

令和 5 年 6 月 13 日現在

機関番号：15301

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2020～2022

課題番号：20K05383

研究課題名（和文）地層処分における人工バリア材としての緩衝材中の熱-水-応力連成モデルに関する研究

研究課題名（英文）A Study on Thermo-Hydro-Mechanical Coupled Model in Buffer Material as an Engineered Barrier in Geological Disposal

研究代表者

佐藤 治夫（Sato, Haruo）

岡山大学・自然科学学域・准教授

研究者番号：50421615

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,400,000円

研究成果の概要（和文）：本研究は、高レベル放射性廃棄物処分の緩衝材として使用されるベントナイトの膨潤応力について、主成分のモンモリロナイト層間中の陽イオンの水和反応に着目し、層間水の熱力学データを取得すると共に、熱力学理論に基づいたモデルを開発した。また、Na型ベントナイトの主成分のNa型モンモリロナイトを始め、Ca型やK型モンモリロナイトに対する熱力学データを取得した。更に、緩衝材中では、熱（温度）-水-応力（膨潤応力）が複合した現象が進行することから、緩衝材とその周辺岩盤について、熱拡散係数と水分拡散係数をモデル化し、温度、水分、膨潤応力の各分布の解析を行い、実測データと比較することで、モデルの実用性を検証した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

緩衝材の膨潤応力について、温度の影響も解析できるこれまでにない汎用性の高い熱力学モデルを開発した。これにより、様々なベントナイト、珪砂混合率、乾燥密度などに対して膨潤応力の解析が可能となる。また、初めてNa型のほかCa型やK型モンモリロナイト層間水の熱力学データを取得した。これらのモデルやデータは他に類がなく、学術的にも貴重である。更に、緩衝材中の熱（T）-水（H）-応力（M）の連成モデルを開発し、温度、水分、膨潤応力の各分布の経時変化を解析した結果、実測データを概ね再現し、モデルの実用性が示された。地層処分における人工バリアの設計や長期挙動解析などの側面で、学術的にも社会的にも意義は大きい。

研究成果の概要（英文）：In this study, we focused on the hydration reaction of cations in the interlayer of montmorillonite, which is the major component of bentonite, used as a buffer material in the geological disposal of high-level radioactive waste, for the swelling stress of the bentonite, and obtained the thermodynamic data of the interlayer water. We also developed a thermodynamic model which can analyze the effect of temperature on the swelling stress of bentonite, based on thermodynamic theory. We measured the thermodynamic data of Ca- and K-montmorillonite in addition to Na-montmorillonite. Additionally, since Thermo (temperature)-Hydro (water)-Mechanical (swelling stress) (T-H-M) coupled processes proceed in the buffer material, we modelled thermal and water diffusivities for buffer material and surrounding rock mass, and calculated temperature, moisture and swelling stress distributions. The practicality of the model was verified by comparing with measured data.

研究分野：原子力工学

キーワード：地層処分 緩衝材 ベントナイト モンモリロナイト 膨潤応力 膨潤力 温度依存 熱力学

1. 研究開始当初の背景

原子力施設、医療施設、研究施設など、放射性物質や放射線を使用する施設からは様々な種類や放射能レベルの放射性廃棄物が発生し、これらは全て地中に埋設される。我が国の放射性廃棄物は、高レベルと低レベル放射性廃棄物に区分されており、更に低レベル放射性廃棄物は6種類に区分されている。放射性廃棄物は、発生源、放射線の種類、放射能濃度などによって、浅い方から、浅地中トレンチ処分、浅地中ピット処分、中深度(余裕深度)処分、地層処分の4種類により処分される。

