

モンモリロナイト底面間隔から見た
ベントナイト原鉱石の膨潤圧における膠結作用の影響評価

早稲田大学 学生会員 ○伊藤大知
早稲田大学 正会員 小峯秀雄, 王海龍
早稲田大学 フェロー会員 後藤茂

1. はじめに

高レベル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は数万年と
いった長期間、自己シール性等の性能を発揮することが求められる¹⁾。緩衝材は
地下 300m 以深において長期的な膠結作用を受けて固結し、要求性能に係る膨潤
特性等の物理特性が変化する可能性が考えられる。著者らはベントナイト原鉱
石を固結した緩衝材のナチュラルアナログ²⁾として、物理特性から膠結作用を受
けた場合の要求性能の経年変化について評価してきた³⁾。本論文では、不攪乱供
試体と再構成供試体に対して、多リング式モールドを活用して膨潤圧測定前後
に X 線回折 (XRD) を実施し、膨潤圧とモンモリロナイトの底面間隔 (図 1 参
照) から、膨潤圧特性に対する膠結作用の影響に関して考察を行った。

2. 使用した原鉱石の概要および供試体の作製方法

クニゲル V1 (クニミネ工業株式会社製) の産地である、山形県月布鉱山 29
番層産の Na 型ベントナイト原鉱石を用いた。地質学的検討⁵⁾により、地質年代
は約 1000 万年程度で続成作用により生成したと考えられる。また、不攪乱供試
体はカッターリング、直ナイフ等の器具を用いて、直径 28 mm, 高さ 4 mm,
6 mm の円柱形に成形した。再構成供試体は破碎により粒径 0.425 mm 以下
となった粉末試料に対して静的荷重を加えることで締固め、作製した。

3. 実施した実験の概要

本研究では、図 2 に示す膨潤圧測定装置と多リング式モールドを活用し、
膨潤圧測定前後の供試体に対して XRD 分析を行った。本装置では、供試
体の吸水膨潤に対して側方は SUS303 製リング (内径 28 mm, 外径 38 mm,
厚さ 2 mm) により拘束し、鉛直方向は装置下部の全ねじを締めて約 250
kPa の圧力を作用させることで供試体下端と底板を確実に接触させ、装置
上部も 4 か所ネジを締めることで拘束した。供試体の XRD 測定方法は
Wang et.al⁶⁾を参考とした。厚さ 2 mm の SUS303 製リングを 2~3 枚重ね、
リング間に厚さ 0.30 mm の 2 枚組リングを挟んでモールドを構成した。2
の方法により作製した不攪乱供試体と再構成供試体をモールド内に挿入し、
表 2 の条件で XRD によるモンモリロナイト底面間隔 (d_{001}) を測定した。XRD
測定後、装置を組み立て蒸留水の供給と膨潤圧の測定を開始した。所定の期
間膨潤圧の測定を行った後、装置を解体して 2 枚組リングを取り除き、厚さ
0.20~0.25 mm の糸鋸で供試体を厚さ 2 mm ずつに切断した。切断後の供試
体は XRD 測定までパラフィルムにより密閉し、水分の蒸発を防いだ。その後、表 2 の条件で XRD により d_{001} の測
定を行い、含水比を測定した。なお、XRD の測定には RINT-UltimaIII (Rigaku 製) を用いた。

キーワード 地層処分, ベントナイト, 膨潤, 膠結作用
連絡先 〒169-8555 東京都新宿区大久保 3-4-1 T E L 03-5286-2940

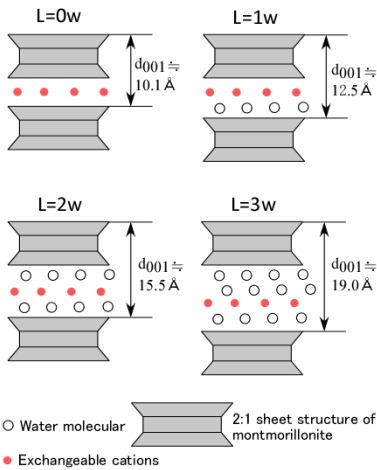


図 1 水分子存在数とモンモリ
ロナイトの底面間隔の関係⁴⁾

表 1 使用した原鉱石の基本的性質

土粒子の密度(Mg/m ³)	2.77
液性限界 (%)	419.1
塑性限界 (%)	29.2
塑性指数	389.9
モンモリロナイト 含有率 (%)	44.7
膨潤力 (ml/2 g)	12
CEC (cmol/kg)	39.3
EXC (Na ⁺) (cmol/kg)	42.5
EXC (Ca ²⁺) (cmol/kg)	10.2
EXC (Mg ²⁺) (cmol/kg)	0.8
EXC (K ⁺) (cmol/kg)	定量下限値 (0.8)以下

