

# ベントナイト系材料の透水係数に及ぼす粘土鉱物の種類と含有量の影響

河野 勝宣

鳥取大学大学院工学研究科 社会基盤工学専攻 土木工学講座

Effects of clay mineral type and content on hydraulic conductivity of bentonite-sand mixtures

Masanori KOHNO

Civil Engineering Course, Department of Management of Social Systems and Civil Engineering,  
Graduate School of Engineering, Tottori University,

Tottori 680-8552, Japan

E-mail: kohnom@tottori-u.ac.jp

**Abstract:** Clay mineral type and content, mineral composition and assemblage, and alteration of bentonite are very important factors for the ultra-long-term stabilization of barriers and backfill in radioactive waste disposal. This study was conducted to investigate the effects of clay mineral type and content on the swelling characteristics and permeability of bentonite-sand mixtures with clay minerals using one-dimensional swelling-pressure and constant-pressure permeability tests. The hydraulic conductivity of bentonite-sand-clay mineral mixtures increased with mixed non-swelling alteration products replacement ratio. These results suggest that an increase in expected alteration products of montmorillonite leads to increased hydraulic conductivity. Our data provide a basis for evaluation of the hydraulic conductivity of bentonite-sand mixtures with known quantities of expected alteration products of montmorillonite.

**Key Words:** Clay mineral, Swelling pressure, Hydraulic conductivity, Bentonite-sand mixtures, Alteration, Specific surface area.

## 1. 緒言

放射性廃棄物の地層処分（図 1）は、各国で現実味を帯びた重要課題である。特に、数千～数百万年間にわたる超長期の安全性が求められる人工バリア材には、モンモリロナイトと呼ばれる粘土鉱物を主成分とする Na 型のベントナイト系材料（ベントナイトと珪砂の混合材料）を利用することが有望視されている。ベントナイトは主にモンモリロナイトと他の粘土鉱物（イライト、カオリナイト、緑泥石など）および非粘土鉱物（石英、長石類、炭酸塩鉱物、黄鉄鉱など）で構成される粘土材料である。これまでベントナイト系材料や粘土鉱物を主とする材料の膨潤特性および透水性に関して、多くの研究成果[2-10]が報告されている。数千～数百万年間の超長期の安全性を実現するにあたって、人工バリア材に及ぼす変質作用の影響は考慮すべき重要項目である。変質作用を受けることにより、ベントナイト中のモンモリロナイトは部分的にイライトや緑泥石に、長石はカオリナイトに変質する恐れがある[11-15]。特に、ベントナイト中のモンモリロナイトがイライトに変質す

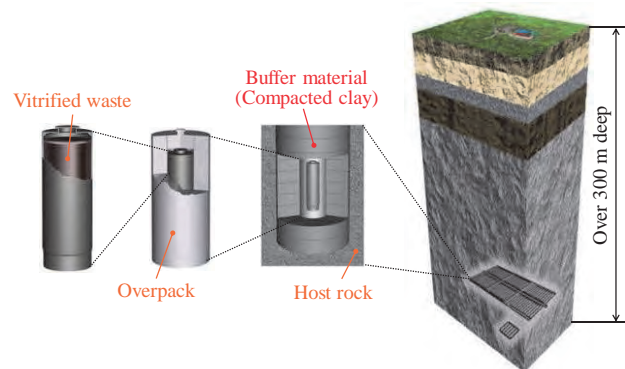


図 1 放射性廃棄物地層処分の多重バリアシステム ([1]に基づく)

る現象については多くの研究成果[12,16-19]が蓄積されているものの、カオリナイトや緑泥石に変質する現象について調査した研究は非常に少ない。これらの変質鉱物の生成により、ベントナイト系材料の物性が劣化する恐れがある。また、ベントナイト系材料に与える変質作用の超長期的な影響を予測するために、いくつかの数値シミュレーション[20-22]も試みられている。

一方、日本列島をはじめとする環太平洋地域の地質は、地質時代を通じて、マグマ活動や地殻変動、風化作用の産物が多く、熱水変質帯や破碎帯、風化帯が広範囲に分布しており、多種多様な粘土鉱物が普遍的に存在している。粘土鉱物はその構造や化学組成の違いから、物理・力学特性が大きく異なる。ベントナイトに関しても、産地が異なれば、モンモリロナイト以外の粘土鉱物やその他の鉱物が様々な割合で含有する。

したがって、ベントナイトの構成鉱物の組合せや量比の違いに着目することと、モンモリロナイトの変質後を想定した様々な粘土鉱物を主成分とする材料の物性を明らかにすることは、放射性廃棄物の地層処分における人工バリア材の超長期安全性を考えるうえで不可欠な重要検討事項である。

