

平成 28 年度

地層処分技術調査等事業

処分システム評価確証技術開発

報告書

平成 29 年 3 月

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

本報告書は、経済産業省資源エネルギー庁からの委託事業として、国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構が実施した平成 28 年度地層処分技術調査等事業「処分システム評価確証技術開発」の事業報告書である。

目次

第1章 緒言

1.1 本事業の背景と目的	1-1
1.2 確証性の高い地層処分システムとは	1-1
1.3 全体フレーム	1-4
1.4 本年度の実施内容	1-6
1.4.1 ニアフィールドのシステム変遷と核種移行を評価するための先端的技術の開発	1-6
1.4.2 多様な廃棄物の共処分におけるニアフィールドの影響評価技術開発	1-9
1.4.3 過酷事象の地層処分システムへの影響に関する評価確証技術開発	1-9
1.4.4 可逆性と回収可能性などを考慮した地層処分システム概念の提示	1-10
1.4.5 処分事業に資するための地層処分システム評価確証技術の統合化	1-11
参考文献	1-12

第2章 ニアフィールドのシステム変遷と核種移行を評価するための先端的技術の開発

2.1 目的と5カ年の計画	2-1
2.1.1 目的	2-1
2.1.2 5カ年の計画	2-2
2.2 システムの過渡的变化評価技術開発	2-5
2.2.1 システムの過渡的状态評価技術の開発	2-5
2.2.2 過渡的状态における人工バリアの挙動評価技術の開発	2-27
2.3 人工バリア中の核種移行に係る不確実性要因分析とそれに基づく性能評価技術開発	2-59
2.3.1 人工バリア中核種移行評価の不確実性要因と課題解決アプローチ	2-59
2.3.2 緩衝材中の核種移行に関する現象理解のための実験研究	2-61
2.3.3 圧縮ベントナイト中の核種移行に関する精緻化モデルの開発	2-81
2.3.4 システム変遷と核種移行評価のためのデータ・モデルの整備	2-111
2.4 天然バリア中の核種移行に係る不確実性要因分析とそれに基づく性能評価技術開発	2-122
2.4.1 天然バリア核種移行評価の不確実性要因と課題解決アプローチ	2-122
2.4.2 岩石マトリクス/割れ目中の核種移行評価技術の開発	2-123
2.4.3 有機物・微生物等の影響評価手法の開発	2-155
2.5 セメント系材料影響評価技術開発	2-183
2.5.1 セメント系材料の化学モデル開発	2-183
2.5.2 セメント系材料の力学挙動評価モデル開発	2-203
2.5.3 セメント系材料による影響下での核種移行挙動の把握	2-211
2.5.4 グラウト影響評価技術開発	2-217
2.6 ニアフィールド複合現象/核種移行の体系的評価に向けた技術開発	2-228
2.6.1 全体アプローチ	2-228
2.6.2 ニアフィールド総合評価システムの要件の具体化	2-229

2.6.3	総合評価プラットフォームの設計	2-234
2.6.4	ニアフィールド複合現象解析モデルの開発	2-241
2.6.5	ニアフィールド核種移行解析モデルの開発	2-263
2.6.6	ニアフィールド変遷と核種移行に関する成果の体系化手法の開発	2-273
2.7	まとめ	2-285
	参考文献	2-290

第3章 多様な廃棄物の共処分におけるニアフィールドの影響評価技術開発

3.1	目的と5カ年の計画	3-1
3.1.1	目的	3-1
3.1.2	5カ年の計画	3-2
3.2	廃棄物の特性を踏まえた共処分への影響評価技術開発	3-5
3.2.1	種々の廃棄物の特性評価と廃棄物由来の影響因子の影響調査	3-7
3.2.2	廃棄物由来の影響因子の化学環境影響評価	3-24
3.2.3	廃棄物由来の影響因子のバリア候補材料への影響評価	3-45
3.2.4	廃棄物由来の影響因子の放射性核種への影響評価	3-58
3.3	多様な廃棄物の影響を考慮した共処分概念案の構築	3-68
3.3.1	硝酸塩及び硝酸塩の影響を考慮した放射性核種の移行解析	3-68
3.3.2	感度解析及び試行的な安全性の評価	3-78
3.4	まとめ	3-82
3.4.1	廃棄物の特性を踏まえた共処分への影響評価技術開発	3-82
3.4.2	多様な廃棄物の影響を考慮した共処分概念案の構築	3-83
	参考文献	3-85

第4章 過酷事象の地層処分システムへの影響に関する評価確証技術開発

4.1	目的と5カ年の計画	4-1
4.1.1	目的	4-1
4.1.2	5カ年の計画	4-1
4.2	地層処分システムにおける過酷事象の概念構築	4-4
4.2.1	過酷事象の検討フローの整備	4-5
4.2.2	検討フローに基づく試行	4-8
4.3	巨大地震・断層活動を事例とした評価技術開発	4-25
4.3.1	安全機能に着目した評価手法の開発	4-25
4.3.2	巨大地震・断層活動に関連した個別現象の調査・評価	4-26
4.3.3	個別現象の分析を踏まえた影響評価の試行	4-140
4.4	まとめ	4-151
4.4.1	地層処分システムにおける過酷事象の概念構築	4-151
4.4.2	巨大地震・断層活動を事例とした評価技術開発	4-151

参考文献	4-154
------	-------

第5章 可逆性と回収可能性などを考慮した地層処分システム概念の提示

5.1 目的とこれまでの経緯	5-1
5.2 種々の政策や技術的オプション間のリスクトレードオフに関する共同事実確認	5-4
5.2.1 共同事実確認の実施	5-4
5.2.2 市場の声の抽出と整理	5-4
5.3 非専門家からの要求と技術的因子とを関連づけるための品質機能展開	5-11
5.3.1 概要	5-11
5.3.2 品質機能展開に基づく新たな処分場概念の提案の例	5-13
5.3.3 CARE 概念を取り入れる場合の設計上の他の検討	5-18
5.4 処分場概念構築に向けたワークショップの試行	5-22
5.4.1 概要	5-22
5.4.2 ワークショップの結果（議論のまとめと課題）	5-23
5.4.3 ワークショップで整理された新たな処分場概念設計に関するアイデアに対する 市民の意見	5-24
5.5 ワークショップの結果に基づくマルチエージェントシミュレーション	5-33
5.5.1 概要	5-33
5.5.2 ワークショップで新しく提案された処分概念からの軸の抽出	5-33
5.5.3 参加者の意見や合意形成の可否に関する態度変容の傾向のパターンの抽出手順	5-34
5.5.4 フォーカスグループインタビューからのアンケート集計結果	5-38
5.5.5 統計的シミュレーション（モンテカルロシミュレーション）	5-40
5.5.6 ケーススタディ結果まとめ及び今後の課題	5-50
5.6 地層処分概念の「見える化」の検討	5-50
5.6.1 概要	5-50
5.6.2 見える化の候補技術の探索・提示	5-51
5.6.3 ヴァーチャル・リアリティ（VR）や拡張現実（AR）	5-57
5.7 まとめ	5-66
参考文献	5-67

第6章 処分事業に資するための地層処分システム評価確証技術の統合化

6.1 目的と5カ年の計画	6-1
6.1.1 目的	6-1
6.1.2 5カ年の計画	6-1
6.1.3 今年度の実施内容	6-2
6.2 処分システム評価確証技術の統合化に関する試行	6-3
6.2.1 ポータルサイトのコンテンツの拡充	6-3
6.2.2 グループウェアを用いたオンラインでの議論の試行とシステムの適用性評価	6-8

6.2.3	ポータルサイト開発（改良）と適用性の評価	6-15
6.3	処分システム評価確証技術の認知の拡大に関する試行	6-19
6.3.1	わかりやすい情報コンテンツ作成のための方法論の調査	6-19
6.3.2	技術情報に関する知識共有を図るための双方向コミュニケーションの調査	6-22
6.3.3	処分システム評価確証技術の認知の拡大に関する試行	6-34
6.4	まとめ	6-39
	参考文献	6-40

第7章 結言

7.1	平成 28 年度における主な成果	7-1
7.2	おわりに	7-6

付録

付録 1	平行平板モデルにおける割れ目およびマトリクスの核種移行支配方程式 と定流量通液試験に用いたパラメータ一覧.....	付 1-1
付録 2	低アルカリ性セメントの水和反応モデル.....	付 2-1
付録 3	化学物質輸送解析に用いるパラメータ	付 3-1
付録 4	情報共有シート.....	付 4-1

図目次

第1章 緒言

図 1.2-1	確証性の高い地層処分システムが具備すべき属性とその構造	1-3
図 1.3-1	本プロジェクトの全体構成	1-5

第2章 ニアフィールドのシステム変遷と核種移行を評価するための先端的技術の開発

図 2.1.1-1	ニアフィールドのシステム変遷と核種移行評価に係る課題例 (核種移行関連を中心とした課題例)	2-1
図 2.1.2-1	本課題の5つのサブタスクの関係	2-3
図 2.1.2-2	5ヵ年の年度展開	2-4
図 2.2.1-1	THMC 連成解析モデルの概念図	2-7
図 2.2.1-2	緩衝材の密度変化を考慮した THM 連成モデルの拡張	2-7
図 2.2.1-3	ニアフィールドの長期挙動評価の解析条件	2-12
図 2.2.1-4	ニアフィールド長期挙動解析結果 (オーバーパックに接触する緩衝材の 飽和度、温度、間隙水の pH と pe、硫酸塩および方解石の沈殿濃度)	2-16
図 2.2.1-5	膨潤変形試験装置図	2-17
図 2.2.1-6	時間と膨潤変形に伴うベントナイト密度変化の推移	2-18
図 2.2.1-7	飽和時の乾燥密度と膨潤圧の関係	2-19
図 2.2.1-8	再現解析結果	2-20
図 2.2.1-9	非破壊測定試験セル	2-21
図 2.2.1-10	X線 CT 測定による供試体内部の断面画像 (体積拘束型)	2-21
図 2.2.1-11	供試体内部における埋設マーカーの移動推移 (体積拘束型)	2-22
図 2.2.1-12	X線 CT 測定による供試体内部の断面画像 (体積非拘束型)	2-22
図 2.2.1-13	供試体内部における埋設マーカーの移動推移	2-23
図 2.2.1-14	供試体変位とマーカー変位との関係 (体積非拘束型)	2-23
図 2.2.1-15	緩衝材の不飽和水分特性曲線	2-25
図 2.2.1-16	熱伝導率と飽和度の関係	2-26
図 2.2.2-1	腐食モニタリングセンサーの模式図	2-28
図 2.2.2-2	不飽和緩衝材中における腐食センサーの適用性確認試験の模式図	2-29
図 2.2.2-3	液抵抗 (Rs) および分極抵抗 (Rp) 測定結果	2-29
図 2.2.2-4	分極抵抗から算出した平均腐食速度および累積腐食量	2-30
図 2.2.2-5	腐食センサー電極面および炭素鋼底板の表面形状測定結果と平均腐食量	2-30
図 2.2.2-6	幌延 URL におけるオーバーパック腐食試験の設置状況	2-32
図 2.2.2-7	交流インピーダンス測定結果の代表例 (Bode 線図)	2-33
図 2.2.2-8	6 段目の腐食センサーの測定結果から求められた液抵抗と 分極抵抗の経時変化	2-34
図 2.2.2-9	6 段目の腐食センサーの測定結果から求められた CPE 定数の経時変化	2-35

図 2.2.2-10	6 段目の腐食センサーの測定結果から求められた CPE 指数の経時変化	2-35
図 2.2.2-11	試験カラムの模式図	2-36
図 2.2.2-12	腐食試験後の試験片の外観 (試験片表面寸法: 30x30mm)	2-40
図 2.2.2-13	試験後の試験片表面の X 線回折結果	2-41
図 2.2.2-14	緩衝材中における炭素鋼の腐食速度に及ぼす炭酸ガス濃度の影響	2-42
図 2.2.2-15	緩衝材中における炭素鋼の腐食速度に及ぼす pH の影響	2-42
図 2.2.2-16	膨潤圧試験/透水試験フロー	2-44
図 2.2.2-17	高塩化物イオン濃度対応型 膨潤圧/透水試験装置	2-44
図 2.2.2-18	イオン強度と平衡膨潤圧の関係	2-46
図 2.2.2-19	イオン強度と透水係数の関係	2-46
図 2.2.2-20	酸性水・膨潤圧/透水試験フロー	2-46
図 2.2.2-21	酸性水対応型 膨潤圧/透水試験装置	2-48
図 2.2.2-22	29 番層の原鉱石試料の偏光顕微鏡観察結果の一例	2-50
図 2.2.2-23	内視鏡用 pH センサープローブの構造	2-53
図 2.2.2-24	緩衝材の間隙水の pH 測定に使用した試験装置	2-53
図 2.2.2-25	溶液中での発色材の呈色状態	2-54
図 2.2.2-26	乾燥させた発色材の呈色状態	2-54
図 2.2.2-27	水の浸潤にともなう緩衝材中での発色材の呈色状態	2-54
図 2.2.2-28	炭素鋼-ベントナイト変質試験カラム概略図	2-56
図 2.2.2-29	AFM により測定した炭素鋼との接触時間に対するモンモリロナイト量の変化	2-58
図 2.3.1-1	人工バリア中核種移行に関する現象理解とモデル精緻化のためのアプローチ	2-61
図 2.3.2-1	拡張型透過拡散/トレーサー減衰法の概要	2-62
図 2.3.2-2	温度制御条件での Sr 拡散データ (a) と拡散・収着データの温度依存性 (b)	2-63
図 2.3.2-3	Ca 型モンモリロナイト中の HTO の透過拡散データ (a) と HTO, Cs, I の 実効拡散係数データの Na 型との比較 (b)	2-64
図 2.3.2-4	dendromer の拡散フラックスの時間変化	2-66
図 2.3.2-5	圧縮ベントナイトの間隙構造と層間/エッジの収着機構に関連する分析技術	2-67
図 2.3.2-6	異なる溶液で飽和させた密度 1.4g/cm ³ の Ca 型モンモリロナイト試料の XRD パターン	2-68
図 2.3.2-7	塩濃度の異なる溶液で飽和させた乾燥密度 0.8 g/cm ³ の Ca 型 モンモリロナイトの T1 分布の温度依存性 (233 から 303K の範囲)	2-69
図 2.3.2-8	塩濃度の異なる溶液で飽和させた乾燥密度 1.4 g/cm ³ の Ca 型 モンモリロナイトの T1 分布の温度依存性 (233 から 303K の範囲)	2-69
図 2.3.2-9	塩濃度の異なる溶液で飽和させた乾燥密度 0.8 及び 1.4 g/cm ³ の Ca 型 モンモリロナイト試料の NMR 信号強度の温度依存性	2-70
図 2.3.2-10	Cs 置換率の異なるモンモリロナイトの湿度制御化で測定した ¹³³ Cs MAS NMR スペクトル: (a)Cs100%置換, (b)Cs50%置換	2-73

図 2.3.2-11	脱水試料処理を行った Cs 置換率 100%の合成及び天然モンモリロナイトの ^{133}Cs MAS NMR スペクトル(a), 異なる相対湿度環境で調整した合成モンモリロナイトの ^{133}Cs MAS NMR スペクトル(b).....	2-74
図 2.3.2-12	モンモリロナイトの積層状態の異なるモデル構造での構造最適化結果	2-75
図 2.3.2-13	Se (IV) のモンモリロナイトに対する収着分配係数の pH 依存性	2-77
図 2.3.2-14	Se (IV) と反応させたモンモリロナイトの Se <i>K</i> -edge XANES スペクトル(a)、及び EXAFS スペクトルから得られた動径分布関数(b) (透過法, pH 4.5)	2-80
図 2.3.2-15	Se (-II) と反応させたモンモリロナイトの Se <i>K</i> -edge XANES スペクトル (蛍光法, $I = 0.5 \text{ M NaCl}$)	2-80
図 2.3.3-1	統合収着・拡散モデル (ISD モデル) の基本概念.....	2-81
図 2.3.3-2	実測データ取得・整備/計算科学手法/モデル開発の位置づけ	2-82
図 2.3.3-3	異なるイオン型の電解質系における実効拡散係数の解析例: (a)Ca 型モデル、(b)Na 型モデル.....	2-83
図 2.3.3-4	ISD 均質間隙モデルと有効電荷により修正されたモデルとの比較.....	2-86
図 2.3.3-5	計算科学手法によって検証すべき課題とアプローチの概念図	2-87
図 2.3.3-6	計算対象の模式図(a)、及び動径分布関数と水和数の例(b)	2-89
図 2.3.3-7	Na 型・層電荷 0.5 の膨潤挙動(a)、及び Na 型の層電荷依存性(b)	2-89
図 2.3.3-8	混合エンタルピーの層電荷依存性(a)、及びイオン型依存性(b)	2-90
図 2.3.3-9	膨潤曲線のイオン型依存性: 1 価型(a)、及び 2 価型(b)	2-90
図 2.3.3-10	Na 型の膨潤挙動 (左上)、層間における水密度と水和数 (左下) 及び 1 層~3 層水和状態のスナップショット (右)	2-91
図 2.3.3-11	Cs 型の膨潤挙動 (左上)、層間における水密度と水和数 (左下) 及び 層間水和状態のスナップショット (右)	2-92
図 2.3.3-12	層電荷 0.5 の Na 型モンモリロナイト+純水系のスナップショットと 層間における各種物性値。層間に水分子 3000 個を含む系(a)、及び水分子 15000 個を含む系(b).....	2-93
図 2.3.3-13	層電荷 0.5 の Na 型モンモリロナイト+純水系における Na イオンと水分子の 自己拡散係数。計算セル内の水分子 (1,000~4,000) に対する依存性.....	2-94
図 2.3.3-14	層電荷 0.5 の Na 型モンモリロナイト層間のスナップショットと層間における 各種物性値。層間に水分子 10,000 個を含む系(a)、及び水分子 9,700 個と NaCl 300 個を含む系(b).....	2-95
図 2.3.3-15	層電荷 0.5 の Ca 型モンモリロナイト層間のスナップショットと層間における 各種物性値。層間に水分子 10,000 個を含む系(a)、及び水分子 9,700 個と CaCl_2 150 個を含む系(b).....	2-95
図 2.3.3-16	層電荷 0.5 のモンモリロナイト層間の対イオンを Na 型から Cs 型へ 連続的に変化させた場合の拡散係数への影響(a)、及びウラニル型化した モンモリロナイト層間における拡散係数の層間水和層数に対する依存性(b).....	2-96
図 2.3.3-17	エッジの表面エネルギーを計算するための 2 種類の layer モデル	2-97

図 2.3.3-18	モンモリロナイト（層電荷 0.5）の A-chain エッジモデル	2-99
図 2.3.3-19	(a)A-chain の Mg の同形置換位置による区分 p1~p5 と Na イオンの位置による表面エネルギー変化、(b)p1~p5 における最安定表面エネルギーの比較。さらに単層モデル(single)と積層モデル(stackings)の最安定エネルギーを比較	2-99
図 2.3.3-20	Na-Mg 間の平均距離と Na-Na 間の距離をパラメータとする A-chain（単層モデル）の表面エネルギーの変化	2-100
図 2.3.3-21	50×50×50 の構造格子からなるブロック鉱物と層状鉱物の組み合わせによる解析体系の例	2-102
図 2.3.3-22	解析体系に配置される鉱物ユニット（ブロック鉱物と層状鉱物）	2-102
図 2.3.3-23	本解析で用いた 9 種類の鉱物配置パターン	2-103
図 2.3.3-24	中性粒子に対する移行率。層状鉱物方向が X 方向に平行で含有率を変化させた場合(a)、層状鉱物方向が X 方向に垂直で含有率を変化させた場合(b)	2-104
図 2.3.3-25	計算コードの拡張で考慮した周期構造モデルとユニットセルの模式図	2-105
図 2.3.3-26	異なる締め固め履歴を経て得られたモデル水和粘土鉱物堆積シミュレーションの結果	2-106
図 2.3.3-27	変形シミュレーションで得られたひずみと応力の関係	2-107
図 2.3.3-28	PHREEQC と ISDCalc を連携した不確実性評価ツールの処理流れ	2-108
図 2.3.3-29	イオン強度に対する Sr 実効拡散係数の散布図(a)、Sr 実効拡散係数に対する主要パラメータの感度解析(b)	2-110
図 2.3.4-1	ガラス製容器を用いた試験体系	2-112
図 2.3.4-2	Fe ²⁺ 共存下、非共存下での Na 型モンモリロナイトに対する Ni の収着分配係数	2-113
図 2.3.4-3	試験方法概略図	2-114
図 2.3.4-4	182 日間変質させた試料の断面の元素画面分析結果	2-115
図 2.3.4-5	変質層厚の経時変化	2-116
図 2.3.4-6	Fe ²⁺ 濃度の経時変化	2-117
図 2.3.4-7	各 pH 条件における溶液の Si 及び Fe 濃度の経時変化	2-119
図 2.3.4-8	各 pH 条件における析出物の XRD パターン	2-119
図 2.3.4-9	各 pH 条件における析出物の赤外吸収スペクトル	2-120
図 2.3.4-10	各 pH 条件における析出物のラマンスペクトル	2-120
図 2.3.4-11	安定固相の推定結果	2-121
図 2.4.1-1	天然バリア中の核種移行評価における課題解決アプローチ	2-123
図 2.4.2-1	室内から原位置へのアップスケールを含む岩石系の研究アプローチ	2-125
図 2.4.2-2	グリムゼル花崗岩のマトリクス試料の室内収着・拡散試験結果のまとめ	2-127
図 2.4.2-3	グリムゼル花崗岩マトリクスの X 線 CT 分析による黒雲母の空間分布とその解析結果	2-128
図 2.4.2-4	グリムゼル花崗岩マトリクスの不均質性を考慮したモデル解析体系	2-129

図 2.4.2-5	レファレンスモデルにおける中性粒子の拡散フラックスとフィッティング 結果(a)及び得られた拡散係数のモデル間の比較(b) ……………	2-130
図 2.4.2-6	割れ目を含むグリムゼル花崗岩を対象とした室内試験の体系 ……………	2-131
図 2.4.2-7	グリムゼル岩（割れ目部、マトリクス部）の拡散試験結果： (a)Cs の拡散試験結果、(b)各トレーサーの実効拡散係数……………	2-132
図 2.4.2-8	グリムゼル岩（割れ目部）中の Ni の拡散試験及び解析結果： (a)濃度プロファイル、(b)トレーサー減衰曲線 ……………	2-132
図 2.4.2-9	グリムゼル花崗岩の割れ目部及びマトリクス部に対する分配係数： (a)拡散試験による結果、(b)バッチ収着試験による結果 ……………	2-133
図 2.4.2-10	定流量通液試験で得られたトレーサー元素の破過曲線データ(a) 及び試験後の割れ目表面の状況とトレーサー分布分析結果(b) ……………	2-134
図 2.4.2-11	通液試験に用いた割れ目を含むグリムゼル岩試料の X 線 CT 分析評価結果…	2-134
図 2.4.2-12	グリムゼル花崗岩の割れ目近傍の鉱物の不均質性の EPMA による分析結果…	2-135
図 2.4.2-13	割れ目近傍の黒雲母層厚さの X 線 CT 像からの分析 (a) 及び バーミキュライト層の間隙率の分析(b) ……………	2-136
図 2.4.2-14	グリムゼル岩割れ目中通液試験の解析のモデル概念(a), 解析体系(b), 1 層及び 2 層モデルに対する解析結果(c) ……………	2-137
図 2.4.2-15	グリムゼル岩割れ目中通液試験の解析のための 3 層モデル概念と パラメータ設定(a)、及び解析結果(b) ……………	2-138
図 2.4.2-16	グリムゼル岩割れ目中の 3 層モデルによる (a)割れ目表面から深さ方向への トレーサー濃度分布、(b)割れ目表面のトレーサー濃度分布の評価結果…	2-139
図 2.4.2-17	エスポにおける原位置トレーサー試験 LTDE-SD の試験概念 ……………	2-140
図 2.4.2-18	エスポ岩で観察されているマトリクス部(a)と割れ目表面部(b)における 拡散プロファイルの特徴 ……………	2-141
図 2.4.2-19	エスポ原位置長期収着・拡散試験 (LTDE-SD) の解析結果例 ……………	2-142
図 2.4.2-20	幌延 350m 調査坑道における原位置トレーサー試験と連携した評価確証 アプローチ ……………	2-143
図 2.4.2-21	マトリクス（健岩）部の原位置トレーサー試験 (D05 孔) の試験装置 (a) とトレーサー減衰データ (b) ……………	2-144
図 2.4.2-22	マトリクス（健岩）部の D05 孔のオーバーコア試料 (a), 研削状況 (b), トレーサー濃度プロファイルの例 (c) ……………	2-145
図 2.4.2-23	健岩部 D05 孔の原位置トレーサー試験の解析結果 ……………	2-146
図 2.4.2-24	健岩部 D05 孔から得られた試料を用いた異方性に着目した室内拡散試験 の結果 ……………	2-147
図 2.4.2-25	幌延の泥岩マトリクス中の原位置及び室内拡散試験で得られた各トレーサー の実効拡散係数（青色バー）と収着分配係数（緑色バー）の比較 ……………	2-148
図 2.4.2-26	拡散のみを考慮した場合の解析結果 ……………	2-150
図 2.4.2-27	移流・拡散を考慮した場合の解析結果 (Case 1) ……………	2-151

図 2.4.2-28	移流・拡散を考慮した場合の解析結果 (Case 2)	2-151
図 2.4.2-29	移流・拡散を考慮した場合の解析結果 (Case 3)	2-152
図 2.4.2-30	移流・拡散を考慮した場合の解析結果 (Case 4)	2-153
図 2.4.2-31	移流・拡散を考慮した場合の解析結果 (Case 5)	2-154
図 2.4.3-1	有機物・微生物等の影響評価研究の流れ	2-155
図 2.4.3-2	有機物影響評価ダイアグラム	2-155
図 2.4.3-3	$\log K_{\text{DOC, Eu}}$ と pH との関係への NICA-Donnan モデルの適用結果	2-159
図 2.4.3-4	再設定パラメータを用いた NICA-Donnan モデルの適用結果	2-161
図 2.4.3-5	Aldrich (a) および幌延の地下水フミン酸(b)のプロトン化反応熱力学量··	2-161
図 2.4.3-6	ケース 1 (a) およびケース 2(b)におけるフィッティング結果	2-163
図 2.4.3-7	第一段階の加水分解定数 ($M^{Z+} \rightleftharpoons MOH^{(Z-1)+} + H^+$) とイオン固有の NICA-Donnan パラメータとの関係	2-164
図 2.4.3-8	FFF-ICPMS のシステム構成図	2-164
図 2.4.3-9	Zr ⁴⁺ -HHA-EDTA 試料 (試料 3, (a)) と Zr ⁴⁺ -EDTA 試料 (試料 4, (b)) の フラクトグラム	2-165
図 2.4.3-10	幌延の地下研究施設の深度-250m 地下水の溶存有機物の組成	2-167
図 2.4.3-11	イオン交換-逆浸透 (RO) 膜法による溶存有機物の一括濃縮法の検討	2-168
図 2.4.3-12	透析法による幌延の地下研究施設の地下水中の有機物の回収率	2-169
図 2.4.3-13	有機物・微生物影響評価ダイアグラム	2-170
図 2.4.3-14	微生物コロイドの核種移行影響評価手法フロー図	2-171
図 2.4.3-15	幌延深地層研究センター地下施設内ボーリング孔配置図	2-172
図 2.4.3-16	地下水中の微生物全菌数の経時変化	2-174
図 2.4.3-17	07V140M03 孔から採取した地下水のうち、地下水大量採取後の 微生物細胞蛍光顕微鏡観察像	2-174
図 2.4.3-18	微生物サイズのコロイドへの元素の収着挙動	2-175
図 2.4.3-19	希土類元素の有無による微生物群集組成の経時変化	2-176
図 2.4.3-20	培養試験溶液中の全菌数の経時変化	2-177
図 2.4.3-21	バイオフィルムの核種移行影響評価手法フロー図	2-178
図 2.4.3-22	幌延深地層研究センター地下施設の深度 140 m 坑道における バイオフィルム形成試験の設置状況とバイオフィルム観察像	2-179
図 2.4.3-23	地下施設内ボーリング孔 (08-E140-C01) から採取した 16S rRNA gene に 基づく地下水中の微生物群集組成の経時変化	2-182
図 2.5.1-1	イオン交換水に対する浸漬実験での液相 pH と解析結果の比較	2-185
図 2.5.1-2	人工海水に対する浸漬実験での液相 pH と解析結果の比較	2-185
図 2.5.1-3	HFSC 硬化体 - 人工海水浸漬実験での液相、Mg 濃度、Si 濃度と 解析結果の比較	2-185
図 2.5.1-4	M-S-H 過飽和浸漬実験での液相 pH、Mg 濃度、Si 濃度と解析結果の比較····	2-187
図 2.5.1-5	M-S-H 過飽和浸漬実験での固相中の SiO ₂ (am) 及び brucite 量の解析結果····	2-187

図 2.5.1-6	M-S-H 未飽和浸漬実験での液相 pH、Mg 濃度、Si 濃度	2-187
図 2.5.1-7	未飽和浸漬実験における液相 pH、Mg 濃度、Si 濃度と解析結果の比較	2-188
図 2.5.1-8	合成 C-S-H の粉末 X 線回折図	2-189
図 2.5.1-9	主要海水成分に浸漬した C-S-H 浸漬試験での液相 pH	2-191
図 2.5.1-10	主要海水成分に浸漬した C-S-H 浸漬試験での液相 Mg 及び Ca 濃度	2-191
図 2.5.1-11	主要海水成分含有液に浸漬した C-S-H 浸漬試験での粉末 X 線回折図	2-191
図 2.5.1-12	主要海水成分に対する C-S-H の浸漬試験における液相 pH	2-194
図 2.5.1-13	主要海水成分に対する C-S-H の浸漬試験における液相 Mg 濃度	2-194
図 2.5.1-14	主要海水成分に対する C-S-H の浸漬試験における液相 Si 濃度	2-194
図 2.5.1-15	主要海水成分に対する C-S-H の浸漬試験における液相 Ca 濃度	2-195
図 2.5.1-16	主要海水成分に対する C-S-H の浸漬試験における液相 S 濃度	2-195
図 2.5.1-17	主要海水成分に対する C-S-H の浸漬試験における液相 Cl 濃度	2-195
図 2.5.1-18	人工海水に対する HFSC 硬化体の浸漬試験における液相 pH、Mg 濃度、 Si 濃度（既往モデルとの比較）	2-196
図 2.5.1-19	人工海水に対する HFSC 硬化体の浸漬試験における液相 （Katoite-Fe 追加の影響）	2-197
図 2.5.1-20	HFSC424 硬化体における間隙液相組成	2-197
図 2.5.1-21	HFSC 硬化体におけるフライアッシュ (FA) 及びシリカフェーム (SF) の 反応率の経時変化（Analcime 除外前）	2-200
図 2.5.1-22	HFSC 硬化体における間隙液相組成（Analcime 除外前）	2-200
図 2.5.1-23	HFSC 硬化体におけるフライアッシュ (FA) 及びシリカフェーム (SF) の 反応率の経時変化（Analcime 除外後）	2-201
図 2.5.1-24	HFSC 硬化体における間隙液相組成 (1)（Analcime 除外後）	2-202
図 2.5.1-25	HFSC 硬化体における間隙液相組成 (2)（Analcime 除外後）	2-202
図 2.5.1-26	HFSC 硬化体における固相の鉱物量	2-202
図 2.5.2-1	DEM と MACBECE2014 のひび割れ進展状況の比較	2-204
図 2.5.2-2	セメントのひび割れ発生・進展の解析例	2-205
図 2.5.2-3	TRU 廃棄物処分施設を対象とする長期力学解析の解析メッシュ	2-209
図 2.5.2-4	セメント系材料のひび割れの開口幅分布	2-210
図 2.5.2-5	セメント系材料の透水係数の変化	2-211
図 2.5.3-1	固相を含まないブランク試料中の溶存ニオブ濃度の pH 依存性 （2 週間経過後）	2-214
図 2.5.3-2	ナトリウム型及びカルシウム型ベントナイトに対するニオブの 収着分配係数の pH 依存性（8 週間経過後）	2-215
図 2.5.3-3	固相を含まないブランク試料中の溶存モリブデン濃度の pH 依存性 （4 週間経過後）	2-216
図 2.5.3-4	カルシウム型ベントナイトに対するモリブデンの収着分配係数の経時変化	2-216
図 2.5.4-1	深度 300m の研究アクセス坑道建設時の湧水量・グラウト材料注入量	

	割れ目分布	2-218
図 2.5.4-2	深度 300m の研究アクセス坑道への湧水量と周辺ボーリング孔の水頭の変遷	2-219
図 2.5.4-3	深度 300m の研究アクセス坑道周辺のグラウト施工影響領域の透水係数の変遷	2-219
図 2.5.4-4	坑道からの湧水の pH および Ca 濃度の変遷と採水箇所	2-219
図 2.5.4-5	セメント供試体の薄片観察結果 (クロスニコル)	2-221
図 2.5.4-6	3 年試料採取位置	2-221
図 2.5.4-7	3 年試料の岩石薄片観察結果 (クロスニコル)	2-222
図 2.5.4-8	3 年試料の元素分布	2-222
図 2.5.4-9	3 年試料中の Ca/Si 分布と X 線強度プロファイル	2-223
図 2.5.4-10	3 年試料の SEM 観察結果 (反射電子像)	2-223
図 2.5.4-11	3 年試料の μ -XRD 分析箇所と測定結果	2-224
図 2.5.4-12	6 年試料の採取場所	2-224
図 2.5.4-13	B-2 孔の採取結果	2-224
図 2.5.4-14	6 年試料の岩石薄片観察結果	2-225
図 2.5.4-15	グラウト材料の 3 年程度での変化の概念図	2-225
図 2.6.1-1	ニアフィールド総合評価の概念	2-228
図 2.6.2-1	ニアフィールド総合評価システムの全体構想	2-229
図 2.6.2-2	ニアフィールド複合現象解析モデルの基本概念	2-230
図 2.6.2-3	ニアフィールド核種移行解析モデルの基本概念	2-231
図 2.6.2-4	共通モデル・シナリオ共通データベースおよび成果体系化・ユーザー支援ツールの基本概念	2-232
図 2.6.3-1	TRU 地層処分施設を対象とした連成解析の概念	2-238
図 2.6.3-2	総合評価プラットフォームの基本構成	2-239
図 2.6.3-3	OpenMI を利用した連成解析のフレームワーク	2-239
図 2.6.3-4	総合評価プラットフォームの開発手順の概念	2-240
図 2.6.4-1	本年度対象としたの連成解析とデータ交換の概念	2-241
図 2.6.4-2	連成解析のフロー図	2-242
図 2.6.4-3	GARFIELD-CHEM の間隙率分布を DEM 粒子の間隙率へ変換する手法	2-243
図 2.6.4-4	連続亀裂の導入による亀裂の連続性の評価の概念	2-244
図 2.6.4-5	処分坑道スケールでの水理場の概念図	2-245
図 2.6.4-6	水理解析用の有限要素モデルおよびメッシュ	2-246
図 2.6.4-7	小領域の坑道内の位置	2-246
図 2.6.4-8	(左) 領域内のクラック数と応力の時間変化 (右) 領域に与えた強制変位の大きさと方向	2-247
図 2.6.4-9	発生した全亀裂 (左) および 10 個以上の亀裂を含むグループのみを抽出したもの (右)	2-247

図 2.6.4-10	GARFIELD-CHEM 解析の境界条件	2-248
図 2.6.4-11	D→GC 一方向連成解析における間隙率の変遷	2-248
図 2.6.4-12	小領域の場合の連成解析のフロー図	2-249
図 2.6.4-13	小領域内の間隙率、亀裂位置、開口幅の変遷	2-251
図 2.6.4-14	DEM 粒子に割り当てられた間隙率と再結合亀裂の関係 (3750 年時点)	2-252
図 2.6.4-15	TRU 廃棄物処分場坑道全体の形状 (第 2 次 TRU レポートの条件に基づく)	2-253
図 2.6.4-16	GARFIELD-CHEM (左) および DEAFRAP (右) の解析体系	2-254
図 2.6.4-17	TRU 処分施設を対象とした DEM 大規模解析結果と MACBECE 解析結果の比較	2-255
図 2.6.4-18	DEAFRAP による破壊可能領域内のひび割れ伸展挙動の解析結果	2-256
図 2.6.4-19	連成解析で想定している初期状態	2-257
図 2.6.4-20	亀裂発生後の地下水の流路に沿った解析の概念図	2-258
図 2.6.4-21	亀裂発生後の解析モデルの概念図	2-261
図 2.6.4-22	破壊可能域内の開口幅、間隙率、pH の変遷	2-262
図 2.6.4-23	破壊可能域内の開口幅、間隙率、亀裂位置、pH の変遷	2-263
図 2.6.5-1	解析解と比較検証するための解析体系	2-265
図 2.6.5-2	解析解との比較検証の結果	2-265
図 2.6.5-3	1,000 年経過時に発生させる亀裂とグリッドとの対応	2-266
図 2.6.5-4	拡散による I-129 の濃度の経時変化	2-268
図 2.6.5-5	3 核種の溶解度限界の pH 依存性	2-269
図 2.6.5-6	核種移行解析の解析ドメイン	2-270
図 2.6.5-7	核種移行解析における 3 核種の移流・拡散による広がり	2-272
図 2.6.6-1	Chen の記法による ER 図の概念	2-278
図 2.6.6-2	6 つの階層における ER 図を用いた整理図の概念	2-279
図 2.6.6-3	階層③～⑥全体の ER 図	2-280
図 2.6.6-4	階層③の事例：セメント溶脱の ER 図	2-281
図 2.6.6-5	階層④の事例：セメント溶脱モデル	2-282
図 2.6.6-6	階層⑤の事例：化学 - 物質輸送解析ソフトウェア	2-282
図 2.6.6-7	階層⑥の事例：解析結果	2-283
図 2.6.6-8	MySQL と MySQL Workbench で整理したデータベースの一例	2-284

第 3 章 多様な廃棄物の共処分におけるニアフィールドの影響評価技術開発

図 3.1.1-1	HLW と TRU 廃棄物との共処分概念	3-1
図 3.1.2-1	適切な共処分概念の提示フローと実施項目	3-3
図 3.1.2-2	5 ヶ年の計画	3-4
図 3.2.1-1	TAM IV による熱量測定結果 (昇温速度 2°C/h)	3-8
図 3.2.1-2	C80 による熱量測定結果 (昇温速度 0.6°C/h)	3-9
図 3.2.1-3	アスファルトと塩の反応の概念図	3-11
図 3.2.1-4	実測値と計算値の比較	3-14

図 3.2.1-5	熱収支解析体系(左：全体図、右上：処分坑道、右下：廃棄体パッケージ)・・・	3-15
図 3.2.1-6	アスファルト固化体のみ高温の場合（内部からの熱を想定）	3-17
図 3.2.1-7	体系全てが温度一定の場合（外部からの熱を想定）	3-17
図 3.2.1-8	a)アスファルト固化体内部での微生物発熱（微生物によるアスファルト分解において硝酸・亜硝酸イオン利用なしの場合）	3-19
図 3.2.1-9	b)アスファルト固化体内部での微生物発熱（微生物によるアスファルト分解において硝酸・亜硝酸イオン利用ありの場合）	3-20
図 3.2.1-10	高温流体(1,400℃)の接近を想定した場合の評価点の温度及び反応率の変化	3-21
図 3.2.1-11	各国の火災曲線	3-22
図 3.2.1-12	トンネル火災を想定した評価点(ドラム缶側面)の温度変化	3-23
図 3.2.2-1	硝酸イオン化学的変遷挙動評価モデル(NEON)の概念	3-25
図 3.2.2-2	アンプル試験結果と NEON を用いた解析の結果との比較(pH=4) (左：硝酸イオン濃度 右：アンモニウムイオン濃度)	3-29
図 3.2.2-3	アンプル試験結果と NEON を用いた解析の結果との比較(60℃) (左：硝酸イオン濃度 右：アンモニウムイオン濃度)	3-30
図 3.2.2-4	カラムの概要図及び外観	3-31
図 3.2.2-5	カラム試験結果 (左：硝酸イオン濃度 右：アンモニウムイオン濃度)	3-33
図 3.2.2-6	NEON を用いた解析結果 (左：硝酸イオン濃度 右：アンモニウムイオン濃度)	3-34
図 3.2.2-7	鉱物反応における熱流量測定結果 (左：50℃ 右：60℃)	3-35
図 3.2.2-8	鉱物反応における積算熱量測定結果 (左：50℃ 右：60℃)	3-35
図 3.2.2-9	硝酸イオン還元反応熱量推移 (左：熱流量 右：積算熱量)	3-36
図 3.2.2-10	熱量と反応量の関係	3-36
図 3.2.2-11	生口島調査地域	3-39
図 3.2.2-12	調査地域における溶存酸素濃度分布 (左) と溶存有機物分布 (右)	3-39
図 3.2.2-13	解析体系模式図	3-41
図 3.2.2-14	硝酸イオン濃度分布比較	3-43
図 3.2.2-15	アンモニウムイオン濃度分布比較	3-43
図 3.2.3-1	アンモニウム型試料の WD サイクル処理後の XRD パターン	3-47
図 3.2.3-2	カリウム型試料の WD サイクル処理後の XRD パターン	3-47
図 3.2.3-3	WD 処理によるアンモニウム型スメクタイト粒子の高さ頻度比較	3-48
図 3.2.3-4	相対湿度制御時の各イオン型スメクタイトの底面間隔変化	3-51
図 3.2.3-5	相対湿度 10%での各イオン型スメクタイトに水を付加したときの 混合エンタルピー変化	3-51
図 3.2.3-6	相対湿度 30%での各イオン型スメクタイトに水を付加したときの 混合エンタルピー変化	3-52
図 3.2.3-7	アンモニウム型スメクタイトの原子密度分布 (上：一層膨潤時、下：無水状態)	3-54

図 3.2.3-8	カリウム型スメクタイトの原子密度分布(上：一層膨潤時、下：無水状態)・・・	3-55
図 3.2.3-9	Na ⁺ -NH ₄ ⁺ イオン交換の手順	3-57
図 3.2.4-1	(a) イソサッカリン酸及び (b) グルコン酸の構造式	3-58
図 3.2.4-2	ISA 共存下におけるジルコニウム溶解度 (14 及び 60 週後、(a) 10 kDa、(b) 0.45 μm 通過成分)	3-60
図 3.2.4-3	ISA 共存下における溶存ジルコニウム濃度のろ過フィルター孔径依存性 (pHc = 8.6)	3-61
図 3.2.4-4	ISA 共存下における溶存ジルコニウム濃度のろ過フィルター孔径依存性 ([ISA] = 10 ⁻² mol/dm ³)	3-61
図 3.2.4-5	ISA 共存下における溶存ウラン(VI)濃度の pHc 依存性	3-62
図 3.2.4-6	ISA 共存下における溶存ウラン(VI)濃度の ISA 濃度依存性	3-62
図 3.2.4-7	ISA 共存下における溶存ウラン(VI)濃度の pHc 依存性 ((a) [ISA] _{tot} = 10 ⁻⁴ mol/dm ³ 、(b) [ISA] _{tot} = 10 ^{-1.5} mol/dm ³)	3-63
図 3.2.4-8	電解還元によるウランの吸光スペクトル変化	3-65
図 3.2.4-9	試料溶液の pH および Eh 測定結果	3-66
図 3.2.4-10	ISA 共存下での溶存ウラン(IV)濃度の例と最小二乗適合の結果 (8 週間後、ISA 濃度 10 ^{-1.5} mol/dm ³)	3-66
図 3.2.4-11	溶存ウラン(IV)濃度の ISA 濃度依存性 (10kDa 通過成分)	3-67
図 3.3.1-1	解析体系 (右：全体図、左：処分坑道レイアウト)	3-70
図 3.3.1-2	処分坑道断面の例 (左：処分坑道①、右：処分坑道⑮)	3-70
図 3.3.1-3	硝酸塩の影響を受けると想定した I-129 の収着分配係数の設定	3-73
図 3.3.1-4	硝酸塩の影響を受けると想定したベントナイト系材料に対する I-129 の実効拡散係数の設定	3-73
図 3.3.1-5	各外部境界面からの硝酸イオンの流束	3-74
図 3.3.1-6	各外部境界面からの I-129 の流束	3-75
図 3.3.1-7	初期物質質量を変化させた場合における帯水層との境界面からの I-129 の流束	3-75
図 3.3.1-8	初期物質質量を変化させた場合における下流面からの I-129 の流束	3-76
図 3.3.1-9	TRU 廃棄物グループ 3 から上流側への硝酸イオンの拡がり	3-77
図 3.3.1-10	TRU 廃棄物グループ 3 から TRU 廃棄物グループ 4 方向への 硝酸イオンの拡がり	3-77
図 3.3.2-1	平成 27 年度に作成した処分レイアウト	3-79
図 3.3.2-2	母岩の透水係数を変化させた場合の下流面からの I-129 による線量	3-80
図 3.3.2-3	処分レイアウト変更による下流面からの I-129 による線量	3-81

第 4 章 過酷事象の地層処分システムへの影響に関する評価確証技術開発

図 4.1.2-1	本事業の 5 ヶ年計画	4-3
-----------	-------------	-----

図 4.2.1-1	地層処分システムにおける過酷事象の検討フロー	4-6
図 4.2.1-2	人への甚大な影響を起点としたアプローチに対する具体的な手順	4-7
図 4.2.1-3	不安や懸念を起点としたアプローチに対する具体的な手順	4-8
図 4.3.1-1	安全機能に着目した影響評価の手順	4-25
図 4.3.2-1	地層処分技術 WG による回避範囲のイメージ	4-30
図 4.3.2-2	断層破砕帯及びプロセスゾーンからなる断層の影響範囲概念図	4-35
図 4.3.2-3	活動セグメントに関する調査結果	4-36
図 4.3.2-4	地層処分研究における透水係数調査結果	4-38
図 4.3.2-5	断層模擬試験設備 (BORE-SHEAR)	4-41
図 4.3.2-6	試験体の概要図	4-42
図 4.3.2-7	土圧センサーを設置した模擬岩盤	4-42
図 4.3.2-8	圧縮成型した緩衝材及びアルミ製の模擬オーバーパック	4-43
図 4.3.2-9	せん断時のせん断容器及び試験体	4-43
図 4.3.2-10	せん断後の試験体の状況	4-43
図 4.3.2-11	試料ホルダー	4-43
図 4.3.2-12	試料押し治具と使用時のイメージ	4-44
図 4.3.2-13	せん断衝突実験のフロー図	4-45
図 4.3.2-14	飽和膨潤過程終了後の膨潤圧と膨潤圧試験結果との比較	4-46
図 4.3.2-15	緩衝材飽和過程の膨潤圧の経時変化例 (Case6)	4-46
図 4.3.2-16	せん断過程における試験体挙動の概念図	4-47
図 4.3.2-17	取り出した試験体の状況 (Case6)	4-48
図 4.3.2-18	X線 CT 画像を用いた挙動確認例 (Case6)	4-48
図 4.3.2-19	断層模擬実験の解析モデル	4-51
図 4.3.2-20	設計用実寸法人工バリアの解析モデル	4-52
図 4.3.2-21	断層模擬実験の非線形大変形せん断衝突解析結果 (鉛直変位コンタ)	4-60
図 4.3.2-22	断層模擬実験の非線形大変形せん断衝突解析結果 (ミーゼス相当応力コンタ)	4-60
図 4.3.2-23	断層模擬実験結果と解析結果による緩衝材の土圧変化ーせん断変位関係	4-61
図 4.3.2-24	設計用実寸法人工バリアの 3次元モデルによる非線形大変形 せん断衝突解析結果 (鉛直変位コンタ)	4-62
図 4.3.2-25	設計用実寸法人工バリアの 3次元モデルによる非線形大変形 せん断衝突解析結果 (オーバーパックのミーゼス相当応力コンタ)	4-63
図 4.3.2-26	水平動による固有周期の応答スペクトル	4-67
図 4.3.2-27	鉛直動による固有周期の応答スペクトル	4-68
図 4.3.2-28	加速度伝達関数 (増幅率)	4-68
図 4.3.2-29	水平動の最大応答深度分布 (軟岩系岩盤モデル)	4-69
図 4.3.2-30	引き戻し波の速度応答スペクトルと SI 値 (水平動)	4-70

図 4.3.2-31	引き戻し波の速度応答スペクトルと SI 値 (鉛直動)	4-70
図 4.3.2-32	入力地震動の加速度時刻歴 (絶対値) の累積	4-71
図 4.3.2-33	検討に用いる入力地震動 (2E)	4-71
図 4.3.2-34	処分坑道横置き定置方式 (軟岩系岩盤) の処分坑道のイメージ図	4-72
図 4.3.2-35	処分坑道横置き定置方式 (軟岩系岩盤) の人工バリアの仕様例	4-72
図 4.3.2-36	見直し前後の動的変形特性の比較	4-76
図 4.3.2-37	初期応力解析における応力分布	4-80
図 4.3.2-38	振幅倍率 1 倍時における加速度、せん断ひずみ分布	4-81
図 4.3.2-39	振幅倍率 1 倍時における変位・安全率分布	4-81
図 4.3.2-40	オーバーパック外面と岩盤の節点番号	4-83
図 4.3.2-41	振幅倍率とオーバーパックと岩盤の最小隔離の関係(ケース 1~9)	4-84
図 4.3.2-42	振幅倍率とオーバーパックと岩盤の最小隔離の関係(ケース 12~17)	4-84
図 4.3.2-43	オーバーパックと岩盤の最小隔離の時刻歴	4-84
図 4.3.2-44	岩盤と緩衝材のせん断ひずみ履歴	4-85
図 4.3.2-45	オーバーパック外面と岩盤の節点番号	4-86
図 4.3.2-46	振幅倍率とオーバーパックと岩盤の最小隔離の関係	4-86
図 4.3.2-47	オーバーパックと岩盤の最小隔離の時刻歴	4-87
図 4.3.2-48	岩盤と緩衝材のせん断ひずみ履歴	4-87
図 4.3.2-49	有効ひずみを用いた緩衝材の剛性率の低減	4-89
図 4.3.2-50	加振回数の低減率・緩衝材の剛性低減率の関係	4-89
図 4.3.2-51	オーバーパック外面と岩盤の節点番号	4-90
図 4.3.2-52	弾性波速度の深度方向分布	4-91
図 4.3.2-53	一次元応答解析結果	4-98
図 4.3.2-54	立坑仕様	4-99
図 4.3.2-55	覆工コンクリートの経過年と弾性係数	4-101
図 4.3.2-56	二次元解析モデル：モデル化概要図	4-102
図 4.3.2-57	二次元解析モデル：メッシュ図	4-103
図 4.3.2-58	大規模地震 1 回あたりの载荷サイクル模式図	4-104
図 4.3.2-59	境界条件	4-105
図 4.3.2-60	ケース 1 変形図[深度 2.5m] (step20 (10 万年経過), 変形拡大倍率：10,000 倍)	4-107
図 4.3.2-61	ケース 1 岩盤の最大主ひずみコンター図[深度 2.5m] (step20 (10 万年経過), 変形拡大倍率：1,000 倍)	4-108
図 4.3.2-62	ケース 1 岩盤の最小主ひずみコンター図[深度 2.5m] (step20 (10 万年経過), 変形拡大倍率：1,000 倍)	4-109
図 4.3.2-63	ケース 1 岩盤のせん断ひずみコンター図[深度 2.5m] (step20 (10 万年経過), 変形拡大倍率：1,000 倍)	4-110
図 4.3.2-64	ケース 1 岩盤の塑性化領域・立坑との間隙分布図[深度 2.5m]	

	(step20 (10 万年経過), 変形拡大倍率: 50,000 倍)	4-111
図 4.3.2-65	ケース 2 変形図[深度 72.5m]	
	(step20 (10 万年経過), 変形拡大倍率: 1,000 倍)	4-113
図 4.3.2-66	ケース 2 岩盤の最大主ひずみコンター図[深度 72.5m]	
	(step20 (10 万年経過), 変形拡大倍率: 1,000 倍)	4-114
図 4.3.2-67	ケース 2 岩盤の最小主ひずみコンター図[深度 72.5m]	
	(step20 (10 万年経過), 変形拡大倍率: 1,000 倍)	4-115
図 4.3.2-68	ケース 2 岩盤のせん断ひずみコンター図[深度 72.5m]	
	(step20 (10 万年経過), 変形拡大倍率: 1,000 倍)	4-116
図 4.3.2-69	ケース 2 岩盤の塑性化領域・立坑との間隙分布図[深度 72.5m]	
	(step20 (10 万年経過), 変形拡大倍率: 5,000 倍)	4-117
図 4.3.2-70	ケース 3 変形図[深度 302.5m]	
	(step20 (10 万年経過), 変形拡大倍率: 1,000 倍)	4-119
図 4.3.2-71	ケース 3 岩盤の最大主ひずみコンター図[深度 302.5m]	
	(step20 (10 万年経過), 変形拡大倍率: 1,000 倍)	4-120
図 4.3.2-72	ケース 3 岩盤の最小主ひずみコンター図[深度 302.5m]	
	(step20 (10 万年経過), 変形拡大倍率: 1,000 倍)	4-121
図 4.3.2-73	ケース 3 岩盤のせん断ひずみコンター図[深度 302.5m]	
	(step20 (10 万年経過), 変形拡大倍率: 1,000 倍)	4-122
図 4.3.2-74	ケース 3 岩盤の塑性化領域・立坑との間隙分布図[深度 302.5m]	
	(step20 (10 万年経過), 変形拡大倍率: 1,000 倍)	4-123
図 4.3.2-75	ケース 4 変形図[深度 457.5m]	
	(step20 (10 万年経過), 変形拡大倍率: 10,000 倍)	4-125
図 4.3.2-76	ケース 4 岩盤の最大主ひずみコンター図[深度 457.5m]	
	(step20 (10 万年経過), 変形拡大倍率: 1,000 倍)	4-126
図 4.3.2-77	ケース 4 岩盤の最小主ひずみコンター図[深度 457.5m]	
	(step20 (10 万年経過), 変形拡大倍率: 1,000 倍)	4-127
図 4.3.2-78	ケース 4 岩盤のせん断ひずみコンター図[深度 457.5m]	
	(step20 (10 万年経過), 変形拡大倍率: 1,000 倍)	4-128
図 4.3.2-79	ケース 4 岩盤の塑性化領域・立坑との間隙分布図[深度 457.5m]	
	(step20 (10 万年経過), 変形拡大倍率: 2,000 倍)	4-129
図 4.3.2-80	ケース 5 変形図[深度 492.5m]	
	(step20 (10 万年経過), 変形拡大倍率: 10,000 倍)	4-131
図 4.3.2-81	ケース 5 岩盤の最大主ひずみコンター図[深度 492.5m]	
	(step20 (10 万年経過), 変形拡大倍率: 1,000 倍)	4-132
図 4.3.2-82	ケース 5 岩盤の最小主ひずみコンター図[深度 492.5m]	
	(step20 (10 万年経過), 変形拡大倍率: 1,000 倍)	4-133
図 4.3.2-83	ケース 5 岩盤のせん断ひずみコンター図[深度 492.5m]	

	(step20 (10 万年経過), 変形拡大倍率: 1,000 倍)	4-134
図 4.3.2-84	ケース 5 岩盤の塑性化領域・立坑との間隙分布図[深度 492.5m] (step20 (10 万年経過), 変形拡大倍率: 1,000 倍)	4-135
図 4.3.2-85	岩盤と立坑の間隙 (例: ケース 3)	4-137
図 4.3.3-1	情報共有シートフォーマット	4-140
図 4.3.3-2	影響評価の前提となる断層の特性・発生時期の設定	4-149
図 4.3.3-3	時間枠・領域ごとに設定した安全機能の劣化・喪失の組み合わせ (深部地下水の上昇を考慮する場合)	4-150

第 5 章 可逆性と回収可能性などを考慮した地層処分システム概念の提示

図 5.1-1	成果の取りまとめに向けたアプローチ	5-1
図 5.1-2	実施フローと課題の位置づけ	5-3
図 5.2.2-1	市場の声として抽出する手順について	5-6
図 5.3.2-1	CARE 型処分場システム概念	5-14
図 5.3.2-2	CARE 型処分場システムの地下空洞施設 (左図) と地下に定置する 大容量のオーバーパック (キャスク) (右図) の概念図	5-15
図 5.3.2-3	貯蔵期間中の目視を可能とする CARE 概念	5-16
図 5.3.3-1	PEM 収納オーバーパックの空洞内定置オプション	5-18
図 5.3.3-2	樹脂製充填材を用いる CARE 概念	5-19
図 5.3.3-3	高透明性シリコン樹脂	5-19
図 5.3.3-4	樹脂製充填材仕様を最適化した CARE 概念	5-20
図 5.3.3-5	虫入り琥珀	5-21
図 5.3.3-6	PEM 型ベントナイトで包み込んだ MPC キャスク	5-21
図 5.5.2-1	処分場概念オプション	5-34
図 5.5.3-1	アンケート例	5-35
図 5.5.3-2	従来の地層処分概念の説明例	5-36
図 5.5.3-3	意見位置についての番号の対応	5-36
図 5.5.3-4	アンケート結果に基づく意見の集計 (意見分布)	5-37
図 5.5.3-5	態度変容行列の構成	5-37
図 5.5.5-1	統計的シミュレーション	5-41
図 5.5.5-2	ランダムサンプリングによる態度変容決定の概念	5-41
図 5.6.2-1	廃棄体からの放射線 (緩衝材の遮蔽効果)	5-57
図 5.6.3-1	ヘッドマウントディスプレイの例 (NAGRA の VR プロジェクト)	5-58
図 5.6.3-2	AR マーカーの例	5-60
図 5.6.3-3	NAGRA の VR プロジェクトで“見える”映像 (地上施設の景観)	5-63
図 5.6.3-4	NAGRA の VR プロジェクトで“見える”映像 (地下施設におけるキャスク搬入の様子)	5-63
図 5.6.3-5	バーチャル処分場の訪問ポイント	5-64

図 5.6.3-6	VR ウォークの画面	5-64
図 5.6.3-7	簡単説明クイックビューの画面（高レベル放射性廃棄物の地層処分について、要点をまとめたショートムービー）	5-65
第 6 章 地層処分事業に資するための地層処分システム評価確証技術の統合化		
図 6.1.2-1	「地層処分事業に資するための地層処分システム評価確証技術の統合化」の 5 カ年計画	6-2
図 6.1.3-1	処分システム評価確証技術の統合化	6-2
図 6.2.1-1	確証性の高い地層処分システムの構築に向けた多様なステークホルダ 及び 多分野の専門家間の対話と協働による知識の融合と構造化	6-4
図 6.2.1-2	成果統合の手順	6-5
図 6.2.2-1	環境・社会問題に対する関心度	6-9
図 6.2.2-2	高レベル放射性廃棄物の地層処分に対する関心度（属性別）	6-10
図 6.2.2-3	高レベル放射性廃棄物の地層処分に対する関心度（態度別）	6-11
図 6.2.2-4	環境・社会問題に怖いと感じる程度	6-12
図 6.2.2-5	高レベル放射性廃棄物の地層処分に怖いと感じる程度（属性別）	6-13
図 6.2.2-6	高レベル放射性廃棄物の地層処分に怖いと感じる程度（関心度等別）	6-14
図 6.2.2-7	環境・社会問題に対する関心度と怖さの関係	6-15
図 6.2.3-1	ポータルサイトにおけるナビゲーション機能の例	6-17
図 6.2.3-2	ポータルサイトにおける知識ベースの枠組みを反映した成果マップ	6-18
図 6.3.2-1	施策形成のためのコミュニケーション過程の構造化	6-23
図 6.3.2-2	GPIO サイクルの運用	6-25
図 6.3.2-3	参加の段階的モデルの整理	6-25
図 6.3.2-4	デジタルストーリーテリングでの ADMASR プロセス	6-30
図 6.3.3-1	ワークショップにおける GPIO サイクル	6-34
図 6.3.3-2	地上保管施設を対象とした集団の侵入	6-37
図 6.3.3-3	地層処分施設を対象とした集団侵入	6-38

表目次

第2章	ニアフィールドのシステム変遷と核種移行を評価するための先端的技術の開発	
表 2.2.1-1	熱物性の含水比依存性に係るパラメータ	2-11
表 2.2.1-2	不飽和水理特性における van Genuchten モデルのパラメータ	2-11
表 2.2.1-3	ニアフィールドの長期挙動解析に用いた解析物性値	2-14
表 2.2.1-4	ニアフィールドの長期挙動解析で設定した初期間隙水組成	2-14
表 2.2.1-5	ニアフィールドの長期挙動解析の初期条件及び境界条件	2-15
表 2.2.1-6	試験条件	2-18
表 2.2.1-7	载荷条件	2-18
表 2.2.1-8	試験条件	2-21
表 2.2.1-9	実施項目一覧	2-24
表 2.2.1-10	熱伝導率の設定	2-26
表 2.2.2-1	浸漬試験条件	2-37
表 2.2.2-2	腐食試験前後の試験片の重量減量から算出した腐食量及び腐食速度	2-41
表 2.2.2-3	試験条件	2-45
表 2.2.2-4	試験結果	2-46
表 2.2.2-5	試験条件	2-47
表 2.2.2-6	試験に用いた試料	2-49
表 2.2.2-7	原鉱石試料の分析結果および膨潤試験結果	2-50
表 2.2.2-8	炭素鋼ーベントナイト変質試験条件	2-57
表 2.3.1-1	人工バリア中の核種移行評価の不確実性に係る課題	2-60
表 2.3.2-1	拡散試験条件及び結果	2-65
表 2.3.2-2	塩濃度の異なる溶液で飽和させた圧縮 Ca 型モンモリロナイトの 間隙水分布の評価結果：縦緩和時間分布及び NMR 信号強度の温度依存性 からの評価の比較	2-71
表 2.3.2-3	GIPAW 計算より得られた積層構造の異なる Cs 型モンモリロナイトの NMR パラメータ	2-76
表 2.3.2-4	Se (IV) 固相収着試料の調製条件	2-79
表 2.3.2-5	Se (-II) 固相収着試料の調製条件	2-79
表 2.3.3-1	モンモリロナイト層間/粒子間間隙の体積分率	2-84
表 2.3.3-2	イオンの有効電荷と評価のためのパラメータ	2-85
表 2.3.3-3	不確実性を考慮するモデルパラメータ (Sr のケース)	2-110
表 2.3.4-1	試験条件	2-115
表 2.3.4-2	試験条件	2-118
表 2.3.4-3	固相分析結果のまとめ	2-121
表 2.4.2-1	結晶質岩と堆積岩系の核種移行に係る不確実性要因と課題の整理	2-124
表 2.4.2-2	解析で考慮したパラメータおよび設定値 (幅)	2-150

表 2.4.3-1	Eu(III)の熱力学データベース (Hummel et al., 2002)	2-158
表 2.4.3-2	解析に用いた NICA-Donnan モデルパラメータ	2-159
表 2.4.3-3	異なる手法とモデルから評価したフミン酸のカルボキシル基および 水酸基含量	2-160
表 2.4.3-4	再設定された地下水フミン酸への Eu 結合に対する NICA-Donnan モデル パラメータ	2-160
表 2.4.3-5	本調査により得られた Th ⁴⁺ に対する NICA-Donnan モデルパラメータ	2-163
表 2.4.3-6	FFF-ICPMS 測定に供した試料リスト	2-165
表 2.4.3-7	HHA への Zr ⁴⁺ 結合反応の条件付き平衡定数	2-166
表 2.4.3-8	各深度における地下水中のコロイド濃度の測定値	2-172
表 2.4.3-9	地下水中のコロイド濃度 (平均値) と微生物コロイド濃度	2-173
表 2.4.3-10	各ボーリング孔における地下水中の全菌数と採水チューブ内壁および 岩石表面に形成されたバイオフィルム密度	2-179
表 2.5.1-1	M-S-H の解離式及び平衡定数	2-186
表 2.5.1-2	M-S-H の過飽和実験の再現計算条件	2-186
表 2.5.1-3	M-S-H の未飽和浸漬実験の再現計算条件	2-188
表 2.5.1-4	人工海水のイオン濃度 (mol/L)	2-189
表 2.5.1-5	平成 28 年度に実施した C-S-H の浸漬試験 (Ca/Si モル比 0.9)	2-190
表 2.5.1-6	平成 27 年度モデル	2-192
表 2.5.1-7	平成 27 年度モデルにおける C-S-H への吸着設定	2-192
表 2.5.1-8	平成 27 年度モデルにおける初期水和物の設定	2-193
表 2.5.1-9	C-S-H の浸漬実験の再現計算条件	2-193
表 2.5.1-10	C-S-H への吸着設定の変更点	2-193
表 2.5.1-11	HFSC の浸漬実験の再現計算条件	2-196
表 2.5.1-12	平成 28 年度の HFSC の水和反応モデルの概要	2-199
表 2.5.2-1	長期力学解析の解析ケース	2-207
表 2.5.2-2	長期力学解析におけるセメント系材料の物性値 (処分施設閉鎖前)	2-207
表 2.5.2-3	長期力学解析におけるセメント系材料の物性値 (処分施設閉鎖後)	2-208
表 2.5.2-4	長期力学解析における鉄 (腐食膨張要素) の物性値	2-208
表 2.5.2-5	長期力学解析における岩盤の物性値	2-208
表 2.5.4-1	作製したセメント供試体およびブリージング水の水質	2-220
表 2.5.4-2	走査型 X 線分析顕微鏡の測定仕様	2-222
表 2.6.2-1	総合評価プラットフォームに必要な機能のまとめ	2-234
表 2.6.3-1	連成解析用ミドルウェアおよびインタフェースに要求される機能と OpenMI 中の対応する機能	2-236
表 2.6.4-1	本年度の連成解析で交換されるパラメータ	2-242
表 2.6.4-2	小領域解析における亀裂情報抽出の指標	2-244
表 2.6.4-3	水理解析手法構築のための前提条件	2-245

表 2.6.4-4	DEAFRAP による破壊可能領域解析に用いられたモデルの粒子半径と 粒子数	2-255
表 2.6.4-5	本解析で想定する前提条件（貫通亀裂発生まで）	2-258
表 2.6.4-6	固相の設定および溶解反応速度の設定	2-259
表 2.6.4-7	液相の設定	2-259
表 2.6.4-8	連成解析の試行における亀裂情報抽出の指標	2-260
表 2.6.4-9	水理解析で設定した透水係数	2-260
表 2.6.4-10	RegionI、RegionII セメント間隙水の設定	2-261
表 2.6.5-1	試解析の対象となる核種の設定	2-266
表 2.6.5-2	核種移行解析の対象核種	2-269
表 2.6.5-3	核種移行解析における Kd の設定値	2-269
表 2.6.5-4	核種移行解析で対象とした 3 核種の移行挙動のまとめ	2-273
表 2.6.6-1	ニアフィールド状態変遷のストーリーボード	2-275
表 2.6.6-2	核種移行のストーリーボード	2-276

第 3 章 多様な廃棄物の共処分におけるニアフィールドの影響評価技術開発

表 3.2.1-1	熱量測定及び陰イオン濃度分析の方法	3-8
表 3.2.1-2	陰イオン分析結果より算出した塩成分	3-9
表 3.2.1-3	H28 検討モデルのパラメータ	3-13
表 3.2.1-4	熱収支解析における構成要素の物性に関する設定値	3-16
表 3.2.1-5	境界条件及び初期温度分布	3-16
表 3.2.1-6	内部からの微生物発熱を想定した熱収支解析条件	3-18
表 3.2.1-7	自動車火災におけるトンネル内空気の最高温度 (PIARC より)	3-22
表 3.2.2-1	アンプル試験条件一覧	3-26
表 3.2.2-2	アンプル試験気相分析結果	3-27
表 3.2.2-3	アンプル試験液相分析結果	3-28
表 3.2.2-4	カラム試験条件	3-31
表 3.2.2-5	カラム試験結果	3-32
表 3.2.2-6	平成 27 年度カラム試験結果	3-32
表 3.2.2-7	熱量測定試験条件	3-35
表 3.2.2-8	液相分析結果	3-36
表 3.2.2-9	過去に実施したナチュラルアナログ事例解析における 各パラメータ調査結果の有無	3-38
表 3.2.2-10	生口島事例を対象とした硝酸塩変遷挙動解析の条件	3-41
表 3.2.2-11	解析に重要な情報	3-44
表 3.2.3-1	Na ⁺ -NH ₄ ⁺ イオン交換実験の条件	3-56
表 3.2.4-1	本報告で使用もしくは導出したウラン(VI)-OH-ISA 系の反応の平衡定数	3-64
表 3.2.4-2	ウラン(IV)の加水分解種およびイソサッカリン酸錯体の熱力学データ	3-67

表 3.3.1-1	体系を構成する領域に設定した物性値	3-71
表 3.3.1-2	処分坑道ごとの初期物質量	3-71
表 3.3.1-3	硝酸イオンの収着分配係数及び実効拡散係数並びに硝酸塩の影響を受けないと想定した I-129 の収着分配係数及び実効拡散係数の設定値	3-72
表 3.3.1-4	試験データ (Ishidera et al., 2008) を参考に設定したベントナイト系材料に対する I-129 の実効拡散係数	3-73
表 3.3.2-1	母岩の透水係数の設定値	3-78

第 4 章 過酷事象の地層処分システムへの影響に関する評価確証技術開発

表 4.2.2-1	各パラメータの記号と名称	4-9
表 4.2.2-2	吸入摂取による被ばく線量評価に用いたパラメータの一覧	4-10
表 4.2.2-3	吸入による線量換算係数	4-11
表 4.2.2-4	過酷事象となるために必要な最小放射能濃度 (吸入摂取)	4-12
表 4.2.2-5	一般公衆が抱く不安や懸念の整理結果 (1/2)	4-14
	一般公衆が抱く不安や懸念の整理結果 (2/2)	4-15
表 4.2.2-6	一般公衆が抱く不安や懸念に基づく発端事象の抽出結果 (1/4)	4-17
	一般公衆が抱く不安や懸念に基づく発端事象の抽出結果 (2/4)	4-18
	一般公衆が抱く不安や懸念に基づく発端事象の抽出結果 (3/4)	4-19
	一般公衆が抱く不安や懸念に基づく発端事象の抽出結果 (4/4)	4-20
表 4.2.2-7	懸念事項リストの例	4-21
表 4.2.2-8	不安や懸念を起点とした自然事象の連鎖 (1/2)	4-23
	不安や懸念を起点とした自然事象の連鎖 (2/2)	4-24
表 4.3.2-1	地層処分における地震・断層活動の考え方 (1/3)	4-32
	地層処分における地震・断層活動の考え方 (2/3)	4-33
	地層処分における地震・断層活動の考え方 (3/3)	4-34
表 4.3.2-2	せん断模型実験ケース一覧	4-44
表 4.3.2-3	緩衝材の仕様	4-44
表 4.3.2-4	せん断衝突実験結果概要	4-48
表 4.3.2-5	設計用実寸法人工バリアの解析モデルの寸法	4-50
表 4.3.2-6	断層模擬実験解析モデルの模擬岩盤の物性値	4-54
表 4.3.2-7	断層模擬試験解析モデルの模擬オーバーパックの物性値	4-54
表 4.3.2-8	緩衝材の物性値	4-54
表 4.3.2-9	岩盤 (硬岩系) の物性値	4-55
表 4.3.2-10	廃棄体・オーバーパックの物性値	4-55
表 4.3.2-11	最大断層すべり速度の設定用パラメーター一覧	4-58
表 4.3.2-12	国内の主な大規模地震一覧	4-66
表 4.3.2-13	処分坑道横置き定置方式 (軟岩系岩盤) の仕様	4-73
表 4.3.2-14	初期応力解析における物性値及び荷重	4-73

表 4.3.2-15	人工バリア自重解析に用いた物性値	4-74
表 4.3.2-16	動的解析に用いた物性値	4-74
表 4.3.2-17	既往資料緩衝材の動的三軸試験結果	4-75
表 4.3.2-18	解析ステップ一覧	4-78
表 4.3.2-19	入力地震動を係数倍増幅したケースの最小隔離と最大変位	4-83
表 4.3.2-20	地震動を係数倍増幅した場合の最小隔離と最大変位	4-86
表 4.3.2-21	最大せん断ひずみを考慮したせん断剛性率の設定	4-88
表 4.3.2-22	振幅倍率とオーバーパックが岩盤に接するまでに要する加振回数の関係	4-90
表 4.3.2-23	入力物性値	4-91
表 4.3.2-24	一次元応答解析結果（最大相対変位、最大加速度）	4-93
表 4.3.2-25	一次元応答解析結果（最大相対変位、最大加速度）	4-94
表 4.3.2-26	一次元応答解析結果（最大せん断ひずみ、最大せん断応力度）	4-95
表 4.3.2-27	一次元応答解析結果（最大せん断ひずみ、最大せん断応力度）	4-96
表 4.3.2-28	最大せん断ひずみ最大絶対加速度及び最大相対変位	4-97
表 4.3.2-29	評価対象断面（検討ケース）一覧	4-100
表 4.3.2-30	岩盤の入力物性値	4-100
表 4.3.2-31	覆工コンクリートの入力物性値	4-101
表 4.3.2-32	解析結果一覧	4-136
表 4.3.3-1	情報共有シートの取りまとめ表	4-147

第5章 可逆性と回収可能性などを考慮した地層処分システム概念の提示

表 5.2.2-1	非専門家の意見に基づく市場の声（要求概念）の抽出（1/2）	5-9
表 5.2.2-2	非専門家の意見に基づく市場の声（要求概念）の抽出（2/2）	5-10
表 5.3.1-1	市場の声に基づく品質機能展開の例	5-12
表 5.3.2-1	新たな処分場概念「市民参加型の長期監視・可逆型処分施設の機能と特色」	5-13
表 5.4.3-1	高レベル放射性廃棄物対策についての意見（地層処分概念の説明前）	5-26
表 5.4.3-2	高レベル放射性廃棄物対策の実施場所に対する意見 （地層処分概念の説明前）	5-26
表 5.4.3-3	高レベル放射性廃棄物対策に対する意見（地層処分概念の説明後）	5-27
表 5.4.3-4	高レベル放射性廃棄物対策の実施場所に対する意見 （地層処分概念の説明後）	5-28
表 5.4.3-5	高レベル放射性廃棄物対策に関する意見（新概念の提案後）	5-29
表 5.4.3-6	高レベル放射性廃棄物対策の実施場所に対する意見（新概念提案後）	5-29
表 5.4.3-7	高レベル放射性廃棄物対策に対する意見（分散型地上保管概念の説明後）	5-30
表 5.4.3-8	高レベル放射性廃棄物への技術対策に関する意見 （分散型地上保管概念の説明後）	5-30
表 5.4.3-9	高レベル放射性廃棄物術対策に対する意見 （最終処分へのプロセスの説明後）	5-31

表 5.4.3-10	高レベル放射性廃棄物対策の実施場所に対する意見 (最終処分へのプロセス概念説明後)	5-32
表 5.5.3-1	各処分場概念オプションの説明およびアンケートの順序	5-35
表 5.5.4-1	集計した意見分布一覧	5-38
表 5.5.4-2	意見分布ベクトル一覧	5-39
表 5.5.4-3	態度変容行列一覧	5-40
表 5.5.5-1	ケーススタディ 1-1 結果	5-42
表 5.5.5-2	ケーススタディ 1-2 結果	5-42
表 5.5.5-3	ケーススタディ 1-3 結果	5-43
表 5.5.5-4	ケーススタディ 2-1 結果	5-44
表 5.5.5-5	ケーススタディ 2-2 結果	5-45
表 5.5.5-6	ケーススタディ 2-3 結果	5-46
表 5.5.5-7	ケーススタディ 2-4 結果	5-47
表 5.5.5-8	ケーススタディ 3-1 結果	5-48
表 5.5.5-9	ケーススタディ 3-2 結果	5-49
表 5.5.5-10	ケーススタディ 3-3 結果	5-49
表 5.6.2-1	物理探査技術の分類例	5-52
表 5.6.2-2	人工バリア性能確認のための計測項目	5-55
表 5.6.3-1	AR のライブラリ	5-61
表 5.6.3-2	地層処分を“見える”ようにする想定されるケース	5-62
第 6 章	地層処分事業に資するための地層処分システム評価確証技術の統合化	
表 6.2.1-1	知識ベースの枠組みと成果の要件	6-6
表 6.2.1-2	知識ベースの枠組みと各 SP 成果の統合整理	6-7
表 6.2.3-1	ナビゲーション機能の一覧	6-15
表 6.3.1-1	旅行代理店のカスタマージャーニーマップの仕様例	6-22
表 6.3.2-1	参加型コミュニケーション手法の分類	6-26
表 6.3.2-2	日本で開催された主なコンセンサス会議	6-27
表 6.3.2-3	双方向コミュニケーション手法の比較 (概要・特徴・手法)	6-32
表 6.3.2-4	双方向コミュニケーション手法の比較 (有効性の分析)	6-33

1. 緒言

1.1 本事業の背景と目的

本事業は、平成28年度地層処分技術調査等事業（処分システム評価確証技術開発）として、経済産業省資源エネルギー庁（以下、資源エネルギー庁）から国立研究開発法人日本原子力研究開発機構（以下、原子力機構）が受託したものである。本事業の背景と目的を以下に記す。

我が国においては、現在、約17,000トンの使用済燃料を保管中であり、これは、既に再処理された分も合わせるとガラス固化体で約25,000本相当の高レベル放射性廃棄物となる（経済産業省、2014）。廃棄物を発生させた現世代の責任として将来世代に負担を先送りしないように、放射性廃棄物の地層処分対策を着実に進める必要がある。そのために、これまで地層処分の長期的な安全性に関する信頼性を高めることを目標に、安全評価上の保守性を重視したロバストな地層処分システム概念の構築と評価手法の開発が進められてきており、処分実施主体においては、さらに実用的かつ経済的合理性のあるものにするための技術開発が行われている。地層処分が安全で信頼に足るものとして社会に受け入れられるものとするためには、システムとしての評価に関する技術の確証が十分に行われる必要がある。システム評価においては、ロバスト性の概念を、安全評価の保守性だけでなく、システムが有するレジリアンス性なども含めた拡張ロバスト性概念として再定義し、より包括的な視点を与えることが重要である。こうした視点に立って評価技術の確証を行うためには、計算科学等における先端科学技術の知見が最大限適用されていることを保証するとともに、特に東北地方太平洋沖地震を踏まえた過酷事象対策も念頭に置いたシステム概念と評価技術の開発が不可欠である。さらに、システム評価技術の科学技術的な先端化と併せて、社会的意思決定プロセスのなかに、システム評価に関する確証性を高めていくための仕組みを考慮したシステム概念を提示していくことが必要である。

これらの背景を踏まえ、本研究開発では、先端科学技術を駆使した解析評価技術を開発するとともに、こうした評価技術と関連させ、地層処分にかかわる意思決定プロセスにおけるシステム評価の確証性を高めていくための仕組みを備えた地層処分システム開発の方法論を構築することを目的とする。このために、拡張ロバスト性概念の構築を行い、これに基づいて処分場閉鎖前から閉鎖後の長期にわたる処分場近傍（ニアフィールド）を中心としたシステム変遷と核種移行を評価するための先端的評価技術、高レベル放射性廃棄物や多様な長半減期低発熱放射性廃棄物（TRU廃棄物）の共処分によるニアフィールドの影響評価技術、及び断層発生等が過酷事象に至る可能性を探索するための評価確証技術の開発を行うとともに、これらを用いた評価に基づき、可逆性と回収可能性、モニタリングシステム等を考慮した確証性の高いシステム概念の具体的な提示を行う。

これらを通じ、処分実施主体が行う処分場設計や性能評価の科学技術的基盤を与え、安全裕度の定量化等に資すると同時に、安全規制策定に対しても科学技術的基盤を提供し、地層処分技術の社会的受容性向上に貢献する。また、本研究開発の成果をこうした目的に円滑に反映できるよう、地層処分システム評価確証技術として統合化する。

1.2 確証性の高い地層処分システムとは

1.1章において本プロジェクトの開発目標として設定した「確証性の高い地層処分システム」について示す。確証という言葉は、科学・工学の分野では、主に”Validation”の訳語として、「製品やサービスが意図する機能を満足する性能を持つことを確認すること」程度の意味（たとえば、IAEA, 2007）

で使用されている。地層処分システムに期待されるのは、それが「社会に受け入れられて、事業として実施され、その結果、超長期にあたり安全性が維持されること」であり、提案されたシステムがこの期待に答えていることを、ステークホルダー各層が、より良く確認できるものであるという意味で、ここでは「確証性の高い地層処分システム」と呼ぶこととした。「ステークホルダー各層が、その意思決定過程において、地層処分システムが意図する機能を満足する性能を持つことをより良く確認できる」ということは、「ステークホルダー各層にとって、納得のいく地層処分システム(Convincing Geological Disposal System)」と言い換えることができる。意思決定過程にあるステークホルダーにとって納得のいくものであるか否かは、それが確信のもてるもの(Confident)であるかということと、公平(Fair)なものであるかということに強く関連している(OECD/NEA, 2012)。図1.2-1に、ステークホルダーにとって地層処分がConvincingであるために、すなわちConfidentであり、かつFairであるために、地層処分システムが具備すべき属性を構造化して示した。図1.2-1に示した具備すべき属性及びその構造も、検討の進捗とともに変化するものであるが、上記の具備すべき属性の向上に、如何に貢献するかということを確認しつつ引き続き本事業の研究開発を進めることにより、地層処分システムが、よりConvincingなものとなるよう努めることが重要である。

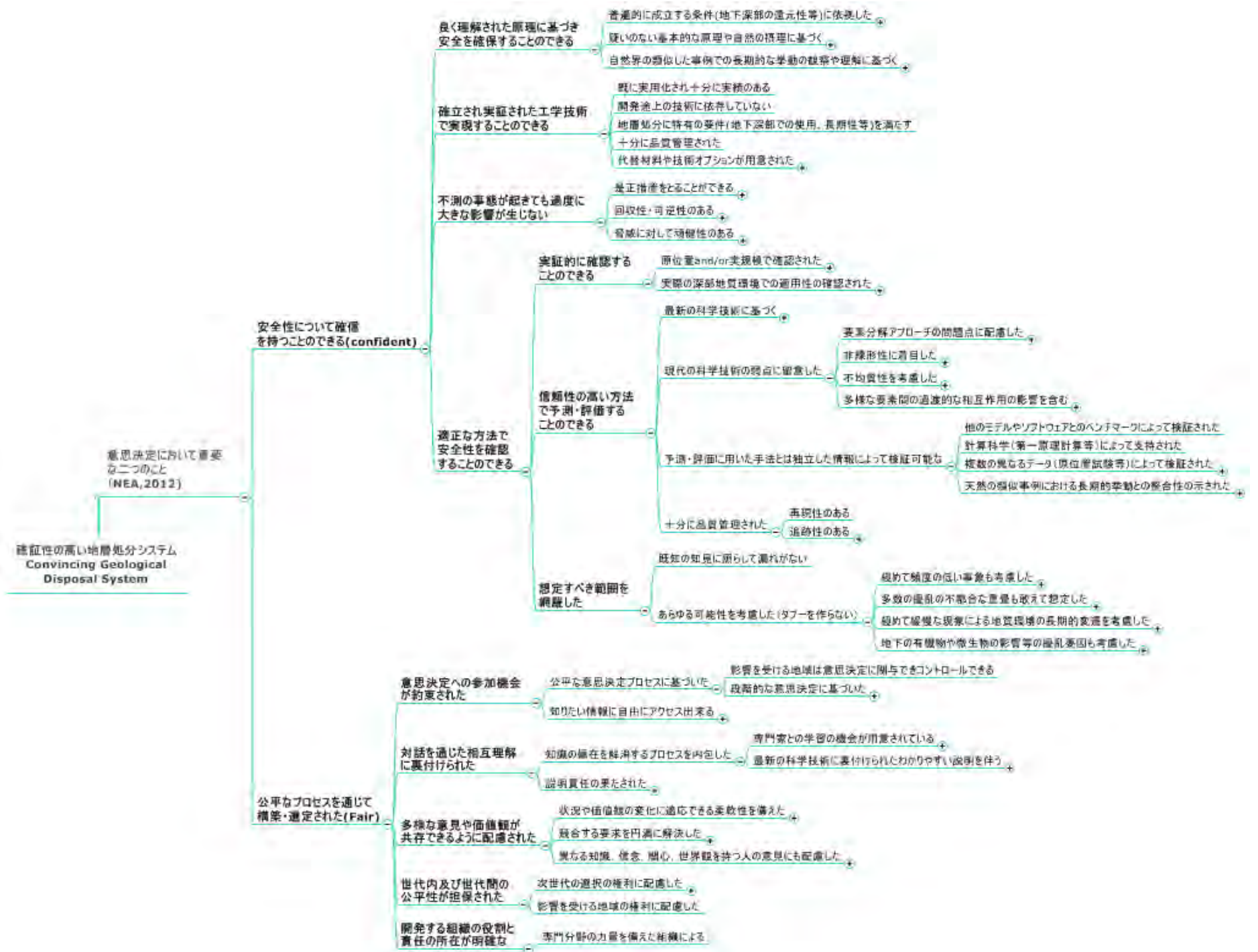


図1.2-1 確証性の高い地層処分システムが具備すべき属性とその構造

1.3 全体フレーム

地層処分研究の特徴として、処分場のサイト選定からサイト調査、掘削、操業、閉鎖等の100年に及ぶ過程で、度々、セーフティケースの提示が求められ、利害関係者の意見調整及び意思決定に用いられる。この間、地層処分システムの評価技術が陳腐化しないように、科学技術の進歩を反映することにより、高度化していくことが必要である。このためには先端的な分析技術を活用した処分システムの長期変遷に係る様々な現象の解明、及び高度な計算科学的手法を利用した現象モデルの精緻化、並びにこれらを反映したシステム性能評価モデルの高度化がなされる必要がある。1.1章で安全で信頼に足る地層処分システムの要件として挙げたように、これらの高度化された評価技術は、地下研究施設や室内での実験結果あるいは天然類似事象の調査結果等により確証される必要がある。

また、1.1では、安全評価の保守性のみに着目した従来の評価のロバスト性にも、システムが有するレジリエンス性を含めて、ロバスト性の概念を再定義し、より包括的な視点を与えることの重要性を指摘した。このレジリエンス性は、近年、社会的関心が高まり、さまざまな分野で新たなパラダイムとして導入され、その文脈に沿って様々なことが議論されている。例えば、平成24年12月に発足した安倍内閣では、平成25年1月に国土強靱化（ナショナル・レジリエンス）（内閣官房，2014）を掲げており、レジリエンス工学という学問分野も確立されつつあり、平成25年4月に東京大学にレジリエンス工学研究センターが設立されている（東京大学，2014）。しかし、下記のように研究者の考え方及び分野の特徴を反映した様々な概念として使用されており、レジリエンスである対象も、組織やシステムなど幅広いものとなっている。

- ◆ 【辞書的な意味】 弾力性、復元性、心理的な立ち直り能力
- ◆ 【Longstaff, P. H., 2010】 Resistance（システムが擾乱に対してその機能を維持すること）& Recovery（システムが機能の一部を失ったときにその障害から回復する能力）の組み合わせ。
- ◆ 【Westrem, R., 2006】 何か悪いことが起こることを事前に防ぐ能力、悪いことがさらに悪くなることを防ぐ能力、悪いことが起こってしまった場合そこから回復する能力
- ◆ 【Hollnagel, E., 2012】 レジリエンスとは想定内、想定外のいずれの事象に対しても、必要な動作を維持することができる能力。擾乱に対する回復力ではなく、想定外の範囲を含む環境下でも、機能を持続できる能力である。
- ◆ 【アメリカ規格協会/アメリカ企業セキュリティ協会(2009)】 複雑かつ変化していく環境に対する組織の適応能力
- ◆ 【米商務省・国家標準技術院（NIST）（2011）】 レジリエンスとは、リスクマネジメント、不測事態対応計画及び継続計画の全体論的な導入により、環境へのあらゆる既知又は未知の変更に対して、迅速に適応かつ回復する能力をいう。

上記、Hollnagel(2012)の定義は、従来、地層処分分野で用いられてきたロバスト性の概念に近いものであるが、受動的状態である閉鎖後の地層処分システムでは、長期的にはシステムの可観測性/可制御性に基づくレジリエンスの維持は保証されない。

以上のことから、従来、他分野で構築されたレジリエンスの概念を、そのまま地層処分システムに反映するのではなく、地層処分システムの特徴を踏まえて、地層処分システムに関するレジリエンス

の概念を構築する必要がある。

Hollnagel (2011)によれば、システムのレジリエンス性の実現過程は、4つの要素（予期(anticipate)、監視(monitring)、対応(responsiveness)、及び学習(learning)）から構成される。これらは主に人の関与が前提となる能動的システムについて検討されたものである。このため、能動的関与が可能な処分場閉鎖前や意思決定の可逆性及び放射性廃棄物の回収可能性の維持期間とは親和性が高いが、閉鎖後の受動的な安全系に移行した後の期間においては、可観測性／可制御性が保証できないという特徴を有する。地層処分システムのレジリエンス性の概念構築とともにそのレジリエンス性を実装する対象(e.g., 地層処分システムを開発・運用する組織、研究・設計・評価等の行為、地層処分システム自体)や方法論についての検討も必要となる。

以上のことを含め、確証性の高い地層処分システム(Convincing Geological Disposal System)の構築を目指して、図1.3-1に示す全体構成に基づきプロジェクトを実施する。

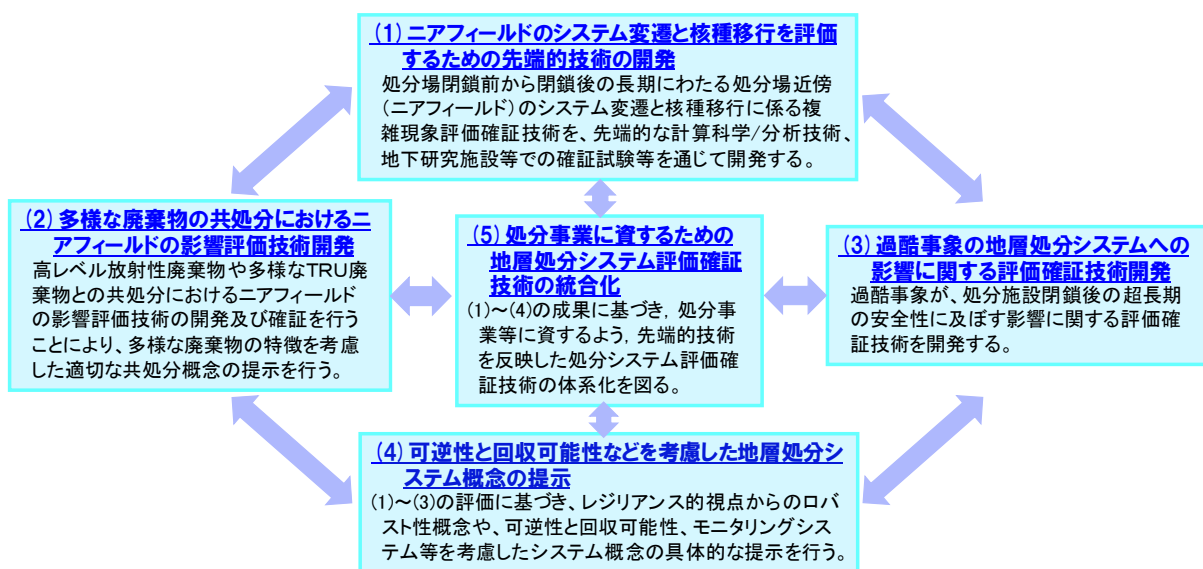


図1.3-1 本プロジェクトの全体構成

上記図1.3-1に示した(1)は、非線形マルチスケール/マルチフィジックスのシステム挙動を呈するニアフィールドシステムの評価を行う場合に、その複雑性ゆえに評価を難しくしている事象についての評価技術を開発するものである。(2)は、TRU廃棄物に含まれる多様な物質の影響を評価する技術を開発するものである。これら(1)及び(2)は地層処分システムの評価技術の高度化であり、地層処分システムの広義の可観測性を向上させることによりレジリエンス性を含むシステムのロバスト性をより明確に示せるようにするものである。(3)は、地層処分システムの安全性に重大な影響を与える可能性のある過酷事象の概念を確立し、その評価・対処技術を確立するものである。(4)は、可逆性と回収可能性などを考慮した地層処分システム概念の検討に係るものである。(3)及び(4)は、不測の事態に対応する技術を開発することにより、地層処分における安全性のロバスト性を、よりレジリエントなものにしようというものである。(5)は、処分事業に資するため(1)~(4)の成果を、利用しやすい知識体系として統合化するものである。これらのプロジェクトを以下の事項に留意して実施する。

- 最先端の計算科学的手法（マルチフィジックス、分子動力学等）や分析技術の適用による現象理解の深化を図るとともに、これらを用いて開発する先端モデルによるシミュレーションに必要なデータベースを構築する。
- 原子力機構の地層処分基盤研究施設/放射化学研究施設、深地層の研究施設等を活用して、各種現象に応じた確証試験あるいはナチュラルアナログ研究等を通じ、評価確証技術を提示する。
- H26年度までに原子力機構が実施した経済産業省資源エネルギー庁関連事業「処分システム化学影響評価高度化開発（日本原子力研究開発機構，2008a, 2009a, 2010a, 2011a, 2012a, 2013a, 2013b）（(1)ニアフィールドのシステム変遷と核種移行を評価するための先端技術の開発に反映）、「セメント材料影響評価技術高度化開発」（日本原子力研究開発機構，2012d, 2013e, 2014c, 2015c）（(1)ニアフィールドのシステム変遷と核種移行を評価するための先端技術の開発に反映）、「先進的地層処分概念・性能評価技術高度化開発（日本原子力研究開発機構，2008b, 2009b, 2010b, 2011b, 2012b, 2013c, 2013d）（(1)ニアフィールドのシステム変遷と核種移行を評価するための先端技術の開発、及び(3)過酷事象の地層処分システムへの影響に関する評価確証技術開発に反映）、「硝酸塩処理・処分技術高度化開発（日本原子力研究開発機構，2008c, 2009c, 2010c, 2011c, 2012c, 2013d, 2013e）（(2)多様な廃棄物の共処分におけるニアフィールドの影響評価技術開発に反映）の成果を活用する。
- 現在、実施されている経済産業省資源エネルギー庁関連事業、「使用済燃料直接処分技術開発」（日本原子力研究開発機構，2014a, 2015a, 2016a, 2017a）と「地質環境長期安定性評価確証技術開発」（日本原子力研究開発機構，2014b, 2015b, 2016b, 2017b）における研究開発との連携を図る。

1.4 本年度の実施内容

1.4.1 ニアフィールドのシステム変遷と核種移行を評価するための先端技術の開発

処分場閉鎖後の長期にわたるニアフィールドのシステム変遷と核種移行を評価するための技術を、様々な不確実性要因を考慮した複合現象としての取り扱い、先端的な計算科学・分析技術の活用、地下研究施設等での確証等の視点に重点をおいて開発する。

(1) システムの過渡的変化評価技術開発

ニアフィールドの処分場閉鎖前から核種移行開始までの環境条件変遷を評価する熱-水-応力-化学連成解析コードを高度化するとともに、多様な環境条件の変遷やその不確実性を考慮した評価のための人工バリア材の基礎データを拡充し、ニアフィールドシステムの過渡的変化に関する、より現象に忠実な評価手法の構築と確証を行う。

平成27年度までに、処分場閉鎖後の各時期及び各領域でのニアフィールドシステムにおいて考慮すべき様々な現象の特徴及び現状での現象理解の状況を整理し、本事業において取り組むべき課題と対応を取りまとめた。また、より複雑な現象を取りこんだ解析を可能とするための連成解析コードの改良を行った。さらに、高温環境や酸性環境等における人工バリア材料の挙動評価のためのデータ取得を継続するとともに、開発したセンサーによる室内試験や原位置での測定を実施した。

平成28年度は、原位置試験などの大規模領域を対象とした解析やより複雑な現象を考慮した解析を

実施するために解析コードの改良を行うとともに、その改良に必要な室内試験により緩衝材の膨潤挙動のより詳細な検討を実施する。また、人工バリア材料の挙動評価に必要なデータ取得として、腐食モニタリングセンサーを用いたオーバーパックスの腐食試験を継続するとともに、従来の想定範囲を超える条件下でのオーバーパックスの腐食挙動に関するデータを拡充する。さらに、緩衝材中のpHを計測するためのセンサーの改良を継続するとともに、オーバーパックスと緩衝材の相互作用評価のための環境条件を制御した室内試験データを拡充する。

(2) 人工バリア中の核種移行に係る不確実性要因分析とそれに基づく性能評価技術開発

人工バリア中の核種移行評価技術として、最新の科学的知見に基づく現象理解を反映したより精緻な評価、システム変遷やそれに係る不確実性要因を考慮した評価を可能とするモデルとデータベースを開発する。

平成27年度までに、緩衝材中の間隙構造や間隙水特性、核種の収着・拡散、ガラス溶解等の核種移行現象、それらに対するシステム変遷の影響に着目した不確実性要因の抽出、その解決に向けたアプローチを提示した上で、基礎データの取得、先端的分析・計算科学技術によるメカニズムの理解及びそれらを反映したモデルの改良を進めた。

平成28年度は、緩衝材中の間隙構造や間隙水特性の不均質性及び核種の収着・拡散メカニズムをより精緻に理解するため、先端的な分析技術の適用を含む各種室内試験により基礎データを拡充する。また、分子動力学計算や量子化学計算等による評価事例を拡充しつつ、多様な環境条件とその変遷を考慮した評価を可能とするための精緻化モデルの構築とその適用性評価を行う。さらに、システム変遷に係る不確実性要因のうち、オーバーパックス腐食生成物がガラス溶解及び核種の収着・拡散現象に及ぼす影響について、室内試験によるデータ取得とモデル構築を進める。

(3) 天然バリア中の核種移行に係る不確実性要因分析とそれに基づく性能評価技術開発

ニアフィールド岩盤のシステム変遷やそれに係る不確実性要因を考慮し、割れ目等の不均質性や有機物・微生物等が地下水化学や核種移行に及ぼす影響評価手法を、室内試験及び地下研究施設等での原位置試験を通じて構築・確認する。

平成27年度までに、割れ目等の不均質性を考慮した核種移行評価手法については、岩石マトリクスや割れ目部の鉱物・間隙の不均質性や核種の収着・拡散に関わる基礎データを取得するとともに、それら不均質性等を考慮した核種移行モデルの開発を進めた。また、原位置トレーサー試験やナチュラルトレーサー評価によるモデルの適用性評価に着手した。有機物・微生物等の核種移行評価については、室内試験と原位置試験を含む影響評価手法の開発アプローチを具体化するとともに、基礎データの取得に必要な技術の整備、試験及びモデル化手法調査等を実施した。

平成28年度は、割れ目等の不均質性をより精緻に評価するための室内試験と解析手法の改良を継続するとともに、室内試験を通じて構築した評価技術の原位置への適用性評価、ナチュラルトレーサーを活用した長期時間スケールでの確認評価を行う。また、有機物・微生物等の核種移行への影響評価手法の構築・確認に向けて、室内及び原位置でのデータの取得を継続し、核種移行プロセスへの影響モデルの構築とその適用性の評価を行う。

(4) セメント系材料影響評価技術開発

処分場建設時には、支保、グラウト、インバート等にセメント系材料が使用されることが想定される。このため、セメント系材料を利用することによるニアフィールドへの影響を把握・評価するための技術開発として、セメント系材料の長期挙動評価モデルの開発、セメント系材料の利用によって生ずる地下水の化学的条件変化による核種移行挙動への影響評価、グラウト材料（セメント）による周辺岩盤への影響調査（以下、グラウト影響評価技術開発とする）を実施する。

平成27年度は、セメント系材料の長期挙動評価モデルの開発として、化学的観点からは海水系地下水条件で主要なセメント水和物となるマグネシウムケイ酸塩水和物の溶解沈殿反応に係るデータ取得を行い、力学的観点からはセメントのひび割れ発生の挙動等を考慮した長期力学解析手法の開発を行った。また、セメント系材料の核種移行挙動への影響評価としては、四価遷移金属元素（Zr、Sn）を対象にアルカリ性条件における核種の収着分配係数設定のための調査及びデータ取得を行った。さらに、グラウト影響評価技術開発としては、地下研究所等における既存のボーリング孔のコアを用いたグラウト材料充填状況とグラウト材料接触部岩盤の変質状況の観察・分析を行った。

平成28年度は、セメント系材料の長期挙動評価モデルの開発として、海水系地下水条件での低アルカリ性セメントの化学的変質挙動に関わるデータ取得及びモデル化と、セメントによるニアフィールドの現実的な状態変遷を考慮した長期力学解析を行うための手法開発を行う。また、セメント系材料の核種移行挙動への影響評価としては、多価遷移金属元素（Nb、Mo等）の収着分配係数設定のための調査及びデータ取得を行う。さらに、グラウト影響評価技術開発としては、グラウト施工領域で新たにコアを採取して観察・分析を行い、グラウト材料や岩盤の割れ目の状態に着目して経時変化の考察を行う。

(5) ニアフィールド複合現象／核種移行の体系的評価に向けた技術開発

上記(1)～(4)での検討結果や成果を統合することによって、ニアフィールドの環境変遷とその不確実性を考慮して核種移行評価を実施できる評価技術を開発する。

平成27年度までに、ニアフィールドの状態・環境変遷に係る諸現象について、マルチスケール性、マルチフィジックス性等を適切に取り扱う手法について調査・検討を進め、分野横断的・整合的に現象解析を実施するための共通モデルを整備した。さらに、これまでセメント系材料の影響評価を対象に、平成26年度までに経済産業省資源エネルギー庁委託事業「地層処分技術調査等事業 セメント系材料影響評価技術高度化開発」において開発された現象解析モデル間の連成・統合手法等に基づき、適用対象を拡大した複合現象解析技術の開発を進めた。

平成28年度は、可変グリッド型反応輸送解析モデルと個別要素法力学解析モデルの連成解析を行うための手法を開発し、複合現象解析技術への反映を行う。また、ニアフィールドの状態・環境変遷評価に基づき核種移行の場の時空間的変遷を推定し、その推定結果を反映して核種移行解析を行うための手法開発を行う。さらに、上記の複合現象解析技術及び核種移行解析手法、共通モデル等をニアフィールド総合評価システムとしてとりまとめるとともに、ニアフィールドの状態・環境変遷に関する現象解析及びこの結果を踏まえた核種移行解析という一連の試行と、その試行を通じた今後の課題抽出を行う。

1.4.2 多様な廃棄物の共処分ににおけるニアフィールドの影響評価技術開発

高レベル放射性廃棄物や再処理施設等から発生する多様なTRU廃棄物との共処分ににおけるニアフィールドの影響評価技術の開発及び確証を行うことにより、多様な廃棄物の特徴を考慮した適切な共処分概念の提示を行う。

(1) 廃棄物の特性を踏まえた共処分影響評価技術開発

平成27年度は、多様な廃棄物の中で、硝酸塩を含有する廃棄物の発熱反応に関わるデータを模擬固化体に対して取得し、データの蓄積を行い、様々なシナリオに対する地層処分の予備的な安全性の評価を実施した。硝酸塩の化学的変遷モデルの確証については、確証試験を継続するとともに、自然界における硝酸性窒素の汚染事例について、モデルの適用性を示した。バリア候補材料への影響については、硝酸塩に由来するアンモニア等による緩衝材の変質について、セメント固化体等からのアルカリ成分の影響の重畳を考慮した実験的な調査を行うとともに、計算科学的な調査に着手した。放射性核種への影響については、有機物の影響として、セルロースの分解生成物が放射性核種の溶解度に及ぼす影響について実験的なデータを取得した。

平成28年度は、模擬固化体について、従来から特にデータが不足している低温領域における発熱量測定を行うとともに、得られたデータ等に基づき発熱速度モデルを定式化する。定式化されたモデルに基づき、地層処分の安全性の評価を行う。硝酸塩の化学的変遷モデルの確証については、確証試験等を継続するとともに、自然界における硝酸性窒素の汚染事例に対するモデルの適用性について成果の取りまとめを行う。バリア候補材料への影響については、硝酸塩に由来するアンモニア等による緩衝材への影響として、セメント固化体等からのアルカリ成分影響の重畳を考慮しつつ、モンモリロナイトの膨張性と安定性についての実験的調査を進めるとともに、分子動力学シミュレーションの精度向上を図る。放射性核種への影響については、セルロースの分解生成物の影響による放射性核種の溶解度の上昇について、実験的な調査を継続し、影響評価の信頼性向上を図る。

(2) 多様な廃棄物の影響を考慮した共処分概念の構築

平成27年度は、抽出された評価手法や技術等を参考に、硝酸塩の影響を考慮した共処分概念を例示した。

平成28年度は、例示した概念等に基づき核種移行計算の予備検討及び感度解析等を行う。

1.4.3 過酷事象の地層処分システムへの影響に関する評価確証技術開発

閉鎖後の地層処分システムにおける過酷事象の概念構築を行うとともに、東北地方太平洋沖地震を踏まえ、特に巨大地震・断層活動の発端を事例にした、地層処分システムへの影響に関する評価確証技術の開発を行う。

(1) 地層処分システムにおける過酷事象の概念構築

平成27年度までに、地層処分システムの過酷事象の定義やフローを構築するとともに、人へ甚大な影響を及ぼしうること及び非専門家の不安や懸念という観点から、過酷事象に至る可能性のある事象及びそれらの組合せを抽出し、懸念事項として包括的にリスト化してシナリオを構築する方法論を例示した。また、一部のシナリオに対して影響評価を試行するとともに、重要度評価及び対策技術検討の考え方を示した。

平成28年度は、平成27年度に例示した懸念事項及びシナリオに対して、重大な見落としがないかを確認するとともに、最新の科学的な知見を踏まえ、挙げられた懸念事項及びシナリオに対する発生可能性を分析する。また、必要に応じて評価技術の高度化を図りつつ、懸念事項やシナリオに対する影響評価を試行する。さらに、影響度、頻度、社会的関心等の観点から重要度評価を行い、優先的に対策を検討すべきシナリオを明らかにする方法論及び対策技術の検討方法を具体化する。なお、これらの検討を通じ、過酷事象の定義や概念構築フローの見直しを必要に応じて継続的に実施するとともに、抽出された事象に対する影響評価技術の開発のための技術課題を整備する。

(2) 巨大地震・断層活動の発端を事例とした評価技術開発

東北地方太平洋沖地震を踏まえ、閉鎖後の地層処分システムにおける過酷事象対策技術の具体例として、巨大地震・断層活動を事例とした検討を継続して行う。

平成27年度までに、最大規模の地震・断層の特徴や地質環境条件への影響について、我が国で調査・観測されている情報や個別現象研究の成果等に基づき整理するとともに、安全機能の喪失・劣化の有無に関わるシナリオ分岐を可視化した上で、巨大地震・断層活動に関わるシナリオを記述する手法を具体化した。また、整理した情報及び具体化した手法に基づき構築した一部のシナリオに対して、影響評価を試行した。

平成28年度は、抽出されたシナリオにおいて主要な安全機能の喪失の有無にかかわる分岐の判断を行うための知見の整備を継続する。具体的には、平成25年度に策定した試験計画に基づき、断層挙動を模擬した工学規模の破壊試験を継続して実施するとともに、実スケールの三次元モデルによる非線形大変形せん断衝突解析手法を開発する。また、平成27年度までに開発した手法で得られた最大規模の地震動に対して人工バリア、埋め戻し材、地下施設の相互の影響を考慮した震動影響評価手法を開発する。さらに、平成27年度までに具体化したシナリオ構築の手法を用いて、最大規模の地震・断層活動に対する最新の知見に基づいたシナリオ分岐の詳細な分析や性能評価パラメータの整備を行うとともに、既往のシナリオとの比較を行う。加えて、(3)①で開発した方法論を踏まえ、人へ甚大な影響を及ぼし得るという観点から候補となるシナリオを列挙するとともに、それらが我が国の地層処分システムにおいて発生し得るものかどうかを分析するための方法論を例示する。

1.4.4 可逆性と回収可能性などを考慮した地層処分システム概念の提示

処分計画の意思決定に関与する多様なステークホルダーが地層処分の実施について確信を持つことができる地層処分システム概念を構築するためには、意思決定プロセスの公平性に根ざした合意形成型の処分概念構築技術が不可欠な要素となる。本検討は、計画の可逆性や回収可能性などを考慮した適切な判断材料を創出し、多様なステークホルダーが地層処分の実施について確信を持つことができる地層処分システム概念を提示することを目的とする。平成28年度は、多様なステークホルダー間の合意形成に向けた協働の試行として以下を実施する。

平成27年度までに実施したフォーカスグループインタビュー、オンラインディスカッション等により得られた成果を踏まえ、平成28年度の検討では、一連の活動に参加する可能性のある候補者を対象とし、地層処分及び他の技術的対策の原理や安全性に関する脅威となり得る現象等についてのサイエンスコミュニケーションを行う。

また、これまでの検討の成果である「ロバスト性の高い地層処分システム及び受動的な安全系へ推移するまでの期間におけるレジリエンス的取り組み」などを具体的に提示して、フォーカスグループインタビュー、オンラインディスカッションを実施し、そのような新たな概念と従来の概念との比較に関する意見の抽出、新たな概念及び従来の概念それぞれの選好理由について分析を加える。

さらに、高レベル放射性廃棄物対策に関するアコモデーションを目標としたワークショップを行う。以上の結果を取りまとめ、高レベル放射性廃棄物対策に関する異なる意見や態度の存在及びこれらが派生する原因について考察する。また、サイエンスコミュニケーションを通じた知識共有、種々のステークホルダーのニーズや懸念に配慮した新たな処分概念の提示及び多様なステークホルダー間の話し合いによるアコモデーションといった活動がそれぞれどのように合意形成に寄与し得るのかについて整理し、この結果を踏まえて今後の課題を抽出する。

1.4.5 処分事業に資するための地層処分システム評価検証技術の統合化

本検討では、1.4.1～1.4.4で開発・整備するシステム変遷、多様な廃棄物の共処分、過酷事象の影響に関する評価検証及び可逆性や回収可能性を考慮した処分システム概念開発等に係る要素技術の開発成果に基づき、それらの関連性を踏まえて有機的に統合することで、先端的技術を反映した処分システム評価検証技術体系を提示する。この目的のために、平成28年度は以下の項目を行う。

(1) 処分システム評価検証技術の統合化に関する試行

平成27年度までの各要素技術開発の成果を統合し、ポータルサイトのコンテンツを拡充する。ここでは、知識の生成と利用を円滑に行うための知識ベースの枠組みを、検証性の高い地層処分システムの要件と関連付けて整理する。また、統合した成果を関係者間で閲覧することによる知識共有や分野横断的なテーマについて、グループウェアを用いたオンラインでの議論を試行し、本システムの適用性を評価するとともに課題等を抽出する。さらに、拡充したポータルサイトのコンテンツへのアクセスを支援する目的で、閲覧したい情報へのアクセスを容易にするためのナビゲーション機能を強化したソーシャルウェアを開発し、その適用性を評価する。

(2) 処分システム評価検証技術の認知の拡大に関する試行

今後の地層処分事業の進展においては、一般のステークホルダーと実施主体や専門家が協働しつつ、技術や制度の中から自身の価値観に合うものは何かを主体的に選択しながら合意を作り上げていく必要がある。本検討では、このような合意形成プロセスと並行して行うべき知識共有の一環として、様々なバックグラウンドを持つステークホルダーに本事業で対象とする様々な技術について、「知ってみよう、勉強してみよう」と思ってもらうとともに、研究開発の主体やその成果についての信頼性を醸成することを目的として、種々のマーケティング手法、デザイン思考、科学コミュニケーション手法等を活用することにより、専門性の高い研究開発成果を広く普及し得るようなコミュニケーションの方法論を具体化する。

参考文献

- アメリカ規格協会/アメリカ企業セキュリティ協会(2009): ASIS SPEC. 1-2009, Organizational Resilience: Security, Preparedness and Continuity Management System-Requirements with Guidance for Use, March 12, 2009, American National Standards Institute, Inc., (http://www.asisonline.org/guidelines/ASIS_SPC.1-2009_Item_No._1842.pdf).
- 米商務省・国家標準技術院 (NIST) (2011): NIST IR 7298, Glossary of Key Information Security Terms, rev. 1.
- Hollnagel, E. (2012): 日本語版に寄せて, E. Hollnagel, D. Woods and N. Leveson (編著), 北村正晴(監訳), レジリエンスエンジニアリング: 概念と指針, 日科技連.
- Hollnagel, E. (2011): Epilogue: RAG-The Resilience Analysis Grid., In E. Hollnagel, J. Paries, D. Woods and J. Wreathall (eds), Resilience Engineering in Practice. Franham, UK: Ashgate Publishing.
- IAEA(2007): IAEA Safety Glossary, Terminology Used in Nuclear Safety and Radiation Protection 2007 Edition.
- 経済産業省 (2014) : エネルギー基本計画 (<http://www.meti.go.jp/press/2014/04/20140411001/20140411001-1.pdf>) .
- Longstaff, P.H. et al. (2010): Building Resilient Communities: A Preliminary Framework for Assessment, Homeland Security Affairs, vol. 6, no. 3.
- 内閣官房(2014): http://www.cas.go.jp/jp/seisaku/kokudo_kyoujinka/index.html, 2014, 3, 24.
- 日本原子力研究開発機構 (2008a) : 平成19年度 地層処分技術調査等委託費 高レベル放射性廃棄物処分関連 処分システム化学影響評価高度化開発 報告書 (http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/docs/library/rprt4/19fy6.pdf).
- 日本原子力研究開発機構 (2008b) : 平成19年度 地層処分技術調査等委託費 高レベル放射性廃棄物処分関連 先進的地層処分概念・性能評価技術高度化開発 報告書 (http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/docs/library/rprt4/19fy5.pdf).
- 日本原子力研究開発機構 (2008c) : 平成19年度 地層処分技術調査等委託費 TRU廃棄物処分技術 硝酸塩処理・処分技術高度化開発 報告書 (http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/docs/library/rprt4/19fy11.pdf).
- 日本原子力研究開発機構 (2009a) : 平成20年度 地層処分技術調査等委託費 高レベル放射性廃棄物処分関連 処分システム化学影響評価高度化開発 報告書 (http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/docs/library/rprt4/20fy6-1.pdf, http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/docs/library/rprt4/20fy6-2.pdf).
- 日本原子力研究開発機構 (2009b) : 平成20年度 地層処分技術調査等委託費 高レベル放射性廃棄物

- 処分関連 先進的地層処分概念・性能評価技術高度化開発 報告書
(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/docs/library/rprt4/20fy5.pdf).
- 日本原子力研究開発機構 (2009c) :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 硝酸塩処理・処分技術高度化開発 報告書
(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/docs/library/rprt4/20fy11.pdf).
- 日本原子力研究開発機構 (2010a) :平成21年度 地層処分技術調査等委託費 高レベル放射性廃棄物処分関連 処分システム化学影響評価高度化開発 報告書
(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/21-06/21fy6.pdf).
- 日本原子力研究開発機構 (2010b) :平成21年度 地層処分技術調査等委託費 高レベル放射性廃棄物処分関連 先進的地層処分概念・性能評価技術高度化開発 報告書
(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/21-05/21fy5.pdf).
- 日本原子力研究開発機構 (2010c) :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 硝酸塩処理・処分技術高度化開発 報告書
(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/21-11/21fy11.pdf).
- 日本原子力研究開発機構 (2011a) :平成22年度 地層処分技術調査等委託費 高レベル放射性廃棄物処分関連 処分システム化学影響評価高度化開発 報告書
(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/docs/library/rprt4/22-6-1.pdf,
http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/docs/library/rprt4/22-6-2.pdf).
- 日本原子力研究開発機構 (2011b) :平成22年度 地層処分技術調査等委託費 高レベル放射性廃棄物処分関連 先進的地層処分概念・性能評価技術高度化開発 報告書
(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/docs/library/rprt4/22-5.pdf).
- 日本原子力研究開発機構 (2011c) :平成22年度 地層処分技術調査等委託費 TRU廃棄物処分技術 硝酸塩処理・処分技術高度化開発 報告書
(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/docs/library/rprt4/22-11.pdf).
- 日本原子力研究開発機構 (2012a) :平成23年度 地層処分技術調査等委託費 高レベル放射性廃棄物処分関連 処分システム化学影響評価高度化開発 報告書
(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2011/23-7-1.pdf,
http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2011/2

- 3-7-2. pdf,
http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2011/23-7-3.pdf).
- 日本原子力研究開発機構 (2012b) : 平成23年度 地層処分技術調査等委託費 高レベル放射性廃棄物処分関連 先進的地層処分概念・性能評価技術高度化開発 報告書
(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2011/23-6.pdf).
- 日本原子力研究開発機構 (2012c) : 平成23年度 地層処分技術調査等委託費 TRU廃棄物処分技術 硝酸塩処理・処分技術高度化開発 報告書
(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2011/23-14.pdf).
- 日本原子力研究開発機構 (2012d) : 平成23年度 地層処分技術調査等事業 TRU廃棄物処分技術 セメント材料影響評価技術高度化開発 報告書
(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2011/23-12.pdf).
- 日本原子力研究開発機構 (2013a) : 平成24年度 地層処分技術調査等委託費 高レベル放射性廃棄物処分関連 処分システム化学影響評価高度化開発 報告書
(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2012/24-7-1.pdf).
- 日本原子力研究開発機構 (2013b) : 平成24年度 地層処分技術調査等委託費 高レベル放射性廃棄物処分関連 処分システム化学影響評価高度化開発 — 6ヶ年研究成果の取りまとめ—
(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2012/24-7-2.pdf).
- 日本原子力研究開発機構 (2013c) : 平成24年度 地層処分技術調査等委託費 高レベル放射性廃棄物処分関連 先進的地層処分概念・性能評価技術高度化開発 報告書
(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2012/24-6-1.pdf).
- 日本原子力研究開発機構 (2013d) : 平成24年度 地層処分技術調査等委託費 高レベル放射性廃棄物処分関連 先進的地層処分概念・性能評価技術高度化開発 6カ年とりまとめ報告書
(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2012/24-6-20.pdf).
- 日本原子力研究開発機構 (2013e) : 平成24年度 地層処分技術調査等委託費 TRU廃棄物処分技術 硝酸塩処理・処分技術高度化開発 報告書
(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2012/24-14-1.pdf).
- 日本原子力研究開発機構 (2013f) : 平成24年度 地層処分技術調査等委託費 TRU廃棄物処分技術 硝酸塩処理・処分技術高度化開発 -6カ年研究成果の取りまとめ- 報告書
(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2012/24-14-1.pdf).

- /24-14-2. pdf).
- 日本原子力研究開発機構 (2013g) : 平成24年度 地層処分技術調査等事業 TRU廃棄物処分技術 セメント材料影響評価技術高度化開発 報告書
(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2012/24-12-1.pdf).
- 日本原子力研究開発機構 (2014a) : 平成25年度 地層処分技術調査等委託費 使用済燃料直接処分技術開発 報告書
(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2013/25-11-1.pdf).
- 日本原子力研究開発機構 (2014b) : 平成25年度 地層処分技術調査等委託費 地質環境長期安定性評価確認技術開発 報告書
(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2013/25-3-1.pdf).
- 日本原子力研究開発機構 (2014c) : 平成25年度 地層処分技術調査等事業 セメント材料影響評価技術高度化開発 報告書
(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2013/25-13-1.pdf).
- 日本原子力研究開発機構 (2015a) : 平成26年度 地層処分技術調査等委託費 使用済燃料直接処分技術開発 報告書
(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2014/26fy_sf.pdf).
- 日本原子力研究開発機構 (2015b) : 平成26年度 地層処分技術調査等委託費 地質環境長期安定性評価確認技術開発 報告書
(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2014/26fy_tyoukiantaisei-1.pdf).
- 日本原子力研究開発機構 (2015c) : 平成26年度 地層処分技術調査等事業 セメント材料影響評価技術高度化開発 報告書
(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2014/26fy_cement.pdf).
- 日本原子力研究開発機構 (2016a) : 平成27年度 地層処分技術調査等委託費 直接処分等代替処分技術開発 報告書
(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2014/26fy_tyoukiantaisei-1.pdf).
- 日本原子力研究開発機構 (2016b) : 平成27年度 地層処分技術調査等委託費 地質環境長期安定性評価確認技術開発 報告書
(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2015/27fy_tyoukiantaisei-1.pdf).
- 日本原子力研究開発機構 (2017a) : 平成28年度 地層処分技術調査等委託費 直接処分等代替処分技

術開発 報告書.

日本原子力研究開発機構 (2017b) : 平成28年度 地層処分技術調査等委託費 地質環境長期安定性評価
確証技術開発 報告書.

OECA/NEA(2012): Geological Disposal of Radioactive Waste: National Commitment, Local and
Regional Involvement, A Collective Statement of the OECD Nuclear Energy Agency
Radioactive Waste Management Committee Adopted March 2012.

東京大学(2014):<http://rerc.t.u-tokyo.ac.jp>, 2014, 3, 24.

Westrum, R. (2006), Section 5: A Typology of Resilience Situations., In E. Hollnagel, D. Woods
and N. Leveson (eds), Resilience Engineering: Concepts and Precepts. Aldershot, UK:
Ashgate Publishing.

2章 ニアフィールドのシステム変遷と核種移行を評価するための先端的技術の開発

2.1 目的と5カ年の計画

2.1.1 目的

本課題では、処分場の閉鎖前から閉鎖後の長期にわたって処分場近傍（ニアフィールド）において発生することが考えられる様々な擾乱を含む複雑な現象について、現象の詳細なメカニズムや現象間の相互作用を理解することで、システムの変遷を適切に評価するとともに、そのようなシステムの変遷や、地質環境が本来的に有している不均質性等を考慮して、核種移行を評価するための技術の開発を進める。

地層処分は長期にわたる事業であるために、常に最新の科学的知見に照らして、システムの評価が行われ、過去に実施された評価の確認や見直しが行われることが、社会的受容性の観点からも重要である。このため、最先端の科学的知見や手法を駆使して、処分システムにおいて発生することが想定される諸現象について、科学的な現象の理解を進め、より現象に忠実なモデルを開発し、それらに基づいて、処分システムの評価の妥当性を示すことを目標とする。この際、計算科学的な手法、室内試験、原位置試験あるいは天然類似事象の調査等のそれぞれのアプローチの特徴を踏まえ、それらを適切に組み合わせることで、モデルの確証性を高めて行く。

さらに、対象とする処分システムの時間的変遷や、着目する現象の複雑さ、場の不均質性などを考慮して、不確実性要因とその影響を把握し、評価での取扱いに適切に反映することが重要である。このような観点から、図2.1.1-1に示すようなニアフィールドで想定される様々な現象やプロセスの相互作用にも着目するとともに、それらを適切に取り扱う手法について検討を進めることとする。

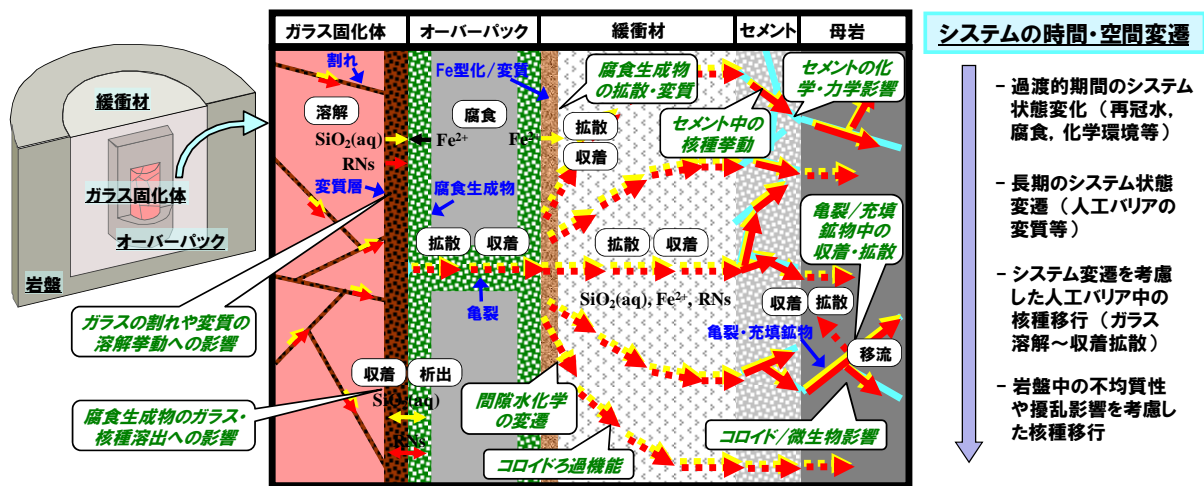


図 2.1.1-1 ニアフィールドのシステム変遷と核種移行評価に係る課題例
(核種移行関連を中心とした課題例)

2.1.2 5ヵ年の計画

上記の目的を達成するために、本課題では、以下の(1)～(5)のサブタスクを設定し、相互の密接な連携のもと研究を進めることとしている。

- (1) システムの過渡的变化評価技術開発
- (2) 人工バリア中の核種移行に係る不確実性要因分析とそれに基づく性能評価技術開発
- (3) 天然バリア中の核種移行に係る不確実性要因分析とそれに基づく性能評価技術開発
- (4) セメント系材料影響評価技術開発
- (5) ニアフィールド複合現象/核種移行の体系的評価に向けた技術開発

なお、平成26年度までは、上記(4)を除く4つのサブタスクを設定して実施してきたが（日本原子力研究開発機構，2014a，2015a）、平成27年度からは、別途受託事業として実施してきた「セメント系材料影響評価技術高度化開発」（日本原子力研究開発機構，2015c）の成果を継承したサブタスク(4)を追加し、5つのサブタスク構成で実施することとした。

これらの5つのサブタスクの関係を図2.1.2-1に示す。サブタスク(1)～(4)については、時間と空間の軸に対して、各タスクが対象とする領域を示している。

(1)は、主として、処分場の建設・操業から閉鎖に続き、周辺岩盤及び緩衝材の地下水による飽和、オーバーパックの破損に至る、核種移行開始までの期間に特に着目する。この期間は、ガラス固化体の発熱が比較的大きく、人工バリアとその周辺では不飽和から飽和といった過渡的な現象が発生する。一方、安全評価においては、核種移行開始時におけるニアフィールドの環境条件として、本来の地下深部の地質環境条件を想定し、そこでは初期地温に近く、還元状態が回復し、緩衝材は地下水で飽和され膨潤することで低透水性等の所期の機能を発揮している、といった状態を想定している。このため、システムの過渡的な変遷における様々な不確実性を考慮したとしても、安全評価において期待している核種移行の初期状態の設定が妥当であるか、あるいはどのような条件下において、所期の状態には至らない可能性があるのか等を把握することが必要となる。(1)では、これらの評価技術の整備を進める。

(2)については、人工バリア中の核種移行に係る不確実性要因に着目し、ガラスの溶解と核種の浸出、核種の溶解度制限、緩衝材中の核種の吸着・拡散及びそれらの前提となる緩衝材間隙の構造や間隙水化学等について、先端的な研究手法を利用して科学的な現象理解を進めるとともに、システム変遷等の不確実性要因を考慮し、最新の科学的知見に基づいて、モデルの構築とデータベースの開発を進める。

(3)については、天然バリア（ニアフィールド岩盤）中での核種移行に係る不確実性要因に着目し、岩盤中の割れ目等の不均質性、有機物・微生物等が核種移行に及ぼす影響等について、室内試験や原位置試験に加え天然事例の評価等を通じて科学的な現象理解を深めるとともに、様々な不確実性要因を考慮した評価を可能とするモデルとデータベースの開発を進める。

(4)については、処分場建設時に、支保、グラウト、インバート等として使用されることが想定されるセメント系材料が、ニアフィールドへ及ぼす影響を評価するための技術として、セメント系材料の化学的・力学的な視点に重点をおいた長期挙動評価、地下水の化学的条件変化による核種移行挙動への影響評価、グラウト材料による周辺岩盤への影響評価に関する技術開発を行う。

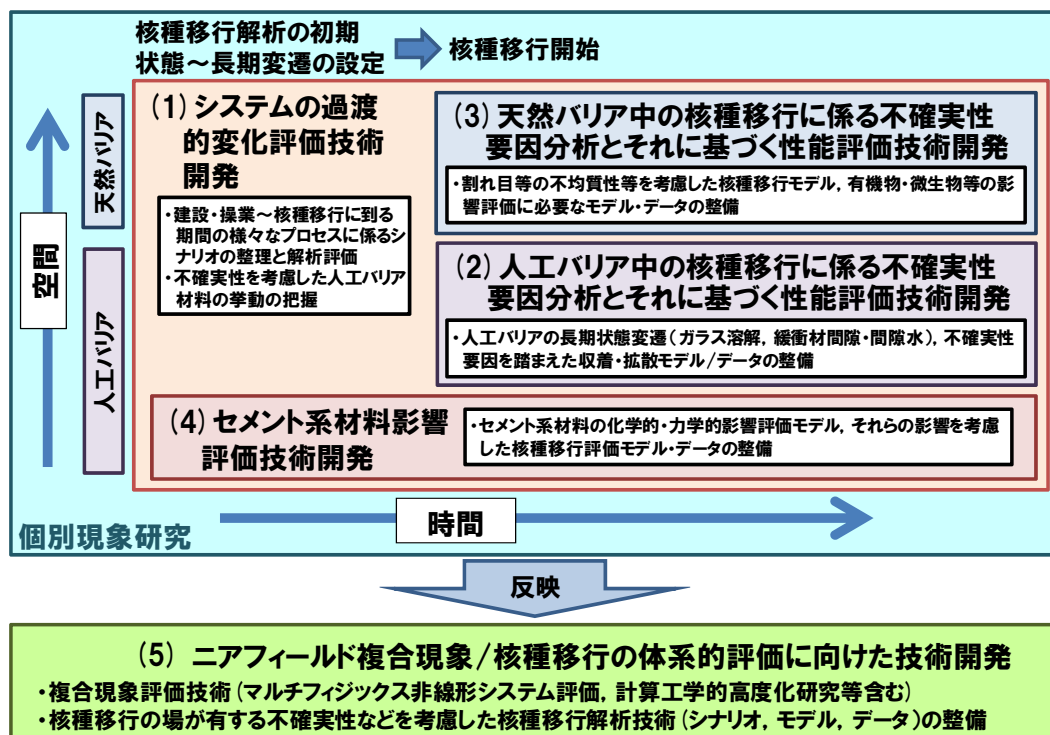


図 2.1.2-1 本課題の5つのサブタスクの関係

(5)については、(1)～(4)の成果として得られる、ニアフィールドのシステム変遷や核種移行挙動に関する個別の現象理解やモデル開発の進展を踏まえ、着目する様々な現象やプロセス相互の非線形性やマルチスケール/マルチフィジックス性を考慮して、複合現象として取り扱うべきプロセスを抽出し、その評価手法を構築するとともに、それらを反映した核種移行評価（性能評価）までを体系的に評価するための技術として開発する。

本課題における技術開発を進めることにより、従来の保守的で簡易な評価では十分に把握できなかったシステム挙動の把握が可能となるとともに、システムの変遷等による不確実性の要因とその影響を示すことよって、評価の信頼性の向上につながるものである。また、これらの成果は、処分システムの設計等へのフィードバックも期待され、処分システムのロバスト性の向上に資するものと考えている。

本課題の5カ年の年度展開を図2.1.2-2に示す。本事業の初年度であった平成25年度には、先行する関連事業の成果や国内外の最新研究動向等を踏まえながら、それぞれのサブタスクにおける研究開発課題とアプローチの設定を進めるとともに、先行的に試験研究や解析評価技術の開発に着手した。平成26年度には、それぞれのサブタスクの技術開発を本格化させるとともに、別途実施されている国内外の地下研究施設における原位置試験等との連携による各種試験技術や評価モデル等の確証に関する取り組みを進めた。平成27年度は、全体計画の中間年度にあたることから、個々のサブタスクの技術開発をさらに進めたうえで、中間的な成果をそれぞれの目標や反映先と

も対応付けて提示するとともに、それを踏まえて今後の残された課題を抽出した。なお、これら
 の中間成果と今後の課題については、中間評価ワークショップにおける国内有識者との議論も反
 映する形で取りまとめた。平成28年度は、中間成果の段階で検討した最終目標・反映先及びそれ
 に向けた課題を踏まえ、個別タスクについてはモデルの高度化、複合系や原位置での確証を進め
 るとともに、サブタスク(5)においては、サブタスク(1)～(4)の成果を反映しつつ、ニアフィール
 ド複合現象/核種移行の体系的評価技術の提示に向けた取り組みを進める。

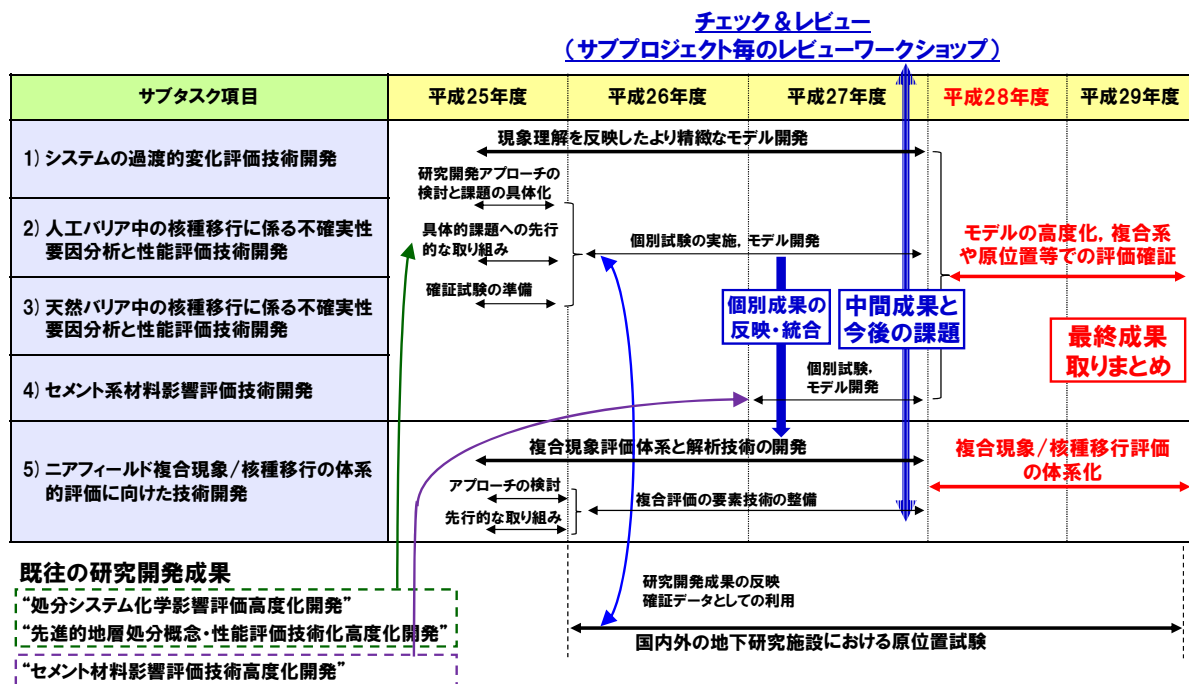


図 2.1.2-2 5 ヵ年の年度展開

2.2 システムの過渡的変化評価技術開発

本節では、2.1.2で掲げた実施項目のうち、1つ目のサブタスクである「システムの過渡的変化評価技術開発」について述べる。2.1.2で述べたように、本タスクでは、ニアフィールドのシステムの過渡的な変遷における様々な不確実性を考慮して、安全評価において期待している核種移行の初期状態の設定が妥当であるか、あるいは、どのような条件下において所期の状態には至らないのか等々を評価する技術の整備を行う。

実施項目は、「2.2.1システムの過渡的状態評価技術の開発」及び「2.2.2過渡的状態における人工バリアの挙動評価技術の開発」である。

2.2.1 システムの過渡的状態評価技術の開発

本項では、安全評価における核種移行の初期状態の設定やオーバーパックの設計や寿命評価への基盤情報とすべく、これまでに整備を行ってきた連成解析コードを用いて、オーバーパックに接触する緩衝材の水分飽和度、温度、間隙水pHなどの時間変化を示した。また、緩衝材の膨潤変形に関するデータを拡充し、これを通じて力学モデルの検証を行うとともに、膨潤などによって生じる可能性のある緩衝材の密度変化にともなう熱物性や水理特性の変化を考慮できるように解析コードの高度化を行った。

(1) 技術開発の背景と目的

本事業では、安全評価における核種移行の初期状態の設定やオーバーパックの寿命評価に必要なニアフィールド環境条件などに関する情報を安全評価側へ提供することを目的として、人工バリアを設置した時点から緩衝材が飽和に至るまでの過渡的な期間を対象に、ニアフィールドで生じる熱的作用（熱輸送、熱膨張）、水理的作用（地下水浸透、温度勾配水分移動）、力学的作用（応力変形）及び化学的作用（物質移行、ガスの発生消費、間隙水濃縮希釈、鉱物の溶解沈澱等）が相互に影響を及ぼし合いながら形成される場の状態を評価するための熱-水-応力-化学（THMC）連成解析コードCouplysの開発を行なっている（日本原子力研究開発機構，2014a、2015a）。CouplysのTHMC連成解析モデルの概念を図2.2.1-1に示す。図2.2.1-1に示す熱（Thermal）-水（Hydrological）-応力（Mechanical）-化学（Chemical）に跨る連成現象のうち、熱-水-応力間の連成現象については、後述のTHAMESコードを、不飽和状態での移流分散の現象については、既往の物質移行解析コード（木村他，2010）を、化学的な現象については既往の地球化学解析コードであるPHREEQC（Parkhurst，1995）を、それぞれ用いて解析を行うようにシステムが構成されている。

従来のCouplysにおける物質移行の評価は、要素内の質量を質量粒子に分割して配置し、実流速で移動させる方法を採用しているが、モデル内に形状がゆがんだ六面体要素が含まれた場合に、質量粒子の座標位置が判定不能となり計算が続行できなくなるといった潜在的な問題を内包していた。また、要素数が多くなる大規模モデルの場合には、現実的な時間内で解を得ることができず、計算の高速化が課題となっていた。このため、平成25年度においては、質量粒子の座標位置が判定不能となった場合でも質量保存を確保しつつ計算が可能となるようプログラムの修正を実施した（日本原子力研究開発機構，2014a）。平成26年度は、数値演算の高速化及び計算中に必要となるメモリを小さくするための数値解法として双共役勾配法（例えば、中田，2002）を選定しCouplysへ実装した。簡易モデルを用いた比較計算により、従来のCouplysに比べて解析時間を約

60%短縮できること、計算実行時に必要なメモリについては90%以上低減できることを確認した（日本原子力研究開発機構，2015a）。平成27年度は、平成26年度までに改良を行なったCouplysを用いて、地下水位が地表面にあると仮定して（深度500mの処分施設の全水頭を500mに設定）、地層処分システムの長期挙動に関する事例解析を行った。これにより、本モデルを用いてガラス固化体の放熱と人工バリア内への地下水の浸潤に伴うニアフィールドの化学的な環境の変化を定量的に評価することが可能であることが示された。しかしながら、実際には処分場閉鎖直後から地下水位は変遷すると考えられ、これによる影響については上記の解析では考慮されていない。

熱-水-応力間の連成現象を扱うTHAMESに対しては、平成27年度において、幌延URLにおける人工バリア性能確認試験を対象とした解析により、解析コードの検証を実施している。その結果、温度及び緩衝材中の水分量の程度を表すサクションについては、解析値と計測結果は概ね整合しており連成解析モデルの正確性を確認することができている。一方、膨潤変形が生じていると考えられる緩衝材中の応力及び変位については計測結果との一致は見られず、特に、変位に関する解析結果は計測値の1/100程度となり、THAMESに適用されている力学モデルは、変形がほとんど生じないモデルであることが明らかとなった。さらに、変形による密度変化が熱や水理挙動に与える影響などの、力学的な挙動の帰結として熱特性-水理特性へ与えられる影響についてはTHAMESでは考慮できていない点も課題となっている。これらの課題に対して、水の浸潤に伴う飽和度上昇やそれに伴う膨潤による密度低下によって生じる剛性低下を考慮できるようにモデルを拡張することで、膨潤挙動の再現性が向上することを確認した。しかしながら、緩衝材の力学挙動をより精度よく評価するためには、室内試験によるデータの拡充を行い、これに基づくモデルの検証を行うと共に、応力変形によって生じる緩衝材の密度変化にともなう熱特性及び水理特性の変化を考慮できるようにモデルを高度化することが必要である。このように、力学解析側から熱解析及び水理解析側へ解析結果を提供するスキームを追加することによる連成モデルの高度化の概念を図2.2.1-2(b)に示す。

上記の観点から、平成28年度においては、処分場閉鎖直後から地下水位が変遷することによる影響を把握することを目的として、Couplysによる連成解析を行い、ニアフィールドの長期挙動評価を実施した（2.2.1(2)）。また、熱-水-応力間の連成現象を扱うTHAMESの高度化に対する取り組みとして、THAMESにおける緩衝材の力学挙動のモデル化に資する試験データを取得すると共に（2.2.1(3)）、応力変形によって生じる緩衝材の密度変化にともなう熱特性及び水理特性の変化を考慮できるようにTHAMESの熱-水-応力連成モデルを改良した（2.2.1(4)）。

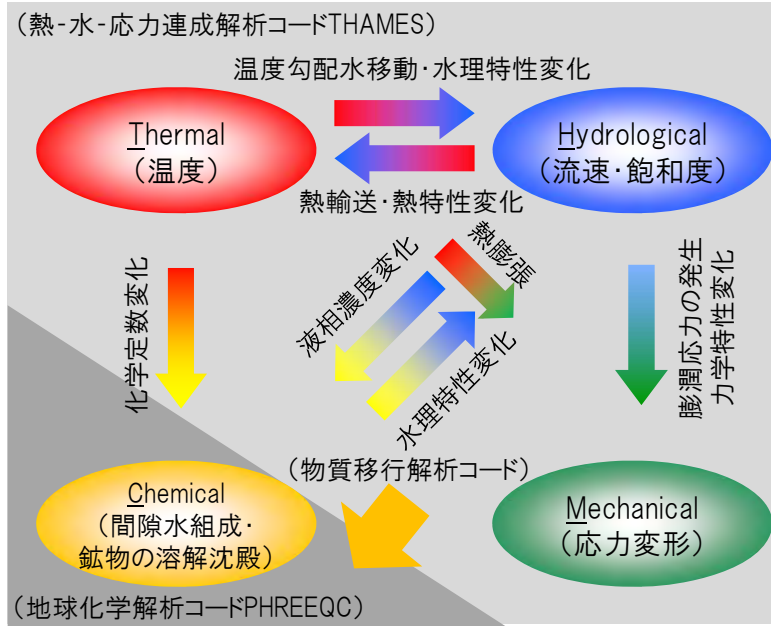


図2.2.1-1 THMC連成解析モデルの概念図

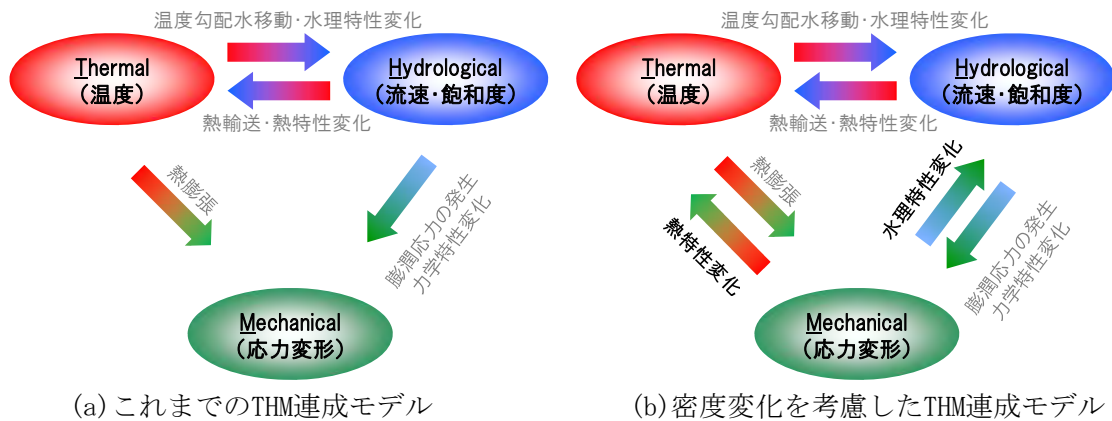


図2.2.1-2 緩衝材の密度変化を考慮したTHM連成モデルの拡張

(2) 熱-水-応力-化学 (THMC) 連成解析モデルによるニアフィールド長期挙動評価

1) Couplesの熱-水-応力-化学連成解析モデルの概要

連成解析コードCouplesは、(1)で示したように、熱-水-応力連成解析コードであるTHAMES、不飽和状態での移流分散の計算を可能とするために開発された既往の物質移行解析コード（木村他、2010）及び既往の地球化学解析コードであるPHREEQC（Parkhurst, 1995）により構成される。これら個別の解析コードは、プロセス管理プログラムと各解析コード間の連成対象変数の受け渡しを行う共有メモリ管理プログラムによって制御される。熱移動、水分移動、力学挙動、物質移行及び地球化学反応については、(2.2.1-1)式～(2.2.1-7)式に示すように、温度 T 、圧力水頭 ψ 、変位 u 、親化学種の総溶解濃度 $c_{<n>}$ 、親化学種の総濃度 $T_{<n>}$ を未知数とした支配方程式系で表される（木村他、2010）。本モデルの大きな特徴としては、非等温下での温度勾配による水分移動を考慮しており、また、移流分散解析と地球化学解析を連成させ、気相、液相、固相間の地球化学反応と物質移行を考慮した解析が可能となっている。化学反応モデルについては、PHREEQC

の機能として、水溶性錯体、ガスの溶解・脱ガス、イオン交換反応、鉱物の溶解・沈殿の平衡反応のほか、反応速度も考慮できる。

なお、本モデルでは、多孔質媒体を対象としており、地下水浸透モデルについては、最高温度が100°Cを超えないことを前提条件としている。ガラス固化体及びオーバーパックについては、崩壊熱の発生と熱膨張及び熱輸送のみを考慮しており、オーバーパックの腐食や緩衝材中の微生物活動、核種の移行等については対象とされていない。また、岩盤や緩衝材の圧密やクリープ現象などは連成モデルの対象外としている。

① 熱移動の支配方程式

熱移動は、熱-水-応力連成解析コードTHAMESにより解かれる。THAMESでは、固相、液相及び気相の三相で構成される岩盤及び緩衝材中の熱移動現象が、以下に示すエネルギー保存則でモデル化されている。なお、気相-液相間の相変化や気相中の熱移動については考慮されておらず、間隙水は全て液状水として存在すると仮定されている。

$$\frac{\partial}{\partial x_i}(\rho_l C_l q_i T) - \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\lambda_m \frac{\partial T}{\partial x_i} \right) + \frac{\partial}{\partial t} (\rho_m C_m T) = 0 \quad (2.2.1-1)$$

ここに、 ρ : 密度、 C : 比熱、 q_i : 液相ダルシー流速、 λ : 熱伝導率、 T : 温度、添え字 l 、 m はそれぞれ液相、固相である。左辺第一項は、液相流動にともなう移流効果、左辺第二項は、温度勾配による伝導効果、左辺第三項は、固相の貯留効果を示す。

② 水移動の支配方程式

THAMESでは、緩衝材中の温度が100°C以下となることを前提とし、水分勾配及び温度勾配を駆動力とする液状水と蒸気水の移動現象が次の支配方程式によりモデル化されている。

$$-\frac{\partial}{\partial x_i} \left\{ \xi \rho_l k \frac{\partial \theta}{\partial x_i} + (1-\xi) \frac{\rho_l g \kappa}{\mu_l} \frac{\partial (\psi + z)}{\partial x_i} + \rho_l D_r \frac{\partial T}{\partial x_i} \right\} + \frac{\partial}{\partial t} (\rho_l n S) = 0 \quad (2.2.1-2)$$

ここに、 k : 比透水係数、 θ : 体積含水率、 ξ : 不飽和パラメータ（飽和で0、不飽和で1）、 κ : 固有透過度、 ψ : 圧力水頭、 z : 位置水頭、 μ_l : 液相粘性係数、 g : 重力加速度、 D_r : 温度勾配水分拡散係数、 n : 間隙率、 S : 飽和度である。左辺第一項、第二項は、全水頭勾配による水の移動効果、左辺第三項は、温度勾配による水の移動効果、左辺第四項は、固相の貯留効果を示す。

③ 力学挙動の支配方程式

THAMESでは、静的条件を仮定した運動量保存則に基づく全応力の釣り合い条件から力学挙動をモデル化している。全応力増分は次式で表される。

$$\Delta\sigma_{ij} = \frac{1}{2}C_{ijkl}(\Delta u_{k,l} + \Delta u_{l,k}) + (1-\xi)\Delta p_w \delta_{ij} - \Delta\sigma_{sw} \delta_{ij} - \frac{E}{1-2\nu}\alpha_s \Delta T \delta_{ij} \quad (2.2.1-3)$$

ここに、 C_{ijkl} ：弾性係数テンソル、 u ：変位、 p_w ：水圧、 δ_{ij} ：クロネッカーのデルタ、 σ_{sw} ：膨潤応力、 E ：弾性係数、 ν ：ポアソン比、 α_s ：固相の熱線膨張係数、 T ：温度である。

④ 物質移行の支配方程式

Couplysに組み込まれている物質移行解析コード（木村他，2010）では、不飽和状態を含めた物質輸送プロセスとして移流と拡散が考慮されている。不飽和時における気相中のガスについては濃度勾配による拡散が考慮される。移流に対して用いられる流速は、熱-水-応力連成解析コードTHAMESによって得られるダルシー流速が用いられる。

$$\frac{\partial}{\partial x_i}(\rho_i q_i C_{(n)}) - \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\rho_i n S D_{ij} \frac{\partial C_{(n)}}{\partial x_j} \right) - \frac{\partial}{\partial x_i} \left(D_g \frac{\partial G_{(n)}}{\partial x_i} \right) + \frac{\partial}{\partial t}(\rho_i n S T_{(n)}) = 0 \quad (2.2.1-4)$$

ここに、 $C_{<n>}$ ： n 番目親化学種の総溶解濃度、 D_{ij} ：分散テンソル、 D_g ：多孔質媒体中のガスの拡散係数、 $G_{<n>}$ ： n 番目親化学種のガス濃度、 $T_{<n>}$ ： n 番目親化学種の総濃度である。土粒子などへの吸着と脱着による遅延効果及び化学的分解などによる濃度の減少については、地球化学解析コードと連成させることで考慮するものとし、ここでは省略している。

⑤ 地球化学反応の支配方程式

Couplysに組み込まれている地球化学反応解析コードPHREEQC（Parkhurst，1995）では、鉱物の溶解沈殿、ガス相の溶解脱ガス及び水溶性化学種の錯形成反応については局所平衡を仮定している。質量作用則は次式の通りである。

a. 鉱物の溶解沈殿の式（ p 番目鉱物相の溶解沈殿）

$$\sum_{n=1}^N [b_{p,n} \log(a_n)] = \log(K_p) \quad (2.2.1-5)$$

b. ガス相の溶解脱ガスの式（ p 番目ガス相の溶解脱ガス）

$$\sum_{n=1}^N [b_{p,n} \log(a_n)] = \log(K_p) + \log(p_p / p_p^0) \quad (2.2.1-6)$$

c. 水溶性化学種の質量保存式（親化学種を除く a 番目水溶性化学種の質量作用式）

$$\log(a_a) = \log(K_a) + \sum_{n=1}^N [c_{a,n} \log(a_n)] \quad (2.2.1-7)$$

ここに、 N ：親化学種の総数、 $b_{p,n}$ ： p 番目鉱物相（ガス相）に対する n 番目親化学種の化学量論係数、 a_n ： n 番目親化学種の活量、 K_p ： p 番目鉱物相（ガス相）の質量作用の式に対する化学反応の平衡定数、 p_p ： p 番目ガス相の分圧、 p_p^0 ：基準圧力、 a_a ： a 番目水溶性化学種

の活量、 K_a : a 番目水溶性化学種の質量作用の式に対する化学反応の平衡定数、 $c_{a,n}$: a 番目水溶性化学種に対する n 番目親化学種の化学量論係数である。

2) 解析条件

本事例解析における処分システムは、第2次取りまとめに示されている廃棄体の堅置き定置方式であり、軟岩系岩盤、設定深度を深度500mとした（核燃料サイクル開発機構, 1999b）。解析領域は、処分深度の±50mをモデルに含め、ガラス固化体を中心として、ガラス固化体ピッチと坑道離間距離の1/2を水平方向に想定した1/4領域で形成する三次元モデルとし、6,48節点、5,221要素でモデル化した（図2.2.1-3）。ガラス固化体ピッチは、第2次取りまとめに示された処分孔径の3倍の6.66mとし、坑道離間距離については、処分坑道の空洞安定性から生じる制限より処分坑道径の2.6倍の13mとした（核燃料サイクル開発機構, 1999b）。熱的境界条件として、モデル上下両面は初期温度での固定境界、モデル四側面は断熱境界とした。水理的境界条件は、モデル上下両面が所定の水頭での固定境界、モデル四側面は不透水境界とした。物質移行に関する境界条件としては、モデル上下両面が初期の地下水組成での濃度固定境界、モデル四側面は反射境界とした。変位境界条件として、yz面は、y及びz方向の変位を許しx方向の変位を拘束、xz面は、x及びz方向の変位を許しy方向の変位を拘束、xy面は、x及びy方向の変位を許しz方向の変位を拘束した。

