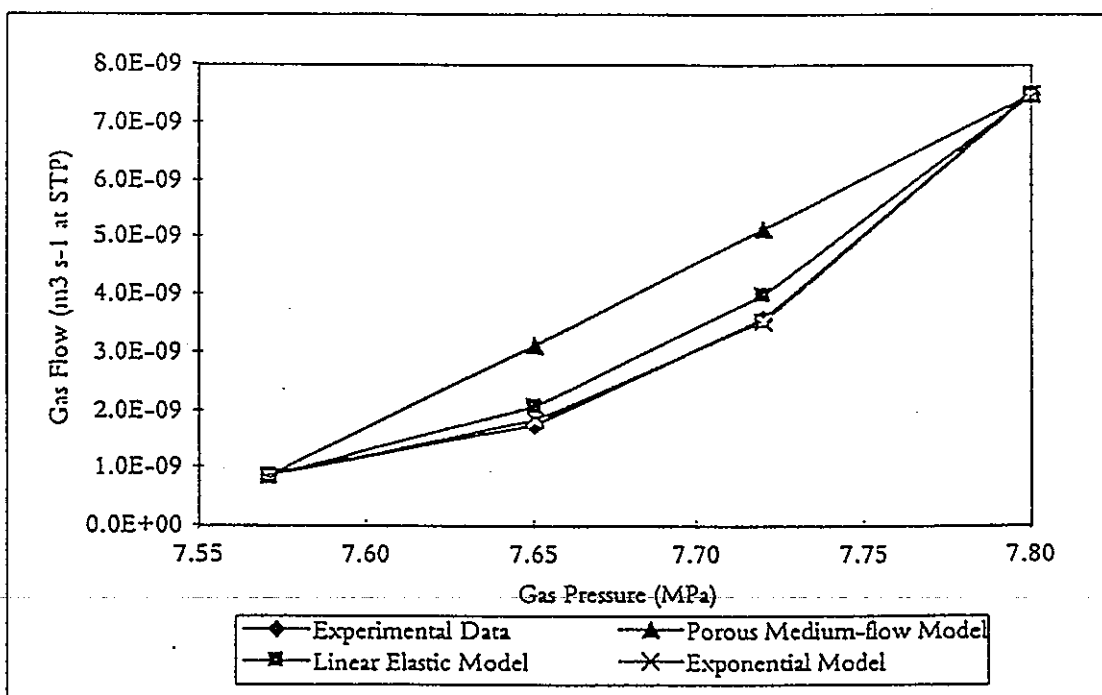
Flow versus pressure for gas test Mx80-4A

図 1.2.2-5 MX80-4A のガス圧とガス流速のフィッティング

表 1.2.2-4 MX80-4A の定常状態でのポンプ流速と注入圧力

Pumping Rate ($\mu\text{L hr}^{-1}$)	Flowrate ($\text{m}^3 \text{ s}^{-1}$ at STP)	Steady-state Injection Pressure (MPa)
375	$1.5 \cdot 10^{-8}$	15.12
180	$6.8 \cdot 10^{-9}$	14.65
90	$3.4 \cdot 10^{-9}$	14.28
45	$1.7 \cdot 10^{-9}$	13.92

Steady-state test data for gas test Mx80-4A



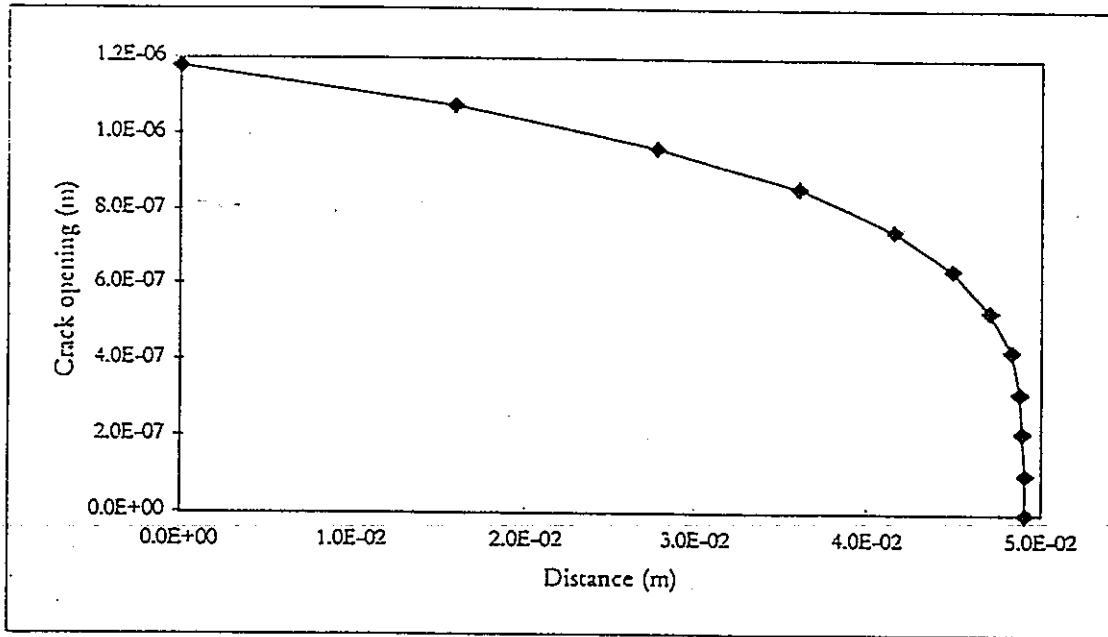
Flow versus pressure for gas test Mx80-6

図 1.2.2-6 MX80-6 のガス圧とガス流速のフィッティング

表 1.2.2-5 MX80-6 の定常状態でのポンプ流速と注入圧力

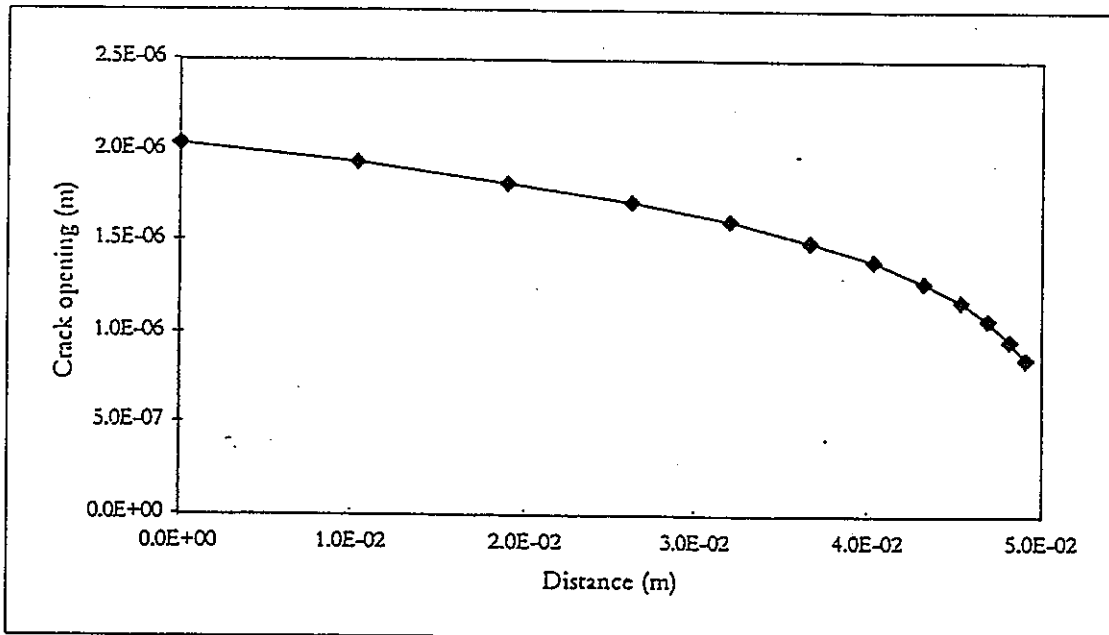
Pumping Rate ($\mu\text{L hr}^{-1}$)	Flowrate ($\text{m}^3 \text{ s}^{-1}$ at STP)	Steady-state Injection Pressure (MPa)
375	$7.5 \cdot 10^{-9}$	7.80
180	$3.6 \cdot 10^{-9}$	7.72
90	$1.8 \cdot 10^{-9}$	7.65
45	$8.6 \cdot 10^{-10}$	7.57

Steady-state test data for gas test Mx80-6



Profile of gas pathway for gas test Mx80-4A using best fit coefficients

図 1.2.2-7 MX80-4A の試料の長さ方向のクラックオープニング(最良フィッティング)



Profile of gas pathway aperture for gas test Mx80-4A with reduced σ

図 1.2.2-8 MX80-4A の試料の長さ方向のクラックオープニング(σ を減少させた方法)

表 1.2.2-6 MX80-4A と MX80-6 のパラメータ

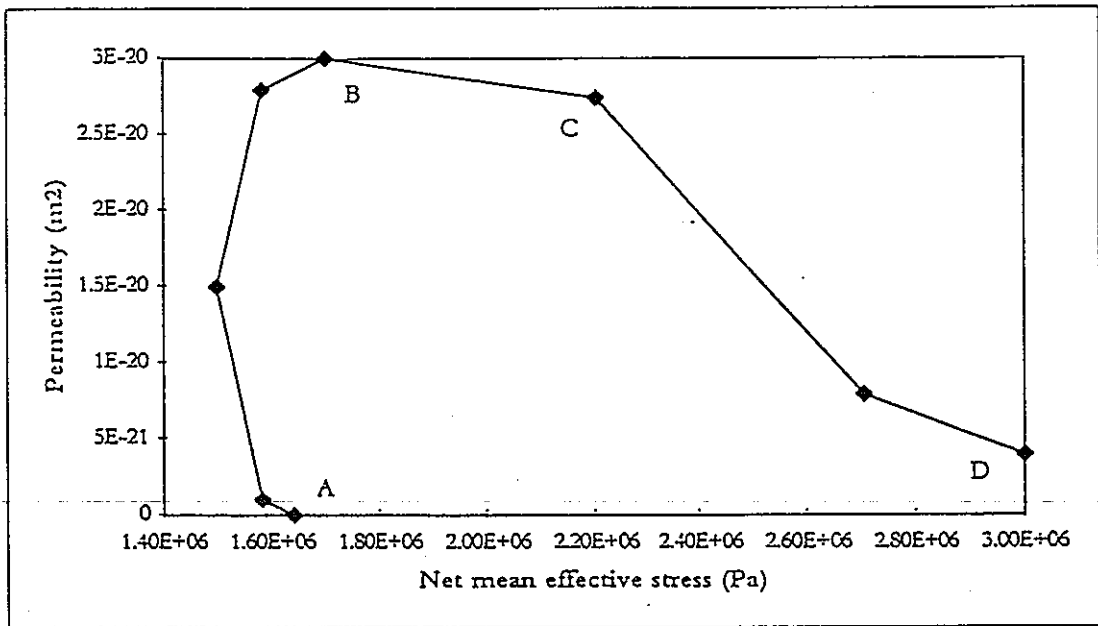
Experiment	Mx80-4A		Mx80-6	
	Porous-medium flow model	Linear elastic model	Porous-medium flow model	Linear elastic model
Downstream gas pressure, p_2 (Pa)	$1.4 \cdot 10^7$	$1.2 \cdot 10^7$	$7.5 \cdot 10^6$	$7.2 \cdot 10^6$
Proportionality constant, Γ	$3.7 \cdot 10^{-23}$	$2.6 \cdot 10^{-22}$	$1.9 \cdot 10^{-21}$	$2.1 \cdot 10^{-19}$

Gas flow parameters

表 1.2.2-7 MX80-4A と MX80-6 のクラックサイズとクラック密度

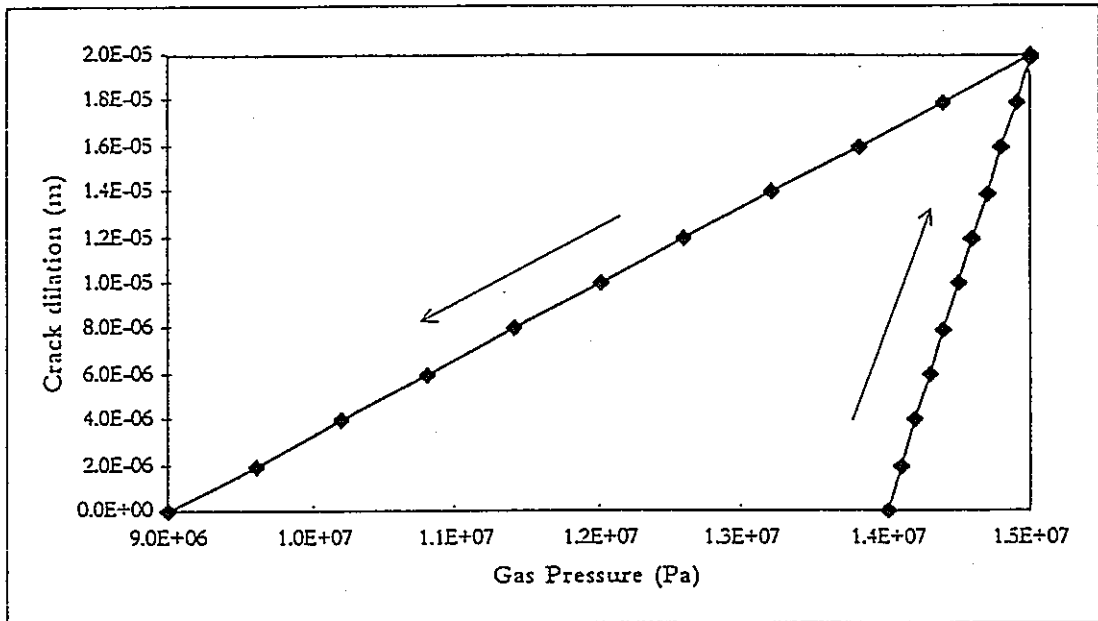
Number of Cracks in Sample	Major Semi-axis, c , of Crack (m)	
	Mx80-4A	Mx80-6
1	$5.0 \cdot 10^{-5}$	$2.7 \cdot 10^{-4}$
10	$2.8 \cdot 10^{-5}$	$1.5 \cdot 10^{-4}$
100	$1.6 \cdot 10^{-5}$	$8.4 \cdot 10^{-5}$
1000	$9.0 \cdot 10^{-6}$	$4.7 \cdot 10^{-5}$

Crack size versus crack density



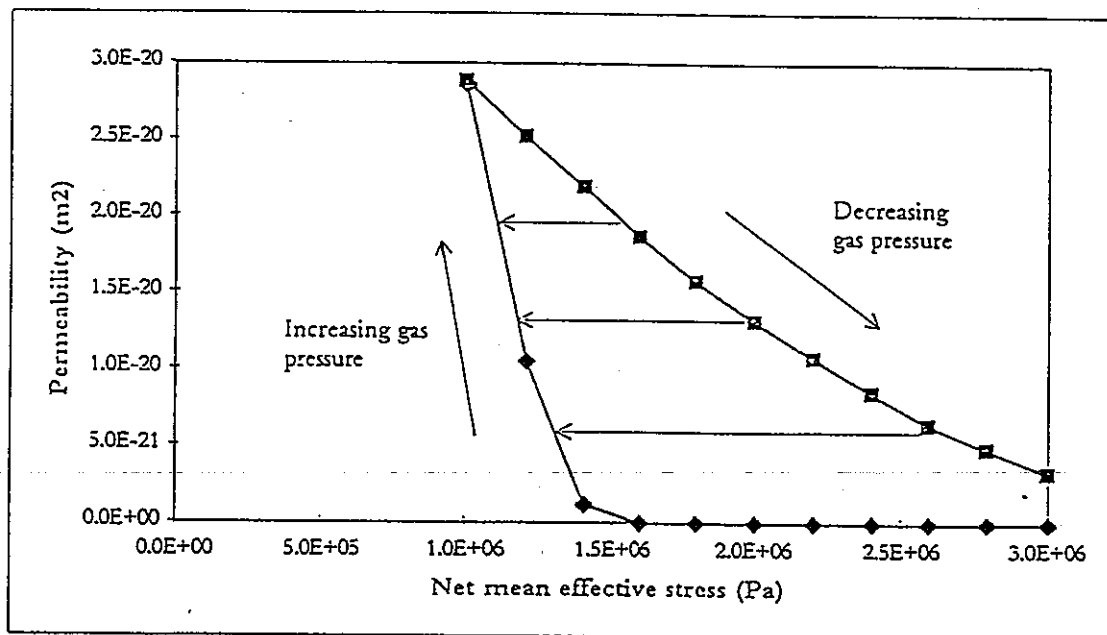
Typical experimental gas permeability versus effective stress

図 1.2.2-9 典型的なガス透過係数と正味平均有効応力の関係



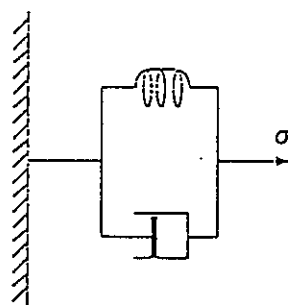
Crack dilation versus gas pressure

図 1.2.2-10 ガス圧とクラックダイラタンスーの関係



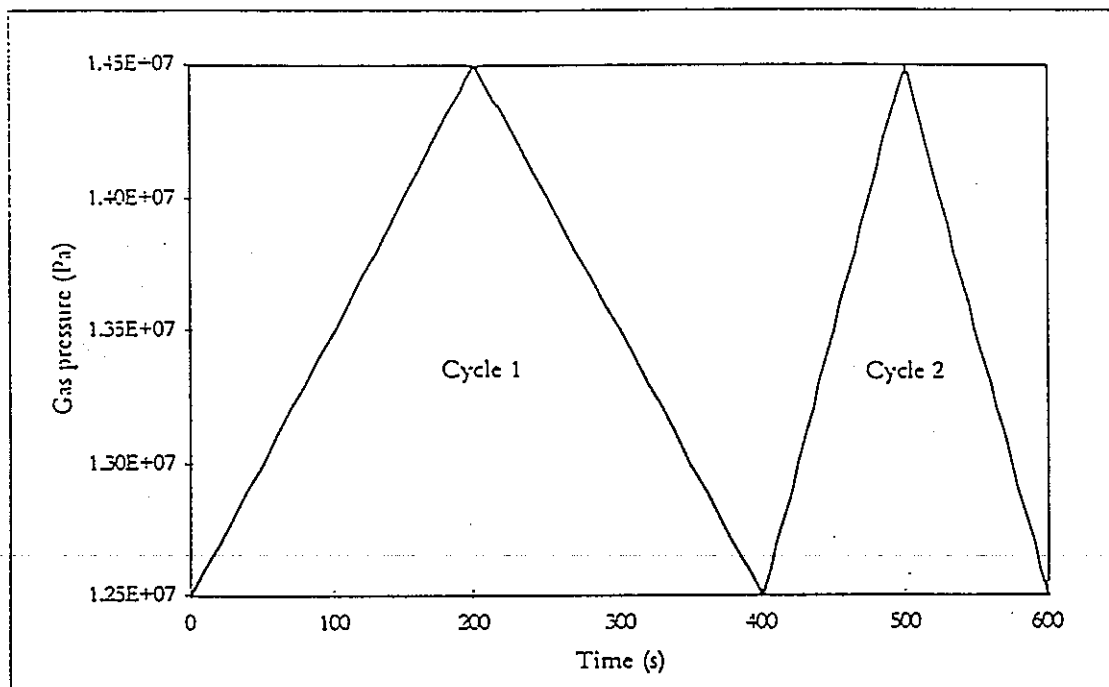
Gas permeability versus effective stress

図 1.2.2-11 単一モデルによるガス透過係数と正味平均有効応力の関係



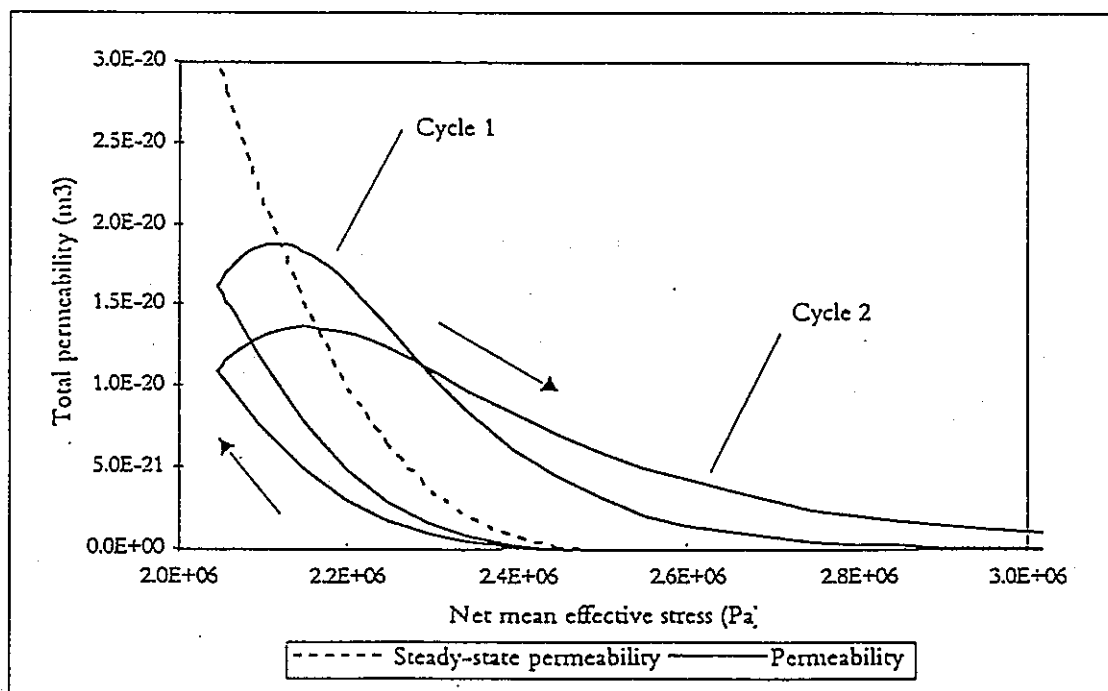
Firmo-viscous material

図 1.2.2-12 Firmo 粘性材料



Variation of gas pressure with time

図 1.2.2-13 ガス圧の経時変化



Variation of total permeability with net mean effective stress

図 1.2.2-14 正味平均有効応力と全透過係数

第 2 章

2 拡散方程式を用いた解析・評価

2.1 拡散解析モデル

2.1.1 モデル化の対象

オーバーパックの処分方法の中から、処分坑道横置方式と処分孔縦置方式における人工バリアの仕様をモデル化の対象とした。

2.1.2 支配方程式

ベントナイト緩衝材中の溶存水素ガスの拡散現象の解析にあたっては、3次元(円筒座標系)拡散方程式を用いた。

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \left(\frac{\partial^2 C}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial C}{\partial r} + \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} \right)$$

ここで、C:溶存水素の濃度(Nm³/m³)、t:時間(yr.)、D:みかけの拡散係数 (m²/yr.)、r:半径方向の座標(m)、z:軸方向の座標(m)である。

2.1.3 シミュレーション用コンピュータプログラム

上記の微分方程式を陽解法差分方程式に組み替えて、コンピュータプログラムを作成した。プログラムを検証するために、空洞周辺のポテンシャル分布の変化を示す Roel Nottrot らの解析解¹⁴⁾との比較を行なった。表 2.1.3-1 に Roel Nottrot らの熱伝導と溶存物質の拡散方程式を比較した。Roel Nottrot らの式で $a=D$ とすれば、拡散方程式となることがわかる。Fourier 数: Fo は下式のように示される。ここで、ro はオーバーパック半径(m)である。

$$Fo = at/ro^2 = Dt/ro^2$$

その比較検討結果を表 2.1.3-2~4 に示す。表 2.1.3-2 は Roel Nottrot らの厳密解による Fourier 数と半径比 r/ro を示し、表 2.1.3-3 は今回の差分方程式による近似解の結果を示す。両者を比較すると、ハッチング部分で最大誤差が 2%と大きいため、さらにメッシュを小さくして再度計算した結果を表 2.1.3-4 に示す。表 2.1.3-2 と表 2.1.3-4 から最大誤差が 0.3%と小さく、今回作成したプログラムによって十分な精度の数値解が得られると考えられる。

2.1.4 解析領域の設定

解析領域は、横置方式の場合境界条件の対称性から、水平方向には炭素鋼オーバーパックが存在する位置の左右 7.0m 及び半径方向には 3.0m、縦置方式の場合には垂直方向にはオーバーパックが存在する位置の上下 7.0m 及び半径方向には 1.7m の範囲とした。

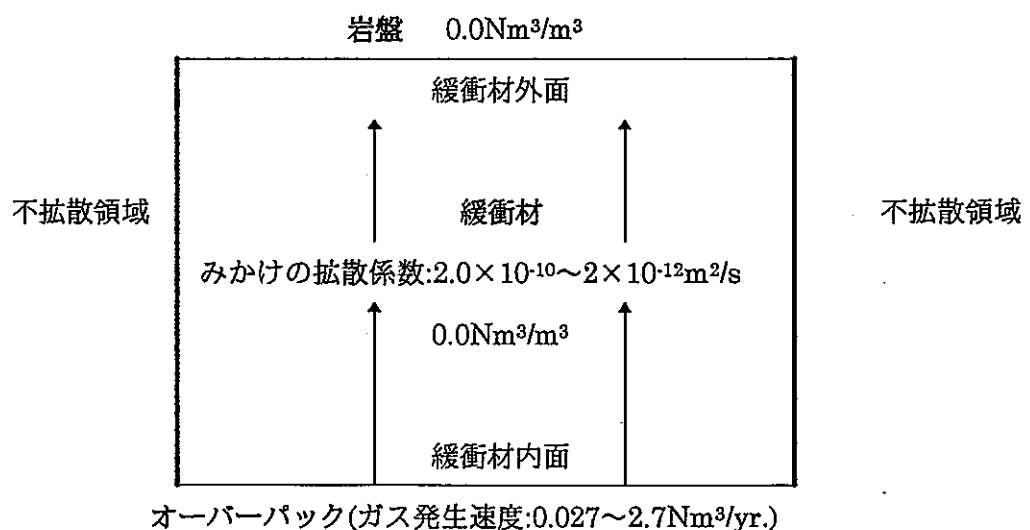
なお、縦置方式モデルは、厳密には緩衝材の軸方向長さが 5.0m であるものの、深度方向には対称でないことから横置方式と同様に 7.0m 長とした。この影響については、解析結果から明らかなように解析領域の軸方向の境界付近の水素濃度は小さいことから 5.0m と 7.0m の差異はほとんどないと考えられる。

2.1.5 解析用差分格子と各種条件設定

差分格子は上記解析領域のうち、対称性を考慮して解析領域の 1/4 の範囲に設けた。格子の間隔はベントナイト緩衝材の厚さや計算期間の長短に応じて、適宜変更した。解析用の差分格子の設定を横置方式の場合図 2.1.5-1 に、縦置方式の場合図 2.1.5-2 に示す。格子 1 つ分の寸法を表 2.1.5-1 に、パラメータを表 2.1.5-2~4 に示す。また、解析結果のまとめを表 2.1.5-5~7 に示す。

解析の初期条件は、解析領域全体にわたって水素濃度を $0.0(\text{Nm}^3/\text{m}^3)$ とした。側面境界は不拡散性とした。またベントナイト緩衝材と母岩の界面に相当する外側の境界では常に $0.0(\text{Nm}^3/\text{m}^3)$ の濃度を、オーバーパックとベントナイト緩衝材の界面（以降 O.B.界面と呼ぶ。）では水素発生速度と拡散から解析的に濃度が定まるが、ガスが蓄積した場合周辺間隙水への過剰圧力はないものとし、常に 1,000 m 深度相当の水圧とした。その水圧で溶存する濃度は Henry 則に基づき $1.6\text{Nm}^3/\text{m}^3$ とし、上限濃度とした。下記に初期条件を図示した。

(解析の初期条件)



2.2 拡散解析結果

各条件における水素濃度変化の収束時の濃度分布、水素濃度分布の経年変化、岩盤への溶出水素フラックスの経年変化、そして O.B.界面に蓄積する水素の量の経年変化を以下に示す。なお、みかけの拡散係数を Da で表す。

