



Title	高アルカリ環境における二次鉱物の生成に関するナチュラルアナログ研究 [全文の要約]
Author(s)	新橋, 美里
Description	この博士論文全文の閲覧方法については、以下のサイトをご参照ください。 https://www.lib.hokudai.ac.jp/dissertations/copy-guides/
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(工学)
Dissertation Number	甲第14889号
Issue Date	2022-03-24
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/85398
Type	doctoral thesis
File Information	Misato_Shimbashi_summary.pdf



高アルカリ環境における二次鉱物の生成に関するナチュラルアナログ研究
(Natural analogue study on secondary minerals
formed under highly alkaline conditions)

氏名 新橋 美里

放射性廃棄物処分では、放射性物質を隔離するために廃棄物の周囲に人工バリア材料が設置される。人工バリア材料のひとつにベントナイトを主とする材料が使用され、放射性核種の移動媒体である地下水の流れを抑制するバリア性能が期待されている。同じく人工バリア材料として用いられるセメント系材料は、変質によりアルカリ環境を生じさせる。これにより、隣接するベントナイトのアルカリ変質反応が起こり、期待されているバリア性能が低下することが懸念されている。そのため、ベントナイトのアルカリ変質反応を理解することが重要である。ベントナイトのアルカリ変質反応には、ベントナイト構成鉱物の溶解や二次鉱物の生成といった反応プロセスが含まれている。二次鉱物の生成反応はベントナイトの変質反応の進む速度に影響を与えるため、アルカリ環境で生じる二次鉱物の鉱物種を把握することが重要である。

ベントナイトのアルカリ変質反応を評価すべき期間は長期に渡り、想定すべき化学条件も多様である。そのため、室内試験や原位置試験、ナチュラルアナログ (NA) 研究といった異なる研究方法から得られた知見を組合せ、長期間・多様な化学条件におけるベントナイトのアルカリ変質反応を理解することが重要である。そこで、本研究では、二次鉱物が生成する化学条件が放射性廃棄物処分施設との類似性を有する天然事象を調べた。これにより、放射性廃棄物処分でのベントナイト周辺で想定されるアルカリ変質反応によって生成する二次鉱物に関して理解することを目的とした。

第 2 章では、反応に寄与する一次鉱物の鉱物種ではなく、二次鉱物が生成する化学条件の類似性に着目するという観点で、天然のアルカリ環境において生成する二次鉱物の反応に関するレビューをした。また、理解すべき天然事象の知見の抽出を行った。具体的には、高温熱変成を受けた泥灰岩付近、オフィオライト岩体付近、アルカリ塩湖の各サイトにおける低温・アルカリ環境下での地球化学反応に関してレビューした。その結果、セメント系材料との界面近傍から遠方におけるベントナイトのアルカリ変質反応の各プロセスと類似性を有する NA 研究の知見を整理することが出来た。また、上記の整理から、Ca-OH

タイプのアルカリ水に伴う地球化学反応の理解が重要であると考えられた。

第3章では、pH 11以上のCa-OHタイプのアルカリ水の産出が報告されていたフィリピンパラワン島ナラ地区のNA研究サイトとしての成立性を調べた。パラワンオフィオライトの基盤岩の上部に広がる扇状地にて、トレンチやドリルホールを掘削し採取した試料を、各種分析に供した。その結果、ここの地下環境では、Ca-OHタイプのアルカリ地下水と堆積物が反応しており、異なる種類のシリケート水和物が生成していることが分かった。このシリケート水和物が生成する反応は、放射性廃棄物処分施設におけるベントナイトのアルカリ変質反応プロセスの一部に類似すると考えられたため、本調査地はNA研究サイトとして有用であると考えられた。

第4章では、堆積年代・堆積環境といった調査地の環境変遷を理解するとともに、一次鉱物・二次鉱物の空間分布を把握することにより、シリケート水和物の生成環境を理解することを目的として分析を行った。その結果、本調査地では約15,000年の間に堆積物が徐々に堆積し、堆積環境は海水域から淡水域に変遷したことが示唆された。また、シリケート水和物の鉱物種は、堆積環境の変化に伴う地下水質の変化によって決まっていると考えられた。具体的には、Fe-Mg-Si相と14 Åトバモライトはアルカリ地下水と堆積物の相互作用により生成した一方で、ノントロナイト様鉱物は表層からの海水浸透の影響を受けた状態でアルカリ地下水と堆積物が相互作用することにより生成したものと推定した。

第5章では、Fe-Mg-Si相やノントロナイト様鉱物の鉱物学的特徴を明らかにし、さらには、その鉱物学的特徴から、Fe-Mg-Si相やノントロナイト様鉱物の生成過程について理解することを目的とした。Fe-Mg-Si相はTetrahedral—Octahedral—Tetrahedral (TOT)層の層間に、不完全な水酸化物シートと交換性陽イオンが存在している構造の鉱物であった。Fe-Mg-Si相が有するFeは元々2価であったと推察された。また、アルカリ地下水と堆積物の相互作用によりFe-Mg-Si相の特徴が徐々に変化し、その後、酸化が起きたことが考えられた。一方、ノントロナイト様鉱物は、Mg含有ノントロナイトの層間に一部水酸化物シートが存在している鉱物であった。ノントロナイト様鉱物は、Fe-Mg-Si相とは異なる化学環境、かつ、溶存Fe³⁺イオンやMgイオンの存在下において生成したことが示唆された。

第6章では、ベントナイト系材料のアルカリ変質実験に関する既往の知見をレビューし、天然事象と実験的検討から得られた知見を統合することにより、放射性廃棄物処分施設におけるベントナイトのアルカリ変質反応において考慮すべき二次鉱物の鉱物種やその変遷時期を理解した。ベントナイトのアルカリ変質に関する解析的な検討は、目的に応じ

て様々な想定（鉱物組成、化学環境、温度、評価期間など）で実施される。この想定に応じて、本研究で得られた知見を解析的検討で使用する場合の留意点についても取り纏めた。

第 7 章は本研究全体の結論である。本研究では、放射性廃棄物処分施設のベントナイト周辺で想定されるアルカリ変質反応、特に、二次鉱物の生成反応に関して理解した。実験的検討で得られた知見のみから二次鉱物の設定の妥当性説明をする場合に生じる不確実性に対して、本研究では、NA研究で得られた知見を組み合わせることにより、上述の不確実性低減に貢献した。これにより、ベントナイトのアルカリ変質反応に関する解析的な検討の信頼性向上に資することができた。