本解析では、ニアフィールドの長期挙動に及ぼす地下水位の影響を把握するため、1,000年後までの評価期間中、地下水位が地表面にあるとする全水頭が500mH₂Oで一定の場合（ケース1）、坑道掘削にともなう地下水位の低下を仮定し、評価期間中、全水頭が0mH₂Oで一定の場合（ケース2）及び処分開始時の地下水位の全水頭を0mH₂Oとし、100年間をかけて500mH₂Oに回復する場合（ケース3）の3ケースを実施した。

地質環境は、幌延深地層研究計画における調査研究結果に基づき設定することとした。幌延地域の大曲断層西側領域は、地質学的、物性的な観点から深度約700mまでの範囲で鉛直方向に概ね深度0～275m、深度275～375m、深度375～700mの3つのゾーン構成で表現できている（山本ほか, 2005；太田ほか, 2007）。そこで岩盤の物性値は、設定深度が500mに該当する岩盤の値とした。地温勾配は、地表面から4.7°C/100mで線形勾配とし、地表面は年間の平均的な気温として15°Cを仮定した（藤田ほか, 2007）。

支保コンクリート、路盤、埋め戻し材及び人工バリアの物性値について、上述した岩盤の値と合わせて表2.2.1-3に示す。ガラス固化体については、第2次取りまとめにおける処分場の温度評価と同様に、再処理までの冷却期間を4年、中間貯蔵期間を50年とした発熱量の時間変化を考慮した（核燃料サイクル開発機構, 1999b）。なお、ガラス固化体とオーバーパックについては、水理、物質移行及び地球化学反応からは対象外とした。支保コンクリートについては、第2次TRUレポートにおいて軟岩系岩盤に対する吹き付けコンクリートの仕様に準じて、間隙率及び真密度を設定し（電気事業連合会、核燃料サイクル開発機構, 2005）、熱伝導率及び比熱は、コンクリート標準示方書に基づき設定した（土木学会, 1996）。緩衝材、オーバーパック及びガラス固化体の物性については、第2次取りまとめに準じた設定とした（核燃料サイクル開発機構, 1999b）。埋め戻し材については、幌延深地層研究計画における人工バリア性能確認試験における埋め戻し材の仕様にに基づき設定した。

熱伝導率 λ (W/mK) 及び比熱 c (kJ/kgK) は、含水比によって変化する。熱物性の含水比依存性

については、測定結果に基づき設定された次式を用いた。

$$\lambda = p_1 + p_2\omega + p_3\omega^2 + p_4\omega^3 \quad (2.2.1-8)$$

$$c = \frac{p_5 + p_6\omega}{100 + \omega} \quad (2.2.1-9)$$

ここで、 ω は含水比 (%) であり、 $p_1 \sim p_6$ のパラメータは下表の通りである。

表2.2.1-1 熱物性の含水比依存性に係るパラメータ

	p_1	p_2	p_3	p_4	p_5	p_6	引用文献
岩盤	5.79×10^{-1}	1.97×10^{-2}	0.00	0.00	6.26×10^1	3.20×10^0	木村ほか, 2010
緩衝材	4.44×10^{-1}	1.38×10^{-2}	6.14×10^{-3}	-1.69×10^{-4}	3.41×10^1	4.18×10^0	核燃料サイクル開発機構, 1999b
埋戻し材	3.39×10^{-1}	2.97×10^{-2}	0.00	0.00	4.00×10^1	4.18×10^0	日本原子力研究開発機構, 2016

不飽和水理特性は、工学規模の人工バリア試験や、幌延深地層研究計画における人工バリア性能確認試験に基づき妥当性が示されている（藤崎ほか, 2008、Sugita et al., 2015）、次式の van Genuchtenモデル（van Genuchten, 1980）により設定した。

$$S_e = \frac{\theta - \theta_r}{\theta_s - \theta} = \left[1 + |\alpha\psi|^n \right]^{-m} \quad m = 1 - \frac{1}{n} \quad (2.2.1-10)$$

$$k = \frac{k_r}{k_s} = \sqrt{S_e} \left[1 - \left(1 - S_e^{1/n} \right)^n \right]^2 \quad (2.2.1-11)$$

ここで、 S_e : 有効水分飽和度、 ψ : 圧力水頭 (mH₂O)、 θ : 体積含水率 (-)、 θ_s : 飽和体積含水率 (-)、 θ_r : 最小体積含水率 (-)、 α (m⁻¹) と n (-) はパラメータ、 k : 比透水係数 (-)、 k_s : 飽和透水係数 (m/s)、 k_r : 不飽和透水係数 (m/s) であり、パラメータを下表に示す。

表2.2.1-2 不飽和水理特性における van Genuchtenモデルのパラメータ

	θ_r	θ_s	α	n	引用文献
岩盤	0.00	0.386	3.00×10^{-3}	1.08	下茂ほか, 1982
支保及び路盤		0.130	3.80×10^{-1}	1.11	藤崎ほか, 2008
緩衝材		0.403	1.20×10^{-2}	1.40	
埋戻し材		0.460	3.80×10^{-3}	1.30	日本原子力研究開発機構, 2016

また、緩衝材中における温度勾配水分拡散係数は、温度や水分飽和度の依存性を考慮したいくつかのモデルが提案されている。ここでは、藤崎らが室内試験結果に基づいて設定した温度勾配水分拡散係数 D_T (m²/s/°C) を（藤崎ほか, 2008）、次式のBörgessonらが提案した関数でフィッティングさせて用いた（Börgesson, L. and Hernelind, J., 1999）。

$$\begin{aligned}
 S_r \leq 0.2 & : D_r = D_{r0} \cdot \sin^b \left(\frac{S_r \pi}{0.3} \right) \\
 0.2 \leq S_r \leq 0.25 & : D_r = D_{r0} = D_{rv} \exp(\alpha T) \\
 S_r \geq 0.7 & : D_r = D_{r0} \cdot \cos^a \left(\frac{S_r - 0.7 \pi}{0.3} \right)
 \end{aligned}
 \tag{2.2.1-12}$$

ここで、 $\alpha=0.0603$ 、 $a=1.0$ 、 $b=8.0$ 、 S_r : 水分飽和度 (-)、 T : 温度 (°C) である。
 弾性係数の含水比依存性は、緩衝材に対して次式を設定した (木村ほか、2010)。

$$E_{50} = 58.74 - 1.87 \omega \tag{2.2.1-13}$$

ここで、 E_{50} 弾性係数 (MPa)、 ω : 含水比 (%) である。

物質移行に関わる解析パラメータについては、第2次取りまとめにおける安全評価解析に準じて設定した (核燃料サイクル開発機構、1999c)。

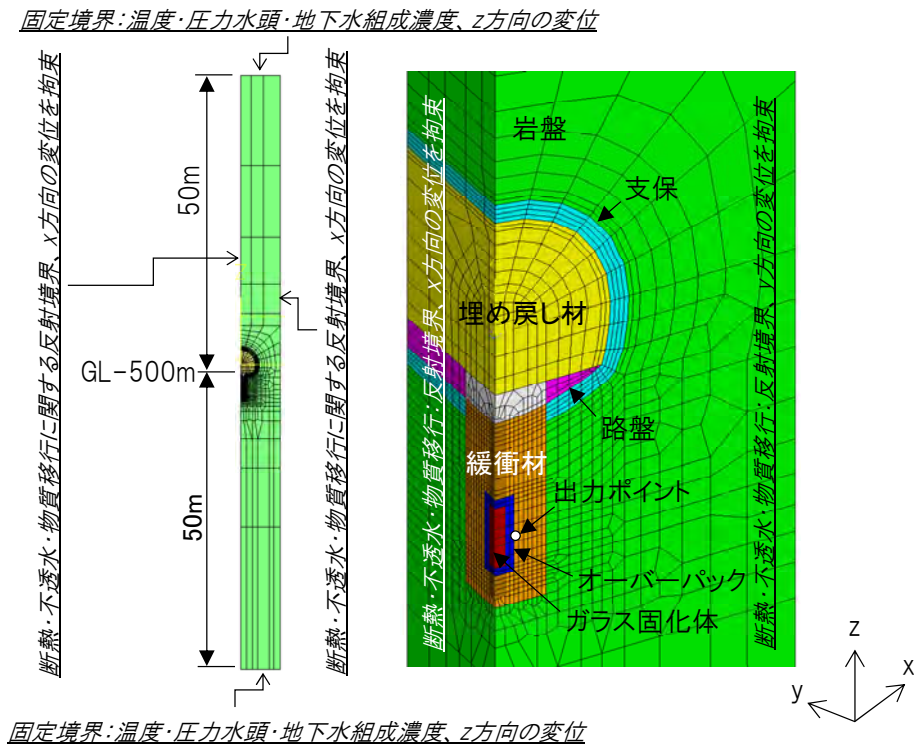


図2.2.1-3 ニアフィールドの長期挙動評価の解析条件

地下水組成は、幌延深地層研究計画の深層ボーリング調査におけるボーリング孔HDB-6で取得された地下水分析結果に基づきモデル化された深度450mの地下水組成を用いた。この地下水の塩分濃度は、現在の海水の1/2程度であり、起源が過去の海水と考えられる海水系地下水である (藤田ほか、2007)。また、岩盤の固相は、この地下水組成を支配していると考えられる鉱物の石英及び黄鉄鉱を考慮することとし、ボーリングコアを対象とした半定量分析結果に基づき、それぞれ、 2585mol/m^3 及び 63mol/m^3 とした (平賀・石井、2007)。

支保及び路盤コンクリートは、第2次TRUレポートで示された軟岩系岩盤に対する吹き付けコンクリート (W/C=45%) のモデル固相に準じたカルシウムシリケート水和物 (CaO-SiO₂-H₂O系水和物、以下C-S-Hゲル) として、ポルトランドイト (3, 446mol/m³)、アモルファスシリカ (1, 318mol/m³)、ハイドロガーネット (164mol/m³)、ブルーサイト (180mol/m³)、エトリンガイト (30mol/m³) を設定した (電気事業連合会、核燃料サイクル開発機構, 2005)。C-S-Hゲルの溶解・沈殿モデルには、杉山らのモデル (杉山ほか, 2001) を用いた。また、コンクリートに含まれるKOH、NaOH及びClは間隙水に瞬時溶解すると仮定した。

緩衝材は、第2次取りまとめの仕様例として示されたクニゲルV1が70wt%、ケイ砂が30wt%の混合材 (乾燥密度1600kg/m³、初期含水比7%) とし (核燃料サイクル開発機構, 1999b)、第2次取りまとめにおける間隙水組成のモデル計算の設定に基づき、考慮する鉱物として、スメクタイト (498mol/m³)、黄鉄鉱 (65mol/m³)、方解石 (291mol/m³) 及び玉髄 (7, 083mol/m³) とした (核燃料サイクル開発機構, 1999c)。ケイ砂については、未反応鉱物として扱った。また、スメクタイトのイオン交換反応 (交換性陽イオン組成ZNa : 51.4meq/100g、Z₂Ca : 7.4meq/100g、ZK : 0.6meq/100g、Z₂Mg : 0.7meq/100g、イオン交換反応選択係数2ZNa-Z₂Ca : 0.69、ZNa-ZK : 0.42、2ZNa-Z₂Mg : 0.67、ZNa-ZH : 1.88) 及び表面エッジサイト酸・塩基反応 (酸・塩基解離定数: logK(-)=-7.92、logK(+)= -5.67、スメクタイト単位重量当たりの表面エッジサイト密度 : 6.5×10⁻⁵mol/g、表面エッジサイト有効比表面積 : 29m²/g) を考慮した (核燃料サイクル開発機構, 1999c)。クニゲルV1に含まれる可溶性塩のCaSO₄、KCl及びNaClは、初期含水比7%の間隙水中に全量が溶解すると仮定した。そして、硫酸塩 (Gypsum:CaSO₄) を沈殿対象の二次鉱物として考慮した。人工バリア設置時の緩衝材は不飽和であるため、間隙中には地上より持ち込まれることが想定される大気分圧の二酸化炭素及び酸素が存在するものと仮定した。そして、緩衝材中に含まれる黄鉄鉱が酸素を消費する反応を、次式の数値モデルで考慮した (Williamson and Rimstidt, 1994)。

$$r = 10^{-8.19} \frac{m_{DO}^{0.5}}{m_{H^+}^{0.11}} A_{min} \quad (2.2.1-14)$$

ここで、 r : 反応速度 (mol/m² s)、 m_{DO} : 溶存酸素濃度 (mol/l)、 m_{H^+} : 溶液中の水素イオン濃度 (mol/l)、 A_{min} : 鉱物の反応表面積 (m²) である。

埋め戻し材については、幌延深地層研究計画における地下施設 (以下、幌延URL) における人工バリア性能確認試験の仕様に準じ、クニゲルV1が40wt%、掘削ズリが60wt%の混合材料 (乾燥密度1400kg/m³、初期含水比30%) とし、スメクタイト (249mol/m³)、黄鉄鉱 (33mol/m³)、方解石 (146mol/m³) 及び玉髄 (3542mol/m³) を考慮する鉱物として設定した。掘削ズリについては、未反応鉱物として扱った。そして、緩衝材と同様にスメクタイト含有量に応じたイオン交換反応、表面エッジサイト酸・塩基反応を考慮し、可溶性塩 (CaSO₄、KCl及びNaCl) の初期間隙水への溶解、不飽和間隙中における大気分圧の二酸化炭素と酸素の考慮するとともに黄鉄鉱が酸素を消費する反応を考慮した。

支保、路盤コンクリート、緩衝材及び埋め戻し材の初期間隙水組成は、設定した鉱物との平衡を仮定して地球化学計算コードPHREEQCによる解析により求めた。熱力学データには、温度が変化する系における計算に対応可能な力学データベース990900c1.tdbを使用し (Arthur et al., 1999)、

これに記述のない支保コンクリートのモデル固相である hidroゲネットとエトリングイトについては、高アルカリ環境に対応した熱力学データベース050700c0.tdb (Arthur et al., 2005)に基づき設定した。初期間隙水組成を表2.2.1-4に示す。

以上、本解析における初期条件及び境界条件を表2.2.1-5に示す。

表2.2.1-3 ニアフィールドの長期挙動解析に用いた解析物性値

パラメータ	単位	岩盤	支保・路盤	緩衝材	埋め戻し材	オーバーハック	ガラス固化体
真密度	kg/m ³	2481	2620	2680	2593	7800	2800
乾燥密度	kg/m ³	1520	2280	1600	1400	-	-
空隙率	-	0.386	0.130	0.403	0.460	-	-
弾性係数	Pa	1.82 × 10 ⁹	2.94 × 10 ¹⁰	式2.2.1-13	3.00 × 10 ⁶	2.00 × 10 ¹¹	8.20 × 10 ¹⁰
ポアソン比	-	0.21	0.20	0.30	0.40	0.30	0.30
線膨張係数	-	1.33 × 10 ⁻⁵	1.00 × 10 ⁻⁵	1.00 × 10 ⁻⁶	1.00 × 10 ⁻⁶	1.64 × 10 ⁻⁶	1.00 × 10 ⁻⁶
初期飽和度	-	1.00	1.00	0.28	0.91	-	-
熱伝導率	W/mK	式2.2.1-8	2.56 × 10 ⁰	式2.2.1-8	式2.2.1-8	5.30 × 10 ¹	1.20 × 10 ⁰
比熱	kJ/kgK	式2.2.1-9	1.05 × 10 ⁰	式2.2.1-9	式2.2.1-9	4.60 × 10 ⁻¹	9.60 × 10 ⁻¹
透水係数*	m/s	5.00 × 10 ⁻⁹	1.00 × 10 ⁻¹⁰	4.50 × 10 ⁻¹³	1.93 × 10 ⁻¹²	-	-
実効拡散係数	m ² /s	9.0 × 10 ^{-12**}		3.0 × 10 ^{-10***}		-	-
縦分散長	m	0.10				-	-
横分散長	m	0.01				-	-

*透過媒体の温度が25°Cの時の値

**新第三紀泥質岩・凝灰岩に対して設定された値(核燃料サイクル開発機構, 1999c)

***海水系間隙水における放射性元素セシウム以外の元素に対して設定された値(核燃料サイクル開発機構, 1999c)

表2.2.1-4 ニアフィールドの長期挙動解析で設定した初期間隙水組成

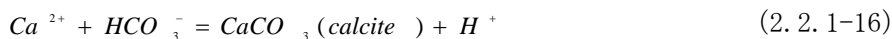
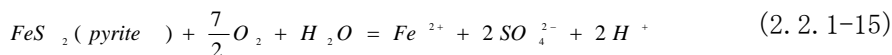
		岩盤(地下水組成)	支保及び路盤	緩衝材	埋め戻し材
温度(°C)		20	20	20	20
pH		6.80	13.46	6.88	8.19
pe		-2.77	7.53	-2.38	-3.93
mol/l _{water}	Al	3.70 × 10 ⁻⁷	4.34 × 10 ⁻⁶	1.00 × 10 ⁻¹⁰	1.00 × 10 ⁻¹⁰
	C	4.10 × 10 ⁻²	1.44 × 10 ⁻⁵	2.02 × 10 ⁻³	2.69 × 10 ⁻³
	Ca	2.10 × 10 ⁻³	6.89 × 10 ⁻⁴	7.53 × 10 ⁻²	1.05 × 10 ⁻³
	Cl	2.20 × 10 ⁻¹	1.00 × 10 ⁻¹⁰	7.75 × 10 ⁻³	1.05 × 10 ⁻³
	Fe	1.50 × 10 ⁻⁵	1.00 × 10 ⁻¹⁰	8.08 × 10 ⁻⁵	8.08 × 10 ⁻⁵
	K	2.10 × 10 ⁻³	3.33 × 10 ⁻¹	3.15 × 10 ⁻³	4.26 × 10 ⁻⁴
	Mg	5.80 × 10 ⁻³	2.99 × 10 ⁻⁹	1.09 × 10 ⁻³	3.55 × 10 ⁻⁵
	Na	2.30 × 10 ⁻¹	2.12 × 10 ⁻¹	4.12 × 10 ⁻¹	7.94 × 10 ⁻²
	S	6.30 × 10 ⁻⁶	1.13 × 10 ⁻¹	2.78 × 10 ⁻¹	3.80 × 10 ⁻²
	Si	7.01 × 10 ⁻⁵	1.11 × 10 ⁻³	1.28 × 10 ⁻⁴	1.70 × 10 ⁻⁴
O ₂	1.00 × 10 ⁻¹⁰	2.78 × 10 ⁻⁴	1.00 × 10 ⁻¹⁰	1.00 × 10 ⁻¹⁰	

表2.2.1-5 ニアフィールドの長期挙動解析の初期条件及び境界条件

解析ケース		ケース1	ケース2	ケース3
地下水位(全水頭)		500mH ₂ O	0mH ₂ O	100年間で0mH ₂ Oから500mH ₂ Oに段階的に上昇
初期温度	人工バリア・埋戻し材・支保・路盤	20℃		
	岩盤	地表面温度を15℃とし、地表面から4.7℃/100mの線形勾配		
初期飽和度		表2.2.1-3の通り		
初期間隙水組成		表2.2.1-4の通り		
熱的境界条件	モデル上面	36.15℃での温度固定境界		
	モデル下面	40.85℃での温度固定境界		
	モデル四側面	断熱境界		
水理学的境界条件	モデル上下面	全水頭500mH ₂ Oでの固定境界	全水頭0mH ₂ Oでの固定境界	100年間で全水頭0mH ₂ Oから500mH ₂ Oに段階的に上昇
	モデル四側面	不透水境界		
力学的境界条件	モデル上下面	図2.2.1-3で示したxy面はz方向の変位を固定		
	モデル四側面	図2.2.1-3で示したxz面はy方向の変位を拘束 図2.2.1-3で示したyz面はx方向の変位を拘束		
物質移行に関する境界条件	モデル上下端	表2.2.1-4で示した地下水組成での濃度固定境界		
	モデル四側面	反射境界		

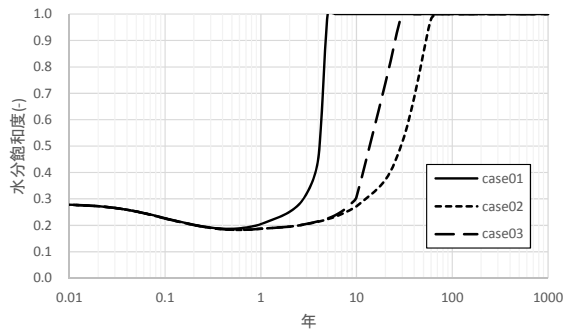
3) 解析結果

ニアフィールドの長期挙動に及ぼす地下水位の影響を把握するための解析結果の一例として、オーバーパックと接触している緩衝材の水分飽和度、温度、間隙水のpHとpe、硫酸塩及び方解石の沈殿濃度の時間変化を図2.2.1-4に示す。出力ポイントは図2.2.1-3の通りである。これより、緩衝材が飽和するまでの時間は、地下水位が地表面にあるとした全水頭が500mH₂Oで一定の場合（ケース1）で約4年、地下水位の全水頭が0mH₂Oで一定の場合（ケース2）で約70年、処分開始時の地下水位の全水頭を0mH₂Oとし、100年間をかけて500mH₂Oに回復する場合（ケース3）で約20年となっており、地下水位が低いほど緩衝材が飽和するまでの時間が長くなっている。温度については、半年後から約30年後までの間でケース1がその他のケースに比べて低くなっている。これは、緩衝材の水分上昇が速いケース1の熱伝導率がその他のケースに比べて大きくなるためである。間隙水のpHの初期からの低下は、式2.2.1-14に示す黄鉄鉱が酸素を消費する反応によって生じていると考えられる。また、酸素が消費され緩衝材が飽和した後は、浸潤する地下水（pH6.8）の影響によってpHは上昇に転じていると考えられる。間隙水のpeは、黄鉄鉱が酸素を消費する反応によって初期から1～3年後にかけて低下し、その後は低い値を保つ結果となっている。硫酸塩（Gypsum）は、緩衝材中の水分飽和度が低下することによる間隙水の濃縮と、温度の上昇による溶解度の低下によって沈殿量が増加し、その後、水分飽和度が上昇に転じ飽和することによって消滅している。方解石は、緩衝材が飽和した以降に沈殿量が増加している。これは、緩衝材が飽和した後のpHの上昇に対して、式2.2.1-16に示す反応が生じているためと考えられる。

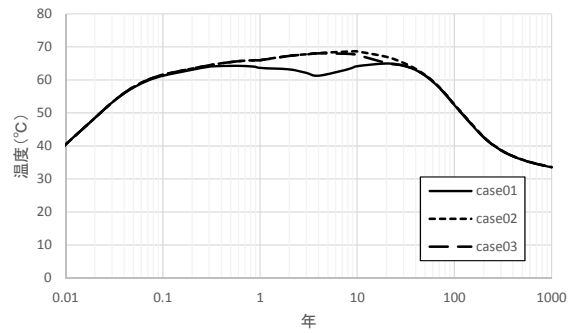


3) まとめ

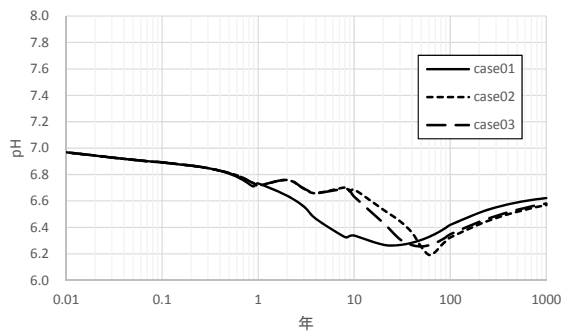
これまでに開発したTHMC連成解析コードCouplysを用いたニアフィールドの長期挙動の評価として、坑道掘削にともなう地下水位の低下を考慮した解析を実施した。そして、地下水位が及ぼすニアフィールドの化学的な環境への影響を把握した。本手法により、オーバーパックの寿命評価に必要なニアフィールド環境条件や、安全評価における核種移行の初期状態の設定に関する情報提供が可能になると考えられる。



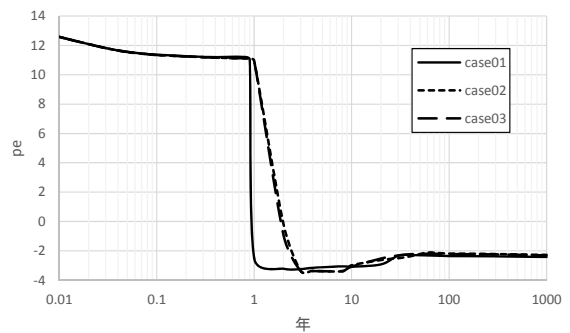
(a) 水分飽和度



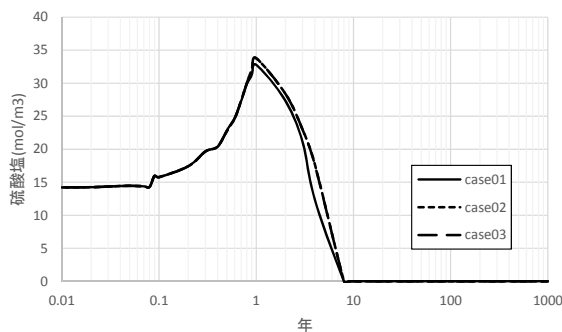
(b) 温度



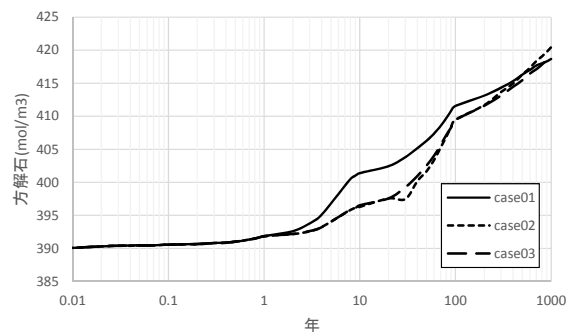
(c) pH



(d) pe



(e) 硫酸塩の沈殿濃度



(f) 方解石の沈殿濃度

図2.2.1-4 ニアフィールド長期挙動解析結果(オーバーパックに接触する緩衝材の飽和度、温度、間隙水のpHとpe、硫酸塩及び方解石の沈殿濃度)

(3) 熱-水-応力連成解析コードの検証のためのデータ取得

1) 概要

処分環境に定置される緩衝材は、再冠水に伴い不飽和から飽和状態といった過渡的な変化が生じる。緩衝材は、その過程において膨潤する挙動が生じることから、人工バリアの長期的安定性を評価するうえでも、緩衝材の膨潤挙動を表現する力学モデルを構築する必要がある。緩衝材の特性については、これまでに乾燥密度と膨潤圧の関係などのデータ整備が進められている一方、緩衝材の膨潤による変形挙動については、その特性が十分に理解されていない。このことから、昨年度より膨潤変形試験によるデータの整備を進めている（日本原子力研究開発機構，2016a）。

本検討では、ニアフィールド環境の変遷による人工バリア緩衝材の挙動評価手法を構築することを目的とし、その評価手法の一つである緩衝材の膨潤挙動を表現する力学モデルの高度化に資するデータの取得を行った。

緩衝材の膨潤挙動を表現する力学モデルの詳細な検討や、高度化に資するデータとして、不飽和から飽和過程におけるベントナイトの膨潤に伴う体積変形について膨潤変形試験を実施し、膨潤挙動の力学モデルの検証データとして反映した。また、ベントナイトの膨潤変形過程における供試体内部の土粒子の移動について、X線CTスキャナを用いた非破壊測定による視覚的な内部観察を試み、より現実に応じた膨潤挙動の力学モデルの構築に資する一知見としてデータの取得を行った。

2) 膨潤変形試験

本試験では、圧縮成型したベントナイト供試体に荷重を載荷させ、水の浸潤にともなって体積変形するベントナイト供試体の体積変位を測定し、荷重と膨潤変形の間関係を把握した。試験装置の概略を図2.2.1-5に、試験条件を表2.2.1-6に示す。

試験は初期乾燥密度 $1.6\text{Mg}/\text{m}^3$ の供試体に対して、載荷重を任意の条件で4ケース負荷した。載荷条件は、表2.2.1-7のとおり設定した。

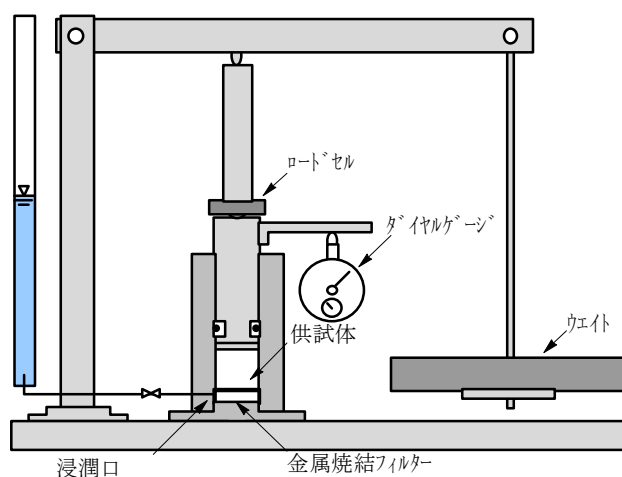


図2.2.1-5 膨潤変形試験装置図

表2.2.1-6 試験条件

材料	ベントナイト（クニゲルV1）、3号・5号ケイ砂
供試体仕様	乾燥密度1.6Mg/m ³ 、ケイ砂30wt%混合ベントナイト
供試体寸法	直径20mm×高さ20mm
初期含水比	8.2%
浸潤水	蒸留水

表2.2.1-7 载荷条件

初期乾燥密度	初期载荷重	除荷ステップ
Case1 1.6 [Mg/m ³]	9.42[kg] (1.27 [Mg/m ³]の膨潤圧相当)	—
Case2 1.6 [Mg/m ³]	14.92[kg] (1.48 [Mg/m ³]の膨潤圧相当)	—
Case3 1.6 [Mg/m ³]	23.99[kg] (1.66 [Mg/m ³]の膨潤圧相当)	9.56 [kg] (1.27 [Mg/m ³]の膨潤圧相当)
Case4 1.6 [Mg/m ³]	50.50[kg] (1.84 [Mg/m ³]の膨潤圧相当)	10.02 [kg] (1.29 [Mg/m ³]の膨潤圧相当)

試験は、初期乾燥密度1.6Mg/m³のベントナイト供試体の膨潤圧に相当する载荷重に対して、弱負荷としたCase1およびCase2、過負荷としたCase3およびCase4に対して行い、それぞれの条件において、負荷相当の変位が生じるかを実験的に確認した。時間と膨潤変形に伴う、ベントナイト密度変化の推移を図2.2.1-6に示す。図の縦軸には、ベントナイト供試体の垂直変位から求められた乾燥密度の値を示している。初期乾燥密度の膨潤圧よりも弱負荷とした場合には、ベントナイト供試体の体積が増加する方向に変形が生じるため、乾燥密度は低下した。一方、過負荷の場合には、圧密によってベントナイト供試体の体積が減少する方向に変形が生じるため、乾燥密度は

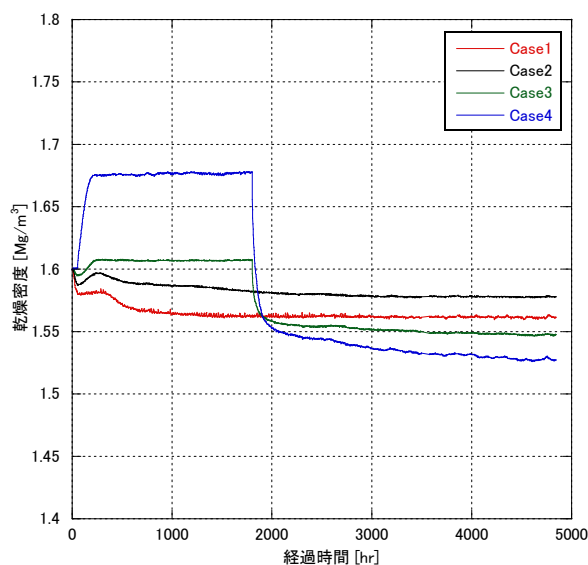


図2.2.1-6 時間と膨潤変形に伴うベントナイト密度変化の推移

増加した。

Case1およびCase2は、体積が増加する方向に変形が生じ、乾燥密度に若干の低下は認められるものの、荷重条件の膨潤圧相当に対応する乾燥密度までの変位は生じなかった。Case3は、初期乾燥密度 $1.6\text{Mg}/\text{m}^3$ の膨潤圧よりも若干過負荷としたため、変位は小さいものの圧密側に変形が生じた。Case4は、体積が減少する方向に顕著に変形が生じ、乾燥密度の増加が認められるものの、荷重条件の乾燥密度までの変位は生じなかった。供試体の垂直変位が収束し、200時間程度が経過した時点で乾燥密度が平衡となったCase3およびCase4については、荷重をCase1相当まで除荷を行い、Case1と同様な変位が生じるかについて確認を行った。その結果、除荷によって体積が増加する方向に変形が生じ、Case1相当の乾燥密度まで変位が生じることは確認できたものの、やはり荷重条件としている乾燥密度までの変位は生じない傾向となった。また、Case3とCase4は、Case1とほぼ同一の荷重条件に除荷したものの、両者ともに、その変位はCase1を上回り、且つ初期荷重条件に応じて除荷後の変位が異なることから、応力履歴が挙動に影響していることが考えられる。本試験における荷重（膨潤圧）と変形との関係について、昨年度実施した膨潤圧試験から求められた乾燥密度と膨潤圧の関係（日本原子力研究開発機構，2016a）と、膨潤変形試験の結果を比較して整理した。結果を図2.2.1-7に示す。図より、膨潤圧試験から得られている乾燥密度と膨潤圧の関係と、膨潤変形試験における乾燥密度と膨潤圧との関係が一致していないことが分かる。これは、緩衝材の膨潤変形特性が、膨潤圧試験から求められる乾燥密度と膨潤圧の関係からは評価することが出来ないことを示唆しており、今後、膨潤変形試験のデータを拡充するなどして、これらの挙動を確認していく必要がある。

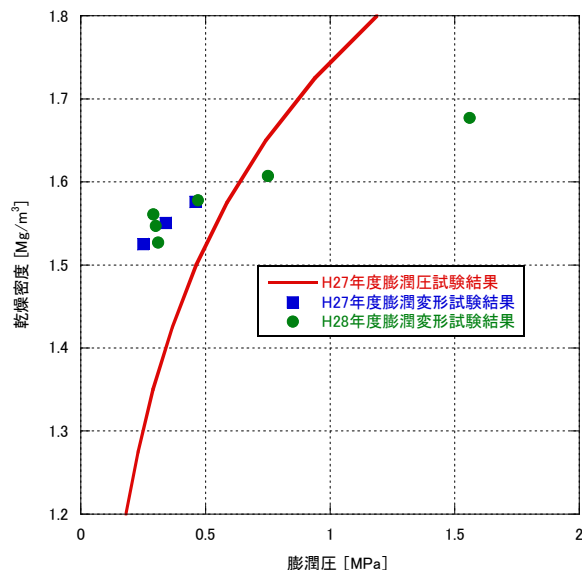


図2.2.1-7 飽和時の乾燥密度と膨潤圧の関係

次に、昨年度改良した熱-水-応力連成解析コードTHAMES（日本原子力研究開発機構，2016a）の検証を行うために、THAMESにより、本実験の再現解析を実施した。解析結果を図2.2.1-8に示す。図より、膨潤側に変形するCase1およびCase2については、体積変形によって乾燥密度が低下する挙動について再現できているものの、実験と解析における乾燥密度の値には差異が認められており、十分な再現性が得られているとは言えない。また、圧密側に変形するCase3やCase4について

は体積変形による乾燥密度の増加が生じておらず、挙動を再現できていない。本解析の力学モデルは、飽和度の増加に伴い内部応力を載荷する方法を用いており、この内部応力については膨潤する方向に作用するようにモデル化されていることから、圧密側の変形挙動については再現できなかったことが考えられる。今後、圧密側の挙動の表現方法、ならびに解析精度も含めたモデルの高度化について検討していくことが課題として挙げられる。

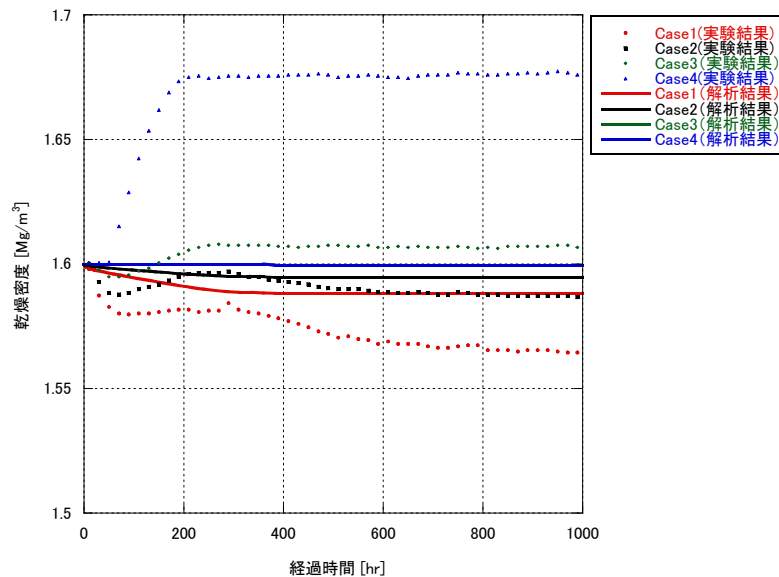


図2.2.1-8 再現解析結果

3) 膨潤変形に伴うベントナイト供試体内部の非破壊測定試験

緩衝材の不飽和から飽和に至る力学挙動を表現する力学モデルは、その適用性を確認するために、膨潤圧や膨潤変形などの要素試験結果に基づいた再現解析による検証が有効であるものと考えられる。しかしながら、不飽和から飽和過程における緩衝材の膨潤圧試験や膨潤変形試験中における供試体内部の状態変化については、これまでに把握できていない。そこで、解析コードのより詳細な検証およびモデルの高度化に資するデータ取得を目的とし、ベントナイト供試体の不飽和から飽和に至る膨潤過程における供試体内部の粒子の移動挙動を把握するために、粒子に見立てた球体のマーカーを供試体の内部に埋設し、X線CTスキャナを用いた非破壊測定を適用してマーカーの移動を観察した。試験は、図2.2.1-9に示す二つの試験セルを用い、ベントナイト供試体の体積変形を拘束する手法（以下、体積拘束型という）と体積変形を拘束しない手法（以下、体積非拘束型という）の二つの手法により実施した。試験条件を表2.2.1-8に示す。

X線CTスキャナを用いて測定した体積拘束型の供試体内部におけるマーカー位置の断面画像の経時変化を図2.2.1-10に示す。また、断面画像情報からマーカーの中心位置の動きを経時的に追い、図2.2.1-11に示した。断面画像を観察する限り、埋設した上中下の3つのマーカーの移動はベントナイト供試体の不飽和から飽和過程において顕著ではなく、ほとんど移動がない。その一方、マーカーの動きを数値化した場合、マーカー上部と中部で微小な動きがあることが示唆される結果が得られた。マーカーは、水の浸潤面とは逆方向の上部側から中部にかけて変位しているものの、下部のマーカーについては変位が認められない。本試験で得られた挙動に関しては、再試験を行うなどして今後精査する必要がある。

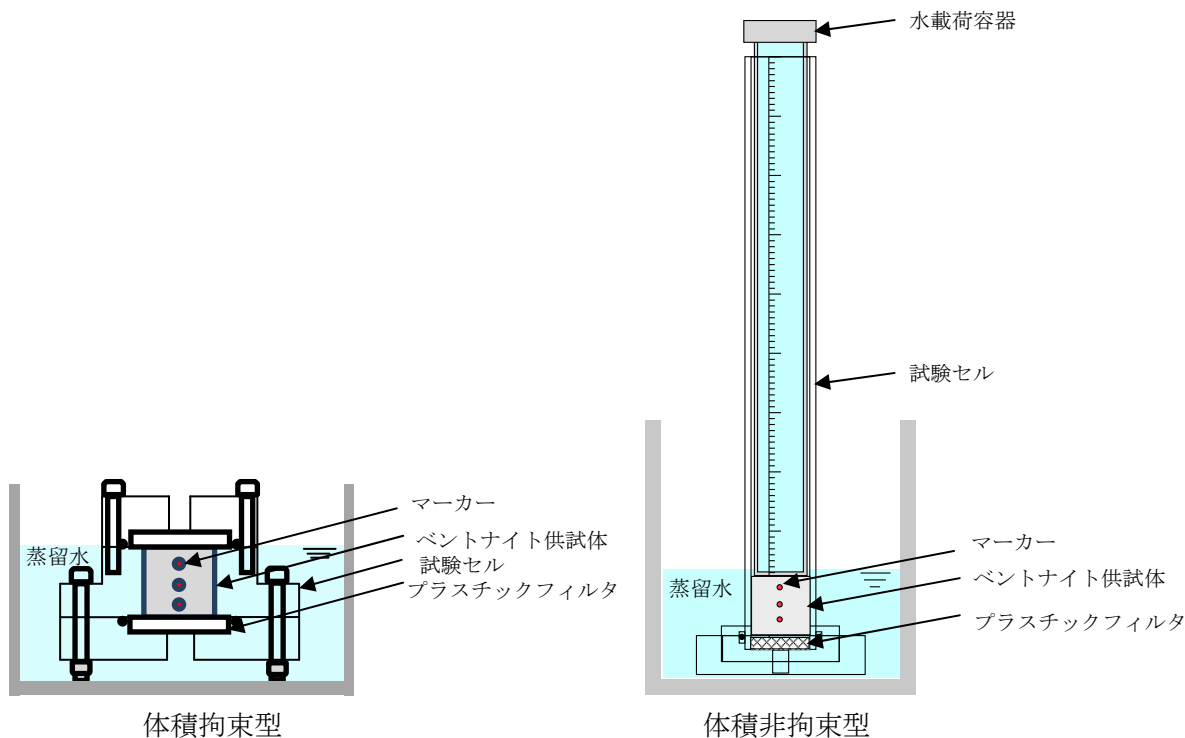


図2.2.1-9 非破壊測定試験セル

表2.2.1-8 試験条件

材料	ベントナイト（クニゲルV1）、3号・5号ケイ砂	
供試体仕様	乾燥密度 $1.6\text{Mg}/\text{m}^3$ 、ケイ砂30wt%混合ベントナイト	
供試体寸法	直径20mm×高さ20mm	
初期含水比	8.2%	
浸潤水	蒸留水	
体積変形条件	体積変形拘束型	体積変形非拘束型
载荷重	—	42g

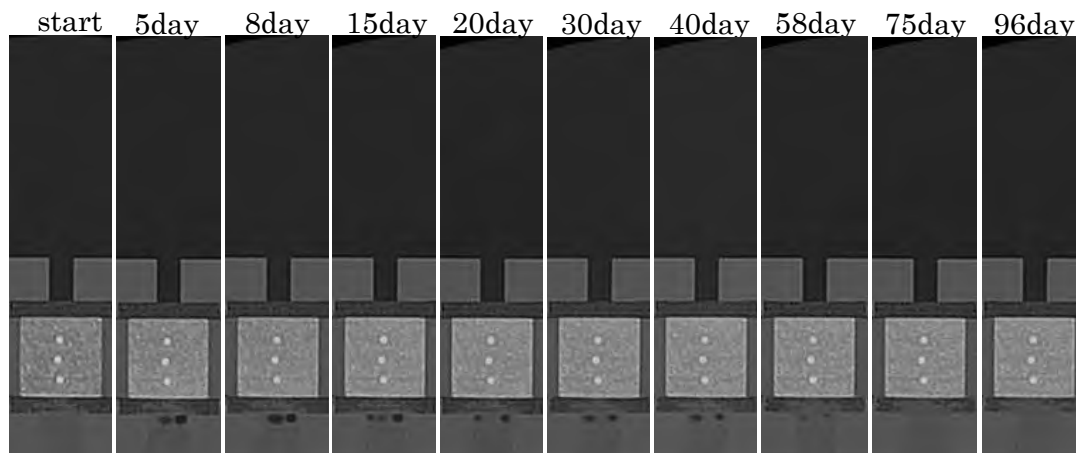


図2.2.1-10 X線CT測定による供試体内部の断面画像（体積拘束型）

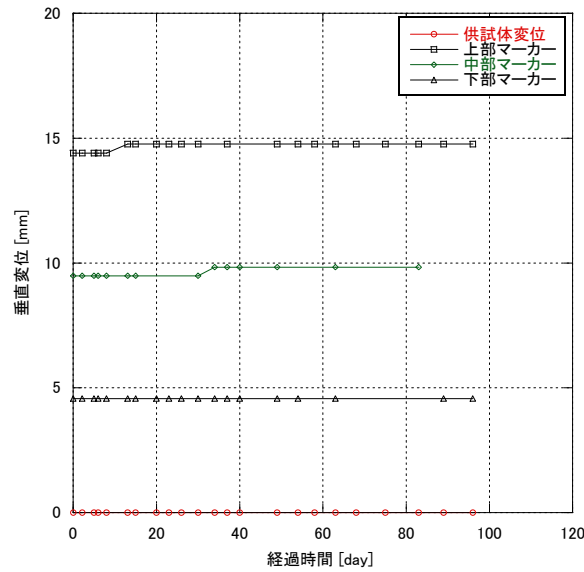


図2. 2. 1-11 供試体内部における埋設マーカーの移動推移（体積拘束型）

次に、体積非拘束型における断面画像の経時変化を図2. 2. 1-12に、断面画像情報からマーカーの中心位置の動きを経時的に追った結果を図2. 2. 1-13に示す。断面画像より体積非拘束型の試験では、供試体の膨潤に伴って体積変形が生じ、埋設したマーカーが顕著に移動していることが観察された。また、ベントナイト供試体の膨潤過程で、供試体上部のエッジに隙間が生じたが、最終的にはベントナイトの膨潤性能によって隙間が充填されていることが分かる。マーカーの移動については、ベントナイト供試体の垂直変位に伴い、3つのマーカーはそれぞれ上方向に押し上げられた。これは、ベントナイトの膨潤による粒子の流動によってマーカーが移動したものと推測される。最終的なベントナイト供試体の垂直変位とそれぞれのマーカーが移動した変位量を整理すると、これらは、ほぼ線形近似の関係が成り立つことが分かった（図2. 2. 1-14参照）。

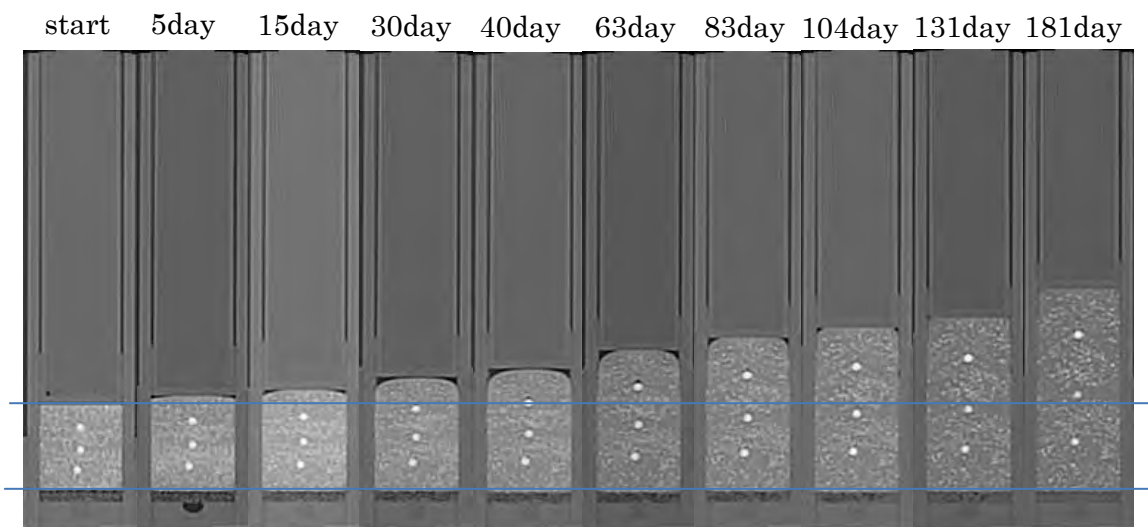


図2. 2. 1-12 X線CT測定による供試体内部の断面画像（体積非拘束型）

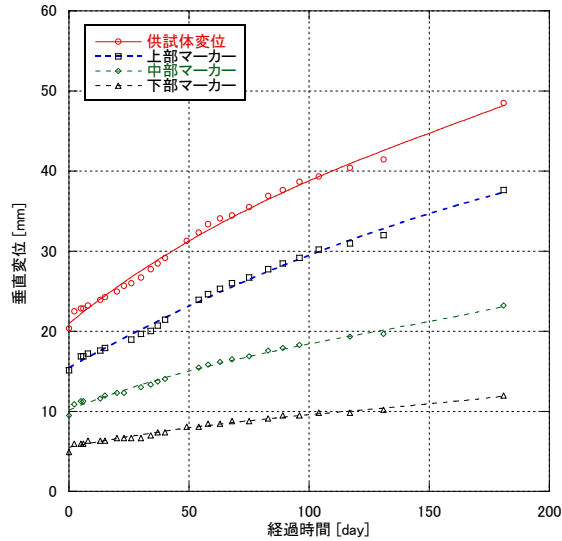


図2.2.1-13 供試体内部における埋設マーカーの移動推移

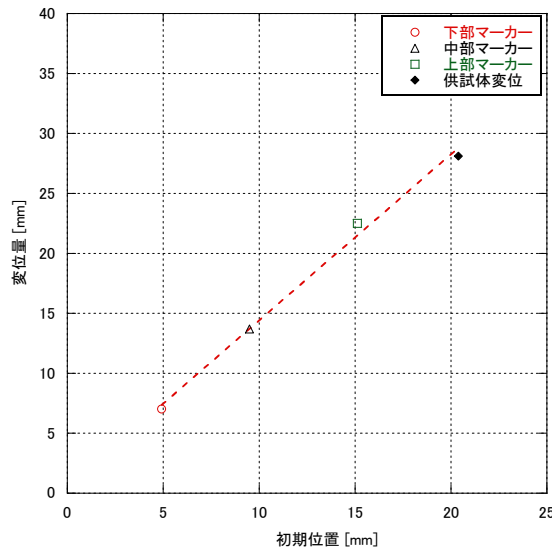


図2.2.1-14 供試体変位とマーカー変位との関係（体積非拘束型）

以上の非破壊測定試験より、供試体の体積が拘束されている条件下では、ベントナイトが不飽和から飽和に至る間、土粒子の移動は顕著ではないことを概略的に把握した。一方、供試体の体積が非拘束の条件下では、供試体の体積変化に伴いマーカーも連動して移動する傾向が確認され、供試体内部のマーカーの変位は、ほぼ線形の関係が成り立つことを概略的に把握した。本試験は供試体に載荷されている荷重が非常に小さな条件下での挙動であるため、今後は載荷条件をパラメータとするなどした挙動についてデータの取得を行い、力学モデルの高度化に資するデータとして反映していくことが課題である。

(4) 熱-水-応力連成解析コードの高度化

1) 高度化の概要

ニアフィールドの連成挙動を評価する手法の確立を目的として、熱-水-応力連成解析コード THAMESの整備を行なってきた。本解析コードにおける緩衝材の力学モデルには、弾性係数の

飽和度・乾燥密度依存性を考慮した非線形弾性構成モデルが適用されており、飽和度の増加に相当する内部応力を戴荷する方法で膨潤挙動を表現している。しかしながら、飽和後の力学挙動も弾性体として計算しているため、飽和した緩衝材の圧密やせん断によって生じる非線形な弾塑性挙動を再現することができていない点が課題である。また、変形により緩衝材の密度変化が生じると、透水係数などの水理特性や熱伝導率などの熱特性は変化するが、THAMESでは、このような水理・熱特性の密度依存性を考慮できていない点も課題である。このような背景のもと、上記の課題を解消することを目的として、熱-水-応力連成解析コードTHAMESに対して、表2.2.1-9に示す改良を実施した。また、改良したこれらの機能については、単純な一要素モデルを用いた検証解析により、理論解と一致していることを確認した。今後は、改良を行ったTHAMESを用いて、幌延URLにおける人工バリア性能確認試験等を対象としたニアフィールドの連成解析を行うことで、改良した効果の検証を実施していく必要がある。ここで、表2.2.1-9の実施項目③～⑤については、既往の研究で提案されている関係式およびモデルをそのまま導入したが、実施項目①および②については、既往の試験結果を再整理し、密度依存性を考慮した新たな関係式を設定し、THAMESに組み込んだ。そこで、実施項目①および②の詳細を以下に示す。

表2.2.1-9 実施項目一覧

実施項目		実施内容
①	飽和度の算出方法の修正	現状のTHAMESでは、体積含水率から飽和度を算定するが、その際、初期間隙率を用いて算定しているため、飽和度の算定には、変形による間隙率変化の影響は反映されていない。そこで、飽和度を算出する際、その解析ステップで得られた間隙率を用いて飽和度を算定するように変更を行った。また、解析により得られたサクシオンを飽和度等の水分量に関する情報に変換する際に必要な水分特性曲線について、現状では密度の影響を考慮できていないため、既往の試験結果(鈴木ほか, (1996))を再整理し、再整理した情報を用いて密度の影響を考慮できるように改良した。
②	熱伝導率の密度依存性導入	菊池・棚井(2003)が実施した緩衝材の熱伝導率の測定結果から、熱伝導率に対する飽和度の関係式を導出した。導出した関係式をTHAMESに組み込み、実施項目①によって得られた飽和度から熱伝導率が算出されるように改良した。
③	比熱の密度依存性導入	菊池・棚井(2003)によれば、比熱は、乾燥密度に依存せず含水比によって決定することができるため、菊池・棚井(2003)によって提案されている緩衝材の比熱と含水比の関係式をTHAMESに組み込み、解析によって得られた含水比から比熱が計算されるように改良を行った。なお、含水比は飽和度および間隙率から算出される。
④	固有透過度の密度依存性導入	緩衝材の固有透過度と有効粘土密度の関係式をTHAMESに組み込み、解析によって得られた乾燥密度から固有透過度が算定されるようにした。その際、蒸留水を用いた場合の関係式(松本ほか, 1997)、人工海水を用いた場合の関係式(菊池ほか, 2003)、幌延地下水を用いた場合の関係式(菊池ほか, 2004)の三種類の関係式を組み込んだ。
⑤	弾塑性構成モデルの導入	飽和後の緩衝材の力学挙動を表現するために、大野ほか, (2006)の提案する弾塑性構成モデル(ECモデル)を熱-水-応力連成解析コードTHAMESに組み込み、緩衝材の飽和度が任意の値に達すると、ECモデルに切り替わる機能を追加した。

①飽和度の算出方法の修正

現状のTHAMES では、解析の結果得られたサクシオンから、まず以下のvan Genuchtenモデル (VGmodel) を用いて体積含水率を算出している。

$$\frac{\theta - \theta_r}{\theta_s - \theta_r} = \left\{ 1 + (\alpha \psi)^n \right\}^{-m} \quad \rightarrow \quad \theta = \theta_r + (\theta_s - \theta_r) \left\{ 1 + (\alpha \psi)^n \right\}^{-m} \quad (2.2.1-17)$$

ここで、 θ : 体積含水率、 θ_r : 最小体積含水率、 θ_s : 飽和体積含水率、 α 、 n 、 $m(=1-1/n)$: VGmodel パラメータ、 ψ : サクシオンである。次に、算出した体積含水率を用いて飽和度 S_r を

$$S_r = \theta / n_i \quad (2.2.1-18)$$

により算出している。ここで、 n_i は初期間隙率である。しかしながら、本来体積含水率と飽和度の関係は、

$$S_r = \theta / n \quad (2.2.1-19)$$

である。ここで、 S_r : 飽和度、 n : 任意の時刻 t における間隙率である。そのため、変形によって生じる密度変化（もしくは間隙率変化）を考慮した算出方法となっていない。さらに、VGmodel の入力パラメータの θ_r 、 θ_s も密度変化に伴い変化する値であるが、現状では一定値として取り扱っているため、変形の影響を考慮することができていない。これらの課題を解決するため、飽和度の算出方法を変更した。鈴木ほか、(1996) によれば、緩衝材のサクシオンは、含水比とサクシオンの関係で整理すると乾燥密度の影響を受けない。そこで、鈴木ほか、(1996) の実験結果から含水比とサクシオンの関係式を新たに設定し、その関係式により計算される含水比から、以下の式を用いて飽和度を算出することとした。

$$S_r = \omega G_s / e \quad (2.2.1-20)$$

ここで、 ω : 任意の時刻 t における含水比、 G_s : 土粒子比重、 e : 任意の時刻 t における間隙比 ($= n/(1-n)$) である。新たに設定した含水比とサクシオンの関係式は、

$$\omega = a_1 \psi^{a_2} \quad (2.2.1-21)$$

である。ここで、 a_1 、 a_2 : フィッティングパラメータであり、鈴木ら (1996) による緩衝材の実験結果から最小二乗法を用いて、 $a_1=124.07$ 、 $a_2=-0.371$ とした。図2.2.1-15に鈴木ほか、(1996) による緩衝材のサクシオンの測定結果および式2.2.1-21でフィッティングによって得られた式を示す。

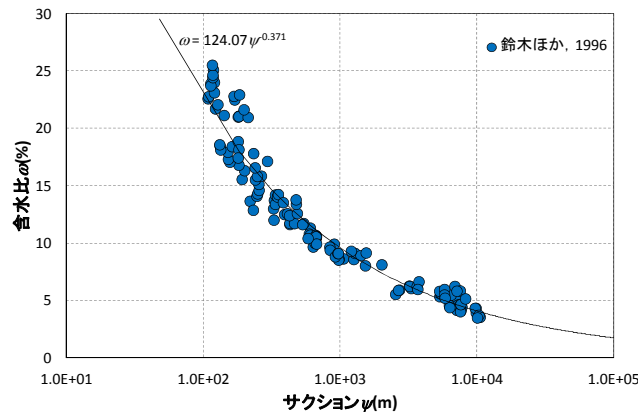


図 2.2.1-15 緩衝材の不飽和水分特性曲線

②熱伝導率の密度依存性導入

菊池・棚井（2003）においては、乾燥密度の異なる種々の緩衝材に対して熱伝導率の測定が実施されており、熱伝導率が含水比の関数として整理されているものの、乾燥密度の関数としては整理されていない。そこで本検討では、熱伝導率の測定結果を再整理した。その結果、熱伝導率を飽和度との関係として整理すると、乾燥密度の影響が小さくなったことから、熱伝導率と飽和度の関係式を新たに設定して、解析コードに組み込んだ。新たに設定した熱伝導率と飽和度の関係式は、

$$\lambda = b_1 + b_2 \cdot S_r + b_3 \cdot S_r^2 + b_4 \cdot S_r^3 \quad (2.2.1-22)$$

である。ここで、 λ ：熱伝導率(W/(mK))、 b_1 、 b_2 、 b_3 、 b_4 ：フィッティングパラメータであり、菊池・棚井（2003）による実験結果から最小二乗法を用いて表2.2.1-10のように決定した。フィッティング結果を図2.2.1-16に示す。

表 2.2.1-10 熱伝導率の設定

材料	入力値			
	b_1	b_2	b_3	b_4
緩衝材	0.5622	-0.0004	0.0005	-3.0×10^{-6}

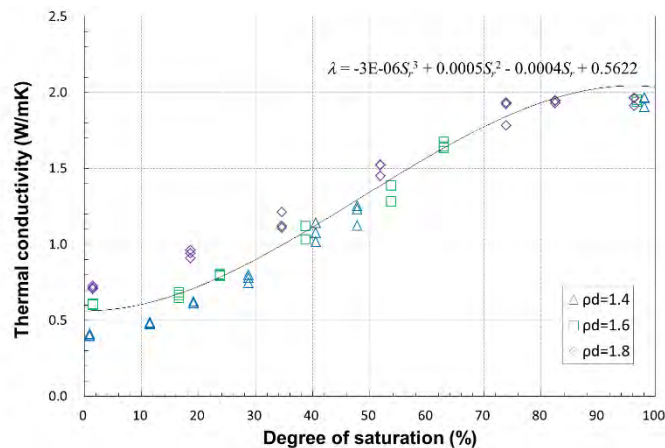


図 2.2.1-16 熱伝導率と飽和度の関係（菊池・棚井（2003）をもとに作成）

2.2.2 過渡的状態における人工バリアの挙動評価技術の開発

本項では、過渡的状態における人工バリアの挙動を評価するために、平成25年度に開発した過渡的条件下での腐食モニタリングセンサーを用いたオーバーパックスの腐食試験を継続した。また、平成25年度に策定した研究アプローチに従って、従来の想定範囲を超える条件下でのオーバーパックスの腐食挙動及び緩衝材の膨潤性や透水性に関するデータを蓄積した。緩衝材の膨潤性については、セメンテーションの影響を念頭に、ベントナイト原鉱石の分析に着手した。さらに、pH計測センサーの開発を継続するとともに、オーバーパックスと緩衝材の相互作用に関するデータの拡充を行った。

(1) オーバーパックスの腐食挙動に関する調査

オーバーパックス埋設後初期において、オーバーパックス周囲の環境は、緩衝材中に残存する酸素によって比較的酸化性の環境が継続すると想定される（核燃料サイクル開発機構，1999a）。緩衝材が再冠水し、飽和に達した後は、溶存酸素が残存していたとしても、緩衝材中での溶存酸素の移行が制限されるため、オーバーパックスの腐食への影響は無視できるほど小さいことが確認されている（Honda et al., 1995）。一方、飽和に至るまでの過渡的な状態では、溶存酸素による腐食が進展し、腐食速度や腐食の不均一化の程度は飽和した条件や還元性雰囲気と比較して大きいと考えられる。また、ガラス固化体からの発熱によって、緩衝材間隙水中成分の濃縮など水質の変化による影響を受ける可能性がある。

従来、酸化性環境における炭素鋼オーバーパックスの腐食挙動については、溶存酸素を含む水溶液やスラリー状のベントナイトを用いた室内試験により腐食の不均一性について検討され、最大腐食深さが評価されているものの（石川ほか，1992；Taniguchi et al., 2011）、環境条件の変遷を伴う過渡状態での腐食挙動の経時的な変化については、測定手法を含めほとんど検討されていない。また、間隙水中の成分については、5種類の地下水モデルを想定して腐食に影響を及ぼす成分の濃度範囲を設定して腐食挙動の検討が行われているが（核燃料サイクル開発機構，1999a）、この範囲を超えた条件での挙動については、高炭酸塩環境での応力腐食割れ挙動（Mitsui et al., 2008）など一部の腐食現象を除き、ほとんど検討が行われていない。

以上のことから、平成25年度に埋設後初期における再冠水過程での炭素鋼オーバーパックスの腐食挙動を把握することを目的として、不飽和緩衝材中における炭素鋼の腐食モニタリングを行うための電極の構造を検討して交流インピーダンス法による腐食モニタリングのためのセンサーを試作するとともに、平成27年度まで室内試験により適用性を確認した。また、平成26年度より本センサーを幌延URLでの原位置における試験（日本原子力研究開発機構，2015a）に適用し、腐食モニタリングを継続して実施している。

従来の想定範囲を超える地下水水質での腐食挙動については、平成26年度までに高塩濃度環境、酸性環境等での実験的検討を行い、データを取得した。

平成28年度は、腐食センサーにより計測された腐食速度の妥当性について、実際の腐食量との比較から検証した。また、幌延URLでの原位置試験に適用されたセンサーについても計測を継続した。従来の想定範囲を超える地下水水質での腐食挙動については、高炭酸ガス環境での腐食速度に関するデータ取得を実施した。

1) 腐食センサーによる腐食モニタリング

①モニタリング用センサーの構成

平成25年度に開発したセンサーの構造、寸法を図2.2.2-1に示す。全体寸法は、原位置試験で緩衝材中に埋め込む予定の他のセンサー類に比較して著しく大きくならないよう、試料極、参照極、対極をφ25x30mm程度の大きさ内に集約した構造となっている（日本原子力研究開発機構，2014a）。

センサーには1個当たり2枚の炭素鋼電極が配置されており、一方を自然電位測定用、もう一方を交流インピーダンス測定用とすることによって両者の同時計測が可能である。この場合、交流インピーダンスは中央のカーボン電極を参照電極、チタン管を対極として3電極法にて実施する。また、本センサーでは2枚の炭素鋼電極を用いることによって、2電極法での測定も可能である。更に、一方の炭素鋼電極に不具合が生じ、測定不能となった場合でも、もう一方の電極で自然電位、交流インピーダンス両方を測定するなど、バックアップが可能となる。炭素鋼電極の材料として、不飽和緩衝材中での腐食モニタリングには、従来使用しているJIS G 3106 SM400B (C:0.14, Si: 0.22, Mn: 1.12, P: 0.016, S: 0.004mass%) をセンサーの検討用の材料として用いた。幌延URLでの原位置試験に適用する際は、実際に試験に用いるオーバーパックと同一材質のJIS G 3202 SFVC 1 (C:0.25, Si: 0.23, Mn: 0.95, P: 0.014, S: 0.004mass%) を用いている。

参照電極（グラッシーカーボン）は、対称性を考慮して2枚の電極間の中央に配置されている。また、原位置試験では種々のセンサーが配置され、計測が行われることを想定し、ノイズによる影響低減を考慮して各電極にはシールド付リード線が接続されている。

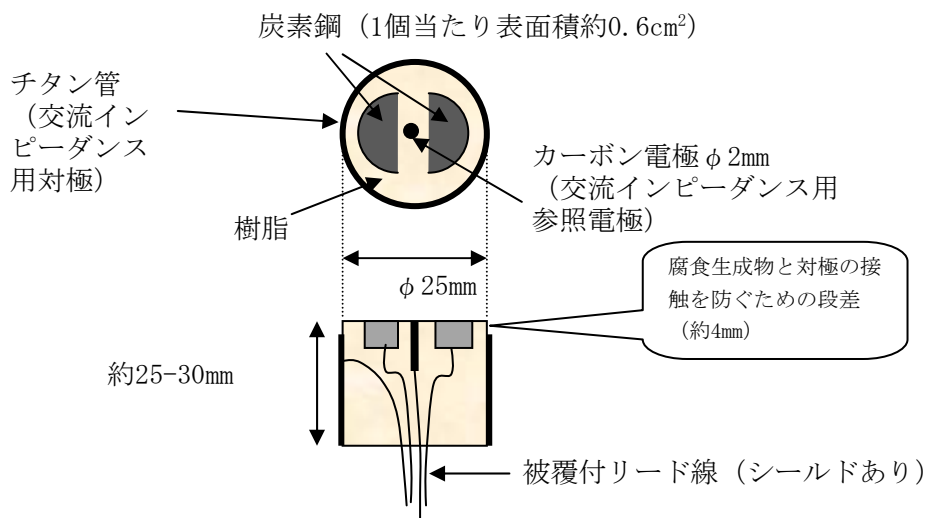


図2.2.2-1 腐食モニタリングセンサーの模式図

②腐食センサーで得られた腐食速度の妥当性の検証

平成26年度に上記の腐食センサーを用いて実施した室内試験装置の模式図（谷口ほか，2015b）を図2.2.2-2に示す。この試験ではφ164x50mmの円柱状の緩衝材中にセンサーを埋め込み、緩衝材の上部から試験溶液を注水している。また、緩衝材の下部には炭素鋼板を設置し、ヒータにより90℃に加熱している。試験溶液には、幌延のボーリング孔から採取した実地下水を用いている。平成26年度に交流インピーダンス法により得られた分極抵抗を図2.2.2-3に示す。このようにして

求められた分極抵抗から、腐食速度への換算係数を20mV（西方ほか，1994）と仮定して、腐食速度および累積腐食量を導出した。結果を図2.2.2-4に示す。

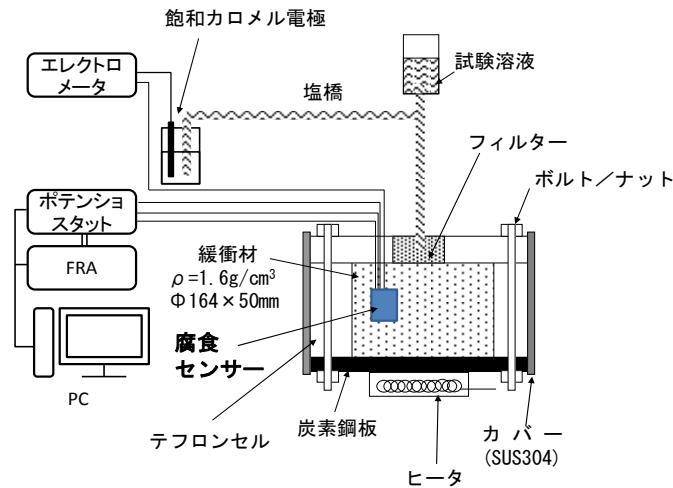


図2.2.2-2 不飽和緩衝材中における腐食センサーの適用性確認試験の模式図
（谷口ほか，2015b）

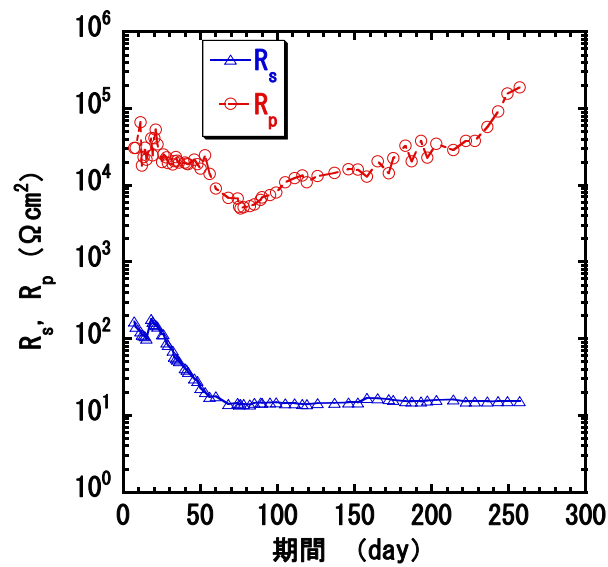


図2.2.2-3 液抵抗 (R_s) および分極抵抗 (R_p) 測定結果
（日本原子力研究開発機構，2015b）

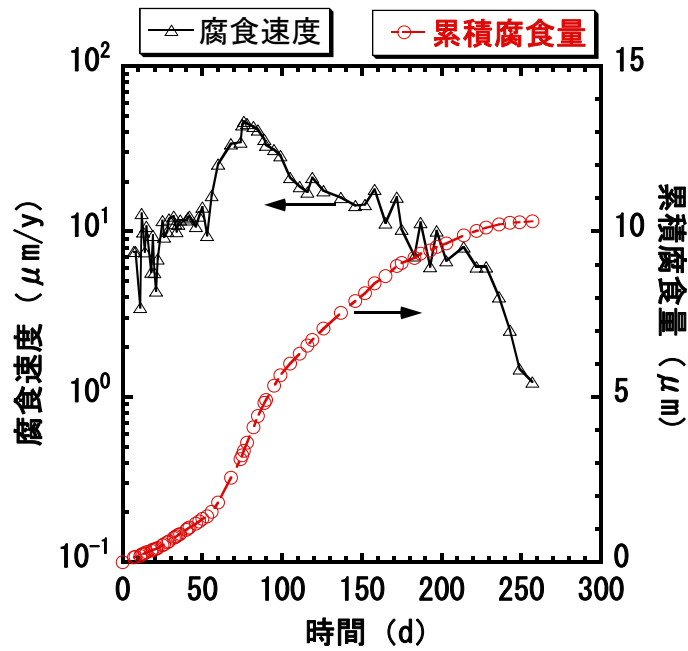
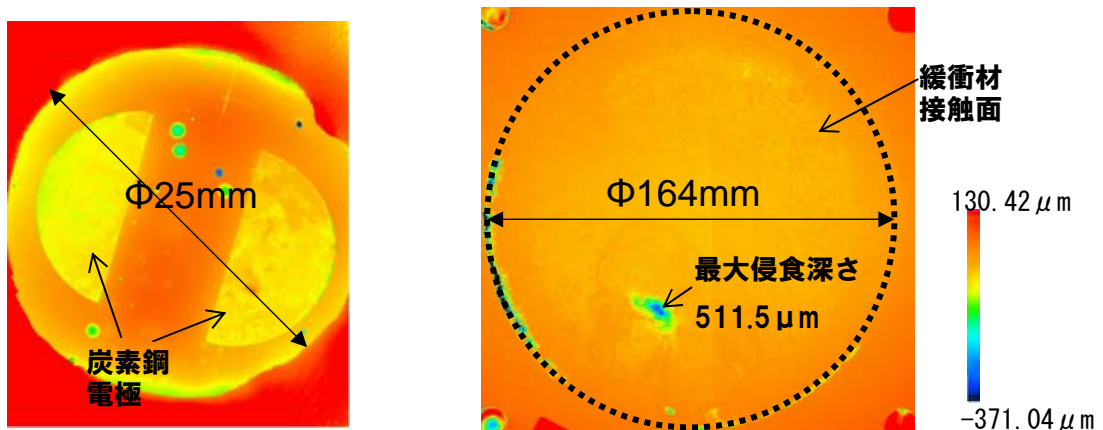


図2.2.2-4 分極抵抗から算出した平均腐食速度および累積腐食量

試験期間（約260日）での累積腐食量は約 $10\mu\text{m}$ となった。次に、レーザープローブにより、センサーの炭素鋼電極部および試験セル底部の炭素鋼板の表面の形状測定を行い、腐食量を求めた。その結果を図2.2.2-5に示す。平均腐食量は $7.6\sim 13.6\mu\text{m}$ であり、図2.2.2-4に示した累積腐食量（約 $10\mu\text{m}$ ）はこの実測された腐食量の間付近の値であった。よって、分極抵抗から算出した平均腐食速度は概ね妥当と考えられる。



a. 腐食センサー電極面の形状測定結果 平均腐食量： $11.0\mu\text{m}$ (左) , $13.6\mu\text{m}$ (右)
 b. 炭素鋼底板の形状測定結果 平均腐食量： $7.6\mu\text{m}$

図2.2.2-5 腐食センサー電極面および炭素鋼底板の表面形状測定結果と平均腐食量

なお、図2.2.2-5 bに示すように炭素鋼底板に局所的に侵食の大きい部分が観察された。これは緩衝材中の水分分布など再冠水過程における環境条件の不均質性に起因するものと考えられる。

水分量が比較的大きい部分では溶存酸素の移行が制限される一方、その周囲の水分量の比較的小さい部分では溶存酸素の移行がより容易と考えられる。このような酸素供給速度の違いにより酸素濃淡電池などの腐食電池が形成され、アノード反応とカソード反応の空間的な分離（水分量が大きい部分でアノード反応、小さい部分でカソード反応）が生じていた可能性が考えられる。局所的に腐食した部分の最大腐食深さは $511.5\mu\text{m}$ であり、平均腐食深さとの比（孔食係数）は67.3となる。これは同程度の平均腐食深さで比較した場合、室内試験や天然水環境で観察される値（Taniguchi et al., 2011）の範囲内であり、孔食係数の観点からは著しい腐食局在化とは言えないものと考えられる。

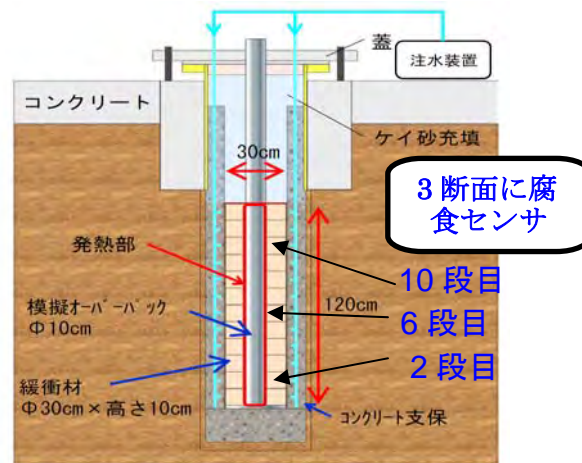
③ 幌延URLでの炭素鋼の腐食モニタリング

a. 試験方法

平成25年度に開発された腐食センサーは、幌延URLにおける人工バリア性能確認試験とオーバーパック腐食試験に適用されている。このうち、オーバーパック腐食試験で設置された腐食センサーを用いて交流インピーダンス測定を行った。幌延URLにおけるオーバーパック腐食試験装置の設置状況を、図2.2.2-6aに示す。直径100mm、高さ1,200mmの模擬オーバーパック周囲に外径300mmのドーナツ状の緩衝材が設置されており、試験の行われる350m試験坑道から採取された地下水を、緩衝材外側から低アルカリ性コンクリート製支保工を通して注水する構造となっている。緩衝材にはあらかじめセンサーの形状寸法を考慮した切り欠き加工がなされており、この部分に腐食センサーが埋め込まれている。腐食センサーは図2.2.2-6bに示すように、緩衝材の上段、中段、下段にそれぞれ4個（真北の方角に対して $45, 135, 225, 315^\circ$ ）、計12個設置されている。センサー中の電極の構成は②で示したものと同様である。ただし、炭素鋼電極については、オーバーパック腐食試験で用いられている模擬オーバーパックの製作過程で出る、余長部から切り出した試料を所定の形状・寸法に加工して用いた。材質はJIS G 3202 SFVC1（C:0.25, Si: 0.23, Mn: 0.95, P: 0.014, S: 0.004mass%）である。交流インピーダンス測定は、中段のセンサー4個に対してグラッシーカーボン参照電極とし、チタン管を対極として3電極法により行った。自然電位から振幅10mV、周波数範囲100kHz～1mHzにて測定した。なお、平成27年度に報告したとおり（日本原子力研究開発機構, 2016a）、腐食生成物による擬似容量によって低周波数においても位相差が生じるため（西村ほか, 2000）、フィッティングによって分極抵抗 R_p を求める（位相のずれがほぼゼロになる周波数でのインピーダンスとして推定）ことが困難となったことから、平成28年度では（400日以降）、100kHz～0.1mHzとより低い周波数領域まで測定を行った。



a. 緩衝材中への腐食センサー設置状況と試験孔への試験体の設置状況



b. オーバーパック腐食試験の概念図

図2.2.2-6 幌延URLにおけるオーバーパック腐食試験の設置状況

b. 試験結果

交流インピーダンス測定結果の代表例を、図2.2.2-7に示す。平成27年度までの測定では、インピーダンス特性は容量成分と抵抗成分からなっており、炭素鋼電極界面について分極抵抗(R_p)と定相要素CPEの並列回路に液抵抗 R_s が直列に結合した等価回路を仮定すると、全インピーダンス Z は以下の式で表される。

$$Z = R_s + \frac{R_p}{1+(j\omega R_p T)^p} \quad (2.2.2-1)$$

R_s : 液抵抗

R_p : 分極抵抗

T: CPE定数 (定相要素)

ω : 角周波数

$$j^2 = -1$$

ここで、 p ($0 < p \leq 1$) は、CPE指数と呼ばれており、 $p=1$ の場合に、定相要素は理想的なコンデンサーと等価となる。 p は時定数分布の状態を表すパラメータに相当し、 p が小さいほど分布の広がりが大きくなる(西方, 1993; 興戸・沖, 1993)。この式に基づいて実測データに対してフィッティングを行い、各パラメータを推定した。

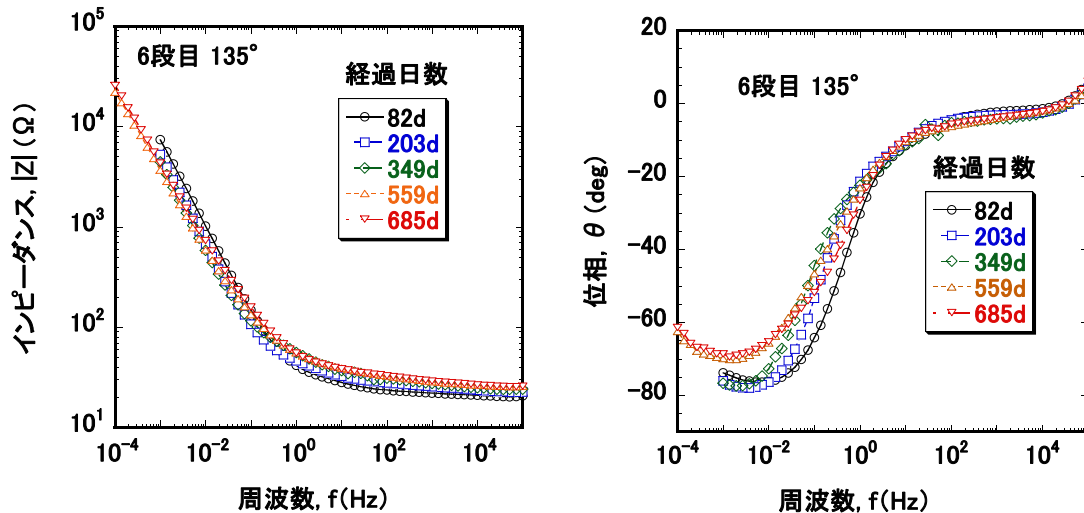


図2.2.2-7 交流インピーダンス測定結果の代表例 (Bode線図)

フィッティングにより得られた R_s と R_p の経時変化を、図2.2.2-8に示す。 R_s は $10 \sim 20 \Omega \text{ cm}^2$ の値を示しており、センサーの場所による違いや経時的な変化は小さい。 R_p は、いずれのセンサーでも、約250~300日までは概ね時間とともに上昇する傾向を示したが、それ以降は一定となった。試験開始後80日後では、 R_p の値は約 $4 \sim 40 \text{ k} \Omega \text{ cm}^2$ となり、250日後では約 $50 \sim 100 \text{ k} \Omega \text{ cm}^2$ に達した。

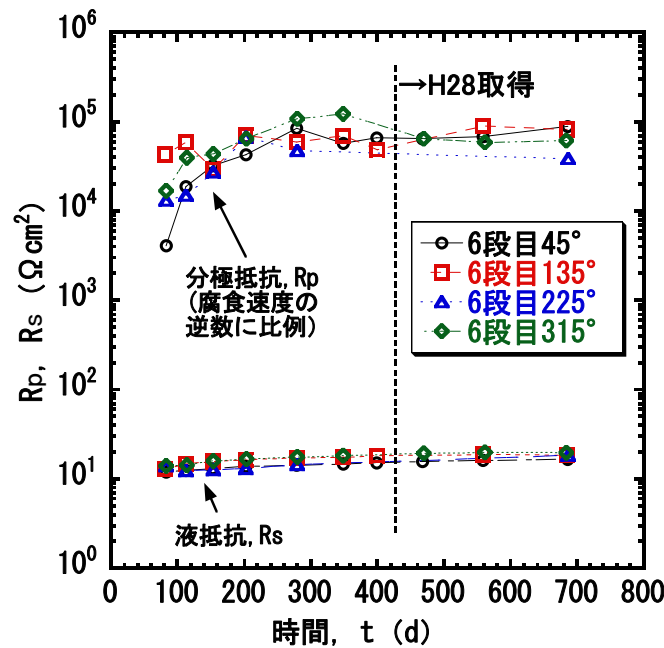


図2.2.2-8 6段目の腐食センサーの測定結果から求められた液抵抗と分極抵抗の経時変化

ここで、分極抵抗から腐食速度への換算係数を20mVと仮定すると（西方ほか，1994）、80日後の値である約4～40k Ω cm²は約6～60 μ m/yに相当し、約250日後のR_pの値である約50～100k Ω cm²は約2～5 μ m/yに相当する。この腐食速度の大きさや経時的な低下の傾向は、既往の室内試験結果（日本原子力研究開発機構，2015b）と同様であり、後者については、センサー近傍の酸素濃度の低下や腐食生成物の皮膜形成によって腐食が抑制されているとして説明できる可能性がある。上記の検討結果から、本センサーによって概ね妥当な腐食モニタリングがなされているものと考えられる。

次に、T と p の経時変化を図2.2.2-9および図2.2.2-10にそれぞれ示す。Tは前述のとおりpが1のときに理想的なコンデンサー容量と等価となり、pは表面の不均一状態に起因する時定数分布の状態を表すパラメータとされている（西方，1993）。図2.2.2-9より、Tは約300日までは経時的に増加する傾向を示し、その値は一般的な電気2重層容量（数10 μ F/cm²）（Nishikata et al., 1995）よりもはるかに大きいことから、腐食生成物層による擬似容量を反映している可能性がある。約300日以降は一定または低下する傾向を示した。pは図2.2.2-10よりほぼ一定となっており、表面の不均一状態の時間的な変化は小さいと解釈できるが、一部のセンサーでは（6段目135°）やや低下傾向を示しており、不均一化が大きくなる傾向を持つ可能性も示唆される。

以上の結果より、緩衝材中の炭素鋼表面は数ヶ月程度で水が浸潤して腐食環境や表面状態が一定になるとともに、約300日程度まで腐食生成物層の成長とともに腐食進展が抑制される傾向になっていると推察される。約300日以降は腐食速度に大きな変化はないものの、腐食生成物の性状や界面の不均一性に変化の兆候も示唆されている。

今後も、長期的なモニタリングを継続し、腐食挙動の経時変化を確認する。

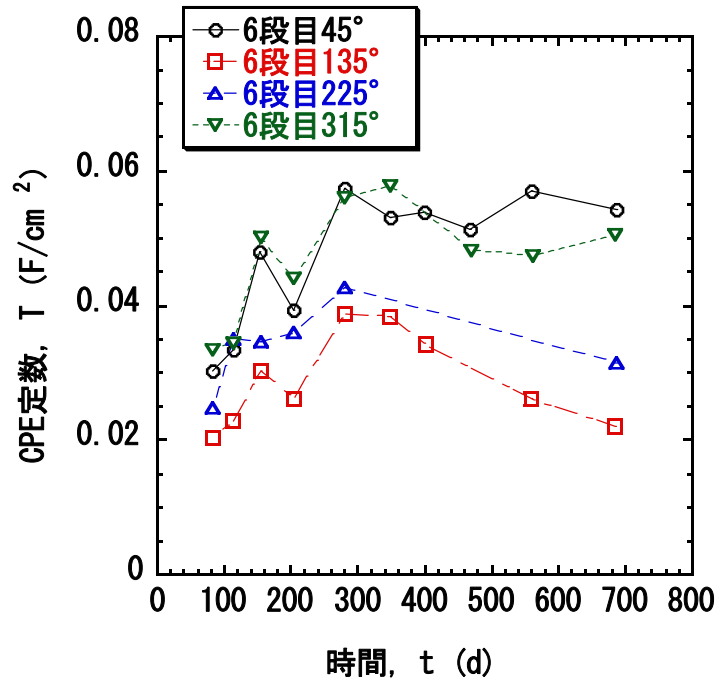


図2.2.2-9 6段目の腐食センサーの測定結果から求められたCPE定数の経時変化

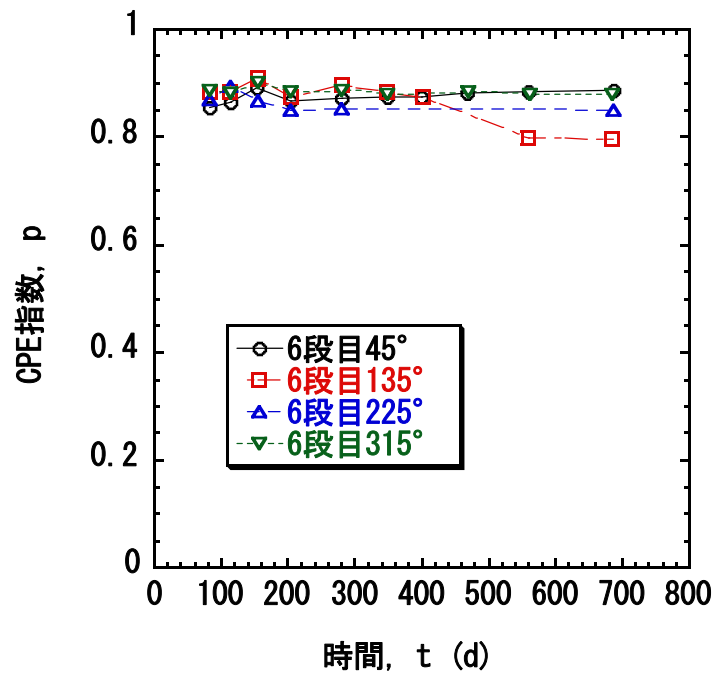


図2.2.2-10 6段目の腐食センサーの測定結果から求められたCPE指数の経時変化

2) 従来の想定範囲を超える地下水水質での腐食挙動の検討

想定された環境条件の範囲を超えた条件での腐食挙動については、関連事業「先進的地層処分概念・性能評価技術高度化開発」（日本原子力研究開発機構，2013b）において、地震活動による地下水水質の変動を想定して、サイト選定で除外されると考えられる高温水、酸性水なども含めて、幅広くわが国の地下水の条件の整理が行われた。それに基づき、検討すべき条件として、以下が挙げられた。

- ・高塩化物環境（海水レベル以上の濃度）
- ・高硫酸塩環境（硫酸酸性を含む）
- ・高温水
- ・酸性水（ $\text{pH}<5$ ）
- ・炭酸ガス、硫化水素ガス環境（酸性を含む）

上記のうち、平成27年度までに高塩化物環境、高硫酸塩環境、高温水環境および酸性水環境において低酸素濃度条件での腐食データが取得された（日本原子力研究開発機構，2016a）。

平成28年度は、炭酸ガス環境中での腐食試験を行い、炭酸ガス濃度による腐食への影響を調査した。

①試験方法の概要

図2.2.2-11に示すように、チタン製のカラム内に炭素鋼試験片と緩衝材（ケイ砂混合ベントナイト）を入れ、緩衝材が所定の密度になるように圧縮成形した。テフロン容器に各濃度に調整した溶液とチタンカラムを浸漬し、80℃における浸漬試験を実施した。

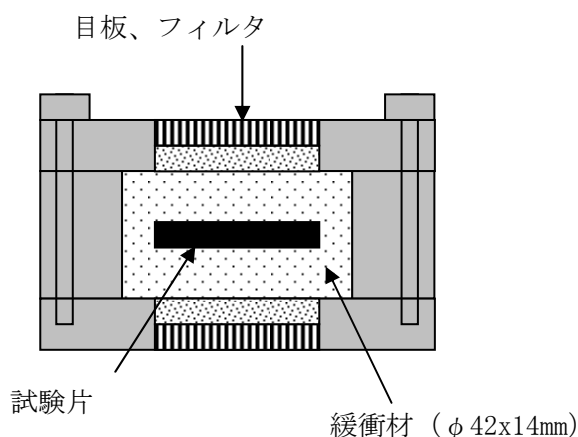


図2.2.2-11 試験カラムの模式図

②試験片

試験片は、既往の条件に準じ、以下のとおりとした。

- ・ 炭素鋼材質：JIS G 3106 SM400B (C:0.13, Si:0.20, Mn:1.04, P:0.017, S:0.006mass%)
- ・ 試験片形状：30×30×t2mm
- ・ 表面仕上げ：#800研磨

③試験条件

試験溶液には、0.56M NaCl溶液に炭酸ガス濃度5～100%のガスを吹き込んだ。試験条件を表2.2.2-1に示す。

④緩衝材

第2次取りまとめにおける緩衝材仕様（核燃料サイクル開発機構，1999a）に準じ、以下の仕様とした。

- ・ 組成：70wt%ベントナイト（クニゲルV1®）+30wt%ケイ砂
- ・ 乾燥密度：1.6M g m⁻³

表2.2.2-1 浸漬試験条件

試験溶液	pH(試験前室温での値)	温度(°C)	浸漬期間
0.56M NaCl + 5%CO ₂ + 95%N ₂	4.4	80	30日
0.56M NaCl + 5%CO ₂ + 95%N ₂	4.4	80	90日
0.56M NaCl + 50%CO ₂ + 50%N ₂	3.9	80	30日
0.56M NaCl + 50%CO ₂ + 50%N ₂	3.9	80	90日
0.56M NaCl + CO ₂	3.7	80	30日
0.56M NaCl + CO ₂	3.7	80	90日

⑤試験手順

試験片を、緩衝材とともに図2.2.2-11に示すチタン製のコラムに充填し、コラムごと試験溶液中に定置したのち、試験溶液に所定の炭酸ガス濃度のガスを吹き込んだ。ガスの吹き込みは試験期間を通じて行った。試験期間は、30日間及び90日間とした。腐食量評価の試験では、浸漬試験後の試験片（3枚）を脱錆処理した後に重量測定し、重量減少量から平均腐食量及び平均腐食速度を算出した。さらに、試験後の試験片1枚について、X線回折（XRD）及び顕微ラマン分光により腐食生成物を分析した。いずれの分析も、雰囲気制御セルを用いて窒素ガス雰囲気を維持した状態で行った。

⑥浸漬試験結果と考察

a. 試験片の外観と腐食生成物

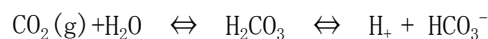
腐食試験後の試験片の外観の観察結果の代表例として、90日後の外観写真を図2.2.2-12に示す。試験片表面には、灰色がかかった皮膜が形成していた。外観で一部茶色状に見えるものは緩衝材であり、これに付着した腐食生成物の一部が、取り出し時点から撮影時点までの大気中に暴露されている期間で酸化したため茶色状に呈色したものと考えられる。また、脱スケール後の外観から、表面はほぼ均一な全面腐食であり、孔食状の腐食や腐食の局在化は認められなかった。

X線回折による腐食生成物の分析結果を図2.2.2-13に示す。いずれの条件でも腐食生成物としてシデライト (FeCO_3) が同定された。また、炭酸ガス濃度が高い条件ほど明瞭なピークが観察された。

b. 腐食量測定結果

腐食試験前後の試験片の重量減量から算出した平均腐食量と平均腐食速度を、表2.2.2-2に示す。平均腐食速度は、平均腐食量を試験期間で除した値である。炭酸ガス濃度と平均腐食速度の関係を、図2.2.2-14に示す。図中には、NaCl (0.56M) 水溶液での値 (日本原子力研究開発機構, 2014a) も示した。腐食速度は炭酸ガス濃度が大きいほど大きくなる傾向があった。また、90日間の腐食速度は30日間の値よりも低下しており、炭酸ガス濃度依存性も30日に比較して小さくなった。次に、平成27年度までに実施された硫酸酸性および塩酸酸性環境での腐食速度およびNaCl水溶液、人工海水中での腐食速度 (日本原子力研究開発機構, 2016a) との比較を図2.2.2-15に示す。同一のpH条件での比較はできないが、pH3付近での硫酸酸性や塩酸酸性における腐食速度と比較して炭酸ガス環境のほうが明らかに大きな値となることがわかった。

炭酸ガス環境での鋼材の腐食は石油開発等の分野で「スイート腐食」として知られており、以下に示すように溶存した炭酸ガスがプロトンを供給することによって腐食が促進されるといわれている (石油公団石油開発技術センター, 1997)。



また、同じpH条件でも塩酸環境に比較して炭酸ガス環境のほうが腐食速度は大きく、炭酸ガス環境では必ずしも単にpHが低下するために腐食速度が大きくなるわけではないことが指摘されている (石油公団石油開発技術センター, 1997)。本試験は緩衝材共存下で実施されており、実際に炭素鋼に接触する間隙水のpHは試験溶液中よりも高いと考えられ、実際に緩衝材を試験溶液で飽和させた後に既往の方法 (谷口ほか, 1999) にしたがって実測すると6.7~7.5の中性付近の値を示した。また、炭酸ガス濃度による明瞭な違いは認められなかった。したがって、pH以外の要因が腐食速度の違いに関与している可能性がある。炭酸ガス環境や炭酸塩環境でのFeのアノード溶解は溶存 CO_2 や HCO_3^- の濃度の影響を受ける可能性が指摘されており (Nesic, 2007)、アノード溶解機構としてFe- CO_2 、 FeCO_2OH などの中間反応体の生成 (Noda et al., 1995) や錯体 $\text{Fe}(\text{CO}_3)_2^{2-}$ の生成 (Nesic, 2007) が提案されている。カソード反応についても、プロトンあるいは水の還元反応に加えて H_2CO_3 または HCO_3^- の還元反応の可能性も指摘されている (小池ほか, 2006)。このようなアノード/カソード反応に対する溶存 CO_2 や炭酸塩の寄与が今回観察された初期の腐食速度の違いに影響を及ぼした可能性が考えられる。また、炭酸ガス環境での腐食は表面に生成する FeCO_3 に代表される炭酸鉄皮膜の沈殿・溶解挙動が影響を与え、 FeCO_3 の沈殿しやすい条件では緻密な皮膜形成によって腐食が抑制されるといわれている (植田, 2007)。本試験ではX線回折による腐食生成物の分析結果から、いずれの条件でも FeCO_3 の生成が認められており、炭酸ガス濃度の高い条件ほど明瞭なピークが観察された。したがって、高炭酸ガス条件であるほど FeCO_3 皮膜の生成が促進されていることが示唆されている。このような皮膜によって90日の試験では30日に比較して腐食速度が低下し、炭酸ガス濃度による腐食速度への影響も緩和された可能性がある。今後、より長期のデータの取得によって炭酸鉄皮膜による腐食抑制効果や長期的な腐食速度への影響の確認が必要と考えられる。

一般に、炭酸ガス環境での腐食速度は炭酸ガス分圧、温度等に依存するが、炭酸ガス分圧0.1MPa、常温での炭素鋼の腐食速度は1～数mm/yに達する場合があります、100℃付近での腐食が最も激しく、局在化を伴って激しい腐食を生じる場合もある（石油公団石油開発技術センター，1997）。したがって、このような高濃度の炭酸ガスを含む弱酸性の地下水が、緩衝材を介さず直接的にオーバーパックに接触した場合には炭素鋼は実用上の耐食性をほとんど有しないと考えられる。しかしながら、今回の試験では炭酸ガス濃度によって異なる腐食速度が観察されたものの、その値は炭酸ガス環境で一般的に観察される腐食速度よりも1桁以上小さな値であった。また、図2.2.2-15に示したとおり人工海水（pH8.8）の浸潤した緩衝材中で観察される腐食速度（30～90日後の値）と比較しても同程度の値であった。したがって、オーバーパックが緩衝材で覆われた状態が維持される場合には高濃度の炭酸ガスを含む地下水が人工バリア周辺に到達した場合であってもその影響は大幅に緩和され、顕著な腐食促進は生じないと考えられる。ただし、本試験は最大0.1MPaの炭酸ガス分圧での結果であり、より高い分圧での腐食挙動や腐食速度についても検討が必要である。













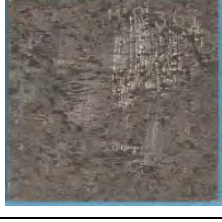





試験溶液	期日 (日)	試験片の外観(上段：取り出し後，下段：脱スケール後)		
0.56M NaCl + 5%CO ₂ + 95%N ₂	90			
				
0.56M NaCl + 50%CO ₂ + 50%N ₂	90			
				
0.56M NaCl + CO ₂	90			
				

図2.2.2-12 腐食試験後の試験片の外観
(試験片表面寸法：30x30mm)

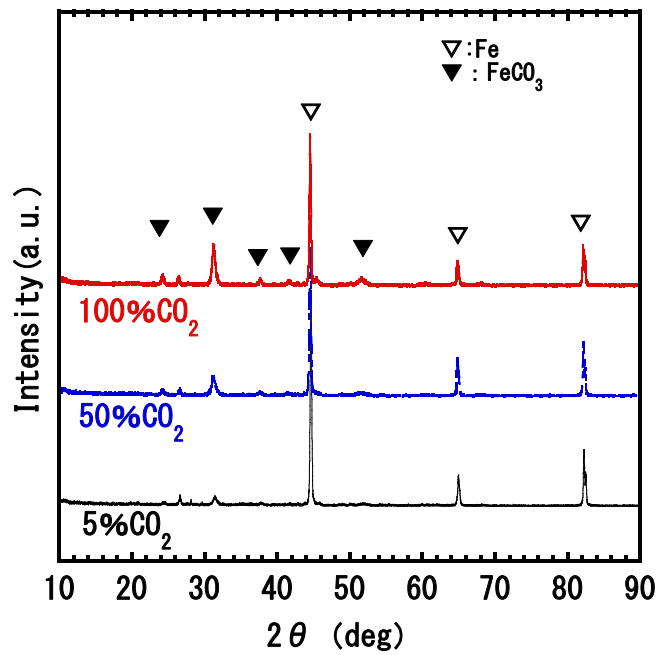


図 2. 2. 2-13 試験後の試験片表面の X 線回折結果

表 2. 2. 2-2 腐食試験前後の試験片の重量減量から算出した腐食量及び腐食速度

試験溶液	試験期間 (days)	腐食量 (mm)	腐食速度 (mm y ⁻¹)
0.56M NaCl + 5%CO ₂ + 95%N ₂	30	3.82. E-03	4.64. E-02
	30	3.62. E-03	4.41. E-02
	30	3.76. E-03	4.57. E-02
	90	6.66. E-03	2.70. E-02
	90	6.45. E-03	2.62. E-02
	90	6.66. E-03	2.70. E-02
0.56M NaCl + 50%CO ₂ + 50%N ₂	30	4.84. E-03	5.89. E-02
	30	4.62. E-03	5.63. E-02
	30	4.61. E-03	5.61. E-02
	90	7.64. E-03	3.10. E-02
	90	7.58. E-03	3.07. E-02
	90	7.59. E-03	3.08. E-02
0.56M NaCl + CO ₂	30	5.21. E-03	6.34. E-02
	30	5.38. E-03	6.54. E-02
	30	5.13. E-03	6.24. E-02
	90	8.28. E-03	3.36. E-02
	90	8.46. E-03	3.43. E-02
	90	8.12. E-03	3.29. E-02

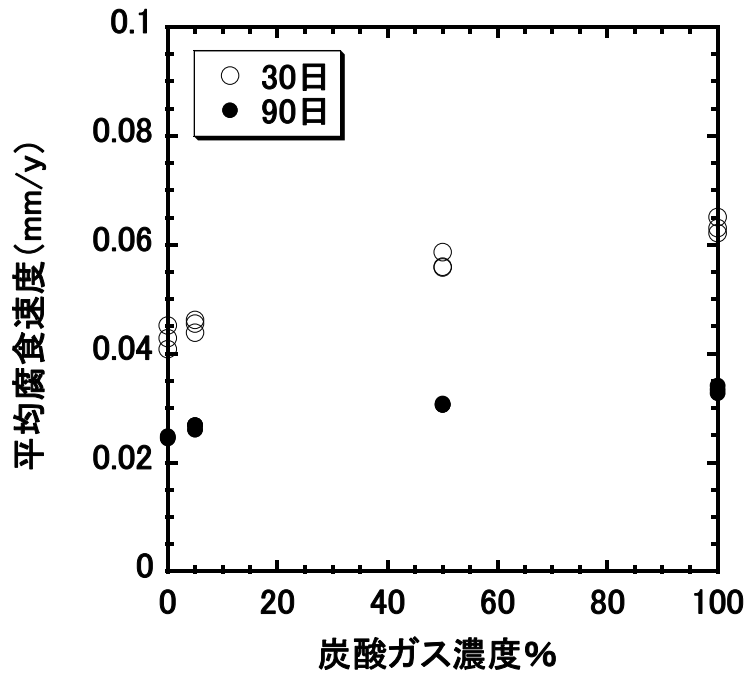


図 2.2.2-14 緩衝材中における炭素鋼の腐食速度に及ぼす炭酸ガス濃度の影響
(炭酸ガス濃度 0% の値については、既往の文献 (日本原子力研究開発機構, 2014a) から引用)

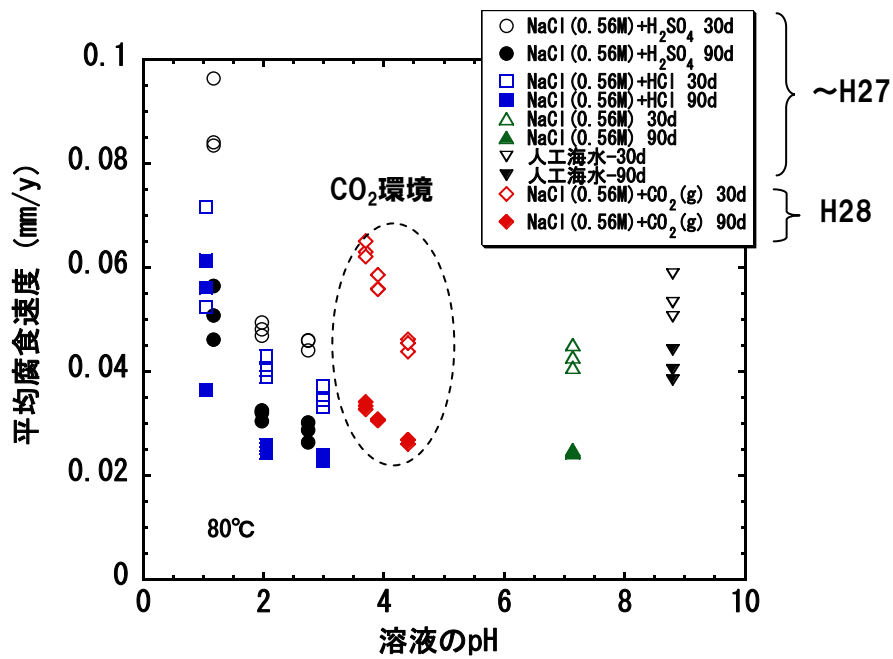


図 2.2.2-15 緩衝材中における炭素鋼の腐食速度に及ぼす pH の影響

(2) 緩衝材の挙動に関する調査

本項では、過渡的状态における人工バリアの挙動評価に必要となるデータとして、緩衝材の膨潤性・透水性等に関する特性についてデータの拡充を行うとともに、緩衝材の特性変化に関する検討および緩衝材中の僅かな量の間隙水のpHを計測するためのセンサーの開発や適用性の確認を進めた。なお、データの拡充は、過酷事象の検討を念頭に、従来の想定範囲を超える地下水水質による緩衝材の諸特性について、データ整備を進めている。

1) 従来の想定範囲を超える地下水水質での緩衝材の挙動の検討

想定された環境条件の範囲を超えた条件での緩衝材の挙動については、関連事業「先進的地層処分概念・性能評価技術高度化開発」（日本原子力研究開発機構，2013b）において、地震活動による地下水水質の変動を想定して、サイト選定で除外されると考えられる環境条件を含めて幅広くわが国の地下水条件の整理が行われた。それに基づき、緩衝材に対して検討すべき条件として、以下の項目が挙げられた。

- ・ 高塩化物イオン水の影響（海水レベル以上の濃度）
- ・ 酸性水の影響（ $\text{pH}<5$ ）
- ・ 高温水の影響（ 100°C 以上）

上記のうち、平成26年度において、本調査に供する材料の物理・化学特性の取得、高塩化物イオン水の影響に対し、イオン強度 $4.0\text{mol}/\text{dm}^3$ に調整した塩化ナトリウム水溶液を用いた膨潤圧試験および透水試験の実施、また超長期にわたる広域的で緩慢な事象が地層処分システムに及ぼす影響として、隆起・侵食に伴い地表近傍に到達した緩衝材が風化により酸性白土化することを想定し、ベントナイト系材料にH型化クニゲル[®]V1（クミネ工業株式会社）を使用した緩衝材の膨潤圧試験および透水試験を実施した。

平成28年度は、飽和濃度の塩化ナトリウム水溶液（イオン強度 $6.0\text{mol}/\text{dm}^3$ ）を用いた膨潤圧試験および透水試験を実施し、高塩化物イオン水の影響に関するデータの拡充を行った。酸性水の影響に関しては、酸性水を試験溶液とする膨潤圧試験および透水試験の手法および試験装置を構築した。

① 高塩化物イオン濃度の影響を考慮した膨潤圧/透水試験

a. 試験方法の概要

本調査においては、図2.2.2-16に示す試験フローに従い、膨潤圧試験を実施した後、同じ供試体を用いて透水試験を実施した。図2.2.2-17に同一供試体による膨潤圧試験および透水試験を可能とする試験装置の概略を示す。

はじめに、試験溶液の供給・計量方法について示す。コンプレッサー（圧縮空気圧： $0.1\sim 0.7\text{MPa}$ ）で加圧タンク（材質：SUS304）内にエアを送り込むことにより、加圧タンク内に設置したフッ素樹脂バックを任意の圧力で加圧する。送り込むエアの圧力はレギュレーターで調整される。フッ素樹脂バックの内部には、試験溶液が満たされている。バックと試験容器はテフロンチューブで繋がれており、バックを加圧することにより試験容器内の供試体に試験溶液が給水される。供試体を通過した試験溶液は、テフロンチューブを介して測量容器に溜められる。容器内の蓄積量は電子天秤により計量される。

次に、試験溶液の浸潤により供試体に発生する膨潤圧と、供試体が飽和した後の透水係数の測定方法を示す。膨潤圧の測定については、ピストンを介して容器に設置されたロードセルで圧力を検知することにより行われる。供試体を通過した試験溶液が測量容器に到達したこと、および膨潤圧が安定したことで供試体が飽和したと判断されたのちに膨潤圧試験から透水試験に移行する。透水試験においては、単位時間あたりに試験容器を通過した溶液の量が電子天秤（測定精度： ± 0.001 [g]）により測定され、測定された通水量と圧力勾配から透水係数が求められる。

なお、試験容器の材質は、剛性や耐腐食性を考慮し、チタン製（材料：純チタンJIS規格2種）とする。また、供試体に試験溶液を給水させるための多孔板には、孔径 $5\mu\text{m}$ のプラスチックフィルタとチタンフィルタを組み合わせたものを使用する。

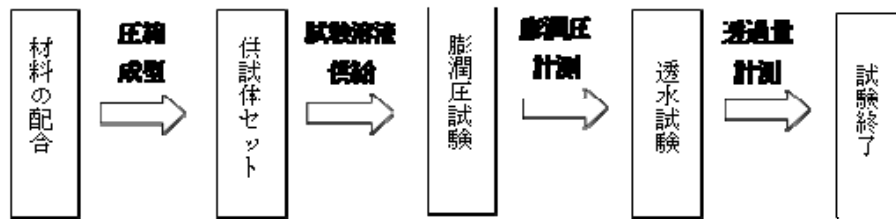
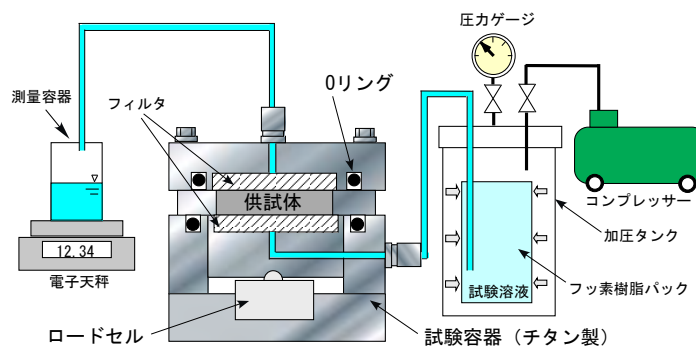


図 2. 2. 2-16 膨潤圧試験／透水試験フロー



試験装置概略図



試験装置外観

図2. 2. 2-17 高塩化物イオン濃度対応型 膨潤圧／透水試験装置

b. 試験条件

高塩化物イオン濃度の影響を考慮した緩衝材の膨潤圧／透水試験の条件を表2.2.2-3に示す。ベントナイト系材料には、Na型クニゲル[®]V1（クニミネ工業株式会社）を用いた。供試体寸法は、直径50mm、高さ10mmとし、所定の密度になるようにプレス機を用いて一次的に圧縮成型した。試験は、25℃に設定した恒温槽内で実施した。試験溶液には、イオン強度6.0mol/dm³に調整した塩化ナトリウム水溶液を用いた。

c. 試験結果

試験結果を表2.2.2-4に示す。平衡膨潤圧は0.32～0.35MPaとなった。また、透水係数は、約3.0×10⁻¹⁰m/sとなった。試験後に実施した乾燥密度（有効粘土密度）、含水比、飽和度の測定結果は、供試体中にNaClが残留しているため参考値とした。

上記の結果と、平成26年度に実施した膨潤圧試験と透水試験の結果および緩衝材基本特性データベース（BMDB；<https://bufferdb.jaea.go.jp/bmdb/>）（日本原子力研究開発機構，2016b）に登録されている塩化物イオン濃度の影響を考慮した膨潤圧および透水係数のデータとの比較を行った。緩衝材基本特性データベースに登録されているデータから、イオン強度と平衡膨潤圧の関係、イオン強度と透水係数の関係はともに、イオン強度2.0mol/dm³以上は、イオン強度が高くなってもあまり変化しない傾向を示していることがわかっている。

図2.2.2-18にイオン強度と平衡膨潤圧の関係を示す。なお、今回の試験条件と同一条件での成果が緩衝材基本特性データベースには登録されていないため、本試験条件と近い有効粘土密度1.37Mg/m³との比較を実施した。今回得られた結果は、緩衝材基本特性データベースにより得られたデータと整合するデータであることがわかった。次に、図2.2.2-19にイオン強度と透水係数の関係を示す。平成26年度に実施したイオン強度4.0mol/dm³における透水係数の値についても、上記に示した2.0mol/dm³以上における値に近い値であることが示されたが、今回実施したイオン強度6.0mol/dm³の結果も同様の値であり、これまでの知見と整合的であった。

表2.2.2-3 試験条件

供試体の材料	ベントナイト（Na型クニゲル [®] V1（Na-KV1））
乾燥密度[Mg/m ³]	1.40
ケイ砂混合率[wt%]	0
有効粘土密度[Mg/m ³]	1.40
初期含水比[%]	8.0
供試体寸法[mm]	直径50×高さ10
試験温度[°C]※	25±1°C程度
試験溶液	NaCl
イオン強度[mol/dm ³]	6.0
供試体数	各3試料

※恒温槽にて管理

表2.2.2-4 試験結果

試験NO.	乾燥密度 [Mg/m ³]	試験後 含水比 [%]	飽和度 [%]	有効粘土密度 [Mg/m ³]	平衡膨潤圧 [MPa]	透水係数 [m/s]
NO.1	1.486	33.9	110.3	1.486	0.35	3.27 × 10 ⁻¹⁰
NO.2	1.495	35.0	115.6	1.495	0.34	3.47 × 10 ⁻¹⁰
NO.3	1.490	34.7	113.6	1.490	0.32	3.30 × 10 ⁻¹⁰

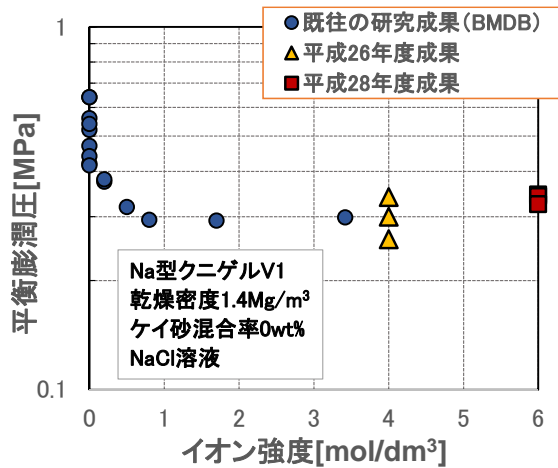


図2.2.2-18 イオン強度と平衡膨潤圧の関係

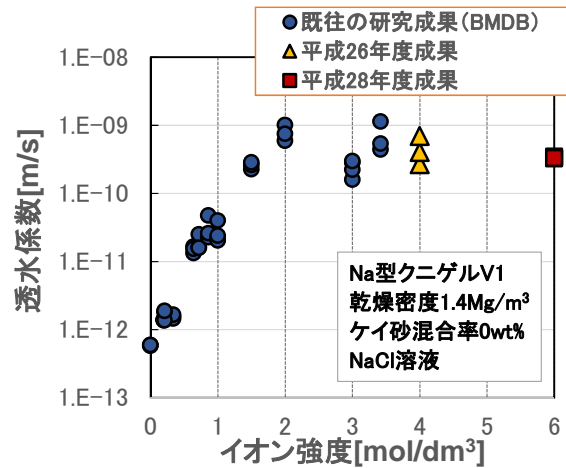


図2.2.2-19 イオン強度と透水係数の関係

②酸性水の影響を考慮した緩衝材の膨潤圧/透水試験方法および試験装置の構築

a. 試験方法および試験装置の概要

酸性水を試験溶液とした、同一供試体による膨潤圧試験および透水試験を実施するための試験方法を図2.2.2-20の試験フローに示す。試験はフローに示すように、蒸留水の試験溶液による膨潤圧試験および透水試験を実施後、試験溶液を酸性水に切り替えて膨潤圧試験および透水試験を実施する。試験装置は図2.2.2-21に示すように、コンプレッサー（圧縮空気圧：0.1～0.7MPa）、加圧給水タンク（SUS製）、ロードセル付き反力枠、試験容器、試験溶液測量容器から構成される。試験容器の材質は、剛性や腐食性を考慮し、塩化ビニルとした。また、滑らかに稼働するピストンを設け、緩衝材が膨潤する際の圧力を反力枠に固定したロードセルで検知する構造とした。なお、試験中の安全対策として、試験溶液を取り扱う部分については図2.2.2-21に示すようにアクリルボックスの中に設置し、酸性の試験溶液が飛散した場合の災害を防止した。

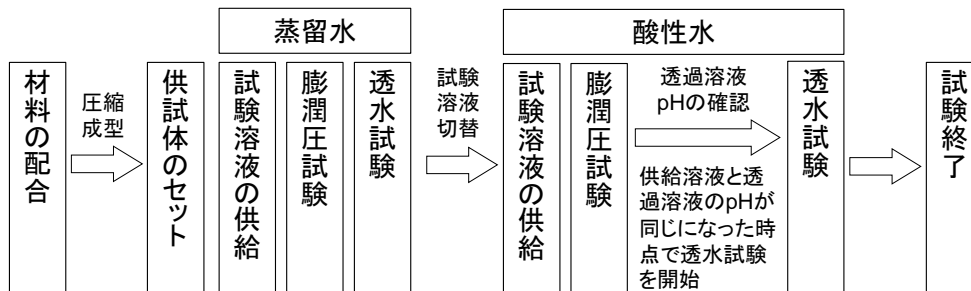


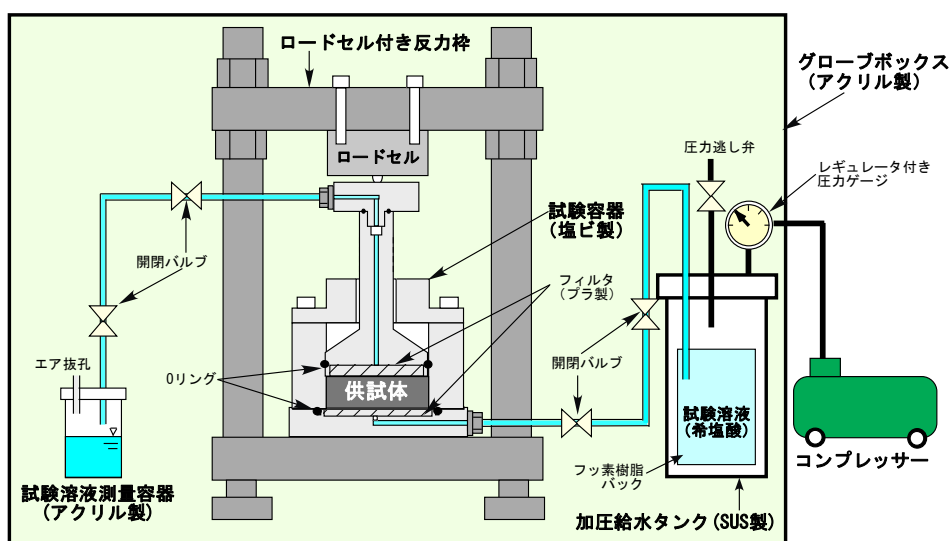
図2.2.2-20 酸性水・膨潤圧/透水試験フロー

b. 試験条件

酸性地下水の影響を考慮した緩衝材の膨潤圧および透水試験の試験条件を表2.2.2-5に示す。供試体は、Na型ベントナイト系材料であるクニゲル[®]V1に、ケイ砂（粒径3号：5号＝質量比1：1）を加えた混合材料を使用し、所定の密度および寸法（直径20mm、高さ10mm）になるように、プレス機を用い、一次圧縮により成型した。試験温度は室温（20℃程度）とした。試験溶液は図2.2.2-20に示すように、蒸留水と酸性水を切り替えて使用する。蒸留水と酸性水の切り替えは、蒸留水での透水試験終了後とする。切り替え後の透過溶液のpHと供給溶液のpHが同じになった時点を、供試体中の蒸留水が酸性水に入れ替わった時点とみなし、酸性水での透水試験を開始する。なお、透過溶液のpHはpHメーターを使用して確認を行う。

表2.2.2-5 試験条件

供試体の材料	ベントナイト（Na型クニゲル [®] V1（Na-KV1）） および3号ケイ砂・5号ケイ砂	
乾燥密度[Mg/m ³]	1.60	
ケイ砂混合率[wt%]	30	
供試体寸法[mm]	直径20×高さ10	
試験温度[℃]	室温（22±1℃）	
供試体数	各3試料	
試験溶液	蒸留水 （試験溶液切替前）	希塩酸（0.1mol/dm ³ ） （試験溶液切替後）
pH	5.6～6.0	1.0～3.0



試験装置概略図



試験装置外観

図2. 2. 2-21 酸性水対応型 膨潤圧／透水試験装置

③まとめ

想定された環境条件の範囲を超えた条件での緩衝材の挙動として、膨潤圧試験および透水試験を行い、データの拡充を図った。高塩化物イオン濃度の影響を考慮した膨潤圧試験の結果、平衡膨潤圧は、0.32～0.35MPa程度の値が示され、透水試験の結果、透水係数は、約 3.0×10^{-10} m/s程度の値が得られ、これまでの知見と整合的な結果が得られた。

2) セメンテーションによる緩衝材の特性変化に関する検討

①背景と目的

高レベル放射性廃棄物および一部のTRU廃棄物の処分施設において使用される緩衝材については、スメクタイトあるいは随伴鉱物の溶解に伴ってアモルファスシリカ等の二次鉱物が間隙に沈殿し、土粒子同士が固着すること（セメンテーション）によって、モンモリロナイトの鉱物学的変質が起らない場合でも、膨潤特性や応力緩衝性などの緩衝材に要求される性能が低下するこ

とが懸念される。第2次取りまとめでは、このような現象による緩衝材の安全機能の劣化については、緩衝材の最高温度が100℃以下に制限されるように処分場を設計することで回避し得るとされている。また、バリア材料としてセメント系材料を使用する場合の高アルカリ条件下におけるセメンテーションの影響については、160℃でアルカリ溶液に長期間浸漬したベントナイトを対象として、鉱物組成等の分析や膨潤量の測定が行われ、モンモリロナイトの残留割合が70%程度以上である場合には膨潤性は失われないという結果が得られている（市毛・本田，2005）。セメントによるベントナイトの変質を考慮した化学-物質輸送連成解析の結果において、緩衝材の変質はセメントとの境界部分に限定されており、緩衝材全域に渡ってモンモリロナイト残留割合が70%以下に低下して膨潤性が喪失する可能性は低く、透水性に与える影響も低いとされている（電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構，2005）。

このようなセメンテーションによる膨潤性等に対する影響評価については不確実性が伴うことが指摘されており（電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構，2005）、評価の信頼性を向上させる取り組みを継続していくことが重要である。他方、ベントナイト鉱山の原鉱石は、セメンテーションを含む続成作用により、粒子同士が固着した岩石の状態が存在しており、セメンテーションによる諸特性の変化を把握する上で、このような原鉱石の特性を評価することが重要となる可能性がある。そこで本検討では、クニゲル®V1（クニミネ工業株式会社）の原鉱石（山形県大江町月布のベントナイト鉱床から採取）を対象として、膨潤性を把握するための予想的な試験および粒子間の固着状態の有無を調べるための表面観察を実施した。

②対象とした原鉱石試料

月布のベントナイト鉱床は、新第三紀中新世後期（10Ma程度）の硬質頁岩中に互層状に夾在する火山ガラス質の凝灰岩が続成的に変質したものであるとされ、30数層のベントナイト層が確認されている（小林・伊藤，1992）。ここでは、モンモリロナイトの含有量が異なる種々の原鉱石を対象とするものとし、クニゲルV1の原料として使用される29番層と31番層から採取した原鉱石と、クニゲルV1よりモンモリロナイト含有率が小さいとされる1番層から採取した原鉱石を採取し、試料として使用した。なお、原鉱石そのものの他に、原鉱石を粉状に粉砕した試料（粉末試料と表記）と、粉末試料を原鉱石の乾燥密度になるまで締め固めて作成した試料（再構成試料）についても試験を行った。試験に用いた試料を表2.2.2-6に示す。

表2.2.2-6 試験に用いた試料

		pH※	含水比 (%)	土粒子密度 (Mg/m ³)	乾燥密度 (Mg/m ³)	MB吸着量 (mmol/100g)
1 番層	粉末試料	7.78	5.19	2.520	—	47
	原鉱石	(17.7℃)	7.80		1.828	
29 番層	粉末試料	9.48	6.02	2.538	—	61
	原鉱石	(17.7℃)	12.10		1.643	
31 番層	粉末試料	9.81	6.89	2.663	—	89
	原鉱石	(17.7℃)	11.00		1.895	

※粉末試料と蒸留水を混合した時点から24時間経過した後の値

②試験手法

試料の膨潤性については、既往の検討（市毛・本田，2005）と同様に、日本ベントナイト工業会標準試験手法（JBAS-104-77）の手法に基づき、蒸留水中に試料を定置した後の懸濁部の体積を測定することにより膨潤力の測定を行った。

試料の表面観察については、偏光顕微鏡を用いて実施するものとし、表2.2.2-6で示した試料のうち、29番層で採取した原鉱石および再構成試料を対象として表面観察を行った。偏光顕微鏡で観察される薄片試料については、原鉱石試料を30mm×25mm程度のチップ状に加工し、コランダム研磨（#3000もしくはより細かいサイズで研磨）して作成した。

②膨潤試験と表面分析の結果

原鉱石試料の膨潤力の測定結果を表2.2.2-7に示す。モンモリロナイト含有量の指標となるメチレンブルー吸着量（以下、MB吸着量）と膨潤力については、いずれの値も1番層から採取した試料が最も小さく、31番層から採取した試料が最も大きな値となり、MB吸着量と膨潤力の間には正の相関がみられた。

偏光顕微鏡観察結果の一例を図2.2.2-22に示す。原鉱石には、比較的大きなサイズの班晶が多数存在している様子が観察された。また原鉱石では基質部分の結晶は比較的粒径のばらつきが小さいが、再構成試料では粒径のばらつきが大きく、基質部分は非常に微細な粒度となっている。これらの違いは、再構成試料の粉末試料を原鉱塊を250メッシュ（63 μ m以下）で粉砕したことによると考えられる。粒子間の固着状態の有無については判別できなかった。

表2.2.2-7 原鉱石試料の分析結果および膨潤試験結果

	MB吸着量 (mmol/100g)	膨潤力 (ml/2g)
1番層	47	10
29番層	61	13
31番層	89	18

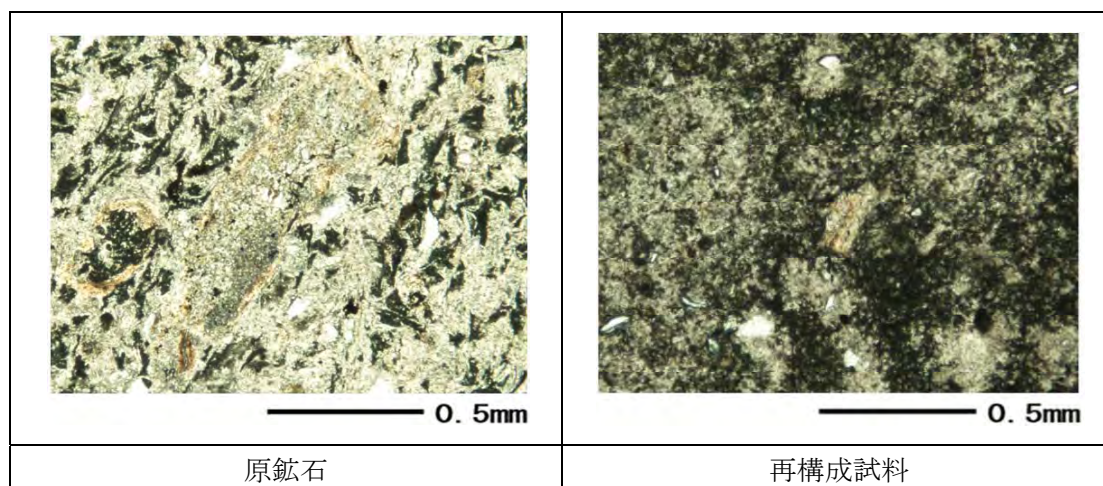


図2.2.2-22 29番層の原鉱石試料の偏光顕微鏡観察結果の一例

④まとめと今後の課題

山形県月布のベントナイト鉱床の1番層、29番層、31番層から採取した原鉱石に対して、膨潤性を把握するための予察的な試験および粒子間の固着状態の有無を調べるための表面観察を実施した。原鉱石および再構成試料を用いた偏光顕微鏡観察結果から、乾燥密度は同じでも、その微視的な状態は異なることを確認した。しかしながら、今回の表面分析の結果では粒子の固着状態の有無が判別できず、今後は、これを観察するための手法を検討していくことが課題である。また、原鉱石と再構成試料の膨潤力の比較等により、セメンテーションが膨潤性などの基本特性に及ぼす影響を把握していく必要がある。このセメンテーションによる基本特性に対する影響については、セメンテーションがどの程度進展しているかを把握するための指標を設定し、それに対して定量的に影響を評価して結果を整理することが望ましいと考えられるが、このような指標については、明確に定められていないのが現状であり、セメンテーションがどの程度生じているかを定量化する指標（手法）の構築も必要である。

3) 光学式pHセンサーの開発

①目的

光学式pHセンサーは、pH感受性の発色材を用いて、比色法の原理に基づき溶液のpHを測定するシステムである。プローブの先端に充填されている発色材には、酸塩基指示薬（以下、pH指示薬）が担持されており、発色材が測定対象の溶液と接触すると溶液のpHに従って発色材の色が変化する。光学式pHセンサーは、この発色材の色の変化を定量的に分析することによりpHの測定を行うものである。

緩衝材中の僅かな量の間隙水のpHを計測するため、これまで、粒状の合成吸着剤樹脂にpH指示薬を担持させたものや（小田ほか，1999）（以下、粒状発色材という）、ゾルゲル法により作製したpH指示薬を含有させたシリカゲル薄膜（Kowada et al., 2005）（以下、薄膜発色材という）を対象として、pHと吸光度の関係を表す検量線を取得し、緩衝材の間隙水pH測定への適用性について検討を行なってきた（原子力機構，2014、2015、2016a）。

幌延URLで実施しているオーバーパック腐食試験や人工バリア性能確認試験において、前者には粒状発色材を、後者には薄膜発色材をそれぞれプローブに装着した光学式pHセンサーを使用し、緩衝材の間隙水のpHを連続的に計測している（中山ほか，2015）。このうち、粒状発色材については、乾燥に対して耐性がなく、一度乾燥すると疎水性となることが指摘されており（原子力機構，2014）、不飽和な緩衝材中において乾燥した場合、所定の呈色反応が生じていないことが懸念される。そこで、内視鏡を用いて緩衝材中における粒状発色材の呈色状況を把握し、間隙水のpH計測が達成できているかどうかを確認した。

②方法

本試験に用いた粒状発色材は、粒状の合成吸着剤樹脂（粒径0.49mm～0.69mm，最頻度細孔直径120Å）に、pH指示薬のクレゾールレッドを担持させたものである。クレゾールレッドの変色範囲は、pH7.2からpH8.8の間において黄色から赤色である。

粒状発色材を装着するpHセンサープローブを図2.2.2-23に示す。プローブの先端は多孔質の金属製焼結フィルターとなっており、フィルターを通じて、先端内部の空間に装着した粒状発色材が

測定対象の溶液と接触することができる。これは、幌延URLで使用している光学式pHセンサーのプローブと同じ構造である。内視鏡は、先端の外径が4.2mmで光源を内蔵しており、pHセンサープローブのスリーブ後端から挿入して使用する。

緩衝材の間隙水pHの測定に使用した試験装置を図2.2.2-24に示す。アクリル製の試験容器内（直径20mm、高さ20mm）に原料であるクニゲルV1（含水比22%）を、湿潤密度1100kg/m³で充填して供試体とし、図2.2.2-23で示したpHセンサープローブの先端を供試体の中心部分に設置した。そして、供試体に蒸留水を浸潤させ、浸潤にともなう粒状発色材の色の変化を内視鏡を用いて観察した。試験は室温、大気中で実施した。

③測定結果

はじめに、pH標準液中においてプローブに装着した粒状発色材の呈色状態を内視鏡で確認した。24時間後の呈色状態を図2.2.2-25に示す。これより、pH7標準液（pH6.88、20℃において）の溶液中においては黄色、pH9標準液（pH9.22、20℃において）では赤色を呈した。これは、pH指示薬のクレゾールレッドの変色範囲と整合しており、プローブに装着した粒状発色材は、測定対象の溶液と接触し、溶液のpHに応じた呈色反応を示すことを確認することができた。

次に、発色材が乾燥することによる呈色反応への影響について確認した。大気中で72時間乾燥させた発色材は、透明感のない黄色を呈した。この発色材をpH9標準液中に浸漬させたが、24時間および120時間経過後においても色の変化は観察されなかった（図2.2.2-26参照）。前述したように、pH9標準液と接触した発色材は赤色を呈することから、一度乾燥した発色材は、その後、溶液と接触しても呈色反応を示さず、発色材としての機能を失うことが分かった。

最後に、緩衝材の間隙水に対しての呈色反応の確認を行なった。不飽和な供試体中への水の浸潤にともなう発色材の呈色状態の変化を図2.2.2-27に示す。浸潤開始時の発色材は黄色を呈している。24時間後、アクリル製の試験容器越しに見る供試体の色の変化から、発色材が装着されたプローブ周辺に浸潤水は到達していないものの、発色材が乾燥した様子は見られず、浸潤開始時と同じ透明感のある黄色を呈している。96時間後、供試体の色の変化からプローブ周辺に浸潤水が到達したことが予想され、発色材の一部が赤色を呈した。168時間後から240時間後にかけて供試体全体に水が浸潤し、発色材の半分程度が赤色を、さらに、264時間後には全ての発色材が赤色を呈した。この呈色状態から間隙水はpH9に近い値と推測することができる。なお、大気条件下で緩衝材材料に蒸留水を浸潤させた本試験と同様な試験系での間隙水の測定値は、pH8～9であることが報告されている（小田ほか，1999）。

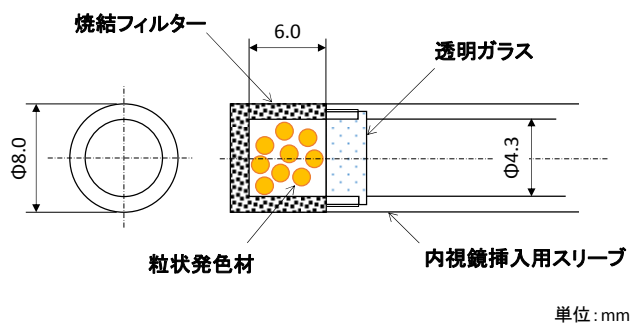


図2. 2. 2-23 内視鏡用pHセンサープローブの構造

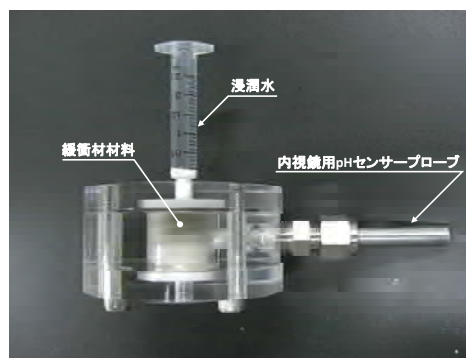


図2. 2. 2-24 緩衝材の間隙水のpH測定に使用した試験装置

④まとめ

光学式pHセンサーに用いる粒状発色材を対象として、緩衝材中における呈色状態を確認した。その結果、不飽和な緩衝材中に置かれた発色材は、乾燥によって機能を失うことはなく、間隙水と接触することによって呈色反応を示すことを目視で確認した。本検討に用いた粒状発色材は、幌延URLのオーバーパック腐食試験で用いているものと同一である。したがって、緩衝材中への地下水の浸潤が進み、発色材を呈色させるだけの間隙水が存在すればpH計測が達成できていると考えられる。他方、乾燥した粒状発色材は、黄色を呈し、その後、溶液と接触しても呈色反応を示さないことが分かった。このため、オーバーパック腐食試験における高温条件下で発色材が乾燥し機能を失った場合、光学式pHセンサーは、黄色の吸光度に従ったpH7程度の計測値を示し、その後、緩衝材中への地下水の浸潤が進んだ場合でも計測値に変化が見られないことが予想される。このような計測結果に基づき、光学式pHセンサーが正常に機能しているかどうかを判断できると考えられる。

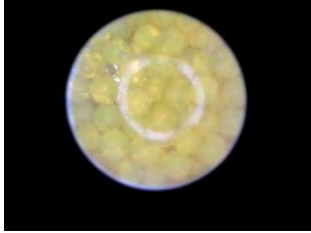
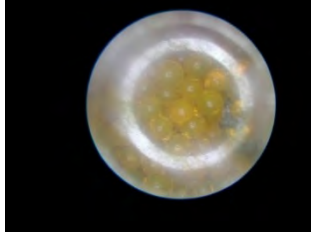
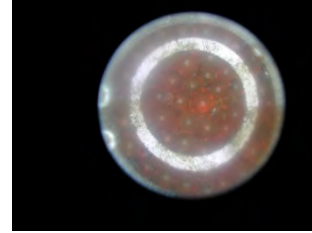
蒸留水中	pH7標準液中	pH9標準液中
		
黄色を呈する	黄色を呈する	赤色を呈する

図2. 2. 2-25 溶液中での発色材の呈色状態

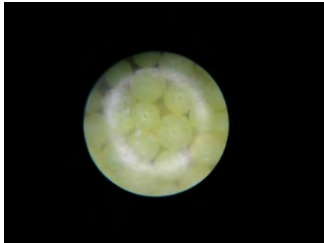

乾燥状態	pH9標準液中に24時間浸漬	pH9標準液中に120時間浸漬
		
黄色を呈する	左に同じ	左に同じ

図2. 2. 2-26 乾燥させた発色材の呈色状態

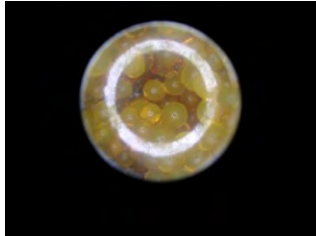
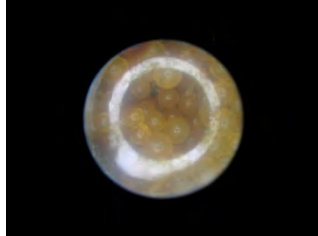
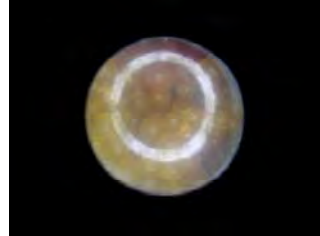
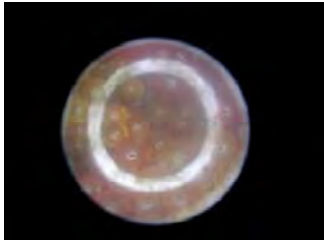
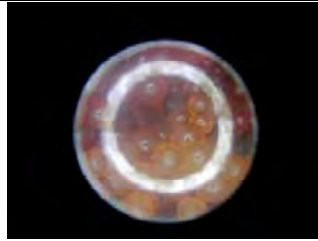
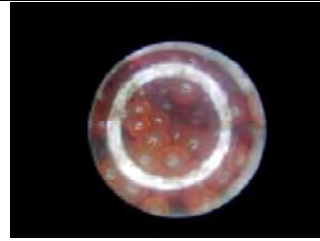
浸潤前	24時間後	96時間後
		
黄色を呈する	黄色を呈する	一部が赤色を呈する
168時間後	240時間後	264時間後
		
半分程度が赤色を呈する	左に同じ	ほぼ全体が赤色を呈する

図2. 2. 2-27 水の浸潤にともなう緩衝材中での発色材の呈色状態

(3)鉄-ベントナイトの相互作用評価に関する調査

ガラス固化体、オーバーパック、緩衝材からなる人工バリア構成においては、オーバーパック材として用いられる炭素鋼と緩衝材である圧縮ベントナイトが直接接触し、鉄との相互作用によりベントナイト中の鉱物に変質する可能性が指摘されている(例えば、Lantenois et al., 2005)。ベントナイトの変質は、放射性核種の収着拡散特性やベントナイトの持つ自己シール性等の安全機能を低下させる可能性がある重要な現象の一つである。

鉄との相互作用によるベントナイトの変質挙動については、ベントナイトの主要構成鉱物であるスメクタイトの変質が顕著となる液性やスメクタイト組成などが明らかにされてきており(例えば、日本原子力研究開発機構, 2008)、生成するスメクタイトの変質鉱物として、バーチェリンや緑泥石等が実験的に確認されている(例えば、陶山ほか, 2006)。また、これらの実験的研究により得られた知見や変質鉱物の生成に関する熱力学データ等に基づいて、圧縮ベントナイトの長期的な変質挙動を定量的に評価するためのモデルが提案されてきている(例えば、日本原子力研究開発機構, 2013a)。変質挙動評価モデルの信頼性向上のためには、圧縮ベントナイトの変質メカニズムの理解を深め、モデルにおいて考慮する変質プロセスをより精緻にするとともに、モデルに必要なパラメータの不確実性の評価を元に、モデル解析結果の不確実性を評価しておくことが必要である。また、原位置試験等におけるベントナイト変質の調査結果とモデルによる解析結果を比較検討し、評価モデルの信頼性を検証していく必要がある。

このような状況を踏まえ、本調査では、信頼性の高い評価モデルを確立することを目的として、変質挙動の理解に必要な基礎的試験や文献調査による既往の知見の整理により、評価モデルに取り込む必要のある現象の抽出を行うと共に、モデル評価に必要なパラメータ値の整備を進めてきている。また、原位置試験等の調査結果を活用してモデルの検証を進めている。平成27年度までに、SKB(スウェーデン核燃料廃棄物管理会社)による国際共同研究ABM(Alternative Buffer Material)プロジェクト(Eng et al., 2007)において行われた長期変質試験後の試料の調査を実施した。その結果、鉄製ヒーターとの相互作用に伴うモンモリロナイトの変質により生成した鉱物は、サポナイト、緑泥石、バーチェリンと推定された。これらの鉱物の生成量はごく微量であり、また、試験期間や試料の含水方法等の条件が異なる場合でも、各鉱物が生成していることが推定された。生成が推定された各鉱物は、Fe共存下で熱力学的に生成しうる鉱物であるものの、間隙水中のFe及びSiの活量等、安定となる条件が各鉱物で異なっている(例えば、日本原子力研究開発機構, 2013a)。このような結果が得られた要因として、原位置試験における鉄製ヒーターと圧縮ベントナイトの接触界面での変質環境が位置により異なること等が考えられた。そのため、これまでの調査において分析した原位置長期変質試験試料では、変質により生成する可能性のある鉱物が検出されたものの、それ以上の検討を行うことは難しいと考えられた。また、確認されたモンモリロナイト変質鉱物は微量であることから、生成量を定量することができなかった。モンモリロナイトの変質量は、モンモリロナイトの変質速度を定量的に評価し、安全評価において重要となる長期的な変質量を推測する上で重要な知見となる。これらの結果を考慮し、本年度の調査では、試験系や間隙水組成等のモンモリロナイトの変質環境を制御した条件での室内試験を実施し、モンモリロナイトの変質量について評価を行った。

調査においては、図2.2.2-28に示す形状の試験カラムを用いて圧縮ベントナイトと炭素鋼試料を接触させた。図2.2.2-28に示すカラムは、内部の直径20mm、長さ20mmのスペースに圧縮ベン

トナイトを設置し、圧縮ベントナイトの片方の端面に直径 25mm、厚さ 4mm の炭素鋼試料を設置することが可能な構造となっている。そのため、炭素鋼試料との接触に伴うベントナイトの変質挙動や、炭素鋼試料から圧縮ベントナイトへ移行した鉄腐食生成物を、一次元の試験系として解析することが可能である。また、炭素鋼と反対側の圧縮ベントナイト端面は、フィルターを介して試験溶液に接触しており、試験溶液の液性を変化させることにより、圧縮ベントナイト間隙水の組成等を制御することが可能である。

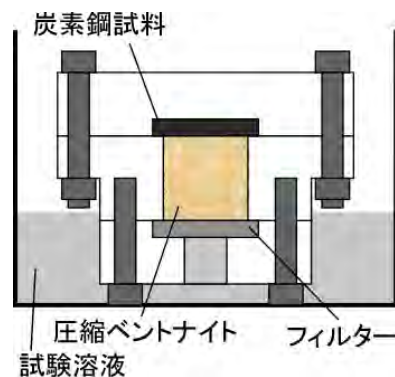


図2. 2. 2-28 炭素鋼ーベントナイト変質試験カラム概略図

試験条件を表 2. 2. 2-8 に示す。ベントナイト試料としてクニミネ工業製クニピア[®]F[®]を使用した。試験には、pH を 5 に調整した酢酸ナトリウム溶液により含有するカルサイトをあらかじめ溶解させて除去した後、NaCl 溶液により Na 型に調製したクニピア F を用いた。試験溶液は、 $0.5\text{mol}/\text{dm}^3$ の NaCl 溶液、 $0.5\text{mol}/\text{dm}^3$ の NaHCO_3 溶液、Na 濃度が $0.5\text{mol}/\text{dm}^3$ となるように NaCl と NaHCO_3 を混合した溶液 2 種類の計 4 種類の溶液を使用した。鉄との相互作用によるベントナイトの変質挙動評価モデルにおいては、炭素鋼の腐食により圧縮ベントナイト間隙水が高 pH となり、それによりモンモリロナイトが溶解することが想定されている（日本原子力研究開発機構，2013a）。本試験で設定した試験条件では、 $0.5\text{mol}/\text{dm}^3$ の NaCl 溶液を用いた試験においては、溶液に pH 緩衝性がないため、炭素鋼とベントナイトの接触面は高 pH になると予測される。これに対し、試験溶液に NaHCO_3 を含有する条件では、溶液が pH 緩衝性を有するため、炭素鋼とベントナイトの接触面の pH 上昇が抑えられると考えられる。 NaHCO_3 の濃度が異なる場合、pH 緩衝性も異なるため、接触面の pH も変化すると考えられる。また、 $0.5\text{mol}/\text{dm}^3$ の NaCl 溶液と $0.5\text{mol}/\text{dm}^3$ の NaHCO_3 溶液を用いた試験においては、試験期間をパラメータとして試験を実施し、モンモリロナイト溶解量の炭素鋼とベントナイトの接触時間に対する依存性を観察した。

表 2.2.2-8 炭素鋼—ベントナイト変質試験条件

試料 No.	固相	乾燥密度	試験溶液	pH	温度	試験期間
1	カルサイト 除去 クニピア F	0.8 Mg/m ³	0.5mol/dm ³ NaCl	8 付近	80℃	3 日
2						6 日
3						10 日
4						19 日
5						40 日
6			0.5mol/dm ³ NaHCO ₃			3 日
7			10 日			
8			41 日			
9			0.05mol/dm ³ NaHCO ₃ +0.5mol/dm ³ NaCl			42 日
10			0.0025mol/dm ³ NaHCO ₃ +0.5mol/dm ³ NaCl			41 日

モンモリロナイト溶解量の評価は、炭素鋼との接触面から 0.2mm の厚さでベントナイト試料をスライスし、そのスライス片中のモンモリロナイト粒子を AFM によって分析することにより行った。AFM 分析用の前処理として、スライス片を純水に浸漬し、超音波洗浄機による分散処理と、イオン交換樹脂を用いた脱イオン処理を行い、白雲母基板上に滴下して 40℃ で乾燥させた。AFM 分析により取得した画像を元に、モンモリロナイト単位結晶または積層体粒子の表面積の測定を画像処理によって実施した。測定は粒子数が 200 カウントを超えるように行い、その測定値をもとに、中央値を示す粒子の表面積等に基づいて以下の式により溶解速度を評価した。

$$\text{モンモリロナイト溶解速度 (mol/m}^2\cdot\text{s)} = \frac{\Delta V}{M_v \cdot ESA \cdot \Delta t}$$

ここで、 ΔV はモンモリロナイト粒子の体積変化 (m³)、 M_v はモンモリロナイトのモル体積、 ESA はモンモリロナイト粒子のエッジ表面積 (m²)、 Δt は炭素鋼との接触時間 (s) である。 M_v には $2.73 \times 10^{-4} \text{ m}^3/\text{mol}$ の値を使用した。

図 2.2.2-29 に、炭素鋼との接触時間に対するモンモリロナイト量の変化を示す。モンモリロナイト量は、そのモル量をエッジ表面積で規格化した値として示している。炭素鋼と接触させていない試料についても測定を行い、その測定結果は試験期間 0 日として示した。また、図に示す点線は、濃度 0.5mol/dm³ の NaCl 溶液条件での試験結果のプロットの最小二乗近似直線である。直線の傾きより、モンモリロナイト溶解速度は $1.9 \times 10^{-12} \text{ mol/m}^2\cdot\text{s}$ と求められた。しかしながら、得られた各試料間の測定値のばらつきが大きく、溶解速度の定量精度に現状では課題が残る結果

となった。また、 NaHCO_3 溶液を用いた試験についても測定値が得られているものの（図中緑◆の
 プロット）、こちらもばらつきが大きく、試験点数も少ないことから、溶解速度の算出は行わな
 かった。溶解量の NaHCO_3 濃度依存性についても、40 日付近 ($3.5 \times 10^6 \text{sec}$ 付近) の各 NaHCO_3 濃度
 条件のプロットを比較すると、測定結果に大きな差が見られなかった。

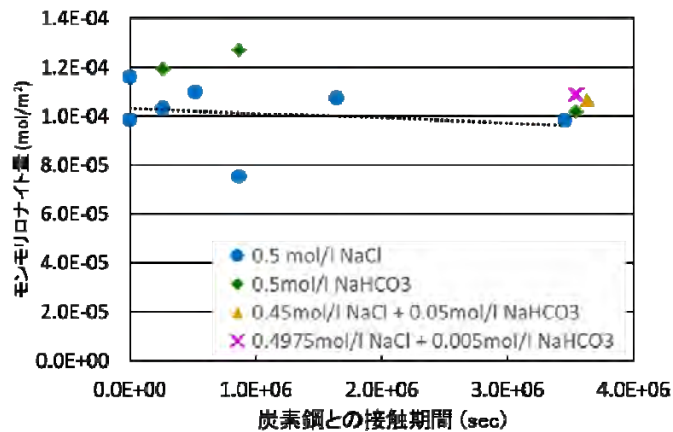


図 2.2.2-29 AFM により測定した炭素鋼との接触時間に対するモンモリロナイト量の変化

本調査では、一部の条件においてモンモリロナイトの溶解速度を定量することができたものの、
 定量精度に課題が残る結果となった。定量精度に影響を及ぼす測定結果のばらつきの原因として
 は、モンモリロナイト量の算出に用いた粒子数が少なかったことが考えられる。また、試験期間
 が短かったためモンモリロナイトの溶解量が少なかったことも定量精度を低下させる要因となっ
 ていると考えられる。そのため、モンモリロナイトの溶解速度を評価する上では、より長期の試
 験試料を用いると同時に、表面積測定の画像処理に使用する粒子数を十分に確保することにより、
 定量精度を向上させる必要があると考えられる。

2.3 人工バリア中の核種移行に係る不確実性要因分析とそれに基づく性能評価技術開発

2.3.1 人工バリア中核種移行評価の不確実性要因と課題解決アプローチ

(1) 調査研究の背景と目的

人工バリア（圧縮ベントナイト）中の核種移行は、ベントナイト間隙水中の化学環境の変化や、ガラス固化体からの放射性核種の浸出挙動、間隙水中での核種の溶解・沈殿、収着・拡散といった現象に影響される。性能評価においては、これらの核種移行に影響を及ぼす現象のメカニズムを理解した上で、これらの現象を簡略かつ保守的に評価することを重視したモデルとパラメータが採用されてきた。第2次取りまとめ（核燃料サイクル開発機構，1999c）において実施されたような、平衡論モデルに基づいて評価された時間的・空間的に変化しない間隙水組成、溶解速度を一定とした保守的なガラス溶解速度の設定、瞬時平衡・可逆反応を仮定した収着分配係数の取り扱い等がその例である。地層処分安全評価の信頼性を高め、信頼に足るものとして社会に受け入れられるためには、最新の科学技術を活用して得られた成果を反映して核種移行に影響を及ぼす現象の理解を深化させるとともに、安全評価手法の精緻化を進め、それらが安全評価技術として有効であることを確証していくことが重要である。

本タスクでは、人工バリア中の核種移行を対象として、上記のような個々の核種移行現象に加えて、バリア間の相互作用による核種移行への影響プロセスに係る現象理解を進め、それらを踏まえた核種移行をより精緻に評価するための技術を、先端的な計算科学/分析技術を適用して開発することを目的とする。この目的の達成に向けて、平成27年度までに、緩衝材中の間隙構造や間隙水特性、核種の収着・拡散、ガラス溶解等の核種移行現象、それらに対するシステム変遷の影響に着目した不確実性要因の抽出、その解決に向けたアプローチを提示した上で、基礎データの取得、先端的分析・計算科学技術によるメカニズムの理解、及びそれらに基づくモデルの改良を進めてきた（日本原子力研究開発機構，2014a, 2015a, 2016a）。平成28年度は、緩衝材中の間隙構造の不均質性及び核種の収着・拡散メカニズムをより精緻に理解するため、先端的な分析技術の適用を含む各種室内試験による基礎データを拡充した。また、分子動力学計算や量子化学計算等による評価事例を拡充しつつ、多様な環境条件とその変遷を考慮した評価を可能とするための精緻化モデルの構築とその適用性評価を行った。さらに、システム変遷に係る不確実性要因のうち、オーバーパック腐食生成物がガラス溶解及び収着・拡散現象に及ぼす影響について、室内試験によるデータ取得とモデル構築を進めた。

