

ベントナイト及び岩石中での核種の実効拡散係数

1992年9月

動力炉・核燃料開発事業団
東 海 事 業 所

複製又はこの資料の入手については、下記にお問い合わせ下さい。

〒319-11 茨城県那珂郡東海村大字村松 4-33

動力炉・核燃料開発事業団 東海事業所

技術開発推進部・技術管理室

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:
Technology Management Section Tokai Works Power Reactor and Nuclear
Fuel Development Corporation 4-33, Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun,
Ibaraki-ken 319-11, Japan

動力炉・核燃料開発事業団 (Power Reactor and Nuclear Fuel Development
Corporation) 1992

ベントナイト及び岩石中での核種の実効拡散係数

佐藤 治夫, 芦田 敬, 小原 幸利,
油井 三和, 梅木 博之* 石黒 勝彦*

要 旨

高レベル放射性廃棄物の地層処分システムの性能評価においては、緩衝材として考えられているベントナイトや多種類の岩石中の核種移行に関する基礎データを必要とする。本報告書は、それらデータの一つである実効拡散係数について、ベントナイト及び岩石中での核種の拡散挙動に関する理論的・実験的背景を確認した上で性能評価に用いる値の設定について検討を行った。

まず、実効拡散係数の理論的背景を確認した上で、拡散に関するデータについて文献調査を行い、拡散係数に影響を及ぼす因子の観点から報告値を整理した。ベントナイトについては、クニピアF及びクニゲルV1の2種類の拡散データに関する技術的成果についてとりまとめた。一方、岩石については、我が国に一般に分布する岩石について、既存のデータの信頼性について評価、検討を行った。以上から性能評価に必要となるベントナイト及び岩石の実効拡散係数の設定を行った。

動力炉・核燃料開発事業団 東海事業所 環境技術開発部 地層処分開発室

*本社 環境技術開発推進本部 処分研究グループ

目 次

1. はじめに	1
2. 実効拡散係数	2
2.1 実効拡散係数の定義	2
2.2 核種移行解析への適用	3
2.3 測定方法	4
2.3.1 トレーサーを用いる方法	4
2.3.2 電気伝導度法	8
3. 実効拡散係数の設定	9
3.1 既往の測定例	9
3.2 形状因子 (FF)	9
3.3 温度の影響	10
3.4 実効拡散係数の設定値	11
4. 今後の課題	12
5. まとめ	12
6. 謝 辞	13
7. 参考文献	14
図	17
表	24

1. はじめに

高レベル放射性廃棄物地層処分の多重バリアシステムに関する性能評価にあたっては、地下水シナリオに基づき、ガラス固化体から溶出した放射性核種が、緩衝材や、地層を移動する現象を取り扱う。図1に地下水シナリオおよび人工バリアシステムの概念図を示す。緩衝材として考えられているベントナイトや、地層を構成する岩石は複雑な形状の微小空隙を有し、核種は地下水で満たされたこれら空隙中を周辺の鉱物と相互作用を経ながら移動する。従来、物質移動理論によれば、このような微細な空隙を含む多孔質媒体中の物質移動については、Fickの法則が成立するとして、実効拡散係数を用いた取扱いがなされており、多重バリアシステムの性能評価の観点からもベントナイトや種々の岩石に対する実効拡散係数の測定が行われてきた。

我が国においては、現在、多重バリアシステムの性能評価を行うにあたっては、地域や岩種を特定せず、地質環境条件をできるだけ広く想定するという考え方に立っている。これによって処分技術の適用範囲を広く考えることが可能となり、その技術的選択の幅が広がることになる。人工バリアシステムの概念に基づき、図1のように、オーバーパックの材料としては炭素鋼を、緩衝材としてはベントナイトを考えた人工バリアの具体的仕様例が示されている（五月女、1992）。

ここでは、このようなシステムを念頭に置き、地質環境条件をできるだけ広く想定した我が国における地層処分の性能評価を行う上で必要となるベントナイト及び岩石中の実効拡散係数について、実測例に基づきその値を設定することを試みる。

2. 実効拡散係数

2.1 実効拡散係数の定義

ペイトナイトや岩石中の拡散による物質移動は、多孔質媒体に対するFickの法則の適用により、実効拡散係数を用いて近似的に表現されている。

$$\vec{J}_i = -De_{,i} \nabla C_i \quad \dots\dots\dots ①$$

ここで、

\vec{J}_i : 多孔質媒体中の物質流束(Bq/m²s)

$De_{,i}$: 実効拡散係数(m²/s)

C_i : 核種 i の濃度(Bq/m³)

多孔質媒体中では、物質は細孔を通過して移動するため、例えば、自由水中の拡散係数に比べて遅くなる。このような細孔の曲がりによる拡散断面積の変化や、拡散距離の増加を補正したものが実効拡散係数である。

実効拡散係数の記述の仕方は必ずしも統一されていないが、Skagius ら(1982a, 1982b)によれば、次のように表されている。

$$De_{,i} = \varepsilon Dp_{,i} = \varepsilon \frac{\delta}{\tau^2} D_i^* \quad \dots\dots\dots ②$$

ここで、

$Dp_{,i}$: 空隙水中の拡散係数(m²/s)

D_i^* : 核種 i の自由水中の拡散係数(m²/s)

ε : 空隙率

δ : 収れん度(Constrictivity)

τ^2 : 屈曲度(Tortuosity) (τ を屈曲度と呼ぶ場合もある)

また、実効拡散係数と自由水中の拡散係数を結び付ける係数 $\varepsilon \cdot \delta / \tau^2$ を形状因子(Formation factor: Skagius and Neretnieks, 1982a, 1982b)と呼び、以下ではFFと記すことにする。

$$FF = \varepsilon \frac{\delta}{\tau^2} \quad \dots\dots\dots ③$$

イオン i の自由水中の拡散係数 D_i^* は、イオンの電気伝導率を用いれば、Nernst-Einsteinの式によって以下のように表すことができる (Skagius and Neretnieks, 1982a, 1982b)。

$$D_i^* = \frac{RT}{F^2} \times \frac{\Lambda_i}{Z_i} \dots\dots\dots \textcircled{4}$$

ここで、

R : ガス定数 (8.314 J/mol/K)

T : 絶対温度 (K)

F : ファラデー定数 (Coul/mol)

Z_i : イオンの価数の絶対値

Λ_i : 限界当量イオン伝導率 ($\text{cm}^2\text{S/mol}$)

Λ_i は核種を含んだ溶液の電気伝導率を測定し求めることができる。

2.2 核種移行解析への適用

実効拡散係数は、次節に述べるようにFFを実験的に決定することによって求められる。空隙率はFFとは独立に実験的に決定することができる。一方、 δ と τ^2 を区別して決定することは実験上困難である。

人工バリアシステムの性能評価で行われる核種移行解析では、核種がベントナイトや岩石に吸着される効果を考慮する。吸着のメカニズムとして、よく用いられる線型吸着を考え、局所的な瞬時吸着平衡を仮定すれば、核種移行の支配方程式は、一次元のモデルでは、例えば、次のように表すことができる。

$$R d_i \frac{\partial C_i}{\partial t} = D_{p,i} \frac{\partial^2 C_i}{\partial x^2} - \lambda_i \cdot R d_i \cdot C_i + \lambda_{i-1} \cdot R d_{i-1} \cdot C_{i-1} \dots\dots\dots \textcircled{5}$$

$$R d_i = 1 + \frac{1 - \epsilon}{\epsilon} K d_i \cdot \rho \dots\dots\dots \textcircled{6}$$

