

TRU廃棄物処分の人工バリア材中の 核種移行挙動に関する研究（V） (研究概要)

(核燃料サイクル開発機構 研究委託内容報告書)

2000年2月

三菱重工業株式会社

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

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村大字村松 4-49

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-nura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184

Japan

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

2000

2000年2月

TRU廃棄物処分の人工バリア材中の核種移行挙動に関する研究（V）
 （研究概要）

柳澤 一郎^{*1}、桂井 清道^{*2}、向井 悟^{*3}
 土井 英雄^{*4}

要旨

本研究では、還元性雰囲気を保持した条件でベントナイト系の緩衝材について、U, Npの拡散係数、及び分配係数を取得し、下記の成果を得た。

- ・還元性雰囲気を保持した条件で得られたU, Npの見かけの拡散係数は、従来の試験結果にくらべて1桁以上低い値であった。このことから、U, Npの酸化数はIV価に保たれていたと推定される。
- ・密度1.6g/cm³でのU, Npの分配係数は、ベントナイト平衡水系(DW)での分配係数が他の液性に比べて、若干小さい傾向にあった。
- ・Cs, Srの分配係数は、ベントナイト空隙水中のイオン強度が高くなるにつれて、若干小さくなる傾向にあった。また、Srの分配係数は、ベントナイト変質により若干高くなる傾向であった。
- ・Ni, Sn, Zr, Nbの分配係数のベントナイトの種類及び液性による違いは顕著ではなかった。
- ・Amの分配係数は、Na型よりもCa型の方が約1桁高い値となった。一方、液性による分配係数の違いは小さかった。
- ・昨年度までに作成した見かけの拡散係数、及び分配係数のデータベースを更新した。

本報告書は、三菱重工業株式会社が核燃料サイクル開発機構の委託により実施した研究成果に関するものである。

契約番号：110D 0132

機構担当部課室：東海事業所 環境保全・研究開発センター 処分研究部
 システム解析グループ

* 1 三菱重工業株式会社 原子力プラント技術部 バックエンド技術課

* 2 三菱重工業株式会社 新型炉・燃料サイクル技術部 燃料サイクル技術課

* 3 ニュークリア・デベロップメント(株) 大宮研究部 放射線技術開発室

* 4 ニュークリア・デベロップメント(株) 大宮研究部

February 2000

Study on the Nuclide Behavior in the Engineered Barrier for TRU Waste(V)

Ichiro Yanagisawa^{*1}, Kiyomichi Katurai^{*2}, Satoru Mukai^{*3},
Hideo Doi^{*4}

ABSTRACT

In this study, in-diffusion experiment was conducted under reducing condition to measure apparent diffusion coefficients and distribution coefficients of Uranium and Neptunium for bentonite materials as engineered barrier.

The summary of this study is as follows:

- Apparent diffusion coefficients of U and Np under reducing condition were one or two orders magnitude lower than those of the results obtained in the previous studies. From this result, the valence of U and Np was estimated to be +4 charge during diffusion experiment.
- Distribution coefficients of U and Np for the system of equilibrated water with bentonite at density of 1.6 g/cm³ were a little lower than those for the other synthetic groundwater system.
- Distribution coefficients of Cs and Sr decreased as ion strength of pore water in bentonite increased. Distribution coefficient of Sr increased for alternation of bentonite.
- Distribution coefficients of Ni, Sn, Zr, and Nb were little difference for any type of bentonite or synthetic groundwater.
- Distribution coefficients of Am for Na-type of bentonite was higher than that of Ca-type of bentonite. But the difference of distribution coefficients for any synthetic groundwater was small.
- Data base of apparent diffusion coefficients and distribution coefficients was renewed.

This work was performed by Mitsubishi Heavy Industries, LTD. (MHI) under contract with Japan Nuclear Cycle Development Agency.

Contract No. : 110D 0132

JNC Liaison:Waste Management and Fuel Cycle Research Center, Waste Isolation Research Division, Repository System Analysis Group

*1 Mitsubishi Heavy Industries, Ltd. Back-end Engineering Section, Nuclear Plant Engineering Department

*2 Mitsubishi Heavy Industries, Ltd. MHI Fuel Cycle Engineering Section, Advanced Reactor & Nuclear Fuel Cycle Engineering Department

*3 Nuclear Development Corporation, Radiation Engineering, Omiya Research & Development Department

*4 Nuclear Development Corporation, Omiya Research & Development Department

目次

1. はじめに	1
2. 圧縮ベントナイト中でのU, Npの分配係数の取得	2
2. 1 拡散試験条件	2
2. 2 試験溶液の作製	2
2. 3 核種添加溶液の調製	2
2. 4 試験方法	3
2. 5 試験結果	8
3. U, Npの分配係数に対する評価	10
3. 1 データベース作成	10
3. 2 分配係数に対する評価	10
4. まとめ	21

図目次

図3.2.1-1 HT0の見かけの拡散係数	14
図3.2.1-2 Csの見かけの拡散係数	15
図3.2.1-3 Srの見かけの拡散係数	16
図3.2.1-4 Npの見かけの拡散係数	17
図3.2.2-1 Csの分配係数	18
図3.2.2-2 Srの分配係数	19
図3.2.2-3 Npの分配係数	20

表目次

表2.1-1 検定条件	4
表2.1-2 試験マトリックス	5
表2.1-3 試験マトリックス	6
表2.1-4 試験マトリックス	7

1. はじめに

本研究は、T R U廃棄物の処分概念を検討するために必要な核種移行評価用データベースを整備することを目的として、ベントナイトに対する核種の分配係数を取得した。

本研究では、これまでに取得されていない、酸化数が+IVのU及びN pのベントナイト空隙水液性を考慮したベントナイトに対する分配係数を取得した。得られた分配係数から、ベントナイト空隙液性の影響を評価した。

2. 圧縮ベントナイト中のU, Npの分配係数の取得

2.1 拡散試験条件

TRU廃棄物処分の性能評価上、重要な核種であるU, Npを対象として、圧密ベントナイト中のみかけの拡散係数を測定した。みかけの拡散係数の測定条件を表2.1-1に示す。試験ではU, Npを拡散試験に使用する溶液と同じ液性に調整し、還元剤を添加したものを使用し、試験セルは還元剤を添加した溶液に浸漬させることで還元性雰囲気を保持した。

拡散試験マトリックスをこれまでに取得したデータも併せて、表2.1-2～表2.1-4に示す。

2.2 試験溶液の作製

試験に使用する溶液は以下の方法により調製した。予め脱ガスした蒸留水を用いて作製した3w/o-NaCl溶液に硫酸塩、炭酸塩を添加して、模擬海水中のNa, Cl, 硫酸イオン、炭酸イオン、硝酸塩を所定濃度に調整した。この溶液にCa(OH)₂を添加してpHを12.5に調整した。硝酸塩を含む系では、この溶液にNaNO₃を約6M添加した。この溶液を0.45μmフィルターで濾過し、模擬海水として使用した。模擬海水のNa, Cl, 硫酸イオン、炭酸イオン濃度は、H3レポートでの地下水組成の計算値を参考に設定した。セメント平衡液には、脱ガスした蒸留水にCa(OH)₂を飽和するまで溶解し、0.45μmフィルターで濾過した溶液を用いた。ベントナイト平衡液には、脱ガスした蒸留水を用いた。