(2) 不確実性要因と課題の抽出

人工バリア中の核種移行評価に係る不確実性要因と課題としては、図2.1.1-1に概念図を示したように、個々のバリア性能や核種移行プロセス等に係るものに加えて、バリア間の相互作用を含むシステムの時間的・空間的変遷等の影響に係るものがある。このシステムの変遷による影響を含めて、人工バリア中の核種移行に影響を及ぼす主要なプロセスに対し、第2次取りまとめ以降の国内関連プロジェクトや諸外国の性能評価レポート等をもとに、核種移行評価の不確実性に係る課題を表2.3.1-1に示すように整理した（日本原子力研究開発機構，2014a）。本タスクでは、国内の関連プロジェクトの成果や実施状況を踏まえ、収着・拡散、間隙水化学、ガラス溶解に係る課題に特に焦点をあて、現象理解の深化と評価手法の精緻化、バリア間の相互作用を含むシステム変遷影響評価に取り組むこととした。

表2.3.1-1 人工バリア中の核種移行評価の不確実性に係る課題

項目	課題
間隙水化学	<ul style="list-style-type: none"> ・複数の間隙タイプの特性或不均質性を考慮した間隙水化学の取扱い ・化学反応—物質移行を考慮した間隙水化学の時間・空間変遷の取扱い ・鉄やセメント等のバリア材が共存することによる間隙水特性への影響評価
ガラス/核種の溶解	<ul style="list-style-type: none"> ・ガラスの長期溶解に関する現象理解とモデル化に関する不確実性の考慮 ・ガラスの表面変質や割れ等の不均質性の取扱い ・オーバーパック鉄腐食生成物のガラス溶解への影響 ・ガラス成分やオーバーパック腐食生成物が核種溶解度に及ぼす影響
核種の収着・拡散	<ul style="list-style-type: none"> ・酸化還元、温度影響等の環境条件影響に関するデータの不確実性 ・収着の時間依存性、不可逆性、核種間競合等に係る現象理解とその取扱い ・複数の化学種の混在や間隙構造の不均質性等の考慮 ・鉄やセメント等のバリア材共存による収着・拡散への影響評価
コロイド/有機物/微生物影響	<ul style="list-style-type: none"> ・人工バリア中でのコロイド形成やその核種との相互作用に係る不確実性の考慮 ・圧縮ベントナイトのコロイドのろ過機能あるいは移行に係る不確実性の考慮 ・人工バリアに含まれる有機物・微生物の核種移行影響に係る不確実性の考慮

(3) 課題解決のための研究アプローチ

本タスクでは、上記において不確実性要因として抽出された課題を対象に、最新の科学的知見に基づく現象理解の深化と評価手法の精緻化、システム変遷等を考慮した評価技術開発を、先端的な計算科学/分析技術を適用しつつ、以下に示すアプローチで進めることとした。

1) 圧縮ベントナイト中の核種移行に関する現象理解と精緻化モデルの開発

圧縮ベントナイト中の収着・拡散現象については、これまでに経済産業省資源エネルギー庁の受託事業「処分システム化学影響評価高度化開発」（日本原子力研究開発機構，2013c）において、信頼性の高いデータ取得手法の構築、各種分析技術を適用した収着・拡散メカニズムの理解、それらを踏まえた現象論的モデル/データベースの開発を進めてきた。開発した統合収着拡散（ISD：Integrated Sorption and Diffusion）モデル/データベースは、圧縮ベントナイトの間隙水化学、収着及び拡散現象を整合的に評価することを目指したものであり、これまでに多様な核種や環境条件に対してモデル/データベースの適用性と課題を示してきた（日本原子力研究開発機構，2013a；Tachi et al., 2014a, 2014b）。圧縮ベントナイト中の核種移行モデルの精緻化については、この先行研究のアプローチと課題を継承しつつ、図2.3.1-1に示すアプローチで検討を進める。

圧縮ベントナイト中の核種移行モデルの精緻化の視点としては、間隙構造や間隙水特性の不均質性の影響、対象核種が複数の溶存化学種として共存することによる影響等を含む収着・拡散メカニズム理解の反映、さらにはバリア間の相互作用を含むシステムの時間的・空間的変遷の考慮等が挙げられる。このような視点での現象理解とモデル精緻化に資するため、図2.3.1-1のアプローチに示すように、多様な環境条件での「データ取得」を、これまで開発してきたデータ取得手法等を適用して進める。また、メカニズム解明のための先端的な「分析技術の適用」によって、モデル精緻化の根拠となる間隙構造や収着機構等の情報を整備する。「精緻化モデル開発」については、これまでに開発してきた統合収着拡散（ISD）モデル/データベースを出発点とし、上記の「データ取得」と「分析技術適用」の知見に加え、「計算科学手法」を適用した評価も取り入れ

て進める。なお、モデルの精緻化にあたっては、従来モデルで考慮している仮定の妥当性の確認や従来モデルの改良点の抽出等、従来モデルとの関係も念頭に検討を進める。図2.3.1-1に示すように、最終的には、性能評価で活用可能なモデル/データベース体系として構築し、既存の収着・拡散実測値データベース（例えば、館ほか，2009）とも組み合わせて、信頼性の高い性能評価パラメータとその不確実性を設定する手法として体系化することを目指す。なお、2.4の天然バリア中の核種移行に係る課題においても、核種移行モデルの開発については、基本的に共通のアプローチをとる。

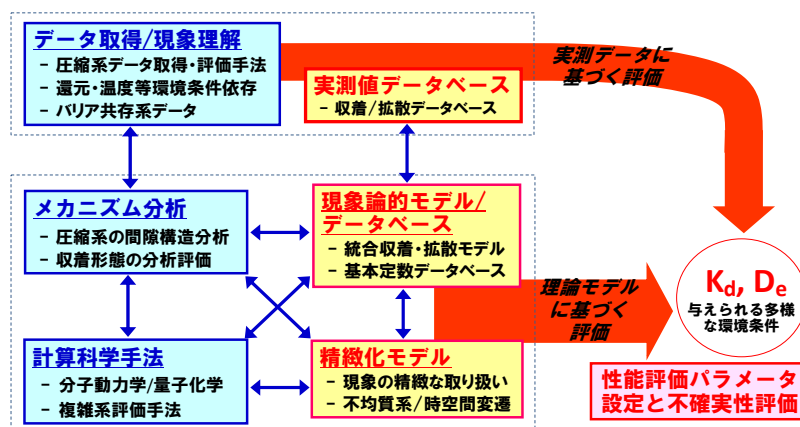


図2.3.1-1 人工バリア中核種移行に関する現象理解とモデル精緻化のためのアプローチ

2) システム変遷を考慮した核種移行評価技術の開発

バリア間の相互作用を含むシステム変遷を考慮した核種移行評価技術の開発は、関連プロジェクト等の実施状況も踏まえ、オーバーパック腐食生成物の影響に着目し、特に、収着・拡散及びガラス溶解への影響を対象に調査検討を進めることとした（日本原子力研究開発機構，2014a）。データ取得、先端的な分析技術や計算科学の適用による現象理解、モデル/データベース構築といったアプローチは、基本的に上記1)と同様である。核種移行評価の前提となる鉄とベントナイトの相互作用の評価は2.2のシステム変遷課題、さらに、鉄共存影響を考慮したシステム変遷と核種移行評価については2.6の体系的評価に向けた技術開発課題においても検討されるため、これらタスクと連携して調査を進める。

2.3.2 緩衝材中の核種移行に関する現象理解のための実験研究

(1) ベントナイト中の核種移行メカニズム把握のためのデータ取得・評価

ベントナイト中の収着・拡散現象の理解とモデルの精緻化に資するため、本課題では、平成27年度までの成果を踏まえ、後述するメカニズムの解明のための分析研究とも連携しつつ、1)多様な環境条件とシステム変遷に着目したデータ拡充、2)システム変遷影響も考慮したコロイドのろ過機能に係るデータ取得に取り組んだ。

1) 多様な環境条件下における圧縮ベントナイト中の収着・拡散データの整備

圧縮ベントナイト中の核種移行に関して、現象理解に則した精緻化モデルを検討していくうえで、その基礎となる信頼性の高いデータの整備が不可欠である。圧縮ベントナイト中の収着・拡散データの取得・評価手法については、先行する受託事業「処分システム化学影響評価高度化開

発」において、「拡張型透過拡散 (TD:Through-Diffusion) / トレーサー減衰 (RD:Reservoir-Depletion) 法」を提案し、多様な核種と環境条件への適用性を確認してきた (図2.3.2-1; 日本原子力研究開発機構, 2013c ; Tachi and Yotsuji, 2014)。本事業では、圧縮ベントナイト中の収着・拡散メカニズムの理解とモデルの精緻化に資するため、本手法を適用して、より多様な環境条件 (密度、塩濃度、温度等) を対象にデータ拡充を進めてきている。平成28年度は、①従来から進めてきたNa型ベントナイト中の収着・拡散挙動の温度依存性に関するデータ、②システム変遷影響に係る課題でもあるCa型ベントナイト中の収着・拡散データの拡充を実施した。

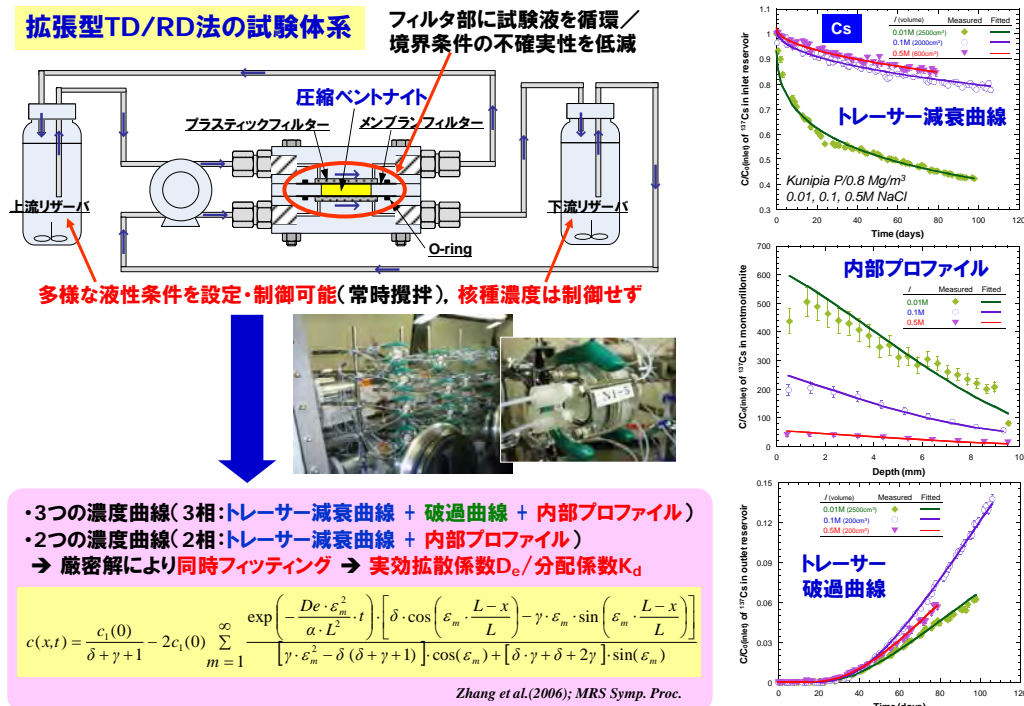


図2.3.2-1 拡張型透過拡散/トレーサー減衰法の概要

① Na型ベントナイト中のイオンの収着・拡散データ取得

Na型ベントナイト中のイオンの収着・拡散データについては、これまで多様なイオンを対象に、ベントナイトの乾燥密度、間隙水の塩濃度、温度条件等をパラメータにデータ取得を進めてきた。ここでは、圧縮ベントナイト中の収着・拡散データの温度依存性を把握するとともに、層間と粒子間隙からなる不均質な間隙中の拡散メカニズムの理解に資することを目的として、温度条件をパラメータにNa型モンモリロナイト中の拡張型透過拡散試験を実施した。温度制御下の試験は、上図の透過拡散試験法に対し、上流と下流側のリザーバと循環ポンプを室温環境下におき、拡散セルと十分な長さの循環チューブを恒温槽内に設置する方法で実施した。平成26年度の当該事業報告書 (日本原子力研究開発機構, 2015a) において、Csの温度依存性データを報告している。それ以降、イオンの電荷と支配的な拡散経路との関係を把握するため、陽イオンのSr、中性のトリチウム水 (HTO)、陰イオンのIを対象としてデータ取得を進めている。試験は、Csの場合と同様に、乾燥密度0.8と1.8Mg/m³の圧縮モンモリロナイト (クニピアF[®]) を0.1M NaCl溶液で飽和させた試料を対象に、10、25、40、60℃の4種類の温度条件で実施した。

ここでは、これまでに取得・評価できたSrの温度条件10℃及び60℃の条件における結果を報告

する。乾燥密度 $0.8\text{Mg}/\text{m}^3$ において 10°C 及び 60°C の温度条件で得られたSrのトレーサー減衰曲線、破過曲線のデータと解析結果を図2.3.2-2(a)に示す。内部プロファイルも含めて、良好なフィッティング結果を得ることができ、フィッティングより実効拡散係数と収着分配係数を導出した。取得した実効拡散係数と収着分配係数の温度依存性を、平成26年度に報告したCsの結果（日本原子力研究開発機構，2015a）とあわせて、図2.3.2-2(b)に示す。実効拡散係数については、CsとSrで温度とともに増加する傾向が明瞭に確認され、両元素の拡散メカニズム及び移行経路は類似したものであると考えられる。一方で、収着分配係数については、Csの場合には温度とともに明瞭に減少する傾向が確認されていたが、Srの場合には温度依存性がほとんど見られない結果となった。このことは、CsとSrの水和エネルギーに違いによる収着メカニズムの差異を反映していると考えられる。今後、中性のHTOや陰イオンのIのデータも拡充したうえで、拡散・収着データの温度依存性を総合的に評価するとともに、後述するNMR分析による間隙水特性評価、分子動力学計算による層間中の間隙水やイオン拡散の評価等より得られる知見についても活用し、温度が収着・拡散挙動に及ぼす影響について、さらに検討を深めていくことが必要である。

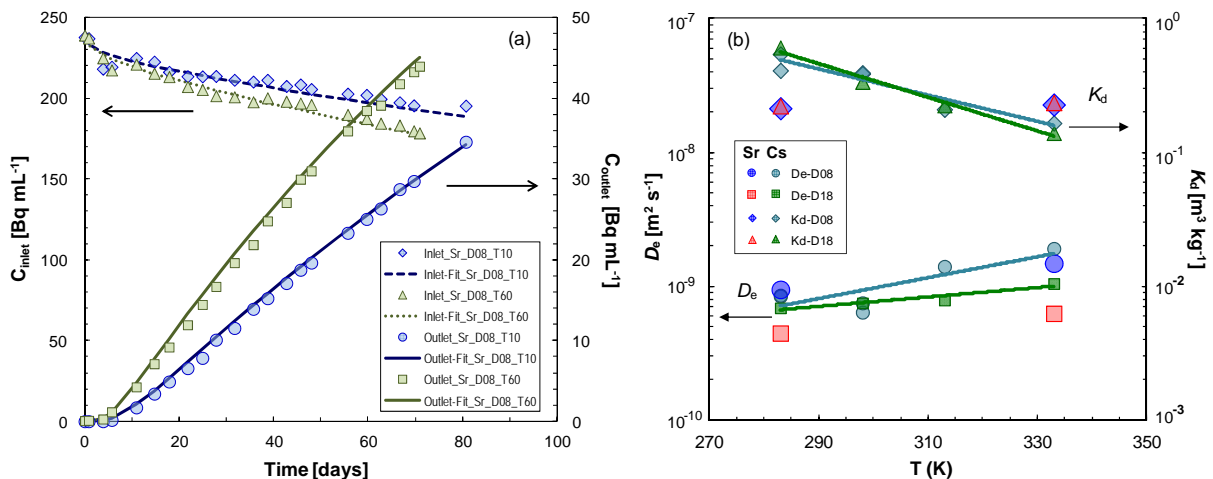


図2.3.2-2 温度制御条件でのSr拡散データ(a)と拡散・収着データの温度依存性(b)
(図中の08, 18はそれぞれ乾燥密度0.8, $1.8\text{Mg}/\text{m}^3$, T10, T60はそれぞれ温度10, 60°C を表す)

② Ca型ベントナイト中のイオンの収着・拡散データ取得

初期にNa型であったモンモリロナイトが、セメント材料の共存影響によってCa型化したり、オーバーパックの共存影響によってFe型化したりする可能性が考えられ、層間陽イオンの変化が核種の収着・拡散特性に及ぼす影響を把握することが重要である。このため、Ca型モンモリロナイト中の収着・拡散データを整備することに加え、圧縮Ca型モンモリロナイトでの間隙構造や収着・拡散メカニズムの理解、モデルの適用性の評価までを念頭に、平成27年度からCa型モンモリロナイトを用いた拡散試験に着手した。具体的には、乾燥密度 $0.8\text{g}/\text{cm}^3$ に成形したCa型モンモリロナイトを0.01、0.1、0.5MのNaCl溶液で飽和させた条件で、Srの拡張型透過拡散試験を行った。その結果をNa型で実施した結果と比較すると、収着分配係数はCa型の方が低い傾向であるのに対し、実効拡散係数については、低塩濃度条件ではCa型の方が低いものの、高塩濃度条件では両者の関係が逆転する傾向が確認された（日本原子力研究開発機構，2016a）。一方で、この試験では、Ca

型モンモリロナイトをNaCl溶液で飽和させており、層間のCaイオンの一部がNaに置換している系での試験となっている点が課題の一つであった。そこで、平成28年度は、圧縮Ca型モンモリロナイト（乾燥密度0.8及び1.4g/cm³）をCaCl₂溶液（0.01M）で飽和させた系で、HTO、I、Csの透過拡散試験を実施した。

結果の一例として、HTOの拡散試験結果を図2.3.2-3(a)に示す。図中の破線及び実線で示すように、トレーサー減衰曲線、破過曲線に対して、拡散方程式の解析解の良好な同時フィッティング結果が得られた。その結果導出された実効拡散係数(D_e)を、Na型に対して報告している実効拡散係数の塩濃度依存性 (Tachi and Yotsuji, 2012, 2014) に重ねて、同図(b)に示す。Ca型においても、陽イオンの加速、陰イオンの排除の傾向は認められるものの、その効果はNa型に比べて非常に小さいことが確認された。また、静電的な相互作用を考慮する必要のないHTOの実効拡散係数も、Ca型で得られた値は、Na型に比較して非常に高い値を示し、幾何学因子もCa型とNa型で大きく異なることが示唆された。引き続き、高塩濃度条件でのデータを拡充するとともに、後述する核磁気共鳴法 (NMR) による間隙構造の分析結果も考慮し、2.3.3で示すような均質系及び不均質系の間隙モデルの適用性を検討していくことが必要である。

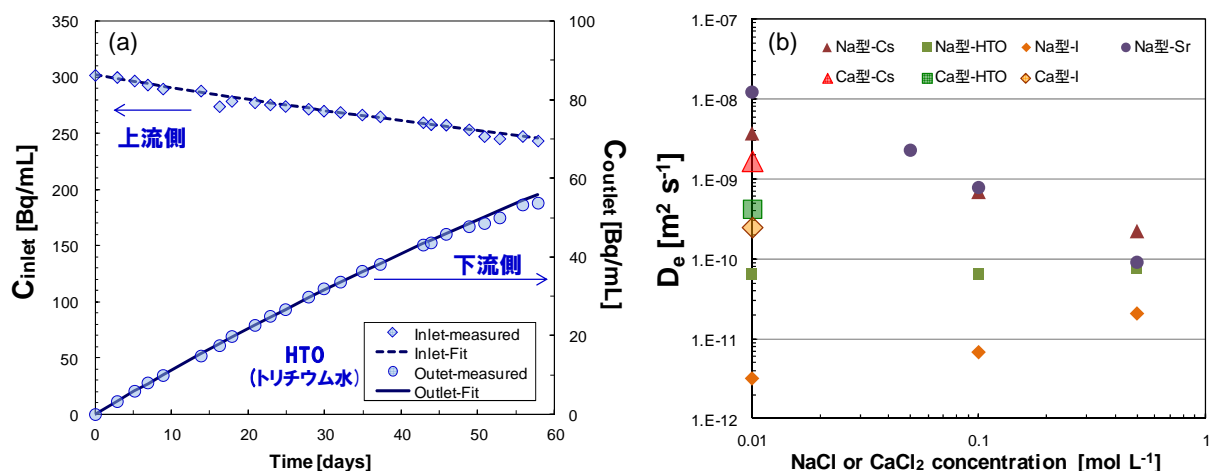


図2.3.2-3 Ca型モンモリロナイト中のHTOの透過拡散データ(a)とHTO, Cs, Iの実効拡散係数データのNa型との比較(b)

2) ベントナイトのコロイドろ過性能の確認試験

緩衝材として用いられる圧縮ベントナイトは、コロイド粒子を物理的にろ過するコロイドフィルトレーション機能により、緩衝材内側での核種移行に及ぼすコロイドの影響を排除することが期待されている（核燃料サイクル開発機構, 1999c）。これまでに報告されている圧縮ベントナイト中のコロイドの透過試験においては、試験溶液の塩濃度や圧縮ベントナイトの乾燥密度等の条件によってはサイズの小さいコロイドがベントナイト内部を移行することが確認されている（黒澤, 2005 ; Holmboe et al., 2010 ; Wold et al., 2007 ; Iijima et al., 2009）。しかしながら、既存の研究で検討された条件は限られており、系統的にデータを取得し、ベントナイトがコロイドろ過機能を発揮する条件を明確化することが必要である。

本調査では、コロイドフィルトレーション機能に影響を及ぼすと推測される溶液の塩濃度、ベントナイトの乾燥密度、層間イオン種等をパラメータとし、粒径の異なるコロイドを用いた拡散

試験を実施することで、フィルトレーション機能が働く条件と透過する条件との境界を明らかにする。また、ベントナイトの微細構造とコロイドフィルトレーション機能の関係について調査し、フィルトレーションのメカニズムについて検討を行う。平成27年度までの調査において、高塩濃度条件での拡散試験に適用できるコロイドについて調査を行い、人工高分子である dendrimer に着目した。Dendrimer は球状構造、既定の粒径、単一分子量であるという特徴を持ち、圧縮ベントナイトを透過するコロイドの粒径を評価するために適したトレーサーである。そこで、Sigma-Aldrich 製 PAMAM dendrimer の粒径分布の塩濃度依存性を調査した結果、NaCl 濃度が 0.5M でも粒径が安定していることを確認した。また、同 NaCl 濃度において dendrimer のゼータ電位は -25mV 程度であり、安定に分散した状態になっていると推測された。Dendrimer が高塩濃度下でも安定であることが確認されたことから、平成28年度は、Dendrimer を用いて異なる塩濃度条件での圧縮ベントナイトに対する拡散試験を実施した。

拡散試験は、図 2.3.2-1 に示す拡張型透過拡散法/トレーサー減衰法と同じ試験装置の構成とし、試験条件は表 2.3.2-1 に示す通りとした。先行研究においては、ベントナイトを透過するコロイドの分子量及び実効拡散係数は、塩濃度とともに増加し、乾燥密度による影響は顕著ではなかったことが報告されている (Wold et al., 2007 ; Iijima et al., 2009) 。そのため、本試験では、NaCl 溶液の濃度を 0.005、0.05、0.5mol/dm³ の 3 条件とし、ベントナイト (クニピア F[®]) の乾燥密度は 0.8Mg/m³ に固定した。また、粒径 15nm 以上の金コロイド (黒澤ほか, 1996) や分子量 100,000 以上のポリアクリル酸 (金持ほか, 1999) は、ベントナイトを透過しない事が確認されている一方で、粒径 2nm の金コロイド (Holmboe et al., 2010) がベントナイト内部へ拡散した例や、分子量 5,000 以下のフミンコロイド (Iijima et al., 2009) がベントナイトを透過したことが報告されている。これらを考慮し、NaCl 濃度が高い 0.5 及び 0.05mol/dm³ の条件では、粒径 5.7nm の Sigma-Aldrich 製 PAMAM dendrimer Generation 4.5 (分子量 26,252) を使用し、NaCl 濃度が 0.005mol/dm³ の条件に対しては、粒径 1.9nm の Generation 0.5 (分子量 1,269) を使用した。本 dendrimer は、アニオン性の官能基であるカルボキシル基を表面に有しており、Generation 0.5, 4.5 の dendrimer はそれぞれ 8,128 個のカルボキシル基が表面に存在している。

表 2.3.2-1 拡散試験条件及び結果

ベントナイト	乾燥密度 [Mg・m ⁻³]	dendrimer 粒径[nm]	NaCl濃度 [M]	高濃度側溶液 pH[-]	低濃度側溶液 pH[-]	実効拡散係数 De (m ² /s)
クニピアF	0.8	1.9	0.005	8.7~10.0	8.1	—
				9.1~10.1	8.1	—
		5.7	0.05	8.2~8.5	7.8	4.78E-12
				7.8~8.2	8.1	1.32E-11
5.7	0.5	7.8~8.2	8.1	7.12E-12		
		7.8~8.2	8.1	7.12E-12		

試験では、高濃度側溶液 (上流リザーバ) 中の dendrimer 濃度を 1000mg/dm³ に設定した。試験開始後、高濃度側溶液は 2週に 1回程度、低濃度側溶液 (下流リザーバ) は週に 1回程度サンプリングを行い、TOC計 (島津製作所 TOC-Lcph) を用いて dendrimer 濃度を測定した。

低濃度側溶液への dendrimer の拡散フラックスを図 2.3.2-4 に示す。NaCl 濃度 0.5、0.05mol/dm³ の条件で、低濃度側に dendrimer が透過してきていることが確認できる。このことから、粒径 5.7nm の dendrimer が、乾燥密度 0.8Mg/m³ の Na 型クニピア F を透過することが確認さ

れた。試験結果を表2.3.2-1に示す。NaCl濃度の増加に伴い、実効拡散係数が増大する傾向が見られたが、これはNaCl濃度の増加によって、ベントナイト間隙水中のイオン強度が高くなり、陰イオン排除効果が低下した影響だと考えられる。これに対し、NaCl濃度 $0.005\text{mol}/\text{dm}^3$ の条件においては、低濃度側溶液中への粒径 1.9nm のデンドリマーの有意なフラックスの増加は観察されなかった。しかしながら、TOCによるデンドリマー濃度の測定においては、ベントナイトから溶出する有機物の影響により、定量下限が上昇する傾向が見られている。NaCl濃度 $0.005\text{mol}/\text{dm}^3$ の条件では、塩濃度の低下に伴う陰イオン排除効果の増大によりデンドリマーのフラックスが低下し、低濃度側溶液中のデンドリマー濃度の上昇が抑えられたため、有機物の影響によってデンドリマーを検出できなかった可能性がある。そのため、今後、サイズ排除クロマトグラフ等によりベントナイト中の有機物とデンドリマーを分離して検出し、デンドリマーが透過する可能性について検討を行う必要がある。

本試験により、NaCl濃度 0.5 , $0.05\text{mol}/\text{dm}^3$ の条件で粒径 5.7nm のデンドリマーが透過することが確認された。今後は、これらのNaCl濃度において、 5.7nm よりサイズの大きいデンドリマーで拡散試験を行うとともに、NaCl濃度 $0.005\text{mol}/\text{dm}^3$ の条件についても、粒径 1.9nm のデンドリマーの透過の有無について確認した後、デンドリマーの粒径を変えて試験を実施することが必要である。また、これらの結果より、コロイドろ過機能が発揮される塩濃度とコロイド粒径条件の関係について評価する必要がある。

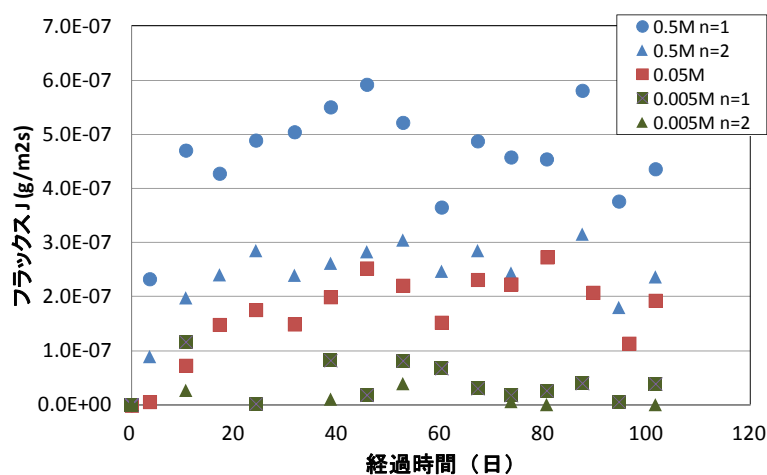


図2.3.2-4 デンドリマーの拡散フラックスの時間変化

(2) 収着・拡散メカニズムの解明

1) ベントナイト中の収着・拡散メカニズム解明に関する課題とアプローチ

圧縮ベントナイト中の収着・拡散現象の理解と、それを反映したより精緻なモデル開発を進めるうえで、分析技術により得られるメカニズムに関する知見は、モデルにおいて表現されている収着・拡散メカニズムが妥当であるかどうかを示す重要な根拠となる情報であり、近年国際的にも先端的な分析技術の開発と適用が進められている。ここでは、本事業で重点的に取り組む圧縮ベントナイト中の収着・拡散モデルの前提となる圧縮ベントナイトの間隙構造や間隙水特性、及び核種の収着メカニズムに焦点を当てて、先端的な分析技術を適用した研究に取り組んだ。

圧縮ベントナイトの間隙構造に係る分析技術 (図2.3.2-5) としては、これまでに透過型電子顕

微鏡 (TEM)、走査型電子顕微鏡 (SEM) による粒子間隙と層間の共存状態の直接観察 (Pusch et al., 1990; Holzer et al., 2010)、X線CT法による間隙構造の把握 (日本原子力研究開発機構, 2013c)、X線回折法 (XRD) によるナノスケールの層間距離の把握 (Kozaki et al., 1998; Holmboe et al., 2012) 等が実施されている。ここでは、核磁気共鳴法 (NMR) に着目し、これまで検討してきた評価手法を多様な条件へ適用するとともに、温度制御も組み合わせた間隙構造の不均質性の定量評価手法を検討した。

一方、核種の収着メカニズムの理解とモデル開発に関し、代表的な分析手法としては、X線吸収微細構造分光法 (XAFS)、時間分解型レーザー誘起蛍光分光法 (TRLFS)、全反射赤外吸収分光法 (ATR-FTIR)、NMR等を挙げることができる。ここでは、これまでに検討してきたNMR法とATR-FTIR法に加え、XAFS法についても新たに対象として分析手法の適用性の評価を実施した。

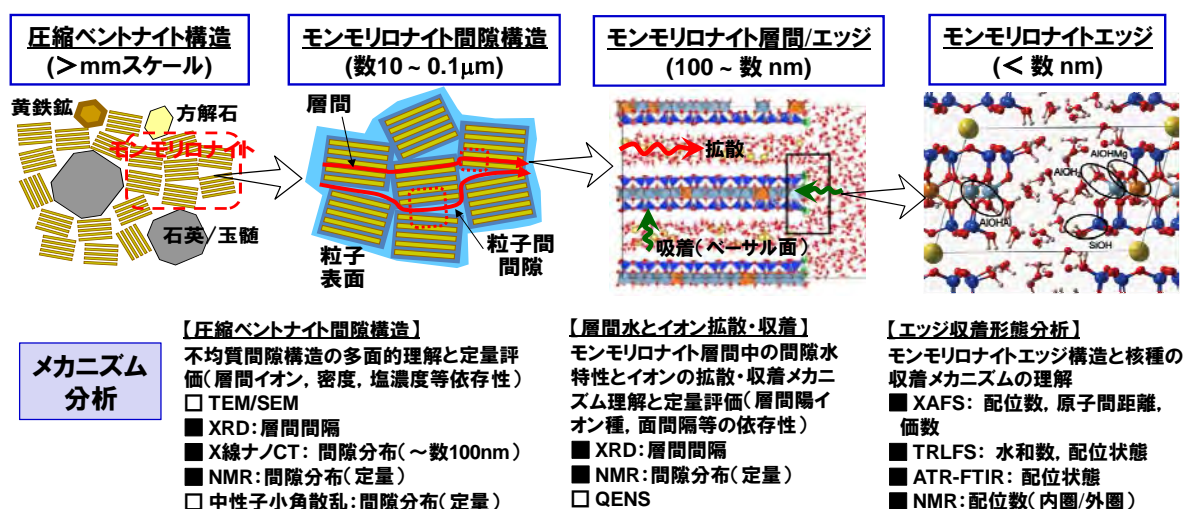


図2.3.2-5 圧縮ベントナイトの間隙構造と層間/エッジの収着機構に関連する分析技術 (■は本事業及び先行事業において検討してきた分析技術を示す)

2) NMR法による圧縮ベントナイトの間隙構造評価

圧縮ベントナイトの間隙構造を定量的に評価する手法として、従来のXRDプロファイルのシミュレーション (例えば、Warr and Berger, 2007) やX線小角散乱法との組み合わせによる評価 (例えば、Muurinen et al., 2013) が検討されているが、層間外間隙を定量的に評価することが難しいこと、ケイ砂等の粘土以外の鉱物を多量に含む系への適用が難しいことが課題であった。このような課題に対して、本事業では、圧縮ベントナイト間隙水のプロトン核磁気共鳴(¹H NMR)測定から得られる縦緩和時間(T1)を利用した、間隙構造評価手法 (Ohkubo et al., 2008) の適用性を検討してきた。平成26年度までに、塩濃度の異なる溶液で飽和したNa型モンモリロナイトを対象に¹H NMR測定を行い、¹H NMR信号から得られるT1及び横緩和時間(T2)の-40℃の低温から室温付近の温度でのデータを解析することによって、層間間隙及び層間外間隙の割合の塩濃度及び密度依存性の評価を行った (日本原子力研究開発機構, 2015a; Ohkubo et al., 2016)。平成27年度以降は、これまでNa型を対象に検討してきた手法のCa型モンモリロナイトへの適用性の検討に着手した (日本原子力研究開発機構, 2016a)。平成27年度の分析は、上記拡散試験と同様に、Ca型モンモリロナイトをNaCl溶液で飽和させた系で実施しており、平成28年度は、圧縮Ca型モンモリロナ

イトをCaCl₂溶液で飽和させた系で分析を実施した。

Ca型モンモリロナイトとしては、Na型モンモリロナイト（クニピアF）をCa型に100%置換した試料を用いた。乾燥密度0.8及び1.4g/cm³となるように圧縮成型したCa型モンモリロナイトを、テフロン製の円筒状容器に充填し、容器の両端をメンブレンフィルター及びプラスチックフィルターで挟んだ状態で、イオン交換水、0.1M及び1.0MのCaCl₂溶液で飽和させた。飽和处理後、ネジ付き蓋により両端が固定された密閉状態でNMR測定を行うとともに、片側の蓋をカプトンフィルムにより封じることにより、含水状態を維持したままXRD測定を実施した。XRD測定はマック・サイエンス社製のM03xrfを用いて封入管式X線源（Cu管球）を使用して行った。¹H NMR測定は、Oxford社製Maran Ultra（静磁場強度0.55T）を用いて行った。反転回復法による縦緩和時間（T₁）分布測定は、90度パルス幅7.9μs、積算繰り返し時間100ms、回復時間（τ）を1から500msの間を指数関数的な間隔で100ポイントに分割して設定した。温度可変測定は、室温から-40℃以下に冷却した後、-40℃から30℃までの範囲で10℃ずつ温度を上昇させながら、T₁、T₂及びT₁-T₂相関測定を行った。

3種類の溶液で飽和させた乾燥密度1.4g/cm³試料のXRDパターンを図2.3.2-6に示す。4から7°の領域において、(001)面に由来する回折ピークが観測された。最大強度の角度から面間隔を計算した結果を図中に併せて示す。CaCl₂濃度が高くなるに従って、面間隔は狭くなることが確認された。この結果は、過剰のCaが層間に入ることによってモンモリロナイトの膨潤が抑制されているためと考えられる。面間隔から予測される水和層の厚みは2から3層水和であり、Morodome and Kawamura（2009）による観察結果と整合的である。湿度調製した粉末XRDから得られた研究によると、Ca型モンモリロナイトは最大で2層水和（面間隔15.5Å程度）の面間隔までしか膨潤しないことが報告されている。本試験では、飽和状態になることで、3層水和状態まで変化した可能性があることが示された。

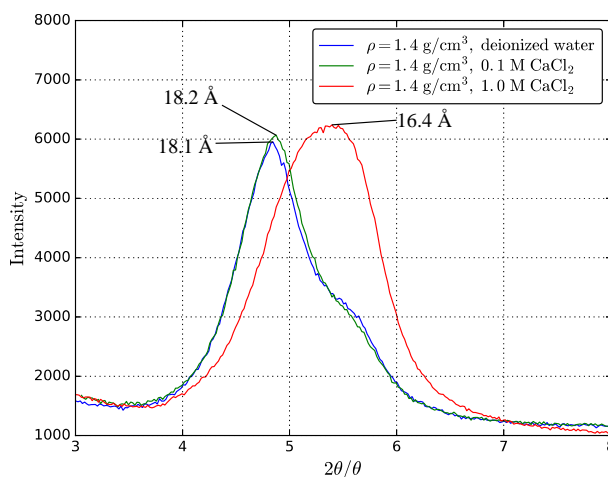


図2.3.2-6 異なる溶液で飽和させた密度1.4g/cm³のCa型モンモリロナイト試料のXRDパターン

塩濃度の異なるCaCl₂溶液で飽和させた乾燥密度0.8及び1.4g/cm³のCa型モンモリロナイトに対するT₁分布について、-40℃（233K）から30℃（303K）の範囲での温度依存性を図2.3.2-7及び図2.3.2-8にそれぞれ示す。密度0.8g/cm³の条件において、273K以上で観測されたT₁分布は、10ms以上の緩和時間に複数のピークを示し、この10ms以上のピークは、モンモリロナイト粒子間のような、よりバルクの状態に近い状態に相当する水と考えられる。一方、密度1.4g/cm³の273K以上の温度で観測されたピークは、0.8g/cm³と比較してやや短い緩和時間にピークを持ち、シャープ

な線形を示す。ピークの幅は、水分子の存在する空間の分布を反映することから、密度 1.4g/cm^3 では、水分子の存在する空隙分布がより狭いことを示していると考えられる。273K以上で観測された密度 1.4g/cm^3 の試料のT1分布は、10ms以上の長い緩和時間にピークを示しておらず、粒子間に存在する水は少ないと考えられる。Ca型モンモリロナイトのT1分布は、Na型モンモリロナイトの結果 (Ohkubo et al., 2016) と比較して CaCl_2 溶液濃度の依存性が少ない。特に密度 1.4g/cm^3 では、 CaCl_2 水溶液の濃度変化で緩和時間分布は、ほとんど変化しない。Ca型化したモンモリロナイトは、Na型と比較して膨潤性が低いため、空隙構造の変化も小さいと考えられる。

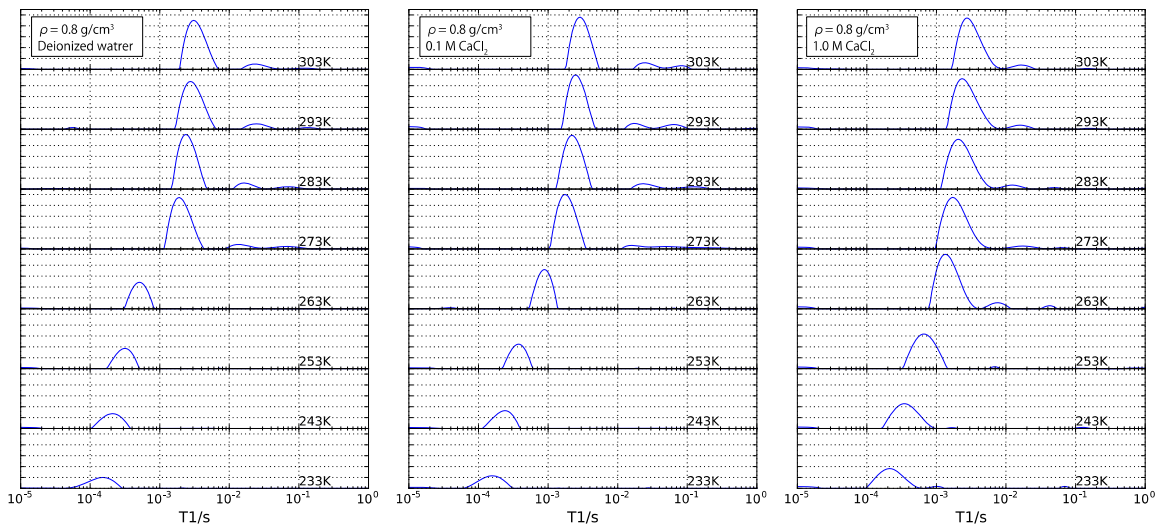


図2.3.2-7 塩濃度の異なる溶液で飽和させた乾燥密度 0.8g/cm^3 のCa型モンモリロナイトのT1分布の温度依存性 (233から303Kの範囲)

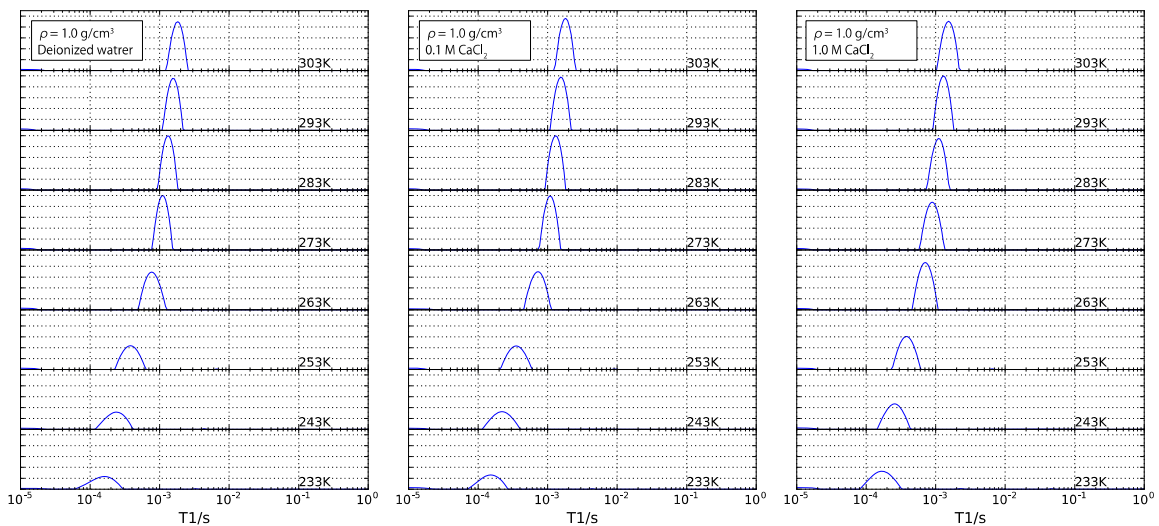


図2.3.2-8 塩濃度の異なる溶液で飽和させた乾燥密度 1.4g/cm^3 のCa型モンモリロナイトのT1分布の温度依存性 (233から303Kの範囲)

緩和時間分布から得られたピークに基づいて信号強度を温度に対して整理した結果を図2.3.2-9に示す。273K以上の信号強度の平均値を100%として相対強度をプロットしている。全ての信号強度は、キュリー則 (Mitchell et al., 2008) に基づいて温度による信号強度の変化を補正した。氷結した水分子はNMR信号として観測できないことから、低温での信号減衰は、液体水の

凍結に相当する。微小な空隙に存在する水分子の融点は、空隙サイズに反比例して低下することから、融点を観測することで水分子の存在する空隙を推定することができる。これまでの研究より、Na型モンモリロナイト層間のサイズに基づいて、層間水と層間外水を識別する凝固点として260.65Kの閾値を設定し(Salles et al., 2008)、実測したデータの内挿により260.65Kでの層間外水に相当する信号減衰を求め、層間水と層間外水の割合を求めている。なお0.1及び1.0M CaCl₂水溶液では、凝固点効果のため、層間水と層間外水を識別する閾値が異なるため、イオン交換水で飽和させた試料のみ層間外水の割合を求めた。平成26年度に報告したNa型モンモリロナイトの結果(日本原子力研究開発機構, 2015a)と比較すると、今回測定したCa型の方が層間外水の割合が高く、上に記載したXRD測定より得られたNa型とCa型の層間膨潤特性の差異と整合的な結果となった。

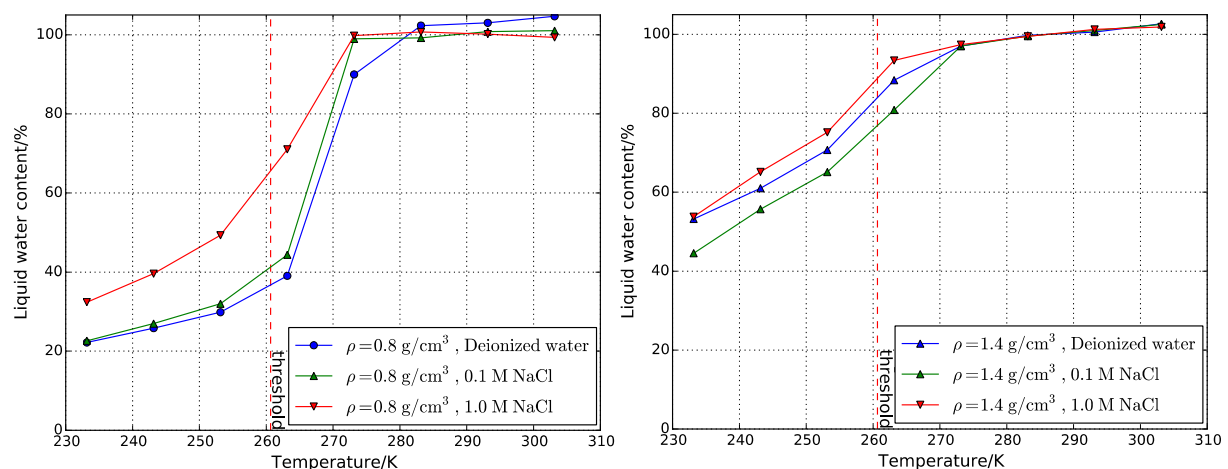


図2.3.2-9 塩濃度の異なる溶液で飽和させた密度0.8及び1.4g/cm³のCa型モンモリロナイト試料のNMR信号強度の温度依存性

上記の緩和時間分布及びNMR信号強度の温度依存性に基づく、間隙水分布(層間水及び層間外水)の定量評価結果を表2.3.2-2に示す。ここで、層間水としては1層と2層のみを仮定し、定量のために用いた緩和時間の閾値(1層:0.0012s以下、2層:0.0012から0.0023s)はNa型モンモリロナイトと同じ値(Ohkubo et al., 2016)を用いた。NMR信号強度の温度依存性から求めた結果と縦緩和時間分布から計算した層間外水の割合を計算すると、密度0.8と1.4g/cm³の試料それぞれで、20%程度の違いが生じた。この理由は、水和状態を区別するためにNa型モンモリロナイトで導出した閾値を用いたことが考えられる。Na⁺とCa²⁺の水和ギブスエネルギーは、-420と-1,592kJ/molである。このようにNa⁺と比較してCa²⁺に配位した水分子はより安定化する傾向があることから、水分子の運動性が低下するためNa型で定義した閾値がより短い緩和時間にシフトすると考えられる。今後、水中にCa型モンモリロナイトを分散させた粘土ゲルの緩和時間を固液比パラメータとして測定し、1層および2層を正確に識別する閾値を決定する必要がある。また、層間水として、1層と2層のみを仮定したが、上記の図2.3.2-6の観察結果も含め、Ca型でも3層状態の存在を報告した事例は複数あり、3層を考慮した評価も今後の検討課題である。

表2.3.2-2 塩濃度の異なる溶液で飽和させた圧縮Ca型モンモリロナイト中の間隙水分布の評価
結果：縦緩和時間分布及びNMR信号強度の温度依存性からの評価の比較

乾燥密度 (g/cm ³)	溶液塩濃度	縦緩和時間分布より			NMR信号温度依存より
		1層	2層	層間外水	層間外水
0.8	water	0.5	54.4	45.1	65.9
	0.1M NaCl	3.8	61.4	34.9	
	1.0M NaCl	7.9	56.0	36.1	
1.4	water	66.8	33.2	0.0	19.6
	0.1M NaCl	69.1	30.9	0.0	
	1.0M NaCl	94.0	6.0	0.0	

3) NMR法による粘土鉱物へのCsの吸着機構の解明

粘土鉱物へのCsの吸着メカニズムの解明のため、平成26年度までにモンモリロナイトを含む多様な粘土鉱物へCsを吸着させた試料の¹³³Cs NMR分析と構造解析を実施してきた。平成27年度は、ベントナイトの主成分であるモンモリロナイトに着目して、Cs吸着量の異なるモンモリロナイトを調整し、¹³³Cs NMRによる構造解析を行った。平成28年度は、組成式やCs吸着量の異なるモンモリロナイトを調整して¹³³Cs NMRによる構造解析を行うとともに、第一原理計算とGIPAW(Gauge-including projector augmented wave)法(Pickard and Mauri, 2001)により、¹³³Cs NMRパラメータの理論計算を行ってCs吸着構造の同定を試みた。

i) ¹³³Cs 固体NMR分析

①実験方法

層間イオンをCs型に置換したモンモリロナイトは、山形県月布産のモンモリロナイトであるクニピアF、及びOrleans大学から提供された合成モンモリロナイトを用いて調製した。月布産のモンモリロナイトの組成は宮脇ほか(2010)に、合成モンモリロナイトの組成はForestier et al. (2010)に報告されている。合成モンモリロナイトは、天然モンモリロナイトと比較して陽イオン交換容量が小さく、四面体のAl置換が少ないことが特徴である。また、窒素吸着で求められた合成モンモリロナイトの外表面は、天然モンモリロナイトの1/10程度で、1層あたりの粒子径が小さい特徴を持っている。

層間イオンを完全にCsに置換したモンモリロナイトは、クニピアFを1.0M CsCl水溶液と接触させて調製した。また、Cs置換率の異なる試料は、0.03から0.3MまでCsCl溶液の濃度を变化させることで一部の層間イオンのみをCsに置換することで調製した。Cs置換率は、試料をフッ素樹脂容器内で塩酸と硝酸の混酸により完全に溶解し、原子吸光によりモンモリロナイトに含まれるCs濃度を決定して求めた。乾燥処理は、真空下150℃で少なくとも10時間行うことで完全に脱水した試料を得た。含水率の異なる試料を調製するため、グローブボックス内に飽和塩を設置して湿度制御した環境で、脱水したモンモリロナイトを静置して含水させた。

¹³³Cs固体NMR測定は、日本電子製ECA分光器を用いて800MHzの磁場下でMagic Angle Spinning(MAS)法により行った。機密性の高い4mmジルコニア製サンプル管を用いて16kHzのスピニング速度で行った。脱水試料の含水を防ぐために、脱水試料のサンプル管へのパッキングは、露点-80℃のグローブボックス内で行った。脱水試料の¹³³Cs 固体スペクトルは広幅化しており、リングングの

影響でスペクトルの歪みが生じる。そのため、測定はsingle pulse測定で行った。 ^{133}Cs は、スピン7/2の四極子核であり、MAS下で2次の四極子相互作用によるスペクトルの影響を考慮する必要がある。脱水試料のNutation実験を行ったところ、2次の四極子相互作用の影響を確認できないNutationカーブが得られた。これは、 ^{133}Cs の四極子モーメントが非常に小さい($-0.343 \times 10^{-30}\text{m}^2$)ためであり、2次の四極子相互作用は無視できる程度まで小さいと考えられる。よって、 ^{133}Cs スペクトルの解析は、2次の四極子相互作用の影響を考慮せずに行った。

②実験結果

乾燥状態から84.2%の相対湿度まで湿度環境を調製したCs置換率100%試料の ^{133}Cs MAS NMRスペクトルを図2.3.2-10(a)に示す。脱水状態から相対湿度6.4%になることで、ブロードなスペクトルが著しく先鋭化し、ピークの線形が変化している。相対湿度6.4%以上のスペクトルは、大きな変化を示さないが、低磁場27ppm付近のピークが、相対湿度が上昇するに従って徐々に減少し、高磁場側-23ppm付近のピーク強度が上昇している。これまでに検討したケミカルシフトの理論計算より、含水状態の高磁場側-23ppm付近のピークは、層間で水和構造を形成しているCsに帰属できる。27ppm付近のピークは、乾燥状態でもブロードな強度の高いピークとして観測されており、低い相対湿度では、乾燥状態の吸着サイトがそのまま残っていると考えられる。これまでに行ったケミカルシフトの理論計算により、27ppm付近のピークは、Alを含む四面体層の六員環中心に存在するCsに帰属される。このサイトに帰属されるピークは、より高磁場側のケミカルシフトを持つAlを含まない六員環中心に存在するCsサイトと比較して水和しにくいいため、低湿度環境でのピークとして観測されることが考えられる。相対湿度75.3%以上では、27ppm付近のピークはほとんど観測されない。これは、高い含水率になることで水和構造を形成し、四面体底面サイトから離れた位置へ移動するためと考えられる。

Cs置換率50%試料を異なる相対湿度環境で含水させて測定した ^{133}Cs MAS NMRスペクトルを図2.3.2-10(b)に示す。27ppm付近に観測されたピークは、低湿度環境では、100%試料と比較して相対的に強いピークになる。この結果は、脱水状態で50%置換試料に吸着したCsは、100%置換試料と比較して、水和しにくいことを示している。脱水状態で比較した場合、層間イオンがすべてCsのモンモリロナイトの層間距離は、Naのものと比較して大きい。層間イオンの一部を置換したモンモリロナイトの層間距離はこれまでに報告されていないが、少なくとも置換率100%のモンモリロナイトと比較して、狭くなっていることが予想される。Csの構造を同じ相対湿度で比較した場合、置換率50%の試料は、層間距離が狭くなることで、Csの水和が進行しにくくなると予想される。

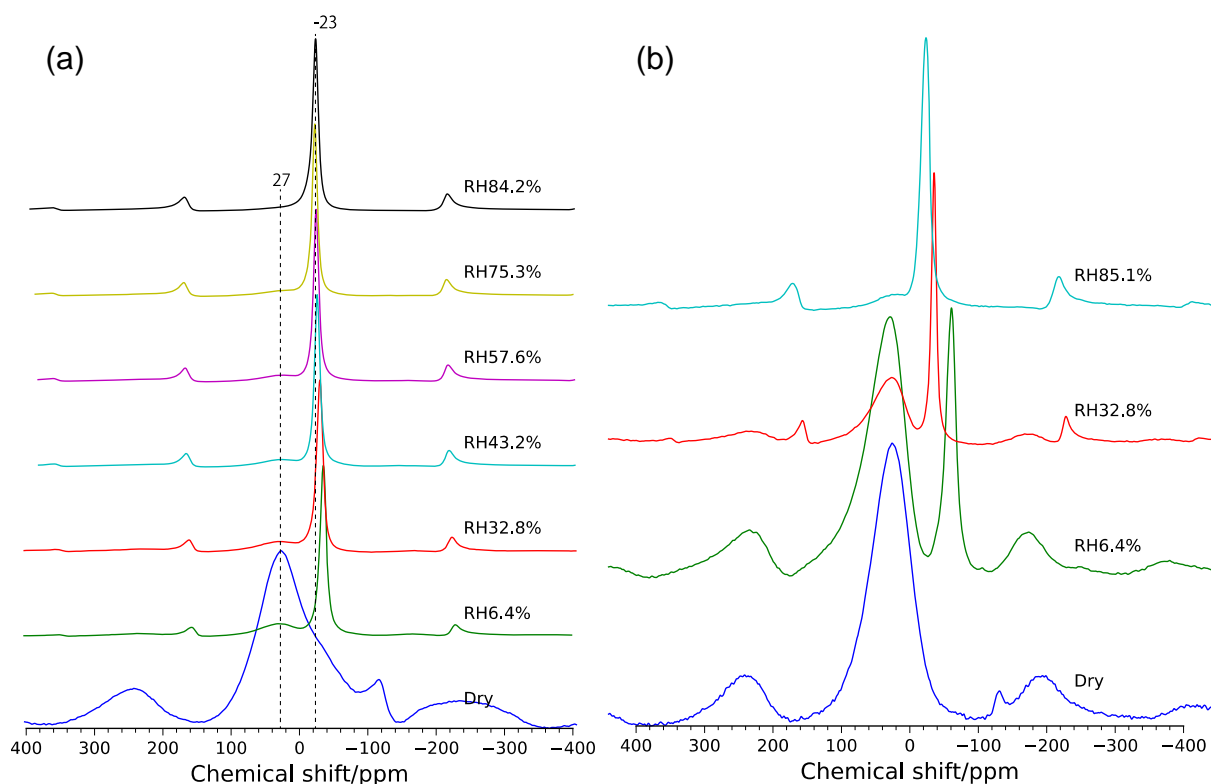


図2.3.2-10 Cs置換率の異なるモンモリロナイトの湿度制御下で測定した ^{133}Cs MAS NMRスペクトル：(a)Cs100%置換，(b)Cs50%置換

合成モンモリロナイトを脱水状態で測定した ^{133}Cs MAS NMRスペクトルを、天然モンモリロナイトの結果と併せて図2.3.2-11(a)に示す。天然のモンモリロナイトで観測された-120ppm付近のシャープなピークは、合成モンモリロナイトでも観測された。また低磁場側で観測された合成モンモリロナイトのブロードなピークは、天然モンモリロナイトと比較して50ppm付近のショルダーが小さい。合成モンモリロナイト四面体層のAl置換量は、合成モンモリロナイトと比較して少ないため相対的に50ppm付近のピークが減少していると考えられる。また高磁場側-100ppm付近のピークは、合成モンモリロナイトでも観測され、より高いピーク強度を示した。

Cs置換率100%の合成モンモリロナイトを異なる相対湿度環境で調製して測定した ^{133}Cs MAS NMRスペクトルを図2.3.2-11(b)に示す。天然試料と比較して、もっとも低い相対湿度6.4%で調製した試料では低磁場側のピークが観測されなかった。この原因として、合成モンモリロナイトは、天然のものと比較して外表面積が10倍程度大きく、1層あたりの層面積が小さいために水和の進行が速いことが考えられる。

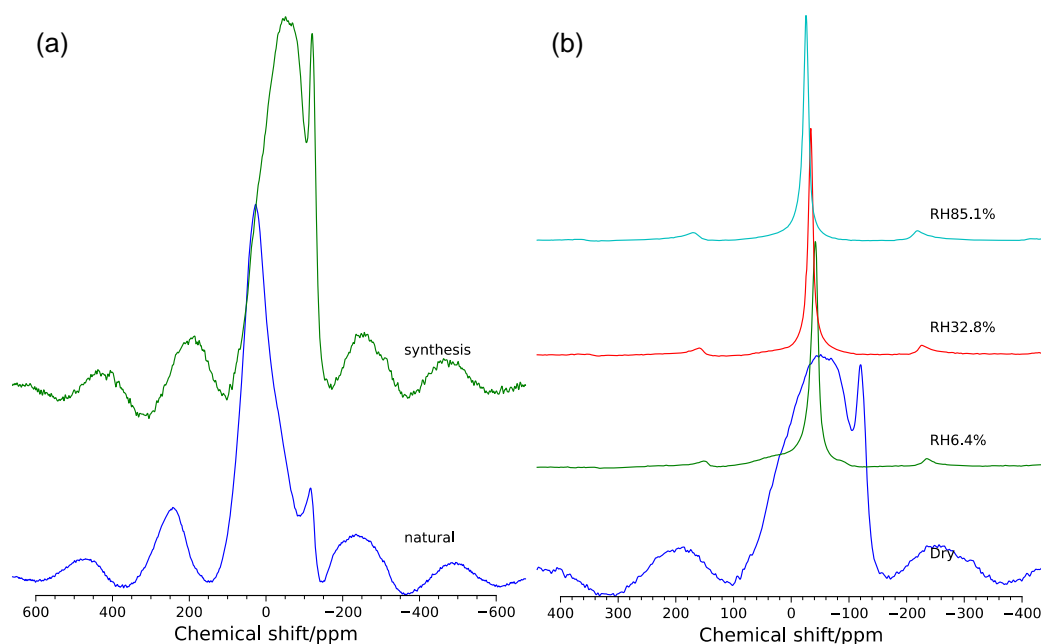


図2.3.2-11 脱水試料処理を行ったCs置換率100%の合成及び天然モンモリロナイトの ^{133}Cs MAS NMRスペクトル(a), 異なる相対湿度 (RH) 環境で調整した合成モンモリロナイトの ^{133}Cs MAS NMRスペクトル(b)

ii) 第一原理計算によるNMRパラメータの推定

第一原理計算には、平面波基底で波動関数を展開するquantum espresso 5.02 (Giannozzi et al., 2009) を、擬ポテンシャルとしてPAW法 (projector augmented wave) を採用するPSlibrary 0.3.1 (Dal Corso, 2014) を用いた。計算では、天然のモンモリロナイト組成 ($\text{Cs}_5(\text{Al}_{12}\text{Mg}_4)(\text{Si}_{31}\text{Al}_1)\text{O}_{80}(\text{OH})_{16}$) に基づいて165原子で構成される積層構造の異なる初期構造を作成した。NMRパラメータの計算は、Quantum espressoのGIPAWモジュールを用いて行った。理論計算に基づくケミカルシフト値 σ_{gipaw} は、ケミカルシフト値が報告されている結晶材料に対して求めた式を適用することによって導出し、実測したケミカルシフト値 σ と比較した。

図2.3.2-11で観測された脱水状態で-120ppm付近に観測されたピークの帰属は、平成27年度までに行った計算モデルで説明できないことから (日本原子力研究開発機構, 2016a)、ここでは積層構造をパラメータとした構造モデルを作製しNMRパラメータの理論計算を行った。-120ppm付近のピークは、極めて線幅が狭いことから対称性の高い配位構造で存在するCsと考え、3つの積層構造を対象としてNMRパラメータの理論計算を行った。3つの構造モデルはすべてc軸方向に2つ層がスタックした構造で四面体層の六員環の重なり方が異なるものである。ここでは、monoclinic stacking (単斜晶) 及びparallel stacking (直方晶系で四面体層の六員環が平行にスタックした層間をもつ) の2つのモデルを例示する (図2.3.2-12)。なお、もう一つのモデルとして、alternated stacking (六員環が中心にずれて交互にスタックした構造の層間をもつ) を検討した。このような初期構造から格子定数および原子位置の最適化計算を行い、安定構造とエネルギーを求めた。3つの構造のエネルギーは、いずれも0.2Ryエネルギー程度の差で積層構造による安定性の相違は小さいといえる。monoclinic stackingの構造最適化によって得られた格子パラメータは、報告されている単斜晶の格子パラメータをよく再現したが格子定数cの値はやや小さくなった。この違いの

正確な理由は不明であるが、実際のモンモリロナイト層と比較して原子数が少ないために層構造の不均一性や乱れ由来層のゆがみを再現できていない可能性が考えられる。

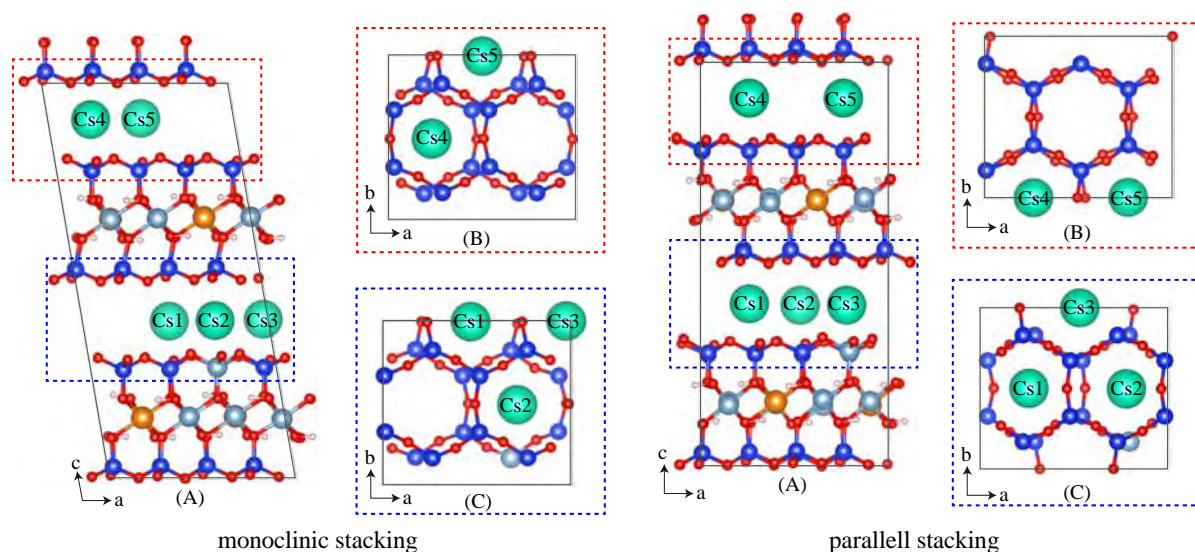


図2.3.2-12 モンモリロナイトの積層状態の異なるモデル構造での構造最適化結果

構造最適化から得られた積層構造の異なる3つのモデルのGIPAW計算から得られたケミカルシフト値を表2.3.2-3に示す。Cs収着サイトの特徴を示すために、四面体層のA1との距離、近接する6つの酸素原子との平均距離、再近接の酸素原子との距離およびc軸方向の分率座標を示す。四面体層のA1とCsの距離が短いほど、低磁場シフトする傾向を確認できた。積層構造の違いによるケミカルシフトへの影響として、parallel積層構造では、monoclinic積層構造と比較して高磁場側にシフトする傾向が確認された。また、隣接する層にA1置換のないCs4とCs5に着目すると、単斜晶による積層と比較してparallel積層構造では、-50ppm付近まで高磁場シフトすることが確認された。parallel積層では、c軸方向上下の六員環に挟まれていることからCsのc軸方向の分率座標はほぼ等しく、ケミカルシフト値の変化は小さい。今回検討した積層構造の異なるモデル (alternated stackingを含む3つのモデル) では、実測した高磁場側ピークのケミカルシフト値 (-120ppm) を再現することができなかった。X線で観測されるように、(001)面の回折ピークは、極めてブロードで層間距離に広いらつきをもっていると考えられる。そのため、今回GIPAW計算を行った最適化構造の層間距離と、NMR測定に供した試料中のモンモリロナイト層間距離が異なっている可能性がある。今後、積層構造および層間距離をパラメータとしたケミカルシフトの理論計算を行い、実験的に観測された高磁場側-120ppm付近のシャープなピークの帰属を明確にする必要がある。

表2.3.2-3 GIPAW計算より得られた積層構造の異なるCs型モンモリロナイトのNMRパラメータ

Cs位置	ケミカルシフト ppm	Cs-Al距離 Å	平均Cs-O距離 Å	最近接Cs-O距離 Å	c軸方向分極座標
Monoclinic stacking					
Cs1	8.08	3.99	3.20	3.01	0.39882
Cs2	5.23	3.90	3.20	3.00	0.40058
Cs3	12.03	3.98	3.21	3.09	0.40374
Cs4	-35.43	9.34	3.23	3.12	0.90801
Cs5	-14.97	8.32	3.20	3.16	0.91087
Parallel stacking					
Cs1	-41.60	6.25	3.24	2.99	0.40268
Cs2	4.55	4.01	3.19	3.02	0.39904
Cs3	-0.02	3.86	3.17	3.01	0.3992
Cs4	-50.65	9.79	3.23	3.12	0.91091
Cs5	-49.37	8.50	3.22	3.14	0.91113

4) ATR-FTIR法及びXAFSによる鉱物へのSeの吸着メカニズム解明

i) ATR-FTIR法による鉱物へのSeの吸着メカニズム解明

①背景と目的

オキソ酸陰イオンの吸着構造同定のためのFT-IR測定では、ATR結晶上に吸着対象の固相の薄膜を作製し、薄膜を、オキソ酸陰イオンを含む溶液と接触させ、固相への吸着により発生するイオンの対称構造の変化に伴う赤外吸収スペクトルの変化を観測する方法(ATR FT-IR)が行われている。ATR FT-IR測定では、フロースルーユニットと組み合わせることにより、pH等の液性を変化させながら溶液を流し、それに伴うスペクトルの変化をin situで測定を行うことが可能である(Lefevre, 2004)。金属酸化物を用いたATR FT-IR測定には多くの例があり、硫酸イオンではヘマタイト(Hug, 1997)やゲータイト(Peak et al., 1999)、マグヘマイト(Roonasi and Holmgren, 2009)等を用いた試験が挙げられる。平成27年度は、ATR FT-IR測定により、フェリハイドライトに吸着したSe(IV)の赤外吸収スペクトルを取得し、吸着形態の評価を行った(日本原子力研究開発機構, 2016a)。これに対し、モンモリロナイトのような粘土鉱物に対する陰イオンの吸着構造の解析については、ATR FT-IR測定により行われた例はほとんど報告されていない。リン酸イオンについては、Fe(III)で層間イオンを置換したモンモリロナイトを用いたATR FT-IR測定の例があるものの(Borgnino et al., 2010)、得られた赤外吸収ピークは、フェリハイドライト(Arai and Sparks, 2001)やゲータイト(Luengo et al., 2006)で得られた結果と比較すると、非常に微弱であったことが報告されている。この結果は、リン酸イオンの吸着量の違いや、モンモリロナイト自体の赤外線吸収に起因すると考えられる。したがって、モンモリロナイトに吸着した陰イオンのATR FT-IR測定には、微弱なピーク強度を改善するための処理が必要であると考えられる。

図2.3.2-13にSe(IV)のモンモリロナイトに対する収着分配係数のpH依存性を示す。Se(IV)のモンモリロナイトへの収着はpH依存性を示し、酸性に近づくに従って収着量が増加する。本年度は、フェリハイドライトを用いた昨年度のATR FT-IR測定手法を参考として、モンモリロナイトへのSe(IV)の収着量が大きくなる酸性条件で試験を行い、モンモリロナイトへ吸着したSe(IV)の赤外吸収スペクトルの取得手法の検討を行った。

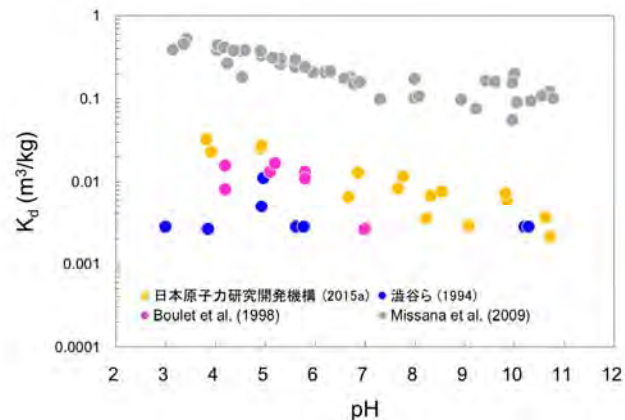


図2.3.2-13 Se(IV)のモンモリロナイトに対する吸着分配係数のpH依存性。

②材料と方法

Se(IV)の赤外吸収スペクトルのピークの出現領域($< 900\text{cm}^{-1}$)は、同じ領域に存在する H_2O の吸収ピークの影響を受ける。また、 CO_2 も 668 及び 680cm^{-1} に吸収ピークを持つため、吸着したSe(IV)のスペクトルの観測の際に影響を与える可能性がある。そのため、粘土鉱物に吸着したSe(IV)の微弱なピークを検出するためには、 H_2O 及び CO_2 の影響を排除する必要がある。本試験では、溶液の調製にはすべて H_2O の代替として D_2O を使用した。ATR FT-IR測定は、空気中の H_2O 及び CO_2 の混入を防ぐため、専用のグローブボックス(IsolatIR, S. T. Japan)を設置し、乾燥 N_2 ガスによるパージを行った状態で実施した。測定は、MCT検出器を備えたFT-IR (Nicolet 6700, Thermo Scientific)及びダイヤモンド結晶・9回反射型のフローセル型ATRユニット(DuraSamplIR, S. T. Japan)を用いて行った。

ATR FT-IR測定は、ATR結晶上の数 μm に滲み出した赤外線により吸着反応を検出する。また、Se(IV)は、モンモリロナイトの端面サイトと錯体を形成することで吸着すると考えられている。このことから、Na型モンモリロナイトを用いて薄膜を作製した場合、溶液と接触するとモンモリロナイトが膨潤し、赤外線が滲み出す領域に存在するモンモリロナイト端面の密度が低下して、端面に吸着したSe(IV)を十分に検出できない可能性がある。また、前述のとおり、モンモリロナイトは、金属酸化物に対して単位重量あたりの陰イオン吸着量が少ないため、ATR結晶上にモンモリロナイト粒子を多く堆積させて吸着量を増やす必要がある。そのため、比表面積が大きく単位体積あたりの吸着量が大きい、粒径の小さな粒子で薄膜を作製する必要がある。

これらを踏まえ、本試験では、膨潤性に乏しいCs型に調製したモンモリロナイトを用い、Cs型モンモリロナイトを 0.01M CsCl溶液に懸濁させた後、静置して固相を沈殿させ、沈殿固相上部の粒径の小さな分画を採取して薄膜作製に使用した。薄膜の作製は、沈殿固相上部をマイクロピペットにより採取し、ATR結晶上に滴下して乾燥させることにより行った。測定では、pH4に調整した 1mM の Na_2SeO_3 溶液を通水させて、赤外吸収スペクトルを取得した。

③結果と考察

試験の結果、 Na_2SeO_3 を含んだ溶液がセルに到達してから60分後においても赤外吸収ピークは確認されなかった。また、膜作製に用いるCs型モンモリロナイト懸濁液の濃度やATR結晶への滴下回

数等の膜の作製条件を変更して測定を実施したが、同様に赤外吸収ピークは確認されなかった。吸着量を増加させるため、溶液中の Na_2SeO_3 濃度を1mMより高くした場合、溶液中のSe(IV)の吸収ピークが現れ、吸着したSe(IV)との区別が難しくなるとともに、溶液中の Na^+ の増加にともなって膜が不安定になり、ATR結晶から徐々にはがれていくことが確認された。このため、本年度検討した手法によるATR FT-IR測定により、モンモリロナイトへ吸着したSe(IV)の赤外吸収スペクトルを取得することは難しいことがわかった。

今後、遠心分離等により粒径の大きな粒子を沈降させ、より粒径の小さなモンモリロナイトを採取してATR結晶上に薄膜を作製する手法や、吸着量が大きくなるより低いpHでの測定などを試行すると同時に、地層処分環境において対象とするpH領域や、低濃度のSe(IV)についての測定など、安全評価への適用性についても考慮しながらATR FT-IR法の適用可能性について評価することが必要である。

ii) XAFS測定による鉱物へのSeの吸着メカニズム解明

①背景と目的

i)で示したFT-IR測定とともに、XAFS測定もまた、固相への陰イオンの吸着構造の解明に有効な分析手法である。ATR FT-IR測定では、吸着に伴う陰イオンの対称構造の変化から結合構造を予測するため、配位構造に関する情報は得られるが、近接原子に関する情報は得られない。これに対し、XAFS測定では、XANES領域から着目原子の化学状態に関する情報(価数)、EXAFS領域から立体構造に関する情報(近接原子の種類、近接原子までの距離、配位数)を得ることが可能である。XAFS測定的手法として、透過法及び蛍光法が挙げられる。透過法は、試料のX線の吸光度を測定し、1wt%以上の元素濃度を必要とする。一方、蛍光法は、試料中の元素がX線を吸収して励起し、放出する蛍光X線の強度を測定する方法で、対象元素濃度が0.01wt%程度でも測定可能である。しかしながら、ATR FT-IR測定と比較すると検出限界濃度が高く、固相中の元素濃度を高く調製する必要がある。これらのことから、ATR FT-IR測定とXAFS測定の結果を総合的に判断することで、より正確な吸着機構の理解につながると考えられる。

本年度は、大型放射光施設SPring-8においてXAFS測定を行い、モンモリロナイトに対するSe吸着構造の分析と手法の適用可能性を検討した。測定では、Seを吸着させた固相を調製する際に溶液中Se濃度を高く保つことができるSe(IV)に対しては透過法、溶解度の低いSe(-II)に対しては蛍光法を用いた。

②材料と方法

Se(IV)試料の調製は、大気下において行った。30mM Na_2SeO_3 を調製してストック溶液とした。試料調製条件を表2.3.2-4に示す。目標とする固相中Se(IV)濃度(1または5wt%)を得るために必要なSe(IV)初期濃度は、既往の報告の K_d 値(Montavon et al., 2009)から算出した。固相は、遠心分離により液相を除去し、乾燥・粉末化した後、ペレット状に成型して測定用試料とした。測定は、SPring-8のビームラインBL11XUにおいて透過法により行い、Se *K*-edgeスペクトルを取得した。

表2. 3. 2-4 Se(IV)固相収着試料の調製条件

Sample	pH	Ionic strength	Solid-liquid ratio (g/L)	Initial Se (mM)	Reaction time (d)
1wt% A	4	0.1 M NaCl	1	3	1
5wt% A	4	0.1 M NaCl	1	15	1
1wt% B	4	0.01 M NaCl	4	3	1
5wt% B	4	0.01 M NaCl	4	15	1
1wt% C	4	0.01 M NaCl	10	3	1
5wt% C	4	0.01 M NaCl	10	15	1

Se(-II)試料の調製は、雰囲気制御グローブボックス内において行った。脱気水を用いて10mM Na₂Seを調製し、ヒドラジンを0.1Mとなるように添加した。1ヶ月以上静置した後、試験開始直前に孔径0.45μmのメンブレンフィルターでろ過して沈殿物を除去したものをストック溶液とした。ICP-MSによる測定から、ストック溶液中のSe濃度は3.7mMであった。試料調製条件を表2. 3. 2-5に示す。反応溶液中のヒドラジン濃度は、0.01Mとした。目標とする固相中Se(-II)濃度(0.01、0.5、または0.1wt%)を得るために必要なSe(-II)初期濃度は、既往の報告のK_d値(日本原子力研究開発機構, 2016a)から算出した。固相は、遠心分離により液相を除去し、ペースト状となったものを酸素低透過性フィルムに入れて密封した。これを、脱酸素剤とともに酸素低透過性フィルムに入れて密封して測定用試料とした。測定は、SPring-8のビームラインBL14B1において蛍光法により行い、Se K-edgeスペクトルを取得した。測定は大気下において行った。

表2. 3. 2-5 Se(-II)固相収着試料の調製条件

Sample	pH	Ionic strength	Solid-liquid ratio (g/L)	Initial Se (μM)	Reaction time (d)
0.1wt%	10	0.5 M NaCl	1	37	7
0.5wt%	10	0.5 M NaCl	1	18.5	7
0.01wt% A	10	0.5 M NaCl	1	3.7	7
0.01wt% B	12	0.5 M NaCl	1	18.5	7
0.01wt% C	8	0.5 M NaCl	1	3.7	7

③結果と考察

図2. 3. 2-14(a)にSe(IV)を収着させたモンモリロナイトのXANESスペクトルを示す。固相中Se濃度や試験溶液のNaCl濃度によらず、Se(IV)を収着させた試料については、すべての試料のXANESスペクトルのピーク位置はIV価のSeと一致し、固相に収着したSeがIV価として存在することが確認された。図2. 3. 2-14(b)にEXAFSスペクトルから得られた動径分布関数を示す。EXAFSスペクトルからは、すべての試料において、Se-O結合に対応するピークが確認された。Peak et al. (2006)は、モンモリロナイトへのSe(IV)の吸着を蛍光法により解析しており、pH4.5において、Se-O結合に加えてSe-Al結合の存在を見出し、二つのアルミノール基と二座内圏錯体を形成していると考察している。しかしながら、本試験で得られたEXAFSスペクトルからはSe-Al結合は確認されなかった。Charlet et al. (2007)もまた、蛍光法により合成モンモリロナイトへのSe(IV)の吸着を解析しているが、pH6.0ではSe-O結合しか確認されず、Se(IV)はモンモリロナイト端面に収着するものの、その形態は外圏錯体であると述べている。試料1wt% Aでは、XANESスペクトルにおいて、Se(IV)に加えてSe(0)のピークが見られ、動径分布関数において、Se-Se結合に対応するピークが確認さ

れた。測定終了後、X線が照射された部分に変色しており、X線測定中にIV価から0価への還元が生じた可能性がある。以上より、透過法によるSe(IV)のモンモリロナイトへの吸着形態の観測の可能性が見出されたが、今後、試料調製条件・測定条件についてより詳細に検討を行い、測定の精度を向上させる必要がある。

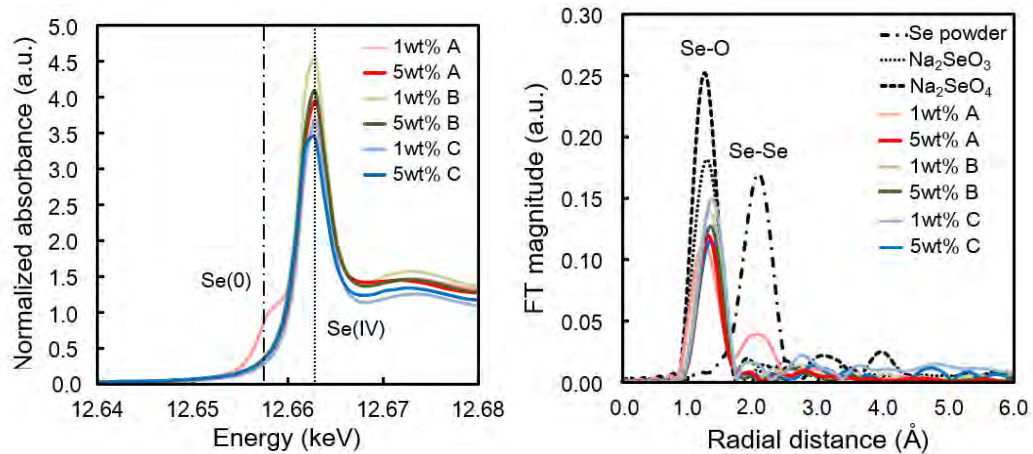


図2. 3. 2-14 Se(IV)と反応させたモンモリロナイトのSe *K*-edge XANESスペクトル(a)、及びEXAFSスペクトルから得られた動径分布関数(b)。(透過法, pH4.5)

図2. 3. 2-15 にSe(-II)を収着させたモンモリロナイトのXANESスペクトルを示す。Se(-II)については、すべての試料のXANESスペクトルのピーク位置がSe(0)のピーク位置と一致し、-II価に相当するピークは見出せなかった。そのため、本試験においては、収着試験期間中にSe(-II)が酸化されてSe(0)となり沈殿したものと考えられる。しかしながら、試料に同封した酸素インジケータの色は変化しておらず、試料への酸素の混入は最小限に抑えられているものと考えられた。加えて、UV-Vis測定により、固相を加えていない試料では試験期間中安定にSe(-II)が存在していたことがわかっており、モンモリロナイトとの接触によりSe(0)が生成した可能性があるため、今後、この現象について検討を行う必要があると考えられる。また、Se(-II)についても、EXAFSスペクトル動径分布関数の解析を試みたが、EXAFS領域のノイズが多く、結合に関する情報は得られなかった。

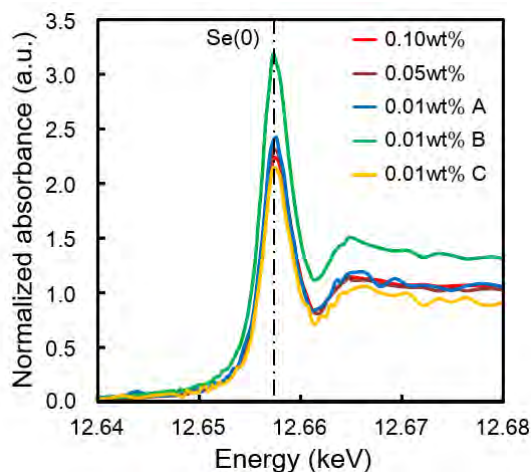


図2. 3. 2-15 Se(-II)と反応させたモンモリロナイトのSe *K*-edge XANESスペクトル。(蛍光法, $I = 0.5M NaCl$)

④まとめ

Se(IV)及びSe(-II)をモンモリロナイトに収着させ、XAFS測定を行った。Se(IV)については、透過法においてモンモリロナイトに収着したSe(IV)のXAFSスペクトルを取得し、透過法の適用の見通しを得た。今後、pH等の液性条件を変更して試験を行い、既往の報告と比較・検討を行うことが必要である。Se(-II)については、蛍光法により測定を行い、Se(0)の生成が確認された。Se(0)の生成要因については今後検討が必要であるが、試料を脱酸素剤とともに密封することで、雰囲気制御グローブボックス外において、低酸素雰囲気を維持した状態で測定が可能な試験手法を確立した。

2.3.3 圧縮ベントナイト中の核種移行に関する精緻化モデルの開発

(1) 圧縮ベントナイト中の統合収着・拡散モデル/データベース開発の現状と課題

圧縮ベントナイト中の収着・拡散現象については、これまでに受託事業「処分システム化学影響評価高度化開発」（日本原子力研究開発機構，2013c）において、信頼性の高いデータ取得及び分析的手法によるメカニズムの理解に基づいて、現象論的モデル/データベースの開発を進めてきた。統合収着拡散(ISD)モデル/データベースは、図2.3.3-1に示すように、核種の熱力学データや粘土鉱物の特性等をベースに、圧縮ベントナイト中における地下水組成等の間隙水化学、収着分配係数や拡散係数を、整合性のある考え方のもとにモデル化するアプローチである。

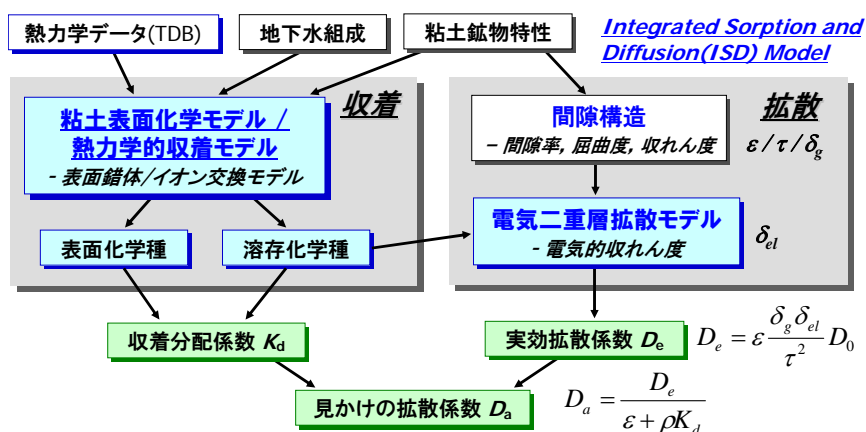


図2.3.3-1 統合収着・拡散モデル (ISDモデル) の基本概念

この統合モデル開発において、圧縮ベントナイトの表面化学/間隙水化学と核種収着を整合的に記述するため、双方で比較的単純なモデルとパラメータを共通して用いることとし、1サイトの静電補正を考慮しない表面錯体モデルと1サイトのイオン交換モデルを組合せた収着モデルを選定した(Tachi et al., 2014a)。一方、拡散モデルの基本概念は、均質な間隙構造を仮定した平行平板中での静電的相互作用を電気二重層モデルで表現するものである。この拡散モデルによって、陽イオン、陰イオン、中性化学種の実効拡散係数 (D_e) の間隙水塩濃度依存性を良好に再現可能であった。一方、多価陽イオン/陰イオン、アクチニド等の錯体化学種を形成しやすい核種や、同一核種でも複数化学種として存在する系等、より複雑な条件に対してはモデルの適用性が十分ではなく、モデルの高度化/改良の必要性が認識された(日本原子力研究開発機構, 2013c; Tachi and Yotsuji, 2014; Tachi et al., 2014b)。

このようなISD拡散モデルの課題を改善するためのモデル高度化に向けたアプローチとして、①均質間隙系での溶質/溶媒/鉱物固相の分子論的構造の考慮、②間隙の不均質構造/多重間隙の考慮、の2つの方向性でモデル改良を検討している。特に前者については、上記の「処分システム化学影響評価高度化開発」（日本原子力研究開発機構，2013c）において検討した。その結果、鉱物間隙中の分子論的な詳細情報は、モデルによる解析の結果に本質的な影響を与えず、鉱物表面とイオンとの静電的相互作用が、拡散係数等のマクロな核種移行パラメータに大きく影響を及ぼすことが確認された。不均質構造/多重間隙構造のISDモデルへの適用性についても、本受託事業において検討を進めており（日本原子力研究開発機構，2014a, 2015a, 2016a）、これまでの検討の結果、NMR測定により得られたベントナイト層間/粒子間間隙の体積分率を重みとして考慮した拡散係数の平均化手法を構築しつつある。このモデル化により、特に陰イオンに対する電解質濃度依存性のモデル評価が改善される結果が得られている（日本原子力研究開発機構，2016a）。

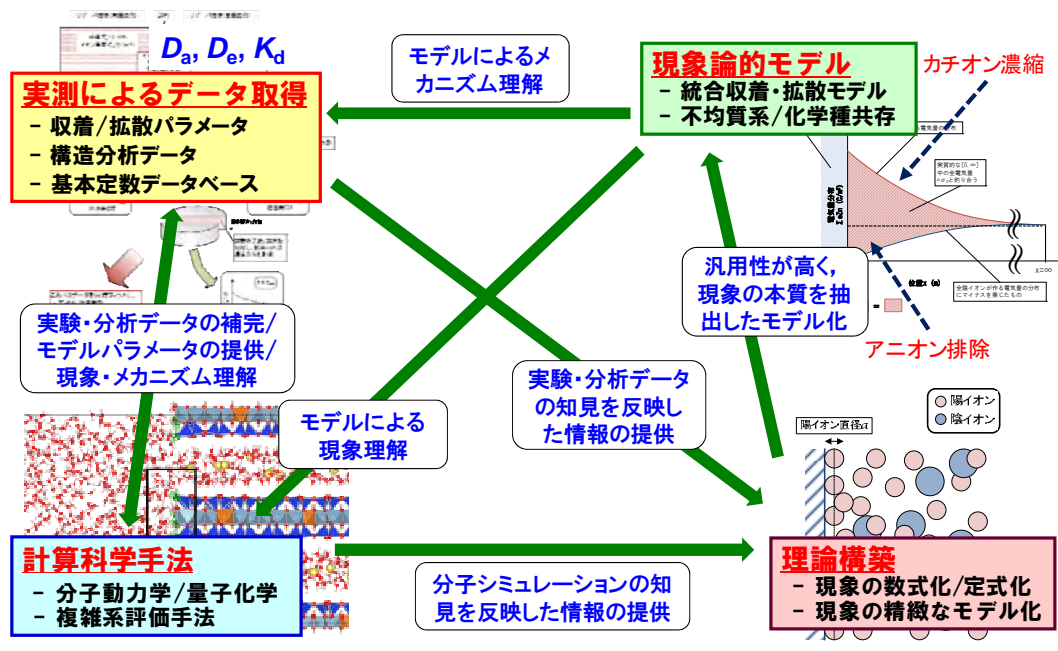


図2.3.3-2 実測データ取得・整備/計算科学手法/モデル開発の位置づけ

このようなISDモデルの高度化開発の現状と課題を踏まえ、2.3.2(1)で検討している様々な条件下での核種移行に関する信頼性の高いデータ取得、2.3.2(2)に示した先端的な分析により得られる知見等も活用して、より精緻なモデル開発を引き続き進めることとした（図2.3.3-2）。特に多様な化学種への適用に向けたモデル高度化では、2価陽イオンの影響、特にCa型化したベントナイト中の核種移行への影響評価、 Sr^{2+} 移行パラメータのモデル評価などを目的として、ISDモデルによる評価と実測データとの比較検討を実施した（2.3.3(2)節）。また、Poisson-Boltzmann (P-B) 方程式の解析に基づいた平均場理論による評価に対し、この理論に基づく拡散モデルの妥当性の検証とモデルの精緻化を含め、古典/第一原理分子動力学 (Molecular Dynamics, MD) シミュレーションや量子化学計算等の計算科学的手法を用いた解析を引き続き進める（2.3.3(3)節）。さらに、最先端の分析データやMD計算などの分子モデルに基づくナノスケールの情報から、メソスケールおよびマクロスケールの物性値（マクロ拡散係数等）を評価するアップスケーリング手法

の確立を目指し、種々の検討を進めた(2.3.3(4)節)。また、モデル開発の最終的な目標が、信頼性の高い性能評価基盤の構築であることから、性能評価パラメータとその不確実性をISDモデルにより定量的に評価する手法についても調査を進めた(2.3.3(5)節)。

(2) 多様な条件へのISD拡散モデルの適用評価

地層処分施設の人工バリアシステムにおいては、セメント系材料や鉄製オーバーパックの共存に伴い、ベントナイト緩衝材中のモンモリロナイトがCa型化やFe型化することなどによる、緩衝材のバリア機能の低下の可能性が指摘されている(核燃料サイクル開発機構, 1999c)。これまでISDモデルによる解析では、おもにベントナイト密度依存性や塩濃度依存性に関する影響評価を実施してきており、モンモリロナイトの層間陽イオンとしてNa⁺のみを考慮していた。また、液性については1:1型のNaClが支配的な溶液を想定しており、電解質の種類による評価・比較が十分ではなかった。そのため平成27年度は、層間陽イオンが2価陽イオンであるCa型化することを想定して、ISD拡散モデルの2:1型電解質溶液への適用評価を実施したが、その際、ISDモデルの計算で用いる拡散媒体の幾何学的因子にCa型化の影響が考慮されていなかったこと、さらにモデル評価値と比較できる実測データが取得できていなかったこと等のため、不完全な評価であった。そこで平成28年度は、上記問題点を是正し、改めてCa型化の影響評価を実施した。

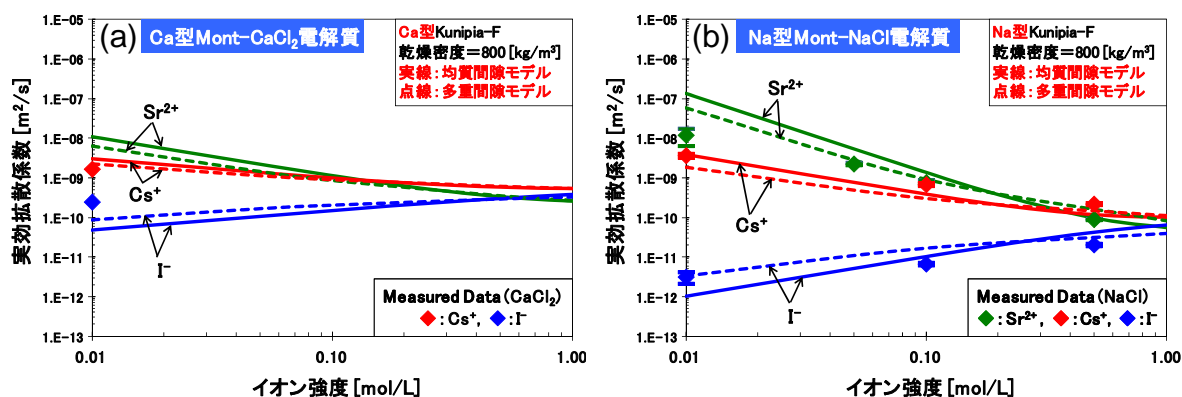


図2.3.3-3 異なるイオン型の電解質系における実効拡散係数の解析例：

(a)Ca型モデル、(b)Na型モデル。実線は均質間隙モデル、点線は多重間隙モデル

モデル計算では、最もシンプルなPoisson-Boltzmann方程式に基づくISDモデルを適用した。また計算対象は、Ca型化した乾燥密度800kg/m³のクニピアF(モンモリロナイト含有率99%、真密度 $\rho_s = 2880\text{kg/m}^3$)に、CaCl₂電解質溶液が接した系とした。ベントナイトの陽イオン交換容量は $1.042 \times 10^5\text{C/kg}$ 、モンモリロナイト比表面積は $8.1 \times 10^5\text{m}^2/\text{kg}$ 、また水の電気粘性係数は $1.02 \times 10^{-15}\text{V}^2/\text{m}^2$ を用いた。なお、幾何学因子の計算には、トリチウム水(HTO)の実効拡散係数の実測データに基づき、電粘性を考慮して評価した。図2.3.3-3(a)に、Ca型に処理したクニピアF-CaCl₂電解質系における実効拡散係数のイオン強度依存性のモデル計算結果を示した。比較のため、Na型クニピアF-NaCl電解質系の計算結果を図2.3.3-3(b)に示した。図中にプロットした実測データは、Ca型は本報告書2.3.2(1)で得られた透過拡散データ、Na型はTachi and Yotsuji (2012, 2014)から引用した。さらに図中には、従来のISD均質間隙モデルとともに、モンモリロナイト層

間隙と粒子間隙を考慮した多重間隙モデルの評価結果を合わせて示した。モンモリロナイト間隙構造の体積分率に関する情報は、本報告書2.3.2(2)で得られたNMR信号強度の分析結果を用いた。Ca型については、取得済みの実測データが十分ではないため、イオン強度依存性の確認ができていないものの、取得されている実測値に対しては、Na型・Ca型ともモデルによる再現性は非常に良い。Na型とCa型を比較すると、鉱物層電荷の対イオンが2価であるCa型は電気二重層の影響がNa型に比べて小さくなるため、イオン強度の依存性も低くなる。得られている実測データはこの理論的考察と整合的であり、このことは電気二重層理論に基づいたISDモデルの正当性を裏付けるものであると考えられる。また多重間隙モデルの解析結果では、均質間隙モデルの結果と比較して、Na型・Ca型ともにイオン強度の依存性が低くなる傾向が現れている。これは、媒体中の間隙総量が同じでも、多重間隙モデルでは間隙幅が広い粒子間隙の存在を考慮し、かつ粒子間隙の存在割合が高いため電気二重層の影響が弱められることに起因している。その結果、粒子間隙が主要な拡散経路となっていると思われる陰イオン種では、モデルによる再現性が改善されている。ただし、モンモリロナイト層間隙と粒子間隙の体積分率は、Na型に対してはOhkubo et al. (2016)のNMR分析データを用いた(表2.3.3-1)。一方Ca型については、本報告書2.3.2(2)で報告されたように現状のNMRの縦緩和時間分布によるデータ解析が十分ではないため、定温下でのNMR信号強度の分析により得られた粒子間隙体積分率を採用し、さらに現状ではイオン強度に依存しないものと仮定した。層間隙についても、2層水和状態が支配的であると仮定し、表2.3.3-1に示すように層間隙1種類と粒子間隙のみを考慮した二重間隙モデルで試算を行った。

上記解析の結果、Na型モンモリロナイトのCa型化は評価上大きな影響を及ぼすと考えられ、特に陰イオン種であるヨウ素の場合、イオン強度の条件によってはNa型に比べて実効拡散係数が一桁以上上昇する。ISDモデルによるこの解析結果は、実測データとも整合的である。

表2.3.3-1 モンモリロナイト層間/粒子間隙の体積分率

イオン強度 [mol/L]	Na型モンモリロナイト-NaCl電解質溶液 (Ohkubo et al., 2016)					Ca型モンモリロナイト-CaCl ₂ 電解質溶液	
	層間隙 [%]				粒子間隙 [%]	層間隙 [%]	粒子間隙 [%]
	1層層間	2層層間	3層層間	4層層間		2層層間	
0.01	0.614	0	5.37	38.6	55.4	34.1	65.9
0.1	0.541	0	7.48	40.5	51.5		
1	0.312	12.9	32.8	17.7	36.3		

次に、多価陽イオンに対する実効拡散係数のモデル評価の改善に向け、「イオン有効電荷」の検討について報告する。溶質の分子論的構造を考慮したモデル補正においては、特に多価陽イオンのモデル評価結果にイオン有効電荷が有意な影響を及ぼすことが示唆されている(日本原子力研究開発機構, 2013c)。本検討では、有効電荷の評価に際しては、それが溶質-溶媒間の相互作用に起因すると考え、古典電磁気学に基づくP-B方程式との一貫性から、イオンの水和自由エネルギーを古典電磁気学的にモデル化し、量子論的補正も含む非静電的効果を有効電荷で調整するアプローチをとる。

主要な単原子イオンに対して算出した有効電荷を表2.3.3-2に示す。ここで、各イオンの結晶半径はShannon (1976)の値を用いた。またイオンに対するvan der Waals半径については、量子力学的なスケールリング規則に従って評価されたStokes (1964)の値を使用する。ただし、陰イオン種に

対するStokes (1964)の手法の適用には検討が必要であるため、ここでは、中性原子に対するvan der Waals半径 (Pauling, 1939) を用いることとする。イオン*i*の水和Gibbs自由エネルギーの値については、化学便覧 (2004) から引用した水和エンタルピー及び水和エントロピーの実測データから算出した。イオンの表面電場は、各イオンを結晶半径の剛体球と仮定してその内部に形式電荷が存在するものとし、ガウスの法則を適用して算出した剛体球表面上での電場である。イオン表面上の比誘電率は、このようにして求めたイオン表面電場からBoothの誘電飽和式(Booth, 1951)を用いて算出した比誘電率である。さらに、溶媒の有効比誘電率は、バルクの比誘電率とイオン表面上の比誘電率から調和平均して算出した値である。

表2.3.3-2に示された有効電荷の値を見ると、1価陽イオンの有効電荷は形式電荷とほぼ等しいが、価数の高い陽イオンでは水分子との強い相互作用により、溶液中での実効的な電荷が小さくなったと考えることができる。また1価の陽イオンと陰イオンを比較すると、有効電荷の絶対値は一般に陰イオンの方が小さくなっている。これは、次のように解釈することができる。まず陽イオンが水和する場合、陽イオンと水分子の双極子との間に静電的相互作用が働くとともに、水分子から陽イオンへの電子供与による相互作用が働く。一方、陰イオンが水和する場合は、陰イオン-双極子間の静電的相互作用とともに、陰イオンから水分子への電子供与による相互作用が働く。水分子の電子供与性(ドナー性)と電子受容性(アクセプター性)を比べると、定量的には3倍程度アクセプター性の方が強いことが知られている(大瀧, 1990)。したがって仮に、電荷の絶対値が等しく、かつイオン半径が等しい陽イオンと陰イオンを比較した場合、イオン-双極子間の静電的相互作用が同じであると仮定すると、水分子の強いアクセプター性のために全相互作用は陰イオンとの水和の方が強いことが分かる。こうした理由により、陰イオンの有効電荷の絶対値が、陽イオンに比べ相対的に低くなっていると考えられる。

表2.3.3-2 イオンの有効電荷と評価のためのパラメータ

イオン	形式電荷の価数 [-]	結晶半径 [m]	van der Waals半径 [m]	水和自由エネルギー [J mol ⁻¹]	イオンの表面電場 [V m ⁻¹]	イオン表面の比誘電率 [-]	溶媒の有効比誘電率 [-]	有効電荷の価数 [-]
Na ⁺	1	1.16E-10	1.352E-10	-3.921E+05	1.070E+11	2.100	4.091	0.912
K ⁺	1	1.52E-10	1.671E-10	-3.192E+05	6.233E+10	2.332	4.529	0.978
Rb ⁺	1	1.66E-10	1.801E-10	-2.974E+05	5.226E+10	2.438	4.730	0.999
Cs ⁺	1	1.81E-10	1.997E-10	-2.743E+05	4.395E+10	2.563	4.964	0.975
Mg ²⁺	2	8.60E-11	1.180E-10	-1.830E+06	3.894E+11	1.866	3.644	1.538
Ca ²⁺	2	1.14E-10	1.480E-10	-1.517E+06	2.216E+11	1.933	3.773	1.494
Sr ²⁺	2	1.32E-10	1.625E-10	-1.399E+06	1.653E+11	1.986	3.874	1.514
Ba ²⁺	2	1.49E-10	1.802E-10	-1.245E+06	1.297E+11	2.044	3.983	1.592
Ni ²⁺	2	8.30E-11	1.140E-10	-1.992E+06	4.180E+11	1.859	3.633	1.391
Al ³⁺	3	6.80E-11	1.046E-10	-4.553E+06	9.342E+11	1.814	3.545	2.223
F ⁻	-1	1.19E-10	1.350E-10	-4.683E+05	-1.017E+11	2.117	4.123	-0.571
Cl ⁻	-1	1.67E-10	1.800E-10	-3.360E+05	-5.163E+10	2.446	4.745	-0.754
Br ⁻	-1	1.82E-10	1.950E-10	-3.098E+05	-4.347E+10	2.572	4.980	-0.778
I ⁻	-1	2.06E-10	2.150E-10	-2.750E+05	-3.393E+10	2.794	5.396	-0.877

水和によりイオンの電荷が見かけ上変化するものと仮定すると、そのメカニズムとしては次のようなことが考えられる。まず、イオン-水分子間で電子の授受による相互作用のため電荷移動が起こり、イオンの電荷は形式電荷と異なる値になる。それと同時に、最近接で水和している水分子はさらに外側の水分子と、水素結合などにより電荷の移動を伴う相互作用を行っている。こうした水分子間の相互作用がマクロな領域にわたって連続的に引き起こされているとすると、水

分子自体は統計的に（長時間平均として）電気的中性の状態を保っていると思われるが、水和されたイオンの方は正味の電荷の一部を水分子に常に供給した状態でマクロに存在しているものと見なすことができる。このようなメカニズムを検証するためには、量子化学計算により水和イオンの電子状態を計算して電荷分布を評価すること、電気泳動の実験データを詳細に解析することなどにより、検証に資する知見が得られるものと考えられる。ただし、このような電荷移動を伴う相互作用は、電子の非局在性に起因する相互作用であり、実際の観測量として端数の電荷が観測されるわけではないため、間接的な検証に留まるものと考えられる。有効電荷の検証については、他の例として「イオンの会合 (ion association)」の観点等からの検討も必要と考えられる。

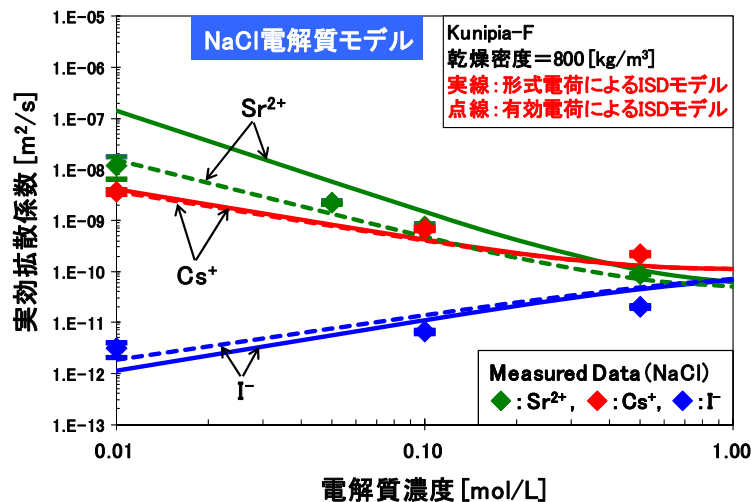


図2. 3. 3-4 ISD均質間隙モデルと有効電荷により修正されたモデルとの比較

水和Gibbs自由エネルギーの実測データから算出された有効電荷を用いて、現状のISD均質間隙モデルで評価した実効拡散係数の電解質濃度依存性を図2. 3. 3-4に示した。計算対象は、NaCl電解質溶液に接した乾燥密度が800kg/m³のクニピアF（モンモリロナイト含有率99%、真密度 $\rho_s = 2880\text{kg/m}^3$ ）とする。また、有効電荷を用いる計算に際しては、全系の電気的中性条件および電解質イオンのバルク濃度が一定であることを考慮して、電解質イオンについては形式電荷をそのまま適用し、トレーサーイオンにのみ有効電荷を適用した。有効電荷を適用することにより、特に Sr^{2+} の実効拡散係数の実測データの再現性が向上した。本報告では、簡単のため単原子イオンに限って議論したが、錯イオン等複雑な形状のイオンに対する有効電荷を評価するためには、イオンの結晶半径やvan der Waals半径などの定量的評価が必要であり、有効電荷に関連する実験データの文献調査と合わせて今後の課題である。

(3) 計算科学的手法による収着・拡散モデルの高度化検討

物質科学の研究においては、マクロなスケールで起こる物理現象や物性値を理解する際、よりミクロなスケールでの構造・物性、現象やダイナミクスからスケールアップしていく要素還元的手法が広く用いられている。多様な時間・空間スケールを取り扱う地層処分の安全評価においても、現在の分析試験レベルで認識可能な電子／原子レベルから、第一原理的にマクロスケールの

物性を評価して現象を理解することは、処分システムの評価検証において重要な課題であると考えられる。その際、実際には量子論的扱いが必要な原子・分子レベルの挙動においても、古典力学で十分近似可能な静的／動的過程に対しては、古典統計力学を用いてマクロ物性を評価することが、計算資源／負荷の上からも合理的である。地層処分研究においては、イオンの拡散挙動などの動的過程が重要な評価対象の一つであるため、古典分子動力学 (MD) 計算が主に用いられてきた。一方で、鉱物表面へのイオンの吸着などの電子の授受を伴う化学反応を対象とする場合には、電子に対する量子力学的計算と、断熱近似に基づいた原子核に対する古典力学的計算を組み合わせた第一原理分子動力学法を用いる必要がある。また、系の静的に安定な状態を速やかに特定するには、動力学を伴わない量子化学計算が適用されている。

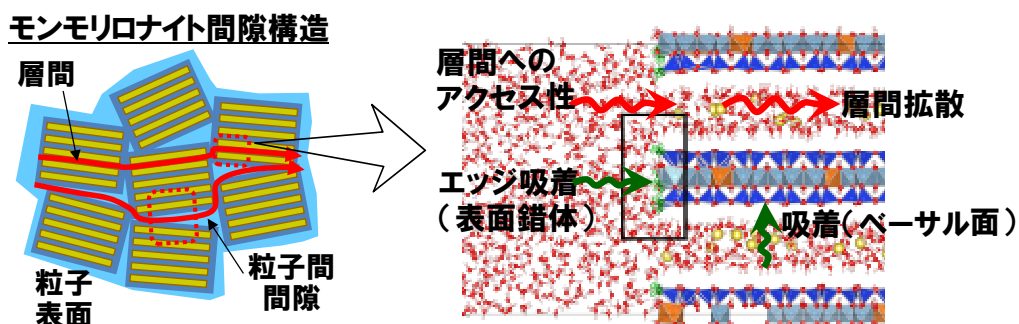


図2.3.3-5 計算科学手法によって検証すべき課題とアプローチの概念図

そこで本調査項目では、圧縮ベントナイト中の間隙水特性、溶存核種の存在形態、核種の収着・拡散挙動、さらに圧縮ベントナイトの間隙構造に影響を与える粘土鉱物の膨潤挙動等に着目し、分子モデルによるナノスケールでの評価、メカニズムの理解を目的として、計算科学的手法（量子化学計算、分子動力学計算等）を適用した評価解析を実施した。ここで実施した評価解析における課題とアプローチの概念を図2.3.3-5に示す。古典MD計算を用いた解析では、粘土鉱物の膨潤挙動、また、ベーサル表面／層間での水の特性、 Na^+ 、 Ca^{2+} 等の交換性陽イオン及びアクチニド核種の収着・拡散メカニズムを理解するため、層電荷・間隙水塩濃度・層間間隙幅等をパラメータとして、収着・拡散挙動の変化を定量的に評価し、その適用性について検討した。また量子化学計算・第一原理MD計算を用いた解析では、粘土鉱物（モンモリロナイト）のエッジ表面における反応サイトの状態や核種収着形態を理解するため、エッジ構造モデルの構築とその安定性の定量的評価を検討した。

1) 古典分子動力学 (MD) 計算によるモンモリロナイト層間の膨潤特性評価

ベントナイトの主要成分であるモンモリロナイトは、粘土粒子の単位構造が積層した構造を持ち、層間間隙を有する。一般に、Na型モンモリロナイトは膨潤特性を有し、それにより止水性を担保する。電気二重層が支配する層間間隙は、陽イオンの主要な拡散経路の一つであるため、その物理化学的狀態を理解することが重要である。そこで、本研究では、層間間隙の情報を取得するため、膨潤挙動について古典MD計算を用いて評価した。その際、変質等によりイオン型が変化しても膨潤特性は保たれるか、層電荷（陽イオン交換容量）の変化に対して膨潤挙動はどう変化

するか、層間の分子モデルを用いて、膨潤のメカニズムはどう理解できるかといった観点で解析を行った。

本報告の古典MD計算では、計算コードとしてMXDORTO/MXDTRICLシステム（平尾・河村，1994）を、また相互作用ポテンシャルとして、次式で表される全自由度分子モデル（BMH-EX型；河村，2004）を採用した。

$$U_{ij}(r_{ij}) = \frac{z_i z_j e^2}{4\pi\epsilon_0 r_{ij}} - \frac{c_i c_j}{r_{ij}^6} + f_0(b_i + b_j) \exp\left(\frac{a_i + a_j - r_{ij}}{b_i + b_j}\right) + D_{1ij} \exp(-\beta_{1ij} r_{ij}) + D_{2ij} \exp(-\beta_{2ij} r_{ij}) + D_{3ij} \exp[-\beta_{3ij} (r_{ij} - r_{3ij})^2] \quad (2.3.3-1)$$

$$U_{ijk}(\theta_{ijk}, r_{ij}, r_{jk}) = -f\{\cos[2(\theta_{ijk} - \theta_0)] - 1\} \sqrt{k_1 k_2}, \quad (2.3.3-2)$$

$$k_1 = \frac{1}{\exp[g_r(r_{ij} - r_m)] + 1}, \quad k_2 = \frac{1}{\exp[g_r(r_{jk} - r_m)] + 1}$$

ここで ϵ_0 は真空の誘電率、 e は電気素量、 z_i は粒子 i の電荷、 r_{ij} は粒子間距離、 θ_{ijk} は粒子 j を挟む3粒子間の角度を表す。その他の記号は、モデルの調整パラメータである。この相互作用モデルは、分子内・分子間を含む全ての原子に対する原子間相互作用を表す。式(2.3.3-1)は2粒子 i - j 間の2体中心力項であり、右辺第1項から順に、静電相互作用、分子間力、近接反発項、及び共有結合の動径部分(3項)を表す。近接反発項のパラメータ a と b は、簡単のために加性を仮定して、原子についての足し合わせになっている。式(2.3.3-2)は3粒子 i - j - k 間の3体力項であり、共有結合の角度部分を表している。 k_1 、 k_2 は角度項の到達範囲を決めるファクターである。これらの相互作用ポテンシャルを用いて様々な水の物性値を計算した結果、水の密度、自己拡散係数、比誘電率など幅広い物性に対して、実測データとおおむね整合的な値が得られている(河村，2008)。

膨潤挙動の解析で対象とする系は、モンモリロナイト - 水の混合系とし(図2.3.3-6(a))、等温・等圧のNTPアンサンブル、標準状態(25°C、1気圧)で計算する。Na型の場合、層間には対イオンのNaイオンと水分子のみが存在し、本計算では電解質は考慮していない。層間の水分子数に対する膨潤挙動を評価するための物理量として、まず平衡後の積層の底面間隔を計測した。ここで底面間隔とは、ケイ酸塩層の上側ベーサル面間の距離とする(図2.3.3-6(a))。また、モンモリロナイトと水を混合した際のエネルギー的な安定性を評価するため、次式で計算される「系の混合過剰エンタルピー $\Delta H(n)$ 」を計算した。

$$\Delta H(n) = \frac{H_{\text{mix}}(n)}{1+n} - \left[\frac{1}{1+n} \cdot H_{\text{dry}} + \frac{n}{1+n} \cdot H_{\text{water}} \right] \quad (2.3.3-3)$$

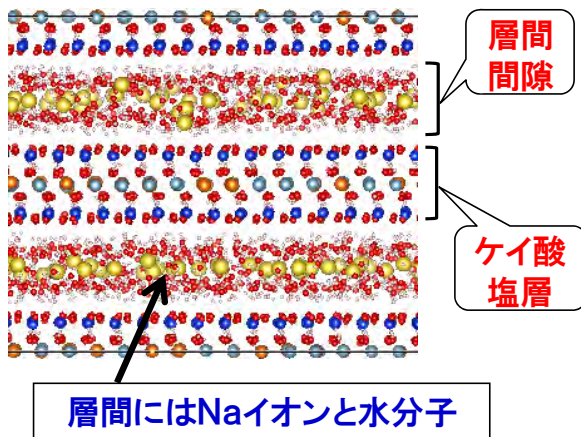
$$H = \frac{1}{2} \sum_{i,j(\neq i)} U_{ij}(r_{ij}) + \sum_{i,j,k} U_{ijk}(\theta_{ijk}, r_{ij}, r_{jk}) + \frac{1}{2} \sum_i m_i v_i^2 + P_{\text{ext}} V \quad (2.3.3-4)$$

ここで式(2.3.3-4)の第1項及び第2項は、式(2.3.3-1)及び式(2.3.3-2)で設定した相互作用ポテンシャル項であり、また m_i と v_i は粒子 i の質量及び速度を表す。さらに N は平衡後の系の体積、 P_{ext} は設定した圧力である。式(2.3.3-3)で計算される混合過剰エンタルピーは、粘土 - 水混合系で計算したエンタルピー(H_{mix})から、「粘土粒子のみ」と「バルク水のみ」からなる端成分で

それぞれ計算したエンタルピー (H_{dry} 及び H_{water}) を、モル分率で按分して差し引いた量である。さらに、層間空隙内における対イオンとベーサル面の水和数 $N(r)$ を計算した。これは、まずイオン周囲の動径分布関数 $g(r)$ をシミュレーションから評価し (図2.3.3-6(b)参照)、水分子に対する第1ピークの次に来る極小点 (r_c) までの範囲で、次式のように動径分布関数を積分して評価している。

$$N(r) = \int_0^{r_c} 4\pi r^2 g(r) dr \quad (2.3.3-5)$$

(a)Na型モンモリロナイトの積層構造



(b)動径分布関数と水和数

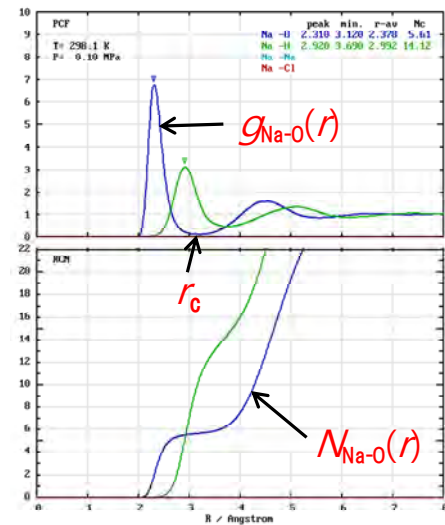


図2.3.3-6 計算対象の模式図(a)、及び動径分布関数と水和数の例(b)

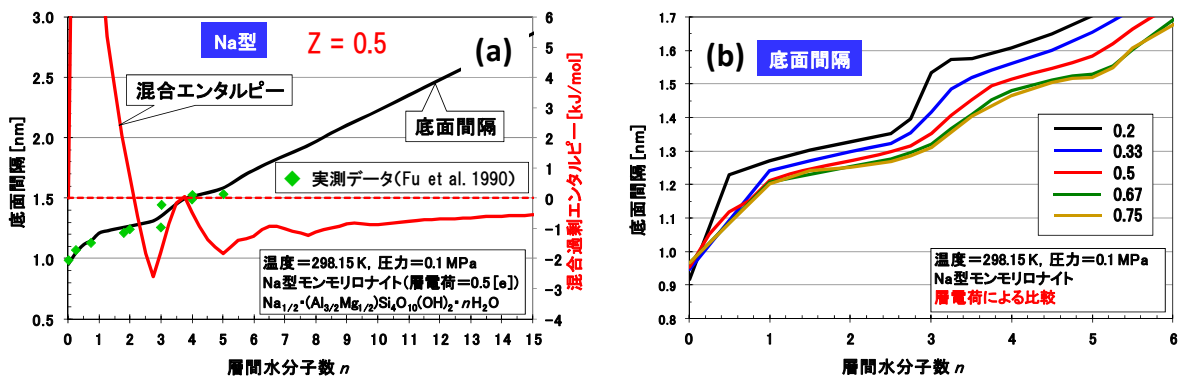


図2.3.3-7 Na型・層電荷0.5の膨潤挙動(a)、及びNa型の層電荷依存性(b)

次に、解析結果を示す。標準ケースとして層電荷0.5のNa型を設定して、膨潤挙動を図2.3.3-7(a)に示した。横軸 n は層間内の水分子数であり、層電荷0.5のNa型の場合、Naイオン0.5個に対して水分子が n 個存在する系を表す。左側の縦軸は「底面間隔」を表し、黒線でプロットしたものが「膨潤曲線」である。解析結果は、XRDによる実測データ (Fu et al., 1990) と整合的であった。また「系の混合過剰エンタルピー」を、赤線でプロットした。混合過剰エンタルピーが右下がりの

領域が安定な水和層に対応し、右上がりの領域は膨潤状態に対応している。図2.3.3-7(b)は、Na型モンモリロナイトを対象に、層電荷を0.2から0.75まで変動させて膨潤曲線を比較した図である。膨潤曲線を見る限り、層電荷を変化させても比較的はっきりとした1層水和状態・2層水和状態が現れると思われる。

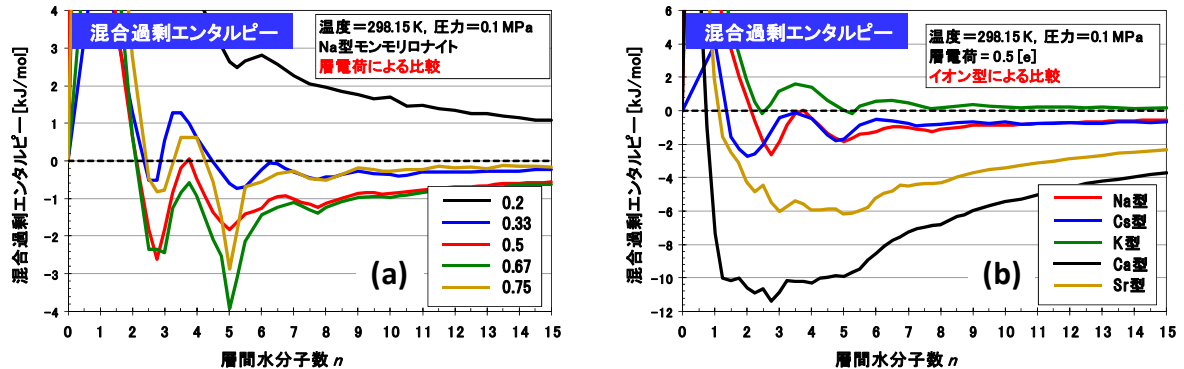


図2.3.3-8 混合過剰エンタルピーの層電荷依存性(a)、及びイオン型依存性(b)

図2.3.3-8(a)には混合過剰エンタルピーの層電荷依存性を示した。図2.3.3-7(b)の膨潤曲線を見ると層電荷が小さいほど膨潤挙動が顕著になるが、混合過剰エンタルピーを比較すると水和状態が逆に不安定になり、存在確率は低くなると考えられる。また層電荷が極端に大きくなると、ある層電荷の値から水和状態は不安定になる傾向を示している。層電荷0.33~0.75では1層及び2層水和状態が比較的安定であり、天然スメクタイトの標準的な層電荷領域(0.2~0.6)を考慮すると、層電荷0.2を除いて概ね整合的なシミュレーションの結果と言える。また層電荷0.33の混合過剰エンタルピーを見ると、1層~4層水和状態が同程度存在することが示唆される。

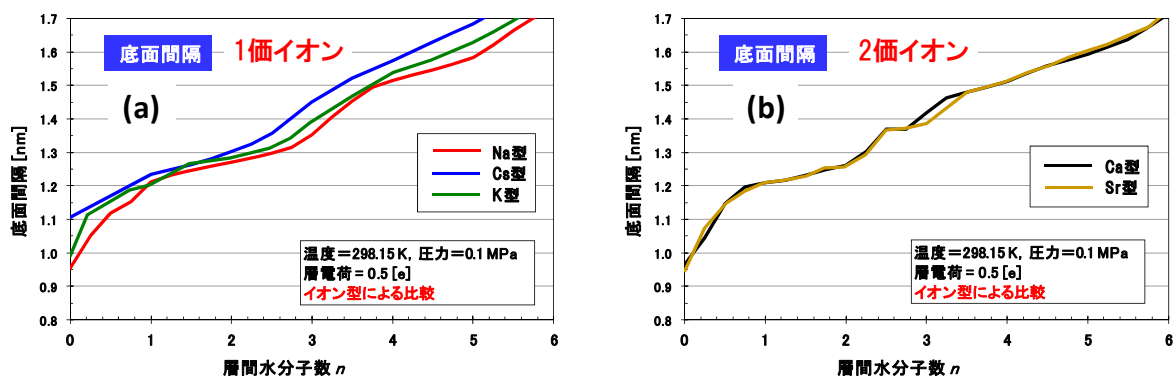


図2.3.3-9 膨潤曲線のイオン型依存性：1価型(a)、及び2価型(b)

次に層電荷を0.5に固定して、対イオンのタイプを変化させて比較した結果を示す。図2.3.3-9(a)は、1価イオンの比較であり、Na型とともにCs型とK型を比較した。1価の場合、Na型と同様な膨潤挙動を示すが、Cs型では2層水和状態が不明瞭である。また無水和状態($n=0$)における底面間隔の違いは、それぞれのイオンのイオン半径によるものと考えられる。さらに混合過剰エンタルピーの第1極小位置を見ると、 $Cs > K > Na$ の順に2層水和への膨潤が早まっているが、こ

これはイオンの水和特性の違いが現れたものと思われる（図2.3.3-8(b)）。一方、2価イオンの場合（ Ca^{2+} , Sr^{2+} ）を比較すると、混合過剰エンタルピーの評価から、1価イオンの場合に比べ水和状態は極めて安定であることが判る。これは、2価イオンの強い水和力が影響していると思われる。また図2.3.3-9(b)の膨潤曲線を見ると、1層水和から2層水和状態にかけて段階的に膨潤を繰り返していることが判る。このことは、混合過剰エンタルピーの形状にも現れている。

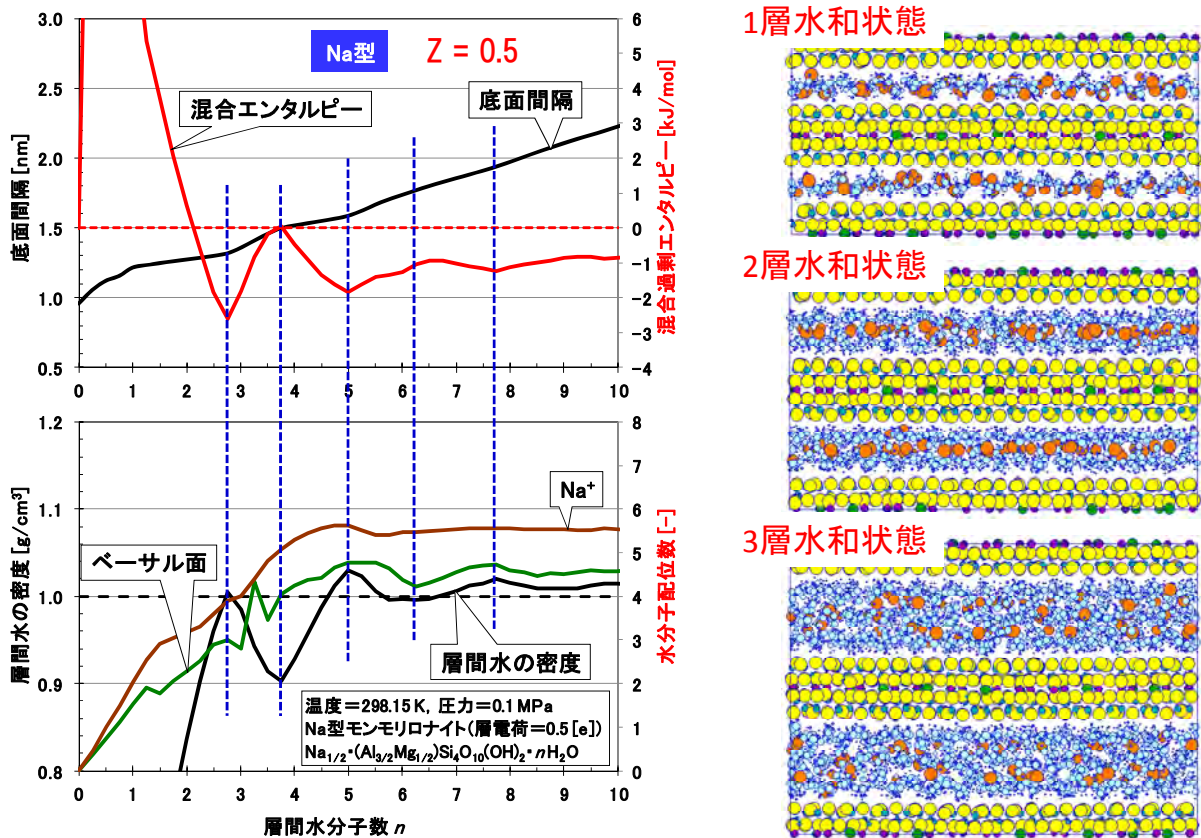


図2.3.3-10 Na型の膨潤挙動（左上）、層間における水密度と水和数（左下）及び1層～3層水和状態のスナップショット（右）

次に、分子モデルを用いて膨潤挙動のメカニズムを理解するため、層間内での水分子の構造に注目して、膨潤の自由エネルギーに寄与する効果を考えた。すなわち層間の水分子とベーサル面との静電相互作用の効果、及びベーサル面への水和のエントロピー効果、同様に、対イオンと水分子との静電相互作用の効果、及び水和のエントロピー効果、さらに水分子間の相互作用と、水分子特有の構造に起因するエントロピー効果などにより、膨潤が引き起こされるものとする。層電荷0.5のNa型モンモリロナイトを例にとると、図2.3.3-10の左上図は膨潤曲線と混合過剰エンタルピーのグラフであり、一方、左下の図は、黒い線が「層間水の密度」、緑の線が「ベーサル面の水和数（Si 1個当たりの数で評価）」、茶色の線が「Naイオンの水和数」である。1層水和状態のとき、ベーサル面とNaイオンに水分子の水和が進むことにより、混合過剰エンタルピーは安定化するが、同時に水和のエントロピーとしては不安定になる。また水和する際、電場による体積収縮効果（電縮効果）のため、層間水の密度は上昇している。ところがエンタルピーの第1極小点では、エントロピーによる不安定性がエンタルピーの効果を上回り、水分子が脱水和あるいは

構造が変化してエントロピーを安定化させるものと推測できる。このとき、水和によって収縮していた体積が解放され、層間水の密度が減少する。この「層間水密度」の減少に伴って、局所的な膨潤が起きているものと考えられる。すなわち膨潤挙動は、層間隙における水和のエンタルピー効果とエントロピー効果の競合によって繰り返されると思われる。

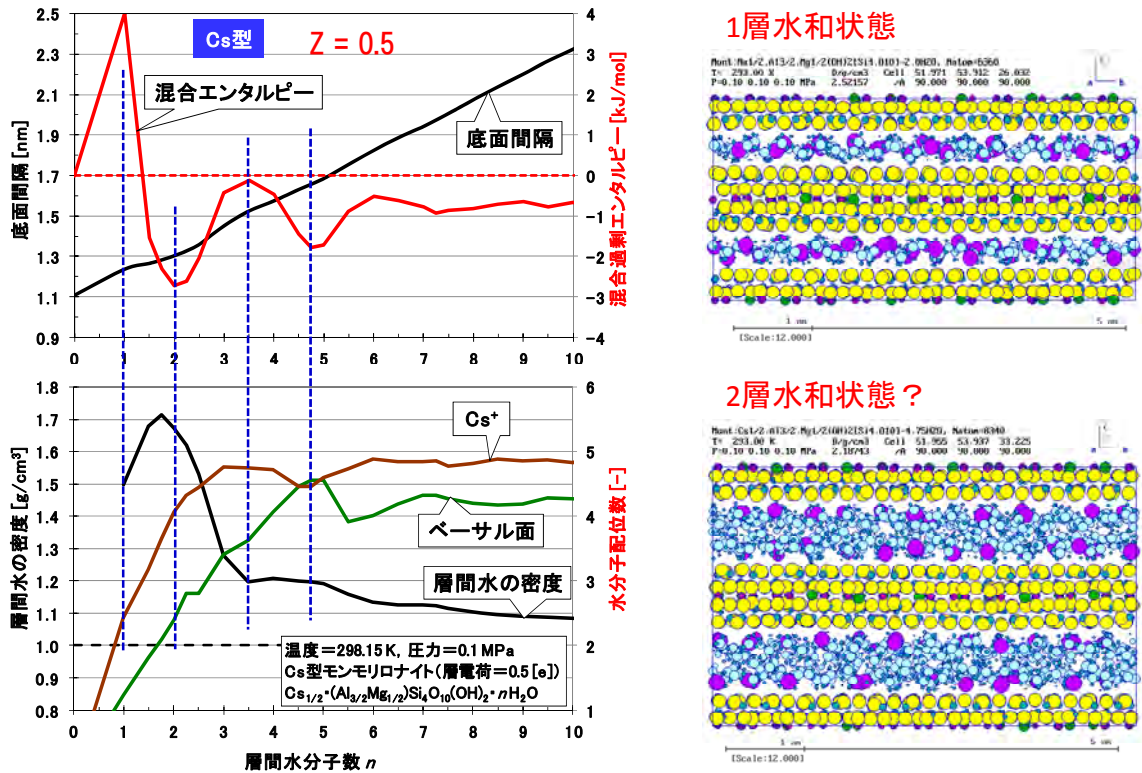


図2.3.3-11 Cs型の膨潤挙動 (左上)、層間における水密度と水和数 (左下) 及び層間水和状態のスナップショット (右)

他のイオン型についても、層間水の密度から同様に考察することができる。例えばCs型の場合 (図2.3.3-11)、1層水和状態のあと膨潤はするが、次の安定な水和状態が現れていない。これはNa型に比べCs型は水和力が弱いため、内圏錯体に近い構造を形成してベーサル面に吸着することにより層電荷を遮蔽し、パイロフィライトと同様な層間水の構造になるものと考えられる。この結果は、XRDによる実測データとも調和的である。

膨潤のメカニズムを定量的に評価するには、粘土 - 水混合系における膨潤のギブス自由エネルギーを評価することが望ましいが、MD計算では系のエントロピー評価が困難である。上記のように、ここでは層間における水分子の配位構造などから系のエントロピーを考慮した定性的な評価を行ったが、定量的評価に向けては更なる検討が必要である。

2) 古典分子動力学 (MD) 計算による重要核種の収着／拡散挙動の評価

圧縮ベントナイトの間隙を電気二重層の場としてモデル化するISDモデルにおいては、鉱物の層間隙や粒子間隙中でのイオン分布、イオンや水分子の拡散係数等の情報は、モデルを精緻化する上で重要な知見と成り得る。また、アップスケーリング手法の開発においても、ナノスケー

ルでの粒子の局所的拡散挙動は、最も基本的な情報の一つである。そこで本項では、モンモリロナイト層間におけるイオンと水分子の拡散挙動を評価するため、イオン型の影響や層間幅の影響、さらに電解質の影響等を考慮して、古典MD計算を実施した。昨年度は、モンモリロナイト層間の1層水和～4層水和状態での拡散挙動を評価したが、本年度は粒子間隙の評価も考慮して、10nmオーダーの間隙幅を有する体系で計算を行った。

(a) Na型モンモリロナイト
+ 3000・H₂O

(b) Na型モンモリロナイト + 15000・H₂O

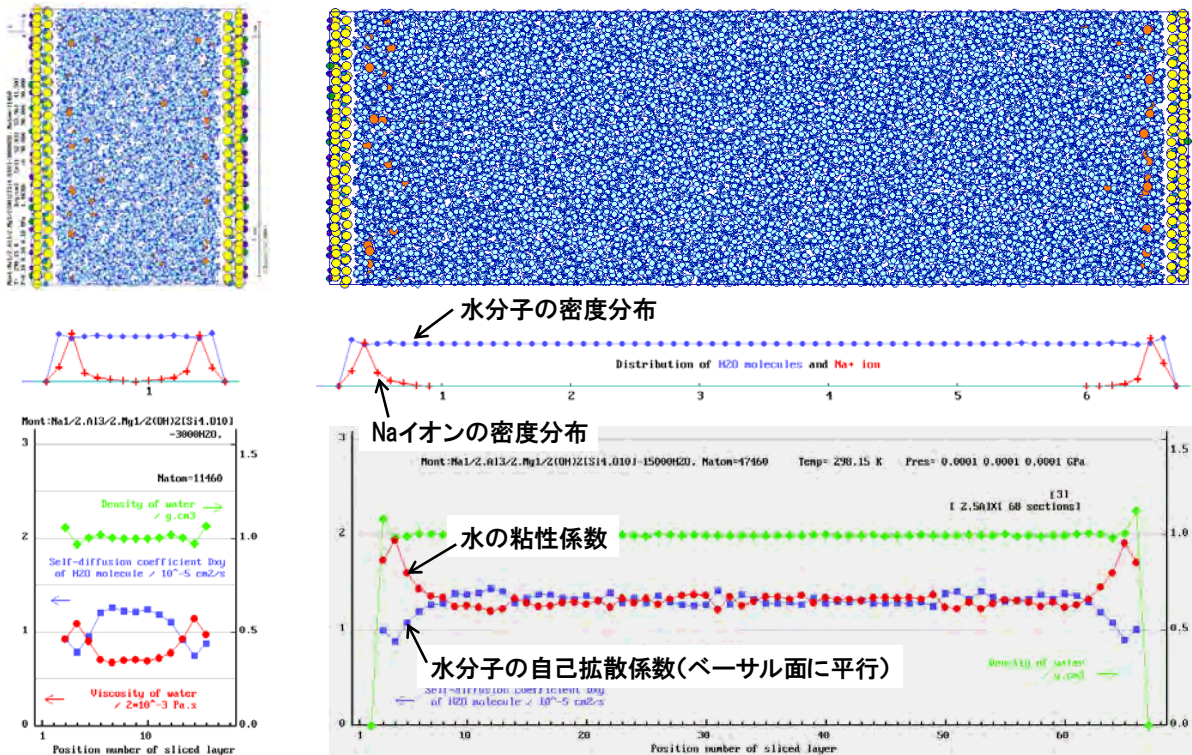


図2. 3. 3-12 層電荷0.5のNa型モンモリロナイト+純水系のスナップショットと層間における各種物性値。層間に水分子3000個を含む系(a)、及び水分子15000個を含む系(b)

はじめに層間幅の違いによる電気二重層の影響を評価するため、層電荷0.5のNa型モンモリロナイトを対象に、計算セル内の水分子数を3,000～15,000分子まで変化させて比較した。計算セル内に水分子3,000個を含む系(層間幅=約3.2nm)及び水分子15,000個を含む系(層間幅=約16.0nm)の計算結果を、図2.3.3-12に示す。この計算では、層間内に存在するイオンは、対イオンであるNaイオンのみである。Naイオンの密度分布を比較すると、Naイオンが分布する領域は何れのケースもベーサル面から1nm程度までである。また水分子の自己拡散係数も、ベーサル面から約1nm離れたと、自由水中拡散係数の値にほぼ収束している。これらの解析結果から、電解質を含まない層電荷0.5のNa型モンモリロナイトの場合、電気二重層が影響する領域はベーサル面から1nm程度までであり、この結果は層間幅にはほとんど依存しないと考えられる。また、計算セル内の水分子数を1,000個(層間幅=約1.1nm)から4,000個(層間幅=約4.3nm)まで変化させた系におけるNaイオンと水分子の自己拡散係数を、図2.3.3-13に示した。何れのデータもベーサル面に平行な成分の拡散係数である。Naイオンは水分子に比べて統計量が少なく、そのため分散が大きい。層

間幅が広がるにしたがって、自由水中におけるそれぞれの拡散係数の値（Naイオン $\approx 8.4 \times 10^{-10} \text{m}^2/\text{s}$ 、水分子 $\approx 1.6 \times 10^{-9} \text{m}^2/\text{s}$ ）に漸近する傾向性が現れている。

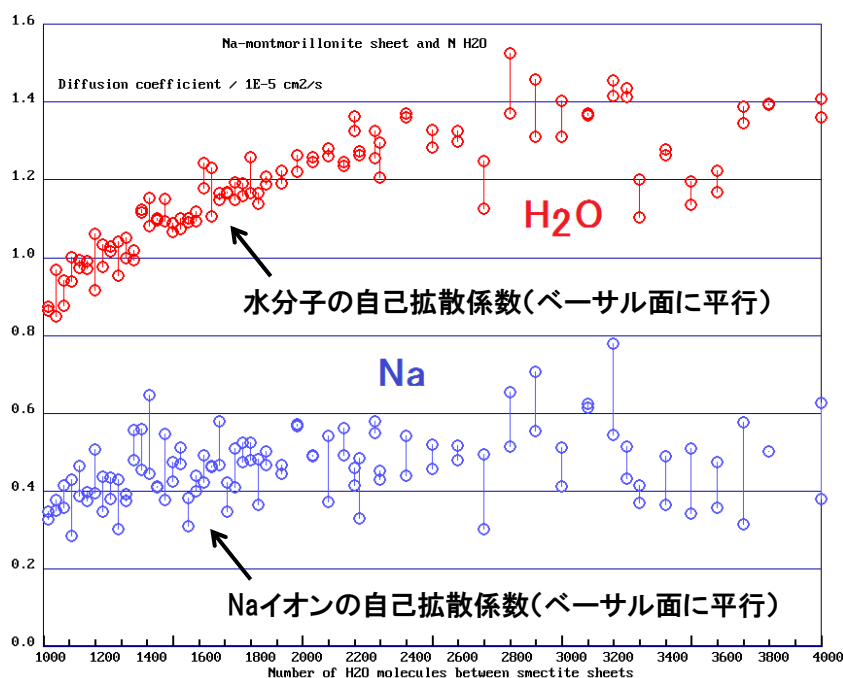


図2. 3. 3-13 層電荷0.5のNa型モンモリロナイト+純水系におけるNaイオンと水分子の自己拡散係数。計算セル内の水分子数（1,000～4,000）に対する依存性

次に、電解質の影響を評価するため、層電荷0.5のNa型モンモリロナイトの層間にNaCl電解質を含む系でMD計算を実行した。計算結果の一例として、計算セル内の層間に水分子9,700個とNaCl300個を含む系（海水の塩分濃度の約3倍に相当）で計算した各種物性値を、図2. 3. 3-14(b)に示した。比較として、層間に水分子10,000個を含む純水系の計算結果を、図2. 3. 3-14(a)に示した。電解質を含む系のClイオン分布は、煩雑さを避けるため、Naイオンとは逆にプラスを下向きにとっており、ベーサル面から離れるとともにイオン密度が上昇している。一方Naイオンの分布は、純水系の場合と同様にベーサル面近傍で密度が高い領域は存在するが、沖合においてもClイオンとともに一定量の密度分布を示している。この結果は、電解質の存在によって電気二重層が弱められ、ベーサル面のごく近傍（1nm以下）にしか影響を及ぼさないことを示すものであると考えられる。また電解質の存在により、水分子の拡散係数が純水系に比べて減少していることが判る。

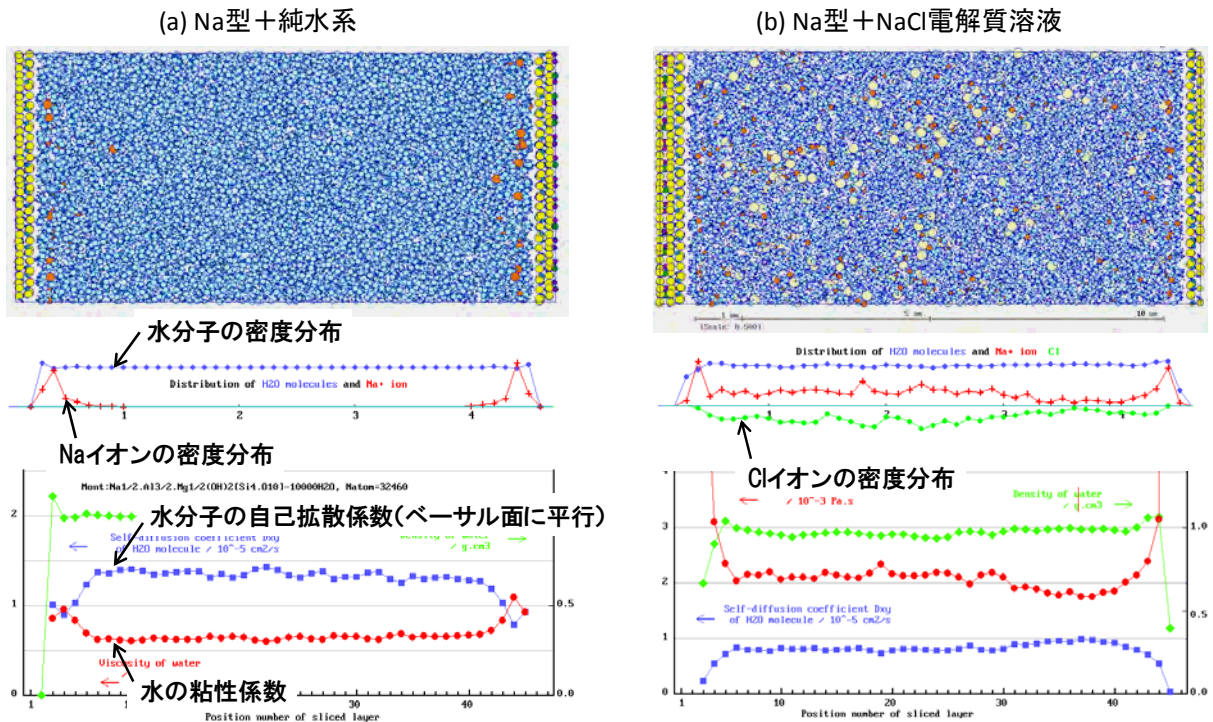


図2.3.3-14 層電荷0.5のNa型モンモリロナイト層間のスナップショットと層間における各種物性値。層間に水分子10,000個を含む系(a)、及び水分子9,700個とNaCl300個を含む系(b)

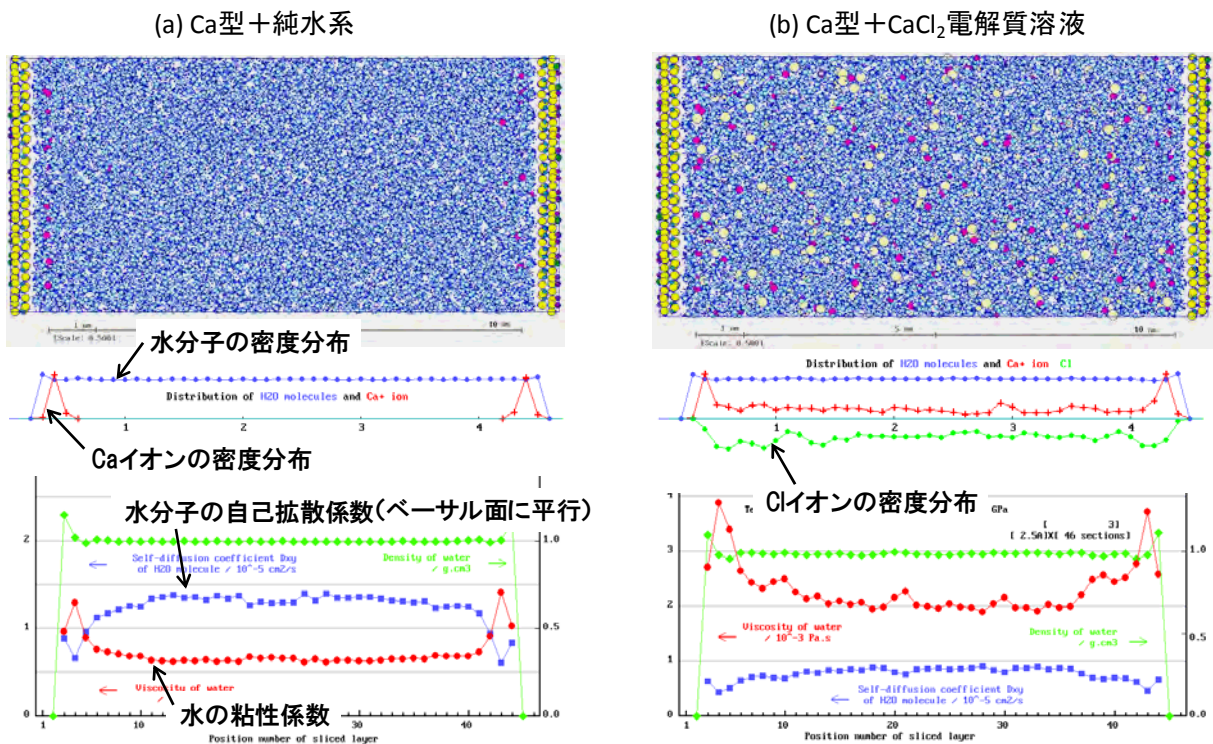


図2.3.3-15 層電荷0.5のCa型モンモリロナイト層間のスナップショットと層間における各種物性値。層間に水分子10,000個を含む系(a)、及び水分子9,700個とCaCl₂150個を含む系(b)

次に、Ca型化の影響を評価するため、層電荷0.5のCa型モンモリロナイトを対象にMD計算を実行

した。計算結果の一例として、計算セル内の層間に水分子10,000個を含む純水系の計算結果を図2.3.3-15(a)に、水分子9,700個とCaCl₂150個を含む系（上記Na型の電解質系と電荷バランスが同じ）の計算結果を図2.3.3-15(b)に示す。Na型の純水系（図2.3.3-14(a）と比較すると、対イオンの分布はCa型の方がベーサル面近傍により局在化していることが判る。これは、対イオンの価数が高くなるとともに、電気二重層の影響がより界面近傍に遮蔽されるという理論的考察を裏付けるものである。Na型とCa型の電解質系同士で比較すると、Ca型の方ではClイオン分布においてベーサル面近傍で有意に濃度が高い領域があり、また水分子の拡散係数は沖合の向かって緩やかに上昇している。これらの現象はともに対イオンの価数の違いに起因するものと考えられるが、さらなる解析により評価・検討する必要がある。

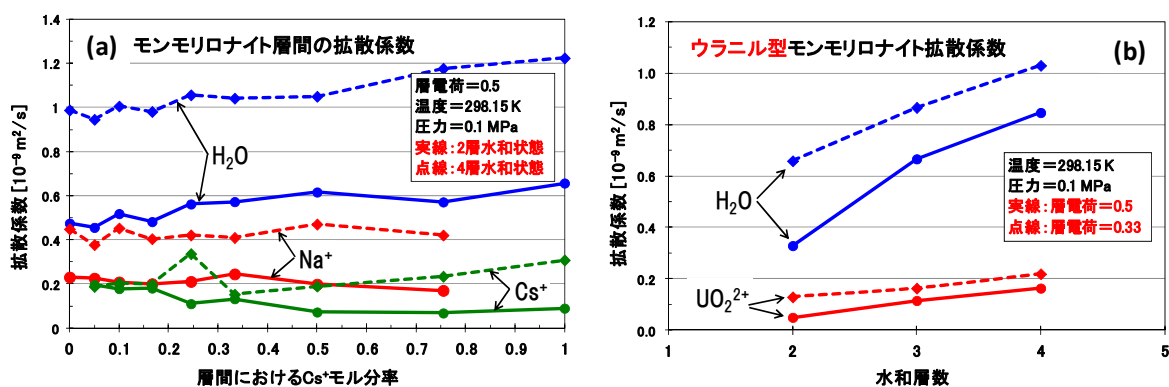


図2.3.3-16 層電荷0.5のモンモリロナイト層間の対イオンをNa型からCs型へ連続的に変化させた場合の拡散係数への影響(a)、及びウラニル型化したモンモリロナイト層間における拡散係数の層間水和層数に対する依存性(b)

次に、層間における対イオン（交換性陽イオン）の連続的交換が与える層間水への影響を評価するため、Na型からCs型への連続的変化を例に、層間における拡散係数を計算した。図2.3.3-16(a)に、層電荷0.5のモンモリロナイト層間におけるCsイオンのモル分率をパラメータとしてNaイオン、Csイオン及び水分子の拡散係数を示した。図中の実線は2層水和状態（層間幅≒1.6nm）での拡散係数であり、点線は4層水和状態（層間幅≒2.3nm）のものである。Cs⁺モル分率が小さい領域ではCsイオンの拡散係数に対する誤差が大きくなり、逆にCs⁺モル分率が大きいパラメータ領域ではNaイオンの拡散係数に対する誤差が大きくなることに注意する必要がある。図から、NaイオンとCsイオンの拡散係数は、Cs⁺モル分率にはほとんど影響を受けないことが示唆される。一方、水分子の拡散係数は、Cs⁺モル分率が增大するとともに有意に上昇しているように見える。これは、CsイオンよりNaイオンの方が水和力が強いため、Naイオンが過剰なパラメータ領域では水分子の拡散挙動が拘束されることに起因していると考えられる。また2層水和状態から4層水和状態へ層間幅が増大すると、各粒子とも拡散係数は2〜3倍上昇している。これは、層間における電気二重層の影響領域が層間幅に依らずほぼ一定であり、その分、拡散層の領域が増大しているためと考えられる。