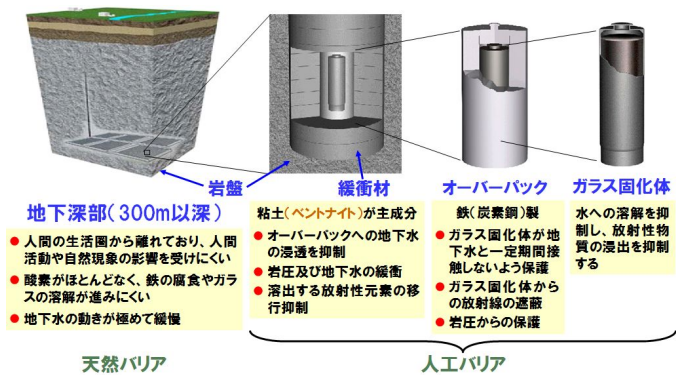


図1 地層処分の多重バリアシステム

処分システムの長期安全性は人工バリア(工学障壁材)と天然バリア(土壌や岩盤)を組み合わせた多重バリアにより確保され、その典型が高レベル放射性廃棄物である。高レベル放射性廃棄物は、原子力発電所から発生した使用済燃料が再処理工場でU(ウラン)やPu(プルトニウム)を分離回収した後に発生する核分裂生成物が主体の廃液で、放射能濃度が高いのが特徴である。廃液はガラス原料と共に混合溶融されガラス固化体とされ、地上施設において30~50年程度貯蔵された後、300m以深の地層中に処分(地層処分)される。ガラス固化体は、金属容器(オーバーパック)に封入され、その外側に緩衝材(ベントナイト(天然の粘土)と珪砂が混合され圧縮成型されたもの)が配置される。その外側は岩盤である(図1:多重バリアシステム[1])。ガラス固化体は地下に坑道を掘削し、300m以深の地層中に埋設処分される。処分後、処分坑道は段階的に埋め戻される。時間経過に伴ってガラス固化体からは崩壊熱、周囲からは地下水が侵入し、緩衝材と接触すると膨潤することで隙間はシールされる(自己シール性)と共に、水の流れは抑制される(止水性)。水は緩衝材中を水蒸気と液状水の混合体で拡散することにより水分分布が形成され、やがてはオーバーパックに到達し飽和する。一方、内側からは崩壊熱が拡散することで温度分布が形成される。更に、緩衝材は水と接触すると膨潤応力(圧)を発現するため、水分分布の形成過程で膨潤応力分布も形成されると考えられる。このように、緩衝材中では、埋設後、再冠水の過程で、熱、水、応力が連動したプロセスが発生することから、これらの連成モデルが必要である。以上の課題に対して、本研究では、主に以下の2点を研究課題とし、人工バリアを構成する緩衝材について、再冠水過程での膨潤応力に関する熱力学モデルの開発を進めると共に、熱と水分の移動に伴って形成される温度分布と水分分布、更にはそれらと連動して形成される膨潤応力分布の変化を連成的に解析するためのモデル(熱-水-応力連成モデル)の開発を目指す。

- (1) 不飽和及び飽和条件での緩衝材の膨潤特性に関する熱力学モデルの開発
- (2) 再冠水過程での熱-水-応力連成モデルの開発

2. 研究の目的

- (1) 不飽和及び飽和条件での緩衝材の膨潤特性に関する熱力学モデルの開発

緩衝材として使用されるベントナイトは、モンモリロナイトが主成分の粘土であり、水と接触すると吸水膨潤し、止水性・自己シール性、力学的緩衝性、化学的緩衝性、核種移行遅延性など、様々な性質を発現する。これらの性質は、モンモリロナイト結晶間(層間)が水和することに起因する。従来の研究では、ベントナイトの膨潤性や透水性などのデータが取得され、乾燥密度に対する実験式などが報告されている。しかしながら、従来のモデルとデータは特定のベントナイトや条件に対しては適用できるものの、ベントナイトの種類や条件が異なる場合に対しては適用できない。本研究は、ベントナイトの主成分のモンモリロナイト層間の陽イオンが水和することで膨潤することに着目し、層間水の熱力学データ(Gibbsの自由エネルギーなど)と熱力学理論により、モンモリロナイト含有率や異なる層間中陽イオンのベントナイト、更には様々な水質、温度条件に対して膨潤応力を解析できる汎用モデルを開発することを目的とする。

