

ベントナイトに対する核種の収着挙動に及ぼすホウ酸の影響

Effect of boric acid on radionuclides sorption on bentonite

*石寺孝充¹, 舘幸男¹, 赤木洋介²

¹原子力機構 ²三菱マテリアル

ホウ酸共存下でのベントナイトに対する Cs, Sr, Np(V), U(VI)の収着試験を行った。その結果、Cs, Sr, Np(V)では、ホウ酸の共存による分配係数の変化は確認されなかった。一方、U(VI)は、炭酸が共存しない場合は高濃度のホウ酸共存下で分配係数の低下が確認されたものの、炭酸が共存する場合には有意な低下が見られなかった。これは、U(VI) との錯形成において、ホウ酸と炭酸が競合したためと推測される。

キーワード：福島第一原子力発電所、廃棄物処分、ホウ酸、ベントナイト、収着

1. 目的

福島第一原子力発電所の廃止措置に伴い発生する放射性廃棄物（以下、事故廃棄物）には、事故処理等の過程において混入した共存物質が含まれている。事故廃棄物処分の安全評価においては、共存物質が放射性核種の移行挙動に及ぼす影響について評価する必要がある。事故廃棄物中の共存物質として、臨界防止のために冷却水中に添加されたホウ酸があげられる。ホウ酸は、核種との錯体の形成や収着の競合により、ベントナイトへの核種の収着量を低下させる可能性がある。しかしながら、既存の放射性廃棄物にホウ酸が含まれていないことから、ホウ酸共存下での核種の収着挙動についての報告例が少ない。本試験では、バッチ法収着試験により核種の収着挙動に及ぼすホウ酸の影響について検討を行った。

2. 試験手法

試験では、ベントナイトに対するホウ酸の収着挙動と、ホウ酸共存下でのベントナイトに対する Cs, Sr, Np(V), U(VI)の収着挙動の検討を行った。ベントナイトはクニミネ工業製クニピア F[®]を使用し、Sr, Np(V), U(VI)の試験では、クニピア F 中の方解石の溶解による炭酸濃度の上昇を防ぐため、あらかじめ pH5 の酢酸ナトリウム溶液で方解石を溶解させて除去したものをを用いた。ホウ酸の収着試験は、ホウ酸濃度を 1×10^{-4} mol/dm³ とし、pH4 及び 9 において実施した。Cs, Sr, Np(V), U(VI)の収着試験は、ホウ酸濃度が 0.1 から 1×10^{-4} mol/dm³ とホウ酸なしの条件で実施し、試験溶液の pH は、ホウ酸の溶存化学種が B(OH)₃ となる pH7 と、B(OH)₃ と B(OH)₄⁻が 50%ずつとなる pH9.3 の 2 条件とした。U(VI)の試験においては、炭酸共存下での収着挙動を検討するため、溶液中の炭酸濃度を 5×10^{-3} 及び 5×10^{-4} mol/dm³ に調整した試験も併せて実施した。

3. 結果と考察

ホウ酸の収着試験の結果、ベントナイトへのホウ酸の収着は確認されず、ホウ酸と核種との収着競合は概ね無視できるものと考えられた。ホウ酸共存下での Cs, Sr, Np(V)の収着試験の結果、pH7 及び pH9.3 (図 1) の両条件において、分配係数のホウ酸濃度依存性は見られなかった (pH7 での Np は未実施)。これらの核種については、ホウ酸との錯形成能が低いため、分配係数へのホウ酸の影響が見られなかったものと推測される。一方、U(VI)においては、pH7 ではホウ酸の影響は確認されなかったものの、pH9.3 では、炭酸が共存しない場合、ホウ酸濃度の増加に伴い分配係数が低下する傾向が見られた (図 2)。しかしながら、炭酸濃度が 5×10^{-4} 及び 5×10^{-3} mol/dm³ の試験においては、ホウ酸共存による分配係数の低下がほとんど観察されなかった。これらの炭酸濃度条件では、U(VI)は炭酸錯体が熱力学的に安定である [1]。本試験の結果は、炭酸が存在しない場合には、U(VI)がホウ酸と錯体を形成して分配係数が低下するものの、炭酸が存在すると溶液中で炭酸錯体が支配的となり、ホウ酸の影響が低下することを示していると考えられる。今後、3 価及び 4 価の元素の収着挙動に及ぼすホウ酸の影響について、炭酸共存の影響を考慮した検討を行う予定である。

参考文献

[1] JAEA-Data/Code 2014-009

*Takamitsu Ishidera¹, Yukio Tachi¹, Yosuke Akagi² ¹JAEA, ²Mitsubishi Materials Corporation

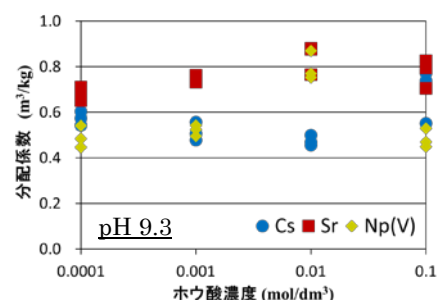


図 1 Cs, Sr, Np(V)の分配係数のホウ酸濃度依存性

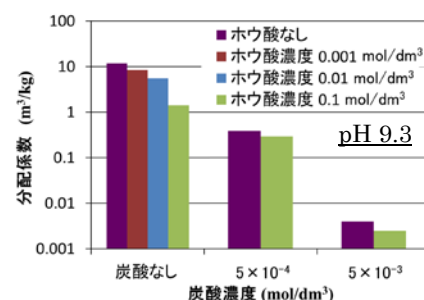


図 2 炭酸共存/非共存下での U(VI)の分配係数のホウ酸濃度依存性