熱-水-応力連成試験設備(COUPLE)における 熱-水-応力-化学連成試験(I)

(研究報告)

2004年2月

核燃料サイクル開発機構 東 海 事 業 所

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い 合わせください。 〒319-1184 茨城県那珂郡東海村村松4番地49 核燃料サイクル開発機構 技術展開部 技術協力課 電話:029-282-1122(代表) ファックス:029-282-7980 電子メール:jserv@jnc.go.jp Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to: Technical Cooperation Section, Technology Management Division, Japan Nuclear Cycle Development Institute 4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1184, Japan

 核燃料サイクル開発機構(Japan Nuclear Cycle Development Institute)
 2004

JNC TN8400 2003-033 2004 年 2 月

熱-水-応力連成試験設備(COUPLE)における熱-水-応力-化学連成試験(I) (研究報告)

鈴木英明**,伊藤 彰*,吉田 泰***,陶山忠宏** 川上 進*,笹本 広*,油井三和*

要旨

高レベル放射性廃棄物地層処分システムにおける人工バリア設計評価や性能評価の信 頼性向上のためのニアフィールド環境条件のリアリティ向上に向けて,熱的,水理学的, 力学的,化学的なプロセスが相互に影響を及ぼし合うニアフィールド連成挙動の数値解 析に関する研究が進められている。

その一環として,人工バリアおよびその周辺岩盤における熱-水-応力-化学の連成現 象を定量的に把握することを目的に,熱-水-応力連成試験設備(COUPLE)を用いて連成 試験を実施した。試験は,モルタルで製作した模擬岩体中に緩衝材を設置し,廃棄体を 模擬したヒーターを100 に,模擬岩体周囲を70 に加熱した。緩衝材中に浸潤する水 は,モルタルと反応した高 pH の溶液である。

本報は,連成試験で得られた結果のうち,試験体中に配置したセンサー(熱電対,サ イクロメータ,土圧計,pH 計等)による計測結果および試験終了後のサンプリング試 料から得られた緩衝材間隙水pH 等の測定結果について記す。

また,予察解析として,熱-水連成解析による緩衝材再冠水挙動に関する検討,地球 化学解析および物質移行-地球化学連成解析による緩衝材/間隙水の化学的変遷に関す る検討を行なったので合わせて報告する。

^{*} 東海事業所 環境保全・研究開発センター 処分研究部 処分バリア性能研究グループ

^{**} 検査開発株式会社

^{***} 株式会社 NESI

Experimental studies on the coupled THMC processes by COUPLE equipment - Part I -(Research Document)

Hideaki Suzuki**, Akira Ito*, Yasushi Yoshida***, Tadahiro Suyama** Susumu Kawakami* , Hiroshi Sasamoto*, Mikazu Yui*

ABSTRACT

The research for numerical experiments on the coupled Thermo -Hydro -Mechanical and Chemical (THMC) processes in the near-field of a high-level radioactive waste repository has been initiated, in order to increase reality in the near-field environmental condition adopted in the evaluation of engineered barrier design and performance assessment.

As a part of this research, experimental studies on the coupled THMC processes by COUPLE equipment have been carried out. The COUPLE equipment simulates the coupled processes in the near-field after emplacement of the engineered barrier. The specimen of COUPLE equipment is composed of heater, buffer material and mortar block. In this experiment, temperature at heater and side surface of mortar block was kept at 100 and 70 , respectively. And high-pH water reacted with mortar infiltrates into the buffer material.

This report presents the results of measured data by embedded sensor (thermocouple, psychrometer, pressure transducer and pH meter etc.) during the experiment, and direct measurement of pH and water content of buffer material after the experiment.

This report also presents the preliminary simulations, of coupled T-H processes, and of chemical process in mortar block and buffer material in the experiment.

^{*} Tokai Works, Waste Management and Fuel Cycle Research Center, Waste Isolation Research Division, Barrier Performance Group

^{**} Inspection & Development Corporation

^{***} NESI Inc.

| 1.はじめに | | 1 |
|------------|------------------------|----|
| 2.試験概要 | | 2 |
| 2.1 試験設備 | | 2 |
| 2.2 試験体 | | 4 |
| 2.2.1 模擬 | 岩体 | 4 |
| 2.2.2 緩衝 | 材試験体 | 7 |
| 2.2.3 模擬 | 廃棄体 | 10 |
| 2 . 3 計測項目 | とセンサー | 11 |
| 2.3.1 計測 | 項目 | 11 |
| 2.3.2 セン | サーレイアウト | 17 |
| 2.4 緩衝材試 | 験体の模擬岩体への組込み | 26 |
| 2 .5 試験条件 | | 28 |
| 3.試験結果 | | 29 |
| 3.1 計測機器 | による経時計測結果 | 31 |
| 3.1.1 温度 | | 31 |
| 3.1.2 間隙 | 水圧 | 34 |
| 3.1.3 サイ | クロメータによる化学ポテンシャルおよび含水比 | 35 |
| 3.1.4 湿度 | 計による相対湿度および含水比 | 39 |
| 3.1.5 膨潤 | 圧,膨潤応力 | 43 |
| 3.1.6 模擬 | 岩体反応溶液の pH | 44 |
| 3.1.7 緩衝 | 材間隙水の pH | 46 |
| 3.2 試験体の | 冷却およびサンプリングによる測定結果 | 48 |
| 3.2.1 試験 | 体の冷却 | 48 |
| 3.2.2 緩衝 | 材含水比および密度 | 52 |
| 3.2.3 緩衝 | 材間隙水の pH 測定 | 60 |
| 3.2.4 模擬 | 岩体との反応溶液の化学組成 | 66 |
| 3.3 まとめ | | 68 |
| 4 . 緩衝材再冠水 | 挙動に関する予察解析 | 69 |
| 4.1 連成モデ | ルの概要 | 69 |
| 4.2 熱-水連 | 成解析による緩衝材再冠水挙動の検討 | 73 |
| 4.2.1 解析 | 条件 | 73 |

. .

| 4.2. | 2 解析結果 | 76 |
|--------|---|-----|
| 4.2. | 3 まとめ | 82 |
| | | |
| 5 . 緩種 | 所材 / 間隙水の化学的変遷に関する予察解析 | 83 |
| 5.1 | 地球化学解析によるモルタル反応溶液組成の検討 | 83 |
| 5.1. | 1 はじめに | 83 |
| 5.1. | 2 モルタル-水反応について | 83 |
| 5.1. | 3 模擬岩体(モルタル)組成 | 83 |
| 5.1. | 4 水和反応生成物の熱力学データについて | 87 |
| 5.1. | 5 解析手順 | 90 |
| 5.1. | 6 解析結果から推定されるモルタル反応溶液について | 97 |
| 5.1. | 7 実測値との比較 | 97 |
| 5.1. | 8 まとめ | 101 |
| 5.2 | 物質移行-地球化学連成解析による緩衝材 / 間隙水の化学的変遷の検討 | 103 |
| 5.2. | 1 はじめに | 103 |
| 5.2. | 2 ベントナイトに析出する二次鉱物の文献調査結果 | 103 |
| 5.2. | 3 地球化学物質移行連成解析における解析条件 | 105 |
| 5.2. | 4 解析結果および考察 | 106 |
| 5.2. | 5 解析値と実測値の pH の比較 | 116 |
| 5.2. | 6 まとめ | 117 |
| | | |
| 6.おわ | っりに | 118 |
| | | |
| 7.謝辞 | 2 | 121 |
| | | |
| 8.参考 | 资文献 · · · · · · · · · · · · · · · · · · · | 122 |
| | | |
| 付録1 | ベントナイトブロックの製作 | |
| 付録2 | 緩衝材試験体中へのセンサーの設置 | |
| 付録3 | 圧縮ベントナイトへの pH 計の適応性に関する検討 | |
| 付録4 | 熱電対による温度計測結果 | |
| 付録5 | 間隙水圧の計測結果 | |
| 付録6 | サイクロメータによる化学ポテンシャルの計測結果および含水比 | |
| 付録 7 | 湿度計による含水比測定結果 | |
| 付録8 | 土圧計による膨潤圧・膨潤応力の計測結果 | |

. .

付録9 緩衝材試験体の解体・サンプリング

図目次

| 図 2-1 | 熱-水-応力連成試験設備(COUPLE)の概要図 | 3 |
|--------|-------------------------------|----|
| 図 2-2 | 模擬岩体の概要図 | 6 |
| 図 2-3 | 緩衝材試験体の概要図 | 8 |
| 図 2-4 | ケイ砂の透過重量百分率 | 9 |
| 図 2-5 | 廃棄体模擬ヒーターの概略図 | 10 |
| 図 2-6 | サイクロメータ | 12 |
| 図 2-7 | 湿度計 | 12 |
| 図 2-8 | 緩衝材試験体に埋設したガラス電極 pH 計 | 14 |
| 図 2-9 | 緩衝材試験体に突刺して計測する ISFET 電極 pH 計 | 15 |
| 図 2-10 | 模擬岩体中のセンサーレイアウト | 18 |
| 図 2-11 | 緩衝材試験体中のセンサーレイアウト | 19 |
| 図 2-12 | 緩衝材試験体中のセンサー埋設位置(GL-930mm) | 20 |
| 図 2-13 | 緩衝材試験体中のセンサー埋設位置(GL-665mm) | 21 |
| 図 2-14 | 緩衝材試験体中のセンサー埋設位置(GL-465mm) | 22 |
| 図 2-15 | 緩衝材試験体中のセンサー埋設位置(GL-165mm) | 23 |
| 図 2-16 | 緩衝材試験体中のセンサー埋設位置(GL-Omm) | 24 |
| 図 2-17 | ISFET 電極 pH 計を挿入するステンレス製のパイプ | 25 |
| 図 2-18 | ISFET 電極 pH 計による計測 | 25 |
| 図 2-19 | 緩衝材試験体の模擬岩体への組込み(1) | 26 |
| 図 2-20 | 緩衝材試験体の模擬岩体への組込み(2) | 26 |
| 図 2-21 | ケイ砂によるすき間の充填 | 27 |
| 図 2-22 | 試験条件概略 | 28 |
| 図 3-1 | 緩衝材の膨出の様子 | 30 |
| 図 3-2 | 熱電対による温度計測結果 | 32 |
| 図 3-3 | 温度経時変化の水平断面方向の比較 | 32 |
| 図 3-4 | 温度経時変化の鉛直断面方向の比較 | 33 |
| 図 3-5 | 試験体中の温度分布 | 33 |
| 図 3-6 | 模擬岩体中の間隙水圧の変化 | 34 |
| 図 3-7 | ケイ砂 30wt %混合ベントナイトの水分保持特性 | 37 |
| 図 3-8 | 含水比とpFの関係 | 37 |
| 図 3-9 | サイクロメータにより求めた含水比の経時変化 | 38 |
| 図 3-10 | 湿度計の適応試験概略図 | 40 |
| 図 3-11 | 供試体含水比と相対湿度の関係 | 41 |

. .

| 図 3-12 | 供試体含水比と多重回帰結果との比較 | 41 |
|--------|---------------------------------|-----|
| 図 3-13 | 湿度計により求めた含水比の経時変化 | 42 |
| 図 3-14 | 膨潤応力の計測結果 | 43 |
| 図 3-15 | ガラス電極 pH 計による循環水の pH 計測結果 | 44 |
| 図 3-16 | ISFET 電極 pH 計による循環水の pH 計測結果 | 45 |
| 図 3-17 | ガラス電極 pH 計による緩衝材間隙水の pH 測定結果 | 47 |
| 図 3-18 | ISFET 電極 pH 計による緩衝材間隙水の pH 測定結果 | 47 |
| 図 3-19 | 冷却期間の緩衝材試験体中の温度変化 | 49 |
| 図 3-20 | 冷却期間の模擬岩体中の温度変化 | 49 |
| 図 3-21 | 冷却期間の模擬岩体中の間隙水圧変化 | 50 |
| 図 3-22 | 冷却期間の緩衝材試験体の膨潤応力の変化 | 50 |
| 図 3-23 | 冷却期間の循環水の pH の変化 | 51 |
| 図 3-24 | 冷却期間の緩衝材試験体中の pH の変化 | 51 |
| 図 3-25 | 含水比測定のためのサンプリング位置 | 53 |
| 図 3-26 | サンプリングで得られた含水比分布 | 54 |
| 図 3-27 | プローブ直径 4mmの ISFET 電極 pH 計 | 62 |
| 図 3-28 | サンプリング試料の pH 測定点 | 63 |
| 図 3-29 | サンプリング試料の pH 測定結果 | 64 |
| | | |
| 図 4-1 | 熱-水-応力-化学連成挙動の概念モデル | 70 |
| 図 4-2 | 熱-水-応力-化学連成解析コードの概要 | 70 |
| 図 4-3 | 熱-水連成解析メッシュ図 | 74 |
| 図 4-4 | 熱-水連成解析ジオメトリ | 75 |
| 図 4-5 | 温度経時変化の計測値と解析結果の比較 | 77 |
| 図 4-6 | 温度分布の計測値と解析結果の比較 | 78 |
| 図 4-7 | 温度分布の解析結果 | 79 |
| 図 4-8 | 含水比経時変化の解析結果 | 80 |
| 図 4-9 | 含水比の計測値と解析結果の比較 | 81 |
| | | |
| 図 5-1 | 解析のイメージ | 105 |
| 図 5-2 | 緩衝材上部での chal cedony 濃度分布 | 107 |
| 図 5-3 | 緩衝材上部での Si 濃度分布 | 107 |
| 図 5-4 | 緩衝材上部での calcite 濃度分布 | 108 |
| 図 5-5 | 緩衝材上部での Ca 濃度分布 | 108 |
| 図 5-6 | 緩衝材上部でのC濃度分布 | 108 |
| 図 5-7 | 緩衝材上部での ettringite 濃度分布 | 109 |
| | | |

| 図 5-8 | 緩衝材上部での AI 濃度分布 | 109 |
|--------|------------------------------------|-----|
| 図 5-9 | 緩衝材上部でのS濃度分布 | 109 |
| 図 5-10 | 緩衝材上部での pH 分布 | 111 |
| 図 5-11 | 緩衝材上部での CaHCO3 ⁺ 分布濃度分布 | 111 |
| 図 5-12 | 緩衝材上部での ZNa および Z2Ca 分布濃度分布 | 112 |
| 図 5-13 | 緩衝材下部での chal cedony 濃度分布 | 112 |
| 図 5-14 | 緩衝材下部での Si 濃度分布 | 112 |
| 図 5-15 | 緩衝材下部での calcite 濃度分布 | 113 |
| 図 5-16 | 緩衝材下部での Ca 濃度分布 | 113 |
| 図 5-17 | 緩衝材下部での C 濃度分布 | 114 |
| 図 5-18 | 緩衝材下部での pH 分布 | 115 |
| 図 5-19 | 緩衝材下部での Si0(0H) ₃ 濃度分布 | 115 |
| 図 5-20 | 緩衝材下部での CaHCO₃⁺濃度分布 | 115 |
| 図 5-21 | 緩衝材下部での ZNa および Z₂Ca 分布濃度分布 | 116 |
| 図 5-22 | 解析値と実験値の pH の比較 | 117 |

表目次

| 表 2-1 | 人工軽量骨材の成分 | 4 |
|--------|---|-----|
| 表 2-2 | 模擬岩体の履歴 | 5 |
| 表 2-3 | 緩衝材試験体の原料 | 7 |
| 表 2-4 | ケイ砂の成分 | 7 |
| 表 2-5 | センサー仕様一覧 | 16 |
| 表 2-6 | センサー記号一覧 | 17 |
| | | |
| 表 3-1 | センサーの稼働率 | 29 |
| 表 3-2 | 湿度計の適応試験の試験条件 | 40 |
| 表 3-3 | サンプリング試料の含水比測定結果 | 57 |
| 表 3-4 | サンプリング試料の pH 測定結果 | 65 |
| 表 3-5 | 模擬岩体との反応溶液の分析成分と分析方法 | 66 |
| 表 3-6 | 模擬岩体との反応溶液の成分分析結果 | 67 |
| | | |
| 表 4-1 | 熱-水-応力-化学連成モデルの支配方程式系 | 71 |
| 表 4-2 | 熱-水-応力-化学連成モデルの支配方程式中の記号一覧表 | 72 |
| 表 4-3 | 熱-水連成解析に使用した各材料の物性値 | 75 |
| | | |
| 表 5-1 | 添加した OPC および細骨材の重量 | 84 |
| 表 5-2 | OPC に含まれる化学成分 | 84 |
| 表 5-3 | OPC の化学成分からの水和物量見積もり | 85 |
| 表 5-4 | モルタル 1 当たりの水和反応生成物および細骨材の状態量 | 86 |
| 表 5-5 | モルタル空隙水 1 当たりの水和反応生成物および細骨材の重量 | 87 |
| 表 5-6 | モルタル空隙 1 に対する水和反応生成物量 | 87 |
| 表 5-7 | C₃AH。, Mg(OH)₂, C₀As₃H₃₂およびCa(OH)₂の熱力学データ | 88 |
| 表 5-8 | Atkinson モデルにより導出した CSH ゲルの反応式および平衡定数 | 90 |
| 表 5-9 | 基本ケースにおける水和反応生成物および calcite の delta pHase | 91 |
| 表 5-10 | 基本ケースにおける化学種濃度 | 92 |
| 表 5-11 | CO₂(g)および calcite の影響を受けた | |
| | 循環水のミキシング計算における鉱物の delta pHase | 94 |
| 表 5-12 | CO₂(g)および calcite の影響を受けた循環水の | |
| | ミキシング計算における各元素に対する主要な化学種濃度の濃度 | 95 |
| 表 5-13 | 模擬岩体との反応溶液の分析成分と分析方法 | 99 |
| 表 5-14 | 測定データに対する水和反応生成物および calcite の飽和指数 | 100 |

| 表 5-15 | 解析より求まるモルタル間隙水組成 | 101 |
|--------|--------------------|-----|
| 表 5-16 | tobermoriteの熱力学データ | 103 |
| 表 5-17 | 二次鉱物候補の平衡定数 | 104 |
| 表 5-18 | 解析条件 | 106 |

1.はじめに

高レベル放射性廃棄物の地層処分における処分場閉鎖後のニアフィールドの挙動は, 廃棄体からの放熱,地下処分施設の再冠水,緩衝材の膨潤および変質など,熱的,水 理学的,力学的,化学的なプロセスの複合現象として取り扱う必要がある。このため, 地層処分システムにおいて想定される熱-水-応力-化学連成挙動の予測を行なうため の現象理解に基づく数値解析システムを構築し,様々な地質環境条件に対するニアフ ィールドの熱,水,応力,化学場の長期的変遷を数値実験により予測する研究が進め られている(伊藤ほか,2001,2002,2003)。

その一環として,人工バリアおよびその周辺岩盤の熱,水理,応力,化学場の明確化の観点から,熱-水-応力-化学の連成現象を定量的に把握することを目的として,熱-水-応力連成試験設備(COUPLE)を用いて連成試験を実施した。

試験は、モルタルで製作した模擬岩体の中心に模擬人工バリア孔を削孔し、そこに、 廃棄体を模擬したヒーターおよびベントナイトブロックで製作した緩衝材試験体を設 置した。模擬岩体および緩衝材試験体中には,熱,水理,応力,化学場の変化を計測 するためのセンサーを配置した。そして,廃棄体を模擬したヒーターの温度を100 模擬岩体の周囲の温度を70 に設定し,緩衝材試験体中に温度勾配を形成させた。緩 衝材試験体に浸潤する水は,モルタルとの反応により高いpHを示す溶液である。 試験 は,平成15年6月3日に廃棄体を模擬したヒーターおよび載荷板の加熱を開始してか ら,平成15年12月1日に加熱を停止までの6ヶ月間実施した。この間,模擬岩体お よび緩衝材試験体に配置した熱電対,間隙水圧計,サイクロメータ,湿度計,土圧計, pH 計による計測を実施した。ヒーターの加熱を停止した後は, 冷却過程での人工バリ ア挙動を把握するため一連の計測を二週間継続した。また,試験中は,緩衝材試験体 に浸潤するモルタルとの反応溶液の成分分析を定期的に行なった。そして,試験終了 後に,緩衝材試験体からサンプリングを行ない,含水比や pH を直接測定した。また, 緩衝材試験体の化学的な影響を把握するために,サンプリング試料の陽イオン交換容 量,メチレンブルー吸着量,交換性陽イオンの組成測定の化学分析,X線回折,SEM観 察などの固相分析等を実施した。

本報は,熱-水-応力連成試験設備(COUPLE)を用いた連成試験のうち,試験体中に配 置したセンサーによって得られた計測結果および緩衝材試験体のサンプリング試料か ら得られた水分分布,pHの分布の測定結果について報告する。また,連成試験の予察 解析として,熱-水連成解析による緩衝材再冠水挙動に関する検討,地球化学解析およ び物質移行-地球化学連成解析による緩衝材/間隙水の化学的変遷に関する検討を行 なったので合わせて報告する。なお,サンプリング試料の化学分析および固相分析の 結果,さらには,これらの分析結果を上記の計測結果や解析結果と合わせ,緩衝材の 化学的な影響に関する考察などは次報にて行なうものとする。

2.試験概要

2.1 試験設備

熱-水-応力連成試験設備(COUPLE)は,人工バリアおよび周辺岩盤における熱-水 -応力の連成現象を定量的に評価することを目的として平成5年に設置された。これ までに,本設備を用いて,天然岩石の試験体に削孔した模擬処分孔内にヒーターおよ び緩衝材を設置し,浸潤・加熱試験を実施しており,温度,水分,膨潤応力などの時 間的,空間的な分布の計測が行なわれている(千々松ほか,1997)。

平成 14 年度までに,化学までを含めた連成試験を実施するために,熱や水の境界条件をさらに厳密に制御するための改良を行い,平成 15 年度より,熱-水-応力-化学の 連成試験を実施している。

熱-水-応力連成試験設備(COUPLE)の概要図を図 2-1 に示す。連成試験は,周辺岩 盤を模擬した試験岩体に模擬人工バリア孔を削孔し,ここに緩衝材および廃棄体を模 擬したヒーターを設置して実施する。

周辺岩盤を模擬した試験岩体は,反力枠内に設置され,計6台の油圧ジャッキによっ て側面二方向から加圧,あるいは,油圧ジャッキのシリンダーを固定することにより, 試験岩体の変位を拘束することができる構造になっている。

試験岩体側面の四枚の載荷板には、それぞれ6本の電気ヒーターが組み込まれており、 載荷板自体の温度を制御することによって、試験岩体の四側面の境界温度を固定する。

試験岩体下部の高さ 500mmの空間には断熱材が充填されている。一方,試験岩体上部は,所定の温度の水を循環させて温度を固定する。試験岩体上部の約 100 リットルの試験水と,これと接続された水槽内の 125 リットルの計 225 リットルの試験水がポンプにて循環する構造になっている。循環する試験水の温度は,水槽内のカートリッジヒーターにて制御を行なう(温水循環システム)。この循環水は,試験岩体上部の境界温度を固定するとともに,試験岩体の飽和を満たす役割を持つ。そして,緩衝材中には,試験岩体と反応した溶液が浸潤し水分分布を形成することになる。

緩衝材試験体の中心には,廃棄体を模擬したヒーターが設置される。ヒーターは,ス テンレス容器内に収められ,オイルを伝熱媒体として,ステンレス容器を加熱する構 造となっている。

緩衝材試験体中心の廃棄体を模擬したヒーターと載荷板および試験岩体上部の循環 水の温度を制御することにより,緩衝材試験体中に温度勾配を形成させた試験が可能 である。





図 2-1 熱-水-応力連成試験設備(COUPLE)の概要図

2.2 試験体

連成試験に用いる試験体は,岩体,緩衝材および廃棄体を模擬したヒーターから構成 される。

本試験における岩体は,モルタルによって作製した(以下,模擬岩体という)。模擬 岩体の寸法は,試験設備との取り合いから,一辺が1000mmの立方体とした。

第2次取りまとめにおける硬岩系岩盤廃棄体竪置き方式では,廃棄体一本あたりの専 有面積が約50m²に設定されている(サイクル機構,1999)。

本試験設備における模擬岩体の寸法は,この1/7スケールとなる。したがって,緩衝 材および廃棄体を模擬したヒーターの外径を第2次取りまとめ人工バリア仕様の1/7 スケールとし,緩衝材の外形を300mm,廃棄体を模擬したヒーターの外径を100mm に設定した。

2.2.1 模擬岩体

模擬岩体の概略図を図 2-2 に示す。

模擬岩体は,一辺が1000mmの立方体である。模擬岩体は,厚さ2mmのSUS316製の槽内にモルタルを打設することにより作製し,連成試験では,SUS316製の槽内に収めた状態で使用した。

モルタルの単位体積当りの配合重量比は,水251/セメント193/細骨材1001/発砲 剤0.6である。

このうち,セメントには,普通ポルトランドセメント(比重3.16),細骨材には,構造用人工軽量骨材(日本メサライト工業㈱,絶乾比重1.68)を使用した。人工軽量骨材の成分を表 2-1 に示す。また,発泡剤にはファインフォーム707(株式会社エヌエムビー)を使用した。

| SiO ₂ | A 1 ₂ 0 ₃ | Fe ₂ 0 ₃ +Fe0 | MgO | Ca0 | Na ₂ 0 | K ₂ 0 |
|------------------|---------------------------------|-------------------------------------|------|------|-------------------|------------------|
| 69.90 | 15.00 | 5.05 | 1.93 | 3.10 | 2.62 | 0.20 |

表 2-1 人工軽量骨材の成分

模擬岩体中央部には,緩衝材試験体を設置する模擬人工バリア孔(直径300mm,高 さ1000mm),および模擬人工バリア孔の周囲には計16本の注水孔(直径30mm,高 さ1000mm)を削孔した。これらの孔は,材齢28日後にダイヤモンドコアドリルに て削孔した。

模擬岩体は,モルタルを打設してから連成試験を開始するまでの6ヶ月の間,設備の 試運転や調整のため,模擬岩体との反応する循環水の交換や,載荷板や循環水の加熱 によって温度履歴を受けている(表2-2参照)。その中で,載荷板を一時的に加熱した 後,模擬岩体および循環水の温度低下にともなって,循環水中に白い浮遊物が発生し た。その後,模擬岩体上部に白い沈殿物が堆積した。この現象は,載荷板あるいは循環水の一時的な加熱後に,試験体あるいは循環水の温度が低下することによって生じ, 発生量は,回を重ねるごとに減少した。沈殿物のX線回折の結果,主に Calcite および Aragonite が検出された。

| 2002年 <u>12月</u> | 1月 | 2月 | 3月 | 2003年 | | 5月 | 6月 |
|---------------------|--------------|---------------|----------------------------|------------|--------|--------------|---------|
| 水交換 ——— | | 岩体および水槽 | ╢ <u>╷</u> , ^{ҝҝ} | 5 1 | | | 車成試験開始 |
| 加熱 _ ^{室温} | | 70 | M | N | | ſ∖_ | |
| рН | | | | р Н10 | p H12 | p H10 | |
| 2002年12月 | 19日 模擬岩 | 体の製作(モノ | レタルの打設 | と, その後, | 水和養生) | | |
| 2003年02月 | 15 日 模擬岩 | 体搬入のため | 養生水の抜き | 取り。 | | | |
| 2003年02月 | 19日 設備内 | に模擬岩体設置 | 置。再びイオ | ン交換水に | て水和養生 | •0 | |
| 2003年02月 | 20日 載荷板 | を一時的に 70 | に加熱,権 | 莫擬岩体の温 | 度も一時的 | に上昇。 | |
| 2003年03月 | 01日 温度低 | 下後,循環水中 | っに白い浮遊 | 物が発生 , | 浮遊物除去。 | のため循環 | 水全量を |
| | イオン | '交換水と交換 | | | | | |
| 2003年03月 | 02日 白い浮 | 遊物除去のため | り循環水全量 | をイオン交 | 換水と交換 | | |
| 2003年03月 | 06日 載荷板 | を一時的に 70 | に加熱,権 | 莫擬岩体の温 | 度も一時的 | に上昇 | |
| | (加熱 | 前の循環水の | oHは11.5 積 | 程) | | | |
| 2003 年 03 月 | 07日 載荷栃 昇 | および循環水な | を一時的に 7 | 0 に加熱 , | 模擬岩体の |)温度も一時 | 寺的に上 |
| 2003年03月 | 11日 温水循 | 環システムの? | k槽内循環水 | く(約125リ | ットル)を | 蒸留水とす | を換 |
| 2003年04月 | 09日 載荷板 | ,循環水を一時 | 寺的に 70 は | こ加熱,模搊 | 経岩体の温度 | モも一時的 | こ上昇 |
| | (加熱 | \前の pH は 12 利 | 呈度) | | | | |
| 2003年05月 | 26日 載荷橋 | 反,循環水を一 | 時的に 70 | に加熱,模 | 疑岩体の温度 | 度も一時的 | に上昇 |
| ~ | 28日 | | | | | | |
| 2003年6月3 | 日連成詞 | 験開始(試験開 | 見始時の pH | は10程度) | | | |

表 2-2 模擬岩体の履歴





図 2-2 模擬岩体の概要図

2.2.2 緩衝材試験体

緩衝材試験体の概略図を図 2-3 に示す。緩衝材試験体の寸法は,直径 290mm,高 さ 930mmである。

緩衝材試験体は,ベントナイトブロック10体を積重ねて作製した。ベントナイトブロックの原料を表2-3に示す。配合比は,無水状態でベントナイト70wt%,5号ケイ砂15wt%、3号ケイ砂15wt%である。ケイ砂の成分を表2-4に,粒度分布を図2-4に示す。

原料を混合した状態において,含水比が13%となるように水を加えミキサーで混合した。

ベントナイトブロックの形状は,外径290mm,内径100mmのドーナッツ型であり, 乾燥密度は1600kg/m³に設定した。ベントナイトブロックは,金型とアムスラーを用 いて,圧縮成型して作製した。ベントナイトブロックの製作工程およびベントナイト ブロックの寸法等の検査結果を付録1に示す。

なお,図2-3中に示すベントナイトブロックNo.は,付表1-1に示すベントナイト ブロックNo.に対応している。

| 原料 名称 | | 産地など | | |
|-----------------|----------|-----------------|--|--|
| ベントナイト | カーゲリ.\/1 | 山形県月布産,クニミネ工業社製 | | |
| ハノ トノ 1F | | ロット No.304830 | | |
| 5 号ケイ砂 | パールサンド | 西豪州産 トウチュウ社製 | | |
| 3 号ケイ砂 | 3 号 S | 愛知県瀬戸産 日陶連原料社製 | | |

表 2-3 緩衝材試験体の原料

表 2-4 ケイ砂の成分

| | SiO ₂ | AI_2O_3 | Fe_2O_3 | Ca0 | MgO | Ti0 ₂ |
|-------|------------------|-----------|-----------|-----|-----|------------------|
| 5号ケイ砂 | 99.8 | 0.02 | 0.01 | - | - | 0.03 |
| 3号ケイ砂 | 96.3 | 2.1 | 0.1 | - | - | - |



図 2-3 緩衝材試験体の概要図





2.2.3 模擬廃棄体

緩衝材試験体の中心には,廃棄体を模擬したヒーターを設置する。ヒーターの概略図 を図 2-5 に示す。ヒーターは, SUS316 製の容器内に収められ,封入されたオイルを伝 熱媒体としてヒーター容器を加熱する。

ヒーター容器の上下には,緩衝材試験体を抑え,且つベントナイトの膨出を抑制する ための着脱可能な SUS316 製の板を有する構造となっている。



2.3 計測項目とセンサー

2.3.1 計測項目

熱-水-応力-化学の連成現象を定量的に把握するため,模擬岩体および緩衝材試験 体中に各種センサーを配置した。配置したセンサーは,熱電対,模擬岩体中の圧力水 頭を計測する間隙水圧計,緩衝材の水分を計測するサイクロメータおよび湿度計,緩 衝材試験体内部および境界壁面に作用する膨潤圧,膨潤応力を計測する土圧計,そし て pH 計である。設置したセンサーの仕様を表 2-5 にまとめて示す。

(1) 熱電対

熱電対は,模擬岩体および緩衝材試験体,廃棄体を模擬したヒーター内の伝熱用オ イル,岩体上部循環水の温度を計測する。熱電対は,TおよびKタイプのシース熱電 対であり,シース材質はステンレス,シース外径1.6mm,シース長10mのものを使 用した。

