

## 緩衝材の特性試験（Ⅱ）

1992年8月

動力炉・核燃料開発事業団  
東 海 事 業 所

複製又はこの資料の入手については、下記にお問い合わせ下さい。

〒319-11 茨城県那珂郡東海村大字松 4-33

動力炉・核燃料開発事業団 東海事業所

技術開発推進部・技術管理室

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:

Technology Management Section Tokai Works Power Reactor and Nuclear  
Fuel Development Corporation 4-33, Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun,  
Ibaraki-ken 319-11, Japan

動力炉・核燃料開発事業団 (Power Reactor and Nuclear Fuel Development  
Corporation) 1992

公開資料  
PNC TN 8410 92-169  
1992年8月

## 緩衝材の特性試験（Ⅱ）

実施責任者：石川 博久\*

報告者：山形 順二\*\*\*, 鈴木 英明\*\*,  
柴田 雅博\*

### 要旨

高レベル放射性廃棄物地層処分における人工バリアの一つに緩衝材があり、圧縮ベントナイトがその候補材料として考えられている。

処分初期は、水で飽和していない圧縮ベントナイトに対して地下水が浸潤してくる、いわゆる再冠水現象が想定され、水分の移動に関する評価および浸潤メカニズムの解明が重要である。

本報告では、処分直後の地下水の再冠水時における不飽和な圧縮ベントナイトへの水の浸潤挙動を把握するために、簡易的な圧縮ベントナイト中への水の浸潤試験を実施し、概略的な評価を行ったのでここに報告する。

その結果、①圧縮ベントナイト中への水の浸潤はみかけ上はおよそ拡散分布を示すこと、②浸潤速度の指標である水分拡散係数は $10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$ のオーダーであること、③水分拡散係数は圧縮ベントナイトの乾燥密度とともに増加すること等を確認した。

また、水の浸潤にともなうモンモリロナイト結晶の底面間隔の測定を行い、『水の浸潤挙動』『底面間隔の変化』『膨潤圧力発生挙動』の相互関係の評価を行った。

その結果、①圧縮ベントナイトが水で飽和する以前に膨潤圧力が平衡となる。②底面間隔が一定となる時に膨潤圧力が平衡となる。という結果を得た。これらのことから、水の浸潤には膨潤圧力を発生させるモンモリロナイト層間への浸潤、およびベントナイト粒子間の空隙を飽和させる浸潤、という二つの浸潤メカニズムがあることが示唆された。

\* 東海事業所 環境技術開発部 地層処分開発室

\*\* 検査開発株

\*\*\* 石川島播磨重工業株

## 目 次

1.はじめに .....	1
2.不飽和な圧縮ベントナイト中への水の浸潤挙動 .....	3
2.1 水の浸潤試験 .....	3
(1) 試験装置・方法 .....	3
(2) 含水比の分布状態 .....	4
2.2 水分拡散係数の算出 .....	7
2.2.1 拡散方程式とその解法 .....	7
(1) 誤差関数による解法 .....	7
(2) 近似式による解法 .....	8
2.2.2 圧縮ベントナイトの水分拡散係数 .....	8
(1) 誤差関数による算出 .....	8
(2) 近似式による算出（実測値とのフィッティング） .....	12
(3) 見掛けの水分拡散係数 .....	19
2.3 初期飽和度と水分拡散係数 .....	23
3.モンモリロナイト結晶の底面間隔の変化と膨潤圧力発生挙動 .....	25
3.1 圧縮ベントナイト試料の底面間隔測定について .....	25
(1) 圧縮による底面間隔への影響 .....	25
(2) 密度による底面間隔への影響 .....	26
(3) 測定時間の影響 .....	26
3.2 底面間隔の変化と膨潤圧力 .....	27
(1) 浸潤時間と底面間隔の変化 .....	27
(2) 底面間隔の変化と膨潤圧力 .....	28
(3) 初期飽和度と膨潤圧力 .....	32
4.まとめ .....	34
5.今後の課題 .....	35
謝 辞 .....	36
引用文献 .....	37
別添資料 .....	38

## 1. はじめに

高レベル廃棄物地層処分における緩衝材には止水性、核種吸着性、機械的安定性など多くの性能が要求される。今までのところ、これらの要求性能の多くを満足するものとして圧縮ベントナイトが有望な候補材料と考えられている。

動燃事業団では、緩衝材開発の一環として、緩衝材仕様の決定および性能評価の基礎データとするために原料、密度、ケイ砂混合率等の要因が緩衝材の特性に及ぼす影響について研究を進めている。その研究フローを図-1に示す。このうち第一段階の標準的材料の選定においては、一般に製品として販売されているベントナイトについてカタログ調査、基本特性試験を実施<sup>1)</sup>、第二段階においては、ケイ砂混合率、空隙率等が緩衝材の特性に影響を及ぼす要因を明らかにするための試験を実施した。更に、第三段階の第一部として『緩衝材の特性試験（I）』<sup>2)</sup>では、緩衝材仕様の評価に資するための各特性値の取得を目的に、山形県月布産のNa-ベントナイト（クニゲルV1、クニミネ工業株製）について、組成等の化学的特性値に関する調査および試験、また、これを圧密成形した圧縮ベントナイトについて透水、膨潤等の物理的、機械的特性に関する試験について報告した。

本報告書では、第三段階の第二部として圧縮ベントナイトの特性のうち、①処分後の圧縮ベントナイト中への地下水の浸潤挙動を把握するための試験、評価、②水の浸潤挙動と浸潤にともない発生する膨潤圧力との関係についての評価を報告する。

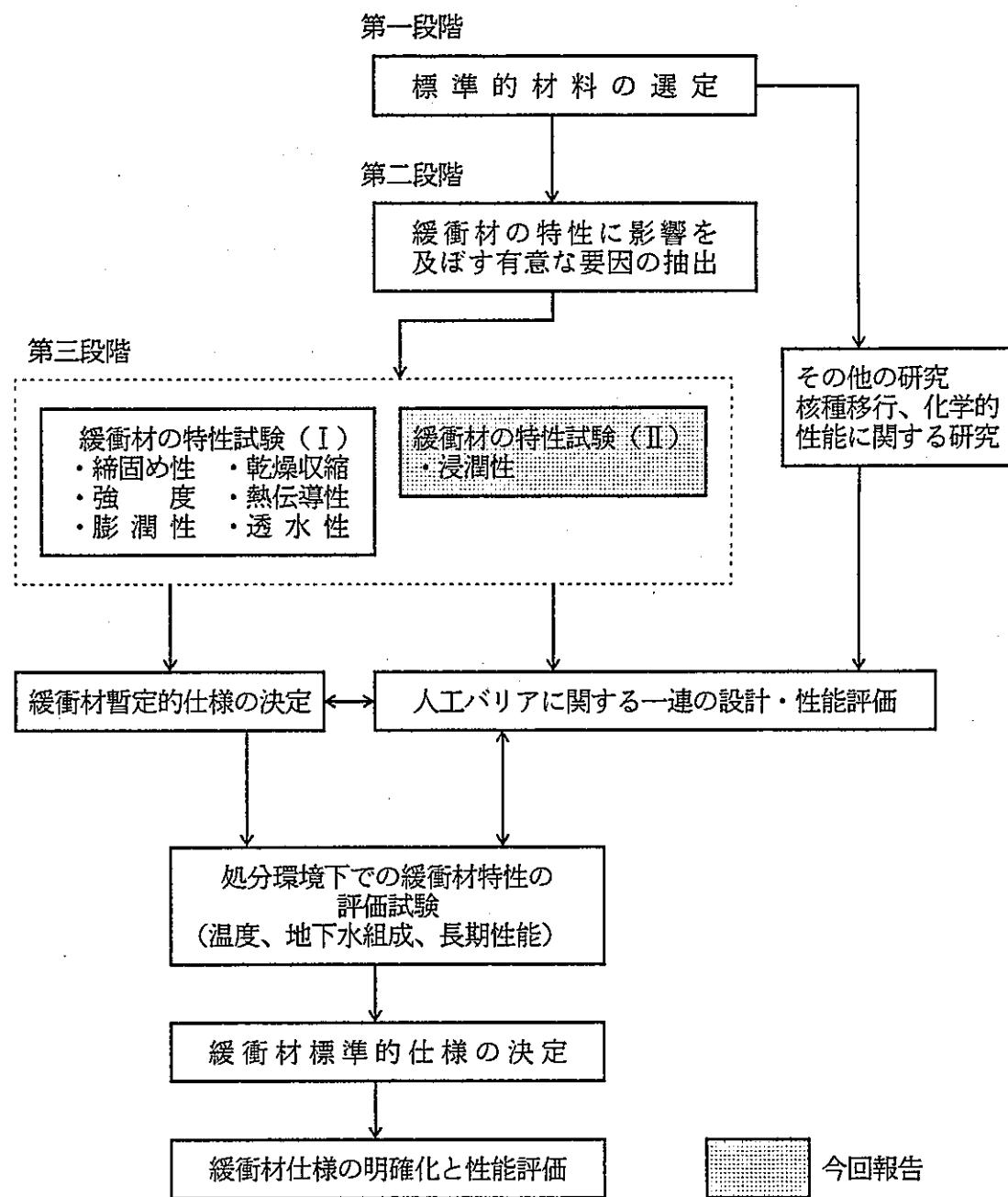


図-1 緩衝材の研究開発フロー

## 2. 不飽和な圧縮ベントナイト中への水の浸潤挙動

## 2.1 水の浸潤試験

## (1) 試験装置・方法

本試験は、不飽和状態な圧縮ベントナイト中への水の浸潤挙動を調べるための試験である。試験装置には水分拡散試験セルを用いた（図2.1参照）。試料は拘束リング内でベントナイト粉末を所定の乾燥密度に圧縮成形して作られる。試料の寸法は $\phi 20\text{mm} \times \text{高さ } 20\text{mm}$ である。試料の上下には金属焼結フィルター（孔径 $2\text{ }\mu\text{m}$ ）が置かれ、試料との間にはテフロンフィルター（孔径 $2\text{ }\mu\text{m}$ ）を有する。試験溶液は試料下部の金属焼結フィルターから一様に試料中へ浸潤する。所定時間の経過後、水分拡散試験セルから上、下部の両拘束蓋を取り外し、拘束リングを押し出し具（図2.2参照）に固定する。ピストンと連結しているデジタルインジゲータを読むことにより、試料は浸潤面から $2\text{ mm}$ づつ押し出され10等分の薄片に切削される。切削された各薄片は炉乾燥法（ $110\text{ }^{\circ}\text{C} \times 24\text{ h}$ ）により含水比を測定し、各薄片の含水比から水分分布を求める。

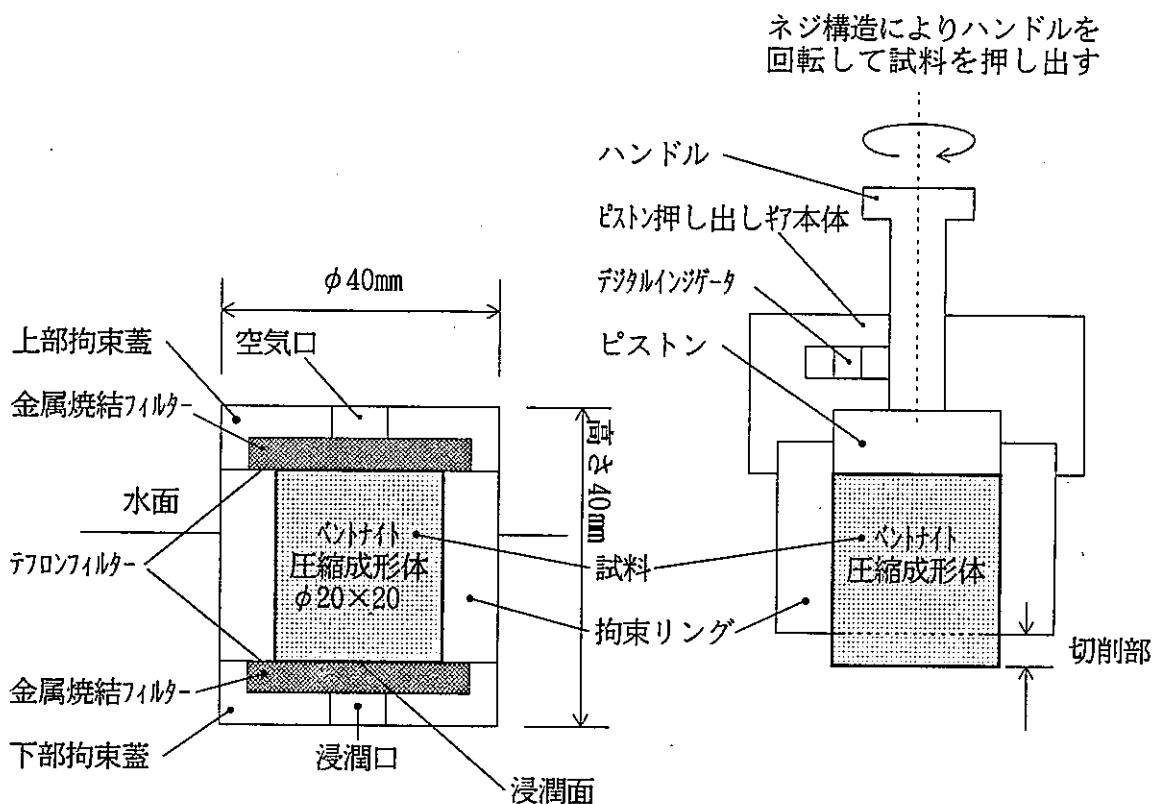


図2.1 水分拡散試験セル

図2.2 押し出し具

## (2) 含水比の分布状態

試験に供するベントナイトは山形県産N a -ベントナイトのクニゲルV 1 および海外で標準的材料として多くの研究例がある米国産N a -ベントナイトのMX-80を用いた。試験条件を以下に示す。

ベントナイト試料 : クニゲルV 1、MX-80

乾燥密度 ( $\text{g}/\text{cm}^3$ ) : 1.6、1.8、2.0

浸潤前含水比 (%) : 10

浸潤時間 : 4 (h) ~ 8 (d)

浸潤溶液 : 蒸留水

試験温度 : 室温

試験繰り返し数 : 2

各浸潤時間における圧縮ベントナイト中の含水比測定結果から得られる水分分布を、クニゲルV 1 (乾燥密度  $1.8 \text{ g}/\text{cm}^3$ ) を一例として図2.3に示す。他の測定結果は別添資料1に示す。これより、同条件で行った2つの試料の水分分布はほぼ同じ値を示すことが分かる。また、水分は時間の経過とともに試料全体にわたって増加している。図中にはそれぞれの乾燥密度から算出される理論飽和含水比を合わせて示す。理論飽和含水比とは試料中の空隙を全て水が充填した時の含水比であり、既報<sup>2)</sup>で述べた通り乾燥密度とベントナイトの真比重より算出することができる。