ここで、

$R d_i$: i 番目の核種の遅延係数(Retardation factor)

$K d_i$: i 番目の核種の平衡分配係数(m^3/kg)

ρ : 媒体 (ベントナイトあるいは岩石) の真密度(kg/m^3)

λ_i : i 番目の核種の崩壊定数(s^{-1})

i : i 番目の核種

従って、FFと空隙率 (ϵ) を実験的に求めれば、自由水中の拡散係数との関係から支配方程式に含まれる空隙水中の拡散係数 $D_{p,i}$ を決定することができる。また、 $D_{p,i}$ と ϵ を求めてもよい。なお、

$$D_{a,i} = \frac{D_{p,i}}{R d_i} \quad \dots\dots\dots \textcircled{7}$$

で表される $D_{a,i}$ を吸着性核種に対するみかけの拡散係数と呼ぶ(Neretnieks, 1980 ; Muurinen et al., 1985a, 1985b)。

2.3 測定方法

実効拡散係数あるいは、空隙水中の拡散係数、FFは実験的に求めることができる。測定方法としては、トレーサーを用いる方法、電気伝導率と拡散係数との関係から決定する方法に大別できる。

以下、それぞれの方法を概観し、測定値のもつ特徴について述べる。

2.3.1 トレーサーを用いる方法

③式から明らかのように、FFは基本的には媒体中の空隙構造に依存した幾何学的因子であり、核種によらず一定と考えれば、種々のトレーサーを用いて実効拡散係数を測定し、FFを決定することができる。このようなトレーサーを用いる方法としては次の二つがある。

(1) スルーディフュージョン (透過拡散) 法

この方法に用いる装置概念図を図2に示す。図2に示す如く、拡散セルは、トレーサーセル及び測定セルより構成され、両セルは、拡散媒体を介して連結されている。トレーサーセルにトレーサー溶液を、測定セルに蒸留水あるいは模擬地下水等を注入し、測定セル側に移動したトレーサー量の時間変化をサンプリングにより測定する。トレーサーセル側のトレーサー濃度 C_0 は一定に保たれるように注意する。

⑤式において、崩壊定数が拡散試験期間と比較して十分に小さければ、即ち、半減期が十分に長ければ、崩壊による放射能の減衰を無視し得る。よって、②、⑤、⑥を用いて、⑤式の一次元におけるFickの第2法則を書き直せば次のようになる。

$$\alpha \frac{\partial C_i}{\partial t} = D_{e,i} \frac{\partial^2 C_i}{\partial x^2} \dots\dots\dots \textcircled{8}$$

$$\alpha = \varepsilon + \rho_b \cdot K d_i = \varepsilon \cdot R d_i \dots\dots\dots \textcircled{9}$$

⑧式から初期および境界条件を与えると、任意の時間 t における測定セル側の核種 i の濃度 Ct は次のようになる (Crank, 1975)。

初期条件: $C(x, 0) = 0, \quad 0 \leq x \leq \ell$

境界条件: $C(0, t) = C_0, \quad C(\ell, t) = 0$

$$C_t = \frac{A \ell C_0}{V} \left[\frac{D_{e,i}}{\ell^2} t - \frac{\alpha}{6} - \frac{2\alpha}{\pi^2} \sum_{n=1}^{\infty} \left\{ \frac{(-1)^n}{n^2} \times \exp\left(-\frac{D_{e,i} n^2 \pi^2 t}{\ell^2 \alpha}\right) \right\} \right] \dots\dots\dots \textcircled{10}$$

⑩式において、 $t \rightarrow \infty$ とすれば、即ち、定常状態においては、近似的に指数項を無視することができ、次の式を得る (Crank, 1975)。

$$C_t = \frac{A \ell C_0}{V} \left(\frac{D_{e,i}}{\ell^2} t - \frac{\alpha}{6} \right) \dots\dots\dots \textcircled{11}$$

ここで、

C t : 任意の時間 t の測定セル側の核種 i の濃度 (Bq/m³)

C 0 : トレーサーセル側の核種 i の濃度 (Bq/m³)

V : セル体積 (m³)

ℓ : 試料の厚さ (m)

A : 試料の断面積 (m²)

D_{e, i} : 核種 i の実効拡散係数 (m²/s)

ε : 試料の空隙率

ρ_b : 試料の乾燥かさ密度 (kg/m³)

α : 収着容量 (Rock capacity factor)

定常状態における測定セル側の核種 i の任意の時間 t での濃度 C_t は、⑩式によって与えられる。

定常状態において、測定セル側の核種 i の濃度 C_t は、時間 t に関して比例関係となり、その傾きより⑩式に基づいて実効拡散係数を求めることができる。この方法を用いた場合、直接に実効拡散係数を測定することができる。

トレーサーとして吸着性の核種を用いた場合、試験期間が長期にわたり、実際的ではない。また、測定された実効拡散係数には、媒体空隙構造のみの影響だけでなく、イオン種の電荷の違いによるイオン排除の効果やイオン半径の違いによる分子ふるい効果の影響も含まれている。このような理由から、イオン半径が小さく、媒体との相互作用の少なく、非吸着性と考えられるHTO や Cl^- 等がトレーサーとして用いられる。この場合、⑨式の α は ε となる。これらのトレーサーを用いて決定したFPは相対的に大きな値となる。

(2) インディフュージョン (濃度プロファイル) 法

この方法に用いられる装置を図3に示す。これは、佐藤ほか(1990, 1991), 小原ほか(1992), 園部ほか(1992)によって用いられたもので、図は1組のカラムを示し、中心より2つに分かれるようになっている。カラムは含水後の膨潤圧を抑えるためにステンレスで製作されており、断面は円形である。ここに所定の乾燥密度になるようにベントナイトを充填し、蒸留水を含水させる。飽和したベントナイトの端面に放射性核種を含んだトレーサー溶液を塗布して2つのカラムを接合させ、一定時間拡散させた後、ベントナイトをスライスして各部の放射能を測定する。これによって塗布面からの核種の濃度分布を求めることができる。

この方法では、媒体中の核種の濃度プロファイルは、次の支配方程式により表される。

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} = D_{a,i} \frac{\partial^2 C_i}{\partial x^2} - \lambda C_i \quad \dots\dots\dots \text{⑫}$$

ここで、

- C_i : 核種 i の濃度 (Bq/m³)
- t : 拡散時間 (s)
- $D_{a,i}$: みかけの拡散係数 (m²/s)
- x : 拡散方向の距離 (m)
- λ : 崩壊定数 (s⁻¹)

⑫式において、拡散試験期間が半減期と比較して小さければ、崩壊項 λC_i を無視することができ、この方程式に対する解は、初期・境界条件に従って以下ようになる(Crank, 1975)。

1) 全量溶解する場合

トレーサー溶液を試料面に塗布した後、核種によって、空隙水中での溶解度が異なるので、試料面で析出と見られる現象が生じるものとそうでないものがある。析出現象がない核種、即ち、全量溶解の場合についての初期・境界条件は、