対イオンの変化がもたらすモンモリロナイト層間への影響評価の一環として、アクチニド核種の一つであるウラニルイオン（UO₂²⁺）が対イオンとして完全に置換した系における拡散係数を計

算した。層間水和状態の層数をパラメータとして横軸にとり、水分子とウラニルイオンの拡散係数における変化を、図2.3.3-16(b)に示した。図中の実線は層電荷0.5の系、点線は層電荷0.33の系を表す。層電荷0.5の系では、平成27年度報告した同じ2価の対イオンであるCa型の場合と比較して、水分子および対イオンとも同程度の拡散係数の値をしめしている（日本原子力研究開発機構, 2016a）。この結果は、拡散係数に関する限り、対イオンの価数あるいは水和力が強く影響し、イオンのサイズや形状にはほとんど依存しないことを示唆するものである。また層電荷の値が小さくなると、必然的に電気二重層の影響が低下し、したがって粘性の減少とともに拡散係数は上昇する。シミュレーションの結果は、このことを裏付けるものである。

3) 量子化学計算によるモンモリロナイト・エッジ表面の安定性評価

粘土鉱物のエッジ表面構造と放射性核種の収着形態に関する知見を得るため、モンモリロナイトのエッジ表面を対象に表面構造のバリエーションと層電荷の影響を考慮してモデル化し、量子化学計算により評価を行った。平成27年度に報告（日本原子力研究開発機構, 2016a）した粘土鉱物におけるエッジ表面の研究のレビューから、雲母・粘土鉱物で最初に検討すべきエッジは、Tsipursky and Drits (1984) で提案されたmodel 1 の格子の定義に従うと、(110), (010), (100), (130)の格子面で表現される。それぞれ順にA-, B-, D-, E-chainモデルとする。またエッジの構造はこれらの格子面に並行であれば良いというだけでなく、 SiO_4 四面体と AlO_6 八面体がそれぞれ強い結合の連続的なつながり(chain)を持つことがもう一つの制約条件となる(White and Zelazny, 1988)。過去のモンモリロナイトのエッジの構造・安定性に関する理論的研究(Tazi et al., 2012; Liu et al., 2013; Liu et al., 2014) は、層電荷 $z=0.25$ を対象としたモデルに基づく研究がほとんどであり、現実のモンモリロナイトの層電荷である $z=0.2\sim 0.6$ の範囲 (Brigatti et al., 2013) を十分に説明できない。

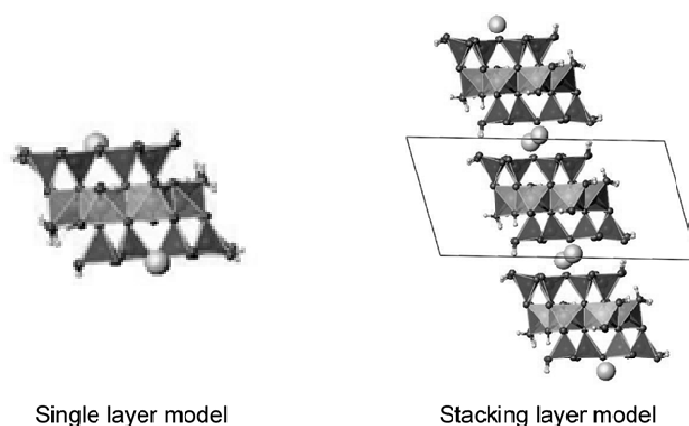


図2.3.3-17 エッジの表面エネルギーを計算するための2種類のlayerモデル。実線はそれぞれのモデルの単位セル（スーパーセル）を示す

そこで本報告では層電荷 $z=0.33, 0.5$ のモンモリロナイトを対象として、現実のモンモリロナイトにより近い系でのエッジの安定性を評価することとした。これまでの研究（日本原子力研究開発機構, 2016a）により、 $z=0.33$ の系についてのエッジの安定性を検討し、八面体のAlをMgに同形置換した位置および層間のNaイオンの位置によってエッジの安定性が変化することを明らか

にした。しかしながら、どのような同形置換やNaイオンの位置が安定であるかについては定性的な理解にとどまっていた。またこれまでのモデルでは、粘土単層の安定性を議論しただけで、積層した場合の影響についての議論がなされていなかった。そこで本報告では、同形置換や層間イオンの位置とエッジの安定性について定量的に評価するとともに、積層による影響を考慮することで、精密なエッジの表面エネルギーを導出した。さらに同手法を $z=0.5$ の系にも展開することにより、層電荷の影響も考察した。粘土単層、積層の計算に用いた単位セルの例を図2.3.3-17に示す。どちらのモデルでも紙面に垂直方向には連続的に結晶が続く周期境界条件を採用している。単層モデルでは上下に粘土層が存在しない。積層モデルでは上下に周期境界条件を採用し、構造が連続的につながっている。

平成27年度に実施した $z=0.33$ のエッジの表面エネルギーの計算方法について、積層構造でない単層に関しては、(001)面の層間結合エネルギー(Inter layer bonding energy, ILBE)を考慮すべきであることが、その後の研究で明らかになった。そこで本年度の表面エネルギーは以下の式(2.3.3-6)を用いて計算する。

$$E_{\text{surf}} = \frac{E_{\text{surf}}^{\text{MM}} - (E_{\text{bulk}}^{\text{MM}} + nE_{\text{gas}}^{\text{H}_2\text{O}} - E_{\text{ILBE}})}{A} \quad (2.3.3-6)$$

ここで、 $E_{\text{surf}}^{\text{MM}}$ はエッジを含むスーパーセルの量子計算から得られる全エネルギー、 $E_{\text{bulk}}^{\text{MM}}$ はバルク状態(全方向に周期境界条件を課し、端面を持たない状態)のモンモリロナイト結晶の量子計算から得られる全エネルギー、 n は吸着させた水分子の数、 $E_{\text{gas}}^{\text{H}_2\text{O}}$ は孤立水分子の量子計算から得られる全エネルギー、 E_{ILBE} はモンモリロナイトの計算に使った(001)面の層間結合エネルギー、 A はエッジの面積(スーパーセル内に2つのエッジがあるのでそれらの和)を示す。本報告では、 $8\text{H}_2\text{O}$ が解離も含めてエッジに吸着した構造となっており、ダングリンボンドは存在しない。一方、積層構造によるエッジの表面エネルギーの評価では、従来の表面エネルギーの式(2.3.3-7)を用いる。

$$E_{\text{surf}} = \frac{E_{\text{surf}}^{\text{MM}} - (E_{\text{bulk}}^{\text{MM}} + nE_{\text{gas}}^{\text{H}_2\text{O}})}{A} \quad (2.3.3-7)$$

なお、式(2.3.3-6)、(2.3.3-7)で必要なエネルギーの導出には、密度汎関数理論に基づく第一原理電子状態計算を用いた。

ここでは、層電荷0.5のA-chainを例として、エッジ表面エネルギーの計算結果を示す。A-chainの考え得る同形置換位置(p1~p5)を網羅し、さらにNaイオンの位置の安定構造を探索して、p1~p5それぞれでの最安定構造を図2.3.3-18に示した。まずこれらの図から、NaイオンはMgイオンの近くの六員環(di-trigonalリング)で安定化することがわかる。これは、局所的にはMg近傍が負に帯電しているためと考えられる。このようなNaイオンの安定性は、図2.3.3-19(a)に示すように、可能なNaイオンの配置すべてに関して構造最適化を実施することで得られた。同形置換の位置による最安定表面エネルギーの違いを図2.3.3-19(b)に示す。単層モデル・積層モデルとも、同形置換位置p2が最も表面エネルギーが低く安定である。この結果から、Mgはエッジ面近傍よりも結晶内部にある方が安定であると判断できる。

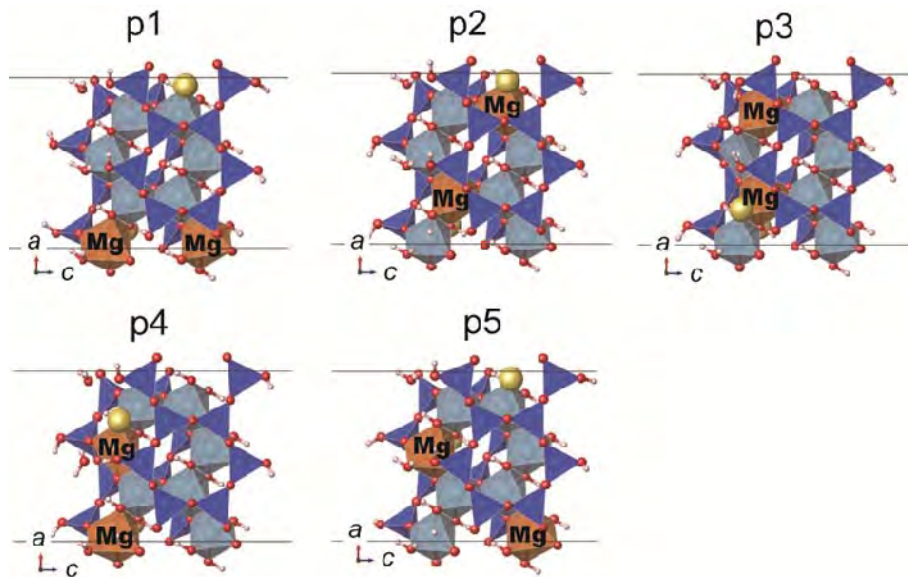


図2.3.3-18 モンモリロナイト（層電荷0.5）のA-chainエッジモデル．(001)面を上から見た図であり、Mgの同形置換部分を茶色で示す。考え得る5通りの同形置換の組み合わせ（p1～p5）に対し、層間Naイオン（黄色）の安定位置を探索。p1～p5それぞれの最安定構造を示す

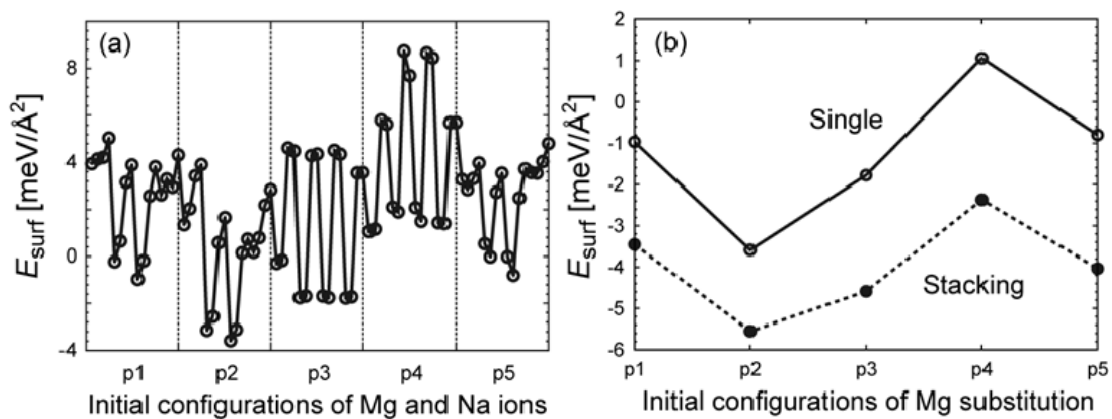


図2.3.3-19 (a)A-ChainのMgの同形置換位置による区分p1～p5とNaイオンの位置による表面エネルギー変化、(b)p1～p5における最安定表面エネルギーの比較。さらに単層モデル (single) と積層モデル (stacking) の最安定エネルギーを比較

このような安定構造をより詳細に理解するため、Na-Mg間の平均距離とNa-Na間の距離の関数とした表面エネルギーの変化を図2.3.3-20に示す。このケースの場合、大域的にはNa-Mg間の平均距離が短いほどエネルギーが低く、Na-Na間の距離はエネルギーにあまり影響しない傾向がある。図2.3.3-19(b)から判るように、積層モデルは単層モデルよりもエネルギー的に安定な状態にある。このことは積層することで層間結合エネルギー以上に安定化するメカニズムがあることを示唆している。このメカニズムは、図2.3.3-17から判るように、エッジのSiO₄四面体にあるSiOHが上下の層と水素結合することによる安定化であると推察できる。つまり、エッジの構造によっては、層と層の入り口が狭くまた強く結合する構造を取り得ることを示唆するものである。この認識は、粘土鉱物のイオン交換やインターカレーションを理解する上で考慮すべきことと考えられる。

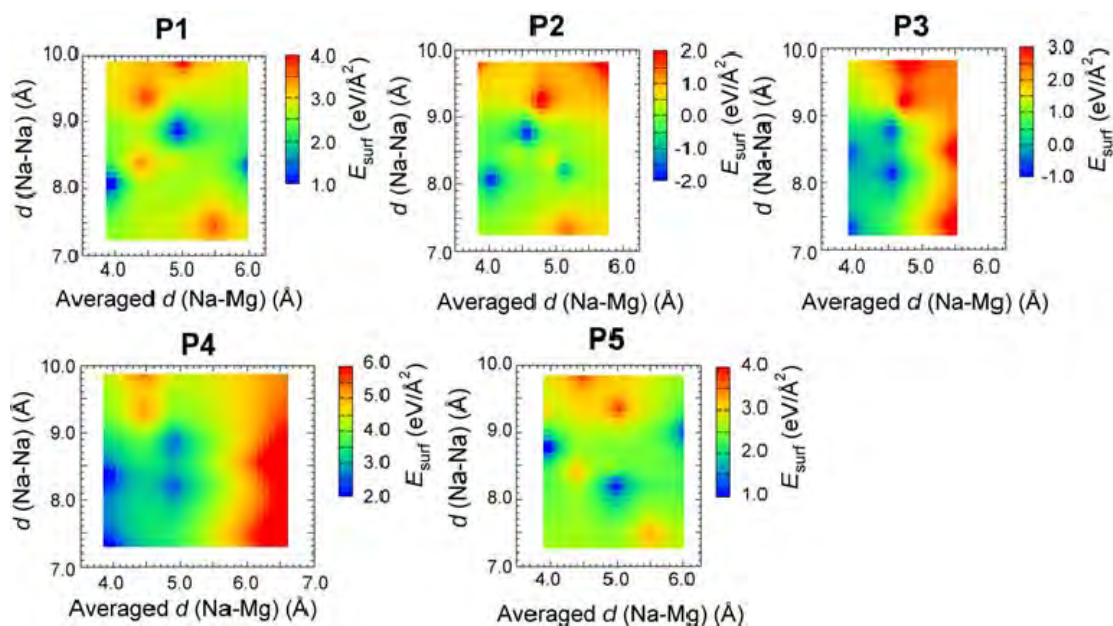


図2.3. 3-20 Na-Mg間の平均距離とNa-Na間の距離をパラメータとするA-Chain（単層モデル）の表面エネルギーの変化。青色：低エネルギー（安定）、赤色：高エネルギー（不安定）

同様の計算をB-, D-, E-chainに対しても実施し、さらに層電荷を $z=0.33$ とした系に対しても行った。その結果、安定なMgの置換位置としては、A及びD-chainでは結晶内部に、またB及びE-chainではエッジ表面近傍にそれぞれ存在する場合であることが判った。このことは、Mgの周りの局所構造を見ることで理解できる。すなわち、B及びE-chainのエッジではMgO₆八面体の2つの酸素原子が他の陽イオンと共有されておらず、Hがついているだけである。一方A及びD-chainのエッジでは1つの酸素原子のみが非共有である。そのため、2つの酸素原子が非共有のB及びE-chainのエッジではMgを安定化させるエネルギーが高く、Mgがエッジで安定化すると考えられる。この傾向性は、 $z=0.33$ 及び0.5に関する限り、層電荷の値には依存していない。また、層電荷0.5の場合と0.33の場合で最安定な表面エネルギーの比較をすると、何れのエッジ表面でも層電荷0.5の方が表面エネルギーが低く、安定であることが判った。このことは、層電荷が増大するとエッジ面が安定化することを示唆している。

(4) アップスケールリング手法の検討

1) アップスケールリング手法の文献調査

最先端の分析データやMD計算などの分子モデルに基づくナノスケールの情報から、メソスケールおよびマクロスケールの物性値（マクロ拡散係数等）を評価するアップスケールリング手法の確立を目的として、ここではChurakov et al. (2011)の行った分子拡散係数のアップスケールリングに対するアプローチの結果を示す。

Churakovらは、以下のようなMDシミュレーションによる決定論的な手法とランダムウォーク(Random Walk, RW)法を組み合わせた2ステップ・アプローチの手法で、粘土中の分子拡散係数のアップスケールリングを行っている。

①粘土粒子や間隙の配置は、あらかじめ簡易な間隙構造マップを仮定する。このマップの各点

には、MDシミュレーションにより算出された局所的な拡散係数 $D(x)$ が付与される。この拡散係数は、着目する粒子や液相の状態(例えば層間水や電気二重層等)によって異なるものであり、この情報をルックアップテーブルに保存する。

②マクロな構造情報(間隙率、鉱物組成、鉱物粒子サイズ、方向分布等)を満たすように生成したマップ上で、RWシミュレーションを行う。その際、上記で設定した局所的拡散係数を用いる。

水分子の平均二乗変位の値をMDシミュレーションのみの結果とMD+RWシミュレーションで得られた結果とを比較することにより、上記の2ステップの手法が妥当であることが確認された。ここでは、平均二乗変位の値として2層水和状態(2L)と3層水和状態(3L)の場合について比較している。

次に粘土構造のモデル化では、解析ドメインのサイズを $200\text{nm} \times 150\text{nm} \times 0.05\text{nm}$ として、分解能を 0.05nm としている。各モンモリロナイト粒子の等価直径(equivalent diameter)は $8 \sim 40\text{nm}$ 程度であり、各粒子は $4 \sim 20$ 層の粘土層状体が積層した構造を有している。また、別途指定された乾燥密度や間隙率といったマクロな幾何学的パラメータが再現されるようにモデル化している。Churakovらは、様々な不均質構造の媒体モデルを想定し、MD+RWシミュレーションで拡散係数を得ている。また、これらの値を基に屈曲度・収れん性・異方性等のパラメータに対して考察を行い、既往の文献等で確認されている値と整合的な値が得られているとしている。

さらにChurakov et al. (2014)では、上記のシミュレーション手法を用いて得られた結果を、準弾性中性子散乱法を用いて測定された結果と比較している。準弾性中性子散乱法では、中性子とモンモリロナイト粒子の散乱によって得られたモンモリロナイト粒子の構造関数を、適切なモデルを用いて拡散係数の関数として表し、フィッティングを行うことで拡散係数を推定する。これは非常に強力な手法であるが、適切な中性子のエネルギー分解能およびモデルの選択が重要である。Churakov et al. (2014)における検討で用いられた解析ドメインの大きさは $2,000\text{nm} \times 2,000\text{nm} \times 0.125\text{nm}$ であり、分解能は 0.125nm である。また、この検討では、上記の構造関数を拡散係数の関数として表すモデルについて、2D及び3Dという2つのモデルで検討を行っており、いずれも同様の拡散係数の値が得られたとしている。これらのモデルは、拡散を2次元的に取り扱うか、あるいは3次元的に取り扱うかの違いに基づいており、今後この手法を用いてこれらのモデルの違いについても検討を進めることができるとしている。

2) ランダムウォーク法を用いたアップスケーリング手法の検討

ベントナイト緩衝材を対象としたアップスケーリング手法の確立を目的として、上記Churakov et al. (2011)で用いられた手法を参考に、ランダムウォーク・シミュレーションを用いた解析コードの検討に着手した。評価に用いる解析コードとしては、花崗岩中の拡散メカニズムを理解するために黒雲母の層状構造を考慮した仮想的な解析体系に適用してその有効性が示されているPARTRIDGEコードを用いた(日本原子力研究開発機構, 2016a)。解析体系として、図2.3.3-21に示すような $50 \times 50 \times 50$ 個の要素からなる構造格子を用いる。その中に、静電的な影響を与えない随伴鉱物を模擬した“ブロック鉱物”と、モンモリロナイトなどの静電的な影響を与え得る粘土鉱物を模擬した“層状鉱物”の2種の鉱物を配置する(図2.3.3-22)。それぞれの鉱物粒子は、5

×5×5個の構造格子をユニットとする。ブロック鉱物は、内部の3×3×3個の構造格子が拡散しない間隙率ゼロのブロックとなっており、その外側の1格子分の表面層が粒界における拡散層を表現する。層状鉱物は、両端と中央の3層が全く拡散しない層であり、その間の2層が層間の拡散層を表現する。初期条件として図2.3.3-21に示す赤色の端面に拡散粒子（ランダムウォーカー）を配置し、反対側の端面から体系外に移行する際の移行率を算出する。また、赤色の粒子放出端面から移行率評価端面へ向かう方向をx方向と定義する。設定条件としては、まず層状鉱物の含有率が10%、30%、50%の割合で、層状鉱物をランダムに配置する3条件とし、層状鉱物の層方向については、解析体系のx方向に対して垂直あるいは平行とする2パターンと、平行か垂直かを完全にランダムに決定するパターンを設定する。したがって、鉱物配置の設定として合計9パターンを考慮するものとする。本解析で設定した配置パターンを、図2.3.3-23に示す。層状鉱物の層間における荷電粒子の拡散係数は、“中性粒子”に対しては $10^{-10}\text{m}^2/\text{s}$ 、“陽イオン”に対しては $10^{-9}\text{m}^2/\text{s}$ 、また“陰イオン”に対しては $10^{-11}\text{m}^2/\text{s}$ と仮定した。なお、ブロック鉱物の拡散層については、各粒子とも共通に $10^{-10}\text{m}^2/\text{s}$ とした。

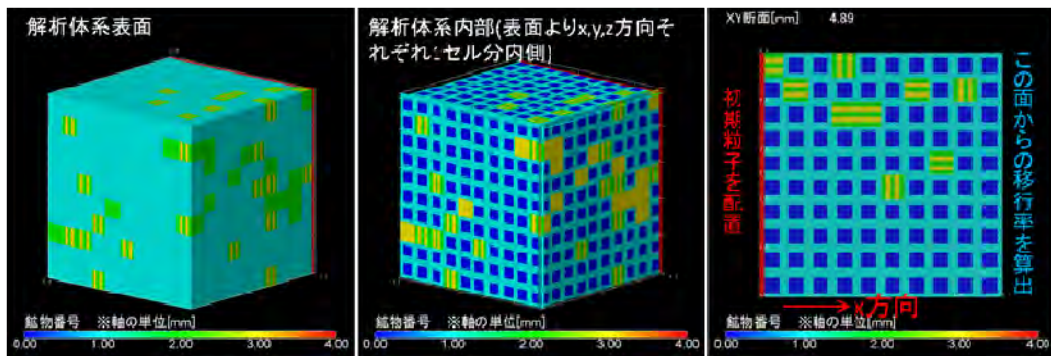


図2.3.3-21 50×50×50の構造格子からなるブロック鉱物と層状鉱物の組み合わせによる解析体系の例(サイズは5mm×5mm×5mm)

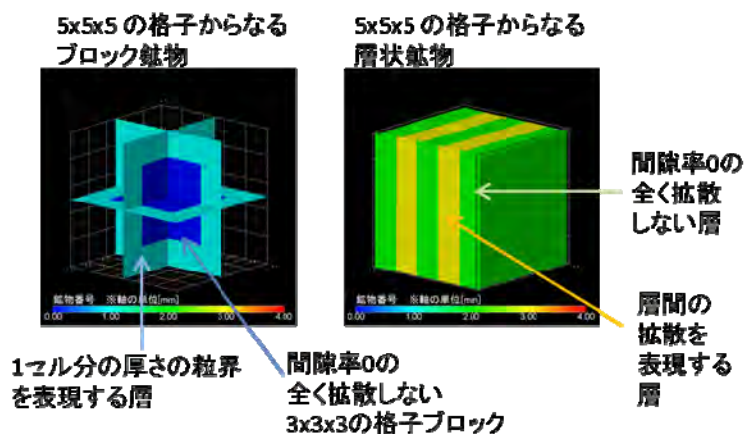


図2.3.3-22 解析体系に配置される鉱物ユニット(ブロック鉱物と層状鉱物)

中性粒子に対する解析結果として下流側端面における粒子移行率 (flux, s^{-1}) の経時変化の例を、図2.3.3-24に示す。図中の“reference” ケースは、層状鉱物が存在しない場合(全てブロッ

ク鉱物から成る)の移行率である。図2.3.3-24(a)が示すように、層状鉱物の層方向がX方向に平行な場合は、層状鉱物の含有率を変化させても拡散による移行挙動にはほとんど影響しない。これは、層状鉱物がX方向への拡散を促進することも阻害することもしないのでX方向への移行挙動に差が現れなかったものと考えられる。一方、層状鉱物の方向がX方向に垂直な場合、図2.3.3-24(b)が示すように、層状鉱物の含有率が増加するにつれて粒子の移行挙動の遅延が大きくなっている。これは、このケースの場合、層状鉱物の含有率が高いほど粒子のX方向への移行が阻害されやすくなるためと考えられる。他の解析ケースについても同様な比較が可能であり、それぞれ妥当な結果が得られた。シミュレーションで得られた粒子移行率に対して、1次元拡散方程式の解析解とのフィッティングにより評価された各ケースの実効拡散係数 D_e は、層状鉱物が全てX方向に平行な場合に最も大きく、 $8 \times 10^{-11} \text{m}^2/\text{s}$ であった。この値は、層状鉱物の含有率には依存しなかった。一方、実効拡散係数が最も小さいケースは、含有率50%の層状鉱物が全てX方向に垂直な場合であり、 $3 \times 10^{-11} \text{m}^2/\text{s}$ であった。中性粒子の場合は、ブロック鉱物の拡散層と層状鉱物の層間の実効拡散係数が等しい場合、層の方向によって粒子の拡散による移行を阻害する効果はあっても、促進させる効果は生じえない。また、層状鉱物の割合が10%程度ならば、層状鉱物の方向は粒子の拡散挙動に顕著な影響を与えない。

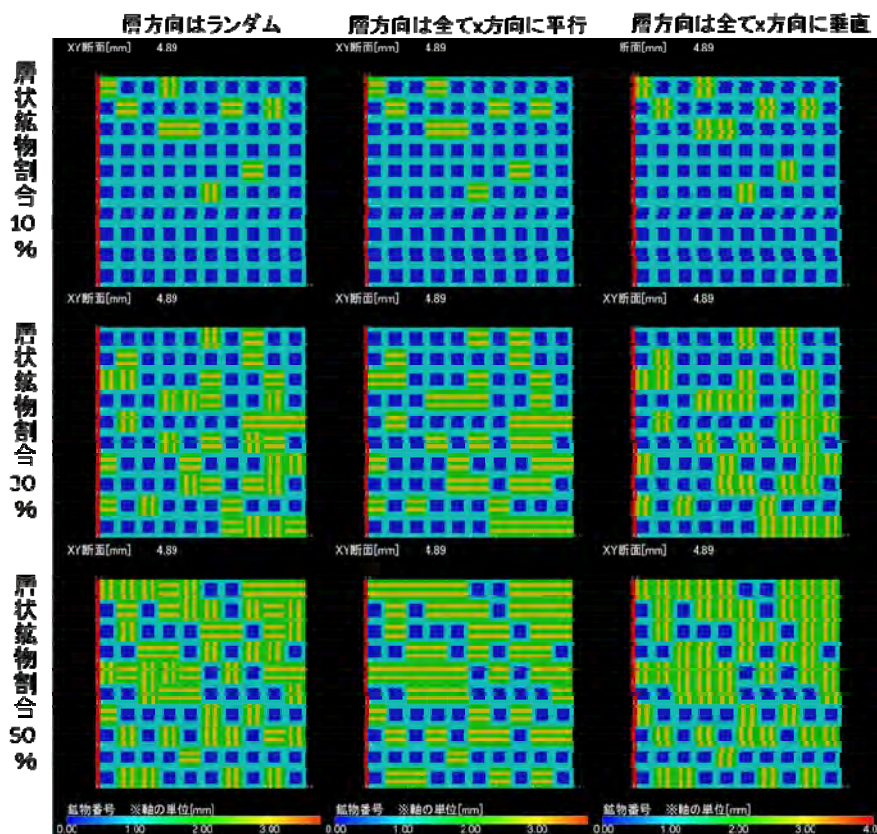


図2.3.3-23 本解析で用いた9種類の鉱物配置パターン

同様な解析を陽イオンに対して実施した結果、実効拡散係数 $4 \times 10^{-11} < D_e < 1.5 \times 10^{-10} \text{m}^2/\text{s}$ の範囲であり、層状鉱物の含有率が高くかつX方向に平行な場合に D_e は大きく、含有率が高くかつX方向に垂直な場合に D_e は小さくなった。陽イオンの場合は、層状鉱物がX方向に平行な場合は含有

率の増大とともに粒子の移行促進効果が顕著になる。しかし、方向がランダムな場合は X 方向に平行な配置の層状鉱物による移行促進効果と X 方向に垂直な配置の層状鉱物による遅延効果が相殺され、顕著な変化は見られない。また、層状鉱物が全て X 方向に対して垂直な場合は、移行が阻害されて遅延効果が表れるものの、層間の拡散が速いために遅延効果自体が小さく、中性粒子の場合と比べると遅延が小さくなると考えられる。さらに陰イオンの場合、 $2 \times 10^{-11} < D_0 < 7 \times 10^{-11} \text{m}^2/\text{s}$ となり、層状鉱物の方向にはほとんど関係なく含有率の増大とともに D_0 が小さくなった。陰イオンの場合は、層間に進入すると確実に拡散が遅くなるため、層状鉱物の方向に関係なく遅延が生じていると考えられる。

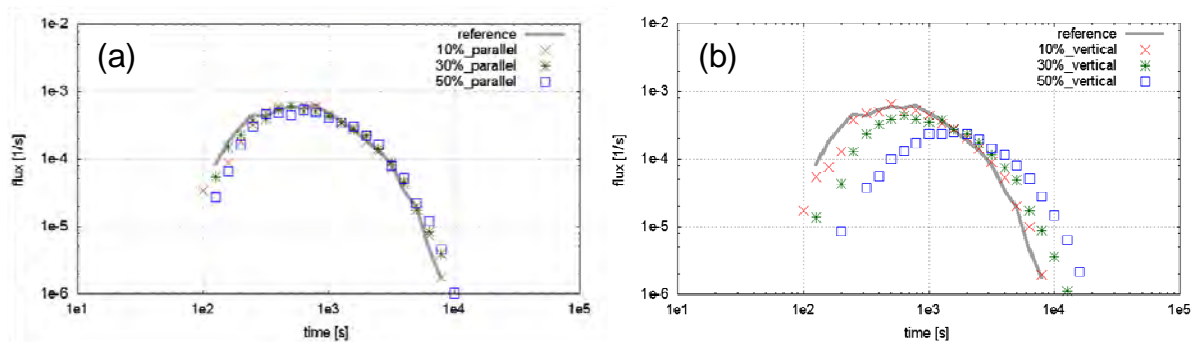


図2.3.3-24 中性粒子に対する移行率。層状鉱物方向が X 方向に平行で含有率を変化させた場合
(a)、層状鉱物方向が X 方向に垂直で含有率を変化させた場合(b)

今後の検討課題としては、より現実的な鉱物配置パターンの検討、各種粒子ごとの局所的な拡散係数の設定方法、あるいは静電場が局所的に与えられた場合の荷電粒子のランダムウォーク法の検討などが挙げられる。

3) メソスケールに着目した間隙構造のモデル化とマクロパラメータ算出の方法論の検討

本項では、ミクロスケール、メソスケールおよびマクロスケール（実測値等）のマルチスケールでの連携の具体化に着目し、その基盤技術となる多孔質媒体の間隙構造のメソスケールに着目したモデル化手法と、その結果に基づく実測値と比較可能なマクロ物性値（マクロ拡散係数等）の算出方法の整備を目的として、間隙構造のモデル化とマクロパラメータ算出のための方法論を検討した。さらに、計算効率の向上に向けてのGPGPU（General Purpose computing on Graphics Processing Unit）の活用についても検討を行った。

本研究では、平成25年度までに、ランダムウォークによる3次元非定常拡散解析を、GPGPU上で並列計算することで、複雑形状領域における拡散問題に対しても著しい計算効率の向上が達成できることを示した（日本原子力研究開発機構，2014a）。また平成26年度には、粘土含水系の多孔質媒体の幾何形状や間隙構造を、粘土シートの堆積に着目した2次元のメソスケール分子シミュレーション（個別要素法DEM）により生成する堆積構造モデルで表現する研究に着手し、基本プログラムの作成を行った（日本原子力研究開発機構，2015a）。このプログラムでは、粘土シートは大きく弾性変形しうるとの仮定のもと、水和した粘土シートを重力場のもとで堆積させることで、2次元的な積層構造を持つ多孔質媒体を生成することが可能となった。さらに平成27年度には、

堆積構造のモデル化について、特に体積拘束により粘土含水系を圧縮する機能を導入することで、より多様かつ現実的な堆積構造モデルの作成が可能となった(日本原子力研究開発機構, 2016a)。また、その結果を加工し拡散解析ソルバーに引き渡すことで、微視的な間隙構造の特性を反映した拡散解析とマクロ拡散係数の算出までを実行することが可能となった。これらの進展により、顕微鏡等による直接観測が非常に困難な粘土含水系の堆積構造のモデルを作成し、それに基づきナノスケールレベルの微視的な間隙構造(拡散経路として見たときの間隙の屈曲状況等)の特性と観測可能なマクロ物性値とを計算科学の手法により結びつけることが可能となってきた。このようなアプローチはこれまでほとんど行われておらず、性能評価解析技術の高度化という工学的意義のみならず、粘土含水系の物理化学的性質を解明するための科学的に有用なツールとしての意義も有すると期待される。以上を踏まえ、本年度は以下を目的とした研究を進めた。

- 粘土含水系の微視的多孔質構造を考慮した変形挙動の解析を、ひずみ及び応力制御下において実施することを目的とした、平成27年度までに開発した2次元のメソスケール分子シミュレーションコードの拡張
- 上記プログラムを用いた解析の実施、並びにナノからマイクロメートルオーダーのメソスケール領域における粘土含水系の応力とひずみの関係を調べる手法の提案

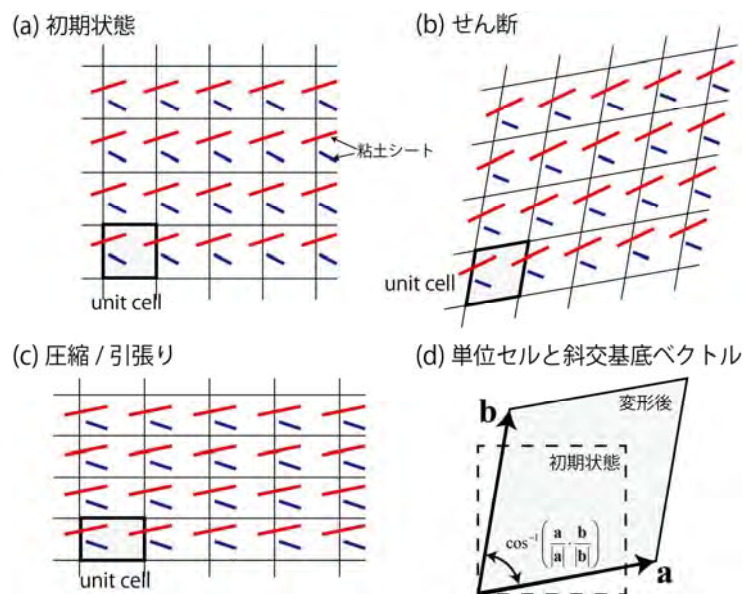


図2.3.3-25 計算コードの拡張で考慮した周期構造モデルとユニットセルの模式図

はじめに、任意のひずみ及び応力制御条件に対して、水和粘土鉱物の堆積シミュレーションを実施することができるよう、平成27年度までに開発した2次元のメソスケール分子シミュレーションコードを拡張する。そのためにまず、周期構造モデルにおいて、系全体に巨視的な意味での変形が生じるとする場合、セルが一様に変形すると考えることで巨視的な変形を表現する。応力との対応を考える場合、基本となる変形の様式は、図2.3.3-25(b)および(c)に示したようなせん断変形と引張り/圧縮変形であり、これらの変形様式とその程度は、図2.3.3-25(d)に示したユニットセルの2辺を基底ベクトルとし、その向きと大きさの変化あるいは変化率で定量化することができる。また、応力制御下で生じる応答ひずみを見るためには、応力値を直接指定することができる。

ないため、ユニットセルを少しずつ変形することで、指定した応力状態が実現されるように微調整を繰り返す方法を採用する。

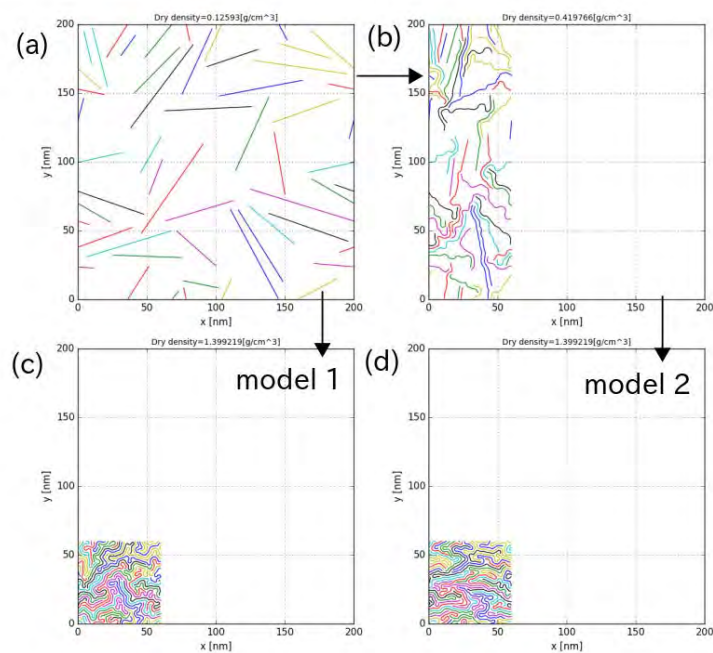


図2. 3. 3-26 異なる締め固め履歴を経て得られたモデル水和粘土鉱物の堆積シミュレーションの結果

以上の改良を加えたメソスケール分子シミュレーションコードを用いて、初期粒子(粘土鉱物)分布(図2. 3. 3-26(a))に対して、以下の異なる締め固め履歴を経て得られた堆積構造のモデル(model-1とmodel-2)を設定した。

model-1: 等方的に圧縮した場合の堆積構造(図2. 3. 3-26(c))

model-2: まず水平方向に圧縮し(図2. 3. 3-26(b))、その後鉛直方向に圧縮した(図2. 3. 3-26(d))
場合の堆積構造

これらのモデルに対して変形シミュレーションを行い、応力とひずみの関係や力学的異方性の程度を調べた。図2. 3. 3-27の上段に、圧縮した時の主応力の応答(赤が水平方向に圧縮した場合、青が鉛直方向に圧縮した場合)を、下段にせん断変形を加えたときのせん断応力の応答を示す。これらの図では、応力値が系のゆらぎにより激しく振動しているが、いずれの応力成分もひずみに比例して増加傾向を示している。圧縮した時の主応力(図2. 3. 3-27(a), (b))について、赤(水平方向)および青(鉛直方向)の傾きを求め比較すると、model-1では傾きはほぼ同じであり、圧縮に対する剛性に方向性が無いことが分かる。一方model-2では、青(鉛直方向)の傾きがやや大きいことから、鉛直方向の剛性が高い、すなわち、わずかながら力学的な異方性が現れていると推定される。また、model-1では、せん断応力の傾きを求めると増加の傾向がみられることに対し、model-2ではひずみ量が小さい時の応答が鈍くより緩やかに増加している傾向となっている(図2. 3. 3-27(c), (d))。これは、model-1とmodel-2での粘土シートどうしの絡み合いの強さの違いにより生じた差であると考えられる。

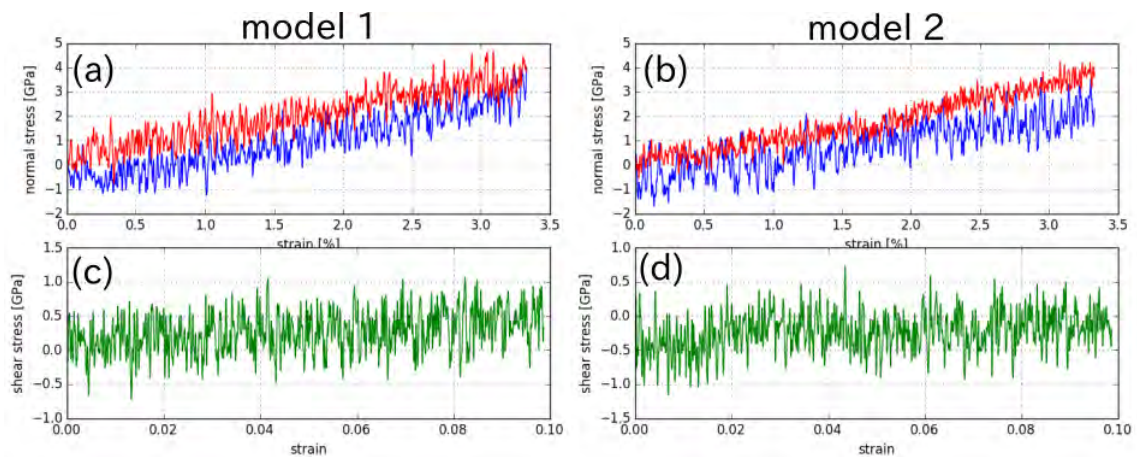


図2.3.3-27 変形シミュレーションで得られたひずみと応力の関係

(a) model-1に対して圧縮した時の応力、(b) model-2に対して圧縮した時の応力、(c) model-1に対してせん断変形を加えたときのせん断応力、(d) model-2に対してせん断変形を加えたときのせん断応力。応力値は、圧縮あるいはせん断変形の開始時点をもとにした場合の偏差量。また、(a)と(c)では、赤が水平方向に圧縮した場合、青が鉛直方向に圧縮した場合の応力を示している

今回のコード拡張により、任意のひずみ並びに応力制御条件下において、粘土含水系の挙動をシミュレーションし、粘土含水系の微視的な組織構造や圧縮成型過程を考慮してマクロな弾性的性質を推定することが可能となった。なお现阶段のシミュレーションコードでは、温度の制御が行えず、また、2次元解析に留まっている。そのため、緩衝材に関するより現実的な課題の解決に利用できるようにしていくためには、温度制御機能と3次元化等が課題となると考えられる。

(5) 核種移行評価の不確実性に係る課題と評価手法に関する調査

圧縮ベントナイト中の間隙水化学は、核種の溶解度と支配化学種、収着や拡散パラメータの設定のための重要な前提条件である。従来、圧縮ベントナイト中の間隙水化学は、ベントナイトの主成分であるNa型モンモリロナイトの層間でのイオン交換、エッジでの酸塩基解離反応、随伴鉱物の溶解・沈殿等を考慮した平衡論モデルによって、不確実性も含めて評価されてきている（例えば、核燃料サイクル開発機構，1999c）。また収着と拡散のモデル及びパラメータについては、統合収着・拡散（ISD）モデルの開発において、不確実性に関する検討を行ってきた（日本原子力研究開発機構，2013c）。このようなモデルによる核種移行パラメータやその不確実性の評価については、特に重要なパラメータである収着分配係数及び実効拡散係数を中心として、国内外で多くの検討がなされてきている。これまで、圧縮ベントナイトの間隙水化学及び核種の収着を地球化学計算コードPHREEQC（Parkhurst et al., 1995）によって評価し、電気二重層理論に基づく実効拡散係数評価コードISDCalcを組み合わせ、間隙水化学・収着・拡散を統合的に評価する手法（統合収着・拡散評価手法）が構築されている（日本原子力研究開発機構，2013b）。さらに本事業において、平成26年度には、PHREEQCによる間隙水化学の評価とISDCalcコードを連携した不確実性評価コードUPhreeqcISDCalcの開発を進めている（日本原子力研究開発機構，2015a）。従来のUPhreeqcISDCalcコードでは、ISDCalcコードに入力する化学種の濃度が一定値として設定され

ており、PHREEQCコードで評価された濃度が反映されないという問題点があった。そこで、本年度は、PHREEQCコードで評価した化学種の濃度がISDCalcコードに入力されるよう改善するとともに、異なる化学種が共存する元素に対しては、各化学種の存在割合を考慮した平均化処理の手法をさらに拡充し、評価コードの機能を拡張した。

1) 不確実性評価コードシステム開発の概要

原子力機構では、これまで開発してきたモデル評価手法との整合性も考慮しつつ、地球化学計算コードPHREEQCを用いた不確実性評価ツールの開発／評価解析を進めてきた。本コードシステムでは、パラメータセット生成コードにおいて、変動パラメータの確率密度関数の情報を入力することにより、LHS（ラテン超方格サンプリング）法に基づいて必要なサンプル数のデータセットを生成することが可能である。地球化学計算コードとしては、これまでの間隙水化学や収着モデル計算に用いてきたPHREEQCを採用する。統計解析コードとしてSPOP（統計ポストプロセッサ）コードを使用し、PHREEQCにより算出された分配係数等の出力値のヒストグラムや累積分布関数を作成するとともに、確率密度関数を設定した変動パラメータの重要度に関する情報（変動パラメータ値と分配係数等の出力値との偏順位相関係数など）を得ることができる。

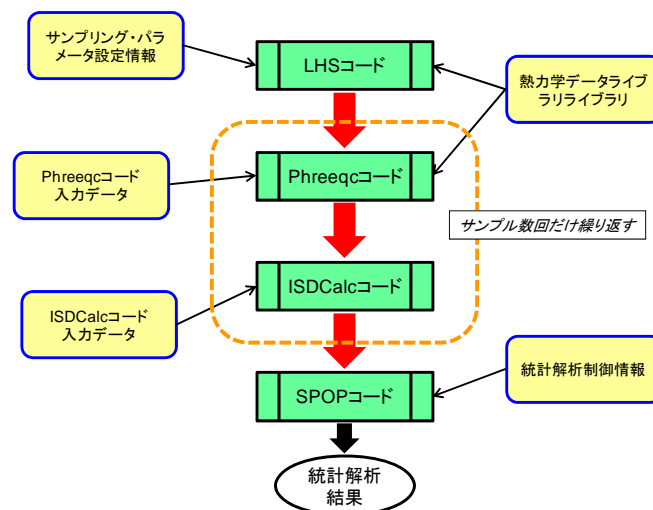


図2. 3. 3-28 PHREEQCとISDCalcを連携した不確実性評価ツールの処理流れ

PHREEQCによる間隙水化学の評価とISDCalcコードを連携した不確実性評価コードUPhreeqcISDCalcコードの処理流れを、図2. 3. 3-28に示す。コードの主要計算部分は2つのパート、すなわちPHREEQCコードを用いて間隙水化学特性／収着分配係数を計算するパートと、ISDCalcコードを用いて実効拡散係数を計算するパートから成る。ISDCalcコードで実効拡散係数を計算する際、必要となる入力パラメータのうち陽イオン交換容量は、間隙水化学特性を計算する際の入力パラメータと整合的にサンプリングし、また、イオン強度はPHREEQCコードによる計算結果を入力パラメータとして用いる。

2) 不確実性評価コードの検証と複数化学種平均化処理の検討

拡張されたUPhreeqcISDCalcコードの動作確認をおもな目的として、乾燥密度1400kg/m³の純粋

なクニゲルV1（真密度=2700kg/m³）を対象に、初期間隙水を純水とした場合の解析を実施した。不確実性を考慮するパラメータの一覧を、Srを例として表2.3.3-3に示す。本解析では、パラメータの分布幅に対する感度解析機能を評価するため、分布形状はすべて「一様分布」を仮定し、また、これまでに整備してきた間隙水化学および収着モデルのパラメータ値(Tachi et al., 2014a)を基準として一桁の変動幅を設定した。なお、パラメータセットのサンプリング数は1000とした。Srを例にとると、実効拡散係数の平均化処理ではPHREEQCコードによる平衡計算の結果得られた溶液中に存在するSrに係る全ての化学種を対象に、それぞれの化学種の濃度（存在割合）を重みとして考慮している。平成27年度の平均化処理では式(2.3.3-8)に示すように、まずそれぞれの化学種ごとに実効拡散係数 $D_{e,i}$ を計算し、その対数をとったものに重みを考慮して調和平均した。

$$\frac{1}{\log \tilde{D}_e} = \sum_{i=1}^m \frac{f_i}{\log D_{e,i}} \quad (2.3.3-8)$$

ここで f_i は化学種 i の存在割合（化学種 i の濃度/Srに係る全ての化学種の濃度合計）、 $D_{e,i}$ はISDCalcコードで計算した化学種 i の実効拡散係数である。また m は、Srに係る化学種の総数である。なおチルダの付いた諸量は、平均化された量を示すものとする（以下同様）。実効拡散係数の対数をとる根拠としては、ISDモデルにおいて支配的な因子である電氣的収れん度が、それぞれのイオンが担う電氣的エネルギーの指数関数の形になっていることが挙げられる（日本原子力研究開発機構, 2016a）。しかしながら、ISDモデルで評価する実効拡散係数は電氣的収れん度が支配的とはいえ自由水中拡散係数も因子としてもつため、厳密には因子ごとに適切な平均化の手法を考慮すべきと考えられる。そこで本年度は、式(2.3.3-9)に示すような平均化処理を検討した。

$$\tilde{D}_e = G \cdot \tilde{\delta}_{el} \cdot \tilde{D}_w, \quad \log \tilde{\delta}_{el} = \sum_{i=1}^m f_i \log \delta_{el,i}, \quad \frac{1}{\tilde{D}_w} = \sum_{i=1}^m \frac{f_i}{D_{w,i}} \quad (2.3.3-9)$$

ここで $\delta_{el,i}$ は化学種 i の電氣的収れん度、 $D_{w,i}$ は化学種 i の自由水中拡散係数である。また G は拡散媒体の幾何学的因子（間隙率も含む）であり、ここで考えている均質間隙モデルにおいては、全ての化学種に対して共通の値をとるものと仮定する。式(2.3.3-9)では、まず電氣的収れん度に対しては対数をとった上で線形の加重平均を評価する。これは1つのイオンが担う電氣的エネルギーの平均は、算術平均で評価できるからである。また自由水中拡散係数については、異なるイオンが混在する系での平均的な拡散係数が調和平均で評価できると考えられることを考慮した。このようにそれぞれの因子について平均化処理した上で、ISDモデルの評価手法にしたがって実効拡散係数を算出した。

表2.3.3-3 不確実性を考慮するモデルパラメータ (Srのケース)

イオン交換の反応定数(log_k)	分布形状	最小値	最大値
$X^- + K^+ = XK$	一様分布	19.92	20.92
$2X^- + Mg^{2+} = X_2Mg$	一様分布	40.17	41.17
$2X^- + Ca^{2+} = X_2Ca$	一様分布	40.19	41.19
$X^- + H^+ = XH$	一様分布	19.6	20.6
$2X^- + Sr^{2+} = X_2Sr$	一様分布	40.19	41.19
陽イオン交換容量 [meq/100g]			
CEC	一様分布	30.05	90.15
CECに対する比表面積 [m ² /kg]			
S	一様分布	4.050E+05	1.215E+06
エッジ表面の酸・塩基解離定数(log_k)			
$sOH + H^+ = sOH_2^+$	一様分布	5.25	6.25
$sOH - H^+ = sO^-$	一様分布	-8.804	-7.804
初期の交換性陽イオン組成 [mol/L]			
XNa	一様分布	7.480E-01	2.244E+00
XK	一様分布	8.345E-03	2.504E-02
X ₂ Mg	一様分布	4.828E-03	1.448E-02
X ₂ Ca	一様分布	5.390E-02	1.617E-01
エッジ表面サイト密度 [mol/L]			
sOH	一様分布	3.008E-02	9.023E-02
可溶性塩含有量 [mol/L]			
CaSO ₄	対数一様分布	5.205E-03	5.205E-01
CaCl ₂	対数一様分布	1.785E-04	1.785E-02
炭酸ガス分圧(log)			
CO ₂ (g)	一様分布	-4.5	-2.5

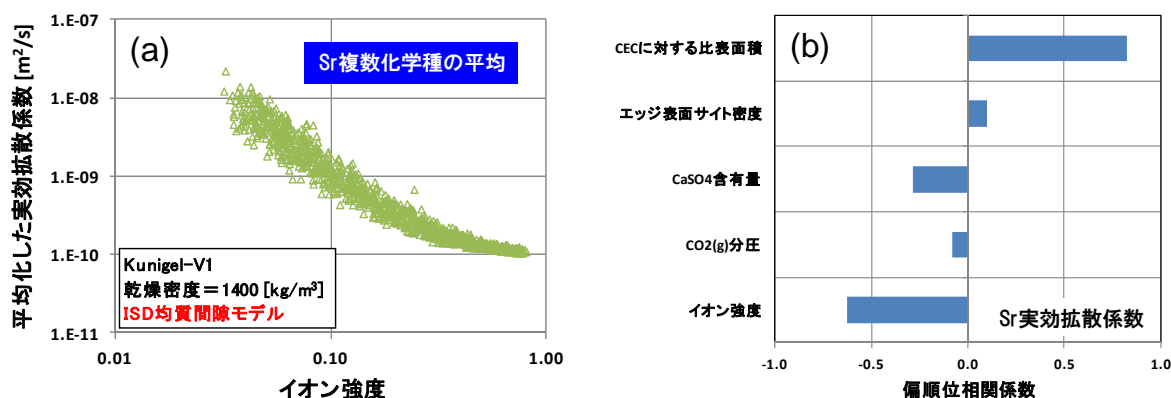


図2.3.3-29 イオン強度に対するSr実効拡散係数の散布図(a)、Sr実効拡散係数に対する主要パラメータの感度解析(b)

式(2.3.3-9)の平均化手法により計算したSr元素に対する実効拡散係数の散布図を、図2.3.3-29(a)に示す。横軸は、PHREEQCコードの平衡計算で得られたイオン強度である。イオン強度が低くなるにしたがって実効拡散係数が上昇していることから、Sr²⁺などの価数の高い陽イオンの存在が支配的であると考えられる。なお、式(2.3.3-8)で評価した昨年度の結果と比較すると、結果的には明白な相違は現れなかった。また、実効拡散係数に対して感度が高いパラメータの偏順位相関係数を、図2.3.3-29(b)に示した。価数の高い陽イオンの存在が支配的であると考え、 「イオン強度」の感度が高いのは妥当な結果であると言える。また、「CEC (陽イオン交換容量) に対する比表面積」が正の高い相関をもつのは、比表面積が増大すると「層間の間隙幅」が減少し、間隙幅が狭くなるほど陽イオン濃集が促進して陽イオンの実効拡散係数が上昇するためと考

えられる（日本原子力研究開発機構，2016a）。これらの結果から、本コードシステムは有効に機能していることが確認できる。

2.3.4 システム変遷と核種移行評価のためのデータ・モデルの整備

(1) 鉄共存下での核種移行評価

1) 鉄共存下での核種移行研究の現状・課題とアプローチ

わが国の高レベル放射性廃棄物の地層処分においては、ガラス固化体、炭素鋼製オーバーパック、及び緩衝材として設置される圧縮ベントナイトによって構成される人工バリア概念を対象として安全評価が行われている。このような概念においては、炭素鋼製オーバーパックの腐食により生成した鉄腐食生成物が圧縮ベントナイト中に移行するため、鉄腐食生成物の溶解により圧縮ベントナイト間隙水中の Fe^{2+} 濃度が上昇する。 Fe^{2+} 濃度の上昇に伴いベントナイトに収着する Fe^{2+} が増加するため、放射性核種と Fe^{2+} との収着が競合し、核種の収着量が低下する可能性が考えられる。これまで、 Fe^{2+} と核種の収着競合については、 Fe^{2+} の存在下での圧縮ベントナイト中の核種の移行挙動の解析や（Pfingsten et al, 2011）、 Fe^{2+} と Zn^{2+} の競合収着に関する実験的研究（Soltermann et al., 2013）等が報告されている。しかしながら、 Fe^{2+} 共存下での核種の競合収着に関する報告は限られており、競合収着の定量的な評価に向けて、より詳細な検討が必要である。

圧縮ベントナイト中において、核種及び Fe^{2+} は主にベントナイトの主成分であるモンモリロナイトに収着する。モンモリロナイト中に存在する収着サイトは、1種類のイオン交換サイトと複数種の表面錯体サイトに分類されることが知られている（例えば、Bradbury and Baeyens, 2005）。そのため、核種と Fe^{2+} との競合収着を検討する上では、各収着サイトに対する Fe^{2+} の収着挙動を調査し、 Fe^{2+} の収着が飽和して核種との収着競合が顕著になる条件を、各収着サイトに対して把握する必要がある。また、 Fe^{2+} との収着競合による核種の収着挙動の変化を評価するためには、 Fe^{2+} と核種の交換挙動を、それぞれの収着サイトに対して把握する必要がある。

このような背景を踏まえ、本調査では、 Fe^{2+} と核種の競合的収着挙動を実験的に明らかにし、 Fe^{2+} が収着したベントナイトに対して核種の選択定数を整備して、競合収着の影響を定量的に評価することが可能なモデルを確立することを目的とする。平成27年度までの調査において、Na型モンモリロナイトに対する Fe^{2+} 収着試験を実施し、 Fe^{2+} のモンモリロナイトへの収着挙動は、1種類のイオン交換サイトと2種類の表面錯体サイトを考慮することにより評価可能であることを示した。また、試験結果より、各表面錯体サイトに対する Fe^{2+} と H^+ の選択定数、イオン交換サイトに対する Fe^{2+} と Na^+ の選択定数を整備し、 Fe^{2+} のモンモリロナイト中の各収着サイトへの収着挙動について、定量的な評価を可能とした。 Fe^{2+} と核種の競合収着に関して、共存 Fe^{2+} 濃度を調整して表面錯体サイトのみが Fe^{2+} により飽和した条件でのNa型モンモリロナイトに対する Cs^+ 、 Ni^{2+} の収着試験、イオン交換サイトを含む全ての収着サイトを Fe^{2+} に交換したFe型モンモリロナイトに対する Cs^+ 、 Ni^{2+} の収着試験を実施し、 Fe^{2+} 共存下での競合収着現象について検討を行った。試験結果より、イオン交換サイトへの Fe^{2+} と Cs^+ の選択定数を算出し、イオン交換サイトも Fe^{2+} により飽和した場合の Cs^+ の収着挙動について定量的な評価を可能とした。しかしながら、 Ni^{2+} に関する試験については、過去の報告（例えば、Bradbury and Baeyens, 1997）に比べて整合性のある分配係数値が得られず、FeをII価に維持するために添加したアスコルビン酸が影響を及ぼしていると考

えられた。このことから、本年度は、 Ni^{2+} 等の収着挙動に影響を及ぼさずに還元環境を実現し、収着試験を実施できる試験手法の確立と、確立した試験手法による Fe^{2+} 共存下での Ni^{2+} 、 Eu^{2+} の分配係数の評価を行うことを目的として試験を実施した。

2) 鉄共存による核種移行への影響評価

①収着挙動に影響を及ぼさない還元手法の検討

Fe を2価に維持する手法として、収着試験に用いる容器内の水素分圧を上昇させ、試験溶液の酸化還元電位を低下させる手法を検討した。具体的には、容器から水素ガスの透過を防ぐためにガラス製の試験容器を使用し、ゴム栓（セプタム）をアルミキャップで封入することにより気密性を確保する形状の試験容器を用いた。試験容器及び水素ガスの封入、サンプリング手法を図2.3.4-1に示す。溶液のサンプリングは、シリンジ針をセプタムに刺し、容器中の試験溶液を採取することにより行う。

試験容器中の溶液の還元雰囲気維持されていることを確認するため、試験溶液に Fe^{2+} を添加し、UV測定により Fe^{2+} 濃度の時間変化を観察した。試験溶液に0.5及び0.05mol/dm³のNaCl溶液を用い、pH8付近で試験を実施した結果、15日後においても溶液中の Fe のほぼ全てが2価に保たれていることが確認された。この結果より、本試験手法を収着試験に用いることとした。

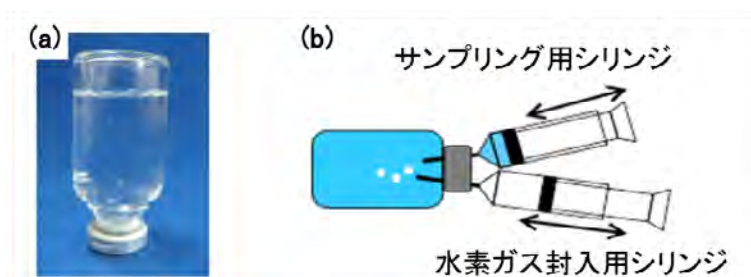


図2.3.4-1 ガラス製容器を用いた試験体系
(a)試験容器 (b)水素ガス封入・サンプリング方法

② Fe^{2+} 共存下でのモンモリロナイトに対するNi, Eu収着挙動

Fe^{2+} とのNi, Euの収着競合について検討するため、 Fe^{2+} 共存下でのNa型モンモリロナイトに対するNi, Euの分配係数をバッチ収着試験法により評価した。試験は、①で検討した試験体系を用い、Na型モンモリロナイトとしてクミネ工業製クニピアFを使用した。共存 Fe^{2+} 濃度は、これまでの調査により明らかとなった Fe^{2+} が収着する2種類の表面錯体サイトのうち、1種類の表面錯体サイトが飽和する条件である Fe^{2+} 濃度 1.0×10^{-4} mol/Lの条件で実施した。試験溶液は0.05mol/Lと0.5mol/Lの2種類のNaCl溶液とし、初期pHを8に調整した。サンプリング時の固液分離は、分画分子量10000の限外ろ過フィルターにより行った。試験は、 Fe^{2+} 非共存下でも同様の条件で実施した。また、Ni, Euの試験容器への収着を評価するため、モンモリロナイトを添加しない条件でも試験を実施した。

図2.3.4-2に、試験により得られたNiの分配係数を示す。本試験により得られた分配係数の値は、 Fe^{2+} 非共存下で3.3-3.6m³/kgであった。この値は、昨年度に還元剤としてアスコルビン酸を添加して取得した0.3-0.8m³/kg程度と比較して一桁程度大きくなっており、昨年度疑われたアスコルビ

ン酸の影響を排除した形で分配係数を評価できたものと考えられる。図に示すように、同じNaCl濃度での分配係数を比較すると、Fe²⁺非共存下に比べて、Fe²⁺共存下ではNiの分配係数が低下している。このことは、Fe²⁺とNiの収着が競合し、その結果としてNiの収着分配係数が低下したことを示していると考えられる。

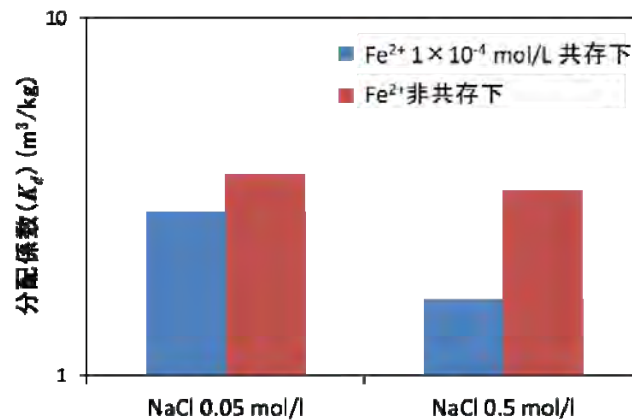


図2.3.4-2 Fe²⁺共存下、非共存下でのNa型モンモリロナイトに対するNiの収着分配係数

昨年度までに、Fe²⁺のモンモリロナイトへの収着挙動は、2種類の表面錯体サイト（表面錯体サイト1、表面錯体サイト2と定義）とイオン交換サイトを仮定することにより説明できることを示した。そのため、本試験条件においてFe²⁺により飽和していると考えられる表面錯体サイト1に対して、FeとNiの選択定数を算出した。その結果、 $\log_{\text{Fe}}^{\text{Ni}}K = 1.6$ の値が得られた。 $\log_{\text{Fe}}^{\text{Ni}}K$ の算出には、底面へのNiの収着が無視できるNaCl濃度0.5mol/Lの試験結果を使用し、表面錯体サイト2へのNi収着は無視した。

Euの収着試験の結果、モンモリロナイトを添加しない試験試料においても、Eu濃度の大幅な低下が観察された。この濃度低下は、試験容器への収着によるものと考えられる。モンモリロナイトを添加した試料においても、Euの試験容器への収着の影響が考えられ、その場合、モンモリロナイトへのEuの分配係数が過大に評価される可能性がある。そのため、Euについては分配係数の算出は行うことができなかった。

本年度の調査より、Fe及びNiが支配的に収着すると考えられる表面錯体サイト1に対して、 $\log_{\text{Fe}}^{\text{Ni}}K$ の値を算出し、FeとNiの収着競合に伴うNiの収着分配係数の低下について定量的に評価するための基礎データを整備した。これに対し、Euについては、分配係数の評価手法に課題が残る結果となった。このことから、今後、酸溶液等を用いた脱離試験によるEuの容器収着量の評価や、固相に収着したEuの濃度の直接測定等、容器収着の影響を定量的に評価する手法、または、容器収着の影響を無視できる試験手法によってEuの分配係数を取得し、Fe²⁺との収着競合の可能性について評価する必要がある。

(2) 鉄共存下でのガラス溶解評価

オーバーパックは、少なくとも放射能や発熱が高い期間、地下水がガラス固化体に接することを防ぐ安全機能が期待されており、この機能が発揮されるよう設計される。この期間を超える長期的な腐食の進展に伴い、やがてはオーバーパックの厚さが減少し、構造的な強度が周囲からの

応力を支持しえなくなった段階で、オーバーパックは機械的に破損する。その後、オーバーパック内部に浸入した地下水とガラス固化体が接触することで、ガラスの溶解及び変質が始まる。同時に、オーバーパックを構成する鉄の腐食は継続する。この条件において、ガラス固化体の溶解・変質がどのように進行するのかを評価する必要がある。

平成25年度は、鉄共存下でのガラス溶解評価に係る課題として、現象理解とモデル整備に向けたパラメータ設定の必要性を示した。平成26年度及び27年度は、 Fe^{2+} と溶存ケイ酸の反応による鉄ケイ酸塩鉱物の析出についての現象理解の参考とするため、 Fe^{2+} と近いイオン半径を持つ Mg^{2+} を含む人工海水中で変質させた既存の模擬廃棄物ガラス試料の表面分析を行うとともに、 MgCl_2 溶液条件で、7～90日間の模擬廃棄物ガラスの浸出試験を実施した。平成28年度は、 MgCl_2 溶液条件で180日間の模擬廃棄物ガラスの浸出試験を実施し、より長期のデータを取得した。また、 Fe^{2+} 含有溶液を用いた浸出試験の実施に向けた Fe^{2+} 含有溶液の安定性評価を行うとともに、処分環境で想定される中性からアルカリ性の条件において、どのような鉄ケイ酸塩鉱物が生成し得るか確認するため、 Si/Fe 比及びpHをパラメータとした Fe^{2+} と溶存ケイ酸の反応試験を行った。

① MgCl_2 溶液条件での模擬廃棄物ガラスの浸出試験

a. 試験方法

10mm×10mm×1mmに成型して表面を鏡面研磨したクーボン状模擬廃棄物ガラス（P0797）を試料とした。試験方法概略図を図2.3.4-3、試験条件を表2.3.4-1に示す。

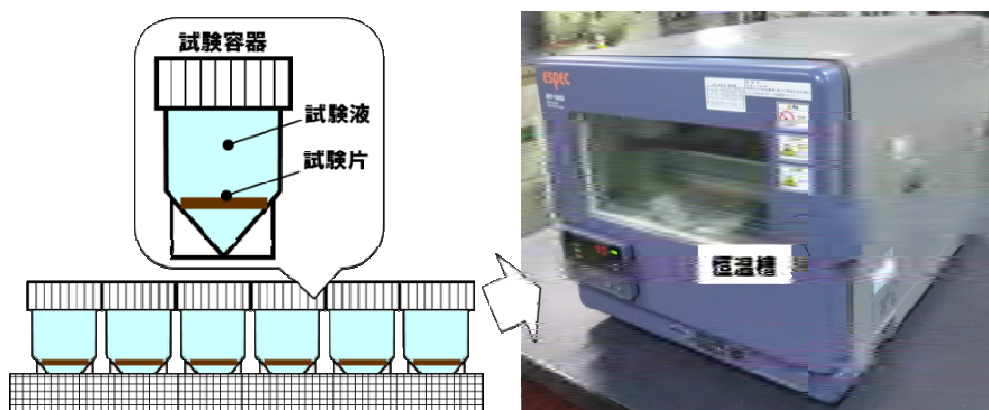


図2.3.4-3 試験方法概略図

試験液（4.8mL）と重量を測定した試験片（1枚）をテフロン製の試験容器に入れて密封し、試験容器を含む総重量を測定した後、90℃に調整した恒温器内で所定の期間静置した。所定の期間ごとに恒温器から取り出した試験容器を密封したまま室温まで自然放冷後、試験容器を含む総重量を測定して、浸出液の漏れや蒸発による有意な重量減がないこと（初期総重量の10%以内）を確認した。その後、試験容器の蓋を開け、浸出液のpHをpHメータを用いて測定した。試験片は、無水エタノールで試験片の両面を洗浄し、乾燥させた後、プラスチック製シャーレに入れてデシケータ内で保管した。

表2.3.4-1 試験条件

試験片	P0797	
試験液：5種、各4.8(mL)	脱イオン水	
	MgCl ₂ 溶液：	0.055M
		0.0055M
		0.00055M
	人工海水 (Mg ²⁺ 濃度：0.055M)	
試験容器	5mLテフロン容器	
試験温度	試料調製時は室温 静置期間中は恒温槽内90°C	
試験期間 (日)	182	
SA/V (m ⁻¹)	50	
N数	3	
固相分析	X線回折分析，走査型電子顕微鏡分析	

b. 分析方法

試験後の試験溶液はICP-AES及びICP-MSにて元素分析を行った。試験後の試験片は、XRD及びSEM分析に供した。

c. 分析結果・考察

図2.3.4-4に182日間変質させた試料の元素の面分析結果を示す。いずれの試料についても、ガラス表面部にはNaの濃度が減少した変質層が認められた。また、MgCl₂溶液及び人工海水条件の試料については変質層の最表面部にはMg濃度が高い領域が認められた。脱イオン水条件の試料と比較して、MgCl₂ 0.055M溶液及び人工海水条件の試料は、2倍程度変質層が厚かった。

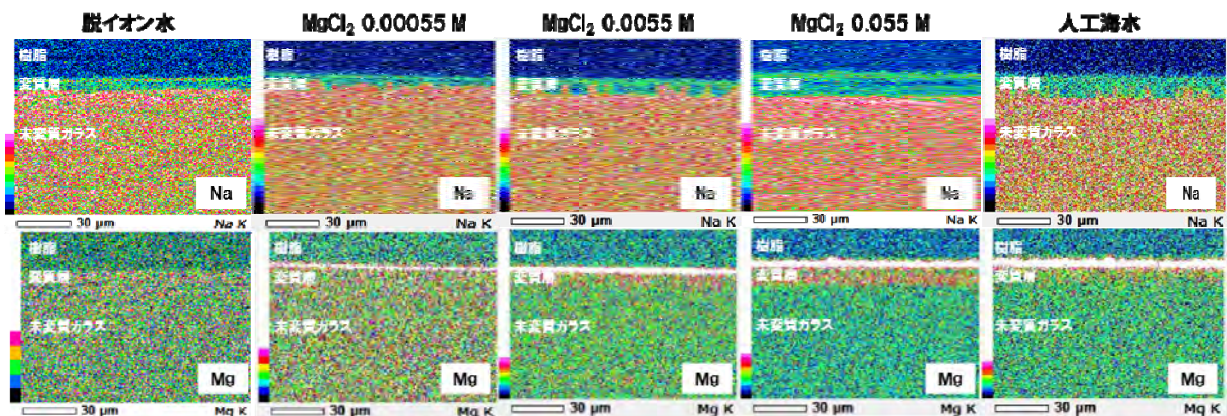


図2.3.4-4 182日間変質させた試料の断面の元素面分析結果

図2.3.4-5にNaの濃度が減少した領域の厚さから計測した各試料の変質層厚の経時変化を示す。比較のため、平成26年度に報告した人工海水条件（窒素雰囲気）で変質させた模擬廃棄物ガラスの変質層厚の測定値の経時変化も併せて示す。91日目では、各条件とも変質層厚に大きな違いはないが、182日目ではMgCl₂ 0.055M溶液及び人工海水条件の変質層厚が大きく増加していることが確認された。

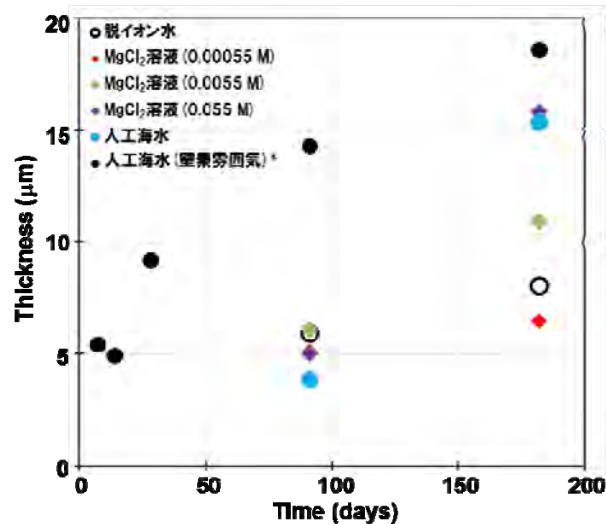


図2.3.4-5 変質層厚の経時変化

(*平成26年度報告データ (日本原子力研究開発機構, 2015a))

昨年度報告したとおり、MgCl₂溶液および人工海水中で変質したガラスについてはハイドロタルサイトに対応するピークが認められている。平野ら (2016) は、国際標準模擬ガラス固化体 (ISG) についてマイクロチャンネル流水試験により、Mg 濃度をパラメータとした溶解試験を行い、ガラス表面にハイドロタルサイトが生成する条件ではガラスの溶解速度が経時的に低下したことからハイドロタルサイトが保護膜として機能し、ガラス溶解を抑制したと報告している。図2.3.4-5に示すように窒素雰囲気的人工海水中で変質したガラスと比べ、大気雰囲気中で変質した本研究のガラスは91日目の変質層厚は2分の1以下であり、ガラス表面に析出したハイドロタルサイトが溶解反応に影響した可能性が考えられる。182日目ではMgCl₂ 0.055M溶液及び人工海水条件の変質層厚が大きく増加していることから、ハイドロタルサイトが長期的には保護膜として機能しないことが示唆される。

② Fe(II)溶液の安定性評価試験

鉄ケイ酸塩鉱物の析出等に伴うガラスの溶解・変質挙動を評価するには、Fe²⁺含有溶液を用いた浸出試験を実施する必要がある。Fe²⁺含有溶液を用いた浸出試験として、これまでFe²⁺供給源として鉄粉や鉄試験片等を共存させる方法が採用されているが (例えば、前田ほか, 2014) 、これらの方法では、①共存する鉄の腐食に伴ってFe²⁺が供給されることから、Fe²⁺濃度をコントロールすることができない、②鉄粉の場合は鉄腐食に伴って溶液のpHが上昇する場合があります、ガラス溶解速度の上昇がpH増加によるものなのか鉄ケイ酸塩鉱物析出によるものなのかを判定することができないといった問題があった。そこで本研究では、試薬を用いて所定濃度のFe²⁺含有溶液を調製し、浸出試験及び後述のFe-Si反応試験に用いることとした。しかしながら、Fe²⁺は沈殿の生成やFe³⁺への酸化等により消費される可能性があることから、本年度は、Fe²⁺含有溶液の安定性を評価する試験を行った。

a. 試験方法

Fe²⁺含有溶液は、低酸素雰囲気にて脱気水中にモール塩 ((NH₄)₂Fe²⁺(SO₄)₂·6H₂O) を溶解させて調製した (初期Fe²⁺の濃度は0.001M)。1.0M水酸化ナトリウム水溶液を用いてpHを3, 5, 7に調整した溶液を試料として、60°Cに設定した恒温器内で最長14日間加熱した後、フェナントロリン吸光光度法を用いてFe²⁺濃度を測定した。なお、pHを8に調整した試料も作製したが、水酸化ナトリウム水溶液の添加により瞬時に暗緑色の沈殿が生成したため、加熱及び分析は実施していない。

b. 試験結果

図2.3.4-6にFe²⁺濃度の経時変化を示す。Fe²⁺濃度は14日間ほぼ一定であり、安定であることが確認できた。

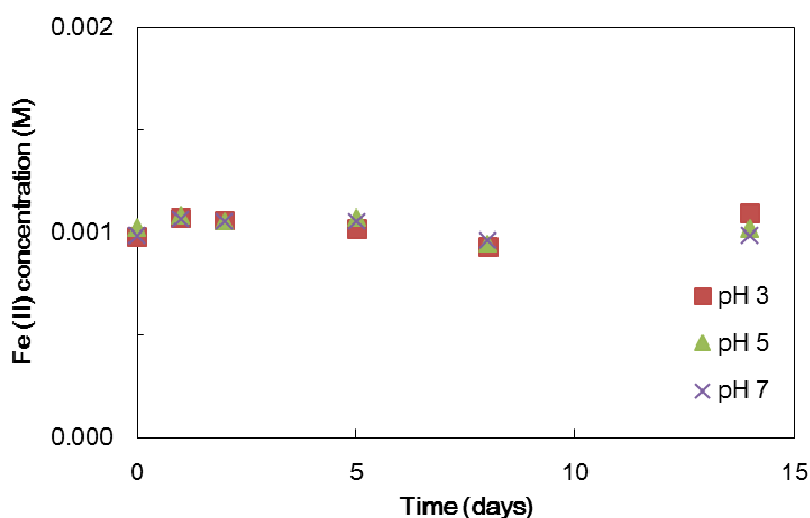


図2.3.4-6 Fe²⁺濃度の経時変化

③ Fe-Si反応試験

ガラス固化体近傍の溶存ケイ酸濃度は、Fe²⁺と溶存ケイ酸の反応によって析出する鉄ケイ酸塩鉱物等によって支配される可能性がある。鉄を共存させた条件で鉄とケイ酸からなる析出物が認められる場合があるが、その多くは結晶性が悪く、鉄ケイ酸塩鉱物の同定に至った例は少ない。Dillmann et al. (2016) は、平板状の模擬廃棄物ガラスSON68試験片で厚さ8μmの鉄ホイルを挟んだ状態で合成CO_x (カルボ・オクスフォード) 粘土層平衡水を用いた浸出試験を行い、透過型電子顕微鏡を用いた電子線回折分析により、ガラス変質層内にFe²⁺含有ケイ酸塩鉱物としてグリーンナライト (Fe₃Si₂O₅(OH)₄) を検出している。しかしながら、どのような固相が析出するかは、溶液のSi/Fe比やpHに依存すると考えられる。本年度は、処分環境で想定される中性からアルカリ性の条件でどのような固相が生成し得るかを確認するため、pHをパラメータとしてFe²⁺と溶存ケイ酸の反応試験を行った。

a. 試験方法

まず、低酸素雰囲気にて脱気水中にオルトケイ酸テトラエチル (TEOS: Si(OC₂H₅)₄) を溶解させてケイ酸溶液 (初期Si濃度は0.01M) を調製した後、上記②と同様の方法で調製したFe²⁺含有溶液を所定濃度になるようケイ酸溶液に添加した。次に、1.0M水酸化ナトリウム水溶液を用いてpHを7、

9、11に調整した溶液を試料として、60°Cに設定した恒温器内で20日間加熱した後、フェナントロリン吸光光度法及びICP-AESを用いてFe²⁺濃度及びSi濃度をそれぞれ測定した。Fe-Si反応によって生成した析出物は、孔径0.45µmのメンブレンフィルターを用いて溶液から分離し、XRD、FT-IR分析、ラマン分析に供した。析出物の分析は低酸素雰囲気で行った。試験条件を表2.3.4-2に示す。

表2.3.4-2 試験条件

Si/Fe	Fe (mol/dm ³)	Si (mol/dm ³)	pH (25°C)	T (°C)
1	0.01	0.01	7	60
1	0.01	0.01	9	60
1	0.01	0.01	11	60

b. 分析結果・考察

図2.3.4-7は各pH条件のSi及びFe濃度の経時変化である。pH9及び11の条件では初期から低濃度であった。これはいずれの試料もpH調整のための水酸化ナトリウム水溶液の添加により暗緑色の析出物が生成し、溶液中のSi及びFeが消費されたためと考えられる。一方、pH7の条件についてはSi及びFeの濃度が緩やかに低下した。この条件では、濃度の低下に伴い緑白色の析出物が少量確認されている。

各pH条件で得られた析出物のXRDパターンを図2.3.4-8に示す。pH9及び11の条件についてはいずれも磁鉄鉱 (Fe₃O₄)、pH11条件では水酸化鉄 (II) も検出されたが、鉄ケイ酸塩鉱物に帰属するピークは認められなかった。また、35°及び60°付近にブロードピークが認められるが、これは非晶質の水酸化鉄 (II) である可能性がある。pH7についてはモル塩に帰属するピークのみが検出された。これは析出物が少量であったため、十分に洗浄処理ができなかったことが原因と考えられる。

図2.3.4-9にはATR-FTIR分析による各試料の赤外吸収スペクトルを示す。pH9及び11条件の析出物のスペクトルは類似し、いずれも480cm⁻¹及び550cm⁻¹付近にそれぞれ水酸化鉄 (II)、磁鉄鉱由来のピークが認められ、XRD分析の結果と整合的である (Cornell and Schwertmann, 2003)。950cm⁻¹付近のピークについては、磁鉄鉱へのSiの吸着によって生成した表面錯体 ((≡FeO)₂-Si(OH)OX) に一致することから、磁鉄鉱表面へのSiの吸着を示していると考えられる (Yang et al., 2008)。pH7の条件については、800cm⁻¹及び1100cm⁻¹付近に非晶質シリカのSi-O結合の変角、伸縮振動に由来するピークが認められる (Tosca and Masterson, 2014)。1200cm⁻¹付近にショルダーピークが認められるが、これはグリーンライトなどの鉄に富む1:1型層状ケイ酸塩鉱物に特徴的なSi-O伸縮振動に由来するものとされている (Stubican and Roy, 1961; Tosca et al., 2015)。610cm⁻¹付近のピークはSO₄²⁻の対称伸縮振動に由来し、XRD分析の結果と整合的である (Szallak et al., 2012)。

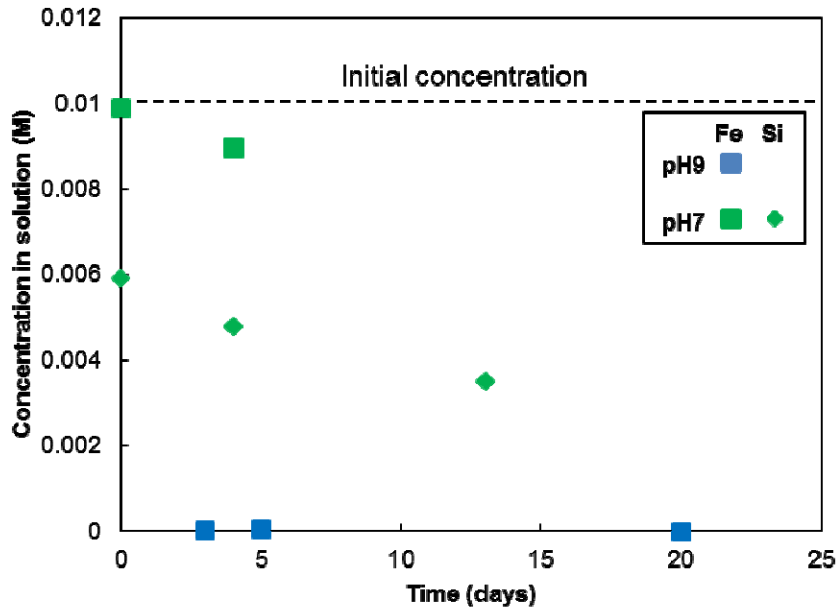


図2.3.4-7 各pH条件における溶液のSi及びFe濃度の経時変化
(pH9のSi及びpH11のFe, Siは検出下限値以下)

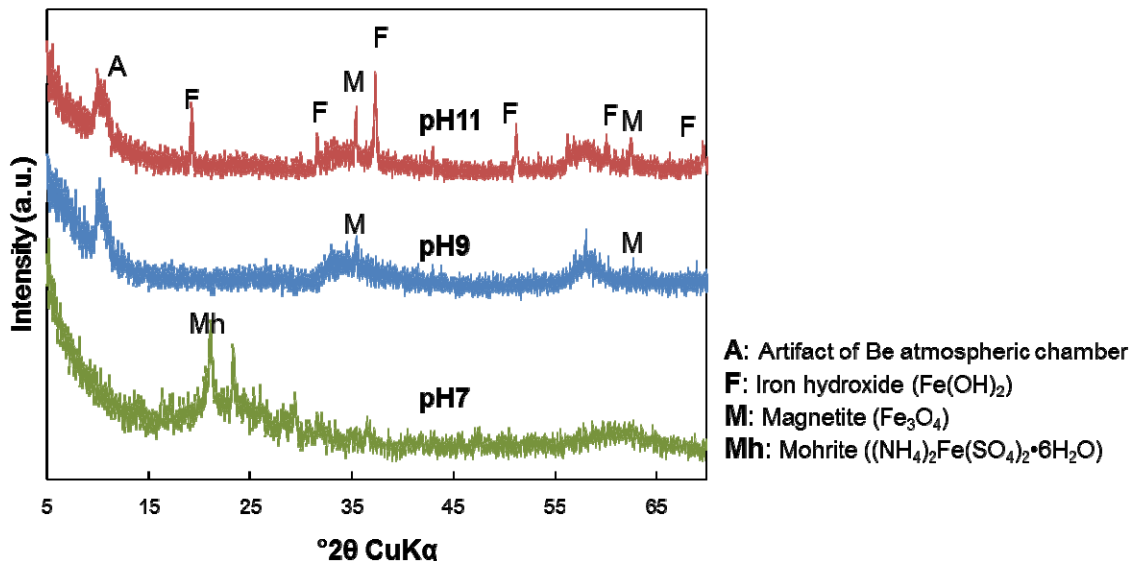


図2.3.4-8 各pH条件における析出物のXRDパターン

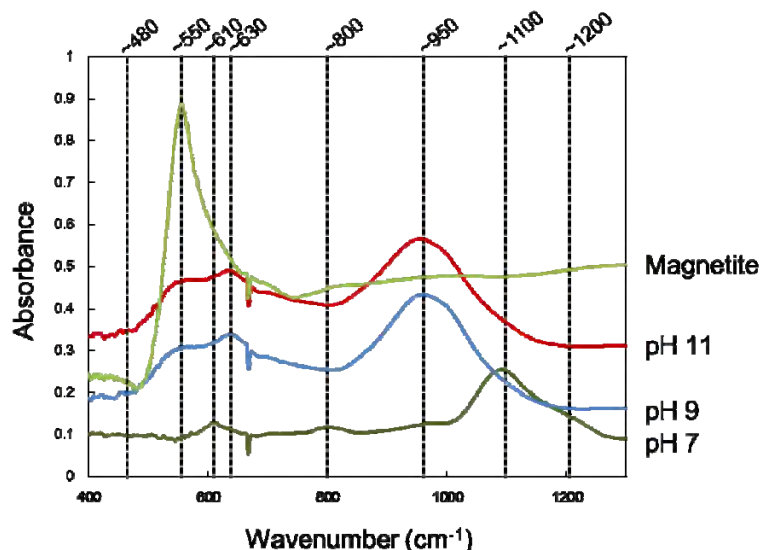


図2. 3. 4-9 各pH条件における析出物の赤外吸収スペクトル
(磁鉄鉱の赤外吸収スペクトルを参考として併記)

図2. 3. 4-10には各試料のラマン分析の結果を示す。ATR-FTIR分析の結果と同様にpH9及び11の条件の析出物のスペクトルは類似し、いずれも680cm⁻¹付近に磁鉄鉱由来のピークが認められる。960cm⁻¹付近のピークはSi-O-Fe結合に由来すると考えられる (Doelsch et al., 2003)。pH7条件のラマンスペクトルにおける、450-480cm⁻¹及び600-650cm⁻¹付近の重なったピーク、990cm⁻¹付近のショルダーピーク、1160cm⁻¹付近のブロードピークはSO₄²⁻に由来するものである (Periasamy et al., 2009; Szakall et al., 2012; Ben Mabrouk et al., 2013)。1030cm⁻¹付近に認められる明瞭なピークは溶液中のSi-O-Si結合の非対称伸縮振動に由来するものである。

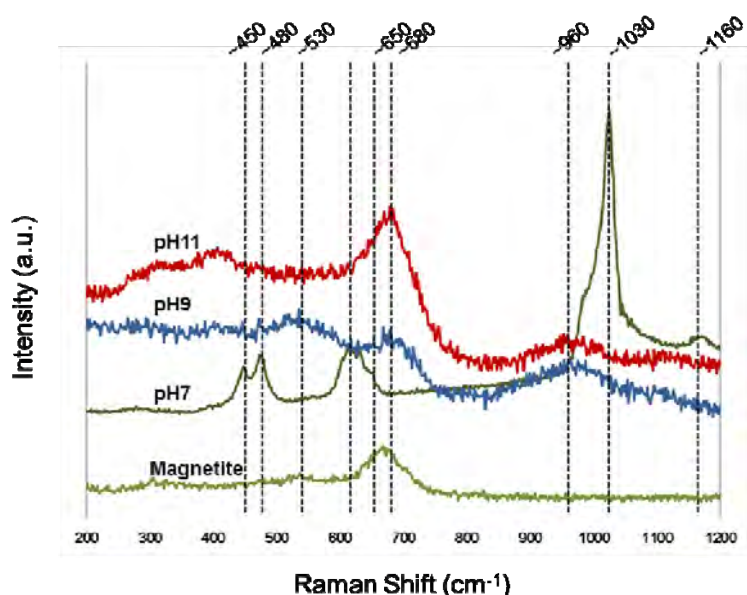


図2. 3. 4-10 各pH条件における析出物のラマンスペクトル
(磁鉄鉱のラマンスペクトルを参考として併記)

以上の固相分析結果を表2. 3. 4-3にまとめた。いずれの試料においても、鉄ケイ酸塩鉱物は検出されなかったが、pH7の条件で得られた析出物については鉄に富む1:1型層状ケイ酸塩鉱物の存在が示唆された。図2. 3. 4-11に示すように熱力学データによる計算ではpH7の条件でグリーンライト、pH9及び11の条件で水酸化鉄（II）が安定固相として示されており、概ね一致する結果となった。pH9及び11の条件で得られた析出物のATR-FTIR分析では磁鉄鉱表面へのSiの収着が確認されたが、溶液の分析結果と合わせて考えると、析出した磁鉄鉱にSiが収着したため、Fe濃度の急激な低下とともにSi濃度も低下したものと推定できる。

表2. 3. 4-3 固相分析結果のまとめ
(固相が特定できないものはカッコ書きで示す。)

	pH7	pH9	pH11
XRD	mohrite	magnetite Fe(II) hydroxide	magnetite Fe(II) hydroxide
ATR-FTIR	mohrite amorphous silica (1:1 Fe-phyllsilicates)	magnetite Fe(II) hydroxide ($\equiv\text{FeO}$) ₂ -Si(OH)OX	magnetite Fe(II) hydroxide ($\equiv\text{FeO}$) ₂ -Si(OH)OX
Raman	mohrite	magnetite (Si-O-Fe bond)	magnetite (Si-O-Fe bond)

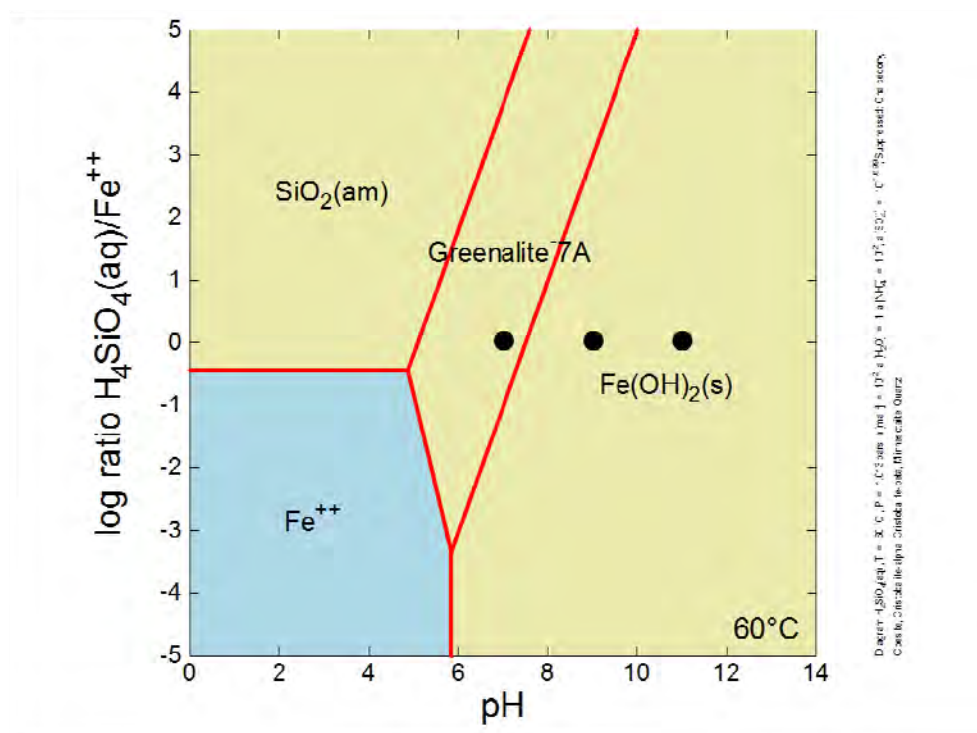


図2. 3. 4-11 安定固相の推定結果
(JAEA TDBを使用)

2.4 天然バリア中の核種移行に係る不確実性要因分析とそれに基づく性能評価技術開発

2.4.1 天然バリア核種移行評価の不確実性要因と課題解決アプローチ

(1) 調査研究の背景と目的

天然バリア中の核種移行評価においては、岩石中の鉱物や間隙の特性、地下水の地球化学的特性、そこでの核種の収着・拡散特性の把握といった人工バリアと共通する課題に加えて、割れ目等の不均質性や、有機物、微生物、コロイド等の地質環境条件に起因する不確実性要因を考慮する必要がある。さらに、隆起・侵食や海水準変動による地質環境変化の影響、セメント等の人工バリア材に起因する岩石の変質など、長期的変遷の影響等についても考慮する必要がある。これらの天然バリア中の核種移行評価について、従来の地質環境を特定しないジェネリックな評価段階においては、簡略かつ保守的に評価することを重視したモデルやパラメータが採用されてきた(核燃料サイクル開発機構, 1999c)。しかし、地層処分長期安全性の信頼性を高めるためには、最新の科学技術の成果を反映した現象理解の深化や評価手法の精緻化等を通じ、性能評価のシナリオ、モデル、パラメータ等の設定手法の高度化と確証を図っていく必要がある。また、天然バリアにおいては、シナリオ、モデル、パラメータ等の設定に際し、実際の地質環境条件をいかに考慮するか、あるいは、実際の地質環境での原位置試験等によっていかにそれらを確認していくか、その方法論を検討しておくことが重要な課題である。

本テーマでは、天然バリア中の核種移行に係る課題のうち、岩石中の割れ目の不均質性等を考慮した核種移行評価手法、及び有機物・微生物等の核種移行への影響に関する評価手法について、室内試験及び地下研究施設等での原位置試験を通じて高度化や確証を行うことを目的とする。平成27年度までに、重要な不確実性要因の抽出とその解決に向けたアプローチを提示し、その中で、岩石の割れ目等の不均質性を考慮した核種移行評価手法については、岩石マトリクスや割れ目中の室内試験による収着・拡散データの取得や評価モデルの高度化を進めるとともに、原位置への適用性の評価及びナチュラルトレーサーに関する事例調査に着手した。一方、有機物・微生物等の影響評価手法については、シナリオ及び核種移行評価に基づき評価上の課題を抽出するとともに、室内試験と原位置試験を含む影響評価手法を開発するためのアプローチを具体化し、基礎データの取得、モデルの高度化等を進めてきた(日本原子力研究開発機構, 2014a, 2015a, 2016a)。これらを踏まえ、平成28年度は、割れ目等の不均質性をより精緻に評価するための室内試験と、不均質性を考慮した解析手法の改良を継続するとともに、室内試験を通じて構築した評価技術の原位置への適用性の評価及びナチュラルトレーサーに関する解析的検討を進めた。また、有機物・微生物の影響評価手法の構築・確証に向けて、室内及び原位置でのデータ取得を継続し、核種移行プロセスへの影響評価モデルの構築とその適用性の評価を行った。

(2) 不確実性要因と課題解決のアプローチ

天然バリア中の割れ目等の不均質性や長期変遷等を考慮した核種移行評価手法、有機物・微生物等が核種移行に及ぼす影響評価手法を構築するための具体的なアプローチは、それぞれ次節以降で詳述するが、ここでは、これらに共通する研究アプローチについて、図2.4.1-1にその全体像を概観する。最初のステップとして、主にプロジェクトの1年目に、国内外の性能評価プロジェクトや原位置試験等の最新情報の調査をもとに、不確実性要因と課題の抽出を行った。この課題の抽出にあたっては、現状の評価モデルやパラメータの整備状況を踏まえたシナリオの検討や核種

移行解析等を実施し、性能評価結果への影響度が高いものを抽出した。抽出された課題に対しては、主に2年目以降に、最新の分析・解析技術及び地下研究施設で得られた原位置情報等を活用しつつ、室内試験による現象理解とそれを反映した評価モデルの高度化に取り組んできた。平成28年度からの後半2年間では、地下研究施設での原位置試験との連携等を通じ、これまで室内試験等で構築してきた評価モデルを実際の地質環境条件の評価に適用し、それらを確認することに焦点を当てる。また、地質環境条件の長期変遷の影響を含めて、地層処分 of 長期にわたる時間スケールに対するデータやモデルの確認も重要な課題であり、そのための検討として、天然事例を対象とした調査・評価を進める。最終的には、得られた成果によって、安全評価手法の精緻化や信頼性向上、不確実性の低減にどう貢献できるかといった観点での取りまとめを行うこととする。

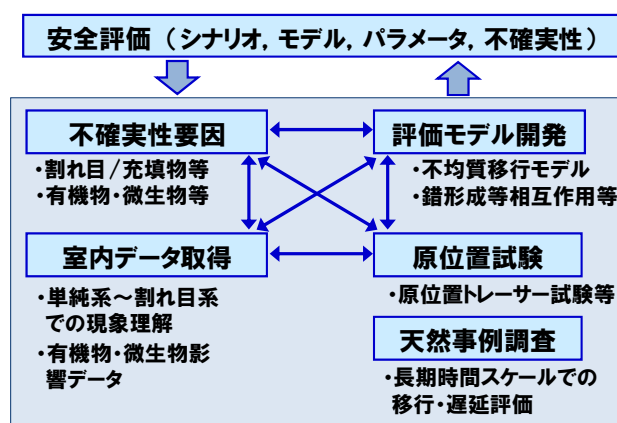


図 2.4.1-1 天然バリア中の核種移行評価における課題解決のアプローチ

2.4.2 岩石マトリクス/割れ目中の核種移行評価技術の開発

(1) 岩石マトリクス/割れ目中の核種移行評価に係る課題・アプローチと実施概要

岩石中の核種移行評価については、結晶質岩系では花崗岩、堆積岩系では粘土質岩を主たる対象として、国内外で研究が実施されてきており、本研究でも、これら2種類の岩石を対象に研究を進めている。平成26年度までに、海外の関連最新動向を、主に地下研究施設等で行われた原位置試験に焦点をあて、室内試験との関連付けや性能評価モデルへの反映といった点までを含めた確認アプローチ、さらに、天然事例に基づくナチュラルアナログ的な長期時間スケールでの確認アプローチなどに着目して調査し、表2.4.2-1に示すような、結晶質岩系と堆積岩系(主に粘土質岩)における重要な不確実性要因と課題を整理した(日本原子力研究開発機構, 2015a)。

結晶質岩では、スウェーデンのエスポ(Äspö)、フィンランドのオンカロ(ONKALO)、スイスのグリムゼル(Grimsel)などが代表的な研究例である。結晶質岩では、亀裂とマトリクスから成る二重間隙モデル体系に関連した割れ目の特性(充填鉱物、flow-wetted-surface area)やマトリクス拡散深さ等の評価に加え、選択的に核種を収着する黒雲母等の分布の不均質性や試料粉碎時の表面積の増大等の影響の評価が重要な課題となっている。一方、堆積岩では、スイスのモンテリ(Mont Terri)、フランスのビュール(Bure)、ベルギーのモル(Mol)などにおいて粘土質岩に焦点が当てられており、このような粘土質岩の場合には、透水性が極めて低いために物質移動は拡散によって支配され、マトリクスの拡散・収着メカニズムの理解とモデル化、間隙水の抽

出・評価、天然同位体プロファイルによる長期拡散特性の立証などが中心的な課題となっている。また、低頻度であっても卓越した核種移行経路となるような割れ目等の存在の評価に加え、割れ目に沿った選択的な地下水流動経路を考慮する必要がある場合には、結晶質岩と同様に割れ目近傍の岩石変質状況や核種移行特性の把握が重要となる。

表 2.4.2-1 結晶質岩と堆積岩系の核種移行に係る不確実性要因と課題の整理
(日本原子力研究開発機構, 2015a)

分類	結晶質岩系 (スウェーデンÄspö, フィンランドONKALO, スイスGrimselなど)	堆積岩系 (スイスMont Terri, フランスBure, ベルギーMolなど)
母岩・割れ目特性	<ul style="list-style-type: none"> 核種の移行経路となる割れ目近傍の間隙構造とこれに対応した岩石の変質状態、被覆層や充填鉱物の種類等の把握 割れ目/充填物の多様性や不均質性の把握と、核種移行評価上の重要な特性と代表性の評価 割れ目及びマトリクスにおける間隙の分布と連続性の評価 収着に対して支配的となる鉱物 (CECや比表面積の大きい雲母鉱物等) の特定と、その粒子の大きさや分布の把握 	<ul style="list-style-type: none"> 母岩の低透水性と拡散支配となることの同位体プロファイル等に基づく確認 低頻度ではあっても、卓越した核種移行経路となるような割れ目等の存在及びその近傍の岩石の変質状態等の把握 収着特性を規定するような鉱物種の特定、及び当該鉱物含有量の把握
地下水化学	<ul style="list-style-type: none"> 透水性の高い亀裂ネットワークに沿った異種の水塊の流入によって、将来の処分場領域の地下水水質が種々に変化する可能性 特に、沿岸域における海退時の海水系地下水の淡水による置換、あるいは海進時の降水系地下水の塩水による置換等 このような地下水化学の長期変遷を考慮して核種移行データセットを作成するため、周囲に存在する異種の地下水端成分の把握 	<ul style="list-style-type: none"> 地下水/間隙水の抽出及び擾乱を与えることなく水質分析を行うための手法 (間隙水の抽出時の脱ガスや酸化の擾乱影響を含んだ測定結果に対する地球化学解析モデルを用いた補正方法を含む) 将来の地下水・間隙水の水質変化が緩慢であることを立証するための証拠となる情報 (深度方向の同位体プロファイル等) の取得・評価 地球化学モデリングによる間隙水化学の解釈と収着等の核種移行を支配する水質特性の把握
拡散・収着特性	<ul style="list-style-type: none"> 割れ目とマトリクスから成る二重間隙モデルの体系に対応した亀裂充填物の収着・拡散特性、マトリクス拡散深さ、flow-wetted-surface areaの評価 選択的に核種を収着する黒雲母等の分布の不均質性や試料粉碎の影響も考慮した室内データから原位置へのアップスケール手法 (間隙率や比表面積の補正) 亀裂ネットワーク内の鉱物組成に空間的ばらつきがあり、その全体スケールに対して代表性を持つような核種移行特性の取得・設定 地下水化学の長期変遷に対応した核種移行特性 (特に分配係数) の設定と不確実性の推定 拡散係数における陽イオン加速や陰イオン排除効果、表面錯体等の収着モデル等の適用性 	<ul style="list-style-type: none"> 原位置での拡散・収着データの取得と室内試験データとの整合性の確認 (地圧や異方性の影響、表面積補正が不要であることの確認等) 粘土質岩で影響が顕著な陽イオン加速や陰イオン排除効果の定量的把握 粘土を主体とした収着モデル (イオン交換、表面錯体) の適用性評価 天然同位体プロファイル等の分析評価に基づく長期拡散特性の立証 割れ目に沿った選択的な地下水流動経路を考慮する必要がある場合、割れ目中の核種移行特性の取得評価 コンクリート支保等による高アルカリ影響を考慮した核種移行特性の評価

本プロジェクトでは、これらの結晶質岩と堆積岩のそれぞれの特徴と課題を踏まえつつ、先行し実施してきた受託事業「処分システム化学影響評価高度化開発」において構築されたアプローチ (日本原子力研究開発機構, 2013c) を発展させる形で、グリムゼルの花崗岩 (結晶質岩) 及び幌延の泥岩 (堆積岩) を主たる対象に研究を展開している。上記の先行受託事業では、いずれの岩石についても、主にマトリクスを対象として室内試験による多様な核種の拡散・収着データの取得やモデルの構築を進めてきた。本プロジェクトでは、これらの岩石マトリクス中の核種移行メカニズムの理解をさらに深めつつ、より複雑な割れ目系までを対象とし、図2.4.2-1に示すように、室内試験データの系統的取得とモデル評価、原位置条件への適用性評価、室内から原位置へ

のアップスケーリング手法の構築等に力点を置いて進める。また、地質環境条件の長期変遷の影響を含めて、長期にわたる時間スケールに対するデータやモデルの確証も重要な課題であり、ナチュラルアナログ的なアプローチの適用可能性についても調査・検討を進めることとする。

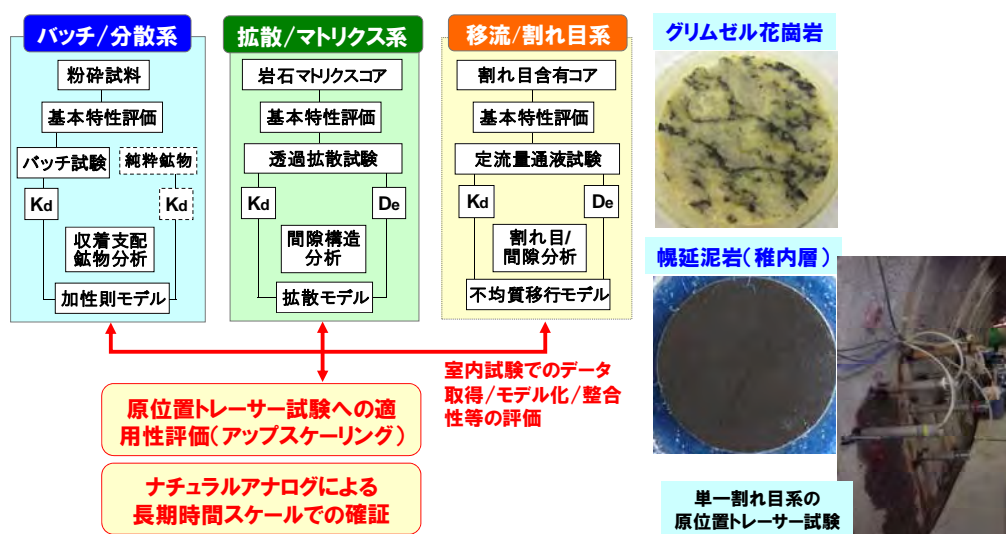


図 2. 4. 2-1 室内から原位置へのアップスケーリングを含む岩石系の研究アプローチ

結晶質岩については、従来、国際共同研究として進めてきたグリムゼル地下研究所における原位置長期拡散(LTD)プロジェクトとの連携により、花崗岩のマトリクス及び割れ目を対象として、室内から原位置までを含めた体系的な研究を進める。さらに、平成28年度からは、他の海外の原位置試験との連携により、多様な特性を有する花崗岩について原位置条件への評価手法の適用性を検討するとともに、日本の花崗岩の特徴との比較分析を通じ、わが国の花崗岩に対する評価手法の適用可能性と課題、並びに性能評価への反映手法の検討にも着手する。本年度の具体的な実施項目及び概要は以下の通りである。

①花崗岩マトリクスに対する室内試験での収着・拡散データ取得と不均質性を考慮したモデル化
 グリムゼル花崗岩のマトリクス試料を対象に、これまで取得してきた多様な核種の拡散・収着データとその傾向性を解釈するため、マトリクス中の鉱物や間隙の不均質性の分析とそれを反映したモデル化を検討する。

②花崗岩割れ目を対象とした室内試験によるデータ取得とモデル化

結晶質岩系で特に重要となる割れ目中の核種移行評価技術の高度化のため、平成27年度までに実施した室内試験の結果に対し、各種試験データや割れ目近傍の鉱物・間隙分析データを拡充するとともに、不均質性等を考慮した総合的な評価結果をまとめる。

③原位置試験への適用性評価に関する調査・解析

上記の①と②で構築された核種移行評価手法を確証する観点から、スウェーデンのエスポ、フィンランドのオンカロの原位置試験結果に対し、核種移行モデル及びパラメータ設定手法の適用性を評価するとともに、ナチュラルアナログ的なアプローチや性能評価への反映に関する最新の海外動向を調査する。

堆積岩系(粘土質岩)については、幌延の泥岩(以下、幌延泥岩)を対象としており、割れ目

の評価が重要となる。このため、幌延深地層研究センターで実施中のマトリクス及び割れ目の双方を対象とした原位置トレーサー試験との連携を通じ、原位置試験をサポートする室内データを取得するとともに、これまでに蓄積してきたデータやモデルの適用性を確認しつつ評価技術としての確証を行う。さらに、粘土質岩系で国際的にも精力的に進められているナチュラルトレーサーを活用した長期時間スケールでの物質移行モデルの確証評価についても、特に幌延の既存の知見に基づく検討を進める。本年度の実施概要は以下の通りである。

①幌延の原位置トレーサー試験と連携した室内補完試験及び解析評価

幌延深地層研究センターの深度350mの調査坑道で実施中のマトリクスと割れ目を対象とした原位置トレーサー試験のうち、マトリクスを対象とした原位置試験における試験後の岩石コアの分析、室内補完試験を行うとともに、一連のデータの解析評価を実施する。

②幌延におけるナチュラルトレーサー評価に関する検討

長期の時間スケールでの物質移行モデルとデータの確証に資するため、平成27年度までに実施した幌延の既往データを活用したナチュラルトレーサー評価の予察解析の結果と課題を踏まえ、地質環境の長期変遷を考慮した解析評価の改良を行う。

(2) 結晶質岩系の評価技術の開発

1) 花崗岩マトリクス中の収着・拡散データ取得と不均質性を考慮したモデル化

i) グリムゼル花崗岩マトリクス中の収着・拡散特性の評価

グリムゼル花崗岩のマトリクスを対象とした収着・拡散データの取得とメカニズムの検討については、グリムゼルのLTDプロジェクトと関連付け、先行事業「処分システム化学影響評価高度化開発」（日本原子力研究開発機構、2013c）から段階的に進めてきた。本事業の最初の2年間では、LTDプロジェクトの2回目の原位置試験と連携して、原位置試験場所から採取した岩石マトリクス試料を対象に、多様なトレーサー（Na, Cs, Cl, HT0, Se, Ba, Ni）を用いて、室内試験による収着・拡散データの取得を進めてきた。これまでに取得した一連の試験データを図2.4.2-2に示すが、1回目のLTD試験で得られた成果（Tachi et al., 2015）と同様、花崗岩試料の鉱物と間隙の不均質性、及び室内試験のための加工により生じる岩石試料の擾乱影響の重要性を示唆する結果が得られた。具体的には、同図(e)に示した実効拡散係数から、ベントナイトや粘土質岩と同様の狭隘間隙中での静電的相互作用に起因した陽イオン加速と陰イオン排除の傾向が確認された。また、その傾向は陽イオンの加速の方が顕著であり、これは花崗岩中の鉱物や間隙の不均質性に起因するものと推定された。一方で、拡散試験終了後に取得した岩石中の核種の濃度プロファイル（同図d）は、二重プロファイルを示し、同図(b), (c)に示す表面分析からは、表面付近の擾乱を受けた黒雲母中の高い間隙率と収着性が、表面近傍の急峻なプロファイルの原因であると考えられた。同図(f)に、このプロファイルの表面近傍（Near）とマトリクス（Far）部分から評価した分配係数、及び粒径サイズの異なる試料を用いたバッチ収着試験により得られた分配係数を比較する。マトリクスの分配係数としては、擾乱の影響を受けていない深部（Far）の拡散プロファイルから評価することが有効であるが、一方で、試料表面部分の擾乱による高い分配係数、粉碎試料を用いたバッチ法で得られた分配係数との関連性を理解することも重要な課題である。このような花崗岩マトリクス中の収着・拡散メカニズムの理解をより深めるため、ここでは特に花崗岩試料の鉱物・間隙の不均質性の定量化と、不均質性を考慮した拡散挙動の解析手法の開発を進めた。

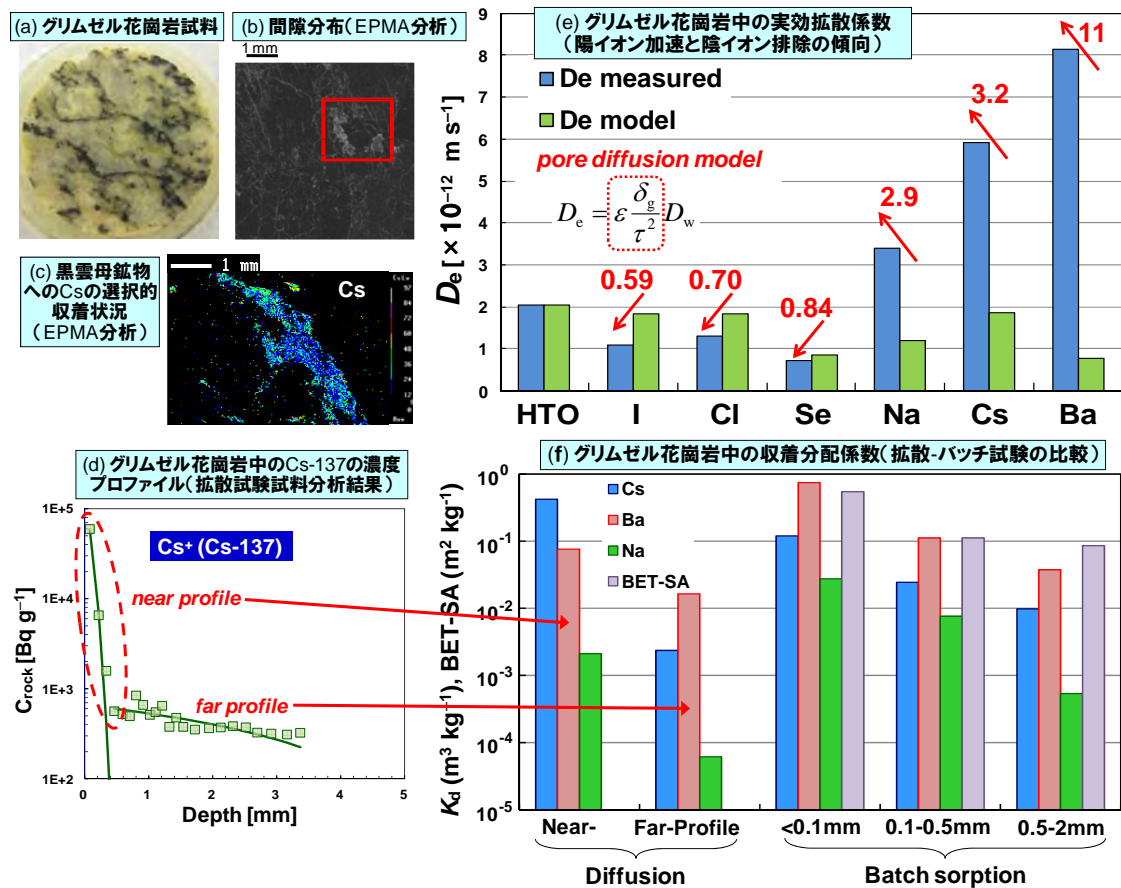


図 2.4.2-2 グリムゼル花崗岩のマトリクス試料の室内吸着・拡散試験結果のまとめ

ii) グリムゼル花崗岩マトリクス中の鉱物・間隙の不均質性の評価

上記i)で示したように、花崗岩マトリクス中の核種の拡散・吸着メカニズムを理解するためには、花崗岩マトリクス中の鉱物の分布、間隙の分布やそれらの連続性等の理解、及びそれらの定量化が重要となる。このため、花崗岩マトリクス試料に対して、X線CTと電子線マイクロアナライザー (EPMA) を適用することにより、鉱物や間隙分布の定量評価を検討した。平成27年度までに、EPMAによるグリムゼル花崗岩試料 (LTDマトリクス) の間隙に重元素 (タングステン) を含浸させた試料の元素マッピングデータの画像解析をもとに、鉱物・間隙分布の定量評価を検討してきた。さらに、X線CTによる輝度データの解析をもとに黒雲母の分布を評価する手法を検討し、EPMAの観察結果との比較によって、その評価手法が妥当であることを提示した(日本原子力研究開発機構, 2016a)。平成28年度は、これらを踏まえ、X線CTによる黒雲母の3次元的な分布やその定量評価の可能性について検討を進めた。

X線CT分析については、グリムゼル花崗岩のマトリクス試料 (1回目のLTD試験のコア試料) を対象に、ナノフォーカスX線CT装置 (UNi-HiTE System, XVA-160a) により、加速電圧90kV、電流値70 mAで測定を行った。X線CTによる輝度データに対し、平成27年度に提案した輝度解析手法 (日本原子力研究開発機構, 2016a) によって黒雲母の空間分布を抽出した結果と、その解析結果を図2.4.2-3に示す。黒雲母の空間分布データに対する解析の結果、分析試料中の黒雲母の含有率は14.35wt%と評価され、同岩石の既報の分析結果 (例えば, Meyer et al., 1989) とも整合する結

果が得られた。さらに、このコア試料の水平断面における黒雲母の粒子は、 24.73mm^2 と評価され、粒子の長さとしては 5.29mm と推定された。コアの長さが 22.55mm なので、これらの粒子は複雑に折り返し、かつ連結して存在していることが示唆された。これらの知見を反映した不均質場のモデル化を構築する方法について、今後さらに検討が必要である。

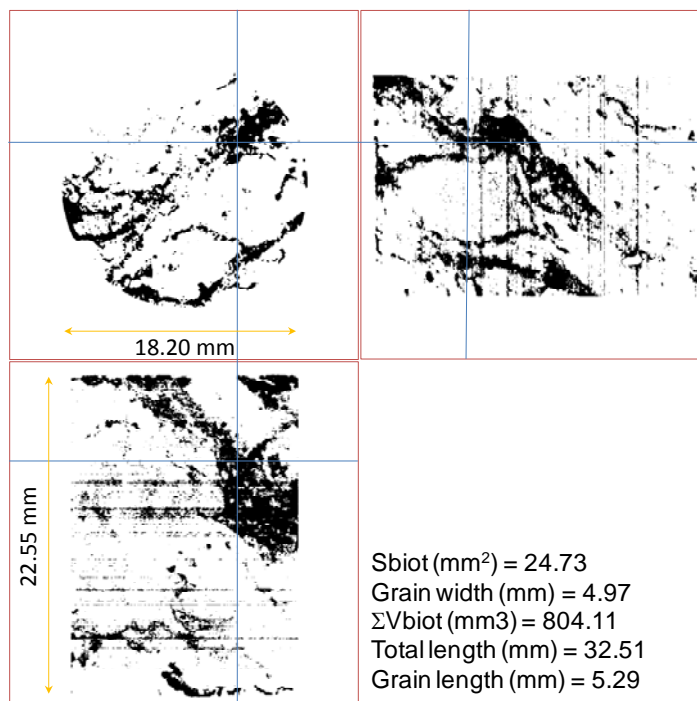


図2.4.2-3 グリムゼル花崗岩マトリクスのX線CT分析による黒雲母（図中の黒色部）の空間分布とその解析結果

iii) 花崗岩マトリクスの不均質性を考慮した核種移行評価手法の開発

上記i)に示したように、グリムゼル花崗岩で実測された実効拡散係数の陽イオン加速と陰イオン排除の傾向性からは不均質性の影響が確認され、上記ii)の鉱物・間隙分布からは、黒雲母の間隙率や不均質分布が拡散に影響を及ぼす可能性が示唆された。花崗岩中の拡散メカニズムを理解するうえで、鉱物・間隙の不均質性、特に黒雲母の形状や分布が、イオンの拡散係数や拡散の異方性に及ぼす影響の評価が重要と考えられる。ここでは、黒雲母中間隙における粒子の拡散挙動の表現方法を検討するため、黒雲母の層状構造を考慮した仮想的な解析体系を対象に、ランダムウォーク法を用いて粒子の拡散挙動を表現することのできるPARTRIDGEコード（野口ほか，2008）を用いた解析を進めている。黒雲母中に入り込んだ粒子の拡散挙動に関する考慮事項として、黒雲母の層構造に由来すると考えられる拡散の異方性、及びイオン形態による拡散の差異が重要となり、平成27年度までに、層状の鉱物その他の鉱物と混在して存在する場合における拡散挙動への影響を確認するための解析を実施してきた（日本原子力研究開発機構，2016a）。平成28年度は、上記ii)で示したグリムゼル花崗岩の鉱物や間隙の実際の分布状況をより具体的に反映した不均質場モデルを作成し、ランダムウォーク法による核種移行解析を実施した。

PARTRIDGEのランダムウォーク法解析は、直方体の構造格子から構成される解析体系で、構造格子の一つ一つのセルに対してそれぞれ物性値を設定することで、不均質場における拡散挙動を表

現するものである。今回の解析は、平成27年度の解析と同様に各格子セルは立方体とし、全体のセル数は $195 \times 195 \times 195 = 7414875$ セルと、平成27年度の解析に対し60倍のセル数とした。全体の解析体系サイズは、一つのセルサイズが 0.033mm であるため、 $6.345 \times 6.435 \times 6.435\text{mm}^3$ である。図2.4.2-4(a)に示すように、黒雲母鉱物ユニットを3層で構成し、外側は粒子の入り込まない間隙率0の層を配置し、層間の拡散を表現するための内部の層を設けた。ユニットのサイズは 0.1mm (001面) $\times 1\text{mm} \times 1\text{mm}$ を仮定し、黒雲母鉱物ユニット全体の間隙率は2.5%と上記ii)の分析結果と整合させた。一方、黒雲母以外の鉱物ユニットは、 0.5mm 角のサイズとして $15 \times 15 \times 15 = 3375$ セルを用いて表現し、外側の1セル分の表面層を粒界の表現に用い、粒界間隙は0.7%となるよう設定を行った。全体の解析モデルの作成方法としては、まず黒雲母以外の鉱物ユニットをxyz方向に13ユニットずつ敷き詰め、 $195 \times 195 \times 195$ セルの解析体系を作成した。その後、黒雲母ユニットが所定の体積割合を占めるまで埋め込んでいく形で配置を行った。黒雲母ユニットの位置についてはモンテカルロ法によりランダムに設定し、黒雲母ユニット同士が重複しないように配置した。図2.4.2-4(b)に示すように、黒雲母ユニットの方向としてはz方向については平行なものとし、x方向については全てのユニットが平行、全てのユニットが垂直、全てのユニットが 45° 、それらがランダムに存在する場合といった複数の設定を行った。拡散挙動解析では $x=0$ 面から粒子を放出し、 $x=6.435\text{mm}$ 面を評価面として移行率を算出した。なお、間隙中での拡散係数は、中性粒子はトリチウム水 (HTO)、陽イオンはCs、陰イオンはIの自由水中の拡散係数 (D_0) を与え、黒雲母の層間間隙では静電的な相互作用による陽イオンの加速 (D_0 の10倍)、陰イオンの排除 (D_0 の1/10倍) を考慮した。移行率については、同一解析モデルにおけるイオン種別の比較や、同一イオン種での解析モデル間の比較できるように解析を行った。さらに、無限遠で濃度が0となる1次元拡散方程式の解析解を用いたフィッティングにより拡散係数を求め、拡散係数を指標として不均質場が拡散係数に及ぼす影響の比較も行った。

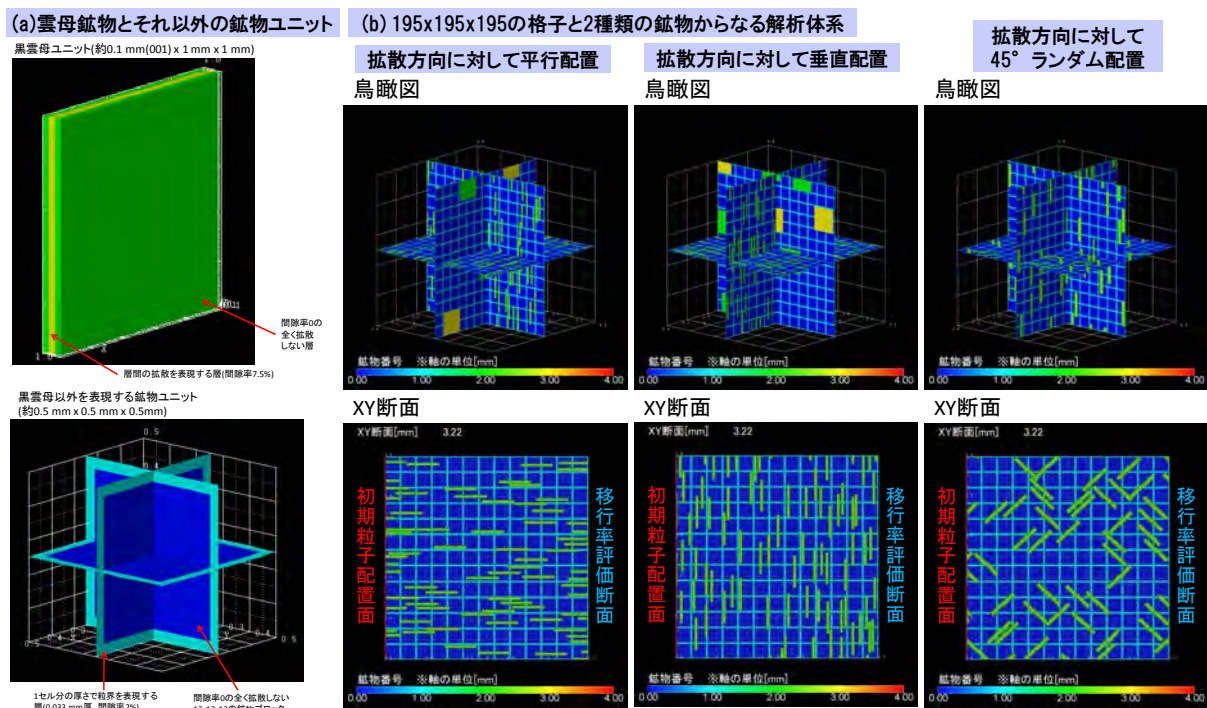


図2.4.2-4 グリムゼル花崗岩マトリクスの不均質性を考慮したモデル解析体系

まずレファレンスモデルについて中性粒子を想定した解析を行い、解析により求めた拡散フラックスと、拡散方程式の解析解によるフィッティング結果を図2.4.2-5に示す。フィッティングにより得られた拡散係数は $D=1.54 \times 10^{-9} \text{m}^2/\text{s}$ となり、中性粒子の D_0 値と整合する結果が得られ、全体の空隙率0.7%を掛け、実効拡散係数 D_e は $1.08 \times 10^{-11} \text{m}^2/\text{s}$ と評価された。図2.4.2-4(b)に示した3つのモデルと、平行配置で黒雲母のサイズを2倍に拡大したモデルの評価結果を図2.4.2-5(b)で比較する。モデル間の比較の結果、中性粒子の実効拡散係数は、層状の黒雲母の配置の影響を受け、特に垂直配置の場合に拡散係数が半分程度まで減少する傾向が確認できた。一方で、陽イオンと陰イオン種では、層状の陽イオン加速と陰イオン排除の効果(図bのグラフ中の数字: 中性粒子の拡散係数に対する比率を参照)が明瞭に確認できた。また、陽イオンにおいて層状鉱物の配置パターンの寄与が大きい一方で、陰イオンにおいては相対的に配置パターンの寄与は小さいことが示唆された。ただし、今回の解析結果では、陽イオンの拡散係数の増大は中性粒子と比較して最大で1.8倍程度にとどまっており、図2.4.2-2(e)に示したような中性粒子に対して陽イオンが3倍程度にまで加速されるような結果は再現できなかった。今後の課題としては、層間における拡散係数のより現実的な設定に加え、図2.4.2-3に示したような実際の観察結果を反映した黒雲母の形状やサイズ、連結状況等の配置パターンを検討することが必要である。

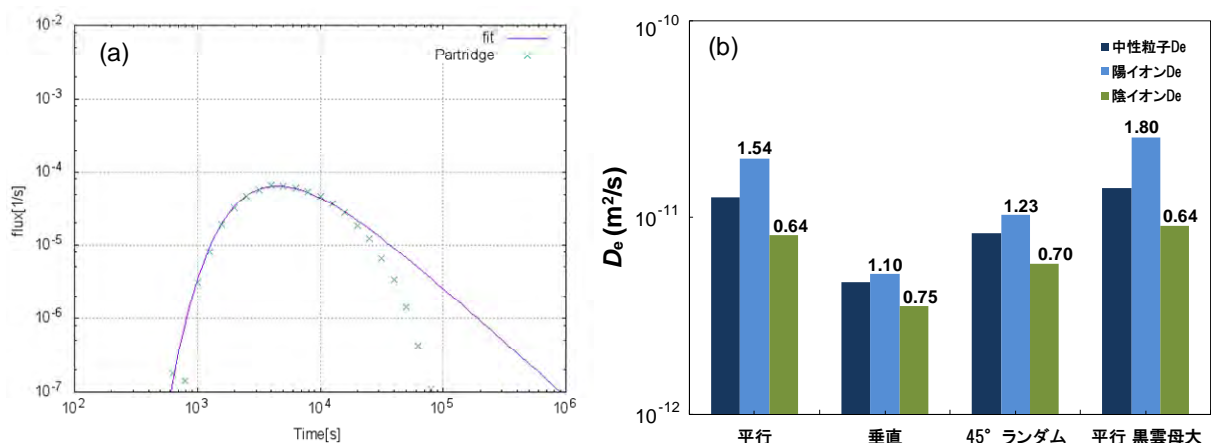


図2.4.2-5 レファレンスモデルにおける中性粒子の拡散フラックスとフィッティング結果(a) 及び得られた拡散係数のモデル間の比較(b)

2) 花崗岩の割れ目を対象とした室内核種移行試験と解析評価

i) 割れ目を対象とした室内核種移行試験

割れ目からマトリクスにかけての核種移行特性を総合的に理解するため、グリムゼル原位置試験場から採取した単一割れ目を含む花崗岩コア試料を対象として、割れ目部とマトリクス部の鉱物・空隙分布の分析、収着・拡散特性を評価するための試験と、割れ目を含むコア状の試料を用いた通液試験を、図2.4.2-6に示すような体系で実施した。平成27年度の報告書(日本原子力研究開発機構, 2016a)において、一連の試験方法と結果の一部を報告済みであり、ここでは、試験方法と結果の主要な部分を確認しつつ、平成28年度に追加的に実施した分析や結果の解釈について報告する。

単一割れ目を含むコア試料から、定流量通液試験に供する割れ目を含む円柱状試料($\phi 50 \times 180 \text{mm}$)を、割れ目近傍とマトリクス部から円板状試料(拡散試験用)及び粉末状試料(バッチ収着試験

用)を調製した。これらの割れ目部とマトリクス部の試料を対象に、鉱物組成、陽イオン交換容量、間隙率・間隙径分布等を測定した。試験には、グリムゼル原位置試験場の模擬地下水中に、HD0(重水;10%), I (10^{-5} mol/L), Cs (10^{-5} mol/L), Se (10^{-4} mol/L), Ni (10^{-6} mol/L), Eu (10^{-6} mol/L)を添加した混合トレーサー溶液を用いた。透過拡散試験及びバッチ収着試験は、割れ目部とマトリクス部の試料を用いて、Ar雰囲気、室温で実施した。透過拡散試験では、上流/下流セルのトレーサー濃度の経時変化と試験終了時の試料の内部プロファイルを取得した。なお、拡散試験については、中性化学種の拡散係数と形状因子を精度良く求めるため、HD0ではなく、トリチウム水(HTO)を用いて試験を実施した。収着試験は、液固比100mL/g, 28日間の反応時間で収着分配係数を評価した。通液試験では、混合トレーサーを1mL/hの一定流量で通液させ(大気条件下)、破過曲線を取得した後、割れ目表面近傍におけるトレーサー分布を取得した。以下に、平成28年度に実施した追加の分析・評価を含めて、試験結果の概要を記載する。

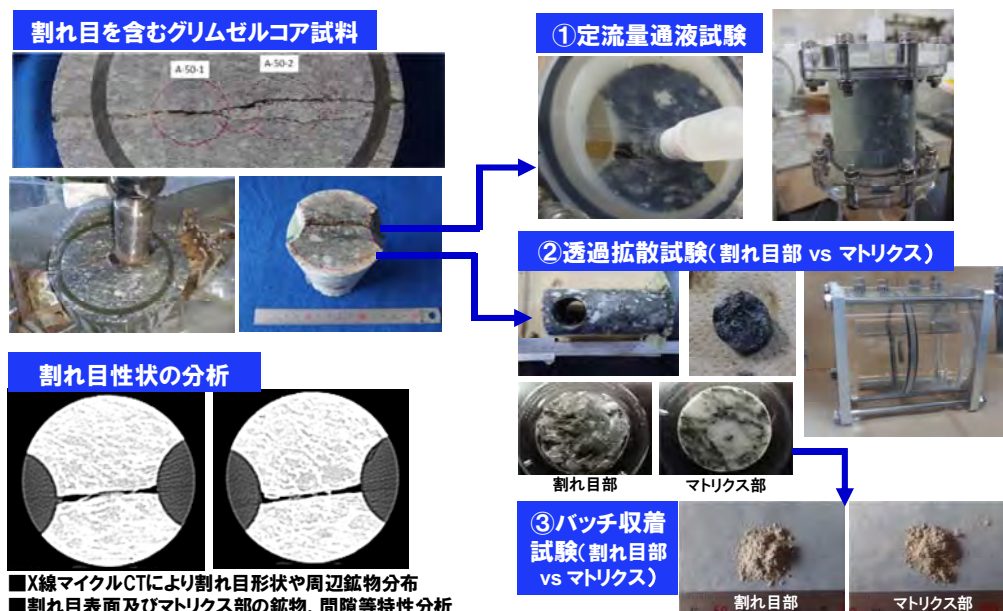


図 2.4.2-6 割れ目を含むグリムゼル花崗岩を対象とした室内試験の体系

透過拡散試験については、取得された上流側のトレーサー減衰曲線、下流側の破過曲線に対して、拡散方程式を同時フィッティングすることによって、実効拡散係数と分配係数を取得した。Csに対する減衰曲線及び破過曲線データと解析結果を図2.4.2-7(a)に例示するが、上流側と下流側の双方のデータに対して良好なフィッティング結果を得ることができた。下流側の破過曲線が得られたCs, Se, HTOに対しては、いずれも良好なフィッティング結果が得られ、同図(b)に示すような実効拡散係数が導出された。いずれのトレーサーにおいても、得られた実効拡散係数は、マトリクス部と比較して割れ目部が低い結果となり、拡散係数を低下させる要因が割れ目表面近傍に存在する可能性が示唆された。割れ目部の拡散試験に用いた試料は、天然の割れ目表面を含んでいるものの、その半分以上はマトリクス部と同様の試料であることから、割れ目表面付近の拡散係数は、割れ目部試料全体に対して得られた拡散係数よりもさらに低いと考えられる。また、いずれの試料においても、陽イオン加速と陰イオン排除効果を示す明瞭な傾向が、これまで実施してきたグリムゼルのマトリクス試料中の拡散試験結果(図2.4.2-2参照)と同様に確認された。

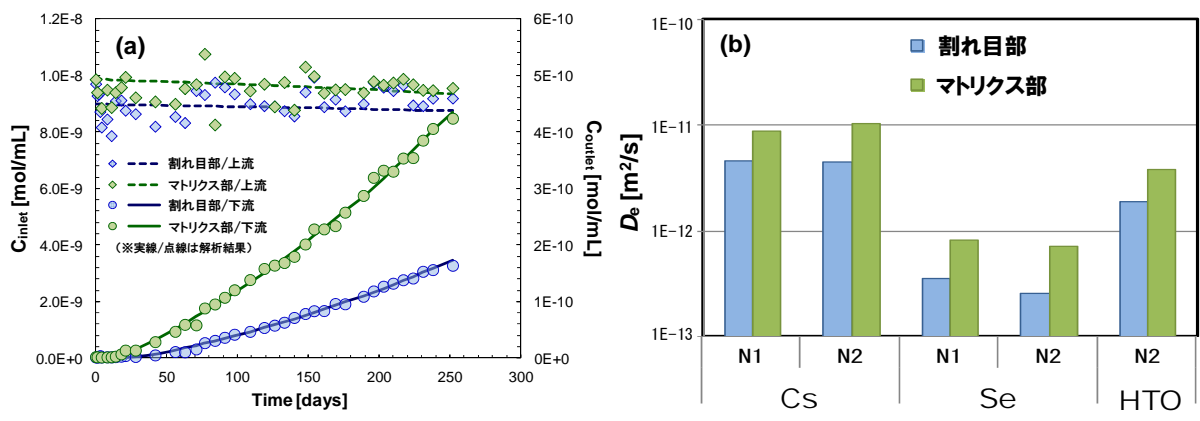


図 2.4.2-7 グリムゼル岩（割れ目部、マトリクス部）の拡散試験結果：(a)Cs の拡散試験結果、(b)各トレーサーの実効拡散係数

透過拡散試験終了時に、試料の研削・分析によって収着性トレーサーの岩石内部の濃度プロファイルを取得した。高濃度側からの研削によって得られた岩石試料の重量測定から研削毎の試料厚さを求め、研削試料を1M硝酸に浸漬させたのち元素濃度分析を行うことにより、各元素の濃度プロファイルを取得した。一例として、割れ目部試料のNiに対して得られた濃度プロファイルを図2.4.2-8(a)に示す。ばらつきはあるものの、表層付近に濃度が高い領域が存在し、他のCs、Se、Euでも同様の傾向が確認されたことから、上記の拡散抵抗とも関連して、割れ目近傍の不均質な鉱物分布が濃度プロファイルにも影響している可能性が示唆された。さらに、取得されたプロファイルに対して、上流側のトレーサー減衰曲線（同図(b)）と合わせてフィッティング（図中破線）することによって、割れ目近傍の分配係数と実効拡散係数を導出した。

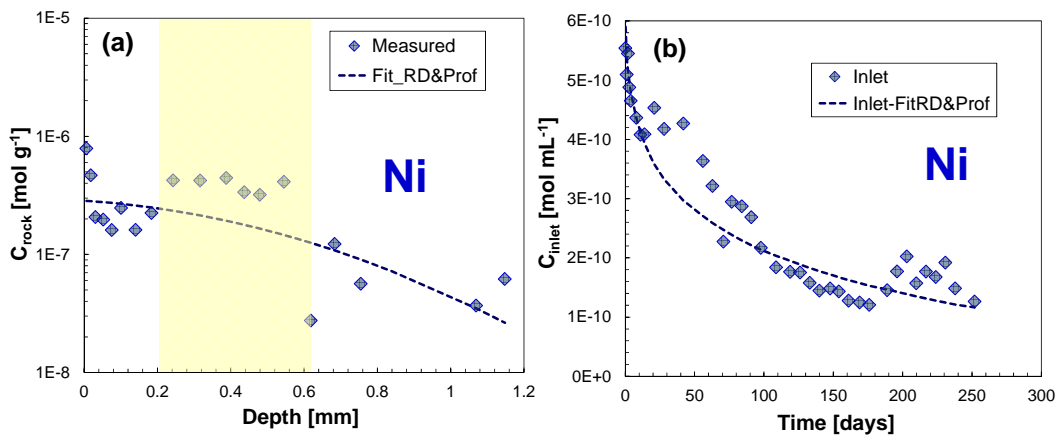


図 2.4.2-8 グリムゼル岩（割れ目部）中のNi の拡散試験及び解析結果：(a)濃度プロファイル、(b)トレーサー減衰曲線

拡散試験によって取得された分配係数を図2.4.2-9(a)に示す。割れ目部近傍の分配係数は、図2.4.2-8に示した濃度プロファイルとトレーサー減衰曲線から導出した値であり、一方、マトリクス部の値は図2.4.2-7に示したトレーサー破過曲線と減衰曲線から導出した値である。NiとEuについては破過曲線が得られず、マトリクス部の値が導出できないものの、割れ目部の分配係数はEu>

Ni > Cs > Seの序列であり、マトリクス部と比較して1~2桁高い値を示した。一方、割れ目部近傍（表面から2~3mm程度）とマトリクス部の粉末試料（粒径0.5~2mm）に対して得られた分配係数を、図2.4.2-9(b)に示す。分配係数値の傾向については、拡散試験で得られた傾向と概ね整合するものの、値自体は大きく異なる結果となった。マトリクス部について、拡散から得られた分配係数が、粉砕した試料を用いたバッチ試験により得られた値よりも低くなる傾向は、図2.4.2-2に示したこれまで確認された傾向と整合するものであるが、割れ目近傍の分配係数については、拡散試験とバッチ試験との関係については元素によって異なる傾向を示した。割れ目部の収着特性の評価は、マトリクス部に対してこれまで検討してきた粉砕の影響に加えて、後述する割れ目部近傍の鉱物の不均質な分布にも十分に配慮したデータ取得と評価が必要である。

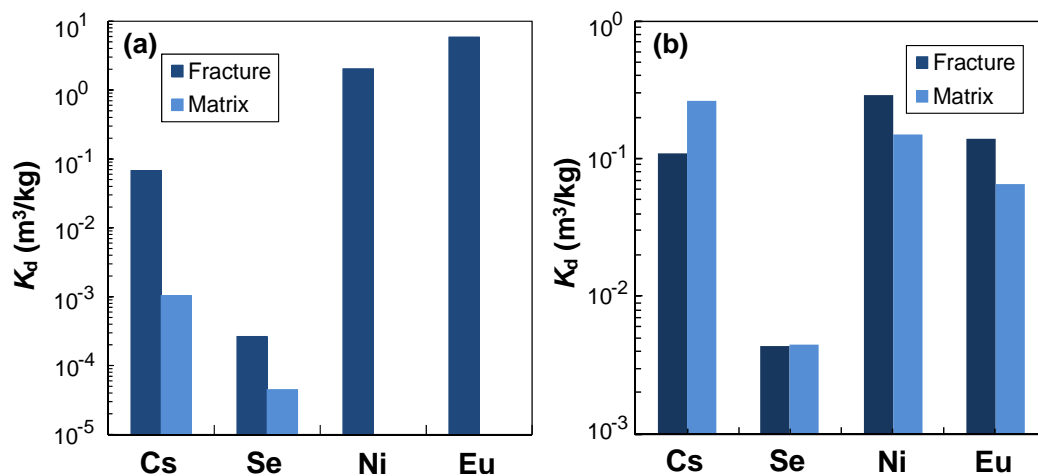


図 2.4.2-9 グリムゼル花崗岩の割れ目部及びマトリクス部に対する分配係数: (a) 拡散試験による結果、(b) バッチ収着試験による結果

通液試験において、拡散試験と同様の元素を含有する混合トレーサー溶液を、定流量ポンプを用いて 1mL/h の一定流量で通液させることにより得られた破過曲線を図 2.4.2-10(a)に示す。非収着及び低収着性の HD0、I、Se については、数日のうちに破過し、それらの破過時間の差異は顕著ではなかった。一方で、収着性の Cs については、数日から 20 日程度かけて破過が認められた。40 日以降、Ni 及び Eu の急激な濃度上昇が確認されたものの、その後また減衰した理由は不明である。これらのトレーサー元素間の遅延の傾向性 (Eu > Ni > Cs > Se ≈ HD0 ≈ I) は、上記に示した収着・拡散試験から得られた各元素間の収着・拡散特性の関係と整合する結果となった。通液試験終了後に、割れ目表面観察、割れ目からマトリクス部への拡散挙動を確認するために、試験セルを解体して試料の分析を実施した。割れ目面近傍のトレーサー元素の分布状況を把握するため、上流から下流にかけてエリアごとの微細充填物に対するトレーサー濃度を分析した結果を図 2.4.2-10(b)に示す。同図(a)に示した破過曲線で完全な破過が確認された Cs については、割れ目部の上流から下流にかけて濃度はほぼ同程度であり、妥当な結果であると考えられる。

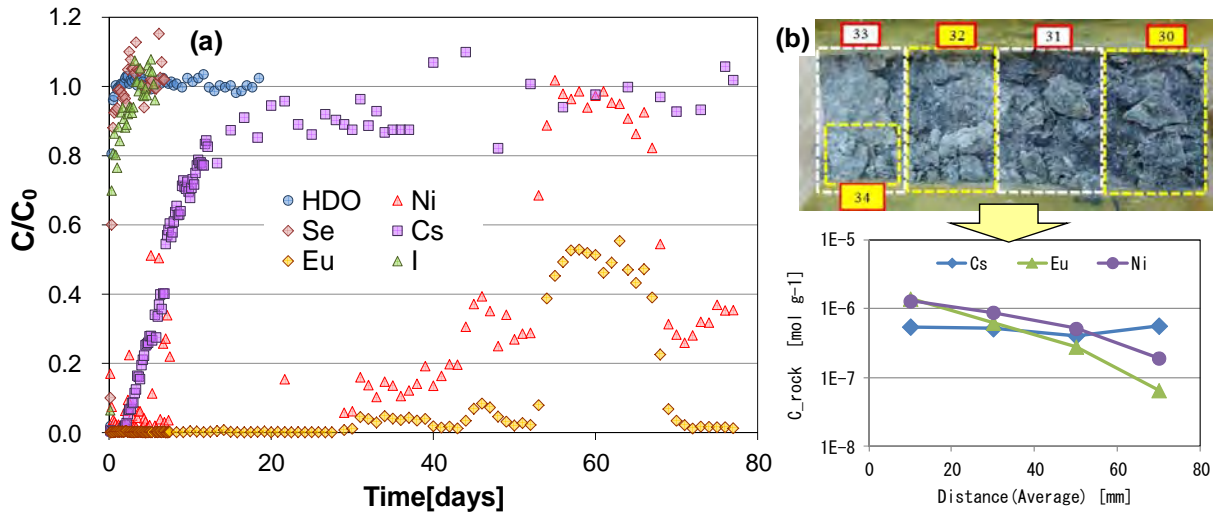


図 2.4.2-10 定流量通液試験で得られたトレーサー元素の破過曲線データ (a) 及び試験後の割れ目表面の状況とトレーサー分布分析結果 (b)

ii) 割れ目部近傍の鉱物の不均質性の分析

グリムゼル花崗岩の割れ目からマトリクスにかけての鉱物や間隙の不均質性を把握するため、サイズの異なる2種類の試料を対象として、X線CT及びEPMAによる分析を実施した。最初に、定流量通液試験で用いたコア状試料を対象に、通液試験前に、X線CT装置（東芝製, Asteion VI）によって、管電圧120kV、管電流200mA、スキャン速度0.75秒、スキャン幅1mmの条件でCT画像を取得した。CT断面図の一部を図2.4.2-11(a)に示すが、約10cmのコア試料全体にわたって単一割れ目が連続していることを確認した。さらに、画像解析手法によって、割れ目表面部の二面を結像し、それらの差分から開口幅分布の評価を行った。その結果、同図(b)に示すように、開口幅の不均質な分布状況を確認するとともに、同図(c)に示すように定量的な間隙幅の分布から平均開口幅が2.57mmと評価された。同図(d)には、開口幅の分布をカラーマッピングで示しており、図中に矢印で示したような広く開口した領域が選択的な流路になっている可能性も考えられる。

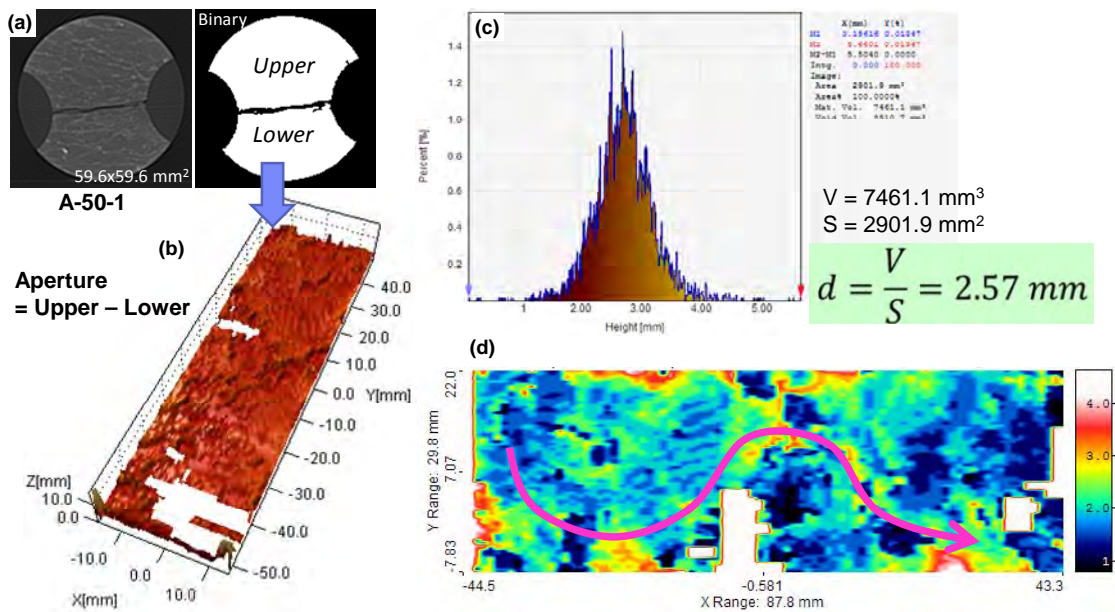


図 2.4.2-11 通液試験に用いた割れ目を含むグリムゼル岩試料の X 線 CT 分析評価結果

さらに、通液試験に用いたコアと同じ割れ目を含む小径の試料を対象として、ナノフォーカスX線CT装置 (UNi-HiTE System, XVA-160a) を用いて、加速電圧90kV、電流値70mAでの測定によりCT像を取得するとともに、同試料を対象にEPMAによる反射電子像及び元素マッピングを取得した。図2.4.2-12(a)に、EPMAにより取得した元素マッピング (Si, Al, Fe, Mg, Ca, K) のうちSiとFeを例示するが、主要な元素のマッピングから、花崗岩を構成する主要鉱物 (石英、斜長石、カリ長石、黒雲母、白雲母) の分布を同定することができ、グリムゼル花崗岩の割れ目近傍には黒雲母及び白雲母が濃集していることが確認された。同図(b)~(d)に示す反射電子像からは、割れ目近傍に濃集した黒雲母及び白雲母が割れ目面と平行に配向していること (同図d)、また、割れ目表面層のごく近傍では雲母の風化がさらに進んだ高間隙率のバーミキュライト層 (同図c) が存在することが確認された。

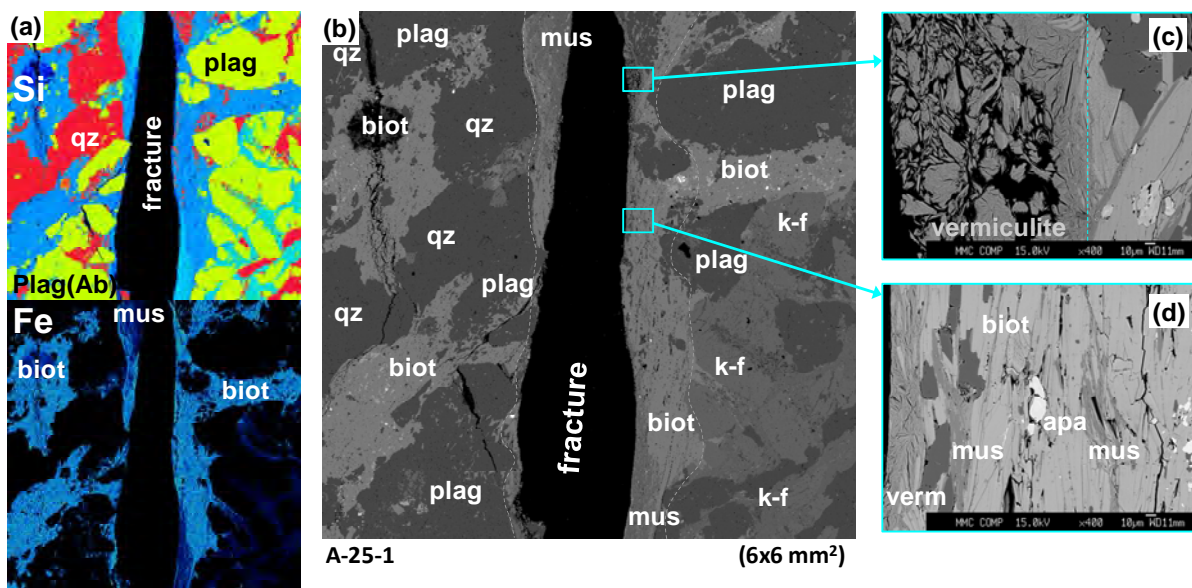


図 2.4.2-12 グリムゼル花崗岩の割れ目近傍の鉱物の不均質性の EPMA による分析結果

さらに、同試料のX線CT像を図2.4.2-13(a)に示す。平成27年度の報告書で検討したように、CT像の輝度分析から、黒雲母の分布を同定することが可能であることを確認しており、その手法により、黒雲母の分布を定量的に評価することが可能である。同図のCT像には黒雲母の領域に色付けする (割れ目表面部の赤色、及びマトリクス中の紫色の部分) とともに、下部にはライン上での輝度の分布から割れ目表面での黒雲母層の厚さを定量可能なことを示している。さらに、同図(b)は図2.4.2-12(c)に示した表面層のバーミキュライト層の間隙率の評価を試みたものであり、この部分の間隙率は約23%と評価された。