2.2.1 横置方式の場合

(1) $Da=2 \times 10^{-10}$ (m²/s) の場合

この条件では、オーバーパック表面からの水素発生量に関わらず、ほぼ 1,000 年でベントナイト内の溶存水素濃度の変動が収束する。

岩盤への水素溶出量は、条件 1 と 2 の場合には $0.181 \text{ Nm}^3/\text{yr}$ であり、それぞれ水素発生量に比して少ない量であるため、ベントナイトの間隙中の水（以降間隙水と呼ぶ）に溶けなかった水素が O.B.界面に蓄積していくことになる。その蓄積の速度は条件 1,2 の場合において、それぞれ $2.519 \text{ Nm}^3/\text{yr}$, $8.9 \times 10^{-2} \text{ Nm}^3/\text{yr}$ である。また、条件 3 のケースでは、O.B.界面で発生した水素のほぼ全量が拡散により岩盤へ溶出し、オーバーパック表面での水素濃度も $0.24 \text{ Nm}^3/\text{m}^3$ と小さく、飽和濃度 ($1.6 \text{ Nm}^3/\text{m}^3$) の約 15% の値となった。(図 2.2.1-1~6)

(2) $Da=2 \times 10^{-11}$ m²/s の場合

この条件では、オーバーパック表面からの水素発生量に関わらず、ほぼ 5,000 年でベントナイト内の溶存水素濃度の変動が収束する。

岩盤への水素溶出量は、条件 4~6 のいずれの場合においても $1.81 \times 10^{-2} \text{ Nm}^3/\text{yr}$ となった。

O.B.界面における水素の蓄積速度は、条件 4,5,6 の場合、それぞれ $2.682 \text{ Nm}^3/\text{yr}$, $0.252 \text{ Nm}^3/\text{yr}$, $8.9 \times 10^{-3} \text{ Nm}^3/\text{yr}$ であった。(図 2.2.1-7~12、図 2.3.2-2)

(3) $Da=2 \times 10^{-12}$ m²/s の場合

この条件では、オーバーパック表面からの水素発生量に関わらず、ほぼ 50,000 年でベントナイト内の溶存水素濃度の変動が収束する。

岩盤への水素溶出量は、条件 7~9 のいずれの場合においても $1.81 \times 10^{-3} \text{ Nm}^3/\text{yr}$ とな

った。このため、O.B.界面における水素の蓄積速度は、条件 7,8,9 の場合、それぞれ $2.698\text{Nm}^3/\text{yr}$ 、 $0.268\text{Nm}^3/\text{yr}$ 、 $2.51 \times 10^{-2}\text{Nm}^3/\text{yr}$ となり、オーバーパック表面で発生した水素の大部分が O.B.界面に蓄積することがわかる。(図 2.2.1-13~18、図 2.3.2-2)

2.2.2 処分孔縦置方式の場合

(1) $Da=2 \times 10^{-11}(\text{m}^2/\text{s})$ 、水素発生速度= $0.27(\text{Nm}^3/\text{yr})$ の場合

このパラメータ設定は処分孔縦置方式における基準的な設定である。

この条件では、ほぼ 2,000 年でベントナイト内の溶存水素濃度の変動が収束する。

岩盤への水素溶出量は $3.3 \times 10^{-2}\text{Nm}^3/\text{yr}$ となった。この量は、オーバーパック表面からの水素発生量に対して約 12% の量である。O.B.界面における水素の蓄積速度は $0.237\text{Nm}^3/\text{yr}$ であった。(図 2.2.2-1~2、図 2.3.2-2)

(2) $Da=2 \times 10^{-11}(\text{m}^2/\text{s})$ 、水素発生速度= $2.7 \times 10^{-2}(\text{Nm}^3/\text{yr})$ の場合

このパラメータ設定は水素発生速度が基本設定の 1/10 で、オーバーパック表面で水素が発生しにくい場合の計算である。

この条件では、ほぼ 2,000 年でベントナイト内の溶存水素濃度の変動が収束する。

岩盤への水素溶出量は $2.70 \times 10^{-2}\text{Nm}^3/\text{yr}$ となり、オーバーパック表面で発生した水素のほぼ全量が拡散により岩盤へ溶出し、O.B.界面には蓄積しない。またオーバーパック表面付近の間隙水中の水素濃度は $1.30\text{Nm}^3/\text{m}^3$ で、飽和濃度の約 81% であった。(図 2.2.2-3~4)

(3) $Da=2 \times 10^{-10}(\text{m}^2/\text{s})$ 、水素発生速度= $0.27(\text{Nm}^3/\text{yr})$ の場合

このパラメータ設定はみかけの拡散係数が基本設定の 10 倍で、間隙水中の水素が拡散によって移動しやすい場合の計算である。

この条件では、ほぼ 200 年でベントナイト内の溶存水素濃度の変動が収束する。

岩盤への水素溶出量は $0.27\text{Nm}^3/\text{yr}$ となり、オーバーパック表面で発生した水素のほぼ全量が拡散により岩盤へ溶出し、O.B.界面には蓄積しない。また、オーバーパック表面付近の間隙水中の水素濃度は $1.30\text{Nm}^3/\text{m}^3$ で、飽和濃度の約 81% であった。(図 2.2.2-5~6)

2.2.3 処分坑道横置方式、水素発生速度= $5.7 \times 10^{-2}(\text{Nm}^3/\text{yr})$ の場合

ここでは、水素ガス発生速度として、過去の実験結果に基づいた値(5.70×10^{-2} Nm³/yr.)を採用して拡散解析を実施した。

(1) $Da=2 \times 10^{-10}$ (m²/s)の場合

この条件では、ほぼ 1,000 年でベントナイト内の溶存水素濃度の変動が収束する。

岩盤への水素溶出量は 5.70×10^{-2} Nm³/yr.となり、オーバーパック表面で発生した水素のほぼ全量が拡散により岩盤へ溶出し、O.B.界面には蓄積しない。オーバーパック表面付近の間隙水中の水素濃度は 0.50 Nm³/m³ で、飽和濃度の約 31%であった。(図 2.2.3-1~2)

(2) $Da=2 \times 10^{-11}$ (m²/s)の場合

この条件では、ほぼ 5,000 年でベントナイト内の溶存水素濃度の変動が収束する。

岩盤への水素溶出量は 1.81×10^{-2} Nm³/yr.となった。この量はオーバーパック表面からの水素発生量の約 31%に相当する。O.B.界面での水素蓄積速度は 3.89×10^{-2} Nm³/yr.となった。(図 2.2.3-3~4)

(3) $Da=2 \times 10^{-12}$ (m²/s)の場合

この条件では、ほぼ 50,000 年でベントナイト内の溶存水素濃度の変動が収束する。

岩盤への水素溶出量は 1.81×10^{-3} Nm³/yr.となり、オーバーパック表面で発生した水素の大部分が O.B.界面に蓄積する。その蓄積速度は 5.52×10^{-2} Nm³/yr.であった。(図 2.2.3-5~6)

2.2.4 処分坑道横置方式でオーバーパックの腐食速度が経時変化する場合

(1) 水素発生速度の計算

水素発生速度が変化する場合の計算は、腐食深さの実験データから得られた下式によって示された例がある。ここでは、この式に基づき拡散解析を実施した。

$$v = \frac{dp}{dT} = 7.96 \times 10^{-3} \times T^{-0.427}$$

ここで、

v:オーバーパックの腐食速度(mm/y)

p:平均腐食深さ(m)

T:時間(y)

水素の発生量は腐食 0.01mm あたり 0.27m^3 であるので、水素発生速度:q は下式のようになる。

$$q = 27 v$$

(2) $Da=2 \times 10^{-11}(\text{m}^2/\text{s})$ の場合の計算結果

ここでは、例として $Da=2 \times 10^{-11}(\text{m}^2/\text{s})$ の場合において、上記のように水素発生速度が経時変化する場合について計算した。その結果を図 2.2.4-1~2 に示す。

O.B.界面への水素の蓄積量は、廃棄物処分後 150 年までは、水素の発生量が間隙水中の拡散量を上回るために増加している。しかし、それ以降は水素の間隙水中への溶解が進行し、やがて O.B.界面に蓄積されていた水素も間隙水に溶け込むようになり、600 年後には O.B.界面への水素の蓄積量は 0 になる(図 2.2.4-3)。

岩盤への水素溶出量は、廃棄物処分後 50 年までは 0 であるが、それから徐々に増加し、700 年で最も多くなる。その後、O.B.界面での水素の発生速度の低下に伴って水素溶出量も減少していき、50,000 年後には水素の発生速度とほぼ同じ値となる(図 2.2.4-4)。

2.3 考察と評価

2.3.1 濃度分布の面から見た考察

ベントナイト中の水素濃度変化の収束時の濃度分布をみると、ベントナイトの厚さ 0.98m の場合は条件 3 と 13 のケースを除いて、みかけの拡散係数や水素発生速度によらずほぼ同じ濃度分布となった。これらの図をみると半径方向に密に、軸方向に疎に等濃度線が引かれているので、間隙水に溶けた水素は主に半径方向に拡散すると考えられる。

また軸方向については中心から約 2.8m 以上離れた部分の水素濃度は $0.1\text{Nm}^3/\text{m}^3$ 以下と小さい値であることがわかる。

また条件 3 と 13 の場合は拡散係数が大きく、O.B.界面の水素の発生速度も小さいため、比較的水素が拡散しやすい状況である。そのため、ベントナイト中の水素濃度も $0.5\text{Nm}^3/\text{m}^3$ 以下となり飽和濃度に対して約 31%以下であり、水素が間隙水にとけ込んで拡散していくものと考えられる。

ベントナイトの厚さ 0.33m の場合 (条件 10~12) は、どのケースにおいても軸方向よりも半径方向に等濃度線が密に引かれ、半径方向への水素の拡散が卓越している。条件 10 の場合には O.B.界面への水素の蓄積がみられたが、条件 11、12 の場合には O.B.界面で発生した水素がほぼ全量岩盤へ溶出する。岩盤への水素溶出は、処分孔の側面からのものが大部分を占めると考えられる。

$Da=2\times 10^{-1}(\text{m}^2/\text{s})$ 、水素発生速度が $0.027\text{Nm}^3/\text{yr}$ の場合、ベントナイト厚さが 0.98m のときには O.B.界面での水素の蓄積が起きたが、ベントナイトの厚さ 0.33m の場合には O.B.界面で発生した水素がほぼ全量岩盤へ溶出する。また軸方向には約 2 m 以遠の部分では水素濃度は $0.1\text{Nm}^3/\text{m}^3$ 以下であり、水素の拡散にあまり関与していない。従って軸方向境界が岩盤に接している場合でも、処分孔の半径方向への拡散が中心となると考えられる。

2.3.2 水素の岩盤への溶出、及び O.B.界面への蓄積の点から見た考察

水素の岩盤への溶出量の経年変化及び O.B.界面に蓄積する水素量の経年変化を図 2.3.2-1~3 に示す。

これらの図を見ると、条件 7, 8, 9, 15 の場合 (すべて $Da=2\times 10^{-1}(\text{m}^2/\text{s})$ の場合である) には岩盤への水素の溶出は廃棄物の処分後 500 年から始まり、その量も毎年 $1.81\times 10^{-3}\text{Nm}^3/\text{yr}$ と少ない。逆に O.B.界面への水素の蓄積量は、オーバーパック表面からの水素の発生量にほぼ比例して増加している。

条件 1, 4, 7 の場合では廃棄物処分直後から大きな勾配で O.B.界面での水素の蓄積量が増加していた。

条件 2 と 14 の場合では、廃棄物を処分して 200 年以内は、O.B.界面に蓄積する水素の量は直線的でなく、徐々に傾きを大きくしながら増加していくという結果が得られた。これは、廃棄物処分直後はオーバーパック表面で発生した水素の全量が間隙水に溶け込み、年数が経過するごとに間隙水中の水素濃度が飽和濃度に近くなり、間隙水に溶けなくなった水素が O.B.界面に蓄積する状況を表すものと考えられる。

条件 6 の場合は、水素の発生と間隙水への溶解の平衡状態が長期間にわたって続くため、水素の蓄積も岩盤への溶出も少なくなっている。

条件 11 と 12 はベントナイトが薄いこと、みかけの拡散係数が大きいこと、水素の発生量が大きいことなど、岩盤への溶出に適した条件が重なった結果と見てもよい。

条件 13 のケースも拡散係数が大きく水素の発生量が小さいために、水素が O.B.界面に蓄積しにくかったという結果を示すものである。

条件 10, 11 の場合、岩盤への水素の溶出は廃棄物の処分後 50 年から開始し、その量はそれぞれ、 $3.33 \times 10^{-2} \text{ Nm}^3/\text{yr}$ と $2.70 \times 10^{-2} \text{ Nm}^3/\text{yr}$ である。このうち条件 10 は O.B.界面で発生した水素の一部が間隙水に溶けて拡散したのに対し、条件 11 は発生した水素の量が少なかったためほぼ全量が拡散によって岩盤に溶出されたものと考えられる。

条件 12 の場合、岩盤への水素の溶出量は $0.27 \text{ Nm}^3/\text{yr}$ であるが、これも拡散係数が大きいため、O.B.界面で発生した水素を十分に拡散の形で岩盤へ排出したためと考えられる。

O.B.界面での水素の蓄積条件については、条件 10 が水素の発生量に比例している。

ガスが蓄積されないケースは、3, 11, 12, 13 ケースであるが、これらのケースはみかけの拡散係数が基準値($2 \times 10^{-11} (\text{m}^2/\text{s})$) $\sim 2 \times 10^{-10} (\text{m}^2/\text{s})$ と大きく、水素ガス発生速度が基準値($2.70 \times 10^{-1} \text{ Nm}^3/\text{yr}$) $\sim 2.70 \times 10^{-2} \text{ Nm}^3/\text{yr}$ と小さい場合である。

これら蓄積されないケースはいずれも岩盤への水素の溶出量とオーバーパックからの水素ガス発生量が一致していることがわかる。

一方、他の多くのケースはオーバーパック周辺にガスが蓄積しているが、例えばケース 4, 5, 6 の場合(横置方式、 $Da=2 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$ 、水素ガス発生量= $2.7 \times 10^{-2} \sim 2.7 \text{ Nm}^3/\text{yr}$)を例にとると、いずれも岩盤への水素の溶出量は $0.0181 \text{ Nm}^3/\text{yr}$ であることから、オーバーパックからの水素ガス発生量が $0.0181 \text{ Nm}^3/\text{yr}$ 以上であればガスは蓄積すると考えられる。

このように、みかけの拡散係数と水素ガス発生速度は、基準値の 1 オーダー以内でガスがオーバーパック周辺に蓄積するか否かを決定づける重要なパラメータであり、ひいては移行

支配か拡散支配かを知るうえでの重要パラメータである。したがって、拡散係数については、数多くの試験を実施してデータを取得する必要がある、水素ガス発生速度については経時変化を考慮した発生速度を検討する必要があると考えられる。

2.3.3 オーバーパックと緩衝材間に蓄積するガス圧

オーバーパックと緩衝材間に水素ガスが蓄積するかどうかは、ガスの発生量、およびガスの拡散量によって左右される。したがって、拡散しやすい条件では、発生ガスの全量が拡散しガスの蓄積はない。したがって、圧力も0である。ここではガスの発生量が拡散量を上回り、ガスが蓄積する場合にその圧力がどの程度になるかを検討する。

このような解析では、緩衝材のそ性的な挙動、および対象となる経過時間が極めて長いことに注意する必要がある。このような条件では、緩衝材として用いられるベントナイトは流動的な変形を継続し、内部応力は流体中と同様に一様であると考えられる。

まず緩衝材の挙動を体積弾性的な考え方で解析した。次に、緩衝材を円柱形弾性体と考えこれが円柱形剛体(岩盤)の中に入っていると考えた場合を解析した。さらに緩衝材を厚肉円筒と考え、これが円柱形剛体(岩盤)の中に入っていると考えた場合を解析した。

なお、これらの解析では、いずれも弾性定数は $4.0 \times 10^4 \text{g/cm}^2$ 、ポアソン比は 0.4 とした(地層処分研究開発の現状(動力炉・核燃料開発事業団、平成8年度、p46)より¹⁰⁾。

(1) 緩衝材の挙動を体積弾性率で表現した場合

体積弾性率は以下の式から求めることができる。¹⁰⁾

$$K = \frac{1}{3} \cdot \frac{mE}{m-2}$$

ここで、

K:体積弾性率

m:ポアソン数(ポアソン比の逆数)

E:ヤング率

緩衝材の挙動が体積弾性率で表現できるとすると、圧力が dP だけ増加した場合の緩衝材の体積減少 dV は次式で表わされる。ここで、 dP はこの圧力からの増加分である。

$$dV = V \cdot \frac{dP}{K}$$

ここで、V:緩衝材の全体積

また、圧力 P_i+dP における蓄積したガスの体積 V_g は次式となる。

$$v_g = \frac{P_i v_i}{P_i + dP}$$

ここで、 $v_i:P_i$ に対応する体積

ガスの体積と緩衝材の体積減少量は等しいので下式となる。

$$V \cdot \frac{dP}{K} = \frac{P_i v_i}{P_i + dP}$$

これは dP に関する2次方程式になり、その解は以下のものである。

$$dP = -\frac{1}{2}P_i + \frac{1}{2}\sqrt{P_i^2 + \frac{4KP_i v_i}{V}}$$

ここで、 $E=4.0 \times 10^4 \text{g/cm}^2$, $\nu=0.4$, $P_i=4 \text{Mpa}$ (膨潤圧) , $V=47.8 \text{m}^3$ (緩衝材の全量)を代入すると下式となる。

$$\begin{aligned} dP &= -2 + \frac{1}{2}\sqrt{16 + 2.18v_i} \text{ (MPa)} \\ &= -2 + \frac{1}{2}\sqrt{16 + 0.0534v_s} \text{ (MPa)} \end{aligned}$$

ここで、 v_s :1気圧でのガスの体積

ただし、蓄積されるガス圧は $P=4 \text{Mpa}$ (膨潤圧)として、 $P+dP$ となる。

(2) 緩衝材を円柱形弾性体とした場合¹⁶⁾

緩衝材を円柱形弾性体と考え、これが円柱形剛体(岩盤)の中に入っている条件とした場合、みかけのヤング率は次式のようになる。

$$E' = \frac{\sigma_z}{\varepsilon_z} = \frac{1-\gamma}{1-\gamma-2\gamma^2} \cdot E$$

この場合、変形は軸方向だけであり、軸方向長さ:Lの変化は体積変化に等しい。

$$\frac{dL}{L} = \frac{dV}{V}$$

したがって、下記のようになる。

$$dV = V\varepsilon_z = V \cdot \frac{\sigma_z}{E'} = V \cdot \frac{dP}{E'}$$

ガスの体積と緩衝材の体積減少量は等しいので次式のようになる。

$$V \cdot \frac{dP}{E'} = \frac{P_1 v_1}{P_1 + dP} \quad E' = 2.1E = 82(\text{kg/cm}^2)$$

したがって、緩衝材間に蓄積するガスの増加圧力:dPは下式となる。

$$\begin{aligned} dP &= -2 + \frac{1}{2} \sqrt{16 + 2.74v_1} (\text{MPa}) \\ &= -2 + \frac{1}{2} \sqrt{16 + 0.0660v_s} (\text{MPa}) \end{aligned}$$

ただし、蓄積されるガス圧はP=4MPa(膨潤圧)として、P+dPとなる。

(3) 緩衝材を厚肉円筒とした場合¹⁷⁾

緩衝材を厚肉円筒と考え、これが円柱形剛体の中に入っていると考えた場合の圧力について検討する。内半径が r1、外半径が r2 の厚肉円筒に、内圧 P1 と外圧 P2 が作用している場合の変位は次式で示される。

$$u = C(1-\gamma)(P_1 r_1^2 - P_2 r_2^2)r + C(1+\gamma)r_1^2 r_2^2 (P_1 - P_2) \cdot \frac{1}{r}$$

$$C = \frac{1}{E(r_2^2 - r_1^2)}$$

初期圧 P_i が作用した際の r_1 における変位は次式のようになる。

$$U_i = C(1-\gamma)P_i(r_1^2 - r_2^2)r_1$$

さらに、内圧のみ圧力が dP 上昇した場合の r_1 における変位は次式のようになる。

$$u = C(1-\gamma)P_i(r_1^2 - r_2^2)r_1 + CdP((1-\gamma)r_1^3 + (1+\gamma)r_1r_2^2)$$

したがって、 dP による変位は次式となる。

$$U = CdP((1-\gamma)r_1^3 + (1+\gamma)r_1r_2^2)$$

外半径は内半径より十分大きいので、外圧の上昇はほとんどないと仮定する。

緩衝材の体積減少は次式のようになる。

$$dV = 2\pi r_1 L U = \frac{B dP}{E}$$

この体積減少がガスの体積に等しいので次式となる。

$$B = \frac{2\pi r_1 L ((1-\gamma)r_1^3 + (1+\gamma)r_1r_2^2)}{r_2^2 - r_1^2}$$

したがって、緩衝材間に蓄積するガスの増加圧力: dP は次式のようになる。

$$B \cdot \frac{dP}{E} = \frac{P_i v_i}{P_i + dP} \quad B = 554$$

$$\begin{aligned} dP &= -2 + \frac{1}{2} \sqrt{16 + 24.7v_i} \text{ (MPa)} \\ &= -2 + \frac{1}{2} \sqrt{16 + 0.277v_s} \text{ (MPa)} \end{aligned}$$

ただし、蓄積されるガス圧は $P=4\text{MPa}$ (膨潤圧)として、 $P+dP$ となる。

この解による圧力は、前述の2種類の解析結果より大きくなる。また、 $L=7.0$ を用いると

次式となる。

$$dP = -2 + \frac{1}{2} \sqrt{16 + 0.0772v_s} \text{ (MPa)}$$

以上、オーバーバックと緩衝材間に蓄積するガスの圧力に関する検討を実施した。なお、これらの解析の前提としてあまりにも大きなガス量には対応が不可能であり、体積弾性率には適応範囲が存在することになる。図 2.3.3-1 には、オーバーバックと緩衝材の界面に蓄積されるガス圧とガス量の関係を示す。

この図では、例えば式(3)で1気圧状態に換算して500m³蓄積されると、その圧力増分は約1.3MPaになり初期圧力4.0MPaを加算すれば5.3MPaとなることを示す。

表 2.1.3-1 Roet Nottrot らの厳密解と拡散方程式

	熱伝導	溶存物質の拡散方程式
支配方程式	$a \frac{\partial^2 \theta}{\partial x^2} = \frac{\partial \theta}{\partial t}$	$D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} = \frac{\partial C}{\partial t}$
パラメータ	a: 温度伝導率 ($L^2 t^{-1}$)	D: 拡散係数 ($L^2 t^{-1}$)
物性値	θ : 温度 ($^{\circ}C$)	C: 溶存物質の濃度 (Nm^3/m^3)
比較する無次元量	$\frac{\theta_s - \theta_w}{\theta_{gu} - \theta_w}$	$\frac{C - C_0}{C_{inf} - C_0}$
対応するパラメータ	θ_g : 立坑近傍の岩盤温度	C: 緩衝材中の溶存水素濃度
	θ_{gu} : 立坑から無限遠点の地山温度	C_{inf} : 外側境界濃度
	θ_w : 立坑を冷却する空気の温度	C_0 : 内側境界濃度

a=Dとすれば、両者とも同様の扱いができる。

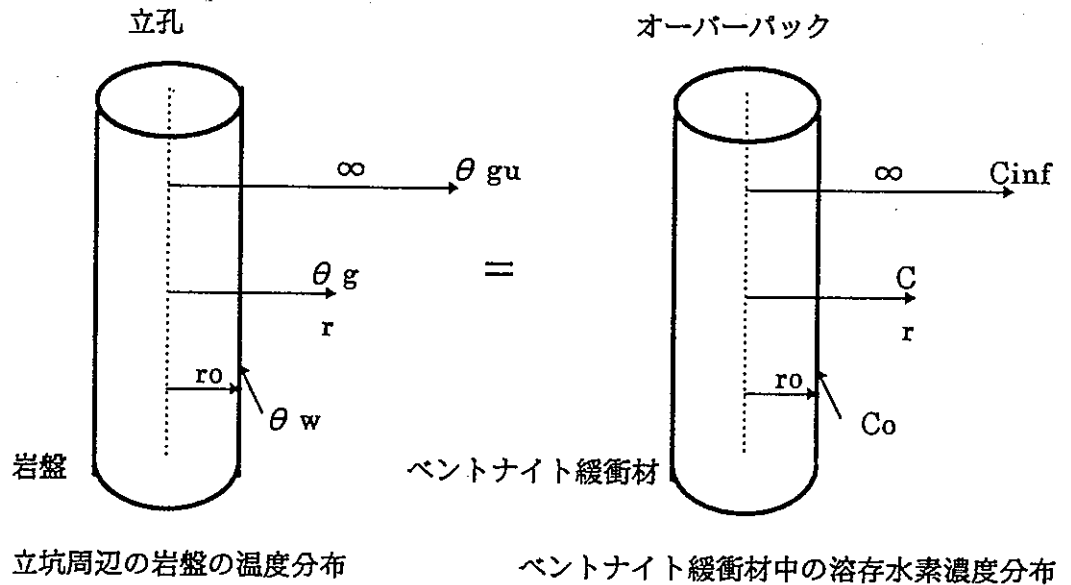


表 2.1.3-2 異なるFourier数Foにおける無次元半径 r/r_0 に依存した無次元温度 $(\theta_g - \theta_w)/(\theta_{gs} - \theta_w)$
Biot数 Bi=無限大の場合(引用文献から抜粋)

Fo \ r/r_0	1.00	1.33	1.67	2.00	3.33	5.00	6.67	8.33	10.00	13.33
0.008	0.000	0.994	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000
0.014	0.000	0.981	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000
0.02	0.000	0.919	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000
0.08	0.000	0.650	0.928	0.993	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000
0.14	0.000	0.540	0.840	0.960	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000
0.20	0.000	0.479	0.773	0.921	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000
0.80	0.000	0.303	0.528	0.689	0.965	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000
1.40	0.000	0.255	0.448	0.597	0.908	0.993	1.000	1.000	1.000	1.000
2.00	0.000	0.230	0.408	0.544	0.860	0.979	0.998	1.000	1.000	1.000
8.00	0.000	0.162	0.287	0.388	0.660	0.842	0.933	0.975	0.992	1.000
14.00	0.000	0.143	0.254	0.344	0.591	0.769	0.874	0.935	0.969	0.995
20.00	0.000	0.133	0.236	0.320	0.551	0.724	0.832	0.900	0.944	0.985
80.00	0.000	0.103	0.183	0.249	0.431	0.575	0.673	0.747	0.803	0.883

表 2.1.3-3 異なるFourier数Foにおける無次元半径 r/r_0 に依存した無次元水素濃度 $(C - C_0)/C_{in} - C_0$
 $r_0=1(m)$ 、半径方向の格子間隔=0.333(m)の場合

Fo \ r/r_0	1.00	1.33	1.67	2.00	3.33	5.00	6.67	8.33	10.00	13.33
0.008	0.000	0.942	0.998	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000
0.014	0.000	0.903	0.995	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000
0.02	0.000	0.868	0.990	0.999	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000
0.08	0.000	0.647	0.912	0.983	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000
0.14	0.000	0.541	0.833	0.950	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000
0.20	0.000	0.479	0.770	0.913	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000
0.80	0.000	0.302	0.525	0.687	0.962	0.999	1.000	1.000	1.000	1.000
1.40	0.000	0.254	0.447	0.595	0.906	0.992	1.000	1.000	1.000	1.000
2.00	0.000	0.230	0.405	0.542	0.858	0.978	0.998	1.000	1.000	1.000
8.00	0.000	0.161	0.286	0.387	0.659	0.841	0.932	0.974	0.991	1.000
14.00	0.000	0.143	0.253	0.343	0.589	0.768	0.873	0.934	0.968	0.994
20.00	0.000	0.133	0.235	0.319	0.550	0.723	0.830	0.899	0.942	0.984
80.00	0.000	0.104	0.184	0.250	0.433	0.577	0.677	0.752	0.811	0.896

表 2.1.3-4 異なるFourier数 Fo における無次元半径 r/r_0 に依存した無次元水素濃度 $(C-C_0/C_{inf}-C_0)$
 $r_0=1(m)$ 、半径方向の格子間隔 $=0.0333(m)$ の場合

$Fo \setminus r/r_0$	1.00	1.33	1.67	2.00	3.33	5.00	6.67	8.33	10.00	13.33
0.008	0.000	0.993	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000
0.014	0.000	0.960	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000
0.02	0.000	0.916	0.999	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000
0.08	0.000	0.846	0.925	0.991	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000
0.14	0.000	0.538	0.837	0.958	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000
0.20	0.000	0.476	0.771	0.918	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000
0.80	0.000	0.301	0.524	0.687	0.963	0.999	1.000	1.000	1.000	1.000