2.3 核種添加溶液の調製

ベントナイトに核種を添加した際のベントナイト空隙水中のpHが変化しない様にするために、U, 及びNpの原液(UO₂²⁺, NpO₂⁺)を拡散試験に使用する溶液と同じ液性の溶液に調製した。ただし、ベントナイト平衡液系については、蒸留水をベントナイト平衡水のpHになる様に、NaOH溶液でpH調整した溶液を使用して、核種添加溶液を調製した。

核種添加溶液は以下に示す方法で調製した。拡散試験での液性と同じ溶液、またはpH調整した蒸留水に還元剤(亜ニチオノ酸ナトリウム)を約10⁻³M添加してEhを-200mV以下(標準水素電極に対する電位)に保つ。この溶液に核種を添加し、1日静置後、限外濾過(分画分子量10000)し、濾液中の核種を分析した。核種分析の結果、U, Np共に限外濾過により濃度の減少が見られた。これは、溶液のpH, Eh条件下でU, 及びNpの酸化数が4価となり、溶解度が減少したためと考えられる。拡散試験

において、限外濾過した溶液を添加する場合、核種濃度が低く、核種添加量が従来の試験よりも2～3桁小さくなり、拡散試験後の核種が検出できる可能性がある。このため、核種添加には、限外濾過前の溶液を使用することとした。

2.4 試験方法

試験は非定常拡散試験により行った。ベントナイトを所定の密度に圧縮成型し、拡散セルにセッティングした。上記2.2項で作製した試験溶液に還元剤（亜ニチオニ酸ナトリウム）を添加してEhを-200mV以下に保つ。この溶液に拡散セルを浸漬し、減圧しながら含水させ、含水飽和に近い状態になるまで、所定の期間静置させた。含水させたベントナイトの端面に、上記2.3項で調製した溶液を塗布し、拡散試験を開始した。酸化還元電位に敏感な元素（U, Np）であるため、還元雰囲気を保持するために、還元剤を含む試験溶液、またはpH調整した蒸留水に還元剤を添加した溶液中にセルを浸して試験を実施した。試験期間中、適宜pH, Ehを測定した。還元雰囲気が保持されていない場合には、還元剤を添加した。所定の期間核種を拡散させた後、ベントナイトを0.5～1mm程度の厚さでスライスした。スライスしたベントナイト片中の核種量をICP-MSにより測定した（U, Npの場合）。拡散試験終了後、試験溶液中のU, Npを分析し、溶液中に核種が拡散していないことを確認した。

核種分析の結果得られたベントナイト中の核種濃度分布から、一次元の拡散の解析解にフィッティングすることにより、みかけの拡散係数を算出した。

表2.1-1 測定条件

項目	測定条件
測定方法	非定常拡散試験 (In-Diffusion法)
測定対象核種	U (+IV), Np (+IV)
ペントナイト試料及び空隙水 液性	<ul style="list-style-type: none"> ・Ca型化ペントナイト／ペントナイト平衡水 ・Ca型化ペントナイト／模擬セメント間隙水 ・Ca型化ペントナイト／模擬セメント間隙水+海水
乾燥密度	1.6 g/cm ³
試験温度	25 °C

表2.1-2 試験マトリックス(1/2)

元素	Ca型化ペントナイト(乾燥密度1.2g/cm ³)		Ca型化ペントナイトナイト+方沸石 セメント平衡液系	Ca型化ペントナイトナイト+方沸石 セメント平衡液系	備考
	ペントナイト平衡液系	セメント平衡液系			
HTO	○(H10)	○(H10)	○(H8)	○(H8)	—
Cs	○(H7)	○(H8)	○(H8)	○(H8)	—
Sr	○(H8)	○(H8)	○(H8)	○(H8)	—
Nb	○(H8)	○(H8)	○(H8)	○(H8)	—
U	○(H8)	○(H8)	○(H8)	○(H8)	—
Np	○(H7)	○(H8)	○(H8)	○(H8)	—
Am	○(H8-H9)	○(H8-H9)	○(H8-H9)	○(H8-H9)	—
Ni	◎(H10-H11)	○(H9)	—	—	—
Sn	◎(H10-H11)	◎(H9-H11)	—	—	—
Zr	◎(H10-H11)	◎(H9-H11)	—	—	—

○:昨年度までに取得したデータ、():は実施年度
 ◎:今年度取得したデータ

表2.1-2 試験マトリックス(2/2)

元素	Ca型化ペントナイト(乾燥密度1.8g/cm ³)		Ca型化ペントナイトナイト+方沸石(乾燥密度1.6g/cm ³)	Ca型化ペントナイトナイト+方沸石 セメント平衡液系	備考
	ペントナイト平衡液系	セメント平衡液系			
HTO	○(H10)	○(H10)	—	○(H10)	—
Cs	○(H7)	○(H8)	○(H8)	○(H10-H11)	—
Sr	○(H8)	○(H8)	○(H8)	○(H10)	—
Nb	○(H8-H9)	○(H8-H9)	○(H8-H9)	○(H10-H11)	—
U	○(H8-H9)	○(H8-H9)	○(H8-H9)	○(H10-H11)*1	*1:還元雰囲気を保持した試験
Np	○(H8-H9)	○(H8-H9)	○(H8-H9)	○(H10-H11)*1	*1:還元雰囲気を保持した試験
Am	○(H8-H9)	○(H8-H9)	○(H8-H9)	○(H10-H11)	—
Ni	◎(H10-H11)	○(H9)	—	○(H10-H11)	—
Sn	◎(H10-H11)	◎(H9-H11)	—	○(H10-H11)	—
Zr	◎(H10-H11)	○(H9-H10)	—	○(H10-H11)	—

○:昨年度までに取得したデータ、():は実施年度
 ◎:今年度取得したデータ

表2.1-3 試験マトリックス(1/2)

元素	Na型ベントナイト(乾燥密度1.2g/cm ³)		備考
	セメント平衡液－海水系	セメント平衡液－硝酸塩－海水系	
HTO	○(H10)	○(H10)	
Cs	○(H9)	○(H9)	
Sr	○(H9)	○(H9)	
Ni	○(H9)	○(H9)	
Sn	○(H9-H10)	○(H9-H10)	
Zr	○(H9-H10)	○(H9-H10)	
Nb	○(H9-H10)	○(H9-H10)	
U	◎(H10-H11)*1	◎(H10-H11)*1	*1:還元雰囲気を保持した試験
Np	◎(H10-H11)*1	◎(H10-H11)*1	*1:還元雰囲気を保持した試験
Am	◎(H10-H11)	◎(H10-H11)	

