

原環センター トピックス

RADIOACTIVE WASTE MANAGEMENT FUNDING AND RESEARCH CENTER TOPICS

2011.7.NO.98

目 次

センターの活動状況	①
セメントーベントナイト相互作用のナチュラルアナログ調査	②

センターの活動状況

I 運営状況

第5回理事会開催

平成23年6月9日開催の第5回理事会において、平成22年度事業報告及び決算、平成23年度再処理等資金管理業務に関する事業計画及び収支予算の変更等について付議し、それぞれ原案のとおり承認されました。

第4回評議員会（定時）開催

平成23年6月24日開催の第4回評議員会（定時）において、平成22年度事業報告及び決算について報告するとともに、平成23年度再処理等資金管理業務に関する事業計画及び収支予算の変更並びに理事及び監事の選任について付議し、それぞれ原案のとおり承認されました。

今回の選任により、次の方々が交代しました（平成23年6月24日付。一部同年同月30日付）。

（敬称略）

区 分	退 任 者	新 任 者	新任者所属・役職
常務理事(常勤)	塩田 修治	藤田 元久 (23.6.30付)	
理事(非常勤)	堀井 秀之	松本 史朗	埼玉大学 名誉教授
監事(非常勤)	森本 浩志 (23.6.30付)	濱田 康男 (23.6.30付)	日本原子力発電（株） 取締役社長

セメントーベントナイト相互作用のナチュラルアナログ調査 ーフィリピン国ルソン島北西部におけるナチュラルアナログ調査の概要ー

はじめに

多重バリアシステムを基本とする地層処分において、地層処分システムの安全性に必要な長期間の性能評価を行うため、将来生じることが予測される現象に類似した天然現象（ナチュラルアナログ：Natural Analogue (NA)）を見出し、その現象の機構やもたらされた結果を、わが国の地層処分事業における一般国民の合意形成をはかる上で、その安全性を説明する論拠（セーフティケース）の一つとして活用する情報として示すことを目的として、原環センターではNA調査を実施している⁽¹⁾。本報告では、我が国の地層処分概念において様々な安全機能が期待されるベントナイトと操業上の安全性や処分概念の実現性のため使用されるセメント材との相互作用のNAとして、フィリピンの高アルカリ地下水とベントナイトとが近接する地域で実施している調査の概要について紹介する。

なお、本調査研究は、経済産業省資源エネルギー庁の委託事業「放射性廃棄物重要基礎技術研究調査」の一部として実施したものである。

1. ナチュラルアナログの概要と調査地の選定

(1) ベントナイトーセメント材の相互作用とナチュラルアナログ

ベントナイト緩衝材は人工バリアシステムの核種移行評価にとって最も重要な構成要素であり（図1参照）、ベントナイト自身の基本的な性能を確保するという点で、ベントナイトとセメント材の相互作用問題は特に重要である。この相互作用におけるキーププロセスとしては、ベントナイト（主にモンモリロナイト＜スメクタイト族粘土鉱物；以下スメクタイトと呼ぶ＞）がセメント系材料から溶出する高アルカリ地下水（間隙水）によるスメクタイトの変質反応（Ca型化、二次鉱物の生成、CSH化やゼオライト化など）により、ベントナイトはその膨潤性が低下し、また、間隙水中の塩濃縮の結果セメンテーションや亀裂が発生し、人工バリアシステムの劣化を引き起こすことが指摘されている^{(2),(3),(4)}。

このような高アルカリ浸出水の影響による緩衝材の変質に関する個別現象については多くの研究が実施されており^{(5),(6)}、それらの成果を基に処分場の性能評価が行われてきた^{(4),(7)}。さらに、上記短期間の試験では得られていなかった現象や、長期予測によって得られたセメント系材料と緩衝材との相互作用による変質（接触面近傍での2次鉱物の生成など）についても、比較的長期間の確証試験によってその一

部が確認されてきている^{(8),(9)}。しかし、これらは実験室で得られたデータを入力情報として得られた解析結果、及び、その解析結果に関して小規模な試験体系で数年～10年程度の間に確認したものであり、処分場における数万年以上にわたる人工バリア材の長期挙動を確証することは困難である。

このような状況において、NA手法により長期挙動の証拠を収集し、これによるモデルやそのパラメータの最適化等を行うことで長期の安全評価のサポートができると考えている^{(10),(11)}。しかし、高アルカリ地下水とベントナイトが共存する環境は世界中でも極めて限定された場所にしか存在せず、ベントナイトやスメクタイトを含む堆積層（粘土層）のアルカリ変質に関するNA研究は近年になって検討され始めているが^{(12),(13),(14)}、天然環境でのベントナイト（スメクタイト）ーアルカリ地下水の相互作用による長期のアルカリ変質現象とその地球化学的プロセスについては、まだ不明な点も多い。

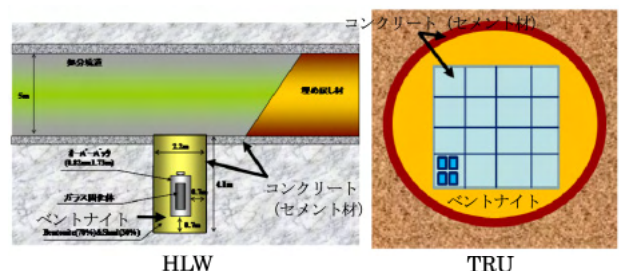


図1 地層処分場におけるベントナイトとセメント材

(2) ナチュラルアナログ調査・研究の進め方

セメント材と地下水の相互作用と同様に高アルカリ地下水の生成・流出がみられる地質環境として、オフィオライトの蛇紋岩体が知られている。その分布は世界的に特定の地域に限られるが、このオフィオライトの蛇紋岩化作用を起源とする高アルカリ地下水、還元性、発熱反応などの環境は、放射性廃棄物処分場環境と非常に類似しており、NA研究の対象の場として絶好の環境条件となっている。

そこで、本調査研究では、このオフィオライトから湧出される高アルカリ地下水に着目し、図2に示すようなオフィオライト起源の高アルカリ地下水とそれに近接してベントナイト層が存在する地質環境を有する地域を対象として、以下の手順で調査を実施することとした。

