

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)

研究概要

技術資料		
開示区分	レポート No.	受領日
7	J127798-002	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

1998年 2月

溶存水素ガスの拡散移行に関する研究

研究概要

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 $2 \times 10^{-13} \sim 2 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$ 、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

February 1998

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

- Outline -

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.

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)	1
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)	2
1.1.4 石油開発分野のガス拡散研究 (その2, B.M.Kross ら)	2
1.1.5 日本におけるガス拡散研究	3
1.1.6 イギリスにおけるガス拡散研究	3
1.1.7 Clay Club (OECD/NEA)におけるガス拡散研究	4
1.1.8 ま と め	4
1.2 ガス移行試験に関わる調査	10
1.2.1 BGS のガス移行研究 (S.T.Horseman ら)	10
1.2.2 GAMBIT Club のガス移行研究 (W.R.Rodwell ら)	20
1.2.3 ま と め	25
2. 拡散方程式を用いた評価	40
2.1 拡散解析モデル	40
2.1.1 モデル化の対象	40
2.1.2 支配方程式	40
2.1.3 シミュレーション用コンピュータプログラム	40
2.1.4 解析領域の設定	40
2.1.5 解析用差分格子と各種条件設定	40
2.2 拡散解析結果	41
2.2.1 横置方式の場合	41
2.2.2 処分孔縦置方式の場合	42
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	42
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	43
2.3 考察と評価	43
2.3.1 濃度分布の面から見た考察	43

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	44
2.3.3	オーバーバックと緩衝材間に蓄積するガス圧	45
3	拡散試験手法の検討及び概念設計	60
3.1	拡散試験装置の概念設計	60
3.2	拡散試験の手法と仕様	60
3.3	次年度に向けた拡散試験の手法と仕様の検討	62
3.3.1	試料寸法の検討	62
3.3.2	検出方法の検討	62
3.3.3	膨潤の検討	62
3.3.4	拡散セルの材質・定置の検討	62
3.3.5	トラブル防止の検討	63
3.4	まとめ	64
4	今後の課題	72

参考文献

表 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)	8
表 1.2.1-1	BGS 装置による測定パラメータ	30
表 2.1.5-1	差分格子 1 つ分の寸法	48
表 2.1.5-2	パラメータ設定(ベントナイトの厚さ 0.98m)	48
表 2.1.5-3	パラメータ設定(ベントナイトの厚さ 0.33m)	48
表 2.1.5-4	パラメータ設定(水素発生速度 0.057m ³ /y)	48
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)	49
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)	49
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)	49
表 3.3.1-1	試験ケース(案)	70

目 次

図 1.1.1-1	In-diffusion 法(左)と Through-diffusion 法(右)の概略	6
図 1.1.1-2	In-diffusion 法システム	6
図 1.1.1-3	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)	7
図 1.1.8-1	諸外国の拡散係数実測値	9
図 1.2.1-1	ガス移行測定装置概念(BGS 装置)	27
図 1.2.1-2(1)	BGS 装置の圧力容器と試験セル	28
図 1.2.1-2(2)	ASG 装置の圧力容器と試験セル	29
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)	31
図 1.2.1-4	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)	32
図 1.2.1-5	MX80-4B の試験結果(経過時間と流速と過剰ガス圧力の関係)	33
図 1.2.1-6	MX80-4C の試験結果(経過時間と流速と過剰ガス圧力の関係)	33
図 1.2.1-7	MX80-4D の試験結果(経過時間と流速と過剰ガス圧力の関係)	34
図 1.2.1-8	ASG-1A の試験結果(経過時間とガス圧力と圧密速度の関係)	35
図 1.2.1-9	ASG-1B の試験結果(経過時間とガス圧力と圧密速度の関係)	35
図 1.2.1-10	ASG-2A の試験結果(経過時間とガス圧力と圧密速度の関係)	36
図 1.2.1-11	ASG-2B の試験結果(経過時間とガス圧力と圧密速度の関係)	36
図 1.2.2-1	流れ方向に垂直断面でのフラクチャー配列	37
図 1.2.2-2	伸張する Griffith クラックモデル	37
図 1.2.2-3	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	38
図 1.2.2-4	ガス圧の経時変化	39
図 1.2.2-5	正味平均有効応力と全透過係数	39
図 2.1.5-1	拡散解析シミュレーションモデル	47
図 2.2.1-1	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： $2.70 \text{ m}^3/\text{y}$ 、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： $0 \text{ m}^3/\text{m}^3$)	50
図 2.2.1-2	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： $2 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$ 、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)	50
図 2.2.1-3	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：2×10 ⁻¹¹ 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)	51
図 2.2.1-4	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： 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)	51
図 2.2.1-5	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： 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)	52
図 2.2.1-6	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： 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)	52
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 m ² /s、発生速度： 0.0113 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)	53
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 m ² /s、発生速度： 0.000212 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)	53
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	54
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	55
図 2.3.2-1	岩盤へ逃げ去るガス量の経時変化	56
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)	57
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)	58

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 ($E=4.0 \times 10^4 \text{g/cm}^3$, $\nu=0.4$, 初期内部応力(膨潤圧)= 40kg/cm^2)	59
図 3.2-1	拡散試験概念設計 (拡散セル)	65
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)	66
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)	67
図 3.3-1	簡易型拡散試験概要図	68
図 3.3-2	簡易型拡散試験概念設計	69
図 3.3-3	Megas Project での測定時間と排水素量	71

1 ガス拡散・移行試験研究の調査

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)²⁾ を基にその現状調査を実施した。

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⁾

実験装置は図 1.1.1-1~2 に示される。

In-Diffusion 法を用いた装置の主要部分はステンレス (SS) 製透気セルであり、3 要素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。

Through-Diffusion 法を用いた装置と In-Diffusion 法の装置の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 以下としている。

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 に示す。図 1.1.1-3 には Through-Diffusion 法のテスト結果例を示す。

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、 $\eta R D$ はオーダー的には $10^{-6} \sim 10^{-7} \text{ cm}^2/\text{s}$ とほぼ同じとしている。

1.1.2 スウェーデンのガス拡散研究 (I.Neretnieks ら)⁴⁾

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、トレーサ溶液を片方面の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 N から空孔拡散係数(pore diffusivity): D_p が導出されるとしている。

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を測定する方法である。

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)¹⁾

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。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 N_2 サンプル内で観察され、一方ヘリウムフラックスは流出速度から計算されている。

1.1.4 石油開発分野のガス拡散研究(その2, B.M.Krossら)¹⁾

水飽和した堆積岩を対象とした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。

・拡散セル

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

2つのチャンバーで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。

・コールドトラップ

コールドトラップは20 cm長のSS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 N_2 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。

・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), 炎イオン検知器(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されている。

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。³⁾試験手法は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 : $\rho = 1.0 \text{ g/cm}^3$
- ・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($\rho = 2.0 \sim 2.1 \text{ g/cm}^3$ 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。

一方、動力炉・核燃料開発事業団¹⁰⁾では、ガス発生速度と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。評価の前提条件は下記のようなものである。

- ・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での溶存ガス量 : 0.016N m³/m³
- ・拡散計算式 : 定常解 (一次元)

この結果、拡散移行速度 0.018Nm³/y はガス発生速度 0.27N m³/y に比較して小さく、オーバーパックと緩衝材間に蓄積する可能性が高いとしている。

1.1.6 イギリスにおけるガス拡散研究¹¹⁾¹²⁾

粘土中の I^- 及び D_2O の実効拡散係数は 1×10^{-10} 、砂岩では $1 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{S}$ 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 $1 \sim 5 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{S}$ であるとしている。 I^- の花崗岩中のテストでは $1 \times 10^{-12} \sim 10^{-13} \text{ m}^2/\text{S}$ ($10^{-14} \text{ m}^2/\text{S}$ 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⁾

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 $0.3 \sim 0.35$ 、密度 $2.0 \sim 2.1 \text{ Mg}/\text{m}^3$ で $1.8 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{S}$ 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 $1.8 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{S}$ となるとしている。バルク拡散係数 D_o を $6 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{S}$ (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 , $D_o=1 \times 10^{-8} \text{ m}^2/\text{S}$ として)。

Eriksen ら(1981)は同様のベントナイトで $D_a=3.6 \times 10^{-12} \text{ m}^2/\text{S}$ としている。もし、 $D_o=6 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{S}$ とすると $D_o/D_a=1,670$ になるとし、メタンについては $D_a=3.9 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{S}$ となるとしている。

Rebour(1995)らは粘土泥岩中のヘリウムの D_a を $(5 \pm 1) \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{S}$ 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 $3.1 \times 10^{-10} \sim 2.3 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{S}$ となり、In-diffusion 法では $1.6, 1.8, 4.8 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{S}$ となるとしている。 D_o を $6.0 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{S}$ として $D_o/D_a=35$ となるとしている (間隙率 $=0.40$)。

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 hidrocarbon 等の石油系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、hydrocarbon 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マススペクトロメーター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 $4.9 \text{ cm} \phi \times 1.1 \sim 4.3 \text{ cm L}$ の Boom clay 試料を用いてそれぞれ独立して 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 In-Diffusion 法の場合上流の、Through-Diffusion 法の場合下流の圧力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と模擬した試験を考慮すると、理想的には、Through-Diffusion 法による測定法がより再現・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 試料に対して同時に多くの試料に対して In-diffusion 法により測定し、測定結果のデータ検証ができるような多機能型装置が最適と考えられる。

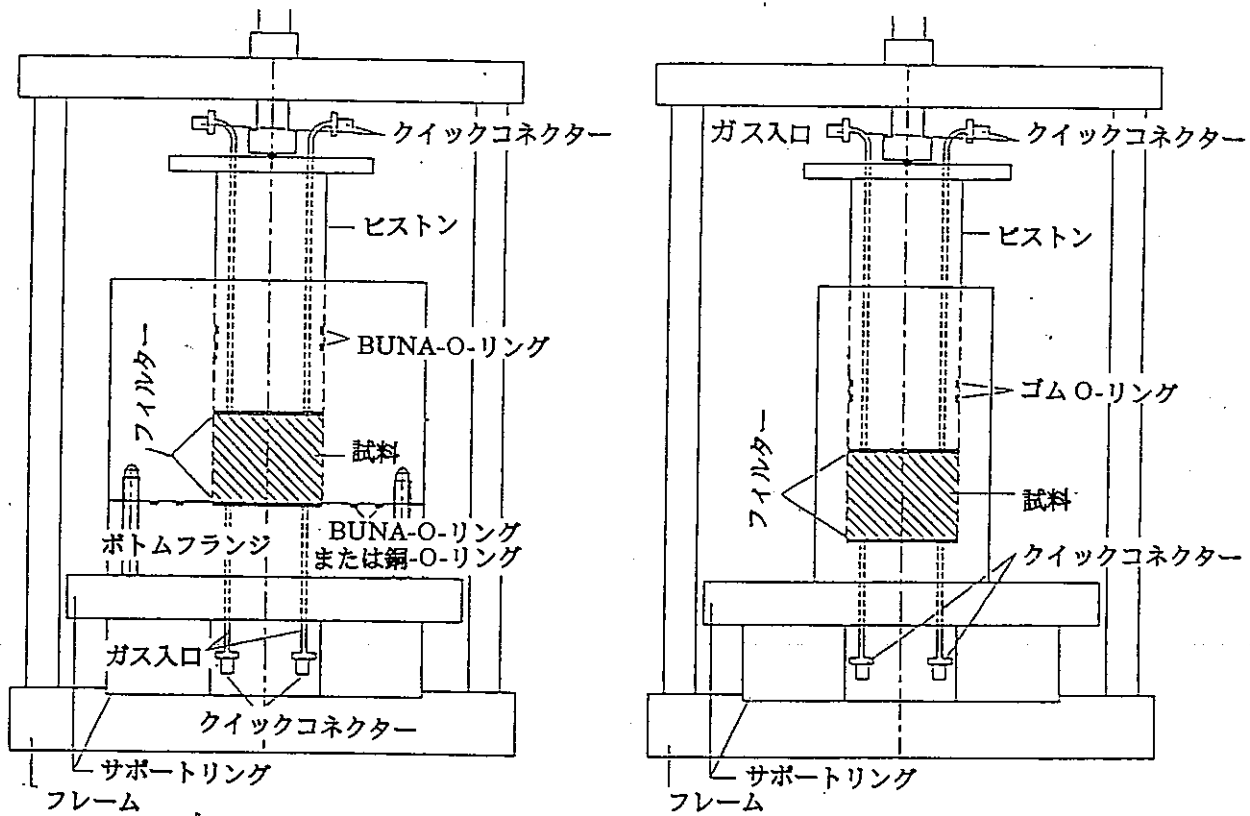
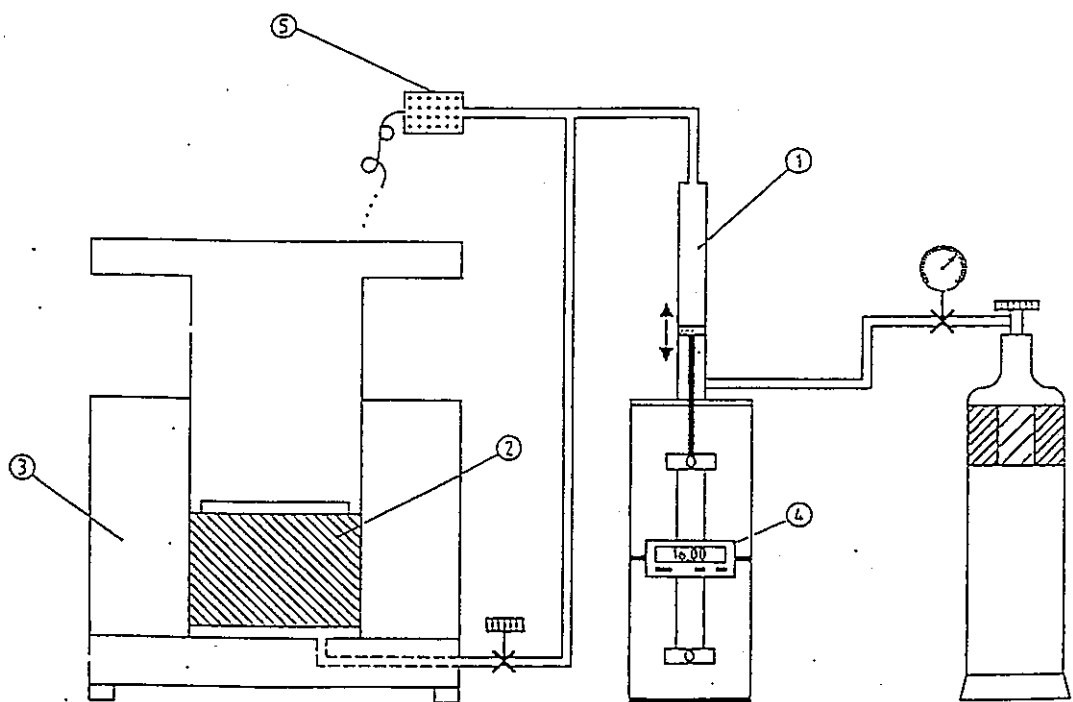


図 1.1.1-1 In-diffusion 法(左)と Through-diffusion 法(右)の概略



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

図 1.1.1-2 In-diffusion 法システム

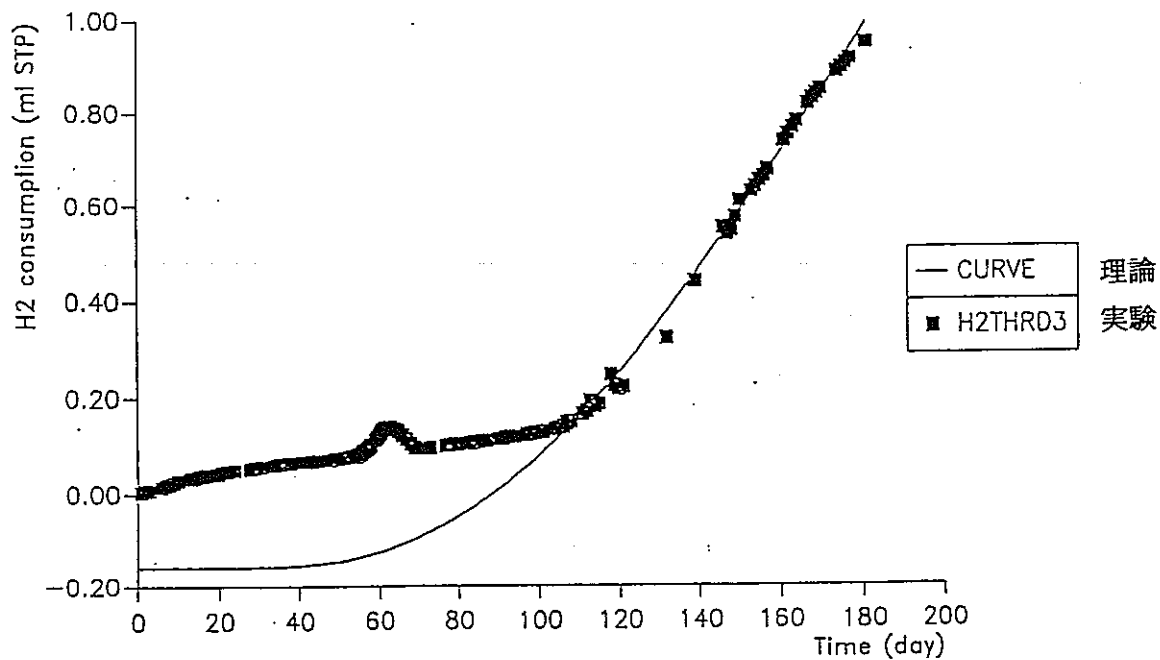


図 1.1.1-3 試料 No.H2THRD1(Boom clay)の Through-Diffusion 法による水素消費量と解析解

(入口側セル中の水素濃度を一定、水素の化学反応は無視)

