

## 廃棄体回収に関わる塩水を利用した緩衝材の分解除去方法の検討

岩佐健吾\*1 石井卓\*2 張至鎬\*2 沖原光信\*1 斉藤亮\*2 鈴木啓三\*3

高レベル放射性廃棄物地層処分においては、何らかの理由により、ベントナイト緩衝材を撤去して定置した廃棄体を回収する場合があると考えられる。塩水によって緩衝材を分解してスラリー状にして除去する方法に着目し、その適用の可能性と基礎的な特性を調べるために、塩水(NaCl 水溶液)と小型の模擬緩衝材を用いた要素実験を行った。ベントナイトおよびケイ砂で構成されている模擬緩衝材は、濃度 3~4wt% の塩水に浸漬することで容易に粘着性を失って分解すること、分解した材料と塩水のスラリーは短時間で沈殿すること、を確認した。また、小型の模擬緩衝材に塩水を噴射する実験を行った結果、塩水を噴射する方法は緩衝材を効率よく除去する上で効果的であることが判った。

**Keywords:** 放射性廃棄物処分, 回収, ベントナイト緩衝材, 分解・除去, 塩水

In high-level radioactive wastes disposal, it may be decided to free and retrieve the emplaced overpack for some reasons. We have been paying attention to the method of slurring bentonite buffer around overpack with fluid (salt solution) as an option method for freeing overpack. Some laboratory tests performed for finding out the feasibility of this method. The results from the tests indicate that the buffer material, constituted of bentonite and quartz sand, can easily be dissolved in NaCl 3 or 4wt% solution, and dissolved material is deposited soon in the slurry. The results from the flushing experiments applied to a small specimen of buffer material suggest that flushing NaCl solution is effective for speedy stripping of buffer material.

**Keywords:** high-level radioactive wastes disposal, retrieval, bentonite-based buffer, dissolving/removing, salt solution

## 1 はじめに

高レベル放射性廃棄物地層処分計画においては、不測の事故など何らかの理由により定置した廃棄体を回収する(回収可能性)概念を取り込むことの検討が行われている。Table 1に示すように回収可能性の考え方は、各国の事情や処分事業の進捗状況に応じて様々である([1]に加筆)。わが国では、原子力安全委員会において、「処分場の閉鎖に際しては、建設段階および操業段階に得られたデータを追加し、安全評価の結果が妥当であることの確認を行う。また、その妥当性を確認するまでの期間は、高レベル放射性廃棄物の回収の可能性を維持することが重要である」としている[2]。回収に必要な作業内容は、処分概念や処分事業の段階によって異なり、OECD/NEAでは、回収可能性は①廃棄体の定置中、②廃棄体定置後および坑道埋め戻し前、③坑道埋戻し後および処分場閉鎖前、④処分場閉鎖後の4つの段階で考慮されるとしている[3]。

回収のための技術に関しては、諸外国においていくつかの検討がなされている。例えば、カナダの事例では、廃棄体の外側の緩衝材をオーバーコアリングすることによる方法が検討されている[4]。また、スウェーデン原子燃料廃棄物管理会社(SKB)では、上記①と②の段階における回収技術について、廃棄体回収に先立つ緩衝材除去が極めて重要な技術であるとしていくつかの除去方法の候補案が

比較検討されており、有力な候補として選定された流体力学的緩衝材除去方法について、具体的検討が進められている[5, 6]。これは、塩水によるベントナイト分解促進現象を利用した技術であり、ベントナイト緩衝材に塩水を低圧で注入(噴射)して徐々に分解し、スラリー化したベントナイト緩衝材をポンプにより取り出すという方法である。エスポ岩盤研究所における実規模スケールのテストでは、塩水を用いて分解・除去したスラリーからベントナイトを分離して塩水を再び分解・除去のために再利用することも実験的に試みられている[5]。一方、わが国においては、具体的に検討した例は少なく、塩水を流体として利用する方法[7, 8]とドライアイスプラスティングによる方法[9]が実験的に取り組まれているのが現状である。以上を総括すると、国内外ともに、緩衝材の中に埋設されている廃棄体を回収することの実現可能性を検討している段階であり、適用技術を確定する段階に至っていない。

現時点で廃棄体回収の方法に関する技術に関して具体的な技術を提示できていないわが国において、実用化できそうな方法を一例として提示することは意義があると考えたので、塩水を利用した緩衝材の除去方法に関して、実用化の可能性を探るために実験的に取り組んだ成果をここに報告する。

## (1) 廃棄体回収技術に求められる要件

廃棄体の回収作業では、下記に示す機能を満たすことが必須である。

- ① 廃棄体を回収する際に廃棄体の性能が劣化するような損傷を与えないこと。
- ② 周囲に埋設されている他の廃棄体に悪影響を与えないこと。
- ③ 周囲に埋設されている他の廃棄体のための人工バリア(緩衝材)に悪影響を与えないこと。
- ④ 回収作業に従事する作業員の被ばくが許容値を超えないこと。

Preliminary study on the method of dissolving/removing the buffer with salt solution by Kengo Iwasa, Takashi Ishii (t-ishii@shimz.co.jp), Jiho Jan, Mitsunobu Okihara, Akira Saitou, Keizou Suzuki

\*1 清水建設株式会社 土木事業本部  
Civil Engineering Div., Shimizu Corporation  
〒105-8007 東京都港区芝浦 1-2-3 シーバンス S 館

\*2 清水建設株式会社 技術研究所  
Institute of Technology, Shimizu Corporation  
〒135-8530 東京都江東区越中島三丁目 4-17

\*3 北海道大学 環境循環システム専攻 環境地質学研究室  
Laboratory of Environmental Geology, Hokkaido University  
〒060-8628 札幌市北区北 13 条西 8 丁目

(Received 26 December 2008; accepted 2 November 2009)

Table 1 Situation on retrievability of foreign countries (modified after Grupa et al.2000)[1]

|                | 米国     | フランス       | ベルギー   | スイス      | ドイツ            | スウェーデン   | フィンランド   |
|----------------|--------|------------|--------|----------|----------------|----------|----------|
| 廃棄体のタイプ        | SF     | ILW/HLW/SF | HLW/SF | HLW/SF   | LLW/ILW/HLW/SF | SF       | SF       |
| 主たる母岩          | 凝灰岩    | 粘土/結晶質岩    | 粘土     | 粘土/結晶質岩  | 岩塩             | 結晶質岩     | 結晶質岩     |
| 処分概念に固有の回収可能性  | あり     | あり         | あり     | あり       | なし             | あり       | あり       |
| 回収可能期間の長さ      | 操業期間のみ | 未定         | 未定     | 操業期間後も継続 | 適用外            | 操業期間後も継続 | 操業期間後も継続 |
| 回収可能性に関する規制/義務 | あり     | あり         | 未定     | 未定       | なし             | 未定       | あり       |
| 回収可能性に関する研究開発  | あり     | あり         | あり     | あり       | なし             | あり       | あり       |

注) SF: 使用済み燃料, ILW: 中レベル放射性廃棄物, HLW: 高レベル放射性廃棄物

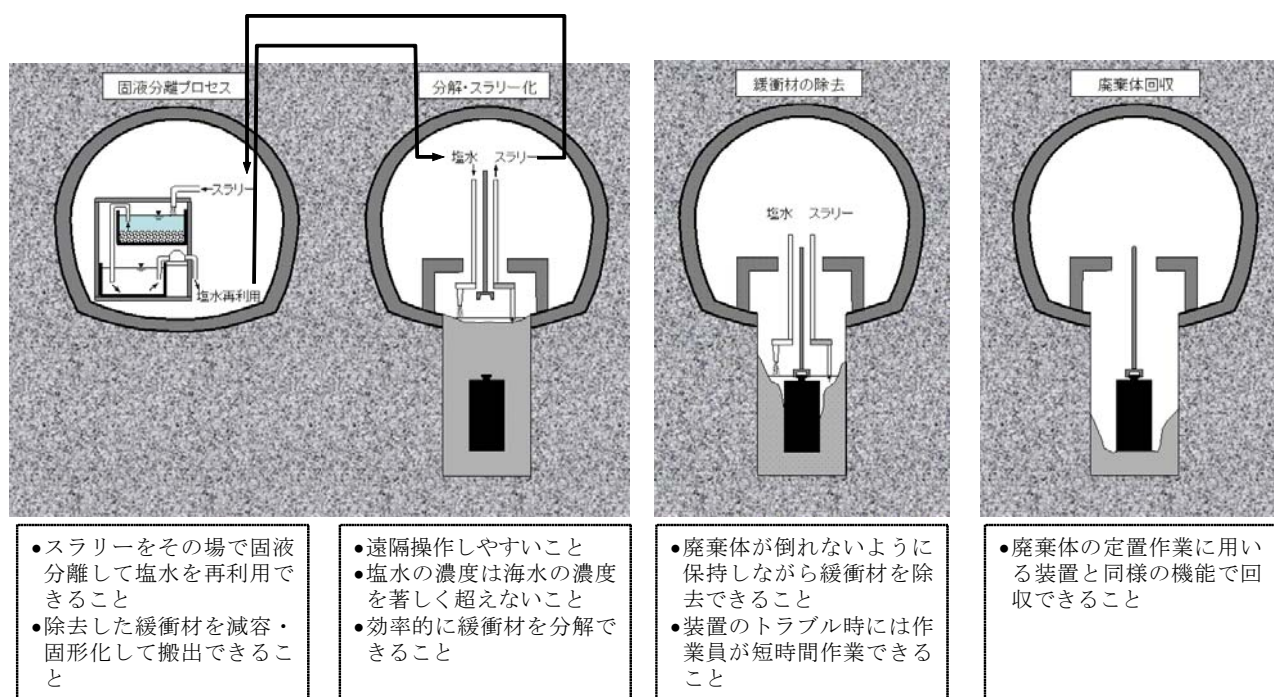


Fig. 1 Schematic process flow of retrieving radioactive waste and issues for operation

高レベル放射性廃棄物の処分事業では、廃棄体を地下深部の所定の位置に搬送して定置し、埋設した後に施設を閉鎖することを行う。廃棄体の受入れ検査、オーバパックの装着等のパッケージ作業、搬送作業、定置作業、緩衝材の設置等の埋設作業、坑道の埋め戻し等の閉鎖作業が主たる作業であり、これらの作業を日常的に多頻度を実施する。これらの日常的作業とは違って、実際に廃棄体を回収する作業が実施される頻度は非常に稀であり、場合によっては全く行われない可能性もある。しかし、対応可能な技術とそれに必要な設備や装置は施設に装備されていなければならない。このような位置づけとなる廃棄体回収技術は以下に示すような特徴を有していることが望ましい。

- 廃棄体の回収作業に使用する設備や機器のうち、専用機器として装備すべきものは必要最小限とし、日常的に施設内で使用する設備や装置を使って廃棄体を回収できることが望ましい。
- 作業は廃棄体の直近での作業となるため、遠隔作業により回収作業の従事者の被ばく量を極力小さくできることが望ましい。
- 廃棄体の回収に伴って発生する廃棄物の量を極力小さくできることが望ましい。

## (2) 緩衝材除去方法の着目点と候補となる技術

廃棄体の回収を実施する際に、廃棄体の表面に密着した緩衝材を除去でき、かつ、定置作業時と同程度の隙間が存

在しているならば、定置装置に類似した装置により定置作業とは逆動線での回収が可能と考えられる[5]。しかし、廃棄体周りの緩衝材は地下水の浸潤に伴って膨潤が進展していくため、緩衝材が廃棄体に密着している状態となっていることが想定されるので、廃棄体と緩衝材との密着部を除去する作業は必要であり、この作業には専用の装置を工夫する必要があると考えた。すなわち、回収技術の検討を進めるうえでは、廃棄体回収に先立つ緩衝材除去技術の成立性や適用性を検討していくことが重要であると考えられる。