初期条件

$$C_i = \frac{N}{A}, \quad t=0, \quad x=0$$

$$C_i = 0, \quad t=0, \quad x > 0$$

境界条件

$$C_i = 0, \quad x=\infty, \quad t > 0$$

であり、これに対する⑫式の解は、

$$C_i = \frac{N}{2A\sqrt{\pi Da_i \cdot t}} - \exp\left[-\frac{x^2}{4Da_i \cdot t}\right] \dots\dots\dots \textcircled{13}$$

ここで、

N : 塗布したトレーサー溶液中の核種の量(Bq)

A : 試料の断面積(m²)

となる。

2) 塗布面で析出する場合

トレーサー溶液を試料面に塗布した後、試料面で析出と見られる現象が観察された場合、塗布面付近での濃度は、拡散源の溶解度に律速されると考えられる。従って、この場合の境界濃度は一定と考えることができる。このことを考慮した場合の初期・境界条件は、初期条件

$$C_i = 0, \quad t=0, \quad x > 0$$

境界条件

$$C_i = C_0, \quad x=0, \quad t > 0$$

$$\frac{C_i}{C_o} = \text{erfc} \left(\frac{x}{2\sqrt{D_{a,i} \cdot t}} \right) \dots\dots\dots ⑭$$

$$\text{erfc}(Z) = 1 - \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^Z \exp(-\eta^2) d\eta \dots\dots\dots ⑮$$

となる。

吸着性トレーサーを用いて実験的にこれらの解を適用することにより、 $D_{a,i}$ を求めることができる。また、別途測定した Kd_i 値から⑥、⑦式に基づいて $D_{p,i}$ を求めることができる。非吸着性核種であるHTO をトレーサーとして用いる場合、分配係数 Kd_i は0であるため、空隙水中の拡散係数 $D_{p,i}$ を直接求めることができる。

2.3.2 電気伝導度法

電解質溶液で飽和した媒体の電気伝導率と拡散係数は、FFの依存性に対して関係が認められており、次のような関係が示されている(Klinkenberg, 1951)。

$$FF = \frac{D_{e,i}}{D_i^*} = \frac{R_o}{R_s} \dots\dots\dots ⑯$$

ここで、

R_o : 電解質溶液の比抵抗 ($\Omega \cdot m$)

R_s : 電解質溶液で飽和した媒体の比抵抗 ($\Omega \cdot m$)

従って、比抵抗 R_o および R_s を測定することにより直接的にFFを求めることができる。

この方法を用いた場合、電解質溶液として用いたイオンに加え、媒体から溶出したイオンも電気伝導に寄与し、一般にはFFが大き目に測定される傾向がある。また、この測定方法では、電解質濃度を低くしすぎると空隙表面の電気伝導率が結果に影響を及ぼすことが指摘されている(Brace, 1965)。

3. 実効拡散係数の設定

性能評価計算に必要な実効拡散係数の設定におけるベントナイトの種類としては、現在の人工バリアの仕様例に基づき、粗製ベントナイトのクニゲルV1(Umeki et al., 1991)について検討した。また、天然バリアである岩石については、我が国に広く分布する代表的な岩石であり、鉱物組成の違いから分類したカコウ岩、玄武岩、泥岩、凝灰岩の4岩種(澁谷ほか, 1992)について検討した。

以下では既往の実効拡散係数の測定例について、形状因子(FF)の形で整理した。さらに、温度の影響を考慮して実効拡散係数の設定を行った。

3.1 既往の実効拡散係数の測定例

(1) ベントナイト

HTO のクニゲルV1中の拡散係数をスルーディフュージョン法、インディフュージョン法およびNaCl溶液を満たしての電気伝導度法により測定した結果(石田ほか, 1991; 動燃事業団, 1991; Conca et al., 1991)をそれぞれ図4, 5, 6に示す。図に示されているように、実効拡散係数およびみかけの拡散係数は、ベントナイトの密度の増加に伴っていずれも減少することがわかる。これは、密度の増加に伴い、空隙率が減少することおよび屈曲度が増加するためと考えられる。

(2) 岩石

HTO のカコウ岩中の実効拡散係数をスルーディフュージョン法により測定した結果(梅木ほか, 1986)およびNaCl溶液を凝灰岩、玄武岩、泥岩に満たして実効拡散係数を電気伝導度法(Conca and Wright, 1990)により測定した結果(Conca, 私信)を各岩石についてまとめて表1に示す。表1に示すように、凝灰岩が最も拡散係数が大きく、玄武岩>カコウ岩>泥岩の順になっている。このうち、凝灰岩は、最も空隙率が大きいことから、拡散係数も大きくなったものと考えられる。

3.2 形状因子(FF)の整理

(1) ベントナイト

ベントナイトの形状因子(FF)は、スルーディフュージョン法から求めたHTO の実効拡散係数(石田ほか, 1991)、インディフュージョン法から求めたHTO のみかけの拡散係数(動燃事業団, 1991)から②式に基づいて求めた実効拡散係数、および電気伝導度法より求めたCl⁻の実効拡散係数(Conca et al., 1991)のそれぞれと、HTO およびCl⁻の自由水中の拡散係数との比から⑩式に基づいて各乾燥かさ密度に対して求めた(表2)。クニゲルV1

の各乾燥かさ密度に対する形状因子(FF)を図7に示す。実験的に実効拡散係数の対数と密度は直線関係にある(Conca, 私信)ことから, これらの結果を用いて, 乾燥かさ密度と $\ln FF$ の関係を最小二乗法により直線近似し(図7の実線), クニゲルV1の乾燥かさ密度1.8 (g/cm³) において, FF=0.06を得た。なお, FFを求めるための各イオンあるいは分子の自由水中の拡散係数 D_i^* は, 次の値を用いた。

$$D^*(HTO) = 2.27 \times 10^{-9} \text{ (m}^2/\text{s)} \text{ (化学工学便覧改訂四版, 1982)}$$

$$D^*(Cl^-) = 2.4 \times 10^{-9} \text{ (m}^2/\text{s)} \text{ (Conca et al., 1991)}$$

他のベントナイト種との比較において, クニゲルV1はモンモリロナイトを50~55wt%含有する粗製ベントナイトであるが, モンモリロナイトを95wt%以上含有する精製ベントナイトのクニピアFでは, 乾燥かさ密度1.8g/cm³において, FF=0.017(動燃事業団, 1991)とクニゲルV1より小さい値が得られた。

(2) 岩石

カコウ岩の形状因子(FF)は, スルーディフュージョン法より求めたHTOの実効拡散係数(梅木ほか, 1986)とHTOの自由水中の拡散係数 D_i^* ($=2.27 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$) (化学工学便覧改訂四版, 1982)の比より⑩式に基づいて求めた。また, 凝灰岩, 玄武岩, 泥岩の3岩種については, NaCl溶液を満たして電気伝導度法(Conca and Wright, 1990)にて求めた Cl^- の実効拡散係数(Conca, 私信)と Cl^- の D_i^* ($=2.4 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$) (Conca et al., 1991)の比より⑩式に基づいて形状因子(FF)を求めた。各岩石の形状因子(FF)および空隙率(ϵ), かさ密度をまとめたものを表3に示す。

3.3 温度依存性

拡散係数に対する温度依存性は, 拡散の活性化エネルギーを用いて評価した。一般的には, イオンおよび分子の自由水中の拡散係数は, 温度上昇に伴って増加する。田島(1986)によれば, H^+ , OH^- を除く他のイオンに対しては, 水を媒体とする電導現象がどんな場合でも活性化エネルギーとして, ほぼ3.60kcal/mol(15.05kJ/mol)であることから, この値を用いて拡散係数の温度依存性を評価した。

