

学 位 論 文 題 名

A Proposed Thermistor Technique for Measurement  
of Thermal Conductivity of Buffer Materials  
and Evaluation of Available Correlations

(サーミスタを用いた緩衝材の熱伝導率測定法の開発と  
熱伝導率推算式の評価)

学位論文内容の要旨

高レベルガラス固化体の深地層への処分では、ガラス固化体をオーバパックと呼ばれる鉄やチタンなどの厚い容器に入れ、その周りを水の浸透しにくい緩衝材(ベントナイトやベントナイトと珪砂などの混合材)で囲み、安定した地層に埋設される。埋設された高レベルガラス固化体のその後の腐食の進行や温度および周りの水分挙動を知るには、緩衝材についての種々の条件で各種の物性値を知る必要がある。本論文は、緩衝材の各種物性値の中の熱伝導率について、1. 簡便な測定法の開発、2. 測定値の集積および 3. 推算式の評価に関する研究である。

緩衝材の熱伝導率は、従来、オンサイトでの測定が容易なことも含め、主として線熱源法により測定されてきた。線熱源法では、熱源の線状ヒータと温度センサーである熱電対を、一本の金属製の細管に入れてプローブとする。試料に設けた深い孔にこのプローブを挿入して温度を測定する際、試料とプローブとの熱的接触を良好にする必要がある。加えて、プローブを幾何学的な線と近似するため、実際の測定では、大きな試料により長時間の測定が必要となる。また、温度センサーとして用いる熱電対の温度変化による起電力が小さく、通常は 5K から 10K の温度上昇が必要である。温度上昇が大きく、かつ長時間の測定を要するため、湿った試料の測定では測定中に水分移動の心配もある。また、ベントナイトやベントナイトと珪砂の混合材の密度、水分含有率および珪砂の混合率について、系統的に変えて得た測定値は充分とは言えない。このため、緩衝材の熱伝導率の特性が十分明らかになっていない上に、熱伝導率の推算式の評価も十分ではない。

本論文は、全 6 章より構成されている。各章の要旨は以下の通りである。

1 章は序論であり、本研究の必要性和各章の概要、2 章では、既存の測定法の紹介とそれぞれの測定法の緩衝材の測定における適性を述べた。

3 章では、緩衝材の熱伝導率を簡便に測定できる方法として、サーミスタを熱源および温度センサーとする測定法を採用した。従来のサーミスタを用いた測定法では、リード線

を無視した球状モデルの解析解を用いて熱伝導率を決定していた。しかし、熱伝導モデルが実際のサーミスタの形状や構造と異なることや、リード線の存在を無視するため、較正に用いる2種類の標準物質に近い熱伝導率の試料以外では、測定精度が悪いなどの欠点があった。

本研究では、サーミスタおよびリード線を含む緩衝材の熱伝導モデルを数値計算して得たサーミスタの温度と測定温度を比較することにより、熱伝導率を決定する方法を採用した。本測定法においてもサーミスタ各部の精度よい寸法や熱物性値のデータが得られないため、標準物質による較正が必要であるが、誤差評価が平行に行える等の長所がある。

サーミスタの構造は3次元であるが、計算時間の短縮のため2次元近似し、サーミスタをステップ状に加熱した場合のサーミスタ温度の時間履歴を計算し、測定温度と最小誤差となる値を求めて試料の熱伝導率とする。この方法によって、通常の液体から水銀までの広い熱伝導率の範囲で、およそ1.4%以内の誤差で測定できる測定法を開発した。

4章では、3章の測定法を用いて、ベントナイト(Kunigel VI)およびベントナイトと珪砂の混合した緩衝材の熱伝導率を測定した。従来の線熱源法などによる熱伝導率の測定にはバラツキが大きい測定値も含まれており、本測定では、緩衝材の密度や水分含有率を系統的に変えて測定値を得た。

5章では、既存の測定値と4章の測定値を用いて、既存の熱伝導率推算式の評価を行った。ベントナイトの推算式として、Kahr と Muller、Knutsson、Kiyohashi と Banno および坂下と熊田の報告がある。これらの式と既存および本測定値と比較して、本測定値はいずれの推算式を用いても良い精度で予測されることが分かった。また、各推算式の差は小さく、高い相関性があることを示した。

