



緩衝材の水理特性

千々松正和 藤田 朝雄 鈴木 英明
松本 一浩

東海事業所 環境保全・研究開発センター 処分研究部

資料番号 : 5 - 7

Hydraulic Properties of Buffer Material

Masakazu CHIJIMATSU Tomoo FUJITA Hideaki SUZUKI
Kazuhiro MATSUMOTO

Waste Isolation Research Division, Waste Management and Fuel Cycle
Research Center, Tokai Works

高レベル放射性廃棄物の地層処分における緩衝材には、低透水性を有することによって地下水の動きを抑制し、その結果として放射性核種の移動を抑制するという機能が要求されている。そこで、緩衝材の透水性を把握することを目的に緩衝材の候補材料であるベントナイトを対象として水理試験を実施した。飽和状態における緩衝材の水理特性としては透水係数を測定し、不飽和状態としては水分拡散係数及び水分ポテンシャルの測定を行なった。また、人工バリアの定置後には廃棄体の発熱により緩衝材内に温度勾配が生じるため、その影響による水分移動を把握することを目的に温度勾配水分移動試験も実施した。試験の結果、飽和状態における緩衝材の透水性は、ケイ砂混合率に関係なく有効粘土密度で整理できることが分かった。また、不飽和状態の水理特性に関しては、水分拡散係数の実験式を求めるとともに、水分ポテンシャルに関してはモンモリロナイトの含有率で正規化した含水比を用いることにより各種粘土の水分ポテンシャルを単一の式で表せることを示した。

The buffer material is required to have low permeability in order to restrict the groundwater flow and the migration of radionuclides. When the waste package is emplaced, the buffer material is in an unsaturated condition suitable for transportation and handling. After that, the voids in the buffer material become filled with groundwater and the buffer material becomes saturated. Therefore, it is necessary to understand the hydraulic properties for both saturated and unsaturated states. As a saturated hydraulic property, hydraulic conductivity was obtained. On the other hand, as an unsaturated hydraulic property, water diffusivity and water potential were obtained. Furthermore, it is expected that thermal gradient is occurred in the buffer after the emplacement of the engineered barrier system. Therefore, a test on the water movement due to the thermal gradient was carried out. As results, the intrinsic permeability of buffer materials may be expressed by the effective clay density, regardless of the sand ratio. As for the unsaturated hydraulic properties, experimental equations for water diffusivity were obtained and it was shown that the water potential of different types of buffer materials may be expressed using an unitary equation including the normalized water content that was normalized by the content ratio of montmorillonite.

キーワード

放射性廃棄物、地層処分、人工バリア、緩衝材、透水係数、水分拡散係数、水分ポテンシャル、温度勾配
High Level Radioactive Waste, Geological Isolation, Engineered Barrier, Buffer Material, Hydraulic
Conductivity, Water Diffusivity, Water Potential, Thermal Gradient

1. はじめに

我が国の高レベル放射性廃棄物の地層処分概念は、「安定な地質環境に、性能に余裕を持たせた人工バリアを含む多重バリアシステムを構築する」ことを基本としている。この多重バリアシ

テムのうち人工バリアは、工学的対策が施された障壁であり、その構成要素としては、放射性廃棄物であるガラス固化体、廃棄物を格納する容器（以下、オーバーパック）オーバーパックと岩盤との間に充填される緩衝材がある。このうち、緩

衝材には低透水性を有することによって地下水の動きを抑制し、その結果として放射性核種の移動を抑制するという機能が要求されている¹⁾。緩衝材中の水分は廃棄体が定置された時点では、施工を行う上で適切な含水比（不飽和状態）に設定されており、やがて、緩衝材の間隙が地下水で満たされた状態（飽和状態）となる。

したがって、緩衝材定置後の浸潤挙動を評価するためには不飽和状態の水理特性を確認することが必要となる。また、地層処分システムの安全評価は緩衝材中の放射性核種の移動が拡散支配であるという前提で実施されているが、拡散支配であるのか移流支配であるのかを評価するためには、緩衝材の飽和状態での水理特性を確認することが必要となってくる。

そこで、緩衝材の候補材料に関して飽和状態及び不飽和状態における各種水理試験を実施した。飽和状態における水理特性としては、緩衝材の透水係数の測定を行った。また、不飽和状態における水理特性としては、水分拡散係数及び水分ポテンシャルの測定を行った。

また、人工バリア定置後には廃棄体の発熱により緩衝材内に温度勾配が生じ、その影響による水分の移動も生じるものと考えられる。したがって、緩衝材中の温度勾配による水分移動を把握するための試験も実施した。

