

地下処分場周辺流動場における過飽和ケイ酸の析出挙動の評価

田中 翔悟, 新堀 雄一, 千田 太詩

東北大学大学院工学研究科

1. 緒言: 深地下への放射性廃棄物処分場建設に大量のセメントが使用されることによって、処分場周辺の地下水が高アルカリ化することが予想される。それに伴い、母岩の主成分であるケイ酸が溶解して流路拡大を生じることが懸念される。その一方で、pHが低下する下流域においては過飽和となったケイ酸が固相へ析出する。このようなケイ酸の空間的な再分配によって、岩盤内の微細流路が狭隘化、さらには閉塞され、核種の移行を遅延させる可能性もある。本研究では、処分場周辺におけるpH変動に伴って過飽和となるケイ酸が流動場において核種移行に及ぼす影響について、固相充填カラムを用いた流動実験により評価を試みた。

2. 実験: 図1に、流動実験装置の概略図を示す。固相としてアモルファスシリカ粉末(粒径75~150 μm)を充填した内径13 mm、充填長さ4 cmのカラムに、スムーズフローポンプを用いて過飽和ケイ酸を継続して流入させる実験系とした。ポンプを用いてケイ酸と緩衝液をそれぞれ約2.5 ml/minで吸い上げ、混合槽内でスター

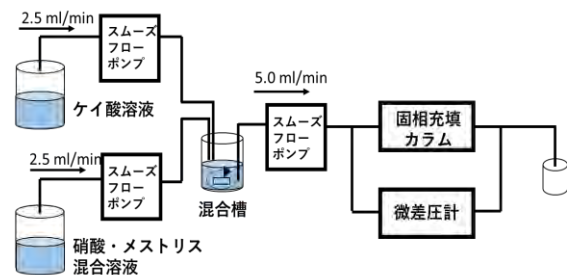


図1 実験概略図

ラーを用いて混合し、pH 8、およびケイ酸過飽和濃度約14 mMなるようにカラム直前で調整し、速やかにカラムへと5 ml/min程度で流入させた。このとき、充填カラムに流入する直前の過飽和ケイ酸溶液を分析し、コロイド状ケイ酸がほとんど生成していないことを事前に確認している。流動実験時間は10時間とし、カラム通過後の溶液を所定時間にて1分間採取し、重量から流量を算出した。同時に実施したケイ酸定量については、液相中の全ケイ酸濃度をICP発光分光分析装置によって、また、水溶性ケイ酸(概ね単量体、二量体)濃度をモリブデンイエロー法により定量し、全ケイ酸濃度と水溶性ケイ酸濃度の差からコロイド状ケイ酸濃度を算出した。なお、カラムに流入した初期の全ケイ酸濃度とカラムから流出した全ケイ酸濃度の差が、カラム中におけるケイ酸析出量に相当する。加えて、流動実験時間にわたり、カラム両端にかかる差圧を測定した。

3. 結果・考察: 流動実験においては、カラム内でのケイ酸析出量が経時的に減少していく様子が見られた。カラムから流出した溶液に含まれるコロイド状ケイ酸はごく僅かであり、カラムに流入した過飽和ケイ酸のほとんどは、カラム内で析出するか、過飽和状態のまま流出したと考えられる。また、流動実験時間にわたって差圧に大きな変化は見られなかった(±約10 Pa)が、流量は僅かながら減少する傾向が見られた(開始時から約0.3 ml/min低下)。カラム内の空隙体積とケイ酸析出量を計算、比較したところ、ケイ酸はカラム内の空隙に対して約30%充填する程度析出していることが確認されたが、差圧や流量には大きな影響が見られなかった。これは、固相粒子の持つ二次間隙に主に過飽和ケイ酸が析出し、一次間隙(固相粒子間の間隙)の変化が比較的小さいことが原因として考えられる。Niiboriら[1]は、同様の系において溶解実験を行った際、溶解が溶解分率にして0.4(完全に粒子が溶解した場合が1.0)まで進行しても、浸透性の上昇が生じないことを、表面積を多く持つ二次間隙における溶解によって定量的に説明しており、析出についてもそれと調和的であることが示唆された。

引用文献: [1] NIIBORI, Y., USUI, H. and CHIDA, T. : Double porosity model to describe both permeability change and dissolution processes, Mechanical Engineering Journal, 2(5), 1-11 (2015).

謝辞: 本研究の一部は、科学研究費補助金挑戦的萌芽研究 16K1453 および基盤研究(B)18H01910 によった。ここに記して謝意を表す。