

## ベントナイト緩衝材のマイクロ構造に基づいた長期力学的挙動評価の研究(その2)

- 圧密その場 X 線回折試験によるベントナイトのマイクロな挙動についての考察 -

(株)大林組 正会員 長谷川宏、中岡健一

(株)東京電力 正会員 齋藤典之

東京工業大学 非会員 河村雄行

名古屋大学 正会員 市川康明、学生員 Theramast Nattavut

## 1. はじめに

高レベル廃棄物処分における人工バリア要素である緩衝材は長期に亘ってオーバーパック周辺に健全な状態で存在する事が必要であるため、緩衝材の候補材料であるベントナイトのオーバーパック支持性の評価は重要な課題の一つとされている。現在、ベントナイトのマイクロな挙動メカニズムを明らかにし、そのメカニズムに則った評価手法(MD/HA 結合解析)を構築し、緩衝材の長期力学挙動を評価するための研究を行っている。結合解析から、ベントナイトの間隙比が減少し、モンモリロナイト積層体の層間距離が縮まると急激に透水係数が小さくなることが示された。また、分子動力学解析から、粘土骨格のクリープによる長期的な挙動へ与える影響はほとんどないことが示されたことから、二次圧密は、圧密過程で層間距離が減少し、透水係数が極めて小さくなることにより圧密の進行が遅れる現象であるとの結果を得た。一方、乾燥密度 1.0 ~ 1.8g/cm<sup>3</sup> のモンモリロナイト積層体の層間距離は、乾燥密度によって 2 層膨潤状態 (1.6nm) と 3 層膨潤状態 (1.9nm) の値をとることが示されているが(Kozaki et al., 1998)、飽和圧密状態下で、どのように層間距離が変化するか、連続的に測定された例はない。今回は、圧密量とモンモリロナイト層間距離の関係を明らかにするため、圧密その場 X 線回折試験を行った結果について報告する。

## 2. 実験手法

図-1 に圧密その場 XRD の供試体圧密容器の概要を示す。ベントナイトはポリカーボネイト管の中に充填され、両端は透水性の蓋によって密閉される。ポリカーボネイト管は、膨潤圧(1[MPa]程度)や圧密荷重に対して十分な強度を有するように、X 線経路用の開口部を有するステンレス製の鞘によって補強した。試料は、外径 7.2mm、初期高さ 10.0mm、初期乾燥密度 1.4g/cm<sup>3</sup> のクニピア F とし、変位を固定した状態で飽和させた後、圧密荷重 2.0MPa を印加する。表-1 に試料の概要を示す。また、X 線として、Cu/K $\alpha$ 線に比べてポリカーボネイト管への吸収が少ない Mo/K $\alpha$ 線を用いた。

表-1 試料の概要

項目	データ
試料	クニピア F
初期乾燥密度	1.4 g/cm <sup>3</sup>
圧密荷重	2.0 MPa
外径	7.2 mm
初期高さ	10.0 mm

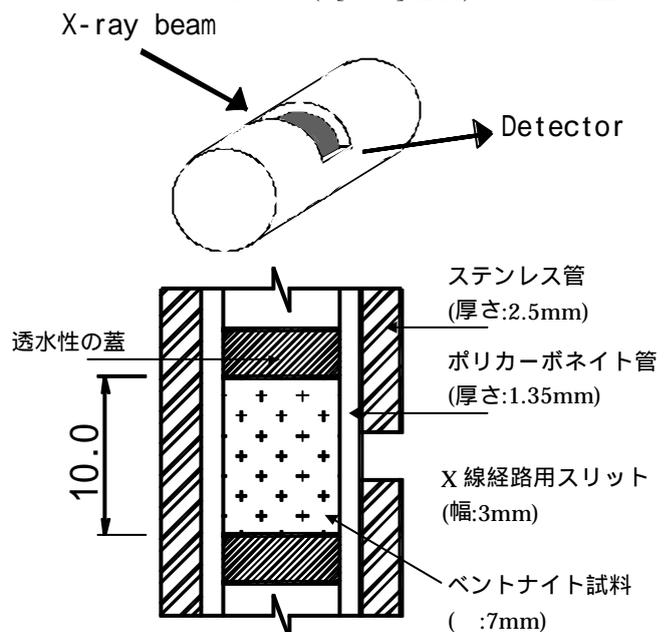


図-1 圧密容器の概要

キーワード：分子動力学法、均質化法、モンモリロナイト、X 線回折試験

連絡先：〒108-8502 東京都港区港南 2-15-2 品川インターシティ-B 棟 TEL:03-5769-1309、FAX:03-5769-1972

### 3. 実験結果および考察

図-2 に圧密変位の時刻歴と X 線回折パターンを併せて示す。圧密変位図に付した 1~5 の番号はそれぞれ、X 線回折パターンに付した番号に対応している。圧密変位図の縦軸 1 目盛りは、変位量 0.5mm に相当する。測定点 0 は印加前における常圧状態での X 線回折パターンであり、このパターンから、初期状態として粘土鉱物のほぼ全量が 3 層膨潤状態(底面間隔=1.9nm)にあることがわかる。回折パターンの観察から、ミクロな挙動として大きく 3 つの段階に分けることができる。

