

一次元模型実験によるベントナイト系緩衝材の 自己シール性評価

小峯秀雄¹・緒方信英²・中島晃³・高尾肇³・植田浩義⁴・木元崇宏⁵

¹正会員 工博 茨城大学助教授 工学部都市システム工学科(〒316-8511 茨城県日立市中成沢町4-12-1)

²正会員 工修 (株)シー・アール・エス地質・耐震構造部(〒270-1176 千葉県我孫子市柴崎台2-11-23)

³正会員 工修 日揮(株)産業プロジェクト本部(〒220-6001 神奈川県横浜市西区みなとみらい2-3-1)

⁴工博 原子力発電環境整備機構 技術部(〒108-0014 東京都港区芝4-1-23)

⁵理学士 東京電力(株)原子力技術部(〒100-0011 東京都千代田区内幸町1-1-3)

高レベル放射性廃棄物地層処分において用いられる緩衝材には、廃棄物収納容器や周辺地盤との間の隙間部分を充填する役割(自己シール性)が期待されており、高い膨潤性が要求されている。第一・第二著者は緩衝材の自己シール性を定量的に評価するため、粘土鉱物結晶間の反発力や引力の理論評価式に新しいパラメータの算出式を組み合わせ、ベントナイト系緩衝材の膨潤評価式を提案した。本研究では、隙間部分と緩衝材の関係を一次元的に縮尺・模擬した模型実験を行い、緩衝材の隙間部分への充填挙動について調査し膨潤評価式の適用性について検討を行った。その結果、膨潤変形により隙間部分がほぼ充填されることを確認するとともに膨潤評価式が隙間充填後の膨潤挙動に対して適用できることを明らかにした。

Key Words : high-level radioactive waste disposal, bentonite, swelling, self-sealing, model test

1. はじめに

原子力発電で発生する高レベル放射性廃棄物を安全に処分することは、社会における重要な課題となっている。現在、我が国ならびに欧米各国で考えられている高レベル放射性廃棄物の有力な処分方法は、地下数百mより深い地盤中に、収納容器に封入した廃棄物を埋設処分する方法である^{1), 2)}。日本における高レベル放射性廃棄物処分施設の概念については、現在、スウェーデンやカナダ等、諸外国で検討されてきた概念も参考にしながら、各研究機関等で検討されてきた。図-1左図は、スウェーデンで検討されている高レベル放射性廃棄物の処分施設の概要の一例を示している³⁾。このような処分施設の建設に際し、廃棄物収納容器と周辺地盤との間を充填する材料が必要とされている。この材料は「緩衝材」と呼ばれており、長期間にわたり廃棄物を人間の生活圏から隔離する必要性や廃棄物から発生する熱への対

策等から、非常に高い止水性や膨潤によるシール性、熱伝導性等が要求されている^{1), 2)}。

ベントナイトは他の土質材料と比べ高い止水性や膨潤性を有することから、緩衝材としての利用が有望視されている。実際にはベントナイトのみで実施することは経済的ではないので、比較的安価な砂をベントナイトに混合して利用することが考えられている^{1), 2)}。また、ベントナイトは締固めて乾燥密度を高くすることにより、その止水性や膨潤性、熱伝導性はいっそう向上するので、実際の処分では高圧で締固め緩衝材として利用することが検討されている。緩衝材が非常に高い止水性や熱伝導性を保有するためには、乾燥密度が1.6~2.0 Mg/m³程度になるように締固める必要があると考えられている^{1)~3)}。しかし、現地における締固め転圧では、上記の乾燥密度を確保することは困難であり、現在のところ、工場においてブロック状等に製作したものを処分孔ピットに搬入し設置する方法が有力と考えられてい

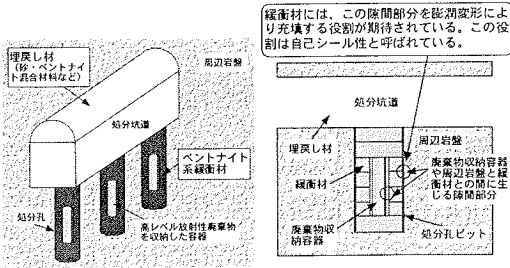


図-1 処分施設と自己シール性の概念

る。このような緩衝材の製作・設置を想定した場合、図-1右図に示すように緩衝材と周辺地盤や廃棄物収納容器との間に隙間が生じてしまう。この隙間が、そのまま残ってしまうと水みちとなる可能性が高い。そこで、緩衝材には膨潤変形により、この隙間部分を充填し、かつ十分な止水機能を有すること、すなわち自己シール性が期待されている。緩衝材の自己シール性が必要とされるのは主に、廃棄物収納容器から核種イオンが地下水流に伴い外部に漏出する段階と考えられ、その時点では緩衝材はほぼ完全に飽和していると想定されている。

この自己シール性の観点から、緩衝材の概略設計を可能にするため、第一・第二著者は、数多くの砂・ベントナイト混合材料や各種ベントナイトの膨潤圧および膨潤変形について、室内実験によりデータの収集と簡易な評価法を提案してきた^{4)~6)}。これらの研究成果から、砂とベントナイトの配合割合およびベントナイトに含有される交換性陽イオンの種類・組成が膨潤特性に強く影響することが明らかになり、これらを考慮できる新しい膨潤評価式を提案した^{7)~9)}。しかし、この膨潤評価式が実際に自己シール挙動を適切に予測できるか否かについて、実験的には検討されていない。

そこで本研究では、図-1右図に示す隙間部分と緩衝材の関係を一次元的に縮尺・模擬した模型実験を行い、緩衝材の隙間部分への充填挙動について調査する。また、既提案の膨潤評価式の計算結果と模型実験結果とを比較することにより適用性を調査する。

2. 新しいベントナイト系緩衝材の膨潤評価式の概要

本章では、参考文献7)~9)において提案されたベントナイト系緩衝材の新しい膨潤評価式の概要を述べる。

第一・第二著者は、化学的な環境条件に大きく影響を受けるベントナイトの膨潤特性の評価を可能と

するため、粘土鉱物結晶レベルの膨潤現象を評価できるGouy-Chapman theoryと呼ばれる拡散二重層理論¹⁰⁾を利用して、締固めたベントナイトに適用できる膨潤評価式を提案した¹¹⁾。この評価式は、ベントナイトの交換性陽イオンを単一と仮定し定式化したものであり、砂・ベントナイト混合材料の膨潤挙動の評価やベントナイトに含有される交換性陽イオンの種類や組成による膨潤挙動の違いについて評価することは困難であった。実際の緩衝材は経済性の観点から、比較的安価な砂や現地発生土をベントナイトに混合して利用することや、海外産のベントナイトを利用することも考えられている^{1), 2)}。そこで、砂・ベントナイト混合材料や海外産ベントナイトへ適用可能とするため、砂とベントナイトの配合割合および含有される交換性陽イオンの種類や組成を考慮できる新しい膨潤評価式の構築が必要となり、以下に示す一連の評価式を提案した。

