

ベントナイト緩衝材の変質 - Cu 型モンモリロナイト中の塩化物イオンの拡散挙動

Alteration of Bentonite Buffer- Diffusion Behavior of Chloride Ions in Cu-montmorillonite

*鎌田 勇希¹, 植松 慎一郎¹, 渡邊 直子¹, 小崎 完¹

¹北海道大学

実験室にて調製した Cu 型モンモリロナイトを異なる乾燥密度に圧縮し、膨潤させた試料に対し、Cl-36 を用いた非定常拡散試験を行い、見かけの拡散係数及び拡散の活性化エネルギーを決定し、拡散挙動を検討した。

キーワード：地層処分、交換性陽イオン、銅型モンモリロナイト、活性化エネルギー、塩化物イオン

1. 緒言 高レベル放射性廃棄物の地層処分において、Cu がオーバーパックのライニング材として用いられた場合、処分後長期間経過後に、オーバーパックを取り囲むベントナイトの主たる交換性陽イオンが Cu²⁺イオンで置換され、Na 型から Cu 型に変質する可能性がある。しかし、圧縮 Cu 型ベントナイト中の核種の拡散挙動に関する研究例は見当たらない。そこで、本研究では、典型的な 1 価の陰イオンである塩化物 (Cl⁻) イオンに着目し、Cu 型モンモリロナイト中の Cl-36 の見かけの拡散係数(D_a)及び 拡散の活性化エネルギー (E_a) を決定し、Cu 型モンモリロナイト中の塩化物イオンの拡散機構を検討した。

2. 実験 Cu 型モンモリロナイト試料は、Na 型モンモリロナイト (クミニネ工業製、クニピア F) を 0.1 M CuCl₂ 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、透析膜を介してイオン交換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 (ρ_d) 0.8~1.6 Mg/m³となるように圧縮成型し、イオン交換水で約 30 日間膨潤した。膨潤した試料の表面に極微量の Cl-36 トレーサー溶液を塗布し、所定温度 (288~323 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た濃度分布から、D_aを決定した。

3. 結果と考察 各乾燥密度において、得られた D_aの自然対数値は温度の逆数に対して良い直線性を示したことから、アレニウスの式より拡散の E_aを決定した。図 1 に、E_aの乾燥密度依存性を、Na 型モンモリロナイト中の Cl⁻の拡散に対する報告値^[1]とともに示す。Na 型モンモリロナイト試料では Cl⁻の E_aは ρ_d=1.0 Mg/m³にて最小値となるのに対して、Cu 型試料中の Cl⁻の E_aは、ρ_d=0.8 Mg/m³において自由水中の Cl⁻の拡散の E_a (17.4 kJ/mol ^[2])とほぼ等しいものの、乾燥密度の上昇に伴い増加し、特に ρ_d=1.4 Mg/m³以上で高い値 (約 40 kJ/mol) を示した。このように、Na 型と Cu 型モンモリロナイト試料で Cl⁻の E_aの乾燥密度依存性が異なったことから、Cl⁻の拡散は、乾燥密度増加に伴う内部微細構造の変化のみならず、交換性陽イオン種の影響をも受けていることが示唆された。モンモリロナイト試料中を Cl⁻イオンが拡散する場合、試料中の電荷バランスを取るために、他のイオンも移行する必要がある。仮に交換性陽イオンがその役割を担っている場合、試料中の Na⁺イオンと Cu²⁺イオンの拡散挙動の相違が Cl⁻イオンが拡散に影響を及ぼした可能性がある。

4. 参考文献 [1] Kozaki, T., et al. (1998). J. Contam. Hydrol, 35(1-3), 67-75.

[2] Parsons, R., (1959) Handbook of Electrochemical Constants, Butterworths Sci. Publ., 79

*Yuki Kamada¹, Shinichiro Uematsu¹, Naoko Watanabe¹ and Tamotsu Kozaki¹

¹Hokkaido Univ.

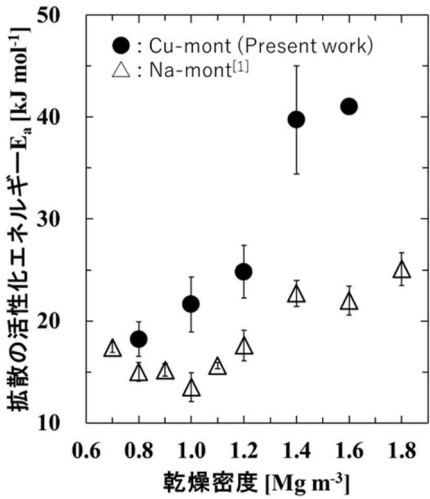


図1 モンモリロナイト中の Cl⁻の拡散の活性化エネルギー