

ベントナイトの保水性およびモンモリロナイト底面距離に及ぼす温度履歴の影響

早稲田大学 学生会員 ○白河部 匠 正会員 小峯 秀雄
フェロー会員 後藤 茂 非会員 王 海龍
大林組 正会員 山本 修一

1. はじめに

放射性廃棄物の地層処分におけるベントナイト系緩衝材の機能低下に、高レベル放射性廃棄物からの崩壊熱による緩衝材に付与された熱履歴の影響が懸念されている。そこで、本研究では緩衝材の技術要件であるベントナイト系緩衝材による地下水の移行抑制性に及ぼす温度履歴の影響を評価する。本論文では、温度履歴を付与したベントナイトの保水性について、蒸気圧法およびサイクロメーター法を用いて調査を行った。また、蒸気圧法によって、含水比を調整したベントナイトの XRD 試験を行うことで、モンモリロナイトの底面距離が算出できるため、含水比と底面距離の関係を調査した。保水性試験の結果では、温度履歴の温度条件を 300℃にしたとき、保水性の低下が確認された。また、底面距離に関しても、300℃の温度履歴を付与することで、底面距離が大きくなることが分かった。

2. 試料の準備方法および試験方法

本研究では、表 1 に基本的性質を示したクニミネ工業製の Na 型ベントナイト、クニゲル V1（以後、KV1 と示す。）を使用し、KV1 に対して、所定の温度および期間に設定した乾燥炉を用いて温度履歴を与えた。本研究では、温度条件を 60℃、110℃、130℃、200℃および 300℃に設定し、履歴時間を 30 日間とした。これらの試料の水分特性曲線を取得するため、表 2 に示す 11 種類の塩を用いて、KV1 を蒸気圧法により養生した。これらの化学ポテンシャルを図 1 に示す METER 社製の水分ポテンシャル測定装置 WP4C で測定した。試料は粉体状で測定し、ポテンシャル測定範囲は-0.1～-300MPa である。また、この装置ではマトリックポテンシャル、浸透ポテンシャルおよび重力ポテンシャルなどの合計値である化学ポテンシャルを測定する。化学ポテンシャルの測定に加えて、養生したベントナイト中の水分形態について調査するため、表 3 の測定条件のもと、Rigaku 製の RINT-UltimaIII を用いて XRD 試験を実施した。

3. 試験結果

本試験で測定した水分特性曲線を図 2 に示し、蒸気圧法によって、同じ塩で養生した V1 の温度履歴の温度と含水比の関係を図 3 に示す。図 2 より、温度履歴を付与したベントナイトは、水分特性曲線が下がっていることが確認されており、特に 300℃の温度履歴を付与した V1 でその傾向が大きい。また、本試験では含水比調整に一定のポテンシャルを持つ塩を使用したことから、図 3 より、温度履歴の温度条件が高いほど含水比が低下していることが確認された。含水比の低下は 200℃以下の温度履歴では低含水比の時ほど顕著に表れており、300℃の温度履歴では、本試験で実施した 11 種の塩における養生において含水比の低下が生じる

表 1 V1 の基本的性質	
タイプ	Na 型
土粒子密度	2.76
液性限界	504.8
塑性限界	44.8
モンモリロナイト含有率	54.4
CEC (meq/100g)	54.9

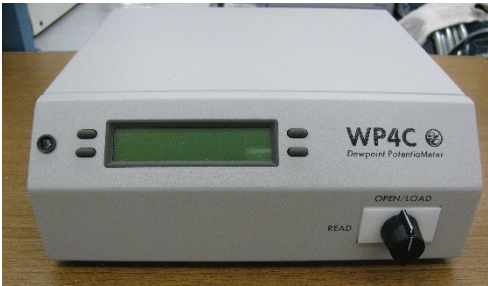


図 1 水分ポテンシャル測定装置 WP4C

表 2 蒸気圧法で用いた飽和塩	
塩の種類	ポテンシャル値 (MPa)
K ₂ SO ₄	-2.83
KNO ₃	-6.94
NH ₄ H ₂ PO ₄	-9.80
KCL	-21.9
NaCL	-39.0
NaBr	-71.0
Mg(NO ₃) ₂ ・6H ₂ O	-83.4
NaCr ₂ O ₇ ・2H ₂ O	-87.3
K ₂ CO ₃ ・2H ₂ O	-115
MgCL・6H ₂ O	-148
LiCL	-296

表 3 XRD の測定条件	
光学系	集中法
測定範囲	5° ～60°
ステップ	0.02°
スキャンスピード	10° /min
発散スリット	2/3°
散乱スリット	8.00mm
受光スリット	13.00mm

キーワード ベントナイト, 温度履歴, 保水性試験, 底面距離

連絡先 〒165-8555 東京都新宿区大久保 3-4-1 58-203 早稲田大学理工学術院 TEL 03-5286-2940

ことが分かった。これらの結果は鈴木ら¹⁾の研究で得られたサクシジョンの温度依存性と同様の傾向である。ベントナイトの保水性は、モンモリロナイトの2:1型層状ケイ酸塩の構造によるポテンシャルが大きく寄与している。そこで、層間に含まれる陽イオンの水和エネルギーによる駆動力が変化することで、水分特性曲線に変化が生じたと考え、XRDによる底面距離の測定を行い、含水比に対する膨潤層の変化を測定する。ここで、図4に温度履歴を付与していないベントナイトのXRD試験の結果を示し、XRDの結果から分かるモンモリロナイトの第1ピークより算出した底面距離を図5に示す。底面距離は、図5に示すモンモリロナイト粒子の間隔のことで、モンモリロナイトの骨格である2:1層を変化させずに、層間陽イオンの水和エネルギーによって水分子が侵入することで変化する。図5より、含水比が増加するにつれて、底面距離がおよそ10Å, 12.5Å, 15.5Åと変化していることが確認された。これらは、既往の研究²⁾から、それぞれ水分子が0層, 1層, 2層と変化することで生じることが確認されている。また、温度履歴による差異としては、今回同じ塩を用いて養生したにも関わらず、300℃-30日間の温度履歴を付与したV1のみ水分子0層の底面距離が確認された。また、水分子2層の時、300℃-30日間の試料のみ、温度履歴なし、および他の温度履歴を付与したベントナイトより少し高くなっていることが確認された。

