

## 薄片試料による黒雲母および金雲母、白雲母へのユウロピウムの収着挙動評価

Evaluation of Sorption Behavior of Europium to Biotite, Phlogopite and Muscovite using the Flake Samples

\*石島 雅也<sup>1</sup>, 千田 太詩<sup>1</sup>, 新堀 雄一<sup>1</sup>

<sup>1</sup>東北大学大学院工学研究科

本研究では、劈開構造を保持した薄片状の黒雲母、金雲母および白雲母へのユウロピウムの収着挙動を、溶液濃度の変化、蛍光寿命および SIMS により追跡した。その結果、同様に劈開構造を持つ雲母鉱物においても、結晶構造の違いに起因して、雲母へのユウロピウムのマクロな収着挙動が異なることが示唆された。

**キーワード**: 黒雲母, 金雲母, 白雲母, ユウロピウム, 薄片状試料, 収着挙動

**1. 緒言** 地層処分システムの天然バリアとして想定される花崗岩に含有する黒雲母は、陽イオン核種に対して高い核種収着能を示すことが知られているが、その既往知見の多くは粉末状の試料が用いられてきた。実際の地下環境において黒雲母は薄片状で存在するため、核種収着挙動がこれまでの知見と異なる可能性がある。本研究では、薄片状の雲母鉱物試料を用いて陽イオン核種の一つであるユウロピウムとの相互作用について検討した。また、雲母鉱物試料として黒雲母に加えて白雲母や金雲母を用い、構造や化学組成の違いによる収着性の変化を比較検討した。

**2. 実験** 本研究では、バッチ式の収着実験を行った。収着実験では、5×6 mm 大の薄片状の黒雲母、および白雲母、金雲母を選び抜き使用した。また、比較として粒径 100~150 μm の黒雲母粉末を併せて用いた。ユウロピウム (Eu(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>, 安定同位体) 濃度は 1 mM に設定し、硝酸および緩衝剤を用いて pH 3, 5, 8 に調整した。そして、窒素雰囲気下のグローブバック内で、液固比が 10 ml/g となるように雲母試料 0.4 g と調整したユウロピウム溶液 4 ml をポリプロピレン管に封入した。振とう期間は 7 日間とし、期間内に計 5 回サンプリングした。サンプリング後に孔径 0.45 μm のメンブレンフィルターを用いて固液分離し、液相は ICP-AES によりユウロピウム濃度測定を、固相は乾燥後に SIMS (Secondary Ion Mass Spectroscopy) により薄片内のユウロピウム分布分析を行った。また、固液混合状態の試料により蛍光寿命を測定した。

**3. 結果・考察** Fig. 1 は、pH 5 の収着実験における液相のユウロピウム濃度の経時変化を示す。Fig. 1 より、黒雲母粉末の場合には、速やかにほぼ全てのユウロピウムが収着する一方、薄片状雲母鉱物へのユウロピウム収着は緩やかに進展することがわかる。これは、薄片内へのユウロピウムの拡散過程が反映されていると考えられる。また、各薄片状雲母鉱物の比較より、ユウロピウムの収着は黒雲母が最も大きく、続いて金雲母、白雲母への収着は非常に小さかった。この原因としては、雲母鉱物の 3 八面体構造 (黒雲母、金雲母) と 2 八面体構造 (白雲母) の違いにより、層間の交換性陽イオンであるカリウムの拘束状態が異なる可能性が示唆される。また、蛍光寿命測定、および SIMS による薄片内のユウロピウム分布からも、薄片内へのユウロピウムの収着挙動が pH によって異なることが明らかになった。

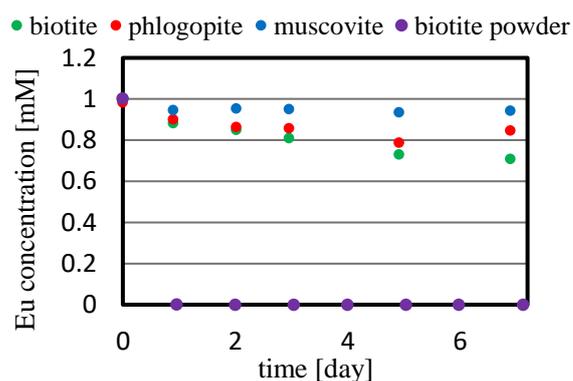


Fig.1 Eu sorption to each sample (pH 5)

**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」、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」、科学研究費補助金 基盤(B) 18H01910 の成果の一部である。ここに記して謝意を表す。

\*Masaya Ishijima<sup>1</sup>, Taiji Chida<sup>1</sup> and Yuichi Niibori<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Graduate School of Engineering, Tohoku Univ.