

緩衝材中の空隙構造に関する研究

成果概要

(動力炉・核燃料開発事業団 委託研究成果報告書)

1992年2月

緩衝材中の空隙構造に関する研究

成果概要

(動力炉・核燃料開発事業団 委託研究成果報告書)

1992年2月

1992年 2月

緩衝材の空隙構造に関する研究

要 旨

緩衝材中の空隙構造に関しては、「均一空隙モデル」及び「有効空隙モデル」の2つのモデルが提案されている。緩衝材中の核種の移行挙動を電気二重層理論に基づき検討するに当たっては、これらのモデルのいずれが適切なものであるのかを決定することが重要である。

本研究では、クニピアFを対象として、表面電位の推定、圧密体の電顕観察を行い、その結果を基に計算された「均一空隙モデル」及び「有効空隙モデル」それぞれの実効拡散係数を実測値と比較して、これらのモデルの妥当性を検討した。また、クニゲルV-1を用いてCs及びNpの実効拡散係数を測定した。結果は次の通りである。

(1) 表面電位の推定

と電位の測定を行い、表面電位の推定を行った。得られた値は、 -56.5 mVである。

(2) 圧密体の電顕観察

SEM 観察及び SrCl_2 溶液を含浸させた圧密体中のSr分布のEPMA観察を行った。いずれの観察においても、「有効空隙モデル」を支持する結果は得られなかった。

(3) 「均一空隙モデル」及び「有効空隙モデル」の検討

「均一空隙モデル」及び「有効空隙モデル」いずれからの実効拡散係数推定値も定量的には実測値との一致は得られなかった。しかしながら、充填密度依存性や拡散種の電荷依存性は定性的には「均一空隙モデル」での予測と一致した。それゆえ、空隙モデルとしては「均一空隙モデル」が適切と考えられる。

(4) Cs及びNpの実効拡散係数測定

以下の値が得られた。

Cs	: 3.9×10^{-10} m ² /s (充填密度 1.4 g/cm ³)
	2.5×10^{-10} m ² /s (充填密度 1.8 g/cm ³)
	3.2×10^{-11} m ² /s (充填密度 2.0 g/cm ³)
Np	: 1.2×10^{-10} m ² /s (充填密度 0.8 g/cm ³)
	2.5×10^{-11} m ² /s (充填密度 1.4 g/cm ³)
	2.5×10^{-12} m ² /s (充填密度 1.8 g/cm ³)

契約番号： 030D0279

事業団担当部課室及び担当者：環境技術開発推進本部 処分研究グループ

February, 1992

On the Pore Structure of Compacted Bentonite

Abstract

Two kind of models have been proposed for the pore structure of compacted bentonite, "Single porosity model" and "Effective porosity model". The adequacy of these models are essential for the estimation of effective diffusivities in compacted bentonite based on the electrical double layer theory.

In this study, the surface potential of KUNIPIA-F has been measured, and the microstructure of the compact has been observed. According to these results, effective diffusivities derived from each model were compared with measured values to validate the model. Furthermore the effective diffusivity of Cs and Np were measured in KINIGEL V-1. The results obtained are summarized as follows;

(1) Surface potential of KUNIPIA-F

The surface potential was estimated via streaming potential measurement. The value of -56.5 mV was obtained.

(2) Microscopic observation

SEM and EPMA analysis were applied for compacted bentonite immersed in SrCl_2 solution. "Effective porosity model" was not supported by the results.

(3) Comparison between "Single porosity model" and "Effective porosity model"

Though both of the models were failed quantitatively to predict the effective diffusivity, the qualitative agreement in the dependence on the bentonite density and the ionic charge, was found for "Single porosity model", which suggest the suitability of this model.

(4) Measurement of Cs and Np effective diffusivities

Values obtained are ;

Cs : 3.9×10^{-10} m²/s at the density of 1.4 g/cm³ ,
 2.5×10^{-10} m²/s at the density of 1.8 g/cm³ ,
 3.2×10^{-11} m²/s at the density of 2.0 g/cm³ ,
Np : 1.2×10^{-10} m²/s at the density of 0.8 g/cm³ ,
 2.5×10^{-11} m²/s at the density of 1.4 g/cm³ ,
 2.5×10^{-12} m²/s at the density of 1.8 g/cm³ .

