地層処分におけるグラウト技術の高度化開発 ーグラウト材料の浸透特性の改善ー

川口 昌尚^{1*}・藤田 朝雄²・杉田 裕³

¹戸田建設株式会社 九州支店（〒810-8502 福岡市中央区白金2-13-12）

²日本原子力研究開発機構 地層処分研究開発部門（〒098-3224 北海道天塩郡幌延町北進432番地2）

³日本原子力研究開発機構 地層処分研究開発部門（〒319-1194 茨城県那珂郡東海村村松4-33）

*E-mail: masanao.kawaguchi@toda.co.jp

地層処分施設では、地下深部の坑道の掘削・施工時にグラウトが必要不可欠と考えられ、高水圧環境下で、湧水量の制限が厳しく、かつ長期的な岩盤変質への影響を最小限に抑えることが要求されている。日本原子力研究開発機構では、低アルカリ性（ $\text{pH} \leq 11$ ）のグラウト材料として、低アルカリ性セメント、超微粒子球状シリカ、溶液型の3種類のグラウト材料を開発し、その技術の改良・高度化を行ってきた。

本稿では、室内試験結果等に基づく各材料ごとの浸透特性改善策についての検討結果と、これに基づいて推定した浸透可能な亀裂開口幅の見直し結果について報告する。

Key Words : geological disposal system, penetrability of grout materials, low alkaline cement, colloidal silica, superfine spherical silica

1. はじめに

高レベル放射性廃棄物を対象とした地層処分施設においては、天然の岩盤（天然バリア）と工学的なバリア（人工バリア）によって構築される多重バリアシステムにより長期的な安全の確保がなされる。ここで、地下坑道の掘削・施工時には、わが国のように岩盤の割れ目や地下水が多い地質環境で、かつ環境基準への対応を考慮して、湧水の抑制対策が要求されており、これに対応可能なグラウト技術が要求されている。

地層処分施設でのグラウトでは、地下深部の高水圧環境や緩衝材の定置作業性などを確保するために、湧水量が厳しく制限されることが想定され、微細な亀裂に対しても注入可能なグラウト材料が必要と考えられる。また通常用いられている普通ポルトランドセメントなどのセメント系材料は、高アルカリ性であり、長期的には岩盤の変質を引き起こし、処分システムの長期性能に影響を及ぼす可能性が指摘されている。

このため、日本原子力研究開発機構（以下、「原子力機構」という）では平成19年度より、既存のグラウト材料と同等以上の施工性・止水性を有し、岩盤への影響を最小限に抑える低アルカリ性（ $\text{pH} \leq 11$ ）のグラウト材料の開発に取り組んできた¹⁾。平成21年度までにプロトタイプとして、低アルカリ性セメント系グラウト材

料、超微粒子球状シリカグラウト材料、溶液型グラウト材料（以下、「低アルカリ性セメント」、「超微粒子球状シリカ」、「溶液型」という）の3材料を開発し、その後の3年間で技術の改良・高度化を行なっている。

本研究では、3材料が、微細な亀裂の入口部等での目詰まり（フィルトレーション、ゲルの生成）の発生を抑制し、もってグラウト材料の浸透特性の改善を図る方法についての検討を行う。

2. グラウト材料の選定基準

(1) 材料選定の考え方

地層処分に用いるグラウト材料の選定基準については、低アルカリ性、施工性（浸透性）、止水性の観点から設定した（表-1）。

この中で、溶液型にも他の材料と同様な基準が適用できるように、特に施工性（浸透性）を重視し、必須条件として、最大粒径を採用すると共に、平行平板浸透試験を実施して対象とする設計亀裂開口幅に対する浸透性を直接確認することで、最終的に使用する材料の選定を行うこととした。

