

乾燥収縮を利用したベントナイトペレットの製造方法

中島均*1 齋藤亮*1 石井卓*1

放射性廃棄物処分施設において緩衝材の周囲に施工上生じるすき間は、適切に埋め戻されることが重要である。すき間を充てんする材料として、ベントナイトを粒状体に加工したベントナイトペレットが期待されている。すき間の充てん密度を高めるためには、ペレット自体の密度が高いことが有利である。粉体ベントナイトを圧縮してペレットを製造すると、圧縮力に応じて密度が高いベントナイトペレットが製造できるが、形状や製造の容易性の観点で改善の余地があった。著者らは、乾燥収縮を利用してベントナイトペレットを製造する新たな方法を考えた。水分が多く可塑性がある状態で球形のベントナイトペレットが製造できることを確認した。続いて、乾燥条件を工夫することで乾燥収縮により乾燥密度 2.0Mg/m^3 程度の比較的密度の高いベントナイトペレットが製造できることを明らかにした。

Keywords: ベントナイトペレット, 乾燥収縮, 放射性廃棄物, 緩衝材, すき間, 充てん, 高密度, 球形

A gap surrounding the buffer material in an HLW repository should be filled in an appropriate way. Pellets made of bentonite are expected to be a candidate material for filling the gap. Using higher density bentonite pellets increases the probability that the gap is filled high density. Conventional methods of making bentonite pellets using compressive force are possible to high density pellets in response to the magnitude of compression. However, there are still room for improvement in terms of shape and ease of production. We have devised a newly method for making bentonite pellets using dry shrinkage. We have verified that spherical pellets could be made under high water content and plastic conditions. Subsequently, we have revealed that spherical pellets with a high water content would turn into high density pellets with a dry density of about 2.0Mg/m^3 if treated appropriately in the drying process.

Keywords: bentonite pellets, dry shrinkage, radioactive waste, buffer material, gap, filling, high-density, sphericity

1 はじめに

高レベル放射性廃棄物処分施設において、緩衝材は人工バリアとして機能する。そのため低透水性を確保するために天然の膨潤性粘土であるベントナイトを用いることが検討されている[1,2]。緩衝材の施工方法としては複数の方法[3]が検討されており、施工法によっては緩衝材の周囲にすき間が発生する。例えば、あらかじめ所定の密度に成形した一辺が数十 cm 程度のベントナイトブロックを、処分孔の所定の位置に積み上げる方式では、Fig. 1 に示すように緩衝材と岩盤との間に施工上避けられないすき間が生じる。同様に、近年検討が進められている緩衝材とオーバーパックを金属容器内に一体化して搬送・定置する PEM 方式[4]においても、Fig. 2 に示すように定置した金属容器と処分抗道の間ですき間が残る。このようなすき間は、緩衝材の品質を確保する観点から適切に埋め戻さなければならないと考えられており、すき間充てんに関する研究が進められている[5]。

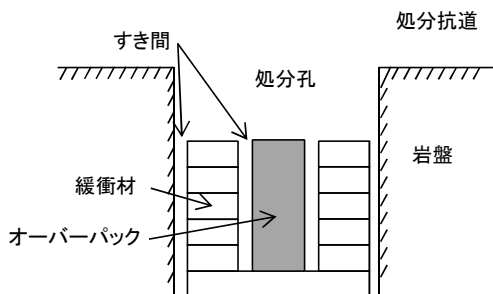


Fig. 1 A gap between buffer material and rock in vertical disposal type.

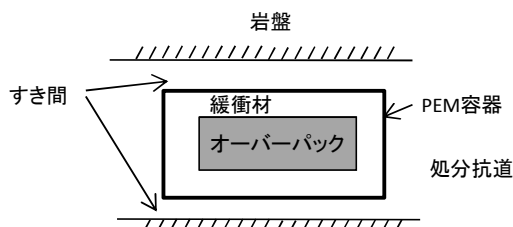


Fig. 2 A gap outside PEM container in horizontal disposal type.

ベントナイトペレットは粉体のベントナイトを粒状体に加工した材料である。すき間は狭いため自由落下などの簡易な施工法が適用できることが望ましく、粉体を加工した粒状体は、粉体そのものよりも充てん密度を高められると考えられる。ここで、充てん密度は充てん部の乾燥密度を示す。高尾らは、ベントナイト原鉱石を破碎した粒状体が粉体のベントナイトよりも高い充てん密度で充てんできることを、自由落下による充てん実験で確認した[6]。すき間に対するベントナイトの充てん密度が高ければ、再冠水後に膨潤したベントナイトにより埋められたすき間の透水性が低くなり、より良好なすき間領域を形成できると考えられる。このため高密度なベントナイトペレットが求められている。なお、ベントナイト原鉱石の単体密度は著者らの測定によると 1.8Mg/m^3 程度である。

ベントナイトペレットの製造方法にはさまざまな方法が考えられるが、多くの方法は成形圧力により密度を確保している。粉体加工分野で一般的に使用されている造粒装置を用いた場合、成形圧力が十分でないものが多く、高密度なペレットが製造できない。一方、特殊な方法で高圧力を載荷する装置を用いると高密度なペレットが製造できるが、装置の大型化や製造コストが高くなるなどの問題点が考えられる。ベントナイトペレットの単体密度の例としては、汎用的な造粒装置で $1.8\sim 1.9\text{Mg/m}^3$ 程度[5]、 600MPa もの高い成形圧力を用いた場合で 2.2Mg/m^3 程度[7]の報告がある。

Method for producing high-density bentonite pellets using dry shrinkage by Hitoshi NAKASHIMA (hitoshi.nakashima@shimz.co.jp), Akira SAITO, Takashi ISHII

*1 清水建設株式会社 技術研究所

Institute of Technology, Shimizu Corporation

〒135-8530 東京都江東区越中島三丁目 4-17

(Received 16 September 2014; accepted 17 December 2014)

著者らは、既存の製造方法と異なる方法で、 2.0 Mg/m^3 程度と比較的高密度なベントナイトペレットが製造できることを発見した[8,9]。本製造方法ではベントナイトペレットの密度を高めるための機構として、成形圧力でなく乾燥収縮を利用する。乾燥する前のベントナイトペレットは高密度である必要はなく、汎用の造粒装置を用いて製造できる。これによりペレットの形状が球形で単粒径であることや、粒径の異なるベントナイトペレットを容易に製造できるなどの特徴も有する。これらの特徴が複合的に高い充てん密度の実現に寄与するものと考えられる。

本報告では、以上で述べたベントナイトペレットの新たな製造方法について示す。2章では、本製造法の検討に至る背景として、既存のベントナイトペレット製造方法や製造実績のあるベントナイトペレットの特徴などについて概説する。3章では、4章以降で示す知見に先行する形で、本製造方法の考え方や手順などを説明する。4章、5章では、本製造方法で重要な製造パラメータである製造時の水分量や乾燥方法について実験内容を示し、結果を考察する。6章で本製造方法によるベントナイトペレットの製造実績を示すことで、本製造方法の特徴を補足する。7章では本報告で示した知見をまとめ、今後の課題などを示す。なお、本製造法で製造したベントナイトペレットのすき間への充てん方法や充てん性能については、戸栗ら[10]を参照されたい。

2 既存のベントナイトペレット製造法とベントナイトペレットの特徴

粉体のベントナイトからペレットを製造する方法にはさまざまな方法が考えられる。一般的な粉体加工技術もあれば、放射性廃棄物分野において研究開発段階にあるものまで幅広い。しかし、ベントナイトペレットの製造実績が報告されている方法は少なく、製造方法が詳述されているものは、さらに少ない。

ここでは、ベントナイトペレットの製造技術と既存技術により試作されたベントナイトペレットの特徴について概括する。なお、ベントナイトの種類についてはクニゲル V1® (クミネ工業製) を中心に整理した。ベントナイトの種類が異なると同じ製造方法でもペレットの密度などが異なると考えられるためである。クニゲル V1 は我が国の代表的な Na ベントナイトであり、放射性廃棄物分野で最も研究データが多いベントナイトである。