Contract No. : 030D0279

PNC Lieson : Isolation System Research Program, Radioactive Waste Management Project

第1章 研究計画

1.1 目的

高レベル放射性廃棄物の性能評価研究では、核種の緩衝材中での移行挙動を解明し、そのモデル化により、核種移行の長期予測の信頼性を評価することが必要である。しかし、現状ではその移行挙動は十分に解明されておらず、今後の課題となっている。

本研究では、緩衝材中の空隙特性と核種の電気的相互作用を明らかにすることによって、核種の有効空隙率を理論的に評価し、核種の実効拡散係数の予測方法を検討すると共に、定常拡散試験を実施し、実効拡散係数データの構築を図る。

この目的のもと、本年度はベントナイトの表面電位の測定、圧密ベントナイトの顕微鏡観察、及び定常拡散試験を実施し、緩衝材中での核種拡散現象について考察した。

1.2 実施内容

1.2.1 空隙構造モデル概念の検討

空隙構造モデル概念としては、均一モデルと物質移行経路を選択的にとる有効空隙モデルが考えられている。これらのモデルの適応性について、電気二重層モデルによる検討を行ない、既存の拡散試験結果と対比することにより検討を進めた。実験的に実施した項目は、ベントナイトの ζ 電位の測定及び圧密したベントナイトの顕微鏡観察である。

(1) ζ 電位の測定

電気二重層理論に基づく基礎データとして、ベントナイトの表面電位を求めるために表1.2.1 に示した条件で ζ 電位の測定を実施した。

Table 1.2.1 Test condition of ζ -potential measurement.

項目	条件
ベントナイト種	クニピアF (ケミネ鉱業(株)製Na型ベントナイト)
含浸液	ベントナイト平衡液 (推定組成)
含浸液濃度	3点

(2) 顕微鏡観察

電気二重層理論に基づく基礎データとして、ベントナイトの層間距離を推定するために、含水させた圧密ベントナイトを直接観察した。観察結果は、ベントナイトのゲル密度の算定及び層間距離の導出に利用する。測定条件は表 1.2.2に示す通りである。

Table 1.2.2 Test condition of microscopic observation.

項目	条件
ベントナイト種	クニピアF (クニネ鉱業(株)製Na型ベントナイト)
試料密度	3点
含浸液	ベントナイト平衡液 (推定組成)

(3) 実効拡散係数の実測値と理論値の比較検討

前年度までに得られた実効拡散係数の実測値と上述の諸調査から得られたデータを用いた電気二重層モデルによる理論的実効拡散係数の比較を行い、有効空隙モデルの適用性の検討を行なった。対象試料としては、ほぼモンモリロナイトのみで構成されており、理論的に厳密な取り扱いが比較的容易なクニピアFを適用した。

1.2.2 定常拡散試験による実効拡散係数の測定

定常拡散試験を実施し、セシウム及びネプツニウムの定常拡散係数データを取得した。試験条件は表 1.2.3に示す通りである

Table 1.2.3 Test condition of effective diffusivity measurement.

項目	条件	
ベントナイト種	クニゲルV1 (クニネ鉱業(株)製Na型ベントナイト)	
含浸液	ベントナイト平衡液 (推定組成)	
試料密度 (ベントナイト乾燥密度, g/cm ³)	Cs	1.4, 1.8
	Np	0.8, 1.4, 1.8

第2章 空隙構造モデル概念の検討

2.1 ζ電位の測定

クニピアFを対象として、ζ電位の測定を行い、表面電位の推定を行った。

2.1.1 測定方法

電気泳動法によりζ電位の測定を行った。測定装置は米国Pen Kem社の全自動界面動電現象解析装置SYSTEM 3000である。測定手順は以下の通りである。

①試料溶液の調整

種々のイオン強度で測定を行なうため、事前に試料溶液を調整した。調整条件は後述する。

②試料の調整

試料は極力細かく粉碎することとし、一般的な乾燥篩いでは最も粒径の細かい330メッシュ(45μm)以下の粉碎を行なった。なお、ζ電位の測定に際しては懸濁物は1μm以下の微細な粒子となっていることが望ましい。

③懸濁溶液の調整

微量(約0.01g)の試料を100mlの溶液中に添加し、懸濁させた。このとき、超音波振動タイプのホモジナイザー、SONIC POWER社製BRANSONを使用して試料を溶液中に均質に懸濁させた。

④測定

測定に際しては、事前に測定用チャンバーを試料溶液で3回共洗いし、また測定後には測定用チャンバーをイオン交換水で3回洗浄した。

2.1.2 測定条件

ζ電位に対する懸濁液中粒子密度依存性及び電解質濃度依存性(充填密度依存性)を考慮して測定条件を設定した。

(1)懸濁液中粒子密度依存性

測定に際して試料溶液中に懸濁させるベントナイト粒子の量が、測定結果に影響する可能性を考慮して実施した予備試験である。この結果を元に、後述する(2)の測定時に使用するベントナイト量を決定した。

表2.1.1 にζ電位の懸濁液中粒子密度依存性における測定条件を示した。

Table 2.1.1 Test Conditions to set up density of clays.