拡散係数と温度との関係は次の式によって与えられている(化学便覧, 1975)。

$$D_i^* = D_o \cdot \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right) \dots\dots\dots \text{⑰}$$

ここで,

D_0 : 頻度因子 (m^2/s)

Q : 活性化エネルギー (kJ/mol)

R : 気体定数 (8.314J/mol/K)

T : 絶対温度 (K)

3.4 実効拡散係数の設定値

(1) ベントナイト

実効拡散係数は、⑩式に基づき、各元素の自由水中の拡散係数とベントナイトの乾燥かさ密度 1.8g/cm^3 の時の形状因子 $FF=0.06$ を用いて求めた。各元素についての自由水中の拡散係数は、限界当量イオン伝導率データのあるものは④式のNernst-Einsteinの式に基づいて解析し、データがないものは、水溶液中の化学形態やイオン半径等のアナログ性より求めた(McKinley and Hardermann, 1984; Andersson and Allard, 1983; 化学便覧, 1975; 化学大辞典, 1987; 化学工学便覧改定四版, 1982)。温度は、標準的溫度の 25°C および地温勾配を考慮して 60°C の場合について計算した。 25°C および 60°C における実効拡散係数をまとめたものを表4に示す。

表4より実効拡散係数に大きな差がないため、保守的に全元素ともクニゲルV1(乾燥かさ密度 1.8g/cm^3)に対する実効拡散係数の最大値の $De=3\times 10^{-10}\text{m}^2/\text{s}$ の値を採用した。なお、空隙率(ε)は、クニゲルV1の真密度を 2.7g/cm^3 とし、 $\varepsilon=1-\rho_b/\rho$ より求めた乾燥かさ密度 1.8g/cm^3 の 0.33 を用いた。ここで、 ρ_b は乾燥かさ密度 g/cm^3 、 ρ は真密度 g/cm^3 である。

(2) 岩石

実効拡散係数は、⑩式に基づき、各元素の自由水中の拡散係数と各岩石の形状因子(FF)より求めた。各元素の自由水中の拡散係数は、3.4(1)のベントナイトと同様に求めた。各岩石に対する実効拡散係数を 25°C および 60°C について求めた結果を表5に示す。表5より各元素の実効拡散係数に大きな差がないため、その最大値を採用し、カコウ岩は、 $3\times 10^{-12}\text{m}^2/\text{s}$ 、凝灰岩は、 $4\times 10^{-10}\text{m}^2/\text{s}$ 、玄武岩は、 $4\times 10^{-12}\text{m}^2/\text{s}$ 、泥岩は、 $3\times 10^{-14}\text{m}^2/\text{s}$ の値を採用した。また、各岩石の間隙率(ε)は、水中飽和法(鈴木ほか, 1989; 西山ほか, 1990)により測定した値を採用した。

4. 今後の課題

ベントナイトについては、実効拡散データの蓄積により拡散機構、特に拡散化学種に応じた実効空隙率の定量化を行う。また、みかけの拡散係数のデータ蓄積とともに、バッチ法による分配係数に基づき、化学吸着モデルに基づく遅延機構およびその定量化を行い、ベントナイト中の拡散および吸着の両メカニズムを明らかにする必要がある。一方、Na-ベントナイトが変質したCa-ベントナイト、イライト等の拡散データの蓄積を図り、同様の評価を行う必要がある。岩石については、実効拡散データの蓄積により拡散に基づく遅延因子（主に実効空隙率）を各岩石で明らかにするとともに、バッチ法による分配係数およびその地球化学モデルと結合させて、拡散・吸着による遅延機構を明らかにする必要がある。

5. まとめ

前章までに、これまでの地層処分研究開発の成果および現状の知見を基に、現段階で実施される地層処分システムの性能評価解析に必要な人工バリアおよび天然バリア中での核種移行パラメータの一つである核種の実効拡散係数データセットを設定した。このデータセットは、最終的に行われる核種移行解析モデルと密接に関係しており、各解析およびモデルの位置づけ、取り扱う現象・数学モデルを踏まえたうえで使用する必要がある。

6. 謝 辞

本報告書をまとめることができたことは、関係各位の御協力の結果であり、感謝致します。特に、拡散係数の測定に御協力を頂いた内館信幸氏、およびトリチウムの分析を担当した再処理技術開発部プロセス分析開発室の石井清澄氏および柴正憲氏に感謝いたします。また、貴重なコメント、御助言を頂いた東海事業所環境技術開発部地層処分開発室室長代理の石川博久氏、本社環境技術開発推進本部処分研究グループ主幹の佐々木憲明氏、同グループの斉藤茂幸氏、内藤守正氏、高瀬博康氏、National Cooperative for the Disposal of Radioactive Wasteの Dr. Ian G. McKinley、中部事業所環境地質課の吉田英一氏に感謝の意を表します。

7. 参考文献

Andersson, K. and Allard, B. (1983)

Sorption of Radionuclides on Geologic Media - A Literature Survey.
I=Fission Products, KBS 83-07.

Brace, W. F. (1965)

The Effect of Pressure on the Electrical Conductivity of Water-Saturated
Crystalline Rocks, J. Geophys. Res., 70.

Crank, J. (1975)

The Mathematics of Diffusion, 2nd ed. Pergamon Press, Oxford.

Conca, J. L. and Wright, J. J. (1990)

Diffusion Coefficients in Gravel Under Unsaturated Conditions, Water Resources
Research, Vol.26, No.5, pp.1055-1066.

Conca J. L., Ashida, T. and Sato, H. (1991).

Apparent and Simple Diffusion Coefficients in Compacted Sodium Bentonite,
Proceedings of the Second Annual International Conference, VOL.2, pp.1382-1389.

動力炉・核燃料開発事業団(1991)

性能評価情報交換会報告書, PNC TN1410 91-079, pp.275-286.

石田久洋, 山田憲和, 上田真三, 室井正和, 佐藤治夫, 油井三和(1991)

フォーメーションファクターを用いた緩衝材中の実効拡散係数の推定, 日本原子力学会
秋の大会要旨集, J24.

Klinkenberg, L. J. (1951)

Analogy between Diffusion and Electrical Conductivity in Porous Rocks, Geol. Soc.
Am. Bull., 62.

化学便覧, 基礎編Ⅱ, 改訂2版(1975).

化学大辞典(1987).

化学工学便覧, 化学工学協会編改訂四版, pp.62(1982).

小原幸利, 芦田 敬, 佐藤治夫, 内館信幸, 油井三和(1992)

鉄粉含有ベントナイト中の⁹⁹Tc, ²³⁷Npのみかけの拡散係数の測定, 日本原子力学会春の年会, C7.

McKinley, I. G. and Hadermann, J. (1984)

Radionuclide Sorption Database for Swiss Safety Assessment, NAGRA NTB 84-40.

Muurinen, A., Rantanen, J. and Ovaskainen, R. (1985a)

Diffusivities of Cesium and Strontium in Crushed and in Mixtures of Sodium Bentonite and Crushed Rock, Mat. Res. Soc. Symp., Vol.44, pp.883-890.

