

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 5 月 1 日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2010～2012

課題番号：22656210

研究課題名（和文）不飽和帯の非線形ダイナミクスに基づく放射性廃棄物処分場の最大限の活用

研究課題名（英文）Maximum use of the radioactive waste disposal system based on the non-linear dynamics of unsaturated zone

研究代表者

新堀 雄一 (NIIBORI YUICHI)

東北大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：90180562

研究成果の概要（和文）：処分場の管理期間(約百年)における通気は不飽和帯（地下水により飽和していない領域）を形成する。本研究では、より精緻な廃棄体間隔の提示を目的として、不飽和帯の再冠水過程を流動系および閉鎖系において追跡し、固相を伴う系における気液間の物質移動係数を Ranz-Marshall の式により整理できることを示すと同時に、物質移動係数および処分場周囲の流路分布を考慮した廃棄体定置間隔評価モデルの基礎を提示した。

研究成果の概要（英文）：The over-all mass transfer coefficients between liquid phase and gas phase in the presence of solid phase were evaluated in order to propose a more reliable space use for the geological disposal system of radioactive wastes. These mass transfer coefficients were consistent with Ranz-Marshall formula, describing the dynamic behavior of dissolved gases.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010 年度	1,700,000	0	1,700,000
2011 年度	800,000	240,000	1,040,000
2012 年度	600,000	180,000	780,000
年度			
年度			
総計	3,100,000	420,000	3,520,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：総合工学・原子力学

キーワード：原子力エネルギー、バックエンド、処分システム、放射性廃棄物、不飽和帯、再冠水、非線形ダイナミクス、溶存速度

1. 研究開始当初の背景

放射性廃棄物の地層処分システムにおける廃棄体（ガラス固化体）の定置間隔は、地下水が飽和されていることを前提に、廃棄体周囲の温度が 100℃に達しないように設計される。その背景は、人工バリアの主となるベントナイトのイライト化（カリウムイオンによる変質）を加速させないことにある。一方、処分場は 100 年に亘る管理期間において通気がなされ、地下水面下においても地下水により飽和していない領域（不飽和帯）が形成される。その場合、不飽和帯の気相は処分場の

閉鎖後において逃げ場を失い、処分場への地下水の流入を抑えることに繋がる。このことは、ベントナイトの変質を進めるカリウムイオン自体の供給も制限されることを意味する。したがって、処分場の再冠水までの時間および廃棄体の発熱量の減衰を考慮した廃棄体の定置間隔の設計によって、限られた面積の処分場を更に有効に活用できる可能性がある。

2. 研究の目的

前述のような逃げ場を失った気相の再冠

水過程は、主に液相への気相の溶存過程に支配される。そこで、本研究では、精緻な廃棄体間隔を提示することを目的として、固相を伴う系において液相への気相の溶存速度を求め、その値から液相に溶存する際の気相の総括物質移動係数を評価する。また、それらを用いて、複雑な間隙における再冠水を表すモデルの基礎を構築する。

3. 研究の方法

(1) 充填層を用いた流動系による気液界面の総括物質移動係数の評価

本実験では地層内の流路を模擬するために充填層を用いた。ここで充填粒子はケイ砂(粒径 0.5 mm, 0.25 mm)およびガラス粒子(粒径 1.0 mm, 0.5 mm, 0.1mm)である。実験の手順は、まず、気相として二酸化炭素を用いて流動系に封入し、入口と出口に各々オーバーフローを設置することにより所定水頭のもとに蒸留水を連続的に注入した。そして、所定時間毎の出口流量から浸透性の変化を把握し、また、出口の pH の変化から炭酸の解離を考慮して気相の溶存速度を定量化した。

