



高レベル放射性廃棄物の地層処分における緩衝材中の水分の気・液二相移動

竹内 真司 原 啓二*

東海事業所環境技術開発部

*環境技術開発推進本部

資料番号: 89-6

Two-phase Water Movement in Buffer Material for Geological Isolation of High-level Radioactive Waste

Shinji Takeuchi Kelji Hara*

(Waste Technology Development Division, Tokai Works

*Radioactive Waste Management Project)

高レベル放射性廃棄物の地層処分において、処分初期の緩衝材中で予想される熱-水-応力連成現象の解析に資するため、このうちの水分移動に関して圧縮ベントナイトの水分ポテンシャルおよび水分拡散係数を測定し、乾燥密度および温度による変化を調べた。その結果、水分ポテンシャルおよび水分拡散係数は、顕著な乾燥密度依存性および温度依存性を示した。また実験値の水分拡散係数は理論式から求めた水分拡散係数と一致し、圧縮ベントナイト中の水蒸気と液状水の二相移動を証明した。

1. はじめに

高レベル放射性廃棄物の地層処分に際し、人工バリアのひとつである緩衝材に圧縮ベントナイトを用いることが考えられている。この緩衝材中では廃棄体の定置後、廃棄体からの放熱、周辺岩盤からの地下水の浸入そして地圧や膨潤圧等が相互に作用した熱-水-応力連成現象が生ずることが予想される。このうち地下水の浸入は、緩衝材に膨潤圧を発生させたり、伝熱性を変化させる等熱移動や圧力に影響を及ぼす大きな要因となると考えられる。

一般に、不飽和ベントナイト中の水は水蒸気と液状水の二相で移動すると言われている^{1),2)}が、両者を明確に分けて取り扱うことが難しいことから、一般に両者を合わせた見かけの水分拡散係数（以下水分拡散係数）を用いた拡散モデルでその移動が解析される例³⁾が多い。しかしこのような簡易モデルでは、熱や応力との連成現象を詳細に把握することが困難なため、そのモデル化においては、水蒸気と液状水の二相流の取り扱いが必要となる。

本研究では、不飽和圧縮ベントナイト中の水分ポテンシャルと水分拡散係数を測定し、それらの乾燥密度依存性および温度依存性を調べた。さらに得ら

れた水分拡散係数について、Philip & de Vries式⁴⁾およびDarcy式を用いてその妥当性を検討し、ベントナイト中の水の移動形態について考察した。

2. 測定原理

2.1 水分ポテンシャル

一般にベントナイト中の水のポテンシャルエネルギー Ψ と相対湿度 P/P_0 の間には次の関係がある⁵⁾。

$$\Psi = \frac{RT}{M} \ln \left(\frac{P}{P_0} \right) \quad (1)$$

ここで Ψ はベントナイト中の単位質量当たりの水分ポテンシャル、 M は水の分子量、 R は気体定数、 T は絶対温度、 P および P_0 はその温度における試料の水蒸気圧と飽和水蒸気圧である。

本試験で水分ポテンシャル測定のために用いたサイクロメータは熱電対サイクロメータと呼ばれるもので、ナノボルトメータに接続された熱電対の接点を湿球として試料と平衡にある水蒸気の相対湿度を求めるものである（図1）。得られた相対湿度を用いて(1)式により試料中の水分ポテンシャルを算出する。

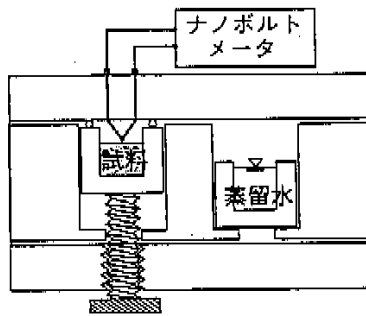


図1 水分ポテンシャル測定装置
(熱電対サイクロメータ)

2.2 水分拡散係数

不飽和ベントナイト中の等温条件下の水の移動は水蒸気移動にしても、液状水移動にしてもDarcy型の式を用い、次式で表わされる。

$$q = -D \frac{\partial \theta}{\partial Z} \quad (2)$$

ここで、 q はフラックス、 D は水分拡散係数、 θ は体積含水率（試料中の水の体積／試料の体積）、 Z は試料の浸潤面からの位置である。

したがって、試料中のある位置 Z_i に着目した場合、時刻 t_1 から t_2 における水分拡散係数 D は、後述する浸潤試験によって得られる水分分布曲線を用いて、次式により計算することができる⁶⁾。

$$D = \frac{\int_{Z_i}^l (\theta_{t=t_2} - \theta_{t=t_1}) dz}{\frac{1}{2} \left\{ \left(\frac{\partial \theta}{\partial z} \right)_{z=Z_i}^{t=t_2} + \left(\frac{\partial \theta}{\partial z} \right)_{z=Z_i}^{t=t_1} \right\}} \times \frac{1}{t_2 - t_1} \quad (3)$$

