

# ナトリウム型ベントナイトのカルシウム型化に伴う透水係数及び核種の実効 拡散係数の変化

三原 守弘

東海事業所 環境保全・研究開発センター 処分研究部

資料番号:6-7

The Comparison Concerned with Hydraulic Conductivities and Effective Diffusion Coefficients for Nuclides between Na and Ca Bentonite

Morihiro MIHARA

Waste Isolation Research Division, Waste Management and Fuel Cycle Reseach Center . Tokai Works

放射性廃棄物の地層処分システムに使用することが想定されているナトリウム型ベントナイトのカルシウム型化に伴う透水係数及び核種の実効拡散係数の変化を調査した。調査においては、ナトリウム型ベントナイトをカルシウム型に処理し、浸出イオン量の88%がカルシウムイオンであることを確認するとともに、乾燥密度をパラメータとして透水係数及びトリチウム、セシウム、ヨウ素の実効拡散係数を取得した。

その結果、乾燥密度が $1.8 \times 10^3 \text{kg/m}^3$ と高い条件であれば、カルシウム型化ベントナイトの透水係数及び核種の実効拡散係数は、既に報告されているナトリウム型の値と同程度であることが分かった。

We studied changes of hydraulic conductivities and effective diffusion coefficients for nuclides between sodium and calcium bentonite, considering that sodium bentonite changes to calcium bentonite in the geological disposal of radioactive waste.

For the permeability and diffusion experiments, we used calcium bentonite derived from sodium bentonite. Calcium ions comprised 88 % of the leached cations in  $1.2 \times 10^3$  to  $1.8 \times 10^3$ kg/m³ dry density. Results show that the hydraulic conductivities and the effective diffusion coefficients of the calcium bentonite were equivalent to those for the sodium bentonite obtained in the  $1.8 \times 10^3$ kg/m³ dry density.

キーワード

放射性廃棄物、地層処分システム、ナトリウム型ベントナイト、カルシウム型化ベントナイト、透水係数、実効拡散係数、トリチウム、セシウム、ヨウ素

Radioactive Waste, Geological Disposal System, Na Bentonite, Ca Bentonite, Hydraulic Conductivity, Effective Diffusion Coefficient, Tritium, Cesium, Iodine

# 1.はじめに

放射性廃棄物の地層処分システムにおいては、 締め固められたナトリウム型ベントナイトを使用 することが検討されている<sup>1)</sup>。このナトリウム型 ベントナイトは、処分施設閉鎖後、地下水や支保 工等のセメント系材料及びベントナイト中のカル シウム成分の影響によって、長期的にはカルシウ ム型になっていくと考えられる。

このベントナイトのカルシウム型化は、処分システムの性能を評価するために重要となる物質移行特性を変化させると考えられる。このため、カルシウム型化したベントナイトの特性を把握する

# ことは重要である。

本研究では、締め固められたベントナイト(以下、圧縮ベントナイト)の物質移行特性を表す指標として透水係数と核種の実効拡散係数を選び、カルシウム型化させたベントナイトに対するデータを乾燥密度をパラメータとして取得し、既存のナトリウム型ベントナイトの値と比較した。

2.物質移行方程式における透水係数と実効拡散 係数の役割

圧縮ベントナイトのような媒体中の物質移行は、その間隙水の流れによる移行(移流)と物質

自らが均一になろうとする移行(分散)とに大別 される。物質の移行を評価するための移流・分散 方程式の一例を以下に示す。

$$\varepsilon Rd\frac{\partial C}{\partial t} = \left(\alpha v + De\right)\frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - v\frac{\partial C}{\partial x} \qquad \cdots$$

ここで、C : 間隙水中の物質の濃度 [ mol/m³ ]

:時間[s] : 間隙率 [ - ]

Rd : 遅延係数 [ - ] :分散長[m]

v : **ダルシー流速「**m/s 1 De: **実効拡散係数**[m²/s] x :評価地点[m]