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

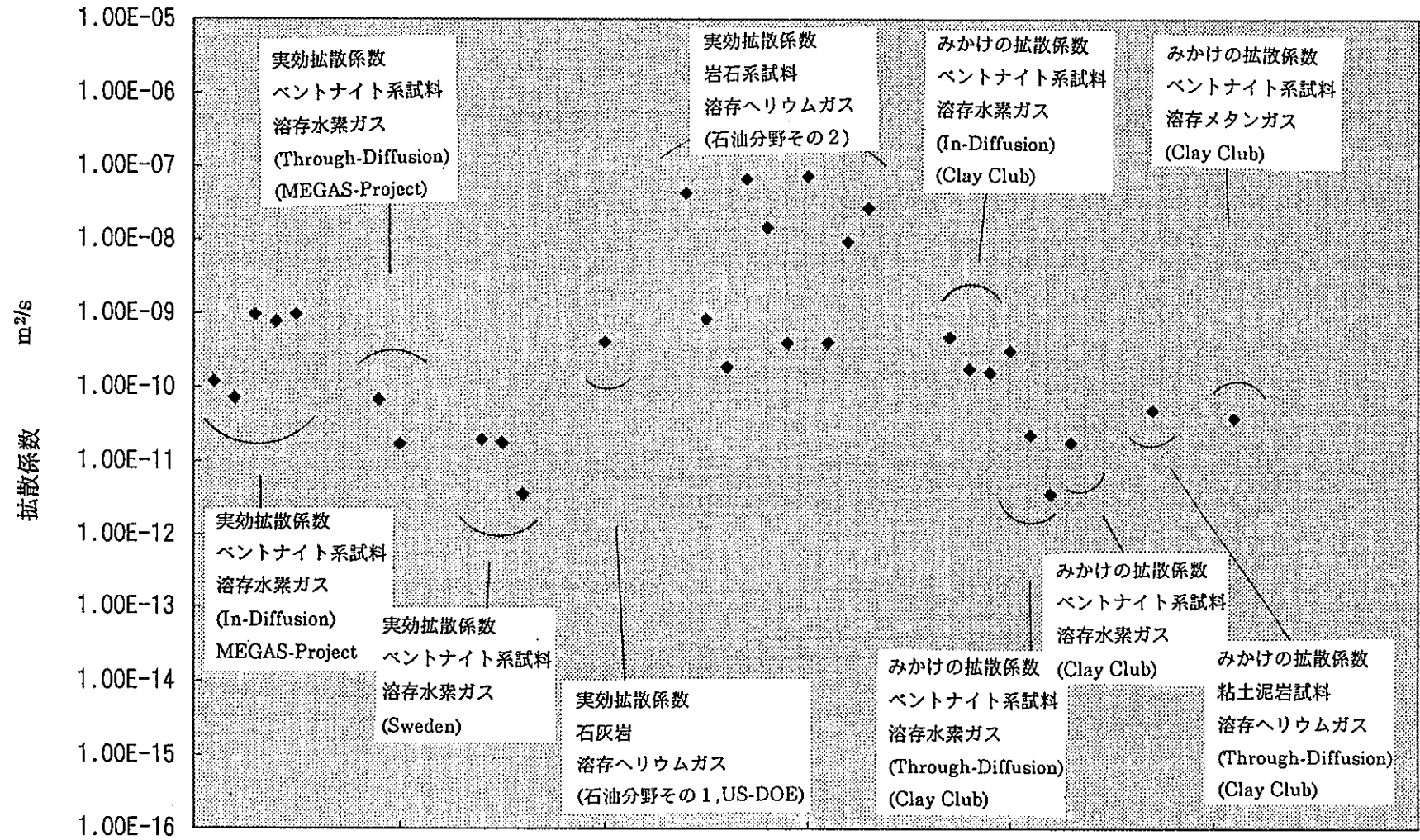


図 1.1.8-1 諸外国の拡散係数実測値

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。ガスとしてヘリウムが用いられている。実験は $20 \pm 0.2^\circ\text{C}$ の一定温度で行われている。

(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

(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 ($714\text{kg}/\text{cm}^2$ 、以下文献に忠実に MPa 単位とする) の耐圧がある。4.90cm ϕ \times 4.90cm 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)ポラスフィルター(ディスク状)を上下端に設置している。

(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。

(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。

(ii) もう1つの装置 (ASG 装置)

図 1.2.1-2(2)にもう1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-リング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。

(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。

(iv) 試料準備 (BGS 装置用)

この試料ブロックは2種類のバッチ(塊)に分けられる。それらは、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。

(v) 基本的物理特性

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。

(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、そ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、各ステップで絞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) δ_{i^v} 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 $0.96 \times 10^{-1} \text{ m}$ である。 $S_i = 700 \text{ m}^2/\text{g}$ 、 $\nu = 0.7$ 、0.28の含水比であるのでからMS粘土の場合 $\delta_{i^v} = 1.48 \times 10^{-1} \text{ m}$ であり、HS粘土の場合、0.24の含水比であるので $\delta_{i^v} = 1.40 \times 10^{-1} \text{ m}$ 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 δ_{s^v} 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 $\delta_{av} = 4.3 \times 10^{-1} \text{ m}$ となり、薄いフィルムは10~14水分子シートから成るとし、HS粘土の場合0.24含水比であるので $\delta_{av} = 3.8 \times 10^{-1} \text{ m}$ としている。

(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

(4) ガスブレークスルーとブレー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)

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、ブロック作成の際载荷した方向に平行に試料の軸を有するように試料を作成し、別の2種類(MX80-6とMX80-7)は垂直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1.2.1-1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 $\mu\text{L/hr}$ 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。過剰圧力は約11.8MPaのマトリックスサクシオンまで低下している。

(b) MX80-2(ブロック BGS-2)

MX80-2 試料は、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、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。

(d) MX80-4(ブロック BGS-2)

MX80-4 試料を用いて、多段階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 1.2.1-4 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。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、その後は 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。

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 1.2.1-5)。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 1.2.1-6)。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。

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 1.2.1-7)。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。

(e) MX80-5(ブロック 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。

(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。第1ピークとブレー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。定常状態での過剰ガス圧($P_{gi}-P_{wo}$)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。

(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。

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。

(ii) ベントナイトペーストの結果 (ASG 装置)

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。圧密ステージの終了時に平均間隙比は 5.361(-)に低下し、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は 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 1.2.1-8 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 1.2.1-9 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。

(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ー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。

(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 1.2.1-10 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。

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

$750 \mu\text{L/hr}$ ($2.083 \times 10^{-10} \text{m}^3/\text{S}$) 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 1.2.1-11 に示している。絶対ガス圧が 2.50MPa (PT2 にて測定) の間隙水圧と等しくなると、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。

(5) 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態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。

- ・ 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。

- ・ 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。

- ・ 有効応力

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。

- ・ 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。

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

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。

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

- ・ 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。

- ・ ガス侵入

一定応力境界条件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。

- ・ 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過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 $1.7 \times 10^{-10} \text{ m}^2$ 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 $1.7 \times 10^{-10} \text{ m}^2$ 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 $1.1 \times 10^{-10} \text{ m}^2$ 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 shuit-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。

shuit-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ヨン）を下回るとき、ガス移行は生じないとしている。この値は MS-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。

- ・ 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。

- ・ 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。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。

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。

(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)の数多くのモデル解釈についても、対象としている。下記の問題を指摘している。

- ① 多数の通路形態が形成される場合、それは1つのネットワークなのかまたは、少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？

(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、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。

たとえば 1.7 mm 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。

(ii) ブレイクスルーと流動ガスの圧力

3軸試験では、拘束圧として $8, 9, 16 \text{ MPa}$ を作用させ、ブレイクスルー圧は拘束圧の $\pm 0.2 \text{ MPa}$ 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。

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

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。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。

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つであるとしている。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。

(iii) ガス侵入に対する粘土の非定常応答

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。

(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。

(3) モデル化のための要求事項

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。④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

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。

(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。

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たとしている。

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。下記に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

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、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。

図 1.2.2-1 にクラック配列を、図 1.2.2-2 にクラックモデルを示す。

(5) 線形弾性モデルによる定常流れの解析

(i) 定常状態でのガス流れ

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) $=\sigma$ (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。

(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。

(iii) 定常状態でのガス流れのモデルパラメータ

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。

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。

(6) ヒステリシス挙動

(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。このようにして考えられたモデルによる正味平均有効応力とガス透過係数の関係は、図 1.2.2-3 のようになる。

(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。

図 1.2.2-4 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 1.2.2-5 のようになるとしている。

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)。

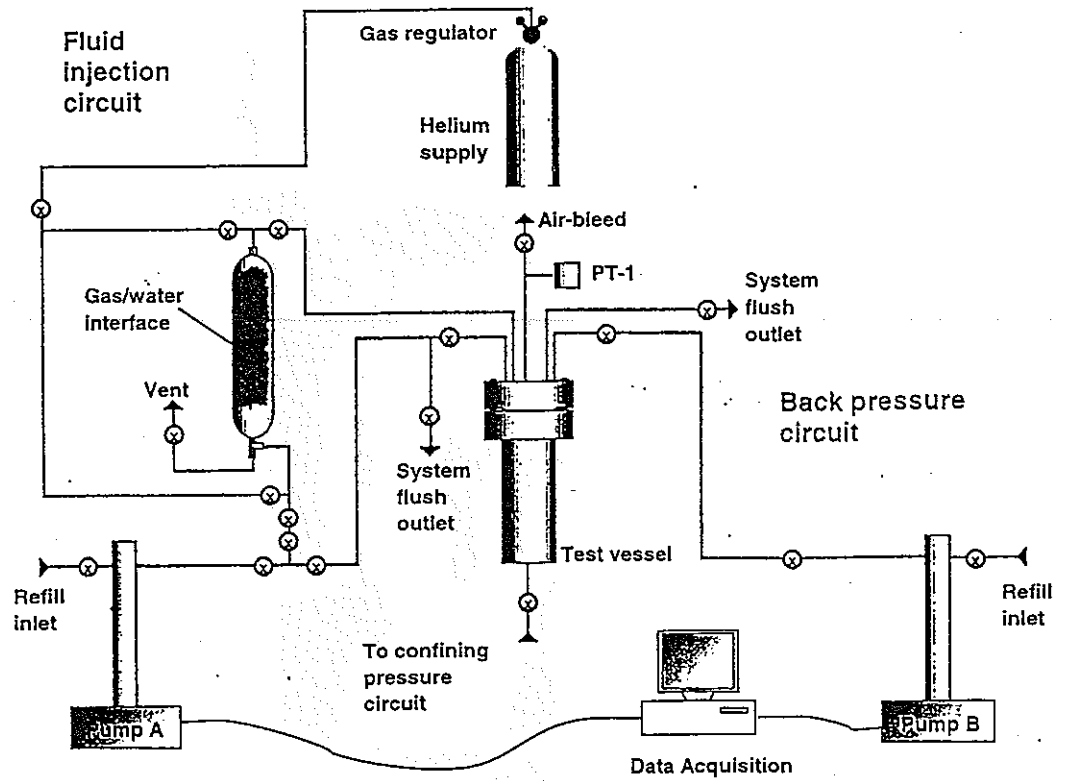
その結果、有効応力 (即ち disjoining pressure) と同程度の過剰ガス圧が作用する時、ブレイクスルーが発生すること、及びブレイクスルー後のガス透過係数と正味平均有効応力の関係から shut-in 後の圧力挙動については、ダルシー則に基づくガス移動式に Griffith 破壊基準を加えたモデルを提案し、shut-in 後の定常値はマトリックスサクシオン即ち毛管圧力に等しいことを述べている。

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、そこでブレイ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。

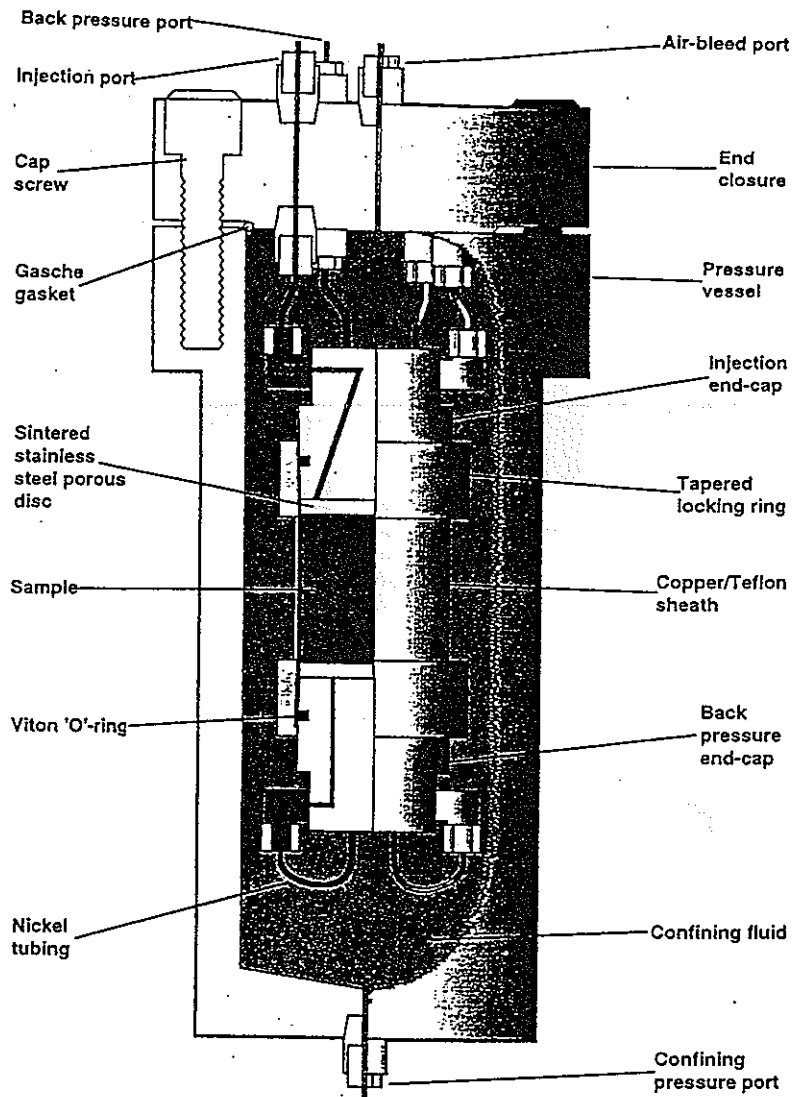
また GAMBIT Club レポートでは、BGS の実験結果をクラック伸張モデルと考え、ガス圧とガス流速の非線形性は Griffith 理論と弾性理論及び指数関数を導入することで近似できること、さらにガス透過係数と正味平均有効応力の挙動をヒステリシスモデルを用いる近似手法を示している。

しかし、これらの実験で、拘束圧とガスブレイ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。



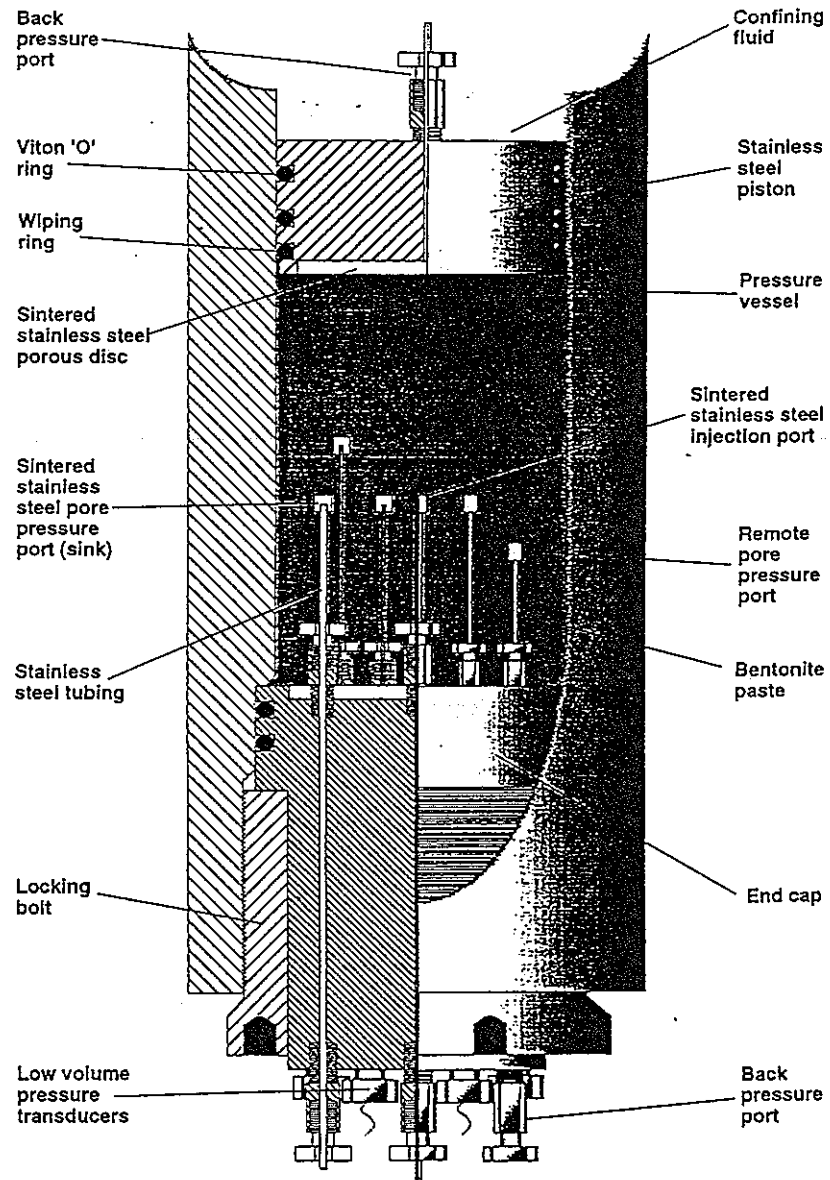
Schematic of the BGS controlled flow-rate gas migration apparatus. The five main components are: (a) a specimen assembly, (b) a pressure vessel together with its associated control equipment, (c) a fluid injection system, (d) a backpressure system and (e) a microcomputer-based data acquisition system.

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.

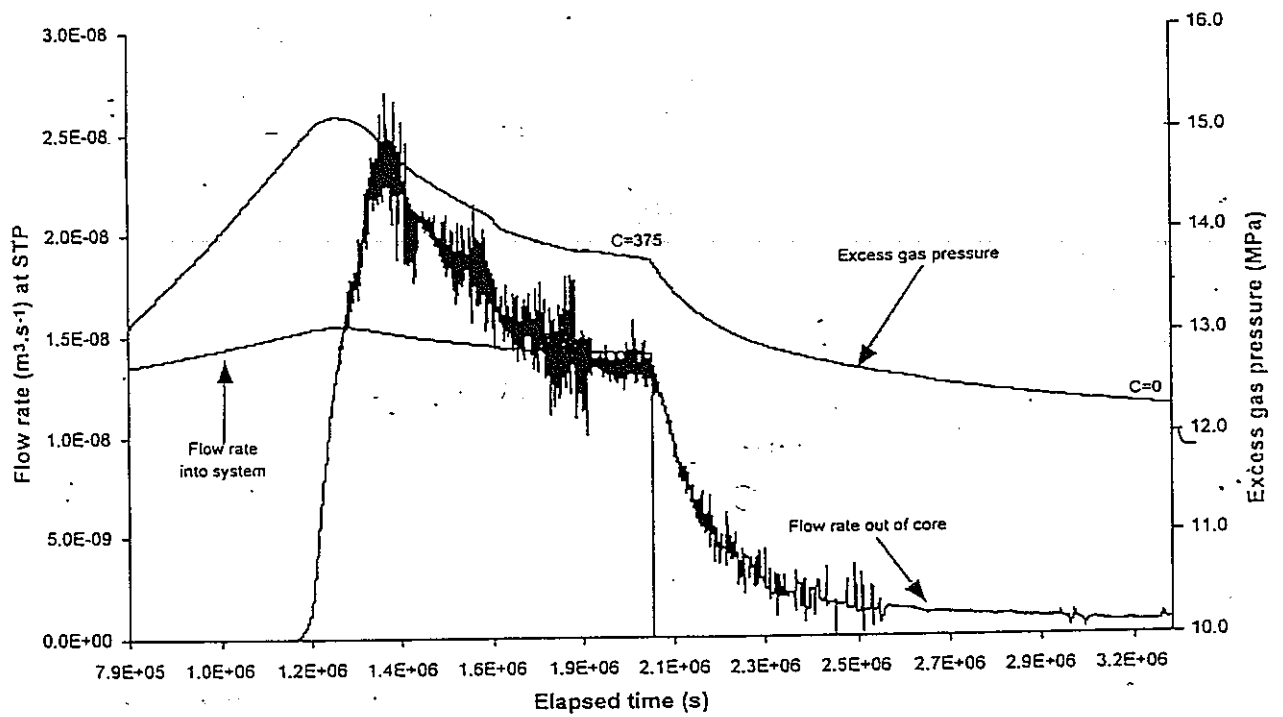
図 1.2.1-2(2) ASG 装置の圧力容器と試験セル

表 1.2.1-1 BGS 装置による測定パラメータ

Test	Pumping rate, C		Excess gas pressure (MPa)				Conf. pressure (MPa)
	$\mu\text{L}\cdot\text{hr}^{-1}$	$\text{m}^3\cdot\text{s}^{-1} / 10^{12}$	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

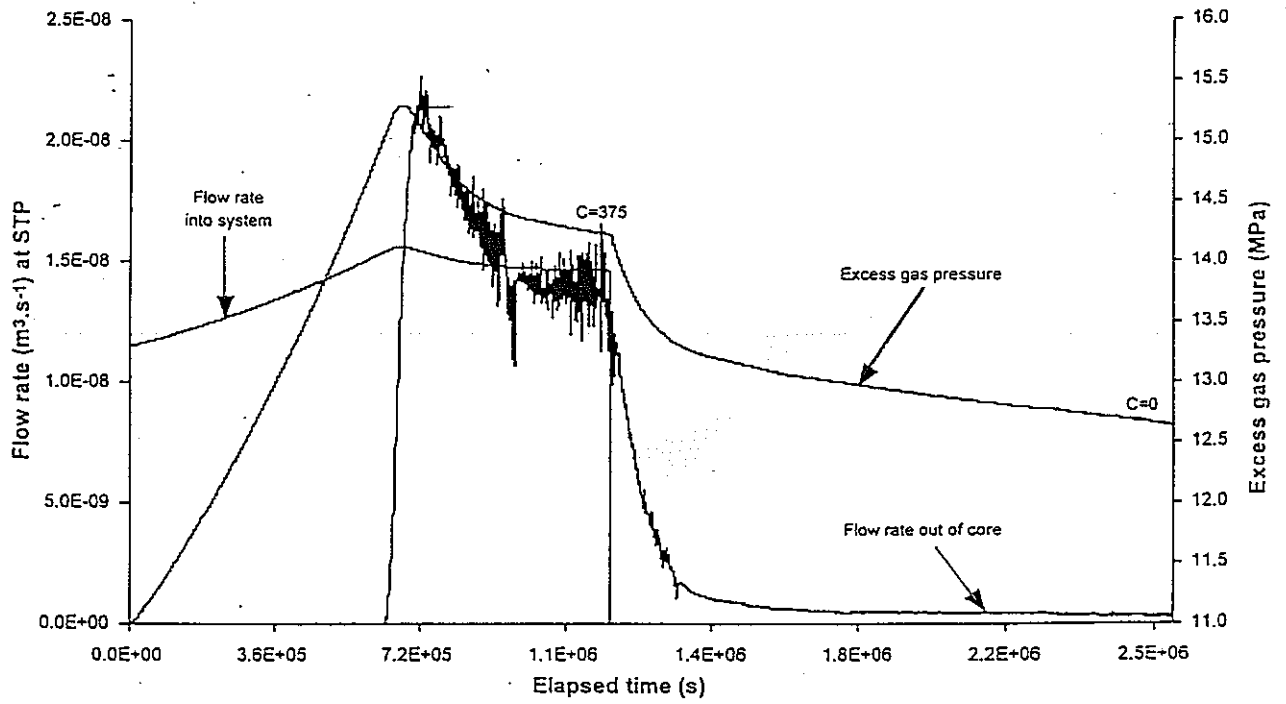
† signifies that the specimen contained a fabrication joint.

