

令和元年6月13日現在

機関番号：15101

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K21174

研究課題名(和文)放射性廃棄物地下処分に関わるバリア材の力学特性に及ぼす粘土鉱物の種類の影響

研究課題名(英文)Effect of clay mineral type on the physical and mechanical properties of barriers for the geological disposal of radioactive waste

研究代表者

河野 勝宣(KOHNO, Masanori)

鳥取大学・工学研究科・講師

研究者番号：60640901

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,100,000円

研究成果の概要(和文)：放射性廃棄物地下処分に關する研究は重要度が高いが、バリア材に含まれる粘土鉱物の種類や含有量、さらに、超長期供用による粘土鉱物の変質については十分な検討がなされていない。特に、複雑な地質環境を有する我が国にとって、「粘土鉱物」に着目することは非常に重要である。本研究は、粘土鉱物を含む岩質材料(天然バリアを想定)と、1種の粘土鉱物および変質鉱物を様々な割合で含むベントナイト系材料(人工バリアを想定)の力学特性に及ぼす粘土鉱物の種類の影響について実験的に検討した。特に粘土鉱物を含む岩質材料では一軸圧縮強度について、粘土鉱物およびベントナイト系材料では膨潤圧・透水特性について検討した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究は、放射性廃棄物の人工・天然バリア材のより確実な長期安定性の実現、さらに、地下環境の状況に応じた粘土バリア材の適切な選定に貢献できると考える。一方、近年のエネルギー資源の多様化、地震・津波・火山噴火による地表での被害を考えると、力学的に安定した地下岩盤利用の可能性を広げることは必須である。様々な環境下での透水性や力学特性の把握により、地下環境の有効利用やエネルギー資源抽出・掘削の際の安定性評価、さらに、遮水壁、人工軟岩開発、地すべり面粘土に関する研究にも展開できると予想される。このように、資源工学および地盤工学分野で幅広い波及効果が期待される。

研究成果の概要(英文)：Clay-mineral type and content are very important factors for the ultra-long-term stabilization of barriers in radioactive waste disposal. Firstly, in order to clarify that effect of only clay mineral content, a series of experiments has been carried out on artificial rock by the use of gypsum specimen mixed with clay minerals. Secondly, this study investigates the effects of clay-mineral type and content on the swelling characteristics and permeability of bentonite-sand mixtures with clay minerals using one-dimensional swelling-pressure and constant-pressure permeability tests. These experiments produced the following results: (1) Comparative tests revealed that the difference of clay mineral content or type in the clay mineral-bearing rock material specimens influences the physical and mechanical properties of rock materials. (2) The hydraulic conductivity of bentonite-sand-clay mineral mixtures increased with increasing content of non-swelling alteration products of montmorillonite.

研究分野：地盤工学，岩石力学，土木地質学

キーワード：粘土鉱物 ベントナイト 変質 一軸圧縮強度 膨潤圧 透水係数 放射性廃棄物地層処分 バリア材

1. 研究開始当初の背景

放射性廃棄物の地下処分は、各国で現実味を帯びた重要課題の一つである。これまで、人工バリア材（ベントナイト系材料）については、膨潤特性や透水性、セメント系材料との接触による変質やナチュラルアナログに関する研究など、天然バリア材については、堆積軟岩の力学特性評価、結晶質岩盤の長期透水性評価や亀裂の閉塞に関する研究など、多くの研究が実施されている。特に、日本列島の地質は、地質時代を通じて、マグマ活動や地殻変動、風化作用の産物が多く、熱水変質帯や破碎帯、風化帯が広範囲に分布しており、多種多様な粘土鉱物が普遍的に存在している。粘土鉱物はその構造（図-1）や化学組成の違いから、物理・力学特性が大きく異なることが想像されるため、これらのバリア材料の長期の安全性を実現するにあたって、バリア材に及ぼす「変質鉱物（主に粘土鉱物）」の影響は考慮すべき重要項目である。

