学位論文題名

Study of iron-bentonite interaction affected for long-term stability of engineering barrier of HLW disposal

(高レベル放射性廃棄物の地層処分における
緩衝材長期安定性に与える鉄-ベントナイト相互作用の研究)

学位論文内容の要旨

高レベル放射性廃棄物 (HLW) の地層処分において設置が予定されている緩衝材には、周辺からの地下水の浸透や緩衝材中での地下水の流れを抑制する機能、地下水に溶出した核種を収着することで放射性核種の移行を遅延させる機能などが期待されている。しかしながら HLW の地層処分における性能評価は、評価期間が数万年を超える長期期間であり、このような長期においては緩衝材に変化が生じ、緩衝材に期待されている性能にも影響が生ずることが予想される。緩衝材の性能に影響を与える可能性のある相互作用の一つとして、緩衝材の主成分鉱物であるスメクタイトと、炭素鋼オーバーパックの腐食生成物 (鉄) との相互作用が想定されている。特に、近年、Fe(III) を有するスメクタイトが金属鉄と共存することにより、急速にスメクタイトが非膨張性鉱物である鉄含有フィロ珪酸塩に変質するとの報告もあり、処分環境における鉄と共存したスメクタイトの長期安定性の確認が重要な課題の一つになっている。

そこで本研究では、鉄とベントナイトの相互作用が緩衝材性能に与える影響について評価することを目的として、低酸素雰囲気下において 10 年間炭素鋼試験片と接触した圧縮ベントナイトについて調査を行った。この調査では、炭素鋼試験片と接触した圧縮ベントナイトについて、ベントナイトを構成する粘土鉱物であるスメクタイトの変化について調査を行うとともに、圧縮ベントナイト試料中における鉄濃度プロファイルを電子線マイクロアナライザ (EPMA) により測定し、鉄の移行挙動について調べた。そして結果について、地球化学コード (PHREEQC for Windows) を用いて熱力学的な検討を行った。さらに、これらの結果を含め、最近の鉄とベントナイト相互作用について知見の整理を行い、鉄とベントナイトの相互作用が緩衝材性能に与える影響について評価を行った。

本論文は、6 章で構成されている。

第 1 章は序論であり、研究の背景、目的について示した。

第 2 章では、緩衝材性能に対する影響を評価する手法について整理するとともに、鉄とベントナイトの相互作用に関する最新の知見について整理を行い、その影響について評価を行った。

第 3 章では、低酸素雰囲気下において 10 年間炭素鋼試験片と接触した圧縮ベントナイトについて、スメクタイトの変質の状況について調査を行った。その結果、人工海水を試験溶液とした 80 °C の試験で、圧縮ベントナイトと炭素鋼試験片接触部から採取した試料において、一部にイオン型の変化およびスメクタイト/イライト混合層鉱物への変化が認められたものの、試料の大部分にお

いては大きな変化が認められなかった。さらに、圧縮ベントナイト試料中における鉄濃度プロファイルの測定により、腐食生成物と考えられる顕著な鉄の濃集層の存在や圧縮ベントナイト試料の内部への鉄の移行が認められ、その見かけの拡散係数は既報の値より遅いことが明らかとなった。

第4章では、地球化学コード (PHREEQC for Windows) を用いて、3章で調査を行った10年間炭素鋼試験片と接触した圧縮ベントナイトについて、スメクタイトの安定性と鉄の移行挙動について熱力学的な検討を行った。その結果、圧縮ベントナイト中においては、スメクタイトの鉱物学的な変質は発生せず、鉄腐食生成物は水酸化第一鉄として熱力学的に安定で存在するとの解析結果を得た。この結果は、上述の実験結果と調和的であった。

第5章では、地球化学計算コード等で用いる粘土鉱物熱力学データの基となる標準生成ギブス自由エネルギーについて5つの推定手法の比較を行い、それぞれの手法から求めた標準生成ギブス自由エネルギーの計算値および鉱物溶解反応平衡定数にどの程度の誤差が生じるのかを検討した。その結果、これらの誤差は無視できるほど小さくはないが、緩衝材の長期安定性に対して顕著な影響を与えない程度であることが明らかとなった。

第6章は、本研究全体の結論であり、得られた知見を総括し、鉄とベントナイトの相互作用が緩衝材性能に与える影響について、評価を行った。その結果、処分システムを構成する人工バリアとしての緩衝材を考えた場合、鉄とベントナイトの相互作用は緩衝材に求められる機能に対して、顕著な影響は無いことを示した。

学位論文審査の要旨

主 査 准教授 佐 藤 努

副 査 教 授 米 田 哲 朗

副 査 教 授 名 和 豊 春

学 位 論 文 題 名

Study of iron-bentonite interaction affected for long-term stability of engineering barrier of HLW disposal

