

## 圧縮ベントナイトの水分特性曲線および水分拡散係数と水の移動形態

## (Water Retention Curve, Water Diffusivity and Water Movement of Compacted Bentonite)

竹 内 真 司<sup>i)</sup> (Shinji Takeuchi)  
原 啓 二<sup>ii)</sup> (Keiji Hara)  
中 野 政 詩<sup>iii)</sup> (Masashi Nakano)

キーワード：圧縮ベントナイト／温度効果／浸透／水分特性曲線／水分拡散係数／粘土／廃棄物処分／不飽和土 (IGC : D2/D3/D4/D5)

## 1. はじめに

高レベル放射性廃棄物の地層処分に際し、人工バリアとして圧縮ベントナイトを緩衝材に用いることが考えられている。緩衝材中では廃棄体からの放熱、周辺岩盤からの地下水の浸入、地圧や膨潤圧が作用した熱-水-応力連成現象が生じると予想される。このような連成現象を明らかにするためには、個々の現象に関わるメカニズムを明らかにする必要があるが、このうち地下水の浸入は緩衝材に膨潤圧を発生させたり、伝熱性を変化させるなど熱や応力に影響を及ぼす大きな要因と考えられる。

不飽和圧縮ベントナイト中の水は、水蒸気と液状水の二相で移動すると言われている<sup>1),2)</sup>が、両者を明確に分けて取り扱うことが難しいことから、一般に両者を合わせた見かけの水分拡散係数（以下水分拡散係数）を用いた拡散モデルでその移動が解析される例<sup>3),4)</sup>が多い。しかしこのような簡易モデルでは、熱や応力との連成現象を詳細に把握することが困難なため、そのモデル化においては、水蒸気と液状水の二相流の取扱いが必要となる。不飽和圧縮ベントナイト中の水蒸気と液状水の二相流については、密度の低いベントナイトでの水分拡散係数と体積含水率の相関から、低含水領域で水蒸気移動が、高含水領域では液状水移動が卓越すると推察されている<sup>2)</sup>。二相流としての取扱いをするためには、水蒸気および液状水の各々の水分拡散係数の正確な把握が必要であり、更にそれぞれの移動が存在するという証明がなされなければならない。

本論では、熱-水-応力連成現象の解析に適用することを目指して、不飽和圧縮ベントナイト中の水分ポテンシャルと水分拡散係数を測定し、それらの密度依存性及び温度依存性を調べた。更に得られた水分拡散係数について、Philip and de Vries 式<sup>5)</sup>及び Darcy 式を用いて測定された水分拡散係数が、液状水移動において定義されたものか、あるいは水蒸気移動において定義されたものかを調べ、ベントナイト中の水の移動形態について考察した。

## 2. 測定原理

## 2.1 水分ポテンシャル

ベントナイト中の水のポテンシャルエネルギー  $\Psi$  と相対湿度  $P/P_0$  の間には次の関係がある<sup>6)</sup>。

$$\Psi = \frac{RT}{M} \ln \left( \frac{P}{P_0} \right) \quad (1)$$

ここで  $\Psi$  はベントナイト中の単位質量当たりのポテンシャル、 $M$  は水の分子量、 $R$  は気体定数、 $T$  は絶対温度、 $P$  および  $P_0$  はその温度における試料の水蒸気圧と飽和水蒸気圧である。

本試験で水分ポテンシャル測定のために用いたサイクロメータ (SC-10A : Decagon Device 社製) は熱電対サイクロメータと呼ばれるもので、熱電対接点を湿球として試料との温度差を測定し相対湿度を求めるものである。

具体的な測定方法は以下のとおりである。試料容器中の試料と空気のポテンシャルが平衡になった状態で、湿球に純水を付ける。湿球近傍の空気は飽和水蒸気圧になっているため、湿球は蒸発によって潜熱を奪われ温度が低下する。一方、湿球の温度低下によって外部から湿球に向かう熱流が生じ、顕熱が発生する。湿球の温度は潜熱と顕熱が釣り合う温度で平衡に達する。この時の温度と出力電圧 (湿球温度低下) より相対湿度を求める。なおポテンシャル測定後、試料の含水比を測定する。

## 2.2 水分拡散係数

不飽和粘土中の等温条件下の水の移動は液状水移動にしても、水蒸気移動にしても Darcy 式を用い次式で表される。

$$q = -D \frac{\partial \theta}{\partial Z} \quad (2)$$

ここで  $q$  はフラックス、 $D$  は水分拡散係数、 $\theta$  は体積含水率、 $Z$  は試料中の位置を表す。

したがって、後述する浸潤試験で得られる水分分布曲線を用いることにより、次式によってこの水分拡散係数  $D$  を計算することができる<sup>5)</sup>。

$$D = \frac{\int_{z_i}^l (\theta_{t=t_2} - \theta_{t=t_1}) dz}{\frac{1}{2} \left\{ \left( \frac{\partial \theta}{\partial z} \right)_{z_i, t=t_2} + \left( \frac{\partial \theta}{\partial z} \right)_{z_i, t=t_1} \right\}} \times \frac{1}{t_2 - t_1} \quad (3)$$

ここで、 $l$  は試料の長さ、 $t$  は浸潤時間、 $z_i$  ( $0 \leq i \leq l$ ) は試料底からの位置を表す。

上式により求めた水分拡散係数  $D$  を次式で与えられる平均的な体積含水率  $\theta$  に対してプロットすると水分拡散係数と体積含水率の関数関係が得られる。

<sup>i)</sup> 動力炉・核燃料開発事業団東海事業所環境技術開発部地層処分開発室 研究員

<sup>ii)</sup> 動力炉・核燃料開発事業団本社環境技術開発推進本部 処分グループ 副主幹

<sup>iii)</sup> 東京大学農学部農業工学科 教授  
(1994. 5. 17 原稿受付・討議期限 1996. 4. 1 要請があれば1か月の期限延長可能)

$$\theta = \frac{1}{4} \left\{ \theta_{t=t_1}^{Z=z_i-1/2 \Delta z_i} + \theta_{t=t_1}^{Z=z_i+1/2 \Delta z_i} + \theta_{t=t_2}^{Z=z_i-1/2 \Delta z_i} + \theta_{t=t_2}^{Z=z_i+1/2 \Delta z_i} \right\} \quad (4)$$

### 3. 試 験

#### 3.1 水分特性試験

##### 1) 方法

試料は粉末ベントナイト（クニゲル V1<sup>TM</sup>）である。試験に用いた装置の概略図を図-1(a)に示す。あらかじめ粉末状のベントナイトに直接水蒸気を与える方法により、水分量の異なる試料を用意する。これを拘束リング内で直径13 mm、高さ9 mmの大きさに所定の乾燥密度で圧縮成形する。これらの試料のポテンシャルをサイクロメータを用いて測定し、これと含水比との関係を得る。

##### 2) 条件

試験条件は表-1に示す通りである。乾燥密度は1.6および1.8(g/cm<sup>3</sup>)、温度は25, 60°C、初期体積含水率は0.16~0.20(cm<sup>3</sup>/cm<sup>3</sup>)で試験した。

#### 3.2 浸潤試験

##### 1) 方法

試料は同じく粉末ベントナイト（クニゲル V1<sup>TM</sup>）である。試験に用いた装置の概略図を図-1(b)に示す。拘束リング（内径20 mm、肉厚10 mm、高さ20 mm）内で粉末状のベントナイト試料をφ20 mm×L20 mmの大きさに所定の乾燥密度で圧縮成形する。この拘束リングの上下に内径20 mm、肉厚10 mm、高さ10 mmのステンレス製の拘束蓋を取り付ける。試料の上下には金属焼結フィルター（孔径5 μm）を置き、これらと試料の間にはベントナイトの流入による金属焼結フィルターの目詰まりを防止するために、テフロンフィルター（孔径2 μm）を挟む。この装置の下端を水中につけて下部より浸入させる。また試験溶液には純水を用いる。また上部には空気口を設けてあり、金属焼結フィルターを介して試料内部の空気を外部に放出する構造となっている。所定の浸潤時間経過