本総説は、まず、1種の粘土鉱物のみから構成される供試体の膨潤特性および透水性[23]について記述する。そして、ベントナイト系材料に対して、超長期供用による変質を想定して、変質鉱物(粘土鉱物)を様々な割合で置換した供試体を用いて、一次元膨潤圧試験および定圧透水試験を実施し、ベントナイト系材料の膨潤特性および透水性に与える粘土鉱物置換率(変質)の影響について検討した結果[23]を記述する。

## 2. 研究方法

### 2.1 研究試料

粘土鉱物の種類の違いが膨潤圧と透水係数に及ぼす影響を明らかにするために、1種の粘土鉱物のみから構成される供試体を使用した1次元膨潤圧試験および定圧透水試験を実施した。本研究で使用した粘土鉱物は、カオリナイト(土粒子密度  $\rho_s = 2.577 \text{ g/cm}^3$ , BET法による比表面積  $S_m = 40.42 \text{ m}^2/\text{g}$ , 1.0nmハロイサイト ( $\rho_s = 2.736 \text{ g/cm}^3$ ,  $S_m = 61 \text{ m}^2/\text{g}$  [24]), タルク ( $\rho_s = 2.786 \text{ g/cm}^3$ ,  $S_m = 5.39 \text{ m}^2/\text{g}$  [25]), 雲母粘土鉱物 ( $\rho_s = 2.904 \text{ g/cm}^3$ ,  $S_m = 4.85 \text{ m}^2/\text{g}$ ) および緑泥石 ( $\rho_s = 2.841 \text{ g/cm}^3$ ,  $S_m = 5.20 \text{ m}^2/\text{g}$ ) を用いた。このうち、ベントナイト系材料の変質を想定した試料として、カオリナイト、雲母粘土鉱物および緑泥石を用いた。ベントナイト系材料の試料の割合は、ベントナイトおよび粘土鉱物との割合により、粘土鉱物置換率 $\alpha$ を定義した(図2)。なお、粘土試料はいずれも75  $\mu\text{m}$ ふるい通過分を用いた。本研究では、ベントナイトは山形県月布産のクニゲルV1、珪砂は三河珪砂6号をそれぞ

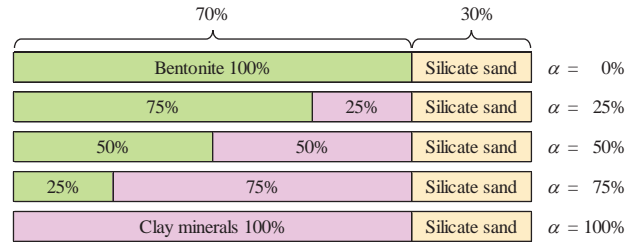


図2 ベントナイト系材料の配合 ([23]を一部改変)

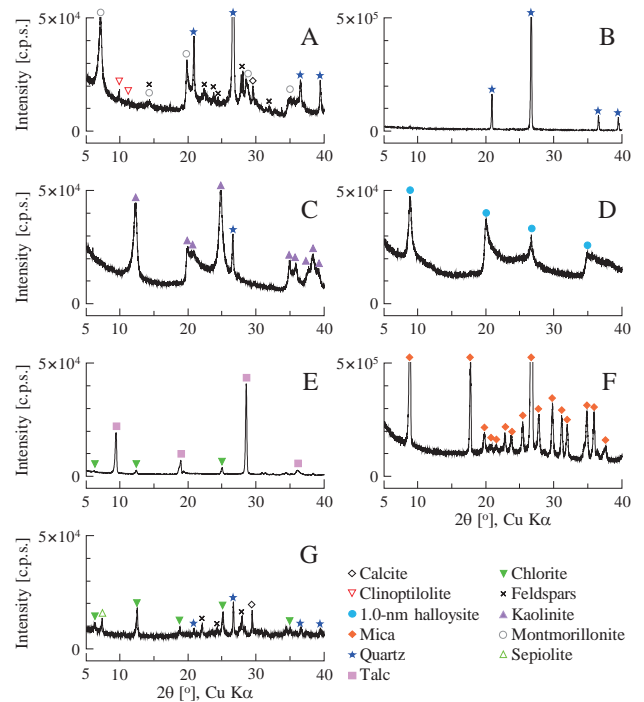


図3 ベントナイト (A)、珪砂 (B) および粘土鉱物試料 (C: カオリナイト, D: 1.0nm ハロイサイト, E: タルク, F: 雲母粘土鉱物, G: 緑泥石) の X 線回折パターン ([23]を一部改変)

