

ベントナイトペレットのすき間充てん特性

中島均*1 朝野英一*2 戸栗智仁*1

高レベル放射性廃棄物処分において緩衝材周囲に施工上発生するすき間は、適切に充てんすることができれば緩衝材の品質確保の観点からは望ましい。すき間充てん技術として、低透水性材料であるベントナイトの粒状体を自由落下させる工法が検討されている。この方法はベントナイトをすき間に締め固める工法と比べて、施工が容易な利点があるが、十分な充てん密度が確保されない課題があった。本研究では、比較的単体の密度が高い、単粒径の球形ベントナイトペレットの充てん性について検討した。室内規模の充てん実験を行い、ペレットの充てん性能などを検討した結果、粒径の異なる2種類のペレットを適切に混合することで、十分な充てん密度が得られる見通しを得た。

Keywords: 高レベル放射性廃棄物処分, すき間充てん, ベントナイトペレット, 球形

Gaps around buffer material, which are inevitably generated during the construction of the high-level radioactive waste disposal repository, have been preferable to be firmly filled, in terms of securing the quality of the layer of buffer material. As a simple method of gap-filling procedure, it has been studied to merely dropping granulated bentonite without compaction. Although it has an advantage in easy construction, is has a concern of generating lower filling density than that generated by the method of compacting bentonite into gaps. In this study, we have studied the gap-filling property of granular, spherical, and relatively high-density bentonite pellets. We performed small-scale filling tests to discover the potential filling densities of the pellets and reach the consequence that mixing two different sizes of pellets enables the sufficient density of filling.

Keywords: HLW, gap filling, bentonite pellets, spherical

1 はじめに

高レベル放射性廃棄物処分施設では、緩衝材は放射性廃棄物を格納したオーバーパックの周囲を取り囲むように配置され、長期間にわたって核種の移行を抑制する人工バリアとして機能する[1,2]。緩衝材の材料には天然の粘土であるベントナイトの使用が考えられており、所定の密度を確保すれば低い透水性を示す。緩衝材の施工方法は複数検討されており、施工方法によっては緩衝材の周囲にすき間が発生する場合もある。このようなすき間が存在すると緩衝材の品質を低下させる要因となる可能性もあり、適切に処置する必要がある。

すき間が狭ければ再冠水の段階で緩衝材が膨潤し、すき間は閉塞する。緩衝材の主要な機能である低透水性や膨潤性は密度に依存するため、すき間を閉塞した緩衝材が所定の密度を維持できるように、緩衝材の初期密度とすき間の幅を設計する必要がある。一方、このようなすき間を施工段階で充てんすることも、課題解決策の一つである。なかでも充てん材料としてベントナイトを用いる方法は、充てん後のすき間にも緩衝材と同様の機能が期待できるので、適切に施工ができれば利点が多い。

すき間にベントナイトを充てんする技術としては、粉体のベントナイトを所定の位置で締め固める方法とともに、あらかじめ粒状体に成形したベントナイトを自由落下などの簡易な施工法を用いて充てんする方法も考えられる。前者は、充てん密度は高くできるが施工が難しい。後者は、施工は簡易であるが充てん密度を高めることが難しいなどの相反する特徴を持つと考えられている。

したがって、後者に着目した場合、すき間を充てんした

Gap-filling property of spherical bentonite pellets by Hitoshi NAKASHIMA (hitoshi.nakashima@shimz.co.jp), Hidekazu ASANO and Satohito TOGURI

*1 清水建設株式会社

Shimizu Corporation

〒135-8530 東京都江東区越中島三丁目4-17

*2 公益財団法人 原子力環境整備促進・資金管理センター

Radioactive Waste Management Funding and Research Center

〒104-0044 東京都中央区明石町6番4号(ニチレイ明石町ビル12階)

(Received 8 August 2018; accepted 27 November 2018)

粒状体のベントナイトが、緩衝材と同等の性能を有する程度の充てん密度となるように施工できれば、技術の選択肢として有望である。現在、考えられている緩衝材の仕様は、ベントナイト70%と砂30%を混合し、乾燥密度1.6 Mg/m³に締め固めた状態であり、これを有効粘土密度で示すと1.37 Mg/m³となる。したがって、砂などの他の材料を含まずベントナイトのみが原材料の粒状体をすき間に充てんすることを考えた場合には、乾燥密度1.37 Mg/m³が充てん密度の目安となる。

高尾らは、粒状体のベントナイトとして原鉱石を破碎した材料を自由落下させた場合の充てん密度が、粉体のベントナイトを落下充てんした場合よりも高く、乾燥密度1.3 Mg/m³程度であることを確認している[3]。また、さらに高い充てん密度を得るために、粉体のベントナイトから原鉱石よりも密度が高く、充てんしやすいベントナイトペレットの製造方法を検討している[4,5]。なお、ベントナイト原鉱石そのものの密度は、放射性廃棄物研究の分野で用いられている代表的なNa型ベントナイトであるクニゲルVI(クニミネ工業製:山形産)の原鉱石に対して著者らが行った測定によれば、乾燥密度が1.8 Mg/m³程度であった。

このような背景のもとで、著者らは、すき間充てん材料としての利用を想定し、単体密度が2.0 Mg/m³程度と比較的密度が高い球形ベントナイトペレットの製造技術を確立した[6,7]。このベントナイトペレットは粒径が揃っている特徴を有しており、仮に最密充てんができたとすれば、充てん率74%で充てん密度1.48 Mg/m³の充てんが可能となる単体密度である。また、様々な粒径のペレットが製造できるという特徴があり、異なる粒径のペレットを組み合わせることで、充てん密度の向上を模索することが可能となる。特に、形状が原鉱石の破碎材と異なり球形である特徴は、比較的容易に所定の位置まで届くことが期待でき、自由落下や流し込みなどの簡易な充てん方法の採用に利点となると考えられる。

著者らは、この球形ベントナイトペレットを用いることを前提に、自由落下や流し込みによるすき間充てん技術を

検討している。対象となるすき間としては、縦置き方式における緩衝材周囲に施工上発生するすき間 (Fig.1 参照) や、横置き方式における同様なすき間、さらには横置き PEM 方式における PEM 容器と岩盤空洞壁面との間のすき間 (Fig.2 参照) などを想定している。このなかで、横置き方式は、すき間が水平方向に長く広がっているため、すき間が鉛直方向に比較的短く存在している縦置き方式よりも、高度な充てん技術が必要と考えられ、技術の成立性の確認が望まれていた。そこで、空気圧送や機械圧送などの搬送技術でペレットをすき間に沿って水平方向に一定の距離運んだうえで、自由落下によりすき間を充てんする方法を考え、実寸に近い部分模型ですき間を模擬し、充てん実験を行った [8]。

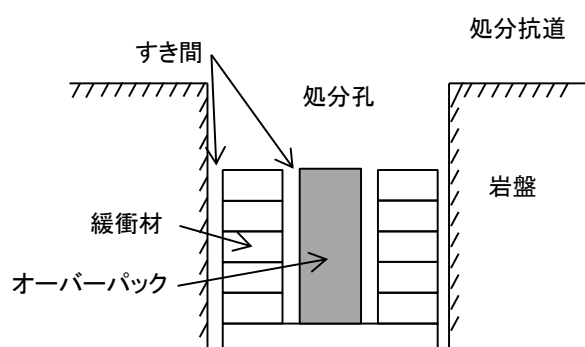


Fig. 1 A gap between the buffer material and the rock in vertical disposal type.

