

# WM'02 国際シンポジウム

－第28回高レベルおよび低レベル廃棄物、混合廃棄物  
と環境修復に関する国際シンポジウム－

(海外出張報告)

2002 年 3 月

核燃料サイクル開発機構  
社内公募型研究推進室



本資料の全部または一部を複写・複製・転写する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村村松4番地49

核燃料サイクル開発機構

技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to :

Technical Cooperation Section,

Technology Management Division,

Japan Nuclear Cycle Development Institute

4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184

Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)

2002

## WM'02 国際シンポジウム —第 28 回高レベルおよび低レベル廃棄物、混合廃棄物 と環境修復に関する国際シンポジウム— (海外出張報告)

佐藤治夫 \*

### 要 旨

平成 14 年 2 月 24～28 日にかけて、米国アリゾナ州ツーソンのツーソンコンベンションセンターにおいて、WM'02 国際シンポジウム（第 28 回高レベルおよび低レベル廃棄物、混合廃棄物と環境修復に関する国際シンポジウムよりクリーンな環境を目指した取組み）が開催された。筆者はこのシンポジウムに出席し、サイクル機構で得られた研究成果について報告すると共に、研究内容について議論した。また、併せて国内外における地質媒体中での核種移行に関する研究動向や地層処分に関連した研究成果の最新情報および国際動向について情報収集を行った。

シンポジウムでは、Plenary session, Panel session, Technical session 合わせて 65 の session が行われた。Panel session では、長期間における廃棄物管理と処分における民主主義と題して意見交換が行われた。主要 7 ヶ国（スウェーデン、スイス、フランス、ドイツ、英国、米国、日本）の実施主体と OECD/NEA の関係者が出席し、各国の処分実施に向けた考え方や処分の実施、一般市民やコミュニティとの合意形成手段などについて意見が交わされた。日本からは、日本におけるサイト選定の考え方や進め方などについて報告された。

Technical session においても各国の放射性廃棄物処分に関する現状や進め方、あるいは考え方や長期的スケジュールに関する紹介が目立った。日本からは TRU 廃棄物処分に関する安全評価の現状と今後の課題および安全評価の詳細（2000 年 3 月に公表された、TRU 廃棄物処分の概念検討書の内容）について紹介された。

その他、各国の地下研究施設（スウェーデン：Äspö ハードロックラボラトリ、米国：WIPP、ベルギー：Mol、フランス：BURE）の現状と研究課題について紹介された。

本報告では、上記の内容の詳細について記述する。

---

\*核燃料サイクル開発機構 社内公募型研究推進室／東海事業所 環境保全・研究開発センター 放射化学研究グループ（兼務・駐在）

**WM'02 Symposia**  
**-28<sup>th</sup> Symposia on the "HLW, LLW, Mixed Wastes and**  
**Environmental Restoration"-**

Haruo SATO \*

**Abstract**

The WM'02 Symposia (28<sup>th</sup> Symposia on the "HLW, LLW, Mixed Wastes and Environmental Restoration -Working Towards A Cleaner Environment") was held at the Tucson Convention Center in Tucson, Arizona, USA between February 24 and 28, 2002. The author participated in the symposium and reported his contribution obtained in JNC, and discussed for the activity. The author additionally collected recent information, associated with radionuclide migration in the geosphere and associated with geological disposal and the international trend.

Totally, 65 sessions, categorized into Plenary Session, Panel Session and Technical Session were held in the Symposium. In the Panel Session, an opinion exchange for the "Democracy in Long-Term Waste Management and Disposal" was made. High-level officials from a number of implementation bodies of 7 countries (Sweden, Switzerland, France, Germany, UK, USA and Japan (NUMO)) and from OECD/NEA introduced approaches and implementation process for HLW geological disposal in each country and discussed on stakeholder and community censensus and so on. Siting concept and the process for HLW geological disposal in Japan was introduced from Japan (NUMO).

Current status, approaches, concept and long-term schedule for radioactive waste disposal in each country was outstandingly introduced in the Technical Session. Current status for safety assessment of TRU waste disposal, future work and details of the safety assessment were introduced from Japan.

In addition, current status and research items in underground research facility of each country (Sweden: Äspö Hard Rock Laboratory, USA: WIPP, Belgium: Mol, France: BURE) were introduced.

This report describes details of matters described above.

---

\* Radiochemistry Group, Waste Isolation Research Division, Waste Management and Fuel Cycle Research Center, Tokai Works / Innovative Research Promotion Office, Head Office Japan Nuclear Cycle Development Institute



## 目 次

1. 会議概要	1
2. 会議の内容	2
3. 筆者の報告と議論	10
4. 所見等	12

## 添付資料

添付資料 1 : 発表 OHP

添付資料 2 : 提出論文

出張期間：平成 14 年 2 月 23 日（土）～3 月 2 日（土）

会議名称：WM'02 国際シンポジウム (WM'02 Symposia "HLW, LLW, Mixed Wastes and Environmental Restoration - Working Towards A Cleaner Environment" : 第 28 回高レベルおよび低レベル廃棄物、混合廃棄物と環境修復に関する国際シンポジウム -よりクリーンな環境を目指した取組み)

会議開催期間：平成 14 年 2 月 24～28 日

開催場所：米国アリゾナ州ツーソン、ツーソンコンベンションセンター

## 1. 会議概要

平成 14 年 2 月 24 日（日）から 28 日（木）にかけて、米国アリゾナ州ツーソンのツーソンコンベンションセンター（Tucson Convention Center）において、WM'02 国際シンポジウム（第 28 回高レベルおよび低レベル廃棄物、混合廃棄物と環境修復に関する国際シンポジウム -よりクリーンな環境を目指した取組み）が開催された。筆者はこのシンポジウムに出席し、サイクル機構において得られた、高レベル放射性廃棄物の地層処分の安全評価に関する研究成果（A Study on the Effect of Clay Particle Orientation on Diffusion in Compacted Bentonite : 圧縮ベントナイト中の拡散に及ぼす粘土粒子の配向性の影響に関する研究）についての発表を行い、研究内容について議論した。筆者は、プログラム中のセッション 20（Determination of Contaminant Migration）において口頭発表（2 月 26 日（火））した（詳細は後述する）。この中で、高レベル放射性廃棄物において使用が検討されている、緩衝材としての圧縮ベントナイト中の粘土粒子の配向性とベントナイト中の主要粘土鉱物のスメクタイト含有率との関係および実効拡散係数と粘土粒子の配向方向との関係について、走査型電子顕微鏡（SEM）観察と非吸着性核種のトリチウム水を用いた圧縮方向に対して鉛直方向と軸方向への透過拡散実験結果について報告した。この報告に対して、会場から、拡散実験前における圧縮ベントナイトの含水や含水期間に関すること（台湾からの研究者）、溶液やトレーサに関すること（米国からの研究者）、実際の安全評価への影響に関すること（スイスからの研究者）、SEM 観察用試料の準備に関すること（米国からの研究者）など技術的内容の質問がなされた。また、併せて国内外における地質媒体中での核種移行に関する研究動向や地層処分に関連した研究成果の最新情報および国際動向について情報収集を行った。

特にこのシンポジウムは、様々な種類の廃棄物処分に關して取り扱われることから、高レベルのみならず、TRU 廃棄物処分や低レベル放射性廃棄物の現状や今後の取組み、国際動向についても情報収集することができた。会場では、アブストラクトおよび論文集は配布されず、2～3 ヶ月後に送付されるということであったため、プログラムのタイトルを頼りに聴講した。

24 日（日）には、Welcome Reception が Exhibit Hall（展示場）で行われ、翌 25 日（月）から 28 日（木）かけて、それぞれの会議室に分かれて Plenary Session, Panel Session, Technical session が開かれた。今回のシンポジウムでは、類似した分野毎に全部で 65 のセッションに分類され、約 10 セッション毎にパラレルに会議は進められた。

ちなみに今回で 28 回目を数える WM 国際シンポジウムは、現在でこそ参加者 2000 人程度と大きな国際シンポジウムとなっているが、以前（20 年くらい前）はアリゾ



ナ大学内で行っていたほどの小さな規模であったそうである（参加者談）。開催国が米国ということもあってか、米国からの参加が圧倒的に多く、国際シンポジウムというよりは、米国内の学会に他国の研究者が参加しているといった雰囲気であった。

Technical session における発表では、アカデミックな内容と言うよりは、むしろ原位試験やフィールドを用いた試験研究やモデル解析、デモンストレーション、各国における研究の進捗状況と長期的研究計画といった内容のものが多かった。

Panel Session では、25 日（月）の午後にかかれた Session 5 (Democracy in Long-Term Waste Management and Disposal : 長期間における廃棄物管理と処分における民主主義) に出席した。主要 7 カ国（スウェーデン、スイス、フランス、ドイツ、英国、米国、日本）の実施主体の関係者の他、OECD/NEA の関係者が出席し、各国の処分実施に向けての考え方や処分の実施プロセス、一般市民やコミュニティとの合意形成手段などについて意見交換が交わされた。日本からは NUMO（増田純男理事）がパネリストとして参加し、日本におけるサイト選定の考え方や進め方などについて報告された（詳細は後述）。このセッション全体を通して、処分実施のための技術的および科学的信頼性はもとより、情報公開などの透明性の確保、民意の反映と相互理解の促進を無視して進めることはできないことなどが共通の認識として挙げられた。

Technical session においても、各国の放射性廃棄物処分に関する現状や進め方、あるいは考え方や長期的スケジュールに関する紹介が目立った。これに関しては、27 日（水）の午後に行われた Session 49 (International TRU Waste Management : 国際的な TRU 廃棄物管理の動向) において、日本から TRU 廃棄物処分に関する安全評価の現状と今後の課題および安全評価の詳細（2000 年 3 月に公表された、TRU 廃棄物処分の概念検討書の内容）について紹介された（サイクル機構と(株)日揮から報告。サイクル機構は概要を報告し、(株)日揮は安全評価を中心に報告。詳細は後述）。

今や放射性廃棄物処分の実施のための準備段階における長期的展望やプログラム、あるいは考え方や次のステージに進めるためのプロセスをどう考えるかを常に持ち、かつ全体を見据えながら戦略的観点で具体的研究に取り組むことが必要であると感じた（人にも依るが、自分も含めてこの観点が現在の処分研究に携わる研究者に欠けている点と認識）。

## 2. 会議の内容

筆者は、Session 5 : 高レベル廃棄物処分に関するパネルディスカッション、Session 6 : ポスターセッション、Session 20 : 汚染物質の移行に関する決定、Session 48 : 米国 TRU 廃棄物管理に関する展望、Session 49 : 国際的な TRU 廃棄物管理の動向、Session 59 : 地下研究施設の各セッションに出席した。また、Session 20 では発表を行い、国内外の専門家と議論した。以下に筆者が出席したセッションの内容について記述する。

## (1)Session 5 : Democracy in Long-Term Waste Management and Disposal (長期間における廃棄物管理と処分における民主主義)

25 日の午前中に開かれた、廃棄物処分実施に向けたパネルディスカッション (Session 5 : Democracy in Long-Term Waste Management and Disposal) に出席した。パネリストとして、スウェーデン (SKB : Peter Nygards)、スイス (NAGRA : Hans Issler)、フランス (ANDRA : Yves LeBars)、ドイツ (BfS : Georg Arens)、英国 (NIREX : Alan Hooper)、米国 (NRC : John Greeves)、OECD/NEA (Hans Riotte) の他、日本からは NUMO (原子力発電環境整備機構) の増田純男理事が出席した。

冒頭に各国の実施主体からそれぞれの国情に合わせた処分場選定および建設に係る進め方や考え方、あるいは選定プロセスや現状の問題点などについて口頭で手短かに説明された後、会場を交えて議論された。特にスイスからは、長期間隔離 (Long-Term Isolation) の保証がなされないなどの理由から、オプションとして再取り出し (Retrievability) についても検討していることなどが述べられた。各国とも現状におけるフェーズは異なっているものの、基本的な考え方や進め方は比較的類似しており、実施のために必要な技術的および科学的信頼性の積み上げと質的向上、情報の透明性確保、民意の反映と相互理解の促進などが共通の認識として挙げられた。

NUMO の増田理事からは、日本におけるサイト選定の現状と選定プロセスの手順や考え方について説明された。説明の中で、日本は 47 都道府県の全ての地域を対象とすること、実施機関自身の公平性や信頼性の確保が重要であること、国全体としての利益と地域の利益の相互を考慮すること、情報公開と透明性の確保などが挙げられた。

会場を交えた議論では、民主主義の観点からどのように市民のコンセンサスを得るのか、心理的問題はどのように解決するのか、といった質問がなされた。これに対して、例えば SKB では、地下研究施設を通して、技術的および視覚的観点からシステムティックにかつ着実に理解促進に努めることが重要であることなどが提案された。

一方、日本の進め方に対して、使用済燃料の再利用以外のオプションについてはどう考えているのかとの質問がなされた。これに対して、日本は国の方針でもある FBR (高速増殖炉) を前提とした考え方であり、使用済燃料をリサイクルという方針であることから、リサイクル以外のオプションは存在しないこと、これを前提として生じる放射性廃棄物を処分するという考え方を取っていることなどが述べられた。

最後に、米国 USDOE の Mark Matthews 博士よりまとめが述べられ、各国における処分の現状を総括すると共に、各フェーズに応じてシステムティックに段階的に進めることが重要であるとまとめられた。

## (2)Session 6 : D & D/TRU/HLW I

同日の午後に開かれたポスターセッションに参加した。TRU や高レベル廃棄物に関連した研究を合わせて 41 件のポスター発表が行われた。特に地質媒体中での核種移行に関する研究では、中国から原位置試験に関する報告がなされた。この研究は、



日本原子力研究所と中国との共同研究で、1995 年から 5 年がかりで行われたものであり、地表から 30m の深さの場所で行われた。横坑道から水平にピットを掘り、そこでコンクリート中にトレーサを拡散させる実験が行われた。また、横坑道からさらに下盤に実験用立坑を地下水流と交差するように掘削し、流れのある条件で土壌中での移行実験が行われた。対象とした核種あるいは元素は、Np-237, Am-241, Pu-238, Sr-90, Ce, Sr, Nd であり、後半の 3 元素は安定同位体として用いられた。地下水の pH は 8 程度であり、酸化還元条件は酸化条件ということであった。得られた結果（濃度分布）は、土壌中に対しては複雑であり単純に移行しているわけではないようであったが、約 3 年間の実験期間において、どれもほとんど拡散移行しておらず、20~30cm 以内であった。これは、コンクリート中の拡散実験においても同様であった。ただし、コンクリート中での拡散実験については比較的単純な濃度分布が得られている傾向であった。拡散移行プロファイルから移行の速さは、どの実験においても Sr-90>Np-237>Pu-238 の順と既存の知見と同様の結果となった。その他の元素については検出下限値未満であり、データは得られていないということであった。各実験とも濃度分布を測定しているものの、周囲の環境（土壌の含水比や間隙率など）についてはほとんど調べていないため、解析するための材料に欠けていることを指摘した。

