

令和 2 年 7 月 6 日現在

機関番号：12401

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17H03301

研究課題名(和文) 微視的構造解析に基づくベントナイトの物質移動係数のモデル化

研究課題名(英文) Mass transport parameter models for bentonite based on the microstructural analysis

研究代表者

川本 健 (Kawamoto, Ken)

埼玉大学・理工学研究科・教授

研究者番号：50292644

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,600,000円

研究成果の概要(和文)：放射性廃棄物地層処分において廃棄物収納容器と周辺地盤の間を充填する材料として、ベントナイトの利用が検討されている。本研究では異なる相対湿度・充填密度条件の顆粒状及びブロック状ベントナイトを用いて、マイクロフォーカスX線CTを用いた微視的構造観察、物質移動係数を評価し、その数理モデル構築を試みた。その結果、ベントナイト内部均質化は細粒・粗粒分比率で定量的に評価でき、顆粒状ベントナイトのガス拡散係数・通気係数は、有効気相率を考慮した予測モデルで上手く表現できること等が明らかとなった。これらの知見は、放射性廃棄物地層処分における充填材内部の物質動態評価や長期安定性評価に活用されることが期待される。

研究成果の学術的意義や社会的意義

放射性廃棄物地層処分におけるベントナイト充填材内部の物質動態を把握するためには、媒体中の水・熱・ガス等の各種物質の移動係数を適切に評価する必要がある。本研究を通して得られた水分吸着(吸水)課程における内部均一化の定量的評価法やガス拡散係数・通気係数予測モデルは、これらの物質動態解析に直接的に組み込まれるものであり、その工学的意義は高い。今後、熱移動や力学挙動との連成解析を行うことにより、ベントナイト充填材の長期安定性を適切に評価できることが期待される。

研究成果の概要(英文)：Bentonite can be expected as a filling material between the canister of radioactive waste and surrounding underground geological deposit in the engineering barrier system. In this study, two kinds of bentonite materials such as granular bentonite under different humidity and packed conditions and block bentonite were used to characterize the microstructure using a microfocus X-ray CT system and to evaluate mass transport parameters for developing predictive models. Results showed that the homogeneous process of bentonite was quantified based on the temporal change in the ratio of coarse and fine grains, and both gas diffusion coefficient and air permeability of granular bentonite were evaluated well by using the predictive models considering effective air-filled porosity. These results can be expected to incorporate with the mass transfer dynamics of filling materials and to contribute to the evaluation of long-term safety of engineering barrier system.

研究分野：地盤環境工学

キーワード：ベントナイト 物質移動 微視的構造解析 ガス拡散 熱伝導

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

ベントナイト(Na型モンモリロナイト主成分とする粘土鉱物)は、高い遮水性(低透水性)、物質吸着性(物質移動遅延)、自己修復性(膨潤)、化学的緩衝性など多様な特徴を有し、現在低レベル放射性廃棄物処分や高レベル放射性廃棄物地層処分において放射性廃棄物を収めたキャニスター(収納容器)やコンクリートピットと周辺地盤との間を充填する材料としての利用が国内外で検討されている。通常ベントナイトを充填する場合、充填を容易とし、かつ、所定の(密な)乾燥密度を得るために、造粒・粒度調合された「顆粒状ベントナイト」が乾燥状態で用いられる(ただし、キャニスターを設置するための台座やキャニスター周辺部位には、圧縮成型した「ブロック状ベントナイト」が用いられる)。顆粒状ベントナイトを充填した充填層やブロック状ベントナイトには、周辺地盤から浸透する水、キャニスターから発せられる熱、金属腐食にともなう水素ガスなど、様々な物質が移動する。特に、ベントナイトの吸水にともなう膨潤・均質化(内部密度の平均化)は、媒体内の間隙構造や密度分布などの内部構造変化を引き起こし、物質移動を評価する際に必要となる各種物質移動係数(飽和・不飽和透水係数、ガス拡散係数、通気係数、熱伝導率、熱容量、溶質拡散係数)に大きな影響を与える。しかし、ベントナイト吸水時における膨潤・均質化過程の定量的解析ならびに各種物質移動係数との関連性の解明、ベントナイト膨潤・均質化を考慮した物質移動係数のモデル化とその有効性の検証には未だに至っていない。

