



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	オマーンに湧出する高アルカリ泉周辺に産する沈殿物のナチュラルアナログ研究 [論文内容及び審査の要旨]
Author(s)	安楽, 総太郎
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(工学)
Dissertation Number	甲第12772号
Issue Date	2017-03-23
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/65324
Rights(URL)	https://creativecommons.org/licenses/by-nc-sa/2.1/jp/
Type	doctoral thesis
File Information	Sotaro_Anraku_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 安楽 総太郎

学 位 論 文 題 名

オマーンに湧出する高アルカリ泉周辺に産する沈殿物のナチュラアナログ研究
(Natural analogue study of secondary minerals at naturally occurring hyperalkaline springs in Oman)

使用済燃料の再処理などから発生する超ウラン元素 (TRU) 廃棄物の地層処分では、固化体やグラウト等に大量のセメント材料が使用され、時間経過と共に処分場が高アルカリ環境になることが予想されている。そのため、高アルカリ環境下での放射性核種の溶出・移行や他のバリア材料の変質・劣化、コロイド安定性等の理解が急務とされている。一般に、高アルカリ性条件では大部分の鉱物表面が負に帯電するため、同様に負に帯電している陰イオンは鉱物表面に吸着されにくい。したがって、TRU 廃棄物処分の安全評価では、地下水中で陰イオンとして振る舞うヨウ素-129 や炭素-14、塩素-36 といった核種の吸着分配係数はゼロまたは限りなく小さく設定されている。

安全評価において上述の核種は弱吸着性と考えられているが、核種が吸着によらない沈殿や固溶体形成等の動的な過程によって移行遅延する可能性がある。そのため、コンクリートの劣化によって生成される高アルカリ環境における鉱物の生成とその安定性を理解することは、核種移行遅延の観点から重要となる。もちろん、コンクリートやセメント材料の劣化に伴う構成材料の変化は、それらを専門とする工学分野の研究対象でもある。しかし、それらは材料そのものの鉱物学的・力学的変化を対象としており、劣化によって浸出する高アルカリ水と地下水の反応によって生成する二次鉱物に関する研究は少ない。

そこで、処分環境で想定される現象に類似した天然の現象を定量的に理解しようとするナチュラアナログ研究の一環として、オマーンオフィオライトに湧出する高アルカリ泉と地表水の反応によって生じる二次鉱物の生成と陰イオンの挙動に与える影響を本研究の研究対象とした。

本研究は、6 章で構成されている。各章の概要は以下のとおりである。

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、放射性廃棄物の処分場を模擬したナチュラアナログ環境における温泉水・河川水・沈殿物の分析を実施し、沈殿物の生成に大きく影響与える因子を明かにした。一つは温泉水の組成であり、もう一つは温泉水への河川水の混合割合であった。また、観察結果を元に、温泉水と河川水の混合モデルをベースとした地球化学モデリングによる生成鉱物相の予測を実施した。Layered Double Hydroxides (LDH) やブルーサイト、炭酸塩鉱物相の生成を精度良く表現する一方で、Mg, Si に関しては平衡計算だけでは説明できない部分があった。X 線回折分析では定性ができなかった Magnesium Silicate Hydrate (MSH) の生成が示唆された。本研究サイトでは確認されなかった

が、処分の評価上重要となる二次鉱物相である Calcium Silicate Hydrate (CSH) と共に、結晶性でない鉱物の定性及び定量の重要性が示唆された。

第 3 章では、処分場において間隙閉塞 (クロッキング) を生じさせる主な原因となると予測される Ca 鉱物の X 線吸収分光による定性を試みた。炭酸塩鉱物の多形、非晶質の CSH、ゲル状で生成するゼオライトといった鉱物相は、従来から定性に用いられてきた X 線回折や EPMA により定性することが難しいケースがある。しかし、標準試料を用いた X 線吸収分光から、XANES 領域におけるパターンフィッティングが非晶質な鉱物相との判別に有効であることが示された。また、オマーンで採取した沈殿物に対してこの手法を適用した結果、炭酸塩の多形を判別し、CSH の生成を否定することが可能となった。

第 4 章では、高アルカリ泉周辺で生成した沈殿物が、陰イオンとして存在する化学種の物質移行特性に与える影響を定量的に評価する試みとして、沈殿物への陰イオンの分配に着目した。その結果、LDH は既存の室内実験で確認されるようにオキシ陰イオンに対して選択性が高かった。しかし、LDH に対する陰イオン交換を考慮した地球化学モデルによると、現場の観察において選択性が高かったオキシ陰イオンは、炭酸イオンや水酸化物イオン、塩化物イオンといった比較的高濃度に環境に存在する種との競争の影響を受けていることが示唆された。また、カルシウム炭酸塩鉱物の中でもアラゴナイトに対して、ヨウ素の選択性が高い事が示された。

第 5 章では、処分の評価上重要であるヨウ素の炭酸塩鉱物への収着機構を明らかにするため、室内試験による定量的な評価を実施した。の本研究より、カルシウム炭酸塩鉱物によりヨウ化物イオンやヨウ素酸イオンといったヨウ素の取り込みが可能であることが明らかとなった。そしてその取り込み量には生成するカルシウム炭酸塩鉱物の多形の違いが影響を与え、吸着反応よりも共沈反応において顕著に確認され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するとともに、高アルカリ環境における鉱物生成と陰イオン収着を定量的に表現できること重要性について述べた。