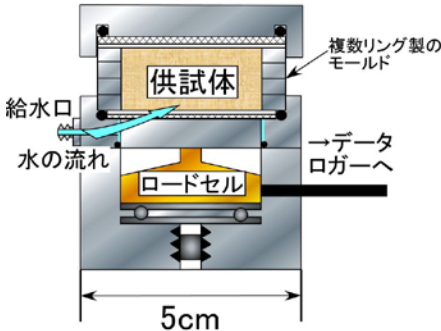


図 2 膨潤圧測定装置の概略図

4. ペントナイト原鉱石の膨潤圧およびモンモリロナイト底面間隔の測定結果

図3に不攪乱供試体と再構成供試体の供試体乾燥密度と最大膨潤圧の関係を示す。不攪乱供試体の最大膨潤圧は同程度の乾燥密度の再構成供試体の約1/2程度にとどまっており、膠結作用の影響により、再構成供試体に比べて膨潤圧が低下する³⁾ことが分かった。

図4、図5に、不攪乱供試体と再構成供試体の膨潤圧測定実験前後のXRD測定結果を示す。不攪乱供試体では実験前(含水比 $w=11.9\%$)のモンモリロナイトピークは 5.8° に存在し、結晶層間に水分子(直径 $2.8\text{\AA}$ ⁷⁾)が2列存在する底面間隔($d_{001}=15.5\text{\AA}$, 図1参照)に相当する。実験後は給水面に近い部分($w=20.2\%$)および上面($w=16.1\%$)で 4.7° に存在し、水分子3列の底面間隔($d_{001}=19.0\text{\AA}$)である。再構成供試体では実験前($w=10.7\%$)は 5.8° (水分子2列)であり、実験後は給水面側($w=18.1\%$)では 5.8° (水分子2列)、上面($w=13.8\%$)では 4.7° (水分子3列)である。故に、膨潤圧測定実験前後で吸水に伴いモンモリロナイト結晶層間に存在する水分子数が増加している。

図6、図7に含水比17.0%および18.8%の不攪乱供試体と再構成供試体のピーク曲線(最大ピーク値で正規化)を示す。再構成供試体では水分子3列の底面間隔が支配的であるのに対し、不攪乱供試体では水分子3列のピークの右肩部分(図中矢印)に水分子2列のピークが残存している。この結果から、同じ含水比において不攪乱供試体中のモンモリロナイト結晶層間に存在する水分子数が再構成供試体に比べて少ないと考えられる。不攪乱供試体では膠結作用によりモンモリロナイト結晶層間への水分子の侵入が阻害され、再構成供試体に比べて膨潤圧が低下したと推察する。

5. まとめ

乾燥密度 $1.7\sim 1.85\text{ Mg/m}^3$ の範囲において、不攪乱供試体の最大膨潤圧は再構成供試体の約1/2に留まった。同一の含水比において、不攪乱供試体では水分子2列分のピークが残存しており、不攪乱供試体の方が再構成供試体に比べてモンモリロナイト結晶層間中の水分子数が少ないことが示唆された。

謝辞: 本研究は平成31年度放射性廃棄物共通技術調査等事業(放射性廃棄物に係る重要な基礎的技術に関する研究調査の支援等に関する業務)の成果の一部である。ペントナイト原鉱石の入手には、クニミネ工業株式会社伊藤雅和氏、株式会社クニマインのご協力を得た。