2. 飽和ベントナイトの透水特性

透水試験は地盤工学会基準JGS T 311に準じて実施した。図1に透水試験装置を示す。試験材料を直径50mm、高さ10mmの透水試験用拘束セル内に所定の乾燥密度で充填したものを供試体とし、恒温槽に設置した。昇・降温過程（25 40 60 80 90 80 60 40 25）の各温度において0.8MPaの圧縮空気で蒸留水を供試体に透過させ、透過液量を電子天秤により計測した。計測は各試験条件で3回ずつ実施し、その平均を透水係

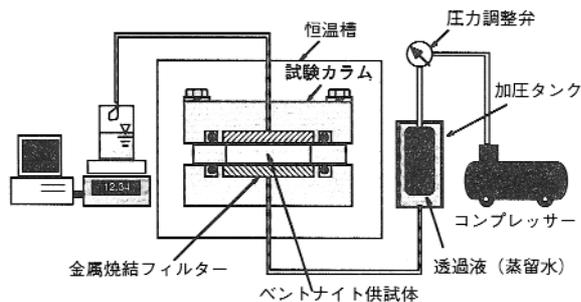


図1 透水試験装置

数の値とした。

透水係数 $k[m\ s^{-1}]$ は単位時間当たりの透過量 $Q[m^3\ s^{-1}]$ からダルシー則に従い次式により算出した。

$$Q = kiA \dots\dots$$

ここで A は供試体断面積 $[m^2]$ 、 i は動水勾配 $[-]$ である。

また、得られた透水係数 $k[m\ s^{-1}]$ から次式により固有透過度 $K[m^2]$ を算出した。

$$k = K g / \mu \dots\dots$$

ここで、 ρ は水の密度 $[Mg\ m^{-3}]$ 、 g は重力加速度 $[m\ s^{-2}]$ 、 μ は水の粘性係数 $[Pa \cdot s]$ である。

図2、図3にケイ砂混合体（ケイ砂混合率30wt%）を用いた試験の結果を示す。各試験条件（温度、乾燥密度）ごとに3回の試験を実施し、その平均値をその試験条件における透水係数（固有透過度）の値とした。図2は各乾燥密度における透水係数と温度、図3は固有透過度と温度の関係である。図2より透水係数は温度の上昇に伴って大きくなっていることがわかる。しかし、固有透

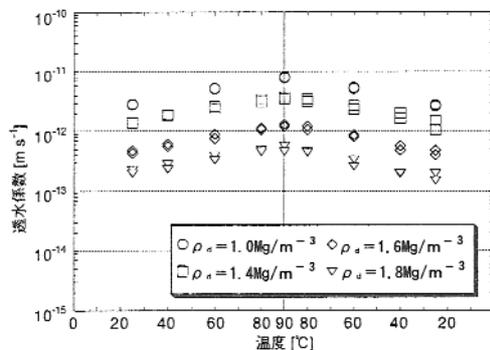


図2 透水係数の温度依存性（ケイ砂混合体（30wt%））

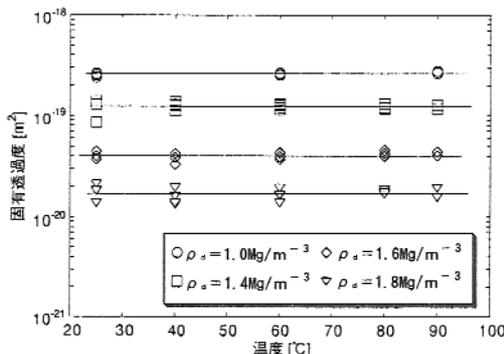


図3 固有透過度の温度依存性（ケイ砂混合体（30wt%））

過度で整理すると温度によらずほぼ一定の値を示している。すなわち、透水係数の温度依存性は、温度変化に伴う水の密度と粘性の変化で説明できるといえる。また、図4にケイ砂混合率の異なる試料の乾燥密度と固有透過度の関係を示す。これより、ケイ砂混合率が小さいほど、また乾燥密度が大きくなるほど固有透過度は小さくなることから、乾燥密度が大きいほどケイ砂混合の影響が大きく現れてくるといえる²⁾。

図5には図4の関係を次式に示す有効粘土密度(砂の体積を除いてペントナイトの乾燥密度を計算した指標)で整理したものを示す。

$$e = M_b / (V_b + V_a) \\ = \rho_d (100 - R_s) / (100 - \rho_s R_s / \rho_s) \dots\dots$$

ここで、 ρ_e は有効粘土密度[Mg m⁻³]、 M_b はペントナイトの乾燥質量[Mg]、 V_b はペントナイトの容積[m³]、 V_a は間隙の容積[m³]、 ρ_d はケイ砂混合体の乾燥密度[Mg m⁻³]、 R_s はケイ砂の乾燥質量での混合率[wt%]、 ρ_s はケイ砂の土粒子密度[Mg m⁻³]である。