拡散移行における遅延に関する定性的な知見を得ることはある程度できたと思うが、周囲の土壌物性測定などの室内試験やそもそも実験の実現性などのフィージビリティスタディが行われておらず、また熱力学的な情報もほとんど利用されていない。解析すれば定量的なデータを得ることができるケース（コンクリート中の拡散など）においても定性的な遅延のみの議論にとどまっていたことから、解析可能なケースに対しては定量的なパラメータにまで落とすべきであること、Ce などは溶解度が極めて低い安定同位元素を用いた実験はそもそも成立しにくいなどをコメントした。

### (3)Session 20 : Determination of Contaminant Migration (汚染物質の移行に関する決定)

26 日には、筆者自身の発表を含むセッションに参加した。このセッションでは全部で 4 件の発表が行われた。筆者以外は全て米国からの発表であり、ヤッカマウンテンプロジェクト (Yucca Mountain Project) の一環として行われた成果についての報告が中心であった。発表は、途中で質疑応答できるといったさながらワークショップのような形態で行われた。発表者全員 (4 人) は別に設けた前の席に座り、一人一人発表および質疑応答した後、セッションの最後には、再度全員の発表に対する総合討論が行われた。4 件の発表に対して約 2 時間半行われた。

最初の報告において、ヤッカマウンテン地域における温度分布の解析を 3 次元で行った結果について報告された。広範囲に渡る断層 (95 個考慮) や地下水の流れなどを考慮した場合としない場合などに対して広範囲な地域をメッシュに分割して計算された。解析の結果、温度は 29~60℃ の範囲であると計算された。

次の報告は、解析手法に関するもので、"Kriging" を応用した異方性媒体中での 3 次元解析手法について報告された。

さらに次の報告では、REKA 法を用いた熱伝導率、熱に関する拡散係数、間隙率測定値の評価に関するもので、縦 6m、横 9m の実規模スケールの実験設備を利用した熱伝導に関する実験結果を解析し、実測結果との比較と最適化を行うと共に、これらのパラメータの評価を行った結果が報告された。この報告については、これまでも処分研究部で COUPLE を用いて進めてきた THM 複合解析手法（熱－水－応力練成解析）や現在進めつつある、THMC 解析手法（熱－水－応力－化学練成解析）の開発などに関連した発表の方がむしろ適していると感じた。ただし、セッションの名称からして、移行に関する研究が本来であることから、筆者の報告がおそらく最もこのセッションに適していたものと感じる。

筆者の報告は、これらの報告を挟んで 3 番目に行った。詳細については後述する。

#### (4)Session 48 : Optimizing U.S. TRU Waste Management (米国 TRU 廃棄物管理に関する展望)

27 日の午前中に開かれた、米国における TRU 廃棄物管理に関するセッションに出席した。文字通り、米国における TRU 廃棄物の管理の現状についての発表が中心であった。主な内容としては、廃棄物の輸送問題（輸送中の安全確保（テロリズムなど））、輸送後の受け入れ検査システムに関する技術的問題、TRU 廃棄物処分の今後の長期的計画などについて報告された。特に、受け入れ検査システム（Confirmation System）については、サバンナリバーサイト（Savannah River Site）、アルゴンヌ国立研究所（Argonne National Laboratory -East）、ネバダ試験サイト（Nevada Test Site）の 3 サイトで実際に実施している実績と現状について報告された。例えば、Savannah River Site では、2001 年の 5 月にホット運転を開始し、保有している 3500 本の TRU 廃棄物の内、466 本を検査したことが報告された。主には、ヘッドスペースのガス採取と分析やパッシブ線分析などを行っているということであった。

TRU 廃棄物の検査システムについては、尚も技術的改良や開発の余地があるとされており、米国における TRU 廃棄物システムのオペレーションプランなどが組み立てられており、長期的戦略で進めて行くこと、より高度な技術（innovative technology）も併せて開発して行くこと（例えば、水素ガス捕集材やオーバーパックの開発）などが報告された。

#### (5)Session 49 : International TRU Waste Management (国際的な TRU 廃棄物管理の動向)

同日の午後に開催された、各国における TRU 廃棄物管理に関するセッションに出席した。このセッションでは、米国、日本、英国、スイスの 4 カ国から 5 件の報告があり、各国における TRU 廃棄物管理や処分における現状について紹介された。尚、日本からは、サイクル機構と(株)日揮から、TRU 廃棄物処分に関する安全評価の現状と今後の課題および安全評価の詳細（2000 年 3 月に公開された、TRU 廃棄物の概念検討書の内容）について報告された。この中で、サイクル機構は概念検討書の概要を報告し、(株)日揮は安全評価の詳細を中心に報告した。

先ず、米国 DOE の Mark Matthews 博士より、WIPP における米国の核兵器関連の



複雑な TRU 廃棄物に対する成功への解決案 (The Waste Isolation Pilot Plant: The Successful National Solution to the US Nuclear Weapons Complex Transuranic Waste Legacy) と題して報告された。米国においては、線量と放射エネルギーに応じて 2 種類の廃棄物に分類されている。1 つ目は、全放射エネルギーが  $3,700\text{Bq/g}$  を超えるもの (CH-TRUW) であり、もう 1 つは、表面線量で  $0.002\text{Sv/h}$ - $10\text{Sv/h}$  のもの (RH-TRUW) である。WIPP のサイトでは、処分場を地表下 650m に建設する。縦 1381m、横 1586m の大きさを持つ。周囲の岩盤は岩塩を主体としたものであり、廃棄物の周囲には pH 調整剤として  $\text{MgO}$  が充填される。安全評価においては、最も危険なシナリオ E1, E2 (ガスが発生し、それによって移行経路が形成され放射性核種が放出される) に対しても行っており、安全性は確保される見通しがついているとのことである。RH-TRUW の受け入れが 2003 年より開始される予定であるとのことであった。

次に、サイクル機構の原啓二サブグループリーダー (本社バックエンド推進部 環境保全課 サブグループリーダー) より、日本における TRU 廃棄物処分概念の検討 (Development of the Japanese TRU Waste Disposal Concept) と題して報告された。まず、国内での廃棄物が NPP、研究所廃棄物、TRU および U 系廃棄物、高レベル廃棄物に分類されること、NPP と研究所廃棄物は浅地中処分、TRU と U 系廃棄物は余裕深度処分、高レベルは地層処分されること、TRU 廃棄物は、東海再処理施設、返還廃棄物、産業界から発生する廃棄物、MOX 燃料加工施設からの廃棄物、U 燃料加工施設からの廃棄物などから発生していること、現在までに廃棄物全体で  $56,000\text{m}^3$  に達し、40,000 本のキャニスターに相当すること、全体の 83% はサイクル機構の再処理から発生していることなどが報告された。また、安全評価解析においては、日本は候補サイトが存在しないことから、結晶質岩と堆積岩の両ケースを想定したこと、それらの水理学的物性値は高レベル廃棄物処分で採用したデータを参考として、透水係数  $E-9\text{m/s}$ 、動水勾配 0.01、間隙率 2% (結晶質岩) および 20% (堆積岩) としたことなどが報告された。廃棄物のソースタームについても 4 グループ (Gr.1: I 吸着材: I-129, Gr.2: ハル、エンドピース, Gr.3: 低レベル濃縮廃棄物、ビチューメン, Gr.4: その他) に分類し、グループに応じて 2 タイプの処分形態 (廃棄物、モルタル、ベントナイト/ケイ砂混合緩衝材、岩石系および廃棄物、コンクリート、岩石系) を想定したこと、さらにセメントと地下水の反応による pH の上昇、非吸着性核種 (I-129, C-14)、ガス発生の影響、有機物の影響、コロイドの影響、微生物の影響などについて考慮したことが説明された。安全評価の結果として、基本ケースでは、I-129, C-14, Cl-36 などの陰イオンがキー核種となることが述べられた。最後に、TRU 廃棄物の長期間における地層処分は適切な地層を選定することにより可能であるとまとめられた。

この報告に対して、安全評価期間としてどれくらい行えば良いのかとの質問がなされた。これに対して、評価期間は決まっていないこと、決まっているのは線量率が  $10\mu\text{Sv/y}$  ということであり、これが現在の基準であることが回答された。

続いて(株)日揮の千葉氏より、日本における TRU を含む廃棄物処分の安全性に関する検討 (Study on Safety of TRU-Containing Waste Disposal in Japan) と題して報告された。この報告は、この前の報告内容の内、安全評価の部分をより詳細に取り扱ったものである。現在、TRU 廃棄物としては、返還廃棄物、再処理施設からの廃棄物、MOX 燃料加工施設および U 燃料加工施設からの廃棄物などがあり、それぞれの区分に応じて数 m レベルの浅地中処分、数 10m レベルの余裕深度処分、数 100m レベ

ルの地層処分が検討されていること、浅地中処分のための法律的区分として、全 $\alpha$ 放射能 (1GBq/ton) とキー核種 (C-14, Co-60, Ni-63, Sr-90, Cs-137, Mo-93 など) の放射エネルギーによる制限値が存在すること、また、廃棄物の内、全体の 45% は余裕深度処分、32% は深地層処分に該当すること、全廃棄物量 56,000m<sup>3</sup> の内、13,000m<sup>3</sup> が浅地中処分、35,000m<sup>3</sup> が余裕深度処分、8,000m<sup>3</sup> が地層処分に該当することが説明された。性能評価では、結晶質岩と堆積岩を対象とし、基本シナリオ (通常進展シナリオに基づいたケース) とパーターベーションシナリオ (直接接近シナリオに基づいたケース: 例えば隆起侵食) に対して行ったことが報告された。その中で、レファレンスケースでは、セメントによる変質とベントナイトの Ca 型化が考慮されたこと、その他のケースとして、ガス発生による影響を考慮したガスケース (Gas Case)、硝酸塩の影響を考慮した硝酸塩ケース (Nitrate Case)、高アルカリの影響を考慮した超アルカリケース (Hyper Alkaline Case) に対して行われ、硝酸塩ケースと超アルカリケースが線量評価上重要であること、全てのケースとも 0.1~0.3mSv/y であること、パーターベーションシナリオでは、隆起侵食、気候変動と海水面変動、埋め戻しの不備、掘削、ボーリングなどの影響を考慮したこと、キー核種として、隆起侵食では Tc-99 と Np-237 であることが報告された。最後に、全てのケースとも 0.1~0.3mSv/y であること、さらなる検討が信頼性向上のために必要であるとまとめられた。

この報告に対し、何故 3 種類のレベルの深さに分類したのか、コストの観点から考えた場合、同一の深さに処分場を建設した方が合理的ではないかと質問された。これに対し、個人的見解としながらも、管理する期間や線量にかかる規制が異なるので分けているのではないかと回答された。また、ガスケースについて説明してほしいとの質問に対しては、このケースは直ぐに溜ったガスが放出された場合を想定しており、I-129, C-14, Se-79 などが支配的核種となることが回答された。その他、候補に応じて処分場のタイプを考えた方がより合理的であるとコメントされた。

次に英国 Nirex より、英国における高レベルと低レベルおよび使用済燃料の共同処分に関する課題 (Issues Associated with the Co-Disposal of ILW/LLW and HLW/SF in the United Kingdom) と題して報告された。英国では、低レベル放射性廃棄物 (LLW)、長半減期の低レベル放射性廃棄物 (Long-lived LLW)、高レベル放射性廃棄物 (HLW)、使用済燃料 (SF) に分類されており、処分形態として、埋め戻し材を伴わない系とセメントをベースとした埋め戻し材を使用する系が存在する。HLW/SF に対する処分概念では、坑道横置きタイプが示され、廃棄物ユニット (キャニスター+充填材+外側パッケージ)、ベントナイト、岩石で構成され、廃棄物ユニット間はベントナイトプラグで仕切られている。主要課題として、社会—技術—経済の相互関連が重要であること、社会的課題として、公平性 (Equality) および社会的許諾 (Public Acceptance)、技術的課題として、放射線リスク (Radiological Risk)、熱的相互作用 (Thermal Interaction)、化学的相互作用 (Chemical Interaction)、再取り出し (Retrievability) などが挙げられた。化学的相互作用に関しては、ILW/LLW と HLW/SF 間では、前者ではセメント、高 pH、ベントナイトの Ca 型化の影響、後者ではベントナイトとガラスとの相互作用が特徴的あること、再取り出しに対しては、地下空間への収納概念 (地下空間に廃棄物が収納されており、上部にクレーンが設置、収納と取出しが可能) などが示された。また、政府に対する処分のコンサルティングなども行っており、現状では Step 1~5 (Step 1: 2001-2: キーとなる課題に対するコンサルティング、Step 2: 2001-4: オプションに関する検討、Step 3: オプションに



関するコンサルティング、Step 4 : 2006 : 戦略の決定、Step 5 : 2007 : 実施のための法整備) に区分された戦略で進められている。

この報告に対し、ガス発生についてはどう考えているのか質問され、LLW については考えていること、具体的には、圧力上昇によって周囲の地質媒体を破壊して放出されることも想定していることが回答された。また、オプションとはどの廃棄物を対象としているのかの質問に対しては、全部を対象としているのではなく、一部の廃棄物を対象としていることなどが回答された。再取り出しに関してはどれくらいの期間を想定しているのかとの質問に対しては、今のところ期間は特に定まっていないことが回答された。その他、安全評価の負担軽減のための工夫などについて議論された。

このセッション最後は、スイスの Nagra (I. G. McKinley 博士) より、スイスにおける TRU 廃棄物処分研究の蓄積 (Integration of TRU Disposal Studies in Switzerland) と題して報告された。内容は、インベントリ、処分のオプション、性能評価の概要、人工バリア、共通課題の解決について報告された。スイスでは、HLW と TRU 廃棄物は深地層処分され、LLW/ILW は浅地中処分される。オプションとして、HLW との共存処分が検討されている。対象岩石は、結晶質岩と堆積岩を想定している。堆積岩としてはオパリナス粘土層中の地下研究施設 (Mont Terri) (HLW/ILW 対象) を利用してこれまで研究を行っており、現在はオパリナス粘土層を対象とした安全評価報告書 (EN2002) をまとめている最中である。報告書は今年 (2002 年) の夏頃に公表される予定で進められている。これは TRU 廃棄物処分の第 1 次取りまとめに当たる。例として、TRU 廃棄物処分の概念が示され、例えば配置として、高レベル廃棄物を中心付近に配置し、周囲に ILW を配置するなどの案が示された。原位置試験に関しては、グリムゼル原位置試験場 (Grimsel Test Site : GMT) でのデモンストレーション、高 pH の影響 (HPF)、コロイドの影響 (CRR)、ガスの影響 (GAM) に関する研究について紹介された。例えば、ガスの影響については、コンクリートの周囲にベントナイトを設置した系でコンクリートの内側からガス圧をかけることによりガスの透過に関する実験を行っている例について紹介された。最後に、管理概念は十分に検討されたものの、未解決課題に対する解決とデモンストレーションおよび実証が必要であるとまとめられた。