2.1 ベントナイト原鉱石を破碎する方法

ベントナイト原鉱石の破碎材は最も簡易に製造できるベントナイト粒状体である。市販されているベントナイトの最終工程はミルによる粉末化であり、その前のベントナイトの状態はベントナイト原鉱石を破碎した粒状体であるため、製造コストも安いと考えられる。最近では粉体であるクニゲル V1 と同じ原鉱石から製造された粒状品も市販されている。例えば、Fig. 3 に示す 10mm アンダー品のクニゲル GX® (クミネ工業製) や 30mm アンダー品の OK ベントナイト® (クミネ工業製) などである。

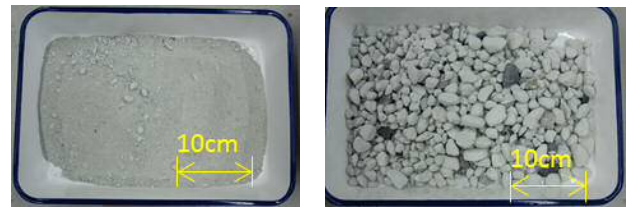


Fig. 3 Kunigel GX® on the left and OK bentonite® on the right, made of the same bentonite ore as used for Kunigel V1®.

クニゲル GX は低レベル放射性廃棄物の処分において低透水層としての利用を想定した検討が進められており、締固めにより乾燥密度 1.6 Mg/m^3 程度の施工が可能であることが示されている[11]。クニゲル GX の粒度分布は伊藤らが報告しているように、最大粒径 10mm から最小粒径およそ 0.07 mm の間に緩やかに分布している[12]。締固め施工をする場合には、粒度分布の違いが仕上がりの乾燥密度に影響することを雨宮らが示しており、最大粒径を大きくし粒度分布の幅が広くなれば締固め密度が高くなる[13]。自由落下でも同様のことが言えるとすると、原鉱石破碎品の充てん性がある程度高いのは、大小さまざまな粒径の粒が混在していることによると考えられる。

ところで、粒状体そのものの密度に関しては報告されている例はない。筆者らは、OK ベントナイトの中から比較的大きい 20~30mm 程度の塊を選び密度を求めた。測定は水中懸垂法、すなわち網に乗せた状態で塊を水中に沈め、浮力より塊の体積を求め、塊の質量をこの体積で除して密度を計算する方法で行った。水浸時には気泡を巻き込まないように注意した。その結果、含水比 8.7% の状態で乾燥密度 $1.81 \sim 1.84 \text{ Mg/m}^3$ であった。クニゲル GX に含まれる 20mm 以下の粒子は、破碎工程で生じた微小亀裂を内在していることも考えられるので、これよりも小さい密度になっていることも推察できる。

2.2 粉体ベントナイトから成形する方法

原鉱石破碎品よりも高い密度のベントナイトペレットを製造する試みがある。高尾らは文献調査や粉体加工メーカーへのヒアリングを行い、粉体からベントナイトペレットを製造する方法について調査した[14]。そして、密度が高いベントナイトペレットが製造できる可能性がある方法として、押出し造粒法、ブリケット法、ロールプレス法、打錠法、解砕造粒法、CIP 法の 6 種類を示した。この中のいくつかの方法については、他の文献などにベントナイトペレットが試作された例が報告されているので、以下に代表的な知見を整理する。なお一部は筆者らによる製造例も含む。

2.2.1 市販の造粒装置の利用

市販の造粒装置が利用できればベントナイトペレットの製造コストを抑えることができる。ブリケット法や打錠法は、汎用の装置が流通しており、粉体加工の分野でさまざまな材料に対して使われている。ブリケット法は、2 つの凹みのあるロールを密着して回転させることで、ロール圧を利用して、その凹みの中に粉体を圧縮成型

する方法である。打錠法は円筒シリンダー内に充てんした粉体を、凹部を有するピストンで上下から一軸圧縮して錠剤を製造する方法である。なお、どちらの方法も圧力を加えることでペレットを製造する方法であり、装置は連続生産ができる構造となっている。

Fig. 4 は 2 つの方法で製造されたベントナイトペレットの例である。ブリケットング法の例は、海外で止水材として販売されている市販品である。原材料はクニゲル V1 ではない。一方、打錠法の例は筆者らが打錠機を用いてクニゲル V1 のペレットを製造したものがある。形状に着目すると、どちらも扁平であり、大きさが単一径であることがわかる。

ベントナイトペレット自体の密度については、クニゲル V1 で製造されたペレットについての報告例がある。打錠法については杉田・千々松ら[15,16]が乾燥密度 1.91Mg/m^3 を報告している、ブリケットング法については乾燥密度 1.77Mg/m^3 の報告例がある [17]。密度は原鉱石よりも高いが、実際に空間に充てんした場合は、形状等の影響で充てん率が低くなり、充てん密度が高まらないことも考えられる。そのような場合には粒径の異なるベントナイトペレットを混合するなどの対応が考えられるが、粒径の異なるペレットを製造するためには、ブリケットング法では凹みの形状や大きさを変えたローラ、打錠法では異なる径のピストンなどが必要となり、装置の改良もしくは複数台の装置を用意するなどの煩雑さがともなうと考えられる。

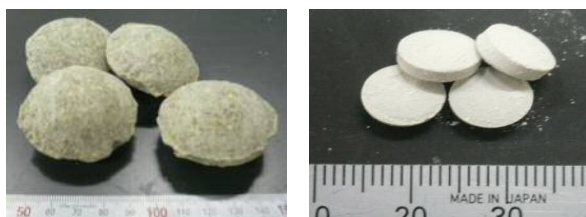


Fig. 4 Commercially-supplied briquetting type pellets on the left and hand-made bentonite pellets using a tablet machinery on the right.

2.2.2 一軸圧縮で高密度なベントナイトペレットを作製する方法

高い載荷圧でベントナイトペレットを成形できれば、それだけ密度の高いベントナイトペレットが作製できる。加える圧力と成形密度との関係は、クニゲル V1 において鈴木らが取得しているデータが参考になる[18]。φ50mm の圧縮ロッドで試料を円柱形に静的圧縮する方法で必要な圧力は、乾燥密度 1.86Mg/m^3 の場合 20MPa、 1.95Mg/m^3 では 50MPa、 2.03Mg/m^3 では 100MPa である。目標とする密度に応じて指数的に大きな載荷圧が必要となることがわかる。

Fig. 5 は、著者らが一軸圧縮により作製したクニゲル V1 のベントナイトペレットである。直径 20mm の円筒ピストンを用いた。圧縮には市販の手動油圧ジャッキを用いており、最大載荷荷重は 40kN 程度であった。含水比 7.8% で作製したペレットの乾燥密度は $2.00\sim 2.04\text{Mg/m}^3$ であった。載荷力を載荷圧に換算すると 127MPa 程度であり、鈴木らのデータとはほぼ整合する。



Fig. 5 Pellets made of Kunigel V1 in uniaxial compression using a laboratory-made piston unit.