○:昨年度までに取得したデータ、():実施年度
 ◎:今年度取得したデータ

表2.1-3 試験マトリックス(2/2)

元素	Na型ベントナイト(乾燥密度1.8g/cm ³)		備考
	セメント平衡液－海水系	セメント平衡液－硝酸塩－海水系	
HTO	○(H10)	○(H10)	
Cs	○(H9)	○(H9)	
Sr	○(H9)	○(H9)	
Ni	○(H9)	○(H9)	
Sn	○(H9-H10)	○(H9-H10)	
Zr	○(H9-H10)	○(H9-H10)	
Nb	○(H9-H10)	○(H9-H10)	
U	◎(H10-H11)*1	◎(H10-H11)*1	*1:還元雰囲気を保持した試験
Np	◎(H10-H11)*1	◎(H10-H11)*1	*1:還元雰囲気を保持した試験
Am	◎(H10-H11)	◎(H10-H11)	

○:昨年度までに取得したデータ、():実施年度
 ◎:今年度取得したデータ

表2.1-4 試験マトリックス

元素	Ca型化ペシトナイト(乾燥密度1.6g/cm ³)			備考
	ペシトナイト平衡液系	セメント平衡液系	セメント平衡液一海水系	
U	◎(H11)*1	◎(H11)*1	◎(H11)*1	*1:還元雰囲気を保持した試験
Np	◎(H11)*1	◎(H11)*1	◎(H11)*1	*1:還元雰囲気を保持した試験

◎:今年度取得したデータ

2.5 試験結果

2.5.1 Ca型化ベントナイト/ベントナイト平衡液、セメント平衡液系

(1) ベントナイト平衡液系

ベントナイト中のNi, 及びSnの濃度分布の測定値は、薄膜拡散源の場合の拡散式にほぼ一致していた。ベントナイト中のZr濃度分布の測定値は、ベントナイト表面での濃度が深い点での濃度に比べて1桁以上高かった。これは、ベントナイト表面でのZrの水酸化物の沈殿により、溶解度律速になっていることが考えられる。Zrの拡散深さにくらべてプロット点が少なく、2層目以降のデータでフィッティングすることが困難なことから、1層目以降のデータを用いて、フィッティングを行った。

Ni, Snについては薄膜拡散源の場合の解析解を用い、Zrについては溶解度律速の場合の解析解を用いてみかけの拡散係数を算出した。

(2) セメント平衡液系

Snの濃度分布は、若干データのばらつきはあるが、ベントナイト平衡液と同様に、薄膜拡散源の場合の解析解に近い濃度分布を示していた。なお、Snの濃度はベントナイト中のバックグラウンドを含んでおり、Snの拡散量に比べてバックグラウンドの寄与が大きい場合には、算出したみかけの拡散係数は、実際よりも高めに評価している可能性がある。

(3) 還元雰囲気を保持した系

拡散セルを模擬地下水（ベントナイト平衡液、セメント平衡液、セメント平衡液-海水系）に浸漬させることにより還元雰囲気を保持した系でのU, Npの試験結果から、ベントナイト表面近傍でのU, Npの濃度は、ベントナイト内部の濃度に比べて1桁以上高かった。このことから、溶解度律速の場合の解析解を用いてみかけの拡散係数を算出した。なお、核種の拡散深さにくらべてプロット点が少なく、2層目以降のデータでフィッティングすることが困難なケースについては、1層目以降のデータを用いて、フィッティングを行った（後述する2.5.2項、2.5.3項でもこれに該当するケースは同様のフィッティングを行った）。

2.5.2 Ca型化ベントナイト+方沸石(80w/o)/セメント平衡液系

(Ca型化ベントナイト+方沸石) 中のCs, Nb, U, Np, Am, Ni, Sn, Zrの濃度分布から、Cs, Ni, Snは薄膜拡散源の場合の解析解に近い濃度分布を示した。一方、Nb, U, Np, Am,

Zrについては、溶解度律速の場合の拡散式に近い濃度分布を示した。

2. 5. 3 Na型ベントナイト／セメント平衡液＋海水系、セメント平衡液＋海水＋硝酸塩系

Na型ベントナイト／セメント平衡液＋海水系、及びNa型ベントナイト／セメント平衡液＋海水＋硝酸塩系でのU, Np, Amの濃度分布から、いずれの核種も、ベントナイト表面近傍での濃度が深い点での濃度に比べて1桁以上高かった。このため、溶解度律速の場合の解析解を用いて、みかけの拡散係数を算出した。

Na型ベントナイト／セメント平衡液＋海水系、及びNa型ベントナイト／セメント平衡液＋海水＋硝酸塩系でのSn, Zr, Nbの濃度分布から、Snは薄膜拡散源の場合の解析解に近い濃度分布を示した。一方、Nb, Zrについては、溶解度律速の場合の拡散式に近い濃度分布を示した。

3. U, N p の分配係数に対する評価

3. 1 データベース作成

これまでに非定常拡散試験で取得したデータ、及び今年度に取得したデータから、ベントナイト中の元素のみかけの拡散係数、分配係数を整理した。分配係数は、本研究で取得したみかけの拡散係数から、元素の実効拡散係数をトリチウムの実効拡散係数と同じと仮定して算出した。

3. 2 分配係数に対する評価

3. 2. 1 みかけの拡散係数のベントナイトの種類／液性による違い

(1) トリチウム

非定常拡散試験により得られたベントナイト中のトリチウムのみかけの拡散係数を図3. 2. 1-1に示す。図3. 2. 1-1において、CWはセメント平衡液系、CSWはセメント平衡液+海水系、CSNWはセメント平衡液+海水+硝酸塩系、DWはベントナイト平衡液系を表している。図3. 2. 1-1から、いずれの液相においてもトリチウムのみかけの拡散係数は、Na型とCa型で殆ど差は見られなかった。トリチウムはベントナイトに吸着することなく、空隙中を拡散することから、Na型とCa型でベントナイト中の空隙構造に殆ど違いはないと推定される。

(2) Cs

Csのみかけの拡散係数を図3. 2. 1-2に示す。図3. 2. 1-2から、Csの見かけの拡散係数は、Na型の方がCa型よりも若干大きい傾向にあった。また、セメント平衡液系でのCa型化ベントナイト+方沸石のみかけの拡散係数は、Ca型化ベントナイトのみかけの拡散係数と同程度であることから、Csの拡散に及ぼすベントナイト変質の影響は小さいと考えられる。

硝酸塩を含む系が他の系に比べて最もみかけの拡散係数が大きかった。これは、硝酸塩に含まれる Na^+ イオンによって、ベントナイトへの Cs^+ イオンの吸着が妨げられたためと考えられる。

