

# 塩水環境下における圧縮ベントナイト膨潤挙動 のその場観測と膨潤性，透水性評価

鈴木 寛<sup>1\*</sup>・高尾肇<sup>2</sup>・竹ヶ原竜大<sup>2</sup>・中島善人<sup>3</sup>・萩沼真之<sup>1</sup>・鈴木和則<sup>1</sup>

<sup>1</sup>財団法人 産業創造研究所（〒277-0861 千葉県柏市高田1201）

<sup>2</sup>日揮株式会社（〒220-6001 横浜市西区みなとみらい2-3-1）

<sup>3</sup>独立行政法人 産業技術総合研究所（〒305-8567 つくば市東1-1-1 中央第7）

\*E-mail: kakusuzuki@iri.or.jp

緩衝材の定置法の1つであるブロック施工法に着目し，あらかじめ所定寸法の隙間が生じるように圧縮成型したベントナイト（乾燥密度 $1.8 \text{ Mg/m}^3$ ，供試体寸法の10%の隙間に相当）を，人工海水中で膨潤させ，施工時に発生する隙間の閉塞性について，X線CT装置を用いて緩衝材膨潤過程を調べた．発生圧力は圧縮成型時の乾燥密度が高いほど減少し，特にケイ砂混合率が高くなると顕著であった．隙間充填部の乾燥密度は低いところで $1.3 \text{ Mg/m}^3$ 程度であった．乾燥密度と透水係数の関係より，供試体内の透水係数の分布を推算したところ，最も乾燥密度が低いところで $10^{-10} \text{ m/s}$ のオーダーであった．

**Key Words :** bentonite, gap, swelling, permeability, X-ray CT imaging

## 1. はじめに

日本では資源の有効利用の観点から，原子力発電から発生する使用済み燃料を“再処理”し，燃料として使用できるウランやプルトニウムを取り出し，残りを廃棄物として処理処分することが考えられている．この廃棄物はガラスと混合され，ガラス固化体化された高レベル放射性廃棄物となる<sup>1)</sup>．ガラス固化体は金属容器で充填冷却された後，オーバーパック（金属製（炭素鋼等）の円筒容器）に溶接封入される．オーバーパックの周囲には緩衝材が設置され，さらに，処分場周辺の岩盤自身も堅牢で分厚い壁となることが期待される．

我が国をはじめとして世界各国の研究機関において，工学的かつ科学的な見地から地層処分の成立性が検討されてきた．緩衝材には隙間充填特性，止水性，変形緩衝性，核種移行遅延性などの役割が期待されている．このような緩衝材に要求される機能を満たすことができる材料のひとつとして，ベントナイトが有力視されている．ベントナイトは粘土鉱物（主にスメクタイト）および石英を主要構成鉱物とする天然岩石であり，国産可能な鉱物資源である．

ベントナイトは緩衝材の候補材料として高い適応性を持つが，反面，地下水の化学組成によりその性能が変化するという問題もある．特に，わが国のように周囲を海に囲まれた国では，処分場の地下水が海水起源の地下水の場合も想定される（例えば，過去の海水が地層中に取り込まれたまま保存さ

れたケースなど）．このような場合，ベントナイトの膨潤性（透水性）や陽イオン交換性がイオン強度の増加とともに低下することが考えられる．我が国における研究開発では，これまで主として降水系地下水（降水を起源とするイオン強度が低い地下水）を対象として，知見の整備や各種の物性値が取得されてきた．これに対し，イオン強度が高い海水系地下水を想定した技術開発は，各機関において進められているところである．

緩衝材の設置方法として，ベントナイトの圧縮成型ブロックを積み上げる工法，冷間プレス法による一体成型工法，現場での締め固め工法，粒状ペレット充填工法などが考案されている．これらのうち，粒状ペレット充填以外の工法は，岩盤と緩衝材，あるいは緩衝材とオーバーパックの間にある程度のクリアランスを持って設置するため，設置直後は隙間が存在する．処分場閉鎖後は，周囲岩盤中の地下水が緩衝材に浸透し，ベントナイトが膨潤するため，隙間が閉塞されると期待される．しかし，塩濃度が高くなるとスメクタイトの膨潤能は著しく低下することが知られている<sup>2), 3)</sup>．すなわち，ベントナイトの膨潤性は地下水の組成と密接に関係しており，特に海水程度のイオン強度を持つ地下水を想定すると，隙間の充填可否は重要な課題である．