乾燥密度と理論飽和含水比の関係を表2.1に示す。クニゲルV 1、MX-80ともにベントナイトの真比重 $2.7^{2)}$ を用いて算出した。

表2.1 乾燥密度と理論飽和含水比

乾燥密度 ( $\text{g}/\text{cm}^3$ )	理論飽和含水比 (%)
1.6	25.46
1.8	18.52
2.0	12.97

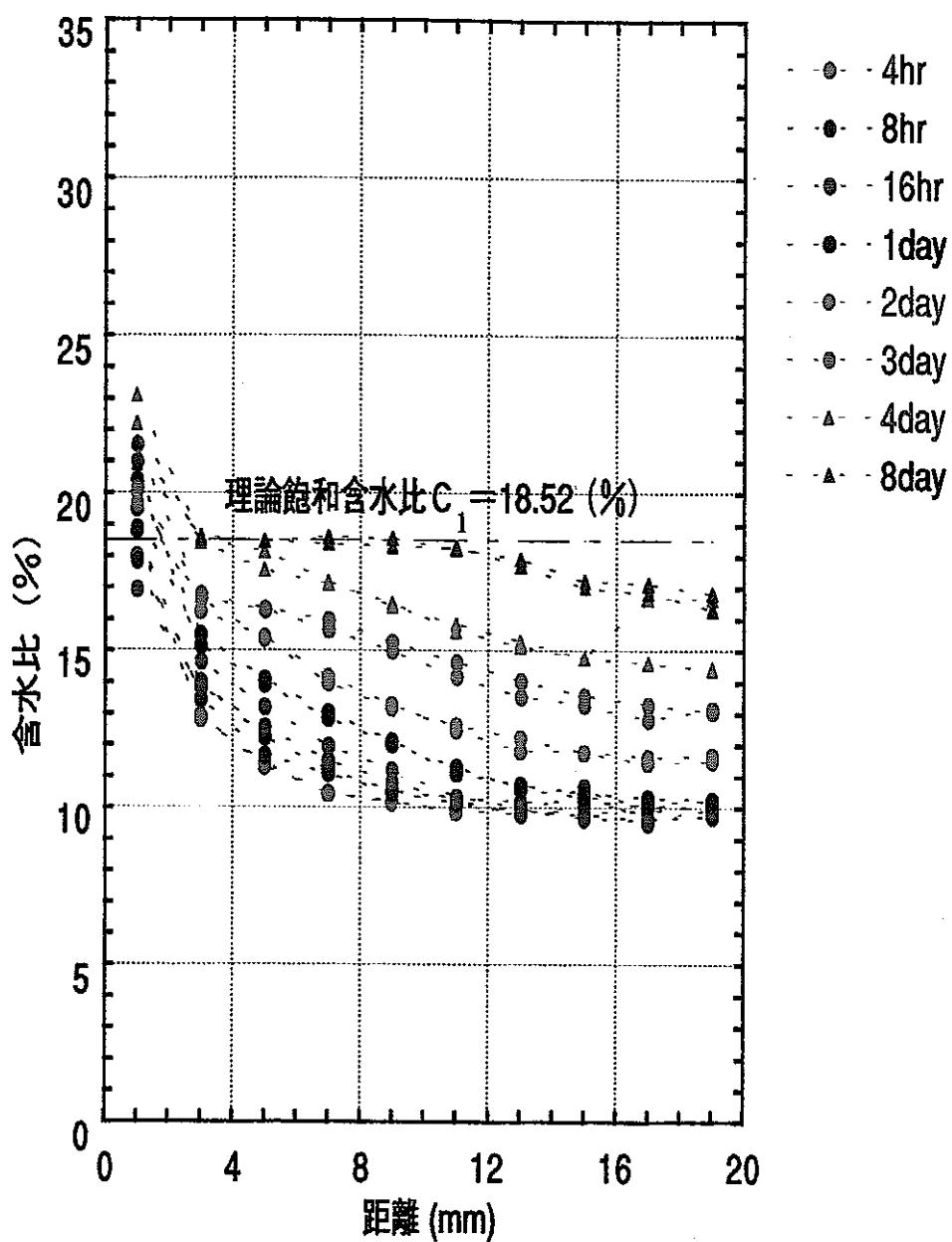


図2.3 水分分布図

クニゲルV1 乾燥密度  $\rho_d = 1.8\text{g/cm}^3$

水分分布図において多くの場合、浸潤面での含水比が理論飽和含水比を越えているが、その原因としては、

- ① 浸潤面を持つ薄片では試料表面に浸潤していない水分（浸潤面に付着した水）を合わせて測定している。
  - ② 浸潤面を持つ薄片部は、水の浸潤により膨潤し、この部分の密度が低下しており、密度の低下によって、飽和含水比が上昇する。
- 等が考えられる。

## 2.2 水分拡散係数の算出

前項の試験結果を用い、不飽和な圧縮ベントナイトへの水の浸潤挙動についての評価を行う。不飽和土壌中の水の移動は、液相および気相の2相で起こるとの報告があり<sup>3)</sup>、その解析には、液相の拡散係数と気相の拡散係数を独立に与える方法<sup>3)</sup>あるいは液相および気相に対し比透水係数を与え各相での水の移行を考える方法<sup>4)</sup>等がある。しかしながら、本解析においては、簡便な評価を行うこととし、Weststikら(1983)<sup>5)</sup>、Börgesson(1985)<sup>6)</sup>等の取り扱いと同様に、水の浸潤現象を試料中の水分量を濃度と見なした拡散現象としてとらえ評価を行うこととした。

以上の条件下で浸潤速度の指標となる水の拡散係数（以下、水分拡散係数という）を導出することとする。

一般に拡散方程式（Fickの第二法則）を解くには様々な手法があるが、本解析では誤差関数を用いた解法<sup>7)</sup>と近似式による解法<sup>7)</sup>を使って整理を行なった。

### 2.2.1 拡散方程式とその解法

一次元で非定常な拡散現象は、Fickの第二法則の式で表すことができる。

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left( D \frac{\partial C}{\partial x} \right) \quad \dots \dots \dots \quad (1)$$

ここで、D : 拡散係数

C : 拡散物質濃度

t : 拡散時間

x : 距離

である。

ここで、圧縮ベントナイト中への水の拡散係数は、浸潤面からの距離、あるいは浸潤時間によらず一定であると仮定<sup>5・6)</sup>すると、(1)式は次のように整理できる。

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} \quad \dots \dots \dots \quad (2)$$

#### (1) 誤差関数による解法

試料中の初期濃度をC<sub>0</sub>、試料表面（境界面）の濃度が一定な値C<sub>1</sub>をとる半無限の試料では、(2)式の解は次の誤差関数が与えられる。

$$\frac{C - C_0}{C_1 - C_0} = \operatorname{erfc} \frac{x}{2\sqrt{Dt}} \quad \dots \dots \dots \quad (3)$$

erfc(Z)は共役誤差関数であり、誤差関数とは次の関係がある。

$$\operatorname{erfc}(Z) = 1 - \operatorname{erf}(Z) \quad \dots \dots \dots \quad (4)$$

本試験の解析においては、距離 $x$ を無次元化して(3)式を以下のように整理して用いた。

$$\frac{C - C_0}{C_1 - C_0} = \text{erfc} \frac{x/\ell}{2\sqrt{Dt/\ell^2}} \quad \dots \dots \dots \quad (5)$$

ここで、 $\ell$ ：試料長さ (m)

$D$ ：水分拡散係数 ( $m^2/s$ )

である。

(5)式において、左辺は実験値から求め、誤差関数表から変数部分を解くことにより水分拡散係数を求めた。

## (2) 近似式による解法

Crank (1975)<sup>7)</sup>は、濃度の代わりに試料中に浸潤した物質量（本解析においては水分量）を用いて(3)

式の近似解を次に示す形で与えている。

$$\frac{Mt}{M\infty} = 1 - \sum_{n=0}^{\infty} \frac{8}{(2n+1)^2 \pi^2} \exp \left\{ -D (2n+1)^2 \pi^2 t / 4\ell^2 \right\} \quad \dots \dots \dots \quad (6)$$

ここで、 $Mt$ ：時間 $t$ において浸潤した水分量

$M\infty$ ：飽和時における浸潤した水分量

$D$ ：水分拡散係数 ( $m^2/s$ )

$t$ ：浸潤時間 (s)

$\ell$ ：試料長さ (m)

である。

ここでは、(6)式に適当な水分拡散係数を代入して得られる水分量の経時変化の曲線と実験値とのフィッティングを行うことにより水分拡散係数を導出する。

次項においては、ここで述べた誤差関数の解法、及び近似式による解法の二通りの解法をもちいて、2.1項で行なった水の浸潤試験結果から水分拡散係数を算出する。

### 2.2.2 圧縮ベントナイトの水分拡散係数

#### (1) 誤差関数による算出

クニゲルV1の各乾燥密度の試料について、誤差関数による水分拡散係数の算出を行なった。

(5)式から水分拡散係数 $D$ を求める手順を以下に示す。

尚、水分拡散係数は浸潤面からの距離5、9、15mmにおける含水比の変化を用いてそれぞれ算出した。

- ① 各浸潤時間 ( $t$ ) 毎に無次元化した濃度 ( $(C - C_0) / (C_1 - C_0)$ ) と無次元化した距離 ( $x/\ell$ ) のグラフ (図2.4参照) を作成する。

ここで、 $C$  : 測定薄片試料の含水比 (%)

$C_1$  : 試料の乾燥密度から求められる飽和時の含水比 (%) (理論飽和含水比、表2.1参照)

$C_0$  : 試料の初期含水比 (%) (実測値の最小値とする)

$\ell$  : 浸潤面から反浸潤面側の薄片の中心までの距離 (mm)

$x$  : 浸潤面から測定薄片の中心までの距離 (mm)

- ②  $(C - C_0) / (C_1 - C_0)$  の値から共役誤差関数  $erfc(Z)$  を求め、次に誤差関数  $erf(Z)$  の値を求める。

- ③ 誤差関数表から  $erf(Z)$  に対応する変数 ( $Z$ ) を求める。

- ④ (5) 式の変数部分に変数 ( $Z$ ) を対応させることにより ( $Dt/\ell^2$ ) を求める。

$$\text{即ち}, Z = (x/\ell) / [2 \sqrt{Dt/\ell^2}]$$

$$\therefore Dt/\ell^2 = (x/\ell)^2 / 4Z^2$$

ここで  $t$  は浸潤時間 (s)、 $D$  は水分拡散係数 ( $m^2/s$ )

- ⑤ さらに、任意の  $(x/\ell)$  毎に、 $Dt/\ell^2$  と浸潤時間  $t$  のグラフ (図2.5) を作成すると、 $D$  と  $\ell$  は定数、変数は  $t$  だけなので原点を通過する直線となり、傾きの値から水分拡散係数を求めることができる。直線近似に際しては、グラフ上明らかに外れている点は除外している。

一例として示した図2.5は乾燥密度が  $1.8 g/cm^3$ 、浸潤面からの距離 ( $x$ ) が、 $x = 5 mm, 9 mm, 15 mm$ 、試料長さ ( $\ell$ ) が、 $19 mm$  の試験結果である。その他の結果を別添資料2-1に示す。これらの直線回帰より、傾きを求め水分拡散係数を算出した結果を表2.2に示す。

表2.2 乾燥密度と水分拡散係数

乾燥密度 (g/cm <sup>3</sup> )	水分拡散係数 (m <sup>2</sup> /s)			
	x (mm) x/ℓ	5 0.263	9 0.473	15 0.789
1.6		2.7 E-10	3.7 E-10	4.6 E-10
1.8		3.9 E-10	4.9 E-10	5.7 E-10
2.0		1.4 E-9	8.7 E-10	1.4 E-9

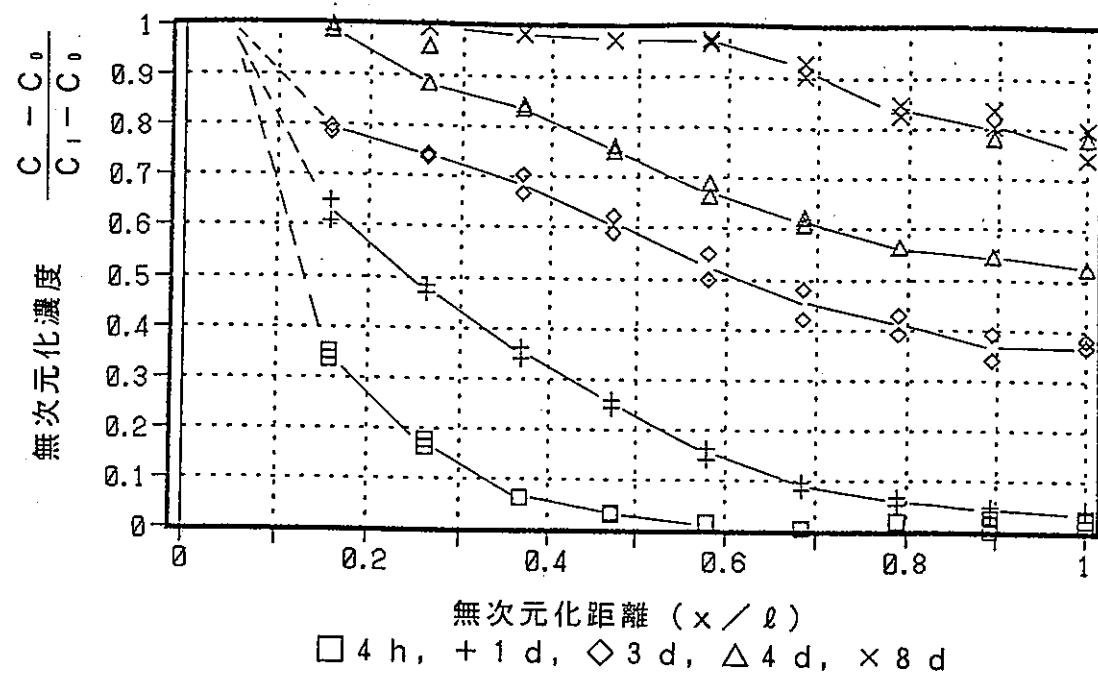


図2.4 無次元化した含水比と浸潤面からの距離  
乾燥密度  $1.8 \text{ g/cm}^3$

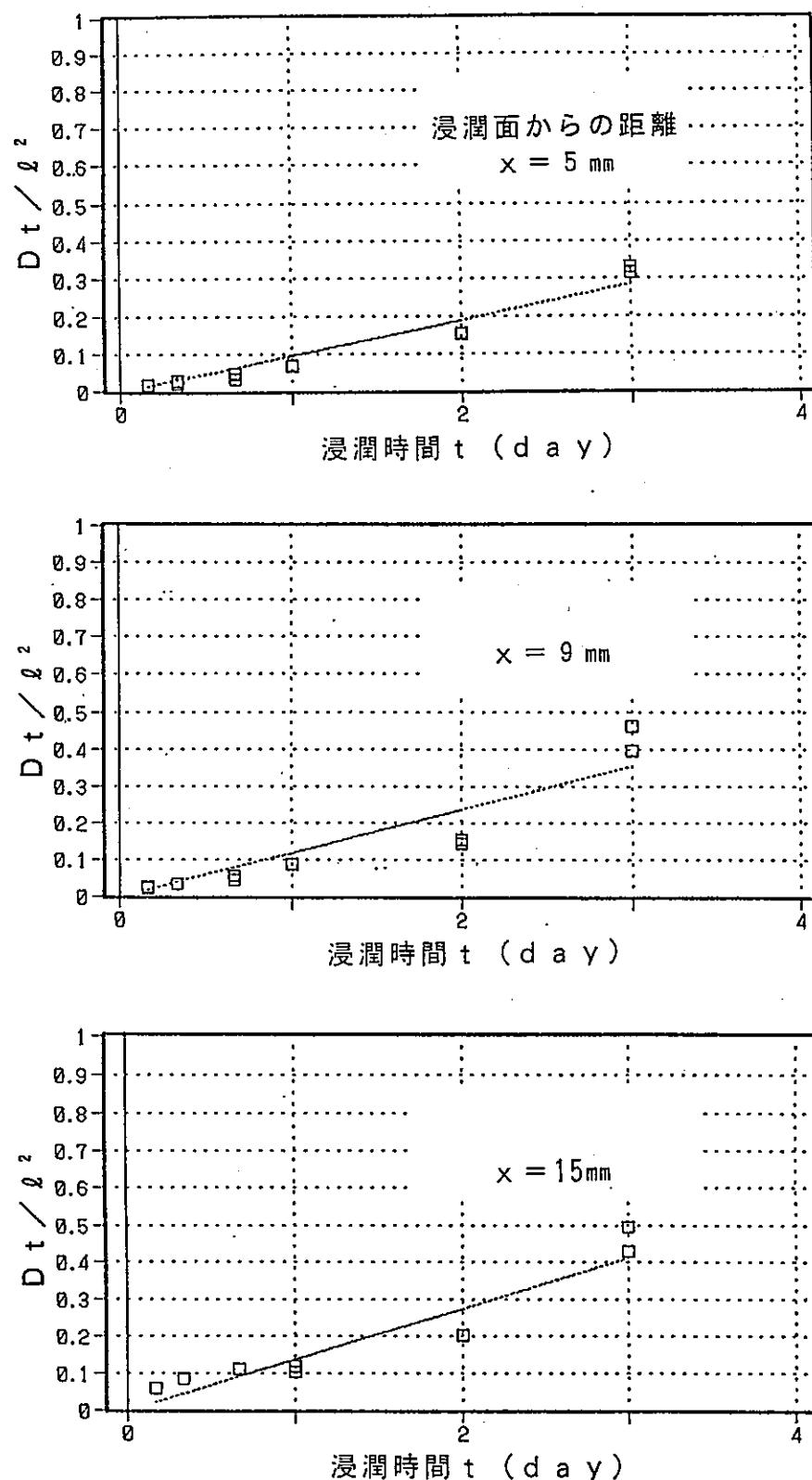


図2.5  $D_t / l^2$  と浸潤時間  $t$  との関係  
試料 クニゲルV1, 乾燥密度  $1.8 \text{ g/cm}^3$

## (2) 近似式による算出（実測値とのフィッティング）

クニゲルV 1 およびMX-80の各乾燥密度の試料について実測値と(6)式の近似値とをフィッティングさせ水分拡散係数Dの算出を行なった。その手順を以下に示す。

2.1 項に示す水の浸潤試験結果より、任意の浸潤時間において試料中に浸潤した水分量( $M_t/M_\infty$ )は次の式で示される。

$$\frac{M_t}{M_\infty} = \frac{M - M_0}{M_1 - M_0} \dots \dots \dots \dots \quad (7)$$

ここで、 $M$ ：各浸潤時間における試料の水分量(g)

$M_1$ ：飽和した試料中に浸潤している水分量〔理論飽和含水比(表2.1)より求める(g)〕

$M_0$ ：試料の初期水分量〔試料作製時のベントナイト粉末含水比によるが実測値の最小値とする(g)〕

である。

試料中に浸潤した水分量( $M$ )は、10等分に切削された薄片毎の水分量を積算して求めた。各浸潤時間において試料中に浸潤した水分量( $M_t/M_\infty$ )を表2.3に示す。