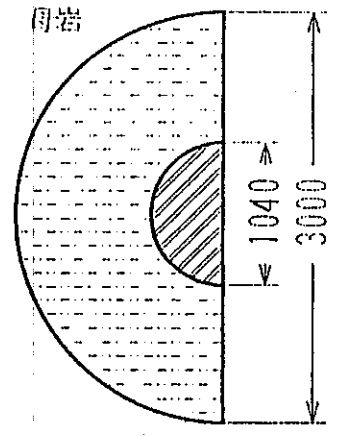
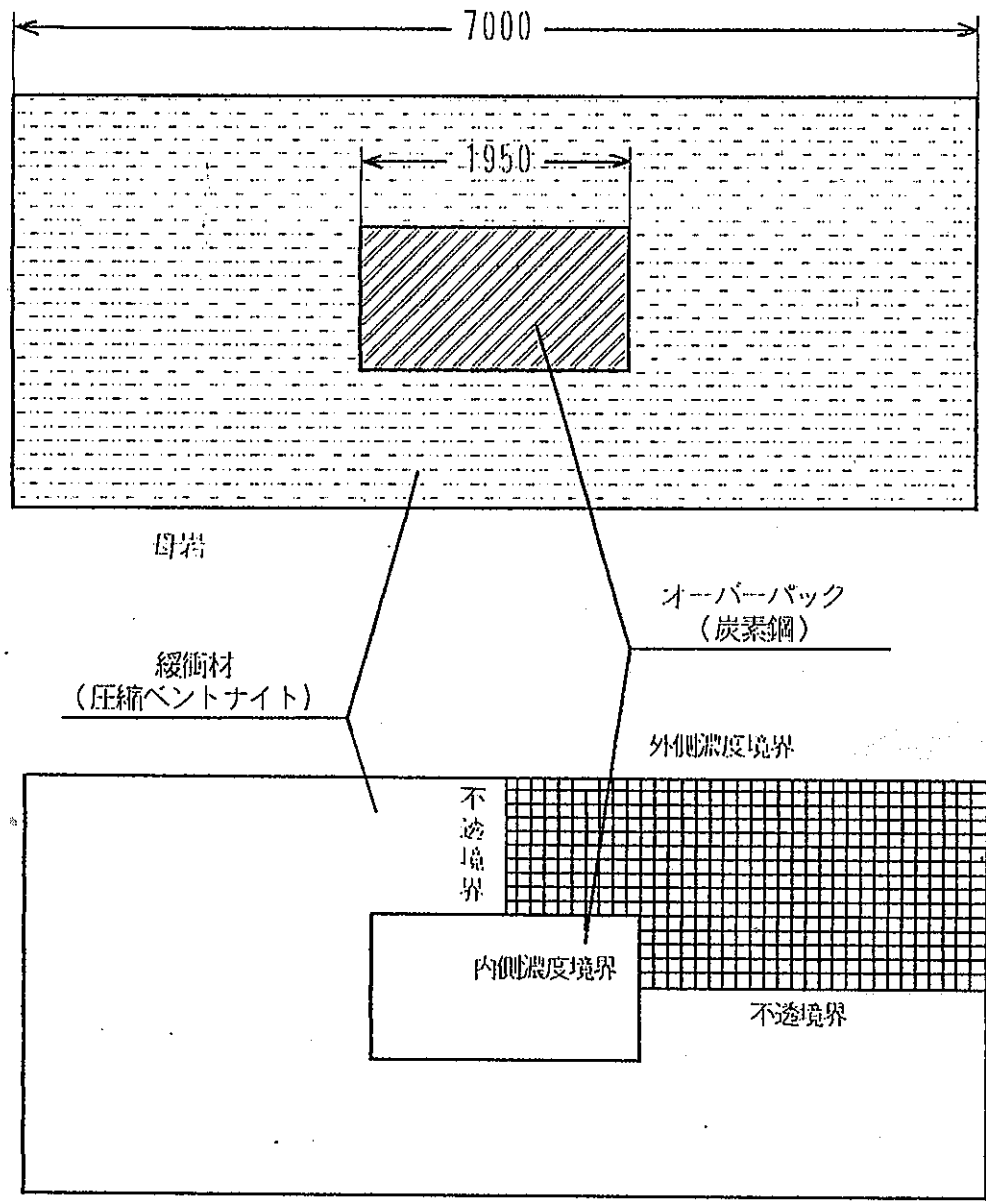
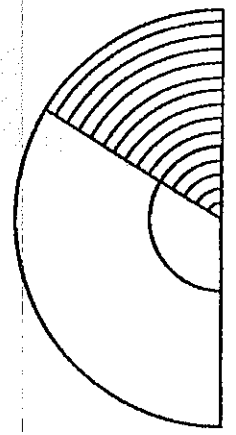
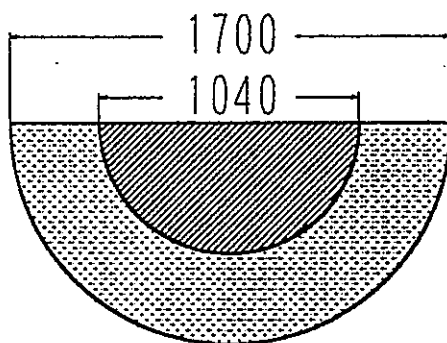
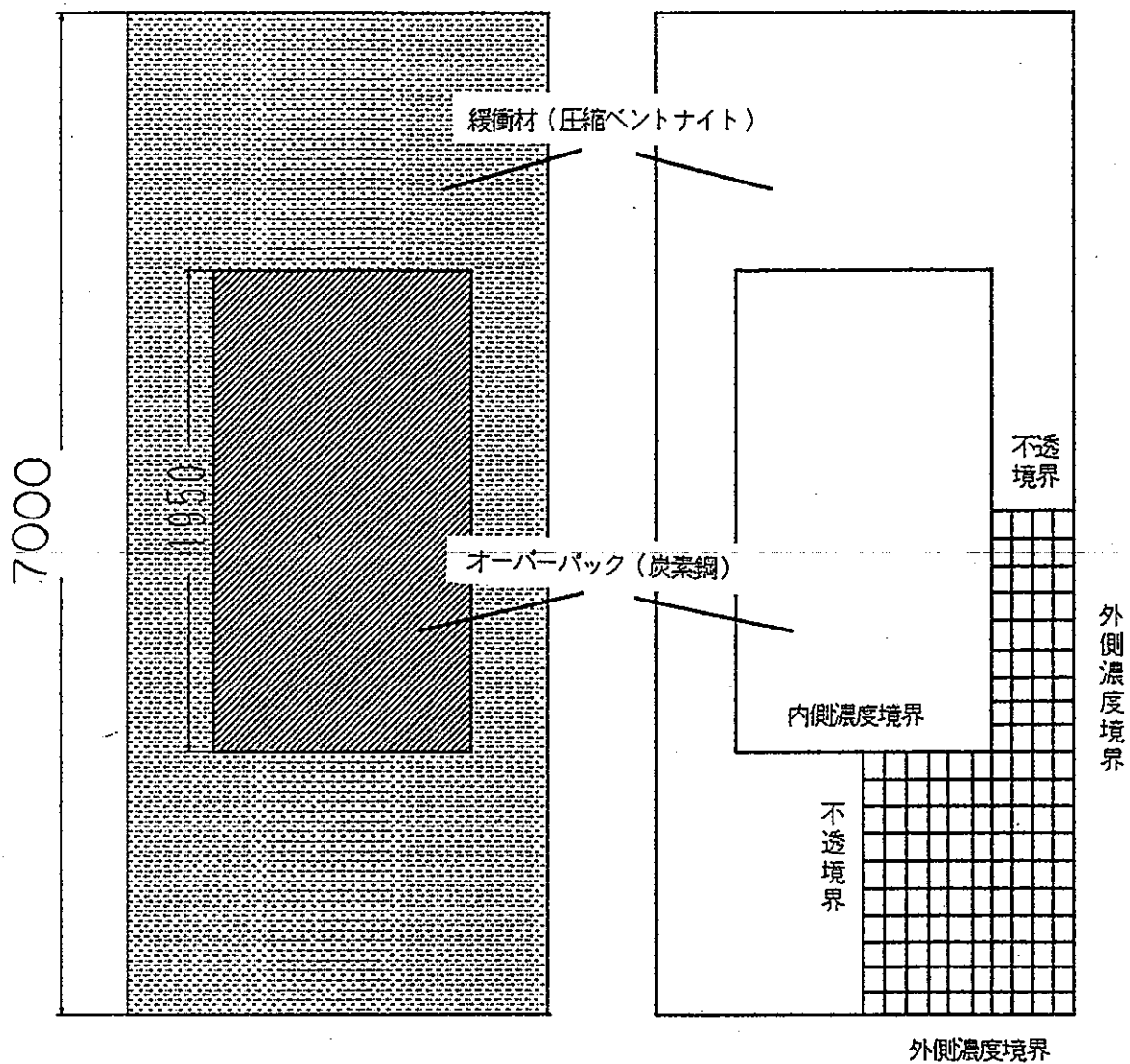
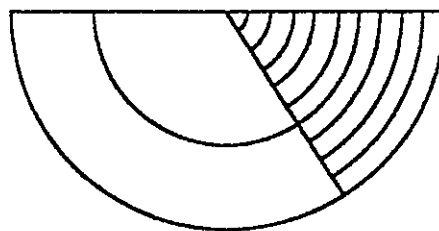


図 2.1.5-1 拡散解析シミュレーションモデル(横置方式)





解析領域の概略図



解析用差分格子の設定

図 2.1.5-2 拡散解析シミュレーションモデル(縦置方式)

表 2.1.5-1 差分格子1つ分の寸法

ベントナイトの厚さ(m)	短期間用(1000年未満)	長期間用(1000年以上)
0.98	6cm*6cm	10cm*30cm
0.33	4cm*6cm	4cm*30cm

*この寸法は計算領域の端付近では適宜変化させた。

表 2.1.5-2 パラメータ設定(ベントナイトの厚さ 0.98m)

解析条件	ベントナイトの厚さ(m)	見かけ拡散係数Da(m ² /s)	水素発生速度(Nm ³ /yr.)	備考
1	0.98	2.00E-10	2.70E+00	
2	0.98	2.00E-10	2.70E-01	
3	0.98	2.00E-10	2.70E-02	
4	0.98	2.00E-11	2.70E+00	
5	0.98	2.00E-11	2.70E-01	処分坑道横置方式の基準値
6	0.98	2.00E-11	2.70E-02	
7	0.98	2.00E-12	2.70E+00	
8	0.98	2.00E-12	2.70E-01	
9	0.98	2.00E-12	2.70E-02	

表 2.1.5-3 パラメータ設定(ベントナイトの厚さ 0.33m)

解析条件	ベントナイトの厚さ(m)	見かけ拡散係数Da(m ² /s)	水素発生速度(Nm ³ /yr.)	備考
10	0.33	2.00E-11	2.70E-01	処分孔竖置方式の基準値
11	0.33	2.00E-11	2.70E-02	
12	0.33	2.00E-10	2.70E-01	

表 2.1.5-4 パラメータ設定(水素発生速度 0.057m³/y)

解析条件	ベントナイトの厚さ(m)	見かけ拡散係数Da(m ² /s)	水素発生速度(Nm ³ /yr.)	備考
13	0.98	2.00E-10	5.70E-02	
14	0.98	2.00E-11	5.70E-02	
15	0.98	2.00E-12	5.70E-02	

表 2.1.5-5 拡散収束時の水素溶出量(ベントナイトの厚さ 0.98m)

解析条件	ベントナイト外への水素溶出量(m ³ /yr.)	収束までの年数	オーバーパック表面のH ₂ 濃度(Nm ³ /m ³)
1	1.81E-01	1000	1.60
2	1.81E-01	1000	1.60
3	2.70E-02	1000	0.24
4	1.81E-02	5000	1.60
5	1.81E-02	5000	1.60
6	1.81E-02	5000	1.60
7	1.81E-03	50000	1.60
8	1.81E-03	50000	1.60
9	1.81E-03	50000	1.60

表 2.1.5-6 拡散収束時の水素溶出量(ベントナイトの厚さ 0.33m)

解析条件	ベントナイト外への水素溶出量(m ³ /yr.)	収束までの年数	オーバーパック表面のH ₂ 濃度(Nm ³ /m ³)
10	3.33E-02	2000	1.60
11	2.70E-02	2000	1.30
12	2.70E-01	200	1.30

表 2.1.5-7 拡散収束時の水素溶出量(水素発生速度 0.057m³/y)

解析条件	ベントナイト外への水素溶出量(m ³ /yr.)	収束までの年数	オーバーパック表面のH ₂ 濃度(Nm ³ /m ³)
13	5.70E-02	1000	0.50
14	1.81E-02	5000	1.60
15	1.81E-03	50000	1.60

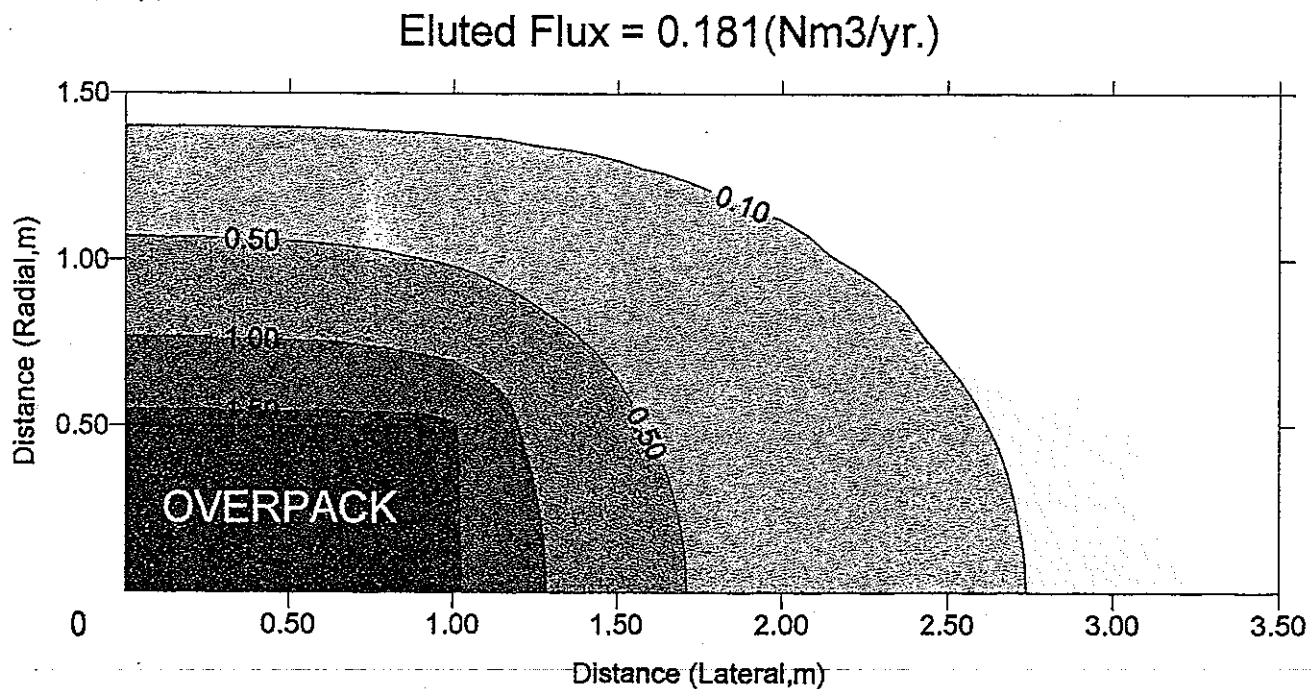


図 2.2.1-1 1000 年後のベントナイト中の水素濃度分布 (ケース 1)
 (坑道横置方式、拡散係数： 2×10^{-10} m²/s、発生速度：
 2.70 m³/y、ベントナイト厚： 0.98 m、キャニスタ面
 の水素濃度 1.6 m³/m³、岩盤面の水素濃度： 0 m³/m³)

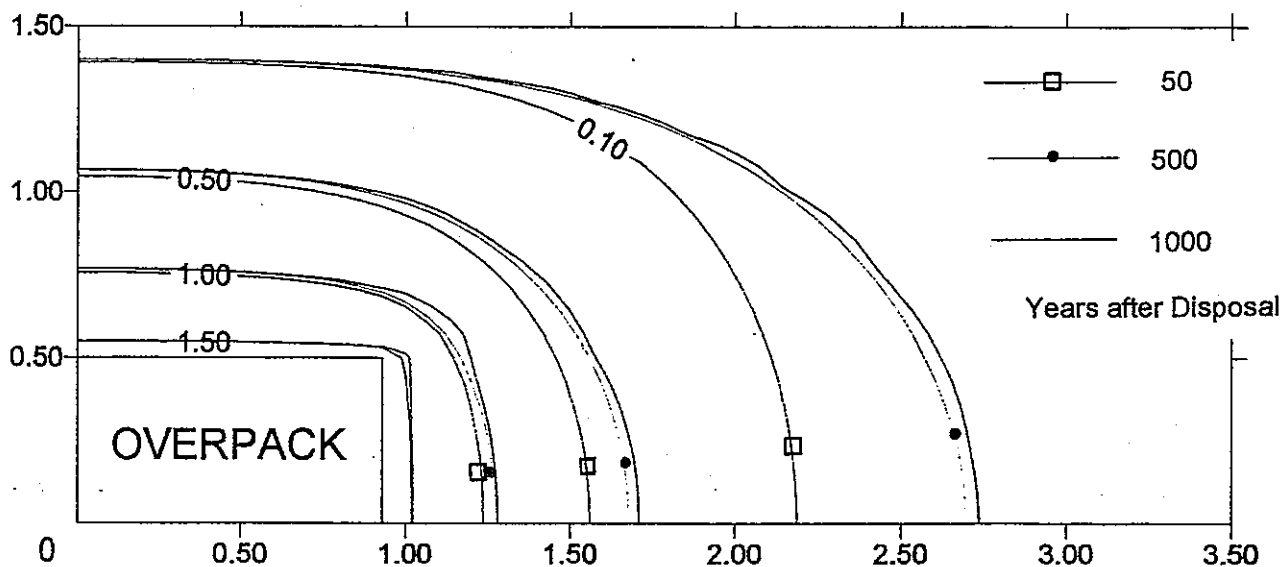


図 2.2.1-2 50~1000 年ベントナイト中の水素濃度分布 (ケース 1)
 (坑道横置方式、拡散係数： 2×10^{-10} m²/s、発生速度：
 2.70 m³/y、ベントナイト厚： 0.98 m、キャニスタ面
 の水素濃度 1.6 m³/m³、岩盤面の水素濃度： 0 m³/m³)

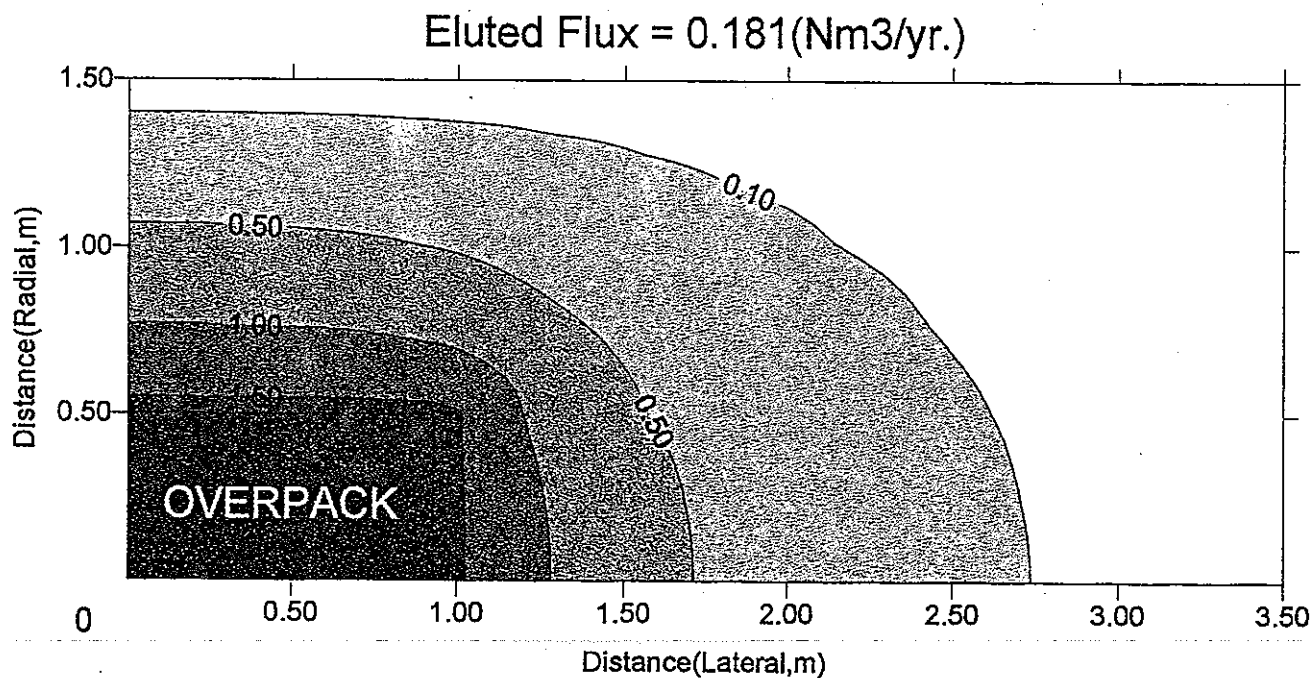


図 2.2.1-3 1000 年後のベントナイト中の水素濃度分布 (ケース 2)
 (坑道横置方式、拡散係数: 2×10^{-10} m²/s、発生速度:
 0.27 m³/y、ベントナイト厚: 0.98 m、キャニスタ面
 の水素濃度 1.6 m³/m³、岩盤面の水素濃度: 0 m³/m³)

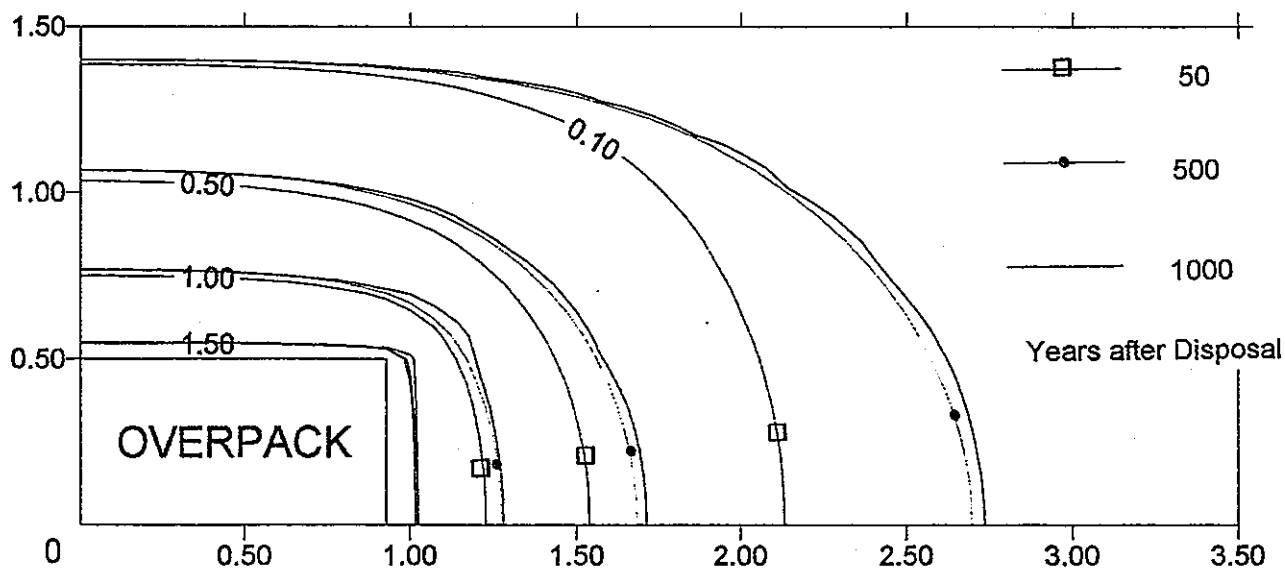


図 2.2.1-4 50~1000 年ベントナイト中の水素濃度分布 (ケース 2)
 (坑道横置方式、拡散係数: 2×10^{-10} m²/s、発生速度:
 0.27 m³/y、ベントナイト厚: 0.98 m、キャニスタ面
 の水素濃度 1.6 m³/m³、岩盤面の水素濃度: 0 m³/m³)

Eluted Flux=0.027(Nm³/yr.)

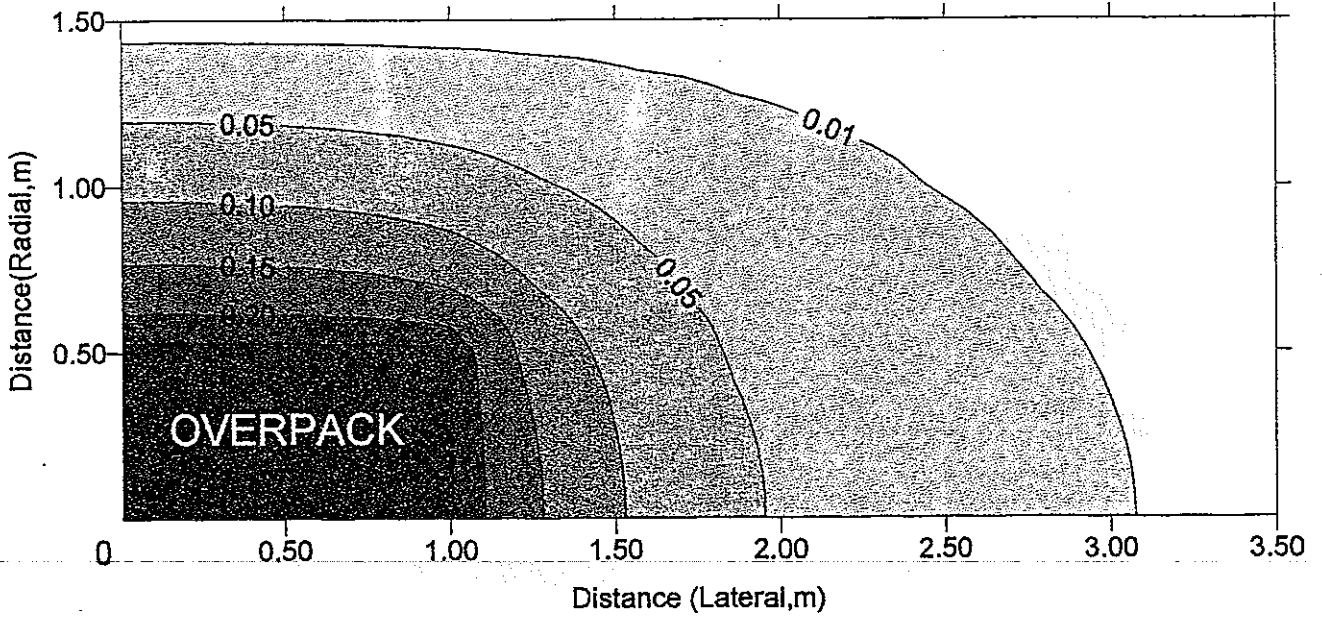


図 2.2.1-5 1000 年後のベントナイト中の水素濃度分布 (ケース 3)

(坑道横置方式、拡散係数： 2×10^{-10} m²/s、発生速度：
0.027 m³/y、ベントナイト厚：0.98 m、キャニスタ
面の水素濃度 1.6 m³/m³、岩盤面の水素濃度：0 m³/m³)

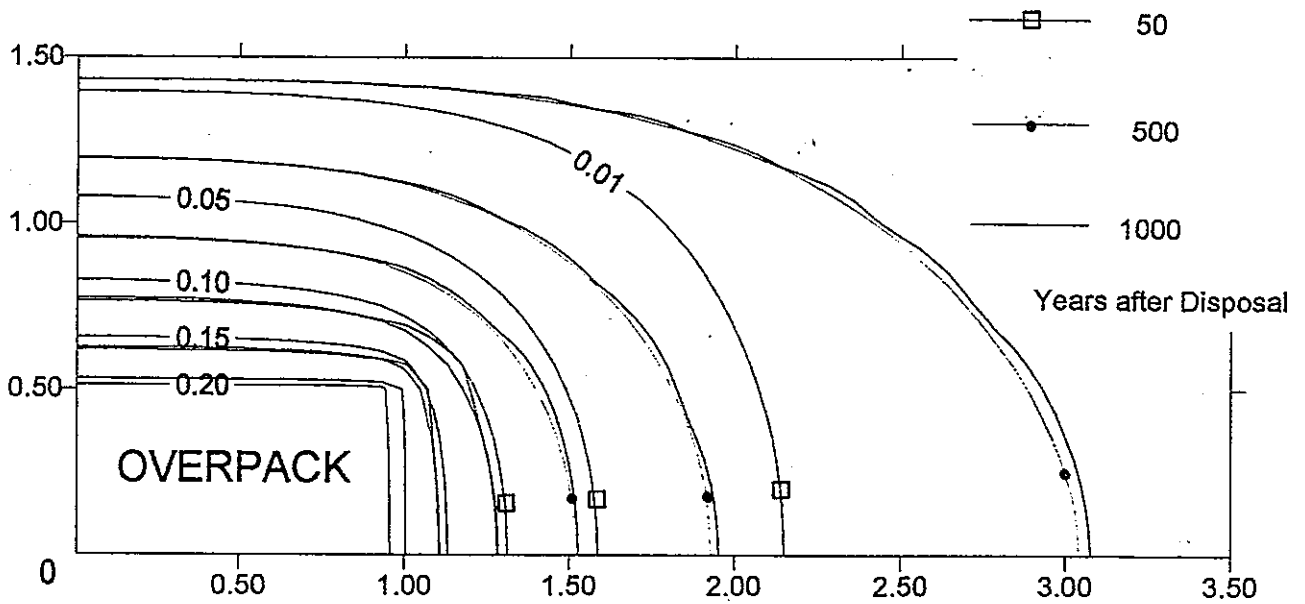


図 2.2.1-6 50~1000 年後のベントナイト中の水素濃度分布 (ケース 3)

(坑道横置方式、拡散係数： 2×10^{-10} m²/s、発生速度：
0.027 m³/y、ベントナイト厚：0.98 m、キャニスタ
面の水素濃度 1.6 m³/m³、岩盤面の水素濃度：0 m³/m³)

Eluted Flux=0.0181(Nm³/yr.)

