



Title	Study on Geochemical Behavior of Radionuclides
Author(s)	北村, 暁
Citation	大阪大学, 1999, 博士論文
Version Type	
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/41405">https://hdl.handle.net/11094/41405</a>
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、<a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">大阪大学の博士論文について</a>をご参照ください。

*The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA*

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

氏 名	きたむらあきら 北村 暁
博士の専攻分野の名称	博 士 (工 学)
学 位 記 番 号	第 1 4 6 6 5 号
学 位 授 与 年 月 日	平成11年 3 月 25 日
学 位 授 与 の 要 件	学位規則第4条第1項該当 工学研究科原子力工学専攻
学 位 論 文 名	Study on Geochemical Behavior of Radionuclides (放射性核種の地球化学的挙動に関する研究)
論 文 審 査 委 員	(主査) 教 授 山本 忠史  (副査) 教 授 宮崎 慶次    教 授 桂 正弘    教 授 高橋 亮人 教 授 竹田 敏一    教 授 山中 伸介

## 論 文 内 容 の 要 旨

本論文は、放射性核種の地球化学的挙動を解明することを目的として、核種の岩石に対する吸着挙動、水溶液中におけるウランの溶解度測定および錯体の安定度定数の決定、そしてレーザー誘起発光分光法によるウランの錯体種の測定について行った研究をまとめたものである。論文は以下の6章で構成されている。

第1章では緒言として、放射性核種の地球化学的挙動に関する研究についてその現状を紹介し、また問題点について指摘している。

第2章では、石英に対する陽イオンの吸着挙動について調べている。種々の陽イオンについて石英に対する分配係数の測定等を行い、得られた結果から環境条件に依存しない熱力学的諸量を得るために、固液の界面反応に着目した電気二重層モデルを適用し解析を行っている。解析によって得られたパラメーターの考察によって、岩石に吸着する核種は水和イオンの状態で存在していることなどが示されている。また、界面における核種の吸着の平衡定数について、その値を予測することの可能性を示している。

第3章では、放射性廃棄物の地層処分場の岩盤の候補にあげられている花崗岩について、第2章と同様に陽イオンの吸着挙動を調べている。花崗岩に対する種々の陽イオンの分配係数を測定し、電気二重層モデルを用いて解析を行い、第2章と同様の吸着のメカニズムを示している。また、吸着挙動に核種の化学形が関与していることを確認している。

第4章では、第2章および第3章の結果を受け、水溶液中において複雑な化学形をとるアクチニド元素のうちウランをとりあげ、これまで報告例の少ない高アルカリ性水溶液中における溶解度を測定している。得られた溶解度曲線から実験条件下で存在する複数の加水分解種の安定度定数を決定している。

第5章では、第4章において報告した加水分解種の化学形を確認するため、レーザー誘起発光分光法を用いてウランの加水分解種の測定を行っている。ウラニルイオンおよびその加水分解種を窒素レーザーを用いて励起し、その発光のスペクトルおよび減衰曲線をストリークカメラを用いて観測している。得られた観測結果から、第4章で報告した複数の加水分解種が異なる化学形であることを確認している。また、配位する水酸化物イオンの数が多くなるにつれて発光スペクトルが長波長側にシフトし、発光寿命が短くなる傾向があることを確認している。

第6章では以上の結果をまとめ、放射性核種の地球化学的挙動を明らかにするうえでの重要な知見が得られたことを述べている。

## 論文審査の結果の要旨

放射性廃棄物の地層処分の安全性を評価するうえで、放射性核種の地中移行挙動に関する情報は非常に重要なものである。したがって、岩石に対する核種の吸着挙動やアクチニド元素の錯生成挙動については、これまでも多くの研究が行われてきている。しかし、核種の地中移行挙動のメカニズムにはまだ不明な点が多く、移行挙動を予測することは現段階では容易ではない。たとえば岩石に対する核種の吸着挙動については多くの場合分配係数を用いて評価されるが、この分配係数は水溶液の pH やイオン強度などの諸条件に依存するため、吸着挙動予測のためにこれら諸条件に依存しない熱力学的な値を求めることが必要とされてきている。また、アクチニドイオンは水溶液中の pH や炭酸イオン濃度の変化によって複雑な錯体を形成することが知られているが、特にアルカリ性水溶液中で存在する錯体の安定度定数については報告されている値に不一致が大きい。この安定度定数決定のためには、さらなるデータの取得が必要とされている。

本研究は、岩石に対する陽イオンの吸着挙動に関する研究と、高アルカリ性水溶液中におけるウランの溶解度測定および錯体の安定度定数決定を行った研究の成果をまとめたものであり、主な成果は以下のように要約できる。

- (1) 石英や花崗岩に対する種々の陽イオンの分配係数等の pH およびイオン強度依存性を調べ、この依存性を電気二重層モデルで解析することにより良好な適合結果が得られ、水溶液の諸条件に依存しない熱力学的な吸着の平衡定数等の値を得ることに成功している。さらに、得られた値から陽イオンの吸着メカニズムの解明および吸着挙動の予測の可能性を示している。また、花崗岩については主要な鉱物成分ごとに陽イオンの吸着挙動を調べることにより、支配的な吸着媒が水溶液の pH により変化することを確認している。
- (2) 高アルカリ性水溶液中におけるウラン (VI) の溶解度を本研究においてはじめて報告している。また、高アルカリ性水溶液中で生成する加水分解種の安定度定数を、実測値としてはじめて報告している。この結果はセメント固化処理処分の安全性評価に直接的に役立つ有用なものである。
- (3) レーザー誘起発光分光法を用いてウラン (VI) の加水分解種の測定を行うことにより、ウランと酸素の間の軌道電子による結合およびその振動は、水酸化物イオンの配位数が増えるにしたがって弱くなることを確認している。これは今後ウラン (VI) のほかの錯体種を観測するうえで重要となる情報を与えるものである。また、この測定の際に常温では観測できないような弱い発光でも 77 K に冷却することによって、水溶液においても発光測定が可能であることを確認している。

以上のように、本論文は放射性核種の地中移行挙動を予測するための重要な知見を提供している。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。