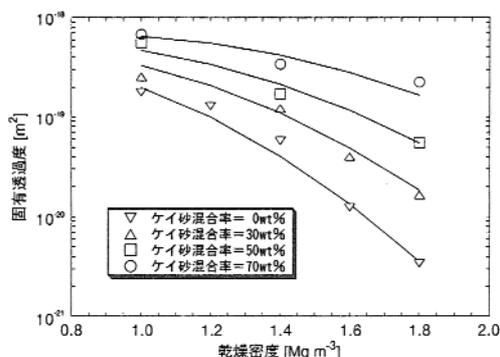


図4 固有透過度の乾燥密度依存性

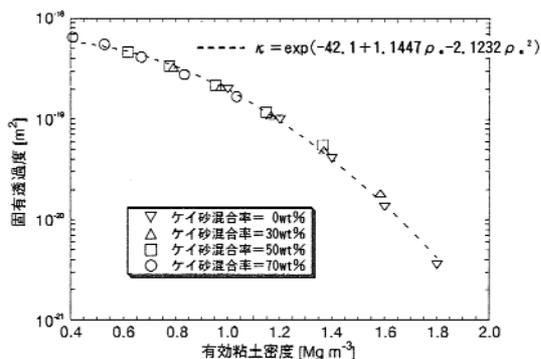


図5 固有透過度と有効粘土密度の関係

有効粘土密度で整理すると、固有透過度はケイ砂混合率に関係なく有効粘土密度と以下の関係で表せる。

$$K = \exp(-42.1 + 1.1447 \rho_e - 2.1232 \rho_e^2) \dots\dots$$

図5にはB式から得られる固有透過度と有効粘土密度の関係を破線で示している。

上記の試験では試験用流体として蒸留水を使用している。流体による透水性の差異をみるために人工海水を用い透水試験を実施し、蒸留水を用いて実施した透水試験との比較を行った。図6に蒸留水が流体の場合の透水係数とASTM D-1141-52基準で作製した人工海水が流体の場合の透水係数の比較を示す。供試体はケイ砂混合体(30wt%)である。算定された透水係数は人工海水を流体としたものの方が大きい結果となった。図7には式を用い試験用流体が蒸留水の場合と人工海水の場合とについて固有透過度を算定し、比較したものを示す。図7には供試体がペントナイト単体の場合の結果も示している。算定は試験温度25のものに関して実施し、人工海水の密度と粘性係数に関しては以下の値を用いた³⁾。

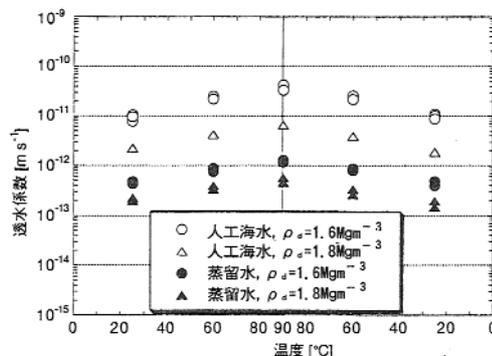


図6 人工海水と蒸留水を用いて求めた透水係数の比較(ケイ砂混合体(30wt%))

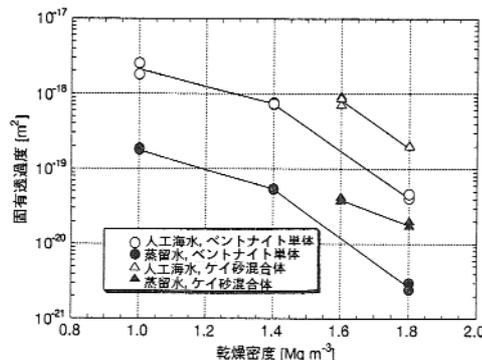


図7 人工海水と蒸留水を用いて求めた固有透過度の比較

人工海水の密度 (25)
 : $\rho_{ssv} = 1.024758 \text{ Mg m}^{-3}$
 人工海水の粘性係数 (25)
 : $\mu_{ssv} = 0.92463 \cdot 10^{-3} \text{ Pa}\cdot\text{s}$

図7より、固有透過度を比較しても人工海水の場合と蒸留水の場合で値は大きく異なる結果となった。蒸留水と人工海水とを用いてベントナイトの膨潤量の測定を行ったところ、人工海水の場合は蒸留水と比べ膨潤量はかなり小さい値となった。すなわち、人工海水と蒸留水を用いた場合の透水性の差は流体の密度や粘性によるものではなく、流体による供試体の構造骨格の差異(層間距離の差等)に依存するものと考えられる。

