

## 地層処分におけるガス移行影響評価 人工バリア内のガス移行解析手法とデータ取得

山本幹彦\*, 三原守弘\*\*, 大井貴夫\*\*

放射性廃棄物の地層処分場において発生するガスは、処分場内の圧力上昇によるバリア機能の低下、気相飽和度の上昇にともなう処分場内間隙水の排出等により、処分の長期安全性に対する潜在的影響を有すると考えられている。本稿ではこれらガス影響の評価に必要な人工バリア内でのガス移行に着目し、その評価手法、解析モデルと移行特性試験、および移行特性パラメータの評価・設定に関する研究成果について報告する。本研究では粘土系材料およびセメント系材料に対するガス透過試験を実施し、ガス侵入圧力、透過係数等のガス移行挙動を把握するとともに、ガス移行評価に適用しうるモデルパラメータの評価を行った。間隙に水を含む固相中をガスが移行する際の機構は、固相の間隙構造、鉱物特性により大きく変化しうるが、ここでは現時点で多次元多相流解析において唯一実用化されている連続媒体 2 相流モデルを適用し、固液間の相対的に強い相互作用等を反映した特性曲線を設定することにより、粘土系材料およびセメント系材料に対する移行特性を評価し、試験結果との良い一致を見た。

本研究により、セメント系材料に対する連続媒体 2 相流モデルの適用が可能であることが確認されたが、今後は粘土系媒体に対する応力条件による影響を反映したモデルの開発と適用、岩盤を含む個々のバリア構成材料に対する長期のガス透過試験による移行特性データの信頼性向上、環境因子による影響の把握、さらに各種媒体に対して最適な移行モデルを統合した複数媒体解析ツールの開発と、実規模試験結果による確証を段階的に進めることが必要である。

**Keywords:** 放射性廃棄物処分, ガス発生, ガス移行, 2相流, 毛管圧力, セメント, ベントナイト

Gas production in a geological repository has potential hazard, as overpressurisation and enhanced release of radionuclides. Amongst data needed for assessment of gas impact, gas migration properties of engineered barriers, focused on clayey and cementitious material, was evaluated in this report. Gas injection experiments of saturated bentonite sand mixture, mortar and cement paste were carried out. In the experiments, gas entry phenomenon and gas outflow rate were observed for these materials. Based on the experimental results, two-phase flow parameters were evaluated quantitatively.

A conventional continuum two-phase flow model, which is only practically used multidimensional multi-phase flow model, was applied to fit the experimental results. The simulation results have been in good agreement with the gas entry time and the outflow flux of gas and water observed in the experiments.

It was confirmed that application of the continuum two-phase flow model to gas migration in cementitious materials provides sufficient degree of accuracy for assessment of repository performance. But, for sand bentonite mixture, further extension of basic two-phase flow model is needed especially for effect of stress field. Furthermore, gas migration property of other barrier materials, including rocks, by long-term gas injection test, clarification of influence of chemical environment and large-scale gas injection test is needed for multi-barrier assessment tool development and their verification.

**Keywords:** radioactive waste disposal, gas generation, gas migration, two-phase flow, capillary pressure, bentonite, cement

### 1 はじめに

放射性廃棄物の処分場内で発生するガスによる影響評価はアメリカにおいて最も早く着目され、1970 年代には WIPP に対する性能評価でガス発生[1], 移行, 蓄積に対する評価[2]が実施されている。欧州においてはスウェーデンで 1983 年にベントナイト中のガス移行挙動に対する試験[3]が開始され、SFR-1 の最終安全評価を契機として 1985 年には簡易なモデルによる評価が行われている[4]。スイス、イギリスにおいても 1980 年代中盤以降、ベントナイト中のガス移行挙動[5,6], 低中レベル廃棄物処分場におけるガス発生と移行に関する予備的検討[7,8]が報告され、1990 年には連続媒体 2 相流モデルによる岩盤中の移行評価[9]が実施された。この間にガス発生による潜在的影響は国際的な場で認知され[10], わが国においても諸外国にやや遅れて 1980

年代終盤より動力炉・核燃料開発事業団（当時、現核燃料サイクル開発機構：以下 JNC と略記）によって調査検討が開始され、以後各機関の研究成果に基づいて低レベル放射性廃棄物[11], TRU 廃棄物[12], および高レベル放射性廃棄物[13]の処分に対する安全評価においてガスによる影響の評価が行われている。

しかしながら、現時点においても長期間のガス発生速度について不確実性が大きく、各種バリアのガス移行挙動について試験データが不足することから、粘土系およびセメント系材料等に対するガス移行機構の理解とそのモデル化、評価パラメータ値の整備が十分ではないことは国際的に共通の認識[14]であり、さらなるモデルの適用性確認、データの収集が課題としてあげられている。本研究ではこれらの課題のうち、とくに人工バリア内でのガス移行解析に着目し、ガス移行モデルの適用性確認と移行特性データの整備に資することを目的として、ベントナイト/ケイ砂混合体、およびセメント系材料に対するガス透過試験を実施し、試験結果に連続媒体 2 相流モデルを適用して移行特性を反映した移行パラメータの設定を試みた。本稿ではこれまでに得られたガス移行に関する知見とそのモデル

An assessment of gas impact on geological repository – Methodology and material property of gas migration analysis in engineered barrier system - by Mikihiro Yamamoto (yamamoto-m@ga.toyo-eng.co.jp), Morihiro Mihara, Takao Ooi

\* 東洋エンジニアリング株式会社 Toyo Engineering Corporation  
〒275-0024 千葉県習志野市浜浜 2-8-1

\* 核燃料サイクル開発機構 Japan Nuclear Cycle Development Institute  
〒319-1194 茨城県那珂郡東海村村松 4-33

化に関する研究を紹介するとともに、上記の移行パラメータの設定に基づくモデル適用の妥当性について報告する。

## 2 ガス移行機構とモデル化

### 2.1 粘土系材料中のガス移行

可塑・膨潤性を有する粘土系材料内のガスの移行現象については、以下の特徴が明らかにされてきている。

- ・ガス侵入圧力に明らかな閾値が存在する。
- ・ガス透過による間隙水排出量が非常に少ない。
- ・ガス侵入時に粘土が体積変化を生じる。
- ・透過係数がガス圧力によって変化する。
- ・ガスの透過が停止する一定の圧力が存在する。

これらの特徴は、Horseman[15]らの MX-80 ベントナイト ( $\rho_d=1.6\text{Mg/m}^3$ , 含水率 = 0.23) に対する検討によって以下のように説明されている。すなわち MX-80 ベントナイトの結晶層状体間の距離は 4.3nm で、多くの粘土についても 10nm 以下である。5nm の平行平板間に作用する毛管圧力は 20～30MPa であるのに対して実際は 15MPa 程度でガスが侵入する。このためほとんど間隙水の排出を伴わない卓越流路の形成によってガスが透過する。また、卓越流路は応力変化による流路の拡大、収縮によって、透過係数が変化するとしている。

一方、我が国におけるベントナイト/ケイ砂混合体に対するガス透過試験では、MX-80 ベントナイトを上回る 10% 近い間隙水の排出が観測されている[16]。これは有効スメクタイト密度が低く非膨潤性の含有鉱物量が増加することにより、連続媒体 2 相流モデルに従う移行機構が共存する可能性を示唆するものと考えられる。

粘土系材料等に対する各種移行モデルの開発、適用状況を以下に示す。

#### (1) 連続媒体 2 相流モデル

連続媒体モデルはマクロな視点から媒体を捉えるため、拡散、分散、溶媒中への溶解、熱輸送等との連成が容易であること、多次元化、アップスケーリング等の拡張が比較的容易に行えることから、現在唯一実用化されているモデルである。一方、本モデルが適用される連続多孔質媒体は、厳密には以下の条件を満足せねばならない。

媒体は強固で、固体骨格は僅かに変形する程度である。間隙は界面の効果が物質移行に支配的影響を及ぼすことがない程度に十分な寸法を有する。

間隙中の流体はパルクの状態に等しい一定の粘度で、ニュートンレオロジー的挙動を示す。

流体の運動に対する主要な束縛は、媒体の屈曲した経路内での粘性抵抗である。

現在、連続媒体 2 相流モデルを粘土系媒体に適用する際には、上記項目に関する不整合点に対して以下のような対

応策を採用し、再現性を高めている。

#### (a) 相対透過係数、毛管圧力の近似モデルによる対応[16]

卓越流路の形成と流路内の移行挙動を近似するため、相対透過係数 ( $k_r$ : Relative permeability, 相対浸透率) の近似式で残留間隙水飽和度 ( $S_{lr}$ ) を 1.0 近傍に設定する。

#### (b) 間隙圧力による間隙体積・間隙構造の変化を考慮[17]

たとえば TOUGH2 コードでは圧縮・膨張係数の導入により、間隙圧力および温度による間隙体積の変化による飽和度の変化を反映可能である。

#### (c) Klinkenberg 効果の評価[17]

ガスが微小間隙中を流れる際に生じる Knudsen 拡散による透過係数の変化について、Klinkenberg の関係式 (式(1)) を適用することにより補正する。

$$k_e = k_\infty \left( 1 + \frac{b}{p_g} \right) \quad (1)$$

$k$  : 圧力無限大時の透過係数( $\text{m}^2$ )

$k_e$  : 見かけの透過係数( $\text{m}^2$ )

$b$  : Klinkenberg 定数(Pa)

$p_g$  : 気相の圧力(Pa)

#### (d) ガス/水の固相との相互作用の相違を考慮[16]

粘土系材料等では飽和試料の水による絶対透過係数と乾燥試料のガスによる絶対透過係数が異なる[18,19]。これは膨潤性粘土の固相に対する水とガスとの相互作用の相違による流体のみかけの粘性の変化、および乾燥/湿潤時の間隙構造の変化によるものである。そこで、ここでは気/液相で別個の絶対透過係数 ( $K_g/K_w$ ) を設定する。

### (2) 非連続媒体モデル

上述の粘土系媒体に特有な現象に対して媒体の非連続性をモデルに反映することにより、卓越流路による移行を正確に模擬しようとする、mechanistic なモデルの開発も進められてきた。これらには毛管束モデル (Capillary bundle model)、毛管網モデル (Capillary network model)、フロント進展モデル (Multiple front propagation model)、亀裂進展モデル (GMClay model) 等がある。これらの開発と併行して Horseman らによる MX-80 ベントナイトに対するガス透過試験結果が示され、排出ガス流速の変動に間欠的挙動が見られること、定応力条件下でガス透過時に試料の体積増加が観測されたことから、高スメクタイト密度の圧縮粘土内のガス移行については、比較的少数の卓越流路によるものと考えられるようになった。このため、通常多数の毛管の形成を想定する毛管束モデル、および毛管網モデルより、亀裂進展モデル、フロント進展モデルのほうが実際のガス移行現象に近く、また既に存在する間隙内の水の排出により経路を形成する毛管系のモデル、およびフロント進展モデルより、粒子 (結晶層状体) 間に引張応力による亀裂を

