

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 2 日現在

機関番号：32689

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2012～2015

課題番号：24360186

研究課題名(和文) 地層処分・余裕深度処分のためのベントナイト緩衝材の水分拡散係数データベースの構築

研究課題名(英文) Database of water diffusivity of bentonite-based buffer material for geological and subsurface disposal

研究代表者

小峯 秀雄 (Komine, Hideo)

早稲田大学・理工学術院・教授

研究者番号：90334010

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,100,000円

研究成果の概要(和文)：高レベル放射性廃棄物地層処分や余裕深度処分の地下施設におけるベントナイト系緩衝材は、地下水の浸入に伴い不飽和から飽和へと遷移する。不飽和状態における緩衝材の挙動は、飽和状態に比べ十分な検討がなされていないのが現状であり、定量的な評価が求められている。そこで本研究では、各種ベントナイトの吸水特性を調査し、緩衝材の水分移動特性を評価する手法を提案した。本研究で提案した水分拡散係数評価手法は、緩衝材の仕様や材料となるベントナイトの基本的性質、周囲の水質から、緩衝材となるベントナイトの水分拡散係数を算出できるため、緩衝材の効率的な材料選定に貢献できる。

研究成果の概要(英文)：Regarding disposal technique of High level radioactive waste, it is considered that geological disposal using multiplex barrier system is the better way in Japan at this time. Bentonite-based buffer material changes its condition from unsaturated to saturated by groundwater seepage into the buffer area. In unsaturated state, the behavior of buffer material is not so much considered than that in saturated state. Therefore, it is required to elucidate the behavior of unsaturated buffer material. Therefore, it is important to understand water movements in buffer materials to evaluate the contiguous performance of buffer materials.

This study aims to investigate water absorption properties of various bentonites. Based on the experimental results, this study proposed the evaluation method for water diffusivity of buffer material. The proposed method in this study will be available to design specifications of bentonite-based buffer materials from the viewpoint of water diffusion.

研究分野：地盤工学

キーワード：ベントナイト 水分拡散係数 高レベル放射性廃棄物地層処分 余裕深度処分 水質 膨潤 緩衝材  
環境地盤工学

### 1. 研究開始当初の背景

原子力発電所から排出される高レベル放射性廃棄物地層処分と比較的放射能レベルの高い低レベル放射性廃棄物の余裕深度処分を可能にするための技術の確立が強く求められている(図10参照)。これらの放射性廃棄物処分において、高い遮水性能を有する人工バリアとしてベントナイト系緩衝材の利用が予定されている。処分直後から地下水の浸入により不飽和状態から飽和状態へと遷移する再冠水の段階では、緩衝材と周辺岩盤の間には水分濃度差が生じ、水分拡散現象により地下水が緩衝材へ浸入することが想定される。地下水の浸入が拡散支配であれば、処分場周辺環境において地殻変動などに起因する動水勾配の変動などが生じて、浸潤速度に与える影響は少ないものと考えられるため、緩衝材の水分拡散特性は、処分場が再冠水するまでの期間を評価する際に重要とされている<sup>1)~5)</sup>。

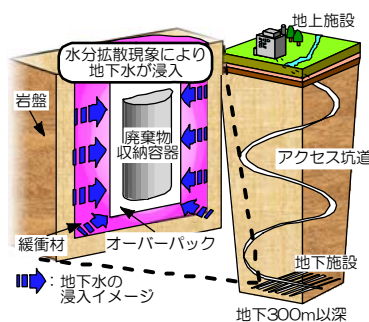


図1 高レベル放射性廃棄物地層処分施設と水分移動評価の必要性

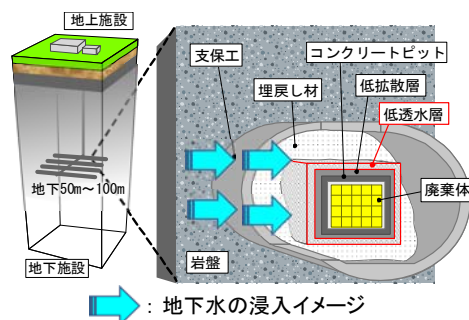


図2 余裕深度処分施設の概念と水分移動評価の必要性

ベントナイト系緩衝材が不飽和状態から飽和状態に至るまでの再冠水に要する時間と力学的挙動の予測は、最終的に施設が力学的に安定するまでの時期を予測する上で必要不可欠なものとしてされている。この再冠水時の挙動予測には、数値解析的研究を中心に進められている<sup>6)</sup>。しかし、これらの数値解析的予測において必要となるパラメータのうち、ベントナイト系緩衝材の水分拡散係数に関する実験データは極めて少ない状況にある。特に、設計に資する材料仕様や環境条件を考慮したデータは極めて少ない。