上記の試作例は、比較的密度が高いベントナイトペレットが、簡易な方法により作製できることを示したもので、すき間充てん材としては改良すべき点も多い。端部が平面のピストンを用いたので形状は円柱形であり、充てん性が低いことも考えられる。高圧力の一軸圧縮で端部が曲面もしくは球形のペレットを作製することには、さらなる工夫が必要であり、まだ報告された例はない。また製造コストの観点からは、ある程度の製造スピードが確保できるような装置の開発が必要となる。

2.2.3 等方圧力で球形のベントナイトペレットを製造する方法

圧縮成型を一軸圧縮で行う限り、球形に近いペレットを製造することには課題が多い。和田らは、冷間等方圧加圧処理 (CIP: cold isostatic pressing) により、高密度で球形のベントナイトペレットを製作している。最大 600MPa の等方圧を作用させ、乾燥密度 2.25Mg/m^3 のペレットを製造したことが報告されている[19,20]。

しかし、製造方法の詳細は示されておらず、高圧を作用できる装置が大規模であったり、製造コストが高いことも懸念される。また、和田らが示している試作例では、50mm、20mm、2mm の粒径のみが紹介されているが、それ以外の粒径のペレットの製造可能性については情報が不足している。

2.2.4 既存のベントナイトペレット製造法のまとめ

ここまで述べたように、ベントナイト原鉱石の破砕品は粒そのものの密度は 1.8Mg/m^3 程度とそれほど高くなく、粉体のベントナイトからペレットを製造すれば、原鉱石破砕品より密度が高いベントナイトペレットが製造できる。製造方法としてさまざまな方法が考えられるが、ほとんどの方法は圧縮力で密度を高める方法であり、ペレットの密度は圧縮力の大きさに依存する。しかし、すき間充てん材としての利用を前提に、ペレットの密度だけでなく、形状や製造の容易さなどを考慮すると、これまでに製造実績があるベントナイトペレットの製造法には一長一短があると考えられる。

3 乾燥収縮を利用した新たなベントナイトペレット製造法

著者らは、2 章で述べた方法とは異なる新たな考え方のベントナイトペレット製造方法を考えた。これは、圧縮力ではなく乾燥収縮を利用する方法で、乾燥密度が 2.0Mg/m^3 と比較的高密度なベントナイトペレットが製造できる。既存の製造方法と比較しながら、新たな製造方法や製造され

るベントナイトペレットの特徴を説明したうえで、製造方法の詳細を示す。

3.1 製造法の特徴とベントナイトペレットの特徴

本方法により製造されるベントナイトペレットの特徴は、以下に示すように大きく3つある。

- ・球形
- ・高密度
- ・単粒径で、かつ任意の粒径

1つ目の特徴は、ペレットの形状が球形であることである。一軸圧縮でペレットを成形すると、球形に近いペレットを製造することは難しい。ペレットの形状は型枠やピストンの形状などで規定されるので、円筒形や扁平な形状となるのが一般的である。本方法では、圧縮成型でペレットを製造する場合と比べて多くの水分をベントナイトに与え、可塑性のある状態でペレットを成形する。可塑性があるため球形に形を整えることが容易である。

2つ目の特徴は、ペレットの密度が 2.0Mg/m^3 と比較的高いことである。これまでの方法では密度の高いペレットを製造するには、それに応じた圧縮圧力が必要である。CIP法では乾燥密度 2.25Mg/m^3 の製造実績が示されているが、一軸圧縮の原理を用いる既存の粉体加工装置を用いた場合には乾燥密度が 1.9Mg/m^3 程度である。これに対して、本方法では高密度化を圧縮圧力に頼るのではなく、乾燥収縮を利用する。可塑性がある状態で球形に成形したベントナイトペレットは、水分が多いため乾燥密度が 1.5Mg/m^3 程度と考えられるが、適切に乾燥させると 2.0Mg/m^3 程度のベントナイトペレットが製造できる。なお、ペレットが球形であることも乾燥収縮により影響を及ぼしていると考えられる。

3つ目の特徴は、単粒径のペレットであり、かつ容易に粒径が異なるペレットを製造できることである。この特徴は、本製造方法で使用する汎用的な造粒装置の機構に依存している。詳細については後述する。すき間の種類や形状によりさまざまな粒径のペレットが必要になった場合などに対応しやすい。また、充てん密度を高めるために異なる粒径のペレットを混合して用いる場合などにも対応しやすい。

3.2 製造手順

製造手順を Fig. 6 に示す。図中、四角の枠は作業および工程を示し、角の丸い四角の枠は製品の形態の変遷を示す。手順は造粒工程と乾燥工程とに大別できる。造粒工程はさらに、加水・混練、押し出し造粒、転動造粒の3つの異なる工程に分けられ、それぞれ異なる汎用的な装置を用いる。

3.2.1 加水・混練（造粒工程）

造粒工程では最初に加水・混練を行う。粉体の材料に所定の水分を加え、それを均一に混練する。水分量の調整は造粒にとって重要である。混練後の水分状態が適切でないと、押し出し造粒および転動造粒に支障があり、転動造粒後の湿潤ペレットが球形にならない。問題点の具体的な内容

については後述するが、ベントナイトとしてクニゲル VI を用いた場合、4章で示すように造粒が可能な含水比が 25~30% の範囲にある。これは塑性限界より少し高い水分量である。クニゲル VI の自然含水比は通常 10% 前後であるので、乾燥などの事前処理は必要なく、加水することで水分調整ができる。

3.2.2 押し出し造粒（造粒工程）

押し出し造粒は、加水・混練したベントナイトから円柱状のペレットを作る工程である。ダイスと呼ばれる円形の孔が開いた金属板に水分調整した材料を通過させ、円柱状の造粒品を成形する。Fig. 7 に示すようにダイスの直上に投入された材料は、ダイスの上を転がるローラで押しつぶされ、空気が抜かれ密度が上昇する。またダイスに設けられた円形孔を通過するとき材料はさらに圧縮され、円柱状のペレットがダイスの下部から押し出される。

材料の水分量が適切でないと押し出し造粒に支障がでる。水分が少ないと孔が詰まり、材料は孔を通過することができない。逆に水分が多すぎると押し出された材料が形を留めなかったり、円柱状ペレットがお互にくっつくなどの不具合が起きる。

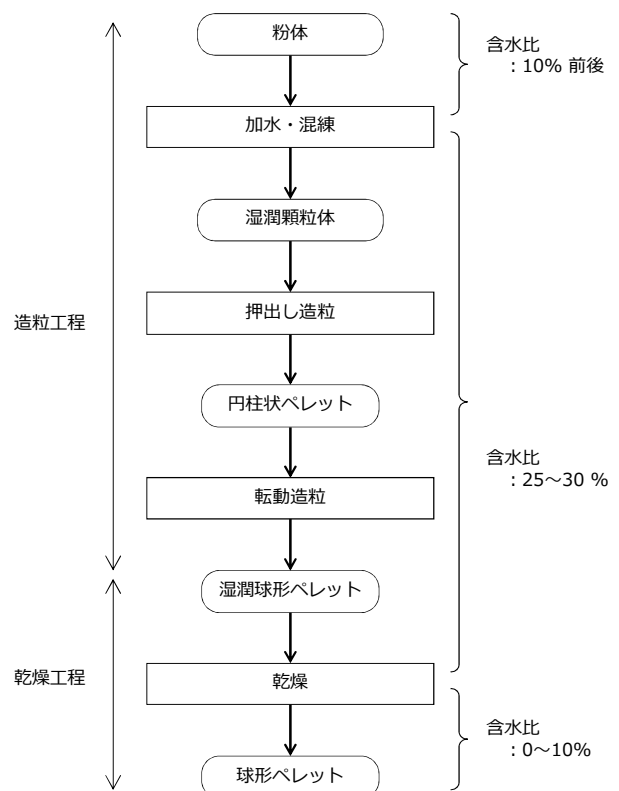


Fig. 6 Procedure for making bentonite pellets.

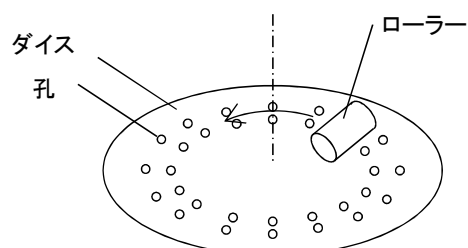


Fig. 7 Conceptual view of extruder.

