

X 線小角散乱法による Na 型スメクタイトのコンシステンシー限界時の粒子間距離と配向度

岩手大学 学生会員 ○小笠原 寛海
 岩手大学 学生会員 内田 勝也
 岩手大学 正 会 員 大河原 正文

1. はじめに

土と水との相互作用による土の物理的特性としてコンシステンシー限界¹⁾は広く知られている。しかし、そもそもなぜ含水比の変化に伴い土が固体（～半固体）、塑性体、液体へと状態を大きく変化させるのか、そのメカニズムは明らかにされていない。とくにコンシステンシー限界（収縮限界 w_s 、塑性限界 w_p 、液性限界 w_L ）が土のどのような構造や物性変化の境界を示しているのか厳密には不明である。

X 線小角散乱法は、X 線を物体に照射して散乱した X 線のうち、 $2\theta < 10^\circ$ 以下の低角領域に現れるものを測定し、物質の構造を評価する分析手法である。数 nm～ μm スケールでの周期構造や配向性の評価が可能である。本研究では Na 型スメクタイトのコンシステンシー限界、なかでも塑性限界 w_p 付近における粒子間距離 d と配向度について調べた。

2. 試料および実験方法

試料には Na 型スメクタイトを主成分とするクニピア F を用いた。鈴木ら²⁾の方法を参考にクニピア F を精製し、得られた高純度スメクタイトに対し、液性限界・塑性限界試験（JIS A 1205）³⁾を 5 回行い、最大値と最小値からさらに前後 20%の余裕幅をとったものを塑性限界ゾーン、前後 80%の余裕幅をとったものを液性限界ゾーンとした（表 1）。

実験では、固体、塑性体、液体ならびに塑性限界、液性限界に含水比を調整するとともに、塑性限界ゾーン、液性限界ゾーンでは変化を詳細に調べるため含水比をさらに細かく設定した。試料セル（縦 35mm×横 35mm×厚さ 2.25mm）には、中心に直径 $\phi 10\text{mm}$ の穴の空いた金属板を使用し、穴に試料を入れた後、両面をスライドガラスで貼りつけ封入した（図 1）。

実験は、高輝度放射光施設 SPring8 内のビームライン BL40B2 に設置されている小角散乱測定装置により行った（写真 1，2）。この装置は、強い放射光を光源とするため厚い試料の分析が可能で、小角～広角までの広い測定範囲を持つことが特徴である。測定においては、小角～広角反射までを測定するため波長を $0.83\text{\AA}$ 、カメラ長 539.0mm とした。

表 1 設定含水比

商品名			精製クニピアF	
鉱物種			Na型スメクタイト	
設定	固体		試料数	含水比の間隔(%)
	塑性限界ゾーン	余裕幅	8試料	5.0
		試験結果(実測値)	4試料	5.0
		余裕幅	10試料	2.5
		余裕幅	4試料	5.0
	塑性体		8試料	5.0
			11試料	60.0
	液性限界ゾーン	余裕幅	4試料	20.0
		試験結果(実測値)	13試料	10.0
		余裕幅	4試料	20.0
		液体	5試料	2wL,3wL,4wL,5wL,10wL
	合計			71試料

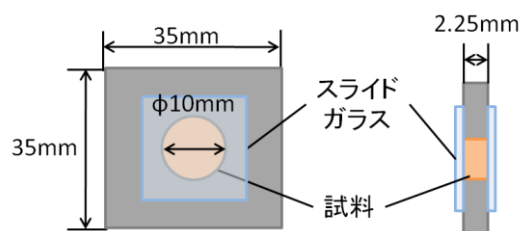


図 1 測定試料の作製方法



写真 1 小角散乱測定装置

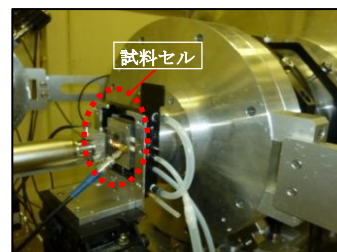


写真 2 測定試料の取付け状況 (BL40B2)