No.	試料	溶液組成	懸濁粒子濃度 (g/100ml)	懸濁溶液のpH
1	クニピアF	イオン交換水	0.01	9.8
2			0.02	9.8
3			0.03	9.8

(2)電解質濃度依存性 (充填密度依存性)

表2.1.2 は、ζ電位の電解質濃度依存性における測定条件である。試料溶液の組成は、充填密度を0.2g/cm³から2.0g/cm³まで段階的に変化させた場合に予想される空隙水の組成である。

Table 2.1.2 Test Conditions to obtain ζ-potential.

No.	試料	充填密度 (g/cm ³)	溶液組成 (g/l)			懸濁溶液のpH
			Na ₂ CO ₃	NaCl	Na ₂ SO ₄	
1	クニピアF	0.2	2.925	0.203	0.121	9.8
2		0.3	4.236	0.294	0.176	9.9
3		0.5	7.220	0.502	0.299	9.9
4		1.0	17.806	1.238	0.738	9.9
5		1.3	27.867	1.937	1.155	9.8
6		1.6	43.570	3.029	1.806	9.9
7		2.0	86.38	6.005	3.58	9.8

2.1.3 測定結果

(1)懸濁粒子密度依存性

表2.1.3 は、測定結果をまとめたものである。この結果から、粘土粒子のζ電位の測定結果は、比較的誤差が大きいものの、粒子密度にはほとんど依存しないことが分かる。しかし、スペクトルを詳細に検討すると、懸濁粒子の濃度が低い場合(0.01g/100ml)にピー

ク強度が低下すること及びベースラインのシグナルが増加することによって測定値の信頼性が低くなることなどの傾向が見られた。このため、両試料の測定に際して、0.02g/100 mlの条件を適用すれば、十分なピーク強度及び分布が得られるものと判断した。

Table 2.1.3 Results of ζ -potential measurement.
-Effect of suspension concentration-

No.	試料	懸濁粒子濃度 (g/100ml)	測定値 (mV)
1	クニピアF	0.01	-49.5 ± 10.0
2		0.02	-47.5 ± 6.7
3		0.03	-46.9 ± 4.2

(2) 電解質濃度依存性 (充填密度依存性)

表2.1.4 に ζ 電位の測定結果を示す。充填密度の増加すなわち電解質濃度の増加により、 ζ 電位の絶対値が減少する傾向が見られる。

Table 2.1.4 Results of ζ -potential measurement.
-Effect of electrolyte concentration (dry density of bentonite)-

No.	試料	充填密度 (g/cm ³)	測定値 (mV)
1	クニピアF	0.2	-45.9 ± 8.2
2		0.3	-44.8 ± 8.4
3		0.5	-43.7 ± 7.6
4		1.0	-39.0 ± 6.6
5		1.3	-32.3 ± 6.2
6		1.6	-30.8 ± 4.9
7		2.0	-22.4 ± 4.8

(3) 表面電位

上記の ζ 電位測定値のデータを、1:1型電解質を仮定して得られた Poisson-Boltzmann方程式に回帰して、表面電位を求めた。得られた値は -56.5mVである。

2.2 顕微鏡観察

圧密含水ベントナイト中の空隙構造空隙の構造に関する知見を得るために顕微鏡観察を実施した。観察用のベントナイトは、圧密及び含水した後、凍結乾燥して試料調製を行なった。この試料の観察に際しては、X線マイクロアナライザーを使用し、主として電子顕微鏡による観察像を得た。

2.2.1 測定方法

(1)測定機器

使用した装置は、日本電子(株)製JXA-733型のX線マイクロアナライザー (X-ray microanalyser, XMA)である。

(2)試料の調製

観察供試体とするまでの試料調製の手順は次の通りである。

① 試料の圧密

試料は、一旦 105℃で24時間乾燥し、その後粉体充填用治具を用いて圧密用の容器に充填した。

② 試料の水飽和及び膨潤

圧密試料を所定の化学組成に調整した溶液に浸漬する。飽和に際しては、装置全体を真空デシケータ中で1時間脱気し、その後、大気中で10日間以上浸漬した。

③ 試料の切断

所定時間水分を飽和させた試料は、圧密容器から取り出した後、速やかに小片に切断した。切断に際しては、試料の圧密時の応力負荷の方向に対して平行及び垂直な面が露出するように配慮した。切断後、試料は直ちに液体窒素中に投入した。

④真空凍結乾燥

液体窒素で凍結した試料小片は、-15度に予冷した外部冷却式の金属製デュワー中に移した。デュワーは速やかに真空状態にし、氷を昇華させ、試料の凍結乾燥を行なった。

⑤研磨

試料の切断時に生じる表面状態の乱れを平滑化するため、必要に応じて試料を熱硬

化性樹脂に埋め込み、2000番エメリーで研磨した。

⑥蒸着

XMAによる測定に供するため、ベントナイトの表面に金蒸着を行なった。

2.2.2 測定条件

測定対象とした試料の条件を表2.2.1に示す。それぞれの試料の膨潤に際してはイオン交換水、0.3M SrCl₂溶液及び模擬空隙水の3種類の溶液を適宜使用した。イオン交換水は、比較のために実施した。Srは、地下水中に普遍的なCaと同族であり、またXMAで濃度分析が可能なため選定した。

Table 2.2.1 Test Condition of microscope observation of bentonite.

