

ベントナイトの透水挙動モデル構築に関する実験的研究 その2:有効間隙率評価

伊藤歩夢^{*1}・千々松正和^{*1}

締め固めたベントナイトの透水係数は、土粒子密度から算出される間隙率の大きさに対して一般的な土質材料の透水係数と比較すると非常に小さい。また、浸透水の水質によっても透水係数は大きく異なるが、浸透水の粘性の違いだけでは透水性を評価できない。本研究の目的は、これらの要因を解明した上で、ベントナイト中での水の浸潤・浸透挙動を数値解析モデルに取り込むことにある。本研究では Na 型ベントナイトに対する物性値の取得および有効間隙率の解析により、その1で想定したメカニズムに関して定量的データを用いて確認するとともに、ベントナイト透水挙動モデルを構築した。

キーワード：ベントナイト、透水係数、浸潤挙動、X線回折、有効間隙率

1. はじめに

ベントナイトは単体または砂礫との混合土として、放射性廃棄物の処分施設でのバリア材としての利用が検討されている。ベントナイトおよびベントナイト混合土を用いて構築したバリア層には、長期間にわたって地下水の侵入を抑制するとともに、周辺環境への放射性物質の流出を遅延させるといった機能が期待されている。

室内試験で得られるバリア層の透水係数は、ベントナイトの土粒子密度および圧縮成型した時の供試体の乾燥密度から算出される間隙率から推定される値に比べるとかなり小さい。また、試験水が蒸留水の場合と海水等のイオン強度の高い溶液の場合とでは透水係数は大きく異なるため、試験水の粘性の違いだけでは、その透水性を評価することはできない。

ベントナイトの主要鉱物であるモンモリロナイトは層状構造をしており、周囲の水を層間に取り込み体積が膨張する性質を持つ。ベントナイトでは膨潤と呼ばれるこの性質により、飽和状態においてモンモリロナイトが通水経路となりうる間隙を埋めるため、土構造物全体の透水係数が低下する現象が生じるものと考えられる。その際のベントナイトによる間隙の閉鎖挙動は、非常に微小な領域で生じており、電子顕微鏡等による直接観察は非常に難しい。また、モンモリロナイトの膨潤特性は浸透水の性質にも影響を受ける。このように、締め固めたベントナイトでは透水性を評価する際に考慮すべきパラメータが非常に多く、複雑である。そのため、ベントナイト中の水の浸潤挙動を正確に再現したモデルはこれまで考案されていない。

本研究の目的は、様々な水質条件下でのベントナイトの透水挙動を定量化し、数値解析モデルを構築することである。モデル化によりバリア層の長期にわたる性能評価が可能となれば、安全性を重視する放射性廃棄物の処分事業に与える影響は非常に大きい。

前報¹⁾では、Na 型ベントナイトを対象に層間距離および透水係数の測定、透水試験後の水質分析を行い、以下のような知見を得た。1) 初期飽和時における浸潤水の水質がベントナイトの透水係数に影響を及ぼす。2) 蒸留水飽和試料ではモンモリロナイトが3分子層～無限膨潤し、人工海水飽和試料では3分子層膨潤する。3) 透水試験前後で試験水の水質を測定した結果、人工海水を通水させた試料において、モンモリロナイトの層間陽イオン交換を起因とする Na イオンの増加を観察した。

本研究では、前報¹⁾で実施した低密度条件 ($1.00\text{Mg}/\text{m}^3$) に加えて高密度条件 ($1.37\text{Mg}/\text{m}^3$) での浸潤挙動に伴う層間距離のデータを取得するとともに、その結果を用いて有効間隙率の解析を行った。本論文は、これらの結果より透水挙動モデルを構築するとともに、これを今後高度化していくにあたっての課題をまとめたものである。

