

Oral presentation | V. Nuclear Fuel Cycle and Nuclear Materials : 505-2 Waste Disposal and Its Environmental Aspects

📅 Thu. Sep 12, 2024 9:45 AM - 10:50 AM JST | Thu. Sep 12, 2024 12:45 AM - 1:50 AM UTC 🏢 Room M(Recture RoomsB 2F B202)

[2M01-04] Sorption 1

Chair: Hisao Satoh(JNFL)

9:45 AM - 10:00 AM JST | 12:45 AM - 1:00 AM UTC

[2M01]

Efficient Cesium Capture Using Potassium-Metakaolin Geopolymer Matrices

*Mai Dung Do Thi Do Thi¹, Sajedah Yousef Abdul-Qader Moushtaha¹, Tadachika Nakayama¹, Tatsuya Suzuki¹, Hisayuki Suematsu¹ (1. Nagaoka University of Technology)

10:00 AM - 10:15 AM JST | 1:00 AM - 1:15 AM UTC

[2M02]

Evaluation of the interaction between flaky biotite and Eu in a saline environment

*Kai Hatano¹, Taiji Chida¹, Tsugumi Seki¹, Yuichi Niibori¹ (1. Tohoku Univ.)

10:15 AM - 10:30 AM JST | 1:15 AM - 1:30 AM UTC

[2M03]

Sorption behavior of iodine to Mg-containing C-S-H under the condition saturated with saline groundwater

*Yuta Tanabe¹, Tsugumi Seki¹, Taiji Chida¹, Yuichi Niibori¹ (1. Tohoku Univ.)

10:30 AM - 10:45 AM JST | 1:30 AM - 1:45 AM UTC

[2M04]

Sorption and desorption of Cs onto river sediment in wet and wet-dry environments

*Saki Ohira¹, Takuma Sawaguchi¹, Taro Shimada¹, Seiji Takeda¹ (1. JAEA)

10:45 AM - 10:50 AM JST | 1:45 AM - 1:50 AM UTC

Time reserved for Chair

Efficient Cesium Capture Using Potassium-Metakaolin Geopolymer Matrices

*Thi Mai Dung Do¹, Sajedah Yousef Abdul Qader Moushtaha¹, Tatsuya Suzuki¹, Tadachika Nakayama¹ and Hisayuki Suematsu¹

¹Nagaoka University of Technology.

Abstract. The cesium (Cs) capture ability of potassium-metakaolin geopolymer will be studied. Cesium chloride was added to the potassium-based geopolymer with metakaolin and silica fume as the aluminosilicate sources. In the XRD result, potassium chloride was identified, suggesting that the Cs⁺ replaced K⁺ ion by the ion exchange process. The result of the leaching tests has also shown that cesium is being effectively captured by replacing potassium in the geopolymer matrix.

Keywords: potassium, metakaolin, cesium, capture, geopolymer, severe accident.

1. Introduction

Cesium (Cs), particularly the radioactive isotope Cs-137, is highly soluble in water and poses significant environmental and health risks. The immobilization of cesium in geopolymers is a crucial topic in radioactive waste management ⁽¹⁾. Immobilizing cesium in geopolymers can effectively prevent its leaching into the environment. This process involves multiple mechanisms: chemical binding ⁽²⁾, physical encapsulation ⁽¹⁾ and ion exchange ⁽²⁾. The efficiency of cesium immobilization depends on factors like the alkali content, silicon (Si)/aluminum (Al) ratio, curing conditions, and the presence of additives. In this study, a potassium (K)-metakaolin geopolymer with an Al:Si:K:H₂O ratio of 1:2.1:0.8:8 will be utilized to investigate the cesium capture capability both in the short term and long term. The mechanisms of cesium capture will be examined in detail.

2. Experiment

To investigate cesium immobilization, CsCl powder was added to a potassium-metakaolin geopolymer mix before curing. The raw materials for the geopolymer included metakaolin, EFACO silica, KOH, potassium silicate, and distilled water. A control sample without CsCl, consisting only of the original raw materials, was also prepared for comparison.

3. Results and discussion

The X-ray diffraction (XRD) patterns of the synthesized geopolymers are depicted in Fig. 1. These patterns revealed a predominant amorphous phase across all geopolymer samples, indicating successful formation of the Al-Si-O network. A significant finding was the presence of potassium chloride (KCl) in the samples, confirming the replacement of K⁺ ions by Cs⁺ ions. The concentration of cesium (Cs) and aluminum (Al) leached from the geopolymer into solution was quantified using ICP-MS analysis. Approximately 4.6% of the initial Cs amount was leached, demonstrating the effective cesium-capturing capability of the potassium-metakaolin geopolymer.