である。ダルシーの法則より、媒体の透水係数 (K[m/s]) と動水勾配(i[-]: 媒体における 水圧の勾配)の関係がv=Kiで表されることから、 式は以下のように書き直される。

$$\varepsilon Rd\frac{\partial C}{\partial t} = Ki\left(\alpha\frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - \frac{\partial C}{\partial x}\right) + De\frac{\partial^2 C}{\partial x^2} \qquad \dots$$

式より、評価地点の間隙水中の物質の濃度変 化(左辺)は、透水係数が関与する項(右辺第一 項)及び実効拡散係数が関与する項(右辺第二項) の和によって表されることが分かる。

なお、Deを Rdで除した値は、見掛けの拡散 係数と呼ばれる。

# 3.ナトリウム型とカルシウム型の物性の違い ベントナイトは、含まれる交換性陽イオンの種 類により、ナトリウム型とカルシウム型に大別さ

れる。

ナトリウム型ベントナイトは、膨潤性や粘性に 優れており、カルシウム型ベントナイトは、砂と の粘結力に優れている。そのため工業的には、前 者は土木・ボーリング用に、後者は鋳物用に用い られている。

また、ナトリウム型ベントナイトはカルシウム 型ベントナイトより止水性、膨潤性に優れている とされているため、放射性廃棄物の処分において は、ナトリウム型ベントナイトの使用の検討が主 になされている<sup>1)</sup>。

Pusch はナトリウム型ベントナイトがカルシウ ム型に変化すると、密度1.8×10<sup>3</sup>kg/m<sup>3</sup>において 膨潤圧が0.5MPaから0.4MPaまで減少し、透水係 数が 2 ~ 5 倍大きくなることを報告?)している。 さらにその後の研究によって、Puschらは、低乾 燥密度において、カルシウム型ペントナイトの透 水係数は、ナトリウム型ベントナイトより 1 桁以 上大きくなることを報告している<sup>3)</sup>。

また、Westsikらは、圧縮成型したナトリウム 型及びカルシウム型の両ベントナイトの透水係数 を測定した(含水率 5 ~ 7 wt%のベントナイトを 約 2 × 10<sup>3</sup>kg/m<sup>3</sup>に圧縮成型)<sup>4)</sup>。その結果、ナト リウム型ペントナイトの透水係数が10<sup>-15</sup>m/sのオ ーダで、カルシウム型ベントナイトの透水係数が 10<sup>-14</sup>m/s**のオーダであること、並びに、密度が高** い状態においても両者の透水係数は 1 桁程度差が ある結果を示している。

# 4.カルシウム型化ベントナイトの調整

# 4.1 カルシウム型化させたナトリウム型ベン トナイト

本研究では、透水係数や核種の実効拡散係数が体 系的に取得されている国産のベントナイト、クニ ゲル∨1(クニミネ工業社製、山形県月布地方産) を使用した。表1にその鉱物組成の一例を示す5)。

#### 4.2 調整方法

粉体状のナトリウム型ベントナイトを用いてカ ルシウム型化の調整を行った。調整の手順を以下 に示す。

イオン交換水50dm3を攪拌機で攪拌しなが ら、カルシウム量が調整するペントナイトの陽 イオン交換容量の約3倍に相当する塩化カルシ ウム2水和物1.5kg(約10mol)を徐々に溶かした。

ベントナイト13kgを少量ずつ分散させ、1時 間攪拌した後、懸濁液を一昼夜以上静置した。

分離した上澄み液を除去し、残りの懸濁液を プフナーロートでろ過・水洗した。

水洗を 3 dm<sup>3</sup>の蒸留水で 3 ~ 4 回程度繰り返 した後に、ろ液を採取し塩化物イオンの存在を 調べるため硝酸銀溶液を加えた。ろ液の白濁は

表 1 ナトリウム型ベントナイトの鉱物組成の一例5)

