

各種ベントナイト系材料の透水特性 データベース構築および 理論的評価方法の高度化

茨城大学（前早稲田大学）講師 伊藤大知

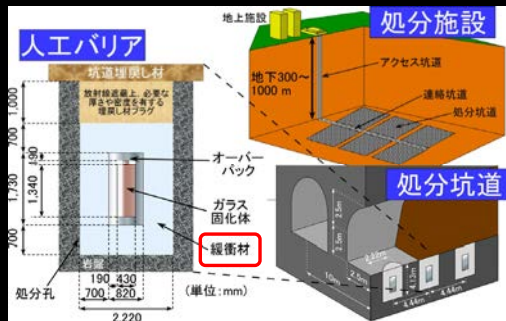
1

本日の発表内容

- 研究の背景と目的
- 研究の方法
- 主な成果
 - ーベントナイト6種の透水係数データベース
 - ー理論的評価の試み（XRDに基づくモンモリロナイト層間外間隙比）
 - ー高透水圧環境下での透水特性
- 本研究成果のまとめおよび今後の予定

2

研究背景（地層処分におけるベントナイト系緩衝材）



高レベル放射性廃棄物に対する緩衝材の設計要件
(NUMO(2018), 包括的技術報告: わが国における安全な地層処分の実現, p.4-37)

設計要件	内容
低透水性	緩衝材中の地下水の流れを抑制し、放射性物質の移行を遅延すること
コロイドの過飽和	放射性物質がコロイドとして移行することを防止すること
自己シール性	オーバーバックや岩壁との隙間など、施工時にできる隙間を充填可能な弾塑性を有すること
自己修復性	ガス発生による亀裂が生じたとしても閉塞できること
製作施工性	既存の技術もしくは近い将来実現可能と考えられる技術に基づき製作施工が可能であること
微生物影響の防止	オーバーバックの腐食に影響を与える緩衝材中の微生物活動を抑制すること
物理的緩衝性	オーバーバックの腐食影響による力学的な影響を緩和して、オーバーバックを保護するように物理的な緩衝性を有すること

➤ 廃棄体周囲に、膨潤性・遮水性に優れた**ベントナイト系材料**を緩衝材として用いることが有力である。地下深部のため、高水圧の地下水が流入する。

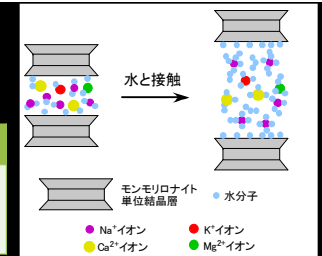
➤ 地層処分事業は**数十年以上**継続して実施され、事業全体で**300万トン程度**の大量のベントナイトが必要であり、使用に適した候補材料のオプションを複数確保しておくことが重要である (NUMO, 2022)。

原子力発電環境整備機構(NUMO)：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.

研究背景と目的

ベントナイトの膨潤・透水特性における影響因子

材料特性	施工条件	環境条件
・モンモリロナイト含有率 ・交換性陽イオン組成	・乾燥密度 ・砂・ベントナイト配合率	・地下水質 ・温度



➤ 従来の透水試験法では、数か月の長期間+バラつきが見られることが課題。

➤ Ito et al., 2022：ベントナイト単体試料を対象として、**数日～2週間程度の短期間**で、精度よく透水係数を測定可能な実験装置を開発。

本研究の目的

➤ モンモリロナイト含有率・交換性陽イオン組成の異なる6種のベントナイトの透水係数データベースを構築し、様々なベントナイト系材料の透水係数予測可能性を調査。

➤ 様々なベントナイトの透水係数を統一的に評価可能な指標の模索。

➤ 高水圧下で透水係数を測定し、実処分環境で想定される境界条件の影響を評価。

Ito, D., Wang, H. and Komine, H.: Hydraulic conductivity test system for compacted, 2-mm-thick bentonite specimens, Soils and Foundations, Vol.62, 101210, 2022.