生じさせ、移行経路を形成するとして亀裂進展モデルのほうがより実際の移行機構に近いと考えられるようになった。しかしながら、亀裂進展モデルは多次元化、アップスケーリング上の問題が大きいことから評価ツールへの採用は断念されている。

### (3)その他のモデル

バリア内のガスの移行に対して適用が検討されているモデルには、粘性フィンガリング、微小気泡による移動等概念モデル段階のものから、亀裂網モデル (Fracture network model)、Kozeny-Carman モデル等コード化が進められているモデルまで種種提案されている。これらの中では、日本 (JNC)、スウェーデン、スイス、フランス、スペイン、フィンランドの6ヶ国の共同研究として、高スメクタイト密度の圧縮ベントナイト内のガス移行モデルと解析プログラムの開発を実施している GAMBIT (modelling Gas Migration in compacted Bentonite) Club の検討が注目される。GAMBIT Club では、初期に開発された亀裂進展モデルに代わって提案された巨視的モデルの開発が進められている。本モデルは、粘土内の水の流れ、および膨潤・排水による応力場の変化を再現可能であり、多次元化が容易である。2002年時点では1次元の実験モデルの域を出ていないが、応力場との連成、3次元解析への拡張等が進行中である。

### 2.2 セメント系材料中のガス移行

これまでインタクトな状態のセメント系材料のガス透過挙動については、連続媒体2相流モデルあるいは毛管束モデル (Capillary bundle model) [20]の適用が試みられている。水で飽和したセメント系材料内のガス移行機構については、気相によって置換される間隙水が相当量観測される [21]ことから連続媒体2相流モデルの適用性が高いと考えられる。国際的な認識としても一般的にセメント系グラウトおよび充填材内のガスの移行に対しては連続媒体2相流モデルの適用が可能であり、2相流パラメータも適切に設定しうるとされている [14]。しかしながら、セメント系材料について間隙径分布、あるいは乾燥・不飽和・飽和状態の透過係数 (Permeability, 浸透率) を測定した例 [22, 23 など] は比較的多く存在するが、2相流パラメータの算定例は、Nagra による多孔質コンクリート [24, 25] のほかは、通常のコンクリートについて Mayer ら [26] による評価例があるに止まる。

## 3 粘土系材料のガス透過試験と特性パラメータ設定

緩衝材の構成材料として検討されているベントナイト / ケイ砂 (配合率 70/30wt%) 混合体に対し三軸拘束型ガス透過試験装置を用いて、処分場条件下における間隙水飽和から非定常のガス透過試験を実施した。また、毛管圧力と間隙水飽和度との関係はサイクロメータ法等によって測定、評価した。ガス透過試験結果で得られたガス排出速度

に対して、これらのパラメータを用いて連続媒体2相流モデルを適用したシミュレーションを行なうことにより、相対透過係数と飽和度との関係に係る近似式とそのパラメータを設定した。なお、同配合の供試体に土被り圧相当の上載加重が作用する条件下において試験、解析を行った結果は既に報告されている [16] ことから、本報では体積歪拘束条件において実施した試験、解析結果の詳細を以下に示す。

### 3.1 ガス透過試験

#### 3.1.1 試験条件

連続媒体2相流モデルによる解析に必要なガスおよび水の絶対透過係数、相対透過係数、ガス侵入圧力 (Threshold 圧) 等のパラメータは、特定圧力・応力条件下でのガスおよび水の排出量の経時変化を基に評価する。

#### (1) 装置構成

主たる試験装置構成を以下に示す。

試験容器：円柱形状供試体 (76.2 mm × 20 ~ 200 mmH) を最大 35,000 kPa で試験可能なステンレス鋼製容器。側面 Viton 製スリーブおよび端面エンドプレートを通じて拘束圧を載荷する。

流体供給系/拘束圧系/背圧系：ISCO 社製シリンジポンプにより、各系統を定流量 ( $10^{-3} \sim 10^2$  ml/min) または定圧制御 (50 ~ 51,000 kPa) する。

排出水・排出ガス捕集測定系：Lucite セパレータ内に捕集された水を電子天秤 (精度 0.001 g) 型積算排水量計により測定し、排出ガスの流速測定 (0 ~ 1,000 ml/min) は熱線コイル方式ガス流量計による。

Fig.1 に試験装置主要部の外観を示す。

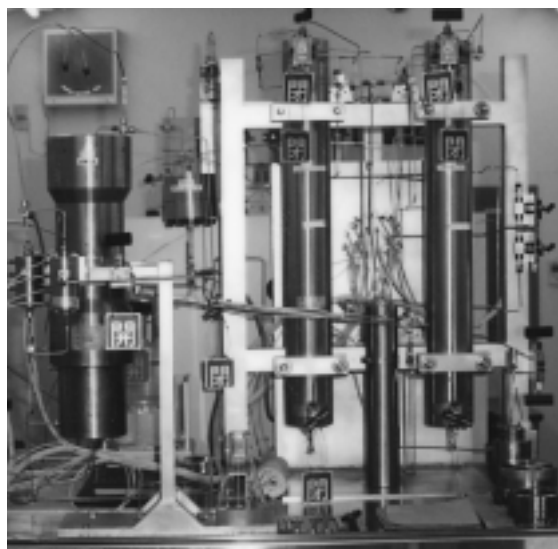


Fig.1 Gas injection test apparatus Test vessel (left) and two accumulators (right)

## (2) 試料の調整と供試体の製作

ベントナイト/ケイ砂混合試料は、105℃で8時間以上炉乾燥したベントナイト(クニゲルV1)、3号ケイ砂(荒砂)、5号ケイ砂(細砂)を、重量比(ベントナイト/3号ケイ砂/5号ケイ砂) = (70/15/15)となるよう秤量し十分に混合した。調整された試料を一軸圧縮機を用いてステンレス鋼製円筒セル内に1.6 g/cm<sup>3</sup>となるよう圧縮成形し、試料下流端には粒子流失防止のために間隙径5μmの金属焼結フィルタを、上流側は試料に気・液流体が直接接触するように、325および60メッシュのフィルタを重ねて設置した。Table 1に試料の配合比、寸法等を、Fig.2に供試体断面図を示す。

## (3) 試験条件

以下に三軸拘束型ガス透過試験装置による試験手順、試験条件を示す。

105℃で8時間以上炉乾燥した試料を用いて製作した供試体を、試験容器内に設置する。背圧を大気圧とし、ガス注入圧力は背圧付近から昇圧させて8.9 kPaでガスの排出速度を測定し、注入ガス圧力の変化による透過係数への影響を評価する。

試験容器内を真空ポンプにて減圧した後、純水を試料の両端から2,500 kPa以上で注入し、次に注入水量と排出水量が等しくなるまで片面から5,000 kPa以上で通水することにより供試体を飽和させる。

5,000 kPa以上の差圧で飽和試料の水の透過係数を測定する。

背圧を深度500 mでの地下水压相当である5,000 kPaとし、注入ガス圧力を5,000 kPaからステップ状に上昇させてガスおよび水の排出フラックスの経時変化を観測し、ガス侵入圧、およびブレイクスルー圧を

検出する。昇圧速度はブレイクスルー時の圧力に影響することから、過去の研究例[15]と比較して過大でない25 kPa/hrとした。

ブレイクスルー検出後はガス注入圧力を一定として、水およびガスの排出速度の測定を継続する。

## (4) 特性評価手法

水の透過係数、およびガスに対する透過係数についてはそれぞれ以下の式により求めた。

$$k_w = \frac{\mu_w Q_w L}{A(P_1 - P_2)} \quad (2)$$

- $k_w$  : 水の透過係数 (m<sup>2</sup>)  
 $\mu_w$  : 水の粘度 1.002 × 10<sup>-3</sup> (Pa·s at 1atm)  
 $A$  : 試料の断面積 (m<sup>2</sup>)  
 $L$  : 試料の長さ (m)  
 $Q_w$  : 排出水速度 (m<sup>3</sup>/s)  
 $P_1$  : 上流側圧力 (Pa)  
 $P_2$  : 下流側圧力 (Pa)

$$k_g = \frac{2\mu_g Q_g L P_N}{A(P_1^2 - P_2^2)} \quad (3)$$

- $k_g$  : ガスの透過係数 (m<sup>2</sup>)  
 $\mu_g$  : N<sub>2</sub>の粘度 17.6 × 10<sup>-6</sup> (Pa·s at 1atm)  
 $Q_g$  : 排出ガス速度 (m<sup>3</sup>/s)  
 $P_N$  : 大気圧 1.01 × 10<sup>5</sup> (Pa)

## 3.1.2 試験結果

### (1) 基礎物性試験

105℃で8時間以上炉乾燥した試料を用いて製作した供試体にN<sub>2</sub>ガスを透過させ、乾燥試料に対するガスの絶対透過係数を測定した。背圧は大気圧とし、体積歪拘束条件でガス注入圧力を約10 kPaとしてガス排出速度を測定し、5.96 × 10<sup>-15</sup> m<sup>2</sup>の値を得た。なお、ベントナイト/ケイ砂混合試料の乾燥時における透過係数は相対的に大きく、常圧以上でKnudsen流の影響が小さいと考えられることから、Klinkenberg効果に関する測定、評価は行わないこととした。

供試体両端から5,000 kPaで約80時間蒸留水を圧入し、さらに下流側を大気圧として約70時間通水後に算定された飽和時の水による絶対透過係数は7.86 × 10<sup>-20</sup> m<sup>2</sup>であった。

ベントナイトおよびケイ砂の真密度と試料体積より算出した間隙率は0.426であった。

### (2) ガス透過試験

注入ガス圧力と背圧の経時変化、および排出ガス流速と累積排出水量の経時変化をそれぞれFig.3, Fig.4に示す。供試体上流側配管内の残留水(約0.4 ml)の注入による水の排出以後、さらに排出水量の増加が観測された昇圧開始後約50~70時間時点、注入ガス圧力6,200~6,700 kPaで供