### 2. 研究の目的

本研究の目的は、実際に緩衝材の候補材料

とされる5種類の国産・海外産ベントナイトと余裕深度処分での使用が予定されている粒状ベントナイトを用いて、後述の「研究方法」において述べる新しい実験方法、すなわち膨潤圧・膨潤変形を並行して測定し、その際の吸水量の経時変化に基づき水分拡散係数を算出する新しい実験方法により、不飽和から飽和に至る過程での水分拡散係数データを取得し、先の数値解析などで使用できる水分拡散係数データベースの構築を目的とする。特に、材料仕様や環境条件を考慮したデータベースの構築を行う。

### 3. 研究の方法

本研究では、膨潤圧発生に伴う吸水量測定試験によって吸水特性を調査した。本試験は、供試体の側方への膨潤変形を拘束し、鉛直方向への膨潤変形を抑制した状態において、供試体への給水量と膨潤圧を経過時間ごとに同時に測定するものである。図3に使用する試験装置の概略を示す。供試体下部から水溶液を供給し、給水開始直後からビュレット管内の水の減少量を測定した。試験期間は、膨潤圧がほぼ定常状態に達すると考えられる7日間程度とした。

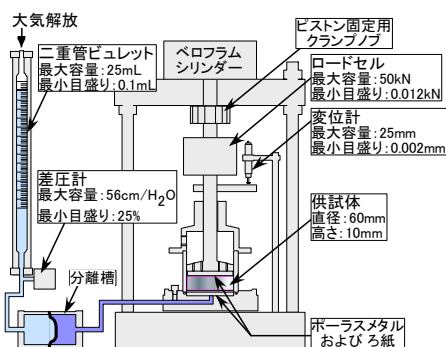


図3 膨潤圧発生に伴う吸水量測定試験装置の概略

本研究では、モンモリロナイト含有率および交換性陽イオンの組成が異なる5種類のベントナイトを試料として使用した。表1に、使用したベントナイトの基本的性質を示す。

表1 各ベントナイトの基本的性質<sup>7)~9)</sup>

| ベントナイト                        | A     | B     | C     | E     | GX<br>最大粒径<br>2mm  |
|-------------------------------|-------|-------|-------|-------|--------------------|
| 主な交換性陽イオン                     | Na    | Na    | Ca    | Na    | Na                 |
| 土粒子密度<br>(Mg/m <sup>3</sup> ) | 2.79  | 2.84  | 2.71  | 2.88  | 2.65 <sup>9)</sup> |
| モンモリロナイト<br>含有率(%)*           | 57    | 71    | 84    | 80    | 47                 |
| 陽イオン交換容量<br>(meq/g)           | 1.166 | 1.054 | 0.795 | 1.348 | 0.854              |

\*モンモリロナイト含有率は、純モンモリロナイトのメチレンブルー吸着量140(mmol/100g)を基準に算出された値

本研究では、これらのうち粉体状ベントナイトであるA、BおよびCを対象に水分拡散係数評価手法を提案する。供給する水溶液は、蒸留水および人工海水(富田製薬株式会社製・MARINE ART SF-1)を用いた。

### 4. 研究成果

既往研究(例えば, 参考文献 10))において, ベントナイトの浸潤特性は水分拡散係数として評価できることがわかっている. 水分拡散係数は, 実験的に調査した供試体の吸水量と拡散方程式から導かれる累積流入量との関係から, 式(1)および式(2)によって算出が可能である.

$$D = \left( \frac{a}{n_e' A} \right)^2 \quad (1)$$

$$n_e' = \left( 1 - \frac{\rho_d}{\rho_{solid}} \right) - \left( \frac{w_0}{100} \times \frac{\rho_d}{\rho_w} \right) \quad (2)$$

