

ベントナイト系材料の長期的変質と物理特性の評価

大成建設(株) 正会員 ○下村 雅則, 今村 聡
原子力安全基盤機構 正会員 鈴木俊一, 非会員 青木広臣

1. はじめに

放射性廃棄物余裕深度処分施設の人工バリアに用いられるベントナイトは施設の物理・化学的な環境の変化に伴い、主成分鉱物であるモンモリロナイトや長石などの随伴鉱物の変質する可能性がある。これにより、ベントナイトの機能として期待されている遮水性や陽イオン吸着性などの物質移行に関する特性が劣化することが懸念されている。

本研究は、想定される余裕深度処分施設の処分環境下でのベントナイト系材料の長期的な変質と物理特性の変化を把握することを目的とし、鉱物学的知見に基づく変質現象の評価と地球化学・物質移行連成解析による物理特性（透水係数）の変化についての検討結果を示すものである。

2. ベントナイト変質の概要

ベントナイトの長期的な物理特性は、構成される鉱物の組成と密度に大きく依存し、セメント系材料と接触する高アルカリ環境下では、構成する鉱物の溶解による間隙の減少二次鉱物の生成による間隙の充填など、複雑にベントナイトの組成・密度が変化する。このため長期的な物理特性を評価するためには、鉱物の溶解生成速度、生成する二次鉱物の種類の把握が重要となる。

2.1 鉱物の溶解と生成 ベントナイトはモンモリロナイトという層状ケイ酸塩鉱物を主要鉱物として含む粘土の総称であり産地によって種々の鉱物を含有している。クニゲル V1 を例にとると、主成分鉱物はモンモリロナイト、石英（カルセドニを含む）、炭酸塩鉱物（カルサイト、ドロマイト）である^{1,2)}。モンモリロナイトの溶解については、各種の実験により、遷移状態理論含むいくつかの理論を基に得られた式が用いられている。また、二次鉱物の生成速度は未解明な部分が多く、生成速度に関する知見は少ない。

2.2 生成する二次鉱物の種類

モンモリロナイトの単位相組成は一般式 $[\text{Si}_{8-x}\text{Al}_x][\text{Al}_{4-y}\text{Mg}_y](\text{OH})_4\text{O}_{20}$ で表すことができ、 x, y の値はモンモリロナイトの種類によって異なる。また、この式量あたりこの骨格は $-(x+y)$ の電荷を持つが、これは交換性陽イオンの吸着によって中和される。つまりモンモリロナイトの性質は石英、炭酸塩鉱物と異なり、産地ごとにかなり異なる可能性がある。そこで、本研究では、モンモリロナイトなどの変動する鉱物の組成を考慮した標準生成自由エネルギーを推定し Helgeson の熱力学パラメータより、相平衡図を作成した³⁾。図1には、一例としてカルシウムを対象とした関連する鉱物の相平衡図を示した。図中のプロットは想定される処分環境の水質を示したものであり、処分環境の水質はモンモリロナイトからローモンタイトの安定領域にまたがって分布している。しかし、高アルカリ間隙水の影響がある場合には、ローモンタイトが安定となる領域に位置し、同様に Na, K を対象とした場合の相平衡図より、アナルサイム、カリ長石が安定である。

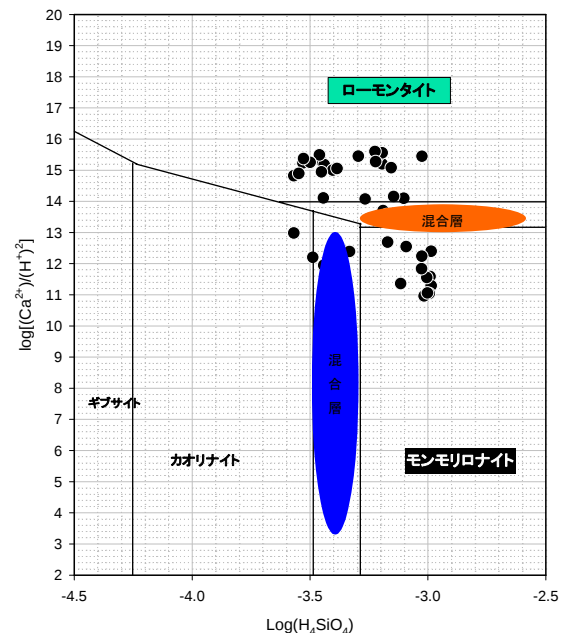


図1 モンモリロナイトの相平衡図(Ca-Si)

キーワード ベントナイト, 変質, 地球化学・物質移行連成解析, 透水係数

連絡先 〒245-0051 神奈川県横浜市戸塚区名瀬町 344-1 大成建設(株)技術センター TEL 045-814-7217

3. 地球化学・物質移行連成解析による物理特性の評価

前述した熱力学的平衡による相平衡図では、最終的にどの鉱物が安定であるのかを判断することはできるが、随伴鉱物を含む複雑な条件での長期的な変質過程を評価することはできない。そこで、処分環境下でのベントナイトの変質過程と変質による物理特性の変化を評価するため、図2に示す一次元モデルで地球化学・物質移行連成解析を実施した。本解析では、透水係数を交換性ナトリウム割合、モンモリロナイトゲル密度及び間隙水の当量イオン濃度の関数として表現された経験式に従うものとし、熱力学的パラメータについては、標準生成自由エネルギーから平衡定数を既往の熱力学データベース(JNC-TDB, TRU)に組み込んでいる。生成する鉱物については、既往の知見⁴⁾を参考にし、二次鉱物の溶解・生成速度は、未解明な部分が多いため保守的な条件である局所平衡と仮定している。また、モンモリロナイトの溶解平衡については、最も保守的な条件として局所平衡を仮定し現実的な条件として溶解速度の飽和度依存性を考慮した非平衡モデルを用いた^{5,6)}。