【ベントナイト系緩衝材の膨潤評価式】

$$P = \frac{1}{CEC} \sum_{\substack{i=\text{Na}^+, \text{Ca}^{2+} \\ \text{K}^+, \text{Mg}^{2+}}} [EXC_i \{ (f_r)_i - (f_a)_i \}] \quad (1)$$

$$(f_r)_i = 2nkT (\cosh u_i - 1) \times 10^{-3} \quad (2)$$

$$u_i = 8 \tanh^{-1} \left[\exp(-\kappa_i d_i) \tanh \left(\frac{z_i}{4} \right) \right] \quad (3)$$

$$\kappa_i = \sqrt{\frac{2n v_i^2 e'^2}{\epsilon k T}} \quad (4)$$

$$z_i = 2 \sinh^{-1} \left(96.5 \times \frac{EXC_i}{S} \sqrt{\frac{1}{8\epsilon n k T}} \right) \quad (5)$$

$$(f_a)_i = \frac{A_n}{24\pi} \left[\frac{1}{d_i^3} + \frac{1}{(d_i + t)^3} - \frac{2}{(d_i + t/2)^3} \right] \times 10^{-3} \quad (6)$$

$$\epsilon_{sv}^* = \left\{ e_o + \frac{\epsilon_{smax}}{100} (e_o + 1) \right\} \quad (7)$$

$$\times \left\{ 1 + \left(\frac{100}{C_m} - 1 \right) \frac{\rho_m}{\rho_{nm}} + \left(\frac{100}{\alpha} - 1 \right) \frac{100}{C_m} \frac{\rho_m}{\rho_{sand}} \right\} \times 100$$

$$e_o = \frac{\rho_{solid}}{\rho_{d0}} - 1 \quad (8)$$

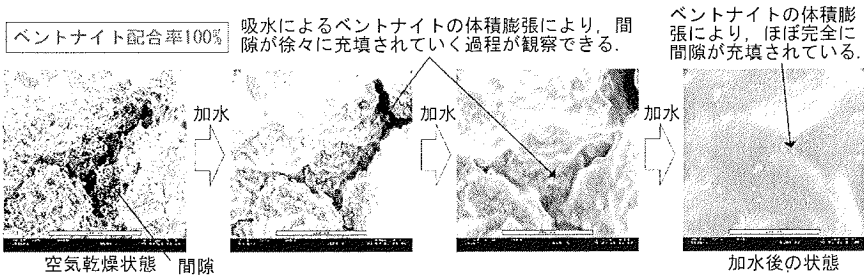


図-2 緩衝材中のベントナイト膨潤挙動の電子顕微鏡観察

$$\rho_{solid} = \frac{100}{C_m} \frac{100}{\alpha} \frac{\rho_m}{\rho_{nm}} \quad (9)$$

$$\left\{ 1 + \left(\frac{100}{C_m} - 1 \right) \frac{\rho_m}{\rho_{nm}} + \left(\frac{100}{\alpha} - 1 \right) \frac{100}{C_m} \frac{\rho_m}{\rho_{sand}} \right\}$$

$$d_i = \frac{\epsilon_{sv}}{100} \left\{ t + (R_{ion})_i \right\} + (R_{ion})_i \quad (10)$$

$$n = \frac{n_0 (\text{mol/m}^3) \times N_A}{1 + \frac{\epsilon_{sv}}{100}} \quad (11)$$

$$S = \frac{C_m}{100} S_m + \left(1 - \frac{C_m}{100} \right) S_{nm} \quad (12)$$

ここに、

p : ベントナイト系緩衝材の発生する圧力(kPa) (なお、 p は反発を正とする。)

$(f_i)_i$: 交換性陽イオン*i*に起因する反発力(kPa) (*i*は Na^+ , Ca^{2+} , K^+ , Mg^{2+} のいずれかの交換性陽イオンを示す。以下に記述される*i*はこれと同様の意味である。)

$(f_a)_i$: 交換性陽イオン*i*に起因する引力(kPa)

EXC_i : 交換性陽イオン*i*の交換容量(meq/g)

CEC : 陽イオン交換容量(meq/g)

d_i : 交換性陽イオン*i*の時の結晶層間距離の1/2 (m)

u_i : 交換性陽イオン*i*の価数

e' : 電子電荷($=1.602 \times 10^{-19} \text{C}$)

k : Boltzmann定数($=1.38 \times 10^{-23} \text{J/K}$)

T : 絶対温度(K)

n : 緩衝材中の間隙水の補正イオン濃度(個数/m³)

n_0 : 緩衝材中の間隙水のイオン濃度(mol/m³)

ϵ : 間隙水の誘電率($\text{C}^2 \cdot \text{J}^{-1} \cdot \text{m}^{-1}$)

A_h : Hamaker定数(モンモリロナイトの場合、 $=2.2 \times 10^{-20} \text{J}$)

t : モンモリロナイトの結晶層厚($=9.60 \times 10^{-10} \text{m}$)

ϵ_{smax} : 緩衝材の最大膨潤率(%)

e_0 : 緩衝材の初期間隙比

C_m : ベントナイトのモンモリロナイト含有率(%)

ρ_{d0} : 緩衝材の初期乾燥密度(Mg/m^3)

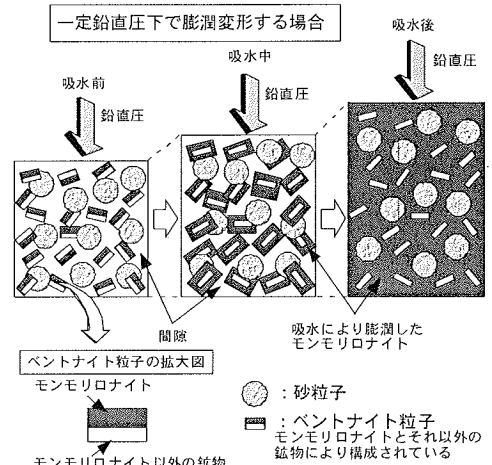


図-3 緩衝材中のベントナイトの膨潤挙動イメージ

α : 緩衝材のベントナイト配合率(%) (緩衝材全体の乾燥質量に対するベントナイトの乾燥質量の百分率)

ρ_m : モンモリロナイトの土粒子密度(Mg/m^3)

ρ_{nm} : モンモリロナイト以外の鉱物の土粒子密度(Mg/m^3)

ρ_{sand} : 砂粒子密度(Mg/m^3)

$(R_{ion})_i$: モンモリロナイト結晶層間中の交換性陽イオン*i*の非水半径(m)

N_A : アボガドロ数($=6.023 \times 10^{23}$)

S : ベントナイトの比表面積(m^2/g)

S_m : モンモリロナイトの比表面積(m^2/g)

S_{nm} : モンモリロナイト以外の鉱物の比表面積(m^2/g)

参考文献11), 12)で提案した「締固めたベントナイトの膨潤評価式」では、モンモリロナイトの結晶の層間に水を吸水することにより生じる膨潤がベントナイトの膨潤挙動を支配すると考え、モンモリロナイトの結晶層間への水の浸入による反発力を拡散二重層理論に基づき定式化している(式(2)~(5)参照)。一方、結晶間には引力であるファンデルワールス力も作用すると考えられ、これについても考慮

