

# 水質分析, メチレンブルー吸着量, X線回折の観点からのベントナイトへの温度履歴の影響に関する考察

茨城大学 正会員 ○小峯秀雄

## 1. 背景・目的

高レベル放射性廃棄物地層処分においては、放射能の崩壊に起因して廃棄物から多量の崩壊熱が発生し、ベントナイト系緩衝材が長期間、高温の状態に曝され、要求される性能の低下が予想される(図1参照)。このような背景から、著者のグループをはじめいくつかの研究機関において、温度履歴を受けたベントナイトの膨潤圧・膨潤変形特性について実験的な調査が行われている<sup>1)~3)</sup>。本研究では、著者が実施してきた種々の温度履歴を受けたベントナイトの膨潤特性実験の際に採取した供試体周辺の水溶液の水質分析、温度履歴を受けたベントナイトのメチレンブルー吸着量測定およびX線回折分析を行い、ベントナイトへの温度履歴の影響について考察した。

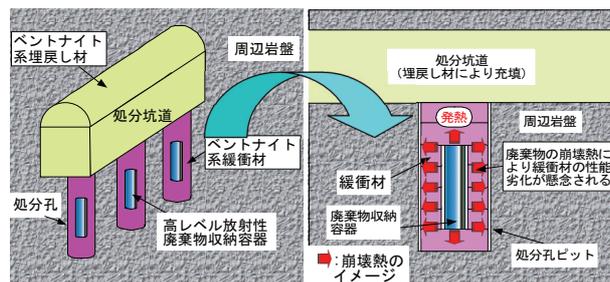


図1 高レベル放射性廃棄物の崩壊熱による影響の概念

## 2. 使用したベントナイト, 温度履歴条件および測定・分析項目

使用したベントナイトは、山形県月布産のNa型ベントナイトA(クニゲルV1・クニミネ工業)と宮城県土浮山鉱床産のCa型ベントナイトC(クニボンド・クニミネ工業)である。表1に上記のベントナイトの基本的性質を示す<sup>1)</sup>。上記の粉末状ベントナイトをステンレス製バットに入れ、温度60℃、90℃、110℃および130℃に設定した乾燥炉に28日、120日および365日間投入し温度履歴を与えた。バットは開放されており、乾燥炉内も大気圧環境に保持された状態において、各ベントナイトに温度履歴を与えた。実施した測定・分析

表1 ベントナイトA, Cの基本的性質

ベントナイト	A	C
タイプ	Na型	Ca型
土粒子密度(Mg/m <sup>3</sup> )	2.79	2.71
液性限界(%)	458.1	128.7
塑性限界(%)	23.7	38.4
塑性指数	434.4	90.3
モンモリロナイト含有率(%)	57	84
陽イオン交換容量(meq/g)	1.166	0.795
交換性Naイオン量(meq/g)	0.631	0.119
交換性Caイオン量(meq/g)	0.464	0.585
交換性Kイオン量(meq/g)	0.030	0.019
交換性Mgイオン量(meq/g)	0.041	0.072

は、著者の実施した膨潤特性実験<sup>1)</sup>終了後に採取した供試体周辺水溶液のNa<sup>+</sup>、Ca<sup>2+</sup>、K<sup>+</sup>およびMg<sup>2+</sup>の各濃度測定(使用装置:イオンクロマトグラフ・東亜DKK, IA-100)および各ベントナイトのメチレンブルー吸着量測定(日本ベントナイト工業会標準試験法JBAS-107-91, 1991.に準拠)とX線回折分析である。

