

アルカリ条件下において変質したベントナイト系緩衝材の透水系数評価手法の開発

日本原子力研究開発機構 安全研究センター 廃棄物安全研究グループ
○澤口 拓磨、塚田 学、向井 雅之、山口 徹治

※本研究は、原子力規制委員会原子力規制庁「平成25年度地層処分安全審査に向けた評価手法等の整備」として実施したものである。

1. はじめに

- 高レベル放射性廃棄物の地層処分システムにおいては、セメント系材料に起因するアルカリ成分によってベントナイト系緩衝材が長期的に変質し、その止水性に影響を及ぼす可能性が指摘されている。
- この影響を評価するため、JAEA安全研究センターでは所定の割合で調合したベントナイト-砂混合圧縮体（以下、「混合圧縮体」）を用いた透水試験を実施し、イオン強度（ I_s , mol/L）、有効モンモリロナイト密度（ ρ_m , kg/m³）、温度（ T , K）をパラメータとした透水系数（ K , m/s）評価モデル（ベントナイト透水系数評価モデル）を整備した[1]。
$$K = 1.2 \times 10^{-7} \cdot I_s^{1.5} \cdot 10^{-0.0042 \rho_m} (7.9 \times 10^{-5} T^2 - 1.9 \times 10^{-2} T - 0.21)$$
- また、Na系アルカリ溶液による混合圧縮体の変質に伴う透水系数の変化を観察する3タイプの実験室試験を行い、変質によって当該透水系数が上昇することを確認した[2]。
- 本研究では、拡散場でアルカリ変質させた混合圧縮体を用いた透水試験を系統的に実施し、処分環境下でのベントナイト透水系数評価モデルの適用性を確認するとともに、その結果を踏まえた安全評価への反映方法に係る検討を行った。

2. 実験

- 試験方法は、上述した変質試料に対する3タイプの透水試験[2]のうち、当該モデルの検証に最も適切であると考えられる（最も整合性があつた）方法（アルカリ溶液を用いて一度だけ変質させた試料に試験溶液を通水させる方法）を採用した。
- ▶試料：乾燥密度1,600 kg/m³のベントナイト-砂（1：1）混合圧縮体
- ▶変質操作：1 mol/LのNaOH溶液に所定の期間（0～224日間）拡散場で浸漬（90℃）
- ▶透水試験：変質させた混合圧縮体に0.01～1.0 mol/LのNaCl溶液を40℃で通水させ、透水系数を測定（Fig. 1）
- ▶試験終了後、混合圧縮体のモンモリロナイト残存量をメチレンブルー吸着試験法により測定し、有効モンモリロナイト密度を導出