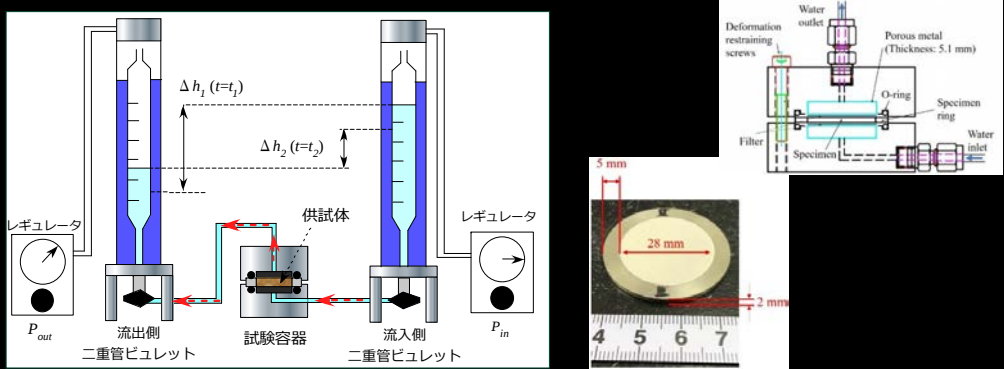
4

使用した試料の基本的性質

クニゲルV1 (粉体, 国産 Na型)	MX-80 (顆粒, 米国 Na型)	ボルクレイ (粉体, 米国 Na型)	クニピアF (粉体, 国産 Na型純モンモリロナイト)	クニボンド (粉体, 国産 Ca型)	三川原鉱 (粉体, 国産 Ca-Mg型)
					
試料名	土粒子密度 (Mg/m ³)	モンモリロナイト 含有率 (%)	浸出 Na ⁺ イオン (cmol/kg)	浸出 Ca ²⁺ イオン (cmol/kg)	浸出 Mg ²⁺ イオン (cmol/kg)
クニゲルV1(KV1)	2.76	52.8	53.8	35.5	4.1
MX-80(MX)	2.77	60.0	69.3	41.1	9.2
ボルクレイ(VOL)	2.82	72	58.9	22.5	1.8
クニピアF(KP-F)	2.90	100	104.7	28.2	7.6
クニボンド(KB)	2.53	71.1	8.3	61.8	15.3
三川原鉱(MG)	2.53	48.7	8.1	22.7	21.2

厚さ2mm供試体を用いる透水試験装置の概要

- 加圧型変水位透水試験 (Ito et al., 2022.)
- 極薄供試体(t=2 mm)を用いることで、試験期間を大幅に短縮
→寸法：1 μm、質量：0.1 mgの精度で計測。

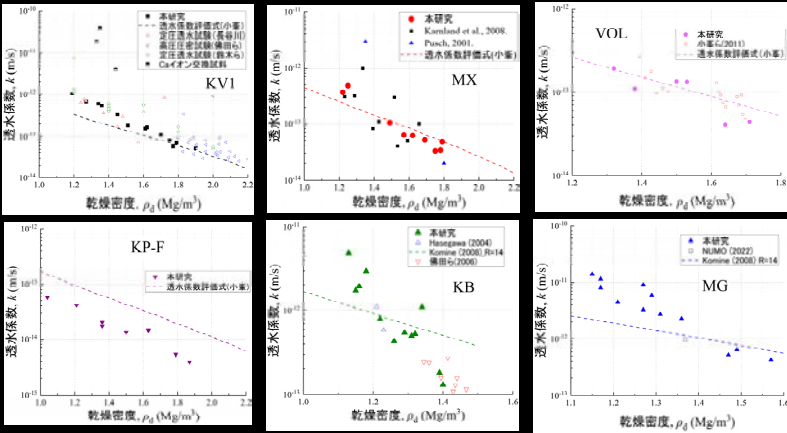


試験ケース(乾燥密度, 動水勾配)