- (2) 再冠水過程での熱-水-応力連成モデルの開発

地層処分の多重バリアシステムでは、ガラス固化体からの崩壊熱、岩盤側から地下水が侵入し、同時に温度分布と水分分布が形成され、更に再冠水過程に伴って膨潤応力分布も形成される熱-水-応力が複合し

た現象が進行し、これらが飽和に至るまで長期に亘り継続する。熱 - 水 - 応力の連成プロセスについては従来からも研究されているが、不飽和から飽和に至る過程での影響(膨潤応力、熱拡散など)が考慮されていない、塩水などの水質の変化に対して限定的である、温度の影響が考慮されていない、更には、適用できる種類のベントナイトに限られるなどの課題がある。本研究は、熱(温度)、水(水分)、応力(膨潤応力)が連動したプロセスについて、不飽和から飽和に至る過程での熱拡散、水分拡散、膨潤応力に関する各モデルを構築することで、汎用的かつ現実的な熱 - 水 - 応力連成モデルを開発することを目的とする。

3. 研究の方法

(1) 不飽和及び飽和条件での緩衝材の膨潤特性に関する熱力学モデルの開発

ベントナイトの膨潤は主成分のモンモリロナイトが膨潤すること起因し、更に膨潤はモンモリロナイト層間中の陽イオンが水和することで発現することから、モンモリロナイト層間への水の吸着・脱着反応に関する熱力学データ(Gibbs の自由エネルギーなど)を取得した。熱力学データは、Na 型モンモリロナイトを始め、地下水による変質を考慮して、層間中陽イオンを代表的なイオン(Ca 及び K)に置換した Ca 型や K 型モンモリロナイトを合成し、含水比や温度をパラメータに、相対湿度法(RH 法)[2]により蒸気圧を測定した(図 2:相対湿度法による蒸気圧測定の概念)。また、熱力学理論に基づいて、ベントナイトの膨潤応力に及ぼす温度の影響に関する熱力学モデルを検討した。

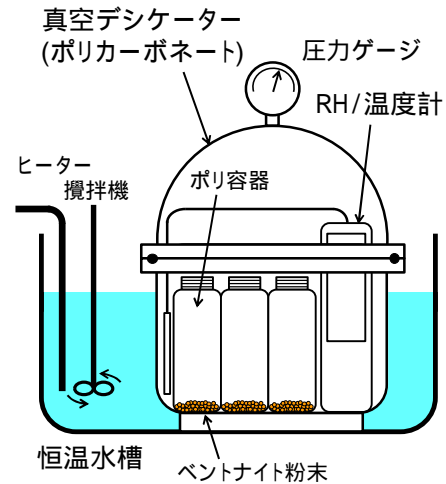


図2 相対湿度法による蒸気圧測定の概念

(2) 再冠水過程での熱 - 水 - 応力連成モデルの開発

熱(T) - 水(H) - 応力(M)連成モデルは、実規模スケールの人工バリアに対して開発した(図 3:熱(温度) - 水(水分) - 応力(膨潤応力)の解析体系)。

緩衝材中の熱の移動は、熱伝導率データに基づいた熱拡散により解析した。熱拡散係数の導出に当たっては、ベントナイトの乾燥密度や水分量、水質の影響についても検討し、モデル化した。緩衝材中の水分の移動は、水蒸気と液状水の混合体での移動を考慮した水分拡散により解析した。また、解析は、差分法による数値解析により実施し、解析データは地下施設(日本原子力研究開発機構幌延深地層研究センターの深度 300m の坑道)で実施された人工バリアの原位置試験データ[3]と比較し、連成モデルの実用性について議論した。