孔の大きさが異なるダイスを用いると、さまざまな太さの円柱状ペレットを製造することができる。円柱状ペレットの太さが異なれば、後続の転動造粒後の球形ペレットの粒径が異なる。ダイスの交換は容易にできるので、一軸圧縮などによる他の製造方法と比べて、粒径の異なるベントナイトペレットを製造することに向いている。Fig. 8は、それぞれ押し径8mmと3mmのダイスの例である。孔はローラが材料を押しつぶす位置に円周上に配置されている。また、円柱状ペレットの長さは、ダイスの下部に備わっている回転カッターにより一定の長さに整えられる。

Fig. 9は押し径8mmのダイスで製造した円柱状ペレットの例である。なお、一般的な粉体をペレット化する場合には、この工程で製造した円柱状ペレットを乾燥し、最終製品とすることもがあるが、本方法では押し出した円柱状ペレットを、そのままの形状で乾燥させるのではなく、さらに転動造粒することで球形ペレットに変える。



Fig. 8 A die with 8mm holes on the left and another with 3mm holes on the right through which bentonite added water is extruded.



Fig. 9 Cylindrical pellets made by extruding using a 8mm-hole die.

3.2.3 転動造粒（造粒工程）

転動造粒では、円柱状ペレットを球形ペレットに成形する。転動造粒機はFig. 10のような構造である。側部が金属壁で覆われており、底部の回転円盤が回転する。円柱状ペレットを高速に回転する円盤上に投入すると、ペレットは遠心力で外側に飛ばされ周囲の壁面に衝突する。この壁面への衝突とペレット同士の摩擦などの複雑な挙動により次第に角が丸くなり球形になる。円盤の回転速度は、およそ100~1000rpmの範囲で調整する。

円柱状ペレットの水分量は転動造粒により成形される球形ペレットの球形度に影響を与える。水分が少ないと可塑性が低いと、角の丸い円柱状のままになり、球形にならない。Fig. 11は、押し径8mmで製造した円柱状ペレットが良好に球形化された例である。

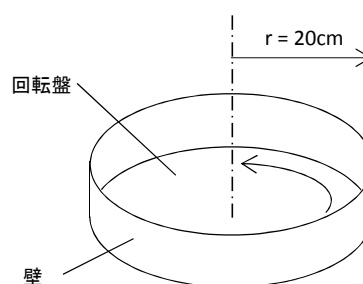


Fig. 10 Conceptual view of tumbling granulator.

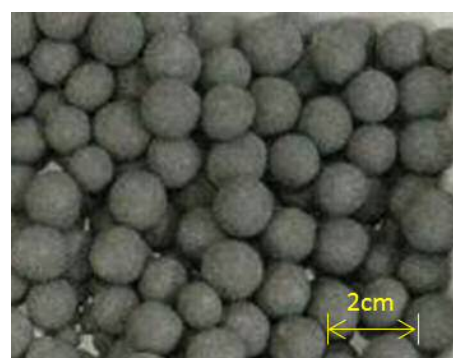


Fig. 11 Spherical pellets rolled from cylindrical pellets made using an 8mm-hole die.

3.2.4 乾燥工程

乾燥工程では、造粒工程で製造した球形ペレットを乾燥させる。このとき良好な乾燥収縮がおきれば、ペレットの乾燥密度は増加する。乾燥状態を制御して良好な乾燥収縮を起こすためには、後述するように、ゆっくり乾燥させることが有効であることが明らかになった。つまり、乾燥工程はベントナイトペレットの製造において重要な役割を果たす。

造粒後の球形ペレットは、ベントナイト原鉱石や既存のペレット製造法に比べて密度が低い。これは造粒時に比較的多くの水分を必要とするためである。水分が少ないと押し出しができなかったり、押し出しができて転動時に球形に成形できなかったりする。球形に成形するためには、ある程度の可塑性が必要となるためである。

Fig. 12はクニゲルV1のゼロ空隙曲線と等含水比線を示している。後述するように造粒に必要な含水比は25~30%程度である。造粒後の球形ペレットは表面色が黒色を示しており、カッターナイフなどで2つ割りにして内部を観察しても表面と同様な状態であり、飽和度は100%に近い状態と考えられる。このような点を考慮すれば、造粒後のペレットの状態は図中Aの状態であると考えられ、乾燥密度は1.5Mg/m³程度と推察される。参考までに圧縮成型で、粉体ベントナイトから乾燥密度2.0Mg/m³程度のベントナイトペレットを製造する場合には含水比10%程度に調整したベントナイトを使用し、同図に示した破線矢印の経路でCに変化させていることになる。

Fig. 13は乾燥前後のペレットの状態図を示している。このうち、Fig. 13(a)は乾燥前すなわち造粒後のペレットの状態を示している。ここでは空気相はなく空隙はすべて水で満たされている飽和状態と仮定した。乾燥密度はペレット

内のベントナイトの質量をペレット体積で除した値で表される。

Fig. 13(b1)および Fig. 13(b2)は乾燥後のペレットの状態である。乾燥時に乾燥収縮がまったく起こらない場合は、Fig. 13(b1)に示すように水が占めていた空間(V_w)が空気が占める空間(V_a)になって全体の体積が変わらず、乾燥による乾燥密度の増加は起こらない。一方、乾燥時に乾燥収縮が起きると、Fig. 13(b2)に示すように、水が占めていた空間(V_w)よりも空気が占める空間(V_a)が少なくなり、乾燥密度が増加する。このような乾燥後の2つの状態を Fig. 12 に示すと、B1、B2 で示した○のようになる。

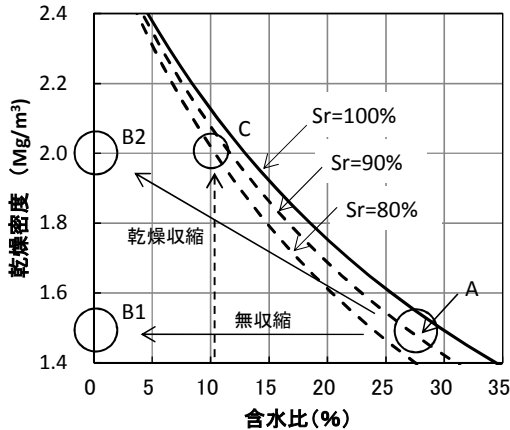


Fig. 12 Change of internal state of pellet before/after drying.

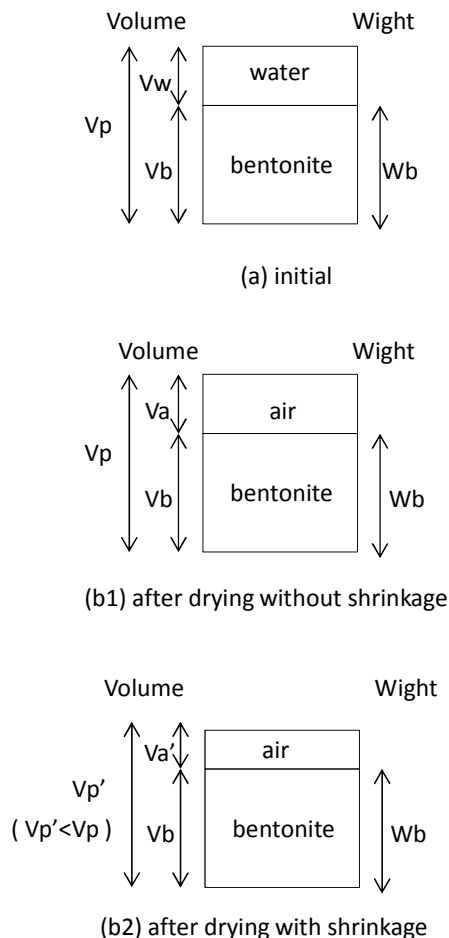


Fig. 13 Phase diagrams of bentonite pellet before/after drying.