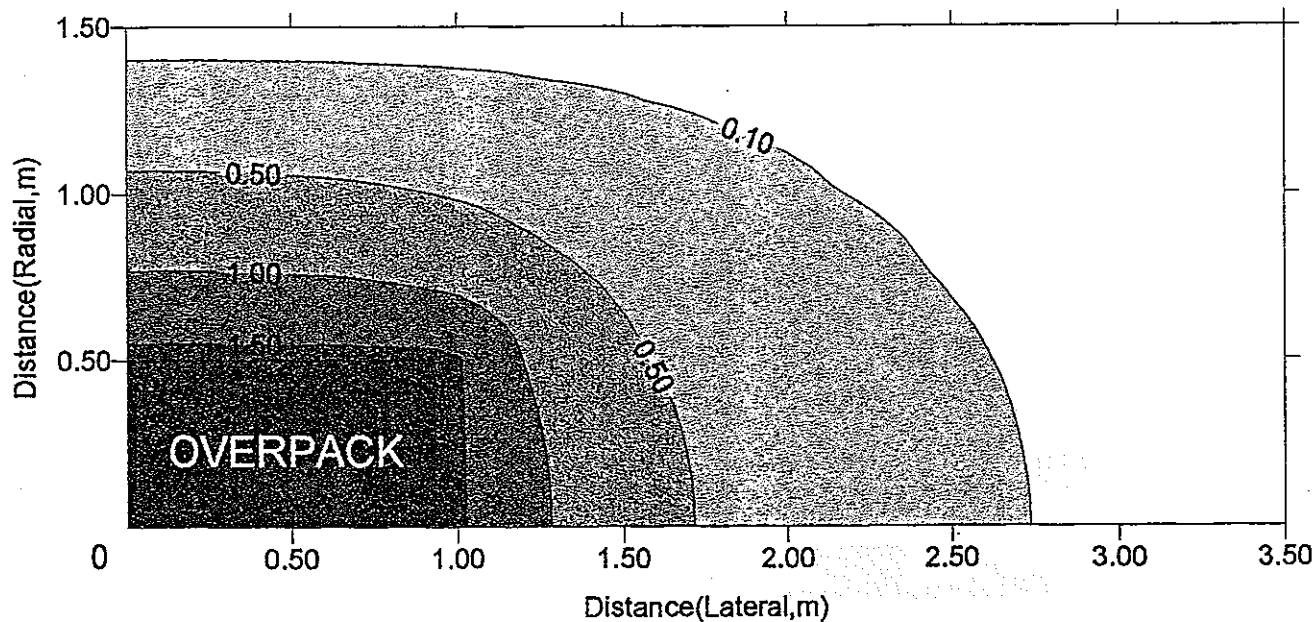


図 2.2.1-7 5000 年後のベントナイト中の水素濃度分布 (ケース 4)

(坑道横置方式、拡散係数： 2×10^{-11} m²/s、発生速度：
2.70 m³/y、ベントナイト厚：0.98 m、キャニスタ面
の水素濃度 1.6 m³/m³、岩盤面の水素濃度：0 m³/m³)

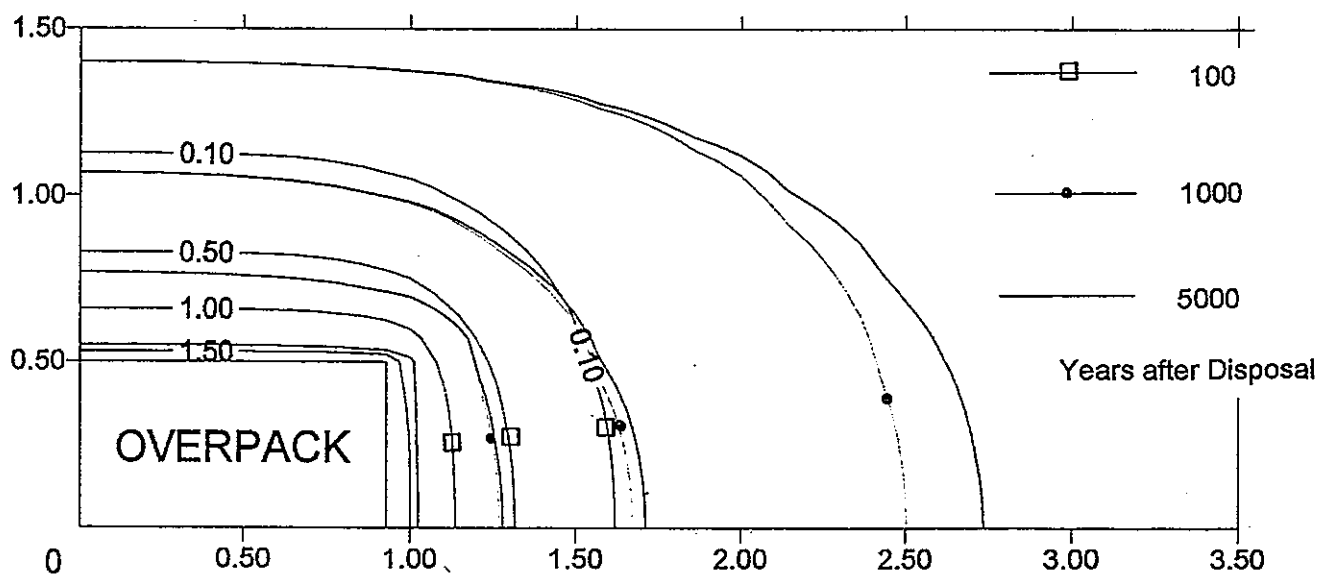


図 2.2.1-8 100~5000 年ベントナイト中の水素濃度分布 (ケース 4)

(坑道横置方式、拡散係数： 2×10^{-11} m²/s、発生速度：
2.70 m³/y、ベントナイト厚：0.98 m、キャニスタ面
の水素濃度 1.6 m³/m³、岩盤面の水素濃度：0 m³/m³)

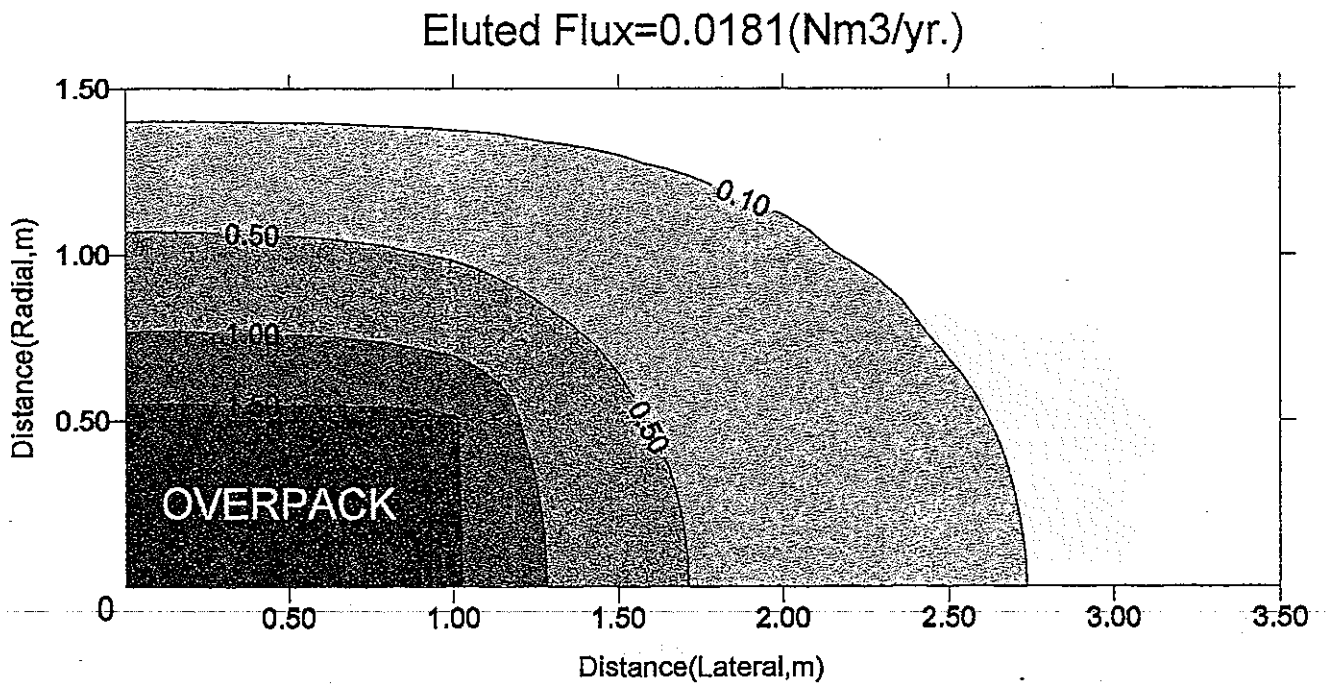


図 2.2.1-9 5000 年後のベントナイト中の水素濃度分布 (ケース 5)
 (坑道横置方式、拡散係数： 2×10^{-11} m²/s、発生速度：
 0.27 m³/y、ベントナイト厚：0.98 m、キャニスタ面
 の水素濃度 1.6 m³/m³、岩盤面の水素濃度：0 m³/m³)

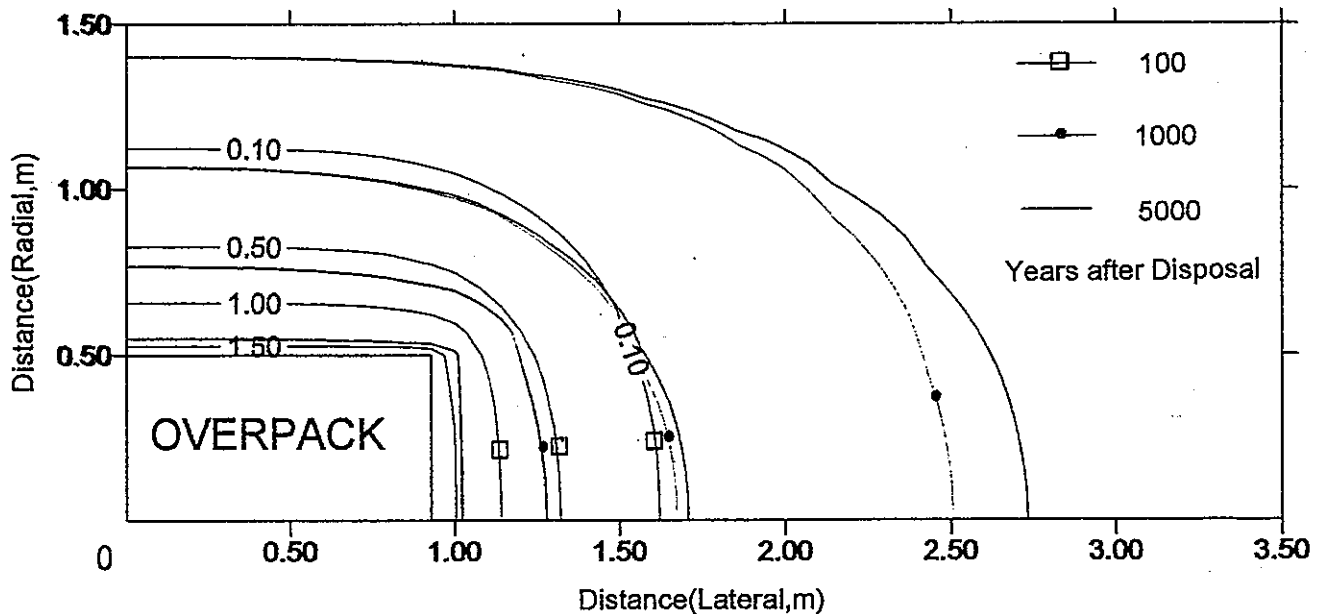


図 2.2.1-10 100~5000 年ベントナイト中の水素濃度分布 (ケース 5)
 (坑道横置方式、拡散係数： 2×10^{-11} m²/s、発生速度：
 0.27 m³/y、ベントナイト厚：0.98 m、キャニスタ面
 の水素濃度 1.6 m³/m³、岩盤面の水素濃度：0 m³/m³)

Eluted Flux=0.0181(Nm³/yr.)

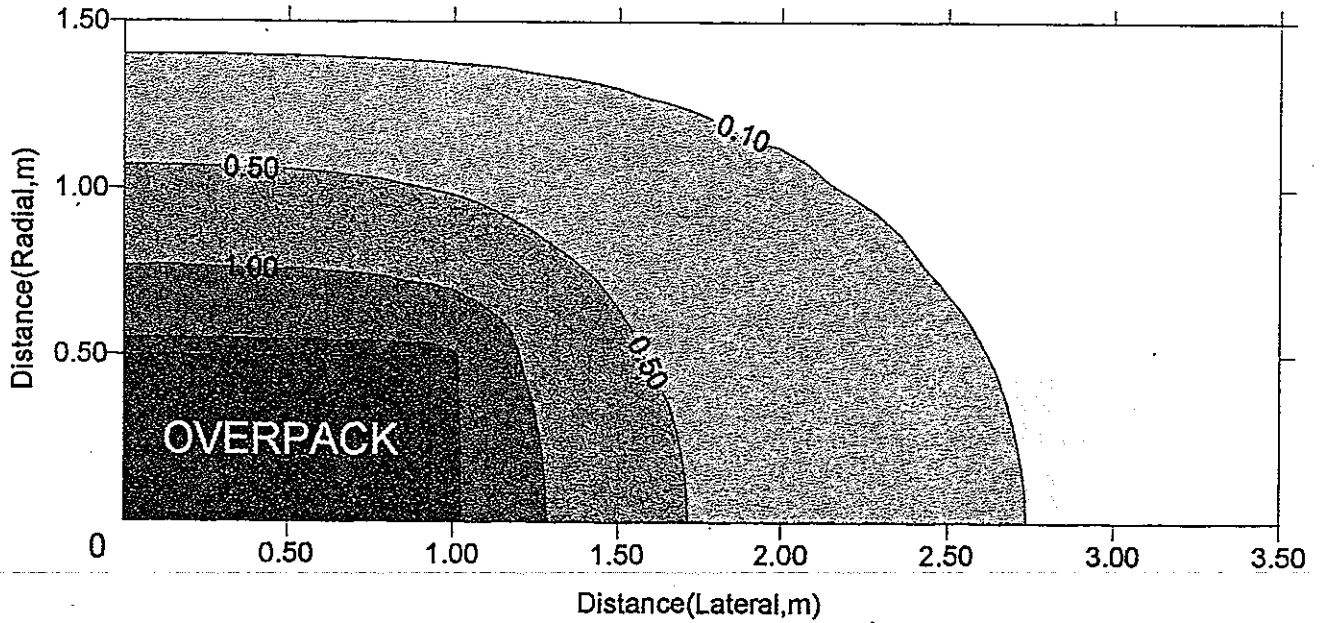


図 2.2.1-11 5000 年後のベントナイト中の水素濃度分布 (ケース 6)

(坑道横置方式、拡散係数： 2×10^{-11} m²/s、発生速度：
0.027 m³/y、ベントナイト厚：0.98 m、キャニスタ面
の水素濃度 1.6 m³/m³、岩盤面の水素濃度：0 m³/m³)

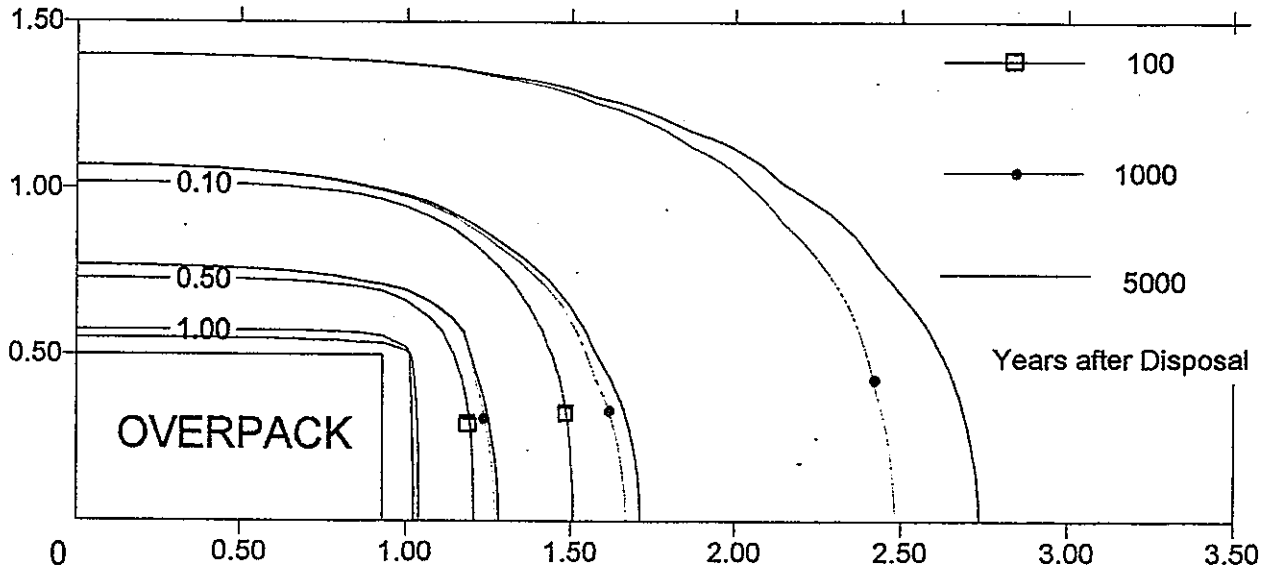


図 2.2.1-12 100~5000 年ベントナイト中の水素濃度分布 (ケース 6)

(坑道横置方式、拡散係数： 2×10^{-11} m²/s、発生速度：
0.027 m³/y、ベントナイト厚：0.98 m、キャニスタ面
の水素濃度 1.6 m³/m³、岩盤面の水素濃度：0 m³/m³)

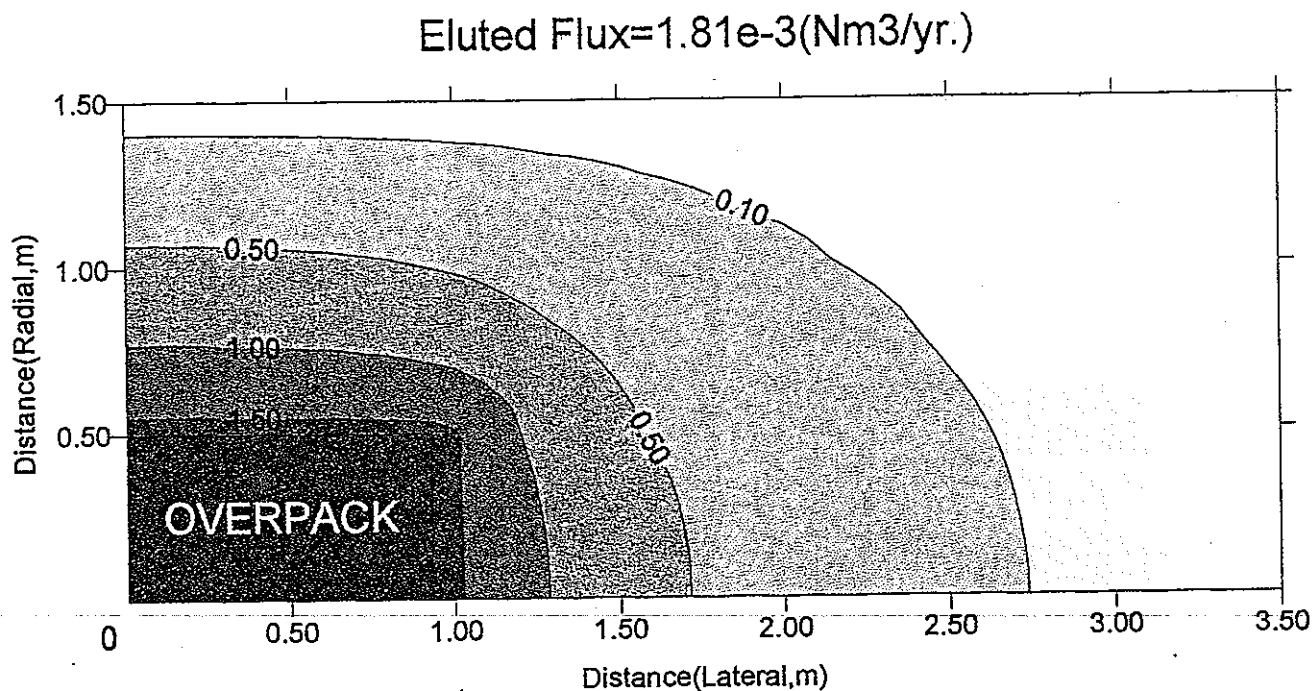


図 2.2.1-13 50000 年後のベントナイト中の水素濃度分布 (ケース 7)

(坑道横置方式、拡散係数： 2×10^{-11} m²/s、発生速度：
2.70 m³/y、ベントナイト厚：0.98 m、キャニスタ面
の水素濃度 1.6 m³/m³、岩盤面の水素濃度：0 m³/m³)

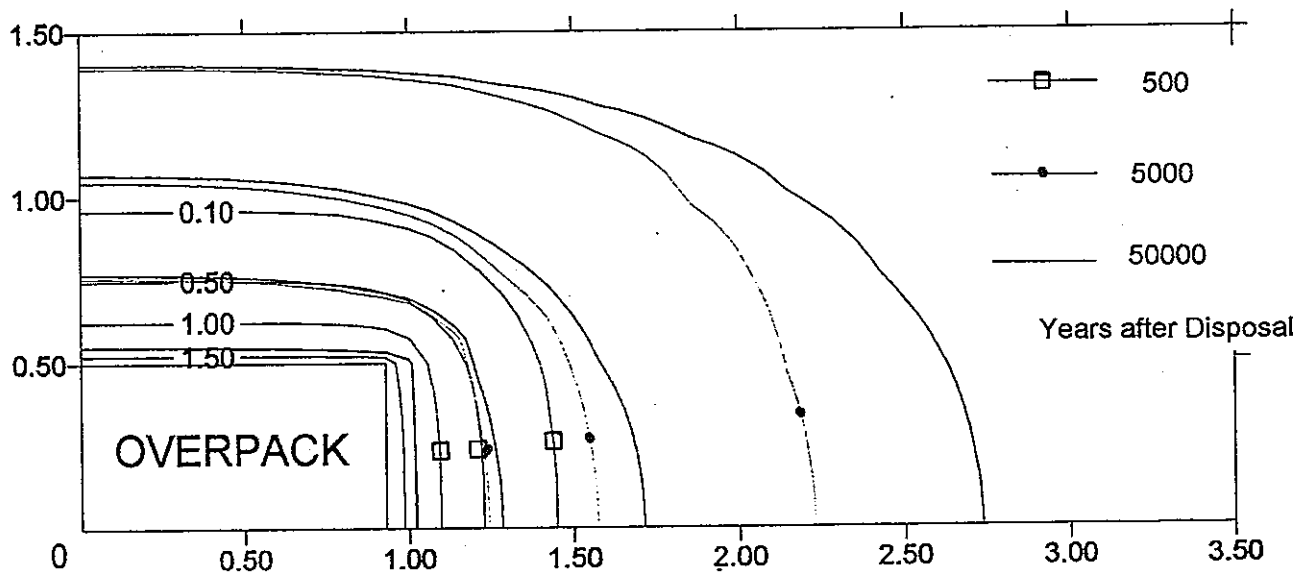


図 2.2.1-14 500~50000 年後のベントナイト中の水素濃度分布 (ケース 7)

(坑道横置方式、拡散係数： 2×10^{-11} m²/s、発生速度：
2.70 m³/y、ベントナイト厚：0.98 m、キャニスタ面
の水素濃度 1.6 m³/m³、岩盤面の水素濃度：0 m³/m³)

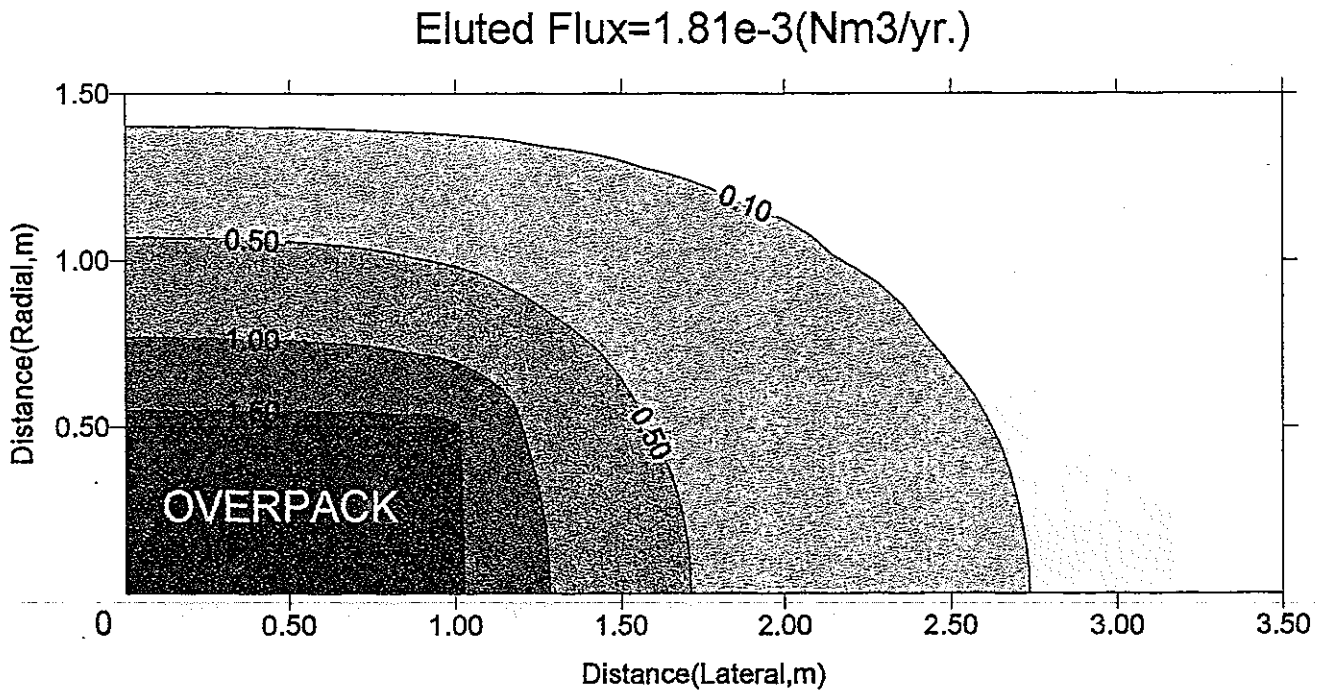


図 2.2.1-15 50000 年後のベントナイト中の水素濃度分布 (ケース 8)

(坑道横置方式、拡散係数： 2×10^{-11} m²/s、発生速度：
 0.27 m³/y、ベントナイト厚：0.98 m、キャニスタ面
 の水素濃度 1.6 m³/m³、岩盤面の水素濃度：0 m³/m³)

