

共同研究成果報告書

微小な空隙中の放射性核種の吸着を伴う移行現象に関する研究

原子力規制委員会 原子力規制庁

東京大学

令和7年9月

1. 研究目的

放射性廃棄物埋設施設の安全評価において、微小な空隙内で束縛された環境が放射性核種の移行評価に与える影響を明らかにするために必要な科学的知見を取得する。

2. 研究内容

埋設した放射性廃棄物から長期間掛かって僅かずつ溶出した放射性核種の岩石中の移行を考える際、微小な空隙中での放射性核種の輸送とその過程での鉱物への吸着が重要な機構である（例えば、粘土中の拡散において、ナノメートルオーダーの空隙の形状が寄与していることが報告されている¹⁾）。岩石への放射性核種の吸着反応は、分散系での吸着試験の結果に基づき表面錯体モデルなどのモデルによって説明されている。従来のこれらの試験やモデルにおいて、反応が生じる空隙のサイズは考慮されていないが、微小な空隙表面での化学反応がより大きな系でのそれと異なることも報告されており^{2,3)}、その影響を適切に評価する必要がある。微小な空間での反応については、水分子の移動や空隙内の分布が制限される影響、表面の凹凸の影響、複数の面の電気二重層が重なる影響等が個々の研究で検討されている^{2,3)}。しかし、岩石中の微小な空隙において、放射性核種の吸着反応に対してそれらの異なる影響がどのように作用するのかは明らかでない。また、そのような微小な空隙中での吸着反応の変化が放射性核種の移行に与える影響を明確にし、移行評価に組み込んだ例はない。

過年度実施した共同研究「微小な空隙を持つ岩石における放射性核種の収着・移行現象に関する研究」において、イオンの吸着反応やそれに関係する水やイオンの物理的・化学的性質は微小な空隙中とより大きな系とで違いがあることが明らかになった。具体的には、空隙径が小さくなるにつれ、電気二重層の重なりによる空隙中の電位分布の変化や、空隙表面の水の比誘電率の減少によって、表面電荷密度が減少し⁴⁾、イオンの吸着量に影響を与えることが示唆された。また、イオンの種類によっては、遅い反応による吸着量の増加や⁵⁾、空隙径の変化に伴う吸着状態の変化が見られた⁶⁾。

一方、これらの微小な空隙での吸着反応等の変化が、微小な空隙中のイオンの移行現象にどのような影響を与えるのかは明らかでない。そこで本研究では、表面への吸着を伴うイオンの移行現象が微小な空隙サイズによってどのように変化するのかを調べる。天然の岩石中の形状やネットワーク構造が複雑な空隙構造を正確に把握することや、その情報を基に微小な空隙での移行現象の空隙サイズ依存性を一般化することは難しいため、均一な空隙を持つ試料を用いた試験を行う。

3. 実施方法

(1) 微小な空隙を持つ試料の評価

微小な空隙での化学反応を調べるため、数nmから数十nmのオーダーの異なるサイズの空隙を有するアルミナ試料（Inredox社製の陽極酸化アルミナ膜）を準備した。電子顕微鏡による空隙サイズ分布の評価を通して、イオンの吸着及び拡散反応に寄与する微小空隙の特性を評価した。

(2) 微小な空隙における水及びイオンの移行の評価

(1)の試料を対象に透過拡散試験を行い、異なる溶液条件での水（測定のため重水を添加）やイオン（1価の陽イオン（ Cs^+ ）及び陰イオン（ I^- , NO_3^- ））の拡散速度を求め、地下環境中の放射性核種の移行評価において考慮すべき微小な空隙中での吸着反応等の変化を整理した。