(2)間隙水圧計

間隙水圧計は,模擬岩体中の圧力水頭を計測する。間隙水圧計は,モルタル打設前 にあらかじめ決められた位置に配置し,そこにモルタルを流しこむ方法で模擬試験体 中に埋設した。間隙水圧計の受圧部に固化前のモルタルが直接入り込まないように砂 袋内に間隙水圧計を入れて設置した。

(3)サイクロメータ

サイクロメータは,緩衝材試験体の含水比の変化を計測する。プローブ部は,図2-6 に示すように先端部にステンレス製の金属焼結フィルターを有するものを用いてい る。このサイクロメータは,釜石原位置試験場における粘土充填・熱負荷試験で使用 した実績のあるものである(千々松ほか,1999a)。なお,サイクロメータでは,ベン トナイトの化学ポテンシャルが計測されるが,後述するように,別途取得されている 水分保持曲線を用いて含水比に換算する(鈴木ほか,1999)。サイクロメータによる 含水比の測定下限値は10%である。したがって,緩衝材試験体の含水比の変化を10% ~25%(飽和含水比)の範囲で計測する。

(4)湿度計

湿度計も,図 2-7 に示すようにプローブ部先端部がステンレス製の金属焼結フィル ターを有するものを用いている。湿度計では,ベントナイト中の相対湿度が計測され る。本湿度計も,釜石原位置試験場における粘土充填・熱負荷試験で使用した実績の あるものである(千々松ほか,1999a)。そして,後述するように,圧縮ベントナイト の供試体に埋設した湿度計によって得られた相対湿度と供試体含水比との関係を求 めるための試験を実施し,この結果より緩衝材試験体の含水比を求める。湿度計では, 含水比10%以下が測定範囲となる。



図 2-6 サイクロメータ



図 2-7 湿度計

(5)土圧計

直径の異なる2種類の土圧計を選定し,一方は,緩衝材試験体と境界壁面の間に, もう一方は,ベントナイトブロック間に設置した。

(6) pH計

pH 計は,土壌管理などを目的に製作販売されているものであり,ガラス電極のものと, ISFET 電極¹の二種類を選定した。

このうち,ガラス電極の pH 計は,土壌に埋設したままの状態で連続計測が可能なように,比較電極である K C I 溶液の流出を抑制する工夫がされている(図 2-8)。

また,ISFET 電極の pH 計は,測定毎に土壌中に突刺して測定を行なうものであり,土壌 への挿入が容易なようにプローブ先端が鋭角になっている(図 2-9)。本試験で使用した pH 計の仕様を以下に示す。

ガラス電極 pH 計

機器名称:藤原製作所製 PHS-1 (pH 電極 6430L 型:東亜ディーケーケー㈱)

- 測定範囲:2~12 pH
- 使用温度:~50
- 耐熱温度:~70
- 使用圧力:~0.5MPa
- 内部電極:塩化銀
- 内部溶液:KCI
- プローブ寸法:直径 30mm,長さ 50mm
- ISFET 電極 pH 計
- 機器名称:大起理科工業社製, IQ-200PH
- 測定範囲:0~14 pH
- 使用温度:~105
- 内部電極:塩化銀
- 内部溶液:KCIゲル
- プローブ寸法: 直径 8mm, 長さ 1000mm(特別仕様)

これまで,上記した pH 計によって圧縮ベントナイト間隙水の pH を測定した例はない。そこで,付録2に示すように,圧縮ベントナイトへの適応性を確認するための試験を実施している。その結果,圧縮ベントナイトが飽和していれば,間隙水の pH 測定が可能なことが示された。

*1 ISFET とは Ion Sensitive Field Effect Transistor (イオン感応性電界効果型トランジスター)の略称である。ISFET のゲート上のイオン感応膜 (SiO2 - Si3N4) に溶液が接すると,溶液中のイオン活量に応じて界面電位(E)が発生する。ゲート膜状にSi3N4 を使用すれば水素イオンに感応しpH センサーとなる。



(a)全体図



(b)プローブ先端

図 2-8 緩衝材試験体に埋設したガラス電極 pH 計



(a)全体図



(b)プローブ先端

図 2-9 緩衝材試験体に突刺して計測する ISFET 電極 pH 計

| | | | 衣 2-5 ビノリー 江塚一見 | | |
|-----------|-------------|---------|---|--|--|
| 設置場所 | 機器名称 | メーカー | 型番および仕様 | 数量 | 備考 |
| | 井종산 | 助川電気工業 | Nimblox シース熱電対 T35 シース外径 1.6mm | 16 | 釜石原位置試験場での使用実績あり。 |
| | <u></u> 然龟刈 | 助川電気工業 | Nimblox シース熱電対 K シース外径 1.6mm | 26 | |
| 模擬岩体 間 | 間隙水圧計 | 共和電業 | 小型間隙水圧計,BPR-A-200KPS 定格容量200KPa,温度範囲0~80 零点の温度影響±0.2%R0/ 出力の温度影響±0.1%R0/ | 8 | |
| | pH 計 | 藤原製作所 | PHS-1型, pH 電極 6430L 型 ガラス電極 プロープ径 30mm,長さ 50mm | 1 | 模擬岩体注水孔に設置 ,循環水の pH を計測 |
| 緩衝材 | 熱電対 | 助川電気工業 | Nimblox シース熱電対 T35 シース外径 1.6mm | 20 | |
| | サイクロメータ | Wescor | PST-55-30-SF | 24 | 原位置用熱電対サイクロメータ,計測器 HR-33Tを使用。 釜石原位置試験場での使用実績あり。 |
| | 湿度計 | VAISALA | HMP233,温度範囲~120 湿度測定範囲0~100%RH (±2%RH,90%~100%RH) プロープ径13mm,長さ70mm | 8 | センサー部保護のステンレス製の金属焼結 フィルターを有する。 釜石原位置試験場での使用実績あり。 |
| | 土圧計 | ST 研究所 | PS25-20,定格容量 2MPa 直径 25mm,厚さ 4mm | 9 | ベントナイトブロックと境界壁面の間に設 置。定格容量の異なるタイプを釜石原位置 試験場で使用した実績あり |
| | | 東京測器研究所 | PDA-2MPAHS,定格容量 2MPa 直径 6.5mm,厚さ 1mm | 7 | ベントナイトブロック間に設置。 |
| | pH 計 | 藤原製作所 | PHS-1 型 , pH 電極 6430L 型 ガラス電極 プロープ径 30mm,長さ 50mm | 2 | 緩衝材試験体に埋設して連続計測 |
| | F | 大起理科工 | 大起理科工業 | IQ-200PH , ISFET 電極 プローブ径 8mm,長さ 1000mm | 3 箇所 |

表 2-5 センサー仕様一覧

.

2.3.2 センサーレイアウト

模擬岩体および緩衝材試験体中のおおよそのセンサーレイアウトを図 2-10,図 2-11 に,また,緩衝材試験体中の詳細なセンサー設置位置を図 2-12~2-16 に示す。図中セ ンサー記号は下表の通りである。なお,GL-0mmは,模擬岩体および緩衝材試験体の 上面として表記している。

緩衝材試験体に直接突刺して測定を行なう ISFET 電極の pH 計は,図 2-17~2-18 に示 すように,緩衝材試験体に直径 9mm のステンレス製のパイプを設置し,この中に,直 径 8mmの pH 計プローブを挿入する方法で計測を行なった。計測時以外,このステン レス製のパイプの開口部はシリコン栓で封じた。

緩衝材試験体中へのセンサー設置時の様子を付録3に示す。

| センサー記号 | センサー | 測定項目 |
|--------|-----------------------|----------|
| TR(T) | 模擬岩体中に埋設した熱電対 (Tタイプ) | 温度 |
| TR(K) | 模擬岩体中に埋設した熱電対(Kタイプ) | 温度 |
| PPR | 模擬岩体中に埋設した間隙水圧計 | 間隙水圧 |
| PHW | 模擬岩体上部循環水中の pH 計 | рН |
| ТВ | 緩衝材試験体中に埋設した熱電対 | 温度 |
| СВ | 緩衝材試験体中に埋設したサイクロメーター | 化学ポテンシャル |
| HB | 緩衝材試験体中に埋設した湿度計 | 相対湿度 |
| SSB | 緩衝材試験体と境界壁面の間に設置した土圧計 | 膨潤応力 |
| SPB | 緩衝材試験体中に埋設した土圧計 | 膨潤圧 |
| PHB(D) | 測定毎に緩衝材試験体中に挿入する pH 計 | рН |
| PHB(F) | 緩衝材試験体中に埋設した pH 計 | рН |

表 2-6 センサー記号一覧



図 2-10 模擬岩体中のセンサーレイアウト





図 2-12 緩衝材試験体中のセンサー埋設位置(GL-930mm)





図 2-14 緩衝材試験体中のセンサー埋設位置(GL-465mm)



C



図 2-16 緩衝材試験体中のセンサー埋設位置(GL-0mm)



図 2-17 ISFET 電極 pH 計を挿入するステンレス製のパイプ



図 2-18 ISFET 電極 pH 計による計測
2.4 緩衝材試験体の模擬岩体への組込み

各種センサーを配置した緩衝材試験体を,模擬岩体の中央分に削孔した模擬処分孔に 設置した。模擬処分孔の直径は300mmである。一方,緩衝材試験体は,緩衝材試験 体中に埋設したセンサーケーブルを取りだすために,その直径が290mmとなってい る。この空間には,表2-4で示した5号ケイ砂を充填した(図2-19)。そして,緩衝 材試験体上部には,緩衝材の膨出防止のためにステンレス製の板を装着し固定した(図 2-20)。詳細を図2-21に示す。



図 2-19 緩衝材試験体の模擬岩体への組込み(1)



図 2-20 緩衝材試験体の模擬岩体への組込み(2)





2.5 試験条件

試験条件を図 2-22 に示す。

廃棄体を模擬したヒーターを構成する伝熱オイルの温度は,第2次取りまとめにおいて緩衝材の制限温度とされている100 に設定した。

第2次取りまとめで示された緩衝材仕様において,硬岩系岩盤,処分深度 1000mの 場合の緩衝材中に生じる最大温度勾配は1 /cm程度となる。この温度勾配を緩衝材中 に生じさせるための模擬岩体境界の温度を熱解析により求めた。その結果,模擬岩体 境界の温度が70 程度必要なことから,載荷板および模擬岩体上部の循環水の温度を 70 に設定した。

模擬岩体上部を循環する試験水には蒸留水を使用し 模擬岩体上部の水位が常に 10cm になるように温水循環システムの運転を行なった。

試験は,室温,大気下にて実施した。

試験は,平成15年6月3日15:00 に載荷板,循環水,廃棄体を模擬した中心ヒーターを所定の温度になるよう加熱を開始し,平成15年12月1日10:00 に中心ヒーターの加熱を停止するまでの180 日間実施した。

さらに,中心ヒーターの加熱を停止してから平成 15 年 12 月 15 日までの二週間は, 冷却過程での挙動を把握するため一連の計測を継続した。



図 2-22 試験条件概略

3.試験結果

試験は,平成15年6月3日に,廃棄体を模擬した中心ヒーター,循環水および載荷 板の加熱を開始してから,平成15年12月1日に,中心ヒーターの加熱を停止するま での6ヶ月間実施した。なお,中心ヒーターの加熱を停止してから12月15日までの 14日間は,冷却過程での挙動を把握するため一連の計測を継続した。

試験開始約40日後の平成15年7月10日に,緩衝材試験体上部のセンサーケーブル 取り出し部分より,ベントナイトが膨出しており,時間の経過とともに膨出量が増加 することが確認された(図3-1参照)。このため,7月24日に岩体上部の循環水を排 出し,膨出したベントナイトの除去を行なった。そして,センサーケーブル取り出し 部分を急結セメントにて封鎖する対策を講じた。以降,ベントナイトの膨出は生じて いない。なお,除去したベントナイト量は乾燥状態で約350gであった。

試験期間中には,二回の終日停電および短時間停電があり,一時的に試験体の温度が 低下した。

試験期間中,模擬岩体上部の循環水の水位が蒸発などにより低下するため,蒸留水を約 10 リットル/週で補給した。

試験体中に配置した各センサーの稼働率を表 3-1 に示す。このうち,緩衝材試験体中 の熱電対は 100%の高い稼働率を示した。これに対して,緩衝材試験体および模擬岩 体の注水孔に設置した計3本のガラス電極のpH計は,試験開始後4ヶ月後に全てが計 測不能となった。この原因として,使用温度範囲を超えていたこと,プローブが完全 な防水構造ではないこと,さらには,試験開始初期は緩衝材試験体が不飽和であるこ とから比較電極として充填されている KC1 溶液の欠乏などが考えられる。また,サイ クロメータおよび湿度計の多くも,4ヶ月程度で計測不能になっているが,これは, 緩衝材試験体が飽和したためと考えられる。

| シンスで | 燃架夕积 | 粉旱 | 稼働率 [%] | | | | | |
|----------|------------|----------|---------|------|-------|------|--|--|
| <u> </u> | 们成估计工作小 | <u> </u> | 1ヶ月後 | 2ヶ月後 | 4 ヶ月後 | 6ヶ月後 | | |
| 模擬岩体 | 熱電対 | 42 | 93 | 93 | 93 | 93 | | |
| | 間隙水圧計 | 8 | 88 | 75 | 50 | 50 | | |
| | pH計 | 1 | 100 | 0 | 0 | 0 | | |
| 緩衝材 | 熱電対 | 20 | 100 | 100 | 100 | 100 | | |
| | サイクロメータ | 24 | 96 | 71 | 25 | 8 | | |
| | 湿度計 | 8 | 88 | 50 | 0 | 0 | | |
| | 土圧計(境界壁面) | 8 | 100 | 75 | 63 | 63 | | |
| | 土圧計(ブロック間) | 7 | 43 | 14 | 0 | 0 | | |
| | pH計 | 2 | 50 | 0 | 0 | 0 | | |

表 3-1 センサーの稼働率



(a) 平成 15 年 7 月 10 日の状態



(b) 平成 15 年 7 月 18 日の状態

図 3-1 緩衝材膨出の様子

3.1 計測機器による経時計測結果

3.1.1 温度

模擬岩体および緩衝材試験体中に設置した熱電対によって得られた温度の経時変化 を付録4に示す。

緩衝材試験体中の温度の経時変化の一例として,GL-465mm,廃棄体を模擬した中心 ヒーターの壁面より10mmの位置に設置した熱電対によって計測されたものを図3-2に 示す。熱電対の設置位置については,図2-14に示す通りである。これより,初期の温 度は約20 であるが,試験開始直後に約90 まで上昇し,平成15年6月3日から平 成15年12月1日までの180日の試験期間中,数回の停電および室温の季節変動の影 響により,温度が若干上下しているものの,ほぼ一定の温度で推移していることが分 かる。

緩衝材試験体中のGL-465mmの位置において,水平方向の温度の経時変化を比較したものを図 3-3 に示す。これより,廃棄体を模擬した中心ヒーターの近傍で約 90 , 模擬岩体との境界付近では約 80 となっており,試験期間中,緩衝材試験体には,お およそ1 / cmの温度勾配が形成されていたことが分かる。

また,中心ヒーター壁面から 50mmの位置において,深度方向の温度の経時変化を 比較したものを図 3-4 に示す。これより,GL-465mmの位置での温度が最も高く, 次いで,GL-165mm,GL-665mmの順となっている。GL-465mmの温度が最も 高くなっているのは,境界の影響が最も少ないためと考えられる。

GL-465mmの水平方向の試験体温度の空間的分布を図3-5に示す。これより室温の 季節変動の影響があるため断定することはできないが,試験開始90日後には,温度の 伝播が終了し,模擬岩体を含めて温度が定常状態に達したものと考えられる。



図 3-3 温度経時変化の水平断面方向の比較







図 3-5 試験体中の温度分布

3.1.2 間隙水圧

模擬岩体中の間隙水圧の計測結果を付録5に示す。

計測結果より,試験開始直後にほとんどの間隙水圧計による出力が大きく負の値を示した。これは,廃棄体を模擬した中心ヒーターおよび載荷板の加熱を開始する前および後述するように加熱を停止し試験体が室温まで低下した場合に,間隙水圧が深度からくる圧力水頭を示していることから,出力への温度による影響と考えられる。本試験に使用した間隙水圧計の零点の温度影響は,表 2-5 に示すように±0.2%R0/ となっている。間隙水圧計が設置された場所の温度は約70 であり,間隙水圧の零点を室温にて設定していることから,室温を20 とすれば温度によるドリフトは最大で±20 kPaとなる。

一例として,GL-500mmに設置した模擬岩体中の間隙水圧の変化を図 3-6 に示す。 上述したように,試験開始直後に間隙水圧は温度による零点の温度ドリフトと考えら れる原因により大きく負の値を示している。その後も,温度変化の影響と考えられる 原因により,間隙水圧は±2kPa 程度の範囲で振動しながら推移していることが分か る。GL-500mmの圧力水頭は5kPa であるから,この振動により,岩体上部循環水 の水位の変化等,模擬岩体中の間隙水圧の変化を読み取ることができる結果を得るこ とができなかった。



図 3-6 模擬岩体中の間隙水圧の変化

3.1.3 サイクロメータによる化学ポテンシャルおよび含水比

サイクロメータは,熱力学的な平衡状態が達成されている場合に,液相,気相の間 での化学ポテンシャルは等しくなるという原理に基づき,土中水の化学ポテンシャル と平衡状態にある気相の相対湿度を熱電対により測定するものである(塩沢,1991)。

本試験では,ウェスコー社製のサイクロメータ PST-55-30-SF,マイクロボルトメー タ HR-33T を用いた。マイクロボルトメータ HR-33T は,露点法とサイクロメトリック 法の二つの方法により化学ポテンシャルを測定することができる。露点法とは,空気 中で物体を冷却して表面に露が出来始めるときの温度から相対湿度を求めるものであ る。また,サイクロメトリック法とは,異種導体の接触面を通じて微量の電流が流れ るとき,その電流の方向により熱が発生または吸収するというペルディエ効果を利用 して相対湿度を求めるものである。このうち,露点法のほうが周囲温度の変化に対す る影響が少ないこと,また,感度係数が二倍と測定精度が高いことから,ここでは露 点法による測定方法を採用した。

マイクロボルトメータ HR-33T における露点法では,出力 *E* と化学ポテンシャル ψ は -0.75 μ V/bar の感度で線形関係にあるので,

 $-\psi = E/0.75$ (3-1)

となる。ここで,ψは化学ポテンシャル[bar], Eはマイクロボルトメータによる出 力[μV]である。露点法より測定した緩衝材試験体中の化学ポテンシャルおよび温度の 測定結果を付録6に示す。計測結果では,時間の経過とともに化学ポテンシャルの絶 対値は小さくなっている。

次に,得られた化学ポテンシャルから含水比を算出する。図 3-7 は,別途,Decagon Device 社製の熱電対サイクロメータ SC-10A によって求めたケイ砂 30wt %混合ベント ナイトの水分保持特性である(鈴木ほか,1999a)。図縦軸は,水の化学ポテンシャル (J/kg)を圧力水頭に換算したサクション(cmH₂0)である(1cmH₂0=9.8×10⁻²J/kg)。 ここでは,水分保持特性の温度依存性を無視し,サクションを常用対数であらわした pFを含水比との関係で整理すると図 3-8 のようになり,含水比とpF は次式のように なる。

 $\varphi = 91.11 \omega^{-4.3286}$ (3-2)

ここで, φは pF, ωは含水比[-]である。

上式により,露点法により計測した化学ポテンシャルを含水比に換算し,緩衝材試 験体中の含水比の経時変化の結果を付録6に示す。結果より,廃棄体を模擬した中心 ヒーターに近い場所では,試験開始後に含水比が一時的に低下し,それ以外は,試験 開始後に含水比は上昇している。そして,そのほとんどが試験開始より60日程度で減 少に転じ,最終的には計測不能となっている。

一例として,GL-465mm,廃棄体を模擬した中心ヒーターの壁面より25mmおよび 75mm に配置したサイクロメータにより得られた含水比の経時変化を図 3-9 に示す。図 3-9(a)のヒーターの壁面より 25mm に配置したサイクロメータの結果からは,温度勾 配による水分移動の影響により、試験開始より約30日間にわたって含水比が低下して いる。図では,含水比が0.08で一定となっているが,サイクロメータの測定範囲の下 限界であると考えられ、実際の含水比はこれ以下である可能性もあると考えられる。 そして,30日以降,含水比は上昇に転じており,模擬岩体からの浸潤が進行してきた ことが分かる。そして,約60日後に含水比は最大値の0.25となった後に急激に減少 している。0.25 は,緩衝材の乾燥密度を1600 kg/m³としたときの理論的な飽和状態 を表す含水比であり、サイクロメータの構造および測定原理から、飽和に達したため に計測不能になったものと考えられる。このようなことから,含水比が減少に転じた 60 日後には, ヒーターの壁面より 25mm の位置が飽和したものと考えられる。一方, 図 3-9(b)は,ヒーターの壁面より 75mm に配置したサイクロメータの結果である。 これより、試験開始後、直ちに含水比は上昇しており、模擬岩体からの水の浸潤の影 響を受けている様子が読み取れる。そして,約30日後に含水比は約0.28に達し,そ の後,60日後までほぼ一定で推移している。このことから,ヒーターの壁面より75mm の位置は,30日程度で飽和に達したものと考えられる。そして,60日以降,含水比 は減少に転じているが,上記と同様の理由により計測不能になったものと考えられる。 や,化学ポテンシャルから水分保持曲線を介して間接的に算出しているために生じる 誤差と合わせて,前述した緩衝材の膨出や,模擬岩体との間のすき間への膨潤等によ って緩衝材の密度が低下したことが考えられる。



図 3-7 ケイ砂 30wt%混合ベントナイトの水分保持特性



図 3-8 含水比とpFの関係



図 3-9 サイクロメータにより求めた含水比の経時変化

3.1.4 湿度計による相対湿度および含水比

湿度計は,緩衝材試験体の水分が初期状態より低下し,サイクロメータの測定範囲 を超える可能性がある模擬廃棄体近傍に設置した。

緩衝材試験体に埋設した湿度計は VAISALA 社製の HMP233 であり,得られた相対湿度 から含水比を求めることとした。そこで,図 3-10 に示すように,密閉容器内の供試 体中にドリルで孔を設け湿度計を埋設し,供試体の含水比および温度をパラメータと して,供試体含水比と湿度の関係を求めるための試験を実施した。試験条件を表 3-2 に示す。供試体含水比と相対湿度の関係を図 3-11 に示す。これより,含水比が0~0.1 の範囲において,供試体含水比と相対湿度は線形関係にあることが分かる。そこで, 計測温度と相対湿度を独立変数とし,含水比を従属変数として線形多重回帰解析を行 うと次式が得られる。

 $\omega = 0.111 + 0.0103H - 1.815 \times 10^{-3}T \quad (3-3)$

ここで, ωは含水比[-], H は相対湿度[%], T は温度[]である。相対湿度および 温度の実測値を(3-3)式に代入して求めた含水比と,実際の供試体含水比との関係 を図 3-12 に示す。これより,含水比が0~0.1の範囲において,両者は良く一致して おり,この範囲で,相対湿度と温度から含水比を精度よく求めることができるものと 考えられる。

緩衝材試験体に埋設した湿度計によって得られた相対湿度を含水比に換算したもの を付録7に示す。また,一例として,GL-465mmの位置において,廃棄体を模擬し たヒーター壁面より 20mm に設置した湿度計によって得られた含水比の経時変化を図 3-13に示す。これより,初期の含水比は約0.1と計測されているが,湿度計の測定範 囲の上限であり,実際の緩衝材試験体の含水比はこれよりも高い可能性がある。そし て,試験開始直後には,温度勾配による水分移動の影響によって含水比が約0.08 ま で低下している。この値は,サイクロメータで計測されたものと同等である。その後, 模擬岩体側からの水の浸潤により含水比は僅かながら上昇に転じ,約50日後に含水 比0.09 まで上昇したところで計測不能となっている。模擬岩体からの水の浸潤にと もなう含水比の上昇が,サイクロメータのように顕著に見られないことや,サイクロ メータでの計測では,ヒーター壁面より25mmの位置での飽和が60日後であるから(図 3-9(a)参照),この湿度計が設置された位置の飽和時間はさらに遅くなるはずであ り,緩衝材の飽和によって計測不能になったとは考えられない。計測不能となった原 因については不明であるが,湿度計の含水比に対する計測範囲の狭さが明らかとなっ た。

| 供試体 | ケイ砂 30wt % 混合体 | | | |
|---------|--------------------|--|--|--|
| 供試体乾燥密度 | 1600 kg/m³ | | | |
| 供試体寸法 | 直径 50mm , 高さ 100mm | | | |
| 供試体含水比 | 0~0.2 | | | |
| 試験温度 | 25 ~ 80 | | | |
| | | | | |

表 3-2 湿度計の適応試験の試験条件



図 3-10 湿度計の適応試験概略図







図 3-12 供試体含水比と多重回帰結果との比較





3.1.5 膨潤圧,膨潤応力

ベントナイトは,その主成分であるモンモリロナイトの層間に水を取り込むことに よって膨潤する。このモンモリロナイトの層状体が外界に対して働かせる圧力が膨潤 圧である。しかし,ベントナイト供試体に水が浸潤したときに拘束境界面に作用する 応力は,この膨潤圧とは必ずしも等しくはならないと言われている(中野ほか,1984)。 ここでは,緩衝材試験体を構成するベントナイトブロックのつなぎ目に設置した土 圧計により得られた値を膨潤圧,緩衝材試験体と境界壁面との間に設置した土圧計に より得られた値を膨潤に力と定義する。膨潤圧および膨潤応力の計測結果を付録8に 示す。

ベントナイトブロックのつなぎ目に設置した土圧計により得られた膨潤圧について は、付録8に示すように、そのほとんどが試験期間中に計測不能となり有意なデータ が得られなかった。これは、本設置方法では、圧力に対する反力が取れないことや、 膨潤により土圧計が移動し、センサーケーブルが断線した可能性なども考えられる。 緩衝材試験体と境界壁面との間に設置した土圧計により得られた膨潤応力も同様に 付録8に示す。この中には、緩衝材の膨出による粘土密度の減少によって、膨潤応力 が低下したと考えられる膨潤応力の変遷が示されている。また、模擬岩体の壁面が曲 面を持っていることから土圧計を確実に固定することができなかったなどの原因に より、ほとんどの土圧計から有意な結果を得ることができなかった。そのうち、図 3-14 に示す計測結果は、別途、本緩衝材仕様でのカラム試験で得られた膨潤応力と 同等の値(0.5MPa)となっている(鈴木ほか、1999b)。



図 3-14 膨潤応力の計測結果

3.1.6 模擬岩体反応溶液の pH

模擬岩体上部の循環水の pH 測定結果について,模擬岩体上部の注水孔に設置したガラス電極 pH 計によるものを図 3-15 に,ISFET 電極 pH 計によるものを図 3-16 に示す。 ISFET 電極 pH 計での計測は,一回/週の頻度を目標に,模擬岩体上部および循環システムの水槽内の2箇所で計測を実施した。校正は計測毎に pH=7 と pH=10の標準溶液にて実施した。

図 3-15 に示すように,ガラス電極 pH 計による計測では,試験開始時,模擬岩体上部の循環水の pH は約 10 であるが,その後,計測値は徐々に低下し,約 30 日後に計測不能となった。

一方,図3-16 に示すように ISFET 電極 pH 計による計測では,試験期間中全般にわた り,わずかながら低下傾向にあるものの pH=10 程度で推移していることが分かる。低 下傾向の理由としては,水の循環を大気開放系で行なっていることもその理由のひと つと考えられる。

ISFET 電極 pH 計では,計測毎に校正を行なっているため,緩衝材試験体中に埋設し, 校正を行なうことができないガラス電極 pH 計よりも信頼性の高いデータとなってい るものと考えられる。



図 3-15 ガラス電極 pH 計による循環水の pH 計測結果



図 3-16 ISFET 電極 pH 計による循環水の pH 計測結果

3.1.7 緩衝材間隙水の pH

緩衝材試験体に埋設したガラス電極 pH 計による測定結果を図 3-17 に,測定毎に緩衝 材試験体に挿入して測定した ISFET 電極 pH 計による測定結果を図 3-18 に示す。これ らの pH 計によって,緩衝材間隙水の pH が計測可能かどうかについては,付録2 に示 してあり,緩衝材が飽和状態であれば計測可能であると判断している。

図 3-17 に示すように, ヒーター壁面より 60mm の位置に埋設したガラス電極 pH 計で は,約30日後に,40mm の位置に埋設したガラス電極 pH 計では約40日後に計測不能 となっている。それぞれの時間での浸潤状態について,ヒーター壁面から同じ距離に あるサイクロメータの計測結果から判断すると,ヒーター壁面より60mm の位置につい ては,サイクロメータ CB-13 によって得られた含水比の経時変化から,30日後は不飽 和状態であると判断できる(付録6参照)。

また,ヒーター壁面より40mmの位置については,サイクロメータ CB-12 によって得られた含水比の経時変化から,40 日後は不飽和状態にあるものと判断することができる。このように,ガラス電極 pH 計は,緩衝材が不飽和な状態で計測不能となっていることから,試験開始から計測不能になる間に得られた値について,緩衝材間隙水の pH 計測が達成できている可能性は低いと考えられる。

このように,緩衝材中に埋設したガラス電極 pH 計が40日程度で計測不能になった原因の一つに,緩衝材のサクションによって,pH 計の比較電極のKC1溶液が液絡部より流出し欠乏したことがあげられる。緩衝材に埋設する pH 計については,KC1溶液の流出対策や,また,校正ができないためデータの信頼性をどう担保するかなどの問題が挙げられる。

一方, ISFET 電極 pH 計による緩衝材試験体中の pH 測定結果を図 3-18 に示す。計測 前には pH=7 と pH=10 の標準溶液にて校正を行なった。測定は,一回/週の頻度を目標 に実施した。ヒーター壁面より 30mm のデータについては,図 2-17 に示した pH 計を挿 入するためのステンレス製のパイプが変形したため,ISFET 電極 pH 計を挿入できず計 測値を得ることができなかった。図より,試験開始から約 60 日後までの間で pH が大 きく上昇していることが分かる。サイクロメータによる含水比の経時変化から浸潤状 態を判断すると,ヒーター壁面より 55mm の位置は,60 日程度で飽和したものと考え られる。したがって,60 日以前の pH は緩衝材が不飽和状態で計測された値と考えら れ,この間で pH が大きく上昇していることになる。60 日以降,すなわち飽和状態で の pH の変遷に着目すると,ヒーター壁面より 55mmの位置では pH=8.5~9.0 程度, ヒーター壁面より 80mmの位置では pH=9.0~9.5 の範囲でほぼ一定となっている。模 擬岩体に近いほうの pH が大きくなっている理由については,浸潤する約 pH=10 の溶液 の影響をより大きく受けていることや,ベントナイトと水との反応時間が長いこと, あるいは,温度が約4 異なるため pH の温度依存性の影響や,温度によるベントナイ ト-水反応への影響などが考えられる。



図 3-17 ガラス電極 pH 計による緩衝材間隙水の pH 測定結果



図 3-18 ISFET 電極 pH 計による緩衝材間隙水の pH 測定結果

3.2 試験体の冷却およびサンプリングによる測定結果

3.2.1 試験体の冷却

平成 15 年 12 月 1 日 10:00 に,廃棄体を模擬した中心ヒーターの加熱を停止し,6 ヶ月間の連成試験を終了とした。その後,12 月 8 日 11:00 に 70 で制御を行なって いた載荷板および循環水の加熱を中止した。この加熱停止による冷却期間の挙動を把 握するため,一連の計測を継続した。温度,間隙水圧,膨潤応力,pHの変化を図 3-19 ~図 3-24 に示す。図中凡例は,センサー番号であり,おおよその設置位置は図 2-10, 図 2-11 の通りである。

冷却期間における緩衝材試験体の温度変化を図 3-19 に,模擬岩体中の温度変化を図 3-20 に示す。100 で制御を行なっていた中心ヒーターおよび70 で制御を行なって いた載荷板,循環水の加熱停止にともなって温度は低下した。そして,載荷板の加熱 停止後,約一週間で緩衝材試験体および模擬岩体ともに室温程度まで温度が低下した。 模擬岩体の間隙水圧の変化を図 3-21 に示す。加熱中の間隙水圧は,付録5 に示すよ うに大きく負の圧力を示していたが,中心ヒーターおよび載荷板の加熱を停止し,温 度が低下したことにより,深度相当の圧力水頭が計測された。このことから,加熱中 に負圧を示した原因として,間隙水圧計の零点の温度によるドリフト等,温度による 出力への影響と考えられる。