### 2. 研究の目的

本研究では、顆粒状及びブロック状ベントナイト試料を用いて、「ベントナイトの膨潤・均質化及び内部構造に影響を及ぼす各種要因の検討」と「膨潤・均質化過程におけるベントナイトの物質移動係数評価」に焦点を当て、微視的構造解析に基づくベントナイトの各種物質移動係数(水、熱、ガス、溶質)の評価及びその数理モデルを構築することを目的とする。ここで、数理モデルとは、各種拘束圧・化学的条件におけるベントナイトの膨潤・均質化挙動・メカニズムを物理・化学的に正しく把握し、間隙構造パラメータに及ぼす影響として定量的に表現し、各種物質移動係数の予測式にこれらを組み込んだモデルとなる。

### 3. 研究の方法

本研究は、「1. マイクロフォーカスX線CTを用いたベントナイトの微視的構造観察と内部構造パラメータの定量的解析」、「2. 膨潤・均質化過程におけるベントナイトの物質移動係数の測定」、「3. 微視的構造解析に基づくベントナイトの各種物質移動係数の数理モデルの構築」の3つから構成される。1では、試料として顆粒状ベントナイト試料及び長期熱負荷試験(内部に100の熱源を設置し、周辺ベントナイトの温度変化・水分量変化などを計測。スイス放射性廃棄物管理協同組合(NAGRA)が1997-2015年に実施)に使用されたブロック状ベントナイトから採取されたコア試料を用いる(図2)。さらに、顆粒状ベントナイトは、NAGRA試験サイトにおいて充填剤として実際に用いられているものと、国産生産されているものの二種類を使用した。顆粒状ベントナイト試料は、アクリル製容器(100cm<sup>3</sup>)に異なる密度条件、湿度条件で充てんし、マイクロフォーカスX線CT装置を用いた微視的構造観察を行った。2では、1で用いた顆粒状ベントナイト試料に対して、保水特性(乾湿履歴における内部水ポテンシャルと水分量の関係)を把握し、ガス拡散係数・通気係数、熱伝導率、熱容量を測定した。3では、特に、ガス拡散・通気係数に注目し、既存の予測モデルをベースに新たな予測モデルを提案した。

### 4. 研究成果

ブロック状ベントナイト試料に関しては、ブロックから取り出したコア試料(直径約70mm、高さ130mm)の内部亀裂及びブロック接合部をマイクロフォーカスX線CTで観察するための最適条件を検討し、亀裂開口幅を定量値等についての情報を得た(図1:引用文献)。この成果は、今後目視では確認できないブロック接合部の長期熱負荷後の形状変化の解析などに活用される結果である。

顆粒状ベントナイト材を用いた試験では、主に次の成果を得た。(1)異なる充填密度の顆粒状ベントナイト試料の吸水過程における内部構造変化を、マイクロフォーカスX線CTを用いて連続的に観察し、湿潤にともなう内部構造変化を細粒分と粗粒分との比率が、密度変化と湿潤による内部均質化の違いを定量的に表現し得ることを明らかにした(図2:引用文献)。(2)密

度変化にともなう顆粒状ベントナイト試料のガス拡散係数・通気係数は、有効気相率を考慮した修正 Millington-Quirk モデルや一般化指数関数モデルで上手く表現できることを明らかにした、(3) 湿潤過程におけるガス拡散係数・通気係数は内部屈曲率の低下により引き起こされ、乾燥密度変化による気相率低下によるものではないことを明らかにした、(4) これに対し、顆粒状ベントナイト試料の熱伝導率や熱容量は、固相率と体積含水率のみに依存し、密度変化や湿潤履歴には依存しないことが明らかとなった。

現在、熱輸送係数に関する予測モデルの検討を行っており、これらの成果を組み合わせることにより、顆粒状ベントナイト材（充填材）の水・ガス・熱同時輸送モデルの構築が可能となる。このモデルは、放射性廃棄物地層処分におけるベントナイト充填材内部の物質動態評価や長期安定性評価に適用されることが期待される。

