

行政院原子能委員會
委託研究計畫研究報告

低放射性廢棄物最終處置地質材料之核種擴散遷移研究(2/2)

**Influence of geological substances near the final low level radioactive
waste repository facility on the diffusion migration of radionuclides**

(2/2)

計畫編號：1002001INER013

受委託機關(構)：國立清華大學原科中心

計畫主持人：衛元耀

聯絡電話：03-5731183

E-mail address：yywei@mx.nthu.edu.tw

核研所聯絡人員：陳智隆

報告日期：2011年12月12日

目 錄

目 錄	I
中文摘要	II
英文摘要	III
壹、計畫緣起與目的	1
貳、研究方法與過程	7
一、光譜分析方法	7
(一)XPS	7
(二)SIMS	8
二、IN-DIFFUSION 樣品製備	9
(一)實驗水樣	9
(二)岩塊薄片製作	9
(三)擴散實驗管柱	10
(四)實驗操作	11
參、主要發現與結論	13
一、擴散實驗與模擬結果	13
二、光譜分析方法的限制與注意事項	18
肆、參考文獻	22

中文摘要

承續第一年期的研究成果，本第二期計畫的主要目的在於探討核種於本土潛在母岩(硬頁岩)的擴散行為。著眼於實驗室分析與現地實驗的相容，以及符合政府相關法規規定，本年度計畫執行核心概念放在建立使用非放射性穩定同位素技術，以廢棄物源頭減量為原則，並嘗試最佳化實驗經費人力與空間使用。鑒於此，我們利用光譜方法進行銫離子於硬頁岩薄片內的擴散，以碘離子取代氫水進行擴散實驗，推得核種於本土地質材料薄片的擴散係數。XPS 與 SIMS 的縱深分析發現，銫離子於完整硬頁岩的擴散係數為 $10E-20 \sim 10E-22 \text{ m}^2/\text{s}$ 。此數值較銫離子擴散於粉碎樣品慢 10 個數量級以上，證明核種最主要利用母岩的裂隙進行擴散。我們並討論各種光譜分析方法的可信度與使用限制，相信對我國日後進行現地實驗具有極高的參考價值。

英文摘要

It is very important to develop techniques that are appropriate for the field experiments in the future. For example, the application of radioactive tracers is often forbidden in the field experiment. The reduction of waste production is also an important issue of concern. Accordingly, we tried to use spectroscopy methods to study Cs diffusion in the intact slide in this study. By analysis the Cs depth profile in local argillite slide with XPS and SIMS, we obtained the apparent diffusion coefficients lying around $10E-20 \sim 10E-22 \text{ m}^2/\text{s}$. The extremely small diffusion coefficients strongly suggested that the fractures are the express for nuclide diffusion. The capability and restrict of spectroscopy methods are also discussed in this study. We are very confident that these efforts are precious for the field experiments in the future.

壹、計畫緣起與目的

國際經驗顯示低放射性廢棄物最終解決之道在於設置最終處置場，結合天然障壁與人為工程障壁之隔離與遲滯功能，使放射性核種在到達人類生活環境之前，即已因衰變作用而達到無害的程度。坑道式處置(洞穴處置)為我國低放處置場概念設計方案之一，係將放射性廢棄物埋藏於淺地層處置坑道中，使其與人類生活領域永遠隔離；它是一種利用山區地形，以人工開挖坑道，將廢棄物包件覆蓋上混凝土工程障壁包封，其餘空間再填塞回填材料，且利用周圍母岩構成良好之天然障壁，以多重障壁之觀念將低放廢棄物埋藏於坑道式處置場中圍阻核種釋出，最後封閉後進行監管。

為能進行處置場長期安全評估，正確且具有代表性的核種遷移參數是非常重要的。其中，核種的吸附參數(例如 K_d 值)與核種的擴散係數(包括視擴散係數與有效擴散係數)是評估核種遷移能力的重要數據。在第一年期計畫中，我們已經掌握硬頁岩的礦物組成(圖 1)、表面化學特性(圖 2)、與不同固液比條件下銻核種吸附特徵與其擬合結果(圖 3)，並將實驗結果整理投稿至同儕審核之國際期刊(Wang et al., 2010)。