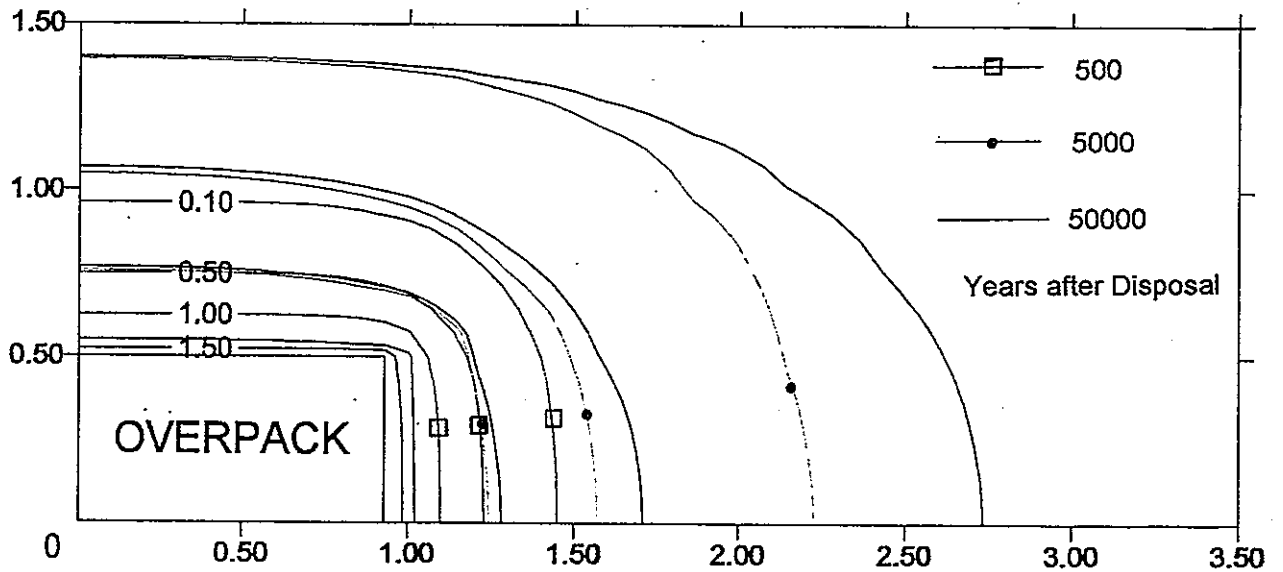


図 2.2.1-16 500~50000 年後のベントナイト中の水素濃度分布 (ケース 8)

(坑道横置方式、拡散係数： 2×10^{-11} m²/s、発生速度：
 0.27 m³/y、ベントナイト厚：0.98 m、キャニスタ面
 の水素濃度 1.6 m³/m³、岩盤面の水素濃度：0 m³/m³)

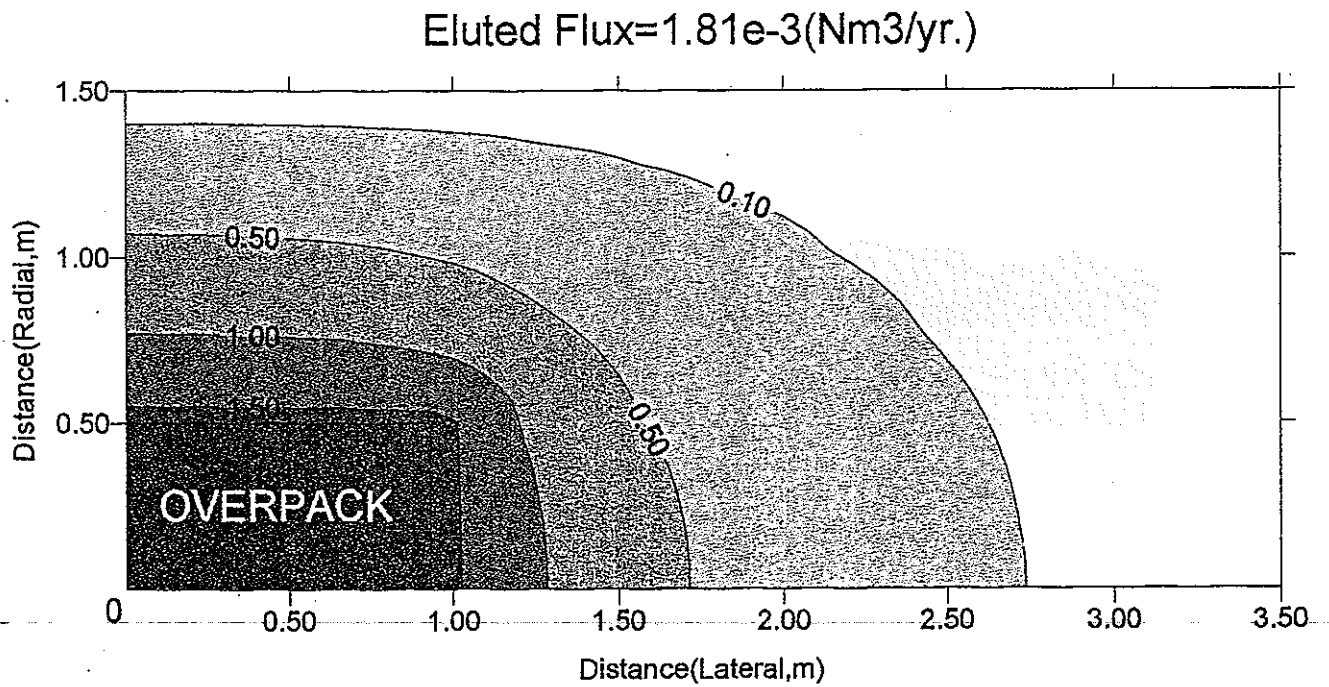


図 2.2.1-17 50000 年後のベントナイト中の水素濃度分布 (ケース 9)

(坑道横置方式、拡散係数： 2×10^{-11} m²/s、発生速度：
 0.027 m³/y、ベントナイト厚：0.98 m、キャニスタ面
 の水素濃度 1.6 m³/m³、岩盤面の水素濃度：0 m³/m³)

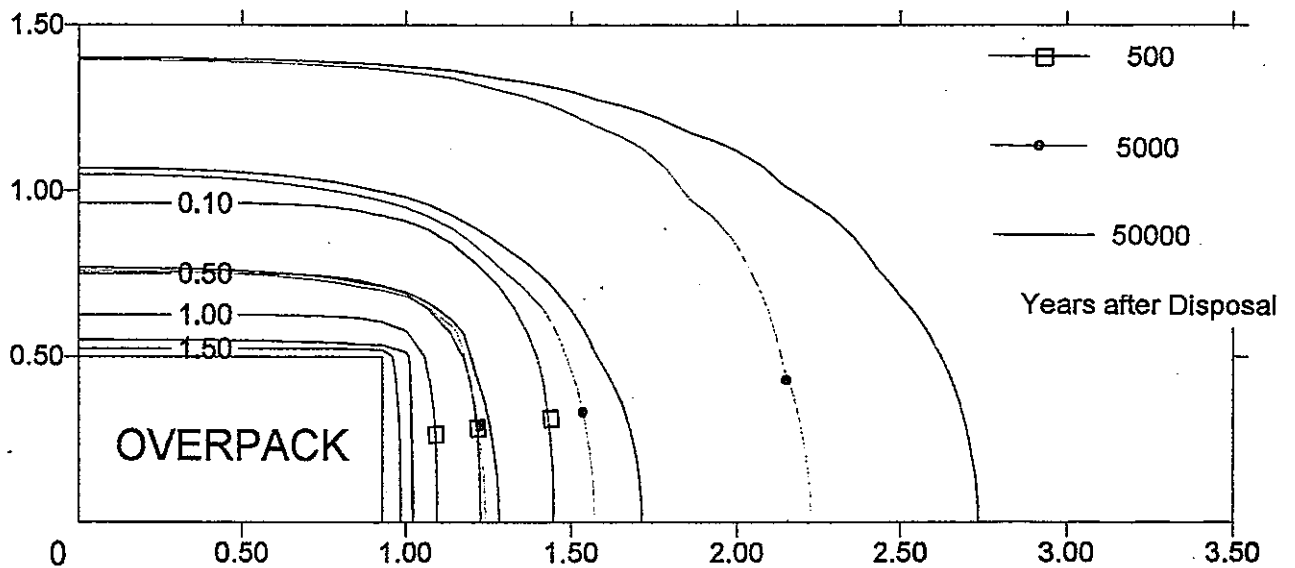


図 2.2.1-18 500~50000 年後のベントナイト中の水素濃度分布 (ケース 9)

(坑道横置方式、拡散係数： 2×10^{-11} m²/s、発生速度：
 0.027 m³/y、ベントナイト厚：0.98 m、キャニスタ面
 の水素濃度 1.6 m³/m³、岩盤面の水素濃度：0 m³/m³)

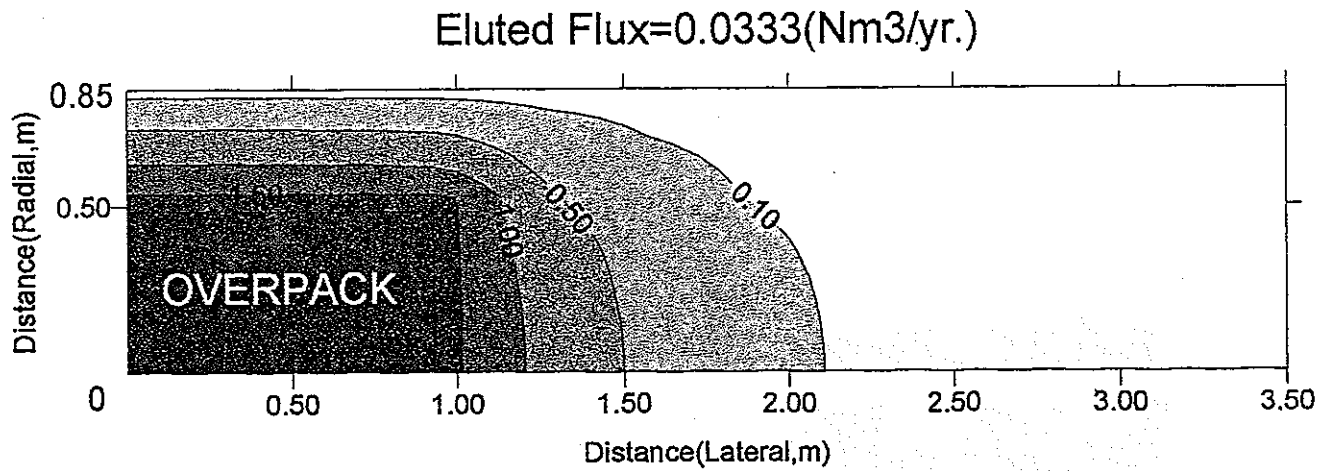


図 2.2.2-1 2000 年後のベントナイト中の水素濃度分布 (ケース 10)

(処分孔縦置方式、拡散係数： 2×10^{-11} m²/s、発生速度：
 0.27 m³/y、ベントナイト厚：0.33 m、キャニスタ面
 の水素濃度 1.6 m³/m³、岩盤面の水素濃度：0 m³/m³)

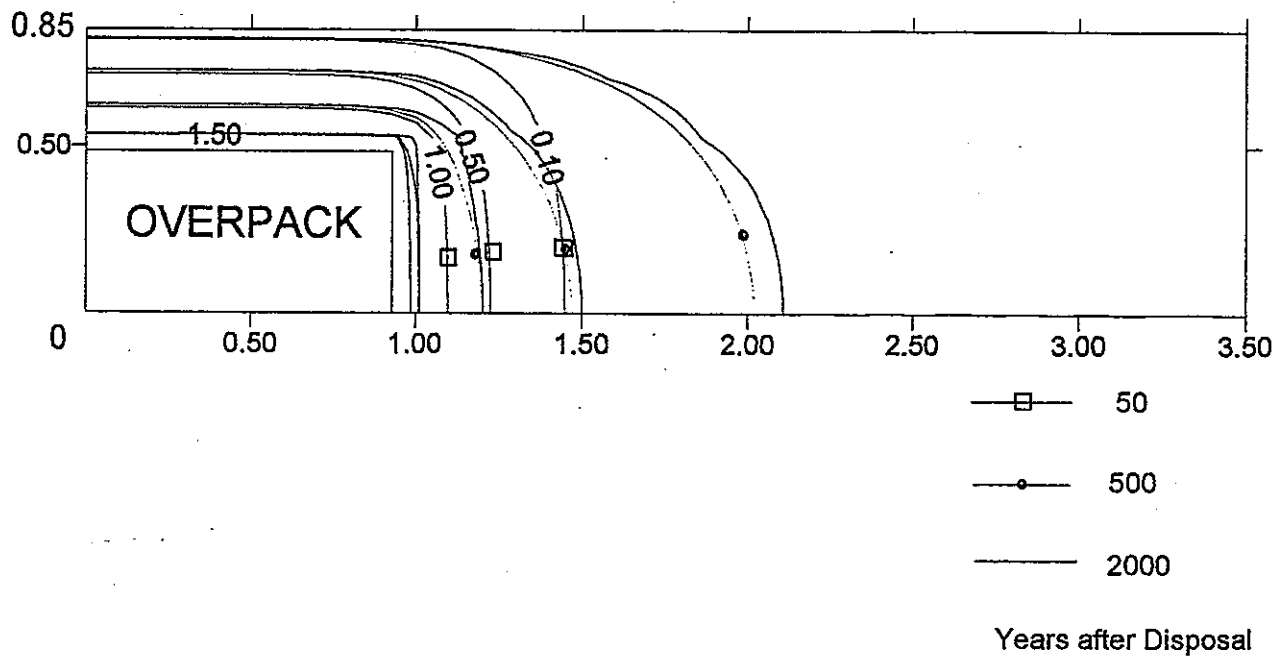


図 2.2.2-2 50~2000 年後のベントナイト中の水素濃度分布 (ケース 10)

(処分孔縦置方式、拡散係数： 2×10^{-11} m²/s、発生速度：
 0.27 m³/y、ベントナイト厚：0.33 m、キャニスタ面
 の水素濃度 1.6 m³/m³、岩盤面の水素濃度：0 m³/m³)

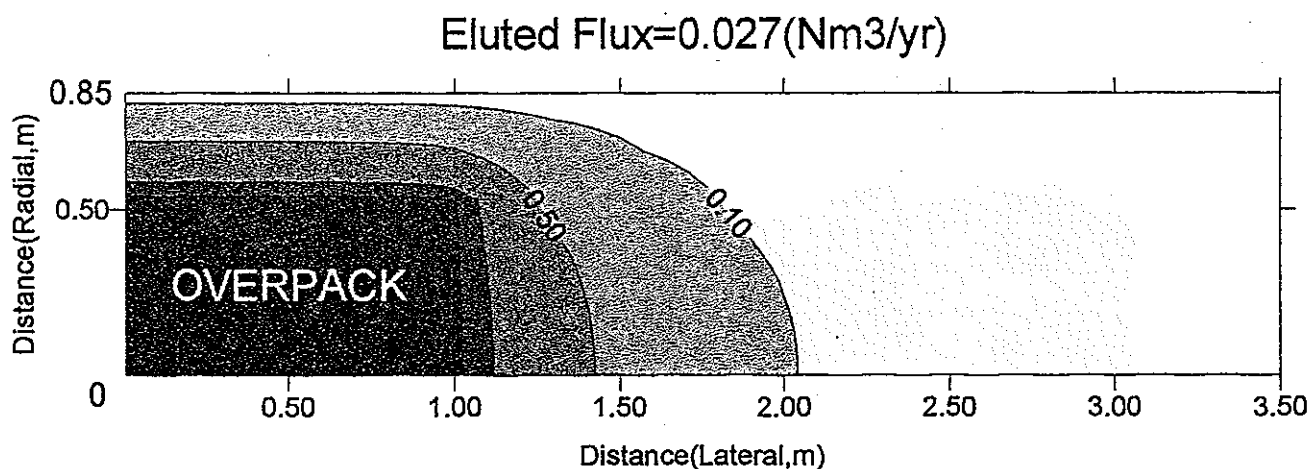


図 2.2.2-3 2000 年後のベントナイト中の水素濃度分布 (ケース 1 1)
 (処分孔縦置方式、拡散係数： $2 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$ 、発生速度：
 $0.027 \text{ m}^3/\text{y}$ 、ベントナイト厚：0.33 m、キャニスタ面
 の水素濃度 $1.6 \text{ m}^3/\text{m}^3$ 、岩盤面の水素濃度： $0 \text{ m}^3/\text{m}^3$)

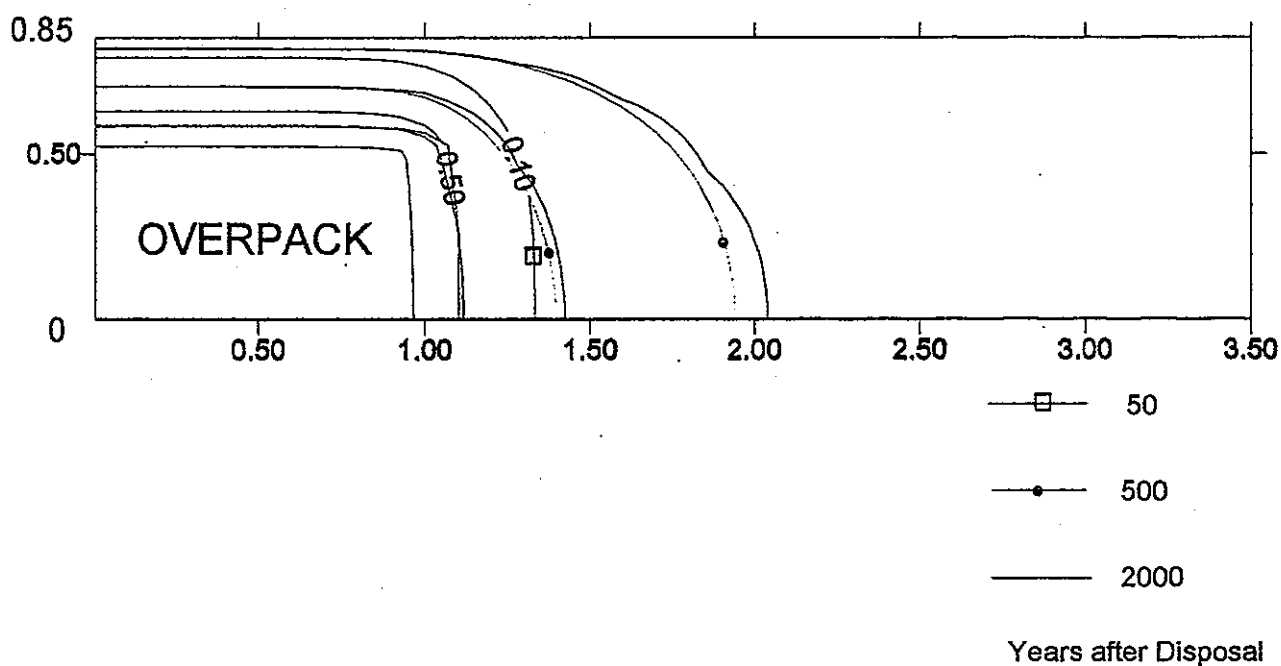


図 2.2.2-4 50~2000 年後のベントナイト中の水素濃度分布 (ケース 1 1)
 (処分孔縦置方式、拡散係数： $2 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$ 、発生速度：
 $0.027 \text{ m}^3/\text{y}$ 、ベントナイト厚：0.33 m、キャニスタ面
 の水素濃度 $1.6 \text{ m}^3/\text{m}^3$ 、岩盤面の水素濃度： $0 \text{ m}^3/\text{m}^3$)

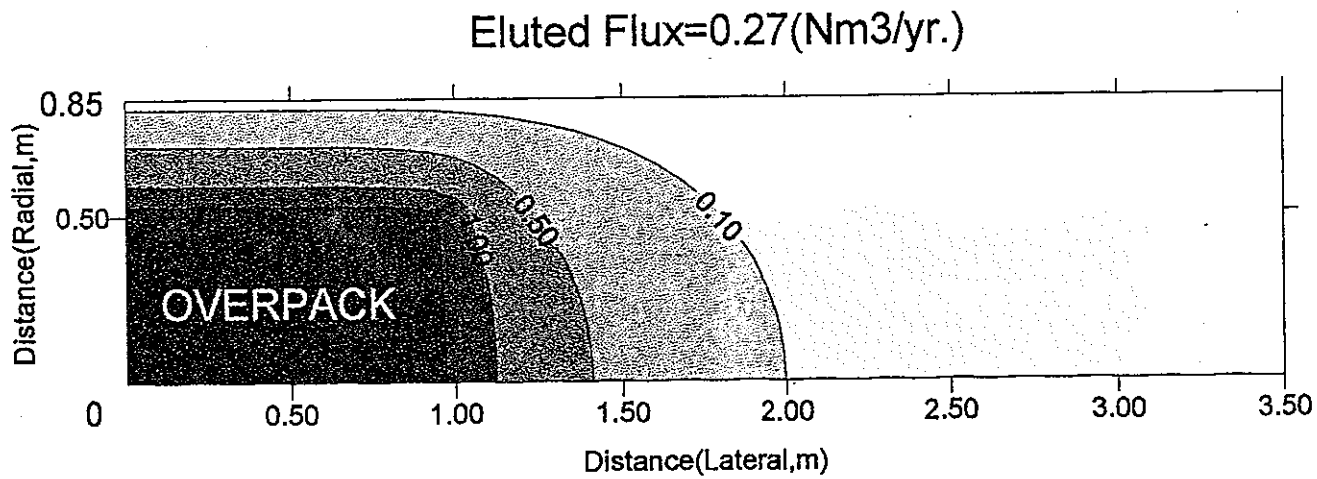


図 2.2.2-5 200 年後のベントナイト中の水素濃度分布 (ケース 1 2)
 (処分孔縦置方式、拡散係数： 2×10^{-10} m²/s、発生速度：
 0.27 m³/y、ベントナイト厚：0.33 m、キャニスタ面
 の水素濃度 1.6 m³/m³、岩盤面の水素濃度：0 m³/m³)

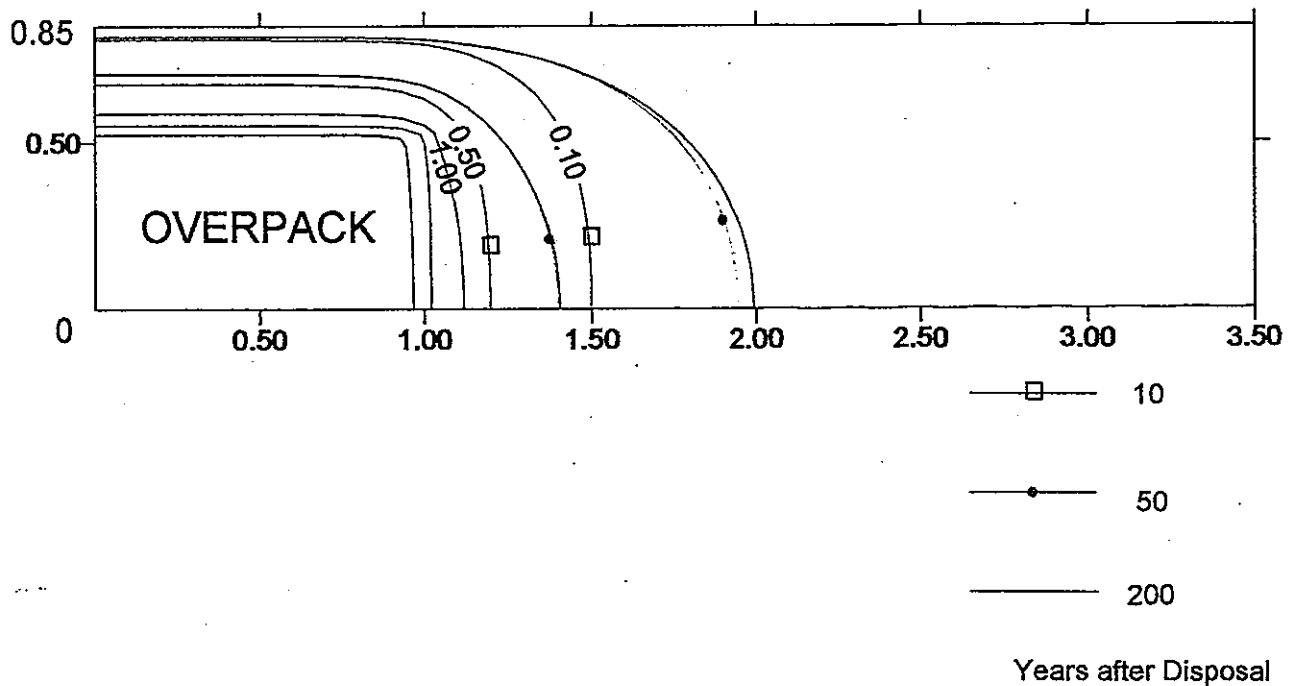


図 2.2.2-6 10~200 年後のベントナイト中の水素濃度分布 (ケース 1 2)
 (処分孔縦置方式、拡散係数： 2×10^{-10} m²/s、発生速度：
 0.27 m³/y、ベントナイト厚：0.33 m、キャニスタ面
 の水素濃度 1.6 m³/m³、岩盤面の水素濃度：0 m³/m³)

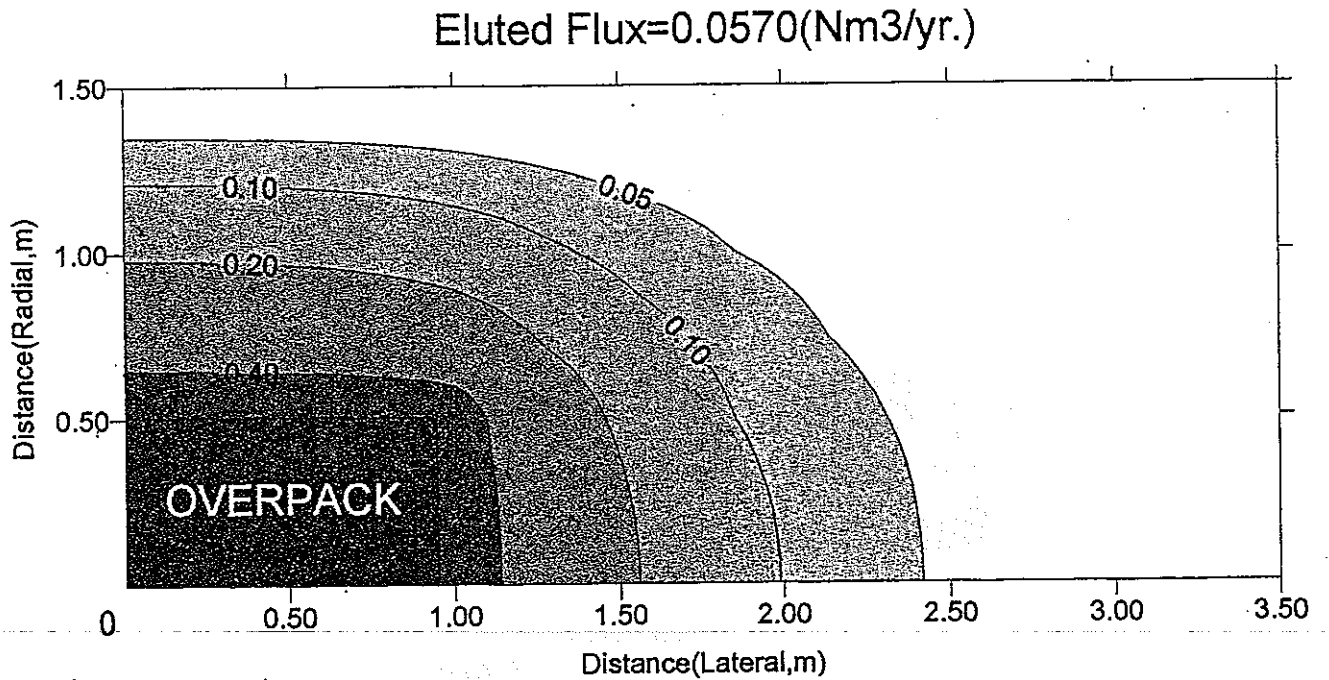


図 2.2.3-1 1000 年後のベントナイト中の水素濃度分布 (ケース 1 3)
 (坑道横置方式、拡散係数： 2×10^{-10} m²/s、発生速度：
 0.057 m³/y、ベントナイト厚：0.98 m、キャニスタ面
 の水素濃度 1.6 m³/m³、岩盤面の水素濃度：0 m³/m³)

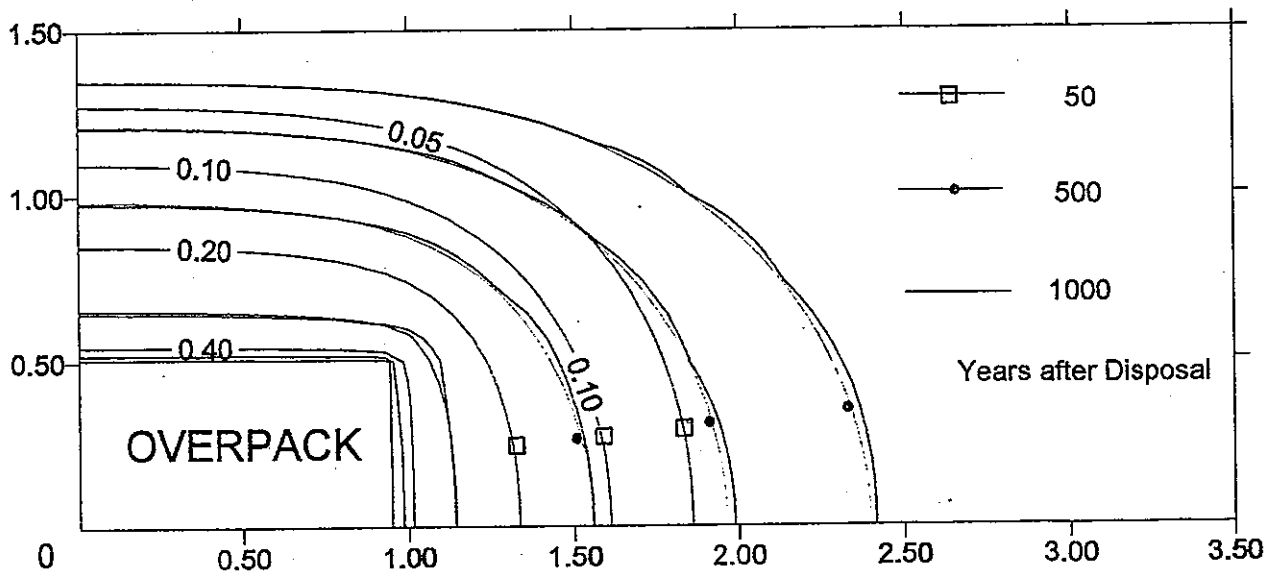


図 2.2.3-2 50~1000 年後のベントナイト中の水素濃度分布 (ケース 1 3)
 (坑道横置方式、拡散係数： 2×10^{-10} m²/s、発生速度：
 0.057 m³/y、ベントナイト厚：0.98 m、キャニスタ面
 の水素濃度 1.6 m³/m³、岩盤面の水素濃度：0 m³/m³)

Eluted Flux=0.0181(Nm³/yr.)