表-1 材料選定基準^{2), 3)}

	特性項目	選定基準	試験法	備考
必須	pH	≤11	浸出法, 電極式pH計	
	密度	設計基準密度±2%	浮標式比重計	
要件	最大粒径	設計基準水理学的 亀裂開口幅以下	粒度試験 (レーザー回折散乱式 or 動的光散乱法)	
	浸透性	設計基準浸透距離以上	平行平板浸透試験	設計基準水理学的 亀裂開口幅で実施
参考要件	浸透可能 最小開口幅	設計基準水理学的 亀裂開口幅以下	平行平板浸透試験	
	圧縮強度	(大きい方が望ましい)	一軸圧縮試験 (JIS A1108-2006 or JIS A1216-2009)	
	ブリーディング率	(小さい方が望ましい)	ブリーディング試験 (JSCE-F 522-2007)	
	せん断強度	(大きい方が望ましい)	ペーンせん断試験	
	乾燥収縮率	(小さい方が望ましい)	寸法安定性試験	溶液型のみ適用
	SiO ₂ 溶出率	(小さい方が望ましい)	耐久性試験	溶液型のみ適用

材 料	配合 (W/B)	開 口 幅 (μm)								
		12	50	100	150	200	250	300	350	
低アルカリ性セメント	400% or 600%	幾何学的開口幅 (水理学的開口幅)			125~188 μm (123~184 μm)	188 μm以上 (184 μm以上)				
超微粒子球状シリカ	400% or 600%	38~50 μm (33~44 μm)		50~188 μm (44~184 μm)		188 μm以上 (184 μm以上)				
溶液型(ゲルタイム120分)		38~50 μm (33~44 μm)	50~100 μm (44~95 μm)	100 μm以上 (95 μm以上)						

図-1 浸透可能な亀裂開口幅²⁾

(2) 浸透可能な亀裂開口幅

浸透可能な亀裂開口幅については、平行平板浸透試験の結果に基づき、図-1のように設定した。

3. グラウト材料の浸透特性の改善

(1) グラウト材料における浸透特性上の課題

2章で検討した3材料の粘性特性と間隙内の浸透性に関する調査の結果、低アルカリ性セメントや超微粒子球状シリカの団粒化、溶液型でのゲル化の進行が、浸透特性に係る課題として取りあげられている⁴⁾。以下で、材料ごとに、これらの課題に対する原因と改善策について検討する。

(2) 低アルカリ性セメントに関する団粒化の原因と浸透特性改善策

低アルカリ性セメントの団粒化の原因は、シリカフューム（以下、「SF」という）の生産過程において材料の取扱い易さ向上のため実施されていた意図的な粒度調整が主な原因であることが判明した。この操作により、シリコンの副産物として回収されたSFの1次粒子（ピ

ーク粒度0.1~0.2 μm）を人工的に凝集させ団粒化した2次粒子の粒径は20~30 μmの間にピーク粒度があり、最大粒径は100 μm以上と大きくなっている。

上記の改善策としては、人工的に凝集させる程度を調整し、2次粒子の粒度をもうひとつの主要原材料である超微粒子普通ポルトランドセメント（以下、「SOPC」という）と同等の粒径（平均粒径4 μm前後）まで小さくすることが最も有効と考えられる。同時にスラリーとして製造保管することにより、粉体材料であることによる吸湿や混練水投入時の団粒化などを回避することが有効と考えられる。上記を含め、検討を行った全ての対策案とその実現性を一覧表にして、表-2に示す。

(3) 超微粒子球状シリカに関する団粒化の原因と浸透特性改善策

室内浸透試験で団粒化が発生した原因を特定するため今回各種条件下において実施した混合試験結果から、実際に団粒化が生じる原因、および粒度試験結果において団粒化が生じていると見なされる原因を考察した結果を表-3に示す。この結果から、唯一粒度試験結果に明瞭な影響を及ぼす要因として考えられるものは、主材である超微粒子球状シリカ（以下、「SFP」という）、硬

化剤である超微粒子消石灰（以下、「SFCa」という）、および分散剤として添加するナフタレン系高性能減水剤（superplasticizer, 以下、「SP」という）の添加方法を含む混合手順にあることが判明したため、超微粒子球状シリカの団粒化を防止するための混合手順を次のように定めた⁹⁾。

- ・水にSPを投入（W/B=167%の配合では水を添加しないため、SPを直接SFPに投入）し、練混ぜ（15秒）
- ・SFPを投入し、練混ぜ（30秒）
- ・SFCaを投入し、練混ぜ（2分）

