

## 学位論文題名

TRU廃棄物地層処分における緩衝材の変質評価に関する研究  
(Geochemical evaluation of bentonite alteration in a TRU waste geological repository)

## 学位論文内容の要旨

TRU 廃棄物地層処分の安全評価においては、I-129 および C-14 が最大線量を支配する。しかし、それらは易溶性・難吸着性であるため、その移行挙動には処分施設の人工バリア材料および周辺母岩への吸着や溶解度制限等による遅延効果が期待できない。そのため、地層処分システムにおいては、拡散および移流による物質移動の抑制機能が重要となり、人工バリアにおいてその機能を主に担うのは低透水性のベントナイトを用いた緩衝材である。この緩衝材の物質移動抑制に関する性能は透水係数や実効拡散係数によって示され、これらはベントナイトの主要構成鉱物であるスメクタイトと間隙の体積の比や、スメクタイト含有割合に強く依存する。一方、TRU 廃棄物地層処分施設の構成要素の多くはセメント系材料である。高アルカリ性のセメント反応水中では、スメクタイトが溶解し、その条件でより熱力学的に安定な二次鉱物の沈殿が生じることによる鉱物学的変化が生じると考えられる。こうした変化によって緩衝材中のスメクタイトと間隙の体積の比やスメクタイト含有割合に変化が生じると、透水係数や実効拡散係数が変化し、その結果として物質移動抑制能が影響を受けることとなる。したがって、緩衝材の化学的・鉱物学的変化とそれに伴う物質移動抑制能変化についての検討を行い、その結果を性能評価に反映することが重要な課題となっている。

そこで、本研究では、緩衝材の化学的・鉱物学的変化とそれに伴う物質移動抑制能の変化を評価することを目的として、以下に示すように、代表的な TRU 廃棄物地層処分システムを対象とした人工バリア領域の化学反応・物質移動連成解析を行った。

本研究は 5 章で構成される。

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、セメント反応水の影響を受けた緩衝材の鉱物学的変化に関する知見の抽出、影響因子の整理を行い、代表的な TRU 廃棄物処分システムにおける緩衝材中で生ずる可能性のある鉱物学的変化を鉱物変遷シナリオとしてまとめた。このシナリオに基づき、化学反応・物質移動連成解析のための解析ケースを設定した。

第 3 章では、スメクタイトについて、高アルカリ性条件における溶解速度を求めるとともに、幅広いアルカリ性条件での評価に適用可能と考えられる溶解速度式を提案した。固液比の低い分散系でのフロースルー式溶解実験と固液比の高い凝集系でバッチ式反応実験を組み合わせることによって、高アルカリ性条件において、高液固比の分散系から低液固比の

凝集系におよぶ広い化学的条件へ適用可能な溶解速度式を決定した。また、本検討結果から、液固比が低く、スメクタイトの溶解に二次鉱物の生成が伴う系では、二次鉱物の生成反応がスメクタイトの溶解速度に強く影響することが示唆された。さらに、異なる化学的条件下で検討された既往の知見と合わせることで、スメクタイトの溶解速度に与える pH、温度およびギブス自由エネルギーの影響を分析し、幅広い条件へ適用可能と考えられる新たな溶解速度式を提案した。

第 4 章では、TRU 廃棄物処分システムにおける人工バリア領域を対象とした化学反応・物質移動連成解析を実施した。第 2 章で検討した鉱物変遷シナリオに基づく解析ケースを設定し、セメント影響を受けた緩衝材の鉱物学的変化に関する不確実性による影響を解析結果の幅として示した。本解析により、第 3 章で提案した新たなスメクタイト溶解速度式は、従来の溶解速度式を用いた場合とは大きく異なる結果を与えることがわかった。また、解析結果から、準安定沸石が生成し、安定相が生成しないケースでは、10 万年後までに、セメントで構成された廃棄体との界面から 16cm までの緩衝材領域においてスメクタイトの溶解が進みスメクタイト残存率が 0 となるが、安定相が生成するケースでは、廃棄体との界面から 6cm までの領域においてスメクタイト残存率が 0 となるものの、廃棄体との界面から 6-16cm に位置する領域では約 5 割のスメクタイトが残されることが示された。一方、本解析結果から求められた緩衝材の拡散係数および透水係数は、全てのケースにおいて、セメント系材料との界面の近傍をのぞけば、10 万年程度のあいだ大きな変化は認められなかった。このように、二次鉱物の設定によって予想されるスメクタイト溶解量に幅が生じるものの、全てのケースにおいて緩衝材中央部 78cm の領域には約 6 割以上のスメクタイトが拘束された状態で残されており、この中央部分によって緩衝材の止水性が 10 万年後も失われることなく拡散場が保たれると評価された。

第 5 章は、本研究全体の結論であり、TRU 廃棄物地層処分における緩衝材の変質評価結果を総括した。その結果、緩衝材の拡散係数および透水係数は、緩衝材の鉱物学的変化の不確実性を考慮した上で、10 万年程度までは大きくは変化しないと結論された。