3. 不飽和ベントナイトの浸潤特性
 水分拡散係数

図8に浸潤試験装置の概要図を示す。試験材料を直径20mm、高さ20mmの拘束容器内で所定の乾燥密度に圧縮成型し供試体とした。供試体の両端には孔径 2 μm のテフロンフィルター及び孔径 5 μm の金属焼結フィルターを設置した。そして、供試体下部より一定の温度(25、40、60)に保たれた蒸留水を浸潤させる。所定時間経過後、供試体をカウンター付き押し出し具を用いて2.0mmずつ押し出し、10分割にする。10分割した各薄片の含水量を炉乾燥法(JGS T 121)にて測定し、供試体内の体積含水率の分布(以下、水分分布曲線)を求める。

等温条件下における不飽和ベントナイト中の水の移動は、次式で表わされる⁴⁾。

$$q = -D_{\theta} \frac{\partial \theta}{\partial Z} \quad \dots\dots$$

ここで、 q は水分フラックス[m s^{-1}]、 D は水分

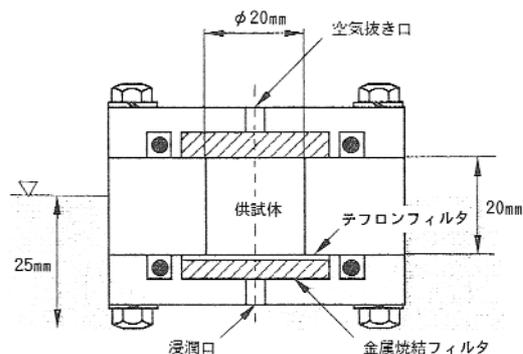


図8 浸潤試験装置図

拡散係数[$\text{m}^2 \text{ s}^{-1}$]、 θ は体積含水率[-]、 Z は試料中における浸潤面からの位置[m]を表す。

したがって、試料長さ l 中のある位置 Z_i に着目した場合、時刻 t_1 から t_2 における水分拡散係数 D は、浸潤試験によって得られた水分分布曲線を用いて、次式により計算することができる⁵⁾。

$$D_{\theta} = \frac{\int_{Z_i}^l (\theta_{t=t_2} - \theta_{t=t_1}) dZ}{\frac{1}{2} \left\{ \left(\frac{\partial \theta}{\partial Z} \right)_{t=t_2, Z=Z_i} - \left(\frac{\partial \theta}{\partial Z} \right)_{t=t_1, Z=Z_i} \right\}} \times \frac{1}{t_2 - t_1} \quad \dots\dots$$

試験温度25、40及び60 における、ベントナイト単体(乾燥密度 1.8 Mg m^{-3})の体積含水率と水分拡散係数の関係を図9に、ケイ砂混合物(30wt%、乾燥密度 1.6 Mg m^{-3})の場合についての関係を図10に示す。水分拡散係数は体積含水率に依存して変化し、低水分領域と高水分領域で水分拡散係数

