

ブームクレイ中における放射性核種の拡散挙動に関する研究

Study on the diffusion behavior of radionuclides in Boom Clay

*水上 裕野¹, 渡辺 直子², 小崎 完², 田中 真悟², 赤木 洋介³

¹北海道大学大学院工学院, ²北海道大学大学院工学研究院, ³三菱マテリアル株式会社

ベルギー産の粘土(ブームクレイ)に対し放射性核種をトレーサーに用いた非定常拡散試験を行い、得られた見かけの拡散係数と拡散の活性化エネルギーから同粘土試料中におけるイオンの拡散メカニズムを考察した。

キーワード: 放射性廃棄物処分、ブームクレイ、拡散、ナトリウムイオン、塩化物イオン

1. 緒言

高レベル放射性廃棄物の地層処分の安全評価においては、人工及び天然バリア材における放射性核種の移行挙動を把握する必要がある。本研究では、ベルギー産粘土試料(ブームクレイ)に対しナトリウムイオン(Na^+)及び塩化物イオン(Cl^-)の非定常拡散試験を行い、得られた見かけの拡散係数(D_a)とその温度依存性から求めた活性化エネルギー(E_a)からイオンの拡散機構を検討した。

2. 実験

^{22}Na あるいは ^{36}Cl をトレーサーとして非定常拡散試験を行った。ブームクレイは、拡散方向が堆積面に対して垂直になるようボーリングコアから切り出して成型し、模擬地下水で14日以上膨潤させた。膨潤後、試料に微量の $^{22}\text{NaCl}$ 溶液あるいは Na^{36}Cl 溶液を塗布し、拡散温度 288K~333K にて所定の時間、拡散させた。拡散試験後、試料を塗布面から 0.5mm 間隔でスライスし、スライス片の放射能測定により得られた濃度プロファイルから D_a を決定した。さらにその温度依存性から E_a を決定した。

3. 結果・考察

ブームクレイ中の Na^+ 及び Cl^- イオンの D_a の温度依存性を図1に示す。 Na^+ の E_a は $16.8 \pm 1.4 \text{ kJ/mol}$ となり、自由水中の拡散の E_a である 18.4 kJ/mol とほぼ一致した。これはブームクレイ中の Na^+ は自由水が存在する比較的大きな空隙中を主要な経路として拡散していることを示唆する。一方、本研究で得られた Cl^- の E_a は自由水中の拡散の E_a である 17.9 kJ/mol に比べて低い値であった。モンモリロナイト単独の粘土試料では乾燥密度 1.0 Mg/m^3 付近で自由水中より低い E_a が報告されているものの、ブームクレイのモンモリロナイト部分密度である 0.68 Mg/m^3 付近では、 E_a は自由水中の値とほぼ等しいと報告されている^[1]。一般に、細孔拡散モデルでは密度の低下は空隙の増加を伴い、これにより E_a は自由水中の値に近づくと思われるが、本研究で得られた Cl^- の E_a は自由水中の値よりも低く、その傾向は認められなかった。これは Na^+ とは異なり、 Cl^- イオンの拡散の支配的な経路となる因子がモンモリロナイトではない可能性を示唆している。

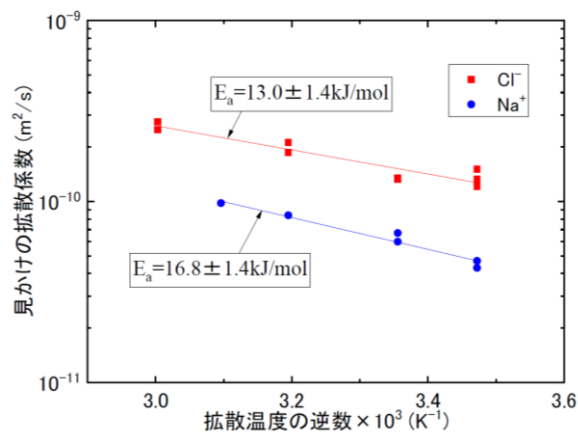


図1. 見かけの拡散係数の温度依存性

参考文献

[1] Kozaki et al., J.Contamin.Hydrol, 47,159-170 (2001).

*Yuya Mizukami¹, Naoko Watanabe², Tamotsu Kozaki², Shingo Tanaka², Yosuke Akagi³

¹Graduate School of Engineering Hokkaido University, ²Faculty of Engineering Hokkaido University, ³Mitsubishi Materials Corporation