

締固めたベントナイトの膨潤に関する一考察

電力中央研究所 正会員 ○渡邊保貴

茨城大学 正会員 小峯秀雄

1. はじめに

モンモリロナイトを主成分としたベントナイトは膨潤性に富む粘土である。ベントナイトの膨潤性の利用が検討されている事例として、放射性廃棄物処分における核種移行抑制を担う材料としての利用が挙げられる。例えば低レベル放射性廃棄物を対象とした余裕深度処分では、塑性限界より低い含水比の粒状ベントナイトを締固めて施工することが検討されている¹⁾。処分施設ではベントナイトが再冠水し、アルカリ環境や海水環境に長期間曝されることも想定される。土木工学の経験上、以上のようなベントナイトの利用事例はない。より安全に放射性廃棄物処分を実施するためには、ベントナイトの膨潤に対する理解を深め、それを評価に反映させることは重要である。そこで、本論文では、既往の代表的知見を参考に、締固めたベントナイトの膨潤に関する考察を行った。

2. ベントナイトの膨潤に関する一般的な解釈

吸水過程のベントナイトに観察される膨潤は、モンモリロナイトの結晶層間に水分子が侵入する現象として解釈される。図-1に示すようにモンモリロナイトは結晶層間に交換性陽イオンを保持する。層間のイオンが水和することや、層間水と自由水の間のイオン濃度差に起因する浸透圧により水分子が層間に侵入することにより、モンモリロナイトは膨潤する。後者の膨潤は拡散二重層理論により解釈されることが多く、すなわち、モンモリロナイト結晶を平行平板コンデンサーとみなし、それが接近することによる斥力と引力から反発力を考えるものである。Gouy-Chapman modelに基づき、粘土の表面電荷を陽イオン交換容量 CEC から与えると斥力 f_r と引力 f_a は次式のようになる^{2),3)}。

$$f_r = 2nkT(\cosh u - 1) \quad \dots(1), \quad f_a = \frac{A_h}{24} \left[\frac{1}{d^3} + \frac{1}{(d+t)^3} - \frac{2}{(d+t/2)^3} \right] \quad \dots(2), \quad u = 8 \tanh^{-1} \left[\exp(-\kappa d) \tanh\left(\frac{z}{4}\right) \right] \quad \dots(3)$$

$$\kappa = \sqrt{\frac{2nve^2}{\epsilon kT}} \quad \dots(4), \quad z = 2 \sinh^{-1} \left(96.5 \times \frac{CEC}{S} \sqrt{\frac{1}{8\epsilon n kT}} \right) \quad \dots(5), \quad d = \frac{\epsilon_{sw}^*}{100} \{t + R_{ion}\} + R_{ion} \quad \dots(6)$$

ここに、 n はイオン濃度、 k はボルツマン定数、 T は絶対温度、 ϵ は間隙水の誘電率、 e は電気素量、 S は比表面積、 t はモンモリロナイト結晶厚さ、 R_{ion} は非水和イオン半径である。 κ は粒子表面からの距離を無次元化するために導入されたパラメーターであり、その逆数は拡散二重層の厚さに概ね相当する。本来、拡散二重層理論は粒子が分散状態にあるほど適用性が高い。締固めたベントナイトに拡散二重層理論を適用する場合、拡散二重層理論の中で締固めたベントナイトの膨潤を特徴づけるファクターは結晶層間距離 d である。Komine and Ogata (2004)により提案されたモンモリロナイトの膨潤体積ひずみ ϵ_{sv}^* により⁴⁾、式(6)に示すようにベントナイトの膨潤と d が関係づけられ、拡散二重層理論に基づいてベントナイトの膨潤特性を評価することが可能となった。以上の理論体系は Na 型ベントナイトの膨潤が主に浸透圧起因で生じる場合に、計算結果が実験結果を精度良く表現するとされてきた⁴⁾。その一方で、締固めた粘土が応力除荷時に膨潤する現象は以前から認識されており⁵⁾、封入空気や土粒子骨格の弾性膨張などが原因と考えられる。締固めたベントナイトが不飽和状態にあるとき、田中(2011)は吸水によるサ

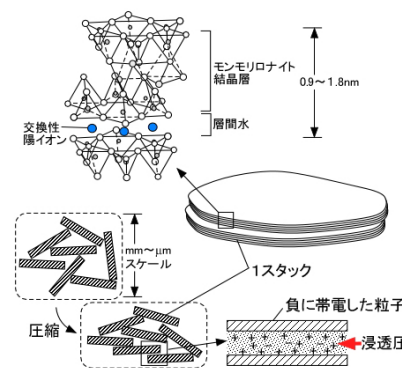


図-1 モンモリロナイトの結晶構造と圧縮の概念

キーワード ベントナイト, モンモリロナイト, 膨潤, 拡散二重層, アルカリ溶液

連絡先 〒270-1194 千葉県我孫子市我孫子 1646 TEL 04-7182-1181

クシオン消失が膨潤の一要因となる重要な指摘をしている⁶⁾。これより、締固めたベントナイトを弾塑性体として観察すれば、その膨潤は、弾性変形としての膨潤と水和や浸透圧に起因する膨潤が重ね合わせられた現象であると解釈するのが本質的であると考えられる。

