

Ca-Al-Si 系水和物によるユウロピウムの固定化に関する基礎的研究

*種市 やよい¹, 千田 太詩¹, 新堀 雄一¹

¹ 東北大学大学院工学研究科

1. 緒言: 放射性廃棄物処分施設の構築には多量のセメント系材料の使用が予定され、溶出するアルカリ成分によって地下環境中の岩盤に化学的変質が顕著に生じると考えられる。とくに、セメント由来の Ca と岩盤等から溶出する Si や Al によって処分場周辺に二次鉱物として生成する Ca-Al-Si 系水和物は、核種移行に影響を及ぼす可能性がある。そこで本研究では、Ca-Al-Si 系水和物による核種固定化に関する基礎的研究として、3 価の陽イオンであるユウロピウムの収着挙動を蛍光発光スペクトルおよび蛍光寿命測定により調べた。

2. 実験: Ca-Al-Si 系水和物の調整は、地下の冠水環境を想定し、ユウロピウムとの相互作用に至るまで乾燥過程を経ないで行った。酸化カルシウム(CaO)、ヒュームドシリカ(SiO₂)、硝酸アルミニウム九水和物(Al(NO₃)₃・9H₂O)を、Ca/Si モル比 0.4~1.6 および Al/Si モル比 0~0.5 になるように分取し、1 mM ユウロピウム溶液 in 1 mM NaOH 溶液と混合することによって行った。すなわち、Ca-Si-Al 系水和物生成時にユウロピウムが共存する条件となる。液固比 20 ml/g となるように、固相は 1.5 g、液相は 30 mL とした。混合から 7 日間もしくは 14 日間養生後、孔径 0.20 μm のメンブレンフィルターで固液分離した。液相は、ICP-AES により溶存成分を測定するとともに、固相は乾燥過程を経ない状態で蛍光発光スペクトルおよび蛍光寿命測定に用い、ユウロピウムの収着形態を検討した。

3. 結果および考察: 溶液分析よりユウロピウムはほとんど溶存していないことを確認した。このことは、ユウロピウムが加水分解により Eu(OH)₃ として沈殿しているか、もしくは Ca-Al-Si 系水和物との相互作用により固相側に分配していることを意味する。Fig. 1 と Fig. 2 は、28 日間養生後の固相試料の蛍光発光スペクトルと蛍光寿命減衰挙動である。Al を含有しないカルシウムシリケート水和物の構造にユウロピウムが取り込まれる場合、Fig. 1 内の Al/Si=0 の条件のように 618 nm 付近のピークが 2 つに分岐することが知られている[1]。しかし、Al/Si モル比が高くなるに従って、このピークの分岐が消失した。一方、Fig. 2 より、ほとんどの試料において Eu(OH)₃ の沈殿を含む溶液より蛍光寿命が長くなった。これらのことから、Fig. 1 で 618 nm 付近のピーク分岐が見られない試料においても、ユウロピウムが OH を外して Ca-Al-Si 系水和物と相互作用する可能性が示唆された。

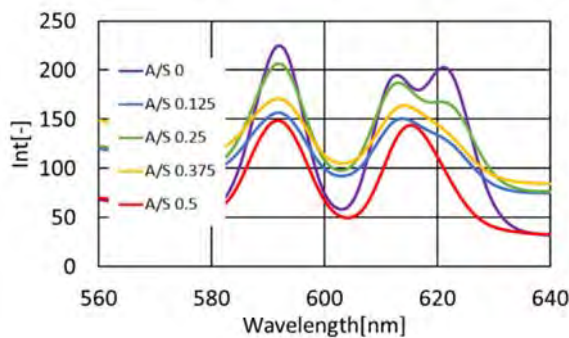


Fig.1 Fluorescence spectrum

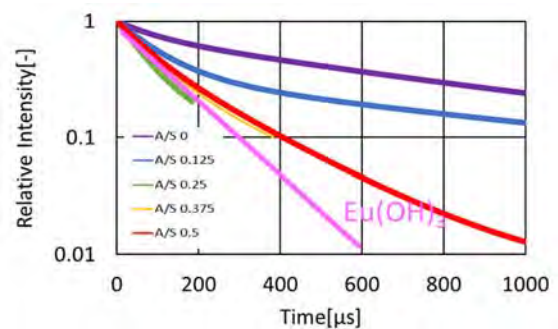


Fig.2 Fluorescence lifetime

引用文献: [1] Narita, M., Niibori, Y., Mimura, H., Kirishima, A. and Ahn, J., Sorption Behavior of Eu(III) Into Calcium Silicate Hydrate (CSH) Gel With Relatively Low Ca/Si Ratio <1.0, Proc. of WM2010, Paper No. 10096, 1-10 (2010).

謝辞: 本研究の一部は、科学研究費補助金 基盤研究(A) 17H01371 および「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成果である。ここに記して謝意を表す。