鉱物種	定量結果(wt%)		定量方法
スメクタイト	46 ~ 49		MB, CEC
石英	29 ~ 38	(0.5~0.7)	X線,モード
玉髄		(37~38)	X線,モード
斜長石	2.7~5.5		X線,モード
方解石	2.1~2.6		X線,モード,分析
苦灰石	2.0~2.8		X線,モード,分析
方沸石	3.0~3.5		X線,モード
黄鉄鉱	0.5~0.7		DTA,モード,分析

( ) 石英と玉髄を分けて考えた場合 MB;メチレンブルー吸着量, CEC;陽イオン交換容量, X線;X回折法(内部標準法,標準添加法), モード;モード分析,分析;化学分析,

DTA: 執分析発執量

みられないことから、塩化物イオンが除去され ているものと判断した。

ブフナーロート上のベントナイトケーキをス テンレスパットに移し、50 にて乾燥した。

乾燥したベントナイトケーキを調整前のベントナイトと同程度の粒度になるよう、200メッシュ(直径約74μm)のふるいを90wt%以上が通過するように粉砕した。

# 4.3 カルシウム型化の確認及び概略的な特性 把握

カルシウム型化の程度を調べるためにナトリウム型ベントナイトとカルシウム型に調整したベントナイトの浸出陽イオン量などの分析を行った。また、その概略的な特性を調べるための試験もあわせて行った。

以下に測定項目を示す。

**膨潤力(容積法)** [mL/2g]

pH [-]

メチレンブルー吸着量 [mmol/100g] 浸出陽イオン量 [meg/100g]

**陽イオン交換容量** [meq/100g]

**化学組成** [wt%]

~ については日本ベントナイト工業会試験 方法に準拠した。

ナトリウム型ベントナイト及びカルシウム型に

表 2 ナトリウム型及びカルシウム型に調整したベントナイトの分析結果

項目		ナトリウム型 ベントナイト	カルシウム型に調整 したベントナイト
膨潤力 [ mL/2g ]		17	6
pH[-]		10.1	9.4
メチレンブル-吸量 [ mmol/100g ]		70.0	71.3
浸出陽 イオン量 [ meq/100g ]	Na <sup>+</sup> K <sup>+</sup> Ca <sup>2+</sup> Mg <sup>2+</sup> Total	53.9 1.4 48.5 7.4 111.2	5.2 1.4 102.8 7.0 116.4
陽イオン交換容量 [ meq/100g ]		59.9	60.8
化 学 組 成 [ wt% ]	$\begin{array}{c} \text{SiO}_2 \\ \text{TiO}_2 \\ \text{Al}_2 \text{O}_3 \\ \text{FeO}_3 \\ \text{FeO} \\ \text{MnO} \\ \text{MgO} \\ \text{CaO} \\ \text{Na}_2 \text{O} \\ \text{K}_2 \text{O} \\ \text{P}_2 \text{O}_5 \\ \text{Ig loss} \\ \text{Total} \end{array}$	70.6 0.18 13.5 0.96 0.58 0.08 2.25 2.17 2.56 0.33 0.04 5.35 98.6	69.4 0.17 13.2 1.00 0.54 0.08 2.24 3.61 0.88 0.30 0.05 7.31 98.8
	Total S SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> CO <sub>2</sub> CI	0.09 0.08 2.16 <0.01	0.06 0.02 2.23 <0.01

調整したベントナイトの分析及び試験結果を表 2 に示す。カルシウム型に調整したベントナイトの 浸出陽イオンの88%がカルシウムイオンであることから、ベントナイトがカルシウム型化していることが分かる。また、調整したベントナイトの膨 潤力は約1/3程度となっていた。これは、膨潤性が低下し、粘結力が増加するというカルシウム型ベントナイトの特性と一致している。ベントナイトの化学分析の結果では、カルシウム型化にともないNa<sub>2</sub>O及びCaOが変化している。また、ベントナイトの塩化物が定量下限値以下であり、調整時に混入する塩化物が除去されていることを確認した。