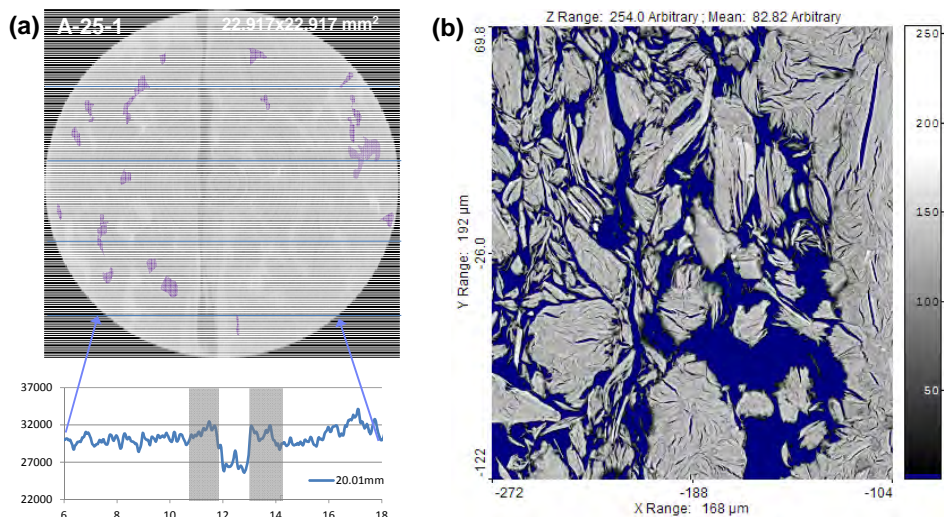


図 2.4.2-13 割れ目近傍の黒雲母層厚さの X 線 CT 像からの分析 (a) 及びバーミキュライト層の間隙率の分析 (b)

iii) 定流量通液試験の解析評価

上記 i) で示した割れ目部の拡散・収着試験の結果、及び ii) で示した割れ目の開口幅や割れ目近傍の鉱物や間隙の不均質性の分析結果を踏まえて、通液試験の結果の解釈を試みる。平成 27 年度にも、平行平板モデルとマトリクス領域を 2 層構造としたモデル化を検討したが、そのパラメータ設定は各種の実験データや分析結果を十分に反映できておらず、また、解析結果も破過データを十分に説明することはできなかった（日本原子力研究開発機構，2016a）。ここでは、上記の実験データや分析結果の解釈をもとに、より精緻なモデル化を検討する。

解析は汎用的なシミュレーションソフトウェアである GoldSim(ver. 10.1; GoldSim Technology Group, 2010)を用いて行った。基本的なモデル化のコンセプトは、図 2.4.2-14(a), (b)に示すように、割れ目中の移流・分散及びマトリクス部の拡散・収着を考慮するものである。なお、解析に用いた支配方程式及びパラメータについては付録 1 に示す。割れ目形状やマトリクス拡散深さについては試料形状をもとに設定するとともに、上記の X 線 CT の解析結果をもとに割れ目の開口幅 (2.5mm) を設定した。割れ目中の流速は、割れ目形状と試験の流量から設定した。割れ目からマトリクスにかけての不均質性を考慮するため、不均質性を考慮しない均質 (一層) から、不均質性を考慮するための 2~3 層のモデルを作成した。割れ目からマトリクス部にかけての不均質性も含めた、間隙率、収着・拡散特性については、上記の拡散試験データ及び各種分析データをもとに設定し、一部実測データが得られていない拡散データについては、グリムゼル花崗岩マトリクス部の既往の拡散データ等に基づく推定値を用いた。最初のステップとして、割れ目近傍の不均質性を考慮しない均質なマトリクスのみを考慮した 1 層モデルとして、マトリクス部に対して実測された収着・拡散データを適用して解析した結果を同図(c)に破線で示す。さらに、割れ目近傍の 0.8mm の雲母層を想定した 2 層モデルとして、割れ目部に対する拡散試験から実測された収着・拡散データを雲母層に適用して解析した結果を同図(c)に実線で示す。非収着性及び低収着性のトレーサーである HD0、I、Se については、遅延がわずかであり、概ね実測の破過曲線を再現できている。一方、収着性の元素については、解析結果の破過曲線の立ち上がりが実測に比べて早く、2 層モデルで割れ目表面の雲母層に高い分配係数を与えることとで、遅延効果が大

幅に増加するものの、実測データとの不整合は大きい結果となった。

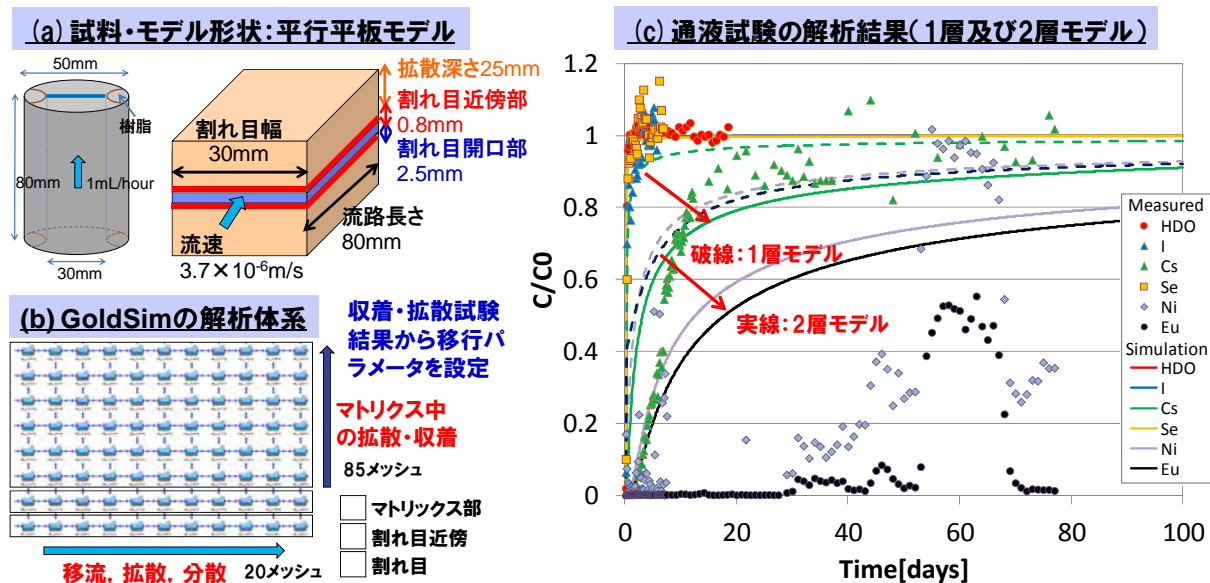


図2.4.2-14 グリムゼル岩割れ目中通液試験の解析のモデル概念(a)、解析体系(b)、1層及び2層モデルに対する解析結果(c)

上記i)及びii)に示したように、平成28年度に追加的に実施した試験・分析によって、割れ目近傍の鉱物の不均質性に関する定量的な情報、それを踏まえた収着・拡散特性の再評価を実施しており、ここでは、それらを反映したより現実的な割れ目近傍の特性を表現する3層モデル概念に基づく解析評価を試みた。図2.4.2-15(a)に3層モデルの概念とパラメータ設定の概要を示す。1層目は、表層の雲母層の風化によるパーミキュライト層である。上記の図2.4.2-12及び図2.4.2-13に示したEPMA分析データに基づき、厚さを0.2mm、間隙率を0.24と設定し、実効拡散係数については、マトリクス部の拡散係数に対して間隙率の差を補正することにより設定した。また、収着分配係数は、割れ目部の拡散試験から取得した濃度プロファイルから導出した値を用いた。2層目は配向した雲母層であり、厚さを0.6mmに設定した。実効拡散係数については、割れ目部の拡散試験の実測データから、試料に対する雲母層とマトリクス層の厚さの割合を考慮して推定された雲母層領域に対する拡散係数を用いた。分配係数は1層目と同様に、割れ目部の拡散試験から取得した濃度プロファイルから導出した。3層目のマトリクス部は、マトリクス部の拡散試験から導出した拡散・収着パラメータを用いた。この3層モデルによる解析結果を、図2.4.2-15(b)に示す。高収着性トレーサの破過曲線の実測データとの整合性が大幅に改善され、特に、十分な精度を有するCsの破過曲線の立ち上がりを再現できることが確認された。

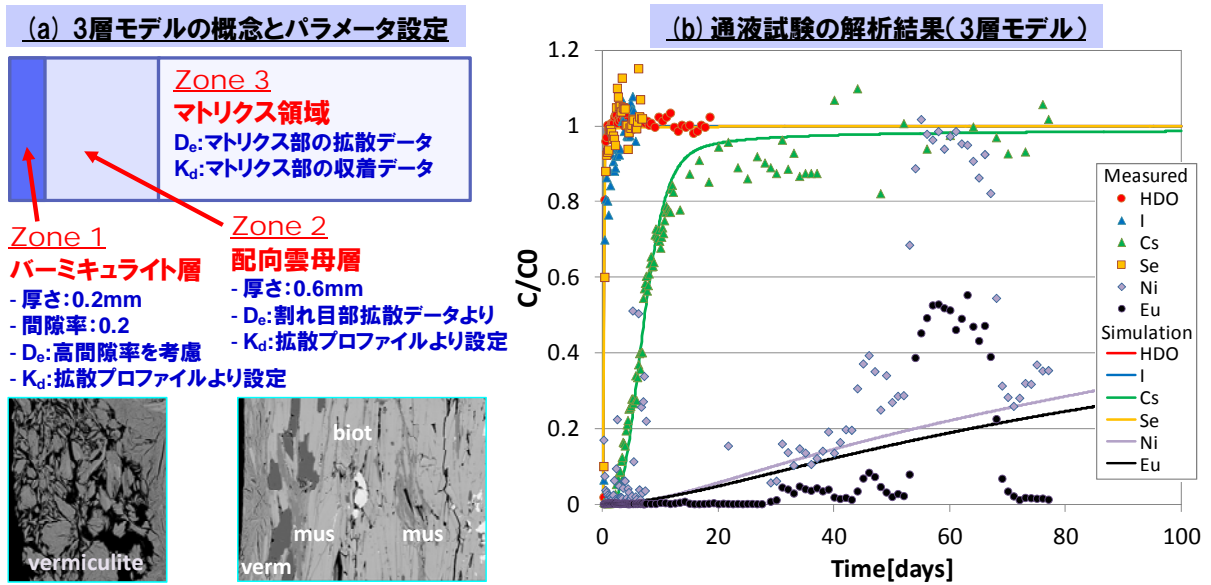


図2. 4. 2-15 グリムゼル岩割れ目中通液試験の解析のための3層モデル概念とパラメータ設定 (a)、及び解析結果(b)

さらに、3層モデルで得られた解析結果の詳細な分析を試みる。上記3層モデルの解析によって計算される、通液試験試料の上流と下流の中間点における割れ目からマトリクスにかけてのトレーサーの濃度分布を、図2. 4. 2-16(a)に示す。低収着性のSeについては、3層目のマトリクス部までプロファイルが進展しているが、Csでは2層目まで、Ni、Euについては、ほとんど1層目に留まっていることがわかる。このことから、Ni、Euについては表層1層目の収着・拡散特性によって破過挙動が説明され、Csについては1層目と2層目の特性の組合せによって破過曲線が良好に再現されたことになる。また、図2. 4. 2-10(b)に示した通液試験後の割れ目近傍のトレーサー濃度分布データに対して、解析結果との対比を試みる。この割れ目近傍のトレーサー濃度分布は、割れ目表面の粉末上の試料を回収して分析することによって取得したものであり、割れ目表面の風化した高間隙率のパーミキュライト層に対応すると考え、図2. 4. 2-16(a)の0.2mmまでのパーミキュライト層に相当するトレーサー濃度の平均値を、実測データとともに、図2. 4. 2-16(b)に示した。実測と計算結果に差異はあるものの、完全に破過したCsについては濃度がほぼフラットであるのに対し、完全な破過までには至っていないNi、Euについては、その破過の度合いに応じた傾きを有していることが確認できる。以上の検討より、室内試験及び分析で得られた割れ目近傍の鉱物の不均質性とそれを踏まえた収着・拡散特性をできるだけ忠実に反映した3層モデルを構築することによって、トレーサーの破過曲線や割れ目表面の分布データ等を再現することができ、割れ目を対象とした体系的な試験手法とモデル化手法の有効性を確認することができた。

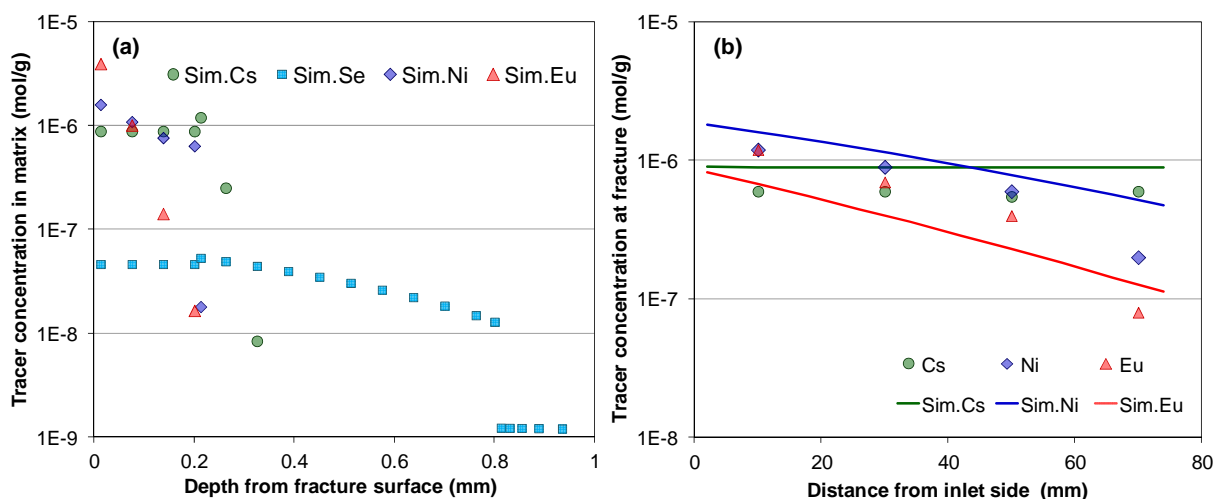


図2. 4. 2-16 グリムゼル岩割れ目中の3層モデルによる (a) 割れ目表面から深さ方向へのトレーサー濃度分布、(b) 割れ目表面のトレーサー濃度分布の評価結果

3) 原位置試験への適用性評価に関する調査・解析

結晶質岩については、上記のように、マトリクスと割れ目を対象に、鉱物や間隙の不均質性の影響等も考慮して、室内試験に基づき構築した評価モデルを、最終的に原位置条件において適用し、その妥当性を確認することが重要である。このような課題に対応するため、諸外国でも様々な視点での原位置トレーサー試験が、室内試験と合わせて進められている。花崗岩マトリクスと割れ目の核種移行評価手法の確証に資するため、平成27年度に、本プロジェクトで主たる対象としてきたスイスのグリムゼルに加え、スウェーデンのエスポ、フィンランドのオンカロの原位置トレーサー試験を調査・分析し、それぞれの岩石や原位置試験の特徴を比較することによって、評価確証に向けたアプローチや視点を検討した（日本原子力研究開発機構，2016a）。平成28年度からの2年間で、これら3カ国の原位置試験の情報を活用することによって、室内から原位置へのアップスケリング手法を含めて核種移行評価技術の適用性評価と確証を行うこととする。それぞれの原位置試験について詳細調査と予察解析を平成28年度から本格化させているが、ここでは、原位置試験が終了しており、最もデータが充実しているエスポにおける原位置トレーサー試験（LTDE-SD: Long Term Diffusion Experiment - Sorption-Diffusion）への適用性評価の結果を報告する。

i) エスポ原位置トレーサー試験（LTDE-SD）の概要

エスポ原位置試験場で実施された原位置長期拡散・収着試験（LTDE-SD）プロジェクトは、マトリクス部と割れ目部の原位置条件での収着・拡散データを取得することを目的に、2006年から約2年をかけて実施されたもので、その結果の詳細は複数のSKBレポートに取りまとめられている（Widestrand et al., 2010a, 2010b; Nilsson et al., 2010）。マトリクス部と割れ目部のデータを同時に取得するために、図2. 4. 2-17の左下に示すように、ターゲットとなる割れ目面（Stub section）及びマトリクス部（Slim hole section）に、20種を超える放射性核種を含むトレーサー溶液を約200日間にわたって循環させ、トレーサー溶液中の核種濃度の減衰データが取得された。さらに、同図右に示すように、試験終了後に試験区間を含む領域のオーバーコアリングを行った

うえで、ターゲットの割れ目からマトリクスにかけて、多数のコア試料を採取し、核種の濃度プロファイルが取得された。エスポの岩石の特徴として、マトリクス部はエスポ花崗閃緑岩で均質未変質岩であり、一方、割れ目については、方解石や緑泥石等の割れ目充填鉱物を不均質に被覆した複雑な特徴を有する。このような特徴を有する割れ目からマトリクスにかけての多様な核種のデータを取得しており、これまでグリムゼル岩を対象に構築してきた室内データから原位置条件へのスケーリング手法を含めた核種移行評価手法を確証するうえで非常に有益なデータセットである。

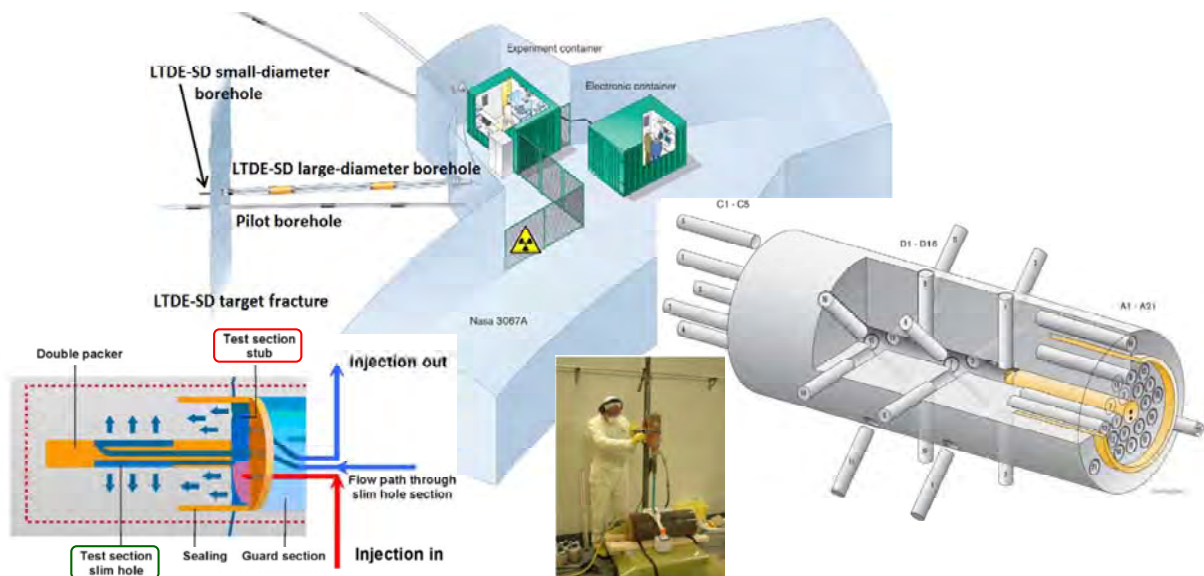


図 2.4.2-17 エスポにおける原位置トレーサー試験 LTDE-SD の試験概念 (Widestrand et al. (2010a) より抜粋)

エスポのLTDE-SD試験におけるオーバーコアリングによって取得された核種濃度プロファイルを、Cs-137を例として図2.4.2-18(a)及び(b)の上段に示す (Nilsson et al., 2010)。図(a)はマトリクス (Slim hole)、図(b)は割れ目表面 (Stub) の結果であり、いずれも表層から5mm前後の領域で急峻なプロファイルが確認された。エスポ岩のマトリクス部については、室内試験によって同様のプロファイルが取得され、さらにオートラジオグラフィによって、そのプロファイルが表層近傍の擾乱を受けた領域の雲母鉱物の分布と相関があることが確認されている (図2.4.2-18(a)の下図; Byegård et al., 1998)。この観察結果は、図2.4.2-2に示したようなこれまでにグリムゼル岩で観察された現象と整合的である。一方、エスポ岩の割れ目近傍の間隙の分析結果 (図2.4.2-18(b)の下図; Widestrand et al., 2007) からは、割れ目の表層からマトリクスにかけて徐々に間隙率が低下しており、この間隙率やそれに関連した物質移行特性の不均質性が、拡散プロファイルに影響しているものと考えられる。これらの観察結果をもとに、グリムゼル岩を対象に検討してきた表層近傍の擾乱影響を考慮した2層モデルを、エスポ岩のマトリクス及び割れ目表層に適用して解析評価を検討した。モデル概念は、マトリクスと割れ目部の表層5mmにおいて、間隙率と拡散係数、収着分配係数が線形に低下していくことを仮定し、一方、5mmより深い領域では、健全なマトリクス部で構成され、一定の特性を有することを仮定した。

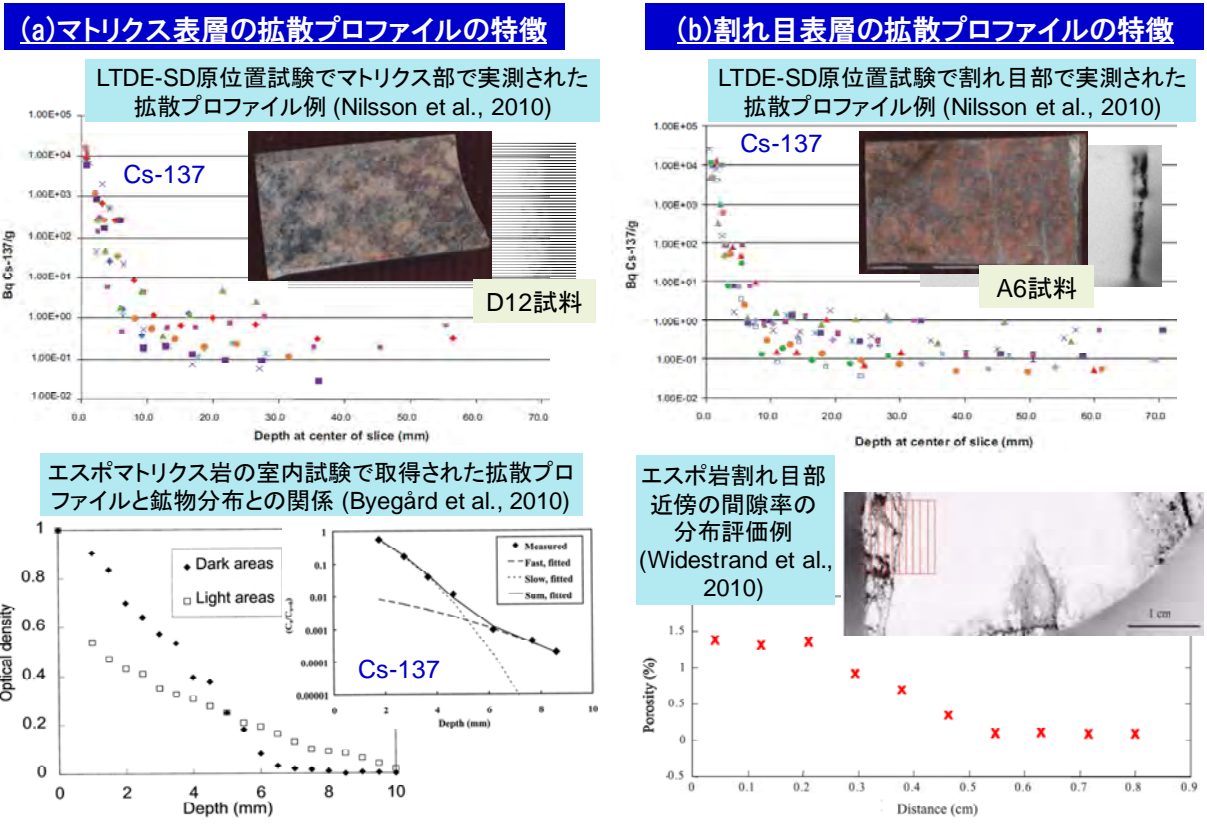


図 2.4.2-18 エスポ岩で観察されているマトリクス部(a)と割れ目表面部(b)における拡散プロファイルの特徴

このモデル概念に基づき、マトリクスと割れ目部の表層から5mmまでの領域、5mmより深い健全なマトリクス領域のそれぞれに対し間隙率、実効拡散係数、収着分配係数を設定し、トレーサー溶液中の核種の減衰曲線、マトリクス (Slimhole) 及び割れ目部 (Stub) における核種濃度プロファイル GoldSimコードによって解析した。間隙率と実効拡散係数の設定については、室内で取得されたエスポ岩中の拡散データがあるものの、試料採取の際の擾乱と圧力解放によって、室内試料の間隙率と拡散データは高めの値をとると考えられる (Tullborg and Larson, 2006; Tachi et al., 2015)。このため、原位置で数10mmまでの濃度プロファイルが取得されているC1及びNaのデータをもとに間隙率と実効拡散係数を評価した。図2.4.2-19(a)に示すように、5mmよりも深い未擾乱のマトリクス部の間隙率は、陰イオンのC1で0.03%、陽イオンのNaで0.1%と非常に低い値であると推定された。このC1とNaとの間隙率の差異は、これまでにグリムゼル岩で確認されているような陽イオン加速あるいは陰イオン排除の効果を示唆するものである。ここでは、Naに対して推定された間隙率と拡散係数を基本として、他の核種の拡散係数はNaとの自由水中の拡散係数の差異により補正して適用することとし、表層の擾乱を受けた領域の間隙率の変化とそれに伴う拡散係数の変化については、エスポ岩に対して導出されたArchie's則 (Ohlsson, 2000) に基づき補正した。一方、収着分配係数については、LTDE-SDプロジェクトの一環として取得された室内バッチ収着試験からの推定を試みる。収着分配係数は、粉碎試料を用いた室内バッチ収着試験データから、いかに原位置の未擾乱岩石あるいは表層の擾乱部に対応する分配係数を推定するかが重要となる。ここでは、図2.4.2-19(b)にBaの例を示すように、エスポ岩に対して取得された各核種の分

配係数の粒径依存性をもとに、擾乱の程度と粒径サイズを関連付けて調整するアプローチを採用した。このようなパラメータの設定と調整の結果として得られた解析結果と実測データとの比較を、同図(c)及び(d)にBaを例に示す。図(c)はトレーサー溶液中の核種減衰曲線、図(d)はマトリクス部 (Slim hole) と割れ目部 (Stub) の濃度プロファイルであり、全体的な傾向を概ね表現できているものの、濃度の減衰とプロファイルの進展をいずれも過大評価していることが確認でき、今後、モデルパラメータの最適化や不確実性の評価を検討する必要がある。なお、濃度プロファイルの10mm付近以降のフラットな領域は、バックグラウンドと評価している。また、Ba以外の核種についても評価を検討しており、Cs, Raといった比較的単純なイオンについてはBaに類似した結果が得られている一方、Cd, Gd, Npといった複雑な化学種ではモデルによる計算結果と実測との乖離が大きく、室内試験条件と原位置条件との差異も不確実性要因として考慮した解析評価を検討していく必要がある。

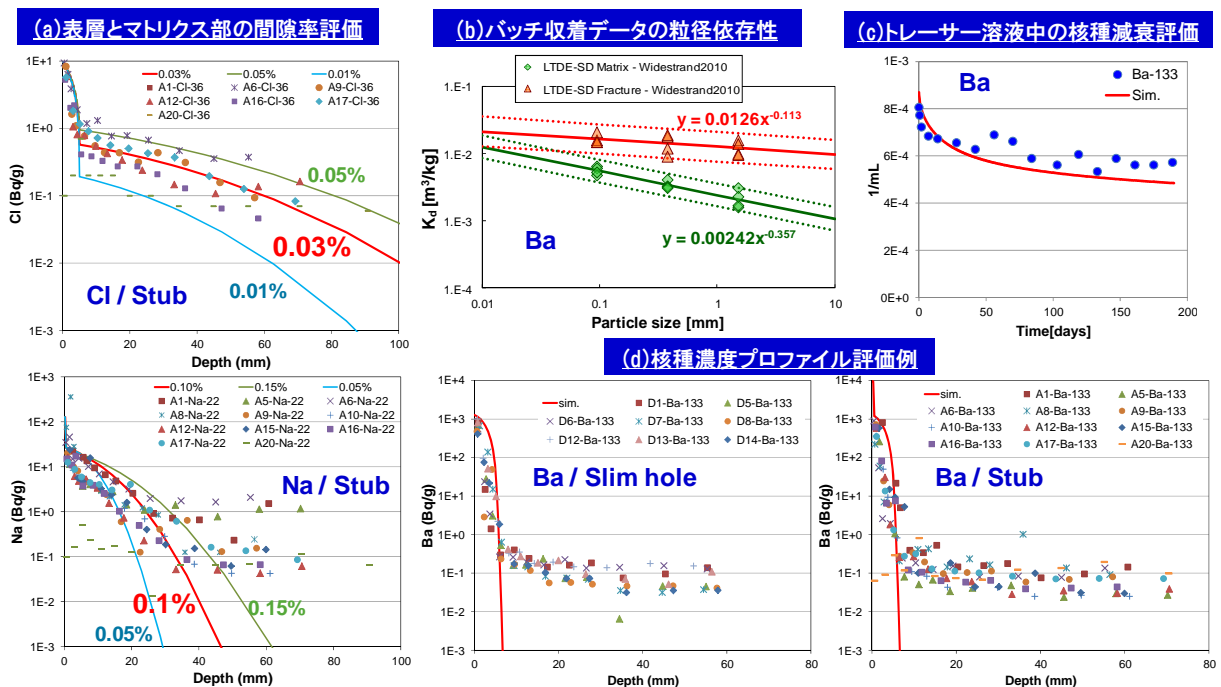


図2.4.2-19 エスポ原位置長期収着・拡散試験 (LTDE-SD) の解析結果例

(3) 堆積岩系の評価技術の開発

1) 幌延の原位置トレーサー試験と連携した原位置への適用性評価

i) 原位置トレーサー試験と連携した室内試験と適用性評価のアプローチ

これまでに幌延深地層研究センターの泥岩 (以下、幌延泥岩) を対象として、マトリクス部については、主にHDB-6孔の深度500-600mの稚内層から採取した珪質泥岩試料を用いて、多様な核種の収着・拡散データを室内試験により取得するとともに、粘土成分を主体としたモデル化手法を構築してきた (Tachi et al., 2011, 2016; 日本原子力研究開発機構, 2015a)。さらに、幌延の泥岩に特徴的な割れ目試料を対象に、上記でグリムゼルの割れ目試料に対して適用したような、体系的な室内試験及び分析評価をもとに、割れ目中の不均質性を考慮したモデル化手法を構築してきた (日本原子力研究開発機構, 2016a)。平成27年度からは、幌延深地層研究センターで実施

中の原位置トレーサー試験と連携することによって、これまでに室内試験で構築してきたマトリクス部から割れ目部までの核種移行評価手法を、実際の原位置トレーサー試験に対して適用・確認することを目指した取り組みに着手した。具体的には、幌延深地層研究センターの350m調査坑道において進められている、マトリクス（健岩部）及び割れ目を対象とした原位置トレーサー試験との連携により、原位置試験をサポートする室内データ（原位置トレーサー試験後の試料分析、コア試料を用いた室内試験）を取得しつつ、室内と原位置とのデータの整合性評価や、これまでに整備してきたモデルの適用性評価等を進めた。わが国においては、原位置試験において放射性トレーサーを利用できない状況も考慮して、原位置条件でいかに信頼性の高いデータを取得し、処分条件に適用可能な核種移行モデルとして確認していくかといった視点が重要な課題であり、これらの視点にも考慮して取り組みを進めた。割れ目とマトリクスを対象としたそれぞれの試験において、本事業で取り組む室内サポート試験や評価確認の視点を図2.4.2-20にまとめる。平成27年度に、マトリクス（健岩）部と割れ目部の双方を対象とした原位置トレーサー試験が実施されているが、現時点でマトリクス部の原位置トレーサー試験において良好なデータが得られており、平成28年度は、このマトリクス部のトレーサー試験の原位置試験試料の室内分析を実施し、異方性や岩圧影響を含めた原位置と室内試験データの関係性を含めて原位置試験データの解釈・評価を試みた。なお、原位置試験そのものは、本事業外の成果であり、オーバーコア試料の分析や室内試験及び解析評価が、本事業として実施した成果である。

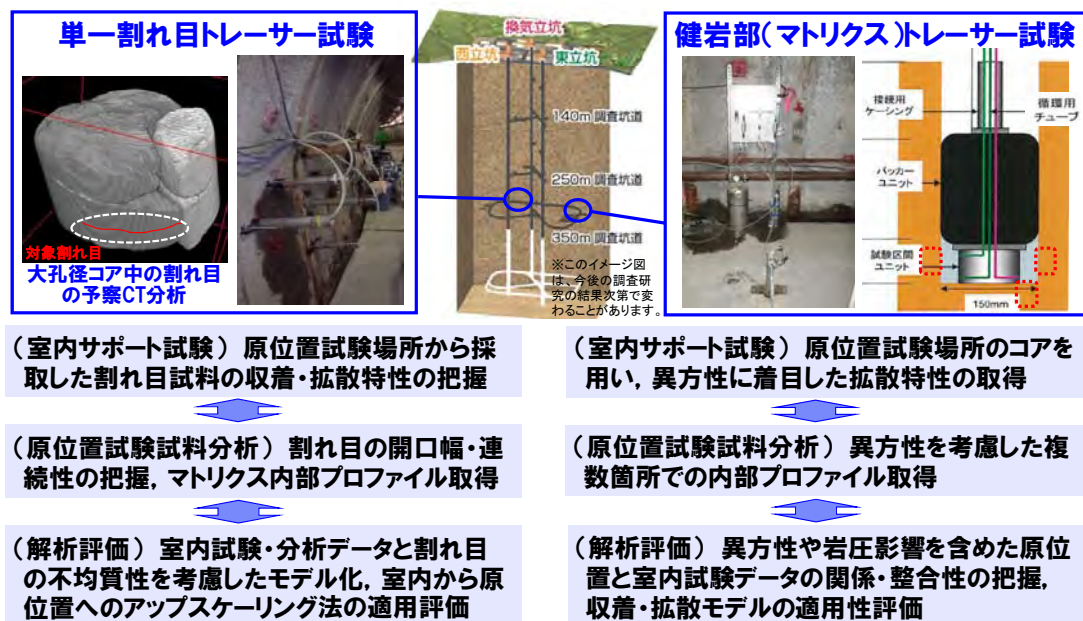


図 2.4.2-20 幌延 350m 調査坑道における原位置トレーサー試験と連携した評価確認アプローチ

ii) マトリクス（健岩）部を対象とした原位置試験の室内サポート試験と解析評価

マトリクス（健岩）部を対象としたトレーサー試験は、平成27年度報告書（日本原子力研究開発機構，2016a）に記載したように、350m調査坑道の開削した3本の試験孔（D05孔-孔径76mm 緩衝材設置無し、D03孔-孔径150mm 緩衝材設置無し、D02孔-孔径76mm 緩衝材設置有り）にトレーサーを添加した模擬地下水を循環させ、孔内のトレーサー濃度の減衰挙動を約11カ月間モニタリングするとともに、試験期間終了後に、オーバーコアリングにより岩石中のトレーサー分布を取得する

方法で進められた。本プロジェクトでは、試験終了後のオーバーコア試料を採取することができたD05孔とD02孔を対象に、オーバーコア試料中の内部プロファイルの取得を行った。ここでは、このうちD05孔を対象として実施した濃度プロファイルの取得、原位置試験結果の解析評価、室内サポート試験を含む室内データとの比較分析について報告する。図2.4.2-21(a)に、D05孔（孔径76mm 緩衝材設置無し）のトレーサー試験の状況と装置図を示す。また、D05孔内のトレーサー減衰データは、図2.4.2-21(b)に示すように、各トレーサーの収着特性に対応した減衰傾向が確認された。

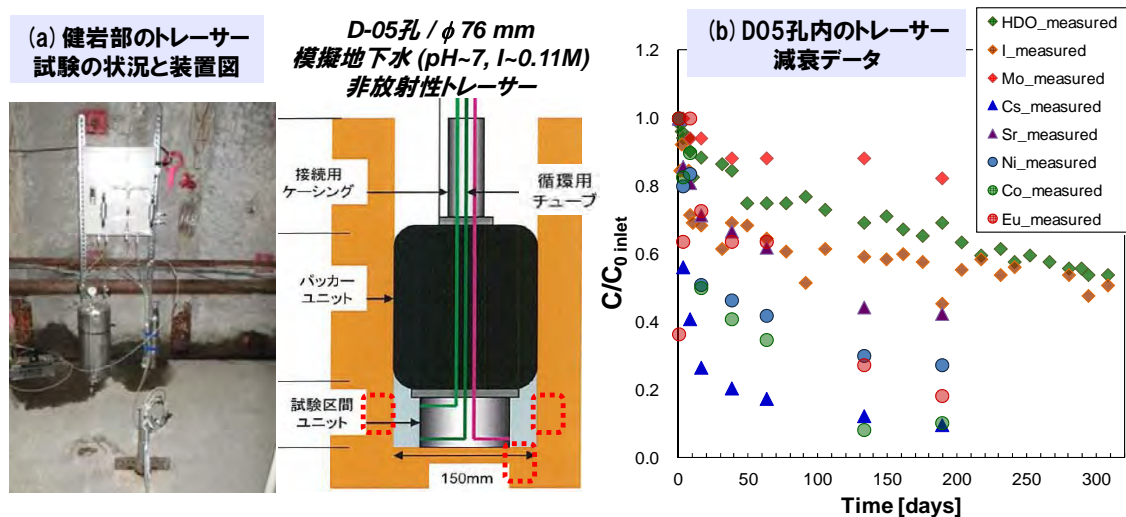


図 2.4.2-21 マトリクス（健岩）部の原位置トレーサー試験（D05 孔）の試験装置 (a) とトレーサー減衰データ (b)

D05孔のトレーサー試験終了後に取得されたオーバーコア試料を図2.4.2-22(a)に示す。拡散の異方性を確認する観点から、複数の方向に研削を行い（同図b）、岩石マトリクス中のトレーサー元素の濃度プロファイルを取得した。同図bに示す試験孔側面試料①に研削した2本（05-1、05-2）が層理面走向方向、写真は掲載していないが、試験孔の側面で試料①に対して周方向に90° 方向に研削した1本（05-3）が傾斜方向、試験孔の底部の試料②に研削した2本（05-4、05-5）が鉛直方向におおよそ対応する。それぞれの方向で得られた濃度プロファイルの比較を、Cs、Sr、Iの3元素を例に同図cに示す。いずれの元素も、拡散源から深さ30mm程度までの十分な精度のプロファイルを取得することができた。得られたプロファイルと比較すると、Csは理想的な形状のプロファイルが得られたものの、SrとIについては、表層の数mmの範囲で急峻な傾きと、それ以降の緩やかな傾きの2つの傾きをもつプロファイルが得られた。一方、層理面に対する方位との関係を見てみると、走向方向と傾斜方向のプロファイルにはほとんど差異が認められないものの、鉛直方向については差異が確認された。陽イオンのCsとSrでは走向及び傾斜方向のプロファイルの進展が顕著であり、一方、陰イオンのIにはその差は僅かではあった。

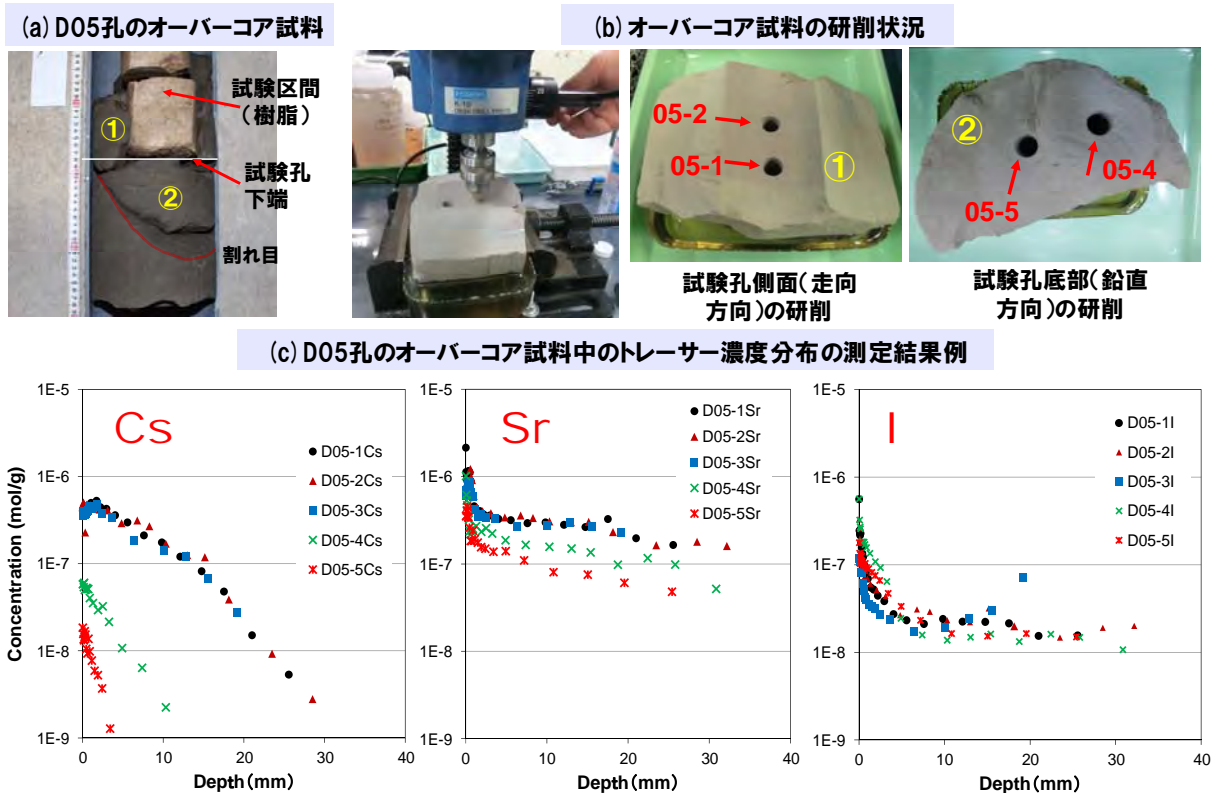


図 2.4.2-22 マトリクス（健岩）部の D05 孔のオーバーコア試料 (a), 研削状況 (b), トレーサー濃度プロファイルの例 (c) (試料 No. 1, 2 は走向, No. 3 は傾斜, No. 4, 5 は鉛直方向)

上記で取得したD05孔のトレーサー減衰及び濃度プロファイルを対象とした解析を実施した。解析には、先行事業で開発してきた1次元の拡散試験解析コード（日本原子力研究開発機構，2010；Tachi et al., 2011）を用い、境界条件が変動する体系での拡散方程式の厳密解を、トレーサー減衰曲線と濃度プロファイルに対して同時フィッティングすることにより行った。ここで、評価体系は、トレーサー溶液の容量と試験孔中のトレーサーとの接触面積のみを考慮した1次元の体系であり、上記においてプロファイルに異方性が確認されたものの、走向及び傾斜方向がトレーサー溶液と岩石の接触面（拡散面）の9割以上を占めることから、プロファイルは走向方向の05-1のデータのみを用いて解析を行った。同時フィッティングした解析結果を図2.4.2-23に示す。同図(a)には全てのトレーサーの減衰曲線の解析結果、同図(b)にはCs, Sr, Iの濃度プロファイルの解析結果例を示す。高収着性トレーサーの減衰曲線、及び濃度プロファイルの表面領域で一部乖離が見られたものの、全体的に良好なフィッティング結果が得られ、各トレーサー元素に対する実効拡散係数及び収着分配係数を導出することができた。なお、二重のプロファイルが認められたSrとIについては、緩やかな傾きをもつ領域のプロファイルの方がフィッティング結果と整合的であり、より進展したプロファイルが主たる拡散プロファイルであることが確認できた。一方で、表層近傍の急峻な傾きをもつプロファイルについては、試錐孔掘削に伴う表面部分の擾乱影響（Borehole disturbed zone:BDZ効果）、あるいは、高濃度トレーサー溶液を用いたことに起因する界面での析出影響などが、その原因として考えられる。今後、オーバーコア試料の詳細分析や別途実施している室内試験結果の評価とあわせて、その原因を検討する必要がある。解析評価に得られた全てのトレーサーの実効拡散係数、容量因子（RCF）、収着分配係数を同図(c)に示す。

幌延の泥岩に対して、これまでに確認されている陽イオン加速及び陰イオン排除の効果が明瞭に確認されたほか、収着分配係数についてもこれまでに観察されてきた傾向と概ね整合する結果が得られた。

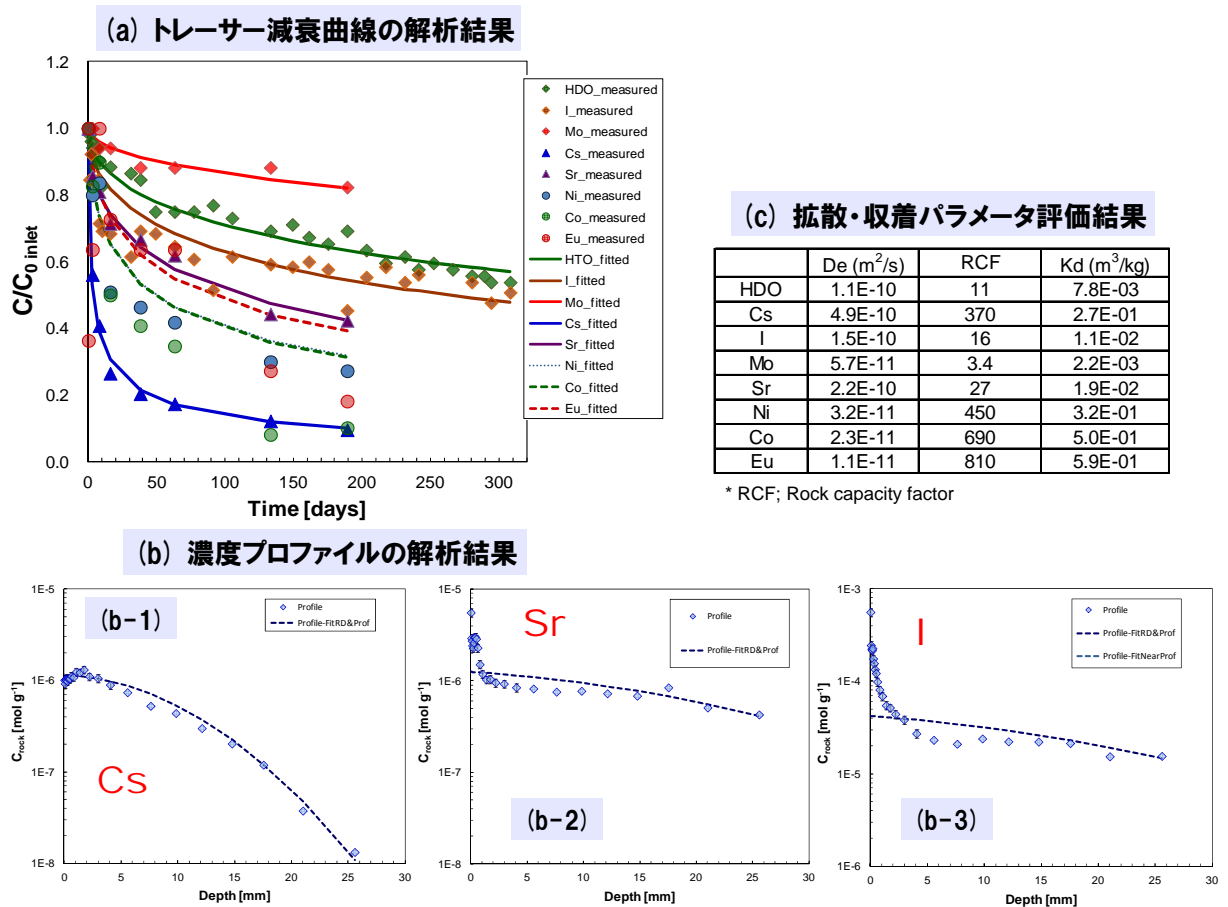


図 2. 4. 2-23 健岩部 D05 孔の原位置トレーサー試験の解析結果

さらに、室内と原位置でのデータの比較と、特に層理面に対する異方性の拡散への影響を把握することを目的として、試験孔のD05孔を掘削した際に取得されたマトリクス試料に対して、走向、傾斜、鉛直方向が拡散方向となるように加工した試料（図2. 4. 2-24(a)参照）を用いて、室内での透過拡散試験を実施した。室内試験に用いたトレーサー溶液は、原位置トレーサー試験に用いたトレーサー溶液と原則として同じ条件（模擬地下水、トレーサー元素の種類と濃度）に設定した。ただし、室内試験ではSeを追加したほか、原位置の被圧条件の再現が困難であることに起因してpH条件が異なっている（原位置の約7に対し、室内では約8.5）。図2. 4. 2-24(b)及び(c)に、トレーサーとしてCsとI、拡散方向として走向と鉛直方向を例として、トレーサー減衰曲線、破過曲線、岩石内部プロファイル、及びそれらの解析結果を示す。非常に良好な同時フィッティング結果が得られ、同図(d)に示すような収着・拡散パラメータを取得した。Csについては、走向と鉛直方向で同程度の拡散係数が得られ、原位置試験で得られた値に対して僅かに大きい値が得られた。一方で、Iについては、走向方向で得られた実効拡散係数は、原位置データに近い値であったが、鉛直方向の拡散係数が低めの値を示す結果となった。Csの結果からは、室内と原位置とで概ねデータが整合すること、及び異方性の影響が顕著ではないことが確認できるが、一方で、Iの結果から

は異方性の影響を示唆する傾向も確認されており、今後他のトレーサーの分析評価結果も踏まえて総合的な評価が必要である。

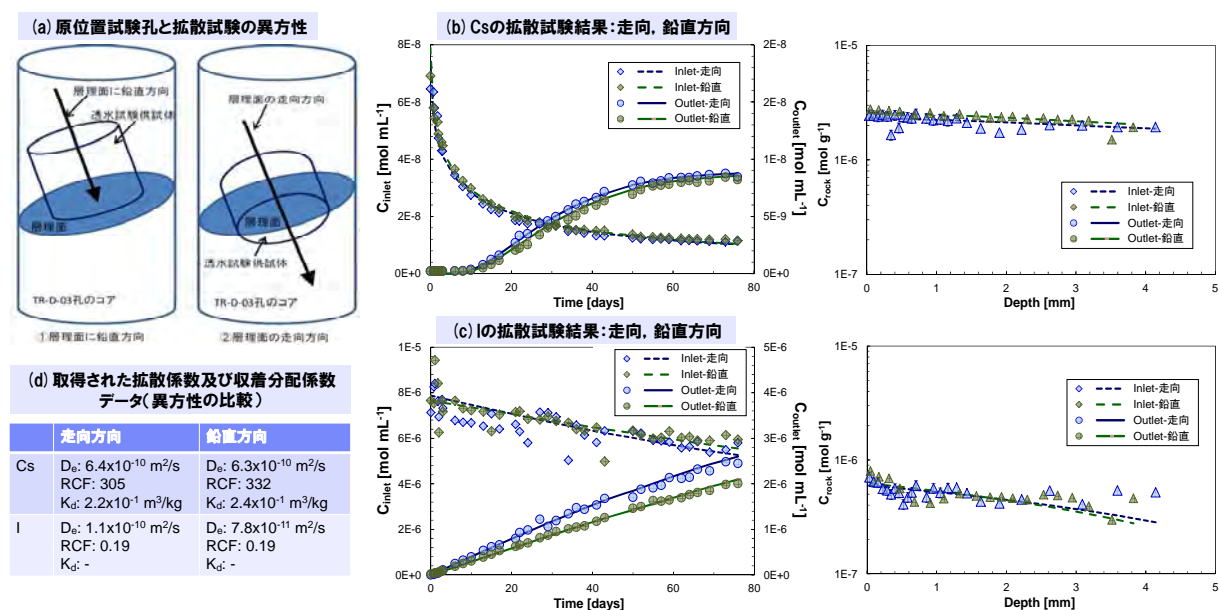


図 2.4.2-24 健岩部 D05 孔から得られた試料を用いた異方性に着目した室内拡散試験の結果

今回の原位置試験で得られた多様な元素の実効拡散係数及び収着分配係数データについて、元素間の関係や、試験条件の差異などに着目して、既往の報告事例と比較分析を試みる。図2.4.2-25の左側に示すグラフが、今回の05孔での原位置拡散試験によって得られたデータセットである。これに対して、同図中央のグラフは、先行事業「処分システム化学影響評価技術開発」で得られたHDB-6孔の深度500m付近の泥岩コアを対象に、主に放射性トレーサーを用いて取得されたデータである (Tachi et al., 2011; Tachi et al., 2016)。一方、右側のグラフは、本事業の最初の2年間で実施したSAB-2孔から採取した割れ目を含むコア試料のマトリクス部に対して取得されたデータである (日本原子力研究開発機構, 2016a)。これらの3つのデータセットを比較するうえでは、間隙率や模擬地下水のイオン強度の若干の差異を考慮するとともに、原位置と室内試験での地下水のpHとトレーサー濃度の差異に特に留意する必要がある。まず、比較的単純なイオンを3つのデータセットで比較すると、中性のトリチウム水 (HTO) または重水 (HDO) が概ね整合するのに対し、陰イオン種 (I, Mo, Se) は電荷に応じた陰イオン排除の効果が整合的に確認できる。しかしながら、今回の原位置でのIの結果については、その陰イオン排除の傾向が不明瞭な点に加えて、収着分配係数も高い値となっており、上述したようなトレーサー濃度の影響を含めてその原因を検討する必要がある。陽イオンであるCsについては、拡散係数の陽イオン加速の効果に加え、分配係数の値についても、3つの試験で概ね整合する結果が得られた。一方で、NiやAm/Euについては、実効拡散係数についてはAm/Euでは同程度の値であるのに対し、Niの場合には3倍程度の差異が確認された。また、収着分配係数については1桁以上の差異が確認できる。これらの高収着性核種は、原位置と室内試験におけるpHの差異に起因する化学種の変化、それに伴う収着特性の変化の影響が大きく、これらの影響をこれまで開発してきたモデルの適用を含めて別途評価する必要がある。このような既往の室内試験のデータセットの比較を通じて、今回原位置で取得し

た拡散・収着データの妥当性を確認すると同時に、原位置におけるトレーサー濃度設定に起因する問題、原位置と室内試験の条件の差異までを考慮した整合性評価の必要性といった、室内から原位置へのスケーリング手法を構築するうえで重要な課題を抽出した。

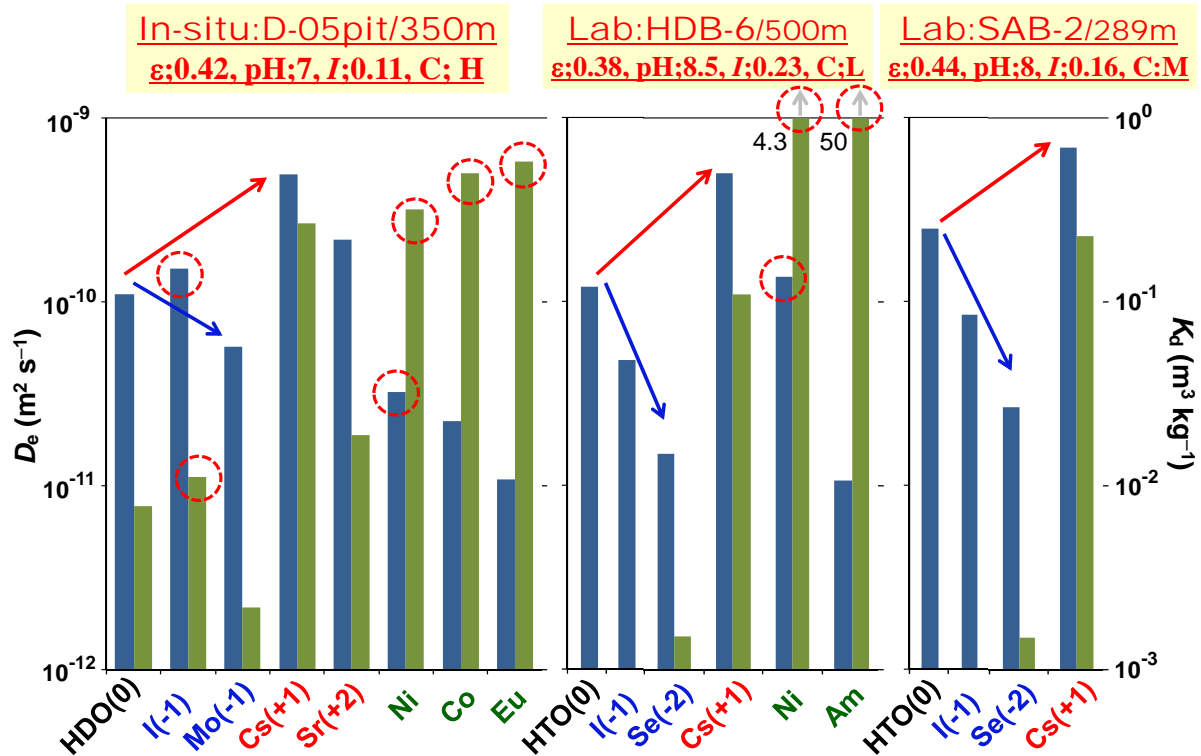


図 2.4.2-25 幌延の泥岩マトリクス中の原位置及び室内拡散試験で得られた各トレーサーの実効拡散係数（青色バー）と収着分配係数（緑色バー）の比較（上部の条件比較におけるは ϵ は間隙率， I はイオン強度， C はトレーサー濃度：H/高～M/中～L/低）

2) 幌延のナチュラルトレーサー評価に関する検討

粘土質堆積岩は、透水性が極めて低い拡散バリアとしての性能が期待されており、諸外国でもこれら岩石における長期にわたる拡散バリア性能の立証が中心的な課題となっている。このような課題に対する取り組みとして、諸外国では粘土質堆積岩を対象に、比較的広域かつ長期にわたる母岩中での物質の移行挙動を評価するため、地下水（間隙水）中に含まれる非収着性（弱収着性）の元素濃度プロファイル（ナチュラルトレーサープロファイル；以下「NTプロファイル」と略す）を調査するとともに、調査箇所の水理地質学的な変遷（たとえば、天然事象による初期／境界条件の変化）も踏まえ、拡散をベースとしたモデルにより濃度プロファイルの解釈が試みられている（たとえば、Mazurek et al., 2009）。同様な試みを我が国における堆積岩を対象に行うため、平成26年度は、幌延の堆積岩を対象にNTプロファイルの検討を行う上で必要となる既往の知見やデータ等を整理した（日本原子力研究開発機構, 2015a）。平成27年度は、幌延の堆積岩を一例にNTプロファイルの解釈を行うためのアプローチを具体化するとともに、NTプロファイルの解釈に向けたモデル化に係る予察的な検討を試みた（日本原子力研究開発機構, 2016a）。平成28年度は、平成27年度の予察的な検討結果を踏まえつつ、具体的な事例を対象とした評価とし

て、幌延深地層研究計画の地上からの調査研究段階（第1段階）で掘削されたボーリング孔であるHDB-1孔を一例に、NTプロファイルの解釈に係る検討を行った。

① NTプロファイルに影響を与えるパラメータの選定

平成27年度に試みたNTプロファイルの解釈に向けたモデル化に係る予察的な検討では、NTプロファイル解釈のための概念モデルをもとに地下水中の Cl^- の深度方向における変化について、物質移行プロセスとして拡散のみを考慮した場合および移流・拡散を考慮した場合の2ケースを想定した解析が行われた（日本原子力研究開発機構、2016a）。平成27年度の予察的な検討結果を踏まえると、NTプロファイルに影響を与える主なパラメータとしては、地層中の地下水（間隙水）に含まれるNTの初期値、地層中でのNTの拡散係数、移流速度（物質移行プロセスとして移流・拡散を考慮する場合）および物質移行プロセスを想定する期間（時間）であると考えられた。そこで、平成28年度は、これらの各パラメータを対象にパラメータの幅を考慮した場合、NTプロファイルがどのように変化するかを解析的に検討することとした。また、解析結果とHDB-1孔で認められたNTプロファイルとを比較し、両者間での整合性が相対的に良いパラメータの組み合わせについても検討した。

② 拡散および移流・拡散を考慮した物質移行解析

平成28年度の検討において、拡散および移流・拡散を考慮した物質移行解析を行うにあたり考慮したパラメータおよび各パラメータの設定値（幅）を表2.4.2-2に示す。解析コードとして、Geochemist's Workbench (Bethke, 2008) のX1tモジュールを用いた。以下に、NTとして Cl^- を対象とした場合の各パラメータの組み合わせに基づく解析結果について述べる。

〔物質移行プロセスとして拡散のみを考慮した場合〕

Cl^- を対象に、地下水中の初期 Cl^- 濃度を3通り（10000, 15000および19350mg/L）に変化させた場合の Cl^- プロファイルを解析した。なお、実効拡散係数（ D_e ）は、 $6.78 \times 10^{-10} \text{m}^2/\text{s}$ とした。図2.4.2-26に拡散のみを考慮した場合の解析結果を示す。比較のため、図中にはHDB-1孔で認められた Cl^- プロファイル（実測値）も示した。地下水中の初期 Cl^- 濃度が高いほど、解析結果のプロファイルが実測値に類似するのに要する時間が長くなり、初期 Cl^- 濃度として10000mg/Lを超える場合、1Ma以上の期間を要すると推察された。幌延の地下施設周辺における古水理地質学的変遷に係る情報と照らし合わせると、本検討で想定する概念モデルでの物質移行プロセスの期間として1Maを超えるのは適切な仮定とは言い難く、初期 Cl^- 濃度として、HDB-1孔深部に存在する現在の地下水の Cl^- 濃度より極端に高い濃度を設定するのは適切な仮定ではない可能性がある。ただし、本解析のように拡散のみを考慮した場合では、いずれの解析ケースも実測値を適切に評価できていない。このため、移流・拡散を考慮した解析においても、初期 Cl^- 濃度については同様に3通りの条件を仮定し解析・評価を行うこととした。

表2. 4. 2-2 解析で考慮したパラメータおよび設定値（幅）

パラメータ	設定値（幅）	設定（仮定）に当たり参考とした文献等
Cl ⁻ 濃度 (ppm)	地下水（間隙水）中の初期濃度の最大値として、海水のCl ⁻ 濃度（19350）、最小値として、HDB-1孔の深部における現在のCl ⁻ 濃度（約10000）、これらの中間値としてのCl ⁻ 濃度（15000）を設定。	Mazurek et al. (2009) 國丸ほか(2007)
δD・δ ¹⁸ O (‰)	地表側（上側）境界の値としては、現在の地表水の値を設定。岩盤側（下側）境界の値としては、HDB-1孔深部の現在の地下水の値を設定。	國丸ほか(2007)
拡散係数 (m ² /s)	Cl ⁻ ：稚内層中でのIの実効拡散係数(De)と声間層の空隙率(0.6)をもとに、声間層のDeを仮定(6.78×10 ⁻¹⁰ および1.67×10 ⁻¹⁰ の2ケースを設定)。また、陰イオン拡散間隙としては、0.3と仮定。 δD・δ ¹⁸ O：CLAYTRACプロジェクトでの設定例等を参考に仮定(1.67×10 ⁻¹⁰)。拡散間隙は、空隙率と同様と仮定。	Tachi et al. (2011) Mazurek et al. (2009)
移流速度 (m/s)	下方向への涵養速度として、3×10 ⁻¹² (約0.1 mm/y)および9×10 ⁻¹² (約0.3 mm/y)を設定（仮定）。	Karasaki et al. (2011) Mazurek et al. (2009)
期間（時間）	幌延の地下施設周辺における古水理地質学的変遷に関する情報を参考に、物質移行プロセスが生じた期間の最大値として、1Ma程度を仮定。	新里ほか(2007) 岩月ほか(2009)

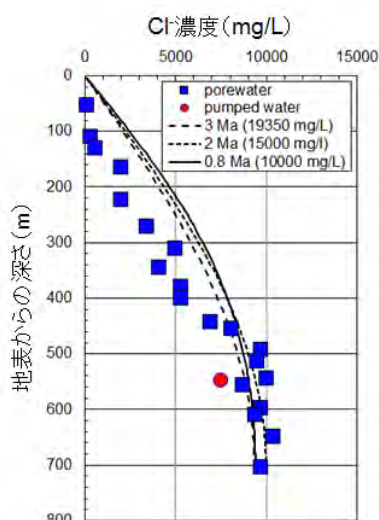


図2. 4. 2-26 拡散のみを考慮した場合の解析結果

〔物質移行プロセスとして移流・拡散を考慮した場合〕

上述した拡散のみを考慮した解析では、深部に比べ浅部の方が解析結果のプロファイルと実測値の乖離が大きかった。平成27年度に実施した予察的な検討において、この要因の1つとして地表から地下に向かう地下水の涵養の影響が示唆された。そこで、平成28年度も地表からの移流による地下水の涵養の影響を考慮した解析を行った。地表からの地下水の涵養速度（移流速度）としては、例えばKarasakiら（2011）による幌延地域を対象にした広域（40km×40km）スケールでの地下水流動解析で検討された例があるが、ここでは、Karasakiら（2011）の解析における設定や欧州の粘土質堆積岩を対象にした評価例（CLAYTRACプロジェクト）（Mazurek et al., 2009）を参考に、移流速度として2通り（3×10⁻¹²m/sおよび9×10⁻¹²m/s）の条件を仮定した。また、拡散係数については、拡散のみを考慮した解析の場合に設定したDeよりも小さい値（1.67×10⁻¹⁰m²/s）での解析も行った。移流・拡散を考慮した場合の解析結果については、拡散のみを考慮した場合のDeのケース（Case 1）と、それよりも小さいDeを仮定したケース（Case 2）をもとに、各ケースで初期Cl⁻濃度・移流速度・期間を変えた場合の解析結果を比較するような形で整理した。なお紙幅の都合上、初期Cl⁻濃度を15000mg/Lとした場合の結果は割愛した。

・ Case 1の結果

図2. 4. 2-27にHDB-1孔で認められたCl⁻プロファイル（実測値）および移流・拡散を考慮した場合の解析結果を示す。初期Cl⁻濃度を19350mg/Lとした場合、移流速度が相対的に速い条件で、移流・拡散期間を0.6Ma程度にした場合に実測値のプロファイルに近い形状となった。一方、初期Cl⁻濃度を10000mg/Lとした場合、移流速度が相対的に速い条件で、移流・拡散期間を0.3Ma程度にした場合に実測値のプロファイルに近い形状となった。

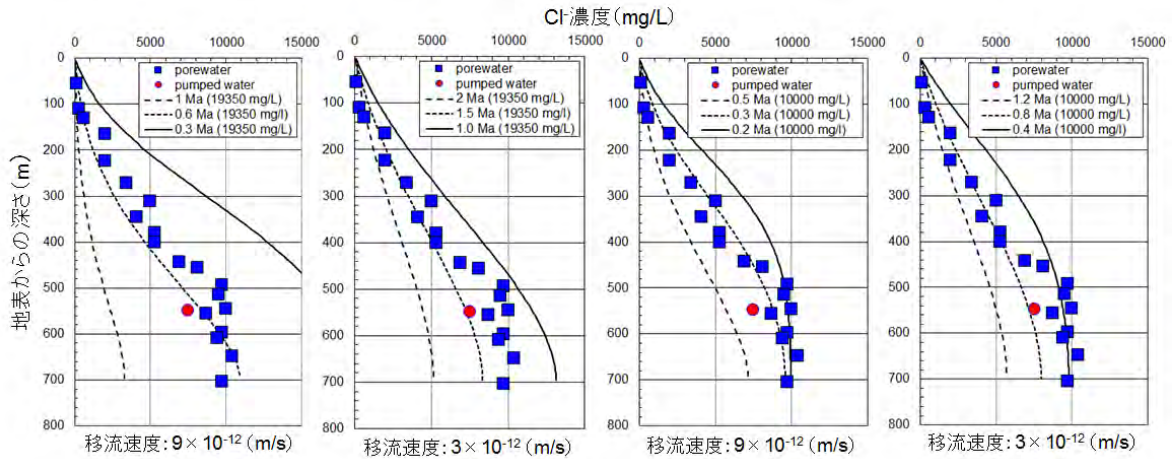


図2. 4. 2-27 移流・拡散を考慮した場合の解析結果 (Case 1)

・ Case 2の結果

Case 1より小さいDeを仮定した移流・拡散を考慮した場合の解析結果を図2. 4. 2-28に示す。初期Cl⁻濃度を19350mg/Lとした場合、いずれの解析結果も実測値のプロファイルに近い形状を得ることが困難であった。一方、初期Cl⁻濃度を10000mg/Lとした場合、移流速度が相対的に遅い条件で、移流・拡散期間を0.8~1Ma程度にした場合に実測値のプロファイルに近い形状となった。

今回検討したCase 1およびCase 2の結果の中で、相対的により実測値のプロファイルに近い形状が得られたのは、Case 2の初期Cl⁻濃度 = 10000mg/L、移流速度 = 3×10^{-12} m/s、移流・拡散期間 = 1Maの場合であった。この結果を踏まえると、初期Cl⁻濃度としては10000mg/Lが妥当な設定であると考えられた。

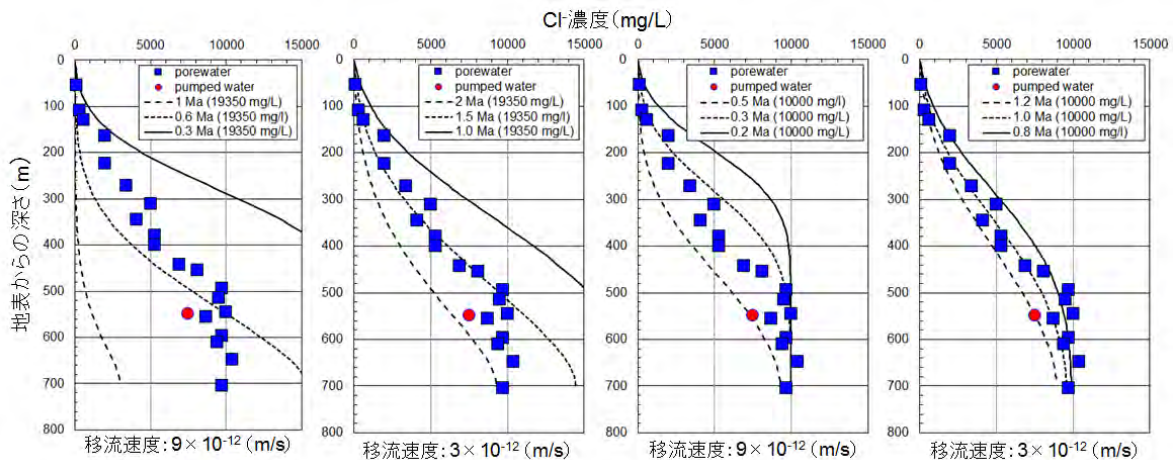


図2. 4. 2-28 移流・拡散を考慮した場合の解析結果 (Case 2)

次に、Case 2の設定をベースに酸素・水素安定同位体比 ($\delta^{18}\text{O} \cdot \delta\text{D}$) のプロファイルについて検討した (Case 3)。

・Case 3の結果

図2.4.2-29に移流・拡散を考慮した $\delta^{18}\text{O} \cdot \delta\text{D}$ の解析結果およびHDB-1孔で認められた $\delta^{18}\text{O} \cdot \delta\text{D}$ プロファイル (実測値) を示す。いずれの同位体比も、移流速度が相対的に速い条件では移流・拡散期間を0.5Ma程度にした場合、移流速度が相対的に遅い条件では移流・拡散期間を1Ma程度にした場合に実測値のプロファイルに近い形状となった。

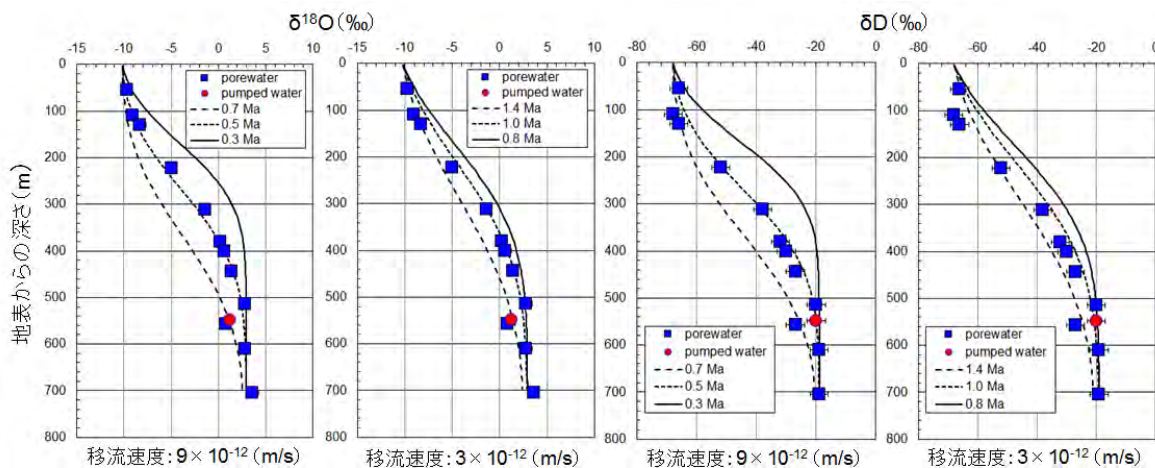


図2.4.2-29 移流・拡散を考慮した場合の解析結果 (Case 3)

今回検討したCase 1～Case 3の結果を踏まえると、HDB-1孔におけるNT ($\text{Cl}^- \cdot \delta^{18}\text{O} \cdot \delta\text{D}$) プロファイルをより整合的に解釈できる設定 (仮定) としては、初期 Cl^- 濃度 = 10000mg/L、拡散係数 = $1.67 \times 10^{-10} \text{m}^2/\text{s}$ 、移流速度 = $3 \times 10^{-12} \text{m/s}$ 、移流・拡散期間 = 1Ma程度であると考えられた。

③ 隆起・侵食による物質移行解析への影響に係る予察解析

②で述べた解析は、隆起・侵食に伴う地層の層厚変化の影響は考慮していない。しかしながら、幌延地域は広域的に見ると、いまから2.5Ma前頃から東西圧縮の応力場となり、幌延の地下研究施設周辺では、1.5～1Ma頃から隆起に転じ、現在まで、隆起・侵食が継続していると推定されている (太田ほか, 2007)。このため、物質移行プロセスを想定する期間が長期になる場合、地表側 (上側) の境界条件が隆起・侵食により経時的に変化することによるNTプロファイルへの影響を考慮することが必要になる。本検討で使用しているX1tモジュールでは、このような境界条件の変化を考慮した解析が可能な機能があるかどうか、現状では不明であった。一方、CLAYTRACプロジェクトで用いられた解析コードであるFLOTTRAN (Lichtner, 2004) では、境界条件の変化を考慮するためのコードの改良が必要と考えられる。そこで、侵食に伴う地層の削剥による層厚変化を考慮した解析を行うため、Bern大学のMartin Mazurek氏およびPeter Alt-Epping氏の協力を得て、FLOTTRANコードの機能改良を試みた。なお、コードの機能改良に先立ち、FLOTTRANコードによる解析の適切性を確認するため、②で述べた解析と同様な設定での解析を一例行い、X1tモジュールによる解析と同様な結果が得られることを確認した。

検討対象とする幌延の地下研究施設が設置されている北進地区における侵食速度は、隆起量の多い背斜軸部では約0.66～1.79m/ky (660～1790m/Ma) 以上、隆起量の少ない翼部では約0.21～

0.86m/ky (210~860m/Ma) 以上と見積もられている (太田ほか, 2007)。なお、小池・町田編 (2001) によれば、幌延地域およびその周辺の隆起速度は0.27~0.55m/kyとされており、侵食速度と同程度か、やや侵食速度より小さいと推定される。HDB-1孔は背斜の翼部付近に相当し、侵食速度としては太田ほか (2007) を参考に約0.6m/kyと仮定した。

まず、②で述べた解析と同様な条件 (Case 1~Case 3の結果を踏まえたHDB-1孔におけるNTプロフィールをより整合的に解釈できる条件) で、侵食に伴う上側境界条件の経時変化を考慮した解析を行った (Case 4)。解析の結果を図2.4.2-30に示す。解析では、1Ma前から侵食の影響が生じたと想定したため、図の縦軸は1Ma前の地表面からの深さとした。Case 4では、侵食速度 (0.6mm/y) > 移流速度 (約0.3mm/y) であり、解析結果のプロファイルは地表面近傍付近で拡散勾配が急な形状を示し、実測値のプロファイルの形状との整合性が良くなかった。前述したCase 1やCase 2において、移流速度が相対的に大きい場合、解析結果のプロファイルにおける拡散勾配が相対的に緩やかになることが示されていたため、実測値のプロファイルの形状との整合を良くするためには、移流速度をやや大きくした方が良いと推察された。

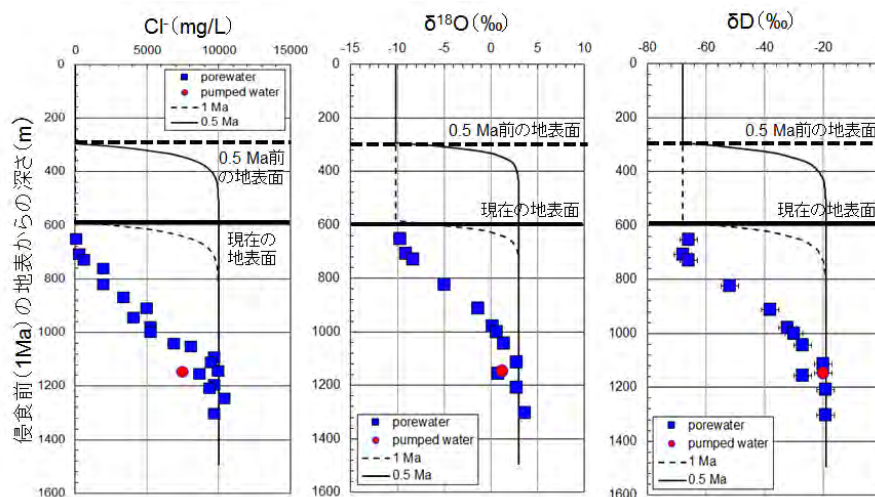


図2.4.2-30 移流・拡散を考慮した場合の解析結果 (Case 4)

そこで、Case 4の条件をベースに移流速度を3倍程度速くした条件 (約0.8mm/y = 2.58×10^{-11} m/s) での解析を試みた (Case 5)。解析結果を図2.4.2-31に示す。Case 5では、侵食速度 (0.6mm/y) < 移流速度 (約0.8mm/y) であり、移流・拡散期間を1Maと仮定した場合、Cl⁻・δ¹⁸O・δDのいずれのトレーサーについても実測値のプロファイルと良い整合を示す結果となった。

今年度、予察的に行ったFLOTTRANコードを用いた侵食影響を考慮した解析により、上側境界条件の変化が解析結果のプロファイルの形状に与える影響や、侵食速度と移流速度の関係が解析結果のプロファイルの形状に与える影響について概略的に把握できた。ちなみに、移流・拡散をベースにしたモデルによるCl⁻プロファイルの解釈については、先行事例として、松本ら (2008) の評価例がある。松本ら (2008) の場合、今回の解析で設定した移流速度より1~2桁程度大きい値 (1×10^{-11} ~ 1×10^{-10} m/s) で評価されており、その場合、移流・拡散期間としては0.1Ma程度の場合に実測値のプロファイルと良い整合を示すことが示されている。松本ら (2008) も指摘しているが、幌延地域における地史的な情報に基づけば、天水の浸透開始時期としては、0.2~1Ma前、あるいは2Ma程度前とされており、不確実性の大きいパラメータの一つである。また、移流速度に関

係する地層の透水性についても、同様に不確実性が大きい。今後、このような不確実性の大きいパラメータを主な対象にした解析を進めるとともに、現段階で最も確からしいと推定されるパラメータ値を用いて実測値のプロファイルを整合良く解釈できないかを検討する予定である。なお、今回試みたHDB-1孔を対象としたNTプロファイルの解釈では、物質移行プロセスとして拡散のみならず移流の影響が大きいことが示唆されたが、今後は他のボーリング孔（例えば、地表面近傍付近で拡散勾配が急で、HDB-1孔と比べてプロファイルの変化の距離が短いHDB-3孔等）におけるNTプロファイルの解釈も進め、拡散バリア性能の傍証としての適用性についても検討する必要がある。

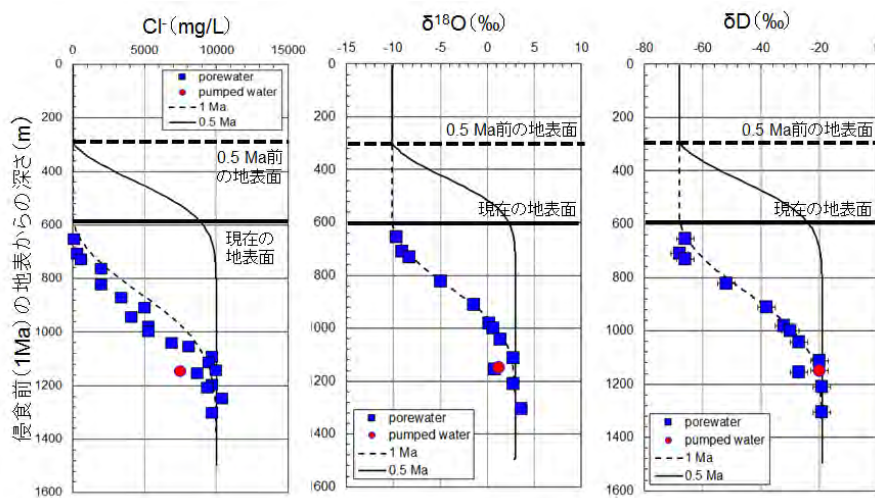


図2.4.2-31 移流・拡散を考慮した場合の解析結果 (Case 5)

2.4.3 有機物・微生物等の影響評価手法の開発

安全評価の信頼性を向上させるには、天然バリア中の核種移行評価において、地下環境に広く分布する有機物や微生物等の影響を考慮する必要がある。しかし、多様な地下環境を対象に、これらの影響評価を可能にする一般的な手法は、現在なお整備されていない。本研究は、安全評価における不確実性低減化の観点から、天然バリア内の核種移行に対する有機物・微生物等の影響評価手法を開発する。影響評価手法の開発に当たっては、効果的に研究開発を進めるため、①性能評価における課題（不確実性）の抽出、②不確実性低減化に向けた研究開発の実施、③その成果の性能評価へのフィードバックの枠組みを設け、課題に取り組むこととした（図2.4.3-1）。また、研究開発では、抽出された課題だけでなく、これまでに指摘されている課題についても考慮するとともに、室内試験と原位置試験の双方から取り組むことで、より信頼性の高い影響評価手法の開発を進めることとした。

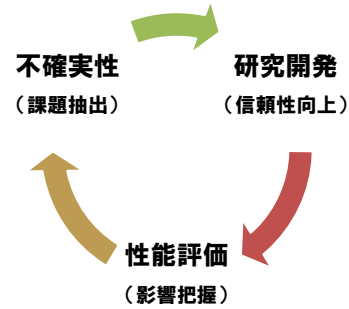


図 2.4.3-1 有機物・微生物等の影響評価研究の流れ

(1) 有機物影響評価技術の開発

高レベル放射性廃棄物の地層処分の安全性に影響を及ぼす可能性のある有機物には、セメント混和剤等の人工有機物と地下水などに存在する天然有機物がある。人工有機物については、3.2.4項で取り扱っており、本項では、天然有機物を検討の対象とする。

地下水に溶存する天然有機物には、カルボキシル基や水酸基等の酸性官能基を有するものがあり、金属イオンと安定な錯体を生成することが出来るものが存在する（Thurman, 1985）。地層処分システムにおいて、核種がそのような有機物と錯生成すると、地下水に対する核種の溶解度が上昇するとともに、母岩への核種の取着・拡散が抑制され、核種移行が促進される可能性がある。これら核種移行の促進に対する有機物の影響は、コロイドの影響評価と同様に、Millerら（2000）のダイアグラム（図2.4.3-2）に従って概括的に評価することができる。平成26年度までに、日本原子力研究開発機構（2014a, 2015a）は、このダイアグラムに従って天然有機物による核種移行への影響を概括的に評価し、処分システムにおいて有機物による影響が顕在化する可能性を指摘した。この結果を踏まえ、より現実的な影響評価を実施するため、既存の錯生成に係る知見や技術を基に評価対象核種の有機物への分配係数を整備し、これらの値を用いた性能評価解

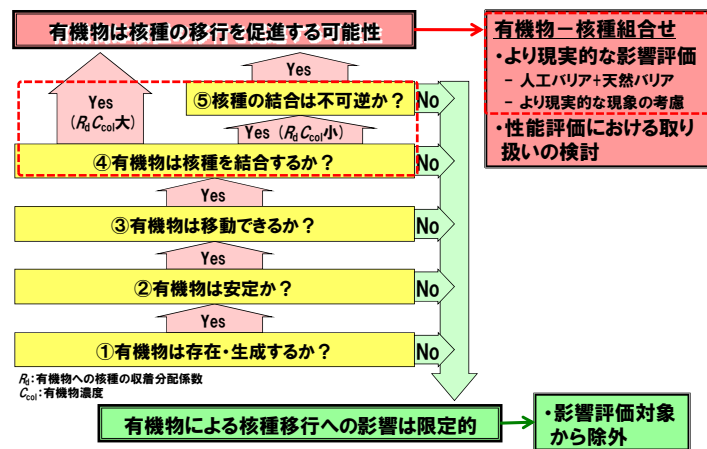


図 2.4.3-2 有機物影響評価ダイアグラム

析を保守的な条件で試行した。その結果、より現実的な影響評価においても天然有機物による影響が顕在化する可能性が示された（日本原子力研究開発機構，2015a）。しかし、解析に用いた分配係数には不確実性がある他、過度に保守的な条件を設定して解析を行っている場合があるなど、用いた定量評価手法には課題があることも指摘されている。このため、評価の信頼性を高めるには、より現実的な評価手法の整備が不可欠であり、以下のモデル/パラメータデータベースの開発に取り組む必要がある。

a. 信頼性の高い核種と有機物との錯生成評価手法の開発

- ・ III価・IV価核種に対するモデル/パラメータの信頼性の向上
- ・ 錯生成モデルパラメータデータベースの拡充（Zr(IV)，Nb(V)，Pd(II)，Sn(IV)等）
- ・ 天然有機配位子としての腐植物質の代表性の確認
- ・ 核種－有機物錯生成における瞬時/可逆性の把握

b. 核種－有機物－母岩三元系における収着・拡散モデルの開発

- ・ 母岩に対する有機物の収脱着挙動の把握（有機物種類、核種の種類、母岩の種類）
- ・ フィルトレーション効果の把握

平成27年度までに、日本原子力研究開発機構（2014a，2015a，2016a）において、上記に示すもののうち、「a. 信頼性の高い核種と有機物との錯生成評価手法の開発」の一環として、「III・IV価核種に対するモデル/パラメータの信頼性の向上」、「錯生成モデルパラメータデータベースの拡充」、「天然有機配位子としての腐植物質の代表性の確認」に取り組んできた。具体的には、モデル/パラメータの信頼性向上に向けて、低濃度のEu(III)と幌延の地下研究施設の深部地下水から分離・精製した腐植物質との錯生成データを取得し、多様な水質条件での腐植物質の錯生成評価が可能なNICA-Donnanモデルの適用性を調査した。また、深部地下水中の溶存腐植物質の錯生成特性データを非水滴定法や熱量滴定法を用いて取得し、NICA-Donnanモデルパラメータの信頼性を確認した。モデルパラメータデータベースの拡充については、透析法を用いたZr(IV)と腐植物質との錯生成データの取得手法について調査した。また、天然有機配位子としての腐植物質の代表性確認に向けて、幌延の地下研究施設の深部地下水中の溶存有機物の一括濃縮・精製法の開発を進めた。

平成28年度は、モデル/パラメータの適用事例を拡充するため、異なる溶液条件（pH、イオン強度）における低濃度Eu(III)と深部地下水中の腐植物質との錯生成データの取得、および、NICA-Donnanモデルの適用確認を進めた。また、表層環境に存在する腐植物質との比較から深部地下水中の腐植物質の錯生成特性を調査した。さらに、文献値を用いてTh(IV)と腐植物質とのNICA-Donnanモデルパラメータを再整備し、その有効性を検討した。モデルパラメータデータベースの拡充については、錯生成データ取得手法としてFFF-ICPMS法を新たに開発し、Zr(IV)と深部地下水中の腐植物質との錯生成パラメータを取得した。腐植物質の代表性に係る調査では、深部地下水中の溶存腐植物質の定量評価を実施するとともに、溶存有機物の一括濃縮・精製手法としてのイオン交換-逆浸透(RO)膜法の有効性について試験・調査した。

1) III価・IV価核種に対するモデル/パラメータの信頼性の向上

有機物影響を考慮した安全評価の実施に当たっては、多様な地下水条件での核種と腐植物質との錯生成を高い信頼性をもって評価する必要がある。NICA-Donnanモデル(式2.4.3-1)は、金属イオンと腐植物質との相互作用に特徴的な錯生成反応の不均一性(非線形性)と静電相互作用を考慮することで、熱力学モデルに類似した評価が可能であり(Kinniburgh et al., 1996; Benedetti et al., 1996; Koopal et al., 2005)、これまでに日本原子力研究開発機構(2013c)は、多様な地下水条件での錯生成評価に用いるモデルとして、このNICA-Donnanモデルを暫定的に選定してきた。しかし、NICA-Donnanモデルは、錯生成試験から取得したデータセットへのモデルの当てはめ(フィッティング)によってモデルパラメータを設定していることから、フィッティングに用いたデータセットから外れる条件(例えば、異なる腐植物質、高pH条件、低い核種濃度など)での錯生成評価に対しては、評価の信頼性を十分担保できないという課題がある。本調査では、NICA-Donnanモデルを対象に、深部地下水から分離・精製した腐植物質等へのIII・IV価核種の錯生成データへのモデルの適用性を調査し、この結果を踏まえ、モデルの高度化、モデルパラメータの整備を進める。

$$Q_i = \frac{n_{i1}}{n_{H1}} \cdot Q_{\max 1, H} \cdot \frac{(\tilde{K}_{i1} C_i)^{n_{i1}}}{\sum_i (\tilde{K}_{i1} C_i)^{n_{i1}}} \cdot \frac{\left[\sum_i (\tilde{K}_{i1} C_i)^{n_{i1}} \right]^{p_1}}{1 + \left[\sum_i (\tilde{K}_{i1} C_i)^{n_{i1}} \right]^{p_1}} + \frac{n_{i2}}{n_{H2}} \cdot Q_{\max 2, H} \cdot \frac{(\tilde{K}_{i2} C_i)^{n_{i2}}}{\sum_i (\tilde{K}_{i2} C_i)^{n_{i2}}} \cdot \frac{\left[\sum_i (\tilde{K}_{i2} C_i)^{n_{i2}} \right]^{p_2}}{1 + \left[\sum_i (\tilde{K}_{i2} C_i)^{n_{i2}} \right]^{p_2}} \quad (\text{式} 2.4.3-1)$$

Q_i	: 有機物に結合した金属イオン <i>i</i> の濃度 [mol g ⁻¹]
C_i	: 遊離体の金属イオン濃度 [mol dm ⁻³]
$Q_{\max 1, H}$: 結合サイト1の濃度 [meq g ⁻¹]
$Q_{\max 2, H}$: 結合サイト2の濃度 [meq g ⁻¹]
$\log K_{i1}$: 金属イオン <i>i</i> の結合サイト1に対する親和定数(結合定数)
$\log K_{i2}$: 金属イオン <i>i</i> の結合サイト2に対する親和定数(結合定数)
n_{H1}	: H+結合サイト1の不均一パラメータ
n_{H2}	: H+結合サイト2の不均一パラメータ
n_{i1}	: 金属イオン <i>i</i> に対する結合サイト1の不均一パラメータ
n_{i2}	: 金属イオン <i>i</i> に対する結合サイト2の不均一パラメータ
p_1	: 結合サイト1の親和性分布幅
p_2	: 結合サイト2の親和性分布幅

① 低濃度Eu(III)と腐植物質との錯生成データの取得とNICA-Donnanモデルの適用

安全評価では、溶解度以下の低濃度核種を評価の対象とするのに対し、既存の錯生成モデルパラメータは、溶解度以上の濃度領域での核種との錯生成データへのフィッティングから整備されている。平成27年度までに、日本原子力研究開発機構(2015a, 2016a)では、溶解度以下の低濃度領域のEuと腐植物質との錯生成データに対するNICA-Donnanモデルの適用性を調査し、実験値と計算値とが大きく乖離する可能性があることを見出している。しかし、得られた結果は、pH5.5、イオン強度0.1の1条件のみであったことから、酸解離平衡定数の大きい酸性官能基における錯生成や静電相互作用による結合については、モデルの適用性は明らかにされていない。そこで、平成28年度は、pHとイオン強度条件を広げて、低濃度領域でのEuとの錯生成データを取得するとともに、そのデータセットへのNICA-Donnanモデルの適用性を調査した。

Eu と腐植物質との錯形成データの取得については、TTA (4,4,4-trifluoro-1-(2-thienyl)-1,3-butanedione) とTBP (Tributyl phosphate) をキシレンに溶解させた溶媒を用いて、溶媒抽出法 (Kubota et al., 2002) により行った。Euトレーサーには、¹⁵²Euを使用した。腐植物質としては、Aldrich社製のフミン酸および幌延の地下研究施設の深度-250mの地下水から分離・精製したフミン酸を用いた。試験溶液条件は、pH4~6 (MES+Tris混合溶液)、イオン強度0.01~1.0 (NaClO₄)、Eu初期濃度として1条件 (10⁻⁸ mol dm⁻³)、フミン酸濃度としてブランクを含めた2条件 (0, 10 mg dm⁻³) を設定した。なお、試験は、雰囲気制御条件で実施した。溶媒抽出法を用いて取得した水相と有機相に分布したEuの分配比データ (D_0 : フミン酸が存在しない時の分配比、 D : フミン酸が存在する時の分配比)、フミン酸のカルボキシル基の解離度 (α)、フミン酸の全カルボキシル基濃度 (C_R)、Euの全濃度 (C_{Eu}) から、Euの条件付き安定度定数 (β_{app}) を算出した (式2.4.3-2)。また、モデルの適用にあたっては、核種移行評価への利用を想定し、 β_{app} を分配係数 (K_{DOC_Eu} , m³ kg⁻¹ of C) へ変換して行った。

$$\beta_{app} = \frac{(D_0 / D - 1)}{\alpha(C_R - 3C_{Eu}(1 - D / D_0))} \quad (\text{式2.4.3-2})$$

Euとの錯生成データへのNICA-Donnanモデルの適用では、Visal MINTEQ Ver3.1 (Gustafsson, 2016) を用いた。解析に用いたEuの熱力学データベース (TDB) は、NAGRA/PSI TDB (Hummel et al., 2002) を使用し (表2.4.3-1)、その他は、Visal MINTEQ の初期TDBであるNIST TDBを用いた。幌延の深部地下水 (深度-250m) から分離精製したフミン酸のEuに対するNICA-Donnanモデルのパラメータについては、時間分解レーザー蛍光分光法 (TRLFS) を用いて評価した、日本原子力研究開発機構 (2013c) の報告値を用いた (表2.4.3-2)。また、Aldrich社製フミン酸のEuに対するNICA-Donnanモデルパラメータとしては、間接滴定法 (David et al., 2010) を用いて評価した値を用いた (表2.4.3-2)。

表2.4.3-1 Eu(III)の熱力学データベース (Hummel et al., 2002)

Reaction	Equilibrium constant
$\text{Eu}(\text{OH})_3(\text{cr}) + 3\text{H}^+ \rightleftharpoons \text{Eu}^{3+} + 3\text{H}_2\text{O}$	$\log K_{s,0}^0 = 14.9 \pm 0.3$
$\text{Eu}(\text{OH})_3(\text{am}) + 3\text{H}^+ \rightleftharpoons \text{Eu}^{3+} + 3\text{H}_2\text{O}$	$\log K_{s,0}^0 = 17.6 \pm 0.8$
$\text{Eu}_2(\text{CO}_3)_3(\text{cr}) \rightleftharpoons 2\text{Eu}^{3+} + 3\text{CO}_3^{2-}$	$\log K_{s,0}^0 = -35.0 \pm 0.3$
$\text{EuOHCO}_3(\text{cr}) \rightleftharpoons \text{Eu}^{3+} + \text{OH}^- + \text{CO}_3^{2-}$	$\log K_{s,0}^0 = -21.7 \pm 0.1$
$\text{EuF}_3(\text{cr}) \rightleftharpoons \text{Eu}^{3+} + 3\text{F}^-$	$\log K_{s,0}^0 = -17.4 \pm 0.5$
$\text{Eu}^{3+} + \text{H}_2\text{O} \rightleftharpoons \text{EuOH}^{2+} + \text{H}^+$	$\log \beta_{1,1}^0 = -7.64 \pm 0.04$
$\text{Eu}^{3+} + 2\text{H}_2\text{O} \rightleftharpoons \text{Eu}(\text{OH})_2^+ + 2\text{H}^+$	$\log \beta_{1,2}^0 = -15.1 \pm 0.2$
$\text{Eu}^{3+} + 3\text{H}_2\text{O} \rightleftharpoons \text{Eu}(\text{OH})_3 + 3\text{H}^+$	$\log \beta_{1,3}^0 = -23.7 \pm 0.1$
$\text{Eu}^{3+} + 4\text{H}_2\text{O} \rightleftharpoons \text{Eu}(\text{OH})_4^+ + 4\text{H}^+$	$\log \beta_{1,4}^0 = -36.2 \pm 0.5$
$\text{Eu}^{3+} + \text{CO}_3^{2-} \rightleftharpoons \text{Eu}(\text{CO}_3)^+$	$\log \beta_1^0 = 8.1 \pm 0.2$
$\text{Eu}^{3+} + 2\text{CO}_3^{2-} \rightleftharpoons \text{Eu}(\text{CO}_3)_2^-$	$\log \beta_2^0 = 12.1 \pm 0.3$
$\text{Eu}^{3+} + \text{SO}_4^{2-} \rightleftharpoons \text{EuSO}_4^+$	$\log \beta_1^0 = 3.95 \pm 0.08$
$\text{Eu}^{3+} + 2\text{SO}_4^{2-} \rightleftharpoons \text{Eu}(\text{SO}_4)_2^-$	$\log \beta_2^0 = 5.7 \pm 0.2$
$\text{Eu}^{3+} + \text{F}^- \rightleftharpoons \text{EuF}^{2+}$	$\log \beta_1^0 = 3.8 \pm 0.2$
$\text{Eu}^{3+} + 2\text{F}^- \rightleftharpoons \text{EuF}_2^+$	$\log \beta_2^0 = 6.5 \pm 0.5$
$\text{Eu}^{3+} + \text{Cl}^- \rightleftharpoons \text{EuCl}^{2+}$	$\log \beta_1^0 = 1.1 \pm 0.2$
$\text{Eu}^{3+} + 2\text{Cl}^- \rightleftharpoons \text{EuCl}_2^+$	$\log \beta_2^0 = 1.5 \pm 0.5$

表2. 4. 3-2 解析に用いたNICA-Donnanモデルパラメータ

Parameters	Horonobe HA	Horonobe FA	Aldrich HA	Generic HA*	Generic FA*
q^0 (eq kg ⁻¹)	-0.64	-0.53		—	—
b	0.81	0.87	0.63	0.49	0.57
$Q_{\max 1,H}$ (eq kg ⁻¹)	4.38	5.64	2.99	3.15	5.88
p_1	1	1	0.89	0.62	0.59
$Q_{\max 2,H}$ (eq kg ⁻¹)	4.44	4.09	2.66	2.55	1.86
p_2	0.36	0.27	0.38	0.41	0.70
$\log K_{1,H}$	3.74	3.63	3.53	2.93	2.34
$n_{1,H}$	0.82	1	0.66	0.81	0.66
$\log K_{2,H}$	10.62	10.48	7.95	8.00	8.60
$n_{2,H}$	1	1	0.66	0.63	0.76
$\log K_{1,Eu}$	1.26	-4.17	2.73	1.92	-1.92
$n_{1,Eu}$	1	1	0.62	0.57	0.47
$\log K_{2,Eu}$	15.83	12.03	4.41	3.43	5.87
$n_{2,Eu}$	0.28	0.35	0.33	0.36	0.45
R^2 (H ⁺)	0.9970	0.9975	0.9997	—	—
R^2 (Eu ³⁺)	0.9951	0.9876	0.9989	—	—

*Milne et al., 2001, 2003

図2. 4. 3-3に異なるイオン強度条件における $\log K_{\text{DOC}_\text{Eu}}$ とpHとの関係を、NICA-Donnanモデルの適用結果とともに示す。両フミン酸の $\log K_{\text{DOC}_\text{Eu}}$ 値は、pHの上昇、イオン強度(I)の低下とともに、僅かに大きくなることを確認した。この結果は、フミン酸の酸性官能基の解離にともなう結合サイト数の増加と対イオン濃度の低下によるフミン酸の静電場の発達に起因した結合量の増加による。NICA-Donnanモデルを適用した結果は、Aldrich社製フミン酸の実験値を概ね再現したが、幌延の地下水フミン酸については、このフミン酸に固有のモデルパラメータを導入したにも関わらず、モデルは実験値を十分再現できなかった。

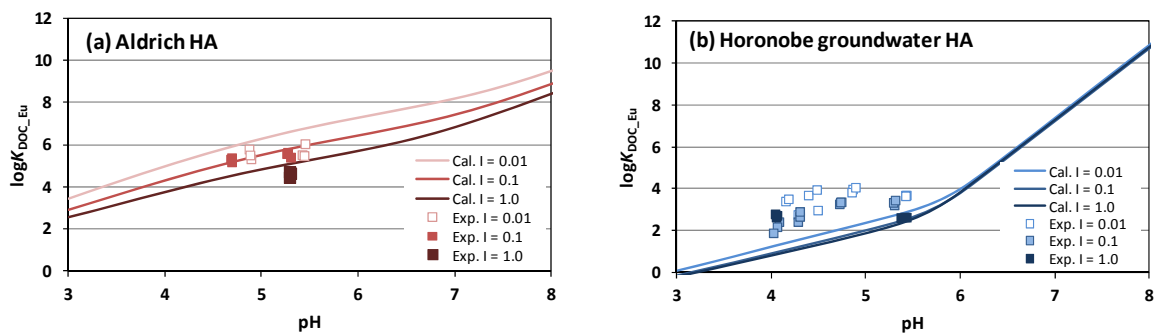


図2. 4. 3-3 $\log K_{\text{DOC}_\text{Eu}}$ とpHとの関係へのNICA-Donnanモデルの適用結果

Euの錯生成に対する各サイトの寄与について、モデル解析した結果から、Aldrich社製フミン酸では、カルボキシル基サイト（サイト1）との結合が優位であるのに対し、幌延の地下水フミン酸では、水酸基サイト（サイト2）への結合が優位になっていることを確認した。また、水系滴定は、腐植物質の水酸基サイトのプロトン化反応を評価する方法として不確実性が大きいことが知られているため、非水滴定により水酸基サイトのプロトン容量を評価したところ、この値は本調査で用いたNICA-Donnanモデルパラメータの $Q_{\max 2,H}$ （水系滴定から評価した水酸基のプロトン交換容量）と良く一致することを確認した（表2. 4. 3-3）。このことは、幌延の地下水フミン酸のプロトン結

合パラメータが適切に評価されていることを支持している。一方、幌延の地下水フミン酸に対するEuの結合パラメータは、Eu濃度 10^{-5} mol dm⁻³とフミン酸濃度50 mg dm⁻³の一つのローディング条件の下、異なるpHとイオン強度で取得した錯生成データへのフィッティングから評価されている（日本原子力研究開発機構，2013c）。従って、NICA-DonnanモデルがEuと幌延の地下水フミン酸との錯生成を十分再現できないのは、Euの結合パラメータである $\log K_{1, \text{Eu}}$ 、 $\log K_{2, \text{Eu}}$ 、 $n_{1, \text{Eu}}$ 、 $n_{2, \text{Eu}}$ が、錯生成の濃度依存性に対して十分に最適化されていないことが原因と考えられた。

表2.4.3-3 異なる手法とモデルから評価したフミン酸のカルボキシル基および水酸基含量

フミン酸 (HA)	酸性官能基	単位	非水滴定法	水系滴定法	水系滴定法
			Tochiyama model ¹⁾	Tochiyama model	NICA-Donnan model
Aldrich HA	R-COOH	eq kg ⁻¹	5.3~5.5	4.9~5.0	3.0
	R-OH	eq kg ⁻¹	1.9~2.6	1.9~2.6	2.7
Horonobe HA	R-COOH	eq kg ⁻¹	5.69	(3.58) ²⁾	4.38
	R-OH	eq kg ⁻¹	4.5	(2.41) ²⁾	4.44

1) Tochiyama et al., 2004

2) 参考値：低pH領域で、水酸基の解離度がカルボキシル基の解離度を上回る矛盾がある。

そこで、本調査では、Euと幌延の地下水フミン酸との錯生成について、これまでにTRLFS法を用いて評価したpHとイオン強度依存性データに加えて、溶媒抽出法から評価した結合等温線データへのモデルの同時フィッティングから、Euの結合パラメータを最適化した（表2.4.3-4）。最適化の結果、サイト1（低親和性）およびサイト2（高親和性）の $\log K_{i, \text{Eu}}$ 値は、既存のパラメータ（表2.4.3-2）と比べて小さくなることが分かった。一方、 $n_{1, \text{Eu}}$ は1から0.72へ小さくなるのに対し、 $n_{2, \text{Eu}}$ は0.28から0.41へと大きくなった。

表2.4.3-4 再設定された地下水フミン酸へのEu結合に対するNICA-Donnanモデルパラメータ

データ取得	考慮される条件	$\log K_{1, \text{Eu}}$	$n_{1, \text{Eu}}$	$\log K_{2, \text{Eu}}$	$n_{2, \text{Eu}}$	出典
TRLFS 法	pH イオン強度	1.26	1	15.83	0.28	日本原子力研究開発機構，2013c
TRLFS 法+溶媒抽出法	pH イオン強度 Eu 濃度	0.95	0.72	11.53	0.41	本研究

*フィッティングの際に用いたプロトン結合等のパラメータ (b , $Q_{\text{max, H}}$, p , $\log K_{i, \text{H}}$) は、報告値 (Saito et al., 2015) を使用.

最適化されたパラメータを用いて、異なるイオン強度条件における $\log K_{\text{DOC, Eu}}$ とpHとの関係に対して、NICA-Donnanモデルを適用した結果を図2.4.3-4に示す。既存のパラメータを用いた場合と比較して、最適化により再設定したパラメータを用いた場合には、中性から弱アルカリ領域において $\log K_{\text{DOC, Eu}}$ 値を低く評価した。これは、主に最適化により小さくなった $\log K_{2, \text{Eu}}$ 値に起因する。また、実験値との比較において、再設定したパラメータは、既存のパラメータと比較して、実験値をより良く再現出来ることが分かった。しかし、全ての実験値を十分説明することは出来なかった。このpH領域において、最適化によるパラメータ再設定の効果がそれほど大きくないことを考慮すると、実験値と計算値との乖離は、実験誤差に起因する可能性がある。今後、実験値の誤

差を考慮したモデルの適用について検討を進めるとともに、実際の地下水への適用を念頭に、中性から弱アルカリ領域における錯生成データへのモデルの適用や共存イオンの影響等についても検討を進める必要がある。

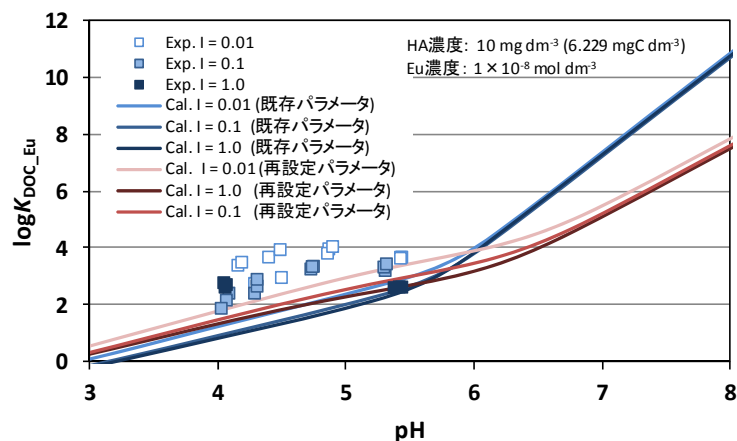


図 2.4.3-4 再設定パラメータを用いたNICA-Donnanモデルの適用結果

一方、pH4.7付近において、幌延の地下水フミン酸に対するEuの $\log \beta_{app}$ 値は、5.8となり、Aldrich社製フミン酸の値(7.8)より小さな値となった。この錯生成能の違いは、Aldrich社製フミン酸と幌延のフミン酸の酸性官能基の特徴の違いに由来する。熱量滴定により、Aldrich社製フミン酸と幌延の地下水フミン酸のプロトン化反応を評価したところ(図2.4.3-5)、幌延の地下水フミン酸は、Aldrich社製フミン酸と比べて電荷密集効果の寄与(高分子電解質性)が小さいこと、酸性官能基の不均一性がAldrich社製フミン酸と同様に存在することが、熱力学的に明らかになった。電荷密集効果の寄与の小ささは、酸性官能基間の距離が離れていることを示唆しており、このことは、Aldrich社製フミン酸がEuと多座配位により安定な錯体を生成する傾向と、幌延の地下水フミン酸がEuと単座配位により比較的不安定な錯体を生成する傾向を説明する可能性がある。今後、結合サイトに関わる直接的な評価から、そのメカニズムの詳細について明らかにする必要がある。

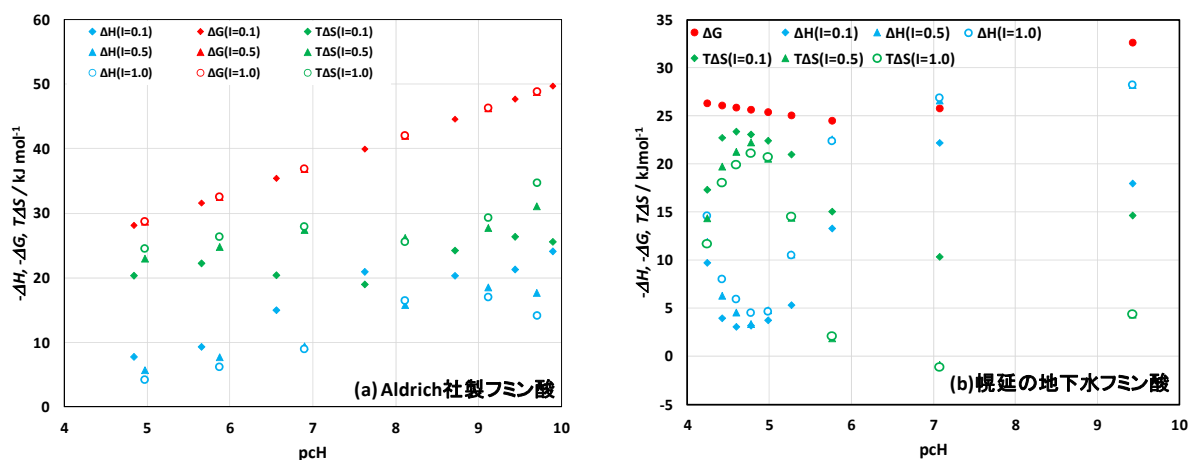


図2.4.3-5 Aldrich (a) および幌延の地下水フミン酸(b)のプロトン化反応熱力学量

② Th(IV)に対する NICA-Donnan モデルパラメータの再整備

これまでに整備された一般化NICA-Donnanモデルパラメータの中には、線形自由エネルギー相関 (LFER) から間接的に算出・設定されたものもあり (Milne et al., 2003)、これらのパラメータの低い信頼性が課題となっている。特に、IV価核種であるThは、有機物影響を決定づける最も重要な核種であるにも関わらず、NICA-Donnanモデルは、Thの有機物への分配係数の算出において非現実的な高い値を与えることが確認されている (日本原子力研究開発機構, 2015a)。そこで本調査では、文献調査から抽出したThと腐植物質との錯生成データへのNICA-Donnanモデルのフィッティングから、Thに対するモデルパラメータを直接評価して、信頼性の高いパラメータを再整備するとともに、このパラメータと間接的に評価したパラメータを用いる錯生成評価の相異について調査した。

Th錯生成データへのフィッティングによるモデルパラメータの再整備に当たっては、Sasakiら (2012) によって報告された精製済みAldrichフミン酸 (PAHA) と国際腐植物質学会 (IHSS) から頒布されているEliot soil フミン酸 (EHA) へのTh⁴⁺の結合データ、およびSternら (2014) によって報告されているEHAとPahoekee Peatフミン酸 (PHA) へのTh⁴⁺の結合データを用いた。また、フィッティングは、以下の2ケースを対象に実施した。

ケース1：GHAパラメータ

Milneら (2001) が報告しているgeneric HA (GHA) のNICA-Donnanモデルパラメータを元に、上述の先行研究の結合データセットの内、Daviesの式の適用限界を超えるイオン強度1 mol dm⁻³のデータを除く全てのTh⁴⁺結合データへのフィッティングを行い、Th⁴⁺に関する4つのパラメータ ($\log K_{1, \text{Th}}$, $\log K_{2, \text{Th}}$, $n_{1, \text{Th}}$, $n_{2, \text{Th}}$) の最適化を実施。

ケース2：PAHAパラメータ

Saitoら (2004) が報告したPAHAのパラメータを元に、Sasakiら (2012) のPAHAへのTh⁴⁺結合データを用いてフィッティングを行い、Th⁴⁺に関する4つのパラメータ ($\log K_{1, \text{Th}}$, $\log K_{2, \text{Th}}$, $n_{1, \text{Th}}$, $n_{2, \text{Th}}$) の最適化を実施。

図2. 4. 3-6に、ケース1およびケース2のフィッティング結果を、表2. 4. 3-5に、最適化されたTh⁴⁺のNICA-Donnanパラメータ、および、Milneら (2003) によって報告されているGHAのパラメータをそれぞれ示す。ケース1については (図2. 4. 3-6(a))、等温線から外れるデータの存在により、フィッティングの相関係数は0.42と小さくなった。これは、錯生成試験においてフミン酸に結合したTh⁴⁺とそれ以外のTh⁴⁺の分離が不十分であった可能性の他、液相中でのTh⁴⁺水酸化物固相の形成や遊離Th⁴⁺の活量の計算に使用した安定度定数の誤差の可能性も考えられた。一方、ケース2では (図2. 4. 3-6(b))、PAHAに対するTh⁴⁺の結合データのみをPAHAに関して最適化されたパラメータを用いてフィッティングを行っているため、相関係数は0.79と比較的大きくなり、良好な結果が得られた。得られたTh⁴⁺のNICA-Donnanパラメータについて、LFERから評価したGHAの値と比較すると、本調査で評価したパラメータは小さく、特に、サイト2に関して顕著であることが分かった (表2. 4. 3-5)。しかし、Th⁴⁺がPAHAに加水種として結合している可能性もあり、より信頼性の高いパラメータの整備に向けて、さらなる研究が必要である。

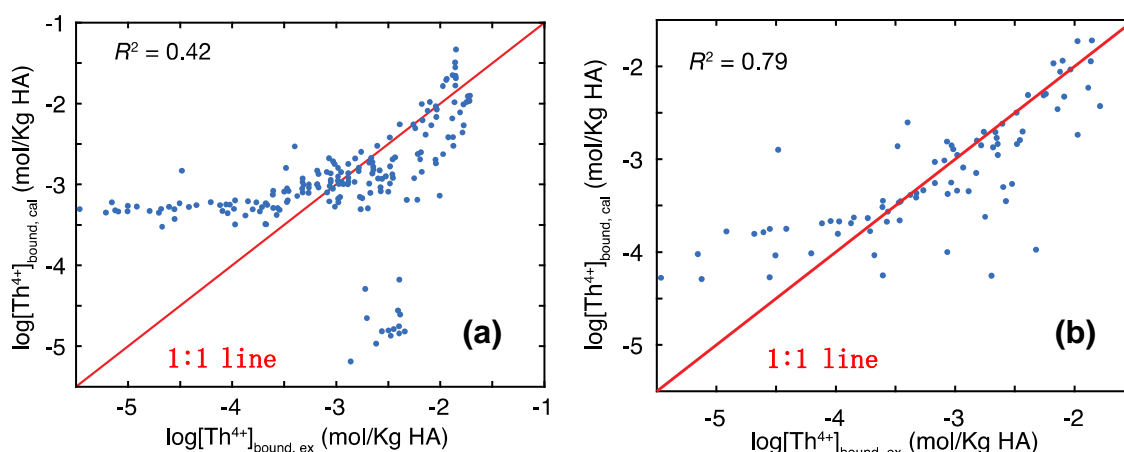


図2.4.3-6 ケース1 (a) およびケース2(b)におけるフィッティング結果 (結合量の報告値($\log[\text{Th}^{4+}]_{\text{bound, ex}}$)と計算値($\log[\text{Th}^{4+}]_{\text{bound, cal}}$)の関係)

表2.4.3-5 本調査により得られた Th^{4+} に対するNICA-Donnanモデルパラメータ

Parameter	Aldrich HA	Generic HA	Generic HA※
$\log K_{1,\text{Th}}$	3.16	1.39	7.40
$n_{1,\text{Th}}$	0.46	0.52	0.26
$\log K_{2,\text{Th}}$	6.37	6.59	20.00
$n_{2,\text{Th}}$	0.28	0.19	0.20

※Milneら (2003) の報告値 (LFERから算出された値)

イオン固有のNICA-Donnanパラメータ ($n_1 \log K_1$, $n_2 \log K_2$) とイオンの第1段階の加水分解定数 ($\log \beta_{\text{OH}}$) との間には、相関関係 (LFER) が存在する (Milne et al., 2003)。図2.4.3-7に、ケース1について評価した $n_1 \log K_1$ および $n_2 \log K_2$ と $\log \beta_{\text{OH}}$ との関係をプロットしたものを示す。他の金属イオンと比べて、本研究で求めた Th^{4+} の結合パラメータは、比較的小さい値となる。特に、サイト1では、価数の大きい Th^{4+} 、 Fe^{3+} 、 Al^{3+} のプロットが直線関係から大きく外れている (図2.4.3-7(a))。この $n_1 \log K_1$ の値が小さい理由として、Donnan相中のイオンの活量が過大評価されている (電荷の小さい Th^{4+} の加水種がフミン酸と結合している) 可能性が考えられる (Tipping, 2002)。サイト2については、サイト1について見られたような傾向は明確ではない (図2.4.3-7(b))。これは、比較的高いpHで作用する高親和性サイトであるサイト2に関するNICA-Donnanパラメータの信頼幅が、元データの限られたpH条件により、比較的大きくなっていることに起因するものと考えられる。今後は、分光測定や計算化学によって、フミン酸に結合した Th^{4+} の化学形を推定することで、 OH^- との3元の結合反応のモデルへの組み込みを検討するとともに、幅広いpH、イオン強度条件での結合量評価の結果を基に、パラメータの最適化を行う必要があるものと考えられた。

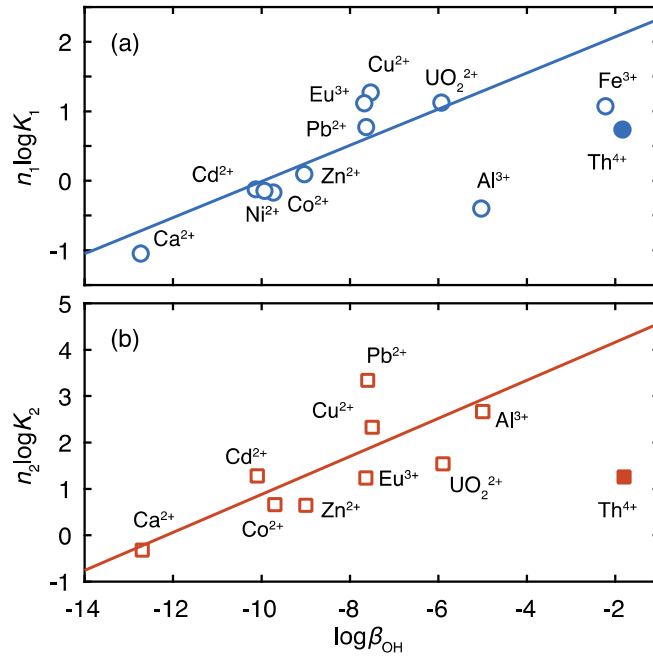


図2.4.3-7 第一段階の加水分解定数 ($M^{Z+} \rightleftharpoons MOH^{(Z-1)+} + H^+$) とイオン固有のNICA-Donnanパラメータとの関係. (a) $n_1 \log K_1$, (b) $n_2 \log K_2$. 白抜き: Milneら (2003) による報告値, 塗りつぶし: 本研究で求めた Th^{4+} のパラメータ. 直線は, Milneら (2003) によって報告されている関係式, $n_1 \log K_1 = 0.26 \log \beta_{OH} + 2.59$, $n_2 \log K_2 = 0.41 \log \beta_{OH} + 4.98$.

2) IV価核種のNICA-Donnanモデルパラメータの拡充

Zrは、重要な評価対象であるとともに、その高い価数により安定な錯体を生成することから、有機物による影響が顕在化する可能性の高い核種の一つである。これまでに実施した有機物影響を考慮した性能評価解析では、ThをZrの化学アナログとしてZrの腐植物質への分配係数を設定したが(日本原子力研究開発機構, 2015a)、ZrはThよりも腐植物質と強く結合する場合もあり(Stern et al., 2014)、Zr固有のNICA-Donnanモデルパラメータの整備が不可欠である。しかし、NICA-DonnanモデルをフィッティングするためのZrの錯生成データセットは、十分整備されていない。本調査では、腐植物質のサイズ分画にも利用されている流動場分画法 (flow-field flow fractionation, Fl-FFF) (Saito et al., 2015) と誘導結合プラズマ質量分析 (ICP-MS) を組み合わせたFFF-ICPMS (図2.4.3-8) を用いて腐植物質へのZr⁴⁺結合量を評価する手法を開発するとともに、この手法を用いて、Zrと深部地下水中の腐植物質との錯生成データを取得した。

図2.4.3-9に、Zr⁴⁺濃度 ($G_{T, Zr}$) が $0.11 \mu mol dm^{-3}$ における、Zr⁴⁺-幌延の地下水フミン酸 (HHA) -エチレンジアミン四酢酸 (EDTA) 試料のフラ

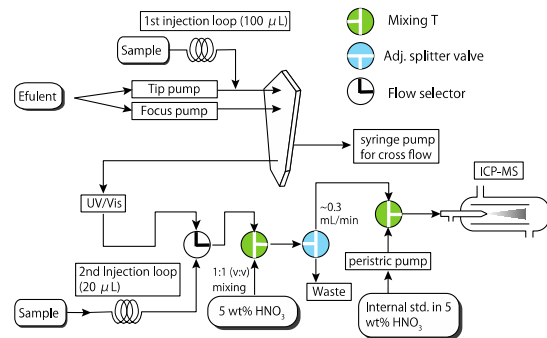


図2.4.3-8 FFF-ICPMSのシステム構成図

クトグラムを示す。HHAが存在する時、ZrはHHAとともに $t_r < 5\text{min}$ で流出した(図2.4.3-9(a))。一方、HHAが存在しない場合には、 Zr^{4+} -EDTA錯体が濃縮ステップ中に、限外ろ過膜より排出されるために、フラクトグラムにピークを示さないことを確認した(図2.4.3-9(b))。これらの結果は、 Zr^{4+} -フミン酸錯体と Zr^{4+} -EDTA錯体とがF1-FFFによって分離され、HHAに結合した Zr^{4+} がICP-MSで検出されることを示している。また、他の Zr^{4+} 濃度($C_{\text{T, Zr}} = 0.055, 0.022 \mu\text{mol dm}^{-3}$)においても、同様の結果が得られたことから(表2.4.3-6)、濃縮ステップ中に排出されるHHAに結合した Zr^{4+} の寄与を補正することで、FFF-ICPMSにより、HHAに対する Zr^{4+} の結合量評価が可能であることが分かった。

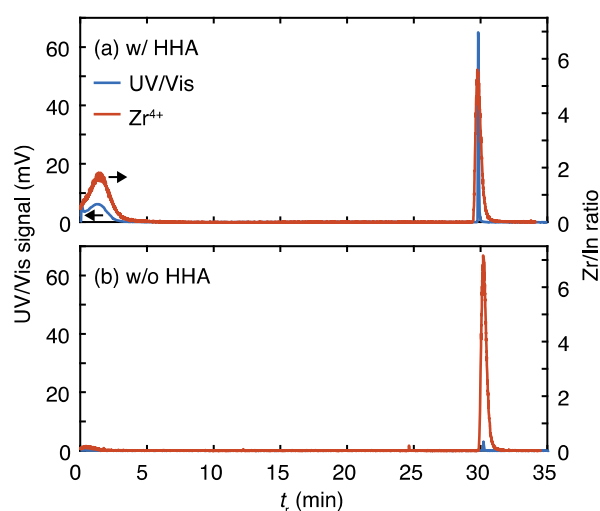


図2.4.3-9 Zr^{4+} -HHA-EDTA試料(試料3, (a))と Zr^{4+} -EDTA試料(試料4, (b))のフラクトグラム。 $C_{\text{T, Zr}} = 0.11 \mu\text{mol dm}^{-3}$ 。縦軸はHHA濃度に比例するUV/Vis検出器信号電圧とICP-MSにおけるZr/Inカウント比。

表2.4.3-6 FFF-ICPMS測定に供した試料リスト

No.	HHA濃度	Zr^{4+} 濃度	HHA回収率	Zr^{4+} 回収率	Zr^{4+} 結合量	Zr^{4+} 結合割合
	mg dm^{-3}	$\mu\text{mol dm}^{-3}$	%	%	mmol Kg^{-1} HHA	%
1	20	0	83.9	-	-	-
2	0	0	-	-	-	-
3	20	0.110	48.3	23.7	2.70	49.1
4	0	0.110	-	1.1	-	-
5	20	0.055	43.4	23.8	1.51	54.8
6	20	0.022	43.2	39.4	1.00	91.1

全ての試料は、 $\text{pH}6.00 \pm 0.05$ に調整され、 $5 \text{ mmol dm}^{-3} \text{ NaClO}_4$ 、および、 $0.25 \mu\text{mol dm}^{-3} \text{ EDTA}$ を含む。

HHA: 幌延の地下研究施設の深度-250mの地下水から分離・精製したフミン酸。

これまでに、Sternら（2014）は、CE-ICPMS法を用いて、表層環境の土壤由来のElliot soil フミン酸に対するZr⁴⁺の結合反応の条件付き平衡定数を報告している。平衡定数の計算では、Zr⁴⁺がフミン酸のカルボキシル基サイトと1:1で錯生成反応すると仮定した。本調査では、同様の解析方法に倣い、Zr⁴⁺-EDTA錯体とZr⁴⁺-HHA錯体の交換反応の平衡定数（ $\log K_{\text{exch}}$ ）、Zr⁴⁺とEDTAの錯生成の平衡定数 $\log K_{\text{ZrEDTA}}$ （Morel et al., 1993）を用いて、HHAへのZr⁴⁺の結合反応の条件付き平衡定数（ $\log K_c$ ）を算出した（式2.4.3-3）。

$$\log K_c = \log K_{\text{exch}} + \log K_{\text{ZrEDTA}} \quad (\text{式2.4.3-3})$$

表2.4.3-7 HHAへのZr⁴⁺結合反応の条件付き平衡定数

$C_{\text{T, Zr}}$ ($\mu\text{mol dm}^{-3}$)	[COOH]/[Zr]モル比 ¹	$\log K_{\text{exch}}$	$\log K_c$	参考文献
0.110	796	-7.3	21.9	本研究 ²
0.055	1593	-7.2	22.1	本研究 ²
0.022	3982	-6.2	23.0	本研究 ²
-	591	-6.6	22.7	Stern et al., 2014 ³

¹NICA-Donnan パラメータ（Saito et al., 2015）より計算される HHA のカルボキシル基型サイトのモル濃度と Zr 濃度の比。

²pH 6.00, 5 mmol dm⁻³ NaClO₄, $C_{\text{T, HHA}} = 20 \text{ mg dm}^{-3}$, $C_{\text{T, EDTA}} = 0.25 \mu\text{mol dm}^{-3}$.

³Elliot 土壤フミン酸. pH 5.9, 0.1 mol dm⁻³ NaNO₃, 0.01 mol dm⁻³ MES.

本研究で得られた $\log K_c$ を、Sternら（2014）の報告値とともに表2.4.3-7に示す。 $C_{\text{T, Zr}} = 0.110 \mu\text{mol dm}^{-3}$ におけるHHAの $\log K_c = 21.9$ は、同様のpHと[COOH]/[Zr]条件における、Elliot soil フミン酸に対する報告値（ $\log K_c = 22.7$ ）よりも若干小さい。本研究のイオン強度（0.05 mol dm⁻³）が、Sternら（2014）の値（約0.1 mol dm⁻³）と比べて小さいことを考慮すると、同一のイオン強度では、HHAの方がZr⁴⁺に対する親和性がより小さくなるものと考えられる。従って、この結果は、深部地下水に由来するフミン酸は、表層環境由来のフミン酸と比較して、II価やIII価の核種に対する錯生成能だけでなく（Terashima et al., 2012; Saito et al., 2015, Saito et al., 2017）、IV価核種についても錯生成能が低いことを示している。今後は、異なるpH、イオン強度、Zr⁴⁺/HHA比で、同様の測定を行い、結合量データを揃えることで、NICA-Donnanモデルなどのモデルパラメータの整備を進める必要がある。

3) 深部地下水中の溶存腐植物質の有機配位子としての代表性

深部地下水中には、腐植物質だけでなく、その他の有機物も溶存しており、有機物配位子として機能する可能性がある。一方、天然有機物を対象とした錯生成モデルやモデルパラメータのデータベースは、分離・精製した腐植物質を用いて開発されており、これらの評価手法が必ずしも

全溶存有機物の錯生成評価に対しても有用になるとは限らない。より現実的で、より信頼性の高い有機物の錯生成評価を行うためには、地下水中に溶存する腐植物質と未分画有機物の組成とともに、これら有機物の錯生成能の相違を明らかにする必要がある。本調査では、これまでに日本原子力研究開発機構（2013c）において、腐植物質の分離・精製試験の対象とされた幌延の地下研究施設の深度-250mの地下水を対象に、溶存有機物の組成および錯生成能について評価する。

① 幌延の深部地下水中の溶存腐植物質の定量

これまでに日本原子力研究開発機構（2013c）では、幌延の深部地下水から分離・精製した腐植物質（フルボ酸とフミン酸の総和として）を秤量し、処理した地下水量、地下水の全有機炭素濃度（TOC）、分離・精製した腐植物質の元素分析値から、地下水中の溶存有機炭素濃度に占める腐植物質の割合を評価している。その結果、地下水から分離・精製した腐植物質は、全溶存有機炭素の0.38～9.4%に相当する有機物分画であることを示した。しかし、地下水からの腐植物質の抽出は、腐植物質の定量分析を目的としていないため、定量分析に必要な操作条件の最適化が不十分であり、信頼性の高い有機物の組成データを得ることが出来ない。近年、腐植物質を抽出するための疎水性樹脂（DAX-8）を固相に用いる定量方法が開発され（Tsuda et al., 2012）、淡水試料だけでなく海水試料への適用性が明らかにされている（Kida et al., 2016）。本調査では、この固相抽出法を幌延の深部地下水に適用し、溶存腐植物質濃度の定量評価を実施した。

図2.4.3-10に幌延の地下研究施設の深度-250mにおける地下水中の溶存有機物の組成を示す。深部地下水に溶存している有機物は、全体の64%を腐植物質が占め、残りの36%を非腐植物質が占めていることが分かる。このことは、腐植物質が、深部地下水中の溶存有機物の支配成分であることを示している。一方、同サイトの地下水について、分離・精製操作から算出した腐植物質の存在割合は9%程度（全腐植物質の約14%に相当）であることが報告されている（図2.4.3-10、※）（日本原子力研究開発機構，2013c）。このことは、分離・精製した腐植物質を用いて開発したモデル/データベースの適用が、地下水に溶存している腐植物質の一分画に限定される可能性があることを示唆している。従って、今後、全溶存腐植物質の特性評価を行うとともに、分離・精製した腐植物質を用いて開発したモデル/データベースについて、その適用性を腐植物質の全分画と非腐植物質について、検討していく必要がある。

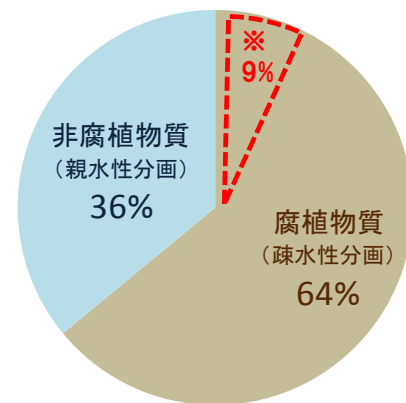


図2.4.3-10 幌延の地下研究施設の深度-250m地下水の溶存有機物の組成。※：カラム法で分離・精製された腐植物質の割合（日本原子力研究開発機構，2013c）。

② 幌延の深部地下水中の溶存有機物の一括濃縮法

腐植物質と未分画有機物の錯生成能の相違を明らかにするには、同じ溶液組成での錯生成データの取得が不可欠であり、第一に、地下水に溶存する未分画有機物を濃縮・精製する必要がある。そこで、日本原子力研究開発機構（2015a）では、これまでに、脱塩処理用のイオン交換カラムを

組み合わせた、イオン交換-逆浸透 (RO) 膜システムを製作し、幌延の深部地下水への適用を試みてきた。しかし、イオン交換処理した地下水をRO膜処理したところ、大部分の有機物がRO膜から漏出したため、効果的な一括濃縮を達成できないことが分った。これは、イオン交換による脱塩処理で地下水試料が酸性化したことで、RO膜の有機物保持機能が低下したことに起因するものと考えられた (Sun et al., 1995)。そこで、本調査では、イオン交換-RO膜システムをオンライン処理型からオフライン型に変更し、RO膜処理前にpH制御を取り入れることで、効果的な溶存有機物の一括濃縮を試みた。また同時に、手法の拡充の観点から、透析膜を用いた一括濃縮法についても合わせて検討した。



図2.4.3-11 イオン交換-逆浸透 (RO) 膜法による溶存有機物の一括濃縮法の検討

図2.4.3-11にイオン交換-RO膜法による一括濃縮・精製の検討結果を示す。幌延の深度-250mの地下水45.71dm³を対象に、陽イオン交換樹脂による脱塩処理、RO膜システムによる一括濃縮を実施し、約21倍の濃縮液 (2.2dm³) を得た。しかし、濃縮液中のNa⁺濃度が5800 mg dm⁻³であったことから、再度、イオン交換処理を実施した。ここで、イオン交換反応による酸性化で、有機物が沈殿して回収出来なくなることが予想されたため、一部試料を予めpH < 1.5まで酸性化させ、沈殿生成の有無を確認した。今回は、沈殿生成が認められなかったため、沈殿の処理をしないままイオン交換樹脂に通して脱塩した。このイオン交換によって、Na⁺濃度を300 mg dm⁻³まで低下させられたものの、有機物濃度も大きく低下することが分った (図2.4.3-11 写真(a), (b))。これは、高い塩濃度により、有機物とイオン交換樹脂の静電斥力が低下し、有機物の収着が助長されたことによるものと考えられた。イオン交換処理後の試料水を凍結乾燥させた後、約6.3gの粉末状の試料を得た。地下水の全有機物濃度 (13.4 mg dm⁻³) から推定される有機物重量 (約1.0g)

と比べると、この精製した試料は約6倍程度大きい。これは、イオン交換による脱塩が不十分であったことから（2回目以降のイオン交換処理は、Na⁺の低減化に効果を示さない）、残存したNa塩が混入したためであると考えられる。これらのNa塩を透析膜を用いて、除去することも可能であるが、図2.4.3-12に示すように、透析法では地下水に溶存する有機物の約70%程度を回収することができない。従って、イオン交換-RO膜法とともに、透析膜を用いた脱塩・濃縮方法は、地下水中の溶存有機物の有効な一括濃縮法とならないことが分かった。

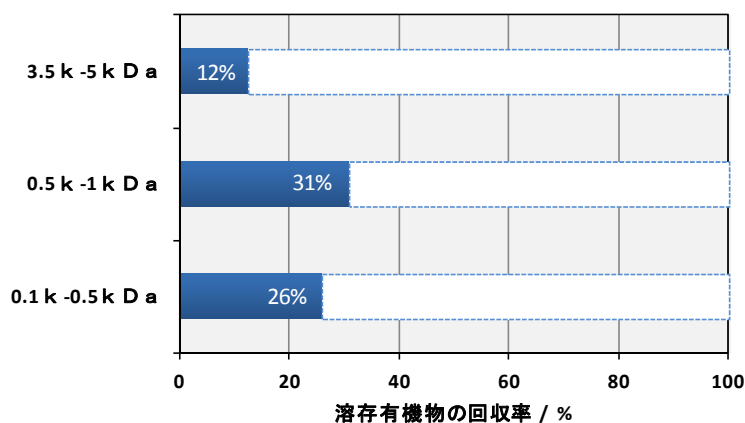


図2.4.3-12 透析法による幌延の地下研究施設の地下水中の有機物の回収率

一方、脱塩処理に電気透析法を用いるRO膜法（電気透析-RO膜法）は、塩水からの有機物の一括濃縮・分離に有効であることが知られているが、回収率は60～95%と処理の状況に応じては、高い回収率が得られない (Vetter et al., 2007; Gurtler et al., 2008; Koprivnjak et al., 2009)。そこで、今後は、DEAE-セルロース樹脂法を用いて、アニオン性の有機物を中心に回収方法を検討するとともに、有機物と核種との錯生成において競合する炭酸イオン等を除去した地下水試料を調製することで、未分画有機物の錯生成能の評価手法の開発を進める必要がある。

(2) 微生物影響評価技術の開発

地層処分システムにおいて、人工バリアやその周辺母岩で構成されるニアフィールド及び天然バリアには、放射性核種の移行を抑制する安全機能が期待される。しかしながら、地下環境には膨大な数の微生物が存在することが明らかにされており（例えば、Fredrickson and Fletcher, 2001）、処分システムの安全機能にこれらの微生物が影響を及ぼす可能性が指摘されている (Pedersen, 1999; West et al., 2002; Pedersen, 2005)。平成27年度までは、これまで国内外で集積された最新の知見を網羅的に調査するとともに、安全機能への不確実性要因である微生物影響について、微生物が関与する事象を考慮した評価シナリオを構築し、処分システムの安全機能に影響を及ぼしうる微生物反応の中で重点的に評価が必要な事象を抽出し、それらの不確実性を低減させるための評価手法について検討した（図2.4.3-13）。検討結果から、ニアフィールド岩盤を含む天然バリア環境において核種移行に影響を及ぼす微生物関連事象のうち、「安全機能への影響評価が必要であるが結論が得られていないと見なせる項目」を下記に示す（日本原子力研究開発機構, 2015a）。

- a 「プラグ/グラウト、支保、埋め戻し材」領域における、微生物活性に伴う pH、 Eh、 地下水組成の変化
- b 「母岩」領域における、微生物コロイド・バイオフィームへの核種の収着特性とその核種移行に及ぼす影響
- c 「母岩」領域における、バイオフィームの母岩被覆に伴う母岩への核種の収着・拡散能力の低下
- d 「母岩」領域における、微生物コロイド及びバイオフィームへの核種の不可逆的反応（核種の濃縮、形態変換、鉱物化）

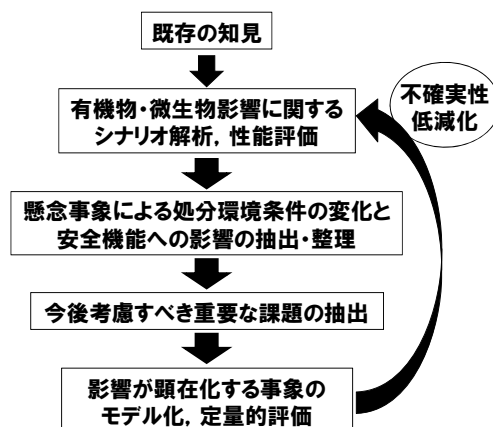


図 2.4.3-13 有機物・微生物影響評価ダイアグラム（日本原子力研究開発機構，2016a）

平成28年度は、評価が必要として抽出された微生物関連事象のうち、下記の項目について評価を実施した。

- 1) 微生物（コロイドあるいはバイオフィームとして存在）の核種移行挙動に関する現象モデル開発
- 2) 水質形成や核種移行に関わる微生物代謝活性の評価手法開発

1) 微生物の核種移行挙動に関する現象モデル開発

地下環境における微生物の存在形態は、浮遊性と付着性に分けられる。浮遊性微生物は、その形態的特徴から、処分システムにおいては「コロイド」として取り扱うことが可能と考える。一方、付着性微生物は、固体表面に付着して「バイオフィーム」と呼ばれる高次構造体を形成する。本研究では、コロイド状の微生物（以下、微生物コロイド）とバイオフィームに着目して評価を行った。

① 地下環境における微生物コロイドの元素収着特性評価

地下環境中に分布する地下水には、無機・有機の形態で様々な化学種のコロイドが存在することが知られており、これらのコロイドは地層処分システムにおいて放射性核種の移行促進に影響を及ぼす可能性が懸念されている。微生物細胞も浮遊する場合には、コロイドと同様に振る舞う

可能性もあることから、核種が微生物コロイドに収着あるいは取り込まれた場合は、核種移行の促進が顕在化されることが危惧される。平成26年度までに実施したGoldSim (ver. 10.1; GoldSim Technology Group, 2010)及びColfrac (Ibaraki and Sudicky, 1995)を用いたコロイド影響を考慮した核種移行解析の結果は、コロイドによる核種移行の促進が顕在化する条件として、地下水中的コロイド密度、コロイドへの元素の分配係数、不可逆性に大きく関係することを示している。そこで本研究では、平成26年度までに提案した微生物コロイドの核種移行影響評価手法（図2.4.3-14）に基づいて、地下水中に存在するコロイドの密度及びコロイドへの元素の分配係数について、データの拡充を目指して試験を実施した。なお、地下環境中に存在する微生物に起因するコロイドには、微生物細胞自体がコロイドとしての挙動を示すものと、微生物の代謝活性により細胞外へ排出された核種のナノコロイドがあると考えられるが、本研究では微生物細胞を対象とした評価を実施した。

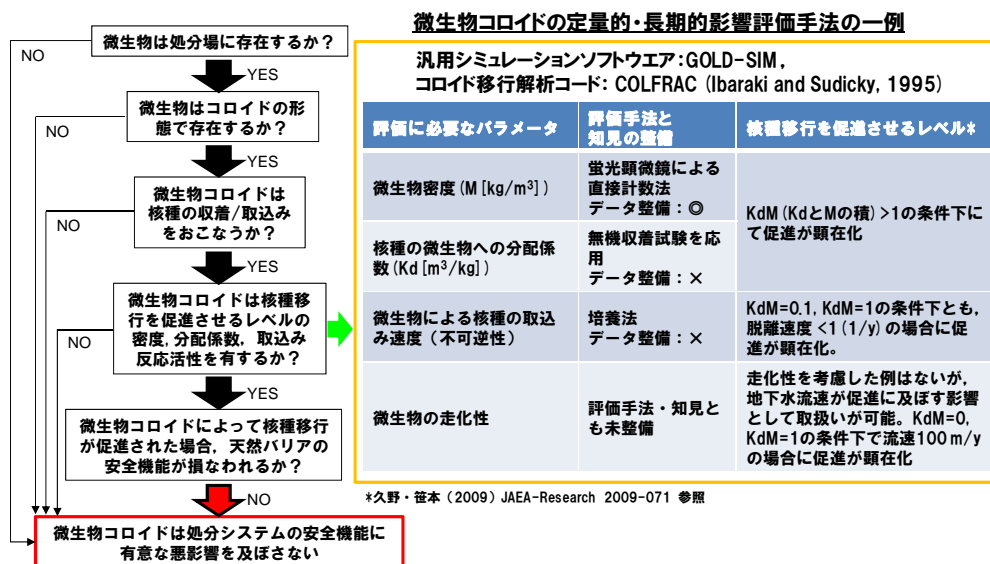


図 2.4.3-14 微生物コロイドの核種移行影響評価手法フロー図 (日本原子力研究開発機構, 2016a)

a. 地下水中の全コロイド濃度および微生物現存量

地下水中的コロイド濃度のデータ拡充を目的として、幌延深地層研究センター地下施設内に掘削されたボーリング孔のうち、二つの深度から採取した地下水のデータを取得した (08E140C01孔および13-350-C01孔; 図2.4.3-15)。0.2μmサイズのフィルターを用いて地下水をろ過し、コロイド捕集後のフィルター重量を測定することにより、捕集物重量とろ過量から地下水中的各分画における全コロイド濃度 (無機/有機・微生物コロイドの総量) を算出した。また、地下水中的微生物コロイド濃度については、蛍光顕微鏡を用いた直接計数法により全菌数を評価して算出した。全菌計数用の試料として採取した地下水について、採取後直ちに終濃度が4%になるように中性化ホルマリンを添加し、地下水中的微生物細胞を固定した。ホルマリン固定処理した地下水を、0.2 μmメンブレンフィルター (GTBP, Millipore) でろ過し、微生物細胞をフィルター上に捕集した。捕集された微生物細胞を0.05%のアクリジンオレンジにて3分間染色した。染色後の細胞を、蛍光顕微鏡 (Leica, DMLP) を用いて観察、計数し、地下水中的細胞数を算出した。

地下水中のコロイド濃度を表2.4.3-8に、また、各深度のコロイド濃度（平均値）と微生物コロイド濃度を表2.4.3-9に示す。深度140mから350mまでの各ボーリング孔地下水中のコロイド濃度を比較すると、0.2 μ mサイズ以上のコロイド濃度は、声間層から採取した地下水試料ではほぼ同程度の濃度であったのに対し、稚内層における濃度は深度250 mで0.091mg/L、深度350mで1.66mg/Lと差が認められた。深度140mは声間層群の中層に位置しているのに対し、250mは声間層と稚内層の境界に位置し、透水性も高い。また、塩分濃度も、地層境界に位置する深度250mの地下水では、深度140mあるいは350mと比較して低く（140mの地下水の2/3程度）、地質学的・地球化学的特性が異なっており、地質環境条件によってコロイド濃度が異なる空間分布を示すことが考えられる。微生物コロイド（全菌数）の濃度は、両深度を比較するとわずかに深度250mの地下水の方が低いが、全コロイド重量で認められたような濃度の差はなかった。本試験で取得された微生物コロイド濃度から、既存の知見に基づく大腸菌1細胞あたりの重さ（ 1.0×10^{-13} g/cell; Madigan et al., 2009）を参考にして重量換算した場合、全コロイドに対する微生物コロイドの割合は、0.6~22%と算出された。したがって、地下水中のコロイドは、そのほとんどが無機コロイドか微生物細胞以外の有機コロイドであると推定された。

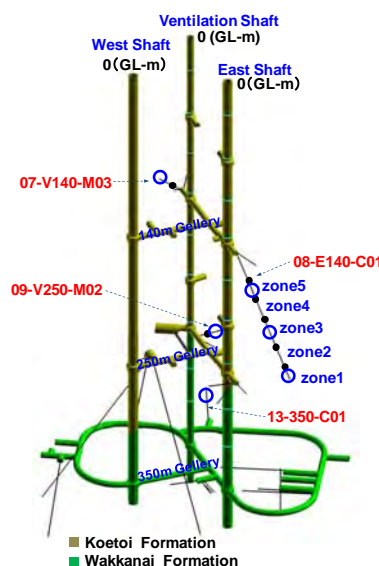


図 2.4.3-15 幌延深地層研究センター
地下施設内ボーリング孔配置図

表 2.4.3-8 各深度における地下水中のコロイド濃度の測定値

ボーリング孔	採取深度 (GL-m)	地層区分	コロイド重量: 0.2 μ mサイズ (mg)	コロイド重量: 10 kDaサイズ (mg)	地下水 ろ過量 (L)	コロイド 濃度 (mg/L)
07-V140-M03	140	声間層	7.40	u.m.*	12.3	0.600
			5.00	u.m.	8.9	0.562
			5.10	u.m.	7.7	0.662
08E140C01_z3	175.13-194.20	声間層	11		22	0.500
			13.1		14.2	0.923
			6.3		28.7	0.220
09-V250-M02	250	声間層/稚内層	3.20	u.m.	30.0	0.107
			8.57	u.m.	46.5	0.184
			1.70	u.m.	49.0	0.035
			1.93	u.m.	16.0	0.121
			1.80	u.m.	46.5	0.039
			1.60	u.m.	71.0	0.023
13-350-C01	350	稚内層	3.3		25.2	0.131
			4.7		8.4	0.560
			18.7		10.2	1.833
			15		5.8	2.586
*unmeasurable						

表2.4.3-9 地下水中のコロイド濃度（平均値）と微生物コロイド濃度

ボーリング孔	採取深度 (GL-m)	コロイド重量: 0.2 μmサイズ (mg/L)	微生物コロイド 密度 (cells/L)	微生物コロイド 密度 (mg/L)	全コロイド重量 に対する微生物 コロイドの割合 (%)
07-V140-M03	140	0.608 (±0.05)	1.67×10^8 (±0.1)	0.05	8.2
08E140C01_z3	185	0.547 (±0.35)	0.88×10^8 (±0.003)	0.03	5.5
09-V250-M02	250	0.091 (±0.06)	0.69×10^8 (±0.07)	0.02	22.0
13-350-C01	350	1.660 (±1.02)	0.29×10^8 (±0.15)	0.01	0.6

図2.4.3-16に、各ボーリング孔掘削後からこれまでの間に取得した全菌数の経時変化を示す。08E140C01孔は、深度140mの調査坑道から掘削された掘削長100mのボーリング孔であり、パッカーで仕切られた5つの観測区間が設置されている。ただし、区間2および区間4については、現在は採水不可の状況であるため、継続観測は実施していない。設置された採水区間のうち、区間5が立坑壁面に最も近く、各区間の立坑からの直線距離は、それぞれ約16.5m（区間5）となっている。一方で、07V140M03孔および09V250M02孔は、深度140mおよび深度250mの調査坑道からそれぞれ掘削された掘削長20mのボーリング孔であり、今回調査対象とした採水区間は立坑壁面（ボーリング孔口）から4m～20mの距離に設置されている。各調査区間の全菌数の変化をみると、08E140C01孔の3区間はおおむね $10^5 \sim 10^6$ cells/mlの範囲で比較的安定した状態で存在しているのに対し、坑道壁面からの距離が近い07V140M03および09V250M02孔については、 $10^4 \sim 10^6$ cells/mlの範囲で2桁程度の変動が見られ、さらに、時間と共に全菌数の増加傾向が認められた。これらの2つの区間は立坑壁面から近い領域であることから、坑道掘削に伴い周辺の水理・地球化学環境に変化が生じており、特にpHや酸化還元状態が変化することによって、微生物増殖が促進されている可能性が示唆された。なお、図2.4.3-16-b)の07V140M03孔の全菌数のうち、点線円で示した 10^6 cells/mlの計数結果を示した試料については、地下水採取のためのバルブ開放後1日以上経過した際のものである。採水バルブ解放直後（区間ボリューム分の地下水排出後）と比較して、開放後に地下水を数十リットル採取した後では全菌数が1桁以上増加する傾向が認められ、さらに試料中に多くの細胞集合体と細胞外多糖のような粘性物質が観察されたことから（図2.4.3-17）、地下水の大量採取に伴い、岩盤亀裂中に形成されていたバイオフィームが剥がれて地下水中に浮遊することにより、全菌数が一時的に増加したものと考えられた。この結果は、天然地下環境の堆積岩岩盤中にバイオフィームが形成されている可能性を示唆するとともに、地下水の流速等環境状態が変化することによって、バイオフィームが剥離し地下水中に浮遊することを示していると考えられる。一方で、地下施設建設に伴い水理・地球化学状態が擾乱を受けた環境下においても、坑道壁面から16.5m以上離れた領域では、微生物数は比較的安定していることが確認できたことから、坑道閉鎖後の水理・化学状態が安定した環境下では、微生物数は安定した状態であることが推察される。実際の地下環境から取得したこれらのデータは、長期的な時間軸における核種移行への微生物影響評価を行う上で、重要な知見になると考える。

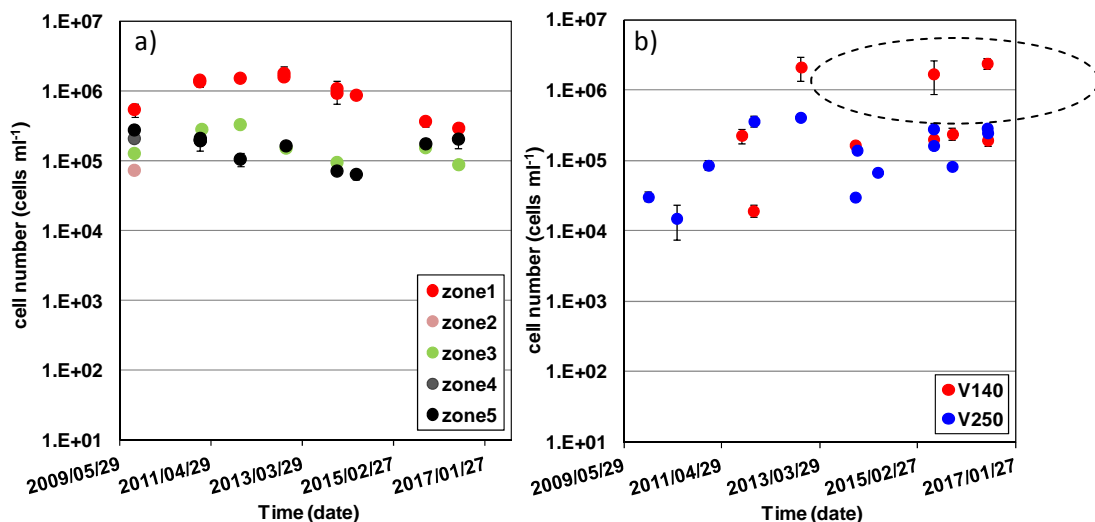


図 2. 4. 3-16 地下水中の微生物全菌数の経時変化
a) 08E140C01孔、 b) 07V140M03および09V250M02孔

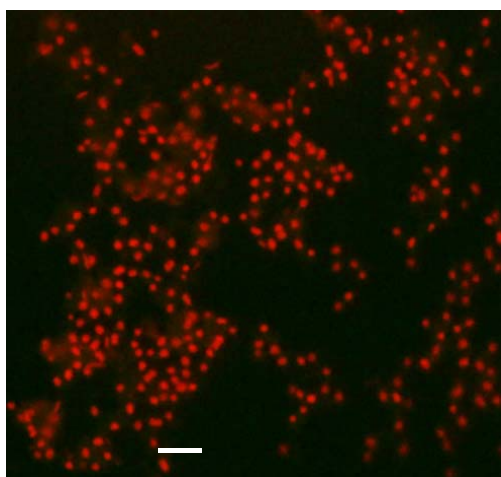


図 2. 4. 3-17 07V140M03 孔から採取した地下水のうち、地下水大量採取後の微生物細胞蛍光顕微鏡観察像。スケールは 10 μ m.

b. 地下水中の全コロイドと希土類元素の収着特性評価試験

地下水中のコロイドを対象とした元素の収着特性評価試験については、平成27年度に引き続き（日本原子力研究開発機構，2016a）、地下水中に存在する全コロイド（無機/有機コロイドおよび微生物コロイド）への希土類元素の収着挙動に関するデータを取得した。微生物コロイドと無機/有機コロイドを区別せず、pH、還元条件および水質条件等の環境条件を原位置の条件と同等とし、硝酸洗浄済み・オートクレーブ滅菌済みの耐圧タンクを99.999%アルゴンガス置換したものに地下水を採取した後に、タンク内に嫌氣的に元素を添加した。試験では、アクチノイドと挙動が類似し、天然環境中でアクチノイドのアナログ元素として用いられる希土類元素を用いた。一定期間、元素と反応させた溶液中のコロイドをサイズ分画して固相を捕集したフィルターと液相

のろ液を採取した。サイズ分画には、微生物サイズとして孔径 $0.2\mu\text{m}$ のメンブレンフィルター及び 10kDa (MWC0) サイズの限外ろ過膜を用いた。反応試験に用いた未ろ過原液及び各ろ過液は、コロイドの収着特性評価に資するため、Na, K, Ca, Mg, Cl, HCO_3^- , TOC, TIC, Total Fe, Fe^{2+} , S^{2-} 等、一般的な水質分析の対象となるイオン等の分析を行った。微量元素については、ICP-MS (パーキンエルマー社製, NexION300X型) を用いて測定した。また、各サイズ分画フィルター上の捕集物について、走査型電子顕微鏡を用いた観察・分析を実施した。さらに、試験過程における微生物群集組成の変化を明らかにするために、16S rRNA遺伝子を対象とした解析を実施した。採取した試験試料中の微生物細胞を $0.2\mu\text{m}$ フィルター上に捕集し、捕集物からExtrap Soil DNA Kit Plus ver. 2 (日鉄住金環境株式会社製) を用いて直接DNAを抽出し、微生物の16S rDNAをターゲットとしたPCR増幅産物について、次世代シーケンス解析 (MiSeq, Illumina社製) を実施した。得られた配列解析データについて、複数の解析ツールが統合されたQIIMEパイプラインを用いて、塩基配列のチェック、OTU (Operation Taxonomic Unit) の選定、代表配列の決定を行うとともに、各OTUの代表配列について16S rRNA遺伝子データベースに対する相同性検索を行い、系統分類を推定するとともに菌種構成比を算出した。

その結果 (図2. 4. 3-18)、希土類元素のコロイドへの収着パターンは、重希土類と比較して軽希土類のほうが収着しやすく、 $0.2\mu\text{m}$ 以上のコロイドに元素のほとんどが収着することが示された。この結果は、希土類元素を対象とした微生物収着試験の既存報告 (Tanaka et al., 2010; Ohnuki et al., 2015) とほぼ一致しており、実験室における収着試験結果を原位置環境に適応出来る可能性があることを示唆していると考えられる。一方で、微生物細胞自体の収着挙動影響を評価するために、微生物を死滅させた系における希土類元素の分配係数データを上記と同様の試験操作により取得したところ、07V140M03孔において新たに採取した地下水中のコロイド濃度が既存の値 ($0.56\sim 0.66\text{mg/L}$, 表2. 4. 3-8) と比べ20倍程度高く (12.5mg/L)、液相中の元素濃度の測定が不可能となり、分配係数を評価することが出来なかった。今後は、収着試験の条件を最適化することで、分配係数に対する微生物の寄与を評価するとともに、そのメカニズムについて評価を行っていく必要がある。

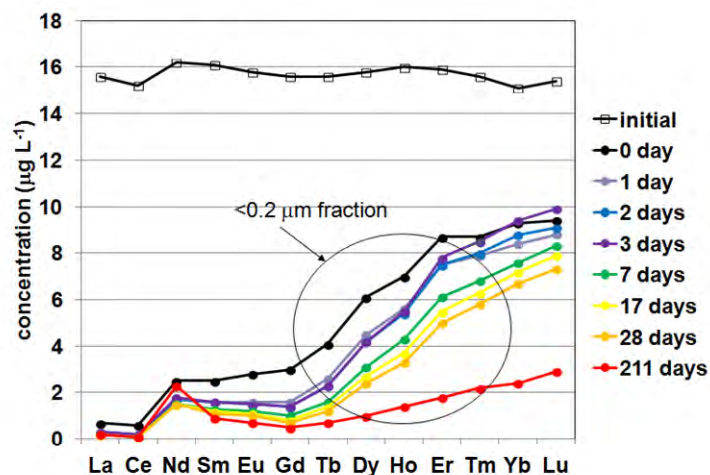


図2. 4. 3-18 微生物サイズのコロイドへの元素の収着挙動

c. 微生物と希土類元素の相互作用評価試験

上述の地下水中の全コロイドを対象とした収着特性評価試験において、試験過程における微生物群集組成の変化についてモニタリングを行った結果、希土類元素添加に伴う微生物群集組成の顕著な変化は確認できなかった。一方で、試験過程において鉄濃度が減少する傾向が確認され、試験過程において地下水試料中のRedox条件が変化している可能性が考えられたことから、希土類元素と微生物群集の相互作用の評価を目的として、ガラス製バイアル瓶を用いた培養試験を平成27年度に引き続き別途実施した。幌延深地層研究センター地下施設のボーリング孔から採取した地下水をバイアル瓶に分注し、希土類元素（終濃度10ppb）を添加して微生物の増殖が刺激を受けるか否かについて、地下水中の微生物を対象にして培養試験を行った。地下水試料中の還元状態を維持するために、還元剤として0.5g/Lのシステイン塩酸塩を添加した試料を調製した。また、希土類元素およびシステイン塩酸塩を添加しない試料もコントロールとして調製した。バイアル瓶をブチルゴムおよびアルミキャップで密封し、数ヶ月間培養を行う過程で定期的に微生物群集組成、全菌数、化学成分の分析を行った。

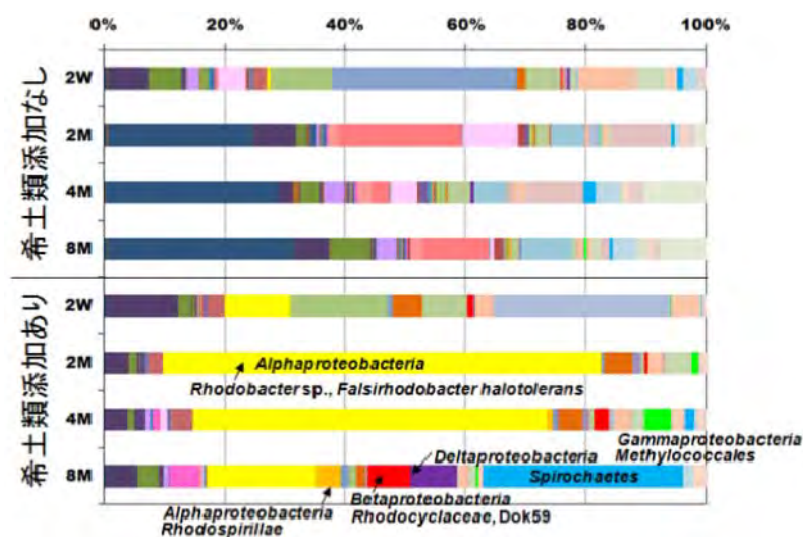


図 2. 4. 3-19 希土類元素の有無による微生物群集組成の経時変化

培養試験の結果、希土類元素を添加した系では、微生物の群集組成に著しい変化が認められた（図2. 4. 3-19）。添加2週間後から、*Alphaproteobacteria*に属する*Rhodobacter* sp. に近縁な種が増殖しており、希土類および還元剤添加後2ヶ月では全体の約70%を占める優占種となる結果が得られた。還元剤を添加しない系でも同種の微生物の増殖が認められたが、還元剤を添加した系と比較すると優占度は低かったことから、希土類元素の利用には比較的低い還元状態が必要とされていることが推察された。微生物群集組成の結果は全体に占める各種微生物の割合（%）で示されていることから、必ずしも試験溶液中の微生物の増減を表していない可能性があるが、試験溶液中の全菌数の結果をみると、希土類元素添加の試料中の菌数は、無添加の試料中の菌数と比較して顕著な増加傾向を示していることから（図2. 4. 3-20）、希土類添加溶液中では*Rhodobacter* sp.

