

二酸化ウランの溶解におよぼす炭酸イオンの影響評価

The effect of carbonate ion on the dissolution of UO_2

*諸井 悠里子¹, 桐島 陽¹, 秋山 大輔¹, 佐藤 修彰¹, 北村 暁², 紀室 辰伍²

¹東北大学, ²JAEA

使用済燃料直接処分の安全評価には燃料成分の溶解挙動が重要となるため、高濃度の炭酸イオンを含む模擬地下水における UO_2 の溶解挙動を調査した。還元雰囲気での浸漬試験より、溶液中の炭酸イオン濃度が高いと U の溶出が促進されることを明らかにした。

キーワード：直接処分, UO_2 , 炭酸イオン, 還元雰囲気, 溶解速度

1. 緒言

高レベル放射性廃棄物の地層処分の代替処分オプションの一つとして、使用済燃料の直接処分が検討されている。この際、燃料マトリクス中に取り込まれた放射性核種は燃料成分の溶解とともに放出されるため、燃料溶解速度が直接処分の安全評価における重要なパラメータの一つとなる。わが国で想定されている緩衝材間隙水中には、諸外国と比較して炭酸イオンが多く含まれることがモデル計算から推定されている[1]。諸外国の先行研究では、燃料溶解速度に対する炭酸イオン濃度の影響については評価されている濃度範囲が狭く、わが国の地下水には既往研究の範囲を外れるものもある。そこで本研究では、高濃度の炭酸イオンを含む模擬地下水での UO_2 の溶解速度を評価することを目的とする。

2. 実験

溶存炭酸イオンの UO_2 の溶解におよぼす影響を検討するため、模擬地下水の炭酸イオン濃度を 0, 1, 5, 10, 50 mM と設定し、 NaHCO_3 を溶解して浸漬液を調整した。地下の還元雰囲気を模擬するために、還元剤である $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ と Ar 雰囲気のグローブボックスを用いた。調製した模擬地下水に成型した UO_2 ペレットを浸漬し、これをグローブボックス内に静置し、所定時間ごとにサンプリングした。サンプリングした液相の pH、Eh(SHE)、および炭酸イオン濃度をガラス複合電極、ORP 電極、炭酸電極をそれぞれ用いて測定した。また、U 溶解におよぼすコロイドの影響を評価するために、サンプリングした溶液を $0.45 \mu\text{m}$ もしくは 10 kDa のメンブレンフィルターろ過したのち 5% HNO_3 で希釈し、ICP-MS で溶存ウラン濃度を測定した。

3. 結果・考察

$[\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4] = 5 \text{ mM}$, 浸漬期間 5, 12, 25 日について溶解速度を求めた。本研究では溶解速度は次式で定義した。

$$D_R \left[\frac{\text{mg}}{\text{m}^2 \cdot \text{d}} \right] = \frac{C \cdot V \cdot M}{A \cdot t} \cdot 10^3$$

ただし、 C : 溶解した U 濃度[mol/L], V : 溶液体積[L], M : ^{238}U 質量数[g/mol], A : UO_2 幾何学的表面積(ペレットの直径および高さより算出) [m^2], t : 浸漬時間[day] とする。得られた溶解速度と炭酸水素イオン濃度との関係から、

$$\log D_R = (1.0 \pm 0.5) \log [\text{HCO}_3^-] + b$$

という相関式が各浸漬日数の結果に対して得られた。得られた相関式を用いて、低炭酸イオン条件および高炭酸イオン条件として $[\text{HCO}_3^-] = 1, 50 \text{ mM}$ を設定し

て、各浸漬日数ごとの U の溶解速度を算出すると図 1 の通りとなった。一般的な物質の溶解同様、U の初期溶解速度が大きく、時間経過につれて速度は小さくなっている。しかしながら、いずれの浸漬日数においても U 溶解速度は炭酸水素イオン濃度に依存して大きくなり、炭酸イオン濃度が重要な評価項目であることが分かった。講演では諸外国の先行研究で得られた燃料溶解速度との比較についても報告する。

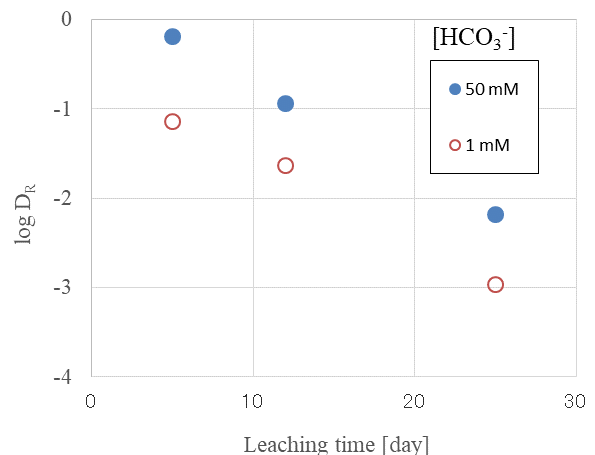


図 1 U の浸漬期間に対する溶解速度評価

参考文献

[1] A. Kirishima, A. Kuno, H. Amamiya, T. Kubota, S. Kimuro, Y. Amano, K. Miyakawa, T. Iwatsuk, T. Mizuno, T. Sasaki, N. Sato. Interaction of rare earth elements and components of Horonobe deep groundwater. Chemosphere 167(2017)798-806

謝辞

本研究は、経済産業省資源エネルギー庁の受託事業「平成 30 年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業(直接処分等代替処分技術高度化開発)」の成果の一部である。

*Yuriko Moroi¹, Akira Kirishima¹, Daisuke Akiyama¹, Nobuaki Sato¹, Akira Kitamura², Shingo Kimuro²

¹Tohoku Univ., ²Japan Atomic Energy Agency