尚、水分量( $M_t/M_\infty$ )の算出は以下の条件で行った。

- ア) 水分分布(図2.3)において、浸潤面を含む薄片の含水比が理論飽和含水比を越えた場合は浸潤面(距離=0mm)の含水比を理論飽和含水比とし、浸潤面から2つ目の薄片の含水比とを直線で結ぶことにより、浸潤面を含む薄片の含水比を算出した。
- イ) 初期水分量( $M_0$ )は試料調整時の値ではなく、比較的初期の浸潤時間(4~16時間程度)での実測値の最小値を用いた。
- ウ) 試料中に浸潤した水分量( $M_t/M_\infty$ )が計算上1を越えた試料(試料全体の含水比が理論飽和含水比( $M_\infty$ )を越えたもの)については、水分拡散係数を算出する一連の計算より除外した。
- エ) 試料中に浸潤した水分量( $M_t/M_\infty$ )が、その前後の浸潤時間における水分量と比較し明らかに小さいもの(試料中に水が浸潤しなかったもの)については、水分拡散係数を算出する一連の計算より除外した。

表2.3 水分量 ( $M_t/M_\infty$ ) の経時変化  
(試験繰り返し数 = 2)

ベントナイト試料	クニゲルV 1			MX - 8 0		
乾燥密度(g/cm <sup>3</sup> )	1. 6	1. 8	2. 0	1. 6	1. 8	2. 0
浸潤時間(day)	水分量 ( $M_t/M_\infty$ )					
0.167	0.1390	0.1545	0.1881	0.1749	0.2239	0.4166
	0.1450	0.1529	0.1763	0.1591	0.2141	0.4427
0.333	0.1929	0.1986	0.2534	0.2329	0.2658	0.4641
	0.1929	0.1869	0.2372	0.2300	0.2976	0.4505
0.667	0.2447	0.2436	0.4820	0.2965	0.3407	0.8424
	0.2480	0.2150	0.4071	0.3038	0.3093	0.7701
1	0.3020	0.2945	0.4664	0.3970	0.4188	<u>1. 1752</u>
	0.2924	0.3050	0.4808	<u>0.1164</u>	0.4375	<u>1. 1258</u>
2	0.4437	0.4377	<u>1. 0170</u>	0.5704	0.7532	<u>1. 4313</u>
	0.4482	0.4286	0.8007	0.6014	0.7028	<u>1. 3387</u>
3	0.5193	0.5941	0.8534	<u>0.1509</u>	0.8428	
	0.5247	0.5589	0.8522	0.6747	0.8562	
4		0.8425	0.9249	0.7036	0.9935	
		0.7018	0.8224	0.7337	0.9698	
7	0.7964		<u>1. 0099</u>			
	0.7485		0.9810			
8	0.7502	0.9117	<u>1. 2471</u>			
	0.6919	0.8849	<u>1. 2415</u>			

注) 上表において、水分量 ( $M_t/M_\infty$ ) が計算上 1 を越えた試料、あるいは試料中に浸潤した水分量 ( $M_t/M_\infty$ ) が、その前後の浸潤時間における水分量と比較し明らかに小さいもの（表中で下線をつけた値）、については水分拡散係数を算出する一連の計算より除外した。

以上の条件で求めた水分量 ( $M_t/M_\infty$ ) と浸潤時間との関係を表すグラフを作成し、これらの各実験値と良く一致する水分量の経時変化を示す曲線を (6) 式を用い求めた。ここでは、各測定時間での実験値について、その値を通過する曲線を与える水分拡散係数を (6) 式に代入して求め、各実験値から得られた水分拡散係数の値の平均値をもってその試料の代表する水分拡散係数とした。図2.6にケニゲルV1、図2.7にMX-80に対する計算値と実験値の比較を示す。

その結果、各浸潤時間における実験値の水分量 ( $M_t/M_\infty$ ) は近似解から算出される水分量の経時変化を示す曲線と良く一致する。近似解により求めた各試料の水分拡散係数を表2.4および図2.8に示す。

表2.4 試料中に浸潤した水分量より求めた水分拡散係数

	クニゲルV 1	MX - 8 0
乾燥密度 (g/cm <sup>3</sup> )	水分拡散係数 (m <sup>2</sup> /s) (近似式による算出)	
1.6	3.5 E-10	5.6 E-10
1.8	4.2 E-10	9.3 E-10
2.0	9.2 E-10	3.5 E-9

- 16 -

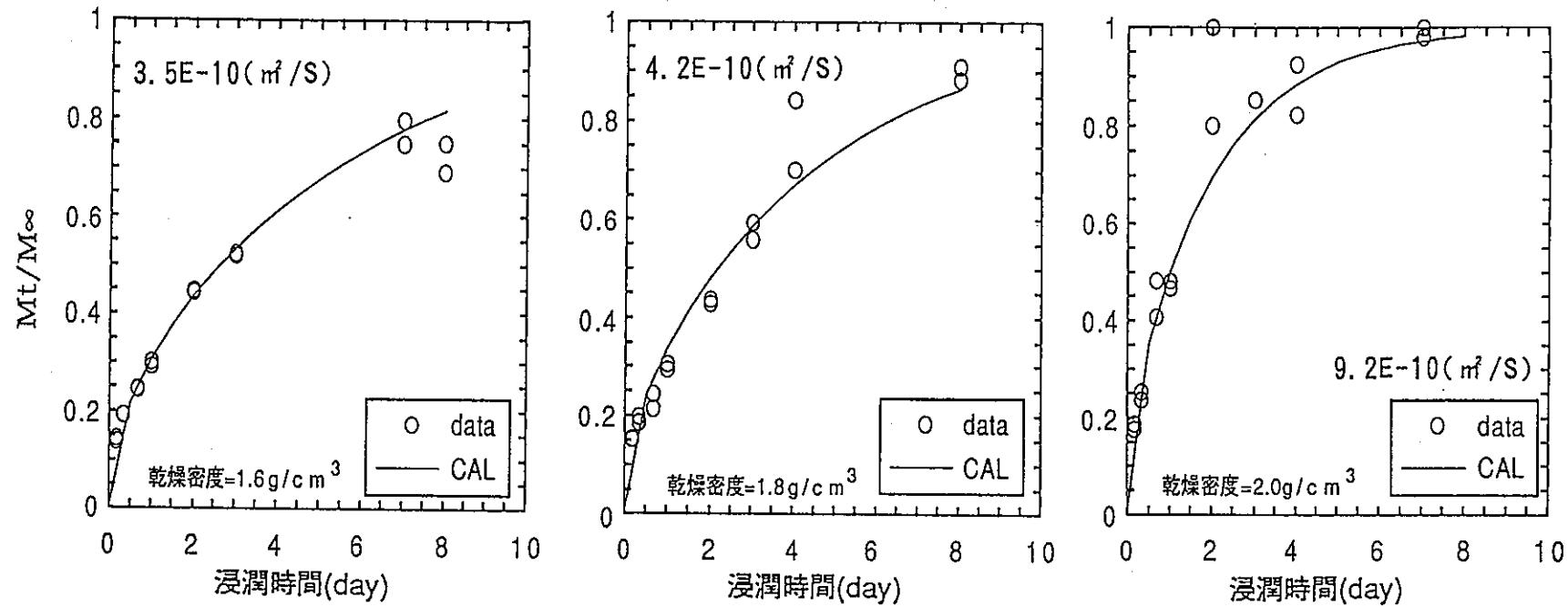


図2.6 近似式による計算値と実験値との比較  
試料 クニゲルV1, 乾燥密度 1.6, 1.8, 2.0  $\text{g}/\text{cm}^3$

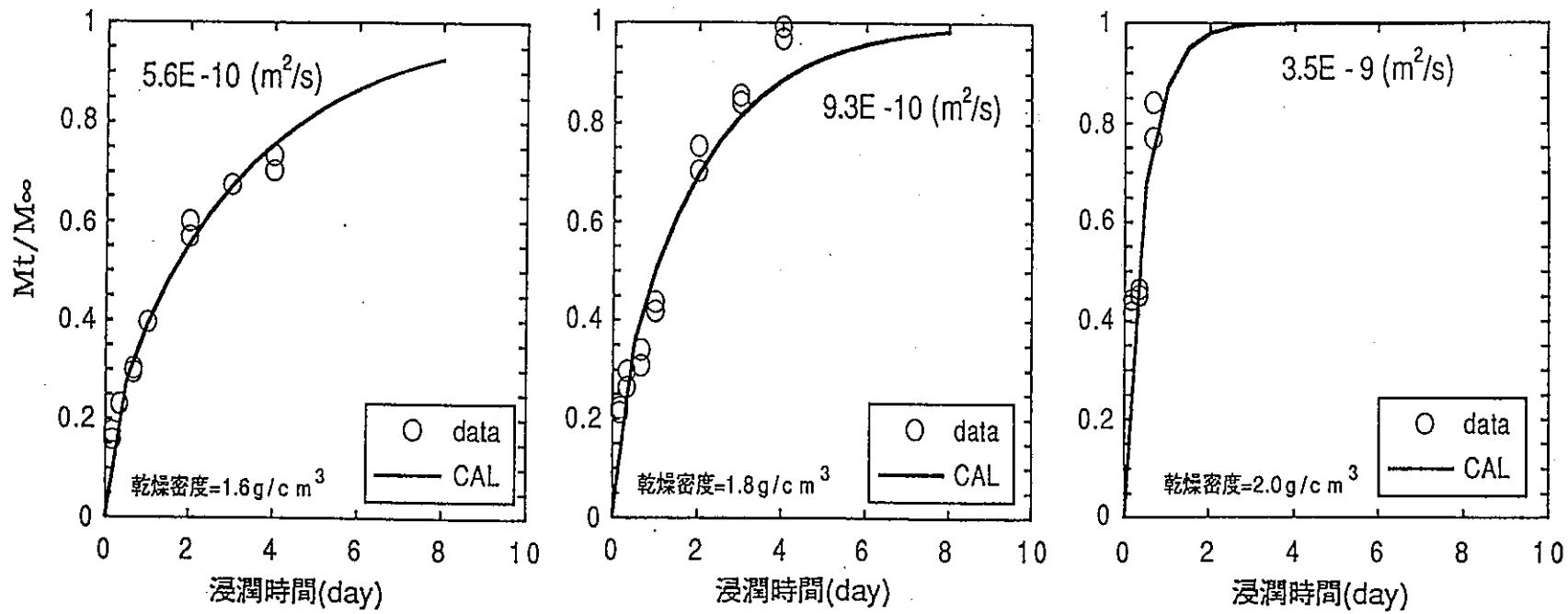


図2.7 近似式による計算値と実験値との比較  
試料 MX-80, 乾燥密度  $1.6, 1.8, 2.0 \text{ g/cm}^3$

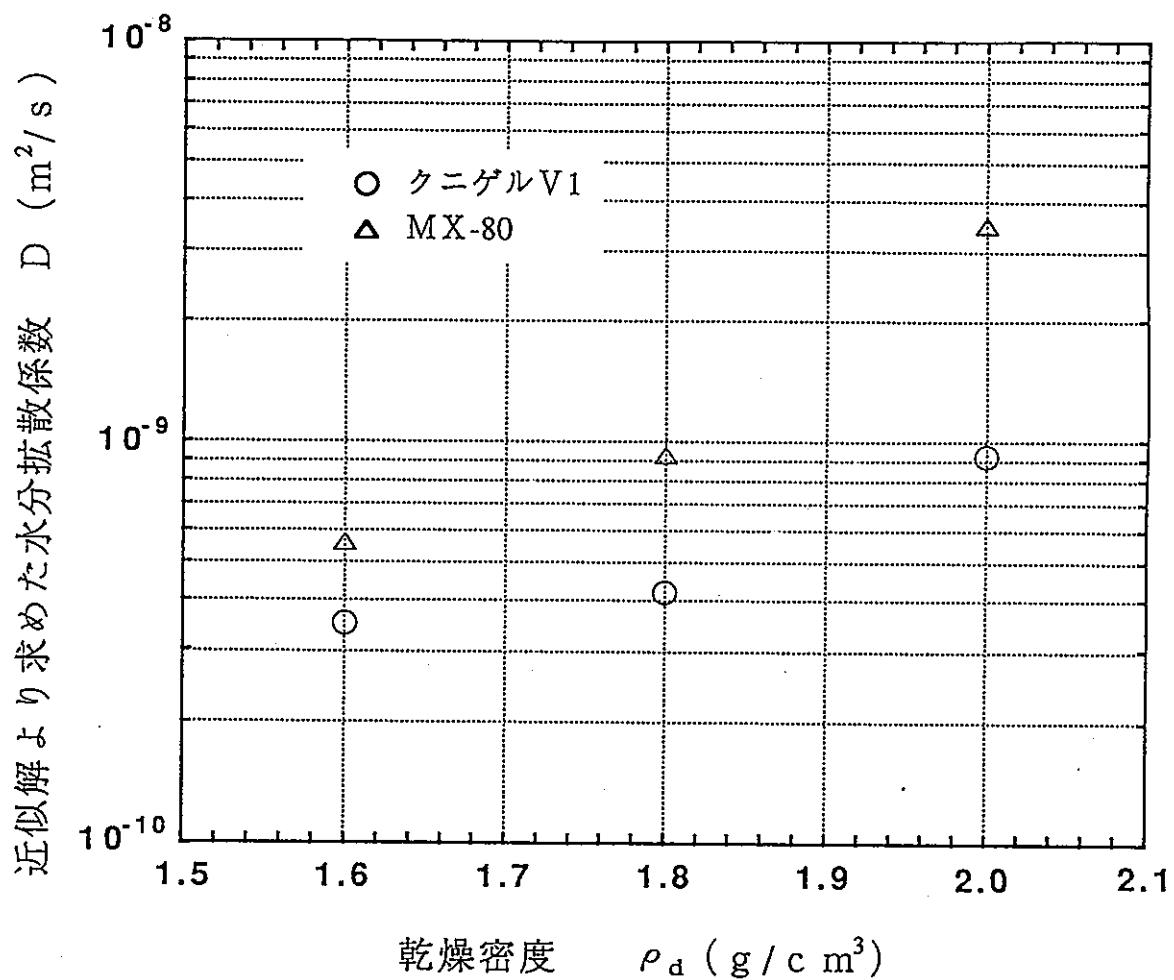


図2.8 乾燥密度と近似解より求めた水分拡散係数

## (3) 見掛けの水分拡散係数

前項に示した2通りの解法によって求めたクニゲルV 1圧縮成形体の水分拡散係数を表2.5に示す。

浸潤時間における濃度（含水比）から誤差関数を用いて算出した水分拡散係数では、浸潤面からの各距離において $10^{-10} (\text{m}^2/\text{s})$  のオーダーが得られている。試料後部程、水分拡散係数は大きくなる傾向が見られたが、この原因のひとつとして試料長さが20mmと有限である試料に対し、半無限媒体に対する解を用いたことが考えられる。今後、試料長さを更に大きくとった試験を実施し確認する必要があろう。

また、圧縮ベントナイト中に浸潤した物質量（水分量）と近似式とのフィッティングによる算出では、図2.6に見られるように、各浸潤時間毎の実験値の水分量は近似式より与えられる計算値の水分分布曲線と良く一致する結果を得た。このことから不飽和な圧縮ベントナイト中への水の浸潤を水の拡散現象としてとらえることができると言える。

前述のように、不飽和なベントナイト中への水の浸潤は、気相、液相の2相での移動によるとの報告があるが<sup>3)</sup>、本試験により得られた不飽和な圧縮ベントナイト中への水の浸潤が拡散現象として整理できることから、ここでは気相、液相の2相の移動を合わせた水分の浸潤特性を評価することとし、これを見掛けの水分拡散係数とした。

クニゲルV 1の見掛けの水分拡散係数は、その解法によって算出される結果に若干のバラツキがあることを考慮し、濃度（含水比）から算出した結果の平均と、浸潤した物質量（水分量）から近似解を用いて算出した結果を合わせ評価することとし、有効数字1桁で表した。

参考としてクニゲルV 1（乾燥密度 $1.8 \text{ g/cm}^3$ ）圧縮成形体の見掛けの水分拡散係数から求められる含水比の拡散プロファイルと実測含水比との比較を図2.9に示す。実測含水比は試験繰り返し数2の平均値を用いた。その結果、4時間から4日の浸潤時間の範囲で両者は良く一致する。

クニゲルV 1の見掛けの水分拡散係数を試料の乾燥密度との関係で整理すると図2.10のようになる。参考としてBorgesson(1985)がMX-80について求めた報告値<sup>3)</sup>を合わせて示す。本試験結果と同様に、試料の乾燥密度とともに水分拡散係数の増加が認められる。

