

Title	Reactive transport evaluation of Ca(OH) <sub>2</sub> solution - granite interaction
Author(s)	桐野, 裕介
Citation	大阪大学, 2013, 博士論文
Version Type	
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/60093">https://hdl.handle.net/11094/60093</a>
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉</a> 大阪大学の博士論文について <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">〈/a〉</a> をご参照ください。

***Osaka University Knowledge Archive : OUKA***

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

【55】

氏名	桐野裕介
博士の専攻分野の名称	博士(理学)
学位記番号	第25836号
学位授与年月日	平成25年3月25日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当 理学研究宇宙地球科学専攻
学位論文名	Reactive transport evaluation of Ca(OH) <sub>2</sub> solution - granite interaction (Ca(OH) <sub>2</sub> 水溶液-花崗岩相互作用における反応・拡散複合評価)
論文審査委員	(主査) 教授 中嶋 悟 (副査) 教授 寺田 健太郎 教授 近藤 忠 准教授 寺崎 英紀 准教授 佐伯 和人

#### 論文内容の要旨

放射性廃棄物の地層処分において、セメント起源の高アルカリ性 Ca(OH)<sub>2</sub>水溶液により周囲の岩盤が変質する影響が懸念されている。この変質現象は、初生鉱物の溶解反応、二次鉱物の沈殿反応、亀裂及び岩石間隙水中での物質移動を含む複雑な現象である。本研究では、この複雑な変質現象を実験及び反応・物質移動複合シミュレーションを用いて解明し、処分場周辺岩盤への影響評価を行った。

はじめに  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  水溶液中での花崗岩ブロックの加速変質実験 (80℃、1-40 日) を行った。変質実験後に花崗岩を取り出し観察した結果、花崗岩ブロック表面に多孔質なファイバー状の二次鉱物が生成している様子が確認された。この二次鉱物は走査型電子顕微鏡及び顕微ラマン分光装置を用いた分析の結果、一部の Si を Al で置換したジェナイト様鉱物 ( $\text{Ca}_9\text{Si}_6\text{O}_{16}(\text{OH})_{10}\cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ) であることが分かった。また反応溶液を分析した結果、Ca 濃度の減少及び Na・K・Al 濃度の増加がみられた。一方で Si 濃度は変質実験 1 日目までは増加したが、それ以降では減少した。これらの濃度変化を解析した結果、ジェナイト様鉱物の沈殿速度は速く、初生鉱物の溶解と岩石間隙水中の溶存 Si の拡散過程がジェナイト様鉱物の沈殿過程を律速していることが分かった。さらに主な Si の供給源は曹長石及びカリ長石であることが分かった。

次に反応・物質移動複合シミュレーションを用いて、実験結果を再現するパラメータの検討を行った。その結果、実験の Na 及び K 濃度の変化を良く再現したことから、曹長石及びカリ長石に関しては稲田花崗岩のバルクの比表面積・実効拡散係数の値を用いることが適切であることが分かった。一方で、実験の Ca 濃度の変化を再現するためには、石英の比表面積・実効拡散係数は稲田花崗岩のバルクの 1/30 程度の値を持たなければならないことが分かった。またこれらのパラメータを用いた場合、ジェナイト様低結晶性カルシウム珪酸塩水和物の沈殿が確認され、実験と調和的な結果となった。したがって長石は比表面積・実効拡散係数を稲田花崗岩のバルクの値、石英は 1/30 の値を用いることで、固相・液相とも実験を再現できることが分かった。

さらに変質実験を再現したパラメータを用いて、処分場環境下 (40℃) での変質現象の計算を行った。その結果、主に亀裂表面から 1mm 以内の曹長石から Si が供給され、亀裂表面でジェナイト様鉱物が沈殿すると予測された。また亀裂に沿った方向への変質範囲は岩盤の規模に比べて非常に小さく、放射性廃棄物の地層処分へのアルカリ変質の影響は限定的であることが分かった。

最後に、現場セメント影響試験で回収された変質試料の顕微ラマン分光分析を行った。

## 論文審査の結果の要旨

放射性廃棄物の地層処分において、セメント起源の高アルカリ性  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  水溶液により周囲の岩盤が変質する影響が懸念されている。この変質現象は、初生鉱物の溶解反応、二次鉱物の沈殿反応、亀裂及び岩石間隙水中での物質移動を含む複雑な現象である。桐野裕介氏は、この複雑な変質現象を実験及び反応・物質移動複合シミュレーションを用いて解明し、処分場周辺岩盤への影響評価を行った。

はじめに、 $\text{Ca}(\text{OH})_2$  水溶液中での花崗岩ブロックの加速変質実験 (80℃、1-40 日) を行った。変質実験後に花崗岩を取り出し観察した結果、花崗岩ブロック表面に多孔質なファイバー状の二次鉱物が生成している様子が確認された。この二次鉱物は走査型電子顕微鏡及び顕微ラマン分光装置を用いた分析の結果、一部の Si を Al で置換したジェナイト様鉱物 ( $\text{Ca}_9\text{Si}_6\text{O}_{16}(\text{OH})_{10}\cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ) であることが分かった。また反応溶液を分析した結果、Ca 濃度の減少及び Na・K・Al 濃度の増加がみられた。一方で Si 濃度は変質実験 1 日目までは増加したが、それ以降では減少した。これらの濃度変化を解析した結果、ジェナイト様鉱物の沈殿速度は速く、初生鉱物の溶解と岩石間隙水中の溶存 Si の拡散過程がジェナイト様鉱物の沈殿過程を律速していることが分かった。さらに主な Si の供給源は曹長石及びカリ長石であることが分かった。

次に反応・物質移動複合シミュレーションを用いて、実験結果を再現するパラメータの検討を行った。その結果、実験の Na 及び K 濃度の変化を良く再現したことから、曹長石及びカリ長石に関しては稲田花崗岩のバルクの比表面積・実効拡散係数の値を用いることが適切であることが分かった。一方で、実験の Ca 濃度の変化を再現するためには、石英の比表面積・実効拡散係数は稲田花崗岩のバルクの 1/30 程度の値を持たなければならないことが分かった。またこれらのパラメータを用いた場合、ジェナイト様低結晶性カルシウム珪酸塩水和物の沈殿が確認され、実験と調和的な結果となった。したがって長石は比表面積・実効拡散係数を稲田花崗岩のバルクの値、石英は 1/30 の値を用いることで、固相・液相とも実験を再現できることが分かった。

さらに変質実験を再現したパラメータを用いて、処分場環境下 (40℃) での変質現象の計算を行っ

た。その結果、主に亀裂表面から 1mm 以内の曹長石から Si が供給され、亀裂表面でジェナイト様鉱物が沈殿すると予測された。また亀裂に沿った方向への変質範囲は岩盤の規模に比べて非常に小さく、放射性廃棄物の地層処分へのアルカリ変質の影響は限定的であることが分かった。

以上のように、桐野裕介氏は、セメント起源の高アルカリ性  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  水溶液と花崗岩の相互作用という複雑な現象を、実験及び反応・物質移動複合シミュレーションを用いて定量的に解明し、放射性廃棄物の地層処分へのアルカリ変質の影響を定量的に予測することに成功した。特に、岩石の組織を考慮した岩石のアルカリ変質現象の評価は世界初である。

よって、本論文は博士 (理学) の学位論文として十分価値あるものと認める。