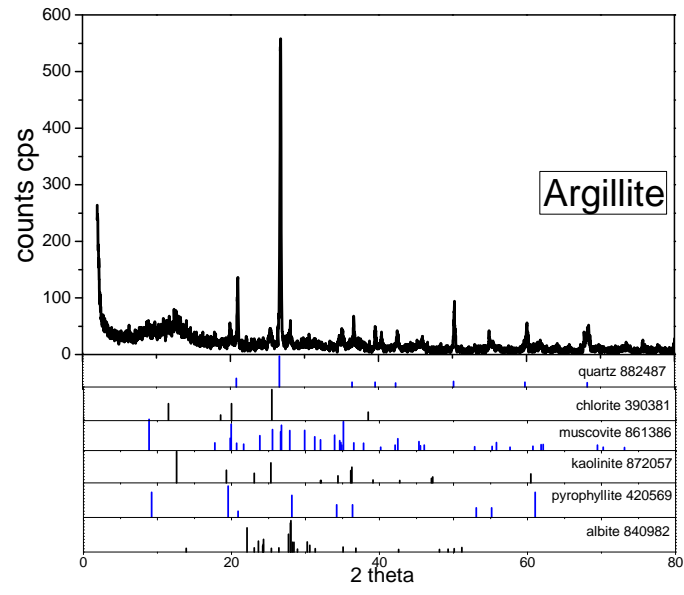


圖 1 硬頁岩的礦物組成

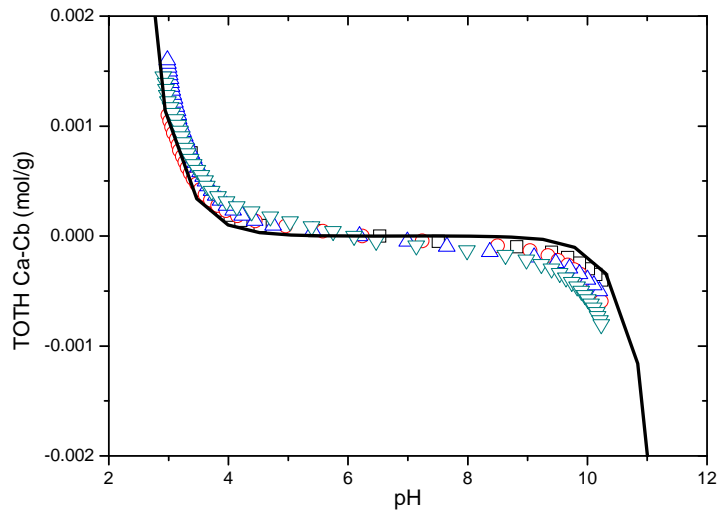


圖 2 硬頁岩表面化學行為

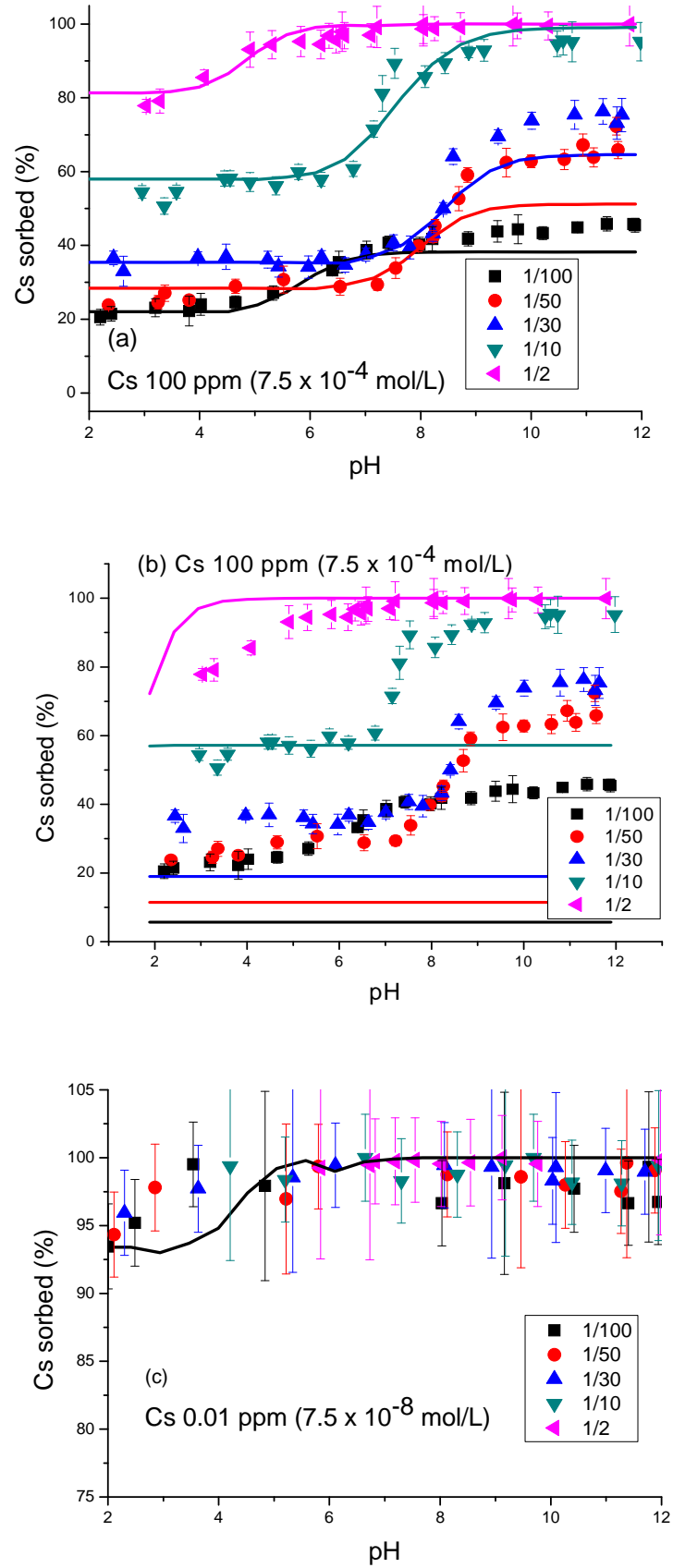


圖 3 不同固液比條件下之銫核種吸附特徵與其擬合結果

在第二年期計畫中，本計畫著重於銫核種於硬頁岩薄片之擴散行為。由於擴散所需要的時間較長，極有可能在計畫執行結束前，銫核種的擴散仍未達到穩態(steady state)，因此本計畫將採用 in-diffusion 方式，利用二次質譜儀(Secondary Ion Mass Spectroscopy, SIMS)與 X 光螢光光譜方法(X-ray Photoelectron Spectroscopy, XPS)，藉由分析特定時間點下的銫核種縱深分布，以數學解析方式推討出銫核種的視擴散係數與有效擴散係數。方法如下列方程式所示

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D_a \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} \quad (1)$$

$$\frac{C}{C_0} = \operatorname{erfc} \frac{x}{2\sqrt{D_a t}} \quad (2)$$

$$\operatorname{erfc}(z) = 1 - \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^z \exp(-x^2) dx \quad (3)$$

$$D_a = \frac{D_e}{\theta + K_d \rho} \quad (4)$$

$$K_d = \frac{(C_0 - V_{slices} \theta C_l) / (V_{slice} \rho)}{C_l} \quad (5)$$

由於本計畫嘗試使用硬頁岩薄片，而非過去所使用的粉末樣品方式，因此先前所建立的毛細管柱擴散法並不適用於本計畫。鑒於此，本計畫將採用清大貴儀中心的 SIMS 與 XPS，針對硬頁岩進行縱深分析。

二次質譜儀的工作原理是利用高能量之一次粒子束 (O_2^+ , Ar^+) 撞擊固態樣品表面，撞擊後釋放出二次離子，將所產生的二次離子導入質譜儀進行定性與訂量分析。本計畫將利用 SIMS 技術求取銫核種之縱深分布，推導出銫離子的相關擴散係數。目前此技術已運用於核種於夯實蒙托土吸附行為研究，如圖 4 所示(Shawan et al., 1999)，