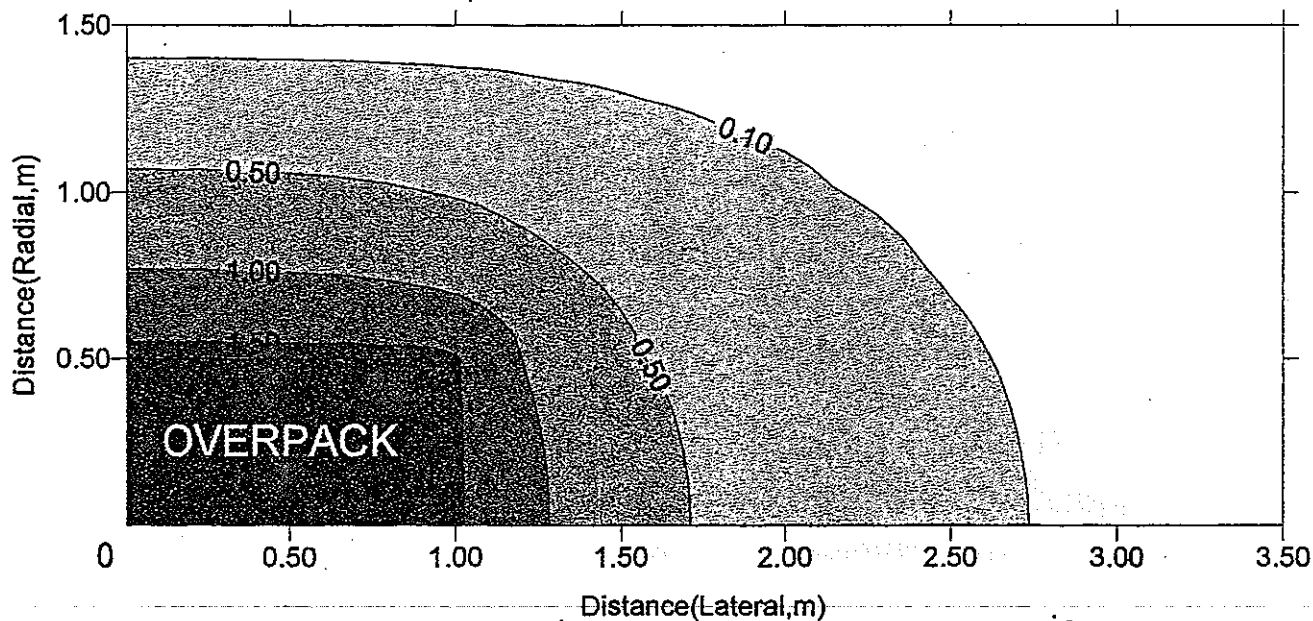


図 2.2.3-3 5000年後のベントナイト中の水素濃度分布 (ケース14)

(坑道横置方式、拡散係数： 2×10^{-11} m²/s、発生速度：
0.057 m³/y、ベントナイト厚：0.98 m、キャニスタ面
の水素濃度 1.6 m³/m³、岩盤面の水素濃度：0 m³/m³)

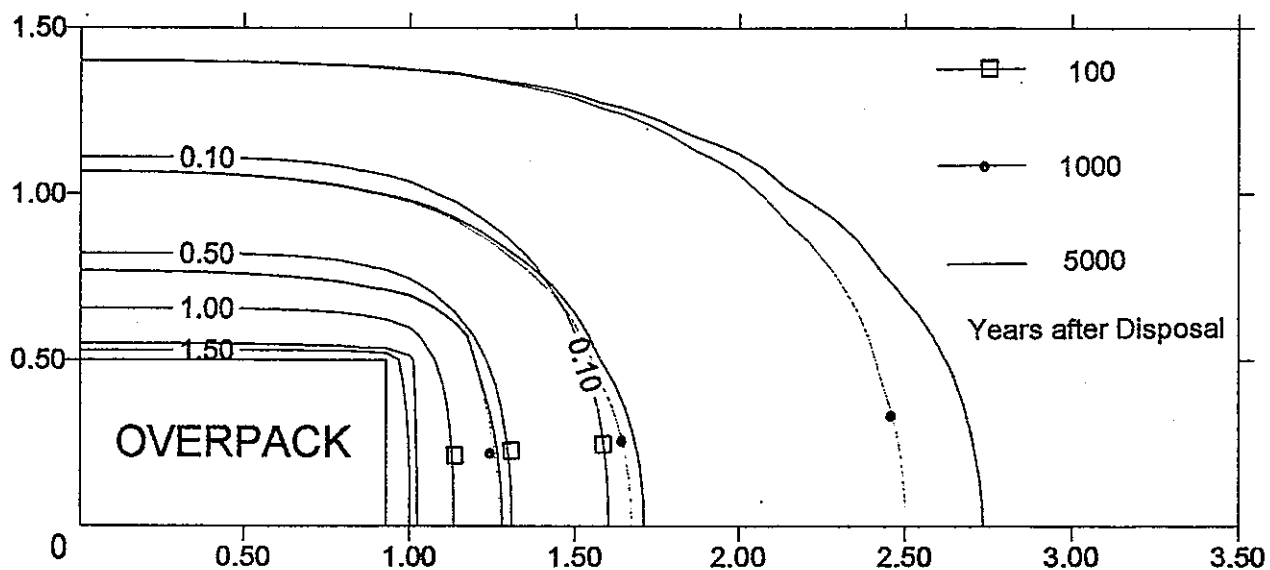


図 2.2.3-4 100~5000年後のベントナイト中の水素濃度分布 (ケース14)

(坑道横置方式、拡散係数： 2×10^{-11} m²/s、発生速度：
0.057 m³/y、ベントナイト厚：0.98 m、キャニスタ面
の水素濃度 1.6 m³/m³、岩盤面の水素濃度：0 m³/m³)

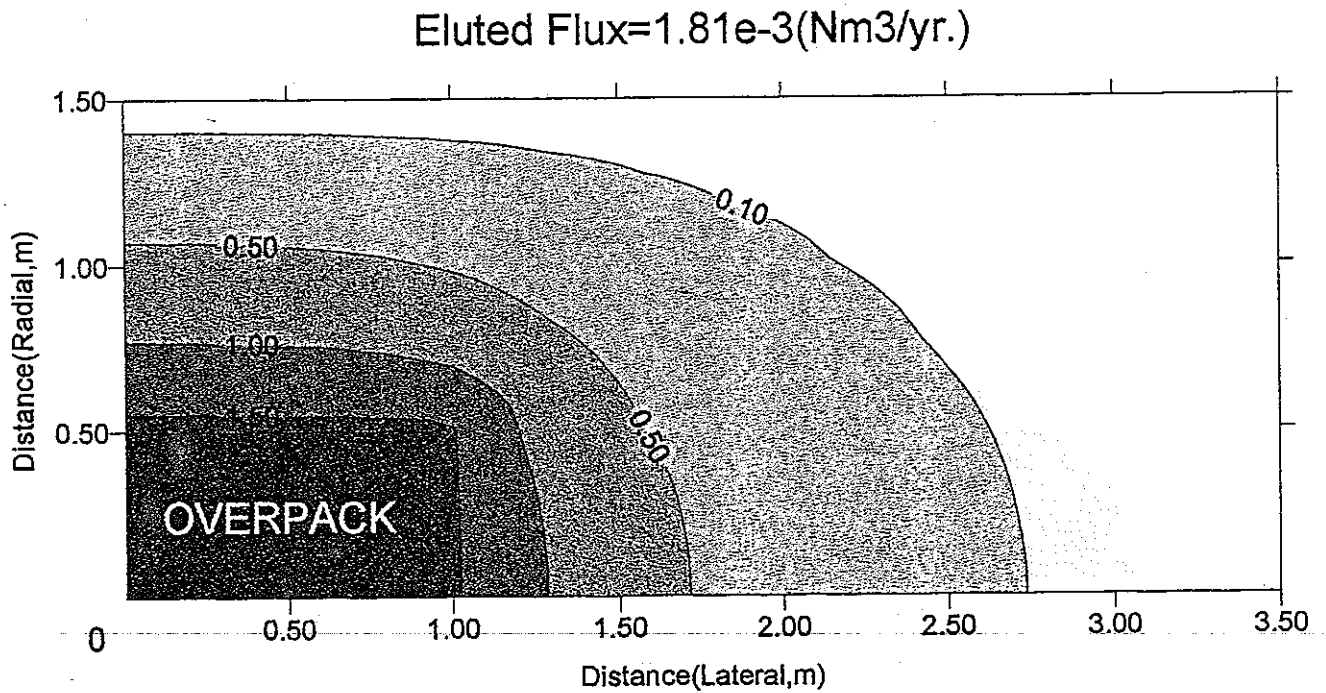


図 2.2.3-5 50000 年後のベントナイト中の水素濃度分布 (ケース 1 5)

(坑道横置方式、拡散係数： 2×10^{-11} m²/s、発生速度：
 0.057 m³/y、ベントナイト厚：0.98 m、キャニスタ面
 の水素濃度 1.6 m³/m³、岩盤面の水素濃度：0 m³/m³)

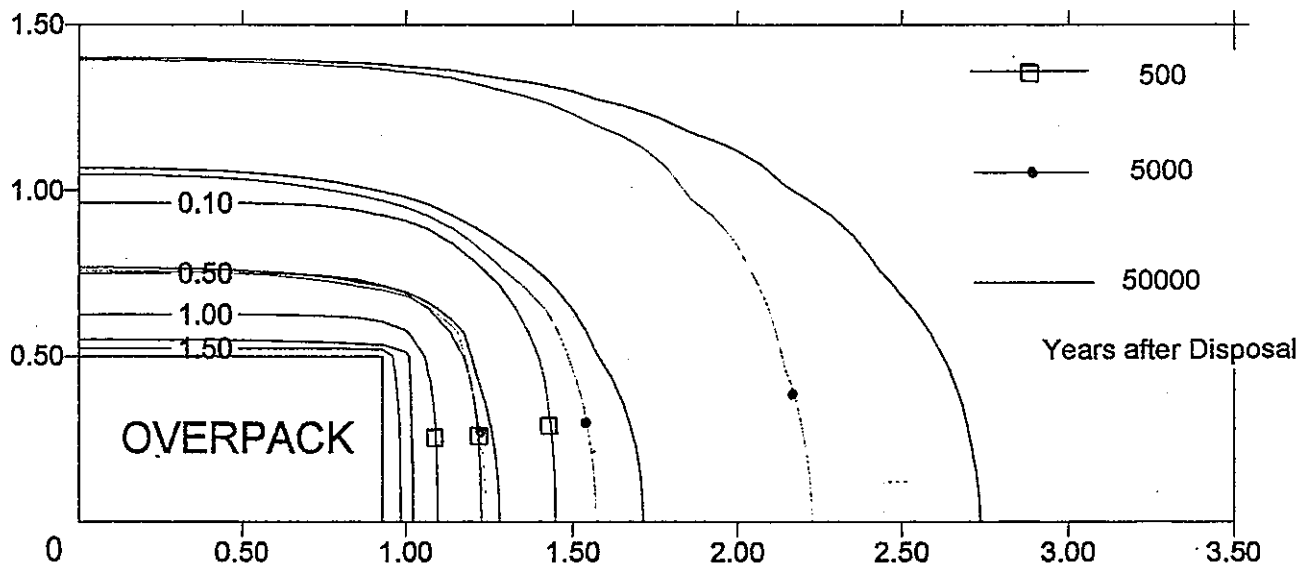


図 2.2.3-6 500~50000 年後のベントナイト中の水素濃度分布 (ケース 1 5)

(坑道横置方式、拡散係数： 2×10^{-11} m²/s、発生速度：
 0.057 m³/y、ベントナイト厚：0.98 m、キャニスタ面
 の水素濃度 1.6 m³/m³、岩盤面の水素濃度：0 m³/m³)

Eluted Flux = 0.0142(Nm³/yr.)

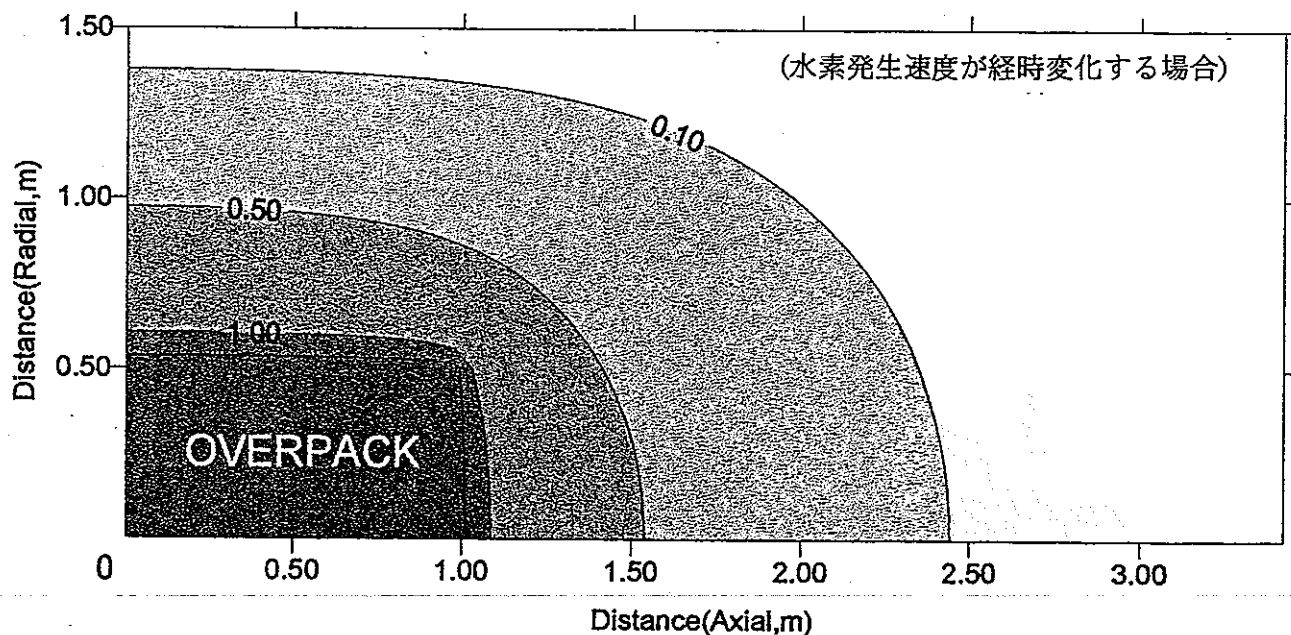


図 2.2.4-1 1000 年後のベントナイト中の水素濃度分布

(坑道横置方式、拡散係数： 2×10^{-11} m²/s、発生速度：
0.0113 m³/y、ベントナイト厚：0.98 m、キャニスタ面
の水素濃度 1.6 m³/m³、岩盤面の水素濃度：0 m³/m³)

Eluted Flux=0.00213(Nm³/yr.)

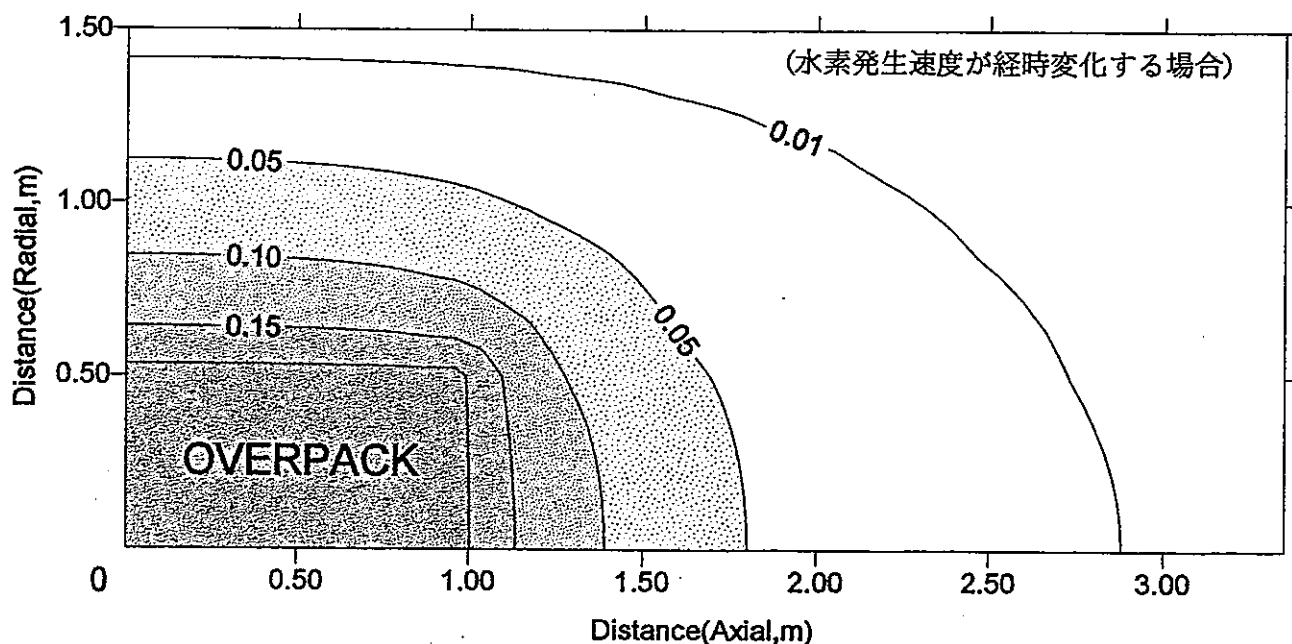
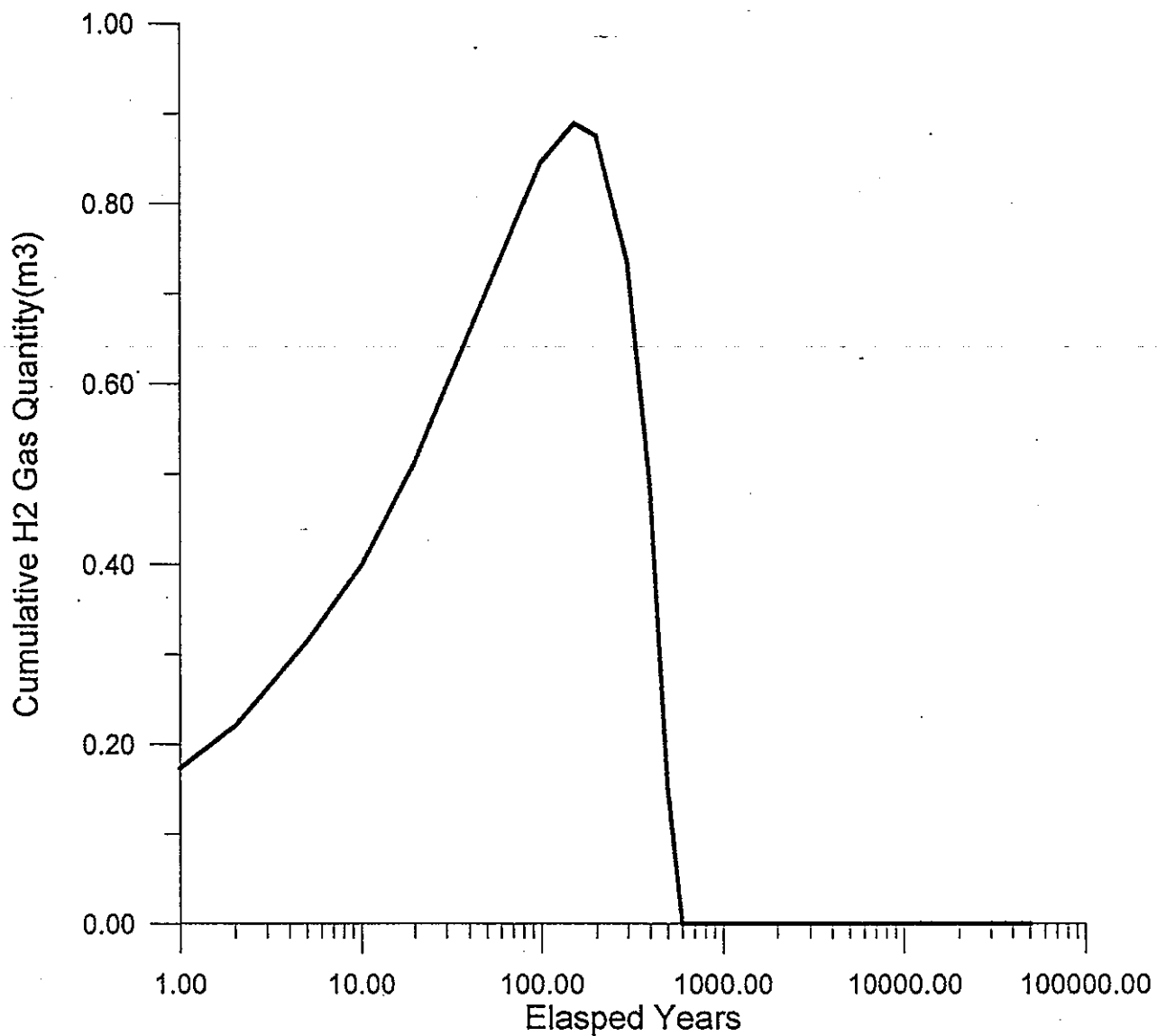


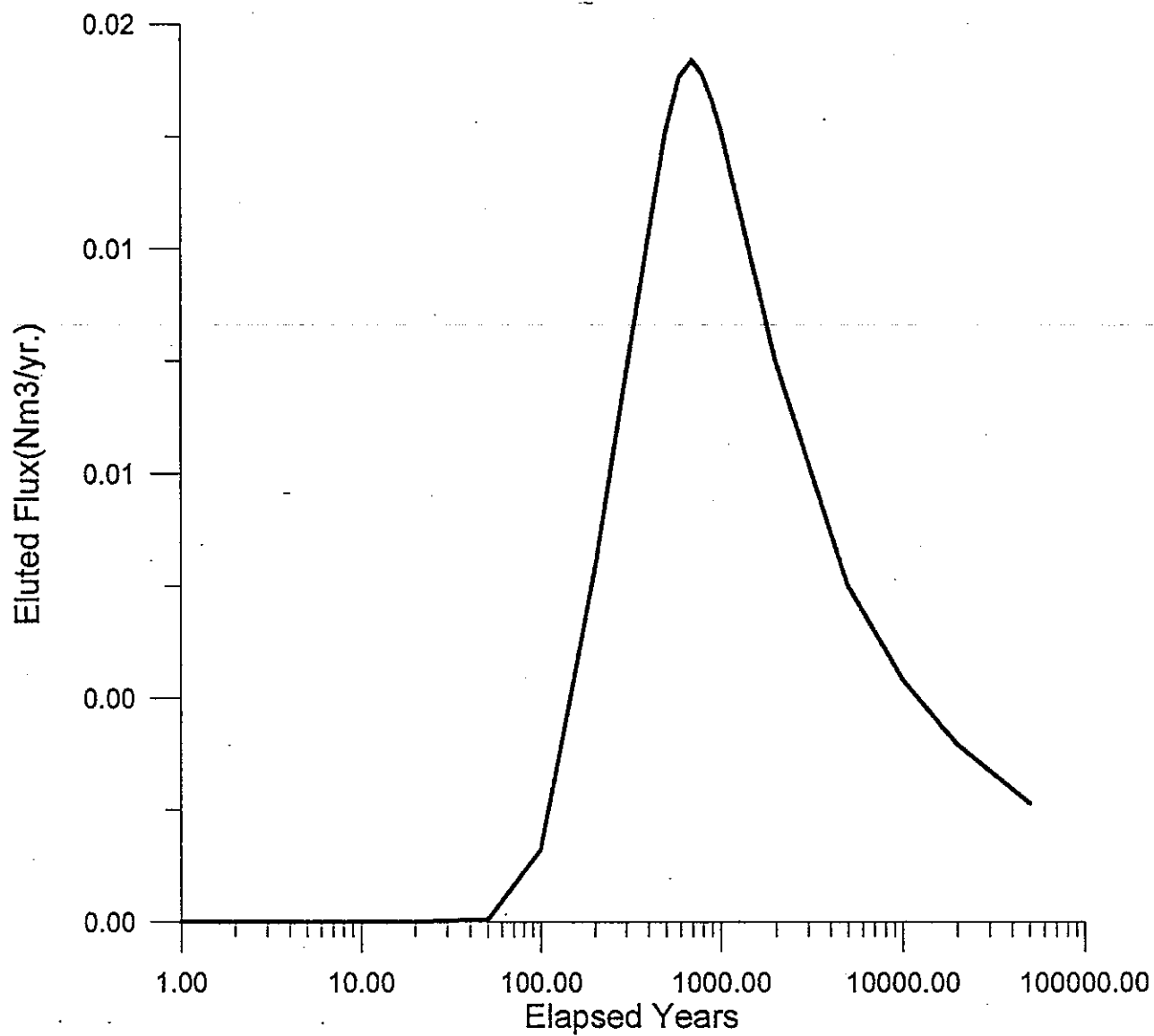
図 2.2.4-2 5000 年後のベントナイト中の水素濃度分布

(坑道横置方式、拡散係数： 2×10^{-11} m²/s、発生速度：
0.000212 m³/y、ベントナイト厚：0.98 m、キャニスタ面
の水素濃度 1.6 m³/m³、岩盤面の水素濃度：0 m³/m³)