4. まとめ

本試験では、温度履歴を付与したベントナイトの保水性試験および底面距離の測定を実施することで、温度履歴の影響を調査した。その結果、低含水比の時と300℃-30日間の温度履歴において保水性の低下が確認された。また、底面距離においては、300℃-30日間の温度履歴の時のみ差異が生じることが分かった。本試験の結果から、300℃

-30日間の温度履歴では保水性の低下および底面距離の増大から、モンモリロナイトの水分子を吸着する性能が低下していることが考えられる。そこで、CECを用いた交換陽イオンの測定および更に高温の温度履歴による影響を調査する必要がある。

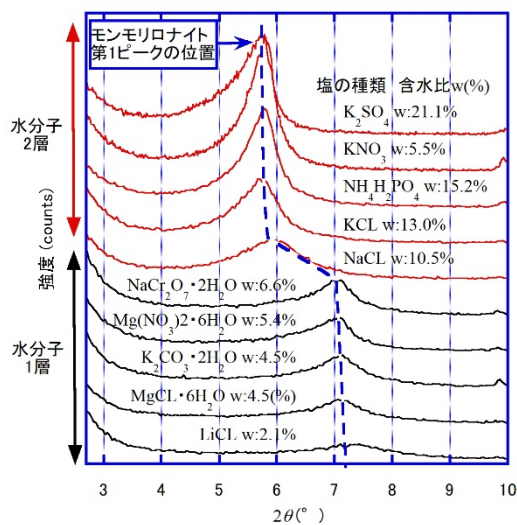


図4 V1のXRD試験結果(2.7° ~10°)

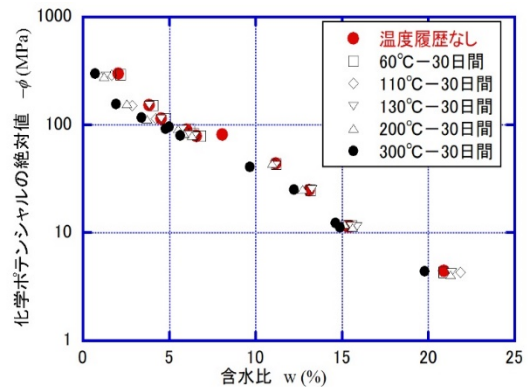


図2 含水比と化学ポテンシャルの関係

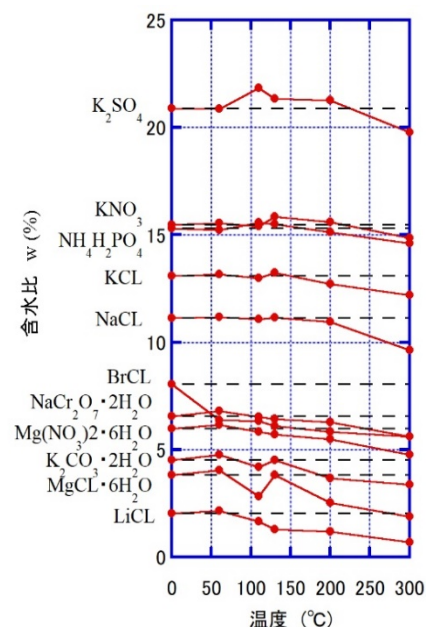


図3 同じ塩で養生したV1の温度履歴の温度条件と含水比の関係

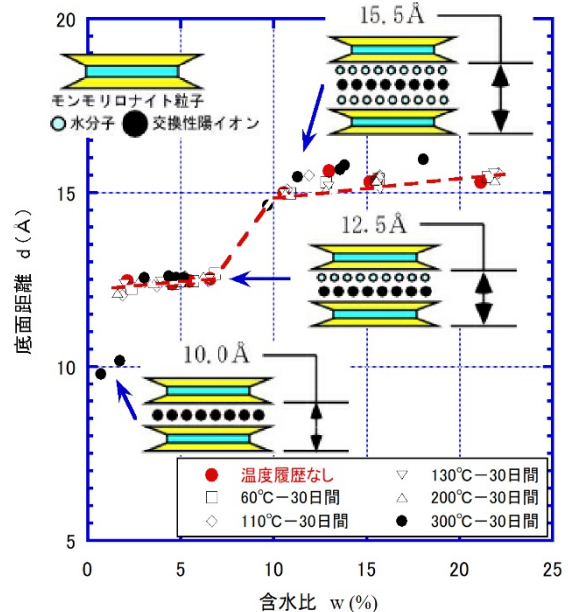


図5 含水比と底面距離の関係

参考文献 1) 鈴木英明, 藤田朝雄: 緩衝材の不飽和水利特性 (試験報告), JNC TN8400 99-010, 1999.09. 2) 佐藤努: 緩衝材候補材料としてのベントナイトの多様性と変化性, 日本原子力学会誌, Vol.36, No.5, pp.405-412, 1994.