Table 1 Specification of the specimen with bentonite / sand mixture

Materials	Bentonite / Sand Mixture (Weight ratio = 7 : 3)
Bentonite	Kuni-Gel V1
Quartz sand	3# Sand / 5# Sand (Weight ratio = 1 : 1)
Dry density	1.6 Mg/m <sup>3</sup>
Dimension	57.2mm φ×30mm H

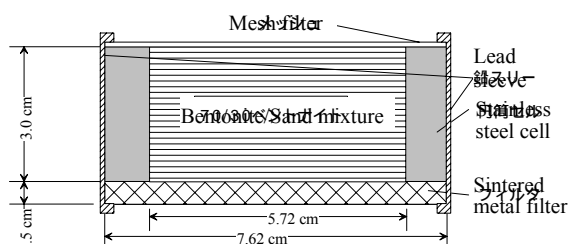


Fig. 2 Schematic diagram of the specimen

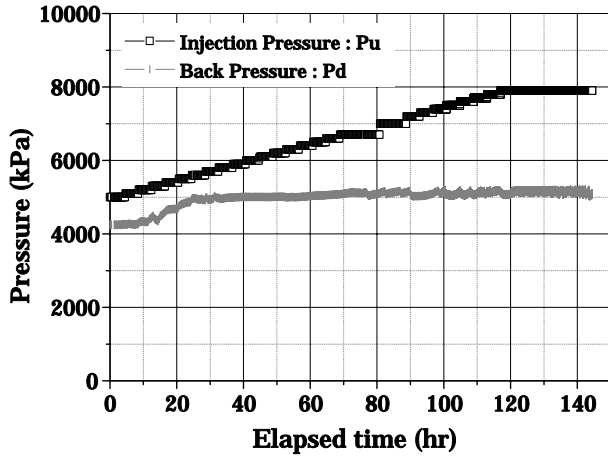


Fig. 3 Gas injection pressure and backpressure history for bentonite / sand mixture

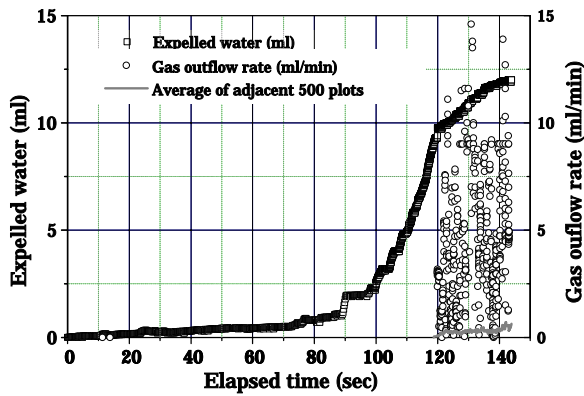


Fig. 4 History of expelled water volume and gas outflow rate for bentonite / sand mixture

試体へのガスの侵入が開始し、さらに急激な排出水量の増加が開始する約 90 時間時点以降、注入ガス圧力が 7,200kPa 以上で試料中をガスが透過し、事実上のブレイクスルーが生じているものと考えられる。試験結果は、さらに供試体下流側の管路内の水を排出した後、約 120 時間時点に試験装置からのガスの排出が観測されている。Fig.4 に 6 秒ごとに計測されたガス排出速度を印でプロットしたが、最大 17 ml/min で間欠的かつ変動が大きい。これは、粘土物質に特徴的な移行経路の開閉現象と、供試体下流側の背圧レギュレータが断続的に開閉すること、および試料から排出されたガス・水が交互に管路から流出することの相乗によると考えられる。

### 3.2 2相流パラメータの設定

上記のガス透過試験結果に対して、Darcy 則を 2 相流に拡張した連続媒体 2 相流モデルを適用して透過現象のシミュレーションを行った。使用した解析コードは TOUGH2[17]であり、このシミュレーションにより相対透過係数と飽和度との近似関数とそれに含まれる各種パラメータの値を繰返し計算によって求めた。

#### 3.2.1 連続媒体 2 相流モデル

連続媒体 2 相流モデルに関する基本数学モデルを以下

に示す。質量収支式を式(4)に、相対透過係数を導入した拡張 Darcy 則を式(5)、(6)に示す。

$$\frac{d}{dt} \int_{V_n} \sum_{\beta=1}^N (\rho_{\beta} \phi_{\beta} X_{\beta}^{(\kappa)}) dV = \int_{\Gamma_n} \sum_{\beta=1}^N (\rho_{\beta} \mathbf{u}_{\beta} X_{\beta}^{(\kappa)}) \cdot \mathbf{n} d\Gamma \quad (4)$$

- $V_n$  : 系内の  $n$  分割された任意体積の領域 ( $\text{m}^3$ )  
 $\Gamma_n$  :  $n$  分割された各領域を取り囲む面積 ( $\text{m}^2$ )  
 $\beta$  : 相 (水, ガス)  
 $\rho_{\beta}$  : 相の密度 ( $\text{kg m}^{-3}$ )  
 $\phi_{\beta}$  : 相によって占められた間隙率 (-)  
 $X_{\beta}^{(\kappa)}$  : 相中の成分の質量分率 (-)  
 $\mathbf{u}$  : 相の Darcy 流速テンソル ( $\text{m s}^{-1}$ )

水の Darcy 流速

$$\mathbf{u}_w = -\frac{\mathbf{K}_w}{\mu_w} k_{rw} (\nabla p_w - \rho_w \mathbf{g}) \quad (5)$$

- $\mathbf{u}_w$  : 水の Darcy 流速テンソル ( $\text{m s}^{-1}$ )  
 $\mathbf{K}_w$  : 水の絶対透過係数テンソル ( $\text{m}^2$ )  
 $k_{rw}$  : 水の相対透過係数 (-)  
 $\mu_w$  : 水の粘度 (Pa s)  
 $p_w$  : 間隙水圧 (Pa)  
 $\rho_w$  : 水の密度 ( $\text{kg m}^{-3}$ )  
 $\mathbf{g}$  : 重力加速度 ( $\text{m s}^{-2}$ )

ガスの Darcy 流速

$$\mathbf{u}_g = -\frac{\mathbf{K}_g}{\mu_g} k_{rg} (\nabla p_g - \rho_g \mathbf{g}) \quad (6)$$

- $\mathbf{u}_g$  : ガスの Darcy 流速テンソル ( $\text{m s}^{-1}$ )  
 $\mathbf{K}_g$  : ガスの絶対透過係数テンソル ( $\text{m}^2$ )  
 $k_{rg}$  : ガスの相対透過係数 (-)  
 $\mu_g$  : ガスの粘度 (Pa s)  
 $p_g$  : 間隙ガス圧 (Pa)  
 $\rho_g$  : ガスの密度 ( $\text{kg m}^{-3}$ )

ここで、間隙水圧力と間隙ガスの圧力は、毛管圧力を用いて以下のように表わせる。

$$p_w = p_g - p_c \quad (7)$$

- $p_c$  : 毛管圧力 (Pa)

なお、上述のように、乾燥試料によるガスの絶対透過係数より飽和試料による水の絶対透過係数が極端に小さい値となる粘土系材料の特性を反映するため、使用した TOUGH2 コードではガスおよび水について異なる絶対透過係数を設定可能とした。

式(5)、(6)に用いられる水およびガスの相対透過係数について、間隙水飽和度との関係を以下に示す。本研究では Corey モデル[27] (式(8)) の指数部分を変数として柔軟性をさらに高めたモデルを適用した。式(9)に変形 Corey モデルによる相対透過係数と間隙水飽和度との関係を示す。

$$k_{rg} = (1 - S_e)^2 (1 - S_e^2) \quad (8)$$

$$k_{rw} = S_e^4 \quad (9)$$

$$k_{rg} = (1 - S_e)^n (1 - S_e^m) \quad (10)$$

$$k_{rw} = S_e^m$$

$$S_e = \frac{(S_l - S_{lr})}{(1 - S_{lr} - S_{sr})} \quad (11)$$

$k_{rg}$  : ガスの相対透過係数(-)

$k_{rw}$  : 水の相対透過係数(-)

$S_e$  : 実効飽和度 (Corey モデル) (-)

$S_l$  : 間隙水飽和度 (-)

$S_{lr}$  : 残留間隙水飽和度(-)

$S_{sr}$  : 残留ガス飽和度(-)

$m, n$  : 間隙径分布係数(-)

式(11)に本評価で毛管圧力と間隙水飽和度との関係に対する近似式として適用した Narasimhan のモデル[28]を示す。同モデルは Mayer ら[26]によって水銀圧入法による間隙径分布データに基づく毛管圧力に対して適用され、良好な再現性が確認されている。

$$p_c = -p_e - p_0 \left( \frac{(1 - S_l)}{(S_l - S_{lr})} \right)^{\frac{1}{\eta}} \quad (11)$$

$P_c$  : 毛管圧力(Pa)

$P_e$  : 毛管排除圧 (ガス侵入圧) (Pa)

$P_0$  : 係数(-)

$\eta$  : 間隙径分布係数(-)

### 3.2.2 シミュレーション

TOUGH2 コードを用いたシミュレーションによる 2 相流パラメータの決定手順を以下に示す。

毛管圧力 ( $P_c$ ) と間隙水飽和度 ( $S_l$ ) との関係を用いて Narasimhan の近似式によりフィッティングし、毛管圧力に対するモデルパラメータを決定する。毛管排除圧 ( $P_e$ ) はガス透過試験のガス侵入時の過剰間隙圧力 (1.2 ~ MPa) から想定できるため、ここでは残留間隙水飽和度 ( $S_{lr}$ )、間隙径分布係数 ( $\eta$ )、係数 ( $P_0$ )、をフィッティングによって設定する。

当該供試体の透過試験で得られた水による絶対透過係数値を用いて、ガス排出速度あるいは累積排出水量の経時変化に対してフィッティングを行い、湿潤状態でのガスの絶対透過係数 ( $K_g$ )、および相対透過係数に関する残留ガス飽和度 ( $S_{sr}$ )、残留間隙水飽和度 ( $S_{lr}$ ) 等の Corey 変形モデルのパラメータを設定する。

