

Zr 水酸化物溶解度に及ぼすコロイド種の影響

Influence of colloidal species on the solubility of zirconium hydroxide

*小林 大志¹, 水越 寛文¹, 佐々木 隆之¹

¹京都大学大学院工学研究科

4価ジルコニウム水酸化物溶解度に及ぼす水酸化物コロイド種の影響を定量的に評価するため、水酸化物コロイド種の粒径分布およびゼータ電位を測定した。熱力学データに基づき、コロイド種のゼータ電位を解釈し、粒径分布や見かけの溶解度との関係について考察した。

キーワード：ジルコニウム水酸化物、溶解度、コロイド種、粒径分布、ゼータ電位

1. 緒言 放射性廃棄物処分の核種移行評価では、様々な地下水条件下での4価アクチノイドの見かけの溶解度を表す熱力学モデルを構築する必要がある。4価アクチノイドは加水分解反応により水酸化物コロイド種を形成するため、見かけの溶解度の把握には、水酸化物コロイド種による寄与を定量的に評価することが不可欠である。これまでの研究では、水酸化物コロイド種の粒径分布を異なる孔径のフィルターを用いた限外ろ過法によって測定し、単核加水分解種から水酸化物コロイド種が形成されると仮定することにより粒径分布が再現できることを示した[1]。一方、前報では、4価アクチノイドのアナログであるジルコニウムの水酸化物コロイド種の異なるpHおよび温度条件下におけるゼータ電位を報告した[2]。本研究では、ジルコニウム水酸化物コロイド種のゼータ電位を加水分解定数などの熱力学データにより解釈するとともに、コロイド種の粒径分布や見かけの溶解度との関係について考察する。

2. 実験 0.01 M のジルコニウム初期溶液に NaOH/HClO₄ を加えることにより pH を 2~8 に調整した試料溶液を作成した。イオン強度 (*I*) は NaClO₄ により *I* = 0.2, 0.5 および 1.0 に調整した。試料溶液を所定の期間、振とうした後、水素イオン濃度 (pHc) を測定し、上澄み液に含まれる水酸化物コロイド種のゼータ電位および粒径分布を測定した(ゼータサイザーナノ ZS, Malvern)。また、上澄み液を 3kDa~100kDa フィルターで限外ろ過、ICP-MS (ELAN DRC II, PerkinElmer) によりろ液に含まれるジルコニウム濃度を定量することで見かけの溶解度を得た。

3. 結果・考察 図1に25℃におけるジルコニウム水酸化物コロイド種のゼータ電位および加水分解定数から計算される単核加水分解種 ($\text{Zr}(\text{OH})_n^{(4-n)}$, $n=1\sim4$) の存在割合で重みづけした $\text{Zr}(\text{OH})_n^{(4-n)+}$ の平均電荷 *Z* の pHc 依存性を示す。両者の pHc 依存性は概ね一致した傾向を示し、また、*I* = 0.2~1.0 におけるイオン強度依存性はほとんど表れなかったことから、水酸化物コロイド種のゼータ電位には *Z* が大きく寄与していることが示唆された。一方、粒径分布測定では、pHc 2 付近から pHc とともにコロイド種の平均粒径が増大する傾向が表れた。これらの変化傾向と見かけの溶解度との相関について、熱力学データによる解釈を試みた。

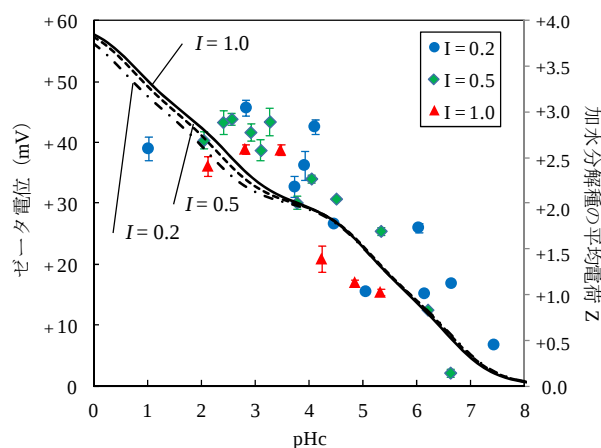


図1 ジルコニウム水酸化物コロイド種のゼータ電位と加水分解種の平均電荷 (25℃、*I* = 0.2~1.0)

参考文献 [1] T. Sasaki et al., Radiochim. Acta 94, 489 (2006). [2] 水越ら, 日本原子力学会 2015 年春の年会, B16.

*Taishi Kobayashi¹, Hirofumi Mizukoshi¹ and Takayuki Sasaki¹

¹Kyoto Univ., Graduate School of Engineering