緩衝材を除去する手段としては、機械的に掘削する方法、緩衝材を強制的に乾燥させて体積収縮させることで廃棄体と緩衝材の密着部をもろくさせる方法、高圧水で切断する方法、流体で分解させてほぐす方法、等が考えられる。作業は廃棄体の直近での作業となるため、遠隔作業しやすい方法であることが望ましい。機械的に掘削する方法では遠隔操作を適用しにくい複雑な機械操作が必要となること、粉じんが発生しやすいこと、廃棄体を損傷する危険性が大きいことがデメリットであり、緩衝材を強制的に乾燥させて体積収縮させる方法では廃棄体と緩衝材の密着部をはがれやすくできるメリットはあるが、その後の緩衝材撤去作業で機械的に掘削する必要がある、同様のデメリットがある。高圧水で切断する方法は緩衝材を小割りする効果はあるが、ベントナイト泥水が多量に発生して泥濘化し、その後の小割りした材料を取り除く作業が効率的にできないことが懸念される。

ベントナイトスラリーを用いた隙間や岩盤亀裂への注入技術に関する既往研究[10, 11]によれば、水に比べて塩水あるいはエタノール水はベントナイト系の材料の粘着性を低下させてスラリー化しやすくする効果があることが判っていることから、流体で分解させてほぐす方法としては、塩水あるいはエタノール水によるスラリー化が可能であると考えた。塩水あるいはエタノール水を圧縮固化されている緩衝材に接触させることでスラリー化できるならば、分解後の材料を取り除く作業も遠隔操作しやすい。

以上のことを考慮し、筆者らは、まず緩衝材除去技術について実用化できそうな方法を提示できることを目指し、その一例として、流体で分解させてほぐす方法の適用可能性の検討を進めていくこととした。

### (3) 塩水を利用した緩衝材の除去方法のメリットと課題

塩水を利用した緩衝材の除去方法を実際の廃棄体回収に適用した場合には、Fig. 1に示すようなプロセスと留意点が想定される。流体に浸漬する方法あるいは低圧で噴射する方法により緩衝材をスラリー化する作業は除去対象部位から離れた位置から注水あるいは噴射する作業となるため、精密な位置制御を伴う作業とはならないため、遠隔操作しやすいと考えられる。また、分解した緩衝材がスラリー状になった後はバキューム吸引あるいは水中ポンプによる流体搬送によって排出できるため、吸引口あるい

は水中ポンプの位置決めを精密に操作することは求められないので、このプロセスの制御操作も、固体状の材料を機械的に除去する方法に比べて遠隔操作しやすいと考えられる。Fig. 1には遮へい機能をもたせたカバーを処分孔の上に設置して、廃棄体が倒れないように機械的に保持しながら緩衝材を除去する方法を概念的に図示した。同図に示すような廃棄体の転倒防止対策は必ず必要となる対策ではなく、注水あるいは噴射の量・圧力・位置・方向等をコントロールすることで廃棄体の転倒を抑止できる可能性がある。一方、スラリー状態で除去したものが大量に発生することはデメリットとなるので、スラリーをその場で固液分離して塩水を再利用できることが求められる。

前述のように、廃棄体の表面に密着した緩衝材を除去できるならば、廃棄体の搬出は廃棄体の定置作業に用いる装置と同様の機能で対応できると考えられる。したがって、この技術に関する実用化への可能性を確認するためには、流体により緩衝材を分解・スラリー化するプロセスにおける塩水の濃度の目安と分解の効率を確認できること、およびベントナイトスラリーを固液分離し塩水を再利用するプロセスの実用性を確認することが肝要である。塩水により緩衝材を分解・スラリー化するプロセスについては、ベントナイトスラリーを用いた隙間や岩盤亀裂への注入技術に関する既往研究[10, 11]において、塩水あるいはエタノール水が水に比べてベントナイトのスラリー化に有効であるという知見があることから、まずはこの2種類の流体に着目した。予備的な実験の結果、塩水(NaCl 水溶液)に浸漬すると短時間で分解するが、エタノール水に浸漬した場合には短時間では分解しないことが判ったので、スラリー化するための流体としては塩水を第一候補とすることにした。また、ベントナイトスラリーから塩水とベントナイトを分離するプロセスは、建設分野の地中連続壁工事等で用いられるベントナイト安定液のリユースシステムの中で既に実用化された機構と類似しており、適用性が高いと考えられる。

回収対象となる廃棄体に塩水を使用した場合には、隣接する廃棄体周囲の緩衝材の性能を劣化させることが懸念されるが、小峯ら[12]は処分の安全性の観点から海水成分の与える影響を実験的に検討し、海水環境下にあっても緩衝材の自己シール性の低下は小さくできることを示していることから、海水に相当する濃度以下であれば懸念材料とはならない。なお、使用した塩水の濃度が希釈されずに、そのまま隣接する廃棄体周囲の緩衝材に接触することはないと考えられるので、厳密な上限濃度を設定する必要はないが、原則的には海水の濃度を著しく超えない塩水を使うことが望ましい。

### (4) 本研究の目的

筆者らは、塩水を接触させて緩衝材を分解してスラリー化する方法が、実用化しやすい緩衝材除去技術として第一候補であると考え、この技術の実用化に向けた可能性を調

べることを研究目的とした。塩水の成分としてはまずは代表的な NaCl 水溶液を使うこととした。塩水による緩衝材除去技術は、廃棄物を損傷させるリスクが小さいこと、除去作業で粉じんが出にくいこと、流動性を有するため除去緩衝材の搬出がしやすいこと、スラリー化して取り出した後で固液分離が可能で塩水を再利用できることから大量のスラリーの発生は生じないこと、というメリットを期待できるため、閉鎖空間での操作や遠隔操作における装置化やシステム構築の観点でも、優位性を有する技術であると考えられる。

本研究では、塩水を利用した緩衝材除去方法の実用化の可能性を探るために、複数の要素実験を行なうとともに、実験で示された現象についてメカニズムに関する考察を試みた。要素実験では特に下記の観点で実用化への可能性を確認することを目標とした。

- どの程度の塩水濃度であれば緩衝材を分解できるのかを明らかにすること
- 塩水を使ってスラリー化した流体から固液分離して塩水を再利用できることの確認
- 塩水で分解した緩衝材を塩水の噴射によって取り除くことの適用可能性の確認

また、建設分野で実用化されている安定液リユースシステムの緩衝材分解除去方法への適用の可能性についても検討を行なった。これらの結果について報告する。

## 2 要素実験

要素実験では、この技術の中核である分解プロセスと分解スラリーの固液分離プロセスに関するメカニズムの把握に資するために、「模擬緩衝材の塩水浸漬分解実験」と「ベントナイトスラリー沈殿実験」を行なうとともに、緩衝材を分解・除去するための具体的な方法についての見通しを得るためにビーカースケールの模擬緩衝材を用いた室内における「塩水噴射実験」を行なった。

### 2.1 模擬緩衝材の塩水浸漬分解実験

模擬緩衝材の塩水浸漬分解実験では、塩水(NaCl 水溶液)中に緩衝材を模擬したベントナイト供試体を浸漬し、時間経過に伴う供試体の分解現象や塩分濃度に応じた分解速度の違いを把握することを目的とした[7]。

#### 2.1.1 実験方法

Fig. 2 に示すように、吊下げワイヤーで固定したメッシュ金網に載せた模擬緩衝材の供試体を、所定濃度を有する 1000 mL の NaCl 水溶液(水道水に NaCl を混合した溶液)が入ったビーカー内に浸漬し、時間の経過に伴って供試体表面部から順に粘着性を失って沈殿しビーカー底に溜まった分解供試体の重量を、ビーカー下に設置した電磁はかりにより経時的に測定した。

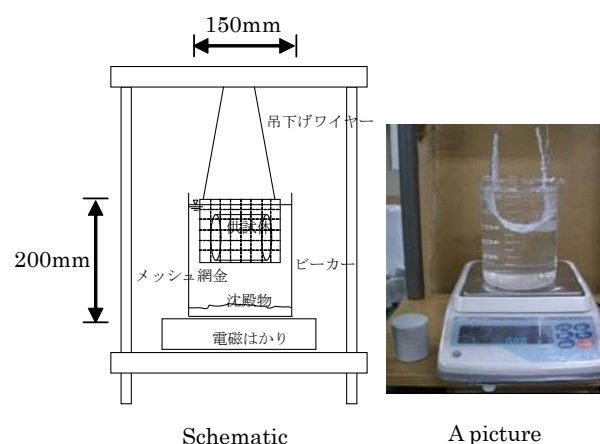


Fig. 2 Test apparatus

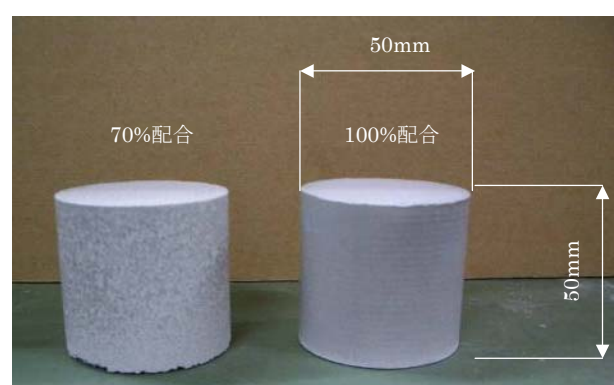


Fig. 3 Bentonite specimen

#### 2.1.2 実験条件

模擬緩衝材を浸漬させるための NaCl 水溶液は、濃度の違いによる分解現象の相違をみるために、0, 2, 3, 4, 6 wt% の 5 水準の濃度とした。NaCl 水溶液に浸漬させる模擬緩衝材の供試体は、ベントナイト(クニゲル V1) 70 wt% とケイ砂 30 wt% の混合体とベントナイト 100 wt% の 2 水準とし、Table 2 に示すように、それぞれ直径 50 mm 高さ 50 mm(体積 100 mL)の大きさで乾燥密度  $1.6 \text{ Mg/m}^3$  にプレス成型したものを用いた。Table 2 に実験の要因と水準ならびに供試体条件を、Fig. 3 に供試体の成型後の写真を示す。水溶液は水道水に所定の塩化ナトリウムを加えて作成し

Table 2 Factor and level on test of dissolving bentonite

| 溶液条件  | NaCl 濃度   | 0, 2, 3, 4, 6 wt%    |         |
|-------|-----------|----------------------|---------|
| 供試体条件 | ベントナイト配合率 | 70 wt% (ケイ砂 30wt%)   | 100 wt% |
|       | 含水比       | 12 %                 | 17 %    |
|       | 間隙率       | 41.6 %               | 42.4 %  |
|       | 体積含水率     | 19.2 %               | 27.2 %  |
|       | 気相率       | 22.4 %               | 15.2 %  |
|       | 乾燥密度      | $1.6 \text{ Mg/m}^3$ |         |
|       | 寸法        | 直径 50mm, 高さ 50mm     |         |
|       |           |                      |         |