但目前尚未運用於核種擴散行為之研究。

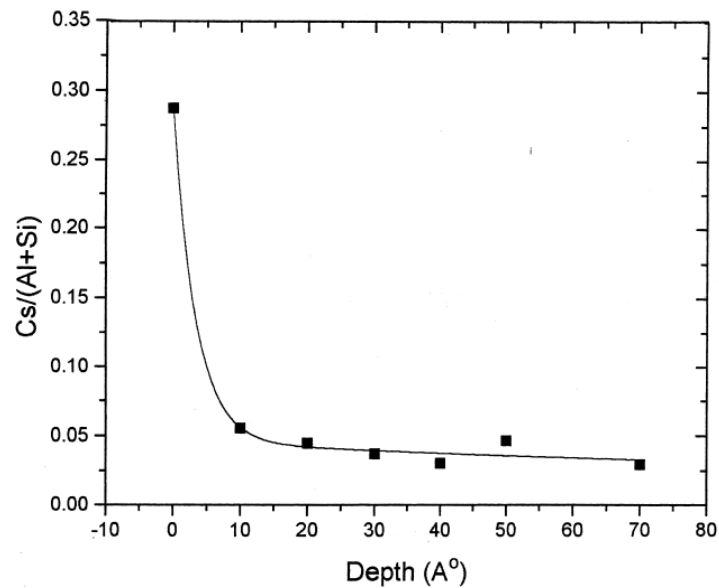


圖 4 銫核種於高嶺石之縱深吸附率與矽鋁比例 (Shawan et al., 1999)

X 光螢光光譜方法，主要是利用高能電子束撞擊分析樣品表面，透過光子與原子間的作用，激發特性 X 光，經由偵檢器蒐集特定波長範圍內的 X 光與計數，藉以達到定性與定量之目的，是一種普遍搭配於電子顯微鏡的分析技術。本計劃將運用電子束探針微分析(Electron Probe Microanalysis)分析銫核種於硬頁岩薄片剖面之分布，藉以求取銫核種之縱深分布，推導出銫離子的相關擴散係數。美國西北太平洋國家實驗室已利用此技術探討銫核種於礦物顆粒中的分布，如圖 5 所示。但如同 SIMS 技術，EPMA 技術仍未運用在探討擴散係數相關議題。

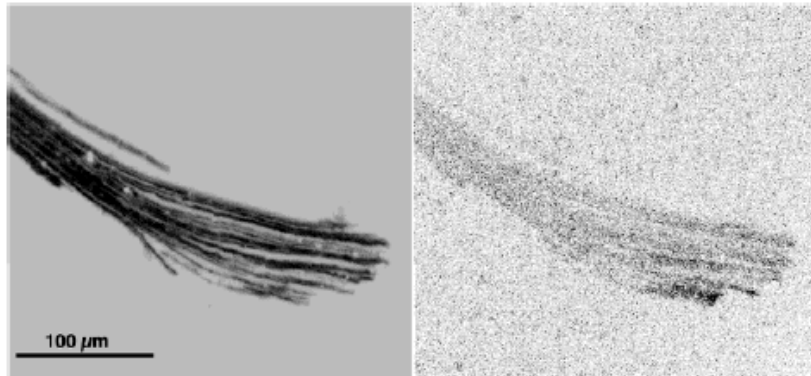


圖 5 以 EMP 技術進行鉀離子與銫離子於黑雲母剖面之分布
(McKinley et al., 2004)

另外，基於目前法規尚未明確說明可以進行現地 radioactive tracer 實驗，因此，突顯出使用非放射性穩定同位素的重要性。並且，鑒於廢料的源頭減量原則，我們也應該盡量避免使用 radioactive tracer 方法；而為了節省實驗所需要的時間，我們在本計劃中使用 in-diffusion 實驗方法，並搭配光譜分析的技術，進行核種與硬頁岩完整薄片的擴散實驗。由於相較於粉碎樣品，完整薄片的性質較接近現地母岩的狀況，因此實驗結果比較具有代表性。

貳、研究方法與過程

本研究方法共分為兩項：光譜分析方法與 in-diffusion 樣品的製備。光譜分析方法，其概念如圖 6 所示。光譜分析方法普遍使用於材料分析的相關領域，主要的概念都是利用高能離子撞擊分析表面，隨著撞擊的時間而濺射出不同深度的離子，再透過分析光電子動能或是導入質譜儀，分析所濺射出離子的濃度，藉此分析所關心離子的濃度縱深分布。

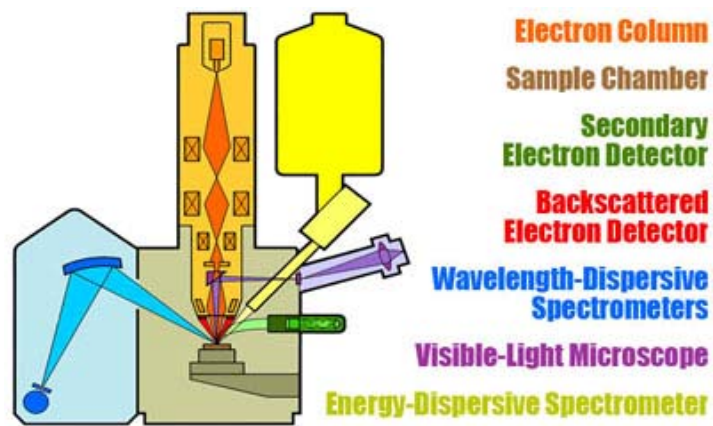


圖 6 光譜分析方法示意圖

一、光譜分析方法

主要利用清大貴儀中心的 XPS 與 SIMS。

(一)XPS

XPS 是 X-ray Photoelectron Spectroscopy 方法的縮寫，主要是利用 Ar 離子將擴散進入硬頁岩的 Cs 離子濺射出，再利用 X 光激發 Cs 的光電子，藉此進行定量分析。本研究所使用的 XPS 儀器為 PHI Quantera SXM，如圖 7 所示：



圖 7 XPS 外觀

(二)SIMS

SIMS 是 Secondary Ion Mass Spectroscopy 方法的縮寫，主要是利用 O 離子將擴散進入硬頁岩的 Cs 離子濺射出，再將 Cs 的導入質譜儀，藉此進行定量分析。本研究所使用的 SIMS 儀器為 TOFSIMS IV，如下圖所示：