(2) 閉鎖系による気液界面の総括物質移動係数の評価

(1)の充填層に加え、亀裂を模擬するためにマイクロフローセルを用いて、流路の片側を閉鎖した系により気液界面の進行を追跡した。図 1 にマイクロフローセルの概念図を示す。マイクロフローセルは、岩石試料の上に予め所定の大きさのスリットを入れた合成ゴムシートを置き、数 mm 程度の亀裂幅の流路を再現するものである。上面はシリコンフィルム(0.2 mm 厚)によって覆い、上面から気液界面の進行を追跡する。花崗岩は鏡面研磨したものと同非研磨のものを用意した。図 2 にそれぞれの試料の表面を原子間力顕微鏡により観察した結果を示す。鏡面研磨試料の表面は明らかに滑らかであることが確認できる。実験では、流路の出口側を閉鎖して、入口に 10 cm の水頭圧を掛け、予め亀裂内に封入した気相(二酸化炭素)と脱気した純水を接触させた。そして、液相への気相の溶存に従って進行する気液界面の位置を上面から測定し、固相を伴う場合の気相の液相への溶存速度および気液界面における総括物質移動係数を評価した。

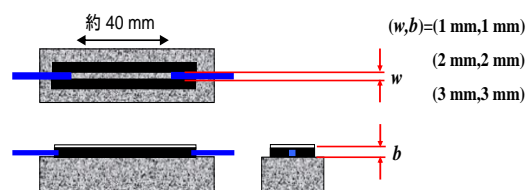


図 1 マイクロフローセルの概念図

また、マイクロフローセルを用いて亀裂幅(図 1 の w および b の組み合わせ)を変更することより気液界面における総括物質移動係数に及ぼす固相表面の影響も調べた。

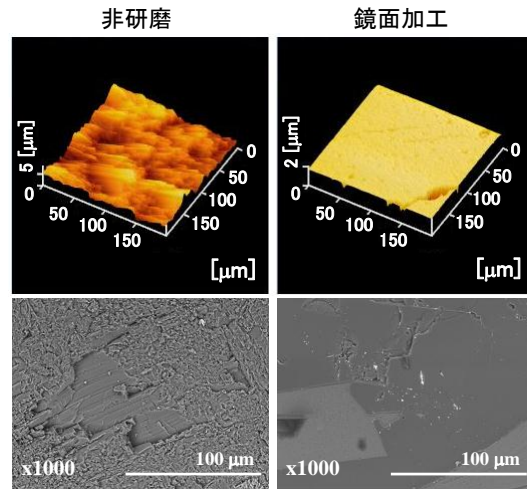


図 2 原子間力顕微鏡による花崗岩試料の表面(左図、非研磨表面、右図、研磨表面)

(3) 酸素を用いた閉鎖系における気液界面の総括物質移動係数の評価

(1)および(2)では気相として二酸化炭素を用いていたが、ここでは酸素を用いて(2)に述べた閉鎖系の充填層およびマイクロフローセルにより、固相共存下における気液界面の総括物質移動係数を評価した。そして、(1)および(2)において求めた総括物質移動係数と比較し、見かけの溶存速度が、液相内の物質移動に律束され、ほぼ統一的に表せる可能性に言及した。また、これら溶存過程と気液界面の移動をモデル化し、廃棄体定置間隔を評価する上での基礎を構築する。

4. 研究成果

(1) 流動系による気液界面の総括物質移動係数の評価

図 3 に充填層を用いた際の浸透率の変化および出口における pH の変化の一例(ケイ砂 ϕ 0.5 mm 充填)を示す。浸透率はその最終的な値により無次元化されている。浸透率は速やかに上昇し、ほぼ一定になっていることが分かる。しかしながら、1 時間経過した後も気相が充填層内に残留していることが確認できた。これは、不飽和帯において比較的流れやすい水路が充填層全体にわたって形成されていることを意味する。一方、pH は変動し、初期における pH の低下は、二酸化炭素の溶存によるものであり、その後の回復は、二酸化炭素の溶存の一方で供給される蒸留水による希釈の効果が現れたためである。したがって、本実験では、浸透率が回復した時点で気液界面が安定化したと仮定し、その際の pH

の低下（図面の矢印の pH 変化）から炭酸の解離を補正して気相の溶存速度および気液界面の総括物質移動係数を求めた。その結果、いずれの流動系の場合も総括物質移動係数は $1.0 \times 10^{-6} \text{ m/s} \sim 1.0 \times 10^{-5} \text{ m/s}$ の範囲にあった。一方、固相のない攪拌された系においては $1.0 \times 10^{-3} \text{ m/s}$ であった。これらの違いは、固相による液相の混合の抑制、固相の不均一性に伴う気液界面の形成の違いに依るものであり、それらが再冠水期間に大きく影響することを示唆した。