Muurinen, A., Rantanen, J. and Penttia-Hiltunen, P. (1985b)

Diffusion Mechanisms of Strontium, Cesium and Cobalt in Compacted Sodium Bentonite, Mat. Res. Soc. Symp., Vol.50, pp.617-624.

Neretnieks, I. (1980)

Diffusion in the Rock Matrix: An Important Factor in Radionuclide Retardation ?, J. Geophys. Res., 85.

西山勝栄, 中嶋 悟, 多田隆治, 内田隆 (1990)

岩石間隙水中のイオンの拡散係数と間隙の性質, 鉱山地質(Mining Geology), 40(5), pp.323-336.

Skagius, K. and Neretnieks, I. (1982a)

Diffusion in Crystalline Rocks of Some Sorbing and Nonsorbing Species, Mat. Res. Soc. Symp., Vol.11, pp.509-518.

Skagius, K. and Neretnieks, I. (1982b)

Diffusion in Crystalline Rocks of Some Sorbing and Nonsorbing Species, KBS 82-12.

五月女敦, 藤田朝雄, 原啓二, 納田 勝(1992)

地層処分場の空洞安定性の検討, PNC TN1410 92-055.

佐藤治夫, 宮原 要, 芦田 敬, 湯佐泰久, 佐々木憲明(1990)

ベントナイト中の核種拡散係数に及ぼすベントナイト圧縮密度の効果, 日本原子力学会
1990年年会, K46.

佐藤治夫, 芦田 敬, 澁谷朝紀, 小原幸利(1991)

クニゲルV1中における核種の拡散・収着機構の研究, 日本原子力学会秋の大会要旨集,
J25.

澁谷朝紀, 吉川英樹, 佐藤治夫, 油井三和, 梅木博之, 石黒勝彦(1992)

ベントナイト及び岩石中での核種の分配係数, PNC TN8410 92-163.

園部一志, 佐藤治夫, 二神幸彦, 新谷昌和, 油井三和(1992)

ベントナイト中でのPuのみかけの拡散係数の測定, 日本原子力学会春の年会, C8.

鈴木隆次, 中嶋 悟, 永野哲志, 喜多治之 (1989)

花崗岩中における物質移動経路としての微小間隙の存在状態, 鉱山地質(Mining
Geology), 39(6), pp.349-354.

田島 栄 (1986)

電気化学通論, 共立出版, pp.41-42.

梅木博之, 鈴木篤之, 清瀬量平(1986)

花崗岩岩体中の核種移動現象, 日本原子力学会「昭61年分科会」, H63.

Umeki, H., Ishiguro, K., Takase, H., Yui, M., Sasaki, N., and Masuda, S. (1991)

Proceedings of High Level Radioactive Waste Management, Vol.2, pp.1715-1733.