No.	試料	充填密度 (g/cm ³)	粒度
1	クニピアF	1.0	150 ~ 200 メッシュ (0.105~0.074mm)
2		1.6	150 ~ 200 メッシュ (0.105~0.074mm)
3		2.0	20 ~ 42 メッシュ (0.355~0.84 mm)
4			150 ~ 200 メッシュ (0.105~0.074mm)
5			200 ~ 330 メッシュ (0.074~0.045mm)

2.2.3 観察結果

所期の目的は、圧密体を構成するベントナイト粒子間の空隙が圧密膨潤時にも存在し、核種拡散経路となっているかどうかを判断することであったが、観察からは空隙構造に言及するような結果は得られなかった。特に大きな問題点としては、液体窒素凍結後真空乾燥した場合に、膨潤時の試料の状態が保存されているかどうかを確認し得なかったことが挙げられる。一部の写真では、特異な核種移行経路の可能性のある亀裂状の部分が見られているが、試料調製時に生じたものである可能性がある。

2.3 実効拡散係数の実測値と理論値の比較検討

2.3.1 理論値の算出方法

以下の手順で実効拡散係数の推定を行った。

① 層間距離の設定

モンモリロナイト粒子は無限平板と仮定し、エッジの比表面積への寄与は無視して、充填密度（均一モデル）あるいはゲル密度（有効空隙モデル）から次式に従い推定を行った。

$$[\text{層間距離}] = \frac{2 [\text{空隙率}]}{[\text{比表面積}] \times [\text{密度}]}$$

② 空隙水組成の設定

ベントナイト空隙水の組成は、カチオンはNaが、アニオンはCO₃とSO₄が支配的であるため、1:2型の電解質溶液とし、充填密度に応じて濃度を設定した。

③ 層間でのPoisson-Boltzmann 方程式の適用

系を一对の平行平板と考え、層間中央でのポテンシャルの勾配=0とした。表面電位は実測値を使用した。Poisson-Boltzmann 方程式を距離Xから層間中央まで積分して得られる次式を用いた。

$$\left(\frac{d\phi}{dx} \right)^2 = \frac{2 k A_v T}{\epsilon} \left(\sum C_{i0} \exp\left(-\frac{z_i e \phi}{k T}\right) - \sum C_{i0} \exp\left(-\frac{z_i e \phi_d}{k T}\right) \right)$$

ϕ : 電位, ϕ_d は層間中央での値

z_i : イオンの価数

k : ボルツマン定数

C_{i0} : 沖合イオン濃度

A_v : アボガドロ定数

e : 単位電荷

T : 絶対温度

④ 粘性の電場依存性

粘性は電場により次式に従い変化するとした。

$$\eta = \eta_0 (1 + f E^2)$$

η : 電場E が加えられたときの粘性係数

f : 電気粘性係数

⑤ 空隙内拡散係数への換算

層間全体での平均値を次式により計算した。

$$D_i = \frac{D_0 \eta_0}{n_i x_D} \int_0^{x_D} \frac{C_i(x)}{\eta(x)} dx$$

D_0 : バルク水中の拡散係数

$C_i(x)$: 層間におけるイオンi の濃度

η_0 : バルク水の粘性係数

$\eta(x)$: 層間における粘性係数

n_i : イオンi のバルク濃度

x_D : 層間中央

⑥ 実効拡散係数の算出

空隙のネットワークを考慮して、空隙内拡散係数から実効拡散係数を算出した。

2.3.2 計算結果の検討

ここでは、圧密ベントナイト中の空隙に関する均一空隙モデル及び選択的移行空隙モデルに沿って検討を行う。

(1) 均一空隙モデルを前提とした検討

1) 計算条件

充填密度は便宜的に以下の7点とした。

$$0.32, 0.7, 1.0, 1.3, 1.5, 1.6, 2.0 \text{ g/cm}^3$$

模擬空隙水は 1:2型であり、カチオン濃度は以下の通りとした。

$$0.32 \text{ g/cm}^3 : 8.4\text{E-}2 \text{ mol/l}$$

$$0.7 : 2.2\text{E-}1$$

$$1.0 : 3.7\text{E-}1$$

$$1.3 : 5.8\text{E-}1$$

1.5	:	7.9E-1
1.6	:	9.2E-1
2.0	:	1.8E+0

均一空隙モデルでは、全ての空隙が物質移行に利用可能としているので、空隙率はモンモリロナイトの真密度及び圧密体の充填密度から算出できる。

0.32 g/cm ³	:	0.88
0.7	:	0.74
1.0	:	0.63
1.3	:	0.51
1.5	:	0.44
1.6	:	0.40
2.0	:	0.25