参考文献: 1) 緒方信英, 小崎明郎, 植田浩義, 朝野英一, 高尾肇: 高レベル放射性廃棄物処分の事業化技術, 一その4 人工バリアの設計と製作一, 原子力バックエンド研究, Vol.5, No.2, pp.103-121, 1999. 2) 鹿園直建: 放射性廃棄物の地層処分に対するシミュレーション研究とナチュラルアナログ研究の意義, 地質ニュース 499号, pp.13-22, 1996. 3) D. Ito, H. Komine, S. Morodome, T. Sekiguchi, G. Miura, Evaluating influence of cementation in bentonite buffer material based on the swelling properties of bentonite ore, Proceedings of the 8th International Congress on Environmental Geotechnics, Vol.3, pp.97-104, 2018. 4) S. Morodome, K. Kawamura, Swelling behavior of Na- and Ca-montmorillonite up to 150°C by in situ X-ray diffraction experiments, Clays and clay minerals, Vol.57, No.2, pp.150-160, 2009. 5) 伊藤雅和, 石井卓, 中島均, 平田征弥: ペントナイトの成因・生成環境に関する一考察, 粘土科学第38巻第3号, pp.181-187, 1999. 6) H. Wang, T. Shirakawabe, H. Komine, D. Ito, T. Gotoh, Y. Ichikawa, Q. Chen, Movement of water in compacted bentonite and its relation with swelling pressure, Canadian Geotechnical Journal, doi:10.1139/cgj-2019-0219, 2019. 7) 上平恒: 水の物性と構造, 化学と教育, 43巻8号, pp.494-500, 1995.

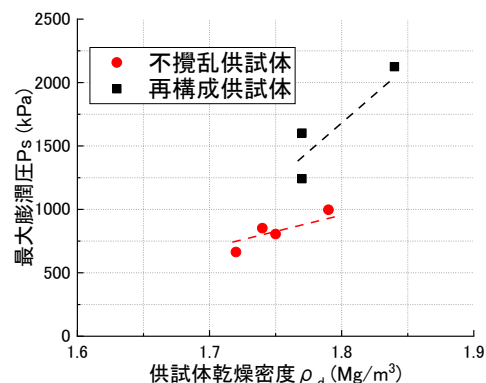


図3 乾燥密度と最大膨潤圧の関係

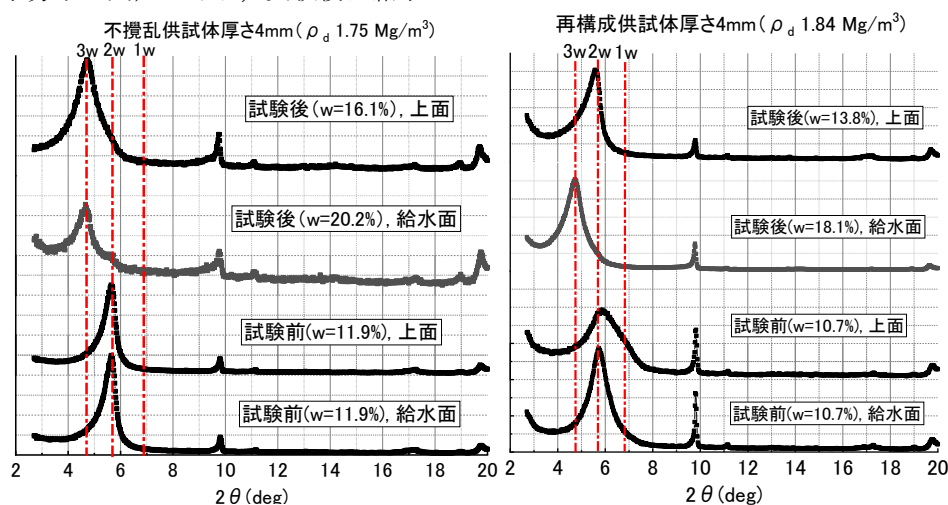


図4 不攪乱供試体の膨潤圧測定実験前後のXRD結果

図5 再構成供試体の膨潤圧測定実験前後のXRD結果

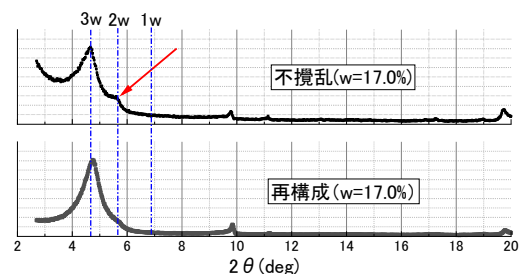


図6 含水比17.0%のピーク形状

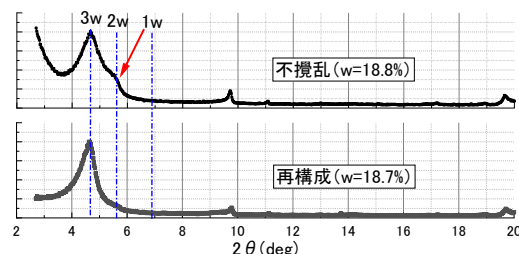


図7 含水比18.8%のピーク形状