

JAERI - M
87-164

原位置緩衝材試験(I)
— 圧縮ベントナイター —

1987年10月

熊田 政弘・村岡 進・下岡 謙司
岡本 雅道*・荒木 邦夫

JAERI-M レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の問合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）
あて、お申しこしてください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城
県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division, Department
of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun,
Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1987

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 山田軽印刷所

原位置緩衝材試験 (I)

— 圧縮ベントナイト —

日本原子力研究所東海研究所環境安全研究部

熊田政弘・村岡 進・下岡謙司

岡本雅道*・荒木邦夫

(1987年9月16日受理)

高レベル放射性廃棄物の地層処分に際して、岩盤と廃棄物固化体容器との間に充填される緩衝材としては、ベントナイトが有力な候補材料に挙げられている。我が国に産出するベントナイトを、地下380mに掘削した試験孔に原位置で、 1.27 kg/cm^3 の密度に圧密充填し、電気ヒータを用いて882時間の加熱試験を行なった。試験孔内で高温に加熱された緩衝材の熱伝導率は、室内試験で測定された値よりやや高い値を示した。緩衝材中の水分を中性子水分計で測定した結果、緩衝材は加熱中乾燥し、加熱停止後、地下水が孔内周囲の岩盤の亀裂を通して緩衝材中に浸入していることが分かった。

In Situ Buffer Material Test (I)

— Compacted Bentonite —

Masahiro KUMATA, Susumu MURAOKA, Kenji SHIMOOKA
Masamichi OKAMOTO* and Kunio ARAKI

Department of Environmental Safety Research
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received September 16, 1987)

Buffer materials would be placed between a package and wall rock in a disposal pit in a deep geological formation in the concept for geological disposal of high level radioactive wastes. A bentonite powder produced in our country was compacted in a test hole in-situ into 1.27 kg/cm^3 at 380 m below surface and heated with a electric heater about 882 hours. The value of obtained thermal conductivity of the buffer material was slightly larger than those of the laboratory data. The results of the measurements of the moisture of the buffer material using a Neutron Moisture Meter revealed that the buffer material was dried during the heating and groundwater penetrated from fractures of the wall rock into the buffer material after heating was stopped.

Keywords: High Level Waste, Geological Disposal, In-Situ Experiment
Buffer Material, Bentonite, Heater Test, Neutron Moisture
Meter, Thermal Conductivity

* Mitsubishi Metal Co.

目 次

1. はじめに.....	1
2. 緩衝材.....	1
3. 原位置試験.....	10
3.1 試験孔.....	10
3.2 緩衝材の充填.....	11
3.3 ヒータ.....	11
3.4 水分測定器.....	12
4. 結果及び考察.....	15
4.1 温度分布.....	15
4.2 熱伝導率.....	15
4.3 水分分布.....	16
5. まとめ.....	23
謝 辞.....	23
引用文献.....	24

CONTENTS

1. Introduction	1
2. Buffer Material	1
3. In Situ Experiments	10
3.1 Test Hole	10
3.2 In-situ Compaction	11
3.3 Heater	11
3.4 Moisture Meter	12
4. Results and Discussion	15
4.1 Thermal Distribution	15
4.2 Thermal Conductivity	15
4.3 Moisture Distribution	16
5. Summary	23
Acknowledgment	23
References	24

1. はじめに

高レベル放射性廃棄物の地層処分は、固化体を含めた人工バリアと天然バリアを組み合わせたマルチバリアシステムによって対処することが考えられている。ガラス固化された高レベル廃棄物は、それを包むキャニスタ及びその外側を保護するオーバーバックなどの金属製容器に封入され、地下深部に掘削された横あるいは縦の処分孔に埋設されるが、この際岩盤との間には緩衝材が充填され、固化体を固定することが計画されている。固化体容器と岩盤との間に充填される緩衝材は、固化体や金属容器と共に人工バリアの一部として、放射性核種の生態圏への漏洩を抑制することが求められる。そのため、低透水性で核種の吸着性が高く、長期間化学的、機械的に安定であり可塑性と膨潤性により亀裂などを自己シールする特質を有し、良い熱伝導性をもつなど多くの性能が要求される¹⁾。このような多様な要求を満足する材料の一つとして、高密度に圧縮したベントナイトが有力候補として取り上げられている^{1,2)}。スウェーデンでは、米国ワイオミング産のベントナイト“Volclay MX-80”³⁾を圧縮成形して緩衝材を作成し、実験室試験を行なうとともに国際ストリパ計画^{4,5)}においてBMT（バッファマステスト）⁶⁾として原位置試験を実施している。今回、我が国に産出するベントナイトについて、原位置における特性を調べるため、玄武岩質輝緑凝灰岩の地下380mの深部に、直径30cm、深さ3.3mの試験孔を掘削し、孔の中央に設置した電気ヒータと岩盤との間に、緩衝材を現場で圧密充填して加熱試験を行なった。本報では、882時間の緩衝材の加熱特性と室内試験による物性測定結果、及び試験後の緩衝材中の水分を非破壊のまま現場で測定するために、²⁵²Cfを線源とする中性子水分計の使用を試みたのでこれを報告する。

本研究は、三菱金属㈱の協力により、試験の一部を委託して実施したものである。

2. 緩 衝 材

ベントナイトは、酸性凝灰岩が続成作用でモンモリロナイト化したもの、あるいは石英粗面岩などが熱水作用や風化作用をうけて生成したもので、粘土鉱物であるモンモリロナイトを主成分とする粘土状物質⁷⁾で、我が国においても商業的に一般に販売されているものである。緩衝材としてベントナイトに求められている止水性や膨潤による自己シール性などの特性は、その主成分であるモンモリロナイトの鉱物学的性質に起因するものである。モンモリロナイトは、層状の結晶構造を持つアルミノ珪酸塩の一群に属するスメクタイト（図1）の一種で、層間に水分子が吸い込まれて層間を開き、内部膨潤⁸⁾する性質を持っている。結晶構造中に交換可能な陽イオンの層（図1、スメクタイトの(E)を含む層）があり、ここに入っている陽イオンの種類によってNa型、Ca型、などに分けられる。今回、緩衝材として用いたベントナイトは、国内でも有数のベントナイト産出県である山形、群馬、新潟の各県から7種のベントナイトを集め、X線回析法によ

1. はじめに

高レベル放射性廃棄物の地層処分は、固化体を含めた人工バリアと天然バリアを組み合わせたマルチバリアシステムによって対処することが考えられている。ガラス固化された高レベル廃棄物は、それを包むキャニスタ及びその外側を保護するオーバーバックなどの金属製容器に封入され、地下深部に掘削された横あるいは縦の処分孔に埋設されるが、この際岩盤との間には緩衝材が充填され、固化体を固定することが計画されている。固化体容器と岩盤との間に充填される緩衝材は、固化体や金属容器と共に人工バリアの一部として、放射性核種の生態圏への漏洩を抑制することが求められる。そのため、低透水性で核種の吸着性が高く、長期間化学的、機械的に安定であり可塑性と膨潤性により亀裂などを自己シールする特質を有し、良い熱伝導性をもつなど多くの性能が要求される¹⁾。このような多様な要求を満足する材料の一つとして、高密度に圧縮したベントナイトが有力候補として取り上げられている^{1,2)}。スウェーデンでは、米国ワイオミング産のベントナイト“Volclay MX-80”³⁾を圧縮成形して緩衝材を作成し、実験室試験を行なうとともに国際ストリパ計画^{4,5)}においてBMT（バッファマステスト）⁶⁾として原位置試験を実施している。今回、我が国に産出するベントナイトについて、原位置における特性を調べるため、玄武岩質輝緑凝灰岩の地下380mの深部に、直径30cm、深さ3.3mの試験孔を掘削し、孔の中央に設置した電気ヒータと岩盤との間に、緩衝材を現場で圧密充填して加熱試験を行なった。本報では、882時間の緩衝材の加熱特性と室内試験による物性測定結果、及び試験後の緩衝材中の水分を非破壊のまま現場で測定するために、²⁵²Cfを線源とする中性子水分計の使用を試みたのでこれを報告する。

本研究は、三菱金属株の協力により、試験の一部を委託して実施したものである。

2. 緩衝材

ベントナイトは、酸性凝灰岩が続成作用でモンモリロナイト化したもの、あるいは石英粗面岩などが熱水作用や風化作用をうけて生成したもので、粘土鉱物であるモンモリロナイトを主成分とする粘土状物質⁷⁾で、我が国においても商業的に一般に販売されているものである。緩衝材としてベントナイトに求められている止水性や膨潤による自己シール性などの特性は、その主成分であるモンモリロナイトの鉱物学的性質に起因するものである。モンモリロナイトは、層状の結晶構造を持つアルミノ珪酸塩の一群に属するスメクタイト（図1）の一種で、層間に水分子が吸い込まれて層間を開き、内部膨潤⁸⁾する性質を持っている。結晶構造中に交換可能な陽イオンの層（図1、スメクタイトの(E)を含む層）があり、ここに入っている陽イオンの種類によってNa型、Ca型、などに分けられる。今回、緩衝材として用いたベントナイトは、国内でも有数のベントナイト産出県である山形、群馬、新潟の各県から7種のベントナイトを集め、X線回析法によ

って、モンモリロナイトの含有量を比較して含有量が最も多いと判定した山形産の「クニゲルVA」(商品名)を選定した。選定したベントナイトの化学組成と物性値を表1に示す。X線回析法の結果は、ベントナイトの主要成分であるモンモリロナイトは、 12.6 \AA に底面反射⁸⁾を持つNa型であることを示している。

緩衝材となるベントナイトは、止水性や膨潤性などの特性の他、処分孔中で固化体を含む重い廃棄物パッケージを安全に包蔵するため十分な機械的強度を有し、良好な熱伝導率を得るため、高密度が要求される^{3,9)}。今回採用した山形産ベントナイトの圧縮荷重と成形密度との関係を求めるため、圧縮荷重を、 10 kg/cm^2 から 1000 kg/cm^2 まで10段階に設定し、圧縮比と成形後の密度を求めた。圧縮成形は、直径 50 mm ϕ の円筒状モールドを使用し、成形後の試料の直径と高さの比がほぼ1となるよう(50 mm $\phi \times 50 \text{ mm}$)に一軸圧縮した。 1000 kg/cm^2 の試験を除き、各荷重について4個の供試体を用いた。結果を表2および図2に示す。圧縮成形荷重と密度との関係は、成形荷重が 40 kg/cm^2 付近で勾配が変化しているが荷重の増加に伴い密度も大きくなっており、この図から原位置の埋め込みに際して成形荷重から成形後の密度を求めることができる。

緩衝材の基礎的な熱特性を把握するため、圧縮成形した試料の熱伝導率、比熱及び含水率を測定した。又、機械的強度を調べるため一軸圧縮強度を測定した。熱伝導率は、昭和電工(株)製のQTM迅速熱伝導率計を用いてボックスプローブ方式の熱線法¹⁰⁾により測定した。比熱、含水率は建設省土木試験基準(案)に準じて測定した。一軸圧縮強度は、日本工業規格(JIS)に従って測定した。密度測定のため作成した 50 mm $\phi \times 50 \text{ mm}$ の39の試料について、室温で熱伝導率と一軸圧縮強度を測定した。うち13の試料について、 $110 \text{ }^\circ\text{C}$ で強制乾燥させ、加熱減量法により含水率測定を行なった。比熱の測定に際しては、アルミ製の測定容器の大きさに合わせて、直径 4.8 mm 、高さ 3 mm の試料を別途圧縮成形して用いた。熱伝導率の測定結果を表3に、比熱の測定結果を表4に、含水率測定結果および一軸圧縮強度測定結果を表5及び表6にそれぞれ示す。図3は、圧縮成形荷重と熱伝導率及び比熱との関係を示したもので、図4は、熱伝導率を成形密度との関係で表わしたものである。図5は、圧縮成形荷重と一軸圧縮強度の関係を示したもので、図6は、一軸圧縮強度を成形密度との関係で表わしたものである。