## 3. 各測定・分析結果から推察できるベントナイトへの温度履歴の影響に関する考察

図2は、Na型ベントナイトAの膨潤変形実験<sup>1)</sup>後における供試体周辺のNa<sup>+</sup>イオン濃度測定結果を、加熱温度と鉛直圧をパラメータに、加熱時間との関係において整理した図である。図2から、Na型ベントナイトAにおいては、温度履歴を受けることにより供試体周辺の水溶液のNa<sup>+</sup>イオン濃度が高くなる傾向が認められた。特に加熱温度が高く、加熱期間が長くなるほど、供試体周辺の水溶液のNa<sup>+</sup>イオン濃度が高くなる。Ca<sup>+</sup>イオンについても同様の傾向を示した。また鉛直圧1000kPaと500kPaでの膨潤変形実験の結果を比較すると、鉛直圧の低い500kPaのケースの方が、Na<sup>+</sup>イオン濃度が高い傾向を示した(図2参照)。Ca<sup>+</sup>イオンについても同様の傾向を示した。このことから、Na型ベントナイトAの場合

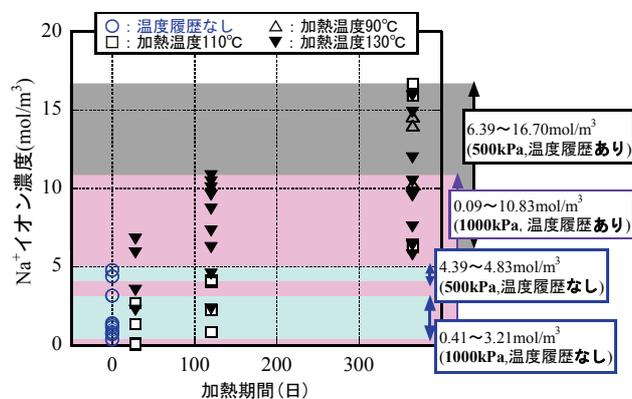


図2 ベントナイトAの膨潤変形実験後における供試体周辺のNa<sup>+</sup>イオン濃度測定結果

キーワード ベントナイト, 放射性廃棄物地層処分, 温度履歴, 化学分析, X線回折

連絡先 〒316-8511 茨城県日立市中成沢町4-12-1 茨城大学工学部都市システム工学科 TEL 0294-38-5163

合、温度履歴により、ベントナイトの交換性陽イオンが供試体周囲の水溶液中に溶出しやすくなるものと考えられる。一方、表2に示すCa型ベントナイトCの測定結果は、Na型ベントナイトAとは異なり、温度履歴を受けても、供試体周囲の陽イオン濃度には大きな差異は認められなかった。このことから、Na型ベントナイトAとCa型ベントナイトCにおける温度履歴の影響は異なるものと考えられる。

図3は、ベントナイトAおよびCのメチレンブルー吸着量測定の結果を、加熱温度をパラメータに、加熱期間との関係において整理したものである。図3より、いずれのベントナイトにおいても、温度履歴によりメチレンブルー吸着量が低下することが分かる。温度履歴によりメチレンブルー吸着量が低下する要因には、ベントナイト中のモンモリロナイトの含有率の低下と、ベントナイト自体の陽イオンの吸着能力の低下が考えられる。そこでX線回折分析を行い、ベントナイト中のモンモリロナイトの状況を推察した。図4は、ベントナイトAおよびCのX線回折による温度履歴の影響を示したものである。この図より、Na型ベントナイトAは加熱温度130°C、365日の加熱期間とい

表2 Ca型ベントナイトCの膨潤圧・膨潤変形実験後の供試体周囲のNa<sup>+</sup>およびCa<sup>2+</sup>の濃度測定結果

実験区分	加熱温度(°C)	加熱期間(日)	Na <sup>+</sup> イオン(mol/m <sup>3</sup> )	Ca <sup>2+</sup> イオン(mol/m <sup>3</sup> )
膨潤圧実験	温度履歴なし		0.33~1.65	0.01~0.16
	130	28~120	0.20~0.46	0.00~0.14
鉛直圧1000kPaで変形可能	温度履歴なし		0.21~0.59	0.05~0.48
	90~130	28	0.03~1.27	0.01~0.45
	90~130	120	0.06~0.84	0.17~0.27
	130	365	0.50~0.78	0.12~0.25