表-1 水分特性試験の試験条件

試 料	クニゲル V1	
乾燥密度 $\rho_d$ (g/cm <sup>3</sup> )	1.6	1.8
温 度 (°C)	25	25, 60
初期体積含水率 $\theta$ (cm <sup>3</sup> /cm <sup>3</sup> )	0.16~0.20	

表-2 浸潤試験の試験条件

試 料	クニゲル V1	
温 度 (°C)	室温 (約25)	40, 60
乾燥密度 $\rho_d$ (g/cm <sup>3</sup> )	1.0, 1.6, 1.8	1.8
浸潤時間 (h)	4, 8, 16, 24, 48, 72	
初期体積含水率 $\theta$ (cm <sup>3</sup> /cm <sup>3</sup> )	0.16~0.20	

後、試料を10分割する。分割した試料は炉乾燥（110°C, 24 h）により含水比を測定し、試料の水分分布を求める。

##### 2) 条件

試験条件は表-2に示す通りである。温度は25~60°Cの範囲で行い、乾燥密度は1.0~1.8(g/cm<sup>3</sup>)、初期体積含水率は0.16~0.20(cm<sup>3</sup>/cm<sup>3</sup>)で試験した。

### 4. 試 験 結 果

#### 4.1 水分特性試験

図-2(a)(b)に密度の異なる試料の測定結果を示す。ここで図-2(a)は縦軸に含水比を、図-2(b)は体積含水率をとったものである。図-2(a)では水分特性曲線は密度によらず一本の曲線上にのる傾向を示す。即ち含水比を軸にとった場合、試験範囲の含水比においては水分特性曲線に乾燥密度依存性は見られないことが分かる。図-2(b)より、体積含水率を軸にとると乾燥密度依存性が現れ、水分の少ない領域では、密度の上昇に伴ってサクシオンは増加するが、水分が多い領域では逆に減少することが分かる。なお体積含水率を軸にとった乾燥密度1.0(g/cm<sup>3</sup>)の水分特性曲線（図-2(b)）は実測値ではないが、上述のように含水比を軸にとった場合（図-2(a)）、水分特性曲線には乾燥密度による変化は認められず、更に体積含水率は含水比に乾燥密度を乗じて得られることから、図-2(a)のクニゲル V1のデータを図-2(b)の乾燥密度1.0(g/cm<sup>3</sup>)の水分特性曲線とした。また図-2(a)には、クニゲル V1の他にベントナイト GA 及びクニゲル V1にケイ砂を混合した試料のサクシオンの値を文献<sup>2),8)</sup>より引用した。その場合、クニゲル V1のモンモリロナイト含有率は約50%、ベントナイト GAは約65%、乾燥密度0.846(g/cm<sup>3</sup>)、クニゲル V1にケイ砂を混合した試料は30%、乾燥密度1.8(g/cm<sup>3</sup>)である。これより水分特性曲線はモンモリロナイトの含有率に依存して変化することが分かる。即ち不飽和ベントナイト中の保水は、ベントナイト中のモンモリロナイト含有率に大きく支

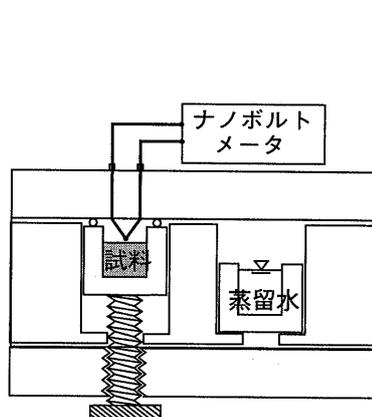


図-1(a) 水分特性試験

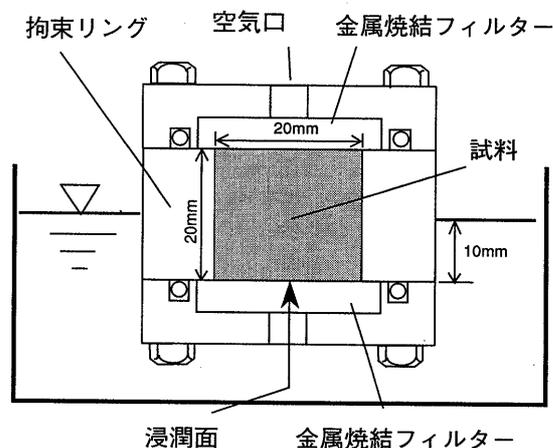


図-1(b) 浸潤試験

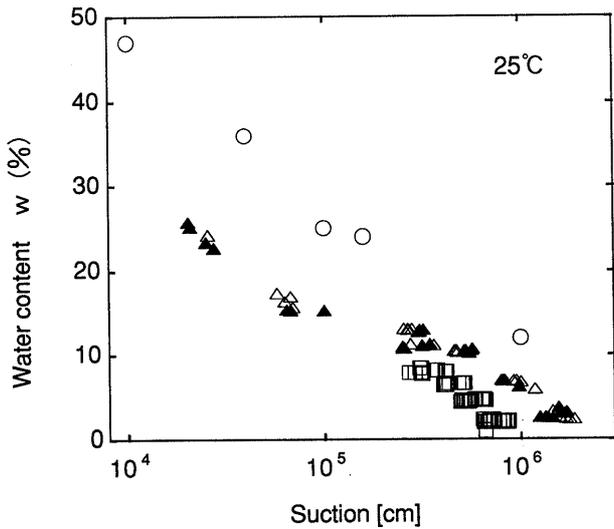


図-2(a) 各種ベントナイト試料の水分特性曲線 (縦軸: 含水比)  
 ○: ベントナイト GA ( $\rho_d=0.846 \text{ g/cm}^3$ , モンモリロナイト 65%), ▲: クニゲル V1 ( $\rho_d=1.6 \text{ g/cm}^3$ , モンモリロナイト 50%), △: クニゲル V1 ( $\rho_d=1.8 \text{ g/cm}^3$ , モンモリロナイト 50%), □: クニゲル V1+ケイ砂 ( $\rho_d=1.8 \text{ g/cm}^3$ , モンモリロナイト30%)

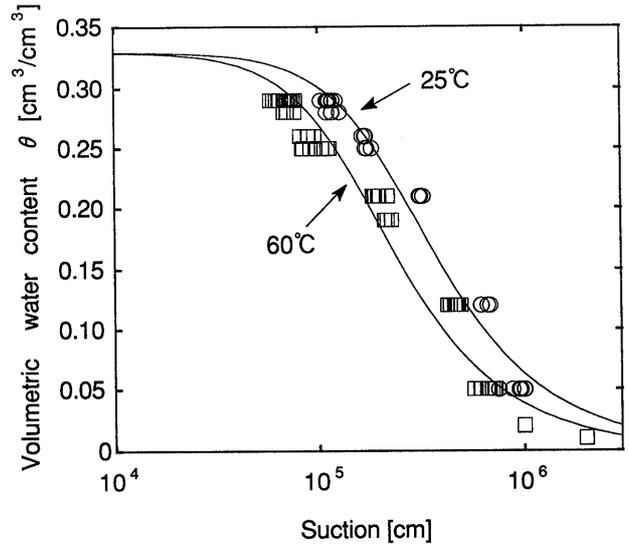


図-3 クニゲル V1 の水分特性曲線の温度依存 ( $\rho_d=1.8 \text{ g/cm}^3$ )  
 ○: 25°C, □: 60°C

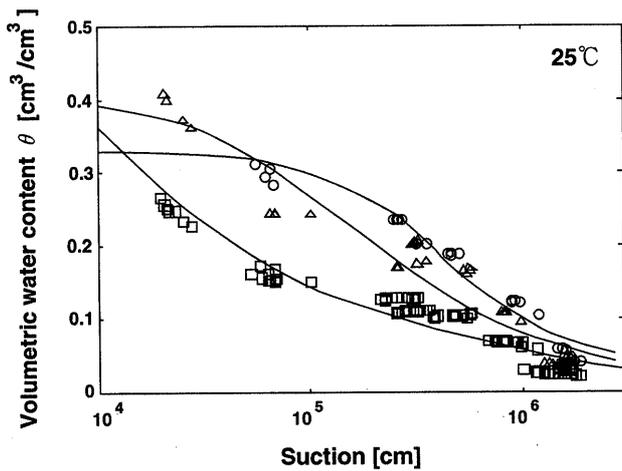


図-2(b) クニゲル V1 の水分特性曲線の密度依存 (縦軸: 体積含水率)  
 □:  $\rho_d=1.0 \text{ [g/cm}^3]$ , △:  $\rho_d=1.6 \text{ [g/cm}^3]$ , ○:  $\rho_d=1.8 \text{ [g/cm}^3]$