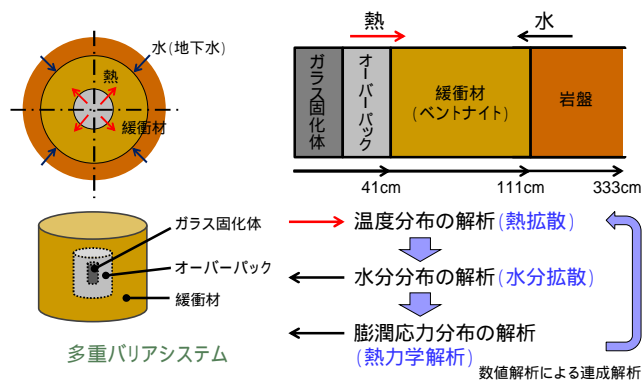


図3 熱(温度) - 水(水分) - 応力(膨潤応力)の解析体系

4. 研究成果

(1) 不飽和及び飽和条件での緩衝材の膨潤特性に関する熱力学モデルの開発

ベントナイト及びモンモリロナイト中の水の熱力学データ

ベントナイト中の水の熱力学データについては、膨潤応力などの実測値が多く報告されている Na 型ベントナイトでさえ実測データに限られており、Ca 型や K 型に至っては皆無である。本研究では、まずは Na 型ベントナイト(クニゲル V1:モンモリロナイト含有率 51%) [4]とその主成分の Na 型モンモリロナイト(クニピア F:モンモリロナイト含有率 99%以上)(クニミネ工業製)について、標準状態(25)において含水比をパラメータに相対湿度法により蒸気圧を測定した。図 4 に相対部分モル Gibbs の自由エネルギーとモンモリロナイトに対する含水比との関係の測定例を示す。両ベントナイトとも、含水比が 40%付近から、含水比の減少に伴って水の活量と相対部分モル Gibbs の自由エネルギーは低下し、過去の実測値結果[5, 6]と同様な傾向であった。

次に、Na 型ベントナイトが地下水と長期に亘り接触することで Ca 型や K 型などに変質する可能性があることから、Na 型モンモリロナイトを Ca 型と K 型に置換合成し、同様な方法により熱力学データを測定した。その結果、Ca 型モンモリロナイトは、Na 型モンモリロナイトと同様な傾向が得られた。一方、K 型モンモリロナイトは、含水比が約 15% 以下の領域で水の活量と相対部分モル Gibbs の自由エネルギーが減少し、Na や Ca 型と大きく異なった。K 型モンモリロナイトの層間には水 1 分子層のみしか入らないことが知られており、これまでの知見とも整合している。このことは K 型に変質すると膨潤しにくいことを示している。

図 5 にモンモリロナイト部分密度に対する熱力学モデルによる膨潤応力の解析結果と実測値[7-9]との比較を示す。解析値は実測値と良く一致しており、モデルの実用性が確認された。

ベントナイトの膨潤応力に及ぼす温度の影響に関する熱力学モデル

これまでの熱力学モデルは、標準状態(25)での膨潤応力を解析することができたが、温度の影響についてはモデルが存在しなかった。本研究では、水の熱力学データについて、蒸気を近似的に理想気体と見なし、Clausius-Clapeyron の式を適用することで温度の影響に関するモデルを導出することに成功した。その結果、キーパラメータは、相対部分モルエンタルピーであることが判明した。また、一部データを取得し、膨潤応力に及ぼす温度の影響について解析した。

図 6 に相対部分モルエンタルピー (dH_{H_2O}) と含水比と関係の測定例[6]を示す。多少のバラツキが見られるものの、 dH_{H_2O} は概ね含水比 43% 以下の領域で含水比の減少に伴い緩やかに低下する傾向を示した。これは、モンモリロナイト部分密度に換算して概ね 1.25Mg/m³ 以上の領域で、温度上昇に伴って膨潤応力が緩やかに低下することを示している。地層処分における緩衝材の設計仕様とモンモリロナイト含有率を考えると、現実的には温度の影響は考えなくても良い領域であると考えられる。膨潤応力に及ぼす温度の影響について、熱力学理論と熱力学データに基づいて定量的に解析したのは、これが初めてである。今後、データの充実を図ると共に、モデルの有効性や汎用性などについても検討する。