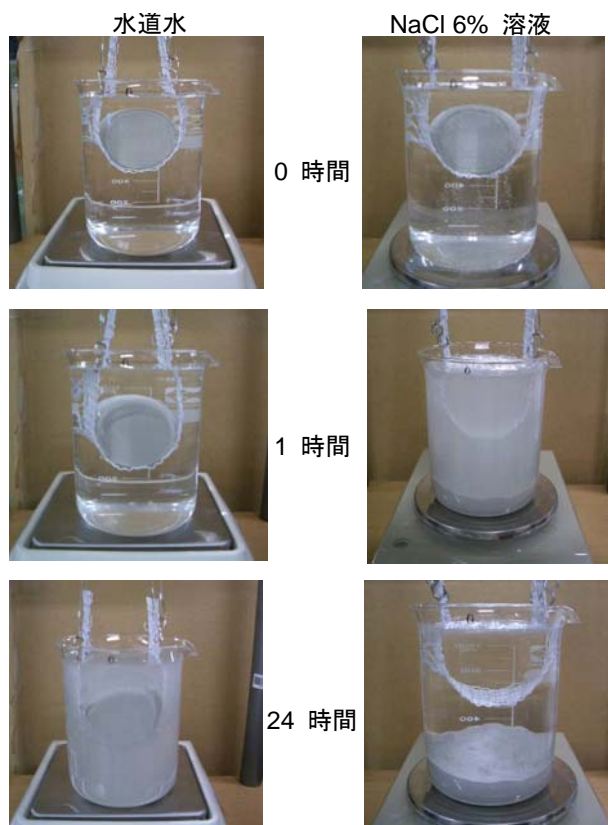


Fig. 4 Appearance of dissolving bentonite specimen

たので、濃度 0 wt% の場合には水道水そのものが使われている。当該水道水の平成 17 年から 19 年の 3 年間における東京都水道局水質データによれば、ナトリウムおよびその化合物は 11~18 mg/L、カルシウム、マグネシウム等(硬度)については 27.5~52.0 mg/L、塩化物イオンは 19.2~32.0 mg/L であり、NaCl 水溶液 2 wt%(20,000 mg/L)に比べて希薄な溶液である。

### 2.1.3 実験結果

Fig. 4 に、ベントナイト 100 wt% の供試体を、水道水(NaCl 濃度 0 wt%)に浸漬した場合と NaCl 水溶液(NaCl 濃度 6 wt%)に浸漬した場合の時間経過(0→1→24 時間)に伴う分解状況の進展の 1 例を写真で示す。Fig. 4 の例からも明らかなように、水道水に浸漬した場合と NaCl 水溶液(NaCl 濃度 2, 3, 4, 6 wt%)に浸漬した場合とでは、分解速度に大きな差が見られた。Fig. 5 には浸漬後の時間経過に応じた分解供試体の累積重量を示した。Fig. 5 に示すように、NaCl 濃度が高くなるほど(0→2→3→4→6 wt%)早く分解する傾向があること、ベントナイト 70 wt%配合の供試体の方がベントナイト 100 wt%配合の供試体よりも 2 倍程度早く分解する傾向があることが確認された。Fig. 6 は、供試体の分解累積重量が 20 g に達するまでの時間を NaCl 濃度別に比較したものである。Fig. 6 に示すように、NaCl 濃度 3 wt%以上で分解速度が速くなる傾向が認められた。

なお、Fig. 5 において崩壊重量がマイナスの値となっている部分がある。試験体は不飽和状態であり、浸漬直後から吸水し、吸水量に相当する空気が供試体から放出される

ため、供試体の水中体積が減少したことがその理由である。なお、崩壊してビーカーの底に落下する材料の重量が吸水量よりも大きい場合にはマイナスの値は観測されない。また、実験は 2 ケースずつ並行して実施したので、計測のタイミングは同一ではない。濃度 2 wt% のケースでは予想より長時間を要したため、計測のタイミングが飛んでいる場合がある。

## 2.2 ベントナイトスラリー沈殿実験

ベントナイトスラリー沈殿実験では、塩水の分離・再利用に関わる予備的知見として、ベントナイトスラリー(ベントナイト懸濁液)中のベントナイトやケイ砂が塩水と固液分離し沈殿する現象や、塩水溶媒中の塩分濃度に応じた沈殿速度の違いを把握することを目的とした[7]。

### 2.2.1 実験方法

沈殿現象の違いを把握するために、プレバックドコンクリートの注入モルタルのブリーディング率(上澄み率)の試験方法に準拠し、ポリエチレン袋方法(JSCE-F522-1999)[13]によりブリーディング率(vol%)を測定することとした。ポリエチレン袋方法は、直径約 50 mm、長さ 500 mm 以上のポリエチレン袋に高さ約 200 mm までモルタルスラリーを充てんし、時間経過後の上澄み部ブリーディング液の体積変化を観測するというものである。

この沈殿実験では、前述の塩水浸漬分解実験が終了した後のビーカー内の供試体分解・沈降物と溶液を十分攪拌し、攪拌後の懸濁液をポリエチレン袋に充てんしたものを使って、その後の上澄み液の時間経過に伴う体積比変化(Fig. 7 参照)を確認した。体積は、同図の右側に示すように適量の水を入れてある 1000 mL メスシリンダー(目盛間隔 10 mL、許容誤差±5 mL)内に試料を充てんしたポリエチレン袋を沈めてメスシリンダー内の水位上昇量から測定した。したがって、スラリーの初期体積約 400 mL に対して±5 mL 程度の誤差は生じる。この体積比(ブリーディング率)は、次式で求めることができる。

$$\text{ブリーディング率(vol\%)} = B/V \times 100 \quad (1)$$

ここに、B：上澄み液体積 V：スラリーの初期体積

### 2.2.2 実験条件

Table 3 に沈殿実験の要因と水準を示す。沈殿実験では、塩水浸漬分解実験後のビーカー内分解・沈殿物を攪拌した懸濁液を用いるため、NaCl 濃度とベントナイト配合率は、塩水浸漬分解実験と同じ水準となる。

### 2.2.3 実験結果

時間の経過に伴うブリーディング率の増加傾向を Fig. 8 に示す。

Fig. 8 より、NaCl 水溶液を溶媒としたベントナイトスラリーは、水道水を溶媒とした場合に比べ沈殿しやすく、特に NaCl 濃度 3 wt%以上で沈殿速度が大きくなること、また、ベントナイト 100 wt%配合よりも、ベントナイト 70 wt%配合の方が早く沈殿する傾向を示していることが把

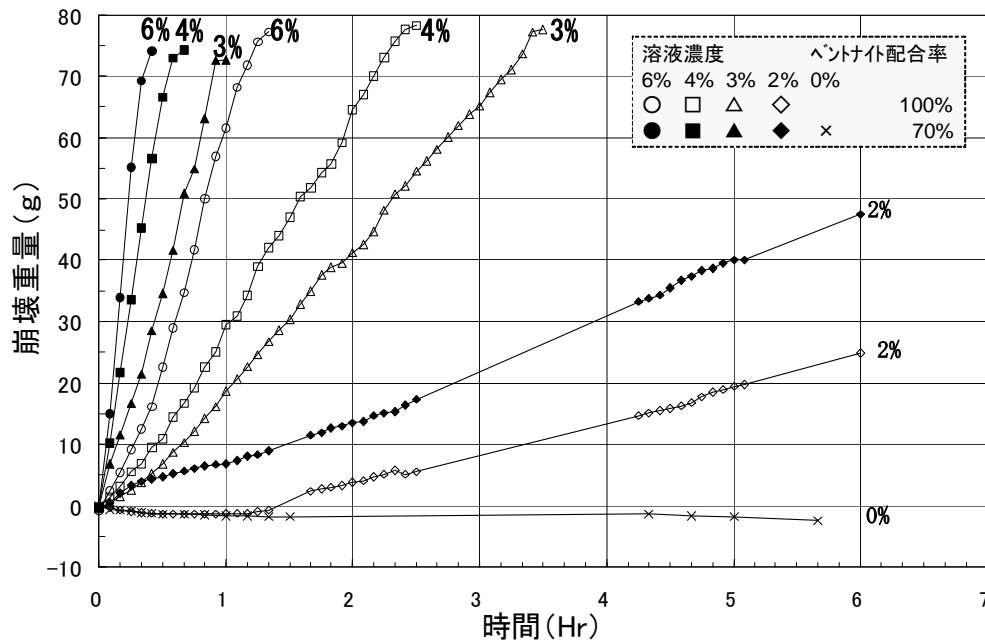


Fig. 5 Time variation of weight of dissolved specimen

Table 3 Factor and level on sedimentation test of bentonite particle

|       |            |                       |         |
|-------|------------|-----------------------|---------|
| 懸濁液条件 | ベントナイト配合率  | 70 wt%<br>(ケイ砂 30wt%) | 100 wt% |
|       | 懸濁液中の固形分濃度 | 16 wt%                | 16 wt%  |
|       | 容積         | 400 mL                |         |
|       | ポリエチレン袋寸法  | 直径 50mm, 高さ 200mm     |         |
|       | NaCl 濃度    | 0, 2, 3, 4, 6 wt%     |         |

握された。なお、NaCl 濃度 0 wt% の条件では測定時間内にはブリーディングは見られなかった。

Fig.9 は、ベントナイト 70 wt% 配合のスラリーの場合における塩水濃度と沈殿速度の関係を示した。濃度 2 wt% の塩水ではブリーディング率が 30 vol% を超えなかったため、沈殿速度への影響程度を相対的に比較するための参考値としてブリーディング率が 20 vol% に達するまでの時間を、同図ではプロットしてある。NaCl 濃度 3 wt% 以上において凝集沈殿の速度が顕著に上昇する傾向が認められた。

### 2.3 塩水噴射実験

前述した塩水浸漬分解実験により、浸漬条件下では塩水が模擬緩衝材の分解に効果があることを確認できたため、処分孔に設置された緩衝材を塩水で分解除去するための具体的方法について見通しを得ることを目的として、室内における小規模な塩水噴射実験を実施した[8]。

#### 2.3.1 実験方法

緩衝材を効率的に分解・除去する方法として、SKB の

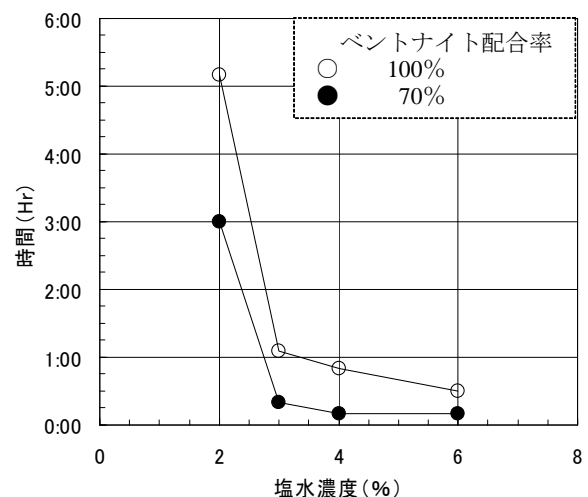


Fig. 6 Relation between NaCl-concentration and time until specimen dissolved up to 20g

研究[6]においても試みられているような Fig. 10 に示す手順の塩水噴射の繰り返しによる除去方法が有効と考えられるため、その方法の適用性を実験的に確認するために、模擬岩に削孔した模擬処分孔にビーカースケールの模擬緩衝材を定置した試験体を対象に、塩水噴射の繰り返しによる除去を模擬した実験を行った。

#### 2.3.2 実験条件

試験体は、Fig. 11 に示すように、模擬岩(来待砂岩)の中にくり抜いた内径 50 mm 深さ 50 mm の模擬処分孔に模擬緩衝材の供試体を装填したものとした。供試体に塩水を噴射するための実験装置を Fig. 12 に示す。塩水を模擬緩衝材の上面に一定圧力(0.1 MPa)で 1 L ずつ噴射して、分解・除去されてできた懸濁液を回収し、乾燥後に重量を測定す