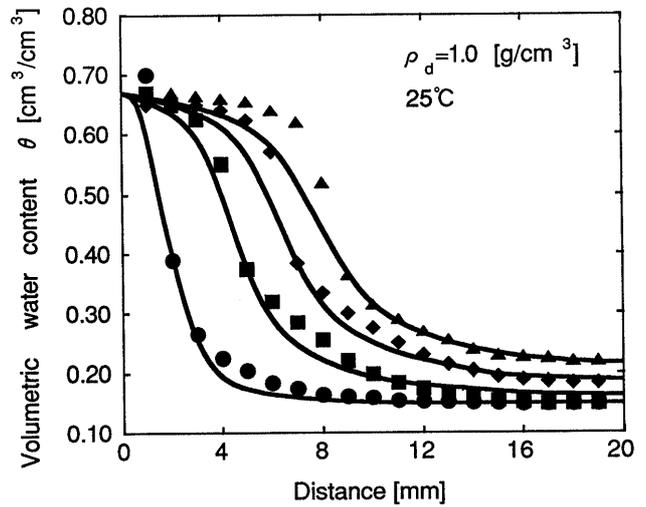


図-4(a) 水分分布図  
 —: 計算値, ●: 浸潤時間 4 h, ■: 浸潤時間 24 h, ◆: 浸潤時間 48 h, ▲: 浸潤時間 72 h

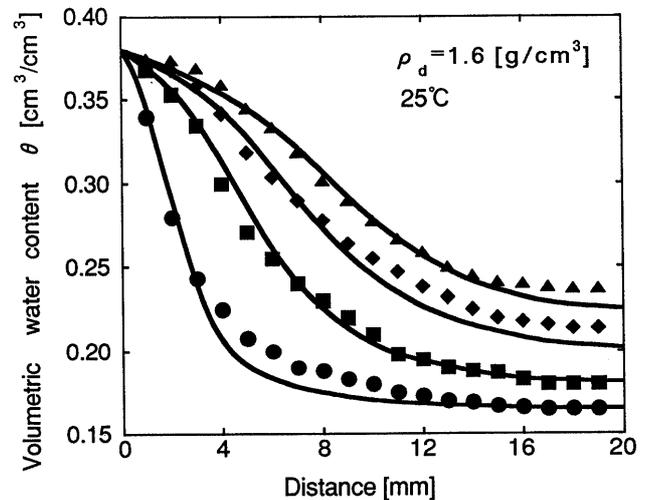


図-4(b) 水分分布図  
 —: 計算値, ●: 浸潤時間 4 h, ■: 浸潤時間 24 h, ◆: 浸潤時間 48 h, ▲: 浸潤時間 72 h

配されることが予想される。

図-3 に試料の温度を変化させた場合の測定結果を示す。これより、サクシオンは温度の上昇に伴って減少することが分かる。

#### 4.2 浸潤試験

##### 1) 水分分布

室温(約25°C)における試験の結果、得られた水分分布図を図-4(a)(b)及び図-5(a)に示す。図には2回行った試験の平均的な値をプロットしてある。これより水分は時間の経過に伴って全層にわたって増加していることが分かる。

特徴として、乾燥密度が1.0, 1.6(g/cm<sup>3</sup>)では水分分布曲線は水分量の多い部分と少ない部分において傾きが緩やかな部分が見られるが、乾燥密度が1.8(g/cm<sup>3</sup>)では水分量が多い部分で曲線の緩傾斜部が見られないことが挙げられる。

図-5(a)(b)に乾燥密度が1.8(g/cm<sup>3</sup>)の時の25°C, 60°Cにおける試験の結果得られた水分分布図を示す。図-5においても図-4と同

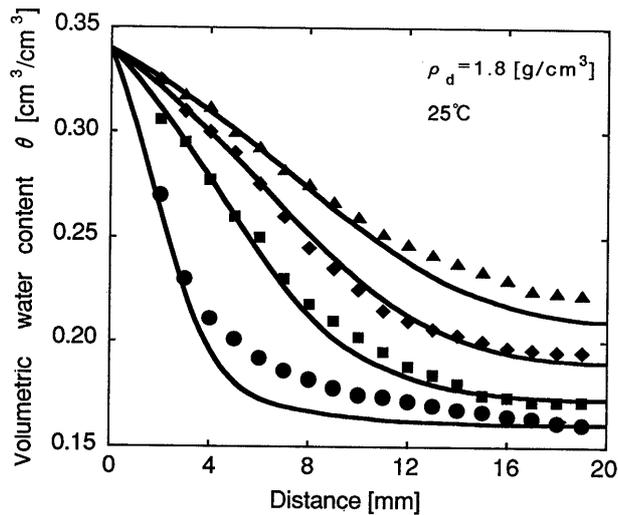


図-5(a) 水分分布図  
 一：計算値，●：浸潤時間4h，■：浸潤時間24h，◆：浸潤時間48h，▲：浸潤時間72h

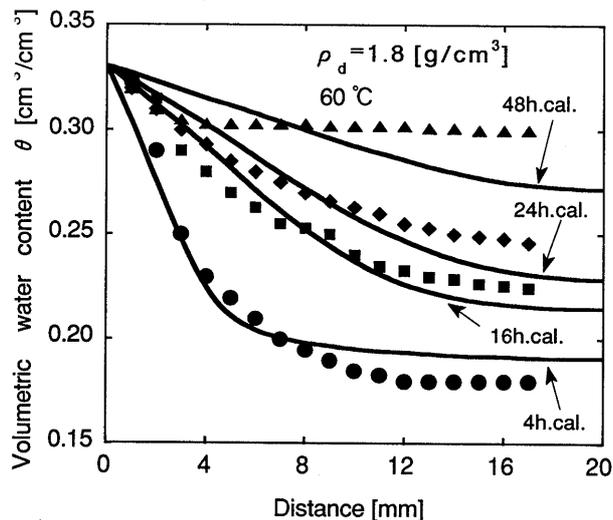


図-5(b) 水分分布図  
 一：計算値，●：浸潤時間4h，■：浸潤時間16h，◆：浸潤時間24h，▲：浸潤時間48h

様に浸潤時間の経過に伴って水分が全層にわたって増加していることが分かる。

2) 密度分布

ベントナイトは水の浸潤に伴って、モンモリロナイトの層間に水を蓄えることにより膨潤する。このため微視的に見ると粒子の移動を伴うとされている<sup>1),6)</sup>。この粒子の移動は10分割した薄片の乾燥密度の変化に現れると考え、時間毎の乾燥密度を測定した。乾燥密度は各薄片の乾燥重量をその体積で割ることにより求めた。結果の一部を図-6に示す。乾燥密度1.0(g/cm<sup>3</sup>)の試料においては、浸潤の初期には浸潤面における試料の膨張による乾燥密度の低下と、これと隣接する部分での乾燥密度の増大が認められる。更に時間の経過に伴い、高密度の部分が試料の内部に移動することが分かる。これは水の浸潤過程におけるベントナイト粒子の移動を示していると考えられる。しかしながら、乾燥密度1.6および1.8(g/cm<sup>3</sup>)においては顕著な密度変化は認められなかった。更に乾燥密度1.8(g/cm<sup>3</sup>)