(2) 再冠水過程での熱 - 水 - 応力連成モデルの開発
緩衝材中の熱 - 水 - 応力連成モデルについては、

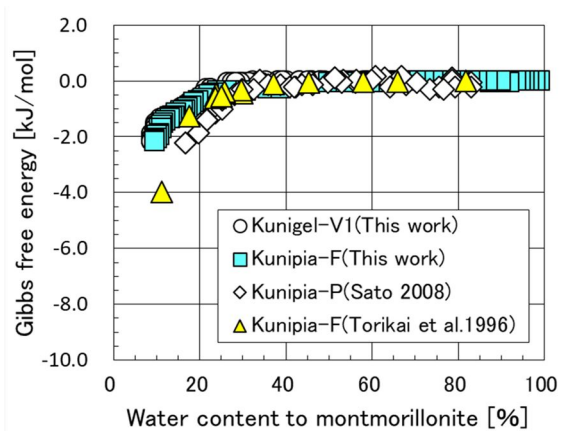


図 4 相対部分モル Gibbs の自由エネルギーとモンモリロナイトに対する含水比との関係の実測例

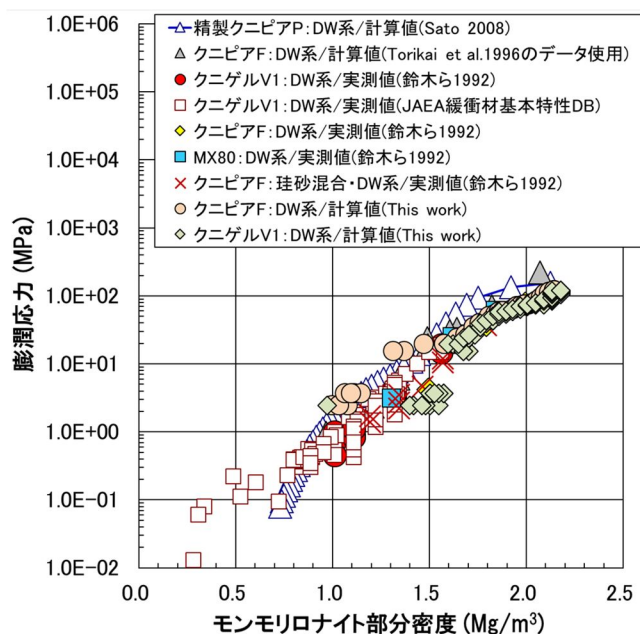


図 5 相対部分モル Gibbs の自由エネルギーとモンモリロナイトに対する含水比との関係の実測例

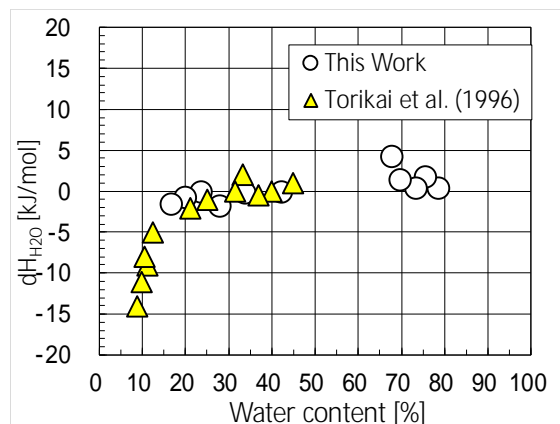


図 6 相対部分モルエンタルピーと含水比との関係の測定例(○:本研究(クニピア P)、△:文献データ(クニピア F))