表 1 山形産ベントナイトの化学分析値および物理特性

化学分析値 (%)		物理特性	
SiO ₂	65 ~ 75	真比重	2.4
Al ₂ O ₃	14 ~ 17	粒度 (mesh)	300
Fe ₂ O ₃	1.9 ~ 2.4	見掛比重	0.50 ~ 0.65
CaO	1.2 ~ 1.9	pH	9.2 ~ 10.5
MgO	1.8 ~ 3.0	水分%	8以下
Na ₂ O	1.8 ~ 2.5	膨潤力 cc/g	20以上
K ₂ O	0.5 ~ 1.0		
Ig-loss	4.5 ~ 5.0		

表 3 熱伝導率測定結果

載荷重 (kg/cm ²)	熱伝導率(×10 ⁻³ cal/cm·s·°C)				
	試料番号				平均値
	1	2	3	4	
10	0.567	0.564	0.572	0.592	0.575
15	0.632	0.628	0.665	0.665	0.647
20	0.689	0.689	0.742	0.722	0.711
25	0.722	0.757	0.719	0.758	0.739
30	0.793	0.829	0.801	0.788	0.803
50	0.935	0.944	0.965	1.006	0.964
100	1.253	1.256	1.294	1.299	1.275
250	1.708	1.726	1.767	1.736	1.733
500	2.185	2.033	2.104	2.201	2.131
1000	2.521	2.543	2.526	—	2.528

表 4 比熱測定結果

載荷重 (kg/cm ²)	比熱 (cal/g)	載荷重 (kg/cm ²)	比熱 (cal/g)
10	0.195	30	0.189
15	0.191	100	0.184
20	0.194	250	0.161
25	0.184	500	0.155

表 2 ベントナイト*圧縮成形結果

載荷重 (kg/cm ²)	成形後高さ (mm)	成形後重量 (g)	成形後密度(g/cm ³) (平均値)	載荷重 (kg/cm ²)	成形後高さ (mm)	成形後重量 (g)	成形後密度(g/cm ³) (平均値)
10	49.9	114.82	1.17	50	50.1	139.67	1.42
	50.1	114.84	1.17 (1.170)		50.1	139.63	1.42 (1.428)
	50.0	114.88	1.17		50.0	139.95	1.43
	49.6	114.60	1.18		49.5	139.80	1.44
15	51.7	123.85	1.22	100	49.1	152.43	1.58
	51.5	123.69	1.22 (1.230)		49.3	152.76	1.58 (1.585)
	51.0	123.76	1.24		49.0	152.98	1.59
	51.0	123.76	1.24		48.9	153.00	1.59
20	50.8	125.64	1.26	250	51.0	180.58	1.86
	50.8	125.73	1.26 (1.270)		50.7	179.81	1.81 (1.833)
	49.9	125.73	1.28		50.5	181.77	1.83
	50.3	125.91	1.28		50.5	181.29	1.83
25	50.8	129.12	1.29	500	49.9	194.91	1.99
	50.2	128.35	1.30 (1.295)		50.6	195.03	1.96 (1.978)
	50.9	129.00	1.29		50.5	196.46	1.98
	50.5	129.08	1.30		50.5	195.93	1.98
30	51.1	133.65	1.33	1000			
	50.6	132.94	1.34 (1.333)				
	51.2	134.05	1.33				
	51.4	134.28	1.33				
						208.00	2.12

*成形前平均密度：0.6g/cm³

表 5 含水比*測定結果

載荷重 (kg/cm ²)	含水比 (%)	載荷重 (kg/cm ²)	含水比 (%)
10	7.63	50	8.02
15	7.74	100	7.86
20	7.58	250	7.67
25	7.75	500	7.61
30	7.94	1000	7.61

* 含水比 = $(W_1 - W_2) / W_2 \times 100(\%)$

W_1 : 自然状態重量

W_2 : 110℃強制乾燥状態重量

表 6 一軸圧縮強度測定結果

載荷重 (kg/cm ²)	一軸圧縮強度 (kg/cm ²)				
	試料番号				平均値
	1	2	3	4	
10	2.68	2.91	2.66	2.50	2.69
15	4.78	4.34	3.81	4.30	4.31
20	7.04	6.63	5.56	5.46	6.17
25	6.73	7.81	7.24	8.11	7.47
30	9.64	8.78	9.69	10.9	9.75
50	15.5	17.1	16.2	15.3	16.0
100	36.7	36.7	32.9	31.6	34.5
250	74.3	72.9	73.5	74.9	73.9
500	118.9	119.9	134.7	115.3	122.2
1000	141.3	157.73	160.7	—	153.2

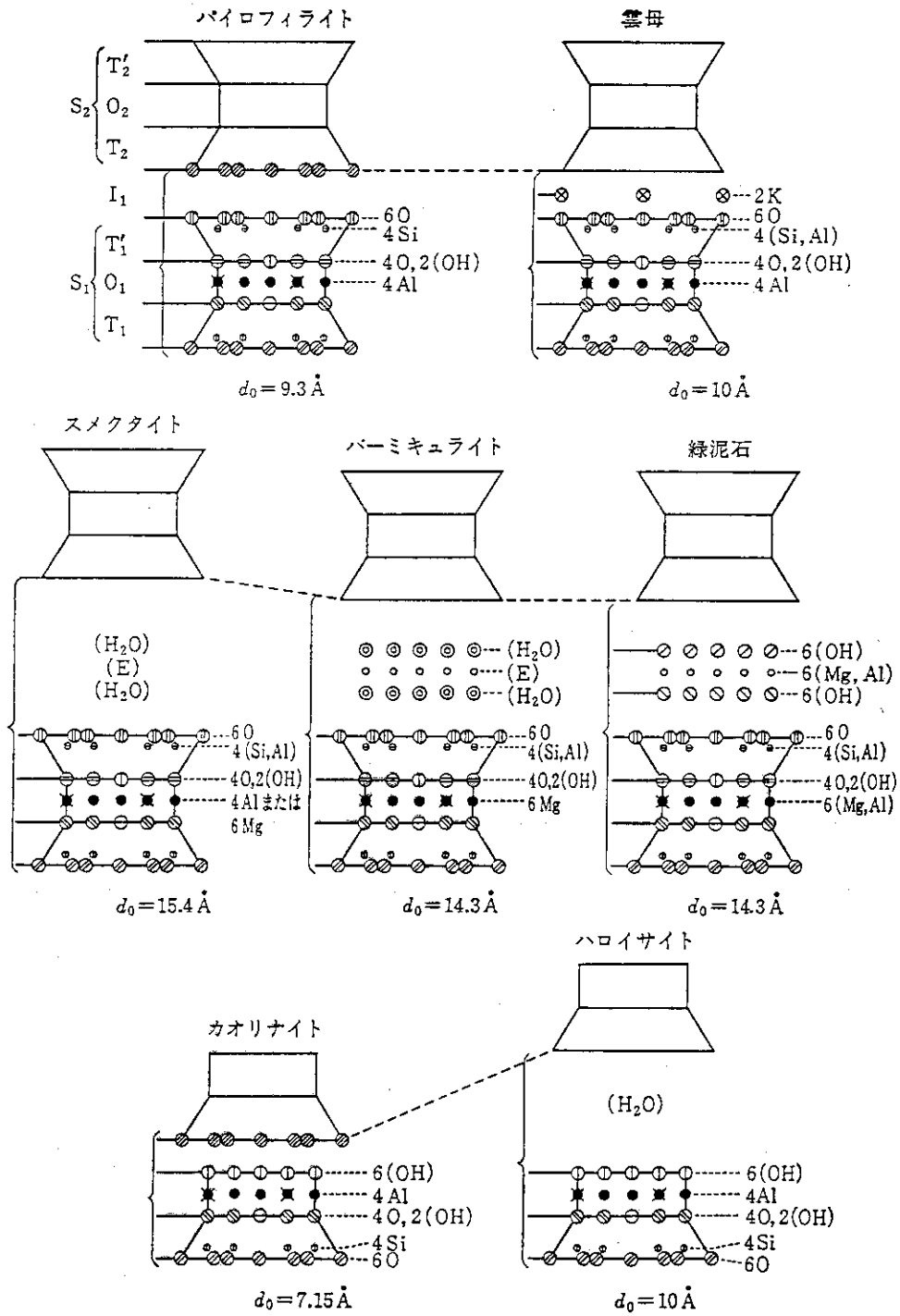


図 1 主な層状珪酸塩の構造模式図 (須藤俊男(1974)より)