試料名	乾燥密度 (Mg/m ³)	測定数	動水勾配(透水時の差圧)
KV1(Na型粉体)	1.19~1.90	13	2,000~25,000 (40~500)
MX(Na型顆粒)	1.22~1.79	9	10,000・20,000 (200・400)
VOL(Na型粉体)	1.32~1.71	6	10,000・20,000 (200・400)
KP-F(Na型純モンモリロナイト)	1.03~1.87	8	10,000~36,000 (200~720)
KB(Ca型粉体)	1.09~1.40	13	1,000~4,000 (20~80)
MG(Ca-Mg型粉体)	1.17~1.57	12	1,000~5,000 (20~100)

- 約60ケースの供試体(乾燥密度：実務想定よりも広範囲)で透水係数を取得。
- 動水勾配を試験中に変更しても、透水係数が変わらない⇒ダルシー則の成立を確認。

試験結果(透水係数—乾燥密度関係)



- 透水係数と乾燥密度の間に、バラつきの小さい(2倍以内)関係がみられる。
- 本研究で得られた結果は、既往研究と同様のオーダーにある。

透水係数－有効モンモリロナイト密度関係

・有効モンモリロナイト密度

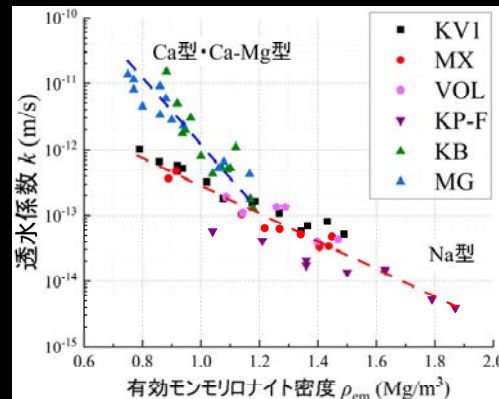
$$\rho_{em} = C_m \rho_d / \{100 - (100 - C_m) \rho_d / \rho_{nm}\} \quad (3)$$

$$\rho_{solid} = 100 \rho_m / \{C_m + (100 - C_m) \rho_m / \rho_{nm}\} \quad (4)$$

ρ_{em} : 有効モンモリロナイト密度, C_m : モンモリロナイト含有率, ρ_d : 乾燥密度, ρ_{solid} : ベントナイト土粒子密度, ρ_{nm} : 随伴鉱物の土粒子密度, ρ_m : モンモリロナイトの土粒子密度 (= 2.77 Mg/m³) (Lambe & Whitman, 1969).

➢ Na型ベントナイトと, Ca型・Ca-Mg型ベントナイトとでそれぞれ良好な相関性が見られた。

→ **主要な交換性陽イオン種およびモンモリロナイト含有率を予め把握しておくことで, 有効モンモリロナイト密度を代替指標として透水係数を予測できる**ことが示唆された。

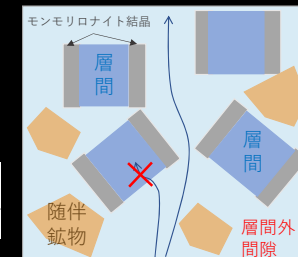


XRDに基づくモンモリロナイト層間外間隙比

・モンモリロナイト結晶層間水は交換性陽イオンや結晶表面の電荷からの影響を強く受けている。

仮説: モンモリロナイト層間部を不透水と考え, 層間外の体積とモンモリロナイト結晶体積による間隙比 (**モンモリロナイト層間外間隙比 e'_m**) を用いれば, 鉱物組成や交換性陽イオン種によらない統一評価ができるのではないかと?