この報告に対し、ガス移行については処分後どう考えているのか質問された。これに対し、グリムゼル原位置試験場で行っているガス移行試験を例に説明された。ガス移行試験では、コンクリートに実際と同様にジョイントの隙間などが設けられており、その隙間をガスが移行して抜けることを想定、また、その外側のベントナイト中をどの程度抜けるのかを原位置での実験で確かめていると回答された。また、コロイド移行試験についてはどう行っているのかとの質問に対しては、コロイドはベントナイトコロイドを想定していること、ベントナイトコロイド共存系に対して原位置で核種を共存させた系で移行試験を行っていることなどが回答された。その他、ガス移行は時間やシナリオに依存する。高圧縮密度のベントナイトなどは亀裂ができるかもしれないこと、ゆっくり発生する場合は溶存ガスの拡散も関係することなどがコメントされた。

## (6)Session 59 : Underground Research Facilities (地下研究施設)

28 日の午前中に開かれた、地下研究施設のセッションに出席した。このセッションでは、スウェーデン (Äspö ハードロックラボラトリ)、米国 (WIPP)、ベルギー (Mol)、フランス (BURE) の地下研究施設について紹介された。

まず L. O. Werme 博士より、スウェーデンの Äspö ハードロックラボラトリで行われている銅に対する原位置での腐食試験について説明された。この研究は UK とスウェーデンの共同で行われているものであり、岩盤にボアホールを掘削し、中心にヒーター、その周囲にベントナイトが配置されている。ところどころに銅クーボンが埋め込まれている。実験条件は、大気下、室温と 75℃ に対して 2 種類の溶液系 (sulfide containing water : 硫酸イオン含有水、reducing chloride water : 低塩素イオン水) で行われ、実験は 2001 年 5 月に開始された。現在実験中とのことである。また、LOT 試験とよばれる腐食試験 (LOT experiment) が 25℃ と 50℃ に対して行われ、50℃ における平均腐食速度は年間  $3\mu\text{m/y}$  と見積もられた。また、複数の腐食生成物、例えば  $\text{Cu}_2\text{O}_2$ 、 $\text{Cu}_2\text{CO}_3(\text{OH})$  などが確認された。また、LOT 試験の内、電気化学試験 (LOT Experiment Final Test ECN measurement) も行われ、平均腐食速度は  $1.7\mu\text{m/y}$  であること、局部腐食の可能性は低いことが報告された。

この報告に対して、腐食速度について、初期の段階では酸素が残留しているので腐食は促進され時間に対して変化するが、長期的には安定すると思う。より長期、例えば 20 年くらいの実験が必要ではないかとの質問がなされた。これに対して、その可能性は考えられる。時間については技術的問題なので検討してみたいとの回答がなされた。

次に、M. L. Matthews 博士より、米国 WIPP サイトで行われている核兵器起源の放射性廃棄物 (Nuclear Weapons Waste : NW) に対する処分研究について紹介された。Session 49 の TRU 廃棄物管理の動向でも記述したが、WIPP のサイトでは、処分場を地表下 650m の Saisdo 層中に建設する。縦 1381m、横 1586m の大きさを持つ。周囲の岩盤は岩塩を主体としたものであり、廃棄物の周囲には pH 調整剤として  $\text{MgO}$  が充填される。1975 年に地上施設の建設が始まり、1981 年からは堅坑の建設が始まった。1983 年からは原位置での基本特性調査が開始された。現在、HLW のモックアップ試験 (廃棄物の代わりにヒーターなどを用いた試験) が行われている。2003 年には、表面線量で  $0.002\text{Sv/h}$ - $10\text{Sv/h}$  の TRU 廃棄物 (RH-TRUW) を対称とした処分が開始される見通しである。

この報告に対して、TRUW は数年後には処分が開始されるが、その後も何のために行うのかとの質問がなされた。これに対し、法的、政治的にはそうであるが、科学的小および技術的にはまだ意味のある研究を行う必要があると回答された。また、放射性物質 (トレーサとして) を用いないで挙動を知るのには限界がある。例えばアクチニドは周囲の環境に対して敏感であることから重要である。グリムゼル原位置試験場などはアクチニドなども使用して調べており、こうしたアクチニド元素などを用いた研究もすべきであるとコメントされた。

次に、A. Sneyers 博士より、ベルギーの Mol 研究所の地下研究施設 (HADES Underground Research Facility) について紹介された。ベルギーの放射性廃棄物研究開発は 1974 年に始まり、1976 年に粘土層の調査が開始された。1980 年には URF の建

設が始まり、1997～1999年には第2 堅坑と坑道が建設された。地下実験施設は225mの深さにあり、 $\alpha$ と $\gamma$ ソースの放射性核種の使用が可能である。岩盤は黄鉄鉱と炭酸鉱物を含むシルト質の粘土層であり、地下水のpHは8.2、透水係数は $2E-12m/s$ 程度、拡散係数は見掛けの拡散係数で $D_{app} < E-10m^2/s$ であることが説明された。この施設では、廃棄物のバリア性能や岩石中での放射性核種やガスの移行などを調べるのに適していることなどが強調された。また、共同研究で幾つかの原位置試験を実施中であることなどが説明された。

この報告に対して、アクチニドを用いた原位置試験は行っているのかとの質問がなされた。これに対して、トレーサは用いていないが、アクチニドを含む廃棄物などを使用した原位置試験などを行っていることなどが回答された。

最後に、J. L. Gaussen 博士より、フランス URL プロジェクト (BURE サイト) について、特にサイト選定プロセスとスケジュールを中心に紹介された。BURE はパリから東に約 300km に位置する小さな村であり、地下研究施設の位置付けを持つ。1994～1996 年にサイト選定 (3 サイト) を行い、1999 年にライセンスを取得した。現在は URL フェーズ (～2005 : 2000-2003 年建設、2000～ : 科学的研究実施) に当たる。2005 年には政府に報告書を提出する計画となっている。地質は Callono-Oxfordian 泥質層であり、120m の厚さを持つ (深度 420m～540m に位置)。45%は粘土鉱物、25%は石英、30%は方解石ということであった。透水係数は  $E-12m/s$  と小さく、岩石の強度は 26MPa ということであった。地下研究施設は深度 500m に建設される予定である。現状の研究計画では、泥質岩層中の放射性物質の移行性能や移行はどの程度か、URL 建設によって生じる岩盤周囲の影響領域 (乱れ) はどれほどかなどについて調査する。現在、地上施設は 70%完成しており、堅坑は 150m の深度まで掘削、ベンチレーション用堅坑は 80m の深度まで掘削したことが報告された。また、計画は全て CNE (National Review Road) と DSIN (Nuclear Safety Authority) のレビューを受けていることも報告された。

1995 年に報告書を出して直ぐに URL 建設とは随分早いと感じるが、きちんと調査した上のことかとの質問がなされた。これに対して、サイトは極めて単純な層であり分かりやすい。実証試験などを行うのに最適であると考えていると回答された。また、放射性核種を用いた試験はできるのかとの質問に対しては、できるとのことであった。さらに地質的な観点で掘削時に何か特別なイベントは起こったのかとの質問がなされ、今のところは何も起こっていないと回答された。その他、ガス発生に伴う挙動試験などについて議論された。また、筆者は、地下水の pH や周囲の環境における酸化還元条件について質問したところ、地下水の pH は 11 程度とアルカリであること、酸化還元条件はガス発生と併せて重要なポイントであると考えていることなどが回答された。従って、今のところは酸化還元条件はよく分かっていないものと認識される。

### 3. 筆者の報告と議論

筆者は、2 月 26 日 (火) の午前中に行われた、セッション 20 (Determination of Contaminant Migration) において口頭発表した (添付資料 1 : 発表 OHP、添付資料 2 : 提出論文コピー参照)。午前 7 時頃からこの Session での発表者は座長と朝食を取り

ながら発表内容や経歴などについてミーティングを行った。この後、会場を移動し、発表会場に向かった。発表は、途中で質疑応答できるといったさながらワークショップのような形態で行われた。発表者全員（4人）は別に設けた前の席に座り、一人一人発表および質疑応答した後、セッションの最後には、再度全員の発表に対する総合討論が行われた。4件の発表に対して約2時間半行われた。

筆者の発表は、高レベル放射性廃棄物処分において使用が検討されている、緩衝材としての圧縮ベントナイト中の粘土粒子の配向性とベントナイト中の主要粘土鉱物のスメクタイト含有率との関係および実効拡散係数と粘土粒子の配向方向との関係について、走査型電子顕微鏡（SEM）観察と非吸着性核種のトリチウム水（HTO）を用いた圧縮方向に対して鉛直方向と軸方向への透過拡散実験結果について報告した。SEM観察は、クニゲル V1 とクニピア F に対して密度を変えて行った。また、HTO を用いた拡散実験についても同様なベントナイトを使用し、乾燥密度を変化させた。SEM観察から、スメクタイト含有率の高いクニピア F に対しては粘土粒子に一定の配向がみられ、粘土の圧縮方向に対して鉛直方向に配向する様子が観察されたが、スメクタイト含有率の低いクニゲル V1 では見られなかった。HTO に対する透過拡散実験より得られた実効拡散係数も SEM 観察結果と調和的であり、粘土粒子の配向方向に対する実効拡散係数の方が鉛直方向よりも大きく、クニゲル V1 のようにランダムな方向に配向している系では両拡散方向ともほぼ同じ実効拡散係数となった。これらの結果を総括し、圧縮ベントナイト中の拡散移行経路への影響について検討した。スメクタイト含有率の高いクニピア F では、圧縮方向に対して鉛直方向に粘土粒子が配向し、それによって圧縮方向に対して軸方向に拡散する場合は屈曲度が大きくなるのに対して、圧縮方向に対して鉛直方向へ拡散する場合は、粘土粒子の配向方向に沿うため屈曲度は小さくなる。一方、スメクタイト含有率の低いクニゲル V1 では、配向性は起こらないため粘土粒子はランダムな方向を向く。このため屈曲度はどの方向に対してもほぼ同じとなり、実効拡散係数の圧縮方向依存性は見られなかったものと考察した。従って、安全評価上では、不純物あるいはケイ砂混合系のベントナイトを使用すると考えた場合、圧縮方向による拡散係数の異方性は起こらないと考えられることを報告した。

筆者の報告に対して、会場から、何故 Na 型ベントナイトを使用したのか、他の種類のベントナイトは考えられないのかといった質問がなされた（ウィスコンシン大学：C. H. Benson 博士）。これに対して、Na 型ベントナイトは地層処分において重要な緩衝材の候補となっている。Na 型は CEC も高く、陽イオンに対する吸着性も良い。Ca を含む地下水と接触すると、層間イオンが Ca 型になることから、Ca 型化についても拡散特性について検討している。本研究では、Na 型のみを対象として研究したが、Ca 型についても考えていないわけではないことを回答した。次に、透過拡散実験で使った溶液とトレーサは何かとの質問（ウィスコンシン大学：C. H. Benson 博士）に対しては、溶液は NaCl, Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> で調製した模擬間隙水を使用したこと、トレーサは HTO を使用したこと、また HTO は非吸着性であり、ベントナイト表面で相互作用を起こさないことから間隙構造因子を得るのに都合が良いことなどを回答した。次に、SEM 観察で使った試料のスライス時に配向性は乱されないのかとの質問がなされた（Jacobs Inc. USA：D. B. Ward 博士）。これに対して、試料は液体窒素に凍結させた後、真空乾燥させていることから、層間距離などは変化すると思うが、粘土粒子の配向に影響を及ぼすものではない。スライスについても一方



向のみからではなく、向きを変えて行ったが結果は同様であったことを回答した。次に、スイス Nagra の I. G. McKinley 博士から、実際の系はメータースケールと大きいものが使用される。このように大きい径に対して結果はどれほど影響を及ぼすと考えているのか、同様な結果になるのかといった質問がなされた。これに対し、ここで申し上げたかったのは、クニピア F のようにスメクタイト含有率の高い粘土に対しては配向性が有り、方向によっては透水性、拡散係数などのパラメータが変化することが考えられるが、実際にはこのようなベントナイトは用いられず、ケイ砂が混合されるか、粗製ベントナイトが使用される。このような場合は異方性の心配はいらないということであると回答した。また、台湾核能研究所（劉凌振研究員）より、ベントナイトの飽和はどれくらい、どのように行ったのか、分布などはチェックしたのかとの質問がなされた。これに対して、ベントナイトは実験前に減圧下で約 1 ヶ月含水させた。ベントナイトのサイズが 15mm 程度のブロックの場合、自然含水でも 2 週間で充分である。もし減圧下で含水させればより速く 1 週間程度で含水する。但し、間隙水が水でない場合は、イオン分布も均一になる必要がある。以前 Na の分布をチェックしたことがあるが、含水期間とほぼ同じでも均一になっていた。含水分布の均一性についても、含水後、ベントナイトをスライスし、含水比分布を調べたことがあり、均一になることを確認していることなどを回答した。

その他、ウィスコンシン大学の C. H. Benson 博士は、Wyoming ベントナイトについて研究しており、 $D_2O$  を用いて移流が存在する系で物質移行を調べているとのことであった。但し、彼が研究しているのは、圧縮系というよりは Loosely ベントナイトに対してということであった。

#### 4. 所見等

このシンポジウムに出席して強く感じたことは、今や放射性廃棄物処分の実施のための準備段階における長期的展望やプログラム、あるいは考え方や次のステージに進めるためのプロセスをどう考えるかを常に持ち、かつ全体を見据えながら戦略的観点で具体的研究に取り組むことが必要不可欠であるということである。

国際的な動向を考えると、政治的な動きも視野に入れつつ研究計画の立案や見直しを行う必要がある。人にも依るが、自分も含めてこの観点が現在の処分研究に携わる研究者に欠けている点ではないかと認識した。

## 添付資料 1 : 発表 OHP

# A Study on The Effect of Clay Particle Orientation on Diffusion in Compacted Bentonite

## WM'02 Conference

Session 20: Determination of Contaminant Migration

February 26, 2002

Haruo SATO

*Japan Nuclear Cycle  
Development Institute*



WM'02, Feb. 24-28, 2002, AZ, Tucson

## Abstract

The effect of the orientation of clay particles on diffusion in compacted bentonite was discussed on the basis of effective diffusivities  $D_e$  for tritiated water (HTO) and of the results of observations by Scanning Electron Microscope (SEM).