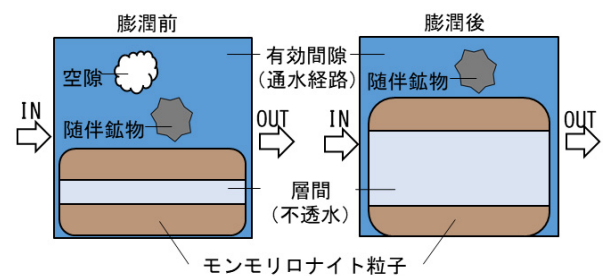


図-1 間隙の考え方

*1 原子力部

2. 物性値の取得方法

本研究では図-1に示すように、モンモリロナイトが膨潤することによってベントナイトの間隙率が減少し、透水係数が低下するという仮定のもと、モンモリロナイトの層間距離の測定値から有効間隙率を解析し、透水試験の結果と比較することにより、ベントナイトの透水挙動を評価することを試みた。

供試体の間隙はモンモリロナイトの層間と有効間隙で構成されているとし、透水試験において水は有効間隙のみを流れるものとする。ここで、有効間隙とはベントナイト内で随伴鉱物とモンモリロナイト以外の部分と定義する。

表-1 試験条件一覧

ケース名	調整水	浸潤水	浸透水	XRD分析	設定含水比
DW①	DW	DW	DW	○	10.0
SW①	DW	SW	SW	○	10.0
DW②	DW	DW	DW	○	10.0
SW②	DW	SW	SW	○	10.0

DW…蒸留水, SW…人工海水

①…1.37Mg/m³, ②…1.00Mg/m³



図-2 XRD測定用試験容器

表-2 XRD測定条件

項目	測定条件
管球	MoK α
スキャンステップ	0.025°
スキャン速度	0.1deg/min
スリット幅	5 mm
発散スリット	1/4°
散乱スリット	1/2°
受光幅	0.3mm

2.1 XRD測定

放射性廃棄物の地層処分事業で考えられる淡水と塩水の地下水環境を想定し、蒸留水 (Distilled water) で浸潤 (以下, DW), 人工海水 (Artificial seawater) で浸潤 (以下, SW) の2つの試験水条件でX線回折 (XRD) を実施し、モンモリロナイトの層間距離を測定した。なお、人工海水には市販の試薬²⁾を使用し、リロナイトの層間距離とした。

(1) 供試体作製条件

今回の室内試験に用いたベントナイトは、Na型ベントナイト³⁾である。供試体は試験容器に置いて、そのまま動的締固めをすることにより作製した。地層処分事業で検討されているバリア材の配合は、ベントナイト:70%, 珪砂:30%であり、乾燥密度は1.6 Mg/m³で有効粘土密度に換算すると1.37Mg/m³である。今回は珪砂との混合を行わず、ベントナイト単体としたが、試験では有効粘土密度を前報の低密度条件1.00 Mg/m³ (②) および高密度条件1.37Mg/m³ (①) とした。

供試体サイズは、XRDで測定ができるように直径11mmおよび長さ51mmとし、ポリカーボネイトを用いて試験容器を作製した。試験条件の一覧を表-1に、XRD測定試験容器を図-2に示す。

(2) 測定条件

各試験水条件で飽和させた供試体に対してXRD測定を行った。また、層間距離から層間に含まれる水分子の層数を推定した。測定にはX線回折装置⁴⁾を用いた。測定条件は、表-2にまとめた。測定は給水端から排水端にかけて5mm間隔で複数回行った。