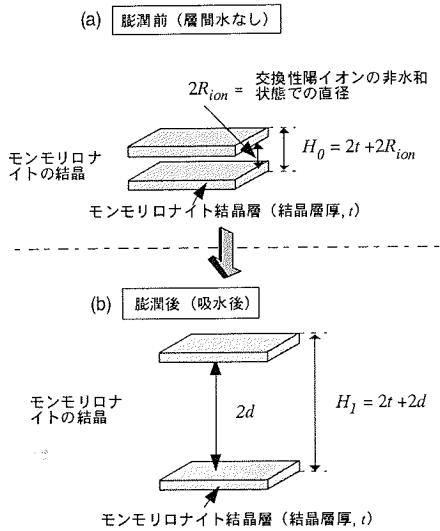


図-4 結晶レベルから見たモンモリロナイトの膨潤体積ひずみ

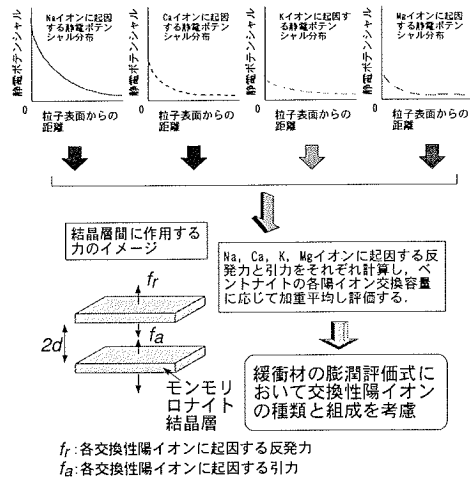


図-5 膨潤評価式における交換性陽イオンの種類と組成の考慮の概念

している(式(6)参照)。

また、実際の緩衝材中には間隙やモンモリロナイト以外の膨潤性をあまり示さない鉱物粒子も含まれているので、これらの影響を考慮できるようにするための新しい理論式が必要となる。第一・第二著者は、図-2に示すように、ベントナイトが膨潤し緩衝材中の間隙が充填されることを確認した。また、室内の膨潤実験の結果も踏まえ、緩衝材・埋戻し材の膨潤圧および膨潤変形の発生プロセスを考察し、図-3に示すモデルを提案した⁵⁾。このモデルに基づき、緩衝材中のモンモリロナイトの膨潤挙動を評価できるパラメータ「モンモリロナイトの膨潤体積ひずみ ϵ_{sv}^* (%)」を定義し、その算出式を誘導した(式

(7)~(9)参照)。この式によれば、緩衝材の膨潤率(=膨潤変形量/緩衝材の初期体積×100)の最大値、すなわち最大膨潤率とモンモリロナイトの膨潤体積ひずみ ϵ_{sv}^* が関係づけられる。また、砂とベントナイトの質量比率に関するパラメータであるベントナイト配合率 α (%)を導入しており、砂とベントナイトの配合割合を考慮できるようにしている。

一方、著者は図-4に示すようなモンモリロナイトの結晶レベルの膨潤挙動を考え、モンモリロナイトの膨潤体積ひずみ ϵ_{sv}^* (%)と平行二粒子間距離の1/2に相当するパラメータ d の関係を参考文献7)において定義した(式(10)参照)。

また、既往の研究から、ベントナイトの膨潤挙動は周辺の水の性質など周辺環境条件に大きく影響を受けることが知られている^{13)~15)}。したがって、モンモリロナイトの膨潤変形に伴う環境条件の変化も考慮する必要がある。式(11)はモンモリロナイト結晶層の膨潤変形に伴う間隙水のイオン濃度の変化を評価する式である。式(12)はベントナイトの比表面積を算出するための式であり、ベントナイト中のモンモリロナイト含有率の影響を考慮できるようにしている。

上記の理論を基本に、さらにベントナイトの主要な交換性陽イオンである Na^+ 、 Ca^{2+} 、 K^+ 、 Mg^{2+} の4種類に対して、それぞれの交換性陽イオンに起因する粘土結晶層間に作用する反発力と引力を算出し、各イオンの交換容量を用いて加重平均し評価する方法を新たに考案した(式(1)、図-5参照)。

3. 緩衝材の自己シール性に関する一次元模型実験

本章では、図-1右図に示す緩衝材の自己シール挙動を模擬した一次元模型実験を行うと共に、前章に述べた緩衝材の膨潤評価式の適用性を調査した。

(1) 使用した試料

使用した試料は、山形県月布産のクニゲルV1(クニミネ工業製、土粒子密度:2.79Mg/m³)である。本試料はNa型ベントナイトであり、低透水性、膨潤性に富むベントナイトであることから、日本の高レベル放射性廃棄物処分技術に関する研究・開発において、頻繁に実験等に使用されている材料である。表-1にクニゲルV1の基本的な性質を示す。参考文献4)~6)に本試料のX線回折パターンや基本的な性質について詳述されているので参照されたい。

表-1 使用したベントナイトの基本的性質

タイプ	Na型
土粒子の密度	2.79 Mg/m ³
液性限界	473.9 %
塑性限界	26.61 %
塑性指数	447.3
活性度	6.93
塑性比	16.81
粘土分(< 2 μm)含有率	64.5 %
モンモリロナイト含有率	48 %
陽イオン交換容量	0.732 meq./g
交換性 Na イオン量	0.405 meq./g
交換性 Ca イオン量	0.287 meq./g
交換性 K イオン量	0.009 meq./g
交換性 Mg イオン量	0.030 meq./g

使用したベントナイトは温度が22±1℃、相対湿度が70～80%となる室内で保存しており、このときの含水比は6.12～8.54%の範囲にあった。混合する砂には、三河珪砂6号(粒径：0.053～0.590mm、土粒子の密度：2.66 Mg/m³)を使用した。

(2) 緩衝材供試体の作製

緩衝材供試体のベントナイトと砂の配合割合は、(財)電力中央研究所・電気事業連合会による緩衝材仕様^{2), 16)}をもとに設定した。すなわち、ベントナイトのみを締固めた供試体、およびベントナイト配合率が80%となるよう三河珪砂6号を加えた混合材料を用いた。ここでベントナイト配合率とは、全試料の乾燥質量に対するベントナイトの乾燥質量の百分率である。

緩衝材供試体の作製には、参考文献6)と同様の方法で行った。すなわち、締固め圧力載荷用のフレーム、試料を投入する内径60mm、高さ100mmの円筒形モールドおよびピストンから構成されている装置を用いて、静的荷重により締固めて作製した。

供試体寸法は直径60mm、高さ10mmを目標に作製した。乾燥密度は2.0Mg/m³と1.4Mg/m³の2種類を目標に作製した。

(3) 実験装置および実験手順

本実験では、図-6に示すように、参考文献6)で用いた膨潤圧実験装置を用いて、緩衝材と周辺岩盤およびその間に生じる隙間を模擬した。

供試体の設置、各測定器のゼロ点設定は次のように行った。まず供試体の設置を行う前に、ロードセルのゼロ点を設定する。そして、前節の方法にて作製した緩衝材供試体を図-6の実験装置に設置した後、

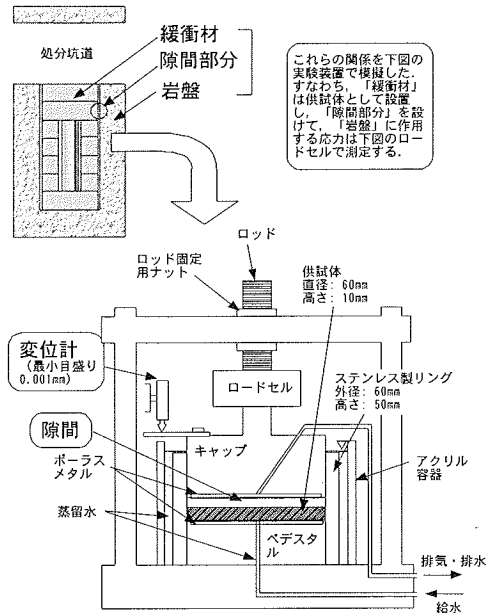


図-6 実験装置の概要と処分孔周辺との関係

キャップが供試体上面に接触するまでロッドを下げる。この際、20～30kPa程度の鉛直応力を作用させ、供試体とキャップを確実に接触させる。ここで変位計のゼロ点を設定する。隙間を設けない実験ケースでは、この後、供試体の上部および下部から蒸留水の供給を開始する。