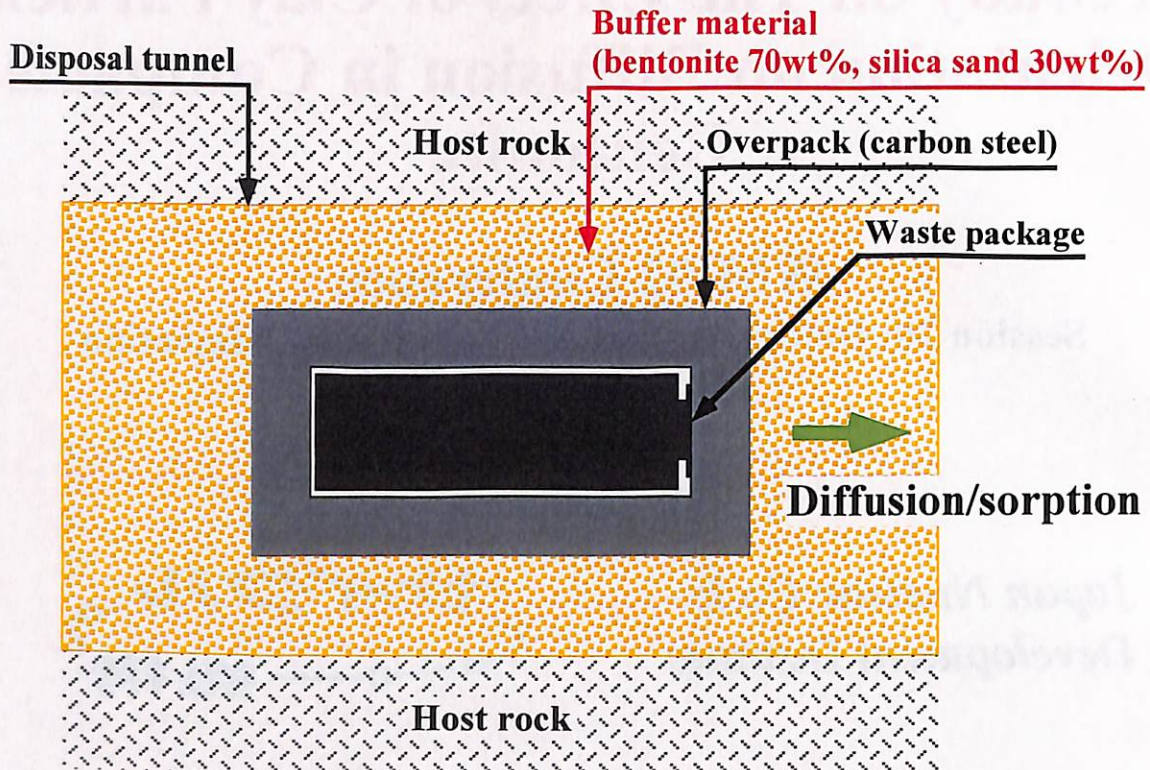
Through-diffusion experiments for HTO were carried out for the same direction as compacted direction of bentonite and for perpendicular direction to compacted direction. SEM observations for the cross section of bentonite in axial and perpendicular directions to compacted direction were carried out. Both experiments were carried out for Kunigel-V1 (smectite content 46-49wt%) and Kunipia-F (smectite content > 99wt%) in order to discuss the effect of smectite content.

Although  $D_e$  values for Kunigel-V1 were approximately the same for both diffusional directions to compacted direction, for Kunipia-F,  $D_e$  values in perpendicular direction to compacted direction were higher than those in the same direction as compacted direction. Also in the SEM observations, no orientation of clay particles was found for Kunigel-V1, while the orientation of clay particles was found for Kunipia-F and was congruent with the results of  $D_e$  values.



# Concept of HLW Geological Disposal in Japan

Design example adopted in H-12 report (tunnel disposal type)



WM'02, Feb. 24-28, 2002, AZ, Tucson

## Introduction –Background and objectives

- Use of a compacted bentonite is considered as an engineered barrier in HLW geological disposal system
  - Since diffusion properties of radionuclides in bentonite directly affect the release rate of radionuclides from the bentonite to natural barrier (geosphere), it is important for safety assessment
  - It is well known from conventional studies that the diffusion of radionuclides in bentonite receives the effects of dry density of bentonite, additives to bentonite (e.g. silica sand), bentonite grain size, etc. which closely concern with micropore structure
  - Since bentonite is composed of smectite aggregates which have a sheet structure as a major component, there is a possibility that the orientation of clay particles takes place in bentonite and affects diffusivity when the bentonite was compacted from a constant direction
- ⇒ To consider the correlations between the orientation properties of clay particles to compacted direction and smectite content
- ⇒ To consider the effect of the orientation of clay particles on diffusion in bentonite



## Method

### ■ SEM observations for compacted bentonite

SEM observations for clay particles from axial and perpendicular directions to compacted direction of bentonite

⇒ **Structure observations for clay particles in compacted bentonite**

- Kunipia-F (smectite content: > 99wt%)
- Kunigel-V1 (smectite content: 46-49wt%)

### ■ Diffusion experiments for HTO

Through-diffusion experiments for HTO in axial and perpendicular direction to compacted direction of bentonite

⇒ **Diffusional direction dependency of  $D_e$  on compacted direction**

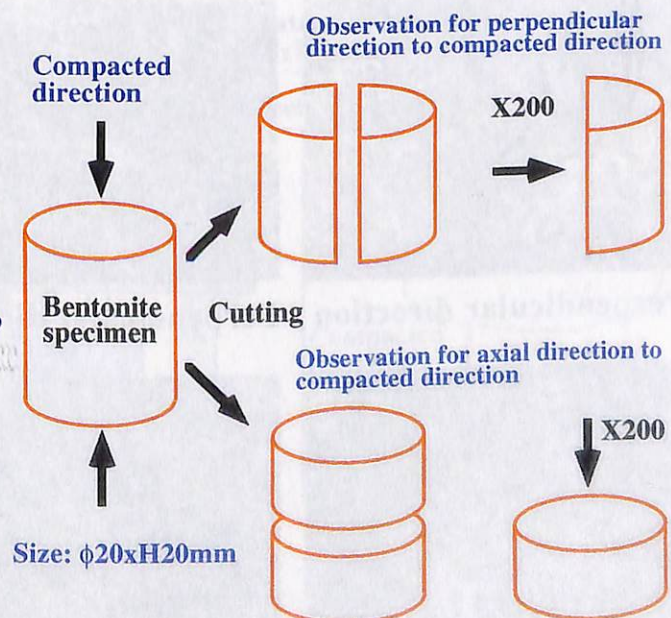
- Kunipia-F (smectite content: > 99wt%)
- Kunigel-V1 (smectite content: 46-49wt%)

WM'02, Feb. 24-28, 2002, AZ, Tucson

## SEM Observations for Compacted Bentonite

### Procedure for sample preparation and observation

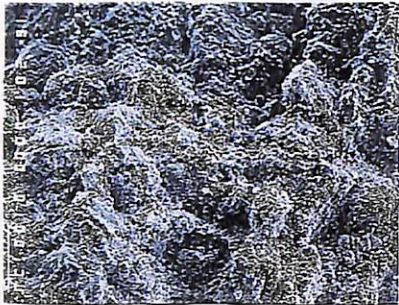
- Filling of bentonite powder dried 24 hours at 50°C into a stainless column to obtain desired densities (**dry density: 1.0, 1.6, 2.0 Mg/m<sup>3</sup>**)
- Saturation of the bentonite with synthetic porewater
- Pushing out of the porewater-saturated bentonite from the column, freezing in liquid nitrogen, and drying in a vacuum chamber
- Cutting of the bentonite in axial and perpendicular directions to compacted direction and Au-evaporating
- SEM observations for both directions (x200)





## Results of SEM Observations for Compacted Bentonite $-\rho_d 1.0 \text{ Mg/m}^3$

Kunigel-V1



Perpendicular direction

Kunipia-F



Perpendicular direction

Kunigel-V1

No significant orientation of clay particles is found for both directions to compacted direction

Kunipia-F

Layers of clay particles orientated in perpendicular direction to compacted direction are found



Axial direction



Axial direction

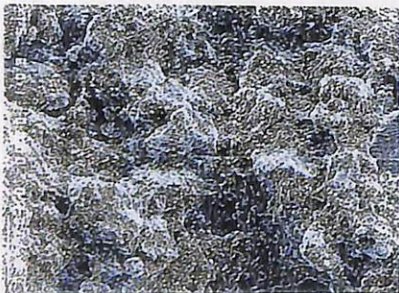
100 $\mu\text{m}$ 

Indicating a possibility that the orientation of clay particles affects diffusion



## Results of SEM Observations for Compacted Bentonite $-\rho_d 1.6 \text{ Mg/m}^3$

Kunigel-V1



Perpendicular direction

Kunipia-F



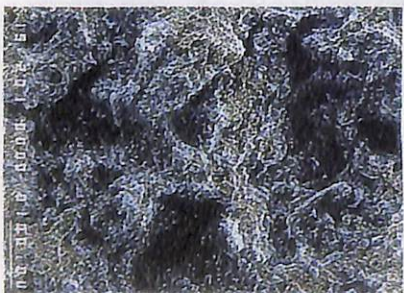
Perpendicular direction

Kunigel-V1

No significant orientation of clay particles is found for both directions to compacted direction

Kunipia-F

Layers of clay particles orientated in perpendicular direction to compacted direction are more clearly found



Axial direction



Axial direction

100 $\mu\text{m}$ 

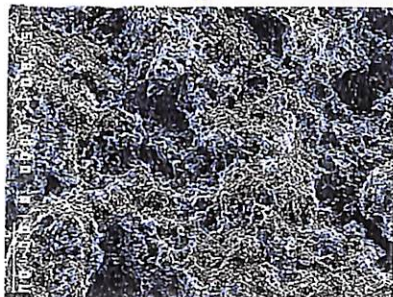
Indicating a possibility that the orientation of clay particles affects diffusion





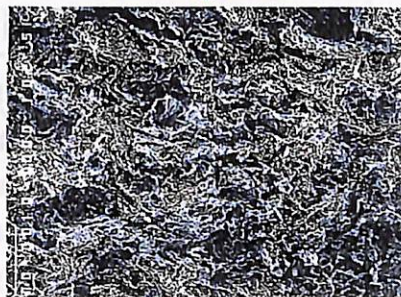
## Results of SEM Observations for Compacted Bentonite $-\rho_d 2.0 \text{ Mg/m}^3$

Kunigel-V1

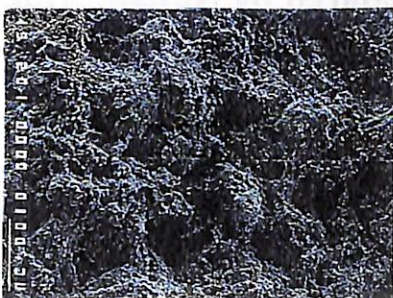


Perpendicular direction

Kunipia-F



Perpendicular direction



Axial direction



Axial direction

### Kunigel-V1

No significant orientation of clay particles is found for both directions to compacted direction

### Kunipia-F

Layers of clay particles orientated in perpendicular direction to compacted direction are more clearly found

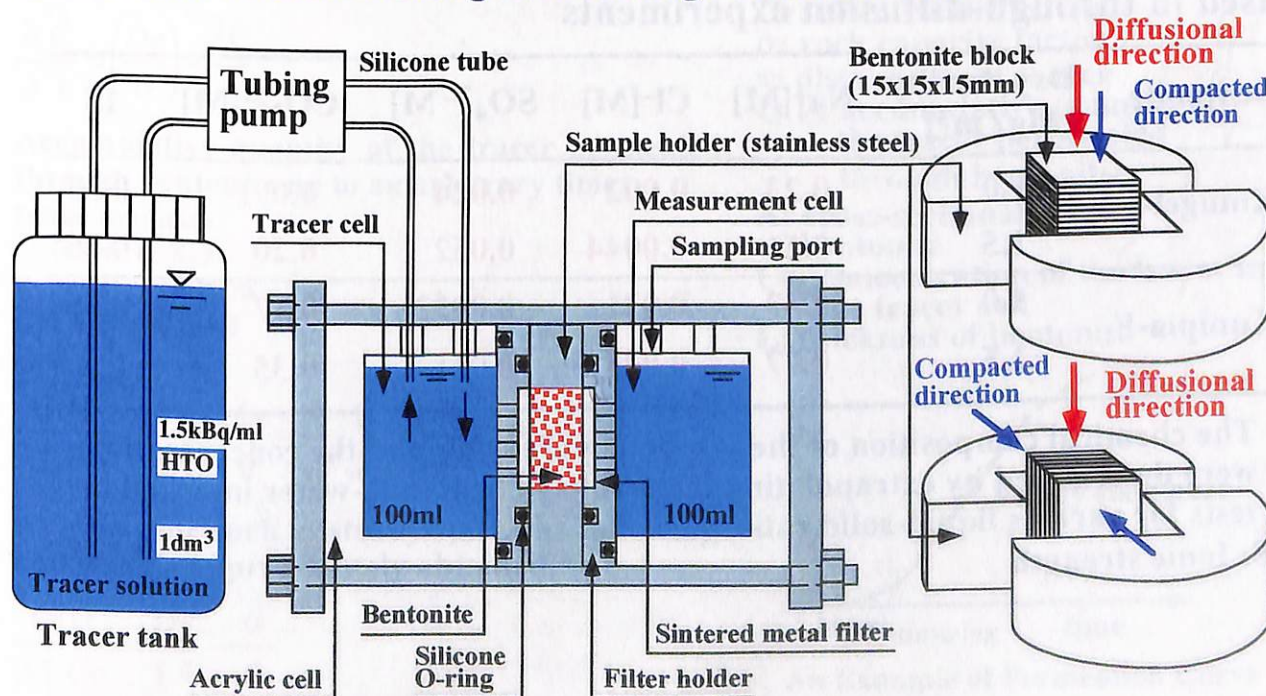


Indicating a possibility that the orientation of clay particles affects diffusion

100 $\mu\text{m}$

## Diffusion Experiments –Through-diffusion experiments for HTO

Diffusional direction changeable through-diffusion cell





## Diffusion Experiments –Experimental conditions

### Experimental conditions for through-diffusion experiments

Item	Condition
Method	Through-diffusion method
Bentonite	Kunigel-V1 (smectite content: 46-49wt%) Kunipia-F (smectite content: > 99wt%)
Dry density of bentonite	1.0, 1.5 Mg/m <sup>3</sup> (size: a cube of 15mm)
Diffusional direction	Axial and perpendicular directions to compacted direction
Saturated solution	Synthetic porewater (prepared by NaCl, Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> , Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> )
Tracer solution	HTO (initial concentration: 1.5 kBq/ml)
Temperature	Room temperature (25°C)
Atmosphere	Under air
Diffusion period	12-36 days
Repeatability	n=2

WM'02, Feb. 24-28, 2002, AZ, Tucson

## Diffusion Experiments –Porewater

### Chemical composition and concentrations of synthetic porewater used in through-diffusion experiments

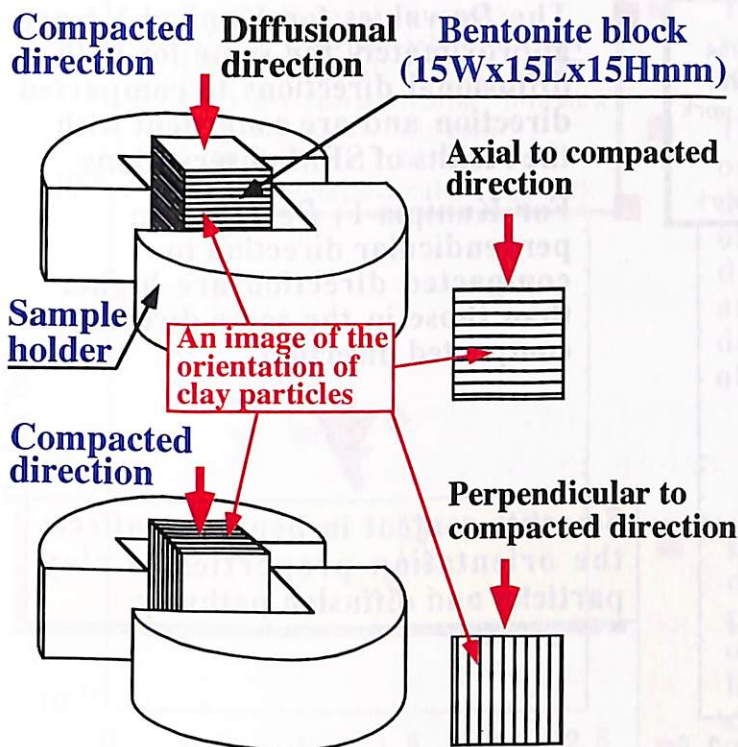
Bentonite	Dry density [Mg/m <sup>3</sup> ]	Na <sup>+</sup> [M]	Cl <sup>-</sup> [M]	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> M]	CO <sub>3</sub> <sup>2-</sup> [M]	IS
Kunigel-V1	1.0	0.23	0.002	0.024	0.091	0.35
	1.5	0.51	0.0044	0.052	0.20	0.76
Kunipia-F	1.0	0.37	0.021	0.0052	0.17	0.55
	1.5	0.77	0.045	0.011	0.35	1.1

\* The chemical composition of the synthetic porewater and the concentrations were determined by extrapolating the results of bentonite-water interaction tests for various liquid-solid ratios.