相関距離は、2.3.1 に述べた方法に従い算出した平均化された値を用いた。

0.32 g/cm ³	:	7.2E-9 m
0.7	:	2.8E-9
1.0	:	1.6E-9
1.3	:	1.0E-9
1.5	:	7.7E-10
1.6	:	6.6E-10
2.0	:	3.3E-10

表面電位はクニピアFについて測定を行って得られた -56.5mVを採用した。

2) 計算結果

上記の計算条件のもとで得られた結果を図2.3.1 に示す。また、昨年度クニピアFで得られた実効拡散係数の実測値を図2.3.2 に示した。計算値と実測値のグラフを比較すると、絶対値に差がみられるものの、全体の傾向はほぼ一致している。測定値では、カチオンのデータがほとんどないため、今度データ収拾を行い、カチオンの実効拡散係数を計算値と比較することが電気二重層理論の実効拡散係数予測への適用に当たり必要である。

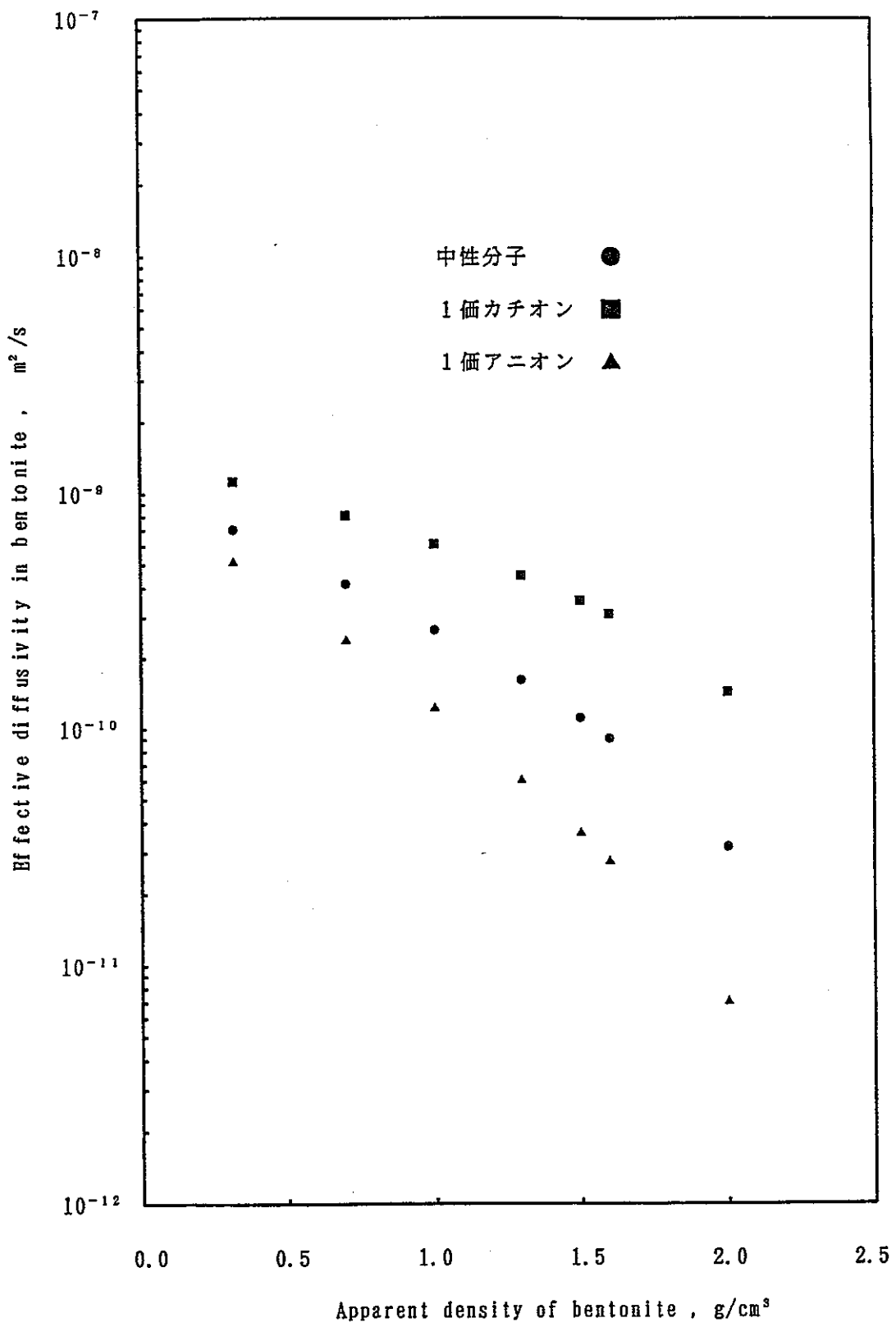


Fig. 2.3.1 Calculated effective diffusivities for Kunipia F

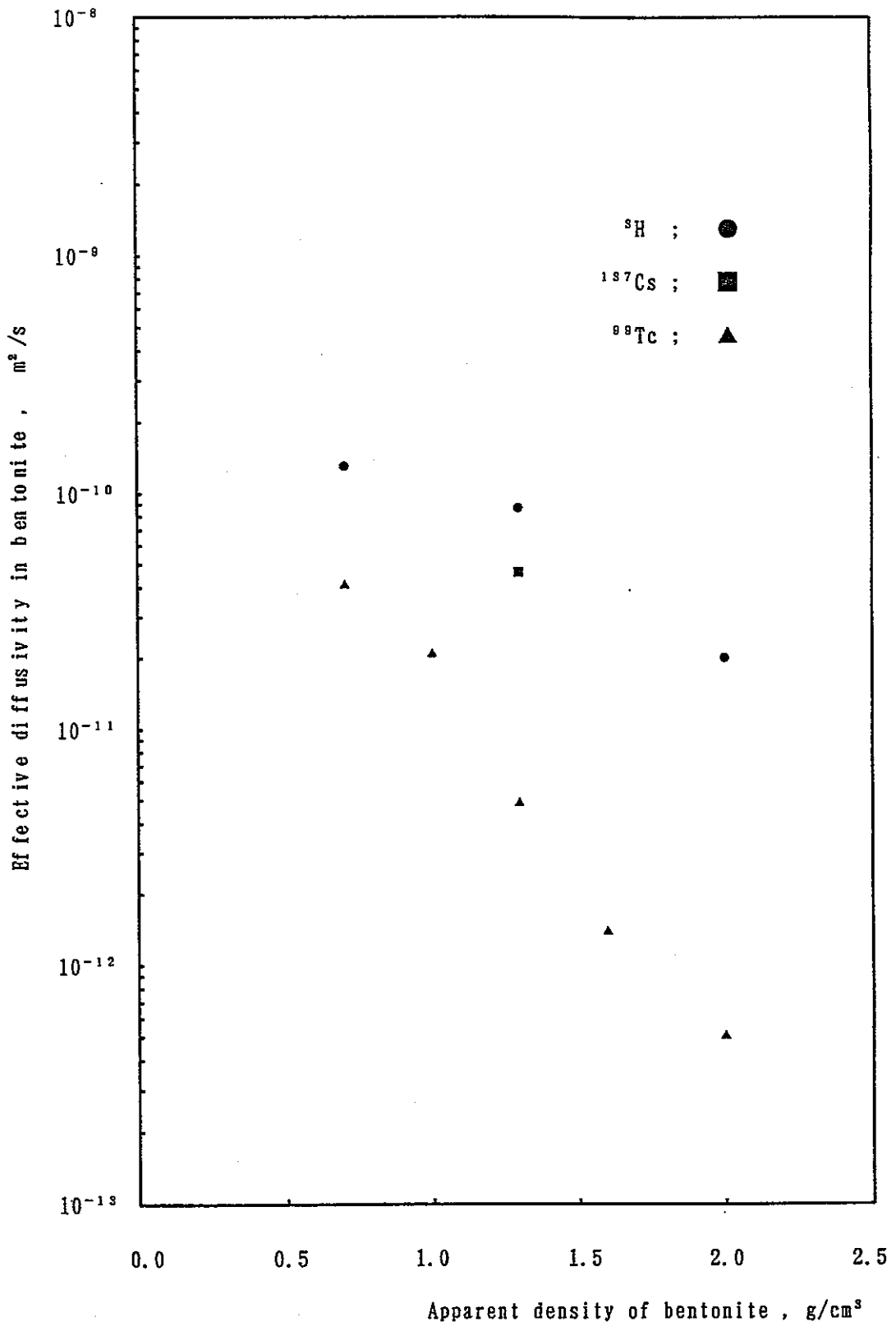


Fig. 2.3.2 Measured effective diffusivities for Kunipia-F

(2) 選択的移行空隙モデルを前提とした検討

顕微鏡を用いた直接観察によっては選択的移行空隙の存在を示す証拠は得られなかった。ここでの検討においては、Pusch が示した選択的移行空隙の概念及び特性値を用いて電気二重層理論に従った実効拡散係数の推定を行い、(1)で行ったように、実測データとの比較を行うこととする。