隙間を設定する実験ケースでは、ロッドを上方に移動させ、最小目盛りが0.001mmの変位計の読み値に基づいて所定の隙間を供試体とキャップの間に設ける。ここでロッド固定用ナットでロッドを固定し、ロードセルのゼロ点を再度設定する。その後、緩衝材供試体の上部および下部から蒸留水の供給を開始する。

実験中は、微小ではあるがキャップの位置が移動することが予想されるのでキャップ位置を変位計により、鉛直方向の軸力をロードセルにより測定する。

実験期間は7日間を基本として、実験終了後に取り出した供試体の寸法、質量および含水比を測定し、供試体の飽和度の算出を行う。また、ベントナイトの膨潤特性は、周辺の水質の影響を受ける。供給する水が蒸留水であっても、供試体から陽イオンが溶出し、それが供試体周辺の水質となる。したがって、本実験では、図-6に示すステンレス製リングとアクリル容器の間に残存する水が分析可能な量を採取できる場合には、供試体周辺の水として採取し、Na, Ca, K, Mgの各イオンの濃度をプラズマ(ICP)発光分析装置により測定した。今回、水質分析に供する水は、スポイトを使用してステンレス製リングとア

表-2 全実験条件と結果一覧

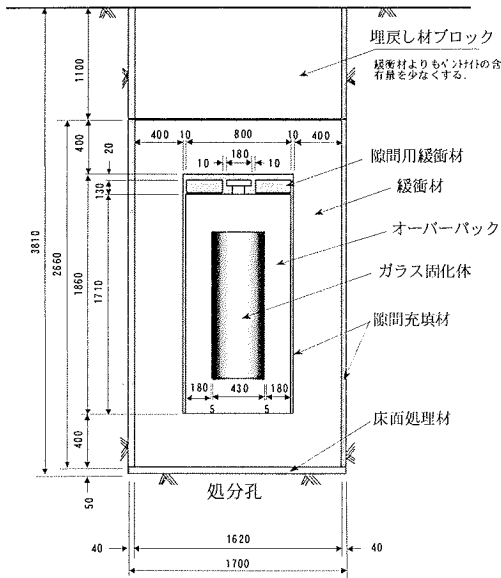
供試体	ベント ナイト 配合率 (%)	供試体高さ (mm)		含水比(%)		乾燥密度 (Mg/m ³)		隙間(mm)		発生圧力 (kPa)	Na イオン 濃度(mol/m ³)
		初期	実験後	初期	実験後	初期	実験後	初期	実験後		
B20V000	100	9.9	10.1	8.51	28.38	2.00	1.94	0.000	0.224	2529.5	17.40~17.59
B20V050-1	100	10.0	10.5	7.97	23.56	2.00	1.88	0.508	0.569	1726.8	9.73~9.97
B20V050-2	100	9.9	10.5	8.54	25.62	1.99	1.86	0.497	0.609	1733.9	24.11~24.52
B20V125-1	100	9.9	11.4	6.94	28.07	2.03	1.74	1.259	1.492	651.1	9.22~9.33
B20V125-2	100	9.9	11.3	8.23	28.61	2.00	1.76	1.259	1.330	750.2	9.21~9.34
B20V200-1	100	9.8	11.8	6.99	29.74	2.03	1.61	1.982	2.014	549.1	11.76~12.24
B20V200-2	100	10.0	12.4	7.48	30.83	1.99	1.58	2.046	2.393	425.7	14.16~14.38
B20V200-3	100	10.1	12.2	8.28	31.45	1.98	1.62	2.046	2.189	464.8	採水できず*
B20V300	100	9.9	13.0	7.06	33.77	2.04	1.54	2.995	3.118	280.9	9.53~9.64
B14V000	100	9.8	10.0	8.54	45.16	1.43	1.28	0.000	0.249	180.8	6.10~6.18
B14V050	100	9.9	10.5	8.15	46.87	1.42	1.34	0.550	0.570	141.9	10.41~10.43
B14V125	100	9.9	11.2	7.48	48.84	1.42	1.26	1.283	1.303	138.4	20.92~21.11
B14V200-1	100	9.7	11.6	7.59	54.55	1.45	1.21	1.999	1.909	131.2	採水できず*
B14V200-2	100	9.7	11.8	7.44	54.38	1.45	1.20	2.019	2.108	109.9	18.83~19.11
B14V200-3	100	9.9	11.8	8.12	56.34	1.42	1.17	2.029	1.969	70.9	15.59~15.72
B14V300-1	100	10.6	13.6	7.76	68.05	1.34	1.02	3.026	2.985	113.2	採水できず*
B14V300-2	100	10.4	13.5	7.88	70.05	1.36	1.00	3.044	3.044	145.5	採水できず*
B14V300-3	100	10.7	13.6	6.12	71.46	1.35	1.02	3.026	2.985	152.2	採水できず*
B14V300-4	100	10.5	13.6	6.65	72.24	1.36	1.03	3.064	3.064	191.5	採水できず*
S20V000	80	10.4	10.4	7.36	30.42	1.97	1.92	0.010	-0.020	3209.0	10.75~10.89
S20V050-1	80	10.1	10.7	7.43	29.56	2.03	1.88	0.508	0.670	1829.4	12.49~12.73
S20V050-2	80	10.4	11.0	7.40	33.01	1.96	1.84	0.487	0.629	1610.1	9.78~9.95
S20V125-1	80	9.6	10.6	6.01	18.00	2.10	1.89	1.281	1.016	1900.4	4.07~4.13
S20V125-2	80	10.3	11.9	7.45	34.68	1.97	1.70	1.273	1.527	904.6	11.41~11.56
S20V200-1	80	10.2	12.2	5.93	27.99	2.00	1.65	1.984	2.019	323.5	5.22~5.35
S20V200-2	80	10.2	12.4	7.67	39.46	2.00	1.61	2.009	2.188	613.4	11.27~11.37
S20V300	80	10.4	13.5	7.29	43.04	2.29	1.47	3.075	3.115	354.8	5.22~5.28
S14V000	80	10.2	10.0	4.83	42.18	1.43	1.45	0.010	-0.189	184.4	4.91~4.93
S14V050-1	80	10.3	10.8	7.41	46.08	1.38	1.31	0.508	0.497	187.5	採水できず*
S14V050-2	80	10.2	10.6	4.88	48.34	1.43	1.33	0.508	0.477	152.2	採水できず*
S14V125	80	10.2	11.4	7.55	54.97	1.40	1.25	1.273	1.262	149.0	3.8
S14V200	80	10.3	12.6	7.63	59.77	1.39	1.15	2.009	2.327	148.9	8.6
S14V300-1	80	10.2	13.3	4.99	63.28	1.42	1.07	3.044	3.064	92.2	2.9
S14V300-2	80	10.0	13.1	6.72	62.00	1.43	1.10	2.991	3.022	110.0	採水できず*
S14V300-3	80	10.4	13.4	5.58	65.02	1.39	1.05	3.025	3.022	117.1	採水できず*