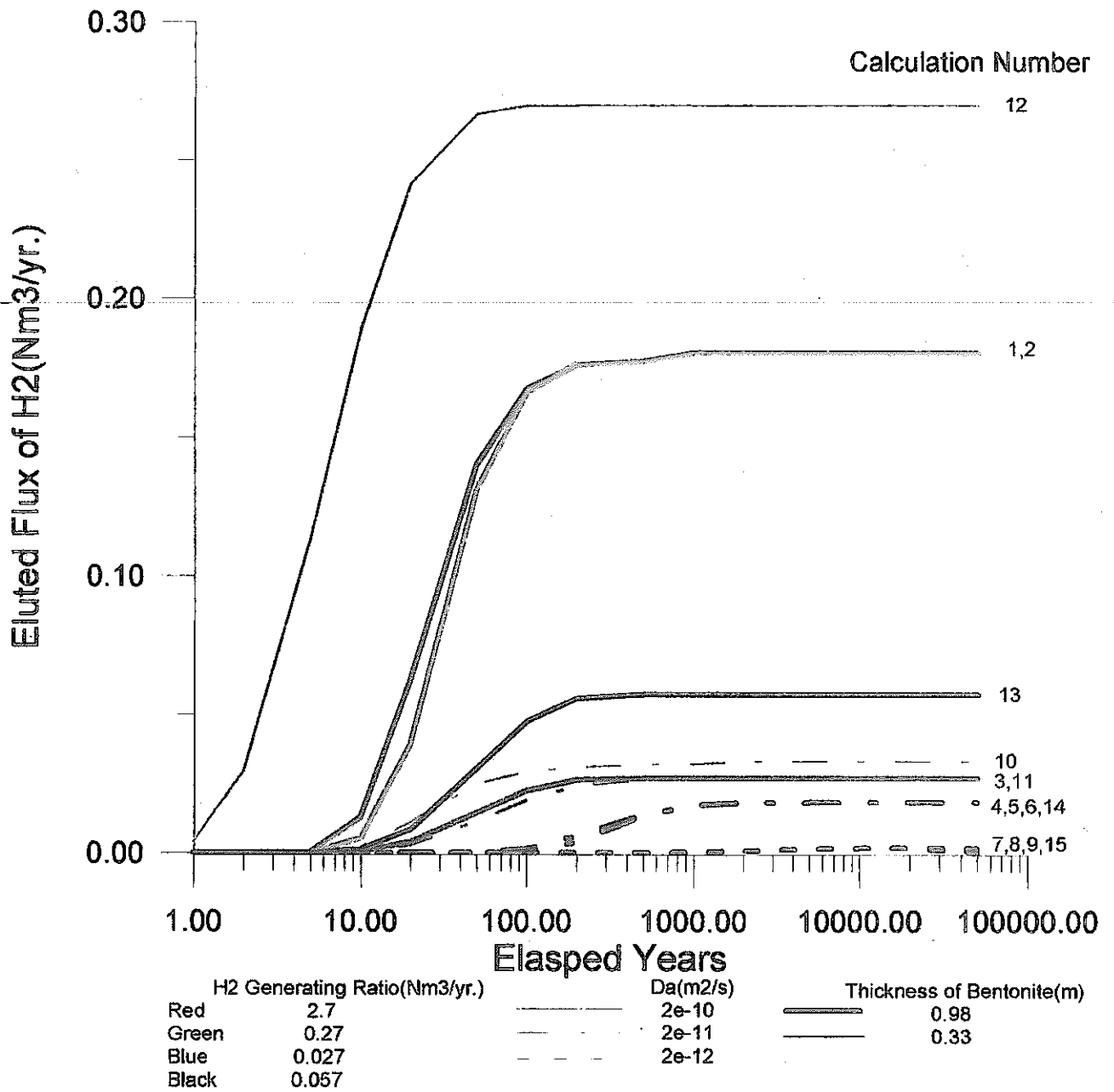
Change of Cumulative Redidual H2 Gas Quantity around Overpack
(No.5-v)

図 2.2.4-3 腐食速度が経時変化(減少)する場合のオーバーバック周辺に蓄積される積算
ガス量の経時変化



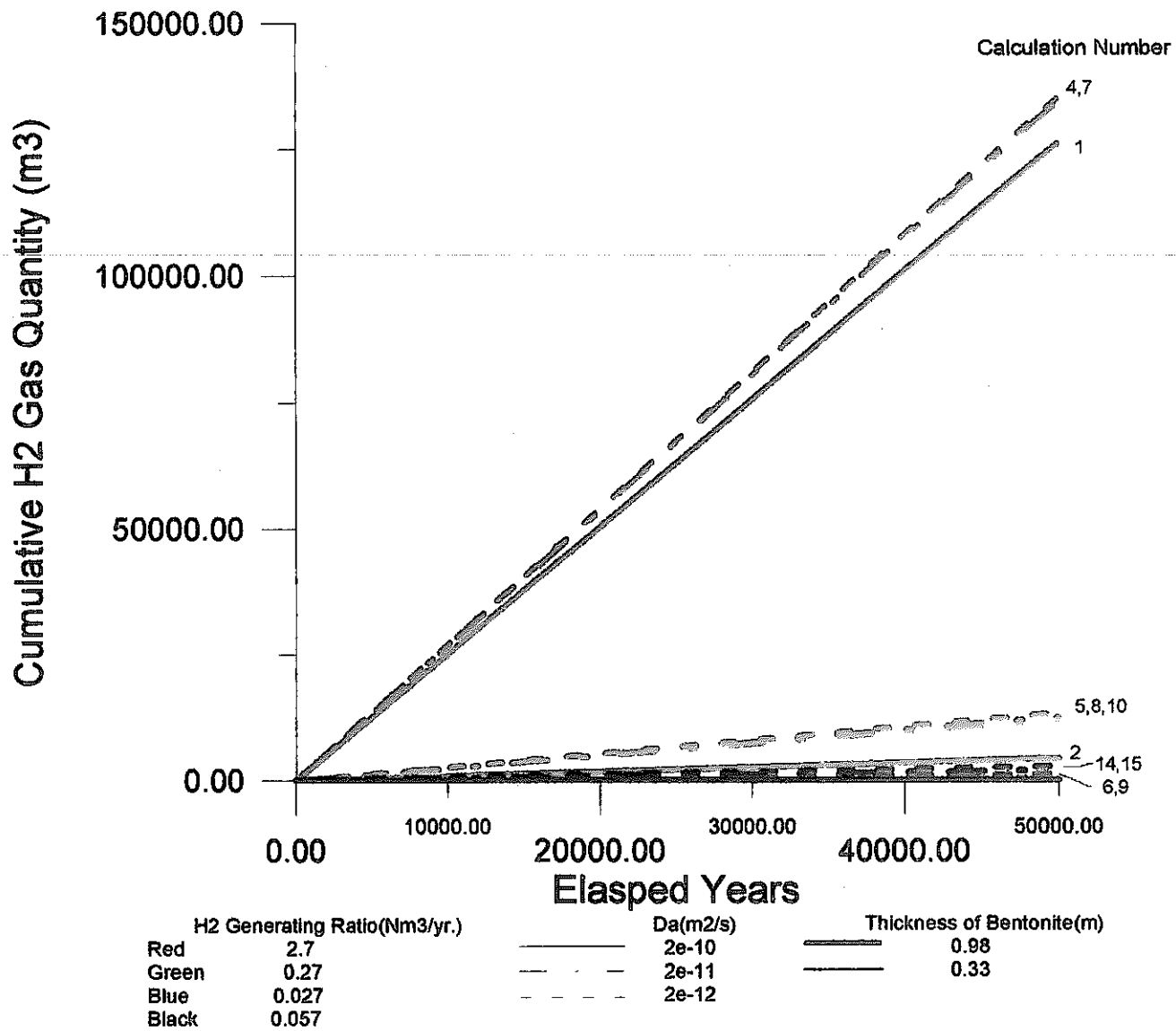
Change of Eluted Flux of H₂
(No.5-v)

図 2.2.4-4 腐食速度が経時変化(減少)する場合の岩盤へ逃げ去るガス量の経時変化



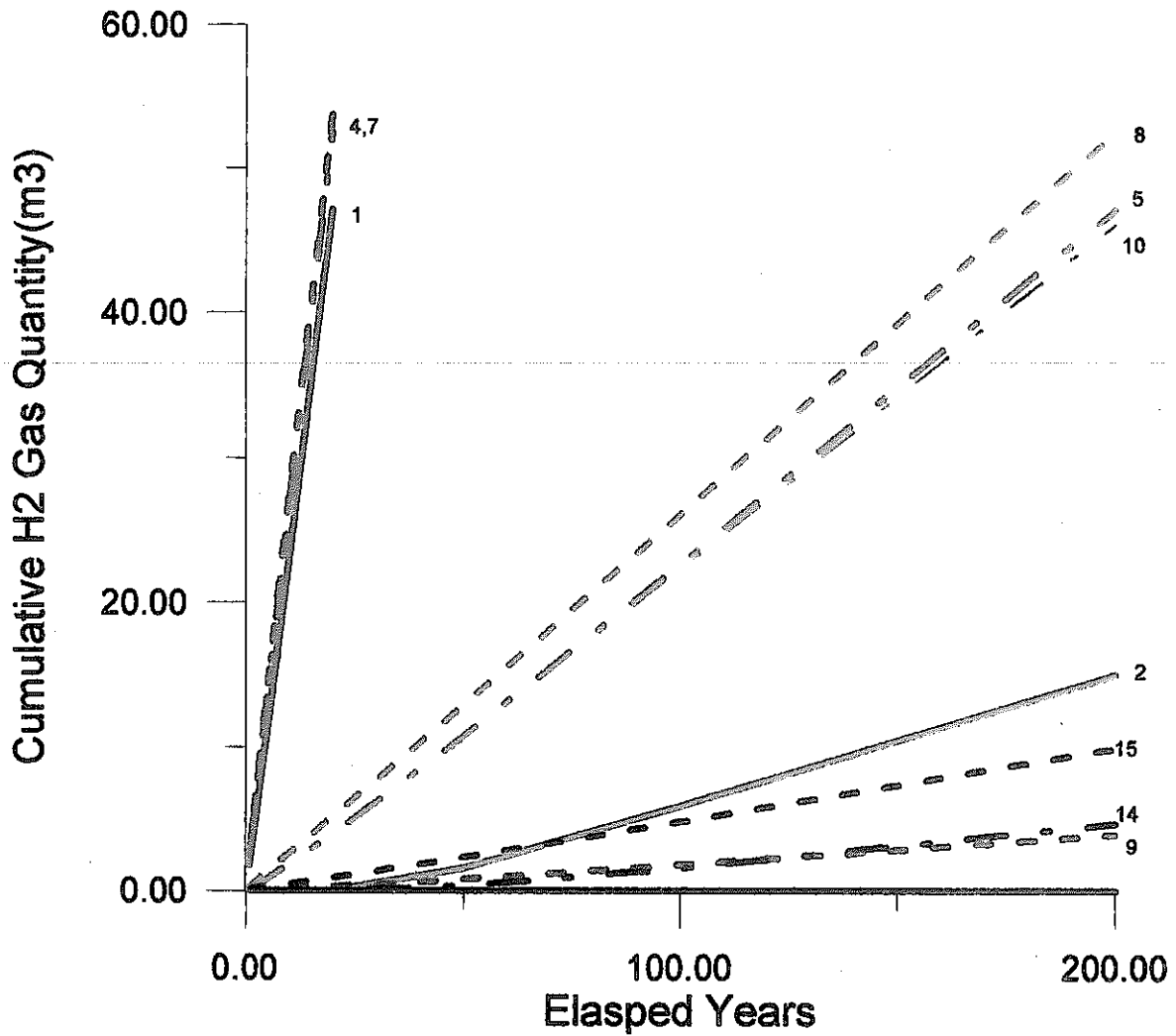
Change of Eluted Flux of H₂

図 2.3.2-1 岩盤へ逃げ去るガス量の経時変化



Change of Cumulative Redidual H2 Gas Quantity around Overpack
(No Accumulation in Case of 3,11,12 and 13)

図 2.3.2-2 オーバーパック周辺に蓄積されるガス量経時変化(その1)



	H2 Generating Ratio(Nm3/Ayr.)	D_a (m ² /s)	Thickness of Bentonite(m)
Red	2.7	2e-10	0.98
Green	0.27	2e-11	0.33
Blue	0.027	2e-12	0.98
Black	0.057	2e-12	0.33

Change of Cummulative Redidual H2 Gas Quantity around Overpack
to 200 Years after Disposal

(No Accumulation in Case of 3,6,11,12 and 13)

図 2.3.2-3 オーバーパック周辺に蓄積されるガス量経時変化(その2)

3,11,12,13 ケースはガスの蓄積がない。

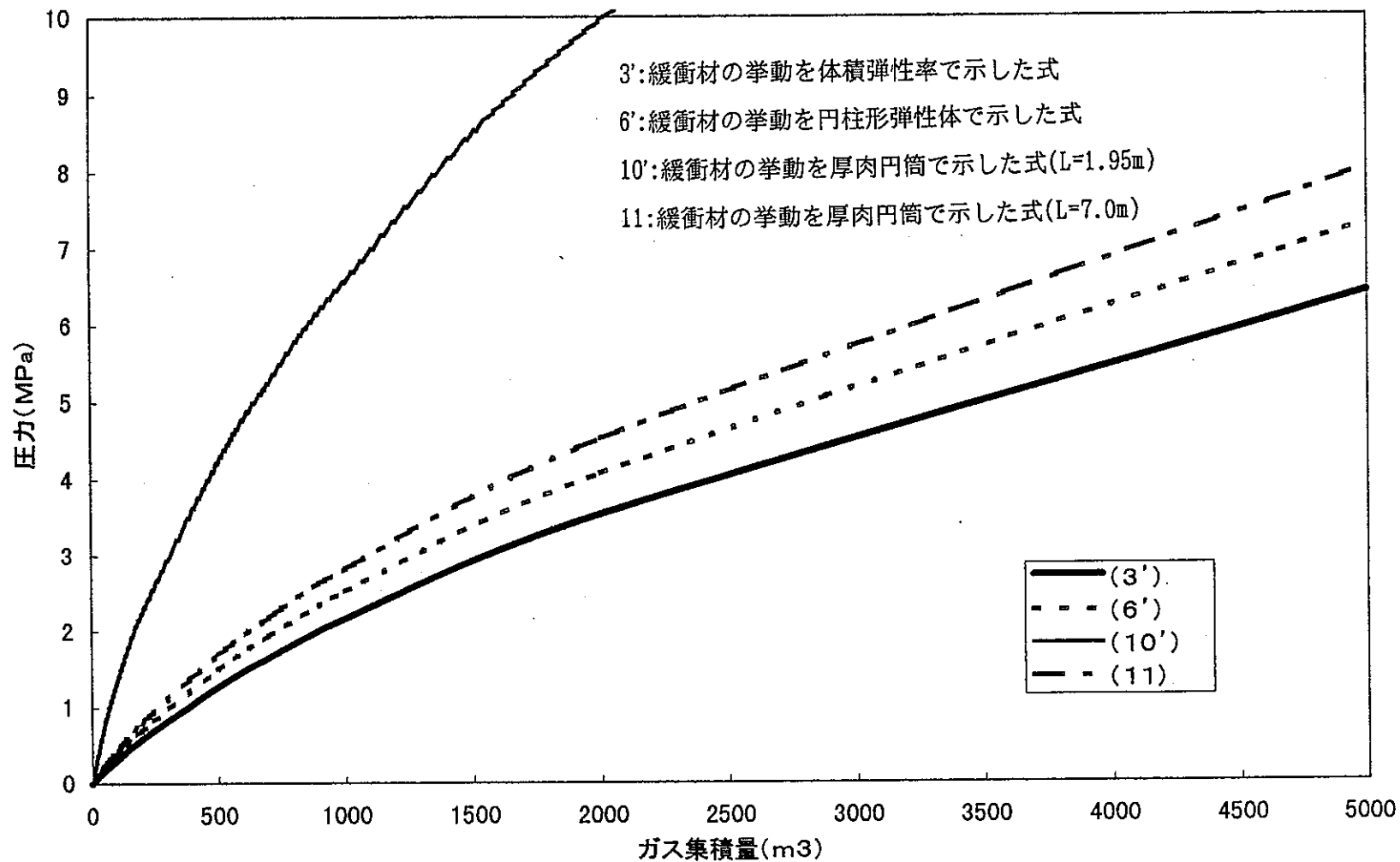


図 2.3.3-1 オーバーパックと緩衝材間に蓄積するガスの圧力

($E=4.0 \times 10^4 \text{ kg/cm}^2$, $\nu=0.4$, 初期内部応力(膨潤圧)= 40 kg/cm^2)

この図では、例えば式(3')で1気圧状態に換算して 500 m^3 蓄積されると、その圧力増分は約 1.3 MPa になり初期圧力 4.0 MPa を加算すれば 5.3 MPa となることを示す。

第 3 章

3 拡散試験手法の検討及び概念設計

諸外国の拡散試験手法とシミュレーション解析結果を踏まえ、溶存水素ガスの分析量が微量であることを考慮した精度よい試験手法について検討するとともに、ベントナイト中における溶存水素ガスの拡散係数を取得するための試験装置の概念設計を実施した。また、具体的な試験手順、試験装置及び計測機器の仕様等についても明らかにした。

一般に、拡散試験には種々の方法がある。例えば、拡散現象を把握するには長期的な測定が必要であるが、代替法として比較的短期間に実施できる In-Diffusion 法、Lag-Time 法、non-stationary 法等がある。これらの方法は厳密な解析的原理にしたがって拡散係数を導出することが可能であるものの、実際の現象即ち試料中を貫通する現象を再現した方法ではないことにより困難な面もある。

一方、実際の現象を再現できる方法には Through-Diffusion 法があるが、試験期間の長期化に伴う漏洩等の問題がある。

ここでは、まず 3.1～3.2 節において地下環境条件を満たす測定条件下での Through-Diffusion 法に関わる概念設計を検討した。

さらに、3.3 節において、簡易型拡散試験装置により測定条件を限定・簡易化しつつ Through-Diffusion 法及び In-Diffusion 法が測定可能な装置について概念設計を検討した。

3.1 拡散試験装置の概念設計

Through-Diffusion 法によるベントナイト試料を対象とした溶存ガス拡散試験は、効率化のため多機能型拡散試験装置を基本とし、しかも測定結果にある範囲のバラツキがあることを前提として、できるだけ多くのデータを取得し、地下環境条件下における拡散係数の傾向を把握する必要がある。

さらに、地下環境の変化に追従できる汎用的なデータを取得するため、パラメータを振った場合の測定についても検討する必要があると考えられる。

この節では、このような地下環境条件下で測定可能な拡散試験装置について検討する。

試験条件はおよそ下記のとおりとする。

- ① 試料サイズ：7.6 cm ϕ × 約 0.5 cm 厚
- ② 温度：室温(例えば 25°C)
- ③ 拘束圧力：深度数 10 m 相当

また、パラメータを振った場合の試験条件は下記のようなものである。

- ① 試料サイズ：7.6 cm ϕ \times 0.5 cm 厚以上
- ② 温 度：地下環境温度程度(例えば 60°C)
- ③ 拘束圧力：深度数 100 m 相当

さて、この試験装置は 4 種類の構成要素が必要となる。

① 多機能型セル

上流圧を一定としつつ水素ガスを供給可能な多機能型セルとする必要がある。側面は上流側セルからの漏気を防止するための所定の圧力にて拘束する。上流側セルは水素ガスが溶存するために必要な一定圧をかける。下流側にも上流側と同様の圧力をかけ、しかも溶存ガス濃度検知システムへ定期的にサンプリング水を送り出す機能を有する必要がある。また、長期間の測定に対しても漏洩なく測定が実施できるものとする。試料安定のため側面にて拘束圧制御システムを有するものとする。

② 上流側（地下環境応力条件下）システム

上流側セル内で圧力を長時間維持できるシステムとする。

水素ガス注入用システムを有するものとする。

ガスを溶存した上流側セル内で均質保持するための循環システムを有するものとする。

③ 下流側（地下環境応力条件下）システム

定期的に一定流量をサンプリングするシステムを有するものとする。

水素ガス検知システムまでサンプリング水を吐出できるものとし、上流セルと同等の圧力を維持するシステムとする。

④ 水素検知システム

水素ガス検知にはいくつかの方法があるが、ここではこの試験で考えられる最も精度よい方法について以下に検討した。この原理は、水素ガスをトリチウムに励起し、シンチレーションカウンターにて測定する方法で、精度は 0.1ppb である。この検知システムは R.L.Zimmerman らの開発実績に基づいている。

・概要

NaI 環状シンチレーターに囲まれた BGO シンチレーターの配列を有する検知器 (Detector) によって、 C^{12} の励起状態が $^1H(^{15}N, \alpha\gamma)^{12}C$ 共鳴核反応によって起き、そのとき発生する 4.44MeV を検知するものである。この方法は、土中の水

素検知用に適している。この水素検知器の測定限界は検知部の効率(efficiency)とバックグラウンドに依存し、バックグラウンドについては、NaIが0.511MeVの消滅ガンマ線を検知する時のみ減少する特徴に注目し、残りの3.93MeVの主ガンマ線エネルギーをBGOシンチレーターが検知するシステムである。これによって、溶存水素濃度は0.1ppbの精度まで可能としている。

・検知メカニズム

水素は、軽い核イオンによって衝撃が与えられる場合、Coulombバリアが低いためプロトンが比較的強く反応し、たやすく同定でき、水素濃度は反応速度に比例することになる。ここで、核反応とは ${}^1\text{H}({}^{15}\text{N}, \alpha\gamma){}^{12}\text{C}$ 共鳴核反応である。

この検知器は土中の水素分布の検知特性データを得るのに適しているとされている。

3.2 拡散試験の手法と仕様

図 3.2-1 は溶存水素ガス用拡散試験装置の概念図を示す。全体システムを図 3.2-2 に示す。このコアホルダーにはいくつかのタイプがあるが、ここでは 3 軸応力状態下での拡散試験が可能なコアホルダーについて検討した。

まず、コアホルダーの右側を上流側とすると、上流側セルへポンプにより注水する。そして水素ボンベから最大溶存量となるように加圧注入する。ポンプにて飽和した溶存水素ガス水溶液の圧力を一定に保つ。

次にコアホルダーの左側(下流側)であるが、定期的の下流側セルの濃度を測定する。一定量サンプリングしたら下流側水素濃度を検知できる。

また、試料を飽和させるため事前に真空にするため、Vacuum Pump が取り付けられる。

また図 3.2-3 は同時に多くの試料を同時に測定する場合の複合システムを示す。ここでは 3 試料が同時測定可能であるが、1 種類のポンプで多くのセルの応力注入条件を設定するため、供給ラインと排出ラインには定期的に切替が可能な装置が必要となる。

測定手順を下記に示す。

1. 110°Cで乾燥したあと、鉛スリーブ及びフィルタにてベントナイト試料を包み、所定の乾燥密度(純ベントナイトの場合 $1.8\text{g}/\text{cm}^3$ 、ベントナイト/砂混合比 70/30 の場合 $1.6\text{g}/\text{cm}^3$)まで圧縮する。
2. コアホルダーに試料をセットする。
3. 8 時間程度真空乾燥する。
4. その後、24 時間程度蒸留水で試料を加圧し飽和する。
5. 下流側圧力を 0 にする。
6. 上流側圧力を $70\text{kg}/\text{cm}^2(1,000\text{psi})$ にし、一定流速で送水し、飽和させる。
7. 両セルの水圧を同値とする。
8. 上流側ポンプを一定流モードにセットする。
9. 水素ポンプをセットし、定期的の下流側ポンプで測定する。

3.3 次年度に向けた拡散試験の手法と仕様の検討

次年度から実施される拡散係数測定試験のために、限られた測定期間及びコストを考慮した最適な装置の概念設計の検討を実施する。

ここでは、Through-Diffusion 法及び In-Diffusion 法両方の測定が可能である装置を前提とするが、実際の試験では後者を対象とする。

測定条件として下記項目があげられる。

① 温度条件

温度は 25°C 及び 60°C の 2 種類とする。これは常温、及び地下深部温度相当と考えられ、この温度変化による拡散係数の変化を把握することを目的とする。一定温度を維持するため、恒温水槽内に試験セルを定置させる。

② 膨潤量の拘束条件

試料は飽和過程において膨潤するが、ここでは膨潤歪を完全拘束する。一般に純ベントナイトの最大膨潤圧は 40kg/cm² と言われている。したがって、この圧力を支持できる構造とする。また、試料の拘束面は拡散現象を妨げないような試料面積とする。

③ 有効応力: $\sigma_e = 0$ 条件

有効応力は試料に作用させないものとする。一般に処分場岩盤が結晶質岩のように強固な場合は処分空洞の収縮は無視できると考えられ、緩衝材への岩盤圧力は伝達されないからである。

④ 間隙圧力: $u = \text{最大 } 10\text{kg/cm}^2$ 条件

処分空洞に作用する地下水圧は不明である。ここでは最大 100m 水頭までの水圧までの測定が可能な構造とする。今回対象とする水圧は大気圧とし、その溶液に水素が溶存する場合でも測定可能なものとする。なお、間隙水圧と拡散係数の関係について述べた文献は見あたらない。

⑤ 試料厚さ条件

試料厚さは 5 mm 程度あるいは 10mm 程度とし、厚さの変化による拡散現象の相違を把握できるようにする。文献によれば、2mm 以下では試験に不適切であるとされ、試験期間を考慮するとこの程度の厚さが最適と考えられる。

⑥ 乾燥密度条件

試料の乾燥密度を純ベントナイトの場合 $1.8\text{g}/\text{cm}^3$ 、オプションとしてベントナイト/砂混合重量比:70/30 の場合 $1.6\text{g}/\text{cm}^3$ とする。

3.3.1 試料寸法の検討

ベントナイト系試料の特性として低透過係数であり、溶存水素ガスの拡散係数も小さいといわれている。諸外国の文献によると、純ベントナイトのみかけの拡散係数は $1 \times 10^{-11}\text{m}^2/\text{s}$ のオーダーである。

In Diffusion 法(あるいは Through Diffusion 法)による試験を行う場合、この拡散係数オーダーを前提に試料の寸法を検討する必要がある。

MEGAS Project によれば、In-Diffusion 法の場合試料の寸法は $4.9\text{cm } \phi \times 1.14 \sim 4.36\text{cm}$ 、Through-Diffusion 法の場合 $4.9\text{cm } \phi \times 3.975\text{cm}$ 厚であり、測定日数は In-Diffusion 法で 20~90 日、Through-Diffusion 法で 45~180 日である。In-Diffusion 法の $4.9\text{cm } \phi \times 1.14\text{cm}$ 試料の場合を比較の対象とすると、今回考えている試料(寸法 $7.6\text{cm } \phi \times 1.0\text{cm}$ 厚の場合)は、試料断面積で 2.4 倍と大きいことから、測定日数は同じく 20 日と仮定すると測定精度が 2.4 倍上昇すると考えられる。。

図 3.3.1-1 には拡散試験装置の概要を、図 3.3.1-2 には、概念設計を示す。また、表 3.3.1-1 には、試験ケース(案)を示す。

参考までに、図 3.3.1-3 には Megas Project で実施された拡散試験データに基づき、100 時間あたり発生する定常水素ガス排出量を示した。

3.3.2 検出方法の検討

溶存水素ガスの検出方法は、定期的に抽出する溶液に対して、クロマトグラフィーによる分析を前提とする。この分析精度は一般に数 ppm である。研究を継続する途中でさらに高精度を有する検出方法があれば、その応用性も検討するものとする。

今回、抽出する溶液はセル A を対象とするが、溶存水素ガス 1 ml 排出するのに約 20 日かかる と仮定し、サンプリングを例えば 1 回/2 日すると、 $1/10=0.10\text{ml}/\text{回}$ の濃度変化量を検出する必要がある。

今、セルの内容積を仮に 150ml とすると、溶存ガス濃度(ガス容量/水容量) $=0.10/150=6.7 \times 10^{-4}=0.00067(\text{ガス } \text{m}^3)/(\text{水 } \text{m}^3)$ となる。この濃度であれば、クロマトグラフィー等の分析機器によ

り測定可能と考えられる。

3.3.3 膨潤の検討

試料を作成するため圧縮用ステンレス容器に粉末混合試料を充填させた後、一軸圧縮機にて所定の乾燥密度(純ベントナイトで $1.8\text{g}/\text{cm}^3$ 、あるいはベントナイト/砂重量混合比 70/30 で $1.6\text{g}/\text{cm}^3$)まで圧縮し、試料を作成する。

その後セルAとセルBの中間に試料をセットし浸潤させるが、この浸潤期間中に試料は膨潤する。この膨潤量を拘束するためには外部からの拘束力が必要である。拘束する理由は、実際の処分場が強固な岩盤内の閉空間内に施工されると仮定し、その後緩衝材が浸潤・膨潤した場合でも周囲岩盤に完全拘束されると考えられるためである。

この膨潤圧は、完全拘束すれば純ベントナイトで最大 $40\text{kg}/\text{cm}^2$ といわれており、この圧力を支持できる金属シャフトにて試料両端面を拘束するものとする。拘束用金属シャフトに作用する力は、 7.6cm ϕ であるので約 $2,000\text{kg}$ となる。なお、試料の両端面はフィルター(中央は金属焼結フィルター、周面はSS製フィルター台)にて固定する。

3.3.4 拡散セルの材質・定置の検討

セルAとセルBの内空間寸法について検討する。

各セルは耐圧強度 $10\text{kg}/\text{cm}^2$ に耐えるように、肉厚を 20mm 以上とする。

セルAでは、溶存水素ガス含有水を絶えず飽和状態とし、測定中も内部を観察できる必要がある。従って、セルの材質は透明度のよいものを使用する。また、溶液ではなく気泡そのものが試料に接触しないように注意が必要である。また、セルAとセルBの溶液の圧力は同値とする必要がある。

3.3.5 トラブル防止の検討

(1) 漏洩防止の検討

MEGAS Projectによれば、漏洩防止のため底部フランジとピストンの接触部にはO-ringを用いている。ここでは、セルAとBと試料外周の間に高精度O-ringを設置し、外部から一定圧力にてボルト締めにて密着させることとする。