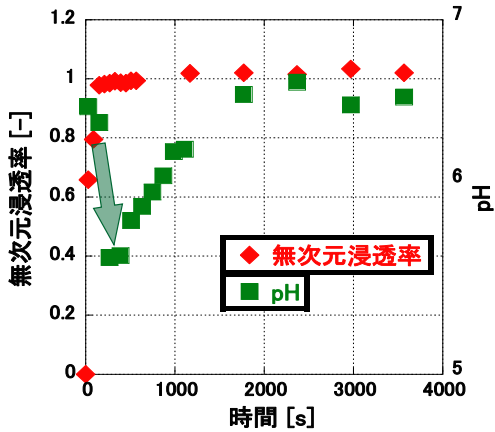


図3 充填層の浸透率および出口での pH の経時変化(ケイ砂 $\phi 0.5 \text{ mm}$ の充填層の場合)

(2)閉鎖系における気液界面の総括物質移動係数の評価

図4に充填層における気液界面の形成を示す。ここでケイ砂を用いた場合には、毛管力によって気液界面は複雑になる一方、ガラス粒子の充填層ではほぼ一様であることが分かる(図4右側の青いライン参照)。これは、粒子の持つ粒度分布に起因する。すなわち、ケイ砂の方の粒度が多様であり、毛管作用が生じ易い。

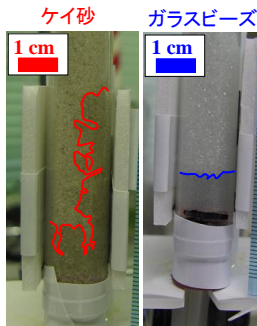


図4 閉鎖系充填層における気液界面の様子

図5に各充填層における気液界面の進行状況を示す。ここで縦軸は充填層の長さにより無次元化した際の気液界面の位置を示している。ケイ砂の場合は、気液界面の上端の移動挙動を示している。この図より、ケイ砂の

方の気液界面の進行速度が、ガラス粒子充填層に比べて大きいことが分かる。但し、前者の方が、気液界面の面積が大きいことから、その後者との違いを考慮して、溶存速度を評価した。

一方、図6にマイクロフローセルを用いた場合の気液界面の進行挙動を示す。ここでは、非研磨試料および研磨試料と、図1に示したスリットの幅 w と高さ b との組み合わせによる違いを示している。たとえば、非研磨 1 mm は $w=b=1 \text{ mm}$ を意味しており、 $w=b$ とすることにより、単位亀裂体積当たりの気液界面の断面積を等しくしている。図6に示すように非研磨試料の方が気液界面の進行速度が大きい。また、 $w=b=1 \text{ mm}$ の方が、他に比較して花崗岩表面への濡れによる気液界面の変形が大きく、見かけ上の溶存速度が大きくなる。