必要に応じ絶対透過係数を 1 ロット内のばらつき、測定誤差範囲内として許容される範囲で変化させ、細部のフィッティングを図る。

解析上の幾何体系は試料に対して軸方向に 20 分割とし、試料下流側にはフィルタの特性を与え水で飽和した要素

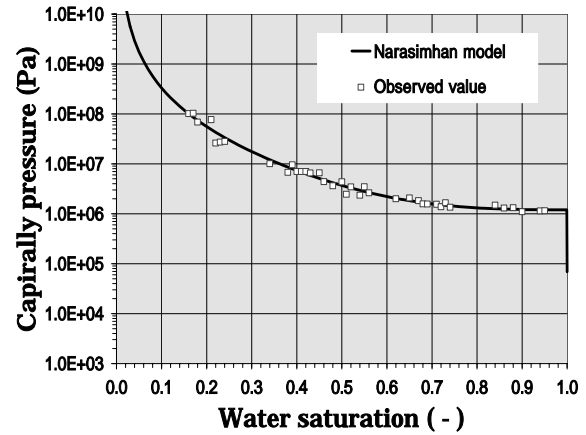


Fig. 5 Fit of gas-water capillary pressure curve for bentonite / sand mixture

Table 2 Capillary pressure model parameters for bentonite / sand mixture

$P_e$ (Pa)	$P_0$ (Pa)	$S_{lr}$ (-)	(-)
Capillary entry pressure	Model parameter	Residual water saturation	Pore radius distribution coefficient
$1.20 \times 10^6$	$2.50 \times 10^6$	0.0	0.45

を配した。ベントナイト/ケイ砂混合体試料に対する解析ではフィルタ下流側配管内の残流水を考慮していないため、シミュレーション対象は供試体フィルタ下流端におけるガス排出速度のみとした。

Narasimhan のモデルを適用した毛管圧力測定データのフィッティング結果、およびパラメータ値を Fig.5, Table 2 に示す。粘土系媒体に対する排水側 (Drainage) での毛管圧力の測定方法についてはサクシオン制御オedometa法などが提案されているが、確立されたものではなく測定例もきわめて少ない。ここでは必ずしも排水側の挙動を表わすものではないと考えられるが、サイクロメータおよび蒸気圧法によって測定された、乾燥密度  $1.6 \text{ Mg/m}^3$  のクニゲル V1 / 3 号・5 号ケイ砂 : 70/30 wt% に対するサクシオン値[29]を用い、相対透過係数とは別個にパラメータの設定を行なうこととした。

繰返し計算により設定された相対透過係数のモデルパラメータを Table 3 に、相対透過係数と間隙水飽和度との関係を Fig.6 に示す。

供試体下流端での気相の到達時期は、試験装置からのガス排出開始時点における累積排出水量が 9.5ml であり、本供試体の下流側管路内の残留水量が 5.0ml であることから、累積排出水量がこれらの差である 4.5ml、試験開始後 108.5 時間時点であると推定できる。したがって、シミュレーション対象とする供試体下流端のガス排出は、試験開始後約 108 時間時点から観測されるものとしてフィッティングを行なった。排出ガス速度に対するシミュレーション結果を Fig.7 に、またこのときのガス飽和度のシミュレーション結

Table 3 Model parameters of permeability for bentonite / sand mixture

$S_{lr} (-)$	$S_{sr} (-)$	$m$	$n$
Residual water saturation	Residual gas saturation	Pore radius distribution coefficient	
0.94	0.00	1.5	9.5

$K_w (m^2)$	$K_g (m^2)$
Intrinsic permeability (water)	Intrinsic permeability (gas)
$7.86 \times 10^{-20}$	$1.00 \times 10^{-19}$
Porosity (-)	
0.426	

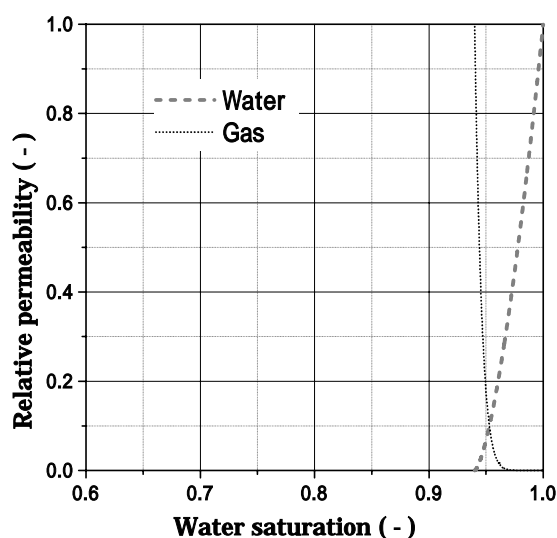


Fig. 6 Relative permeability curves for bentonite / sand mixture

果を Fig.8 に示す。

前述のように試験結果は試料下流端での気相の透過が 90 時間以降であることを示し、供試体下流端におけるガス排出開始は約 108 時間時点であることを示唆した。解析結果は Fig.7 に示されたように供試体下流端、すなわち試料下流に設置されたフィルタ下流端でのガス排出開始が 93 時間時点であることを示した。これより解析結果は試験結果から推定された 108 時間時点よりやや早期であるが、試験結果と近く比較的良好一致を示している。一方、ブレイクスルー後のガス排出速度については、試験結果がブレイクスルー後急速な増加を示したのに対し、解析結果はブレイクスルー後数十時間後には試験結果（印でプロットした 6 秒ごとのガス排出速度に対する隣接 1,500 区間のスムージング曲線）とほぼ等しくなるが、フラックスの上昇速度は試験結果に比較して小さく、ブレイクスルー直後の遷移過程の再現性は十分な精度に達していない。試料の間隙水飽和度の低下についてのシミュレーション結果は、試料の部位により 4.5～6%の飽和度の低下を示した。Boom clay のガス透過試験による飽和度の低下が 5%以下[30]と

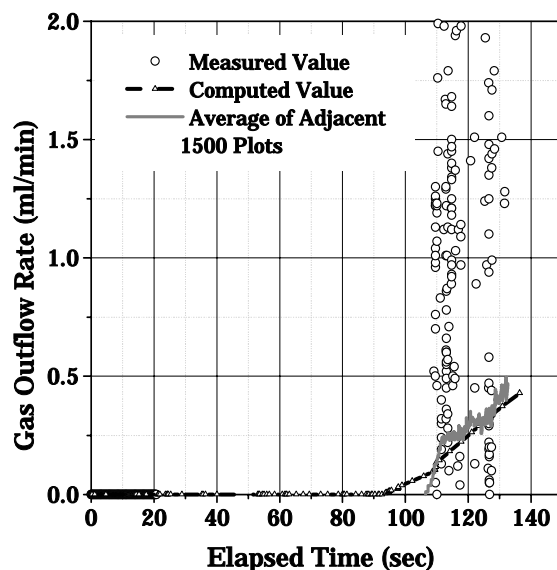


Fig. 7 Measured and simulated gas out flow rate for bentonite / sand mixture

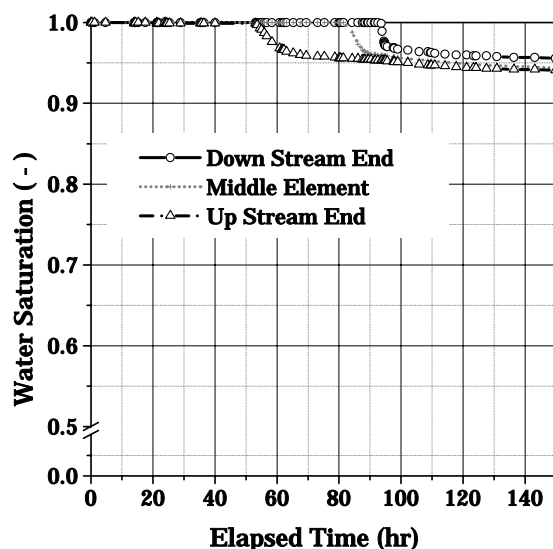


Fig. 8 Simulated water saturation for bentonite / sand mixture

されているところからも、シミュレーション結果は妥当な範囲にあると考えられる。また、供試体へのガス侵入開始時期も昇圧後 53 時間と算定されており、試験結果から想定された 50～70 時間の範囲内にある。

#### 4 セメント系材料内のガス透過試験と特性パラメータ設定

間隙が水で飽和したセメント系材料に対するガス透過試験および毛管圧力の測定試験を実施するとともに、試験結果に対して連続媒体 2 相流モデルを適用してシミュレーションを行ない、移行特性パラメータを設定した。



## 4.1 ガス透過試験

### 4.1.1 試験条件

試験装置は粘土系材料のガス透過試験に使用したものと同一装置を用いた。

#### (1) 試料の調整

試験対象は充填材の候補材料であるとともに、粗骨材の影響を排除しセメントとしての透過特性がより端的に現われると考えられるモルタル、および骨材を含まずセメント水和物の特性をより明確に示すと考えられるセメントペーストとした。セメントは普通ポルトランドセメント（以下 OPC と略記）を用いた。Table 4 に試験対象としたセメント系材料の配合比、寸法、圧縮強度等を示す。また、セメント系材料では試料の上下流側にフィルタを設置する必要がないため、円筒形の試料そのものを供試体とした。

#### (2) 試験条件

三軸拘束型ガス透過試験装置による試験手順、試験条件を以下に示す。

供試体を試験容器内に挿入し真空ポンプで 3 時間以上減圧後、試料の両端から 5,000kPa で蒸留水を注入する。さらに下流側圧力（背圧）を一定として上流側を昇圧し、排水速度がほぼ一定となるまで通水して供試体を飽和させる。

背圧を一定に保ち、一定注入圧力で飽和試料の水の透過係数を測定する。本過程以後拘束圧は等方圧でガス注入圧力 + 3,500kPa とする。

背圧を一定とし、注入ガス圧力を背圧から 2.5 ~ 50 kPa/hr でステップ状に上昇させてガスおよび水の排出速度の経時変化を観測し、ガス侵入圧、ブレイクスルー圧を測定する。

ブレイクスルー検出後はガス注入圧力を一定として水およびガスの排出速度の測定を継続する。

試料を 105 ~ 120 °C で 20 時間以上炉乾燥後、試験容器内に設置する。背圧を一定としてガス注入圧力を背圧付近から昇圧してガスの排出速度を測定し、注入ガス圧力の変化による透過係数への影響を評価する。

透過係数の算定は式(2)、および式(3)を用いた。

Table 4 Specification of the cementitious specimen

Materials	JIS mortar	Cement paste
Water / Cement	0.50	0.85
Cement / sand	0.33	
Curing	In water at 50 °C, <28 day	
Cement	OPC	
Dimension	76.2 mm $\phi$ × 50 mm H	
Compressive strength	42.0 MPa	6.6 MPa

