

緑泥石および絹雲母への過飽和ケイ酸の析出挙動に及ぼす共存イオンの影響

Influence of Co-existing Ions on the Deposition Behavior of Supersaturated Silicic Acid on Chlorite and Sericite

*齋藤 聖史¹, 千田 太詩¹, 新堀 雄一¹

¹東北大学

処分場周辺の pH 変動場におけるケイ酸析出は、地下水流路を狭隘化し、核種移行を抑制する可能性がある。本研究では、地下に遍在する緑泥石および絹雲母に対する過飽和ケイ酸の析出挙動について、Ca イオンの共存を考慮して実験的検討を行い、析出速度定数を評価した。

キーワード：放射性廃棄物処分場、過飽和ケイ酸、析出挙動、緑泥石、絹雲母、変質鉱物

1. 緒言

放射性廃棄物処分場周辺では、処分場建設に使用されるセメント系材料からの成分溶出により地下水が高 pH 化し、岩盤中のケイ酸塩鉱物からケイ酸が溶出することが懸念される。一方、分散や希釈により地下水の pH が 8 程度まで低下してケイ酸が過飽和になることで、流路表面に析出することが予想されている。このようなケイ酸の析出に伴う地下水流路の狭隘化により、天然バリア中の核種移行が抑制される効果が期待される。本研究では、析出対象である流路表面の鉱物として地下に遍在する熱水変質鉱物である緑泥石および絹雲母を想定するとともに、セメント由来の Ca イオンが過飽和ケイ酸の析出に及ぼす影響について検討した。

2. 実験

過飽和ケイ酸の析出実験では、pH 8 において所定の過飽和濃度になるように調整したケイ酸溶液(pH 12 以上)に、緑泥石(粒径 45 μm 以下)あるいは絹雲母(粒径約 10 μm)の粉末を固相として添加した。そして硝酸と pH 緩衝液を用いて pH を 8 程度に設定し、析出実験を開始した。pH を 8 に設定する直前に、Ca 濃度が 10 mM になるように CaCl_2 溶液を添加した。試料溶液の総量は 125 ml とし、窒素雰囲気および 25°C に保つとともに、300 rpm で攪拌した。実験中は所定時間毎にサンプリングし、0.45 μm メンブレンフィルターを用いて固液分離した。ICP-AES により液相中の水溶性ケイ酸およびコロイド状ケイ酸の合計濃度を、モリブデンイエロー法により水溶性ケイ酸のみの濃度を測定した。また、固液分離によって取り除かれたケイ酸を固相に析出したケイ酸とし、ケイ酸の析出挙動を評価した。

3. 結果・考察

Fig. 1 は過飽和ケイ酸濃度 6 mM および緑泥石 5 g、Ca 濃度 10 mM の場合の各形態のケイ酸の経時変化である。縦軸 f は、各ケイ酸濃度を初期ケイ酸濃度で除した分率である。Fig. 1 より、水溶性ケイ酸が減少し、析出したケイ酸およびコロイド状ケイ酸が増加していることから、過飽和の水溶性ケイ酸が析出のみならず重合することがわかる。このようなケイ酸の析出および重合は他の実験条件においても同様に確認された。実験開始時から 40 分までのケイ酸析出速度を用いて算出した見かけの析出速度定数は、固相として緑泥石および絹雲母のいずれを用いた場合も、 10^{-10} m/s オーダーであった。これは、固相を非晶質シリカとした場合の見かけの析出速度定数と概ね同様である[1]。また、本研究で得られた析出速度定数と、想定される処分環境の地下水流速および流路幅[2]から算出した Damköhler 数は 10^5 以上であり、地下水移流に対してケイ酸の析出反応が支配的になると考えられる。このことはケイ酸析出による流路の狭隘化への寄与を意味する。

参考文献

[1] Sasagawa et al.: Effects of Supersaturated Silicic Acid Concentration on Deposition Rate Around Geological Disposal System, *J. of Nuclear Rad. Sci.*, **3**(4), 041010-1 – 041010-6 (2017).

[2] JNC：わが国における高レベル放射性廃棄物処分の技術的信頼性 – 地層処分研究開発第 2 次とりまとめ(1999).

謝辞 本研究の一部は科学研究費補助金 基盤(B) 18H01910 の成果の一部である。ここに記して謝意を表す。

*Takafumi Saito, Taiji Chida, Yuichi Niibori
Tohoku Univ.

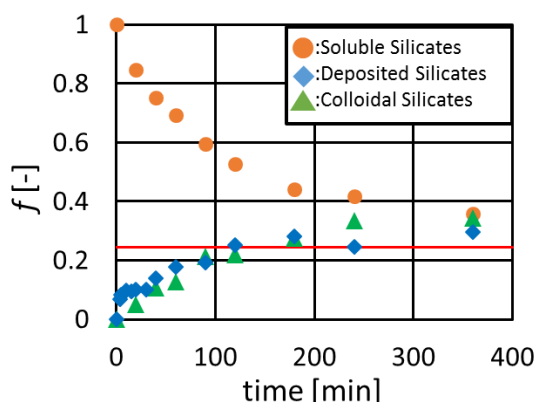


Fig. 1 Deposition behavior of supersaturated silicic acid on chlorite
(Supersaturated silicic acid concentration: 6 mM, Solid phase: 5 g, Ca concentration: 10 mM)