



Title	セメント - 緩衝材相互作用における海水影響の評価 [論文内容及び審査の要旨]
Author(s)	小林, 佑太朗
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(工学)
Dissertation Number	甲第16132号
Issue Date	2024-09-25
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/93393
Rights(URL)	https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/
Type	doctoral thesis
File Information	Yutaro_KOBAYASHI_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 小林 佑太郎

学 位 論 文 題 名

セメント - 緩衝材相互作用における海水影響の評価
(Evaluation of the influence of seawater on Cement-Buffer material interaction)

低レベル放射性廃棄物のうち、半減期が長い超ウラン元素を含む廃棄物 (TRU 廃棄物) は、人間の生活環境から隔離するために地層処分が検討されており、放射性核種の移行を抑制するためにセメント系材料およびベントナイトを主とする緩衝材で構成される人工バリアシステムの設置が提案されている。セメント系材料への地下水の浸透によって形成される高アルカリ性のブルームが隣接する緩衝材と接触した場合には、一次鉱物の溶解や二次鉱物の形成を伴うベントナイトのアルカリ変質反応が生じ、人工バリア材料に期待されるバリア性能の低下が懸念される。ベントナイトのアルカリ変質反応を最小限に抑えるため、ポゾラン材料をセメントと混合した低 pH セメントの開発が進められており、地下処分施設のモルタル、コンクリート部材への適用が検討されている。

日本では、放射性廃棄物輸送の安全性の観点から、放射性廃棄物の地層処分施設の立地は沿岸域が好ましいと考えられている。沿岸域の地下には、海水起源の塩分を多く含んだ海水系地下水が存在すると予想されるため、処分施設の人工バリア材料の長期性能評価を行う上で、海水系地下水の共存を考慮する必要がある。セメント系材料とベントナイトを主とした緩衝材の相互作用に関する研究は古くから実施されてきたが、海水のように塩分濃度の高い環境条件下での変質現象に関しては理解が不十分である。

そこで、本研究では、ポゾラン材料の添加有無によって間隙水 pH が大きく異なる 2 種類のセメントを対象に、使用するセメント種類が海水やベントナイトとの反応性に及ぼす影響を調査し、セメント - ベントナイト相互作用によって生じる鉱物相変化に及ぼすセメント種類および海水の影響を検討した。

本研究は 6 章で構成されており、各章の概要は以下の通りである。

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、沿岸域に立地する処分施設の人工バリア材料で生じる可能性のある鉱物学的変化に着目し、人工バリアを構成するセメント系材料およびベントナイトをはじめとした粘土系材料、また地下水として施設に流入する海水といった各要素の間に生じる相互作用に関する先行研究をレビューした。セメント - 海水およびベントナイト - 海水相互作用については、室内試験による知見を中心に海水が各材料と接触した際に生じる変化について整理し、セメント - ベントナイト相互作用については、室内試験のほか、原位置試験、ナチュラルアナログ研究といった空間的、時間的スケールの異なる研究方法によって得られた知見を組み合わせ、長期的に生じる人工バリア材料の鉱物相変化を整理した。その結果、各要素間での相互作用によって生じる鉱物相組成の変化や、相変化に及ぼす材料種類の影響といった知見を整理することができた。また、上記の整理から、処分施設向けに開発された、混和材を多量に混合した低アルカリ性のセメント系材料を使用した条件での知見が十分ではないことが確認された。

第 3 章では、使用するセメントの種類の違いが海水中でのセメントペーストの変質に及ぼす影響

を明らかにすることを目的に、普通ポルトランドセメント (OPC) および低 pH セメント (HFSC) を用いたセメントペーストの海水浸漬試験を行い、海水との反応による鉱物学的変化を検討した。セメントペースト中のセメント水和物は接触する海水量の増加とともに溶脱したが、溶脱の進行は初期に形成されたセメント水和物の鉱物組成に依存しており、混和材を多く含む HFSC は海水への化学的耐性が OPC に比べ劣ることが示された。また、セメント水和物の溶脱とともに炭酸塩鉱物や Mg 含有鉱物等の二次鉱物の生成が確認された。セメントの種類によって生じた pH と Si 濃度の違いは、海水との反応に伴うセメントペーストの鉱物変遷に大きな影響を与えており、生成した鉱物種の違いによって放射性核種の移行特性に影響を与える可能性が示唆された。

第 4 章では、セメントペースト - ベントナイト相互作用により生じる鉱物相組成の変化に及ぼす溶液組成の影響を明らかにすることを目的に、各材料の接触表面積を意図的に大きくした接触試料を超純水および人工海水に浸漬した加速変質試験を実施し、変質に伴う鉱物学的変化を検討した。その結果、高アルカリ性である OPC ペーストを用いた試料でのみ、ベントナイトのアルカリ変質によるカルシウムシリケート水和物 (C-S-H) の生成とセメンテーションが生じており、HFSC を使用することでベントナイトのアルカリ変質を抑制できることが示された。また、接触溶液が超純水の場合は変化がほぼ生じなかった一方、人工海水の場合は接触界面から試料内部への Mg の拡散、セメント水和物の溶脱および二次鉱物であるマグネシウムシリケート水和物 (M-S-H) の生成が見られ、海水成分が試料内部に浸透することで鉱物相変化が生じた。Mg の反応フロントの移動度の違いから、C-S-H によるセメンテーションが物質移動を化学的および/または物理的に抑制する障壁として機能する可能性が示唆された。

第 5 章では、セメントペースト硬化体と圧縮ベントナイトが接触した接触試料を人工海水に浸漬した変質試験を実施し、海水共存下でのセメントペースト - ベントナイト相互作用に伴う鉱物相変化および微細構造変化を検討した。その結果、海水共存下でのセメント - ベントナイト接触界面における相互作用では、セメント種類による高 pH フロントの形成位置の違いにより、Mg 濃集の形成領域や生成する Mg 含有鉱物種が変化することが明らかとなった。生成した Mg 含有鉱物やその安定相鉱物によって、膨潤特性や吸着特性が変化すると考えられ、放射性核種の移行特性に大きな影響を及ぼすことが示唆された。また、海水成分が十分に供給される条件における接触界面での相互作用では、第 4 章で確認された C-S-H によるセメンテーションは接触界面ごく近傍に限定され、試料密度が低下する傾向が示され、物質移行を抑制するようなクロッキングは生じにくいものと推察された。

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、放射性核種の移行遅延の観点から、人工バリア材料の長期性能評価における海水影響の考慮および沿岸域に立地した処分施設で使用するセメント種類の重要性について述べた。