原位置試験により鉄と長期間接触させたクニゲル V1 試料の変質挙動の調査

Investigations of mineral alteration in Kunigel V1 samples contacted with iron obtained from long-term in-situ experiments

*石寺 孝充¹, 笹本 広¹, 佐藤 久夫² ¹原子力機構 ²三菱マテリアル

原位置において鉄と長期間接触させたクニゲル V1 試料中の鉱物の変質挙動について調査した。その結果、 生成量は微量であるものの、バーチェリン、鉄クロライト、鉄サポナイトが生成していることが推定され、 また、鉄とクニゲル V1 試料の接触界面に、石膏とカルサイトの生成が確認された。

キーワード:鉄、ベントナイト、変質、原位置試験

1. 目的

高レベル放射性廃棄物の地層処分においては、オーバーパック材として用いられる炭素鋼が圧縮ベントナイトと接触することにより、ベントナイト中の鉱物が変質する可能性がある。ベントナイトが変質すると、ベントナイトの膨潤特性や放射性核種の収着拡散挙動等が大きく変化する可能性があることから、特に圧縮状態における鉄とベントナイトの相互作用メカニズムを理解する必要がある。本試験では、原位置において鉄と長期間接触させたベントナイト試料の分析を行い、鉱物の変質挙動について調査した。

2. 分析試料

スウェーデン SKB 社による国際共同研究 ABM(Alternative Buffer Material)プロジェクトにおいては、 Äspo HRL の坑道に掘削された直径 30cm、長さ約 3m のボーリング孔へベントナイトブロックを定置し、中心部に炭素鋼製のヒーターを設置して 130° C程度に加熱することにより、原位置でのベントナイトの変質を評価する試験が行われている[1]。本研究では、試験期間約 2 年半(ABM1)と約 6 年半(ABM2)の乾燥密度約 2.0Mg/m^3 のクニゲル V1 試料について、TEM, AFM, EPMA, FE-SEM, μ -XRD による分析を実施し、クニゲル V1 中の鉱物の変質状況の観察と、生成している変質鉱物の推定を行った。

3. 結果と考察

分析の結果、ABM1、ABM2 のどちらの試料においても、生成量は微量であるものの、TEM 観察及び AFM 分析(図 1)からはバーチェリンと推定される鉱物、SEM-EDS 分析及び μ -XRD 分析からは鉄クロライト、EPMA 分析からは鉄サポナイトと推定される鉱物の存在が確認された。これらの鉱物は、Fe²+共存下で生成すると予測される鉱物であるものの、熱力学的に安定な Fe²+濃度や pH 条件等が異なっている。そのため、同じ試験試料内でも、ベントナイトの変質環境にはばらつきがあったものと推定された。また、鉄とベントナイトの接触界面において、カルシウムと硫黄の濃度が高い部分が見られ(図 2)、この部分は μ -XRD分析より石膏とカルサイトと同定された。このような接触界面での鉱物の析出は、鉄製ヒーターの加熱に伴って、鉄とベントナイトの界面に間隙水中の塩分が濃縮されたことによるものと推測された。

※本報告は経済産業省委託事業「処分システム評価確証技 術開発」の成果の一部である。

鉄製ヒーターとの接触面 Ca及びSの濃集 Ca Ca S

図1 AFM 分析結果 (a) Deflection image, (b) 高さ分布

モンモリロナイトシ

1.3 nm

= 1.3nm: モンモリロナイト

d₀₀₁ = 0.8nm: バーチェリンと推定

図2 鉄ーベントナイト接触界面の EPMA マッピング

参考文献

[1] Eng et al., (2007) SKB IPR-07-15.

^{*}Takamitsu Ishidera¹, Hiroshi Sasamoto¹, Hisao Sato² ¹JAEA, ²Mitsubishi Materials Corporation