(高レベル放射性廃棄物の地層処分における
緩衝材長期安定性に与える鉄-ベントナイト相互作用の研究)

高レベル放射性廃棄物 (HLW) の地層処分において設置が予定されている緩衝材には、周辺からの地下水の浸透や緩衝材中での地下水の流れを抑制する機能、地下水に溶出した核種を収着することで放射性核種の移行を遅延させる機能などが期待されている。しかしながら HLW の地層処分における性能評価は、評価期間が数万年を超える長期間であり、このような長期においては緩衝材に変化が生じ、緩衝材に期待されている性能にも影響が生ずることが予想される。緩衝材の性能に影響を与える可能性のある相互作用の一つとして、緩衝材の主成分鉱物であるスメクタイトと、炭素鋼オーバーパックの腐食生成物 (鉄) との相互作用が想定されている。特に、近年、Fe(III) を有するスメクタイトが金属鉄と共存することにより、急速にスメクタイトが非膨張性鉱物である鉄含有フィロ珪酸塩に変質するとの報告もあり、処分環境における鉄と共存したスメクタイトの長期安定性の確認が重要な課題の一つになっている。

そこで本研究では、鉄とベントナイトの相互作用が緩衝材性能に与える影響について評価することを目的として、低酸素雰囲気下において 10 年間炭素鋼試験片と接触した圧縮ベントナイトについて調査を行った。この調査では、炭素鋼試験片と接触した圧縮ベントナイトについて、ベントナイトを構成する粘土鉱物であるスメクタイトの変化について調査を行うとともに、圧縮ベントナイト試料中における鉄濃度プロファイルを電子線マイクロアナライザ (EPMA) により測定し、鉄の移行挙動について調べた。そして結果について、地球化学コード (PHREEQC for Windows) を用いて熱力学的な検討を行った。さらに、これらの結果を含め、最近の鉄とベントナイト相互作用について知見の整理を行い、鉄とベントナイトの相互作用が緩衝材性能に与える影響について評価を行った。

本論文は、6 章で構成されている。

第 1 章は序論であり、研究の背景、目的について示した。

第 2 章では、緩衝材性能に対する影響を評価する手法について整理するとともに、鉄とベントナイトの相互作用に関する最新の知見について整理を行い、その影響について評価を行った。

第3章では、低酸素雰囲気下において10年間炭素鋼試験片と接触した圧縮ベントナイトについて、スメクタイトの変質の状況について調査を行った。その結果、人工海水を試験溶液とした80℃の試験で、圧縮ベントナイトと炭素鋼試験片接触部から採取した試料において、一部にイオン型の変化およびスメクタイト/イライト混合層鉱物への変化が認められたものの、試料の大部分においては大きな変化が認められなかった。さらに、圧縮ベントナイト試料中における鉄濃度プロファイルの測定により、腐食生成物と考えられる顕著な鉄の濃集層の存在や圧縮ベントナイト試料の内部への鉄の移行が認められ、その見かけの拡散係数は既報の値より遅いことが明らかとなった。

第4章では、地球化学コード(PHREEQC for Windows)を用いて、3章で調査を行った10年間炭素鋼試験片と接触した圧縮ベントナイトについて、スメクタイトの安定性と鉄の移行挙動について熱力学的な検討を行った。その結果、圧縮ベントナイト中においては、スメクタイトの鉱物学的な変質は発生せず、鉄腐食生成物は水酸化第一鉄として熱力学的に安定で存在するとの解析結果を得た。この結果は、上述の実験結果と調和的であった。

第5章では、地球化学計算コード等で用いる粘土鉱物熱力学データの基となる標準生成ギブス自由エネルギーについて5つの推定手法の比較を行い、それぞれの手法から求めた標準生成ギブス自由エネルギーの計算値および鉱物溶解反応平衡定数にどの程度の誤差が生じるのかを検討した。その結果、これらの誤差は無視できるほど小さくはないが、緩衝材の長期安定性に対して顕著な影響を与えない程度であることが明らかとなった。

第6章は、本研究全体の結論であり、得られた知見を総括し、鉄とベントナイトの相互作用が緩衝材性能に与える影響について、評価を行った。その結果、処分システムを構成する人工バリアとしての緩衝材を考えた場合、鉄とベントナイトの相互作用は緩衝材に求められる機能に対して、顕著な影響は無いことを示した。

以上を要するに、筆者は、世界的に懸念されている放射性廃棄物処分場での鉄-ベントナイト相互作用によるベントナイトの性能劣化について、10年に及ぶ反応実験と地球化学計算コードによる反応・輸送モデル計算により定量的に検討し、緩衝材に求められている性能に対して顕著な影響が無いことを示した。これらの研究成果は、資源工学や廃棄物処分工学の発展に寄与するところ大なるものがある。よって著者は、北海道大学博士(工学)の学位を授与される資格があるものと認める。