

砂・ベントナイト混合材料および各種ベントナイトの膨潤特性

小峯秀雄¹・緒方信英²

¹正会員 工博 茨城大学助教授 工学部都市システム工学科(〒316-8511 茨城県日立市中成沢町4-12-1)

²正会員 工修 (財)電力中央研究所 地盤耐震部上席研究員(〒270-1194 千葉県我孫子市我孫子1646番地)

高レベル放射性廃棄物の地層処分において、処分孔や坑道を充填する緩衝材や埋戻し材には膨潤性や低透水性が要求されており、ベントナイトを用いた材料が有望である。本論文では、緩衝材や埋戻し材の設計に資するため、砂とベントナイトの配合割合が5~100%の砂・ベントナイト混合材料および海外産を含む4種類のベントナイトの膨潤圧および膨潤変形について実験的に調査した。その結果、膨潤特性に及ぼす砂・ベントナイトの配合割合、乾燥密度、モンモリロナイト含有率および交換性陽イオンの種類と組成の影響を明らかにした。また、著者らの提案するパラメータ「モンモリロナイトの膨潤体積ひずみ」により、ベントナイトの種類に応じて膨潤圧・膨潤変形特性を統一的に評価できることを示した。

Key Words : high-level radioactive waste disposal, bentonite, swelling, montmorillonite

1. はじめに

我が国ならびに欧米各国で考えられている高レベル放射性廃棄物の有力な処分方法は、地下数百mより深い地盤中に、収納容器に封入した廃棄物を埋設処分する方法である^{1), 2)}。図-1は、スウェーデンで検討されている高レベル放射性廃棄物の処分施設の概要の一例を示している³⁾。このような処分施設の建設に際し、廃棄物収納容器と周辺地盤との間を充填する材料が必要とされている。この材料は「緩衝材」と呼ばれており、長期間にわたり廃棄物を人間の生活圏から隔離する必要性や廃棄物から発生する熱の対策等から、非常に高い止水性や膨潤によるシール性、熱伝導性等が要求されている^{1), 2)}。ベントナイトは他の土質材料と比べ高い止水性や膨潤性を有することから、緩衝材としての利用が有望視されている。実際にはベントナイトのみで実施することは経済的ではないので、比較的安価な砂や現地発生土をベントナイトに混合して利用することが考えられている^{1), 2)}。また、ベントナイトは締固めて乾燥密度を高くすることにより、その止水性や膨潤性、熱伝導性はいっそう向上するので、実際の処分では高圧で締固め緩衝材として利用することが検討され

ている。緩衝材が非常に高い止水性や熱伝導性を保有するためには、1.6~2.0 Mg/m³程度の乾燥密度に締固める必要があると考えられている^{1)~3)}。したがって、現地における締固め転圧では、上記の乾燥密度を確保することは困難であり、現在のところ、工場においてブロック状に製作したものを処分孔ピットに搬入し設置する方法が有力と考えられている。このような緩衝材の製作・設置を想定した場合、緩衝材と周辺地盤や廃棄物収納容器との間に隙間が生じてしまう。この隙間が、そのまま残ってしまうと水みちとなる可能性が高い。そこで、緩衝材には膨潤変形により、この隙間部分を充填し、かつ十分な止水機能を有すること、すなわち自己シール性が期待されている。

一方、処分孔間を連結する処分坑道部においても、砂・ベントナイト混合材料の利用が有望視されている^{1), 2)}。この部分に用いられる材料は、「埋戻し材」と呼ばれ、先の緩衝材と比べてベントナイトの含有量が低い混合材料の利用が検討されている。埋戻し材には、処分坑道部を充填しトンネル周辺岩盤の緩み域の拡大や過度の変形を可能な限り防ぎ、かつ埋戻し部が水みちなどの水理的な弱点にならないようにする役割が期待されている^{1), 2)}。このような

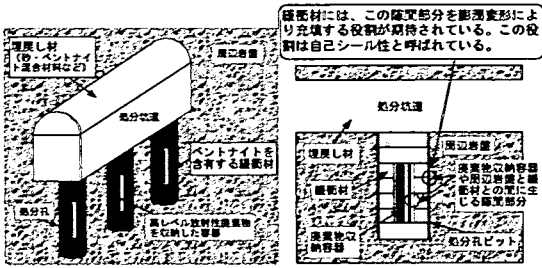


図-1 処分施設と自己シール性の概念

観点から、埋戻し材にも低透水性をはじめ、処分坑道内に有意な水みちを発生させずに低透水性をより向上させるための機能として膨潤性が要求されている。

このように、緩衝材や埋戻し材の膨潤特性は、高レベル放射性廃棄物の処分技術において重要な役割を期待されている。しかし、土質材料の膨潤現象には未解明な点が多く、上記の自己シール性や処分施設の力学的安定性を検討する上で、膨潤挙動に関する実験データを蓄積することが強く求められている。特に、砂・ベントナイトの配合割合、乾燥密度、ベントナイトの種類などの材料条件を種々変化させたときの膨潤挙動データは、緩衝材や埋戻し材の仕様設計において有用である。

本研究では、砂とベントナイトの配合割合が5~100%の砂・ベントナイト混合材料および海外産を含む4種類のベントナイトの膨潤圧および膨潤変形について実験的に調査し、緩衝材・埋戻し材の設計・製作に資するように実験データを整理する。また、上記の結果に基づき、膨潤特性に及ぼす砂・ベントナイトの配合割合、乾燥密度、モンモリロナイト含有率および交換性陽イオンの種類と組成の影響を明らかにする。さらに、著者らの提案するパラメータ「モンモリロナイトの膨潤体積ひずみ」により、様々な材料条件での緩衝材・埋戻し材の膨潤特性データが統一的に評価できることを示す。

2. 砂・ベントナイト混合材料の膨潤特性

ベントナイトを含有する緩衝材・埋戻し材の膨潤特性を把握するため、ベントナイトと砂を混合した試料を締固めて供試体を作製し、膨潤変形しないよう拘束した状態で鉛直方向の膨潤圧を測定する膨潤圧実験と、一定の鉛直圧下における一次元膨潤変形量を測定する膨潤変形実験の2種類を行った。本研究では、ベントナイト配合率が60%~100%の膨潤圧および膨潤変形に関する実験データを新たに取得

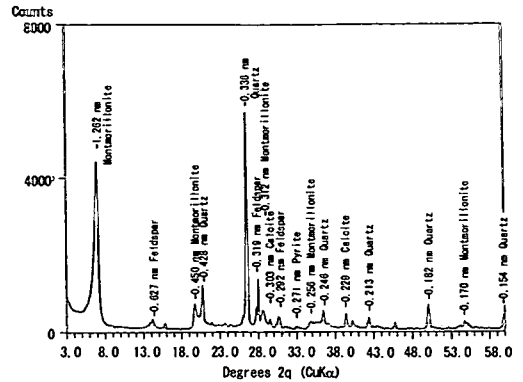


図-2 ベントナイトAのX線回折パターン

したので、それらを中心に論じるが、文献 4)~6)で発表してきた締固めたベントナイトおよびベントナイト配合率が5%, 10%, 20%, 30%, 50%の5種類の混合材料に関する実験データと併せて論じる。なお、ベントナイト配合率とは全試料の乾燥質量に対するベントナイトの乾燥質量の百分率である。ここで乾燥質量とは110℃の乾燥炉内に24時間投入した後の質量を言う。