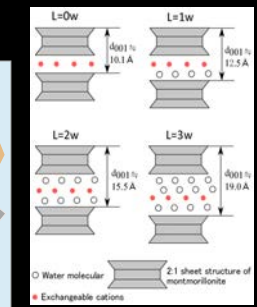
⇒ X線回折(XRD)により, Na型, Ca型, Ca・Mg型ベントナイト中のモンモリロナイト結晶層間距離を測定し, e'_m による評価を試みた。



$$e'_m = \frac{V_{out}}{V_m} = \frac{V_o - V_{int}}{V_m} = \frac{V_o - \frac{d_{001} - t}{t} V_m}{V_m} = \frac{100 \rho_m (\rho_s - 1) - \frac{d_{001} - t}{t} C_m}{C_m}$$

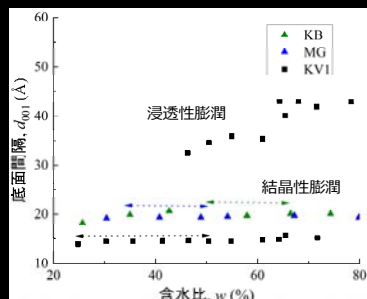


X線回折 (XRD) 装置 (RINT-Ultima III)



モンモリロナイトの吸水による層間距離増加

XRDに基づくモンモリロナイト層間外間隙比

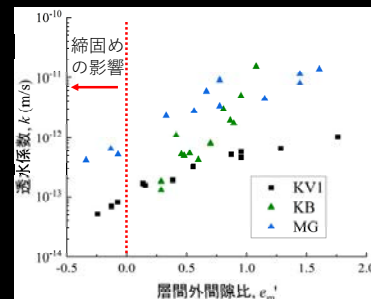


・XRD測定結果 (対象: 粉体状試料)

KV1: 結晶性膨潤 ($w > 50\%$, 底面間隔 d_{001} : 約 15 Å) と浸透性膨潤 (約 30 Å 以上) が混在。

KB・MG: 含水比によらず約 20 Å でほぼ一定。

⇒ 透水試験後の供試体含水比 (図中の破線矢印の範囲) における d_{001} を用いて e'_m を算出。



・ e'_m と透水係数の関係

低間隙比でKV1とKBが比較的近傍したが, MGは近傍しなかった。

⇒ Ca型およびCa・Mg型ベントナイトの結晶層全体を不透水としている仮定に誤りがある?

今後, 層間水について固定層 (Stern層), 拡散層の厚さを考慮し, 実際の透水現象における通水可能な間隙に即した間隙比を提案したい。

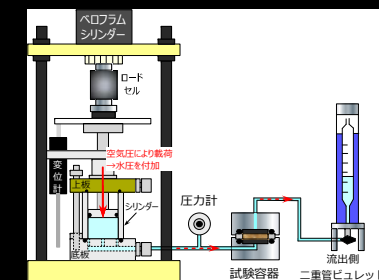
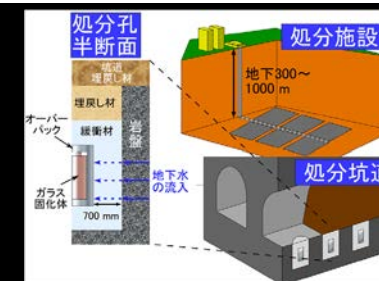
高透水圧環境下での透水特性

・地層処分施設: 地下300~1000 mの深地層に建設
→ 地下水圧は静水圧相当で3~10 MPa。

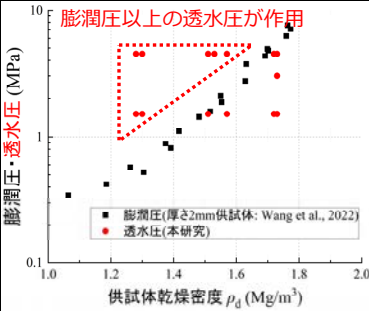
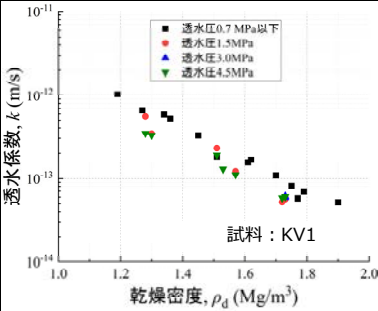
・透水試験基準において, 現場で想定される動水勾配・水圧に基づく試験が推奨されているが, このような高透水圧, 高動水勾配環境がベントナイトの透水特性に及ぼす影響は評価されていない。