境界壁面に作用する膨潤応力の変化を図 3-22 に示す。中心ヒーターおよび載荷板の 加熱を停止し,温度が低下しても膨潤応力には大きな変化は見られず,膨潤応力は 0.5MPa 程度で推移していることが分かる。

図 3-23 は, ISFET 電極の pH 計で測定した循環水の pH, 図 3-24 は緩衝材間隙水の pH の変 化である。循環水の pH は,載荷板の加熱停止直後に一時的に変動するが,温度が室温ま で低下した時の pH は,試験期間中の pH と同等の値であった。一方,図 3-24 に示す緩衝 材間隙水の pH については,温度低下とともに上昇する傾向にある。緩衝材試験体の温度 が室温まで低下したときの pH は,ヒーター壁面より 55mmの場所で pH=9.8,ヒーター壁 面より 80mmの場所で pH=10.2 程度となっている。中心ヒーターおよび載荷板の加熱中の 緩衝材試験体の pH は,ヒーター壁面より 55mmの位置で pH=9.0 程度,ヒーター壁面 より 80mmの位置では pH=9.5 程度であることから,約 60 の温度低下により pH は 0.7 程度大きくなっている。

試験体の温度が室温程度まで低下した平成 15 年 12 月 16 日に,模擬岩体上部の循環 水を排出し,模擬処分孔より緩衝材試験体を抜き出した。そして, 10 段積み重ねた ドーナッツ状のベントナイトブロックをそれぞれ 1/4 に切断し,計 40 ヶのブロックに 分割した。本作業は,緩衝材試験体上部より実施し,1/4 に取り分けたブロックは, 水分の蒸発などにより状態が変化しないよう速やかに食品用フィルムで養生した。緩 衝材試験体の解体の様子を付録9に示す。そして,1/4 に取り分けたベントナイトブ ロックからサンプリングを行ない,含水比,間隙水のpH,固相および化学分析を実施



した。このうち,固相分析,化学分析の結果については,次報にて行なうものとする。



















3.2.2 緩衝材含水比および密度

緩衝材試験体の含水比および密度分布を求めるためにサンプリングを行なった。サン プリング位置は,図3-25に示すように,鉛直方向7断面,水平断面については,北お よび西の二方向とし,中心ヒーターと模擬岩体との境界の間で10分割とした。図中 のNo.5のプロックについては,上下のベントナイトプロックとのつなぎ目の影響を把 握するために,図中に示すように,つなぎ目部分を含むようサンプリングを行なった。 サンプリング数は計140である。

サンプリングした試料の含水比は,110 の炉乾燥法により求め,乾燥密度については,サンプリング試料が飽和しているものと仮定し,クニゲルV1の真密度を2700kg/m³,ケイ砂の真密度を2600kg/m³として求めた。含水比および乾燥密度の測定結果を表3-3に示す。

含水比および乾燥密度の測定結果を,中心ヒーターからの距離で整理し図 3-26 に示 す。これより,含水比については,中心ヒーター側から模擬岩体側にかけて大きくな っていることが分かる。中心ヒーター近傍の含水比はおおむね0.25 程度であり,これ は,緩衝材試験体の乾燥密度が1600kg/m³としたときの飽和含水比である。

一方,乾燥密度については,中心ヒーター近傍では,製作したベントナイトブロックの密度である1600kg/m³程度となっているが,模擬岩体近傍では,これよりも小さくなっている。これは,第2.4節で示したように,模擬岩体の孔径に比べて緩衝材試験体の直径を10mm小さく設定しており,緩衝材の膨潤により密度が低下したためと考えられる。そして,密度の低下により空隙率が上昇し,したがって含水比が大きくなっているものと考えられる。

図 3-26(a) に示すベントナイトブロック No.13 の乾燥密度は,他のブロックに比べ て小さくなっている。これは,図 3-1 に示したように,試験開始から約1ヶ月間にわ たって生じた緩衝材の膨出の影響と考えられる。

図 3-26(c)に示すベントナイトブロック No.5 については,GL-370mm,GL-415mm,GL-460mmからサンプリングを行ない,含水比および乾燥密度の比較を行った。 このうち,GL-370mmとGL-460mmについては,上下のベントナイトブロックとのつ なぎ目部分を含んだものである。しかしながら,含水比,乾燥密度ともに,つなぎ目 部分を含まないGL-415mmの場合と大きな差異はない結果であった。



図 3-25 含水比測定のためのサンプリング位置



図 3-26 サンプリングで得られた含水比分布(1/3)



図 3-26 サンプリングで得られた含水比分布(2/3)



図 3-26 サンプリングで得られた含水比分布(3/3)

| | | | 北ア | 「向 | | 西方向 | | | |
|----------------|----------|----------|----------|--------|----------------------|----------|----------|--------|----------------------|
| | ヒーター壁面から | サンプル湿潤重量 | サンプル乾燥重量 | 含水比 | 乾燥密度 | サンプル湿潤重量 | サンプル乾燥重量 | 含水比 | 乾燥密度 |
| | の距離[mm] | [g] | [g] | [-] | [kg/m ³] | [g] | [g] | [-] | [kg/m ³] |
| | 5 | 7.45 | 5.61 | 0.3281 | 1423 | 6.64 | 4.95 | 0.3414 | 1397 |
| | 15 | 11.32 | 8.46 | 0.3381 | 1403 | 6.28 | 4.70 | 0.3362 | 1407 |
|)]3 | 25 | 12.51 | 9.31 | 0.3438 | 1392 | 5.00 | 3.73 | 0.3405 | 1399 |
| Ъ. | 35 | 11.19 | 8.17 | 0.3697 | 1344 | 5.33 | 3.93 | 0.3562 | 1368 |
| N no | 45 | 11.02 | 7.84 | 0.4057 | 1282 | 6.42 | 4.64 | 0.3836 | 1319 |
| <u>ب</u> رو | 55 | 12.80 | 8.63 | 0.4833 | 1166 | 7.29 | 5.03 | 0.4493 | 1214 |
| L Q | 65 | 13.37 | 8.47 | 0.5786 | 1049 | 6.75 | 4.40 | 0.5341 | 1101 |
| $\Gamma \odot$ | 75 | 11.64 | 7.00 | 0.6630 | 964 | 4.89 | 2.97 | 0.6465 | 979 |
| | 85 | 7.77 | 4.75 | 0.6361 | 990 | 7.91 | 4.63 | 0.7084 | 923 |
| | 95 | | | | | | | | |
| | 5 | 12.09 | 9.70 | 0.2463 | 1611 | 12.17 | 9.84 | 0.2367 | 1636 |
| | 15 | 14.78 | 11.84 | 0.2482 | 1606 | 15.26 | 12.29 | 0.2416 | 1623 |
| 82 | 25 | 16.19 | 13.00 | 0.2453 | 1613 | 15.59 | 12.51 | 0.2461 | 1611 |
| Ч. | 35 | 17.71 | 14.18 | 0.2489 | 1604 | 17.38 | 13.95 | 0.2458 | 1612 |
| クト 15 | 45 | 18.97 | 14.97 | 0.2671 | 1558 | 16.40 | 13.02 | 0.2595 | 1577 |
| 20 | 55 | 18.56 | 14.66 | 0.2660 | 1561 | 18.59 | 14.71 | 0.2637 | 1567 |
| μ ^Ω | 65 | 23.10 | 18.11 | 0.2755 | 1538 | 19.63 | 15.46 | 0.2697 | 1552 |
| | 75 | 24.62 | 19.12 | 0.2876 | 1510 | 15.04 | 11.72 | 0.2832 | 1520 |
| | 85 | 27.24 | 20.71 | 0.3152 | 1450 | 19.83 | 15.14 | 0.3097 | 1462 |
| | 95 | 22.47 | 15.84 | 0.4185 | 1261 | 10.28 | 7.44 | 0.3815 | 1323 |

表 3-3 サンプリング試料の含水比測定結果(1/3)

.

| | | 北方向 | | | | 西方向 | | | |
|-------------|----------|----------|----------|--------|----------------------|----------|----------|--------|----------------------|
| | ヒーター壁面から | サンプル湿潤重量 | サンプル乾燥重量 | 含水比 | 乾燥密度 | サンプル湿潤重量 | サンプル乾燥重量 | 含水比 | 乾燥密度 |
| | の距離[mm] | [g] | [g] | [-] | [kg/m ³] | [g] | [g] | [-] | [kg/m ³] |
| | 5 | 5.88 | 4.61 | 0.2753 | 1539 | 10.69 | 8.48 | 0.2608 | 1574 |
| | 15 | 11.44 | 9.01 | 0.2696 | 1552 | 10.94 | 8.70 | 0.2576 | 1582 |
| 52 | 25 | 10.42 | 8.21 | 0.2691 | 1554 | 10.05 | 7.96 | 0.2627 | 1569 |
| <u></u> | 35 | 10.23 | 8.00 | 0.2786 | 1531 | 11.77 | 9.28 | 0.2685 | 1555 |
| 2 Ś | 45 | 12.98 | 10.12 | 0.2825 | 1522 | 9.76 | 7.62 | 0.2810 | 1525 |
| <u> </u> | 55 | 10.60 | 8.18 | 0.2957 | 1492 | 12.16 | 9.47 | 0.2842 | 1518 |
| ーれば | 65 | 10.95 | 8.42 | 0.3004 | 1482 | 10.66 | 8.15 | 0.3082 | 1465 |
| | 75 | 14.36 | 10.83 | 0.3259 | 1428 | 11.75 | 8.85 | 0.3279 | 1424 |
| | 85 | 11.94 | 8.74 | 0.3660 | 1350 | 13.83 | 10.07 | 0.3736 | 1337 |
| | 95 | 22.25 | 15.53 | 0.4326 | 1239 | 13.755 | 9.515 | 0.4456 | 1219 |
| | 5 | 8.39 | 6.57 | 0.2771 | 1535 | 11.08 | 8.72 | 0.2705 | 1550 |
| | 15 | 16.65 | 13.14 | 0.2672 | 1558 | 10.26 | 8.09 | 0.2681 | 1556 |
| - <u>5</u> | 25 | 10.39 | 8.16 | 0.2734 | 1543 | 9.41 | 7.45 | 0.2629 | 1569 |
| 9 E | 35 | 15.82 | 12.42 | 0.2738 | 1542 | 11.93 | 9.37 | 0.2731 | 1544 |
| 15 | 45 | 16.26 | 12.62 | 0.2885 | 1508 | 11.25 | 8.73 | 0.2885 | 1508 |
| | 55 | 13.47 | 10.36 | 0.3003 | 1482 | 12.58 | 9.65 | 0.3035 | 1475 |
| 1 20 | 65 | 13.40 | 10.18 | 0.3164 | 1447 | 11.18 | 8.52 | 0.3121 | 1456 |
| | 75 | 19.03 | 14.23 | 0.3374 | 1405 | 12.02 | 9.02 | 0.3324 | 1414 |
| | 85 | 14.48 | 10.62 | 0.3635 | 1355 | 14.63 | 10.59 | 0.3813 | 1323 |
| | 95 | 26.04 | 18.21 | 0.4300 | 1243 | 13.60 | 9.47 | 0.4359 | 1234 |
| | 5 | 11.64 | 9.07 | 0.2835 | 1520 | 11.58 | 9.05 | 0.2797 | 1528 |
| | 15 | 17.83 | 14.01 | 0.2728 | 1545 | 11.77 | 9.25 | 0.2726 | 1545 |
| <u> </u> | 25 | 17.16 | 13.44 | 0.2769 | 1535 | 10.69 | 8.39 | 0.2743 | 1541 |
| No. | 35 | 16.30 | 12.64 | 0.2897 | 1506 | 15.32 | 11.94 | 0.2832 | 1520 |
| <u>v</u> 09 | 45 | 19.40 | 14.91 | 0.3012 | 1480 | 12.88 | 9.95 | 0.2946 | 1494 |
| | 55 | 11.92 | 9.12 | 0.3072 | 1467 | 13.40 | 10.34 | 0.2961 | 1491 |
| | 65 | 19.74 | 14.78 | 0.3357 | 1408 | 16.08 | 12.26 | 0.3117 | 1457 |
| Ŭ | 75 | 17.73 | 13.01 | 0.3629 | 1356 | 14.12 | 10.62 | 0.3297 | 1420 |
| | 85 | 18.81 | 13.36 | 0.4081 | 1278 | 14.72 | 10.74 | 0.3707 | 1342 |
| | 95 | 21.38 | 14.51 | 0.4736 | 1179 | 29.49 | 20.61 | 0.4310 | 1241 |

表 3-3 サンプリング試料の含水比測定結果(2/3)

.

| | | 北方向 | | | | 西方向 | | | |
|--------------|----------|----------|----------|--------|----------------------|----------|----------|--------|----------------------|
| | ヒーター壁面から | サンプル湿潤重量 | サンプル乾燥重量 | 含水比 | 乾燥密度 | サンプル湿潤重量 | サンプル乾燥重量 | 含水比 | 乾燥密度 |
| | の距離[mm] | [g] | [g] | [-] | [kg/m ³] | [g] | [g] | [-] | [kg/m ³] |
| | 5 | 14.42 | 11.40 | 0.2649 | 1564 | 9.05 | 7.16 | 0.2640 | 1566 |
| | 15 | 14.65 | 11.62 | 0.2608 | 1574 | 11.40 | 9.04 | 0.2611 | 1573 |
| N (C | 25 | 14.80 | 11.70 | 0.2650 | 1564 | 12.20 | 9.67 | 0.2616 | 1572 |
| ο Γ | 35 | 16.34 | 12.85 | 0.2716 | 1548 | 12.78 | 10.15 | 0.2591 | 1578 |
| 15 | 45 | 14.57 | 11.41 | 0.2770 | 1535 | 13.88 | 10.93 | 0.2699 | 1552 |
| <u>ہ</u> ۔ | 55 | 16.07 | 12.49 | 0.2866 | 1512 | 13.42 | 10.51 | 0.2769 | 1535 |
| <u>т</u> ы | 65 | 17.40 | 13.38 | 0.3004 | 1482 | 13.78 | 10.66 | 0.2927 | 1499 |
| | 75 | 15.71 | 11.93 | 0.3168 | 1446 | 12.13 | 9.23 | 0.3142 | 1452 |
| | 85 | 16.48 | 12.21 | 0.3497 | 1381 | 12.14 | 9.02 | 0.3459 | 1388 |
| | 95 | 20.41 | 14.27 | 0.4303 | 1243 | 15.71 | 10.89 | 0.4426 | 1224 |
| | 5 | 7.59 | 5.83 | 0.3019 | 1478 | 7.15 | 5.60 | 0.2768 | 1535 |
| | 15 | 7.18 | 5.68 | 0.2641 | 1566 | 6.68 | 5.28 | 0.2652 | 1563 |
| <u> </u> | 25 | 7.86 | 6.22 | 0.2637 | 1567 | 5.50 | 4.36 | 0.2615 | 1572 |
| o E | 35 | 7.66 | 6.05 | 0.2661 | 1561 | 6.89 | 5.47 | 0.2596 | 1577 |
| 25 25 | 45 | 5.58 | 4.40 | 0.2682 | 1556 | 7.76 | 6.12 | 0.2680 | 1556 |
| ブロッ (GL-9 | 55 | 7.00 | 5.49 | 0.2750 | 1539 | 7.45 | 5.88 | 0.2670 | 1559 |
| | 65 | 6.91 | 5.44 | 0.2702 | 1551 | 8.49 | 6.66 | 0.2748 | 1540 |
| | 75 | 8.29 | 6.47 | 0.2813 | 1525 | 8.57 | 6.69 | 0.2810 | 1525 |
| | 85 | 7.27 | 5.67 | 0.2822 | 1523 | 8.63 | 6.67 | 0.2939 | 1496 |
| | 95 | 6.17 | 4.71 | 0.3100 | 1461 | 7.83 | 5.84 | 0.3408 | 1398 |

表 3-3 サンプリング試料の含水比測定結果(3/3)

3.2.3 緩衝材間隙水の pH 測定

解体した緩衝材試験体に対して, ISFET 電極 pH 計および pH 試験紙を用いて緩衝材 間隙水の pH 計測を実施した。

ISFET 電極 pH 計による測定には,プローブ形状およびプローブの直径が異なる2種 類のタイプを使用した。このうちの一つは,連成試験で使用したプローブ直径 8mm の pH 計である(図 2-9 参照)。もう一方は,図 3-27 に示すように,プローブ直径が 4mmの ISFET 電極の pH 計であり,土壌に突刺した際のセンサー部の破損を防止する ため,プローブの側面に感知部を有する形状となっている。それ以外の測定範囲など 両者の仕様は同じである。ISFET 電極 pH 計による pH の計測箇所は,図 3-28 に示す ように,おおよそ GL-0,-215,-415,-715,-900mmの5 断面であり,緩衝材試験 体の北および西の二方向とした。そして,プローブ直径 4mmの ISFET 電極 pH 計で は,廃棄体を模擬した中心ヒーター壁面より 10,30,50,70,90mmの5 点,プロ ーブ直径 8mmの pH 計では,中心ヒーター壁面より 20,50,80mmの3 点とし,ISFET 電極 pH 計のプローブをサンプリング試料に突刺して測定を行なった。本測定は,緩 衝材試験体の解体・サンプリング直後に大気下,室温にて実施した。

また, pH 試験紙による測定では, サンプリング試料をプレス機で圧縮し, 間隙水を 圧密排水させることにより pH 試験紙に含浸させ発色させる方法で実施した(磯貝ほ か, 2000)。pH 試験紙には, 付録2 で記述した測定領域が pH=7.5~9.5 のものを使用 し,サンプリング試料と pH 試験紙の間には,孔径 1 µ mのテフロンフィルターおよ び孔径0.1µmのメンブランフィルターを挟み込んで測定を行なった。本測定は,サ ンプリング試料をプレス機にセットするための成型など準備に時間がかかるため,緩 衝材の解体後,速やかに測定することができない。このため,大気の影響によって緩 衝材間隙水の pH が変化する可能性があることから,サンプリング試料を直ちにアル ゴンガスで雰囲気を制御しているグローブボックス内(酸素濃度 1ppm 以下)に搬入 し保管した。そして, pH 試験紙による測定も, この雰囲気制御グローブボックス内 にて実施した。pHの判定は,あらかじめ pHが既知の溶液で pH 試験紙を発色させた 色見本を作製し,これとの比較により行なった。pH 試験紙による計測箇所は, ISFET 電極 pH 計と同様に,おおよそ GL-0,-215,-415,-715,-900mmの5 断面とし,緩 衝材試験体の南南西方向,廃棄体を模擬した中心ヒーター壁面より,おおよそ10, 40,70mmの3点とした。なお,サンプリング試料の外表面は,雰囲気制御グローブ ボックス内に搬入するまでの間に大気と接触し pH が変化している可能性があるため, 表面を約10mm程度削ぎ落として測定面とした。

ISFET 電極 pH 計および pH 試験紙によるサンプリング試料の pH 測定結果を表 3-4 にまとめて示す。

測定された pH を,廃棄体を模擬した中心ヒーター壁面からの距離で整理したものを 図 3-29 に示す。これより,二種類の ISFET 電極 pH 計および pH 試験紙での測定値に 大きな差異がないこと,また,緩衝材試験体の北方向,西方向,南南西方向での測定 値にも大きな差異がないことが分かる。

そして,サンプリング試料から得られた緩衝材間隙水のpHは,廃棄体を模擬したヒ ーター壁面に近い部分ではpH=7.0~8.5 程度,模擬岩体に近い部分では,pH=9.0~ 10.5 程度となっており,模擬岩体に近いほどpHは大きくなっていることが分かる。 これは,3.1.7項で示したように,連成期間中の測定結果と同じ傾向であり,模 擬岩体に近い部分では,浸潤する約pH=10の溶液の影響をより大きく受けていること や,ベントナイトと水との反応時間が長いこと,あるいは,緩衝材試験中には温度勾 配が形成されていることから,ベントナイト-水反応への温度による影響などが考え られる。

また,深度方向のpHの分布に着目すると,廃棄体を模擬した中心ヒーター近傍での pH に大きな違いはないが,模擬岩体近傍では,緩衝材試験体の上部に比べて下部の pH が大きくなっていることが分かる。この理由の一つとして,緩衝材試験体に浸潤 する模擬岩体との反応溶液のpH が上部に比べて高いためと考えられる。模擬岩体の 下部は,大気と接触した循環水の交換がより少ないことが反応溶液のpH を大きくし ている要因の一つと考えられる。

サンプリング試料から得られた pH と,図 3-24 で示した連成試験終了後,試験体が 室温まで低下した時に計測した値とを比較すると,連成試験終了後にプローブ直径8 mmの ISFET 電極の pH 計によって得られた緩衝材間隙水の pH は,中心ヒーター壁面 より 55mmの場所で pH=9.7 程度,ヒーター壁面より 80mmの場所で pH=10.2 程度と なっており,サンプリング試料から得られた pH と同程度の値であることが分かる。


(a) 全体像



(b)プローブ先端





図 3-28 サンプリング試料の pH 測定点



図 3-29 サンプリング試料の pH 測定結果

| | ヒーター 辟面 | 北方向 西方向 西方向 | | | | | 南南西方 | 「向 | | | |
|---|--|---|--|---|---|--|--|--|---|--|--|
| | からの距離 | ISFE1電極pH計 | | | | pH試験 | 紙 | | | | |
| | [mm] | | <u> 1</u> 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 | | <u> 1</u> 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 | | <u> 1</u> 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 | | <u>且住8mm</u> 迫度[1] | nH | 20 (1) |
| | 10 | 8.55 | 16.80 | pri | | 7.98 | 16.70 | pri | | 7.5 ~ 8.0 | 26.5 |
| n) 3.13 | 20 | | | 8.19 | 13.90 | | | 7.86 | 13.70 | <u></u> | |
| | 30 | 8.73 | 16.70 | | | 7.99 | 16.80 | | | | |
| NC mo | 40 | 0.70 | 10.70 | 0.50 | 10.00 | 0.40 | 10.70 | 0.00 | 40.70 | 8.0 | 22.6 |
| ا_ 3 | 50 60 | 8.70 | 16.70 | 8.53 | 13.80 | 8.42 | 16.70 | 8.32 | 13.70 | | |
| μŌ | 70 | 9.10 | 16.60 | | | 9.40 | 16.70 | | | 8.5 | 23.5 |
| | 80 | | | 8.72 | 13.90 | | | 9.17 | 13.70 | | |
| | 90 | 9.11 | 16.70 | | | 9.28 | 16.70 | | | | |
| | 10 | 7.91 | 13.20 | 7.60 | 14.40 | 7.42 | 18.40 | 7 05 | 14 50 | 8.0 | 23.0 |
| ∞, | 20 | 7.37 | 13 30 | 7.02 | 14.40 | 7 78 | 18 40 | CO. 1 | 14.50 | | |
| No. | 40 | 1.01 | 10.00 | | | 1.10 | 10.40 | | | 8.0 | 22.9 |
| ック 215 | 50 | 7.46 | 13.60 | 7.78 | 14.30 | 8.10 | 18.50 | 7.75 | 14.30 | | |
| Ľ, | 60 | 0.05 | 40.50 | | | 0.07 | 40.50 | | | 0.05/ 0.405) | 00.0 |
| пõ | 70 | 8.05 | 13.50 | 8 36 | 14.20 | 8.27 | 18.50 | Q / 2 | 1/ 20 | 8.25(±0.125) | 22.9 |
| | 90 | 8.84 | 13.40 | 0.50 | 14.20 | 8.92 | 18.50 | 0.42 | 14.50 | | |
| | 10 | 8.65 | 18.20 | | | 7.82 | 18.40 | | | 7.5 ~ <u>8.0</u> | 21.8 |
| | 20 | | | 7.99 | 14.60 | | | 7.92 | 14.60 | | |
| 0.5 J | 30 | 8.51 | 18.30 | | | 8.62 | 18.30 | | | | 00.4 |
| 4N 15Γ | 40 50 | 9 1 9 | 18 20 | 8 37 | 14 50 | 9.65 | 18 30 | 8.05 | 14 60 | <u>8.0</u> ~ 8.5 | 22.1 |
| <u>п</u> 24 | 60 | 5.15 | 10.20 | 0.57 | 14.50 | 5.00 | 10.50 | 0.00 | 14.00 | | |
| ъŌ | 70 | 9.90 | 18.20 | | | 9.88 | 18.40 | | | 8.0 ~ <u>8.5</u> | 22.0 |
| | 80 | 40.45 | 10.00 | 9.21 | 14.60 | 10.10 | 10.00 | 8.92 | 14.70 | | |
| | 90 | 10.45 | 18.20 | | | 10.16 | 18.30 | | | 775(+ 0425) | 22.6 |
| | 20 | 7.55 | 10.00 | 8 27 | 14 90 | 1.12 | 10.00 | 8 28 | 15.00 | $7.75(\pm 0.125)$ | 22.0 |
| Ω.Έ | 30 | 7.67 | 18.60 | 0.21 | 1 1.00 | 7.70 | 18.70 | 0.20 | 10.00 | | |
| 2Nc 5m | 40 | | | | | | | | | <u>8.0</u> ~ 8.5 | 22.7 |
| 21- | 50 | 7.98 | 18.60 | 8.59 | 14.90 | 7.96 | 18.70 | 8.49 | 15.00 | | |
| ĽО | 60 70 | 8 50 | 18.60 | | | 8 60 | 18.60 | | | 75~80 | 22.7 |
| | 80 | 0.59 | 10.00 | 9.65 | 15.10 | 0.00 | 10.00 | 9.70 | 15.10 | 7.5 ** <u>6.0</u> | 22.1 |
| | 90 | 9.53 | 18.70 | | | 9.53 | 18.60 | | | | |
| | 10 | 7.71 | 17.90 | | | 7.11 | 17.60 | | | <u>7.5</u> ~ 8.0 | 22.2 |
| ~ 2 | 20 | 7.50 | 40.00 | 7.96 | 15.10 | 0.00 | 47.70 | 8.33 | 15.50 | | |
| D.1 | 30 | 7.58 | 18.00 | | | 8.36 | 17.70 | | | 80~85 | 21.0 |
| 2N 000 | 40 50 | 8.24 | 18.00 | 8.83 | 15.10 | 9.00 | 17.70 | 8.51 | 15.40 | <u>0.0</u> 0.5 | 21.5 |
| <u>ہ</u> ت | 60 | | | | | | | | | | |
| 170 | 70 | 9.22 | 18.00 | 10.05 | 47.00 | 10.31 | 17.80 | | 45.00 | <u>9.0</u> ~ 9.5 | 22.0 |
| | 9 0 | | | 10.00 | 15.20 | | | 9.89 | 15.30 | | |
| プロックNo.12 プロックNo.2 プ (GL-900mm) (GL-715mm) (G) | 70 80 90 10 20 30 40 50 60 70 80 90 10 20 30 40 50 60 70 80 90 | 9.90 <u>10.45</u> 7.55 7.67 7.98 8.59 <u>9.53</u> 7.71 7.58 8.24 9.22 | 18.20 18.60 18.60 18.60 18.60 18.60 18.00 18.00 18.00 18.00 | 9.21 8.27 8.59 9.65 7.96 8.83 10.00 | 14.60 14.90 14.90 15.10 15.10 15.10 15.20 | 9.88 <u>10.16</u> 7.12 7.70 7.96 8.60 <u>9.53</u> 7.11 8.36 9.00 10.31 | 18.40 18.30 18.60 18.70 18.60 18.60 17.60 17.70 17.70 17.80 | 8.92 8.28 8.49 9.70 8.33 8.51 9.89 | 14.70 15.00 15.00 15.10 15.50 15.40 15.30 | $8.0 \sim \underline{8.5}$ 7.75 (± 0.125) $\underline{8.0} \sim 8.5$ 7.5 ~ <u>8.0</u> $\overline{7.5} \sim 8.0$ $\underline{8.0} \sim 8.5$ $\underline{9.0} \sim 9.5$ | 22.0 22.6 22.7 22.7 22.2 21.9 22.0 |

表 3-4 サンプリング試料の pH 測定結果

pH 試験紙による測定では, pH が 0.5 の間隔で色見本を作製し, これとの比較により判定して いる。表中の二重下腺は, 色見本と比較したとき, 例えば, <u>7.5</u>~8.0 の場合,間隙水 pH は 7.5 ~8.0 の間と考えられ,より 7.5 に近いという意味である。この場合の間隙水 pH は, 7.5 より大 きく 7.75 未満と判断し,図 3-29 中では pH=7.625 (±0.125)として表示した。

また,表中の(±0.125)の表記は,発色の程度が,例えば pH=8.0 と pH=8.5 の丁度中間という意味であり,図 3-29 中では pH=7.75(±0.125)として表示している。

3.2.4 模擬岩体との反応溶液の化学組成

試験期間中,模擬岩体との反応溶液である模擬岩体上部の循環水のサンプリングを1 回/月の頻度で実施した。また,試験終了後には,模擬岩体中の注水孔内の水を,さら に,模擬岩体より緩衝材試験体を取り出した後に,模擬処分孔内の水のサンプリング を行なった。そして,これらサンプリング試料の成分分析を行なった。分析の対象と した成分および分析方法は下表の通りである。

| 成分 | 分析方法 | | | | |
|--------------------|---------------------|--|--|--|--|
| AI,Ca,Mg,Si | ICP 発光分光分析法 | | | | |
| S042- | イオンクロマトグラフ法 | | | | |
| Na,K | 原子吸光分析法 | | | | |
| HCO ₃ - | 焼酸化-赤外線分析法で無機炭素定量後, | | | | |
| | 溶液 pH から換算により算出 | | | | |

表 3-5 模擬岩体との反応溶液の分析成分と分析方法

成分分析の結果を表 3-6 に示す。岩体上部の循環水,および注水孔内の水については, 試験を開始する直前の 2003/6/2 から,試験終了の 2003/12/15 の約 6 ヶ月間で, Na, Si, S04²⁻の各成分の濃度が上昇傾向を示している。これら成分の濃度は,特に,緩衝 材の膨出を抑制するまでの 2 ヶ月間での上昇率が大きいことから,膨出したベントナ イトが溶液組成に影響を与えた可能性が考えられる。

模擬岩体より緩衝材試験体を抜き出した後の模擬処分孔内に溜まった水の pH は 7.4 であり,岩体上部の循環水および注水孔内の水に比べて pH が低い結果となっている。 模擬処分孔内から採取した水は,緩衝材試験体と接触していたものと考えられ,ベン トナイトの化学的緩衝能力の影響により,他の部分よりも pH が低くなっているものと 考えられる。

| サンプリング場所 | サンプリング日時 | Na | Ca | Si | AI | Mg | K | S042- | HCO3- | 備考 |
|--------------|------------|-----|------|------|------|------|-----|-------|----------------------|----------|
| | 2003/06/02 | 106 | 1.10 | 23.4 | 2.51 | 0.05 | 176 | 37.1 | 128[pH=10.3(24.9)] | 連成試験開始直前 |
| | 2003/06/25 | 151 | 1.74 | 59.7 | 3.89 | 0.25 | 215 | 75.6 | 83.4[pH=10.6(25.0)] | |
| | 2003/07/24 | 189 | 1.68 | 72.5 | 3.55 | 0.54 | 210 | 94.9 | 514[pH=9.2(22.9)] | 緩衝材膨出対策前 |
| | 2003/07/29 | 200 | 2.37 | 78.7 | 6.21 | 1.06 | 217 | 105 | 584[pH=8.9(22.9)] | 緩衝材膨出対策後 |
| 出たし如の領導地 | 2003/08/29 | 222 | 2.08 | 93.2 | 5.43 | 0.98 | 218 | 118 | 400[pH=9.7(22.3)] | |
| 白仲工即以相域小 | 2003/09/29 | 238 | 1.93 | 101 | 5.24 | 0.93 | 220 | 126 | 328[pH=9.9(23.0)] | |
| | 2003/10/31 | 255 | 1.88 | 97.0 | 2.95 | 0.42 | 223 | 145 | 423[pH=9.6(17.7)] | |
| | 2003/11/28 | 262 | 1.81 | 99.5 | 2.89 | 0.38 | 218 | 163 | 361[pH=9.8(17.6)] | |
| | 2003/12/08 | 266 | 1.77 | 95.5 | 1.82 | 0.16 | 225 | 170 | 354[pH=9.8(17.9)] | |
| | 2003/12/15 | 274 | 2.04 | 74.3 | 1.47 | 0.10 | 205 | 170 | 551[pH=9.3(17.8)] | 解体直前 |
| 注水孔内の水 | 2003/12/15 | 270 | 2.11 | 72.5 | 1.75 | 0.16 | 207 | 170 | 561[pH=9.2(17.9)] | 解体直前 |
| ノエリトラレドヨマノリト | | | | | | | | | | |

1.65 0.15

0.09 2.08

1.79

0.17

204

288

414

170

614

705

表 3-6 模擬岩体との反応溶液の成分分析結果

2.04

238

217

270

731

1090

2003/12/15

2003/12/16

2003/12/17

模擬処分孔内の水

72.1

24.9

31.1

単位:mg/l

561[pH=9.2(17.9)]

304[pH=7.4(17.9)]

318[pH=7.4(18.0)]

解体直前

緩衝材試験体撤去直後

緩衝材試験体撤去一日後

.

