

京都大学教育研究振興財団助成事業  
成果報告書

2024年 4月 30日

公益財団法人京都大学教育研究振興財団

会長 藤 洋作 様

所属部局 工学研究科 原子核工学専攻

職 名 准教授

氏 名 小林 大志

助成の種類	令和5年度 ・ 研究活動推進助成			
申請時の科研費 研究課題名	地層処分後から天然環境に至る放射性核種の固相状態の変遷過程の解明			
上記以外で助成金 を充当した 研究内容				
助成金充当に関 わる共同研究者	(所属・職名・氏名)			
発表学会文献等	(この研究成果を発表した学会・文献等)			
成果の概要	研究内容・研究成果・今後の見通しなどについて、簡略に、A4版・和文で作成し、添付して下さい。(タイトルは「成果の概要／報告者名」)			
会計報告	交付を受けた助成金額	1,000,000	円	
	使用した助成金額	1,000,000	円	
	返納すべき助成金額		円	
	助成金の使途内訳	費 目	金 額	
		試薬の購入	244,042	
		雰囲気制御ガスの購入	184,800	
		学会・セミナー出張費・参加費	389,427	
		英文校正費用	47,421	
実験消耗品の購入		35,750		
実験装置部品の交換品の購入	98,560			
当財団の助成に ついて	(今回の助成に対する感想、今後の助成に望むこと等お書き下さい。助成事業の参考にさせていただきます。)			

## 成果の概要／小林 大志

原子力エネルギーの利用によって発生する放射性廃棄物の中でも、特に高い放射能を有する高レベル放射性廃棄物は、地下 300m 以深の安定な地層に処分することが計画されている。放射性廃棄物の地層処分の安全評価では、放射性核種の地下環境中での移行挙動を長期に亘って予測するモデルの確立が不可欠である。現在の核種移行モデルで想定されている事象や関連するパラメータの多くは、放射性核種毎の実験に基づいており、異なる核種間での相互作用は取り入れられていない。本研究では、安全評価上の重要核種であるアクチノイド核種を対象とし、地下環境中での移行挙動を支配する地下水への溶解度および、その溶解度を決定する固相状態に着目した。特に、複数の核種を組み合わせた実験を行うことで、これまで得られた来なかった核種間の相互作用を見出すことが出来た。

実験では、4 価金属イオンとなるアクチノイド核種であるトリウムと、同じく 4 価金属イオンとなるウランやプルトニウムの化学アナログであるジルコニウムを共存させた母溶液を調製し、アルカリを加えることで、アモルファス状の水酸化物を沈殿させた。次に、中性およびアルカリ性 pH 条件の 25°C および 70°C の水溶液中でアモルファス水酸化物沈殿を 1 カ月間静置した後、溶解度および固相状態の分析を行った。溶解度は上澄み液を限外ろ過した後、ろ液に含まれるトリウムおよびジルコニウム濃度を ICP 質量分析装置により定量した。固相については、懸濁状態の試料を中性子小角散乱法により測定し、凝集状態を調べるとともに、乾燥後の試料を粉末 X 線回折法により測定し、結晶状態を調べた。トリウムおよびジルコニウムの 25°C における溶解度制限固相は、それぞれのアモルファス水酸化物 ( $\text{Th}(\text{OH})_4(\text{am})$ ,  $\text{Zr}(\text{OH})_4(\text{am})$ ) であるが、アルカリ性 pH、70°C の条件下では固相の脱水結晶化が進行することにより、結晶性酸化物 ( $\text{ThO}_2(\text{cr})$ ,  $\text{ZrO}_2(\text{cr})$ ) へと変化した。一方、トリウムおよびジルコニウムを 1:1 のモル比で混合させた母溶液から調製したアモルファス水酸化物については、 $\text{Th}(\text{OH})_4(\text{am})$  および  $\text{Zr}(\text{OH})_4(\text{am})$  のみの場合と比較して、結晶化の程度が小さいことが粉末 X 線回折パターンから分かった。トリウムとジルコニウムは同じ 4 価金属イオンとして、アルカリを加えることにより共沈固相を形成すると考えられるが、 $\text{ThO}_2(\text{cr})$  と  $\text{ZrO}_2(\text{cr})$  は全率固溶しないため、結晶化の過程で分離する必要がある。このことがトリウムとジルコニウムが共存する場合のアモルファス水酸化物の結晶化を阻害している要因と考えられた。

本研究により、放射性廃棄物の処分環境における核種の固相状態について、複数の核種が共存することによる影響の一端を明らかにすることができた。今後は、価数の異なる核種を含めた多元系における核種の固相状態および溶解度を調べることにより、より実際の処分環境に近い条件下での安全評価に貢献することができると考えている。