なお、供試体直径は全ケースにおいて 60.0mm である。Na イオン濃度は、図-6 のステンレス製リングとアクリル容器の間に残存した水の分析結果である。Ca, K, Mg イオン濃度は検出限界値以下であった。

クリル容器の間から採取した。この方法では、分析に必要な量が採取できない場合も生じた。後述の実験結果の考察においても述べるが、膨潤挙動は周辺の水質に大きく影響されることが考えられるので、

このような観点からの実験装置の高度化が必要と考えられる。

隙間の大きさは、(財)電力中央研究所・電気事業連合会による処分孔仕様^{2), 16)}をもとに設定した。



(図中の数値の単位：mm)

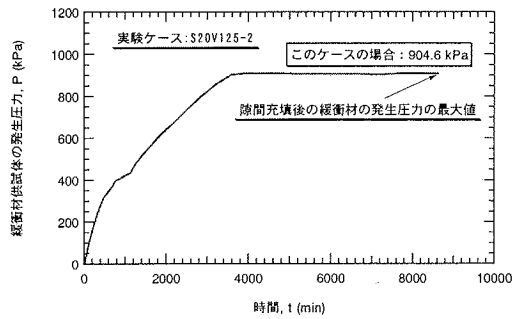
図-7 処分孔の外形と寸法の一例^{2), 16)}

図-7に上記の処分孔仕様を示す。すなわち、これまでの検討によれば緩衝材とオーバーバックの間に10mm、緩衝材と処分孔壁との間に40mm、合計50mmの隙間が生じる精度でオーバーバックと緩衝材の定置が可能であるとしている。また、緩衝材厚さは400mmと設定されている。そこで本研究では、図-7に示す緩衝材厚さと隙間の比と、図-6の実験装置内での供試体高さとの比と同じ値になるように設定した。このように隙間を設定すると、供試体高さ10mmに対して隙間は1.25mmとなる。この値を基準とし、隙間の初期の設定値を種々変化させて実験を行った。隙間の値は、表-2に示すように実験開始時には0.000~3.075mmの範囲にあった。前述のように、これらの隙間の値は図-6の変位計により測定した。

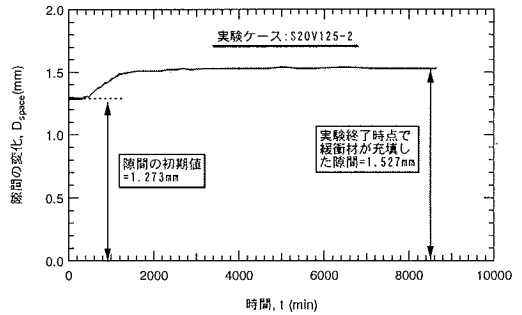
(4) 実験結果および考察

本実験で実施した実験条件および結果をまとめたものを表-2に示す。全実験ケースとも、実験終了時点での供試体の飽和度は96~105%の範囲にあり、ほぼ完全に飽和していたものと考えられる。第1章でも述べたように、緩衝材の自己シール性が主に要求される段階では緩衝材はほぼ完全に飽和していると想定される。したがって、本実験では、緩衝材が膨潤変形により隙間部分を充填し、発生圧力がほぼ一定になった状態に対して実験結果を整理した。

図-8は、実験ケースS20V125-2において測定された



(a) 緩衝材の発生する圧力の時間変化



(b) 隙間量の時間変化

図-8 隙間充填に伴う緩衝材の発生する圧力および隙間量の時間変化

隙間充填に伴う緩衝材の発生圧力および隙間量の時間変化を例示する。図-8に示す実験ケースでは、1.273mmの隙間を設けて緩衝材供試体に給水を開始した。緩衝材供試体は膨潤変形し設定した隙間を充填した後に、さらに図-6に示すキャップを上方に押し上げ、実験終了時点では1.527mm分の隙間を充填した。本研究では、キャップを上方に押し上げた変位量も含めて隙間と考えて、以下の整理を行っている。

図-9には、隙間充填後の緩衝材の発生圧力と隙間・緩衝材の体積比率との関係を、図-10には隙間充填後の緩衝材の発生圧力と、隙間充填後の緩衝材の乾燥密度との関係を示す。いずれの図においても、表-2に示した全実験ケースに対して表記している。図-9から分かるように、隙間の幅が大きくなるに伴い、膨潤により隙間を充填した後に緩衝材が発生する圧力は小さくなるのが分かる。特に、緩衝材の初期乾燥密度が大きい場合(図-9で○、●で示したケース)、隙間充填後の緩衝材の発生圧力は指数関数的に低下することが分かる。

図-10に示すように、隙間充填後の状態における緩衝材の発生圧力を、隙間充填後の緩衝材の乾燥密度で整理すると、両者の関係は一意的な関係になる

表-3 計算に用いた各パラメータの値

材料パラメータ (使用した試料の実測データ)	
ρ_m	2.77 Mg/m ³
ρ_{nm}	2.81 Mg/m ³
ρ_{sand}	2.66 Mg/m ³
S_m	810 m ² /g
S_{nm}	0 m ² /g
C_m	48 %
CEC	0.732 meq./g
EXC_{Na}^+	0.405 meq./g
EXC_{Ca}^{2+}	0.287 meq./g
EXC_{K}^+	0.009 meq./g
EXC_{Mg}^{2+}	0.030 meq./g
$(R_{ion})_{Na}$	0.098 nm
$(R_{ion})_{Ca}$	0.1115 nm
$(R_{ion})_{K}$	0.133 nm
$(R_{ion})_{Mg}$	0.0835 nm
v_{Na}	1
v_{Ca}	2
v_K	1
v_{Mg}	2
t	9.60×10^{-10} m
物理定数	
e'	1.602×10^{-19} C
k	1.38×10^{-23} J/K
A_h	2.2×10^{-20} J
N_A	6.023×10^{23}
環境条件パラメータ	
ε	7.083×10^{-10} C ² /(J·m)
n_0	10, 20, 30, 40 mol/m ³
T	295 K

各パラメータの詳細は、第2章を参照されたい。

ことが分かる。すなわち、隙間充填後の緩衝材の発生する圧力は、その状態における乾燥密度に一意的に依存するものと考えられる。したがって、第2章で概説した「ベントナイト系緩衝材の膨潤評価式」は、隙間を充填した後の緩衝材の発生圧力等を予測・評価できる可能性があり、緩衝材の自己シール性を定量的に数値計算により評価できるものと考えられる。