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.



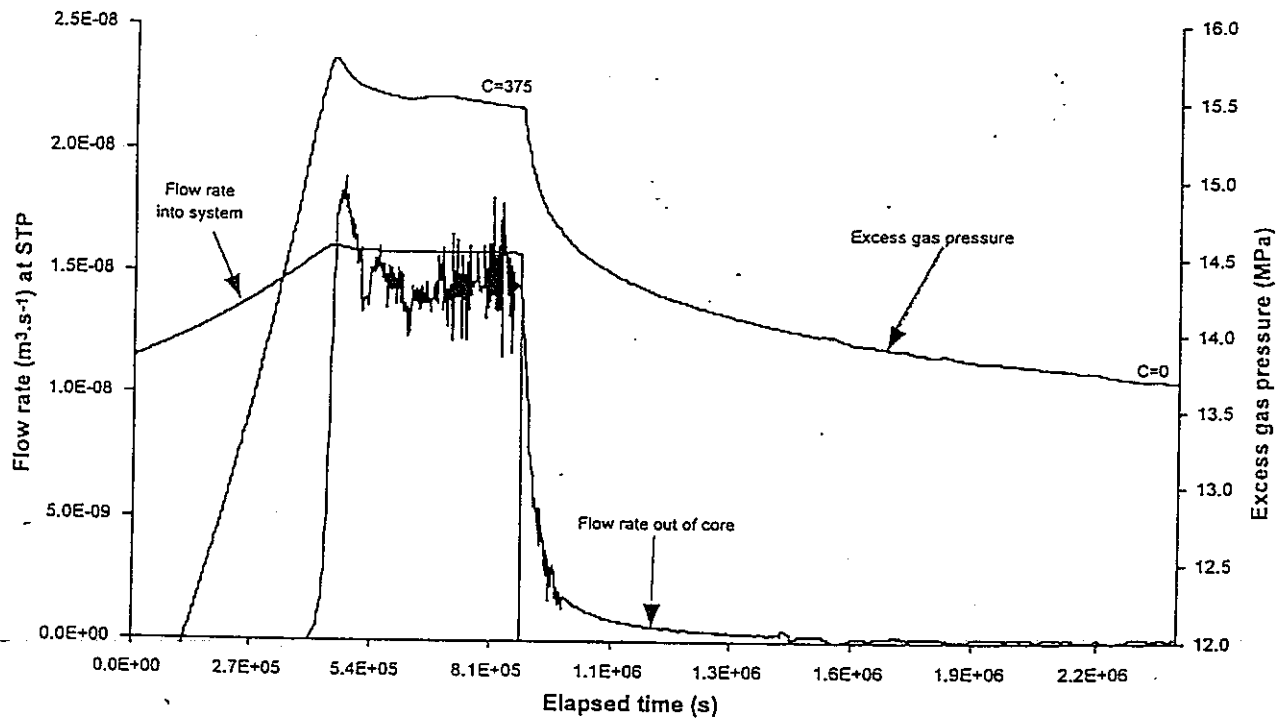
Experimental history: Mx80-1 (Block BGS 2) on HS-batch clay with an average dry density of 1.638 Mg.m^{-3} and a swelling pressure close to 15 MPa. Excess gas pressure ($p_g - p_{we}$) and volumetric flow rates (STP) into the testing system and out of the specimen plotted against elapsed time. The peak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



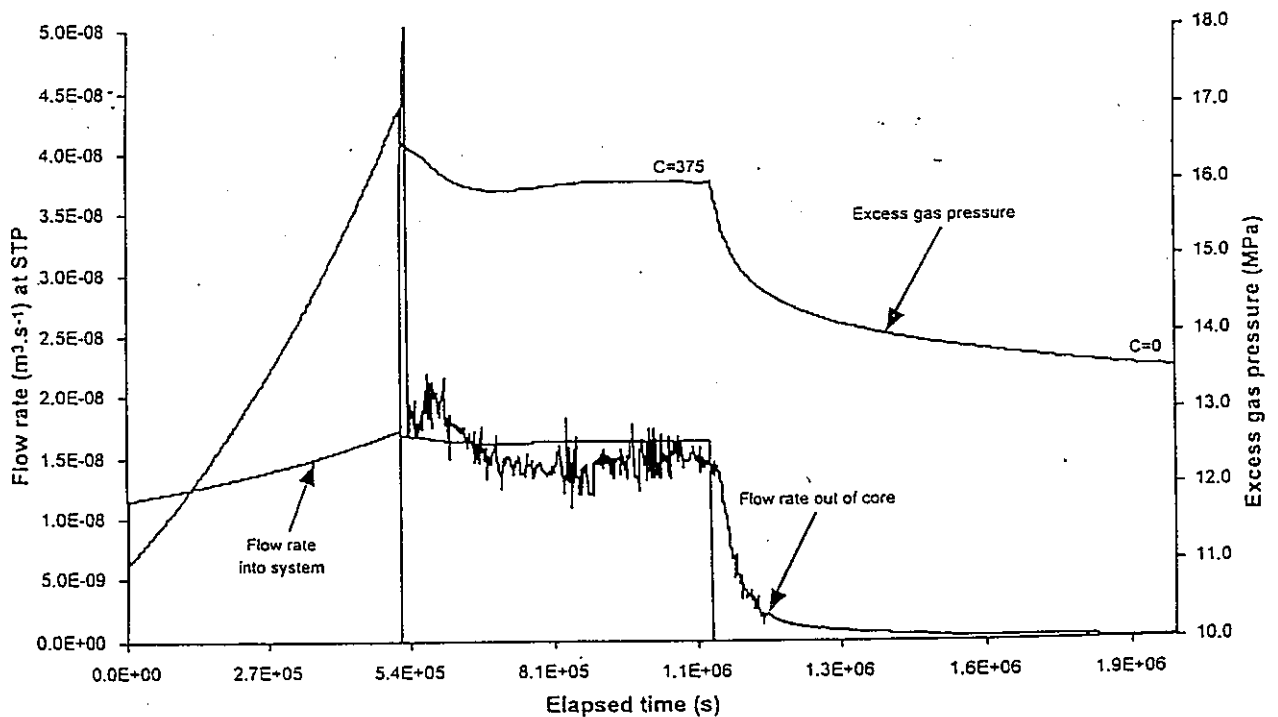
Experimental history Mx80-4A Part 1 (Block BGS 2) on HS-batch clay with an average dry density of 1.638 Mg.m^{-3} and a swelling pressure close to 15 MPa. Excess gas pressure ($p_{gi}-p_{wo}$) and volumetric flow rates (STP) into the testing system and out of the specimen plotted against elapsed time.

図 1.2.1-4 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)



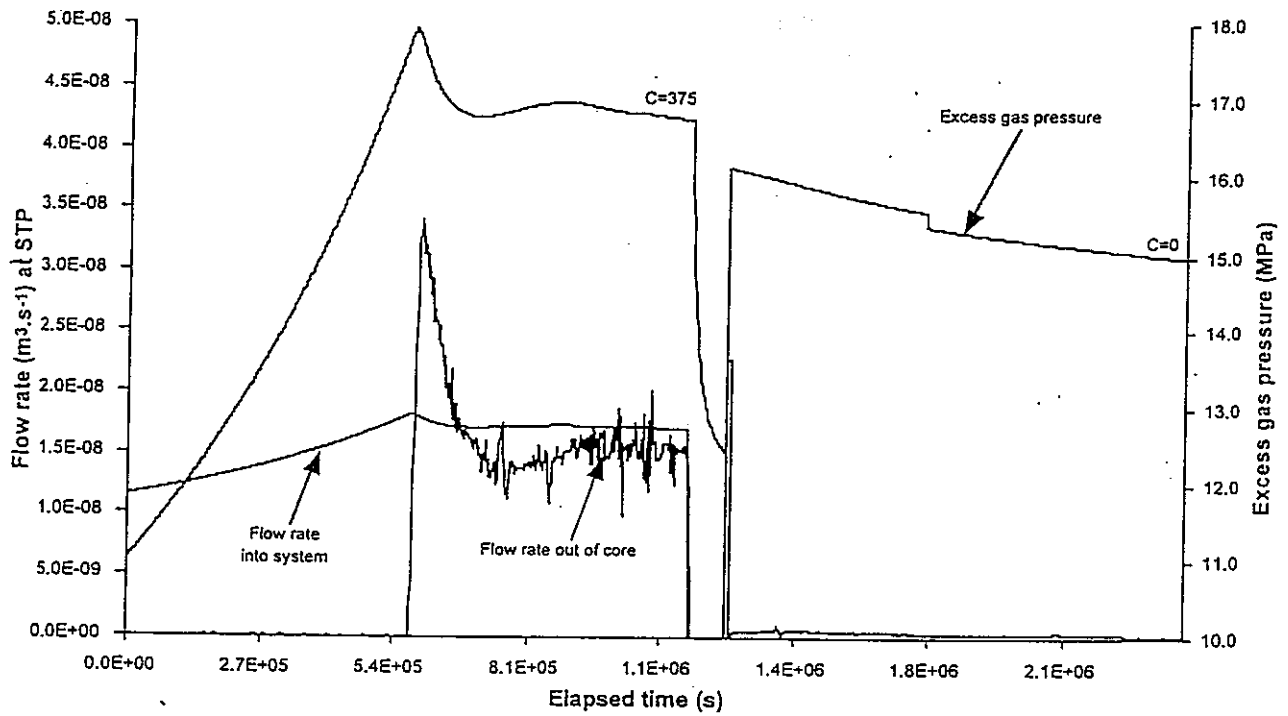
Experimental history Mx80-4B (Block BGS 2) on HS-batch clay with an average dry density of 1.638 Mg.m^{-3} . The confining pressure is 18 MPa. Excess gas pressure ($p_{g_i} - p_{w_0}$) and volumetric flow rates (STP) into the testing system and out of the specimen plotted against elapsed time.

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



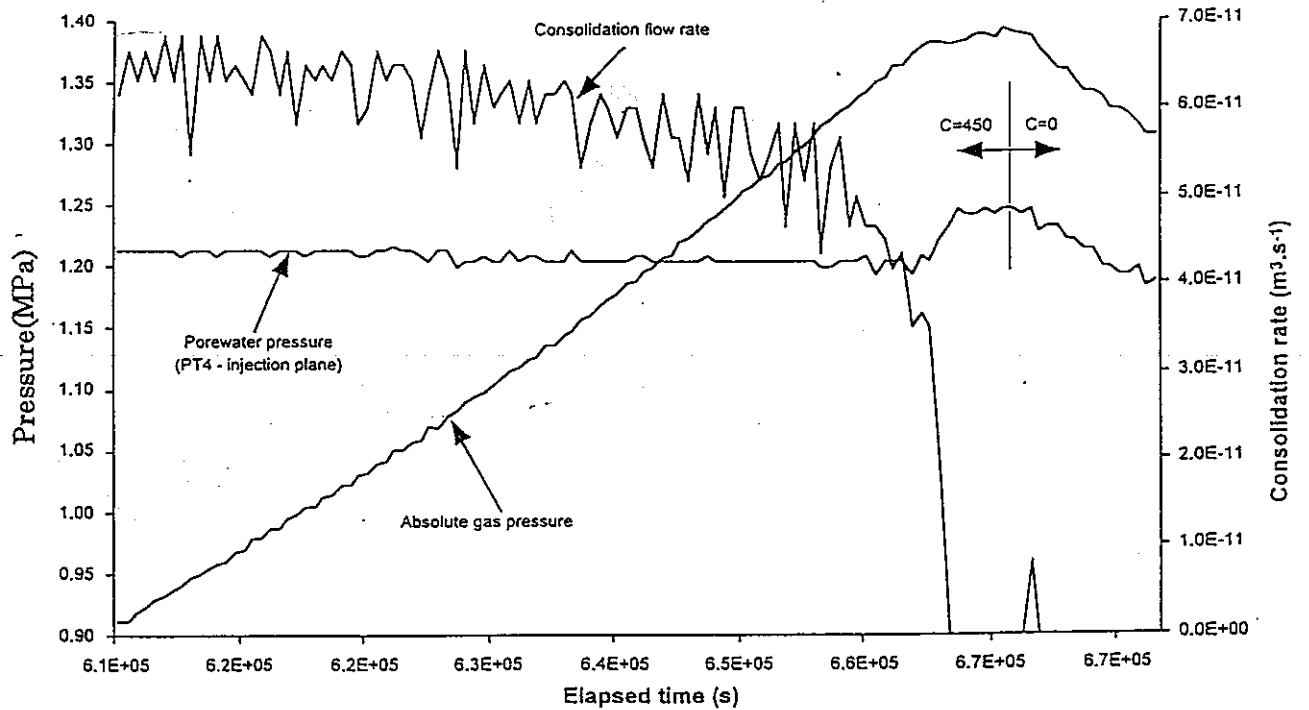
Experimental history Mx80-4C (Block BGS 2) on HS-batch clay with an average dry density of 1.638 Mg.m^{-3} . The confining pressure is 20 MPa. Excess gas pressure ($p_{g_i} - p_{w_0}$) and volumetric flow rates (STP) into the testing system and out of the specimen plotted against elapsed time.

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



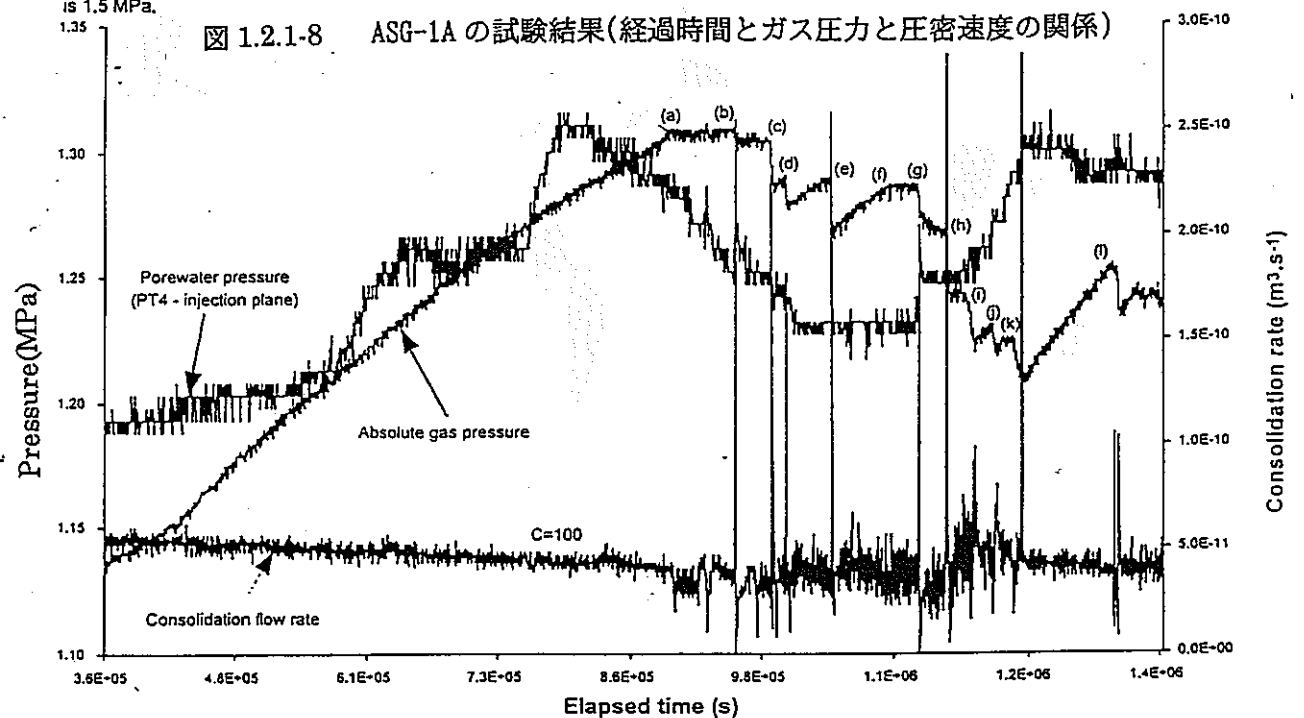
Experimental history Mx80-4D (Block BGS 2) on HS-batch clay with an average dry density of 1.638 Mg.m⁻³. The confining pressure is 22 MPa. Excess gas pressure ($p_g - p_w$) and volumetric flow rates (STP) into the testing system and out of the specimen plotted against elapsed time.

図 1.2.1-7 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 ASG-1A on bentonite paste showing absolute gas pressure, p_g , 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.

☒ 1.2.1-8 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_g , 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.

