

アルカリ条件にて生成する Mg-Si-Al 系鉱物の生成と亜セレン酸の吸着・共沈挙動

○出井俊太郎<sup>1</sup>、佐藤努<sup>1</sup>、長谷東子<sup>1,2</sup>、大竹翼<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>北海道大学大学院工学院、<sup>2</sup>株式会社ニュージェック)

放射性廃棄物処分の安全評価で鍵を握る核種の一つと考えられている Se-79 は、地下水中で陰イオンとして存在するため、地下水の pH によっては吸着が期待できず、その移行が遅延されない場合がある。一方で、処分環境周辺や核種の移行経路では、岩石-水反応により新たな鉱物の生成も考えられ、それら二次鉱物の収着反応による亜セレン酸(Se(IV))イオンの移行遅延も期待可能な場合がある。

TRU 廃棄物の地層処分では、セメント系材料と地下水が反応することで高アルカリ間隙水が生成する。この高アルカリ間隙水がベントナイトと反応することによりモンモリロナイトは溶解し、セメント-ベントナイトの境界面でシリカを含む高アルカリ水と Mg 系の地下水が混合することで、二次鉱物種が生成することが予想される。また、岩盤中のアルミノケイ酸塩鉱物の溶解に伴う地下水やベントナイトの溶解によってアルカリ間隙水中に Al イオンが含まれる可能性がある。しかし、低温で生成する Mg-Al-Si 系の二次鉱物に関する先行研究は少なく、それらの予測は難しい。しかし、人工バリア内で適切に材料が設計されれば、高い陰イオン交換容量を有する Mg と Al を含む層状複水酸化物 (LDH) の生成も期待できるため、3 成分系において生成する鉱物に対する Se(IV)の収着挙動を明らかにすることは非常に重要である。

そこで本研究では、溶存 Mg, Al, Si の混合割合が異なるアルカリ系において、生成する固相とそれに対する Se(IV)の吸着・共沈実験を実施し、生成相の生成条件と Se(IV)の収着挙動を明らかにすることを目的とした。

まず pH 9, 12 の 2 つの条件において、様々な溶存 Mg: Al: Si 比にて固相の合成を行った。その固相に対する吸着実験では、吸着材合成後の懸濁液に対して Se(IV)を 50 mg/L 加えて 24 時間反応させ Se(IV)の除去率を調べた。一方、共沈実験では吸着材合成時の溶液に Se(IV)を 50 mg/L 加えることによって、Se(IV)の共沈量を調べた。収着実験前後の固相は XRD 分析に供し、収着実験後の溶液は ICP-AES により Se(IV)の定量分析を行った。

得られた実験結果をまとめると以下ようになる。すべての系において吸着より共沈反応のほうが高い収着率を示した。この結果より、共沈反応では一部の Se(IV)が鉱物の構造内部に収着されたと推察される。Mg-Si あるいは Al-Si の 2 成分系のみでの収着実験においては、Se(IV)の収着率は相対的に低かった。一方、Mg-Si-Al の 3 成分系で行った実験では、Mg 濃度が高くマグネシウムシリケート水和物が生成する条件では低い収着率となったものの、LDH が生成する混合条件では Se(IV)に対し高い収着率を示していた。そのため、人工バリアの重要構成物であるセメント系材料中に LDH の生成が期待できるのであれば、Se(IV)の移行は遅延されると考えられる。したがって、今後は地球化学反応モデルによる LDH の生成モデルとその確証が必要となる。