数千年～数百万年間もの長期にわたる人工バリア材や埋戻し材の使用は、モンモリロナイトをイライトや緑泥石をはじめとする他の粘土鉱物に変質させる恐れがある。特に、ベントナイト中のモンモリロナイトがイライトに変質する現象については多くの研究成果が蓄積されているが、変質のタイプの違いによる「構成鉱物の組合せと量比」、「変質鉱物の種類や含有量」の影響についての定量的な検討は十分とは言えない。ベントナイトに関しても、産地が異なれば、モンモリロナイト以外の粘土鉱物やその他の鉱物が様々な割合で含有する。したがって、ベントナイトの構成鉱物の組合せや量比の違いに着目することと、モンモリロナイトの変質後を想定した様々な粘土鉱物を主成分とする材料の透水性等の力学特性を明らかにすることは、放射性廃棄物のバリア材や埋戻し材の長期安定性を考えるうえで不可欠な重要検討事項である。

天然バリア材のうち、堆積軟岩においては、結晶質岩盤に比べて亀裂の影響が少ないが、岩盤強度が小さいことから、透水性よりも岩盤強度や変形・破壊特性の把握が重要となる。一方、新生代に形成された堆積岩類や様々な変質作用を受けた諸岩類は粘土鉱物を含むことが多く、これらの岩類は、岩石自体の強度が低いだけでなく、含有粘土鉱物の影響による岩石組織の物理的または化学的な劣化度合いが大きい。また、含有粘土鉱物は、地すべりなどの斜面災害、建設工事における盤ぶくれや崩壊等の要因の一つとして挙げられる。そのため、粘土鉱物を含む地盤材料や岩質材料の物性について検討した研究は各分野において多くなされているが、粘土鉱物の種類に着目して物性を評価している研究例はほとんどない。

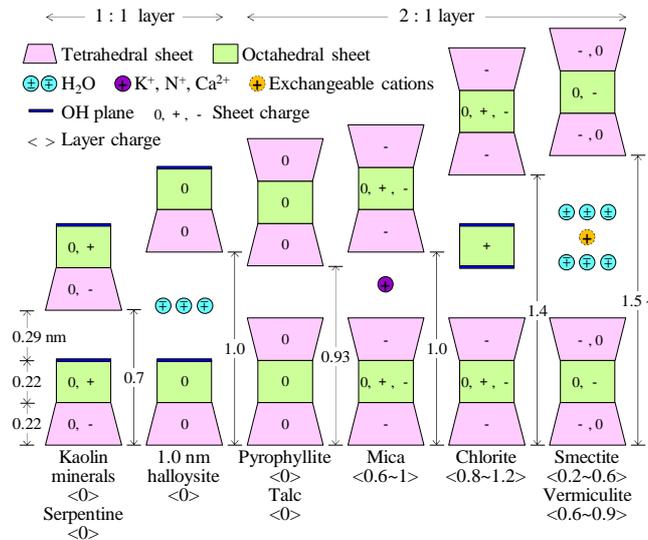


図-1 層状珪酸塩の構造模式図(白水晴雄 著：粘土鉱物学 - 粘土科学の基礎 - (新装版), 2012 に基づく)

2. 研究の目的

本研究は、天然バリア材（堆積軟岩を対象）および人工バリア材（ベントナイト系材料）を対象として、放射性廃棄物地下処分に関わるこれらのバリア材の物性に及ぼす変質鉱物（主に粘土鉱物）の種類と含有量の影響を明らかにし、放射性廃棄物地下処分におけるバリア材の長期安定性実現に大きく貢献できる基礎的データを得ることを目的とする。

3. 研究の方法

(1) 粘土鉱物のみ影響を評価できるように、石膏と粘土鉱物を様々な割合で混合した人工軟岩供試体（直径 30 mm、高さ 60 mm の円柱形：図-2）を作製し、粘土鉱物の種類・含有量の違いによって、供試体の最も基礎的な物性値と一軸圧縮強度がどのように変化するかについて実験的に検討する。特に、一軸圧縮強度の差を粘土鉱物の構造の違いに基づいて考察する。人

