

課題番号 : F-16-KT-0127  
利用形態 : 機器利用  
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, 坂本 峻一  
Username(English) : T. Kobayashi, S. Nakajima, S. Sakamoto  
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、地下水中では難溶性の水酸化物固相として沈殿し、そ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線回折法により調べた。

## 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( $ZrCl_4$ )試薬を超純水に溶解し、Zr濃度  $0.01 \text{ mol/dm}^3$  の母溶液を作成した。水酸化ナトリウム( $NaOH$ )水溶液を滴下することで水酸化物沈殿( $Zr(OH)_4(am)$ )を生成した。沈殿を超純水で洗浄した後、pH 12に調整した試料溶液に固相として投入した。試料溶液は25、40、60および90°Cに調整した恒温器内に静置した。約1カ月間の熟成の後、恒温器から試料溶液を取り出し、遠心沈降により固相を分離し室温で乾燥させた。

京都大学ナノハブ拠点実験室において、各温度で熟成した固相試料をX線回折法により測定した。このとき、Cu-K $\alpha$ 線( $1.54 \text{ \AA}$ )を用い、散乱角  $2\theta$  は  $20 \sim 90^\circ$  の範囲とした。

## 3. 結果と考察(Results and Discussion)

25~90°Cで静置した試料溶液の固相のXRDスペクトルをFig. 1に示す。25~40°Cまでは、XRDスペクトルには顕著なピークは見えず、固相は初期のアモルファス状態から変化していないことが分かった。一方、60°Cおよび90°Cで静置した試料溶液の固相では、ジルコニウム酸化物( $ZrO_2(monoclinic)$ )に相当するピ

ークが観察され、高温環境下で水酸化物固相の結晶化が進行していることが確認できた。

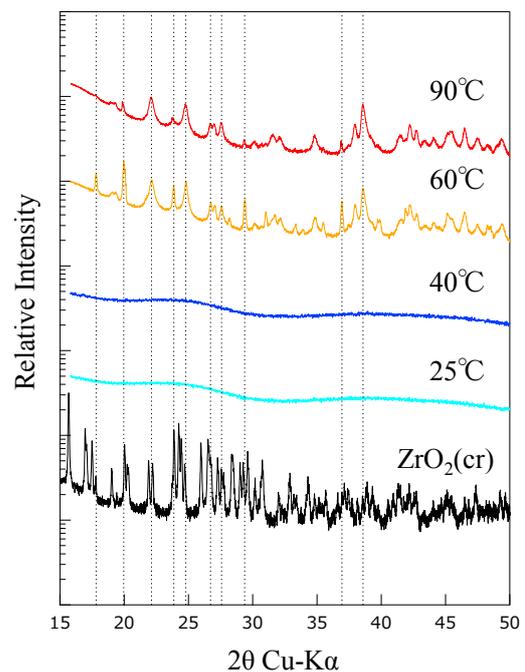


Fig. 1 XRD Spectra for  $Zr(OH)_4(s)$  solid phases aged at 25, 40, 60 and 90°C at pH 12.

## 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。