2.2 透水試験

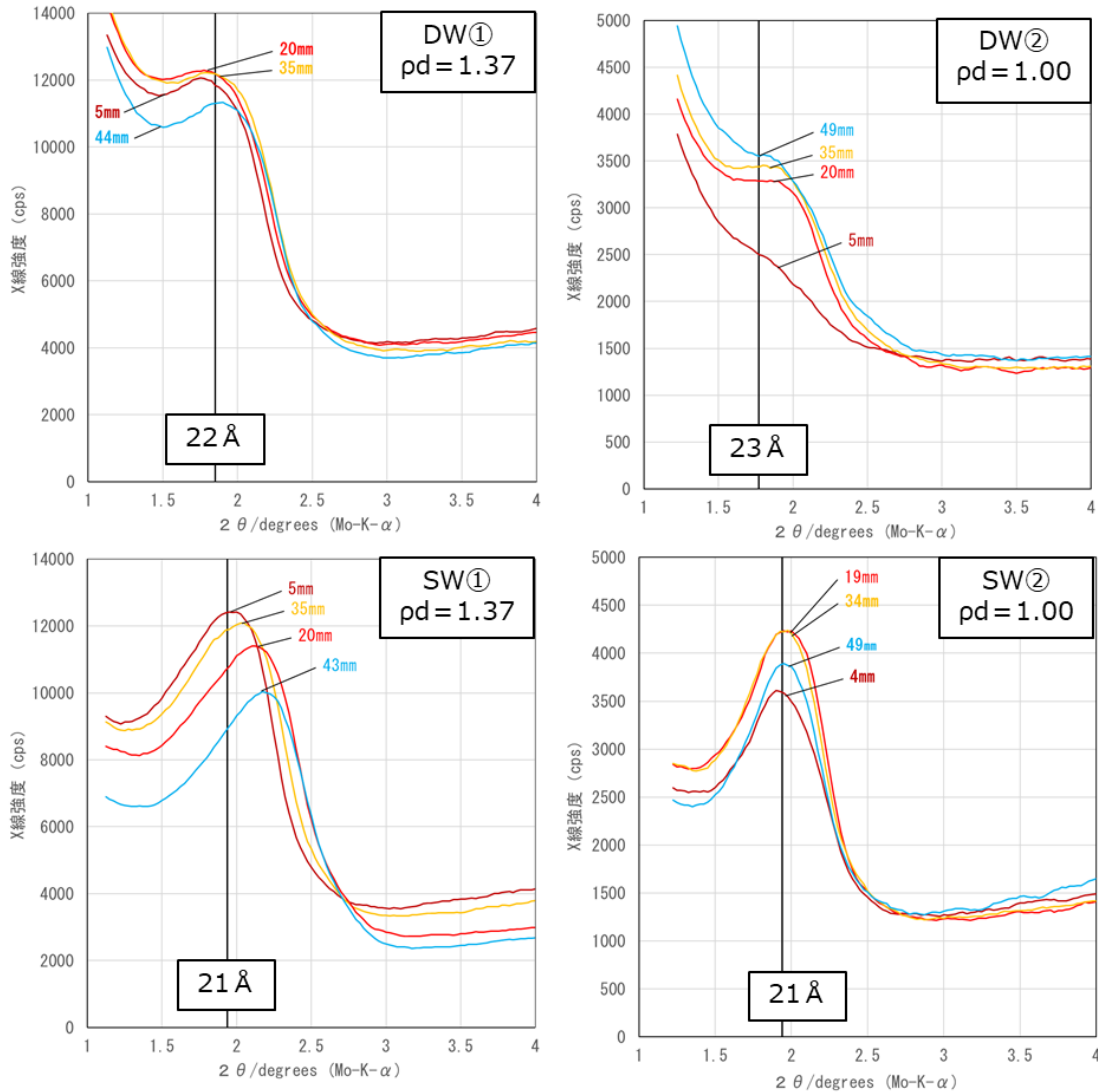
透水試験は低透水材料の透水試験方法 (JGS 0312-2018) に従った。試験水には、供試体の含水比調整に用いる調整水、不飽和状態から飽和状態になるまで通水する浸潤水、飽和状態において通水を行う浸透水の三種類を区別して用いた。

供試体の作製要領は2.1(1)と同じである。寸法は直径60mmとし、高さはXRD測定試験容器の長手方向の長さに合わせて50mmとした。

3. 測定結果

3.1 XRD測定結果

乾燥密度条件①, ②および、試験水条件をDW, SWとした計4ケースのXRD測定結果を図-3に示す。なお、通水前の供試体をXRD測定したところ①, ②の両ケース



図－3 XRD 測定結果

で 16 Å のピークが卓越していることを確認した。以下に試験水条件毎に結果をまとめる。

(1) DW 試料

この試料では、給水端で無限膨潤状態、その他の位置では 22 – 23 Å のピークと低角側にピークが観察された。②では①よりもモンモリロナイトの層間距離が広がっていることが分かった。

