

氏名	やまぐちてつじ 山 口 徹 治
学位(専攻分野)	博 士 (工 学)
学位記番号	論 工 博 第 3590 号
学位授与の日付	平 成 13 年 3 月 23 日
学位授与の要件	学 位 規 則 第 4 条 第 2 項 該 当
学位論文題目	STUDY ON CONTRIBUTION OF SURFACE DIFFUSION ON MASS TRANSFER OF ACTINIDES AND FISSION PRODUCTS IN GRANITE (アクチニド元素と核分裂生成物の花崗岩内拡散に対する表面拡散の寄与に 関する研究)
論文調査委員	(主 査) 教 授 東 邦 夫 教 授 森 山 裕 丈 教 授 森 澤 眞 輔

論 文 内 容 の 要 旨

本論文は、高レベル放射性廃棄物処分の安全評価において、処分場から漏洩した放射性核種の岩盤内での移行を予測する際の評価因子である健全な岩石内における拡散現象に関し、その物質移行のしくみ、特にその移行を促進する表面拡散現象について実験的に検討したものであり、9章からなっている。

第1章は序論であり、本研究の背景として、高レベル放射性廃棄物地層処分の安全評価において、処分場から漏洩する放射性核種の岩盤内における移行挙動を予測するために、岩石内における放射性核種の拡散のしくみを理解し、拡散係数を知ることの必要性を述べている。また既往の研究において、岩石内拡散に対して表面拡散が寄与するらしいとの報告があるもののその証拠が得られていないこと、アクチニド元素の岩石内拡散については拡散のしくみを議論するにたえるデータすらほとんど無いことを述べ、本研究のねらいを提示している。

第2章は、日本でよく知られた花崗岩の一つである茨城県稲田産花崗岩についての、イオンの拡散経路となる間隙構造解析について論じている。間隙が鉱物粒界に存在することを示すとともに、そのサイズ分布及び全間隙率を明らかにしている。花崗岩内におけるイオンの拡散現象にフィックの法則が適用できることを明らかにしている。

第3章は、稲田花崗岩内における HTO, I^- , Cs^+ , Ba^{2+} , Sr^{2+} , Mg^{2+} , Co^{2+} , Ni^{2+} 及び UO_2^{2+} の有効拡散係数を測定し、バルク溶液中における拡散係数と正の相関があることから、これらのイオンが岩石内の間隙を満たす水の中を拡散(細孔拡散)することを示している。一方、 Sr^{2+} については岩石への吸着がある場合に細孔拡散モデルから予想されるよりも大きい拡散フラックスが見られたことから、吸着された状態での Sr^{2+} の拡散(表面拡散)の寄与を示唆している。

第4章は、 Sr^{2+} が花崗岩に吸着する条件下で拡散試験を行い、分配係数と拡散係数との関係を定量的に検討している。吸着された状態では Sr^{2+} は拡散しないと仮定する細孔拡散モデルでは、 Sr^{2+} の拡散挙動を説明できないことが明らかになり、前章に続き表面拡散の寄与が示唆されている。

第5章は、稲田花崗岩中における Ba^{2+} の透過拡散試験を行い、分配係数が小さい条件では細孔拡散モデルから予想されたとおりの拡散フラックスとなるのに対し、分配係数が大きい条件ほど拡散フラックスが大きくなることを示した。花崗岩の間隙構造には差がないため、細孔拡散だけではこのような差は生じない。拡散フラックスが分配係数に対して正の相関を持っていることは、岩石内における拡散に表面拡散が有意に寄与することを明示した。

第6章は、稲田花崗岩中におけるヨウ素イオンの拡散係数をいくつかの条件下で取得し、トリチウム水の拡散係数を基に細孔拡散モデルで予測される値と一致することを示している。ヨウ素イオンのような陰イオンの岩石内拡散が細孔拡散モデルに従うことは、負電荷を持つアクチニド元素の錯イオンの岩石内拡散のしくみを考える上で重要な知見となっている。

第7章は U, Np, Pu の炭酸錯体について花崗岩内有効拡散係数を取得し、細孔拡散で説明できる値であることを示している。また、Pu, Am について、岩石への分配係数が大きい条件でも拡散速度は非常に遅いことを示している。これらの結果から、アクチニド元素の炭酸錯体の岩石内拡散において、表面拡散の寄与は無視できる事を明らかにしている。

第8章は、アクチニド元素の炭酸錯体の花崗岩内拡散試験において、Np, Puの溶存化学種を推定するために必要な熱力学データについて論じている。炭酸イオン共存系におけるPu(IV)の溶存種を推定するためには、既存のデータは不十分であったため、実験を行って平衡定数を取得している。全炭酸イオン濃度 $10^{-4} \sim 10^{-1} \text{ mol kg}^{-1}$ の条件下で2種類のヒドロキソ炭酸錯体が生成することを示し、それぞれについて平衡定数を取得している。これらのデータを取り入れて熱力学データベースを編集し、拡散試験溶液中における溶存化学種の推定を可能にしている。Npについては文献調査によりデータベースを編集し、溶存化学種の推定を可能にしている。

第9章は結論であり、本論文で得られた成果について要約している。

論文審査の結果の要旨

本論文は、高レベル放射性廃棄物処分の安全評価において、処分場から漏洩した放射性核種の岩盤内での移行を予測する際の評価因子である健全な岩石内における拡散現象に関し、その物質移行のしくみ、特にその移行を促進する表面拡散現象について実験的に検討したものであり、得られた成果は以下のようにまとめられる。

- 1) 代表的な花崗岩の一つである茨城県稲田産花崗岩を試料として用い、その間隙構造を解析し、花崗岩内におけるイオンの拡散現象にフィックの法則が適用できることを、実験によっても明らかにした。
- 2) 花崗岩内におけるHTO, I^- , Cs^+ , Ba^{2+} , Sr^{2+} , Mg^{2+} , Co^{2+} , Ni^{2+} 及び UO_2^{2+} の有効拡散係数を測定し、バルク溶液中における拡散係数と正の相関があることから、これらのイオンが岩石内の間隙を満たす水の中を拡散(細孔拡散)することを示した。一方、 Sr^{2+} については岩石への吸着がある場合に細孔拡散モデルから予想されるよりも高い拡散フラックスが見られたことなどから、吸着された状態での Sr^{2+} の拡散(表面拡散)の寄与を示唆した。
- 3) 稲田花崗岩中における Ba^{2+} の透過拡散試験を行い、分配係数が小さい条件では細孔拡散モデルから予想されるとおりの拡散フラックスとなるのに対し、分配係数が大きい条件ほど拡散フラックスが大きくなることを示した。花崗岩の間隙構造には差がないため、細孔拡散だけではこのような差を説明することは出来ない。拡散フラックスが分配係数に対して正の相関を持っていること等から、岩石内における拡散に表面拡散が有意に寄与することを明らかにした。
- 4) アクチニド元素U, Np, Puについて花崗岩内有効拡散係数を測定し、細孔拡散で説明できることを示した。また、Pu, Amについて、岩石への分配係数が大きい条件でも特に大きな拡散係数をとらないことを示した。これらの結果から、アクチニド元素の花崗岩内に於ける表面拡散の寄与は無視できる事を明らかにした。

以上、要するに本論文は、健全な岩石内をイオンが拡散する現象において、その拡散に対する表面拡散の寄与を明らかにすることによって、岩盤内における放射性核種などの物質移行挙動を定量的に評価することを可能にしたものであり、学術上、実際上寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士(工学)の学位論文として価値あるものと認める。また、平成13年2月19日、論文内容とそれに関連した事項について諮問を行った結果、合格と認めた。