4. Conclusions

Metakaoline-based geopolymer which had the molar ratio of Al:Si:K:H₂O was 1:2.1:0.8:8 fully met the requirements for capturing the nuclear waste containing Cs ion.

References

- [1] Provis, J. L., & Bernal, S. A. (2014). Geopolymers and related alkali-activated materials. *Annual Review of Materials Research*, 44, 299-327.
- [2] Komnitsas, K., & Zaharaki, D. (2007). Geopolymerisation: A review and prospects for the minerals industry. *Minerals Engineering*, 20(14), 1261-1277.

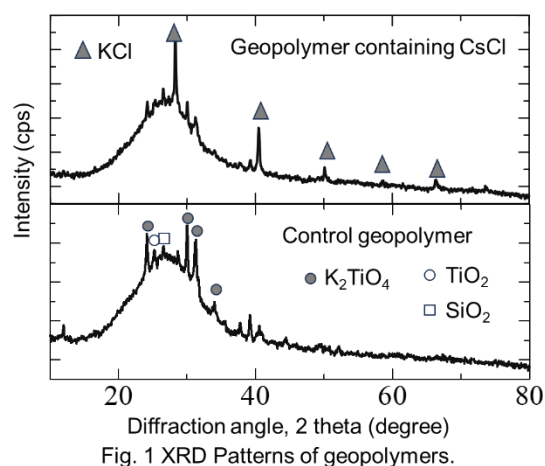


Fig. 1 XRD Patterns of geopolymers.

塩水環境を考慮した薄片状黒雲母と Eu の相互作用の評価

Evaluation of the interaction between flaky biotite and Eu in a saline environment

*波多野 快¹, 千田 太詩¹, 関 亜美¹, 新堀 雄一¹

¹東北大学

塩水環境を考慮した薄片状黒雲母と Eu の収着挙動を評価した結果、共存イオンが存在しない場合と比較して、Eu の収着が Na や Ca のような共存イオンによって若干促進されることが示唆された。また、薄片状黒雲母内の Eu の見かけの拡散係数は深成岩中の拡散係数と同等か小さく見積もられた。

キーワード： 黒雲母、ユウロピウム、地層処分、収着、共存イオン、拡散、イオン交換

1. 緒言 地層処分の安全評価において、核種と岩盤の相互作用の評価が重要な要素の一つとなる。本研究では、岩盤において核種を顕著に収着する黒雲母の存在状態に着目して、黒雲母を粉砕することなく薄片状の試料を用い、Eu の収着挙動を塩水環境として Na および Ca 共存下において調べた。

2. 実験 pH を 3, 5 に調整した 0.5 mM Eu(NO₃)₃ 溶液 15 mL と 5 mm 四方の薄片状黒雲母 3.0 g を混合し、一日一回攪拌しつつ一週間に亘り 25°C の恒温槽内で相互作用させた。また、共存する Na および Ca 濃度は NaCl、CaCl₂ を用いて 0 および 6 mM と設定した。サンプリングを 7 回行い、ICP-OES によって得た液相中の Eu 濃度の経時変化から Eu 収着量および黒雲母の層間への見かけの拡散係数を評価した。実験では液固比を一定に保つため、サンプリングの際に採取した溶液と同じ濃度・体積の溶液を調整し、容器に戻した。また、実験後の薄片状黒雲母に対し、TOF-SIMS により薄片内の Eu 分布を取得した。

3. 結果と考察 図 1 は pH 3 における薄片状黒雲母への Eu の収着挙動を、溶液中の Eu 濃度変化から見たものである。縦軸は Eu の初期濃度で規格化した。図 1 に示すように、共存イオンを加えない場合と比較して、Na および Ca 共存条件において Eu 収着量がやや増加する傾向がある。既往研究に[1]において Na イオンによる黒雲母端部近傍の膨潤が報告されており、図 1 のような共存イオンによる Eu 収着量の増加も同様の効果に起因する可能性がある。また、図 1 右上に例を示すように黒雲母内部への 2 次元拡散と液相の濃度変化を関連付けたモデル[2]を実験結果に適用した。得られた薄片内の Eu の見かけの拡散係数は概ね 10⁻¹³ m²/s であった。これらの値は地層処分の性能評価に想定されている深成岩中の拡散係数[3]と同等か小さく、黒雲母を含有する深成岩中の核種収着が薄片内への拡散に律速される（収着分配の局所平衡が成立しない）可能性が示唆された。

