

モンモリロナイトベントナイトの不飽和浸透挙動に関する実験的研究

岡山大学 学生会員 ○松井 大知
 岡山大学 正会員 木本 和志
 東京工業大学 非会員 河村 雄行

1. 序論

我が国では原子力発電関連施設から排出される高レベル放射性廃棄物を安全に処分する方法として地層処分が検討されている。地層処分において、地下水の浸透や放射性物質の流出を抑制する緩衝材としてベントナイトの使用が検討されている¹⁾。ベントナイトは定置後、地下水の浸透により、長い年月をかけて不飽和状態から飽和状態に遷移すると考えられ、この過程は再冠水過程と呼ばれる²⁾。既往の研究には、飽和ベントナイトの膨潤や透水試験が多い一方、不飽和状態から飽和状態に至る過渡的な浸透挙動はよく理解されていない。特に、分子スケールでのモンモリロナイトの水和挙動をふまえた不飽和浸透メカニズムや、飽和-不飽和領域がどのように形成、進展するかはよく知られていない。そこで本研究では、モンモリロナイトの不飽和浸透試験とX線回折試験を同時に行い、飽和-不飽和状態が混在する状況で、モンモリロナイト粘土中を水分がどのように浸透するかを明らかにする。

2. 不飽和浸透試験

供試体は、無水モンモリロナイト(クニピア F)と純水を混合し、円筒状の試験セル(写真-1)に封入して作製する。はじめに、試料を 110°C で 24 時間以上炉乾燥させた後、含水比 5% になるように純水と混合した。これを内径 11mm のポリカーボネートチューブに長さ 30mm、乾燥密度 1.0g/cm³ になるように充填した。試験中は、膨潤によって供試体の長さが変わらないように体積拘束した。浸透試験では、図-1 のように試験セルの一端で試料と重水を接触させ、他端は大気開放とした。

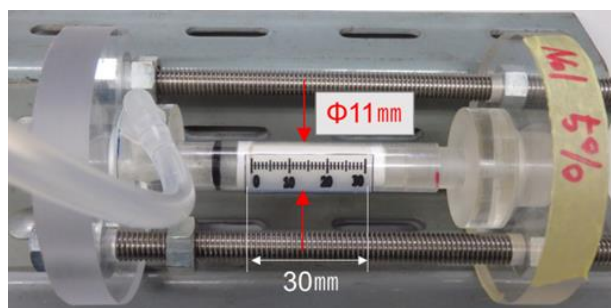


写真-1 試験セルの外観

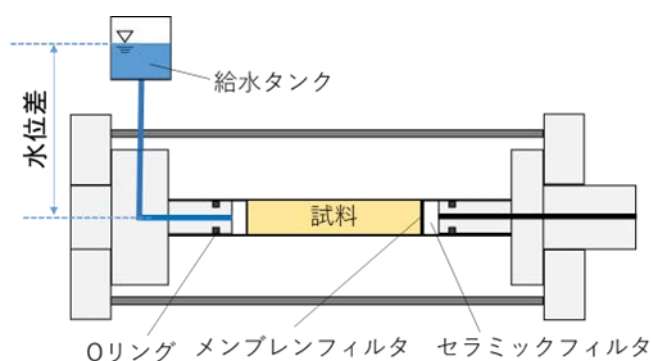


図-1 試験セルの構成と給水経路

3. X線回折試験

X線回折試験は試料を試験セルに入れた状態でを行い、MoK α 線を当てた。X線の幅制限スリットを用いて測定幅を2mmに設定し、測定位置は図-2の茶色に着色した8か所とした。X線回折試験では、積層した粘土分子で回折したX線強度を測定する。回折X線強度がピークとなる θ_p が得られれば、Braggの式

$$2d\sin\theta_p = \lambda \quad (1)$$

より、粘土分子の層間距離 d を求めることができる。なお、 λ はX線の波長を表す。

4. 層間距離の変化

図-3に回折ピークから求めた層間距離の経時変化を示す。 x は給水端からX線測定点までの距離を表している。

キーワード 地層処分, ベントナイト, モンモリロナイト, X線回折試験
 連絡先 〒700-8530 岡山県岡山市北区津島中 3-1-1 岡山大学環境理工学部棟
 TEL086-251-8801