れ用いた。クニゲルV1は、モンモリロナイト (46~49%), 石英 (29~38%), 長石類 (2.7~5.5%), 方解石 (2.1~2.6%), 苦灰石 (2.0~2.8%), 沸石類 (3.0~3.5%), 黄鉄鉱 (0.5~0.7%) などで構成される[1,26]。ベントナイトと粘土鉱物試料は、粉末X線回折パターンにより同定した(図3)。カオリナイト試料は、多量のカオリナイトと極少量の石英で構成される(図3C)。タルク試料は、多量のタルクと極微量の緑泥石で構成される(図3E)。緑泥石試料は、多量の緑泥石、少量の石英、長石、方解石、海泡石で構成される(図3G)。

## 2. 2 一次元膨潤圧試験および定圧透水試験

一次元膨張圧試験および定圧透水試験に使用した供試体は、直径50 mm、高さ10 mmの円柱で、密度が $1.4 \text{ g/cm}^3$ になるように静的に締固めて作製した。両試験とも恒温室 ( $20 \pm 1^\circ\text{C}$ ) 内に断熱材で作製した恒温槽内にて実施した。

一次元膨潤圧試験 (図4) は、供試体の体積変化を拘束した状態で水浸 (蒸留水) させ、そのときの鉛直方向に発生する荷重  $F$  を1秒間隔で測定し、膨潤圧  $P_s (= F/A, A: \text{供試体の断面積})$  を算出した。一次元膨潤圧試験は、少なくとも72時間行い、それ以降は膨潤圧が24時間一定 (平衡膨潤圧) となるまで測定を行った。

定圧透水試験 (図5) は、エアコンプレッサーおよび加圧容器を用いて、供試体に一定の透水圧で通水 (蒸留水) して行った。供試体は水浸減圧容器を用いて脱気し、飽和状態とした。本研究における供試体の飽和度の最小値は98.9%であった。粘土鉱物の膨張圧が約2日で平衡膨張圧力に達したことから (図6)、水浸時間は、粘土鉱物試料で4日間、ベントナイトで7日間とした。後者の日数は、少なくとも一次元膨張圧試験の期間に対応する。透水量は分析天びん (株式会社島津製作所製 AUW120D, 分解能 $0.1 \text{ mg}$ ) を用いて、60秒間隔でコンピュータにより計測した。測定時間は、初めて透水量を確認してから24時間以上測定した。透水係数  $k (= QL/hAt, Q: \text{透水量}, L: \text{供試体高さ}, h: \text{水位差}, A: \text{供試体の断面積}, t: \text{測定時間})$  はダルシー則を用いて算出した。水位差は加圧容器

内の圧力 (例えば、透水圧が $0.1 \text{ MPa}$ の場合、 $h = 1020.4 \text{ cm}$ ) として計算した。なお、透水圧は、供試体の変形や水みちを生じさせないように、膨潤圧以下に設定した。ただし、緑泥石試料および緑泥石-珪砂混合試料 ( $P_s < 0.002 \text{ MPa}$ ) の透水圧は $0.002 \text{ MPa}$ とした。また、透水量については、蒸発量も考慮した。

Temperature-controlled room

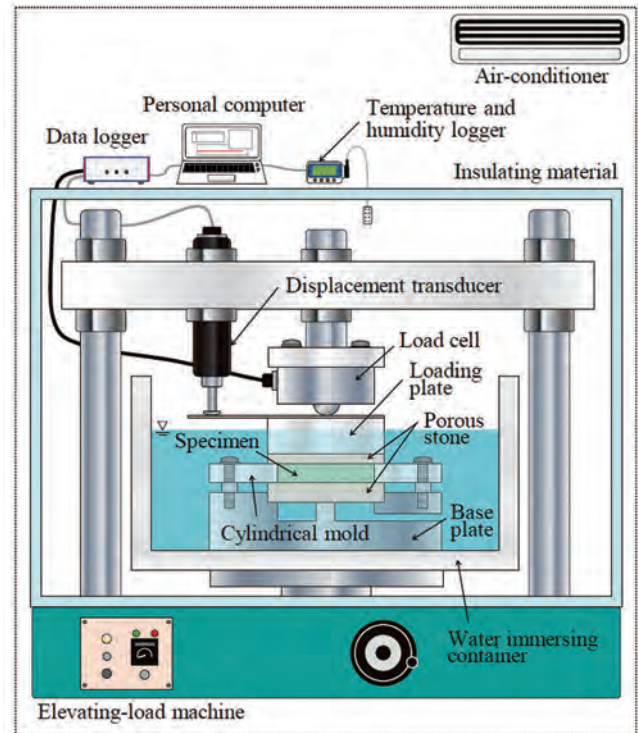


図4 一次元膨潤装置の概略図[23]