4. 緩衝材の膨潤評価式の適用性

本章では、第3章に述べた実験結果と、第2章で述

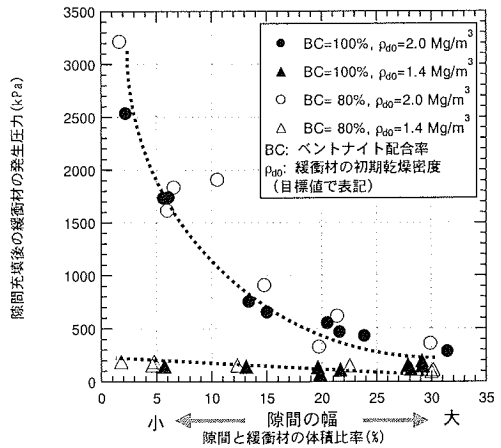


図-9 隙間充填後の緩衝材の発生圧力と隙間・緩衝材の体積比率の関係

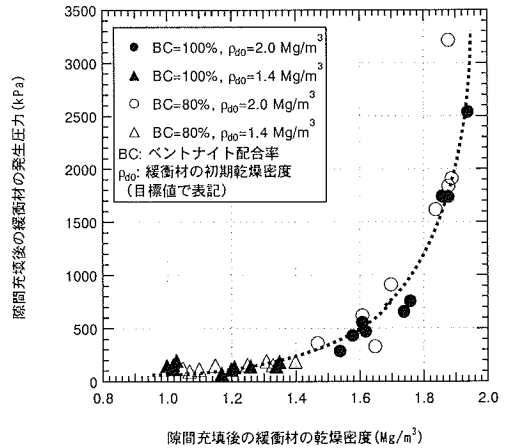


図-10 隙間充填後の緩衝材の発生圧力と乾燥密度の関係

べた「ベントナイト系緩衝材の膨潤評価式」による計算結果を比較し、膨潤評価式の適用性について述べる。

(1) パラメータの設定

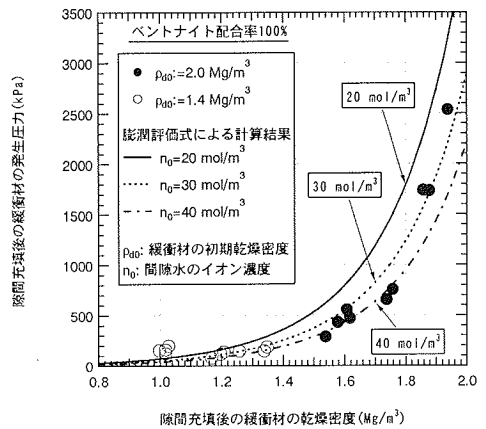
第2章で提案された膨潤評価式で必要となるパラメータ・物理定数は、使用した材料固有のパラメータ（以下、材料パラメータと記述する）と周辺環境に係わるパラメータ（環境条件パラメータ）および物理定数とに分類される。計算に用いた各パラメータは表-3に示す通りである。

材料パラメータは、使用したベントナイトおよび砂試料に対して実際に測定を行い、その結果に基づき設定した。モンモリロナイトの土粒子密度は2.75~2.78Mg/m³程度と言われており¹⁷⁾、この値を参考にモンモリロナイトの土粒子密度 $\rho_m = 2.77$ Mg/m³と

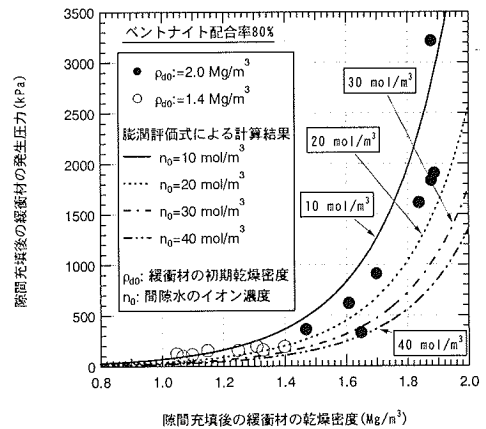
設定した。モンモリロナイト以外の鉱物の土粒子密度 ρ_{nm} は、式(9)においてベントナイト配合率 α を100%としたときの ρ_{solid} がベントナイトの土粒子密度になるように計算で求めた。表-1 に示すようにベントナイトの土粒子密度が 2.79 Mg/m^3 、モンモリロナイト含有率が48%のとき、 $\rho_{nm} = 2.81 \text{ Mg/m}^3$ と計算される。砂の土粒子密度 ρ_{sand} は、三河珪砂6号の土粒子密度である 2.66 Mg/m^3 を用いた。モンモリロナイトの比表面積 S_m は文献(18)から引用し $810 \text{ m}^2/\text{g}$ とした。一方、モンモリロナイト以外の鉱物の比表面積 S_{nm} はモンモリロナイトと比べて十分小さいと考え、 $0 \text{ m}^2/\text{g}$ に設定した。モンモリロナイト含有率 C_m は、表-1 に示す通りメチレンブルー吸着量測定の結果から48%とした。各交換性陽イオン量 EXC_{Na^+} 、 $EXC_{Ca^{2+}}$ 、 EXC_{K^+} 、 $EXC_{Mg^{2+}}$ についても、表-1 に示す測定結果の値を用いた。陽イオン交換容量 CEC は、Na, Ca, K, Mg の各交換性陽イオン量の総和とした。また、Na, Ca, K, Mg の非水とイオン半径 (R_{ion})_{*i*} (*i* は Na^+ , Ca^{2+} , K^+ , Mg^{2+} のいずれかの交換性陽イオンを示す) は文献(19)に記載されている値を参考に表-3 に示すように設定した。イオン価は各イオン種の価数を設定した。モンモリロナイトの結晶層厚 l は文献(19)から引用して設定した。Hamaker定数 A_h には、Novich and Ring がモンモリロナイトの凝集実験結果に対して理論解析を行い求めた $2.2 \times 10^{-20} \text{ J}$ という値を設定した²⁰⁾。間隙水の誘電率は一般的な水を想定し、文献(10)より引用した。温度 T は、実験室内の温度が $22 \pm 1^\circ\text{C}$ であることから 295 K と設定した。

間隙水のイオン濃度 n_0 については、供試体に圧力を作用させて抽出した水の分析結果に基づき設定する方法などが考えられる。しかし、ベントナイト系緩衝材は非常に高い保水性を有し低透水材料であるため、その供試体から間隙水を抽出しイオン濃度を直接測定することは非常に困難である。そこで本研究では、表-2 に示したステンレス製リングとアクリル容器の間に残存した水の分析結果、第一・第二著者による文献(7)での推察結果および以下に述べる既往の研究結果を参考に、表-3 に示すように $10 \sim 40 \text{ mol/m}^3$ の範囲で変化させた。

粘土中の水溶液の電解質濃度を調査した研究として Bolt らの研究があり、それによると自然粘土の間隙水イオン濃度は通常 $10 \sim 100 \text{ mol/m}^3$ 程度であるとしている^{21), 22)}。ベントナイトと地下水の反応について調査した研究においても、アメリカ・ワイオミング産ベントナイト MX-80 と接触した水のイオン濃度は $10 \sim 20 \text{ mol/m}^3$ 程度であるという報告があ



(a) ベントナイト配合率100%の場合



(b) ベントナイト配合率80%の場合

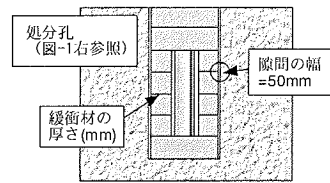
図-11 隙間充填後の緩衝材の発生圧力と乾燥密度との関係における計算結果と実験結果の比較