実規模スケールでの緩衝材及びその周辺岩盤中の熱移動に伴う温度分布、緩衝材中の水分移動に伴う水分分布、緩衝材中の水分分布に伴う膨潤応力分布の解析を行った。温度分布の経時変化については、日本原子力研究開発機構幌延深地層研究センターの地下施設(深度 350m の試験坑道)で実施している実規模スケールの人工バリア性能試験の実測結果[3]と比較した結果、解析値の方がやや高目ではあるものの概ね一致した。また、温度分布の変化と連動する水分分布の経時変化についても実測結果とほぼ一致した。

図 7 に水分分布の変化に伴う膨潤応力分布の経時変化の解析例を示す。水分分布(含水比)の変化に伴って膨潤応力分布も変化していることが分かる。解析は、飽和条件における膨潤応力については熱力学モデルに基づいて、不飽和条件での膨潤応力については実測結果に基づく実験式に基づいて実施しており、実測結果と概ね整合している。地下水の再冠水過程において、水分移動に伴って緩衝材中で膨潤応力に分布が発生する可能性については、以前から予測していたものの、今回、人工バリアの原位置試験により、実際に発生することが明らかとなり、また、その程度も概ね一致したことから、解析手法の実用性が確認された。

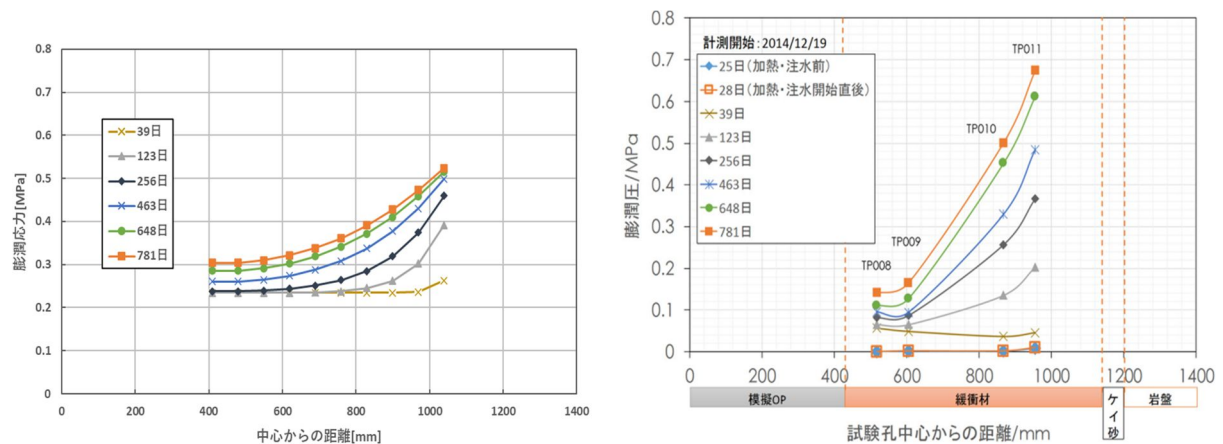


図 7 緩衝材中の膨潤応力分布の経時変化の解析結果の例(左)と日本原子力研究開発機構幌延深地層研究センター地下施設(深度 350m の試験坑道)での人工バリア性能試験結果の例(右)

< 引用文献 >

[1] 佐藤治夫:地層処分における人工バリアとしての緩衝材の膨潤と熱力学, バックエンド研究, Vol.27, No.2, pp.105-114 (2020).

[2] 佐藤治夫:ナノ微粒子材料としての各種ベントナイト材料の膨潤特性に及ぼす温度の影響に関する熱力学的研究, 令和 4 年度 公益財団法人ウエスコ学術振興財団事業報告書 研究成果報告書集(印刷中).

[3] 日本原子力研究開発機構 幌延深地層研究センター:幌延深地層研究計画 平成 29 年度調査研究成果報告(2018).