(1) 試料

本実験で使用したベントナイトAは、山形県月布産のベントナイト(クニミネ工業製、クニゲルVI)である。このベントナイトは交換性陽イオンが主にNa⁺イオンのベントナイト、すなわちNa型ベントナイトであり、止水性、膨潤性に富むベントナイトである。日本の高レベル放射性廃棄物処分技術に関する研究・開発において、頻繁に実験等に利用されている材料である。図-2にX線回折法により得られたX線パターンを示す。この図から分かるように、ベントナイトAには膨潤性を有するモンモリロナイトが含有されており、それ以外に非膨潤性の鉱物である石英や長石等も含有している。表-1には、ベントナイトAの基本的な性質を示す。

モンモリロナイト含有率は、純モンモリロナイトのメチレンブルー吸着量(140 meq./100g)を基準に、ベントナイトAのメチレンブルー吸着量(67 meq./100g)から算出し48%とした。なお、メチレンブルー吸着量の測定は日本ベントナイト工業会標準試験方法により行った⁷⁾。各交換性陽イオン量は、1N酢酸アンモニウム(CH₃COONH₄)溶液を用いて抽出操作をし、プラズマ(ICP)発光分析装置により測定した⁸⁾。陽イオン交換容量は、Na, Ca, K, Mgの各交換性陽イオン量の総和とした⁸⁾。また、ベントナイトAは温度が22±1℃、相対湿度が70~80%となる室内で保存しており、このときの含水比は6.5

表-1 ベントナイトAの基本的性質

タイプ	Na型
土粒子の密度	2.79 Mg/m ³
液性限界	473.9 %
塑性限界	26.61 %
塑性指数	447.3
活性度	6.93
塑性比	16.81
粘土分(<2 μm)含有率	64.5 %
モンモリロナイト含有率 (メチレンブルー吸着量より計算)	48 %
陽イオン交換容量 (交換性 Na, Ca, K, Mg イオン量の総和)	0.732 meq./g
交換性 Na イオン量 (1N CH ₃ COONH ₄ 抽出法により測定)	0.405 meq./g
交換性 Ca イオン量 (1N CH ₃ COONH ₄ 抽出法により測定)	0.287 meq./g
交換性 K イオン量 (1N CH ₃ COONH ₄ 抽出法により測定)	0.009 meq./g
交換性 Mg イオン量 (1N CH ₃ COONH ₄ 抽出法により測定)	0.030 meq./g

～10.0%の範囲にあった。混合する砂には、三河珪砂6号(粒径：0.053～0.590mm，土粒子の密度：2.66 Mg/m³)を使用した。

(2) 供試体作製方法

本実験では、前節で述べた試料を用い、ベントナイト配合率が60%、70%、80%、90%の混合材料とベントナイト配合率100%に相当する締固めたベントナイトを作製し実験に供した。供試体は直径60mm，高さ5mmの円柱形である。ベントナイトは一般の粘性土と比べて透水性が低いので、吸水膨潤に時間を要すると考え、供試体高さを日本工業規格「土の段階載荷による圧密試験方法(案)(JIS A 1217:2000)」⁹⁾で用いられる供試体の高さ(=20mm)の1/4を採用した。供試体の作製には図-3に示す装置を使用し静的荷重による締固め方法を採用した。実際の緩衝材の製作においても高圧力で静的に締固めて作製すると考えられている^{1),2)}ので、上記の方法により供試体の作製を実施した。図-3の供試体作製装置は、締固め圧力載荷用のフレーム、試料を投入する内径60mm，高さ100mmの円筒形モールドおよびピストンから構成されている。ピストンの外径は、円筒形モールドの内径より0.05mm小さくしており、ピストンとモールドの間の摩擦は生じない。

供試体の作製手順は次の通りである。締固めた後に供試体高さが約5mmになるように所定質量の試料を、円筒形モールドに投入する。次に、2つのピス

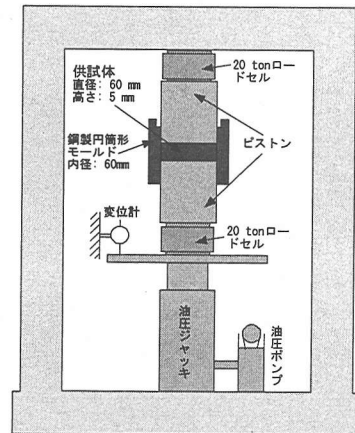


図-3 供試体作製装置

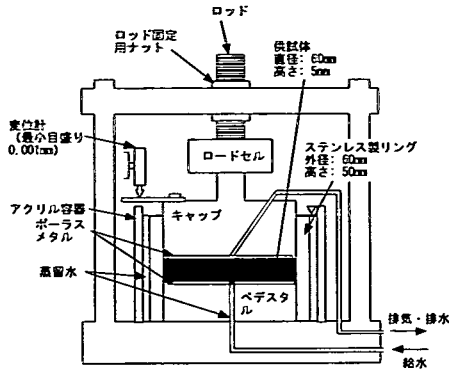
トンロードにより試料の上下端から2.0～51.0MPaの範囲の締固め圧力を作用させ15分間放置する。締固め圧力は、ピストン部に設置された2個のロードセルにより計測する。15分経過後、円筒形モールドから各実験で使用するステンレス製リング(後述の図-4(a), 6(a)を参照)に供試体を移動して、供試体作製・設置を完了する。

(3) 膨潤圧実験

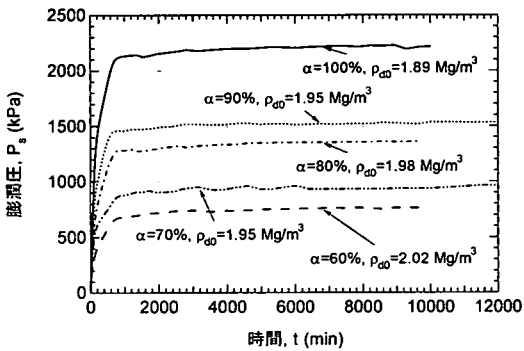
a) 実験装置および方法

図-4(a)に使用した装置の概要を示す。供試体は直径60mm，高さ5mmの円柱形である。本実験では、供試体の初期乾燥密度およびベントナイト配合率の違いによる膨潤圧の変化を調査するため、締固めの度合いと砂とベントナイトの配合割合を変化させた。本実験で用いた供試体の初期乾燥密度は1.43～2.03 Mg/m³の範囲で変化させた。

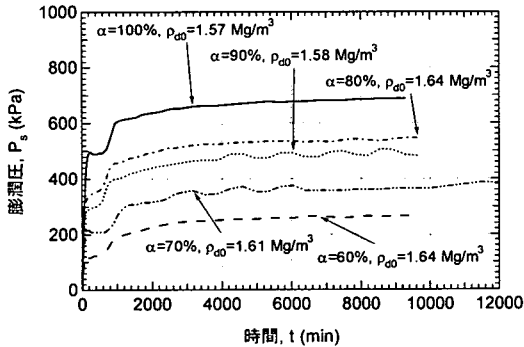
前節の手順により作製した供試体をステンレス製リングと一緒に、図-4(a)に示すペDESTAL部に設置しキャップを載せる。供試体とペDESTAL部およびキャップの間には、フィルター材として直径60mm，厚さ0.1mmの不織布と直径60mm，厚さ5mmのポーラスメタルを挿入した。初期鉛直圧はキャップを載せ固定する際に発生する鉛直圧であり、その値は19.5～39.0 kPaの範囲にあった。図-4(a)のように実験装置を組み立てた後、供試体下部から室温状態(22±1℃)の脱気した蒸留水を注水する。同時にアクリル製セル容器内にも室温状態の脱気した蒸留水を注水する。なお、セル容器内の脱気水の蒸発を防止するため、その水表面にケロシンを薄く張った。