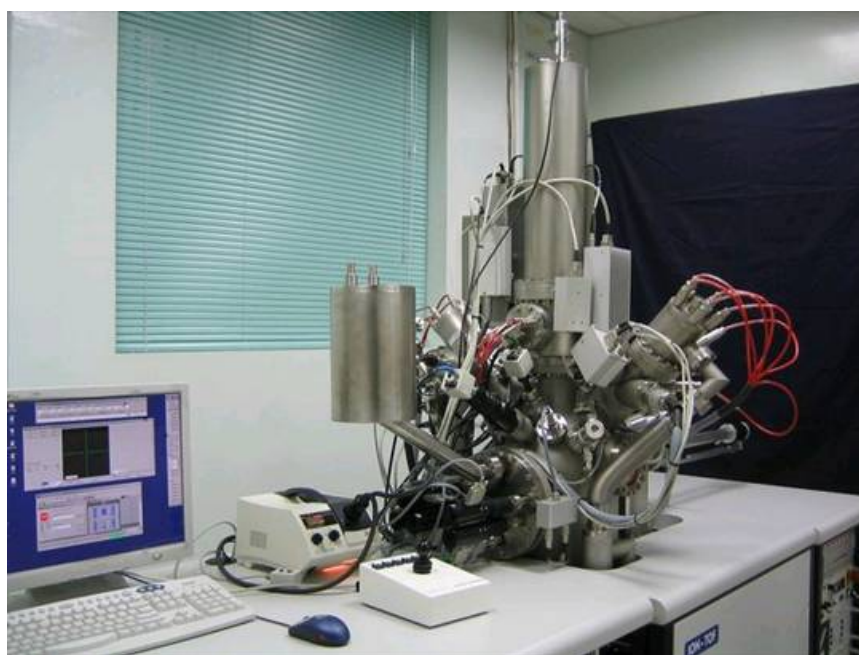


圖 8 SIMS 外觀

二、In-diffusion 樣品製備

(一) 實驗水樣

實驗試片為台東硬頁岩，直徑為 30 mm，厚度為 2 mm。製備方法，首先採取該地區水樣並進行成分分析，作為後續實驗用配備水樣的依據(見表 1)。

表 1 南田水樣實驗用水配方

化合物	分子量	濃度(M)	g/20L
CaCl ₂ ·2H ₂ O	147.02	3.84E-04	1.1291136
NaF	41.99	2.91E-05	0.0244089
NaBr	102.96	1.65E-06	0.0033978
KCl	74.55	7.73E-06	0.0115254
Sr(NO ₃) ₂	211.63	0.00000136	0.0057563
MgSO ₄ ·7H ₂ O	246.48	2.24E-04	1.1044445
MgCO ₃	84.3139	2.41E-04	0.4063198
Na ₂ CO ₃	105.99	2.15E-04	0.4551196
NaCl	58.44	1.86E-04	0.2168561
NaNO ₃	85	1.35E-06	0.0022931

(二) 岩塊薄片製作

硬頁岩實驗薄片製作，主要有幾個步驟(如圖 9 所示)：(A) 首先將所採樣得到的現地硬頁岩塊體敲破；(B) 選取合適的岩塊並進行岩塊的薄片切割；(C) 將岩塊薄片根據實驗模具需要，再研磨為圓形薄片；(D) 配合實驗模具將岩塊薄片逐步修磨，至所需大小；(E) 將圓形的岩塊薄片固定於環氧樹脂中，直徑約 15 mm。

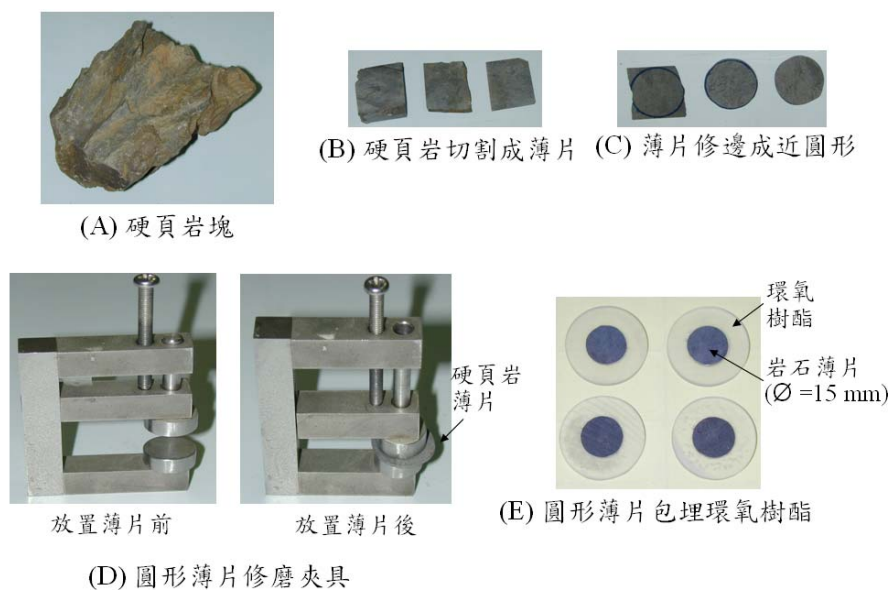


圖 9 硬頁岩實驗薄片製作

(三)擴散實驗管柱

擴散實驗管柱如圖 10 所示，管組包含 250 ml 的注入腔與擴散腔，以及中間接合岩塊薄片的 PP 材質接頭。實驗管柱組裝程序，首先將固定於環氧樹脂的岩塊薄片置入 PP 接頭中，隨即在薄片兩側置入鐵氟龍材質的環形墊片，並裝置固定兩側的注入腔與擴散腔。注入腔與擴散腔皆設置兩組開關，作為灌注地下水樣或核種，並作為排氣與採樣之用。