ここで,  $a$  は時間の平方根あたりの供試体の吸水量( $\text{m}^3/\sqrt{\text{sec}}$ ),  $n_e'$  は吸水に対する有効間隙率(初期体積含水率と飽和状態の体積含水率の差),  $A$  は供試体の断面積( $\text{m}^2$ )を表す. 有効間隙率  $n_e'$  は, 供試体の乾燥密度  $\rho_d(\text{Mg}/\text{m}^3)$ , ベントナイトの土粒子の密度  $\rho_{solid}(\text{Mg}/\text{m}^3)$ , 初期含水比  $w_0(\%)$ , 水の密度  $\rho_w(\text{Mg}/\text{m}^3)$  によって決定する. したがって, 時間の平方根あたりの吸水量  $a$  を評価することで, 水分拡散係数の評価手法を提案できると考えられる. 本研究では, 時間の平方根あたりの吸水量  $a$  を供試体の断面積  $A$  で除した吸水度  $S$  を用いて, より一般的な形で吸水特性を評価する<sup>11), 12)</sup>.

#### 4.1 蒸留水環境下におけるベントナイトの吸水特性

##### 4.1.1 モンモリロナイトの体積含有率による整理

供試体中のモンモリロナイトは吸水に伴って膨潤し, 供試体内部の空気間隙を充填する. 供試体の吸水挙動は, モンモリロナイトが膨潤する過程における吸水が支配的と考え, 次式(3)で得られるモンモリロナイトの体積含有率  $V_m/V$  に着目して結果を整理した.

$$\frac{V_m}{V} = \frac{C_m}{100} \times \frac{\rho_d}{\rho_m} \quad (3)$$

ここで,  $C_m$  はベントナイトのモンモリロナイト含有率(%),  $\rho_d$  は供試体の乾燥密度( $\text{Mg}/\text{m}^3$ ),  $\rho_m$  はモンモリロナイトの土粒子の密度( $\text{Mg}/\text{m}^3$ )である.

図4に, ベントナイトA, BおよびCの吸水度とモンモリロナイトの体積含有率の関係を示す. 図4には, 大気乾燥状態の試料とともに, 蒸気圧法を援用して初期含水比を増加させた含水比調整試料を用いた試験結果も併記している. 大気乾燥状態の試料に着目すると, 図4より, モンモリロナイトの体積含有率が同程度の場合, ベントナイトCが最も吸水度が高く, ベントナイトAが最も吸水度が低いことがわかる.

一方, 同一のベントナイトでは, モンモリロナイトの体積含有率の増加に伴って吸水度が低下する傾向がある. モンモリロナイトの体積含有率が同一である場合, ベントナイトのモンモリロナイト含有率が高いほど供試体の間隙体積は大きくなる. 一方, ベントナイトの種類が同一の場合, 供試体の乾燥密

度が高いほど, モンモリロナイトの体積含有率が増加するとともに間隙体積が減少する. 以上より, 比較的低い吸水度を示すケースでは, 供試体の間隙体積が比較的小さいことがわかる.

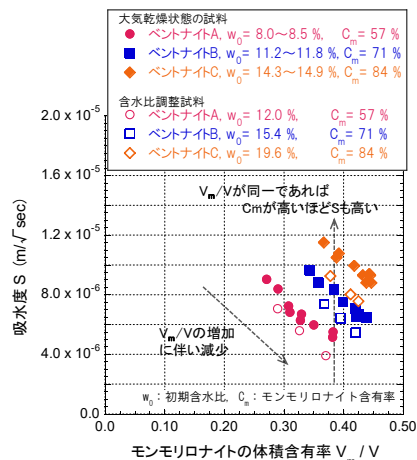


図4 吸水度とモンモリロナイトの体積含有率の関係

一方, 含水比調整試料に着目すると, いずれのベントナイトにおいても大気乾燥状態の試料に比べて低い吸水度を示している. 含水比が高い場合, 含水量に応じて空気間隙体積は減少する. 供試体中のモンモリロナイトは, 空気間隙の体積相当の水を吸水するため, 間隙の体積よりもむしろ間隙体積から初期の含水量を除いた, 空気間隙体積を考慮する必要があると考えられる.

##### 4.1.2 空気間隙率による整理

前節の考察を踏まえ, 図5に, 吸水度と空気間隙率の関係を示す.