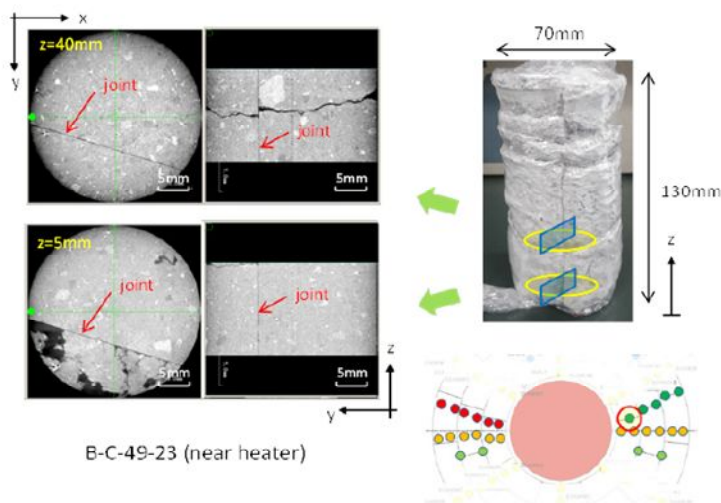


図1 ブロック状ベントナイトから取り出したコア試料の内部ジョイント部の観察例

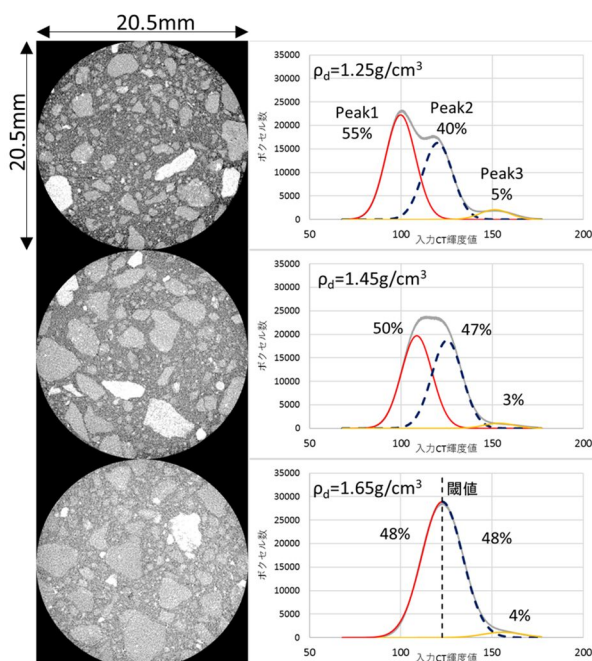


図2 マイクロフォーカス X 線 CT による顆粒状ベントナイト材の内部構造観察例

引用文献)

NAB 16-017 FEBEX-DP Postmortem THM/THC Analysis Report. 2017. María Victoria Villar, Contributors: Ana María Fernández, Enrique Romero, Ann Dueck, Jaime Cuevas, Michael Plötze, Stephan Kaufhold, Reiner Dohrmann, Rubén J. Iglesias, Toshihiro Sakaki, Marco Voltolini, Liange Zheng, Ken Kawamoto, Florian Kober.

石塚 紳, 神 利博, 川本 健. 2018. 顆粒状ベントナイト材料の微視的構造観察と物質移動係数測定. 0190. 第 53 回地盤工学会発表会.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 3件）

1. 発表者名 Mazhar Nazir, Akihiro Matsuno, Takeshi Saito, Ken Kawamoto, and Toshihiro Sakaki
2. 発表標題 Visualization of Microstructure and Measurement of Mass Transport Parameters for Granulated Bentonite Mixtures
3. 学会等名 3rd International Symposium on Coupled Phenomena in Environmental Geotechnics (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Mazhar Nazir, Akihiro Matsuno, Takeshi Saito, Ken Kawamoto and Toshihiro Sakaki
2. 発表標題 Advancement on the understanding of the properties of Granulated Bentonite Mixtures in the radioactive waste disposal concepts
3. 学会等名 10th International Conference on Geotechnique, Construction Materials and Environment (GEOMATE 2020) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Ishizuka, S., A. Matsuno, and K. Kawamoto
2. 発表標題 Pore structure analysis of autoclaved aerated concrete using microfocus X-ray computed tomography
3. 学会等名 The 9th International Conference on Sustainable Built Environment (ICSBE 2018) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 石塚 紳、榊 利博、川本 健
2. 発表標題 顆粒状ベントナイト材料の微視的構造観察と物質移動係数測定
3. 学会等名 第53回地盤工学研究発表会
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

【レポート】NAB 16-017 FEBEX-DP Postmortem THM/THC Analysis Report. 2017. Maria Victoria Villar, Contributors: Ana Maria Fernandez, Enrique Romero, Ann Dueck, Jaime Cuevas, Michael Plotze, Stephan Kaufhold, Reiner Dohrmann, Ruben J. Iglesias, Toshihiro Sakaki, Marco Voltolini, Liange Zheng, Ken Kawamoto, Florian Kober.

また、本研究成果は公開前に海外協力機関のスイス放射性廃棄物管理組合の内容確認があるため、そのデータならびに解析結果の一部は学術論文等での公開を現時点で控えている。

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----