(2) SW 試料

この試料では、層間距離が 20 – 21 Å のピークが卓越

していた。SW 試料は DW 試料よりも層間距離が短く、膨潤変形量が小さい。X 線強度が最大となったデータ同士を比較すると①、②のケースでは層間距離に差は見られなかった。一方で、供試体内の層間距離の分布という視点で比較すると、①では吸水側ほど層間距離が広がる傾向が見られたが、②では吸水側と排水側で層間距離の差は見られなかった。

3.2 透水試験結果

各試験水条件および乾燥密度条件による透水試験結果を表－3に示す。

(1) 試験水条件

SW 試料の透水係数は DW 試料に比べ 1 ～ 3 オーダー大きくなっている。

(2) 乾燥密度条件

DW 試料における透水係数は、①、②による変化はほ

表－3 透水係数 (m/s)

乾燥密度条件	①	②
試験水条件	1.37Mg/m ³	1.00Mg/m ³
DW	5.09E-12	5.66E-12
SW	2.00E-11	1.97E-09

表-4 解析に用いたパラメータ

ベントナイト	ρ_{solid} (Mg/m ³)	ρ_{nm} (Mg/m ³)	ρ_0 (Mg/m ³)	C_m (%)	α (%)
KV 1 (Na型)	2.716	2.81	1.37, 1.00	52.9	100

とんど見られなかった。一方、SW 試料の透水係数は①に対して②では2オーダー大きくなっている。

4. 有効間隙率の解析方法の構築

4.1 解析方法

XRD 測定の結果をもとに、有効間隙の体積が全体積に占める割合（以下、有効間隙率）を解析した。Na 型ベントナイトの解析パラメータは表-4である。ここに、 ρ_{solid} ：ベントナイト系材料中固相の土粒子の密度 (Mg/m³)、 ρ_{nm} ：ベントナイト中のモンモリロナイト以外の土粒子の密度⁴⁾ (Mg/m³)、 ρ_0 ：ベントナイト系材料の初期乾燥密度 (Mg/m³)、 C_m ：ベントナイトのモンモリロナイト含有率 (%)、 α ：ベントナイト配合率 (%) である。また、図-1を定量化するため、ベントナイトの構成物質を図-4のように設定する。ここに、 V_1 ：モンモリロナイトの乾燥体積、 V_2 ：モンモリロナイトの層間に存在する水の体積、 V_3 ：ベントナイト中の随伴鉱物の体積、 V_4 ：モンモリロナイトの層間以外に存在する水の

体積、 V_5 ：供試体中の空隙の体積である。

ベントナイト中の間隙は、 V_2 、 V_4 および V_5 で構成され、透水試験において水は有効間隙 V_4 および V_5 中を流れるものとする。 V_1 と V_3 は飽和状態に関わらず一定で、 V_2 と V_4 は飽和状態により変化するものとする。また、供試体中の水は V_2 に優先的に入るものとし、 V_2 に入りきらない分は V_4 および V_5 に存在するものとする。 V_5 は不飽和状態において正の値を示し、飽和状態では0とする。

以上の前提において、供試体中の各体積割合の算定式を式 (1) ~ (5) のように設定した。

$$\phi_1 = \frac{\rho_0}{\rho_{solid}} \times C_m \tag{1}$$

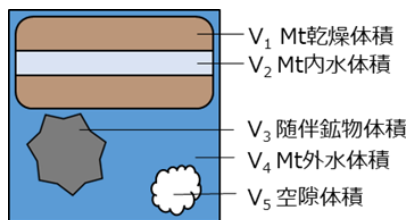
$$\phi_2 = \begin{cases} \rho_0 \times \omega \times 100, & \rho_{wall} = \rho_{wm} \\ \rho_{em} \times w_m \times 100, & \rho_{wall} > \rho_{wm} \end{cases} \tag{2}$$