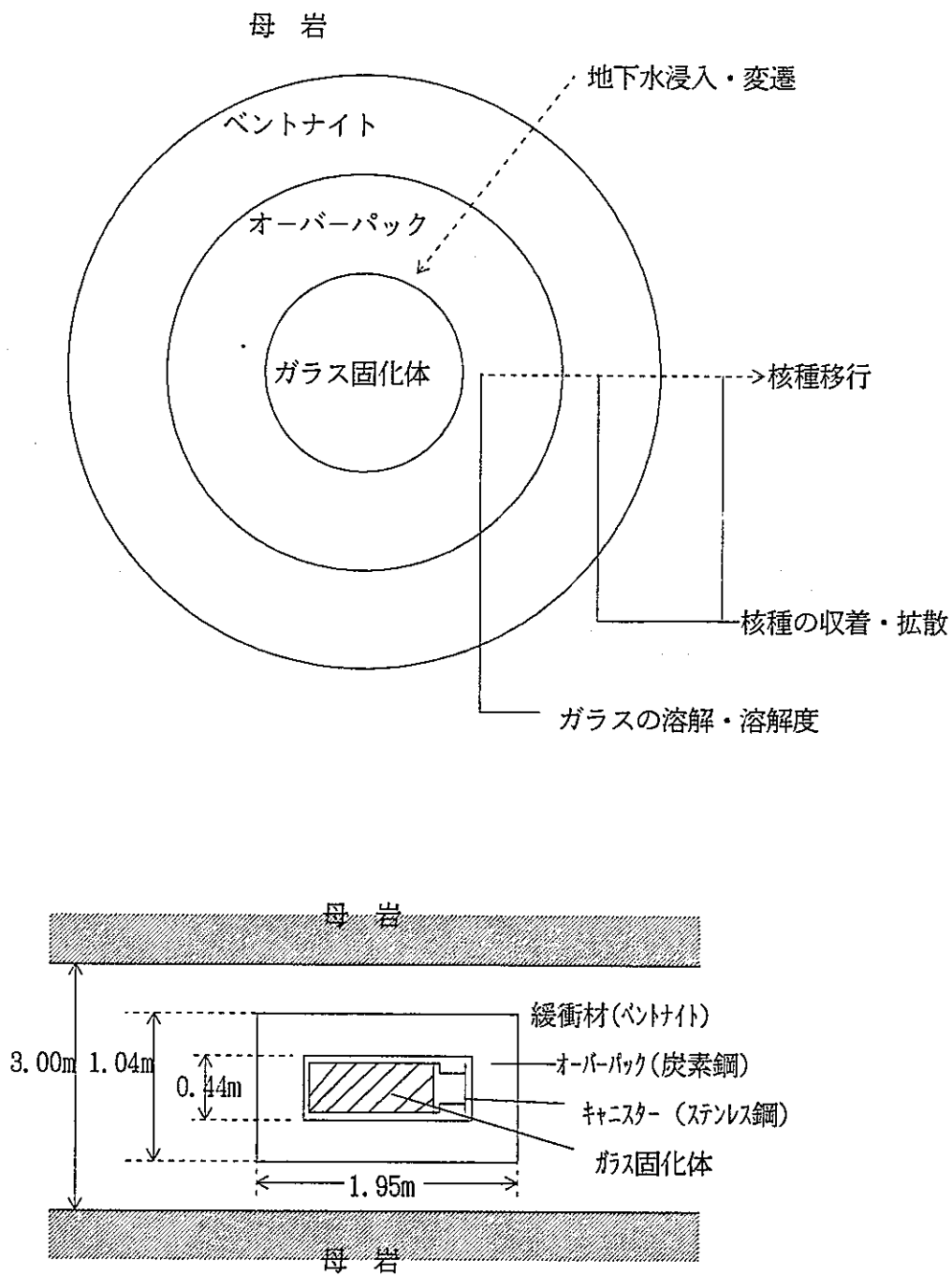


図1 地下水シナリオおよび人工バリアシステムの概念図

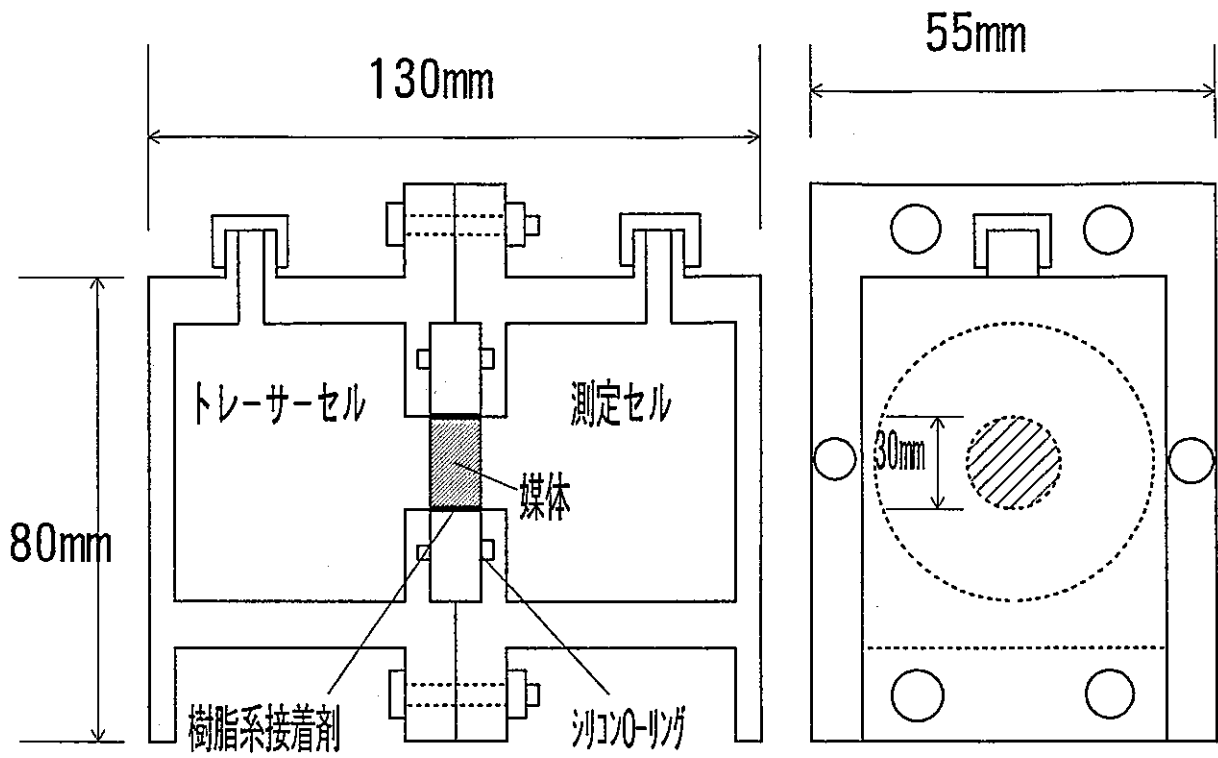


図2 スルーディフュージョン法装置概念図

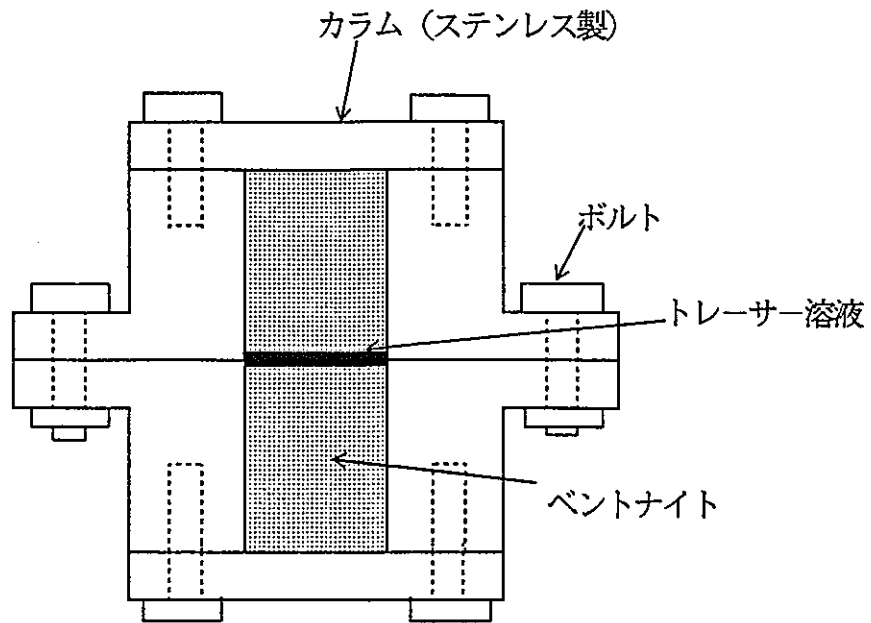


図3 インディフュージョン法装置概念図

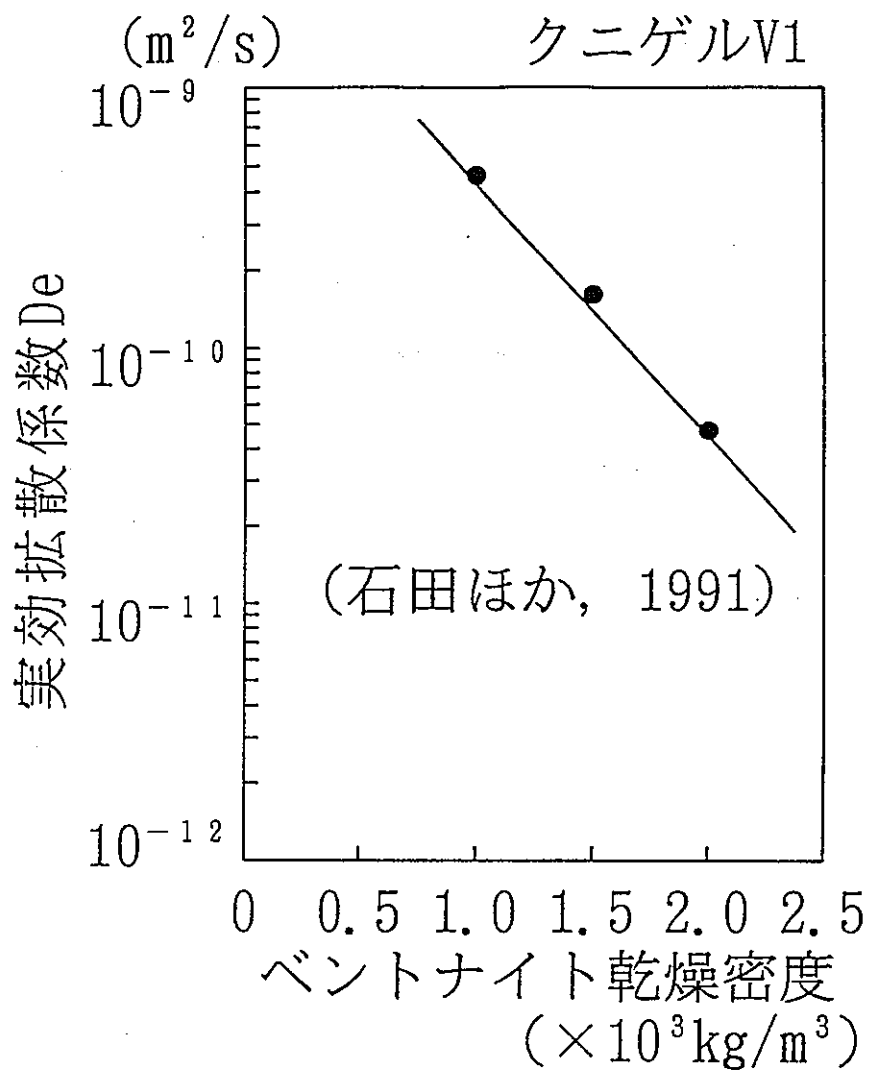


図4 HTOの実効拡散係数と密度との関係

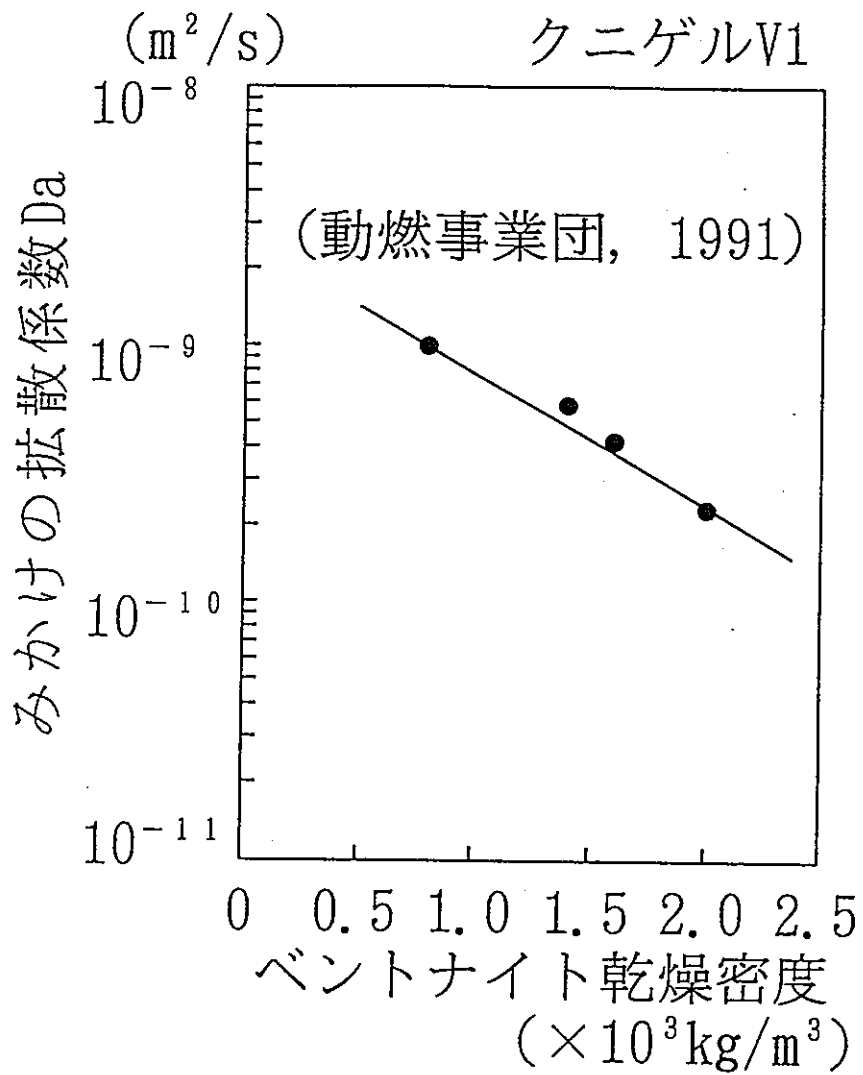


図5 HTOのみかけの拡散係数と密度との関係

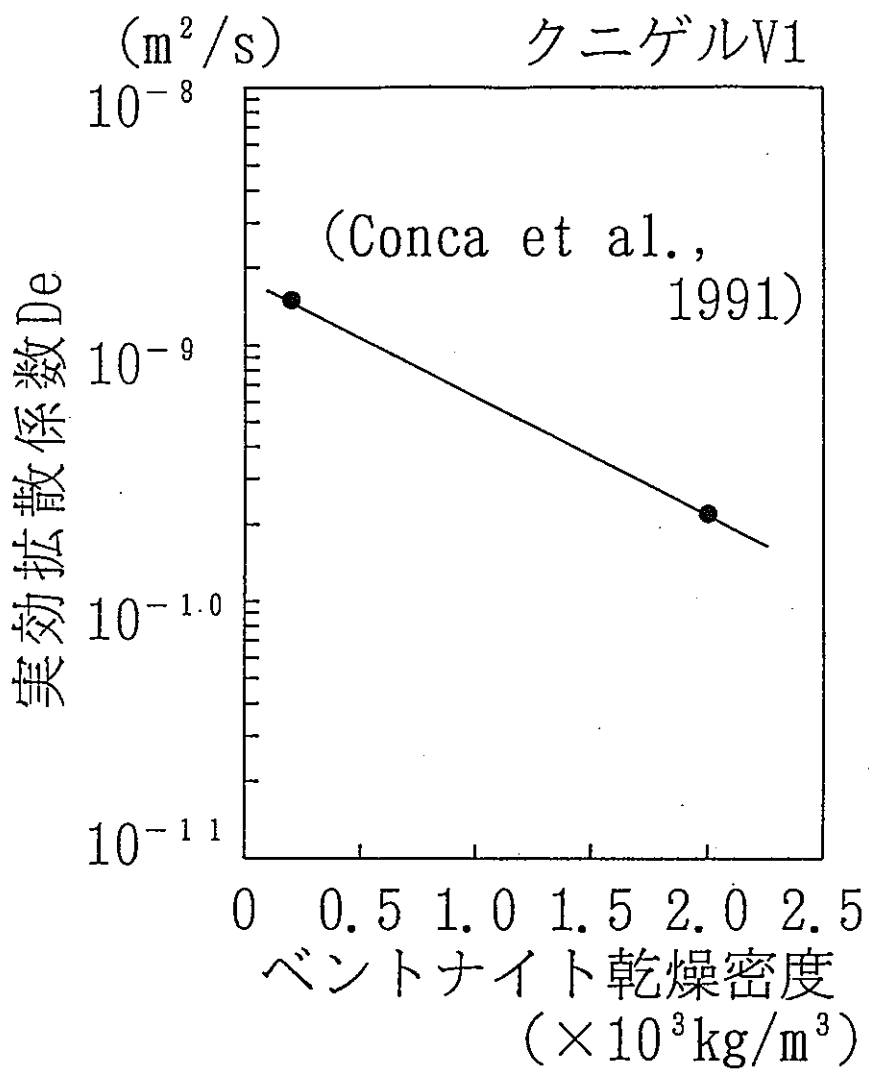


図6 C1-の実効拡散係数と密度との関係

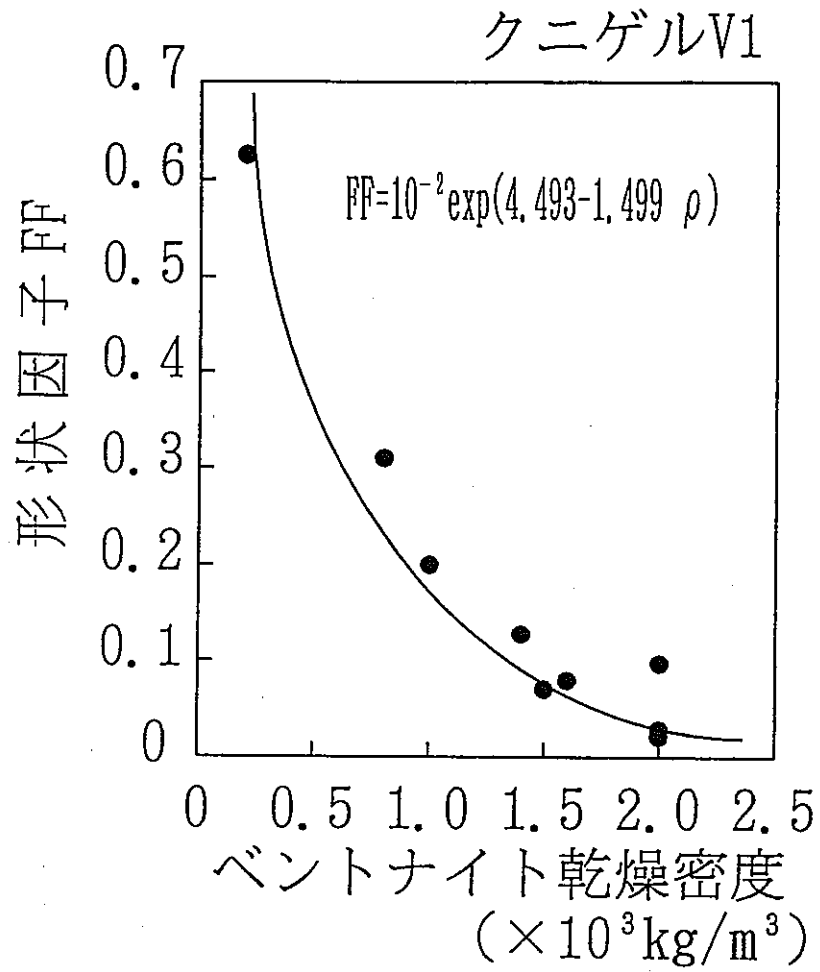


図7 形状因子と密度との関係

表 1 岩石中のHTO およびCl⁻ の実効拡散係数De

データ	岩 石			
	カコウ岩	凝灰岩	玄武岩	泥岩
De (m ² /s)	(HTO) 3 × 10 ⁻¹²	(Cl ⁻) 4 × 10 ⁻¹⁰	(Cl ⁻) 4 × 10 ⁻¹²	(Cl ⁻) < 3 × 10 ⁻¹⁴

()内はトレーサー

表 2 ベントナイトのFF (クニゲルV 1)

	密度 (×10 ³ kg/m ³)						
	0.2	0.8	1.0	1.4	1.5	1.6	2.0
空隙率	0.928	0.710	0.638	0.493	0.457	0.42	0.275
スルファイオン法 FF			0.20		0.07		0.021
イデフイオン法 FF		0.31		0.128		0.079	0.028
電導度法 FF	0.625						0.0967

表3 各岩石の形状因子

データ	岩 石			
	カコウ岩	凝灰岩	玄武岩	泥岩
FF	5.3×10^{-4}	0.1	9.2×10^{-4}	$< 5.4 \times 10^{-6}$