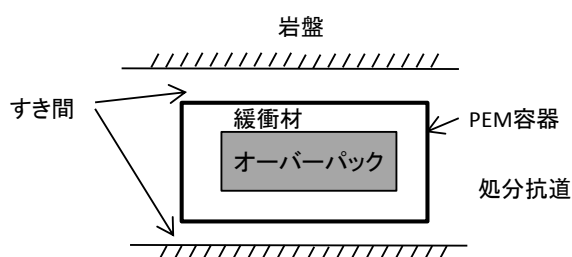


Fig. 2 A gap outside PEM container in horizontal disposal type.

本研究で対象としているベントナイトペレットのような粒状体の充てん性については、古くから多くの研究が行われている。大きさの等しい球形粒子の規則的な充てん構造をもとに、Horsfield[9,10]は複数の適切な大きさの球を組み合わせることで空隙が少なくなる細密充てん理論を示している。また、規則的な構造とならない不規則な構造となる問題に対しては、田中ら[11]、鈴木ら[12]が任意の大きさの複数の球形粒子の充てん率を推定するモデルを示している。しかし、いずれも充てんする空間に境界を設定していない、もしくは充てんする粒子に比べて充てん空間が大きいなど、理想的な系を想定しており、狭いすき間に対して比較的大きいベントナイトペレットを充てんする場合に適用できるかについては明らかではなかった。

本論文は、すき間充てん技術を確認する研究開発において実寸規模の充てん実験を実施するにあたり、その実験に用いたベントナイトペレットの仕様、すなわちペレットの粒径や異なる粒径のペレットの組み合わせ方を決定する過

程で得られた知見をまとめたものである。具体的には、充てん技術が対象とするすき間のなかで最低限の大きさで単純な形状の、直径 10 cm、高さ 12.7 cm の円筒形モールドを用いて、粒径の異なる数種類の球形ベントナイトペレットに対して充てん実験を行った。この結果、期待する充てん密度が得られないことを明らかにしたうえで、粒径の異なるペレットの組み合わせや混合割合を変えて充てん実験を行い、当該ペレットのすき間の充てん密度を求めた。これらの実験結果を、従来の粒子充填の理論と比較して考察することで、当該球形ペレットの充てん性の特徴を論じるとともに、高い充てん密度を得る可能性があるベントナイトペレットの組み合わせや混合割合を明らかにした。

2 ベントナイトペレット

2.1 ベントナイトペレットの概要と製造方法

本研究が対象としたのは、Fig.3 に示すような球形のベントナイトペレットである。市販されている粉体のベントナイト (クニゲル VI : クミネ工業製) を 25~30% の含水比に加水し、それを金属版 (ダイス) の孔から押し出して円柱状のペレットに成形したのちに、高速回転する円盤の上で球形に成形した。この湿潤状態の球形ペレットを含水比 0% まで乾燥させるときに乾燥収縮させることで乾燥密度 2.0 Mg/m^3 程度に製造したものである。製造方法の詳細については、中島ら[6]を参照されたい。

このベントナイトペレットの粒径は、ダイスに設けられた孔の径 (押し出し径) で規定され、粒径が揃った比較的単粒径のペレットが製造できる。また、孔径が異なるダイスを用いることで、様々な粒径のベントナイトペレットを製造することが可能である。なお、ベントナイトペレットを区別するために、著者らは押し出し径 (ダイスの孔径) を用いている。本製造方法によるベントナイトペレットは $0.3 \text{ mm} \sim 20 \text{ mm}$ の押し出し径で製造された実績がある [13]。



Fig. 3 Sample of the pellets with different size used in this study.

2.2 本研究で使ったベントナイトペレット

本研究の充てん実験では、異なる押し出し径で製造した 1mm, 2mm, 4mm, 15mm, 20mm の 5 種類のベントナイトペレットを用いた。金属製網ふるいを用いたふるい分けで求めた、それぞれのペレットの粒径分布は Fig.4 に示すとおりである。実際の粒径は押し出し径よりも若干大きく、均等係数は 1.1~1.2 と、ほぼ等粒径である。

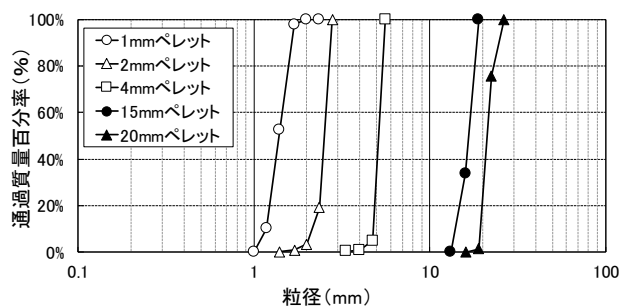


Fig. 4 Particle size distribution of the pellets.

Table 1 にペレットの単体密度および充てん密度を示す。単体密度は各ペレットから粒径範囲の中央値付近のペレットを採取し、浮力法により測定した。浮力法は水中に沈めたときの浮力からペレットの容積を求め、ペレットの質量を除いてペレットの単体密度を求める方法である。浮力法に用いる液体にベントナイトの膨潤を抑制するケロシンなどの有機溶媒を用いる方法もあるが、水を用いた場合でも膨潤は瞬時には始まらず、迅速に計測を行うことで同等の結果が得られることを事前に確認している。なお、測定に供したベントナイトペレットは完全乾燥、すなわち 110°C の炉乾燥で 1 日以上乾燥したペレットを使用しているため、得られた単体密度は乾燥密度である。

充てん密度は、直径 10 cm、高さ 12.7 cm の円筒形の金属モールドに、直上よりスコップを用いて、モールド内にペレットを充てんする方法で取得した。充てん密度は使用するモールドの大きさや形状により変わることが予想されたが、処分施設周囲のすき間の大きさや形状は様々であり、想定している施工方法による充てん性の基礎データを取得する観点で、想定しているすき間の最低限の大きさで、かつ単純な形状への充てん密度を取得することとした。すなわち、縦置き処分方式において、10 cm 程度より狭いすき間に対してはペレットを充てんする方法よりも緩衝材の膨潤による閉塞を選択するほうが適切な対応と考えられるし、横置き処分方式においては 10 cm より狭いすき間を生ずるような施工は困難であると考えた、5 種類のペレットのいずれも 1.37 Mg/m³ 以下の充てん密度を示した。最も充てん密度が高い 1mm ペレットでも充てん密度は 1.3 Mg/m³ 程度である。