Temperature-controlled room

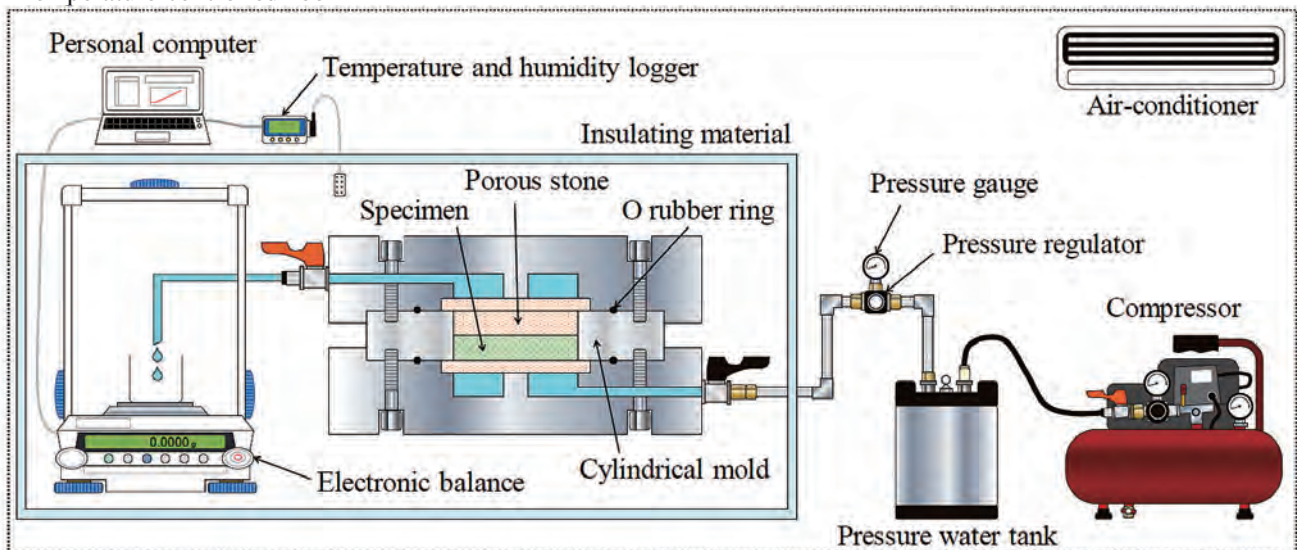


図5 定圧透水試験装置の概略図[23]



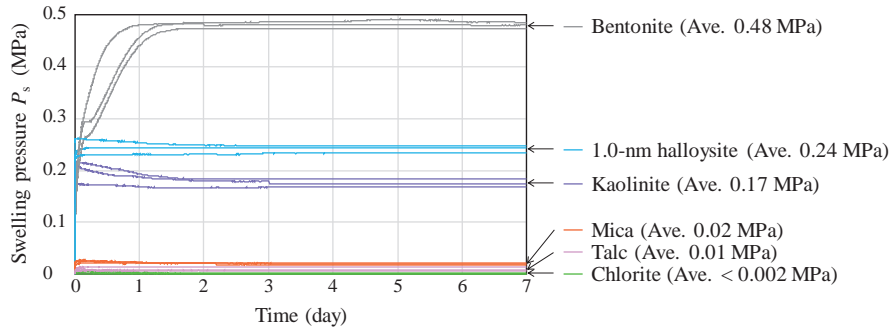


図6 ベントナイトと粘土鉱物の一次元膨潤圧[23]

### 3. 実験結果および考察

#### 3.1 1種の粘土鉱物のみから構成される供試体の膨潤圧および透水係数

5種類の粘土鉱物およびベントナイトの膨潤圧と透水係数との関係を図7に示す。膨潤圧  $P_s$  は、ベントナイトが最も大きく ( $P_s = 0.48$  MPa)、次いで、1.0nm ハロイサイト ( $P_s = 0.24$  MPa)、カオリナイト ( $P_s = 0.17$  MPa) であり、雲母粘土鉱物およびタルクが、それぞれ、 $P_s = 0.02$  MPa および  $P_s = 0.01$  MPa で小さく、緑泥石については  $P_s < 0.002$  MPa であった。したがって、膨潤圧は、粘土鉱物の種類によって異なることがわかる。特に、1.0 nm ハロイサイトとカオリナイトの膨張圧は、他の粘土鉱物よりも大きく、これらの粘土鉱物では比表面積が大きい。そのため、これらの粘土鉱物は表面張力による吸着水の増加により、間隙水圧が大きくなり、その結果、膨潤圧が大きくなったと考えられる。