(3) Sr

Srのみかけの拡散係数を図3. 2. 1-3に示す。図3. 2. 1-3から、Srの見かけの拡散係数は、Na型の方がCa型よりも若干大きい傾向にあった。また、セメント平衡液系でのCa型化ベントナイト+方沸石のみかけの拡散係数は、Ca型化ベントナイトのみかけの拡散係数に比べて小さかったことから、Srの拡散にはベントナイト変

質の影響がみられた。

硝酸塩を含む系が若干ではあるが、他の系に比べて最もみかけの拡散係数が大きかった。これは、硝酸塩に含まれる Na^+ イオンによってベントナイトへの Sr^{2+} イオンの吸着が妨げられたためと考えられる。

(4) Ni

Niの見かけの拡散係数は、ベントナイトの種類／液性によって若干違いはあるものの顕著ではなかった。また、セメント平衡液系でのCa型化ベントナイト＋方沸石のみかけの拡散係数は、Ca型化ベントナイトのみかけの拡散係数と同程度であることから、Niの拡散に及ぼすベントナイト変質の影響は小さいと考えられる。

(5) Sn, Zr, Nb

Sn, Zr, Nbの見かけの拡散係数は、ベントナイトの種類／液性によって若干違いはあるものの顕著ではなかった。ただし、ベントナイト中にこれらの元素のバックグラウンドの確認試験が今後必要と考えられる。

(6) Np, U

Npのみかけの拡散係数を図3.2.1-4に示す。図3.2.1-4から、密度1.6g/cm³でのみかけの拡散係数は、密度1.2g/cm³と1.8g/cm³のみかけの拡散係数よりも小さかった。Npは酸化還元電位によって酸化数が変化するが、密度1.6g/cm³の場合、還元性雰囲気を保持した試験であることから、Npの酸化数は4価に保たれていたと推定される。

Uのみかけの拡散係数についても、上述したNpの場合と同様に、密度1.6g/cm³でのみかけの拡散係数は、密度1.2g/cm³と1.8g/cm³のみかけの拡散係数よりも小さかった。Uは酸化還元電位によって酸化数が変化するが、密度1.6g/cm³の場合、還元性雰囲気を保持した試験であることから、Uの酸化数は4価に保たれていたと推定される。ただし、ベントナイト中にUのバックグラウンドの確認試験が今後必要と考えられる。

(7) Am

Amの見かけの拡散係数は、Na型よりもCa型の方が約1桁高い値となった。一方、液性によるみかけの拡散係数の違いは小さかった。

3.2.2 分配係数のベントナイト密度／変質による違い

(1) Cs

3.1項で述べた方法により算出した Cs の分配係数を図3.2.2-1に示す。図3.2.2-1から、Cs の分配係数は、Na型の方がCa型よりも若干大きいがその差は1桁以内であった。また、セメント平衡液系でのCa型化ベントナイト+方沸石の分配係数は、Ca型化ベントナイトの分配係数と同程度であることから、ベントナイト変質の影響は小さいと考えられる。

硝酸塩を含む系が他の系に比べて最も分配係数が小さかった。これは、硝酸塩に含まれる Na^+ イオンによって、ベントナイトへの Cs^+ イオンの吸着が妨げられたためと考えられる。

(2) Sr

Sr の分配係数を図3.2.2-2に示す。図3.2.2-2から、Sr の分配係数は、Na型とCa型で顕著な差はみられなかった。また、セメント平衡液系でのCa型化ベントナイト+方沸石の分配係数は、Ca型化ベントナイトの分配係数に比べて大きいことから、Sr の拡散にはベントナイト変質の影響がみられた。

硝酸塩を含む系が若干ではあるが、他の系に比べて最も分配係数が小さかった。これは、硝酸塩に含まれる Na^+ イオンによってベントナイトへの Sr^{2+} イオンの吸着が妨げられたためと考えられる。

(3) Ni

Ni の分配係数は、ベントナイトの種類／液性によって若干違いはあるものの顕著ではなかった。また、セメント平衡液系でのCa型化ベントナイト+方沸石の分配係数は、Ca型化ベントナイトの分配係数と同程度であることから、Ni の分配係数に及ぼすベントナイト変質の影響は小さいと考えられる。

(4) Sn, Zr, Nb

Sn, Zr, Nb の分配係数は、ベントナイトの種類／液性によって若干違いはあるものの顕著ではなかった。

(5) Np, U

Np の分配係数を図3.2.2-3に示す。図3.2.2-3から、密度 $1.6\text{g}/\text{cm}^3$ での分配係数は、密度 $1.2\text{g}/\text{cm}^3$ と $1.8\text{g}/\text{cm}^3$ の分配係数よりも大きかった。これは、3.2.1項で

述べた様に、密度 $1.6\text{g}/\text{cm}^3$ の場合、還元性雰囲気を保持した条件での試験であることによる。密度 $1.6\text{g}/\text{cm}^3$ での分配係数を比較すると、ベントナイト平衡水系(DW)での分配係数が他の液性に比べて、若干小さい傾向にあった。

Uの分配係数についても、上述したNpの場合と同様に、密度 $1.6\text{g}/\text{cm}^3$ での分配係数は、密度 $1.2\text{g}/\text{cm}^3$ と $1.8\text{g}/\text{cm}^3$ の分配係数よりも大きかった。これは、同様に3.2.1項で述べた様に、密度 $1.6\text{g}/\text{cm}^3$ の場合、還元性雰囲気を保持した条件での試験であることによる。密度 $1.6\text{g}/\text{cm}^3$ での分配係数を比較すると、ベントナイト平衡水系(DW)での分配係数が他の液性に比べて、若干小さい傾向にあった。