工軟岩供試体は、石英粉末と粘土鉱物粉末の割合（質量比）を種々変化させることにより、固化材である石膏の割合を一定にし、かつ、粘土鉱物含有量の異なる供試体を作製した。粘土鉱物混合率 C_c は 0%, 10%, 20%, 30% とした。ここで用いた粘土鉱物は、図-1 に示す各構造を網羅できるように、カオリナイト、蛇紋石、1.0 nm ハロイサイト、タルク、雲母粘土鉱物、緑泥石およびス멕タイトの計 7 種類である。また、岩石中によく含まれる鉱物（非粘土鉱物）として長石および方解石についても検討した。

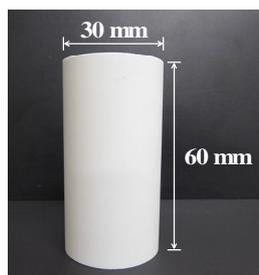


図-2 人工軟岩供試体

(2) 1 種の粘土鉱物のみから構成される供試体の膨潤特性および透水性と、ペントナイト系材料に対して、超長期供用による変質を想定して、粘土鉱物を様々な割合で混合した供試体を用いて、一次元膨潤圧試験（図-3）および定圧透水試験（図-4）を実施し、ペントナイト系材料の膨潤特性および透水性に与える粘土鉱物置換率（変質）の影響について検討する。ここで用いた粘土試料は、カオリナイト、1.0 nm ハロイサイト、雲母粘土鉱物、タルクを用いた。このうち、ペントナイト系材料の変質を想定した試料として、雲母粘土鉱物、カオリナイトおよび緑泥石を用いた。ペントナイト系材料の試料の割合は、ペントナイトおよび粘土鉱物を 70%、珪砂 30% とし、ペントナイトと粘土鉱物との割合により、粘土鉱物混合率 C_c を定義した。また、ペントナイトは山形県月布産のクニゲル V1、珪砂は三河珪砂 6 号をそれぞれ用いた。なお、粘土試料はいずれも 75 μm ふるい通過分を用いた。一次元膨潤圧試験および定圧透水試験の供試体は、いずれも直径 50 mm、高さ 10mm の円柱で、密度が 1.4g/cm³ になるように静的に締め固めて作製した。いずれの試験も恒温室（22±1°C）内に断熱材で作製した恒温槽内にて実施した。一次元膨潤圧試験は、供試体の体積変化を拘束した状態で水浸（蒸留水）させ、そのときの鉛直方向に発生する荷重 F を 1 秒間隔で測定し、膨潤圧 $P_s (= F/A, A: \text{供試体の断面積})$ を算出した。一次元膨潤圧試験は、少なくとも 72 時間行い、それ以降は膨潤圧が 24 時間一定（平衡膨潤圧）となるまで測定を行った。一方、透水試験は、エアコンプレッサーおよび加圧容器を用いて、供試体に一定の透水圧で通水（蒸留水）して行った。供試体は水浸減圧容器を用いて脱気し、飽和状態とした。透水量は分析天びん（株式会社島津製作所製 AUX120、分解能 0.1 mg）を用いて、60 秒間隔でコンピュータにより計測した。測定時間は、初めて透水量を確認してから 24 時間以上測定した。透水係数 $k (= QL/hAt, Q: \text{透水量}, L: \text{供試体高さ}, h: \text{水位差}, A: \text{供試体の断面積}, t: \text{測定時間})$ はダルシー則を用いて算出した。水位差は加圧容器内の圧力（例えば、透水圧が 0.1 MPa の場合、 $h = 1020.4 \text{ cm}$ ）として計算した。なお、透水圧は、供試体の変形や水みちを生じさせないように、膨潤圧以下に設定した。また、透水量については、蒸発量も考慮した。