3.3 まとめ

試験は,廃棄体を模擬したヒーター内の伝熱用オイルの温度を100 ,また,模擬岩体境界温度を70 に固定するために,載荷板および岩体上部の循環水の温度を70 に設定して実施した。試験期間中の停電や室温の季節変動もあったが,温度固定の境界条件を保つことができた。そして,緩衝材中の温度勾配については,緩衝材試験体中に設置した熱電対により,廃棄体を模擬したヒーター壁面近傍で90 程度,模擬岩体との境界部分で約80 程度と計測されており,1 /cm程度の温度勾配を実現することができ,試験設備として満足できるものであった。

一方,緩衝材試験体と模擬岩体とのすき間の影響および緩衝材の膨出により,緩衝材の密度が若干低下した。このような密度低下は,連成現象をより複雑にする可能性があることから極力避けなければならないと考える。

試験体中に埋設したセンサーの稼動率については,表3-1に示した通りであり,熱電対については,高い稼働率と信頼性のある計測結果が得られている。

間隙水圧計については,温度の影響による零点のドリフトにより,また,土圧計については,設置方法が適切ではなかったと考えられる理由により計測不能あるいは信頼性のある計測結果が得られなかった。

サイクロメータについては,中心ヒーター近傍で温度勾配による水分移動のためー 時的に含水比が低下する現象が計測されたが,計測可能な範囲を超える領域まで含水 比が低下した可能性があることや,緩衝材が飽和したと考えられる理由により計測不 能となった。また,湿度計についても,温度勾配によって一時的に含水比が低下する 現象が計測され,この時の値は,サイクロメータで計測されたものと同等であった。 しかしながら,その後の模擬岩体側からの水の浸潤による含水比の上昇を捉えること ができず,サイクロメータの計測範囲を補うためのセンサーとして十分に機能したと は言えない。湿度計の含水比に対する計測範囲の狭さが明らかとなった。

今回, pH 計による緩衝材間隙水の pH の計測を試みた。pH 計には,ガラス電極および ISFET 電極の pH 計を使用した。このうち 緩衝材中に埋設したガラス電極 pH 計は, 緩衝材のサクションによる KCI 溶液の欠乏と考えられる理由により,4ヶ月程度で計 測不能となっており,この間に得られたデータの信頼性も低い。一方,ISFET 電極の pH 計については,連成期間中の緩衝材間隙水の pH の時間的な変遷および試験終了後 のサンプリング試料から空間分布に関する知見を得ることができたが,本 pH 計の圧 縮ベントナイトに対しての適応性について,さらに検討を行なう必要があると考える。 4.緩衝材再冠水挙動に関する予察解析

4.1 連成モデルの概要

熱-水-応力連成モデル/解析コードの開発は,国際共同研究 DECOVALEX(大西ほか,2002)等を通じて,緩衝材中最高温度,緩衝材再冠水時間,処分坑道および 処分孔の掘削から緩衝材再冠水の間の力学的安定性に関して現象に立脚した評 価を目指し,その成果を「第2次取りまとめ」の再冠水時の人工バリア挙動評価 に反映している(サイクル機構,1999)。

しかしながら,オーバーパックの腐食や核種移行の重要な環境条件となる緩衝 材/間隙水組成の時間的/空間的変遷の把握や,人工バリアを中心とした化学的 変遷を考慮したニアフィールド長期健全性評価のためには,図4-1の概念モデル に示す個別現象間の相互作用を考慮する必要がある。このため,個別現象間の相 互作用および熱-水-応力連成モデル(図 4-1 中の破線内部),物質移行モデル, 地球化学モデルの構成方程式,支配方程式を基に,熱-水-応力-化学連成モデル の開発が行なわれている(伊藤ほか,2003)。本モデルは,表4-1,4-2に示すよ うに,熱移動,水分移動,応力変形,化学現象(物質移行,地球化学反応)につ いて,温度T,圧力水頭(水分ポテンシャル)w,変位ui,親化学種の総溶解濃度 C<n>, 親化学種の総濃度 T<n>を未知数とした支配方程式系である。なお,鉱物相 の溶解 / 沈殿および水溶性化学種の詳細組成は,地球化学反応の支配方程式群か ら導出可能となっている。また,連成モデルの支配方程式系から,熱-水-応力-化学連成挙動に係わる物性値の相互依存性について、緩衝材に関する既存の知見 およびデータの取りまとめを行なっている。すなわち,熱移動特性として熱伝導 率,比熱,水分移動特性として固有透過度,水分特性曲線,水分勾配水分拡散係 数,温度勾配水分拡散係数,応力変形特性として弾性係数,膨潤応力,化学現象 特性として化学反応の平衡定数,化学種の拡散係数を取り上げ,各々の温度依存 性,含水比依存性,乾燥密度依存性,化学条件依存性の整理を実施している。一 方,熱-水-応力-化学連成解析コード開発に際しては, 地球化学モデル導入に 伴う複雑な連成解析に対応可能な解析体系の構築, 地質環境条件や人工バリア 仕様に応じた連成挙動に柔軟に対応可能な解析体系の構築が肝要と考え,柔軟な 連成解析体系を実現する連成解析コード開発基盤を活用し,既存コードをベース とした熱-水-応力-化学連成解析コードの開発を進めている。連成解析コードは, 図 4-2 に示すように , 熱-水-応力連成解析コード THAMES , 物質移行解析コード Dtransu,地球化学解析コード PHREEQE の3つの解析コードを制御するプロセス 管理プログラムと、各解析コード間で連成対象変数の授受を行う共有メモリ管理 プログラムからなる。連成解析を実現するために必要な手続きは、各解析コード 中の連成解析用コマンド記述,連成挙動に係わる物性値の相互依存性等を定義す る物性・連成モジュール作成,連成対象変数を定義する共有メモリ管理プログラ

ムの入力データ作成,連成解析のプロセス(シーケンス)を定義するプロセス管 理プログラムの入力データ作成となっており,連成解析コード開発の作業効率を 大きく向上させるものである(伊藤ほか,2003)。



図 4-1 熱-水-応力-化学連成挙動の概念モデル



図 4-2 熱-水-応力-化学連成解析コードの概要

| 1)熱移動の支配方程式 |
|--|
| $\frac{\partial}{\partial x_i} \left(\rho_i C_i q_i T \right) - \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\lambda_m \frac{\partial T}{\partial x_i} \right) + \frac{\partial}{\partial t} \left(\rho_m C_m T \right) = 0$ |
| 2)水分移動の支配方程式 |
| $-\frac{\partial}{\partial x_i}\left\{\xi\rho_i D_\theta \frac{\partial \theta}{\partial x_i} + (1-\xi)\frac{\rho_i^2 gK}{\mu_i}\frac{\partial(\psi+z)}{\partial x_i} + \rho_i D_T \frac{\partial T}{\partial x_i}\right\} + \frac{\partial}{\partial t}(\rho_i nS) = 0$ |
| 3)応力変形の支配方程式 |
| $\frac{\partial}{\partial x_j} \left\{ \frac{1}{2} C_{ijll} \left(\frac{\partial u_k}{\partial x_l} + \frac{\partial u_l}{\partial x_k} \right) - \pi^* \delta_{ij} - \frac{E}{1 - 2\nu} \delta_{ij} \alpha_s (T - T_0) + \chi \delta_{ij} \rho_l g \psi \right\} + \rho_m b_i = 0$ |
| 4)化学現象(物質移行,地球化学反応)の支配方程式 |
| 4-1)物質移行の支配方程式 |
| (n番目親化学種の質量保存の式) |
| $\frac{\partial}{\partial x_i} \left(\rho_i q_i C_{\langle n \rangle} \right) - \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\rho_i n S D_{ij} \frac{\partial C_{\langle n \rangle}}{\partial x_j} \right) + \frac{\partial}{\partial t} \left(\rho_i n S T_{\langle n \rangle} \right) = 0$ |
| 4-2)地球化学反応の支配方程式(平衡モデル) |
| 4 - 2 - 1) 電気的中性の式 |
| $\sum_{a=1}^{A} (z_a m_a) = 0$ |
| 4 - 2 - 2) 電子保存の式 |
| $\sum_{a=1}^{A} (v_a m_a) = OPV + \sum_{p=1}^{P} (u_p MIN_p)$ |
| 4 - 2 - 3)質量保存の式 |
| (n番目親化学種の質量保存の式) |
| $C_{(n)} = \sum_{a=1}^{A} (c_{a,n}m_a), C_{(n)} = T_{(n)} + \sum_{p=1}^{P} (b_{p,n}MIN_p)$ |
| 4-2-4)固相の質量作用の式 |
| (p番目鉱物相の質量作用の式) |
| $\sum_{n=1}^{N} \left\langle b_{p,n} \log(a_n) \right\rangle = \log(K_p)$ |
| 4-2-5)水溶性化学種の質量作用の式 |
| (親化学種を除くa番目水溶性化学種の質量作用の式) |
| $\log(a_a) = \log(K_a) + \sum_{n=1}^{\infty} \left\{ c_{a,n} \log(a_n) \right\}$ |

表 4-1 熱-水-応力-化学連成モデルの支配方程式系

液相密度 ρ_l C_l 液相比熱 液相ダルシー流速 q_{l} 温度 Т λ_m 媒体熱伝導率 ho_{m} 媒体密度 C_m 媒体比熱 不飽和パラメータ:飽和領域で 5=0,不飽和領域で 5=1 ξ D_{θ} 水分勾配水分拡散係数 体積含水率 θ 重力加速度 8 固有透過度(絶対浸透率) K 液相粘性係数 μ_l 圧力水頭(水分ポテンシャル) ψ 位置水頭 7 D_T 温度勾配水分拡散係数 間隙率 п 飽和度 S C_{ijkl} 弾性マトリクス u_i 変位 膨潤応力に寄与する膨潤圧 π クロネッカデルタ δ_{ii} ヤング率 Ε ポアソン比 v 固相の熱線膨張係数 α_{s} 初期温度 T_0 有効応力に関するパラメータ χ b_i 物体力 $C_{\langle n \rangle}$ ∨番目親化学種の総溶解濃度 D_{ii} 分散テンソル $T_{\langle n \rangle}$ v番目親化学種の総濃度 水溶性化学種の総数 Α α番目水溶性化学種の電荷 Z_a α番目水溶性化学種の重量モル濃度 m_a α番目水溶性化学種の実効原子価 v. OPV 系の総実効原子価 鉱物相の総数 Р π番目鉱物相の実効原子価 u_p π番目鉱物相の溶解量 MIN α番目水溶性化学種に対するν番目親化学種の化学量論係数 $C_{a,n}$ $b_{p,n}$ π番目鉱物相に対するν番目親化学種の化学量論係数 Ν 親化学種の総数 a_n v番目親化学種の活量 K_p π番目鉱物相の質量作用の式に対する化学反応の平衡定数 a_a α番目水溶性化学種の活量 K_a α番目水溶性化学種の質量作用の式に対する化学反応の平衡定数

表 4-2 熱-水-応力-化学連成モデルの支配方程式中の記号一覧表

4.2 熱-水連成解析による緩衝材再冠水挙動の検討

ここでは,化学までを含めた熱-水-応力-化学連成解析を実施する前の予察解析として,熱-水連成解析により緩衝材の再冠水挙動について評価を行なった。この熱-水連成解析は,今後,COUPLE での連成試験結果について化学までを含めた連成解析を進めていく中で,解析領域の設定や境界条件および解析物性値の妥当性を確認するとともに,化学を含めた連成解析を行った場合に,化学反応が熱あるいは再冠水挙動にどのように影響するのかを定量的に把握する上で必要となる。

このようなことから,熱-水-応力連成解析コード THAMES(千々松ほか,1999b)を用 いて,熱と水との連成解析を実施し,COUPLE での連成試験で得られた温度分布および 緩衝材試験体中の水分分布との比較を行った。

4.2.1 解析条件

図 4-3 に解析メッシュ図を示す。解析領域は、COUPLE での連成試験に使用した試験 体の対象性を考慮して水平断面の 1/8, 垂直断面については深度-0.5m±0.05m とし, これを三次元にてモデル化した。

COUPLE の試験体を構成する材料はモデル中心より,

- 模擬廃棄体を構成する伝熱用オイル
- 模擬廃棄体を構成するステンレス製の容器

緩衝材試験体

緩衝材試験体と模擬岩体の間の隙間に充填したケイ砂

模擬岩体

である。解析に使用した物性値を表 4-3 に示す。模擬廃棄体を構成する伝熱用オイル およびステンレス製容器の部分については,水移動への影響が無視できるようにする ため,間隙比および固有透過度を小さく設定した。模擬岩体および模擬岩体と緩衝材 試験体との間の隙間に充填したケイ砂の熱物性は,模擬岩体と同一に設定した。緩衝 材試験体の熱伝導率 λ [W/m/K]および比熱 c [kJ/kg/K]は,含水比依存性がありそれぞ れ次式で表されている(鈴木ほか,1999c)。

$$\lambda = 4.44 \times 10^{-1} + 1.38 \times 10^{-2} \,\omega + 6.14 \times 10^{-3} \,\omega^2 - 1.69 \times 10^{-4} \,\omega^3 \quad (4-1)$$

 $c = (34.1 + 4.18\omega)/(100 + \omega)$ (4-2)

ここで,ωは含水比[%]である。

温度勾配による水分移動パラメータ D_T は次式で設定されている(千々松ほか,1999b)。

$$D_T = D_{T0} \exp(\alpha_T \frac{T - T_0}{T_0})$$
 (4-3)

ここで, D_{T0} は基準となる係数の値, T_0 は基準温度, α_T は温度に対する非線形性の度合いを調整するパラメータでスカラー量である。このうち, D_{T0} は7.0×10⁻⁸cm²/s/, α_T は0と温度勾配下の水分移動に関する実験結果より設定されている。 水分勾配による水分移動パラメータ D_{θ} は次式で表されている(鈴木ほか,1999a)。

$$D_{\theta} = \frac{a_1(\theta - \theta_s)}{(\theta - b_1)(b_1 - \theta_s)} + \frac{a_2\theta}{b_2(\theta - b_2)} \quad (4-4)$$

$$a_1 = 2.99 \times 10^{-8}T - 3.74 \times 10^{-7}$$

$$a_2 = -1.50 \times 10^{-8}T + 1.49 \times 10^{-7}$$

$$b_1 = -2.49 \times 10^{-3}$$

$$b_2 = 5.59 \times 10^{-4}T + 3.93 \times 10^{-1}$$

境界条件を図 4-4 に示す。廃棄体を模擬した中心ヒーターの壁面温度が約 90 であ ることから,オイル部分の温度を 90 に,載荷板と接する模擬岩体の外側を 70 の温 度固定境界とした。また,模擬岩体の注水孔には 70 の水が循環していると考えられ るため,この部分も 70 の温度固定境界とした。また,模擬岩体上部には,0.1mの水 位で水が循環していることから模擬岩体中は 0.6mの全水頭固定とした。

初期条件は,モデル全域において 20 ,緩衝材試験体の初期含水比を 13%とし,これに相当する初期水頭を与えた。



図 4-3 熱-水連成解析メッシュ図



図 4-4 熱-水連成解析ジオメトリ

| | 模擬廢 | 廃棄体 | 经活动 | | 模擬岩体 | |
|--------------|-----------------------|-----------------------|-----------------------|--------------------------|--------------------------|--|
| | 伝熱用 | フテント・フ | ☆ 12」 12」 | 5 号ケイ砂 | | |
| | オイル | | 百八间央 144 | | | |
| 乾燥密度[kg/m³] | 870 | 8000 | 1600 | 1300 | 1300 | |
| 間隙比 [-] | 0.0001 | 0.0001 | 0.675 | 0.852 | 0.852 | |
| 熱伝導率[₩/m/K] | 0.13 | 16.0 | 式(4-1) | 0.92 | 0.92 | |
| 比熱 [kJ/kg/K] | 2.00 | 0.50 | 式(4-2) | 1.67 | 1.67 | |
| 固有透過度 | 1.0×10 ⁻³⁰ | 1.0×10 ⁻³⁰ | 4.0×10 ⁻²⁰ | 1.70 × 10 ⁻¹⁶ | 1.70 × 10 ⁻¹⁶ | |
| 温度勾配水分移動 | | | + (1 2) | | | |
| パラメータ | パラメータ | | 10(4-3) | - | - | |
| 水分勾配水分移動 | | | ± (1 1) | | | |
| パラメータ | パラメータ | | IV (4-4) | - | - | |

表 4-3 熱-水連成解析に使用した各材料の物性値

4.2.2 解析結果

(1)温度

熱-水連成解析により求めた緩衝材試験体中の温度の経時変化を,廃棄体を模擬したヒーター壁面より,10mm,20mm,35mm,50mm,65mm,80mmのそれぞれの位置について,計測結果と比較し図4-5に示す。これより,熱電対による計測値については,試験期間中の停電および室温の季節変動の影響により温度が若干変動しているが,試験開始直後に温度が急激に上昇していることや,温度が定常となる時間など,解析結果との良い一致が見られる。

図 4-6 は,試験開始 10 日後,30 日後,60 日後,90 日後,120 日後,180 日後にお ける温度の空間的な分布について,計測値と解析結果を比較したものである。図中の 凡例は,熱電対の設置位置であり,緩衝材試験体における深度と方向を表している。 これより,計測値は,深度および方向により若干のバラツキが見られるが,全体的に 見たときのプロファイルは解析結果と一致しているといえる。計測値は,深度-500mm での温度が最も高くなっており,これは,前述したように,境界の影響が少ないため と考えられる。

図 4-7 は,熱-水連成解析によって求めた試験体中の温度の空間的な分布である。 これより,60 日後には,温度の伝播が終了し定常状態になることが分かる。これは, 3.1.1項の図 3-5 で示したように,計測によって得られた結果と同等の結果となっている。

本解析においては,式(4-1),式(4-2)に示すように,緩衝材試験体の熱物性を含 水比のみの関数として扱っている。しかしながら,3.2.2項にあるように,サン プリングによる密度の測定結果から,模擬岩体近傍の密度が低下していることが示さ れている。緩衝材の熱物性は,密度に依存すると考えられるため,さらに厳密な評価 が求められる場合には,緩衝材の密度変化を考慮した解析を実施する必要があり,そ のためには,熱物性の密度依存性を考慮したデータの整理が必要である。



図 4-5 温度経時変化の計測値と解析結果の比較



図 4-6 温度分布の計測値と解析結果の比較





(2)水分分布

熱-水応力連成解析により求めた緩衝材試験体中の含水比の経時変化の一例を図4-8 に示す。これより,廃棄体を模擬したヒーター壁面近傍では,温度勾配による水分移 動の影響により一時的に含水比が低下していることが分かる。また,模擬岩体に近い ほど飽和に達する時間が早くなっている。

サイクロメータにより計測された緩衝材試験体中の含水比の経時変化を解析結果と 比較して図 4-9 に示す。図中の計測値は,サイクロメータの構造および測定原理から, 含水比が低下し始めた時点でベントナイトが飽和したと考えられるため,ここでは, 含水比が最大値を示すまでの計測結果を表示している。これより,図4-9(a)およ び(b)に見られるように,ヒーター壁面近傍では解析結果に比べて計測値のほうが 含水比の低下が著しく,また,含水比が上昇に転じるまでの時間が長いことが分かる。 これは,試験に使用したサイクロメータの計測範囲を超えた領域まで含水比が低下し ていること,あるいは,解析で設定した温度勾配による水分移動パラメータが適当で はなかったことなどの要因が考えられる。

一方,模擬岩体に近い部分では,図4-9(d)および(e)に見られるように,解析 値は,飽和に至るまでの浸潤挙動を比較的良く再現していることが分かる。ただし, 計測値が一定となったときの値,すなわち飽和状態で計測される含水比は各センサー 間でのバラツキが大きくなっている。この理由としては,サイクロメータの測定精度 や計測された化学ポテンシャルを水分保持特性を介して含水比に換算していること, さらには,緩衝材の密度低下などの影響があげられる。







図 4-9 含水比の計測値と解析結果の比較

4.2.3 まとめ

熱-水-応力-化学連成解析を実施する前の予察解析として,境界条件や解析に用いる 物性の妥当性を確認することを目的に,熱と水の連成解析を実施し,実験結果との比 較を行った。

本検討から,化学反応に影響を与える温度場については,解析結果が実験結果を良 く再現することから,解析で設定した試験の境界条件および試験体の熱物性が概ね妥 当であるものと考えられる。

また,緩衝材中の水分移動については,模擬岩体に近い部分において,飽和に至る までの浸潤挙動が実験結果を良く再現する結果となっており,解析で設定した境界条 件および水分勾配水分移動パラメータの妥当性を示すものである。一方,廃棄体を模 擬したヒーター近傍については,解析結果と実験結果には差が見られた。この原因と して,サイクロメータの計測可能範囲および計測精度の問題と,解析で設定した温度 勾配水分移動パラメータの温度依存性の問題の両方が考えられる。現時点において, サイクロメータ法が緩衝材中の水分変化を計測できる唯一の方法である。今回の試験 条件は,サイクロメータ法の計測範囲を超える領域まで含水比が低下している可能性 があることから,ヒーター近傍での浸潤挙動については,解析で設定した物性値や境 界条件の妥当性を示すまでには至らなかった。

このようなことから,試験条件の見直しを行い,センサーの計測範囲が確保できる 条件で連成試験を行なっていく必要があると考える。また,測定精度を上げるべく, 配置するセンサー数の増加や,水分保持特性を介さないで含水比を求めることなどの 対策が必要であろう。

また,本解析では,緩衝材の密度低下を取り扱っていないため,密度低下にともな う緩衝材の熱物性および水理特性の変化が考慮されていない。緩衝材の密度低下を考 慮した解析を実施し,その影響について確認する方法もあろうが,現象がより複雑と なることから,次回の試験においては,緩衝材の膨出対策など,密度低下を極力抑え た条件で試験を行なう必要があろう。

今後は,連成試験終了後に行なった緩衝材サンプリング試料の化学分析や固相分析 の結果から,緩衝材中の温度や水分浸潤挙動に影響を与えうる化学反応を確認し,各 物性値の検討を通じて,化学現象を含めた連成解析に取り組んでいく予定である。

- 5.緩衝材/間隙水の化学的変遷に関する予察解析
- 5.1 地球化学解析によるモルタル反応溶液組成の検討
- 5.1.1 はじめに

熱-水-応力連成試験設備(以下,COUPLE と呼ぶ)での連成試験における模擬岩体(モ ルタル)間隙水および緩衝材(ベントナイト)間隙水の化学的特性は, pH 計による 計測と模擬岩体(モルタル)上部の循環水から採取した溶液の分析により測定された が,実測された化学的特性の確認には,地球化学計算コードを用いた計算が有効であ る。そのため,ベントナイトへ浸入する溶液組成をモルタル-水反応のモデル計算を 行うことにより求めた。

5.1.2 モルタル・水反応について

COUPLE では試験体中の水頭差が小さく,溶液は拡散の作用により動くと考えられ る。また,透水性については,モルタルは細骨材を豊富に含み,また発泡剤を添加し ているため高い値を示すのに対し,ベントナイトは圧密されており低い値を示す。よ って,比較的初期の段階でモルタル-水反応が生じ,その結果生成されるモルタル反応 水がベントナイトに浸潤するものと考えられる。このため,モルタル反応溶液はベン トナイト領域外側の化学組成についての境界条件を与えるものであり,その化学的特 性を把握することは重要である。COUPLE における模擬岩体(モルタル)は,セメン ト,細骨材および発泡剤で構成されており,細骨材および発泡剤は化学的に不活性で あると考えられるため,主にセメントの水和物と流入水における反応によりモルタル 反応水の化学的特性が決まると考えられる。よって,本解析では,試験で用いたモル タルに含まれるセメント水和物量を算出し,そのセメント水和物がモルタル間隙水と 反応するとして計算を行った。化学反応は平衡論を仮定し,二次鉱物として calcite を 仮定した。また,大気下での反応であるので,CO₂(g)の反応を考慮した。

5.1.3 模擬岩体(モルタル)組成

モルタル作製時の配合仕様は,以下の通りである。

単位体積当たりの配合重量比[kg/m³]

:水251/セメント193/細骨材1001/発泡剤0.6

- セメント:普通ポルトランダイトセメント(以後「OPC」と称する)
- 細骨材 :人工軽量骨材(商品名:メサライト(日本メサライト工業株式会社), かさ密度 1.03 kg/l,絶対乾燥密度:1.65 kg/l,絶対乾燥状態における吸水率:15% → 真密度:1.65 / (1 – 1.65 x 0.15) = 2.19 kg/l, 含有成分率[wt%]: SiO₂ 69.90 ,Al₂O₃ 15.00 ,Fe₂O₃ + FeO 5.05 ,MgO 1.93 , CaO 3.10 , Na₂O 1.40 , K₂O 2.62)
- 発泡剤 : 商品名ファインフォーム 707(株式会社エヌエムビー), 組成は企業秘 密のため不明

発泡剤については添加量が微量であるので計算を行う際の固液比算出には考慮しな かった。

モルタル・水反応の計算には,地球化学計算コード PHREEQC (Parkhurst, 1995) を用いたが,この計算コードの入力条件として,単位重量溶液当たりの固相重量を設 定する必要があるため,モルタル間隙水 1kg あたりに接触するセメント水和反応生成 物量の算出を行った。また,水和反応生成物量の算出に当たっては,水の添加量はセ メント水和物および細骨材の空隙が十分に満たされるまで加えると仮定し計算を行な った。モルタル作製時に添加された OPC および細骨材の重量は表 5-1 のようになる。

 OPC
 細骨材
 総重量

 重量 [kg]
 193
 1001
 1194

表 5-1 添加した OPC および細骨材の重量

OPC に水を添加すると水和反応により,セメント水和反応生成物が生成される。 OPC に含まれる化学成分の文献値(武井ほか,2002)および微量化学成分の含有量 を0として計算した化学成分量を表 5-2 に示す。

| 化学成分 | 文献値 [wt%] (武井ほか, 2003) | 微量成分を 除いた計算 値 [wt%] | OPC 1g中の含 有重量[g] | 各セメント 鉱物の化学 成分の分子 量[g/mol] | OPC 1g中の含 有 mol 数 [mol/g-OPC] |
|-------------------------------|---------------------------------|---------------------------|---------------------|-------------------------------------|-------------------------------------|
| SiO ₂ | 21.24 | 21.564 | 2.156E-1 | 6.008E+1 | 3.589E-3 |
| A I 203 | 5.24 | 5.320 | 5.320E-2 | 1.020E+2 | 5.218E-4 |
| Fe_2O_3 | 2.51 | 2.548 | 2.548E-2 | 1.597E+2 | 1.596E-4 |
| Ca0 | 64.86 | 65.850 | 6.585E-1 | 5.608E+1 | 1.174E-2 |
| MgO | 1.84 | 1.868 | 1.868E-2 | 4.030E+1 | 4.635E-4 |
| SO3 | 2.02 | 2.051 | 2.051E-2 | 8.006E+1 | 2.562E-4 |
| Na ₂ 0 | 0.23 | 0.234 | 2.335E-3 | 6.198E+1 | 3.768E-5 |
| K ₂ 0 | 0.54 | 0.548 | 5.482E-3 | 9.420E+1 | 5.820E-5 |
| Ti0 ₂ | 0.32 | 0 | 0 | 7.988E+1 | 0 |
| P ₂ O ₅ | 0.37 | 0 | 0 | 1.419E+2 | 0 |
| MnO | 0.04 | 0 | 0 | 7.094E+1 | 0 |
| CI | 0.016 | 0.016 | 1.624E-4 | 3.545E+1 | 4.582E-6 |
| その他微量 化学成分 | 0.66 | 0 | 0 | 0 | 0 |

表 5-2 OPC に含まれる化学成分

モルタル - 水反応では,表 5-2 に示す化学成分が水和反応し水和反応生成物が生成 される。生成される水和反応生成物を,Börjesson (1997)で一般的であるとされている C_3AH_6 , C_3FH_6 , $Mg(OH)_2$, $C_6As_3H_{32}$, KOH, NaOH, CSH ゲル, $Ca(OH)_2$ および Cl の混合物 (化学組成および解離反応式を '5.1.4 水和反応生成物の熱力学データに ついて',に示す)とし,OPC 1g あたりのセメント鉱物 mol 数より,水和反応生成物 量の割付を行った。添加した OPC が全て水和反応に消費されるとし,S を $C_6As_3H_{32}$, Fe を C_3FH_6 , Al を C_3AH_6 に割り付け,残りの Si を CSH ゲルに割り付け,最終的 に残った Ca を $Ca(OH)_2$ に割り付けた。

例えば, $C_{6}As_{3}H_{32}$ の割付では, OPC に含まれる S が全量水和物になると仮定しているため,

1g OPC 中の C₆As₃H₃₂ mol 数 $: 2.562 \text{E} \cdot 04 / 3 = 8.538 \text{e} \cdot 5 \text{ mol/g-OPC}$

となる。また, C₆As₃H₃₂生成に伴い, SO₃以外の成分も消費されており, それぞれ, CaO 消費量: 8.538e-5 x 6 = 5.123e-4 mol

Al₂O₃消費量:8.538e-5 x 1 = 8.538e-5 mol

となり, CaO および Al₂O₃の他の水和反応生成物への割付量は,

1g OPC 中全 CaO mol 数 - C₆As₃H₃₂割付量 = 1.174E-02 - 5.123e-4 = 1.123e-2 mol 1g OPC 中全 Al₂O₃ mol 数- C₆As₃H₃₂割付量 = 5.218E-04 - 8.538e-5 = 4.364e-4 mol となる。また,水和反応生成物の分子量および真密度より OPC 1g 当たりに占める水和 反応生成物の体積を求めた。結果を表 5-3 に示す。

| | OPC 1g 当たり | | OPC 1g 当たり | 水和反応生成 | OPC 1g 当たり |
|---------------------|------------|----------|------------|-------------|--------------------------|
| 水和反応 | の各水和反応 | 分子量 | の水和反応生 | 物の真密度 | の水和反応生 |
| 生成物 | 生成物の割付 | [mol/g] | 成物重量 | [g/cm³](大門, | 成物体積 |
| | け mol 数 | | [g/g-OPC] | 1989) | [cm ³ /g-OPC] |
| C₃AH ₆ | 4.364E-4 | 3.783E+2 | 1.651E-1 | 2.52 | 6.551E-2 |
| C_3FH_6 | 3.192E-4 | 4.360E+2 | 1.392E-1 | 3 | 4.639E-2 |
| Mg(OH) ₂ | 4.635E-4 | 5.832E+1 | 2.703E-2 | 2.36 | 1.145E-2 |
| $C_6As_3H_{32}$ | 8.538E-5 | 1.255E+3 | 1.072E-1 | 1.78 | 6.021E-2 |
| КОН | 1.164E-4 | 5.611E+1 | 6.531E-3 | - | - |
| NaOH | 7.535E-5 | 4.000E+1 | 3.014E-3 | - | - |
| CSHゲル | 3.589E-3 | 1.342E+2 | 4.816E-1 | 2.35 | 2.049E-1 |
| Ca(OH) ₂ | 5.375E-3 | 7.409E+1 | 3.982E-1 | 2.24 | 1.778E-1 |
| CI | 4.582E-6 | 3.545E+1 | 1.624E-4 | - | - |
| 合計 | | | 1.328 | | 5.663E-1 |

表 5-3 OPC の化学成分からの水和物量見積もり

表 5-3 の'OPC 1g 当たりの水和反応生成物重量[g/g-OPC]合計'と'OPC 1g 当た りの水和反応生成物体積[cm³/g-OPC]'より水和反応生成物全体の密度は,