(6) Am

Amの分配係数は、Na型よりもCa型の方が約1桁高い値となった。一方、液性による分配係数の違いは小さかった。

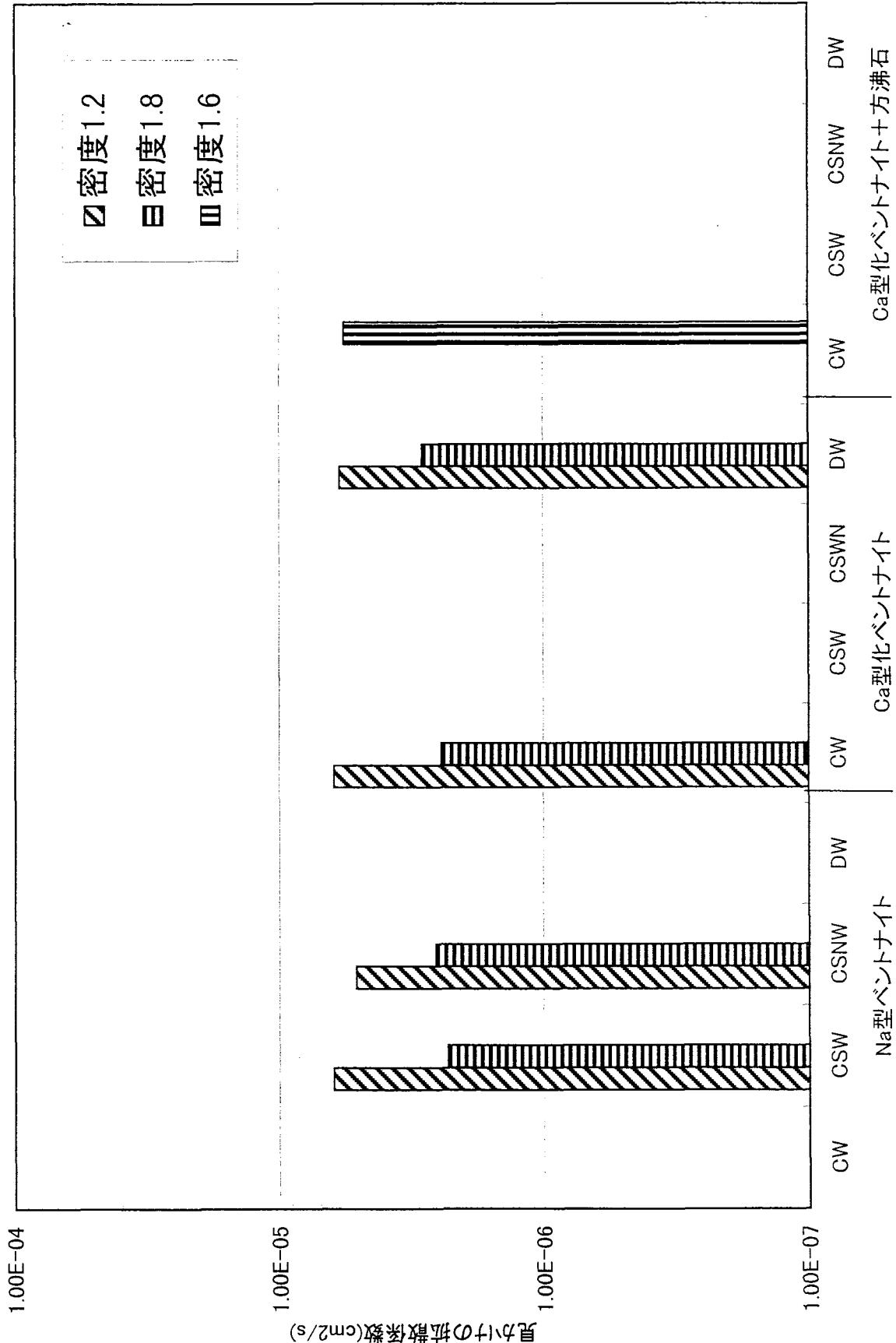


図3.2.1-1 HTOの見かけの拡散係数