以上の分析結果より、ナトリウム型ベントナイトがカルシウム型化されていることが確認された。以下、この調整したベントナイトをカルシウム型化ベントナイトと称することとする。

# 5.カルシウム型化ベントナイトの透水係数

# 5.1 透水係数の取得法

透水係数を測定する方法には、定水位透水試験 (定圧透水試験やアウトプット法ともいう。)と変 水位透水試験とがある。ここでは、既にナトリ ウム型ベントナイトに対して用いられている定 水位透水試験<sup>()</sup>にて透水係数を測定することとす る。

試験装置の概念図を図 1 に示す。この試験は、 試験セルに設置した試料の片方から一定の水圧を かけ、もう一方から流出する水量を一定時間毎 に測定し、単位時間あたりの試料の透過水量の 定常値(Qw[m³/s])を取得するものである。こ の定常値は、式によって透水係数に換算される。

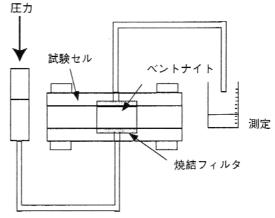


図 1 透水試験装置概念図

$$K = \frac{Qw}{Ai}$$
 .....

ここで、K :透水係数 [ m/s ]

Qw: 単位時間当たりの透水量 [ m³/s ]

i :動水勾配[-] A :試料断面積[m²]

である。

# 5.2 試験条件

以下に試験条件について述べる。

ベントナイト試料

4. で調製したカルシウム型化ベントナイトを 試験に供した。

試料の乾燥密度及び試料の大きさ

既に報告されているナトリウム型ベントナイト (クニゲル $\lor$ 1)の試験結果 $^{6}$ を参考にして、乾燥密度を $1.2 \sim 1.8 \times 10^{3}$ kg/m $^{3}$ の範囲とした。試料の大きさについては水を透過させる断面を直径50及び40mmの円形とし、試料の厚さをそれぞれ 5 及び20mmとした。

使用した溶液

蒸留水または、イオン交換水とした。

#### 動水勾配

既存の報告例<sup>5)</sup>を参考に、ダルシーの法則が成立することを確認しながら動水勾配が3,000~20,000の範囲で試験を実施した。

# 温度

室温で実施した。

以上の条件を表3にまとめる。

# 5.3 試験結果及び考察

図 2 に既に報告されているナトリウム型ベントナイトの透水係数<sup>®</sup>と本試験で得られたカルシウム型化ベントナイトの乾燥密度依存性を示す。

カルシウム型化ベントナイトの透水係数はナト リウム型ベントナイトと同様に、乾燥密度が大き くなるにともない小さくなっており、乾燥密度が

表 3 透水試験条件

項目	試験条件	
ベントナイト試料	4.で調整したカルシウム型化ベントナイト	
乾燥密度	1.2~1.8×10 <sup>3</sup> kg/m <sup>3</sup>	
大きさ	直径50×5mm, 直径40×20mm	
試験溶液	蒸留水またはイオン交換水	
動水勾配	3,000 ~ 20,000	
温度 室温		

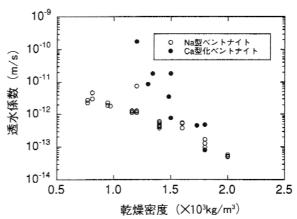


図2 圧縮ベントナイトの透水係数の乾燥密度依存性

1.8×10³kg/m³では、10⁻¹³m/s程度である。この値は、同乾燥密度のナトリウム型ベントナイトの透水係数と同程度である。しかし、乾燥密度が小さい領域では、カルシウム型化ベントナイトの透水係数の増大の程度は、ナトリウム型のそれを上まわり、乾燥密度1.2×10³kg/m³では、約1桁以上大きくなっていることが分かる。これは、低飽和密度において、カルシウム型ベントナイトの透水係数が、ナトリウム型ベントナイトより1桁以上大きくなることを示しているPuschらの報告³と同様な傾向であった。