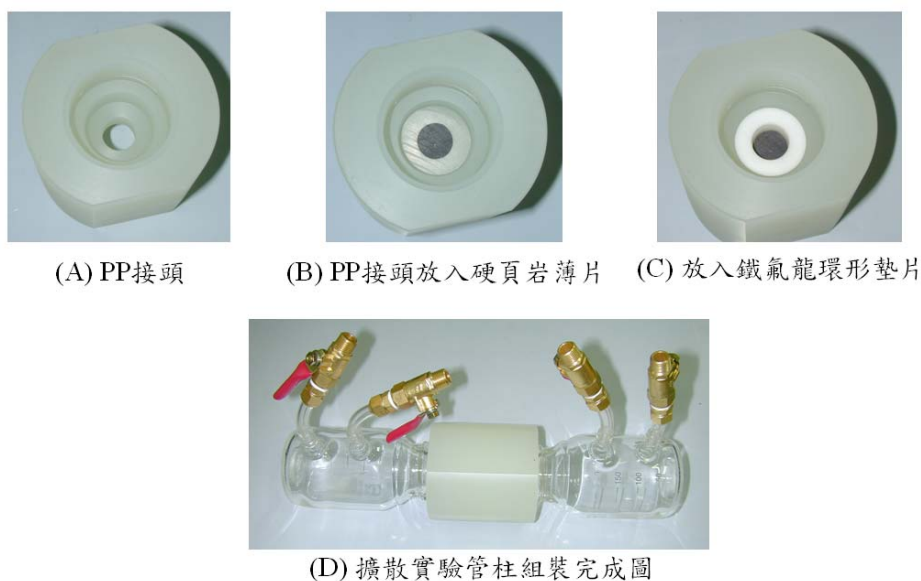


圖 10 擴散實驗管柱組裝

(四) 實驗操作

實驗操作過程曾考量製作更薄的薄片，如此可以縮短擴散所需要的時間，但切割過程中非常容易造成薄片的破碎，造成實驗上的誤差。另外，將製備後的硬頁岩薄片裝入鐵氟龍擴散槽內，進行水平衡。為了縮短水平衡所需要的時間，我們先將擴散槽端抽真空，製造低壓環境。整體而言，水平衡所需要的時間約為 3-4 個月，3-4 個月後，會在擴散槽端觀察到霧狀水氣，再將含有 Cs 離子的水溶液倒入擴散槽中，進行擴散實驗。我們將擴散進行一天與五天的薄片取出，進行光譜縱深分析。此外，我們也留下幾組硬頁岩薄片繼續擴散實驗(如圖 11 所示)，作為光譜分析實驗結果的對照組。



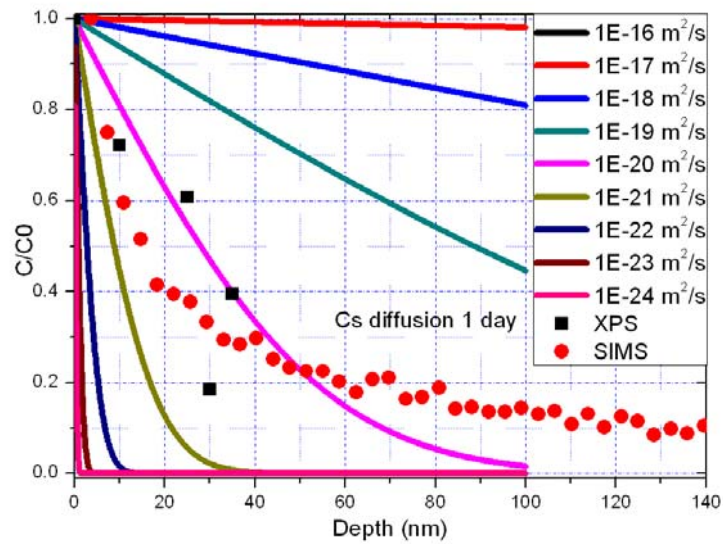
圖 11 整體擴散實驗組

參、主要發現與結論

一、擴散實驗與模擬結果

以 XPS 與 SIMS 所得到的 Cs 離子縱深分布如圖 12 所示。

(a) 經過 1 天擴散



(b) 經過 5 天擴散

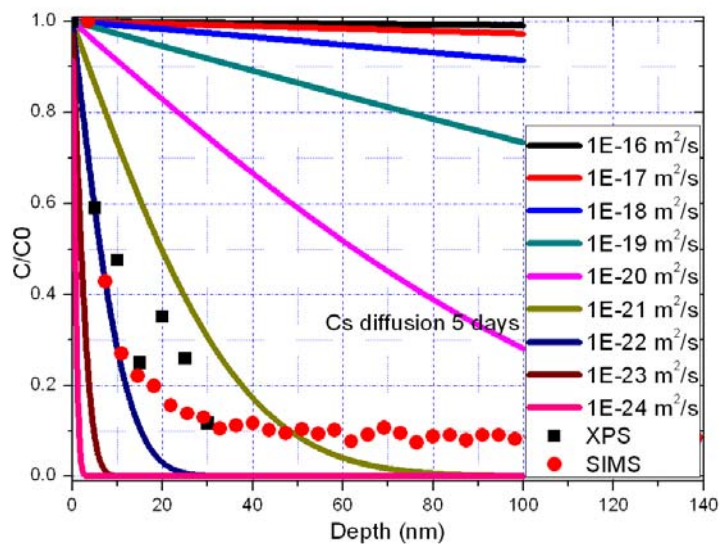


圖 12 經過 1 天與 5 天擴散的擴散實驗與模擬結果

透過模式的分析，我們得到 Cs 的擴散係數落在 $10E-20 \sim 10E-22$ m^2/s 之間，雖然 Cs 離子在 1 天的樣品比起 5 天的樣品多擴散了約 10 nm，這很有可能僅是因為不同的樣品有不同的微孔隙結構。然而重要的是，XPS 與 SIMS 分析的結果非常相近，這說明了這兩種分析技術都足以運用於核種擴散實驗的分析；更務實的一點，由於 SIMS 在全台灣的貴儀系統中常常都是最繁忙的儀器之一，因此實驗結果證明，若是無法順利取得 SIMS 進行實驗，也可以使用 XPS 取得不錯的分析結果。

另外值得注意的是，我們得到的擴散係數是一個非常低的擴散係數。舉例來說，經過了 5 天的擴散，Cs 離子只有進入表層約 40 nm 的距離，因此合理的推估，若需要完成 2 mm 的擴散距離，很有可能需要 $5 \times 50,000$ 天的時間，也就是 250,000 天，約為 600 多年的時間。這比起一般使用粉碎樣品進行擴散實驗所得到的擴散係數少了約 10 個數量級。

如此，我們可以想像完整岩石薄片與粉碎樣品的最大差別在於微孔隙的數量多寡。粉碎樣品中充滿了大量的孔隙，因此 Cs 離子就像在水溶液中的擴散，所得到的擴散係數也與水溶液環境中相似，多落在 $10E-9 \sim 10E-11$ m^2/s 範圍內。而我們的實驗結果顯示，Cs 離子真正在岩塊中的擴散速率並沒有那麼快，根據以上的實驗結果，我們接下來的目標會放在建立孔隙率與擴散係數的相關性，另外，我們也將文獻中相關的實驗結果列於表 2，作為我們實驗結果的參考。