ここで t は浸潤時間、 l は試料の長さ、 Z_i ($0 \leq Z_i \leq l$)は試料底からの位置を示す。

3. 実験

3.1 水分特性試験

試料は例としてNa型ベントナイト(クニゲルV1TM)を用いた。あらかじめいくつかの段階で水分調整したベントナイト試料を直径13mm、高さ9mmの大きさに所定の乾燥密度で成型し試験に供した。これらの

表1 水分特性試験の試験条件

試 料	クニゲルV1		
温 度 (°C)	25	25	60
乾燥密度 (g/cm³)	1.6	1.8	
初期体積含水率 (cm³/cm³)	0.16—0.20		

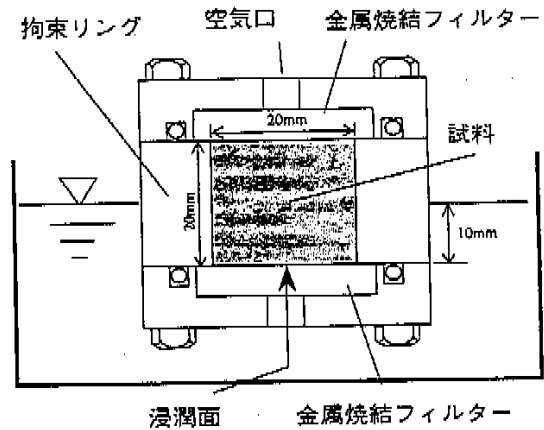


図2 浸潤試験装置

試料の相対湿度をサイクロメータを用いて測定し、(1)式によりポテンシャルエネルギーを算出し、これと炉乾燥 (110°C, 24h) によって得られる水分量との関係をもとめた。試験条件を表1に示す。

3.2 浸潤試験

試料は同じくクニゲルV1TMである。試験装置の概略図を図2に示す。ステンレス製の拘束容器（内径20mm、肉厚10mm、高さ20mm）内でベントナイト試料を直径20mm、高さ20mmの大きさに所定の乾燥密度で成型した。本装置の下端を水中につけて、下部から水を入れた。所定の浸潤時間経過後に試料を10分割し、各々の体積含水率をもとめた。試験条件を表2に示す。

4. 試験結果

4.1 水分特性試験

試験で得られた水分ポテンシャルと水分量（含水比および体積含水率）の関係（水分特性曲線）を図3、4に示す。図中横軸のサクションは水分ポテンシャルを圧力水頭の単位[cm]で表わしたものである。図3aにサクションと含水比（試料中の水の質量／乾燥試料の質量）との関係を示す。これより試料の乾燥密度によらず、水分特性曲線は点線で示し

表2 浸潤試験の試験条件

試料	クニゲルV1	
温度 (°C)	25	40, 60
乾燥密度 (g/cm³)	1.0, 1.6, 1.8	1.8
浸潤時間 (h)	4, 8, 16, 24, 48, 72	
初期体積含水率 (cm³/cm³)	0.16~0.20	

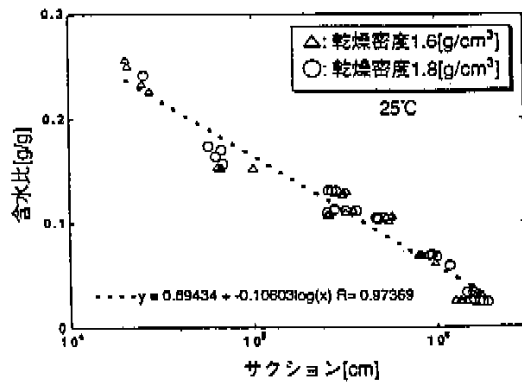


図3a 水分特性曲線（サクシオンと含水比の関係）

た一本の線で表現できることがわかる。すなわち、含水比を軸にとった場合、水分特性曲線には乾燥密度依存性が見られないことがわかる。

図3bにはサクシオンと体積含水率の関係を示す。ここで実線は一般によく用いられる van Genuchten式⁷⁾を適用した近似曲線である。ただし、乾燥密度1.0 [g/cm³]のものについては、測定値がないため、図3aの関係をもとに換算し、推定した。図3bより水分特性曲線は顕著な乾燥密度依存性を持つことが読み取れる。すなわち低水分域では乾燥密度の増加に伴いサクシオンは高くなり、逆に高水分域では乾燥密度の増加に伴いサクシオンは低くなる。また図4より温度の上昇に伴いサクシオンは低くなることが読み取れる。