IS: Ionic strength



## Enlargement of Sample Holder



Bentonite powder dried at 105°C over night is filled into sample holder with a size of 15x15x15mm (cubical block) and is saturated with synthetic porewater for 3 days under atmospheric pressure after being degassed a half hour in a vacuum chamber.

For an experiment for axial direction to compacted direction, both directions for diffusion and compaction are the same. On the other hand, for an experiment for perpendicular direction to compacted direction, since diffusional direction to compacted direction is different, bentonite block is rotated by 90° after being compacted. Then the sample holder with bentonite is set between tracer and measurement cells.

WM'02, Feb. 24-28, 2002, AZ, Tucson

## Calculation of Effective Diffusivity

Diffusion equation for one-dimensional non-steady state:

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \left( \frac{De}{\alpha} \right) \frac{\partial^2 C}{\partial x^2}$$

Accumulative quantity of the tracer permeated through bentonite up to an arbitrary time:

Initial condition

$$C=0, t=0, 0 \leq x \leq L$$

Boundary condition

$$C=C_0 \cdot \alpha, t>0, x=0$$

$$C=0, t>0, x=L$$

$$\frac{Q(t)}{ALC_0} = \frac{De}{L^2} - \frac{\alpha}{6} - \frac{\alpha}{\pi^2} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(-1)^n}{n^2} \exp\left(-\frac{De \cdot n^2 \cdot \pi^2 \cdot t}{L^2 \cdot \alpha}\right)$$

At long time such as steady state, the following equation is approximately obtained.

$$\frac{Q(t)}{ALC_0} = \frac{De}{L^2} - \frac{\alpha}{6}$$

C: concentration in bentonite

t: diffusing time

De: effective diffusivity

$\alpha$ : rock capacity factor

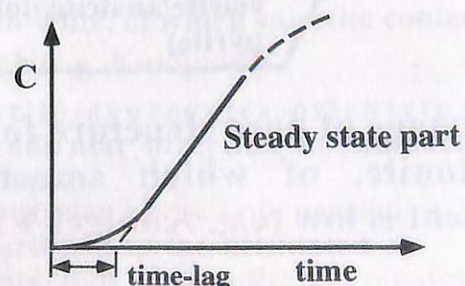
x: distance from source

Q(t): accumulative quantity of the tracer permeated through bentonite

A: cross-sectional area of bentonite

C<sub>0</sub>: concentration of the tracer in the tracer cell

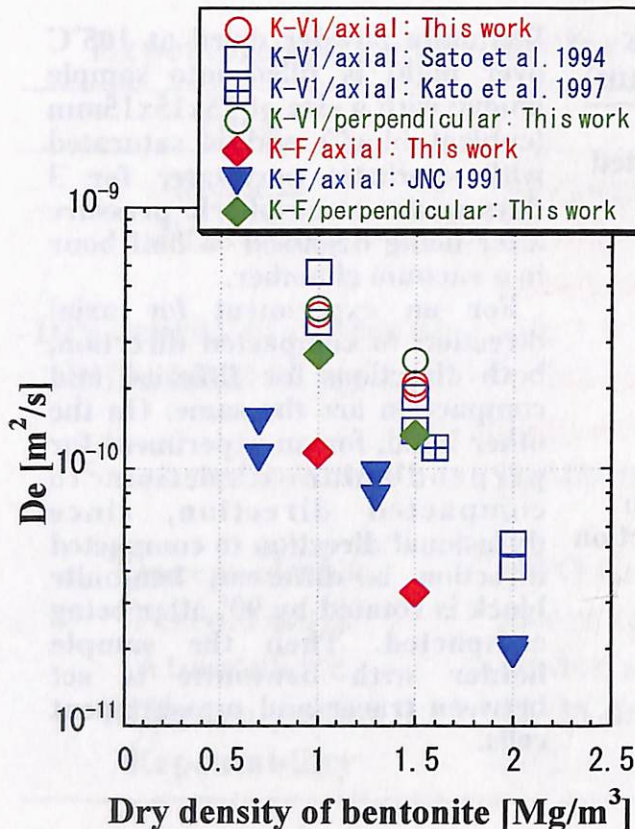
L: thickness of bentonite



An Example of Permeation Curve



## Results – A dry density dependency of $D_e$



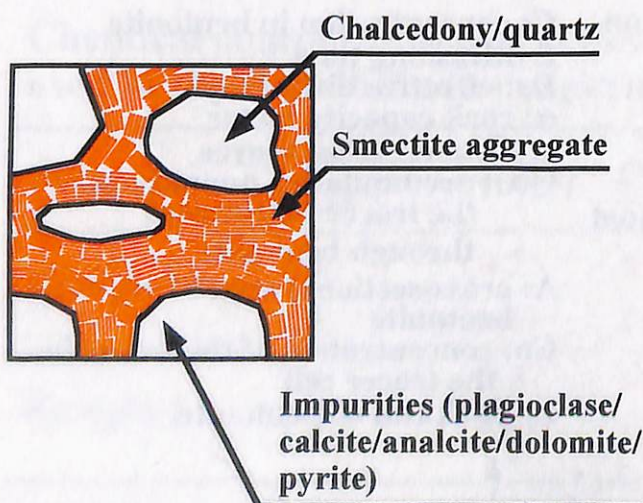
■ The  $D_e$  values for Kunigel-V1 are approximately the same for both diffusional directions to compacted direction and are congruent with the results of SEM observations

■ For Kunipia-F,  $D_e$  values in perpendicular direction to compacted direction are higher than those in the same direction as compacted direction



Smectite content in bentonite affects the orientation properties of clay particles and diffusion pathway

## Calculation of Smectite Partial Density



An image of pore structure for a bentonite, of which smectite content is low (e.g. Kunigel-V1)

The smectite partial density for a bentonite added additives such as silica sand is generally calculated by the following equation

$$\rho_{dm} = \frac{(1-f_s) \cdot f_m \cdot \rho_d}{1 - \left\{ \frac{(1-f_s)(1-f_m)}{\rho_{im}} + \frac{f_s}{\rho_s} \right\} \rho_d}$$

$\rho_{dm}$ : smectite partial density

$\rho_d$ : dry density of bentonite

$\rho_{im}$ : average solid density of impurities

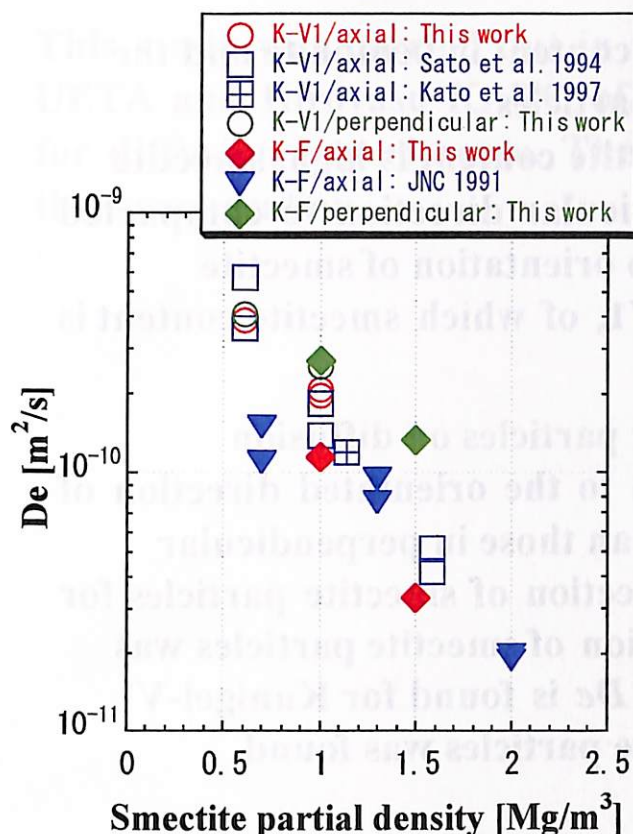
$\rho_s$ : solid density of an additive added to bentonite

$f_m$ : smectite content in bentonite

$f_s$ : content of the additive added to bentonite



## Results – A dependency of $D_e$ on smectite partial density



■ The  $D_e$  values for Kunigel-V1 are wholly higher than those for Kunipia-F

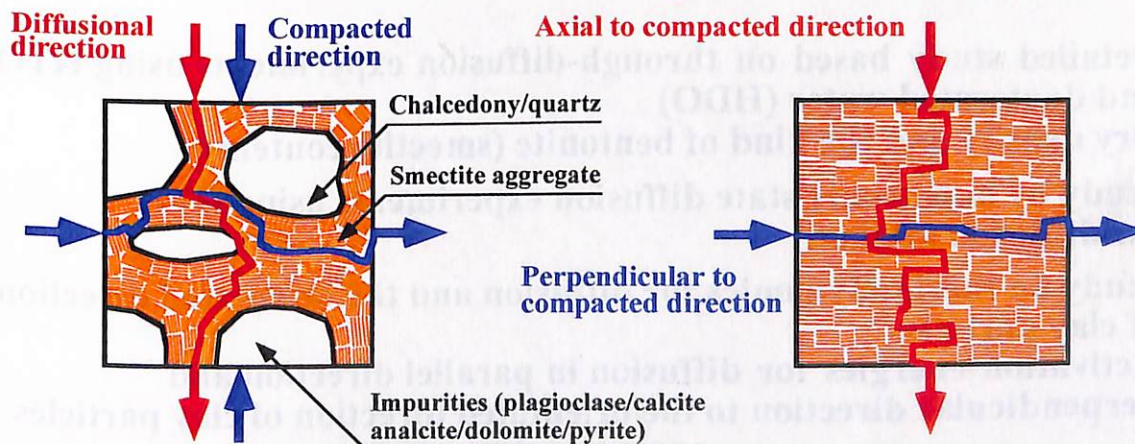
■ The obtained  $D_e$  values are in the order of diffusion in parallel direction to the orientated direction of smectite particles, diffusion in direction orientated at random, and diffusion in perpendicular direction to the orientated direction of smectite particles

■ Diffusion depends on the orientated direction of smectite particles and the effect of orientation is significant for a bentonite, of which smectite content is high

■ The effect of orientation can be ignored for Kunigel-V1

WM'02, Feb. 24-28, 2002, AZ, Tucson

## Effect of the Orientation of Clay Particles on Diffusion



A bentonite, of which smectite content is low (e.g. Kunigel-V1)

Smectite aggregates orientate at random by the mixture of impurities

⇒ Diffusion pathway is the same in any directions

A bentonite, of which smectite content is high (e.g. Kunipia-F)

Smectite aggregates orientate in perpendicular direction to compacted direction

⇒ Diffusion pathway in parallel direction to the orientated direction of smectite aggregates is short, while that in perpendicular direction to the orientated direction of smectite aggregates is long



## Conclusions

- Correlations between smectite content in bentonite and the orientation properties of clay particles
  - ⇒ For Kunipia-F, of which smectite content is high, smectite particles orientate in perpendicular direction to compacted direction of bentonite, while no orientation of smectite particles occurs for Kunigel-V1, of which smectite content is low
- Effect of the orientation of clay particles on diffusion
  - ⇒  $D_e$  values in parallel direction to the orientated direction of smectite particles are higher than those in perpendicular direction to the orientated direction of smectite particles for Kunipia-F, which the orientation of smectite particles was found, while no anisotropy in  $D_e$  is found for Kunigel-V1 which no orientation of smectite particles was found

WM'02, Feb. 24-28, 2002, AZ, Tucson

## Future Work

- Detailed study based on through-diffusion experiments using HTO and deuterated water (HDO)
  - Dry density and the kind of bentonite (smectite content)
- Study by non-steady state diffusion experiments using HTO (in-diffusion method)
- Study on thermodynamics for diffusion and the orientated direction of clay particles
  - Activation energies for diffusion in parallel direction and perpendicular direction to the orientated direction of clay particles
- Correlation between porewater chemistry and micropore structure and discussion on thermodynamics for the effects of porewater chemistry and micropore structure on diffusion
  - Ionic strength and basal space
  - Correlation between ionic strength and activation energies for diffusion in parallel direction and perpendicular direction to the orientated direction of clay particles
- Study on the effects described above for sorbing nuclides and anions



## **Acknowledgments**

**This study was carried out in cooperation with Messrs. Shinzo UETA and Hiroyasu KATO of Mitsubishi Materials Corporation for diffusion experiments. The author would like to thank for their cooperation.**

## 添付資料 2 : 提出論文

WM'02 Conference, February 24-28, 2002, Tucson, AZ

## A STUDY ON THE EFFECT OF CLAY PARTICLE ORIENTATION ON DIFFUSION IN COMPACTED BENTONITE

H. Sato

Japan Nuclear Cycle Development Institute

4-33 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1194, Japan

### ABSTRACT

In this study, the effect of the orientation of clay particles on diffusion in compacted bentonite, which is regarded to be quite important as a candidate buffer material in safety assessment for a geological disposal of high-level radioactive waste, was experimentally discussed by investigating effective diffusion coefficients ( $De$ ) for tritiated water (HTO), which is non-sorptive onto bentonite. The diffusion experiments were carried out for 2 kinds of smectite contents of Na-bentonites, Kunigel-V1® (content of Na-smectite, 46-49wt%) and Kunipia-F® (content of Na-smectite, > 99wt%) at dry densities of 1.0 and 1.5 Mg/m<sup>3</sup> by a through-diffusion method. The through-diffusion experiments were carried out for the same direction as compacted direction of bentonite and perpendicular direction to compacted direction. Scanning electron microscopic (SEM) observations for the cross section of bentonite in the axial and perpendicular directions to compacted direction of bentonite were also carried out at dry densities of 1.0, 1.6, and 2.0 Mg/m<sup>3</sup>. Although  $De$  values for Kunigel-V1® were approximately the same for both diffusion directions to compacted direction over the densities, and no anisotropy in  $De$  was found,  $De$  values in the perpendicular direction to compacted direction for Kunipia-F® were clearly higher than those in the same direction as compacted direction. In the SEM observations, no significant orientation of clay particles was found for Kunigel-V1® over the densities, while the orientation of clay particles was clearly found for Kunipia-F®, and the degree of the orientation of clay particles became significant with an increase in dry density of bentonite. This tendency is in good agreement with that for  $De$  values obtained, indicating that smectite content in bentonite affects the orientation property of clay particles, and that the orientated clay particles affect diffusion pathway.