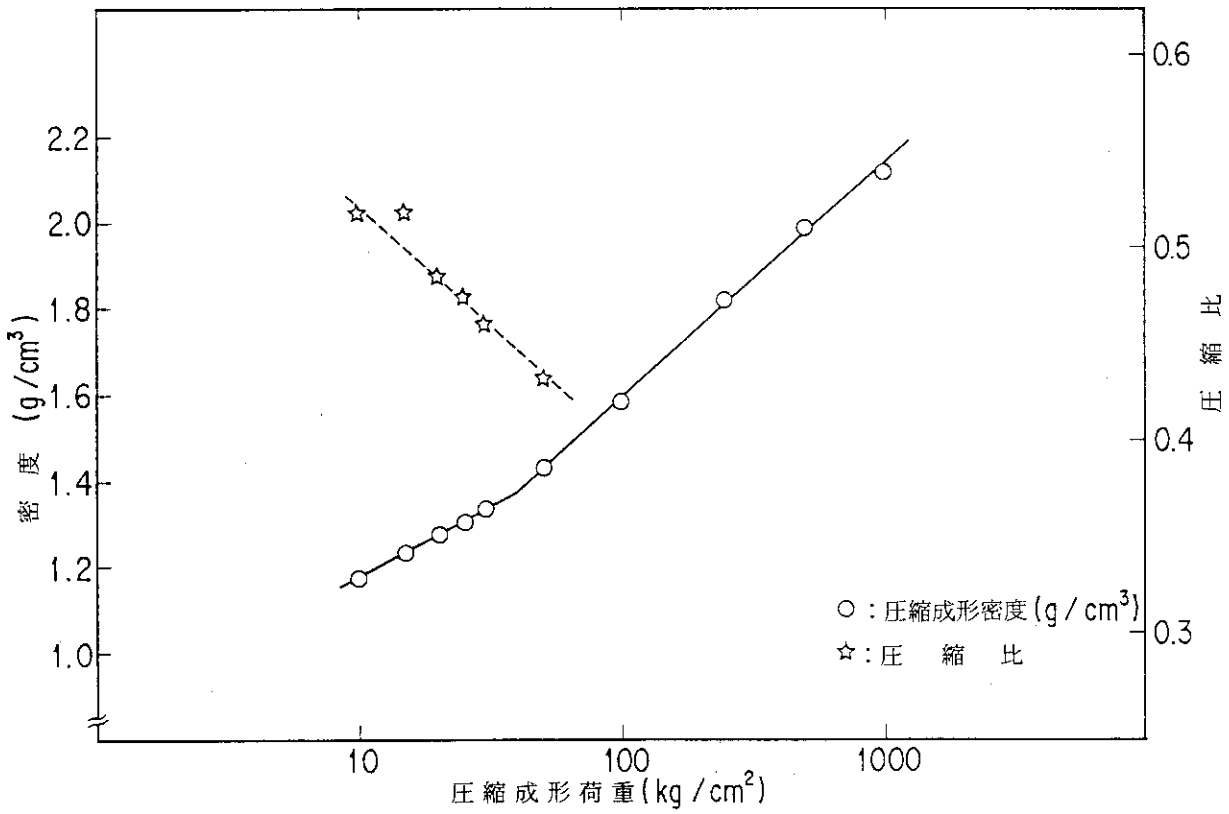


図 2 圧縮成形荷重と圧縮成形密度及び圧縮比の関係

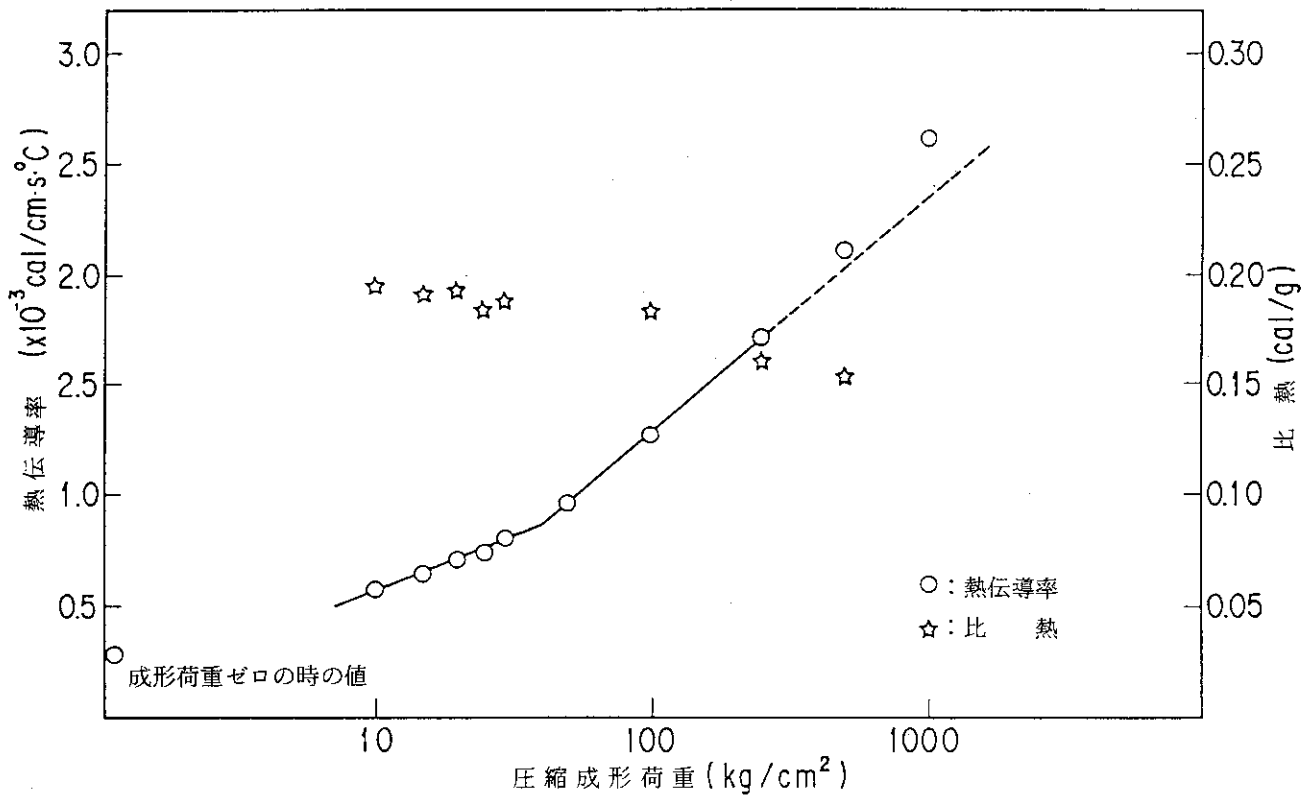


図 3 圧縮成形荷重と熱伝導率及び比熱の関係

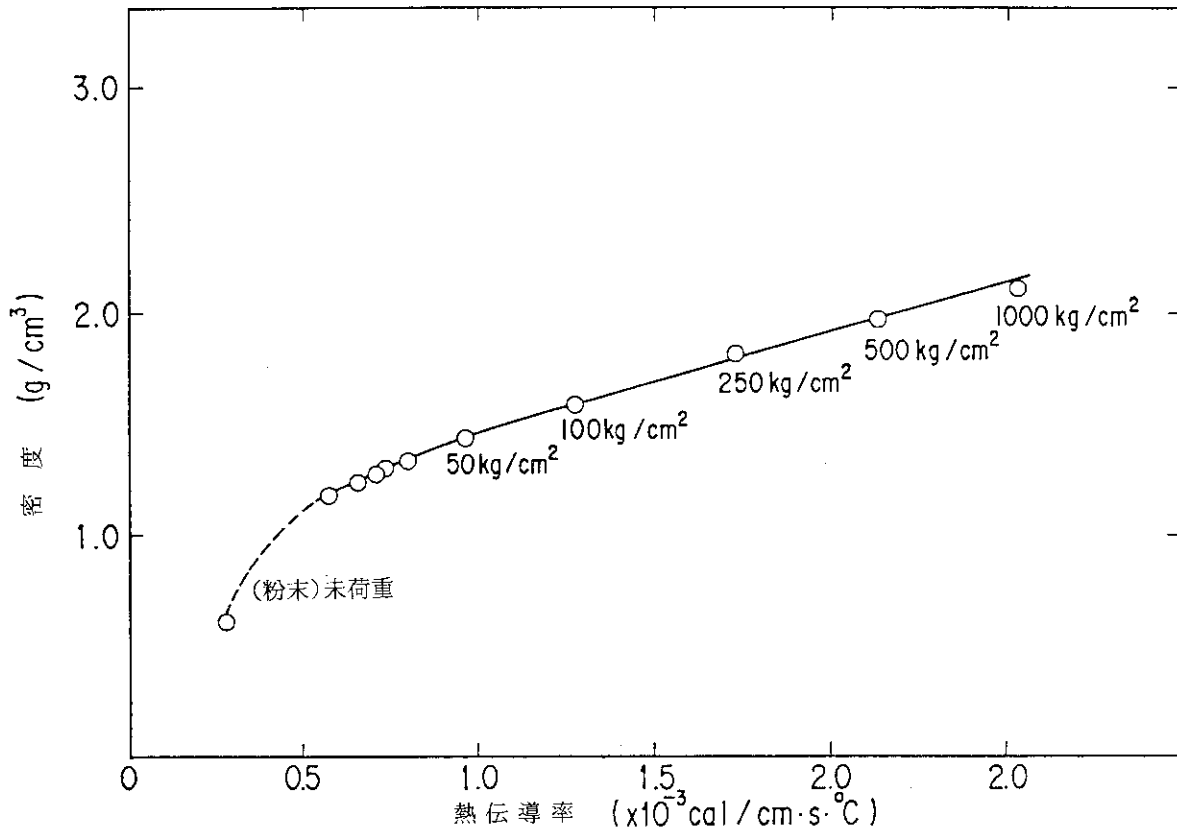


図 4 熱伝導率と圧縮成形密度の関係

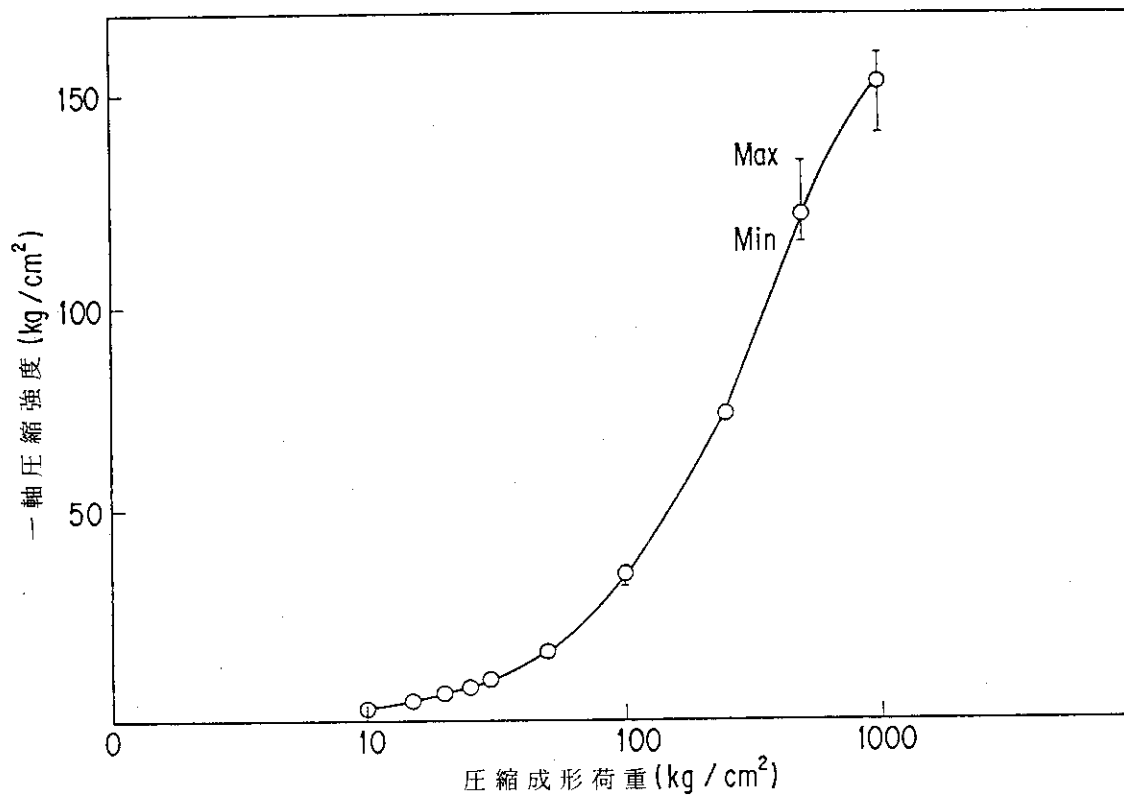


図 5 圧縮成形荷重と一軸圧縮強度の関係

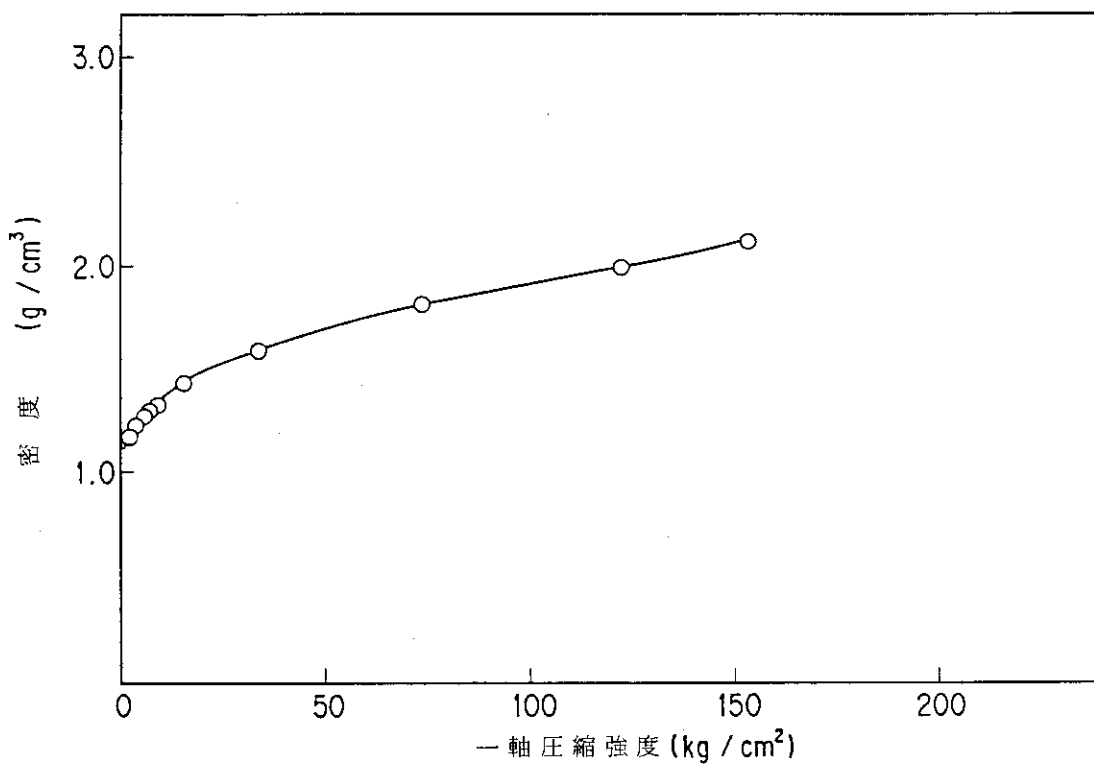


図 6 一軸圧縮強度と圧縮成形密度の関係

3. 原位置試験

3.1 試験孔

兵庫県明延鉱山の地下 380m レベルの坑道床面から垂直下向に直径 330mm、深さ 3.3m の試験孔を掘削した。試験孔の内表面は、ベントナイトの充填作業に支障のないようできるだけ滑らかに仕上げた。試験孔の中央にヒータを設置するためのパイプを置いてヒータスリーブとし、その周囲にベントナイトを充填した。ベントナイト中には温度変化を測定するための熱電対を挿入した。試験孔内の模式図を図 7 に示す。中央のヒータスリーブ内に設置したヒータにより充填した

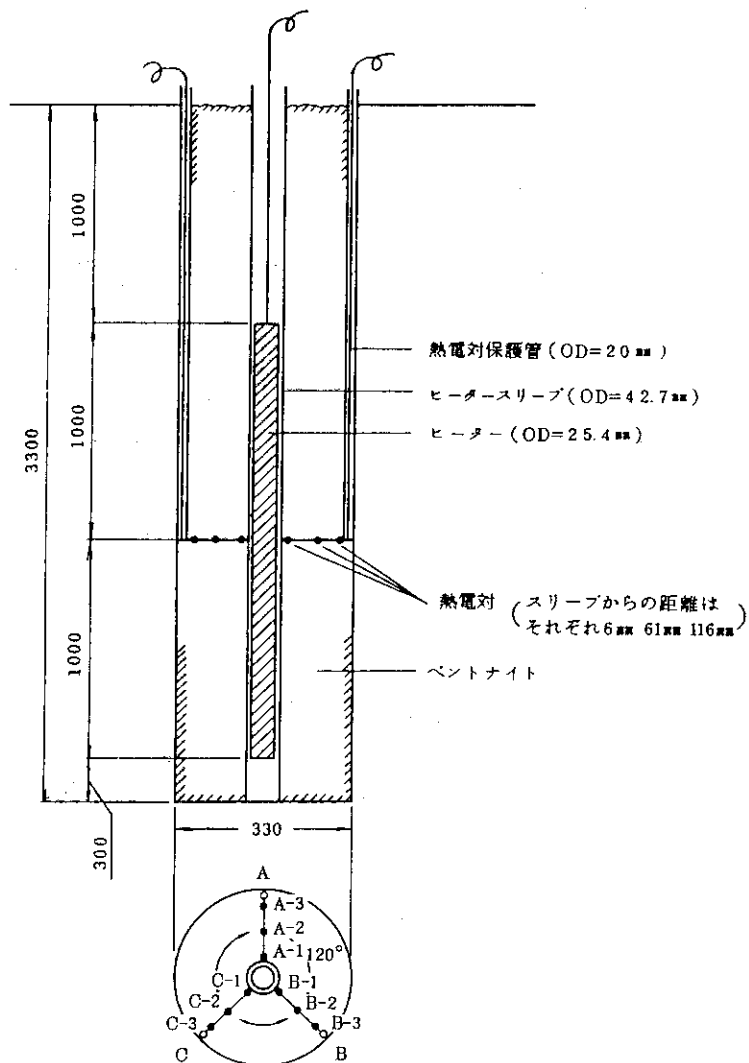


図 7 ヒータ及び熱電対の配置図 (単位: mm)

ベントナイトを加熱し、ベントナイトの温度変化を計測するとともに、高温の定常状態にあるベントナイトの熱伝導率を求めた。さらに、ヒータスリーブを利用して、加熱前後における試験孔中のベントナイトの水分分布を中性子水分計により現場で測定した。

掘削直後の試験孔内表面には、数本の割れ目が存在し、床面から約80 cm付近に観察された試験孔全周にわたる亀裂と280～300 cmに見られた斜めの亀裂から地下水がにじみ出ているのが認められた。試験孔内表面に観察された亀裂の孔内展開図を図8に示す。孔内の地下水の湧出は、試験孔掘削後からベントナイト充填までの10日間で約2.6 ℓに達し、平均10.8 mℓ/hで孔内に流入している。

3.2 緩衝材の充填

原位置でのベントナイトの充填に際しては、均一でなるべく高い充填密度が得られるように油圧ジャッキによる圧縮充填法を採用した。試験孔上部の天盤にジャッキ反力の支持用梁を設け、これに20 t油圧ジャッキを装着して図9に示す作業手順に従いベントナイトを充填した。すなわち、

STEP 1 : ヒータスリーブを試験孔の中心に設置するための固定盤(300 mm φ × 10 mm t)を底部に設置し、ヒータスリーブを挿入する。

STEP 2 : ベントナイト約25 kgを投入し、下部加圧盤にて軽く押し固める。

STEP 3 : 加圧用パイプを降ろし、必要長さ分だけ継ぎ合わせた後、上部加圧盤を載せ、油圧ジャッキのピストンに接続する。油圧ポンプを作動させ所定の圧力(20 kg/cm²)まで上昇した時点で約30秒間保持し除荷する。

上部加圧盤、加圧用パイプ、下部加圧盤を取り除き、STEP 1～3を繰り返して坑道床面までベントナイトを充填した。充填時のベントナイトの含水率を調べるため、充填作業中、試験孔底から0.5 m、1.1 m、及び2.3 m充填したところで含水率測定のための試料を採取した。

試験孔には、総量347.5 kgのベントナイトを充填した。充填した実効容積は、試験孔容積からヒータスリーブ、固定盤、熱電対保護パイプの容積を差し引くと約272.8 ℓとなり、原位置での平均充填密度は約1.27 g/cm³となった。これは図2の圧縮成形荷重と密度の関係から求めた値と一致する。