表-2 低アルカリ性セメントの浸透性改善策

想定される改善点		現状	改善策	検討結果
シリカフェームの代替材料の利用	供給形態	粉体材料	スラリー製品の利用	<ul style="list-style-type: none"> ・現在市販されている既存のスラリー製品のピーク粒度は1次粒度とほぼ同じ（0.1~0.2μm）で、SOPCの粒度（ピーク粒度1~10μm）と比較して小さく材料分離を生じる恐れがあるため、SOPCと同等の粒度に調整する必要がある。 ・また、使用される原材料の違いにより製品粒度が異なり、10μm以上の団粒化した粒子も相当量含む場合もあるため、使用する原材料を特定して、製品粒度が適切となるよう管理しながら製造する必要がある。
	2次粒子の小さい材料	20~30μmにピーク粒度を持ち、最大粒径は100μm以上	SOPCと同程度の粒度（1~10μmにピーク粒度）	<ul style="list-style-type: none"> ・SFは副産物であり、現状の製造方法のまま粒度調整を行おうとすると、主製品であるシリコンの生産速度に支障となるため、別途製造ラインを設けて製造する必要がある。 ・同様に、現状の製造方法においては、人工的に凝集を生じさせて粒度を調整しているものの、この際の管理項目はかさ比重のみであるため、粒度管理のできる製造ラインにする必要がある。

表-3 超微粒子球状シリカの団粒化原因の考察

	団粒化が生じたと判断される想定原因	検討結果
①	せん断効果を有しない攪拌翼の使用	せん断のかからない攪拌翼、およびせん断効果を有する攪拌翼を使用したH24年度の粒度試験の結果は、どちらもH22年度の粒度試験結果と大きく異なり、大きな粒径を持つ粒子の割合は少なかった。 したがって攪拌翼の違いが原因ではない。
②	混合エネルギーの不足	回転数を変化させて低速による攪拌混合を行ったH24年度の試験結果は、どれもH22年度の粒度試験結果と大きく異なり、大きな粒径を持つ粒子の割合は少なかった。また、回転数を変えたことによる攪拌速度の違いによる粒度分布の差も大きくなかった。 したがって、混合エネルギーの違いが原因ではない。
③	粒度分布測定における計測条件の違い	H22年度と同じ相対屈折率を適用した粒度測定結果と、異なる相対屈折率を適用したH24年度の試験結果との差異はほとんど見られなかった。 したがって、相対屈折率などの計測条件が原因ではない。
④	混合攪拌後の残置時間中の団粒化の進行	混合直後と1時間放置後の粒度測定結果との間に、ほとんど差異は認められなかった。 したがって、混合攪拌後の残置時間の違いが原因ではない。
⑤	長期間静置された原材料の沈降による材料分離と団粒化の進行	沈降物が多い材料を使用した場合、団粒化していると思われる粒径の大きな粒子の割合が若干多いことが確認されたものの、採取した原材料のスラリー濃度が設計より高いことにより、添加したSP量が不足していた影響が大きいと考えられる。 また、以上は極端なサンプル採取をした場合の結果であり、現実的には起こり得ない条件であることを考慮すると、静置期間の長さが団粒化に与える影響は小さいと判断される。 ただし、原材料の使用前の攪拌については注意を促す必要がある。
⑥	攪拌容器に付着していたセメント分とシリカの反応	H22年度の試験時の状況は確認できないものの、配合濃度の違いにより団粒化の程度が異なっていることを説明できないことより、これが団粒化の原因ではないと判断される。
⑦	誤った攪拌、混合手順	H24年度の試験結果より、SFP側に予めSPを添加しないでSFCaと混合した場合、全てを同時に加えた場合、およびSFPではなくSFCa側にSPを加えた場合には、どのケースにおいても団粒化が発生することが確認された。 ただし、H22年度の混合手順が報告書に明示されている正しい混合手順で行われていたのであれば、これらが団粒化の原因とはならないものの、実際の混合手順の確認はできない。 混合手順の注意を促す必要がある。

(4) 溶液型に関する浸透特性改善策

これまでの検討において、溶液型の浸透特性を損なう主な要因として、狹隘部において発生するゲル化の進行が挙げられていた。表-4 に上記の改善策についての検討結果を一覧表にして示す。