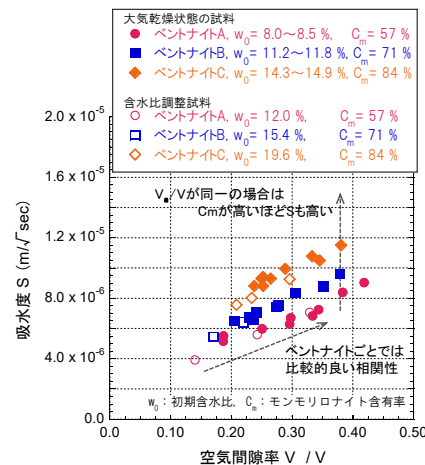


図5 吸水度と空気間隙率の関係および空気間隙率の関係

空気間隙率  $V_a/V$  は, 試験中の微小な体積変化を補正した供試体の乾燥密度  $\rho_d(\text{Mg}/\text{m}^3)$ , ベントナイトの土粒子の密度  $\rho_{solid}(\text{Mg}/\text{m}^3)$ , 初期含水比  $w_0(\%)$  および水の密度  $\rho_w(\text{Mg}/\text{m}^3)$  から, 次式(4)を用いて算出した.

$$\frac{V_a}{V} = 1 - \left( \frac{\rho_d}{\rho_{solid}} + \frac{w_0}{100} \times \frac{\rho_d}{\rho_w} \right) \quad (4)$$

図5より, 各ベントナイトにおいて, 吸水

度と空気間隙率には比較的良好な相関性があり、初期含水比が吸水特性に及ぼす影響は、空気間隙率によっておおよそ評価できることがわかる。しかし、同程度の空気間隙率においては、モンモリロナイト含有率が高いもの、すなわち供試体に含まれるモンモリロナイトの量が多いものほど高い吸水度を示す。

4.1.3 蒸留水環境下における吸水特性評価手法  
各ベントナイトの吸水特性を統一的に評価するために、本研究では、式(5)に示す単位断面積のモンモリロナイトに対する吸水度  $S_m$  (m/√sec) という概念を提案する。

$$S_m = \frac{a}{A_m} = \frac{a}{A} \times \frac{1}{\frac{V_m}{V}} = S \times \frac{V}{V_m} \quad (5)$$

ここで、 $A_m$ は供試体の断面積に占めるモンモリロナイトの断面積(m<sup>2</sup>)を表す。 $S_m$ を比較することで、吸水特性に及ぼすモンモリロナイトの体積含有率の影響を正規化できると考えられる。図6に、 $S_m$ と空気間隙率の関係を示す。

各ベントナイトにおいて、 $S_m$ と空気間隙率は、含水比を調整した試料も含めてほぼ良好な相関関係にある。さらに、主な交換性陽イオンがNa<sup>+</sup>であるベントナイトAおよびBでは、 $S_m$ と空気間隙率の関係に差異はほとんど認められない。

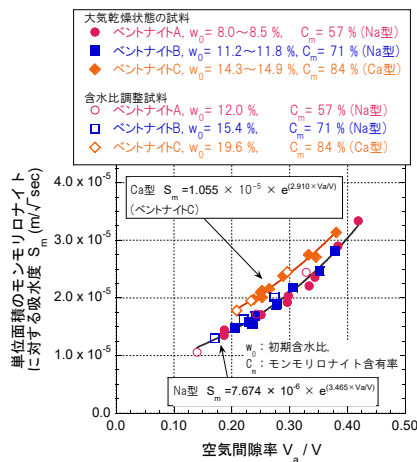


図6 単位断面積のモンモリロナイトに対する吸水度と空気間隙率の関係

主な交換性陽イオンがCa<sup>2+</sup>であるベントナイトCは、Na型ベントナイトと異なる膨潤特性を示すことが明らかになっており、主な交換性陽イオンの違いにより、異なる吸水特性を示したものと推察される。図6より、単位断面積のモンモリロナイトに対する吸水度と空気間隙率は、Na型のベントナイトとCa型のベントナイトCで、それぞれ式(6)および式(7)の関係があることがわかった。

$$S_m = 7.674 \times 10^{-6} \times e^{\left(3.465 \times \frac{V_a}{V}\right)} \quad (6)$$

(R<sup>2</sup> = 0.9835, ただし V<sub>a</sub> / V = 0.14 ~ 0.42)

$$S_m = 1.055 \times 10^{-5} \times e^{\left(2.910 \times \frac{V_a}{V}\right)} \quad (7)$$

(R<sup>2</sup> = 0.9882, ただし V<sub>a</sub> / V = 0.21 ~ 0.38)

