

## 軟 X 線顕微鏡による含水飽和ベントナイトの微細構造分析

## Micro structure analysis of water-saturated bentonite by soft X-ray microscopy

高橋 宏明<sup>a</sup>, 大東 琢治<sup>b</sup>  
Hiroaki Takahashi<sup>a</sup>, Takuji Ohigashi<sup>b</sup><sup>a</sup> 日本原子力研究開発機構, <sup>b</sup> 立命館大学 SR センター  
<sup>a</sup> Japan Atomic Energy Agency, <sup>b</sup> SR Center, Ritsumeikan University

含水飽和モンモリロナイトの微細構造を非破壊で調べるため、軟 X 線顕微鏡を用いて、Computed Tomography による 3 次元観察を実施した。測定波長に、“水の窓領域” (2.3~4.4 nm) を適用することで、水と粘土粒子の高いコントラスト像を示した。0.01 mol dm<sup>-3</sup> NaCl 水溶液で含水飽和したモンモリロナイトの 3 次元観察の結果、サブ~数 μm の粒子が膨潤した粘土ゲルの中に散在している様子が確認された。

In order to investigate the microstructure of water-saturated montmorillonite non-destructive, three-dimensional observation was carried out by computed tomography using a soft X-ray microscope. The images showed high gray level contrast between water and clay particles by applying "water window" (2.3 ~ 4.4 nm) for the measurement wavelength. As a result of three-dimensional observation of hydrated montmorillonite saturated with an aqueous solution of 0.01 mol dm<sup>-3</sup> NaCl, how the particles with sub- to a few μm sizes were interspersed in the swelling clay gel was confirmed.

**Keywords:** water-saturated montmorillonite, soft X-ray microscopy, Computed Tomography

**背景と研究目的:** 高レベル放射性廃棄物の地層処分における人工バリア材として、地下水の浸入と放射性核種の動きを抑制するための緩衝材に、圧縮したベントナイトを用いることが検討されている[1]。圧縮ベントナイト中の核種拡散移行特性は、ベントナイトから地質媒体への放射性核種の放出率に直接的に影響を及ぼすことから、安全評価上重要な課題である。圧縮ベントナイト中の核種拡散移行のメカニズムを解明するためには、水の侵入により含水飽和した圧縮ベントナイトの内部微細構造を理解することが重要である。このような、高分解能を要求される構造観察に対して、TEM[2]やFIB-nanotomography[3]を用いた手法が適用されている。しかしながら、これらの手法は、観察するための試料を樹脂で固定する必要があるため、極力試料の状態を保存する調製方法が適用されているが、非破壊的とは言いがたく、含水状態の構造を理解する方法として決定的な手法とは言えない。そこで、筆者等のこれまでの研究では、ベントナイトの主成分であるモンモリロナイトの

含水飽和圧縮体を非破壊で実験室光源による X 線 CT により観察し、サブミクロン領域までの 3 次元微細構造を明らかにしてきた。しかしながら、圧縮ベントナイト中の粘土層と間隙水あるいは、粘土層が水中で膨潤し分散したゲル状部分を識別するためには、さらなる高分解能が要求される。そこで、本研究では、高分解能な軟 X 線顕微鏡による Computed Tomography を適用し、含水飽和モンモリロナイト内部微細構造の 3 次元観察を行うことを目的とした。

**実験:** モンモリロナイトには、クニミネ工業株式会社製クニピアPを用いて、以下の手順で試料を調製した。

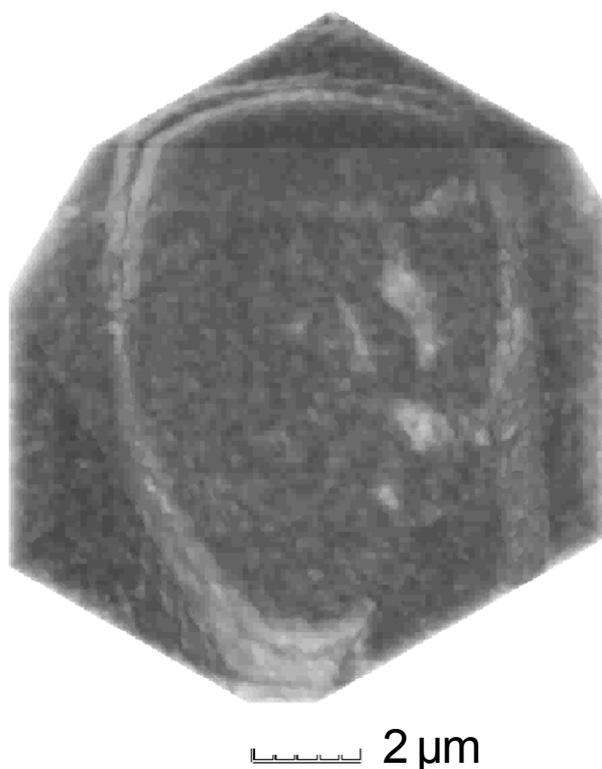
- (1) 0.01 M NaCl中に、5 wt%クニピアPを加え、10日間密封し、自由膨潤させる。
- (2) 内径、10 μm程度に加工したガラスキャピラリー中に(1)の試料をシリンジを用いて吸い込み、乾燥を防ぐために蜜蝋でキャピラリー先端部の穴を塞ぐ。

以上のように調製した試料について、立命

館大学SRセンター軟X線顕微鏡ビームライン (BL-12) を用いてCTによる3次元観察を行った。観察条件は、試料を大気中に設置し、観察波長は2.4 nmを使用した。この時の光学系の倍率は、約950倍であり、ピクセルサイズは試料面において約100 nm角に相当する。投影像は試料回転角3.6度毎に50枚取得した。その際の露光時間は5分とした。断層像の再構成は、Convolution Backprojection法で、Shepp-Logan フィルターを用いて行った。

**結果, および, 考察:** Fig. 1 に、再構成した密度分布の断面像を、高さ方向に重ねた 3次元像を示す。白く表示される部分はX線吸収が高く、密度が高い部分であり、ガラスキャピラリとその中のモンモリロナイト粒子を示していると考えられる。グレースケールで黒に近いほど密度が低い部分であり、これは、膨潤したゲル相部分を示していると考えられる。このように、薄片状のサブ~数 $\mu\text{m}$ サイズのモンモリロナイト結晶とそれを取り囲む膨潤したゲル相に相当する構造が観測できた。

今回の観察では、ビームタイムの都合により一試料の測定のみ実施することができたが、今後は、試料の調製条件を変化させ、飽和させるための溶液のイオン強度が、構造に与える影響等を観測する計画である。



**Fig. 1.** three-dimensional image of water-saturated montmorillonite in glass capillary

## 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の技術的信頼性 - 地層処分研究開発第2次取りまとめ - 総論レポート”，サイクル機構技術報告書，JNC TN1400 99-020 (1999)
- [2] T. Melkior, E.C. Gaucher, C. Brouard, S. Yahiaoui, D. Thoby, Ch. Clinard, E. Ferrage, D. Guyonnet, C. Tournassat, D. Coelho, Journal of Hydrology, 370 (2009) 9-20
- [3] Holzer, L., Münch, B., Rizzi, M., Wepf, R., Marschall, P., Graule, T., Applied Clay Science 47 (2010) 330-342.

## 論文・学会等発表 (予定)

未定