鉄共存系での圧密ベントナイト中におけるプルトニウムの 15 年間の移行挙動

15 years Plutonium Migration Behavior in Compacted Bentonite with Iron

*大久保 德弥¹, 出光 一哉¹, 稲垣 八穂広¹, 有馬 立身¹, 秋山 大輔², 小無 健司²¹, 九州大学, ²東北大学

炭素鋼とベントナイトを接触させ、その接触面にプルトニウム 238 溶液を塗布して約 15 年間拡散実験を行いその挙動を評価した。

キーワード:ベントナイト、プルトニウム、鉄共存、移行

- 1. 緒言 プルトニウム(Pu-239)の半減期は 2.41 万年と非常に長い。高レベル放射性廃棄物の処分において緩衝材であるベントナイト中のプルトニウムの移行挙動を把握することは処分の安全評価上重要である。現在考案されている地層処分のシステムでは、処分後長期間経過すると、ベントナイトと接触している炭素鋼オーバーパックが腐食し、核種の移行挙動に影響を与える可能性が考えられる。そこで本研究では、ベントナイトと炭素鋼が共存した系でのプルトニウムの移行挙動を調査している。本報告では、約 15 年間の試験での鉄の腐食とプルトニウムの移行について報告する。
- 2. 実験 圧縮ベントナイト試料 (クニゲル V1、 $1.2\,\mathrm{Mg/m^3}$ 、 $\varphi10\times10\,\mathrm{mm^2}$) を NaCl 溶液 (0.01 M) と $1\,\mathrm{f}$ 月以 上接触させ飽和膨潤させた。膨潤完了後の試料下部に 238 Pu のトレーサー溶液(100 MBq/L) 10 μ L を塗布し、その面と炭素鋼を接触させて約 15 年間拡散試験を行った。試験終了後、試料をスライスし、HCl(1 M)で各スライス中のイオンを脱離後、 α 線シンチレーションカウンターを用いて 238 Pu を定量し、濃度プロファイルを得た。また、脱離液を約 $1000\sim5000$ 倍に希釈し、鉄およびナトリウムを ICP-MS を用いて定量し、濃度プロファイルを求めた。
- 3. 結果と考察 拡散試験から得られた各元素の濃度 分布を図1に示す。結果から、Puの90%近くは境界面付近に存在しており、残りのPuも約2mmの深さまでしか移行していなかった。この0~2mmの領域は、Feの濃度が高い部分であり、FeとNaの当量の合計がクニゲルV1の予想CEC(約0.5meq/g)を超えている部分でもある。また、この部分には鉄腐食生成物の析出と思われる色の変化(黒緑色)が観察された。過去の実験から、PuはpHの減少に伴って.溶解度及び拡散係数が増加することが知られている。したがって、交換性陽イオンとして層間に取り込まれなかった余剰のFeが、下に示す化学変化を起こした領域でpHが減少し、Puの溶解と拡散が起きたものと考えられる。

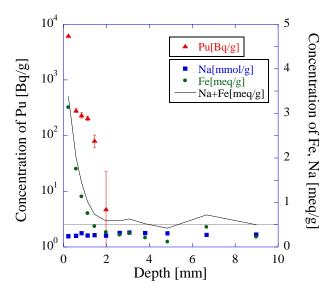


図1 ベントナイトへの侵入深さと各元素の濃度分布

 $Fe^{2+} + 2H_2O \rightarrow Fe(OH)_2 + 2H^+$ (1)

また、ベントナイト表面約6 mm付近にはクラックが観察され、その前後でFeの濃度に異常があった。このクラックは、腐食による水素が移動している途中の経路と考えられる。

^{*}Noriya Ohkubo¹, Kazuya Idemitsu¹, Yaohiro Inagaki¹, Tatsumi Arima¹, Daisuke Akiyama², Kenji Konashi²

¹Kyushu Univ , ²Tohoku Univ