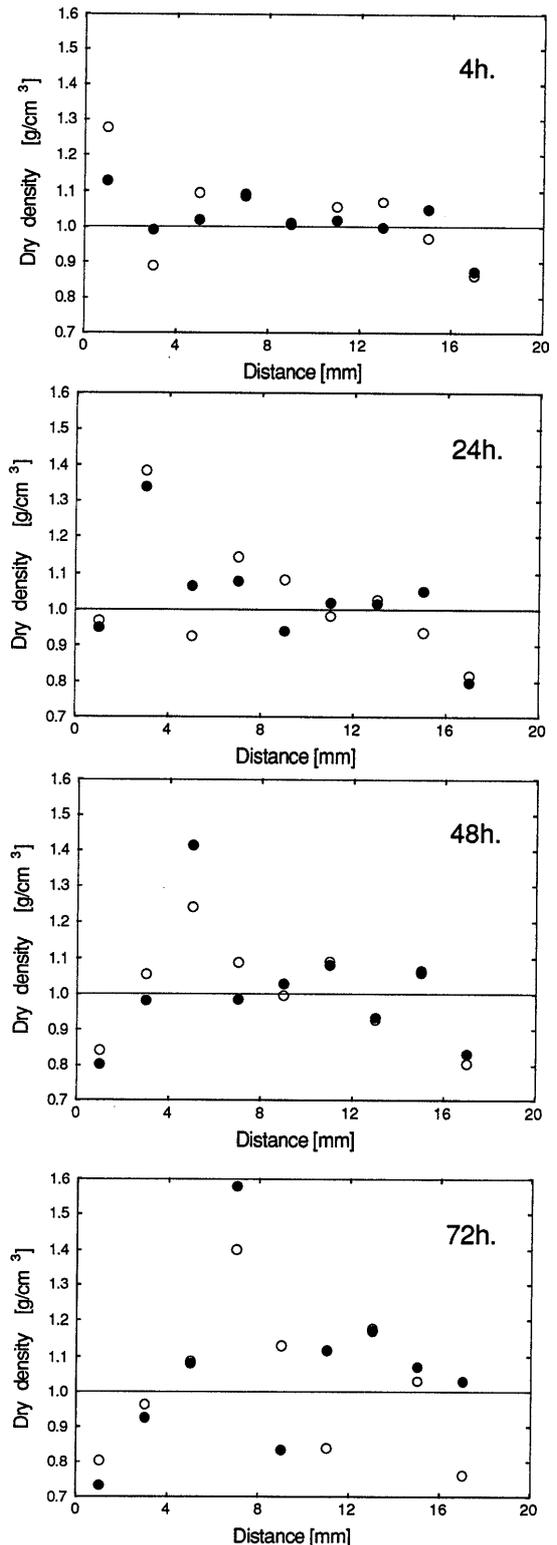


図-6 密度分布 ( $\rho_d = 1.0 \text{ g/cm}^3, 25^\circ\text{C}$ )  
 (○:1回目, ●:2回目)

で温度40°Cおよび60°Cにおいても同様に時間経過に伴う密度の変化は認められなかった。このことは試料の密度が高いほど試料中の間隙体積が小さいために水の浸潤に伴う試料の膨張・圧縮があっても無視し得るほど小さく、測定上現れないことを示していると推定される。

3) 水分拡散係数

試験で得られた水分分布より(3),(4)式を用いて求めた水分拡散係数と体積含水率との関係を図-7(a), 8に示す。なお, 図-7(b)は図-7(a)の横軸の体積含水率を飽和度に換算したものである。いずれの場合も拡散係数は体積含水率に依存して変化し, ある体積含水率に対して最小値をもつ谷型の分布を示すことが分かる。この傾向は, 中野他<sup>2)</sup>がより低い乾燥密度(0.846 g/cm<sup>3</sup>)で行った結果と一致する。

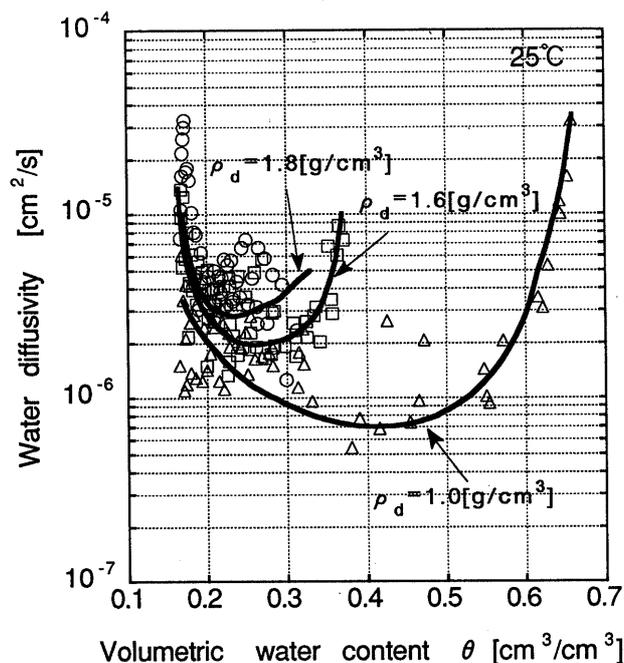


図-7(a) 水分拡散係数の密度依存 (横軸: 体積含水率, 25°C)  
 △: ρ<sub>d</sub>=1.0[g/cm<sup>3</sup>], □: ρ<sub>d</sub>=1.6[g/cm<sup>3</sup>], ○: ρ<sub>d</sub>=1.8[g/cm<sup>3</sup>]

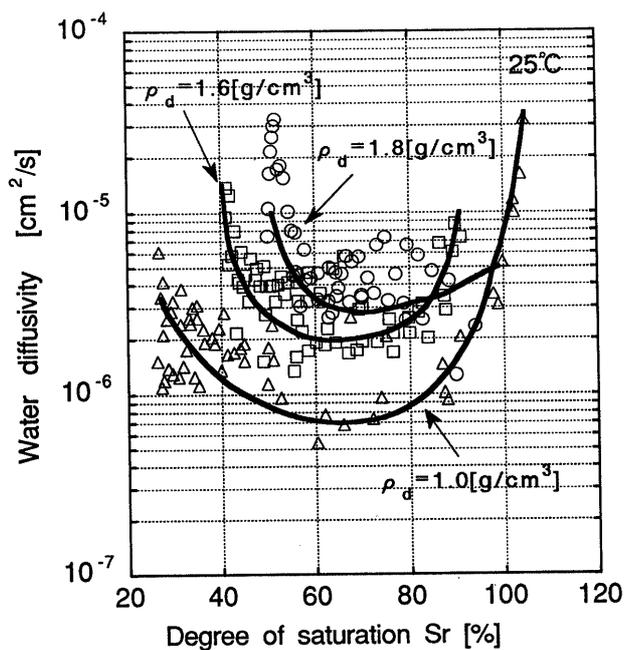


図-7(b) 水分拡散係数の密度依存 (横軸: 飽和度, 25°C)  
 △: ρ<sub>d</sub>=1.0[g/cm<sup>3</sup>], □: ρ<sub>d</sub>=1.6[g/cm<sup>3</sup>], ○: ρ<sub>d</sub>=1.8[g/cm<sup>3</sup>]

図-7(a)より拡散係数の最小値は乾燥密度の増加に伴って上昇し, 最小値を与える体積含水率が右側にシフトする。図-7(b)より拡散係数の最小値における飽和度の値は, 乾燥密度によらずほぼ一定値(60~70%)をとる。また図-8より温度の上昇とともに拡散係数は上昇し, 最小値を与える体積含水率も上昇する。なお, 図-7(b)で飽和度が100%を越えることについては, ベントナイトの膨潤による体積変化に起因する測定誤差と考えられる。

5. 考 察

5.1 水分拡散係数と体積含水率の関係

1) 水分拡散係数の妥当性の検討

ここでは, 得られた水分拡散係数の妥当性を検討するために, 図-7, 8に示す水分拡散係数を用い, 有限要素法汎用非線型構造解析システム(FINAS)によって時間毎の水分分布を計算し, 試験で得られた水分分布図を再現するかどうかを調べた。