4.2 浸潤試験

試験の結果得られた水分分布曲線の一例（乾燥密度1.6 g/cm³）を図5に示す。図5に示した実験値をみると、時間の経過に伴って試料全体に水分が増加

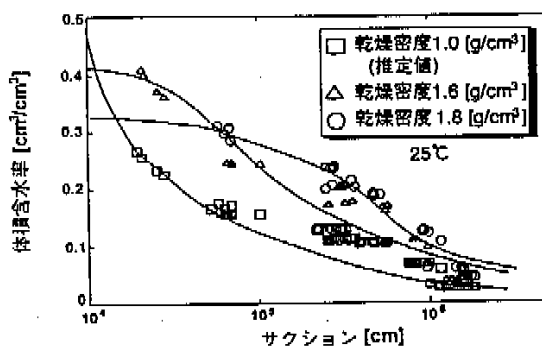


図3b 水分特性曲線（乾燥密度による変化）

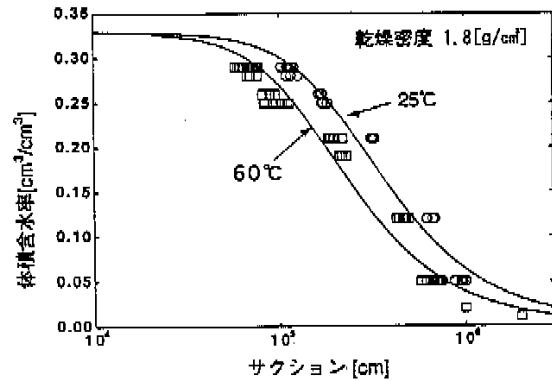


図4 水分特性曲線（温度による変化）

していく様子が読み取れる。図5に示した乾燥密度1.6 g/cm³以外の条件においても同様の傾向を示す。これを基に(3)式を用いて水分拡散係数を算出した結果を図6、7に示した。図6より水分拡散係数は体積含水率に依存して変化し、ある体積含水率に対して最小値を持つU字型の分布を示すことがわかる。さらに、乾燥密度の増加に伴って水分拡散係数の最小値も増加することがわかる。また、図7より温度の上昇とともに水分拡散係数の最小値は上昇することがわかる。

5. 考察

5.1 解析に用いる水分拡散係数の検討

既述のように水分拡散係数は体積含水率に対してU字型の分布を示すことがわかった。ここでは得られた水分拡散係数の分布のうち、解析に用いるのに最も適当な水分拡散係数と体積含水率の関係を得るために、図6、7に実線で示した水分拡散係数を用い、有限要素法により時間毎の水分分布を計算し、これが試験で得られた水分分布を再現するかどうかを調べ

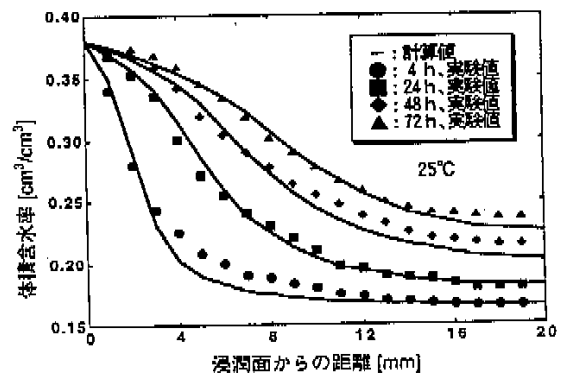


図5 水分分布曲線（乾燥密度1.6 g/cm³）

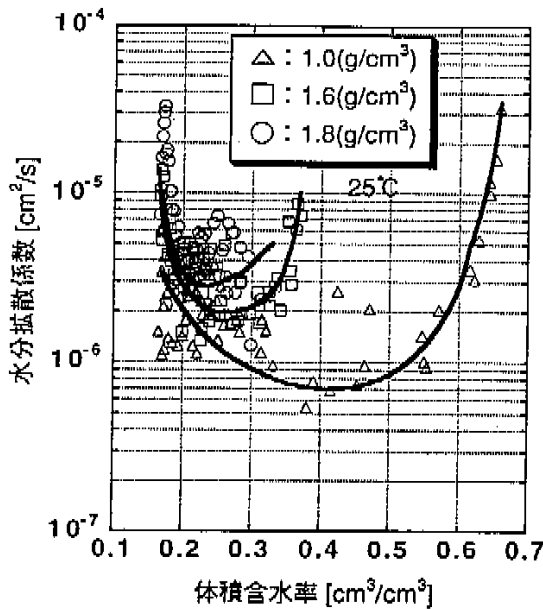


図6 水分拡散係数 (乾燥密度による変化)

