HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	Study on the calcium carbonate precipitation and anion diffusion in compacted bentonite for performance assessment of engineered barrier in the geological disposal [an abstract of dissertation and a summary of dissertation review]
Author(s)	Rachmadetin, Jaka
Citation	北海道大学. 博士(工学) 甲第13790号
Issue Date	2019-09-25
Doc URL	http://hdl.handle.net/2115/75916
Rights(URL)	https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/
Type	theses (doctoral - abstract and summary of review)
Additional Information	There are other files related to this item in HUSCAP. Check the above URL.
File Information	Jaka_Rachmadetin_review.pdf (審査の要旨)

Instructions for use

Hokkaido University Collection of Scholarly and Academic Papers : HUSCAP

学位論文審査の要旨

博士の専攻分野の名称　博士 (工学)　氏名　Jaka Rachmadetin

審査担当者　主　査　教　授　小崎 完
副　査　教　授　加美山 隆
副　査　特任教授　森 治嗣
副　査　准教授　渡辺 直子

学位論文題名

Study on the calcium carbonate precipitation and anion diffusion in compacted bentonite for performance assessment of engineered barrier in the geological disposal
(地層処分における人工バリア材の性能評価のための圧縮ベントナイト中のカルサイトの析出および陰イオンの拡散に関する研究)

原子力発電所の運転に伴い生じる高レベル放射性廃棄物の地層処分において、圧縮したベントナイトを工学的なバリア材料として使用することが考えられている。このため、地層処分の安全評価においては、高レベル放射性廃棄物処分場における放射性核種の長期の移行挙動を予測するため、圧縮したベントナイト中の移行挙動を理解することが重要となっている。人工バリア材としてのベントナイトの性能に関する知見を深めるため、これまでに多くの研究が行われてきたが、その複雑性のため、それらの長期間の挙動を予測することが可能なモデルとして広く受け入れられるものは未だ得られていない。従って、本論文では、ベントナイト中の放射性核種の移行挙動に影響を及ぼす 3 つの因子、すなわちベントナイト中の空隙水の化学、析出過程、放射性核種の拡散機構に関する理解を深化することを目的とした。

本論文は 5 章から構成される。第 1 章では、放射性廃棄物の種類とその処分方法を概説し、処分におけるベントナイト材料の役割、そこでの拡散現象、ならびに長期安定性に関する研究の重要性を紹介するとともに、本研究に関連のある、$CaCO_3$ の析出および関連する化学現象を整理して紹介した。また、最後に、本研究の目的と概要を述べた。

第 2 章では、ベントナイト中の空隙水の化学について、溶存イオンの活量の観点から検討を加えた。ここでは、Ca^{2+} および HCO_3^-/CO_3^{2-} について、ベントナイト中の空隙水および固相中の量を直接決定するために、複数の放射性トレーサーおよび $CaCO_3$ 飽和溶液を用いた逐次抽出法を開発した。次に、ベントナイト試料の両端からそれぞれ Ca^{2+} と HCO_3^-/CO_3^{2-} イオンを電位勾配下で供給する界面動電法によって $CaCO_3$ を析出させ、先述の抽出手法によって、ベントナイト空隙水中の Ca^{2+} および HCO_3^-/CO_3^{2-} 濃度を決定した。一方、ベントナイトの固相分析の結果から、析出した $CaCO_3$ は非晶質である可能性を確認したことから、これらの実験結果をもとにベントナイト中のイオンの活量係数を推定した結果、バルク水中の値に比べて 3 分の 1 程度以下であることを明らかにした。これは、空隙水がベントナイトの主たる構成鉱物であるモンモリロナイトの有する負電荷の影響を強く受けていること、また、地層処分においては、放射性核種の溶解度などの因子がその影響を強く受ける可能性を示唆する新たな知見である。

第 3 章では、界面動電実験法により、Ca^{2+} および CO_3^{2-} イオンの移動度に関する基礎データを

求め、Ca^{2+} イオンが CO_3^{2-} イオンに比べて 1 桁以上高い移動度を有することを明らかにした。さらに、2 章で行った界面動電実験を異なる実験時間で実施し、その際の Ca^{2+} および HCO_3^-/CO_3^{2-} 濃度を決定し、ベントナイト中の $CaCO_3$ の析出位置の時間変化を調べた。この結果、実験期間中の析出位置の移動速度は一定であることを示した。けい砂試料中の $CaCO_3$ の析出は物質移行に影響を及ぼすことが報告されているのに対して、ベントナイト試料ではこの影響が認められなかったことから、Ca^{2+} イオンがベントナイト中の空隙のみならず、モンモリロナイトの層間を移行している可能性を示唆するものと結論付けた。

第 4 章では、ベントナイト中の陰イオンの移行挙動を把握するため、SO_4^{2-} イオンのベントナイト中の見かけの拡散係数を非定常 1 次元拡散法によって異なる温度条件下で決定した。これは、SO_4^{2-} イオンが CO_3^{2-} イオンに比べて pH の影響を受けずに比較的安定であり、また処分環境においては微生物代謝を伴うことで銅製廃棄物容器の腐食に影響を及ぼす可能性があることによる。見かけの拡散係数の温度依存性から得られた拡散の活性化エネルギーは、ベントナイトの乾燥密度が 1.0 Mg m^{-3} より高い領域では、自由水中の同イオンの拡散の活性化エネルギーより低いことを明らかにした。また、乾燥密度が 1.0 Mg m^{-3} では、塩濃度が 0.5 M に増加すると、活性化エネルギーは自由水中の値まで増加することを見出した。これらの結果より、SO_4^{2-} イオンは乾燥密度が低い条件下では空隙内の自由水中を主に拡散するものの、乾燥密度が高い条件下ではそれとは異なるプロセスが支配的となること、また、活性化エネルギーが塩濃度の影響を受けていることから、塩濃度の変化の影響を顕著に受けるとされるモンモリロナイト表面の電気二重層が関与するモンモリロナイト表面あるいは層間が主な拡散経路となっている可能性があると結論付けた。

第 5 章は結論であり、得られた結果を総合し、本論文のまとめとした。

以上の新知見は、高レベル放射性廃棄物の地層処分におけるベントナイト中の放射性核種の移行挙動の理解を進めたものであり、原子力、中でも高レベル放射性廃棄物の地層処分の安全評価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あるものと認める。