## 4.1.2 試験結果

### (1) 透水係数

#### ・モルタル

供試体両端から 5,000 kPa で約 240 時間蒸留水を圧入し、さらに上流側を 9,900 kPa に昇圧して約 280 時間通水後、飽和試料に対する水の透過係数を算定した。飽和時の水による絶対透過係数は  $1.22 \times 10^{-20} \text{ m}^2$  であった。

#### ・セメントペースト

供試体両端から 4,900 kPa で約 150 時間蒸留水を注水した後、本試験で調整したセメントペーストの一軸圧縮強度が 6 MPa 程度であったことから、これを上回る局部的応力による破壊の可能性を考慮し、拘束圧が 6 MPa を超えない範囲の注入ガス圧力で一連の試験を実施した。飽和試料に対する水の透過係数は 100 kPa に約 55 時間保持して測定した。水による絶対透過係数は  $3.44 \times 10^{-17} \text{ m}^2$  であった。

### (2) ガス透過試験

#### ・モルタル

Fig.9, Fig.10 にそれぞれ注入ガス圧力、背圧、およびガス排出速度、累積排出水量の経時変化を示す。

注入ガス圧力は 50 kPa/1 時間で昇圧させ、約 6,600 kPa でガスの侵入が開始し、昇圧開始後約 215 時間、12,500 kPa

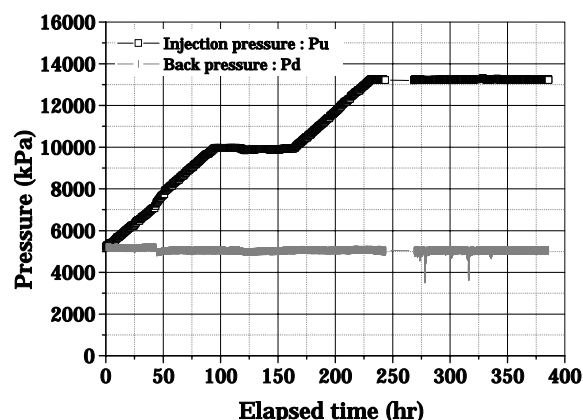


Fig.9 Gas injection pressure and backpressure history for JIS mortar

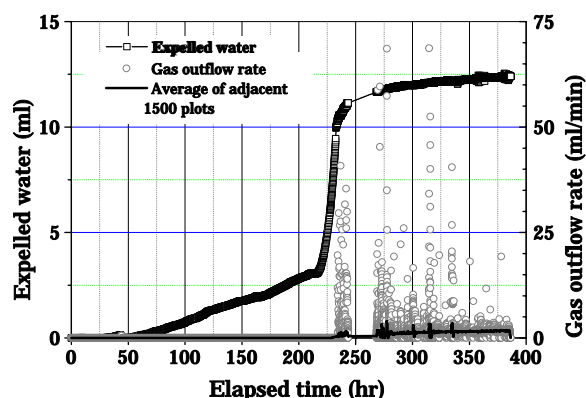


Fig.10 History of expelled water volume and gas outflow rate for JIS mortar



で供試体中をガスが透過、233 時間でガスの排出を検出した。ガスの平均排出速度は 1~2 ml/min であり、ブレイクスルー後も間隙水の排出による飽和度の低下に従って上昇する傾向を示している。

#### ・セメントペースト

Fig. 11, Fig. 12 に注入ガス圧力、背圧、およびガス排出速度、累積排出水量の経時変化をそれぞれ示す。

注入ガス圧力は 5kPa/2 時間から 25kPa/1 時間まで昇圧速度を増加させ、ガス排出速度がほぼ 5 ml/min 以上に増加した 1,150kPa で一定とした。間隙水はブレイクスルー直前までほとんど排出されず、昇圧開始後約 145 時間、注入ガス圧力 600kPa 付近でガスが侵入し、急速に供試体下流端に達したと考えられる。このことはセメントペーストの間隙径分布が  $0.3 \mu\text{m}$  付近で急激に頻度が増すことと一致する。

#### (3) 飽和度の変化

ガス押し開始時点における供試体の飽和度を 1.0 として排出水量から算定した試験後の供試体内平均飽和度は、試験終了後の値としてモルタルは 0.87、セメントペーストは 0.83 と算出された。一方、重量測定結果より評価した平均飽和度は、モルタルについて飽和前が 0.83、試験後が 1.0、セメントペーストでは飽和前が 1.16、試験後が 0.90 である。モルタルについて試験前の飽和度が試験後より小さいの

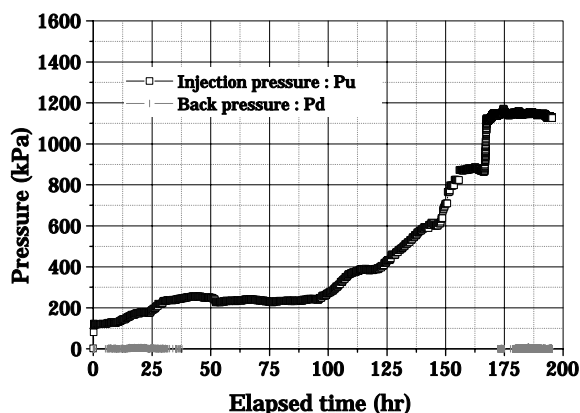


Fig.11 Gas injection pressure and backpressure history for cement paste

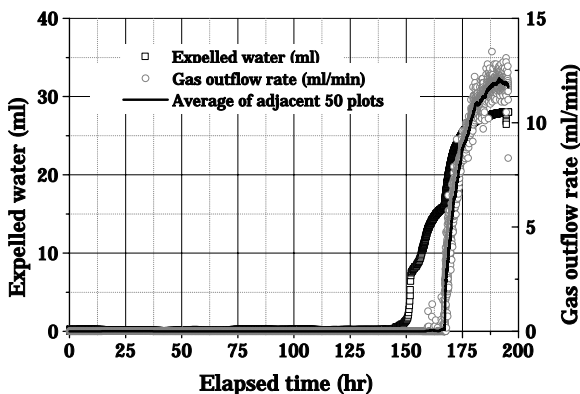


Fig.12 History of expelled water volume and gas outflow rate for cement paste

は、飽和過程において 20 ml 以上の注入水量が観測されたことから、水中養生後の供試体は不飽和であったことを示す。また、重量測定による飽和度が排出水量に基づく飽和度と同等の値となる間隙率は、He の注入量によって測定された間隙率に対してモルタルで 2%、セメントペーストでは 10%程度大きい値となる。これはセメント系材料については湿潤相の侵入可能な間隙が非湿潤相の侵入可能な間隙体積より大きく、したがってガス注入法によって測定した間隙率は、乾燥による水分減少量によって得られる間隙率より小さい[31]可能性があること、あるいは、通水によって供試体中のアルカリ成分が溶解し間隙体積が増加したことによると考えられる。

#### (4) 乾燥試料に対するガスの透過係数

ガス透過終了後 110 で 20 時間以上乾燥した JIS モルタル供試体に  $\text{N}_2$  ガスを透過させ、乾燥試料に対するガスの透過係数を測定した。背圧は大気圧、拘束圧は等方圧条件でガス注入圧力 + 3,500kPa とし、ガス注入圧力を約 300 kPa ~ 900 kPa の範囲で変化させガス排出速度を測定した。その結果、圧力勾配の増加に伴い見かけの透過係数が減少する傾向が明確に現われ、Fig. 13 に示すように平均間隙圧力（上流側圧力(注入ガス圧力) $P_u$ と下流側圧力(背圧) $P_d$ の平均値）の逆数と透過係数が直線関係を示したことより、Harris ら[23]によっても報告されている微小流路内での Knudsen 流の発生が確認された。Knudsen 流の影響を排除し、固相との相互作用のない液体の透過係数に相当する Klinkenberg 透過係数は X 軸切片で示され、モルタル試料では  $5.01 \times 10^{-18} \text{m}^2$  であった。また式(1)に示された Klinkenberg 係数は  $b = 9.85 \times 10^5 (1/\text{Pa})$  であった。この関係から、間隙圧が 5,000 kPa 以上となる処分場環境下ではガスの蓄積による間隙圧力が 10,000 kPa に上昇した場合でも Klinkenberg 効果による透過係数の低下は 15%程度であり、評価に大きな影響はないことが明らかとなった。

なお、セメントペースト供試体の透過係数はモルタル供試体に比較して 3 桁大きいことから、Klinkenberg 効果の測

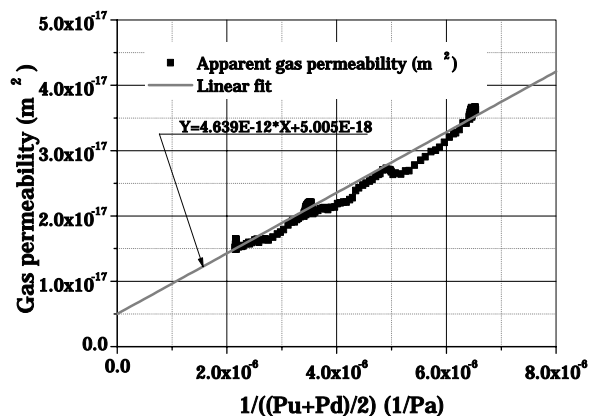


Fig.13 Determination of Klinkenberg permeability and parameter

Table 5 Result of gas injection test

Material	JIS Mortar	Cement Paste
Temperature	20 ~ 24	
Dimension	7.72cm × 4.78cmH	7.77cm × 5.00 cmH
Dry density	2.12 (g/cm <sup>3</sup> )	1.07 (g/cm <sup>3</sup> )
Effective Porosity	0.16	0.50
Pore Volume	36.3 (ml)	118.5 (ml)
Klinkenberg Permeability	$5.01 \times 10^{-18}(\text{m}^2)$	$2.37 \times 10^{-16}(\text{m}^2)$
Gas Entry Pressure	1,600 (kPa)	600 (kPa)
Breakthrough Pressure	7,500 (kPa)	880 (kPa)

定は行わず、背圧を 2,000 kPa 載荷して試験を行い  $2.37 \times 10^{-16} \text{m}^2$  の透過係数を得た。

モルタルおよびセメントペースト供試体に対する試験結果を Table 5 に示す。

## 4.2 毛管圧力および間隙径分布の測定評価

### 4.2.1 試験方法

これまでセメント系材料の毛管圧力評価に適用されている手法は、Mayer らによる水銀圧入法[26]、あるいは蒸気圧法を利用した細孔径分布密度法[32]であり、必ずしも排水側の現象に対して測定されたものではない。ここでは排水側の挙動における飽和度と毛管圧力との関係を忠実に再現可能と考えられる遠心法を適用し測定を行なった。また、基礎物性として水銀圧入法による間隙径分布データの取得を行った。