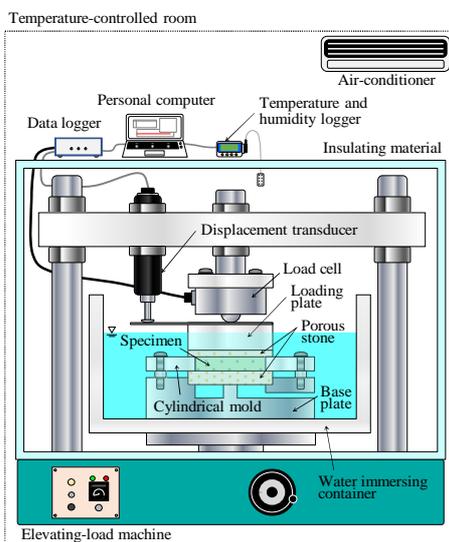


図-3 ペントナイト系材料の一次元膨潤圧試験

Temperature-controlled room

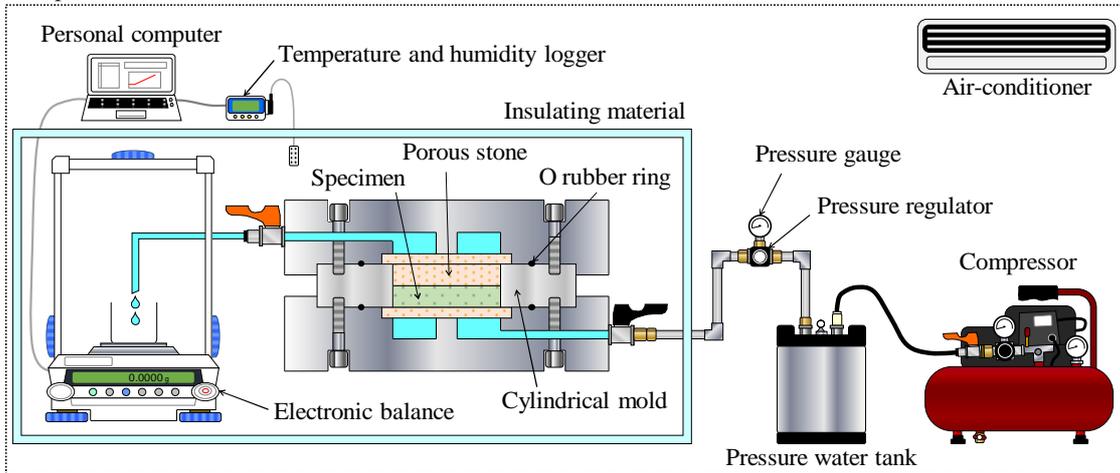


図-4 ベントナイト系材料の定圧透水試験

4. 研究成果

放射性廃棄物地下処分に関わるバリア材の物性に及ぼす変質鉱物（主に粘土鉱物）の種類と含有量の影響について検討した。得られた知見を以下に示す。

(1) 本研究では、石膏と粘土鉱物を様々な割合で混合した人工軟岩供試体を作製し、粘土鉱物の種類・含有量の違いによって、物性値と一軸圧縮強度がどのように変化するのかについて検討した。その結果、石膏 - 粘土鉱物混合供試体の P 波速度、一軸圧縮強度および乾湿による強度変化率は、含有する粘土鉱物の種類・含有量によって異なることがわかった（図-5）。特に、乾燥状態における石膏 - 粘土鉱物混合供試体の一軸圧縮強度は、最大値と最小値で 9 MPa 程度の差がみられ、粘土鉱物の種類の違いによって、一軸圧縮強度に大きな差がみられた。本研究では、この一軸圧縮強度の差を粘土鉱物の構造の違いに基づいて考察した。飽和状態における一軸圧縮強度に与える粘土鉱物の種類や含有量の影響については課題を残すが、乾燥状態における一軸圧縮強度は、含有粘土鉱物が緑泥石、雲母粘土鉱物およびスメクタイト（イオン結合）、カオリナイト、蛇紋石および 1.0 nm ハロイサイト（水素結合）、タルク（ファンデルワールス力）の順に大きい結果となった。これは、含有粘土鉱物の層間に働く化学結合の種類、すなわち、結合力の大小関係を反映するような結果であった。以上の結果は、含有粘土鉱物の種類は岩質材料の強度低下に影響を及ぼす要因の一つであり、今後、粘土鉱物を含む地盤材料や岩質材料の力学特性評価をする上で、貴重な知見になると考えられる。