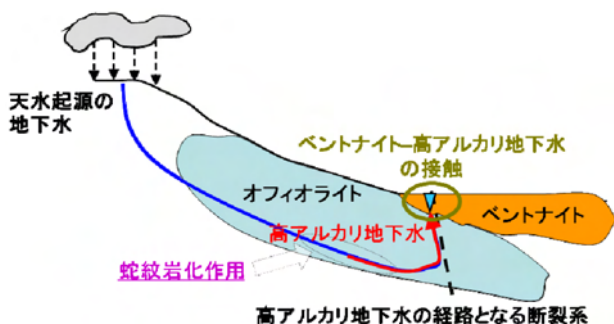


図2 オフィオライトの蛇紋岩化作用とNAの要件

第1段階としては、アナログの要件を満たす地域、すなわち高アルカリ地下水を生成するオフィオライトとベントナイト層が近接する地域の文献調査を行う。

第2段階としては、この過程で抽出された複数の候補地から、アナログの成立性を最優先とし、さらにロジスティックの有利性なども考慮して、調査対象地域を選定する。そして、対象地域の地質概査の実施計画案を作成する。その際、対象地域において予察調査を行い、その結果を実施計画案に反映させることで最適化を行う。

第3段階からが現地での本格的な調査・研究を開始するステージとなる。地質概査として、地質調査、地下水調査、及び本事業では高アルカリ地下水の湧出が断裂系に規制されることから断裂系調査を行い、高アルカリ地下水とベントナイト層が接触するアナログサイトを選定する。また、岩石鉱物学的調査、岩石化学的調査を実施して、ベントナイト層や高アルカリ地下水の基本特性、環境条件に係わる基礎データを取得する。

第4段階では、第3段階で選定されたアナログサイトでのトレンチ及び試錐を実施して、ベントナイト-高アルカリ地下水の相互作用及びその生成、環境条件に関する詳細な調査を実施する。ここでは、ベントナイト層と高アルカリ地下水の接触について2つのアナログタイプを設定した。1つは、過去にベントナイトと高アルカリ地下水と接触していたが高アルカリ地下水が何らかの理由で枯れて現在は存在していない場所である“Fossil Type”のNAサイト、もう一方は、現在もベントナイトと高アルカリ地下水が接触している場所である“Active Type”のNAサイトである。Active Typeのサイトにおいては、流出している地下水の採水・モニタリングが可能な構造試錐の実施もこの段階で検討する。これらの現地での調査結果を踏まえ、現象モデル（ベントナイトのアルカリ変質鉱物の生成シナリオ）の作成を行う。

最後の第5段階では、作成した現象モデルに基づいて性能評価で用いる数値モデルにより数値解析を行い、ベントナイトの長期的アルカリ変質プロセスの現象理解とその性能評価に関する数値モデルの検証を行う。さらに、その変質現象のベントナイトの長期健全性への影響を評価し、セーフティケースの一部として取りまとめる。

なお、セメント-ベントナイト相互作用のNAは、平成18年度までの検討において、既存のNA研究の文献を解析した結果、新規に展開すべき重要テーマとして選定されたテーマである（RWMC, 2006）⁽¹⁵⁾。この結果を踏まえ、本調査研究は平成19年度より開始しており、図3にその全体計画を示す。



図3 全体計画

(3)調査地の選定

文献調査の結果、オフィオライトは、世界中の沈み込み帯で特徴づけられるテクトニクス場に広く分布するが、活発な蛇紋岩化作用を伴う比較的新しい時代のオフィオライトを対象に文献調査を行った

結果、その分布地域は限定されており、特に東アジアでは、フィリピンに分布することが判明した。さらに、ベントナイト鉱床は、中国、韓国及びフィリピンにも分布するが、オフィオライトの存在と重なるのはフィリピンのみであった（図4参照）。また、

フィリピンは島弧型の変動帯に属し、日本のテクニクス場と酷似しており、これらの理由から本NAの候補地としてフィリピンを選定した。

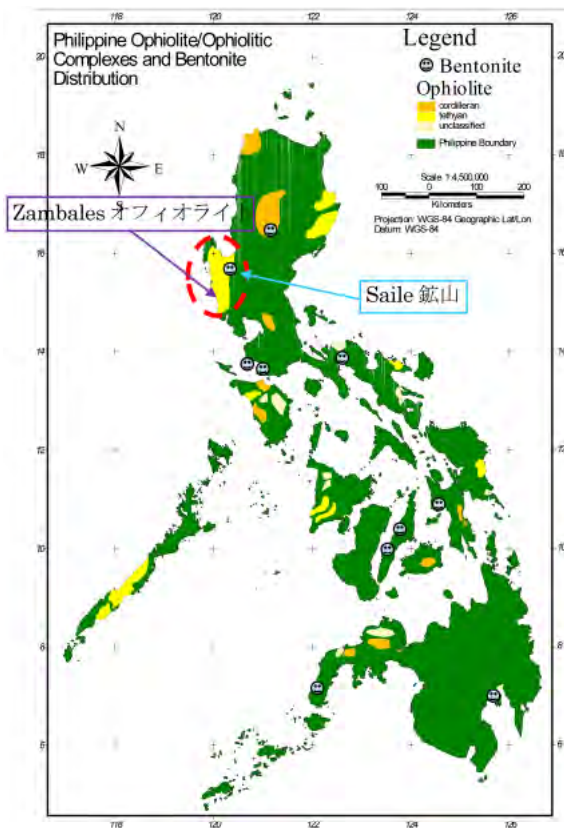


図4 フィリピンのオフィオライトとベントナイト鉱床の分布

2. フィリピン国ルソン島北西部の地質概要

ルソン島北西部には、Zambales オフィオライトが広く分布する。Zambales オフィオライトは、古第三紀・始新世中期に形成され、年代の古い順に、カンラン岩 (Peridotites) - 斑レイ岩 (Gabbro) - 輝緑岩岩脈 (Diabase Dike) - 玄武岩質枕状溶岩 (Basaltic Pillow Lava) - 堆積層 (Aksitero Formation (以下Fm)) で構成される (図5参照)。このうち、Mangatarem地域にはZambalesオフィオライト (Gabbro、Diabase、Pillow LavaとBasalt) が基盤岩として分布し、その後堆積した地層 (Aksitero Fm、Moriones Fm)、第四紀の地層 (安山岩質円頂丘、Alluvium) が分布している。Aksitero Fmは深海底石灰質堆積物であり、このうちの凝灰岩質碎屑物を原岩とするベントナイト層が存在する。その主成分鉱物はCaスメクタイトである。従って、NAサイトとしてオフィオライト起源の高アルカリ地下水との接触を考えると、基盤岩上部の枕状溶岩と整合関係にあるAksitero Fmと接触する場所が好都合なサイトであり、現在、①Saile 鉱山とその周辺地区 (Mangatarem地域)、②Bigbiga