3. 粒状ベントナイトの膨潤特性

締固めた粒状ベントナイトの膨潤特性について文献⁷⁾の実験結果を交えて考察する。前章において浸透圧とそれ以外の要因を区別することが重要であると考えられたため、ここでは、アルカリ溶液等を供給することによりイオン強度の高い条件におけるベントナイトの挙動を拡散二重層理論の観点から考察する。NaOH 溶液に約 10 日間浸漬した粒状ベントナイトの最大膨潤圧を図-2 に示す。また、浸透圧のみを考慮したときの計算結果を同図内に示した。NaOH 溶液の濃度が増加するほど膨潤圧は低下する傾向が認められる。計算結果では濃度 0.5 mol/L 以上では浸透圧がほとんど期待されないことから、1.0 mol/L の溶液を用いた実験で得られた膨潤圧は、主に飽和時の弾性膨張等による膨潤を示したものであると考えられる。NaOH 供給時に試料の初期含水比が低いほど高い最大膨潤圧であったことは、初期飽和度が低いほど土粒子骨格に起因する膨潤圧が顕著に生じることを示唆している。蒸留水供給時に対する各濃度の NaOH 溶液および NaCl 溶液供給時の最大膨潤圧の低下率を図-3 に示す。浸透圧のみを考慮した計算では、間隙水の濃度を 0.02 mol/L としたときの最大膨潤圧を基準に各低下率を算出しており、それは浸漬溶液の実測濃度が 0.02 ~ 0.05 mol/L であったことが根拠である³⁾。低密度かつ高濃度の条件ほど最大膨潤圧の低下率は大きいことがわかる。また、1.0 mol/L の NaOH 溶液と NaCl 溶液の比較からは pH が高い方が最大膨潤圧の低下が著しいことがわかる。浸透圧のみを考慮した計算結果からは、浸透圧に起因する最大膨潤圧の低下率は乾燥密度にほとんど依存していないことが特徴として挙げられる。実験では、高密度であるほど高い締固め圧力が作用していたことによる弾性膨張等の浸透圧以外の膨潤機構により、高い膨潤圧が測定されたことが、上記結果の違いに結びついたと推察される。

4. おわりに

ベントナイトの膨潤機構を浸透圧とそれ以外の要因を区別して考察することは重要である。しかし、拡散二重層理論に基づいた計算の精度を向上させる上では、イオンの電荷や寸法⁴⁾、間隙水の pH、締固めた粘土の骨格等の検討課題がある。実験においても反力枠の剛性に起因する実験精度の問題⁶⁾があり、精査されたデータと計算を比較する必要がある。最後に、本論文で使用したデータは元茨城大学大学院の杉浦航氏(パシフィックコンサルタンツ株式会社)の協力を得て入手したものである。ここに感謝の意を表します。

参考文献

- 1) 伊藤ら, 土木学会第 62 回年次学術講演会, CS5-001, 2006.
- 2) Van Olphen, H.: *An introduction to clay colloid chemistry*, 2nd Ed., Krieger, 1991.
- 3) Mitchell, J. K. (1993): *Fundamentals of soil behavior*, 2nd Ed., Wiley, New York, pp. 111-123.
- 4) Komine, H. and Ogata, N. (2004): Predicting swelling characteristics of bentonite, *Journal of Geotechnical and Geoenvironmental Engineering*, ASCE, pp. 818-829.
- 5) Yong, R. N. and Warkentin, B. P.: *Soil Properties and Behaviour*, Elsevier Scientific Publishing Company, 1975.
- 6) 田中幸久: ベントナイトの吸水膨潤モデルによる膨潤圧試験における試験条件の影響評価, 土木学会論文集 C, Vol. 67, No. 4, pp. 513-531, 2011.
- 7) Sugiura, K., Komine, H., Yasuhara, K. and Murakami, S.: Swelling characteristics of bentonites under high-alkali condition for radioactive waste disposal, *Proc. of 6th International Congress on Environmental Geotechnics*, pp. 479-484, 2010.

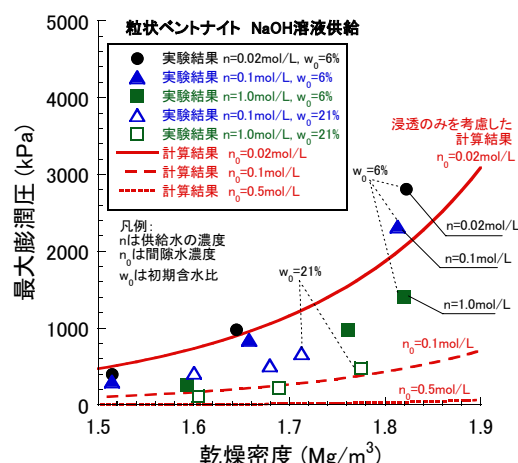


図-2 NaOH 溶液に浸漬した粒状ベントナイトの最大膨潤圧

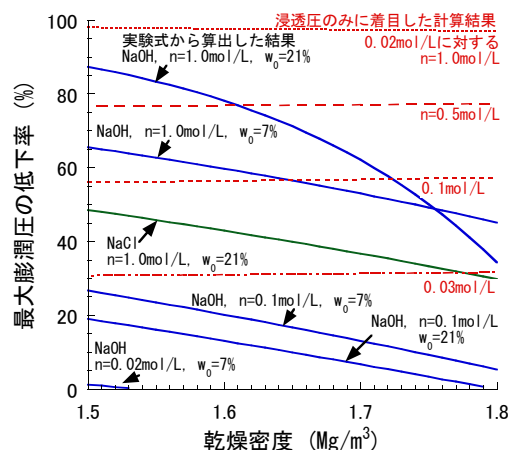


図-3 NaOH 溶液および NaCl 溶液に浸漬した粒状ベントナイトの最大膨潤圧の低下率