

## カルシウム炭酸塩の多形によるヨウ素の取り込み Iodine uptake by calcium carbonate polymorphs

安楽 総太郎<sup>1\*</sup>, 星野 純<sup>1</sup>, 松原 勇武<sup>1</sup>, 佐藤 努<sup>2</sup>, 米田 哲朗<sup>2</sup>

ANRAKU, Sohtaro<sup>1\*</sup>, Jun HOSHINO<sup>1</sup>, MATSUBARA, Isamu<sup>1</sup>, SATO, Tsutomu<sup>2</sup>, Tetsuro YONEDA<sup>2</sup>

<sup>1</sup> 北海道大学大学院工学院, <sup>2</sup> 北海道大学大学院工学研究院

<sup>1</sup>Graduate School of Engineering, Hokkaido University, <sup>2</sup>Faculty of Engineering, Hokkaido University

使用済燃料の再処理などから発生する TRU 廃棄物の地層処分では、固化体やグラウト等に大量のセメント材料が使用され、時間経過と共に処分場が高アルカリ環境になると予想される。したがって、処分の安全評価を行う上で、高アルカリ環境下での放射性核種の溶出・移行やバリア材料の変質・劣化、コロイド安定性等の理解が急務となっている。

ヨウ素 (I-129)、炭素 (C-14)、塩素 (Cl-36)、セレン (Se-79) やテクネチウム (Tc-99) といった核種は、地下水中で陰イオンとして振る舞う。一般に、高アルカリ条件で天然バリアを構成する大部分の鉱物の表面は負に帯電するため、これらの陰イオンは鉱物表面に分配 (収着) されにくく、安全評価上分配係数がゼロもしくは低く設定される。そのため、TRU 廃棄物における核種ごとの線量評価結果では、上述した核種の人工・天然バリアでの移行遅延は期待できない。また、その中でも I-129 は評価期間全体の線量を支配することが予想され処分の安全評価上「鍵を握る核種」と位置づけられている。

一方、オマーンに湧出する高アルカリ泉周辺では、Mg-HCO<sub>3</sub> 系の河川水と Ca-OH 系の高アルカリ泉の混合により生成するカルシウム炭酸塩鉱物の準安定相である aragonite へのヨウ素の選択的分配が明らかとなっている。この反応は、地層処分環境で予想されるアルカリ性である Ca-OH 系のセメント材料間隙水と中性である Mg-HCO<sub>3</sub> 系の地下水の反応と類似している。そのためフィールド調査から得られた知見は、実際の処分環境における安全評価に重要な示唆を与えるものと考えられる。

そこで、オマーンで確認された炭酸塩鉱物の多形間におけるヨウ素 (I<sup>-</sup>, IO<sub>3</sub><sup>-</sup>) 収着挙動の違いを実験系を制御して確認すること、ヨウ素 (I<sup>-</sup>, IO<sub>3</sub><sup>-</sup>) が多形の形成に与える影響を把握することを目的に室内吸着・共沈実験を行った。

室内吸着実験では予め合成した calcite と aragonite に異なるヨウ素 (I<sup>-</sup>, IO<sub>3</sub><sup>-</sup>) 濃度の溶液を添加、室内共沈実験ではカルシウム炭酸塩鉱物の安定相である calcite と準安定相である aragonite をヨウ素 (I<sup>-</sup>, IO<sub>3</sub><sup>-</sup>) が溶存する母液から合成し、共沈過程における分配係数を求めた。室内実験により得られた試料に対し、XRD による鉱物同定、ICP-MS によるヨウ素濃度の測定を行なった。

本実験の条件範囲においては、炭酸塩鉱物の生成相にヨウ化物イオンは影響を与えず、ヨウ素酸イオンは大きく影響を与えることが明らかとなった。calcite を合成する Mg を添加しない系では vaterite, aragonite を合成する Mg を添加した系では monohydrocalcite といった準安定相が生成し、それらのヨウ素酸イオンに対する分配係数の高さが確認された。

CaCO<sub>3</sub> 鉱物の同質多形において calcite よりも aragonite の方がヨウ化物イオンの収着能が高いことが明らかとなり、ヨウ化物に対する分配係数には濃度依存性が確認された。calcite 及び aragonite におけるヨウ化物イオンの収着機構は固相生成後の吸着過程よりも共沈過程において顕著に確認されることが明らかとなった。

キーワード: カルシウム炭酸塩, 多形, ヨウ素, 吸着, 共沈, ナチュラルアナログ

Keywords: calcium carbonate, polymorphs, iodine, adsorption, coprecipitation, natural analogue