試験孔底から約1300 mm充填したところで緩衝材中の温度測定のため9本の熱電対を設置した。水平面上に120°間隔でA、B、C各方向に、スリーブ表面から6 mm、61 mm、116 mmの距離に3本の熱電対を配置した(図7参照)。

3.3 ヒータ

ヒータは、2.0 mm φのニクロム線をコイル状に巻いた2 mの発熱部を、外径25.4 mm、長さ2.2 mのステンレス鋼でシースしたものをを用いた。発熱部中央のシース用ステンレス鋼内側に、ヒータ温度をモニターし、コントロールするため、クロメル・アルメル(CA)熱電対を取り付けた。坑道床面から深さ2 mにヒータ中心が位置するよう試験孔中央のヒータスリーブ(外径42.7

mmφ、内径 29.9mmφ：SUS 304 製)内にヒータを設置して加熱試験を行なった。スリーブ内のヒータ上下の空間は、空気雰囲気のままとしたが、スリーブからの放熱をできるだけ少なくするため上端の坑道床面付近に石綿の栓をした。ヒータ出力を決定するため、無限長円筒モデルを用いて予測計算を行なった。熱伝導率λを一定とした場合、長さℓm、内径 r_1 、外径 r_2 の円筒を考えると、定常状態において円筒壁を通過する熱量は、フーリエの法則に従い

$$Q = \frac{2\pi\lambda\ell}{\ln\frac{r_2}{r_1}} (t_1 - t_2) \quad [\text{kcal/h}]$$

となる¹¹⁾。ここで半径 R_H のヒータの単位体積当たりの発熱量を q とすれば、

$$Q = \pi R_H^2 \ell \times q$$

であるから、温度差 $\Delta T = t_1 - t_2$ は以下のようにになる。

$$\Delta T = \frac{q \cdot R_H^2}{2\lambda} \ln \frac{r_2}{r_1}$$

熱伝導率としては、室内試験で、載荷重 20 kg/cm² (原位置の充填荷重に相当する) で成形した試料について得られた値、0.71 cal/cm²・s・°Cを入力した(表3参照)。また、初期温度はすべて15°Cとし、ヒータ中心から2mの位置では、初期温度に保たれると仮定した。計算結果から、ヒータの耐熱温度(700°C)以下で、加熱定常時におけるベントナイトの温度が100°C以上になるようなヒータ出力としては、1kWが適当であると予想された。

3.4 水分測定器

中性子線源として²⁵²Cf、検出部に³H比例計数管を用いた日本イーティエル株製のSX-8n型の中性子散乱型水分計を用いた。中性子水分計は、高速中性子源と熱中性子検出器を備えた土壌などの水分を測定する計測器¹²⁾で、野外における地盤調査や施工管理など、土木、建設分野で早くから(昭和30年代から)採用されている¹³⁾ものである。本水分計は、従来の中性子水分計¹⁴⁾の中性子線源として、自発核分裂により、平均2MeVの高速中性子を放出し、可搬型の熱中性子ラジオグラフィ装置¹⁵⁾等に用いられる²⁵²Cfを備えたものである。線源と計数管及び前置増幅器を収納した、外径40mmφ、長さ520mmの水分計測部をヒータの代わりにスリーブに挿入し、加熱の直前と、加熱停止直後及び加熱停止後2年間室温状態で放置した時点で、水分測定を行ない緩衝材中の水分変化を調べた。水分計による測定値とサンプリングによる含水比との対応を確かめ、緩衝材中の詳細な水分分布を調べるため、2年経過後の水分測定時に、内径1.83cmの鋼製パイプを坑道床面から深さ150cmまで打ち込んでヒータスリーブ近傍から緩衝材の一部を採取した。採取した試料は、110°Cで48時間乾燥して重量減少から水分量を測定した。