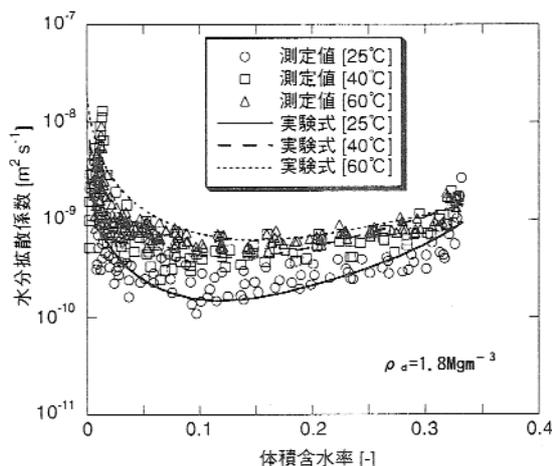


図9 ベントナイト単体の水分拡散係数

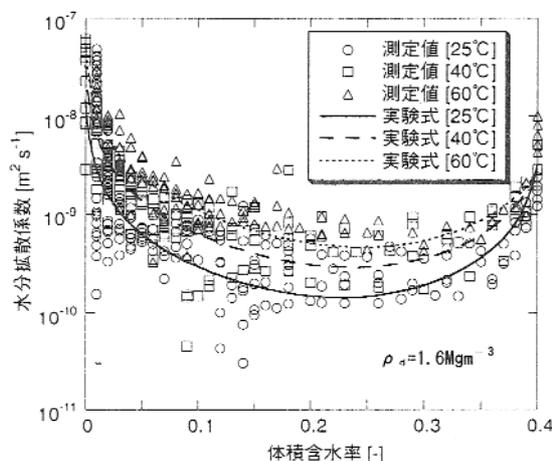


図10 ケイ砂混合物(30wt%)の水分拡散係数

表1 各材料における水分拡散係数実験式の係数の値

| 係数 | ベントナイト単体 | ケイ砂混合体 (30wt%) |
|-------|---|---|
| a_1 | $1.76 \times 10^{-12}T - 3.04 \times 10^{-11}$ | $2.99 \times 10^{-12}T - 3.74 \times 10^{-11}$ |
| a_2 | $-1.48 \times 10^{-11}T + 2.98 \times 10^{-10}$ | $-1.50 \times 10^{-12}T + 1.49 \times 10^{-11}$ |
| b_1 | -3.68×10^{-3} | -2.49×10^{-3} |
| b_2 | $5.22 \times 10^{-3}T + 2.68 \times 10^{-1}$ | $5.59 \times 10^{-4}T + 3.93 \times 10^{-1}$ |
| s | 0.333 | 0.403 |

T; 温度[]

が大きくなるU字型の分布を示した。また、このU字型の分布は温度とともに上昇し、水分拡散係数には顕著な温度依存性がみられた。

不飽和ベントナイト中の水分は含水量が少ない状態では水蒸気状態での移動が支配的であり、含水量が多い状態では液状水での移動が支配的であるというこれまでの検討結果⁶⁾から、水分拡散係数 D を水蒸気による拡散係数 D_v と液状水による拡散係数 D_l の和として式のように表した。実測値によるフィッティングから得られた式における各係数の値を表1に示す。また、実験式により得られる水分拡散係数を図9及び図10に示した。

$$D_\theta = D_{\theta v} + D_{\theta l} = \frac{a_1(\theta - \theta_s)}{(\theta - b_1)(b_1 - \theta_s)} + \frac{a_2\theta}{b_2(\theta - b_2)}$$

水分ポテンシャル

ベントナイト中の単位体積当たりの水分ポテンシャル [Pa]と相対湿度 P/P_0 の間には次のような関係がある⁷⁾。

$$= (RT/M)\ln(P/P_0)$$

ここで、 R は気体定数($8.31 \text{ J mol}^{-1} \text{ K}^{-1}$)、 T は絶対温度[K]、 M は水の分子量($1.8 \times 10^{-2} \text{ kg mol}^{-1}$)、 P 、 P_0 はそれぞれ試料の水蒸気圧[Pa]と飽和水蒸気圧[Pa]である。

水分ポテンシャルの測定には熱電対サイクロメータを用いた。図11に測定装置の概要図を示す。水分ポテンシャルは密度依存性が小さいと考えられているため⁵⁾、粉末状の試料を用い測定を行った。試験は含水比と温度をパラメータとしており、温度は25、40及び60 で試験を実施した。図12には各温度におけるベントナイト単体(クニゲルV1)の水分特性曲線を、図13にはケイ砂混合体(30wt%)の水分特性曲線を示す。水分特性曲線には水分拡散係数ほど顕著な温度依存性はみられなかった。また、図14には種類の異なるベントナイトの水分特性曲線を示す。試験温度は25 である。水分ポテンシャルの絶対値はクニピアFが最

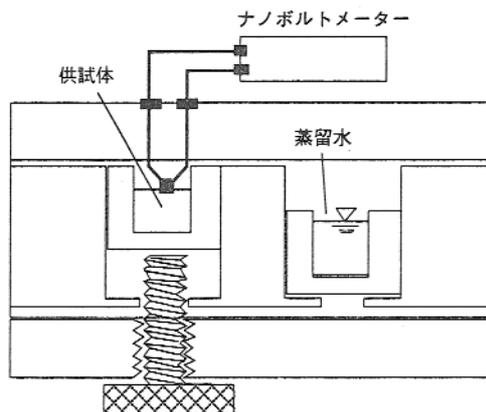


図11 水分ポテンシャル測定装置 (熱電対サイクロメータ)