実際には乾燥収縮が全く起こらないことは考えられないため、B1 のようにはならず、B2 のようになるのであるが、いかに乾燥収縮量を多くするかが、高密度なペレットを製造するために重要である。

4 造粒実験と造粒時水分の影響

3.2.1~3.2.3 で詳述したとおり、造粒工程では水分調整した粉体を押し出し造粒で円柱状に成形し、さらに可塑性を利用して球形に形を整える。このときの適切な水分量は材料により異なり、材料ごとに確認する必要がある。

これまでも農業や肥料のペレットを製造するときには、ベントナイトが用いられる場合はあった。しかし、それは混合材として利用しているのであって、ベントナイトのみがペレットの材料となっていたわけではない。粉体を造粒する場合には粘着性が必要なため、粘着性が高いベントナイトがバインダー（継ぎ材）として、主材に混合される。また、このような分野でペレットに加工する目的は、形状や粒径を安定させて扱いやすくすることであり、ペレットの形状として必ずしも球形にこだわる必要も少なく、円柱状であることが多い。

このように、ベントナイトのみで球形のペレットが製造された例はなく、ベントナイトを材料としてペレットが製造できることを確認する必要がある。造粒するには材料に粘着性が必要であるが、ベントナイトのみを材料として用いると粘着性が非常に高いと考えられ、機器が正常に機能しない恐れもあった。

そこで造粒実験を行い、ベントナイトペレットが造粒可能かどうかを確認するとともに、球形に成形するために必要となる水分量を調べた。

4.1 実験方法と実験条件

押し出し径 8mm, 5mm, 4mm, 2mm, 1mm のダイスを用いて、粒径の異なるベントナイトペレットを造粒した。すべてのケースでベントナイトにはクニゲル V1 を用い、自然含水比状態で 5kg の材料を用いた。

造粒に用いた機器は、加水・混練には混合機 (GRAL-75 型: 不二パウダル社製)、押し出し造粒にはディスクペレッタ (F-20 型: 不二パウダル社製)、転動造粒にはマルメライザー (Q-400 型: 不二パウダル社製) である。

少量のベントナイトに水を加えて固まり易さなどの状態を確認し、他の粉体材料での経験を踏まえて判断したうえで、造粒実験を行う水分条件を Table 1 に示すように設定した。

押し出し径の違いにより加えた水の量は異なり、これを上水添加率で示した。上水添加率は、材料の湿潤重量に対する加えた水の重量を比で表したもので、粉体加工分野で使われている指標である。材料の重量には自然状態で含まれている水分の重量も含むため、別途、材料含水比を電気水分計で測定し、設定した上水添加率と測定した材料含水比から混合後含水比を計算した。なお、Table 1 には設定した条件での造粒実験の結果も○×で示しているが、詳しくは後述する。

Table 1 Conditions of pelletizing tests and the results.

押出し径 (mm)	上水添加率 (%)	材料含水比 (%)	混合後含水比 (%)	造粒の可否
8	17%	10.22%	28.95%	○
5	17%	10.22%	28.95%	○
4	16%	8.04%	25.32%	×
4	18%	8.04%	27.48%	○
2	17%	8.60%	27.06%	○
1	17%	8.60%	27.06%	×
1	16%	8.60%	25.98%	○

4.2 造粒結果

押出し径 8mm および 5mm のペレットは、上水添加率 17%で加水・混合した。押出し造粒では、水分が少なすぎるとダイスの孔が詰まり押出し不能になることや、水分が多すぎると転動造粒のときにペレット同士がくっつき球形に成形できなくなるなどがあるが、上水添加率 17%ではこのような問題は起こらず、良好な押出しができた。押出し造粒に要する時間は、1 ケース(自然含水比状態で 5kg)につき 3~5 分程度であった。8mm 径の場合の押出し造粒後の円柱状ペレットの状態は、先に示した Fig. 9 のとおりである。また、転動造粒では高速円盤の回転数は 510rpm とした。4 分間の転動でペレットは円柱状から球形が変わった。さらに表面の粗度を改善するための 2 分間の転動を回転数を下げて 250rpm で行った。Fig. 11 に示すように球形のペレットが成形された。

押出し径 4mm のペレットは上水添加率を 16%と 18%と 2 種類の水分状態で行った。16%のケースは 510rpm の転動を 5 分間継続してもペレットが棒状から球形に変わらなかったため水分不足と判断した。18%のケースは 510rpm の転動を 6 分間行い、球形になったことを確認したのちに、250rpm の転動を 2 分間行うことで、球形のペレットが作製できた。

押出し径 2mm のペレットは上水添加率を 17%とした。4mm の場合より 1%下げたのは、押出し径が小さくなると水分が少なくても押出しやすくなること、また水分が多いと転動時にペレット表面に水分がしみだしてペレットのくっつきが起こることなどの粉体加工分野での知見を参考にしたからである。押出し後の転動造粒では、回転速度を 640rpm と 8mm~4mm の場合より高く設定した。粒径が小さくなると円盤の回転によりペレットに働く遠心力の効果が小さくなり球形になりにくくなると考えたためである。この条件にて 2mm ペレットの造粒は適正に行うことができた。

押出し径 1mm のペレットは、上水添加率 17%と 16%で造粒した。両ケースとも押出し造粒は問題なく行えたが、転動造粒では 17%のケースは水分が多すぎて、ペレット同士がペレットからしみだした水分で密着し、球形に成形することができなかった。水分が少ない 16%は良好な造粒が行えた。なお、転動時の回転数は 760rpm で 4 分間、250rpm で 1 分間の条件で行った。

4.3 造粒に必要な水分量

Fig. 14 にすべてのケースの含水比をプロットする。造粒ができたケースを●で、造粒できなかったケースを×で表している。実験結果から、良好な造粒が可能な含水比が存在することが確認でき、それは 25~30%の範囲にあった。クニゲル V1 の水分量と可塑性の関係は文献[21]によれば、液性限界 416%、塑性限界 21%と示されていることから、造粒が可能な含水比は液性限界と塑性限界の間にあり、塑性限界よりもわずかに大きい値である。すなわち、材料が塑性を示す必要があるが、その中でもより固体に近い側に適正な水分量があると考えられる。

しかし、造粒が可能な含水比の幅は 25~30%よりも狭いと考えられる。今回の実験では他の粉体での造粒経験を参考に粒径が小さくなるほど水分量を少なくして造粒実験を行った。このため、明確に造粒できない含水比が得られたのは 2 点だけである、4mm 径の場合は含水比 27.5%では造粒可能であったが、25.3%では造粒できなかった。また、1mm 径の場合は含水比 26%では造粒可能であったが、27%では造粒できなかった。ベントナイトにおいても、押出し径が大きいほど必要な水分が多く、押出し径が小さいほど水分を少なくする必要があることが推察できる。

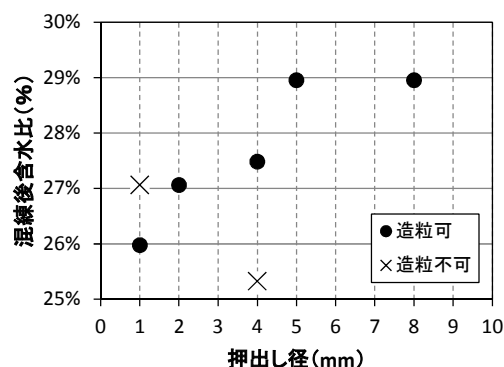


Fig. 14 Results of pelletizing tests in which ● show suitable conditions and × show unsuitable conditions.

