

人工および天然バリア材におけるヨウ化物イオンの拡散挙動

Diffusion of Iodide Ions in Engineered and Natural Barrier Materials

*北城 諒一¹, 田中 真悟¹, 渡邊 直子¹, 小崎 完¹, 赤木 洋介², 武田 匡樹³

¹北海道大学, ²三菱マテリアル, ³日本原子力研究開発機構

人工および天然バリア材におけるヨウ化物イオンの見かけの拡散係数および拡散の活性化エネルギーを決定した。ヨウ化物イオンの拡散機構は、モンモリロナイト部分密度によって変化することが明らかとなった。

キーワード：放射性廃棄物処分, ベントナイト, ブームクレイ, 堆積岩, 拡散, ヨウ素

1. 緒言 放射性廃棄物の地層処分の安全評価には、人工および天然バリア材における核種の移行挙動を把握する必要がある。本研究では、種々の人工および天然バリア候補材中における典型的な陰イオンであるヨウ化物イオン(I^-)の見かけの拡散係数(D_a)およびその活性化エネルギー(E_a)を非定常拡散試験によって決定し、得られた値とバリア材のモンモリロナイト部分密度との関係から、 I^- の拡散挙動について検討した。

2. 実験 人工バリア材試料として①ケイ砂混合ベントナイト試料(乾燥密度 1.6 Mg m^{-3} 、クニゲル V1:ケイ砂 = 7:3)、②Na 型モンモリロナイト試料(クニピア F、乾燥密度 1.0 Mg m^{-3})、③ベントナイト試料(MX-80、乾燥密度 1.6 Mg m^{-3})を用いた。また、天然バリア材試料として、④ベルギー産ブームクレイ(No.CGR76/77D-10.40-11.40c)、⑤幌延産堆積岩(稚内層)を用いた。なお、試料の空隙率は、試料②(約 0.6)を除いて 0.4 程度であった。人工バリア材試料は所定の乾燥密度に圧縮成型し、イオン交換水で 1 ヶ月以上膨潤させた。一方、試料④は拡散方向が層理面に垂直または水平となるよう成型し模擬地下水で飽和させ、試料⑤はコア抜き加工をして成型し原位置の地下水で飽和させた。拡散は、これらの試料に Na^{125}I トレーサー溶液を塗布し、拡散温度 $288 \sim 323 \text{ K}$ にて所定の時間行った。実験終了後、試料をスライスし、スライス試料の放射能を測定し、得られた濃度プロファイルから I^- の D_a を決定した。また、 D_a の温度依存性から拡散の E_a を決定した。

3. 結果・考察 本研究で得られた I^- の拡散の E_a のモンモリロナイト部分密度依存性を、試料②と同じ Na 型モンモリロナイト中の塩化物イオンに対する報告値^[1]とともに図 1 に示す。試料②を除き空隙率がほぼ同じ値である試料中の I^- の E_a は、試料のモンモリロナイト部分密度によって異なる値となった。このうち、天然バリア材試料である試料④および試料⑤中の I^- の E_a は $15.3 \sim 16.4 \text{ kJ mol}^{-1}$ であり、自由水中の E_a (16.9 kJ mol^{-1}) とほぼ同じ値であることから、 I^- は自由水が存在するような比較的大きな空隙中を主な拡散経路としていていると考えられる。また試料④では、 E_a の値に差が認められなかったものの、 D_a は拡散方向が層理面に対して垂直の場合よりも水平の場合の方が約 2 倍大きな値を示したことから、 I^- の主な拡散経路は水平方向に大きく発達している可能性がある。一方、試料①では自由水中の値よりも低い E_a が得られた。これは、 Cl^- の E_a に対して推察されているように^[1]、この試料中の I^- は空隙内の拡散とは異なるプロセスで移行していることを示唆している。また、空隙率は異なるが、モンモリロナイト部分密度がほぼ同じ($0.9 \sim 1.0 \text{ Mg m}^{-3}$) 試料①と試料②の I^- の E_a は、同じ値となったことから、他のイオンと同様に、 I^- の拡散は試料中のモンモリロナイト部分密度で整理できる可能性があると考えられる。

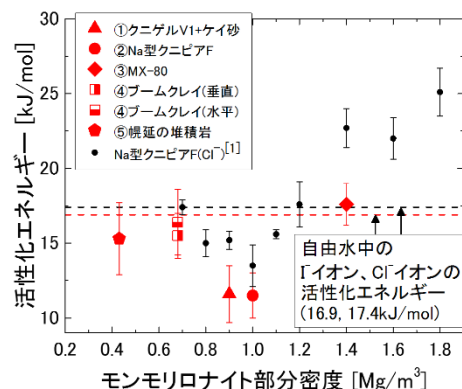


図 1 活性化エネルギーの部分密度依存性

謝辞：本研究の一部は ONDRAF/NIRAS 研究費(Cont.No.CCHO-13/418)により実施された。

参考文献：[1]Kozaki et al., *J. Contam. Hydrol.*, 47, 159–170 (2001)

*Ryoichi Hojo¹, Shingo Tanaka¹, Naoko Watanabe¹, Tamotsu Kozaki¹, Yosuke Akagi² and Masaki Takeda³

¹Hokkaido University, ²Mitsubishi Materials Corporation, ³Japan Atomic Energy Agency