

圧縮ベントナイト中における  
Pu, Amの拡散挙動  
(研究報告)

1999年11月

核燃料サイクル開発機構  
東海事業所

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)  
2000

圧縮ベントナイト中における  
Pu, Amの拡散挙動  
(研究報告)

舘 幸男\*, 小原 幸利\*,  
内舘 信幸\*, 澁谷 朝紀\*

要旨

高レベル放射性廃棄物地層処分性能評価において、ベントナイト系緩衝材中の核種移行挙動を把握することは重要な課題であり、圧縮ベントナイト中の見かけの拡散係数 ( $D_a$ ) は、第2次取りまとめにおいてベントナイト中の分配係数の設定根拠となることから、特に重要なパラメータである。本報告では、ベントナイト中の Pu 及び Am の拡散試験結果について報告する。

圧縮ベントナイト中の Pu 及び Am の拡散試験を、大気下、室温にて In-diffusion 法により行い、以下の結果が得られた。

- (1) Pu については、乾燥密度  $0.4 \text{ Mg/m}^3$  のベントナイトに対して  $2.0 \times 10^{-15} \sim 2.2 \times 10^{-14} \text{ m}^2/\text{s}$  の見かけの拡散係数が得られた。この値は過去に報告したスメクタイトの密度  $0.4 \text{ Mg/m}^3$  に対する値と同程度であった。
- (2) Am については乾燥密度  $2.0 \text{ Mg/m}^3$  のベントナイトに対して  $2.7 \times 10^{-16} \sim 1.2 \times 10^{-15} \text{ m}^2/\text{s}$  の見かけの拡散係数が得られた。この値は過去に報告したより低密度のベントナイト中の  $D_a$  データの密度依存性に合致するものであった。

Pu, Am の見かけの拡散係数は非常に低いために、精度の高いデータを取得することは難しく、ここで報告したデータも一桁程度の幅をもった値として得られたものである。特に、Pu の場合には濃度プロファイルが途中で折れ曲がる傾向が認められ、複雑な拡散挙動をとることが示唆された。今後、より精度の高いデータを取得すると共に、化学種と拡散挙動の関係に着目した研究を行い、拡散メカニズムについて検討する必要がある。

---

\* 核燃料サイクル開発機構 東海事業所 環境保全・研究開発センター 処分研究部  
放射化学研究グループ

## Diffusion Behavior of Pu and Am in Compacted Bentonite

Tachi Yukio\*, Kohara Yukitoshi\*,  
Uchidate Nobuyuki\*, Shibutani Tomoki\*

### Abstract

Understanding the migration behavior of radionuclides in compacted bentonites is important for the performance assessment of geological disposal of high-level radioactive waste. In the Second Progress Report, the distribution coefficients of radionuclides on bentonites have been determined based on apparent diffusion coefficients ( $D_a$ ) obtained for compacted bentonites. Therefore, the apparent diffusion coefficient is one of the most important parameters for the performance assessment. In this report, the diffusion behavior of plutonium and americium in compacted bentonites was studied.

The diffusion experiments of Pu and Am in compacted bentonite (Kunigel V1) were conducted by in-diffusion method under aerobic conditions at room temperature. The following results were acquired.

- (1) The apparent diffusion coefficients of Pu obtained for compacted bentonite with a dry density of  $0.4 \text{ Mg/m}^3$  were in the range of  $2.0 \times 10^{-15}$  to  $2.2 \times 10^{-14} \text{ m}^2/\text{s}$ . These values were similar to those for compacted smectite (Kunipia F) reported by JNC in the past.
- (2) The apparent diffusion coefficients of Am obtained for compacted bentonite with a dry density of  $2.0 \text{ Mg/m}^3$  were in the range of  $2.7 \times 10^{-16}$  to  $1.2 \times 10^{-15} \text{ m}^2/\text{s}$ . These values were consistent with the dependency of  $D_a$  on density reported by JNC in the past.

It is difficult to obtain accurate diffusion coefficient of Pu and Am due to quite slow diffusivity. The apparent diffusion coefficients obtained for individual conditions in this study include uncertainty to some extent (one order of magnitude). The concentration profile of Pu was confirmed to have complicated shape composed of three parts, which implied complexity of diffusion behavior. To understand diffusion mechanisms of these elements in compacted bentonites, more accurate diffusion data and information focused on relation between species and diffusion behavior are essential.

---

\* Radiochemistry Group, Waste Isolation Research Division, Waste Management and Fuel Cycle Research Center

## 目次

1. はじめに .....	1
2. 試験 .....	1
2.1 試験条件及び方法 .....	1
2.2 解析方法 .....	5
3. 試験結果及び考察 .....	6
3.1 Pu .....	6
3.2 Am .....	10
4. まとめ及び今後の課題 .....	14
5. 謝辞 .....	14
6. 参考文献 .....	15

## 1. はじめに

高レベル放射性廃棄物地層処分の性能評価において、ベントナイト系緩衝材中の核種移行挙動を把握することは重要な課題である。これまでに、第2次取りまとめに向けて、重要評価対象元素として選定された22元素（第2次取りまとめ（サイクル機構，1999）においては18元素を対象として評価）のベントナイト中の見かけの拡散係数( $D_a$ )や実効拡散係数( $D_e$ )の取得を進めてきた（例えば，Sato et al., 1992, 1993, Sato and Yui, 1995, Sato, 1998, Tachi et al, 1999）。第2次取りまとめにおいては、ベントナイト中の分配係数を圧縮ベントナイト中の見かけの拡散係数に基づき設定していることから、見かけの拡散係数は特に重要なデータと位置付けられる。これまでにアクチニドについては、Uの大気下での $D_e$ （佐藤・澁谷，1994）（Uの大気下の $D_a$ はIdemitsu et al.(1996)等の報告がある）、Npの大気下での $D_a$ (Sato et al., 1992, 1993), Puの大気下での $D_a$ （動燃事業団，1996）、Amの $D_a$ (Sato et al., 1992, 1993)を取得してきている。また、UとNpについては、還元条件下での $D_e$ も取得されている（加藤ほか，1999）。

本報告では、ベントナイト中のAm, Puの見かけの拡散係数を新たな条件下で取得したので、その結果について報告する。Amについては、ベントナイト（クニゲルV1）の密度0.4, 0.8, 1.4 Mg/m<sup>3</sup>での $D_e$ を既に報告しており(Sato et al., 1993), ここでは、より高密度の2.0Mg/m<sup>3</sup>に対して得られた結果について報告する。また、Puについては、スメクタイト（クニピアF）の密度0.2, 0.4, 0.6Mg/m<sup>3</sup>での $D_e$ を既に報告しているが（動燃事業団，1996）、ベントナイト（クニゲルV1）に対する報告値はない。ここでは、密度0.4Mg/m<sup>3</sup>のベントナイト（クニゲルV1）中のPuの拡散試験の結果について報告する。