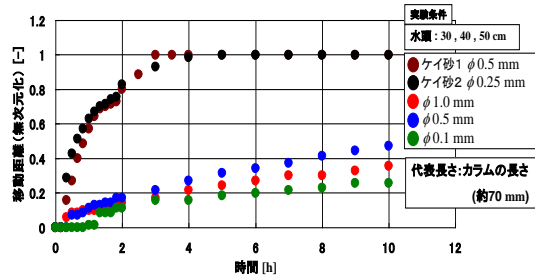


図5 各充填層における気液界面の進展挙動

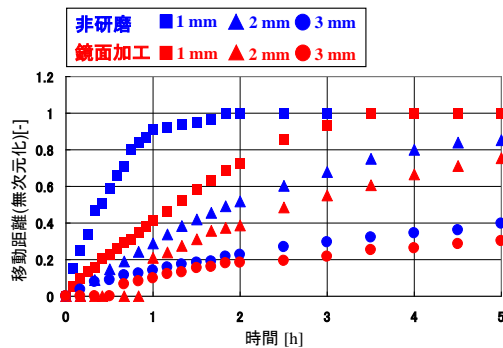


図6 マイクロフローセルによる気液界面の進行挙動

これらの結果より、気液界面の変形を考慮して、単位気液面積あたりの溶存速度を求め、閉鎖系における総括物質移動係数を評価した。その結果、充填層において、気液界面の形状は充填粒子によって異なるものの、総括物質移動係数の値は、ケイ砂を用いた場合、 $2.0 \times 10^{-6} \text{ m/s} \sim 8.0 \times 10^{-6} \text{ m/s}$ にあり、ガラス粒子の場合にほぼ一致した。また、マイクロフローセルの場合も総括物質移動係数も上述の値とほぼ同様となった。これらの値は、(1)の流動系の実験結果($1.0 \times 10^{-6} \text{ m/s} \sim 1.0 \times 10^{-5} \text{ m/s}$)と一致する。

また、マイクロフローセルの亀裂幅を変更

した結果、総括物質移動係数の値に及ぼす亀裂幅の影響は小さいことから、岩石の表面の影響は気液界面の変形は大きいものの、その変形に伴う気液界面の面積の違いを考慮することであれば、総括物質移動係数の値はほぼ同程度の値となることが明らかになった。

さらに、これらの気液界面の進行を気液界面の物質移動および溶存ガス成分の液相内の拡散過程を考慮した1次元の簡便な数学モデルを作成し、実験値との比較を行った。図7にその数学モデルの概念図を示す。気液界面には液相側と気相側の各々に境膜抵抗を仮定し、気相が液相に溶存することにより気液界面が図においては右方向に移動する。また、液相中の溶存ガスの拡散では、炭酸の解離を考慮した。ここでのパラメータは総括物質移動係数と液相内の溶存ガス成分の拡散係数となる。

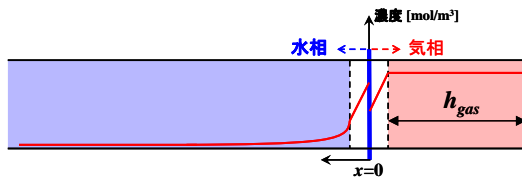
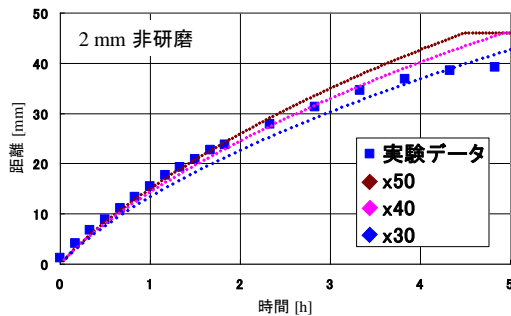


図7 気液界面の進行を表わす数学モデルの概要(1次元)

マイクロモックアップ法の実験結果



カラム溶存実験の実験結果

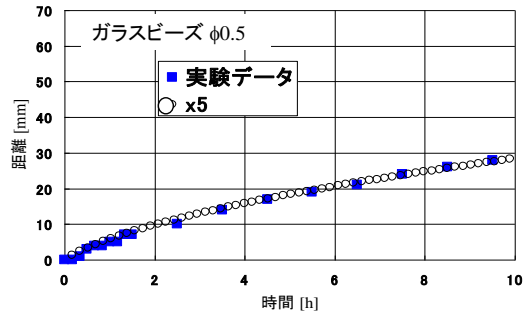


図8 気液界面の進行挙動と数学モデルとの比較

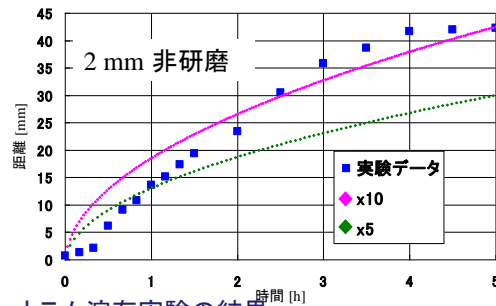
図8に実験値と計算値との比較を示す。ここでマイクロモックアップ法とはマイクロフローセルを用いた場合であり、また、カラムと記載されているものが充填層の結果を

