

## アパタイトの溶解初期過程における元素の挙動

Behavior of elements at the initial stage of apatite dissolution

# 大貫 敏彦 [1], 香西 直文 [2], 村上 隆 [3], 山本 春也 [4], 楢本 洋 [5]

# Toshihiko Ohnuki [1], Naofumi Kozai [2], Takashi Murakami [3], Shunya Yamamoto [4], Hiroshi Naramoto [4]

[1] 原研・地質研, [2] 原研・環安部, [3] 東大・理・鉱物, [4] 原研・高崎, [5] 原研・高崎研

[1] EGL, JAERI, [2] Dept. Environ. Safety Research, JAERI, [3] Mineralogical Inst., Univ. of Tokyo, [4] Takasaki, JAERI

アパタイトの溶解過程におけるEu,Ndの挙動をRBS, R NRAを用いて検討した。RBSスペクトルからEu及びNdはアパタイト表面から浸入していた。Eu及びNdの浸入深さと水素の浸入深さにより相関があった。これらの結果から、まず、水素の浸入があり続いて元素がアパタイトの構造内に取り込まれることが分かった。

鉱物の溶解初期過程における吸着元素の再分配挙動は、地中における元素の循環機構を解明する上で重要である。アパタイトは、地層中に広く分布し、希土類元素などを吸着することで知られている。また、アパタイト周辺にウランが濃集しウラン鉱物が生成されていることも報告されている。しかしながら、その機構はまだ明らかになっていない。初期過程における元素の挙動を研究するためには、表面からの深さ方向における元素、特に水素、構成元素及び吸着元素の分布を求める必要がある。しかし、吸着元素濃度が構成元素に比べて低く、また、水素に関する情報が得られないことから、E P M Aによる分析では溶解の初期過程における元素の挙動を明らかにすることは難しかった。一方、RBS (Rutherford Backscattering解析) およびR NRA (共鳴核反応) は、低濃度の元素及び水素の深さ方向の分布を求めることが可能な方法である。しかし、これらの方法では加速器が必要となる。本研究では、原研、高崎研にあるタンデム型加速器を用いて、アパタイトの溶解の初期過程におけるEu及びNdの挙動について検討した。

Eu及びNdのアパタイト ( $\text{Ca}_5(\text{PO}_4)_3\text{F}$ ) への収着実験では、アパタイトの単結晶 (約5mmx5mmx1mm) をEu、0.1 mM 10 ml (初期pH6.4,4.6,3.4) と40, 75及び150において、10日間反応させた。RBSでは、2.4MeVのHe-4を入射ビームとした。R NRAでは、N-15を入射ビームとし、6.385 MeVにあるH-1(N-15,ag)C-12の核反応を使って、水素の深さ方向分布を求めた。

75において異なるpH溶液を用いた実験により得られたアパタイトのRBSスペクトルと、未反応試料のスペクトルとの差 (差スペクトル) から、pHが低くなるほどEuについてのピーク面積が増えることが分かった。pH4.6と3.4で得られた差スペクトルを比較すると、アパタイト表面付近ではpH4.6におけるEuのピーク値がpH3.4よりも高い。また、pH3.4におけるEuピークの方がより低エネルギー側までピークが現れることが分かる。この結果から、溶液のpHが低いほどEuがアパタイト結晶の深部に侵入していることが分かる。Caのピーク値が負になっていることからCaの一部はアパタイトから溶出していることがわかる。R NRAにより水素の深さ方向の分布を求めた結果、pH6.4,4.6では表面付近に水素が分布し、スペクトルは未反応のものと同様であった。しかし、pH3.4の場合、水素がアパタイトの深部まで浸透していることが明らかとなった。

pH4.6における異なる反応温度においてEu溶液と接触させたアパタイトのRBS差スペクトル及び水素の深さ分布から、150において、Euと水素の深部への侵入が起こっていることが分かった。これらのことから、Euのアパタイトへの取り込みには水素イオンが重要な役割を担っていると考えられる。Ndについても同様な結果が得られた。