(a) 膨潤圧実験装置



(b) $\rho_{d0}=1.89\sim 2.02 \text{ Mg/m}^3$

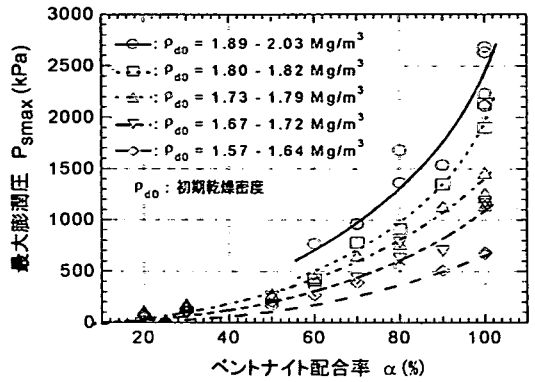


(c) $\rho_{d0}=1.57\sim 1.64 \text{ Mg/m}^3$

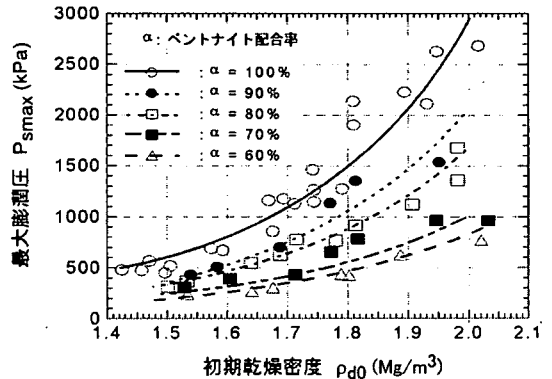
(α : ベントナイト配合率, ρ_{d0} : 初期乾燥密度)

図-4 膨潤圧とベントナイト配合率, 乾燥密度の関係

脱気した蒸留水を注水する直前から、供試体が発生する鉛直方向の膨潤圧をロードセルにより経時的に測定した。膨潤圧とは膨潤する土の体積変化を抑制するために必要な圧力のことであり、供試体の体積変化を全く生じさせない状態で測定しなければならない。しかし実際には、供試体を全く体積変化させない状態に保つことは非常に困難である。本実験装置においては、供試体は吸水しても鉛直方向に大きく膨潤変形しないよう鋼製フレームで拘束されて



(a) 最大膨潤圧とベントナイト配合率の関係



(b) 最大膨潤圧と初期乾燥密度の関係

図-5 最大膨潤圧とベントナイト配合率, 初期乾燥密度との関係

いる。この鋼製フレームは、3000 kPaの圧力を作用させたときの変位量は0.01mm以下であることが確認されている。また、図-4(a)に示すように、最小目盛り0.001mmまで測定可能な変位計をキャップ上部に取り付け、供試体の微小な鉛直変位量を測定し、その値から供試体の体積および初期乾燥密度の補正を行った。

膨潤圧の測定は脱気した蒸留水を注水する直前から膨潤圧がほぼ一定になるまで行った。実験終了後、供試体の含水比測定を行い、その値と土粒子の密度、水の密度、実験後の供試体の間隙比から飽和度を算出したところ、いずれの供試体も99~119%の値を示した。100%以上となっているのは、含水比測定の際、供試体表面に表面張力などにより薄い水膜が付着したためと考えられる。

b) 膨潤圧実験の結果

図-4(b), (c)に膨潤圧実験により得られた膨潤圧の経時変化曲線の代表的な例を示す。また、図-5に膨潤圧の最大値(以下、最大膨潤圧と記述する)とベントナイト配合率の関係、最大膨潤圧と初期乾燥密

度の関係を示す。これらの図には、文献4)~6)において既に報告してきた締固めたベントナイトとベントナイト配合率が5%, 10%, 20%, 30%, 50%の砂・ベントナイト混合材料の実験結果も合わせて表示している。

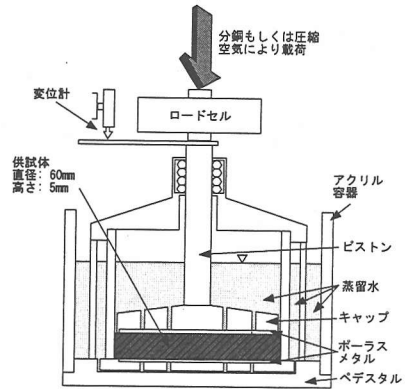
図-4(b), (c)から、ベントナイト配合率の増加および初期乾燥密度の増加に伴い、高い膨潤圧が発生することが分かる。膨潤圧は1000~2000分程度でおおよそ最大値に到達している。また、最大膨潤圧に至るまでに、2点において膨潤圧の増加過程に変化が認められる。このような膨潤圧の増加過程における2つの変化点は、締固めたベントナイトに関してPuschが行った実験¹⁰⁾や著者らが実施した実験⁵⁾においても観測されている。このような2つの変化点が観測される理由として、文献5), 6)において著者らは、供試体内部においてモンモリロナイトが膨潤変形し供試体中の空隙を充填する過程で生じると考察している。今回の結果も同様の理由によるものと考えられる。詳細は文献5), 6)を参照されたい。

今回、新たなデータを加えたことにより、最大膨潤圧とベントナイト配合率および初期乾燥密度の関係が、図-5に示すように広範囲に把握できた。なお図-5(b)では、初期乾燥密度を広範囲に変化させることのできたベントナイト配合率が60%以上のデータについて整理した。最大膨潤圧とベントナイト配合率の関係から、最大膨潤圧はベントナイト配合率の増加に伴い指数関数的に増加することが分かる。また、初期乾燥密度が大きいものほど、ベントナイト配合率の増加に伴う最大膨潤圧の増加率は大きいことが分かる。一方、最大膨潤圧と初期乾燥密度の関係においても、最大膨潤圧は初期乾燥密度の増加に伴い指数関数的に増加することが分かる。ベントナイト配合率が大きいものほど、初期乾燥密度の増加に伴う最大膨潤圧の増加率は大きくなること分かる。

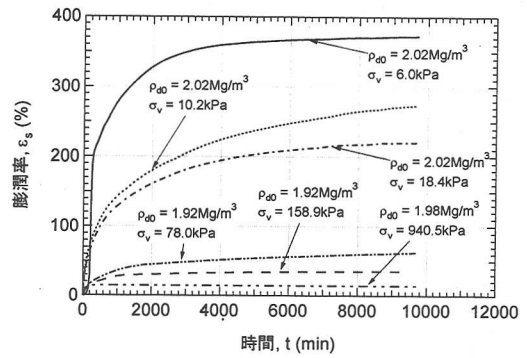
(4) 膨潤変形実験

a) 実験装置および方法

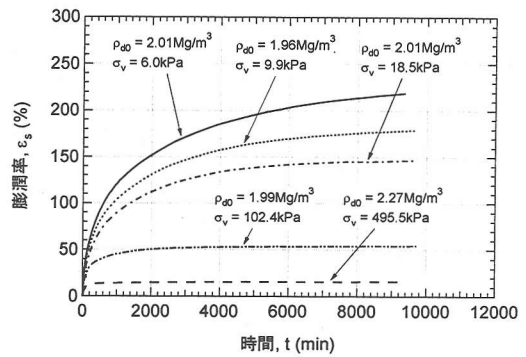
図-6(a)に使用した装置の概要を示す。供試体は、膨潤圧実験と同様、直径60mm、高さ5mmの円柱形である。本実験では、初期乾燥密度、ベントナイト配合率および鉛直圧の違いによる膨潤変形の変化を調査するため、締固めの度合いと砂とベントナイトの配合割合、作用させる鉛直圧を変化させた。本実験で用いた供試体の初期乾燥密度は1.19~2.27Mg/m³の範囲に、ベントナイト配合率は60~100%の範囲で変化させた。作用させる鉛直圧は、