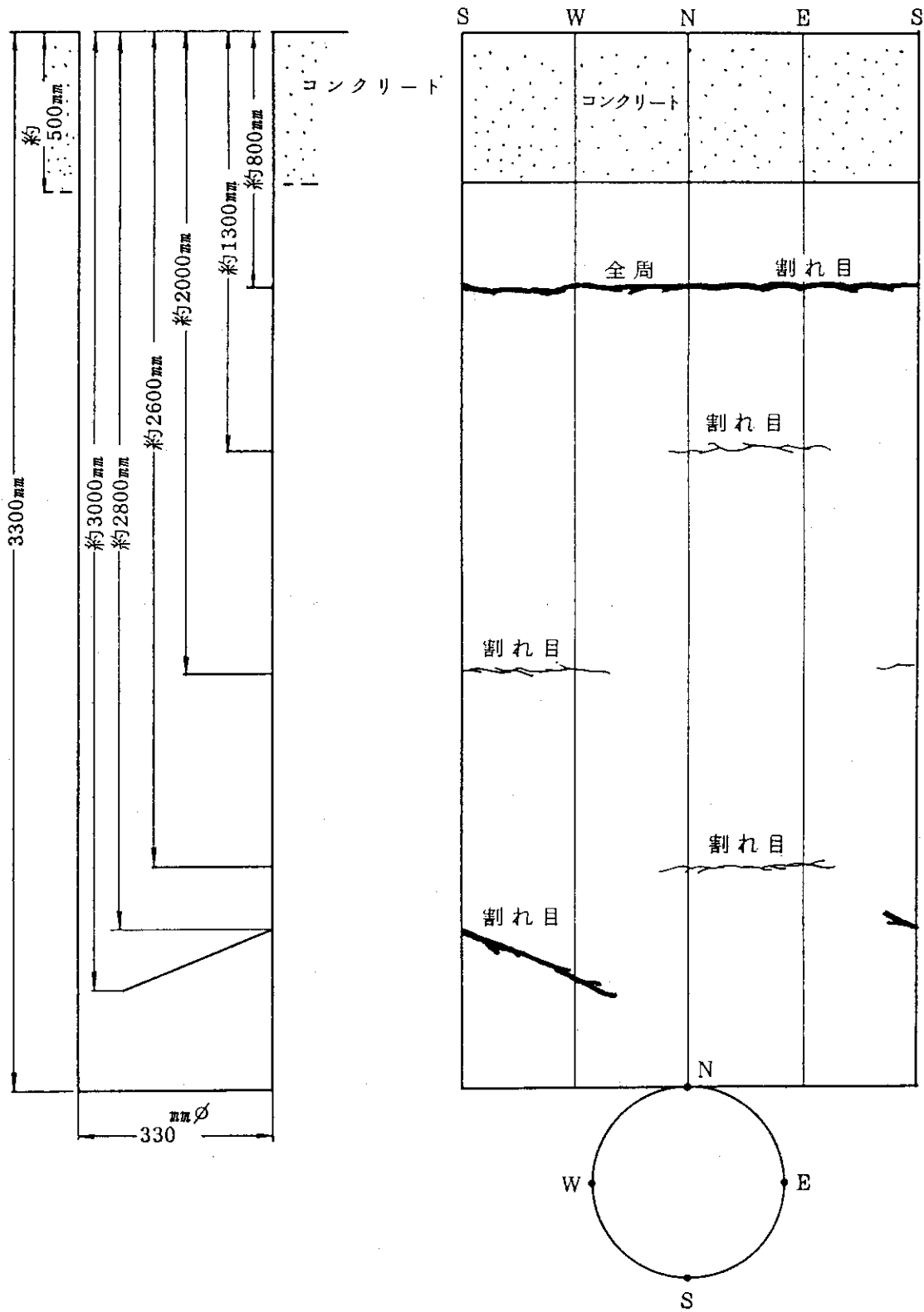


図 8

試験孔内表面の割れ目状況

(太線で示した亀裂は、地下水の滲み出しが観察されたもの)

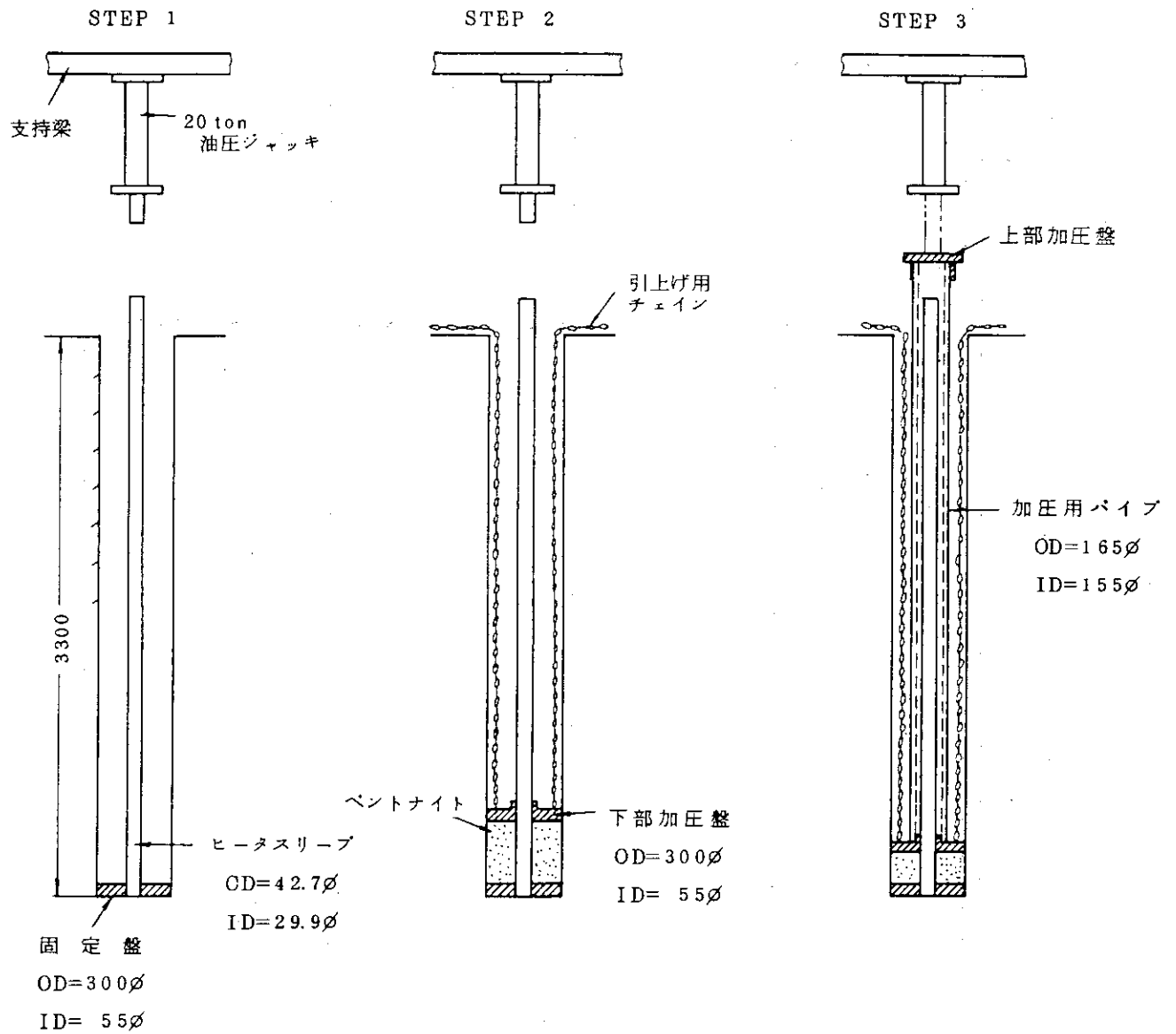


図 9 緩衝材充填現場作業手順 (単位: mm)

4. 結果及び考察

4.1 温度分布

882時間、約1ヶ月間の試験期間中の積算電力値は1017 kW・hとなり、ヒータの平均出力は1.15 kWであった。

ヒータ及び緩衝材中の温度変化（A方向の熱電対測定結果）を図10に示す。ヒータ発熱部中央の温度は、加熱開始後の2日間で急激に上昇し、その後しだいに上昇はゆるやかになり、一週間経過後には、ほぼ650°C前後で安定した。緩衝材中の温度変化は、ヒータ温度に対応しており、約一週間経過後にはほぼ定常状態に近いものとなった。加熱終了直前の疑似定常状態におけるベントナイト中の温度分布を図11に示す。測定された緩衝材の温度は、方向により10～60°Cの温度差があったが、ほとんどの部分で100°Cを越え、ヒータ近傍では500°C近くまで上昇した。

4.2 熱伝導率

緩衝材の熱伝導率が周辺岩盤に比べてかなり低いと、固化体を含む廃棄物パッケージの温度が上昇し、隣接する処分孔との間の岩盤温度が上昇する¹⁶⁾ので、緩衝材の熱伝導率は、処分場の設計において重要である。緩衝材は乾燥して水分が減少すると熱伝導率が小さくなる^{16, 17)}ので、特に、処分初期の固化体の発熱期間中には、乾燥状態の熱伝導率が重要である。

今回の試験では、882時間の加熱により緩衝材のほとんどの部分が100°Cを越え、十分乾燥していると考えられる。原位置における緩衝材の温度分布から熱伝導率の推定熱計算を行うため、緩衝材中央に設置した熱電対（例えば、A2）を境に、これより内側と外側との2つの部分、及びヒータ近傍（例えば、A1）と岩盤近傍（例えば、A3）の温度から得られる緩衝材全幅を計算対象とし、無限長円筒モデルを適用した。計算結果を表7に示す。

表 7 ベントナイトの熱伝導率計算結果

温度測定点	温度差 (°C)	熱伝導率 (cal/cm s・°C)
A-1 : A-2	256.5	0.95×10^{-3}
A-2 : A-3	134.0	0.84×10^{-3}
A-3 : A-1	390.5	0.91×10^{-3}
B-1 : B-2	222.3	1.09×10^{-3}
B-2 : B-3	121.8	0.92×10^{-3}
B-3 : B-1	344.1	1.03×10^{-3}
C-1 : C-2	237.6	1.02×10^{-3}
C-2 : C-3	133.7	0.84×10^{-3}
C-3 : C-1	371.3	0.96×10^{-3}

全域の計算から求めた平均的な熱伝導率は、 $0.9 \times 10^{-3} \sim 1.0 \times 10^{-3} \text{ cal/cm} \cdot \text{s} \cdot ^\circ\text{C}$ となり、室内試験で得られた室温における熱伝導率 $0.71 \times 10^{-3} \text{ cal/cm} \cdot \text{s} \cdot ^\circ\text{C}$ に比べて高い値となった。こうした違いの生じた原因の一つに、熱伝導率の温度依存性が挙げられる。図12は熱伝導率と各測定点間の平均温度との関係を示したものである。温度が高温になるに従い熱伝導率は大きくなっている。その関係は直線的であり、原位置での測定結果は、熱伝導率の温度依存性により、室温における測定結果より大きくなったものと考えられる。