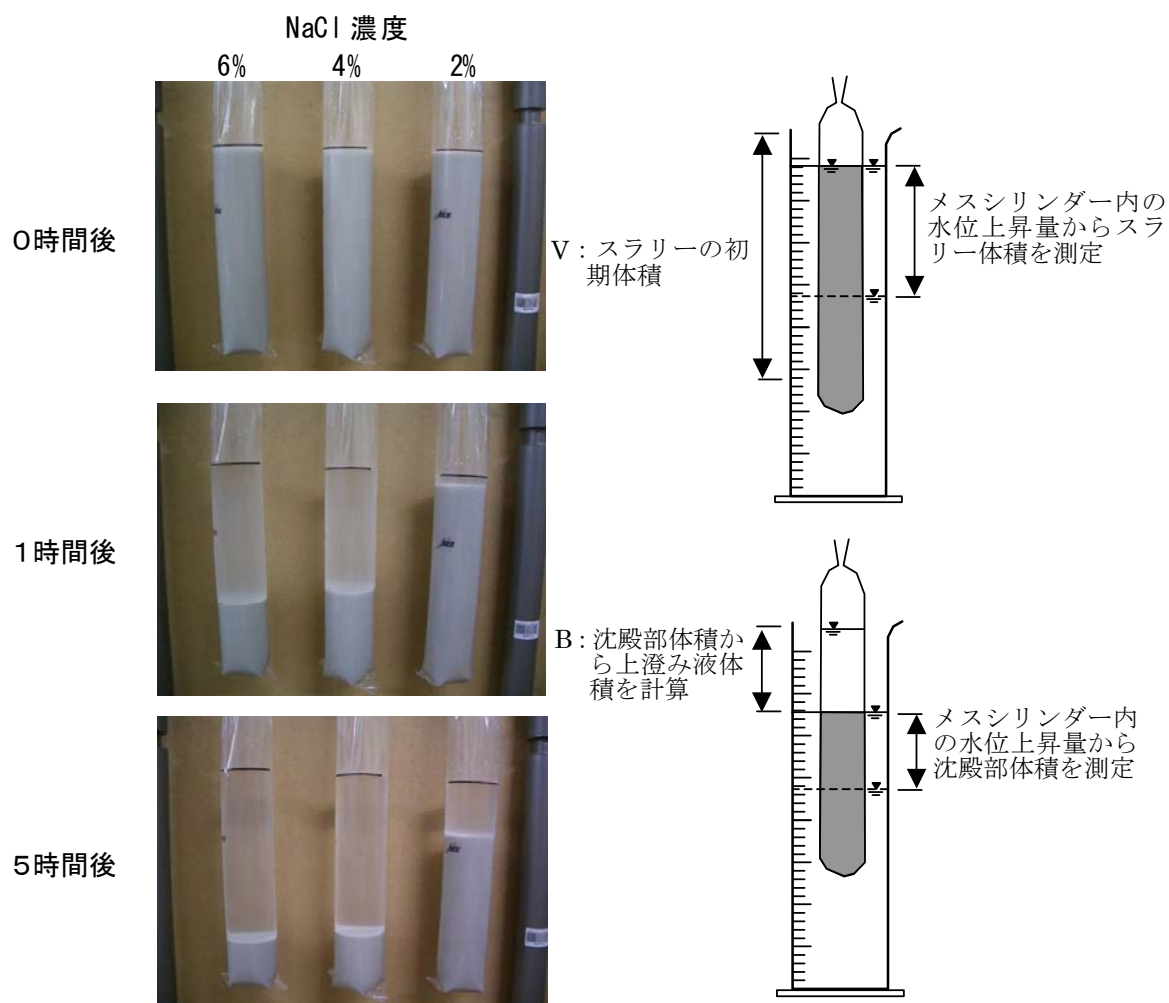
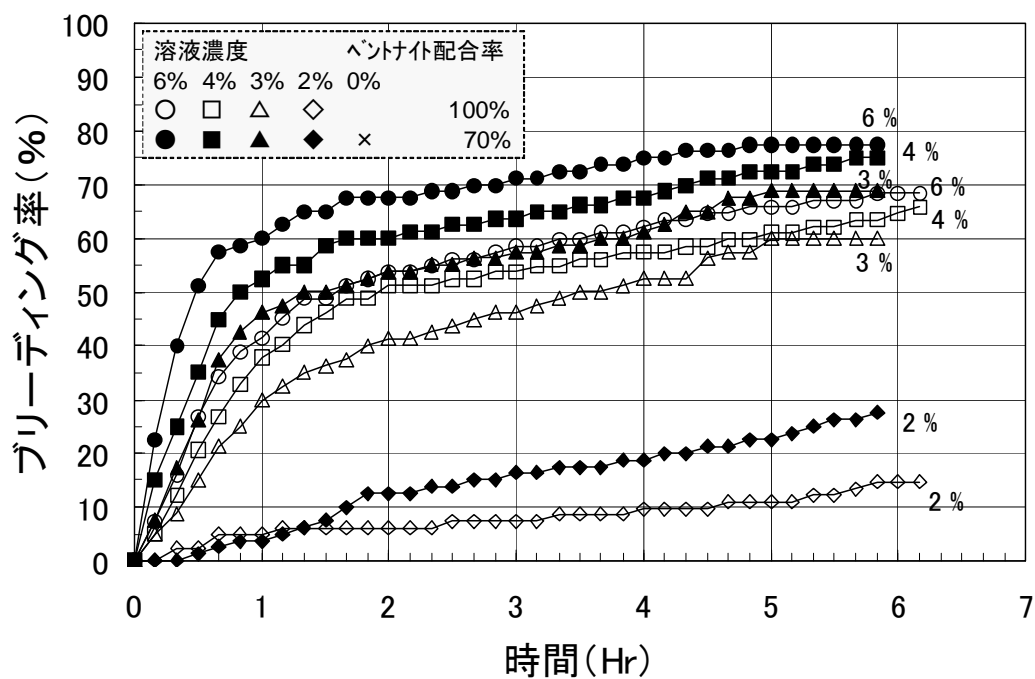


Fig. 7 Sedimentation appearance of bentonite particle and method of volume measuring



注) NaCl 濃度 0wt% の条件では測定時間内にはブリーディングは見られない

Fig. 8 Time variation of bleeding ratio

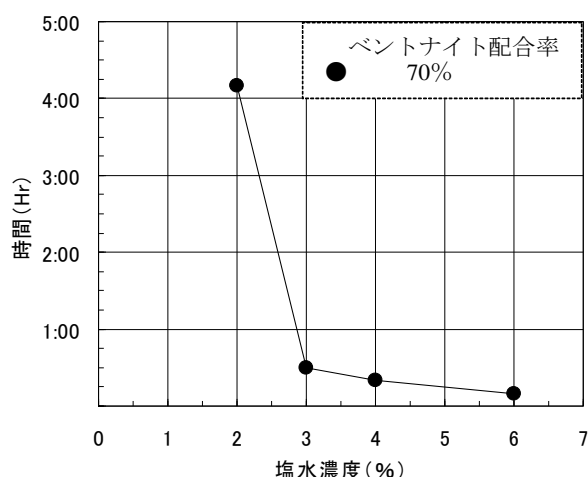


Fig. 9 Time in each salinity until bleeding ratio reached up to 20 vol % (in case of slurry made from bentonite 70wt% & silica sand 30wt%)

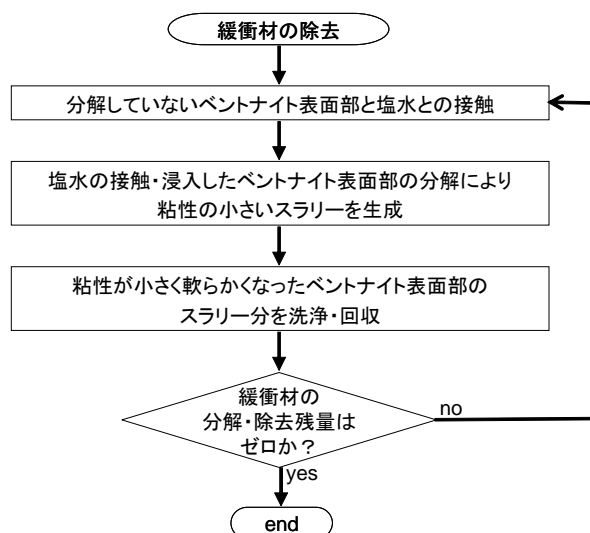


Fig. 10 Overview flowchart for removing buffer in SKB's study

ることによって、1回の噴射で分解・除去できた重量を測定した。塩水の噴射は、10分の間隔をおいて、最大10回まで繰り返した。

Fig. 13に、塩水噴射による分解・除去状況の一例(NaCl濃度4 wt%, 噴射流量速度70 mL/s)の写真を示す。事前の予備的噴射実験により、供試体の表面を塩水に10分程度

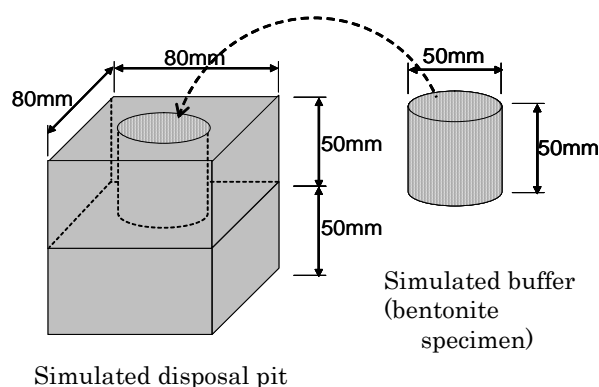


Fig. 11 Simulated disposal pit and buffer

接触させて、供試体表面付近への塩水の浸入を促進しておくことが効果的であることが把握できていたため、Fig. 13に示すように、供試体の上部に高さ10 mm程度の樹脂製型枠を設けて、貯液スペースとして利用した。

模擬緩衝材の供試体には、直径50 mm高さ50 mmにプレス成型したTable 2に示すベントナイト70 wt%とケイ砂30 wt%の混合体(乾燥密度1.6 Mg/m<sup>3</sup>)を用いた。噴射する塩水(NaCl水溶液)のNaCl濃度は、浸漬分解実験で顕著な分解効果が見られた4 wt%とした。

実際の廃棄体回収作業においては前述Fig. 1に示すようなプロセスが想定される。塩水の所要の使用量や噴射圧力(あるいは噴射流量速度)あるいはノズル口径等の条件を決めるためには、実物大の実験による検討が必要であり、小規模な噴射実験では最適条件を明らかにすることは難しい。今回実施したピーカースケールの模擬緩衝材を使った小規模な塩水噴射実験では、塩水の浸漬によって粘性が低下した緩衝材を塩水の噴射によって剝離して除去できることの確認を目的に行った。また、塩水は短時間で固液分離して再利用できることが判ったので、緩衝材の量に対してどの程度の塩水の累計使用量が必要となるかという課題は現時点で明らかにする必要はないと考え、1回の噴射での塩水の使用量は供試体体積の10倍に相当する1000 mLの1条件のみとした。口径4 mmのナイロンチューブのノズルを用いて事前に噴射圧力を0.05 MPaから0.5 MPaまでの範囲で噴射を試行した結果から、噴射圧力が0.1 MPaであれば浸漬によって分解あるいは軟質化した材料の洗浄・除去には十分であることが判ったので、噴射圧力については0.1 MPaの1条件のみとした。なお、噴射に

Table 4 Condition of test for flushing bentonite specimen

| ケース<br>No. | 噴射圧力<br>P (MPa) | 噴射溶体量<br>Q (L×n回) | 噴射間隔<br>(分) | NaCl 濃度<br>(wt %) | 噴射用<br>チューブ径 | 平均流量速度<br>(mL/sec) |
|------------|-----------------|-------------------|-------------|-------------------|--------------|--------------------|
| 1          | 0.1             | 1L×10回            | 10          | 4                 | 4mm          | 70                 |
| 2          | 0.1             | 1L×10回            | 0           | 4                 | 2mm          | 10                 |
| 3          | 0.1             | 1L×10回            | 10          | 0                 | 4mm          | 70                 |