また、図2よりカルシウム型化ベントナイトの 透水係数は、ナトリウム型ベントナイトの透水係 数に比べて乾燥密度の変化による影響が大きいこ とが分かる。

6.カルシウム型化ベントナイトの核種の実効拡 散係数

# 6.1 実効拡散係数の取得法

実効拡散係数の取得方法には、大きく分けて濃度プロファイル(In-diffusion)法と透過拡散 (Through-diffusion)法とがある。前者の方法は、見掛けの拡散係数 (= De / Rd )を取得する方法であり、用いる核種がベントナイトに対して非収着性(すなわち、Rd=1)であれば、得られる見掛けの拡散係数と間隙率を用いて実効拡散係数を算出することができる。収着性の核種の場合は、得られる見掛けの拡散係数から実効拡散係数を求めるために、別途未知量である遅延係数を推定する必要がある。ここでは、収着性の核種についても実効拡散係数を取得するため、直接実効拡散係数が取得できる透過拡散法を用いることとする。そこで、Katoらがナトリウム型ベントナイトに対して行った試験方法"を用いることとし、本試験

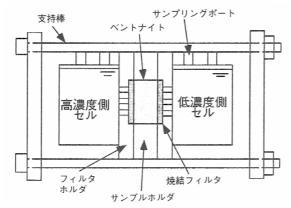


図3 拡散試験装置概念図

で用いた試験装置の概念図を図3に示す。試料が流出しないように2枚の焼結フィルタ(厚さ1mm)で試料を挟んで両側に溶液セルを設ける。試料を十分溶液で飽和させた後、一方のセルには測定対象とする核種を添加する(このセルを「高濃度側セル」といい、この濃度をC。[mol/m³]とする)。核種は拡散現象によって他方のセルへと移行する(このセルを「低濃度側セル」という)、低濃度側セルの核種の濃度(C[mol/m³])を測定することにより単位時間あたりの核種の低濃度側セルへの流入量を算出する。時間が経つと単位時間あたりの核種の流入量は一定となる。一定となった値(Qt[mol/s])と、C。 Cの条件から導出される次式を用いることによって実効拡散係数が求められる。

$$De = \frac{QtL}{AC_0} \qquad \dots$$

ここで、De: 実効拡散係数[m²/s]

Qt : 単位時間当たりの核種の流入量 [ mol/s ] L : 試料厚さ(焼結フィルタの厚さ含む)[ m ]

A :試料断面積[m²]

C<sub>0</sub>:高濃度側の核種濃度[mol/m<sup>3</sup>]

である。求めた値は、2 枚の焼結フィルタの影響を含んでいるため、試験終了後のフィルタに対しても同様に核種の実効拡散係数を取得する。求められた実効拡散係数より、次式を用いてベントナイトのみの実効拡散係数を算出する。

$$De_b = \frac{L_b}{\frac{L_t}{D_e} - \frac{2 \times L_f}{De_f}} \qquad \dots \dots$$

ここで、De<sub>b</sub>:ベントナイト中での核種の実効拡散

**係数[**m²/s]

 De, : フィルタ中での実効拡散係数 [ m²/s ]

 Lb : ベントナイト部のみの厚さ [ m ]

L<sub>f</sub> :フィルタ1枚の厚さ[m]

である。

#### 6.2 試験条件

以下に試験条件について述べる。

使用した核種と濃度

本試験で使用した核種については、ベントナイトの間隙水での化学形態を考慮して以下のものを 選定した。

# 1 ) **トリチウム (**H - 3 )

本核種は、中性付近では電荷を帯びておらず、ベントナイトにほとんど吸着しないため、他の核種と比較して試験期間を短くできる特徴を有している。核種の濃度は約5×10<sup>4</sup>cpm/cm³となるように調整し、両セルからサンプリングを行い濃度を測定した。