Table 1 Dry densities of the bentonite pellets.

| 呼び名 | 押出し径 (mm) | ペレットの乾燥密度 (Mg/m ³) | 充てん密度 (Mg/m ³) |
|----------|-----------|--------------------------------|----------------------------|
| 1mmペレット | 1 | 2.16 | 1.31 |
| 2mmペレット | 2 | 2.10 | 1.26 |
| 4mmペレット | 4 | 2.04 | 1.21 |
| 15mmペレット | 15 | 1.97 | 1.12 |
| 20mmペレット | 20 | 2.00 | 1.11 |

3 充てん実験

3.1 2 粒径混合ペレットの充てん実験

3.1.1 実験ケース

Table 1 に示した粒径の異なる 5 種類のペレットの中から、2 種類のペレットを選び、混合割合を変えて充てん実験を行った[8]。これを 2 粒径混合ペレットの充てん実験と呼ぶ。選んだ 2 種類のペレットのうち、粒径が大きい方を大ペレット、粒径が小さい方を小ペレットと呼ぶ。実験ケースは Table 2 に示すとおり、6 通りの組み合わせに対して、それぞれ 6 条件の混合割合 (20~80%) とした。試験数はそれぞれ 1 回である。

Table 2 Pellets pairing and the mixing rate for the tests.

| 組み合わせ | 大ペレット | 小ペレット | 小ペレットの混合割合 (重量比) |
|-------|----------|---------|------------------------------------|
| 1 | 15mmペレット | 1mmペレット | 20%, 30%, 40%, 50%, 60%, 80% (6条件) |
| 2 | 15mmペレット | 2mmペレット | |
| 3 | 15mmペレット | 4mmペレット | |
| 4 | 20mmペレット | 1mmペレット | |
| 5 | 20mmペレット | 2mmペレット | |
| 6 | 20mmペレット | 4mmペレット | |

3.1.2 実験方法

充てん容器には直径 10 cm、高さ 12.7 cm の円筒形の金属モールド (Fig.6 参照) を用いた。モールドの容積は 1,000 cm³ である。

充てん方法としては、実際の施工の充てん性を検討するための基礎データとして役立つように、できるだけ均一に充てんできる方法を選んだ。Fig.5 に実験方法を示す。大ペレットをモールド内に手で均等に配置し、その上から小ペレットを高さ 5 cm の位置から均等に自由落下させ、これを繰り返すことでモールド全体が 5 層で詰まる方法とした。この充てん方法では、事前に混合したペレットを投入する方法に比べて、モールド内での材料の分離が少なく均質な充てんができると考えた。実際の施工にあたっては、充てん部位において充てん直前に 2 種類の大きさのペレットを所定割合で混合することは、十分可能であると考えられる。

また、モールドに振動などの力は加えなかった。充てん後に振動を加えた場合、小ペレットが下側に移動し、大ペレットが上側に移動する、いわゆるブラジリアンナッツ効果と呼ばれる現象が起き、結果的に充てん密度が下がることを事前の予備試験で得ている。なお、実際の施工の観点では振動を与える操作を行うためには、その加振機構などの検討も必要となり、また作業工程も増えることから、施工コストの増大につながることを推測される。Fig.6 に充てん状況の一例を示す。

所定の充てんが完了した段階で、容器に充てんされたベントナイトペレットの総重量を測定し、充てん密度を求めた。充てん実験に使用したペレットは完全乾燥し水分を含んでいない状態のため、充てん密度は乾燥密度を示す。

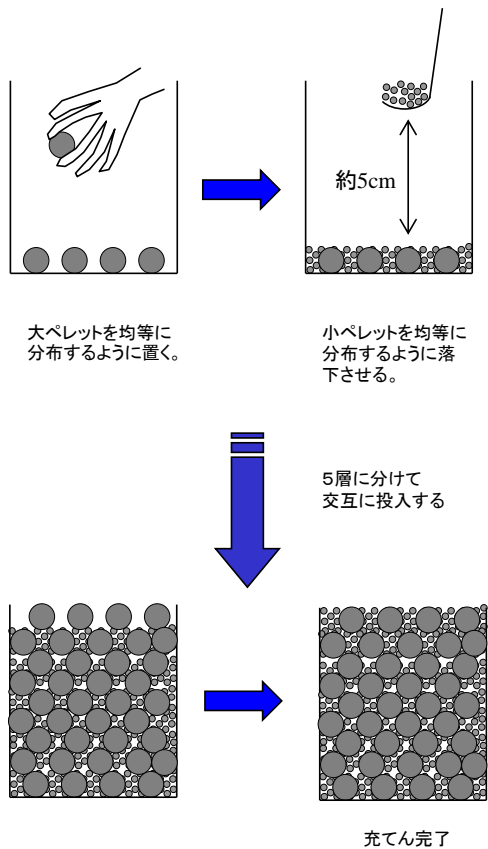


Fig. 5 Procedure of the filling test mixing two different type of pellets in size.

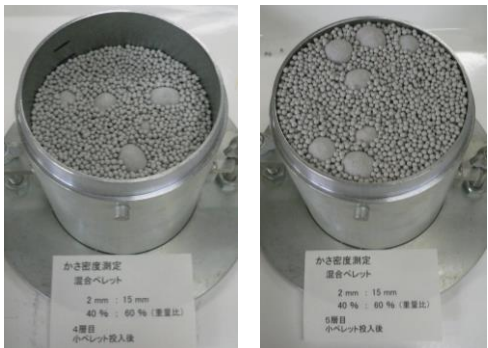


Fig. 6 Photos during the filling tests.

3.1.3 実験結果

Fig 7～Fig. 9 に充てん実験で得られた 2 粒径混合ペレットの充てん密度を示す。横軸は混合割合を示しており、小ペレットの割合を指標として用いた。横軸が 0% と 100% の位置のプロットは Table 1 に示した混合しない場合の充てん密度であり、0% は大ペレットのみ、100% は小ペレットのみの場合の充てん密度を示す。

試験結果から、粒径の異なる 2 種類のベントナイトペレットを組み合わせると、ベントナイトペレットを 1 種類だけ用いる場合よりも充てん密度が高くなる。充てん密度が最大となる混合割合は、ペレットの組み合わせにより若干変わるが、小ペレットの割合が 30～50% の場合である。すなわち、大ペレットに比べて小ペレットが同量か若干少ない場合に充てん密度は最も高くなる。

それぞれの組み合わせで最も高い充てん密度を最大充て

ん密度と呼ぶ。最大充てん密度は、ペレットの組み合わせによって異なることがわかる。小ペレットの種類に着目すると、Fig.7 に示す 1mm ペレットの場合が最も高く最大充てん密度 1.54 Mg/m³ であり、Fig.9 に示す 4mm ペレットの場合が 1.25～1.30 Mg/m³ と低い。小ペレットの粒径が小さいほど 2 粒径混合ペレットの充てん密度が高まる。