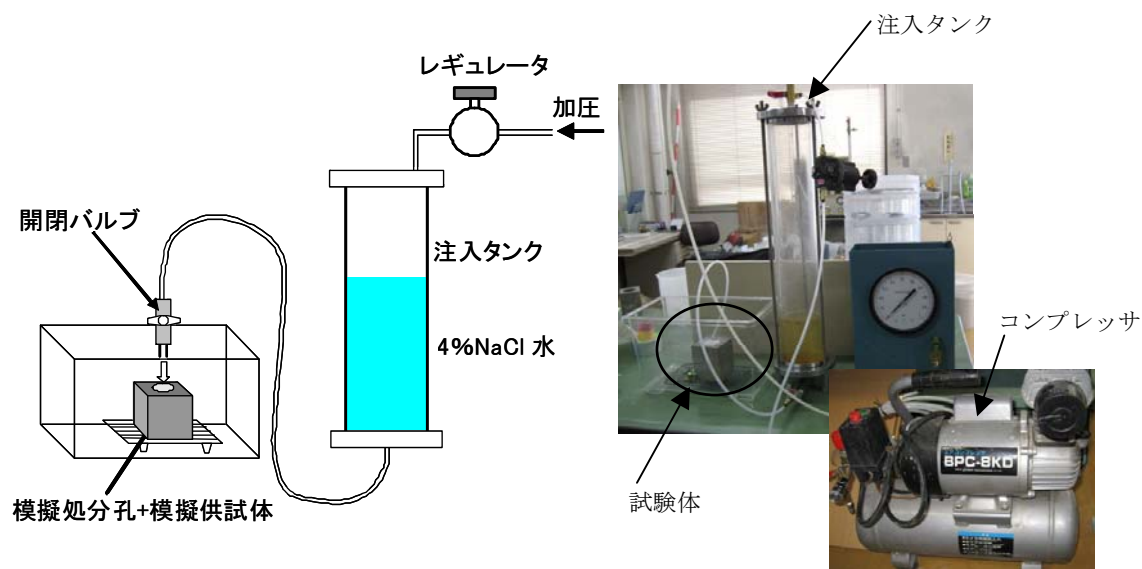


Fig. 12 Schematic of test apparatus for flushing bentonite specimen

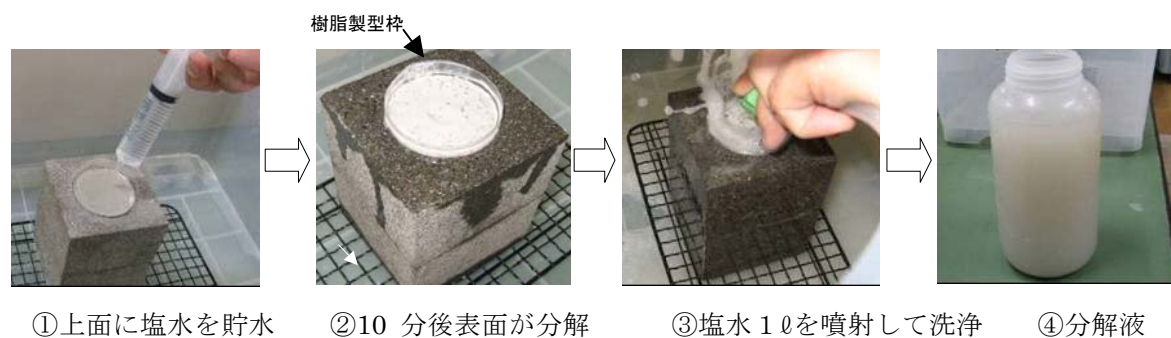


Fig. 13 Procedure of flushing test



Fig. 14 Appearance of removed bentonite specimen (after 10th flushing)

よる削剥効果を期待せずに噴射流量速度を絞って噴射継続時間を長くすることで塩水の浸入が促進されて除去効率が增大できる可能性があると考えたので、ノズル口径1/2に相当する口径2 mmのノズルについても実験した。この場合には塩水の噴射前に毎回10分間塩水を浸漬させるプロセスは行わないこととした。口径4 mmのノズルで噴射圧力が0.1 MPaの場合の噴射流量速度を測定した結果は70 mL/secであり、口径2 mmのノズルでは10 mL/sec

であった(Table 4)。また、比較のために、NaClを添加しない水道水の噴射実験も実施した。実験で着目した要因とその水準をTable 4に示す。

### 2.3.3 実験結果

Fig. 14に、10回の噴射終了後における各ケースの供試体の分解・除去状況写真を示す。塩水(NaCl濃度4 wt%)を70 mL/sで噴射した場合(ケース1)の除去効果は顕著であり、事前に噴射を試行した結果から設定した噴射圧力

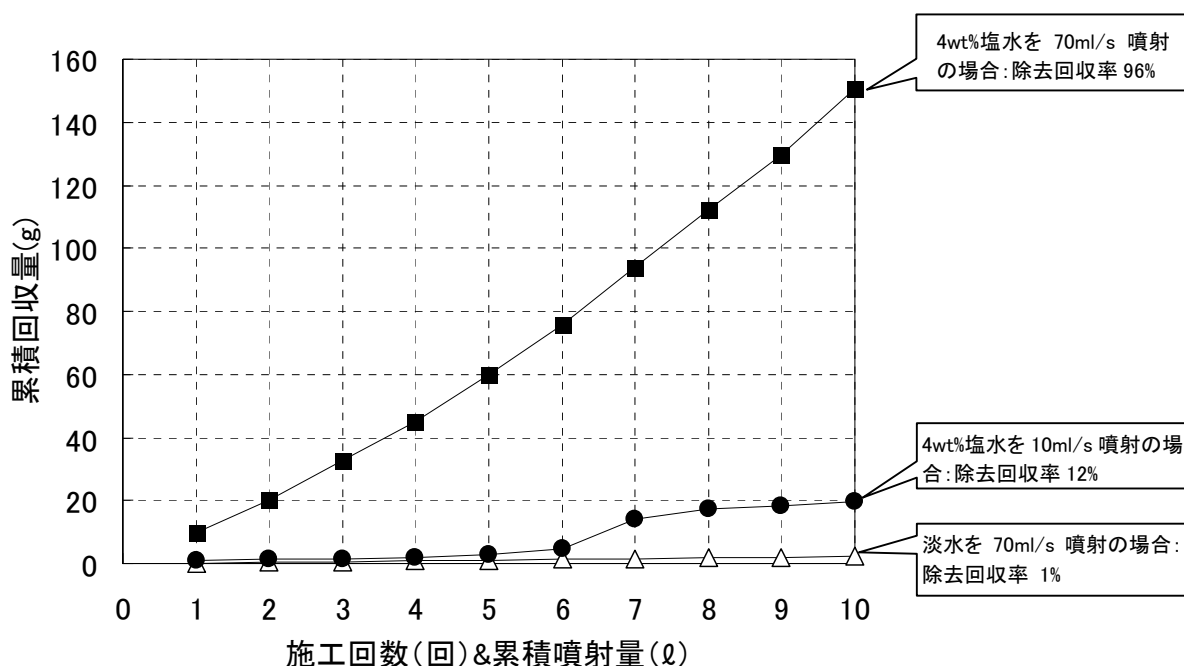


Fig. 15 Weight of bentonite removed by flushing

0.1 MPa の条件で効率良く除去できることを確認できた。

Fig. 15 は、塩水噴射を 10 回繰り返したときの各段階における供試体の分解・除去重量の累積値を示したものである。同じ NaCl 濃度 4 wt% の塩水でもノズル口径 4 mm (噴射流量速度 70 mL/s, 事前浸漬 10 分間) の条件(ケース 1)では、ノズル口径 2 mm (噴射流量速度 10 mL/s, 事前浸漬なし) の条件(ケース 2)に比べて同じ時間で 8 倍程度大きな分解・除去量となることが示された。後者の実験条件では、噴射継続時間を長くすることで塩水の浸漬を促進することも効果があると期待したが、結果は事前浸漬 10 分間を行う前者の方法に比べて効果的ではなく、この条件では塩水の浸透による分解促進効果や塩水の浸透によって軟質化した領域を除去する能力が不足したようである。

一方、ノズル口径が 4 mm の場合には 1 回あたりの噴射量 1000 mL の前半段階で除去が進み、後半で除去できる量は微量であった。実際の緩衝材の除去のための噴射条件を最適にするためには、緩衝材表面にできるだけ長時間の塩水の接触を継続すること、浸漬によって分解あるいは軟質化した表面部の緩衝材を効率よく除去する条件として噴射圧力やノズル口径の両者の組み合わせで決まる噴射流量速度の条件に着目すべきであることが判った。ただし、緩衝材の表面から浸入した塩水によって軟質化が進展する領域は塩水の接触継続時間の条件によって異なるであろうから、実際の適用に際しては塩水接触条件との組み合わせにも着目して、総合的な検討をする必要がある。塩水接触後の噴射継続時間については除去状況を遠隔観察しながら人間が判断することが現実的であると考えられる。

また、水道水による噴射はほとんど効果がないことが確

認された。

これらの結果から、NaCl 濃度 4wt% の塩水を使った場合、比較的低圧(0.1MPa)の塩水噴射でも必要な噴射流量速度を有していれば緩衝材の分解・除去に効果があることが示唆された。

### 3 試験結果の考察

ここでは、塩水浸漬分解実験とベントナイトスラリー沈殿実験の結果について考察する。

#### 3.1 塩水による模擬緩衝材の分解現象

前述した塩水浸漬分解実験における NaCl 水溶液に浸漬した模擬緩衝材の分解現象や分解速度の違いは、供試体に浸入した溶液のイオン濃度とモンモリロナイト層間距離の関係に起因するメカニズムによるものと考えられる。このメカニズムに関する既往知見を整理したうえで、塩水による分解現象について考察を試みる。

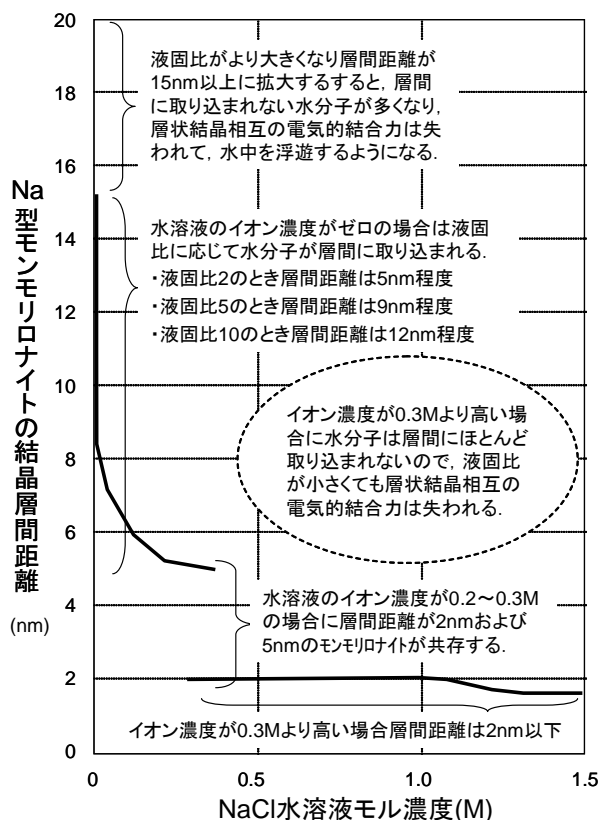
##### 3.1.1 モンモリロナイトの結晶構造と層間距離の変化

###### (1) 結晶構造の特徴

ベントナイトの主成分であるモンモリロナイトの層状結晶構造は Grim(1968) [14] が記述したように、Si-O 四面体シートと Al-O, Mg-O 等の八面体シートで構成される層状の結晶構造の各層の結晶層に陽電荷が不足しており、層間に陽イオンが介在することで、層どうしの電気的引力によって互いに力学的に結合力(以降では電気的結合力和と称す)をもたらしているとされている。