4.3 水分分布

原位置で試験孔に緩衝材を充填した時の試料の含水率は、9.3～11.1%であり、緩衝材中には、初期的に約10%の水分が含まれていたと考えられる。

中性子水分計を用いた測定で得られた、加熱前と加熱停止直後及び2年間放置後の緩衝材中の水分分布を図13に示す。図中の水分量 (N/No) は、ベントナイト中での計数値をパラフィン容器中での標準計数値により標準化した相対値である。試験孔に充填した緩衝材中の水分量は、加熱前には、深さ方向にほぼ一定値を示していたが、加熱停止直後の測定では、ヒータ長に相当する部分だけ水分量が低下していた。2年経過後では、全体的に水分量が増加し、80 cmと280 cmの位置にピークを持つ水分分布が得られた。このピークは、試験孔壁に観察された亀裂のうち、地下水の滲水が認められた亀裂位置に対応している。

水分計から得られた結果を検討するため、2年経過時点の測定後、試験孔から採取したベントナイト試料を電気炉で加熱、乾燥させ、重量変化から水分量を求めた。図14は、重量変化法によって求めた実測の水分量を採取深度に対応させて示したものである。採取現場における肉眼観察では、緩衝材のベントナイトは、坑道床面から30～80 cm深さまではかなり湿潤しているが、80 cmを越えると乾燥しているのが認められた。図14は、この観察結果を良く説明しており、水分量は、80 cmを越えるあたりから減少している。深さ150 cmまでの採取区間の水分量変化は、中性子水分計により得られた水分分布曲線と良く一致している。重量法により実測した水分量を、採取位置の水分計の計数値に対応させ、水分量と計数値との関係を示したものが図15である。実測された水分量と水分計の計測値とは、良い相関性を示し、半径15 cmほどの領域にある緩衝材中の水分は、中性子水分計により測定可能であることがわかった。

従って、中性子水分計により3回にわたって測定された緩衝材中の水分分布は、加熱前から加熱停止直後及びその後の水分の変化を示している。すなわち、加熱前ほぼ均一な水分分布を示していた緩衝材は、882時間の加熱により初期的に含有していた水分が移動して乾燥したが、加熱停止後から周辺岩盤の水みちとなる亀裂を通して地下水が浸入し、全体的に水分量を増して2年経過後の水分分布を得たものである。これは、処分初期に固化体の崩壊熱により緩衝材が高温になって脱水された状態から、発熱がおさまって温度が低下してから水の浸入が始まり、かなりの時間を要して緩衝材中に水が飽和する過程を示していると思なすことができる。

試験孔へ流入する地下水は、掘削直後からベントナイトを充填するまでの10間でおおよそ2.6 lが観測されている。同じ割合で地下水が流入していたとすると、加熱期間中には、おおよそ9.5 lの地下水が流入することになるが、同期間中のベントナイトの水分は、初期含水量より小さく、

むしろ乾燥していたとみなせるので、この期間に流入するはずの地下水は、岩盤近傍の緩衝材あるいは周辺の岩盤から蒸発していったと思われる。この間のヒータ出力は、1017 kW・hであるので9.5 ℓの地下水を蒸発させるには十分であったと思われる。また、加熱停止後の2年間では、およそ189 ℓが試験孔に流入する計算になる。仮に、緩衝材がすべて、測定された含水比の最大値である50%になったと仮定しても、約273 ℓの容積を持つ緩衝材中の水分量は、約160 ℓとなり全量が緩衝材に吸収されていないことになる。加熱停止から2年経過後の緩衝材の平均含水比は50%より小さいので、2年間で緩衝材中に浸入した地下水量の試算は、さらに少ないものとなる。地下水の流入速度は、ベントナイト充填までのわずか10日間のデータしかないので、その後変化があったかどうか不明であるが、仮に初期の流入速度が維持されたとすると、ベントナイトによる地下水の止水性に関し効果があったように見える。緩衝材が有効に性能を発揮した否かを検討するためには、事前の長期に亘る観測データが必要であるとともに、原位置での試験に際しては、試験期間中の流量、流速など地下水の流れに関するデータの取得が必要であろう。

今回の試験で得られた水分分布の結果を、スウェーデンのストリパで行なわれている原位置でのバッファマテスト（緩衝材試験）と比較すると、ストリパでは、湿潤した試験孔の高密度ベントナイト（ $\rho = 2.1 \text{ g/cm}^3$ ）中の水分分布は、孔壁全体から均一に浸透したような、等水分線が孔壁に沿ったものとなり、岩盤の亀裂の存在位置は、試験孔内の水分分布に大きく影響していない¹⁸⁾が、今回の実験では、図13に示されるように、2年経過時点の緩衝材中の水分分布は、水みちとなる亀裂の存在に大きく依存しており、均一な水分分布は得られなかった。ストリパでは、岩盤と高密度ベントナイトとの間に、10 mmの空間、あるいは、固めていないベントナイトの粉末を充填した30 mmの隙間がある。このため、岩盤から浸入した地下水は、岩盤と高密度ベントナイトとの間の空間や、固めていないベントナイト粉末などの相対的に透水性の大きな部分で再配分され、高密度ベントナイトの最外殻に膨潤層を形成し、地下水は、形成された膨潤層を拡散源として高密度ベントナイト中に均一に浸透したものと考えられる。今回の実験では、ベントナイトを直接試験孔に充填したので、岩盤と緩衝材との間に、空間や大きな透水性をもつ領域が無く、周辺の岩盤から浸入した地下水は、再配分されることなく水みちとなる亀裂を供給源として浸透していったものと考えられる。

Hodgesら¹⁹⁾は、密度 2.1 g/cm^3 に圧縮した2 cmのNaベントナイト中を水が通過するのに、15 MPaの圧力で水を注入しても約1年以上を要すると報告しているが、今回の実験では、岩盤の亀裂から緩衝材中に浸入した地下水は、加熱停止からの2年間で、孔壁から約14 cm離れたヒータスリーブまで到達しているようである（図14）。これは、用いた緩衝材の平均密度の違いに起因する透水係数の相違によるものではないかと考えられる。Pusch³⁾によるNaベントナイト（MX-80）の圧縮密度と透水性との関係が今回用いた国産のベントナイトにおいても成り立つと仮定すれば、今回用いた緩衝材の密度は 1.27 g/cm^3 であるので、透水係数は、 $10^{-12} \sim 10^{-11} \text{ m/s}$ 程度になり、高密度ベントナイト（ $\rho = 2.1 \text{ g/cm}^3$ ）に比べて一桁から二桁大きくなると予想される。高密度ベントナイト中の水の移行は、温度勾配のある場合、気液二相の流れを含んだ複雑なものとなる。一般に多くの仮説が設けられ、Pusch¹⁸⁾は、飽和過程は水の拡散プロセスであるという仮定から、室内試験で得られた高密度ベントナイトの拡散係数 $4 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$ をもとに予測計算を行なっている。また、飽和していない高密度ベントナイト中の水の移行は、水蒸気の拡

散によるもので、液体状の水の移行はもっと遅いだろう¹⁹⁾という推定もなされている。しかしながら、緩衝材を多孔質媒体とみなすと、緩衝材中を流れる水の流速 V は、ダルシー則から

$$V = \frac{K}{\phi} \frac{dh}{dx}$$

となる²⁰⁾。ここで、 K = 透水係数、 ϕ = 空隙率、 dh/dx = 水頭差。従って、透水係数が二桁も大きくなると、空隙率が多少大きくなっても、水の移行速度はかなり大きなものとなる。緩衝材が飽和するメカニズムは、大きな検討課題であり、多数の室内試験とともに、実証的な意味からも原位置で緩衝材が飽和する速度などが計測されることが必要であろう。

また、加熱停止から2年経過後の水分分布は、図14に明らかなようにならかなり偏在している。ベントナイトをベースとした緩衝材の密度と膨潤圧との関係²¹⁾から、今回試験した緩衝材の最大膨潤圧を推定すると、現場で圧密充填した緩衝材の密度は、 1.27 kg/cm^3 であるので、最大膨潤圧は、約 2 MPa 程度になると想像される。オーバパックしない状態のキャニスターのプレナム部は、 $4 \sim 14 \text{ kg/cm}^2$ 程度の静水圧で降伏を起こす²²⁾ので、ベントナイトを主成分とする緩衝材を用いる場合には、膨潤圧の局在による廃棄物パッケージへの影響を考慮する必要があるであろう。緩衝材にベントナイトを用いた場合の問題点は、すでにいくつか指摘されており²³⁾、現場における施工方法の検討の上からも、今後とも原位置試験の実施が必要と考えられる。

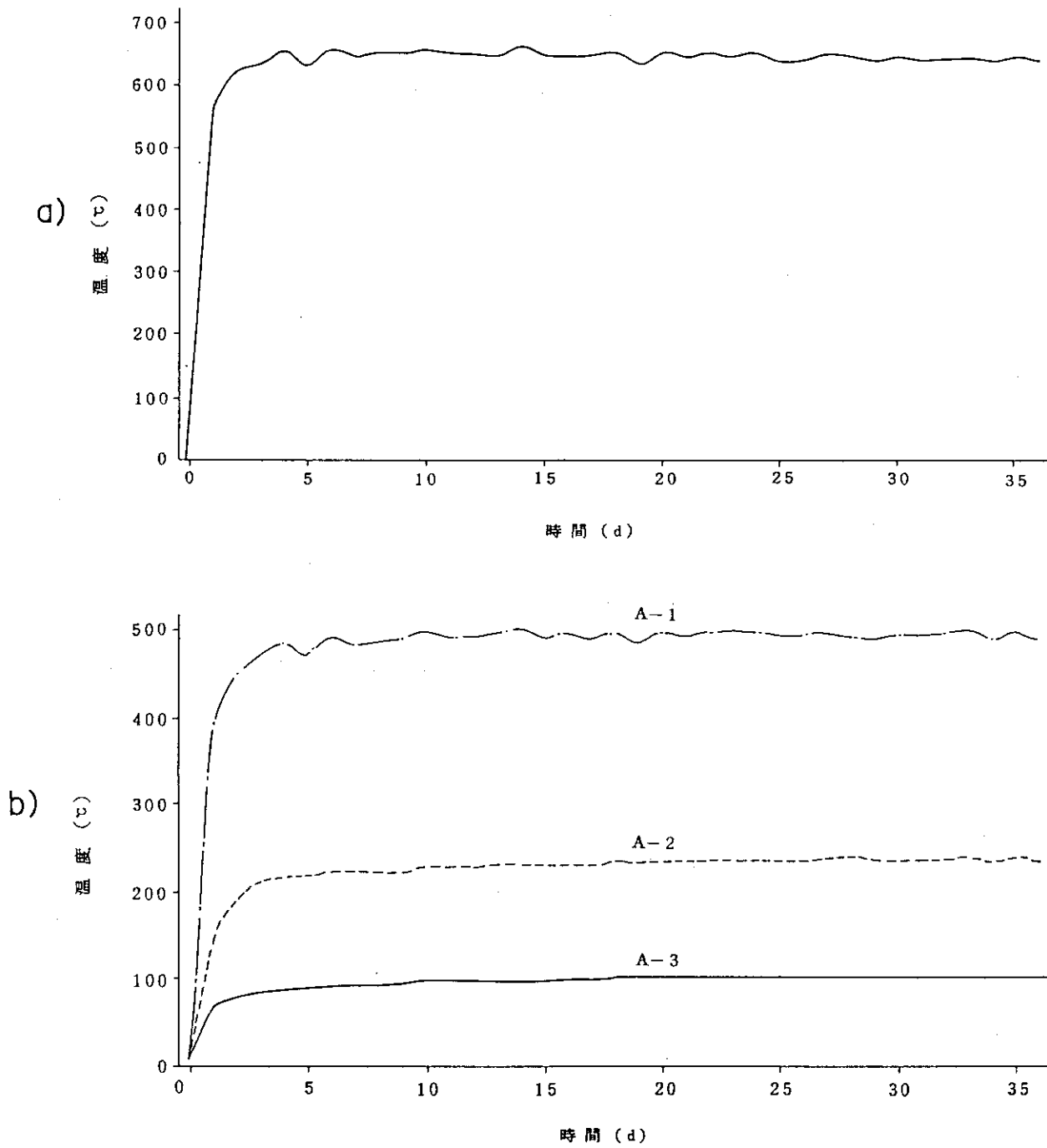


図 10 ヒータ及び緩衝材(A方向)の温度の時間変化：a)ヒータ、b)緩衝材 (A-1、A-2、A-3 は緩衝材中の熱電対位置を示している)