同様に大ペレットの種類に着目すると、小ペレットが 1mm ペレットの場合 (Fig.7) と 2mm ペレットの場合 (Fig.8)

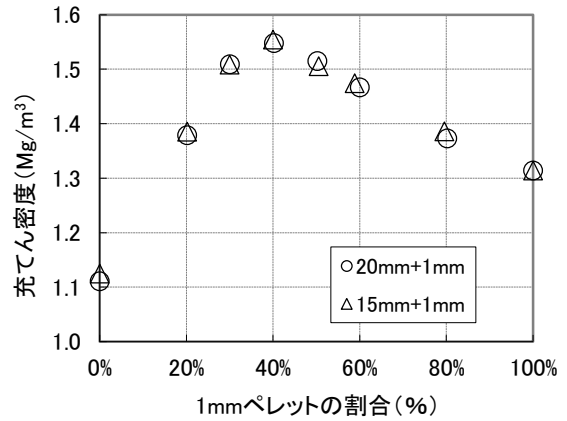


Fig. 7 Filling densities of mixture of large-pellets and 1mm-pellets based on the mixing rate.

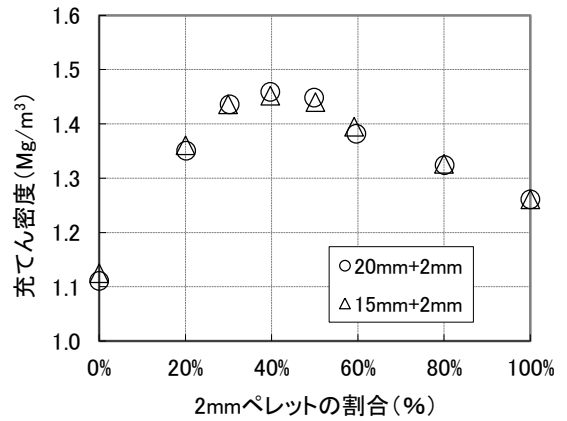


Fig. 8 Filling densities of mixture of large-pellets and 2mm-pellets based on the mixing rate.

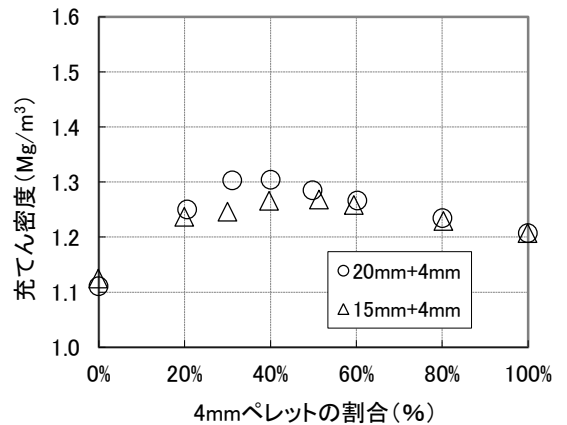


Fig. 9 Filling densities of mixture of large-pellets and 4mm-pellets based on the mixing rate.

は、大ペレットの粒径によらず最大充てん密度がほぼ同等であるが、小ペレットが 4mm ペレットの場合 (Fig.9) は大ペレットとして 20mm ペレットを用いた方が、15mm ペレットを用いた場合に比べて充てん密度が高い。大ペレットの粒径は大きいほど、2 粒径混合ペレットの充てん密度は高くなる傾向があると考えられる。これらから、大ペレットと小ペレットの粒径の差が大きいほうが、2 粒径混合ペレットの充てん密度が高まると言える。

本研究で対象とした 5 種類のベントナイトペレットでは、最も粒径が大きい 20mm ペレットと最も粒径が小さい 1mm ペレットを重量比で 60:40 に混合した場合に最大の充てん密度 1.54 Mg/m³ を得た。なお、今回行った実験では、試験数が 1 回であるため、最大充てん密度がどの程度のバラツキを含むかについては議論できないが、隣り合う異なる条件で得られた充てん密度の値も勘案し、基礎データとしての信頼性はあるものとする。実際の充てん方法を議論する段階では、すき間の形状や大きさが今回実験に使用した充てん容器と同じではないため、より信頼性が高いデータについては、想定している条件を考慮した施工試験などを実施する必要がある。

3.2 3 粒径混合ペレットの充てん実験

3.2.1 実験ケース

2 粒径を混合したペレットでは、最も大きい 20mm ペレットと最も小さい 1mm ペレットを適切に混合したケースで充てん密度が最も高かった。この組み合わせに中間の粒径のペレットを混合したときの充てん密度を確かめた。これを 3 粒径混合ペレットの充てん実験と呼ぶ。中間の粒径として 4mm ペレットを用いた。すなわち、ペレットの組み合わせは 1 通りであり、混合割合のみを変えた。

混合割合は 3 種類のペレットを個別に設定するのではなく、Table 3 に示すように 2 つの段階に分けて設定した。第 1 段階では、最大充てん密度を示す 4mm ペレットと 1mm ペレットの最適な混合割合を求めた。混合割合は 20~60% の 5 条件とした。第 2 段階では、第 1 段階で求めた最適な混合割合の 4mm と 1mm の 2 粒径混合ペレットを小ペレットとして扱い、大ペレットとして 20mm ペレットを混合した材料とした。混合割合は 20%, 40%, 60% の 3 条件とした。試験数は、それぞれ 1 回である。

Table 3 Conditions of the filling tests for three different size pellets.

| 実験の順序 | 組み合わせ | | 小ペレットの混合割合 (重量比) |
|-------|-------|---------|-------------------------|
| | 大ペレット | 小ペレット | |
| 第1段階 | 4mm | 1mm | 20%, 30%, 40%, 50%, 60% |
| 第2段階 | 20mm | 4mm+1mm | 20%, 40%, 60% |

3.2.2 実験方法

第 1 段階の充てん実験では、4mm ペレットと 1mm ペレットを所定の割合で事前に混合し、これをモールド上部より静かに投入する方法を用いた。第 2 段階の充てん実験は、

大ペレットと小ペレットを別々に交互に投入する Fig.5 で示した方法で行った。この場合の小ペレットは、事前に最適割合で混合した 4mm と 1mm の 2 粒径ペレットである。

3.2.3 実験結果

Fig.10 に 4mm ペレットと 1mm ペレットを用いた第 1 段階の充てん実験の結果を示す。横軸は 1mm ペレットの割合を示し、0% と 100% のプロットはそれぞれ Table 1 に示した 4mm ペレットと 1mm ペレットの充てん密度である。4mm ペレットと 1mm ペレットを混合した場合にも、それぞれのペレットを単独で用いた場合より高い充てん密度が得られることがわかる。最大となる充てん密度は 1mm ペレットが 40~60% の範囲でほぼ同等の密度を示しており、50% で若干小さい充てん密度を示しているが、Fig.5~Fig.7 に示したこれまでの実験結果と同様にピークがあると考えられるため、この傾向は実験のバラツキによるものと考え、第 2 段階の充てん実験で用いる混合割合は 50% に設定した。

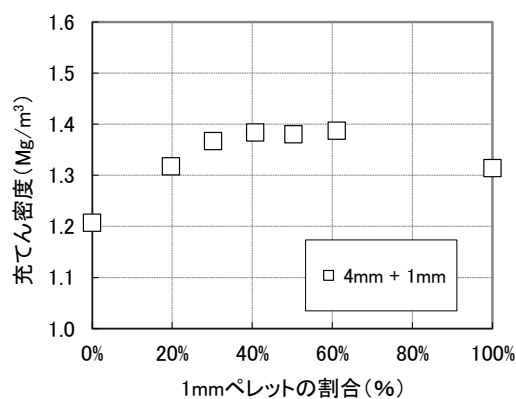


Fig. 10 Filling densities of mixture of 1mm-pellets and 4mm-pellets based on the mixing rate.