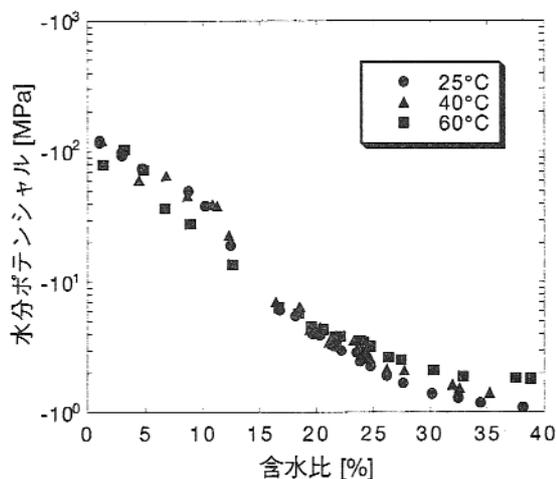


図12 ベントナイト単体の水分ポテンシャル

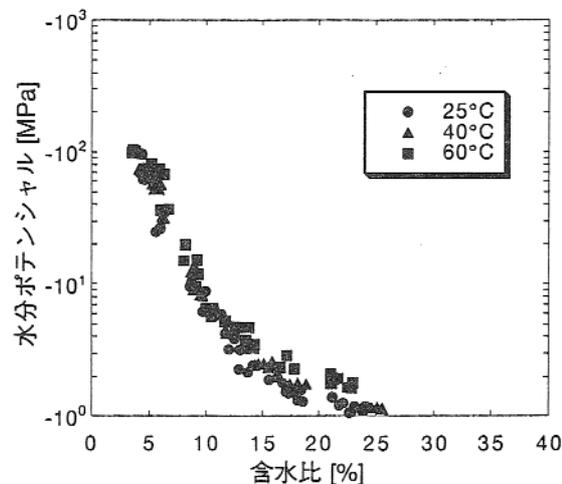


図13 ケイ砂混合体 (30wt%) の水分ポテンシャル

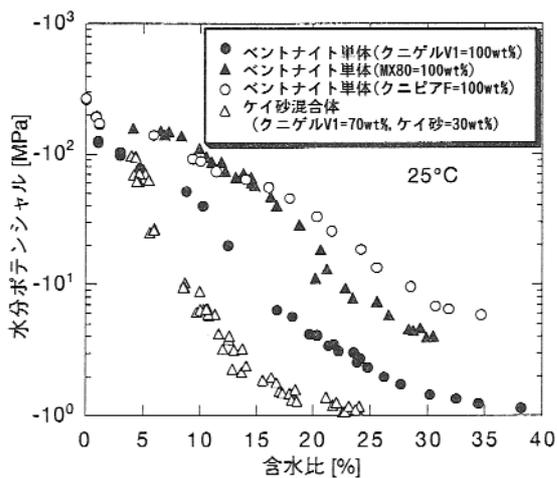


図14 各種ベントナイトの水分ポテンシャル

も大きく、次いでMX-80、クニゲルV1の順であることが分かる。これはモンモリロナイトの含有率に依存すると考えられるため、含水比を式に示すモンモリロナイトの含有率で正規化した含水比 (w_{mon}) で整理したものが図15である。この含水比で整理すると水分ポテンシャルは式で表すことができる。

$$w_{mon} = w / R_{mon} \dots\dots$$

$$= g \left[\left(-1.37 \times 10^4 T + 1.23 \times 10^6 \right) \times \exp \left(-9.5 \times 10^{-3} \left(w_{mon} R_{mon} \right)^2 \right) + 3.5 \times 10^5 \left(w_{mon} R_{mon} \right)^{0.95} \right] \dots\dots$$

ここで、 w_{mon} はモンモリロナイト含有率で正規化した含水比[%]、 w は含水比[%]、 R_{mon} はモンモ

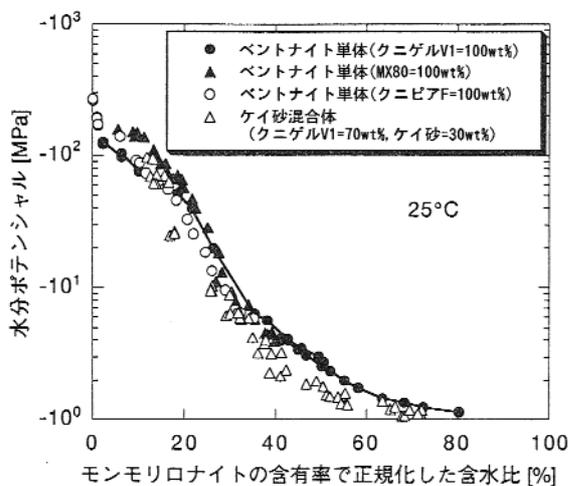


図15 モンモリロナイト含有率で正規化した水分ポテンシャル

リロナイト含有率[-]、 ψ は水分ポテンシャル [Pa]、 T は温度[]、 g は重力加速度[cm s^{-2}]である。

温度勾配下の浸潤挙動⁸⁾

温度勾配下の水分移動試験を実施するための試験装置を図16に示す。供試体の寸法は直径 5 cm、高さ10cmである。試験装置は 2 個で 1 対となっており、図16の(a)に示す装置Aで水分分布を、(b)に示す装置Bで温度分布を測定する。試験では、供試体に温度勾配を与え、供試体中の水分分布及び温度分布を計測する。水分分布は試験終了後に装置Aに設置された供試体を10分割し、炉乾燥法 (JGS T 121) により含水比を測定し求める。また、温度分布は供試体下部 (高温側) より、0.2、2.0、4.0、6.0、8.0、9.8cmの各距離に設けられた計6点での熱電対により、データログを用いて計測する。試験条件を表 2 に示す。供試体中の温度は約 2 ~ 3 時間で定常となった。図17に定常状態時の温度分布を示す。(a)はベントナイト単体の場合の結果、(b)はケイ砂混合体 (30wt%) の場合の結果である。供試体の両端の温度を固定して温度勾配をつけているため、供試体の含水比の違いによる温度分布の差は図17(b)に示すようにない。