(a) 膨潤変形実験装置



(b) α=100%



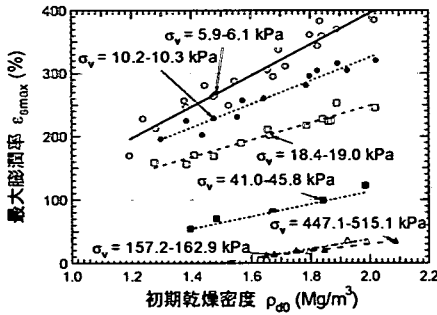
(c) α=60%

(ρ_{d0}: 初期乾燥密度, σ_v: 鉛直圧)

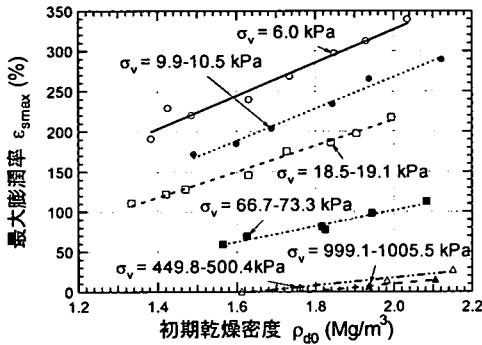
図-6 膨潤率とベントナイト配合率、初期乾燥密度の関係

各供試体とも膨潤圧実験で得られた最大膨潤圧以下に設定し、5.9~1005.5 kPaの範囲で変化させた。

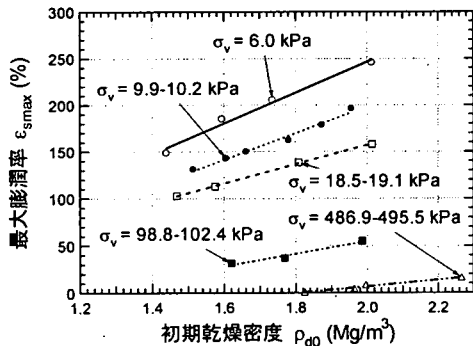
2.2の手順により作製した供試体をステンレス製リングと一緒に、図-6(a)に示すペDESTAL部に設置しキャップを載せる。供試体とペDESTAL部およびキャップの間には、フィルター材として直径60mm、厚さ0.1mmの不織布と直径60mm、厚さ5mm



(a) $\alpha=100\%$



(b) $\alpha=80\%$



(c) $\alpha=60\%$

(σ_v : 鉛直圧)

図-7 最大膨潤率と初期乾燥密度の関係

のポーラスメタルを挿入した。また、供試体の膨潤変形に伴い生じるであろう供試体とリングの間の摩擦を低減するためにシリコングリースをステンレス製リング内壁に塗布する。

図-6(a)に示すように所定の鉛直圧を供試体の上端に作用させた後、アクリル製セル容器内に室温状態 ($22 \pm 1^\circ\text{C}$) の脱気した蒸留水を注水する。その後、セル容器内の脱気水の蒸発を防止するため、その水表面にクロシンを薄く張った。

給水直前から供試体の一次元膨潤変形量 ΔS を経

時的に測定する。この一次元膨潤変形量 ΔS を供試体作製時の高さ H_0 で除し、百分率で表示したものを膨潤率 ε_s (%) と定義し、その時間変化を調べた。

$$\varepsilon_s = \frac{\Delta S}{H_0} \times 100 (\%) \quad (1)$$

なお、一次元膨潤変形量の測定は給水直前から開始し測定期間を7日間とした。実験終了後に、供試体の含水比測定を行い、その値と土粒子の密度、水の密度、実験後の供試体の間隙比から飽和度を算出したところ、いずれの供試体も98~124%の範囲にあった。100%以上が多い理由については、前述の膨潤圧実験の節で述べたとおりである。

b) 膨潤変形実験の結果

図-6(b), (c)に膨潤変形実験により得られた膨潤率の経時変化曲線の代表的な例を示す。これまで文献4)~6)で報告した実験結果と同様、今回得られた実験結果においても初期乾燥密度とベントナイト配合率が大きいものほど膨潤変形量は大きく、鉛直圧が小さいものほど大きく膨潤変形することが分かる。膨潤変形に及ぼす初期乾燥密度、ベントナイト配合率および鉛直圧の影響をより詳細に検討するため、以下に定義される最大膨潤率 ε_{smax} (%) により実験結果を整理した。最大膨潤率 ε_{smax} (%) とは、膨潤率の経時変化曲線に対して式(2)で表示される双曲線で近似し、その漸近線から式(3)により求められる^{4), 5)}。

$$\varepsilon_s(\text{time}) = \frac{\text{time}}{a + b \text{time}} (\%) \quad (2)$$

$$\varepsilon_{smax} = \lim_{\text{time} \rightarrow \infty} \varepsilon_s(\text{time}) = \frac{1}{b} (\%) \quad (3)$$

ここに、 time : 時間(min), $\varepsilon_s(\text{time})$: 時間 time における膨潤率(%), a, b : 近似により定められる定数
上記の方法により得られた最大膨潤率と初期乾燥密度の関係をベントナイト配合率ごとに示したものが図-7である。この図からベントナイト配合率および鉛直圧の違いによらず、最大膨潤率は初期乾燥密度に対して直線的に増加することが分かる。

表-2 各種ベントナイトの基本的性質

ベントナイト	B	C	D
タイプ	Na型	Ca型	Na交換型
土粒子の密度 (Mg/m ³)	2.84	2.71	2.68
液性限界 (%)	628.2	144.5	607.5
塑性限界 (%)	44.80	63.87	50.69
塑性指数	583.4	80.6	556.8
活性度	6.35	4.36	7.79
塑性比	13.02	1.26	10.98
粘土含有率 (%)	91.9	18.5	71.5
モンモリロナイト含有率 (%)	69	80	76
陽イオン交換容量 (meq/g)	1.007	0.796	1.035
交換性 Na イオン量 (meq/g)	0.566	0.119	0.620
交換性 Ca イオン量 (meq/g)	0.293	0.585	0.333
交換性 K イオン量 (meq/g)	0.016	0.019	0.019
交換性 Mg イオン量 (meq/g)	0.132	0.072	0.063

3. 各種ベントナイトの膨潤特性

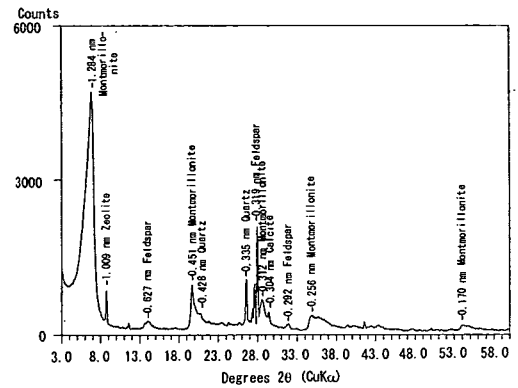
実際の処分場の操業開始は 2030 年代から遅くとも 2040 年代半ばを目途としている¹¹⁾。したがって、処分場操業開始時において、前章で用いたベントナイトが緩衝材や埋戻し材の材料として利用されることは限らない。経済性の観点から比較的安価で大量に供給が可能であれば、海外産のベントナイト等を利用することも考えられる。そこで、海外産ベントナイトや前章で用いたものと異なる性質のベントナイトの膨潤特性について調査しておくことも重要である。

本章では、海外産のベントナイト 1 種類と、国産のベントナイトで前章で用いたものと異なる性質を有するもの 2 種類に対して膨潤圧実験と膨潤変形実験を実施し、その特徴について述べる。