に近縁な種が有意に増加しているものと考えられる。希土類元素添加により、特定の種の微生物増殖が刺激を受けて活発化することは確認できたが、これらの微生物の代謝反応に希土類元素がどのように関与しているのかについては、まだ明らかにされていない。希土類元素を細胞内に取り込み濃集するのか、あるいはメタン酸化等のある種の反応を行うための酵素反応に必要な遺伝子を発現させるために用いられているのか等、現段階ではわかっていないが、どのような代謝反応に用いられるかによって、核種移行への影響が異なってくることから、今後はメカニズムの解明に取り組む必要があると考える。

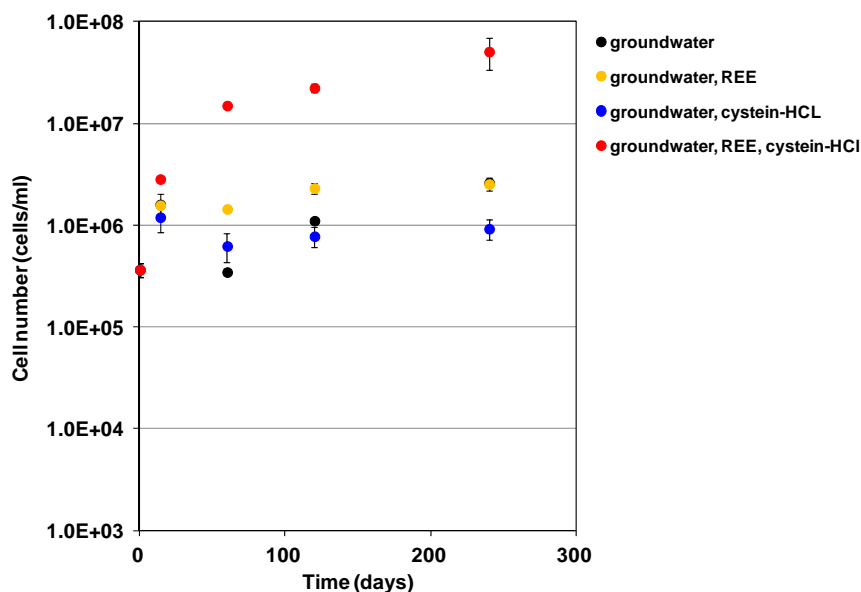


図 2. 4. 3-20 培養試験溶液中の全菌数の経時変化

② 地下環境におけるバイオフィルムの元素吸着特性評価

母岩中の核種の移行挙動に対するバイオフィルムの影響については、バイオフィルムが花崗岩に被覆することにより、花崗岩に対する核種の吸着性が低下する現象、および核種のマトリクス拡散が抑制される現象が報告されている (Vandergraaf et al., 1997; Anderson et al., 2006; 2007)。一方で、バイオフィルムが岩石表面に形成されることにより核種の移行を遅延させる効果が期待されるとする報告もある。バイオフィルムを構成する細胞表面に存在する接着性タンパク質や、微生物が分泌した、細胞外に存在するポリマー物質 (extracellular polymeric substances: バイオフィルムの主成分となる) は、環境中でマイナスに帯電していることから、高い金属元素吸着能力を有することが報告されている (Amano et al., 2017; MacLean et al., 2007; Takahashi et al., 2005; Takahashi et al., 2007)。

上記に示したバイオフィルムによるバリアの閉じ込め性能に対する影響のうち、特に、母岩の核種吸着性の低下および核種のマトリクス拡散の抑制が起こる場合については、天然の地下環境において、岩石亀裂表面にバイオフィルムが形成される環境要因等に関する知見や、バイオフィルムが、どの程度の密度で存在しうるかに関する知見が、ほとんど存在しないのが現状である。地下環境を模擬した条件下にて、あるいはボーリング孔の孔壁において形成されたバイオフィル

ムに関する調査結果は報告されているが (Ekendahl et al., 1994; Anderson and Pedersen, 2003; Anderson et al., 2006; 2007; Jägevall et al., 2011; Krawczyk-Bärsch et al., 2012)、それらはいずれも地下水流速やエネルギー源供給速度の観点において、バイオフィルムの形成にとって好条件である。それに対して、地下本来の岩盤亀裂表面における環境条件は地下水の流れが非常に遅く、微生物増殖のエネルギー物質の供給は非常に限定されていることから、既報のバイオフィルム密度は実際の岩盤亀裂表面におけるそれと比較すると過大評価されていると言える。微生物影響に起因する不確実性を低減させるためには、原位置環境におけるバイオフィルム形成とその特性に関する知見を蓄積するとともに、バイオフィルムの元素収着特性について評価を行う必要がある。

ここでは、平成26年度までに作成した、核種移行へのバイオフィルム影響の評価手法フローに基づき (図2.4.3-21)、平成26年度から幌延深地層研究センター地下施設のボーリング孔地下水および立坑壁面から採取した堆積岩試料を利用して開始したバイオフィルム形成試験における地下水通水から2年後の岩石を対象として、岩石表面におけるバイオフィルム形成の有無について観察・分析を行った。

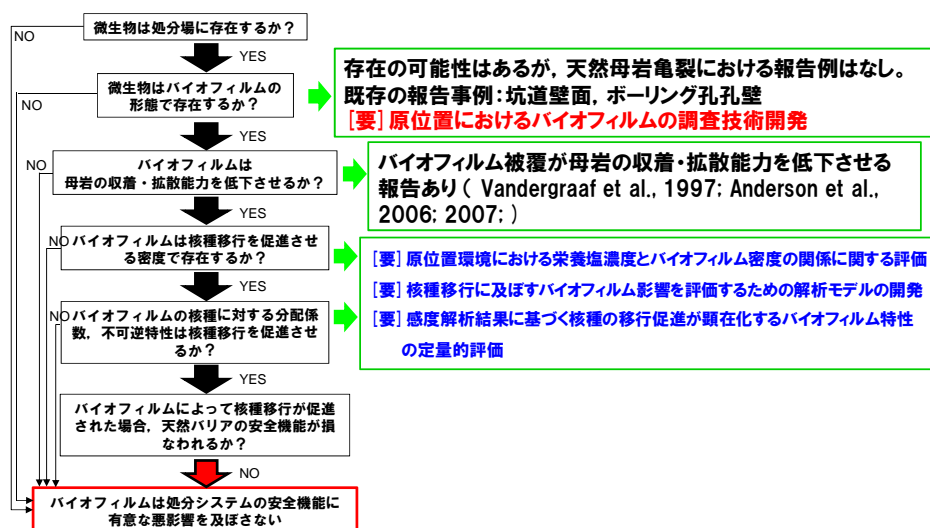


図 2.4.3-21 バイオフィルムの核種移行影響評価手法フロー図 (日本原子力研究開発機構, 2016a)

図2.4.3-22に、幌延深地層研究センター地下施設の深度140m坑道に設置したバイオフィルム形成試験容器と試験後の観察結果を示す。図2.4.3-22-d) e)では、岩石表面に形成された膜をアクリジンオレンジで染色し、蛍光顕微鏡で観察した像であるが、膜内に微生物細胞の高次構造体が観察され、地下環境下においても岩石表面にバイオフィルムが形成されている様子が確認できた。

採取した地下水中の全菌数と、採水チューブ内壁および堆積岩表面の付着物中の全菌数 (バイオフィルム密度) を表2.4.3-10に示す。全菌数は、各試料を終濃度4%の中性ホルマリンで固定した後に、微生物細胞を0.2μmフィルター (Millipore, GTBP) に捕集し、0.05%アクリジンオレンジにて染色した後、蛍光顕微鏡で観察・計数することにより評価した。直接計数法により取得した菌数から1cm²あたりの細胞数 (バイオフィルム密度) を算出し、この値とバイオフィルムの乾燥重量から、バイオフィルム乾燥密度を算出した。細胞数から細胞重量への換算には、既存の知

見に基づく大腸菌1細胞あたりの重さ (1.0×10^{-13} g/cell; Madigan et al., 2009) を参考にした。昨年度は、形成されたバイオフィルムの厚みを0.1mmと仮定して乾燥密度を算出したが、今年度は原位置環境下で形成されたバイオフィルム厚みの実測値 (約0.01mm) を用いて計算した。その結果、堆積岩表面に形成されたバイオフィルムの乾燥密度は 18.8kg/m^3 となり、ボーリング孔からの地下水採水チューブの内部に形成されたバイオフィルムの値 (深度140mの試料で 2.27kg/m^3 、深度250mの試料で 0.75kg/m^3) と比較して1桁程度高い値であることが示された。

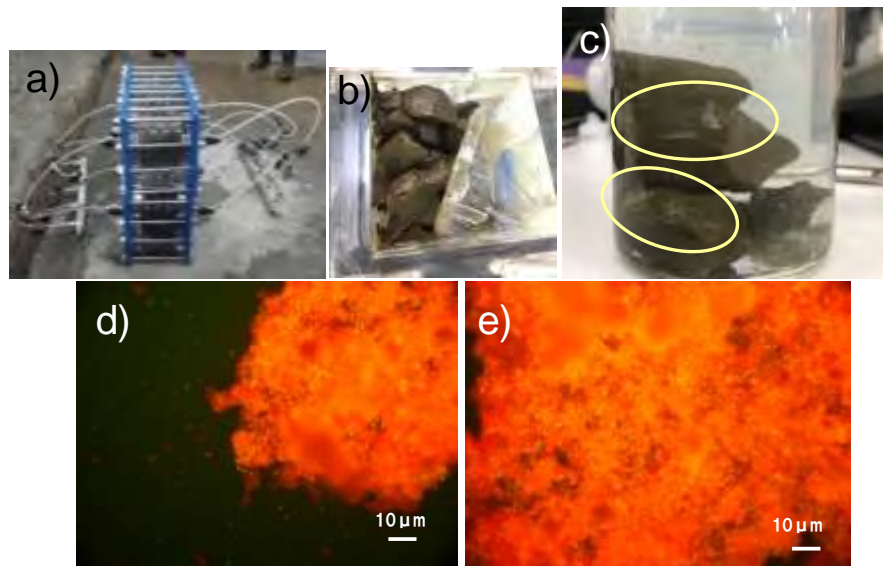


図 2.4.3-22 幌延深地層研究センター地下施設の深度 140m 坑道におけるバイオフィルム形成試験の設置状況とバイオフィルム観察像。a) 試験体設置状況, b) 開封後の容器内岩石, c) 岩石表面に形成されたバイオフィルム (剥離状態), d) e) 容器内の岩石表面に形成されたバイオフィルムの蛍光顕微鏡像

表 2.4.3-10 各ボーリング孔における地下水中の全菌数と採水チューブ内壁および岩石表面に形成されたバイオフィルム密度

Borehole	深度 [m]	バイオフィルム形成面	地下水中的全菌数 [cells/ml]	直接計数法により取得したバイオフィルム密度 [cells/cm ²]	算出したバイオフィルム乾燥密度 [kg/m ³]
07-V140-M03	140	テフロンチューブ	2.30×10^5	8.12×10^6	2.27
09-V250-M02	250	テフロンチューブ	5.88×10^4	2.69×10^6	0.75
07-V140-M01	140	堆積岩	1.55×10^4	6.71×10^7	18.8

平成26年度に実施した汎用シミュレーションソフトウェアGoldSIMを用いた核種移行解析では、バイオフィーム影響を考慮したパラメータ値として、バイオフィームの乾燥密度を0.038kg/m³と設定している。この値は花崗岩地下環境にて実験的に形成されたバイオフィームの文献値 (Anderson et al., 2006) を引用したものであり、今回得られた結果は、その値と比較して高い値を示した。一般的に、バイオフィームは非常に高い元素保持能力を有することが報告されており (MacLean et al., 2007; Takahashi et al., 2005; Takahashi et al., 2007)、バイオフィームの形成により核種移行の遅延効果が高まるものと予測される。一方で、高濃度に核種を保持した状態のバイオフィームが地下水流動変化等により剥離して移行する可能性も考えられるが、幌延深地層研究センター地下施設周辺の地下水中の微生物全菌数のモニタリング結果から、地下水採取等の急激な水流変化によりバイオフィームが岩石から剥離された場合にも、地下水中の菌数は1~2桁程度増加することが確認されている。原位置環境から取得したこれらの観測データは、核種移行解析を行う上で、不確実性を低減させたより現実的かつ長期的な評価の一助になるものと考えられる。

今後は、岩石表面に形成されたバイオフィームについて、群集組成解析や元素の化学分析等を継続して実施するとともに、岩盤表面に形成されたバイオフィームが母岩の核種収着能力を低下させる要因について検討を進めることが必要である。

2) 水質形成や核種移行に関わる微生物代謝活性の評価手法開発

これまでの知見により、地下環境における微生物生息域が広範囲にわたるとともに、その代謝活性や系統学的多様性は非常に複雑であることが分かってきた (例えば, Fredrickson and Fletcher, 2001)。また、地下環境から検出されている微生物群集については、これまで培養されていない微生物が数多く検出されており、それらの微生物の代謝機能については、未解明な部分が多く残されている。このような未培養微生物群の未知の代謝機能は、地層処分システムの長期的安全性を評価する上で、核種移行影響における不確実性要因となりうる。そのため、微生物が関与する核種の収着、濃縮、形態変換、鉱物化、代謝に関わる酸化還元反応、錯化剤の生成等について評価技術を構築する必要がある。本研究では、平成26年度に引き続き、幌延深地層研究センター地下施設から採取した地下試料を対象として、核種移行への微生物影響の不確実性要因となりうる未培養微生物の代謝活性を予測するために、遺伝子解析技術を活用した評価手法の開発を行った。

地下施設内に掘削されたボーリング孔 (08-E140-C01, 07-V140-M03, 09-V250-M02) から地下水を採取し、孔径0.2 μ mのメンブランフィルター (GVWP; Millipore) 上に微生物細胞を捕集した。捕集した微生物細胞の全DNAをExtrap Soil DNA Kit Plus ver.2 (日鉄住金環境株式会社製) を用いて抽出し、次世代シーケンサーによる16S rRNA 遺伝子をターゲットとした解析及びメタゲノム解析に供した。16S rRNA 遺伝子解析については、複数のプライマーを用いて16S rRNA 領域を増幅したPCR産物を対象として解析を行った。解析には、以下のプライマーを用いた。

V4-5 region primers:

V4-F (5'-AYTGGGYDTAAAGNG-3'), V4-R (5'-CCGTCAATYYTTTRAGT-3')

515-F (5'-GTGCCAGCMGCCGCGTAA -3'), 806-R (5'-GGACTACVSGGGTATCTAAT-3')

V1-2 region primers:

27F (5'-AGAGTTTGTATCMTGGCTCAG-3'), 355-R (5'-ACTCCTACGGGAGGCAGC-3')

メタゲノム解析については、抽出したDNAについてゲノムDNA断片化を行い、ビーズ精製により550bpインサートを基準としてサイズ選択した後、Agilent 2100BioAnalyzerにより濃度測定・品質を確認することでシーケンス用ライブラリ調製を行った。シーケンス解析は、Paired-End法にて150塩基を対象として実施した。Paired-End解析のゲノム配列データセットについて、checked and quality trimmed, idba ud (Peng)を用いてゲノム配列の再構築（アセンブル）を行った。meta-Prodigalを用いて1000bp以上のコンティグについてオープンリーディングフレーム（ORF；推定遺伝子領域。塩基配列のうち、タンパク質として機能していると予測される領域のこと）を推定した。また、University of California Berkeley校のJillian Banfield教授のもとで構築されたアノテーションパイプラインを用いて、ORFsの予察的な機能の推定やrRNA、tRNAの推定を行った。ゲノム配列データベース中からそれぞれのORFについて最も相同性の高いものを同定した（Wrighton et al., 2012）。

平成28年度までに採取した地下水について、次世代シーケンサーを用いて、微生物の16S rRNA遺伝子領域を増幅したPCR産物を対象とした解析及びメタゲノム解析を実施し、多様性や代謝活性の経時的変化について評価を行った。その結果、両解析結果とも、過去4年間に於いて検出される微生物種は著しい変化を示さなかったことから、比較的安定した菌叢が形成されていることが示された（図2.4.3-23）。同試料地下水の化学組成分析結果からも、主要成分の大きな変化は確認されておらず安定した地球化学状態であることを示している（天野ほか, 2012; 笹本ほか, 2015）。しかしながら、08E140C01の区間1および区間3の一部の試料においては、時間の経過とともに微生物種の構成割合に変化が確認された（図2.4.3-23）。このことは、原位置環境において微生物の代謝活性が酸化還元状態に鋭敏に反応していることを示しており、水質分析等の地球化学調査では通常検出できないレベルで原位置の酸化還元状態の変化が生じていることが示唆された。一方で、酸化還元のモニタリング結果は、観測初期から現在までの間で約-220mV程度の値からほとんど変化していないことから、微生物の酸化還元に関わる代謝反応も原位置の酸化還元状態の保持に大きく寄与していると考えられる。また、フィンランド国オルキルオトにおける地下研究施設等を利用した微生物研究報告では、微生物の現存量や多様性は、坑道掘削時に最も変化が生じることが示されていることから（Pedersen et al., 2014）、地下施設建設過程における微生物現存量および多様性（すなわち代謝活性）の変化の程度を把握しておくことで、長期的な核種移行影響評価を行う際の基礎データに資することが可能になる。

メタゲノム解析については、再構築されたゲノム配列結果を基に、それぞれの検出種の代謝機能を推定するとともに、解析データの信頼性確認を継続して実施した。その結果、600以上のゲノムを検出し、そのうち250ゲノムは異なる生物種に由来していることが示された。複数年にわたるメタゲノム解析に基づく微生物群集代謝機能の経時的変化について解析を進めた結果、炭酸固定反応、高分子有機物分解、メタン代謝、硫黄代謝、発酵、水素代謝、鉄還元等の金属還元反応等に関連する遺伝子の存在が示され、検出される群集組成及び代謝機能は経時的に大きく変化していないことから、地下施設建設による酸化還元状態に対する多少の擾乱影響は生じているものの、

メタゲノム解析結果からも、地下施設近傍の水理・地球化学状態には著しい変化が生じていないことが示された。

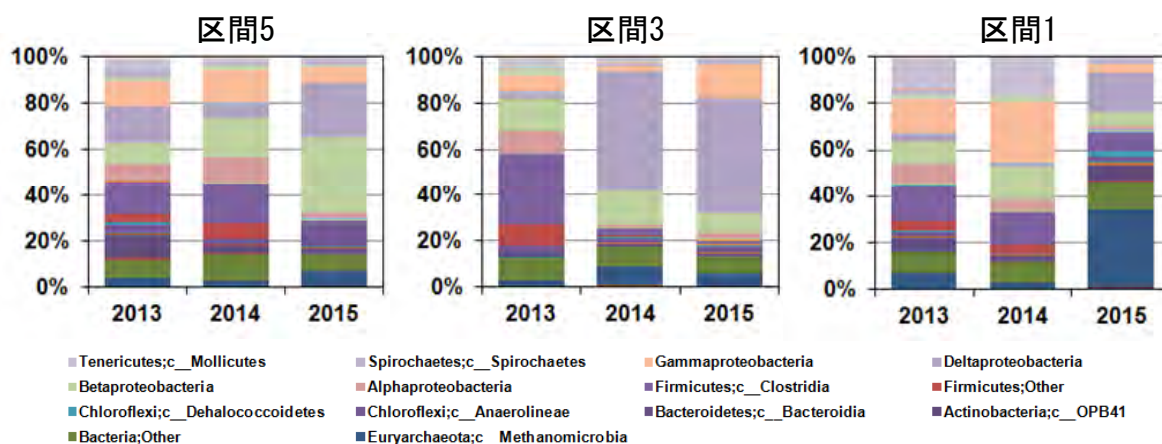


図 2.4.3-23 地下施設内ボーリング孔 (08-E140-C01) から採取した 16S rRNA gene に基づく地下水中の微生物群集組成の経時変化

検出された微生物代謝反応のうち、金属還元に関わる微生物代謝反応を評価するために、multi-heme cytochromes (MHCs) に関与する遺伝子について解析をおこなった。MHCsは*Geobacter sulfurreducens*や*Shewanella oneidensis*などのような金属還元菌において電子伝達をおこなう成分として知られている。したがって、検出された全ゲノムにおいてMHCsを有している種を調べることによって、潜在的な金属還元反応について評価を行うことができる。ゲノムデータベースを利用してMHCsについて解析を行った結果、全体の90%が異化型金属還元反応に関連する遺伝子を有することが示され、そのうちの1.2%は特異的なMHCsであることが示された。これまでに解析したゲノムのうち、63ゲノムから253のMHCsが検出され、23ゲノムが鉄還元能力を有する遺伝子を有していることが推測された。また、未培養微生物群として知られるANME-2d (嫌氣的にメタン酸化を行うメタン生成菌群) についても幌延において検出されている種はMHCsを有することから、金属還元能力を有しており、金属還元と嫌氣的メタン酸化の共反応を行っている可能性が示唆された。微生物の生理生態学的特性を明らかにするために、従来培養法を用いた評価が行われてきたが、未培養微生物群は培養に成功していない群集で構成されていることから、その代謝活性を推定することが難しい。一方で、メタゲノム解析手法を活用した代謝活性評価は、環境中における微生物代謝反応を推測することが可能であり、未培養微生物群にとっては極めて有効な手法となる。

今後、メタゲノム解析に基づく微生物の代謝反応に関する解析を継続し、未培養微生物も含めた代謝機能を網羅的に評価するとともに、鉄還元等金属との相互作用に関連する代謝機能の評価を行っていくことで、微生物による処分環境の酸化還元状態等への影響や核種移行への影響について評価する必要がある。

2.5 セメント系材料影響評価技術開発

処分場建設時には、支保、グラウト、インバート等にセメント系材料が使用されることが想定される。セメント系材料は、核種の移行抑制のために設置されるベントナイト緩衝材や、天然バリアである周辺岩盤とは熱力学的に安定に共存することができないため、地層処分システムにセメント系材料を導入することによって化学親和力が発生し、この化学親和力を駆動力として、新たな化学的安定状態に向かって地層処分システムが変化していくと考えられる（日本原子力研究開発機構、2015b）。このため、セメント系材料自体や、セメント系材料に隣接する緩衝材や周辺岩盤において、化学的変質とこれに伴う物質輸送特性変化や力学的特性変化、及び間隙水の化学的条件の変化が生じ、核種の移行挙動が変化する可能性がある。したがって、セメント系材料を利用することによる、以上のようなニアフィールドへの影響を評価するための技術開発が必要となる。

こうした背景の下、本事業では、平成26年度までに実施された資源エネルギー庁受託事業「セメント系材料影響評価技術高度化開発」（日本原子力研究開発機構、2015b）及び平成24年度までに実施された資源エネルギー庁受託事業「地下坑道施工技術高度化開発」（日本原子力研究開発機構、2013e）の成果を踏まえ、セメント系材料影響評価技術開発として、セメント系材料の長期挙動評価で必要となる化学モデル及び力学挙動評価モデルの開発、セメント系材料の影響下における核種移行挙動の把握、グラウト材料（セメント）による周辺岩盤への影響調査（以下、グラウト影響評価技術開発とする）を実施する。

本課題については、平成27年度～平成29年度の3年間にかけて取り組むこととしており、平成28年度は、セメント系材料の化学モデル開発では、セメント水和物溶解沈澱モデルの構築とセメント水和反応モデルの構築を行った（2.5.1項）。セメント系材料の力学挙動評価モデル開発では、セメントのひび割れ発生の挙動等を考慮した長期力学解析手法の開発を行った（2.5.2項）。また、セメント系材料の影響下における核種移行挙動の把握では、四価遷移金属元素（Mo, Nb）を対象としてアルカリ性条件における核種の収着分配係数設定のためのデータ取得を行った（2.5.3項）。さらに、グラウト影響評価技術開発では、グラウト材料の初期状況を把握するためのセメント供試体の作製・観察、平成27年度に使用した既存のボーリング孔のコア試料（施工後約3年が経過した試料）を用いたグラウト材料の状況や周辺母岩の観察・化学分析、グラウト施工後約6年が経過したボーリングコア試料の研究坑道からのサンプリングと採取試料の観察を行った（2.5.4項）。

2.5.1 セメント系材料の化学モデル開発

(1) 背景と目的

セメント系材料の化学的変質としては、長期的にセメント水和物が地下水に溶解するとともに二次鉱物が生成し、これによって水和物組成や間隙水組成が変化することが考えられる。こうしたセメント系材料の変質については、主に普通ポルトランドセメント（以下、「OPC」とする）を中心に評価・検討が実施されてきた。一方、実際の地層処分施設ではセメント系材料の高アルカリ性間隙水による緩衝材・周辺岩盤への影響を低減する目的で、低アルカリ性セメントが用いられることも想定される。そのような低アルカリ性セメントの候補の一つとして、OPCに対してフライアッシュとシリカフュームを混合することで間隙水や接触液のpHを低下させたフライアッシュ高含有シリカヒュームセメント（以下、「HFSC」）が開発された（入矢ほか、2003）。

処分場を想定した長期のセメント変質挙動の予測を可能とするためには、セメント系材料自体の変質や間隙水組成の変化を反映した化学-物質輸送連成解析モデルが必要となる。本研究では、連成解析を可能とするために必要となる個別要素モデルの開発を行う。具体的には、初期のセメント系材料の組成である「初期水和物組成」の設定を含め、水和物の溶解・沈澱による鉱物組成変化や間隙水組成変化を化学平衡計算で導出するための「①セメント水和物の溶解沈澱モデル」、フライアッシュ及びシリカフェームの長期的な水和の進行に伴う水和物組成の変化を評価するための「②セメント水和反応モデル」、鉱物組成変化や間隙率変化に伴う物質輸送特性の変化を評価するための「③間隙構造と透水係数の関係評価モデル」の開発を行う。

平成27年度は、セメント水和物溶解沈澱モデル及びセメント水和反応モデルについて、本節冒頭で述べた「セメント系材料影響評価技術高度化開発」（日本原子力研究開発機構，2015d）で開発されたモデルの信頼性向上を目的として、モデル構築に必要な実験データの取得を行い、実験データとモデル解析結果との比較を行った（日本原子力研究開発機構，2016a）。平成28年度は、平成27年度に抽出された課題をもとに、モデルの更なる改善を目的として実験データの取得を行った。

(2) セメント水和物の溶解沈澱モデルの開発

セメント水和物の溶解沈澱モデルの検討（日本原子力研究開発機構，2015d）では、OPC及びHFSCを用いたバッチ式浸漬実験結果とモデルによる解析結果との比較により、OPC及びHFSCともにイオン交換水系での浸漬実験に対して全体的に浸漬液pHを再現できることが示された（図2.5.1-1）。一方、人工海水系での浸漬実験のpHに対してはOPCの再現性は高いものの、HFSCの再現性が低い（図2.5.1-2）ことが課題とされた。平成27年度の研究（日本原子力研究開発機構，2016a）では、人工海水に含まれるマグネシウムとセメント水和物に含まれるケイ酸との反応によって生成するマグネシウムシリケート水和物（ $(\text{MgO})_x \cdot (\text{SiO}_2)_y \cdot (\text{H}_2\text{O})_z$ ），以下、M-S-Hと呼ぶ）について、熱力学データを取得するとともに溶解沈澱反応の定式化を行い（以下、「H27MSHモデル」と呼ぶ）、この結果を反映することによってHFSCのセメント水和物溶解沈澱モデルの海水系に対する適用性向上に取り組んだ。その結果、M-S-Hの熱力学データを反映することで液固比100(g/g)以上の領域では再現性が高くなったが、液固比100(g/g)以下の領域では再現性が低かった（図2.5.1-3）。これは、M-S-Hおよび他のMg含有二次鉱物の設定が適切ではないことが原因として考えられた。また、HFSCの主要構成鉱物であるC-S-Hに対するMg以外の成分（Na, K, Ca, S, Cl）の影響についてはこれまでの報告例をもとに定式化されているが、C-S-Hに対するMgの影響については知見が乏しい。そこで平成28年度は、平成27年度に引き続きM-S-Hの熱力学データを取得するとともに、C-S-Hと人工海水の相互作用に関する実験データを取得した。

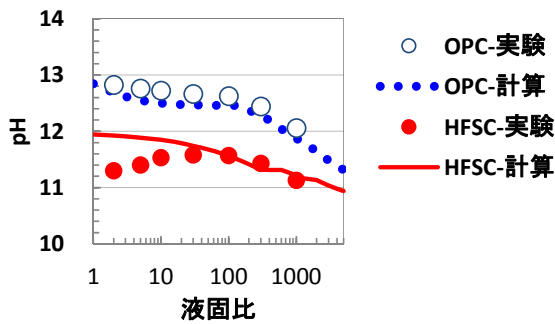


図2.5.1-1 イオン交換水に対する浸漬実験での液相pHと解析結果の比較 (日本原子力研究開発機構, 2015d)

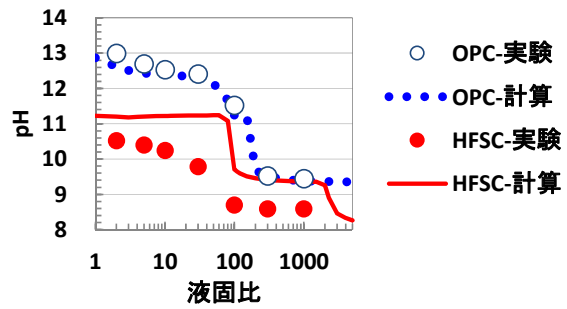


図2.5.1-2 人工海水に対する浸漬実験での液相pHと解析結果の比較 (日本原子力研究開発機構, 2015d)

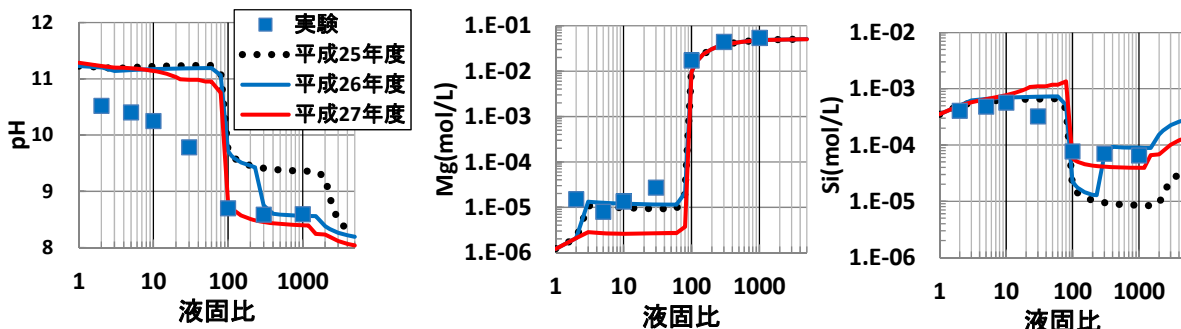


図2.5.1-3 HFSC硬化体 - 人工海水浸漬実験での液相、Mg濃度、Si濃度と解析結果の比較 (日本原子力研究開発機構, 2016a)

1) マグネシウムシリケート水和物の熱力学データの検討

平成27年度でのM-S-Hの熱力学データの検討は、その合成過程における平衡液相組成をもとに実施した(過飽和実験)。平成28年度は、イオン交換水に浸漬した合成M-S-Hの平衡組成分析を行い(未飽和実験)、M-S-Hの溶解沈澱反応の解離式及び平衡定数による再現計算を実施した。

① 過飽和浸漬実験

M-S-Hの溶解沈澱反応の解離式及び平衡定数の設定にあたっては、WalkerらによるC-S-Hの溶解沈澱反応の解離式及び平衡定数の設定方法(Walker et al., 2016)を参考として、以下のように設定した。既往データが多数存在するC-S-Hについては、C-S-Hを水溶液中における二組の二元系非理想固溶体とみなして溶解沈澱モデルを構築した。本調査におけるM-S-Hについては、過飽和実験におけるこれまでの4組の液相データ (Roosz et al., 2015、; Nied et al., 2016、; Lothenbach et al., 2014、; 日本原子力研究開発機構, 2015d) をもとに、Mg/Siモル比が0.5であるM-S-Hと、Mg/Siモル比が1.5であるM-S-Hとを端成分とした二元系理想固溶体とみなした溶解沈澱モデルを構築した。0.6から1.5までの範囲でのMg/Si比において、上記の溶解沈澱モデルに基づき、離散的なMg/Si比を有する固相として設定したM-S-Hの解離式及び平衡定数を表2.5.1-1に示す(以下、H28MSHモデル)。

表2.5.1-1 M-S-Hの解離式及び平衡定数

名称	解離式	log <i>K</i>
MSH06	$(\text{MgO})_{0.6}(\text{SiO}_2)(\text{H}_2\text{O})_{2.6} = 0.6 \text{Mg}^{2+} + 1 \text{H}_4\text{SiO}_4 + 1.2 \text{OH}^-$	-11.3
MSH07	$(\text{MgO})_{0.7}(\text{SiO}_2)(\text{H}_2\text{O})_{2.7} = 0.7 \text{Mg}^{2+} + 1 \text{H}_4\text{SiO}_4 + 1.4 \text{OH}^-$	-12.7
MSH08	$(\text{MgO})_{0.8}(\text{SiO}_2)(\text{H}_2\text{O})_{2.8} = 0.8 \text{Mg}^{2+} + 1 \text{H}_4\text{SiO}_4 + 1.6 \text{OH}^-$	-14.0
MSH09	$(\text{MgO})_{0.9}(\text{SiO}_2)(\text{H}_2\text{O})_{2.9} = 0.9 \text{Mg}^{2+} + 1 \text{H}_4\text{SiO}_4 + 1.8 \text{OH}^-$	-15.4
MSH10	$(\text{MgO})_{1.0}(\text{SiO}_2)(\text{H}_2\text{O})_{3.0} = 1.0 \text{Mg}^{2+} + 1 \text{H}_4\text{SiO}_4 + 2.0 \text{OH}^-$	-16.7
MSH11	$(\text{MgO})_{1.1}(\text{SiO}_2)(\text{H}_2\text{O})_{3.1} = 1.1 \text{Mg}^{2+} + 1 \text{H}_4\text{SiO}_4 + 2.2 \text{OH}^-$	-18.0
MSH12	$(\text{MgO})_{1.2}(\text{SiO}_2)(\text{H}_2\text{O})_{3.2} = 1.2 \text{Mg}^{2+} + 1 \text{H}_4\text{SiO}_4 + 2.4 \text{OH}^-$	-19.3
MSH13	$(\text{MgO})_{1.3}(\text{SiO}_2)(\text{H}_2\text{O})_{3.3} = 1.3 \text{Mg}^{2+} + 1 \text{H}_4\text{SiO}_4 + 2.6 \text{OH}^-$	-20.6
MSH14	$(\text{MgO})_{1.4}(\text{SiO}_2)(\text{H}_2\text{O})_{3.4} = 1.4 \text{Mg}^{2+} + 1 \text{H}_4\text{SiO}_4 + 2.8 \text{OH}^-$	-21.8
MSH15	$(\text{MgO})_{1.5}(\text{SiO}_2)(\text{H}_2\text{O})_{3.5} = 1.5 \text{Mg}^{2+} + 1 \text{H}_4\text{SiO}_4 + 3.0 \text{OH}^-$	-23.0

H28MSHモデルを用いて、モデル構築の元である4組の過飽和実験の再現計算を地球化学計算コードPHREEQC (Parkhurst et al., 1995) を用いて実施した。計算条件を表2.5.1-2に、計算結果を図2.5.1-4に示す。再現計算では、本浸漬試験条件で合成M-S-HのSi源として用いたフュームドシリカの4%溶液のpHが4前後であることから、合成時の液量1Lに含まれる40gのSiO₂(am)から0.1mmolの塩化物イオンが溶出するものと仮定した。モデル構築の元となった4組の実験値に、最大1桁程度の差異が認められる

図2.5.1-5には過飽和実験の再現計算のうち、固相中のSiO₂(am)量及びbrucite量を示す。粉末X線回折及びFT-IRによる分析から、SiO₂(am)はMg/Si比0.4で検出されたが、Mg/Si比0.7では検出されなかったものと判断された(日本原子力研究開発機構, 2016a)。また、bruciteはいずれのMg/Si比においても検出されなかった。固相における実験結果に対して、平成27年度モデルに比べて平成28年度モデルのほうが、より整合的であったと判断される。

表2.5.1-2 M-S-Hの過飽和実験の再現計算条件

データベース	JAEA-β TDB v1.07 (for PHREEQC) (付録3参照)
平衡反応に考慮する固相	SiO ₂ (am)、periclase、brucite 表2.5.1-1に示すMSH
初期固相	実験条件に準拠して、原料としてのSiO ₂ (am)とpericlaseを所定量設定
浸漬液相	合成時の液量1Lに含まれるSiO ₂ (am) (mol)あたり0.15mmol/Lの塩化物イオンを含むイオン交換水 (塩化物イオン濃度) (mmol/L) = 0.15 × (SiO ₂ (am)) (mol/L)

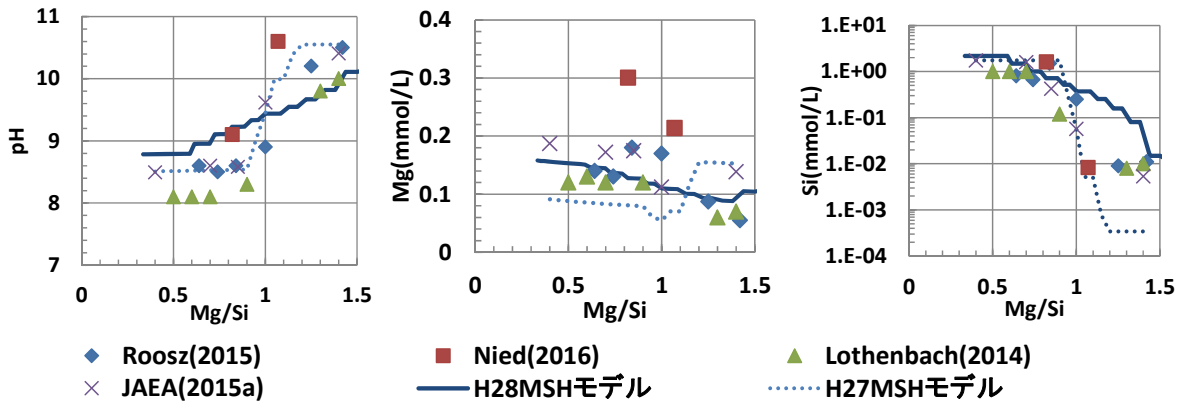


図2. 5. 1-4 M-S-H過飽和浸漬実験での液相pH、Mg濃度、Si濃度と解析結果の比較

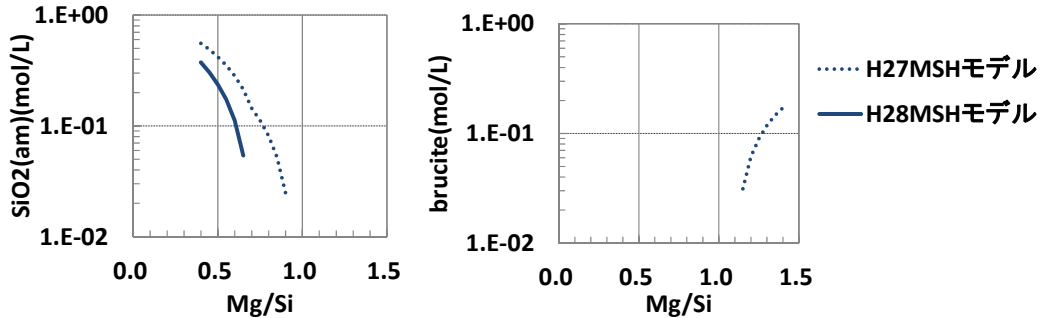


図2. 5. 1-5 M-S-H過飽和浸漬実験での固相中のSiO₂(am)及びbrucite量の解析結果

②未飽和実験

平成27年度に得られた合成M-S-H（日本原子力研究開発機構，2016a）を、窒素ガス雰囲気において液固比15 (g/g)、温度約25°Cの条件でイオン交換水に浸漬した。浸漬約10か月後に固液分離し、孔径0.45 μmのメンブランフィルターを通過させたろ液に対して、pH7、9、12.5の標準液で校正した複合ガラス電極を用いてpHを測定するとともに、誘導結合プラズマ発光分光分析装置（パーキンエルマー社製Optima8300）によりMg、Si濃度を測定した。

過飽和実験及び未飽和実験における液相pH、Mg濃度、Si濃度を図2. 5. 1-6に示す。過飽和実験では浸漬後約5ヶ月後、及び約16ヶ月後に固液分離を実施した。未飽和実験は、約16ヶ月後の固相を浸漬したものである。これら3組のデータを比較すると、pHについては未飽和実験のほうが過飽和実験に比較して低く、Mg/Si比1以上では0.5程度の差異がみられた。Mg濃度については未飽和実験のほうが過飽和実験に比較して約2.5倍と高く、Mg/Si比1では約10倍高かった。Si濃度における3組の差異は小さかった。

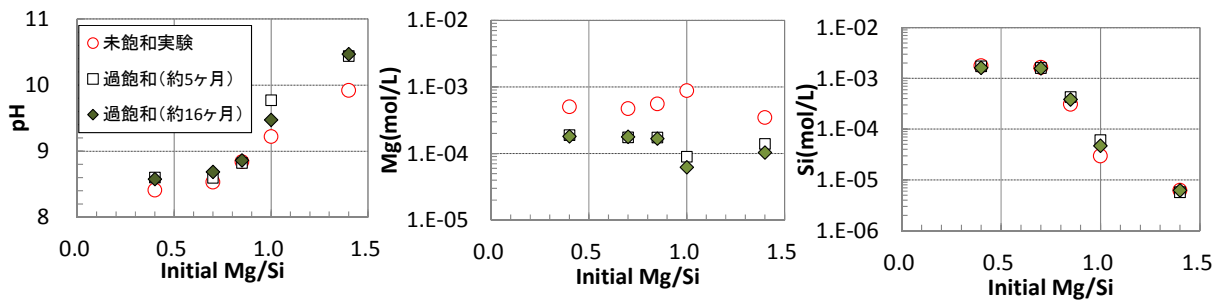


図2. 5. 1-6 M-S-H未飽和浸漬実験での液相pH、Mg濃度、Si濃度

引き続き、未飽和実験について、表2.5.1-3に示す条件においてPHREEQCを用いて再現計算を実施した。実験結果について、平成27年度モデル（H27MSHモデル）、平成28年度モデル（H28MSHモデル）によるそれぞれの再現計算結果とともに図2.5.1-7に示す。未飽和実験結果について、いずれのモデルでも実験結果に対する計算結果のずれが1桁以上に達しており、本研究で設定したMSHモデルには改善の余地があるものと考えられる。今後、未飽和実験のデータを蓄積するとともに、未飽和実験データも考慮したMSHモデルの開発が必要であると考えられる。

表2.5.1-3 M-S-Hの未飽和浸漬実験の再現計算条件

データベース	JAEA-β TDB v1.07 (for PHREEQC) (付録3参照)
平衡反応に考慮する固相	SiO ₂ (am) MSH07、MSH08、MSH09、MSH10、MSH11、MSH12、MSH13、MSH14 brucite
出発固相	Mg/Siモル比0.4~1.4のM-S-H (ただし、Mg/Siモル比0.7未満のM-S-Hについては、実験におけるMg/Siモル比となるようにMSH07に対してSiO ₂ (am)を追加した。)
浸漬液相	イオン交換水

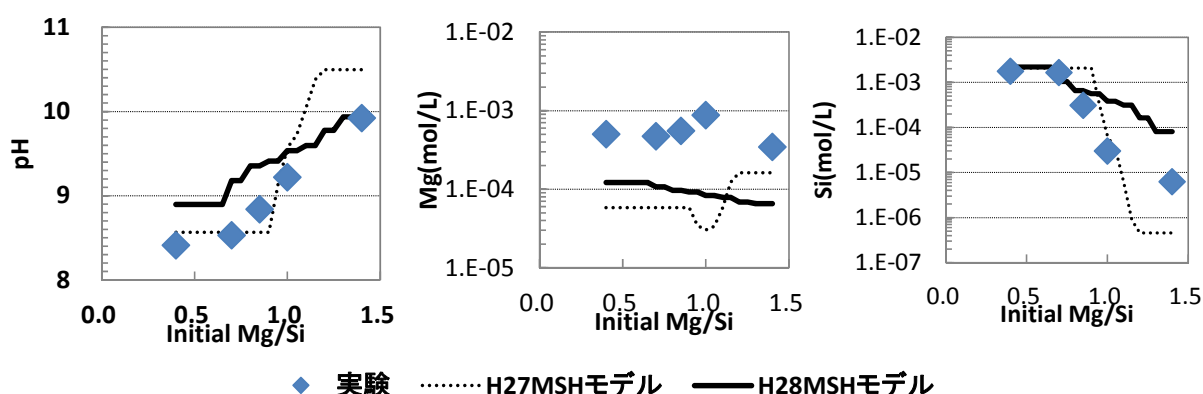


図2.5.1-7 未飽和浸漬実験における液相pH、Mg濃度、Si濃度と解析結果の比較

2) 海水中の主要化学成分含有液へのカルシウムシリケート水和物の浸漬実験

本項では、海水中の主要成分含有液及びASTM相当の人工海水に対して、セメント硬化体の主要構成物であるC-S-Hを浸漬して、その平衡液相組成及び固相を分析した。

①C-S-Hの合成

C-S-Hの合成では、アルゴン雰囲気グローブボックス内において、Ca源としての水酸化カルシウム（関東化学製特級試薬）と、Si源としてのフュームドシリカ（日本アエロジル社製、AEROSIL200）とをポリプロピレン製容器に入れ、液固比15 (g/g)、温度約25°Cの条件でイオン交換水に浸漬した。Ca/Siモル比0.9及び1.2となるようCa源及びSi源を調整した2種類のC-S-Hを合成し、浸漬期間中は、1週間に2回程度の頻度で大気中において容器を手で十分に攪拌した。約3か月後に固液分離を行い、

分離した固相を相対湿度11%に調整したデシケーター内で7日間以上乾燥した後、粉末X線回折装置（パナリティカル社製X'Pert PRO MPDp、管球：Cu、管電圧：45kV、管電流：40mA、散乱防止スリット：2°、ソーラスリット：0.04rad）により得られたチャート（図2.5.1-8）を既往の文献と比較し（たとえば、五十嵐ら，2011；Walker et al.，2007）、C-S-Hが合成されていることを確認した後、浸漬実験に供した。

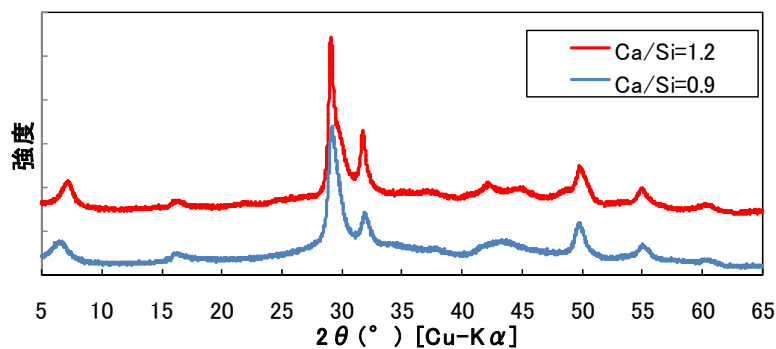


図2.5.1-8 合成C-S-Hの粉末X線回折図

②浸漬実験方法

2種類の合成C-S-Hを、窒素ガス雰囲気において液固比10及び100(g/g)、温度約25°Cの条件で6種類の水溶液に浸漬した。平成28年度は2種類のC-S-Hのうち、Ca/Siモル比0.9の合成C-S-Hを対象として、浸漬約2か月後に固液分離して以下のように固相及び液相を分析した。液相については、孔径0.45 μmのメンブランフィルターを通過させたろ液に対して、pH7、9、12.5の標準液で校正した複合ガラス電極を用いてpHを測定するとともに、誘導結合プラズマ発光分光分析装置（パーキンエルマー社製Optima8300）及びイオンクロマトグラフ（東亜DKK社製、ICA-5000）により化学成分濃度を測定した。固相については、相対湿度11%に調整したデシケーター内で乾燥した後、粉末X線回折装置により鉱物の同定を行った。

ASTM相当の人工海水は八洲薬品社製「アクアマリン」（金属腐食試験用）を用いて調製した。人工海水のイオン濃度を表2.5.1-4に示す。平成28年度に実施したC-S-Hの浸漬実験について、浸漬条件及び液相の分析対象元素を表2.5.1-5に示す。

表2.5.1-4 人工海水のイオン濃度(mol/L)

Na ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	Cl ⁻	HCO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻	BO ₃ ⁻	F ⁻	Br ⁻	Sr ²⁺
4.8E-1	1.0E-2	1.0E-2	5.5E-2	5.6E-1	2.4E-3	2.9E-2	4.4E-4	7.1E-5	8.4E-4	1.6E-4

表2.5.1-5 平成28年度に実施したC-S-Hの浸漬試験 (Ca/Siモル比0.9)

略号	浸漬液	液固比 (g/g)	液相の分析対象元素
IEW	イオン交換水	10, 100	Ca, Si
MS10	硫酸マグネシウム 10mmol/L	10, 100	Ca, Mg, Si, S
MS50	硫酸マグネシウム 50mmol/L	10, 100	Ca, Mg, Si, S
MC50	塩化マグネシウム 50mmol/L	10, 100	Ca, Mg, Si, Cl
NC480	塩化ナトリウム 480mmol/L	10, 100	Ca, Na, Si, Cl
SW	人工海水	10, 100	Ca, Si, Mg, S, Al, Na, K, Cl

③実験結果

液相pH測定結果を図2.5.1-9に示す。液固比10及び液固比100(g/g)の双方とも、浸漬液の硫酸マグネシウム濃度が高いほどpHが低下したことが分かる。さらに人工海水(SW)でのマグネシウム濃度(約55mmol/L)と同程度のマグネシウム濃度(50mmol/L)に設定した陰イオンの異なる2つの系を比較すると、硫酸マグネシウム溶液(MS50)に浸漬した条件のpHに比較して、塩化マグネシウム溶液(MC50)に浸漬した条件のpHのほうが低かった。また、MC50浸漬によるpHは、SW浸漬した条件によるpHと同程度となった。一方、人工海水と同程度のナトリウム濃度(480mmol/L)とした塩化ナトリウム溶液(NC480)へ浸漬した条件のpHは、イオン交換水(IEW)へ浸漬したpHと同程度であった。したがって、SW浸漬した条件でのpHがIEW浸漬した条件でのpHに比べて低下する現象については、Naの影響に比べてMgの影響が大きいものと考えられる。

IEW、MS50、MC50、SWへの浸漬前及び浸漬後の液相Mg濃度及びCa濃度を図2.5.1-10に示す。浸漬前に液相に50mmol/L程度存在していたMgは、液固比10(g/g)での浸漬後では殆ど認められず、液固比100(g/g)では6割程度となった。C-S-Hの溶解に起因する液相Caは、IEW浸漬後には1mmol/L程度であったのに対して、Mg含有液での液固比10での浸漬後には20~70mmol/Lとなり、液固比100(g/g)の浸漬後には10~30mmol/Lとなった。MC50、SWにおいては、浸漬前に対する浸漬後での液相Mgの減少に相当する量のCaが、C-S-Hから溶出した結果となった。MS50での浸漬後の液相Ca濃度がMC50に比べて低いのは、後述の粉末X線回折結果で示すように、固相中でのgypsum($\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$)の析出によるものと考えられる。

IEW、MC50、SW、MS50への浸漬後の粉末X線回折図を、合成C-S-H及びMg/Si比1.0の合成M-S-Hとともに図2.5.1-11に示す。液固比10(g/g)でのC-S-Hに起因するピークについては、IEW浸漬した条件でのピーク強度に比較して、MC50、SW、MS50浸漬でのピーク強度の減少が認められた。C-S-Hのほかに、SW浸漬した条件ではhalite(NaCl)に起因するピークが、MS50浸漬ではgypsumに起因するピークが認められた。図2.5.1-11には、haliteに起因するピーク位置に「H」の記号を付した。一方、液固比100(g/g)でのIEW浸漬した条件ではC-S-Hに起因するピークが認められるのに対して、MC50、SW、MS50浸漬後にはC-S-Hに起因するピークが認められず、M-S-Hに起因するピークが認められた。液固比100(g/g)のSW浸漬でM-S-Hの他に認められたピークは、液固比10(g/g)とは異なりaragonite(CaCO_3)に起因するピークであった。液固比100(g/g)のMS50浸漬した条件でM-S-Hの他に認められたピークはgypsumに起因するものであった。

粉末X線回折において、液固比100(g/g)ではM-S-Hが支配的であったのに対して液固比10(g/g)

ではC-S-Hが支配的であったのは、浸漬前後の液固比が変わらないものと仮定して液相分析結果から固相中のMg/(Ca+Mg)比を試算した結果、液固比100(g/g)の浸漬では5~7割であったのに対して、液固比10(g/g)の浸漬では1割程度であったことを反映していると考えられる。

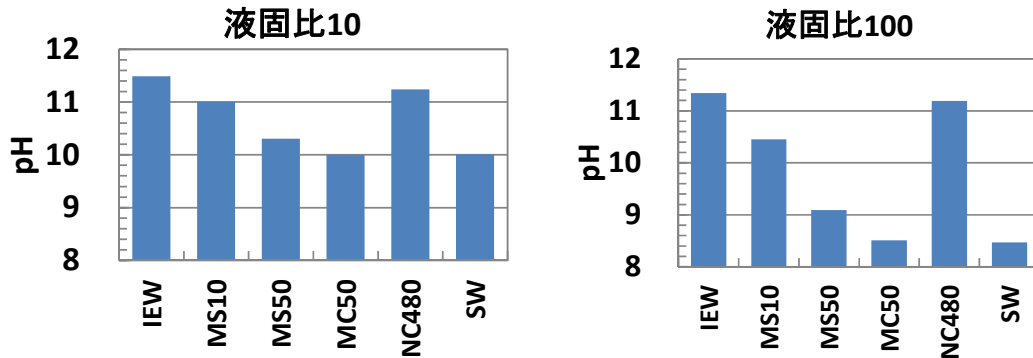


図2.5.1-9 主要海水成分に浸漬したC-S-H浸漬試験での液相pH

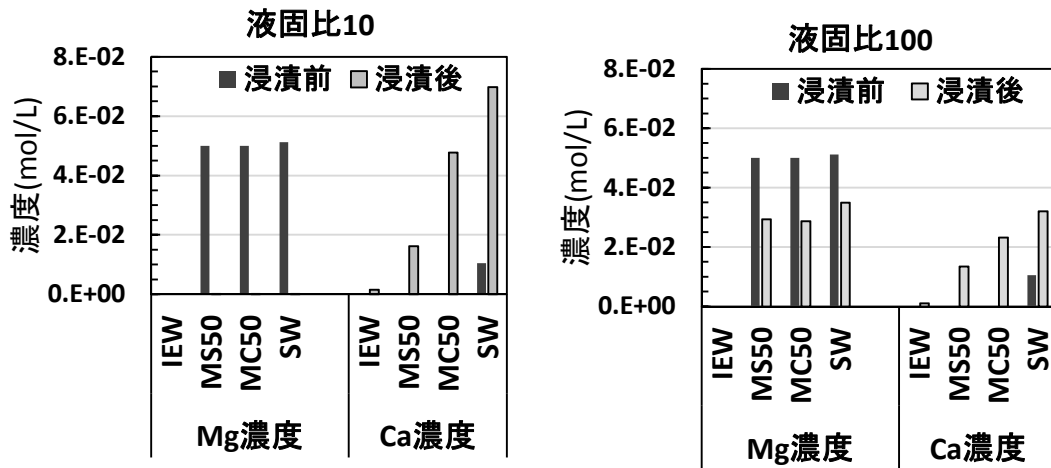


図2.5.1-10 主要海水成分に浸漬したC-S-H浸漬試験での液相Mg及びCa濃度

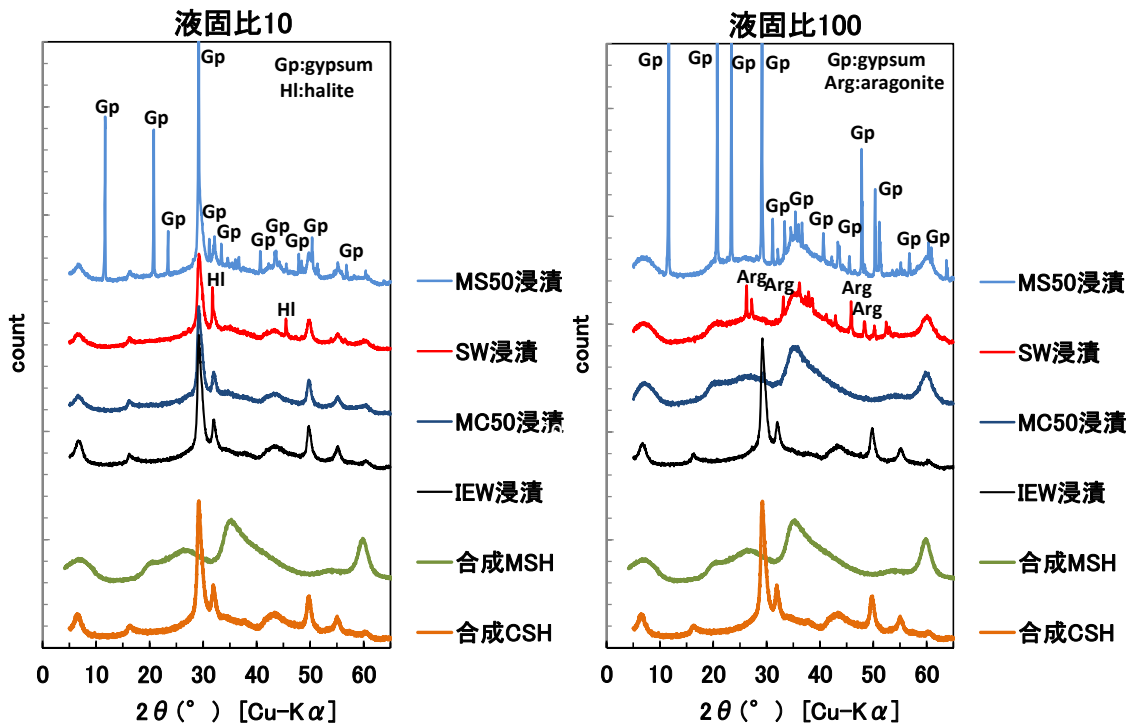


図2.5.1-11 主要海水成分含有液に浸漬したC-S-H浸漬試験での粉末X線回折図

3) 水和物溶解沈殿モデルの見直し

本項では、2.5.1(2)1項及び2)項の検討結果に基づき、平成27年度に構築した水和物溶解沈殿モデル（日本原子力研究開発機構，2016a）におけるM-S-Hの設定、C-S-Hの表面吸着反応の設定、一部の固相の設定を見直すことでモデルの改良を試みた。2.5.1(2)2項に示したC-S-H浸漬実験及び2.5.1(2)冒頭で述べた平成24年度のHFSC硬化体のバッチ式浸漬実験に対する再現計算を実施して、改良後のモデル（以下、平成28年度モデル）の妥当性を検討した。

①平成27年度までに構築した水和物溶解沈殿モデルの概要

平成27年度までに構築した水和物溶解沈殿モデル（以下、平成27年度モデル）の概要を表2.5.1-6に示す。水和物溶解沈殿モデルの一部である、C-S-Hへのアルカリの吸着設定を表2.5.1-7に、初期水和物の設定を表2.5.1-8にそれぞれ示す。

表2.5.1-6 平成27年度モデル

熱力学データベース	JAEA-β TDB v1.06 (for PHREEQC) (付録3参照)
平衡反応に考慮する固相	<ul style="list-style-type: none"> ・Portlandite、CSH(1.65)、CSH(1.55)・・・CSH(0.65)、CSH(0.55)、SiO₂(am) ・ Calcite、Monocarbonate-Al、Hemicarbonate-Al、Gypsum、Monosulfate-Al、Ettringite-Al、Katoite-Al、C4AH13、C4AH19、Stratlingite-Al、Katoite-AlSi080、Hydrotalcite-Al、Brucite、Laumontite-Ca、Analcime-I、Kaolinite、Pyrophyllite、Friedel_Salt、Sepiolite ・ H27MSH、NaOH、KOH
C-S-Hへの吸着	表2.5.1-7に示す
初期水和物の設定	表2.5.1-8に示す。

表2.5.1-7 平成27年度モデルにおけるC-S-Hへの吸着設定

設定項目	設定式
サイト密度	$S = -0.3102 \cdot [\text{Ca/Si比}] + 0.6866$
比表面積	$A = -66.758 \cdot [\text{Ca/Si比}] + 132.58$
プロトン解離	$\text{SiOH} \rightleftharpoons \text{SiO}^- + \text{H}^+ \quad \log K = -12.3$
Ca吸着	$\text{SiOH} + \text{Ca}^{2+} \rightleftharpoons \text{SiOCa}^+ + \text{H}^+ \quad \log K = -9.4$
Na吸着	$\text{SiO}^- + \text{Na}^+ \rightleftharpoons \text{SiONa} \quad \log K = -1.63 \cdot [\text{Ca/Si比}] + 2.715$
K吸着	$\text{SiO}^- + \text{K}^+ \rightleftharpoons \text{SiOK} \quad \log K = -2.3 \cdot [\text{Ca/Si比}] + 3.815$
S吸着	$\text{SiO}^- + \text{Ca}^{2+} + \text{SO}_4^{2-} \rightleftharpoons \text{SiOCaSO}_4^- \quad \log K = 1.5$

表2.5.1-8 平成27年度モデルにおける初期水和物の設定

セメント種類	設定水和物
OPC硬化体	Portlandite、CSH(1.65)、NaOH、KOH、Ettringite-Al、Katoite-Al、Hydrotalcite-Al
HFSC硬化体	CSH(1.05)、CSH(0.95)、NaOH、KOH、Ettringite-Al、Hydrotalcite-Al

②C-S-H浸漬実験の再現計算

本項では、平成27年度モデルに対して、M-S-H溶解モデルは1)項で検討したモデルに変更し、C-S-Hの表面吸着モデルを見直した上で、2)項に示したC-S-H浸漬実験の再現計算を実施した。

上記の浸漬実験について、表2.5.1-9に示す条件においてPHREEQCを用いて再現計算を実施した。熱力学データベースは本事業において開発された「JAEA-β TDB v1.07」(付録3)を用いた。C-S-Hの表面吸着については、表2.5.1-7に示した設定に対して細川らの検討(細川, 2006)に基づき塩化物イオンの吸着を設定し、硫酸イオンの吸着については実験結果に対するフィッティングをもとに、その平衡定数を変更した。C-S-Hの吸着現象に関するこれらの変更点を表2.5.1-10に示す。

表2.5.1-9 C-S-Hの浸漬実験の再現計算条件

データベース	JAEA-β TDB v1.07 (for PHREEQC) (付録3参照)
平衡反応に考慮する固相	<ul style="list-style-type: none"> ・Portlandite、CSH(1.65)、CSH(1.55)・・・CSH(0.65)、CSH(0.55)、SiO2(am) ・ Calcite 、 Monocarbonate-Al 、 Hemicarbonate-Al 、 Gypsum 、 Monosulfate-Al、Ettringite-Al、Katoite-Al、C4AH19、Stratlingite-Al、Katoite-ALSi080、Hydrotalcite-M4A、Brucite、Laumontite-Ca、Analcime、Kaolinite、Pyrophyllite、Friedel_Salt、NaOH(s)、KOH(s) ・ <u>H27MSHモデルをH28MSHモデルに変更</u>
吸着	表2.5.1-7に対して表2.5.1-10の変更を加えた設定
出発固相	実験に準拠 (CSH(0.95)及びCSH(0.85)を1:1の割合とした)
浸漬液相	実験に準拠 (IEW、MS10、MS50、MC50、NC480、SW)
液固比 (g/g)	1~5000

* 下線部は、平成27年度モデルに対して変更を加えた部分

表2.5.1-10 C-S-Hへの吸着設定の変更点

設定項目	設定式
S吸着	$\equiv \text{SiO Ca}^+ + \text{SO}_4^{2-} \rightleftharpoons \equiv \text{SiOCaSO}_4^- \quad \log K = 0.7$
Cl吸着	$\equiv \text{SiO Ca}^+ + \text{Cl}^- \rightleftharpoons \equiv \text{SiOCaCl} \quad \log K = 0.5$

C-S-H浸漬実験における液相について、浸漬実験結果と平成27年度モデルと平成28年度モデルの双方による再現計算結果をあわせて、pHを図2.5.1-12に、Mg濃度を図2.5.1-13に、Si濃度を図2.5.1-14に、Ca濃度を図2.5.1-15にそれぞれ示す。今年度M-S-Hモデルを中心に見直したことで、

Mgを含有するMC10、MS50、MC50、SW浸漬系で再現性の向上が認められた。ただし、Si濃度については、今回のモデル見直しでMg含有系での改善が認められるものの、依然として実験値と計算値が乖離している点も認められる。

本調査で吸着の平衡定数に変更を加えたS濃度を図2.5.1-16に、吸着現象を追加したCl濃度を図2.5.1-17にそれぞれ示す。本調査では、吸着現象の導入に伴い液固比10(g/g)未満の液相濃度が低下する点に留意しつつ、液固比10(g/g)におけるこれらの濃度が変更前に比較して実験結果に近くなるようにパラメータフィッティングを実施した結果として、Cl吸着における平衡定数は細川らの設定値とし、S吸着の平衡定数を変更した。今後、吸着現象が顕著にみられる液固比10(g/g)未満の領域での検証が必要と考えられる。

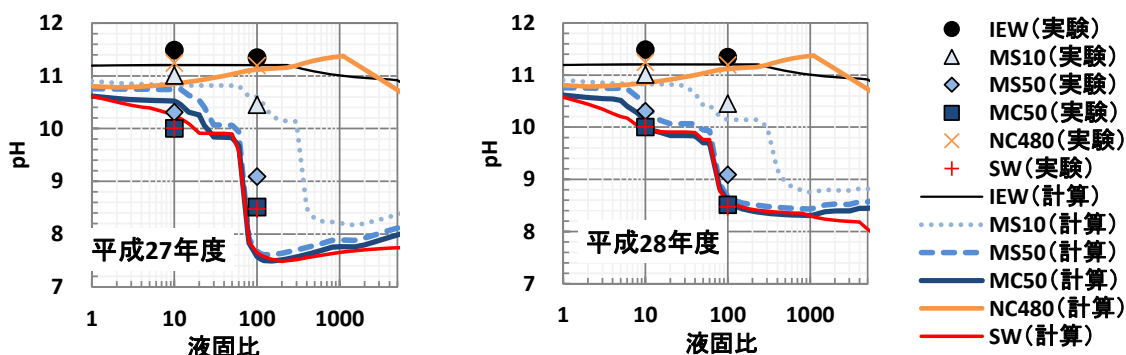


図2.5.1-12 主要海水成分に対するC-S-Hの浸漬試験における液相pH

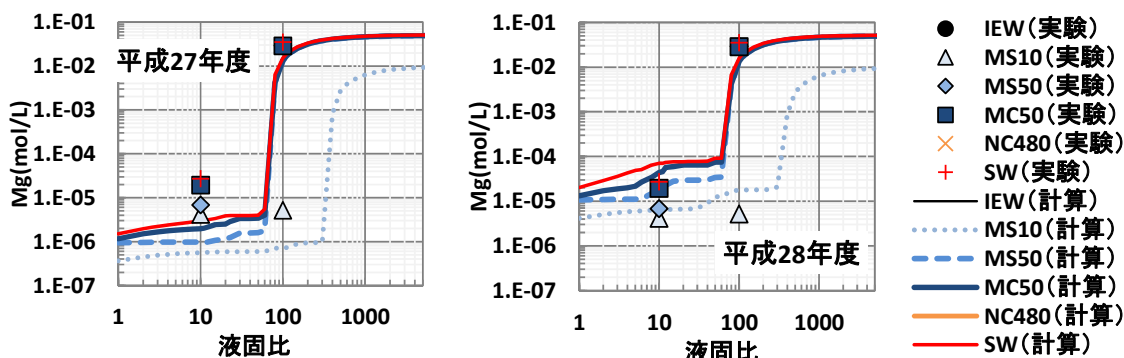


図2.5.1-13 主要海水成分に対するC-S-Hの浸漬試験における液相Mg濃度

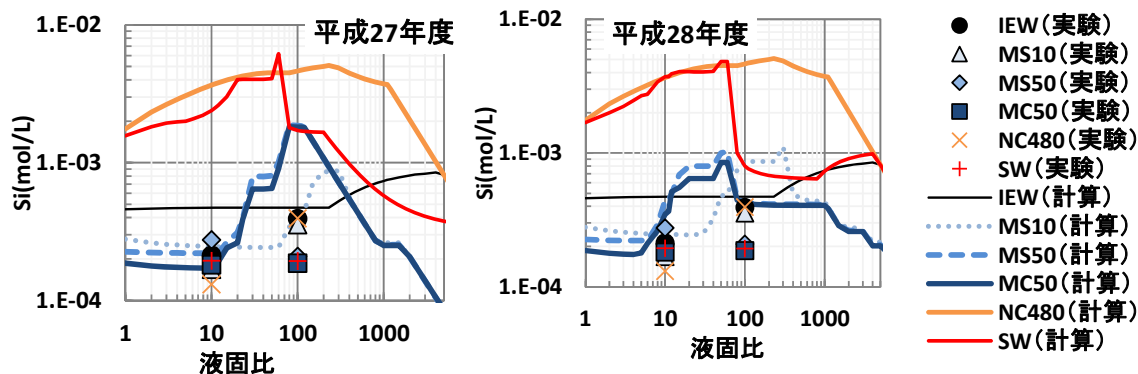


図2.5.1-14 主要海水成分に対するC-S-Hの浸漬試験における液相Si濃度

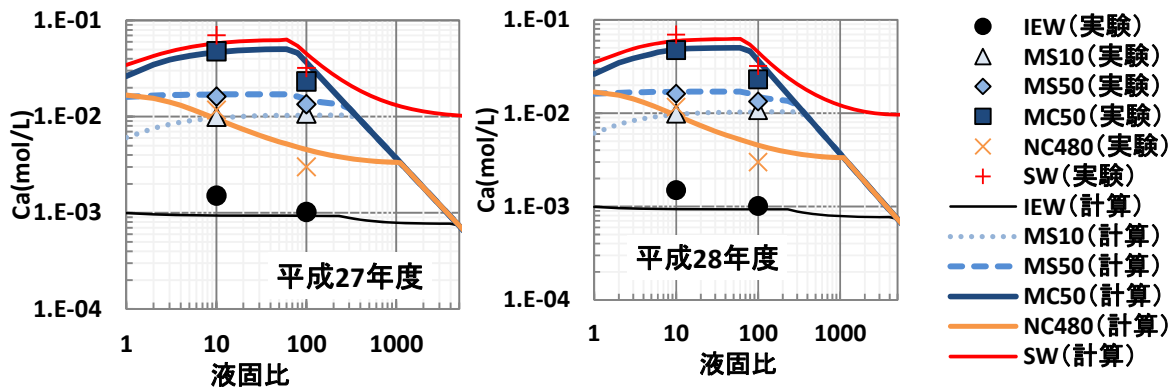


図2.5.1-15 主要海水成分に対するC-S-Hの浸漬試験における液相Ca濃度

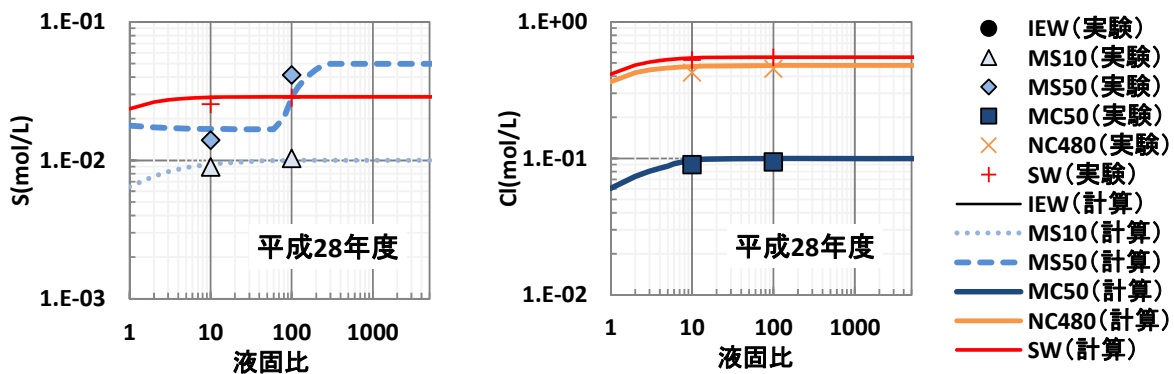


図2.5.1-16 主要海水成分に対するC-S-Hの浸漬試験における液相S濃度

図2.5.1-17 主要海水成分に対するC-S-Hの浸漬試験における液相Cl濃度

③人工海水に対するHFSCの浸漬実験の再現計算

本項では、②項で実施した見直しに加えて、固相の設定方法を見直すことでモデルを改良し、HFSC硬化体を用いたバッチ式浸漬実験の再現計算を実施して改良後のモデルの妥当性を検討した。

表2.5.1-11に示す条件においてPHREEQCを用いて再現計算を実施した。②項で検討した条件に対して、さらに変更を加えた点を以下に示す。平成27年度までに構築した水和物溶解沈殿モデルでの初期水和物の設定では、鉄を含有する水和物については反応性が低いことから考慮していなかった。今年度は、BernerらによるOPCペーストの初期水和物の設定(Berner et al., 1992)に準じてOPCに起因する鉄は「Katoite-Fe(3CaO·Fe₂O₃·6H₂O)」として存在するものとして設定し、Dilnesaらの報告(Dilnesa et al., 2014)に基づき、「Katoite-FeSi084(3CaO·SiO₂·0.84Fe₂O₃·4.32H₂O)」及び「Katoite-FeSi134(3CaO·SiO₂·1.34Fe₂O₃·3.32H₂O)」についても平衡反応に寄与する鉱物として扱った。

表2.5.1-11 HFSCの浸漬実験の再現計算条件

データベース	JAEA-β TDB v1.07 (for PHREEQC) (付録3参照)
平衡反応に考慮する固相	<ul style="list-style-type: none"> ・Portlandite、CSH(1.65)、CSH(1.55)・・・CSH(0.65)、CSH(0.55)、SiO2(am) ・ Calcite、 Monocarbonate-Al、 Hemicarbonate-Al、 Gypsum、 Monosulfate-Al、 Ettringite-Al、 Katoite-Al、 C4AH19、 Stratlingite-Al、 Katoite-AlSi080、 Hydrotalcite-M4A、 Brucite、 Laumontite-Ca、 Analcime、 Kaolinite、 Pyrophyllite、 Friedel_Salt、 NaOH(s)、 KOH(s) ・ H27MSHモデルをH28MSHモデルに変更 ・ Katoite-Fe、 Katoite-FeSi084、 Katoite-FeSi134を追加
吸着設定	表2.5.1-7に対して表2.5.1-10の変更を加えた設定
出発固相	表2.5.1-8に対してKatoite-Feを追加
浸漬液相	実験に準拠 (人工海水)
液固比 (g/g)	1~5000

* 下線部は、表2.5.1-9に対して変更を加えた部分

HFSC硬化体を人工海水に浸漬したバッチ式浸漬実験結果と、平成25年度から平成28年度のモデルによる再現計算結果を図2.5.1-18に示す。pHとMg濃度については、ほぼ全ての液固比において、過去のモデルに比べて平成28年度モデルで再現性が向上していることが分かる。一方、液固比100(g/g)未満のpHの実験値を過大に見積もる傾向は依然としてみられている。また、液相Si濃度については、M-S-Hの未飽和実験及び過飽和実験に対する再現計算の結果(図2.5.1-4及び図2.5.1-7)と同様に、液固比100(g/g)以上の領域で過大に評価する傾向となっており、原因の一つがM-S-Hモデルによるものと考えられる。Bernerの設定に準じて鉄を含有する鉱物を追加した影響については、図2.5.1-19に示すように、追加する前に比較してpHが全体的に若干上昇したが、Si濃度に対する影響はほとんど認められなかった。平衡計算に寄与するものとして用いている鉱物が、液固比が高い領域に対しては依然として適切で無い可能性が考えられることから、今後、鉱物の設定のさらなる見直しを図る予定である。

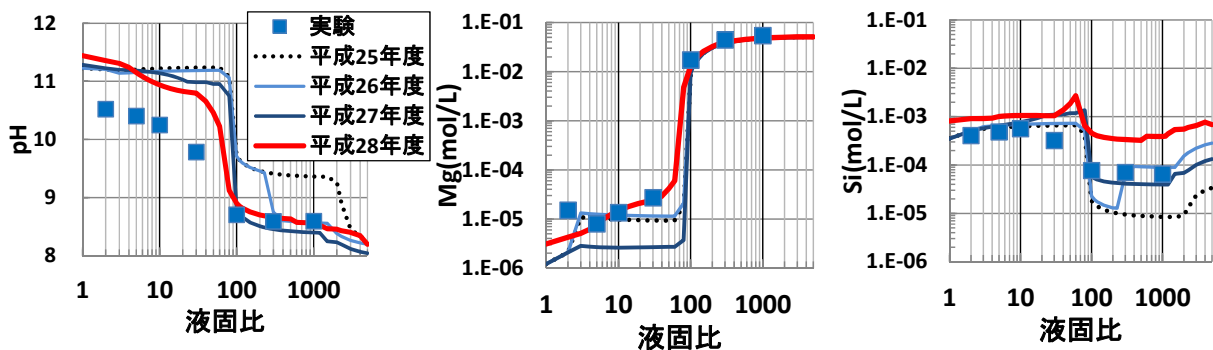


図2.5.1-18 人工海水に対するHFSC硬化体の浸漬試験における液相pH、Mg濃度、Si濃度(既往モデルとの比較)

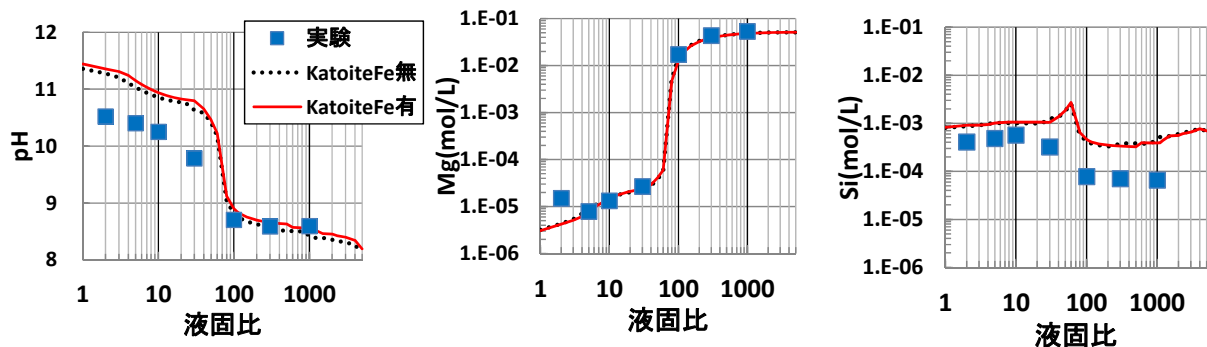


図2.5.1-19 人工海水に対するHFSC硬化体の浸漬試験における液相（Katoite-Fe追加の影響）

以上のように、平成27年度までに開発した水和物溶解沈殿モデルに対して、M-S-Hの固溶体モデルに基づく溶解沈殿モデルとC-S-H表面への吸着反応を見直し、実際の硬化体の水和物に即して鉄含有水和物を追加することで、細部に課題は残るものの、人工海水に対するHFSC硬化体の浸漬実験の計算の再現性を全体的に向上させるとともに、更に改良すべき課題を抽出することができた。

(3) セメント水和反応モデルの開発

既往のセメント水和反応モデルの検討（日本原子力研究開発機構，2015d）では、Shrinking Coreモデルに基づきフライアッシュ及びシリカフュームの水和反応の速度を定式化し、経時的な水和反応に伴い間隙に溶出する成分とその他の水和物が化学平衡モデル（星野ほか，2014）に従って瞬時に平衡に到達することを前提とした水和反応モデルを構築した。当該モデルについては、材齢5年までのフライアッシュとシリカフュームの水和反応に伴う水和物組成の経時変化の傾向を再現できることが示されたが、妥当性の確認は不十分であった。

そこで平成27年度にはモデルの妥当性を確認することを目的として、水和反応の進行に伴い変化する間隙液相組成について実験データとモデルによる計算値を比較し、材齢91日までは変化の傾向が概ね再現されたことが確認された。図2.5.1-20には、OPC：シリカフューム：フライアッシュの重量混合割合を4：2：4とした「HFSC424セメント」のペースト硬化体における間隙液相組成を示す。

平成28年度は、引き続き材齢1年におけるHFSCセメントペースト硬化体に対する圧力荷荷により絞り出した間隙液の組成分析結果と、水和反応モデルによる液相組成計算結果とを比較して信頼性の向上を図った。

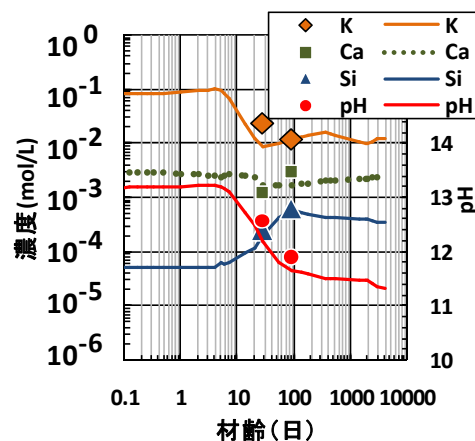


図2.5.1-20 HFSC424硬化体における間隙液相組成（日本原子力研究開発機構，2016a）

1)セメントペースト硬化体の間隙液相及び固相の分析

水和反応モデルの妥当性を検証することを目的とする実験用供試体として、平成27年度に作製された3水準のセメントペースト硬化体（組成の異なる2種類のHFSC及び比較対象としてのOPC）について、その材齢約1年における間隙液相及び固相を分析した。分析方法は平成27年度と同様である。具体的な手順を以下に示す。

セメントペースト硬化体の材料として、OPC（セメント協会製）、シリカフューム（エルケム社製マイクロシリカ940-U）、フライアッシュ（中部電力社製碧南火力発電所産）を用いた。セメントペースト硬化体は、セメント重量に対するイオン交換水の重量比を0.5として均一に練り混ぜたものを密封容器に約20℃で保管することで作製した。本調査で対象としたセメントは、OPCのみからなる「OPCセメント」に加えて、OPC：シリカフューム：フライアッシュの重量混合割合を4:2:4とした「HFSC424セメント」、2:2:6とした「HFSC226セメント」の3水準である。

以上のように作製したセメントペースト硬化体について、練り混ぜてから404日経過したものを対象として分析を行った（以下、「材齢約1年」と呼ぶ）。具体的には、セメントペースト硬化体の表面近傍付近を除き、1cm程度の塊状となるように硬化体を粗砕した（以後、「粗砕試料」と呼ぶ）。間隙液は、粗砕試料に対して専用の治具を用いて最高約400MPaの圧力を載荷することで、硬化体内部から採取し、孔径0.45 μmのPTFE製メンブランフィルターを用いてろ過したものである（圧搾法）。この間隙液に対して、pH7、9、12.5の標準液で校正した複合ガラス電極を用いてpHを測定し、誘導結合プラズマ発光分光分析装置（パーキンエルマー社製Optima8300）により化学組成を測定した。

粗砕試料に対して、熱重量-示差熱分析装置（リガク社製Thermo plus EV02、雰囲気：窒素ガスパーズ（流速300ml/min））を用いて結合水量及びCa(OH)₂の含有量を算出した。粉末X線回折装置（パナリティカル社製X'Pert PRO MPDp、管球：Cu、管電圧：45kV、管電流：40mA、散乱防止スリット：2°、ソーラーズスリット：0.04rad）により鉱物を同定した。フライアッシュ及びシリカフュームの反応率については、酸に対する固相構成成分の溶解挙動の差異に着目して開発された方法（亀井ほか、2007）により測定した。

2)セメント水和反応モデルの妥当性検討

本項では、平成27年度までに開発した水和反応モデル（日本原子力研究開発機構、2016a）に対して、2.5.1(2)項において検討した水和物溶解沈殿モデルを反映させて、HFSC424セメント及びHFSC226セメントの水和反応に伴う間隙液相及び固相の経時的な変化を計算した。2.5.1(3)1項の調査で得られた実験値と比較して、水和反応モデルの一部を見直した。

計算条件を表2.5.1-12に示す。

表2.5.1-12 平成28年度のHFSCの水和反応モデルの概要

データベース	<u>JAEA-β TDB v1.07 (for PHREEQC) (付録3参照)</u>
平衡反応に考慮する固相	<ul style="list-style-type: none"> ・Portlandite、CSH(1.65)、CSH(1.55)・・・CSH(0.65)、CSH(0.55)、SiO₂(am) ・ Calcite、 Monocarbonate-Al、 Hemicarbonate-Al、 Gypsum、 Monosulfate-Al、 Ettringite-Al、 Katoite-Al、 C4AH19、 Stratlingite-Al、 Katoite-AlSi080、 Hydrotalcite-M4A、 Brucite、 <u>Laumontite-Ca、 Analcime</u>、 Pyrophyllite、 Friedel_Salt、 NaOH(s)、 KOH(s) ・ <u>H27MSHモデルをH28MSHモデルに変更</u> ・ <u>Katoite-Fe、 Katoite-FeSi084、 Katoite-134を追加</u>
吸着設定	<u>表2.5.1-7に対して表2.5.1-10の変更を加えた設定</u>
水和反応の概要	完全に水和したOPC硬化体と、Shrinking Coreモデルにより経時的に反応するフライアッシュ及びシリカフェーム起因の溶出成分とが、硬化体の間隙液中において瞬時平衡に到達することを前提とした水和反応モデル
初期固相	<ul style="list-style-type: none"> ・ OPC硬化体 (反応率100%) ・ 未水和フライアッシュ及び未水和シリカフェーム
初期OPC硬化体の水和物設定	<ul style="list-style-type: none"> ・ Portlandite、 CSH(1.65)、 NaOH、 KOH、 Ettringite-Al、 Katoite-Al、 Hydrotalcite-M4A ・ <u>Katoite-Feを追加</u>
シリカフェーム及びフライアッシュの反応	<ul style="list-style-type: none"> ・ いずれも、単一鉱物相と仮定し、Shrinking Coreモデルに基づく経時的な反応式を付与。 ・ Shrinking Coreモデル及びそのパラメータについては付録2で記述

* 下線部は、平成27年度モデルに対して変更を加えた部分

* 囲みは、以下の検討の結果として削除した鉱物

昨年度までと同様に、フライアッシュ及びシリカフェームの反応速度に関する係数を対象としてパラメータフィッティングを実施したが、フライアッシュ及びシリカフェームの反応率及び間隙液相の計算値について、HFSC424及びHFSC226の双方を同時に実測値に近づけるパラメータを見出すことができなかった。表2.5.1-12の条件では、それらの反応率が高まるとともに固相に供給されるSi及びAlは、水和物溶解沈殿モデルにおいて考慮されている水和物のうちCa/Si比の低い「Laumontite-Ca」に供給される計算結果であった。「Laumontite-Ca」は、計算条件によっては材齢1ヶ月程度で生成することとなったが、実環境での生成には非常に長い年月を要する可能性がある。そこで、「Laumontite-Ca」を除外して計算した。

以上のように「Laumontite-Ca」を除外した水和反応モデルにより、材齢約5年までのHFSC424及びHFSC226の双方におけるフライアッシュ及びシリカフェームの反応率は、図2.5.1-21に示すように、実測値との差異が0.1程度以内となった。その際の間隙水のpH及び液相組成(Na、Ca、Si)の計算結果を、実験結果とともに図2.5.1-22に示す。HFSC424でのNa濃度については材齢1ヶ月、3ヶ月では計算結果と実験結果の差異は約 1×10^{-2} (mol/L)であったが、材齢約1年での差は拡大した。HFSC226でのNa濃度は、その差異がさらに拡大して材齢約1年ではオーダーレベルでの差となって

いる。固相の鉍物量の計算結果から、この差異はNaを含有する鉍物である「Analcime」の生成に起因することが判明した。

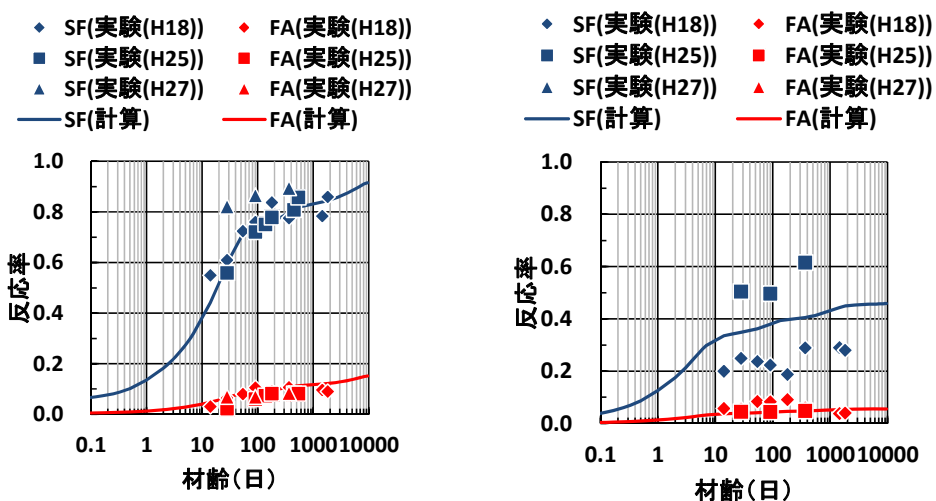


図2.5.1-21 HFSC硬化体におけるフライアッシュ (FA) 及びシリカフェーム (SF) の反応率の経時変化 (Analcime除外前) 左: HFSC424、右: HFSC226

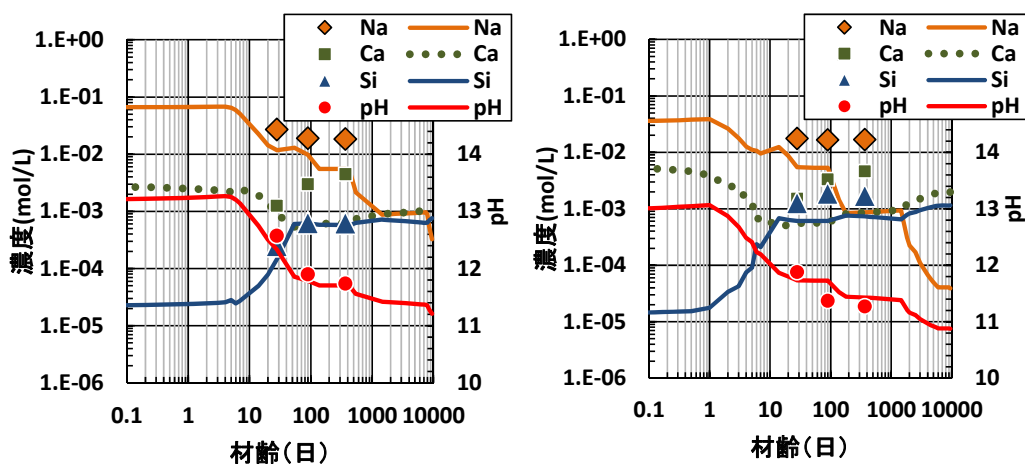


図2.5.1-22 HFSC硬化体における間隙液相組成 (Analcime除外前) 左: HFSC424、右: HFSC226

上記の計算は図2.5.1-21及び図2.5.1-22に示すように、フライアッシュ及びシリカフェームの反応率、液相pH、液相Siについては実験結果との差が小さく、液相Caについてもオーダーレベルでは同程度であった。しかし、「Analcime」は水熱合成での生成が多数報告されている鉍物であることから、「Laumontite-Ca」に加えて「Analcime」も除外して計算することとした。その結果、図2.5.1-24に示すように、液相Na濃度の計算値は、実測値と同程度となったが、図2.5.1-23に示すフライアッシュ及びシリカフェームの反応率、及び図2.5.1-24に示すNa以外の液相成分は「Analcime」を除外する前と同程度であった。

間隙水のpH及び液相組成(K, S, Al)の計算結果を、実験結果とともに図2.5.1-25に示す。K及びS濃度の計算結果は実験結果と同程度であったが、Alについては実験結果との乖離が大きかった。本計算では、Alを含有する鉍物として、HFSC硬化体中에서도検出されている「Ettringite-Al」に加えて、「Hydrotalcite-M4A」、「Stratlingite-Al」、「Katoite-AlSi080」を考慮していた。後

述のように、フライアッシュの反応に伴って「Stratlingite-Al」及び「Katoite-AlSi080」の合計量が増加することとなった。液相Al濃度の計算値が実測値に比較して高いのは、フライアッシュの反応に伴って供給されるAl量が、「Stratlingite-Al」及び「Katoite-AlSi080」の生成によって消費されるAl量に対して過剰であることを示しているものと考えられる。一方、実際のセメント水和物におけるAlはC-S-Hに固溶するものと考えられている(Richardson et al., 1992)ので、こうした現象をモデルに取り組んでいないことがAlの乖離の原因のひとつとして考えられる。

固相の鋳物量の計算結果を図2.5.1-26に示す。図2.5.1-26では、「Stratlingite-Al」及び「Katoite-AlSi080」の合計量を「C-A-S-H」と表記している。本計算では、シリカフェーム及びフライアッシュの反応に伴って、材齢数日でポルトランドイトが消失し、C-S-H及び「C-A-S-H」が生成する計算結果となった。C-S-HのCa/Si比は、HFSC424については材齢91日までに0.95程度に低下、HFSC226については約10日までに0.95程度に低下する計算結果となり、その低下が材齢28日での間隙液相のpHに反映されたものと考えられる。ただし、HFSC424については材齢28日の時点でポルトランドイトが残存していた実測例(日本原子力研究開発機構, 2014b)もあることを踏まえれば、材齢数日で消失する計算結果は実際の硬化体の水和反応に比較して早期に進行しているものと考えられる。

間隙のpH及び液相組成について、圧搾法で得た実験結果と比較すれば、水和反応モデルによる計算結果はセメント材料(HFSC424またはHFSC226)及び材齢(28日、91日、約1年)が与える影響を、概ね再現しているものと考えられる。しかし、Al濃度のように計算値と実測値が乖離している成分が存在し、主要元素であるCaの再現性も良好とはいえない。今後、Alを取り込みうる鋳物を選定するなど平衡計算で考慮する水和物の見直しや、長期材齢における実験結果との比較などを通じて再現性のさらなる向上を図る必要がある。

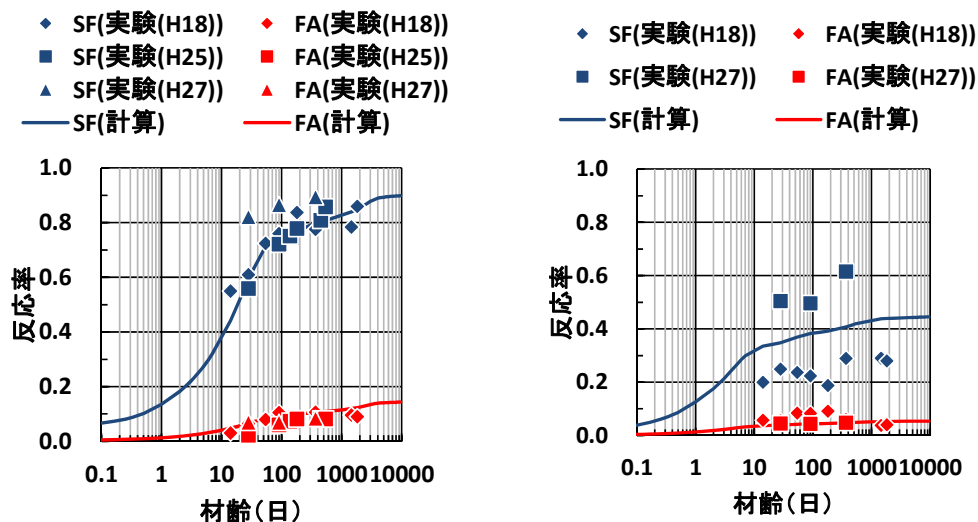


図2.5.1-23 HFSC硬化体におけるフライアッシュ(FA)及びシリカフェーム(SF)の反応率の経時変化(Analcime除外後) 左: HFSC424、右: HFSC226

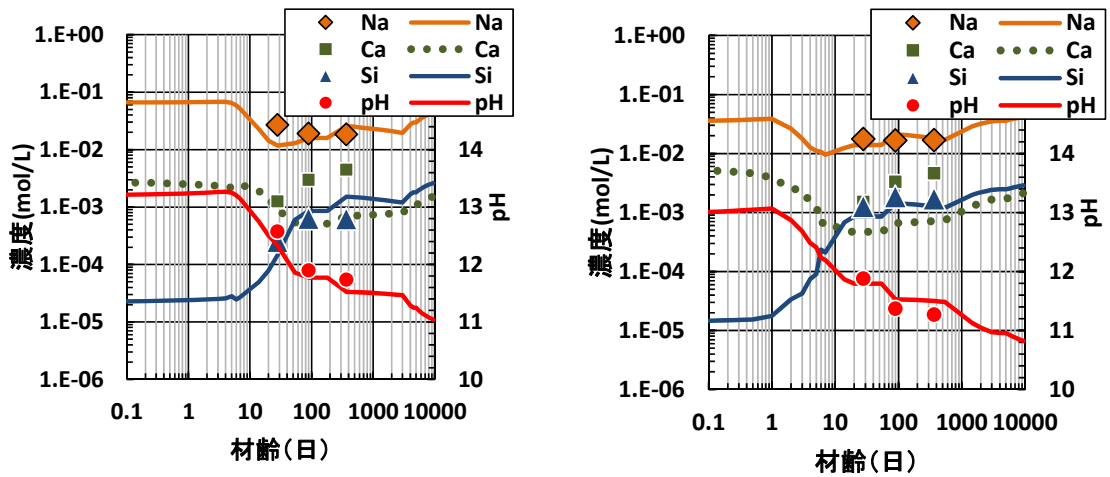


図2.5.1-24 HFSC硬化体における間隙液相組成(1) (Analcime除外後) 左: HFSC424、右: HFSC226

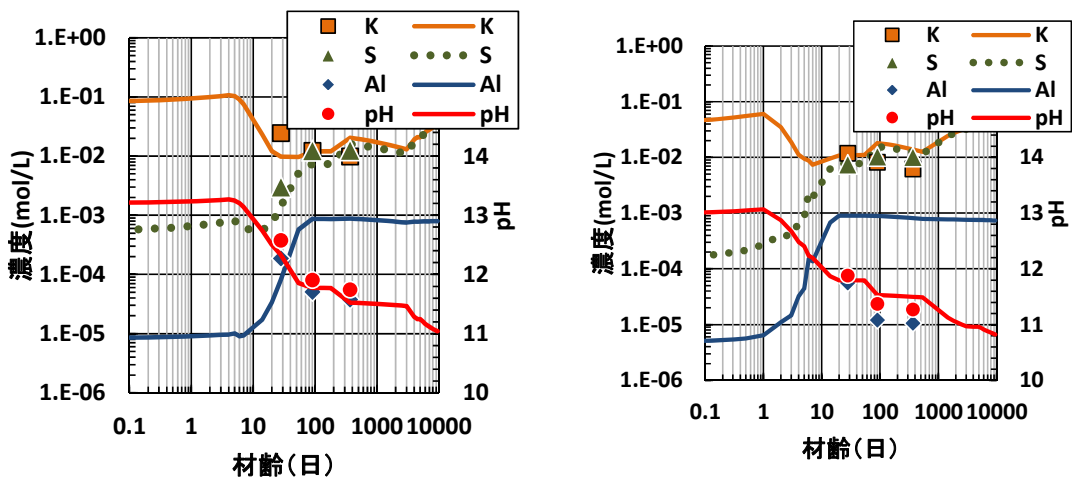


図2.5.1-25 HFSC硬化体における間隙液相組成(2) (Analcime除外後) 左: HFSC424、右: HFSC226

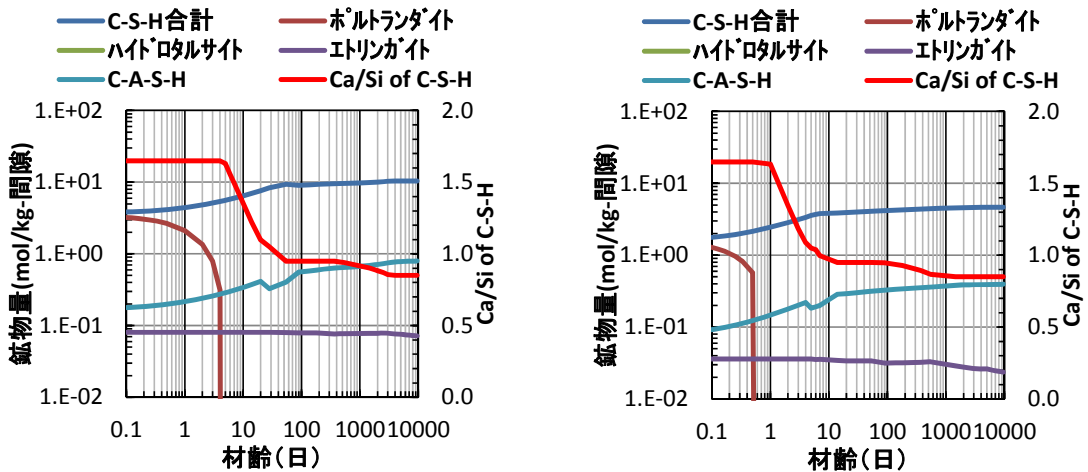


図2.5.1-26 HFSC硬化体における固相の鉱物量 左: HFSC424、右: HFSC226

以上のように、平成27年度までに構築した水和反応モデルに対して、(2)項で開発した水和物溶解沈殿モデルを反映し、平衡反応に考慮する水和物を見直した結果、材齢約1年までの実験結果と整合的な計算結果を得ることができた。

2.5.2 セメント系材料の力学挙動評価モデル開発

(1) 背景と目的

本節の冒頭で述べたように、処分施設にセメント系材料を用いることでセメント系材料を含むバリア材料に化学的変質が生じると、これに伴い剛性や強度などの力学的特性も変化し、処分施設の長期力学挙動に影響を与える可能性がある。このような課題について、第2次TRUレポート（電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構，2005）では、セメント系材料からのCa溶脱による剛性・強度の低下、及びベントナイト緩衝材のCa型化による膨潤性能の変化等、バリア材料の化学的変質挙動を考慮に入れてニアフィールドの長期力学挙動評価を行った。この評価では、化学-物質輸送解析との連成解析を行わず、化学的変質解析の結果に基づき、力学特性を設定して解析を行っているのみであるため、化学的現象、物質輸送現象及び力学的現象に跨るフィードバックループを含む非線形挙動は考慮されていない。このようなバリア材料の非線形的な変質・変形挙動を示す現象の一つとして、廃棄体パッケージの容器や構造躯体等に使用される金属材料の腐食膨張によって、周囲のセメント系材料において引張応力が作用することにより、ひび割れが発生する現象が挙げられる。個々のひび割れが連結して施設全体を貫通すると、ひび割れを流路として地下水が流れることによってひび割れ面からのCaの溶出が起これると考えられる。これにより、剛性と強度が低下して新たなひび割れが発生すると、流入する地下水の量が増加し、さらにCa溶出が促進される可能性がある。

こうした観点から、処分施設の長期力学挙動とそれに伴う物質輸送特性の変化を評価する技術開発の一環として、セメント系材料におけるCa溶出による剛性・強度の低下と、金属の腐食膨張等によりセメント系材料に割れが発生する現象を考慮できる力学挙動解析技術の開発を行った（日本原子力研究開発機構，2012；2013d；2014b；2015c；2015d）。TRU廃棄物処分施設を対象とする長期力学解析を行うために開発された有限要素解析コードであるMACBECE2014（Mechanical Analysis considering Chemical transition of BEntonite and CEment materials（2014））は、Ca溶脱によるコンクリートの剛性・強度の低下を考慮できる非線形弾性体モデルが組み込まれた公開コードであるMACBECE（三原ほか，2010）をベースとして開発されており、Ca溶脱による剛性・強度の低下と、せん断・圧縮破壊後の応力再配分及び引張りひび割れによる剛性低減を考慮した力学解析が可能である（平野ほか，2016）。

他方、上記の連続体モデルを不連続体モデルによる解析と組み合わせることにより、力学的変形によるひび割れなどの局所的な不連続体化現象を対象とする力学解析手法が検討されている（日本原子力研究開発機構，2014b；2015c；2015d）。この評価手法では、不連続体モデルとして、粒状体個別要素法（Distinct Element Method:DEM）を採用し、MACBECE2014により求められるセメント系材料周辺の材料の力学挙動による変位情報を境界条件として反映することにより、TRU廃棄物処分施設を対象とする解析を実施している。TRU廃棄物処分坑道断面を対象とした長期力学解析について、MACBECE2014単独の解析結果と、MACBECE2014の解析結果から鉄腐食膨張と岩盤クリーブの変位情報を境界条件として反映し、セメント系材料の部分のみをDEMを用いて解析を行った結果を図2.5.2-1に示す。いずれの解析手法でも、廃棄体領域の角から坑道外側に向かってひび割れが発生し始めるという点においては、MACBECE2014による解析結果とDEMの解析結果は整合的である。しかしながら、MACBECE2014の解析では、割れの発生範囲の全要素が割れるという評価結果となっており、現実のひび割れ発生挙動（割れ発生による応力解放とそれによる空間的局在化

等)との乖離が見られる(日本原子力研究開発機構, 2015c)。一方、MACBECE2014の解析結果をDEMの解析モデルに反映させる解析手法では、ひび割れが生じた場合の応力が解放されることにより、割れの分布が局所的になる現実的な破壊挙動を表すことができているものの、DEMによる解析は一般的に計算負荷が大きく(清水ほか, 2014; Potyondy et al., 2004)、このような手法に限定して処分施設断面の大領域を対象とする計算を行うことは合理的ではないと考えられる。

上記の観点から、平成27年度においては、処分施設全体の性能評価解析の場の状態を設定するための基本となる解析手法である連続体モデルによる力学解析ツールを用いて、セメント系材料における局在化した割れの発生を表現するための技術開発を行った(日本原子力研究開発機構, 2016a)。具体的には、セメント系材料に対してひび割れ判定された要素に解放力を与える解析が可能となるように、上記に示したMACBECE2014の改良を行った。長期力学解析の結果の例として、セメント系材料における要素状態図を図2.5.2-2に示す。解放力を载荷する解析を行うことにより、ひび割れが局所的な分布をもって進展していく結果となり、図2.5.2-1で示したDEMによる割れの発生・進展挙動の解析結果と近い挙動を示す結果が得られた。しかしながら、平成27年度に開発したモデルでは、ひび割れ発生の原因となる鉄の腐食膨張挙動については、処分場閉鎖直後から鉄腐食生成物の弾性係数を用いて、弾性体モデルで膨張応力を解析しており、鉄が残留している状態では膨張応力を過小に評価している可能性が考えられる。また、セメント系材料においては、引張応力が引張強度を超える場合にひび割れが発生すると判定していたが、Ca溶脱による引張強度の低下については考慮していなかった。このことは、本項の冒頭で示した、化学的現象および物質輸送現象に跨る非線形挙動を対象とする場合に特に重要な課題であると考えられた。

こうした観点から、平成28年度においては、鉄が腐食する以前の剛性と腐食生成物の剛性を想定した要素を直列に結合する手法により、腐食の進行の程度に応じた等価な弾性係数を算出して腐食膨張解析を行う機能を追加すると共に、Ca溶脱率の依存性が考慮された引張強度をひび割れ発生の判定基準とできるように昨年度改良を加えたMACBECE2014に対して更なる改良を加えた。本項では、この検討の成果を示す。

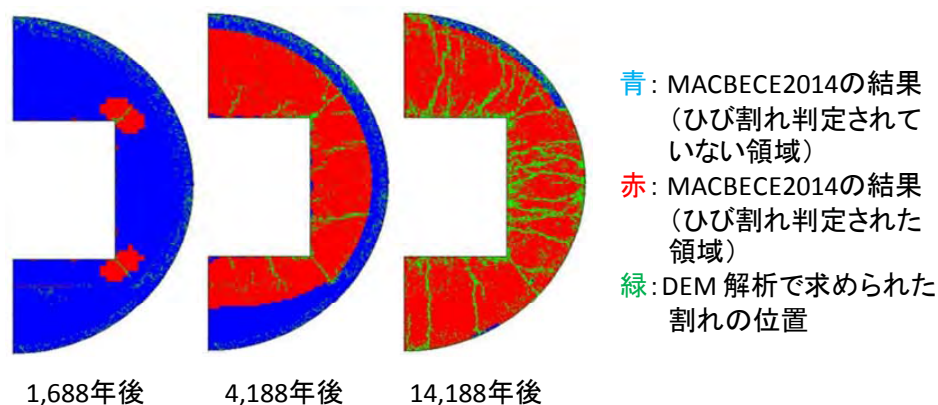


図2.5.2-1 DEMとMACBECE2014のひび割れ進展状況の比較

(日本原子力研究開発機構(2015c)を一部加工。緩衝材を用いない処分施設を対象とした解析結果の例を示す)

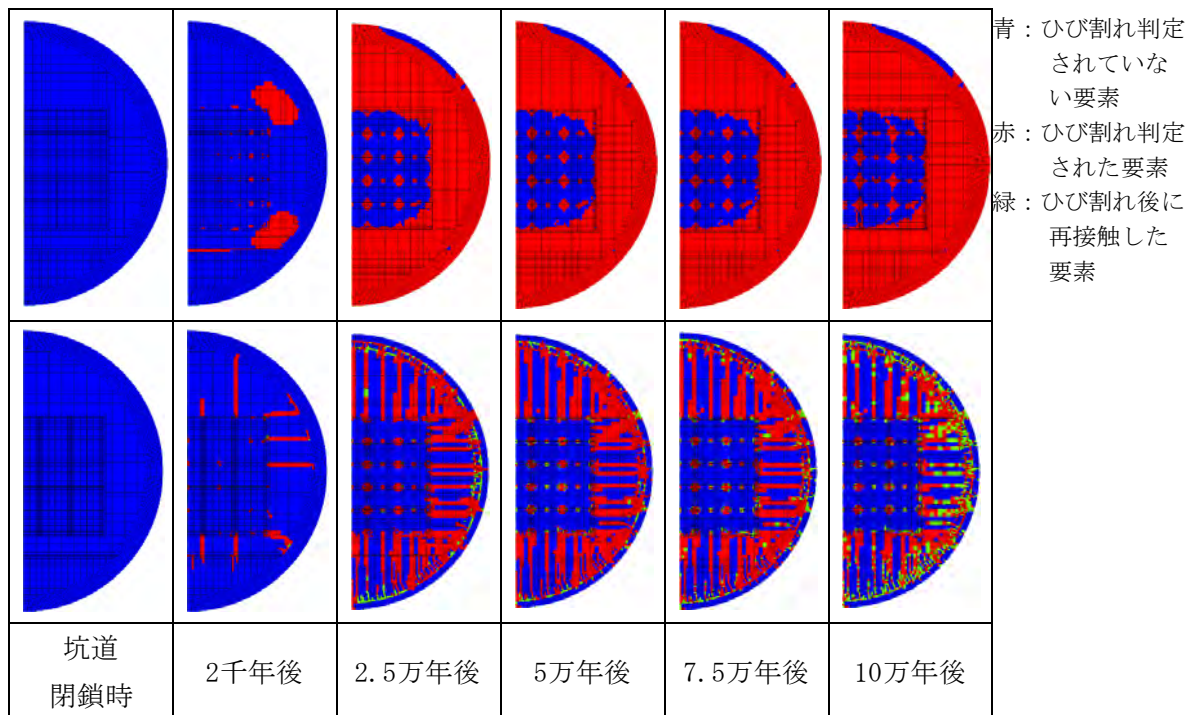


図2.5.2-2 セメントのひび割れ発生・進展の解析例（日本原子力研究開発機構，2016a）
（上段：解放力を載荷しないケース、下段：解放力を載荷するケース）

(2) セメント系材料におけるひび割れの発生を考慮できる評価手法の開発

1) 腐食膨張モデルの改良

鉄が腐食して腐食生成物に変化した部分と、腐食する以前の健全な鉄が残留している部分の体積割合に応じて、直列ばねの考え方により剛性を算定するモデルを平成27年度に改良したMACBECE2014に導入した。このモデルにおける腐食膨張要素の等価弾性係数： E^* を以下に示す。

$$E^* = \left(\frac{E_0 E_{cor}}{E_{cor} (V - V_{cor}) + E_0 V_{cor}} \right) V = \frac{E_0 E_{cor}}{E_{cor} (1 - V_{cor}/V) + E_0 (V_{cor}/V)} \quad (2.5.2-1)$$

ここで、 E_0 ：健全部分の弾性係数、 E_{cor} ：腐食部分の弾性係数、 V ：部材の体積、 V_{cor} ：部材の腐食部分の体積である。腐食速度等から求められる部材のひずみ速度と、腐食膨張率等から算定した V_{cor}/V を上式の E^* に反映させて膨張力を算出する解析を繰り返す手法により、腐食の進展と共に、腐食膨張要素の等価弾性係数が低下しつつ膨張する挙動をモデル化した。なお、上記のひずみ速度および腐食膨張率は、インプットとして与えられるパラメータである。改良した腐食膨張モデルを用いて、単純な1要素を対象とする検証解析を行った結果、腐食の進展に伴い変化する腐食膨張要素の剛性が理論値と一致することが確認できた。

2) Ca溶脱率による引張強度の変化のモデル化

Ca溶脱率に対する引張強度の依存性は、圧縮強度の依存性と同様であるとの試験結果が報告されている（Babaahmadi et al., 2015）。これを踏まえ、既にMACBECE2014でモデル化されている

圧縮強度のCa溶脱率依存性（例えば、奥津ほか(2005)）と同様に、引張強度をCa溶脱率の関数として、以下に示すように定式化した。

$$\sigma_t = \sigma_{t0} \times \alpha_{St} \times R_{Sp} \quad (2.5.2-2)$$

$$\alpha_{St} = 1 - (Lc/100) \times \left(1 - R_{St(Lc=100)} / R_{Sp(Lc=100)}\right) \quad (2.5.2-3)$$

$$R_{St(Lc=100)} = \sigma_{t(\min)} / \sigma_{t0} \quad (2.5.2-4)$$

$$R_{Sp} = \exp(-0.0762 \times a \times Lc) \quad (2.5.2-5)$$

$$a = 1.038 \exp(-0.0135 \times (W/C)) \quad (2.5.2-6)$$

ここで、 σ_t ：引張強度、 σ_{t0} ：初期引張強度、 $\sigma_{t(\min)}$ ：最小引張強度、 Lc ：Ca溶脱率（%）、 W/C ：水セメント比（%）である。

(3) 地層処分対象となる廃棄物の処分施設の長期力学解析

(2)で示した解析コードにより、地層処分対象となる廃棄物の処分施設を対象とする長期力学解析を実施した。解析は、TRU廃棄物処分施設の緩衝材を用いない処分概念を対象とした。既往の検討（平野ほか，2016；日本原子力研究開発機構，2016a）と同様に、セメント系材料のCa溶脱率および間隙率が処分後10万年後まで時間に対して線形に変化するものと仮定して、Ca溶脱が進み、剛性および圧縮強度が低下することによってひずみが増加する挙動（三原ほか，2010）と、鉄腐食膨張による引張応力でセメント系材料にひび割れが発生する挙動を同時に考慮する解析を行った。さらに、これらの力学的挙動の帰結として生じる透水係数の変化についても、既往の検討（平野ほか，2016）と同様の手法により評価を行った。

1) 解析ケースおよび解析モデル・解析条件の設定

対象とする解析ケースを表2.5.2-1に示す。(2)で示したモデルにより、セメント系材料のCa溶脱による引張強度の低下を考慮する場合（以下、ケース1）と、鉄の腐食の進展に伴う腐食膨張要素の等価弾性係数の低下を考慮する場合（以下、ケース2）の二つのケースについて解析を行った。比較のために、これらの影響を考慮しないケース（以下、標準ケース）についても解析を行った。それ以外の条件については、これら3つのケースで共通とした。

解析メッシュについては、第2次TRUレポートにおける坑道の設計を基本とした。解析メッシュを図2.5.2-3に示す。坑道の中央に廃棄体パッケージを25個積み重ね、その周囲をコンクリートで埋め戻す体系とし、対称性を考慮して半断面でモデル化した。廃棄体充填材をセメントモルタル（ $W/C=55\%$ と想定）とし、支保工、覆工、坑道埋戻し材およびインバートをコンクリート（ $W/C=45\%$ と想定）として、平成27年度の検討と同様に、ひび割れ後に解放応力を載荷する手法で計算を行った。コンクリートおよびモルタルの仕様については、第2次TRUレポートと同様とした。セメン

ト系材料のCa溶脱率・間隙率については、既往の検討（平野ほか，2016；日本原子力研究開発機構，2016a）と同様に、処分後10万年後まで時間に対して線形に増加すると仮定し、これにより剛性・圧縮強度が低下してひずみが増加する挙動と、透水係数の変化を評価するものとした。

廃棄体パッケージの鉄とドラム缶の鉄の容器については、厚さをそれぞれ5mmと1.6mmとし、これらの鉄材料の腐食が処分後に進展することを想定して、前項で示した鉄腐食膨張モデルによる腐食膨張解析を行った。周辺岩盤としては堆積岩（SR-C）を想定し、既往の検討と同様に大久保モデルで岩盤クリープを考慮するものとした（平野ほか，2016；日本原子力研究開発機構，2016a）。なお、処分施設閉鎖後の応力状態は、処分施設の建設・操業段階での、坑道掘削時の地山からの解放応力、人工バリア材料の自重载荷等の影響を受けて定まることから、ここでは、既往の検討（平野ほか，2016；日本原子力研究開発機構，2016a）を参考に、処分施設の建設操業に伴う応力場の変化を考慮に入れて長期力学解析の初期状態を設定した。

セメント系材料と腐食膨張要素および岩盤に対する物性値については、既往の検討（平野ほか，2016；日本原子力研究開発機構，2016a）を参考に設定した。但し、前項で示したモデルの改良に伴い必要となる物性値として、セメント系材料の最小引張強度（Ca溶脱率100%における引張強度の値）および鉄の弾性係数を追加した。これらの物性値を表2.5.2-2、表2.5.2-3、表2.5.2-4および表2.5.2-5にそれぞれ示す。

表2.5.2-1 長期力学解析の解析ケース

標準ケース	Ca溶脱によるセメント系材料の引張強度の低下および鉄の腐食の進展による腐食膨張要素の剛性の低下のいずれも考慮しない。
ケース 1	Ca溶脱によるセメント系材料の引張強度の低下を考慮する。鉄の腐食の進展による腐食膨張要素の剛性低下については考慮しない。
ケース 2	Ca溶脱によるセメント系材料の引張強度の低下については考慮しない。鉄の腐食の進展による腐食膨張要素の剛性低下を考慮する。

表2.5.2-2 長期力学解析におけるセメント系材料の物性値（処分施設閉鎖前）

	支保工	覆工 / インバート	埋戻し材	廃棄体充填材
単位体積重量 (kN/m ³)	24.1	24.1	24.1	38.5
ヤング率 (MPa)	4.80×10 ³ : 若材齢値 3.04×10 ⁴ : 通常値	3.04×10 ⁴	3.04×10 ⁴	1.75×10 ⁴
ポアソン比	0.2	0.2	0.2	0.2
引張強度 (MPa)	4.3	4.3	4.3	3.5
ひび割れ後の剛性低下率	1/100	1/100	1/100	1/100

表2.5.2-3 長期力学解析におけるセメント系材料の物性値（処分施設閉鎖後）

	支保工 / 覆工 / インバート / 埋戻し材	廃棄体充填材
初期ヤング率 (MPa)	3.04×10^4	1.75×10^4
ポアソン比 [降伏前]	0.20	0.20
[降伏後]	0.45	0.45
初期粘着力 (MPa)	21.5	17.5
初期内部摩擦角 (deg.)	0	0
初期圧縮強度 (MPa)	43	35
最小圧縮強度 (MPa)	0.43	0.35
骨材容積割合 (%)	67	54
気乾単位容積重量 (kN/m ³)	22.8	20.9
初期引張強度 (MPa)	4.3	3.5
最小引張強度 (MPa)	0.043	0.035
ひび割れ後の剛性低下率	1/100	1/100
水の動粘性係数 (m ² /s)	1.0×10^{-6}	1.0×10^{-6}
ひび割れ本数 (1要素当り)	1.0	1.0

表2.5.2-4 長期力学解析における鉄（腐食膨張要素）の物性値

	廃棄体パッケージ容器 / ドラム缶
腐食速度 ($\mu\text{m}/\text{y}$)	0.02
腐食膨張率	3.2
鉄要素の弾性係数 (MPa)	2.1×10^5
腐食要素の弾性係数 (MPa)	2.5×10^2
腐食要素のポアソン比	0.333

表2.5.2-5 長期力学解析における岩盤の物性値

	軟岩 (SR-C)
単位体積重量 (kN/m ³)	22.0
一軸圧縮強度 (MPa)	15.0
引張強度 (MPa)	2.1
初期ヤング率 (MPa)	3.50×10^3
初期ポアソン比 (-)	0.30
延性のパラメータ (-)	5.0
時間依存性のパラメータ (-)	20.0
ピーク強度到達時間 (sec.)	120.0
初期上載圧 (MPa)	11.0
側圧係数 (-)	1.066

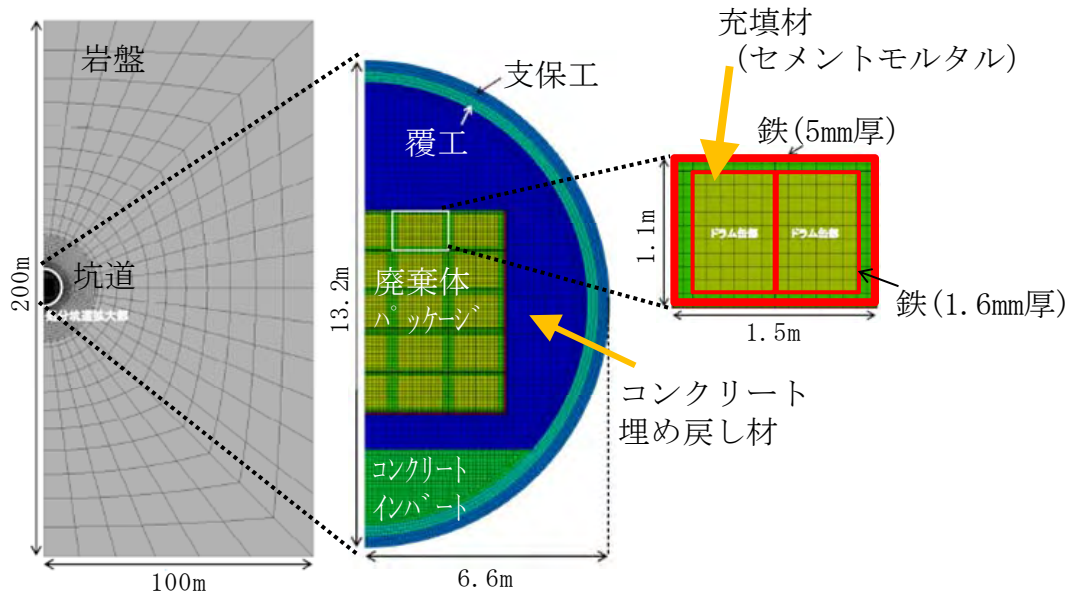


図2.5.2-3 TRU廃棄物処分施設を対象とする長期力学解析の解析メッシュ

2) 解析結果

長期力学解析の解析結果の一例として、セメント系材料のひび割れの開口幅分布を図2.5.2-4に示す。Ca溶脱によるセメント系材料の引張強度の低下および鉄の腐食の進展による腐食膨張要素の剛性の低下のいずれも考慮しない「標準ケース」では、処分後2千年時点で、廃棄体領域の角部において施設外部まで貫通するひび割れが2本発生し、2.5万年経過後においては、更に開口幅の大きい貫通性のひび割れが6本発生する結果となったが、それ以降は、いずれのひび割れも閉塞に向かう傾向を示した。これは、比較的板厚が薄いドラム缶の腐食膨張が終了して廃棄体パッケージの容器のみが腐食膨張に寄与すること等により、岩盤クリープによる変形量が優勢となるためであると考えられる。

Ca溶脱によるセメント系材料の引張強度の低下を考慮する「ケース1」では、ひび割れ発生の判定基準となる引張強度が時間と共に低下することにより、標準ケースと比較して、処分後2.5万年までで貫通性のひび割れの発生本数が著しく増加する結果が示された。他方、ひび割れが広範囲で発生し、局所的な応力の集中が起こりにくい状態となったために、「標準ケース」と比較して、より小さな開口幅のひび割れが多数発生する結果となった。処分後5万年以降における、岩盤クリープ等の外圧によるひび割れの閉塞については「標準ケース」と同様の傾向を示した。

鉄の腐食の進展による腐食膨張要素の剛性低下を考慮する場合では、本項(2)の1)で示したように、鉄が全て腐食する以前の状態では、残留している健全な鉄の弾性係数と腐食生成物の弾性係数から求められる等価弾性係数を用いて、周辺のセメント材料に載荷される膨張応力が計算されることから、より開口幅の大きなひび割れが広範囲に発生する可能性が考えられた。しかしながら「ケース2」の解析では、処分後2千年でのひび割れの発生本数が「標準ケース」と比較してわずかに増加するのみであり、その後のひび割れの発生・進展の挙動は「標準ケース」とほぼ同様の傾向を示した。この理由として、腐食の進展に伴い、腐食膨張要素の剛性が低下して周辺のコンクリートに載荷される膨張応力が低下したこと、および、セメント系材料のCa溶脱が進行して剛性が低下することにより、腐食膨張に対する応力緩衝効果が作用したこと等が考えられる。

力学的変形挙動の帰結として生じるバリア材料全体の透水係数の変化の一例を図2.5.2-5に示す。「標準ケース」「ケース1」「ケース2」のいずれの解析ケースにおいても、平成27年度の検討結果と同様に、ひび割れの開口幅の分布と対応して、局所的に透水係数が上昇する挙動と、Ca溶脱により、セメント系材料全体で透水係数が時間の経過と共に徐々に上昇していく挙動が確認できた。

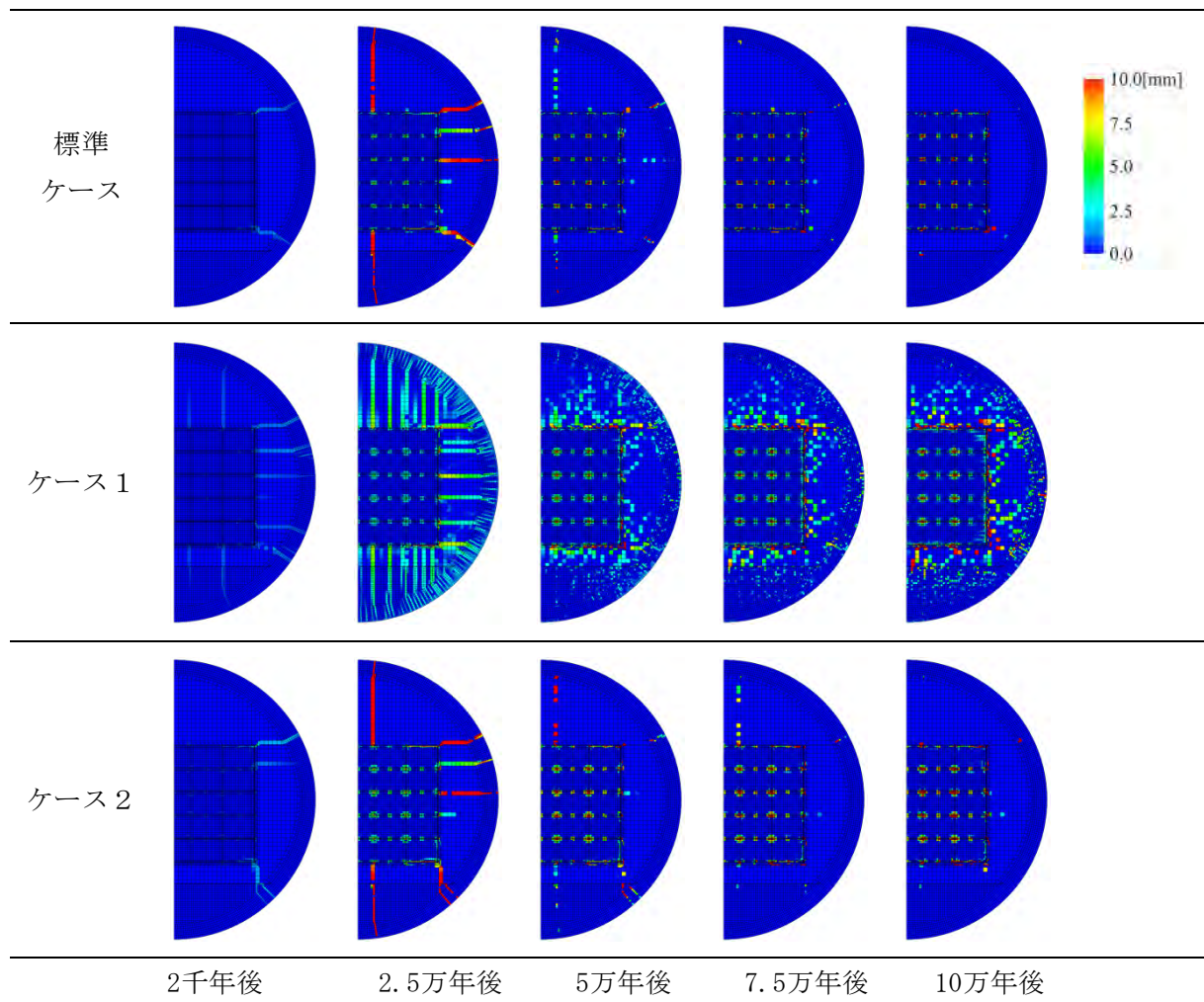


図2.5.2-4 セメント系材料のひび割れの開口幅分布

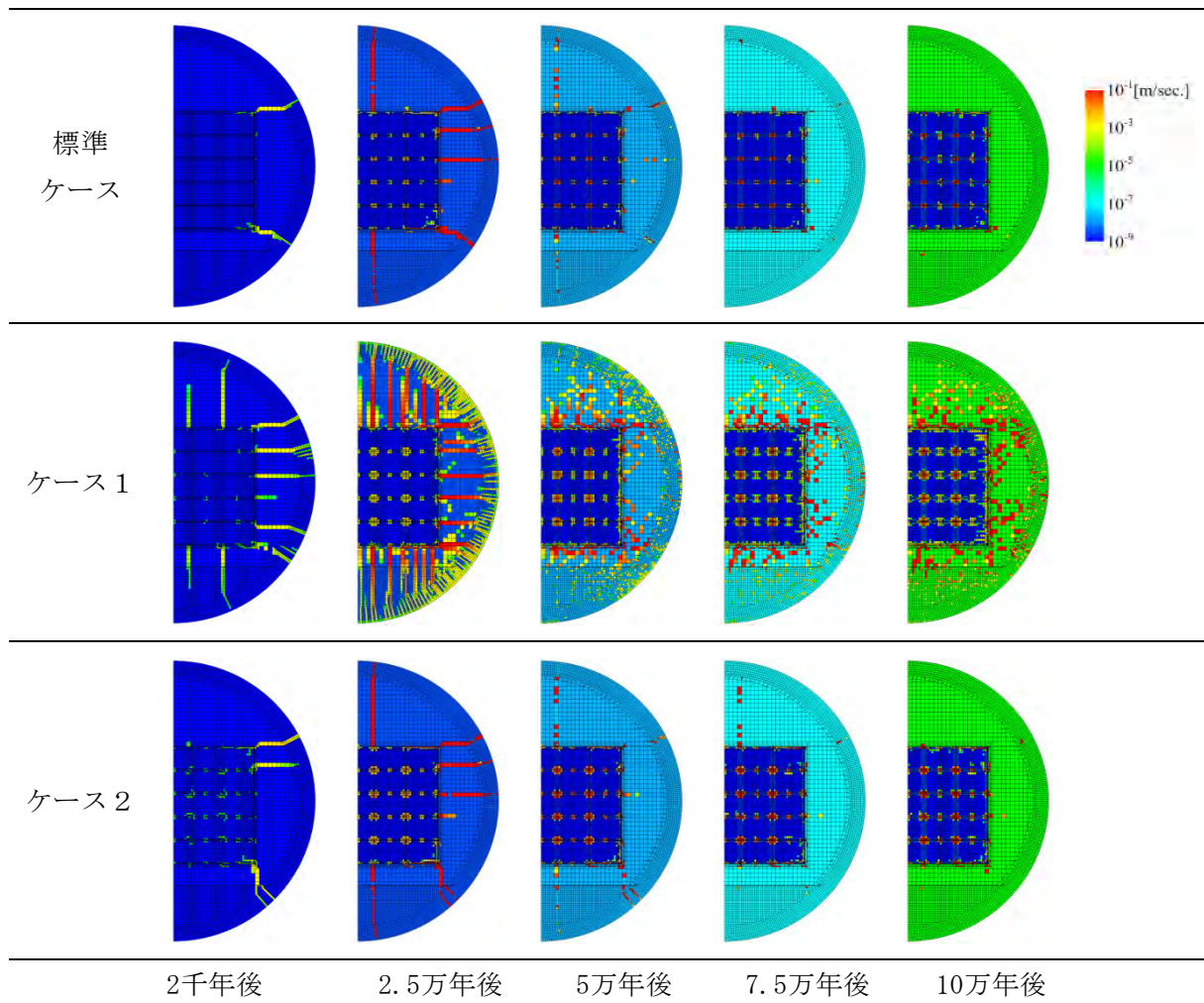


図2.5.2-5 セメント系材料の透水係数の変化

2.5.3 セメント系材料による影響下での核種移行挙動の把握

(1) 背景と目的

セメントが放射性核種の移行挙動に与える影響因子として、水酸化カルシウムが存在することによる高 pH 条件 (11以上) や高カルシウム濃度 (最大で $0.04\text{mol}/\text{dm}^3$ 程度) が考えられる。これらの影響因子は、元素によっては放射性核種の溶解度及び溶存化学種の変化をもたらす可能性があり、セメントによる影響を考慮しない場合に比べて安全機能が低下する可能性が生じる。したがって、既往の文献を基に、安全評価上の重要元素の溶解度や収着分配係数に及ぼすセメント影響の調査の現状を把握するとともに、調査結果から抽出された課題の一部について実験データの取得を行うこととした。さらに、取得した実験データなどを基に、セメント影響を考慮した地層処分性能評価のためのバリア材に対する放射性核種の収着分配係数について、平成26年度に設定した値 (日本原子力研究開発機構, 2015c) の更新を計画している。

(2) セメント環境中での収着挙動に関する実験的調査

1) はじめに

平成27年度に実施した文献調査の結果（日本原子力研究開発機構，2016a）に基づけば、最優先で充実させるべきデータは、 $\text{pH} \geq 11$ における、またカルシウム型ベントナイトに対する遷移金属元素（ジルコニウム、ニオブ、モリブデン、スズ等）の収着分配係数である。平成27年度はジルコニウムとスズのデータを取得したことから、平成28年度はニオブ及びモリブデンについて、アルカリ性水溶液中におけるベントナイトに対する収着分配係数を取得することとした。ナトリウム型及びカルシウム型に対する収着分配係数の比較検討を目的として、ナトリウム型及びカルシウム型の両方で収着分配係数を取得することとした。

2) 実験手順

収着分配係数はバッチ法で取得した。固相には、クニミネ工業（株）製の高純度ナトリウム型モンモリロナイトであるクニピアF、及びクニピアFから調製したカルシウム型ベントナイトを使用した。カルシウム型ベントナイトの調製は、三原ら（1999）の手法に基づいて実施した。収着分配係数評価対象元素はニオブ及びモリブデンとした。各元素の初期溶液は、それぞれ塩化ニオブを純水に溶解したもの及び酸化モリブデンを $0.1\text{mol}/\text{dm}^3$ 水酸化ナトリウム水溶液に溶解したものとした。初期溶液の pH は8.4, 10.0, 11.4, 12.5とし、ガラス複合電極を用いて測定及び調整した。初期溶液はカルシウム系とし、水酸化カルシウムで pH を調整した上で、塩化カルシウム (CaCl_2) を添加することにより、カルシウム濃度を $0.002\text{mol}/\text{dm}^3$ 及び $0.02\text{mol}/\text{dm}^3$ ($\text{pH} = 12.5$ の場合は $0.02\text{mol}/\text{dm}^3$ のみ) とした。

比較のために、 $\text{pH} = 8.4$ 及び 10.0 の条件については、ナトリウム系での収着実験も行った。この場合、固相はナトリウム型であるクニピアF、水溶液は塩化ナトリウム水溶液とし、水酸化ナトリウムを添加することで pH を調整した上で、塩化ナトリウム (NaCl) を添加することにより、ナトリウム濃度を $0.02\text{mol}/\text{dm}^3$ に調整した。水溶液の pH が所定の値より変動する場合は、塩酸もしくは水酸化ナトリウム・水酸化カルシウムを用いて適宜 pH を調整した。液固比は $0.1\text{m}^3/\text{kg}$ 、初期ニオブ及びモリブデン濃度は、 $1 \times 10^{-6}\text{mol}/\text{dm}^3$ とした。実験結果の再現性を確認するため、すべての条件において3つずつ（ただしブランク試料は1つずつのみ）収着実験試料を作製した。実験期間は最長で約2ヶ月とした。固液分離は分画分子量 10^4 (10kDa) の限外ろ過 (UF) を基本とし、比較のために $0.45\ \mu\text{m}$ メンブレンフィルターによる精密ろ過 (MB) を実施した。さらに、ニオブの実験では6,000rpmで90分間遠心分離を行ったのちに上澄みの採取すること (SN) も実施した。実験温度は室温とし、すべての作業はアルゴン雰囲気グローブボックス中で実施した。溶存ニオブ及びモリブデン濃度は、誘導結合プラズマ質量分析装置 (ICP-MS) を用いて定量した。

3) 結果と考察

① ニオブ

固相を含まないブランク試料中の2週間経過後における溶存ニオブ濃度の pH 依存性を図2.5.3-1に示す。図2.5.3-1(a)に示すナトリウム系では、いずれの固液分離法においても初期濃度付近の値が多いものの、 $\text{pH} = 8.4$ 付近の結果にばらつきが見られた。図2.5.3-1(b)に示す $0.002\text{mol}/\text{dm}^3$ のカルシウム系では、上澄み中(SN)の溶存ニオブ濃度が平均で $6 \times 10^{-7}\text{mol}/\text{dm}^3$ 程度、限外ろ過(UF)

および精密ろ過後 (MB) の溶存ニオブ濃度が平均で $1 \times 10^{-7} \text{mol/dm}^3$ 程度だが、結果のばらつきが非常に大きいことがわかる。図2.5.3-1(c)に示す 0.02mol/dm^3 のカルシウム系では、上澄み中 (SN) の溶存ニオブ濃度がほぼ初期値であるのに対して、限外ろ過 (UF) および精密ろ過後 (MB) の溶存ニオブ濃度については、一部のデータを外れ値とみなすとpHの増加とともに溶存ニオブ濃度が増加する傾向であることがわかる。SNとフィルターろ過 (UFおよびMB) の濃度差が多く見られることから、孔径 $0.45 \mu\text{m}$ を上回るようなニオブのコロイドが生成している可能性が考えられる。図2.5.3-1に示した結果のうち、 $\text{pH} = 8.4$ 付近については、もともと本pH条件でニオブの溶解度を制限すると考えられる酸化ニオブ (Nb_2O_5) の溶解度が低い (岩田・北村, 2015) ために、一部が沈殿した可能性が考えられる。また、カルシウム系については、溶存カルシウム濃度が $1 \times 10^{-3} \text{mol/dm}^3$ より高い場合にpHの増加に伴って溶存ニオブ濃度が低下する傾向のあることが報告されており (Tarelico et al., 2004)、図2.5.3-1(b)及び(c)の結果はその傾向をある程度反映しているものと考えられる。しかしながら、図2.5.3-1(a)に示したナトリウム系でも $\text{pH} = 12.5$ では溶存ニオブ濃度が低下していること、図2.5.3-1(c)に示した 0.02mol/dm^3 のカルシウム系では逆に溶存ニオブ濃度がpHの増加とともに高くなっていることなど、現象がまだ完全には解明されておらず、今後明らかにすることが必要である。

このように、ニオブの場合は溶存濃度が初期濃度より低下する試料が多かったことから、収着分配係数を導出するための全ニオブ濃度については、以下のように取り扱うこととした。

- 0.02mol/dm^3 NaCl水溶液：
各pH条件におけるブランク試料濃度の平均値とする。ただし、 $\text{pH} = 8.4$ 付近の結果についてはブランク試料濃度がばらついているため、 $\text{pH} = 12.5$ 付近の結果についてはブランク試料濃度が時間とともに低下する傾向があるため、それぞれのブランク試料濃度を上限値として取り扱う。
- 0.002mol/dm^3 CaCl_2 水溶液：
各固液分離法に応じたブランク試料濃度の平均値とする。
- 0.02mol/dm^3 CaCl_2 水溶液：
各固液分離法に応じたブランク試料濃度の平均値とする。ただし、 $\text{pH} = 8.4$ および 9.4 付近における $0.45 \mu\text{m}$ および 10kDa 通過成分の結果のうち、 10^{-7}mol/dm^3 以上の高い値については外れ値とみなして平均値の導出から除外する。