[4] 原子力発電環境整備機構:国内産ベントナイトおよびベントナイト混合土の基本特性データ, NUMO-TR-21-02 (2022).

[5] H. Sato: Thermodynamic Model on Swelling of Bentonite Buffer and Backfill Materials, Phys. Chem. Earth, 33, pp.S538-S543 (2008).

[6] Y. Torikai, S. Sato, and H. Ohashi: Thermodynamic Properties of Water in Compacted Sodium Montmorillonite, Nucl. Technol, 15, pp.73-80 (1996).

[7] 日本原子力研究開発機構:緩衝材基本特性データベース, <https://www.bufferdb/jaea.go.jp/bmsb/>, 最終アクセス: 12/14 (2014).

[8] H. Sato: Thermodynamic Approach on Effect of Salinity on Swelling Pressure of Bentonite, Proceedings of the 4th Japan-Korea Joint Workshop on Radioactive Waste Disposal 2008: Perspective of Science and Sci. and Eng., May 27-28, Hakone, Japan, pp.1-17 (2008).

[9] 鈴木英明, 柴田雅博, 山形順二, 広瀬郁郎, 寺門一馬: 緩衝材の特性試験(I), PNC TN8410 92-057 (1992).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 佐藤治夫	4. 巻 Vol.7, Issue 7-8
2. 論文標題 A Thermodynamic Model of Effect of Temperature on Swelling Stress of Buffer Material in Geological Disposal	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 MRS Advances	6. 最初と最後の頁 160-164
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1557/s3580-022-00233-2	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 佐藤治夫	4. 巻 27-2
2. 論文標題 地層処分における人工バリアとしての緩衝材の膨潤と熱力学	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 バックエンド研究	6. 最初と最後の頁 105-114
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計10件（うち招待講演 2件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 岡島大耕、佐藤治夫
2. 発表標題 緩衝材中の熱-水-応力(T-H-M)連成現象に関する解析
3. 学会等名 原子力学会2022年秋の大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 佐藤治夫
2. 発表標題 相対湿度法による標準状態及び圧力開放系におけるNa型ベントナイト中の水の熱力学データの測定
3. 学会等名 原子力学会2022年秋の大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 佐藤治夫
2. 発表標題 放射性廃棄物の地層処分における緩衝材の膨潤応力に及ぼす温度の影響に関する熱力学モデルの開発
3. 学会等名 第55回安全工学研究発表会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 佐藤治夫
2. 発表標題 Measurements of Thermodynamic Data of Water in Na-Bentonite in the Standard Condition by Relative Humidity Method
3. 学会等名 2022 MRS Fall Meeting : Scientific Basis for Nuclear Waste Management (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 岡島大耕、佐藤治夫
2. 発表標題 緩衝材中の熱水応力(T-H-M)連成現象に関する解析
3. 学会等名 原子力学会第16回中国・四国支部研究発表会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 佐藤治夫
2. 発表標題 高レベル放射性廃棄物の地層処分における人工バリアとしての緩衝材の膨潤特性と熱力学
3. 学会等名 原子力学会中国・四国支部2021年第1回講演会(招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 佐藤治夫
2. 発表標題 地層処分における緩衝材の膨潤応力に及ぼす温度の影響に関する熱力学理論に基づく考察
3. 学会等名 原子力学会2021年秋の大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 佐藤治夫
2. 発表標題 A Thermodynamic Model of Effect of Temperature on Swelling Stress of Buffer Material in Geological Disposal
3. 学会等名 MRS2021 -45th Scientific Basis for Nuclear Waste Management (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 岡島大耕、佐藤治夫
2. 発表標題 緩衝材中の熱-水(T-H)連成現象に関する解析
3. 学会等名 原子力学会2022年春の年会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 佐藤治夫
2. 発表標題 地層処分における人工バリアとしての緩衝材の膨潤と熱力学
3. 学会等名 第36回バックエンド夏期セミナー(招待講演)
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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
--	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------