1.328 g/g-OPC / $5.663e-1 \ell/\text{kg-OPC} = 2.345 \text{ kg}/\ell$

となる。193 kg の OPC 添加後のモルタル中水和反応生成物の体積および重量を求め ると ,

5.663E-1 l/kg-OPC x 193 kg = 109.2874 l

1.328E+00 kg/kg-OPC x 193 kg = 256.2918 kg

となる。また,細骨材の体積を求めると,

 $1001 \text{ kg} / 1.03 \text{ kg/l} = 971.845 \ell$

となる。よって、モルタル全体の密度は、

 $(256.2918 \text{ kg} + 1001 \text{ kg}) / (109.2874 \ell + 971.854 \ell) = 1.16294 \text{ kg}/\ell$

となる。また,単位体積(1ℓ)当たりの水和反応生成物および細骨材の含有重量は, 各々,以下のように計算される。

1 ℓモルタル中の水和反応生成物 : 1.16294 kg/ℓ / (256.2918 kg + 1001 kg) x 256.2918 kg = 0.237059 kg/ℓ-mortar

1 ℓモルタル中の細骨材重量 : 1.16294 kg/ℓ / (256.2918 kg + 1001 kg) x 1001 kg = 0.925881 kg/ℓ-motar

また,モルタル1 (中における水和反応生成物および緩衝材の体積は,各々,以下の ように計算される。

1 ℓモルタル中の水和反応生成物体積 : 0.237059 kg/ℓ-mortar / 2.345 kg/ℓ = 0.101086 ℓ/ℓ-mortar 1 ℓモルタル中の細骨材体積 : 0.925881 kg/ℓ-motar / 2.19 kg/ℓ = 0.422258 ℓ/ℓ-mortar

| | 重量 [kg] | 体積 [] | 空隙率 [-] |
|--------------------------|----------|----------|----------|
| 水和反応生成物 | 0.237059 | 0.101086 | - |
| 細骨材 | 0.925881 | 0.422258 | - |
| 全体 (水和反応生成 物 + 細骨材) | 1.16294 | 0.523344 | 0.476656 |

表 5-4 モルタル1 当たりの水和反応生成物および細骨材の状態量

表 5·4 の値を単位水(水1ℓ当たり)に換算すると,

モルタル間隙水1 ℓ当たりの水和反応生成物重量: 0.237059 / 0.476656

= 0.497337 kg-solid/ℓ-mortar pore

モルタル間隙水1 ℓ当たりの細骨材重量: 0.925881 / 0.476656

= 1.942452 kg-solid/ ℓ -mortar pore

となる。

| 表 5-5 モルタル空隙水1 | 当たりの水和反応生成物および細骨材の重量(kg) |
|----------------|--------------------------|
|----------------|--------------------------|

| | 水和反応生成物 | | 全体(水和反応 生成物+ 細骨材) |
|----|----------|----------|----------------------|
| 重量 | 0.497337 | 1.942452 | 2.43979 |

表 5-5の水和反応生成物重量と表 5-3の水和反応生成物生成比より,モルタル空隙水 12に対する各水和反応生成物の生成量は表 5-6のようになる。

| 水和反応生成物 | mol/g-OPC | mol/l-water in motar |
|--------------------------------|-----------|----------------------|
| C ₃ AH ₆ | 4.364E-04 | 2.170E-01 |
| C_3FH_6 | 3.192E-04 | 1.587E-01 |
| Mg(OH) ₂ | 4.635E-04 | 2.305E-01 |
| $C_6As_3H_{32}$ | 8.538E-05 | 4.246E-02 |
| КОН | 1.164E-04 | 5.789E-02 |
| NaOH | 7.535E-05 | 3.748E-02 |
| CSH ゲル | 3.589E-03 | 1.785E+00 |
| Ca(0H) ₂ | 5.375E-03 | 2.673E+00 |
| CI | 4.582E-06 | 2.279E-03 |

表 5-6 モルタル空隙1 に対する水和反応生成物量

モルタル-水反応によるモルタル反応水の計算では表 5-6 の値をモルタルに含まれ る水和反応生成物の含有量として計算した。

5.1.4 水和反応生成物の熱力学データについて

Börjesson (1997)によれば, OPC の水和により C₃AH₆, C₃FH₆, Mg(OH)₂, C₆As₃H₃₂, KOH, NaOH, CSH ゲルおよび Ca(OH)₂ が一般的に生成される水和 反応生成物とされている。

本解析では C₃FH₆を不活性な鉱物とし,KOH および NaOH を可溶性の塩とした。 よって,セメント-水反応の平衡計算には C₃AH₆, Mg(OH)₂, C₆As₃H₃₂, CSH ゲ ルおよび Ca(OH)₂を考慮した。以下に各鉱物の熱力学データを示す。

 (1) C₃AH₆, Mg(OH)₂, C₆As₃H₃₂および Ca(OH)₂の熱力学データについて C₃AH₆, Mg(OH)₂, C₆As₃H₃₂および Ca(OH)₂の熱力学データは表 5-7 のデータ を用いた。PHREEQC の計算では鉱物の解離反応において Al(OH)₄および OH⁻を Al³⁺ および H⁺に書き換える必要がある。この Al(OH)₄·→Al³⁺および OH⁻→H⁺の変換には以 下に示す Arthur, et al. (1999)のデータを用いた。

 $Al^{3+} + 4H_2O = 4H^+ + Al(OH)_4^- \log K = -22.883$

 $H_2O = H^+ + OH^-$ logK = -13.995

| 5 0 · B · , 2 · 0 · 5 · 5 · () | 2 | - |
|---|--------|-----------------------|
| Reaction | logK | Reference |
| $3Ca0.AI_2O_3.6H_2O(C_3AH_6) = 3Ca^{2+} + 2AI(0H)_4^- + 40H^-$ | -23.13 | Savage, et al. (2000) |
| (計算に用いた解離反応式および logK) | | |
| $3Ca0.AI_2O_3.6H_2O(C_3AH_6) = 3Ca^{2+} + 2AI^{3+} + 12H_2O - 12H^+$ | 78.616 | |
| Mg (OH) ₂ (brucite) + 2H ⁺ = Mg ²⁺ + 2H ₂ O | 16.298 | Arthur, et al. (1999) |
| (計算に用いた解離反応式および logK) | | |
| Mg (OH) ₂ (brucite) + 2H ⁺ = Mg ²⁺ + 2H ₂ O | 16.298 | |
| Ca ₆ Al ₂ O ₆ (SO ₄) ₃ .32H ₂ O(ettringite) = 6Ca ²⁺ + 2Al(OH) ₄ ⁻ + 3SO ₄ ²⁻ + 4OH ⁻ + 26H ₂ O | -43.94 | Savage, et al. (2000) |
| (計算に用いた解離反応式および logK) | | |
| Ca ₆ Al ₂ O ₆ (SO ₄) ₃ .32H ₂ O(ettringite) = 6Ca ²⁺ + 2Al ³⁺ + 38H ₂ O + 3SO ₄ ²⁻ - 12H ⁺ | 57.806 | |
| $Ca(OH)_2(portlandite) = Ca^{2+} + 2OH^{-}$ | -5.19 | Savage, et al. (2000) |
| (計算に用いた解離反応式および logK) | | |
| $Ca(OH)_2(portandite) = Ca^{2+} + 2H_2O - 2H^+$ | 22.8 | |

表 5-7 C₃AH₆, Mg(OH)₂, C₆As₃H₃₂およびCa(OH)₂の熱力学データ

(2) CSH ゲルについて

CSH ゲル平衡定数導出モデル

CSH ゲルは非調和溶解により,時間とともに骨格内の Ca/Si 比(以後「C/S 比」と する)が変化する。そのため,CSH ゲルの溶解沈殿挙動を計算するには,CSH ゲル の各 C/S 比に対する反応式および logK を設定する必要がある。本解析では,C/S 比に 対応した CSH ゲルの反応式および平衡定数を Atkinson のモデル(Atkinson, et al., 1987)により導出した。Atkinson のモデルとは,C/S 比が 0 から n までの領域は, 端成分を SiO₂(am)と nCaO·SiO₂·mH₂O とし,C/S 比が n から 1.8 の領域は端成分を Ca(OH)₂(s)と nCaO·SiO₂·mH₂O とした理想固溶体モデルに格子安定項(Lattice stability term)および正則溶液項(regular solution term)を加え,C/S 比の異なる CSH ゲルの溶解度変化の実験結果より,各 C/S 比における CSH ゲルの平衡定数を求 めたモデルである。nCaO·SiO₂·mH₂O は C/S 比が変化する際に生じる固相で Atkinson, et al.,1987では n = 0.833, m = 0.917(5CaO·6SiO₂·5.5H₂O, トバモライト)と n = 1, m = 1 に対して計算が行われている。本解析では,n = 0.833, m = 0.917を用 いて CSH ゲルの反応式および平衡定数の導出を行った。 CSH ゲルの反応式および平衡定数の導出

Atkinson のモデルによる CSH ゲルの平衡定数は, 各 C/S 比に対して求められる。 C/S 比が 0 から 0.833 の領域では端成分が SiO₂(am)と 0.833CaO SiO₂ 0.917H₂O に なり 0.833より大きく 1.8 以下の領域では端成分が Ca(OH)₂(s)と 5CaO 6SiO₂ 5.5H₂O になる。それぞれの領域に対応した反応式を以下に示す。

0 C/S < 0.833 (n=0.833 , m=0.917)

$$n(1-X_{s})CaOSiO_{2}m(1-X_{s})H_{2}O = n(1-X_{s})Ca^{2+} + H_{4}SiO_{4} + \left\{(n+m)(1-X_{s}) - 2\right\}H_{2}O - 2n(1-X_{s})H^{+}$$
(5-1)

$$0.833 < C/S \qquad 1.8 \text{ (n=0.833 , m=0.917)}$$

$$CaO\left(\frac{1-X_p}{n}\right)SiO_2 \cdot \left\{\frac{m(1-X_p)}{n} + X_p\right\}H_2O = Ca^{2+} + \left(\frac{1-X_p}{n}\right)H_4SiO_4 + \left\{\frac{(m-2)(1-X_p)}{n} + X_p + 1\right\}H_2O - 2H^+$$
(5-2)

ここで, X_s および X_p はそれぞれ $SiO_2(am)$ および $Ca(OH)_2(s)$ のモル分率を示す。式(5-1)および(5-2)をAtkinsonの固溶体モデルで表すと以下のようになる。

0 C/S < 0.833 (n=0.833, m=0.917)

$$\Delta G_{f}^{0} = X_{s} \Delta G_{fs}^{0} + (1 - X_{s}) \Delta G_{fx}^{0} + RT \{ X_{s} \ln X_{s} + (1 - X_{s}) \ln(1 - X_{s}) \} + L_{sx} X_{s} + A_{sx} X_{s} (1 - X_{s})$$
(5-3)

0.833 < C/S 1.8 (n=0.833, m=0.917)

$$\Delta G_f^0 = X_p \Delta G_{fp}^0 + \left(\frac{1 - X_p}{n}\right) \Delta G_{fx}^0 + RT \left\{ X_p \ln X_p + \left(\frac{1 - X_p}{n}\right) \ln\left(\frac{1 - X_p}{n}\right) \right\} + L_{px} X_p + A_{px} X_p \left(\frac{1 - X_p}{n}\right) \right\}$$
(5-4)

ここで ΔG_{f^0} , ΔG_{fx^0} , ΔG_{fs^0} および ΔG_{fp^0} は,それぞれ, CSH ゲル, トバモライト, SiO₂(am)および Ca(OH)₂(s)のギブスの生成自由エネルギーである.Lsx および Lpx はそれぞれ,端成分を SiO₂(am)または Ca(OH)₂(s)としたときの格子安定項(lattice stability term)のパラメータであり, Asx は正則溶液項(regular solution term)の パラメータである.R は気体定数, T は温度である。

式(5-1)~(5-4)を用いて導出した CSH ゲルの反応式および平衡定数を表 5-8 に示す。 平衡定数導出に際しては以下のパラメータ (Atkinson, et al., 1987)を用いた。

| ΔG^{0}_{fx} | : | -1643708 J/mol |
|--------------------------------|---|----------------|
| $\Delta G^{0}{}_{\mathrm{fs}}$ | : | -848530 J/mol |
| $\Delta G^{0}{}_{\mathrm{fp}}$ | : | -897498 J/mol |
| L_{sx} | : | 0 J/mol |
| L _{px} | : | 9000 J/mol |

| A_{sx} | : | 2000 J/mol |
|---------------------------------|---|-------------------|
| A _{px} | : | -29000 J/mol |
| $\Delta G^{0}_{\rm fH2O}$ | : | -237160 J/mol |
| $\Delta G^{0}{}_{fCa2\text{+}}$ | : | -552806 J/mol |
| $\Delta G^{0}_{fH4SiO4}$ | : | -1307788 J/mol |
| R | : | 8.3145107 J/K/mol |
| Т | : | 298.15 K |

表 5-8 Atkinson モデルにより導出した CSH ゲルの反応式および平衡定数

| C/S 比 | 反応式 | 平衡定数 |
|-------|--|--------|
| 0.1 | $Ca_{0.1} SiO_{2.1} 0.11H_2O = 0.1 Ca^{2+} + H_4SiO_4 -1.79 H_2O - 0.2 H^+$ | -1.071 |
| 0.2 | $Ca_{0.2}SiO_{2.2}O.22H_2O = 0.2 Ca^{2+} + H_4SiO_4 - 1.58 H_2O - 0.4 H^+$ | 0.565 |
| 0.3 | $Ca_{0.3}SiO_{2.3} O.33H_2O = 0.3 Ca^{2+} + H_4SiO_4 -1.37 H_2O - 0.6 H^+$ | 2.227 |
| 0.4 | $Ca_{0.4}SiO_{2.4}O.44H_2O = 0.4 Ca^{2+} + H_4SiO_4 -1.16 H_2O - 0.8 H^+$ | 3.906 |
| 0.5 | $Ca_{0.5}SiO_{2.5}O.55H_2O = 0.5 Ca^{2+} + H_4SiO_4 - 0.95 H_2O - H^+$ | 5.600 |
| 0.6 | $Ca_{0.6}SiO_{2.6}O.661H_2O = 0.6 Ca^{2+} + H_4SiO_4 - 0.739 H_2O - 1.2 H^+$ | 7.311 |
| 0.7 | $Ca_{0.7}SiO_{2.7}O.771H_2O = 0.7 Ca^{2+} + H_4SiO_4 - 0.529 H_2O - 1.4 H^+$ | 9.043 |
| 0.8 | $Ca_{0.8}SiO_{2.8}O.881H_2O = 0.8 Ca^{2+} + H_4SiO_4 - 0.319 H_2O - 1.6 H^+$ | 10.817 |
| 0.9 | $CaSi_{1.111}O_{3.222} \cdot 1.093H_2O = Ca^{2+} + 1.111 H_4SiO_4 - 0.129 H_2O - 2.0 H^+$ | 14.059 |
| 1.0 | $CaSiO_3 \cdot 1.084H_2O = Ca^{2+} + H_4SiO_4 + 0.084 H_2O - 2 H^+$ | 14.511 |
| 1.1 | $CaSi_{0.909}O_{2.818} \cdot 1.076H_2O = Ca^{2+} + 0.909 H_4SiO_4 + 0.258 H_2O 2.0 H^+$ | 14.981 |
| 1.2 | $CaSi_{0.833}O_{2.666} 1.07H_2O = Ca^{2+} + 0.833 H_4SiO_4 + 0.404 H_2O - 2.0 H^+$ | 15.437 |
| 1.3 | $CaSi_{0.769}O_{2.538} \cdot 1.065H_2O = Ca^{2+} + 0.769 H_4SiO_4 + 0.527 H_2O - 2.0 H^+$ | 15.867 |
| 1.4 | $CaSi_{0.714}O_{2.428} \cdot 1.060H_2O = Ca^{2+} + 0.714 H_4SiO_4 + 0.632 H_2O - 2. 0 H^+$ | 16.269 |
| 1.5 | $CaSi_{0.667}O_{2.334} \cdot 1.056H_2O = Ca^{2+} + 0.667 H_4SiO_4 + 0.722 H_2O - 2.0 H^+$ | 16.640 |
| 1.6 | $CaSi_{0.625}O_{2.250} \cdot 1.053H_2O = Ca^{2+} + 0.625 H_4SiO_4 + 0.803 H_2O - 2.0 H^+$ | 16.984 |
| 1.7 | $CaSi_{0.588}O_{2.176} \cdot 1.049H_2O = Ca^{2+} + 0.588 H_4SiO_4 + 0.873 H_2O - 2.0 H^+$ | 17.301 |
| 1.8 | $CaSi_{0.556}O_{2.112} \cdot 1.047H_2O = Ca^{2+} + 0.556 H_4SiO_4 + 0.935 H_2O - 2.0 H^+$ | 17.594 |

5.1.5 解析手順

モルタル - 水反応は,モルタルに含まれるセメント水和反応生成物の反応が支配的 であると考えられるため,モルタルに含まれる水和反応生成物とモルタル間隙水との 反応をモデル化し,溶液組成を求めた。計算はモルタル中の間隙水1 ℓにおける鉱物-水反応を解くこととしており,モルタル間隙水1 ℓと反応する水和反応生成物量は表 5-6 の値を用いた。水和反応生成物の C₃AH₆, Mg(OH)₂, C₆As₃H₃₂および Ca(OH)₂ の反応の logK は表 5-7 の値を用い,CSH ゲルについては,OPC 反応初期においては C/S 比が 1.8 程度であるため(Berner, 1992),表 5-8 の C/S 比 1.8 の平衡定数を用 いた。連成試験は大気下で行われており,常に CO₂(g)との接触により水溶液への炭酸 ガスの溶け込みが生じていると考えられるが,通常セメント反応液は高いpHを示し, CO₂(g)との反応において,容易に平衡状態に到達することはない。したがって,本セ メント - 水反応モデルでは,循環水と CO₂(g)との平衡とモルタル間隙での CO₂(g)平衡 水-セメント反応を段階的に計算することとし,この計算を基本ケースとした。また, COUPLEにおける模擬岩体(モルタル)上部では,大気の影響を受けた水が常に循環 しており,モルタルより溶出したイオンによる二次鉱物の析出などが見られるため, 循環水へのモルタル構成元素の溶出および二次鉱物の析出を考慮した CO₂(g)-calcite 平衡水のミキシング計算も行った。計算は地球化学計算コード PHREEQC(Parkhurst, 1995)により行った。熱力学データベースは 990900c0.tdb(吉田,油井,2003)を 用いた。以下に,解析結果を示す。

<基本ケース>

温度を 70 とし,大気中の CO₂(g)と平衡になった溶液がモルタル間隙に流入し,水 和反応生成物との反応および二次鉱物である方解石(calcite)の析出を考慮した計算 を行った。計算結果を以下に示す。

- 計算ステップ1(CO₂(g)平衡水(logPCO2 = -3.5))の計算結果

pH: 5.641

 $C_{total} \ddagger 1.295\text{e-}5$

 計算ステップ2(CO₂(g)平衡水 + 水和反応生成物 + calcite 沈殿)計算結果
 Delta phase を表 5-9,化学種の濃度を表 5-10に示す。表 5-9より,全ての水和反応生成物は溶解傾向を示しており calcite が沈殿している。水和反応生成物において, 最も溶解量が多いのは Ca(OH)₂であり, 3.450e-1 mol 溶解している。

| Mineral name | Delta phase (+:precipitation / -:dissolution) |
|--------------------------------|---|
| Brucite | -2.608e-9 |
| C ₃ AH ₆ | -3.161e-2 |
| $C_6As_3H_{32}$ | -2.835e-5 |
| $Ca(OH)_2$ | -3.450e-1 |
| CSH(1.8) gel | -5.629e-6 |
| Calcite | 1.915e-7 |

表 5-9 基本ケースにおける水和反応生成物および calcite の delta phase

| Element | pH / species | Concentration |
|---------|---|---------------|
| | рН | 12.311 |
| A 1 | AI _{total} | 6.328e-2 |
| AI | AI(OH)4 ⁻ | 6.264e-2 |
| | C _{total} | 6.685e-6 |
| С | CaCO ₃ (aq) | 6.251e-6 |
| | C032- | 4.336e-7 |
| | Ca _{total} | 4.400e-1 |
| Са | Ca0H⁺ | 3.685e-1 |
| | Ca ²⁺ | 7.142e-2 |
| | K _{total} | 5.789e-2 |
| К | K+ | 5.507e-2 |
| | КОН | 2.517e-3 |
| | Mg _{total} | 2.608e-9 |
| Mg | MgOH⁺ | 2.551e-9 |
| | Mg ²⁺ | 5.713e-11 |
| | Na _{total} | 3.748e-2 |
| Na | Na⁺ | 3.593e-2 |
| | NaOH | 1.208e-3 |
| | S _{total} | 8.505e-5 |
| | S04 ²⁻ | 5.485e-5 |
| S | CaS0₄ | 2.303e-5 |
| | KSO4- | 4.267e-6 |
| | NaS04 ⁻ | 2.899e-6 |
| | Si _{total} | 3.130e-6 |
| | H ₂ SiO ₄ ²⁻ | 1.900e-6 |
| Si | H ₃ SiO ₄ - | 7.699e-7 |
| | NaH ₃ SiO ₄ | 2.947e-7 |
| | CaH ₃ SiO₄ ⁺ | 1.647e-7 |

表 5-10 基本ケースにおける化学種濃度 (mol/kgw)

< CO₂(g)-calcite 平衡水のミキシング計算 >

COUPLE では大気下で試験が行われており,また,温水循環システムにより溶液が 大気と接触する表面積も増えるため,溶液への CO₂(g)の溶解が促進される傾向にある。 :

一方, モルタル反応水は Ca を豊富に含んでいる。このため, 溶液に溶け込む炭酸ガ スと水和反応生成物から供給される Ca により二次鉱物である方解石(calcite)が沈 殿しやすい条件となっている。連成試験において, 模擬岩体(モルタル)への通水開 始を行った後の比較的初期の段階からモルタル上部水には白い沈殿物が確認され,2. 2.1項で記述したように,沈殿物を採取し X 線回折を行ったところ,方解石(calcite) であることが確認されている。よって,モデル計算では,大気接触に伴う CO₂(g)の溶 け込みと方解石(calcite)溶解の影響を受けた循環水がモルタル間隙に流入した場合 の影響評価を行った。計算は,以下のようにいくつかの段階に分けて行った。

Step 1: 蒸留水と CO₂(g)の平衡水

Step 2: step 1の溶液とモルタル(二次鉱物の沈殿含む)の平衡を計算

Step 3: step 2 の溶液のみを CO₂(g)および calcite と平衡(炭酸溶け込みおよび calcite 沈殿)

Step 4: step 3の溶液を step 2の固相と平衡にして計算

Step 5: step 4 の溶液のみを CO₂(g)および calcite と平衡(炭酸溶け込みおよび calcite 沈殿)

Step 6: step 5の溶液を step 4の固相と平衡にして計算

計算では,モルタル反応水を CO₂(g)-calcite に平衡にし,再度モルタル間隙に流入 させ,モルタルと反応させるといった step を繰り返し行った。結果を表 5-11 および 表 5-12 に示す。

表 5-11 より溶液交換 4 回目までは Ca(OH)₂の溶解量が顕著になるが,5 回目以降 は Ca(OH)₂が枯渇する。5 回目のサイクルでは C₃AH₆の溶解が促進され,8 回目以降 は CSH ゲルの溶解量が最も多くなる。溶液の pH についても表 5-12 に示すとおり, Ca(OH)₂が枯渇する 5 回目以降 pH が減少し,C₃AH₆が枯渇する 7 回目以降では pH はさらに低下し,8 回目以降では 10.5 程度となる。

| | | 2(0) | - | | | | | | 1 | | | |
|---------------------|------------|--|------------|------------|------------|------------|------------|------------|------------|------------|--|--|
| Min. | | Delta phase +:precipitation / -:dissolution | | | | | | | | | | |
| name | | (Amount of solid, mol/mortar reacted with 11 pore water) | | | | | | | | | | |
| Mixing | Initial | 1st | 2nd | 3rd | 4th | 5th | 6th | 7th | 8th | 9th | | |
| Brucite | -2.608e-9 | -2.334e-11 | -2.353e-11 | -2.372e-11 | -2.391e-11 | -1.900e-10 | -4.630e-9 | -6.436e-9 | -3.537e-7 | -2.682e-7 | | |
| | (2.305e-1) | (2.305e-1) | (2.305e-1) | (2.305e-1) | (2.305e-1) | (2.305e-1) | (2.305e-1) | (2.305e-1) | (2.305e-1) | (2.305e-1) | | |
| C_3AH_6 | -3.161e-2 | -2.439e-4 | -2.459e-4 | -2.479e-4 | -2.498e-4 | -4.598e-3 | -1.069e-1 | -7.289e-2 | 0 | 0 | | |
| | (1.854e-1) | (1.851e-1) | (1.849e-1) | (1.847e-1) | (1.844e-1) | (1.798e-1) | (7.289e-2) | (0) | (0) | (0) | | |
| $C_6As_3H_{32}$ | -2.835e-5 | -1.862e-7 | -1.877e-7 | -1.893e-7 | -1.909e-7 | 7.175e-8 | 6.905e-6 | 1.145e-6 | -4.331e-4 | -2.205e-4 | | |
| | (4.243e-2) | (4.243e-2) | (4.243e-2) | (4.243e-2) | (4.243e-2) | (4.243e-2) | (4.244e-2) | (4.244e-2) | (4.201e-2) | (4.179e-2) | | |
| Ca(0H) ₂ | -3.450e-1 | -4.653e-1 | -4.690e-1 | -4.728e-1 | -4.765e-1 | -4.444e-1 | 0 | 0 | 0 | 0 | | |
| | (2.328) | (1.863) | (1.394) | (9.209e-1) | (4.444e-1) | (0) | (0) | (0) | (0) | (0) | | |
| CSH(1.8) | -5.629e-6 | -3.838e-8 | -3.870e-8 | -3.901e-8 | -3.933e-8 | -8.637e-7 | -2.038e-5 | -2.809e-5 | -2.397e-2 | -2.879e-2 | | |
| gel | (1.785) | (1.785) | (1.785) | (1.785) | (1.785) | (1.785) | (1.785) | (1.785) | (1.761) | (1.732) | | |
| Calcite | 1.915e-7 | 2.210e-2 | 2.182e-2 | 2.153e-2 | 2.124e-2 | 2.095e-2 | 1.509e-2 | 9.368e-5 | 8.920e-5 | 8.919e-5 | | |
| | (1.915e-7) | (2.210e-2) | (4.392e-2) | (6.545e-2) | (8.669e-2) | (1.076e-1) | (1.227e-1) | (1.228e-1) | (1.229e-1) | (1.230e-1) | | |

| | Species | Concentration | | | | | | | | | | |
|----|---------------------|---------------|-----------|-----------|-----------|-----------|-----------|-----------|----------|----------|----------|--|
| | Mixing | Initial | 1st | 2nd | 3rd | 4th | 5th | 6th | 7th | 8th | 9th | |
| | рН | 12.311 | 12.311 | 12.311 | 12.310 | 12.310 | 12.286 | 11.891 | 11.638 | 10.544 | 10.404 | |
| AI | AI _{total} | 6.328e-2 | 6.324e-2 | 6.320e-2 | 6.317e-2 | 6.313e-2 | 7.143e-2 | 2.744e-1 | 4.117e-1 | 4.115e-1 | 4.118e-1 | |
| | $AI(OH)_4^-$ | 6.264e-2 | 6.261e-2 | 6.258e-2 | 6.254e-2 | 6.251e-2 | 7.074e-2 | 2.717e-1 | 4.078e-1 | 4.076e-1 | 4.081e-1 | |
| С | C_{total} | 6.685e-6 | 6.685e-6 | 6.685e-6 | 6.685e-6 | 6.685e-6 | 6.717e-6 | 6.704e-6 | 6.487e-6 | 6.586e-6 | 6.576e-6 | |
| | CaCO₃(aq) | 6.251e-6 | 6.251e-6 | 6.251e-6 | 6.252e-6 | 6.252e-6 | 6.287e-6 | 6.404e-6 | 6.266e-6 | 6.376e-6 | 6.358e-6 | |
| | C032- | 4.336e-7 | 4.330e-7 | 4.324e-7 | 4.319e-7 | 4.314e-7 | 4.289e-7 | 2.987e-7 | 2.184e-7 | 1.795e-7 | 1.764e-7 | |
| Ca | Ca_{total} | 4.400e-1 | 4.403e-1 | 4.406e-1 | 4.409e-1 | 4.412e-1 | 4.195e-1 | 2.910e-1 | 2.962e-1 | 1.803e-1 | 1.854e-1 | |
| | Ca0H⁺ | 3.685e-1 | 3.688e-1 | 3.690e-1 | 3.692e-1 | 3.694e-1 | 3.485e-1 | 1.954e-1 | 1.554e-1 | 1.480e-2 | 1.096e-2 | |
| | Ca ²⁺ | 7.142e-2 | 7.150e-2 | 7.157e-2 | 7.165e-2 | 7.172e-2 | 7.094e-2 | 9.554e-2 | 1.408e-1 | 1.616e-1 | 1.660e-1 | |
| | $CaH_3SiO_4^+$ | | | | | | | | | 3.279e-3 | 7.438e-3 | |
| Κ | K _{total} | 5.789e-2 | 5.741e-2 | 5.694e-2 | 5.647e-2 | 5.600e-2 | 5.554e-2 | 5.511e-2 | 5.491e-2 | 5.477e-2 | 5.476e-2 | |
| | K+ | 5.507e-2 | 5.461e-2 | 5.416e-2 | 5.372e-2 | 5.328e-2 | 5.290e-2 | 5.285e-2 | 5.252e-2 | 5.276e-2 | 5.274e-2 | |
| | KOH | 2.517e-3 | 2.495e-3 | 2.474e-3 | 2.452e-3 | 2.431e-3 | 2.307e-3 | 9.637e-4 | | | | |
| | $KAI(OH)_4$ | | | | | | | 1.288e-3 | 1.869e-3 | 1.917e-3 | 1.912e-3 | |
| Mg | Mg _{total} | 2.608e-9 | 2.609e-9 | 2.611e-9 | 2.613e-9 | 2.614e-9 | 2.775e-9 | 7.161e-9 | 1.324e-8 | 3.479e-7 | 6.015e-7 | |
| | MgOH⁺ | 2.551e-9 | 2.552e-9 | 2.554e-9 | 2.555e-9 | 2.557e-9 | 2.711e-9 | 6.772e-9 | 1.198e-8 | 1.497e-7 | 2.066e-7 | |
| | Mg ²⁺ | 5.713e-11 | 5.720e-11 | 5.726e-11 | 5.732e-11 | 5.738e-11 | 6.400e-11 | 3.886e-10 | 1.257e-9 | 1.913e-7 | 3.657e-7 | |
| | $MgH_3SiO_4^+$ | | | | | | | | | 6.901e-9 | 2.918e-8 | |

表 5-12 CO₂(g)および calcite の影響を受けた循環水のミキシング計算における各元素に対する主要な化学種濃度の濃度(1/2)

.