5 乾燥実験と密度増加に与える乾燥条件の影響

造粒工程で製造したベントナイトペレットは、含水比が 25%~30%程度であり、一軸圧縮でペレットを製造する方法に比べて水分量が多い。その結果、乾燥密度は 1.5Mg/m³程度となり、原鉱石破砕品の密度よりも低く、すき間充てん材としての利用には向いていない。しかし、乾燥時に体積が収縮することで乾燥密度が向上する。乾燥収縮量や乾燥後の乾燥密度は、乾燥条件によって異なると考えられるため、造粒後の湿潤ペレットを異なる方法や温度で乾燥し、乾燥に要する時間や乾燥収縮による密度増加の違いを検討する。

5.1 実験条件

乾燥方法は、送風乾燥方式と炉乾燥方式の 2 種類とした。実験対象は、押出し径 5mm と 8mm で造粒した 2 種類の湿潤球形ペレットである。使用したベントナイトはクニゲル

V1 である。乾燥前の含水比は 27~28%であった。Table 2 に乾燥条件を示す。

送風乾燥方式は粉体加工分野で汎用的に用いられる乾燥方法であり、乾燥時間が短いという利点がある。底部がメッシュ製の容器に湿潤状態の球形ペレットを投入し、容器底部から上部に向けて温風を通過させる方式である。効率化の観点から水の沸点 100℃前後で温度設定するのが一般的であるが、ペントナイトの場合は、この温度で送風乾燥させるとペレットに割れや欠けが多く発生することが事前にわかっていたため、40℃もしくは 50℃の温度設定とした。温度の調整は排気温度で設定した。

炉乾燥方式には土質試験などで一般的に用いられている電気乾燥炉を用いた。炉内の底部にニクロム線があり、炉内を熱する方式である。炉内温度は炉内に設置された熱電対で計測し制御される。炉内の水分を含んだ空気は炉上部の排気口より外部空気と入れ替わる。実験では炉内温度を 110℃と 50℃に設定した。

Table 2 Conditions of drying tests.

乾燥方式	押し出し径 (mm)	温度 (°C)	乾燥前のペレットの総重量 (g)	含水比変化グラフ
送風乾燥	8	40	1,500	Fig.15
送風乾燥	5	40	1,500	Fig.15
送風乾燥	5	50	1,500	Fig.15
炉乾燥	8	50	900	Fig.17
炉乾燥	8	110	450	Fig.16
炉乾燥	5	50	750	Fig.17
炉乾燥	5	110	700	Fig.16

5.2 実験結果

5.2.1 含水比の変化

乾燥実験の途中段階で適宜、ペレットの全体重量を測定した。乾燥実験が終了した段階で 110℃で 24 時間以上の炉乾燥を行ってペレット全体の乾燥重量を求めた。この値を用いて、乾燥途中の含水比を算定した。

Fig. 15 に送風乾燥の場合のペレットの含水比変化を示す。1 時間~2 時間程度で含水比が 7~8%まで低下する。粒径が小さい方が、すなわち 5mm ペレットの方が 8mm ペレットよりも速く乾燥が進む。また、送風温度が高い方が速く乾燥が進むことがわかる。

Fig. 16 に電気乾燥炉で 110℃設定にした場合のペレットの含水比変化を示す。乾燥速度は Fig. 15 の送風乾燥に比べて、温度が高いにも関わらず遅い。含水比が 7~8%に到達するのに要した時間は 3 時間前後である。粒径の違いによる乾燥時間については、粒径の大きい 8mm ペレットの方が粒径の小さい 4mm ペレットに比べ若干速い。これは乾燥に供したペレット量が、8mm ペレットが 450g、4mm ペレットが 700g と、8mm ペレットの方が少ないためと考えられる。

Fig. 17 に電気乾燥炉で 50℃に設定した場合のペレットの含水比変化を示す。110℃設定では 4 時間程度で含水比が 2~3%程度まで低下するが、50℃設定では含水比が 5%程度

まで低下するのに 1 日程度を要し、乾燥温度が高い方が乾燥が速く進むことがわかる。

乾燥温度や粒径がほぼ同じである Fig. 15 と Fig. 17 とを比較すると、乾燥方法の違いが乾燥時間に大きく影響していることがわかる。これは乾燥時にペレットから排出された水分が含まれるペレット周囲の高湿度の空気の排出の違いによるものと思われる。送風乾燥ではペレット周囲の空気が絶えず送風によって入れ替わるが、炉乾燥では空気の入れ替えは炉上部の一部からしか行われないため、ペレット周囲が高湿度環境になっており、ペレットからの水分の蒸発が抑制されるものと考えられる。

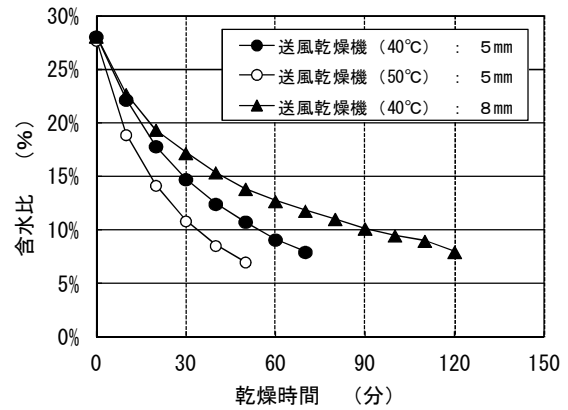


Fig. 15 Water content change caused by drying using an air-blow dryer.

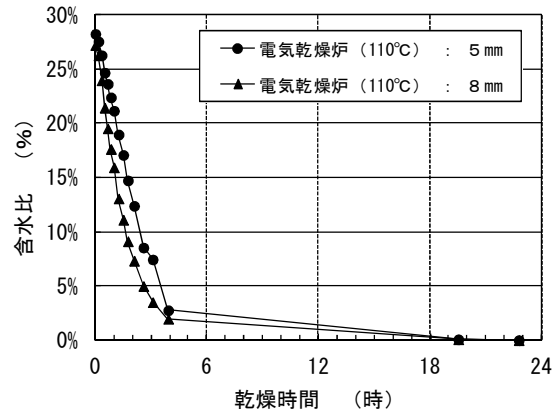


Fig. 16 Water content change caused by drying using a non-air-blow dryer at 110 °C.

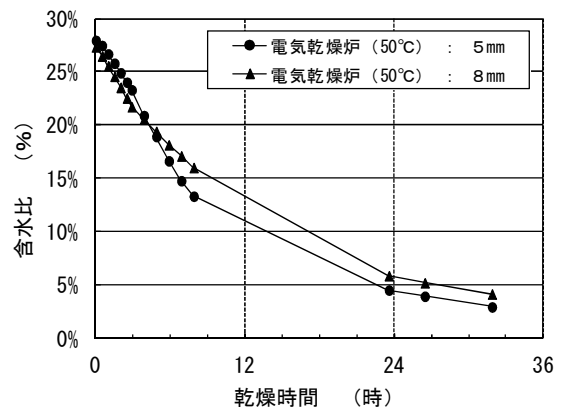


Fig. 17 Water content change caused by drying using a non-air-blow dryer at 50 °C.

5.2.2 乾燥後のベントナイトペレットの乾燥密度

乾燥によるペレットの密度増加を把握するために、乾燥後のペレットに対して乾燥密度を求めた。測定には水中懸垂法を用いた。水中懸垂法は、水中に沈めたときの浮力から測定物の体積を算定する方法である。1粒のペレットではなく50g程度のペレットをまとめて測定対象とした。

なお、送風乾燥および炉乾燥50℃のペレットでは、Fig. 15および Fig. 17 で示した最終状態の含水比から、さらに110℃の炉乾燥を行い、ペレットを絶乾状態にして乾燥密度を計測した。土質材料の場合、含水比が高い状態では水分の減少に伴って体積減少が起きる正規収縮を呈するが、水分が少ない状態では無収縮の挙動を示すとされており[22]、7~8%の含水比は自然含水比以下であり、無収縮状態で密度増加がないと考えたためである。

Fig. 18 に乾燥後のペレットの乾燥密度を示す。送風乾燥機を用いて乾燥させたペレットは乾燥密度が 1.8Mg/m³ 程度であるが、電気乾燥炉を用いた場合は 1.87~2.03 Mg/m³ と高い値を示す。また、乾燥温度が低い方が乾燥密度が高くなる傾向や、粒径が小さい方が乾燥密度が高くなる傾向がみられる。これらの要因のうち、乾燥方法の違いによる密度増加の効果をもっとも顕著であり、乾燥温度がほぼ 40~50℃と同じであっても、送風乾燥が 1.8Mg/m³ であるのに対して、炉乾燥法では 1.96~2.03 Mg/m³ となる。

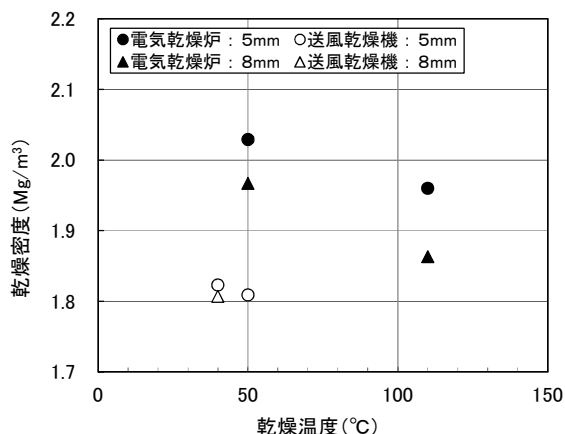


Fig. 18 Dry density of dried bentonite pellets.