### INTRODUCTION

In safety assessment of a geological disposal of high-level radioactive waste in Japan, a role as a barrier function of buffer material (bentonite), which composes the multibarrier system of the geological disposal, is quite important, and a lot of studies have been therefore carried out up to the present (e.g. 1). Particularly, since diffusion property of radionuclides in compacted bentonite directly affects the release rate of radionuclides from the bentonite to the geosphere, it is regarded as one of the important parameters in the safety assessment. It is well known from conventional studies that the diffusion of radionuclides in bentonite receives the effects of various pore structural properties or parameters, such as porosity, dry density of bentonite, tortuosity, additives to bentonite (e.g. silica sand), initial bentonite grain size, etc. Since a Na-bentonite, one of the candidate buffer materials, constitutes stacks of smectite flakes, there is a possibility that the orientation of clay particles takes place in bentonite when the bentonite

WM'02 Conference, February 24-28, 2002, Tucson, AZ

was compacted, and that the orientated clay particles affect diffusion pathway. The author has preliminarily discussed for the effects of pore structural properties or pore structural factors such as dry density, diffusion direction to compacted direction of bentonite, mixture of silica sand to bentonite, and initial bentonite grain size on diffusion in compacted bentonite in previous studies (2, 3). Moreover, a study on modeling of micropore structure for compacted bentonite has been carried out, and a model of micropore structure considered the orientation of clay particles has been proposed (4). However, neither the orientation property of clay particles in compacted bentonite nor the effect of the orientation property on diffusion has been quantitatively discussed.

In this work, the effect of the orientation of clay particles on diffusion in compacted bentonite is discussed by scanning electron microscopic (SEM) observations and effective diffusion coefficients ( $D_e$ ) for tritiated water (HTO), which is non-sorptive onto bentonite.

## EXPERIMENTAL

### Diffusion Experiments

The diffusion experiments were carried out by a through-diffusion method (5). Table I shows the experimental conditions for the through-diffusion experiments. The diffusion experiments were carried out for 2 kinds of smectite contents of Na-bentonites, Kunigel-V1® (content of Na-smectite, 46-49wt%) and Kunipia-F® (content of Na-smectite, > 99wt%) at dry densities of 1.0 and 1.5 Mg/m<sup>3</sup>. Both bentonites were obtained from the Kunimine Industries Co. Ltd, Japan. The bentonites were taken from the Tsukinuno mine, Yamagata-ken, Japan. Kunigel-V1® is a crude bentonite, and chalcedony, quartz, plagioclase, calcite, dolomite, analcite, and pyrite are contained as impurities. While Kunipia-F® is a purified bentonite, and no impurity is contained. The detailed mineralogy for these bentonites is described in the literatures of Ito et al. (6, 7).

Figure 1 shows a sectional view of a diffusion cell for a through-diffusion experiment and the enlargement of the sample holder. The diffusion cell consists of a tracer cell, a measurement cell, and a sample holder as shown in Figure 1. The through-diffusion experiments using HTO as a tracer were carried out for the same direction as compacted direction of bentonite and perpendicular direction to compacted direction. Bentonite is filled into the sample holder. At both sides of the sample holder, sintered metal filters sandwich the bentonite to prevent the swelling of the bentonite, and furthermore filter holders sustain the sintered metal filters from outside. The tracer cell is additionally connected with a tracer tank to keep the concentration of HTO in the tracer cell constant, and the solution is circulated by a tubing pump if necessarily. The diffusion experiments were carried out according to the following procedure.

The bentonite was firstly dried at 105°C overnight, and was filled into the sample holder with a cubical space of 15mm. The diffusion experiments in the axial direction to compacted direction were carried out as the compacted bentonite blocks were, while the experiments in the perpendicular direction to compacted direction were performed after the compacted bentonite blocks were rotated by 90° in angle. The bentonite in the sample holder was then saturated with synthetic porewater for 3 days under atmospheric pressure after being degassed a half hour in a vacuum chamber.

WM'02 Conference, February 24-28, 2002, Tucson, AZ

Table I. Experimental Conditions for Diffusion Experiments

Item	Condition
Method	Through-diffusion method
Bentonite	Kunigel-V1® (content of Na-smectite: 46–49wt%) Kunipia-F® (content of Na-smectite: > 99wt%)
Dry density of bentonite	1.0, 1.5 Mg/m <sup>3</sup> (sample size: L15mmxW15mmxH15mm)
Diffusion direction	Axial direction to compacted direction Perpendicular direction to compacted direction
Saturated solution	Synthetic porewater (prepared by NaCl, Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> , Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> ) <sup>a</sup>
Tracer solution	Tritiated water (initial concentration: 1.5 kBq/ml)
Temperature	Room temperature (25°C)
Atmosphere	Under air
Diffusing period	12–36 days
Producibility	n=2

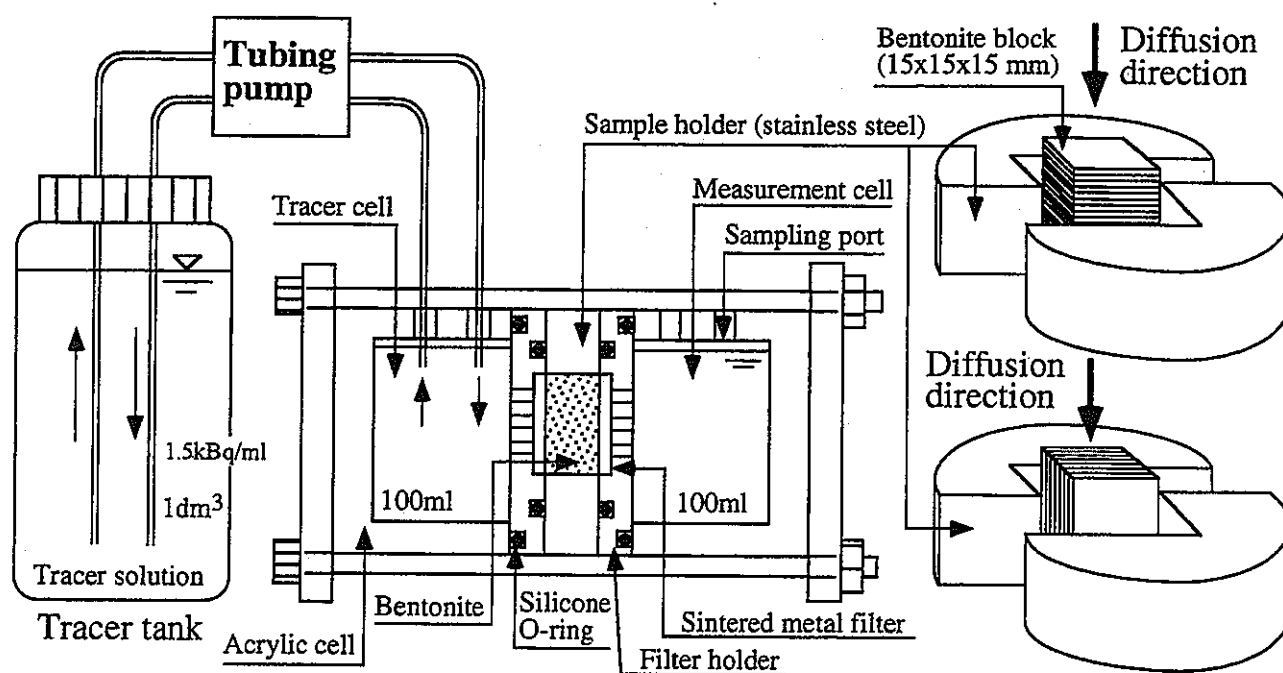
<sup>a</sup> See Table II for the chemical composition of the synthetic porewater.

Fig. 1. Sectional view of a diffusion cell and the enlargement of the sample holder.



WM'02 Conference, February 24-28, 2002, Tucson, AZ

Table II shows the chemical composition of the synthetic porewater. The synthetic porewater was prepared by NaCl, Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, and Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>. The concentration and the chemical composition of the porewater were determined based on the results of bentonite-water reaction tests for various liquid-solid ratios. After the saturation of the bentonite, the synthetic porewater in the tracer cell was exchanged with that loaded HTO to obtain 1.5 kBq/ml.

Table II. Chemical Composition of Synthetic Porewater

Bentonite	Dry density [Mg/m <sup>3</sup> ]	Concentration [M] <sup>a</sup>				
		Na <sup>+</sup>	Cl <sup>-</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	CO <sub>3</sub> <sup>2-</sup>	I. S. <sup>b</sup>
Kunigel-V1	1.0	0.23	0.002	0.024	0.091	0.35
	1.5	0.51	0.0044	0.052	0.20	0.76
Kunipia-F	1.0	0.37	0.021	0.0052	0.17	0.55
	1.5	0.77	0.045	0.011	0.35	1.1

<sup>a</sup> The concentration of each ion was determined by extrapolating the results of bentonite-water reaction tests for various liquid-solid ratios.

<sup>b</sup> I. S.: Ionic strength.

Samples, 0.5ml, were periodically taken from the measurement cell. To minimize the effect of the decrease in the volume of the porewater by sampling, when total volume of the porewater decreased up to 95ml, the porewater in the measurement cell was exchanged with synthetic porewater, in which no tracer is contained.

Through-diffusion experiments of HTO for sintered metal filters were also carried out in order to correct concentration gradients in the filters when *De* values are calculated. The concentration of HTO was analyzed for 20 minutes with a liquid scintillation counter. The accumulative quantity of HTO permeated through bentonite specimen from the tracer cell to the measurement cell was obtained with time based on analyzed data. The accumulative quantity is calculated from the following generalized equation.

$$Q_n = C_n \{V - (n-1)v\} + \sum_{i=1}^{n-1} (C_i \cdot v) \quad (n = 1, 2, 3, 4, \dots) \quad (\text{Eq.1})$$

Where  $Q_n$  is the accumulative quantity of the tracer permeated through bentonite specimen up to the *n*-th sampling (cpm),  $C_n$  is the analyzed concentration in the *n*-th sample (cpm/ml),  $V$  is the solution volume in the measurement cell (ml), and  $v$  is the sampling volume (ml).

At the end of each diffusion experiment, bentonite block in the sample holder was pushed out, and cut with a knife into 1mm pitched slices. Each slice was immediately weighed to accurately obtain the thickness of slice. The slices were immersed in a 2ml HCl solution with a concentration of 0.1M overnight to extract HTO from the slices. Furthermore, a 18ml liquid scintillator was added to individual slices in addition to HCl. The concentrations

WM'02 Conference, February 24-28, 2002, Tucson, AZ

of HTO were then analyzed, and the concentration profiles in the bentonite were determined based on the analyzed data.

### Scanning Electron Microscopic (SEM) Observations for the Cross Section of Compacted Bentonite

Scanning electron microscopic (SEM) observations for the cross section of bentonite in the axial and perpendicular directions to compacted directions were carried out at dry densities of 1.0, 1.6, and 2.0 Mg/m<sup>3</sup> in order to observe the orientation property of clay particles in compacted state. The SEM observations were carried out for both Kunigel-V1® and Kunipia-F® bentonites in order to evaluate the effect of smectite content in bentonite. Figure 2 shows the procedure of the SEM observations. The SEM observations were carried out in the following procedure.

The bentonite was firstly dried at 50°C for 24 hours, and was filled into a stainless column with a cylindrical space of 20mm in diameter and 20mm in thickness. Each bentonite in the column was then saturated with synthetic porewater, of which chemical composition and concentration are the same as that used in diffusion experiments, and was frozen in liquid nitrogen after being pushed out of the column. Each bentonite sample was then dried in a vacuum chamber, and was cut in the axial and perpendicular directions to compacted direction. The SEM observations were carried out for both directions with a magnification of 200 times after being Au-evaporated.

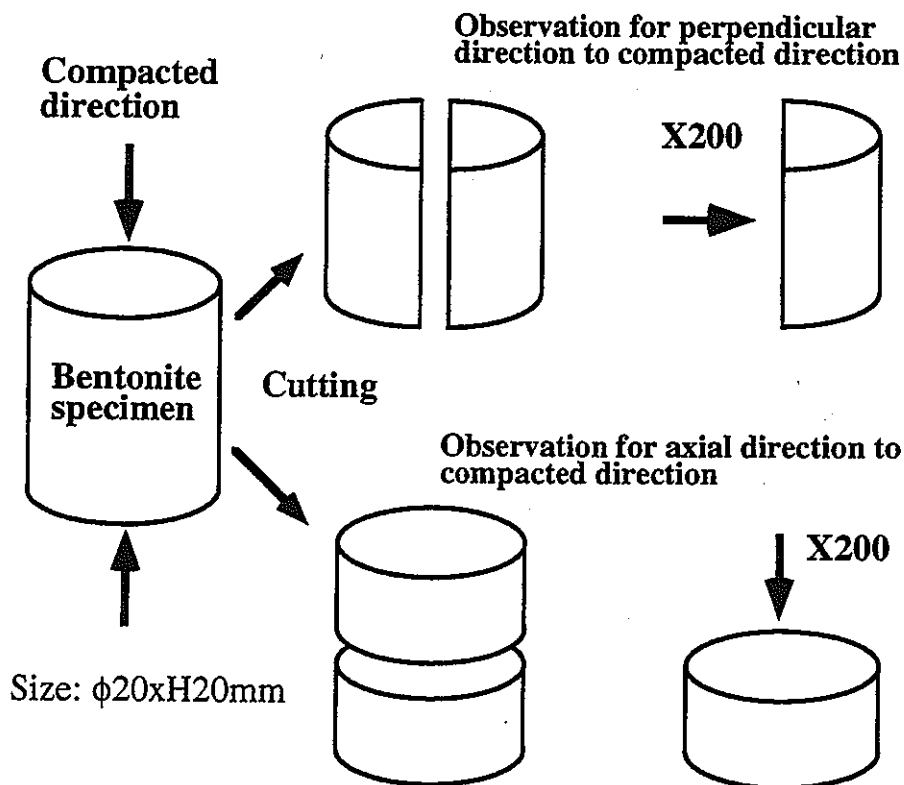


Fig. 2. Procedure of SEM observations for compacted bentonite.