| | Species | | Concentration | | | | | | | | | |
|----|---|----------|---------------|----------|----------|----------|----------|----------|----------|----------|----------|--|
| | Mixing | Initial | 1st | 2nd | 3rd | 4th | 5th | 6th | 7th | 8th | 9th | |
| | рН | 12.311 | 12.311 | 12.311 | 12.310 | 12.310 | 12.286 | 11.891 | 11.638 | 10.544 | 10.404 | |
| Na | Na _{total} | 3.748e-2 | 3.717e-2 | 3.686e-2 | 3.656e-2 | 3.626e-2 | 3.596e-2 | 3.568e-2 | 3.555e-2 | 3.546e-2 | 3.545e-2 | |
| | Na⁺ | 3.593e-2 | 3.563e-2 | 3.534e-2 | 3.505e-2 | 3.476e-2 | 3.449e-2 | 3.383e-2 | 3.327e-2 | 3.125e-2 | 2.902e-2 | |
| | NaOH | 1.208e-3 | 1.198e-3 | 1.187e-3 | 1.177e-3 | 1.167e-3 | 1.102e-3 | 4.460e-4 | | | | |
| | $NaAI(OH)_4$ | | | | | | 3.671e-4 | 1.398e-3 | 2.039e-3 | 1.931e-3 | 1.792e-3 | |
| | NaH_3SiO_4 | | | | | | | | | 2.236e-3 | 4.590e-3 | |
| S | S _{total} | 8.505e-5 | 8.490e-5 | 8.475e-5 | 8.461e-5 | 8.446e-5 | 8.356e-5 | 6.319e-5 | 5.970e-5 | 1.289e-3 | 1.914e-3 | |
| | S042- | 5.485e-5 | 5.477e-5 | 5.469e-5 | 5.462e-5 | 5.454e-5 | 5.368e-5 | 3.567e-5 | 3.045e-5 | 5.918e-4 | 8.756e-4 | |
| | CaSO ₄ | 2.303e-5 | 2.303e-5 | 2.303e-5 | 2.303e-5 | 2.302e-5 | 2.299e-5 | 2.261e-5 | 2.547e-5 | 6.197e-4 | 9.286e-4 | |
| | KSO4 ⁻ | 4.267e-6 | 4.227e-6 | 4.187e-6 | 4.148e-6 | 4.109e-6 | 4.110e-6 | 2.963e-6 | 2.282e-6 | 4.809e-5 | 7.025e-5 | |
| | NaSO4 ⁻ | 2.899e-6 | 2.871e-6 | 2.844e-6 | 2.817e-6 | 2.791e-6 | 2.778e-6 | 1.940e-6 | 1.502e-6 | 2.923e-5 | 3.975e-5 | |
| Si | Si _{total} | 3.130e-6 | 3.125e-6 | 3.121e-6 | 3.116e-6 | 3.111e-6 | 3.547e-6 | 1.431e-5 | 2.907e-5 | 1.264e-2 | 2.777e-2 | |
| | H ₂ SiO ₄ ²⁻ | 1.900e-6 | 1.898e-6 | 1.897e-6 | 1.895e-6 | 1.893e-6 | 2.121e-6 | 5.303e-6 | 6.638e-6 | 2.906e-4 | 4.637e-4 | |
| | H ₃ SiO₄ [−] | 7.699e-7 | 7.695e-7 | 7.691e-7 | 7.688e-7 | 7.684e-7 | 9.010e-7 | 5.427e-6 | 1.261e-5 | 6.651e-3 | 1.473e-2 | |
| | NaH_3SiO_4 | 2.947e-7 | 2.921e-7 | 2.896e-7 | 2.871e-7 | 2.846e-7 | 3.318e-7 | 1.981e-6 | 4.472e-6 | 2.236e-3 | 4.590e-3 | |
| | $CaH_3SiO_4^+$ | 1.647e-7 | 1.648e-7 | 1.649e-7 | 1.650e-7 | 1.651e-7 | 1.923e-7 | 1.590e-6 | 5.325e-6 | 3.279e-3 | 7.438e-3 | |
| | H ₄ SiO ₄ | | | | | | | | | 1.822e-4 | 5.568e-4 | |

5.1.6 解析結果から推定されるモルタル反応溶液について

モルタル・水反応が平衡に達し、且つ CO₂(g)の影響が少ない場合には溶液組成は 70 におけるモルタル・水反応計算結果である表 5-10の溶液組成に近付くと考えられる。 また,モルタル・水反応が平衡に達した後において,CO₂(g)や calcite の影響を受けた 溶液がモルタル間隙に浸入してくる場合には溶液組成は表 5-12 のような傾向を示す と考えられ,特に CO₂(g)-calcite 平衡の影響を強く受ける場合には 9 回目溶液交換で 得られた溶液組成に近づく傾向が見られると考えられる。

5.1.7 実測値との比較

3.2.4項で示したように,試験期間中,模擬岩体との反応溶液である模擬岩体 上部の循環水のサンプリングを1回/月の頻度で実施している。また,試験終了後に は,模擬岩体に削孔した注水孔内の循環水を,さらに,模擬岩体より緩衝材試験体を 取り出した後に,模擬処分孔内の循環水のサンプリングを行なっている。そして,成 分分析を実施している。分析対象はNa,Ca,Si,Al,Mg,K,SO4,HCO3の濃度 およびpHである。分析方法および分析結果をまとめて再度,表 5-13に示す。ここ で,岩体上部とは,COUPLE 試験設備の模擬岩体(モルタル)上部を循環している 溶液,岩体注水孔N およびS は,模擬岩体(モルタル)への浸潤を促進するための 孔内の溶液,模擬処分孔とは緩衝材解体後の空間にモルタル空隙より浸出した溶液で ある。

表 5-13の実測データに対して 地球化学計算コード PHREEQC(Parkhurst et al., 1995)を用い化学種分配計算 (speciation calculation)を行い, 各鉱物に対する飽 和指数 (saturation index) を求めた. 結果を表 5-14 に示す. なお,表 5-13 の分析 値は分析温度が室温であるため,温度を70 に補正した後化学種分配計算を行った。 表 5-14より,水和反応生成物の C₃AH₆, C₆As₃H₃₂, Ca(OH)₂, および CSH(1.8) ゲルに対してすべての溶液が未飽和であり、モルタル・水反応が平衡状態には達して いないと考えられる.また, calcite が全溶液に対して若干過飽和となっており,サ ンプリングが行われた期間においてモルタルからの Ca イオン溶出が連続して生じて いると考えられる。炭酸ガス分圧は ,岩体上部(2003/6/2)および岩体上部(2003/6/25) の測定値を除いて, すべて大気中の炭酸分圧 (logPco2 = -3.5) と同等か高い値を示 している。これは,急激なpH上昇による CO₃2濃度分配量の上昇によるものである が,模擬処分孔(2003/12/16)および模擬処分孔(2003/12/17)の測定値を除き,炭 酸の大気分圧である-3.5 に近い値を示し,モルタル溶解反応に伴う Ca 等のイオンを 溶出し pH を上昇させる反応に対して, calcite 沈殿・炭酸ガス溶解といったアルカリ 性の溶液を中性に戻す緩衝性を有する反応が岩体上部や岩体注水孔の溶液で支配的 であると考えられる。岩体上部(2003/6/2)および岩体上部(2003/6/25)について は,試験初期で反応が進んでいなかったため logpco2 が低かったと考えられ,処分孔
(2003/12/16)および処分孔(2003/12/17)は緩衝材解体後に中心部にたまった水で あり,ベントナイトの流入等のモルタル-水反応以外の反応が影響を及ぼした可能性 が考えられる。

| | 分析温 | | Na | Ca | Si | AI | Mg | К | S04 ²⁻ | HCO₃ ⁻ |
|---------------------|------|------|----------|----------|----------|----------|----------|----------|-------------------|-------------------|
| | 度[] | рп | [ppm] *1 | [ppm] *2 | [ppm] *2 | [ppm] *2 | [ppm] *2 | [ppm] *1 | [ppm] *1 | [ppm] *4 |
| 岩体上部(2003/6/2) | 24.9 | 10.3 | 106 | 1.1 | 23.4 | 2.51 | 0.05 | 176 | 37.1 | 128 |
| 岩体上部(2003/6/25) | 25 | 10.6 | 151 | 1.74 | 59.7 | 3.89 | 0.25 | 215 | 75.6 | 83.4 |
| 岩体上部(2003/7/24) | 22.9 | 9.2 | 189 | 1.68 | 72.5 | 3.55 | 0.54 | 210 | 94.9 | 514 |
| 岩体上部(2003/7/29) | 22.9 | 8.9 | 200 | 2.37 | 78.7 | 6.21 | 1.06 | 217 | 105 | 584 |
| 岩体上部(2003/8/29) | 22.3 | 9.7 | 222 | 2.08 | 93.2 | 5.43 | 0.98 | 218 | 118 | 400 |
| 岩体上部(2003/9/29) | 23 | 9.9 | 238 | 1.93 | 101 | 5.24 | 0.93 | 220 | 126 | 328 |
| 岩体上部(2003/10/31) | 17.7 | 9.6 | 255 | 1.88 | 97 | 2.95 | 0.42 | 223 | 145 | 423 |
| 岩体上部(2003/11/28) | 17.6 | 9.8 | 262 | 1.81 | 99.5 | 2.89 | 0.38 | 218 | 163 | 361 |
| 岩体上部(2003/12/8) | 17.9 | 9.8 | 266 | 1.77 | 95.5 | 1.82 | 0.16 | 225 | 170 | 354 |
| 岩体上部(2003/12/15) | 17.8 | 9.3 | 274 | 2.04 | 74.3 | 1.47 | 0.1 | 205 | 170 | 551 |
| 岩体注水孔 N(2003/12/15) | 17.9 | 9.2 | 270 | 2.11 | 72.5 | 1.75 | 0.16 | 207 | 170 | 561 |
| 岩体注水孔 S(2003/12/15) | 17.9 | 9.2 | 270 | 2.04 | 72.1 | 1.65 | 0.15 | 204 | 170 | 561 |
| 模擬処分孔(2003/12/16) | 17.9 | 7.4 | 731 | 238 | 24.9 | 0.17 | 1.79 | 288 | 614 | 304 |
| 処分孔(2003/12/17) | 18 | 7.4 | 1090 | 217 | 31.1 | 0.09 | 2.08 | 414 | 705 | 318 |

表 5-13 模擬岩体との反応溶液の分析成分と分析方法

*1 : 原子吸光分析法により測定

*2 : ICP 発光分光分析法により測定

*3 : イオンクロマトグラフ法により測定

*4 : 燃焼酸化-赤外線分析法で無機炭素定量後,溶液 pH から換算により算出

.

| | Brucite | C ₃ AH ₆ | $C_6As_3H_{32}$ | Ca(OH) ₂ | CSH(1.8)gel | Calcite | l og _{PC02} |
|---------------------|---------|--------------------------------|-----------------|---------------------|-------------|---------|----------------------|
| 岩体上部(2003/06/02) | -0.58 | -26.24 | -31.83 | -8.69 | -5.56 | 0.37 | -4.45 |
| 岩体上部(2003/06/25) | 0.39 | -24.56 | -28.56 | -8.17 | -4.88 | 0.51 | -4.83 |
| 岩体上部(2003/07/24) | -1.12 | -28.56 | -32.54 | -10.09 | -6.44 | 0.49 | -2.92 |
| 岩体上部(2003/07/29) | -1.36 | -28.50 | -31.61 | -10.42 | -6.70 | 0.52 | -2.56 |
| 岩体上部(2003/08/29) | -0.05 | -26.61 | -30.62 | -9.25 | -5.67 | 0.69 | -3.56 |
| 岩体上部(2003/09/29) | 0.24 | -26.16 | -30.27 | -8.97 | -5.44 | 0.67 | -3.86 |
| 岩体上部(2003/10/31) | -0.63 | -27.62 | -31.37 | -9.49 | -5.86 | 0.62 | -3.40 |
| 岩体上部(2003/11/28) | -0.36 | -27.14 | -30.94 | -9.21 | -5.64 | 0.63 | -3.67 |
| 岩体上部(2003/12/08) | -0.73 | -27.56 | -31.32 | -9.21 | -5.65 | 0.61 | -3.68 |
| 岩体上部(2003/12/15) | -1.75 | -29.00 | -32.24 | -9.93 | -6.29 | 0.60 | -2.98 |
| 岩体注水孔 N(2003/12/15) | -1.72 | -29.05 | -32.12 | -10.06 | -6.41 | 0.58 | -2.87 |
| 岩体注水孔 S(2003/12/15) | -1.74 | -29.15 | -32.25 | -10.07 | -6.42 | 0.57 | -2.87 |
| 処分孔(2003/12/16) | -3.82 | -30.83 | -25.99 | -11.03 | -7.52 | 0.92 | -1.56 |
| 処分孔(2003/12/17) | -3.76 | -31.56 | -26.85 | -11.08 | -7.52 | 0.88 | -1.55 |

表 5-14 測定データに対する水和反応生成物および calcite の飽和指数

.

5.1.8 まとめ

< モルタル-水反応の解析 >

COUPLE 試験設備を用いた連成試験では,モルタルに含まれる反応生成物と溶液だ けでなく,大気中の CO₂(g)との接触による炭酸ガスの溶け込みや,二次鉱物である calcite の沈殿の影響を考慮する必要がある。モルタル上部においては常に大気と反応 している循環水が流入しており,モルタル上部間隙水組成は,calcite 沈殿-CO₂(g)溶け 込みの影響を強く受けたモルタル-水反応により決定されると考えられる。長期にわた り calcite 沈殿-CO₂(g)溶け込みの影響を受けると,溶液の pH を 12.5 程度まで上昇さ せる Ca(OH)₂ および C₃AH₆ を枯渇させ,溶液の pH を支配する鉱物が CSH ゲル等に 変遷すると考えられる。

COUPLE 試験設備を用いた試験期間において,劇的な水和反応生成物の溶解が生じ るとは考えられないが,溶液組成は高アルカリの性質から CSH ゲル等の水和反応生成 物が支配的となる弱アルカリ性に変化する傾向を示すと考えられる。このため,表 5-11 で示したように, CO₂(g)および calcite の影響を受けたミキシング計算において,ミキ シング回数 9 回目で CSH が溶液組成を支配していることから,モルタル上部間隙水の 組成は,表 5-12 に示すように,ミキシング 9 回目の組成に近づくとした。一方,モル タル下部の間隙水は,大気の影響をあまり受けないと考えられ,表 5-10 に示すように 初期の CO₂(g)平衡水に対するモルタル-水反応により得られる溶液組成に近い値になる と予想される。

モルタル上部および下部間隙水の推定値を表 5-15 に示す。

| pH / Element | Species | モルタル上部側間隙水組成 | モルタル下部側間隙水組成 | |
|---------------|---------------------|---------------------|---------------|--|
| conc. mol/kgw | spectes | (表 5-12 ミキシング 9 回目) | (表 5-10) | |
| рН | | 10.404 | 12.311 | |
| pe (Eh mV) | | -4.860(-287) | -6.222 (-368) | |
| AI | AI _{total} | 4.118e-1 | 6.328e-2 | |
| С | C_{total} | 6.576e-6 | 6.685e-6 | |
| Ca | Ca_{total} | 1.854e-1 | 4.400e-1 | |
| К | K _{total} | 5.476e-2 | 5.789e-2 | |
| Mg | Mg _{total} | 6.015e-7 | 2.608e-9 | |
| Na | Na _{total} | 3.545e-2 | 3.748e-2 | |
| S | S _{total} | 1.914e-3 | 8.505e-5 | |
| Si | Si _{total} | 2.777e-2 | 3.130e-6 | |

表 5-15 解析より求まるモルタル間隙水組成

< 実測値の評価について >

模擬岩体上部,注水孔および緩衝材試験体撤去後の模擬処分孔より採水した溶液組 成について水和反応生成物,二次鉱物である calcite および炭酸分圧を求める化学種分 配計算を行った。第5.1.7項に示す計算の結果から,calcite がすべての溶液に対し て若干過飽和になっており,測定期間全般にわたりモルタルから Ca イオンが継続的 に溶出していることが示された。しかし,主要な水和反応生成物である C₃AH₆, C₆As₃H₃₂,Ca(OH)₂,および CSH(1.8)ゲルに対して,すべての溶液が未飽和であり, モルタル-水反応が平衡には到達していないことが示された。また,炭酸ガスの分圧が 大気の炭酸分圧と同等か若干高い値を示していることから,モルタル-水反応によりア ルカリ側に溶液組成が変化しているものの,calcite 沈殿-CO₂(g)溶け込みによってアル カリ性を中性にする緩衝作用の方が強く作用していることが示された。 5.2 物質移行-地球化学連成解析による緩衝材 / 間隙水の化学的変遷の検討

5.2.1 はじめに

COUPLE での連成試験系において起こりうる反応を事前に予測し,化学に関するデー タ取得がより有効に行なえるための情報を提供することを目的として,モルタル反応 水-緩衝材の相互作用について,5.1節で示した地球化学計算コード(PHREEQC) の結果をもとに,地球化学物質移行連成解析コード(以下,TRACE という)によりモ デル計算を行なった。

5.2.2 ベントナイトに析出する二次鉱物の文献調査結果

5.1 節で示したように,緩衝材上部のモルタル反応溶液の pH は 10.4 程度(表 5-15 参照)である。入谷ほか(2003)に基づけば,この pH 領域の浸漬液と接触するベント ナイトにおいては,calcite が析出するが,その他の鉱物の析出は生じないと考えら れる。また,COUPLE での緩衝材下部においては,calcite の析出および養生期間が長 ければ 10~14 tobermorite, CASH および CSH が析出すると考えられる。

本解析では, tobermoriteの熱力学データは Savage et al. (2000)を引用した。その 熱力学データを表 5-16 に示す。また, Savage et al. (2000)と Atkinson et al. (1987) のデータから計算した各二次鉱物候補の平衡定数(log K)を表 5-17 に示す。

| | Formation from the Elements | | | | | |
|---|-------------------------------|---------------------------|---------------------------|--|--|--|
| Substance/Mineral Name | _f H _f G | | S | | | |
| | (kcal mol ⁻¹) | (kcal mol ⁻¹) | (kcal mol ⁻¹) | | | |
| Ca₅Si ₆ O ₁₇ • 5.5H ₂ 0/11 | 2556 2 | 2261 45 | 146.15 | | | |
| tobermorite | -2000.0 | -2301.43 | | | | |
| Ca₅Si ₆ O ₁₇ ・5.5H ₂ 0/14 | -2011 25 | -2647 3 | 193.15 | | | |
| tobermorite | -2911.25 | -2047.3 | | | | |
| Ca₅Si ₆ O ₁₇ • 5.5H ₂ 0/9 | 2275 0 | 2215 0 | 122.65 | | | |
| tobermorite | -2375.0 | -2215.0 | | | | |

表 5-16 tobermorite の熱力学データ(Savage et al. 2000)

| Mineras Name | Formation | log K |
|----------------|---|--------|
| CSH(0.1) | 0.100 Ca ²⁺ + 1.000 H ₄ SiO ₄ -1.790 H ₂ O - 0.200 H ⁺ | -1.071 |
| CSH(0.2) | 0.200 Ca ²⁺ + 1.000 H ₄ SiO ₄ -1.580 H ₂ O - 0.400 H ⁺ | 0.565 |
| CSH(0.3) | 0.300 Ca ²⁺ + 1.000 H ₄ SiO ₄ -1.370 H ₂ O - 0.600 H ⁺ | 2.227 |
| CSH(0.4) | 0.400 Ca ²⁺ + 1.000 H ₄ SiO ₄ -1.160 H ₂ O - 0.800 H ⁺ | 3.906 |
| CSH(0.5) | 0.500 Ca ²⁺ + 1.000 H ₄ SiO ₄ -0.950 H ₂ O - 1.000 H ⁺ | 5.600 |
| CSH(0.6) | 0.600 Ca ²⁺ + 1.000 H ₄ SiO ₄ -0.739 H ₂ O - 1.200 H ⁺ | 7.311 |
| CSH(0.7) | 0.700 Ca ²⁺ + 1.000 H ₄ SiO ₄ -0.529 H ₂ O - 1.400 H ⁺ | 9.043 |
| CSH(0.8) | 0.800 Ca ²⁺ + 1.000 H ₄ SiO ₄ -0.319 H ₂ O - 1.600 H ⁺ | 10.817 |
| CSH(0.9) | 1.000 Ca ²⁺ + 1.111 H ₄ SiO ₄ -0.129 H ₂ O - 2.000 H ⁺ | 14.059 |
| CSH(1.0) | 1.000 Ca ²⁺ + 1.000 H ₄ SiO ₄ + 0.084 H ₂ O - 2.000 H ⁺ | 14.511 |
| CSH(1.1) | 1.000 Ca ²⁺ + 0.909 H ₄ SiO ₄ + 0.258 H ₂ O - 2.000 H ⁺ | 14.981 |
| CSH(1.2) | 1.000 Ca ²⁺ + 0.833 H ₄ SiO ₄ + 0.404 H ₂ O - 2.000 H ⁺ | 15.437 |
| CSH(1.3) | 1.000 Ca ²⁺ + 0.769 H ₄ SiO ₄ + 0.527 H ₂ O - 2.000 H ⁺ | 15.867 |
| CSH(1.4) | 1.000 Ca ²⁺ + 0.714 H ₄ SiO ₄ + 0.632 H ₂ O - 2.000 H ⁺ | 16.269 |
| CSH(1.5) | 1.000 Ca ²⁺ + 0.667 H ₄ SiO ₄ + 0.722 H ₂ O - 2.000 H ⁺ | 16.640 |
| CSH(1.6) | 1.000 Ca ²⁺ + 0.625 H ₄ SiO ₄ + 0.803 H ₂ O - 2.000 H ⁺ | 16.984 |
| CSH(1.7) | 1.000 Ca ²⁺ + 0.588 H ₄ SiO ₄ + 0.873 H ₂ O - 2.000 H ⁺ | 17.301 |
| CSH(1.8) | 1.000 Ca ²⁺ + 0.556 H ₄ SiO ₄ + 0.935 H ₂ O - 2.000 H ⁺ | 17.594 |
| hydrogarnet | 3.000 Ca ²⁺ + 2.000 AI ³⁺ + 12.000 H ₂ 0 - 12.000 H ⁺ | 78.616 |
| ettringite | 6.000 Ca ²⁺ + 2.000 AI ³⁺ + 38.000 H ₂ 0 + 3.000 SO ₄ ²⁻ - 12.000 H ⁺ | 57.806 |
| Ca(OH)2 | 1.000 Ca ²⁺ + 2.000 H ₂ O - 2.000 H ⁺ | 22.685 |
| SiO2(am) | 1.000 H ₄ SiO ₄ - 2H ₂ O | -2.636 |
| CSH(0.833) | 0.833 Ca ²⁺ + 1.000 H ₄ SiO ₄ - 0.250 H ₂ O - 1.666 H ⁺ | 11.424 |
| 9 tobermorite | 5.000 Ca ²⁺ + 6.000 H ₄ SiO ₄ - 1.500 H ₂ O - 10.000 H ⁺ | -0.173 |
| 11 tobermorite | 5.000 Ca ²⁺ + 6.000 H ₄ SiO ₄ - 1.500 H ₂ O - 10.000 H ⁺ | -0.066 |
| 14 tobermorite | 5.000 Ca ²⁺ + 6.000 H ₄ SiO ₄ - 1.500 H ₂ O - 10.000 H ⁺ | 0.144 |

表 5-17 二次鉱物候補の平衡定数

5.2.3 地球化学物質移行連成解析における解析条件

解析条件(表 5-18) および解析イメージ図(図 5-1)を以下に示す。緩衝材は,初 期には不飽和であるが,TRACE の解析では飽和条件を仮定する必要があるため,初期 の緩衝材中には便宜上,pH=7,Eh=250mVの蒸留水が間隙水として存在していると仮定 した(表 5-18 参照)。図 5-1 の模擬岩体(モルタル部)-緩衝材接触点を節点1とし て,この境界条件を固定条件とする。また,この節点1をセメント浸漬液の流入部と する。セメント浸漬液については表 5-15 の PHREEQC によるセメント浸漬液組成解析 結果に基づいたものとする。緩衝材-ヒーター接触点を節点20として,境界条件を対 称条件とする。解析領域は1つ(ベントナイト70%およびケイ砂30%)として,緩衝材 長さ95mmを20の節点に分ける。緩衝材の随伴鉱物としては,chalcedony および calcite(COUPLEの実験では大気条件で行なわれているため,今回の解析においては 酸化還元条件に影響の大きいpyriteについては考慮しない)とする。二次鉱物候補と しては,表5-17に示した26個の鉱物とする。ベントナイトの実効拡散係数,空隙率, 交換性陽イオン濃度および酸・塩基反応化学種濃度の値は第2次取りまとめでの緩衝 材仕様であるケイ砂30%含有クニゲルV1の値を用いる。なお,解析時間は6ヶ月(180 日)とする。



| 解析時間 | 6ヶ月(180日) | | | | | |
|----------------------|-----------------------|---------------------------------|--------------------------------|--|--|--|
| 節点数 | 20(1~20) | | | | | |
| セルサイズ(X) | 0.05(dm) | | | | | |
| 実効拡散係数 ^{*1} | 0.00259(dm²/day) | | | | | |
| 空隙率 | 0.41*1 | | | | | |
| рН | | 7.0 | | | | |
| Eh | | 250mV | | | | |
| ☆ 海⇒ぐ亡 ルカガ1 | chal | cedony (17 | .3 mol/L) | | | |
| 十割亟初 | calcite (0.653 mol/L) | | | | | |
| 二次鉱物 | 表 5-17 参照 | | | | | |
| | Z | 1.67(mol/L) | | | | |
| 交換性陽イオン濃度 | ZNa | 1.43(mol/L) | | | | |
| および酸・塩基反応化学種*1 | ZK | 1.62×10 ⁻² (mol/L) | | | | |
| (ZᡎM:表面化学種,Z は負の | Z ₂ Mg | 9.73×10 ⁻³ (mol/L) | | | | |
| 電荷を持つ) | Z ₂ Ca | 1.03×10 ⁻¹ (mol/L) | | | | |
| | SOH | 8.67 × 10 ⁻² (mol/L) | | | | |
| 倍田冬件 | 節点 1(入口部) 固定条件 | | 固定条件 | | | |
| 現外赤叶 | 節点 20(出口部) 対称条件 | | 対称条件 | | | |
| | 節点1 表 5-15 参照 | | 表 5-15 参照 | | | |
| 儿杀底区 | 節点 2~20 | 全元素 | 1.00×10 ⁻¹⁰ (mol/L) | | | |

表 5-18 解析条件

*1 第2次取りまとめにおけるケイ砂 30%含有クニゲル 1 の値

5.2.4 解析結果および考察

(1) 緩衝材上部の解析結果および考察

chalcedony および Si の濃度変化

緩衝材随伴鉱物の1つである chalcedony および chalcedony の成分元素である Si の濃度変化を図 5-2 および図 5-3 に示す。

図 5-2 に示すように,モルタル接触部に近い場所(5mm 地点)では,時間の経過に ともなって chalcedony の沈殿量が増加している。モルタル接触部から離れるに従が って,Siの流入量が少なくなるため chalcedony の沈殿量も減少して行く。モルタル 接触部から約 50mm 内部の緩衝材中では,chalcedony の濃度変化が確認されない。こ のことから,モルタル接触部からのSiの流入に伴う chalcedony の沈殿への影響は, モルタル接触部から約 50mm である。 Si の濃度変化を図 5-3 に示す。モルタル接触部に近い場所(5mm 地点)において, 50 日後までは, chalcedonyの沈殿に伴ってSi 濃度が減少している。その後,時間の 経過にともない,モルタル接触部からのSi の流入の影響によって,大半は chalcedony の沈殿に費やされるが, 150 日後および 180 日後ではSi がSi 化学種としてとどま りSi 濃度が増加している。また,ヒーター接触部(95mm)付近のSi 濃度は,100 日 後まで減少傾向にあるが,それ以降は,上昇に転じている。モルタル接触部から約 50mm 内部の緩衝材中では chalcedony 濃度の変化が確認されないのに対して,ヒータ ー接触部(95mm)付近でのSi 濃度は変化している結果となっている。



図 5-2 緩衝材上部での chalcedony 濃度分布

図 5-3 緩衝材上部での Si 濃度分布

calcite, CaおよびCの濃度変化

緩衝材随伴鉱物の1つである calcite と calcite の成分元素である Ca およびCの 濃度変化を図5-4,図5-5および図5-6に示す。

calcite の濃度変化を図 5-4 に示す。モルタル接触部に近い場所(5mm 地点)では, 時間に関係なく calcite の沈殿が確認できる。そして,モルタル接触部から 25mm 地 点まで calcite の沈殿量が増加しており,それよりも内部においては沈殿量が減少し ている。最終経過時間 180 日での緩衝材中の calcite は,モルタル接触部から約 25mm 地点までは沈殿量が増加,25~70mm 地点までは沈殿量が減少し,さらに,70mm から ヒーター接触部までは溶解している。

Caの濃度変化を図 5-5 に示す。モルタル接触部に近い場所(5mm 地点)においては calcite の沈殿反応にも係わらずモルタル接触部からの流入の影響が強いため Ca 濃 度が増加している。緩衝材内部に行くに従って,Ca 濃度は減少する傾向にある。図 5-4 に示したように,calcite は沈殿および溶解を繰り返しているのにも係わらず, Ca 濃度は減少傾向にあることから,モルタル接触部からの Ca の流入の影響が大きいと考えられる。

C の濃度変化を図 5-6 に示す。calcite の沈殿により, 初期濃度から 50 日後の間で 急激に減少している。







図 5-5 緩衝材上部での Ca 濃度分布



図 5-6 緩衝材上部での C 濃度分布

二次鉱物の濃度変化

二次鉱物候補として 26 個の鉱物(表 5-17 参照)を選択した。しかし,解析の結果, ettringite のみ沈殿する結果となった。ettringite の濃度変化を図 5-7 に示す。図 よりモルタル接触部に近い場所(5mm 地点)では,時間の経過に伴って ettringite の沈殿量が増加している。そして,モルタル接触部から離れるに従がって,ettringite の沈殿量も減少して行く。モルタル接触部から約15mm以奥では、ほとんどettringiteの沈殿は確認できない。

ettringite の成分元素であるAI およびSの濃度変化を図5-8および図5-9に示す (Ca については図5-5参照)。AI 濃度についてはモルタル接触部からの流入量が多い ために ettringite の沈殿にも係わらず流入する濃度に近い値まで上昇している。S の初期濃度が高いのは緩衝材中に含まれている可溶性塩の存在のためである。その後, モルタル接触部から流入する濃度に近い値まで減少して行く。モルタル接触部に近い 場所(5mm 地点)において,時間の経過に伴って ettringite の沈殿量が増加して行 くにも係わらず,S濃度は経過時間に関係なくほぼ一定の値である。緩衝材内部に行 くに従い,時間経過に伴って減少量が少なくなっているが,この地点においては ettringite が沈殿していないためにS濃度の変化には影響していないと考えられる。





図 5-8 緩衝材上部での AI 濃度分布

距離(mm)

40

60

80

100

0

20

pH 変化

緩衝材上部における pH 変化を図 5-10 に示す。初期の緩衝材内部の pH は約 7.6 程 度であったが,モルタル接触部に近い場所 (5mm 地点)では,時間の経過に従い pH は上昇している。モルタル接触部から距離 20~60mm の間では,初期の pH の 7.6 を若 干下回っている。モルタル接触部からは,pH=10.4 と非常に pH の高い液が流入して いるにも係わらず, pH が上昇していない理由としては,モルタル接触部からのセメ ント浸漬液の流入に伴う chalcedony, calcite および二次鉱物である ettringite の 沈殿反応によるものと考えられる。

chalcedony の沈殿反応は,(5-5)式,(5-6)式,および(5-7)式で表すことがで きる。chalcedony の沈殿反応だけでは(5-7)式より H⁺が減少する傾向にあることか ら pH は上昇する傾向にあることが分かる。

chalcedony + $2H_2O$ H_4SiO_4 (5-5)

 $H_4 SiO_4 \quad H^+ = SiO(OH)_3^-$ (5-6)

chalcedony + $2H_20$ H⁺ SiO(OH)₃⁻ (5-7)

また, calcite の沈殿反応は以下の(5-8)式,(5-9)式,および(5-10)式で表す ことができる。calcite の沈殿反応だけでは(5-10)式より H⁺が増加する傾向にある ことから pH は減少する傾向にある。

calcite $Ca^{2+} + CO_3^{2-}$ (5-8)

 $Ca^{2+} + CO_3^{2-} + H^+ = CaHCO_3^+$ (5-9)

calcite + H^+ CaHCO₃⁺ (5-10)

ettringite の沈殿反応を以下の(5-11)式および(5-12)式に示す。ettringite の沈殿反応だけでは(5-12)式より H*が増加する傾向にあることから pH は低下する 傾向にある。

ettringite + $12H^+$ $6Ca^{2+} + 2AI^{3+} + 38H_2O + 3SO_4^{2-}$ (5-11)

ettringite + $18H^+$ + $6CO_3^{2-}$ 6CaHCO₃⁺ + $2AI^{3+}$ + $38H_2O$ + $3SO_4^{2-}$ (5-12)

これらの3つの沈殿反応を表すと(5-13)式になる。

chalcedony + calcite + ettringite +
$$18H^{+}$$
 + $6CO_{3}^{2^{-}}$
SiO(OH)₃⁻ + 7CaHCO₃⁺ + $2AI^{3^{+}}$ + $36H_{2}O$ + $3SO_{4}^{2^{-}}$ (5-13)