上記の改善策としては、硬化促進剤の添加量を低減することで主材であるコロイダルシリカの不安定化を遅延させ、もって粒子同士の衝突による想定外のゲル化の発生を抑制する対策以外は、現時点では技術的な裏付けのない構想段階の案であるか、あるいは硬化後の材料特性の低下といった恒久的な影響が残る案であることから、上記の対策が唯一具体性があり実現可能な対策と考えられる。ただし、注入したグラウト材の硬化が遅延することになるため、施工時間の増大や注入したグラウト材料が硬化前に流失してしまう恐れもある。

(5) 浸透可能な亀裂開口幅の改善効果

各材料で浸透特性改善策を行った場合に予測される改善効果をもとに見直した各材料の適用可能な亀裂開口幅を図-2 に示す。なお、低アルカリ性セメントと超微粒子球状シリカについては、浸透可能な亀裂開口幅は最大粒径と高い相関関係があり、室内平行平板試験において両者はほぼ一致したことから、今回の見直しにおいても最大粒径を浸透可能な亀裂開口幅として予測を行った。また、溶液型については、硬化促進剤の濃度によって期待される改善効果は変化すると思われる。このため、改善策導入後の溶液型のゲルタイムおよび浸透可能な最小開口幅については、実際の実験によってこれを確認する必要がある。

表-4 溶液型の浸透性改善策

想定される改善点	現 状	改 善 策	課 題	実現性
硬化促進剤添加量	設計ゲルタイムを120分として、室内試験により添加量を決定	想定外のゲル化が生じない、あるいは発生量が十分低減される添加量を室内平行平板浸透試験などにより直接決定する。	<ul style="list-style-type: none"> ・浸透した亀裂内部においてもゲル化しないで流失してしまう恐れがある。 ・注入孔からの逆流を防止するためゲル化が進むまで注入装置を取り外せないことにより施工時間が増大する。 	△
コロイダルシリカ濃度	市販品をそのまま使用	想定外のゲル化が生じない、あるいは発生量が十分低減される混練水量を室内平行平板浸透試験などにより直接決定する。	<ul style="list-style-type: none"> ・浸透した亀裂内部においてもゲル化しないで流失してしまう恐れがある。 ・単位注入量あたりのシリカ量が減少するため、ゲル化しても空隙を十分充填できないため止水性が低下する。 ・強度が小さく耐久性に劣る。また、注入直後に注入孔から逆流してくる。 	×
電気二重層の強化と硬化促進剤添加量の増量	(企業秘密のため詳細不明)	混合直後の電気二重層の安定性を高めて、粒子衝突による結合が生じにくくする。	<ul style="list-style-type: none"> ・現時点では具体策なし。 	×
シリカ粒子の粒径	10~20nmの1次粒子が粒子同士の衝突により容易に成長しゲル化	粒子衝突によるゲル化が生じても十分小さい程度まで1次粒子を微細化する。	<ul style="list-style-type: none"> ・浸透した亀裂内部においてもゲル化しないで流失してしまう恐れがある。 ・注入孔からの逆流を防止するためゲル化が進むまで注入装置を取り外せないことにより施工時間が増大する。 ・シリカ量が同量であれば粒子数が増加するため衝突頻度は逆に高まる。 	×

凡例 : ○ 可能性大, △ 可能性あり, × 可能性なし

材 料	配合 (W/B)	開 口 幅 (μm)							
		12	50	100	150	200	250	300	350
低アルカリ性セメント	125% ～ 600%			56～125 μm (51～123 μm)	125 μm以上 (123 μm以上)				
超微粒子球状シリカ	167% ～ 600%	～12 μm (～6 μm)	12～125 μm (6～123 μm)		125 μm以上 (123 μm以上)				
溶液型(ゲルタイム ?分)			?～100 μm (?～95 μm)	100 μm以上 (95 μm以上)				幾何学的開口幅 (水理的開口幅)	

※ 改善策導入後の溶液型のゲルタイムおよび浸透可能な最小開口幅については、実際の実験によって確認する必要がある。

図-2 改善策導入後に予想される各材料の適用可能な亀裂開口幅

表-5 想定される浸透特性の改善策

材料名	改善策	具体的内容
低アルカリ性セメント	供給形態の見直し	スラリー製品の利用
	2次粒子の小さい材料	人為的に団粒化を調整
超微粒子球状シリカ	混合方法の改良	SPの適切な添加（混合手順の遵守）
溶液型	硬化速度の調整	硬化促進剤添加量の低減