3. 実験結果および考察

図2にX線散乱像を示す。散乱像には、散乱強度 I (arbitrary scale) と散乱ベクトル q 粒子間距離に関する情報が含まれており、図3に示す $I-q$ グラフへと変換できる。さらに散乱ベクトル q は粒子間距離 d との間に次式の関係があり距離を求めることができる。

$$d = 2\pi/q \quad q : \text{散乱ベクトル}$$

図4は塑性限界領域における $I-q$ グラフであるが、異なる2つの粒子間距離が存在している。水分子層の変化は、瞬時になされるのではなく、例えば1層から2層へ増加する場合、1層が徐々に減少していき、2層が順次増加していくというような遷移的な変化であることを示している。図5に含水比と粒子間距離との関係を示す。図より塑性限界付近において粒子間距離 d が 1.87nm から 4.29nm へと急激に広がっている。この距離は、1.87nm が水分子層3層に、4.29nm が12層に相当する。この部分を詳しく見ると、図6のように3層が徐々に減少し、それに代わって12層が増加していることが分かる。図7は含水比と配向度との関係である。固体ではランダムである粒子が、塑性限界付近から粒子が徐々に配向していき、再び液性限界付近でランダムになっている。粒子は、塑性体領域においてのみ配向するようである。

4. まとめ

本研究では、精製した高純度スメクタイトに対し、X線小角散乱実験を行い、粒子間距離（水分子層厚に相当）と配向度を求めた。その結果、粒子間距離は塑性限界付近から徐々に増加し、なかでも塑性限界 w_p において、1.87nm から 4.29nm と急激に増加することをとらえた。この粒子間距離は、それぞれ水分子3層、12層に相当し、なぜ3層から12層へと不連続的に増加するのか、今後の検討課題である。また、配向度では、ランダム状態であった固体から塑性体領域に入ると粒子は配向していき、液性限界では再びランダムになることが明らかになった。塑性体においてのみ粒子は配向するようである。

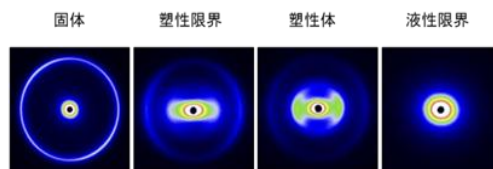


図2 X線散乱像

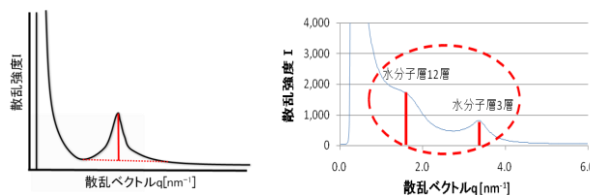


図3 I-q グラフ

図4 塑性限界付近での I-q グラフ

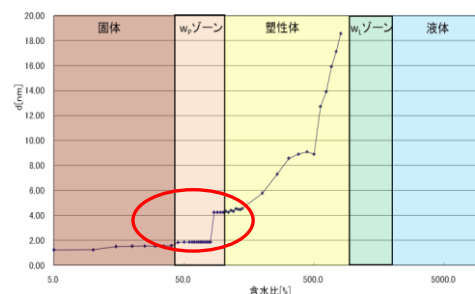


図5 粘土粒子の粒子間距離

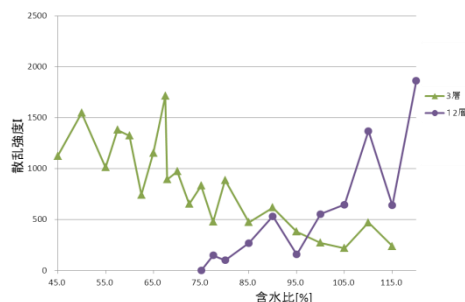


図6 各水分子層の散乱強度変化

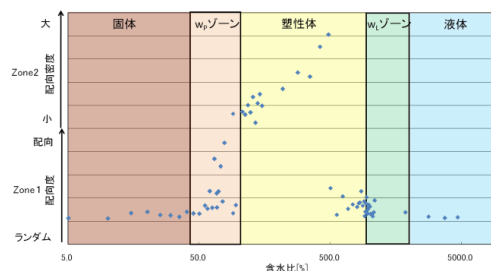


図7 粘土粒子の配向度

<参考文献>

- 1) Atterberg, A. (1911), On the investigation of the physical properties of soils and on the plasticity of clays, Int. Mitt. fur Bodenkunde, 1, pp.10-43
- 2) 鈴木啓三ら：高精製モンモリロナイトの調整とキャラクター化, 粘土科学, 第46巻, 第3号, 147-155
- 3) (社)地盤工学会：地盤材料試験の方法と解説, 丸善株式会社出版事業部 pp.53-78, 2009
- 4) 小峯秀雄：モンモリロナイト結晶と層間水の構成から見たベントナイトの自然含水比に関する一考察, 第47回地盤工学研究発表会発表論文集, pp.305-306, 2012