緩衝材の施工時の隙間は再冠水時の膨潤により閉塞し，長期間経過後には密度分布が均一になると考えられている．施工時の隙間は，再冠水初期の主要な水みちになると考え

られ、その壁面のベントナイトが最初に膨潤を始めると考えられる。そのため、初期においては、隙間充填部のベントナイト密度は相対的に低いと考えられる。水が徐々に浸透し、緩衝材内部まで膨潤が始まると、初期に膨潤した部分が徐々に圧密され、全体の密度が均一化すると考えられる。しかし、膨潤性が低下した塩水環境下での隙間の充填メカニズムについては十分な検討がなされていない。そこで、本研究では、X線CT装置を用いた密度分布の経時変化観測により、ベントナイトの隙間充填特性について詳細に検討した。X線CT法は、非破壊で対象試料の内部構造を観察できるので、ベントナイトの隙間充填過程や密度分布の有無を観測するのに最適である。従来手法では密度分布を決定するために、試料を切断せねばならなかったが、X線CT法を用いれば迅速に高い空間分解能で密度分布を求めることが可能である。

## 2. 試験方法

ベントナイトはクニゲル V1(モンモリロナイト 46-49 重量%, 石英 29-38 重量%, 長石 2.7-5.5 重量%, その他)<sup>4)</sup>を使用した。第2次取りまとめの緩衝材仕様のレファレンスケースに準じて、ケイ砂(粒径約100  $\mu\text{m}$ )を30重量%混合した。初期乾燥密度 1.8  $\text{Mg}/\text{m}^3$ の条件は、ブロック定置工法のレファレンスケースに相当し、試料寸法(50mm)に対して 10%割合で隙間を設けたことに相当する(図-1)。所定サイズに圧縮成型したケイ砂混合ベントナイトを試験セルに設置し、試料下部より人工海水(ダイゴアクアマリン)を給水し試料を膨潤させた。

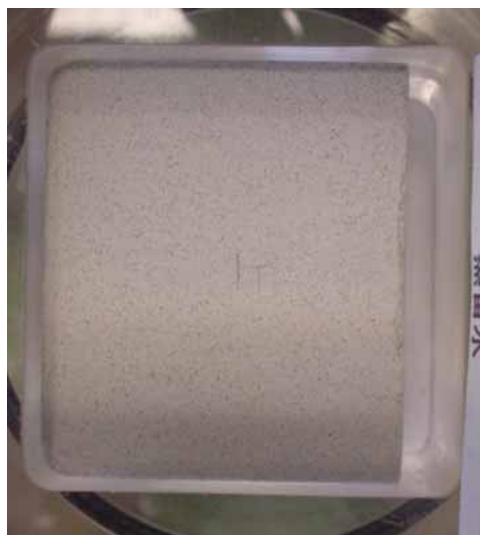


図-1 試験セルに圧縮ベントナイト試料を設置したところ。右側に隙間を設けた。

給水開始から1ヶ月後および4ヵ月後に、試験セルを装置から取り外し、X線CT測定を実施した。X線CT装置は、試料内部のX線の吸収率の分布を非破壊で画

像化する装置である。X線の吸収率はCT値と呼ばれる値として表され、水が0、空気が-1000になるように定義されている<sup>5)</sup>。また、CT値は原子量の大きな元素ほど、また、物体の密度が高いほど大きな値となる。したがって、物体内に元素組成の異なる物体が含まれている場合や、密度の粗密がある場合、それは画像の明暗として捉えることができる。したがって、隙間が十分に充填されていない場合、密度が低いので、X線CT画像として捉えることができる。

X線CT測定装置は、W2000(日立メディカルCo.)を使用した。X線管球の加速電圧は120kVで、電流は125-150 mAであった。面内空間分解能は0.3 mmで、測定スライス厚さは1 mmであった。なお、装置の詳細については、Nakashima<sup>6)</sup>の文献に報告されている。金属ボルトはX線を激しく吸収するので、測定の直前にアクリルボルトに交換して測定を行った。1断層撮影毎に透水方向に試料台を1 mmずつ動かしながら測定し、試料全体の二次元断層像データを取得した。試料内の密度分布の定量的に解析するために、Scion Image b4.0.2を用いて、二次元断面画像のCT値を読み取った。