WM'02 Conference, February 24-28, 2002, Tucson, AZ

## DIFFUSION THEORY

The calculations of  $De$  values were based on Fickian law (8). The diffusion equation for one-dimensional non-steady state is generally expressed by the following equation (9).

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \left( \frac{De}{\alpha} \right) \frac{\partial^2 C}{\partial X^2} \quad (\text{Eq.2})$$

Where  $C$  is the concentration of the tracer in the bentonite (cpm/m<sup>3</sup>),  $t$  is the diffusing time (s),  $De$  is the effective diffusion coefficient (m<sup>2</sup>/s),  $\alpha$  is the rock capacity factor ( $= \phi + \rho_d \cdot K_d$ ),  $\phi$  is the porosity of the compacted bentonite,  $\rho_d$  is the dry bulk density of the compacted bentonite (Mg/m<sup>3</sup>),  $K_d$  is the distribution coefficient (m<sup>3</sup>/Mg), and  $X$  is the distance from the tracer source (m).

The  $De/\alpha$  is equal to the apparent diffusion coefficient ( $Da$ ). The accumulative quantity of the tracer permeated through bentonite specimen up to arbitrary time for Eq.(2), based on initial and boundary conditions, is written as follows.

Initial condition

$$C(t, X) = 0, t = 0, 0 \leq X \leq L$$

Boundary condition

$$C(t, X) = C_0 \cdot \alpha, t > 0, x = 0$$

$$C(t, X) = 0, t > 0, X = L$$

$$\frac{Q(t)}{ALC_0} = \frac{De}{L} t - \frac{\alpha}{6} - \frac{2\alpha}{\pi^2} \sum_{n=1}^{\infty} \left\{ \frac{(-1)^n}{n^2} \exp\left(-\frac{De n^2 \pi^2 t}{L^2 \alpha}\right) \right\} \quad (\text{Eq.3})$$

Where  $Q(t)$  is the accumulative quantity of the tracer permeated through bentonite specimen (cpm),  $A$  is the cross-sectional area of the bentonite sample (m<sup>2</sup>),  $L$  is the thickness of the bentonite sample (m), and  $C_0$  is the concentration of the tracer in the tracer cell (cpm/m<sup>3</sup>).

At long time such as steady state, the exponentials in Eq.(3) fall away to zero. Therefore, Eq.(3) is approximately written by the following equation for steady state.

$$\frac{Q(t)}{ALC_0} = \frac{De}{L} t - \frac{\alpha}{6} \quad (\text{Eq.4})$$

The  $De$  is calculated from the slope in the change of  $Q(t)$  with time in steady state based on Eq.(4). If surface diffusion does not occur,  $De$  is expressed by the following geometric parameters (9, 10).

$$De = \phi \left( \frac{\delta}{\tau^2} \right) D_0 = \phi G D_0 = FF D_0 \quad (\text{Eq.5})$$

Where  $\delta$  is the constrictivity,  $\tau^2$  is the tortuosity,  $D_0$  is the diffusion coefficient in free water (m<sup>2</sup>/s),  $G$  is the geometric factor (or is also called the tortuosity factor), and  $FF$  is the formation factor.

It is familiar that  $D_0$  depends on species in solution. The  $D_0$  values for ions are

WM'02 Conference, February 24-28, 2002, Tucson, AZ

calculated by the Nernst expression as shown below (11).

$$D_o = \frac{RT\lambda}{F^2|Z|} \quad (\text{Eq.6})$$

Where  $R$  is the gas constant (8.314 J/mol/K),  $T$  is the absolute temperature (K),  $\lambda$  is the limiting ionic equivalent conductivity ( $\text{m}^2\cdot\text{S}/\text{mol}$ ),  $F$  is the Faraday constant (96,493 C/mol), and  $|Z|$  is the absolute value of the ionic charge.

Tritiated water, part of water molecule was exchanged with  $^3\text{H}$ , can be regarded as a neutral species. Therefore, although  $D_o$  for HTO can not be obtained by electrochemical measurement,  $D_o$  directly measured by a diffusion experiment using tracer is reported. In this case, since water diffuses in the water,  $D_o$  is called a self-diffusion coefficient, and is reported to be  $2.28\text{E-}9 \text{ m}^2/\text{s}$  ( $25^\circ\text{C}$ ) for HTO (12).

The concentration gradient of tracer in the filter, which was used to prevent the swelling of bentonite, is also included in  $De$  calculated based on Eq.(4), and must be corrected to calculate true  $De$  in bentonite. This correction is made using the following equation for (13).

$$De = \frac{L}{\left(\frac{L+2L_f}{De_t}\right) - \left(\frac{2L_f}{De_f}\right)} \quad (\text{Eq.7})$$

Where  $De_t$  is the effective diffusion coefficient including the concentration gradient of the tracer in the filter before correction ( $\text{m}^2/\text{s}$ ),  $De_f$  is the effective diffusion coefficient in the filter ( $\text{m}^2/\text{s}$ ), and  $L_f$  is the thickness of the filter (m) (1mm in this study).

The detailed derivation process for the correction of  $De$  is described in (14).

## RESULTS AND DISCUSSION

### Effect of Diffusion Direction to Compacted Direction on $De$ and SEM Observations

The concentrations of HTO in the measurement cell as a function of time showed non-linear curves in transient state, and increased in a straight line as a function of time in steady state. The concentration profiles of HTO in bentonite approximately linearly decreased from the tracer cell side to the measurement cell side in all cases. This indicates that the diffusion reached steady state in all cases.

Figure 3 shows  $De$  values of HTO in the axial and perpendicular directions to compacted direction as a function of dry bulk density of bentonite obtained in this study together with  $De$  data of HTO reported to date (15-17). And Table III shows a summary of  $De$  values of HTO obtained in this study together with  $De_f$  values used for correction. All  $De$  data reported up to the present were obtained for axial direction to compacted direction, and are approximately the same as  $De$  values obtained for diffusion in the axial direction to compacted direction in this work. The  $De$  values obtained decreased with increasing dry bulk density of bentonite, showing similar tendency to data reported to date (15-17). The  $De$  values for Kunigel-V1® were approximately the same for both diffusion directions to compacted direction over the densities, and no anisotropy in  $De$  was found, while  $De$  values in the



WM'02 Conference, February 24-28, 2002, Tucson, AZ

perpendicular direction to compacted direction for Kunipia-F® were clearly higher than those in the same direction as compacted direction, being approximately 4 times greater at a dry density of 1.5 Mg/m<sup>3</sup>. The  $De$  values for Kunigel-V1® were moreover higher than those for Kunipia-F® on the whole at the same dry density. This is considered to attribute to the difference of smectite partial density (18) caused by the difference of smectite content between both bentonites. The effect of the smectite partial density on diffusion is discussed later. Since the smectite content of Kunipia-F® bentonite is approximately 100wt%, there is a possibility that smectite particles in bentonite orientated in a constant direction by being compacted from one way.

Table III. Summary of  $De$  Values of HTO in Compacted Bentonite Obtained in This Study

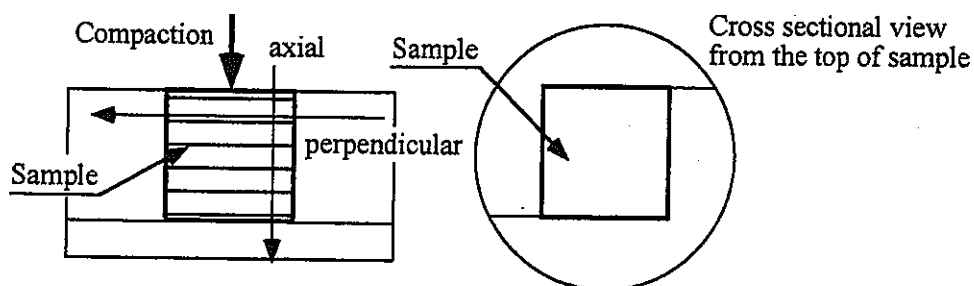
Bentonite	Dry density [Mg/m <sup>3</sup> ]	Diffusion direction	Effective diffusion coefficient [m <sup>2</sup> /s]	
			$De_f^a$	$De^b$
Kunigel-V1	1.0	Axial	2.7E-10	3.9E-10
		Perpendicular	2.8E-10	4.1E-10
	1.5	Axial	2.1E-10	2.1E-10
			2.1E-10	2.0E-10
		Perpendicular	2.7E-10	2.6E-10
Kunipia-F	1.0	Axial	3.0E-10	1.2E-10
		Perpendicular	3.1E-10	2.7E-10
	1.5	Axial	3.0E-10	3.3E-11
		Perpendicular	2.5E-10	1.3E-10

<sup>a</sup>  $De_f$ : effective diffusion coefficient in the filter.

<sup>b</sup>  $De$ : effective diffusion coefficient in bentonite.

Axial : diffusion for the same direction as compacted direction (see below figure).

Perpendicular : diffusion for perpendicular direction to compacted direction (see below figure).



WM'02 Conference, February 24-28, 2002, Tucson, AZ

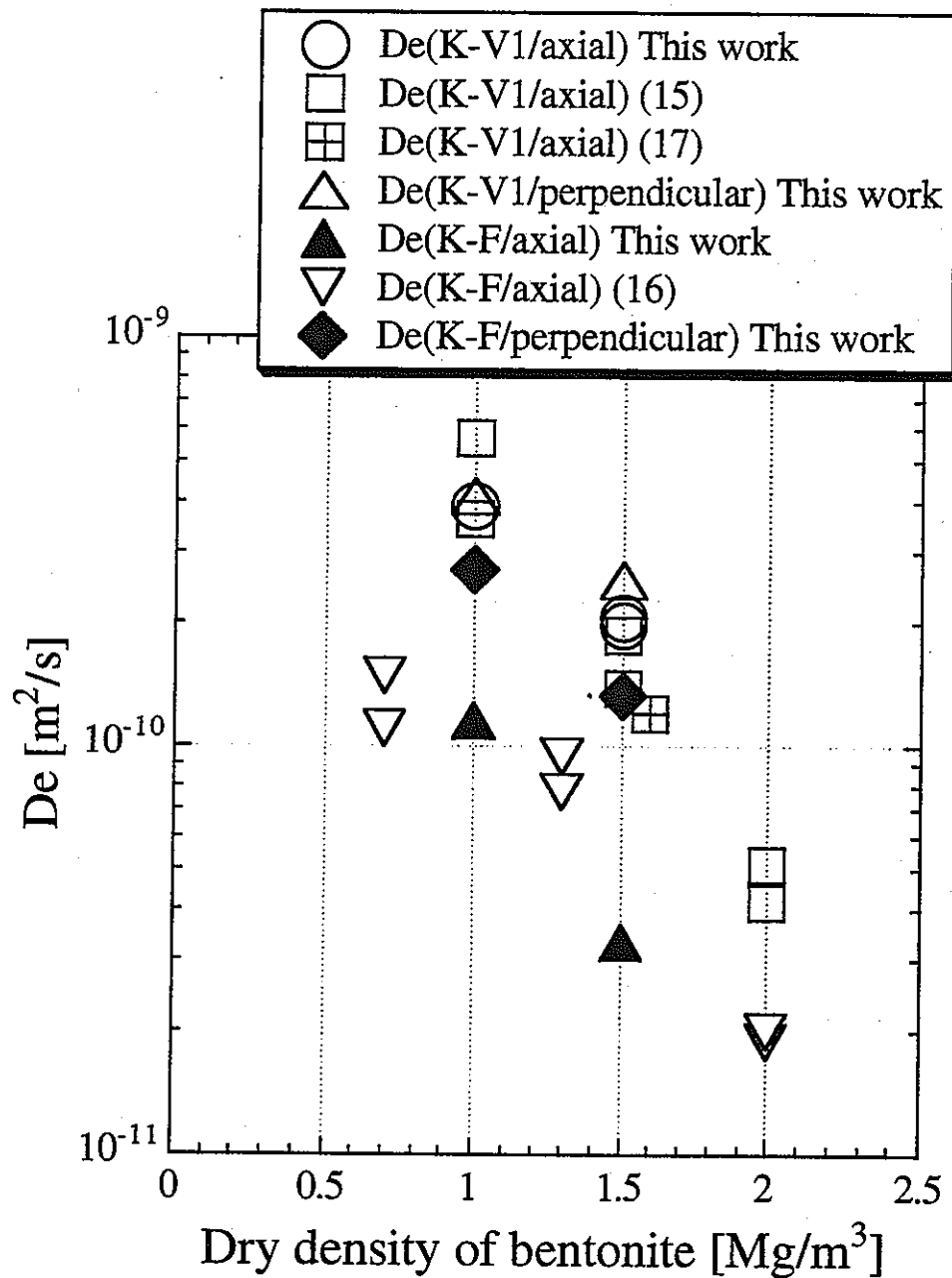


Fig. 3.  $De$  values of HTO for axial and perpendicular directions to compacted direction as a function of dry bulk density of bentonite.

K-V1:Kunigel-V1®, K-F: Kunipia-F®

Axial : diffusion in the axial direction to compacted direction

Perpendicular : diffusion in the perpendicular direction to compacted direction



WM'02 Conference, February 24-28, 2002, Tucson, AZ

The difference in micropore structure between Kunigel-V1® and Kunipia-F® was found also in the results of SEM observations. No significant orientation of clay particles was found for Kunigel-V1®, and it was observed that clay particles orientated at random in compacted bentonite. On the other hand, the orientation of clay particles was found for Kunipia-F®, layers of clay particles orientated in the perpendicular direction to compacted direction were observed in the SEM observations, and the degree of the orientation of clay particles became significant with an increase in smectite content in bentonite and dry bulk density of bentonite. Namely, clay particles showed a tendency to orientate in the perpendicular direction to compacted direction of bentonite for Kunipia-F®. This tendency is in good agreement with that for  $De$  values obtained, indicating that smectite content in bentonite affects the orientation property of clay particles, and that the orientated clay particles affect diffusion pathway such as tortuosity.

### Correlation between $De$ Values and Smectite Partial Density

The  $De$  values of HTO for Kunigel-V1®, in which smectite content is about 50wt%, were on the whole higher than those for Kunipia-F®, in which smectite content is approximately 100wt%. Smectite, major clay mineral of bentonite, is considered to compensate spaces between impurities in bentonite. In this case, it is presumed that radionuclides predominantly diffuse in smectite compensating the spaces between the impurities. It is well known also from many literatures reported to date that the diffusivities of radionuclides in smectite depend on the dry bulk density (e.g. 1).