$$\phi_3 = \phi_{solid} \times (100 - C_m) \tag{3}$$

$$\phi_4 = \begin{cases} 0, & \rho_{wall} = \rho_{wm} \\ (\rho_0 \times \omega - \rho_{em} \times w_m) \times 100, & \rho_{wall} > \rho_{wm} \end{cases} \tag{4}$$

$$\phi_5 = 1 - (\phi_1 + \phi_2 + \phi_3 + \phi_4) \tag{5}$$

ここに、 ϕ_1 ：モンモリロナイトの乾燥体積割合 (%)、 ϕ_2 ：モンモリロナイトの層間に存在する水の体積割合



Mt…モンモリロナイト

図-4 ベントナイトの構成物質モデル

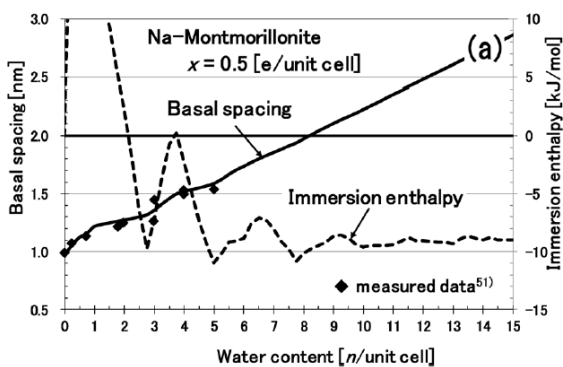


図-5 単位格子当たりのNa型モンモリロナイトの含水量と層間距離の関係⁶⁾

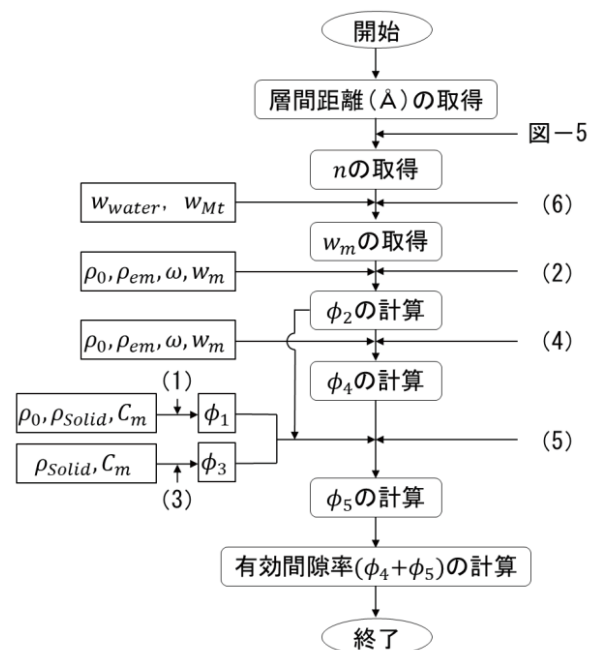


図-6 解析のフローチャート

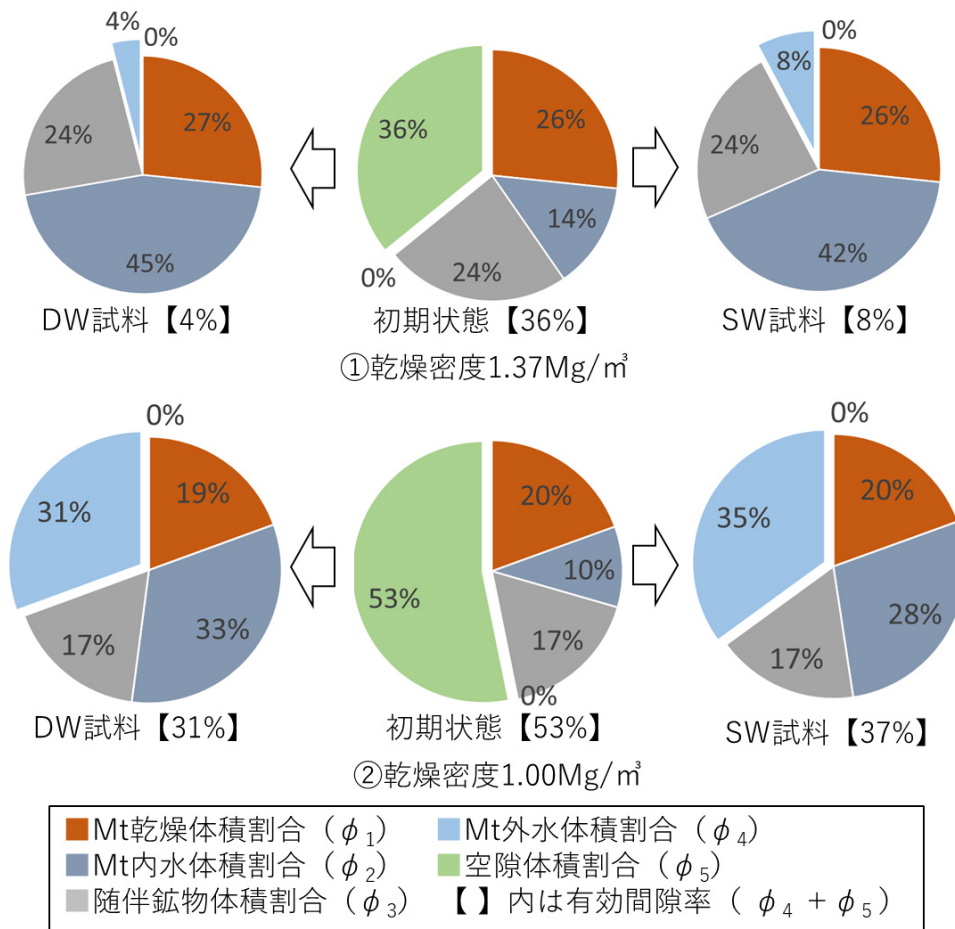


図-7 有効間隙率解析の結果

(%), ϕ_3 : ベントナイト中の随伴鉱物の体積割合 (%), ϕ_4 : モンモリロナイトの層間以外に存在する水の体積割合 (%), ϕ_5 : 供試体中の空隙の体積割合 (%), ρ_{em} : 有効モンモリロナイト密度 (Mg/m^3), w_m : 単位質量当たりのモンモリロナイトの保持水分量 (g/g), ρ_{wall} : 供試体内に存在する単位体積当たりの水分量 (Mg/m^3), ρ_{wm} : モンモリロナイト層間に存在する単位体積当たりの水分量 (Mg/m^3) である。