☒ 1.2.1-9 ASG-1B の試験結果(経過時間とガス圧力と圧密速度の関係)

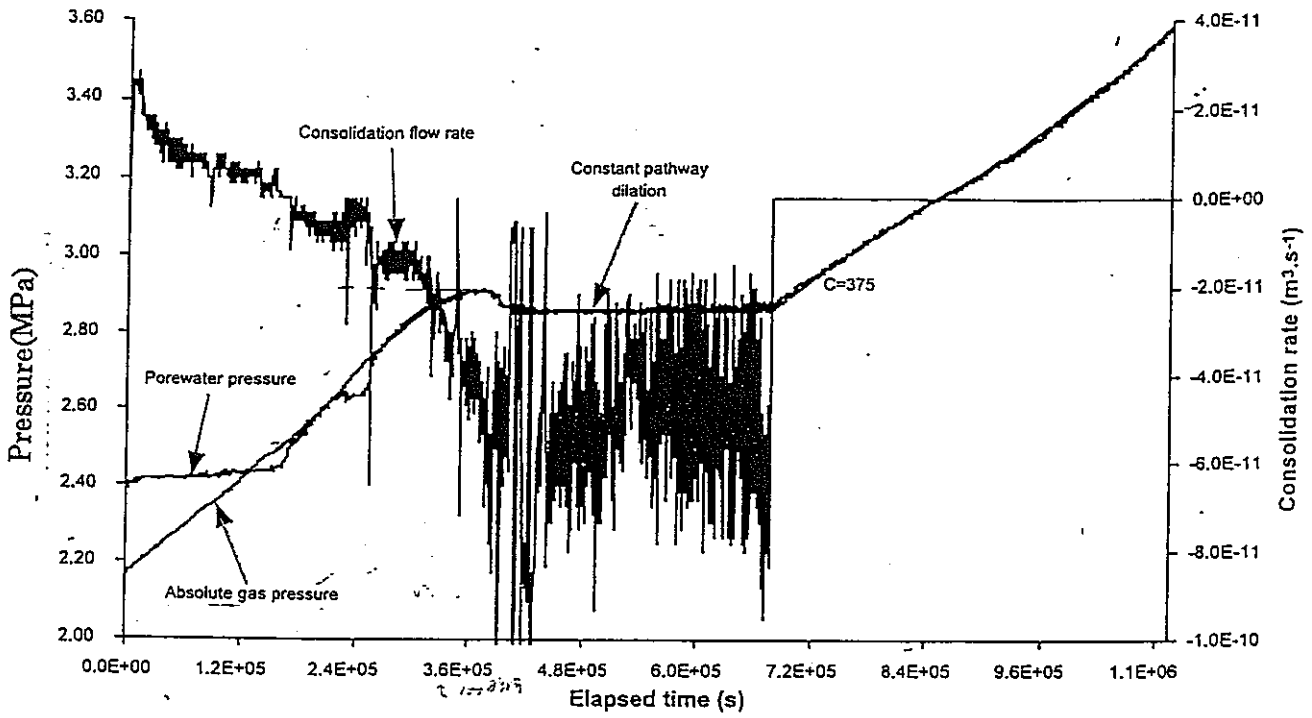


Fig. 1.2.1-10 - Experimental history ASG-2A on bentonite paste showing absolute gas pressure, p_{gi} , the consolidation rate monitored by the axial stress-control pump, and the pore pressure at one of the internal monitoring filters. The vertical stress on the bentonite is 2.7 MPa.

図 1.2.1-10 ASG-2A の試験結果(経過時間とガス圧力と圧密速度の関係)

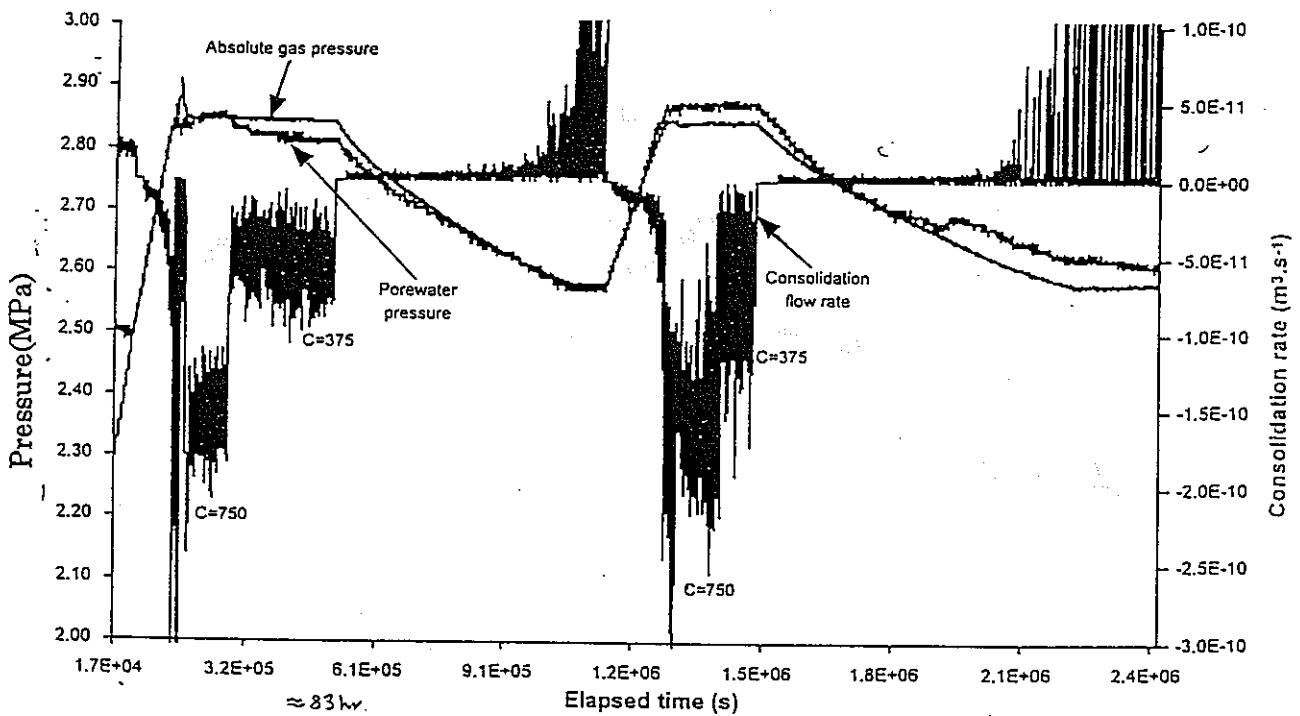
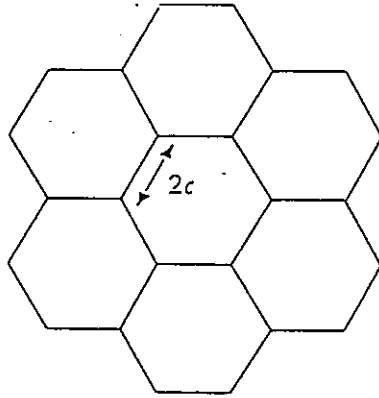


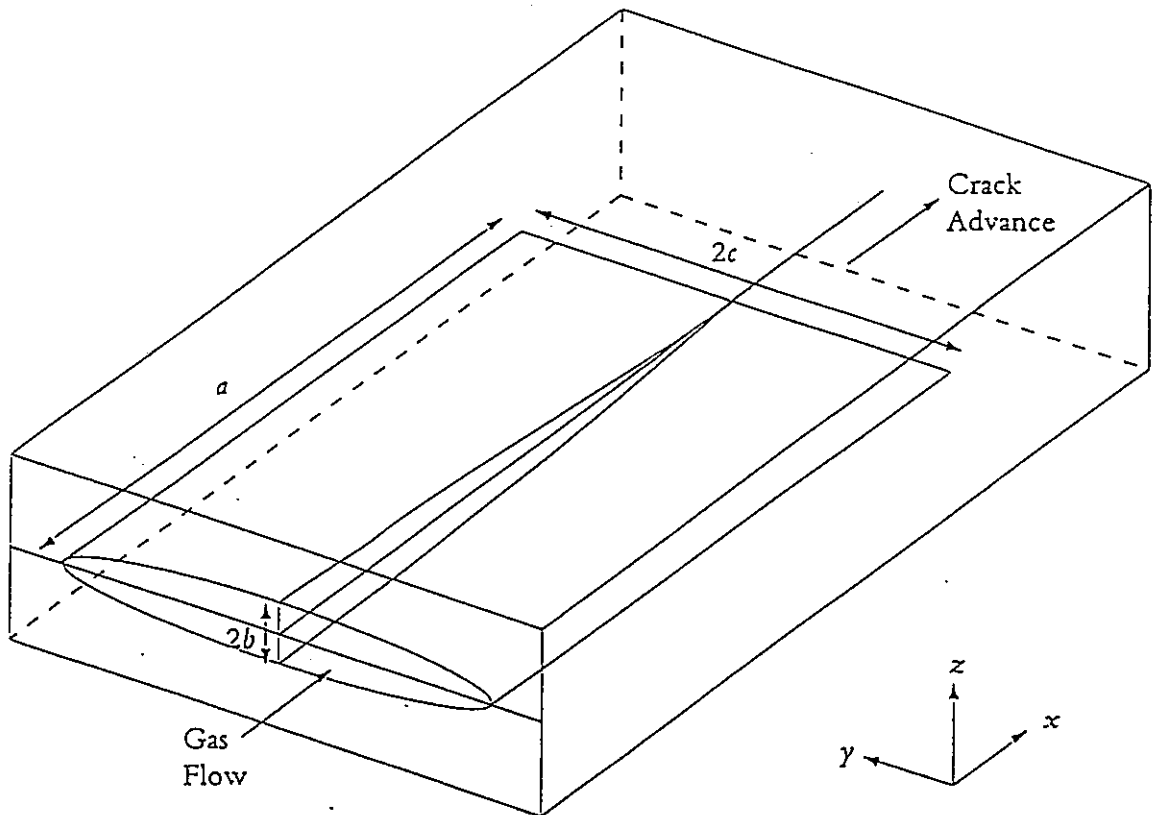
Fig. 1.2.1-11 - Experimental history ASG-2B on bentonite paste showing absolute gas pressure, p_{gi} , the consolidation rate monitored by the axial stress-control pump, and the pore pressure at one of the internal monitoring filters. The vertical stress on the bentonite is 2.7 MPa.

図 1.2.1-11 ASG-2B の試験結果(経過時間とガス圧力と圧密速度の関係)



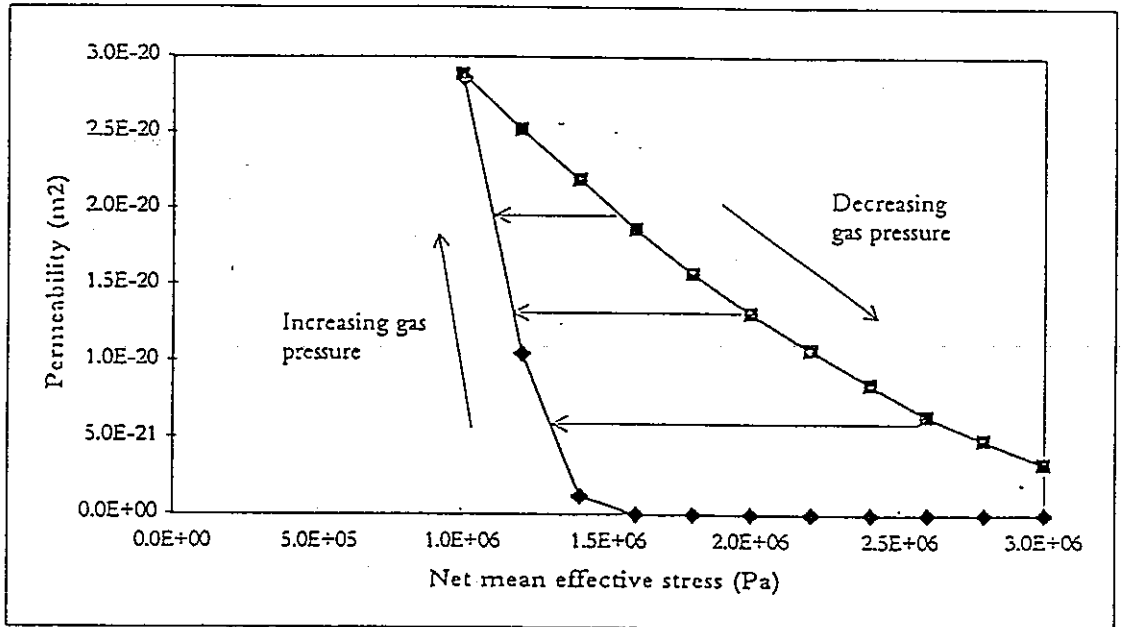
Possible arrangement of fractures normal to flow direction

図 1.2.2-1 流れ方向に垂直断面でのフラクチャー配列



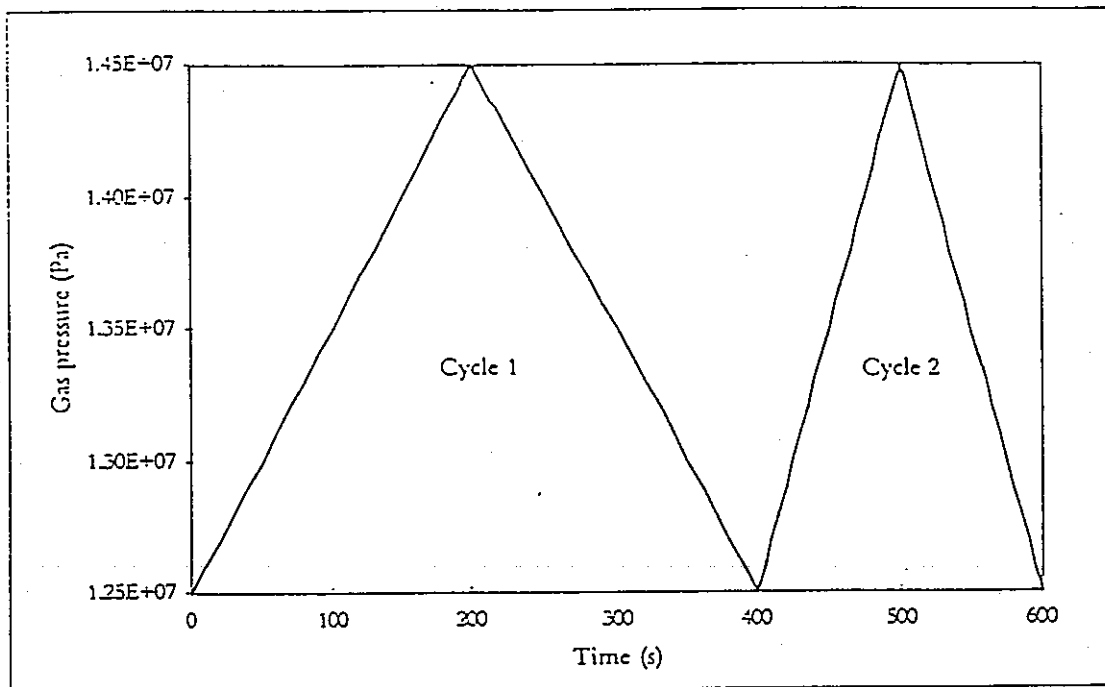
Schematic of propagating Griffith crack

図 1.2.2-2 伸張する Griffith クラックモデル



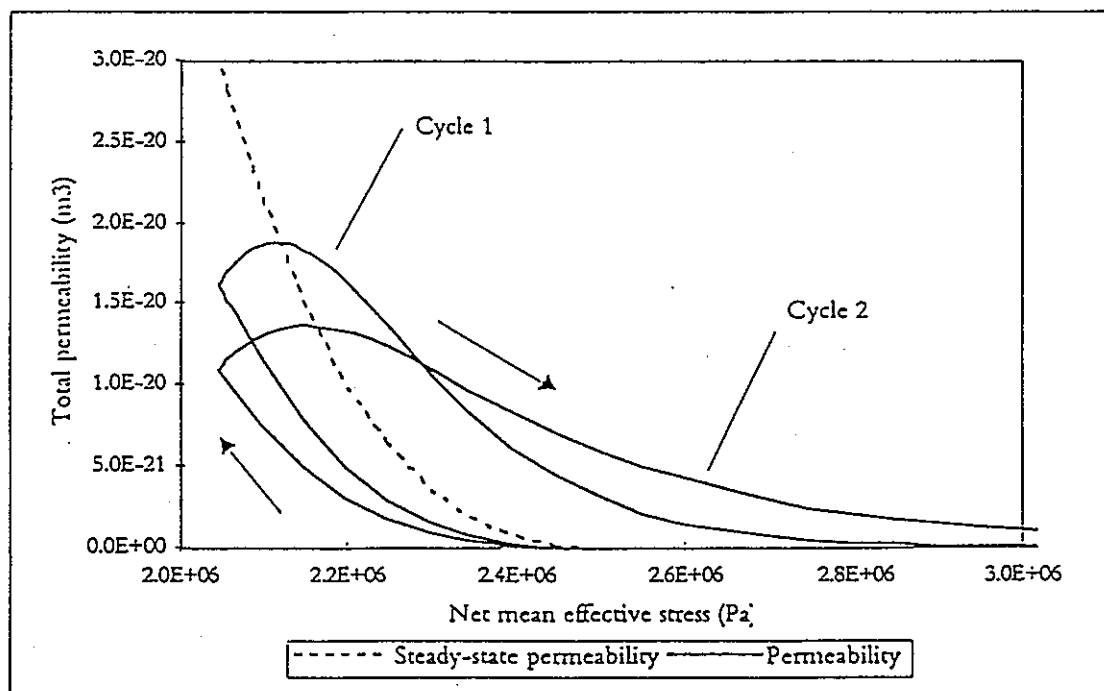
Gas permeability versus effective stress

図 1.2.2-3 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



Variation of gas pressure with time

図 1.2.2-4 ガス圧の経時変化



Variation of total permeability with net mean effective stress

図 1.2.2-5 正味平均有効応力と全透過係数

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豎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、拡散に関する3次元(円筒座標系)微分方程式を用いた。

2.1.3 シミュレーション用コンピュータプログラム

本解析は、微分方程式を陽解法差分方程式に組み替えてプログラムを作成し、シミュレーションを実施した。

なお、事前にこの作成したプログラムを検証するために、解析解が得られている空洞周辺のポテンシャル分布の変化を求める解析解¹⁴⁾とコンピュータプログラムによって得られた数値解を比較した。

その結果、今回作成したプログラムによって、どちらの場合においても0.3%以内の十分な精度の数値解が得られた。

2.1.4 解析領域の設定

解析領域は、境界条件の対称性から横置き方式の場合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、豎置方式の場合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の範囲でそれぞれ設定した。

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図2.1.5-1、格子1つ分の寸法を表2.1.5-1、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、オーバーバ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。

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、見かけの拡散係数を Da で表す。

2.2.1 横置方式の場合

(1) $Da=2 \times 10^{-10} (\text{m}^2/\text{s})$ の場合

この条件では、オーバーバ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）に溶けきれなかった水素が O.B.界面に蓄積していく。

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

この条件では、オーバーバ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 2.2.1-1~6)

(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 1.81×10^{-3} Nm³/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 2.698Nm³/yr.、0.268 Nm³/yr.、 2.51×10^{-2} 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.界面に蓄積することがわかる。

2.2.2 処分孔縦置方式の場合

(1) $Da=2 \times 10^{-11}$ (m²/s)、水素発生速度=0.27(Nm³/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 3.3×10^{-2} Nm³/yr.となった。

(2) $Da=2 \times 10^{-11}$ (m²/s)、水素発生速度= 2.7×10^{-2} (Nm³/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 2.70×10^{-2} Nm³/yr.となった。