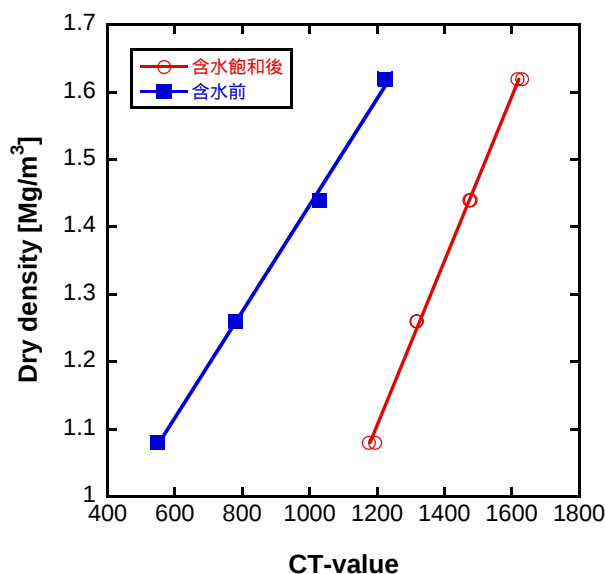


図-2 CT値と乾燥密度の関係

CT値から乾燥密度を推定するために検量線用に新たに隙間を有しない圧縮ベントナイトを製作した。乾燥密度 1.1, 1.3, 1.4, 1.6  $\text{g}/\text{cm}^3$ の条件でケイ砂混合ベントナイト(7号ケイ砂 30wt.%含有)を圧縮成型し、専用セル中で人工海水を含水飽和させた。含水の前後で2次元断面を撮影し、Scion Image b4.0.2によりCT値を読み取った。CT値と乾燥密度は、比例関係にあり、単純な1次の検量線として表すことができることを示している(図-2)。また、含水後の試料が全体に高CT値を示すのは、含水前の空隙が空気(CT値:-1000)で満たされていることから、含水後の海水(CT値:約0)で満たされて

いることへの変化に相当する．飽和含水後のベントナイト密度（乾燥密度に換算）とCT値の関係を最小二乗法によりフィッティングし、次式の検量線を得た．

$$\rho_{dry} = 0.0013 \times CT - 0.42 \quad (1)$$

ここで  $\rho_{dry}$  はベントナイト密度（ $\text{Mg/m}^3$ ，乾燥密度に換算）， $CT$  はCT値である．

### 3．結果と考察

図-3 に透水試験試料のCT像を示す．中央付近に正方形のベントナイト試料が確認できる．ベントナイト試料は、紙面左側から右側に向かって、白色から濃いグレーに徐々に変化しており、密度分布が生じていることがわかる．