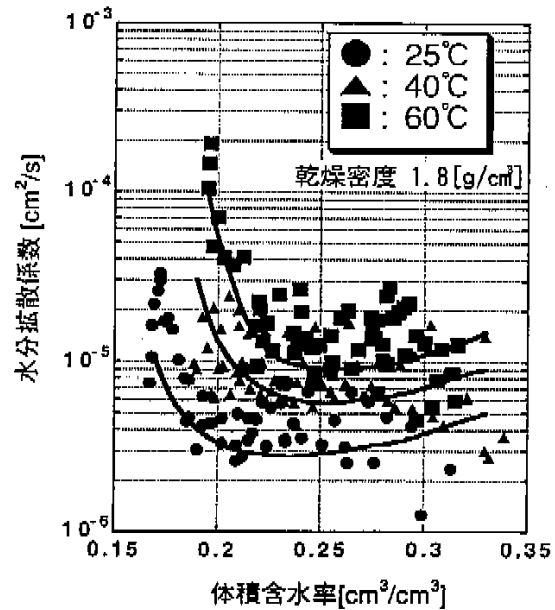


図7 水分拡散係数 (温度による変化)

た。水分分布は一般に一次元で解析されるので、連続式

$$\frac{\partial \theta}{\partial t} + \frac{\partial q}{\partial z} = 0 \quad (4)$$

に(2)式を代入した次式を解くことによりもとめた。

$$\frac{\partial \theta}{\partial t} = -\frac{\partial}{\partial z} \left(D \frac{\partial \theta}{\partial z} \right) \quad (5)$$

解析結果の一例を図5に実線で示した。これより、計算値は実験値をよく再現していることがわかる。他の条件においても同様にして実験値を用いた水分分布を得た。

5.2 水分拡散係数の乾燥密度依存性、温度依存性の検討

ここでは、水分拡散係数の乾燥密度依存性および温度依存性について検討する。今回の試験のような等温条件下では、水移動は水分勾配のみによって行われると考えられる。通常土中水は水分の少ない領域では水蒸気移動が卓越し、水分の多い領域では液状水移動が卓越するとされている。そこで本研究では、水蒸気移動の場合の水分拡散係数は一般に広く用いられるPhilip & de Vries式⁴⁾を用い、液状水の場合はDarcy式を用い検討を行った。すなわち水蒸気移動の場合の水分拡散係数は、

$$D_v = a \tau D_a \nu \rho^* h_r \frac{M}{RT} \frac{\partial \Psi}{\partial \theta} \quad (6A)$$

で表わせる。ここで、 D_v は水分勾配に依存する水蒸気的水分拡散係数、 a は気相率、 τ は屈曲度、 D_a は空気中の水蒸気の拡散係数、 ν はマスフロー・ファクターと呼ばれ、 $P/(P-P_v)$ (P : 全圧、 P_v : 水蒸気分圧) で表わされる。また、 ρ^* は飽和水蒸気濃度、 h_r は相対湿度である。また、 Ψ は試料中の水の全ポテンシャルを表わし、空気と水の界面が存在することに起因するマトリック・ポテンシャル、重力ポテンシャル、水が溶質を含むことに起因するオスモティック・ポテンシャルの和として表わされる。しかし本試験に用いたベントナイト試料の場合、重力ポテンシャルはマトリック・ポテンシャルに比べて小さく無視して考えることができる⁶⁾。さらに浸透圧の寄与は小さいため、オスモティック・ポテンシャルも無視して考えることができる。したがって次式が成立する。

$$D_v = a \tau D_a \nu \rho^* h_r \frac{M}{RT} \frac{\partial \psi}{\partial \theta} \quad (6B)$$