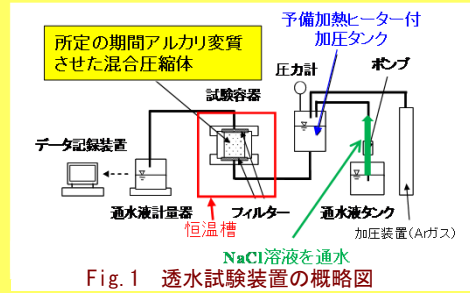


Fig. 1 透水試験装置の概略図

3. 結果・考察

【試験結果と計算結果の比較】

- 変質させた混合圧縮体の透水系数と有効モンモリロナイト密度、イオン強度の関係を計算値と併せてFig. 2に示す。

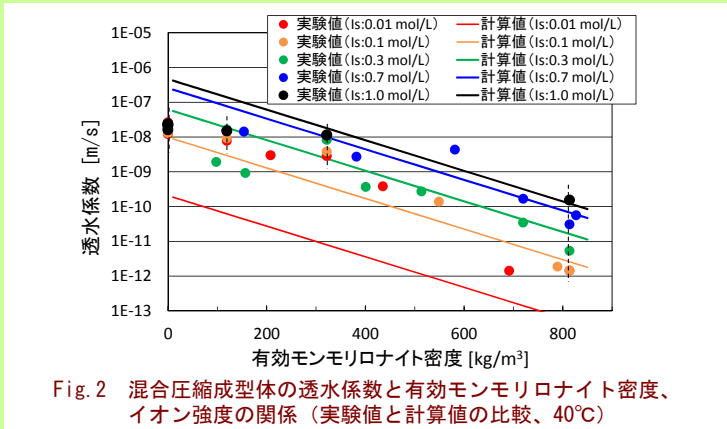


Fig. 2 混合圧縮成型体の透水系数と有効モンモリロナイト密度、イオン強度の関係（実験値と計算値の比較、40℃）

- ▶破線（——）は同一の変質試料に対してイオン強度の異なるNaCl溶液を順次通水して得た値である。
- ▶同一試料にイオン強度0.01 mol/Lと0.1 mol/Lの溶液を通水させたときの透水系数に大きな差異は見られなかった。
- ▶通水溶液のイオン強度が0.1 mol/L未満のとき、透水系数の計算値は実験値を大きく上回った。
→ベントナイトから溶出されるNa+によって間隙水中のイオン強度が増加したためと考えられる。
- ▶有効モンモリロナイト密度が高い領域（約400 kg/m³以上）では、透水系数に対するイオン強度依存性が大きく、**実験値と計算値の整合性が良い**。
- ▶モンモリロナイトが減少するに従いそのイオン強度依存性が小さくなり、**実験値と計算値が乖離**する傾向がみられた。
→イオン強度の影響はモンモリロナイトの存在量に依存する。
→その存在量が減少すると間隙構造の影響が支配的になる可能性がある。
→当該モデルでは、生成した二次鉱物の粒径が透水系数に及ぼす影響については考慮していない。
→上記のことが実験値と計算値の乖離の原因かもしれない。
- ▶過度に変質させた混合圧縮体の透水系数は、通水させた溶液のイオン強度に係わらず一定の値（ $2.0 \sim 2.6 \times 10^{-8}$ m/s）となった。
→モンモリロナイト残存量が過度に低下した領域については（イオン強度依存性の項がある）当該モデルが適用できない。

【安全評価への反映方法に係る検討】

- 長期安全評価において当該モデルを使用する際には、その適用性を適切に考慮する必要がある。
- 実際にアルカリ変質させた試料を用いた透水試験結果を踏まえ、ベントナイト透水系数評価モデルの適用範囲の明確化および改良した結果をFig. 3に示す。

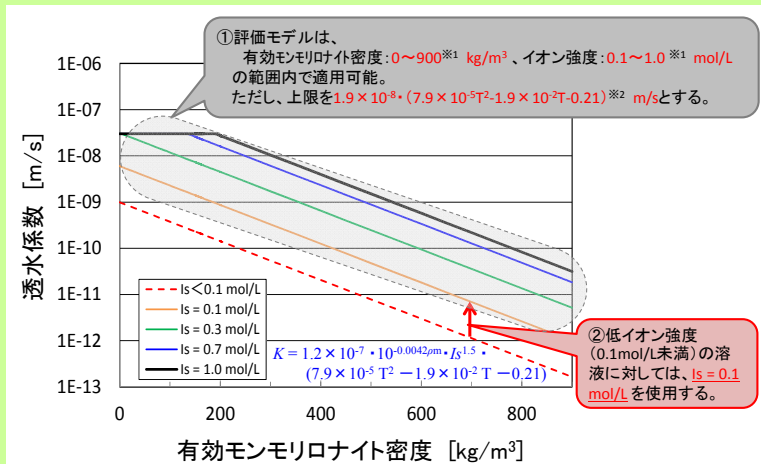


Fig. 3 ベントナイト透水系数評価モデルの改良の概要（40℃）

- ※1 当該モデル作成時に使用した「試料の有効モンモリロナイト密度」および「通水させた溶液のイオン強度」の上限値。なお、有効モンモリロナイト密度の上限値は、実際の処分場での使用が想定されているベントナイト-砂（7：3）混合圧縮体の当該密度に相当。
- ※2 過度に変質させた混合圧縮体の透水系数（ 3.0×10^{-8} m/s@40℃）を基に決定。

4. まとめ、課題

- アルカリ変質させた混合圧縮体を用いた透水試験を実施し、その結果を踏まえて、ベントナイト透水系数評価モデルを改良した。
→今後は、改良した当該モデルを物質移行-変質連成解析コードに導入し、長期安全評価に資することとする。
- Ca系アルカリ溶液に対するベントナイトの変質については、本研究では未検討であるため、今後、ベントナイト中のCaの移行評価と併せて検討を行う予定である。

[1] Yamaguchi et al., Experimental and modeling study on long-term alteration of compacted bentonite with alkaline groundwater, Physics and Chemistry of the Earth, 32, pp.298-310, 2007.
[2] Yamaguchi et al., Changes in hydraulic conductivity of sand-bentonite mixtures accompanied with alkaline alteration, Clay Minerals, 48, pp.403-410, 2013.