#### 2 ) セシウム (Cs - 137、CsClの化学形態)

セシウムは、溶液中では正の一価(Cs\*)であり、雰囲気の影響によって化学形態は変化しない。ベントナイトに収着する特徴を有しており、ナトリウム型ベントナイトに対する分配係数は0.1m³/kgオーダである®。本拡散試験では、高濃度側槽の核種濃度を一定に保つ必要があるため、あらかじめベントナイトへの収着による濃度減少を考慮して、非放射性のCsを添加し、Cs - 137の濃度減少を押さえた。非放射性のCsの濃度を10-3mol/dm³とした。Cs - 137の濃度は、約105cpm/cm³となるように調製した。

# 3 ) **ヨウ素 ( I - 125、Nal の化学形態 )**

ヨウ素は、溶液中では負の一価(I<sup>-</sup>)である。溶液の酸化還元電位が高い場合には、同じ負のイオンであるヨウ素酸の化学形態(IO<sub>3</sub><sup>-</sup>)も取り得る<sup>9)</sup>。負のイオンは、ベントナイトにほとんど収着しない。I - 125の濃度をCs - 137と同様、約10<sup>5</sup>cpm/cm<sup>3</sup>となるように調製した。

いずれの核種についても、試験中は高濃度側セルの核種濃度の測定を行い、核種濃度を確認した。

ベントナイト試料

4. で調整したカルシウム型化ベントナイトを 試験に供した。

ベントナイトの乾燥密度及び試料の大きさ 既に報告されているナトリウム型ベントナイト (クニゲルV1)の試験結果<sup>7), 10), 11)</sup>を参考にして、 透水試験と同様に乾燥密度を1.2~1.8×10<sup>3</sup>kg/m<sup>3</sup> の範囲とした。

表 4 拡散試験条件

項目	試験条件	
核 種	H-3, Cs-137, I-125	
核種濃度	10 <sup>4</sup> ~ 10 <sup>5</sup> cpm/cm <sup>- 3</sup>	
ベントナイト試料	4.で調整したカルシウム型化ベントナイト	
乾燥密度	1.2~1.8×10 <sup>3</sup> kg/m <sup>3</sup>	
大きさ	直径20×3及び20mm	
試験溶液	pH約9.4の水酸化カルシウム溶液	
雰囲気	大気条件	
温度	室温	

試料の大きさは直径20mm、高さ20mm (H - 3 のみ) 及び 3 mm (Cs - 137、I - 125) の円筒形とした。

# 試験液性

試料を挟む両側のセルの溶液には、カルシウム型化ベントナイトの間隙水を模擬した溶液を用いた。表 2 に示される結果より浸出陽イオンのほとんどがカルシウムイオンであるため、pH約9.4の水酸化カルシウム水溶液とした。

# 雰囲気

本試験で用いた核種の化学形態は雰囲気にあまり影響を受けないため大気条件とした。

#### 温度

室温で実施した。

以上の試験条件をまとめた結果を表4に示す。

# 6.2 試験結果及び考察

トリチウム (H - 3) の実効拡散係数

図 4 に本試験で得られたカルシウム型化ベントナイト及び既に報告されているナトリウム型ベントナイトの実効拡散係数<sup>7), 10), 11)</sup>の乾燥密度依存性を示す。

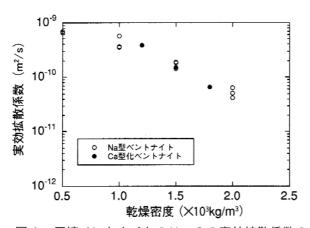


図 4 圧縮ベントナイトのH - 3 の実効拡散係数の 乾燥密度依存性

カルシウム型化ベントナイトのトリチウムの実効拡散係数は、乾燥密度が大きくなるにともない 小さくなっている。 乾燥密度が $1.2 \sim 1.8 \times 10^3 \text{kg/m}^3$ の範囲では、実効拡散係数は、 $10^{-11} \sim 10^{-10} \text{m}^2/\text{s}$ のオーダである。