一方、透水係数  $k$  は、ベントナイトで  $k = 5.3 \times 10^{-13}$  m/s で最も小さく、これは、同一試験条件下での既往の研究における透水係数 ( $k = 4.8 \times 10^{-13}$  m/s[27]) と同程度の値である。カオリナイトおよび1.0nm ハロイサイトの透水係数は  $10^{-10}$  m/s 程度、タルク、雲母粘土鉱物および緑泥石の透水係数は  $10^{-8}$  m/s 程度であり、両者には2オーダーの差があった。粘土鉱物の種類の違いによって、透水係数は異なることが示された。また、膨潤圧が大きい試料ほど透水係数は低く、これらの間には高い相関が認められた(図7)。地層処分において、ベントナイトの変質により生成されると考えられるカオリナイト、雲母粘土鉱物、緑泥石の透水係数は、ベントナイトの透水係数より3~5オーダー大きかった。これらの実験結果は、ベントナイトの変質による非膨潤性粘土鉱物の増加が透水係数の増加につながることを示唆している。

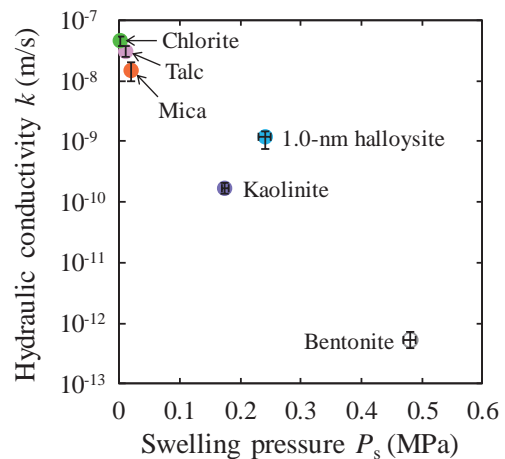


図7 ベントナイトと粘土鉱物の膨潤圧と透水係数との関係[23]

#### 3.2 粘土鉱物を含むベントナイト系材料の膨潤圧および透水係数

ベントナイト系材料の膨潤圧と透水係数との関係を図8に示す。ベントナイト系材料の膨潤圧は膨潤圧が大きい試料ほど透水係数は低くなる傾向が見られ、これらの間には高い相関が認められた。また、粘土鉱物置換率  $\alpha$  の増加に伴い、膨潤圧は低下するが、置換する粘土鉱物の種類の違いによる大きな差は見られない。

ベントナイト系材料の膨潤圧および透水係数と粘土鉱物置換率との関係を図9に示す。カオリナイト-珪砂混合供試体、雲母粘土鉱物-珪砂混合供試体および緑泥石-珪砂混合供試体 ( $\alpha = 100\%$ ) の透水係数は、それぞれ、 $k = 6.3 \times 10^{-10}$  m/s、 $k = 3.6 \times 10^{-8}$  m/s および  $k = 9.4 \times 10^{-8}$  m/s であった。これらの透水係数は、ベントナイト-珪砂混合供試体 ( $\alpha = 0\%$ ) における透水係数 ( $k = 1.4 \times 10^{-12}$  m/s) よりも2~4オーダー程度低下する結果となった。なお、同一試験条件下での既往の研究におけるベントナイト-珪砂混合供試体 ( $\alpha = 0\%$ ) の透水係

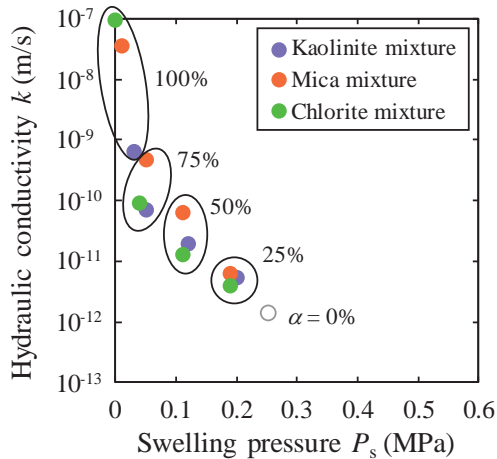


図 8 ベントナイト系材料の膨潤圧と透水係数との関係[23]