測定点 1-3: 回折パターンのピークの位置はほとんど変化せず、それにもかかわらず大きな変位が見られる。したがってこの段階では、粘土の 3 層膨潤の積層状態は変化せず、層間水は保持されたまま、外部水のみが排水されるものと考えられる。この段階は 8 時間程度の長さであった。

測定点 3-4: 回折パターンにおいて、3 層膨潤状態が大きく減少し、2 層膨潤状態(底面間隔=1.6nm)が増加している。4 番では 2 層膨潤状態が卓越している。ただし、3 層膨潤状態も少量ではあるが明確に残っている。この間の変位は と同様に大きく進む。ここまでが一次圧密期間と考えられる。圧密荷重印加開始から 42 時間程度の時間である。

測定点 4 以降: 回折パターンと変位は共に時間とともに小さな変化を示すのみである。ただし、変位は続いており、3 層膨潤状態も少ないが、まだ明確に残っている。これを二次圧密期間と考える。

以上の実験結果から、ベントナイトの圧密のミクロなメカニズムは、まず、積層体内部の層間水を 3 層膨潤状態に保ったまま積層体の外部間隙が小さくなり、次第に層間からも排水が生じて層間距離が短くなり、大部分が 2 層膨潤状態になった後もわずかに残った 3 層膨潤状態の積層体から層間水が排水することにより、二次圧密が生じるものと考えられる。

### 4. まとめ

前述のように、MD/HA 結合解析の結果に基づき、我々はベントナイトの二次圧密は層間からの排水に伴って生じるものと予測している。本研究で示した圧密その場 X 線回折試験の結果は、それを裏付けるものと考えられる。

2 層膨潤状態と 3 層膨潤状態の割合を同定することができれば、圧密量とその割合との関係を調べることにより、二次圧密は全て層間からの排水によるものかどうかを実験的に確認することができ、MD/HA 結合解析の検証のために有効なデータになると考えられる。

### 5. 参考文献

1) Kozaki, T., Fujishima, A., Sato, S., and Ohashi, H. (1998): "Self-diffusion of sodium ions in compacted sodium montmorillonite". *Nuclear Tech.*, 121, 63-69

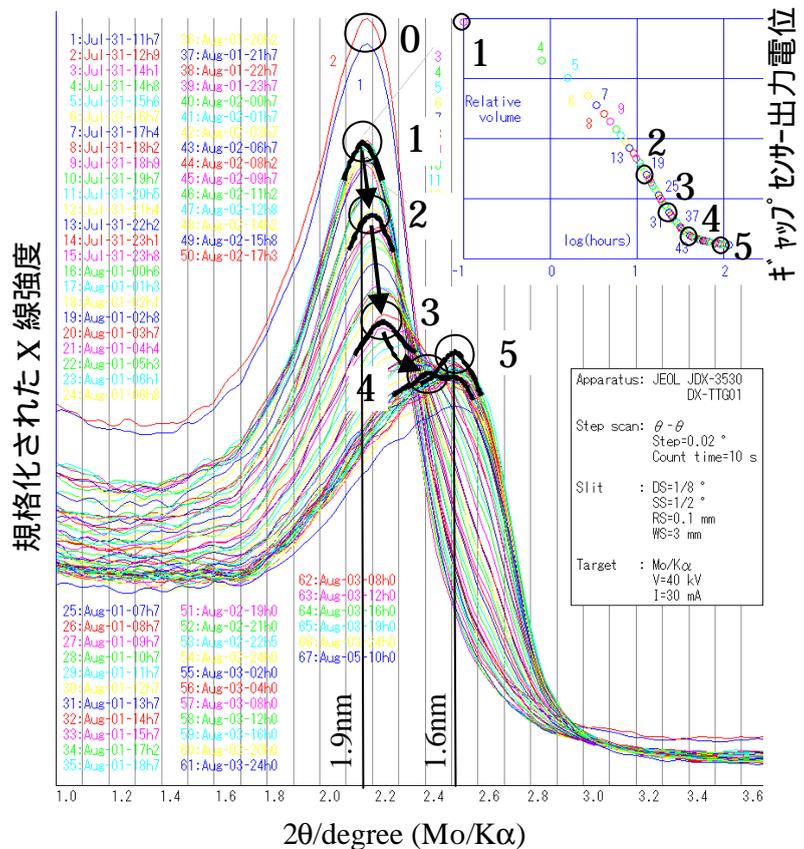


図-2 圧密その場 X 線回折実験 (2.0MPa, 室温) による底面間隔ピーク付近の回折パターンの時間変化

\* なお、本研究には電力共通研究の成果の一部が含まれている。