## 4.2 人工海水環境下におけるベントナイトの吸水特性の評価

図7に、蒸留水環境下および人工海水環境下における各種ベントナイトの吸水度と乾燥密度の関係を示す。

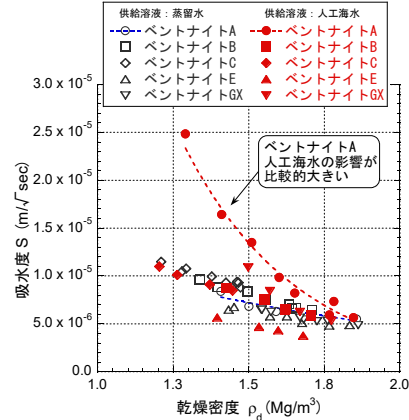


図7 各種ベントナイトの吸水度と乾燥密度の関係

ベントナイトAでは人工海水の影響が比較的大きく、人工海水環境下では吸水量の増加が大きくなる傾向が認められた。そこで、吸水特性に及ぼす人工海水の影響をより詳細に調査するために、ベントナイトAについて、濃度を変化させた人工海水を用いて膨潤圧発生に伴う吸水量測定試験を実施した。図8に、各供給溶液における吸水度と乾燥密度の関係を示す。

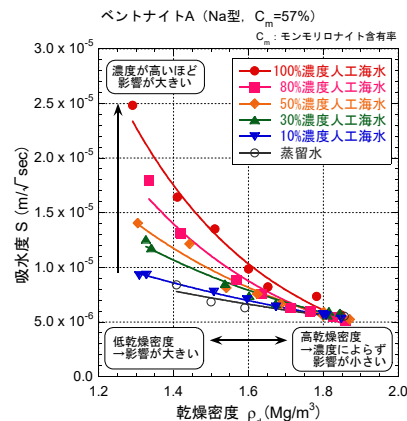


図8 各濃度の人工海水環境下における吸水度と乾燥密度の関係

図8より、供給する人工海水の濃度が高いほど吸水度に及ぼす影響が大きく、吸水度が増加することがわかる。また、乾燥密度が低いほど吸水特性に及ぼす人工海水の影響が大きく、吸水度は指数関数的に大きい値を示す。一方、乾燥密度が高い場合、人工海水の濃度によらず同様な吸水度を示しており、吸水特性に及ぼす人工海水の影響が小さいことがわかる。

### 4.3. 水分拡散係数評価手法の提案

以上に述べた吸水特性の評価手法を用いた水分拡散係数の評価手法を図9に示す。本研究で提案した評価手法は実験式を使用しているため、精度や適用範囲に課題が残るものの、ベントナイトの基本的性質や初期含水比、想定される水質に応じて、水分拡散係数と乾燥密度の関係を連続的に算出することができる。これは、吸水特性の評価において吸水度に着目したことで可能となったものであり、本研究の成果と言える。

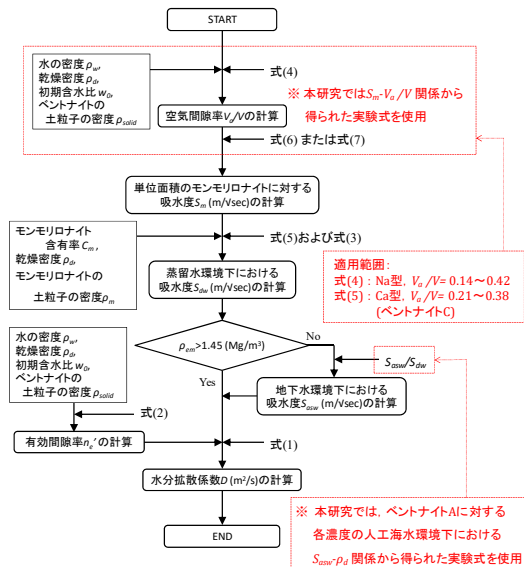


図9 水分拡散係数評価手法

本研究で提案した水分拡散係数評価手法は、緩衝材の仕様や材料となるベントナイトの基本的性質、周囲の水質から、緩衝材となるベントナイトの水分拡散係数を算出できるため、緩衝材の効率的な材料選定に貢献できると考えられる。

