薄片状黒雲母へのユウロピウムの収着における pH 依存性

Influence of pH on Sorption behavior of Europium to Biotite Flakes

*豊田　丈通[1]、千田　太詩[1]、新堀　雄一[1]
[1]東北大学大学院工学研究科

本研究では、薄片状黒雲母へのユウロピウムの収着挙動に関する pH の影響を調べた。その結果、pH が高くなるとユウロピウムの収着量が増加し、加水分解を生じる pH 8 においてはユウロピウム水和物の沈殿のみならず薄片内部への浸入促進による遅延効果も期待される可能性が示唆された。

キーワード：薄片状黒雲母、ユウロピウム、SIMS、地層処分、収着挙動

1. 緒言　地層処分における天然バリア中の核種移行評価の一環として、花崗岩および含有鉱物への核種収着に関する研究が従来よりなされてきた。しかし、その多くは粉末試料を使用しているため、本研究では実環境における鉱物の形状に着目し、花崗岩に含有する鉱物の中でも核種収着性が高いとされる黒雲母について薄片形状の試料を用いて核種収着挙動を調べることとした。一方、アメリシウムやユウロピウムのような三価陽イオン核種は中性～アルカリ性において加水分解を生じることが知られており、例えばユウロピウムは pH 6 以上で $Eu(OH)_3$ の水和物となり通常の地下水(pH 8)中では沈殿するとされている。そこで本研究では、pH 3～8 とした収着実験により、薄片状黒雲母へのユウロピウム収着における水和物の影響を検討した。

2. 実験　本研究では、バッチ式の収着実験を実施した。ユウロピウム($Eu(NO_3)_3$、安定同位体)溶液は HNO_3 および NaOH 溶液を用いて収着実験実施直前に pH を 3、5 および 8 に調整し、濃度は 1 mM とした。なお、pH 8 においても沈殿物の生成は目視では確認されなかった。液固比は 10 とし、薄片状の黒雲母 0.6 g と $Eu(NO_3)_3$ 6 mL をポリプロピレン管へ封入した。封入作業は、地下の低酸素環境を考慮して窒素雰囲気のグローブバック内で行った。振とう期間は 7 日間とし、一日ごとにサンプリングを行った。振とう後 0.45 μm メンブレンフィルターを用いて固相と液相を分離し、液相は ICP-AES による濃度測定と蛍光寿命測定、固相は SIMS(二次イオン質量分析)により薄片状黒雲母内のユウロピウム分布について分析を行った。

3. 結果・考察　図 1 は、収着実験後の液相のユウロピウム濃度である。図 1 より、pH が高くなるにつれてユウロピウムの黒雲母への収着量が増加した。特に、pH 8 ではユウロピウム濃度の低下が顕著であるが、これは固相の共存により水和物の沈殿が促進されたためと考えられる。図 2 は、SIMS による薄片状黒雲母内のユウロピウム分布である。測定箇所は薄片の端部(Edge 2)であり、薄片上面に対して垂直方向にイオンビームを照射したため、図 2 の横軸は薄片上面からのスパッタ深さを示す。なお、縦軸の強度は、同時に取得した Si の強度にて規格化した。図 2 のスパッタ深さ 1 μm における各データの比較では pH 8 の強度が最も大きく、pH 3 や 5 と比べて pH 8 の溶液条件においてユウロピウムが黒雲母内へ浸入したと言える。これは、移行しやすいイオン状態の Eu^{3+} よりも、水和物である $Eu(OH)_3$ の方が黒雲母薄片内部へ拡散浸入しやすいということを示している。この理由については検討中であるが、三価陽イオンが加水分解するような通常の地下水条件において、水和物生成による沈殿のみならず、薄片状黒雲母内への取り込みによる遅延効果も期待できる可能性がある。

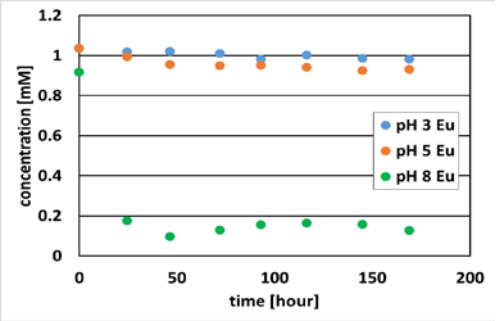

図 1　薄片状黒雲母への Eu 収着

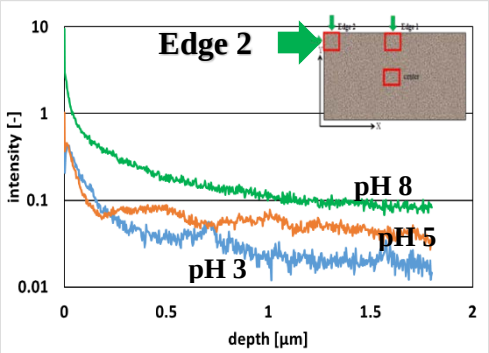

図 2　SIMS による黒雲母 edge 2 の元素分析結果と照射箇所

謝辞：本研究の一部は、「文部科学省英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」により実施された「廃止措置のための格納容器・建屋等信頼性維持と廃棄物処理・処分に関する基盤研究及び中核人材育成プログラム」、および経済産業省の委託事業「平成 26 年度放射性廃棄物重要基礎技術研究調査」の成果である。ここに記して謝意を表す。

*Tomoyuki Toyota[1], Taiji Chida[1] and Yuichi Niibori[1]
[1]Graduate School of Engineering, Tohoku Univ.