5.3 乾燥速度が密度増加に与える影響

ペレットの乾燥速度は時間当たりの含水比低下量で定義するのが適当であると考えられるが、Fig. 15~Fig. 17 からわかるように、乾燥速度は乾燥期間中に一定ではなく、乾燥初期に大きく、乾燥が進むにつれて小さくなる。乾燥が進み含水比が小さくなったときには無収縮挙動を示すと考えれば、まずは乾燥初期の平均的な乾燥速度が乾燥収縮に与える影響を評価することを考えた。ベントナイトの自然含水比が 10%程度であることから、それ以下では無収縮状態であると仮定し、含水比 10%に至るまでの乾燥時間で乾燥速度を代用した。

Fig. 19 に含水比 10%に至るまでの乾燥時間と乾燥後のペレットの乾燥密度との関係を示す。おおむね、乾燥時間が長いほど乾燥密度が高まっている。送風をせずに乾燥温度が低い場合、乾燥密度が高くなっていることがわかる。

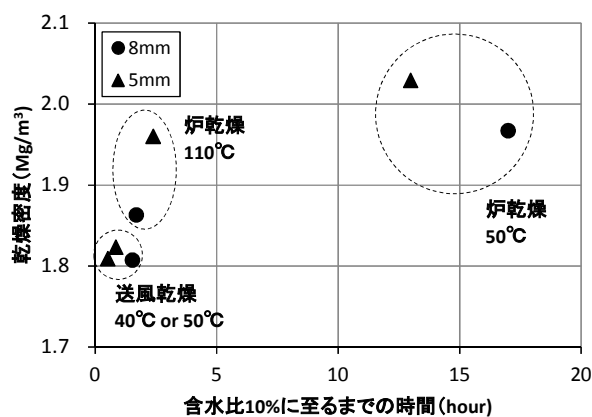


Fig. 19 Relationship between dry density of dried bentonite pellets and drying speed which is expressed as the elapsed time when the water content reached 10%.

乾燥に要する時間が長く、ゆっくり乾燥が進むほど、乾燥収縮が大きくなり結果的に乾燥密度が高まったものと推測される。

一方、乾燥に要する時間が同じでも粒径の小さいペレットの方が乾燥密度が高くなる傾向も推測される。炉乾燥110℃の場合には、ほぼ同じ乾燥時間でも4mmペレットの方が乾燥密度が大きい。炉乾燥50℃の場合には、乾燥時間が短いにもかかわらず4mmペレットの方が乾燥密度が大きい。粒径が小さい方が同じ乾燥時間でも密度が高まり易い傾向があると言える。

6 ベントナイトペレットの粒径と形状

本報告で示した製造方法では、押し造粒時の押し径を適宜変えることで、任意の粒径のベントナイトペレットが製造できる。これまでに製造したベントナイトペレットの粒度分布を Fig. 20 に示す。測定は完全乾燥後の状態、すなわち110℃の乾燥炉で24時間以上乾燥させた状態で行った。押し径 20mm~0.3mm でペレットの製造が可能である。

Fig. 20 を用いて、本方法で製造したベントナイトペレットの粒径に関する特徴を 2 つ説明する。1 つ目は押し径よりも大きめのペレットが製造できることである。図より 8mm ペレットを除くすべてのペレットで、10%通過粒径が押し径より大きいことがわかる、8mm ペレットについても、50%通過粒径が 8mm 以上であった。円柱状ペレットが転動造粒で球形に変わるときに、押し径よりも大きめの球になることは容易に想像できる。乾燥の段階で乾燥収縮するものの押し径より小さくはならない。最終的な乾燥状態のベントナイトペレットの球径を厳密に規定しなければならないような場合には、それよりも小さい押し径のダイスを用いる必要がある。

2 つ目は粒径が揃っていること、すなわち単粒径であることである。ただし、大きい粒径のペレットは小さい側に、小さい粒径のペレットは大きい側に、球形ではない欠陥品を含む傾向がある。この原因は、大きい粒径では押し造粒時に細かい破砕品を含むことが原因である。この破砕品

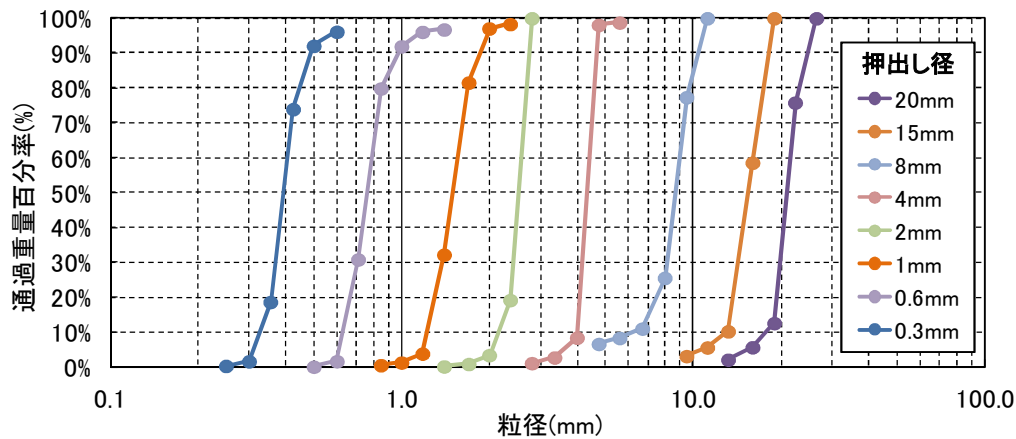


Fig. 20 Grain size distribution of dried bentonite pellets.

が欠陥ペレットになる。小さい粒径では、転動造粒時にペレット同士がくっついて大きい塊になり、これが欠陥ペレットになる。局所的な水分のバラツキにより水分が多い部分で起こっているものと思われる。このような欠陥ペレットは分級することで簡単に取り除くことができる。

Fig. 21 には完全乾燥したペレットの形状例を示す。欠陥ペレットを除いた代表的な粒径のもののみを示しており、球形なベントナイトペレットが製造できていることがわかる。

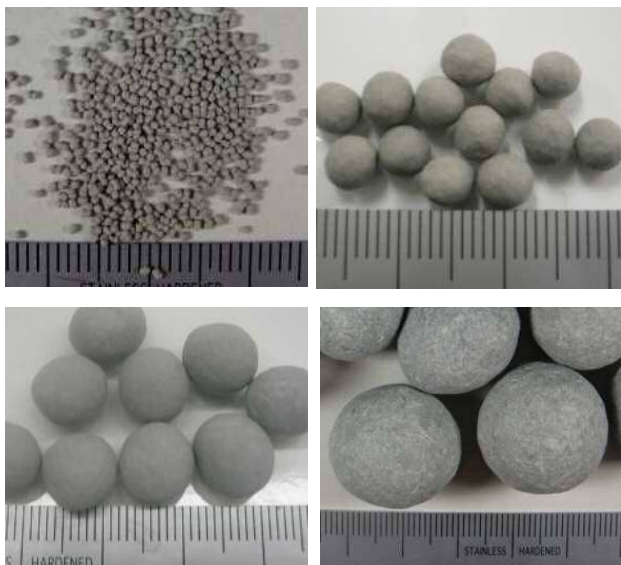


Fig. 21 Examples of the dried bentonite pellets showing spherical shape.