(3) $Da=2 \times 10^{-10}$ (m²/s)、水素発生速度=0.27(Nm³/yr)の場合

このパラメータ設定は見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 Nm³/yr.となった。

2.2.3 処分坑道横置方式、水素発生速度= 5.7×10^{-2} (Nm³/yr)の場合

ここでは、水素ガス発生速度が過去の実験結果から最も妥当性のある値:0.057Nm³/yr.に基づいて拡散解析を実施したものである。

(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。

(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。

(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。

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

水素の発生量は腐食 1 mm あたり 27m³であるので、水素発生速度:q は下式のようになる。ここでは、水素ガス発生速度が経時変化した場合を考慮して拡散解析を実施した。

$$q = 27 v$$

(2) $Da=2 \times 10^{-11}$ (m²/s)の場合の計算結果

この条件では、ベントナイト内の溶存水素ガス濃度、岩盤への水素溶出量、O.B.界面への水素の蓄積量が時間の経過とともに変化している。

図 2.2.4-1～図 2.2.4-2 には、1,000 年後及び 5,000 年後の濃度分布を示す。また、図 2.2.4-3～図 2.2.4-4 には、腐食速度が経過時間とともに減少する場合のオーバーパック周辺に蓄積されるガス量と、岩盤へ逃げ去る量を示す。

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、見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。

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。

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。

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。

$Da=2 \times 10^{-11}$ (m²/s)、水素発生速度が 0.027Nm³/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生じた。

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 $Da=2 \times 10^{-12}$ (m²/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 年から発生し、その量も毎年 1.81×10^{-3} Nm³/yr. と少ない。

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。

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 年目から開始し、その量は

それぞれ、 $3.26 \times 10^{-2} \text{ Nm}^3/\text{yr}$ と $2.70 \times 10^{-2} \text{ Nm}^3/\text{yr}$ である。

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進んでいる。

条件 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。

2.3.3 オーバーパックと緩衝材間に蓄積するガス圧

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、p46,平成8年度)より¹⁰⁾。

(1) 緩衝材の挙動を体積弾性率で表現した場合

体積弾性率は文献¹⁵⁾から下式のように求めることができる。

$$dP = -2 + 0.5 \times (16 + 0.0534v_s)^{0.5}$$

ただし、 v_s は 1 気圧状態の発生ガス量、

ここで、蓄積されるガス圧: $P+dP$ は、上記の dP に $P=4 \text{ MPa}$ の膨潤圧を加算する必要が
ある。

(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、
を次式のように計算できる。

$$dP = -2 + 0.5 \times (16 + 0.0660v_s)^{0.5}$$

ただし、 v_s は 1 気圧状態の発生ガス量、

ここで、蓄積されるガス圧: $P+dP$ は、上記の dP に $P=4 \text{ MPa}$ の膨潤圧を加算する必要が
ある。

(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 r_1 、外半径が r_2 の厚肉円筒に、内圧 P_1 と外圧 P_2 が作用してい
る場合を次式のように計算できる。

$$dP = -2 + 0.5 \times (16 + 0.277v_s)^{0.5} \quad (L=1.95(\text{オーバーパックの長さを取る})\text{の場合})$$

$$dP = -2 + 0.5 \times (16 + 0.0772v_s)^{0.5} \quad (L=7.00(\text{緩衝材の長さを取る})\text{の場合})$$

ただし、 v_s は 1 気圧状態の発生ガス量、

ここで、蓄積されるガス圧: $P+dP$ は、上記の dP に $P=4\text{MPa}$ の膨潤圧を加算する必要がある。

以上、オーバーパ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、オーバーパ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 500m^3 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。

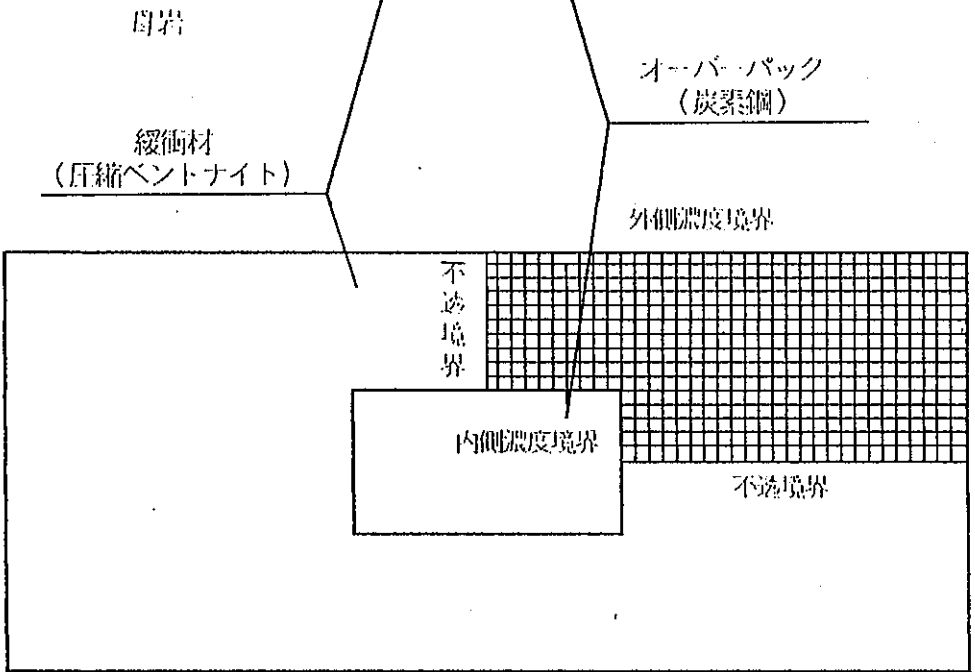
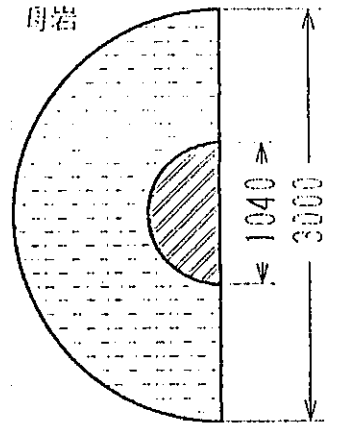
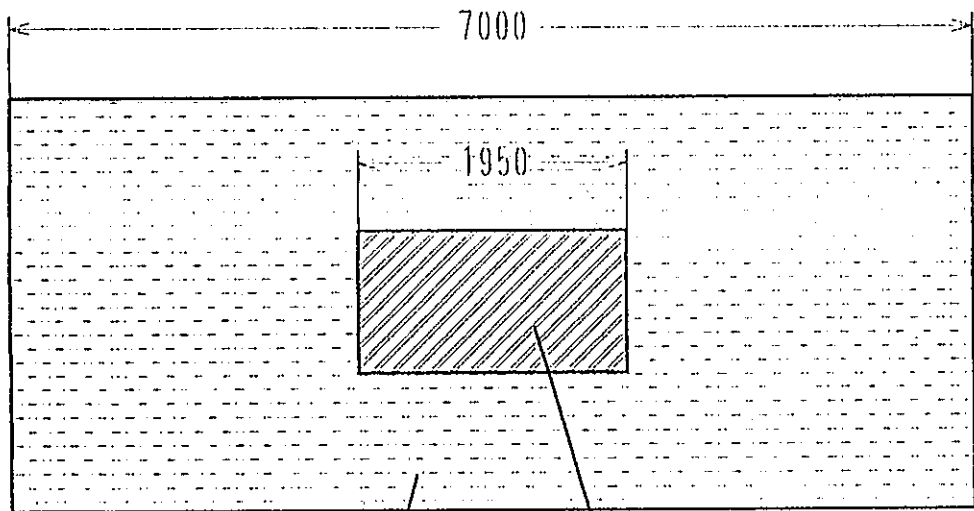


図 2.1.5-1 拡散解析シミュレーションモデル

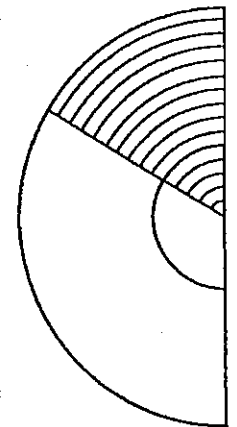


表 2.1.5-1 差分格子1つ分の寸法

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	処分孔縦置方式の基準値
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

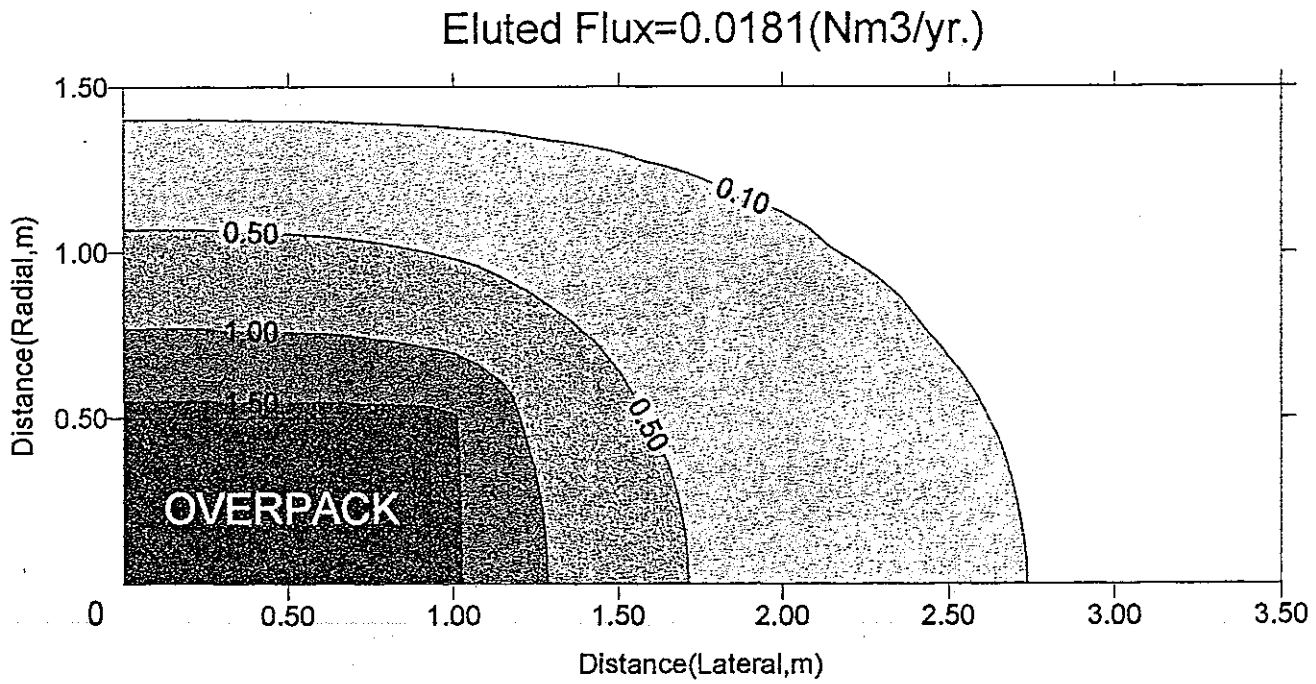


図 2.2.1-1 5000 年後のベントナイト中の水素濃度分布

(坑道横置方式、拡散係数： 2×10^{-11} m²/s、発生速度：
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)

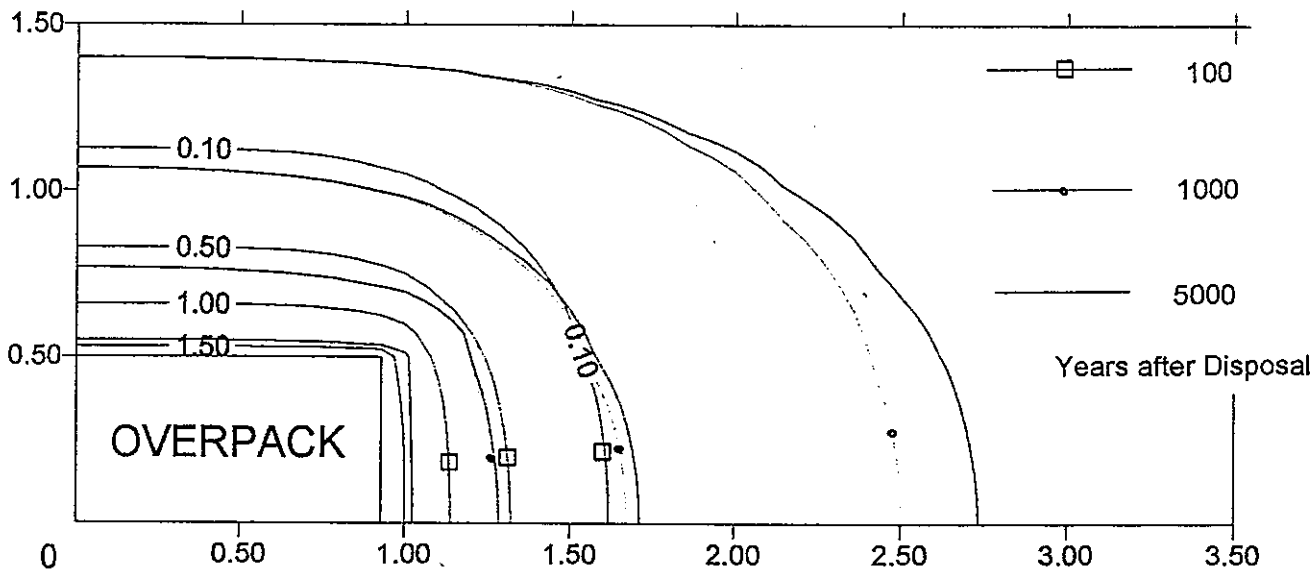


図 2.2.1-2 100~5000 年ベントナイト中の水素濃度分布

(坑道横置方式、拡散係数： 2×10^{-11} m²/s、発生速度：
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)

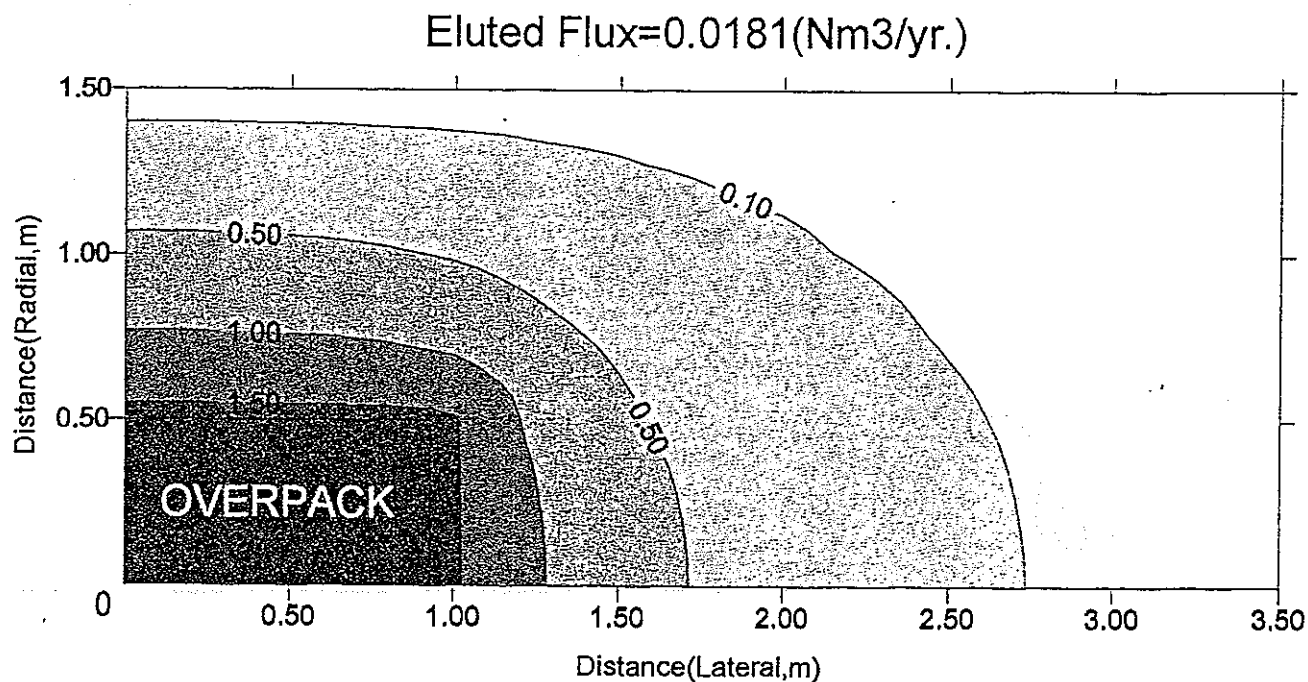


図 2.2.1-3 5000 年後のベントナイト中の水素濃度分布

(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)

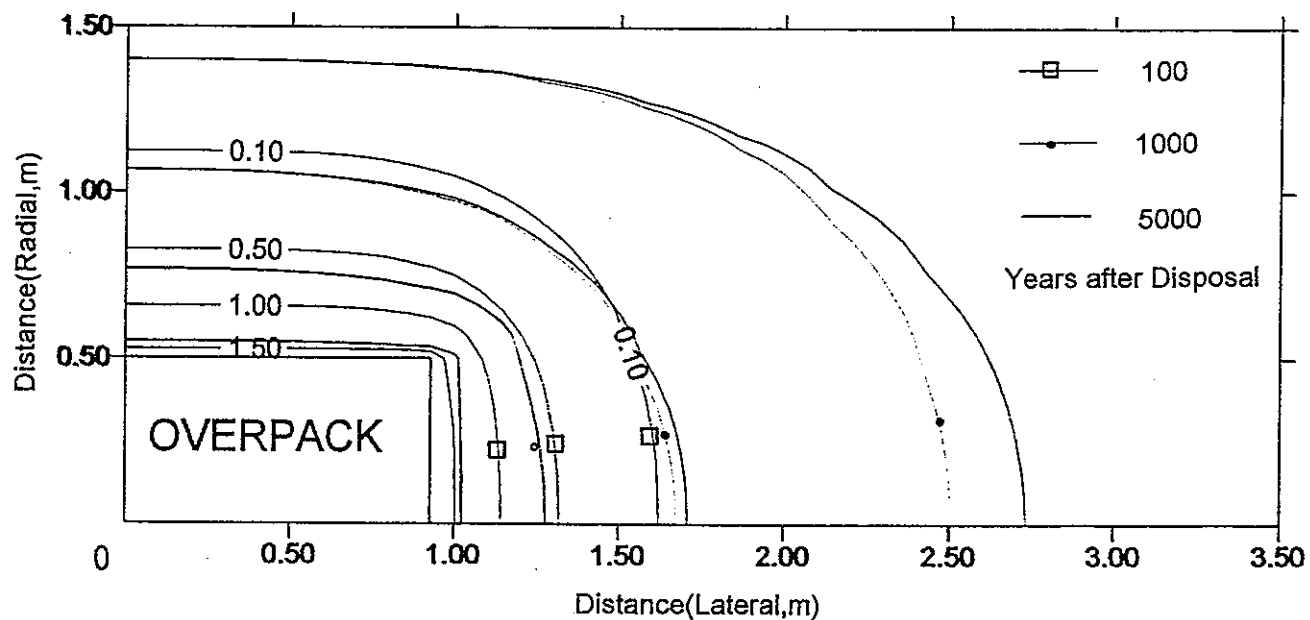


図 2.2.1-4 100～5000 年ベントナイト中の水素濃度分布

(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)

Eluted Flux=0.0181(Nm³/yr.)