#### (1)遠心法による毛管圧力測定

遠心法による測定に先立ち、Core Labo 社製 Auto Porosimeter を用い He ガスによる間隙率の測定を行った。

遠心法の測定装置は Beckman 社製 High speed ultracentrifuge を使用した。試験温度は室温、置換ガスについては空気とし、拘束圧は無負荷とした。

#### (2)水銀圧入法による間隙径分布測定

測定装置は Micromeritics 社製の AutoPore II 9220 を使用した。水銀の注入量は温度、圧縮による影響を補正し、さらに供試体の表面粗さに起因する補正を行って飽和度を評価した。

### 4.2.2 試験結果

#### (1)遠心法による毛管圧力測定

遠心法によって得られた毛管圧力、および測定、評価された基礎物性を、JIS モルタルについて Fig.14 に、セメントペーストについて Fig. 15 に示した。またそれらに先立って He 間隙率測定装置によって乾燥試料に対して測定された間隙率は、JIS モルタルについて 0.162、セメントペーストについては 0.499 であった。

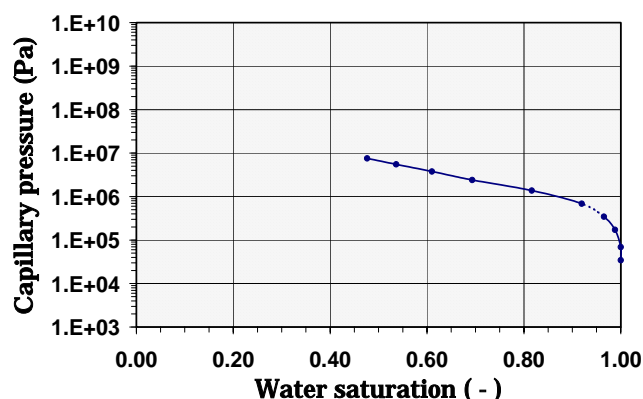


Fig.14 Gas-water capillary pressure curve for drainage of JIS mortar

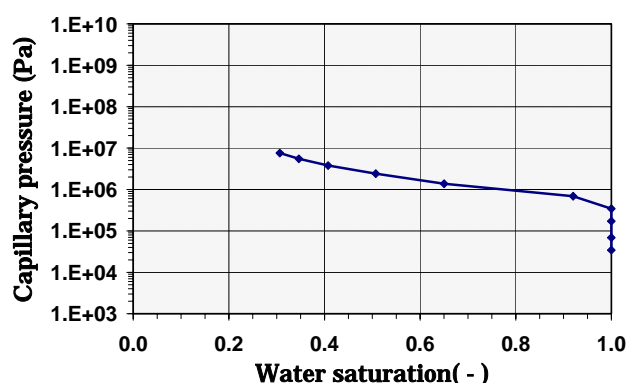


Fig.15 Gas-water capillary pressure curve for drainage of cement paste

#### (2)水銀圧入法による間隙径分布測定

得られた結果を JIS モルタル、セメントペーストについてそれぞれ Fig. 16, Fig. 17 に示した。

JIS モルタルの間隙径は約  $2 \mu\text{m}$  から  $0.001 \mu\text{m}$  の範囲にあり、最頻値  $0.07 \mu\text{m}$  のほか 0.3, および  $0.03 \mu\text{m}$  にピークを有する複雑な間隙構造を示す。間隙径分布が対数正規分布を示す[33]花崗岩等とは異なり、その分布範囲、複数ピークの存在は Jacobs ら[22]が報告したコンクリートに近いが、粗骨材を含むコンクリートではさらにピーク数が多く間隙径の分布は複雑である。一方、水/セメント比の大きいセメントペーストの間隙径は約  $0.6 \mu\text{m}$  から  $0.001 \mu\text{m}$

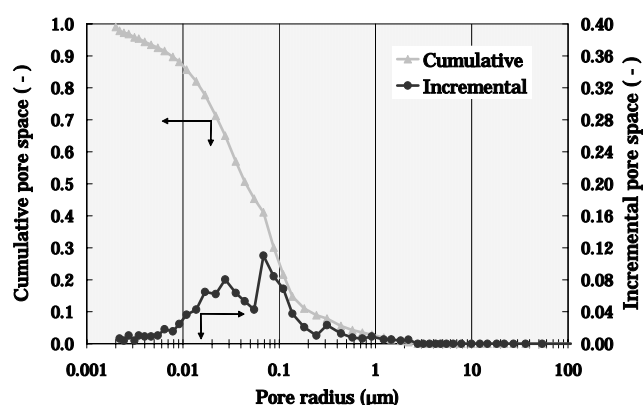


Fig.16 Pore radius distribution of JIS mortar

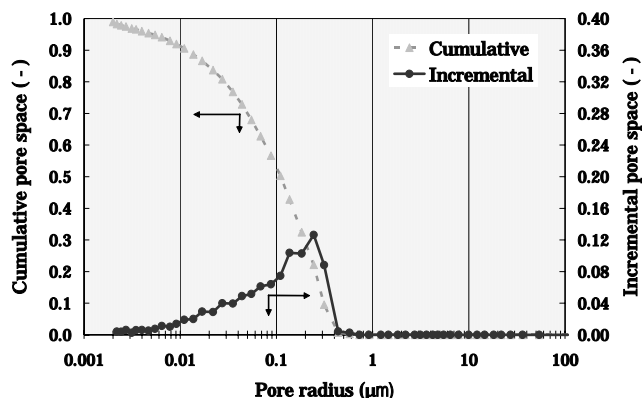


Fig.17 Pore radius distribution of cement paste

の範囲にあり、最頻値は JIS モルタルの約 4 倍の  $0.3 \mu\text{m}$  にある。これらの結果は、一般に毛管間隙 (gel pore に対する capillary pore) のピーク位置は  $0.05 \sim 0.1 \mu\text{m}$  にあり、水 / セメント比の増加により  $0.5 \sim 1 \mu\text{m}$  まで増加する[34]とした報告に一致する。

### 4.3 2相流パラメータの設定

上記ガス透過試験結果に対して TOUGH2[17]コードを用いてガスおよび水の排出量測定値に対するシミュレーションを行ない、2相流パラメータを設定した。

#### 4.3.1 シミュレーション

シミュレーションによる2相流パラメータの設定手順を以下に示す。

遠心法による毛管圧力と間隙水飽和度との関係を Narasimhan の近似式によりフィッティングし、毛管圧力に対するモデルパラメータを決定する。

透過試験で得られた絶対透過係数値を用い、累積排水量、ガス排出速度の経時変化に対してフィッティングを行い、相対透過係数と間隙水飽和度との関係を近似する Corey 変形モデルのパラメータを設定する。

必要に応じ絶対透過係数を1ロット内のばらつき、測定誤差範囲内として許容される範囲で変化させ、細部のフィッティングを図る。

解析上の幾何体系は供試体に対して軸方向に20分割とし、供試体下流側には水で飽和した要素を配することにより試料下流側装置内の残流水の存在を模擬した。

#### (1) JIS モルタル

Narasimhan のモデルによる毛管圧力測定データのフィッティング結果とパラメータ値を Fig.18, Table 6 に示す。

繰返し計算により設定された相対透過係数モデルパラメータを Table 7 に、相対透過係数と間隙水飽和度との関係を Fig. 19 に示す。

シミュレーション結果をそれぞれ Fig.20, Fig.21 に示す。ガスの排出について、ブレイクスルー検出時期は解析結果の昇圧開始後236時間時点に対して試験結果は233時間でありきわめて再現性が高く、ブレイクスルー直後のフラッ

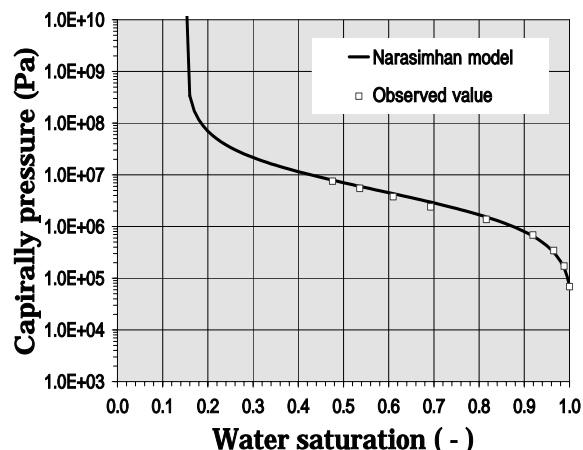


Fig. 18 Fit and observed value of gas-water capillary pressure curve for JIS mortar

Table 6 Capillary pressure model parameters for JIS mortar

$P_e$ (Pa)	$P_0$ (Pa)	$S_{lr}$ (-)	(-)
Capillary entry pressure	Model parameter	Residual water saturation	Pore radius distribution coefficient
$6.90 \times 10^4$	$5.00 \times 10^6$	0.15	1.05

Table 7 Model parameters of permeability for JIS mortar

$S_{lr}$ (-)	$S_{sr}$ (-)	m	n
Residual water saturation	Residual gas saturation	Pore radius distribution coefficient	
0.15	0.075	25.0	2.30

$K_w$ (m <sup>2</sup> )	$K_g$ (m <sup>2</sup> )
Intrinsic permeability (water)	Intrinsic permeability (gas)
$9.9776 \times 10^{-21}$	$7.311 \times 10^{-18}$
Porosity (-)	
0.162	