表 2 各種母岩擴散係數之擴散實驗結果

Da (x 10E-12 m ² /s)	Materials	Reference
1-30	Bentonite	Garcia-Gutierrez, M., Cormenzana, J.L., Missana, T., Mingarro, M., Molinero, J., 2006. Overview of laboratory methods employed for obtaining diffusion coefficients in FEBEX compacted bentonite. <i>Journal of Iberian Geology</i> , 32 (1), 37-53
82	Opalinus clay	Yaroshchuk, A.E., Van Loon, L.R., 2008. Improved interpretation of in-diffusion measurements with confined swelling clays. <i>Journal of Contaminant Hydrology</i> , 97, 67-74
120	Bentonite	Yaroshchuk, A.E., Van Loon, L.R., 2008. Improved interpretation of in-diffusion measurements with confined swelling clays. <i>Journal of Contaminant Hydrology</i> , 97, 67-74
200	stainless steel	Glaus, M.A., Rosse, R., Van Loon, L.R., Yaroshchuk, A.E., 2008. Tracer diffusion in sintered stainless steel filters: measurement of effective diffusion coefficients and implications for diffusion studies with compacted clays. <i>Clays and Clay Minerals</i> , 56 (6), 677-685
230-270/ 18-24 (HTO)	Bure mudrock	Melkior, T., Yahiaouia, S., Motelliera, S., Thobya, D., Tevissen, E., 2005. Cesium sorption and diffusion in Bure mudrock samples. <i>Applied Clay Science</i> 29, 172-186.
810	Clay	Takashi Itakura, David W. Airey, Chin Jian Leo, Timothy Payne, Gordon D. McOrist, Laboratory studies of the diffusive transport of ¹³⁷ Cs and ⁶⁰ Co through potential waste repository soils, <i>Journal of Environmental Radioactivity</i> 101 (2010) 723-729

2000	Do (water)	Mills, R., Lobo, V.M.M., 1989. Self-diffusion in Electrolyte Solutions, a Critical Examination of Data Compiled from the Literature. Elsevier, Amsterdam. p320
1.4 (Cs+)/ 0.74 (Cl-)	Granodiorite (5 mm)	H. Sato, T. Shibutani, M. Yu, Experimental and modelling studies on diffusion of Cs, Ni and Sm in granodiorite, basalt and mudstone, Journal of Contaminant Hydrology 26 (1 997) 19-133
0.15 (Cs+)/ 0.041 (Cl-)	Basalt (5 mm)	H. Sato, T. Shibutani, M. Yu, Experimental and modelling studies on diffusion of Cs, Ni and Sm in granodiorite, basalt and mudstone, Journal of Contaminant Hydrology 26 (1 997) 19
0.48 (Cs+)/ 0.089 (Cl-)	Mudstone (5 mm)	H. Sato, T. Shibutani, M. Yu, Experimental and modelling studies on diffusion of Cs, Ni and Sm in granodiorite, basalt and mudstone, Journal of Contaminant Hydrology 26 (1 997) 19
2-3	Mudrock (7.5 mm)	T. Melkior *, S. Yahiaoui, D. Thoby, S. Motellier, V. Barthe`s, Diffusion coefficients of alkaline cations in Bure mudrock, Physics and Chemistry of the Earth 32 (2007) 453–462
600 (Cs+)/ 60 (HTO)	Tunnel experiment test site	P. Wersin, J.M. Soler, L. Van Loon, J. Eikenberg, B. Baeyens, D. Grolimund, T. Gimmi, S. Dewonck, Diffusion of HTO, Br ₋ , I ₋ , Cs ⁺ , ⁸⁵ Sr ²⁺ and ⁶⁰ Co ²⁺ , in a clay formation: Results and modelling from an in situ experiment in Opalinus Clay, Applied Geochemistry 23 (2008) 678–691
1.4-8.0 (I-)	Rock slide 7 mm	P. Mell, J. Megyeri, L. Riess, Z. Máthé, G. Hámos, K. Lázár, Diffusion of Sr, Cs, Co and I in argillaceous rock as studied by radiotracers, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol. 268, No.2 (2006) 411–417 Melkior, T., Yahiaouia, S., Motelliera, S., Thobya, D., Tevissen, E., 2005. Cesium sorption and diffusion in Bure mudrock

		<p>samples. Applied Clay Science 29, 172-186</p> <p>Takashi Itakura, David W. Airey, Chin Jian Leo, Timothy Payne, Gordon D. McOrist, Laboratory studies of the diffusive transport of ^{137}Cs and ^{60}Co through potential waste repository soils, Journal of Environmental Radioactivity 101 (2010) 723-729</p> <p>Mills, R., Lobo, V.M.M., 1989. Self-diffusion in Electrolyte Solutions, a Critical Examination of Data Compiled from the Literature. Elsevier, Amsterdam. p320</p> <p>H. Sato, T. Shibutani, M. Yu, Experimental and modelling studies on diffusion of Cs, Ni and Sm in granodiorite, basalt and mudstone, Journal of Contaminant Hydrology 26 (1 997) 19</p> <p>T. Melkior *, S. Yahiaoui, D. Thoby, S. Motellier, V. Barthe`s, Diffusion coefficients of alkaline cations in Bure mudrock, Physics and Chemistry of the Earth 32 (2007) 453–462</p> <p>P. Wersin, J.M. Soler, L. Van Loon, J. Eikenberg, B. Baeyens, D. Grolimund, T. Gimmi, S. Dewonck, Diffusion of HTO, Br₋, I₋, Cs⁺, $^{85}\text{Sr}^{2+}$ and $^{60}\text{Co}^{2+}$, in a clay formation: Results and modelling from an in situ experiment in Opalinus Clay, Applied Geochemistry 23 (2008) 678–691</p>
--	--	--

此外，我們也得到利用 through-diffusion 方式，I 離子的擴散實驗結果，如圖 13 所示。與 Cs 擴散實驗的結果相似，儘管 I 離子已經擴散了 160 天，其 C/C0 值僅達到了 0.1，再次證明孔隙是核種擴散最重要的途徑。