表2.5 見掛けの水分拡散係数

乾燥密度 (g/cm <sup>3</sup> )	水分拡散係数(m <sup>2</sup> /s)					
	濃度(含水比)から誤差関数を用いて算出した結果 x/ℓ = 0.263 x/ℓ = 0.473 x/ℓ = 0.789			物質量(水分量)から近似解を用いて算出した結果		見掛けの水分拡散係数
ケニゲルW1	1.6	2.7 E-10	3.7 E-10	4.6 E-10	3.5 E-10	4 E-10
	1.8	3.9 E-10	4.9 E-10	5.7 E-10	4.2 E-10	5 E-10
	2.0	1.4 E-9	8.7 E-10	1.4 E-9	9.2 E-10	1 E-9

- 21 -

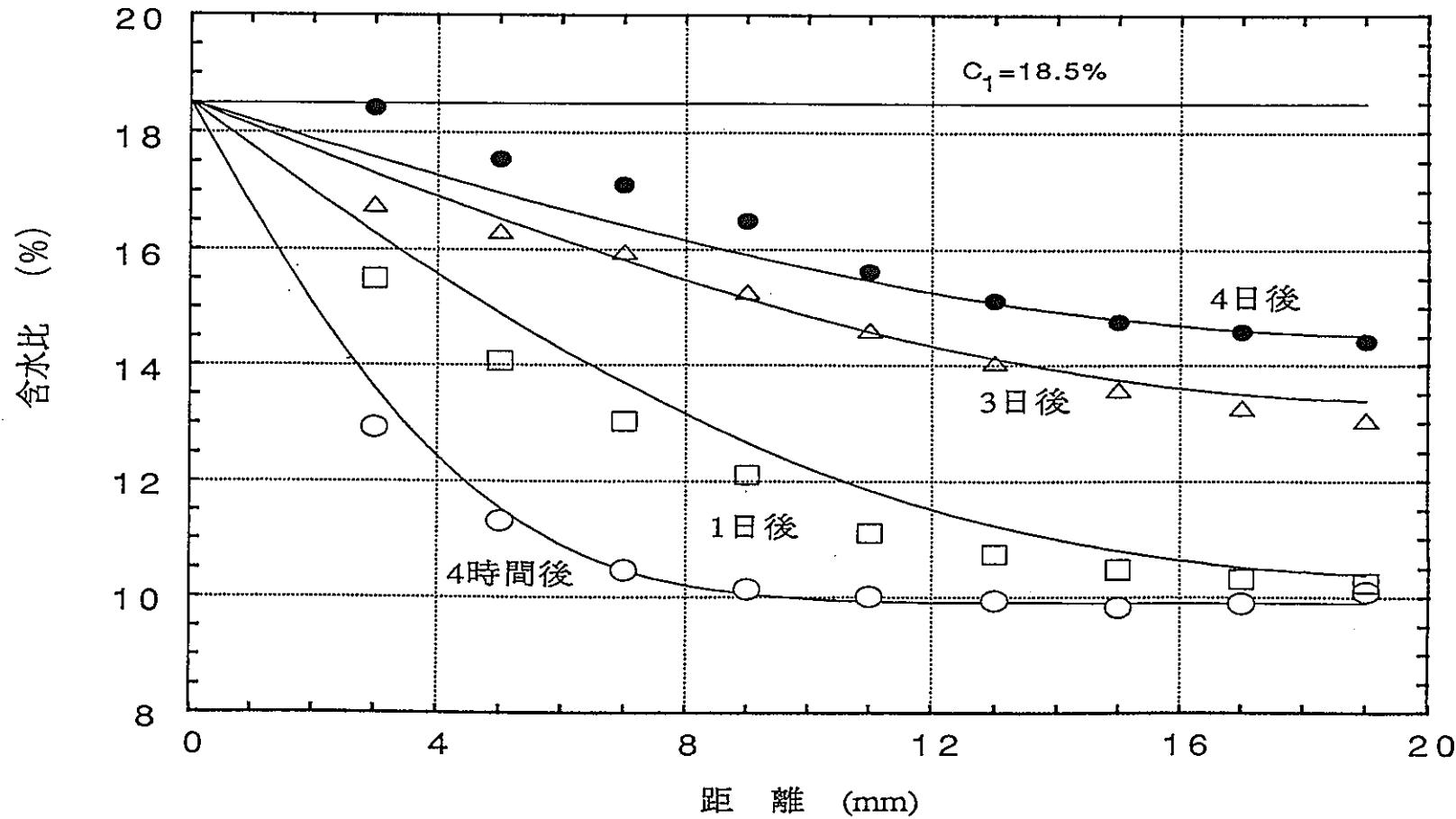


図 2.9 圧縮ベントナイト中の水分分布 (クニゲル V 1,  $\rho_a = 1.8 \text{ g/cm}^3$ )

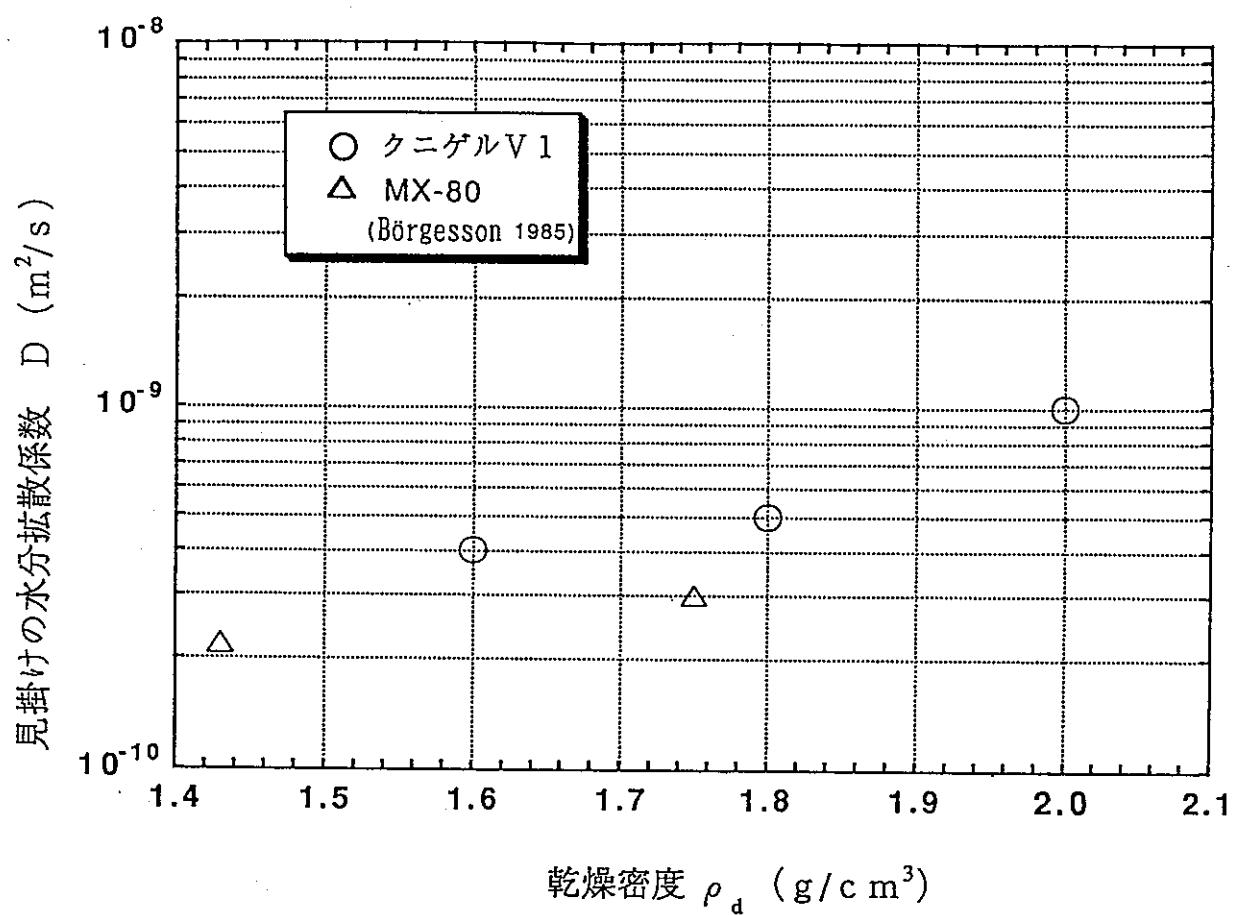


図 2.10 乾燥密度と見掛けの水分拡散係数

### 2.3 初期飽和度と水分拡散係数

2.1項では各乾燥密度の試料は含水比10%のベントナイト粉末を圧縮成形して作製している。従って、乾燥密度によって浸潤前の飽和度（以下、初期飽和度と言う）が異なる。飽和度は試料中の空隙に対する水分の占める割合であるので、初期飽和度が大きいほど試料中に浸潤できる水分量は少なくなる。ここでは、浸潤前の試料中の水分量による水分拡散係数への影響を把握する試験を実施した。

乾燥密度1.6～2.0 g/cm<sup>3</sup>の圧縮ベントナイトを作製する際のベントナイト粉末の含水比を調整して飽和度0、50、75%の初期飽和度を持った試料を作製し（表2.6参照）、水の浸潤試験および水分拡散係数の算出を行った。

水分拡散係数の算出は近似解により求めた（別添資料2-2参照）。

その結果、圧縮ベントナイト試料の初期飽和度により水分拡散係数に違いがあり、初期飽和度の増加とともに水分拡散係数が増加する傾向が見られた（表2.7、図2.11参照）。

表2.6 飽和度と含水比の関係

		含 水 比 (%)		
初期飽和度 (%)		乾燥密度 (g/cm <sup>3</sup> )		
		1.6	1.8	2.0
0		0.00	0.00	0.00
50		13.11	9.26	6.86
75		19.66	13.89	10.29

表2.7 初期飽和度と水分拡散係数

		水分拡散係数 (m <sup>2</sup> /s)		
初期飽和度 (%)		乾燥密度 (g/cm <sup>3</sup> )		
		1.6	1.8	2.0
0		3.4 E-10	3.6 E-10	4.1 E-10
50		4.4 E-10	4.2 E-10	1.0 E-9
75		4.4 E-10	5.5 E-10	9.2 E-10

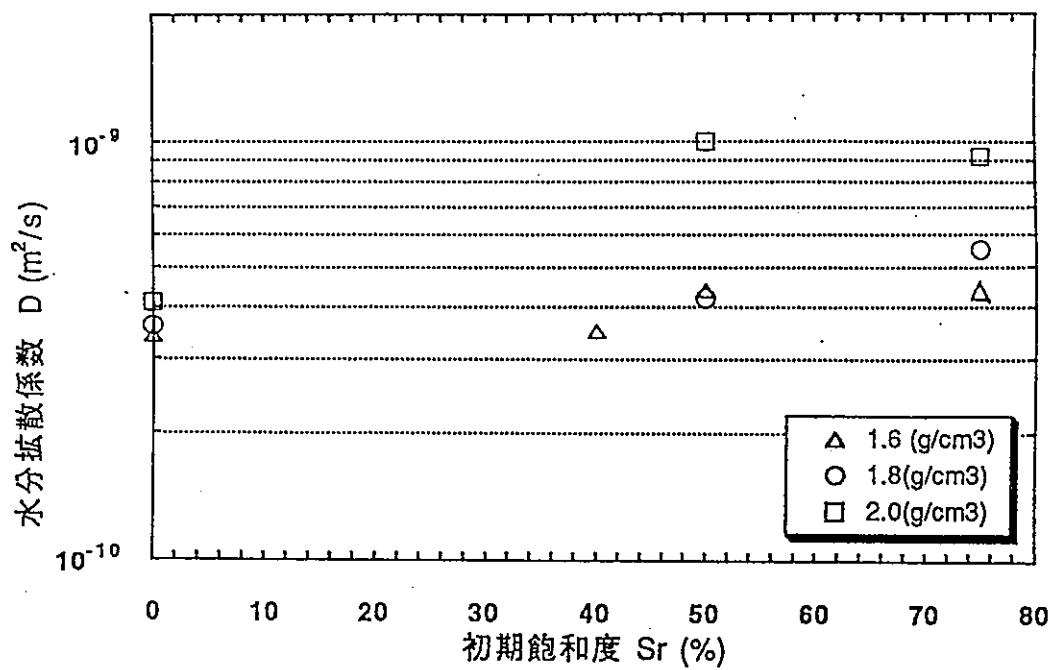


図2.11 初期飽和度と水分拡散係数

### 3. モンモリロナイト結晶の底面間隔の変化と膨潤圧力発生挙動

ベントナイトの膨潤圧力の発生メカニズムの一つに層状構造を持つモンモリロナイト結晶の層間陽イオンの水和による層間の拡大がある。この層間の距離は、エックス線回折により、モンモリロナイト結晶面の間隔（以下、底面間隔と言う）として測定することができる。

ベントナイトの主成分であるモンモリロナイトは雰囲気中の相対湿度により、その底面間隔が変化することは良く知られている<sup>8)</sup>。湿度の変化はベントナイト試料の含水比の変化に対応する。従って、ベントナイト試料の含水比により底面間隔が変化することが予想される。

本試験は、圧縮ベントナイト中への水の浸潤による底面間隔の変化と膨潤圧力発生挙動との関係を把握するために実施した。

#### 3.1 圧縮ベントナイト試料の底面間隔の測定について

モンモリロナイト結晶の底面間隔の測定では、より明確な回折像を得るために、モンモリロナイト結晶を定方位に調整する。一般的な方法として、ベントナイト粉末を水に懸濁させたものをガラス試料板上で自然乾燥させ測定用試料としている<sup>9)</sup>。

今回の測定の対象は、定方位試料ではなく、圧縮ベントナイトであるため、底面間隔の回折像の測定における試料調整方法の影響について、以下に示す予備的な試験を行い確認した。

尚、エックス線回折装置には理学電機社製RAD-Bシステムを用いた。この測定を行うために、ベントナイト粉末は無反射ガラス試料板に圧着させ試料とした。また、圧縮ベントナイト試料は直径20mm×厚さ2mmに成形した後、スリットを持つアルミ試料板に固定し試験に供した。

##### (1) 圧縮による底面間隔への影響

含水比をそれぞれ、0、10、15%に調整したベントナイトの粉末および圧縮ベントナイト試料について底面間隔を測定し比較を行った。

測定結果を表3.1に示す。粉末、圧縮ベントナイト試料ともに、含水比により底面間隔は同等な値を示し、圧縮することによる底面間隔への影響はないことが分かった。

表3.1 粉末、圧縮ベントナイト試料の底面間隔

含水比 (%)	底面間隔 (Å)	
	粉末ベントナイト	圧縮ベントナイト
0	9.78	9.76
10	12.80	12.60
15	15.74	15.97

## (2) 密度による底面間隔への影響

圧縮ベントナイト試料の密度による底面間隔への影響を把握する。含水比10%のベントナイト粉末を乾燥密度を1.6～2.0 (g/cm<sup>3</sup>) に圧縮成形し底面間隔の測定を行った。測定結果を表3.2に示す。この結果より各乾燥密度の試料ともに底面間隔は同等な値を示し、密度による底面間隔への影響はないことが分かった。

表3.2 密度と底面間隔

乾燥密度 (g/cm <sup>3</sup> )	底面間隔 (Å)
1.6	12.76
1.8	12.60
2.0	12.78

## (3) 測定時間の影響

測定時間が長くなると測定中に試料に含まれている水分の乾燥、あるいは大気の水分を吸収し底面間隔が変化することが懸念される。今回、含水比0%および15%の圧縮ベントナイト試料について、試料作製直後と1時間放置後の底面間隔の測定を行った。

その結果、大気雰囲気の影響を受けての底面間隔の変化は認められなかった。

以上の結果より、底面間隔は含水比によって変化し、モンモリロナイト結晶を定方位に調整した試料と同様に圧縮ベントナイト試料についてもその評価が行えることが分かった。

### 3.2 底面間隔の変化と膨潤圧力

#### (1) 浸潤時間と底面間隔の変化

圧縮ベントナイト試料を所定の時間、浸潤させ浸潤面からの各距離における底面間隔の測定を行った。底面間隔測定の試験条件を以下に示す。

ベントナイト :	クニゲルV 1
乾燥密度 :	1.8 (g/cm <sup>3</sup> )
浸潤前含水比 :	10 (%)
試料寸法 :	φ20mm×高さ20mm
浸潤溶液 :	蒸留水
試験温度 :	室温

試験装置には水分拡散試験セル、押し出し具(図2.1、2.2参照)を用いた。所定の時間、水を浸潤させた圧縮ベントナイト試料を浸潤面から2mmづつ押し出して切削する。その切削断面の底面間隔の測定を行なった。エックス線回折像の測定結果の一例を図3.1に示す。得られたエックス線回折像より底面間隔を求め浸潤面からの距離、および浸潤時間でまとめたものを表3.3に示す。

底面間隔は、モンモリロナイト結晶間に配列する水分子の層により、10.0Å、12.4Å、15.6Å、18.8Åと段階的に拡大し、それぞれ0、1、2、3層に相当することが知られている<sup>10)</sup>。