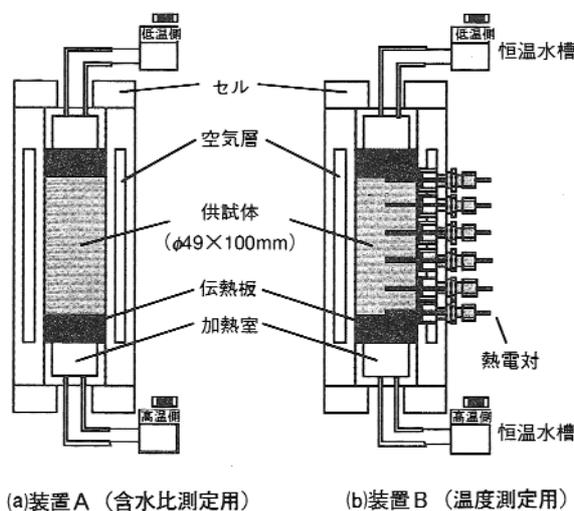


図16 試験装置

表 2 温度勾配下の水分移動試験における試験条件

| 試験材料 | ベントナイト単体 | ケイ砂混合体 (30wt%) |
|-----------------------------|---------------|----------------|
| 乾燥密度 [Mg m^{-3}] | 1.8 | 1.6 |
| 初期含水比 [%] | 5, 10, 13, 15 | 5, 12.5, 20 |
| 温度勾配 [cm^{-1}] | 2.0 | 1.0 |

