

処分環境温度におけるカルシウムシリケート水和物への ホウ酸共存下でのユウロピウム収着挙動

Sorption Behaviors of Europium onto Calcium Silicate Hydrate
in the Coexistence of Boric Acid under the Disposal Environment Temperature

*業天 智貴¹, 関 亜美¹, 千田 太詩¹, 新堀 雄一¹

¹東北大学

福島第一原子力発電所の廃棄物に付着したホウ酸塩の存在, および地下の温度変化を考慮し, カルシウムシリケート水和物と長半減期核種であるユウロピウムの相互作用について実験的に調べた。

キーワード: カルシウムシリケート水和物, ホウ酸, 温度, ユウロピウム

1. 緒言 福島第一原子力発電所の廃炉工程より発生する放射性廃棄物には, ホウ酸塩や長半減期核種が含まれると考えられる。ホウ酸はセメントの凝結を阻害することが知られており, これらの廃棄物をセメント固化処理する際には課題となる。先行研究[1]では, セメント系材料の主成分であるカルシウムシリケート水和物(C-S-H)へのセシウムの収着挙動について, ホウ酸共存の影響を報告している。一方, 地中の温度は深度により変化するため, これらを関連付けた基礎的知見を整理する必要がある。そこで本研究では, 処分環境温度を考慮して, ホウ酸共存下における C-S-H と 3 価の陽イオンであるユウロピウム(Eu)の相互作用を調べた。

2. 実験 C-S-H 試料は, 窒素雰囲気下で, 酸化カルシウム, フェームドシリカ, 純水またはホウ酸ナトリウム溶液, 硝酸ユウロピウム溶液を混合することで調製した。Ca/Si モル比は 0.8 および 1.6, 液固比は 20 ml/g (液相 30 ml, 固相 1.5 g), Na/B モル比は 0.2 および 1.0 とし, Na 量は NaOH にて調整した。Eu 濃度は 1 mM, ホウ酸濃度は 0, 200, 400, 600 mM で変化させた。温度は 15°C, 25°C, 40°C とし, 一週間の振とう養生後, 遠心分離した。液相は孔径 0.20 μm のフィルターで濾過後, pH および溶存成分を調べた。なお, 溶液中に Eu はほぼ溶存していないことを確認した。また, 固相はラマン分光分析および蛍光分光分析に供した。

3. 結果と考察 図 1 はホウ酸共存下における C-S-H 中の Eu の蛍光スペクトルである(Ca/Si=1.6, 25°C, Na/B=1.0)。Eu の電子が周辺原子の電子とクーロン相互作用する場合に見られるシュタルク分裂(618 nm 付近のピーク分裂)はホウ素濃度の増加とともに減少するものの, ホウ素濃度 600 mM においてもその存在が確認され, 他の温度条件でも同様だった。図 2 はラマン分光分析より得られた C-S-H (Ca/Si=1.6)の Q^1/Q^2 比と温度の関係である。 Q^1 は C-S-H 内の SiO_4 四面体の架橋酸素数が n 個であることを表し, Q^1/Q^2 比の減少は silicate chain の重合度増加を意味する。図 2 より, 温度上昇およびホウ酸濃度増加に伴い silicate chain の重合度が増加しており, このような構造変化は Ca がホウ酸との反応で消費されることに一因があると考えられる。また, 前述のように蛍光分光分析から Eu と C-S-H の相互作用が示されていることから, 図 2 のような構造変化が C-S-H への Eu 収着に及ぼす影響は小さいと推測される。

引用文献 [1] Hara et al.: Proc. of WM2018, Paper No. 18068, 1-9 (2018).

謝辞: 本研究の一部は科学研究費補助金 基盤(A) 21H04664 の成果である。ここに記して謝意を表す。

*Tomoki Gyoten¹, Tsugumi Seki¹, Taiji Chida¹ and Yuichi Niibori¹

¹Tohoku Univ.

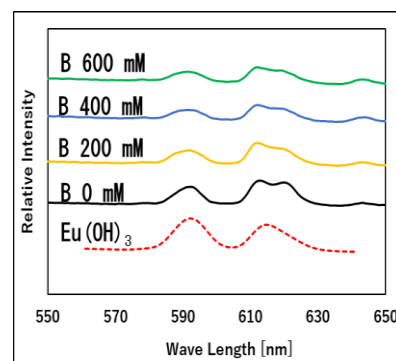


図 1 Eu の蛍光発光スペクトル

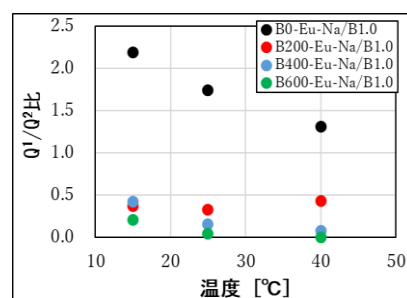


図 2 Q^1/Q^2 比と温度の関係