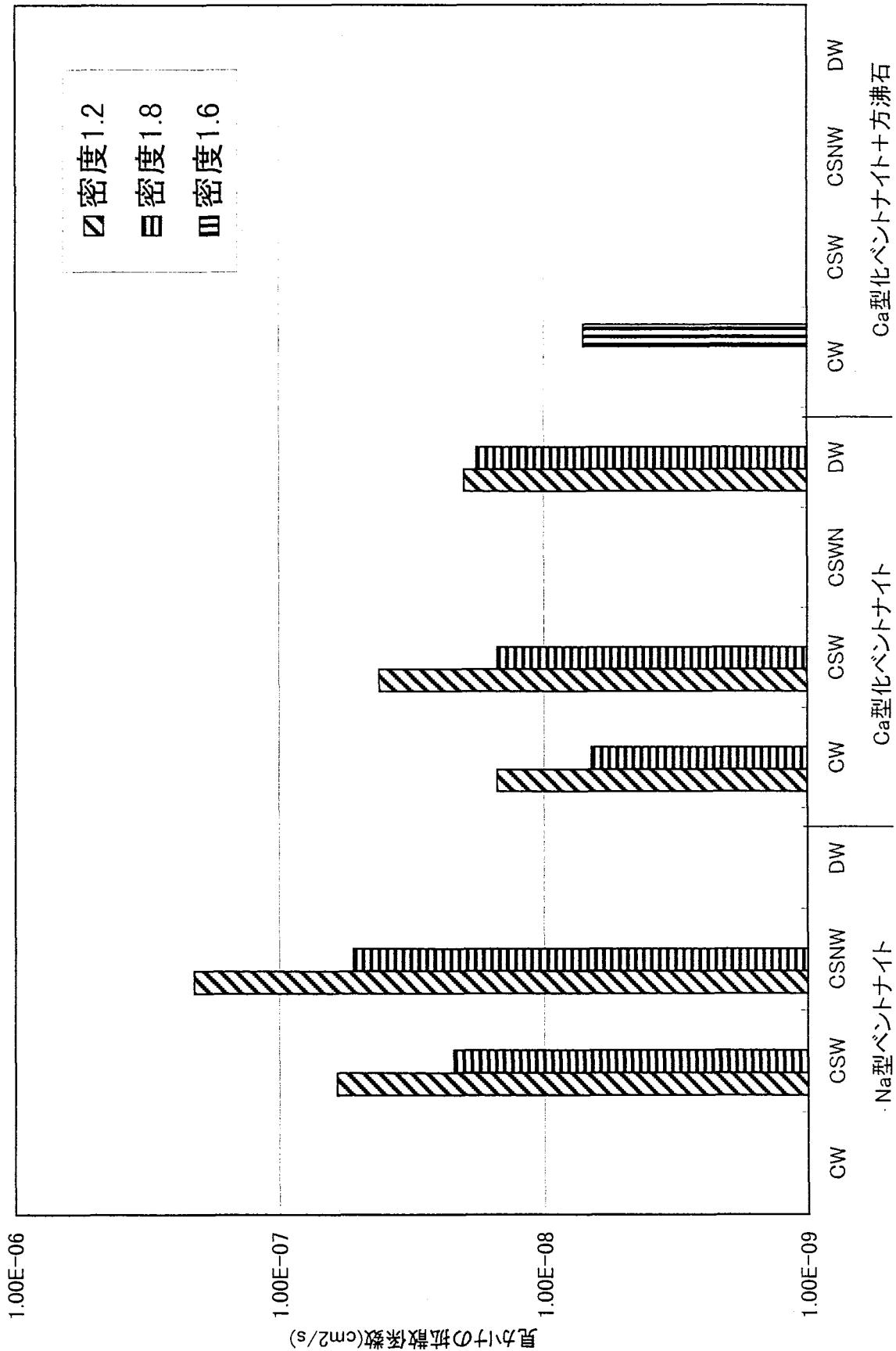


図3.2.1-2 Csの見かけの拡散係数

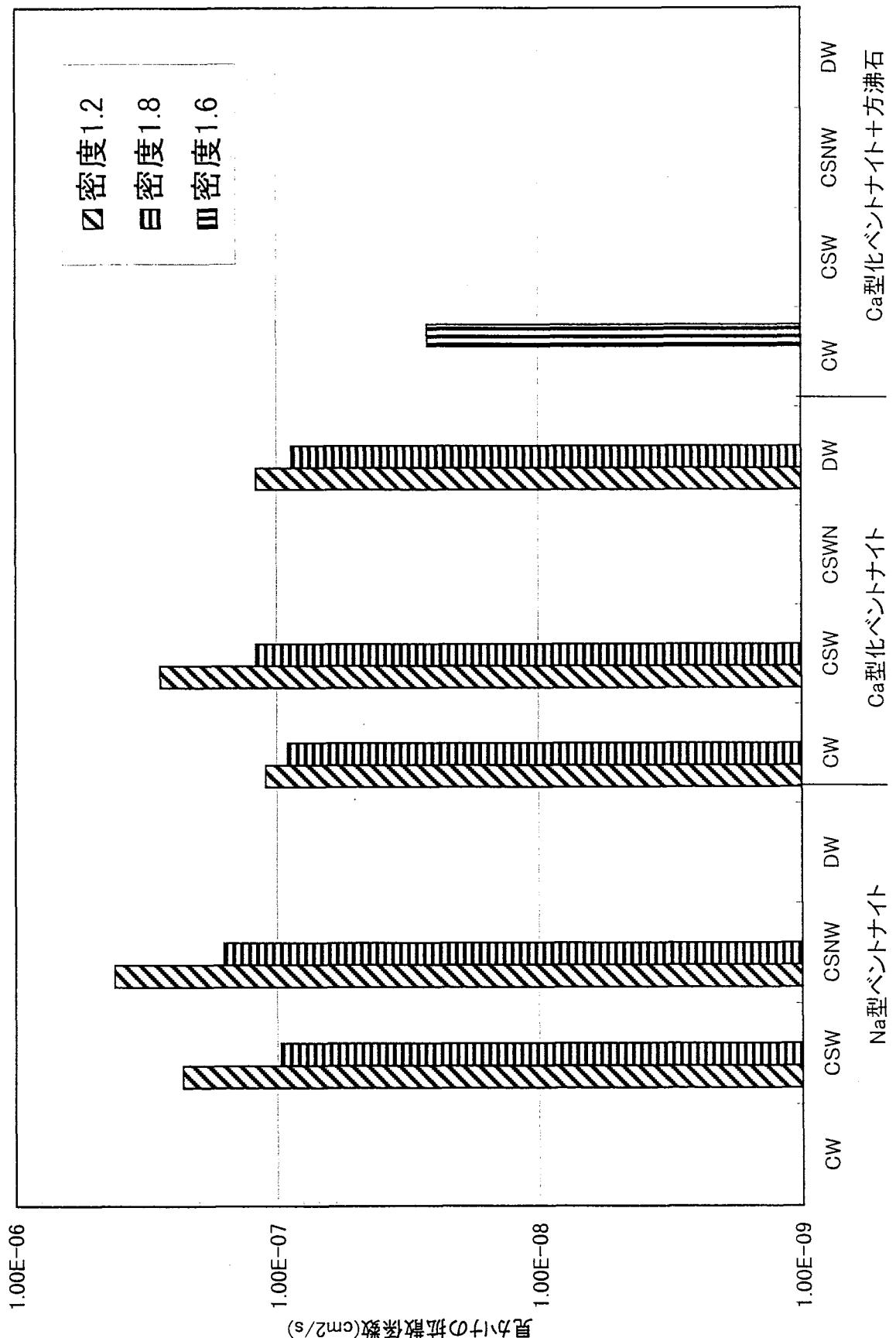
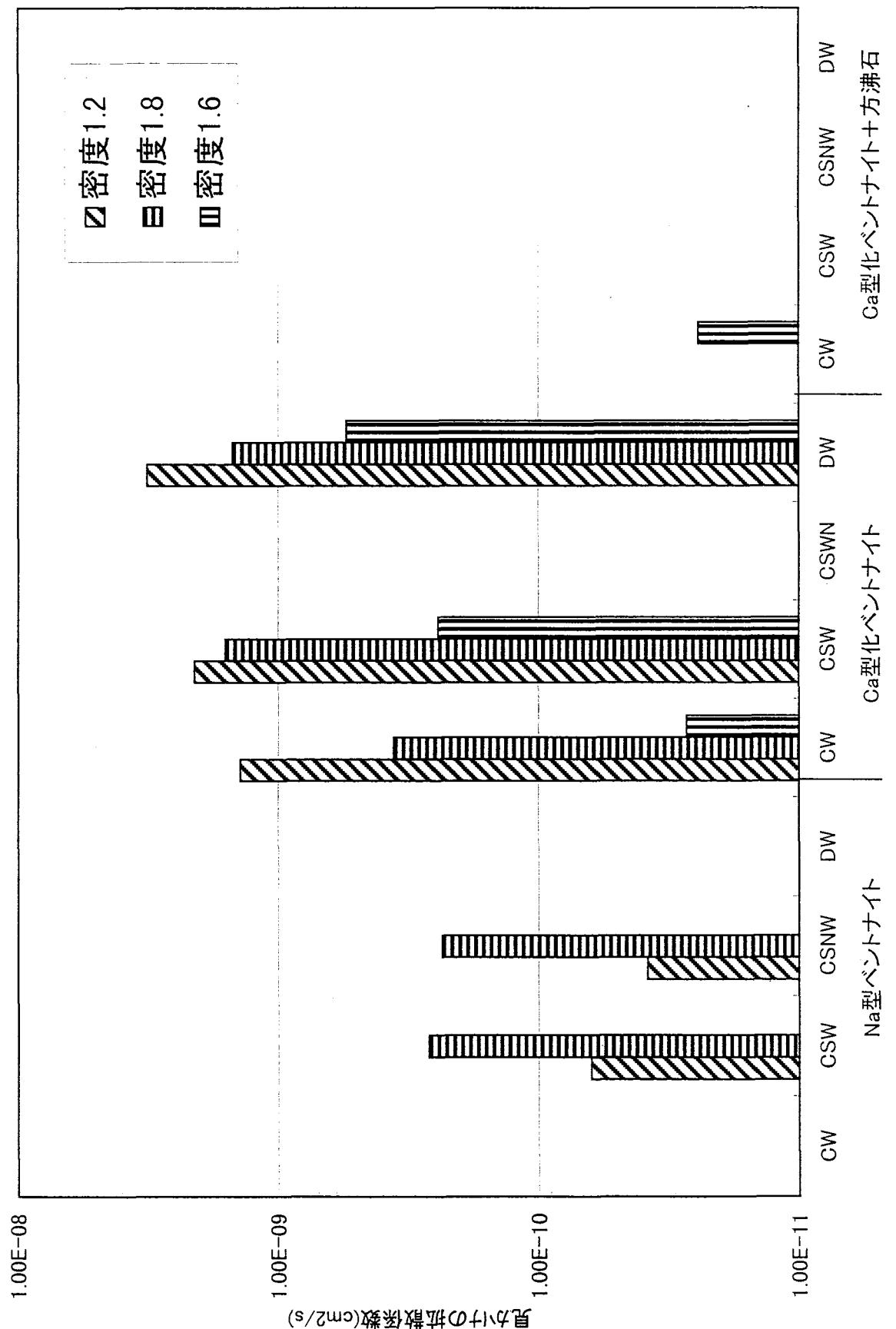