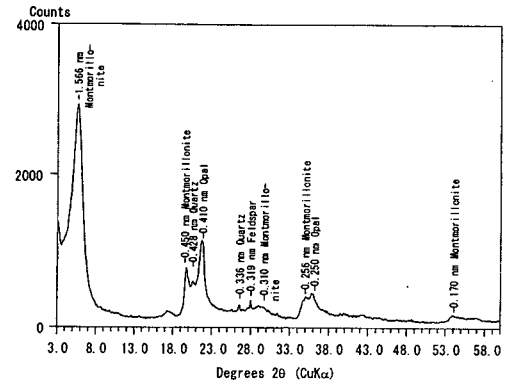
(1) 試料

使用したベントナイトは、アメリカ・ワイオミング産のベントナイト（日商岩井ベントナイト株式会社、ボルクレイ）および宮城県土浮山鉱床産のベントナイトであるクニボンド（クミネ工業製）と宮城県川崎町産のネオクニボンド（クミネ工業製）である。本章では、前章で用いたベントナイトの実験結果も比較して論じるので、以降、使用したベントナイトを以下のように記述する。すなわち、ベントナイト A（クミネ工業製、クニゲル VI）、ベントナイト B（日商岩井ベントナイト株式会社、ボルクレイ）、ベントナイト C（クミネ工業製、クニボンド）およびベントナイト D（クミネ工業製、ネオクニボンド）の 4 種類である。

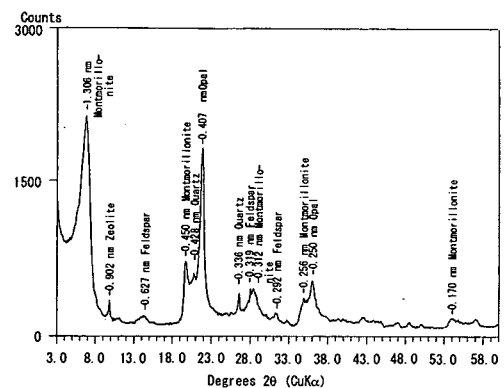
ベントナイト A については、2.1 で述べたものと



(a) ベントナイト B (ボルクレイ)



(b) ベントナイト C (クニボンド)



(c) ベントナイト D (ネオクニボンド)

図-8 各種ベントナイトの X 線回折パターン

同じである。ベントナイト B は交換性陽イオンが主に Na⁺イオンのベントナイト (Na 型ベントナイト) である。ベントナイト C は、交換性陽イオンが主に Ca²⁺イオンのベントナイト (Ca 型ベントナイト) である。ベントナイト D は Na 交換ベントナイトと呼ばれ、Ca 型ベントナイトに炭酸ナトリウムを加え、人工的に Na 型にしたベントナイトである。表-2 にベントナイト B~D の基本的な性質を

示す。交換性陽イオンの組成はベントナイトの膨潤特性に大きく影響し、一般に Na 型ベントナイト、Ca 型ベントナイトおよび Na 交換ベントナイトの 3 種類に大別されている¹²⁾。したがって、本実験において上記のベントナイトを試料として採用した。図-8 に各ベントナイトの X 線パターンを示す。モンモリロナイト含有率や各交換性陽イオン量の測定方法は 2.1 に述べた通りである。使用したベントナイトは温度が $22\pm 1^\circ\text{C}$ 、相対湿度が 70~80%となる室内で保存しており、このときの含水比はそれぞれ、ベントナイト B が 11.1~15.1%の範囲に、ベントナイト C が 15.0~17.2%の範囲に、ベントナイト D が 11.3~12.3%の範囲にあった。

(2) 供試体作製方法

供試体の作製方法は、2.(2)と同様である。なお、締固め圧力は 3.0~51.0 MPa の範囲で実施した。この締固め圧力の範囲において、ベントナイト B の初期乾燥密度は膨潤圧実験の供試体では $1.40\sim 1.81\text{ Mg/m}^3$ の範囲に、膨潤変形実験の供試体では $1.27\sim 2.01\text{ Mg/m}^3$ の範囲にあった。ベントナイト C の膨潤圧実験供試体では、 $1.00\sim 1.44\text{ Mg/m}^3$ の範囲に、膨潤変形実験の供試体では $0.93\sim 1.61\text{ Mg/m}^3$ の範囲にあった。ベントナイト D では、膨潤圧実験供試体の初期乾燥密度は $1.08\sim 1.52\text{ Mg/m}^3$ の範囲に、膨潤変形実験の供試体では $0.99\sim 1.69\text{ Mg/m}^3$ の範囲にあった。文献 12)において、著者らは使用した各種ベントナイトの締固め特性について調査し報告している。それによるとベントナイト C および D の最大乾燥密度は他の 2 種類と比べて小さい値となっており、比較的締め固めにくい材料と考えられる。

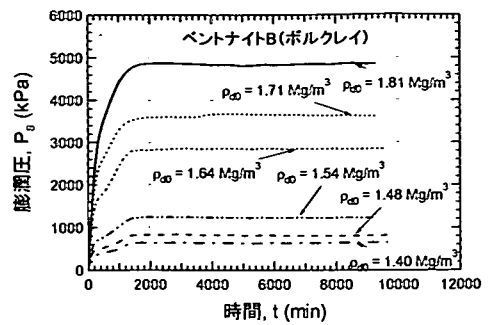
(3) 膨潤圧実験

a) 実験装置および方法

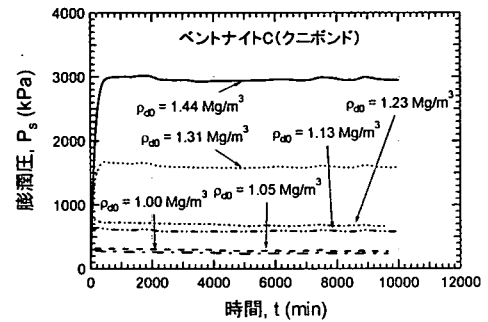
実験方法は 2.(3)a)で述べた方法と同様である。実験終了後に測定した供試体の含水比と土粒子の密度、水の密度、実験後の供試体の間隙比から飽和度を算出したところ、いずれの供試体も 99~125%の値を示した。これは含水比測定の際に供試体表面に表面張力などにより薄い水膜が付着したためと考えられる。

b) 膨潤圧実験の結果

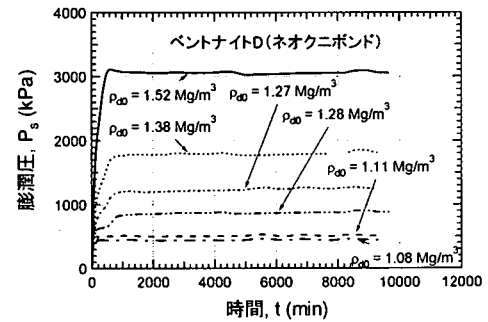
図-4(b), (c)の $\alpha=100\%$ の結果がベントナイト A の膨潤圧の経時変化曲線に相当する。また図-9(a)~(c)はベントナイト B, C, D の膨潤圧の経時変化曲線の例である。図-10 に最大膨潤圧と初期乾燥密度の関係をベントナイトの種類ごとに示す。これらの図



(a) ベントナイト B



(b) ベントナイト C



(c) ベントナイト D

(ρ_{d0} : 初期乾燥密度)

図-9 各種ベントナイトの膨潤圧の時間変化

から、同じ初期乾燥密度で比較した場合、ベントナイト C および D は、他のベントナイトと比べて大きい膨潤圧を発生することが分かる。一般に Ca 型のベントナイトは Na 型のベントナイトと比較して膨潤性が低いとされている¹³⁾。しかし、今回の実験結果では Ca 型ベントナイトであるベントナイト Cの方が Na 型ベントナイトであるベントナイト A, B よりも高い膨潤圧を発生した。表-2 に示すように、ベントナイト C, D のモンモリロナイト含有率は 80%程度と他の 2 種類と比べて大きいことから、この高いモンモリロナイト含有率に起因して高い膨潤圧を発生したものと考えられる。今回の結果