式 (2) の w_m の算出には、図-5 に示す四辻ら⁶⁾ の分子動力学シミュレーションの解析結果を用いた。つまり、XRD 測定により得られた層間距離 (Basal spacing) を図-5 の関係図を用いて単位格子当たりの Na 型モンモリロナイトの含水量 (n/unit cell) に変換した。そして式 (6) を用いて単位格子当たりの Na 型モンモリロナイトの含水量 (n/unit cell) を単位質量当たり (g/g) に変換した。

$$w_m = \frac{w_{water}}{w_{Mt}} \times n \quad (6)$$

ここに、 w_{water} : 水のモル質量 (mol/g), w_{Mt} : モンモリロナイトのモル質量 (mol/g), n : 水の単位質量 (n/unit cell) である。図-6 には解析のフローチャートを示す。

4.2 解析結果

XRD 測定結果より得られた各ケースでの最大ピークの代表値を表-5 に示す。また、表-6 は、表-5 のデータを式 (6) より w_m に変換したものである。表-4 および表-6 の値を式 (1) ~ (5) に代入し、 $\phi_1 \sim \phi_5$ および有効間隙率 ($\phi_4 + \phi_5$) を求めた。その結果を図-7 に示す。図-7 においては、初期状態の空隙体積 (黄緑色) を介して供試体中に浸透した水が、飽和に伴って Mt 内水体積 (青色) と Mt 外水体積 (水色) に分かれることを示している。