図 2 は収着実験後の薄片状黒雲母内の Eu 分布(pH 3、Ca 6 mM)である。縦軸は、黒雲母内に一様に分布する Si の強度で規格化した Eu 強度である。薄片内の Eu 分布は薄片端部に近づくほど大きくなっており、端部から内部へと Eu が拡散浸入していることが確認された。

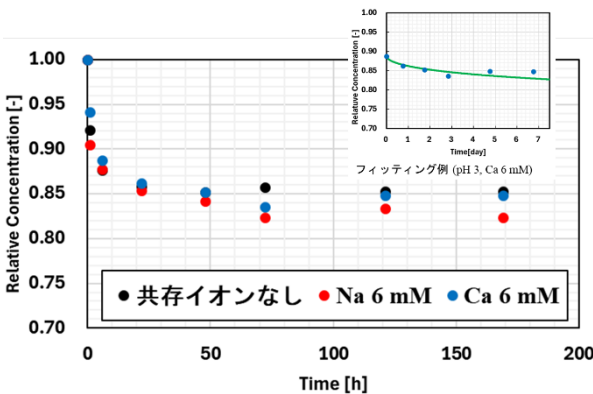


図 1 薄片状黒雲母への Eu の収着挙動 (pH 3)

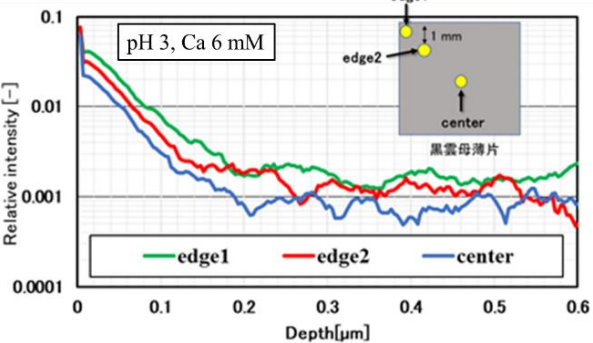


図 2 収着実験後の薄片状黒雲母内の Eu 分布

引用文献： [1] Kim, et al., *CATENA*, **135**, 107-113 (2015). [2] Chida, et al., *MRS Advances*, **9**, 462-466 (2024). [3] 原子力発電環境整備機構, NUMO-TR-03 (2022).

謝辞: 本研究の一部は JSPS 科研費 JP21H04664、JP22K14627 および JP24K01395 の成果である。記して謝意を表す。

*Kai Hatano¹, Taiji Chida¹, Tsugumi Seki¹ and Yuichi Niibori¹

¹Tohoku Univ.

塩水系地下水環境における Mg 含有 C-S-H へのヨウ素の収着挙動

Sorption behavior of iodine to Mg-containing C-S-H

under the condition saturated with saline groundwater

*田邊 悠太¹, 関 亜美¹, 千田 太詩¹, 新堀 雄一¹

¹東北大学

塩水条件における Mg 含有カルシウムシリケート水和物(C-S-H)へのヨウ素の収着挙動について検討した。Mg 含有によって C-S-H へのヨウ素の取り込みは若干低下するものの、I⁻では 20%、IO₃⁻では 60%以上の収着率が得られ、塩水条件においても Mg 含有 C-S-H へヨウ素が有意に取り込まれる可能性が示唆された。

キーワード：地層処分、カルシウムシリケート水和物、ヨウ化物イオン、ヨウ素酸イオン、マグネシウム

1. 緒言 処分場建設に使用される大量のセメント系材料と地下水が長期接触することにより、高アルカリ条件において溶出する岩盤成分とセメント系由来の Ca が反応して二次的に C-S-H が生成する。この水和物には、地下水流路の狭隘化や核種収着能によって核種移行を抑制する効果が期待される。また、TRU 廃棄物に含まれる I-129 は被ばく線量を支配する核種の一つであり[1]、処分環境では主に I⁻で存在するものの、局所的な酸化条件においては IO₃⁻となる可能性もある。本研究では、地下に遍在する Mg を含有する C-S-H に着目し、I⁻および IO₃⁻の収着挙動について地下の塩水環境を考慮した評価を行った。