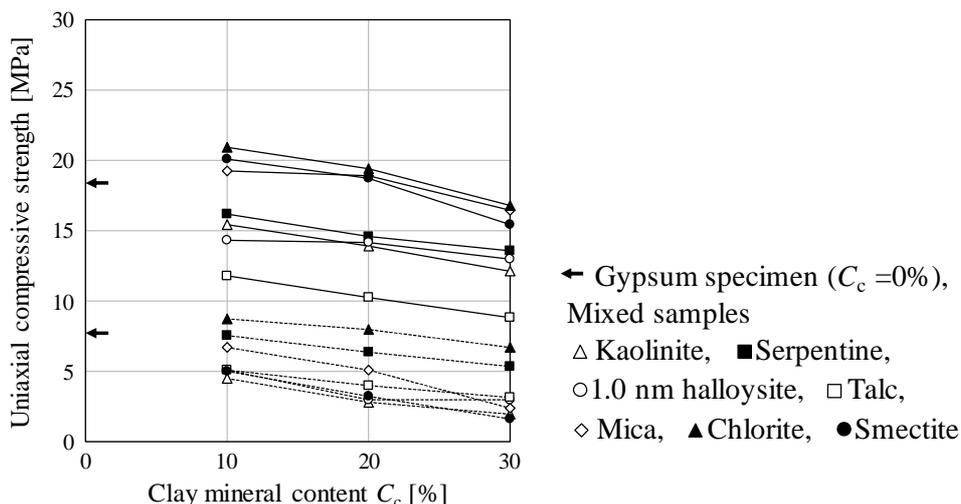


図-5 人工軟岩供試体における粘土鉱物混合率と一軸圧縮強度との関係

(2) まず、粘土試料とベントナイト系材料の膨潤圧・透水試験装置の作製した。1種の粘土鉱物のみから構成される供試体の膨潤特性および透水性と、ベントナイト系材料に対して、超長期供用による変質を想定して、粘土鉱物を様々な割合で混合した供試体を用いて、一次元膨潤圧試験および透水試験を実施し、ベントナイト系材料の膨潤特性および透水性に与える粘土鉱物置換率（変質）の影響について検討した。その結果、膨潤圧と透水係数は粘土鉱物の種類によって異なり、特に、ベントナイトの変質によって生成されると考えられるカオリナイト、雲母

粘土鉱物および緑泥石の透水係数は、ベントナイトの透水係数よりも約3~5桁大きい(図-6)。また、粘土鉱物置換率の増加に伴い、ベントナイト系材料の膨潤圧は低下するとともに、透水係数は上昇した(図-7)。特に、透水係数については、混合した粘土鉱物の種類の違いによる差が見られ、これは、変質による粘土鉱物の増加は、ベントナイト系材料の透水性に影響を与える恐れがあることを示唆するものである。さらに、KOH溶液またはCa(OH)₂溶液に浸漬させ変質反応促進を施したベントナイトを様々な割合で混合した供試体を用いて、一次元膨潤圧試験および透水試験を実施し、ベントナイト系材料の膨潤特性および透水性に与える変質鉱物置換率(変質)の影響についても検討した。その結果、膨潤圧と透水係数は粘土鉱物の種類や浸漬させた溶液の種類によって異なり、特に、ベントナイトの変質によって生成されると考えられるカオリナイト、雲母粘土鉱物および緑泥石、さらに、KOH溶液浸漬ベントナイトの透水係数は、ベントナイトの透水係数よりも約3~5桁大きいことがわかった。これは、変質や、それに伴う変質鉱物(特に粘土鉱物)の増加は、ベントナイト系材料の透水性に影響を与える恐れがあることを示唆するものである。また、ベントナイト系材料を用いる場合、カルシウムイオンの他に、カリウムイオンの存在にも十分注意する必要があることが実験から明らかとなった。