解析に用いた諸条件は表-3に示す通りである。

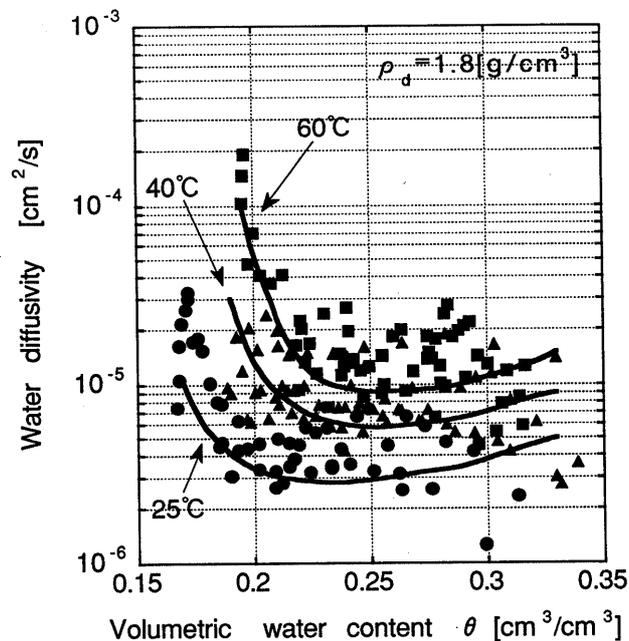


図-8 水分拡散係数の温度依存  
 ●: 25°C, ▲: 40°C, ■: 60°C

表-3 解析条件  
 (θ: 体積含水率, Z: 試料中の位置)  
 密度依存性

乾燥密度 ρ <sub>d</sub> (g/cm <sup>3</sup> )	1.0	1.6	1.8
初期条件 θ	0.15	0.165	0.161
試料頂部における境界条件	$\frac{\partial \theta}{\partial Z} = 0$		
試料底における境界条件 θ	0.68	0.38	0.34

温度依存性

温度 (°C)	25	40	60
初期条件 θ	0.161	0.17	0.18
試料頂部における境界条件	$\frac{\partial \theta}{\partial Z} = 0$		
試料底における境界条件 θ	0.34	0.35	0.33

水分分布は一次元であるので、連続式

$$\frac{\partial \theta}{\partial t} + \frac{\partial q}{\partial z} = 0 \quad (5)$$

で表現できる。これに(2)式を結合して下記の式を解くことにより求めた。

$$\frac{\partial \theta}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left( D \frac{\partial \theta}{\partial z} \right) \quad (6)$$

解析結果を図-4, 5に実線で示した。図に見られるようにいずれの乾燥密度においても、実線で示した計算値は黒丸で示した実測値をよく再現している。このことは、図-7, 8に示した水分拡散係数の近似曲線が妥当であることを示している。

2) 水分拡散係数の密度依存性・温度依存性

今回の試験のように等温条件下では、水移動は水分分配のみによって行われると考えられる。通常土中水は水分の少ない領域では水蒸気移動が卓越し、水分の多い領域では液状水移動が卓越するとされている。

ここで水蒸気移動の場合の水分拡散係数は Philip and de Vries 式<sup>5)</sup>より、

$$D_v = \alpha \tau D_a \nu \rho^* h_r \frac{M}{RT} \frac{\partial \Psi}{\partial \theta} \quad (7)$$

で表せる。ここで  $D_v$  は水分分配に依存する水蒸気の水分拡散係数、 $\alpha$  は気相率、 $\tau$  は屈曲度、 $D_a$  は空気中の水蒸気の拡散係数、 $\nu$  はマスフロー・ファクターと呼ばれ、 $P/(P-P_v)$  ( $P$ : 全圧、 $P_v$ : 水蒸気分圧) で表される。また、 $\rho^*$  は飽和水蒸気濃度、 $h_r$  は相対湿度、 $M$  は水の分子量、 $R$  は気体定数、 $T$  は絶対温度である。

一方、液状水移動は Darcy 式により、

$$q = -k \frac{\partial \Psi}{\partial z} \quad (8)$$

で表せる。ここで、 $q$  はフラックス、 $k$  は不飽和透水係数、 $z$  は試料の浸潤面からの位置である。また、 $\Psi$  は粘土中の水の全ポテンシャルを表し、マトリック・ポテンシャル、重力・ポテンシャル、オスモティック・ポテンシャルの和として表される。しかし、本試験に用いたベントナイト試料の場合、重力・ポテンシャルは無視して考えることができる<sup>5)</sup>。さらに浸透圧の寄与は小さいため、オスモティック・ポテンシャルも無視して考えることができる。そこで次式が成立する。

$$q = -k \frac{d\Psi}{d\theta} \frac{\partial \theta}{\partial z} = -D_l \frac{\partial \theta}{\partial z} \quad (9)$$

ここで、 $D_l$  は水分分配に依存する液状水の拡散係数、 $\theta$  は体積含水率、 $\Psi$  はマトリック・ポテンシャルを表す。更に  $D_l$  は以下のよう定義される。

$$D_l = k \frac{\partial \Psi}{\partial \theta} \quad (10)$$

いま(7)及び(10)式を用いて密度依存性及び温度依存性を考察する。

a) 水分拡散係数の密度依存性

中野他<sup>2),7)</sup>ではベントナイト中の水分移動でも土中水と同様に低水分領域では水蒸気移動が、高水分領域では液状水移動が卓越すると推定している。そこで水分拡散係数の最小値より低水分領域に(7)式、高水分領域に(10)式を適用し、水分拡散係数の実測値を水蒸気の水分拡散係数 ( $D_v$ ) と液状水の拡散係数 ( $D_l$ ) に分離し、これを用いて(7), (10)式で未知数である屈曲度  $\tau$ 、不飽和透水係数  $k$  を求め各々の密度依存性を検討した。

ここで水分拡散係数 ( $D$ ) の分離については、飽和点 (飽和体積含水率) で  $D = D_l$ 、最小値で  $D_l = D_v$  であると仮定し、この2点を

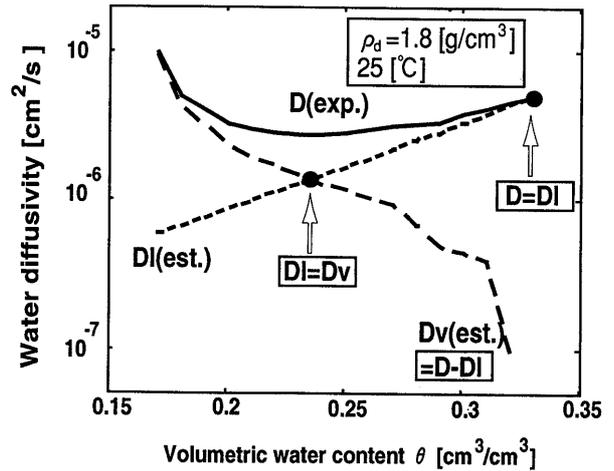


図-9 水分拡散係数の分離 ( $\rho_d = 1.8 \text{ g/cm}^3$ ,  $25^\circ\text{C}$ )  
 $D$  (exp.): 実験値,  $D_l$  (est.): 液状水による拡散係数の推定値,  
 $D_v$  (est.): 水蒸気による拡散係数の推定値

表-4 van Genuchten 式で用いた数値

乾燥密度 $\rho_d$	$a$	$\lambda$	$\theta_s$	$\theta_r$
1.0 g/cm <sup>3</sup>	2.81E-4	1.49	0.63	0.02
1.6 g/cm <sup>3</sup>	2.16E-5	1.54	0.407	0.03
1.8 g/cm <sup>3</sup>	4.53E-6	2.08	0.33	0.0001

結び液状水の拡散係数 ( $D_l$ ) とした。また水蒸気の拡散係数 ( $D_v$ ) については、 $D$  と  $D_l$  の差より求めた (図-9)。更に(7), (10)式での  $\partial\Psi/\partial\theta$  は水分特性曲線 (図-2(b)) の傾きで与えられ、ここでは実験値を最も良く再現するとされる van Genuchten 式<sup>9)</sup>を適用した。すなわち

$$\Psi = \frac{1}{a} \left\{ \left( \frac{\theta - \theta_r}{\theta_s - \theta_r} \right)^{\lambda/(1-\lambda)} - 1 \right\}^{1/\lambda} \quad (11)$$

ここで、 $\Psi$  は水分ポテンシャル、 $\theta$  は体積含水率、 $\theta_s$  は飽和体積含水率、 $\theta_r$  は最小水分容量で、本研究では水分特性試験のポテンシャル・データの分布から最小体積含水率を推定して求めた。表-4に各密度における  $\theta_s$ ,  $\theta_r$  および係数  $a$ ,  $\lambda$  を示す。