Fig.11 に第 2 段階の充てん実験の結果を示す。横軸には小ペレットとして扱った 4mm と 1mm の 2 粒径混合ペレットの、3 粒径混合ペレット全体に対する重量割合を示した。なお、4mm と 1mm の混合割合は前述したように 50% である。グラフ中でプロットの近くに示した①~⑤の数字はケース番号を示しており、グラフ上部には対応するケースの 3 種類のペレットの混合割合を併記した。

Fig.11 より、3 粒径混合ペレットにおいても、大ペレット (20mm ペレット) と小ペレット (4mm-1mm 混合ペレット) を同量程度に混合した場合に、充てん密度が高くなることがわかる。しかし、充てん密度の最大値は、③のケース (20mm : 60%, 4mm : 20%, 1mm : 20%) で得られた 1.50 Mg/m³ であり、Fig.5 で示した小ペレットに 1mm ペレットを用いた 2 粒径混合ペレットでの最大値 1.54 Mg/m³ よりも若干小さい。3 粒径を混合するために中間粒径として 4mm を混合することは、充てん密度の向上を阻害する結果であった。

4 考察

充てん実験で得られた結果を、球の配置理論などと比較して考察するとともに、球形ベントナイトペレットの充てんにおいて有用となる指標を検討する。

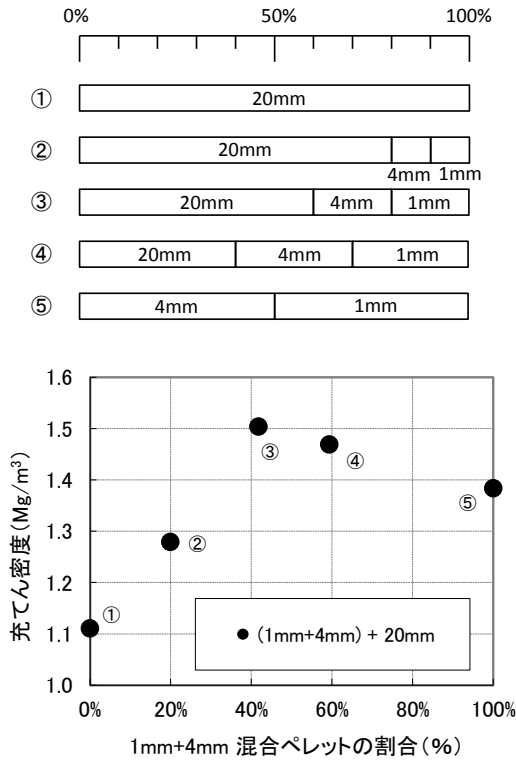


Fig. 11 Filling densities of mixture of 20mm as large-pellets and small-pellets mixed appropriately with 1mm and 4mm, based on the mixing rate.

4.1 等球径粒子の充てん構造

充填する空間に境界がないと仮定し、大きさの等しい球を規則的に配置すると、理論的には数種類の異なる配置構造が考えられる。このうち最も密な配置が六方最密充てん構造であり、充てん率は 74.1%を示す。一方、最も緩い規則配置は立方配置構造であり、充てん率は 52.4%である。その他にも規則配置はいくつかあり、それらは 52.4~74.1%の間の充てん率を示す[14,15]。

本研究が対象としているベントナイトペレットは球形に近く、かつそれぞれがほぼ等粒径なので、それぞれのペレットの充てん状態を等球径の配置理論と比較した。充てん率は、すき間の容積に占めるペレットの容積で定義した。

本研究で用いた 5 種類のベントナイトペレットに対して、Table1 に示した充てん密度から充てん率を求めると Fig.12 に示すとおり 55.5~60.8%となる。いずれのペレットにおいても六方最密充てん構造の充てん率 74.4%には、はるか及んでおらず、立方配置構造の充てん率に近い。すなわち、充てんされたベントナイトペレットは、単一粒径であっても規則的な充てん構造をとっていると考えることは無理があり、むしろ様々な規則配置が混在した全体としては不規則な配置をとっていると考えるほうが妥当である。また、球形が大きいペレットになるほど低い充てん率を示しており、ペレットの大きさに比べて充てん容器の寸法が小さいために起こる境界効果の影響も加わっているものと考えられる。

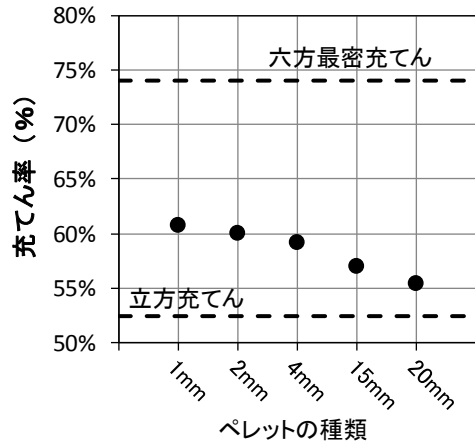


Fig. 12 Comparison of the obtained filling rate of the bentonite pellets with the rate of cubic closest packing or simple cubic packing.