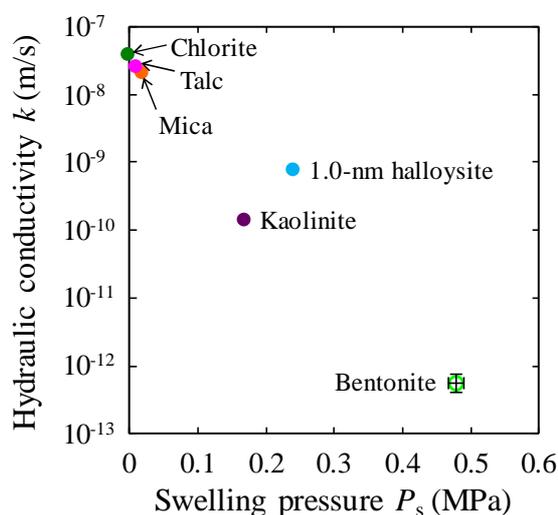


図-6 各種粘土鉱物とベントナイトの膨潤圧と透水係数との関係

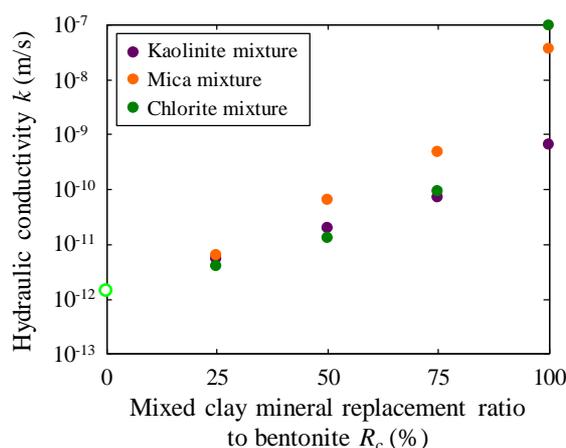


図-7 各種粘土鉱物を混合したベントナイト系材料の粘土鉱物混合率と透水係数との関係

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計5件)

1. Masanori KOHNO, Yoshitaka NARA, Masaji KATO and Tsuyoshi NISHIMURA (2018): Effects of clay-mineral type and content on the hydraulic conductivity of bentonite-sand mixtures made of Kunigel bentonite from Japan. *Clay Minerals*, Vol.53, No.4, pp.721-732, DOI: 10.1180/clm.2018.52. (査読有り)
2. Masaji KATO, Yoshitaka NARA, Yuki OKAZAKI, Masanori KOHNO, Toshinori SATO, Tsutomu SATO and Manabu TAKAHASHI (2018): Application of the transient pulse method to measure clay

- permeability. *Materials Transactions*, Vol.59, No.9, pp.1427-1432, DOI: 10.2320/matertrans.Z-M2018826. (査読有り)
- 河野勝宣・竹原裕太・西村 強 (2018): 粘土鉱物の種類の違いに着目した岩質材料の物性に関する一考察. *材料*, Vol.67, No.3, pp.324-329, DOI: 10.2472/jsms.67.324. (査読有り)
 - 加藤昌治・奈良禎太・岡崎勇樹・河野勝宣・佐藤稔紀・佐藤 努・佐藤 学 (2018): 粘土の透水係数測定へのランジェントパルス法の適用. *材料*, Vol.67, No.3, pp.318-323, DOI: 10.2472/jsms.67.318. (査読有り)
 - Yoshitaka NARA, Masaji KATO, Ryuhei NIRI, Masanori KOHNO, Toshinori SATO, Daisuke FUKUDA, Tsutomu SATO and Manabu TAKAHASHI (2018): Permeability of granite including macro-fracture naturally filled with fine-grained minerals. *Pure and Applied Geophysics*, Vol.175, No.3, pp.917-927, DOI: 10.1007/s00024-017-1704-x. (査読有り)