## 2. 試験

### 2.1 試験条件及び方法

拡散試験は大気下、室温にて、in-diffusion法（例えば，Sato et al., 1992）により行った。試験条件を表1に、試験フローを図1に示す。ベントナイトはNa型スメクタイトの含有率が約48%であるクニゲルV1<sup>®</sup>（クニミネ工業(株)製）を用いた。クニゲルV1の鉱物組成等については、伊藤ほか（1993）に詳述されている。ベントナイト粉末を110℃の恒温槽で24時間以上乾燥させ、圧縮成型治具を用いて図2に示すステンレス製拡散カラムに所定の乾燥密度（Puの場合0.4 Mg/m<sup>3</sup>, Amの場合2.0Mg/m<sup>3</sup>）で充填した。試料の形状はφ20 mm x 20 mmである。試料を充填した拡散カラムを蒸留水に浸し、1ヵ月以上静置することにより、ベントナイト試料を蒸留水で飽和させた。含浸飽和後、トレーサー溶液を二つのベントナイト試料の片面に25μlづつ塗布し、図2に示すように二つの拡散カラムをトレーサー塗布面で接合させた。ここで、トレーサー溶液としては、Puの場合、Pu（主にPu-239, Pu-240）を1 x 10<sup>-4</sup> M含む3M-HNO<sub>3</sub>溶液、Amの場合、Am-241を1.5 x 10<sup>-7</sup> M含む0.05M-HCl溶液を用いた。所定の拡散期間（Puの場合1379

日, Am の場合 2592 日) 静置した後, カラムを解体し, 押し出し治具及びスクレイパーを用いてトレーサー塗布面側から試料の切断を行った。Pu の試験では厚さ 0.4mm で切断を行い, 切断片を 3ml の 1M-HNO<sub>3</sub> 溶液中に浸漬させた。1 週間静置した後, 分画分子量 10,000 の限外ろ過フィルターでろ過し, ろ液をステンレス皿へ焼付け, Si 半導体検出器を用いて  $\alpha$  スペクトルを測定することでスライス片中の Pu 量を定量した。一方, Am の試験では, ベントナイト表面での  $\alpha$  線を ZnS シンチレーションカウンターを用いて測定しつつ, 厚さ 0.1~0.3mm での切断を繰返し, 切断終了後に各切断片の  $\gamma$  線を GM 計数管により測定した。各切断片の切断面あるいは中心に対して, 測定された放射エネルギーをプロットすることにより濃度プロファイルを得た。

表 1 試験条件

	Pu	Am
試験方法	In-diffusion法	←
固相	ベントナイト	←
圧縮密度	0.4 Mg/m <sup>3</sup>	2.0 Mg/m <sup>3</sup>
含浸溶液	蒸留水	←
トレーサー	Pu-239/Pu-240	Am-241
トレーサー液性	3M-HNO <sub>3</sub>	0.05M-HCl
トレーサー濃度	1 x 10 <sup>-4</sup> mol/l (70kBq/ml)	1.5 x 10 <sup>-7</sup> mol/l (4.5kBq/ml)
トレーサー塗布量	50 $\mu$ l (25 $\mu$ l x 2)	←
雰囲気	大気下	←
温度	室温	←
試験期間	1379 日	2592 - 2593 日
分析方法	Si半導体検出器	ZnS(Ag) シンチレーションカウンター GMカウンター