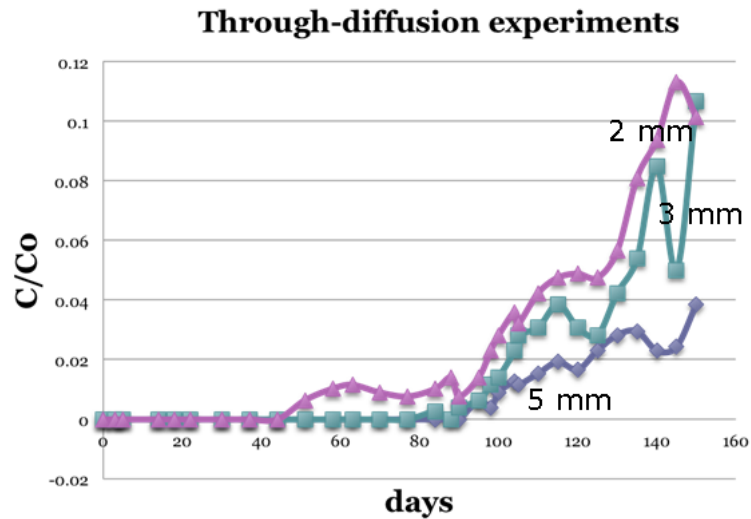


圖 13 I 離子的 through-diffusion 實驗結果

二、光譜分析方法的限制與注意事項

由於所有的光譜分析方法都需要超高的真空($< 10E-8$ torr)，儘管我們的實驗結果顯示硬頁岩的低孔隙率，但進行光譜分析實驗的過程中可以明顯的發現儀器真空度的下降，這暗示看起來緻密的硬頁岩樣品還是有許多的微小孔洞，這些微小孔洞並沒有反應在 BET 的表面積上，但在擴散的過程中，會保留些許的水溶液，在抽真空的環境下溢散出來，破壞儀器的真空度。因此，在進行光譜方法分析擴散實驗時，建議先在真空，或是低壓烘箱(~ 60 °C)烘烤 2-3 天，藉由較低溫度緩和除水的速率，儘可能避免除水過程所造成核種重新分布。

除了除水的問題外，擴散實驗的低核種起始濃度也造成光譜分析方法的困難度，如圖 14 所示：

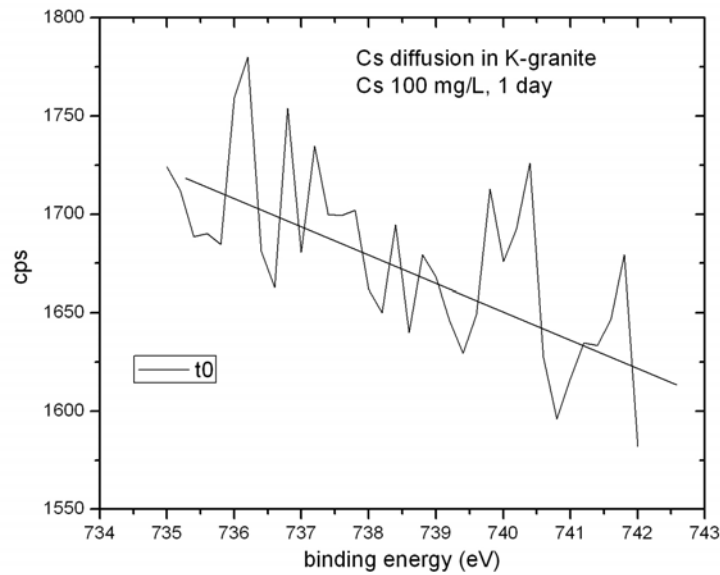


圖 14 低濃度所造成的低訊噪比結果

由圖 14 可以了解，當核種的起始濃度太低($< 10E-4 M$)，表面 Cs 離子的濃度不夠顯著，此時可以利用增加掃描的次數，例如掃描 20 次，藉此提高訊噪比。若得到足以分析，高品質的光譜結果後，可以提供觀察 Cs 的兩個特徵峰，分別為 Cs3d3(~750 eV)與 Cs3d5(~735 eV)，如圖 15 所示。在此要提醒的是，雖然 Cs3d5 的信號較強，但由於此特徵峰與 Fe3p1 的訊號非常接近，因此容易得到高估的擴散結果。因此在數據處理過程中，需要利用其與 Fe3p3 的特徵峰高度比進行校正，推出真正的 Cs 特徵峰高度。也就是說，若想要利用 Cs3d3 的特徵峰進行 Cs 離子的濃度定量，我們建議使用特徵峰高度來進行定量的分析。相對的，若可以利用多次重複掃描，得到 Cs3d5 的特徵峰結果，則可以利用面積的積分結果，進行 Cs 濃度定量。

整體而言，雖然 SIMS 可以得到較精準的 Cs 濃度定量分析，但是由於 SIMS 在全台各貴儀中心都是屬於忙碌的儀器，因此選擇利用

XPS 分析也是一個不錯的選擇。為了得到可靠的擴散係數，實驗的樣品數要夠多，藉此得到較多的實驗數據，以方便進行統計回歸分析。此外，由於實驗的結果證明岩石裂隙是最主要的傳輸途徑，因此如何找出裂隙大小與擴散的快慢之間的關係是一個很有挑戰的議題，值得後續的努力。

