

## 圧縮ベントナイト中における硫酸イオンの拡散挙動

Diffusion behavior of sulfate ion in compacted bentonite

\*角田 憲弥, 田中 真悟, 渡邊 直子, 小崎 完

北海道大学

高レベル放射性廃棄物の地層処分におけるベントナイト緩衝材中の放射性核種の拡散挙動を把握するため、非定常拡散試験にて硫酸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求め、その支配的な拡散機構を検討した。

**キーワード**: 放射性廃棄物処分, ベントナイト, 拡散, 活性化エネルギー, 硫酸イオン

**1. 緒言** 高レベル放射性廃棄物の地層処分の安全評価では放射性核種のベントナイト緩衝材中の長期にわたる移行挙動を理解する事が重要である。本研究では、2 価の陰イオンである硫酸イオン ( $\text{SO}_4^{2-}$ ) に着目し、異なる乾燥密度の Na 型ベントナイト試料中に見かけの拡散係数 ( $D_a$ ) および拡散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することでそこでの拡散機構を検討した。

**2. 実験** 精製した Na 型ベントナイト (クミネ工業製クニピア F) を乾燥密度が  $0.8 \sim 1.6 \text{ Mg m}^{-3}$  となるよう圧縮成型し、イオン交換水で 1 ヶ月以上膨潤した。次に、この試料に  $\text{Na}_2^{35}\text{SO}_4$  トレーサー溶液を塗布し、所定の温度 ( $288 \sim 323 \text{ K}$ ) で所定時間トレーサーを拡散させた。その後、試料を塗布面から  $0.5 \text{ mm}$  間隔でスライスし、液体シンチレーションカウンターを用いて各スライス片の放射能を定量して得られた  $\text{SO}_4^{2-}$  の濃度プロファイルから  $D_a$  を決定した。また、 $D_a$  の温度依存性から  $E_a$  を決定した。

**3. 結果・考察**  $298 \text{ K}$  における  $\text{SO}_4^{2-}$  の  $D_a$  の乾燥密度依存性および拡散の  $E_a$  の乾燥密度依存性を  $\text{Cl}^{-[1]}$  と  $\text{I}^{-[2]}$  の報告値とともに図 1 および図 2 にそれぞれに示す。 $\text{SO}_4^{2-}$  の  $D_a$  は、乾燥密度の増加に対し、絶対値の差はあるものの、他の陰イオンと同様に単調な減少傾向を示した。一方、 $\text{SO}_4^{2-}$  の  $E_a$  は乾燥密度  $0.8 \text{ Mg m}^{-3}$  において  $21.5 \text{ kJ mol}^{-1}$  となり自由水中の拡散とほぼ等しい値であったのに対し、乾燥密度が  $1.0$  および  $1.2 \text{ Mg m}^{-3}$  に増加すると  $E_a$  は  $15.0$  および  $12.6 \text{ kJ mol}^{-1}$  と自由水中より低くなった。また、さらに乾燥密度が  $1.4$  および  $1.6 \text{ Mg m}^{-3}$  に増加すると  $E_a$  は  $16 \sim 18 \text{ kJ mol}^{-1}$  に増加した。このことから、この乾燥密度範囲において、支配的な拡散機構が少なくとも 2 回変化していることが考えられる。このように、単調な減少傾向を示した乾燥密度の増加に伴う  $\text{SO}_4^{2-}$  の  $D_a$  の変化は、陰イオンの水和半径に対し拡散経路であるモンモリロナイト試料中の間隙の狭隘化といった微細構造の変化の影響に加え、支配的な拡散機構の変化の影響を受けている可能性が示唆された。

### 参考文献

[1] T. Kozaki et al., J. Contam. Hydrol., 47, (2001) 159-170. [2] 北城諒一ら, 日本原子力学会北海道支部第 34 回研究発表会

\*Kenya Kakuta, Shingo Tanaka Naoko, Watanabe, and Tamotsu Kozaki

Hokkaido Univ.

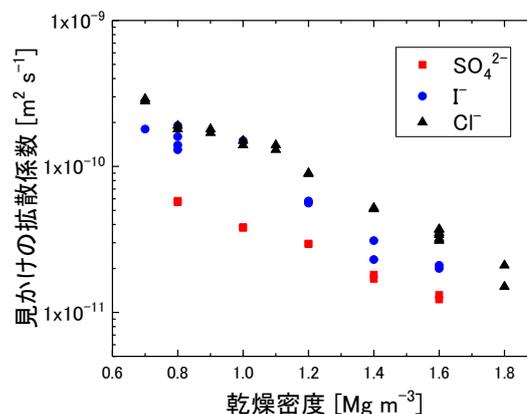


図 1 拡散係数の乾燥密度依存性 (298K)

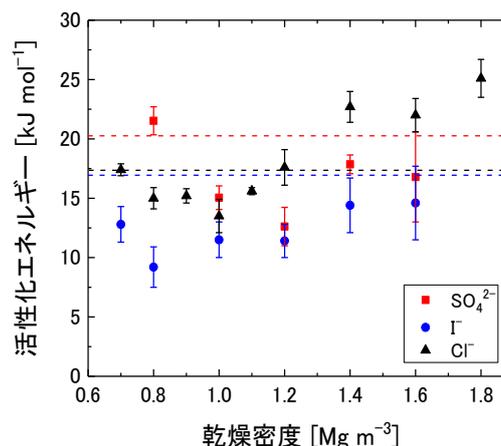


図 2 活性化エネルギーの乾燥密度依存性  
図中の点線は自由水中の  $E_a$  (赤:  $\text{SO}_4^{2-}$ , 青:  $\text{I}^-$ , 黒:  $\text{Cl}^-$ )