る^{23), 24)}。表-3 に示した n_0 の値は、これらの既往の研究成果とほぼ整合するものと考えられる。

(2) 計算結果と実験結果の比較

図-11は、表-2 に示す全実験ケースに対して、「ベントナイト系緩衝材の膨潤評価式」の計算結果と実験結果の比較を示したものである。この図においては、隙間充填後の緩衝材の発生する圧力と、そのときの乾燥密度の関係において整理している。この図から、「ベントナイト系緩衝材の膨潤評価式」は、隙間充填後の緩衝材の膨潤挙動を比較的良好に予測できていると言える。表-2 に示したステンレス製リングとアクリル容器の間に残存した水のNaイオン濃度の値から、ベントナイト配合率100%の方が、80%の場合よりもNaイオン濃度が高い傾向になることが認められる。図-11からも、ベントナイト配合率が100%の方が間隙水のイオン濃度が高い条

件で計算したものと良く合致していることが分かる。このことから、膨潤挙動は間隙水のイオン濃度に大きく影響されることが分かる。したがって、第5章に後述する「ベントナイト系緩衝材の膨潤評価式」を利用した緩衝材の設計では、間隙水のイオン濃度を精度良く評価することが重要と考えられる。



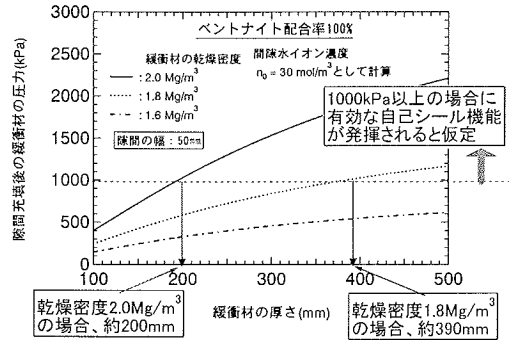
5. ベントナイト系緩衝材の膨潤評価式による緩衝材の設計例

本章では、「ベントナイト系緩衝材の膨潤評価式」の利用例として、第1章で述べた自己シール性の観点からの緩衝材の乾燥密度やベントナイト配合率、寸法の概略設計例について述べる。

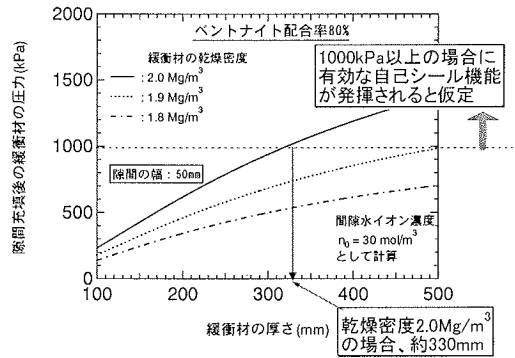
第1章において述べたように、緩衝材には、図-1右図に示すような周辺地盤や廃棄物収納容器との間に生じる隙間を充填し、かつ十分な止水機能を有するための自己シール性が期待されている。ベントナイト系緩衝材の膨潤評価式は、表-3に示すように材料パラメータや環境条件パラメータを設定することにより、使用する材料や処分施設周辺の環境条件に応じた緩衝材・埋戻し材の膨潤による最大変形量と最大圧力を算出できる。この膨潤評価式を用いれば、緩衝材から処分孔壁面までの距離と、その隙間を充填した後の緩衝材の発生圧力との関係を求めることにより自己シール性の検討が可能となる。

今回、緩衝材から処分孔壁面までの隙間の幅(図-1右図参照)を50mmであると仮定し、これを充填し十分な止水機能を有するために必要な緩衝材の乾燥密度、ベントナイト配合率および厚さの試算を行った。

試算を行う上での前提条件として、①廃棄物収納容器、緩衝材、緩衝材と周辺岩盤との隙間、周辺岩盤を水平方向の一次元モデルとする、②緩衝材全体が均一に膨潤変形する、③隙間充填後の緩衝材の圧力には異方性がない、④緩衝材が膨潤変形し処分孔壁面に接した状態で発生する圧力は1000 kPa以上の時に有効な自己シール機能が発揮される、と仮定した。①については、今後、模型実験などを行い検討する予定である。また、②、③では、緩衝材全体が均一に膨潤変形し隙間充填後の緩衝材の圧力は鉛直、水平とも等しいと仮定しているが、これについても今後実験的に調査する必要がある。④では、緩衝材が隙間の隅々まで体積膨張して充填し、かつ1000 kPa以上の圧力を発生している状態において十分な止水機能を発揮していると仮定したものである。



(a) ベントナイト配合率 100%



(b) ベントナイト配合率 80%

図-12 自己シール性の機能を満足する緩衝材の乾燥密度、ベントナイト配合率および厚さの試算例

カナダでは緩衝材の膨潤変形後に必要な圧力を1000 kPaとしており^{25)~27)}、これを参考にして④のように仮定した。なお、参考に挙げた文献^{25)~27)}においても、その明確な根拠は明らかにされていないので、膨潤変形後に必要な圧力値については、今後実験的な検討が必要である。また、参考文献^{25)~27)}では、処分孔周辺が岩盤であれば、1000 kPaの圧力では岩盤への悪影響は与えないとしている。

図-12に、ベントナイト配合率が100%と80%の緩衝材の試算結果を例示する。スウェーデンではベントナイトのみを締固めたものを緩衝材として利用することを予定している³⁾。日本においては、80%や70%のベントナイト配合率でブロック状に締固めたものを緩衝材に利用することを考えている^{1), 2)}。以上より、緩衝材の設計例として上述の配合率の場

合の試算例を示した。この試算では、本研究で使用したベントナイト（クニミネ工業製クニゲル V1）を想定して、表-3 に示す材料パラメータと環境条件パラメータを使用した。ただし、緩衝材中の隙間水のイオン濃度 n_0 は 30 mol/m^3 と仮定した。緩衝材の乾燥密度は、ベントナイト配合率が 100% の場合は $1.6 \sim 2.0 \text{ Mg/m}^3$ の範囲で、ベントナイト配合率 80% の場合には $1.8 \sim 2.0 \text{ Mg/m}^3$ の範囲で変化させた。

図-12 の結果から、50mm の幅の隙間を膨潤変形により充填した後に、緩衝材が発生する圧力が 1000 kPa 以上であるためには、緩衝材のベントナイト配合率が 100% の場合、乾燥密度 2.0 Mg/m^3 において約 200mm の緩衝材厚さが、乾燥密度 1.8 Mg/m^3 において約 390mm の緩衝材厚が必要と計算される。また、緩衝材のベントナイト配合率が 80% の場合は、乾燥密度 2.0 Mg/m^3 において約 330mm の緩衝材厚が必要であると試算される。

上記の試算は、「ベントナイト系緩衝材の膨潤評価式」の利用の仕方を示すために、いくつかの仮定を行い実施したものである。今後は、設定した仮定の有効性について調査するとともに、より大きな規模の模型実験等により「ベントナイト系緩衝材の膨潤評価式」の適用性を検討する必要がある。特に、隙間部分を充填した後の緩衝材の圧力がどの程度であれば、十分な止水機能を有するのかが定量的に把握し、高レベル放射性廃棄物処分施設で用いる緩衝材の設計に本格的に利用できるよう高度化していく必要がある。