1) Puschモデルの概要

Pusch は、圧密ベントナイト中の物質移行は、充填時に存在するベントナイト粒子間の空隙が低密度のゲルで満たされた部分（外部空隙，External pore）でのみ行われるというモデルを提案した。3つの異なる充填密度，0.9，1.35，1.8g/cm³ について外部空隙の特性を表 2.3.1 にまとめた。

Table 2.3.1 Characteristics of external pore

充填密度 (g-clay/cm ³)	ゲル密度 (g-clay/cm ³)	存在割合 (%)	層間距離 (m)	カチオン濃度 (mol/l)
0.9	0.16	2.8	1.5E-8	3.1E-1
	0.32	7.8	7.2E-9	
	0.48	14	4.5E-9	
1.35	0.32	0.61	7.2E-9	6.3E-1
	0.48	2.5	4.5E-9	
1.8	0.48	0.61	4.5E-9	1.3E-0

2) 選択的移行空隙モデルにおける空隙の不均一性の扱い

圧密ベントナイト中では、外部空隙がネットワークとなって移行空隙を形成している。しかしながら、この点についての情報は与えられておらず、実効拡散係数の推定を行うに当たり何らかの前提をもうける必要がある。ここでは、次のような2つの極端なケースを想定して推定を行い、実際の実効拡散係数はこれら両ケースの間にあると考えることにした。

ケース1：並列モデル

外部空隙が並行するパイプ状に配置されており、物質移行がパイプに沿って行われるとする。

この場合の実効拡散係数は次式で与えられる。

$$D_{eff} = \sum D_i$$

ケース2：直列モデル

外部空隙が直列に連結されており、拡散種は各外部空隙を順番に通過していく。この場合の実効拡散係数は次式で与えられる。

$$D_{eff} = \frac{(\sum \varepsilon_i)^2}{\sum \frac{\varepsilon_i}{D_i}}$$

3) 計算結果

並列モデル及び直列モデル毎に、圧密ベントナイト中の実効拡散係数を推定した結果を図2.3.3に示す。有効空隙モデルでは、電荷の違いによる実効拡散係数の大小関係の定量的な面では、電荷の違いによる影響が均一空隙モデルのように明瞭には現れていない。これは、低密度ゲルを移行空隙としているために層間距離が大きくなり、界面電気的な影響が消失していることによる。すなわち、選択的移行経路モデルでは、実測値にみられるような高充填密度でのアニオンの実効拡散係数減少が説明できない。実効空隙率の測定値がほぼ見掛けの空隙率と等しいことも勘案すると、圧密ベントナイト中の物質移行を考えるうえで、均一空隙モデルのほうが妥当性を有すると考えることができそうである。