以上のようにして求めた屈曲度  $\tau$  を図-10に示す。これより屈曲度  $\tau$  はほぼ0.01~1の範囲の値をとり、若干ではあるが密度が増加すると減少する傾向を示す。また比較的密度の低い1.0 g/cm<sup>3</sup>の試料ではその屈曲度の範囲は、一般に土壌で用いられる値0.66<sup>10)</sup>と同じオーダーである。さらに(7)式の中で密度の変化に伴って変化する項 ( $\partial\Psi/\partial\theta$ ) および ( $ah_r$ ) に関して密度依存性を検討した。その結果、( $ah_r$ ) は密度の増加に伴って減少する傾向を示すが (図-11)、( $\partial\Psi/\partial\theta$ ) は密度の増加に伴って、上昇する傾向を示した (図-12)。また  $D_a \nu \rho^* M/R/T$  については密度による変化はない。すなわち ( $\tau$ ) および ( $ah_r$ ) は密度増加に伴って減少する傾向を示すにも関わらず、 $D_v$  は増加することより水蒸気の拡散係数  $D_v$  の密度依存性には ( $\partial\Psi/\partial\theta$ ) の密度依存性が大きく寄与していることが分かる。次に液状水の拡散係数 ( $D_l$ ) と ( $\partial\Psi/\partial\theta$ ) より不飽和透水係数  $k$  を求めた結果を図-13に示す。不飽和透水係数  $k$  は密度の増加に伴って小さくなる傾向を示す。特に高水分領域ではこの傾向が顕著に認められる。ところが水分拡散係数は密度の増加に伴って上昇することより、液状水の拡散係数 ( $D_l$ ) の密度依存性にはやはり水分特性曲線の勾配 ( $\partial\Psi/\partial\theta$ ) の密度による上昇が大きく寄与している

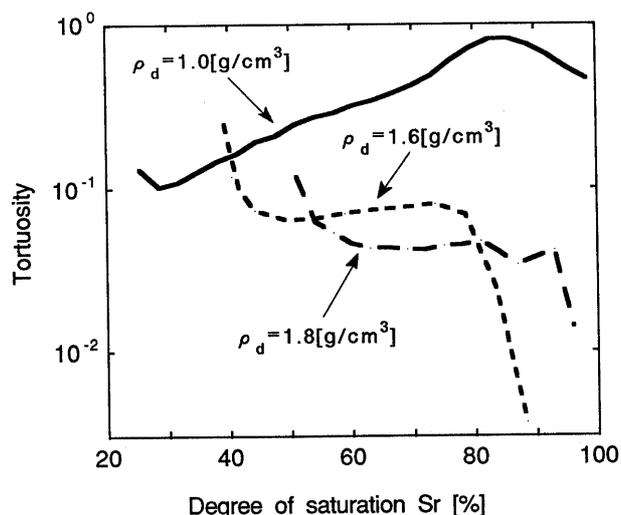


図-10 クニゲル V1 の屈曲度

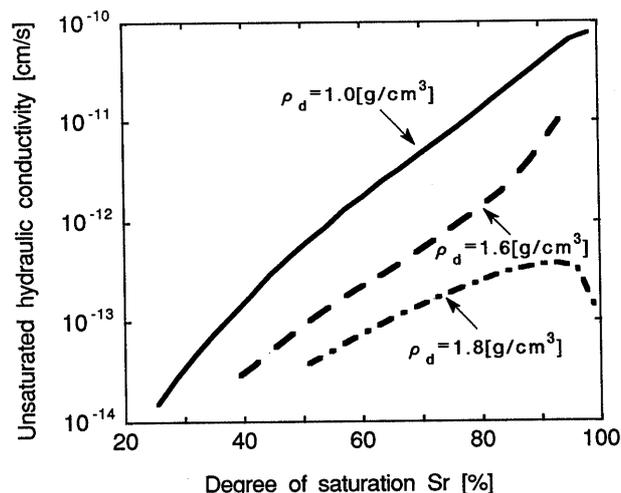


図-13 不飽和透水係数の密度依存

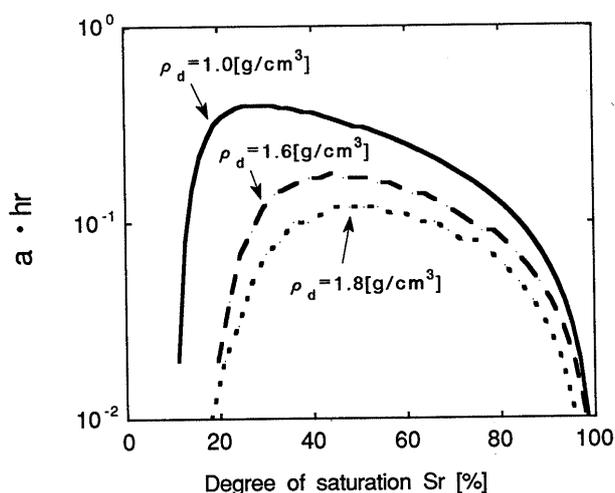


図-11 気相率 (a) と相対湿度 (hr) の積の密度依存

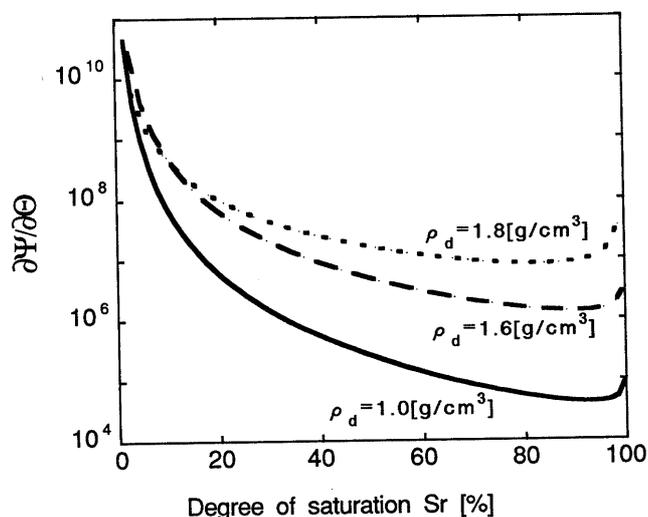


図-12 水分特性曲線の微分値の密度依存

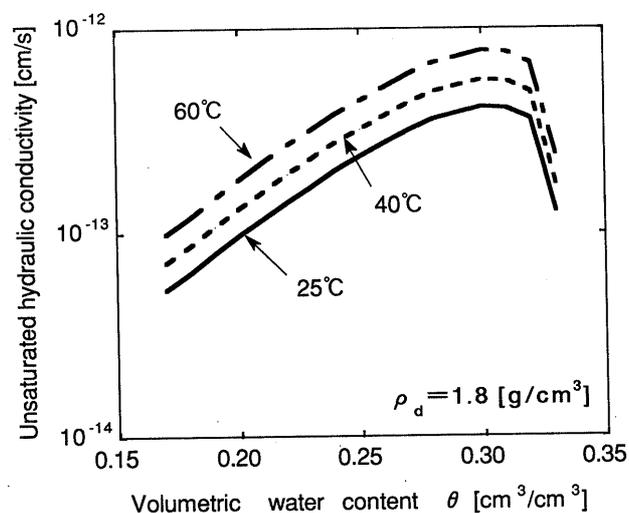


図-14 不飽和透水係数の温度依存

ことが分かる。

すなわち水分拡散係数の密度依存性は、水分特性曲線の勾配 ( $\partial\Psi/\partial\theta$ ) の密度依存性に大きく起因する。

b) 水分拡散係数の温度依存性

(7)式は形式的には温度に逆比例する。しかし更に  $D_a, \rho^*, h_r$  等も温度の関数である。即ち  $D_a, \rho^*$  は温度に比例し、 $h_r$  は逆比例する。そこで、水分拡散係数の温度依存性の検討は、乾燥密度  $1.8 \text{ g/cm}^3$ 、温度  $25^\circ\text{C}$  の条件で算出された屈曲度  $\tau$ 、不飽和透水係数  $k$  を基にして(7)、(10)式より  $D_v$  と  $D_l$  を計算し、各温度の実験で得られた水分拡散係数と比較した。なお  $40^\circ\text{C}$ 、 $60^\circ\text{C}$  の不飽和透水係数  $k$  は水の粘性と密度の温度変化を考慮し、各温度における密度 ( $\rho$ ) を粘性 ( $\mu$ ) で割った値 ( $\rho/\mu$ ) を求め、それぞれの温度におけるこの値を  $25^\circ\text{C}$  の値で規格化し、これに  $25^\circ\text{C}$  における不飽和透水係数  $k$  をかけ合わせて求めた (図-14)。また、 $\partial\Psi/\partial\theta$  は実験より得られた水分特性曲線から求め、それを van Genuchten 式で近似して用いた (図-3)。但し  $40^\circ\text{C}$  における水分特性曲線は  $25^\circ\text{C}$ 、 $60^\circ\text{C}$  における van Genuchten 式の各係数より比例計算により求めた。表-5 に van Genuchten 式で用いた係数および飽和体積含水率、最小水分容量の値を示す。ここで屈曲度  $\tau$  および不飽和透水係数  $k$  を除

