

炭酸共存下でのモンモリロナイトへの Zr, Np(IV)の収着分配係数の評価

Sorption of Zr and Np(IV) on montmorillonite in the presence of carbonate

*石寺 孝充¹, 浜本 貴史², 岡崎 充宏³, 山田 良英³, 戸村 努³

¹日本原子力研究開発機構, ²原子力発電環境整備機構, ³検査開発株式会社

炭酸濃度の高い地下水を想定し、モンモリロナイトへの Zr, Np(IV)の収着分配係数の炭酸濃度依存性を得た。その結果、炭酸濃度の変化に伴う収着分配係数の変化は、モンモリロナイト結晶端面での炭酸を含む表面錯体の形成を考慮した収着モデルにより予測できると考えられた。

キーワード：地層処分、ベントナイト、収着、炭酸、Zr、Np(IV)、表面錯体

1. 緒言

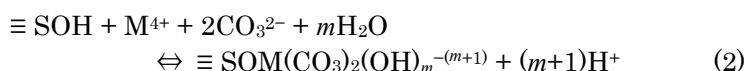
炭酸濃度（溶存する $\text{H}_2\text{CO}_3, \text{HCO}_3^-, \text{CO}_3^{2-}$ の合計濃度）の高い地下水中では、一部の放射性核種は炭酸と錯体を形成して溶存する。核種が炭酸錯体を形成した場合、低炭酸濃度で支配的な溶存化学種である加水分解種等と比べて、収着分配係数 (K_d) が低下する傾向が見られている。本研究では、4 価で溶存する地層処分の安全評価上重要な核種である Zr, Np(IV) について、モンモリロナイトに対する K_d の炭酸濃度依存性を得し、炭酸の影響を収着モデルにより解析した。

2. 試験条件及び手順

試験はバッチ収着試験とし、固相はクニミネ工業製クニピア F を使用した。試験溶液の炭酸濃度は、Zr の試験では 0.01 から 0.25 mol/dm³、Np の試験では 0.1, 0.25 mol/dm³ とし、Na 濃度 0.5 mol/dm³ で所定の炭酸濃度となるように NaCl, NaHCO₃, Na₂CO₃ を混合して調製した。Np の試験では、還元剤として 0.005 mol/dm³ の Na₂S₂O₄ を添加した。溶液の pH は 8~12 程度、試験期間は最長 28 日とし、窒素雰囲気下で実施した。Zr 及び Np の初期濃度はそれぞれ 5×10^{-7} , 2×10^{-7} mol/dm³、液固比はそれぞれ 100, 50 ml/g とした。試験では、固相と試験溶液を遠沈管に採取、pH 調整後、Zr または Np を添加した。所定期間後に遠心分離して上澄み液を採取し、Zr または Np の濃度を測定した。 K_d は、初期濃度と上澄み液中の濃度より算出した。

3. 試験結果及び考察

試験結果を図 1, 2 に示す。Zr, Np の K_d は炭酸濃度の上昇に伴い低下する傾向が見られた。得られた各炭酸濃度での Zr, Np の K_d について、モンモリロナイト結晶端面（表面錯体サイト）への錯体形成等を考慮して核種の収着量を評価する 2SPNE SC/CE モデル[1]により解析した。解析では、同モデルの Strong site のみを考慮し、熱力学データは JAEA-TDB[2] を使用した。解析結果を図 1, 2 に実線、破線で示す。解析では、以下の反応式(1), (2)を仮定することで Zr, Np の K_d の再現が可能であった。



式中の M は Zr または Np、 n 及び m は整数である。Zr は $n=4, 5$ 及び $m=2$ の 3 つの反応式で解析し、解析に使用した各反応式の錯生成定数 ($\log K$) はそれぞれ -8.0, -19.7, 17.1 であった。Np は $n=3$ 及び $m=1$ の反応式で解析し、 $\log K$ はそれぞれ -1.0, 22.0 であった。この結果から、反応式(1),(2)及び各 $\log K$ を使用することで、炭酸濃度の変化に伴う Zr, Np(IV) の K_d の変化が収着モデルにより予測可能と考えられた。また、反応式(2)が収着へ寄与することから、炭酸濃度が上昇して収着性の低い炭酸錯体の割合が増加しても、炭酸を含む表面錯体種を形成して Zr, Np(IV) が収着し、 K_d の低下が抑えられることが示唆された。

参考文献

[1] Bradbury M. H. and Baeyens B. (1997) *J. Cont. Hydrol.* **27**, 223–248. [2] Kitamura A. et al. (2019) JAEA-Data/Code 2018-018.

*Takamitsu Ishidera¹, Takafumi Hamamoto², Mitsuhiro Okazaki³, Yoshihide Yamada³ and Tsutomu Tomura³

¹JAEA, ²NUMO, ³Inspection Development

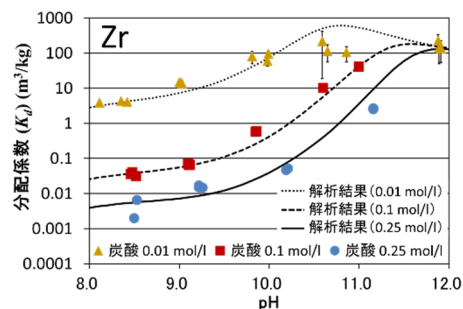


図 1 Zr の K_d の炭酸濃度依存性

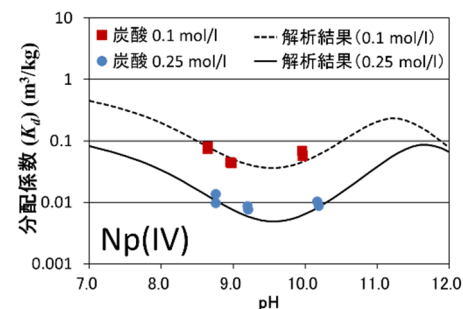


図 2 Np(IV) の K_d の炭酸濃度依存性