

Sn, Nb のモンモリロナイトへの収着に及ぼす pH 上昇の影響の評価

Effect of pH increase on sorption of Sn and Nb onto montmorillonite

*石寺 孝充¹, 澁谷 早苗²

¹日本原子力研究開発機構, ²原子力発電環境整備機構

セメント材料の溶出等による圧縮ベントナイト間隙水の pH 上昇の可能性を想定し、pH8~12 の範囲でモンモリロナイトへの Sn, Nb の分配係数の pH 依存性を取得した。その結果、pH 上昇に伴う分配係数の変化は、モンモリロナイト結晶端面への表面錯体形成を考慮したモデルにより予測できると考えられた。

キーワード：地層処分、ベントナイト、収着、Sn、Nb、pH 依存性、表面錯体

1. 緒言

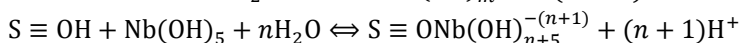
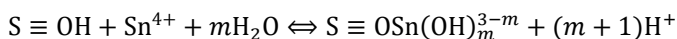
放射性廃棄物の地層処分では、セメント材料の溶出等により、圧縮ベントナイト間隙水の pH が上昇する可能性がある。ベントナイトの主要構成鉱物であるモンモリロナイトは負電荷を有しており、また、pH 上昇に伴いモンモリロナイト結晶端面の変異荷電サイトも負に帯電する。一方、pH が上昇すると、安全評価対象核種である Sn, Nb 等の溶存化学種が陰イオンとなり、電気的反発力によりベントナイトに対する分配係数が低下する可能性がある。本研究では、約 pH8 以上の領域で Sn, Nb のモンモリロナイトに対する分配係数の pH 依存性を取得し、その変化を収着モデルにより解析した。

2. 試験条件及び手順

試験はバッチ収着試験とし、固相はクニミネ工業製クニピア F、試験溶液は 0.5 mol/l NaCl 溶液を使用した。溶液の pH は 8~12 程度、試験期間は最長 14 日とし、窒素雰囲気下で実施した。Sn の初期濃度は 3×10^{-11} mol/l、液固比は 5000 ml/g、Nb の初期濃度は 1×10^{-6} mol/l、液固比は 1000 ml/g とした。試験では、固相と試験溶液を遠沈管に採取し、pH を所定の値に調整した後、Sn または Nb を添加した。所定期間後に遠心分離して上澄み液を採取し、Sn または Nb の濃度を測定した。分配係数は、初期濃度等と上澄み液中の濃度より算出した。

3. 試験結果及び考察

試験結果を図 1, 2 に示す。試験開始 7 日後と 14 日後の分配係数に差は見られず、収着平衡に達していることがわかる。試験結果より、Sn, Nb の分配係数は pH 上昇に伴い低下する傾向が確認された。この pH 領域での Sn, Nb の収着形態を検討するため、得られた分配係数について、モンモリロナイト結晶端面（表面錯体サイト）への錯体形成等を考慮して核種の収着量を評価する 2SPNE SC/CE モデル[1]により解析を行った。本研究では、このモデルに基づいて、Sn, Nb の表面錯体サイトへの収着を以下の式で表す。



ここで、S は表面錯体サイト、 m, n は整数である。解析では、2SPNE SC/CE モデルの Strong site のみを考慮し、熱力学データは JAEA-TDB[2]を使用した。図 1, 2 に解析結果を示す。破線・点線は各 m, n 数で表される表面錯体形成による分配係数への寄与を、実線はそれらの合計を示す。図に示すように、モデルにより Sn, Nb の分配係数を再現することが可能であり、Sn は $m = 4, 5$ 、Nb は $n = 0, 1$ の式で表される表面錯体の形成が分配係数に支配的に寄与していることがわかった。このことから、これらの表面錯体形成反応及びその錯形成定数（図中 Log K）に基づき、pH 上昇に伴う Sn, Nb の分配係数の変化を予測することが可能と考えられる。

参考文献

[1] Bradbury M. H. and Baeyens B. (1997) *J. Cont. Hydrol.* **27**, 223–248.

[2] Kitamura A. et al. (2014) JAEA-Data/Code 2014-009.

*Takamitsu Ishidera¹ and Sanae Shibutani²

¹JAEA, ²NUMO

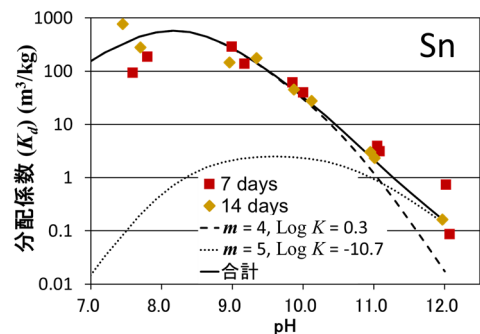


図 1 Sn の分配係数の pH 依存性

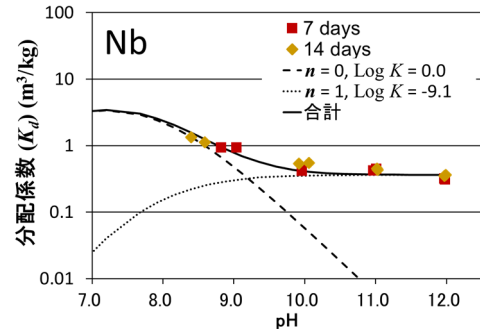


図 2 Nb の分配係数の pH 依存性