###### (2) 層間距離の拡大特性

ベントナイトは水を吸収して膨潤する。これについて



**Fig. 16 Relation between the basal spacing of Na-montmorillonite and the NaCl concentration of the solution with which it is in equilibrium (modified after Low et al.1992 [17] and Fukushima 1984[16])**

は、例えばSladeら(1991)[15]が言うように、モンモリロナイトの結晶層間と周辺水溶液との陽イオン濃度勾配により浸透圧が発生し、層間に極性を持つ水分子が次々に浸入し陽イオンと水和して層間が広がるためと考えられている。すなわち、モンモリロナイトの結晶層を取り囲んでいる周辺水溶液の陽イオン濃度が高くなると、モンモリロナイトの結晶層間へ水が取り込まれる力となる浸透圧が減少するため、モンモリロナイトの結晶層間の距離は小さくなり、逆に周辺水溶液の陽イオン濃度が低くなると結晶層間の距離は大きくなる。

周辺水溶液のイオン濃度がゼロの場合には、液固比(モンモリロナイトの固相の重量に対する水の重量の比)によって層間距離は決まる。Fukushima(1984) [16]は、Na型モンモリロナイトに水を加えていった場合の液固比と層間距離の関係を測定し、液固比が大きくなるに従ってNa型モンモリロナイトは多量の水を層間に取り込んで層間が数倍以上に広がること、ならびにNa型モンモリロナイトの層間距離が150Å (15 nm)を超えると、水中を自由に浮遊する状態になると述べている。このことから、層間距離が15 nmを超えると、増加された水分子は層状結晶の間に取り込まれず、自由に移動できる水分子が多くなるので、これ以上の層間距離になるとモンモリロナイトの層状結晶相互の電気的結合力は失われるものと考えられる。

### (3) 間隙水のイオン濃度の層間距離への影響

ベントナイト系材料において、モンモリロナイトの層間距離は、ベントナイトの間隙水(モンモリロナイト粒子の周囲に存在する溶液)のイオン濃度によって異なると考えられる。モンモリロナイト粒子の周囲に存在する間隙水のイオン濃度よりも層状結晶の層間に存在する陽イオンのイオン濃度が大きい場合には水分子はさらに層間に取り込まれることになる。イオン濃度の違いによる層間距離への影響については、Low(1992)[17]が、NaCl水溶液中におけるNa型モンモリロナイトの層間距離の実測例に基づいて、NaCl水溶液のモル濃度(mol/L)が0.2(mol/L)未満の濃度領域においては、濃度が小さくなるほど層間は大きくなること、0.2~0.3(mol/L)の濃度領域においては層間距離が2 nmの状態と5 nm程度の状態の両者が共存していること、0.3(mol/L)以上の濃度条件であれば層間距離は2 nmより大きくはならないことを示している。すなわち、濃度領域0.3(mol/L)付近(濃度2 wt%程度)は、層間距離が急激に変化する濃度の境界領域(層間距離が大きいものと小さいものが共存する濃度領域)であると考えられる。

### (4) 間隙水のイオン濃度がベントナイト系材料の粘着性に与える影響

上述のFukushima(1984)およびLow(1992)の研究を参考にして、Fig. 16にはNaCl水溶液中におけるモンモリロナイトの層間距離とイオン濃度がゼロに近い場合における層間距離の大きさの変化を概念的に示した。この図に示すように、イオン濃度がゼロに近い場合にNa型モンモリロナイトの層間距離が15 nmを超えるとモンモリロナイトの層状結晶相互の電気的結合力は失われるが、逆に考えるならば、モンモリロナイトの層状結晶の層間距離が小さいときにはモンモリロナイトの層状結晶相互の電気的結合力は大きい。ベントナイトが吸水して粘着性の大きいゲル状になった状態はそのようなときである。ただし、このような結合力はモンモリロナイトの層状結晶の周囲にある間隙水のイオン濃度がLow(1992)の述べるように所定の濃度以下の場合に限定される。

モンモリロナイトの層状結晶の周囲の間隙水のイオン濃度が高い場合にはモンモリロナイトの層状結晶相互の電気的結合力が維持された状態での層間距離の拡大ができないので、水分子は層状結晶の層間に取り込まれず、結晶粒子の外側において水分子が自由に移動するようになり、モンモリロナイトの層状結晶相互の電気的結合力は失われる。その結果、同じ液固比条件であっても、イオン濃度が小さい場合にはベントナイトゲルの粘着性は高く、イオン濃度が大きい場合にはベントナイトゲルとしての粘着性は発揮しなくなる。ベントナイトを構成する粒子相互の一体性は、ケイ砂やベントナイト中の随伴鉱物粒子の周りを取り囲んでいるモンモリロナイトゲル中におけるモンモリロナイトの層状結晶相互の電気的結合力が粘着性(拘束力)として機能しているためであると理解すること

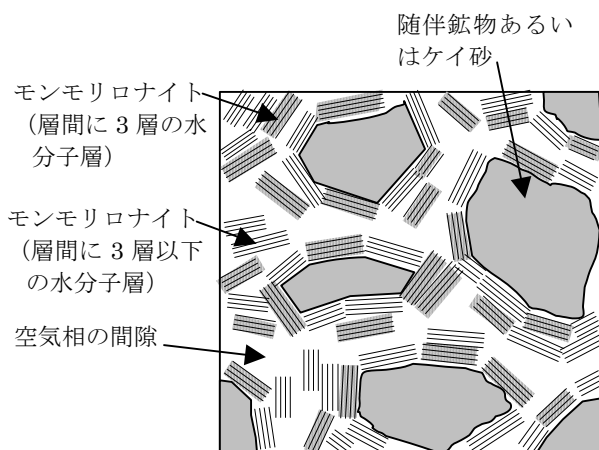


Fig. 17 Schematic of microstructure of specimen before immersion in solution

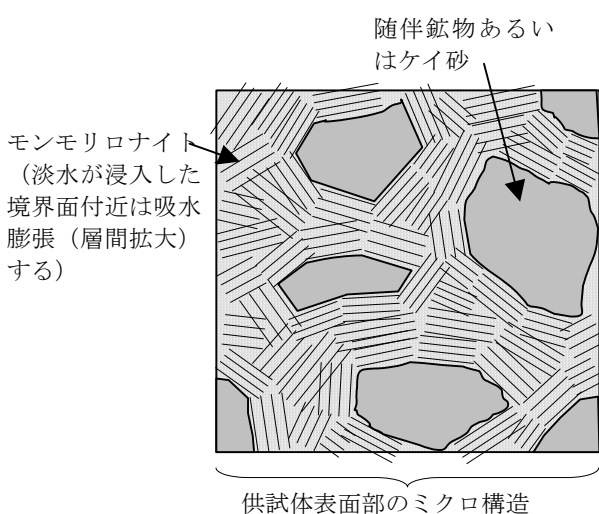


Fig. 18 Microstructure of bentonite specimen after water supply

ができるが、モンモリロナイトの層状結晶の周囲の間隙水濃度が 0.3(mol/L)付近(濃度 2 wt%程度)を超える濃度に変化した場合に、ベントナイト系材料は一体性を保持する上での粘着性を喪失すると考えられる。

### 3.1.2 塩水による浸漬分解メカニズム

#### (1) 土粒子の浸漬分解の原因

土質材料を水に浸漬し、かつ、土質材料の外表面が土粒子の崩壊を自由に許す自由面であるとすれば、土粒子は徐々に粘着性を失って、やがては分解する。すなわち、土粒子によって拘束されていない自由水が土粒子を取り囲み、土粒子相互の粘着力を喪失させ、土粒子相互は分離する。このときの分解速度は主として浸漬領域の透水係数(すなわち浸漬水の浸入速度)で決まると考えられる。

#### (2) 浸漬前の供試体条件

今回用いたプレス成型による供試体は、Table 2 に示した通り 41.6 %あるいは 42.4 %の間隙率を有しているとともに不飽和供試体であり、その気相率(空気容積の全容積に対する体積百分率)は、ベントナイト 70 wt%配合の場合

22.4%、ベントナイト 100 wt%配合の場合 15.2 %であるから、飽和状態の場合に比べて塩水が浸入する領域が多く存在する。

Davineau et al.(2006)[18]は、風乾したベントナイトを、直径 30 mm、高さ 4 mm、乾燥密度  $1.7 \text{ Mg/m}^3$  に圧縮成型し、中性子線回折で測定し相対湿度と層間距離の関係を求めており、相対湿度 98 %の雰囲気において、Na モンモリロナイト層間距離は  $18.2 \text{ \AA}$  (1.8 nm)であったとしている。当実験で用いた供試体の乾燥密度は  $1.6 \text{ Mg/m}^3$  であるため、彼らの測定値と同一とは限らないが、一方、佐藤(2001)[19]によれば、周囲の相対湿度が 100%に近い場合に Na モンモリロナイトの層間距離は 1.8 nm 程度であり、層間には水分子層が 3 層含む状態になっている。当実験で用いた供試体は不飽和供試体であるものの飽和度(間隙体積中に占める水の体積比)の値はベントナイト 70 wt%配合の場合 46 %、ベントナイト 100 wt%配合の場合 64 %であったことから間隙中の相対湿度は 100 %相当であったと考えられる。したがって、供試体中の Na モンモリロナイト層間距離は、1.8 nm 程度であり、層間の広がり非常に小さい状態であったと推定される。今回用いた不飽和供試体の間隙構造は、概念として Fig. 17 のようにケイ砂およびベントナイト中の随伴鉱物の周囲に層間距離が 1.8 nm 程度に層状に重なっているモンモリロナイトの粒子が分布している状態であると想定される。

#### (3) 淡水(水道水)に浸漬した場合の現象

不飽和状態の圧縮ベントナイト供試体を淡水(水道水)に浸漬した場合には、まず供試体の表面部分が水で浸潤する。間隙に浸入した水はモンモリロナイト層間に取り込まれ層間距離が拡大(膨潤)するため、粒子構造の粘着性低下に寄与する自由水は極めて限定される。例えば、ベントナイトには約 50 %のモンモリロナイトが含まれるとすると、ベントナイト配合率が 70 wt%で乾燥密度が  $1.6 \text{ Mg/m}^3$  の緩衝材の単位体積 1 mL 中に占めるモンモリロナイトの量はおよそ 0.56 g ( $1.6 \text{ g/mL} \times 70 \% \times 50 \%$ )であり、間隙体積は 0.4 mL 程度であるから、吸水した結果、仮に緩衝材中の間隙が水で満たされたと仮定した場合の液固比は 1 より小さい。緩衝材の表面部では吸水膨張が生じるので液固比はそれよりは大きくなるであろうが、瞬時には体積膨張できないので、液固比が 10 を超えることは考えにくい。このような状態では浸漬後短時間でモンモリロナイトの層状結晶の層間距離が 15 nm を超えて、層状結晶相互の結合力が喪失することは生じにくい。実際に、Fig. 4 に示す水道水に浸漬した場合の観測例では、1 時間経過した時点において表面から遊離したベントナイト粒子が水中に拡散する現象はほとんど生じなかった。

上記のような挙動であると考え、モンモリロナイトの層間距離が 2 nm 程度に小さい状態で空気層が供試体体積の 15.2 %もしくは 22.4 %を占めている Fig. 17 に示した間隙の構造から、モンモリロナイトの層間距離が若干拡大