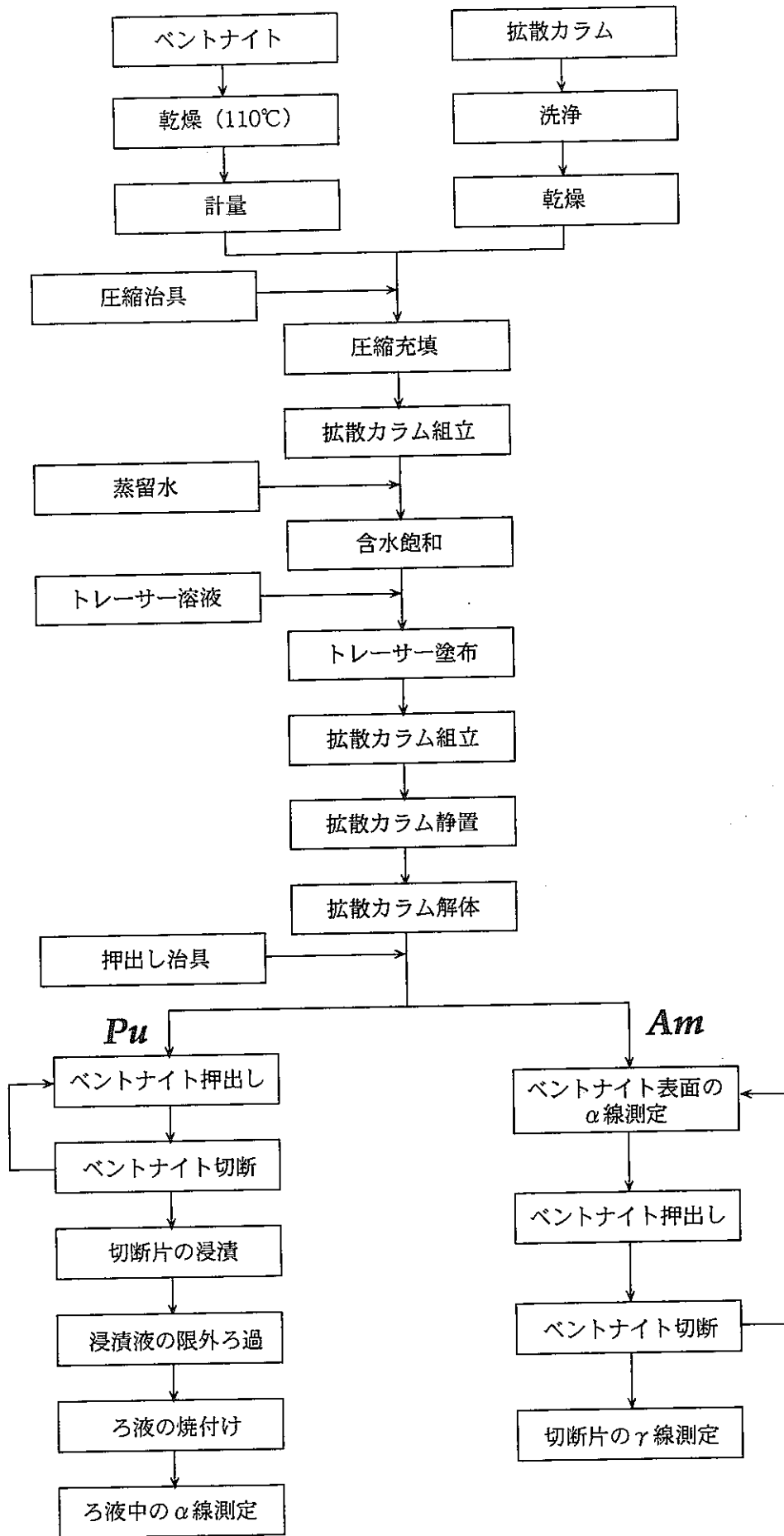


図1 In-diffusion法拡散試験のフロー



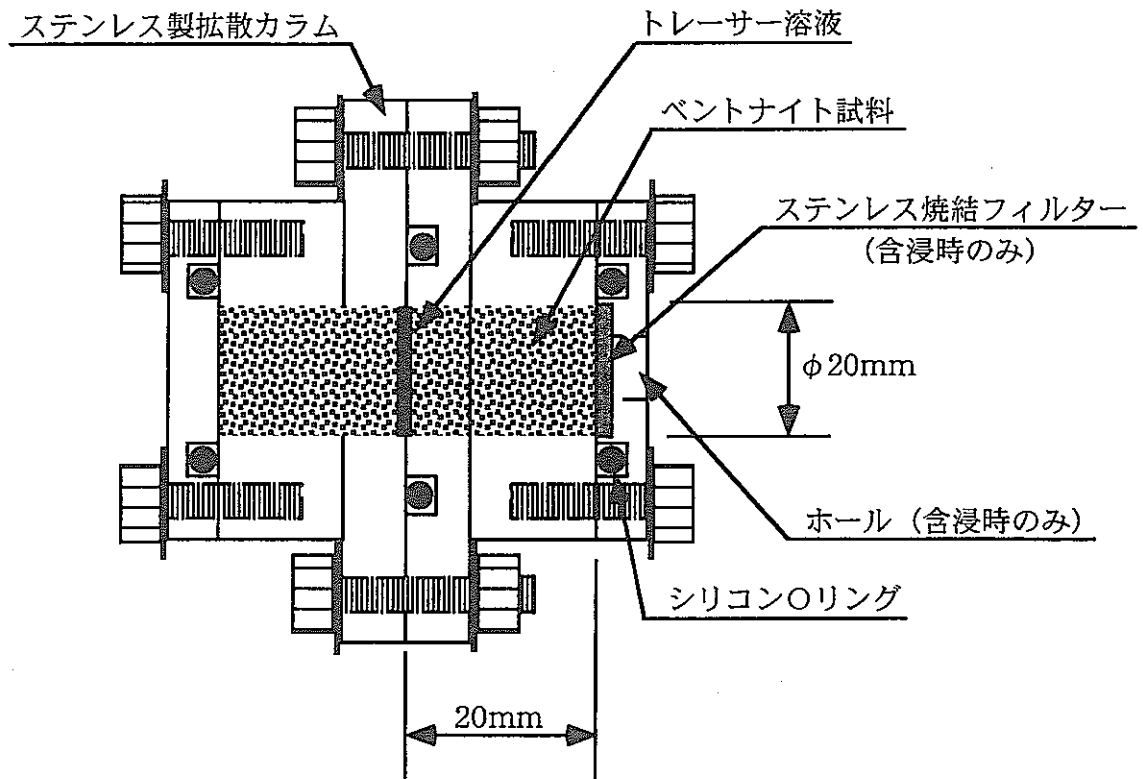


図2 拡散カラム概略図

## 2.2 解析方法

濃度プロファイルに拡散方程式の解析解をフィッティングすることで見かけの拡散係数が導出される。ベントナイト中の濃度プロファイルの解析には、(1)全量拡散モデル、または(2)濃度一定拡散源モデルが適用されるのが一般的である(例えば、Sato et al.(1992), Idemitsu et al.(1993))。ここでは、塗布したトレーサー濃度が溶解度よりも高く、試験期間中の境界条件が溶解度で一定に保たれていると考えられるため、(2)の濃度一定拡散源モデルを適用する。アクチニド等の低溶解度元素に対しては、本モデルが適用されることが一般的である(例えば、Idemitsu et al.(1996))。

一次元での非定常状態の拡散は、次式の拡散方程式で表される(Crank, 1975)。

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

ここで、 $C$  は拡散物質の濃度 ( $\text{mol/m}^3$ )、 $t$  は拡散期間 (s)、 $x$  は拡散源からの距離 (m)、 $D_a$  は見かけの拡散係数 ( $\text{m}^2/\text{s}$ )である。濃度一定拡散源モデルでは、拡散源におけるトレーサー濃度が一定であることから、以下の初期条件及び境界条件に基づき、拡散方程式の解は(2)式のように導出される(Crank, 1975)。

$$\text{初期条件) } t=0, \quad x > 0, \quad C=0$$

$$\text{境界条件) } x=0, \quad t > 0, \quad C=C_0$$

$$x \rightarrow \infty, \quad t > 0, \quad C \rightarrow 0$$

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

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

ここで、 $C_0$  は拡散源における拡散物質の濃度 (表面濃度) ( $\text{mol/m}^3$ )である。得られた濃度プロファイルに(2)式を非線形最小二乗法によりフィッティングすることで、見かけの拡散係数  $D_a$  と表面濃度  $C_0$  を導出した。

## 3. 試験結果及び考察

## 3.1 Pu

乾燥密度  $0.4 \text{ Mg/m}^3$  のベントナイトに対して得られた Pu の濃度プロファイルを図 3 に示す。トレーサー塗布面を挟む両側で得られた二つのプロファイル (No.1, No.2) を比較すると, No.1 に比べて No.2 の方がデータのばらつきは大きいものの, ほぼ同様の濃度プロファイルが得られている。いずれの濃度プロファイルにおいても, (1)拡散源(0mm)から 1.5mm 程度の距離までの傾きがシャープな部分, (2)拡散源から 1.5~4mm 付近の傾きが緩やかな部分, (3)4mm 以降のフラットな部分が認められる。本試験においては切断片の重量測定による切断片厚さの補正を行っておらず, データのばらつきは主にスライス片の厚さのばらつきに起因するものと考えられる。また, 4mm 以降のフラットな領域では有意なカウントが得られてはいるものの低濃度であり, 速い拡散成分が存在する可能性と, コンタミネーションの影響である可能性が考えられる。

濃度プロファイルの(1)の拡散源から 1.5mm 程度の部分 (region(1)), (2)の 1.5~4mm の部分 (region(2)) に, 解析解(2)式をそれぞれフィッティングすることにより見かけの拡散係数を導出した。フィッティング結果を図 3 の濃度プロファイル上に, 得られた見かけの拡散係数及び表面濃度を表 2 に示す。

表 2 Pu の見かけの拡散係数 (クニゲル V1, 乾燥密度  $0.4 \text{ Mg/m}^3$ )

試料 No.	解析領域	見かけの拡散係数 $D_a$ ( $\text{m}^2/\text{s}$ )	表面濃度 $C_0$ ( $\text{mol}/\text{m}^3$ )
No.1	(1)	$2.2 \times 10^{-15}$	$1.2 \times 10^{-3}$
	(2)	$1.1 \times 10^{-14}$	$1.2 \times 10^{-4}$
No.2	(1)	$2.0 \times 10^{-15}$	$1.3 \times 10^{-3}$
	(2)	$2.2 \times 10^{-14}$	$1.1 \times 10^{-4}$

二つのプロファイルから得られた見かけの拡散係数は, いずれの領域においても同程度であり, (1)の領域で  $2 \times 10^{-15} \text{ m}^2/\text{s}$ , (2)の領域で  $1 \sim 2 \times 10^{-14} \text{ m}^2/\text{s}$  の値であった。

過去に得られているベントナイト中の Pu の見かけの拡散係数としては, 動燃事業団 (1996) があり, ベントナイトを精製したスメクタイト (クニミネ工業(株)製クニピア F<sup>®</sup>) の密度  $0.2 \sim 0.6 \text{ Mg/m}^3$  に対する見かけの拡散係数として  $2 \times 10^{-15} \sim 8 \times 10^{-14} \text{ m}^2/\text{s}$  ( $0.4 \text{ Mg/m}^3$  で  $8 \times 10^{-15} \text{ m}^2/\text{s}$ ) の値を報告している。これらのデータを今回得られたデータと共に密度に対してプロットしたものを図 4 に示す。なお, 動燃事業団 (1996) で報告されたデータは, 濃度プロファイルの(1)の