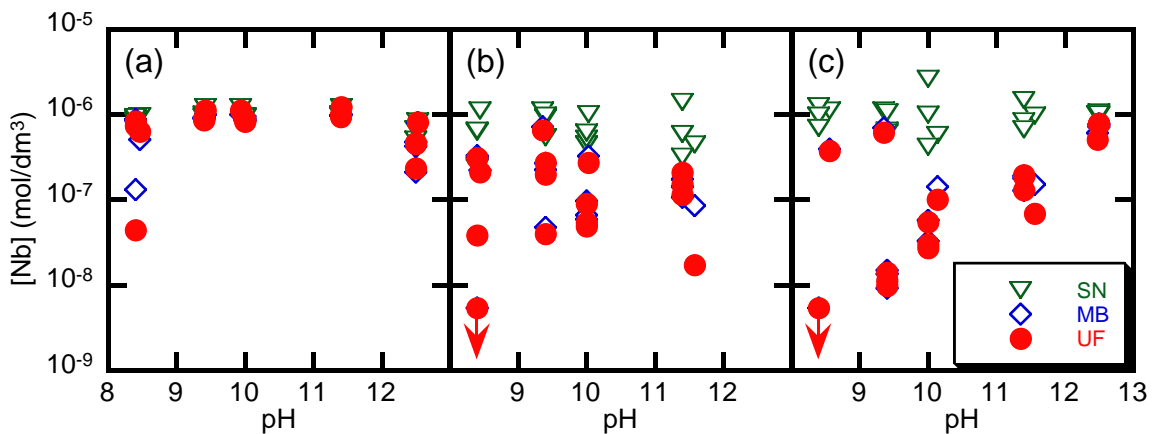


図2.5.3-1 固相を含まないブランク試料中の溶存ニオブ濃度のpH依存性
(2週間経過後)

((a) 0.02mol/dm³ NaCl, (b) 0.002mol/dm³ CaCl₂, (c) 0.02mol/dm³ CaCl₂)

実験開始から8週間経過時点でのナトリウム型及びカルシウム型ベントナイトに対するニオブの収着分配係数のpH依存性を図2.5.3-2に示す。図2.5.3-2(a)に示したナトリウム系の場合、収着分配係数はpHの増加とともに高くなる傾向が得られ、また固液分離の手法にはあまり影響されていないことがわかった。その一方で、図2.5.3-2(b)および(c)に示したカルシウム系については、上澄み液(SN)を除いて溶存ニオブ濃度が検出限界を下回ったため、有意な値が得られなかった。数値の変化については、ブランク試料濃度の変化がそのまま反映されている。したがって、これらの結果は下限値として取り扱うのが妥当である。

各条件におけるニオブの支配的な溶存化学種は、図2.5.3-2(a)に示したナトリウム系ではNb(OH)₆⁻であるものの、pH上昇に伴う陰イオン種とベントナイトとの静電的な反発を考慮するとこのような収着分配係数のpH依存性が得られるとは考えられないため、Nb(OH)₆⁻中の水酸化物イオン(OH⁻)とベントナイト中の水酸基(S-OH)が特異的に相互作用していることが考えられる。一方、図2.5.3-2(b)および(c)に示したカルシウム系では、ニオブ酸カルシウムのようなカルシウムとニオブの両方を含む溶存化学種の可能性が考えられる(Talerico et al., 2004)ものの、詳細な現象解明は今後の課題である。

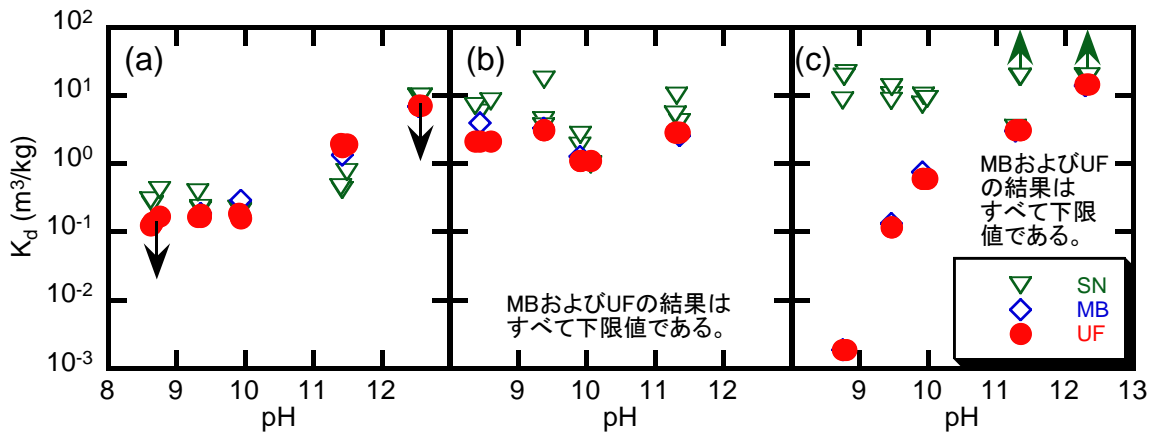


図2.5.3-2 ナトリウム型及びカルシウム型ベントナイトに対するニオブの収着分配係数のpH依存性 (8週間経過後)

((a) 0.02mol/dm³ NaCl, (b) 0.002mol/dm³ CaCl₂, (c) 0.02mol/dm³ CaCl₂)

② モリブデン

ブランク試料及び収着実験試料中における溶存モリブデン濃度のpH及び時間依存性を図2.5.3-3および図2.5.3-4に示す。

ナトリウム系については、収着実験試料中の溶存モリブデン濃度が初期濃度より高くなるという結果が得られた。この原因としては、ベントナイト中に含まれている微量のモリブデンが溶出したことが考えられ、詳細を調査中である。このため、ナトリウム系における収着分配係数は、すべての試料で定量限界未満 ($<3 \times 10^{-4} \text{m}^3/\text{kg}$) となった。

一方、カルシウム系では、溶存モリブデン濃度が初期濃度 ($1 \times 10^{-6} \text{mol}/\text{dm}^3$) 付近ではあるものの、図2.5.3-4に示すとおり有意な収着分配係数が得られた。収着分配係数を導出するために使用した全モリブデン濃度は、すべて初期添加濃度としている。実験期間4週間の時点では、まだ収着分配係数が実験期間とともに高くなっていく傾向が見られており、系が平衡に到達していない可能性が残るものの、いずれの濃度のCaCl₂水溶液中においても、収着分配係数はpHが大きくなるにつれて高くなり、特に0.002mol/dm³試料中でその傾向が顕著であることがわかる。得られた収着分配係数は、セメントペーストに対する値 (加藤ほか, 2002) に近い値であった。モリブデンは地層処分及びTRU廃棄物処分環境中ではモリブデン酸イオン (MoO_4^{2-}) であると予想されており (天野ほか, 2015; 日本原子力研究開発機構, 2015c)、陰イオン種であるが故にベントナイトやセメント系材料等に収着しないとされ、安全評価では収着分配係数を0m³/kgに設定することも多い (たとえばWieland, 2014; Ochs et al., 2016)。本報告の結果が信用できると判断されれば、安全評価上有利になる。収着メカニズムとしては、ベントナイト中のエッジサイト (S-OH) における表面錯体が考えられる。

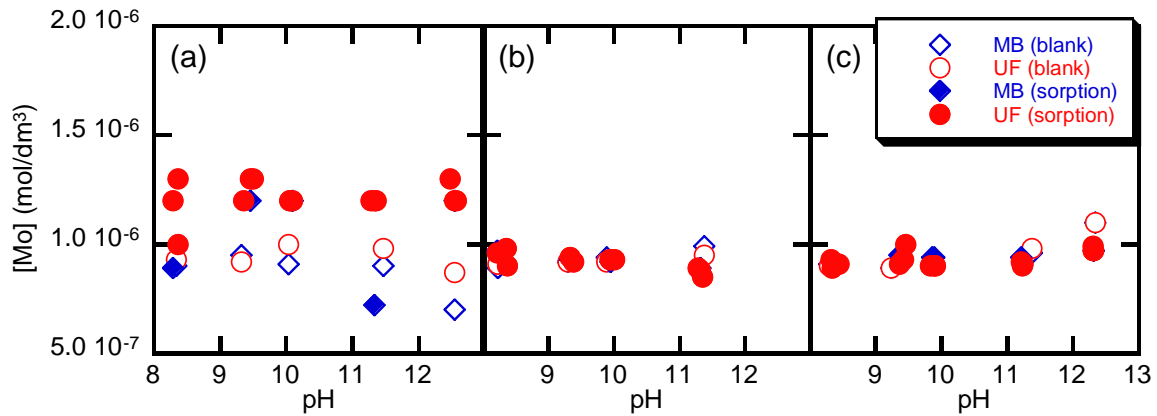


図2.5.3-3 固相を含まないブランク試料中の溶存モリブデン濃度のpH依存性（4週間経過後）
 ((a) 0.02mol/dm³ NaCl, (b) 0.002mol/dm³ CaCl₂, (c) 0.02mol/dm³ CaCl₂)

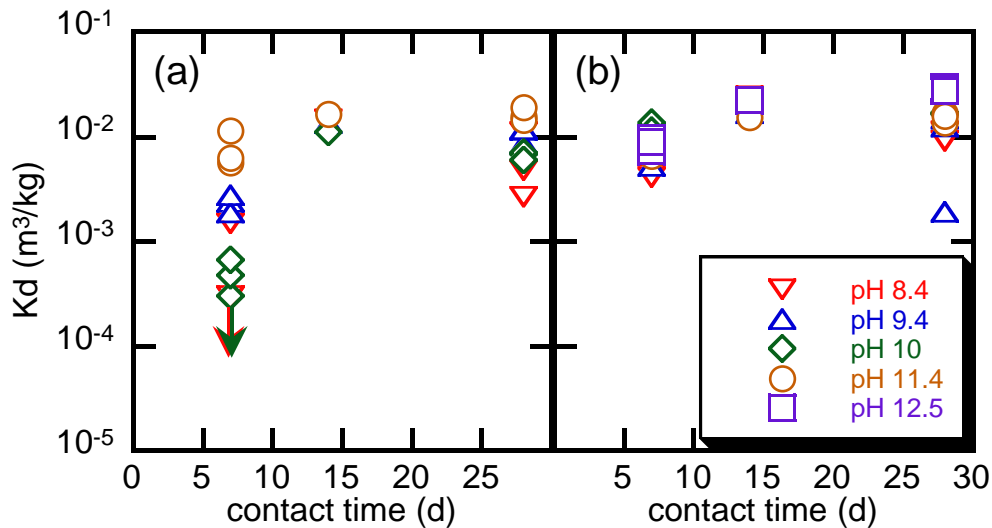


図2.5.3-4 カルシウム型ベントナイトに対するモリブデンの収着分配係数の経時変化
 ((a) 0.002mol/dm³ CaCl₂, (b) 0.02mol/dm³ CaCl₂)

4) まとめ

ナトリウム型及びカルシウム型ベントナイトに対するニオブ及びモリブデンの収着分配係数を高pH条件で取得した。実験開始から4週間経過後の結果をまとめ、カルシウム系ではニオブがカルシウムと相互作用し錯体を形成している可能性が示唆された一方で、現象解明に課題を残した。また、カルシウム型ベントナイトに対するモリブデンの収着分配係数の有意値が新たに取得された。以上の結果は、セメント系材料共存下におけるこれらの元素の収着分配係数設定の基盤情報として活用することが期待される。

2.5.4 グラウト影響評価技術開発

(1) 背景と目的

処分場建設時には、湧水抑制対策としてセメント系材料を用いたグラウト施工が行われることが想定される。セメント系材料は、人工バリア材料のみならず、周辺岩盤に化学的影響として変化を生じさせ天然バリアの性能を低下させることが懸念される。これまで、セメント系材料による周辺岩盤への影響に関する研究が国内外で行われているが、特に亀裂性媒体においては物質移行を促進もしくは遅延する両ケースの研究事例が報告されており、現状十分な知見が得られているとは言い難い (Steeffel and Lichtner, 1994; Bateman et al., 1998, 1999; Soler, 2003など)。特に、実際の地下環境におけるグラウト材料そのものの変遷やセメント系材料による周辺岩盤への影響に関する知見は乏しいと言える。

以上の背景の下、地層処分の安全評価の信頼性向上に向けて、原位置におけるセメント系グラウト材料の変遷とその周辺岩盤への影響について理解すると共にこれらの評価技術手法について整備することを目標として平成27年度から3ヶ年の研究を進めている。

瑞浪超深地層研究所では、換気立坑の深度200m付近、深度200mの水平坑道、深度300mの研究アクセス坑道、換気立坑の深度400～500m及び深度500mの研究アクセス南坑道においてプレグラウチングが実施されている (見掛ほか, 2010 ; 石井ほか, 2010など)。これまでに、深度200mの水平坑道から採取した施工後約4年半経過したグラウト材料で充填された割れ目を含む岩石試料などを用いた検討が進められている (鶴山ほか, 2015)。また、深度200mの坑道周辺の湧水のpHは施工後2年程度で天然の地下水のpHと同程度に低下することが確認され、これは周辺地下水の流入に伴う希釈に起因するもの推定されている (笹本ほか, 2012)。さらに、平成27年度に実施した、深度300mの研究アクセス坑道から採取した施工後3年程度のグラウト材料を対象とした観察の結果、グラウト材料自体も炭酸化 (方解石化) しつつあることが確認された (日本原子力機構開発機構, 2016a)。

そこで、本年度 (平成28年度) は、グラウト材料および周辺岩盤への影響の経年変化を検討するために、深度300mの研究アクセス坑道を対象として、グラウト材料の初期状況把握のためのセメント供試体の作製・観察、施工後約3年経過したグラウト材料 (以下、3年試料) の観察・化学分析、および施工後約6年経過したグラウト材料および周辺岩盤試料 (以下、6年試料) の採取・観察を実施した。さらに、これらの観察・分析を通じてグラウト材料およびその周辺岩盤の経年変化の把握と共に適用した手法の妥当性について検討を行った。

(2) 研究対象の坑道の概要

深度300mの研究アクセス坑道は、建設前の先行ボーリング調査時に最大で約1,600l/minの湧水が発生した。そこで、本坑道では坑道全体の透水性を約2Lu (ルジオン) 以下になるように建設時にセメント系グラウト材料 (普通ポルトランドセメント ; 以下, OPC) を用いてプレグラウチングを実施している (見掛ほか, 2010 ; 図2.5.4-1)。なお、グラウチングに用いたセメントミルクの水-セメント比 (W/C) は75～800%である (見掛ほか, 2010)。本坑道には坑道壁面の観察から1,670本の割れ目が認められ、そのうち118本がグラウト材料で充填されている (石橋ほか, 2014 ; 図2.5.4-1)。以下に、背景情報として本坑道における透水性とpHと水質の変遷について示す。

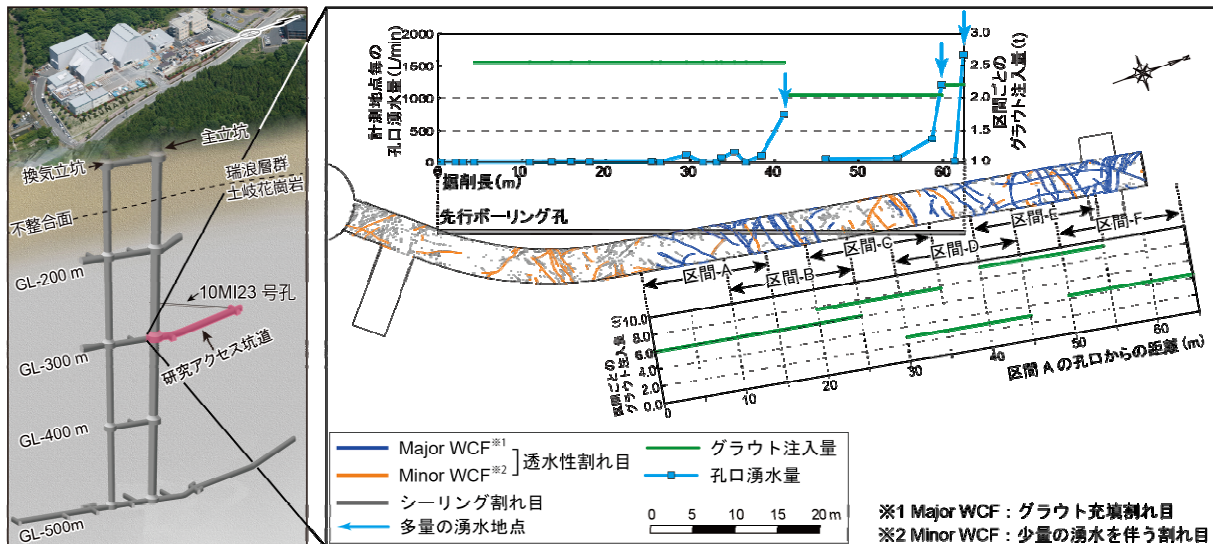


図2.5.4-1 深度300mの研究アクセス坑道建設時の湧水量・グラウト材料注入量・割れ目分布 (石橋ほか (2014) より引用・加筆)

1) 深度300mの研究アクセス坑道周辺岩盤の透水性の変遷

本坑道の湧水量は坑道建設 (2009年7月) 以降に上昇し、2012年9月以降安定する傾向がみられた (佐藤ほか, 2014; 上野ほか, 2014, 2017; 図2.5.4-2)。一方で、坑道周辺の地下水の水圧 (水頭) は坑道施工後、継続的に低下する傾向がみられた (狩野ほか, 2011, 2012, 2013; 別府ほか, 2014; 濱ほか, 2014, 2015, 2016; 図2.5.4-2)。このため、これらの情報に基づき、見掛ほか (2010) で示された理論式を簡略化した式 2.5.4-1を用いてグラウト施工領域の透水性の変化を整理した。

$$k_g = \frac{\ln\left(\frac{R_g}{r_0}\right)}{\frac{2\pi L(-h_0+h_w)}{Q} - \frac{\ln\left(\frac{R_w}{R_g}\right)}{k_w}} \quad \text{式 2.5.4-1}$$

ここで、 L は坑道長さ (100m)、 h_0 は坑道内部の標高 (坑道内部では水頭0と仮定し標高 (-99.1m) と設定)、 h_w は岩盤内部の水頭 (周辺ボーリング孔の水頭値)、 r_0 は坑道半径 (1.8m)、 R_g はグラウト施工影響領域の半径 (4.8m)、 R_w は坑道施工に伴う影響半径 (34.2m)、 k_w は岩盤領域の透水係数 (m/sec)、 k_g はグラウト領域の透水係数 (m/sec) を示す。なお、周辺ボーリング孔としては10MI23号孔の区間4とMIZ-1号孔の区間3の水頭値を用いた。10MI23号孔は坑道施工後の2010年12月以降に水頭データが取得されている。10MI23号孔の区間4の水頭値は、MIZ-1号孔の区間3と整合することが確認できたことから、本検討では2009年7月から2010年11月まではMIZ-1号孔の区間3の水頭値を用い、2010年12月以降は10MI23号孔の水頭値を用いた。

上記の考え方で算出した本坑道周辺のグラウト施工影響領域の透水性は、施工後約5年までは増加する傾向が認められ、それ以降はバラつきはあるが 5×10^{-7} m/s程度で安定する傾向が認められた (図2.5.4-3)。

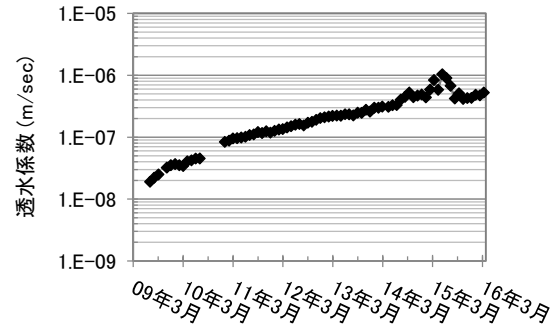
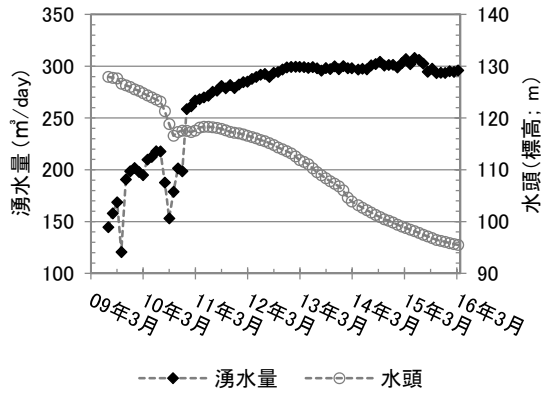


図2.5.4-2 深度300mの研究アクセス坑道への湧水量と周辺ボーリング孔の水頭の変遷

図2.5.4-3 深度300mの研究アクセス坑道周辺のグラウト施工影響領域の透水係数の変遷

2) pHと水質の変遷

グラウト施工に伴う地下水水質への影響を検討するために、一例として本坑道への湧水のpHおよびCa濃度について既存情報を整理した。その結果、本坑道への湧水のpHは、施工直後は9程度の値を示したものの、約2～3年程度経過すると天然の地下水のpH（約8.5）程度まで低下していることがわかってきた（新宮ほか，2011，2012；大森ほか，2013，2014a，2014b；林田ほか，2016；濱ほか，2016；図2.5.4-4）。Ca濃度は、施工後1年半程度まで直線的に上昇し、その後3年程度まで緩やかに上昇するが、約4年以降に直線的に低下している。なお、深度300mステージ周辺の地下水のCa濃度は約14～27ppm（平均は22ppm；新宮ほか，2011，2012；大森ほか，2013，2014a，2014b；林田ほか，2016）であることから、2015年度末時点の水質でもバックグラウンドに比較して高い値を示している。また、グラウト材料による水質の変化に影響を与えるとされる HCO_3^- （蔵重・廣永，2007）の地下水中の濃度は、施工後も明瞭な変化はなく約25ppmの値である（新宮ほか，2011，2012；大森ほか，2013，2014a，2014b；林田ほか，2016）。

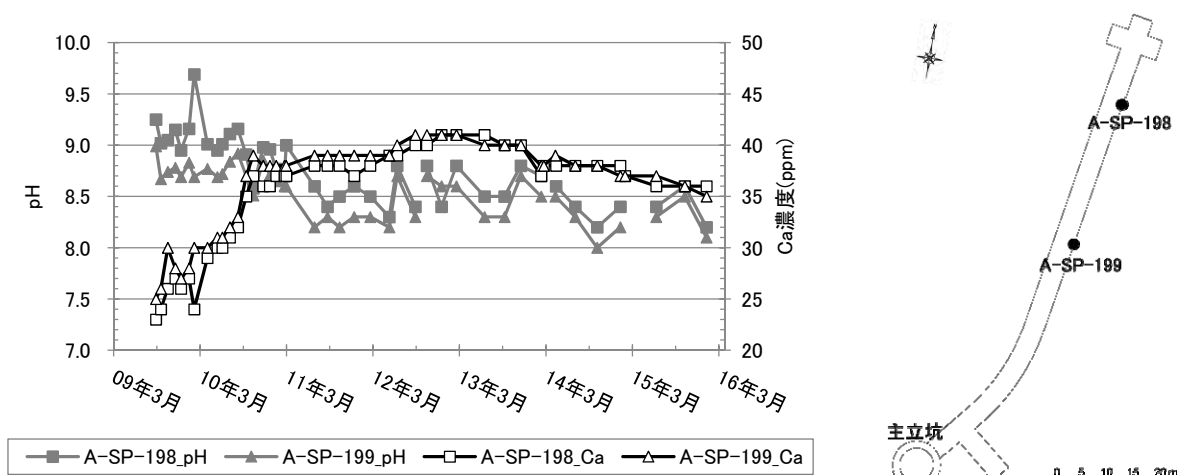


図2.5.4-4 坑道からの湧水のpHおよびCa濃度の変遷と採水箇所

(3) 初期状態を把握するためのセメント供試体の作製と観察

1) セメント供試体の作製

セメント系グラウト材料のグラウト施工時の状態を推定するために、OPCを用いてセメント供試体を作製した。ここで、グラウト施工後の固結時のW/Cを把握することは不可能であることから、本研究では、セメント供試体を複数のW/Cで作製しそれらの状態について比較した(表2.5.4-1)。具体的には、グラウト材の実際の施工時において岩盤中で想定されるW/Cを把握するため、セメント供試体完成時の上澄み水の重量を測定すると共にpHおよびECを測定した。セメント供試体の作製では、小型セメントミキサーを用いて低速練30秒、静置・かき落とし30秒、高速練60秒を行い、それを土木学会製のグラウトブリージング率測定用のポリエチレン袋に打設し、3日間養生して脱型を作製した。なお、脱型したセメント供試体は、原位置の環境を模擬するために、空気部分をアルゴンガスで置換した上で、材齢で28日程度まで深度300mの研究アクセス坑道から採取した地下水で養生し十分に固化させた。

完成したセメント供試体は、W/C50%以外は打設時のW/Cに比較して小さいW/Cとなり、ブリージング水のpHは、いずれも約13を示した(表2.5.4-1)。また、28日間養生した地下水(養生水)のpHはブリージング水よりは低い約12近くまで上昇した。

表2.5.4-1 作製したセメント供試体およびブリージング水の水質

セメント打設容器内の配合			セメント供試体完成時の配合			ブリージング水の水質		養生水の水質	
W/C (%)	C (g)	W (g)	CH (g)	BW (g)	W/C (%)	pH	EC	初期pH	養生後pH
50	300	150	376.1	0.5	50	-	-	8.2	11.4
100	250	250	408.6	67.9	72	12.9	2580	8.2	11.6
150	200	300	334.7	116.6	85	12.8	1810	8.2	11.7
200	150	300	270.2	167.4	85	12.7	1520	8.2	11.7
400	150	600	290.1	453.8	95	12.6	1260	8.2	11.8
700	50	350	100.6	288.2	107	12.5	1120	8.2	11.9

W/C:水-セメント比、C:OPCの重量、W:イオン交換水の重量、CH:セメント供試体(硬化体)の重量、BW:ブリージング水の重量

2) セメント供試体の薄片観察

作製したセメント供試体を対象として岩石薄片を作製し、偏光顕微鏡を用いて観察を行った(図2.5.4-5)。その結果、W/Cが大きなセメント供試体ほど大きな空隙と粗粒な方解石が形成されている傾向があった。

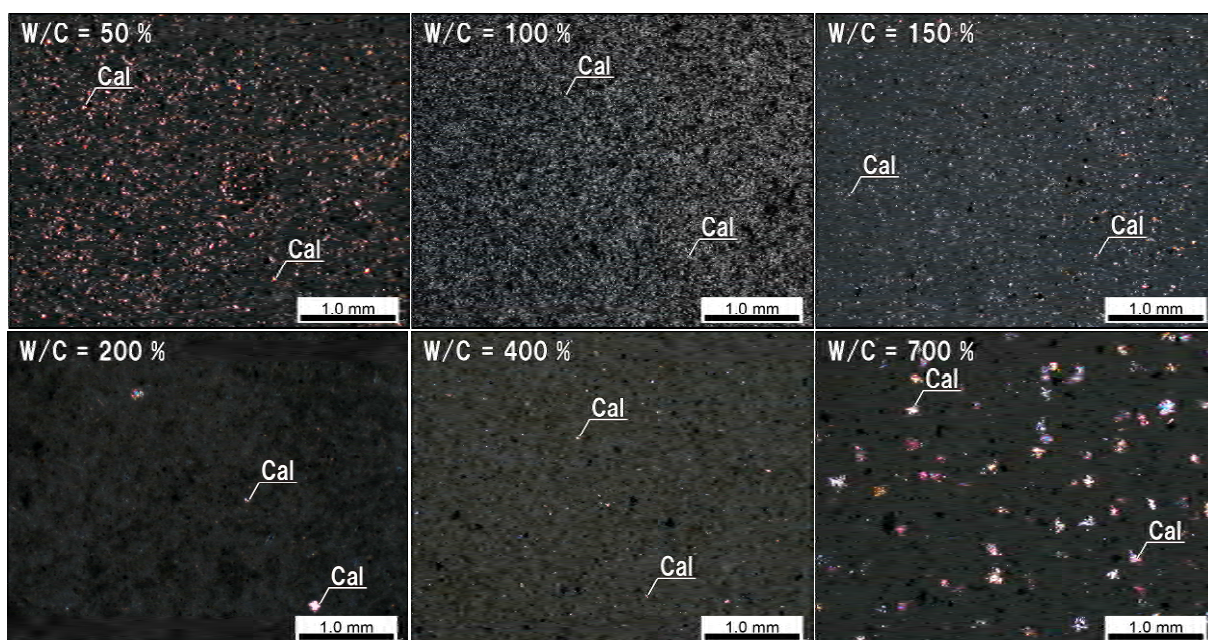


図2.5.4-5 セメント供試体の薄片観察結果（クロスニコル）。高い干渉色を示す箇所（例えば Calで示す箇所）は方解石である。

(4) 施工後約3年経過したグラウト材料およびその周辺岩盤の観察と化学分析

1) グラウト材料およびその周辺岩盤の岩石薄片観察

グラウト施工後約3年程度経過したグラウト材料およびその周辺岩盤（3年試料）を対象として、岩石薄片を作製した。3年試料は、深度300mの坑道から約1m程度の範囲で採取したものを対象とした（湯口ほか，2013；図2.5.4-6）。

岩石薄片観察の結果、グラウト材料と周辺岩盤の境界部には、花崗岩を構成する鉱物の破砕片で構成される組織（含破砕片組織）と方解石が認められた。方解石は自形の形状を示し、その形状は天然の湧水を伴う割れ目で産出する方解石（石橋ほか，2014）と類似する。方解石は、周辺岩盤中の幅数十 μm 程度の微細な割れ目にも認められるが、このような方解石は、グラウト施工された領域以外の岩盤でも認められ、グラウト施工に伴う影響とは考え難い。一方、グラウト材料中には、方解石と推察できる微細な結晶が分布する領域（以下、結晶化領域）と、高い倍率で観察しても偏光下で暗く非晶質なものが分布する領域（以下、含非晶質領域）が認められる（図2.5.4-7）。結晶化領域は主にグラウト材料-岩盤境界やグラウト材料中の微細な割れ目の周辺に発達する傾向がある（図2.5.4-7）。なお、含非晶質領域にも、微細な方解石がまばらに分布する。

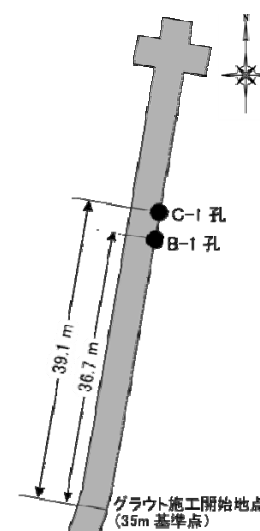


図2.5.4-6 3年試料採取位置

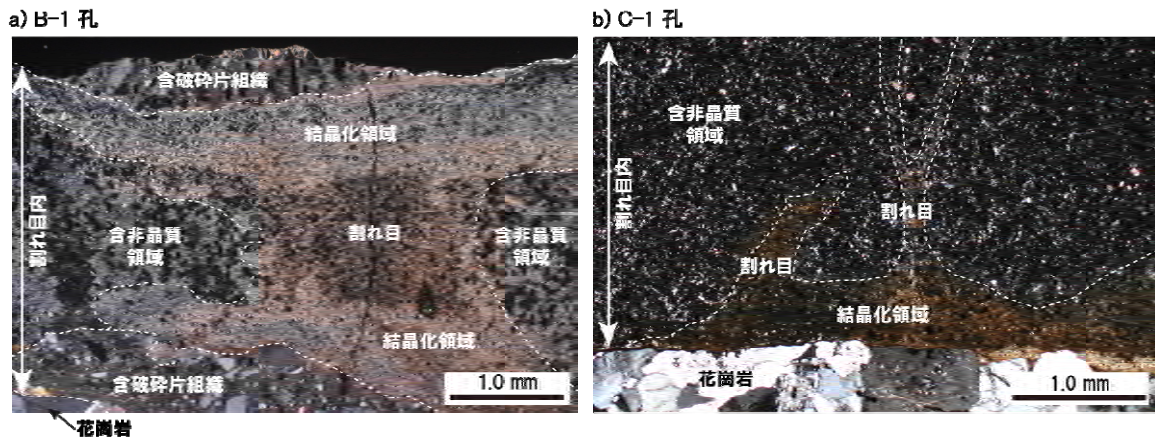


図2.5.4-7 3年試料の岩石薄片観察結果 (クロスニコル)

2) 走査型X線分析顕微鏡を用いた元素分布の把握

作製した岩石薄片 (図2.5.4-7 a) を対象として、走査型X線分析顕微鏡を用いてグラウト材料中の元素分布を把握した。走査型X線分析顕微鏡での測定仕様を表2.5.4-2に示す。

表2.5.4-2 走査型X線分析顕微鏡の測定仕様

測定器	: HORIBA XGT-7200V
X線管	: Rh
X線検出器	: シリコドリフト検出器 (SDD)
管電圧	: 50kV
管電流	: 1.0mA
測定面積	: 30mm×30mm
ビーム径	: 10μm
測定時間	: 1,000秒×20回走査 (20,000秒)
解像度	: 256×256画素
測定雰囲気	: 真空

元素分布をみると、結晶化領域は含非結晶化領域に比較してCa濃度が高い傾向がある (図2.5.4-8)。また、結晶化領域でも、非晶質なものが分布する領域ではCa濃度が低下する。取得したX線強度に基づく半定量結果から、Ca/Si

モル比 (以下、Ca/Si比) を算出した結果を図2.5.4-9に示す。Ca/Si比は結晶化領域では比較的高い値を示す傾向があり、含非晶質領域では低い傾向がある。結晶化領域と含非晶質領域にかけて面分析結果に基づくプロフィールを確認するとCa/Si比は岩石薄片中の微細な割れ目近傍で高い値を示し、含非晶質領域に向かって低下する (図2.5.4-9)。また、CaのX線強度は割れ目近傍で高い値を示し、含非晶質領域に向かって低い値を示す。一方、SiのX線強度は全領域で概ね一定の値を示す。すなわち、このCa/Si比はCaの濃度変化に対応して変化していると言える。

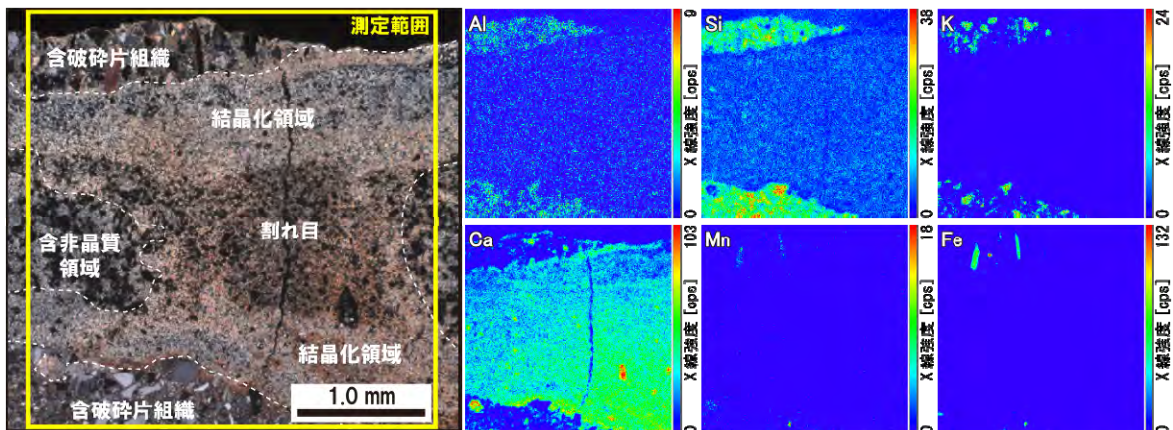


図2.5.4-8 3年試料の元素分布

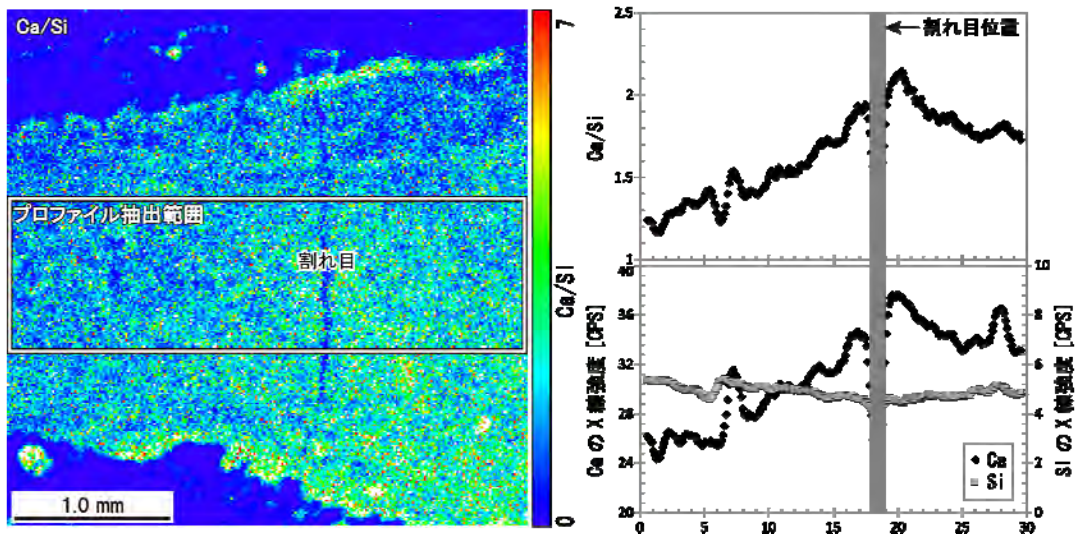


図2.5.4-9 3年試料中のCa/Si分布とX線強度プロフィール

3) SEMを用いた観察による空隙分布の把握

作製した岩石薄片 (図2.5.4-7 a) に認められるグラウト材中の微細な割れ目の左側領域を対象としてSEMを用いた観察を行った。その結果、含非晶質領域では結晶化領域に比較して大きな空隙が多く形成されていることが確認された (図2.5.4-10)。なお、この含非晶質領域に分布する大きな空隙は岩石チップでも認められた。このことから、定性的ではあるがCaのX線強度の差は、この空隙の量の差が影響していると推察できる。

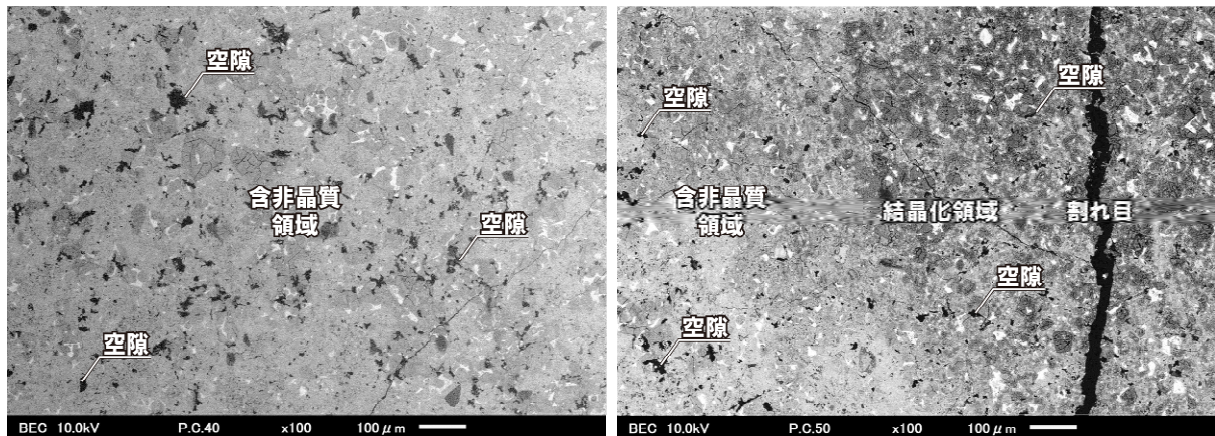


図2.5.4-10 3年試料のSEM観察結果 (反射電子像)

4) μ -XRD分析による微小領域の鉱物種の把握

結晶化領域と含非晶質領域の鉱物組成を比較するために、作製した岩石薄片 (図2.5.4-7 a) を対象として μ -XRD分析 (リガク製SmartLab、X線発生源: Cu、ビーム径: $100\ \mu\text{m}$ 、走査範囲: $10\sim 90^\circ$ 、走査速度: $1^\circ/\text{min}$) を実施した。その結果、主に方解石、バテライトといった CaCO_3 の鉱物とガラス質なSiが全領域に分布することが明らかとなった (図2.5.4-11)。方解石のピーク強度は結晶化領域に比較して含非晶質領域で低くなる傾向が認められる。また、 20° 付近に認められるハローは含非晶質領域 (Point 4、5) で大きくなる傾向があり、この領域にはC-S-Hゲルなどの非晶質物質が存在している可能性が示唆される。一方で、本測定の結果では、ポルトランド

イトやエトリンガイトなどのセメント水和物は検出されなかった。

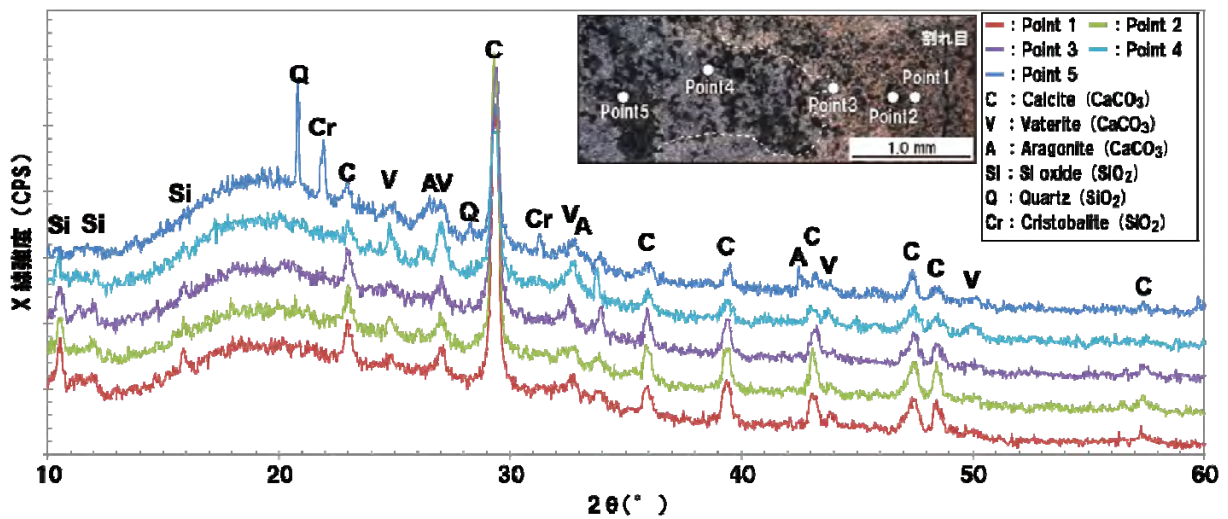


図2.5.4-11 3年試料の μ -XRD分析箇所と測定結果

(5) 施工後約6年経過したグラウト材料およびその周辺岩盤のサンプリングと観察

1) グラウト材料およびその周辺岩盤の採取

深度300mの研究アクセス坑道において、施工後約6年経過したグラウト材料およびその周辺岩盤試料（6年試料）の採取を行った。岩石試料は、コアドリル（SPZ-250A2）を用いて円筒形（直径約100mm）の試料として採取した。試料長・採取場所は図2.5.4-12に示す。なお、岩石試料は、3年試料と同じ割れ目を対象としたことから、岩石試料名は3年試料の試料名（湯口ほか，2013）の連番とすることとした。採取した岩石試料のうち、A-3孔ではグラウト材料が確認されず採取した割れ目はほぼ全て方解石で充填されていた。B-2およびB-3孔では、先行ボーリング調査の際に実施したグラウト材料（灰色に着色）と坑道建設前に実施したプレグラウトで充填したグラウト材料（赤色に着色）で充填された割れ目が観察された（図2.5.4-13）。なお、D-2孔はグラウト材料の比較対象として吹付けコンクリート材を含めて岩石試料を採取した。

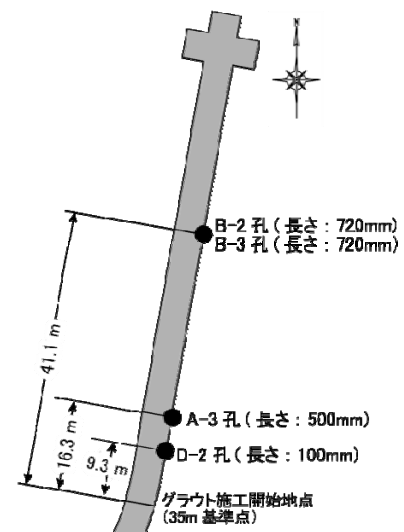


図2.5.4-12 6年試料の採取場所

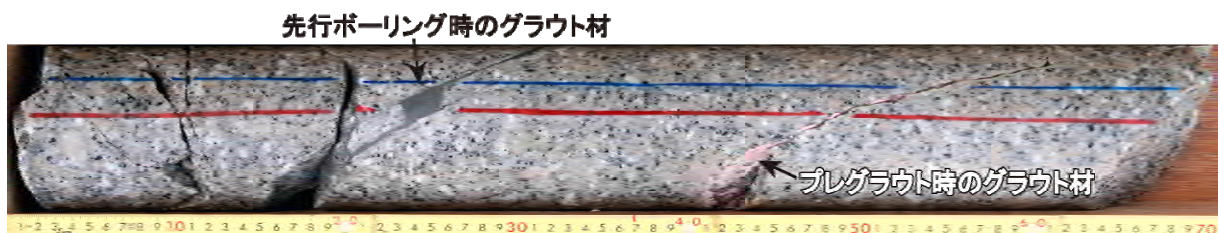


図2.5.4-13 B-2孔の採取結果

2) グラウト材料およびその周辺岩盤の岩石薄片観察

採取した6年試料を対象として岩石薄片を作製し偏光顕微鏡で観察した結果、3年試料同様にグラウト材料中には結晶化領域（グラウト材料-周辺岩盤の境界周辺とグラウト材中の割れ目周辺）と含非晶質領域が存在することが確認された（図2.5.4-14）。また、偏光顕微鏡観察からは定性的であるが結晶化領域が3年試料に比較して広い箇所が認められた。なお、6年経過試料でも、周辺岩盤へのグラウト材料による影響と考えられる鉱物などは認められなかった。

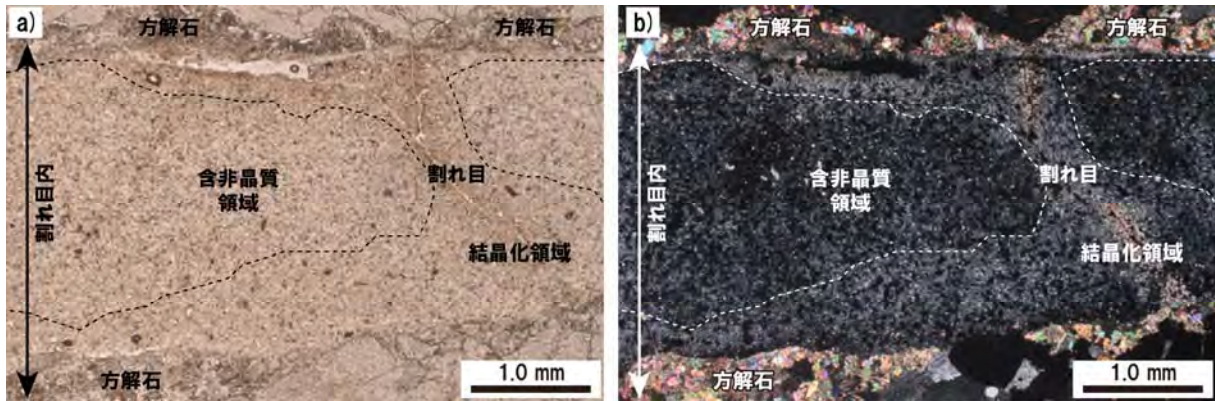
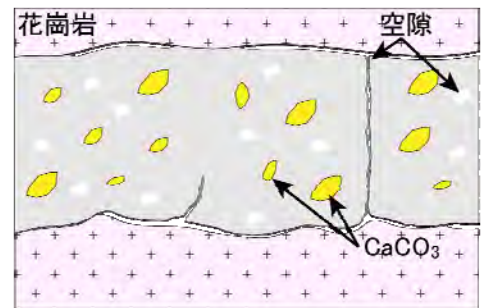


図2.5.4-14 6年試料の岩石薄片観察結果 (a:オープンニコル、b:クロスニコル)

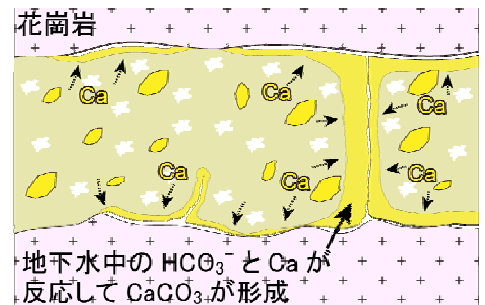
(6) グラウト材料が岩盤やその周辺環境に与える影響と評価手法に関する考察と今後の課題

1) 3年試料の状況に関する考察

施工後約3年経過したグラウト材料は、結晶化領域と含非晶質領域に分けられる（図2.5.4-7）。非晶質領域には、（C-S-Hゲルの可能性があると考えられる）に加えて方解石も認められる（図2.5.4-11）。セメント供試体の薄片観察結果から、高W/Cのセメントミルクで作製したセメント硬化体では、硬化段階で方解石が形成されていた（図2.5.4-5）。このような、高W/Cのセメント硬化体はセメントに対する水が多く（炭酸が多く）、硬化時点で炭酸化が進み方解石が形成されることは既に指摘されている（谷・内田，1999）。このことから、含非晶質領域中の方解石は、グラウト材料が硬化した段階から形成されていたと考えられる（図2.5.4-15 a）。結晶化領域は、通水部と考えられる周辺岩盤との境界周辺やグラウト材料中の微小割れ目周辺に発達している。本坑道周辺の地下水中には HCO_3^- が含まれており、このような条件ではポルトランドイトやC-S-Hの溶解によってCaが供給された際に方解石が形成されることが指摘されている（蔵重・廣永，2007）。グラウト施工領域には HCO_3^- を含有する地下水が常に供給されている状況にあることから、その結果として方解石の形成が促進され結晶化領



a) グラウト材料固化直後の状況



b) 施工後3年程度の状況

図2.5.4-15 グラウト材料の3年程度での変化の概念図

域が形成されたと考えられる（図2.5.4-15 b）。

2) グラウト材料とその周辺岩盤の変遷に関する考察

施工後約3年および6年経過したグラウト材料周辺岩盤に着目して観察を行った結果、グラウト材料の影響と考えられるような変化は認められなかった。施工後約4年程度経過した試料でもグラウト材料による影響は認められていない（日本原子力研究開発機構，2013e）。グラウト材料の影響と考えられる周辺地下水のpHは最大でも9.8程度である（図2.5.4-4）。この地下水は、動水勾配の関係から坑道に向かって流れている。よって、坑道を開放している段階では、岩盤に比べて坑道内部の圧力は低いため坑道方向の動水勾配が生じ、pHが上昇した地下水と岩盤が接する時間が短く、グラウト材料による周辺岩盤への化学的影響が生じ難い状況にあると考えられる。

一方、坑道スケールで見たグラウト施工領域の透水性は、施工後約5年までは透水性が増加していると言え（図2.5.4-3）、これはグラウト材の材料変化によるものと推察される。地下水中のpHについては、施工直後から天然の地下水よりも高い値を示し、徐々に低下して施工後2～3年経過すると天然の地下水と同程度の値を示す（図2.5.4-4）。地下水中のCa濃度については3年程度経過した段階でも深度300m付近の天然の地下水のCa濃度に比較して高い値を示す（図2.5.4-4）。Caはグラウト材料の溶脱によって供給されたと考えられることから、pH低下の要因がグラウト材料の変化によるものとは考え難い。pHが徐々に低下した期間は、坑道への湧水量が増加している期間である（図2.5.4-2）ことから、pHの低下は天然の地下水の流入に伴う希釈効果によるものと考えられる。

地下水中のCa濃度の変化に着目すると、施工後約3年程度までは増加傾向であるが、施工後約4年経過以降は、直線的な低下傾向を示す（図2.5.4-4）。セメント系材料からのCaの溶脱低下の原因としては、a) 溶解度の高いポルトランドイトから溶脱した後に比較的溶解度の低いC-S-Hからの溶脱が開始することにより少なくなること（山本・廣永，2006）や、b) HCO_3^- を含む水とセメント系材料との通水試験から、水-セメント接触面に方解石が形成されることで、Caの溶脱が抑制されること（蔵重・廣永，2007）が指摘されている。3年試料の μ -XRD分析の結果から、含非晶質領域においてもポルトランドイトの存在が確認されていないことからa)の要因である可能性はあるものの、 μ -XRD分析結果は微小領域（ $100\ \mu\text{m}$ 径の領域）の鉱物組成であり、全領域にポルトランドイトが無いとは言い切れないことから、広い領域を対象とした鉱物組成の把握など、更に分析データを拡充が必要であると考えられる。

なお、施工後約3年目から認められるCa濃度の低下が継続すると仮定した場合は、施工後約20年程度でCa濃度は天然の地下水の水質と同程度となると考えられ、グラウト施工に伴う高pH環境が形成される可能性がある期間は20年程度と見做すこともできる。一方、透水性については現在定常化している傾向にあり、今後の変化については次年度以降の傾向も確認し検討する必要があると考えられる。

3) 評価手法に関する考察

上記に述べてきた、岩石薄片を用いた観察と化学分析を組み合わせることで、グラウト材料の変遷やその周辺岩盤への影響に関する理解はより進んだと考えられる。一方で、岩石薄片観察の結果ではグラウト材料の明瞭な溶脱があったとは考えにくい、地下水の水質変化からはグ

ラウト材料が溶脱していると推定できる。このように、現在の観察結果と地下水水質の変化の解釈結果には矛盾が生じており、今後観察結果と水質変化については検討が必要である。また、今年度新たに導入した μ -XRD分析については、微小領域における鉱物種が明確に把握でき観察結果の妥当性の確認と変遷メカニズムを推定する上で有効な手法であると考えられる。

4) 今後の課題

坑道スケールでのグラウト施工領域の透水性は、施工後5年程度経過した段階で、定常化が認められた。これらは注入したグラウト材の性能低下が要因と考えられるものの、施工後約3年および約6年経過した試料の岩石薄片観察結果には明らかな差が認められなかった。このため、今後も施工されているグラウト材の透水性の変化を把握することが重要と考えられる。また、水質やグラウト材料の変化及びそれらが地質環境に影響を及ぼすメカニズムについても不明な点や矛盾が認められる。そこで、次年度は今年度取得・作製した試料を用いた化学分析等に加え、地下水を用いた通水試験を実施し、水質やグラウト材料の変化を把握することで、地下環境におけるグラウト材料およびその周辺岩盤等の変遷メカニズムについてさらに検討を進める。また、それらの評価手法の整理およびグラウト施工が長期的な時間スケールでの地質環境に与える影響評価に向けた課題について検討する。

2.6 ニアフィールド複合現象／核種移行の体系的評価に向けた技術開発

本節では、2.2節から2.5節に示した4つのサブタスクの成果を集約し、ニアフィールドの環境変遷とバリアシステムの状態変遷（以降、「ニアフィールドシステム変遷」という）、及びニアフィールドシステム変遷とその不確実性を考慮して核種移行を評価できる技術（以降、「ニアフィールド総合評価技術」という）の開発について述べる。

2.6.1 全体アプローチ

平成25年度に検討したニアフィールド総合評価の概念を図 2.6.1-1に示す。すなわち、処分システムの長期性能に影響を及ぼす可能性がある要因に対し、個々の現象に忠実なモデル開発を行い、現象の相関関係を考慮しながら個別現象モデルを適切に組み合わせて複合現象評価を行う。これによりシステム全体としての環境や状態の変遷についての知見を拡充し、この知見を核種移行の場の設定に反映させて核種移行解析を行うという構造である。

以上の評価を体系的に実施するために、平成26年度～平成29年度の検討では、

- ・ 必要となる個別現象の情報・知見の集約
 - ・ ニアフィールドシステム変遷についての分野横断的・整合的な現象解析に向けた共通モデル・シナリオの整備
 - ・ ニアフィールド複合現象評価手法の開発
 - ・ ニアフィールドシステム変遷の理解に基づき核種移行解析を行う手法の開発
- を行い、これをニアフィールド総合評価システムとしてまとめる。

平成27年度までに、今後2年間で開発するニアフィールド総合評価システムの全体構想の検討、ニアフィールドシステム変遷に係る現象理解や個別モデル開発の情報・知見の調査及び集約、分野横断的・整合的な現象解析に向けた共通モデル・シナリオの整備を進めた（日本原子力研究開発機構，2016a）。平成28年度は、総合評価システムの機能要件を具体化し、システムの構成要素であるニアフィールド複合現象解析モデル、ニアフィールド核種移行解析モデル、およびシステムの動作基盤となるニアフィールド総合評価プラットフォームの開発を行った。また、ニアフィールドシステム変遷と核種移行に関する一連の成果を体系化するための手法の提案を行った。

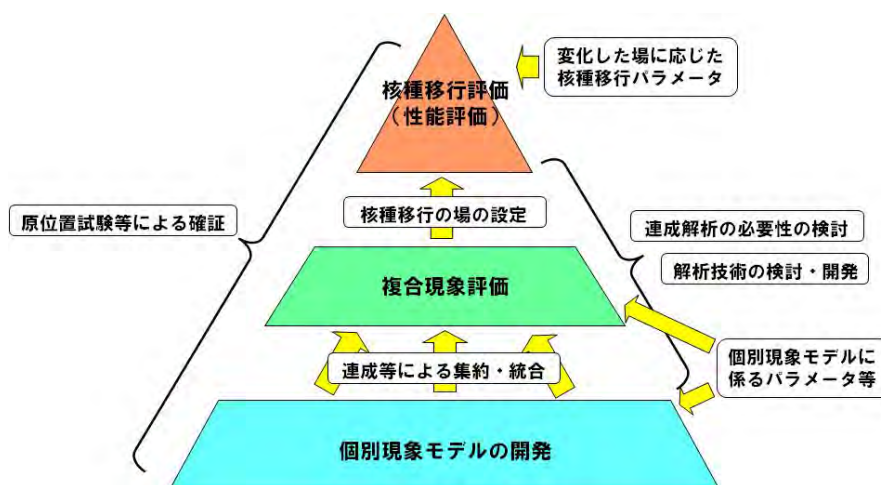


図 2.6.1-1 ニアフィールド総合評価の概念（日本原子力研究開発機構，2014a）

2.6.2 ニアフィールド総合評価システムの要件の具体化

平成27年度に検討したシステムの全体構想を図 2.6.2-1に示す。ニアフィールド総合評価システムは、ニアフィールドシステム変遷を評価するためのニアフィールド複合現象解析モデル、ニアフィールドシステム変遷を考慮して核種移行解析を行うニアフィールド核種移行解析モデル、各解析・評価で必要となる共通モデル・シナリオ・データベース、成果の体系化やユーザ支援に関するツールと、これらのモデルやツール、データベースの動作基盤としての役割を果たす総合評価プラットフォームで構成される。本項では、性能評価、現象理解、モデル・計算科学、知識マネジメントという4つの視点から定めたシステムの開発目標(日本原子力研究開発機構, 2016a)を達成するために求められる、システム構成要素の機能要件を具体化する。

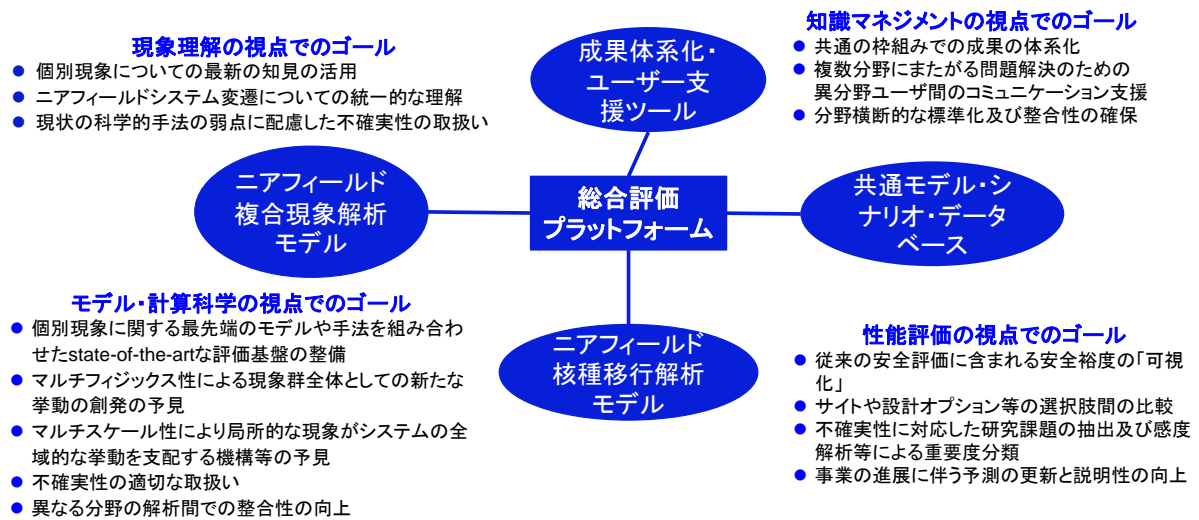


図 2.6.2-1 ニアフィールド総合評価システムの全体構想
(日本原子力研究開発機構, 2016a より一部改訂)

(1) ニアフィールド複合現象解析モデル

ニアフィールド複合現象解析モデル(図 2.6.2-1参照)は、ニアフィールドシステム変遷に関連する多様な現象及びこれらの相互関係についての理解を深め、これに基づく長期のニアフィールドシステム変遷評価の信頼性の向上を図るためのものであり、現象理解の視点から、以下の要件を満たすことを目標としている。

- ・ 個別現象についての最新の知見の活用
- ・ 分野横断的・整合的な理解
- ・ 現状の科学的手法の弱점에配慮した不確実性の取扱い

さらに、ニアフィールド複合現象解析モデルの開発を行うにあたり、数学モデリング・計算科学の視点からは、以下のような点に留意して開発を進めることにより、関連する多様な現象及びこれらの相互関係の重要な特徴を失うことなく、現実的な計算時間の中でこれらの総体について十分な精度でのシミュレーション実施を可能とすることを目標としている。

- ・ 個別現象に関する最先端のモデルや手法を組み合わせさせたstate-of-the-artな評価基盤の整備

- ・ マルチフィジックス性の現象群全体としての新たな挙動の創発（逡増や逡減のような連成現象に固有の特徴があらわれること）の予見
- ・ マルチスケール性により、異種材料間の境界等における局所的な現象がシステムの全域的な挙動を支配する機構等の予見
- ・ 知識ギャップ（複数の分野間の境界等のように従来の研究で得られた知見が不足している領域）による不確実性の影響の把握とそれに基づく不確実性の適切な取扱い
- ・ 異なる分野の解析間での整合性の向上：異分野のデータベース統合やインタフェイス等の分野についての知見収集及びそれを踏まえたインタフェイス開発

上記の開発目標を達成するための、ニアフィールド複合現象解析モデルの基本概念(図 2.6.2-2)について説明する。ニアフィールド複合現象モデルでは、化学-物質輸送-力学連成挙動を合理的に評価するための連成解析技術が必要となる。こうした連成解析技術では、マルチフィジックスとマルチスケールの複合問題に対処するために、そのような複合問題に含まれる多様な解析タスクの全体を、現実的な計算時間で実行可能なシステムを構築する必要がある。また、個別現象について最新の知見を活用するという目的から、既に各分野で研究が進められている、また、今後進められる最新のモデルや知見を取り込めるような柔軟性が求められる。そのため、図 2.6.2-2 に示すように、各分野の最先端の個別モデル（ソフトウェア）をそのままプラグインとして組み合わせることのできるプラットフォームを構築する。プラットフォームでは、個別モデルはそれぞれについて専用で作成されたインタフェイスを通じてミドルウェアと呼ばれる実行指示や共有データストレージを管理する役割を持つソフトウェアに接続されている。ミドルウェアから各モデルに対しては、実行や停止といった実行指示命令の他、各モデルへの入力情報等を送り、各個別モデルからは、モデルの実行により得られた出力データをミドルウェアに送り、共有データストレージに保管する。また、共通モデル・シナリオ及び共通データベース（後述）をミドルウェアと紐づけることで、ニアフィールド複合現象解析モデルやニアフィールド核種移行解析モデルにこれらの情報を活用できるシステムを構築する。

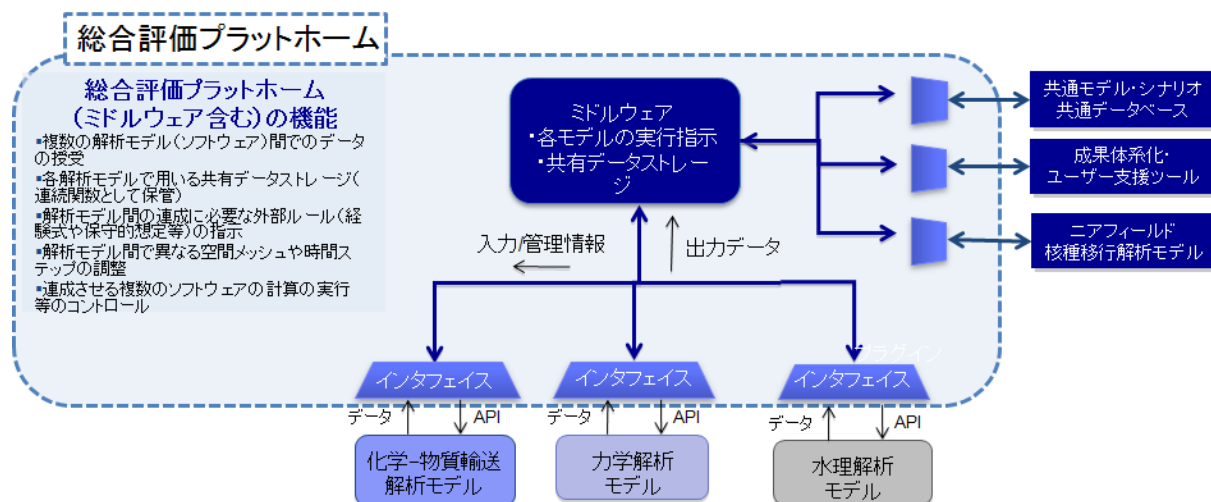


図 2.6.2-2 ニアフィールド複合現象解析モデルの基本概念

(2) ニアフィールド核種移行解析モデル

ニアフィールド核種移行解析モデル（図 2.6.2-1参照）については、性能評価の観点から、長期安全性についての説明性の向上、及び地層処分事業の各段階における多様なステークホルダの合意に基づく意思決定の根拠となる信頼性の高い情報の提供に資するシステムを目指して、以下を可能とするシステム開発を目標としている。

- ・ 従来の性能評価に含まれる安全裕度の「可視化」：現象理解に含まれる不確実性等に配慮した地層処分システムの性能の保守的な仮定に代わって、最新の知見に基づく予測に照らして最尤と考えられる状態での地層処分システムの性能を定量化し、その差分としての保守性の程度を定量化すること、また不確実性に起因する地層処分システム性能の変動幅と上記の保守性の程度を比較することにより、十分な安全裕度の存在を確認すること
- ・ サイトや設計オプション等の選択肢間の比較
- ・ 不確実性に対応した研究課題の抽出及び感度解析等による重要度分類
- ・ 事業の進展に伴う予測の更新と説明性の向上

上記の開発目標を達成するための、ニアフィールド核種移行解析モデルの基本概念を図 2.6.2-3に示した。基本的な構成はニアフィールド複合現象解析モデルと同様であり、既に開発が進められている核種移行解析モデルをミドルウェアとインタフェースで接続し、ニアフィールド複合現象解析モデルにおいて評価された長期環境変遷の情報や共通モデル・シナリオや共通データベースの情報を用いて核種移行解析を行う。核種移行解析の結果得られた情報は、成果体系化・ユーザ支援ツール（後述）に出力する。

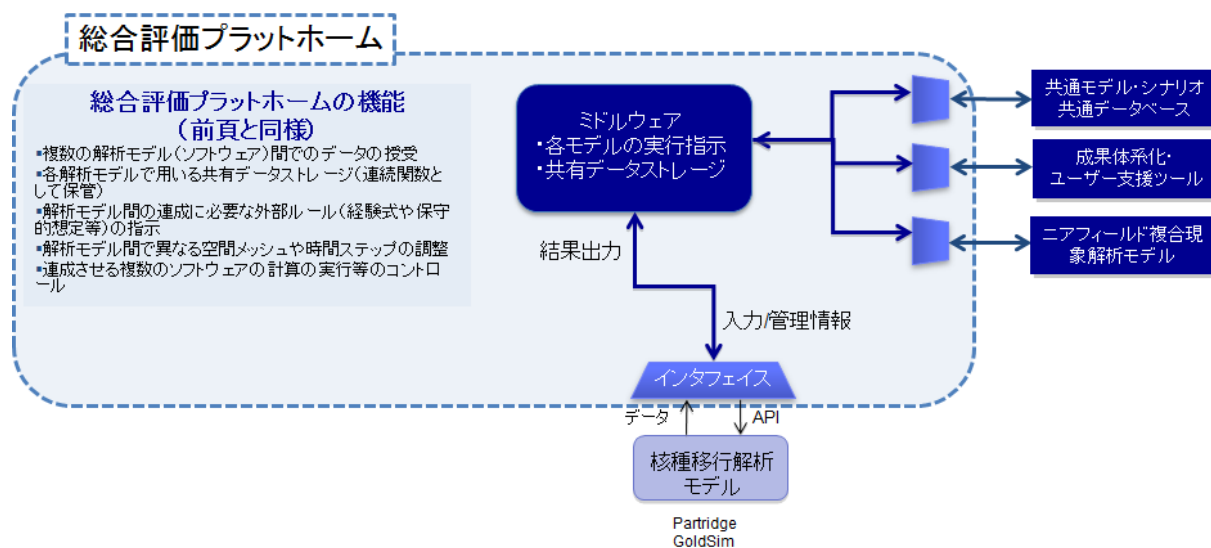


図 2.6.2-3 ニアフィールド核種移行解析モデルの基本概念

(3) 共通モデル・シナリオ及び共通データベース、並びに成果体系化・ユーザ支援ツール

ニアフィールドシステム変遷と核種移行に対する統一的な理解に向けて、共通する現象に対する研究領域間での取扱い、仮定、モデルについての競合・矛盾などを解消するための共通モデル・シナリオ及び共通データベース（図 2.6.2-1参照）を整備する。また、現象理解や計算科学の視

点から多様なデータやツール群を連携させるのみではなく、これらの開発や利用に携わるユーザがそれぞれ所有している知識やノウハウの効率的な共有及び分野横断的な協働による新たな知識の創出を支援するという知識マネジメントの視点に基づき、成果体系化・ユーザ支援ツール（図 2.6.2-1参照）を開発する。これらの整備・開発では、以下の要件を満たすことを目標としている。

- ・ 共通の枠組みでの成果の体系化：シミュレーションやストーリーボード等の共通の枠組みの作成によってシステム全体の挙動についての理解を統一的に表現する
- ・ 複数分野にまたがる問題解決のための異分野ユーザ間のコミュニケーション支援
- ・ 分野横断的な標準化及び整合性の確保

上記の開発目標を達成するための、共通モデル・シナリオ共通データベースおよび成果体系化・ユーザ支援ツールの基本概念を図 2.6.2-4に示した。基本的な構成はこれまでと同様であり、共通モデル・シナリオ共通データベースにおいてはミドルウェア上の共有データストレージとデータをやりとりする際に必要なインタフェイスを、成果体系化・ユーザ支援ツールにおいては、ユーザ支援ツールで入力された値や、ミドルウェアに格納されている一連の解析結果から、成果の体系化を行う為に必要な情報整理のためのインタフェイスを作成する。また、実際にユーザが本システムを用いる際のユーザインタフェイスとしての役割も果たす。

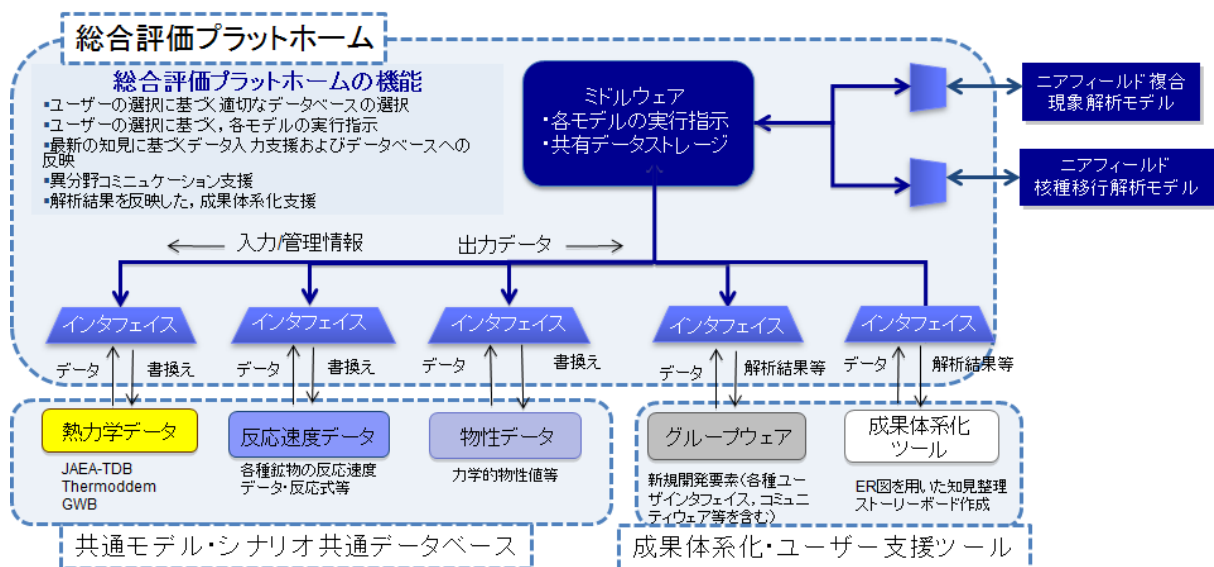


図 2.6.2-4 共通モデル・シナリオ共通データベースおよび成果体系化・ユーザ支援ツールの基本概念

(4) 総合評価プラットフォーム

1) ミドルウェアに要求される機能

総合評価プラットフォーム（図 2.6.2-1～4参照）のミドルウェアにおいて想定されている役割は個別モデルの「コントローラ機能」と「共有データストレージ機能」である。コントローラ機能は、連成解析において、あるタイムステップでのあるモデルの計算を一時的に停止させ、ミドルウェアの共有ストレージから情報を受け取った後に計算を再開させる、といった一連の計算実行や停止等の指示を行うことができるような機能である。また、異なる分野（力学・化学）、異なる

るスケール（全体と局所）あるいは異なる部分領域間の整合性をチェックし、必要に応じて動的な対応（例えば新たな情報を用いて前タイムステップに戻って再計算を実施させる、あるいはタイムステップを小さくして再計算させる等）を指示するといった機能も求められる。共有データストレージ機能は、解析に関連する諸情報の空間分布とその時間変化を一元的に管理する機能である。

2) インタフェイスに要求される機能

インタフェイスに要求される機能は基本的には対応する個別モデルによって異なるため、ニアフィールド複合現象解析モデルとニアフィールド核種移行解析モデルの両者のインタフェイスに共通な機能、共通モデル・シナリオ共通データベースのインタフェイスに必要な機能、成果体系化・ユーザ支援ツールに必要な機能に分類して説明する。

①ニアフィールド複合現象解析モデル/ニアフィールド核種移行解析モデルインタフェイス

ニアフィールド複合現象解析モデルのインタフェイスには、連成解析のための時間的・空間的補間（補外）機能が必要である。これは、異なるタイムステップや空間メッシュを用いる解析モデルに対して、ミドルウェアの共有データストレージからの情報を各モデルへの入力情報に変換する機能や、各モデルからの出力を共有データストレージに関数として格納する機能が考えられる。基本的には各モデル出力を内挿することによって、空間的かつ時間的に連続な関数として格納する。また、解析ルールの追加（変更）機能も考えられる。これは、ある個別モデルの解析結果を受けて、別の解析モデルに対し必要な外部ルール（構成式の変更等）を指示する。

ニアフィールド核種移行解析モデルのインタフェイスについては、ニアフィールド複合現象解析モデルから、タイムステップ毎に共有データストレージに出力されている拡散係数、流速、pH等といった情報を読み取る機能が必要であり、さらにこの際に適宜情報を補間して用いる機能が必要である。また、放射線分解の影響など、核種移行解析モデルから現象解析モデルへの影響を考慮して解析を行うことを想定した場合、共有データストレージからの入力だけではなく、各タイムステップでのデータストレージへの出力機能も必要である。さらに、複合現象解析モデルのインタフェイスと同様に、解析ルールの追加（変更）機能も必要であると思われる。

②共通モデル・シナリオ共通データベースインタフェイス

データベースに保存された情報を実際にニアフィールド複合現象解析モデルやニアフィールド核種移行解析の入力情報として使用することができるような、ミドルウェアとのインタフェイスを提供することが目的である。そのために、以下のような機能が必要であると考えた。

まずは、ミドルウェアからニアフィールド複合現象解析モデルや核種移行解析モデルに実行指示を与える際に、使用するデータベースを選択できる機能である。ここでは、ユーザの選択に基づき、適切なデータベースを選択して解析を行う機能が当然必要であるが、選択されたモデルに応じて、単位の変換や例外処理等、データベース間の不一致を是正する機能も実装する必要がある。

次に、そのデータベースを入力できる機能も必要である。これは最新の知見に基づき、ユーザがデータ入力を行うことを支援する機能、データベースへの反映を行う機能であるが、成果体系

化・ユーザ支援ツールとも連携して、入力された情報についての確認や意見交換等ができる機能も付属していることが望ましい。また、上記で選択された内容に合わせて実際にモデルの実行を指示するモデル指示機能も必要である。

③成果体系化・ユーザ支援ツールインタフェイス

ニアフィールド複合現象解析モデルや核種移行解析モデルを実行して得られた成果を体系化して共有化すること、またそれを基にユーザ、特に異分野間のコミュニケーションを図ることができることが目的である。なお、成果の体系化については、2.6.6項において実際にどのような体系化が可能かを試行している。

3) 総合評価プラットフォームに必要な機能のまとめ

これまで述べてきた総合評価プラットフォームに必要な機能を表 2.6.2-1にまとめた。

表 2.6.2-1 総合評価プラットフォームに必要な機能のまとめ

		機能	機能説明
ミドルウェア		コントローラ機能	<ul style="list-style-type: none"> ・インタフェイスを介して各ソフトウェアの計算実行を指示 ・異なる分野（力学-化学）、異なるスケール（全体と局所）あるいは異なる部分領域間の整合性をチェックし、必要に応じて対応（新たな情報を用いて前タイムステップに戻って計算を実施する、あるいはタイムステップを小さくして計算を再実行する等）を指示
		共有データストレージ機能	<ul style="list-style-type: none"> ・解析に関連する諸情報の空間分布とその時間変化を一元的に管理 ・上記の各情報は、上流側の各ソフトウェア出力を内挿することによって空間的に稠密かつ時間的に連続な関数として格納する
インタフェイス	NF複合現象解析モデル/NF核種移行解析モデル	時間的・空間的補間（補外）機能	解析モデル間で異なる空間メッシュや時間ステップを調整する。ミドルウェアの共有データストレージからの情報を各ツールへの入力情報に変換する機能や、各ツールからの出力をミドルウェアの共有データストレージに格納する機能
		解析ルール追加（変更）機能	解析モデル間の連成に必要な外部ルール（経験式や保守的想定等）を指示する。これには、例えば初期条件や境界条件の指定に関するルールや、解析モデルの選択についてのルール等が含まれる
	共通モデル・シナリオ共通データベース	データベース選択/入力支援機能	<ul style="list-style-type: none"> ・ユーザの選択に基づき、適切なデータベースを選択して解析を行う機能。単位の変換や例外処理等、データベース間の不一致を是正する機能を実装する必要がある。 ・最新の知見に基づき、ユーザがデータ入力を行うことを支援する機能、データベースへの反映を行う機能
		モデル実行指示機能	ユーザの選択（入力）に基づき、ミドルウェアから各モデルへの実行指示情報を書き換える機能
成果体系化・ユーザ支援ツール		成果体系化機能	<ul style="list-style-type: none"> ・現象解析や核種移行解析の解析結果を反映した、成果体系化支援ツール。例えば、ストーリーボードの作成機能等が考えられる。 ・解析の結果だけではなく、既往の実験結果等の知見の体系化機能
		コミュニケーション支援機能	上記の成果体系化機能で整理された知見等を参照し、異分野間のコミュニケーションを支援する機能

2.6.3 総合評価プラットフォームの設計

本項では、総合評価プラットフォームの開発環境の調査、及び、2.6.2項で述べたミドルウェアやインタフェイスの要件に基づいたプラットフォームの設計を行う。

(1) 総合評価プラットフォームの開発環境の調査

既に述べたように、ニアフィールド複合現象評価における化学-物質輸送-力学連成解析に向けて、それぞれの分野で独自に開発された適切な解析モデルを組み込むことの可能なミドルウェアおよびインタフェースを開発する。ソフトウェア間を接続し、解析を進めながらデータ交換や計算制御をするモデル開発環境としては、国際的に利用されているモデル連成フレームワークを利用する。

本項では、欧州を中心とした非営利グループによって開発されているモデル連成フレームワークOpenMI (<http://www.openmi.org/>)の概要の調査と、総合評価プラットフォームへの適用性を検討した。

OpenMI (Open Modeling interface)は、連携するソフトウェア（個別モデル）のインタフェースを定義する規格（OpenMI standardと呼ぶ）と、この規格に沿ってデータ交換、計算制御を行うための環境（OpenMI environment）を提供している。以下、これらの規格および環境をいずれもOpenMIと称することとする。

連成解析モデルの開発環境としてOpenMIを用いる利点としては、以下の点が挙げられる。

- ・ 独立するソフトウェア構成要素間のパラメータを、タイムステップ毎にやりとりするような問題に対し、汎用的に用いることができる座標変換や単位変換等の機能を持つ
- ・ ソフトウェア構成要素に含まれるプログラム（モデル）をライブラリ化（DLL ファイル形式に変換）することで、要素モデルの開発言語によらず、使用することが可能
- ・ 上で述べた機能を有するので、様々なモデル、データベース、解析あるいは可視化プログラム等をリンクさせることが可能
- ・ 環境分野の問題（主に水理・水文・水質シミュレーション）に対し使用された実績が豊富
- ・ オープンソースのプログラムである

以下に、OpenMIの機能と複合現象解析モデルインタフェースの要件との比較を行った。

1) OpenMIで用いられている手法

OpenMIの特徴として、ランタイム（プログラム実行中）にデータ交換を行う手法を定義している点が重要である。データ交換を逐次行うことによって、プロセス間の相互作用やフィードバックループの適切な取扱いが可能となる。そのために、OpenMIでは、モデルを連結させる際にファイルへの書き出しによるデータ交換ではなく、モデルに直接アクセスしてデータ交換する手法を用いる。具体的には、ある個別モデルが他のモデルからの要求を受けた際にそれに対して応答するという”request-reply”メカニズムを採用しており、あるモデルが他のモデルからのデータを要求した際に、前者がGetValuesと呼ばれる機能呼び出し、後者からデータを取得することとなる。複数のモデルを連成させる際には、モデル間で単純にGetValues関数を連続させる場合や、フィードバックをかけるような場合が起こりえる。GetValues関数を呼んだ際に、既に値が計算されていれば単純に値を返すだけであるが、計算がなされていない場合はその値が返されるまで計算を行う、あるいは、他の計算結果を待っているために計算が行われなかったような場合には値を外挿するといった手法がとられる。また、モデル間のタイムステップが合っていない場合に内挿をする手法や、単位が揃っていない場合には変換を行う手法が用いられる。

2) 要求されている機能との比較

表 2.6.3-1に、2.6.2項で述べたニアフィールド複合現象解析用ミドルウェアおよびインタフェースに要求される機能と上記のOpenMIの機能を比較した結果を示す。コントローラ機能や時間的・空間的補間（補外）機能はOpenMIの内部機能として実装されている。一方、共有データストレージ機能については、OpenMIは交換パラメータを内部変数として直接受け渡すことを目指して作成されたインタフェースであるため、これに対する特有の機能は存在しない。ただし、オープンソースなプラットフォームであるため、あらかじめ形式を定めておいた共有データストレージに対して読み書きを行う機能を追加することは比較的容易であると考えられる。また、解析ルール追加（変更）機能については、OpenMIには実装されておらず、個別モデルにそのような解析ルール追加（変更）指示を行う機能を実装した上で、OpenMIのインタフェース側でその機能呼び出し可能なように改良する必要がある。このような改良も、OpenMIがオープンソースのプログラムであるため、基本的には実装可能である。

表 2.6.3-1 連成解析用ミドルウェアおよびインタフェースに要求される機能と OpenMI 中の対応する機能

要求される機能	機能概要	OpenMI上での対応する機能有無
コントローラ機能	インタフェースを介して各ソフトウェアの計算実行を指示する機能	有。 メモリ上に構築された個別モデルを実行することが可能である。個別モデルの実行はモデル内の1タイムステップ単位で可能。
共有データストレージ機能	解析に関連する諸情報の空間分布とその時間変化を一元的に管理する機能	無。 OpenMIの機能としては実装されていないが、共通のデータストレージからの外部変数の出入力方法を定め、その機能のOpenMIインタフェースへの実装は比較的容易である。
時間的・空間的補間（補外）機能	解析モデル間で異なる空間メッシュや時間ステップを用いている際にこれを調整する機能	有。 OpenMI中で定義されているクラスを用いることで、空間メッシュやタイムステップの種類に応じた、補間機能を用いることが可能。
解析ルール追加（変更）機能	ある個別モデルの解析結果を受けて、別の解析モデルに対し必要な外部ルール（経験式や保守的想定等）を指示する機能	無。 OpenMIの機能としては存在しないため、インタフェースおよび個別モデル側で対応した機能を独自に実装する必要がある（個別モデル中の、左記のような機能呼び出す等）。

(2) 総合評価プラットフォームの設計

ここでは、本検討で想定する連成解析の概念と、OpenMIを用いた総合評価プラットフォームの設計および開発手順について述べる。

1) ニアフィールド複合現象に関する連成解析の概念

処分坑道内の埋め戻し材にセメント系材料を想定するTRU地層処分施設(Gr3/4)では、2.5章で検討したように、鋼製材料の腐食膨張などによってセメント系埋め戻し材(コンクリート)にひび割れが生じると考えられる。ひび割れが生じた箇所では、ひび割れ部を中心としたコンクリート成分の溶脱により強度が低下することとなり、さらにひび割れが進行するといった現象が生ずる可能性がある。また条件によっては、割れ目内を二次鉱物が生成して塞ぐことにより、連続するプロセスを抑制する可能性もある。こうしたマルチフィジックス性の問題を対象としたニアフィールド複合現象解析では、施設の変形挙動やニアフィールド全体としての地下水流動といった巨視的スケールで捉えるべき現象に対しては、系全体を対象とした解析を行う必要がある一方、ひび割れ近傍での局所的な振る舞いについては、これを考慮しない場合には現象の本質的特徴が表現できないので、高い解像度でモデル化して解析に反映することが重要となる。

図 2.6.3-1に、TRU地層処分施設(Gr3/4)の処分坑道(坑道内の埋め戻し材にセメント系材料を想定)を対象とした連成解析の概念を示す。本検討では、岩盤クリープおよび鉄腐食膨張を考慮した坑道全体の変形や、坑道全体を横切るような地下水流れについては、有限要素法による力学解析モデルMACBECE2014改良版(日本原子力研究開発機構, 2016a)と水理モデルFEMWATER(Hsin-Chi J. et al., 1997)を用いた巨視的スケールの解析を行う。このような系で力学解析を行うと、2.5章で示したように、廃棄体部から支保までを貫通するようなひび割れが廃棄体の隅角部周辺に集中して生じることが予想される(例えば、図 2.6.3-1の扇形で示した部分)。このようなひび割れの入りやすい坑道の一部(以降、「破壊可能域」とする)を対象として、2.6.4項で述べる有限要素法による可変グリッド型化学-輸送解析モデルGARFIELD-CHEM(Grid Adaptive Refinement Finite Element Discretisation-CHEMistry)と粒状体個別要素法(DEM法)による力学解析モデルDEAFRAP(Distinct Element Analysis for FRACTure Propagation)を用いた高解像度の連成解析を行う。また、破壊可能域以外の部分については、ひび割れの発生は想定せずにGARFIELD-CHEMを用いて低解像度で解析を行うといった手法が考えられる。巨視的スケールの解析から局所スケールの解析へは、破壊領域を指定する他、系全体の応力分布や流速分布などの情報を境界条件として与えることとなる。局所スケールの解析からは、破壊領域で生ずる局所的な力学的特性変化、化学的状态変化および物質輸送特性変化の情報を、巨視的スケールの解析に返すこととなる。

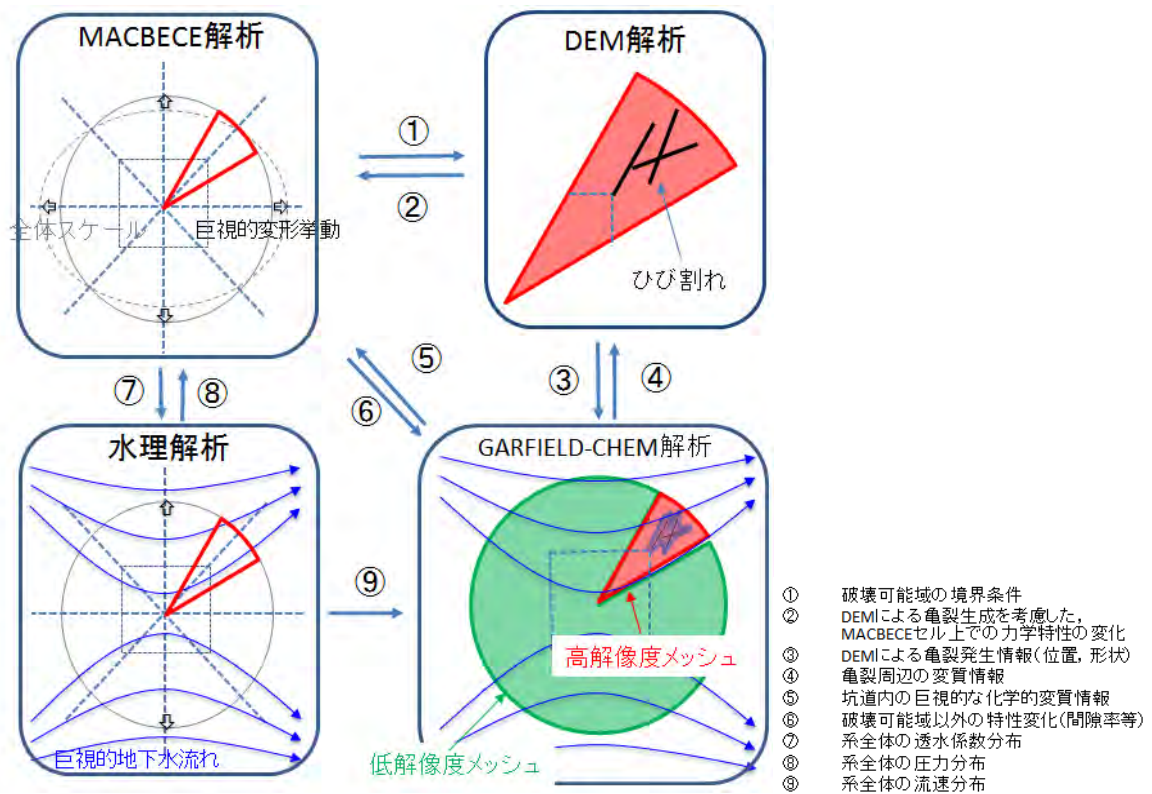


図 2.6.3-1 TRU 地層処分施設を対象とした連成解析の概念

(○数字はデータ交換の内容を表す、DEM解析にはDEAFRAPを、水理解析にはFEMWATERを用いる)

2) OpenMIを用いた総合評価プラットフォームの基本構成

総合評価プラットフォームの基本構成を図 2.6.3-2に示す。ニアフィールド複合現象解析モデルに組み込まれた個別モデル間では、図 2.6.3-1の連成解析の流れに沿って、ミドルウェアを介して①～⑩のデータ交換を行う。また、連成解析によって得られる空間的、時間的なシステム変遷に関する情報は、核種移行の場の設定の情報として、ニアフィールド複合現象モデルから2.6.5項で述べる可変グリッド型核種移行解析モデルGarfield-RNT (Grid Adaptive Refinement FInite ELeMent Discretisation-RadioNuclides Transport) に適切な解像度で渡される。ニアフィールド複合現象解析モデルから核種移行解析モデルへの情報伝達は一方向とする。

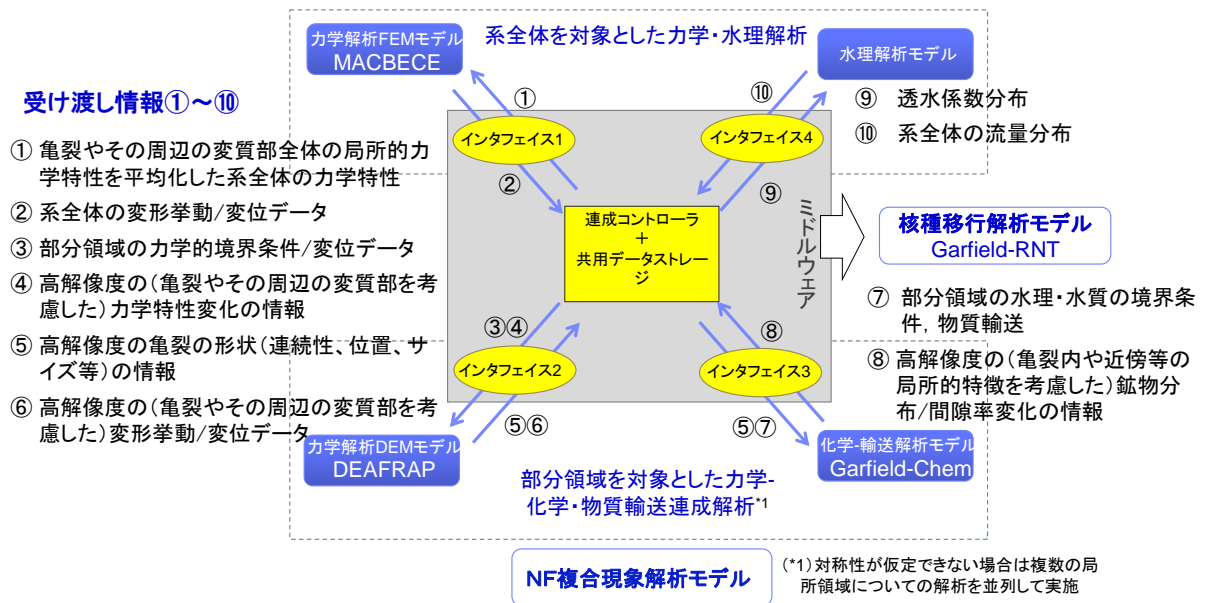
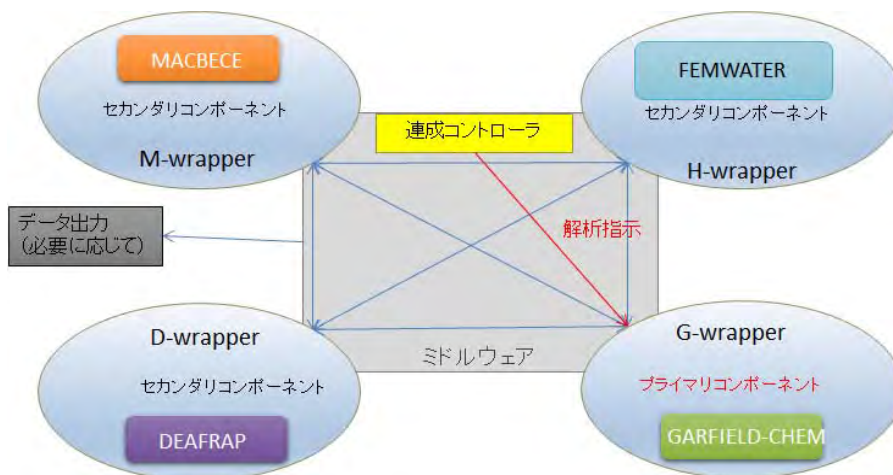


図 2.6.3-2 総合評価プラットフォームの基本構成

図 2.6.3-1に示した連成解析の概念に沿って、また図 2.6.3-2のプラットフォームの基本構成に基づき、OpenMIのインタフェースを利用した連成解析のフレームワークを図 2.6.3-3に示す。図中央の「ミドルウェア」は、OpenMIのインタフェースのうちの連成コントローラ機能を有するものである。共有データストレージは内部には保持しておらず、必要に応じてファイル出力機能の追加などを行う必要がある。連成コントローラは、OpenMIの手法に則って、トリガーとなる個別モデル(図では「プライマリコンポーネント」と表示)に対し数タイムステップ分の連成解析の指示を出し、その後は個別モデル間で必要な値をリクエストして連成解析を進めていく。それぞれの個別モデルは「Wrapper」と呼ばれるOpenMI側で作成されたインタフェースでミドルウェアと接続される。Wrapperに個別モデルを組み込むために必要な機能が個別モデル側に用意されていない場合は、個別モデル側でコードの改良を行う必要が生じる。



(3) 総合評価プラットフォームの開発手順

連成解析技術の開発においては、連成解析を行うことによって得られた知見を次段階の開発に活用することが重要と考える。そのためには、個別モデルを繋いで動かすという固定された設計目標に向かって効率的に進める（ウォーターフォール型アプローチ）のではなく、現象理解とソフトウェア設計・開発とを反復的に繰り返し、理解と経験の蓄積に伴い設計を変更できるような柔軟な取り組み（アジャイル型開発アプローチ）が必要となる。アジャイル型アプローチを考慮した総合評価プラットフォームの開発手順の概念を図 2.6.3-4に示した。ここでは、開発段階をいくつかのフェーズに分けて各フェーズにおける目標（あるいは解くべき例題）を設定し、各々のステップの目標達成のために必要な個別モデル、Wrapper、連成コントローラの各開発要素をクリアしていき、例題を徐々に最終的な例題に近づけていくことで各開発要素の高度化を行っていくというアプローチを採用している。また、各フェーズにおけるドキュメント化を行うことで、開発過程の可視化や、後段のフェーズで生じた問題の解決、さらには複数グループ間での情報共有が可能になる、といった利点を得ることができる。

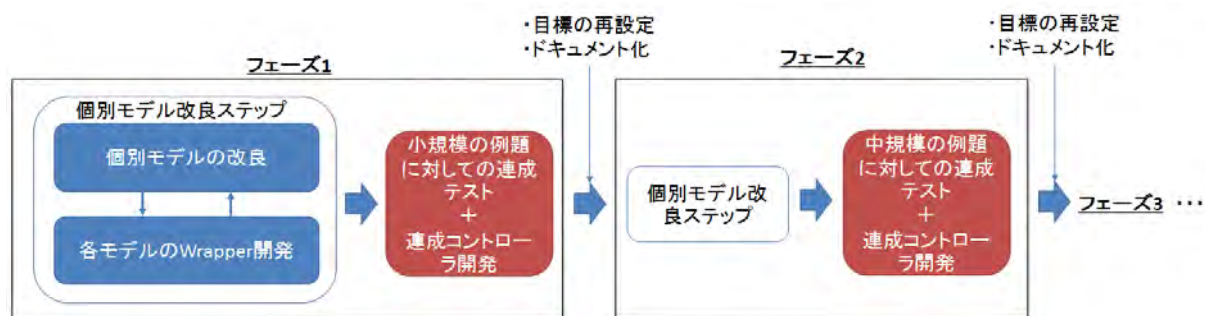


図 2.6.3-4 総合評価プラットフォームの開発手順の概念

2.6.4 ニアフィールド複合現象解析モデルの開発

本項では、化学-物質輸送-力学連成解析を行うニアフィールド複合現象解析モデルの開発について述べる。ニアフィールド複合現象解析モデルでは、既に述べているように、可変グリッド法を用いた化学-物質輸送解析モデルであるGARFIELD-CHEM、人工バリア材等の変形や割れを表現することの可能な力学解析モデルであるMACBECE2014改良版およびDEAFRAP、水理解析モデルであるFEMWATERを組み込むことを想定する。

(1) ニアフィールド複合現象解析モデルの開発

1) 本年度の開発範囲および連成解析フローの検討

図 2.6.3-1に示したような連成解析を可能とすることが本モデル開発の1つの大きな目標であるが、2.6.3項で述べたように、アジャイル型アプローチに従って段階的なステップを経て開発を行っていく必要があると考える。今年度は、図 2.6.3-1に示した連成解析のうち局所スケール・高解像度の部分を主対象として、化学-物質輸送-力学連成解析を実施し、その結果に基づき、2.6.5項で核種移行解析まで行うことを目標とした。

図 2.6.4-1に本年度の開発対象とする連成解析と、連成解析におけるデータ交換の概念を示す。また、この連成解析において個別モデル間で交換される具体的なパラメータを表 2.6.4-1にまとめた。

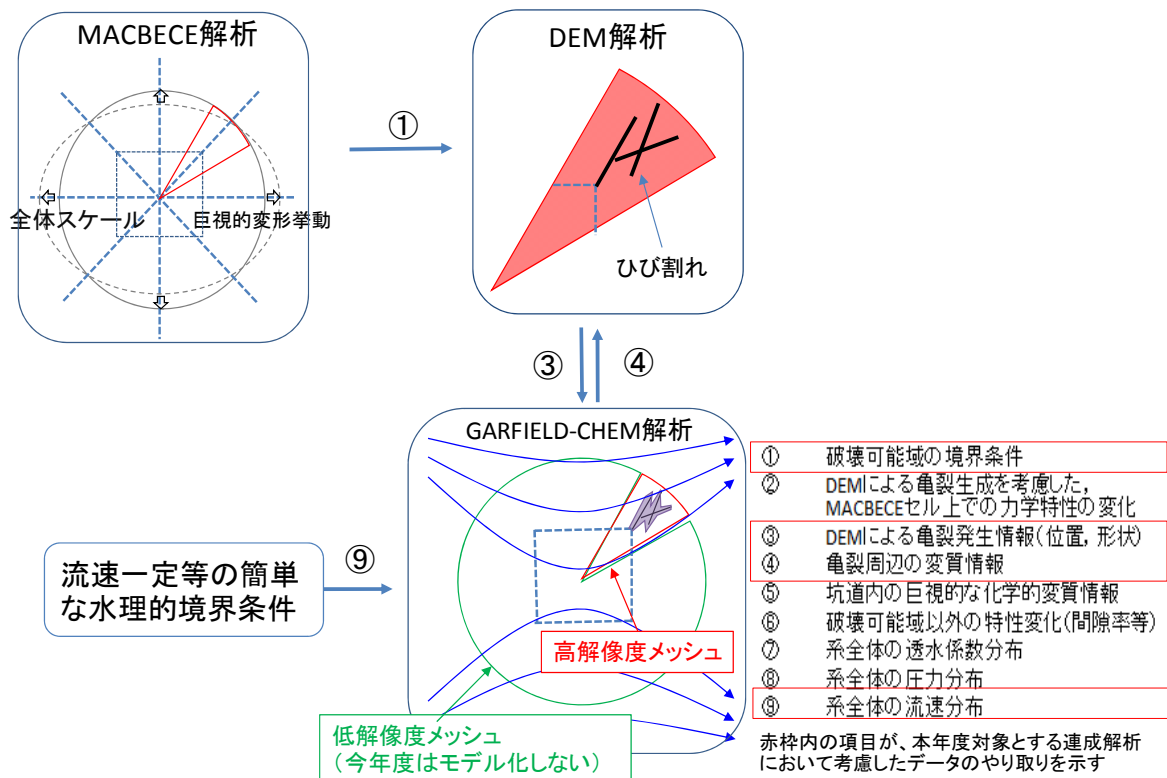


図 2.6.4-1 本年度対象とした連成解析とデータ交換の概念

(○数字はデータ交換の内容を表す、DEM解析にはDEAFRAPを用いる)

表 2.6.4-1 本年度の連成解析で交換されるパラメータ

番号・名称	方向	説明
①破壊可能域の境界条件	M→D	MACBECE2014改良版で得られた、破壊可能域境界上の変位の時間変遷をDEAFRAPに渡す。
③亀裂発生情報	D→GC、H	DEAFRAPで得られた亀裂発生情報（位置や開口幅、発生時間等）をGARFIELD-CHEM及び水理解析に渡す。
④亀裂周辺の変質情報	GC→D	亀裂周囲を含めた破壊可能域全体の変質情報（間隙率）をDEAFRAPに渡す。
⑨系全体の流速分布	H→GC	簡単な水理解析から得られた、破壊可能域系内の流速をGARFIELD-CHEMに渡す。

※MはMACBECE、DはDEAFRAP、GCはGARFIELD-CHEM、Hは水理解析（本検討ではFEMWATERを使用）を指す

連成解析フローを図 2.6.4-2に示す。本年度の解析においてはMACBECE2014改良版による10万年程度の全体スケールでの力学解析を実施し、そのそれぞれのタイムステップでの変位情報をDEAFRAPに渡して局所スケールの力学解析を行う。GARFIELD-CHEMとDEAFRAP間の連成については、初期状態（ひび割れの無い状態）を想定したGARFIELD-CHEM解析を先行させ、GARFIELD-CHEMの解析から得られる間隙率変化の情報を適宜反映しながらDEAFRAPによる計算を進めるとともに、DEAFRAPの解析により求められる亀裂発生情報をGARFIELD-CHEMの解析モデルに反映する手法を構築した。

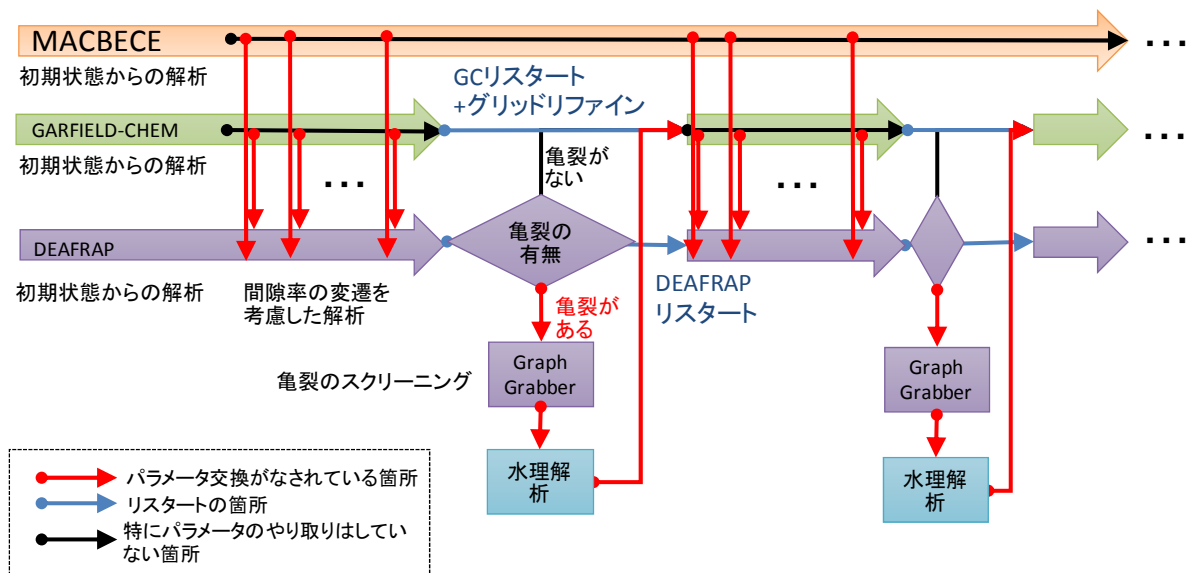


図 2.6.4-2 連成解析のフロー図

GARFIELD-CHEMからDEAFRAPへの情報反映については、近接する複数のCellの間隙率を平均化させる手法の一種である逆距離加重法(Inverse Distance Weighted: IDW) (Shepard, 1968)を用いて、GARFIELD-CHEMによって計算された間隙率分布をDEAFRAPにおける各粒子の間隙率に反映させ

るものとした。GARFIELD-CHEMの間隙率分布をDEAFRAPのDEM粒子の間隙率へ変換する手法の概念図を図 2.6.4-3に示す。さらに、セメント系材料のカルシウム溶脱率及び間隙率と剛性・圧縮強度との関係（奥津ほか，2005）を参考に、間隙率と強度・剛性の関係式を導出し、その関係式に基づき、DEMの力学モデルにおける粒子間結合ばねの剛性や強度を間隙率の関数として表現した。

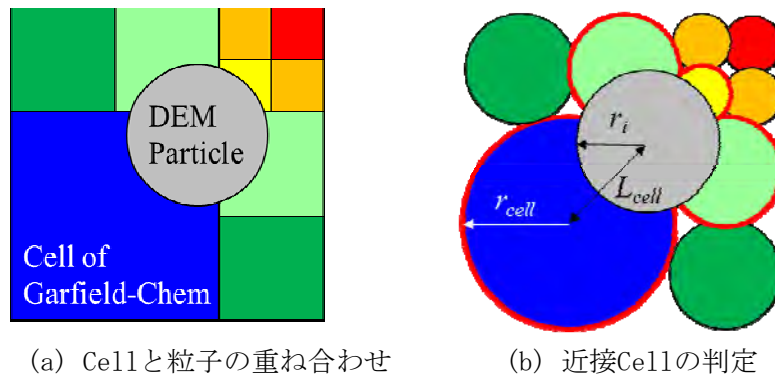


図 2.6.4-3 GARFIELD-CHEM の間隙率分布を DEM 粒子の間隙率へ変換する手法

（各セルの面積と同じ面積を持つ円の半径を r_{cell} とする。着目する粒子の半径を r_i 、粒子の中心と、隣接するセルに相当する円の中心との距離を L_{cell} とし、 $L_{cell} - (r_i + r_{cell})$ が任意の値（本解析では r_i に設定）を下回る場合に、当該セルを粒子に近接するセルであると判定する。さらに、近接するセルと判定された全てのセルの間隙率から、粒子中心から各セル中心点への距離に応じた重みづけ平均値を求め、これを粒子の間隙率とした）

DEAFRAP からGARFIELD-CHEMへの情報反映については、DEAFRAPの解析で求められる個々の粒子間の結合の破断により生じる亀裂の中には、選択的な物質移行経路として寄与しない非貫通性の亀裂も多数含まれ、亀裂の全てをGARFIELD-CHEMのモデルに反映することは効率的ではないと考えられた。そこで、既往の検討（日本原子力研究開発機構，2012；2014b）における「連続亀裂」の概念を導入して、物質移行への寄与が大きい連続亀裂のみを表 2.6.4-2に示した指標に従って抽出し、GARFIELD-CHEMのモデルに反映させるものとした。微小亀裂と連続亀裂の概念を図 2.6.4-4に示す。このような手法に基づき、DEAFRAPで求められた亀裂の発生状況を画像で表現し、画像上の位置情報を数値データとして取得することが可能な画像処理ソフトを用いて数値化した上で、GARFIELD-CHEMのモデルに反映させた。GARFIELD-CHEMではこの際にグリッドリファインを行うものとした。

図 2.6.4-2のフローでは、GARFIELD-CHEMとDEAFRAP間の連成によって計算された化学的変質に起因する力学的特性変化とこれによるひび割れの進展や応力分布の変化という情報のMACBECEへのフィードバックがからない計算となるが、こうした局所スケールから全体スケールへのフィードバックを考慮した解析手法については次年度以降の課題とする。

表 2.6.4-2 小領域解析における亀裂情報抽出の指標

指標	条件	理由
亀裂開口幅	0.010mm以上	GARFIELD-CHEMにおける計算効率の観点から、最小の開口幅を0.01mmとした。
同一の連続亀裂のグループに属する微小亀裂の数	10以上	地下水の流路となり得る貫通性の亀裂を過度に排除しない値として設定した。

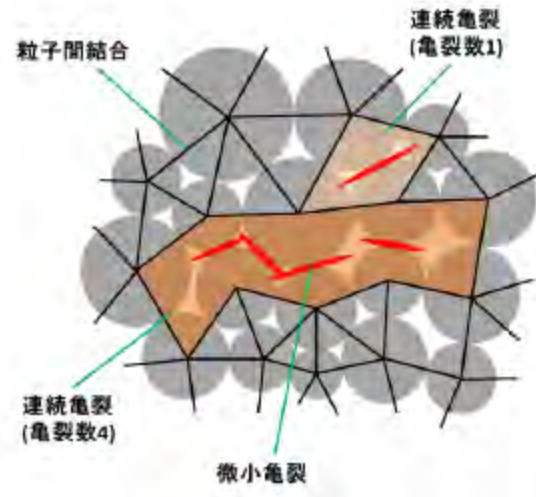


図 2.6.4-4 連続亀裂の導入による亀裂の連続性の評価の概念 (日本原子力研究開発機構, 2012)

2) 水理解析について

上述のように今年度の連成解析では廃棄体定置領域の隅角部に破壊可能域を設定し、そこに透水性の高い領域が生じると仮定して解析を行う。表 2.6.4-1中の⑨に示したように、本連成解析では破壊可能域内の亀裂に対し水理解析の結果から流速を与え、それをGARFIELD-CHEMに入力して化学-物質輸送解析を行うこととしている。その流量を計算するためには、ローカルな破壊可能域のみではなく、坑道全体を含む系において水理解析を行う必要がある。ここでは、図 2.6.4-5及び表 2.6.4-3に示す処分坑道スケールでの水理場とその前提条件を仮定して、その水理解析の手法を構築することとした。

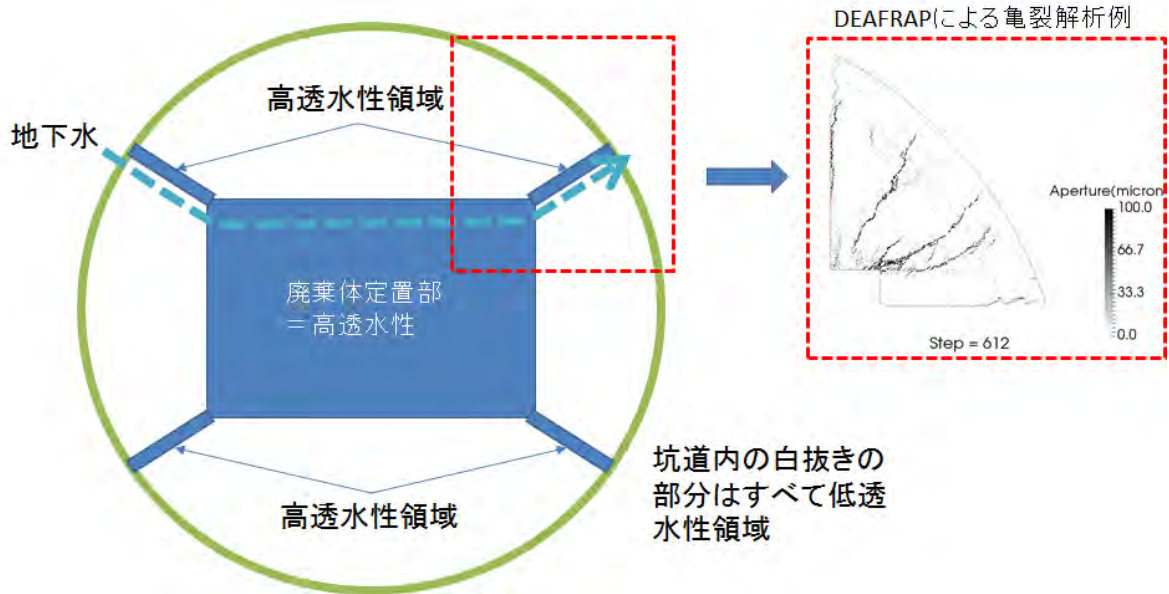


図 2.6.4-5 処分坑道スケールでの水理場の概念図

表 2.6.4-3 水理解析手法構築のための前提条件

仮定1	破壊可能域は4つの隅角部すべてに存在するものとし、いずれも同じように亀裂が発生するものとする。
仮定2	上記の破壊可能域の亀裂は必ずどこかのタイミングで廃棄体部から坑道外縁（支保工）の部分まで貫通するものとする。
仮定3	廃棄体定置部は非常に水を通しやすい構造になっていると仮定する。上記の仮定1、2と併せて考えると、破壊可能域で亀裂が入ったタイミングで、破壊可能域（上流）→廃棄体定置部→破壊可能域（下流）といった流れが生じることになる（図 2.6.4-5）。
仮定4	破壊可能域中の亀裂以外の部分および坑道内の破壊可能域以外の部分については低透水性が保たれているものと仮定する。

上記の仮定に基づき、破壊可能域に生成した貫通亀裂への流量を以下のような手順に従って計算することとした。

1. 亀裂が貫通したタイミングで、亀裂を含んだセル内で平均化された透水係数（透水係数テンソル）を計算する。今回の解析では、計算負荷の制約から、局所スケールで計算された亀裂情報は用いず、最初の全体スケールを対象としたMACBECEの解析において計算されたひび割れを含む要素の平均的な透水係数を代用した。
2. 図 2.6.4-5の概念図に基づき、TRU坑道断面を対象とした水理解析用の有限要素モデル（図 2.6.4-6）を作成する。この際、実際には貫通亀裂が数本存在することも考えられるが、このモデルの段階では1本の高透水性領域に代表させる。そのモデルに対し、1.で決定した透水係数テンソルを設定し、有限要素法による水理解析（ソフトウェア：FEMWATER）を行う。これにより解析領域全体での各要素上のダルシー流速の値を得ることが可能である。
3. 2.で計算されたダルシー流速分布から、図 2.6.4-5の高透水性領域内の流量を決定する。

その結果と実際にDEAFRAPで得られた、貫通亀裂の本数とそれぞれの開口幅とを比較して、貫通亀裂が複数存在する場合はそれぞれの開口幅に応じた流量の割り付けを行う。また、各亀裂の流量と開口幅から亀裂内のダルシー流速を計算し、その値をGARFIELD-CHEMに用いることで連成解析を再開する。

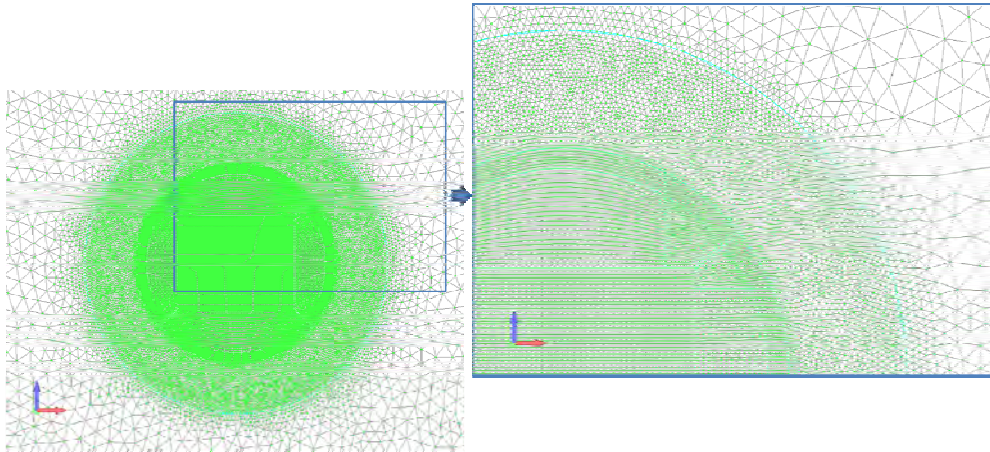


図 2.6.4-6 水理解析用の有限要素モデルおよびメッシュ

3) OpenMIを利用した解析モデルプロトタイプ構築

以上の連成解析手法に沿って、OpenMIのインタフェースを利用したニアフィールド複合現象解析モデルプロトタイプを構築した。

プロトタイプ構築は2段階で行うこととし、まず、解析結果の解釈が行いやすいという理由と、連成解析に伴う計算時間のオーバーヘッドを短縮する目的で、TRU Gr3/4坑道内の図 2.6.4-7に示したようなMACBECE上の一要素（約10cm四方）に対応する小領域を対象としたモデルを作成した。

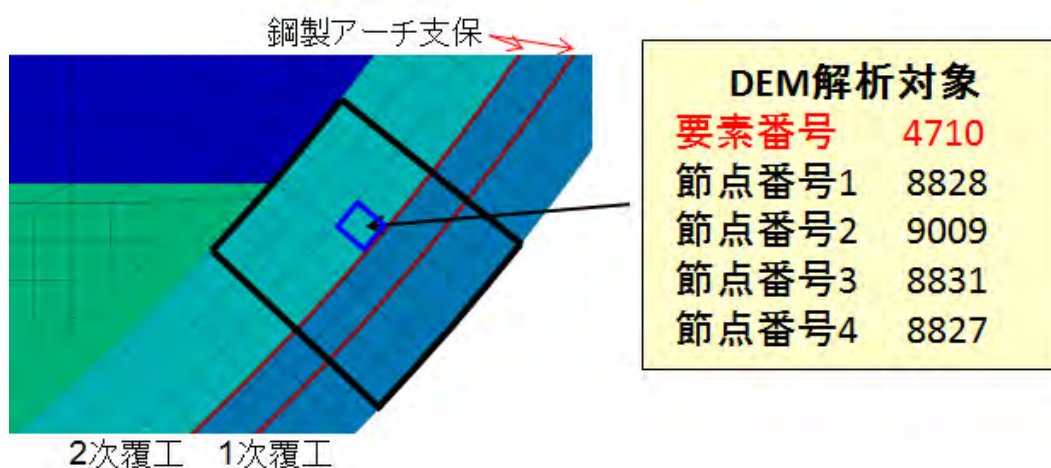


図 2.6.4-7 小領域の坑道内の位置

連成解析の結果を示す前に、平成27年度に実施した、MACBECEの解析の結果得られる要素の外周上の節点変位を基にしたDEAFRAPの解析例（日本原子力研究開発機構、2016a）を示す。領域内の

クラック数や応力の時間変化、強制変位を図 2.6.4-8に、発生した亀裂の様子を図 2.6.4-9に示す。ここに示した1タイムステップは62.5年に対応しており、以降本項の解析では基本的にこのタイムステップを時間の最小単位として解析を行う。図 2.6.4-9の結果は600ステップ目の結果であるが、これは坑道閉鎖後6750年の解析結果に相当するものである。

この結果によれば、DEAFRAPのみの解析の場合には、大小2本の亀裂が生じたことがわかる。この解析には、化学的な影響（セメント溶脱や亀裂内の二次鉱物沈殿による再閉塞）の効果は考慮されていないので、連成解析において化学的な影響がどのように結果に表れるのかを予察的に解析することが連成解析の主な視点である。

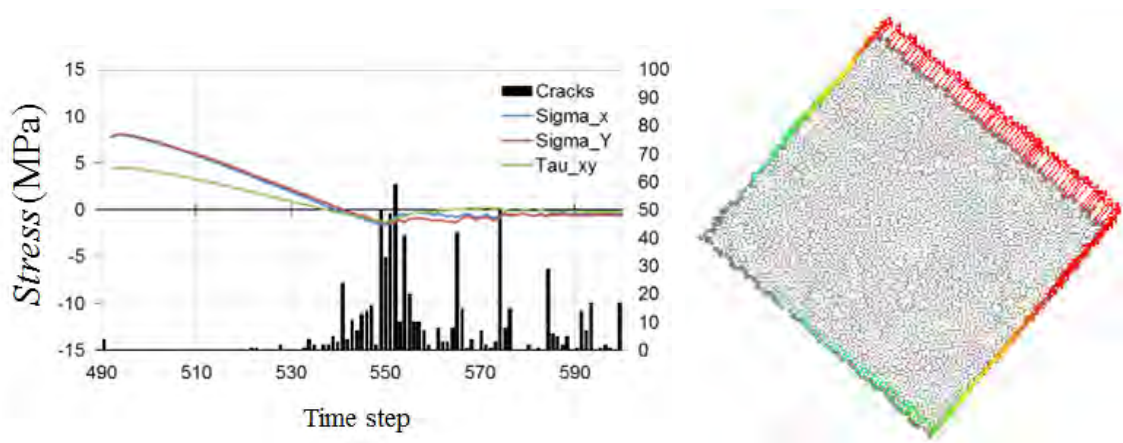


図 2.6.4-8 (左) 領域内のクラック数と応力の時間変化 (右) 領域に与えた強制変位の大きさと方向 (日本原子力研究開発機構、2016a の結果に基に作図)

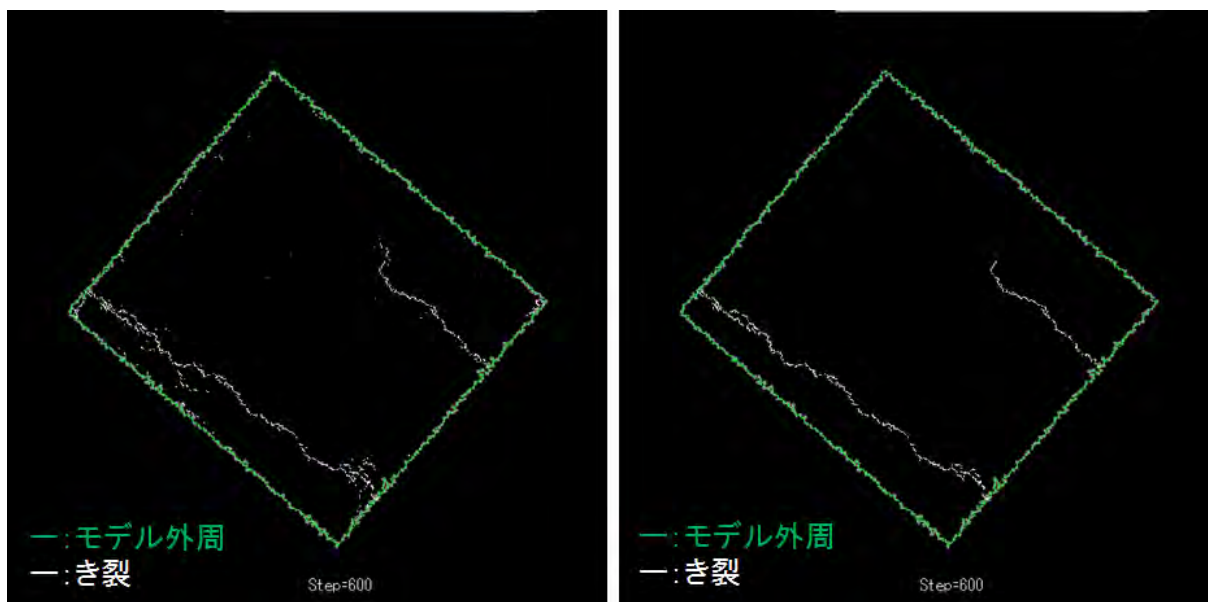


図 2.6.4-9 発生した全亀裂 (左) および 10 個以上の亀裂を含むグループのみを抽出したもの (右) (日本原子力研究開発機構、2016a の結果に基に作図)

また、日本原子力研究開発機構 (2016a) では、上記のDEAFRAP解析で発生した亀裂情報を

GARFIELD-CHEMに入力し、同一の解析体系において亀裂内および周辺の化学的変質の様子を解析した1方向の解析を実施している。その解析では、図 2.6.4-10に示す通り、紙面に垂直な方向の地下水の移流により、発生した亀裂内およびその周辺の変質が進んでいく様子をシミュレートした。図 2.6.4-11は、その解析の結果得られた間隙率の変遷の様子を示しており、その他にも以下のような現象が確認されている。

- ・ 亀裂内では主にカルサイトおよびジェナイトの沈殿により間隙率が低下する。
- ・ 亀裂周囲においては初期鉱物であるポルトランダイトやジェナイトが亀裂周囲で溶解しているため、間隙率が増加する。
- ・ 本解析では長い方の亀裂も短い方の亀裂もほぼ同様の変化を示しているが、亀裂の細かな形状を反映して不均質な変質が生じている。

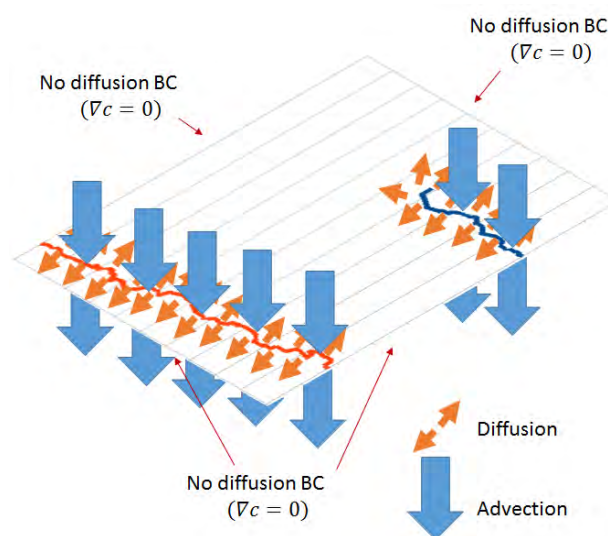


図 2.6.4-10 GARFIELD-CHEM 解析の境界条件
(日本原子力研究開発機構、2016aの結果に基いて作図)

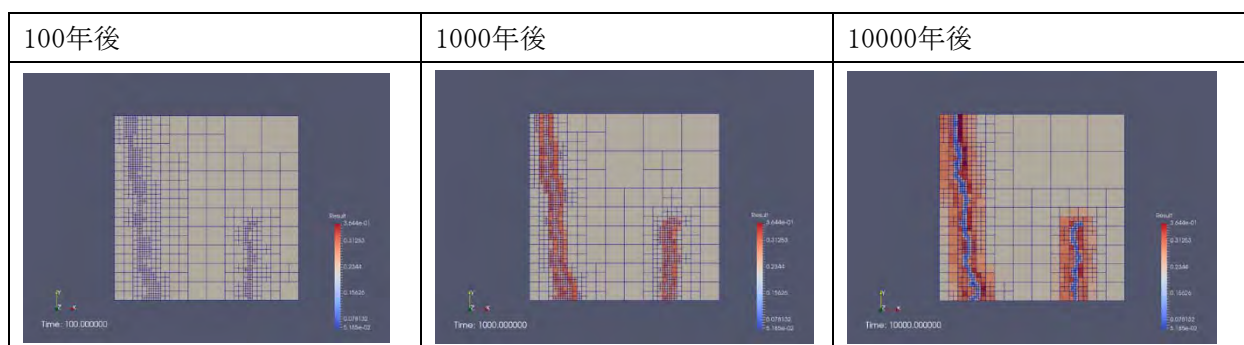


図 2.6.4-11 D→GC 一方向連成解析における間隙率の変遷 (日本原子力研究開発機構、2016a)

本検討では、上記で示した現象のうち、特に亀裂内の間隙率の低下や亀裂周囲の溶脱現象が、DEAFRAPとの双方向連成解析を行った場合にどのように影響するかといった点に着目して、同じ

MACBECEの要素を対象とした双方向の連成解析を、図 2.6.4-12に示した解析フローに従って行った。本フローは、図 2.6.4-2に示した処分坑道断面に対する解析フローを小領域解析のために簡略化したものである。このフロー図についての留意点は以下のようにまとめられる。

- ・ 坑道掘削、覆工から坑道閉鎖までの操業期間および閉鎖後を含めた10万年のMACBECEの解析における、492ステップ（坑道閉鎖後）の状態を、連成解析の開始時点（0年）とする。
- ・ 解析の1タイムステップはMACBECEの1step=62.5年を採用した。
- ・ 最初の3500年間は500年毎に亀裂発生の有無をチェックする。亀裂のスクリーニングは表 2.6.4-2に示した尺度に従った。結果的に3500年後に亀裂が発生していたので、その後に亀裂情報の受け渡しを開始した。3500年までもGARFIELD-CHEMの間隙率の値の受け渡しは行っているが、ほとんど値に変化はない。
- ・ 3500年以降は2step=125年毎に亀裂情報のアップデートを行う。

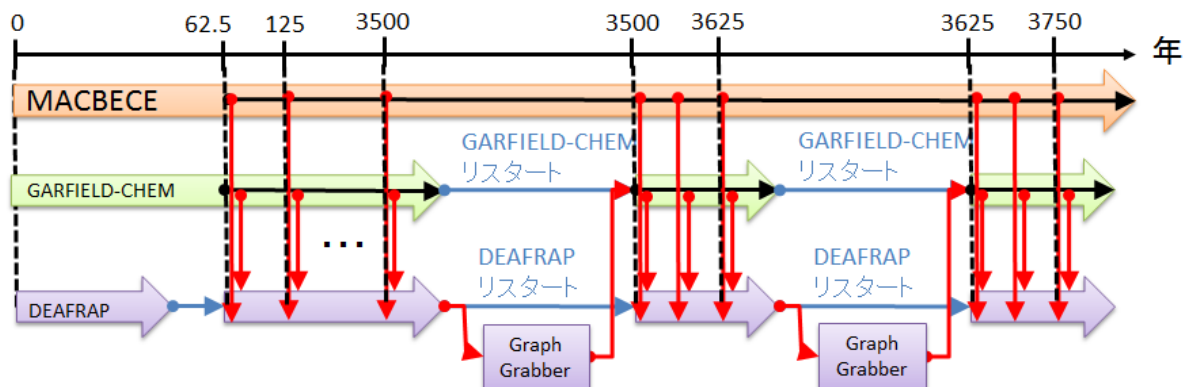


図 2.6.4-12 小領域の場合の連成解析のフロー図

小領域の解析で考慮する連続亀裂の開口幅の最小値は $10\mu\text{m}$ としているが、GARFIELD-CHEMで水理場を計算する際に用いる「亀裂開口幅」には、連続亀裂中の開口幅のうち最大値を用いて評価することとした。その他の化学-物質輸送解析側の解析条件については、上述のDEAFRAP→GARFIELD-CHEMの一方連成解析と同様のものとした（固相および液相の設定や鉍物の溶解反応速度の設定についての詳細は付録3を参照のこと）。

DEAFRAPの解析条件も、上述の単一の解析と全く同等のものとした。ただし、DEAFRAPプログラム内では以下の改良を施し、GARFIELD-CHEMで得られた間隙率情報をDEM粒子間の結合力に反映させるように改良した点が、平成27年度の解析事例と異なっている。

- ・ GARFIELD-CHEMの出力結果（間隙率の空間分布）を読み取り、対応するDEM粒子に間隙率の値を設定できる機能を追加
- ・ DEM粒子の間隙率から、粒子間の結合力を変化させ、セメント系材料の圧縮強度や引っ張り強度、弾性係数を計算できるように改良
- ・ 亀裂が生じたと判断される粒子間においても、間隙率がある値を下回った場合にその亀裂は再結合したと判断される機能を追加

上記のような条件下で3500年（領域内の亀裂生成直後）から4000年までの時間内で一要素の連

成解析を行った結果を図 2.6.4-13に示す。ここでは開口幅と間隙率の2つのプロットを示しており、開口幅の方では亀裂の位置と開口幅、間隙率の方ではDEM粒子にGARFIELD-CHEMで得られた間隙率を射影して分布図を作成した。

3500年時の状態では、解析領域中左部分に最大10 μ m程度の開口幅の亀裂が長さ20mm程度にわたって生成されていることがわかる。この時点では小領域内に亀裂を発生させたGARFIELD-CHEMの解析は行っていないため、間隙率はほぼ初期値のままである。

次に3750年時点の結果では、領域内の左右で亀裂が伸展していることが見て取れる。さらに、間隙率のプロットからは、間隙率の低下している部分の周囲に間隙率が增大している部分が広がっていることがわかる。これは、元々亀裂の入っていた部分で地下水とコンクリートが反応し、二次鉱物の沈殿により間隙率の低下した部分と、その周囲のCa溶脱（ポルトランダイトやジェナイトの溶解）により間隙率が増加した部分を示している。今回の解析においては、その間隙率が増加した部分でさらに亀裂が発生しては伸展していくような振る舞いが見られた。

この振る舞いを明確に示すため、図 2.6.4-14に、DEM粒子間の再結合した部分を示す図を示した。この図によると、間隙率低下が進んでいる部分で再結合が進んでおり、周囲の間隙率が高い部分に新たな亀裂が生成していることがわかる。

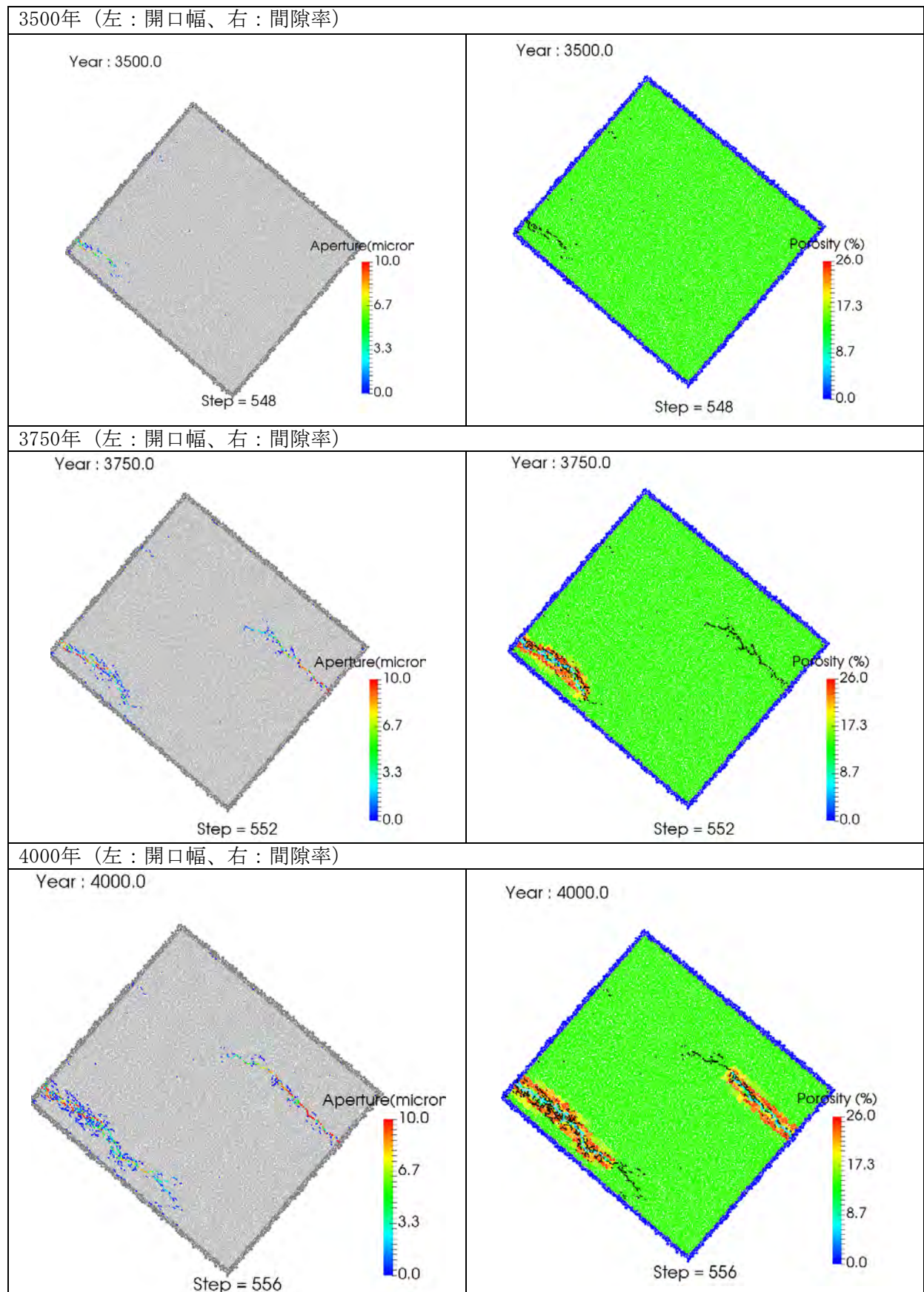


図 2.6.4-13 小領域内の間隙率、亀裂位置、開口幅の変遷

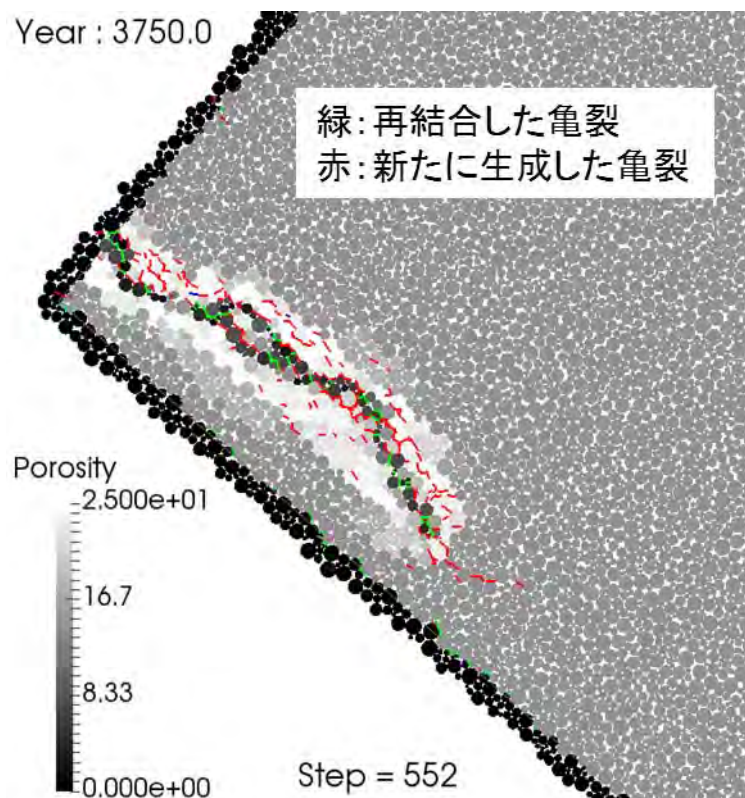


図 2.6.4-14 DEM 粒子に割り当てられた間隙率と再結合亀裂の関係 (3750 年時点)

(2) 化学-物質輸送-力学連成解析の試行

以上のように作成したニアフィールド複合現象解析モデルプロトタイプを用いて、化学-物質輸送-力学連成解析を試行した。

1) 解析体系の設定

これまで述べてきたように、廃棄体定置領域の隅角部に破壊可能域を設定して解析を行った。なお、坑道全体の形状は図 2.6.4-15に示したように第2次TRUレポート（電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構，2005）の条件に基づいて設定しており、既往のMACBECEの解析結果を参考に、このうちの赤い四角中の領域を破壊可能域として設定した。破壊可能域は、処分坑道の中心部より上側に2m、右側に3mに位置し、一部廃棄体定置領域を含んでいる。

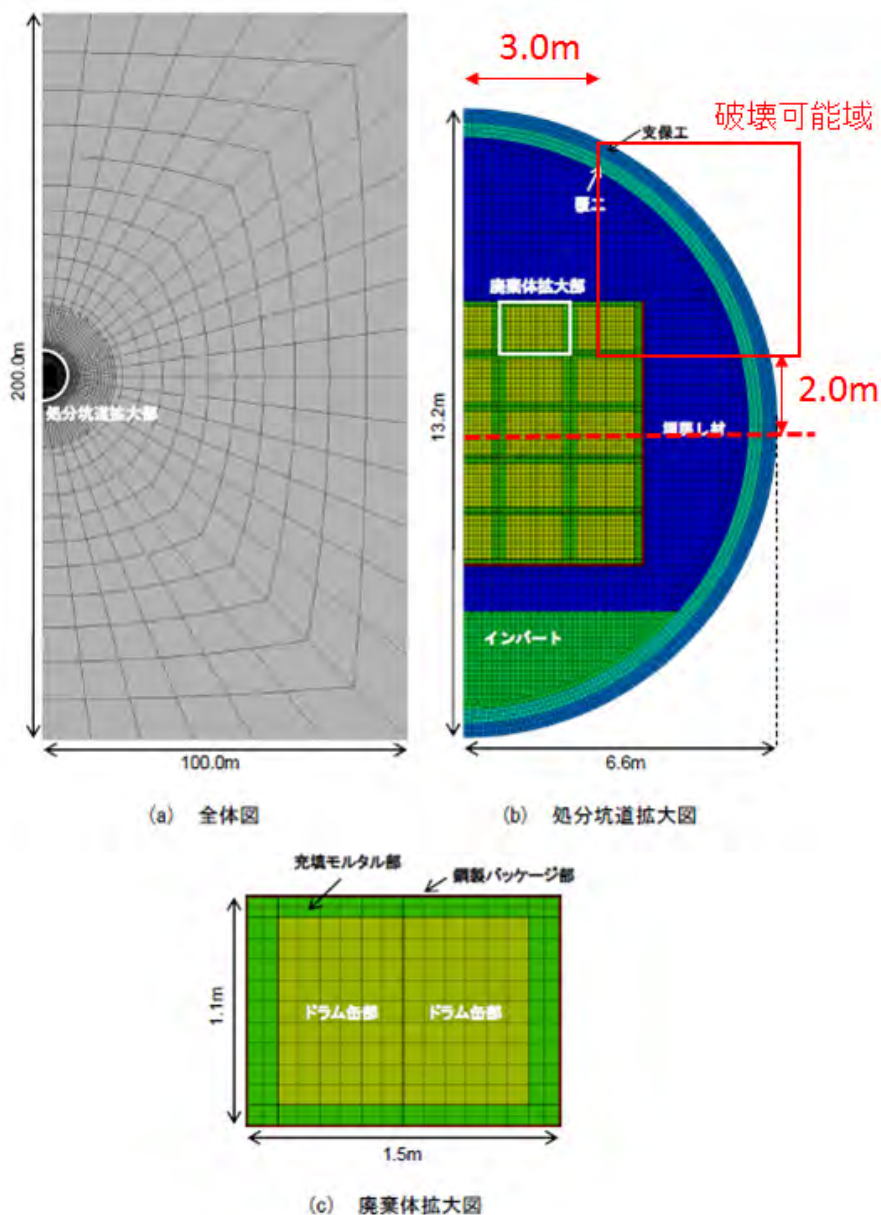


図 2.6.4-15 TRU 廃棄物処分場坑道全体の形状（第 2 次 TRU レポートの条件に基づく）

GARFIELD-CHEM及びDEAFRAPの解析体系を図 2.6.4-16に示す。図 2.6.4-16（左）はGARFIELD-CHEMの解析体系であり、DEAFRAPでも取り扱う廃棄体定置領域の隅角部近傍領域に加え、2.6.5項で述べる核種解析を行うことを想定して廃棄体定置領域も含めており、両者の間では拡散や移流で化学種や放射性核種が移動できるようになっている。図 2.6.4-16（右）はDEAFRAPの解析体系（図 2.6.4-16左の「DEAFRAP解析領域」に対応）であり、初期の開口幅分布とともに示した。外縁内側の支保工（一次覆工と二次覆工に分かれている）領域で微細なひび割れが生じているのは、連成解析の初期状態（0年）がMACBECEの解析における坑道閉鎖時点に対応しており、この段階でのMACBECEの解析における応力分布が反映されているためである。

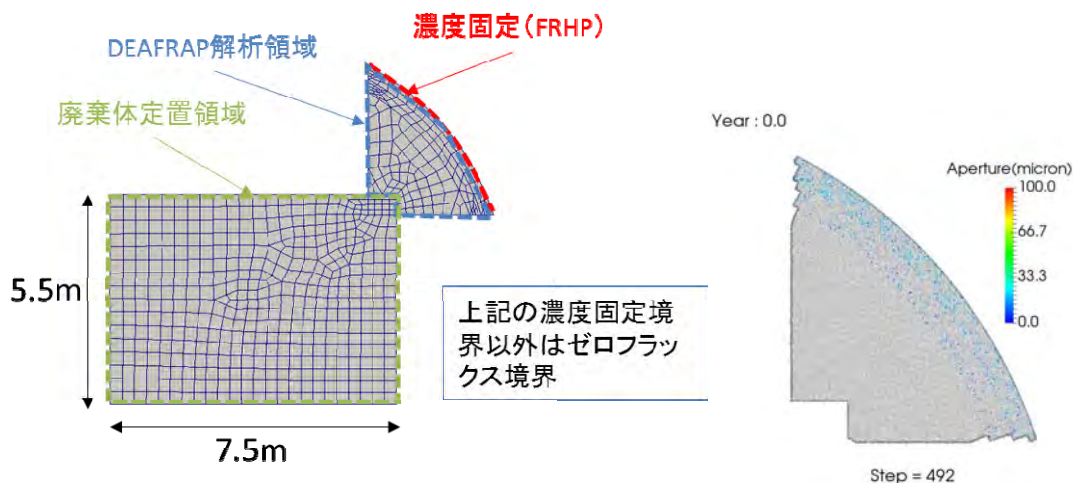


図 2.6.4-16 GARFIELD-CHEM (左) および DEAFRAP (右) の解析体系

このうち、DEAFRAPについては、坑道全体の一部を破壊可能領域として切り抜いたモデルに対してDEAFRAPを適用した場合と、坑道全体に対してDEAFRAPを適用した場合において、同様のひび割れ伸展挙動が得られるかを確認した。坑道全体に対してDEAFRAPを適用した解析については、既往の検討（日本原子力研究開発機構，2015c）における、TRU廃棄物処分施設を対象としたDEM大規模解析結果（図 2.6.4-17）を参照した。破壊可能領域を対象とする解析では、図 2.6.4-17に示す赤の四角で表示した領域を破壊可能領域として切り抜いてモデル化し、大規模解析におけるStep492を初期状態としてStep730までの解析を行った。破壊可能領域を対象とする解析に用いられたモデルの粒子半径と粒子数を表 2.6.4-4に、解析の結果得られた破壊可能領域内でのひび割れ伸展挙動を図 2.6.4-18にそれぞれ示す。図 2.6.4-18においてはひび割れの位置を赤い線分で表現しており、図 2.6.4-17と比較して、ひび割れの方向、頻度、発生位置などについて同様の傾向となることが確認できた。

GARFIELD-CHEMについては、支保工の外縁部はFRHPの濃度固定境界としてあり、その他の部分はゼロフラックス境界としてある。なお、坑道内に貫通亀裂が生成した後の境界条件や、その他の化学-物質輸送解析の解析条件については後述する(2.6.4(2)2))。

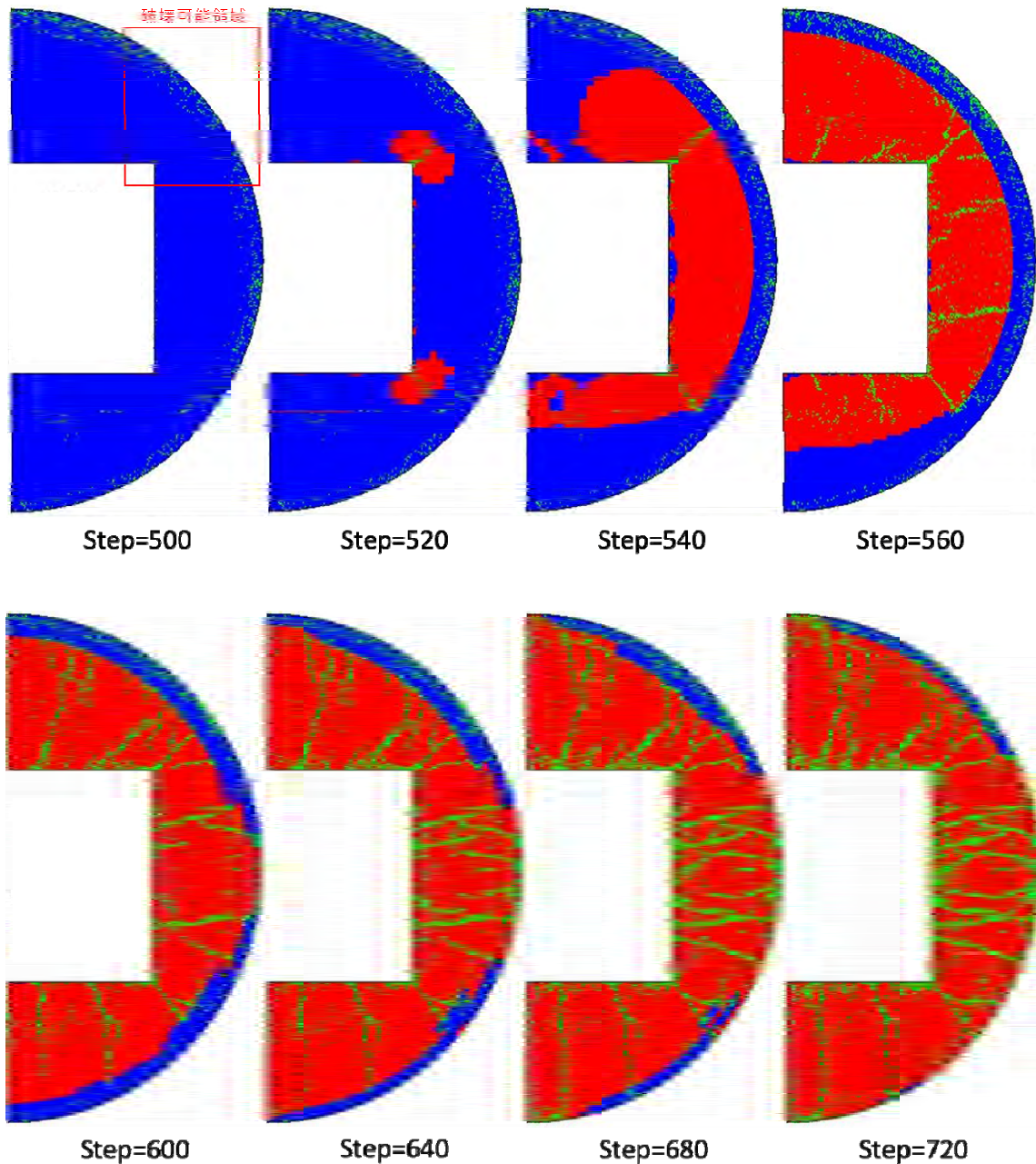


図 2.6.4-17 TRU 処分施設を対象とした DEM 大規模解析結果と MACBECE 解析結果の比較(日本原子力研究開発機構, 2015c)

(青 : MACBECE の解析でひび割れ判定されていない領域、赤 : 同ひび割れ判定された領域、緑 : DEM 大規模解析において発生したひび割れの位置)