図3.2.1-3 Srの見かけの拡散係数



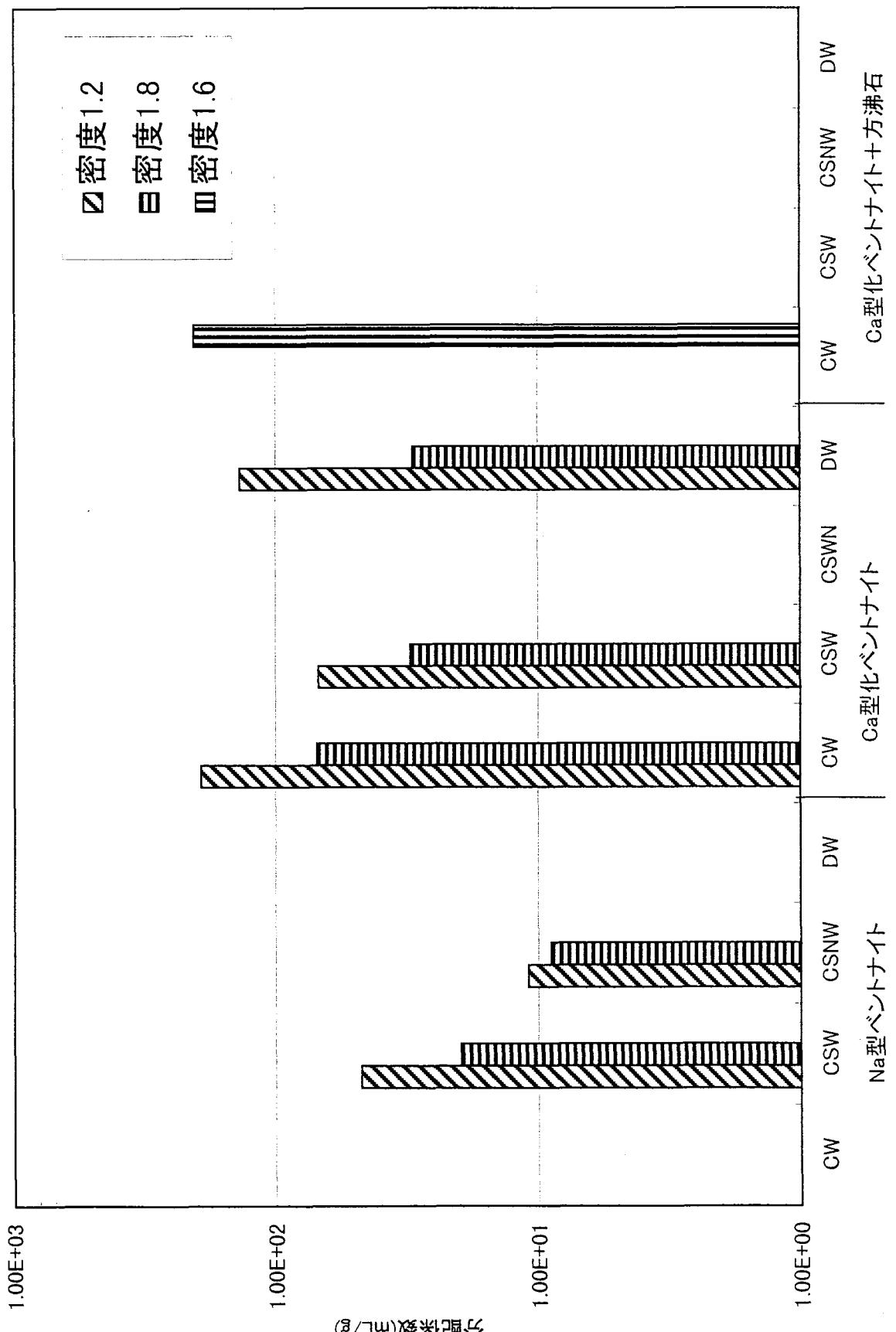


図3.2.2-1 Csの分配係数

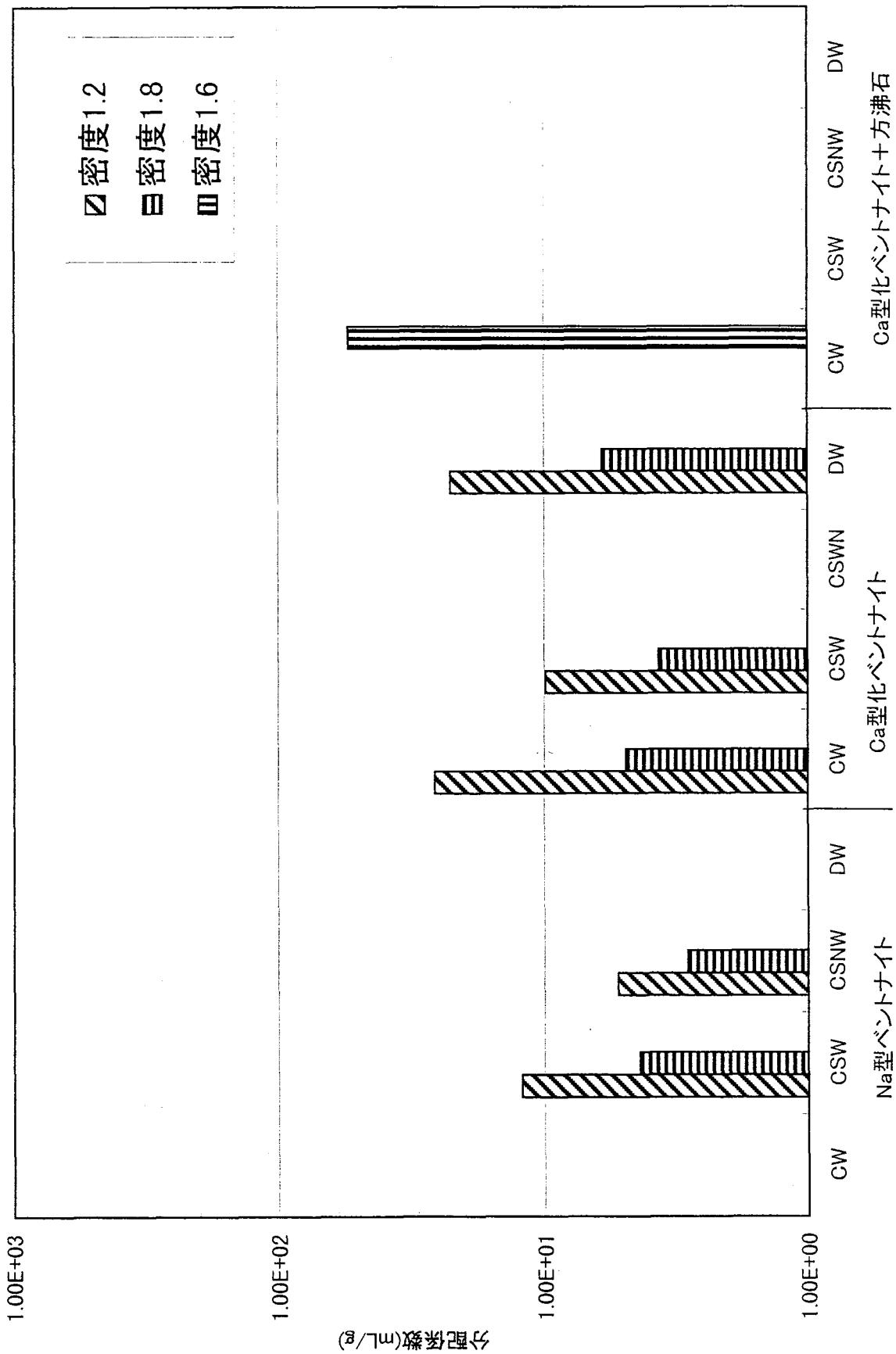


図3.2.2-2 Srの分配係数

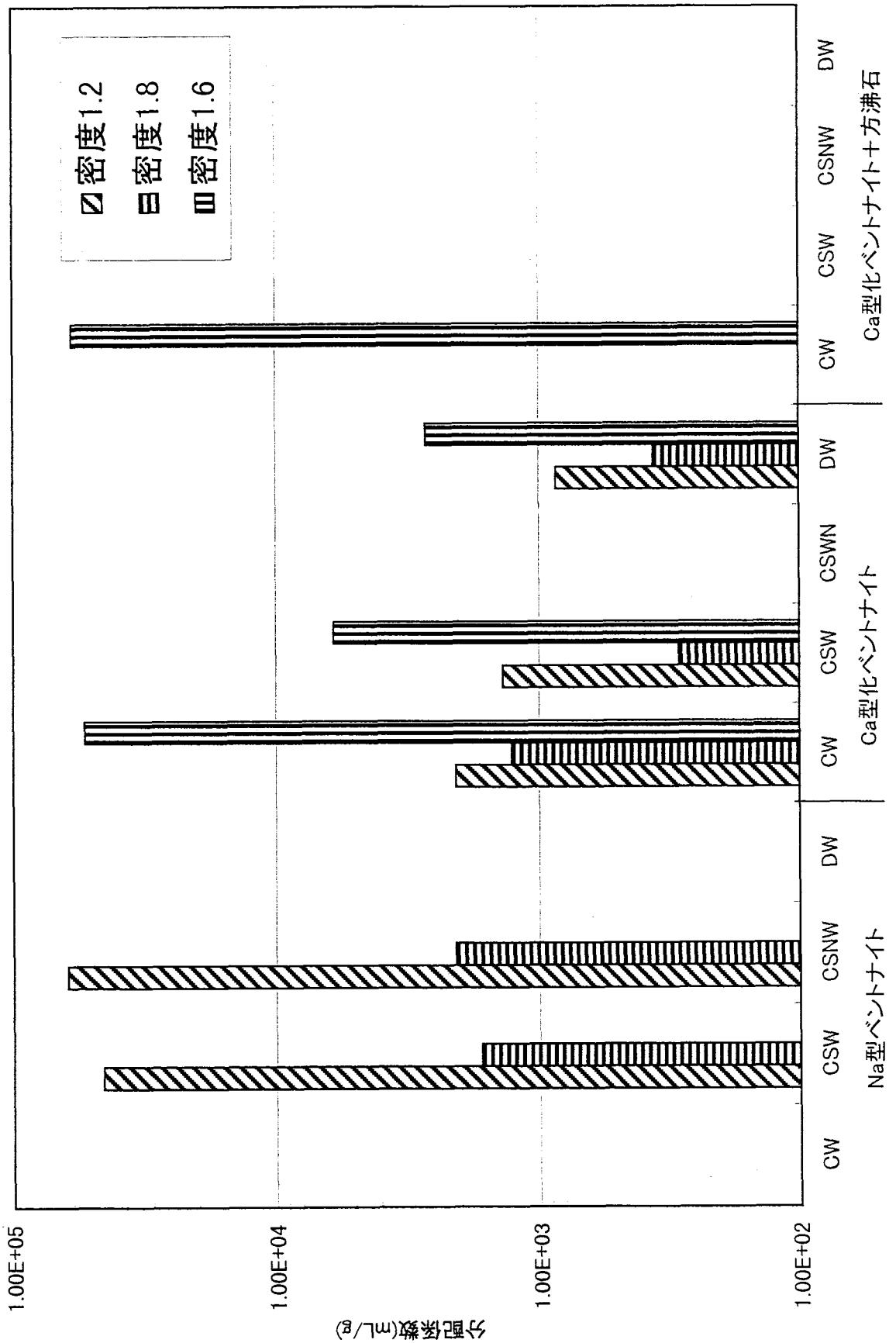


図3.2.2-3 N_p の分配係数

4.まとめ

本研究では、還元性雰囲気を保持した条件でベントナイト系の緩衝材について、U, Npの拡散係数、及び分配係数を取得し、下記の成果を得た。

- ・還元性雰囲気を保持した条件で得られたU, Npの見かけの拡散係数は、従来の試験結果にくらべて1桁以上低い値であった。このことから、U, Npの酸化数はIV価に保たれていたと推定される。
- ・密度1.6g/cm³でのU, Npの分配係数は、ベントナイト平衡水系(DW)での分配係数が他の液性に比べて、若干小さい傾向にあった。
- ・Cs, Srの分配係数は、ベントナイト空隙水中のイオン強度が高くなるにつれて、若干小さくなる傾向にあった。また、Srの分配係数は、ベントナイト変質により若干高くなる傾向であった。
- ・Ni, Sn, Zr, Nbの分配係数のベントナイトの種類及び液性による違いは顕著ではなかった。
- ・Amの分配係数は、Na型よりもCa型の方が約1桁高い値となった。一方、液性による分配係数の違いは小さかった。
- ・昨年度までに作成した見かけの拡散係数、及び分配係数のデータベースを更新した。