4.2 複数の等球径粒子を組み合わせた充てん構造

大きさの異なる球形粒子を組み合わせた場合の充てん構造として Horsfield の理論が有名である[9,10]。等球径 (半径 $r=1$) の球 (1 次球) を六方最密充填したときの残りの空間に、適切な大きさ (半径 $0.414r$) の球 (2 次球) を配置すれば、充てん率が 74.1%から 79.3%に高まる。さらにそれらが作る残りの空間にさらに小さい等球 (3 次球) を配置することで、充てん率は 81.0%となる。

しかし、この考え方は最も大きい球である 1 次球が六方最密充てん構造となっていることを仮定している。仮に、最も大きい 1 次球が立方充てんされている場合を考えると、この球が作る残りの空間に収まる最も大きい球 (2 次球) の半径は $0.732r$ となり、六方最密充てんの場合よりも大きい。1 次球のみの場合の充てん率は 52.4%であり、2 次球を配置すると充てん率は 72.9%に高まる。つまり、1 次球である最も大きい球がどのように配置しているかによって、残りの空間を適切に埋めるための球の大きさも変わり、それを配置することによって増加する充てん率も異なる。

球形ベントナイトペレットを 1 種類の粒径のみで充てんした場合には、先に説明したように六方最密充てん構造にはなっておらず、不規則な充てん構造となっている可能性が高いことを示した。したがって、2 粒径混合ペレットを構成する大ペレットにおいても同様に不規則配置をとっている可能性が高く、Horsfield が示したような適切な大きさの 2 次球についても様々な粒径が必要になると考えられるため、このような理論の適用をより難しいものにすると言える。

4.3 2 粒径混合ペレットの充てん性

上述したような不規則な充てん構造はランダム充てんと呼ばれており、古くから多くの研究がなされており、複数の充てん率推定モデルが示されている。例えば、鈴木ら[12] は大きさの異なる 3 粒径のガラスビーズ (大, 中, 小) を用いて、混合比率を変えてタッピングや棒突きで充てん実験を行い、この結果を表現できるモデルを幾何学的に取り得る配置から導いた。これによると、大きさの異なる 2 つ

の粒子を混合した場合、粒子を単独で充てんした場合よりも充てん率が高くなり、充てん率が最大値を示すのは大粒子の体積割合が30~50%のときである。また、大、中の組み合わせや中、小の組み合わせよりも、大、小の組み合わせの方が高い充てん率を示した。

本研究で実施したベントナイトペレットの充てん実験と鈴木らが行ったガラスビーズの試験では、充てんする材料や充てん方法は異なるものの、大きさの等しい球形粒子を2種類混合して充てん率を評価する点で類似している。大きさの異なる2種類のベントナイトペレットを組み合わせたほうが、それぞれの粒径のベントナイトペレットを単独で充てんするよりも充てん率が高く、大ペレットの体積割合が30~50%の場合に充てん率の最大値を示した本研究の実験結果と整合している。

また、このような2粒径混合ペレットの充てん性の特徴である2粒径の差が大きいほうが充てん性が高い結果については、Fig.13を用いて次のように概念的に説明することもできる。

始めに小ペレットのみが充てんされている領域を考える。次に、その一部を大ペレットで置換することを考えると、大ペレットが置換した領域には、置換前は小ペレットと空隙が存在しているが、置換後には空隙が存在しなくなるため、全体として充てん率が上がる。一方、大ペレットが配置される場所の境界に、置換前に存在していた小ペレットは一部のみを置換することはできないため、外側に移動することになる。これにより、全体としての体積が増えることになり、充てん密度は低下する。

この2つの相反する現象は同時に起きると考えた場合、小ペレットの大きさに対して、大ペレットがより大きい方が、境界の面積に比べて内部の体積のほうが大きいので、充てん率が大きくなると考えられる。すなわち、実験結果が示すように大ペレットと小ペレットの大きさの違いが大きいほうが、より充てん率は高くなる。

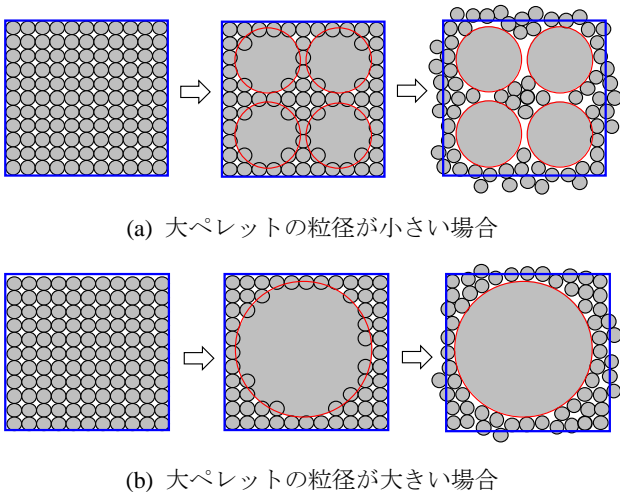


Fig. 13 Concepts of two size sphere pellet filling.

4.4 2 粒径混合ペレットの充てん性の定量的評価

2 粒径混合ペレットの充てん密度は、大ペレットと小ペレットの粒径の違いが大きい方が高かった。この実験結果

を、混合した2種類のペレットの粒径の比に着目して考察する。

4.4.1 粒径比

まず、2種類のベントナイトペレットの粒径の違いを定量化することを試みる。この粒径の違いを式(1)に示すように粒径比で表現する。粒径の代表値として、ペレットの粒径が若干の幅をもっているため50%通過粒径(粒径分布曲線上で50%通過量となる粒径)を用いた。Table 4にはFig.1に示した5種類のペレットの50%通過粒径を示す。Table5は、式(1)で計算した充てん実験における大ペレットと小ペレットの組み合わせで決定される粒径比である。3 粒径混合ペレットの充てん実験の第1段階のケースも含めている。

$$\text{粒径比} = \frac{\text{大ペレットの50\%通過粒径}}{\text{小ペレットの50\%通過粒径}} \quad (1)$$

Table 4 Grain sizes of 50% passing.

| 呼び名 (押し出し径) | 50%通過粒径 (mm) |
|----------------|-----------------|
| 1mm ペレット | 1.4 |
| 2mm ペレット | 2.5 |
| 4mm ペレット | 5.1 |
| 15mm ペレット | 17 |
| 20mm ペレット | 21 |

Table 5 Ratio of the size of large pellet to that of small pellet.

| | | 大ペレット | | |
|-------|------|-------|------|------|
| | | 4mm | 15mm | 20mm |
| 小ペレット | 1mm | 3.6 | 12 | 15 |
| | 2mm | | 6.8 | 8.4 |
| | 4mm | 1 | 3.3 | 4.1 |
| | 15mm | | 1 | |
| | 20mm | | | 1 |

4.4.2 最大充てん率

Fig.7~Fig.9 および Fig.10 で得られた大ペレットと小ペレットの各々の組み合わせの中から最も大きい充てん密度を最大充てん密度と呼び、それに対応する充てん率を最大充てん率と呼び、Table 6に示す。なお、大ペレットと小ペレットが同じ粒径の欄に示している値は、Table 1 および Fig.12 に示した混合していないペレットの充てん率である。

Table 6 Maximum filling ratio in the mixture of two different size pellets.

| | | 大ペレット | | | | |
|-------|------|-------|-------|-------|-------|-------|
| | | 1mm | 2mm | 4mm | 15mm | 20mm |
| 小ペレット | 1mm | 60.8% | | 65.0% | 76.1% | 75.1% |
| | 2mm | | 60.0% | | 71.9% | 71.6% |
| | 4mm | | | 59.2% | 63.2% | 64.7% |
| | 15mm | | | | 57.1% | |
| | 20mm | | | | | 55.5% |