表-5 van Genuchten 式で用いた数値

温度	$a$	$\lambda$	$\theta_s$	$\theta_r$
25°C	4.53E-6	2.08	0.33	0.0001
40°C	5.57E-6	2.09	0.33	0.0001
60°C	6.96E-6	2.11	0.33	0.0001

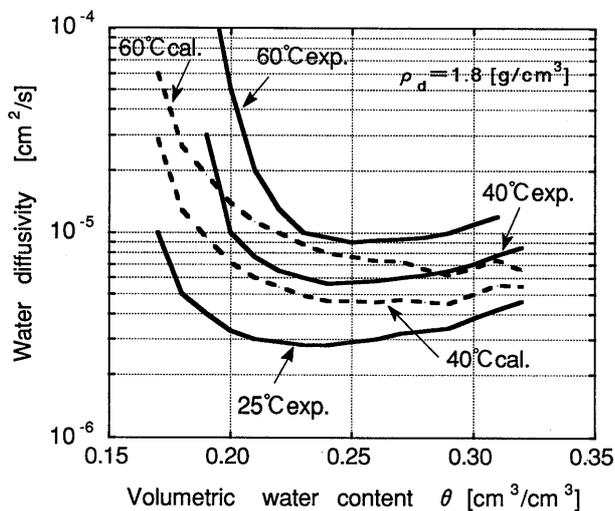


図-15 水分拡散係数の実験値と計算値の比較

く、今回試験で得られていない各温度における水の粘性、密度及び飽和水蒸気密度については、理科年表より引用した。

求めた水蒸気の水分拡散係数 ( $D_v$ ) と液状水の水分拡散係数 ( $D_l$ ) をたし合わせるにより水分拡散係数  $D$  を計算した (図-15)。実験値と計算値は一致し、水分拡散係数の温度依存性は (7)、(10) 式を構成する各項の温度上昇に伴う変化で説明できる。

上述のように、実験値は Philip and de Vries 式及び Darcy 式によりよく再現されることは、低水分領域で水蒸気移動が卓越し、高水分領域で液状水移動が卓越することを示している。

## 5.2 不飽和ベントナイトの保水形態について

拘束されたベントナイトに水が浸潤するとモンモリロナイトは膨潤し、これによりモンモリロナイト以外の非膨潤性粒子が占める間隙は減少することが予想される。即ち、水の浸潤に伴いベントナイト中の水分子の存在状態が変化すると考えられる。ここでは不飽和ベントナイトの保水に関して X 線回折の結果と中野他<sup>2)</sup>を参考にした計算結果の比較から若干の考察を行う。

X 線回折による浸潤過程におけるモンモリロナイトの層間距離の変化については、乾燥密度  $1.8 \text{ g/cm}^3$  の試料を用いた山形他<sup>3)</sup>の報告がある。測定結果を図-16に示す。これによると、24時間浸潤させた試料では、浸潤面から  $8 \text{ mm}$  ないし  $10 \text{ mm}$  の位置で底面間隔が  $1.56 \text{ nm}$  から  $1.26 \text{ nm}$  に変化している。また48時間浸潤させた試料では、浸潤面から  $16 \text{ mm}$  ないし  $18 \text{ mm}$  の位置で底面間隔が同様に  $1.56 \text{ nm}$  から  $1.26 \text{ nm}$  に変化している。これは水分子層数に換算するとそれぞれ2分子層、1分子層に対応する。即ちこの位置において底面間隔が2層吸着から1層吸着に変化することを示している。今回試験の結果得られた乾燥密度  $1.8 \text{ g/cm}^3$  で室温 (約  $25^\circ\text{C}$ ) で試験を行った試料の水分分布図 (図-5(c)) では、24時間および48時間浸潤させた試料において浸潤面からそれぞれ  $8 \text{ mm}$  ないし  $10 \text{ mm}$ ,  $16 \text{ mm}$  ないし  $18 \text{ mm}$  の位置での体積含水率はい

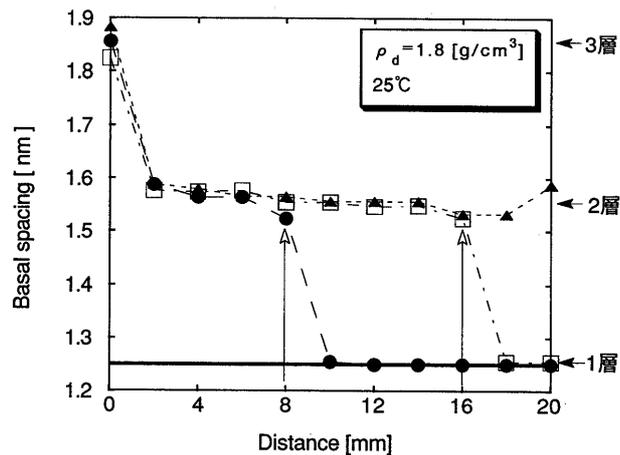


図-16 浸潤過程における層間距離の変化 (山形他, 1992より)

—: 試験前, ●: 浸潤時間24 h, □: 浸潤時間48 h, ▲: 浸潤時間65 h

れの場合も約  $0.2 \text{ cm}^3/\text{cm}^3$  を示す。この値は乾燥密度  $1.8 \text{ g/cm}^3$  の試料の室温 (約  $25^\circ\text{C}$ ) における見かけの水分拡散係数の最小値の体積含水率に相当する (図-8(a))。以上のことは、ベントナイトの乾燥密度  $1.8 \text{ g/cm}^3$  の試料の場合、水分拡散係数の最小値より低水分領域ではモンモリロナイトの層間には1層の水分子が存在し、高水分領域では2層の水分子が存在することを示していると推測する。

次に中野他<sup>2)</sup>にならない、乾燥密度  $1.8 \text{ g/cm}^3$  のベントナイト試料  $1 \text{ cm}^3$  中のモンモリロナイトに吸着される水分子層数の変化とそれに伴うモンモリロナイトの層間の体積 (以下、層間体積と省略) とモンモリロナイト以外の粒子間隙の体積 (以下、間隙体積と省略) 及び層間に吸着された水分子の水分量 (体積含水率) を計算した。

モンモリロナイトは板状層状体が数枚ほど平行に並んでクラスターを作ると言われている。ベントナイト中のクラスターの数とクラスター中の板状層状体の数はモンモリロナイトと試料の比表面積から次式により計算される<sup>2)</sup>。

$$r_m S = 2maN \quad (12)$$

$$r_d S_0 = 2aN \quad (13)$$

ここで、 $S$  はモンモリロナイト  $1 \text{ g}$  当たりの表面積、 $S_0$  は試料  $1 \text{ g}$  当たりのクラスター最外面積、 $r_m$  は試料  $1 \text{ g}$  のモンモリロナイト重量、 $r_d$  は試料の乾燥密度、 $a$  は板状層状体の面積、 $N$  は試料  $1 \text{ g}$  中のクラスター数、 $m$  はクラスター中の板状層状体の数を表す。このうち、モンモリロナイトについては  $S = 810 \text{ m}^2/\text{g}$ 、 $a = 10^{-10} \text{ cm}^2$  がいわれている<sup>11)</sup>。ここで、 $a$  の値はモンモリロナイトの板状層状体の表面の一辺が  $10^{-5} \text{ cm}$  ( $0.1 \mu\text{m}$ ) の正方形と近似したものである。