6. 結論

本研究で得られた主な結論は以下の通りである。

- (1) 緩衝材と処分孔壁との間に生じる隙間部分を一次元的に縮尺・模擬した模型実験を行い、緩衝材の隙間部分への充填挙動について調査した。その結果、隙間部分がほぼ充填されることを確認するとともに、隙間充填後の状態における緩衝材の発生圧力を、隙間充填後の緩衝材の乾燥密度で整理すると、両者の関係は一意的な関係になることが分かった。すなわち、隙間充填後の緩衝材に発生する圧力は、その状態における乾燥密度に一意的に依存するものと考えられる。
- (2) 第一・第二著者が提案している「ベントナイト系緩衝材の膨潤評価式」による計算結果と実験により得た隙間充填後の緩衝材が発生す

る圧力と乾燥密度との関係とを比較したところ、膨潤評価式は隙間充填後の緩衝材の膨潤挙動を良好に予測できることが分かった。

- (3) 「ベントナイト系緩衝材の膨潤評価式」を利用して、自己シール性の観点から緩衝材の密度やベントナイト配合率、寸法（厚さ）の概略設計例を紹介した。

謝辞：本研究には、電力10社による電力共通研究「高レベル廃棄物処分における人工バリア物性評価に関する研究」にて実施した成果の一部が含まれている。また、第一著者および第二著者が（財）電力中央研究所に、第五著者が東京電力（株）に在職中の研究成果である。関係各位に感謝する次第である。また、実験の実施においては、（株）シーアールエスの川西光弘氏にご協力いただいた。感謝の意を表する。

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—総論レポート。JNC TN1400 99-020, 1999.
- 2) （財）電力中央研究所，電気事業連合会：高レベル放射性廃棄物地層処分の事業化技術，1999.
- 3) Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co.: SKB91 Final disposal of spent nuclear fuel. Importance of the bedrock for safety, SKB Technical Report 92-20, 1992.
- 4) Komine, H. and Ogata, N.: Experimental study on swelling characteristics of compacted bentonite, Canadian Geotechnical Journal, Vol.31, No.4, pp.478-490, 1994.
- 5) Komine, H. and Ogata, N.: Experimental study on swelling characteristics of sand-bentonite mixture for nuclear waste disposal, Soils and Foundations, Vol. 39, No.2, pp.83-97, 1999.
- 6) 小峯秀雄，緒方信英：砂・ベントナイト混合材料および各種ベントナイトの膨潤特性，土木学会論文集 No.701/III-58, 373-385, 2002.
- 7) Komine, H. and Ogata, N. : New equations for swelling characteristics of bentonite-based buffer materials, Canadian Geotechnical Journal, Vol. 40, No. 2, pp. 460-475, 2003.
- 8) 小峯秀雄：高レベル放射性廃棄物処分におけるベントナイト粘土の役割と技術開発動向，粘土科学，第41巻，第4号，pp.182-189, 2002.
- 9) Komine, H. : Evaluation of swelling characteristics of buffer and backfill materials considering the exchangeable cations compositions of bentonite and its applicability, Proc. of the 15th Int. Conf. on Soil Mechanics and Geotechnical

- Engineering, Vol. 3, pp. 1981-1984, 2001.
- 10) Mitchell, J.K. : Fundamentals of soil behavior (Second Edition), John Wiley & Sons, Inc., pp.111-130, 1993.
 - 11) Komine, H. and Ogata, N. : Prediction for swelling characteristics of compacted bentonite, Canadian Geotechnical Journal, 33-1, pp.11-22, 1996.
 - 12) Komine, H. and Ogata, N. : Experimental study on swelling characteristics of compacted bentonite, Canadian Geotechnical Journal, 31-4, pp.478-490, 1994.
 - 13) Iwata, S. and Tabuchi, T. : Soil - water interactions , Marcel Dekker, Inc., pp.131-193, 1988.
 - 14) Van Olphen, H. : An introduction to clay colloid chemistry (Second Edition), Krieger Publishing Company Malabar, pp. 92-110, 1991.
 - 15) Kanno, T. and Wakamatsu, H. : Water uptake and swelling properties of unsaturated bentonite buffer materials, Canadian Geotechnical Journal, Vol.29, pp.1102-1107, 1992.
 - 16) 緒方信英, 小崎明郎, 植田浩義, 朝野英一, 高尾肇 : 高レベル放射性廃棄物処分の事業化技術—その4 人工バリアの設計と製作—, 原子力バックエンド研究, Vol. 5, No. 2, pp.103-121, 1999.
 - 17) Lambe, T.W. and Whitman, R.V. : Soil Mechanics, John Wiley & Sons Inc., pp.29-31, 1969.
 - 18) 日本粘土学会編 : 粘土ハンドブック (第2版) , 技報堂出版, pp.132, 1987.
 - 19) Mitchell, J.K. : Fundamentals of soil behavior (Second Edition), John Wiley & Sons, Inc., pp.38-40, 1993.
 - 20) Novich, B.E. and Ring, T.A. : Colloid stability of clays using photon correlation spectroscopy, Clays and Clay Minerals, Vol. 32, No. 5, pp.400-406, 1984.
 - 21) Bolt, G.H. : Physico-Chemical analysis of the compressibility of pure clays, Geotechnique, Vol.6, No.2, pp.86-93, 1956.
 - 22) Bolt, G.H. and Bruggenwert, M.G.M. : Soil chemistry, A Basic Elements (Second Revised Edition), Elsevier Scientific Publishing Company, Amsterdam, 1978.
 - 23) Wanner, H. : Modeling interaction of deep groundwaters with bentonite and radionuclide speciation, Nuclear Technology, Vol. 79, 1987.
 - 24) Snellman, M., Uotila, H. and Rantanen, J. : Laboratory and modelling studies of sodium bentonite groundwater interaction, Materials Research Society Symposium Proceeding, Vol. 84, 1987.
 - 25) Atomic Energy of Canada Limited : The Disposal of Canada's Nuclear Fuel Waste : Engineered Barriers Alternatives, AECL-10719 COG-93-8, Whiteshell Laboratories Pinawa, Manitoba R0E 1L0, 1994.
 - 26) Dixon, D.A., Gray, M.N., Cheung, S.C.H. and Daxidson, B.C. : The hydraulic conductivity of dense clay soils in geotechnique in resource development, Proceedings of the 40th Canadian Geotechnical Conference, Regina, Saskatchewan, pp. 389-396, 1987.
 - 27) Dixon, D.A. and Gray, M.N. : Swelling and hydraulic properties of bentonites from Japan, Canada and the USA, Proceedings of the Second International Congress on Environmental Geotechnics (IS-Osaka), Vol. 1, pp.43-48, 1996.

(2003.1.7 受付)

EVALUATION OF SELF-SEALING PROPERTY OF BENTONITE-BASED BUFFER BY ONE-DIMENSIONAL MODEL TEST

Hideo KOMINE, Nobuhide OGATA, Akira NAKASHIMA, Hajime TAKAO,
Hiroyoshi UEDA and Takahiro KIMOTO

Bentonite-based buffer materials for high-level nuclear waste disposal are expected to fill up the space between buffer and a wall of the disposal pit, and/or between buffer and an overpack by its swelling deformation. That is called as self-sealing ability. This study performs the one-dimensional model tests simulated the relationship between buffer and space mentioned above. It also investigates the validity of the new equations for evaluating the swelling characteristics of bentonite-based buffer material, which were proposed the first and second authors, by comparing the calculations and the experimental results. The experimental works and calculations showed the filling-up of spaces by swelling of buffer, and the high applicability of authors' equations to evaluate self-sealing ability.