表3.3より、水を浸潤させる前の底面間隔は試料全体が約12.50(Å)の1層であるが、浸潤時間とともに浸潤面より底面間隔が拡大しているのが分かる。浸潤時間48時間では、浸潤面より16mmまでが約15.5Åの2層になっているが、試料後部の4mmは水を浸潤させる前の約12.5Åの1層の状態であることが確認された。浸潤時間が65時間になると試料全体の底面間隔が約15.5Åの2層になる。さらに浸潤時間96時間、あるいは336時間について測定を行ったが15.5Åの2層より底面間隔が拡大することはなかった。尚、浸潤面の底面間隔が約18.5Åの3層になっているが、浸潤面では付着している水により含水比が高くなっているためと考えられる。

この結果より、今回の試験に用いた圧縮ベントナイト試料は約65時間で層状構造を持つモンモリロナイトの層間陽イオンの水和が平衡状態に到達することがわかった。

表3.3 浸潤時間と底面間隔の変化

浸潤時間 (h r)	0	24	48	65	96	336	
浸潤面からの距離 (mm)	底面間隔 (Å)						
0	12.50	18.56	18.24	18.83	18.43	18.55	
2		18.88	18.77	18.88	18.69	18.55	
4		18.65	18.74	18.80	18.60		
6		18.65	18.77	18.66	18.63		
8		18.24	18.55	18.68	18.49		
10	12.50	12.55	18.55	18.57	18.55	18.55	
12			18.47	18.57	18.57		
14			18.49	18.57	18.52		
16			18.25	18.33	18.07		
18			18.55				
20	12.50	12.55	12.55	18.88	18.57	18.55	

3層  
2層  
1層

## (2) 底面間隔の変化と膨潤圧力

底面間隔の変化と膨潤圧力の発生挙動の関係を対比し、以下にまとめると。

既報<sup>2)</sup>で述べた膨潤圧力の経時変化を図3.2に示す。この膨潤圧力の経時変化を試験繰り返し数4の平均的な値で整理し、かつ室温の変化による膨潤圧力の変動を補正したものを図3.3に示す。また、図3.3には、2章で実施した水の浸潤試験結果より浸潤時間と試料全体の含水比、および見掛けの水分拡散係数から計算される含水比の経時変化を合わせて示す。この図より、膨潤圧力が平衡となる時間は水の浸潤開始から約60時間後であることが分かる。これは、圧縮ベントナイト全体の底面間隔が約15.5Åと一定になる時間とほぼ一致する。従って、水の浸潤により底面間隔が変化し、膨潤圧力が発生するが、試料全体の底面間隔が一定になった時に膨潤圧力が平衡となるものと考えられる。一方、浸潤時間60時間での試料含水比は約15%（飽和度にして約80%）であり、試料が飽和する以前に膨潤圧力が平衡となっている。このことから、水の浸潤には、膨潤圧力の発生に影響を与える層間への浸潤、およびベントナイト粒子間の空隙を飽和させる浸潤があると考えられる。

一般に、土壤中の水は、水蒸気拡散と不飽和浸透流の二相で移動すると言われている<sup>3)</sup>。今回の試験では水の浸潤初期には、水蒸気による水分が液相を先行する形で圧縮ベントナイト中を移動し圧縮ベントナイトが飽和する以前に底面間隔を拡大させたものと推定される。

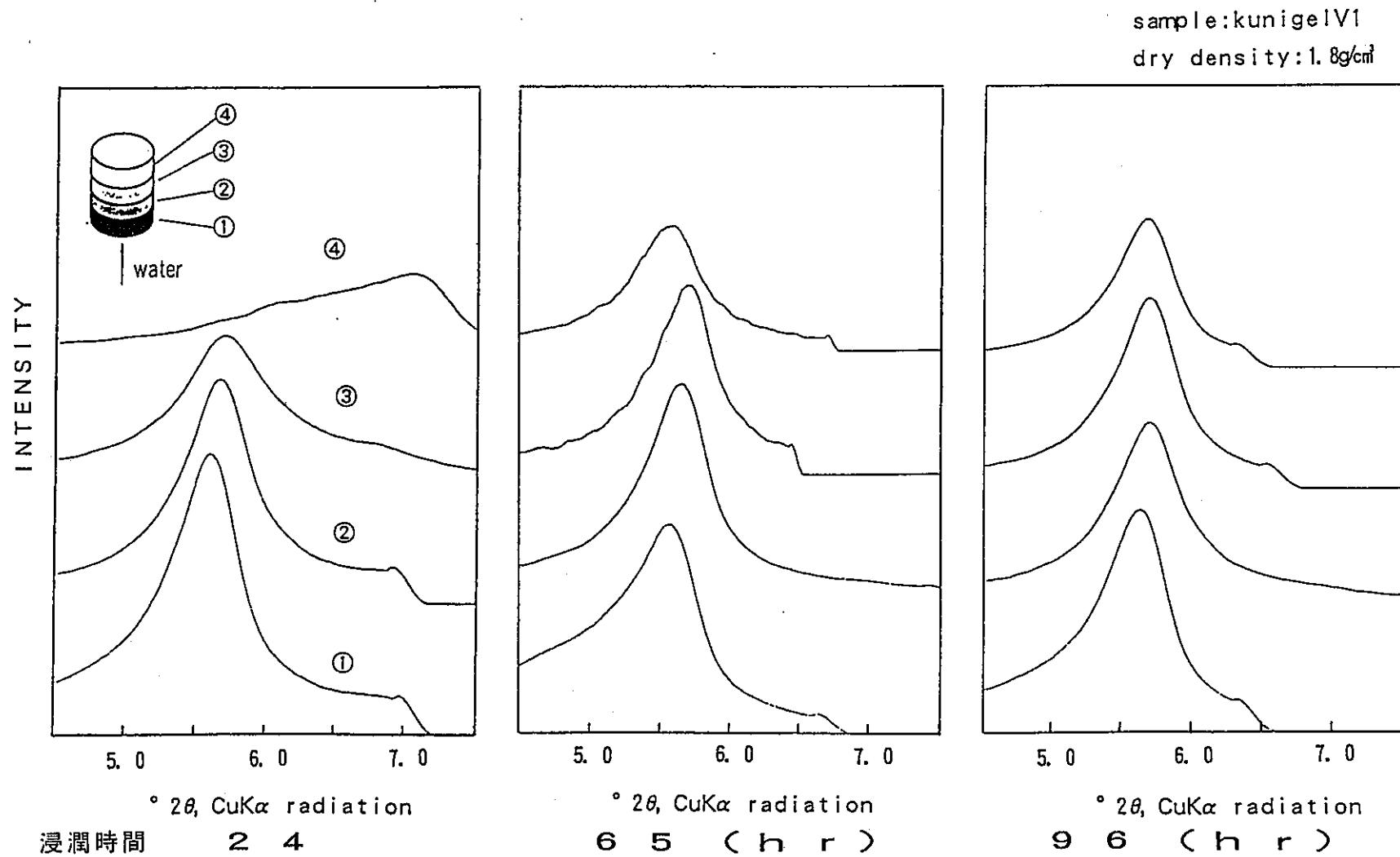
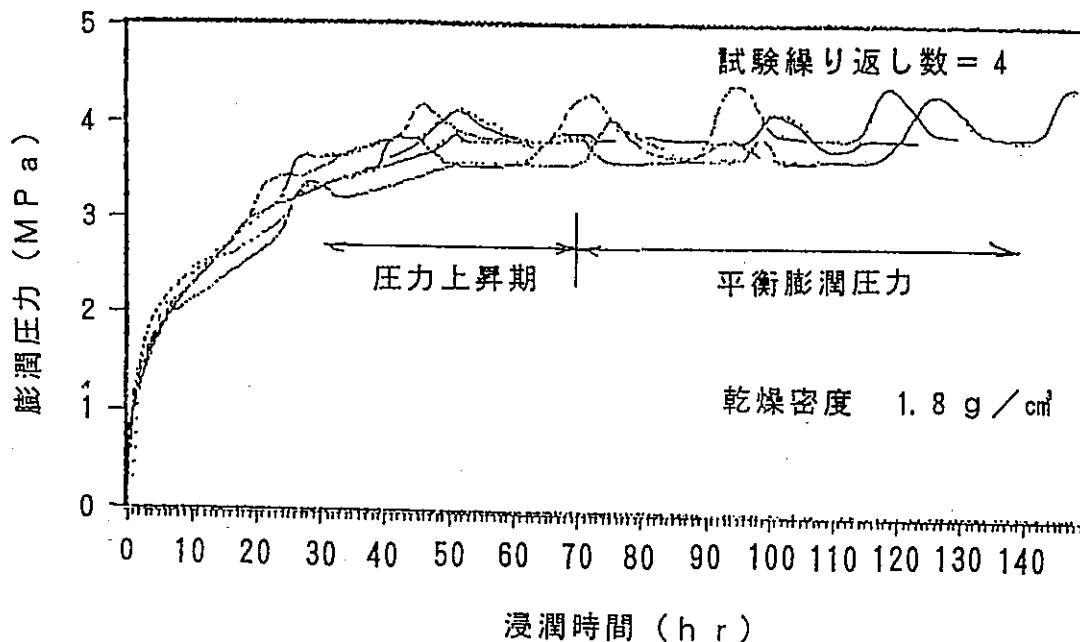


図3.1 浸潤時間による底面間隔分布の変化



万能試験機による膨潤圧力経時変化  
(平衡後の圧力変化は室温の影響による)

既報「緩衝材の特性試験（I）」（PNC TN8410 92-057）より抜粋

図3.2 膨潤圧力測定結果

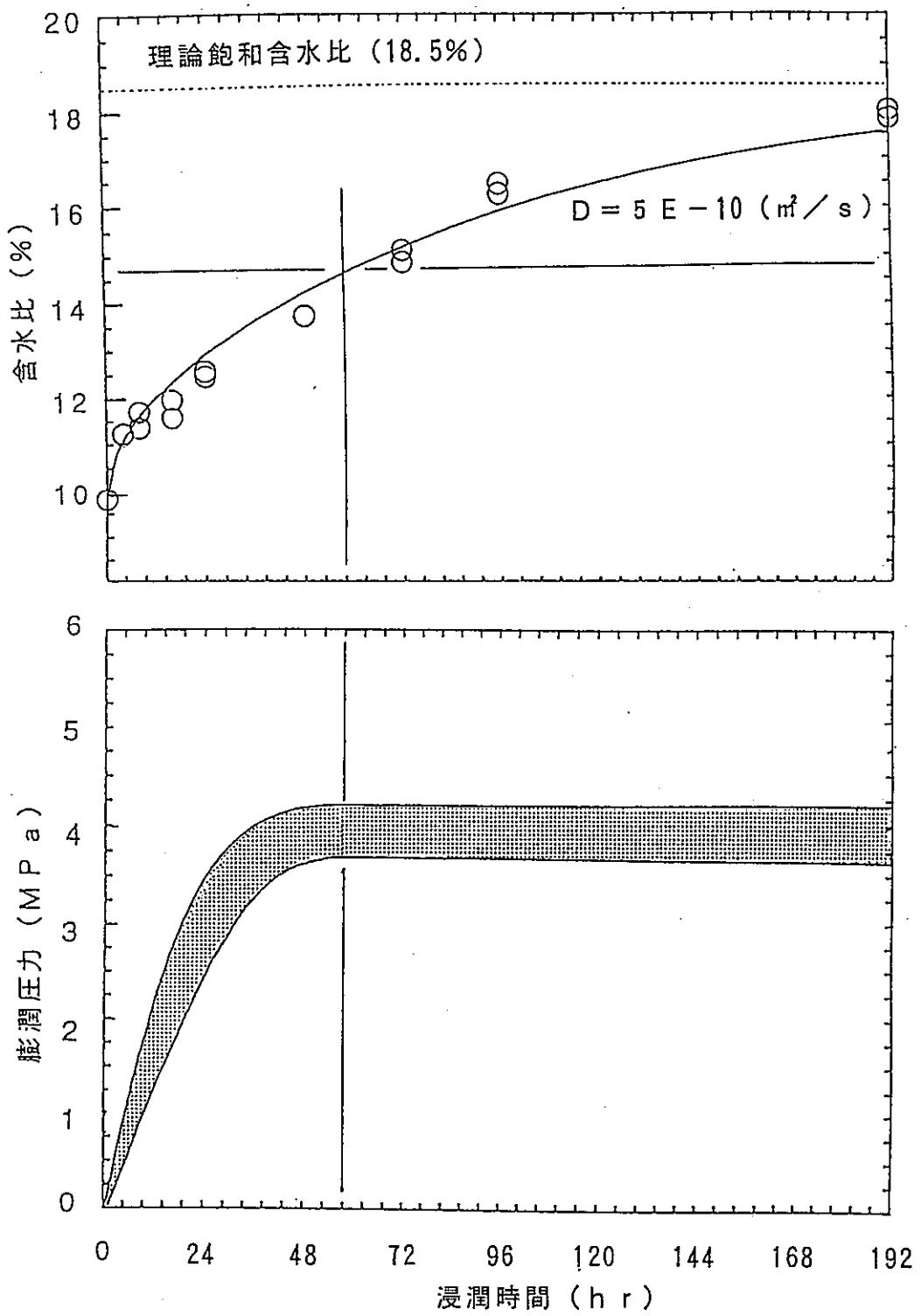


図3.3 膨潤圧力と浸潤挙動との関係

## (3) 初期飽和度と膨潤圧力

既報<sup>2)</sup>では、圧縮ベントナイトの浸潤前の水分量（試料作製時におけるベントナイト粉末の含水比による。以下、初期飽和度と言う）が少ない試料ほど、水を浸潤させた場合に大きい膨潤圧力を発生する結果を得た。各初期飽和度を持つ試料の平衡膨潤圧力測定結果を表3.4に示す。

表3.4 初期飽和度と平衡膨潤圧力〔乾燥密度1.8(g/cm<sup>3</sup>)〕

初期飽和度(%)	平衡膨潤圧力(MPa)
0	5.08
50	3.72
75	3.24

このように、圧縮ベントナイトに水を浸潤させた場合、その初期飽和度によって膨潤圧力が異なる理由として底面間隔の変化量に関係があるものと考えた。

初期飽和度を0, 50, 75%に調整した各試料について、浸潤前および水を1日間浸潤させた時の底面間隔の測定を行ない、その変化を比較した。測定結果を図3.4に示す。

初期飽和度0%の試料の浸潤前の底面間隔は試料全体が約10Åの0層である。1日浸潤させた時、浸潤面に近い箇所での底面間隔は膨潤圧力が平衡となる底面間隔（以下、最終底面間隔と言う）の約15.5Åの2層に拡大しているのが確認され、水の浸潤により底面間隔が約5.5Å変化することが分かる。また、初期飽和度50%の試料の浸潤前の底面間隔は試料全体が約12.5Åの1層であり、最終底面間隔の約15.5Åになるまで、底面間隔は約3.0Å変化する。さらに、初期飽和度75%の試料は、浸潤前に最終底面間隔である約15.5Åの2層になっているため、顕著な底面間隔の変化は見られない。

のことから、試料の初期飽和度によって水を浸潤させた時の底面間隔の変化量が異なる。初期飽和度が少ない試料ほど、水の浸潤により底面間隔の変化量が大きく、よって、大きい膨潤圧力が発生するものと推測される。