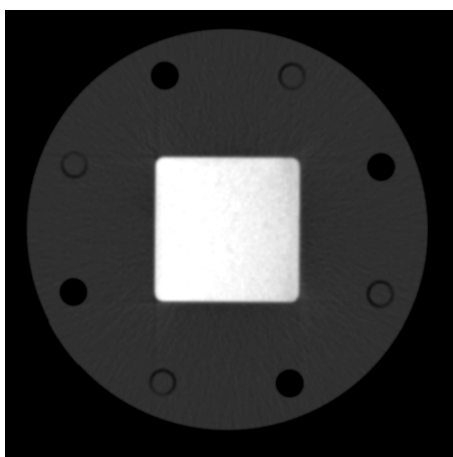


図-3 透水試験試料のCT画像

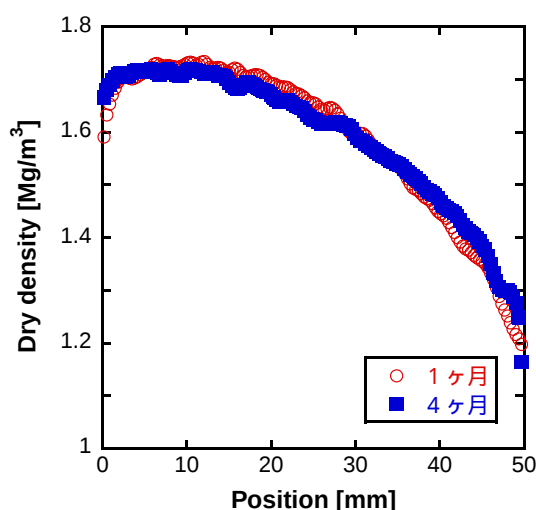


図-4 乾燥密度分布の時間変化

画像解析により供試体部分について紙面上下方向でCT値を平均化し、図-3の紙面横方向のベントナイト密度

（乾燥密度に換算）の分布を求めた（図-4）．初期乾燥密度は  $1.8 \text{ Mg/m}^3$  であったが、最も高いところでも  $1.7 \text{ Mg/m}^3$  に低下した．また、隙間充填部に向かって乾燥密度は低くなり、最も低いところで約  $1.3 \text{ Mg/m}^3$  であった．同じ試料について、含水後1ヶ月および4ヶ月経過した時点でCT測定を行ったが、両方で密度分布は変化しておらず、完全に密度分布が均一化するには長時間を要することが示された．また、同一条件で含水膨潤させた別の試料について、試験後に試料を分割し乾燥密度の分布を求めたところ、X線CTで得られた値とよく一致した（図-5）．

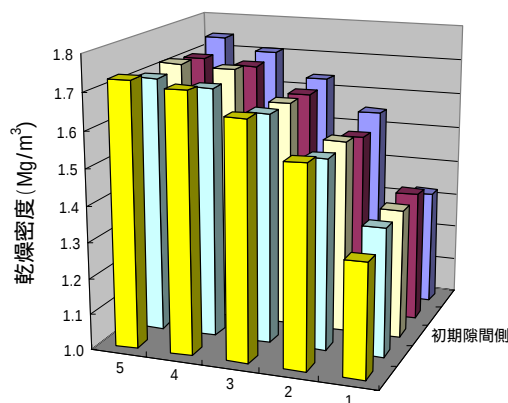


図-5 同一条件の試料を試験後に1cmの厚みで分割し得られた乾燥密度分布

上述のように、隙間閉塞部の乾燥密度が相対的に低いことが示された．乾燥密度が低い箇所では透水係数が増大することが懸念される．圧縮ベントナイトの透水係数は乾燥密度（単位体積あたりの固相重量）が高いほど小さい．例えば、人工海水の透水係数とベントナイトの乾燥密度の関係について、次式のような実験式が与えられている<sup>7)</sup>．

$$k = \exp(-25.64 + 8.28\rho_b - 5.689\rho_b^2) \quad (2)$$

ここで、 $\rho_b$  は有効粘土密度（ここでは、クニゲル V1 の乾燥密度として表す）で、適用範囲は、有効粘土密度  $1.17 \sim 1.8 \text{ Mg/m}^3$  である．透水係数（あるいは固有透過度）は、有効粘土密度の関数として表すとケイ砂混合率に依存しない<sup>1)</sup>．有効粘土密度は、ケイ砂混合率  $\alpha$  とケイ砂混合ベントナイトの乾燥密度  $\rho_{dry}$  をパラメーターとして次式で表される．

$$\rho_b = \frac{\rho_{dry}\rho_{qtz}(1-\alpha)}{\rho_{qtz} - \alpha\rho_{dry}} \quad (3)$$

ここで、 $\rho_{qtz}$  は石英の鉱物密度で、 $2.65 \text{ Mg/m}^3$  である。

これらの知見に基づいて、図-4 で求めた乾燥密度の分布より、式(3)を用いて有効粘土密度を計算し、供試体中の透水係数の分布を推算したところ、最も乾燥密度が低いところで  $10^{-10} \text{ m/s}$  のオーダーであった(図-6)。このように、隙間充填部で透水性は増大しているものの、難透水性媒体と判断できる範囲にある。

