

高イオン強度下でのプルトニウム溶解度に及ぼす炭酸影響

Plutonium solubility in the presence of carbonate at high ionic strength

*小林 大志¹, 佐々木 隆之¹

¹ 京都大学大学院工学研究科

硝酸塩環境におけるプルトニウム溶解度に及ぼす炭酸影響を調べるため、pH、炭酸濃度およびイオン強度が異なる溶液中でのプルトニウム水酸化物の溶解度を測定した。支配的な溶存化学種を推定するとともに、活量補正モデルを用いて溶解度の定量的な解釈を行った。

キーワード：プルトニウム、水酸化物、炭酸、溶解度、イオン強度補正

1. 緒言 放射性廃棄物処分環境におけるプルトニウム(Pu(IV))は、地下水中に存在する炭酸イオンと安定な錯体を形成することで、炭酸イオンを含まない場合と比較して、高い溶解度を示すと考えられる[1,2]。一方、TRU 廃棄物の一部には多量の硝酸塩が含まれており、処分場近傍において高濃度の硝酸塩環境が形成される可能性があるが、幅広いイオン強度下における Pu と炭酸イオンの錯生成挙動に関する既往知見は少ない。そこで、本研究では、0.1～5.0 M 硝酸ナトリウム水溶液中における Pu 溶解度の pH、炭酸イオン濃度およびイオン強度依存性を調べた。支配的な Pu 炭酸錯体を推定するとともに Pu 炭酸錯体の錯生成定数のイオン強度依存性に活量補正モデルを適用し、Pu 溶解度に及ぼす炭酸影響を熱力学定数に基づき解釈した。さらに、想定される処分環境における Pu の支配的化学状態について考察した。

2. 実験 Pu (²³⁹Pu>99%) の母溶液 ([Pu]=3.8 mM) に塩酸ヒドロキシルアミン (HONH₂·HCl) および亜硝酸ナトリウム (NaNO₂) を添加し、4 価 Pu 母溶液とした後、NaOH 溶液を加え、水酸化物沈殿 (Pu(OH)₄(am)) の懸濁母溶液を得た。懸濁母溶液を PP 製試験管チューブに分取し、pH_c (pH_c=8～11)、炭酸イオン濃度 ([CO₃]_{tot}=10～300 mM) および NaNO₃ によりイオン強度 (I = 0.1～5.0) を調整した試料溶液を添加した。Pu(OH)₄(am) 固相の量は、全溶解した場合の濃度が 1×10⁻⁴ M となるようにした。グローブボックス内にて所定の期間、静置した後、試料溶液の pH_c および Eh を測定、上澄み液を限外ろ過 (10kDa フィルタ、孔径約 3nm) した。ろ液 30μl を試料皿で蒸発乾固させた後、α線スペクトロメトリにより Pu 濃度を定量した。Pu 濃度の検出限界はおおよそ 1×10⁻⁸ M であった。

3. 結果・考察 図 1 に pH_c 8.1～9.7 における Pu 溶解度の炭酸イオン濃度依存性を示す。各イオン強度における Pu 溶解度は炭酸イオン濃度の増加とともにおよそ傾き 3 で増加する傾向を示した。また、イオン強度が高いほど Pu 溶解度は高い値を示した。支配的溶存種として Pu(OH)₂(CO₃)₃⁴⁻、溶解度制限固相として Pu(OH)₄(am) を仮定し、各イオン強度における錯生成定数を求めるとともに、SIT および Pitzer Model による活量補正を行った。さらに得られた錯生成定数や活量補正パラメータを用いて、想定される処分環境における Pu の支配的溶存種を推定した。

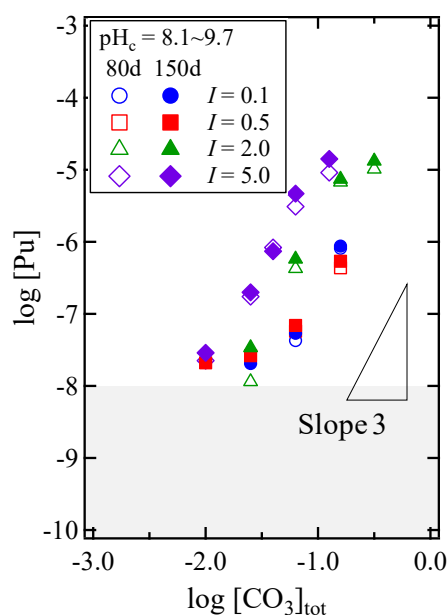


図 1 Pu 溶解度の炭酸イオン濃度依存性 (pH_c 8.1～9.7)

参考文献 [1] Yamaguchi, T. et al., Radiochim.

Acta 66/67, 9 (1994). [2] Rai, D. et al., Radiochim. Acta, 86, 89 (1999).

*Taishi Kobayashi¹ and Takayuki Sasaki¹

¹Kyoto Univ., Graduate School of Engineering