この図から分かるようにこの乾燥密度の範囲では、ナトリウム型の実効拡散係数とほぼ同じ値を 示している。

セシウム (Cs - 137) の実効拡散係数の乾燥 密度依存性

図 5 に本試験で得られたカルシウム型化ベントナイト及び既に報告されているナトリウム型ベントナイトの実効拡散係数<sup>11)</sup>の乾燥密度依存性を示す。

カルシウム型化ベントナイトのセシウムの実効拡散係数についても、トリチウムと同様に乾燥密度が大きくなるにともない小さくなっており、乾燥密度 $1.2 \sim 1.8 \times 10^3 \text{kg/m}^3$ の範囲では、 $10^{-11} \sim 10^{-10} \text{m}^2/\text{s}$ のオーダである。

ナトリウム型と比較すると、乾燥密度1.8×10³kg/m³程度では、セシウムの実効拡散係数は、ナトリウム型より小さくなっているが、乾燥密度1.2~1.8×10³kg/m³の範囲でみると、ほぼ同程度の値である。

ヨウ素 (I-125)の実効拡散係数の乾燥密度 依存性

図 6 に本試験で得られたカルシウム型化ベントナイトの実効拡散係数の乾燥密度依存性を示す。また、透過拡散試験法においては、ナトリウム型ベントナイトに対するヨウ素の実効拡散係数が取得されていないため、間隙水中で同じ化学形態と推定されるTc (TcO<sub>4</sub><sup>-</sup>)を示す<sup>11)</sup>。

カルシウム型化ベントナイトのヨウ素の実効拡

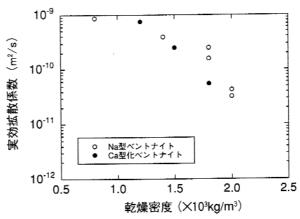


図 5 圧縮ベントナイトのCs - 137の実効拡散係数の 乾燥密度依存性

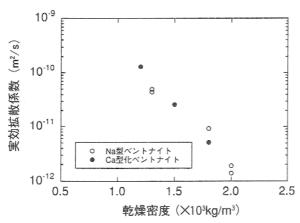


図 6 圧縮ベントナイトの I - 125の実効拡散係数の 乾燥密度依存性

(Na型ベントナイトについては、Tc - 99の値)

散係数は、乾燥密度が大きくなるにともない小さくなっており、10<sup>-12</sup>~10<sup>-10</sup>m<sup>2</sup>/sのオーダである。 この結果は、ナトリウム型ベントナイトに対するTcの値と同程度の値である。

~ の結果を基にカルシウム型化ベントナイトのみの実効拡散係数を図 7 にまとめる。核種ごとに比較すると、乾燥密度1.8×10³kg/m³では、セシウムとトリチウムの実効拡散係数はほぼ同程度であるがそれ以外の乾燥密度での実効拡散係数の大きさは、セシウム トリチウム > ヨウ素の順となっていた。これら核種の水溶液中での自己拡散係数は、2×10⁻ցm²/s程度¹⁰,¹²)であるが、実効拡散係数での比較ではヨウ素の実効拡散係数がトリチウムやセシウムの値より 1 桁程度小さくなっている。特に乾燥密度が大きくなるとその差は顕著となる。一般に、ベントナイト等の珪酸塩鉱物の表面は、負に帯電しているといわれており、こ

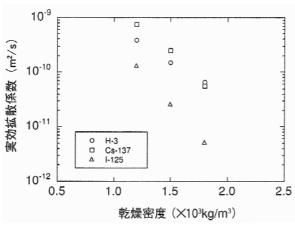


図7 圧縮Ca型化ベントナイトの核種の実効拡散係 数の乾燥密度依存性

の影響によって陰イオンとして存在するヨウ素が 反発され、実効拡散係数が他の核種よりも小さく なっていると推定される。このことは、ナトリウ ム型ベントナイトについても同様である。