また、ベントナイト  $1 \text{ cm}^3$  当たりのクラスターがもつ水の量は、外側の表面にも層間と同じ厚さの水を持つとすると、

$$V_w = (m+1)nraN \quad (14)$$

で表せる。ここで  $V_w$  はベントナイト  $1 \text{ cm}^3$  当たりのクラスターがもつ水の量、 $n$  は水分子層数、 $r$  は水分子の直径で  $2.76 \times 10^{-8} \text{ cm}$  である。中野他<sup>2)</sup>によれば、モンモリロナイト・クラスター中の板状層状体の数について、 $m = 8$  を与えている。以上によりモンモリロナイトの層間に水分子が1層および2層吸着されたときの層間体積および間隙体積を求めた。この際試料中のモンモリロナイト含有率は50%、試料の真比重は  $2.7 \text{ g/cm}^3$  を用いた。計算結果

表-6 ベントナイト1 cm<sup>3</sup>中の層間体積と間隙体積

水分子層数	層間水の体積 (cm <sup>3</sup> )	粒子間隙の体積 (cm <sup>3</sup> )	体積含水率 (cm <sup>3</sup> /cm <sup>3</sup> )
1	0.113	0.221	0.113
2	0.226	0.108	0.226

(表-6)は、モンモリロナイトに吸着される水分子層数が1層のときは間隙体積の方が層間体積より大きく、2層では逆に層間体積の方が大きくなることを示している。

また、水分子層数が1層の時の体積含水率は0.113(cm<sup>3</sup>/cm<sup>3</sup>)となり、X線回折によって得られた、モンモリロナイトの層間全てが1層の水分子で充填された時の体積含水率(0.2 cm<sup>3</sup>/cm<sup>3</sup>)と比較すると、約60%にすぎない。このことは1層の水分子が層間を充填した時、水分子がモンモリロナイト層間以外の粒子間隙にも存在することを示している。

既述のように図-2(a)はベントナイトの保水がモンモリロナイトの含有率に大きく支配されていることを示している。さらに藤井・中野<sup>11)</sup>は、モンモリロナイト層間の中心部と縁辺部の水の化学ポテンシャルを計算し、中心部のポテンシャルの方が低いことを示した。さらに縁辺部の水の化学ポテンシャルは、モンモリロナイト以外の粒子間隙のそれとほぼ平衡状態にあるとしている。以上のことから、ベントナイトに浸潤した水分子はその初期には優先的にモンモリロナイト層間に保水され、さらに水分量が多くなり、モンモリロナイト以外の粒子間隙とのポテンシャルの差がなくなるとはじめて、層間以外の粒子間隙に保水されると推測される。

### 5.3 ベントナイト中の水の移動形態について

本研究により水分拡散係数は体積含水率に依存して変化し、ある体積含水率に対して最小値を持つ谷型の分布を示すことが明らかとなった。また水分拡散係数の最小値はベントナイトの乾燥密度・温度に依存して変化することが明らかとなった。また理論式との比較により、低水分領域では水蒸気移動が卓越し、高水分領域では液状水移動が卓越することを示した。また、室温(約25°C)の場合水分拡散係数の最小値に対応する飽和度は密度によらずほぼ一定値を示す結果が得られた(図-7(b))。更に水分特性曲線がモンモリロナイト含有率に依存して変化すること、藤井・中野<sup>11)</sup>の計算では層間水の化学ポテンシャルは粒子間隙のそれよりも低いことなどから、ベントナイト中に浸潤した水はその初期にはモンモリロナイト層間に優先的に吸着されるが、両者のポテンシャルに差がなくなると粒子間隙にも吸着されていくことが推定される。更にモンモリロナイト層間に吸着された水は、粒子間隙中の水に比べ化学ポテンシャルが低いために動きにくい<sup>11)</sup>。このことより水移動は主にモンモリロナイト以外の粒子間隙で行われると推測される。

これらをふまえ、ベントナイト中の水の移動形態に関して以下のように推定する。すなわち、ベントナイト中に浸潤した水分子はその初期には粒子間隙が広く、水蒸気移動が卓越するため水分子の移動速度は速い。次第に水分量が多くなると、水分子は層間に吸着されつつ、モンモリロナイト以外の粒子間隙にも吸着されるようになる。モンモリロナイトが膨潤し粒子間隙を塞ぐことにより、水分子の移動空間は狭められ次第に移動速度は小さくなる。室温(約25°C)の場合、飽和度が60~70%になるとこの移動速度は最小に

なる。更に水分が多くなると水分子は互いに連結し始め、水蒸気移動の効果はほとんど無くなる。変わって液状水での移動が卓越し、水分子は徐々に連結しその移動速度は不飽和透水係数とポテンシャルの勾配の増加によって次第に早くなる。

## 6. ま と め

本研究の結果以下のことが明らかとなった。

1. 不飽和ベントナイトの水分特性試験の結果、得られた水分特性曲線は密度および温度によって変化する。
2. 浸潤試験で得られた水分拡散係数は体積含水率に依存して変化し、ある体積含水率に対して最小値をもつ谷型の分布を示す。この分布はベントナイトの乾燥密度及び温度に依存して変化する。
3. 水分拡散係数の密度依存性には水分特性曲線の勾配の密度依存性が大きく寄与する。また理論式を用いて温度依存性を計算し、実験値と比較したところ両者は良く一致することより、ベントナイト中の水蒸気と液状水による二相移動を明らかにした。
4. 水分特性曲線および水分拡散係数の密度依存性、温度依存性、X線回折及びモンモリロナイト層間に入る水分子数の検討などにより、ベントナイト中の水の保水と移動の形態を考察した。

本研究の結果、ベントナイト中の水分の気・液二相移動がほぼ明らかとなった。しかしながら処分環境下では、廃棄体からの発熱による温度勾配に伴う水移動、ベントナイトの吸水による膨潤応力の発生などが想定される。今後はこれらの影響を考慮した水移動の詳細な解明を行う予定である。

## 7. 謝 辞

本研究に関して動燃事業団環境技術開発部地層処分開発室の菅野毅氏には粗稿に目をとおして頂き、また同室の藤田朝雄氏にはFINASを用いた解析に関して協力して頂いた。さらに同室の鈴木英明氏、松本一浩氏には実験に関して協力して頂いた。以上の方々から感謝いたします。

## 参 考 文 献

- 1) 中野政詩(1991):「土の物質移動学」東京大学出版会, p. 189.
- 2) 中野政詩・雨宮 悠・藤井克己・石田朋靖・石井明俊(1984):拘束された不飽和粘土の浸潤と膨張圧,「農業土木学会論文集」, Vol. 112, pp. 55~66.
- 3) 山形順二・鈴木英明・柴田雅博(1992):緩衝材の特性試験(II),「動燃技術資料 PNC TN8410 92-169」.
- 4) L. Borgesson(1985):“Water flow and swelling pressure in non-saturated bentonite clay barriers,” Engineering Geology, Vol. 21, pp. 229-237.
- 5) Philip, J. R. and de Vries, D. A. (1957):“Moisture movement in porous materials under temperature gradient,” Transactions, American Geophysical Union, Vol. 38, No. 2, pp. 222-232.
- 6) 塩沢 昌(1991):サイクロメータによる土壌水のポテンシャル測定,「土壌の物理性」, Vol. 62, pp. 53~61.
- 7) 中野政詩・雨宮 悠・藤井克己・石田朋靖・石井明俊(1982):不飽和粘土の浸潤と膨潤,「農業土木学会論文集」. Vol. 100, pp. 8~16.
- 8) 菅野 毅・若松久夫(1991):吸着等温線による緩衝材膨潤圧の検討,「日本原子力学会1991秋の大会」J14, p. 562.
- 9) van Genuchten, M. T. (1980):“A closed-form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils,” Soil Sci. Soc. Am. J., Vol. 44, pp. 892-898.
- 10) Penman, H. I. (1940):“Gas and vapor movements in the soil I, The diffusion of vapor through porous soils,” J. Agric. Sci., Vol. 30, pp. 437-462.
- 11) 藤井克己・中野政詩(1984):ベントナイト吸着水の化学ポテンシャルについて,「農業土木学会論文集」Vol. 112, pp. 43~53.