2. 実験 Mg 含有 C-S-H の組成は Ca/Si モル比 0.8、1.6、および、Mg/Si モル比 0、0.1、0.2、0.3 とした。収着実験では、液固比 20 (30 mL/1.5 g)となるようにフュームドシリカ(SiO₂)、CaO、Mg(NO₃)₂ および 0.5 mM の NaI 溶液または NaIO₃ 溶液を混合し、恒温振とう機を用いて 25℃で 1、2、4 週間振とう養生した。また、NaCl 濃度は 0 および 0.6 M に設定した。養生後、固相はラマン分光法および XRD 分析、液相は濾過後にイオンクロマトにより溶存ヨウ素濃度を定量し、C-S-H への収着率を算出した。

3. 結果と考察 図 1 は、Ca/Si モル比 0.8 および Mg/Si モル比 0、0.3 の Mg 含有 C-S-H のラマンスペクトルである。図中の Qⁿ は隣接する Si-O 四面体間の Si-O-Si 結合数を表しており、Mg/Si モル比 0.3 において Q³ が増大した。この際、Mg 含有 C-S-H 生成時に取り込まれる水分量が Mg/Si モル比の増大とともに減少しており、Mg による Si-O 四面体の Silicate chain 同士の架橋に伴う層間距離の減少が生じている可能性がある。なお、NaCl の影響は図 1 ではほぼ認められなかった。

図 2 には、Ca/Si モル比 0.8 の Mg 含有 C-S-H への養生期間 4 週間におけるヨウ素の収着率を示す。収着率はいずれの条件においても I⁻では 20%以上、IO₃⁻では 60%以上に達し、Mg 含有 C-S-H がヨウ素の移行を遅延させることを示唆する。また、養生期間および NaCl による差異はほぼ認められなかったものの、Mg 増加に伴い収着率がいずれも若干低下しており、前述した Mg 含有 C-S-H 生成時に取り込む水分量が減少したことに起因すると考えられる。

参考文献 [1] 原子力発電環境整備機構：包括的技術報告書 (2021)。

謝辞：本研究の一部は JSPS 科研費 JP21H04664 および JP22K14627 の成果である。記して謝意を表す。

*Yuta Tanabe¹, Tsugumi Seki¹, Taiji Chida¹ and Yuichi Niibori¹

¹Tohoku Univ.

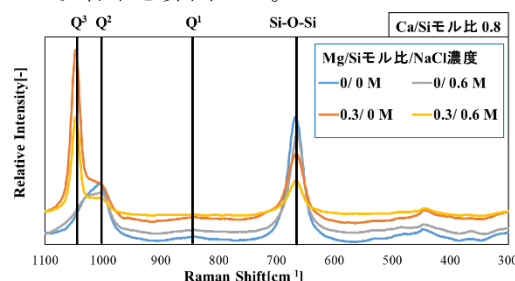


図 1 Mg 含有 C-S-H のラマンスペクトル

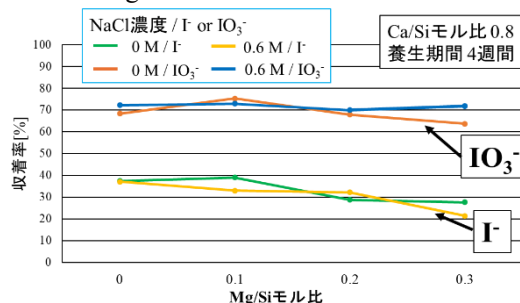


図 2 Mg 含有 C-S-H への I⁻、IO₃⁻の収着率

湿潤および湿潤・乾燥環境における河川堆積土に対する Cs の収着・脱離

Sorption and desorption of Cs onto river sediment in wet and wet-dry environments

*大平 早希¹, 澤口 拓磨¹, 島田 太郎¹, 武田 聖司¹

¹ 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構 安全研究センター

河川堆積土を用いて、環境条件を変化させた収着・脱離試験を実施した。その結果、放射性 Cs の脱離に関して、収着時の環境条件（湿潤・乾燥環境、固液比、共存イオン濃度等）に依存することが示された。