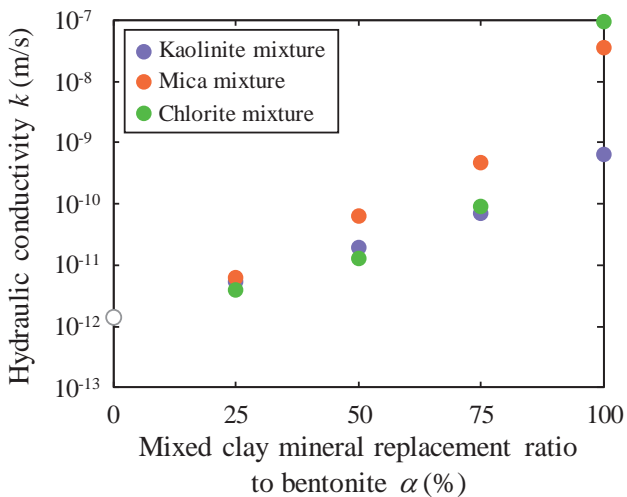


図 9 ベントナイト系材料の粘土鉱物置換率と透水係数との関係 ([23]を一部改変)

数は、 $k = 1.0 \times 10^{-12}$  m/s[27]であり、本研究における透水係数と同程度の値である。粘土鉱物置換率  $\alpha$  の増加に伴い、透水係数  $k$  は高くなる傾向が見られるが、 $\alpha = 25\%$ 、 $50\%$ においては、粘土鉱物の種類の違いによる透水係数の大きな差は見られない。これは、粘土鉱物含有量が少ないうちは、透水係数の値には、粘土鉱物の種類の影響よりもベントナイト含有量、すなわち、膨潤量が大きく関係すると考えられる。つまり、ベントナイト含有量が多いうちは、膨潤により大部分の空隙を埋めることができるが、粘土鉱物の増加に伴い、空隙を埋めることができなくなり、その結果、透水係数の上昇という現象が見られたと考えられる。このことについては、走査型電子顕微鏡による2次電子画像(図10)で確認することができ、ベント

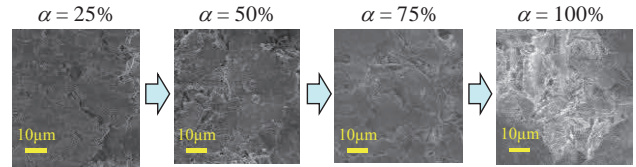


図 10 ベントナイト系材料の2次電子画像(雲母粘土鉱物混合の例)

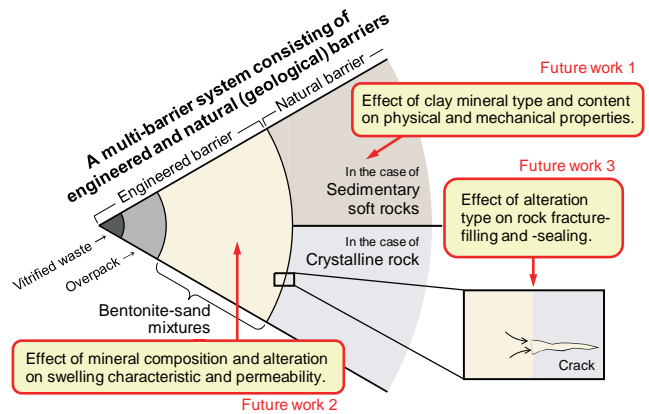


図 11 著者が目指す今後の解決すべき課題

ナイトよりも結晶粒子の大きな粘土鉱物置換率の増加に伴い、空隙が多くなっていく様子が見ることが出来る。以上の結果は、ベントナイト系材料を構成するモンモリロナイトの変質によるカオリナイト、雲母粘土鉱物、緑泥石等の粘土鉱物の増加は透水係数の上昇を引き起こす恐れがあることを示唆する。

#### 4 研究のまとめと今後の課題

本研究では、1種の粘土鉱物のみから構成される供試体と、ベントナイト系材料に対して超長期供用による変質を想定して、変質鉱物(粘土鉱物)を様々な割合で置換した供試体を用いて、一次元膨潤圧試験および定圧透水試験を実施し、ベントナイト系材料の膨潤特性および透水性に与える粘土鉱物置換率(変質)の影響について検討した。その結果、粘土鉱物の種類によって膨潤圧と透水係数が異なることがわかった。特に、ベントナイトの変質によって生成されると考えられるカオリナイト、雲母粘土鉱物および緑泥石の透水係数は、ベントナイトの透水係数よりも3~5オーダー大きかった。また、カオリナイト-珪砂混合供試体、雲母粘土鉱物-珪砂混合供試体および緑泥石-珪砂混合供試体の透水係数は、ベントナイト系材料供試体における透水係数よりも2~4オーダー程