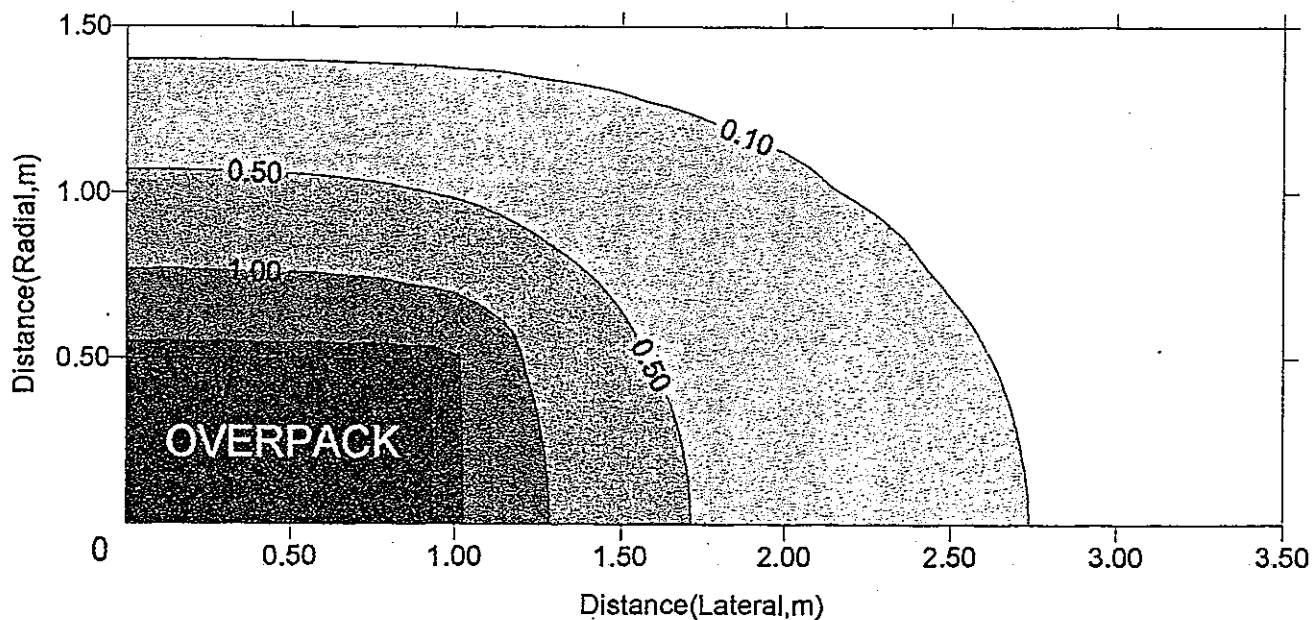


図 2.2.1-5 . 5000 年後のベントナイト中の水素濃度分布

(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)

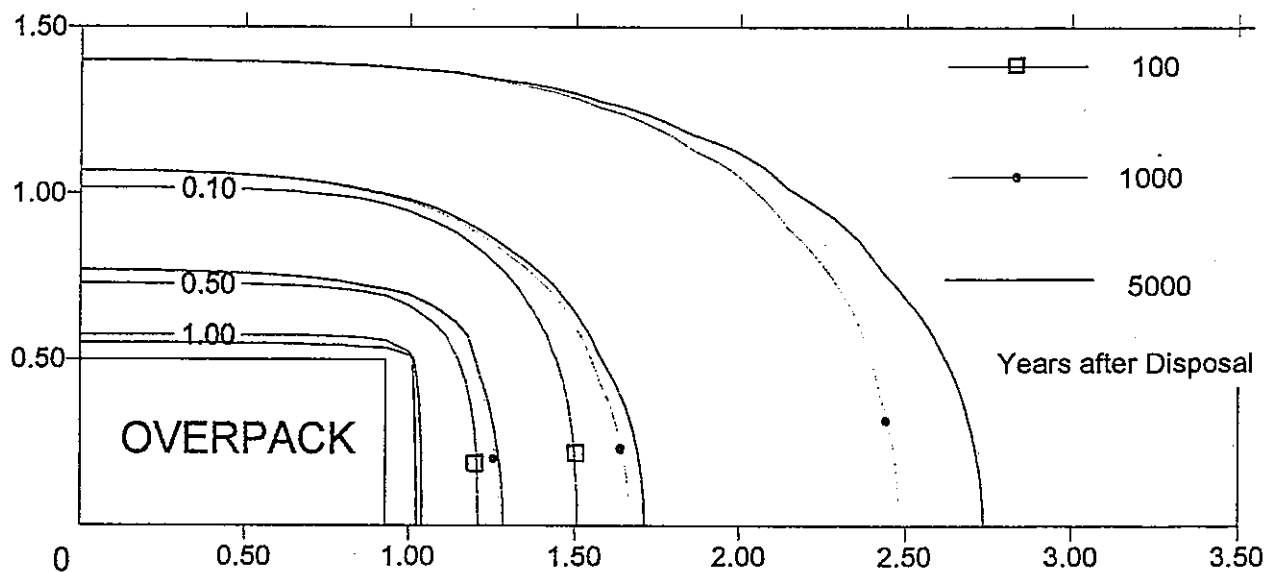


図 2.2.1-6 100~5000 年ベントナイト中の水素濃度分布

(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)

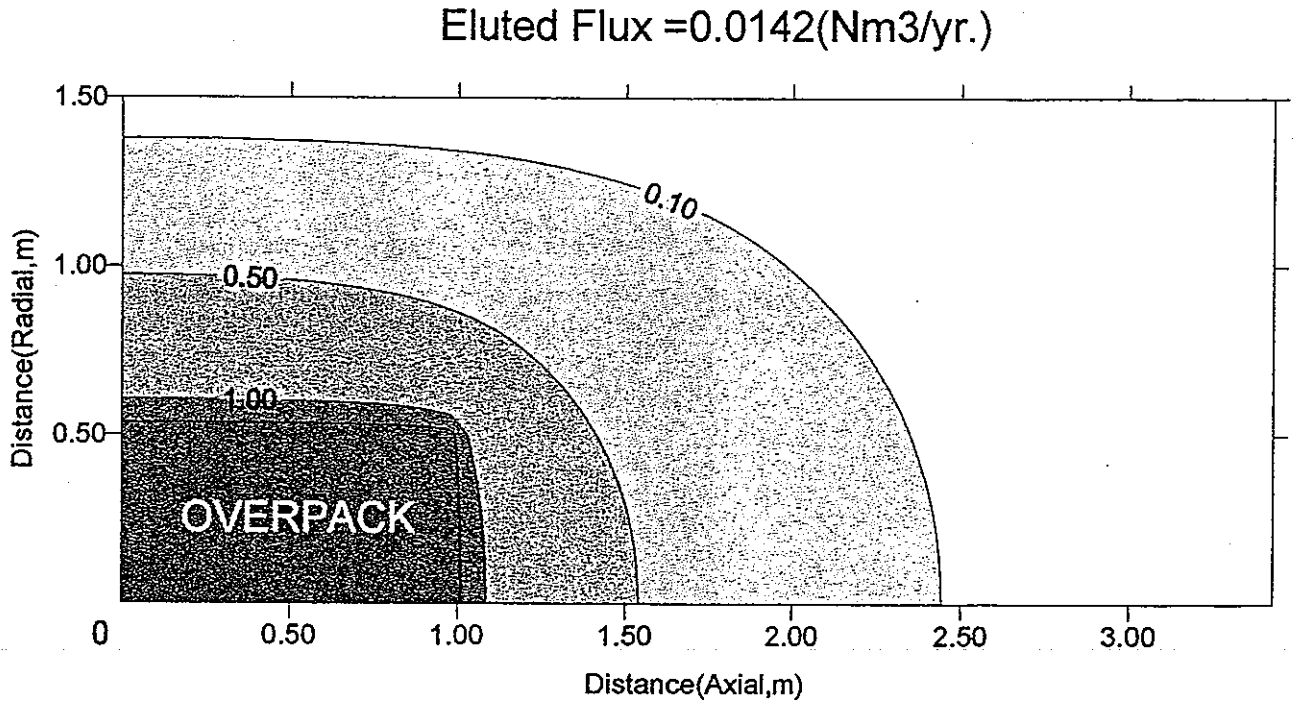


図 2.2.4-1 1000 年後のベントナイト中の水素濃度分布

(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)

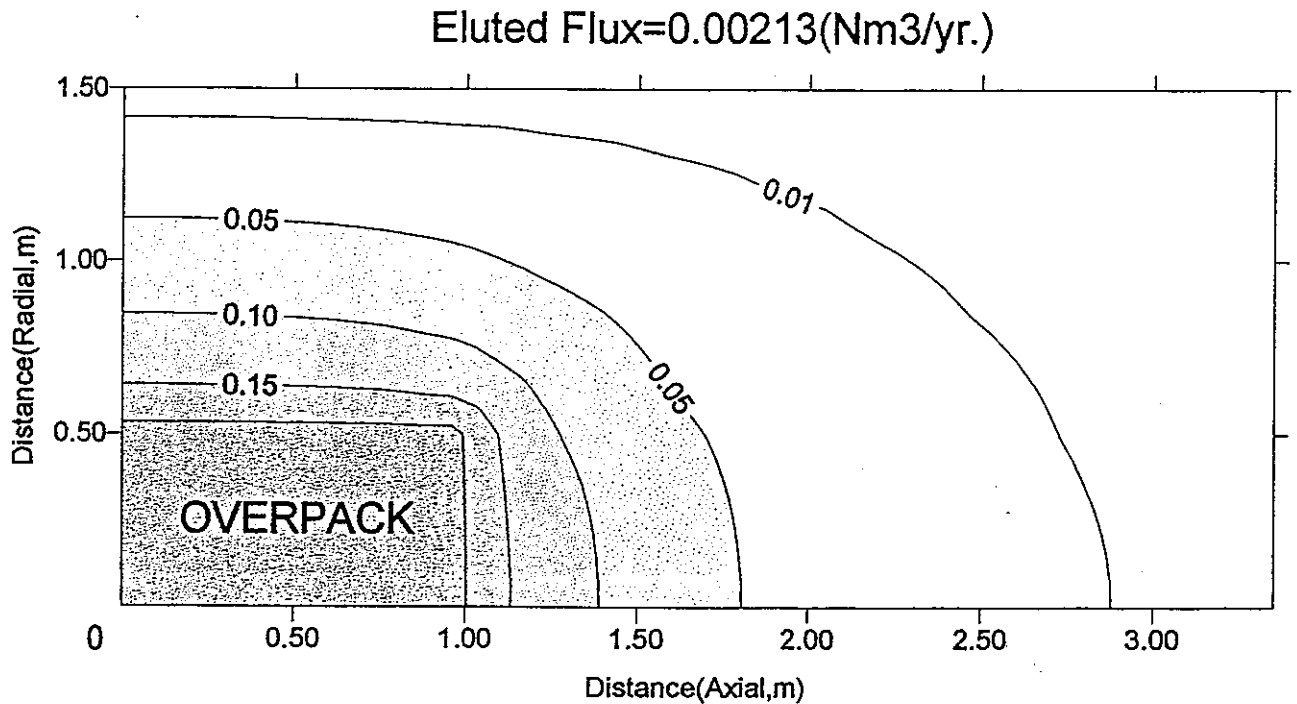
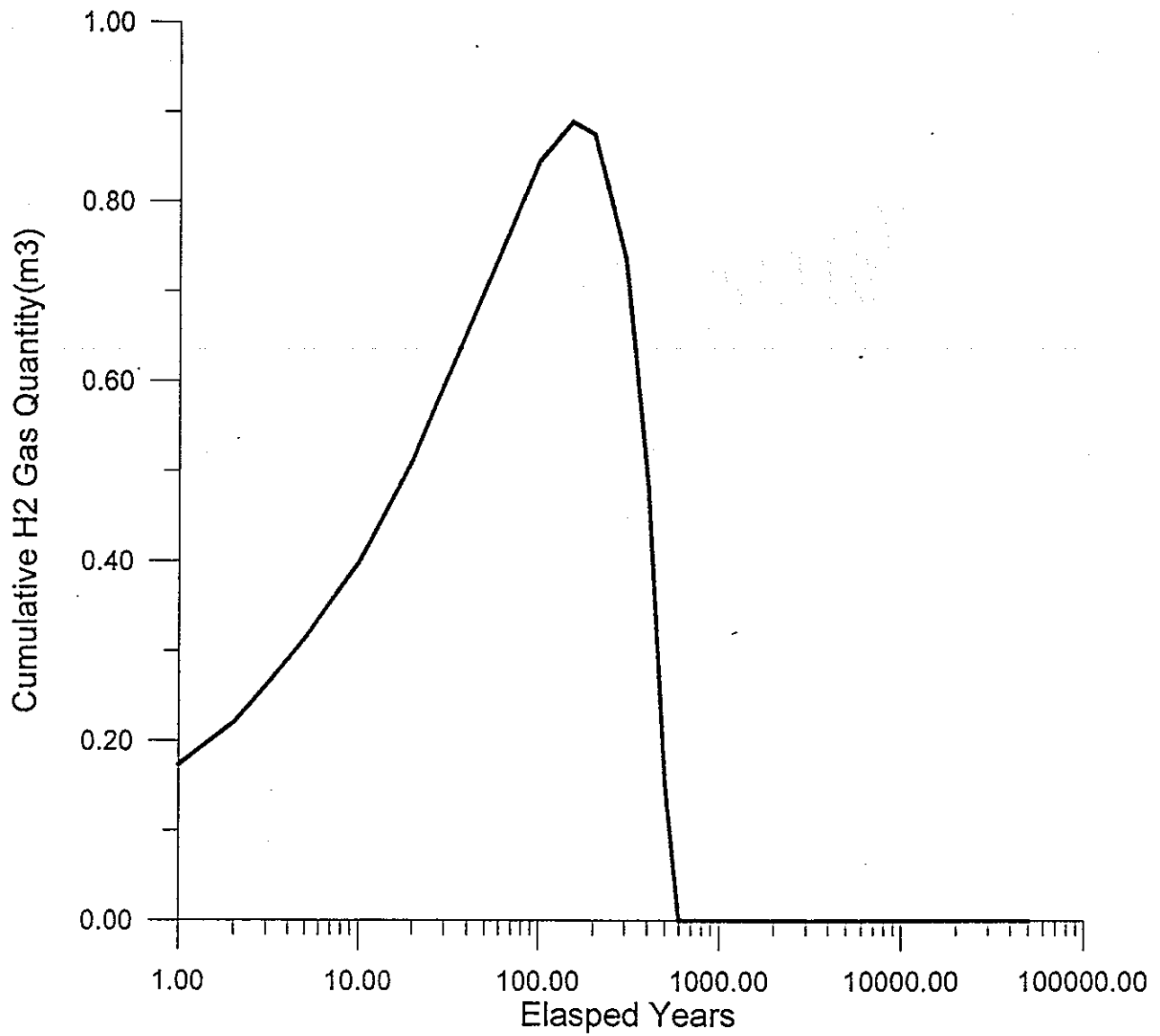


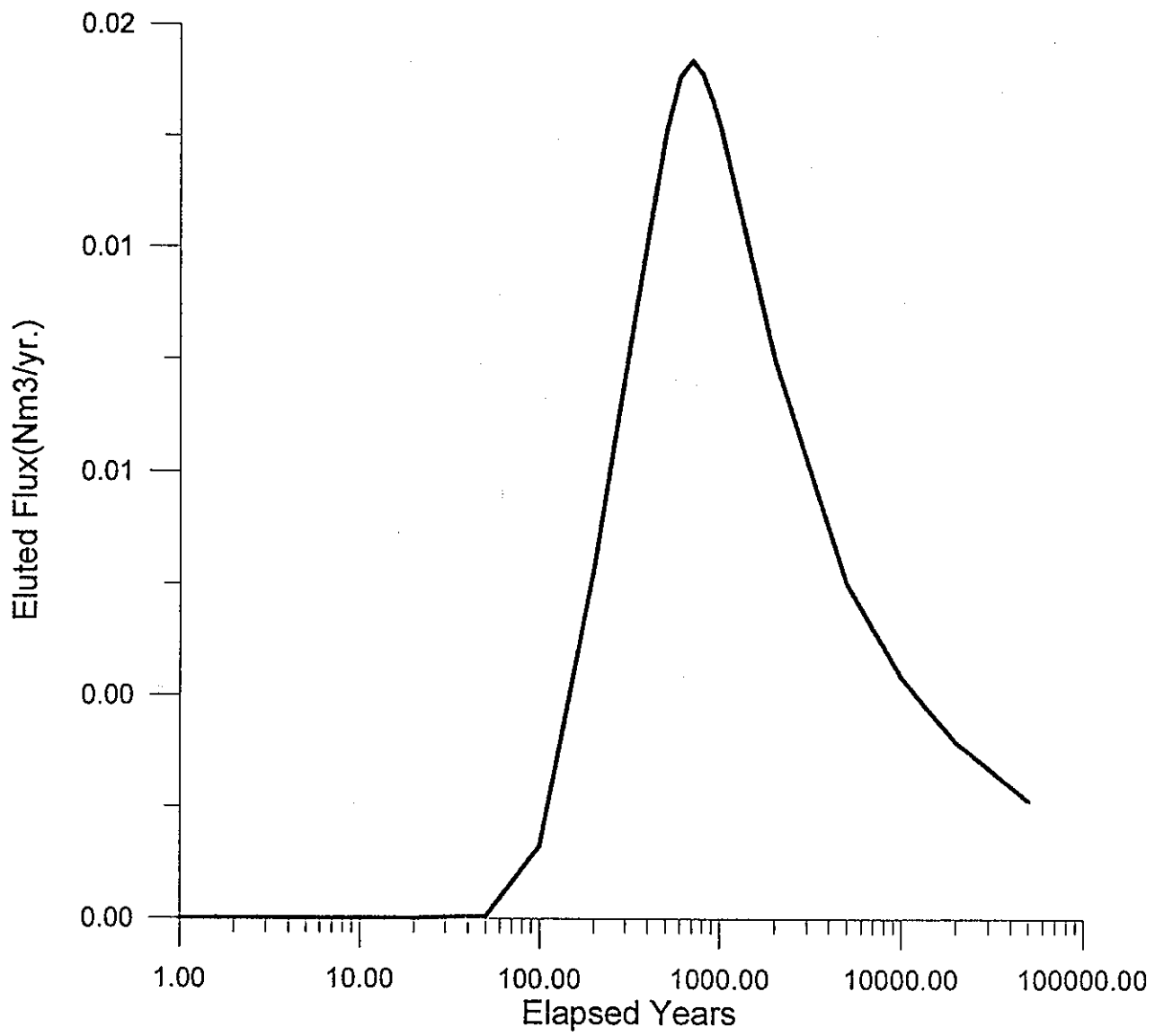
図 2.2.4-2 5000 年後のベントナイト中の水素濃度分布

(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)