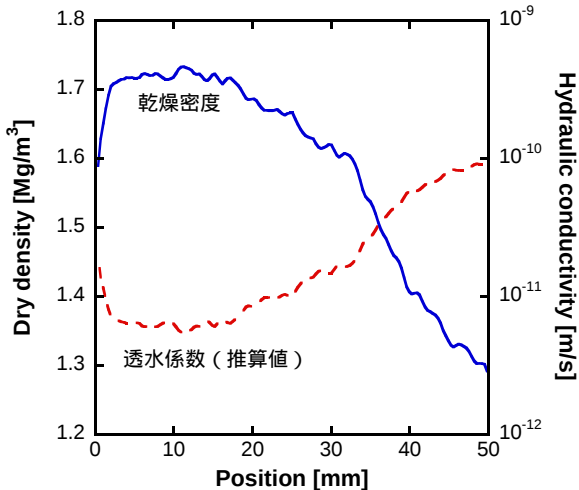


図-6 乾燥密度分布から算出した透水係数分布

#### 4. おわりに

本稿では、塩水環境下におけるベントナイト膨潤による隙間閉塞性について、X線CT装置を利用して検討した。この手法は、供試体を非破壊で観察することができるため、膨潤過程を詳細に調べることができる。塩水環境下においてもベントナイトは1ヶ月程度で隙間を充填することが示されたが、充填部分の乾燥密度は相対的に低く、4ヶ月程度経過した後も供試体内で均一化しなかった。ただし、密度は低下しているものの、止水性はまだ十分に有していると判断できる。

本研究では、X線CT法が緩衝材の隙間充填性能の詳細な把握に有効な手法であることを確認した。

X線CT装置を利用した緩衝材の特性評価はまさに各機関で研究開発が進んでいるところであり<sup>6,8)</sup>、さまざまな実験手法と合わせて、緩衝材挙動の詳細観測や、動的観察手法(例えば、膨潤過程のアニメーション化)などの新しい知見の創出が期待できる。

#### 謝辞

本研究報告は、経済産業省委託調査、地層処分技術調査等「塩水環境下処分技術調査」の成果の一部である。

#### 参考文献

- 1) 核燃料サイクル開発機構：わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性—地層処分研究開発第2次取りまとめ—, JNC TN1400 99-020, -024 (1999).
- 2) Norrish, K.: The swelling of montmorillonite. Discuss. Faraday Soc. 18, 120–134 (1954)
- 3) Suzuki, S., Somchai, P., Ichikawa, Y.: In-situ observations of the swelling of the smectite aggregate in contact with NaCl solutions, Appl. Clay Sci., 29, 89-98 (2005)
- 4) 伊藤雅和, 岡本真由美, 柴田雅博, 佐々木康夫, 壇原徹, 鈴木啓三, 渡辺隆: ベントナイトの鉱物組成分析, PNC TN8430 93-003, (1993)
- 5) 岩井喜典, 斎藤雄督, 今里悠一: 医用画像診断装置 - CT, MRI を中心として -, コロナ社 (1998)
- 6) Nakashima, Y.: The use of X-ray CT to measure diffusion coefficients of heavy ions in water-saturated porous media., Eng. Geol., 56, 11-17 (2000)
- 7) 核燃料サイクル開発機構: 緩衝材の飽和透水特性 - 海水性地下水が緩衝材の透水性の及ぼす影響 -, JNC TN8430 2003-002 (2003)
- 8) Kozaki, T., Suzuki, S., Kozai, N., Sato, S., Ohashi, H.: Observation of microstructure of compacted bentonite by microfocus X-ray computerized tomography(micro-CT), Journal of Nuclear Science and Technology, 38, 697-699 (2001)

## THE SWELLING PROPERTY OF COMPACTED BENTONITE IN SALINE WATER, AND IN-SITU OBSERVATION OF FILLING GAP

Satoru SUZUKI, Hajime TAKAO, Tatsuhiro TAKEGAHARA, Yoshito NAKASHIMA, Masashi HAGINUMA and Kazunori SUZUKI

The swelling property of compacted bentonite and the gap-filling process were investigated in saline water. The sand-bentonite mixture was compacted to dry densities of  $1.8 \text{ Mg/m}^3$  with gap of 10% of size of a specimen. The pressure of swelling decreased with increasing the gap and sand content after filling gap. The density of bentonite was  $1.7 \text{ Mg/m}^3$  at the highest after swelling, while that measured at the gap filled with bentonite was approximately  $1.3 \text{ Mg/m}^3$ . The density distribution was heterogeneous even after 4 months. The permeability of this part was calculated to be of the order of  $10^{-10} \text{ m/s}$ .