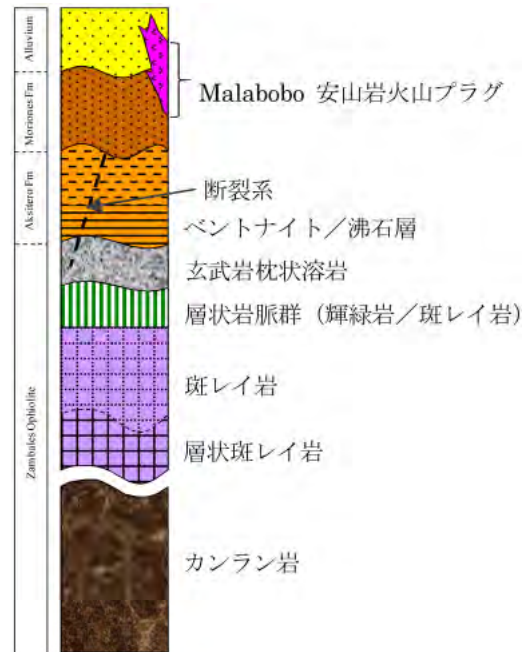


図5 Zambalesオフィオライトの火成層序

地区、③Poonbato地区において調査を実施している。

①Mangatarem地域には、Aksitero Fmを胚胎母層とするベントナイト・ゼオライトの鉱床 (Saile 鉱山) が存在するとともに、その西3kmにはManleluag温泉保養地が存在しており、ここでは断裂系に沿って高pHかつ高還元状態の温水が湧出している。鉱山のオープンピット石切り場 (Quarry) の露頭では、図7のようにゼオライト層と互層関係にある水平に分布するベントナイト層、それらの層を切る複数の断裂系が観察できる。これらのことから、枕状溶岩の亀裂部との接触地点で高アルカリ地下水と接触しているベントナイトの存在が期待される候補サイトである。

②Bigbiga地区はSaile 鉱山の南20kmに位置し、玄武岩質自破碎溶岩・枕状溶岩と整合関係にあるAksitero Fmが累重しており、Saile 鉱山とその周辺地区と類似した地質であるが (図8参照)、Aksitero Fmは石灰質泥岩/シルト岩が多いことが特徴である。また、Aksitero Fmの露頭の近傍にはpH9を超えるアルカリ地下水の揚水井が存在しており、この地区も高アルカリ地下水とベントナイトとの接触が期待される (特にActive TypeのNAの可能性が高い) 候補サイトである。

③Poonbato地区はSaile 鉱山の南西50kmの南シナ海沿岸に位置し、オフィオライト本体のカンラン岩等の超塩基性岩が河川沿いの露頭で観察できる。そのため、当地域の地下水のpHは11.7と最も高く、高アルカリ地下水の湧出点では、図9のようなカンラン岩の亀裂への蛇紋石と方解石の生成、天然コンクリートの生成等の高アルカリ地下流出に伴う典型的な現象が観察される。セメントとの相互作用の理解おい

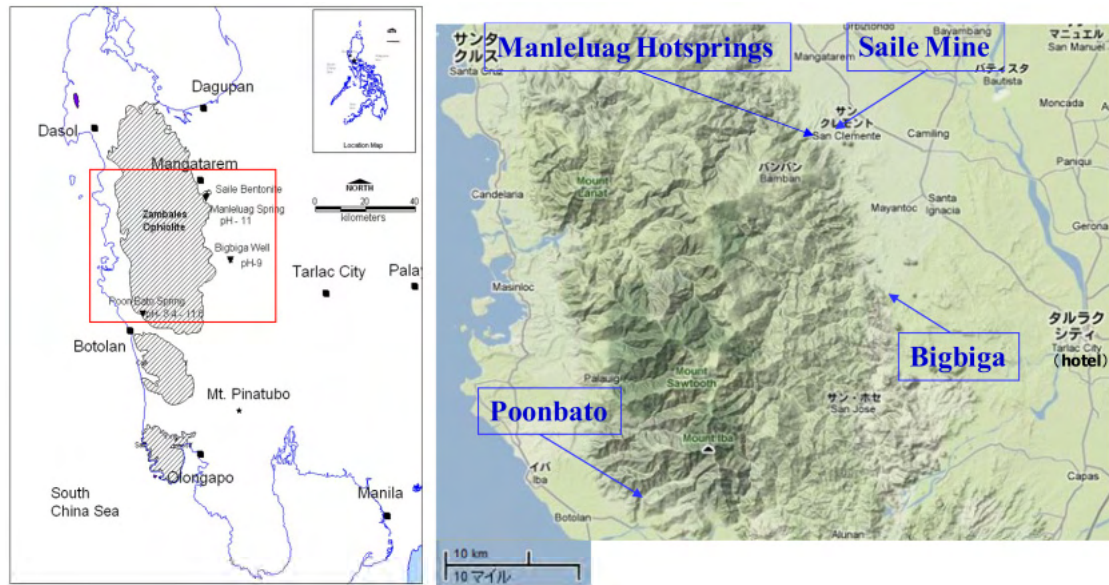
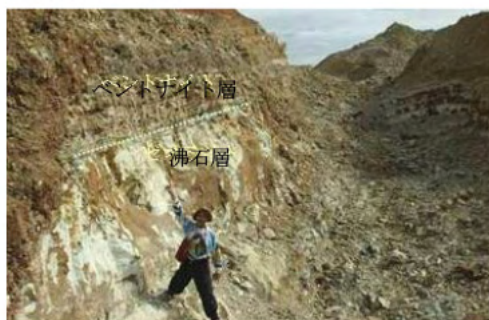


図6 ルソン島北西部の調査地域の位置図



(a) Quarry の全体写真と断裂系 (背後は Malabobo 安山岩火山プラグ)



(b) ベントナイト層、沸石層の互層関係

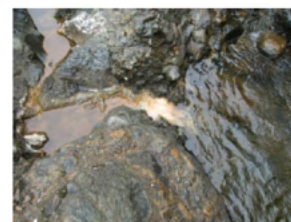


(c) Quarry の断裂系(F3)とベントナイト層、沸石層

図7 Saile鉱山オープンピットQuarryの露頭



図8 Bigbicaの空中写真と地質概要



(a) 高アルカリ地下水の湧出点(pH11.7)



(b) 蛇紋岩化作用の痕跡



(c) 天然コンクリート



(d) Tufa (石灰華: 多孔質炭酸石灰の沈殿物)