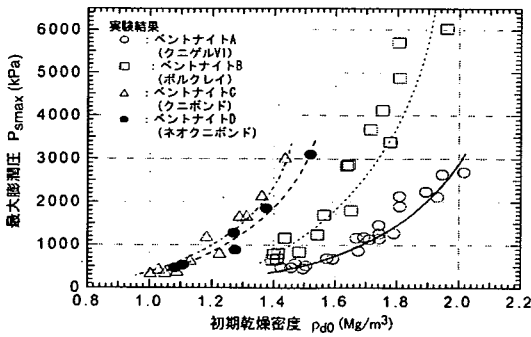


図-10 各種ベントナイトの最大膨潤圧と初期乾燥密度との関係

から、最大膨潤圧に対しては交換性陽イオンの種類・組成よりもベントナイトのモンモリロナイト含有率の方が大きく影響するものと考えられる。Pusch が実施した実験においても乾燥密度が高いときには Ca 型ベントナイトの方が Na 型ベントナイトよりも高い膨潤圧を発生することが報告されている^{14), 15)}。本実験の結果は、Pusch の報告と整合するものと思われる。

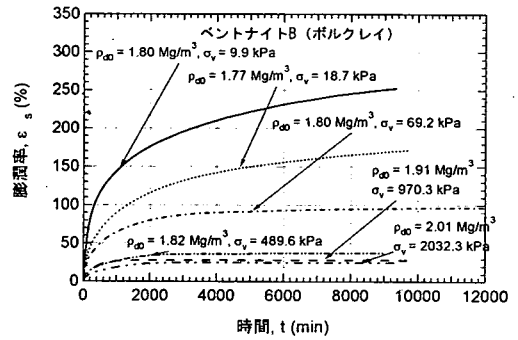
(4) 膨潤変形実験

a) 実験装置および方法

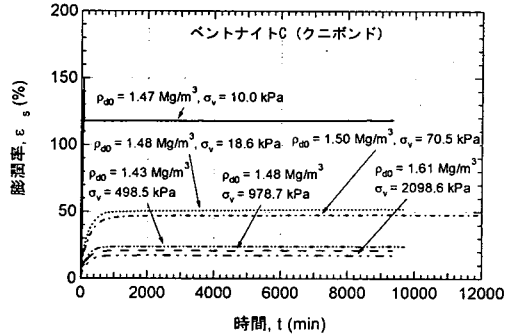
実験には図-6(a)に示した装置を使用した。実験方法は 2.(4)a)で述べた方法と同様である。実験終了後に測定した供試体の含水比と土粒子の密度、水の密度、実験後の供試体の間隙比から飽和度を算出したところ、いずれの供試体も 98~124%の値を示した。

b) 膨潤変形実験の結果

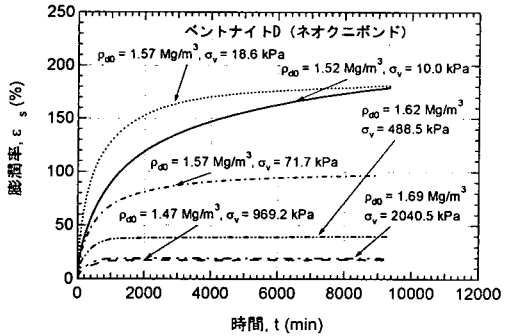
先に示した図-6(b)がベントナイト A の膨潤変形の経時変化曲線である。図-11(a)~(c)はベントナイト B, C, D の膨潤変形の経時変化曲線である。また、図-7(a)はベントナイト A の最大膨潤率と初期乾燥密度の関係を、図-12(a)~(c)はベントナイト B, C, D における同様の関係を示す。これらの図から、Ca 型ベントナイトであるベントナイト C の最大膨潤率が、他の 3 種類と比べて著しく小さいことが分かる。また、Na 型ベントナイトであるベントナイト A, B, D においては、表-1、表-2 に示すようにモンモリロナイトの含有率が大きく異なるにも関わらず、比較的鉛直圧の小さい条件での最大膨潤率は、初期乾燥密度が同程度であれば、ほぼ同じ値となっている。以上から、膨潤変形に対しては、ベントナイトのモンモリロナイト含有率よりもむしろ、ベントナイトの保有する交換性陽イオンの種類・組成が大きく影響を及ぼすものと考えられる。交換性 Na イオ



(a) ベントナイト B



(b) ベントナイト C



(c) ベントナイト D

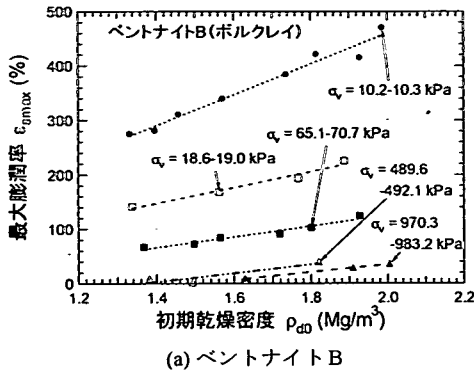
(ρ_{d0} : 初期乾燥密度, σ_v : 鉛直圧)

図-11 各種ベントナイトの膨潤率の時間変化

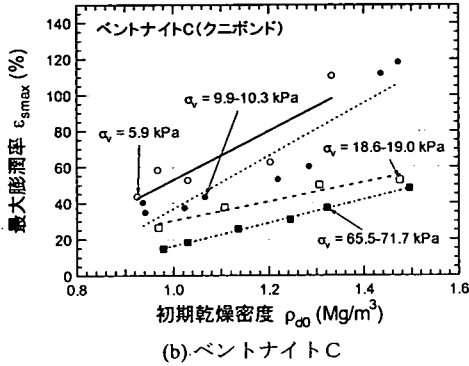
ン量が多いベントナイトの方がより大きく膨潤変形でき、交換性 Na イオン量よりも交換性 Ca イオン量が多い Ca 型ベントナイトでは膨潤変形量が著しく小さくなると考えられる。

4. 「モンモリロナイトの膨潤体積ひずみ」による評価

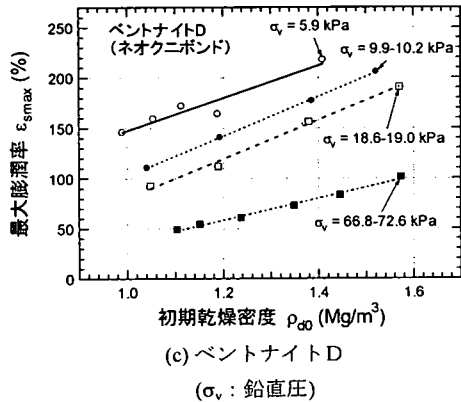
ベントナイトの膨潤挙動は、モンモリロナイト結晶層間の吸水挙動に起因する膨潤が支配的であると考えられている¹⁶⁾。著者らは電子顕微鏡の観察結果



(a) ベントナイト B



(b) ベントナイト C



(c) ベントナイト D
(σ_v: 鉛直圧)

図-12 各種ベントナイトの最大膨潤率と初期乾燥密度の関係

から、緩衝材や埋戻し材中のベントナイトが膨潤し間隙を充填していく状況を確認し、これに基づき緩衝材・埋戻し材の膨潤挙動モデルを図-13のように提案した⁴⁾。このモデルに基づき、緩衝材・埋戻し材中のモンモリロナイトの膨潤挙動を評価できるパラメータ「モンモリロナイトの膨潤体積ひずみ ε_{sv} (%)」を式(4)~(6)のように定義した。このパラメータは、ベントナイトに含まれるモンモリロナイトの膨潤変形前後の体積比率を意味するものであり、モンモリロナイトの結晶レベルでの膨潤挙動と緩衝材・埋戻し材の膨潤挙動を結ぶパラメータである。