度低下する結果となった。これらの実験結果は、ベントナイト系材料を構成するモンモリロナイトの変質によるカオリナイト、雲母粘土鉱物、緑泥石等の粘土鉱物の増加は透水係数の上昇を引き起こす恐れがあることを示唆する。

図 11 に著者が目指す今後の解決すべき課題を示す。放射性廃棄物地層処分において、人工バリア材（ベントナイト系材料）の変質による膨潤性能や透水性能の低下は、緩衝材の性能を劣化させる負の効果である反面、変質によるベントナイトの粘性の低下等により、天然バリア材（岩盤）中の亀裂を閉塞させてバリア機能を高めるといった正の効果と捉えることもできる。ベントナイトに作用する溶液の種類の違いにより、岩盤中の亀裂の閉塞の程度や、閉塞鉱物の組成も異なることが考えられ、それに対応して岩盤の透水性などの物性も大きく異なることが予想される。今後は、人工バリア材（ベントナイト系材料）と天然バリア材（結晶質岩盤と堆積軟岩）の物性に及ぼす変質や変質鉱物（主に粘土鉱物）の組合せ・量比の影響を明らかにし、その評価手法を構築する予定である。さらに、人工バリアおよび天然バリアの両バリア材の相互作用関係から、変質によるベントナイトの性能劣化と岩盤の亀裂閉塞による性能向上の関係性を明らかにする予定である。いずれも、地質学的な視点はもちろんのこと、力学・化学的現象についての理論的検討・融合も視野に入れて、地下地盤環境の長期安定性実現に向けて挑戦する所存である。

## 謝 辞

本総説は、平成 30 年度鳥取大学科学研究業績表彰の対象となった論文[23]の一部と今後の課題についてまとめたものである。執筆の機会を与えて頂いた工学研究科研究報告編集委員会に感謝申し上げます。また、共同研究者の鳥取大学教授 西村強先生、京都大学准教授 奈良禎太先生、北海道大学助教 加藤昌治先生との議論を通じて多くの示唆を頂いた。記して、謝意を表する。

## 参考文献

- [1] Japan Nuclear Cycle Development Institute: H12: Project to Establish the Scientific and Technical Basis for HLW Disposal in Japan, Supporting Report 2, Repository Design and Engineering Technology, Second Progress
- [2] Komine, H. and Ogata, N.: Experimental study on swelling characteristics of compacted bentonite, *Canadian Geotechnical Journal*, Vol.31, pp.478-490, 1994.
- [3] Mollins, L.H., Stewart, D.I. and Cousens, T.W.: Predicting the properties of bentonite-sand mixtures, *Clay Minerals*, Vol.31, pp.243-252, 1996.
- [4] Komine, H. and Ogata, N.: Experimental study on swelling characteristics of sand-bentonite mixture for nuclear waste disposal, *Soils and Foundations*, Vol.39, pp.83-97, 1999.
- [5] Cho, W.J., Lee, J.O. and Chun, K.S.: The temperature effects on hydraulic conductivity of compacted bentonite, *Applied Clay Science*, Vol.14, pp.47-58, 1999.
- [6] Sivapullaiah, P.V., Sridharan, A. and Stalin, V.K.: Hydraulic conductivity of bentonite-sand mixtures, *Canadian Geotechnical Journal*, Vol.37, pp.406-413, 2000.
- [7] Shirazi, S.M., Kazama, H., Salman, F.A., Othman, F. and Akib, S.: Permeability and swelling characteristics of bentonite, *International Journal of the Physical Sciences*, Vol.5, pp.1647-1659, 2010.
- [8] Suzuki, K., Asano, H., Yahagi, R., Kobayashi, I., Sellin, P., Svemar, C. and Holmqvist, M.: Experimental investigations of piping phenomena in bentonite-based buffer materials for an HLW repository, *Clay Minerals*, Vol.48, pp.363-382, 2013.
- [9] Pusch, R.: Is montmorillonite-rich clay of MX-80 type the ideal buffer for isolation of HLW?, SKB Technical Report, Rep. No. SKB-TR-99-33, 1999.
- [10] Sellin, P. and Leupin, O.X.: The use of clay as an engineered barrier in radioactive-waste management - A review, *Clays and Clay Minerals*, Vol.61, pp.477-498, 2013.
- [11] Inoue, A., Kohyama, N., Kitagawa, R. and Watanabe, T.: Chemical and morphological evidence for the conversion of smectite to illite, *Clays and Clay Minerals*, Vol.35, pp.111-120, 1987.
- [12] Nakayama, S., Sakamoto, Y., Yamaguchi, T.,

Report on Research and Development for the Geological Disposal of HLW in Japan, JNC TN1410 2000-003, 2000.