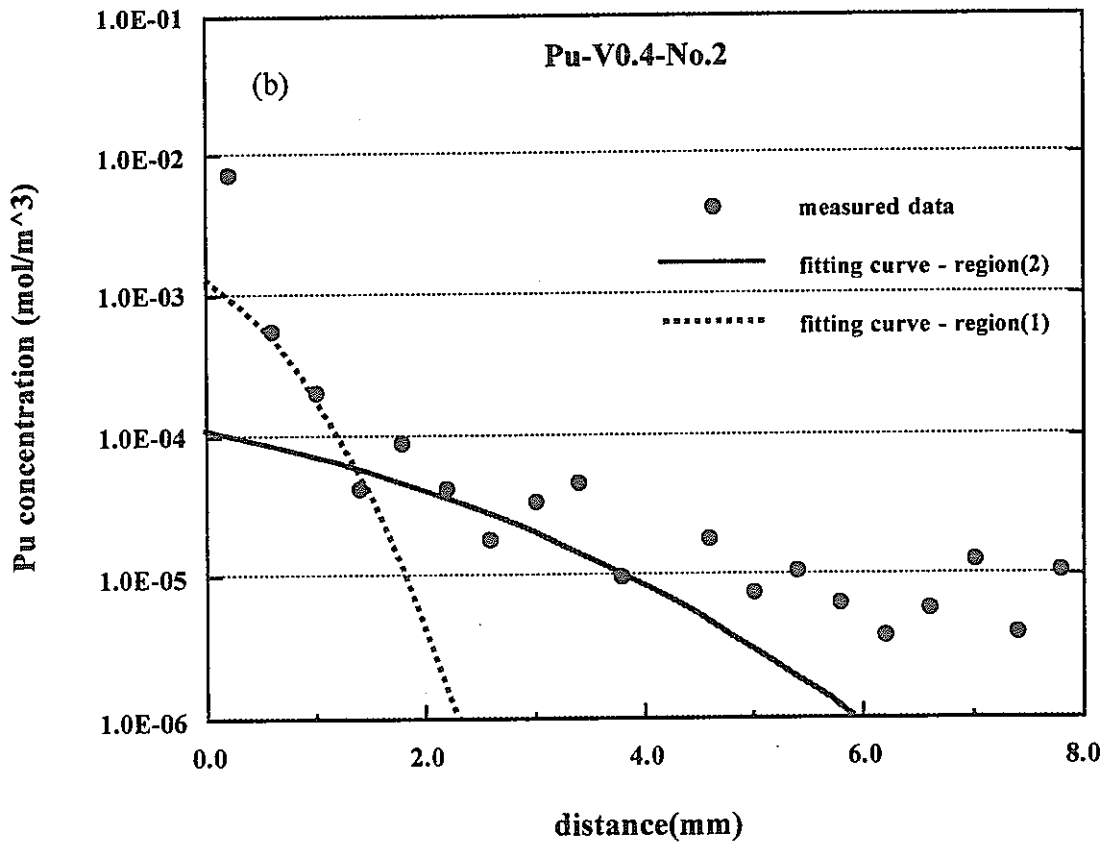
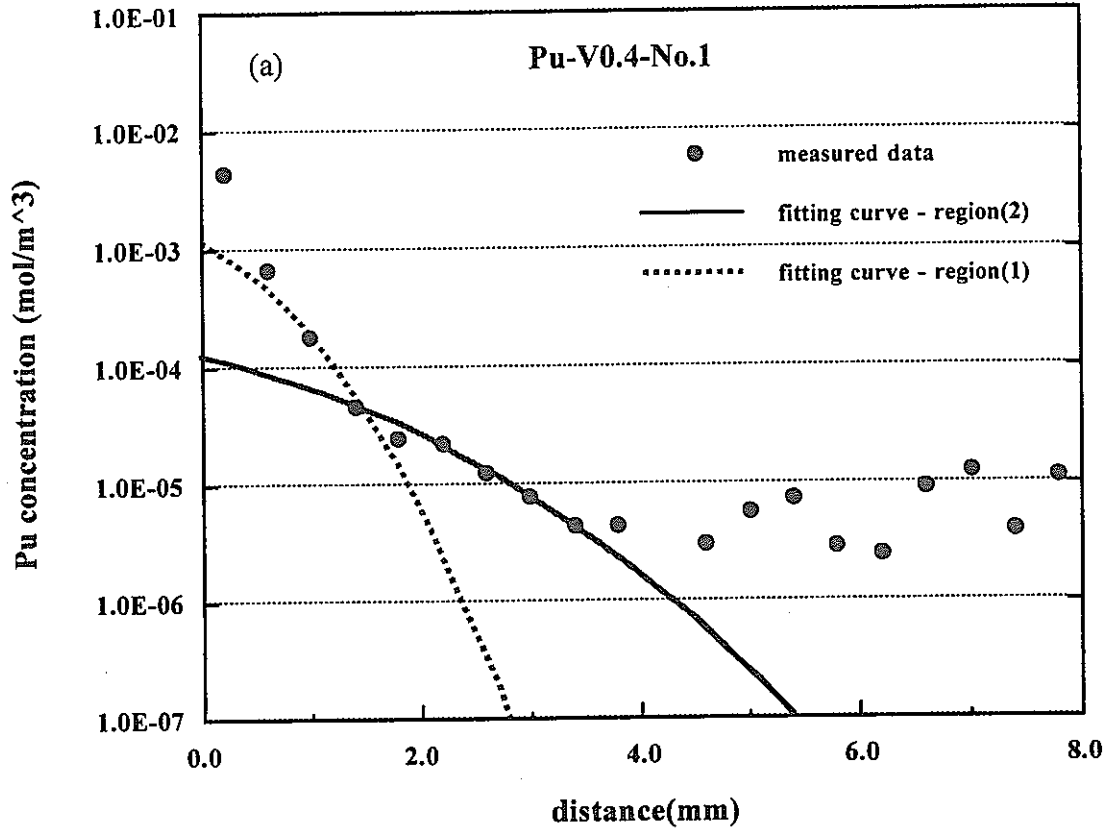


図3 Puの濃度プロファイル及び解析結果 ((a)No.1, (b)No.2)