図9 Poonbatoの露頭

てpHが高い環境は非常に有望であるが、近傍にはベントナイト層やその原岩となる凝灰岩質堆積物はまだ確認されていない（但し南東35kmにはピナツボ火山が存在する）。

3. 高アルカリ地下水の地球化学的特性

ルソン島北西部ではZambalesオフィオライトの蛇紋岩化作用による高アルカリ地下水の湧出地点が存在する。ここでの蛇紋岩化作用とは、オフィオライト中の超塩基性岩（主にカンラン石や輝石の苦鉄質鉱物）と地下水との反応（①カンラン石の溶解、②輝石の溶解、③蛇紋石の生成、④炭酸塩の生成、⑤（CH₄, H₂）ガスの発生、⑥蛇紋石の溶解の一連の反応）により、発熱、高アルカリ性、還元性の地下水環境が生成されることである。

調査サイトに存在する地下水の地球化学的特性を表1にまとめる。これらの地下水のpHや主要な溶存イオン種と濃度は低アルカリセメントの浸出水と類似している⁽¹⁶⁾。また、地下水の環境同位体（酸素・水素同位体比：δD-δ¹⁸O）測定の結果から、図10に示すように各調査サイトの地下水がフィリピン国の天水ライン上にのる。これは、降雨水起源の地下水であることを示し、高アルカリ地下水が降雨水-オフィオライトの水-鉱物反応（蛇紋岩化作用）によって生成されたことを裏付ける。Poonbatoではカンラン岩の亀裂から高アルカリ地下水が湧出しており、当地域で最もpHが高く、またCa濃度が非常に高い。また、CH₄、H₂ガスのバブリングが見られ、濃度も非常に高い。一方、Manleluag温泉保養地は斑レイ岩の亀裂から高アルカリ地下水が湧出しており（図11参照）、Poonbatoと同様にガスの噴出を伴うが、

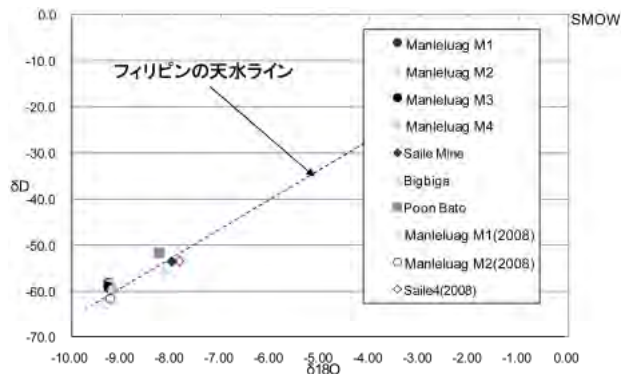


図10 地下水同位体比のδD-δ¹⁸O関係

ガス濃度及びCa濃度、pHともPoonbatoに比べるとやや低い。Bigbigaの地下水はAksitero Fmに掘削したくみ上げ井戸から採水しており、pHはやや低い9を超える。この地下水は他の地域と異なりNa濃度が高い一方Ca濃度は低い。また、表層水との混合の影響が考えられるため、深部のpHは少し高いと思われる。

Magatarem地域においては、高アルカリ泉の存在するManleluag温泉保養地の西のSaile鉱山では、pH7前後の酸化環境の浅層地下水が存在している。地下水及び河川水の地球化学特性と地質概査の結果を踏まえ、当地域の地下水流動系の概念図を図11に示す。降雨水の地下浸透として供給される深層地下水は、オフィオライト基盤岩中の高還元環境下での長時間にわたる蛇紋岩化作用の進行によって、高pH地下水と水素・メタンが生産され続け、Manleluag温泉保養地では断裂系を伝って上昇してきた裂隙水の高アルカリ泉が存在する。Saile鉱山のようにAksitero Fmが分布する地域では、ベントナイト層によってシールされた断層では、高pH地下水はオフィオライト岩体を構成する枕状溶岩との境界付近まで上昇した後に境界面に沿って流動する。またベントナイト鉱床は不透水層の役割をするために、表層部の中性の浅層地下水と深層部の高pH地下水は、互いに混合することなく独立した流動系として存在している。そして、

表1 地下水の地球化学特性

Site	Manleluag HSp. - M1	Manleluag HSp. - M2	Manleluag HSp. - M3	Saile Mine	Poonbato	Bigbiga Well	low alkali cement leachates (PNC-1997) ⁽¹⁶⁾
Sample No.	MA-10-HWP-01	MA-10-HWP-02	M3-10-HWP-03	SM-10-HWP-01	PB-10-HWP-01	BB-10-HWP-06	
pH	11.08	10.75	10.83	6.73	11.69	9.09	11.09
ORP(Eh) [mV]	-713	-682	-496	65	56	252	-
Temp [°C]	34	34.1	34	27.9	27.4	30.1	60
CH ₄ [ppm]	1140	470	2200	0	>5000	0	-
H ₂ [ppm]	150	53	230	0	50~1320	0	-
Na ⁺ [ppm]	24.0	24.9	25.1	11.4	21.6	107	43
K ⁺ [ppm]	5.24	0.764	0.045	nd	36.4	0.215	13
Ca ²⁺ [ppm]	323	68.3	95.4	84.4	182	0.599	16.8
Mg ²⁺ [ppm]	2.98	0.054	0.06	44.1	0.147	0.092	-
Al ³⁺ [ppm]	0.463	0.242	0.336	0.02	0.103	0.012	0.3
Cl ⁻ [ppm]	6.98	6.88	7.14	0.703	0.226	1.543	-
SO ₄ ²⁻ [ppm]	0.502	0.413	0.330	0.081	0	1.332	-
HCO ₃ ⁻ [ppm]	73.50	74.08	71.78	-	124.14	153.89	-

*Mix Proportion - Portland cement: silica fume: fly ash = 40: 20: 40

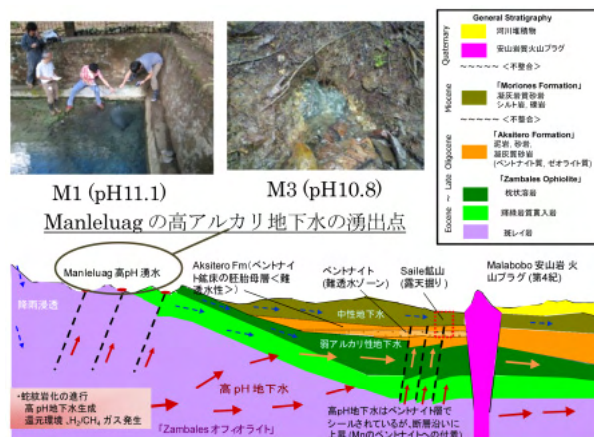


図11 Mangatarem地域の地下水の生成・流動の概念モデル

ベントナイト鉱床の下部（コンタクト）では、高pH地下水との相互作用によってアルカリ変質反応が起きている可能性が示唆され、これが現在も続いている場所がActive Typeのサイトである。