ε	0.0099	0.56	0.026	0.0074
かさ密度 ($\times 10^3 \text{kg/m}^3$)	2.64	1.01	2.94	2.75

表4 各元素の実効拡散係数 D_e の推定単位 (m^2/s)

元 素	D^* (10^{-9})		D_e (10^{-10})	
	25°C	60°C	25°C	60°C
Cs	2.1	4.0	1.3	2.4
Ra	1.8	3.4	1.1	2.0
Tc	2.0	3.8	1.2	2.3
Ni	1.4	2.6	0.84	1.6
Pd	1.8	3.4	1.1	2.0
Pb	1.9	3.6	1.1	2.2
Se	2.0	3.8	1.2	2.3
Sm	1.8	3.4	1.1	2.0
Th	0.74	1.4	0.44	0.84
U	0.85	1.6	0.51	0.96
Am ¹⁾	1.8	3.4	1.1	2.0
Zr ²⁾	0.85	1.6	0.51	0.96
Nb ²⁾	0.85	1.6	0.51	0.96
Sn ³⁾	1.9	3.6	1.1	2.2
Sb ³⁾	1.9	3.6	1.1	2.2
Bi ³⁾	1.9	3.6	1.1	2.2
Po ³⁾	1.9	3.6	1.1	2.2
Ac ¹⁾	1.8	3.4	1.1	2.0
Pa ²⁾	0.85	1.6	0.51	0.96
Np ²⁾	0.85	1.6	0.51	0.96
Pu ¹⁾	1.8	3.4	1.1	2.0
Cm ¹⁾	1.8	3.4	1.1	2.0

¹⁾ Sm, Ce, Eu, Nd, Laをアナログとして平均したデータを用いた。

²⁾ U のデータをアナログとして用いた。

³⁾ Pd, Tc, Seをアナログとして平均したデータを用いた。

表5 岩石中の実効拡散係数De

単位 (m²/s)

元 素	25℃				60℃			
	カコウ岩	凝灰岩	玄武岩	泥 岩	カコウ岩	凝灰岩	玄武岩	泥 岩
	10 ⁻¹²	10 ⁻¹⁰	10 ⁻¹²	10 ⁻¹⁴	10 ⁻¹²	10 ⁻¹⁰	10 ⁻¹²	10 ⁻¹⁴
Cs	1.1	2.1	1.9	<1.1	2.1	4.0	3.7	<2.2
Ra	0.95	1.8	1.7	<0.97	1.8	3.4	3.1	<1.8