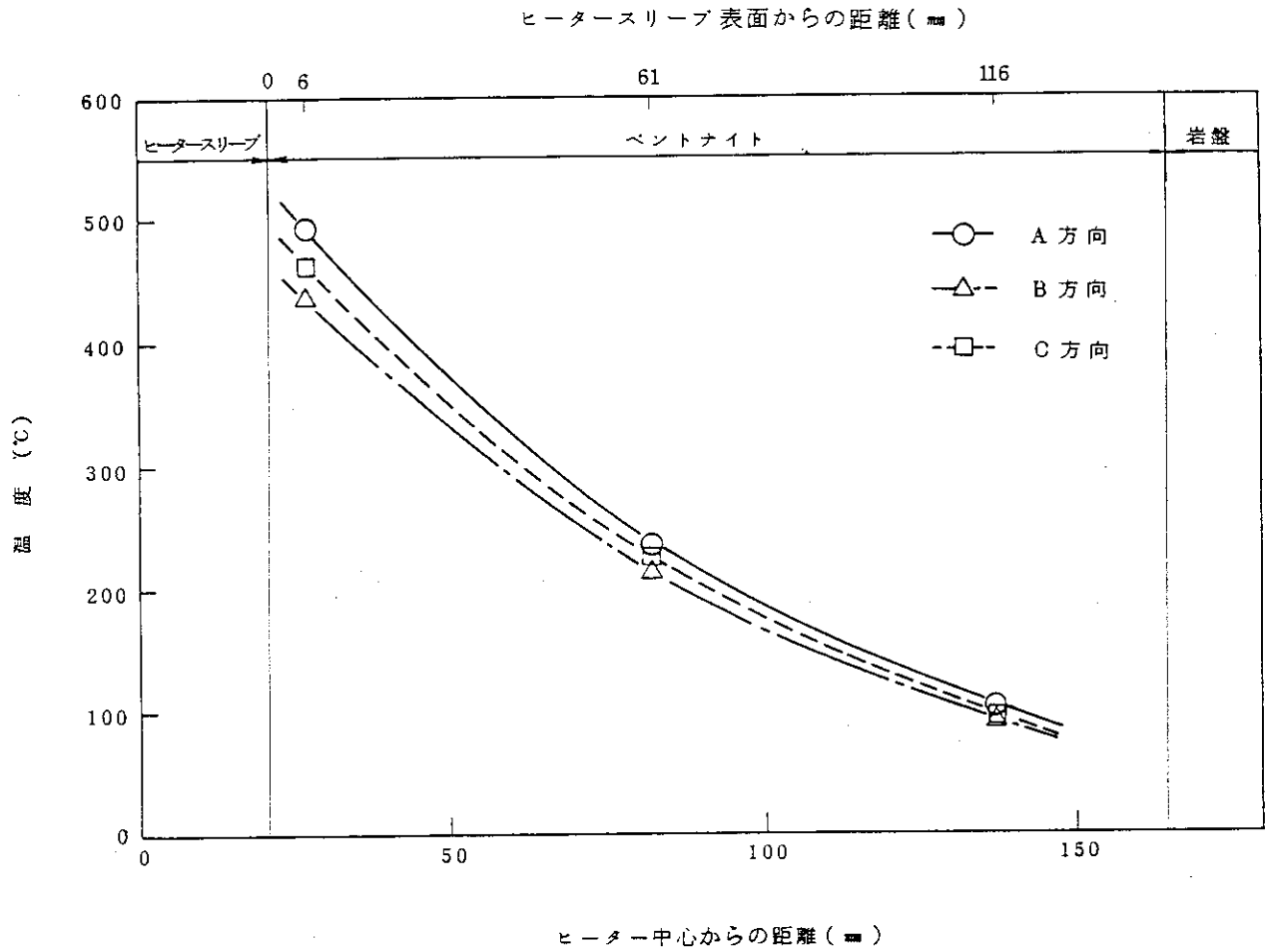


図 11 擬似定常状態におけるベントナイトの温度分布

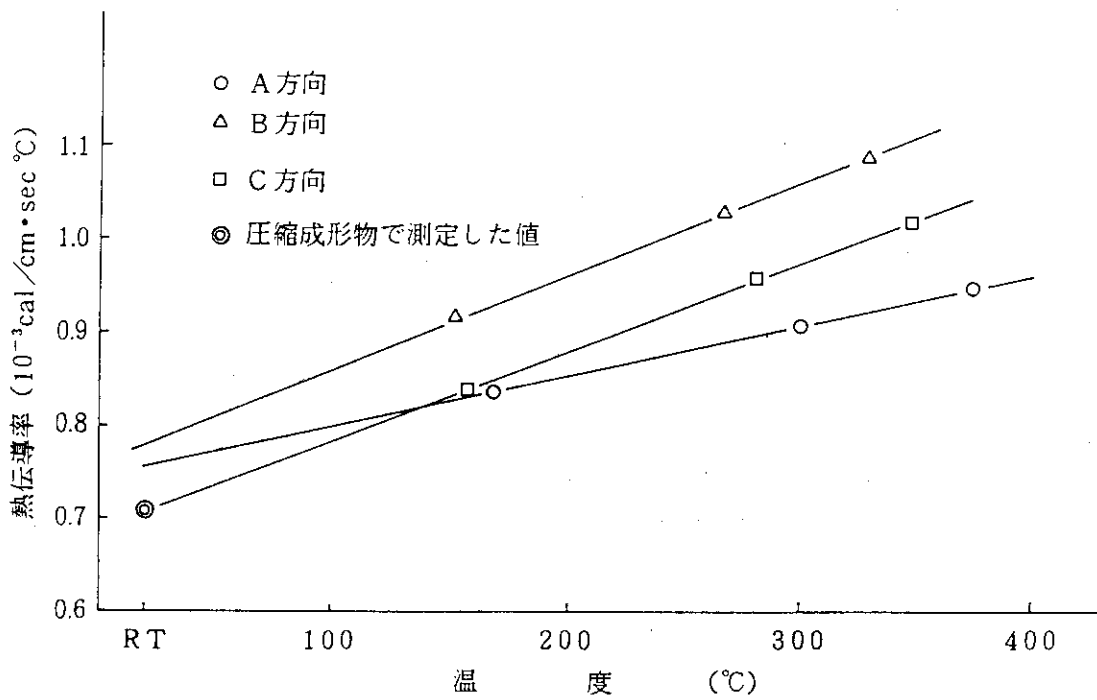


図 12 熱伝導率の温度依存性

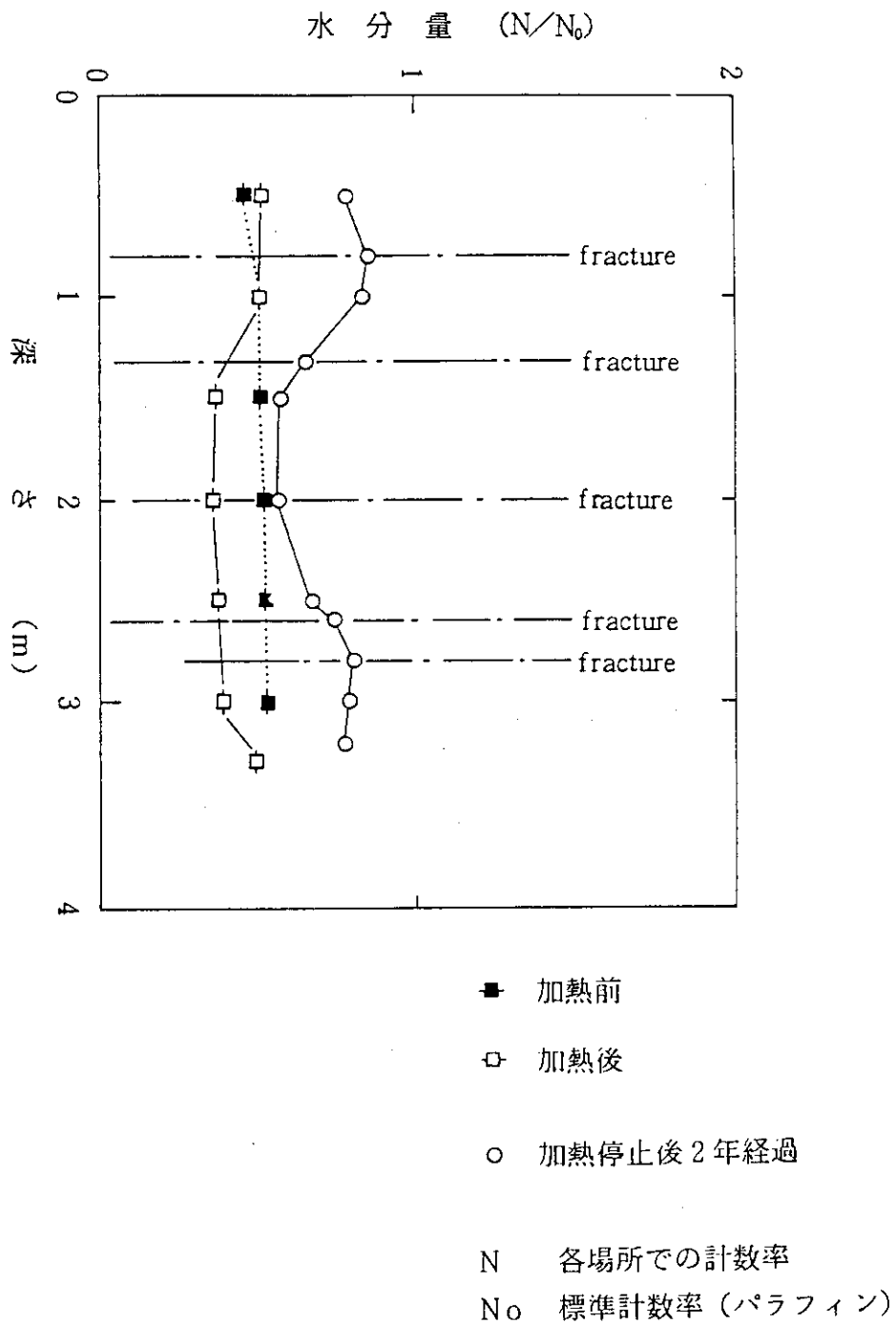


図 13 中性子水分計による水分量測定結果

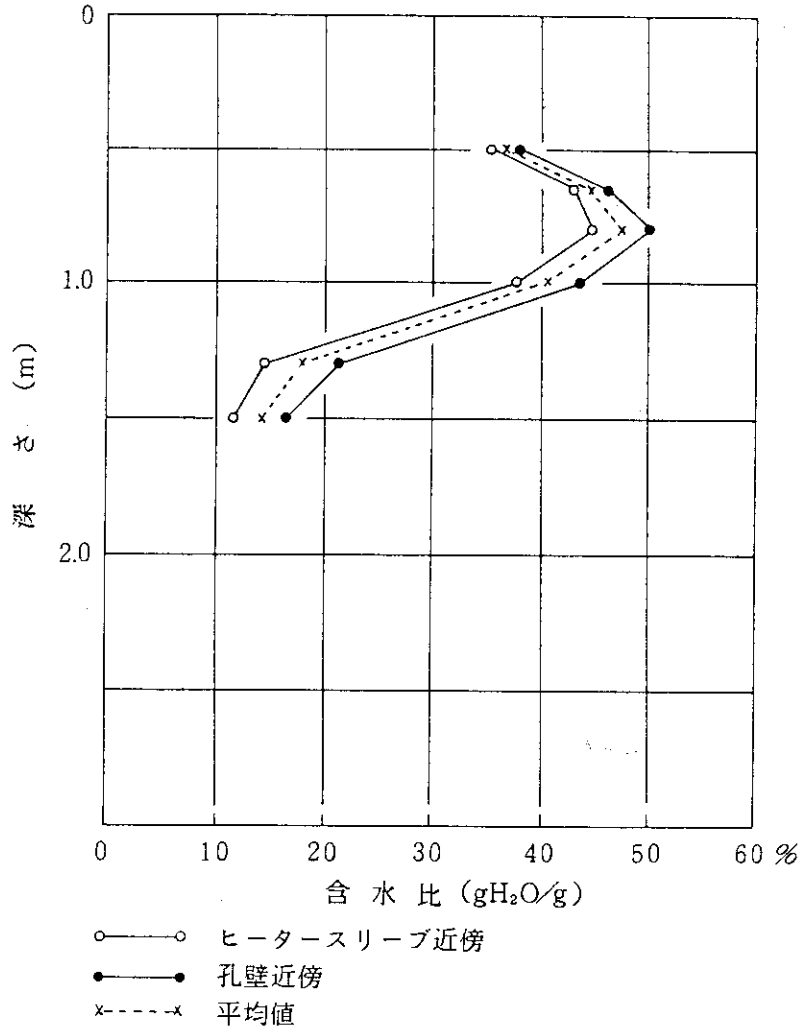


図 14 サンプルングによる含水比分布測定結果

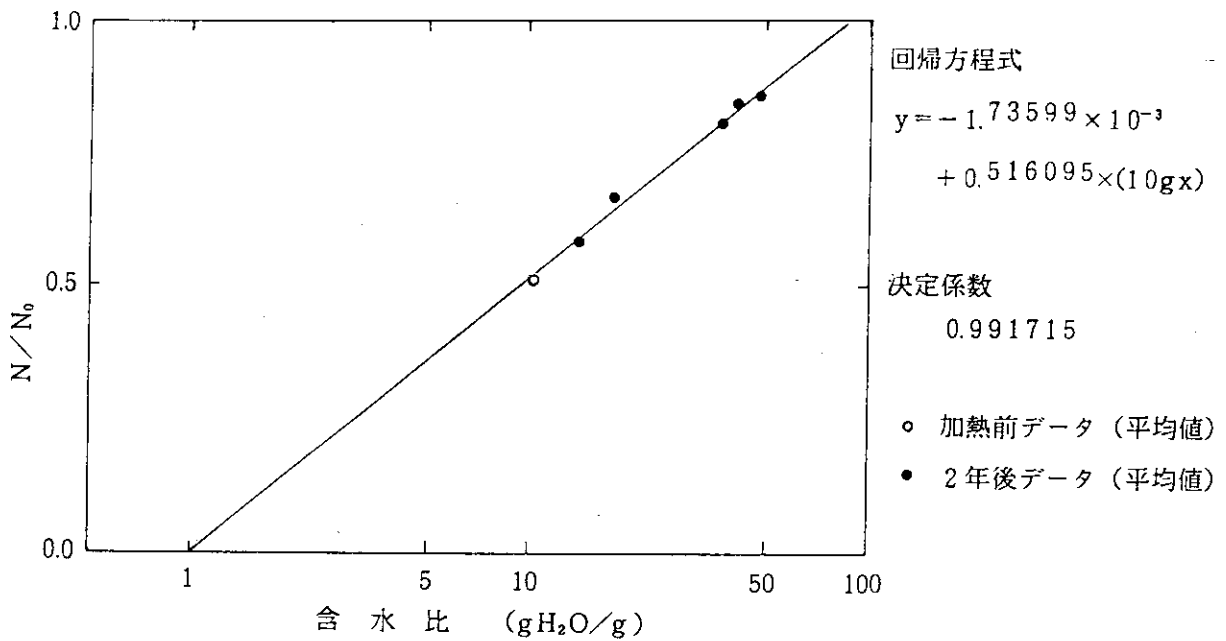


図 15 $N/N_0 \sim$ 採取含水比関係

5. ま と め

緩衝材の候補に挙げられているベントナイトの原位置での特性を調べるため、地下 380 m の玄武岩質輝緑凝灰岩中で行なった実験結果をまとめると以下のようである。

- (1) 原位置で充填したベントナイトの平均密度は、 1.27 kg/cm^3 となり、試験室の結果から得られた圧縮荷重—密度曲線から求めた値と一致し、現場でのベントナイトの充填作業は、良好に実施できることが分かった。
- (2) 882 時間の加熱試験後、実測された緩衝材中の温度分布から得られたベントナイトの熱伝導率は、室内試験で得られた値より大きくなった。これは、圧縮成形した緩衝材の熱伝導率の温度依存性によるものと推定された。
- (3) 直径 33 cm の試験孔に充填したベントナイト中の水分は、中性子水分計により十分測定できることが分かった。測定結果から、ベントナイト中に含まれていた初期水分は、ヒータ加熱中に移動し、ベントナイトは乾燥する。加熱停止後、地下水が、岩盤の亀裂を通して浸入する。という緩衝材の履歴が明らかとなった。

今後、水分移行に関する定量性や、ベントナイトの自己シール性、核種吸着特性など核種移行遅延評価に関連する研究を進めていく必要がある。

謝 辞

本実験を遂行するに当たって、中性子水分計による測定に関し、原研 RI 事業部利用開発室の和田延夫氏に丁寧な御教示をいただいた。ここに謝意を表します。また、現場での水分計測にあたっては高レベル研究室 柳田剛（現、三井建設(株)）、中越章雄（現、(株)間組）両氏に御協力いただいた。ここに感謝の意を表します。

5. ま と め

緩衝材の候補に挙げられているベントナイトの原位置での特性を調べるため、地下 380 m の玄武岩質輝緑凝灰岩中で行なった実験結果をまとめると以下のようである。

- (1) 原位置で充填したベントナイトの平均密度は、 1.27 kg/cm^3 となり、試験室の結果から得られた圧縮荷重—密度曲線から求めた値と一致し、現場でのベントナイトの充填作業は、良好に実施できることが分かった。
- (2) 882 時間の加熱試験後、実測された緩衝材中の温度分布から得られたベントナイトの熱伝導率は、室内試験で得られた値より大きくなった。これは、圧縮成形した緩衝材の熱伝導率の温度依存性によるものと推定された。
- (3) 直径 33 cm の試験孔に充填したベントナイト中の水分は、中性子水分計により十分測定できることが分かった。測定結果から、ベントナイト中に含まれていた初期水分は、ヒータ加熱中に移動し、ベントナイトは乾燥する。加熱停止後、地下水が、岩盤の亀裂を通して浸入する。という緩衝材の履歴が明らかとなった。

今後、水分移行に関する定量性や、ベントナイトの自己シール性、核種吸着特性など核種移行遅延評価に関連する研究を進めていく必要がある。

謝 辞

本実験を遂行するに当たって、中性子水分計による測定に関し、原研 RI 事業部利用開発室の和田延夫氏に丁寧な御教示をいただいた。ここに謝意を表します。また、現場での水分計測にあたっては高レベル研究室 柳田剛（現、三井建設(株)）、中越章雄（現、(株)間組）両氏に御協力いただいた。ここに感謝の意を表します。

引用文献