示している。ここで、縦軸は気液界面の進行した距離であり、横軸は経過時間である。また、図中の、例えば、x50は、既知の等モル分子拡散係数を50倍した計算値である。等モル分子拡散係数に比較して実験値は大きい拡散係数を持つ理由は、固相の存在による気液界面の変形等が挙げられ、計算値は実験の傾向をおおよそ表わすことができる。また、この解析によって得られた総括物質移動係数は、後述(3)の結果と併せて示す。

(3) 酸素を用いた閉鎖系における気液界面の総括物質移動係数の評価

ここでは、気相として酸素を用いて、充填層およびマイクロモックフローセルにより(1)および(2)と同様に気液界面の進行を追跡した。図9に前述(2)における数学モデルと実験値との比較の一例を示す。図の見方は図8と同様である。マイクロモックアップ法(マイクロフローセル利用)の場合の初期を除いて、数学モデルはおおよそ実験値を表わすことができる。

マイクロモックアップ法の結果



カラム溶存実験の結果

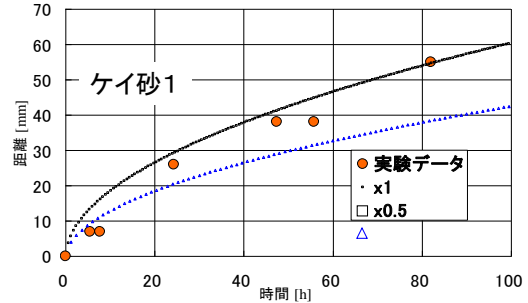


図9 酸素を用いた場合の実験値と数学モデルとの比較

図10は(2)と(3)において得られた総括物質移動係数を示したものである。ここでバブリングとは、固相のない攪拌状態において求めた総括物質移動係数である。実験系によって値は異なるものの、気相として二酸化炭素を用いた場合も酸素を用いた場合もほぼ同様の傾向を示すことが分かる。総括物質移動係数に含まれるヘンリー定数は、酸素の方が二酸化炭素に比較して20倍大きい。一方、二

酸化炭素には炭酸の解離により見かけ上早く気液界面は進行する。これらの違いは数学モデルにより考慮されている。したがって、それでもなお総括物質移動係数がおおよそ等しい値になるのは、液相の物質移動が溶存過程を律速していることを示唆する。このことはバブリングの結果より固相存在下において得られた総括物質移動係数が明らかに小さいことに調和する。

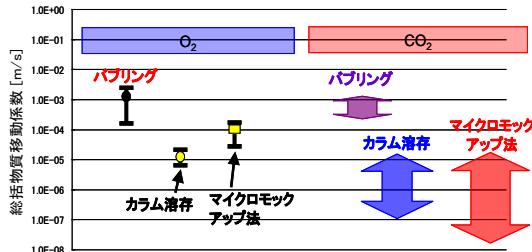


図 10 各気相による総括物質移動係数

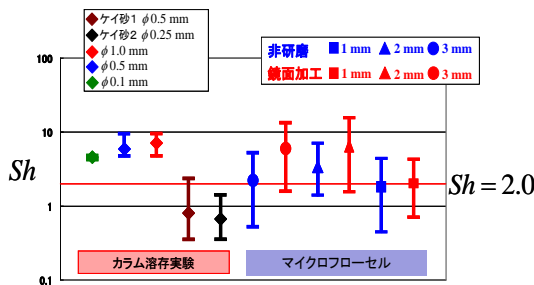


図 11 総括物質移動係数の Ranz-Marshall の式による整理

図 11 は得られた総括物質移動係数を Ranz-Marshall の式(物質移動係数と流動との関係を表す式)により整理したものである。ここでシャーウッド数 Sh は

$$Sh = K_L x_1 / D \approx x_1 / \delta \quad (1)$$

と表される。ここで δ は液相の境膜の厚さ(m)、そして x_1 は初期の気相長さ(m)である。一般にシャーウッド数 Sh は Ranz-Marshall の式に従う。すなわち、

$$Sh = 2.0 + 0.6 Re^{1/2} Sc^{1/3} \quad (2)$$

このうち、 Re はレイノルズ数、 Sc はシュミット数であり、

$$Re = \frac{\rho v d}{\mu}, \quad Sc = \frac{\mu}{\rho D} \quad (3)$$

と定義される。ここで ρ は密度(kg/m^3)、 v は流体の速度(m/s)、 d は流路幅(m)、 μ は粘性係数(Pa·s)である。本研究の実験では、マイクロモックアップ法でも、充填層を用いた場合で