Tc	1.1	2.0	1.8	<1.1	2.0	3.8	3.5	<2.1
Ni	0.74	1.4	1.3	<0.76	1.4	2.6	2.4	<1.4
Pd	0.95	1.8	1.7	<0.97	1.8	3.4	3.1	<1.8
Pb	1.0	1.9	1.7	<1.0	1.9	3.6	3.3	<1.9
Se	1.1	2.0	1.8	<1.1	2.0	3.8	3.5	<2.1
Sm	0.95	1.8	1.7	<0.97	1.8	3.4	3.1	<1.8
Th	0.39	0.74	0.68	<0.4	0.74	1.4	1.3	<0.76
U	0.45	0.85	0.78	<0.46	0.85	1.6	1.5	<0.86
Am ¹⁾	0.95	1.8	1.7	<0.97	1.8	3.4	3.1	<1.8
Zr ²⁾	0.45	0.85	0.78	<0.46	0.85	1.6	1.5	<0.86
Nb ²⁾	0.45	0.85	0.78	<0.46	0.85	1.6	1.5	<0.86
Sn ³⁾	1.0	1.9	1.7	<1.0	1.9	3.6	3.3	<1.9
Sb ³⁾	1.0	1.9	1.7	<1.0	1.9	3.6	3.3	<1.9
Bi ³⁾	1.0	1.9	1.7	<1.0	1.9	3.6	3.3	<1.9
Po ³⁾	1.0	1.9	1.7	<1.0	1.9	3.6	3.3	<1.9
Ac ¹⁾	0.95	1.8	1.7	<0.97	1.8	3.4	3.1	<1.8
Pa ²⁾	0.45	0.85	0.78	<0.46	0.85	1.6	1.5	<0.86
Np ²⁾	0.45	0.85	0.78	<0.46	0.85	1.6	1.5	<0.86
Pu ¹⁾	0.95	1.8	1.7	<0.97	1.8	3.4	3.1	<1.8
Cm ¹⁾	0.95	1.8	1.7	<0.97	1.8	3.4	3.1	<1.8

1) Sm, Ce, Eu, Nd, La をアナログとして平均したデータを用いた。

2) Uのデータをアナログとして使用した。

3) Pd, Tc, Se をアナログとして平均したデータを用いた。