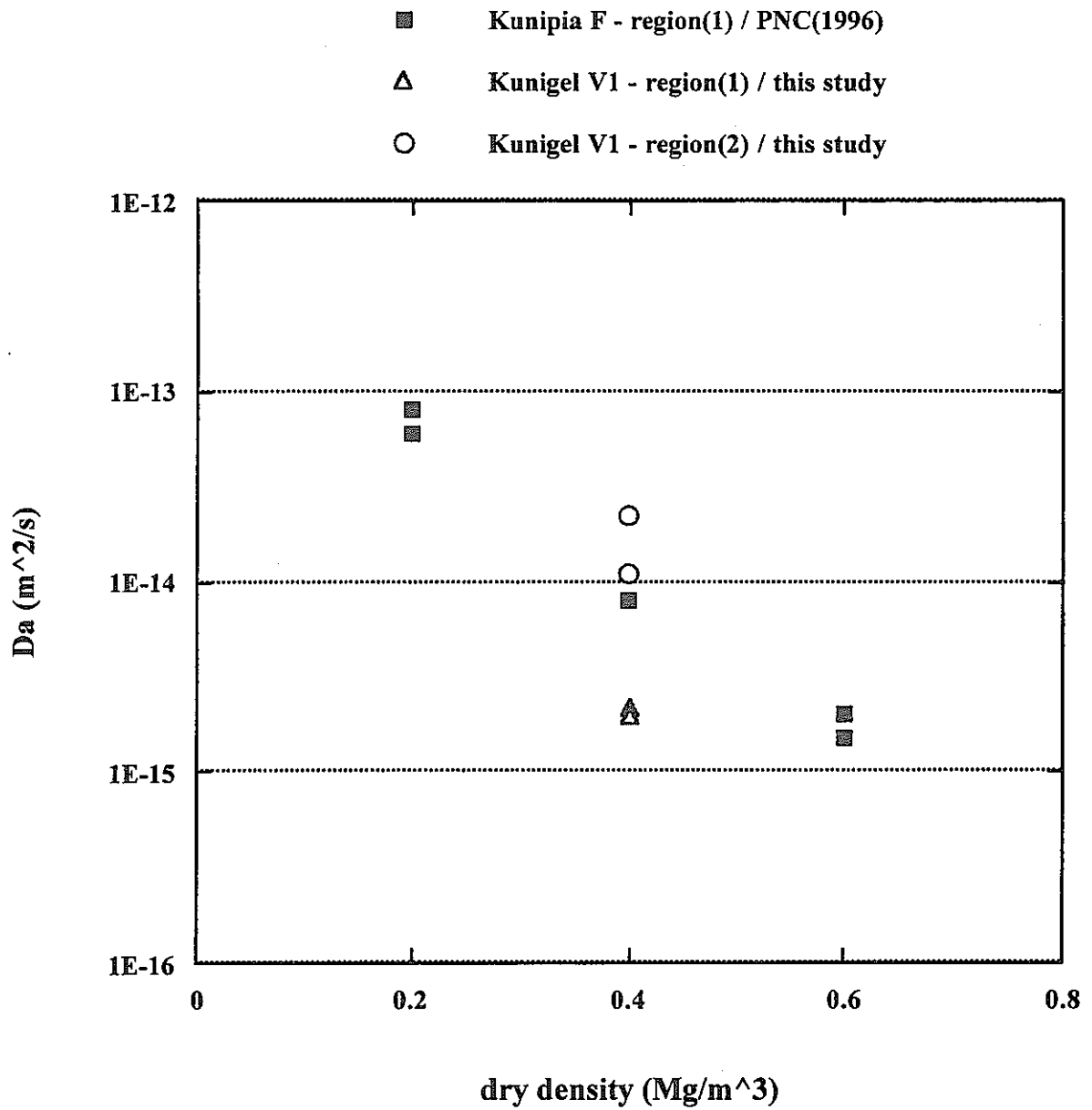


図4 Puの見かけの拡散係数Daの密度依存性

領域（拡散源から 2mm 程度）に対して得られた値である。今回(1)の領域に対して得られた値と比較すると、今回得られた値の方が低く、ベントナイト（クニゲル V1）の  $D_a$  の方がスメクタイト（クニピア F）の  $D_a$  に比べて低い値である。この傾向は従来より Sato et al.(1992, 1993), Idemitsu et al.(1996)等で、複数の核種に対して確認されている傾向とは異なる結果である。

また、館ほか（1997）においても、動燃事業団（1996）と同じデータを報告しており、今回得られたデータと同様に、濃度プロファイルが途中で折れ曲がる形状であることが示されている。このようなプロファイルは Pu のベントナイト中の拡散挙動の複雑さを反映したものであり、この原因になる可能性のあるものとしては、

- ① Pu の溶液化学の複雑さに起因して、ベントナイト間隙水中において Pu が複数の価数、あるいは化学種として存在する可能性
  - ② 比較的濃い酸溶液をトレーサー溶液として塗布したことに起因して、試験開始後に長期間 Pu 濃度が高い状態で維持され、その期間にプロファイルが進展した可能性
- が考えられるが、今回の結果のみからは原因を特定することは困難である。

ベントナイト中の Pu の拡散挙動に関する研究は、長期間を要する等の実験的制約から非常に少なく、Na 型ベントナイト中の Pu の拡散に関するその他の報告としては、Torstenfelt et al.(1982, 1986)や Xia et al.(1999)があるのみである。Torstenfelt et al.(1982)では、模擬地下水で飽和させた乾燥密度  $2\text{Mg/m}^3$  のベントナイト（MX-80）中の Pu の見かけの拡散係数として  $6.9 \times 10^{-15} \text{ m}^2/\text{s}$  を報告している。Torstenfelt et al.(1986)でも、Torstenfelt et al.(1982)と同じ条件でより長期間のデータを取得しており、 $D_a$  として  $1.9 \times 10^{-15} \text{ m}^2/\text{s}$  を報告している。また、Xia et al.(1999)では、蒸留水で含水させた密度  $1.4\sim 2.0 \text{ Mg/m}^3$  のクニゲル V1 及びクニピア F 中の Pu の拡散試験を行い、いずれの条件においても明確な濃度プロファイルは得られず、見かけの拡散係数が  $1 \times 10^{-15} \text{ m}^2/\text{s}$  以下であることを示している。なお、Xia et al.(1999)では鉄腐食生成物を共存させた還元条件でも試験を行っており、大気下の見かけの拡散係数より高い  $10^{-14} \text{ m}^2/\text{s}$  オーダーの値を得ている。

以上のことから、本研究を含めた既往の研究では、Pu の  $D_a$  は幅広い密度範囲で  $10^{-14} \text{ m}^2/\text{s}$  オーダー以下であると考えられる。しかしながら、今回得られたデータを含め、Pu の拡散プロファイルは精度が十分なものとは言えず、また、プロファイルは途中で折れ曲がりを有するものである。今後、より精度の高いデータを取得し、ベントナイト中の拡散メカニズムを明らかにするためには、Pu の定量精度を向上させると共に、トレーサーの液性に配慮した試験を行い、濃度プロファイルの時間依存性を確認する必要がある。また、例えば、酸化還元条件や含浸液の液性等をパラメータとした拡散試験を行うなどして、Pu の化学種と拡散挙動の関係を明らかにしていく必要がある。

## 3.2 Am

乾燥密度  $2.0 \text{ Mg/m}^3$  のベントナイトに対して、 $\alpha$ 線及び $\gamma$ 線測定により得られた Am の濃度プロファイルを、それぞれ図 5, 6 に示す。トレーサー塗布面を挟む両側で、ほぼ同様の二つのプロファイル (No.1, No.2) が得られている。また、Pu の濃度プロファイルに比べてデータのばらつきも小さく、途中で折れ曲がるような傾向も認められない。 $\alpha$ 線と $\gamma$ 線測定により得られた濃度プロファイルと比較すると、 $\alpha$ 線測定により得られたプロファイルの方が傾きがシャープで、プロファイルの進展が遅いことが読み取れる。

濃度プロファイルの 1 点目 (もしくは 1~2 点目) を除いたプロファイルに、解析解(2)式をフィッティングすることにより見かけの拡散係数を取得した。フィッティング結果を図 5, 6 の濃度プロファイル上に、得られた見かけの拡散係数及び表面濃度を表 3 に示す。

表 3 Am の見かけの拡散係数 (クニゲル V1, 乾燥密度  $2.0 \text{ Mg/m}^3$ )

試料 No.	測定法	見かけの拡散係数 $D_a$ ( $\text{m}^2/\text{s}$ )	表面濃度 $C_0$
No.1	$\alpha$ 線	$2.7 \times 10^{-16}$	$4.5 \times 10^5 \text{ cps/m}^2$
	$\gamma$ 線	$1.0 \times 10^{-15}$	$2.8 \times 10^8 \text{ cps/m}^3$
No.2	$\alpha$ 線	$3.0 \times 10^{-16}$	$4.1 \times 10^5 \text{ cps/m}^2$
	$\gamma$ 線	$1.2 \times 10^{-15}$	$2.6 \times 10^8 \text{ cps/m}^3$

