

審査の結果の要旨

氏名 黒澤 進

高レベル放射性廃棄物の地層処分環境下では、ガラス固化体から溶出した核種は加水分解により真性コロイドを生成するとともに、環境下に存在する地下水コロイドにも収着して擬似コロイドを形成する。しかしながら、現行の安全評価では、人工バリア中の核種の移行は溶質(イオン形態)のみの移行が評価されている。また天然バリア中における核種移行挙動解析においても、コロイド形成の影響は変動シナリオとされるとともに、人工バリア材であるベントナイト起源コロイドの影響などについては、その重要性が観念的には指摘され続けてきているが必ずしも十分な理解がされることなく、地下水中に最初から存在する地下水コロイドと区別されていない。本論文は、コロイド移行挙動に関して、これまでの安全評価において暗黙の了解事項とされていた問題点に着目し、とくに DLVO 理論の活用を通して、その了解事項がどこまで正しいのか、また現象を説明するにあたって DLVO 理論の限界はどこにあるのかを明らかにしつつ、地下環境中におけるコロイド形成、移行挙動の定量的評価につながる基盤的知見を得ることを目的としたもので、6 章から構成される。

第 1 章では、コロイドの生成と移行に関する既往研究のレビューが行われ、コロイド生成・移行挙動解明での課題が整理されるとともに、本論文の目的が述べられている。

第 2 章では、透水試験法を利用した緩衝材に対するコロイドの透過実験が行われ、コロイド濾過効果が実験的に確認された。また、緩衝材中の微細構造に関して構造均質化モデルを適用して、間隙の大きさが推定されるとともに、DLVO 理論に基づき、緩衝材の間隙水中でのコロイドの凝集性、ベントナイト材へのコロイドの収着性が評価され、コロイド濾過効果のメカニズムが理論的に考察されている。その結果、コロイド濾過効果は緩衝材中のモンモリロナイトの部分密度に依存する間隙の大きさとコロイド粒子の大小関係に従う物理的効果によって起こる可能性が大きいことが示された。また、緩衝材の間隙水組成のもとではコロイドは凝集しやすいこと、ベントナイト材に収着しやすいことが予測され、コロイドは緩衝材中を物理的要因のみならず化学的にも移行しにくいことの知見が得られている。

第 3 章では、処分環境下でのモンモリロナイトの流動、熱運動が理論的に評価され、モンモリロナイト起源コロイド生成の可能性について議論されている。ここでは、塑性状態およびゲル状態にあるモンモリロナイトの流体力学的相互作用とコロイド化学的相互作用による粒子間の抵抗力(剪断応力)、Maxwell-Boltzmann の分布式や DLVO 理論を適用してのゲル状態にあるモンモリロナイト粒子の熱運動のしやすさが評価されている。その結果、塑性状態およびゲル状態にあるモンモリロナイト粒子間の剪断応力とつり合う流体の流速は、最も小さく評価された場合でも、地下深部で推測される地下水流速と比較して数桁以上大きな値であり、処分環境下では流動の発現は起こりにくいことが明らかにされている。

第 4 章では、コロイドの影響を考慮した核種移行挙動の定量的予測を実現するために、

核種のコロイドへの収着を分配係数により評価することの妥当性，ならびにモデルの適用可能性が，実験室実験とフィールド実験を通して検討されている．また，核種のコロイドへの分配係数を設定するモデルを構築し，分配現象を瞬時平衡および速度論を扱い，実験結果との比較が行われている．その結果，移行実験の結果は，収着実験により得られた分配係数と Henry 型吸着等温線式を適用して求めた反応速度定数を用いたモデル解析の結果と一致することが示されている．このことは，核種のコロイドへの収着現象を分配係数により評価すること，ならびにその分配係数を用いる核種移行モデルを適用することが妥当であること示している．

第 5 章では，第 2 章から第 4 章までの知見に基づき，コロイド濾過効果を十分に確保できる緩衝材の仕様の検討，および掘削影響領域や天然バリア中の核種移行評価におけるコロイドの影響が体系的に考察されている．緩衝材の仕様に関しては，コロイドとして定義される最小粒子に対しても十分な濾過効果を確保するのに必要な工学的対策が検討されている．掘削影響領域においては，モンモリロナイト粒子が分散した場合の安全評価への影響が，DLVO 理論に基づき検討されている．さらに，天然バリア中の核種移行評価に関して，安全評価上の指標として，核種のコロイドへの“収着比（=コロイド濃度×核種のコロイドへの分配係数）”が定義され，その指標に従って核種移行に及ぼすコロイドの影響が総合的に検討されている．

第 6 章では，以上の成果が総括され，本論文の結論が述べられるとともに，本論文の成果が高レベル放射性廃棄物の地層処分の安全評価に与える意義がまとめられている．

以上要するに，本論文は，放射性廃棄物地層処分の安全評価において重要となるコロイドの影響について，DLVO 理論に基づき，コロイドの生成・移行挙動機構を解明し，さらにコロイドが安全評価結果に与える影響を定量化して，同時にその影響を無視できるようにするための処分場設計指針の基盤情報を与えるものである．これらはシステム量子工学，特に放射性廃棄物処分の安全性確保に及ぼすコロイドの影響の解明に寄与するところが少なくない．よって，本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる．