ランタニド元素のベントナイト中の拡散に与える炭酸の影響

Influence of carbonate to the diffusion of lanthanide elements in compacted bentonite

*栫 優樹[1], 藤井 和志[1], 大久保 徳弥[1], 出光 一哉[1], 稲垣 八穂広[1], 有馬 立身[1]
[1]九州大学

様々な炭酸濃度下でベントナイト(クニピア F)中にランタニド元素(La, Nd, Eu, Dy, Er, Lu)を拡散させた結果元素ごとに異なる拡散挙動をみせた。これは炭酸濃度に応じて各元素の炭酸錯体の化学形が変化したためと考えられる。

キーワード：ベントナイト，ランタニド，拡散試験

1. 緒言　ガラス固化処理後 1000 年以降ではアクチニドが支配的となるためベントナイト中におけるアクチニドの移行挙動の知見が必要である。本実験ではアクチニドの模擬物質としてランタニドを対象とし、ベントナイト乾燥密度及び炭酸濃度を変化させ拡散試験を行いランタニドの炭酸中の移行挙動を調査した。

2. 実験　圧密したベントナイト(クニピア F)を種々の濃度の $NaHCO_3$ 溶液と接触させ十分に飽和膨潤させた。それぞれのベントナイトの片面にランタニド混合トレーサー(La, Nd, Eu, Dy, Er, Lu 硝酸塩各 10μM)を 5μL 塗布し拡散試験を行った。ベントナイト乾燥密度は 1.0, 1.2, 1.4 Mg/m^3、$NaHCO_3$ 濃度は 0.01~1M とし各条件におけるランタニド元素のみかけの拡散係数を導出した。

3. 結果　**【乾燥密度依存性】**各元素のみかけの拡散係数は乾燥密度の増加と共に指数関数的に減少した。これは乾燥密度が高くなると自由空隙が減少し拡散経路が複雑化するためと考えられる。

【炭酸濃度依存性】乾燥密度 1.0 Mg/m^3 の試料における各元素のみかけの拡散係数の炭酸濃度依存性を図 1 に示す。みかけの拡散係数は炭酸濃度の上昇に伴い元素によって異なる挙動を見せた。低炭酸濃度では原子番号順にみかけの拡散係数は減少する。炭酸濃度の上昇に伴い La と Nd ではみかけの拡散係数は減少し(炭酸濃度 0.25M 以上は拡散せず)、Eu ではやや減少の後に上昇し、Dy、Er、Lu では上昇し、原子番号順に拡散係数は増加した。1.2 および 1.4 Mg/m^3 の試料においても同様の傾向が見られた。また Eu より原子番号の大きな元素については、炭酸濃度 0.25M 付近以上で炭酸濃度依存が顕著になることが分かった。これは炭酸濃度によって各元素の化学形が変化したためと考えられる。一例として図 2 に Eu の化学形の炭酸濃度依存性を示す。0.1M 付近で $EuOHCO_3$ から $Eu(CO_3)_2^-$へと支配的化学形が変化している。炭酸濃度上昇に伴うみかけの拡散係数の増加は炭酸錯体形成により陰イオンとして自由空隙中を移行したためと考えられる。

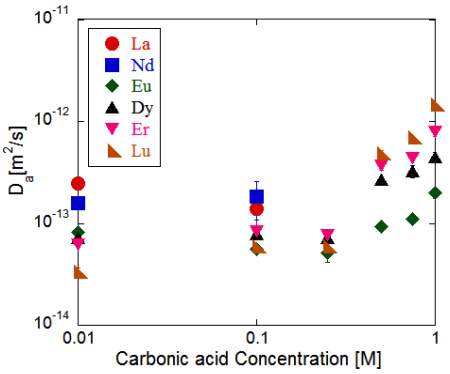

図 1 みかけの拡散係数の炭酸濃度依存性

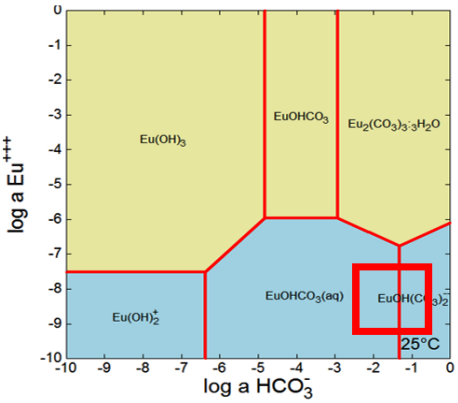

図 2 Eu の化学形の炭酸濃度依存性

*Yuki Kakoi[1], Kazuyuki Fujii[2], Noriya Ookubo[1], Kazuya Idemitsu[1], Yaohiro Inagaki[1], Tatsumi Arima[1] , [1]Kyushu Univ.