

課題番号 : F-19-KT-0125
 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) : Study on the migration behavior of radionuclide
 利用者名(日本語) : 小林大志、伏見朋和
 Username(English) : T. Kobayashi, T. Fushimi
 所属名(日本語) : 京都大学院工学研究科
 Affiliation(English) : Graduate School of Eng., Kyoto Univ.
 キーワード/Keyword : ジルコニウム酸化物、形状・形態観察、X線小角散乱、環境技術

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、長半減期の放射性核種であり、廃棄物処分の安全評価では、長期にわたって処分環境中での移行挙動を把握する必要がある。ジルコニウムは、地下水中で 4 価イオンとして振る舞い、加水分解反応により水酸化物や酸化物を形成する。ジルコニウム水酸化物や酸化物は微小なナノ粒子を形成し、その凝集分散挙動は、移行挙動に大きく影響する。本研究では、ジルコニウムの安定同位体の酸化物に着目し、ジルコニウム酸化物のナノ粒子を種々の条件下で水溶液中に懸濁させた試料を X 線小角散乱法(SAXS)により測定した。

2. 実験(Experimental)

【利用した主な装置】

X 線回折装置/SmartLab

【実験方法】

ジルコニウム酸化物粉末(ZrO_2)を pH およびイオン強度を調整した試料溶液に懸濁させた。pH は塩酸(HCl)および水酸化ナトリウム(NaOH)により pH 2~12、イオン強度(I)は塩化ナトリウム(NaCl)を添加することにより、 $I = 0.01, 0.1$, および 0.5 mol/dm^3 とした。京都大学ナノハブ拠点の実験室において、 ZrO_2 粉末を含む懸濁試料を内径 0.7 または 1.5 mm のほう珪酸ガラスキャピラリー(WJM-Glas Müller GmbH)に充填した。X 線回折装置(SmartLab)の小角散乱ユニットを用いて、散乱角 $2\theta = 0.06\sim 6.0^\circ$ の範囲で 0.02° ステップ、 $0.53^\circ/\text{min}$ で散乱 X 線を測定した。なお、結果と考察では、散乱角の代わりに散乱ベクトル q ($q = 4\pi\sin q/\lambda$ ($\lambda = 0.154 \text{ nm}$))を用いて表す。

3. 結果と考察(Results and Discussion)

ZrO_2 粉末を pH 10、 $I = 0.01, 0.1$ および 0.5 M の NaCl 溶液に懸濁させた試料の SAXS プロファイルを

Fig. 1 に示す。いずれの条件で懸濁させた試料についても、散乱強度($\log I(q)$)は散乱ベクトル q の減少に伴って単調に増加し、 $\log I(q)$ の q に対する傾きの変化は見られなかった。このことから、ジルコニウム酸化物の粒子は、100nm 以上の凝集体を構成していると考えられた。

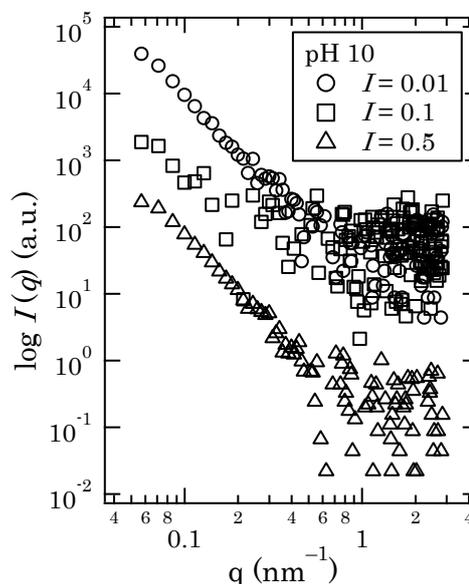


Fig. 1 SAXS profiles of monoclinic ZrO_2 suspended in NaCl solutions at pH 10 ($I = 0.01, 0.1$, and 0.5). The profiles are vertically shifted to avoid overlap by offset constants.

4. その他・特記事項(Others) なし

5. 論文・学会発表(Publication/Presentation)

伏見朋和, 小林大志, 元川竜平, 佐々木隆之 「4価金属酸化物および水酸化物コロイドのゼータ電位と粒径分布の測定と解釈」, 3A06, 日本放射化学会第 63 回討論会, いわき産業創造館, 福島(2019)

6. 関連特許(Patent) なし