# 学位論文審査の要旨

主 査 教 授 佐 藤 努  
副 査 教 授 名 和 豊 春  
副 査 准教授 大 竹 翼

## 学位論文題名

### TRU廃棄物地層処分における緩衝材の変質評価に関する研究 (Geochemical evaluation of bentonite alteration in a TRU waste geological repository)

TRU 廃棄物地層処分の安全評価においては、I-129 および C-14 が最大線量を支配する。しかし、それらは易溶性・難吸着性であるため、その移行挙動には処分施設の人工バリア材料および周辺母岩への吸着や溶解度制限等による遅延効果が期待できない。そのため、地層処分システムにおいては、拡散および移流による物質移動の抑制機能が重要となり、人工バリアにおいてその機能を主に担うのは低透水性のベントナイトを用いた緩衝材である。この緩衝材の物質移動抑制に関する性能は透水係数や実効拡散係数によって示され、これらはベントナイトの主要構成鉱物であるスメクタイトと間隙の体積の比や、スメクタイト含有割合に強く依存する。一方、TRU 廃棄物地層処分施設の構成要素の多くはセメント系材料である。高アルカリ性のセメント反応水中では、スメクタイトが溶解し、その条件でより熱力学的に安定な二次鉱物の沈殿が生じることによる鉱物学的変化が生じると考えられる。こうした変化によって緩衝材中のスメクタイトと間隙の体積の比やスメクタイト含有割合に変化が生じると、透水係数や実効拡散係数が変化し、その結果として物質移動抑制能に影響を受けることとなる。したがって、緩衝材の化学的・鉱物学的変化とそれに伴う物質移動抑制能変化についての検討を行い、その結果を性能評価に反映することが重要な課題となっている。

そこで、本研究では、緩衝材の化学的・鉱物学的変化とそれに伴う物質移動抑制能の変化を評価することを目的として、以下に示すように、代表的な TRU 廃棄物地層処分システムを対象とした人工バリア領域の化学反応・物質移動連成解析を行った。

本研究は 5 章で構成される。

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、セメント反応水の影響を受けた緩衝材の鉱物学的変化に関する知見の抽出、影響因子の整理を行い、代表的な TRU 廃棄物処分システムにおける緩衝材中で生ずる可能性のある鉱物学的変化を鉱物変遷シナリオとしてまとめた。このシナリオに基づき、化学反応・物質移動連成解析のための解析ケースを設定した。

第 3 章では、スメクタイトについて、高アルカリ性条件における溶解速度を求めるとともに、幅広いアルカリ性条件での評価に適用可能と考えられる溶解速度式を提案した。固液比の低い分散系でのフロースルー式溶解実験と固液比の高い凝集系でバッチ式反応実験を組み合わせることによって、高アルカリ性条件において、高液固比の分散系から低液固比の凝集系におよぶ広い化学的条件へ適用可能な溶解速度式を決定した。また、本検討結果から、液固比が低く、スメクタイトの溶解に二次鉱物の生成が伴う系では、二次鉱物の生成反応がスメクタイトの溶解速度に強く影響することが

示唆された。さらに、異なる化学的条件で検討された既往の知見と合わせることで、スメクタイトの溶解速度に与える pH、温度およびギブス自由エネルギーの影響を分析し、幅広い条件へ適用可能と考えられる新たな溶解速度式を提案した。

第4章では、TRU 廃棄物処分システムにおける人工バリア領域を対象とした化学反応・物質移動連成解析を実施した。第2章で検討した鉱物変遷シナリオに基づく解析ケースを設定し、セメント影響を受けた緩衝材の鉱物学的変化に関する不確実性による影響を解析結果の幅として示した。本解析により、第3章で提案した新たなスメクタイト溶解速度式は、従来の溶解速度式を用いた場合とは大きく異なる結果を与えることがわかった。また、解析結果から、準安定沸石が生成し、安定相が生成しないケースでは、10 万年後までに、セメントで構成された廃棄体との界面から 16cm までの緩衝材領域においてスメクタイトの溶解が進みスメクタイト残存率が 0 となるが、安定相が生成するケースでは、廃棄体との界面から 6cm までの領域においてスメクタイト残存率が 0 となるものの、廃棄体との界面から 6-16cm に位置する領域では約 5 割のスメクタイトが残されることが示された。一方、本解析結果から求められた緩衝材の拡散係数および透水係数は、全てのケースにおいて、セメント系材料との界面の近傍をのぞけば、10 万年程度のあいだ大きな変化は認められなかった。このように、二次鉱物の設定によって予想されるスメクタイト溶解量に幅が生じるものの、全てのケースにおいて緩衝材中央部 78cm の領域には約 6 割以上のスメクタイトが拘束された状態で残されており、この中央部分によって緩衝材の止水性が 10 万年後も失われることなく拡散場が保たれると評価された。

第5章は、本研究全体の結論であり、TRU 廃棄物地層処分における緩衝材の変質評価結果を総括した。その結果、緩衝材の拡散係数および透水係数は、緩衝材の鉱物学的変化の不確実性を考慮した上で、10 万年程度までは大きくは変化しないと結論された。

以上を要するに、著者は、TRU 廃棄物処分システムにおける緩衝材中で生ずる鉱物変遷シナリオをまとめ、アルカリ性条件での評価に適用可能と考えられる溶解速度式を新しく提案し、緩衝材に求められている性能の長期評価を可能にした。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。