二つのプロファイルから得られた見かけの拡散係数は、いずれの測定法においても同程度の値である。 $\alpha$ 線測定で  $3 \times 10^{-16} \text{ m}^2/\text{s}$  程度、 $\gamma$ 線測定で  $1 \times 10^{-15} \text{ m}^2/\text{s}$  程度の  $D_a$  であり、 $\gamma$ 線測定で得られた値の方が 3 倍程度大きい値を示した。過去にクニゲル V1 の低密度側で得られたデータは、Sato et al.(1993), 館ほか (1997) に報告されているが、館ほか (1997) では、密度  $1.4 \text{ Mg/m}^3$  においても $\gamma$ 線測定で得られた  $D_a$  の方が $\alpha$ 測定に対して 2~3 倍程度大きい値であることが示されている。この原因として、 $\gamma$ 線測定においては、 $\alpha$ 線測定に比べ、ベントナイトに含まれる天然起源の放射能がバックグラウンドとしてより大きく影響している可能性が考えられる。Sato et al.(1993)において、乾燥密度  $0.4 \sim 1.4 \text{ Mg/m}^3$  の見かけの拡散係数として、 $1.7 \times 10^{-14} \sim 2.8 \times 10^{-15} \text{ m}^2/\text{s}$  の値が報告され、密度の増加と共に  $D_a$  が減少する傾向が示されている。Sato et al.(1993)で得られた  $D_a$  と今回得られた  $D_a$ , 更に Sato et al.(1993)のスメクタイト (クニピア F) に対する  $D_a$  を密度に対してプロットしたものを図 7 に示す。今回乾燥密度  $2.0 \text{ Mg/m}^3$  に対して得られた  $D_a$  も Sato et al.(1993)で報告された密度依存性に合致することが確認された。

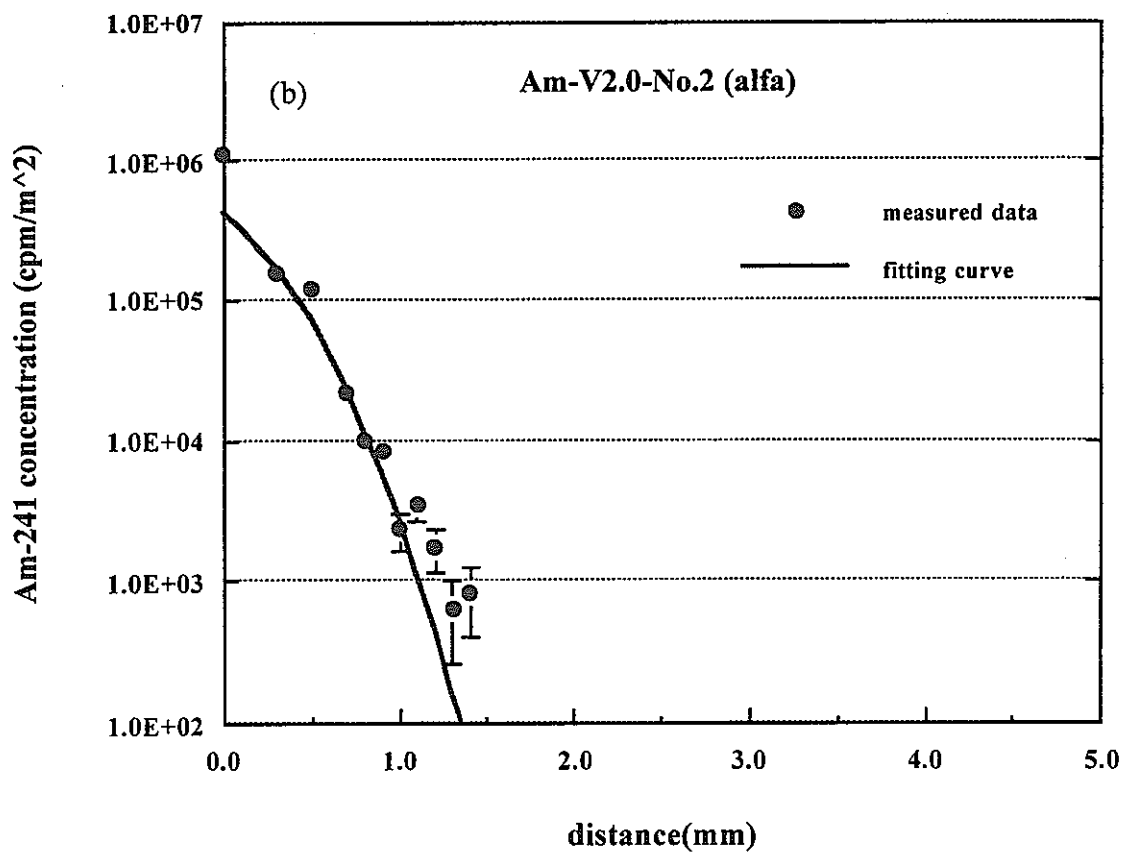
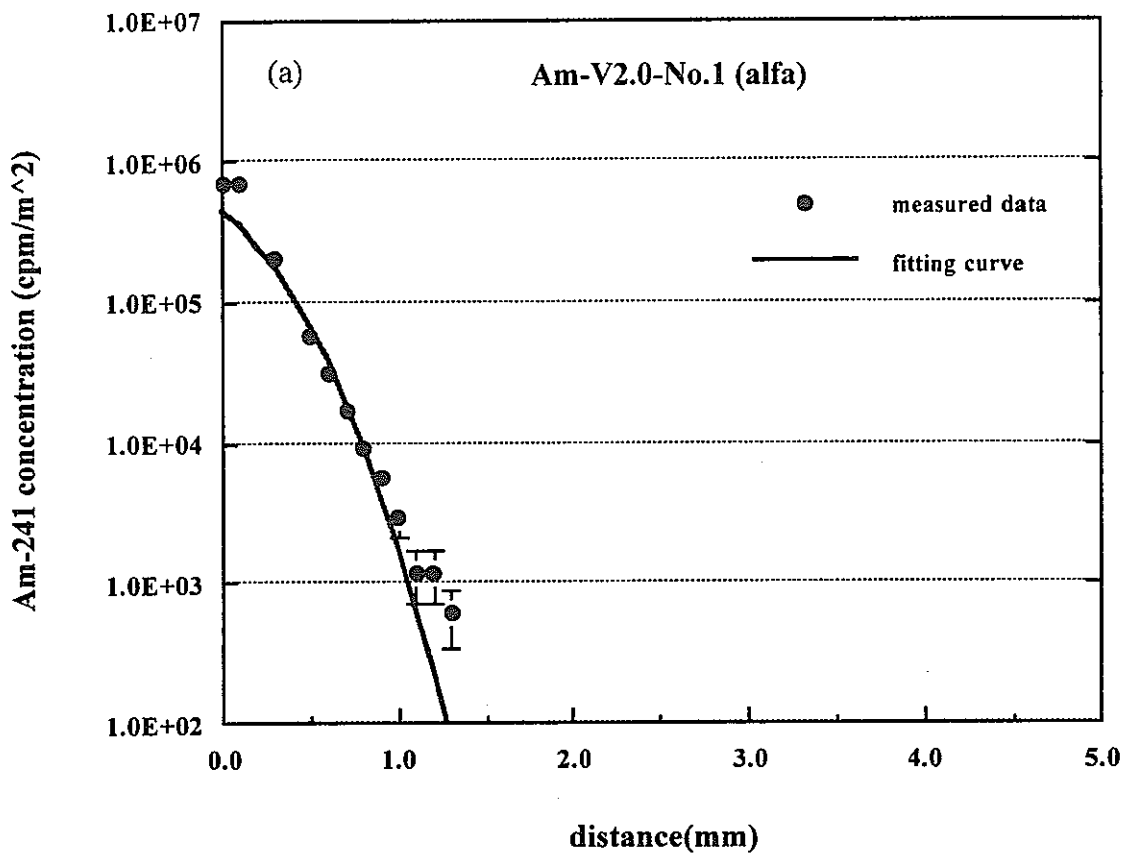


図5 Amの濃度プロファイル及び解析結果 (α線測定) ((a)No.1, (b)No.2)