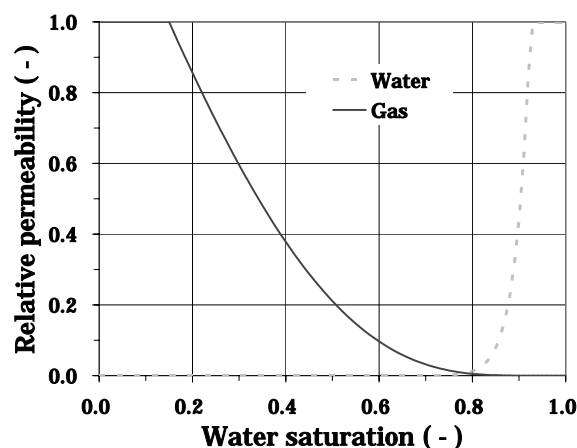


Fig. 19 Relative permeability curves for JIS mortar

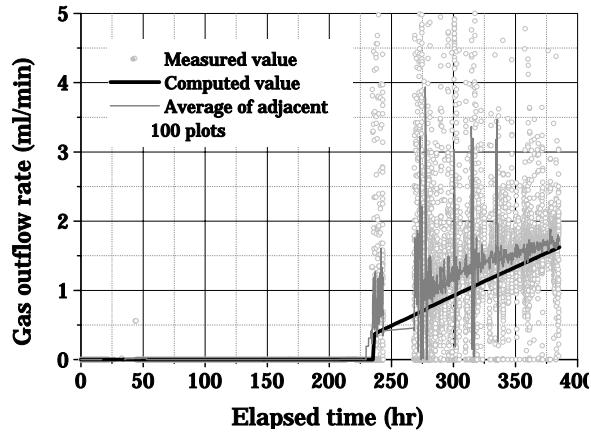


Fig. 20 Measured and simulated gas outflow rate for JIS mortar

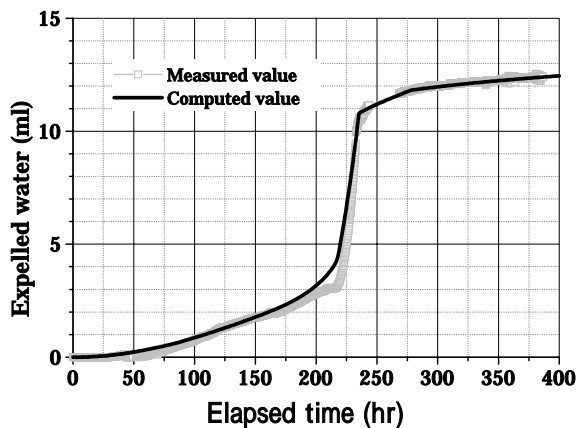


Fig. 21 Measured and simulated expelled volume of water for JIS mortar

クスの上昇幅についても試験結果（隣接 100 区間平均値）と解析値との差は 10% 程度であった。累積排水量についても、最終的な累積排水量、およびブレイクスルー時の急激な上昇の傾向のみでなく、ブレイクスルー前のガスによる間隙水の置換過程における排水量も、試験結果ときわめてよく一致し、試験結果に対して高い再現性を示した。

## (2)セメントペースト

Narasimhan モデルによる毛管圧力測定データのフィッティング結果とパラメータ設定値を Fig.22 ,Table 8 に示す。

繰返し計算によって設定された相対透過係数に対するパラメータを Table 9 に、相対透過係数と間隙水飽和度との関係を Fig.23 に示す。

シミュレーション結果をそれぞれ Fig.24 ,Fig.25 に示す。ガスの排出に対してはガス透過試験で観測されたブレイクスルー発生時期が、昇圧開始後 160 時間であるのに対して 155 時間ときわめて良く一致した。またブレイクスルー直後の昇圧過程のフラックスの上昇については実験値より大きい、その後の昇圧過程については良い一致を示した。累積排水量については、昇圧開始後 145 時間で観測された供試体へのガスの侵入について非常によく再現できている。ブレイクスルー時の昇圧段階における累積排出

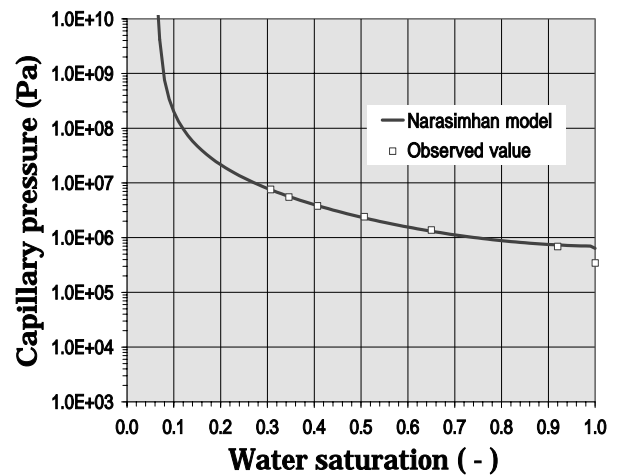


Fig. 22 Fit of gas-water capillary pressure curve for cement paste

Table 8 Capillary pressure model parameters for cement paste

$P_e$ (Pa)	$P_0$ (Pa)	$S_{lr}$ (-)	(-)
Capillary entry pressure	Model parameter	Residual water saturation	Pore radius distribution coefficient
$7.00 \times 10^5$	$1.35 \times 10^6$	0.065	0.65

Table 9 Model parameters of permeability for cement paste

$S_{lr}$ (-)	$S_{gr}$ (-)	m	n
Residual water saturation	Residual gas saturation	Pore radius distribution coefficient	
0.065	0.00	12.0	0.38

$K_w$ (m <sup>2</sup> )	$K_g$ (m <sup>2</sup> )
Intrinsic permeability (water)	Intrinsic permeability (gas)
$3.442 \times 10^{-17}$	$2.137 \times 10^{-16}$
Porosity (-)	
0.499	

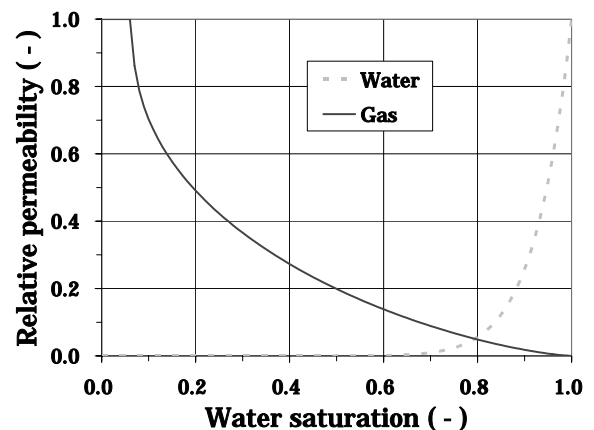


Fig. 23 Relative permeability curves for cement paste

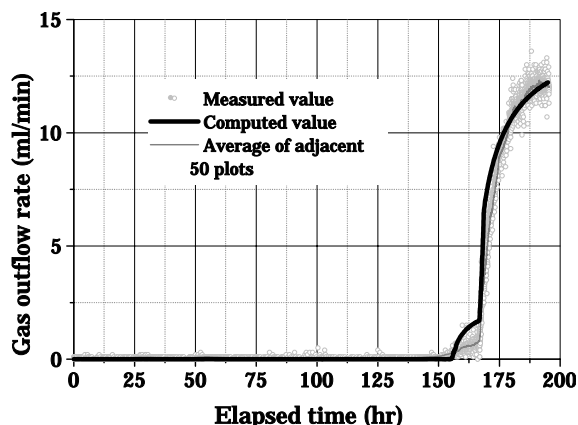


Fig. 24 Measured and simulated gas out flow rate for cement paste

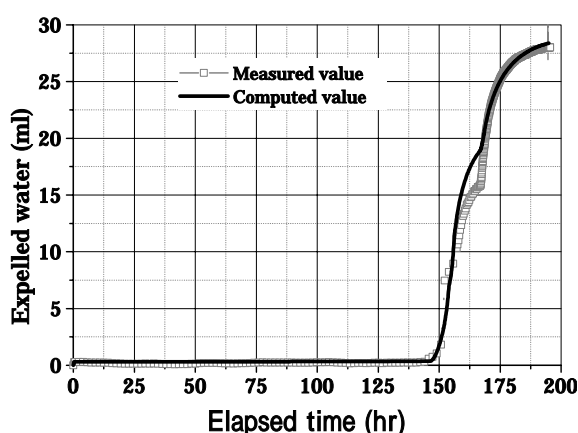


Fig. 25 Measured and simulated expelled volume of water for cement paste

水量は、実験値に比較して 20%程度大きいとその後の段階的昇圧過程における排出水量については、試験結果の 28.0ml に対して 28.4ml と算出され、良い一致を示した。

## 5 連続媒体 2 相流モデルの適用性

ベントナイト/ケイ砂混合体に対しては、粘土鉱物と水との間に生じる物理・化学的相互作用、卓越流路形成による移行挙動を、水・ガスの絶対透過係数に異なる値を設定する、残留間隙水飽和度 ( $S_{lr}$ ) を飽和近傍に設定して間隙水の排出を抑制する、毛管圧力特性に適切な毛管排除圧力 (Threshold 値) を設定する等の手法により、ブレイクスルー発生時期、ガスフラックスについて概略模擬は可能であり、連続媒体 2 相流モデルは中長期的水・ガスの移行評価に有効であることが確認された。一方、ブレイクスルー直後の過渡的現象、すなわち応力変化による体積あるいは間隙構造の変化に起因すると考えられる短期間の急激なガスフラックスの変動への追従性に対しては、連続媒体モデルあるいは REV (Representative Elementary Volume) 手法に固有の数値解法上の限界が存在すると考えられた。しかしながら、可塑性・膨潤性を有する粘土系材料に特有な、応

力条件の変動による透過性の変化に対応することができるようになれば、さらに短期的現象に対する追従性の向上が期待できると考えられる。

セメント系材料に対しては、間隙水およびガスの排出開始時期、排出速度の経時変化とともに、シミュレーション結果が試験結果に現れた挙動と基本的に一致したことから、水で飽和したセメント系材料内のガス透過現象は、連続媒体 2 相流モデルにより再現可能であることが確認された。ただし、セメント系材料の間隙構造については一般的な多孔質媒体との相違について不明な点があり、間隙径分布に複数の大きなピークが観察されるモルタルでは、明らかに複数のタイプの間隙によって構成されると考えられ、また、セメントペーストの間隙径分布は  $0.5 \mu\text{m}$  付近で急激に区分間隙率が上昇する特徴を持つ。これは各ピークに対応する累積間隙率近傍で透過特性が変化することを示唆するものであり、JIS モルタル試料では間隙水飽和度 1.0 から 0.98、および 0.92 付近とそれ以外の領域で、セメントペースト試料では間隙水飽和度 1.0 から 0.78 とそれ以降の領域で、それぞれ異なる関数形を設定することによりさらに高い再現性が得られることが期待できる。

