



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	Evaluation of bentonite/hyperalkaline-fluids interaction in compacted system by X-ray computed tomography [an abstract of dissertation and a summary of dissertation review]
Author(s)	中林, 亮
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(工学)
Dissertation Number	甲第11467号
Issue Date	2014-03-25
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/55461
Rights(URL)	https://creativecommons.org/licenses/by-nc-sa/2.1/jp/
Type	doctoral thesis
File Information	Ryo_Nakabayashi_abstract.pdf, 論文内容の要旨



学 位 論 文 内 容 の 要 旨

博士の専攻分野の名称 博士（工学） 氏名 中林 亮

学 位 論 文 題 名

Evaluation of bentonite/hyperalkaline-fluids interaction in compacted system by X-ray computed tomography

(X 線 CT による圧縮ベントナイト - 高アルカリ間隙水相互作用の評価)

放射性廃棄物の地層処分では、処分場からの放射性核種の移行を抑制する目的から、膨潤性粘土鉱物であるモンモリロナイトを主成分とするベントナイトの設置が検討されている。一方、このベントナイトの周辺では、廃棄体定置領域の充填や支保、グラウト等として大量のセメント系材料が設置される予定である。このセメント系材料は地下水と反応することで高アルカリ性間隙水を生成し、ベントナイトを変質させる可能性がある。このため、地層処分の安全評価では、ベントナイト-高アルカリ間隙水の相互作用を定量的に理解する必要がある。しかし、実際の処分場で使用予定である圧縮ベントナイトでは、実験的に求められてきたモンモリロナイトの溶解速度よりも遅延することが報告されているが、その要因や機構の詳細な解明には至っていない。そこで本研究では、経時変化をトレースするツールとして X 線 CT によるその場観察を取り入れ、地球化学モデリングによる計算結果等を検証するための多数のデータを取得し、ベントナイトと高アルカリ性間隙水の相互作用による変質を支配するパラメーターを決定することを目的とした。

本報は 5 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、低圧縮ベントナイト試料 (乾燥密度 0.3Mg m^{-3}) に対し、 $80\text{ }^{\circ}\text{C}$ 下において高アルカリ性間隙水を模擬した 0.3M NaOH 溶液を用いた透水変質実験を実施した。10 日ごとに X 線 CT を用いて内部観察を行い、ベントナイト中の二次鉱物の生成過程の定量的評価を試みた。その結果、二次鉱物の生成過程の経時変化を定量的に評価することに成功し、X 線回折分析結果と併用することにより二次鉱物を方沸石と特定した。また、モデル検証の結果、X 線 CT による鉱物生成の経時変化の定量的なデータは、地球化学モデルの検証に有意なものであることが証明されるとともに、圧縮ベントナイト中のモンモリロナイトの溶解速度が粉末状のモンモリロナイトよりも一桁程度遅く、その要因として反応表面積の制限とモンモリロナイトの溶解度に対する飽和度が大きく影響する可能性を明らかにした。実際の処分環境では、圧縮による反応表面積の制限や飽和度の影響がより一層大きくなると予想される。

第 3 章では、二次鉱物と同様に、初期鉱物である玉髄が溶解することでベントナイト間隙水中の溶液組成が変化し、モンモリロナイトの溶解に影響を与える可能性があるため、第 2 章と同様に透水変質実験を実施し、入水側を撮影することで初期鉱物であるシリカ鉱物の溶解に着目し X 線 CT 観察を実施した。その結果、付随鉱物である玉髄の溶解過程の経時変化を定量的に評価することに成功した。また、二次鉱物の定量的データ同様に地球化学モデルの検証に有効であることが証明され、さらに圧縮ベントナイト中の玉髄の溶解により、モンモリロナイトの溶解度に対する飽和度が抑制され、結果的にモンモリロナイトの溶解速度が遅延されることが明らかとなった。実際の処分環境では、間隙水の滞留時間が長くなり、間隙水中の溶存シリカ濃度がモンモリロナイトの溶解速度に与える影響は一層大きくなると予想される。

第4章では、第2、3章で得られた知見を基に、実際の処分システムで施工されるコンクリート/ベントナイト系の相互作用に、モンモリロナイトの溶解速度や玉髄の溶解速度が与える影響について100,000年の長期シミュレーションを実施し検討した。その結果、圧縮影響の有無で、少なくともモンモリロナイトの溶解速度に三桁の差が生じることが明らかとなった。また、モンモリロナイトの溶解速度の違いは、特に反応初期(～1,000年)において解析結果に大きく反映され、反応が進むにつれ溶解速度の違いによる影響は小さくなることが示唆された。このことは短期試験を再現可能とするモデルの重要性を示唆し、X線CT法によって得られる鉱物の溶解・生成の経時変化の定量的データを、新たにモデル検証の手法の一つに取り入れる意義を示している。一方、玉髄の溶解速度の違いによる解析結果への影響は示唆されなかった。これは二次鉱物の種類やその生成速度が支配的であるということが示唆され、実際の処分環境下における二次鉱物種やその生成速度を明らかにすることの重要性が示唆される結果となった。

第5章は本研究全体の結論である。X線CT法による微小構造解析はベントナイトの変質過程の経時変化を定量的に評価することに有効であり、取得した定量的データは人工バリア材長期評価モデルを構築する上で、地球化学モデルの検証に非常に有意なものであることが示唆された。また、モンモリロナイトの溶解速度は圧縮影響の考慮有り無しで、少なくとも三桁の違いが生じることが明らかとなり、現実的な長期評価を実施する上で圧縮の影響を考慮することが非常に重要であることが明らかとなった。今後、NaOH以外の様々なセメント間隙模擬水(KOHや Ca(OH)_2)とベントナイトの相互作用による変質過程に対し本試験と同様な知見の積み上げが必要不可欠である。本研究で開発したX線CT法による微小構造解析法を分析手法の一つとして取り入れることで、確度の高い地球化学モデルの検証が可能となり、得られた知見を総括することによって人工バリア材の性能をより現実的かつ合理的に評価することが可能となるであろう。