⇒ 水供給システムの剛性を高めることで高水圧・高動水勾配を作用できる実験系を開発し, 透水圧1.5・3.0・4.5 MPa (動水勾配75,000~230,000) の下で透水特性に及ぼす影響を確認した。

・供給シリンダー: ステンレス製圧力容器 (シリンダー内径28 mm, 肉厚5 mm), ピストンに鉛直荷重を載荷し透水圧を付加。



高透水圧環境下での透水特性



- 透水圧1.5～4.5 MPaの場合、0.7 MPa以下に比べてやや透水係数が小さい。
- 差異は概ね2倍以内であることから、今回作用させた透水圧が透水係数に及ぼす影響は小さいと考えられる。
(透水係数の計測時間：1日以内)
- 本研究の透水圧と供試体の最大膨潤圧の大小関係。
➢ 最大膨潤圧以上の透水圧を作用させても、流入・流出量の収支が取れていた・供試体の変形や破壊が見られなかった。
⇒今回与えた環境（最大4.5MPa）においても、KV1はダルシーの法則に則った安定的な透水挙動を示すことが示された。

本研究成果のまとめと今後の検討事項

- 本研究の成果：
1. 交換性陽イオン組成の異なる国産・海外産ベントナイト6種について、バラつきの小さい透水係数データベースを取得した。
 2. 異なる産地のベントナイト試料であっても、交換性陽イオンおよびモンモリロナイト含有率を把握すれば有効モンモリロナイト密度を代替指標として透水係数を予測可能である。
 3. 高透水圧4.5 MPa（動水勾配約23万）においても、KV1の透水特性はダルシーの法則に則っていることが実験的に確認された。
 4. Na型ベントナイトを高乾燥密度で締め固めることで、10³年オーダーのトラベルタイムを確保できることが試算できた。

- 今後の検討事項：
1. 透水係数取得を1日以内で可能にする透水試験法を確立できたため、対象試料や水質環境、動水勾配環境を広げ、実処分事業に資することのできる網羅的なデータベースを構築する。
 2. 理論評価手法の高度化および交換性陽イオンの違いを統一的に評価できる代替指標の獲得に向け、屈曲度など粒子・骨格構造を表すパラメータの導入や、骨格内の通水部の解明および間隙比を現象に即した形で発展させる。

参考文献

1) 動力炉・核燃料開発事業団：緩衝材の飽和透水特性, PNC TN8410 97-296, 1997.

2) 堀井憲治, 菊池広人, 中村邦彦, 田中幸久, 廣永道彦：ベントナイト系材料の標準的室内試験法構築に向けての試験法の現状調査と試験による検討—日本原子力研究開発機構/電力中央研究所共同研究成果報告—, JAEA-Research2010-025, 2010.

3) 原子力発電環境整備機構(NUMO)：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.

4) Ito, P., Wang, H. and Komine, H.: Hydraulic conductivity test system for compacted, 2-mm-thick bentonite specimens, Soils and Foundations, Vol.62, 101210, 2022.

5) Wang, H., Komine, H., and Gotoh, T.: A swelling pressure cell for X-ray diffraction test. Géotechnique 72(8): 675-686, 2022.

6) 日本工業規格 (JIS)：ベントナイトなどのメチレンブルー吸着量の測定方法, JIS Z 2451, 2019.