4. まとめ

本研究では、地層処分施設で用いることを念頭に開発した3種類のグラウト材料について、浸透特性上の課題を挙げ、原因の追究とその改善策の検討を行い、浸透可能な亀裂開口幅の見直しを行った。これらの検討結果をまとめ、現状において想定される材料ごとの浸透特性の改善策を表-5 に示す。

本研究は、原子力機構が平成19～24年度の6ヶ年で取り組んできたプロジェクトのうち、天然バリアの長期的な性能に与える影響が小さく、地下深部の高水圧にも対応可能なグラウト材料やグラウト注入技術などの開発を行う「要素技術の開発」の一部である。本プロジェクトは、ほかに、開発した技術を体系化し実際の地質環境に適用するための「原位置適用性試験」、さらに安全評価に関わる研究として、グラウト材料からのアルカリによる地球化学的な影響を長期にわたり現実的に評価できる「グラウト影響評価技術の開発」とあわせて構成されている。なお、プロジェクト全体の成果は、別途、6ヶ年報告書⁶⁾として取りまとめられ、別冊でグラウト技術のガイドライン⁷⁾も整理されている。

謝辞：本研究は経済産業省資源エネルギー庁「平成24年度地層処分技術調査等委託費（高レベル放射性廃棄物関連：地下坑道施工技術高度化開発）」の一部として実施したものである。

参考文献

- 1) 藤田 朝雄, 笹本広, 杉田裕, 松井裕哉：地層処分におけるグラウト技術の高度化開発(その1)－プロジェクトの概要と開発技術の適用例－, 第13回岩の力学国内シンポジウム講演論文集, pp.331-336, 2013.
- 2) 川口昌尚, 岸裕和, 藤田朝雄, 岸田潔：地層処分におけるグラウト技術の高度化開発(その2)－グラウト材料の選定－, 第13回岩の力学国内シンポジウム講演論文集, pp.337-342, 2013.
- 3) 日本原子力研究開発機構：平成23年度地層処分技術調査等委託費高レベル放射性廃棄物処分関連, 地下坑道施工技術高度化開発報告書, p.18, 2012.
- 4) 日本原子力研究開発機構：平成22年度地層処分技術調査等委託費高レベル放射性廃棄物処分関連, 地下坑道施工技術高度化開発報告書, pp.14-36, 2011.
- 5) 関口高志, 関根一郎, 川口昌尚, 藤田朝雄, 杉田裕, 荒木昭俊, 超微粒子球状シリカ系グラウト材料における団粒化発生メカニズムの考察, 第42回岩盤力学に関するシンポジウム, 2014 (予定) .
- 6) 日本原子力研究開発機構：平成24年度地層処分技術調査等委託費高レベル放射性廃棄物処分関連, 地下坑道施工技術高度化開発6ヶ年報告書(本編), 2013.
- 7) 日本原子力研究開発機構：平成24年度地層処分技術調査等委託費高レベル放射性廃棄物処分関連, 地下坑道施工技術高度化開発, グラウト技術のガイドライン(平成24年度版), 2013.

DEVELOPMENT OF GROUTING TECHNOLOGIES FOR GEOLOGICAL
DISPOSAL OF HIGH LEVEL RADIOACTIVE WASTE IN JAPAN,
IMPROVEMENT OF PENETRABILITY OF GROUT MATERIALS

Masanao KAWAGUCHI, Tomoo FUJITA and Yutaka SUGITA

Grouting of transmissive fractures is necessary to limit the amount of inflowing groundwater during the construction of an underground facility for the geological disposal of high level radioactive waste. Grout materials are typically cementitious, but their use raises concerns over the generation of a high pH plume and its potential to cause adverse effects on the long-term safety of the geological disposal system. In an attempt to mitigate these effects, JAEA has developed three new grout materials of target $\text{pH} \leq 11$, namely low alkaline cement, colloidal silica and superfine spherical silica. This report describes laboratory tests of these materials and reviews the observed relationships between fracture aperture and penetrability.