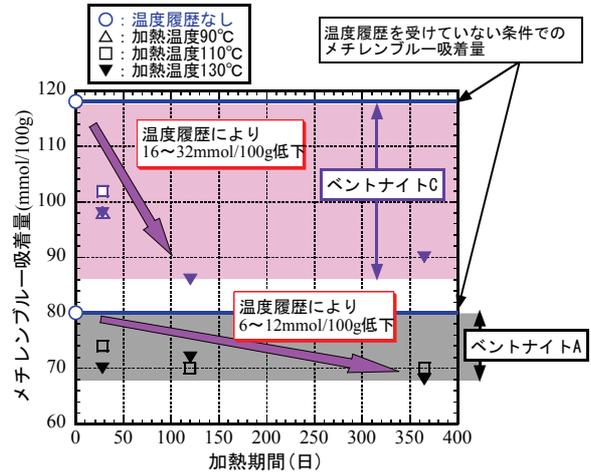


図3 ベントナイトA、Cのメチレンブルー吸着量測定結果

う温度履歴が付与されても、モンモリロナイトを示す1.24nmの結晶格子間距離に相当するピークがやや温度履歴により低下しているものの、その付近のパターンプロファイルの幅の変化はほとんどなく、鉱物組成に大きな変化はないものと推察される(図4左参照)。このことから、Na型ベントナイトAは温度履歴により鉱物的な変質を生じることなく、

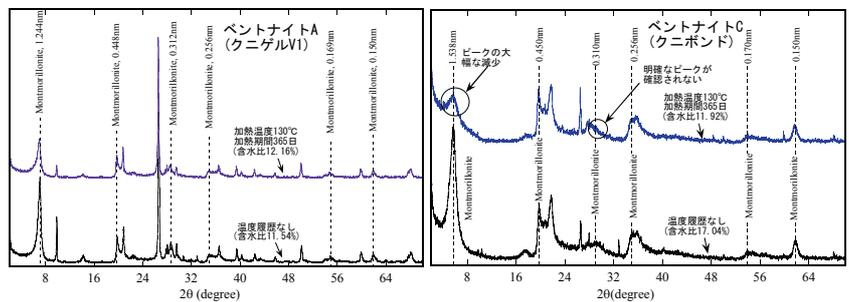


図4 温度履歴を受けたベントナイトAおよびCのX線回折パターン

く、ベントナイトA中のモンモリロナイト自身の陽イオンの吸着能力が低下したものと考えられる。一方、図4右に示すようにCa型ベントナイトCの場合は、加熱温度130°C、365日の加熱期間という温度履歴により、モンモリロナイトの存在を示すX線回折のピークがベントナイトAの場合と比べて大きく低下している。参考文献4)、5)によれば、Ca型ベントナイトは300°C程度の加熱温度、加熱時間1時間において、Ca<sup>2+</sup>およびMg<sup>2+</sup>イオンがモンモリロナイト結晶に固着され、陽イオン交換容量が低下すると考察している。本研究では、加熱期間がとても長い実験条件であったことから、比較的低い加熱温度条件においても、上述のような陽イオンのモンモリロナイト結晶層への固着現象がCa型ベントナイトCにおいて生じたものと考えられる。

参考文献

- 1) 小峯秀雄, 大橋良哉, 安原一哉, 村上哲: ベントナイトの膨潤圧・膨潤変形特性に及ぼす温度履歴の影響とその要因, 土木学会論文集C, Vol. 63, No. 3, pp. 731-741, 2007.
- 2) Komine, H. and Ogata, N.: Thermal Influence on compacted bentonite for nuclear waste disposal, Proceedings of the 3rd International Congress on Environmental Geotechnics, Vol. 1, pp.39-44, 1998.
- 3) 田中幸久, 中村邦彦: 海水の濃度と高温履歴がベントナイトの膨潤特性に及ぼす影響とその評価, 土木学会論文集, No.806/III-73, pp.93-111, 2005.
- 4) 鈴木啓三, 近藤三二, 堀籠良一: ベントナイトの加熱による交換性カチオンの固着, 第21回粘土科学討論会講演要旨集, p.18, 1977.
- 5) 近藤三二: ベントナイト関連製品の物性と応用, 粘土科学, Vol. 21, No. 1, pp.1-13, 1981.