

幌延深部地下水中の溶存フミン酸による低濃度 Eu との錯生成

Complexation of trace Eu with humic acid isolated from deep groundwater

in the Horonobe underground research laboratory site, Japan

*寺島元基¹, 斉藤拓巳², 石井智子^{3a}, 伊藤美貴³, 赤木洋介³, 館 幸男¹

¹原子力機構、²東京大学、³三菱マテリアル (^a現職：原環センター)

放射性 Eu と溶媒抽出法を用いて、幌延の地下研究施設の深度 250 m の深部地下水に溶存するフミン酸と低濃度の Eu との錯生成データを取得し、市販のフミン酸の錯形成挙動との比較およびモデル解析から、深部地下水中の溶存フミン酸の低濃度 Eu との錯生成特性を明らかにした。

キーワード：錯生成、フミン酸、低濃度ユーロピウム、深部地下水、幌延

1. 緒言

これまでに著者等は、幌延の深部地下水から分離・精製した腐植物質 (HS) を対象に、蛍光消光法を用いて Eu との錯生成を調査し、深部地下水中 HS の条件付錯生成定数が土壌や市販の HS の値と比較して 2 桁程度小さいことを報告した [1]。しかし、蛍光消光法をはじめとする分光学的手法は、錯生成への応答感が低く、地層処分システムの安全評価に必要な低濃度領域の核種との錯生成を十分評価できないという課題があった。このため、深部地下水中 HS による核種との錯生成は、現在もなお不明確であり、このことは、地層処分システムにおける核種移行への有機物影響を評価する上での大きな不確定要因となっていた。本研究では、放射性 Eu を用いた溶媒抽出法を Eu と幌延の深部地下水中 HS との錯生成試験に適用し、その低濃度 Eu に対する錯生成挙動を調査した。

2. 実験

HS 試料は、幌延の地下研究施設の深度 250 m の地下水から分離・精製したフミン酸 (HHA) [2] および市販の Aldrich 社製のフミン酸 (AHA) を用いた。錯生成試験は、4,4,4-trifluoro-1-(2-thienyl)-1,3-butaedione (TTA) と tributyl phosphate (TBP) を含むキシレン溶液を有機相として用いる Kubota らの溶媒抽出法 [3] を採用し、アルゴン雰囲気グローブボックス内で行った。24 時間混合した試験水溶液 (10^{-8} ~ 10^{-6} mol dm⁻³ Eu (C_{Eu}) (¹⁵²Eu 含む)、0~100 mg dm⁻³ HA、0.2 mol dm⁻³ MES+Tris (pH 5.5)、0.1 mol dm⁻³ NaClO₄) は、 10^{-3} mol dm⁻³ TTA+TBP キシレン溶液と接触させた後、有機相および水相中の ¹⁵²Eu の γ 線を液体シンチレーションカウンタを用いて測定した。錯生成定数 (β_α) は、HA のカルボキシラートアニオン基 (COO⁻) と Eu が 3 : 1 の割合で結合することを仮定して算出した。カルボキシラートアニオン基濃度は、HA のカルボキシル基全濃度 (C_R , mol dm⁻³) と解離度 (α) との積から算出し、 α は各 HA に固有の NICA-Donnan モデルパラメータ [2, 4] を Visual MINTEQ (ver.3.1) に導入して算出した。

3. 結果と考察

Eu のローディングレベル ($\log(C_{Eu}/C_R\alpha)$) と $\log\beta_\alpha$ との関係を図に示す。AHA (□) と HHA (●) の $\log\beta_\alpha$ は、ローディングレベルの低下とともに増加し、不均質な錯生成サイトの存在を示唆した。また、AHA と HHA の $\log\beta_\alpha$ は、 $\log(C_{Eu}/C_R\alpha) = -3$ 以下の低いローディングレベルにおいても 2 程度の差が存在することが分かった。このことは、AHA と HHA の構造特性は異なるものの [2]、両 HA の $\log\beta_\alpha$ の変化量は検討したローディングレベルの範囲において、同じであることを示唆している。尚、発表では、モデル解析の結果も踏まえて議論する。

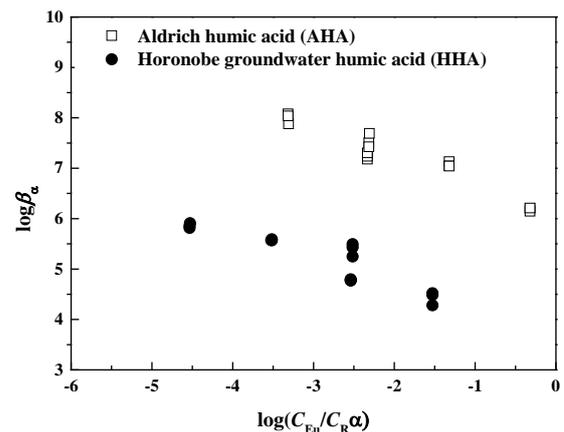


図 $\log(C_{Eu}/C_R\alpha)$ と $\log\beta_\alpha$ との関係

参考文献

- [1] M. Terashima et al., J. Nucl. Sci. Tech., 49, pp.804 – 815, 2012
 [2] T. Saito et al., Environ. Sci.: Processes Impacts, 17, pp.1386 – 1395, 2015
 [3] T. Kubota et al., Radiochim. Acta, 90, pp.569 – 574, 2002
 [4] T. Saito et al., Radiochim. Acta, 92, pp. 567 – 574, 2004

*Motoki Terashima¹, Takumi Saito², Tomoko Ishii^{3a}, Miki Ito³, Yosuke Akagi³ and Yukio Tachi¹

¹JAEA, ²Univ. of Tokyo, ³MMC (^a Present post : RWMC).

謝辞：本報告は、経済産業省委託事業「平成 27 年度処分システム評価確証技術開発」の成果の一部である。