ここで、 ψ はマトリック・ポテンシャルを表わす。

一方、液状水移動はダルシー式により

$$q = -k \frac{\partial \Psi}{\partial z} \quad (7)$$

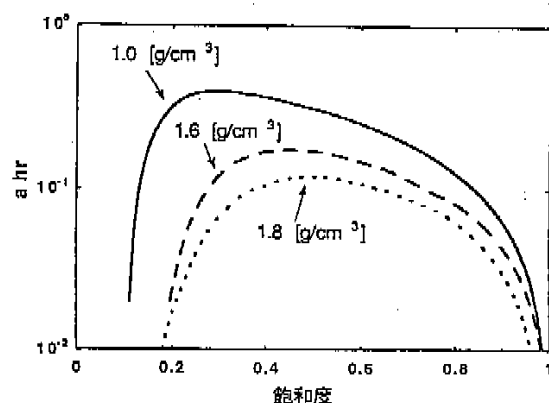


図8 a hrの乾燥密度依存性

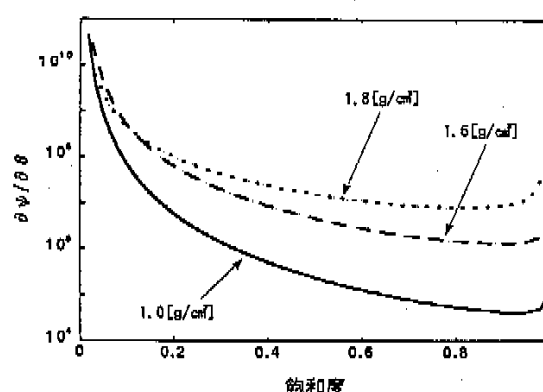


図9 水分特性曲線の傾きの乾燥密度依存性

で表わせる。

ここで、 k は不飽和透水係数である。また既述のように全ポテンシャル Ψ はマトリックス・ポテンシャル ψ のみを考えればよいから次式が成立する。

$$q = -k \frac{\partial \psi}{\partial \theta} \cdot \frac{\partial \theta}{\partial z} = -D_v \frac{\partial \theta}{\partial z} \quad (8)$$

ただし、

$$D_v = k \frac{\partial \psi}{\partial \theta} \quad (9)$$

ここで、 D_v は水分勾配に依存する液状水の水分拡散係数を表す。

(1) 乾燥密度依存性

ここでは、水分拡散係数の乾燥密度依存性について検討するために、実測値の水分拡散係数を水蒸気の水分拡散係数と液状水の水分拡散係数に分離し、水蒸気の水分拡散係数には(6)B式を、液状水の水分拡散係数には(9)式を適用して、両式を構成する各項の乾燥密度に伴う変化を検討した。ここで水分拡散係数の分離については、飽和点（乾燥密度 $1.0 \text{ [g/cm}^3]$ における実験値の飽和体積含水率は $0.68 \text{ [cm}^3/\text{cm}^3]$ 、 $1.6 \text{ [g/cm}^3]$ では $0.38 \text{ [cm}^3/\text{cm}^3]$ 、 $1.8 \text{ [g/cm}^3]$ では $0.33 \text{ [cm}^3/\text{cm}^3]$ ）においてはすべてが液状水の移動であること、また水分拡散係数の最小値ではPhilip (1955)⁸⁾を参考にして水蒸気と液状水は同量ずつ寄与すると仮定し、この2点を結ぶことにより液状水の水分拡散係数とした。また水蒸気の水分拡散係数は全体の水分拡散係数から液状水の水分拡散係数を差し引くことにより求めた。

まず水蒸気の水分拡散係数については、(6)B式において気相率 a と相対湿度 h_r の積は乾燥密度の上昇

に伴って減少する（図8）。またこの ah_r と水分特性曲線の傾き $\partial \psi / \partial \theta$ を除いた項、 $\tau, D_v, \nu, \rho^*, M, R, T$ のうち屈曲度 τ には計算の結果顕著な乾燥密度依存性が認められず、その他の項、 $D_v, \nu, \rho^*, M, R, T$ は温度一定では変化しないため、 $\tau D_v \nu \rho^* M / R / T$ の乾燥密度に伴う変化はほとんど無いことがわかる。さらに水分特性曲線の傾き $\partial \psi / \partial \theta$ は乾燥密度の上昇に伴って増加する（図9）。したがって水蒸気の水分拡散係数の乾燥密度依存性は水分特性曲線の傾き $\partial \psi / \partial \theta$ の乾燥密度依存性が大きく寄与していることがわかった。また液状水の水分拡散係数については、(9)式において不飽和透水係数 k は乾燥密度の上昇に伴って減少するが、水分特性曲線の傾き $\partial \psi / \partial \theta$ は乾燥密度の上昇に伴って増加する（図9）。したがって液状水の水分拡散係数の乾燥密度依存性についても水分特性曲線の傾き $\partial \psi / \partial \theta$ の乾燥密度依存性が大きく寄与していることがわかる。