式(4)~(6)の誘導は、参考文献4)に詳述されているので参照されたい。

$$\varepsilon_{sv} = \left\{ e_0 + \frac{\varepsilon_{smax}}{100} (e_0 + 1) \right\} \quad (4)$$

$$\times \left\{ 1 + \left(\frac{100}{C_m} - 1 \right) \frac{\rho_m}{\rho_{nm}} + \left(\frac{100}{\alpha} - 1 \right) \frac{100}{C_m} \frac{\rho_m}{\rho_{sand}} \right\} \times 100$$

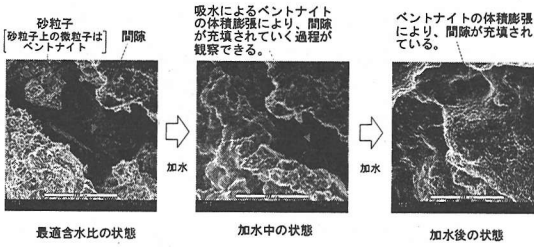
$$e_0 = \frac{\rho_{solid}}{\rho_{d0}} - 1 \quad (5)$$

$$\rho_{solid} = \frac{\frac{100}{C_m} \frac{100}{\alpha} \rho_m}{\left\{ 1 + \left(\frac{100}{C_m} - 1 \right) \frac{\rho_m}{\rho_{nm}} + \left(\frac{100}{\alpha} - 1 \right) \frac{100}{C_m} \frac{\rho_m}{\rho_{sand}} \right\}} \quad (6)$$

ここに、 ε_{smax} : 緩衝材・埋戻し材の最大膨潤率(%), e_0 : 緩衝材・埋戻し材の初期間隙比, C_m : ベントナイトのモンモリロナイト含有率(%), ρ_{d0} : 緩衝材・埋戻し材の初期乾燥密度(Mg/m³), α : ベントナイト配合率(%)(全土質材料の乾燥質量に対するベントナイトの乾燥質量の百分率), ρ_m : モンモリロナイトの土粒子密度(Mg/m³), ρ_{nm} : モンモリロナイト以外の鉱物の土粒子密度(Mg/m³), ρ_{sand} : 砂粒子密度(Mg/m³)

パラメータ ε_{sv} を用いて、2章で述べた砂・ベントナイトの混合材料の内、ベントナイト配合率が20~100%のときの膨潤圧・膨潤変形実験の全結果を整理したものが図-14である。文献4)で報告した電子顕微鏡観察の結果では、ベントナイト配合率が20%以上のときに図-13の膨潤挙動モデルの適用性が高いと考えられることから、図-14ではベントナイト配合率20%以上の結果について整理した。膨潤変形実験の結果については、膨潤率が一定値に到達した状態において膨潤圧と鉛直圧が釣り合っていると考え、最大膨潤率を発生した状態における ε_{sv} を計算し、その時の鉛直圧を最大膨潤圧と考えて整理している。同様に、3章で述べた各種ベントナイトの膨潤圧・膨潤変形実験の全結果を整理したものが図-15である。

上記の計算における入力データは次の通りである。一般に、モンモリロナイトの土粒子密度は2.75~2.78Mg/m³程度と言われており¹⁷⁾、この値を参考にモンモリロナイトの土粒子密度 $\rho_m = 2.77 \text{ Mg/m}^3$ と設定した。モンモリロナイト以外の鉱物の土粒子密度 ρ_{nm} は、式(6)においてベントナイト配合率 α を100%



ベントナイトの膨潤挙動
(砂・ベントナイトA 混合材料, $\alpha = 50\%$ の例)

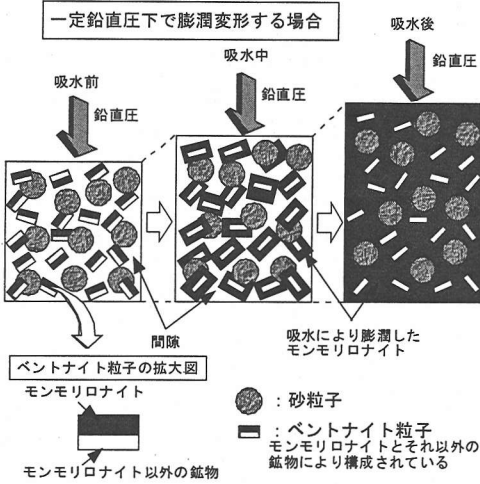


図-13 緩衝材・埋戻し材中のベントナイトの膨潤挙動イメージ

としたときの ρ_{solid} が各ベントナイトの土粒子密度になるように計算で求めた。表-1に示すようにベントナイトAの土粒子密度が 2.79Mg/m^3 、モンモリロナイト含有率が48%のとき、 $\rho_{nm} = 2.81\text{Mg/m}^3$ と計算される。同様に、ベントナイトB, C, Dの ρ_{nm} はそれぞれ、3.01, 2.50, 2.43Mg/m^3 と計算される。砂の土粒子密度 ρ_{sand} は、三河珪砂6号の土粒子密度である 2.66Mg/m^3 を用いた。

図-14から分かるように、砂・ベントナイト混合材料においては、ベントナイトの種類を特定すれば、最大膨潤圧もしくは鉛直圧とパラメータ ε_{sv}^* は、ほぼ良好な相関関係にあり、 ε_{sv}^* を用いることにより砂・ベントナイトの膨潤特性を評価することができる。すなわち、砂・ベントナイト混合材料の初期乾燥密度とベントナイト配合率、最大膨潤率を式(4)~(6)に代入し算出される ε_{sv}^* と図-14に示す σ_v と ε_{sv}^* の関係から、最大膨潤圧やある鉛直圧における最大膨潤率を求めることができる。

また、図-15から分かるように、同じNa型タイプ

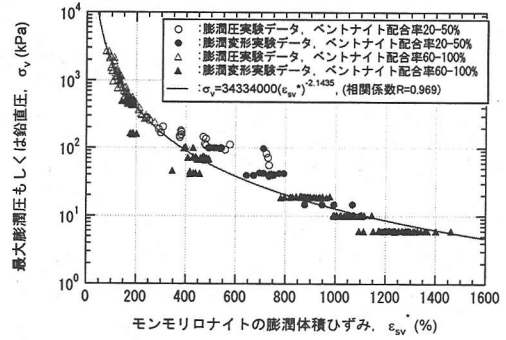


図-14 砂とベントナイトAの混合材料における σ_v と ε_{sv}^* の関係

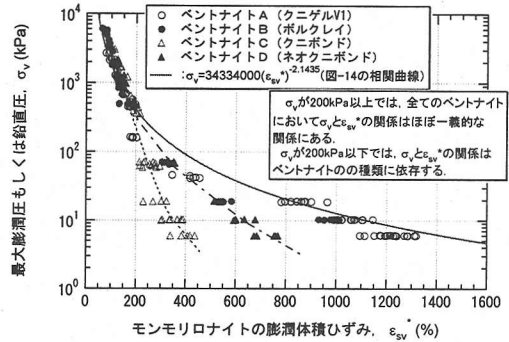


図-15 各種ベントナイトにおける σ_v と ε_{sv}^* の関係

であるベントナイトAとBでは σ_v と ε_{sv}^* の関係に差異はほとんど認められない。一方、交換性陽イオンの種類・組成が異なるベントナイトCやDでは、 σ_v が200kPa以下においてベントナイトA, Bと異なることが分かる。 σ_v が200kPa以上ではベントナイトの種類による差異は少ない。これらのことから、膨潤圧や200kPa以上の高い鉛直圧下での膨潤変形に対しては、ベントナイトの種類によらず σ_v と ε_{sv}^* は一義的な関係にあり、モンモリロナイトの膨潤体積ひずみ ε_{sv}^* のみにより、その膨潤特性を評価することができると思われる。