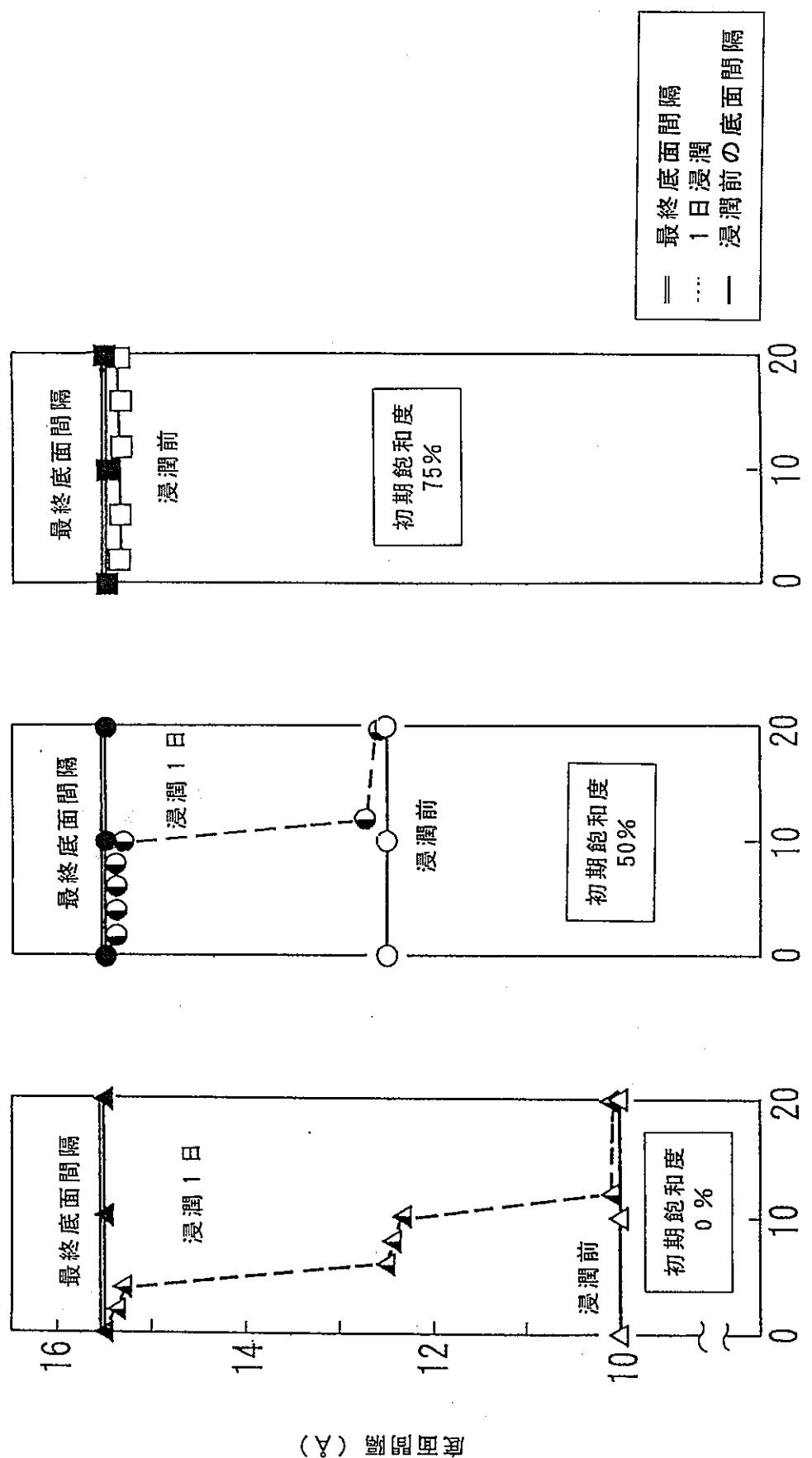


図3.4 底面間隔の変化

#### 4. まとめ

本試験の結果から以下のことが結論される。

##### (1) 水の浸潤挙動について

- ① 不飽和な圧縮ベントナイト試料中への水の浸潤は、拡散現象として整理でき、浸潤速度の指標となる水分拡散係数は乾燥密度  $1.6\sim2.0 \text{ g/cm}^3$  の試料に対し  $10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$  程度の値である。
- ② 水分拡散係数は圧縮ベントナイト試料の乾燥密度とともに増加する傾向にある。
- ③ 浸潤前の水分量（初期飽和度）により、水分拡散係数に違いがみられ、初期飽和度の増加とともに水分拡散係数の増加がみられた。

##### (2) 水の浸潤と膨潤圧力発生の関係について

- ① 圧縮ベントナイト試料が水で飽和する以前に膨潤圧力は平衡となる。
- ② 圧縮ベントナイト試料全体の底面間隔が一定となる時、膨潤圧力が平衡となる。
- ③ ①および②の結果より、圧縮ベントナイト試料中への水の浸潤には、ベントナイト粒子間の空隙を飽和させる浸潤と膨潤圧力の発生挙動に起因するモンモリロナイト層間への浸潤が考えられる。
- ④ 圧縮ベントナイト試料の初期飽和度が小さいほど膨潤圧力が大きいのは、水の浸潤による底面間隔の変化量が大きいためである。

## 5. 今後の課題

圧縮ベントナイトの水の浸潤はみかけ上はおよそ拡散分布を示すことから、本報告書では、みかけの水分拡散係数を用いて、水分の浸潤特性の概略評価を行なった。今後は、水蒸気と液状水での2相系での移動および拡散係数の温度依存性、不飽和透水係数といった概念の導入を行ない、より詳細な現象を把握するための試験およびモデルの開発を行う。

また、実際の処分環境では、廃棄体の発熱、周辺岩盤からの地下水の侵入、地圧や膨潤圧が相互に作用した、熱-水-応力連成現象が生ずる。これらの連成現象を考慮した試験についても計画、実施していく。

謝 辞

本試験を実施するにあたりデータの取得に関して、環境技術開発部 地層処分開発室 松本一浩氏の御助力をいただいた。ここに深謝いたします。

引用文献

- 1) H. Ishikawa, K. Amemiya, Y. Yusa, N. Sasaki, "COMPARISON OF FUNDAMENTAL PROPERTIES OF JAPANESE BENTONITES AS BUFFER MATERIAL FOR WASTE DISPOSAL" Proceeding of the 9th International Clay Conference, Strasbourg, 1989 Sci. Géol., Mém. 87 pp. 107-115 (1990)
- 2) 鈴木英明、柴田雅博、山形順二、広瀬郁郎、寺門一馬、"緩衝材の特性試験 (I)" 動燃技術資料 PNC TN 8410 92-057 (1992)
- 3) 中野政詩 " 土の物質移動学" 東京大学出版会 (1991)
- 4) 安俊弘、池田孝夫、大江俊昭、菅野毅、千葉保、塙本政樹、中山真一、長崎晋也、牧野祐子(1991) "高レベル放射性廃棄物の地層処分における人工バリアの性能評価モデル(2)" 第7回放射性廃棄物セミナー資料集、日本原子力学会pp. 129-172
- 5) J. H. Weststik Jr., F. N. Hodges, W. L. Kuhn and T. R. Myers "NUCLEAR AND CHEMICAL WASTE MANAGEMENT, Vol. 4" (1983)
- 6) L. Börgesson " Engineering Geology, 21" (1985)
- 7) J. Crank "The Mathematics of Diffusion" Oxford University Press (1975)
- 8) 渡辺隆 " X線回折用相対湿度制御装置の開発と応用" 上越教育大学研究要綱 第7巻 第3分冊 (1989)
- 9) 下田右 " 粘土鉱物研究法" 創造社 (1985)
- 10) Bradley, W. F., Grim, R. E. and Clark, G. F. (1937) Z. Kristallogr. Kristallgeom, 97