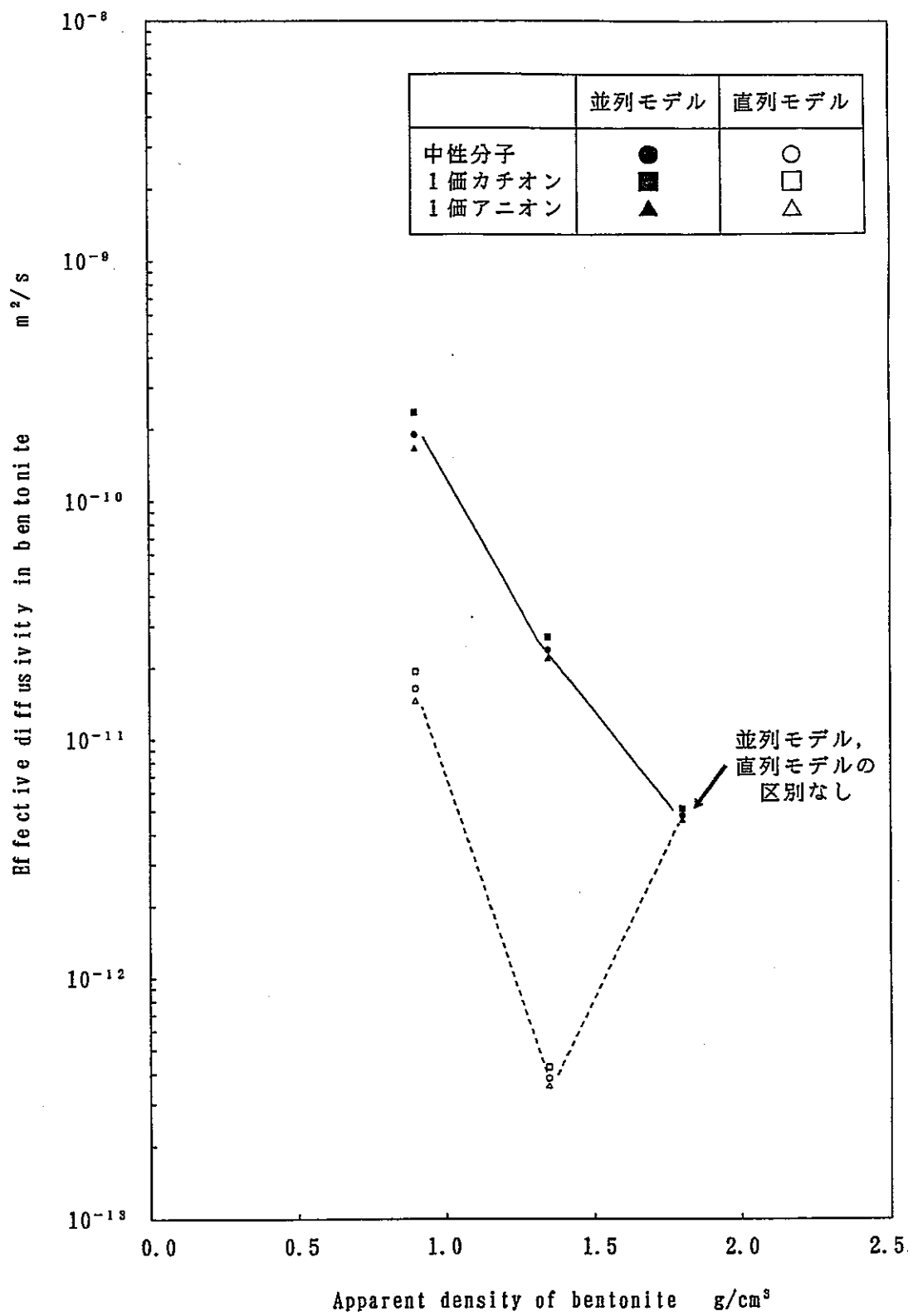


Fig. 2.3.3 Effective diffusivities derived from Pusch's model

第3章 定常拡散試験による実効拡散係数の測定

試料としてクニミネ工業(株)製クニゲルV1を使用し、セシウム及びネプツニウムの定常拡散試験を実施し、実効拡散係数を測定した。

3.1 セシウムの定常拡散試験

表 3.1.1に、充填密度 1.4g/cm^3 及び 1.8g/cm^3 のベントナイトに対して得られた定常拡散係数及び事前に求めたそれぞれの模擬空隙水中でのフィルターの拡散係数を示した。なお、昨年度 2.0g/cm^3 において試験を実施して得られた値も併記した。

Table 3.1.1 Effective diffusivity of Cesium in compacted bentonite.

試料	充填密度 (g/cm^3)	定常拡散係数 (m^2/s)	71μm拡散係数 (m^2/s)	備考
クニゲルV1	1.4	3.9×10^{-10}	3.1×10^{-11}	—
	1.8	2.5×10^{-10}	3.1×10^{-11}	—
	2.0	3.2×10^{-11}	8.2×10^{-11}	昨年度のデータ

3.2 ネプツニウムの定常拡散試験

表3.2.1 に、ネプツニウムの定常拡散係数及び事前に求めたそれぞれの模擬空隙水中でのフィルターの拡散係数を示した。

Table 3.2.1 Effective diffusivity of Neptunium in compacted bentonite.

試料	充填密度 (g/cm^3)	定常拡散係数 (m^2/s)	71μm拡散係数 (m^2/s)
クニゲルV1	0.8	1.2×10^{-10}	1.3×10^{-11}
	1.4	2.5×10^{-11}	1.4×10^{-11}
	1.8	2.5×10^{-12}	1.6×10^{-11}

拡散試験終了後、試料を分割して得た試料中のネプツニウム濃度は距離に対し線型の関係を示さなかった。一方、拡散試験におけるネプツニウムの積算透過量は試験後半期では時間に対し線型に増加しており、フラックスが一定になったことを示している。この理由として、溶液中のネプツニウムの化学形態が影響している可能性を考慮し、地球化学計算コードPHREEQEを用いた検討を行った。

地球化学計算からは、ネプツニウムの化学形態と実効拡散係数との関係が一致するような結果は得られなかったが、ネプツニウムが複数の化学種の共存状態で拡散移行していることが示された。今後の課題として、化学種を正しく把握した上で、拡散係数を議論することの必要がある。これについては、PHREEQEなどを用いた化学種の推定手法により、さらに正確に化学種を把握することと、試験の雰囲気調整しネプツニウムが一定の化学形態しかとり得ない雰囲気下で拡散試験を行っていくような試験面からの対応を併せて行い、検討を深めていくことが望ましい。