(1) 条件①

有効間隙率は初期状態で 36% である。(図-7①中央) 飽和によるモンモリロナイト (Mt) の膨潤後は、有効間隙率は DW 試料で 4% (図-7①左), SW 試料で 8% (図-7①右) まで減少している。

(2) 条件②

有効間隙率は初期状態で 53% である。(図-7②中央) 飽和によるモンモリロナイトの膨潤後は、有効間隙率は DW 試料で 31% (図-7②左), SW 試料で 35% (図-7②右) まで減少している。

表-5 XRD測定による層間距離 (Å)

乾燥密度条件	①	②
試験水条件	1.37Mg/m ³	1.00Mg/m ³
DW	22	23
SW	21	21

表-6 モンモリロナイトの保持水分量 w_m (g/g)

乾燥密度条件	①	②
試験水条件	1.37Mg/m ³	1.00Mg/m ³
DW	0.48	0.51
SW	0.44	0.44

表-7 有効間隙率 (%)

乾燥密度条件	①	②
試験水条件	1.37Mg/m ³	1.00Mg/m ³
初期状態	36	53
DW	4	31
SW	8	35

5. 考察

5.1 XRD測定結果

(1) DW 試料

本試料では、22 - 23 Åのピークとより低角側にピークが観察されたことから、3分子層膨潤と無限膨潤した層が共存していることが推定される。(図-3 DW ①, DW ②) また、②の方が①よりもモンモリロナイトの層間距離が大きくなった。これは初期の乾燥密度の小さい②の方が、空間的な余裕が大きいモンモリロナイトの膨潤時の層間距離が大きくなったためと考えられる。

(2) SW 試料

本試料では、主に21 Åのピークが観察されたことから、3分子層膨潤が形成されていると推定される。(図-3 SW ①, SW ②) しかし、この試料では低角側のピークは見られなかったことから、DW 試料よりも層間距離は小さくなっていると考えられる。図-3において①、②条件でX線強度が最大となったデータ同士を比較すると層間距離に差は見られなかった。①はXRDの測定位置に関わらず21 Åのピークが卓越していたのに対し、②ではXRDの測定位置によって19 - 21 Åの様々な層間距離が共存していることが明らかとなった。その要因として、初期空隙率の高い②では人工海水が一樣に浸潤し、供試

体全体のモンモリロナイトにおいて膨潤とCa型化が進行したのに対し、初期空隙率の低い①では供試体内で人工海水の浸潤の程度にばらつきが生じ、一部のモンモリロナイトで膨潤とCa型化が進行したためと考えられる。

5.2 透水係数および有効間隙率

表-7にはケース毎のモンモリロナイト膨潤後の有効間隙率をまとめた。DW 試料では、モンモリロナイトの膨潤によって層間距離が大きくなる分、有効間隙率は減少する。一方で、SW 試料では、DW 試料より層間距離が小さくなる分、有効間隙率の減少は抑制される。これは表-3からも透水係数の明瞭な差として現れている。

表-3と表-5より、乾燥密度条件①、②ともにDW 試料とSW 試料の有効間隙率の差は4%と同じであるが、透水係数の差は②で顕著であった。これは初期の乾燥密度が小さいほど、初期状態での有効間隙率が大きくなり、人工海水がモンモリロナイトと接触する比表面積が多くなるため、モンモリロナイトの膨潤とCa型化が同時に進行し、有効間隙率の減少が抑制された結果であると考えられる。SW 試料では初期の乾燥密度が大きいほど人工海水が透水性に与える影響を抑制することができると考えられる。

一方、①、②の違いによる有効間隙率の変化は顕著であるものの、DW 試料では透水係数の差を十分反映できていない。これは、XRD測定において供試体の乾燥密度が小さくなると無限膨潤層の割合が多くなり、十分に測定が行えていないためであると考えられる。すなわち、低密度となった場合には、現状の測定技術では測定できない、つまり、測定限界があると言える。また、有効間隙率の変化のみではこの試験結果を説明することはできないため、式(1)~(5)を高次のものに改良していくことも必要ではないかと考えられる。