7 まとめと今後の課題

ベントナイトペレットの新たな製造方法として、含水比が高く可塑性がある状態で球形のベントナイトペレットを成形し、それを乾燥することで比較的高密度なベントナイトペレットを製造する方法を考えた。代表的な Na 型ベントナイトであるクニゲル V1 で、実際にベントナイトペレットを製造し、以下の結論を得た。

本製造法を用いることで、以下の特徴のベントナイトペレットが製造できることがわかった。

- ・球形である。

- ・乾燥密度 2.0Mg/m^3 程度の比較的高密度である。
- ・単粒径で任意の粒径の選択が容易である。

また、本製造法では市販の造粒機器を用いるため、新たな機器開発が必要なく、このことは本製造法の利点の一つと考えられる。

本製造法の製造条件を決めるために造粒試験と乾燥試験を行った、造粒試験では、以下の知見が得られた。

- ・ベントナイトは球形に造粒できることがわかり、造粒可能な含水比はおよそ 25~30% の範囲にあった。これは使用したベントナイトの塑性限界 (クニゲル V1 の場合は 21%) よりも若干高い値である。
- ・造粒時の適正な水分量は、粒径 (押し出し径) によって異なり、粒径が大きくなるにつれて若干多くする必要があることが推察される。
- ・造粒により製造できた乾燥前の球形ペレットは、乾燥密度 1.5Mg/m^3 程度と推測できる。

乾燥試験では、以下の知見が得られた。

- ・乾燥すると湿潤状態のベントナイトペレットは乾燥収縮し、乾燥密度が増加する。
- ・乾燥方法の違いで乾燥収縮の程度が異なり、ゆっくり乾燥させた場合は、乾燥密度が 1.5Mg/m^3 程度から 2.0Mg/m^3 程度になる。

最後に本製造法の課題を示す。本製造法では、乾燥過程がベントナイトペレットの高密度化に大きく影響する。現段階ではゆっくり乾燥させることが密度向上に有効であることは把握できたが、最適な乾燥速度の設定にはデータが不足している。乾燥速度は温度・湿度・風速などの乾燥条件に依存すると考えられるので、乾燥条件を変えた乾燥試験を行い、これらの乾燥条件を把握することが重要と考える。このような知見に基づき高密度化を確保しながら最短で乾燥する最適条件を把握することは、本方法で製造するベントナイトペレットの製造方法の効率化に役立つと考えられる。

参考文献

- [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 次とりまとめ—総論レポート, JNC TN1400

- 99-020 (1999).
- [2] 原子力発電環境整備機構:地層処分事業の安全確保 (2010 年度版)ー確かな技術による安全な地層処分の実現のためにー. 原子力発電環境整備機構, NUMO-TR-11-01 (2010).
- [3] 財団法人 原子力環境整備促進・資金管理センター:平成 17 年度 地層処分技術調査等遠隔操作技術高度化調査報告書 (3/3), (2006).
- [4] Nakashima, H. et al. : Design options for HLW repository operation technology:Part I- Demonstration and evaluation of remote handling technologies. Proceedings of the 13th International Conference on Environmental Remediation and Radioactive Waste Management, Volume 2, ICEM2010-40242, pp. 459-465 (2010).
- [5] 財団法人 原子力環境整備促進・資金管理センター:平成 18 年度 地層処分技術調査等遠隔操作技術高度化調査報告書 (3/3), (2007).
- [6] 高尾肇, 竹ヶ原竜大, 佐藤由子, 和田英孝, 荒岡邦明, 中嶋幸房, 植田浩義, 木元崇宏:すきま充填材としてのベントナイト特性に関する研究 (その 1) ーすきま充填材の充填特性評価ー. 土木学会第 55 回年次講演会, pp.378-379 (2000).
- [7] 和田隆太郎, 西村務, 澤田昌久, 竹内靖典:高品質・高施工性ベントナイト系成型品の開発ー1. 日本原子力学会 2000 秋の大会, 青森, 9 月 15~17 日, K34 (2000) .
- [8] 中島均, 齊藤亮, 石井卓:高密度で真球度が高いベントナイトペレットの製造方法. 日本原子力学会 2013 春の年会, 大阪, 3 月 26~28 日, A19 (2013).
- [9] 中島均, 齊藤亮, 石井卓:乾燥収縮を利用したベントナイトペレットの製造方法. 第 48 回地盤工学研究発表会, pp.463-464 (2013).
- [10] 戸栗智仁, 景山仁志, 朝野英一, 沖原光信, 岩佐健吾, 中島均, 石井卓:横置き定置方式における緩衝材周辺隙間へのベントナイトペレットの充てん方法に関する研究, 土木学会第 63 回年次講演会, pp.191-192 (2008).
- [11] 中島貴弘, 織田信明, 千々松正和, 高橋隆太郎, 中越章雄, 石橋勝彦:狭隘部におけるベントナイト締固めによる側部緩衝材 (低透水層) の施工性確認ー地下空洞型処分施設性能確認試験によるー. ,土木学会第 66 回年次講演会, pp.1-2 (2011).
- [12] 伊藤弘志, 伊藤弘志, 千々松正和, 村上利一:ベントナイト層の現場施工用材料の開発. ,土木学会第 62 回年次講演会, pp.161-162 (2007).
- [13] 雨宮清, 中越章雄, 茂呂吉司, 千々松正和, 工藤康二, 田中幸久, 山崎直, 庭瀬一仁, 小松進一:ベントナイト原鉱の締固め特性に関する検討ー種々の材料に対する室内試験結果ー. ,土木学会第 58 回年次講演会, pp.313-314 (2003).
- [14] 高尾肇, 増田良一, 上坂文哉, 竹ヶ原竜大, 雨宮清, 千々松正和:ベントナイトペレットの特性試験 (その 1) ーベントナイトペレットの製作方法の検討および製作ー, 土木学会第 57 回年次講演会, pp.473-474 (2002).
- [15] 杉田裕, 千々松正和, 雨宮清:ベントナイトペレットを用いた緩衝材の隙間充填性に関する検討 (その 1) ベントナイトペレット膨潤後の止水性に関する検討, 土木学会第 56 回年次講演会, pp.2-3 (2001).
- [16] 千々松正和, 雨宮清, 杉田裕:ベントナイトペレットを用いた緩衝材の隙間充填性に関する検討 (その 2) 楔形状の隙間に対する充填性に関する検討, 土木学会第 56 回年次講演会, pp.4-5 (2001).
- [17] 財団法人 原子力環境整備促進・資金管理センター:平成 13 年度 高レベル放射性廃棄物処分事業推進調査報告書ー遠隔操作技術高度化調査ー(2/2), (2002).
- [18] 鈴木英明, 柴田雅博, 山形順二, 広瀬郁郎, 寺門一馬 (1992):緩衝材の特性試験 (I), 動燃技術資料, 動燃技術資料, PNC8410 92-057.
- [19] 和田隆太郎, 山口憲治, 播磨昇, 竹内靖典:高品質・高施工性ベントナイト系成型品の開発ー2 ベントボール粒径配合による充填密度の制御. 日本原子力学会 2002 春の年会, 神戸, 3 月 27~29 日, M12 (2002) .
- [20] 和田隆太郎, 山口憲治, 竹内靖典, 隈元純二, 小峯秀雄, 中西宏:低透水層用充填材「ベントボール®」, 神戸製鋼技法, Vol.53 No.3, pp.72-77 (2003).
- [21] 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ー地層処分研究開発第 2 次とりまとめー分冊 2 地層処分の工学技術, JNC TN1400 99-022 (1999).
- [22] 土壌物理研究会編:土の物理学ー土質工学の基礎, 森北出版, pp.98-101 (1979).

