

埋め戻し材の変質を考慮したイライトへの過飽和ケイ酸析出挙動の温度依存性

Temperature dependencies of the deposition behavior of supersaturated silicic acid on illite,
considering the alteration of backfill material.

*小山 伸也¹, 笹川 剛¹, 千田 太詩¹, 新堀 雄一¹

¹東北大学大学院工学研究科

本研究では、ベントナイトの変質によって生成するイライトへの過飽和ケイ酸の析出挙動について、処分場において想定される地温勾配を考慮した温度依存性を析出実験により検討した。その結果、見かけのケイ酸析出速度定数が温度上昇に伴い大きくなり、Ca型化ベントナイトを用いた析出実験と同様の傾向を示した。
キーワード：温度依存性，イライト，過飽和ケイ酸，析出速度，埋め戻し材

1. 緒言 地層処分においては、坑道内の埋め戻し材の一部、および廃棄体を覆う緩衝材としてベントナイトの使用が考えられている。ベントナイトは膨潤性や低透水性に優れ、長期にわたる地下水や核種の移行抑制が期待されるが、廃棄体の発熱や地下水中のKイオンなどの影響によってイライト化変質が生じ、膨潤性が失われる可能性がある。一方、処分場建設に使用されるセメント系材料によって、地下水のpHが12以上から8程度まで連続的に変化するpH変動場が形成される。ここでは、高pHではケイ酸は溶解するものの、pHの低下に伴い過飽和状態となり固相表面へ析出するために、空隙を閉塞し核種移行を抑制することが期待される。本研究では、地温勾配によって処分環境が室温に比較して高温となることを考慮し、過飽和ケイ酸のイライトへの析出に関する温度依存性を検討した。

2. 実験 バッチ式によるケイ酸析出実験では、固相試料としてイライト(オレンジフラワー社製)を使用し、パラメータとしてケイ酸溶液の初期過飽和濃度(2, 6, 10 mM), 溶液温度(15, 25, 50°C), 添加する固相量(0.5, 1.0, 1.5 g)を設定した。まず、ケイ酸溶液(250 ml)にイライトを添加し、pH緩衝液および硝酸を添加することによりpHを10以上から8に調整し、溶液中のケイ酸濃度を過飽和状態とした。所定時間ごとに採取したサンプルを0.45 µmメンブレンフィルターにより固液分離し、水溶性ケイ酸の濃度はモリブデンイエロー法、溶液中の全ケイ酸濃度はICP-AESを用いて定量した。これらを基に、固相へ析出したケイ酸の量を求め、実験開始直後の析出速度を2次近似により求めた。そして、添加した固相量と析出速度より各温度・初期過飽和濃度ごとの見かけの析出速度定数を評価した。

3. 結果・考察 図1および2の実験結果に示すように、本実験系におけるケイ酸の状態は水溶性ケイ酸、コロイド状ケイ酸、固相への析出と定義した。見かけの析出速度定数は初期過飽和濃度6 mMにおいて、15°Cのとき 4.98×10^{-11} m/s, 25°Cのとき 5.76×10^{-11} m/s, 50°Cのとき 8.65×10^{-11} m/sと評価され(見かけの活性化エネルギーは12.3 kJ/mol), 先行研究によるCa型化ベントナイトを用いた析出実験¹⁾と同程度の値が得られた。以上より、比較的高温の処分環境においてもCa型化ベントナイトと同様にイライトへのケイ酸の析出により流路空隙が狭められる可能性が示された。

参考文献[1] Sasagawa et al, Proc of WM2016, Paper No.16033 (2016).

謝辞：本研究の一部は科学研究費補助金 挑戦的萌芽研究 16K14532, 若手研究(B)16K18345, および「文部科学省英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業—廃止措置のための格納容器・建屋等信頼性維持と廃棄物処理・処分に関する基盤研究及び中核人材育成プログラム」に拠った。

*Shinya Oyama¹, Tsuyoshi Sasagawa¹, Taiji Chida¹, Yuichi Niibori¹

¹Graduate school of Engineering, Tohoku University

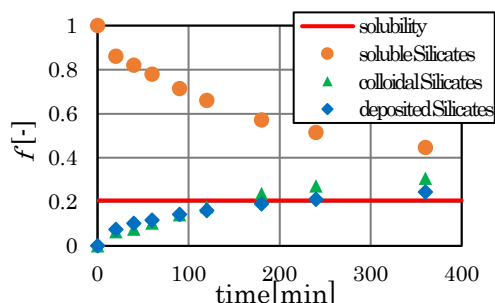


図1 ケイ酸析出挙動(初期過飽和濃度 6 mM, 温度 15°C, 固相量 1.5 g)

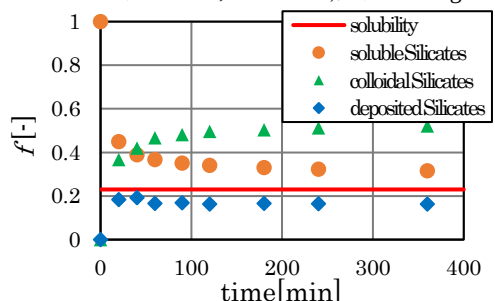


図2 ケイ酸析出挙動(初期過飽和濃度 6 mM, 温度 50°C, 固相量 1.5 g)