6. まとめ

6.1 成果

本研究では、前報¹⁾で実施した低密度条件(1.00Mg/m³)に加えて高密度条件(1.37Mg/m³)でのモンモリロナイトの浸潤挙動に伴う層間距離と透水係数のデータを取得した。また、ベントナイト内の構成物質モデル(図-4)を作成し、各部の体積割合を求める解析方法(式(1)~(5))を提案した。その結果、XRD測定で得られた層間距離から有効間隙率を算出する解析フロー(図-6)を確立した。解析によって得られた有効間隙率と実験で取

得した透水係数を比較することでモンモリロナイトの膨潤メカニズムを概ね把握することができた。本研究の成果は以下のようにまとめられる。

- ・モンモリロナイトの膨潤により有効間隙率が減少し、透水係数が小さくなるという当初想定していたメカニズム（透水挙動モデル）が、試験水の違いによる各試験結果からほぼ妥当であることが確認された。
- ・同一の乾燥密度で製作した供試体でも、用いる試験水が異なることにより透水係数に大きな差が出るということが確認された。飽和後の有効間隙率の差が透水係数に影響を与えていることを示した。

6.2 今後の課題

蒸留水を用いた場合では、乾燥密度の違いによる有効間隙率の顕著な差異が、透水係数に反映されていないことが把握された。これについては、要因を追求していく必要があるが、これを含めた今後の課題を以下に挙げる。

- ・層間距離から有効間隙率を算定する式 (1) ~ (5) を高次の式にする等の改良を行う。
- ・今回は有効間隙を通水するモデルを考えたが、層間を通るモデル要素も合わせて検討する。
- ・供試体内での密度の不均一にともなうモンモリロナイトの層間距離のばらつきを考慮できる解析モデルを検討する。
- ・本研究ではNa型のベントナイトを用いたが、Ca型でも同様のモデル化が可能か検討を行う。

謝辞

本研究の実験と解析を行うにあたり、東京工業大学河村雄教授、クニミネ工業株式会社 諸留章二氏にご協力いただきました。ここに記して謝意を表します。

参考文献

- 1) 伊藤歩夢, 千々松正和: ベントナイトの透水挙動モデル構築に関する実験的研究, 安藤ハザマ研究年報, Vol.8, P.11, 2020.
- 2) 富田製菓株式会社: MARINE ART, <http://www.tomitaph.co.jp/products/data/catalog/marineart.pdf>, 2021.9.24 参照
- 3) クニミネ工業株式会社: クニゲル V1, https://www.kunimine.co.jp/download/pdf/catalog/catalog_kunigel_v1.pdf, 2021.9.24 参照
- 4) 株式会社リガク, RINT Ultima III 製品カタログ, <https://www.rigaku.com/ja>,
- 5) 核燃料サイクル開発機構 (1999): わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性—地層処分研究会開発の第2次取りまとめ— 分冊 2 地層処分の工学技術, JNC TN1400 99-022, 1999.
- 6) 四辻健治, 舘幸男, 河村雄行, 有馬立身, 佐久間博: 分子動力学法によるモンモリロナイト層間中の水とイオンの物性評価—拡散モデルへの反映—, 粘土科学, 第58巻, 第1号, pp.8-25, 2019.

Experimental study on the construction of a permeability model of bentonite Part2 : Effective porosity analysis

Ayumu ITO, Masakazu CHIJIMATSU

The permeability coefficient of compacted bentonite is very small compared to that of common soil materials. In addition, the permeability coefficient differs greatly depending on the quality of the test water, and it cannot be evaluated by the difference in viscosity alone. The purpose of this study is to elucidate these factors, and finally to understand the infiltration and penetration behavior of water in bentonite, and then incorporate it into a numerical analysis model. In this study, we obtained the physical properties of Na-type bentonite and analyzed the effective porosity. The mechanism assumed from Part 1 was confirmed using quantitative data, and a bentonite permeability behavior model was constructed.