4. 高アルカリ地下水とベントナイトとのコンタクト

平成19年度の文献調査、予察調査を踏まえ、Mangatarem地域においてベントナイト層はオフィオライト複合岩体内部で生成された高アルカリ地下水と接触している可能性が高いと判断し、平成20年度よりSaile鉱山において、トレンチ調査、試錐調査等によりNAサイト選定のための調査を開始した。その結果、高アルカリ地下水とベントナイトとのコンタクトを示すいくつかの証拠が得られた。

Saile鉱山のQuarryでは、図7(a)に示すようにベントナイト層を切る7つの断裂系の存在を確認しており、断裂系（断裂帯）の充填物およびベントナイト層の層理面に平行にMn-staining（暗黒色物質の附着）が見られる特徴がある。この断裂系から試料を採取し、XRD、SEM-EDXによる分析した結果、Mn水酸

化物の一つであるマンガナイト（Manganite; $\gamma\text{-MnO}(\text{OH})$ ）が同定された。これは還元環境の高アルカリ溶液で安定であるマンガナイトが露頭でMn-Stainingとして残存したことを示しており、この断裂系が過去に高アルカリ地下水の経路となっていたことを示す。

平成20年度～22年度には、基盤岩上部の枕状溶岩とAksitero Fmとの接触部の地質鉱物学的な状況を把握することを目的として、Saile鉱山鉱区内において計8ヶ所でトレンチ調査を実施した。これらのうちトレンチ1（ST01）では、枕状溶岩とベントナイト層の接触が確認された。また、トレンチ1は断裂系そのものを掘削していたため（掘削方向が断層面に一致）、底部の断裂系充填物を採取し分析した。その結果、断裂系充填物は外側が蛇紋石、内側が方解石であることを同定した（図12(A)参照）。これは、オマーンなど高アルカリ地下水が枯れた場所によく観察される現象であり、蛇紋岩化作用による高アルカリ地下水が閉塞の最終段階で炭酸塩として沈殿したためであり、これも過去に高アルカリ地下水が断裂系

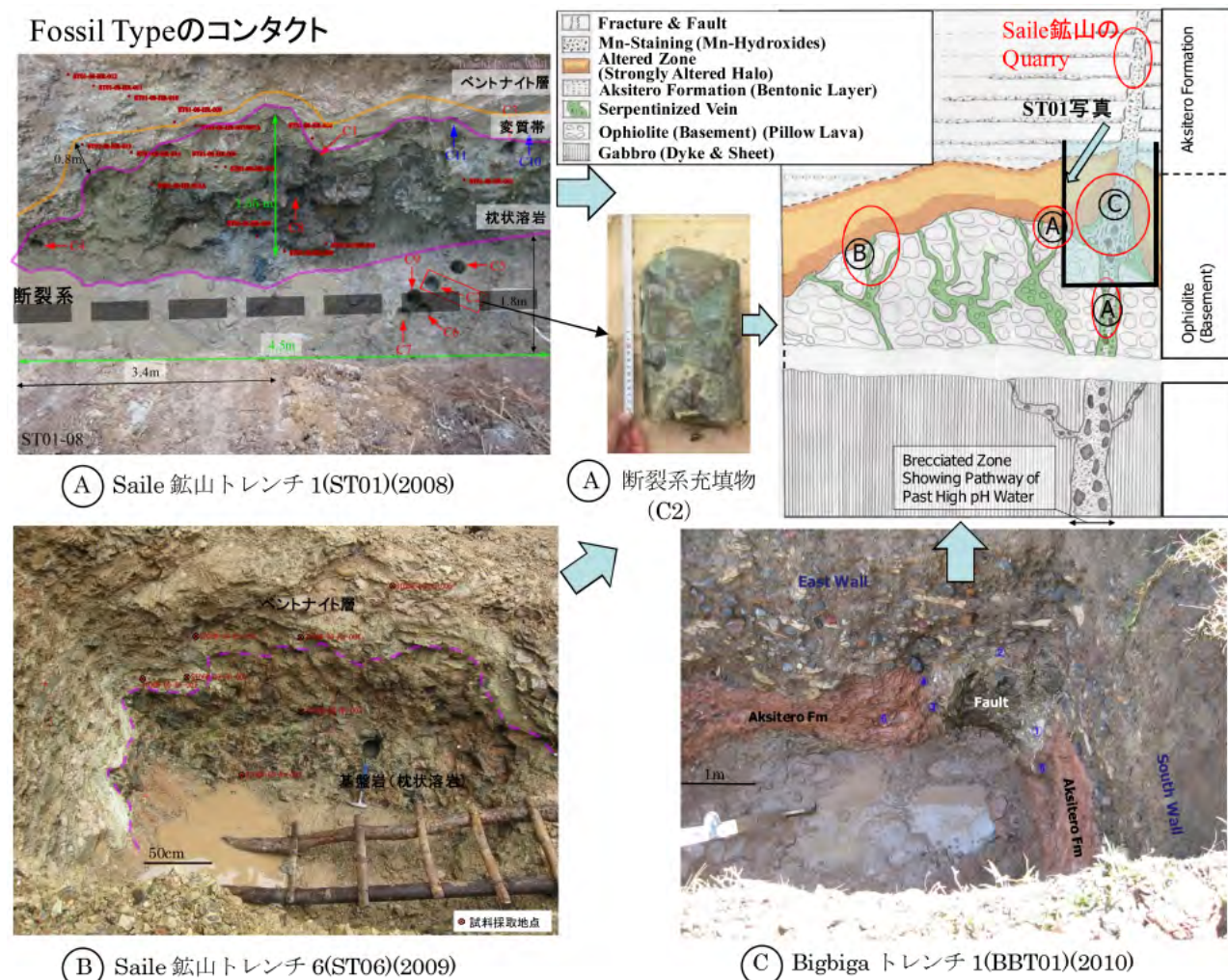


図12 Quarry及びトレンチの壁面の地質観察に基づくFossil Typeのナチュラルアナログの模式断面図

にそって来ていたことを示す証拠である。また、トレンチ5 (ST05)、トレンチ6 (ST06) でも枕状溶岩との接触が確認されたが、これらのトレンチでは、脈状の蛇紋石の充填物 (図12B)、図16(a)参照) が枕状溶岩中に形成され、ベントナイト層の接触部まで達していることを確認した。これは断層系から枝分かれした蛇紋岩化作用による高アルカリ地下水の経路であったことを示す。

