

# 緑泥石および絹雲母への陽イオン核種収着挙動

東北大院・工 ○千田太詩, 豊田丈通, 新堀雄一

## 1. 緒言

高レベル放射性廃棄物を対象とする地層処分では、深地層の安定した岩盤に天然バリアとして核種閉じ込め機能を期待する。この岩盤には、わが国に広く分布する花崗岩が想定されており、花崗岩に対する核種収着や花崗岩内拡散などの核種移行評価に関する研究が進められている。一方、実環境では、亀裂部などの水みちにおいて、花崗岩表面が熱水等によって変質を生じていることが考えられる。特に、熱水変質に関しては、核種収着挙動を支配する黒雲母が緑泥石(Chlorite,  $(\text{Mg}_5\text{Al})(\text{Si}_3\text{Al})\text{O}_{10}(\text{OH})_8$ )へ変質するとともに、長石類が絹雲母(Sericite,  $\text{KAl}_2(\text{Si}_3\text{Al})\text{O}_{10}(\text{OH})_2$ )を生成して花崗岩表面を覆うことが報告されている[1]。本研究では、これら変質鉱物への核種収着について着目し、1~3 価の陽イオン核種を想定した収着実験を行った。

## 2. 実験概要

本研究では、緑泥石および絹雲母への Cs, Sr, Eu (いずれも安定同位体)の収着についてバッチ式の収着実験を実施した。鉱物粉末試料はいずれも株式会社ニチカから購入し、緑泥石は長崎県西彼杵群三和町蚊焼産、粒径 75~150  $\mu\text{m}$  のものを、絹雲母は岡山県備前市三石産、粒径 75  $\mu\text{m}$  以下のものを使用した。各元素の初期濃度は 1 mM, 溶液の pH は 5 に設定した。鉱物粉末試料 0.6 g に対して各元素の溶液を 6 mL 加え(液個比 10, 容積 10 mL のネジ蓋付遠沈管使用), 7 日間に亘り収着挙動の経時変化を取得した。なお、いずれの鉱物および元素についても実験開始から 1 日後には収着が平衡に達することを確認した。固相と液相の混合、および容器密封の作業については、地下の低酸素環境を考慮して、窒素雰囲気グローブバック内で行った。溶液分析については、孔径 0.45  $\mu\text{m}$  メンブレンフィルターにて固相を除去した後、ICP 発光分析装置により各元素濃度を定量した。なお、添加した Cs, Sr, Eu に加え、緑泥石や絹雲母に含有する Mg, Al, K, Si についても併せて濃度分析を行った。

## 3. 結果および考察

表 1 は、収着実験により得られた分配係数  $K_d$  である。価数の大きい順に  $K_d$  が大きくなることが分かる。また、緑泥石および絹雲母ともに有意に陽イオンを収着しており、特に絹雲母では添加した Cs, Sr, Eu のほとんどが固相に収着したために大きな  $K_d$  が得られた。一方、収着実験中の緑泥石および絹雲母からの成分溶出については、元素によって多寡はあるものの  $10^{-4}$ ~ $10^{-3}$  M 程度の濃度上昇が確認されており、緑泥石では Mg, 絹雲母では Si が比較的多く溶出した。ただし、これらの成分溶出と Cs, Sr, Eu の収着について、電荷収支に係る有意な相関は確認されておらず、緑泥石および絹雲母への陽イオン収着はイオン交換以外の効果によるものと考えられる。

表1 各元素の  $K_d$  (pH 5) [L/kg]

	Cs	Sr	Eu
緑泥石	0.9	3.1	9.3
絹雲母	97	270	980 <

(絹雲母に対する Eu の  $K_d$  は、使用装置の検出限界値を用いて算出)

### 謝辞:

本研究の成果の一部は、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」の成果である。ここに記して謝意を表す。

### 引用文献:

[1] S. Nishimoto, H. Yoshida, Y. Asahara, T. Tsuruta, M. Ishibashi, N. Katsuta: Episyenite formation in the Toki granite, central Japan, *Contrib Mineral Petrol*, 1-12 (2014).