4.4.3 最大充てん率と粒径比の関係

Fig.14 は、粒径比と最大充てん率との関係を示したものである。大ペレットの種類で系列化している。大ペレットの粒径が異なっても、粒径比が同じであれば、ほぼ同じ最大充てん率を示すことがわかる。粒径比を大きくすれば、充てん密度が高まるが、その効果は粒径比の増加にともなって小さくなる。

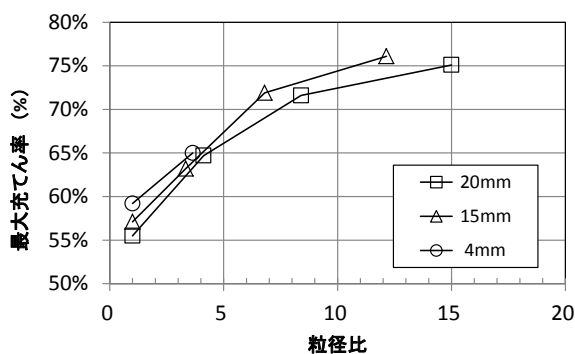


Fig. 14 Relationship between ratio in pellets size and maximum filling rate.

4.4.4 充てん率の向上の可能性

Fig.14 に示した最大充てん率と粒径比の関係を外挿すると、粒径比を上げることで最大充てん率を大きくできると予想される。20mm ペレットをより大きい粒径のペレットに変える、もしくは 1mm ペレットをより小さい粒径に変える。これにより粒径比が上がり、充てん率より高い 2 粒径混合ペレットが得られると推察できる。

ただし、20mm ペレットより粒径が大きいペレットの適用に対しては、対象とするすき間の大きさに留意する必要がある。すき間に対して粒径が大きいペレットを使用すると Fig.14 に示したように大ペレット自体の充てん率が下がる可能性もある。

一方、1mm ペレットをより小さいペレットに変えることについては、粉体の充てん挙動に留意する必要がある。具体的に言えば、小ペレットを粉末のベントナイトに変えると、粒径は 0.1 mm 以下を示し、粒径比を 10 倍以上に上げることが可能となる。しかし、粉体は粒体と比べて比表面積が大きく、体積に働く重力に対して表面積に働く付着力が卓越するため、落下させた場合に所定の位置まで落ちきれずに止まり、充てん率が低くなることが予想される。このため、実際に粒径比の増加が充てん率の上昇に結びつくかの確認を充てん実験により取得する必要がある。

4.5 3 粒径混合ペレットの充てん性の考え方

充てん実験の結果では、3 粒径混合ペレットの充てん密度は、2 粒径混合ペレットの最大充てん密度を上回らなかった。すなわち、2 粒径を混合した方が、3 粒径を混合した場合よりも充てん性能が高い混合ペレットが得られる。

鈴木らは、ガラスビーズを用いて類似の試験を行い、同様の結果を得ている[12]。大、中、小の 3 種類の異なる粒径のガラスビーズを用い、混合比率を変えてタッピングや棒突きで充てん実験を行っている。最も充てん率が高かつ

たのは中間の大きさのガラスビーズを用いず、大と小のみで構成した場合であった。本論文で実施したベントナイトペレットの充てん実験と鈴木らが行ったガラスビーズの試験では、充てんする材料や充てん方法が異なるものの、大きさの等しい球形粒子を 2 種類もしくは 3 種類混合して充てん率を評価する点で類似しており、同様の結果を示している。

このような結果が得られる理由は、4.3 で述べた 2 粒径混合ペレットの充てん性の考え方でも説明できる。Fig.15 で説明したように、すべてが小さい粒径のペレットで構成された配置に対して、その一部をそれより大きい粒径のペレットで置換することを考えた場合、置換に用いるペレットの粒径が大きいほうが、充てん率が高くなる。このことは Table 6 に示した通りであり、小さいペレットが 1mm の場合、大きいペレットとして 20mm で置換すると最大充てん率は 75.1% であり、4mm で置換すると最大充てん率は 65.0% である。3 粒径混合ペレットに同様の考え方をを用い、小さいペレットとして 1mm を考え、大きいペレットとして 4mm と 20mm が混合されたものと考えれば、実験で得られた最大充てん率の 72.0% は 75.1% と 65.0% の間にあり、考え方の整合がとれている。

以上で説明したように、粒径の異なるペレットを混合して充てん率を上げるためには、2 粒径混合ペレットが適しており、これに対して中間の粒径を混合すると充てん率が低下する傾向が見受けられる。

4.6 混合ペレットの粒径分布と充てん性

土質材料の締固めやコンクリートの骨材では、粒径分布が広い材料、すなわち、最大粒径と最小粒径の差が大きいほうが高い密度が得られるとされている[16,17]。土質材料は自然の材料であることが多く、粒度調整を行わなければ粒径分布に段差はなく、なだらかに変化することが普通である。同様にコンクリート用骨材も大きい粒径から小さい粒径に段階的に変化する材料が選ばれる。

ここでは本研究における 2 粒径混合ペレットと 3 粒径混合ペレットの充てん性の違いを、粒径分布の観点で考察した。考察では、粒径分布の評価軸を 2 つの観点に分けた。1 つは粒径の幅を示す最大粒径と最小粒径の差であり、もう 1 つは粒径変化のなだらかさである。なだらかさとは、粒径分布に段差が生じていないことを示す。

1 つ目の観点の粒径分布における粒径の幅については、ペレットの場合は 2 粒径混合ペレットにおける粒径比と同等の考え方である。粒径比が大きい組み合わせの 2 粒径混合ペレットの方が、粒径比が小さい組み合わせよりも最大充てん率が高かった。すなわち、粒径の幅が大きいほうが充てんしやすいことと同等である。

2 つ目の粒径のなだらかさの観点については、2 粒径混合ペレットと 3 粒径混合ペレットの充てん実験の結果を用いて考察した。2 粒径混合ペレットで最大充てん密度を示した混合は、20mm ペレットと 1mm ペレットの組み合わせで配合割合を 60:40 とした場合であった。この混合ペレットの粒径分布は Fig.15 となる。これに中間粒径の 4mm ペレットを混合し、3 粒径混合ペレットとした場合に、最も充

てん密度が高かったのは、20mm : 4mm : 1mm = 60:20:20の配合割合の混合ペレットであった。この粒径分布をFig.16に示す。2種類の混合ペレットは粒径の範囲は同じであるが、粒径のなだらかさが異なる。段差の少ない3粒径混合ペレットの方がなだらかである。充てん実験の結果からは、3粒径混合ペレットの方が、最大充てん密度が小さく、なだらかでないほうが充てんに有利な材料である結果を示した。