別添資料

1. 水の浸潤試験

含水比の測定結果

P. 39 ~ P. 44

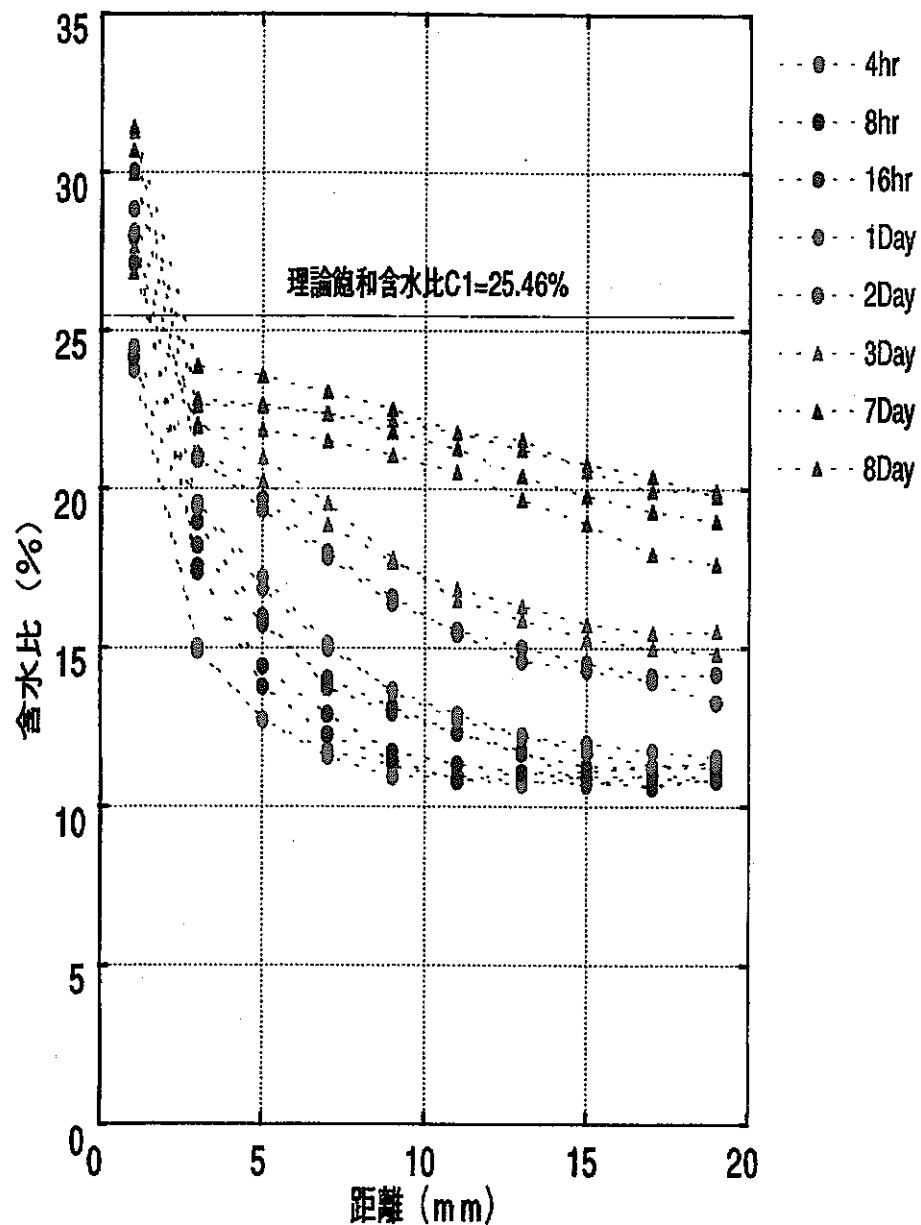
2. 水分拡散係数の算出について

2-1 誤差関数による水分拡散係数の算出資料

P. 45 ~ P. 47

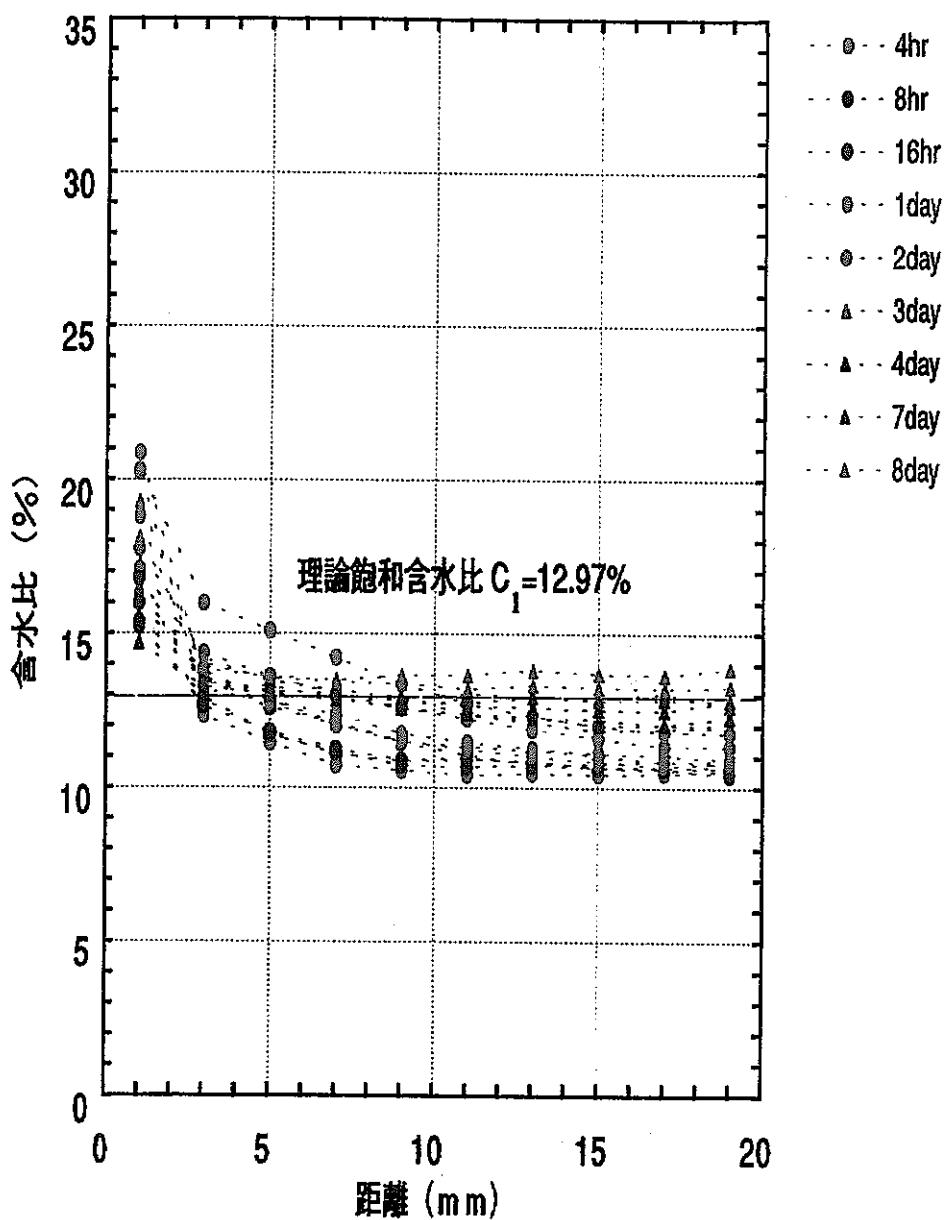
2-2 初期飽和度を変化させた場合の近似式による計算値と実験値の比較

P. 48 ~ P. 50



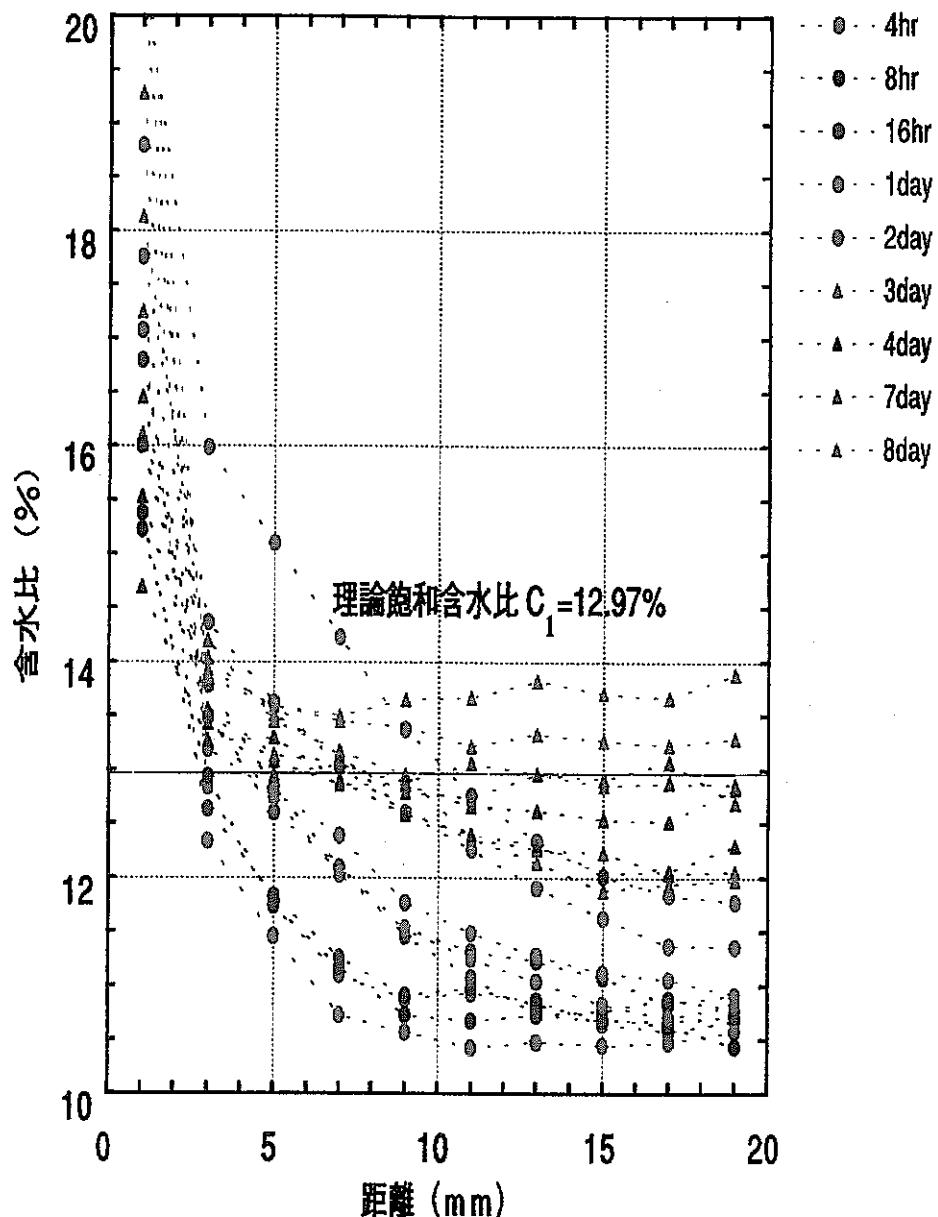
別添図1.1 水分分布

試料：クニゲルV1 乾燥密度  $\rho_d = 1.6(\text{g}/\text{cm}^3)$



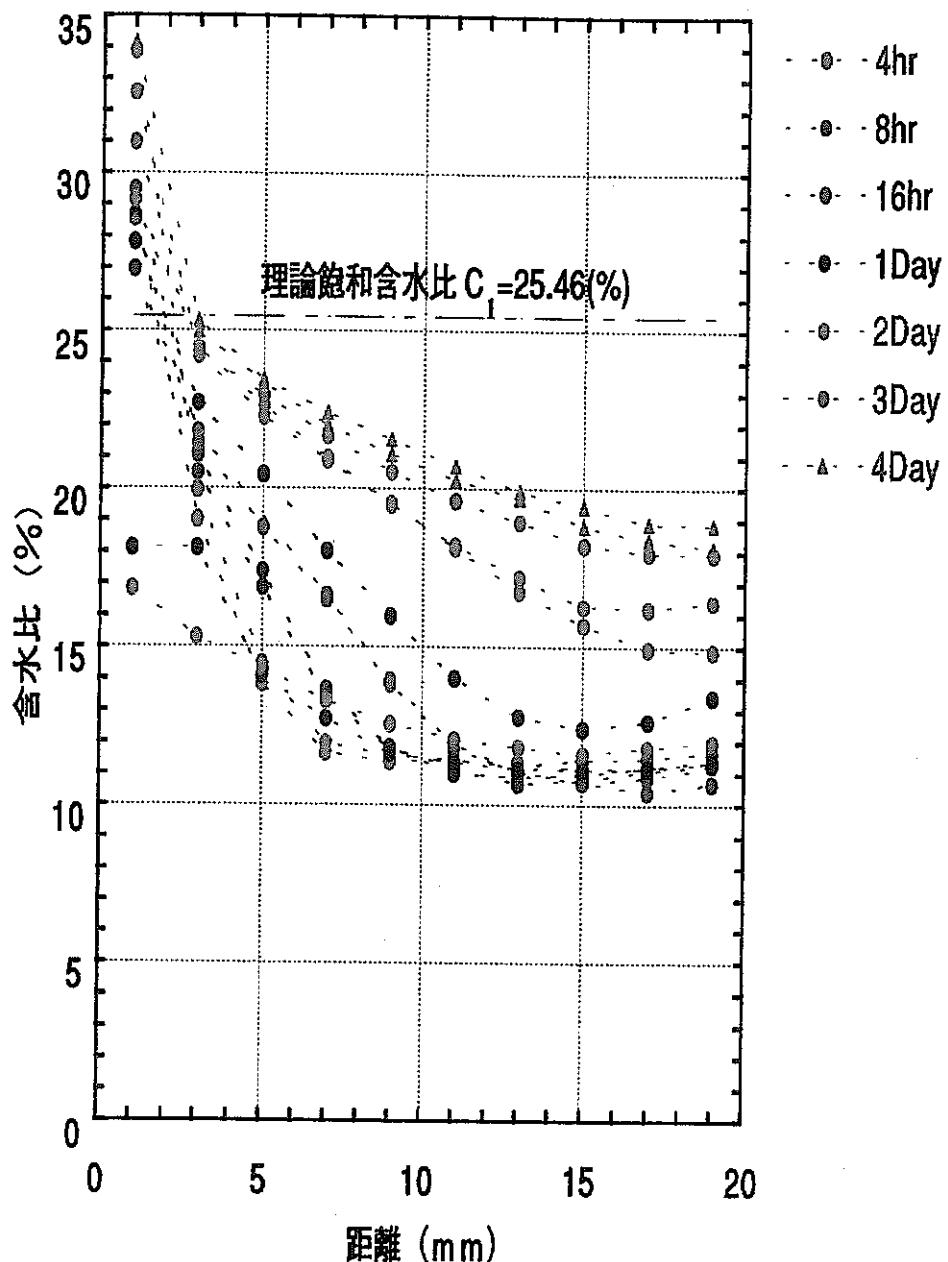
別添図1.2 水分分布図

試料：クニゲルV1 乾燥密度  $\rho_d = 2.0(\text{g/cm}^3)$



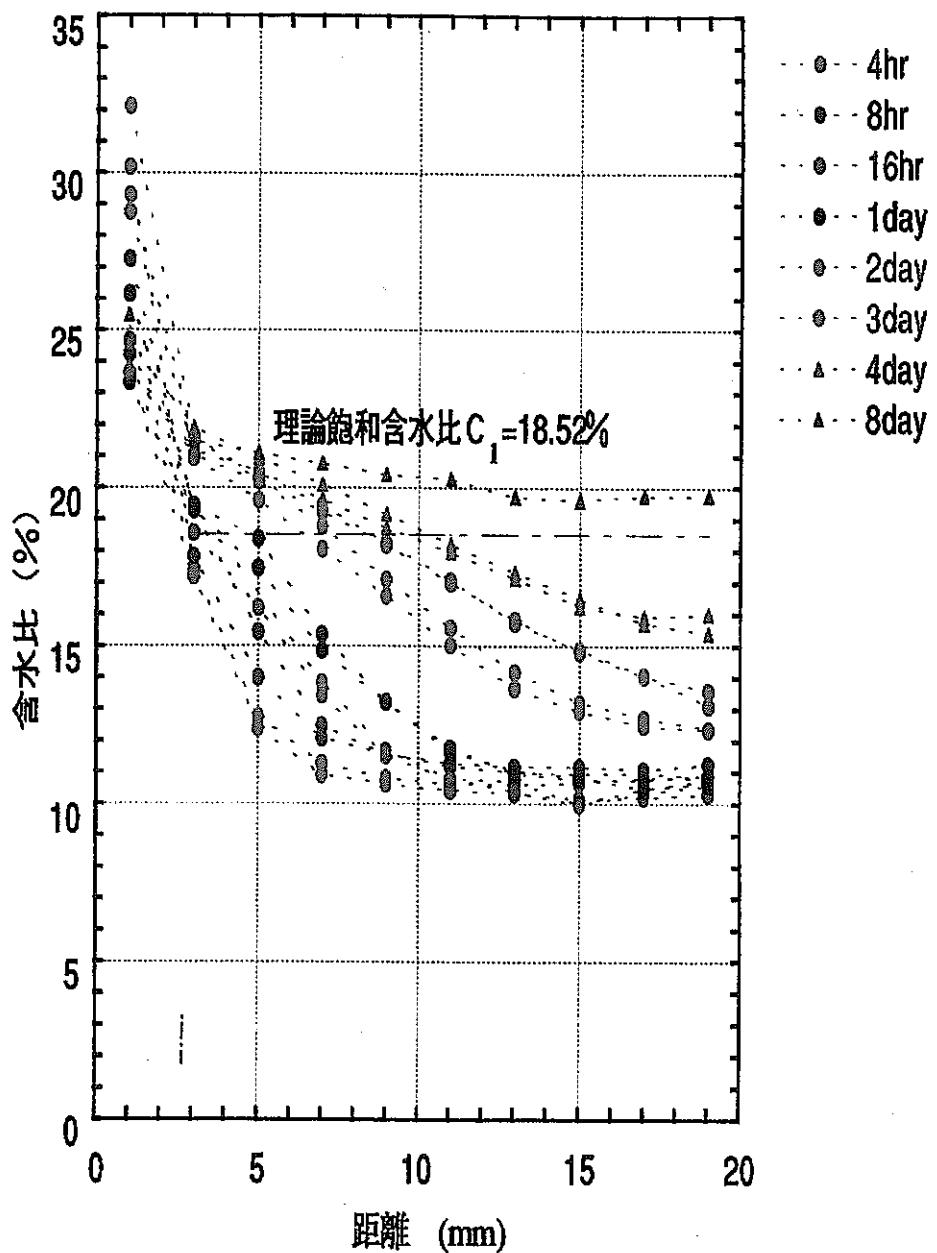
別添図1.3 水分分布図 (図1.2の縦軸を拡大)