- Akai, T., Tanaka, T., Sato, T. and Iida, Y.: Dissolution of montmorillonite in compacted bentonite by highly alkaline aqueous solutions and diffusivity of hydroxide ions, *Applied Clay Science*, Vol.27, pp.53-65, 2004.
- [13] 横山信吾, 中村邦彦, 田中幸久, 廣永道彦: ベントナイトのアルカリ変質に関する文献調査, 電力中央研究所報告, N05042, pp.1-32, 2006.
- [14] Savage, D., Walker, C., Arthur, R., Rochelle, C., Oda, C. and Takase, H.: Alteration of bentonite by hyperalkaline fluids: A review of the role of secondary minerals, *Physics and Chemistry of the Earth*, Vol.32, pp.287-297, 2007.
- [15] 横山信吾, 中村邦彦: 放射性廃棄物処分におけるベントナイト系材料のアルカリ溶液による変質挙動 (その 1) -アルカリ性の各種溶液に浸漬した締固めベントナイトの鉱物学的な変質と透水性の変化-, 電力中央研究所報告, N09015, pp.1-29, 2010.
- [16] Yamaguchi, T., Sakamoto, Y., Akai, M., Takazawa, M., Iida, Y., Tanaka, T. and Nakayama, S.: Experimental and modeling study on long-term alteration of compacted bentonite with alkaline groundwater, *Physics and Chemistry of the Earth*, Vol.32, pp.298-310, 2007.
- [17] Cuisinier, O., Masrouri, F., Pelletier, M., Villieras, F. and Mosser-Ruck, R.: Microstructure of a compacted soil submitted to an alkaline PLUME, *Applied Clay Science*, Vol.40, pp.159-170, 2008.
- [18] Chen, B., Guo, J. and Zhang, H.: Alteration of compacted GMZ bentonite by infiltration of alkaline solution, *Clay Minerals*, Vol.51, pp.237-247, 2016.
- [19] Yamaguchi, T., Sawaguchi, T., Tsukada, M., Kadowaki, M. and Tanaka, T.: Changes in hydraulic conductivity of sand-bentonite mixtures accompanied by alkaline alteration, *Clay Minerals*, Vol.48, pp.403-410, 2013.
- [20] 石川博久, 柴田雅博, 藤田朝雄: 放射性廃棄物処分における緩衝材のイライト化変質シミュレーション, *粘土科学*, Vol.34, pp.149-156, 1994.
- [21] Savage, D., Noy, D. and Mihara, M.: Modelling the interaction of bentonite with hyperalkaline fluids, *Applied Geochemistry*, Vol.17, pp.207-223, 2002.
- [22] Ishii, T., Yahagi, R., Owada, H., Kobayashi, I., Takazawa, M., Yamaguchi, K., Takayama, Y., Tsurumi, S. and Iizuka, A.: Coupled chemical-hydraulic-mechanical modelling of long-term alteration of bentonite, *Clay Minerals*, Vol.48, pp.331-341, 2013.
- [23] Kohno, M., Nara, Y., Kato, M. and Nishimura, T.: Effects of clay-mineral type and content on the hydraulic conductivity of bentonite - sand mixtures made of Kunigel bentonite from Japan, *Clay Minerals*, Vol.53, pp.721-732, 2018.
- [24] 日本粘土学会 編: 粘土ハンドブック (第三版), 技報堂出版, 2009.
- [25] Holland, H.J. and Murtagh, M.J.: An XRD morphology index for talcs: The effect of particle size and morphology on the specific surface area, *Advances in X-ray Analysis*, Vol.42, pp.421-428, 2000.
- [26] 伊藤雅和, 岡本真由美, 柴田雅博, 佐々木康雄, 檀原 徹, 鈴木啓三, 渡辺 隆: ベントナイトの鉱物組成分析, PNC TN8430 93-003, 動力炉・核燃料開発事業団, pp.1-114, 1993.
- [27] 鈴木英明, 柴田雅博, 山形順二, 広瀬郁郎, 寺門一馬: 緩衝材の特性試験 (I), PNC TN8410 92-057, 動力炉・核燃料開発事業団, pp.1-103, 1992.

(受理 令和元年 10 月 21 日)