

## Se-79 の閉じ込め機構に関する研究 (3) XAFS 法による Se の天然黄鉄鉱中での固定状態の調査

XAFS study on Se immobilized in natural iron pyrites

阪大 (工) 中川 貴 仁谷 浩明 小野 貴弘 本田 裕祐 山本 孝夫  
Takashi NAKAGAWA Hiroaki NITANI Takahiro ONO Yusuke HONDA Takao YAMAMOTO  
秋田大 (工資) 水田 敏夫 神戸製鋼 和田 隆太郎 中山 武典  
Toshio MIZUTA Ryutaro WADA Takenori NAKAYAMA

高レベル放射性廃棄物の地層処分において長寿命で移行性が高いと言われている核種のひとつである Se の鉱物中での固定状態を XAFS 法により調査した。Se の XANES 解析により、天然鉱石中では Se は単体のみでは存在していないことが示された。

**キーワード** : XAFS, 高レベル廃棄物, 地層処分, Se, 黄鉄鉱, ナチュラルアナログ

**1. 緒言** 高レベル放射性廃棄物の処分における長寿命核種の地層中での移行を考える際に、これまでに行われている分配モデルだけに依存した核種移行評価だけでなく、鉱物中への核種の固定化を考慮に入れる考え方がある。これは、自然環境をある精度で模擬しているはずで、この考えを正しく取り入れた場合に処分施設に求められる仕様がどうなるかは検討に値する。今回、長半減期 (約 6 万 5 千年) で処分時に問題となる Se が、鉄を含有する鉱物中に固定されるか否かの最初の検討として天然鉱石中の Se の存在状態を XAFS 法によって調べた。

**2. 実験** 以下の 2 種類の試料を測定し比較した。人工試料 : 5 mM  $\text{Na}_2\text{SeO}_3$  水溶液に希硝酸を加えて pH 5.0 に調整した溶液に還元鉄粉を 25 日間浸漬させた粉末。天然試料 : オマーンで採取された天然鉱石である Se を含んだ黄鉄鉱。これらの試料の結晶状態を XRD で調べ、XAFS 測定後試料の化学組成を ICP で調べた。さらに、Se の K 端 XAFS 測定を SPring-8 のビームライン BL01B1 において室温・大気中で行った。入射 X 線強度を電離箱で、X 線吸収は蛍光 X 線強度を 19 素子 SSD で測定した。Se 原子価の標準試料として Se、 $\text{SeO}_2$  (IV 価)、 $\text{H}_2\text{SeO}_4$  (VI 価) も測定した。

**3. 結果・考察** 人工試料の XRD パターンには金属鉄のピークとマグネタイト ( $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ) のピークが見られた。天然試料であるオマーン黄鉄鉱では  $\text{FeS}_2$  が主相と確認できた。しかし、どちらの試料においても Se 単体やその化合物に由来する回折ピークは有意に見られなかった。XAFS 測定後試料の元素分析によれば、Se 濃度は人工試料中で 1100 ppm、天然試料中では 300 ppm と低濃度であったが、解析可能な X 線吸収スペクトルが得られた。得られたデータのうち、吸収端近傍の XANES 領域のスペクトルを Fig.1 に示す。標準試料の XANES スペクトルと形状を比較すれば存在状態が推測できる。まず、人工試料のスペクトルはピーク位置・形状とも Se 単体のものと一致しているので、Se は単体で存在すると考えられる。一方、オマーン黄鉄鉱試料のスペクトルはメインピークの位置が Se に比べ 2eV ほど高エネルギー側にシフトしている。このスペクトルの特徴は測定した標準試料のどれとも一致せず、この試料中ではこれらの物質相が混在しているか、中間的な化学状態として存在しているものと考えられる。いずれにしてもこの天然試料中で、Se の全てが単体として存在していることはない。より高エネルギー側の EXAFS 領域のデータから得られた動径分布関数によっても、各試料の差を有意にとらえることができた。これらの詳細な解析結果については当日報告する。

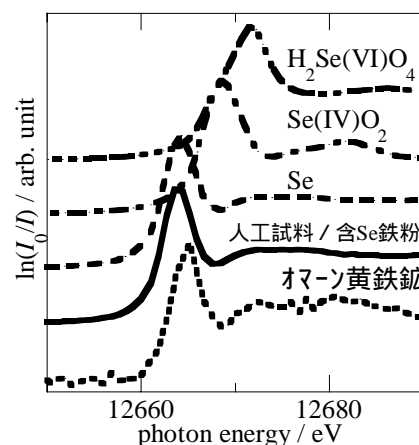


Fig.1 Se K-edge XANES spectra of Se-containing samples.

**謝辞** 東京大学・田中知教授、長崎晋也助教授、サイクル機構・亀井玄人氏には情報のご提供、計画策定および結果の評価に有益なご指導を頂いた。ここに厚く謝意を表す。