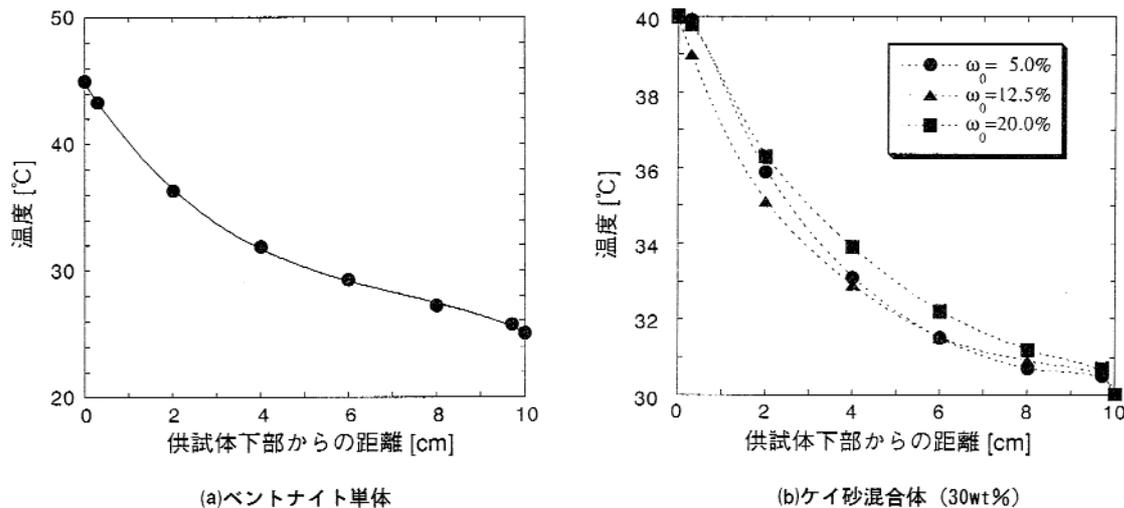


図17 温度分布

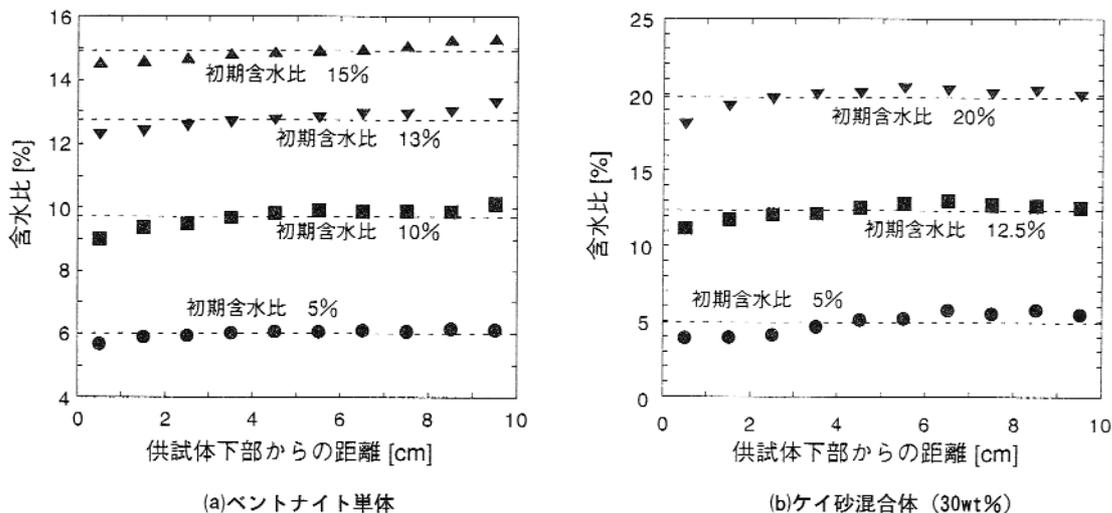


図18 含水比分布

試験開始から96時間後に装置を解体し供試体の観察を行った。供試体の高温側では乾燥により直径方向の収縮が、また低温側では膨張がみられた。試料全体を観察すると高温側から低温側にかけて白から徐々に黒くなっていることが分かった。各供試体の初期状態の含水比分布と96時間後の含水比分布測定結果を図18に表す。(a)はベントナイト単体の場合の結果、(b)はケイ砂混合体(30wt%)の場合の結果である。いずれの供試体においても、初期の含水比分布と比較して96時間後には高温側では水分の減少が、低温側では水分の上昇が認められ、水分勾配が形成されていることがわかる。

4. おわりに

放射性廃棄物の地層処分の安全評価(放射性核種の移動)及び緩衝材定置後の浸潤挙動の評価に資することを目的に、緩衝材の水理試験を実施した。飽和状態における水理特性として、緩衝材の飽和透水係数の測定を行い、不飽和状態における水理特性としては、水分拡散係数及び水分ポテンシャルの測定を行った。また、緩衝材中の温度勾配による水分移動を把握するための試験も実施した。

今回の試験の結果より、飽和状態における緩衝材の透水性は、有効粘土密度で整理できることが分かった。また、不飽和状態の水理特性に関しては、水分拡散係数の実験式を求めるとともに、水

分ポテンシャルに関してはモンモリロナイトの含有率で正規化した含水比を用いることにより各種粘土の水分ポテンシャルを単一の式で表せることを示した。

緩衝材の浸潤挙動評価は今回測定した飽和・不飽和状態すべての水理特性を使用して実施している⁹⁾。温度勾配による水分移動に関しては、今回の試験では直接物性値の算定にまで至っていないため、逆解析により物性値（温度勾配水分拡散係数）の算定を実施している。

飽和の水理特性は、試験流体の影響により大きく異なってくるのが分かったため、今後は不飽和水理特性に関しても試験流体の影響を把握するための試験を実施していく予定である。

参考文献

- 1) 動燃事業団：“高レベル放射性廃棄物地層処分研究開発の技術報告書（平成3年度）”，PNC TN 1410 92-081（1992）。
- 2) 松本一浩，菅野 毅，藤田朝雄，鈴木英明：“緩衝材の飽和透水特性”，PNC TN8410 97-296（1997）。
- 3) J.P.Riley and G.Skirrow：“Chemical Oceanography”，Vol.1,2nd Edition, Academic Press（1975）。
- 4) 中野政詩：“土の物質移動学”，東大出版会（1991）。
- 5) 鈴木英明，藤田朝雄，菅野 毅：“緩衝材の水分ポテンシャルと水分拡散係数”，PNC TN8410 96-117（1996）。
- 6) 竹内真司，原 啓二，中野政詩：“圧縮ベントナイトの水分特性曲線及び水分拡散係数と水の移動形態”，地盤工学会論文報告集，Vol.35, No.3, p.129-137（1995）。
- 7) 塩沢 昌：“サイクロメータによる土壌水のポテンシャルの測定”，土壌の物理性，62, pp.53-61（1991）。
- 8) 鈴木英明，千々松正和，藤田朝雄：“温度勾配による緩衝材内の水分移動と膨潤応力の測定”，JNC TN8400 99-020（1999）。
- 9) 千々松正和，谷口 航：“熱-水-応力連成モデルを用いたニアフィールド解析評価”，JNC TN8400 99-014（1999）。