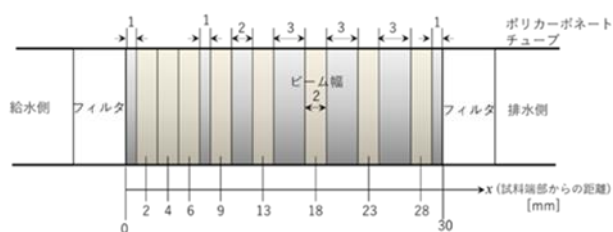


図-2 X線測定位置

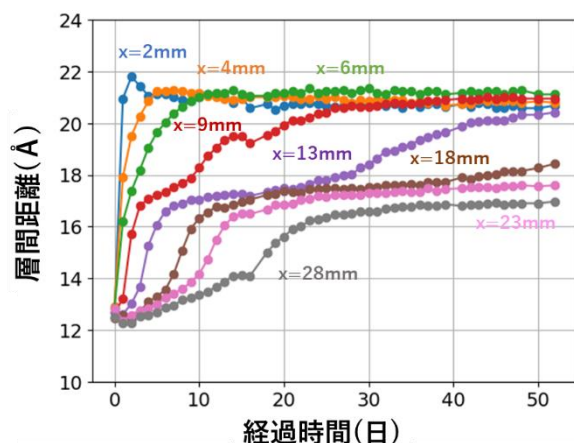


図-3 X線回折試験で得られた層間距離の時間変化

実験開始時には、層間距離 $12.5\text{\AA}$ で、ほぼ均一な一層膨潤にある。 $x=2\sim 13\text{mm}$ の観測点では試験終了時には $21\text{\AA}$ と4層膨潤状態に達している。外部(層外)間隙に水塊が到達していれば3分子層以上の膨潤状態になると考えられることから、液体の状態で水分が浸透する範囲は51日でおおよそ13mm程度と見積もられる。一方、1～2分子層膨潤状態にある排水側の概ね半分($x>15\text{mm}$)では、粘土の外部間隙に水塊が到達しなかったと考えられる。すなわち、今回の実験では、約50日の期間でも、3～4分子層膨潤状態(注水端)から2分子層膨潤状態(排水端)までが分布する不均質な状態となった。

5. 浸透速度の推定

浸透速度の推定結果を示す。図-4はX線回折試験で得た層間距離の時空間分布をカラーマップで示したものである。三層膨潤が観測されるのは、白の実線で挟まれた範囲であり、ここは、液体と水蒸気としての浸透形態が混在する。この領域の境界線だけを表示したのが図-5である。実線は、測定結果から推定した境界を表し、破線はべき関数での近似を表す。曲線の傾きは浸透形態が切り替わる位置の進展速度を意味し、どちらのケースも、進展速度は浸透につれて

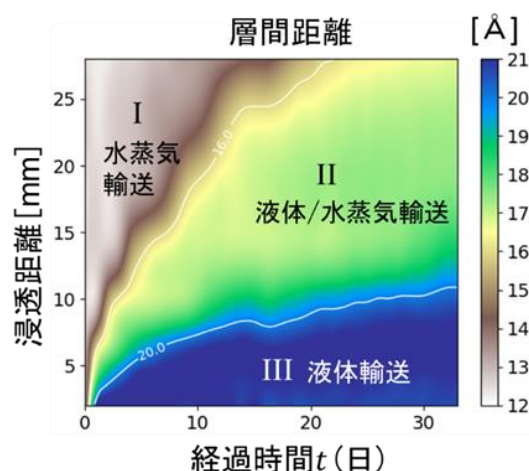


図-4 層間距離の時空間分布
(IIは概ね三層膨潤状態となる範囲を表す)

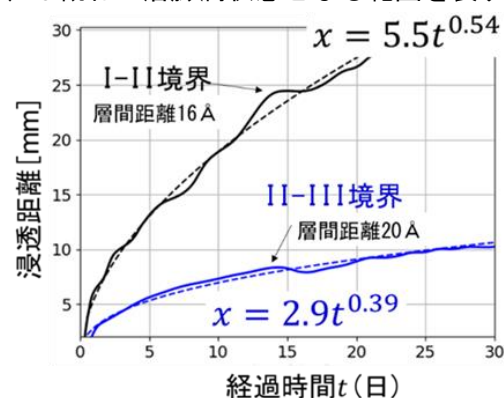


図-5 領域II境界位置の時間変化

低下する。べき関数の指数をみると、層間距離 $16\text{\AA}$ の位置は0.54、 $20\text{\AA}$ では0.39である。指数0.5は通常の拡散方程式に従う現象であることを意味し、指数0.39は通常より遅い拡散現象であることから、この違いは、両者が異なる拡散法則に従って進展することを示唆している。

6. まとめ

本研究では、モンモリロナイト供試体を使った不飽和浸透試験のX線回折試験による観察を行った。その結果、気液が混在して浸透する領域前後の境界が、異なる拡散法則に従って浸透する可能性があることが分かった。

参考文献

- 1) 原子力発電整備機構：”高レベル放射性廃棄物地層処分の技術と安全性”，NUMO-TR-04-01，2004
- 2) 動力炉・核燃料開発事業団：”再冠水に関する原位置試験研究”，PNC TJ1853 98-001，1998