1. Pusch, R. (1983) : SKBF/KBS Teknisk Rapport 83-46.
2. Wood, M. I., Pater, Jr. E. S. & Coons, W. E. (1981) : RHO-BWI-SA-80.
3. Pusch, R. (1979) : Nuclear Technology, vol. 45, pp. 153~157.
4. Carlsson, H. S. (1983) : Radioactive Waste Management, Proc. Int. Conf., vol. 3, IAEA, IAEA-CN-43/69, pp. 256~273.
5. OECD/NEA (1983) : The International STRIPA Project
6. Pusch, R. & Börgesson, L. (1983) : Geological Disposal of Radioactive Waste In Situ Experiments In Granite, Proc. NEA Workshop OECD/NEA, pp. 173~183.
7. 地学事典, 平凡社, 1981年改訂版.
8. 須藤俊男 (1974) : 粘土鉱物学, 岩波書店.
9. Pusch, R. (1983) : SKBF/KBS Teknisk Rapport 83-47.
10. 荒川美明 (1985) : 粉体工学会誌, vol. 22, pp. 161~170.
11. エム・ミハイエフ著, 内田秀雄・鎌田重夫訳 (1966) : 基礎伝熱工学, 東京図書株式会社,
12. Zuber, A. & Cameron, J. F. (1966) : Atomic Energy Review, vol. 4, No. 4, pp. 143~164.
13. 有泉昌 (1973) : Isotope news, 2月号, pp. 2~4.
14. 石松健二 (1961) : 計測, vol. 11, No. 8, pp. 451~457.
15. 和田延夫 (1981) : Radioisotopes, vol. 30, No. 3, pp. 177~185.
16. Radhakrishna, H. S. & Tsui, K. K. (1981) : Near-Field Phenomena in Geologic Repositories for Radioactive waste Proc. NEA Workshop OECD/NEA, pp. 329~344.
17. Moss, M. & Molecke, M. A. (1983) : Scientific Basis for Radioactive Waste Management VI, pp. 719~726.
18. Pusch, R. (1986) : In Situ Experiments in Granite Associated with the Disposal of Radioactive Waste, Proc. NEA Workshop, OECD/NEA, pp. 120~131.
19. Hodges, F. N. et al. (1982) : Scientific Basis for Radioactive Waste Management V, pp. 641~648.
20. Wood, B. J. (1982) : Nuclear Technology, vol. 59, pp. 390~404,
21. Gray, M. N. et al. (1985) : Scientific Basis for Radioactive Waste Management VIII, MRS Symp. Proc. vol. 44, pp. 523~530.
22. 鈴木隆次 (1987) : 未発表データ.
23. 菅野卓治 (1987) : 放射性廃棄物研究連絡会, 会報第8号, 日本原子力学会, RWM-87007, pp. 3~31.