#### <参考文献>

- 1) 核燃料サイクル機構：我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—分冊2 地層処分の工学技術, JNC TN1400 99-022, 1999.
- 2) 社団法人 土木学会 エネルギー委員会 低レベル放射性廃棄物の余裕深度処分に関する研究小委員会：余裕深度処分における地下施設の設計、品質管理および検査の考え方, 社団法人 土木学会, 2009.
- 3) 原子力発電環境整備機構：地層処分事業の安全確保(2010年度版)-確かな技術による安全な地層処分の実現のために-, NUMO-TR-11-01, 2011.
- 4) Svensk Kärnbränslehantering AB : Long-term safety for KBS-3 repositories at Forsmark and Laxemar - a first evaluation Main Report of the SR-Can project, SKB TR-06-09, 2006.
- 5) 公益財団法人原子力環境整備促進・資金管理センター：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処分システム工学要素技術高度化開

発報告書(第2分冊)—人工バリア品質評価技術の開発—(2/2), 2011.

- 6) 操上広志, 千々松正和, 小峯秀雄, 小林晃, 大西有三：膨潤評価式を適用した熱—水—応力連成解析, 土木学会論文集, No.771/III-68, pp.21-31, 2004.09.
- 7) 直井優, 小峯秀雄, 安原一哉, 村上哲, 百瀬和夫, 坂上武晴：各種ベントナイト系緩衝材の膨潤特性に及ぼす人工海水の影響, 土木学会論文集, No.785/III-70, pp.39-49, 2005.
- 8) 小峯秀雄：余裕深度処分のための粒状ベントナイトの膨潤圧特性に関する基礎的研究～最大粒径10mmと2mmの粒状ベントナイトの膨潤圧特性の比較～, 第46回地盤工学研究発表会発表論文集, pp.2087-2088, 2011.
- 9) 伊藤弘志, 千々松正和, 村上利一：ベントナイト層の現場施工材料の開発, 土木学会第62回年次学術講演会講演概要集, pp.161-162, 2007.
- 10) 長谷川琢磨：ベントナイトの透水・浸潤特性への海水影響, 電力中央研究所報告, N04005, 2004.
- 11) ダニエル・ヒレル著, 岩田進午・内嶋善兵衛監訳：環境土壌物理学II 耕地の土壌物理学, 農林統計協会, pp.14-24, 2001.
- 12) ウィリアム・ジュリー, ロバート・ホートン著, 取手伸夫監訳：土壌物理学土中の水・熱・ガス・化学物質移動の基礎と応用, 築地書館株式会社, pp.122-145, 2006.

### 5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計7件)

- ① Hideo Komine, Design flow for specifications of bentonite-based buffer from the viewpoint of self-sealing capability using theoretical equations for swelling characteristics, Japanese Geotechnical Society Special Publication, 査読有, Vol. 2 (2015) (No. 53), p. 1833 - 1836, <http://doi.org/10.3208/jgssp.JPN-007>, 2016年01月
- ② 山田淳夫, 千々松正和, 藤原斉郁, 矢田勤, 秋山吉弘, 小峯秀雄, 飯塚敦, 放射性廃棄物の地下空洞型処分施設に用いる底部低透水層の転圧工法による施工品質の評価, 土木学会論文集 C (地圏工学), 査読有, Vol. 71 (2015) No. 371 (3), p. 147 - 162, 2015年07月
- ③ 小峯秀雄, 放射性廃棄物処分に対する地盤工学の役割, 地盤工学会誌, 査読有, 63(06(689))p.1 - 3, 2015年06月
- ④ Komine, H., Thermal influences on swelling-pressure and swelling-deformation of bentonites and investigation on its factors,

Proceedings of the 18th International Conference on Soil Mechanics and Geotechnical Engineering, 査読有, Paris 2013, 2013.09.

- ⑤ 小峯秀雄, 長田徹, 高尾肇, 植田浩義, 高レベル放射性廃棄物処分施設の縦置き孔模型実験における緩衝材発生圧力の予測・評価, 土木学会論文集C(地圏工学), 査読有, 69(1)p.108 - 117, 2013年03月
- ⑥ 森拓雄, 齋藤典之, 小峯秀雄, 余裕深度処分における緩衝材の長期廃棄体支持性能に関する実験的研究, 土木学会論文集C(地圏工学), 査読有, 68(4)p.633 - 642, 2012年10月
- ⑦ 小峯秀雄, 放射性物質汚染土の対処に向けた今後の土木技術の応用と展望, 土木施工, 査読無, 53(8), p.60 - 62, 2012年08月