一方、200kPa以下の低い鉛直圧下での膨潤変形については、 σ_v と ε_{sv}^* の関係はベントナイトの種類に依存する。すなわち、モンモリロナイトの膨潤体積ひずみ ε_{sv}^* のみならず、ベントナイトの保有する交換性陽イオンの種類・組成が大きく影響を及ぼすものと考えられる。したがって、200kPa以下の低い鉛直圧下での膨潤変形については、ベントナイトの種類に応じて図-15に示す σ_v と ε_{sv}^* の関係を用い、鉛直圧 σ_v に対応するモンモリロナイトの膨潤体積ひずみ ε_{sv}^* と式(4)~(6)から膨潤特性を評価する必要がある。

ベントナイトの膨潤特性は間隙水の水質など周辺の化学的環境の影響を受けることが知られている¹⁸⁾。

今後は、粘土粒子の周辺環境の影響を考慮し粘土鉱物結晶レベルの膨潤現象を評価できる拡散二重層理論と「モンモリロナイトの膨潤体積ひずみ ε_{sv}^* 」を組み合わせるにより緩衝材・埋戻し材の膨潤特性を詳細に評価できる理論式の構築を図る。

5. 結論

砂・ベントナイト混合材料および各種ベントナイトの膨潤圧・膨潤変形実験の結果およびその考察から、以下の結論を得た。

- (1) 今回、ベントナイト配合率60～100%の膨潤圧・膨潤変形に関する実験データを取得し、既報告のデータと合わせて砂・ベントナイト混合材料の膨潤圧・膨潤変形特性と初期乾燥密度(1.19～2.27Mg/m³)およびベントナイト配合率(5～100%)との関係を把握した。
- (2) 各種ベントナイトの膨潤圧・膨潤変形特性について実験的に調査した結果、最大膨潤圧に対しては交換性陽イオンの種類よりもベントナイトのモンモリロナイト含有率の方が大きく影響することが分かった。一方、膨潤変形に対してはベントナイトのモンモリロナイト含有率よりもむしろ、ベントナイトの保有する交換性陽イオンの種類が大きく影響を及ぼすものと考えられる。交換性Naイオン量が多いベントナイトの方がより大きく膨潤変形でき、交換性Naイオン量よりも交換性Caイオン量が多いCa型ベントナイトでは膨潤変形量が著しく小さくなると考えられる。
- (3) 著者らの提案するパラメータ「モンモリロナイトの膨潤体積ひずみ ε_{sv}^* 」により、ベントナイトの種類に応じて緩衝材・埋戻し材の膨潤圧・膨潤変形特性を統一的に評価できることを示した。膨潤圧や200kPa以上の高い鉛直圧下での膨潤変形に対しては、ベントナイトの種類によらずモンモリロナイトの膨潤体積ひずみ ε_{sv}^* のみにより、その膨潤特性を評価することができる。200kPa以下の低い鉛直圧下での膨潤変形については、ベントナイトの種類に応じて図-15に示す σ_v と ε_{sv}^* の関係を用い、モンモリロナイトの膨潤体積ひずみ ε_{sv}^* から膨潤特性を評価する必要がある。

謝辞：本論文で報告した実験データは、第一著者が電力中央研究所在職中に取得したものである。電力

中央研究所副所長・西好一博士をはじめとする関係各位にご協力いただきました。実験データの取得には、(株)シーアールエスの田代勝浩氏にご尽力いただきました。ここに感謝の意を表します。

参考文献

- 1) 核燃料サイクル開発機構：わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分技術的信頼性—地層処分研究開発第2次取りまとめ—総論レポート。JNC TN1400 99-020, 1999.
- 2) (財)電力中央研究所、電気事業連合会：高レベル放射性廃棄物地層処分の事業化技術, 1999.
- 3) Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co.: SKB91 Final disposal of spent nuclear fuel. Importance of the bedrock for safety, SKB Technical Report 92-20, 1992.
- 4) Komine, H. and Ogata, N.: Experimental study on swelling characteristics of sand-bentonite mixture for nuclear waste disposal, Soils and Foundations, Vol. 39, No.2, pp.83-97, 1999.
- 5) Komine, H. and Ogata, N.: Experimental study on swelling characteristics of compacted bentonite, Canadian Geotechnical Journal, Vol.31, No.4, pp.478-490, 1994.
- 6) Komine, H. and Ogata, N.: Prediction for swelling characteristics of compacted bentonite, Canadian Geotechnical Journal, Vol.33, No.1, pp.11-22, 1996.
- 7) 日本ベントナイト工業会標準試験法：ベントナイト(粉末)のメチレンブルー吸着量測定方法, JBAS-107-91, 1991.
- 8) 五十嵐敏文, 馬原保典：自然環境中の安定同位元素を用いた放射性核種分配係数測定方法の提案, 電力中央研究所報告U95025, 1996.
- 9) (社)地盤工学会：土質試験の方法と解説—第一回改訂版—, 2000.
- 10) Pusch, R. : Swelling pressure of highly compacted bentonite, Swedish Nuclear Fuel Supply Co/Division KBS technical report, Vol.80, No.13, pp. 1-21, 1980.
- 11) 稲村実：高レベル放射性廃棄物処分事業のスケジュール, 土と基礎, Vol. 46, No. 10, pp. 5-6, 1998.
- 12) 小峯秀雄, 緒方信英：塑性限界を導入した粘土の締固め特性の評価法の提案, 土木学会論文集, No. 436/III-16, pp.103-110, 1991.
- 13) 例えば, 土質工学会：土質工学における化学の基礎と応用, 土質基礎工学ライブラリー15, pp. 112-122, 1978.
- 14) Pusch, R. : Stability of bentonite gels in crystalline rock – physical aspects, Swedish Nuclear Fuel Supply Co/Division KBS technical report, Vol.83, No.4, 1983.
- 15) Pusch, R. : Use of clay as buffers in radioactive repositories, Swedish Nuclear Fuel Supply Co/Division KBS technical

report, Vol.83, No.46, 1983.

16) 日本粘土学会 : 粘土ハンドブック(第2版), 技報堂出版,
pp.709-711, 1987.

17) Lambe, T.W. and Whitman, R.V. : Soil Mechanics, John
Wiley & Sons Inc., pp.29-31, 1969.

18) 例えば, Mitchell, J.K.: Fundamentals of soil behavior
(Second Edition), John Wiley & Sons, Inc., pp.111-130,
1993.

(2001. 6. 1 受付)

SWELLING CHARACTERISTICS OF SAND-BENTONITE MIXTURE AND VARIOUS KINDS OF BENTONITE

Hideo KOMINE and Nobuhide OGATA

Bentonite is attracting greater attention as buffer and backfill materials for repositories of high-level nuclear waste because these materials must have high swelling property and low permeability. To contribute the design of buffer and backfill materials, this study investigated the swelling properties of sand-bentonite mixtures, of which bentonite contents are within 5 – 100%, and four typical kinds of bentonite produced in Japan and the USA. The experimental works clarified the influence of bentonite-content, dry density, montmorillonite-content of bentonite and exchangeable-cation-compositions upon the swelling characteristics of materials. Moreover, it was found that the authors' parameter "Swelling volumetric strain of montmorillonite" can easily evaluate the maximum swelling pressure and the maximum swelling strain of sand-bentonite mixtures and various kinds of bentonite at various dry densities and bentonite contents.