キーワード：生活圏、核種移行評価、陸水域、懸濁粒子、セシウム、収着、脱離、エイジング

1. 緒言

放射性廃棄物処分の生活圏の核種移行評価において、環境中の核種移行現象に関する知見に基づき、現象の考慮が評価に与える影響度を把握し、適切な反映を検討することは重要である。また、処分サイト特有の環境条件での核種の収脱着評価を行う上で、そのばらつきの要因を特定し、定量的にその影響度を把握することは肝要である。東京電力福島第一原子力発電所（1F）事故後、放射性セシウム（Cs）は陸水中で溶存態の他、懸濁粒子（鉱物等）に収着した懸濁態としても移行し、また放射性 Cs は河口等の高塩分領域で懸濁粒子からの脱離が確認されている。処分の評価においても、懸濁態としての移行の考慮の影響度を把握し、適切な評価への反映が必要となる。本研究では、核種移行評価における収脱着の評価への反映を念頭に、懸濁粒子への Cs の収着・脱離試験を実施し、環境条件が収脱着に与える影響について検討した。

2. 収着・脱離試験

福島県南相馬市の汽水湖である松川浦流入河川の宇多川の堆積土を用いて、放射性 Cs 収着試験を実施し、収着試験後の試料からの塩による脱離試験を実施した。収着試験は、埋設処分の評価で想定される継続的な湿潤環境と、1F 事故などフォールアウト起源で想定される¹⁾ 湿潤・乾燥を繰り返す環境の 2 つの条件で実施した。湿潤環境においては収着期間、固液比、初期 Cs 濃度、初期塩濃度を変化させた。湿潤・乾燥環境においては、湿潤環境と同じ Cs 添加量になるよう調整した溶液を添加した後、湿潤・乾燥作業の繰り返し回数（2, 8, 16 回）を変化させた。収着試験後の試料を、再吸着を防ぐためにプルシアンブルー（PB）を入れた透析チューブとともに塩濃度 1~34% の溶液に浸漬させた脱離試験を実施し、PB に収着した放射性 Cs 量を測定することで脱離率を導出した。

3. 結果・考察

図 1 に各条件で収着試験を実施した試料からの脱離試験の結果を示す。どの試料においても、脱離反応時間 14 日以降、脱離反応速度が遅いことが示され、堆積土に Cs を脱離しやすい収着サイトと脱離しにくいサイトがあることが示唆された。湿潤環境において、収着反応時間 14 日と 79 日を比べると脱離率が約 10% 減少し、収着反応時間経過により粘土鉱物の層間へと固定されて脱離しにくいエイジングが確認された。一方、湿潤環境で 79 日間収着させた試料と、湿潤・乾燥の繰り返し 16 回（収着反応時間 60 日間）の条件で収着させた試料からの脱離率を比べると、湿潤・乾燥の繰り返しにより脱離率は約 20 % 減少した。このことから、収着反応時間の経過よりも湿潤・乾燥の繰り返しの方がエイジング促進の効果が大きいことが示された。埋設処分における表層の核種移行評価では、地下水から陸水域に核種が直接放出され、継続的な湿潤環境での移行シナリオが想定される。そのため、放射性 Cs の懸濁粒子からの脱離に関して、収着時の条件（継続的な湿潤条件、固液比、塩濃度等）が明確なデータに基づく評価が適当と考えられる。

参考文献

[1] 長尾ら, 福島第一原子力発電所事故後の河川水系における放射性セシウムの移行特性, 地球化学, 49, 217–226 (2015).

*Saki Ohira¹, Takuma Sawaguchi¹, Taro Shimada¹ and Seiji Takeda¹

¹Nuclear Safety Research Center, Japan Atomic Energy Agency.

本発表は原子力規制庁委託事業「令和 5 年度廃棄物埋設における環境条件の評価に関する研究」として実施したものである。

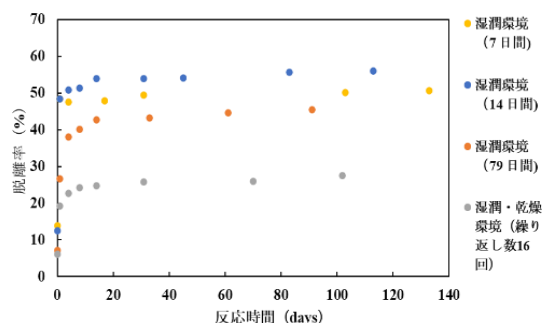


図 1 湿潤環境の収着反応時間および湿潤・乾燥環境の繰り返しによる脱離率の経時変化