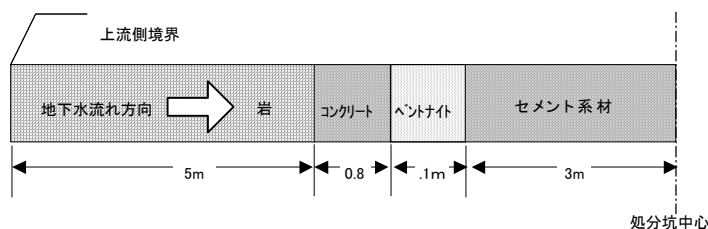


図2 解析条件図

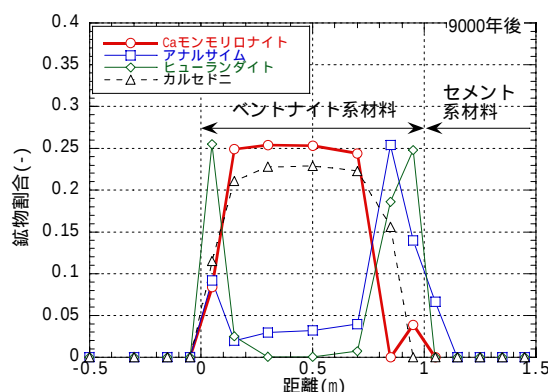


図3 主要鉱物割合（局所平衡）

図3に最も保守的な局所平衡モデルによる解析結果を示す。9000年後の主要鉱物は、Na型モンモリロナイトからCa型モンモリロナイトへと変化し、セメント系材料と接する両端では、モンモリロナイトに代わって二次鉱物であるヒューランドイト、アナルサイトが生成している。ベントナイト系材料中央部ではCa型モンモリロナイトとカルセドニが残存する。

ベントナイトの変質による物理特性の変化の一例として、等価透水係数の変化を図4に示した。最も保守的な局所平衡の場合、Na型モンモリロナイトの減少とともに等価透水係数は漸増するが、Ca型化モンモリロナイトが残存することにより、700年以降の変化は顕著ではない。一方、モンモリロナイトの溶解速度を考慮した場合には、1万年後でもNa型モンモリロナイトが残存するため、透水係数は変化しない。

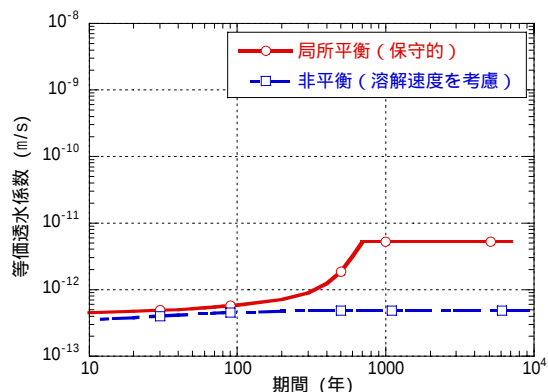


図4 等価透水係数

4. まとめ 鉱物学的知見、既往の知見に基づく最終的に安定

する二次鉱物の種類を明確にし、地球化学物質移行連成解析により想定される環境における物理特性の評価を行った。本研究の解析条件における検討結果を以下にまとめる。ベントナイト系材料はセメント系材料と接した境界部より変質が進み、モンモリロナイトの溶解、Ca型化、二次鉱物の生成が生じる。具体的には、透水係数については、鉱物の溶解および二次鉱物の生成を局所平衡と考えた最も保守的なケースでも、Ca型化したモンモリロナイトが中央部に残存するため、透水係数の変化は初期の20倍程度であり、非平衡モデルでは顕著な変質は見られない。

参考文献 1) 動燃事業団：地層処分研究開発の現状，動燃技術資料，PNC TN1410 96-071, 1996. 2) 伊藤雅和ほか：ベントナイトの鉱物組成分析，動燃技術資料，PNC TN8430 93-003, 1994. 3) Helgeson H. C. and P. Aagaard: Activity/Composition relations among silicates and aqueous solutions. I. Thermodynamics of intrasite mixing and substitutional order/disorder in minerals, American Journal of Science, Vol. 285, pp.769-844, 1985. 4) 小田治恵ほか：緩衝材の鉱物学的長期変遷シナリオ。核燃料サイクル開発機構，JNC TN8400 2005-020, 2005. 5) Sato, T et.al.: Dissolution mechanism and kinetics of smectite under alkaline conditions, NUMO-TR-04-05., 2004. 6) Cama, J. et.al.: Smectite dissolution kinetics at 80 and pH8.8, Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol.64, No.15, pp.2701-2717, 2000.