(2) ブランクテストの検討

透明性容器、試料を包む金属類等からの水素発生の可能性があるため、ブランクテストを実施する。

(3) 飽和の確認

真空ポンプにて8時間程度引いた後水を注入し、その後両側セルに差圧をかけて試料を飽和させる。

予備的に、試料を解体して内部を観察し、水が確実に侵入していることを確認する必要がある。

(4) スターラーの設置

溶液の均質性を維持するため、定期的にセルAとセルBの溶液をかき混ぜるためのスターラーを設置する。

(5) 温度一定

温度を一定とするため(例えば25°C、60°C)、恒温器付き水槽内に試験セル全体を定置する。

(6) 測定手順の検討

- ① 試料の調整
- ② 試料のセット
- ③ 試料の真空脱気
- ④ 試料の飽和(両面から同圧)
- ⑤ 試料の飽和(両面に差圧をかける)
- ⑥ セルAとセルBの溶液圧力を大気圧(～最大10kg/cm²)にセット
- ⑦ 水素の供給
- ⑧ 拡散試験の開始
- ⑨ 定期的なサンプリング

以下に具体的な手順・要領を示す。

① 試料の調整(ベントナイト/砂混合の場合)

105°Cで24時間乾燥した純ベントナイト(クニゲルV1)試料、あるいはオプションとしてベントナイト/3号砂/5号砂を重量比70/15/15となるように混合した試料を、圧縮用ステンレス容器に入れ、一軸圧縮機を用いて試料の厚さ0.5~1.0cm、乾燥密度1.8g/cm³、1.6g/cm³となるように圧縮成形する。その後、試料に対して両面から焼結金属フィルター(外周はSS製フィルター台)で包み込む。

② 試料のセット

作成した供試体(円盤状フィルター + 試料, 9.6cm φ×1.5~2.0cm厚)を、セルA及びセルBにセットする。セット後、上下底盤を連結する鉄性ボルトにて均等圧にて締め付けることにより、セルAと供試体とセルB相互の接合面からの溶液の漏洩を防ぐように圧着する。

③ 試料の真空脱気

供試体、セルA、セルBの間隙を真空にするため、真空ポンプP1により8時間程度引く。

④ 試料の飽和(両面から同圧)

供試体を飽和するため、セルAとセルBに給水容器から水を入れる。

⑤ 試料の飽和(両面に差圧をかける)

供試体に水が浸透するように送水したあと、両面に差圧をかけ飽和を確実なものにする。

⑥ セルAとセルBの溶液圧力を大気圧(~最大10kg/cm²)にセット

セルAとセルBを同じ圧力とする。

⑦ 水素の供給

水素が十分に溶存した溶液をセルAに供給する。

セルAのスターラーを回転させ、水素ガスを均等に溶存させる。

⑧ 拡散試験の開始

拡散試験を開始する。

⑨ 定期的なサンプリング

測定間隔は、測定期間20日間を目安として、拡散係数が導出できる程度のサンプリング回数とする。サンプリングにより、溶液の減量がある場合は新たに水を補給するなど、測定誤差とならないようにする。また、サンプリングによる誤差を少なくするため、試料を数個同時に測定開始し、測定途中のサンプリングをせず、各セルの溶液を時間をずらして分析する方法も考えられる。

3.4 まとめ

今回検討した拡散試験装置の概念及び測定手法によって、処分場周辺の緩衝材ベントナイト系材料を対象として拡散係数を測定することは、技術的には可能であると考えられる。

しかしながら、この概念のうち3.1節及び3.2節で述べた測定手法は拡散セル内部を地下環境応力状態に相当する圧力が载荷可能なものであることから、各構成要素が複雑となり測定に際しての必要コストも大きくなる。

これに対して、もし拡散現象が拘束圧力に影響されないことを前提とするならば、装置・測定方法はさらに簡単なものと考えられ、3.3節で述べた簡易型測定手法を用いれば所期の目的は達成できると考えられる。特に、測定期間やコストを考慮するとこの簡易手法は現実的であり、次年度以降の測定に適した装置であると考えられる。

また、試料サイズについては、試料寸法を直径7.6 cm、長さ0.5 cm～1.0 cm程度としたが、これはMEGAS Projectで実施されている試料サイズ(直径4.9 cm、長さ1.1～4.4 cm)に比較して、数倍の精度と時間短縮が期待できると考えられる。

次年度以降に、実際に測定するにあたっては限られた期間内で、数多くしかも高い精度を有する拡散試験とする必要があるが、そのためには3.3節で述べた簡易型拡散試験装置を用いた測定が合理的であると考えられ、本試験の前に制御方法やソフトウェアを含めた予備試験が必要であると考えられる。

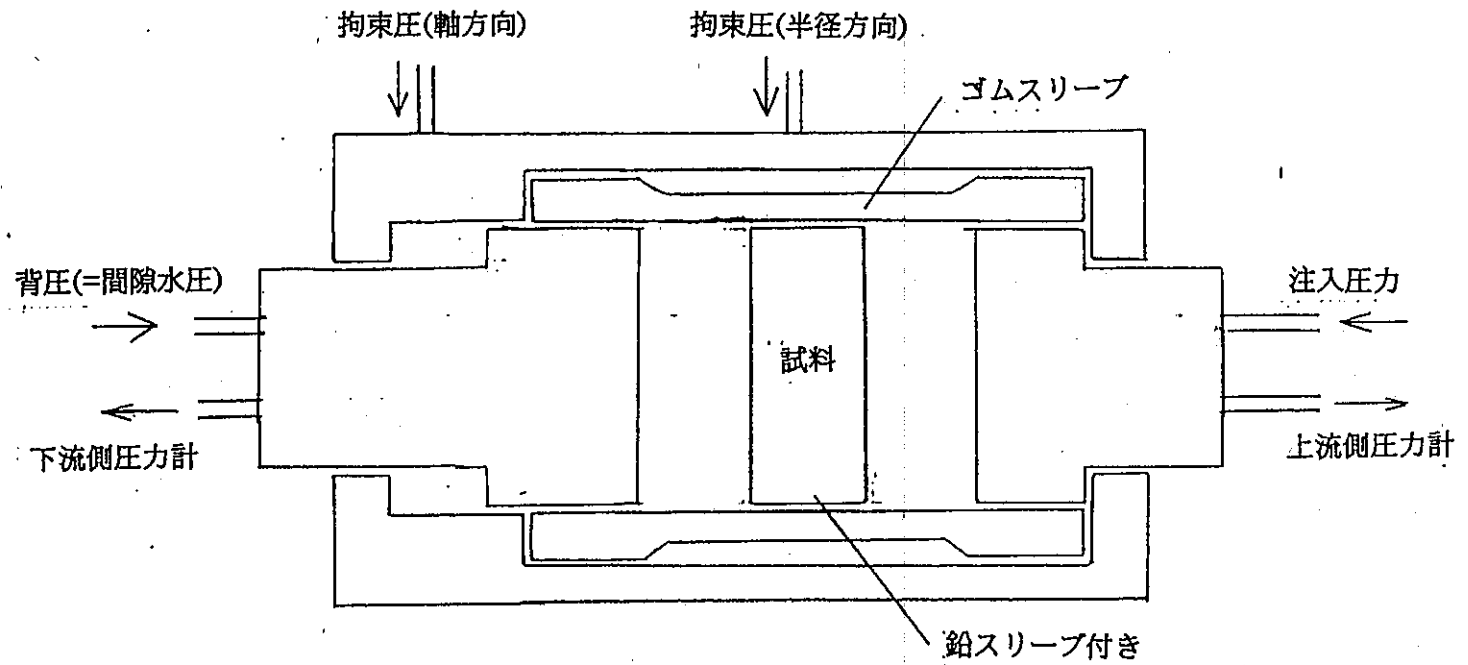


図 3.2-1 拡散試験概念設計 (拡散セル)

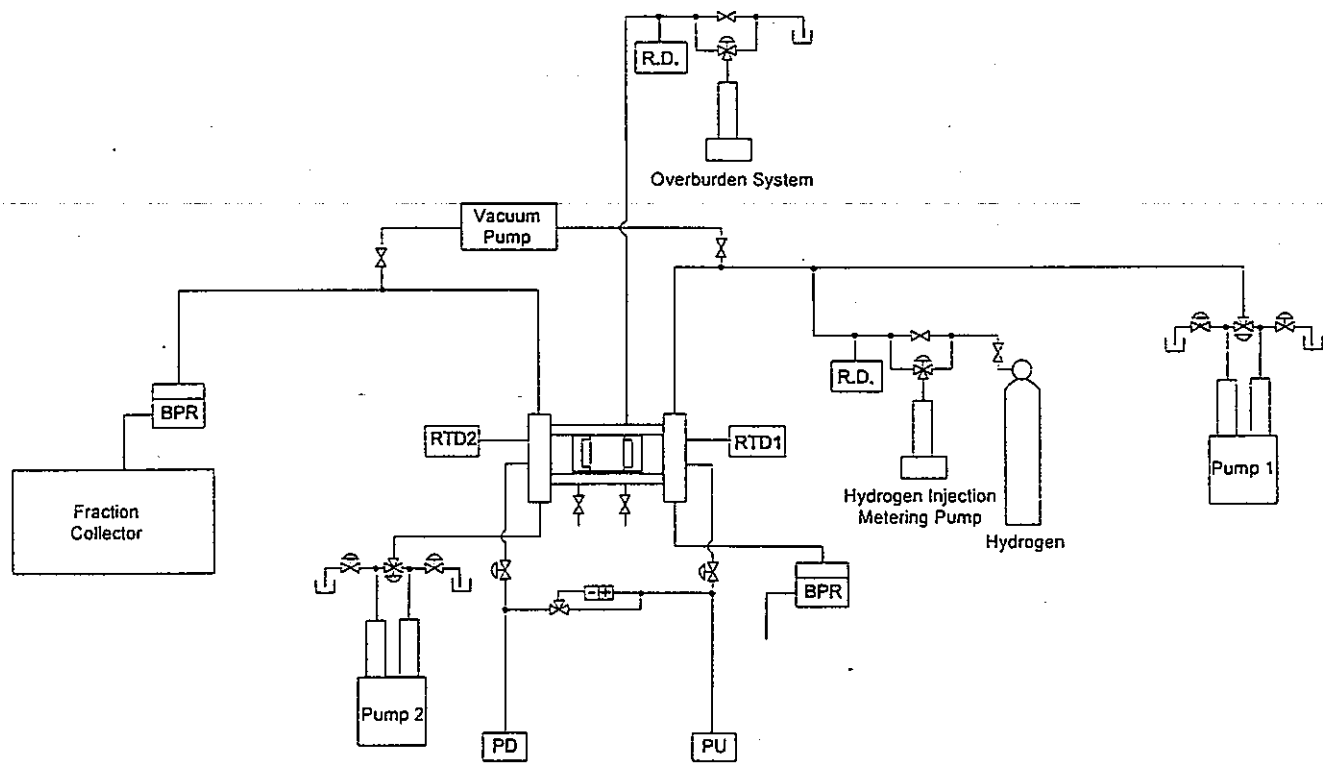


図 3.2-2 拡散試験概念設計 (拡散セル 1 個の場合システム)

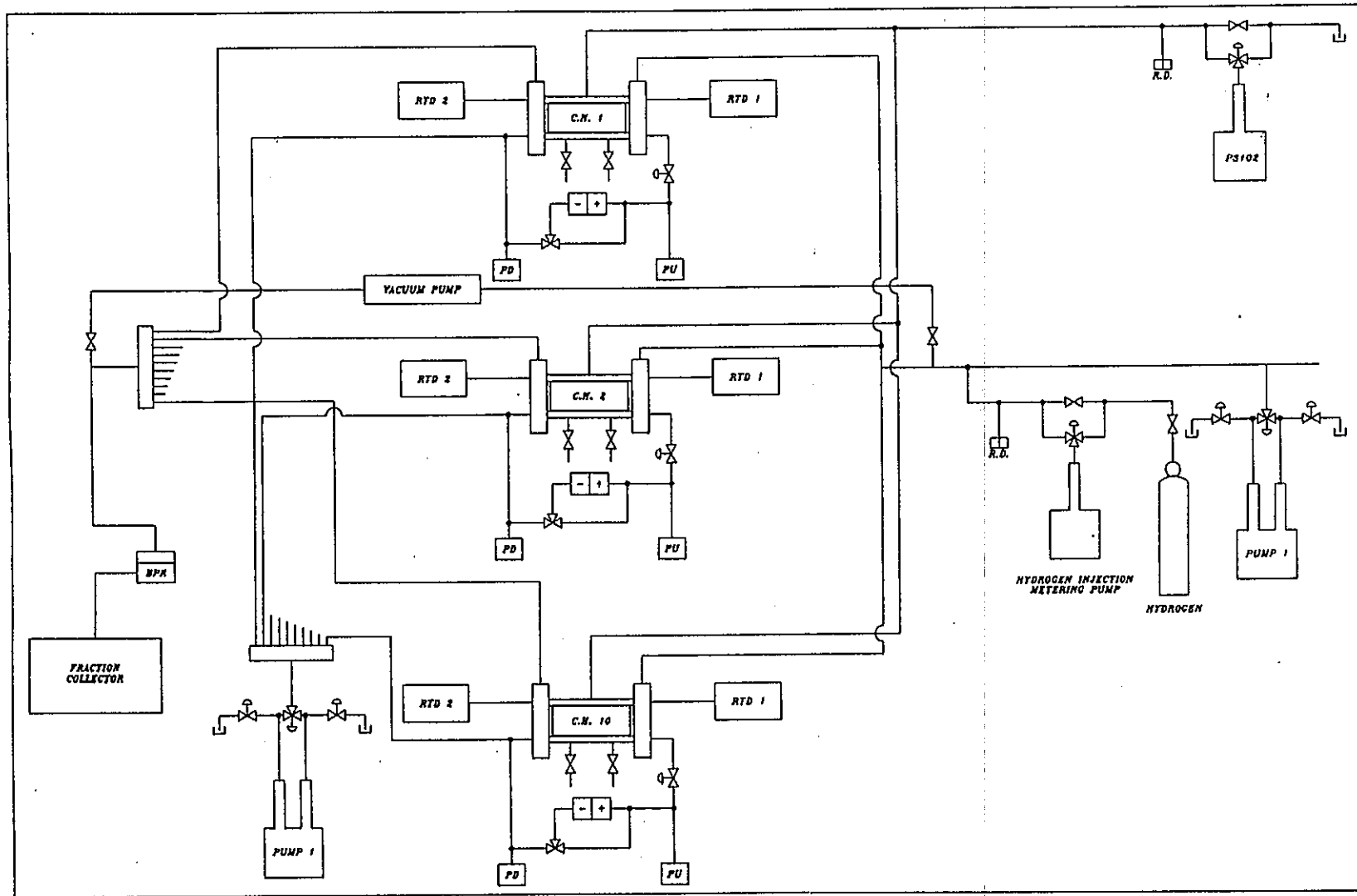


図 3.2-3 拡散試験概念設計 (拡散セル 3 個の場合システム)

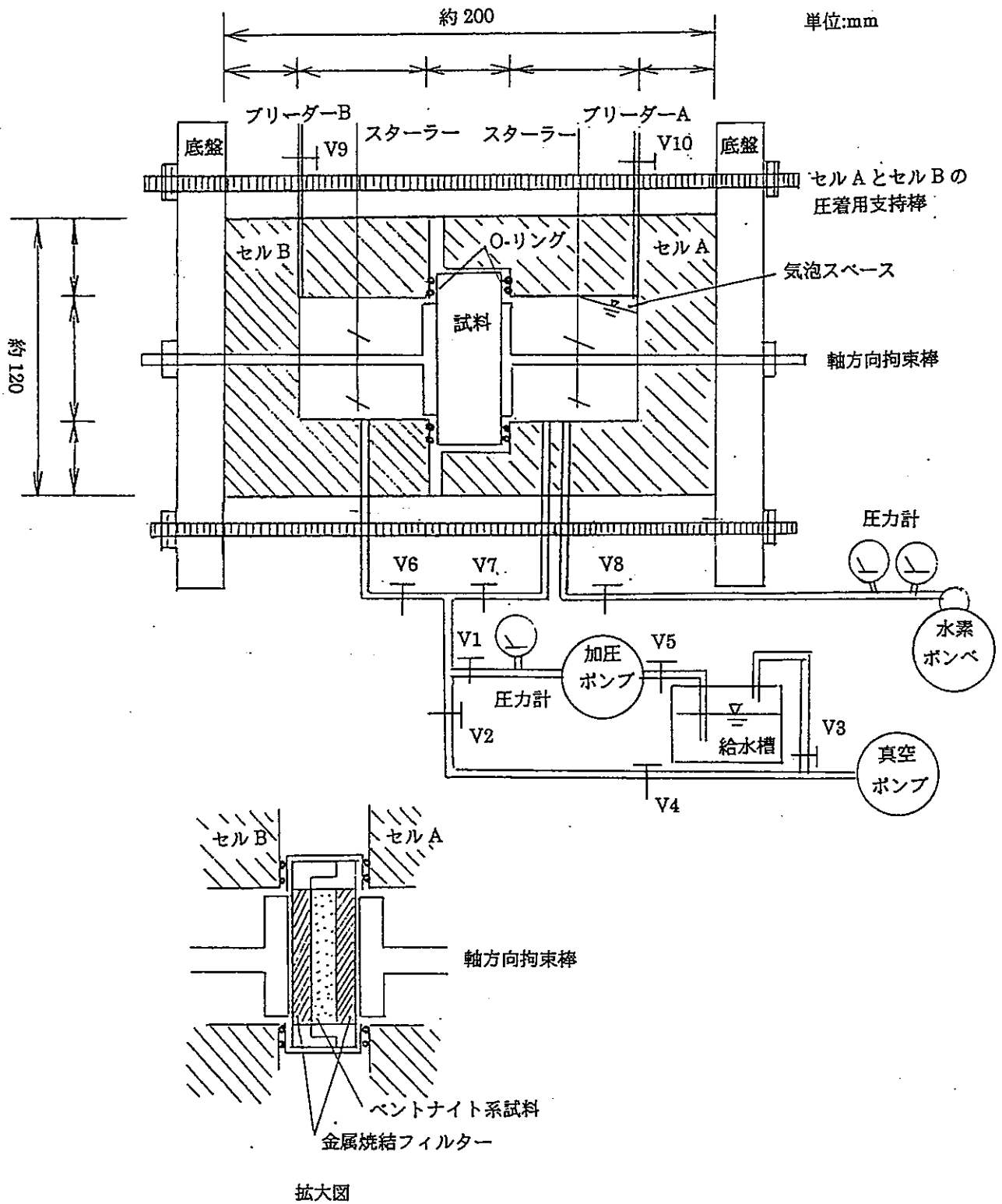


図 3.3-1 簡易型拡散試験概要図

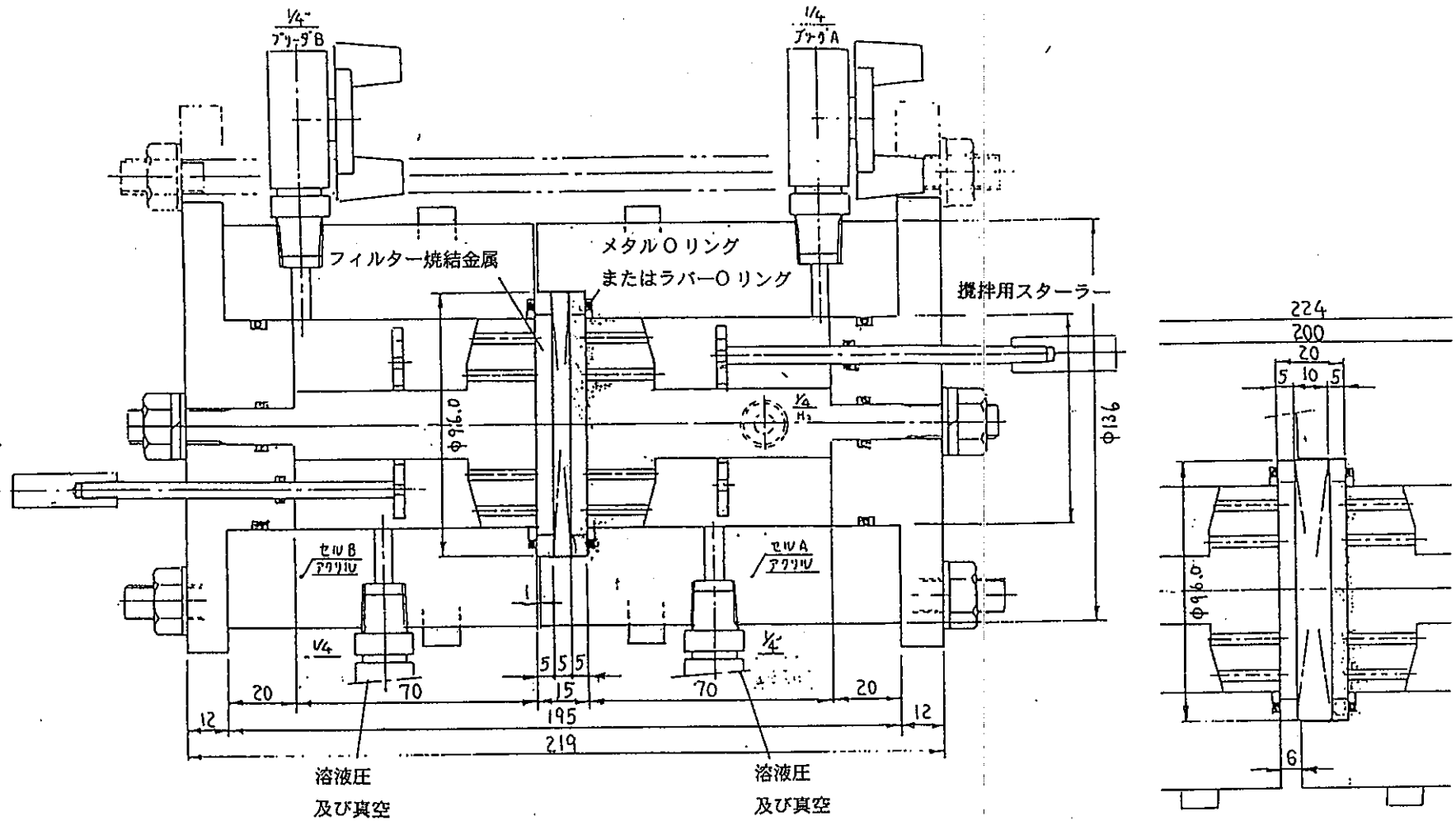


図 3.3-2 簡易型拡散試験概念設計

表3.3.1-1 試験ケース(案)

試験ケース	温度		試料寸法		乾燥密度	
	25°C (RoomTm)	60°C (High)	0.5cm 厚 (Small)	1.0cm 厚 (Thick)	1.6g/cm3 (Light)	1.8g/cm3 (Dense)
C1-RSL	○		○		○	
C2-RTL	○			○	○	
C3-RSD	○		○			○
C4-RTD	○			○		○
C5-HSL		○	○		○	
C6-HTL		○		○	○	
C7-HSD		○	○			○
C8-HTD		○		○		○
C9-BTL5	○					
C10-BTH5		○				
C11-RSDPR	○		○		○	
C12-HSDPR		○	○		○	

全部で12ケース

○はケースで採用する条件

C1~C8 はベントナイト/砂重量混合比 100/0

C9~10 はブランクテスト

C11~C12 はベントナイト/砂重量混合比 70/30(オプション)

第 4 章

4 今後の課題

理想的には、3.1～3.2節に述べた「拡散装置概念」を用いれば、Through diffusion法による地下環境応力条件下での室内拡散測定を同時に数多く実施することができる。また、試料サイズを変更することも可能であり、処分システム周辺の溶存水素ガス拡散に関わる種々の問題に対処可能であり、このような地下環境再現下での測定が最良である。

しかし、「第2次取りまとめ」に必要とされる水素ガス発生に伴う溶存水素ガス拡散の影響を検討するにあたり、2,000年前までの限られた期間及びベントナイト等不均質材料の拡散データのバラツキ等を考慮すれば、まず基本的試験条件下での「簡易型拡散試験装置」を用いて数多くの測定を実施し、多くのケースの拡散係数を獲得するのが適切と考えられる。

そこで、次年度からの実際の測定を前提に、3.3節に述べた「簡易型拡散装置」の概念・手法について詳細に検討した。このような簡便な装置の概念は、ある限られた範囲での地下環境応力による拡散の影響には対処できると考えられる。

この簡易型拡散試験装置を用いることにより、下記のような項目についてはある限定条件下で測定・検討が可能であろうと考えられる。

- ① 拡散係数と温度の関係の測定 …………… 地下の温度の影響を検討
- ② 拡散係数と試料厚の関係の測定 …………… 緩衝材の施工厚さを検討
- ③ 拡散係数と乾燥密度の関係の測定 …… 緩衝材の施工時の絞め固めを検討

これら、国内産ベントナイト系材料を対象とした測定データを用いて、処分システムモデルに拡張し解析シミュレーションを実施する必要がある。また、下記の課題が考えられる。

- ④ 地下環境条件下でのベントナイトの拡散係数について把握し、かつ弾性率等を考慮した拡散シミュレーション解析を実施することで、ガス発生によるオーバーパックとベントナイトの境界の空隙でのガス蓄積について検討する。
…………… ガスの蓄積圧力を検討
- ⑤ 蓄積されたガス量・圧を算出し、ベントナイトのブレイクスルー圧との比較を実施することで水素ガス移動の及ぼす拡散と移行の寄与の程度を把握する。
…………… 拡散と移行の寄与度を比較検討
- ⑥ ガス発生量については従来、嫌気性条件かつ大気圧下での最大腐食速度から求めているが、時間経過や圧力上昇による腐食速度低下傾向を考慮した解析を実施する。
…………… 現実的ガス発生量及び影響を検討

参 考 文 献

参考文献

- 1) S.T.Horseman et al., Study of Gas Migration in MX80 Buffer Bentonite: BGS, Natural Environment Research Council, Feb. (1997)
- 2) W.R.Rodwell et al., Specification for a Model of Gas Migration in Compacted Bentonite: AEA Report, Jun. (1997)
- 3) G.Volckaert, M.Put, L.Ortiz, P.De Canniere, S.Horseman, J.Harrington, V.Fioravante, M.Impey, K.Worgan, MEGAS modelling and experiments on gas migration in repository host rocks : Proc. Progress Meeting of PEGASUS Project, Commission of European Communities, Luxembourg (1993)
- 4) G.Volckaert, L.Ortiz, P.De Canniere, M.Put, S.Horseman, J.Harrington, V.Fioravante, M.Impey, MEGAS modelling and experiments on gas migration in repository host rocks : Final report - Phase I: European Commission (1995)
- 5) I.Neretnieks, Diffusivities of Some Constituents in Compacted Wet Bentonite Clay and the Impact on Radionuclide Migration in the Buffer : Nucl.Technol, 71, pp.458~470 (1985)
- 6) K.J.Worgan, Scoping calculations for gas dissolution, diffusion and water expulsion in a L/ILW repository : Intra Sciences Report linebreak I, Version 2, pp.1904~7 (1990)
- 7) G.N.Pandey, M.R.Tek, L.Katz, Diffusion of fluids through porous media with implications in petroleum geology : American Association of Petroleum Geologists Bulletin, 58, pp.291~303 (1974)
- 8) Krooss, B.M, Schaefer, R.G, Experimental measurements of the diffusion parameters of light hydrocarbons in water-saturated sedimentary rocks-I, A new experimental procedure : Org. Geochem, 11(3), pp.193~199 (1987)
- 9) 黒田康宏, 佐藤正知, 大橋弘土, 圧密モンモリロナイト中での He の移行挙動: 日本原子力学会「1996 春の年会」 P653(1996)
- 10) 動力炉・核燃料開発事業団, 地層処分研究開発の現状: p46, 平成8年度
- 11) R.S.Wikramaratna et al., A Preliminary Assessment of Gas Migration from the Copper/Steel Canister: AEA-D&W-0672

- 12) W.R.Rodwell et al.,Mechanism and Modelling of Gas Migration from Deep Radioactive Waste Repositories:AEA-D&R-0115
- 13) OECD/NEA,water gas and solute movement through argillaceous media:Clay Club(1995)
- 14) Roel Nottrot und Constant Sadee:Abkühlung homogenen isotropen Gesteins um eine zylindrische Strecke durch Wetter von konstanter Temperatur:GLUCKKAUF-FORSCHUNGSHEFTE,27 Jahrgang H.4. August,pp.193-200(1966)
- 15) 山口梅太郎他,岩石力学入門「第2版」:東大出版会,P25(1977)
- 16) 村上敬宣,弾性力学:p43(1991)
- 17) 西村尚,ポイントを学ぶ材料力学:p105(1988)