もレイノルズ数は 0 とみなせる。その場合、シャーウッド数 Sh の値は

$$Sh = 2.0 \quad (4)$$

と推算できる。

図 11 に示すように、得られた総括物質移動係数に基づくシャーウッド数は (4)式と同様にほぼ 2.0 の値になる。この傾向は二酸化炭素でも酸素でも大きな違いがない。

以上の結果より、液相における溶存ガスの物質移動が溶存過程の律速となることが確認された。溶存過程における固相の働きは、主に液相の混合を抑えることにあると言える。また、本研究において提示した気液界面の移動と液相内における溶存ガスの拡散過程を考慮した数学モデルは、実験値をおおよそ再現することができた。これらに加え、岩石表面の微小起伏を、水酸化カルシウム溶液を連続的に流した際の析出物の形状から評価し、前述のモデルに反映した。これらにより、実際に存在する流路分布と気相溶存過程との双方を考慮した廃棄体定置間隔の評価モデルの基礎を確立することができた。

今後、不飽和帯における水の飽和率(単位間隙体積あたりの水相の体積)の不均一性およびそこに伴う気液界面の比面積の空間分布を、溶存ガス成分の拡散と移流過程に連成させることが課題となる。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 2 件)

- ① Taiki Yoshii, Yuichi Niibori, and Hitoshi Mimura, Some Fundamental Experiments on Apparent Dissolution Rate of Gas Phase in the Groundwater Recovery Processes of the Geological Disposal System, Proceedings of WM2012 (HLW, TRU, LLW/ILW, Mixed, Hazardous Wastes & Environmental Management), 査読有, Paper No. 12146, 2012, 1-9
- ② YUICHI NIIBORI, JOONHONG AHN, and HITOSHI MIMURA, UNCERTAINTY OF RELATIVE PERMEABILITY TO DESCRIBE TWO-PHASE FLOW IN GEOLOGICAL DISPOSAL SYSTEM, NUCLEAR TECHNOLOGY, 査読有, **175**, 2011, 641-651

[学会発表] (計 6 件)

- ① 倉田大輝、新堀雄一、三村 均、地層処分場周辺における二次鉱物析出に伴う核種閉じ込めバリアの形成、日本原子力学会東北支部研究交流会、2012年12月07日

仙台

- ② 倉田大輝、新堀雄一、三村 均、マイクロフローセルを用いた地層処分場周辺の高アルカリ化に伴う浸透性の評価、日本原子力学会、2012年9月21日、広島
- ③ 吉居大樹、新堀雄一、三村 均、放射性廃棄物処分場の再冠水過程における気相の溶存過程に関する基礎的研究、日本原子力学会、2012年3月20日、福井
- ④ 吉居大樹、新堀雄一、三村 均、マイクロモックアップ法による不飽和帯における気相溶存速度の評価、日本原子力学会、2011年3月11日 (CD-ROM公表)、東京
- ⑤ 吉居大樹、新堀雄一、三村 均、放射性廃棄物処分場における不均一性と再冠水過程との関係、日本原子力学会東北支部研究交流会、2010年12月3日、仙台
- ⑥ 吉居大樹、新堀雄一、三村 均、処分システムの再冠水過程におけるみかけの気相溶存速度に関する実験的考察、日本原子力学会、2010年9月17日、札幌

[その他]

ホームページ等

<http://db.tohoku.ac.jp/whois/view?l=ja&u=a0f21740a16e2fd1eeab1f9ef0b882de&c=0>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

新堀 雄一 (NIIBORI YUICHI)
東北大学・大学院工学研究科・教授
研究者番号：90180562

(2) 研究分担者

()

研究者番号

(3) 連携研究者

()

研究者番号