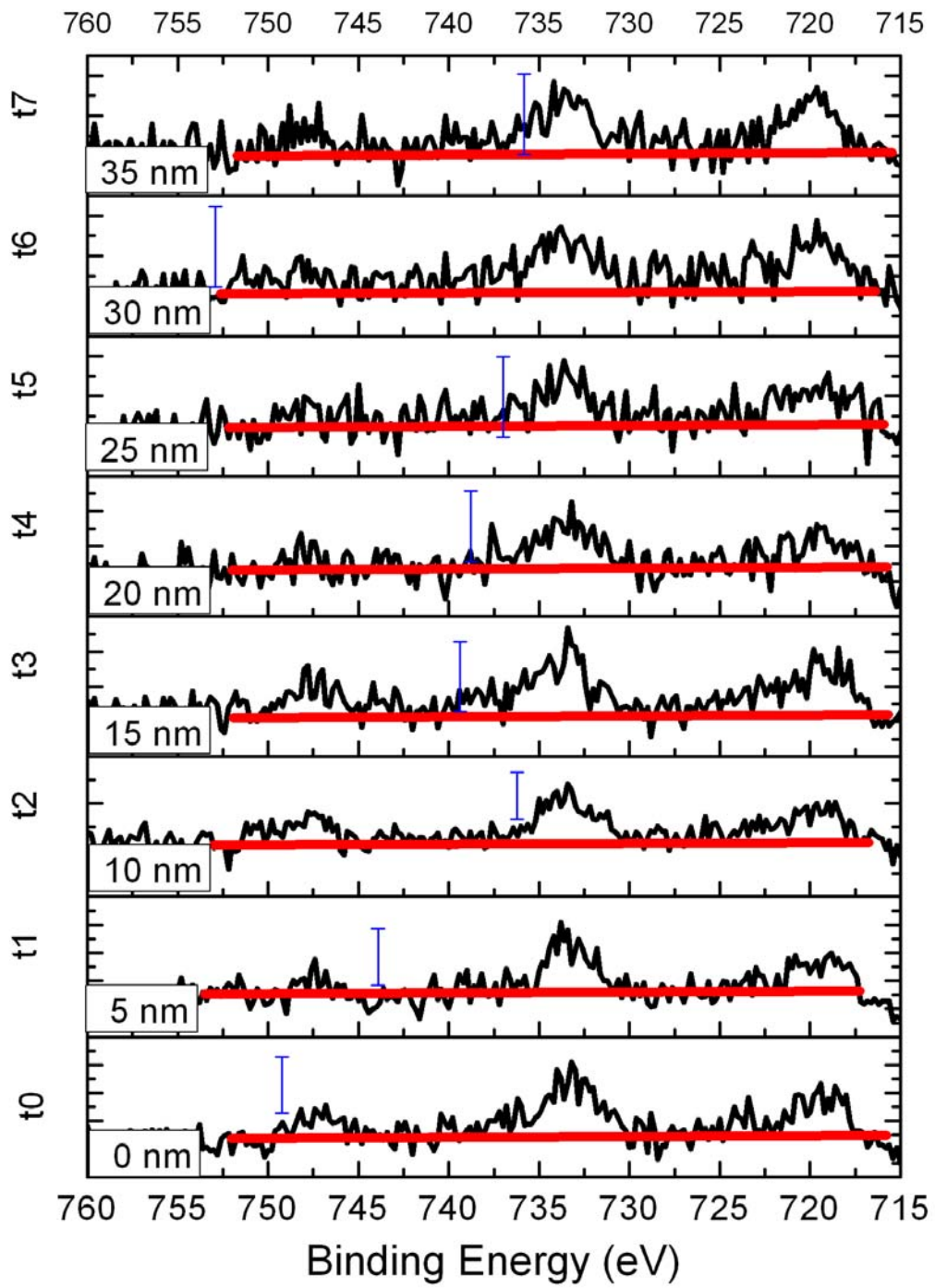


圖 15 XPS 分析所得到的 Cs 訊號與縱深分布

肆、参考文献

- [1]. Takashi Itakura, David W. Airey, Chin Jian Leo, Timothy Payne, Gordon D. McOrist, Laboratory studies of the diffusive transport of ^{137}Cs and ^{60}Co through potential waste repository soils, *Journal of Environmental Radioactivity* 101 (2010) 723-729.
- [2]. Garcia-Gutierrez, M., Cormenzana, J.L., Missana, T., Mingarro, M., Molinero, J., 2006. Overview of laboratory methods employed for obtaining diffusion coefficients in FEBEX compacted bentonite. *Journal of Iberian Geology*, 32 (1), 37-53
- [3]. Yaroshchuk, A.E., Van Loon, L.R., 2008. Improved interpretation of in-diffusion measurements with confined swelling clays. *Journal of Contaminant Hydrology*, 97, 67-74.
- [4]. Glaus, M.A., Rosse, R., Van Loon, L.R., Yaroshchuk, A.E., 2008. Tracer diffusion in sintered stainless steel filters: measurement of effective diffusion coefficients and implications for diffusion studies with compacted clays. *Clays and Clay Minerals*, 56 (6), 677-685.
- [5]. P. Mell, J. Megyeri, L. Riess, Z. Máthé, G. Hámos, K. Lázár, Diffusion of Sr, Cs, Co and I in argillaceous rock as studied by radiotracers, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, Vol. 268, No.2 (2006) 411–417
- [6]. Melkior, T., Yahiaouia, S., Motelliera, S., Thobya, D., Tevissen, E., 2005. Cesium sorption and diffusion in Bure mudrock samples. *Applied Clay Science* 29, 172-186
- [7]. Takashi Itakura, David W. Airey, Chin Jian Leo, Timothy Payne, Gordon D. McOrist, Laboratory studies of the diffusive transport of ^{137}Cs and ^{60}Co through potential waste repository soils, *Journal of Environmental Radioactivity* 101 (2010) 723-729
- [8]. Mills, R., Lobo, V.M.M., 1989. *Self-diffusion in Electrolyte Solutions, a Critical Examination of Data Compiled from the Literature*. Elsevier,

Amsterdam. p320

- [9]. H. Sato, T. Shibutani, M. Yu, Experimental and modelling studies on diffusion of Cs, Ni and Sm in granodiorite, basalt and mudstone, *Journal of Contaminant Hydrology* 26 (1 997) 19
- [10]. T. Melkior *, S. Yahiaoui, D. Thoby, S. Motellier, V. Barthe`s, Diffusion coefficients of alkaline cations in Bure mudrock, *Physics and Chemistry of the Earth* 32 (2007) 453–462
- [11]. P. Wersin, J.M. Soler, L. Van Loon, J. Eikenberg, B. Baeyens, D. Grolimund, T. Gimmi, S. Dewonck, Diffusion of HTO, Br₋, I₋, Cs⁺, ⁸⁵Sr²⁺ and ⁶⁰Co²⁺, in a clay formation: Results and modelling from an in situ experiment in Opalinus Clay, *Applied Geochemistry* 23 (2008) 678–691.
- [12] T.H. Wang, C.L. Chen, Y.Y. Wei, F.L. Chang, S.P. Teng, Study of Cs Sorption to Argillite and Numerical Fitting of behavior thereof: the Potential Host Rock for Low-level Radioactive Waste Repository in Taiwan, submitted
- [13] T.H. Wang, M.H. Li, S.P. Teng, Cs diffusion in local Taiwan laterite with different solution concentration, pH and packing density, *Applied Radiation and Isotopes*, 2008, 66, 1183-1189,
- [14] T. Shahwana, H.N. Ertena, U.L. Blackb, G.C. Allen, TOF-SIMS study of Cs⁺ sorption on natural kaolinite, *Science of the Total Environment*, 1999, 226, 255-260
- [15] J.P. Mckinley, J.M. Zachara, S.M. Heald, A. Dohnalkova, M.G. Newville, S.R. Sutton, Microscale Distribution of Cesium Sorbed to Biotite and Muscovite, *Environ. Sci. Technol.* 2004, 38, 1017-1023