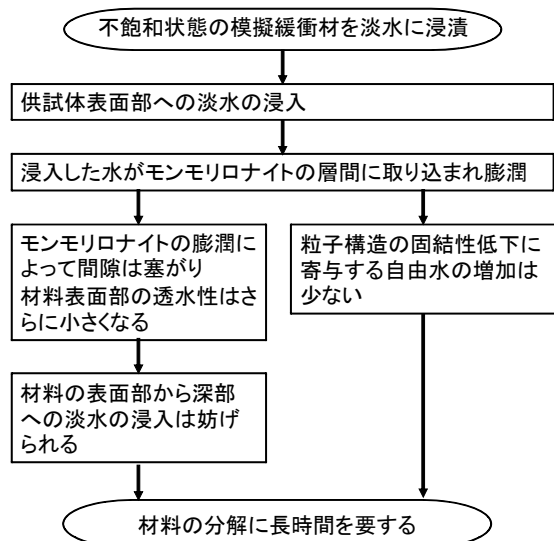


Fig. 19 Cause-and-effect sequence of events in bentonite specimen surface layer after water supply

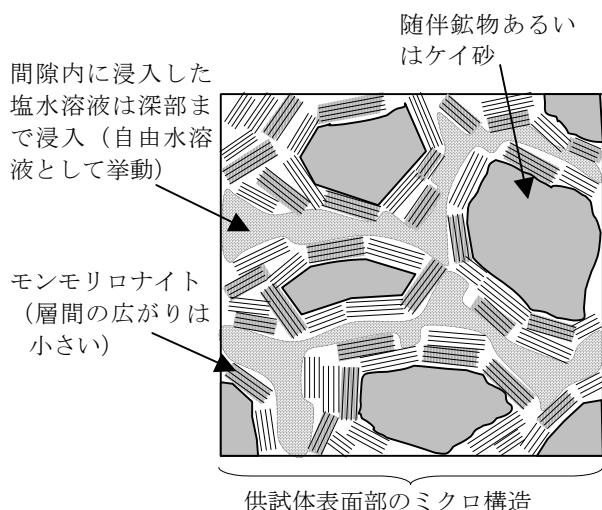


Fig. 20 Schematic of microstructure of bentonite specimen after NaCl solution (concentrations of 3wt% or more) supply

しているものの均質なゲル状を呈している膨潤モンモリロナイトにより間隙が埋まるような Fig. 18 に示す構造へ変化し、その結果、層状結晶としての一体性と層状結晶相互の結合力の両方が発揮されているとともに、極めて難透水性のゾーンが形成され则认为される。このようにゲル化した膨潤モンモリロナイトで間隙が埋まる状況は、小峯・緒方(2002)[20]が論文中で示した写真のように走査型電子顕微鏡による膨潤挙動観察で確認されている。供試体の表面部には、ベントナイトゲルに満たされて難透水性を有する皮膜のようなゾーンが形成され、その皮膜のようなゾーンのマイクロな構造は Fig. 18 に示すように均質なゲル状の膨潤モンモリロナイトがケイ砂やベントナイト随伴鉱物の周囲を取り囲んでいる構造となっているであろう。この皮膜のようなゾーンは難透水性を有するので供試体表面部より深部への水の浸入を阻害することとなる。この

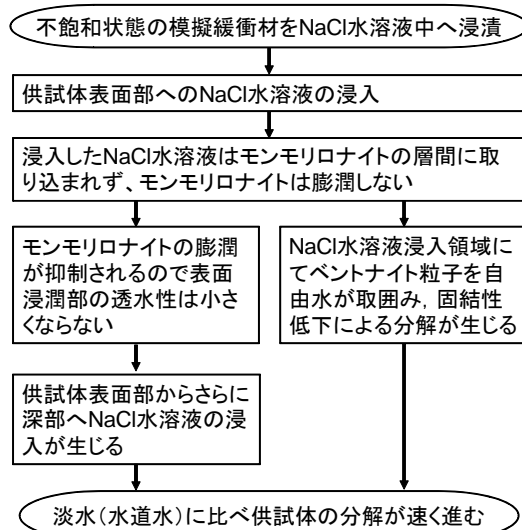


Fig. 21 Cause-and-effect sequence of events in bentonite specimen surface layer after NaCl solution (concentrations of 3wt% or more) supply

結果、水道水に浸漬した場合には、供試体の分解速度が極めて遅くなったものと推察される。以上のように水道水に浸漬した場合に関して推察したメカニズムをブロックダイアグラムで因果関係として示したものが Fig.19 である。

#### (4) NaCl 溶液に浸漬した場合の現象

次に不飽和状態の圧縮ベントナイト系供試体を NaCl 水溶液に浸漬した状態を考える。NaCl 水溶液の濃度が 3 wt% (0.5 mol/L) 以上の場合には、Fig. 16 に示した概念図に示すように、モンモリロナイト層間距離は 2 nm 以上には広がらないので浸漬前のモンモリロナイト層間距離と大きく変わらない。すなわち、Fig. 20 に示すような間隙構造になっていると考えられる。間隙内に浸入した NaCl 水溶液はモンモリロナイトの層間にほとんど取り込まれないため、層状結晶粒子に拘束されない自由水として挙動し、粒子相互の分解に寄与する。また、モンモリロナイトの膨潤は抑制されるので、材料の表面部に難透水性のゾーンは形成されず、NaCl 水溶液はより深部の間隙内に浸入する。表面部から順に分解・沈降することにより、継続的に供試体の分解が進行することとなる。このようなメカニズムにより、NaCl 溶液(塩水)に浸漬したときの分解速度が水道水(淡水)に比べ顕著に早くなったものと考えられる。以上のように NaCl 水溶液に浸漬した場合に関して推察したメカニズムをブロックダイアグラムで因果関係として示したものが Fig. 21 である。なお、上述のようなメカニズムの推定は実験結果を説明できる仮説として提示したものであり、今後の実験的な確認が必要であると考えている。例えば、上記のようなメカニズムが正しいならば、初期飽和度が 100 % に近い緩衝材を塩水に浸漬した場合には、効率よく分解することはできないと予想されるので、比較実験で確認することが望まれる。今後の課題としたい。

一方、NaCl 水溶液の濃度が 2 wt% の場合は、Fig. 16 の



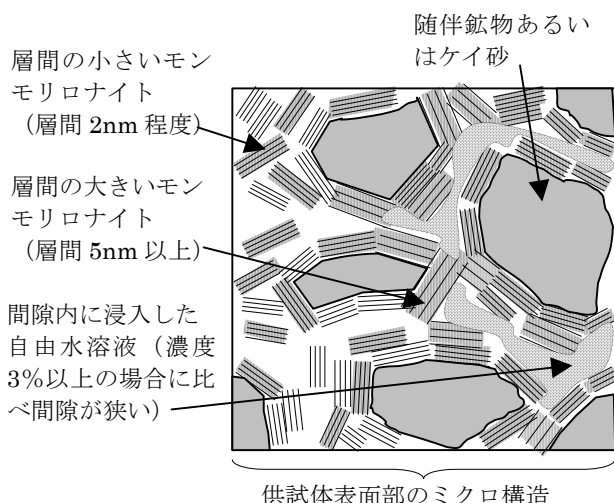


Fig. 22 Schematic of microstructure of bentonite specimen after NaCl solution (concentrations of 2wt%) supply

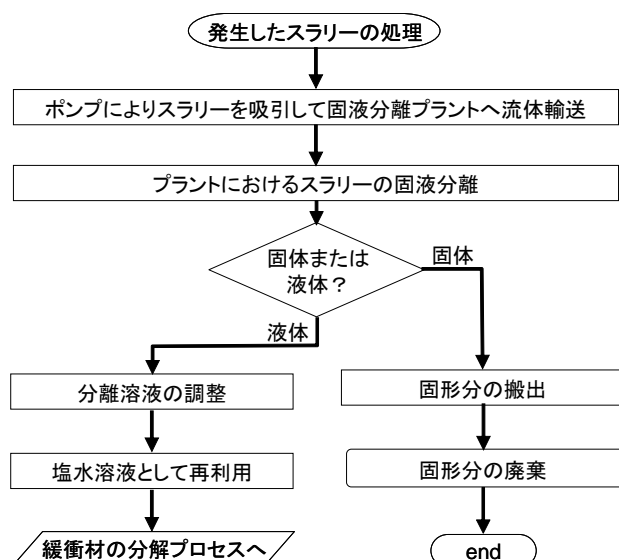


Fig. 23 Flowchart of recycling of salt solution using solid-liquid separation method

イオン濃度と層間距離に関する概念図に示すように、層間距離が段階的に変化する濃度の境界領域付近であり、層間距離 2nm 程度(層間に新たな水分子を吸収しにくいもの)のモンモリロナイト粒子と層間距離 5 nm 以上(層間に新たに水分子を吸収する)のモンモリロナイト粒子とが共存する Fig. 22 に示すような間隙構造になっていると考えられる。膨潤モンモリロナイトのゲルによって占められていない間隙は部分的には残った状態であるため、間隙のほとんどがゲルで埋まった状態と考えられる水道水浸漬ケース (Fig. 18 参照) に比べると分解速度は速くなるものの、NaCl 水溶液の濃度 3 wt% 以上のケース (Fig. 20 参照) と比べれば塩水が浸入しやすい間隙は小さくなっており、間隙内に浸入し自由水として挙動する NaCl 水溶液も少なくなるため、分解速度は NaCl 濃度 3 wt% 以上の場合に比べて低下したものと考えられる。

### 3.2 NaCl 水溶液中のベントナイトスラリー沈殿現象

モンモリロナイト粒子は水分子のブラウン運動により運動しているため、粒子同士はランダムに接近したり離れたたりしている。モンモリロナイト粒子の表面は負電荷を生じているので、モンモリロナイト粒子の外側を取り巻くように陽イオンが広がりをもって分布している。一方、モンモリロナイト表面と同符号の陰イオンは、表面から離れるにしたがって次第に増え、両者の濃度はある距離のところ等で等しくなる。これを電気二重層と呼び、この電気二重層が厚いと、ファンデルワールス力が作用する前に二重層の同符号間の反発力が働き、ブラウン運動により粒子同士が接近しても粒子の結合は困難であり分散状態となる。二重層が薄くなると近接した粒子同士には反発力が働くが、それ以上のファンデルワールス引力により粒子は結合し凝集することになる(例えば、佐藤(2001)[19])。電気二重層の厚さは、懸濁液(スラリー)のイオン強度により変化し、イオン強度が高いと電気二重層は薄くなってモンモリロナイト粒子は凝集状態になる。イオン強度が高いほど、モンモリロナイト粒子は凝集しやすくなるため、水道水による懸濁液に比べ、NaCl 水溶液による懸濁液が、また NaCl 溶液の懸濁液では NaCl 濃度の濃い方が、より凝集しやすい状態となる。したがって、水道水により分解した後に攪拌した懸濁液では沈殿が極めて遅く、NaCl 溶液による懸濁液(スラリー)では、イオン強度が高くなる(NaCl 濃度が大きくなる)ほど、沈殿速度がより早くなったものと考えられる。

また、ベントナイト 70 wt% 配合(ケイ砂 30 wt%)の方がベントナイト 100 wt% 配合に比べて沈降速度が早くなったのは、ベントナイト 70 wt% 配合では、凝集粒子の中に共沈現象による砂粒子も含まれるためであると考えられる。