Quarry及びトレンチの試料の微量成分 (希土類元素: REE) 分析からは、Quarryの断層から離れたベントナイトがフラットなパターンを示したのに対し、トレンチの枕状溶岩の接触部に近いベントナイトのパターンは左上がり、Ce正・負異常、高REE規格値で特徴づけられる。これらの特徴はQuarryの断層近くベントナイト試料にもやや弱い同様の傾向が見られ、地下水から軽希土類 (LREE) が付加され、酸化地下水との混合により $Ce^{3+} \rightarrow Ce^{4+}$, $Mn^{2+} \rightarrow Mn^{4+}$ が起こり、Ce 負異常、Ce 正異常、モンモリロナイト、Mn 鉱物へのREE の濃集が生じたためであると考えられる。すなわち、断層近くや接触部近傍のベントナイトが地下水による変質作用をより強く受けた証拠を示す。

Quarry及びトレンチの壁面の地質観察に基づく模式断面図を図12に示す。Saile鉱山では、枕状溶岩とベントナイト層が接触しており、その後にくだ断層系に沿って高アルカリ地下水が流れ、この断層系および断層系から枝分かれして枕状溶岩中の亀裂を通してベントナイトと接触したと考えられる。またベントナイトの接触部近傍の高アルカリ地下水との相互作用を受けた層を変質帯 (接触部付近は変色している層が見られるのでBleached Zoneまたは変質ハロー) と呼ぶこととした。また、Bigbicaのトレンチ1 (BBT01) においては (図12C参照)、Saile鉱山では確認できなかった、断層系がAksitero層の下部堆積層を貫いている状況を確認することができた。これらの観察結果から、Saile鉱山のベントナイトが過去に高アルカリ地下水と接触していたと考えられ、Fossil TypeのNAサイトとして要件を満たす場所であることが示された。これらの成果は、当NA調査研究のサイト選定 (1.(2)の第3段階の調査) において不可欠であり、このMangatarem地域のNAサイトにおいて、さらに詳細な調査へステップを進めるための大きな一歩となった。

5. ベントナイトのアルカリ変質反応に係わる鉱物学的地球化学的特性

ルソン島北西部のAksitero Fmのベントナイトは、凝灰岩質碎屑物を原岩とし、それが埋没過程での変質作用によって生成されたものと考えられる。このベントナイトと高アルカリ地下水との接触については4.に示した証拠により確認され、Quarryの断層系

の形状や充填物の鉱物組成からAksitero Fm堆積後に断層系が形成され高アルカリ地下水の湧水があったと思われるが、ベントナイトと高アルカリ地下水との反応において、熱水の影響がある場合は、その変質反応の解釈が複雑になる。そこで、ベントナイトの生成と環境条件について把握するため、Quarryやその周辺でのトレンチ調査などにより系統的試料採取をし、偏光顕微鏡観察、XRDによる鉱物同定を実施した。その結果、ベントナイト層には、熱水の侵入による熱水溶液との反応で生成される特徴的な変質鉱物の晶出 (産状) や変質鉱物分帯が確認されなかった。さらに、新規貫入岩の熱の影響による変質鉱物が確認されないことから、このベントナイト層は熱水作用によって生成されたものではないことが明らかになった。また、4.で説明したREE分析結果から、断層ゾーンではREEの濃集が認められるが、断層から離れたベントナイト層一沸石層では、地下水との相互作用を起こさず、原岩の特徴であるフラットで低濃度のREEパターンを示す。このことは、ベントナイト層一沸石層が、これらの地下水や熱水との反応により生成したのではないことを示唆する。また、ベントナイト層の下部で緑泥石が顕著になること、さらに、随伴する鉱物として石英やCa沸石類 (モルデナイト、クリノプチロライト等) が見られることから、このベントナイト層は、典型的な埋没・続成作用による地球化学的反應により生成されたものと考察される。

このNAのキーププロセスである高アルカリ地下水によるベントナイトのアルカリ変質反応において、変質鉱物の反応系列・経路を明らかにするために、トレンチの基盤岩との接触面近傍の変質帯から系統的に試料を採取し (図13参照)、XRDによる変質帯の鉱物組み合わせ、FESEM-EDS及びEPMAによる鉱物組成・組成変化や形状 (組織・形態など) を同定・分析すると共に、X線CT、EPMA、XRD 及びHAADF-STEM (高角度暗視野走査型透過電子顕微

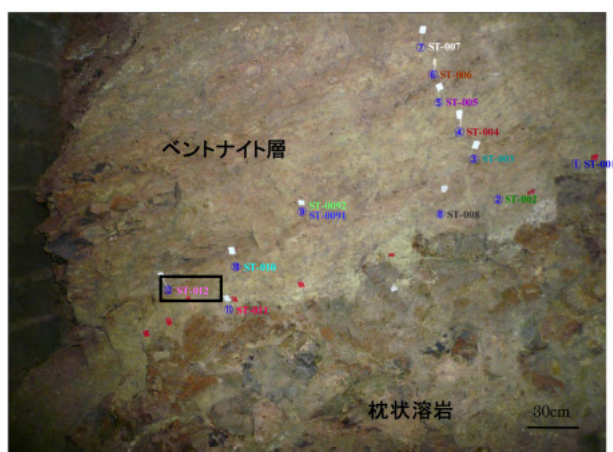
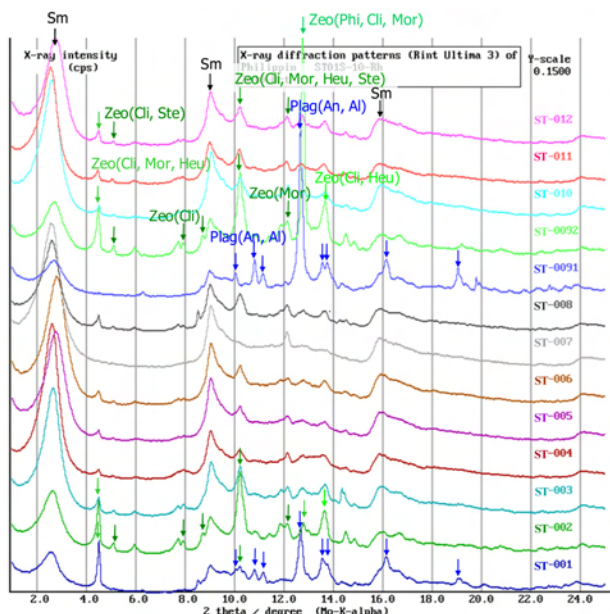


図13 試料採取位置図 (ST01南壁接触面近傍)