ベントナイトと珪砂の混合材については、珪砂を分散体、ベントナイトを連続媒質とする分散物質と見なして、既存の分散物質に関する推算式である Maxwell、Bruggeman、Fricke、Johnson および Yamada et al.の式と比較した。その結果、Fricke および Bruggeman の式を用いることにより、実用上十分な精度で熱伝導率を推算できることを明らかにした。

6章は、3, 4, 5章のまとめである。

# 学位論文審査の要旨

主 査 教 授 杉 山 憲一郎  
副 査 教 授 佐 藤 正 知  
副 査 教 授 工 藤 一 彦  
副 査 教 授 池 川 昌 弘

学 位 論 文 題 名

## A Proposed Thermistor Technique for Measurement of Thermal Conductivity of Buffer Materials and Evaluation of Available Correlations

(サーミスタを用いた緩衝材の熱伝導率測定法の開発と  
熱伝導率推算式の評価)

現在、原子力発電によって発生する高レベル放射性物質をガラス固化体として、深地層処分する計画が進められている。この計画では、ガラス固化体はオーバーパックと呼ばれる容器に入れられ、その周囲に緩衝材であるベントナイトやベントナイトと珪砂の混合材を充填して埋設される。地下水で飽和したベントナイトは 100℃以上の温度になると徐々に変質して放射性物質の封じ込め機能が低下する。このため、処分後の長期の安全評価上、緩衝材の熱伝導率の値は重要である。

従来、緩衝材の熱伝導率は、オンサイトでも使用可能な非定常線熱源法によって測定されている場合が多い。この方法では熱源である線状ヒータと温度センサーである熱電対を 1本の金属管に挿入してプローブとする。従来の純解析的な手法ではプローブを線と見なせる幾何学形状で測定が行われるため、実験室系では大きな体積のサンプルが必要であり、測定に時間を要した。

本論文では、数値解析を導入し、緩衝材の熱伝導率を小体積のサンプルにより短時間で測定する方法を提案し、精度の高い測定値を得て既存の熱伝導率推算式と比較を行っている。具体的には測定法に小体積での測定が可能である非定常点熱源法を採用し、熱源には温度センサーでもあるサーミスタを用いている。従来のサーミスタを用いた解析的な点熱源法では、リード線部が無視でき、小球と見なせる大きさの幾何学形状での測定が必要であるが、本論文の方法では、数値解析を導入することにより、センサーの形状効果およびリード線効果が現れない最小幾何学形状での測定が可能である。また、幾何学形状を最小にできることにより、ベントナイトと珪砂の混合材の不均質性を減少させることができ、短時間にばらつきの少ない測定値の取得が可能である。

本論文の成果は、次の点に要約できる。

1. サーマスタの3次元構造を計算時間短縮のため2次元構造に近似して、測定温度との誤差が最小となる時間領域での数値解より、熱伝導率を求める方法を開発した。その結果、浮力の効果が混入しやすい液体の熱伝導率を約 1.6%以内の誤差で測定できることを明らかにした。
2. 本論文のベントナイトの測定値は、Kiyohashi と Banno の熱伝導率推算式の低熱伝導率領域を除き、既存の熱伝導率推算式と良い一致を示すことを明らかにした。
3. 本論文のベントナイトと珪砂の混合材の測定値は、珪砂を分散物質、ベントナイトを連続媒質と見なせば、既存の分散物質の熱伝導率の式である Fricke の式および Bruggeman の式と良い一致を示すことを明らかにした。すなわち、これらの式により混合材の熱伝導率を推算できることを示した。

これを要するに、著者は数値解析を導入した非定常点熱源法による熱伝導率測定法を開発し、実用上重要なベントナイトおよびベントナイトと珪砂の混合体の熱伝導率の値を高精度で測定すると共に、利用可能な熱伝導率推算式を明らかにしたものであり、原子力工学に貢献するところ大なるものがある。

よって著者は、北海道大学博士（工学）の学位を授与される資格あるものと認める。