試料：クニゲルV1 乾燥密度  $\rho_d = 2.0(\text{g}/\text{cm}^3)$



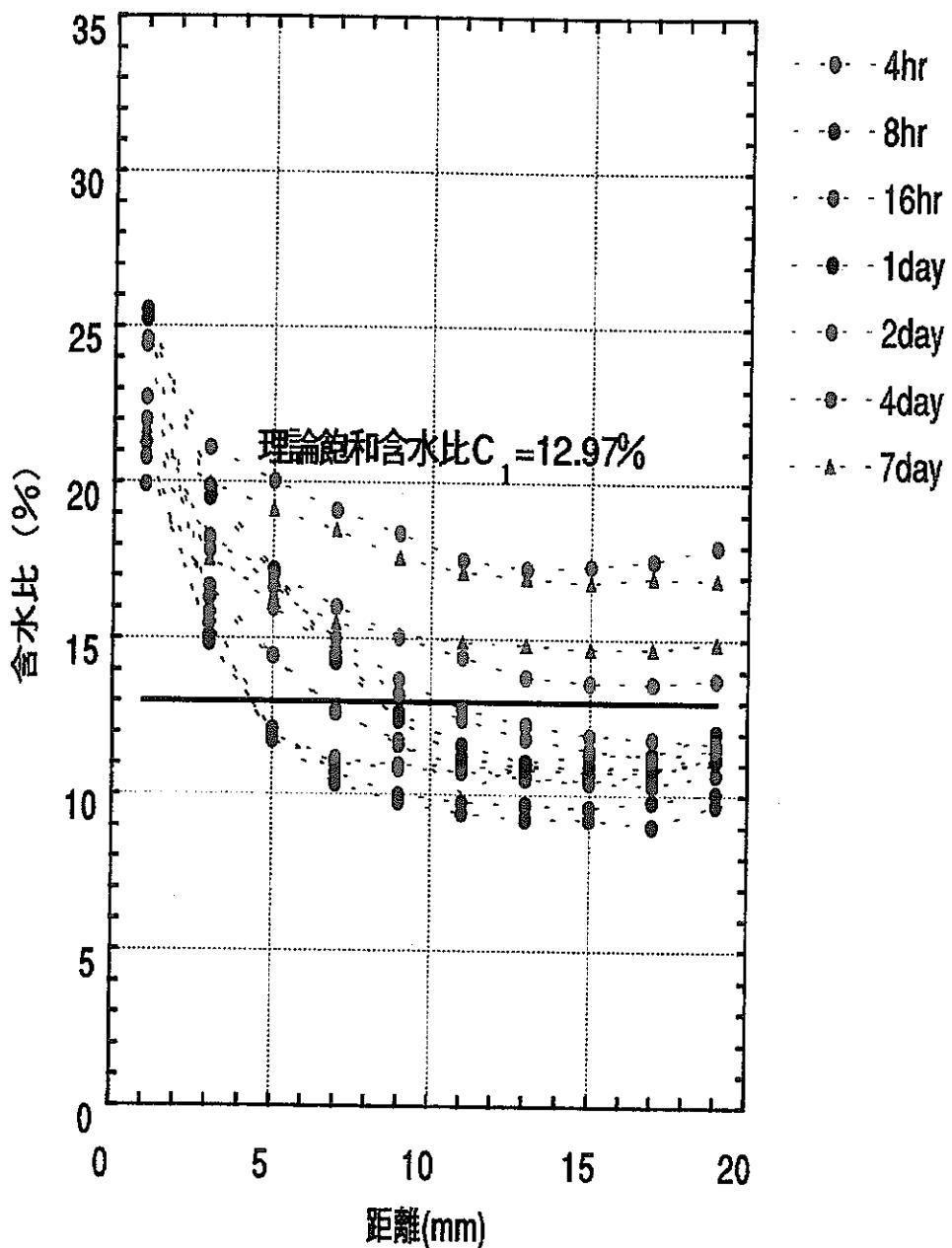
別添図1.4 水分分布図

試料：MX-80 乾燥密度  $\rho_d = 1.6\text{g/cm}^3$



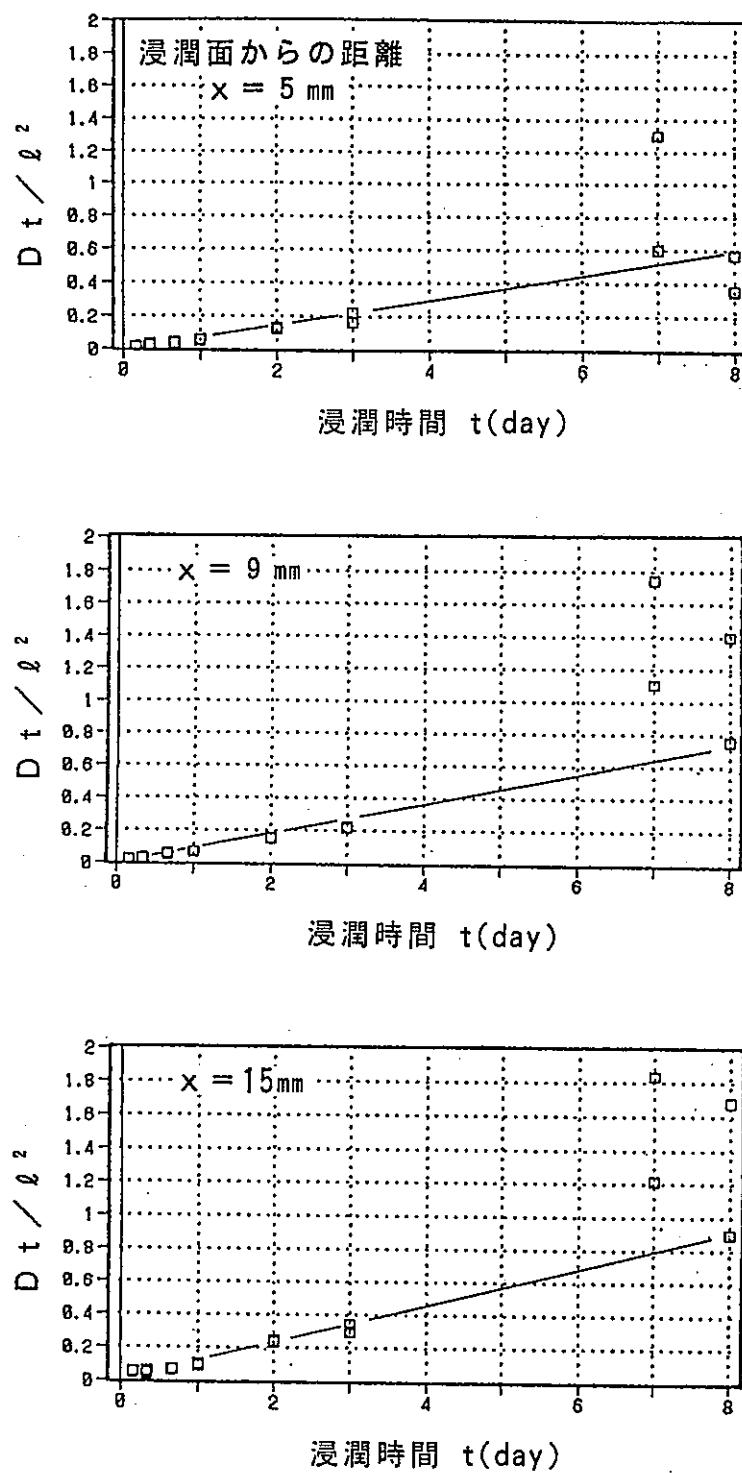
別添図1.5 水分分布図

試料：MX-80 乾燥密度  $\rho_d = 1.8 \text{ (g/cm}^3\text{)}$



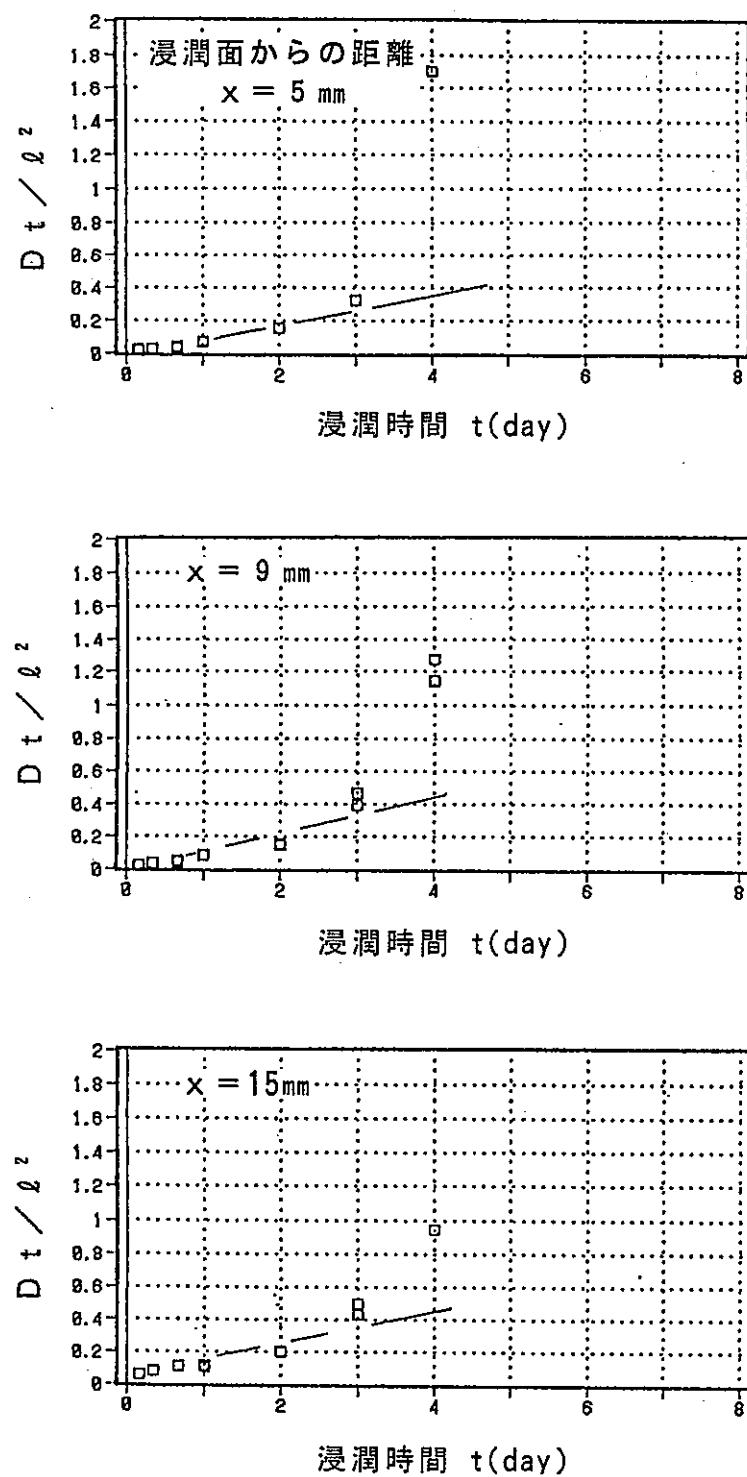
別添図1.6 水分分布図

試料：MX-80 乾燥密度  $\rho_d = 2.0 \text{ (g/cm}^3\text{)}$

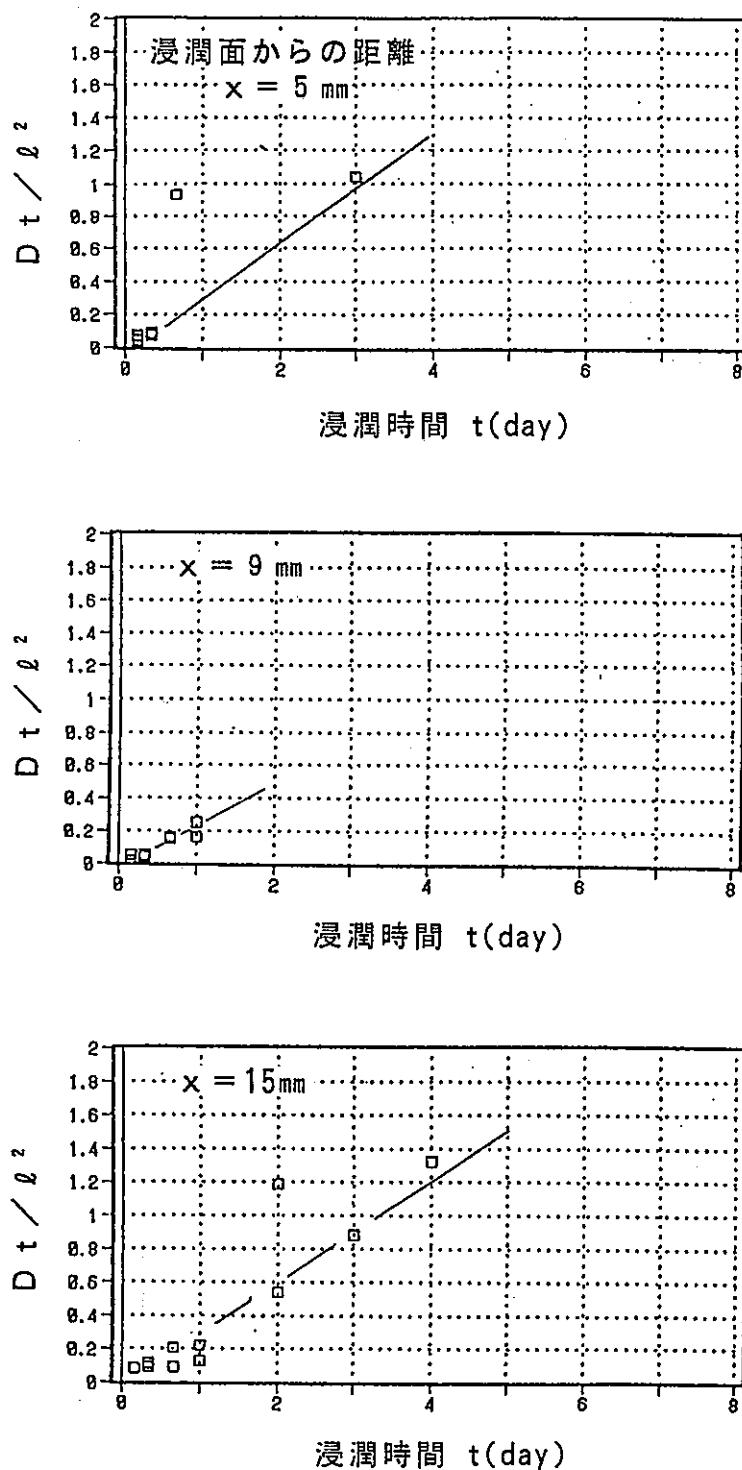


別添図2-1.1  $Dt/\ell^2$  と浸潤時間  $t$  との関係

試料 クニゲルV1, 乾燥密度  $1.6 \text{ g/cm}^3$



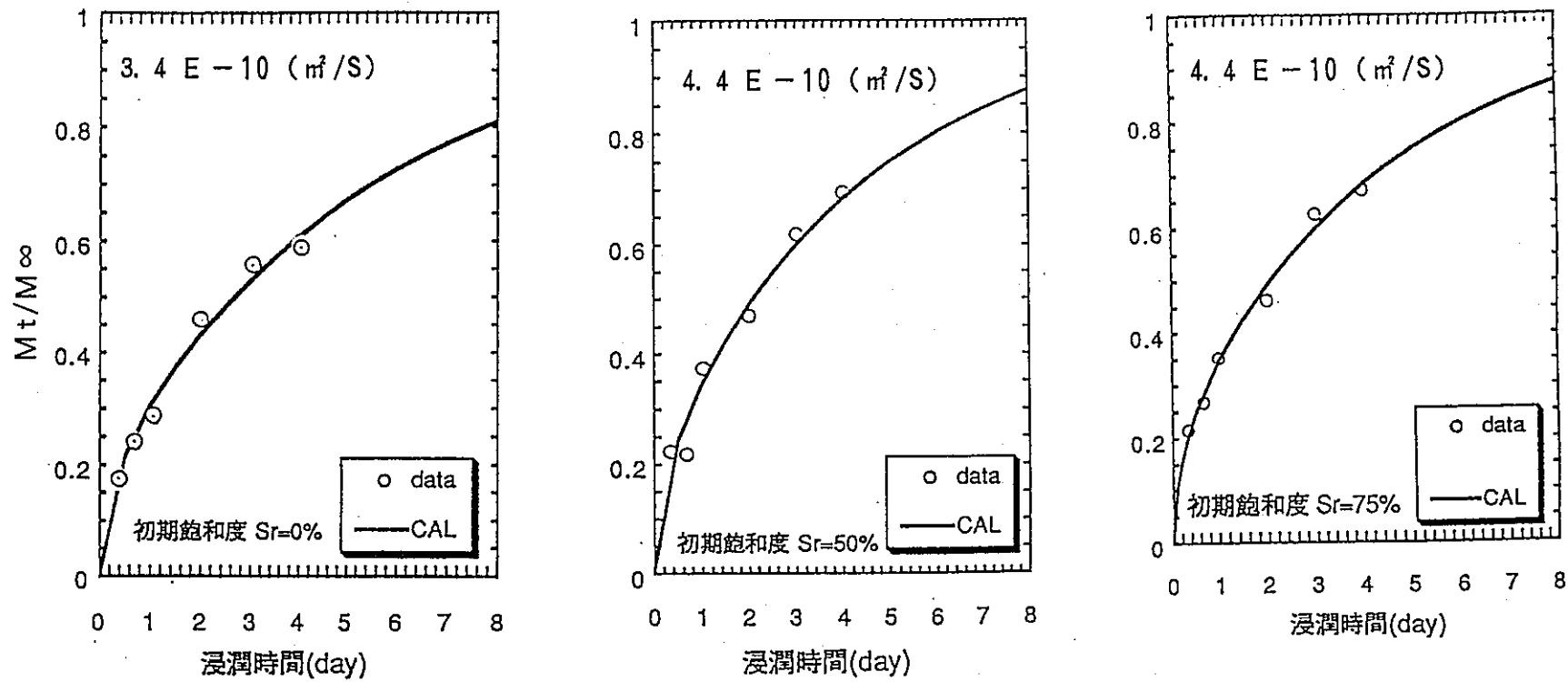
別添図 2-1.2  $D_t / l^2$  と浸潤時間  $t$  との関係  
試料 クニゲルV1, 乾燥密度  $1.8 \text{ g/cm}^3$



別添図 2-1.3  $Dt / \ell^2$  と浸潤時間  $t$  との関係

試料 クニゲルV 1, 乾燥密度  $2.0 \text{ g/cm}^3$

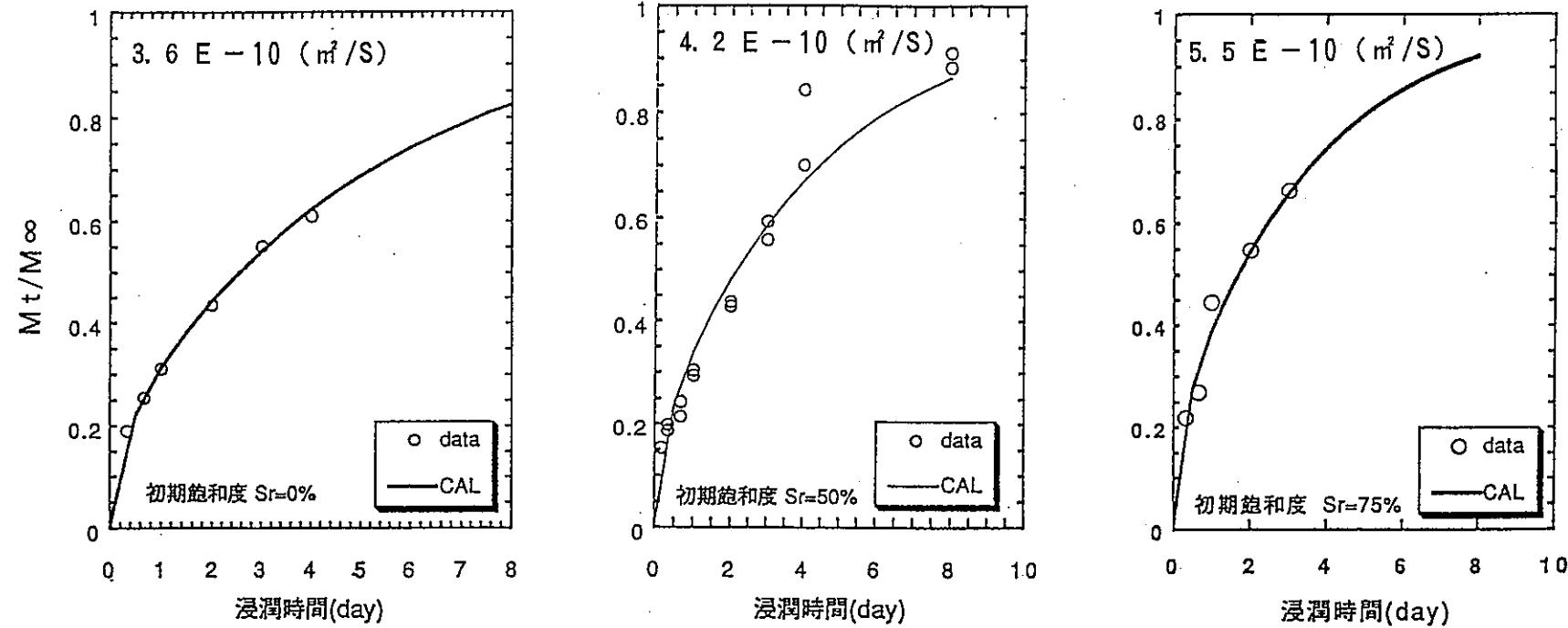
- 48 -



別添図2-2.1 近似式による計算値と実験値との比較

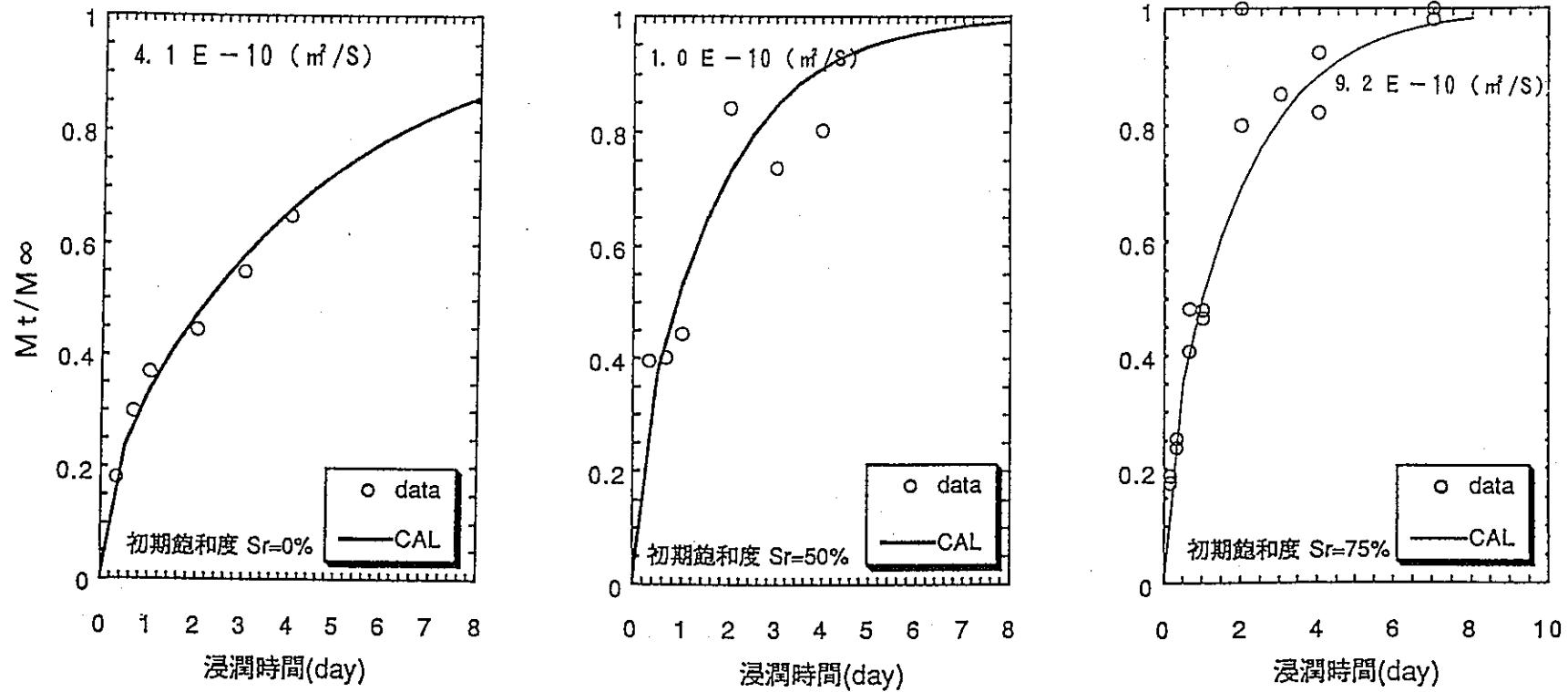
試料 クニゲルW1, 乾燥密度  $1.6 \text{ g/cm}^3$ , 初期飽和度 0, 50, 75%

- 49 -



別添図 2-2.2 近似式による計算値と実験値との比較

試料 クニゲルW1, 乾燥密度  $1.8 \text{ g/cm}^3$ , 初期飽和度 0, 50, 75%



別添図 2-2.3 近似式による計算値と実験値との比較

試料 クニゲルW1, 乾燥密度  $2.0 \text{ g/cm}^3$ , 初期飽和度 0, 50, 75%