(5-13) 式より chalcedony, calcite および ettringite が沈殿反応を起こすと H⁺ が増加する傾向にあることから pH は減少する傾向にある。このことからモルタル接 触部から pH=10.4 と非常に高い液が流入しているにも係わらず, pH=8.3 までしか上 昇しないのは chalcedony, calcite および ettringite の沈殿反応が大きく影響して いると考えられる。また (5-13)式の反応で影響している CaHCO₃⁺の濃度分布を図 5-11 に示す。この図から,モルタル接触部に近いところは,CaHCO₃⁺が初期濃度より減少し ている様子が分かり,(5-13)式に示される反応により影響を受けていると考えられ る。



緩衝材の Ca 型化

モルタル接触部から Ca 濃度の高いセメント浸漬液が緩衝材に流入していることか ら,緩衝材は Na 型から Ca 型に変化していると考えられる。そこで,図 5-12 に緩衝 材の吸着サイトである ZNa と Z₂Ca の濃度分布を示す。図よりモルタル接触部付近は Ca 型を示す Z₂Ca 濃度が高く,ヒーター接触部付近は Na 型を示す ZNa 濃度が高いこと から,モルタル接触部付近では緩衝材の Ca 型が進んでいると推定される。



図 5-12 緩衝材上部での ZNa および Z₂Ca 分布濃度分布

(2)緩衝材下部の解析結果および考察

chalcedonyの濃度変化

緩衝材随伴鉱物の 1 つである chalcedony および chalcedony の成分元素である Si の濃度変化を図 5-13 および図 5-14 に示す。

図 5-13 からモルタル接触部に近い場所(5mm 地点)では,時間経過に伴って chalcedony が溶解している。モルタル接触部から離れるに従がって, chalcedony の 溶解量も減少している。モルタル接触部から約 50mm 内部の緩衝材中では,chalcedony の濃度変化は確認できない。このことから,モルタル接触部からの Si の流入に伴う chalcedony の沈殿への影響は約 50mm である。

Si の濃度変化を図 5-14 に示す。モルタル接触部に近い場所(5mm 地点)において は, chalcedonyの溶解にも係わらず, Si は初期濃度から大きく減少し,時間の経過 とともに,初期濃度に回復する傾向にある。





図 5-14 緩衝材下部での Si 濃度分布

calcite, CaおよびCの濃度変化

緩衝材随伴鉱物の 1 つである calcite と calcite の成分元素である Ca および C の 濃度変化を図 5-15,図 5-16 および図 5-17 に示す。

図 5-15 に示すように,モルタル接触部に近い場所(5mm 地点)では, calcite の沈 殿が確認される。モルタル接触部から 35mm 地点まで calcite の沈殿が増加し,それ より内部では減少している。この傾向は緩衝材上部での calcite のものに良く似てい る。180 日後の緩衝材中の calcite は,モルタル接触部から約 35mm 地点までは沈殿 傾向が上昇し,35~90mm 地点までは沈殿傾向が低下し,ヒーター接触部では初期の calcite の状態である。

Ca の濃度変化を図 5-16 に示す。Ca 濃度についても,緩衝材上部での Ca 濃度変化 傾向に良く似ている。

Cの濃度変化を図 5-17 に示す。C濃度については緩衝材の全ての地点で初期の濃度 よりも急激に減少している。また,時間に関係なく低い濃度である。



· 113 ·



図 5-17 緩衝材下部での C 濃度分布

二次鉱物の濃度変化

計算の結果,緩衝材下部においては,二次鉱物の沈殿は認められなかった。

pH 変化

次に,緩衝材下部における pH 変化を図 5-18 に示す。初期の緩衝材内部 pH は約 7.6 程度であったが,モルタル接触部に近い場所(5mm 地点)では,時間の経過とともに pH が上昇している。モルタル接触部から 15mm 内部の緩衝材中では初期の pH の 7.6 を下回っている。モルタル接触部からは,pH=12.3 と非常に高い液が流入しているに も係わらず,初期の pH に対してあまり上昇していない理由としては,モルタル接触 部からのセメント浸漬液の流入に伴う chalcedony 溶解反応および calcite 沈殿反応 によるものと考えられる。そこで,chalcedony の溶解反応を以下の(5-14)式に示 す。chalcedony の溶解反応だけでは(5-14)式より H⁺が増加する傾向にあることか ら pH は減少する傾向にある。

chalcedony + $2H_20$ SiO(OH)₃⁻ + H⁺ (5-14)

chalcedonyの溶解反応と calcite の沈殿反応は以下の(5-15)式で表すことができる。

calcite + $2H^{+}$ + SiO(OH)₃⁻ chalcedony + CaHCO₃⁺ + $2H_2O$ (5-15)

(5-15) 式より chalcedony の溶解反応と calcite の沈殿反応を起こすと H*が増加 する傾向にあることから pH は減少する傾向にある。このことからモルタル接触部か ら pH=12.3 と非常に高い液が流入しているにも係わらず, pH=8.1 までしか上昇しな いのは chalcedony の溶解反応と calcite の沈殿反応が大きく影響していると考えら れる。(5-15)式の反応で大きく影響している SiO(OH)3⁻と CaHCO3⁺の濃度分布を図 5-19 および図 5-20 に示す。これらの図から,モルタル接触部に近いところでは,SiO(OH)3⁻ が初期濃度より増加, CaHCO3⁺は初期濃度より減少している様子が分かり,(5-15)式 に示される反応により影響を受けていると考えられる。



図 5-18 緩衝材下部での pH 分布

図 5-19 緩衝材下部での Si0(OH)3-濃度分布

100



図 5-20 緩衝材下部での CaHCO₃+濃度分布

緩衝材の Ca 型化

緩衝材上部よりもモルタル接触部から Ca 濃度の高いセメント浸漬液が緩衝材に流入していることから,緩衝材上部よりも Na 型から Ca 型に変化している傾向は強いと

考えられる。そこで,図 5-21 に緩衝材の吸着サイトである ZNa と Z₂Ca の 180 日後の 濃度分布を示す。図よりモルタル接触部付近は Ca 型を示す Z₂Ca 濃度が高く,ヒータ ー接触部付近は Na 型を示す ZNa 濃度が高い。緩衝材上部とは異なり,緩衝材下部に おいては完全に Ca 型化していることになる。



図 5-21 緩衝材下部での ZNa および Z₂Ca 分布濃度分布

5.2.5 解析値と実測値の pH の比較

COUPLE による連成試験で得られた緩衝材間隙水の pH 計測結果(図 3-18 参照)と, 図 5-10 で示した TRACE における解析値を比較して図 5-22 に示す。3.1.7 項で記述し たように,緩衝材が飽和したと考えられる 60 日以降の結果について両者を比較する と,計測値は pH =9.0~9.5 であるのに対し,解析値は pH=7.6~7.8 となっている。 この原因として,

- 1)連成試験での緩衝材は初期に不飽和であり、モルタルとの反応溶液が緩衝材中に 直接浸潤するのに対し、解析では、蒸留水で飽和している緩衝材中ヘモルタル反 応溶液が拡散するため、緩衝材間隙水中の水溶性化学種の濃度が実際よりも低く 見積もられていることが考えられる。そして、解析値のpHが180日後においても 上昇傾向にあることから、緩衝材中へのモルタル反応溶液の拡散が完了していな い可能性もある。
- 2) 計算では,モルタル反応水-緩衝材の平衡計算を行っているために鉱物の沈殿が 生じ,このため pHの上昇が抑制される結果になっているが,実際の緩衝材中では このような現象は生じていない。
- 3) 連成試験における緩衝材の温度が 80 程度であるのに対し,解析では 25 の温 度条件で地球化学反応が計算されていること。

などが考えられる。



図 5-22 解析値と実験値の pH の比較

5.2.6 まとめ

COUPLE での連成試験系において起こりうる反応を事前に予測し,データ取得がより 有効に行なえるための情報を提供できることを目的として,モルタル接触水-緩衝材 の相互作用について地球化学計算コード(PHREEQC)の結果をもとに地球化学物質移 行連成解析コード(TRACE)によりモデル計算を行なった。

緩衝材上部における反応において,緩衝材の随伴鉱物である chalcedony および calcite はモルタル接触部付近で沈殿傾向にあった。chalcedony は緩衝材の中程で初期の状態にあるが, calcite はヒーター接触部付近では溶解する傾向にあった。二次鉱物候補として 26 個の鉱物を選択したが,計算結果からはモルタル接触部付近にのみ ettringite だけが沈殿する結果となった。pH の変化はモルタル接触部からのセメント浸漬液の流入による chalcedony, calcite および ettringite の沈殿反応の影響により pH の急激な上昇は抑制されたと考えられる。モルタル接触部からの高い Ca 濃度のセメント浸漬液によりモルタル接触部から緩衝材の中程においては Na 型から Ca 型に変化していることが推定された。

緩衝材下部における反応において,緩衝材の随伴鉱物である chalcedony はモルタ ル接触部付近で溶解傾向にあった。また, calcite は緩衝材中で沈殿傾向にある。モ ルタル接触部付近で沈殿傾向が増加しているが,緩衝材内部に行くに従って沈殿傾向 は減少してヒーター接触部付近においては,ほとんど初期の calcite 濃度になった。 緩衝材下部においては二次鉱物の沈殿は確認できなかった。pH の変化は随伴鉱物で ある chalcedonyの溶解反応と calcite の沈殿反応の影響により pH の急激な上昇が抑 制されたと考えられる。そして,緩衝材上部より低い pH になった。緩衝材下部にお いても緩衝材の Na 型から Ca 型の変化が推定され,緩衝材上部よりも Ca 型化が強い 傾向にあった。 6.おわりに

人工バリアおよびその周辺岩盤における熱-水-応力-化学の連成現象を定量的に把握することを目的に,熱-水-応力連成試験設備(COUPLE)を用いて連成試験を実施した。試験は,モルタルで製作した模擬岩体中に緩衝材を設置し,廃棄体を模擬したヒーターを100 に,模擬岩体周囲を70 に加熱した。緩衝材中に浸潤する水は,モルタルと反応した高 pHの溶液である。

本報は,連成試験で得られた結果のうち,試験体中に配置したセンサーによって得 られた計測結果および緩衝材試験体のサンプリング試料から得られた水分分布,pH の分布,さらに,連成試験の予察解析として,熱-水連成解析による緩衝材再冠水挙 動に関する検討,地球化学解析および物質移行-地球化学連成解析による緩衝材/間 隙水の化学的変遷に関する検討結果をまとめたものである。以下に,本試験で得られ た知見をまとめる。

- 1) 緩衝材中の温度は,廃棄体を模擬した中心ヒーター近傍で約90,模擬岩体との境界付近で約80 と計測されており,試験期間中,緩衝材中には約1 / c mの温度勾配が形成されていた。なお,試験期間中,緩衝材中に設置した熱電 対は100%の高い稼働率を示した。
- 2)サイクロメータによる緩衝材中の水分変化については、中心ヒーター近傍で温度勾配による水分移動のため一時的に含水比が低下する現象が計測された。そして、中心ヒーター近傍では約60日、模擬岩体付近では約30日で飽和したと考えられる理由により計測不能となった。また、今回の試験条件では、水分計の計測範囲を超えた領域まで温度勾配による水分移動によって緩衝材の含水比が低下した可能性がある。また、湿度計についても、温度勾配による水分移動のため一時的に含水比が低下する現象が計測され、この時の値は、サイクロメータで計測されたものと同等であった。しかしながら、その後の模擬岩体側からの水の浸潤による含水比の上昇を捉えることができなかった。これら水分計については、センサーの耐久性や計測範囲の向上も課題として挙げられる。
- 3)緩衝材の膨潤応力は、境界壁面との間に設置した一部の土圧計により、0.5MPa 程度の膨潤応力が計測された。しかしながら、多くの土圧計は、計測不能ある いは測定値が想定範囲を超える結果となった。その原因として、土圧計の固定 が不十分だったことが考えられる。
- 4) 試験期間中の模擬岩体(モルタル)との反応溶液である循環水の pH は,10.5程度であった。また,反応溶液の化学組成の分析結果からは,Na,Si,SQ4^{2・}の各成分の濃度が上昇傾向にあることが分かった。これら成分濃度は,特に,緩衝材の膨出を抑制するまでの2ヶ月間での上昇率が大きいことから,膨出したベントナイトが溶液組成に影響を与えた可能性が考えられる。また,模擬岩体より緩衝材試験体を抜き出した後の模擬処分孔内に溜まった水の pH は 7.4 であり,

それ以外の場所で採取した循環水に比べて pH が低い結果であった。模擬処分孔 内から採取した水は,緩衝材試験体と接触していたものと考えられ,ベントナ イトの化学的緩衝能力の影響により,他の部分よりも pH が低くなっているもの と考えられる。

- 5) 緩衝材間隙水 pH の経時変化および試験終了後のサンプリング試料から pH の分 布を求めた。連成試験中の緩衝材間隙水の pH は,緩衝材が飽和に達した後に pH =8.5~9.5の範囲で推移した。また,試験終了後のサンプリング試料より得られ た pH の分布については,中心ヒーター近傍で pH=7.0~8.5,模擬岩体に近い部 分では pH=9.0~10.5 と,模擬岩体に近づくほど pH が高くなる分布を示した。 これは,連成試験中の計測結果と同じ傾向であり,模擬岩体から浸潤する高 pH 溶液の影響をより大きく受けていることがその理由と考えられる。また,緩衝 材上部よりも下部のほうが緩衝材間隙水の pH が高い結果であった。この理由の 一つとして,緩衝材試験体に浸潤する模擬岩体との反応溶液の pH が上部に比べ て高いためと考えられ,模擬岩体の下部は,大気と接触した循環水の交換がよ リ少ないことが反応溶液の pH を大きくしているものと推定される。緩衝材中に 埋設したガラス電極 pH 計は,緩衝材のサクションによる KCI 溶液の欠乏と考え られる理由により,4ヶ月程度で計測不能となっており,この間に得られたデー 夕の信頼性も低い。緩衝材中に埋設して連続計測を行なう場合の耐久性やデー 夕の信頼性をどう担保するかなど pH 計の問題が明らかとなった。
- 6)サンプリングにより緩衝材の含水比および密度分布を測定した。その結果,中 心ヒーター付近では,初期の密度を維持していたが,模擬岩体との境界付近で 密度が低下していることが分かった。これは,緩衝材試験体に比べて模擬岩体 に削孔した模擬処分孔の直径が大きいためである。このような緩衝材の密度低 下は,連成挙動を評価する上で現象をより複雑にすることが考えられるため, 密度低下を極力抑えた試験を実施する必要がある。また,ベントナイトブロッ ク間のつなぎ目を持つ部分の密度は,つなぎ目を持たない部分の密度と同程度 であることが分かった。
- 7)熱-水連成解析の結果,化学反応に影響を与える温度場については,解析結果が実験結果を良く再現しており,解析で設定した境界条件および試験体の熱物性が概ね 妥当であることが示された。一方,緩衝材中の水分移動については,模擬岩体に近い部分において,飽和に至るまでの浸潤挙動が実験結果を良く再現する結果となっているものの廃棄体を模擬したヒーター近傍については,解析結果と実験結果には差が見られた。この要因として,センサーの計測範囲および計測精度の問題と,解 析で設定した温度勾配水分移動パラメータの温度依存性の問題の両方が考えられる。
- 8) 地球化学計算コードによりモルタル 水反応のモデル計算を行なった。計算の 結果, calcite が若干過飽和になっており, 連成試験期間全般にわたりモルタル

から Ca イオンが継続的に溶出していることが示された。しかし,主要な水和反応生成物である C₃AH₆, C₆As₃H₃₂, Ca(OH)₂, および CSH(1.8)ゲルに対して未飽和であることから,モルタル - 水反応が平衡には到達していないことが示された。また,炭酸ガスの分圧が大気の炭酸分圧と同等か若干高い値を示していることから,モルタル - 水反応によりアルカリ側に溶液組成が変化している一方で,calcite 沈殿-CO₂(g)溶け込みによってアルカリ性を中性にする緩衝作用の方が強く作用していることが示された。そして,計算により求めたモルタル - 水反応溶液の pH は,連成試験中の循環水の計測値と良い一致を示した。

9)上記のモルタル - 水反応の計算結果をもとに,地球化学 - 物質移行連成解析コ ード(TRACE)により,モルタル水反応 - 緩衝材の相互作用についてモデル計算 を行なった。その結果,緩衝材上部では,緩衝材の随伴鉱物である chalcedony および calcite がモルタル接触部付近で沈殿傾向に,calcite はヒーター近傍で 溶解する傾向にあった。二次鉱物については,モルタル接触部付近にのみ ettringite が沈殿する結果となった。また,緩衝材中のpH については,モルタ ル接触部からのセメント浸漬液の流入による chalcedony, calcite および ettringite の沈殿反応の影響により, pH の上昇が抑制されたと考えられる。 また,ベントナイトが Na 型から Ca 型に変化していることも推定された。一方, 緩衝材下部においては,緩衝材の随伴鉱物である chalcedony はモルタル接触部 付近で溶解傾向に,calcite は沈殿傾向にあった。モルタル接触部付近で沈殿傾 向が増加しているが,ヒーター接触部付近においては,初期の calcite 濃度で あった。また,緩衝材上部のような二次鉱物の沈殿は見られず,pH は緩衝材上 部より低い値であった。緩衝材下部においても,緩衝材の Na 型から Ca 型の変 化が推定され,緩衝材上部に比べ Ca 型化が強い傾向にあった。

本連成試験における緩衝材/間隙水の化学的変遷については、固相分析(X腺回折、SEM 等)による二次鉱物の確認,浸出陽イオン量測定によるスメクタイトのイオン型の変化の 確認等を実施中である。今後は,これらの分析結果と本報で示した計測結果および解析的 検討との比較を通じて,緩衝材の化学的な影響について考察を行なうものとする。そして, 本連成試験系で支配的な地球化学的プロセスを同定し,本連成試験の熱・水・応力・化学連成 解析に反映する予定である。また,緩衝材/間隙水の化学的変遷が顕著と想定される環境 条件の選定等,試験条件の再検討を通じて,今後も,熱・水・応力連成試験設備(COUPLE) を用いた連成試験を実施し,人工バリアおよびその周辺岩盤における熱・水・応力・化 学の連成現象の定量的な把握に取り組んでいく予定である。

他方,本連成試験を通じて計測センサーの耐久性や計測範囲の問題が明らかとなった。今後,幌延深地層研究施設等での原位置人工バリア試験における性能確認モニタリングに向けてセンサーの開発も課題として挙げられる。

7.謝辞

本研究のデータ取得において,同課室の磯貝武司氏,菊池広人氏の御協力を頂ました。 ここに感謝の意を表します。

8.参考文献

A. Atkinson , J.A. Hearne and C.F. Knights : " Aqueous chemistry and thermodynamic modeling of CaO-SiO2-H2O gels ", AERE R 12543 (1987)

Berner, U.R. : "EVOLUTION OF PORE WATER CHEMISTRY DURING DEGRADATION OF CEMENT IN A RADIOACTIVE WASTE REPOSITORY ENVIRONMENT ", waste management, Vol. 12, pp. 201-219 (1992)

千々松正和,他: "熱-水-応力連成試験設備(COUPLE)における試験(その1), 天然岩体を用いた試験結果",動燃技術資料, PNC TN8410 97-025(1997)

千々松正和,他: "釜石原位置試験場における粘土充填・熱負荷試験結果", サイクル 機構技術資料, JNC TN8400 99-024 (1999a)

千々松正和,他: "熱-水-応力連成モデルを用いたニアフィールド解析評価",サイクル機構技術資料,JNC TN8400 99-014 (1999b)

大門 正機:セメントの科学-ポルトランドセメントの製造と硬化,内田老鶴圃,62p (1989)

D.L. Parkhurst.: "User's Guide to PHREEQC-A Computer Program for Speciation, Reaction-Path, Advective-Transport ,and Inverse Geochemical Calculations ",U.S. Geological Survey, Water-Resources Investigations Report 95-4227 (1995)

D. Savage ,K ,Lemke ,H. Sasamoto ,M. Shibata ,R.C. Arthur and M. Yui : "Models of Cement-Water Interaction and a Compilation of Associated Thermodynamic Data ", JNC Technical Report , JNC TN8400 2000-004 (2000)

入矢 桂史郎,藤井 健介,田島 孝敏,竹田 宣典,久保 博 : "低アルカリコンクリ ートの実用性評価",JNC業務委託報告書,JNC (2003, to be published)

磯貝武司,他: "圧縮ベントナイト間隙水の pH 測定(I) - 測定手法の開発 - ",サイ クル機構技術資料,JNC TN8400 2000-006(2000)

伊藤 彰,他: "熱-水-応力-化学連成挙動研究の現状と今後の計画", サイクル機

構技術資料, JNC TN8400 2001-028(2001)

伊藤 彰,他:"熱-水-応力-化学連成挙動に関する数値解析コードの開発",サイ クル機構技術資料,JNC TN8400 2002-022(2002)

伊藤 彰,他:"高レベル放射性廃棄物地層処分におけるニアフィールドの熱-水-応力-化学連成挙動に関する数値解析の取り組み",土木学会第58回年次学術講演 会 P.359-360 CS7-041 (2003)

中野政詩,他:"拘束された不飽和粘土の浸潤と膨潤圧",農業土木学会論文集,第112 号, pp.55-66.(1984)

小田治恵,柴田雅博:"ベントナイト - 水相互作用の実験とモデル化",サイクル機構 技術資料,JNC TN8400 99-032(1999)

大西有三,他:"人工バリアおよび周辺岩盤における連成モデルの開発プロジェクト 国際共同研究「DECOVALEX」",土木学会第 57 回年次学術講演会講演概要集, CS10-051,pp.483-484.(2002)

R.C. Arthur, H. Sasamoto, M. Shibata, M. Yui and A. Neyama: "Development of Thermodynamic Databases for Geochemical Calculations", JNC Technical Report, JNC TN8400 99-079 (1999)

サイクル機構:"わ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)

S. Börjesson : " Computer modeling of the interaction between water and complex solid phases ", Department of nuclear chemistry, Chalmers univ. Sweden (1997)

塩沢 晶:"サイクロメータによる土壌水のポテンシャル測定",土壌の物理性,第6 2号,pp.53-61.(1991)

佐々木康雄,他:"ベントナイト - 地下水反応に関する研究",動燃技報 No.92pp101-105 (1994) 鈴木英明,他:"緩衝材の不飽和水理特性", サイクル機構技術資料, JNC TN8430 99-010(1999a)

鈴木英明,他:"緩衝材の膨潤特性",サイクル機構技術資料,JNC TN8400 99-038 (1999b)

鈴木英明,他:"緩衝材の熱物性試験(II)", サイクル機構技術資料, JNC TN8430 99-006(1999c)

鈴木 覚,他:"圧縮ベントナイトの微細構造のモデル化と MD-HA 結合解析法の拡 散問題への適応,-先行基礎工学研究に関連した共同研究の研究開発状況-",サイ クル機構技術資料,JNC TY8400 2001-003(2001)

武井明彦,他:"セメント系材料の水理・力学特性の変遷に関する研究", JNC 業務 委託報告書, JNC TJ8400 2002-028 (2002)

竹内真司,他:"圧縮ベントナイトの水分特性曲線およ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, pp129-137, Sept. (1995)

山形順次,他:"緩衝材の特性試験(II)",動燃技術資料 PNC TN8410 92-169 (1992)

吉田 泰,油井三和:"地球化学計算コードで利用可能な JNC 熱力学データベース", JNC Technical Report, JNC TN8400 2003-005 (2003)

付録1 ベントナイトブロックの製作

1. ベントナイトブロックの仕様

連成試験に使用する緩衝材試験体の仕様は以下の通りとする。

外径: 290mm 内径: 100mm 高さ:930.5mmW 体積:V=54153.24cm³ 含水比: =12.7% 湿潤密度: ρ_r=1.803g/cm³

乾燥密度: $\rho_{a}=1.600g/cm^{3}$

緩衝材試験体の高さ方向については 10 分割することとした。ベントナイトブロックの形状は,付図 1-1 に示すようなドーナツ状であり,以下に示す二種類の寸法のベントナイトブロックを製作した。

外径: 290mm 内径: 100mm 高さ:100mm 外径: 290mm 内径: 100mm 高さ:65mm



付図 1-1 作製するブロックの形状

2.製作手順

ベントナイトブロックの製作に使用したアムスラーを付図 1-2 に示す。本アムスラ ーの最大荷重は 2000kN である。また,付図 1-3 には,使用した圧縮用治具を示す。 付図 1-3 に示すように,容器内に芯棒が設置されており,これに対応するように,押 し棒もドーナツ状になっている。付図 1-4~ 付図 1-21 には製作の一連の流れを示す。 また,付図 1-22~ 付図 1-26 には製作した試験体の質量および寸法の測定状況を示す。 付図 1-27~ 付図 1-31 には,完成品を水分が変化しないよう及び運搬時に破損しないよう養生している様子を示している。



付図 1-2 製作に使用したアムスラ-







付図 1-4 治具内部



付図 1-5 材料の投入



付図 1-6 材料投入直後



付図 1-7 材料表面のならし



付図 1-8 圧縮前の材料の状況



付図 1-9 押し棒の挿入



付図 1-10 圧縮直前の状況



付図 1-11 圧縮状況



付図 1-12 圧縮終了時



付図 1-13 押し棒の抜き出し



付図 1-14 圧縮終了後の試験体下部の状況



付図 1-15 圧縮終了後の試験体上部の状況



付図 1-16 試験体抜き出し用治具および試験体破損防止用底敷き



付図 1-17 圧縮用治具の再設置



付図 1-18 抜き出し状況



付図 1-19 抜き出し後の状況



付図 1-20 抜き出し後の状況



付図 1-21 抜き出し後の状況


付図 1-21 質量測定状況



付図 1-22 質量測定結果



付図 1-23 試験体外径測定状況



付図 1-24 試験体内径測定状況



付図 1-25 試験体高さ(外側部)測定状況



付図 1-26 試験体高さ(内側部)測定状況

付-1(11)



付図 1-27 完成品



付図 1-28 試験体をラップで養生



付図 1-29 ラップ養生後



付図 1-30 ビニール詰め



付図 1-31 エアーキャップによる保護

3.検査結果

高さ 100mm のベントナイトブロックを 11 体,高さ 65mm のベントナイトブロックを 4 体の計 15 体の試験体を製作した。付表 1-1 には質量及び寸法の測定結果を示す。 製作精度は質量に関しては±0.05%,高さに関しては±1%である。 付表1-1 ベントナイトブロック製作結果

| ブロック | ブロック 設定高さ 設定外径 設定内径 最大荷重 外径直径(mm) | | | 内径直 | 内径直径(mm) 外径高さ(mm) | | | | | 内径高さ(mm) | | | 質量 | 平均外径直径 | 平均内径直径 | 平均外径高さ | 平均内径高さ | 体積 | 湿潤密度 | 乾燥密度 | | | | |
|--------------------|-----------------------------------|------|------|--------------|-------------------|--------|--------|--|--------------|----------------|--|--------|-----------------|----------|--------|--------|--------------|-------------|---------------------|-------------------|--------|--------------------|----------------------|------------|
| No. | (mm) | (mm) | (mm) | (kN) | 1 | 2 | 1 | 2 | 1 | 2 | 3 | 4 | 1 | 2 | 3 | 4 | (g) | (mm) | (mm) | (mm) | (mm) | (cm ³) | (g/cm ³) | (g/cm^3) |
| 1 | 100 | 290 | 100 | 134.0 | 290.30 | 290.30 | 100.00 | 100.00 | 99.80 | 99.75 | 99.60 | 100.35 | 99.80 | 99.75 | 99.90 | 100.00 | 10491.6 | 290.30 | 100.00 | 99.88 | 99.86 | 5826.28 | 1.801 | 1.598 |
| 2 | 100 | 290 | 100 | 135.3 | 290.00 | 290.10 | 100.00 | 99.81 | 99.90 | 100.00 | 100.00 | 99.90 | 99.90 | 100.00 | 100.00 | 100.00 | 10492.5 | 290.05 | 99.91 | 99.95 | 99.98 | 5820.46 | 1.803 | 1.600 |
| 3 | 100 | 290 | 100 | 131.1 | 290.10 | 290.00 | 100.10 | 100.00 | 100.10 | 100.30 | 100 | 100.00 | 100.10 | 100.10 | 100.25 | 100.20 | 10491.6 | 290.05 | 100.05 | 100.13 | 100.16 | 5828.83 | 1.800 | 1.597 |
| 4 | 100 | 290 | 100 | 134.1 | 290.30 | 290.20 | 99.90 | 100.00 | 99.90 | 99.80 | 99.60 | 99.60 | 99.66 | 99.66 | 99.71 | 99.90 | 10492.2 | 290.25 | 99.95 | 99.73 | 99.73 | 5815.88 | 1.804 | 1.601 |
| 6 | 100 | 290 | 100 | 134.2 | 290.30 | 290.20 | 99.90 | 99.82 | 100.20 | 100.50 | 100.55 | 100.30 | 100.55 | 100.30 | 100.55 | 100.25 | 10489.6 | 290.25 | 99.86 | 100.39 | 100.41 | 5855.80 | 1.791 | 1.589 |
| 7 | 100 | 290 | 100 | 135.4 | 290.30 | 290.30 | 99.78 | 100.00 | 99.30 | 99.70 | 100.00 | 100.00 | 99.65 | 99.65 | 99.70 | 99.50 | 10494.2 | 290.30 | 99.89 | 99.75 | 99.63 | 5821.59 | 1.803 | 1.599 |
| 8 | 100 | 290 | 100 | 136.1 | 290.30 | 290.30 | 100.00 | 100.00 | 99.90 | 99.70 | 100.00 | 99.80 | 100.00 | 99.80 | 99.85 | 99.90 | 10497.1 | 290.30 | 100.00 | 99.85 | 99.89 | 5824.43 | 1.802 | 1.599 |
| 9 | 100 | 290 | 100 | 135.9 | 290.30 | 290.30 | 100.00 | 100.00 | 100.00 | 100.05 | 100.00 | 100.05 | 99.95 | 100.30 | 99.95 | 99.85 | 10495.6 | 290.30 | 100.00 | 100.03 | 100.01 | 5835.03 | 1.799 | 1.596 |
| 10 | 100 | 290 | 100 | 136.9 | 290.30 | 290.30 | 100.00 | 100.00 | 99.75 | 99.55 | 99.70 | 99.50 | 99.85 | 99.60 | 99.70 | 99.80 | 10498 | 290.30 | 100.00 | 99.63 | 99.74 | 5810.71 | 1.807 | 1.603 |
| 11 | 100 | 290 | 100 | 135.9 | 290.03 | 290.30 | 100.00 | 100.00 | 99.85 | 99.65 | 99.90 | 99.75 | 99.65 | 99.65 | 99.75 | 99.75 | 10495.9 | 290.17 | 100.00 | 99.79 | 99.70 | 5815.62 | 1.805 | 1.601 |
| 12 | 100 | 290 | 100 | 134.5 | 290.30 | 290.30 | 100.00 | 100.00 | 99.90 | 99.55 | 99.65 | 99.95 | 99.65 | 99.90 | 99.70 | 100.00 | 10495.7 | 290.30 | 100.00 | 99.76 | 99.81 | 5819.23 | 1.804 | 1.600 |
| 13 | 65 | 290 | 100 | 131.2 | 290.30 | 290.30 | 100.00 | 100.00 | 64.65 | 64.75 | 65.10 | 64.90 | 64.80 | 64.85 | 64.70 | 64.75 | 6821.2 | 290.30 | 100.00 | 64.85 | 64.78 | 3783.60 | 1.803 | 1.600 |
| 14 | 65 | 290 | 100 | 131.1 | 290.30 | 290.30 | 100.00 | 100.00 | 65.30 | 64.90 | 64.50 | 64.75 | 64.65 | 64.75 | 65.10 | 65.05 | 6821.2 | 290.30 | 100.00 | 64.86 | 64.89 | 3783.54 | 1.803 | 1.600 |
| 15 | 65 | 290 | 100 | 133.5 | 290.30 | 290.30 | 99.94 | 100.00 | 64.70 | 65.05 | 64.50 | 64.70 | 64.55 | 64.65 | 64.55 | 64.90 | 6820.2 | 290.30 | 99.97 | 64.74 | 64.66 | 3777.34 | 1.806 | 1.602 |
| 16 | 65 | 290 | 100 | 131.9 | 290.30 | 290.30 | 99.96 | 99.94 | 64.80 | 64.60 | 64.55 | 64.65 | 64.55 | 64.60 | 64.60 | 64.55 | 6819.5 | 290.30 | 99.95 | 64.65 | 64.58 | 3772.44 | 1.808 | 1.604 |
| | | | | | | | | | | | | | | 100 | mm | 最大値 | 10498.0 | 290.30 | 100.05 | 100.39 | 100.41 | 5855.8 | 1.807 | 1.603 |
| | | | | | | | | | | | | | | 100 | | 最小値 | 10489.6 | 290.05 | 99.86 | 99.63 | 99.63 | 5810.7 | 1.791 | 1.589 |
| | | | | | | | | | | | | | | 65 r | nm | 最大値 | 6821.2 | 290.30 | 100.00 | 64.86 | 64.89 | 3783.6 | 1.808 | 1.604 |
| | | | | | | | | | | | | | | 001 | | 最小値 | 6819.5 | 290.30 | 99.95 | 64.65 | 64.58 | 3772.4 | 1.803 | 1.600 |
| <測 | 定ポイント | ·図 > | | | | | | | | | | | | | <備考: | > | | | | | | | | |
| | | | | | | | | | | (= | · ــــــــــــــــــــــــــــــــــــ | | | | | r | | 1 | 新日(1) | | | | | |
| | | | | | | | | | 机宁店 | 買重(g) 号小竹窗植 | 早十新家店 | 机空店 | 厚さ(MM) 星小新家植 | 早十次灾体 | | | | | | | | | | |
| (1991日 | 1 凶) | | | | (上間) | ы) | | | | 701 | ェ側たり を測定す | ペイント・・ | ttb~ c.t | 5点 1占 | | | | 設化直 | 取小計台III (-0.05%) | 取入計台値 (+0.05%) | 即头友 | 取小計台値 (-1%) | 取入計台삩 (+1%) | |
| | | В | | | / | | | | | 1.21 | | | u u-e | | | 100mi | nブロック | 10494 3 | 10489.0 | 10499.5 | 100 | 99.00 | 101.00 | |
| | a | b | | \mathbf{a} | | | | | \backslash | | | | | | | 65mn | コプロック | 6821.3 | 6817.9 | 6824.7 | 65 | 64.35 | 65.65 | |
| | | | | | | | | | | | | • | | | | | | | | | | | | |
| | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| А | | | | | | | | | 戟 | Σ燥密度(g/cn | n ³) | | | | | | | | | | | | | |
| / 内径測定ポイント・・a-cライン | | | | | | | | | 設定値 | 最小許容値 | 最大許容値 | | | | | | | | | | | | | |
| b-dライン | | | | | | | 100mi | nブロック | 1.600 | 1.583 | 1.621 | | | | | | | | | | | | | |
| | | | | | | | i | | | | | | | | | 65mn | コノロック | 1.600 | 1.583 | 1.617 | | | | |
| | | | | | | | I | | | | | | | | ÷n | | ± (, (, 3) | | 1 000 | | | | | |
| D | | | | | | | 設正 | *設定钇/架쑵度(Q/CM) = 1.000 .今☆ヒ/𝔄) = 12.7 | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | | | | | | | | | | | | | | | ·h=100 |)mm時の | い設定休穏 | $[(cm^3) =$ | 5819.8 | 最小値 | 5745.9 | 最大値 | 5878.0 | |
| | | | | | | | | | | | | | | | •h=65r | nm時の | 設定体積 | $(cm^3) =$ | 3782.9 | 最小值 | 3745.0 | 最大値 | 3820.7 | |