このことを拡張して考えると、大ペレットと小ペレットの間に様々な粒径のペレットを適切に混合し、粒径幅が同じ状態を維持したまま、粒径がなだらかな混合ペレットにしても充てん密度は高まらなると推察できる。ただし、本研究で実施した3粒径混合ペレットの充てん実験は、中間の粒径として4mmペレットのみしか使用しておらず、データ数の不足は否めない。今後、そのほかの粒径のペレットを混合し、さまざまな粒径分布の多粒径混合ペレットについて充てん実験を実施し、3粒径以上の混合ペレットを用いる必要がないことを示す必要がある。

なお、本研究で用いたベントナイトペレットの製造方法は、製造段階で粒径が揃ったペレットを製造するのに適しており、混合するペレット種類が少ないことは、施工コストの増加を抑制することになり、実務的には有益であると言える。

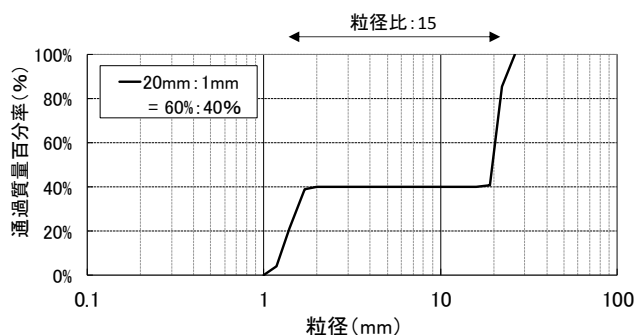


Fig. 15 Pellet size distribution of 20mm:1mm = 60%:40%.

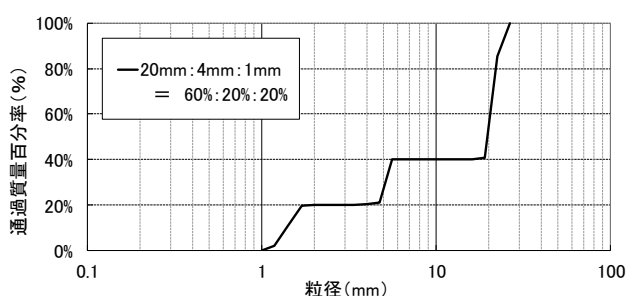


Fig. 16 Pellet size distribution of 20mm:4mm:1mm = 60%:20%:20%.

5 まとめ

緩衝材の周囲に施工上発生するすき間をベントナイトペレットで高密度に充てんする技術の確立を目指し、球形で高密度のベントナイトペレットの充てん性能の基礎的デー

タを取得する目的で、想定する最低限のすき間を単純な形状の充てん容器で模擬し、充てん実験を行った。得られた成果を以下にまとめ、結論とする。

- 球形で単体密度 2.0 Mg/m^3 程度のベントナイトペレットは、緩衝材相当の性能を有するために必要な充てん密度 1.37 Mg/m^3 を満足できる可能性が高いことを確認した。ただし、異なる粒径のペレットを適切に組み合わせるうえで、混合割合を適切に調整する必要がある。
- 粒径の異なる5種類のベントナイトペレットを用いて、ペレットの組み合わせや混合割合を変えて、2粒径混合ペレット、3粒径混合ペレットの充てん密度を測定した今回の試験条件で得られた結果を比較し、考察したところ、2粒径混合ペレットのほうが高い充てん密度が得られる可能性が高いことが推察できた。
- 今回の試験条件で最大の充てん密度が得られた2粒径混合ペレットの条件は、粒径が最も大きい20mmペレットと最も小さい1mmペレットを、60:40で混合した場合であり、得られた充てん密度は 1.54 Mg/m^3 であった。
- 2粒径混合ペレットでは、粒径の違いを粒径比で表し、充てん性の指標を充てん率で表現すると、粒径比が大きいほど充てん率が大きくなる関係が、ペレットの組み合わせによらず得られることを確認した。

謝辞

本研究は、経済産業省からの委託による「地層処分技術調査等委託費処分システム工学要素技術高度化開発」の成果の一部を用いている。

参考文献

- [1] 核燃料サイクル開発機構：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次とりまとめ—総論レポート, JNC TN1400 99-020 (1999).
- [2] 原子力発電環境整備機構：地層処分事業の安全確保 (2010年度版)—確かな技術による安全な地層処分の実現のために—。原子力発電環境整備機構.NUMO-TR-11-01 (2011).
- [3] 高尾肇 他：すきま充填材としてのベントナイト特性に関する研究 (その1) —すきま充填材の充填特性評価—。土木学会第55回年次講演会, pp.378-379 (2000).
- [4] 財団法人 原子力環境整備促進・資金管理センター：平成13年度高レベル放射性廃棄物処分事業推進調査報告書—遠隔操作技術高度化調査—(2/2) (2002).
- [5] 高尾肇他：ベントナイトペレットの特性試験 (その1) —ベントナイトペレットの製作方法の検討および製作—。土木学会第57回年次講演会, pp.473-474 (2002).
- [6] 中島均, 齋藤亮, 石井卓：乾燥収縮を利用したベントナイトペレットの製造方法。原子力バックエンド研究, 2, 83-93 (2014).

- [7] Nakashima, H. and Asano, H. : A New Manufacturing Method of Bentonite Pellets as a Gap Filling Material for HLW Repository, 16110, WM2016 Conference, March 6 – 10 (2016).
- [8] 財団法人 原子力環境整備促進・資金管理センター : 平成 19 年度地層処分技術調査等委託費 高レベル放射性廃棄物処分関連 処分システム工学要素技術高度化開発 報告書 (第 1 分冊) – 遠隔操作技術高度化開発 – (2/2) (2008).
- [9] Horsfield, H. T. : The strength of Asphalt Mixtures, *Journal of the Society of Chemical Industry*, **53**, (1), 107 (1934).
- [10] Yong, R. N. and Warkentin, B. P. : Soil properties and Behaviour, Elsevier Scientific Publishing Company (1975).
(山内豊聡, 竹中肇, 東山勇, 前田隆監修 : 新編土質工学の基礎, 鹿島出版会, 1978.)
- [11] 田中善之助 他 : 2 成分系粒子群における充填率の変化について, *粉体工学会誌*, Vol.19, No.8, pp.457-461(1982).
- [12] 鈴木道隆, 八木章, 渡辺球夫, 大島敏男 : 3 成分球形粒子ランダム充填層の空間率の推定, *化学工学論文集*, Vol.10, No.6 (1984).
- [13] 中島均 他 : 高密度で真球度が高いベントナイトペレットの製造方法. 日本原子力学会 2013 春の年会, 大阪, 3 月 26~28 日, A19 (2013).
- [14] 最上武雄 : 第 8 章 粒状体の力学, 土木学会監修 最上武雄編著 土質力学, pp.904~914, 技報堂 (1969).
- [15] 社団法人化学工学協会 : 改訂五版化学工学便, 4.3 粒子の充てん特性, pp.239~256, 丸善株式会社 (1988).
- [16] 赤井浩一 : 土質力学, pp.113~122, 朝倉書店 (1985).
- [17] 笠井芳夫編著 : コンクリート総覧, pp.206~207, 技術書院 (1998).