

XAFS 解析による天然鉱物中におけるウラン固定化状態の研究

Study on Immobilization of Uranium in Natural Mineral by XAFS Analysis

阪大・工 ○仁谷 浩明 小原 孝介 平山 悠介 山本 孝夫

Hiroaki NITANI Kosuke Ohara Yusuke HIRAYAMA Takao YAMAMOTO

東工大・理工 中川 貴 原環センター 和田 隆太郎

Takashi NAKAGAWA Ryutaro WADA

(株)神戸製鋼所 中山 武典 産総研 鈴木 庸平

Takenori NAKAYAMA Yohei SUZUKI

数種の天然鉱物中におけるウランの固定状態を XAFS 解析によって調査した。解析の結果、クンガラ鉱床で採取された含ウラン鉱物中のウランは Coffinite と似た固定化状態であることが示された。

キーワード : XAFS, 高レベル廃棄物, 地層処分, ウラン, ナチュラルアナログ

1. 緒言 高レベル放射性廃棄物の地層処分の際に問題となるのが、人工バリアが劣化した場合の核種の拡散移行量の見積もりである。これまで地層処分における超寿命核種の地層中への拡散を評価する際には、ガラス固化体から地下水に溶出した放射性物質が人工バリア媒体および鉱物表面に吸着・脱着を繰り返しながら移行することを想定しているが、これに加え、核種の周囲の鉱物中への固定化を考慮に入れる方法が提案されつつある。周囲の鉱物中への永久的な核種の固定化も考慮した評価法もこの考えを取り入れることで、より安全性に優れ、かつ、合理的な地層処分施設的设计につながると考えられる。本研究では、まずナチュラルアナログの考えに基づき、鉱物中でウランがどのような固定化状態で存在するかを明らかにする。しかし、鉱物中のウラン元素の濃度は非常に低く、また多種多様な他元素を含むため、希薄濃度でも測定可能で、高い元素選択性を持つ XAFS 法を用いて鉱物中のウラン元素の固定化状態の解析を試みた。

2. 実験 本実験では、4 種類の含ウラン鉱物、Coffinite、Ningyoite、Autunite、Tyuyamunite を用意した。また標準試料として U_3O_8 及び UO_2 の測定も行った。これらを乳鉢で粉碎した後、カプトンテープ上に均一に塗布し、XAFS 測定用試料とした。解析用の XAFS スペクトルはビームライン BL01B1 においてウランの L_{III} 端(17166 eV)近傍で測定を行った。鉱物中の U 濃度は非常に低いため、19 素子 Ge-SSD を用いた蛍光法で測定を行った。測定時の雰囲気は、大気・室温である。入射 X 線は Si(111)2 結晶モノクロメータを用いて単色化し、試料の塗布面に対し 45 度の角度に入射するように調整した。

3. 結果・考察 Fig. 1 は測定で得られた各試料の X 線吸収スペクトルである。各試料のウラン含有率は数百~数千重量 ppm であったが、XAFS 振動を観測することに成功した。これらの X 線吸収スペクトルからバックグラウンドを除去し、フーリエ変換を行うことで得られた同型分布関数を Fig. 2 に示す。Fig. 2 には過去に報告した^[1]オーストラリアのクンガラ鉱床で採取された鉱物の同型分布関数も示している。これらのスペクトルを比較すると、各々特徴的な形状をしており、これらの鉱物中におけるウランの固定化状態がそれぞれ異なることが確認された。また、クンガラ鉱床の鉱物のスペクトルは Coffinite のものとよく一致しており、これらの試料中のウランは似通った固定化状態にあることが示唆された。

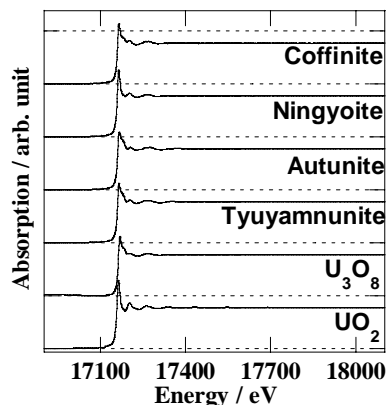


Fig. 1. XAFS spectra of the samples obtained at $U-L_{III}$ edge.

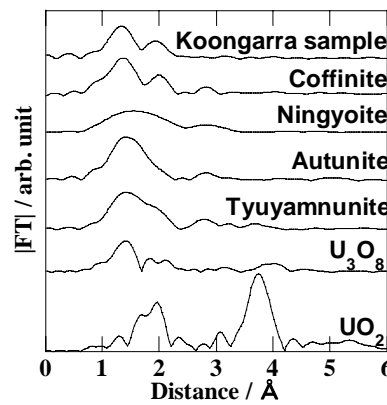


Fig. 2. Radial distribution functions of the samples.

[1] 仁谷浩明 他, 日本原子力学会 2006 年春の年会, 講演番号 B50.