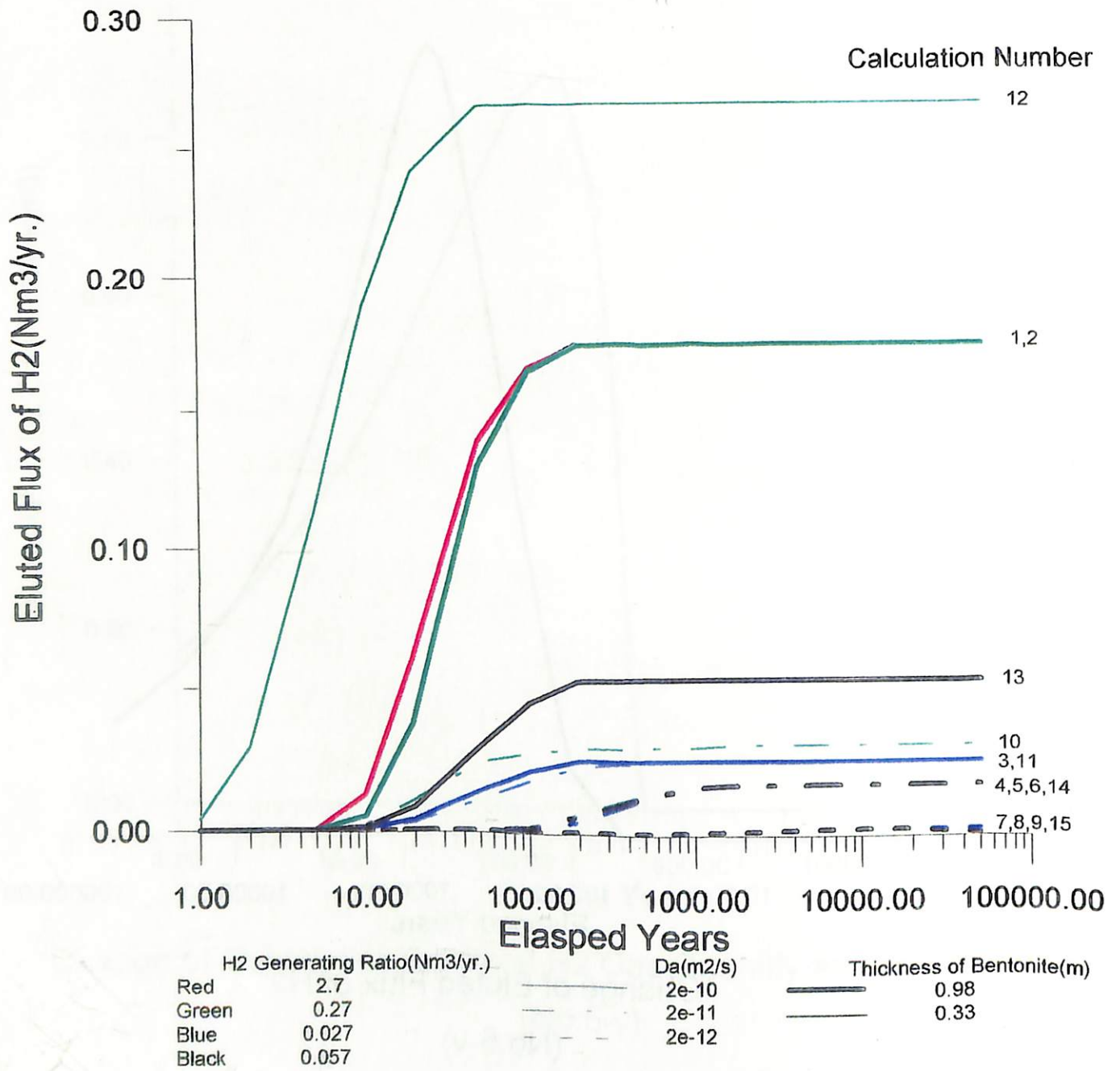
Change of Cumulative Redidual H2 Gas Quantity around Overpack
(No.5-v)

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パック周辺に蓄積される積算
ガス量の経時変化



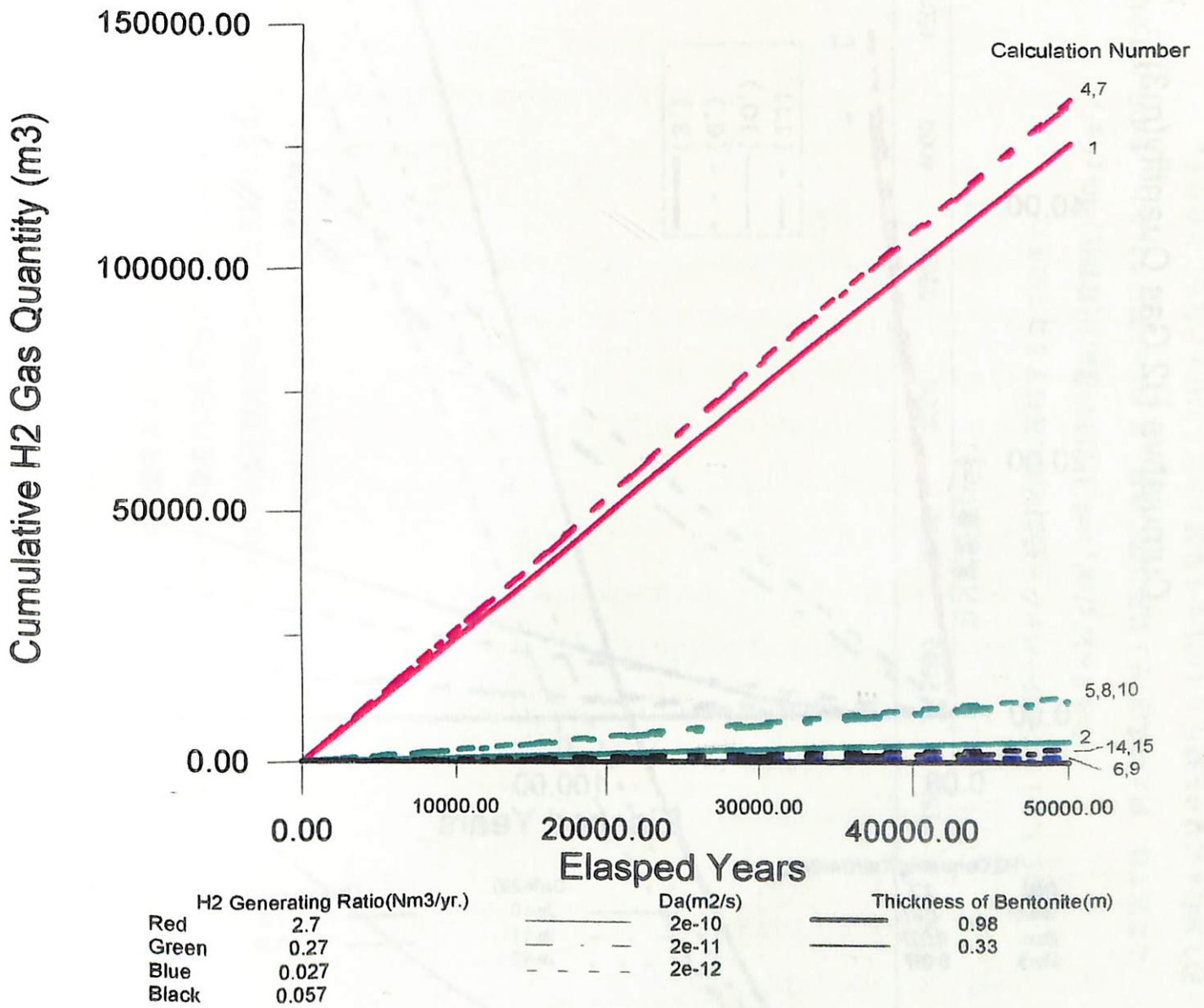
Change of Eluted Flux of H2
(No.5-v)

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



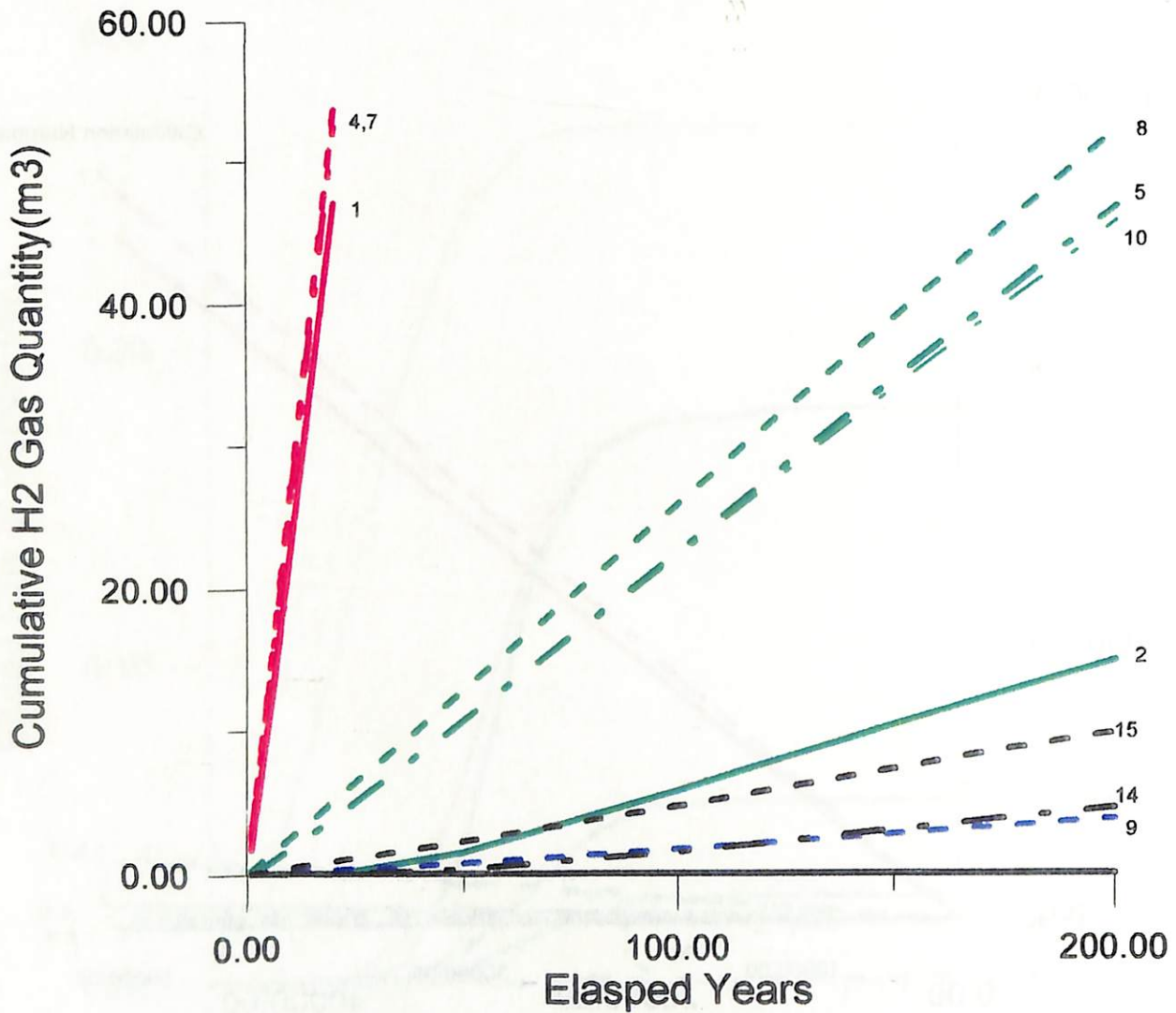
Change of Eluted Flux of H₂

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/yr.)		$D_a(m^2/s)$		Thickness of Bentonite(m)	
Red	2.7	—	$2e-10$	—	0.98
Green	0.27	- · -	$2e-11$	—	0.33
Blue	0.027	- - -	$2e-12$		
Black	0.057				

Change of Cumulative 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。

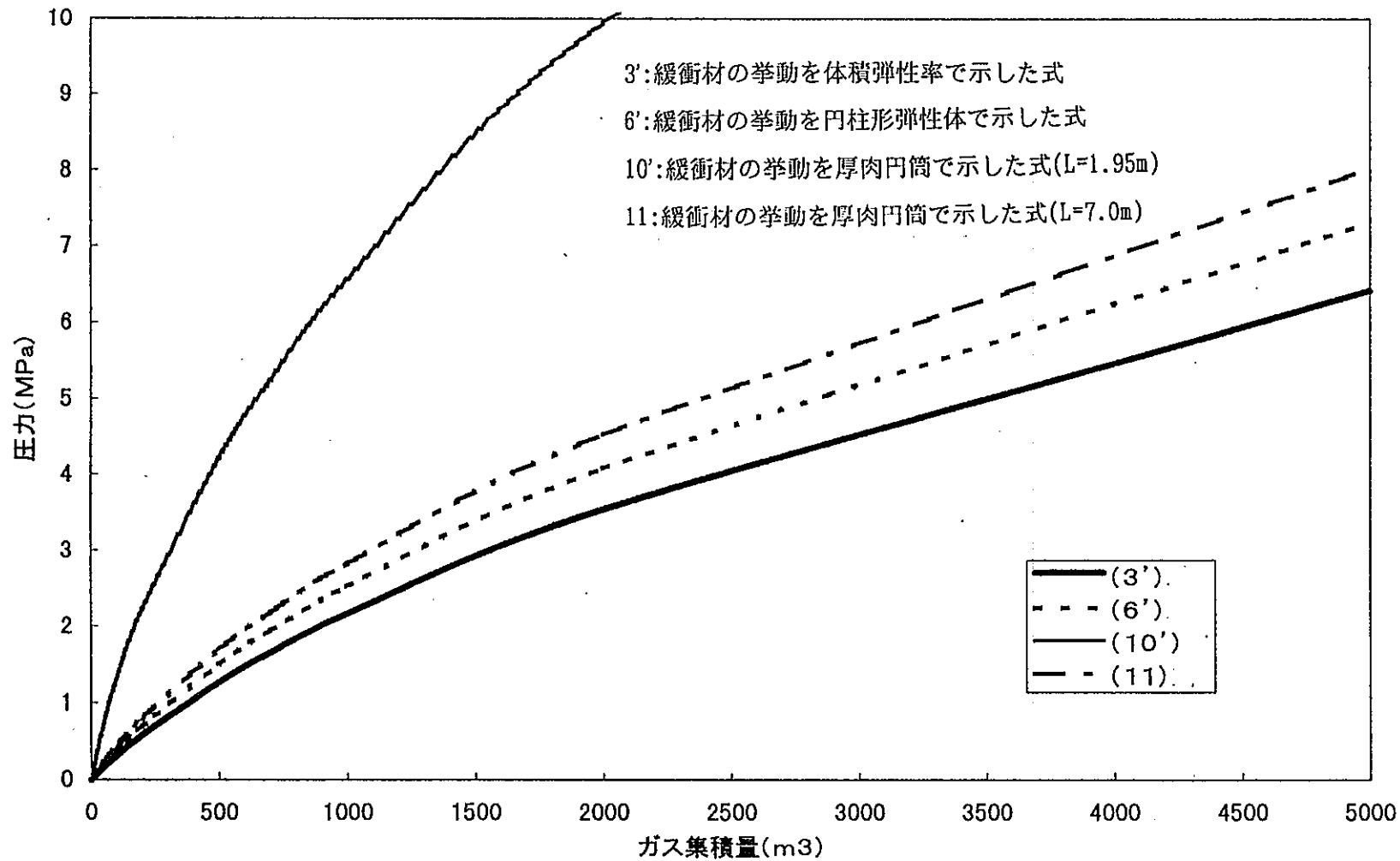


図 2.3.3-1 オーバーパックと緩衝材間に蓄積するガスの圧力

($E=4.0 \times 10^4 \text{g/cm}^2$, $\nu=0.4$, 初期内部応力(膨潤圧)= 40kg/cm^2)

この図では、例えば式(3')で1気圧状態に換算して 500m^3 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。

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て、溶存水素ガスの測定が量的に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。

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について、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 × 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
- ② 上流側(地下環境応力条件下) システム
- ③ 下流側(地下環境応力条件下) システム
- ④ 水素検知システム

精度は 0.1ppb である。

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、ここでは図 3.2-1 のように 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。

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 1.8g/cm^3 、ベントナイト/砂混合比 70/30 の場合 1.6g/cm^3)まで圧縮する。ここで、拘束圧を伝達するため鉛スリーブによって試料側面を包む。
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 $70\text{kg/cm}^2(1,000\text{psi})$ 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。。

3.3.1 試料寸法の検討

7.6cm ϕ \times 0.5cm 厚あるいは 1.0cm 厚の試料を用いれば、MEGAS Project の試験時間から想定すると 1 試料あたり 20 日の試験期間において 2.4 倍の精度で測定可能と考えられる。

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あるいは赤外線吸収法を前提とする。この装置の分析精度は一般に数 PPM である。将来さらに高精度を有する検出方法があれば、その応用性を検討するものとする。

3.3.3 膨潤の検討

試料を作成するため圧縮用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 1.8g/cm³、あるいはベントナイト/砂重量混合比 70/30 で 1.6g/cm³)まで圧縮し、試料を作成する。

膨潤圧は、完全拘束すれば純ベントナイトで最大 40kg/cm² といわれており、この圧力に耐える金属シャフトにて試料を拘束するものとする。

3.3.4 拡散セルの材質・定置の検討

セル A とセル B の寸法について検討し、アクリル性容器で肉厚 20mm、総容量 720mL 程度とした。

3.3.5 トラブル防止と測定手順の検討

下記の対策を検討した。

- (1) 漏洩防止
- (2) ブランクテストの検討
- (3) 飽和の確認
- (4) スターラーの設置
- (5) 温度一定

測定手順として下記のように考えられる。

- 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(両面から同圧をかける)
- ⑤ 試料の飽和(片面から差圧をかける)
- ⑥ セルAとセルBの溶液圧力を同圧(大気圧程度)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

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載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。

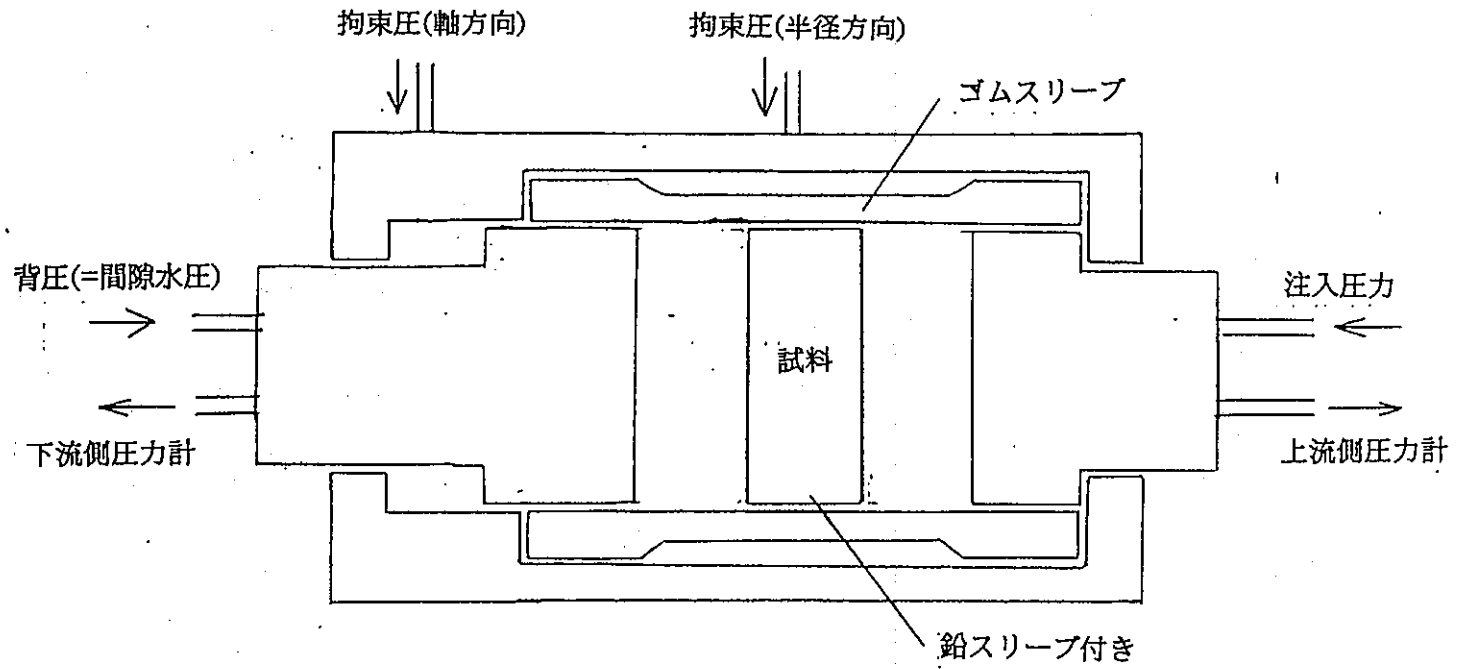


図 3.2-1 拡散試験概念設計 (拡散セル)