付録2 圧縮ベントナイトへの pH 計の適応性に関する検討

1.はじめに

熱-水-応力-化学の連成試験においては,緩衝材中の化学場を把握するための一 指標として,圧縮ベントナイト間隙水のpHの計測を行っている。試験に使用したpH 計は,一般的な土壌の管理などを目的に製作販売されているガラス電極および ISFET 電極の二種類のpH 計である。しかしながら,測定対象である緩衝材は,乾燥密度が 1600kg/m³の圧縮ベントナイトであり,飽和状態であっても含水比は 25%程度と間隙 水量が極めて少ない。また,連成試験の初期,緩衝材は不飽和状態にあり,水の浸潤 により不飽和から飽和に推移することになる。このような条件下において,選定した pH 計によって計測が可能かどうかを把握する必要がある。

そこで,先ず,比較的計測が容易であると考えられるベントナイト懸濁液試料を用 いて,pH が測定可能かどうかを確認するための試験を実施した。そして,固液比と pH の巨視的な関係を把握し,計測がより困難であろう圧縮ベントナイトの pH 計測値 の妥当性を検討した。

次に,不飽和状態から飽和状態に推移する過程で,圧縮ベントナイトの pH 計測値が どのように変化するのか,飽和度がどの程度になれば pH の計測が達成できるのかな どを把握するため,浸潤過程での pH の変化を測定するための試験を実施した。

最後に,X線回折によるスメクタイトの層間距離など,これまでに得られている知見から,圧縮ベントナイト中の水の保水形態ついて整理を試みた。

- 2. 飽和状態での間隙水の pH 測定
- 2.1 試験条件

ベントナイト粉末(クニゲルV1)と蒸留水を任意の固液比で混合したものを試料 とした。含水比が1000%~300%程度までは,懸濁液と見なせる状態であるが,含水 比が200%以下になると流動性に乏しく固体のような状態となる。

これらの試料に対して,ガラス電極 pH 計, ISFET 電極 pH 計および pH 試験紙を用い て測定を実施し計測値の比較を行なった。測定は,試料調整後 10 日以内のものと, 試料調整後 2 ヶ月を経過したものに対して実施し,水 - ベントナイトの反応時間の影響についても確認した。

また,間隙水のpHに及ぼすベントナイト粒子の影響を確認するための試験を実施した。試験は,ガラス電極pH計を用い,プローブ先端と試料との間に孔径1µmのテフロンフィルターを介在させ,テフロンシートを透過した間隙水の測定を行い,プローブを試料に直接接触させて測定した場合との比較を行った。

さらに,体積を拘束した圧縮ベントナイトに水を浸潤させ,飽和させた後に,ISFET 電極 pH 計を圧縮ベントナイトに突き刺して測定を行なった。

これら試料の調整や pH の測定は大気下,室温にて実施した。

測定に用いた pH 計および pH 試験紙の仕様を以下に示す。

(a) ガラス電極 pH 計(藤原製作所 PHS-1型)

- 測定範囲 : 2~12pH
- 使用温度 :~50
- 耐熱温度 :~70
- 内部電極 : 塩化銀
- 内部溶液 :KC1
- センサー部寸法 : 30mm×50mm

(b) ISFET 電極 pH 計(大起理科工業(株) IQ-200PH 型)

| 測定範囲 | : 0 ~ 14pH |
|---------|----------------|
| 使用温度 | : ~ 105 |
| 内部電極 | :塩化銀 |
| 内部溶液 | :KClゲル |
| センサー部寸法 | : 8mm × 1000mm |

(c)pH 試験紙(pH-Fix)

| 測定領域 | :7.5~9.5pH |
|--------|--------------|
| 測定目盛間隔 | :0.2 あるいは0.4 |
| サイズ | :6mm×85mm |

- 2.2 試験結果
- (1)ベントナイト懸濁液

ベントナイト懸濁液(含水比100~1000%)の pH 測定結果を付図 2-1 に示す。測定 は,含水比調整後10日以内の場合と調整後2ヶ月経過した場合について実施した。 測定には,ISFET 電極 pH 計,ガラス電極 pH 計および pH 試験紙を用いた。

これより, ISFET 電極 pH 計,ガラス電極 pH 計および pH 試験紙による測定結果とも に含水比が低いほど pH は小さくなるなり,固液比依存性が顕著であることが分かる。 これは,小田らが懸濁液に対してガラス電極の pH 計を用いて測定した結果と同じ傾 向となっている(小田・柴田,1999)。

また,ベントナイト粉末と蒸留水を混合して 10 日以内に測定した場合に比べて,2 ヶ月経過後に測定した場合のほうが pH は低くなっている。これは,試料調整および pH 測定を大気下で行なっていることから,ベントナイトの含有鉱物であるパイライ ト(FeS₂)の溶解によるものと考えられる。

含水比が 100~1000%の範囲において, ISFET 電極 pH 計, ガラス電極 pH 計および pH 試験紙による計測値は良く一致している。また,含水比 100%での ISFET 電極 pH 計による測定値がばらつく要因としては,試料の流動性が乏しいことによるセンサー 部との接触状態によるものと推測される。



付図 2-1 pH 測定結果の比較

(2)ベントナイト粒子の影響

これまで, 圧縮ベントナイト中の間隙水の pH は, 遠心分離により間隙水を取り出す 方法や(小田・柴田, 1999), pH 指示薬を含浸させた合成吸着剤と保護フィルターを 組み合わせて圧縮ベントナイト中に埋設して発色させる方法(磯貝ほか, 2000)など により計測が行なわれてきた。これらの方法はいずれもベントナイトと間隙水を分離 し,ベントナイト粒子が存在しない間隙水の pH を計測していることになる。しかし ながら,連成試験において pH 計によって緩衝材の pH を測定する場合には,ベントナ イト粒子の影響を受けた状態での計測となる。このため,ベントナイト粒子が同時に 存在する場合と,分離した間隙水を測定する場合とで, pH がどの程度異なるのか, さらには,連成試験での pH 計の使用を考慮した場合に, pH 計プローブの先端にフィ ルターを取り付け,このフィルターにより間隙水を分離するといったような簡易的な 方法で計測が可能なのかどうかを把握するための試験を実施した。

試験は,ガラス電極 pH 計を用い,pH 計プローブを試料に直接接触させて測定した場合と,プローブ先端と試料との間に孔径1µmのテフロンフィルターを取り付け,テ

付-2(4)

フロンシートを透過した間隙水を測定する方法で計測を行い,両者の値を比較した。 測定結果を付図 2-2 に示す。これより,pH 計プローブを試料に直接接触させて測定 した場合に比べて,テフロンフィルターをプローブ部に取り付けた場合のほうが pH は低く計測されることが分かった。ここで,含水比 300%以上の試料では,テフロン フィルターが試料の水分を吸収し湿った状態となっていることが確認でき,含水比 800%の試料においては,テフロンフィルターとプローブ先端の間に水が溜まってい ることが確認できた。しかしながら,含水比 100%の試料については,pH=7.2 程度の 指示値は得られたものの,テフロンフィルターは完全に乾燥した状態にあり,間隙水 の計測が達成できた可能性は低い。

連成試験で対象となる緩衝材は, 飽和状態においても含水比は25%程度であり,フィルターを通して間隙水を分離するといったような簡易的な方法によって pH を計測することは不可能である。このため,連成試験における pH の計測は, pH 計プローブをベントナイトと直接接触させて計測することとした。



付図 2-2 懸濁液を直接測定した場合とテフロンフィルターを介在させ 間隙水のみを測定した場合の pH の比較

(3) 圧縮ベントナイト

乾燥密度1200~1600kg/m³の飽和した圧縮ベントナイトを対象にISFET電極pH計と pH 試験紙により測定を行なった。試料は,それぞれの密度に圧縮成型したベントナ イトの体積を拘束し,蒸留水を浸潤させる方法で飽和させた。養生期間は約2ヶ月で ある。そして,ISFET 電極 pH 計では,圧縮ベントナイトにプロープを突刺すことで, また,pH 試験紙では,圧縮ベントナイトに強く圧し,間隙水を圧密排水させる方法 で発色させた。

測定結果を付図 2-3 に示す。これより, pH 試験紙による測定結果では,測定目盛間 隔の関係上, pH は 8.4の一定値に目視判断された。また, ISFET 電極 pH 計による測 定では, pH=8.2~8.6の範囲となり,両者の測定値が概ね一致する結果であった。



付図 2-3 飽和した圧縮ベントナイトの pH 測定結果

(4) まとめ

今回得られたデータのうち,水-ベントナイトの反応時間が2ヶ月程度のものだけ について付図2-4に示す。図中の磯貝らによる測定値も,反応時間が2ヶ月のもので ある(磯貝ほか,2000)。また,小田らのデータは,遠心分離による上澄み液をガラ ス電極pH計で計測したものである(小田・柴田,1999)。これより,測定する機器に よるバラツキや,土粒子の有無などによりpHが若干異なるものの,巨視的にみると, 比較的計測が容易と考えられる懸濁液系での測定値の延長上に圧縮ベントナイトの 測定値が来る結果となっている。

そして, ISFET 電極 pH 計による測定値と pH 試験紙での測定値が同等の値であることや, pH 指示薬を担持させた合成吸着剤を発色させる方法によって得られた値(磯 貝ほか, 2000)とも同等であることが分かった。

このようなことから, 飽和した圧縮ベントナイトの pH 測定には, ISFET 電極の pH 計が適応できるものと考えられる。



付図 2-4 pH 計適応試験における pH の測定結果

3.不飽和状態の pH 測定

3.1 試験条件

ここでは,不飽和状態から飽和状態に推移する過程で,圧縮ベントナイト間隙水の pH 計測値がどのように変化するのかを把握するため,浸潤過程での pH の変化を測定 するための試験を実施した。

試験は,不飽和な圧縮ベントナイトにガラス電極 pH 計のプローブ部を埋設し,供試体下部より蒸留水を浸潤させ,浸潤過程での pH の変化を測定した(付図 2-5,2-6 参照)。

圧縮ベントナイトは,連成試験での緩衝材試験体と同仕様のケイ砂 30wt%混合体で あり,乾燥密度は1600kg/m³,初期の含水比は約10%,飽和度に換算すると約40%で ある。試験条件をまとめて付表 2-1 に示す。

| 供試体 | ケイ砂 30wt %混合材 |
|-------|------------------------|
| 乾燥密度 | 1600 kg/m ³ |
| 初期含水比 | 10.35% |
| 浸潤水 | 蒸留水 |
| 温度 | 室温 |
| 雰囲気 | 大気 |
| 試験数 | 2 |

付表 2-1 試験条件



付図 2-5 ガラス電極 pH 計による浸潤過程での pH 測定



(a) 試体に pH 計プローブが入る孔 (直径 30mm)を掘削した状態



(b)pH計プローブを埋設し試験カラムを組上げた状態

付図 2-6 ガラス電極 pH 計の適応性試験

3.2 試験結果

水の浸潤にともなう pH 計測値の変化を付図 2-7 に示す。図中には,第4章で示した 緩衝材の水分勾配による水分移動パラメータを用いて汎用有限要素法解析システムの ABAQUS により求めたプローブ先端部の飽和度を合わせて示す。

これより,供試体の飽和度が約40%の初期状態において,計測されたpHは7程度で あった。そして,水の浸潤にともないpHの計測値は上昇し,約300時間後にpHの計 測値は7.8程度となった。この時の飽和度は,計算値で約90%である。その後,若干 の変動があるものの1000時間後までpHの計測値は7.8程度で推移していることが分 かる。このようなpHの計測値および飽和度の変化から,圧縮ベントナイトの飽和度が 90%以下のときのpHについては,計測が達成できたかどうかは不明であるが,飽和度 が90%以上になれば,計測が達成できている可能性がある。

付図 2-8 には,試験終了時の状態を示す。これより, pH 計プローブの先端部と接していたベントナイトが飽和状態にあることが分かる。

試験体のうちのひとつは,水の浸潤開始直後に計測不能となった。計測不能になった 原因の一つに,緩衝材のサクションによって,pH計の比較電極のKCI溶液が液絡部よ り流出し欠乏したことが推測される。このことから,連成試験においては,ガラス電 極 pH計の耐久性も問題となる。



付図 2-7 ガラス電極 pH による浸潤過程における pH の測定結果



(a) プローブを取り除いた状態



(b)プローブ先端部



4. 圧縮ベントナイトの水の保水状態について

(1) クニゲル V1 (乾燥密度 1800kg/m³)の圧縮ベントナイトの場合

ここでは,乾燥密度 1800kg/m³のクニゲル V1,初期含水比 10%(= 飽和度 54%)を モデルに考える。

乾燥密度 1800kg/m³のクニゲル V1 に水を浸潤させた時の底面間隔の変化を付図 2-9 に示す(山形ほか,1992)。これより,水を浸潤させる前の底面間隔は,一様に 12.5

であり,これは水分子一層に相当する。そして,ゲル化した浸潤面が18.5 になっているのを除外し,24時間後には浸潤面より8mmまでが,48時間後には16mmまでが15.5 (水分子二層)に変化していることが分かる。そして,65時間後には,供試体全域が15.5 (水分子二層)となり,以降,浸潤時間を長くしても,層間がこれより大きくはなっていない。すなわち,乾燥密度1800kg/m³のクニゲル V1 の場合,スメクタイト層間には最大で二層の水分子が入ることになる。

付図 2-10 は,乾燥密度が 1800kg/m³のクニゲル V1 に水を浸潤させた時の水分分布図 である(山形ほか,1992)。これより,層間の水分子が二層となる 24 時間後の浸潤面 より 8mm の位置および 48 時間後の 16mm の位置での含水比は両者とも 12%程度となっ ている。含水比 12%は飽和度に換算すると 65%である。

このことから, 付図 2-11 に示すように, 飽和しているクニゲル V1(乾燥密度 1800kg/m³)の場合, 間隙率 33.3%の内, 65%が層間による保水, 35%が粒子間隙による保水であると見積もることができる。これは, 竹内らがベントナイト中の積層体の数とスメクタイトの表面積から算出した間隙の 68%が層間間隙, 32%が粒子間隙という計算結果と良く一致する(竹内ほか, 1995)。

仮に,スメクタイト層間への浸潤が優先的に行なわれるのであれば,付図 2-12 に示 すように飽和度 65%までは粒子間隙に水は存在せずに,全て層間による保水となり, 飽和度 65%以上になると粒子間隙に水が存在し始めることになる。









1800kg/m³のクニゲルV1

付図 2-11 クニゲル V1 (乾燥密度 1800 k g/m³)の飽和時の保水状態



付図 2-12 クニゲル V1 密度(乾燥密度 1800 kg/m³)の浸潤過程の保水形態

(2) ケイ砂 30wt % 混合体(乾燥密度 1.6g/cm³)の圧縮ベントナイトの場合

次に,乾燥密度1600kg/m³のケイ砂30wt%混合体,初期含水比13%(=飽和度52%) をモデルに考える。

ケイ砂混合体の微細構造のモデル化では,スメクタイト密度という考え方が導入され ている(鈴木ほか,2001)。スメクタイト密度は,ベントナイトのスメクタイト含有率 と供試体の乾燥密度から求められ,付図2-13のような関係にある。これより,ケイ砂 30wt%混合体(乾燥密度1600kg/m³)のスメクタイト密度は,約900kg/m³となる。ま た,スメクタイトを代表してクニピアFの底面間隔測定が行なわれている。飽和して いる乾燥密度900kg/m³のクニピアFのX線回折パターンは付図2-14に示すように, 4.6deg.に回折ピークがみられ,これは層間距離18.8 ,水分子三層に相当する。

この結果から,スメクタイト密度が約 900kg/m³のケイ砂 30wt%混合体(乾燥密度 1600kg/m³)では,スメクタイト層間には最大で三層の水分子が入ることになる。

前述したように,クニゲル V1(乾燥密度 1800kg/m³)では,スメクタイト層間に二層 の水分子を持つときの含水比は 12%であった。クニゲル V1のスメクタイト含有率を 50%とし,クニゲル V1の保水が全てスメクタイトによるものとすれば,スメクタイト の保水量は,重量比(=保水重量/スメクタイト重量)で24%と見積もることができ る。これを,ケイ砂 30wt%混合体(乾燥密度 1600kg/m³)に拡張すれば,スメクタイ ト層間に二層の水分子を持つときの含水比は,スメクタイト保水量の重量比24%×ベ ントナイト配合率 70%×スメクタイト含有率 50%=8.4%となる。そして,スメクタ イト層間に三層の水分子を持つときの含水比は,これを1.5倍した12.6%となり,飽 和度に換算すると約50%となる。したがって,乾燥密度 1600kg/m³のケイ砂30wt%混 合体の場合,スメクタイト層間には最大で三層の水分子が入るとすれば,付図2-15に 示すように,飽和している供試体の間隙の50%が層間による保水,50%が粒子間隙に よる保水となる。

これより,スメクタイト層間への浸潤が優先的に行なわれるのであれば,乾燥密度 1600kg/m³のケイ砂混合体(初期含水比 13%=飽和度 52%)の場合,初期状態におい てスメクタイト層間には三層の水分子が存在し,粒子間隙に水は存在しないことにな る。すなわち,付図 2-16 に示すように,初期飽和度 50%の供試体に水が浸潤する場 合には,スメクタイト層間には既に上限の水分子が存在するため,全て粒子間隙への 浸潤ということになる。



付図 2-13 スメクタイト密度と供試体乾燥密度の関係(鈴木ほか,2001)



付図 2-14 クニピア F の飽和した供試体の XRD パターン(鈴木ほか, 2001)



1600kg/m³のケイ砂混合体

付図 2-15 ケイ砂混合体(乾燥密度 1600 kg/m3)の飽和時の保水状態



付図 2-16 ケイ砂混合体(乾燥密度 1600 kg/m3)の浸潤過程の保水状態

付録3 緩衝材試験体中へのセンサーの設置



付図 3-1 ベントナイトブロック No.2(下から 3 段目)に設置した熱電対 (ヒーター壁面より 20,50,80mmの位置に熱電対の先端がある)



付図 3-2 ベントナイトブロック No.4(下から 5 段目)に設置した熱電対 (ヒーター壁面より 20,50,80mmの位置に熱電対の先端がある)



付図 3-3 ベントナイトブロック No.4(下から 5 段目)に設置した熱電対 (ヒーター壁面より, 10, 35, 65mmの位置に熱電対の先端がある)



付図 3-4 ベントナイトブロック No.5(下から6段目)を積み上げた状態 (ガラス電極 pH 計を設置する2ヶの孔と湿度計を設置する4ヶの孔を施工)



付図 3-5 ベントナイトブロック No.5(下から6段目)に施工した 湿度計を設置する深さ 90mmの孔



付図 3-6 ベントナイトブロック No.5(下から6段目)に設置した湿度計



付図 3-7 ベントナイトブロック No.5(下から6段目)に湿度計および ケーブルを埋設処理した状態(写真左の黒いケーブル4本)



付図 3-8 ベントナイトブロック No.5(下から6段目) に施工したガラス電極 pH 計用の深さ 90mmの孔。



付図 3-9 ベントナイトブロック No.7(下から7段目)に設置したガラス電極 pH 計



付図 3-10 ガラス電極 pH 計の設置(写真上はブロック No.7,下のブロックは No.5)



付図 3-11 ベントナイトブロック No.8(下から 8 段目)に施工した ISFET 電極 pH 計を 挿入するための導入管用の孔(深さは 100mmであり,したがって ISFET 電 極 pH 計の先端は,GL-265mmに達する)



付図 3-12 ベントナイトブロック No.8(下から 8 段目)に設置した熱電対 (ヒーター壁面より 20,50,80mmの位置に熱電対の先端がある)



付図 3-13 ベントナイトブロック No.8(下から8段目)に設置したサイクロメータ (ヒーター壁面より25,50,75mmの位置にプローブの先端がある)



付図 3-14 ベントナイトブロック No.8(下から8段目)にベントナイトブロック間の膨潤圧を測定する土圧計を設置



付図 3-15 ベントナイトブロック No.8(下から8段目)の各センサーの設置状態 (手前3ヶの孔は ISFET 電極 pH 計を挿入するための導入管用の孔)



付図 3-16 ベントナイトブロック No.8(下から 8 段目)に ISFET 電極 pH 計 を挿入するための導入管を設置した状態



付図 3-17 ベントナイトブロック No.9(下から9段目)を積み上げた状態



付図 3-18 ベントナイトブロック No.13(下から 10 段目,緩衝材試験体の上面であり, GL-0mmになる)に ISFET 電極 pH 計を挿入するための導入管を設置した状態



付図 3-19 ベントナイトブロック No.13(下から 10 段目,緩衝材試験体の上面であり, GL-0mmになる)に土圧計を設置した状態



付図 3-20 ベントナイトブロック No.13 (下から 10 段目, GL-0mm)に土圧計, 熱電対, ISFET 電極 pH 計を挿入するための導入管を設置した状態



付図 3-21 膨出抑制用のプレートを装着



付図 3-22 ベントナイトブロック間の隙間をベントナイトで処理



付図 3-23 センサーの設置が完了した緩衝材試験体(1)



付図 3-24 センサーの埋設が完了した緩衝材試験体(2)

付録4 熱電対による温度計測結果
模擬岩体および緩衝材試験体中に設置した熱電対によって得られた温度の経時変化 を付図 4-1~付図 4-3 に示す。付図 4-1 は,熱電対 K タイプによって測定した模擬岩 体中の温度,付図 4-2 は,熱電対 T タイプによって測定した模擬岩体中の温度,付図 4-3 は,熱電対 T タイプによって測定した緩衝材試験体中の温度である。模擬岩体中 に埋設した熱電対のうちの数本は,断線等により設置当初より計測不能であった。 計測は一時間毎に実施した。図中凡例は,熱電対の番号であり,設置位置は,図 2-12 ~図 2-18 に示す通りである。



付図 4-1 熱電対 K タイプによる模擬岩体中の温度測定結果(1/5)



付図 4-1 熱電対 K タイプによる模擬岩体中の温度測定結果(2/5)



付図 4-1 熱電対 K タイプによる模擬岩体中の温度測定結果(3/5)



付図 4-1 熱電対 K タイプによる模擬岩体中の温度測定結果(4/5)



付図 4-1 熱電対 K タイプによる模擬岩体中の温度測定結果(5/5)



付図 4-2 熱電対 K タイプによる模擬岩体中の温度測定結果(1/3)



付図 4-2 熱電対 K タイプによる模擬岩体中の温度測定結果(2/3)



付図 4-2 熱電対 K タイプによる模擬岩体中の温度測定結果(3/3)



付図 4-3 熱電対 T タイプによる緩衝材試験体中の温度測定結果(1/4)



付図 4-3 熱電対 ⊤ タイプによる緩衝材試験体中の温度測定結果 (2/4)



付図 4-3 熱電対 T タイプによる緩衝材試験体中の温度測定結果(3/4)



付図 4-3 熱電対 T タイプによる緩衝材試験体中の温度測定結果(4/4)

付録5 間隙水圧の計測結果

模擬岩体中の間隙水圧の計測結果を付図 5 に示す。 図中凡例は,間隙水圧計の番号であり,設置位置は図 2-12 に示す通りである。



付図5 間隙水圧計測結果(1/2)



付図5 間隙水圧測定結果(2/2)

付録6 サイクロメータによる化学ポテンシャル の計測結果および含水比

サイクロメータによって計測された化学ポテンシャルの経時変化を付図 6-1 に,含水比の換算したものを付図 6-2 に示す。図中の凡例は,サイクロメータの番号であり,設置位置は,図 2-15~2-17 に示す通りである。



付図 6-1 サイクロメータによる化学ポテンシャルの測定結果(1/5)



付-6(3)







付図 6-1 サイクロメータによる化学ポテンシャルの測定結果(5/5)









付録7 湿度計による含水比測定結果



湿度計によって計測した含水比の経時変化を付図7に示す。 図中の凡例は,湿度計の番号であり,設置位置は,図2-15~2-17に示す通りである。



付図7 湿度計により求めた含水比の経時変化(2/2)

付録8 土圧計による膨潤圧・膨潤応力の計測結果

緩衝材試験体を構成するベントナイトブロックのつなぎ目に設置した土圧計により得られた膨潤圧を付図 8-1 に,緩衝材試験体と境界壁面との間に設置した土圧計により得られた膨潤応力を付図 8-2 に示す。

土圧計の設置位置は,図2-15~2-17に示す通りである。



付図 8-1 膨潤圧の計測結果(1/2)



(g) SPB-07

付図 8-1 膨潤圧の計測結果(2/2)



付図 8-2 膨潤応力の計測結果(1/2)



付図 8-2 膨潤応力の計測結果(2/2)

付録9 緩衝材試験体の解体・サンプリング



付図 9-1 緩衝材試験体を取り出す前の状態



付図 9-2 クレーンにて緩衝材試験体を模擬岩体から吊り出している様子



付図 9-3 模擬岩体より取り出した緩衝材試験体



付図 9-4 緩衝材試験体を取り出した後の模擬人工バリア孔


付図 9-5 緩衝材試験体底部から表面分析用試料のサンプリング



付図 9-6 緩衝材試験体上部



付図 9-7 水分蒸発防止のための食品用フィルムで養生を終えた状態



付図 9-8 緩衝材試験体の解体前(写真手前の腺はケガキ腺)



付図 9-9 最上部のベントナイトブロック No.13 北方向の 1/4 を切り出した状態



付図 9-10 ベントナイトブロック No.13 の北方向を 1/4 に切り分けたブロック (この後,含水比測定のためにサンプリングおよび p H計測が行なわれる)



付図 9-11 ベントナイトブロック No.9 の上面 (切り出しは写真左のタガネを使用)



付図 9-12 ベントナイトブロック No.9 北方向に埋設していた湿度計



付図 9-13 ベントナイトブロック No.9 の北方向を 1/4 に切り分けたブロック



付図 9-14 ベントナイトブロック No.8 の上面



付図 9-15 ベントナイトブロック No.8 の北方向 1/4 を切り取った状態



付図 9-16 ベントナイトブロック No.8 の北方向を 1/4 に切り取ったブロック (この後,含水比測定のためにサンプリングおよび p H 計測が行なわれる)



付図 9-17 ベントナイトブロック No.8 の東方向を 1/4 に切り取ったブロック (写真中 3 ヶの孔は, ISFET 電極 pH 計を挿入するステンレス製のパイプ用孔)



付図 9-18 ベントナイトブロック No.7 の上面



付図 9-19 ベントナイトブロック No.7 東方向 1/4 を切り取った状態 (写真手前白く見えるのは,埋設したガラス電極 p H 計)



付図 9-20 緩衝材試験体中に埋設したガラス電極 p H 計



付図 9-21 緩衝材試験体中に埋設したガラス電極 p H 計 (試験期間中に計測不能になったが,ガラス部分の破損は見られなかった)



付図 9-22 ベントナイトブロック No.5 の北方向 1/4 を切り取った状態 (写真中白く見えるのは,埋設したサイクロメータのケーブル)



付図 9-23 ベントナイトブロック No.5 の北方向を 1/4 に切り取ったブロック (この後,含水比測定のためにサンプリングおよび p H計測が行なわれる)



付図 9-24 ベントナイトブロック No.5 の北方向を 1/4 に切り取ったブロック (写真手前は,廃棄体を模擬したヒーターとの接触面)



付図 9-25 ベントナイトブロック No.5の東方向を 1/4 に切り取ったブロック



付図 9-26 ベントナイトブロック No.5の南方向を 1/4 に切り取ったブロック (写真中央は,ガラス電極 p H 計が設置されていた孔)



付図 9-27 ベントナイトブロック No.5 の東方向に設置した土圧計



付図 9-28 ベントナイトブロック No.4 の北方向 1/4 を切り取った状態 (写真中,黒いケーブルは湿度計)



付図 9-29 ベントナイトブロック No.4 の北方向を 1/4 に切り取ったブロック (写真中の 3 ヶの孔は,サイクロメータが入っていた孔)



付図 9-30 ベントナイトブロック No.3 の北方向を 1/4 に切り取ったブロック (写真中の孔は,湿度計が入っていた孔)



付図 9-31 ベントナイトブロック No.3 の東方向に設置した土圧計



付図 9-32 ベントナイトブロック No.2 の北方向を 1/4 に切り取ったブロック (この後,含水比測定のためにサンプリングおよび p H 計測が行なわれる)



付図 9-33 ベントナイトブロック No.2 の東方向を 1/4 に切り取ったブロック (写真手前が廃棄体を模擬したヒーターとの接触面)



付図 9-34 ベントナイトブロック No.2 と No.3 の間に設置した土圧計



付図 9-35 ベントナイトブロック No.2 と No.3 の間に設置した土圧計の拡大図



付図 9-36 ベントナイトブロック No.1 の上面



付図 9-37 ベントナイトブロック No.1 の北方向を 1/4 に切り取ったブロック



付図 9-38 最下部のベントナイトブロック No.12 の上面



付図 9-39 ベントナイトブロック No.12 の北方向 1/4 を切り取った状態 (写真手前は,緩衝材試験体底面のステンレス製の押さえ板)



付図 9-40 ベントナイトブロック No.12 の北方向を 1/4 に切り取ったブロック (この後,含水比測定のためにサンプリングおよび p H計測が行なわれる)



付図 9-41 ベントナイトブロック No.12(最下部)の底面に設置した土圧計



付図 9-42 全てのベントナイトブロックを撤去した状態