[学会発表] (計12件)

- ① 浦田智仁, 小峯秀雄, メスシリンダー法による砂とベントナイトから構成される二層構造の吸水特性—中間貯蔵施設の遮水工設計を想定して—, 土木学会第69回年次学術講演会, 岡山大学, 2015/09.
- ② 浦田智仁, 小峯秀雄, 中間貯蔵施設の遮水工設計を想定した砂とベントナイトから構成される二層構造の吸水特性, 第50回地盤工学研究発表会発表論文集, 北海道科学大学, 2015/09.
- ③ Ito, S., Komine, H. and Murakami, S., Development of small-type falling head hydraulic conductivity test for hydraulic conductivity of lower than  $10^{-9}$  m/s of soils, Proceedings of the 7<sup>th</sup> International Congress on Environmental Geotechnics, Melbourne, Australia, 2014.11.
- ④ 伊藤紗由未, 小峯秀雄, 村上哲, 砂・ベントナイト混合土における遮水性能のトラベルタイムによる評価, 土木学会第69回年次学術講演会, 大阪大学, 2014/09.
- ⑤ 伊藤紗由未, 小峯秀雄, 村上哲, 瀬戸井健一, 剛壁型透水試験および柔壁型透水試験により得られた砂・ベントナイト混合土における透水係数の比較, 第49回地盤工学研究発表会発表論文集, 九州工業大学, 2014/07.
- ⑥ 伊藤紗由未, 小峯秀雄, 村上哲: 砂・ベントナイト混合土における様々な水分移動特性に関する実験的調査, 第10回環境地盤工学シンポジウム発表論文集, 日本大学文理学部, 2013/09.
- ⑦ 小山田拓郎, 小峯秀雄, 村上哲, 関口高志, 関根一郎, ベントナイトの吸水特性に及ぼす海水系地下水の影響, 土木学会第68回年次学術講演会, 日本大学生産工学部, 2013/09.

- ⑧ 小山田拓郎, 小峯秀雄, 村上哲, 関口高志, 関根一郎, ベントナイトの吸水特性に及ぼす初期含水比の影響, 第48回地盤工学研究発表会発表論文集, 富山県富山市, 2013/07.

- ⑨ Ito, S., Komine, H. and Murakami, S., Developing small-type falling head hydraulic conductivity test and its applicability for low hydraulic conductivity of lower than  $10^{-9}$  m/s of soils, 13th Geo-Environmental Engineering (GEE 2013), Seoul National University, Seoul, Korea, May 31 - June 1, 2013.

- ⑩ Oyamada, T., Komine, H., Murakami, S., Sekiguchi, T. and Sekine, I., Swelling pressure and water absorption property of compacted granular bentonite during water absorption, ANDRA2012 (Clays in Natural and Engineered Barriers for Radioactive Waste Confinement), Montpellier, France, October 22-26, 2012.

- ⑪ 遠藤さち恵, 小峯秀雄, 村上哲, 関口高志, 関根一郎, 人工海水環境下における不飽和ベントナイトの吸水特性および水分拡散係数, 土木学会第67回年次学術講演会, 名古屋大学, 2012/09.

- ⑫ 遠藤さち恵, 小峯秀雄, 村上哲, 関根一郎, 関口高志, 比較的高い浸透水圧環境下における不飽和ベントナイトの吸水特性および水分拡散特性, 第47回地盤工学研究発表会発表論文集, 八戸工大, 2012/07.

[図書] (計1件)

- ① 小峯秀雄, 震災後に考える 東日本大震災と向きあう92の分析と提言 14 原子力発電所事故に起因する地盤汚染の技術的対策と社会的受容性, 早稲田大学出版部, 担当p.149-159, 総ページp.1003, 2015年03月

[産業財産権]

○出願状況 (計0件)

○取得状況 (計0件)

[その他]

ホームページ等

早稲田大学 研究者データベース (小峯秀雄):

<http://researchers.waseda.jp/profile/ja.76c79e61890943d2da200caa193adfc3.html>

早稲田大学理工学術院 社会環境工学科  
地盤工学 (小峯秀雄) 研究室:

<http://www.f.waseda.jp/hkomine/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

小峯秀雄 (Komine Hideo)

早稲田大学・理工学術院・教授

研究者番号: 90334010