

課題番号 : F-15-KT-0066  
利用形態 : 技術補助  
利用課題名(日本語) : 放射性核種の環境動態に関するナチュラルアナログを用いた研究  
Program Title (English) : Natural analog studies on the migration behavior of radionuclide  
利用者名(日本語) : 小林 大志, 中嶋 翔梧  
Username (English) : T. Kobayashi, S. Nakajima  
所属名(日本語) : 京都大学大学院工学研究科原子核工学専攻  
Affiliation (English) : Kyoto University, Graduate School of Engineering, Nuclear Engineering

## 1. 概要(Summary)

放射性廃棄物に含まれる核分裂生成物の一つであるジルコニウム(Zr-93)は、地下環境中では4価の金属イオンとして振る舞う。4価ジルコニウムは強い加水分解反応により、難溶性の水酸化物固相として沈殿し、地下環境中での移行挙動は水酸化物固相の溶解度によって支配される[1]。本研究ではジルコニウムの安定同位体を用いて、溶解度を支配する水酸化物固相の状態をX線小角散乱法により調べた。

## 2. 実験(Experimental)

### 【利用した主な装置】

X線回折装置/SmartLab

### 【実験方法】

塩化ジルコニウム( $ZrCl_4$ )試薬を純水に溶解し、Zr濃度  $0.01 \text{ mol/dm}^3$  の母溶液を作成した。試料溶液は過飽和法または不飽和法により調製した。過飽和法では、水酸化ナトリウム(NaOH)水溶液を滴下することでpHを調整し、水酸化物沈殿( $Zr(OH)_4(am)$ )を生成した。不飽和法では予め、水酸化物沈殿を生成した後、所定のpHに調整した試料溶液に固相として投入した。

京都大学ナノハブ拠点実験室において固相を含む懸濁液  $10 \mu\text{L}$  を採取し、ガラスキャピラリーに封入してX線小角散乱用の試料とした。また、リファレンスとして  $ZrO_2$  nanopowder (Aldrich, 99%) を懸濁させた試料も調製し、併せて小角散乱の試料とした。X線小角散乱では、Cu-K $\alpha$ 線 ( $1.54 \text{ \AA}$ ) を用い、 $2\theta = 0.06 - 4^\circ$  の範囲において測定を行った。

## 3. 結果と考察(Results and Discussion)

不飽和法により調製し、pH5.8、 $25^\circ\text{C}$  で静置した試料溶液の固相のX線小角のスペクトルを Fig.1 に示す。得られたスペクトルの解析から、固相成分は粒径  $2 \text{ nm}$  程度の微小粒子と  $13 \text{ nm}$  程度の粒子の2成分から成ることが示唆された。電子顕微鏡観察による

$Zr(OH)_4(am)$  の観察では、 $2 \text{ nm}$  程度の粒子が最小単位として測定されており[1]、pH5.8 で静置した試料溶液の固相は、 $2 \text{ nm}$  程度の微小粒子とその凝集体から成る可能性が考えられた。

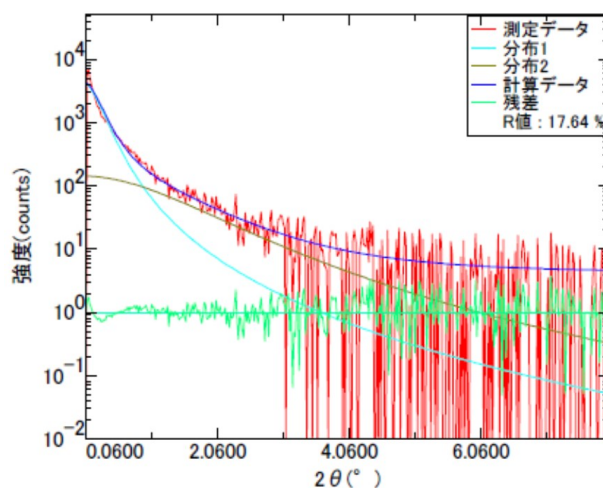


Fig.1 SAXS curves for  $Zr(OH)_4(am)$  solid phase aged at pH 5.8,  $25^\circ\text{C}$ .

## 4. その他・特記事項(Others)

・参考文献

[1] T. Kobayashi, D. Bach, M. Altmaier, T. Sasaki, H. Moriyama, "Effect of Temperature on the Solubility and Solid Phase Stability of Zirconium Hydroxide," *Radiochim. Acta* 101, 645 (2013).

## 5. 論文・学会発表(Publication/Presentation)

なし。

## 6. 関連特許(Patent)

なし。