塩水環境を考慮した薄片状黒雲母と Eu の相互作用の評価

Evaluation of the interaction between flaky biotite and Eu in a saline environment

*波多野　快[1]，千田　太詩[1]，関　亜美[1]，新堀 雄一[1]

[1]東北大学

塩水環境を考慮した薄片状黒雲母と Eu の収着挙動を評価した結果、共存イオンが存在しない場合と比較して、Eu の収着が Na や Ca のような共存イオンによって若干促進されることが示唆された。また、薄片状黒雲母内の Eu の見かけの拡散係数は深成岩中の拡散係数と同等か小さく見積もられた。

キーワード： 黒雲母、ユウロピウム、地層処分、収着、共存イオン、拡散、イオン交換

1. 緒言　地層処分の安全評価において、核種と岩盤の相互作用の評価が重要な要素の一つとなる。本研究では、岩盤において核種を顕著に収着する黒雲母の存在状態に着目して、黒雲母を粉砕することなく薄片状の試料を用い、Eu の収着挙動を塩水環境として Na および Ca 共存下において調べた。

2. 実験　pH を 3, 5 に調整した 0.5 mM $Eu(NO_3)_3$ 溶液 15 mL と 5 mm 四方の薄片状黒雲母 3.0 g を混合し、一日一回撹拌しつつ一週間に亘り 25℃の恒温槽内で相互作用させた。また、共存する Na および Ca 濃度は NaCl、$CaCl_2$ を用いて 0 および 6 mM と設定した。サンプリングを 7 回行い、ICP-OES によって得た液相中の Eu 濃度の経時変化から Eu 収着量および黒雲母の層間への見かけの拡散係数を評価した。実験では液固比を一定に保つため、サンプリングの際に採取した溶液と同じ濃度・体積の溶液を調整し、容器に戻した。また、実験後の薄片状黒雲母に対し、TOF-SIMS により薄片内の Eu 分布を取得した。

3. 結果と考察　図 1 は pH 3 における薄片状黒雲母への Eu の収着挙動を、溶液中の Eu 濃度変化から見たものである。縦軸は Eu の初期濃度で規格化した。図 1 に示すように、共存イオンを加えない場合と比較して、Na および Ca 共存条件において Eu 収着量がやや増加する傾向がある。既往研究に[1]において Na イオンによる黒雲母端部近傍の膨潤が報告されており、図 1 のような共存イオンによる Eu 収着量の増加も同様の効果に起因する可能性がある。また、図 1 右上に例を示すように黒雲母内部への 2 次元的な拡散と液相の濃度変化を関連付けたモデル[2]を実験結果に適用した。得られた薄片内の Eu の見かけの拡散係数は概ね 10^{-13} m^2/s であった。これらの値は地層処分の性能評価に想定されている深成岩中の拡散係数[3]と同等か小さく、黒雲母を含有する深成岩中の核種収着が薄片内への拡散に律速される（収着分配の局所平衡が成立しない）可能性が示唆された。

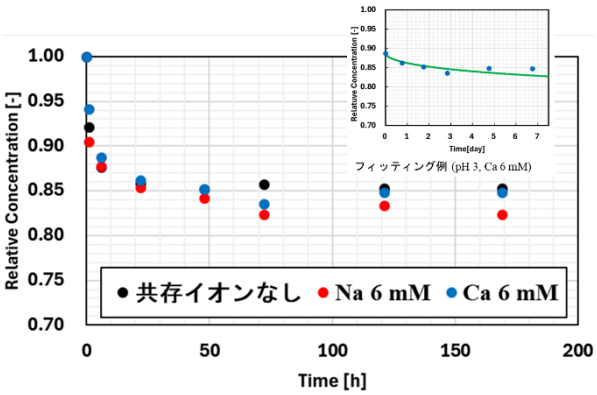

図 1 薄片状黒雲母への Eu の収着挙動（pH 3）

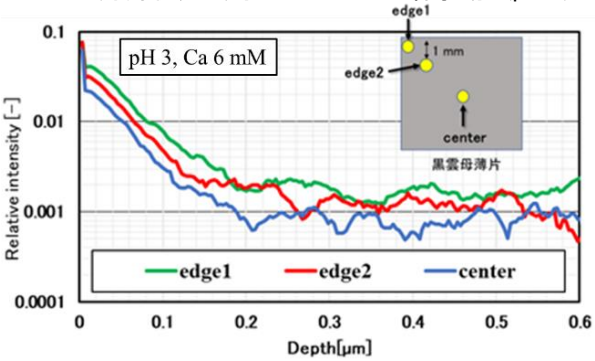

図 2　収着実験後の薄片状黒雲母内の Eu 分布

図 2 は収着実験後の薄片状黒雲母内の Eu 分布(pH 3、Ca 6 mM)である。縦軸は、黒雲母内に一様に分布する Si の強度で規格化した Eu 強度である。薄片内の Eu 分布は薄片端部に近づくほど大きくなっており、端部から内部へと Eu が拡散浸入していることが確認された。

引用文献：[1] Kim, et al., *CATENA*, **135**, 107-113 (2015). [2] Chida, et al., *MRS Advances*, **9**, 462-466 (2024). [3] 原子力発電環境整備機構, NUMO-TR-03 (2022).

謝辞：本研究の一部は JSPS 科研費 JP21H04664、JP22K14627 および JP24K01395 の成果である。記して謝意を表す。

*Kai Hatano[1], Taiji Chida[1], Tsugumi Seki[1] and Yuichi Niibori[1]

[1]Tohoku Univ.