4. 研究実施分担

項目	原子力規制庁	東京大学
(1) 微小な空隙を持つ試料の評価	◎	○
(2) 微小な空隙における水及びイオンの移行の評価	◎	○

◎：主担当、○：副担当

5. 共同研究参加者

区分	氏名	所属部局・職名	本研究における役割
原子力規制庁	山田憲和	原子力規制委員会原子力規制庁長官官房技術基盤グループ放射線・廃棄物研究部門 副主任技術研究調査官	研究の統括 試料分析及び試験の実施方法の検討、それらの結果の考察
	室田健人	同 技術研究調査官	試料分析及び試験の実施、それらの結果の考察
東京大学	斉藤拓巳	東京大学大学院工学系研究科原子力専攻 教授	研究の統括 試料分析及び試験の実施、それらの結果の考察

6. 研究実施工程

年 度 項 目	令和 4 年度				令和 5 年度				令和 6 年 度
(1) 微小な空隙を持つ 試料の評価									
(2) 微小な空隙におけ る水及びイオンの移行 の評価									

7. 成果概要

空隙径 58 nm 程度のアルミナ試料について、拡散試験開始直後から重水及びイオンが透過したのに対し、空隙径 12 nm 程度の試料については、重水及びイオンが 2 週間以上透過しなかった。連続性があり屈曲していないと想定される空隙においてこのような遅い拡散が見られたことから、微小な空隙において水の粘度が増加し、それが水及びイオンの移行に影響を与えていることが示唆された。今後その要因について検討していく予定である。

拡散速度は大きい順に水、陰イオンであるヨウ素イオン (I^-)、陽イオンであるセシウムイオン (Cs^+) となった。試験中の液相 pH は 5-6 程度であり、アルミナ表面は正に帯電していることから、表面に生じる電気二重層の重なりによって陽イオンの拡散が阻害されたと考えられる。すなわち、微小な空隙内では電気二重層が占める範囲が大きく、陽イオンの拡散が空隙中央部分に限定されるようになったと考えられる⁷。このことは、液相中のイオン強度を変えた試験においてイオン強度の低下に伴い Cs^+ の拡散速度が低下したものと整合する。逆に、水と I^- の拡散速度の差はイオン強度の低下に伴い縮まった。

8. 公表成果一覧

なし。

9. 参考文献

- 1 Takahashi, H., Tachi, Y., “3D-microstructure analysis of compacted Na- and Cs-montmorillonites with nanofocus X-ray computed tomography and correlation with macroscopic transport properties”, Applied Clay Science, Vol. 168, pp. 211-222, 2019. doi:10.1016/j.clay.2018.11.008
- 2 Wang, Y., “Nanogeochemistry: Nanostructures, emergent properties and their control on geochemical reactions and mass transfers”, Chemical Geology, Vol. 378-379, pp. 1-23, 2014. doi:10.1016/j.chemgeo.2014.04.007

- 3 Zachara, J., Brantley, S., Chorover, J., Ewing, R., Kerisit, S., Liu, C. X., Perfect, E., Rother, G., Stack, A. G., “Internal Domains of Natural Porous Media Revealed: Critical Locations for Transport, Storage, and Chemical Reaction”, *Environmental Science Technology*, Vol. 50, pp. 2811–2829, 2016. doi:10.1021/acs.est.5b05015
- 4 Murota, K., Saito, T., “Pore size effects on surface charges and interfacial electrostatics of mesoporous silicas”, *Physical Chemistry Chemical Physics*, Vol. 24, pp. 18073-18082, 2022. doi:10.1039/D2CP02520E
- 5 Murota, K., Takahashi, Y., Saito, T., “Adsorption of cesium and strontium on mesoporous silicas”, *Physical Chemistry Chemical Physics*, Vol. 25, pp. 16135-16147, 2023. doi:10.1039/D3CP01442H
- 6 Murota, K., Aoyagi, N., Mei, H., Saito, T., “Hydration states of europium(III) adsorbed on silicas with nano-sized pores”, *Applied Geochemistry*, Vol. 152, p. 105620, 2023. doi:10.1016/j.apgeochem.2023.105620
- 7 Plecis, A., Schoch, R. B. & Renaud, P. “Ionic Transport Phenomena in Nanofluidics: Experimental and Theoretical Study of the Exclusion-Enrichment Effect on a Chip”, *Nano Letters*, Vol. 5, pp. 1147-1155, 2005. doi: 10.1021/nl050265h