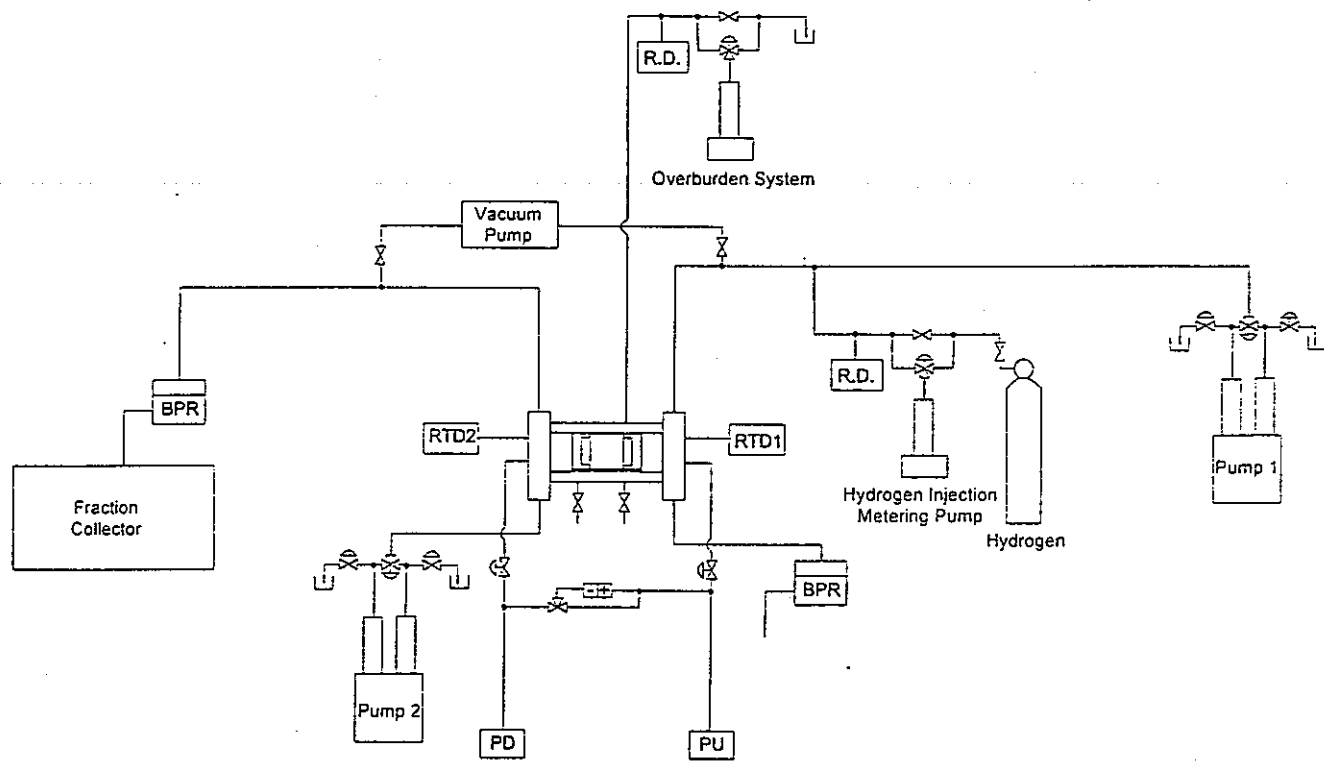


図 3.2-2 拡散試験概念設計 (拡散セル 1 個の場合システム)

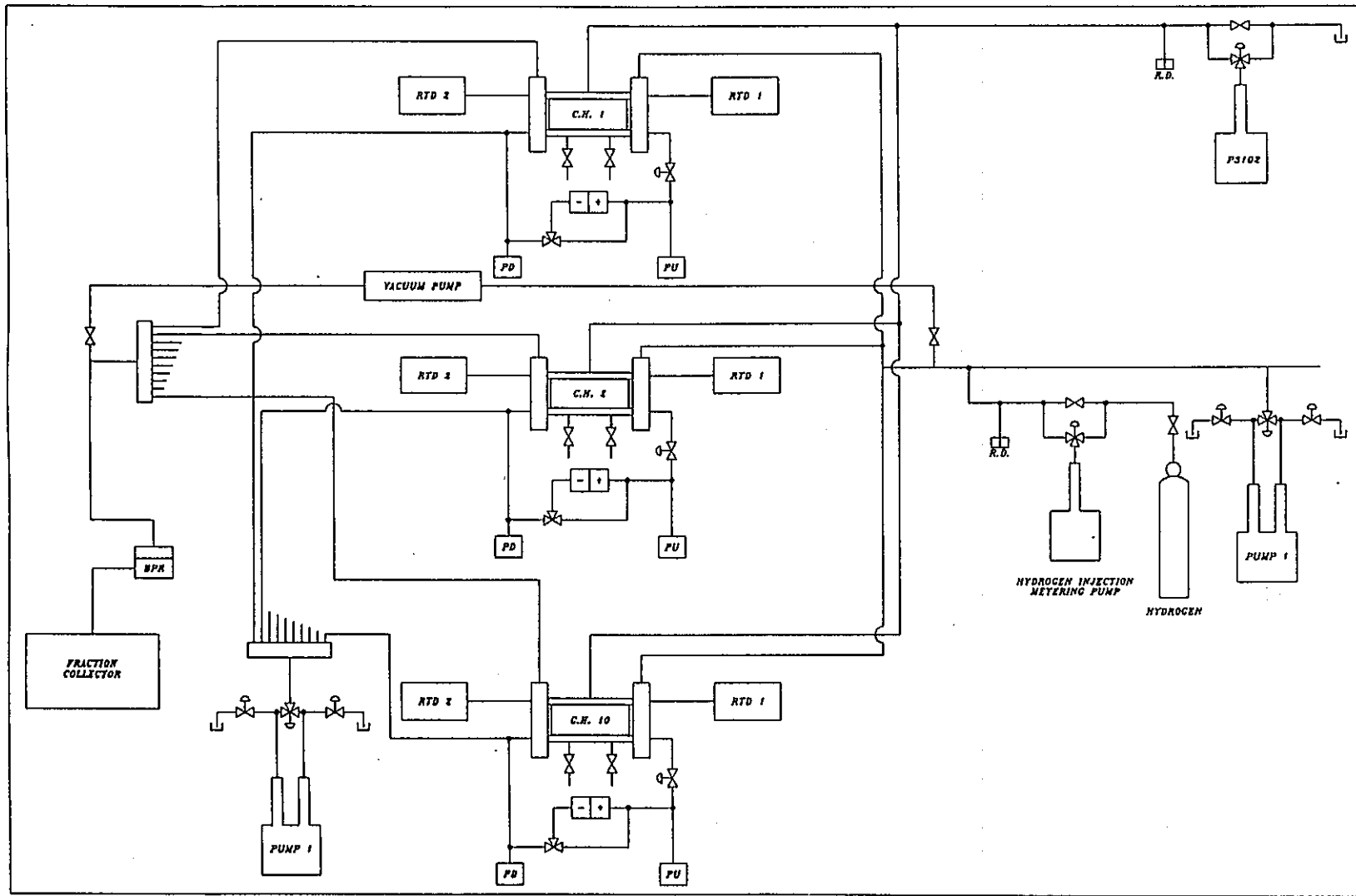


図 3.2-3 拡散試験概念設計 (拡散セル 3 個の場合システム)

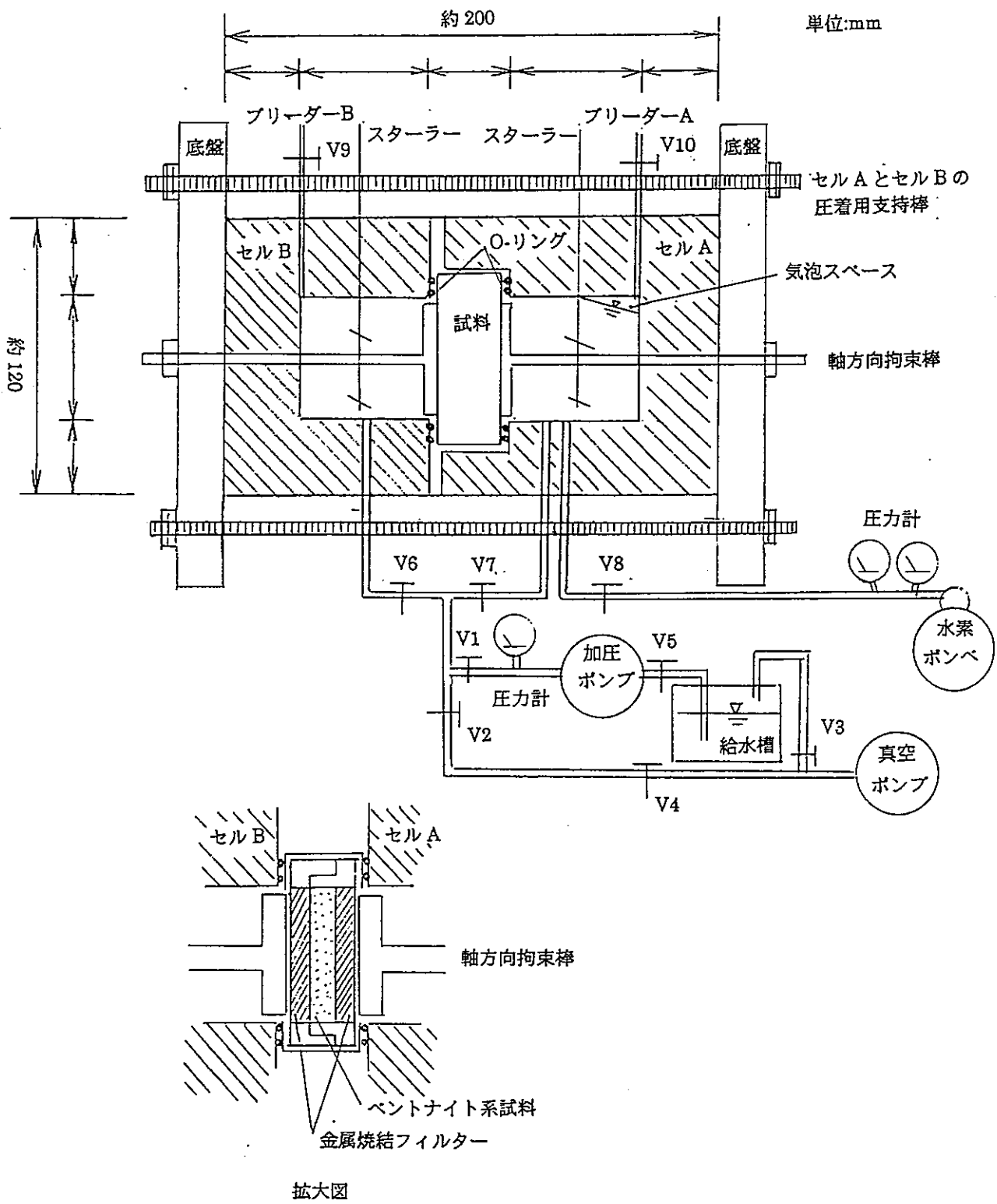


図 3.3-1 簡易型拡散試験概要図

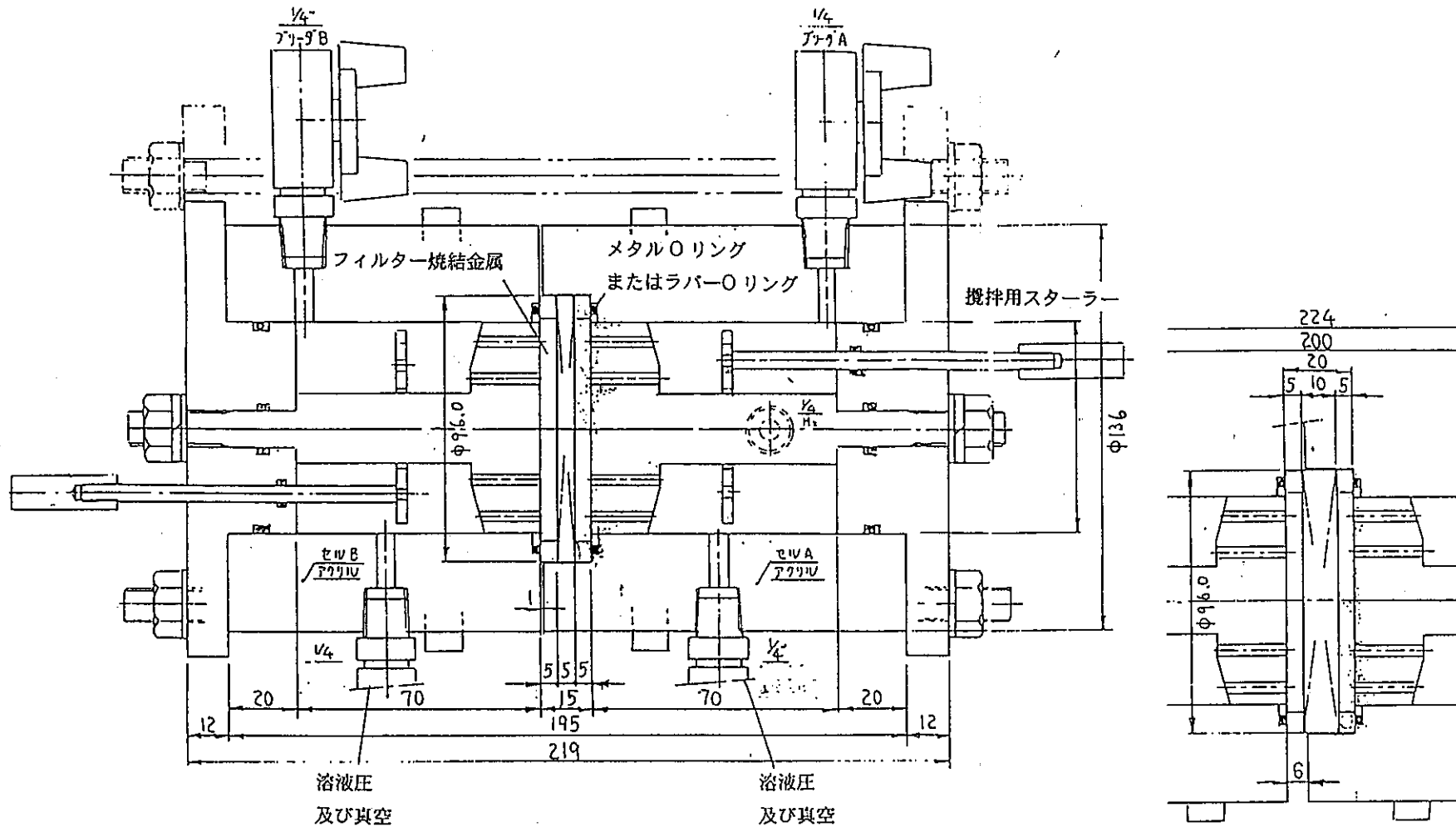


図 3.3-2 簡易型拡散試験概念設計

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/cm ³ (Light)	1.8g/cm ³ (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		○	○		○	

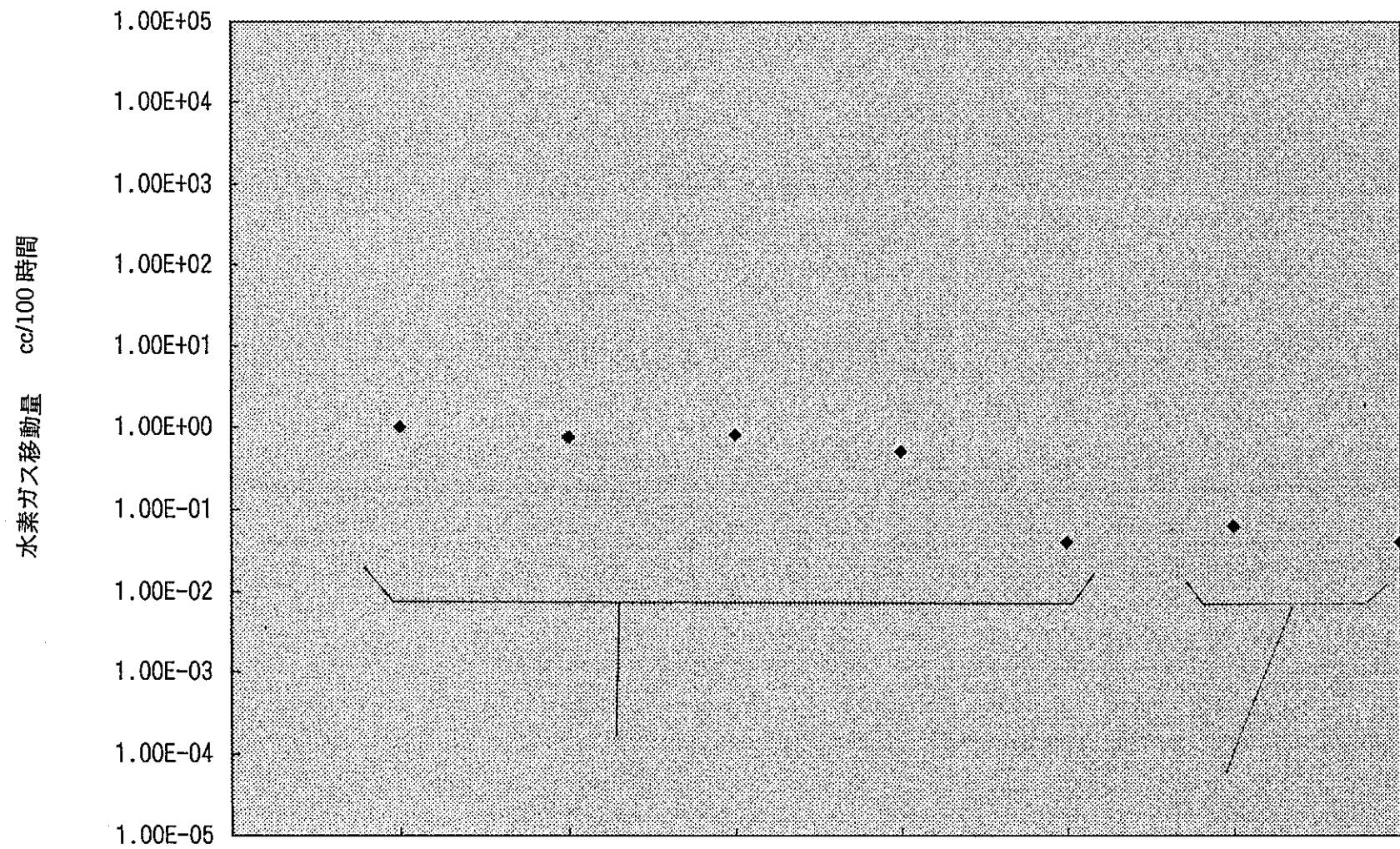
全部で12ケース

○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)



実効拡散係数
ベントナイト系試料
溶存水素ガス
(In-Diffusion)

実効拡散係数
ベントナイト系試料
溶存水素ガス
(Through-Diffusion)

図 3.3-3 Megas Project での測定時間と排出水素量

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。

しかしながら、「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する法が目的に測定に合致していると考えられる。

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

- 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 1: 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 : Intera 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, 大橋弘士, 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: 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:Abklung 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)