鏡)によるベントナイト変質領域の微細構造・組織の観察と変質鉱物の同定を実施した。

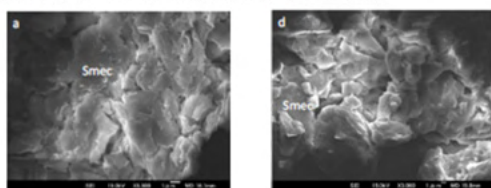
Saile鉱山のトレンチ (ST01、ST05、ST06) のベントナイト試料のXRD分析 (図14参照) からは、変質帯の一部で沸石類 (ヒューランダイト、クリノプチロライト、モルデナイト、フィリップサイト等) や方解石が同定されたが、沸石化を明確に示すような鉱物組成の変化は確認されず、接触面近傍の大部分



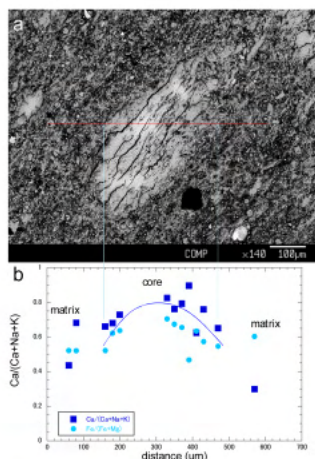
Sm: スメクタイト, Zeo: 沸石 (Cli: クリノプチロライト, Mor: モルデナイト, Heu: ヒューランダイト, Phi: フィリップサイト, Ste: ステラライト), Plag: 斜長石

図14 ベントナイト(ST01南壁)のXRDチャート

試料 ST-012 (ST01 南壁変質帯) 図 13 参照



(a) スメクタイトの産状

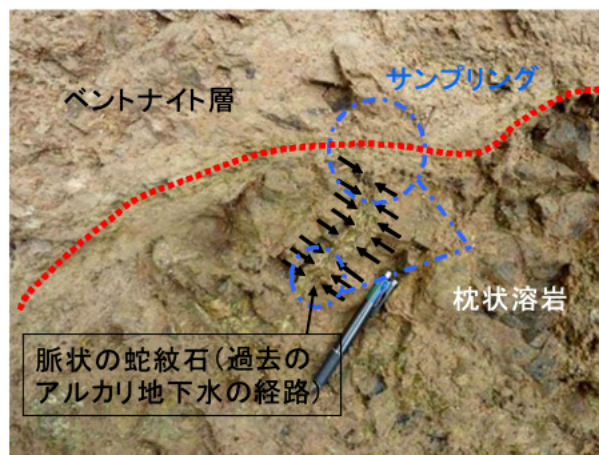


(b) スメクタイトの累帯構造と組成プロファイル

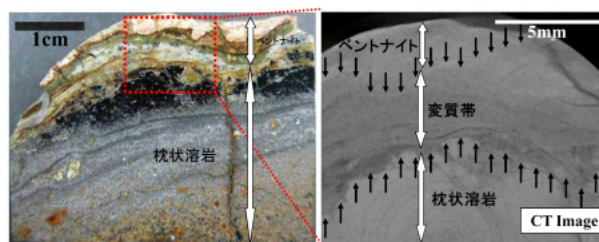
図15 ベントナイトのFESEM観察

のベントナイトの主成分はスメクタイトであった。ベントナイトの膨潤性についても、膨潤力試験結果からは明確な変化は確認されなかった。また、FESEM-EDS及びEPMAによるスメクタイトの詳細な観察から、図15に示すようなコア部がCa-richでリム部はCaが置換される傾向を示す累帯構造がしばしば見られる。これはCaスメクタイトが玄武岩一地下水相互作用による二次的かつ局部的にFeOに富む溶液との置換反応により、Caスメクタイト組成上のCa-Mg-Fe成分の特徴的なノーマル累帯構造を示したのだと考えられる。

ベントナイト変質領域の微細構造の観察・鉱物分析のために、高アルカリ地下水と接触していたFossil Typeのアナログの試料としてST05の枕状溶岩中の脈状の蛇紋石がベントナイトに達する部分から試料を採取し薄片を作成した (図16参照)。X線CT画像とEPMA及びXRDによる微細構造の観察から、最上部枕状溶岩の最外殻の玄武岩ガラス (Tachylite) が高アルカリ地下水 (溶液) との相互作用により、Fe²⁺の酸化やSi・Al・Na・Caの選択的溶脱が促され、幅最大約5mm程度の変質帯を形成していることが確認された (図17参照)。ベントナイトと枕状溶岩の境界部分では、ベントナイト側から、未変質のベントナイトー鉄の濃集部位ーベントナイトの変質領域ー枕状溶岩の変質領域ーガラス質枕状溶岩ー未変質の枕状溶岩、の部位が観察される。鉄濃集帯領域の外側のベントナイトが未変質であることは、この鉄濃集



(a) 試料採取位置図 (ST05 南西壁)



(b) 厚片試料 (左) と変質帯の CT 画像 (右)

図16 ベントナイト変質領域の微細構造の観察

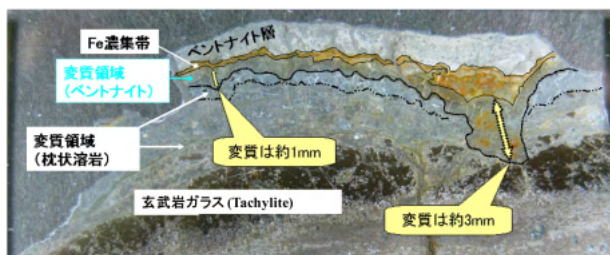


図17 接触面近傍のベントナイトと枕状溶岩の変質

帯領域がアルカリ溶液の浸出・阻止のバリアの役割をしている可能性が高いと考えられる。この鉄濃集帯をHAADF-STEMによりさらに詳細に観察したところ、結晶構造が粒状のものとその周辺の羽毛状のものをもつ特徴がみられ、電子線回折によって粒状組織では針鉄鉱（ゲータイト）、羽毛状組織ではノントロナイトが同定された。また変質ベントナイトではモンモリロナイトと沸石（クリノプチロライト、ヒューランダイト）が同定された。ただし、アルカリ変質プロセスを考察する上で、沸石化の過程でどの沸石が生成されたかについてはさらに詳細な検討が必要である。

6. まとめと今後の展望

これまでの調査研究で、フィリピンのルソン島北西部にベントナイトセメント材の相互作用とNAにおける有望なサイトの存在を確認し、Fossil Typeのベントナイト高アルカリ地下水の接触の証拠が

得られるとともに、地質、地下水調査、鉱物化学分析からベントナイトの変質プロセスに関わる重要なデータが得られた。図18にフィリピンルソン島北西部のNAサイトにおけるベントナイトのアルカリ変質プロセスを示す。