〔学会発表〕(計 13 件)

- 大槻亮介・河野勝宣・西村 強: 変質したベントナイト系材料の透水性に関する研究. 第 53 回地盤工学研究発表会平成 30 年度発表講演集, pp.2223-2224, 高松市, 2018 年.
- 河野勝宣・中迫優介・西村 強: 土の透水係数に及ぼす粒径と動水勾配の影響に関する実験的検討. 第 53 回地盤工学研究発表会平成 30 年度発表講演集, pp.975-976, 高松市, 2018 年.
- 河野勝宣・大槻亮介・西村 強: 粘土鉱物を混合したベントナイト系材料の膨潤圧および透水係数. 第 44 回地盤工学セミナー報告会, 岡山市, 2018 年.
- 大槻亮介・河野勝宣・西村 強: ベントナイト系材料の膨潤圧および透水係数に及ぼす変質の影響. 平成 30 年度第 70 回土木学会中国支部研究発表会発表概要集, pp.233-236 (III-5), 周南市, 2018 年.
- 加藤昌治・奈良禎太・河野勝宣・佐藤 努・佐藤稔紀・高橋 学: 粘土を懸濁した水が流れる環境下での巨視き裂を含む花崗岩の透水係数. 日本材料学会第 67 期学術講演会, Paper No.102, 高知市, 2018 年.
- 河野勝宣: 粘土鉱物の種類と含有量の違いに着目した地盤の力学特性. 第 4 回岩の力学に関する若手研究者会議, pp.4-9, 京都市, 2017 年.
- Masanori KOHNO, Yoshitaka NARA, Masaji KATO and Tsuyoshi NISHIMURA: Effect of clay mineral type and content on swelling characteristic and permeability of bentonite-sand mixtures. *Book of Abstracts of Clay Conference 2017 - The 7th International Conference on Clays in Natural and Engineered Barriers for Radioactive Waste Confinement*, pp.240-241, Davos, Switzerland, 2017 年.
- 竹原裕太・河野勝宣・西村 強: 粘土鉱物の構造の違いに着目した岩質材料の一軸圧縮強度に関する一考察. 公益社団法人土木学会平成 29 年度全国大会第 72 回年次学術講演会講演概要集, pp.799-800 (III-400), 福岡市, 2017 年.
- 河野勝宣・角 浩一・奈良禎太・加藤昌治・西村 強: ベントナイト系材料の透水係数に及ぼす粘土鉱物混合率の影響. 第 52 回地盤工学研究発表会平成 29 年度発表講演集, pp.2073-2074, 名古屋市, 2017 年.
- 河野勝宣・竹原裕太・西村 強: 粘土鉱物の種類・含有量の違いに着目した岩質材料の物理・力学特性に関する実験的研究. 第 14 回岩の力学国内シンポジウム講演集, Paper No.33, pp.1-6, 神戸市, 2017 年.
- Masanori KOHNO, Yuta TAKEHARA and Tsuyoshi NISHIMURA: Physical and mechanical properties of artificial rock based on clay mineral content and type. *Harmonizing Rock Mechanics with Sustainable Economic Development (Proceedings of 9th Asian Rock Mechanics Symposium)*, Proceedings No.PO7-P111, pp.1-7, Bali, Indonesia, 2016 年.
- 竹原裕太・河野勝宣・西村 強: 粘土鉱物を混合した石膏供試体の物理・力学特性に関する実験的研究. 第 51 回地盤工学研究発表会平成 28 年度発表講演集, pp.499-500, 岡山市, 2016 年.
- 竹原裕太・河野勝宣・西村 強 (2016): 粘土鉱物を混合した石膏供試体の物理・力学特性に関する実験的研究. 平成 28 年度第 68 回土木学会中国支部研究発表会発表概要集, pp.195-196 (III-13), 広島市, 2016 年.

〔その他〕

ホームページ等

<https://geotech-tottori-u.jimdofree.com/>

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。