7) 白河部匠, 王海龍, 諸留章二, 小峯秀雄：ベントナイトに適用した陽イオン交換容量および浸出陽イオン量の各種測定方法の検討, 地盤工学ジャーナル, 17(1), 2022.

8) 地盤工学会 (JGS) 基準・同解説：低透水性材料の透水試験方法, JGS 0312-2018, 2019.

9) Komine, H.: Theoretical equations on hydraulic conductivities of bentonite based buffer and backfill for underground disposal of radioactive wastes, Journal of Geotechnical and Geoenvironmental Engineering, American Society of Civil Engineers, Vol. 134, No. 4, pp.497-508, 2008.

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) 焼田理恵, 小峯秀雄, 安原一哉, 村上哲：高圧圧密試験装置を用いたベントナイトの透水係数算出における試験方法の高度化, 土木学会論文集C, Vol.62, No.3, pp.573-578, 2006.

12) 動力炉・核燃料開発事業団：緩衝材の飽和透水特性, PNC TN8410 97-296, 1997.

13) Karnland, O., Nilsson, U., Weber, H. and Wersin, P.: Sealing ability of Wyoming bentonite pellets foreseen as buffer material - Laboratory results, Physics and Chemistry of the Earth, Vol.33, pp. 5472-475.

14) Pusch, R.: The microstructure of MX-80 clay with respect to its bulk physical properties under different environmental conditions, SKB Technical Report, TR-01-08, 2001.

15) 小峯秀雄, 安原一哉, 村上哲：人工海水環境下における各種ベントナイトの透水係数, 土木学会論文集C (地盤工学), Vol. 67, No. 2, pp. 276-287, 2011.

16) Lambe, T.W. and Whitman, R.V.: Soil Mechanics, John Wiley & Sons Inc., pp.29-31, 1969.

17) Mitchell, J. K. 1993. Fundamentals of soil behavior, 2nd Ed., Wiley, New York, 236-271.

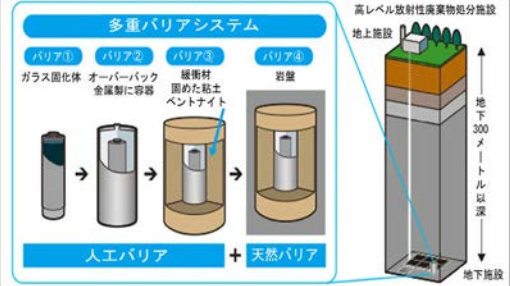
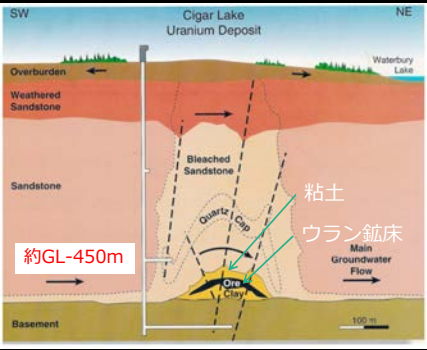
18) ASTM: Standards Test Methods for Measurement of Hydraulic Conductivity of Saturated Porous Materials Using a Flexible Wall Permeameter. ASTM D5084, 2016.

19) Wang, H.: Pore water density in a saturated bentonite, Géotechnique, 74(12), pp.1254-1262, 2024.

20) Wang, H., Ruan, K., Harasaki, S. and Komine, H.: Effects of specimen thickness on apparent swelling pressure evolution of compacted bentonite, Soils and Foundations, 62(1); 101099, 2022.

21) 緒方憲英, 小嶋明郎, 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.52, pp.103-121, 1999.

ご清聴ありがとうございました



出典：NAWG (加筆) <http://www.natural-analogues.com>
地層処分システム (日本)
Cigar Lake ウラン鉱床
研究期間：1892～1993

この度は、2023・2024年度の2か年にわたりご助成を賜りまして、誠に有難うございました。