天然現象の理解に基づいて、この変質プロセスに新たな知見を付加し、または修正を加えて示すことが、最終的な目標であるセーフティケースに資する情報として取りまとめるうえで重要なステップとなる。そのために今後の課題として、NAにおいて時間スケールを把握することが不可欠であることから、年代に関する評価（ベントナイトの形成年代、断裂系の形成時期に密接に係わる高アルカリ地下水のベントナイト層への湧出時期と貯留時間）がまずはあげられる。また、NAを性能評価モデルの検証として適用することを検討するため、現在の取得データに基づくシミュレーションによる長期のアルカリ変質の評価も検討すべきと考える。さらに、ベントナイトのアルカリ変質プロセスの現象理解においては、Active Typeのコンタクトを見つけ出して観察することで、大きく進むだけでなく、安全評価の検証としてもFossil Typeに比べて直接的な情報が得られることが期待されるため、Active Typeの探査も非常に重要な課題である。

（藤井直樹）

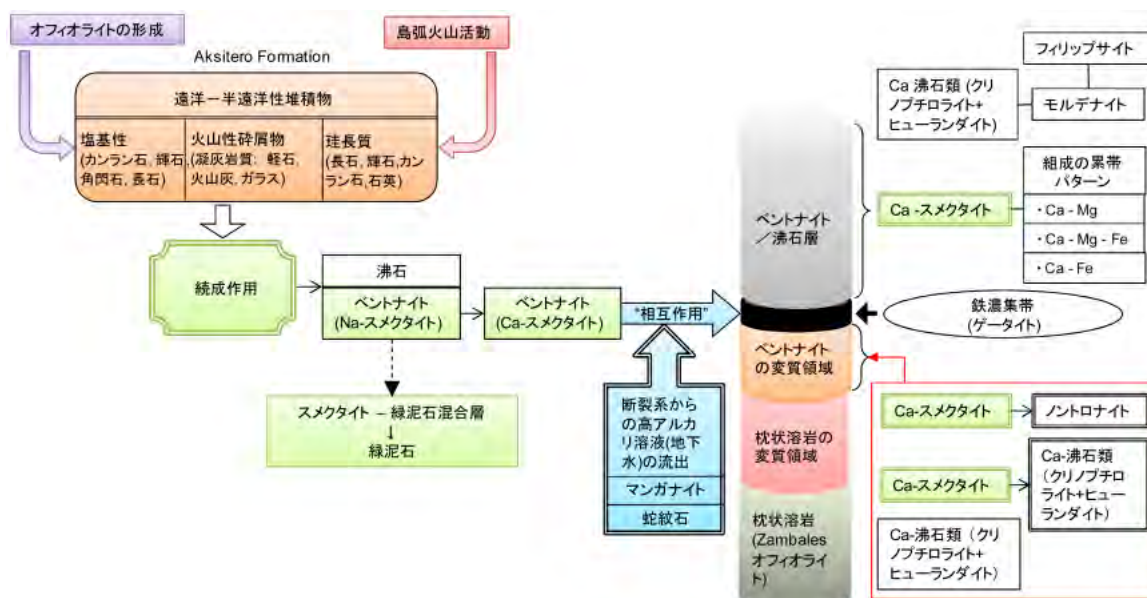


図18 フィリピンルソン島北西部のベントナイトのアルカリ変質プロセス

参考文献

- (1) (公財) 原子力環境整備促進・資金管理センター (2010) 平成21年度放射性廃棄物共通技術調査等 放射性廃棄物重要基礎技術研究調査報告書 (第4分冊) .
- (2) (財) 原子力環境整備促進・資金管理センター (2003) 平成14年度地層処分技術調査等委託費 TRU廃棄物処分技術 人工バリア長期性能確認試験 報告書 (第1分冊) .
- (3) NUMO (2004) Proceedings of the International Workshop on Bentonite-Cement Interaction in Repository Environments, NUMO-TR-04-05.
- (4) 電気事業連合会, 核燃料サイクル開発機構 (2005) TRU廃棄物処分技術検討書ー第2次TRU廃棄物処分研究開発取りまとめー, JNC TY1400 2005-013, FEPC TRU-TR2-2005-02, 2005年9月.
- (5) Johnston, R.M. and Miller, H.G. (1984) The effect of pH on the stability of smectite, AECL-8366.
- (6) 久保博, 黒木泰貴, 三原守弘 (1998) ベントナイト系緩衝材のコンクリート間隙水による長期変質の基礎研究, 地盤工学会誌, 46(10), 31.
- (7) 共同作業チーム (2000) TRU廃棄物処分概念検討書, 電気事業連合会, JNC TY1400 2001-001, TRU TR-2000-01.
- (8) (財) 原子力環境整備促進・資金管理センター (2007) 平成18年度地層処分技術調査等委託費 TRU廃棄物処分技術 人工バリア長期性能確認試験 報告書.
- (9) (財) 原子力環境整備促進・資金管理センター (2009) 平成20年度地層処分技術調査等委託費 TRU廃棄物処分技術 人工バリア長期性能評価技術開発 報告書 (第1分冊) .
- (10) 山川稔 (2008) ナチュラルアナログの再評価ーベントナイトの長期健全性へのアプローチー, 原環センタートピックス, 87, 4-8.
- (11) 吉田英一, 北山一美, 佐藤努 (2010) ナチュラルアナログ; 自然に学ぶ地層処分 数万年先を予測する工学技術とは? 第1回. 日本原子力学会誌, 52(8), 31-35.
- (12) 小田治恵, Savage, D., Steven, B., Claire, W., 高瀬博康 (2008) 緩衝材のアルカリ変質評価研究における天然事例の適用; カリフォルニア・サールスレイクの事例(2) 地球化学・物質移動連成モデル, 日本原子力学会 2008年春の年会, H47.
- (13) (公財) 原子力環境整備促進・資金管理センター (2010) 平成21年度地層処分技術調査等委託費 TRU廃棄物処分技術 人工バリア長期性能評価技術開発 報告書 (第1分冊) .
- (14) Alexander, W.R. and Milodowski, A.E. (2011) Cyprus Natural Analogue Project (CNAP) Phase II Final Report, Posiva Working Report 2011-08.
- (15) (財) 原子力環境整備促進・資金管理センター (2006) 平成17年度地層処分技術調査等 性能評価高度化 報告書 (第3分冊) .
- (16) 入矢桂史郎, 新村亮, 久保博, 黒木泰貴 (1997) 人工バリア材の変質に関する研究, 動力炉・核燃料開発事業団報告書, PNC TJ1201 97-001.

編集発行

公益財団法人 原子力環境整備促進・資金管理センター

〒104-0052 東京都中央区月島1丁目15番7号（パシフィックマークス月島8階）

TEL 03-3534-4511（代表） FAX 03-3534-4567

ホームページ <http://www.rwmc.or.jp/>