

# 塩化物イオン共存下における Ca-Al-Si 系水和物へのヨウ素の収着挙動の評価

長洞 麟太郎, 小野寺 駿斗, 千田 太詩, 新堀 雄一

東北大学大学院工学研究科

**1. 緒言** TRU 廃棄物に含有するヨウ素(I-129)は、バリア材への収着性が非常に小さいことから、線量評価上重要な核種の一つとされる。通常、深地下は還元雰囲気にあるため、ヨウ素の化学形態としては主にヨウ化物イオン(I<sup>-</sup>)が想定される。しかし、廃棄体近傍などにおいては水の放射線分解に伴い局所的な酸化雰囲気が形成され、一部のヨウ素がヨウ素酸イオン(IO<sub>3</sub><sup>-</sup>)の形態になることも懸念される。加えて、海水系地下水の場合には、同じ陰イオンである塩化物イオンがヨウ素と固相の相互作用をさらに小さくすることが考えられる。一方、処分場建設に多量に使用されるセメント系材料により、処分場周辺は高アルカリかつ高 Ca 濃度条件になる。このような条件において、地下水および岩盤等に含有する Si や Al と高濃度の Ca によって Ca-Al-Si 系水和物が二次的に生成し、核種移行を制限する可能性がある。そこで本研究では、Ca-Al-Si 系水和物と I および IO<sub>3</sub><sup>-</sup>の相互作用について、塩化物イオンの影響を実験的に調べた。

**2. 実験** 収着実験はバッチ式とし、以下の手順に従って行った。まず、粉末状の CaO、シリカフェーム、Al(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>・9H<sub>2</sub>O を Ca/Si 比が 1.6、および Al/Si 比が 0~0.5、固相の総量 1.5 g となるように遠沈管に分取した。次に、および NaCl 濃度 0、あるいは 0.6 mol/L となるように溶液を加えた。このとき、遠沈管内のヨウ化物イオン、あるいはヨウ素酸イオンの物質量が 15 μmol となるように、NaI 水溶液あるいは NaIO<sub>3</sub> 溶液を加えた。ヨウ素酸イオンについては、酸化雰囲気を保つように NaClO を併せて添加した。なお、溶液の総量と固相量は液固比 20 で一定とした。これらの試料を 1 日~30 日間養生した後に固液分離し、イオンクロマトグラフにより I および IO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度を測定した。

**3. 結果と考察** 図 1 は養生期間 30 日間、NaCl 濃度 0 mol/L および 0.6 mol/L の条件における Ca-Al-Si 系水和物へのヨウ素酸イオンの収着挙動である[1]。液相中のヨウ素酸イオン濃度は初期濃度よりも大幅に低下した。一方、ヨウ化物イオンの場合には初期濃度が保たれる結果となった。Ca-Al-Si 系水和物形成時は水が消費され液相量が減少するにも関わらず濃度が変わらないのは、固相の水和反応によって水とともにヨウ化物イオンが固相に取り込まれたことを示唆し、これはカルシウムシリケート水和物を用いた先行研究の結果と同様である[2]。これらのことから、ヨウ素の Ca-Al-Si 系水和物への収着は、Ca-Al-Si 系水和物の水和に伴う取り込みに加え、オキソ酸と固相との静電的な相互作用を示唆する。ただし、図 1 に示すように塩化物イオン濃度の影響がほぼ見られないことから、後者については今後検討を要する。図 2 は、図 1 をもとに算出したヨウ素酸イオンの Ca-Al-Si 系水和物に対する収着分配係数である。いずれの条件においても収着分配係数 10 mL/g 以上を示し、従来の安全評価に用いられている母岩に対するヨウ素収着分配係数 0.1 mL/g [3]と比較して高い核種移行遅延効果が期待される可能性が示唆された。

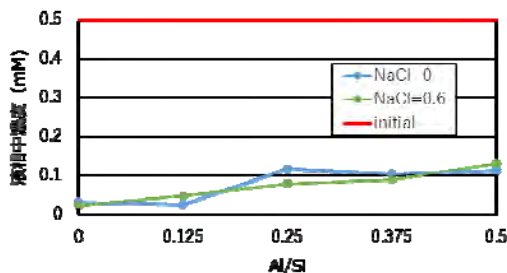


図1: Ca-Al-Si系水和物へのヨウ素酸イオンの収着挙動

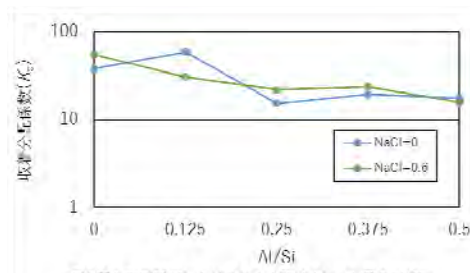


図2: 養生期間30日におけるヨウ素酸イオンの収着分配係数

## 参考文献:

- [1] 長洞ら：日本原子力学会 2018 年春の大会講演要旨集、1L11 (2016).
- [2] 小野寺ら：日本原子力学会 2016 年秋の大会講演要旨集、1D12 (2016).
- [3] 核燃料サイクル開発機構: TRU 廃棄物処分技術検討書―“第 2 次 TRU 廃棄物処分研究開発とりまとめ”, 分冊 2, JNC TN400 99-022 (2005).

**謝辞:** 本研究の一部は科学研究費補助金 基盤研究(A)17H01371 の成果である。ここに記して謝意を表す。