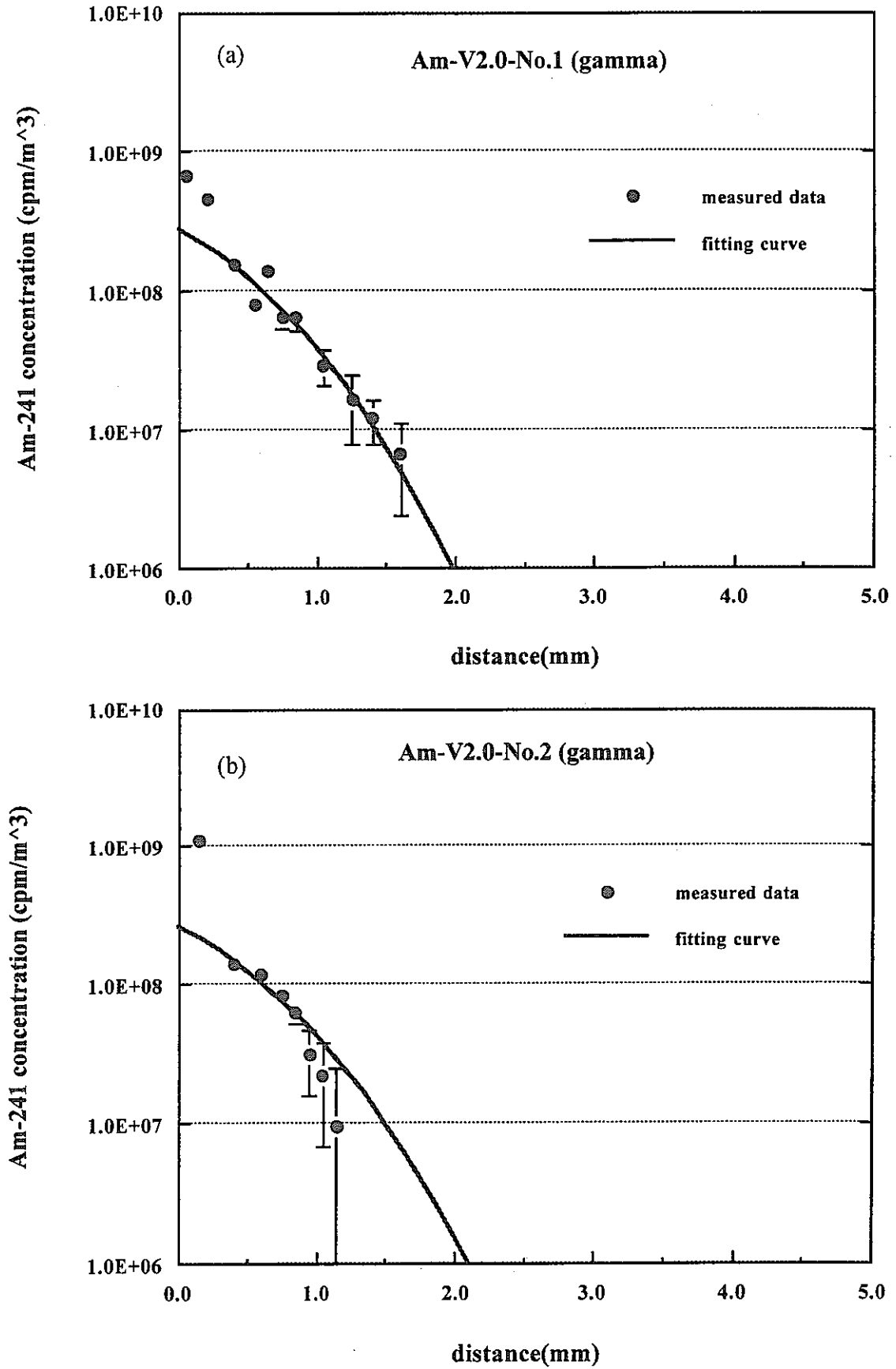


図6 Amの濃度プロファイル及び解析結果（γ線測定） ((a)No.1, (b)No.2)

- Kunigel V1 by alfa-ray measurement / Sato et al.(1993)&this study
- △ Kunigel V1 by gamma-ray measurement / Sato et al.(1993)&this study
- Kunipia F / Sato et al.(1992)