## 6 結論

粘土系材料内のガス移行評価に対して、ベントナイト/ケイ砂混合体：重量比 (ベントナイト/ケイ砂) = (70/30 wt%) についてガス透過試験を行い、連続媒体 2 相流モデルによって粘土媒体中のガス移行現象をある程度の精度で再現可能であることを示したが、ブレイクスルー時の過渡的ガスフラックス変化、応力条件によるガス侵入圧力、透過係数の変化、一定の間隙ガス圧力以下での流路閉塞 (Shut-in 現象) 等、応力との連成問題に課題を残すことが明らかとなった。また、粘土系材料に対するガス透過試験は高圧下で長時間を要し、応力条件の制御、供試体状態の把握が困難なことから現時点においても試験点数自体が少ない。したがって、今後もケイ砂混合体に対しては、異なる応力条件、地下水化学条件下での長期挙動、Shut-in 現象、再冠水との組合せによる移行挙動の把握を目的とした長期のガス透過試験によるデータ取得が必要である。

粘土系材料内のガス移行については現象の理解が十分ではなく、mechanistic なモデルの開発も行われているが、すべての現象を再現するには至っていない。また、非連続媒体系のモデルは多次元化、アップスケーリング上の問題を抱えることから、フランス、スイス、スペイン等においても、現時点の性能評価では主に連続媒体 2 相流モデルによって粘土系材料内のガス移行解析を実施している。この状況は、再現性が高く、パラメータの取得・設定が容易、かつ処分システムの体系に適用可能なモデルの開発・実用化が図られるまで、少なくとも今後数年は変わらないであ

ろう。次世代モデルとしては、我が国から JNC が参加している GAMBIT Club プロジェクトにおいて、新規に提案された巨視的モデルについて応力場との連成モデルを開発しつつあり、成果が期待されるところである。しかしながら、ケイ砂配合率によって特性が大きく変動するケイ砂混合材への適用に対しては、ガス移行機構が卓越流路形成型と連続媒体 2 相流型が共存することによる排出水量の増加等に対する対応性を確認しなければならない。

水により飽和した状態からのセメント系材料内のガス透過現象については、JIS モルタル、セメントペーストについてガス透過試験を実施し、連続媒体 2 相流モデルにより再現可能であることが確認できた。また、モルタル、セメントペースト双方とも間隙径分布特性が強い不連続／非線形性を示すことから、本報告において透過係数と飽和度の関係に適用した Corey 変形モデルより、さらに非線形性の強い特性曲線を設定することによって、透過現象の再現性が向上する可能性があるものと考えられた。EU のガス影響に関する国際共同研究においても指摘されている [35] ように、飽和したセメント系材料のガス移行特性に対するデータは、未だ希少な状況にある。したがって、今後も長期の移行挙動の把握を目的としたより長期間の透過試験を行い、長期影響評価に対応するためのデータの充実とパラメータ設定値の信頼性の向上を図るとともに、亀裂内でのガス移行挙動の把握と適用モデルの検証について試験・研究を実施する必要がある。

## 参考文献

- [1] Molecke, M.A. : Gas generation from transuranic waste degradation: Data summary and interpretation. SAND79-1245, Sandia national laboratories (1979).
- [2] Hunter, T.O. edition : Summary of research and development activities in support of waste acceptance criterion for WIPP. SAND79-1305, Sandia national laboratories (1979).
- [3] Pusch, R. and Forsberg, T. : Gas migration through bentonite clay. SKB TR 83-71, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co. (1983).
- [4] Moreno, L. and Neretnieks, I. : Gas, water and contaminant transport from a final repository for reactor waste. Progress report SFR 85-09, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co. (1987).
- [5] Neretnieks, I. : Some aspects of the use of iron canisters in deep lying repositories for nuclear wastes. NTB 85-35, National Cooperative for the Disposal of Radioactive Waste (1985).
- [6] Pusch, R., Ranhagen, L. and Nilsson, K. : Gas migration through MX-80 bentonite. NTB 85-36, National Cooperative for the Disposal of Radioactive Waste (1985).
- [7] Wiborgh, M., Höglund, L.O. and Pers, K. : Gas formation in a L/ILW repository and gas transport in the host rock. NTB 85-17, National Cooperative for the Disposal of Radioactive Waste (1986).
- [8] Biddle, P., McGahan, D., Rees, J.H. and Rushbrook, P.E. : Gas Generation in Repositories. AERE R12291 UK Nirex Ltd.(1987).
- [9] Pruess, K. : Numerical modelling of gas migration at a potential repository for low- and intermediate-level nuclear wastes at Oberbuchenstock, Switzerland. NTB-89-28, National Cooperative for the Disposal of Radioactive Waste (1990).
- [10] OECD/NEA : Near-field assessment of repositories for low and intermediate level radioactive waste. OECD/NEA (1987).
- [11] 中居邦浩 : 浅地中処分におけるガス発生とその予備的影響評価, 平成 7 年度「放射性廃棄物管理専門研究会」報告書(東邦夫, 下浦一邦 編), 京都大学原子炉実験所, 平成 7 年 11 月 27-28 日, KURRI-TR-414, pp.11-31(1995).
- [12] 共同作業チーム : TRU 廃棄物処分概念検討書. JNC TY1400 2000-001, TRU TR-2000-01, 核燃料サイクル開発機構, 電気事業連合会 (2000).
- [13] 棚井憲治, 佐藤治夫, 村上文啓, 井上雅弘 : 地層処分場におけるガスの拡散・移行に関する検討, JNC TN8400 99-045, 核燃料サイクル開発機構 (1999).
- [14] Rodwell, W. R. and Norris, S. : A thematic network on gas issue in safety assessment of deep repositories for radioactive waste. (GASNET), ERU 20620 EN, European Commission (2003).
- [15] Horseman, S. T. and Harrington J. F., : Study of gas migration in Mx80 buffer bentonite, British Geological Survey Natural Environment Research Council, NERC BGS Internal Report WE/97/7 to SKB (1997).
- [16] Yamamoto, M., Murakami, T., Kuchimura, K., Mori, R., Shoji, Y. and Mihara, M., : Gas migration properties of engineered barriers : gas injection test of compacted sand bentonite mixture and two phase flow simulation. *The 7<sup>th</sup> International Conference, Proceedings on Radioactive Waste Management and Environment Remediation*, ICEM'99, Nagoya, Japan, September 26-30 (1999).
- [17] Pruess, K. : TOUGH2 - A General- purpose numerical simulator for multiphase fluid and heat flow, LBL20700 Lawrence Berkeley National Laboratory (1991).
- [18] 棚井賢治, Galle, C., 菅野毅 : 圧縮ベントナイトの水素ガス移行特性評価. PNC TN8410 96-289, 動力炉・核燃料開発事業団 (1996).
- [19] Villar, M. V. and Lloret, A. : Variation of the intrinsic permeability of expansive clays upon saturation. *Clay Science for Engineering* (Adachi, K. and Fukue, M. Edit.), *Proceedings of the International Symposium on Suction, Swelling, Permeability and Structure of Clays - IS-Shizuoka 2001* Shizuoka Japan 11-13 January (2001).
- [20] 佐藤立, 溝渕麻子, 廣田謙, 藤原愛 : キャパリ-バントル



- モデルによる透気試験のシミュレーション, 日本原子力学会 2001 秋の大会, 北海道大学, 9 月 19 ~ 21 日, O7 (2001).
- [21] Iriya, K., Hironaga, M. and Kawanishi, M. : Gas transportation in saturated cementitious materials. *Scientific Basis for Nuclear Waste Management XVIII (Mater. Res. Soc. Symp. Proc. Vol. 353)* (Murakami, T. and Ewing, R. C. edit.) Part 2, Kyoto Japan, October 23-27, 1994, pp913-920 (1995).
- [22] Jacobs, F. and Wittmann, F. H. : Long term behavior of concrete in nuclear waste repositories. *Nuc. Eng. and Design* 138 (2) pp.157-164 (1992).
- [23] Harris, A. W., Atkinson, A. and Claisse, P. A. : Transport of gases through concrete barriers Task 3 Characterization of radioactive waste forms. EUE 14194 EN, Commission of the European Communities (1993).
- [24] Jacobs, F., Mayer, G., and Wittmann, F. H. : Permeability of backfill materials. Corrosion and gas generation in radioactive waste repositories, (Wittmann, F. H. edit.), *Proceedings of Post-Conference Seminar No. 10 of 12<sup>th</sup> International Conference on Structural Mechanics in Reactor Technology SMiRT-12 Stuttgart, August 15-20, 1993*, Aedification Publishers, pp.83-99 (1994).
- [25] Mayer, G., Moetsch, H. A. and Wittmann, F. H. : Large-scale experiment for water and gas transport in cementitious backfill materials. NTB 98-03, National Cooperative for the Disposal of Radioactive Waste (1998)
- [26] Mayer, G., Jacobs, F. and Wittmann, F. H. : Experimental determination and numerical simulation of the permeability of cementitious materials. *Nuc. Eng. and Design* 138 (2) pp.171-177 (1992).
- [27] Corey, A. T. : The interrelation between gas and oil relative permeabilities. *Producers Monthly*, vol.19, pp38-41 (1954)
- [28] Narasimhan, T. N., Witherspoon, P. A. and Edwards, A. L. : Numerical model for Saturated-Unsaturated Flow in Deformable Porous Media”, Part 2: The algorithm. *Water Resources Research*, vol.14 (2), pp255-261 (1978).
- [29] 千々松正和, 谷口航 : 熱水 応力連成モデルを用いたニアフィールド解析評価 . JNC TN8400 00-014 , 核燃料サイクル開発機構(1999).
- [30] Volckaert, G., Ortiz, L., De Canniere, P., Put, M., Horseman, S. T., Harrington, J. F., Fioravante, V. and Impey, M. : MEGAS : Modelling and experiments on gas migration in repository host rocks Phase-I Final Report. EUR 16235 EN, European Commission (1995).
- [31] Taylor, H. F. W. : *Cement Chemistry*. Academic Press, London (1990).
- [32] 財団法人 原子力環境整備センター : 放射性廃棄物処分高度化システム確証試験 報告書 平成 8 年度 (1997).
- [33] 山口徹治, 磯部博志, 中山真一 : 花崗岩内の微小間隙構造の解析 , 放射性廃棄物研究 . vol.3, No.2 99-107 (1997).
- [34] Harris, A. W., Atkinson, A and Claisse, P. A. : Transport of gases in concrete barriers. *Waste Management*, vol.12, pp.155-178 (1992).
- [35] Rodwell, W. R., Harris, A.W., Horseman, S. T., Lalieux, P., Müller, W., Ortiz Amaya, L. and Pruess, K.: Gas migration and two-phase flow through engineered and geological barriers for a deep repository for radioactive waste. A Joint EC/NEA States Report, EUR-19122 EN, European Commission (1999).