また、ナトリウム型ベントナイトとの比較から、 透水係数は低乾燥密度において 1 桁程度の差がみ られたが、実効拡散係数はどの核種においてもナ トリウム型と同程度の値であった。

# 7. おわりに

本研究においては、漫出陽イオン量の88%がカルシウムイオンであることを確認したカルシウム型化ベントナイトに対して透水係数及び実効拡散係数を取得した。これらの値と調整前のナトリウム型ベントナイトに対して報告されている値とを比較した結果、以下のことが分かった。

カルシウム型化ベントナイトの透水係数は、 乾燥密度が $1.8 \times 10^3$ kg/m $^3$ の場合は、ナトリウム型と同程度の値であるが、乾燥密度が $1.2 \times 10^3$ kg/m $^3$ 程度となると、一桁以上大きくなる。

カルシウム型化ベントナイトの実効拡散係数については、どの核種についてもナトリウム型と同程度の値であった。実効拡散係数の大小を核種毎で比較すると、セシウム トリチウム> ヨウ素となり、ヨウ素の実効拡散係数はセシウム、トリチウムより一桁程度小さく乾燥密度 1.8×10³kg/m³で10⁻¹²m²/sオーダであった。

以上の結果より、乾燥密度が1.8×10<sup>3</sup>kg/m<sup>3</sup>と 高い条件であれば、カルシウム型化ベントナイト の透水係数、実効拡散係数はともにナトリウム型 と同程度であると考えられる。

# 8.謝辞

本研究を実施するにあたって御協力頂いたクニミネ工業(株)、三菱マテリアル(株)及び鹿島建設(株)の関係各位に感謝する次第である。

# 参考文献

- 1) 例えば、動燃事業団: "高レベル放射性廃棄物地層処分研究開発 の技術報告書-平成3年度-",動燃事業団技術資料,PNC TN 1410 92-081 (1982).
- 2 ) R.Pusch: "Chemical Interaction of Clay Buffer Materials and Concrete", SFR ARBETSRAPRORT, SFR 82-01 (1982).
- 3 ) R.Pusch, O.Kamland, et al.: "GMM-A general microstructural model for qualitative and quantitative studies of smectite clay", SKB TECHNICAL REPORT, 90-43 (1990).
- 4 ) J.H.Westsik, L.A.Bray et al.: "Permeability, Swelling, and Radionuclide-Retardation Properties of Candidate Backfill Materials", PNL-SA-9645, DE82 005921 (1981).
- 5) 伊藤雅和,岡本真由美 他: "ベントナイトの鉱物組成分析",

動燃事業団技術資料,PNC TN8430 93-003 (1983).

- 6)鈴木英明,柴田雅博 他:緩衝材の特性試験(I), 動燃事業 団技術資料,PNC TN9410 92-057 (1982).
- 7 ) H.Kato, M.Muroi et al.: "Estimation of Effective Difusivity in Compacted Bentonite", MRS Symp, Proc. Vol.353 (1995).
- 8) 渋谷朝紀,吉川英樹 他: "ベントナイト及び岩石中での核種の分配係数",動燃事業団技術資料,PNC TN8410 92-163 (1992).
- 9 ) 例えば , D.G.Brookins: "Eh-pH Diagrams for Geochemistry",

Springer-Verlag (1988).

- 10) 佐藤治夫, 芦田 敬 他: "ベントナイト及び岩石中での核種の 実効拡散係数", 動燃事業団技術資料, PNC TN8410 92-163 (1992).
- 11)動燃事業団:"地層処分研究開発の現状(平成5年度)",動燃事業団技術資料,PNC TN8410 92-164(1994).
- 12)日本化学会編:"改訂3版 化学便覧 基礎編 ", 丸善株式会社(1984).