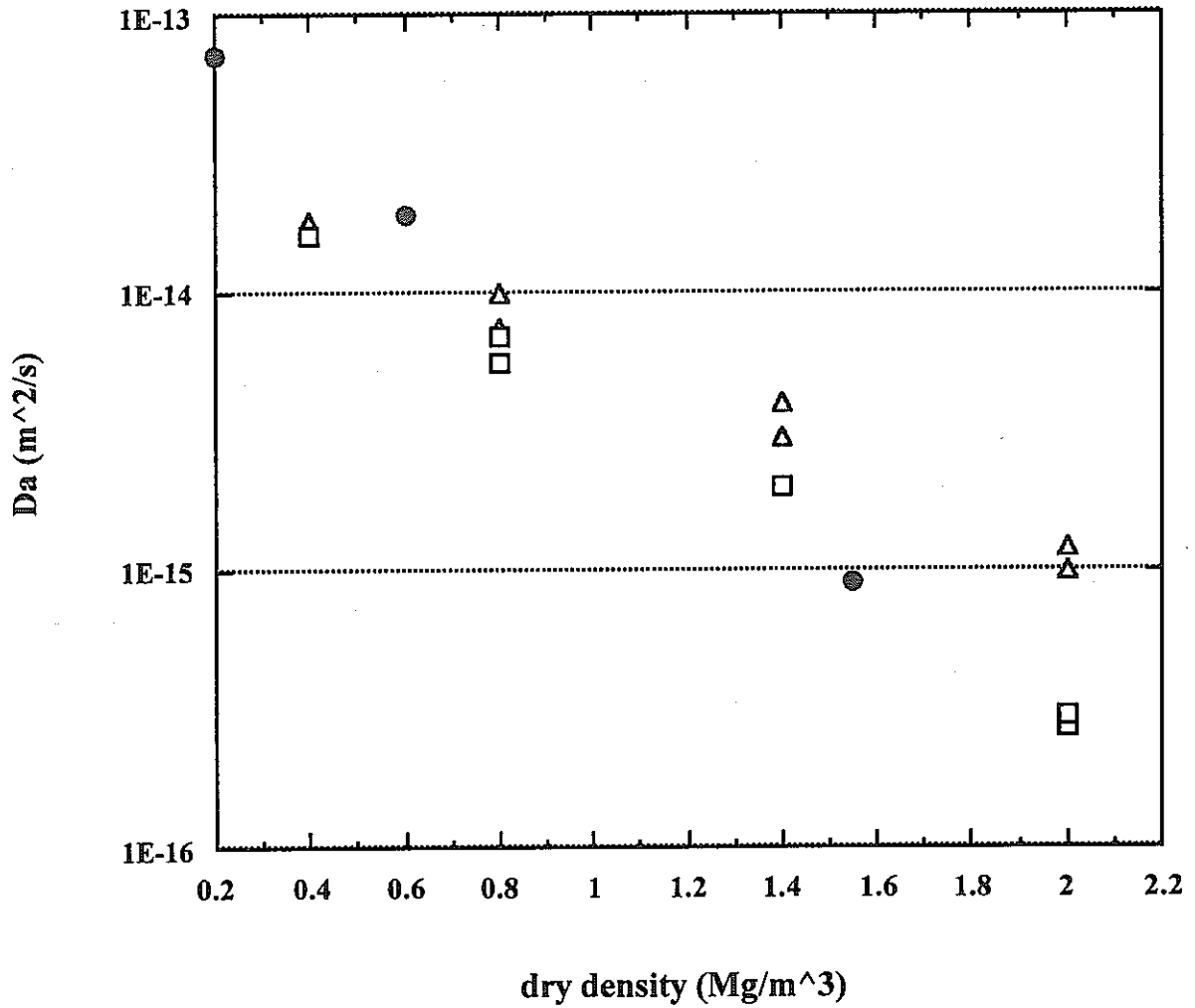


図7 Amの見かけの拡散係数Daの密度依存性

ベントナイト中の Am の拡散挙動に関する研究についても、その数は非常に少なく、その他の研究例としては Torstenfelt et al.(1982, 1986)があるのみである。Torstenfelt et al.(1982)では、模擬地下水で飽和させた乾燥密度  $2\text{Mg/m}^3$  のベントナイト (MX-80) 中の Am の見かけの拡散係数として  $4 \times 10^{-15} \text{ m}^2/\text{s}$  を報告している。Torstenfelt et al.(1986)でも、Torstenfelt et al.(1982)と同じ条件でより長期のデータを取得しており、 $1.3 \times 10^{-14} \text{ m}^2/\text{s}$  の  $D_a$  を報告している。今回得られたデータは、これらの報告値より更に低い値であった。

#### 4. まとめ及び今後の課題

圧縮ベントナイト中の Pu 及び Am の拡散試験を、大気下、室温にて In-diffusion 法により行い、以下の結果が得られた。

- (1) Pu については、乾燥密度  $0.4 \text{ Mg/m}^3$  に対して  $2.0 \times 10^{-15} \sim 2.2 \times 10^{-14} \text{ m}^2/\text{s}$  の見かけの拡散係数が得られた。この値は過去に報告したスメクタイトの密度  $0.4 \text{ Mg/m}^3$  に対する値と同程度であった。
- (2) Am については乾燥密度  $2.0 \text{ Mg/m}^3$  に対して  $2.7 \times 10^{-16} \sim 1.2 \times 10^{-15} \text{ m}^2/\text{s}$  の見かけの拡散係数が得られた。この値は過去に報告したより低密度のベントナイト中の  $D_a$  データの密度依存性に合致するものであった。

Pu, Am の見かけの拡散係数は非常に低いために、精度の高いデータを取得することは難しく、ここで報告したデータも一桁程度の幅をもった値として得られたものである。特に、Pu の場合には濃度プロファイルには途中で折れ曲がる傾向が認められ、複雑な拡散挙動をとる可能性が示唆された。今後、より精度の高いデータを取得し、拡散メカニズムについて検討するためには、Pu の定量精度の向上させると共に、トレーサー溶液の液性等に配慮した試験を行い、濃度プロファイルの経時変化のデータ等を取得する必要がある。また、化学種と拡散挙動の関係に着目した研究についても、拡散メカニズムを明らかにする上で重要であると考えられる。

#### 5. 謝辞

本試験を進める上では、処分研究部放射化学グループの山田一夫技術主幹、黒羽光彦 TL、芦田敬 TL、佐藤治夫副主任研究員、岡崎充宏氏、乾真一氏、同処分バリア性能研究グループの油井三和 GL に様々な面で御協力頂きました。また、試験の実施に当たっては、Pu 燃料第一開発室、B 棟の関係者にも御協力頂きました。これらの方々に対し、ここに深く感謝致します。

6. 参考文献

Crank, J. (1975) : The Mathematics of Diffusion, 2nd edn., Oxford University Press, New York.

動力炉・核燃料開発事業団 (1996) : 地層処分研究開発の現状 (平成 8 年度), 動燃技術資料, PNC TN1410 96-071, pp.162-164.

Idemitsu, K., Furuya, H. and Inagaki, Y. (1993) : Diffusion of Corrosion Products of Iron in Compacted Bentonite, Scientific Basis for Nuclear Waste Management XVI, pp.467-474, Interrante, C.G. and Pabalan, R.T. eds., Material Research Society.

Idemitsu, K., Tachi, Y., Furuya, H., Inagaki, Y. and Arima, T. (1996) : Diffusion of Uranium in Compacted Bentonites in the Reducing Condition with Corrosion Products of Iron, Scientific Basis for Nuclear Waste Management XIX, pp.683-690, Murphy, M. and Knecht, D.A. eds., Material Research Society.

伊藤雅和, 岡本真由美, 柴田雅博, 佐々木康雄, 壇原徹, 鈴木啓三, 渡辺隆 (1993) : ベントナイトの鉱物組成分析, 動燃技術資料, PNC TN8430 93-003.

核燃料サイクル開発機構 (1999) : 地層処分研究開発第 2 次取りまとめ (第 2 ドラフト), 分冊 3 地層処分システムの安全評価, サイクル機構技術資料, JNC TN1400 99-009.

加藤博康, 中澤俊之, 上田真三, 柴田雅博 (1999) : 還元環境条件下でのベントナイト中の U, Np および Tc の見かけの拡散係数, サイクル機構技術資料, JNC TN8400 99-069.

Sato, H., Ashida, T., Kohara, Y., Yui, M. and Sasaki, N. (1992) : Effect of Dry Density on Diffusion of Some Radionuclides in Compacted Sodium Bentonite, Journal of Nuclear Science and Technology, 29, 9, pp.873-882.

Sato, H., Ashida, T., Kohara, Y. and Yui, M. (1993) : Study on Retardation Mechanism of  $^3\text{H}$ ,  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{237}\text{Np}$  and  $^{241}\text{Am}$  in Compacted Bentonite, Scientific Basis for Nuclear Waste Management XVI, pp.403-408, Interrante, C.G. and Pabalan, R.T. eds., Material Research Society.

佐藤治夫, 澁谷朝紀 (1994) : 緩衝材および岩石への核種の吸着・拡散メカニズム, 動燃技報, No.91, PNC TN8410 94-284, pp.71-89.

Sato, H., Yui, M. and Yoshikawa, H. (1995) : Diffusion behavior for Se and Zr in sodium-bentonite, Scientific Basis for Nuclear Waste Management XVIII, pp.269-276, Murakami, T. and Ewing, R.C. eds., Material Research Society.

Sato, H. (1998) : Diffusion Behaviour of Se(II) and Sm(III) in Compacted Sodium Bentonite, Radiochimica Acta, 82, pp.173-178.

館幸男, 澁谷朝紀, 佐藤治夫, 油井三和 (1997) : 圧縮ベントナイト間隙水中におけるアクチニド元素の溶解度評価, 動燃技術資料, PNC TN8410 97-233.

Tachi, Y. Shibutani, T. Sato, H. and Yui, M. (1999) : Experimental and Modelling Study on Sorption and Diffusion of Radium in Bentonite, MIGRATION'99, Abstracts, p.180.

Torstenfelt, B., Kipatsi, K., Andersson, K., Allard, B. and Olofsson, U. (1982) : Transport of Actinides through a Bentonite Backfill, Scientific Basis for Nuclear Waste Management V, pp.659-668, Lutze, W. eds., Material Research Society.

Torstenfelt, B. (1986) : Migration of the Actinides Thorium, Protactinium, Uranium, Neptunium, Plutonium and Americium in Clay, Radiochimica Acta 39, pp.105-112.

Xia, X., Idemitsu, K., Ichishima, T., Furuya, H., Inagaki, Y., Arima, T., Mitsugashira, T., Hara, M. and Suzuki, Y. (1999) : Diffusion of Pu in Compacted Bentonites under a Reducing Condition, IES Report (九州大学大学院工学研究科附属環境システム科学研究センター) , No.18, pp.13-21.