

モンモリロナイト中の硫酸イオンの拡散挙動に及ぼす交換性陽イオンの影響 Effects of Exchangeable Cations on Diffusion Behavior of Sulfate Ions in Montmorillonite

*佐藤 央都¹, 植松 慎一郎¹, 渡邊 直子¹, 小崎 完¹

¹北大

圧密した Ca 型モンモリロナイト試料において、異なる温度条件下で硫酸イオンの拡散実験を行い、得られた見かけの拡散係数及びその温度依存性から決定した拡散の活性化エネルギーから、硫酸イオンの拡散機構について検討した。

キーワード：地層処分，モンモリロナイト，拡散機構，活性化エネルギー，交換性陽イオン，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を行う上で、ベントナイト緩衝材中の放射性核種の拡散挙動の理解が重要である。ベントナイトの低拡散性は、主要な構成鉱物であるモンモリロナイトによる。ここでは、地下処分環境における微生物活動に密接に関与している 2 価の陰イオンである硫酸イオンに着目して、これまでに報告例のない Ca 型モンモリロナイト試料中の見かけの拡散係数を実験的に求めるとともに、その温度依存性から拡散の活性化エネルギーを決定し、そこでの拡散機構を検討した。

2. 実験

Ca 型モンモリロナイト試料は、Na 型モンモリロナイト（クニミネ工業製クニピア F）を 1M CaCl₂ 水溶液中に懸濁させてイオン交換することで得た。イオン交換は 4 回とし、その後、透析膜を介して脱イオン水と接触させることで過剰塩を除去した。この試料を乾燥密度 1.0 Mg/m³ あるいは 1.6 Mg/m³ となるように圧縮し、イオン交換水で 30 日間膨潤した。拡散実験は、一次元非常法によって行った。すなわち、膨潤した試料の表面に極微量の Na₂³⁵SO₄ トレーサー溶液を塗布し、所定温度(288~313 K)で所定時間トレーサーを拡散させた後、粘土試料を 0.5 mm 間隔でスライスし、スライス片の放射能測定から得られた ³⁵S の濃度分布から、見かけの拡散係数(D_a)を求めた。

3. 結果と考察

Ca 型モンモリロナイト中の硫酸イオンの D_a を、Na 型に対する報告値^[1]とともに図 1 に示す。Na 型と同様に、Ca 型においても、乾燥密度 1.6 Mg/m³ に比べて、乾燥密度 1.0 Mg/m³ における D_a は大きな値となった。また、同じ乾燥密度で D_a を比較すると、乾燥密度 1.0 Mg/m³ では、Ca 型が Na 型より大きな値であったのに対して、乾燥密度 1.6 Mg/m³ ではその逆となった。硫酸イオンの D_a の拡散温度依存性から求めた拡散の活性化エネルギーは、乾燥密度 1.0 Mg/m³ において、自由水中の値(20.7 kJ/mol)に対して、小さくなった(16.7 ± 1.0 kJ/mol)。これは、Na 型に比べて、比較的大きな空隙中に多くの自由水を有するとされる Ca 型中においてすら、硫酸イオンは自由水を介した拡散が支配的ではないことを示唆する。

参考文献

[1] 角田 憲弥ら, 日本原子力学会 2017 年秋の大会予稿, 2H16(2017)

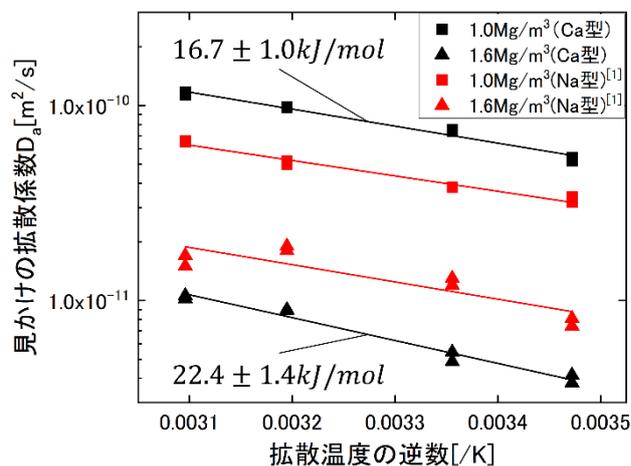


図 1 モンモリロナイト試料中の硫酸イオンの見かけの拡散係数(D_a)の温度依存性

*Hiroto Sato¹, Shinichiro Uematsu¹, Naoko Watanabe¹, and Tamotsu Kozaki¹

¹Hokkaido Univ.