## 4 塩水の分離、再利用における既存技術の適用

前述したベントナイトスラリー沈殿実験における NaCl 水溶液を溶媒としたベントナイトスラリーは凝集により固液分離しやすいという結果から、Fig. 1 に概念的に提示した廃棄体回収のプロセスにおける固液分離プロセスは実現可能性があると考えられる。すなわち、実際に緩衝材を塩水により分解・除去した後に回収されるスラリーは、Fig. 23 に示すようなフローにより効率的に固液分離し、分離した塩水を再利用することができると考えられる。Fig. 24 には建設分野における類似の固液分離プラントの例を示した。同図は地中連続壁の構築のための掘削工事等で用いられている安定液(ベントナイトスラリー)のリユースシステム[21]のプラント概念図である。このプラント設備ではフロック生成装置において凝集剤を添加し発生したフロックを脱水減容化して固液分離している。固形分(ベントナイト)は同図の安定液製造設備に供給されて、再び

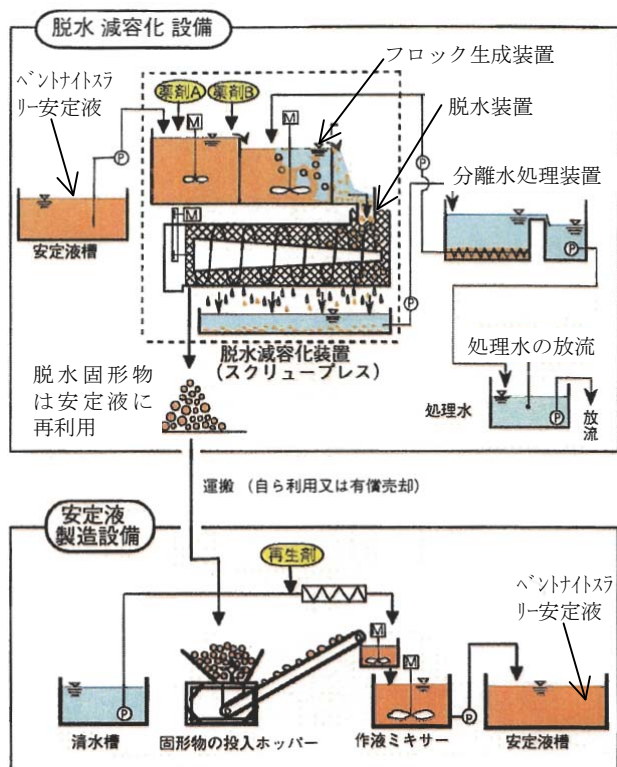


Fig. 24 Principle of recycle system of bentonite slurry used in foundation work of construction field (modified after Iizuka 2001) [21]

安定液(ベントナイトスラリー)として利用される。分離した液は処理後に放流する。緩衝材を塩水で回収する場合の固液分離のプラント設備では、再利用するものは固形分ではなく分離した液となる点異なるが、固液分離のプロセスは同じである。塩水による凝集効果が十分であれば新たな凝集剤の添加は不要となる。固形分(ベントナイト)は再利用せずに廃棄され、分離した液は塩分濃度を再調整して、塩水として再利用されることになる。したがって、Fig. 24に示したプラント設備のうち安定液製造設備は不要になり、よりシンプルなプラントになる。坑道内での利用となることからコンパクト化が必要になるものの、既存の技術で十分適用できると考えられる。ただし、塩水が常時接触する設備機械であることから、ステンレス化等の腐食対策は必要である。なお、この固液分離プロセスは必ずしも緩衝材除去作業場所の直近の狭隘な場所で行う必要はなく、数10 mから数100 m離れた場所に固液分離プラントを設置し、両者間を流体輸送することも可能であろう。なお、分離した固形分(ベントナイト)は廃棄するのではなく、埋め戻し材等の別の材料として利用できる可能性がある。

## 5 まとめ

今回実施した3種類の要素実験と実験結果の考察および既往技術の調査により、以下が把握された。

### ① 塩水(NaCl水溶液)による不飽和条件の模擬緩衝材供

#### 試体の分解現象

- ・塩水では水に比べ分解が早く進む。
- ・塩水の成分としてNaClは適用性がある。
- ・塩水(NaCl水溶液)の塩分濃度は3~4 wt%程度で効果の発揮が顕著となる。
- ・ケイ砂混合材料の場合はベントナイト単体材料より分解が早い。
- ・これらの現象は、供試体に浸入した溶液のイオン濃度とモンモリロナイト層間距離の関係に起因するメカニズムにより説明できる。

### ② 塩水浸漬分解実験によって得られた懸濁液の沈殿現象

- ・溶媒が塩水(NaCl水溶液)の場合は水に比べ沈殿が早く進む。
- ・塩水(NaCl水溶液)の塩分濃度は3~4 wt%程度で効果の発揮が顕著となる。
- ・ケイ砂混合材料の場合はベントナイト単体材料より沈殿が早い。
- ・これらの現象は、分散溶媒中の塩濃度とモンモリロナイト凝集効果の関係に起因するメカニズムにより説明できる。

### ③ 塩水噴射による模擬緩衝材供試体の分解・除去現象

- ・供試体表面から塩水が浸み込む時間を確保することにより、表面部をスラリー状にする効果の発揮が顕著となる。実際の適用に際しては、緩衝材表面にできるだけ長時間の塩水の接触を継続する手段を工夫することが大切である。
- ・小型供試体を対象とした実験では、塩水により分解しスラリー状になったベントナイトを比較的小さい0.1 MPaの噴射水圧で除去できる。
- ・噴射条件を最適にするためには、実寸法のノズル口径と噴射圧力の両者の組み合わせで決まる噴射流量速度の条件に着目すべきである。

また、建設分野で実用化されている既往技術(安定液リユースシステム)の調査により、以下が把握された。

### ④ 安定液リユースシステムの緩衝材分解・除去技術への適用

- ・緩衝材の分解により生じるスラリー(懸濁液)から塩水溶液を効率的に分離する方法として、すでに実績のある既往技術(安定液リユースシステム)を十分適用することができる。

この論文のはじめにおいて、実際の廃棄体回収に塩水を利用した緩衝材除去方法の実用化への可能性を確認するためには、流体により緩衝材を分解・スラリー化するプロセスにおける塩水の濃度の目安と分解の効率を確認すること、およびベントナイトスラリーを固液分離し塩水を再利用するプロセスの実用性を確認することが肝要であると述べたが、以上にまとめたように、実験によってその可能性に肯定的な知見が得られた。塩水(NaCl)溶液を用い

たベントナイト材料のスラリー化技術には、廃棄体回収に関わる緩衝材分解・除去のための実用化の可能性があることが示唆された。

## 6 今後の検討項目

緩衝材の分解・除去技術の概念の構築に向けた今後の検討項目としては、以下が挙げられる。

- ①NaCl 溶液以外の電解質溶液(たとえば、より凝結効果の高い  $\text{CaCl}_2$  溶液)を用いた場合の効果の把握
- ②飽和度の高いベントナイト供試体に対する分解効果の把握(廃棄体回収のタイミングによっては、飽和度の高い条件の緩衝材が除去対象になりうると考えられるため)
- ③実際に適用する場合の装置化を念頭においた効率的な分解・除去方法の工夫と中規模試験体による噴射条件や寸法効果等に着目した除去効率の把握

## 謝辞

本研究に着手するに当たって、(財)原子力環境整備促進・資金管理センターの朝野英一博士から海外の情報と技術の方向性についてご指導をいただいたことに感謝いたします。

## 参考文献

- [1] Grupa, J.B., et al. : Concerted action on the retrievability of long-lived radioactive waste in deep underground repositories, Final Report, Nuclear Science and Technology, EUR19145EN, ISBN92-828-9466-5 (2000).
- [2] 原子力安全委員会：高レベル放射性廃棄物の処分に係る安全規制の基本的考え方について(第1次報告)(2000).
- [3] OECD/NEA : Reversibility and Retrievalability in Geologic Disposal of Radioactive Waste Reflections at the International Level (2001).
- [4] Simmons, G.R. and Baumgartner, P. : Disposal of Canada's nuclear fuel waste: Engineering for a disposal facility. Atomic Energy of Canada Report AECL 10715, COG-93-5, Atomic Energy of Canada (1994).
- [5] Kalbantner, P. and Sjölm, R. : Techniques for freeing deposited canisters Final report, SKB TR-00-15, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co. (2000).
- [6] SKB : 2006.5.24 付け SKB ホームページ News Release, "Successful retrieval of copper canister in Äspö HRL", Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co. (2006).
- [7] 石井卓, 岩佐健吾, 中島均, 澤田正雄, 青木孝, 斉藤亮 : 塩水を利用した緩衝材除去方法の検討(1)ー浸漬分解実験および沈降実験ー, 日本原子力学会 2007 秋の大会予稿集, 574, (2007).
- [8] 中島均, 岩佐健吾, 石井卓, 澤田正雄, 青木孝, 斉藤亮 : 塩水を利用した緩衝材除去方法の検討(2)ー塩水噴射実験ー, 日本原子力学会 2007 秋の大会予稿集, 575, (2007).
- [9] 高村尚, 奥津一夫, 松井信行, 戸井田克, 小林一三, 中嶋誠門 : アイスブラスト工法によるベントナイト系バリア除去に関する検討, 日本原子力学会 2008 年春の年会予稿集, 438, (2008).
- [10] 戸栗智仁, 高橋康裕, 朝野英一, 岩佐健吾, 中島均, 石井卓 : ベントナイトペレットとベントナイトスラリーを併用する隙間充てん方法に関する研究, 土木学会第 62 回年次講演会, (2007).
- [11] 泉敦, 柴田卓詞, 金谷賢生, 寺田博一, 西垣誠 : 掘削損傷領域(Excavation Disturbed Zone)の修復技術としてのベントナイトグラウトの適用性. 日本地下水学会 2005 年秋季講演会要旨, 250-255, (2005).
- [12] 小峯秀雄, 安原一哉, 村上哲 : 人工海水環境下におけるベントナイトの一次元自己シール性, 土木学会論文集 **C 65-2**, 389-400, (2009)
- [13] 土木学会コンクリート委員会規準関連小委員会編 : プレパックドコンクリートの注入モルタルのブリーディング率および膨張率試験方法(ポリエチレン袋方法)(JSCE-F 522-1999), 2007 年制定 コンクリート標準示方書【規準編】, 土木学会, (2007).
- [14] Grim, R. E. : Clay Mineralogy, Second Edition, McGraw-Hill Book Company, New York (1968).
- [15] Slade, P.G., Quirk, J.P. and Norrish, K. : Crystalline Swelling of Smectite Samples in Concentrated NaCl Solutions in Relation to Layer Charge, Clays and Clay Minerals, **39-3**, 234-238, (1991).
- [16] Fukushima, Y. : "X-ray diffraction study of aqueous montmorillonite emulsions", Clays and Clay Minerals, **32-4**, 320-326, (1984).
- [17] Low, P.F. : Interparticle Forces in Clay Suspensions: Flocculation, Viscous Flow and Swelling, cms workshop lectures, Volume 4 Clay-Water Interface and its Rheological Implications N.Güven, R.M.Pollastro Editors THE CLAY MINERALS SOCIETY, 158-190, (1992).
- [18] Devineau, K. et al. : In situ neutron diffraction analysis of the influence of geometric confinement on crystalline swelling of montmorillonite, Applied Clay Science **31**, 76-84, (2006).
- [19] 佐藤努 : 粘土基礎講座 I 粘土の特性と利用, 粘土科学, **41-1**, 26-33, (2001).
- [20] 小峯秀雄, 緒方信英 : ベントナイト緩衝材・埋戻し材の透水特性と簡易評価法の提案, 土木学会論文集, **708/III-59**, 133-144, (2002).
- [21] 飯塚芳雄, 白鳥栄司, 秋山昇 : 建設汚泥のリサイクル

ルー安定液のリユースシステムの開発ー，建設の機械化， **613**, 19-25, (2001).