Here the author has considered a density focused on only smectite aggregates, so called the "smectite partial density" (18). This parameter is equivalent to the "montmorillonite density" reported by Kuroda et al. (19). The smectite partial density defined here is more generalized than that proposed by Kuroda et al., and can be applied for all kinds of bentonites. The smectite partial density for a bentonite added additives such as silica sand is generally calculated by the following equation (18, 20).

$$\rho_{dm} = \frac{(1 - fa) fm \cdot \rho_d}{1 - \left[ \frac{(1 - fa)(1 - fm)}{\frac{1}{n} \sum_{k=1}^n \rho_{imk}} + \frac{fa}{\rho_a} \right] \rho_d} \quad (\text{Eq.8})$$

Where  $\rho_{dm}$  is the smectite partial density ( $\text{Mg/m}^3$ ),  $\rho_{imk}$  is the solid density of the  $k$ -th impurity ( $\text{Mg/m}^3$ ),  $\rho_a$  is the solid density of the additive added to bentonite ( $\text{Mg/m}^3$ ),  $n$  is the number of the kind of impurity contained in bentonite,  $fa$  is the content of the additive added to bentonite (= additive weight / (additive + bentonite weight)) ( $\text{Mg/Mg}$ ), and  $fm$  is the smectite content in bentonite (= smectite weight / (smectite + impurities weight)) ( $\text{Mg/Mg}$ ).

The detailed derivation process of Eq.8 is described in the literature of (18). With respect to the calculations of  $\rho_{dm}$ , a density of  $2.7 \text{ Mg/m}^3$  was used as the average pure density (solid density) of the impurities. Moreover,  $fm$  for Kunigel-V1® was assumed as 0.5 in the calculations of  $\rho_{dm}$ .

Figure 4 shows a dependency of  $De$  values for HTO on  $\rho_{dm}$ . Data converted from  $Da$

WM'02 Conference, February 24-28, 2002, Tucson, AZ

values (1, 15, 16, 21, 22) for HTO to  $De$  values are also simultaneously shown in Figure 4. Since HTO is non-sorptive onto bentonite (1),  $Da$  for HTO can be regarded as diffusion coefficient in porewater ( $Dp$ ), and the relation with  $De$  is given by the following equation.

$$De = \phi \cdot Dp = \left(1 - \frac{\rho_d}{\rho_{th}}\right) Dp \quad (\text{Eq.9})$$

Where  $Dp$  is the diffusion coefficient in porewater ( $\text{m}^2/\text{s}$ ), and  $\rho_{th}$  is the solid density of bentonite ( $\text{Mg}/\text{m}^3$ ).

The porosity of compacted bentonite ( $\phi$ ) was calculated assuming  $2.7 \text{ Mg}/\text{m}^3$  (23) as an average solid density of bentonite. Although some variations in  $De$  values are found,  $De$  values for HTO are well correlative with  $\rho_{dm}$ , even though kind of bentonite is different. As is clear also from Figure 4,  $De$  values of HTO for Kunigel-V1® are wholly higher than those for Kunipia-F®. And  $De$  values in the perpendicular direction to compacted direction for Kunipia-F® are higher than the other data. Particularly, significant difference in  $De$  is found at high dry bulk density ( $1.5 \text{ Mg}/\text{m}^3$ ). This is considered to be due to that clay particles orientated in the perpendicular direction to compacted direction for a bentonite, of which smectite content is high such as Kunipia-F®.



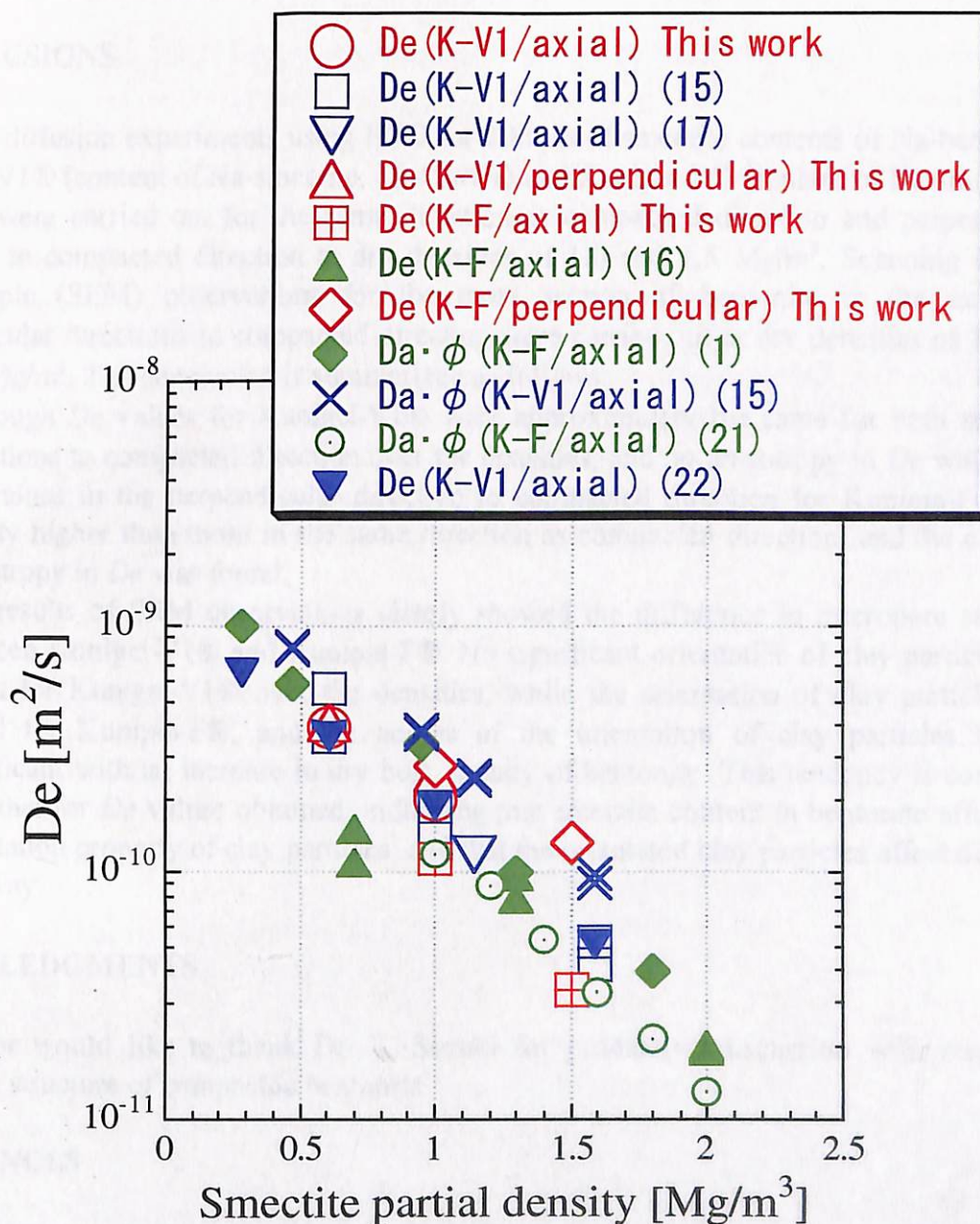


Fig. 4.  $De$  values for HTO as a function of smectite partial density.

K-V1: Kunigel-V1®, Kunipia-F®

Axia : diffusion in the axial direction to compacted direction

Perpendicular : diffusion in the perpendicular direction to compacted direction

WM'02 Conference, February 24-28, 2002, Tucson, AZ

## CONCLUSIONS

Through-diffusion experiments using HTO for 2 kinds of smectite contents of Na-bentonites, Kunigel-V1® (content of Na-smectite, 46-49wt%) and Kunipia-F® (content of Na-smectite, > 99wt%) were carried out for the same direction as compacted direction and perpendicular direction to compacted direction at dry densities of 1.0 and 1.5 Mg/m<sup>3</sup>. Scanning electron microscopic (SEM) observations for the cross section of bentonite in the axial and perpendicular directions to compacted direction were carried out at dry densities of 1.0, 1.6, and 2.0 Mg/m<sup>3</sup>. The conclusion is summarized as follows.

- (1) Although *De* values for Kunigel-V1® were approximately the same for both diffusion directions to compacted direction over the densities, and no anisotropy in *De* was found, *De* values in the perpendicular direction to compacted direction for Kunipia-F® were clearly higher than those in the same direction as compacted direction, and the effect of anisotropy in *De* was found.
- (2) The results of SEM observations clearly showed the difference in micropore structure between Kunigel-V1® and Kunipia-F®. No significant orientation of clay particles was found for Kunigel-V1® over the densities, while the orientation of clay particles was found for Kunipia-F®, and the degree of the orientation of clay particles became significant with an increase in dry bulk density of bentonite. This tendency is consistent with that for *De* values obtained, indicating that smectite content in bentonite affects the orientation property of clay particles, and that the orientated clay particles affect diffusion pathway.

## ACKNOWLEDGMENTS

The author would like to thank Dr. S. Suzuki for productive discussion with respect to micropore structure of compacted bentonite.

## REFERENCES

1. H. SATO, T. ASHIDA, Y. KOHARA, M. YUI, and N. SASAKI, "Effect of Dry Density on Diffusion of Some Radionuclides in Compacted Sodium Bentonite," *Journal of Nuclear Science and Technology* 29 (9), pp.873-882 (1992).
2. H. SATO, "A Study on Pore Structure of Compacted Bentonite (Kunigel-V1)," JNC TN8400 99-064, Japan Nuclear Cycle Development Institute (1999).
3. H. SATO, "The Effect of Pore Structural Factors on Diffusion in Compacted Sodium Bentonite," *Proc. Int. Symp. Scientific Basis for Nuclear Waste Management XXIV*, Sydney, Australia, August 27-31 2000, Materials Research Society, in press.
4. S. SUZUKI, A. FUJISHIMA, K. UENO, Y. ICHIKAWA, K. KAWAMURA, N. FUJII, M. SHIBATA, H. SATO, and K. KITAYAMA, "Microstructural Modeling of Compacted Sodium-Bentonite and Application of Unified Molecular Dynamics/Homogenization Analysis for Diffusion Process," *Journal of the Clay Science Society of Japan*, 41 (2), pp.43-52 (2001), in Japanese.
5. A. MUURINEN, P. PENTILÄ-HILTUNEN, and J. RANTANEN, "Diffusion Mechanisms of Strontium and Cesium in Compacted Sodium Bentonite," *Proc. Int. Symp.*

WM'02 Conference, February 24-28, 2002, Tucson, AZ

- Scientific Basis for Nuclear Waste Management X, Boston, Massachusetts, U.S.A., December 1-4 1986, Vol.84, pp.803-811, Materials Research Society (1987).
6. M. ITO, M. OKAMOTO, M. SHIBATA, Y. SASAKI, T. TANBARA, K. SUZUKI, and T. WATANABE, "Mineral Composition Analysis of Bentonite," PNC TN8430 93-003, Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation (1993), in Japanese.
  7. M. ITO, M. OKAMOTO, K. SUZUKI, M. SHIBATA, and Y. SASAKI, "Mineral Composition Analysis of Bentonite," Journal of the Atomic Energy Society of Japan, 36 (11), pp.1055-1058 (1994), in Japanese.
  8. J. CRANK, "The Mathematics of Diffusion," 2nd ed., Pergamon Press, Oxford (1975).
  9. K. SKAGIUS and I. NERETNIEKS, "Diffusion in Crystalline Rocks of Some Sorbing and Nonsorbing Species," KBS TR82-12, Royal Institute of Technology (1982).
  10. H. SATO, T. SHIBUTANI, and M. YUI, "Experimental and Modelling Studies on Diffusion of Cs, Ni and Sm in Granodiorite, Basalt and Mudstone," J. Contaminant Hydrology 26, pp.119-133 (1997).
  11. R. A. ROBINSON and R. H. STOKES, "Electrolyte Solutions," 2nd ed., Butterworths, London, p.317 (1959).
  12. Chemical Society of Japan, "Chemical Handbook," 4th ed. , Maruzen, Tokyo, p.II-61 (1993), in Japanese.
  13. H. SATO, "Effect of Ionic Charge on Effective Diffusion Coefficient in Compacted Sodium Bentonite," Proc. Int. Symp. Scientific Basis for Nuclear Waste Management XXIII, Boston, Massachusetts, U.S.A., November 29-December 2 1999, Vol.608, pp.267-274, Materials Research Society (2000).
  14. H. SATO, "Diffusivity Database (DDB) for Major Rocks: Database for the Second Progress Report," JNC TN8400 99-065, Japan Nuclear Cycle Development Institute (1999).
  15. H. SATO and T. SHIBUTANI, "Study on Adsorption and Diffusion Mechanism of Nuclides in Buffer Material and Geosphere," PNC Technical Review, No.91, PNC TN 8410 94-284, pp.71-89, Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation (1994), in Japanese.
  16. "Annual Report -FY1989-, " PNC TN1410 91-009, pp.51-52, Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation (1991), in Japanese.
  17. H. KATO and T. YATO, "Estimation of the Effective Diffusivity in Sand/Bentonite Mixture," 1997 Fall Meeting of the Atomic Energy Society of Japan, October 14-17 1997, I39, Atomic Energy Society of Japan (1997), in Japanese.
  18. H. SATO and S. MIYAMOTO, "A Study on Diffusion and Migration of Lead in Compacted Bentonite," JNC TN8400 2001-018 , Japan Nuclear Cycle Development Institute (2001).
  19. Y. KURODA, K. IDEMITSU, H. FURUYA, Y. INAGAKI, and T. ARIMA, "Diffusion of Technetium in Compacted Bentonites in the Reducing Condition with Corrosion Products of Iron," Proc. Int. Symp. Scientific Basis for Nuclear Waste Management XX, Boston, Massachusetts, U.S.A., December 2-6 1996, Vol.465, pp.909-916, Materials Research Society (1997).
  20. H. SATO and S. MIYAMOTO, "The Effect of Silica Sand Content and Temperature on Diffusion of Selenium in Compacted Bentonite Under Reducing Conditions," Proc. Int. Symp. Scientific Basis for Criticality Safety, Separation Process and Waste Disposal,



WM'02 Conference, February 24-28, 2002, Tucson, AZ

Tokai-mura, Ibaraki, Japan, October 31-November 2 2001, Japan Atomic Energy Research Institute, in press.

21. Y. TORIKAI, Doctoral Thesis of Hokkaido University (1996), in Japanese.
22. H. KATO, M. MUROI, N. YAMADA, H. ISHIDA, and H. SATO, "Estimation of Effective Diffusivity in Compacted Bentonite," Proc. Int. Symp. Scientific Basis for Nuclear Waste Management XVIII, Kyoto, Japan, October 23-27 1994, Vol.353, pp.277-284, Materials Research Society (1995).
23. H. SUZUKI, M. SHIBATA, J. YAMAGATA, I. HIROSE, and K. TERAOKA, PNC TN8410 92-057, Power Reactor and Nuclear Fuel Corporation (1992), in Japanese.