(2) 温度依存性

水分拡散係数の温度依存性の検討については、乾燥密度 1.8 g/cm^3 、温度 25°C における水分拡散係数を基に、(6)B式、(9)式を用いて算出した屈曲度 τ 、不飽和透水係数 k を用いて 40°C 、 60°C の水分拡散係数を算出し実験値と比較した。ここで 40°C 、 60°C の水分拡散係数を算出する際に、屈曲度 τ は温度によらず一定であること、さらに不飽和透水係数 k は温度変化に伴う水の粘性係数および密度の変化に伴って変化すると仮定した。

結果を図10に示す。これより実験値と計算値はほぼ一致し、水分拡散係数の温度依存性は(6)B式および(9)式を用いて説明できることがわかった。

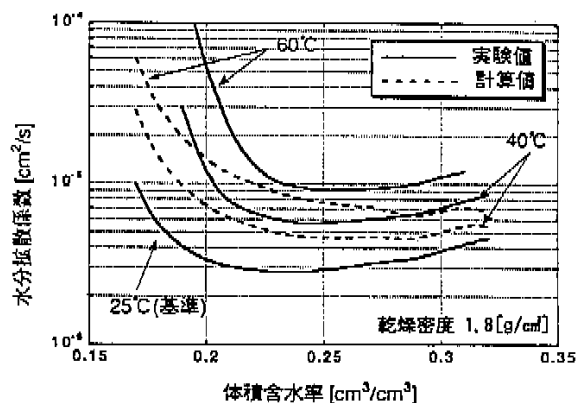


図10 水分拡散係数の温度依存性の検討

6. おわりに

6.1 結論

本研究の結果、以下のことが明らかになった。

- ① 緩衝材の候補材である圧縮ベントナイト中の水分ポテンシャルおよび水分拡散係数を測定した。その結果、水分ポテンシャルと体積含水率の関係で示した水分特性曲線は顕著な乾燥密度依存性、温度依存性を示した。また水分拡散係数は体積含水率に依存して変化し、ある体積含水率に対して最小値を持つU字型の分布を示した。さらに、水分拡散係数は乾燥密度および温度の増加に伴って増加した。
- ② 水分拡散係数の実験値にPhilip & de Vries式およびDarcy式を適用することにより、水分拡散係数の乾燥密度依存性および温度依存性を

説明することができ、圧縮ベントナイト中の水分の気・液二相移動が説明できた。

6.2 今後の予定

今後は実際の処分環境で想定される温度勾配の効果や緩衝材の膨潤の影響を考慮した、水移動のモデル化を行う予定である。

6.3 謝辞

本研究を行うにあたり、東京大学の中野政特教授には実験装置の使用にあたり、便を図って頂くとともに終始貴重な意見を頂いた。また、地層処分開発室の藤田朝雄氏、菅野毅氏には日常より貴重な議論をして頂いた。さらに同室の鈴木英明氏、松本一浩氏には実験に関して協力をして頂いた。以上の方々には心より感謝致します。

参考文献

- 1) 中野政特：土の物質移動学、東京大学出版会、189、(1991)。
- 2) 中野政特、岡宮 悠他：拘束された不飽和粘土の膨潤と膨張圧、農業土木学会論文集、112、55-66 (1984)。
- 3) L.Borgesson : Water flow and swelling pressure in non-saturated bentonite clay barriers, Engineering Geology, 21, 229-237 (1985)。
- 4) J.R.Phipp, D.A.de Vries : Moisture Movement in Porous Materials under Temperature Gradient, Trans. Am. Geophys. Union, 38, (2) 222-232 (1957)。
- 5) 塩沢 昌：サイクロメータによる土壌水のポテンシャル測定、土壌の物理性、62、53-61 (1991)。
- 6) 中野政特、岡宮 悠他：不飽和粘土の膨潤と膨張圧、農業土木学会論文集、100、8-16 (1982)。
- 7) van Genuchten, M.Th. : A closed-form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils, Soil Sci. Soc. Am. J., 44 : 892-898 (1980)。
- 8) J.R.Phipp : The concept of diffusion applied to soil water, Proc. Nat. Acad. Sci. India, 2A, 93-104 (1955)。