表 2.6.4-4 DEAFRAP による破壊可能領域解析に用いられたモデルの粒子半径と粒子数

粒子数:	82,091個
最大粒子半径:	10.0mm
最小粒子半径:	2.5mm
最大/最小粒子半径比:	4.0

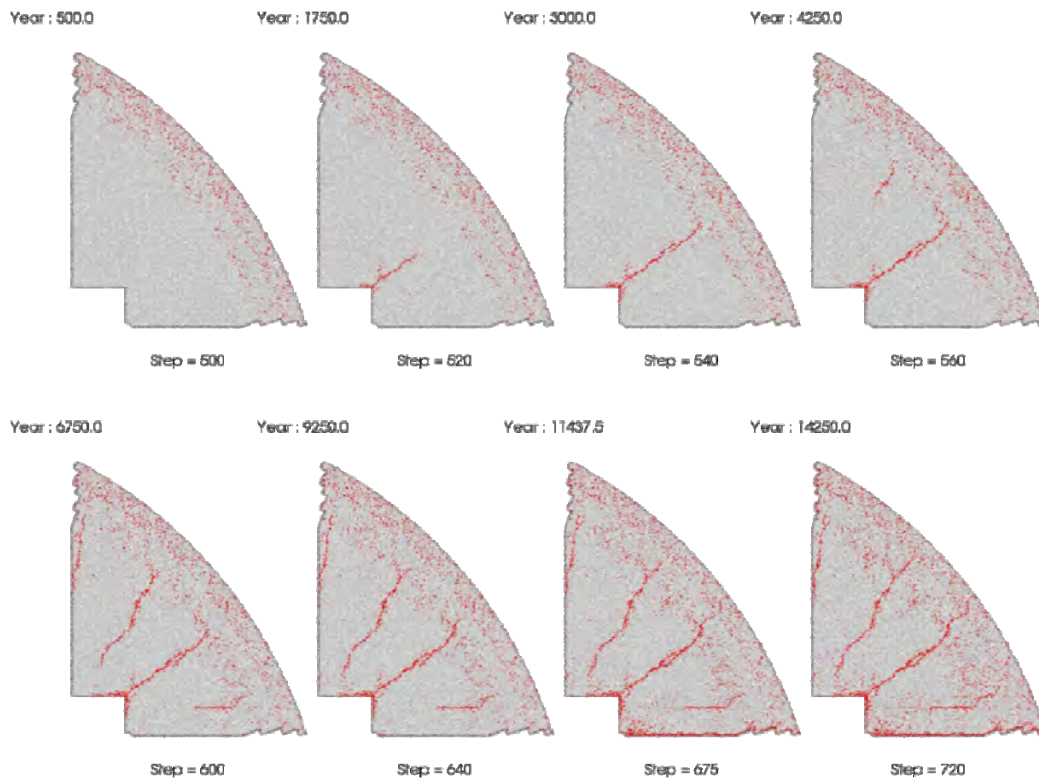


図 2.6.4-18 DEAFRAP による破壊可能領域内のひび割れ伸展挙動の解析結果

2) 連成解析の前提条件/境界条件の設定

今回の連成解析では、これまでのDEM解析等の試解析の結果から得られた知見も活用し、以下のような前提条件と境界条件を想定することにした。

まず連成解析で想定する状態（力学、水理、化学-物質輸送、核種移行解析）は図 2.6.4-19 のように想定した。

- ・ 坑道内の力学的な状態は、鉄腐食や岩盤クリープによる外力を想定し、坑道内全体スケールでの巨視的な変形挙動が生じるものと仮定する（条件の詳細は平成27年度処分システム評価確証技術開発報告書（日本原子力研究開発機構，2016a）を参照のこと）。
- ・ 水理学的な状態は、図のように、坑道を横切るような地下水流れが生じているものと仮定する。ただし、初期の坑道内部は健全（連続亀裂のない状態）であるため、坑道内部はほとんど流れが無い。
- ・ 上記のような状態であるため、基本的に初期の坑道内部は拡散支配であり、化学的な反応は坑道の外縁部から進展することとなる。
- ・ 核種も基本的には廃棄体定置領域から拡散で移行するものと想定する。また、廃棄体領域内での核種濃度分布は一様とする。

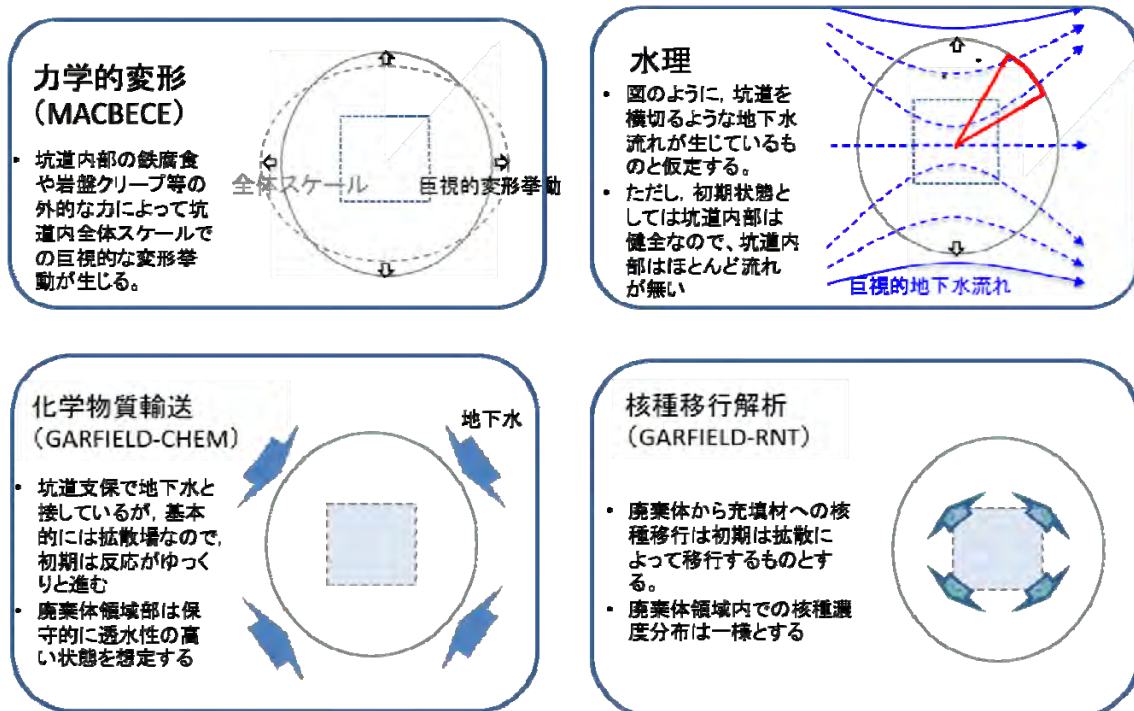


図 2.6.4-19 連成解析で想定している初期状態

また、この状態からの変遷を想定するにあたり、これまでの試解析や既往の評価で得られている、以下の知見を活用する。

- DEAFRAPの大規模解析では廃棄体隅角部において、廃棄体部分から支保までの貫通割れ目が、閉鎖後数万年経過後に生成する（平成26年度セメント開発公募事業報告書（日本原子力研究開発機構，2015c）を参照）
- GARFIELD-CHEMによる化学変質を反映したDEAFRAP解析においては、間隙率の低下した割れ目部分は再結合し、その周囲の間隙率が上昇した部分に新たな割れ目が生成される。すなわち、割れ目部分が閉塞しても、その周囲に新たな流路が形成される可能性が示唆されている（前述の小領域の解析結果を参照）。
- さらに、既往の評価事例として第2次TRUレポートにおけるTRU Gr3/4の処分施設に対する評価事例を活用する。これによると、10万年間の評価期間において、廃棄体中央部のpHはRegionI (pH>13)の維持期間が約100～1,000年、RegionII (pH約12.15)の維持期間が施設外部で約8万年、施設中央部で約7万年という結果が得られている。

これらの知見から、本連成解析では、廃棄体定置領域の隅角部に亀裂が発生した場合に、廃棄体領域から支保工まで貫通する連続亀裂が生ずるか、それによって地下水流れが生じた場合に、亀裂周辺の変質が進行するのか、亀裂が化学的に再結合するのかといった可能性に着目して連成解析を行うこととする。よって、坑道断面の4箇所隅角部のうち、下流側に位置する隅角部の近傍で貫通亀裂が生じた場合には、既出の図 2.6.4-5に示す水理場の概念のように、上流側から下流側に坑道を横切るような流れが発生すると仮定する。加えて、貫通亀裂が生じるまでの物質輸送プロセスは主として拡散であると仮定する。以上の貫通亀裂が生じるまでの前提条件を表

2.6.4-5にまとめた。

表 2.6.4-5 本解析で想定する前提条件（貫通亀裂発生まで）

時間	事象
0年～貫通亀裂発生までの期間	<ul style="list-style-type: none"> 坑道内は再冠水により水理的に飽和状態となる 坑道内で移流は生じないので、拡散が物質輸送の支配プロセスとなる 坑道外縁部から地下水影響によりセメント系材料の変質が生ずる 廃棄体定置領域では間隙水が瞬時に混合するように非常に高い実効拡散係数 ($10^{-5} \text{m}^2/\text{s}$) を設定している。また、廃棄体定置領域と埋め戻し材の間では拡散による物質移行が生じている。
亀裂発生後～10万年	<ul style="list-style-type: none"> 上流、下流に貫通割れ目が同時に発生したものと仮定する。その結果、廃棄体定置領域を経由し、坑道内で移流による物質移行および核種移行が生じる（廃棄体定置領域と埋め戻し材の間で拡散および移流による物質移行が生じる） 割れ目内を水が流れるようになるため、上流側の流路でセメントと反応した地下水が廃棄体領域に流れこむ。このセメント反応水はRegion I→IIと変化していく 上流側、下流側の亀裂内およびその周囲では二次鉱物の沈殿やセメント溶脱反応が進行し、それによってひび割れの生成の仕方に影響を与える

貫通亀裂発生後の地下水の流路に沿ったGARFIELD-CHEMの解析の概念を表したものが図2.6.4-20であり、割れ目、コンクリートマトリクス部、および廃棄体定置領域（材質はコンクリートだが高透水性の領域と仮定）の3つのパートから成る。上流側および下流側の割れ目周辺では二次鉱物の沈殿（およびそれに伴うマトリクス部の溶脱）が起こり、それにより割れ目の閉塞が起こりうる。上流、下流いずれかで割れ目が閉塞した場合、この流路内での移流が生じないことになる。一方、割れ目の閉塞が力学的な作用により再び開口する可能性も考えられるとともに、化学的条件によっては二次鉱物による閉塞そのものが生じない可能性もある。今回の連成解析の試行においては、下流側で貫通亀裂が生じた時点で、その亀裂幅に応じた流量の地下水が廃棄体領域に直接流入するとして、核種が廃棄体からの貫通亀裂を流路として移行するような、悲観的な想定に基づいて計算することとし、上流側が閉塞し移流が生じないような状態は想定しないこととした。

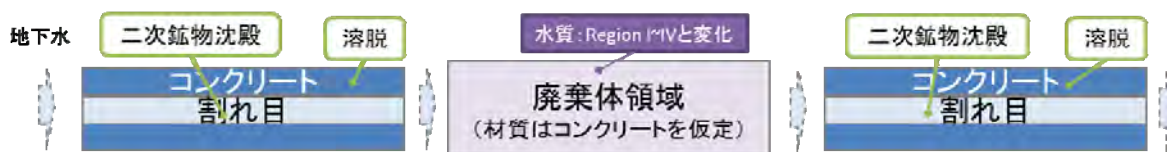


図 2.6.4-20 亀裂発生後の地下水の流路に沿った解析の概念図

3) 解析条件

まず化学-物質輸送解析の解析条件について述べる。化学計算に使用した熱力学データベースはJAEA-βTDB v1.07 (付録3) である。温度は25℃と設定した。セメントの初期鉱物の設定、鉱物の比表面積および溶解反応速度定数を表 2.6.4-6に示す。コンクリートの初期鉱物としてはCSH165とportlanditeのみを考慮している。初期間隙率は0.13と設定した。液相の設定は表 2.6.4-7に示した通りである。また、GARFIELD-CHEMの可変グリッド法を適用するタイミングは、亀裂近傍の局所的な化学的变化に追従できるように、貫通亀裂の生成直後にグリッドリファインメントを行うこととした。

表 2.6.4-6 固相の設定および溶解反応速度の設定

Minerals	セメント中初期鉱物 *1 [mol/m ³]	比表面積 *2 [m ² /g]	速度定数 K *2 [mol/m ² /s]
Calcite	0	0.02	6.3E-6
CSH165	1733.93	10	1.0E-12
CSH105	0	10	1.0E-12
Portlandite	2142.01	0.22	1.0E-12

*1 初期固相設定の方法については付録3参照。ただし、本計算においては熱力学データベースにJAEA-βTDB v1.07を使用し、計算効率を重視して初期存在量の少ない鉱物を省略している

*2 Watson et al., 2013

表 2.6.4-7 液相の設定

	セメント初期間隙水 [mol/kg]	地下水 [mol/kg]	Basis	設定した Complex
pH	13.454	8.460	H+	OH-
Ca	7.743e-04	1.090e-04	Ca ⁺⁺	CaCO ₃ (aq), CaOH+
Si	1.030e-04	3.391e-04	H ₃ SiO ₄ ⁻	
C	3.194e-04	3.541e-03	HCO ₃ ⁻	CO ₂ (aq), CO ₃ ⁻⁻
H ₂ O	55.51	55.51	H ₂ O	

BasisおよびComplexの設定はJAEA-β TDB v1.07 (付録3) に基づき設定

物質輸送特性について、実効拡散係数 D_e (m²/s)は、第2次TRUレポートでも用いられている以下の式を用いた。ここで θ はコンクリートの間隙率である。

$$D_e = 2.27 \times 10^{-9} \times \theta^{3.05}$$

また、マトリクス部の透水係数 $K(\theta)$ (m/s)は以下のKozeny-Carmanの式に従うものとした。

$$K(\theta) = K_0 \frac{(1-\theta_0)^2}{\theta_0^3} \frac{\theta^3}{(1-\theta)^2}$$

ここに、 K_0 はセメントの初期透水係数であり、第2次TRUレポートを参照し、 $K_0 = 1.3 \times 10^{-11}$ m/sと設定した。

連成解析時の亀裂の抽出条件は表 2.6.4-8にまとめた通りである。小領域解析時と比較して解

析領域が広くスケールが20倍となっているため、計算負荷の制約から、抽出する亀裂開口幅の最小値は0.1mmとし、それ以下の亀裂は取り扱わないこととした。

表 2.6.4-8 連成解析の試行における亀裂情報抽出の指標

指標	条件	理由
亀裂開口幅	0.10mm以上	GARFIELD-CHEMの計算効率を考慮すると、これ以上細かい亀裂の取り込みは非現実的

次に水理解析の詳細な条件について述べる。前述のように、貫通亀裂が生成されたことを想定して、図 2.6.4-5のような概念図に基づいてFEMWATERによってモデルを作成して解析を行った。この際設定した各領域の透水係数を表 2.6.4-9に示す。また、地中の動水勾配は坑道と直交するような方向に対して設定し、値は0.01とした。

表 2.6.4-9 水理解析で設定した透水係数

領域名	透水係数 (m/s)	根拠
廃棄体定置領域	1×10^{-5}	砂並みとして設定
EDZ		
埋め戻し材 (高透水性部)	1×10^{-1}	MACBECE解析の結果を参考に設定 (DEAFRAPの解析に用いた結果と同様のもの)
埋め戻し材 (低透水性部)	5×10^{-11}	TRU第2次報告書の「ひび割れの無い場合」の透水係数を設定
母岩	2×10^{-10}	TRU第2次報告書と同様の値を設定

上記のような条件の下で水理解析を行った結果、埋め戻し材の高透水性部分の流量が $5.7 \times 10^{-12} \text{m}^3/\text{s}$ と得られたので、後段の連成解析中でも用いる亀裂内の流量もこの値を用いることとする。

また、貫通亀裂が生成した後の解析のモデル化についてであるが、図 2.6.4-21に示した本解析の流路のうち廃棄体定置領域から下流のみをGARFIELD-CHEM (およびDEAFRAP) でモデル化することとし、上流側は、TRU Gr3/4の処分施設に関する既往の知見 (電気事業連合・核燃料サイクル開発機構, 2005) を参考にし、廃棄体領域に流入する水質を決定した。具体的な水質の決定にあたっては、多成分反応輸送解析モデルQPAC (Benbow et al., 2007) を用いた、二重空隙媒体モデルによる化学-物質輸送解析計算を別途実施した (表 2.6.4-10)。計算にあたっては、割れ目内の二次鉱物の沈殿を想定するとすぐに割れ目が閉塞してその時点で水の流入が止まってしまうため、割れ目内の二次鉱物の沈殿を想定せずに解析した。なお、この際、割れ目内の流速は上記の水理解析で求めた流量を想定して算出し、TRU Gr3/4の処分施設に関する既往の評価とほぼ同様のpH変遷が得られることを確認している。なお、二重空隙媒体モデルによる解析においては解析開始後100年程度までRegionI、その後はRegionIIの水が流入する結果となっていたが、今回の連成解析においては、亀裂貫通後すぐにRegionIIの水が流入するものとして解析を行った。



図 2.6.4-21 亀裂発生後の解析モデルの概念図

表 2.6.4-10 RegionI、RegionII セメント間隙水の設定

	Region I [mol/kg]	Region II [mol/kg]
流入時期	(今回の解析では 使用しない)	貫通亀裂生成後
pH	13.5744	12.4995
Ca	1.972e-04	1.446e-02
Si	1.661e-09	1.661e-09
C	1.849e-04	1.196e-6
H2O	55.51	55.51

4) 解析結果

上記のようにして行った解析の結果について述べる。

まず貫通亀裂の生成前であるが、前述の小領域に対する解析と同様に解析を進めた。小領域の場合と同様に開口幅と間隙率およびpHの変遷を示すと図 2.6.4-22のようになる。10,000万年時に廃棄体定置領域から支保工に向けて亀裂が貫通する様子が見られた。破壊可能領域の解析では小領域の解析の場合と異なり、亀裂が発生しても貫通しない限り地下水の流入は生じない。また、坑道外縁部において、地下水との反応によりカルサイトが生成し、コンクリートの間隙率が低下していること、またpHも地下水との反応により低下していることが示された。早い時期に当該領域の間隙率が低下したため、また、10,000万年までは貫通亀裂による移流が生じないため、地下水とコンクリート間隙水間の物質輸送が抑制されることとなり、コンクリート埋め戻し材の大部分は変化せず、ほぼ初期状態が継続していた。このため、基本的にはDEAFRAPのみの解析結果(図 2.6.4-18)と同様の亀裂発生・進展の様子が得られた。

上記の結果から、10,000年時点で貫通亀裂が生成したものと判断し、10,000年以降はこの亀裂を考慮した連成解析を行った。なお、貫通したと判断した亀裂以外の亀裂は、解析結果への影響は少ないと判断し、今回の解析では考慮していない。

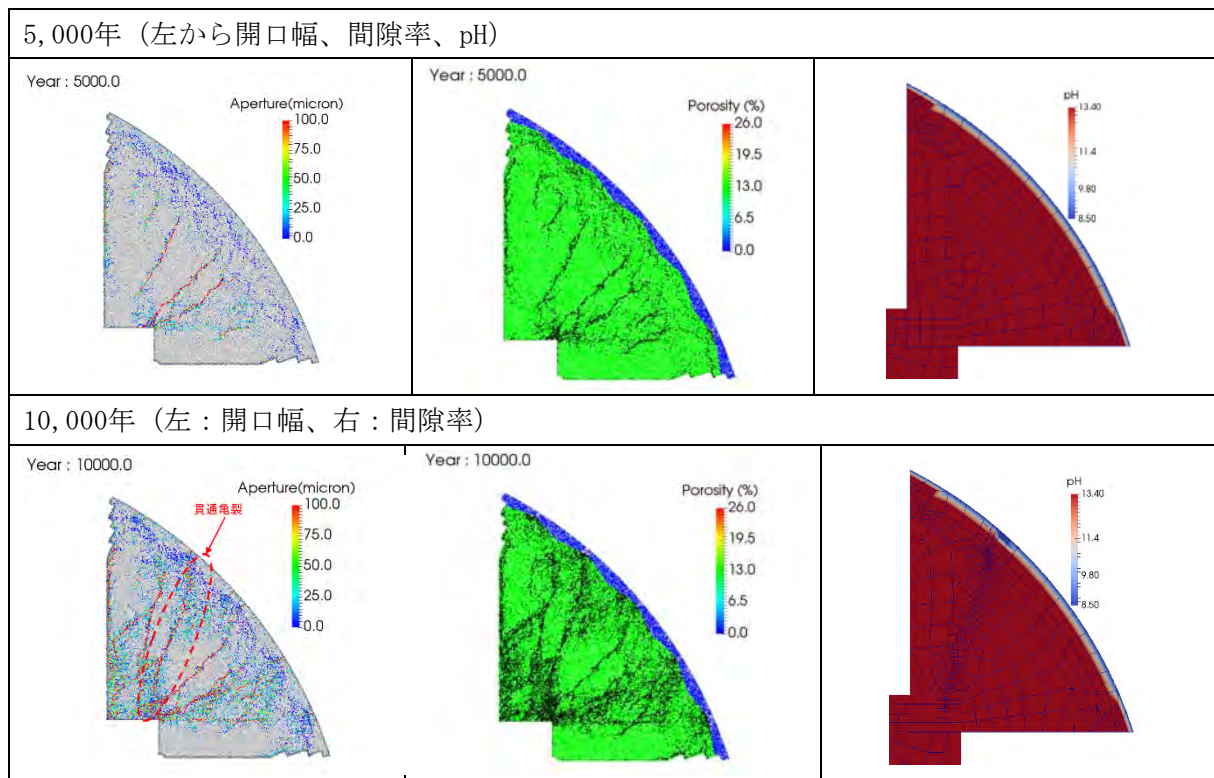


図 2.6.4-22 破壊可能域内の開口幅、間隙率、pHの変遷

亀裂生成後1,000年および5,000年経過時の結果について図 2.6.4-23に示す。pHの変遷については二通りのスケール (pH8.43~13.35とpH13.25~13.25) で示している。前述のように、貫通亀裂の生成後は亀裂内にRegionI(亀裂生成後の100年間)とRegionII(亀裂生成後100年以降)のセメント反応水を流しているが、ほとんど反応は起きず、pHの変化等も無視できる程度であった。したがって、10,000年以前と同様に坑道外縁部以外ではコンクリートの変質は生じず、ほぼ初期状態が継続するという結果となっている。この状態では外縁部以外では亀裂の再結合も生じていなかった。

坑道外縁部では、貫通亀裂の再結合が見られたが、これは二次鉱物の沈澱等による化学的な現象によるものではなく、力学解析における再結合の判定条件に関係している。今回の力学解析においては間隙率が10%を下回ったすべての粒子間で再結合が起こるものと判定しているため、既に間隙率が低下した坑道外縁部では力学的にひび割れが生じても、次のタイムステップで、間隙率の変化等がほとんどないにも関わらずすぐに再結合したと判断されるという結果となっていた。この点については、現実の亀裂の閉塞・再開口の振る舞いと整合しない可能性があるため、化学-物質輸送解析では、このような亀裂に関しては閉塞していないものと判断して解析を行うこととした。そのため、10,000年から15,000年の期間は図 2.6.4-22に示した貫通亀裂がそのまま開口したものと化学-物質輸送解析を行っている。今後、粒子再結合の条件を再度検討(例えば、間隙率の絶対値だけでなく前のタイムステップからの間隙率変化を考慮する等)することが課題の1つとして挙げられる。

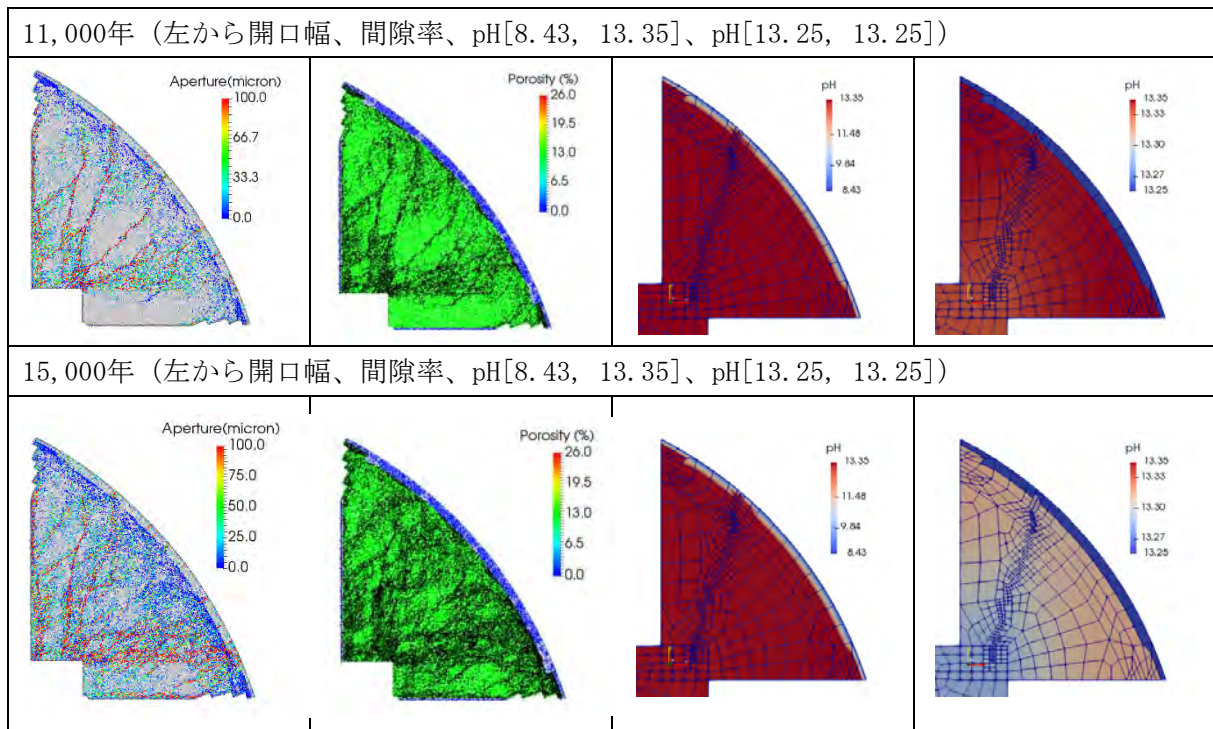


図 2.6.4-23 破壊可能域内の開口幅、間隙率、亀裂位置、pHの変遷

2.6.5 ニアフィールド核種移行解析モデルの開発

2.6.2項(2)で示したニアフィールド核種移行解析モデルの基本概念に基づき、2.6.4項で示したニアフィールド複合現象解析モデルによって評価されるニアフィールド環境条件の時間的・空間的変遷に対応して、核種移行特性の時空間的変化を考慮しつつ適切な解像度で核種移行解析を行うための解析手法を開発した。2.6.5項ではこの成果を示す。

(1) 場の時空間的変遷に対応した核種移行解析モデルの開発

2.6.4項の連成解析において、可変グリッド型化学-物質輸送解析モデルGARFIELD-CHEMによって計算され出力されるニアフィールドの主要環境条件変化に追随して、核種移行パラメータの時空間的変遷に関するデータセットを読み込み、過渡的な場の状況を捉えた核種移行解析を行うことのできる可変グリッド型核種移行解析モデルGARFIELD-RNT (Radio Nuclide Transport) を開発した。なお、2.6.4項で示したニアフィールド複合現象解析モデルと同様に、緩衝材を使用せず、処分坑道内の埋め戻し材にセメント系材料を想定するTRU廃棄物の地層処分施設 (Gr3/4) を対象とする解析を行うことを前提としてモデルの開発を行った。

1) GARFIELD-RNTの開発

GARFIELD-RNTにおいても、前項2.6.4項で示したGARFIELD-CHEMと同様に、可変グリッド (Adaptive gridding) の手法によって化学勾配の大きい部分領域をソルバーが自動的に細かくメッシュ分割するスキームを取り入れている。また、単純化のため核種の崩壊連鎖を考慮せず、単一核種の崩壊のみを考慮するものとし、核種の移行遅延効果および溶解度制限を考慮した解析を

するための機能および核種のソースタームの設定機能を導入した。なお、GARFIELD-RNTにおける放射性核種は化学反応に寄与しないものとし、間隙水中の濃度が、以下に示す移流分散方程式に従うとしてモデル化した。

$$\theta \frac{\partial C}{\partial t} = \nabla \cdot \frac{1}{R(\theta)} (D_{eff} \nabla C - \mathbf{q}C) - \theta \lambda C. \quad (2.6.5-1)$$

ここで、 C (mol/kgw) は核種濃度、 θ (-) は間隙率、 D_{eff} (m²/y) は実効拡散係数、 \mathbf{q} (m/y) はダルシー流速、 λ (y⁻¹) は崩壊定数である。また、遅延係数 $R(\theta)$ (-) は間隙率の関数であり、収着分配係数 K_d (m³/kg) とバルクの乾燥密度 ρ_d (kg/m³) で次のように表わされる。

$$R_0 = 1 + \frac{\rho_d}{\theta_0} K_d, \quad (2.6.5-2)$$

$$R(\theta) = 1 + \frac{\rho_d}{\theta} K_d = 1 + \frac{\theta_0}{\theta} (R_0 - 1).$$

前項2.6.4項で示したニアフィールド複合現象評価モデルで解析されるpHの分布に応じて、セメント系材料のKdおよび溶解度を設定できるものとした。環境因子としてpHを選択した理由は、今回のセメントを中心とした解析体系で状態変遷が顕著であることが予想され、また溶解度やKdの依存性についての知見が比較的豊富なパラメータであったためである。添字の0は初期状態を意味し、 $R(\theta)$ は初期状態の遅延係数 R_0 と間隙率 θ_0 によっても表すことができる。溶解度制限およびKdについては、領域内に設定された各要素の物性タイプ毎に設定可能であり、定数値もしくはpHに依存した形式で設定することが可能である。

2) 解析解との比較による解析コードの検証

1)で示したGARFIELD-RNTを用いて、仮想的な核種の崩壊と収着による遅延を考慮した1次元の核種移行解析を行い、境界における入出力フラックスの数値解と解析解を比較することによりGARFIELD-RNTの動作検証を行った。解析体系を図 2.6.5-1に示す。解析領域は10mとし、両端に0.1mのミキシングセルを設けた。上流端および下流端の濃度をそれぞれ1mol/m³および0mol/m³に固定する境界条件を設定し、初期濃度は0mol/m³、実効拡散係数は0.002m²/y、遅延係数Rは10に設定した。崩壊定数 λ (y⁻¹)を0と10⁻⁴に設定した2ケースについて解析を実施し、解析解との比較を行った。

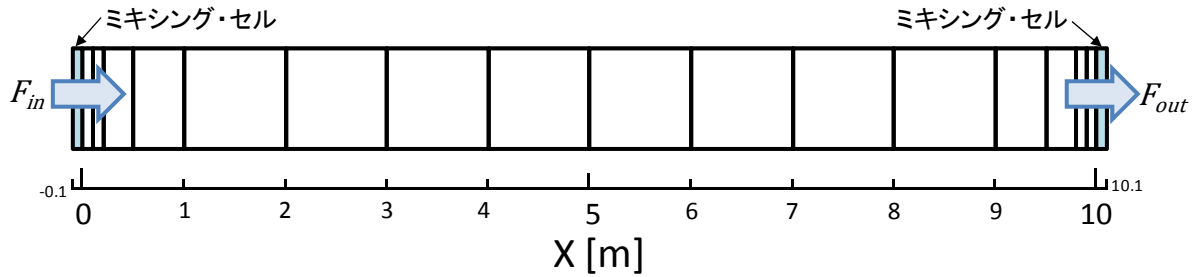


図 2.6.5-1 解析解と比較検証するための解析体系

解析解については、移流分散式を上記の初期条件および境界条件で解き、図 2.6.5-1に示した入力フラックス F_{in} (mol/y) および出力フラックス F_{out} (mol/y) を次式により求めた。

$$F_{in} = \frac{AD_{eff}C_0}{L} \left(\alpha L \frac{\cosh \alpha L}{\sinh \alpha L} + 2e^{-\lambda t} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{n^2 \pi^2}{n^2 \pi^2 + \alpha^2 L^2} e^{-\kappa n^2 \pi^2 t / L^2} \right), \quad (2.6.5-5)$$

$$F_{out} = \frac{AD_{eff}C_0}{L} \left(\alpha L \frac{1}{\sinh \alpha L} + 2e^{-\lambda t} \sum_{n=1}^{\infty} (-1)^n \frac{n^2 \pi^2}{n^2 \pi^2 + \alpha^2 L^2} e^{-\kappa n^2 \pi^2 t / L^2} \right),$$

ここで、 A (m²) は移行経路の断面積であり、 κ と α は便宜的に以下のように定義した。

$$\kappa = \frac{D_{eff}}{\theta R}, \quad \alpha = \sqrt{\frac{\lambda}{\kappa}}, \quad (2.6.5-6)$$

GARFIELD-RNTによって得られた入出力フラックスの数値解と、式(2.6.5-5)から求められる解析解とをまとめたものを図 2.6.5-2に示す。(a)、(b)ともに、数値解と解析解は精度良く一致していることから、GARFIELD-RNTが正しく機能していることが検証できた。

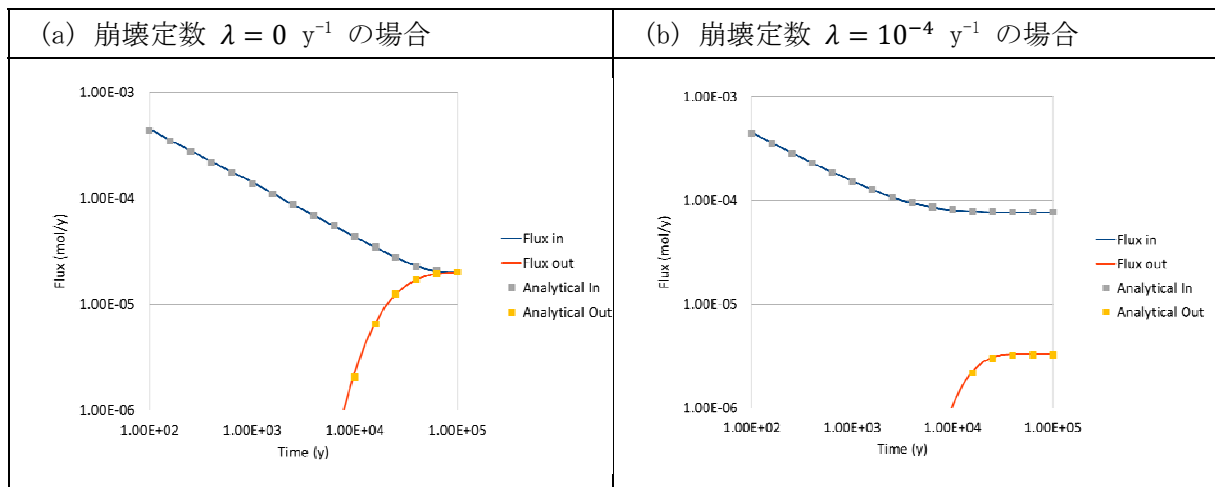


図 2.6.5-2 解析解との比較検証の結果

3) 小領域を対象とした試解析による動作確認

仮想的な小領域（1辺0.1mの立方体とする）で亀裂が発生することを想定した試解析を行い、GARFIELD-RNTの動作確認を行った。核種移行プロセスとしては拡散のみを考慮し、半減期が十分長く、低収着性かつ可溶性のI-129を対象核種として選定した。Kdおよび溶解度については、TRU第2次レポートのGr3におけるセメントモルタルに対する値を参考に設定した。これらの設定値を表 2.6.5-1にまとめて示す。

表 2.6.5-1 試解析の対象となる核種の設定

核種	半減期 [y]	収着分配係数[m ³ /kg]	溶解度
I-129	1.57×10 ⁷	0	可溶性

境界条件については、立方体を構成する六面のうち一つの面の核種濃度を一定値に固定し、その他の面ではゼロフラックス条件に設定した。境界面におけるI-129の濃度は、TRU第2次レポートで示された処分坑道断面オプションのうち、Gr3-X（角型容器）に対する、25年間貯蔵後の総インベントリ（4.8×10⁹Bq=5.65mol）と廃棄体発生量（390m³）およびコンクリートの間隙率（0.13）から導出した値（0.111mol/m³）を設定した。

亀裂の発生・進展の状態設定については、予め、上記に示したものと同じ体系でGARFIELD-CHEMとDEAFRAPによる連成解析を行い、得られた亀裂の1つを、解析開始後1,000年経過した時点で発生させるものとした。

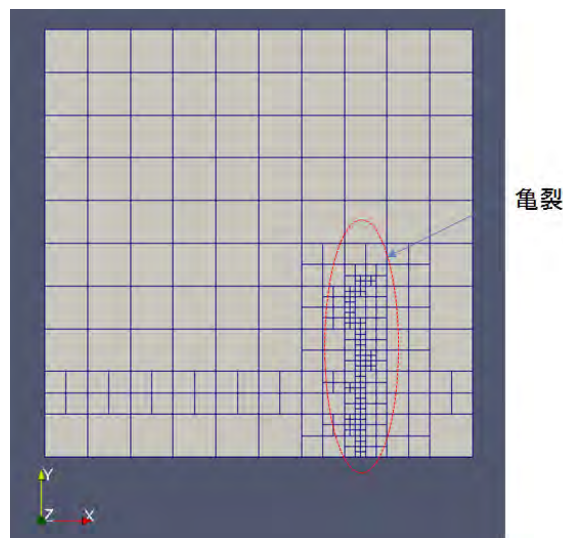


図 2.6.5-3 1,000年経過時に発生させる亀裂とグリッドとの対応

核種の実効拡散係数 $D_{eff}(\theta)$ (m²/s)は、以下のArchie則に従うものとし、間隙率 θ (-)の関数として定式化した。

$$D_{eff}(\theta) = D_{eff,0} \left(\frac{\theta}{\theta_0} \right)^{3.05} \quad (2.6.5-3)$$

ここで、添字の0は初期状態を表すこととした。 θ_0 (-)は初期の間隙率であり、亀裂の入っていないセメント部ではコンクリートの間隙率である0.13と設定し、亀裂の入ったセメント部では、亀裂も間隙の一部と見なし、亀裂はセルの体積の1%を占めると仮定して、 $\theta_0 = 0.01 + (1 - 0.01) \times 0.13 \cong 0.1387$ と設定した。また、 $D_{eff,0}$ (m²/s) は初期の実効拡散係数であり、第2次TRUレポートで使用した次の関係式：

$$D_{eff}(\theta) = 2.27 \times 10^{-9} \cdot \theta^{3.05}, \quad (2.6.5-4)$$

は、式(2.6.5-3)に $\theta_0 = 1$ 、 $D_{eff,0}(\theta) = 2.27 \times 10^{-9}$ m²/s (自由水中の拡散係数) を代入した式に対応することから、以下に示すように初期間隙率との関係式が成り立つ。

$$D_{eff,0} = 2.27 \times 10^{-9} \cdot \theta_0^{3.05}. \quad (2.6.5-5)$$

式(2.6.5-5)に、亀裂の入っていないセメント部では、 $\theta_0 = 0.13$ を代入することで初期の実効拡散係数は 4.50×10^{-12} m²/sと求めることができる。同様に、亀裂の入ったセメント部 ($\theta_0 = 0.1387$) に対しても、 5.49×10^{-12} m²/sと求めることができ、それぞれ初期値として設定した。

以上の設定で試解析を実施した結果を図 2.6.5-4に示す。グリッドのリファインは、基本的に液相の化学種の濃度勾配に応じて行っており、今回はI-129の濃度の時空間的变化に着目していることになる。メッシュリファインの時間は1,000年後、2,000年後、3,000年後を指定して実行した。この結果から、亀裂の含まれるセルは亀裂の含まれないセルより実効拡散係数が大きいため、亀裂付近の核種の拡散が、その他の領域よりも早く進行していることが確認できた。

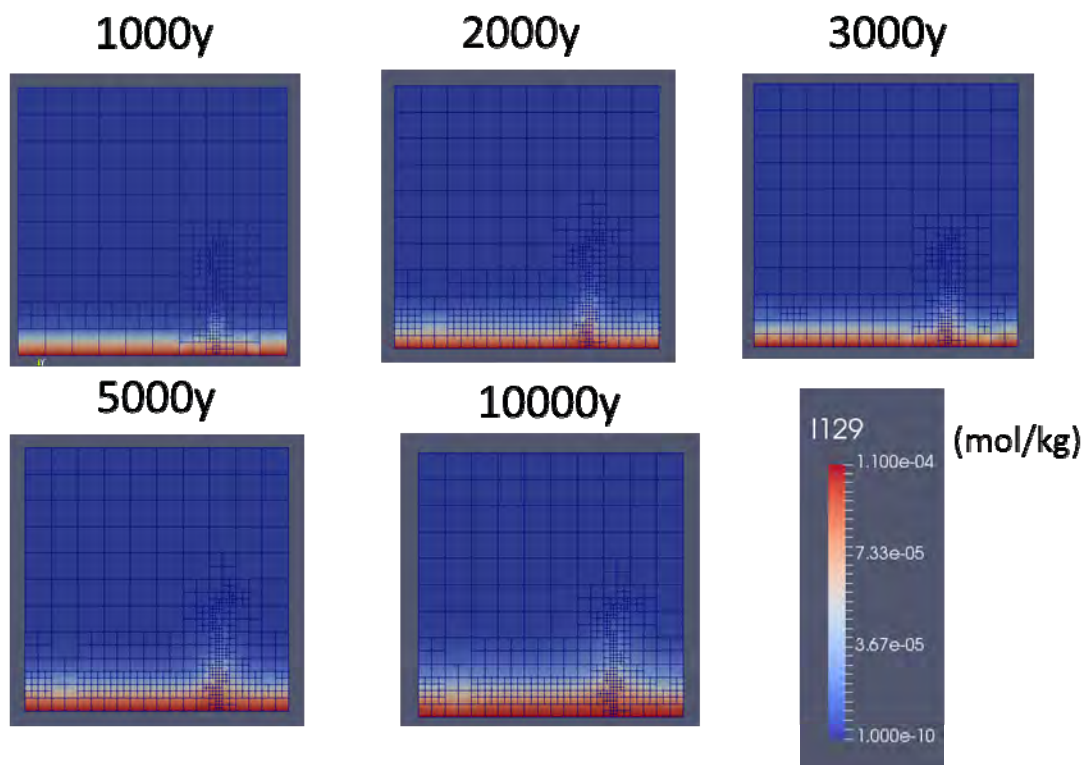


図 2.6.5-4 拡散による I-129 の濃度の経時変化

(2) ニアフィールド条件の時空間的変遷を考慮した核種移行解析の試行

前項で行った化学-物質輸送-力学連成解析の試行結果に基づき、これと同様の変遷を想定した場における核種移行の振る舞いを解析する試行を行った。

1) 解析の目的

本解析では、場の変遷、特に連成解析で行ったような、TRU坑道内を貫通するような亀裂が生成した際の地下水流入に伴う状態変遷（亀裂の閉塞、再開口や液相・固相組成の変化、さらに液相のpHの変化）に追従したニアフィールドの核種移行解析を行うことを目的とした。

2) 核種の選定

今回解析の対象とする核種は、表 2.6.5-2の3種類とした。これらの核種を選定した理由は、第2次TRUレポートにおける評価結果から重要な核種であると考えられていることと、図 2.6.5-5に見られるように、溶解度にそれぞれ異なるpH依存性が見られたためである。解析ではこの溶解度およびKdのpH依存性を考慮した。核種のKdのpHの依存性については、Ochs et al. (2016)、三原 (2006)、Baeyens et al. (2014)の値を参考にして設定した（表 2.6.5-3）。表 2.6.5-3の各pHの値間のKdは線形補間を行うことによって設定した。

表 2.6.5-2 核種移行解析の対象核種（電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構、2005）

	半減期 [y]	初期インベントリ [mol]	初期濃度 [mol/m ³]
Ni-59	8.00E+04	7.88E-03	1.55E-04
Sn-126	1.00E+05	8.33E-01	1.64E-02
Pu-239	2.41E+04	3.83E+01	7.56E-01

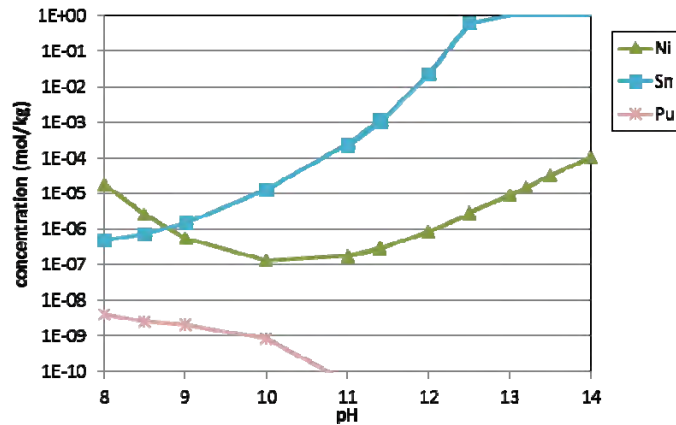


図 2.6.5-5 3核種の溶解度制限の pH 依存性

表 2.6.5-3 核種移行解析における Kd の設定値（Ochs et al. (2016)、三原 (2006)、Baeyens et al. (2014)）

	pH=8.5 (RegionIV相当)	9.5 ≤ pH ≤ 11.5 (RegionIII相当)	pH=12.5 (RegionII相当)	pH=13.5 (RegionI相当)
Ni	5.00E-03	6.28E-02	1.18E-01	9.43E-02
Sn	3.00E+00	3.04E+00	4.69E+01	3.65E+02
Pu	3.00E+01	1.09E+02	6.39E+01	6.39E+01

3) 解析条件および解析結果

核種移行解析の解析条件および解析体系（図 2.6.4-6）は、基本的には前述の化学-物質輸送解析の条件と同様であるが、廃棄体定置領域を配置し、この領域中全体に初期条件として表 2.6.5-2 に示した濃度の核種を配置した。これは、設定した核種の濃度とインベントリの値を整合させるためである。廃棄体領域内においては、核種が瞬時に混合するように、 $10 \times 10^{-5} \text{m}^2/\text{s}$ という非常に高い実効拡散係数を設定して解析を行った。廃棄体定置領域と埋め戻し材の間では、埋め戻し材領域の拡散係数変化に応じて拡散による物質移行が生じることとなる。また、定置領域内での移流による移行は基本的に考慮しないが、貫通亀裂生成後には、化学-物質輸送解析で考慮される流量に応じて核種が定置領域から流出するように設定した。

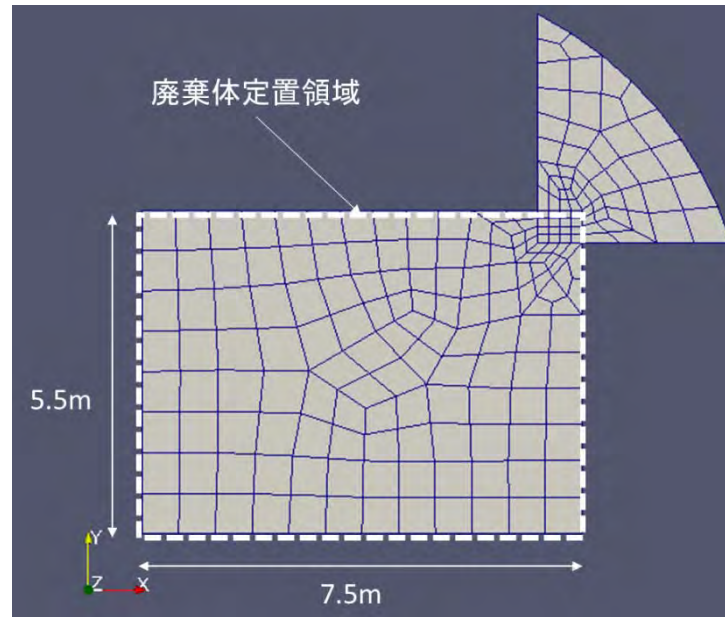


図 2.6.5-6 核種移行解析の解析ドメイン

また、核種移行解析は化学-物質輸送解析と同時に行っているため、2.6.4(2)4項において述べた力学 - 化学物質輸送の連成解析で示した場の変遷を反映させた核種移行解析を行っている。主な特徴を再度以下にまとめる。

- ・ pHや間隙率は支保工の外縁部以外はほぼ初期状態のまま推移している。支保工の外縁部では地下水（FRHP）の影響を受けてpH、間隙率ともに低下している（図 2.6.4-22を参照）。
- ・ 10,000年時点で貫通亀裂が生成し、その後1,000年間は亀裂内の移流による物質移行が継続するものとして解析を行っている。また、この時点で廃棄体を經由してRegionIIのセメント反応水（表 2.6.4-10を参照）が流れるものとして解析を行ったが、15,000年の段階ではpH等の変化は無視できる程度である。
- ・ 上記の結果より、核種移行パラメータはこの支保工の外縁部とそれ以外の場所とでのみ変化する（すなわち、外縁部に到達するまでは核種移行パラメータは場所に依らず一定である）

連成解析の場合と同様に貫通亀裂が生成するまでの期間（10,000年）およびDEAFRAPの解析で得られた亀裂情報を入れた後（11,000年および15,000年）の、核種が拡散で廃棄体定置領域から移行していく様子を示す解析結果を図 2.6.5-7に示す。

まず10,000年までの結果では、溶解度制限ではなくコンクリートマトリクス中での移行遅延(Kd)が核種の移行速度に影響を与えていると考えられ、3種類中最も移行遅延効果が小さくなるNiで核種の広がりが大きいことがわかる。

11,000年時点の結果では、亀裂に沿って核種が移行していく様子が見られ、これにより、核種の一部は外縁部まで到達しており、さらに15,000年時点の結果では亀裂から拡散していく様子も見られる。

今回対象とした3核種の振る舞いを比較すると以下ようになる：

- ・ Ni-59については、初期濃度<溶解度制限であり、またKdも非常に小さい値のため、移流と

拡散、双方のプロセスによって移行する。

- ・ Sn-126については、可溶性ではあるがKdがやや大きい値であるため、移流による移行はNi-59と同様に進むが、拡散による移行は遅延される。やや細かく見ると、亀裂からの拡散がNi-59よりは少なく、Kdの違いによる影響が見られる
- ・ Pu-239については、難溶性であるため移流による移行はほとんど発生しない。Kdも非常に大きな値であるため、拡散による移行も遅延される。

以上の結果を表 2.6.5-4にまとめた。

また、この他に以下のような振る舞いや課題も見られた。

- ・ 亀裂の生じていない5000年時点では、いずれの核種についても、本来廃棄体領域の形状に沿って等方的に拡散すると考えられるが、Pu-239の解析結果を見るとこれと合致しない濃度分布が見られる。これはグリッドの形状および有限要素法の反復計算の精度に依存した分布と考えられ、今後の改善点の1つであると考えられる。これを回避するための方法としては、解析直後の初期化の段階で、廃棄体領域と埋め戻し材の境界部分の核種濃度の勾配に基づきグリッドリファインを行い、この部分のグリッドサイズを小さくするといった対策が考えられる。また、解析結果のメッシュ依存性についても詳細に検証する必要があると考えられる。
- ・ 本解析では10,000年から15,000年までの間では、坑道外縁部を含めて亀裂の閉塞が生じない条件下で解析を行ったが、移流が生じている期間は移流による核種移行が卓越することが改めて示されたものと考えられる。ただし、前述のように現象解析において外縁部の亀裂が閉塞する可能性についても示されているので、この点に着目してより詳細な検討を行う必要があると考えられる。

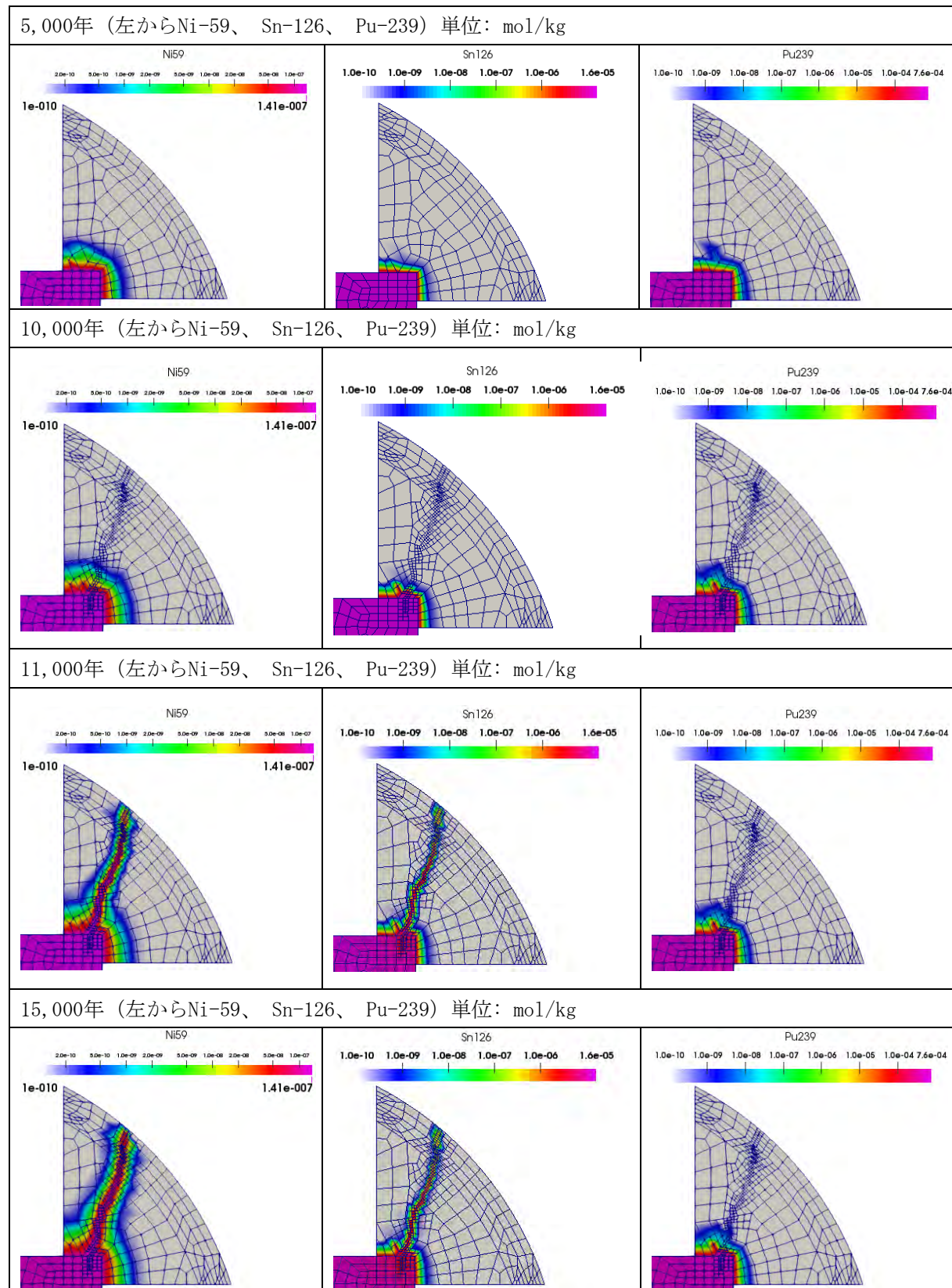


図 2.6.5-7 核種移行解析における3核種の移流・拡散による広がり (5,000~15,000年)

表 2.6.5-4 核種移行解析で対象とした3核種の移行挙動のまとめ

	初期濃度 [mol/kg]	溶解度 (pH=13.5) [mol/kg]	Kd (pH=13.5) [m ³ /kg]	移流による移行	拡散による移行
Ni-59	1.55E-07	2E-4	9.43E-02	大	大
Sn-126	1.64E-05	可溶性	3.65E+02	大	小
Pu-239	7.56E-04	3E-11	6.39E+01	小	小

2.6.6 ニアフィールド変遷と核種移行に関する成果の体系化手法の開発

本項では、「ニアフィールドのシステム変遷と核種移行を評価するための先端的技術開発」の一連の成果を体系化するための手法の提案を行う。

(1) ニアフィールド変遷と核種移行に関する種々の現象理解

ここでは、一連の成果を体系化するための手法を提案するにあたり、2.6.4項および2.6.5項で行った一連のTRU Gr3/4の処分坑道を対象とした連成解析結果から得られた知見を整理し、そこから得られた現象理解についてまとめる。

1) 化学-物質輸送-力学連成解析から得られた現象理解について

2.6.4項で行ったDEAFRAPとGARFIELD-CHEMの連成解析から得られた現象理解としては、以下のような点が上げられる。

- ・ 小領域を対象として行った現象解析の結果では、コンクリート系材料に亀裂が生じ、その亀裂が閉塞したとしても、その周囲には溶脱を起こした領域が存在するため、同じ力が働き続ける場合はその部分に新たに亀裂が生じるという傾向が示されており、これにより、亀裂の開口と閉塞後、僅かに異なる位置での亀裂の開口を繰り返すことを示唆するような挙動が連成解析の結果から得られている。
- ・ TRU坑道の一部を対象とした解析から得られている知見としては、初期状態での地下水とセメントの反応によって坑道外縁部でカルサイトが沈殿し、間隙率が低下することによる、当該部分での力学的な強度の増大や拡散速度の低下が挙げられる。この結果は連成解析というよりは化学-物質輸送解析の結果として得られた現象であるが、力学的現象と物質輸送に影響を与えうる重要な知見の1つであると考えられる。今回の解析では、地下水の影響を受ける外縁部に生じた亀裂の再開口についての検討をさらに進めていくことが課題の1つであることも示唆された。さらに、今回行った連成解析で着目したような移流による地下水流入の影響については、RegionIIのセメント反応水が流入することを前提条件として解析したため、流入水を起源としたセメント変質は生じなかった。

また、上記の解析で得られた知見について詳細にまとめるため、表2.6.6-1にストーリーボード形式で現象解析の結果を整理した。

ストーリーボードは貫通亀裂の発生前後の状態に着目して作成し、貫通亀裂生成前（5,000年）と貫通亀裂生成時（10,000年）、さらに貫通亀裂生成後の15,000年時点に着目した。着目したニアフィールド環境の状態は、系内の化学種や核種の移行に影響する水理場の状態および亀裂開口幅、力学的な強度や拡散速度に影響する間隙率、今回の解析で想定している二次鉱物であるカルサイトの沈殿に影響する炭酸濃度、さらに後段の核種移行パラメータに影響するpHに着目し、それらの分布を示した。

貫通亀裂の生成前までに生じている現象で特筆すべき点は、地下水とコンクリートとの反応によって坑道外縁部数cm程度の領域で生じている間隙率の低下であり、これにより強度の増加や拡散速度の低下が起こっている。

表 2.6.6-1 ニアフィールド状態変遷のストーリーボード

	5,000 年 (貫通亀裂生成前)	10,000 年 (貫通亀裂生成)	15,000 年
水理	<p>・坑道内に水理的な変遷は見られない (物質移行は拡散支配となっている)</p>	<p>・坑道を貫通する亀裂が生じたため、そこを地下水が流れ、移流が発生する</p>	<p>・左記で発生した移流は坑道外縁部での間隙率低下に伴う亀裂閉塞で停止する</p>
亀裂開口幅分布	<p>Year: 5000.0 micron Step = 572</p>	<p>Year: 10000.0 貫通亀裂 micron Step = 652</p>	<p>Year: 15000.0 micron Step = 732</p>
	<p>・廃棄体定置領域から坑道を貫通するような亀裂は生成されていないが、数本の亀裂の伸展が見られる</p>	<p>・廃棄体定置領域から坑道を貫通する亀裂が発生</p>	<p>・坑道を貫通する亀裂は外縁部でのカルサイトの沈殿に伴い閉塞する</p>
間隙率	<p>Year: 5000.0 Porosity (%) Step = 572</p>	<p>Year: 10000.0 Porosity (%) Step = 652</p>	<p>Year: 15000.0 Porosity (%) Step = 732</p>
	<p>・坑道外縁部数 cm 程度の領域において地下水との反応が生じ、カルサイトの沈殿により間隙率が低下している。そのため拡散による化学種の移行は非常に遅くなり、また力学的な強度が増加する</p>	<p>・左記の状態が続いている</p>	<p>・左記と同様の状態である。セメント反応水の流入による影響はほとんど見られない</p>
炭酸濃度	<p>HCO₃⁻ Step = 572</p>	<p>HCO₃⁻ Step = 652</p>	<p>HCO₃⁻ Step = 732</p>
	<p>・坑道外縁部数 cm 程度の領域において高炭酸濃度の領域が存在するが、上記の間隙閉塞により拡散速度が低下しているため、それより内側の領域では初期の低炭酸濃度の状態が続いている</p>	<p>・基本的には左記の状態が続いているものの、亀裂内を地下水が流れ始めたため、地下水とコンクリートの反応が上流側から開始する</p>	<p>・セメント反応水の移流の影響で亀裂周囲の濃度に多少の変化はあるものの、全体的には左記と同様である</p>
pH	<p>pH Step = 572</p>	<p>pH Step = 652</p>	<p>pH Step = 732</p>
	<p>・坑道外縁部数 cm 程度の領域において地下水との反応によって pH が 8.4 程度まで低下しているほかは RegionI の状態のままである</p>	<p>・基本的には左記の状態が続いているものの、亀裂内を地下水が流れ始めたため、地下水とコンクリートの反応が上流側から開始する</p>	<p>・セメント反応水の移流の影響で亀裂周囲の pH に多少の変化はあるものの、全体的には左記と同様である。亀裂内の pH は周囲より僅かに下がっている</p>

2) 核種移行解析から得られた現象理解について

上記の現象解析の結果を受けて、状態変遷に追従する核種移行解析を行った。10,000年時点で坑道を貫通するような移流が生じるものと仮定して核種移行解析を行った結果、以下のような現象理解が得られた

- ・ 廃棄体領域から支保工の外縁部までの貫通亀裂が核種移行の主要経路になりうることを確認できた。ただしこの点は核種の溶解度に大きく依存しており、特に高pHにおける溶解度に依存すると考えられる。
- ・ 核種移行パラメータ（溶解度）への影響という観点からは、外縁部における地下水との反応以外は特に状態変遷が生じなかったため、特筆すべき影響は確認できなかった。

上記のような状態変遷を想定した場合の核種移行への影響について、本項で行った核種移行解析の結果を、表2.6.6-2にストーリーボード形式で整理する。ここでは核種濃度の分布の他、今回解析においてpHの依存性を考慮した核種移行パラメータである溶解度についても記述した。

表2.6.6-2 核種移行のストーリーボード(1/2)

		5,000年 (貫通亀裂生成前)	10,000年 (貫通亀裂生成)	15,000年
Ni-59	濃度分布			
	溶解度	・廃棄体定置領域および埋め戻し材部分の間隙水は RegionI に対応するため、溶解度が高く実質的に可溶性である	・廃棄体定置領域に RegionII のセメント反応水が流入するため僅かに pH が低下しているが、溶解度は高い状態を維持しているため、特に変化はない	・基本的に左記と同様である。RegionII のセメント反応水の流入が継続しているものの、この段階で溶解度に大きな変化は見られない
	Kd	・全域で Kd の値は小さく、拡散による移行の遅延効果は小さい	・pH の低下が開始するものの、この段階では Kd の値に変化はない	・僅かに pH が低下しているものの左記と同様であり、この段階では Kd の値に変化はない

表2.6.6-2 核種移行のストーリーボード(2/2)

		5,000年 (貫通亀裂生成前)	10,000年 (貫通亀裂生成)	15,000年
Sn-126	濃度分布			
	溶解度	・廃棄体定置領域および埋め戻し材部分の間隙水は RegionI に対応し、可溶性である。 ・他方、外縁部は低 pH のため溶解度が低くなっているが、核種はまだ存在していない	・廃棄体定置領域に RegionII のセメント反応水が流入するため僅かに pH が低下しているが、溶解度は高い状態を維持しているため、特に変化はない。	・基本的に左記と同様である。RegionII のセメント反応水の流入が継続しているものの、この段階で溶解度に大きな変化は見られない。
	Kd	・全域で Kd=360 程度であり、拡散による移行が遅延されている。	・pH の低下が開始するものの、この段階では Kd の値に変化はない。	・僅かに pH が低下しているものの左記と同様であり、この段階では Kd の値に変化はない。
Pu-239	濃度分布			
	溶解度	・廃棄体定置領域および埋め戻し材部分の間隙水は RegionI に対応するため、難溶性である。 ・他方、外縁部は低 pH のため溶解度が高くなっているが、核種はまだ存在していない	・廃棄体定置領域に RegionII のセメント反応水が流入するため僅かに pH が低下しているが、溶解度は非常に低い状態を維持している。	・基本的に左記と同様である。RegionII のセメント反応水の流入が継続しているものの、この段階で溶解度に大きな変化は見られない。
	Kd	・全域で Kd=60 程度であり、拡散による移行が遅延されている。	・pH の低下が開始するものの、この段階では Kd の値に変化はない。	・僅かに pH が低下しているものの左記と同様であり、この段階では Kd の値に変化はない。

(2) 一連の成果の体系的な整理方法の提案

ニアフィールドにおける状態変遷の解析と、それを反映させた核種移行解析の説明性を向上させるためには、処分場の安全機能や現象、さらにその現象のモデル化やその入力パラメータとなるデータベース、さらにそれを実装したソフトウェアとその実施結果といった個々の要素およびそれらの関連性を俯瞰的に説明できる体系的な整理方法が必要である。また、このような体系的な整理によって、取り扱う現象の関連性を明らかにすることが、異分野間のコミュニケーションを活性化させる上でも必要な要素の一つであると考えられる。こうした観点から、2.6.2項におい

でも述べたように、ニアフィールド総合評価システムにおいては、共通の枠組みでの成果の体系化や複数分野にまたがる問題解決のための異分野ユーザ間のコミュニケーション支援、さらに分野横断的な標準化及び整合性の確保といった課題を重要課題として位置付けている。例えば、2.6.4項および2.6.5項で行った連成解析で対象とした、坑道内の力学的な変遷と化学的な変遷が複雑に関係する現象を理解するためには、コンクリート中での亀裂の生成・進展に関する力学の知識、亀裂周囲での化学変質に関する知識、さらにそれらの環境変化に伴う核種移行に関する知識をそれぞれ抽出し、関連性を整理する必要がある。

ここでは、上記のような整理を行う方法として、次に述べる「ER図」を用いた現象理解の整理方法について提案し、その一部を実際に試行する。

1) 実体関連モデル

「実体関連モデル (Entity-relationship model)」とは、一般にデータベース設計に用いられるもので、対象とする事象を“実体”と実体間の“関連”からなるものとして定義、構造化してモデル化するデータモデリング手法の一つである。また、実体関連モデルによって具体的なシステムのデータモデルを図で表現したものを実体関連図あるいはER図と呼ぶ。本項ではChenによって提唱された概念(Chen et al., 1975)を基に記述していく。

ER図をChenの記法によって記述すると図 2.6.6-1のような形式になる。すなわち、関係データベースにおける多様なデータ間の関係を含めた構造のモデルであり、「名詞」に相当する実体 (Entity) 間を動詞に相当する関連 (Relation) で対応づけている。また、実体及び関連ともにそれぞれ属性 (実体の中に含まれる情報を表す) を持ち、実体関連図 (ER図) によってこれらの関係や構造を可視化するというものである。

この図はデータベースを設計する際に設計図のように用いられることも多く、市販のソフトウェア等を用い、この図を基にデータベースを作成することも可能である。

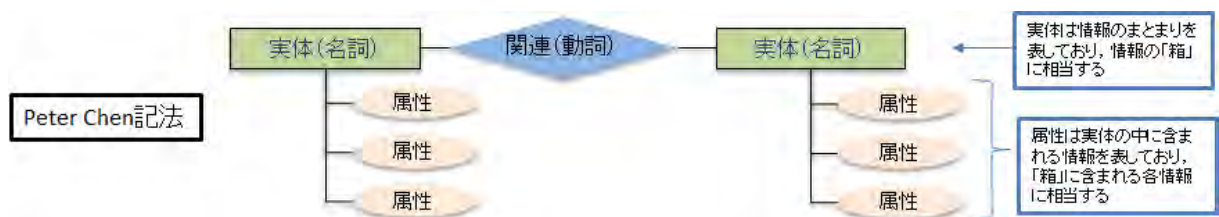


図 2.6.6-1 Chen の記法による ER 図の概念

2) ER図を用いた現象理解の整理

前述のように、ニアフィールドにおける状態変遷の解析やそれを反映させた核種移行解析における現象やモデルの取り扱いを可視化するためには、①バリアシステム及び他の処分場構成要素、②安全機能・機能指標、③現象や現象間の相関、④モデル・データベース、⑤ソフトウェア、⑥数値解析・評価、といった各項目について、それぞれの階層に属する要素およびそれらの関係を整理することが必要である。この整理にER図を用いることとする。

図 2.6.6-2がそのER図を用いた整理図の概念であり、それぞれの階層内の要素や関連性 (図中の“R”) の整理、およびそれぞれの階層間の要素や関連性の整理について俯瞰的に可視化し、最終

的に数値解析や評価にどのように用いられたのかを記述できるものとなっている。

以下に、このER図を用いた整理のうち、特に③～⑥の階層の整理について、その一部を試行した結果を紹介する。

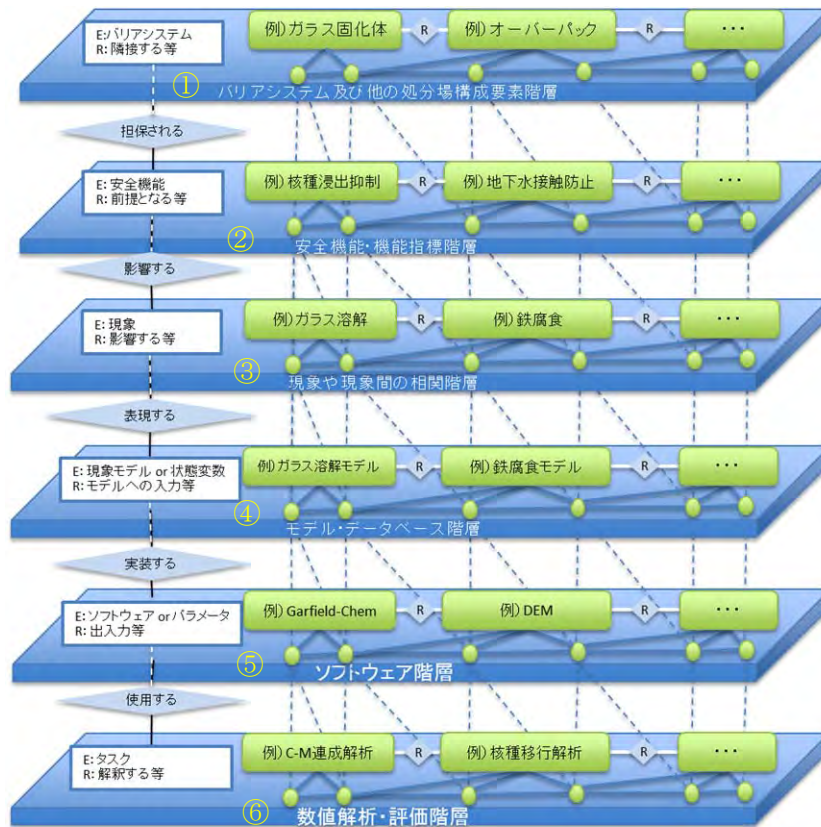


図 2.6.6-2 6つの階層におけるER図を用いた整理図の概念

3) ER図を用いた整理の試行

前述のように、図 2.6.6-2の階層③から階層⑥まで、すなわち、評価において取り扱う現象からそのモデル化、ソフトウェアによる表現、さらに解析結果までを一度に俯瞰できるような整理を行うことを目指す。

なお、ここでは、整理の一例として今年度の連成解析で対象とした、セメントの化学変質やそのモデル化の部分を重点的に示してゆく。

まず、図 2.6.6-2の概念図を、今年度の例題を対象として、階層③～⑥について具体的に記述したものを図 2.6.6-3に示す。今年度の例題で対象としている主な現象は、図中にあるようにセメント溶脱、コンクリート中の物質移行、コンクリートの割れや変形といった現象であり、これらを記述した。さらにモデル階層ではこれらの現象を表現するモデルについて、特にそれらがどのように連成されているのかを明記できるように記述した。さらにそれらのモデルを実装するソフトウェア階層ではモデルとの関連性を明らかにした。なお、データベースはモデルの入力とすることも考えられるが、今回の整理ではソフトウェアの入力とした方がわかりやすいと考え、この階層に記述してある。最終段の解析評価階層では、これらのソフトウェアを用いてどのようなことが整理あるいは評価できるかといった点を示している。

今回の整理では現象解析のみに着目しており、核種移行解析に関する部分は除いてあるが、核種移行解析との連成の部分も同様に記述することが可能であると考えられる。

以下では個々の階層において数例の事例を取り上げて実際にER図を作成し、それぞれどのような点に留意して記述すべきかといった点をまとめていく。

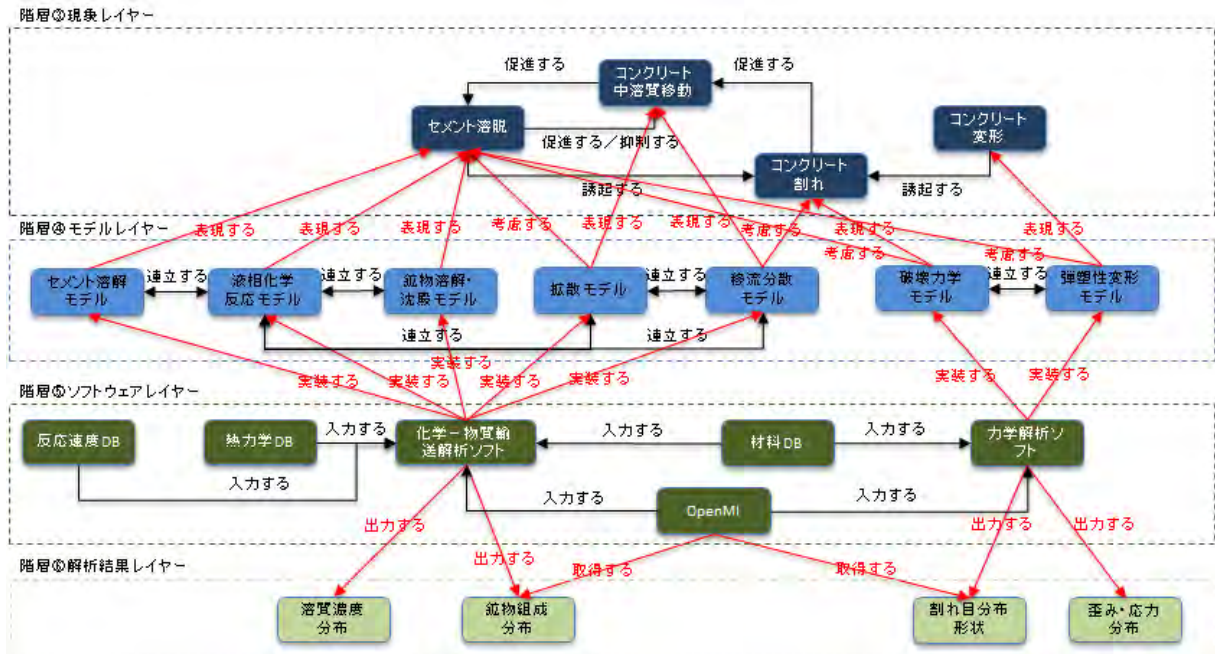


図 2.6.6-3 階層③～⑥全体の ER 図

階層③のER図の事例としてセメント溶脱を取り上げ、図 2.6.6-4のように記述した。階層③では、評価の中で取り扱う現象について記述することが目的であるが、その現象について安全機能と絡めてFEP的な記述をするよりも、それぞれの事例についてどのような観測的・解析的知見が得られているのかといった点について記述することとした。特に、知見についてはナチュラルアナログ、原位置試験、室内試験についての事例を収集し、それぞれについての解析評価も含めて記述し、後段の階層④のモデルレイヤーにおける取り扱いと整合的に記述することが重要である(例えばあるモデル作成の根拠となった事例の整理等)。

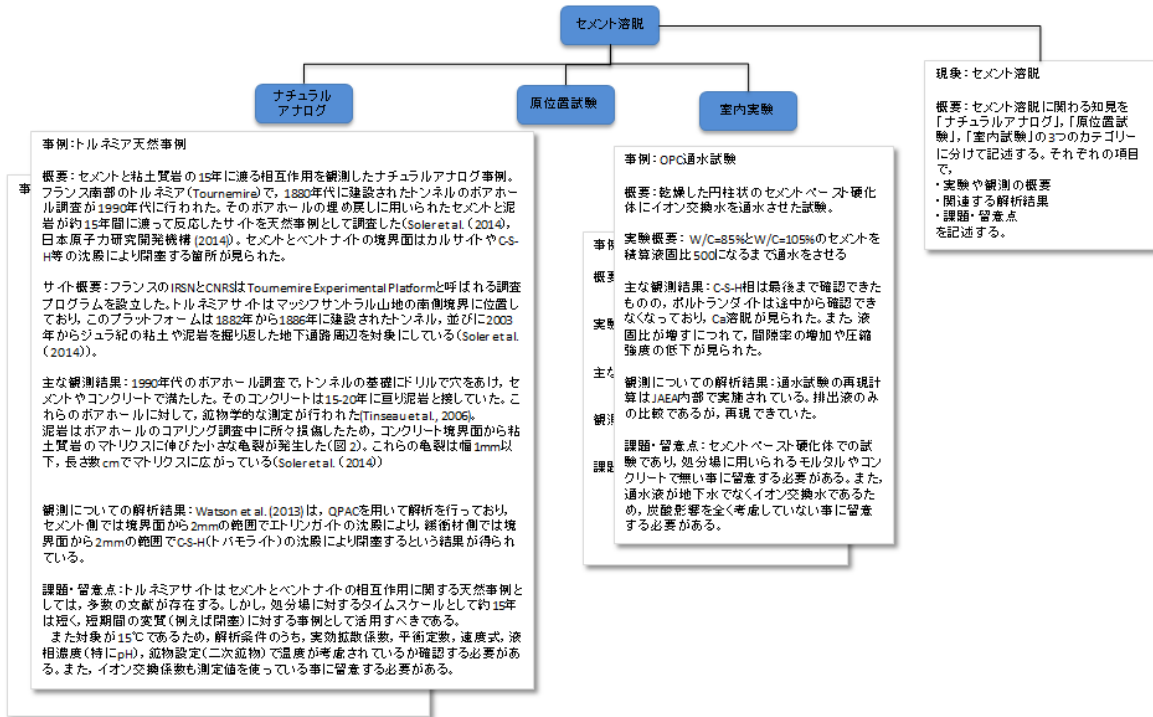


図 2.6.6-4 階層③の事例：セメント溶脱の ER 図

階層④の事例として、セメント溶脱モデルの事例を取り上げ、それぞれ図 2.6.6-5のように記述した。この階層では、それぞれのモデルに対するモデルオプションについて記述し、複数のモデルオプションが考えられる場合はそれぞれのモデルオプションの差異が明確になるように記述する。そのためには、モデルの支配方程式や適用範囲、不確実性や課題といった点について記述するべきと考えられる。

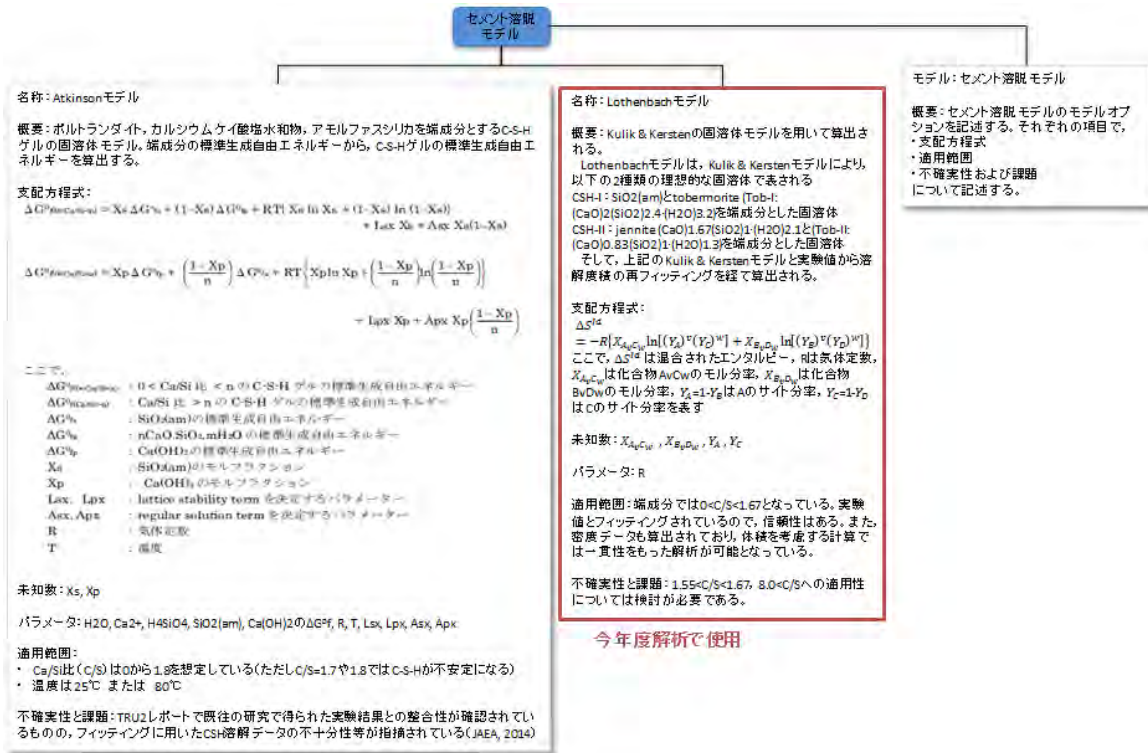


図 2.6.6-5 階層④の事例：セメント溶脱モデル

階層⑤の事例として、化学 - 物質輸送解析ソフトウェアの事例を取り上げ、図 2.6.6-6に示した。ここでは、それぞれのソフトウェアにおいて実装されているモデルについての、階層④で取り扱ったモデルとの関連性を明確にし、それぞれのモデルの取り扱いの可否や出力結果について記述することで、各ソフトウェアの特徴比較を行うことができるように記述すべきと考えられる。

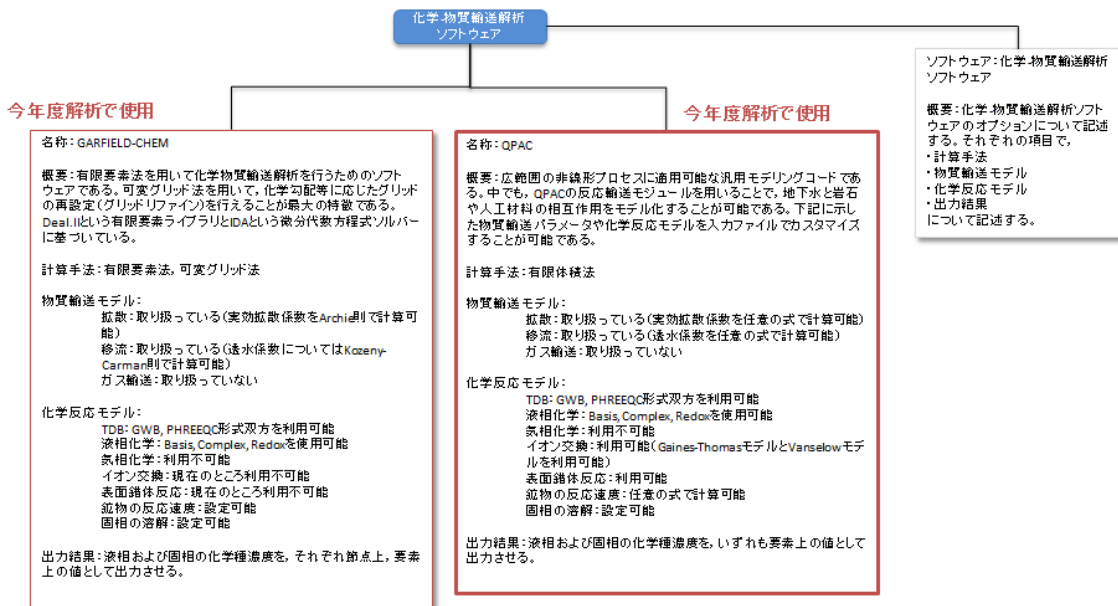


図 2.6.6-6 階層⑤の事例：化学 - 物質輸送解析ソフトウェア

階層⑥の事例として、溶質濃度分布解析と鉱物組成分布解析の事例を取り上げ、図2.6.6-7に示した。このレイヤーでは、現象解析や核種移行解析の結果得られる解析結果について、ある程度系統的に内容をはめ込み、また上の階層③～⑤で記述したオプションのうちどれを用いたか、ということを示すことで、結果を見やすくすることが重要である。また、出力結果として図も含めて整理できることが重要である。したがって、この階層で記述すべき事項としては、以下のようものが挙げられると考えられる。

- ・ 着目する化学種や現象
- ・ 関連性の高い解析条件・解析モデル
- ・ 使用したソフトウェア
- ・ 出力情報および単位
- ・ 解析結果
- ・ 考察
- ・ 課題および不確実性

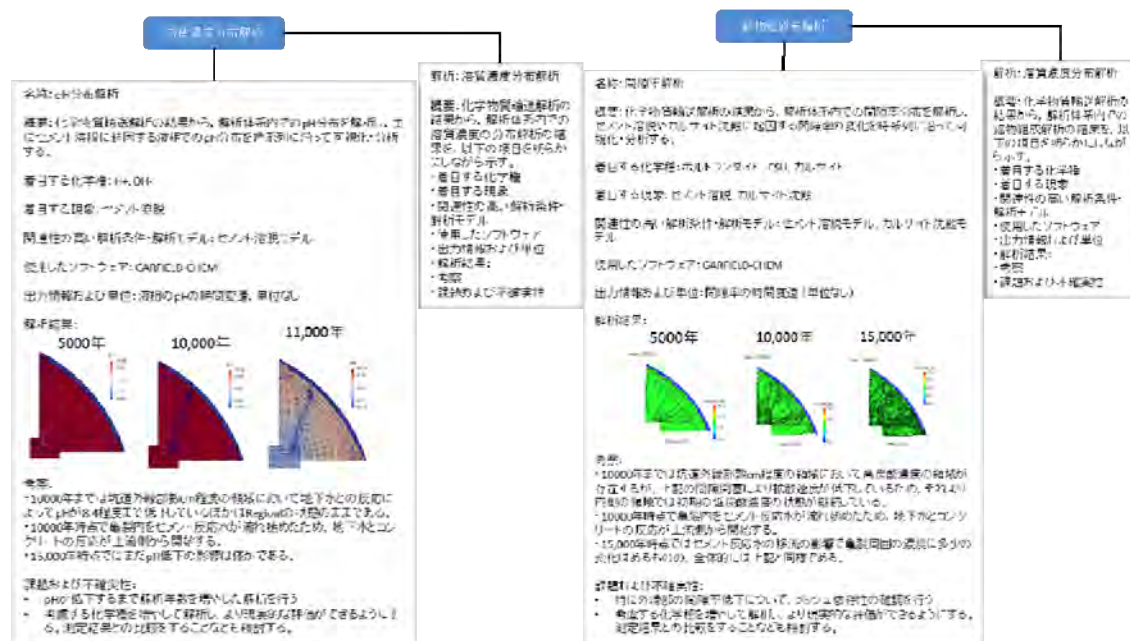


図 2.6.6-7 階層⑥の事例：解析結果

4) 汎用のソフトウェアを用いた整理例

前述のように、ER図は元々、データベースの設計図とすることが目的で作成されたものである。昨今では例えばMySQLのような、様々なデータベースが使用可能となっており、様々な形で利用されているが、本検討で整理したような内容も、このようなデータベースに登録して整理することで、共通モデル・シナリオ共通データベースや成果体系化・ユーザ支援ツールの一部として活用することが期待できる。例えば、以下のような使用方法が想定できる。

- ・ 階層③の事例をデータベースに追加することで、各分野で得られている知見を整理し、異分野コミュニケーションを支援する
- ・ 階層④や⑤の事例を登録し、そこからモデルやソフトウェア、データベースの選択を行える

機能を追加し、さらにミドルウェアへの指示を出せるような機能を追加する

- ・ 階層⑥の事例を登録し、階層③～⑤の情報と紐づけた上で成果を体系的に整理して閲覧できるようにする

図 2.6.6-8は、本検討で実施した内容の一部を、MySQLとMySQL Workbench（いずれも無償で利用可能なソフトウェア）で実際に整理してER図を作成した例である。データベースを作成する際には、このようなER図をまず作成し、次にそれに基づいてテーブル形式のデータベースを実際に作成する”Forward Engineer”と呼ばれる機能でテーブルを作成し、そこに内容を登録していくといった作業が可能である。

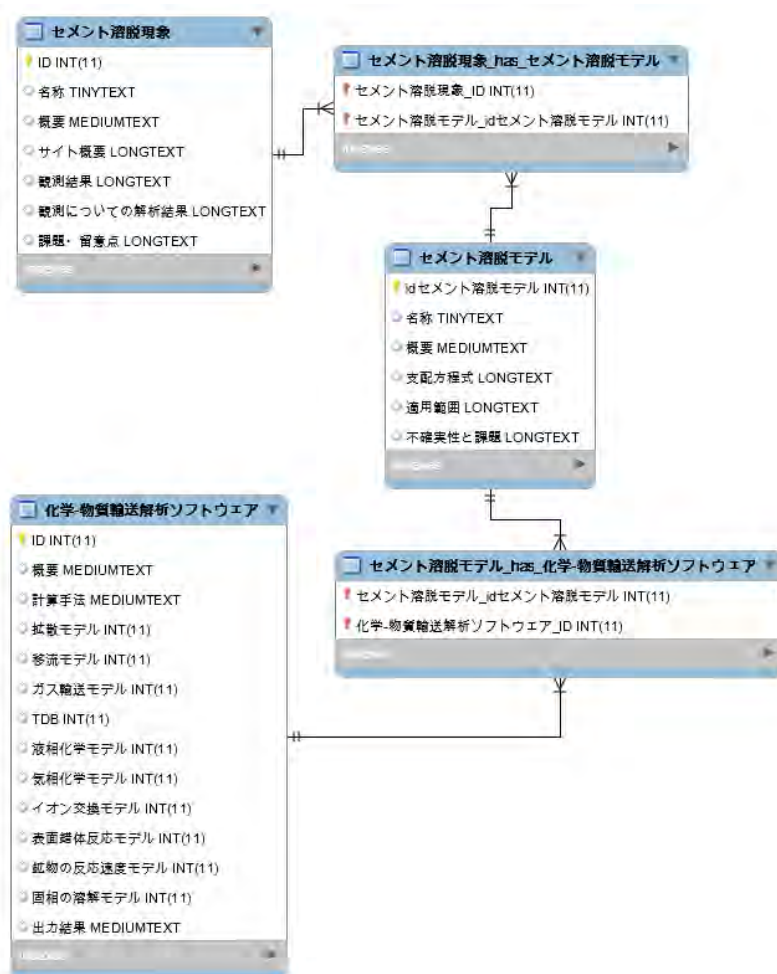


図 2.6.6-8 MySQL と MySQL Workbench で整理したデータベースの一例

5) まとめ

本項では、ER図を用いた現象理解の整理について、現象解析から核種移行解析に至るまで、取り扱っている現象やモデル、ソフトウェアを得られた解析結果と紐づけながら整理できる手法として提案した。このような整理を行うにあたっては、各分野の専門家の協力も得ながら行い、さらにその成果を還元して実際に使用できる形式にするといった観点が必要となる。

2.7 まとめ

本章では、ニアフィールドのシステム変遷と核種移行を評価するための先端的技術の開発として、5つのサブタスクごとの目標・課題設定に沿った技術開発をさらに進めるとともに、それぞれの最終目標や成果反映に向けた今後の課題を抽出した。以下に、サブタスクごとの平成28年度の成果と今後の課題をまとめる。

(1) システムの過渡的变化評価技術開発

1) システムの過渡的状态評価技術の開発

ニアフィールドの長期挙動を評価するための連成解析技術開発に関しては、これまでに整備を行った連成解析コードを用い、岩盤や人工バリア材料の性能確認や核種移行評価の基盤情報とするため、ガラス固化体の放熱と人工バリア内への地下水の浸潤に伴うニアフィールドの化学的な環境の変化を定量的に示した。また、より現実に即した評価を実施するために、既往の試験データに基づき、水理特性および熱特性の密度依存性を考慮できるように連成解析コードの改良を実施した。さらに、緩衝材の力学モデルの詳細な検討や、高度化に資するデータ取得を目的として、体積膨潤ひずみ測定試験およびX線CTスキャナを用いた膨潤過程の非破壊測定を実施しデータを拡充した。

今後は、緩衝材の膨潤変形挙動に関する試験データの拡充と、取得した室内試験データと原位置試験で得られたデータを活用して、解析コードの検証および高度化を行う必要がある。

2) 過渡的状态における人工バリアの挙動評価技術の開発

オーバーパックの腐食挙動に関する調査については、緩衝材の再冠水過程における炭素鋼オーバーパックの腐食挙動を把握することを目的として、平成25年度に試作し、幌延URLでの原位置試験に適用されている腐食センサーを用いて炭素鋼の腐食モニタリングを平成27年度に引き続き行い、再冠水過程における液抵抗、分極抵抗等の経時変化を確認した。また、従来の想定範囲を超える地下水水質での腐食挙動の実験的検討を行い、炭酸ガス環境での腐食挙動に関するデータを取得した。

想定範囲を超える地下水水質での緩衝材の挙動の検討については、高塩化物イオン濃度の影響を考慮した緩衝材の膨潤圧試験、透水試験を実施し、イオン強度 $6.0\text{mol}/\text{dm}^3$ に調整した塩化ナトリウム水溶液による平衡膨潤圧は $0.32\sim 0.35\text{MPa}$ 程度の値となり、透水係数は約 $3.0\times 10^{-10}\text{m}/\text{s}$ 程度の値が得られ、これまでの知見と整合的な結果が得られた。

緩衝材中の微量な間隙水のpHを連続的に把握するための計測技術として、光学式pHセンサーに用いる粒状発色材が、緩衝材中において間隙水と接触することによって呈色反応を示すことを内視鏡により確認した。

鉄-ベントナイトの相互作用評価に関しては、モンモリロナイトの変質環境を制御した条件下の室内試験を実施し、異なる溶液条件や試験期間をパラメータとしてモンモリロナイトの変質量を評価した。

今後は、オーバーパックの腐食挙動に関するデータ、緩衝材の特性データの拡充を図るとともに、計測技術の確立に向けてセンサーの検証を進める必要がある。また、鉄-ベントナイトの相互作用評価についても、室内試験データを拡充してモンモリロナイト変質量の評価を進める必要が

ある。

(2) 人工バリア中の核種移行に係る不確実性要因分析とそれに基づく性能評価技術開発

1) 人工バリア中の核種移行に係るメカニズム分析と精緻化モデルの開発

人工バリア中の核種移行評価技術として、最新の科学的知見に基づく現象理解を反映したより精緻な評価、システム変遷やそれに係る不確実性要因を考慮した評価を可能とするモデルとデータベースを開発することを目的に、圧縮ベントナイト中の核種移行に係る現象理解に資するデータ取得、分析技術の適用、それらを反映したモデルの高度化開発を進めた。

圧縮ベントナイト中の収着・拡散現象に係るデータ取得と現象理解については、多様な環境条件での圧縮ベントナイト中の収着・拡散メカニズムの理解に資するため、Na型モンモリロナイトの拡散挙動の温度依存性、Ca型モンモリロナイト中の収着・拡散データを取得した。また、圧縮ベントナイト中のコロイドろ過機能の確証に関する基礎データを取得した。さらに、先端的な分析技術として、圧縮ベントナイト中の間隙構造のNMRによる定量評価手法のCa型モンモリロナイトへの適用性を確認したほか、NMRと量子化学計算を組み合わせたCsのモンモリロナイトへの収着機構解明、ATR-FTIR及びXAFS分析の組合せによるSeのモンモリロナイトへの収着機構の解明に資する知見を得た。これらデータやメカニズムに関する知見を反映しつつ、従来から開発してきた統合収着・拡散モデルに対し、間隙の不均質性や化学種の混在等の影響を考慮した高度化モデルを提示した。さらに、分子動力学計算及び量子化学計算技術の適用評価によるモデルの裏付けとなる知見を拡充するとともに、それらナノスケール情報からマクロの物質移行パラメータとのつなぐためのアップスケーリング手法の検討に着手した。

今後は、これまでに取得してきた多様な環境条件（密度、温度等）やシステム変遷（Ca型化）の影響を考慮した収着・拡散データ、先端的な分析技術に基づくメカニズムの理解について、それぞれの成果を取りまとめるとともに、これら一連のデータとメカニズム理解を反映した収着・拡散モデルの精緻化とその安全評価への反映方策を提示する。

2) システム変遷を考慮した核種移行評価技術の開発

炭素鋼製オーバーパックの腐食に由来する鉄共存の影響について、Fe(II)と放射性核種のモンモリロナイトへの競合収着について定量的に評価するため、NiやEuの収着に影響を及ぼさない還元手法を用いた試験技術を確立し、Fe(II)とNi, Euの競合収着に関するデータを取得した。また、ガラス溶解に及ぼす影響について、Fe²⁺イオンの共存を模擬したMgCl₂溶液条件でのガラス浸出試験及びFe-Si相互作用に関する試験により、影響メカニズムの理解を進めた。

今後、モンモリロナイトへFe(II)と競合収着するNi等の2価の陽イオンに対する選択定数の整備や、3価の陽イオン等のFe(II)との競合収着の可能性についての検討を引き続き進める。また、Fe²⁺イオン含有溶液を用いたガラス浸出試験、Fe-Si相互作用に関する試験について検討を進め、これら成果を影響評価モデルへ反映していく。

(3) 天然バリア中の核種移行に係る不確実性要因分析とそれに基づく性能評価技術開発

1) 岩石マトリクス/割れ目中の核種移行評価技術の開発

天然バリア中の核種移行に係る課題のうち、割れ目等の不均質性や長期変遷等を考慮した核種

移行評価手法の高度化と確証を目指し、結晶質岩と堆積岩のそれぞれの特徴と課題を踏まえつつ、割れ目等の不均質性をより精緻に評価するための室内試験と解析手法の改良、ナチュラルトレーサーに関する事例調査、原位置条件への適用性評価を進めた。

結晶質岩については、グリムゼル花崗岩マトリクスを対象に、鉱物・間隙の不均質性の定量化と、不均質性を考慮した解析手法の高度化を進めた。また、割れ目試料を対象とした体系的な室内試験の結果に対し、各種試験データや割れ目近傍の鉱物・間隙分析データを拡充するとともに、不均質性等をより忠実に反映したモデルの高度化とその適用性を示した。さらに、スウェーデンのエスポ等の原位置試験データを活用した、核種移行モデル及びパラメータ設定手法の適用性を評価した。一方、幌延泥岩については、原位置試験と連携した確証評価として、マトリクスを対象とした原位置トレーサー試験の室内補完試験を行うとともに、原位置試験データの解析評価を実施した。さらに、長期時間スケールでのモデルとデータの確証に資するため、幌延の既往の調査データを活用したナチュラルトレーサー評価について、地質環境の変遷等を考慮したより現実的なモデルの適用性を評価した。

今後は、いずれの岩石においても、特に割れ目の不均質性とその核種移行への影響に関する現象理解の深化とモデル化手法の構築、原位置トレーサー試験との連携による室内から原位置へのアップスケールも含めた評価手法の適用性評価を進める。さらに、ナチュラルトレーサーの調査と解析評価を拡充し、室内・原位置試験による成果とあわせて、性能評価への反映を図っていくこととする。

2) 有機物・微生物による核種移行への影響評価手法の開発

有機物影響評価手法については、異なる溶液条件（pH、イオン強度）における低濃度Eu(III)と深部地下水中の腐植物質との錯生成データの取得、および、NICA-Donnanモデルの適用性確認を実施し、既存のモデル/パラメータの課題を抽出した。この課題の解決に向けて、Eu(III)との錯生成における濃度依存性データを考慮したパラメータの最適化を実施し、地下水中の腐植物質に対するEu(III)のより現実的なNICA-Donnanモデルパラメータを整備した。また、深部地下水中の腐植物質の錯生成特性の把握に向けて、プロトン化の反応熱力学量を直接評価し、深部地下水と表層の腐植物質の官能基特性の相違を提示した。さらに、間接的な手法から評価されたTh(IV)と腐植物質とのNICA-Donnanモデルパラメータについて、文献から抽出した錯生成データへのモデルフィッティングから直接評価し、より現実的なモデルパラメータの再整備を進めた。モデルパラメータデータベースの拡充については、錯生成データ取得手法としてFFF-ICP-MS法を新たに開発し、Zr(IV)と深部地下水中の腐植物質との錯生成パラメータを拡充した。腐植物質の代表性に係る調査では、溶存腐植物質の定量評価を実施するとともに、溶存有機物の一括濃縮・精製手法としてのイオン交換-逆浸透(RO)膜法と透析法の限界を提示した。今後は、原位置への適用を念頭に置いたモデルパラメータの拡充、IV価核種との錯生成挙動の把握とモデルパラメータの整備・拡充、未分画有機物への適用確認を通して、錯生成モデル/パラメータの評価・確証を進め、これらの成果を影響評価解析に反映させる必要がある。

微生物影響評価手法の開発では、異なる地質環境（深度等）に存在する微生物等の密度、および、これらへの希土類元素の分配係数について、幌延の地下研究施設の深部地下水試料を用いたデータ取得を実施し、影響評価解析に用いるより現実的なパラメータを拡充した。また、深部地

下環境の微生物群集組成変化に与える希土類元素の添加効果やバイオフィルムの形成について調査し、核種との相互作用性の観点からの微生物活性データを取得した。未培養微生物を含めた代謝活性評価手法の開発では、メタゲノム解析技術の適用性を確認し、その手法の有効性を提示した。今後は、微生物と核種との相互作用評価に係る知見・パラメータの拡充を進めつつ、得られた成果を影響評価の解析に反映させていく必要がある。

(4) セメント系材料影響評価技術開発

セメント系材料の化学モデルの開発では、低アルカリ性セメント系材料の一つであるフライアッシュ高含有シリカヒュームセメント（以下、「HFSC」）を対象として、長期的な変質評価に必要となるセメント水和物溶解沈殿モデルおよび水和反応モデルの構築を目的とし、マグネシウムシリケート水和物の溶解度データ、及びカルシウムシリケート水和物と海水成分との相互作用に関するデータを取得した。また、材齢1年におけるセメントペースト硬化体の間隙液相組成分析及び固相分析を実施した。今後、こうした基盤のデータを拡充し、これらを反映させてセメントの化学モデルを構築することにより、より信頼性の高いセメントの化学的変質評価を目指す。

セメント系材料の力学挙動評価モデル開発では、鉄の腐食膨張によって引張応力が加わり、セメント系材料で割れが発生・進展する現象に着目して、平成27年度に解放力を載荷する改良を加えたMACBECE2014について、セメント系材料の溶脱および鉄の腐食の進展による力学特性の変化を考慮するための改良を行った。本モデルを用いて、コンクリートを埋め戻し材及び支保工として用いる処分施設の力学解析を実施した結果、コンクリートの割れの頻度・開口幅分布等が、改良前の従来の結果と比較して変化するものの、処分施設全体の力学挙動には殆ど影響がないことが明らかとなった。今後は、ベントナイト緩衝材を使用する人工バリアシステムでの本モデルの適用性の確認等を行い、ニアフィールド複合現象評価で活用できる技術基盤として整備していく。

核種移行挙動への影響評価では、セメント環境中での収着挙動に関する実験的調査として、アルカリ性水溶液中におけるナトリウム型及びカルシウム型ベントナイトに対するニオブ及びモリブデンの収着分配係数を測定した。カルシウム系ではニオブがカルシウムと相互作用し錯体を形成している可能性が示唆され、現象解明に課題を残した。また、カルシウム型ベントナイトに対するモリブデンの収着分配係数の有意値が新たに取得された。

グラウト影響評価技術開発では、セメント系材料によるニアフィールド岩盤への影響の把握とそのプロセスの理解を目的とし、原位置でのセメント系材料と周辺岩盤との接触事例として瑞浪超深地層研究所で採取されたボーリングコア試料を用いて検討を進めた。具体的には、グラウト材料の初期状況把握のためのセメント供試体の作製・観察、施工後約3年経過したグラウト材料コア試料の観察・分析および施工後約6年経過したグラウト材料コア試料の採取・観察を実施した。この結果、グラウト材料はセメント供試体に比べて早い時期から中性化が進行している可能性や、坑道を解放している段階ではグラウト材料による周辺岩盤への化学的影響が生じ難い可能性があると考えられた。今後、地下環境におけるグラウト材料およびその周辺岩盤等の変遷メカニズムについてさらに検討を進めるとともに、それらの評価手法について整理していく。

(5) ニアフィールド複合現象／核種移行の体系的評価に向けた技術開発

ニアフィールド総合評価技術の開発として、ニアフィールド総合評価システムの動作基盤とな

るニアフィールド総合評価プラットフォーム、ニアフィールド変遷を解析するためのニアフィールド複合現象解析モデル、及びニアフィールドシステム変遷の知見を反映させて核種移行評価を行う核種移行解析モデルのそれぞれのプロトタイプを開発した。本システムによって、コンクリートの力学的なひび割れの発生を発端とした、ひび割れ部の化学的修復やその周辺の化学的変質部での新たなひび割れ発生といった化学-物質輸送-力学連成現象を解析することが可能となった。また、そのようなひび割れの進展や化学的変質に伴う間隙率変化などに応じた移流・拡散による物質輸送速度変化や、これに伴う化学的条件変化に即して核種移行解析を実施することが可能となった。一方、連成解析における化学的修復の判断方法や、局所スケールで生ずる連成現象の全体スケールへのフィードバックなどが課題とされた。さらに、ニアフィールドシステム変遷と核種移行に関する一連の成果を体系化するための手法を提案した。今後、第2章で得られる5つのサブタスクの成果の体系的な取りまとめを行う。

参考文献

- Amano, Y., Iwatsuki, T. and Naganuma, T. (2017): Characteristics of naturally grown biofilms in deep groundwaters and their heavy metal sorption property in a deep subsurface environment, *Geomicrobiology Journal* (accepted, doi: 10.1080/01490451.2016.1267281)
- 天野由記, 近沢孝弘, 千々和辰訓, 江橋健, 畑中耕一郎, 平野史生, 本田明, 石寺孝充, 石谷和己, 亀井玄人, 加藤智子, 河口達也, 北村暁, 小尾繁, 前川恵輔, 牧野仁史, 三木晋, 長尾郁弥, 澤田淳, 柴田雅博, 塩月正雄, 杉田裕, 陶山忠宏, 鈴木祐二, 舘幸男, 谷口直樹, 寺島元基, 若杉圭一郎, 山口正秋 (2015): わが国における使用済燃料の地層処分システムに関する概括的評価—直接処分第1次取りまとめ—, *JAEA-Research* 2015-016.
- 天野由記, 山本陽一, 南条功, 村上裕晃, 横田秀晴, 山崎雅則, 國丸貴紀, 大山隆弘, 岩月輝希 (2012): 幌延深地層研究計画における地下水, 河川水および降水の水質データ (2001~2010年度), *JAEA-Data/Code* 2011-023.
- Anderson, C. and Pedersen, K. (2003): In situ growth of *Gallionella* biofilms and partitioning of lanthanides and actinides between biological material and ferric oxyhydroxides, *Geobiology*, 1, pp.169-178.
- Anderson, C., Pedersen, K. and Jakobsson, A.-M. (2006): Autoradiographic comparisons of radionuclide adsorption between subsurface anaerobic biofilms and granitic host rocks, *Geomicrobiology Journal*, 23, pp.15-29.
- Anderson, C., Jakobsson, A.-M. and Pedersen, K. (2007): Influence of in situ biofilm coverage on the radionuclide adsorption Capacity of subsurface granite, *Environmental Science & Technology*, 41, pp.830-836.
- Arai, Y. and Sparks, D.L. (2001): ATR-FTIR spectroscopic investigation on phosphate adsorption mechanisms at the ferrihydrite-water interface, *Journal of Colloid and Interface Science*, 241, pp.317-326
- Arthur, R.C., Sasamoto, H., Shibata, M., Yui, M. and Neyama, A. (1999): Development of Thermodynamic Databases for Geochemical Calculations, *JNC TN8400* 99-079.
- Arthur, R.C., Sasamoto, H., Oda, C., Honda, A., Shibata, M., Yoshida, Y. and Yui, M. (2005): Development of Thermodynamic Database for Hyperalkaline, Argillaceous Systems (Research Document), *JNC TN8400* 2005-010.
- Bateman, K., Coombs, P., Noy, D.J., Pearce, J.M. and Wetton, P.D. (1998): Numerical modelling and column experiments to simulate the alkaline disturbed zone around a cementitious radioactive waste repository, *Sci. Basis Nucl. Waste Manage., Materials Research Society*, 506, pp.605-611.
- Bateman, K., Coombs, P., Noy, D.J., Pearce, J.M., Wetton P., Haworth, and Linklater, A.C. (1999): Experimental simulation of the alkaline disturbed zone around a cementitious radioactive waste repository: numerical modelling and column experiments, *Geological Society of London*, 157, pp.183-194.

- Babaahmadi, A., Tang, L., Abbas, Z. and Martensson, P. (2015): Physical and Mechanical Properties of Cementitious Specimens Exposed to an Electrochemically Derived Accelerated Leaching of Calcium, *International Journal of Concrete Structures and Materials*, Vol.9, No.3, pp.295–306.
- Baeyens, B., Thoenen, T., Bradbury, M.H., and Marques Fernandes, M. (2014): Sorption data bases for argillaceous rocks and bentonite for the provisional safety analyses for SGT-E2, Nagra Technical Report NTB 12-04, Nagra, Wettingen, Switzerland.
- Benbow, S. and Robinson, P. (2007): QPAC 1.0 User guide, Quintessa Limited.
- Benedetti, M.F., Van Riemensdijk, W.H. and Koopal, L.K. (1996): Humic substances considered as a heterogeneous donnan gel phase, *Environ. Sci. Technol.*, 30, pp.1805–1813.
- 別府伸治, 狩野智之, 竹内竜史, 尾方伸久 (2014): 超深地層研究所計画における地下水の水圧長期モニタリング 2012年度, JAEA-Data/Code 2013-023.
- Berner, U.R. (1992): Evolution of pore water chemistry during degradation of cement in a radioactive waste repository environment, *Waste Management*, 12, pp.201–219.
- Ben Mabrouk, K., Kauffmann, T.H., Aroui Ben Mabrouk, K., Kauffmann, T.H., Aroui, H. and Fontana, M.D. (2013): *Journal of Raman Spectroscopy*, v.44, pp.1603–1608.
- Bethke, C.M. (2008): *Geochemical and biogeochemical reaction modeling*, Cambridge University Press, New York, NY.
- Booth, F. (1951): The Dielectric Constant of Water and the Saturation Effect, *J. Chem. Phys.*, 19, pp.391–394, pp.1327–1328, p.1615.
- Börjesson, L. and Hernelind, J. (1999): Coupled thermo-hydro-mechanical calculations of the water saturation phase of a KBS-3 deposition hole Influence of hydraulic rock properties on the water saturation phase, SKB Technical Report TR-99-41.
- Borgnino, L., Giacomelli, C.E., Avena, M.J. and De Pauli, C.P. (2010): Phosphate adsorption on Fe(III) modified montmorillonite: Surface complexation studied by ATR-FTIR spectroscopy, *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*. 353, pp.238–244.
- Boult, K.A., Cowper, M.M., Heath, T.G., Sato, H., Shibutani, T. and Yui, M. (1998): Towards an understanding of the sorption of U(VI) and Se(IV) on sodium bentonite, *J. Contam. Hydrol.* 15, pp.141–150.
- Bradbury M.H. and Baeyens B. (1997) A mechanistic description of Ni and Zn sorption on Na-montmorillonite, Part II: Modelling, *J. Cont. Hydrol.* 27, pp.223–248.
- Bradbury, M.H. and Baeyens, B. (2005): Modelling the sorption of Mn(II), Co(II), Ni(II), Zn(II), Cd(II), Eu(III), Am(III), Sn(IV), Th(IV), Np(V) and U(VI) on montmorillonite: Linear free energy relationships and estimates of surface binding constants for some selected heavy metals and actinides, *Geochim. Cosmochim. Acta*, 69, pp.875–892.
- Brigatti, M.F., Galán, E. and Theng, B.K.G. (2013): In *Handbook of clay science*, Second edition, part A: Fundamentals; Bergaya, F., Lagaly, G., Eds.; Elsevier: Amsterdam, pp.21–81.

- Byegård, J., Johansson, H., Skålberg, M. and Tullborg, E.-L. (1998): The interaction of sorbing and non-sorbing tracers with different Äspö rock types. Sorption and diffusion experiments in the laboratory scale, SKB TR 98-18.
- Charlet, L., Scheinost, A.C., Tournassat, C., Greneche, J.M., Géhin, A., Fernández-Martínez, A., Coudert, S., Tisserand, D. and Brendle, J. (2007): Electron transfer at the mineral/water interface: Selenium reduction by ferrous iron sorbed on clay, *Geochimica et Cosmochimica Acta*. 71, pp.5731-5749
- Chen, P. (1976): The Entity-Relationship Model – Toward a Unified View of Data, *ACM Transactions on Database Systems*.
- Churakov, S.V. and Gimmi, T. (2011): Up-Scaling of Molecular Diffusion Coefficients in Clays: A Two-Step Approach, *J. Phys. Chem. C*, 115, pp.6703-6714.
- Churakov, S.V., Gimmi, T., Unruh, T., Van Loon, L.R. and Juranyi, F. (2014): Resolving Diffusion in Clay Minerals at Different Time Scales: Combination of Experimental and Modeling Approaches, *Applied Clay Science*, 96, pp.36-44.
- Cornell, R.M. and Schwertmann, U. (2003): *The Iron Oxides: Structure, Properties, Reactions, Occurrences and Uses*, 2nd. ed., 703 p, Wiley-VCH, Weinham.
- Dal Corso, A. (2014): Pseudopotentials Periodic Table: From H to Pu, *Comput. Mater. Sci.*, 95, pp.337-350.
- David, C., Mongin, S., Rey-Castro, C., Galceran, J., Companys, E., Garces, J.L., Salvador, J., Puy, J., Cecilia, J., Lodeiro, P. and Mas, F. (2010): Competition effects in cation binding to humic acid: Conditional affinity spectra for fixed total metal concentration conditions, *Geochim. Cosmochim. Acta*, 74, pp.5216-5227.
- 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.
- Dillmann, P., Gin, S., Neff, d. and Gentaz, L. (2016) Effect of natural and synthetic iron corrosion products on silicate glass alteration processes, *Geochim. Cosmochim. Acta*, 172, pp.287-305.
- Dilnesa, B.Z., Lothenbach, B., Renaudin, G., Wichser, A. and Kulik, D.A. (2014): Synthesis and characterization of hydrogarnet $\text{Ca}_3(\text{Al}_x\text{Fe}_{1-x})_2(\text{SiO}_4)_y(\text{OH})_{4(3-y)}$, *Cement and Concrete Research*, 59, pp.96-111
- 土木学会 (1996): コンクリート標準示方書「設計編」(平成8年制定)
- Doelsch, E., Masion, A., Rose, J., Stone, W.E.E., Bottero, J.Y. and Bertsch, P.M. (2003): Chemistry and structure of colloids obtained by hydrolysis of Fe(III) in the presence of SiO₄ ligands, *Colloids and Surfaces A*, pp.121-128.
- Ekendahl, S., Arlinger, J., Ståhl, F. and Pedersen, K. (1994): Characterization of attached bacterial populations in deep granitic groundwater from the Stripa research mine with 16S-rRNA gene sequencing technique and scanning electron microscopy, *Microbiology*, 140, pp.1575-1583.
- Eng, A., Nilsson, U. and Svensson, D. (2007): Alternative buffer material installation

- report, IPR-07-15.
- Fredrickson, J.K. and Fletcher, M. (eds.) (2001): Subsurface microbiology and biogeochemistry, Wiley-Liss, Inc., New York.
- Fu, M.H., Zhang, Z.Z. and Low, P.F. (1990): Changes in the Properties of a Montmorillonite-Water System during the Adsorption and Desorption of Water: Hysteresis, *Clays Clay Minerals*, 38, pp.485-492.
- 藤崎淳, 鈴木英明, 藤田朝雄 (2008): 熱-水-応力連成試験設備 (COUPLE) を用いた室内試験結果に基づく熱-水連成モデルの信頼性確認, *JAEA-Research* 2008-020.
- 藤田朝雄, 谷口直樹, 松井裕哉, 棚井憲治, 西村繭果, 小林保之, 平本正行, 前川恵輔, 澤田淳, 牧野仁史, 笹本広, 吉川英樹, 柴田雅博, 若杉圭一郎, 濱克宏, 操上広志, 國丸貴紀, 石井英一, 竹内竜史, 中野勝志, 太田久仁雄, 瀬尾俊弘, 宮原要, 内藤守正, 油井三和 (2007): 幌延深地層研究計画における地上からの調査研究段階 (第1段階) 研究成果報告書分冊「地層処分研究開発」, *JAEA-Research* 2007-045.
- Giannozzi, P. et al. (2009): QUANTUM ESPRESSO: a modular and open-source software project for quantum simulations of materials. *J. Phys.: Cond. Matter* 21, pp.395502-395521.
- GoldSim Technology Group (2010). GoldSim Version 10.1.
- Gurtler, B.K., Vetter, T.A., Perdue, E.M., Ingall, E., Koprivnjak, J.-F. and Pfromm, P.H. (2008): Combining reverse osmosis and pulsed electrical current electrodialysis for improved recovery of dissolved organic matter from seawater, *J. Membrane Sci.*, 323, pp.328-336.
- Gustafsson, J.P. (2016): Visual MINTEQ ver. 3.1., <https://vminteq.lwr.kth.se/>
- 濱克宏, 見掛信一郎, 西尾和久, 川本康司, 山田信人, 石橋正祐紀, 村上裕晃, 松岡稔幸, 笹尾英嗣, 真田祐幸, 大貫賢二, 佐藤成二, 別府伸治, 尾上博則, 竹内竜史, 三枝博光, 大森一秋, 長谷川隆, 宗本隆志, 湯口貴史, 岩月輝希, 岩崎理代, 池田幸喜, 堀内泰治, 佐藤稔紀, 大澤英昭, 小出馨, 杉原弘造 (2014): 超深地層研究所計画 年度報告書 (2013年度), *JAEA-Review* 2014-038.
- 濱克宏, 見掛信一郎, 石橋正祐紀, 笹尾英嗣, 桑原和道, 上野哲朗, 大貫賢二, 別府伸治, 尾上博則, 竹内竜史, 三枝博光, 宗本隆志, 加藤利弘, 岩月輝希, 岩崎理代, 池田幸喜, 佐藤稔紀, 大澤英昭, 小出馨 (2015): 超深地層研究所計画 年度報告書 (2014年度), *JAEA-Review* 2015-024.
- 濱克宏, 岩月輝希, 松井裕哉, 見掛信一郎, 石橋正祐紀, 尾上博則, 竹内竜史, 野原壯, 笹尾英嗣, 池田幸喜, 小出馨 (2016): 超深地層研究所計画 年度報告書 (2015年度), *JAEA-Review* 2016-023.
- 林田一貴, 宗本隆志, 青才大介, 乾道春, 岩月輝希 (2016): 超深地層研究所計画における地下水の地球化学に関する調査研究-瑞浪層群・土岐花崗岩の地下水の地球化学特性データ集-, *JAEA-Data/Code* 2016-001.
- 平賀正人, 石井英一 (2007): 幌延深地層研究計画 (第1段階) において採取されたボーリングコアの鉱物組成・全岩化学組成及び地表ガスの化学組成, *JAEA-Data-Code*-2007-022.
- 平野史生, 大谷芳輝, 京川裕之, 三原守弘, 清水浩之, 本田明 (2016): TRU廃棄物処分システム

- の性能評価の観点からの人工バリアの透水性に対するセメント系材料のひび割れの影響に関する検討, 日本原子力学会和文論文誌, 15, No. 2, pp. 97-114.
- 平野飛翼, 稲垣八穂広, 松本遼, 出光一哉, 有馬立身(2016): 国際標準模擬ガラス固化体ISGの溶解挙動に及ぼす溶存Mgの影響, 日本原子力学会2016年秋の大会, 3D04.
- 平尾一之, 河村雄行(1994): パソコンによる材料設計, 裳華房, 東京.
- Holmboe, M., Wold, S. and Jonsson, M. (2010): Colloid diffusion in compacted bentonite: microstructural constraints: *Clays and Clay Minerals*, Vol. 58, No. 4, pp. 532-541.
- Holmboe, M., Wold, S. and Jonsson, M. (2012): Porosity investigation of compacted bentonite using XRD profile modeling, *Journal of Contaminant Hydrology*, 128, pp. 19-32.
- Holzer, L., Münch, M., Rizzi, M., Wepf, R., Marschall, T. and Graule, T. (2010): 3D-microstructure analysis of hydrated bentonite with cryo-stabilized pore water, *Applied Clay Science*, Volume 47, Issues 3-4, pp. 330-342.
- Honda, A., Taniguchi, N., Ishikawa, H. Hoch, A. R., Porter, F. M. and Sharland, S. M. (1995): A modelling Study for Long-term Life Prediction of Carbon Steel Overpack for Geological Isolation of High-Level Radioactive Waste, *Proceedings of International Symposium on Plant Aging and Life Prediction of Corrodible Structures*, pp. 217-227.
- 星野清一, 根岸久美, 本田明(2014): フライアッシュ高含有シリカフェームセメントの低アルカリ性発現機構と化学平衡モデル, *コンクリート工学論文集*, 第25巻, pp. 97-107.
- 細川佳史, 山田一夫(2006): 複合劣化に起因した化学反応によるセメント硬化体の組成変化の熱力学的モデルによる再現, *コンクリート工学論文集*, 28, pp. 977-982.
- Hsin-Chi J., Lin, et al. (1997): A Three-Dimensional Finite Element Computer Model for Simulating Density-Dependent Flow and Transport in Variably Saturated Media, *Vversion 3.0*.
- Hug, S. J. (1997): In situ Fourier transform infrared measurements of sulfate adsorption on hematite in aqueous solutions, *Journal of Colloid and Interface Science*, 188, pp. 415-422.
- Hummel, W., Bemer, U., Curti, E., Pearson, F. J. and Thoenen, T. (2002): Nagra / PSI chemical thermodynamic data base 01/01, Technical Report 02-16.
- Ibaraki, M. and Sudicky, E. A. (1995): Colloid-facilitated contaminant transport in discretely fractured porous media: 1. Numerical formulation and sensitivity analysis. *Water Resources Research*, 31(12), pp. 2945-2960.
- 市毛悟, 本田明(2005): アルカリ性水溶液中で変質させたベントナイトの膨潤試験, *JNC TN8430* 2005-003.
- 五十嵐豪, 丸山一平(2011): 水蒸気吸着によるC-S-HのBET比表面積とC-S-Hが有する反応基との相関に関する基礎的考察, *セメント・コンクリート論文集*, vol. 65, pp. 140-145
- Iijima, K., Kurosawa, S., Tobita, M., Kibe, S. and Ouchi Y. (2009): Diffusion behavior of humic acid in compacted bentonite: effect of ionic strength, dry density and molecular weight of humic acid: *Materials Research Society Symposium Proceedings*, 1124, pp. 263-270.

- 入矢桂史郎, 三原守弘(2003): ポズランを高含有した低アルカリ性コンクリートの開発, コンクリート工学年次論文集, vol. 25, pp. 185-190.
- 石橋正祐紀, 安藤友美, 笹尾英嗣, 湯口貴史, 西本昌司, 吉田英一(2014): 深部結晶質岩における割れ目の形成・充填過程と透水性割れ目の地質学的特徴—土岐花崗岩を例として—, 応用地質, 55, pp. 156-165.
- 石井洋司, 渡辺和彦, 神谷晃, 早野明, 見掛信一郎, 竹内真司, 池田幸喜, 山本勝, 杉原弘造(2011): 深度400m以深の換気立坑掘削において実施したプレグラウチングの施工結果と考察, JAEA-Technology 2010-044.
- 石川博久, 本田明, 鶴留浩二, 井上邦博, 小畑政道, 佐々木憲明(1992): オーバーパック候補材料選定と炭素鋼オーバーパックの寿命評価, PNC TN8410 92-139.
- 岩田孟, 北村暁(2015): 雰囲気制御下でのNb(V)の溶解度測定, 日本原子力学会2015年春の年会, B19.
- 岩月輝希, 石井英一, 新里忠史(2009): 北海道幌延地域における深部地球化学環境の長期変遷シナリオの構築, 地学雑誌, 118(4), pp. 700-716.
- Jägevall, S., Rabe, L. and Pedersen, K. (2011): Abundance and diversity of biofilms in natural and artificial aquifers of the Äspö Hard Rock Laboratory, Sweden. *Microb. Ecol.*, 61, pp. 410-422.
- 核燃料サイクル開発機構(1999a): わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性—地層処分研究開発第2次取りまとめ, JNC TN1400-99-020.
- 核燃料サイクル開発機構(1999b): わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性, 地層処分研究開発第2次取りまとめ, 分冊2, JNC TN1400 99-022.
- 核燃料サイクル開発機構(1999c): わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性—地層処分研究開発第2次取りまとめ, 分冊3 地層処分システムの安全評価, JNC TN1400 99-23.
- 亀井玄人, 本田明, 三原守弘, 小田治恵, 村上裕, 増田賢太, 山口耕平, 中西博, 佐々木良一, 市毛悟, 高橋邦明, 目黒義弘, 山口大美, 青山佳男, 小華和治(2007): TRU廃棄物の処理・処分技術に関する研究開発—平成18年度報告—, JAEA-Research 2007-067.
- 金持真理子, 久野義夫, 油井三和(1999): 圧密ベントナイトに対する有機物の透過試験, サイクル機構技術資料, JNC TN8400 99-080.
- 狩野智之, 毛屋博道, 竹内竜史(2011): 超深地層研究所計画における地下水の水圧長期モニタリング 2009年度, JAEA-Data/Code 2011-002.
- 狩野智之, 竹内竜史(2012): 超深地層研究所計画における地下水の水圧長期モニタリング 2010年度, JAEA-Data/Code 2012-002.
- 狩野智之, 竹内竜史(2013): 超深地層研究所計画における地下水の水圧長期モニタリング 2011年度, JAEA-Data/Code 2013-007.
- Karasaki, K., Ito, K., Wu, Y., Shimo, M., Sawada, A., Maekawa, K. and Hatanaka, K. (2011): Uncertainty reduction of hydrologic models using data from surface-based investigation, *Journal of Hydrology*, 403, pp. 49-57.
- 加藤大生, 嶺達也, 三原守弘, 大井貴夫, 本田明(2002): セメント系材料に対する核種の収着デ

- ータベースの整備, JNC TN8400 2001-029.
- 河村雄行(2004): ベントナイト中の物質移行モデルの高度化研究(Ⅲ), JNC TJ8400 2004-028.
- 河村雄行(2008): 鉱物-水系の分子シミュレーション, 地球化学, 42, pp.115-132.
- Kida, M., Ohtsuka, T., Kato, T., Suzuki, T. and Fujitake, N. (2016): Evaluation of salinity effect on quantitative analysis of aquatic humic substances using nonionic DAX-8 resin, *Chemosphere*, 146, pp.129-132.
- 菊池広人, 棚井憲治(2003): 緩衝材の熱物性測定試験(Ⅲ)-面熱源法による緩衝材熱物性の取得-, JNC TN8430 2003-009.
- 菊池広人, 棚井憲治(2004): 幌延地下水を用いた緩衝材・埋め戻し材の基本特性試験, サイクル機構技術資料, JNC TN8430 2004-005.
- 菊池広人, 棚井憲治, 松本一浩, 佐藤治夫, 上野健二, 鐵剛志(2003): 緩衝材の飽和透水特性Ⅱ-海水性地下水が緩衝材の透水性に及ぼす影響-, JNC TN8430 2003-002.
- 木村誠, 九石正美, 藤田朝雄, 中間茂雄, 鈴木英明(2010): 緩衝材中の化学影響評価に向けた熱-水-応力-化学連成解析モデルの開発, JAEA-Research 2010-034
- Kinniburgh, D.G., Milne, C.J., Pinheiro, J.P., Filius, J., Koopal, L.K. and Van Riemsdijk, W.H. (1996): Metal ion binding by humic acid: application of the NICA-Donnan model, *Environ. Sci. Technol.*, 30, pp.1687-1698.
- 蔵重勲, 廣永道彦(2007): 地下水梅雨炭酸水素イオンによるセメント系材料の溶脱抑制メカニズムに関する検討(その1), 電力中央研究所報告, N06028.
- 小林紘治, 伊藤雅和(1992): 最近のベントナイトの製造工程について, 粘土科学, 31, pp.222-230.
- 興戸正純, 沖猛雄(1993): 界面インピーダンス法の基礎と金属材料への応用, 日本金属学会報, Vol. 32, No. 4, pp.199-207.
- 小池一之・町田洋 編著(2001): 日本の海成段丘アトラス, 東京大学出版会.
- 小池充, 広谷卓也, 赤尾昇, 原信義, 杉本克久(2006): アルカリ性水溶液を含む圧縮ベントナイト中での炭素鋼の耐食性に及ぼす微量合金元素の影響, 材料と環境, 55, pp.445-451.
- Koopal, L.K., Saito, T., Pinheiro, J.P. and van Riemsdijk, W.H. (2005): Ion binding to natural organic matter: general considerations and the NICA-Donnan model, *Colloids Surf., A* 265, pp.40-54.
- Koprivnjak, J.-F., Promm, P.H., Ingall, E., Vetter, T.A., Schmitt-Kopplin, P., Hertkorn, N., Frommberger, M., Knicker, H. and Perdue, E.M. (2009): Chemical and spectroscopic characterization of marine dissolved organic matter isolated using coupled reverse osmosis-electrodialysis, *Geochim. Cosmochim. Acta*, 736, pp.4215-4231.
- Kowada, Y., Ozaki, T. and Minami, T. (2005): Preparation of Silica-Gel Film with pH Indicators by the Sol-Gel Method, *Journal of Sol-Gel Science and Technology*, Vol 33, Issue 2, pp.175-185.
- Kozaki, T., Fujishima, A., Sato, S. and Ohashi, H. (1998): Self-diffusion of sodium ions in compacted montmorillonite, *Nuclear Technology*, 121, pp.63-69.

- Krawczyk-Bärsch, E., Lünsdorf, H., Pedersen, K., Arnold, T., Bok, F., Steudtner, R., Lehtinen, A. and Brendler, V. (2012): Immobilization of uranium in biofilm microorganisms exposed to groundwater seeps over granitic rock tunnel walls in Olkiluoto, Finland. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 96, pp.94-104.
- Kubota, T., Tochiyama, O., Tanaka, K. and Niibori, Y. (2002): Complex formation of Eu(III) with humic acid and polyacrylic acid, *Radiochim. Acta* 90, pp.569-574.
- 國丸貴紀, 柴野一則, 操上広志, 戸村豪治, 原稔, 山本肇(2007): 幌延深地層研究計画における地下水, 河川水および降水の水質分析, JAEA-Data/Code 2007-015.
- 久野義夫, 笹本広(2009): 岩盤亀裂中でのコロイドに助長された核種移行に関する解析検討. JAEA-Research 2009-071.
- 黒澤進(2005): 高レベル放射性廃棄物地層処分システムにおける核種移行評価に及ぼすコロイド影響に関する研究 - 第2次とりまとめ以降の検討 -, JNC TN8400 2005-007
- 黒澤進, 吉川英樹, 油井三和(1996): 海水系地下水により浸潤した圧縮ベントナイト中でのコロイド移行, 日本原子力学会誌, Vol. 38, No. 5, pp. 42-45.
- Lantenois, S., Lanson, B., Muller, F., Bauer, A., Jullien, M. and Plancon, A. (2005): Experimental study of smectite interaction with metal Fe at low temperature: 1. smectite destabilization, *Clays and Clay Minerals*, 53, pp.597-612.
- Lefèvre, G. (2004): In situ Fourier-transform infrared spectroscopy studies of inorganic ions adsorption on metal oxides and hydroxides, *Advances in Colloid and Interface Science*, 107: pp.109-123
- Lichtner, P.C. (2004): Flotran User's Manual: Two phase, non-isothermal coupled thermal-hydrologic-chemical (THC) reactive flow and transport code, LANL Report LA-UR-01-2349, Los Alamos National Laboratory, Los Alamos, NM, USA.
- Liu, X., Cheng, J., Sprik, M., Lu, X. and Wang, R. (2014): Surface Acidity of 2:1-type Dioctahedral Clay Minerals from First Principles Molecular Dynamics Simulations, *Geochim. Cosmochim. Acta*, 140, pp.410-417.
- Liu, X., Lu, X., Sprik, M., Cheng, J., Meijer, E.J. and Wang, R. (2013): Acidity of Edge Surface Sites of Montmorillonite and Kaolinite, *Geochim. Cosmochim. Acta*, 117, pp.180-190.
- Lothenbach, B., Nied, D., L'Hôpital, E., Achiedo, G. and Dauzères, A. (2014): Calcium and magnesium silicate hydrates, 2nd International Symposium On cement-based materials for Nuclear Waste.
- Luengo, C., Brigante, M., Antelo, J. and Avena, M. (2006): Kinetics of phosphate adsorption on goethite: Comparing batch adsorption and ATR-IR measurements, *Journal of Colloid and Interface Science*, 300, pp.511-518.
- Madigan, M.T., Martinko, J.M., Dunlap, P.V., and Clark, D.P. (eds.) (2009): *Brock Biology of Microorganisms*, Prentice hall International, Inc. New Jersey. p 54.
- 前田敏克, 渡辺幸一, 大森弘幸, 坂巻景子, 稲垣八穂広, 出光 一哉(2014): カルシウムイオンや金属鉄がガラス固化体の溶解/変質挙動に及ぼす影響, 原子力バックエンド研究, Vol. 21,

pp. 63-74.

- 松本一浩, 菅野毅, 藤田朝雄, 鈴木英明(1997): 緩衝材の飽和透水特性, PNC TN8410 97-296.
- 松本慎司, 徳永朋祥, 國丸貴紀, 井尻裕二(2008): 塩素安定同位体比を用いた堆積岩中の地下水挙動の評価—北海道幌延地域における検討—, 日本地下水学会 春季講演会講演要旨, pp. 114-117.
- Mazurek, M., Alt-Epping, P., Bath, A., Gimmi, T. and Waber, H.N. (2009): Natural tracer profiles across argillaceous formations: The CLAYTRAC project, OECD/NEA Report 6253, OECD Nuclear Energy Agency, Paris, France.
- MacLean, L. C. W., Pray, T. J., Onstott, T. C., Brodie, E. L., Hazen, T. C. and Southam, G. (2007): Mineralogical, chemical and biological characterization of an anaerobic biofilm collected from a borehole in a deep gold mine in South Africa, *Geomicrobiol J* 24: pp. 491-504.
- Meyer, J., Mazurek, M. and Alexander, W.R. (1989): Petrographic and mineralogical characterisation of Fault Zones AU96 and AU126. In: Bradbury, M.H. (ed.): Grimsel Test Site. Laboratory investigations in support of the migration experiments. NAGRA Technical Report TR-88-23, Nagra, Wettingen, Switzerland.
- 三原守弘(2006): TRU 廃棄物処分システムの安全評価における核種移行データセット—RAMDA: Radio-nuclide Migration Datasets—, JAEA-Review 2006-011.
- 三原守弘, 佐藤信之, 大野進太郎, 森川誠司(2010): TRU 廃棄物地層処分施設の力学挙動解析コード(MACBECE)の開発, JAEA-Data/Code 2009-026.
- 三原守弘, 伊藤勝, 加藤博康, 上田真三(1999): カルシウム型ベントナイトのトリチウム, セシウム, ヨウ素及び炭素の実効拡散係数の取得, JNC TN8430 99-011.
- 見掛信一郎, 山本勝, 池田幸喜, 杉原弘造, 竹内真司, 早野明, 佐藤稔紀, 武田信一, 石井洋司, 石田英明, 浅井秀明, 原雅人, 久慈雅栄, 南出賢司, 黒田英高, 松井裕哉, 鶴田忠彦, 竹内竜史, 三枝博光, 松岡稔幸, 水野崇, 大山卓也(2010): 結晶質岩を対象とした坑道掘削における湧水抑制対策の計画策定と施工結果に関する考察, 日本原子力研究開発機構, JAEA-Technology 2010-026, pp. 78-117.
- Miller, W.M., Alexander, W.R., Chapman, N.A., McKinley, I.G. and Smellie, J.A.T. (2000): Geological Disposal of Radioactive wastes and Natural Analogues, Waste Management Series, 2, Pergamon, Amsterdam.
- Milne, C.J., Kinniburgh, D.G. and Tipping, E. (2001): Generic NICA-Donnan model parameters for proton binding by humic substances, *Environ. Sci. Technol.*, 35, pp. 2049-2059.
- Milne, C.J., Kinniburgh, D.G., Van Riemsdijk, W.H. and Tipping, E. (2003): Generic NICA-Donnan model parameters for metal-ion binding by humic substances, *Environ. Sci. Technol.* 37, pp. 958-978.
- Missana, T., Alonso, U. and García-Gutiérrez, M. (2009): Experimental study and modelling of selenite sorption onto illite and smectite clays, *J. Colloid Interf. Sci.* 334, pp. 132-138
- Mitsui, H., Takahashi, R., Asano, H., Taniguchi, N., and Yui, M. (2008): Susceptibility to

- Stress Corrosion Cracking for Low-Carbon Steel Welds in Carbonate-Bicarbonate Solution, Corrosion, 64, 12, pp.939-948.
- Montavon, G., Guo, Z., Lützenkirchen, J., Alhajji, E., Kedziorek, M. A. M., Bourg, A. C. M. and Grambow, B. (2009): Interaction of selenite with MX-80 bentonite: Effect of minor phases, pH, selenite loading, solution composition and compaction. Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects. 332, pp.71-77
- Morel, F. M. M. and Hering, J. G. (1993): Principales and applications of aquatic chemistry, John Wiley & Sons, New York.
- Morodome, S. and Kawamura, K. (2009): Swelling behavior of Na- and Ca-montmorillonite up to 150°C by in situ X-ray diffraction experiments, Clays and Clay Minerals, 57(2), pp.150-160.
- MySQLホームページ <https://www-jp.mysql.com/>
- MySQL Workbench ホームページ <https://www-jp.mysql.com/products/workbench/>
- 中田和秀(2002): 大規模線型方程式を解くためのクリロフ部分空間法の前処理, 数理解析研究所講究録, 1288巻, pp.52-63.
- 中山雅, 大野宏和, 中山真理子, 小林 正人(2015): 幌延深地層研究計画における人工バリア性能確認試験計測データ集(平成26年度), JAEA-Data/Code 2015-013
- Nesic, S. (2007): Key Issues Related to Modelling of Internal Corrosion of Oil and Gas Pipelines, A review, Corrosion Science, 49, pp.4308-4338.
- Nied, D., Enemark-Rasmussen, K., L'Hopital, E., Skibsted, J. and Lothenbach, B. (2016): Properties of magnesium silicate hydrates(M-S-H), Cement and Concrete Research, 79, pp.323-332
- 日本原子力研究開発機構(2008): 平成19年度 地層処分技術調査等委託費 高レベル放射性廃棄物処分関連 処分システム化学影響評価高度化開発報告書 平成20年3月
- 日本原子力研究開発機構(2010): 平成21年度 地層処分技術調査等委託費 高レベル放射性廃棄物処分関連 処分システム化学影響評価高度化開発報告書 平成20年3月
- 日本原子力研究開発機構(2012): 平成23年度地層処分技術調査等事業 T R U廃棄物処分技術セメント材料影響評価技術高度化開発報告書 平成24年3月
- 日本原子力研究開発機構(2013a): 平成24年度 地層処分技術調査等事業 高レベル放射性廃棄物処分関連 処分システム化学影響評価高度化開発報告書 平成25年3月
- 日本原子力研究開発機構(2013b): 平成24年度 地層処分技術調査等事業 高レベル放射性廃棄物処分関連 先進的地層処分概念・性能評価技術 高度化開発 -巨大地震・津波を含む想定外事象への対応- 報告書 平成25年3月
- 日本原子力研究開発機構(2013c): 平成24年度 地層処分技術調査等委託費 高レベル放射性廃棄物処分関連 処分システム化学影響評価高度化開発総括報告書—6か年研究成果の取りまとめ—.
- 日本原子力研究開発機構(2013d): 平成24年度 地層処分技術調査等事業 T R U廃棄物処分技術セメント材料影響評価技術高度化開発報告書 平成25年3月
- 日本原子力研究開発機構(2013e): 平成24年度 地層処分技術調査等委託費 高レベル放射性廃

- 棄物処分関連 地下坑道施工技術高度化開発 6ヵ年報告書 平成25年3月.
- 日本原子力研究開発機構(2014a): 平成25年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確認技術開発報告書 平成26年3月
- 日本原子力研究開発機構(2014b): 平成25年度 地層処分技術調査等事業 TRU廃棄物処分技術セメント材料影響評価技術高度化開発報告書 平成26年3月
- 日本原子力研究開発機構(2015a): 平成26年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確認技術開発報告書 平成27年3月
- 日本原子力研究開発機構(2015b): 幌延深地層研究計画 平成26年度調査研究成果報告.
- 日本原子力研究開発機構(2015c): 平成26年度 地層処分技術調査等事業 セメント材料影響評価技術高度化開発報告書 平成27年3月.
- 日本原子力研究開発機構(2015d): 平成26年度地層処分技術調査等事業 セメント材料影響評価技術高度化開発 -4ヵ年研究成果の取りまとめ- 報告書.
- 日本原子力研究開発機構(2016a): 平成27年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確認技術開発報告書 平成28年3月
- 日本原子力研究開発機構(2016b): 緩衝材基本特性データベース, <https://bufferdb.jaea.go.jp/bmdb/>.
- 日本化学会編化学便覧(2004): 化学便覧(基礎編, 改定5版), 丸善株式会社.
- 新里忠史, 舟木泰智, 安江健一(2007): 北海道北部, 幌延地域における後期鮮新世以降の古地理と地質構造発達史, 地質学雑誌, 第113巻 補遺, pp. 119-135.
- Nilsson, K., Byegård, J., Selnert, E., Widestrand, H., Höglund, S., Gustafsson, E. (2010): Äspö Hard Rock Laboratory. Long Term Sorption Diffusion Experiment (LTDE-SD). Results from rock sample analyses and modelling, SKB R-10-68.
- 新宮信也, 齋正貴, 萩原大樹, 水野崇(2011): 超深地層研究所計画における地下水の地球化学に関する調査研究-瑞浪層群・土岐花崗岩の地下水の地球化学特性データ集-(2009年度), JAEA-Data/Code 2011-004.
- 新宮信也, 萩原大樹, 増田薫, 飯塚正俊, 乾道春, 水野崇(2012): 超深地層研究所計画における地下水の地球化学に関する調査研究-瑞浪層群・土岐花崗岩の地下水の地球化学特性データ集-(2010年度), JAEA-Data/Code 2012-003.
- 西方篤(1993): インピーダンス測定法V 応用(1)腐食系への適用, 電気化学, Vol. 62, No. 7, pp. 582-587.
- 西方篤, 高橋岳彦, 侯保栄, 水流徹(1994): 乾湿繰り返し環境における炭素鋼の腐食速度のモニタリングとその腐食機構, 材料と環境, 43, No. 4, pp. 188-193.
- Nishikata, A., Ichihara, Y. and Tsuru, T. (1995): An Application of Electrochemical Impedance Spectroscopy to Atmospheric Corrosion Study, Corrosion Science, 37, No. 6, pp. 897-911.
- 西村俊弥, 片山英樹, 野田和彦, 小玉俊明(2000): 乾湿繰り返し環境における炭素鋼の腐食挙動に与えるNaCl-MgCl₂系塩化物の影響材料と環境, 49, No. 1, pp. 45-51.
- Noda, K., Hirota, Y. and Seo, M. (1995): Evaluation of Uniform Corrosion Rate of Carbon

- Steel in Deaerated Carbonate Solutions, Proc. of International Symposium on Plant Aging and Life Predictions of Corrodible Structures, pp. 771-776.
- 野口俊英, 高瀬博康(2008): 処分場の設計オプションの違いを考慮した性能評価手法の開発(1) —ランダムウォーク法を用いた3次元核種移行解析コードPARTRIDGEの開発—, 日本原子力学会2008春の大会.
- Ochs, M., Mallants, D. and Wang, L. (2016): Radionuclide and metal sorption on cement and concrete, Springer International Publishing Switzerland.
- 小田治恵, 磯貝武司, 佐藤光吉(1999): 圧縮ベントナイト間隙水のpH測定(I), —測定手法の開発—, JNC TN8400 2000-006
- 小田治恵, 柴田雅博(1999): ベントナイト—水相互作用の実験とモデル化, JNC TN8400 99-032.
- 大野進太郎, 飯塚敦, 大田秀樹(2006): 非線形コントラクタンシー表現式を用いた土の弾塑性構成モデル, 応用力学論文集, Vol. 9, pp. 407-414.
- Ohkubo, T., Kikuchi, H. and Yamaguchi, M. (2008): An approach of NMR relaxometry for understanding water in saturated compacted bentonite, Physics and Chemistry of the Earth, 33, pp. S169-S176.
- Ohkubo, T., Ibaraki, M., Tachi, Y and Iwadate, Y. (2016): Pore distribution of water-saturated compacted clay using NMR relaxometry and freezing temperature depression; effect of density and salt concentration, Appl. Clay Sci., 123, pp. 148-155.
- Ohlsson, Y. (2000): Studies of ionic diffusion in crystalline rock, Ph.D. thesis, Dep. Chem. Eng., R. Inst. of Technol., Stockholm.
- Ohnuki, T., Jiang, M., Sakamoto, F., Kozai, N., Yamasaki, S., Yu, Q., Tanaka, K., Utsunomiya, S., Xia, X., Yang, K. and He, J. (2015): Sorption of trivalent cerium by a mixture of microbial cells and manganese oxides: Effect of microbial cells on the oxidation of trivalent cerium. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 163, pp. 1-13.
- 奥津一夫, 森川誠司, 広中良和, 前田宗宏, 新保弘畔, 柳幹雄, 田部井和人, 佐原史浩, 村上武志, 青山裕司(2005): ニアフィールド水理場の長期的変遷評価システム構築に関する研究IV, JNC TJ8400 2005-012.
- 大森一秋, 新宮信也, 萩原大樹, 増田薫, 飯塚正俊, 乾道春, 岩月輝希(2013): 超深地層研究所計画における地下水の地球化学に関する調査研究—瑞浪層群・土岐花崗岩の地下水の地球化学特性データ集—(2011年度), JAEA-Data/Code 2013-001.
- 大森一秋, 新宮信也, 増田薫, 青才大介, 乾道春, 岩月輝希(2014a): 超深地層研究所計画における地下水の地球化学に関する調査研究—瑞浪層群・土岐花崗岩の地下水の地球化学特性データ集—(2012年度), JAEA-Data/Code 2013-024.
- 大森一秋, 長谷川隆, 宗本隆志, 増田薫, 青才大介, 乾道春, 岩月輝希(2014b): 超深地層研究所計画における地下水の地球化学に関する調査研究—瑞浪層群・土岐花崗岩の地下水の地球化学特性データ集—(2013年度), JAEA-Data/Code 2014-019.
- 太田久仁雄, 阿部寛信, 山口雄大, 國丸貴紀, 石井英一, 操上広志, 戸村豪治, 紫野一則, 濱克寛, 松井裕哉, 新里忠史, 高橋一晴, 丹生屋純夫, 大原英史, 浅森浩一, 森岡宏之, 舟木泰智, 茂田直孝, 福島龍朗(2007): 幌延深地層研究計画における地上からの調査研究段階

- (第1段階)研究成果報告書 分冊「深地層の科学的研究」, JAEA-Research 2007-044.
- 大瀧仁志(1990): イオンの水和, 共立出版, 東京.
- OpenMIホームページ <http://www.openmi.org/>
- Parkhurst, D.L. (1995): User's Guide to PHREEQC-A Computer Program for Speciation, Reaction-Path, Advective-Transport, and Inverse Geochemical Calculations, U.S. Geological Survey, Water-Resources Investigations Report 95-4227.
- Pauling, L. (1939): The Nature of the Chemical Bond, Cornell Univ. Press, New York, 664p.
- Peak, D., Ford, R.G. and Sparks, D.L. (1999): An in situ ATR-FTIR investigation of sulfate bonding mechanisms on goethite, Journal of Colloid and Interface Science. 218, pp. 289-299
- Peak, D., Saha, U.K. and Huang, P.M. (2006): Selenite adsorption mechanisms on pure and coated montmorillonite: An EXAFS and XANES spectroscopic study, Soil Science Society of America Journal. 70, pp.192-203.
- Pedersen, K. (1999): Subterranean microorganisms and radioactive waste disposal in Sweden, Engineering Geology, 52, pp.163-176.
- Pedersen, K. (2005): Microorganisms and their influence on radionuclide migration in igneous rock environments, Journal of Nuclear and Radiochemical Sciences, 6, pp.11-15.
- Pedersen, K., Bomberg, M., and Itävaara, M. (2014): Summary report microbiology of Olkiluoto and ONKALO groundwater, POSIVA 2012-42.
- Periasamy, A., Muruganand, S., Palaniswamy, M. (2009): Vibrational studies of Na₂SO₄, K₂SO₄, NaHSO₄ and KHSO₄ crystals, Rasayan Journal of Chemistry, v.2, pp.981-989.
- Pfingsten, W., Bradbury, M. and Baeyens, B., (2011): The influence of Fe(II) competition on the sorption and migration of Ni(II) in MX-80 bentonite., Appl. Geochem., 26, pp.1414-1422.
- Pickard, C.J. and Mauri, F. (2001): All-electron magnetic response with pseudopotentials: NMR chemical shifts. Physical Review B, 63(24), 245101.
- Potyondy, D.O. and Cundall, P.A. (2004): A bonded-particle model for rock, International Journal of Rock Mechanics & Mining Sciences, 41, pp.1329-1364.
- Pusch, R., Karnland, O. and Hökmark, H. (1990): GMM - a general microstructural model for qualitative and quantitative studies of smectite clays, SKB technical report 90-43.
- Richardson, I.G. and Groves, G.W. (1992): Microstructure and microanalysis of hardened cement pastes involving ground granulated blast-furnace slag, JOURNAL OF MATERIALS SCIENCE, vol.27, pp.6204-6212.
- Roonasi, P. and Holmgren, A. (2009): An ATR-FTIR study of sulfate sorption on magnetite; Rate of adsorption, surface speciation, and effect of calcium ions, Journal of Colloid and Interface Science. 333, pp.27-32
- Roosz, C., Grangeon, S., Blanc, P., Montouillout, V., Lothenbach B., Henocq, P., Giffaut, E., Vieillard, P. and Gaboreau, S. (2015): Crystal structure of magnesium silicate hydrates(M-S-H): The relation with 2: 1 Mg-Si phyllosilicates, Cement and Concrete

- Research, 73, pp.228-237
- Saito, T., Koopal, L.K., Nagasaki, S. and Tanaka, S. (2004): Application of the NICA-Donnan model for proton, copper and uranyl binding to humic acid, *Radiochim. Acta*, 92, pp.564-574.
- Saito, T., Aoyagi, N. and Terashima, M. (2017): Europium binding to humic substances extracted from deep underground sedimentary groundwater studied by time-resolved laser fluorescence spectroscopy, *J. Nucl. Sci. Technol.*, In press.
- Saito, T., Terashima, M., Aoyagi, N., Nagao, S., Fujitake, N. and Ohnuki, T. (2015): Physicochemical and ion-binding properties of highly aliphatic humic substances extracted from deep sedimentary groundwater, 17, pp.1386-1395.
- Salles, F., Beurroies, I., Bildstein, O., Jullien, M., Raynal, J., Denoyel, R., and Van Damme, H. (2008): A calorimetric study of mesoscopic swelling and hydration sequence in solid Na-montmorillonite, *Appl. Clay Sci.* 39(3), pp.186-201.
- Sasaki, T., Aoyama, S., Yoshida, H., Kulyako, Y., Samsonov, M., Kobayashi, T., Takagi, I., Miyasoedov, B. and Moriyama, H. (2012): Apparent formation constants of Pu(IV) and Th(IV) with humic acids determined by solvent extraction method, *Radiochim. Acta*, 100, pp.737-745.
- 笹本広, 山本信幸, 宮川和也, 水野崇(2015): 幌延深地層研究計画で得られた地下水の水質データ(2011年度~2013年度), *JAEA-Data/Code* 2014-033.
- 笹本広, 油井三和, 高瀬博康(2012): 亀裂性媒体におけるセメント系グラウト材料による地下水・岩盤への影響評価手法の開発, *日本原子力学会和文論文誌*, 11, pp.233-246.
- 佐藤成二, 尾方伸久, 竹内竜史, 武田匡樹(2014): 超深地層研究所計画における研究坑道での湧水量計測(2004~2011年)データ集, *JAEA-Data/Code* 2013-020.
- 石油公団石油開発技術センター(1997): 石油開発における腐食と耐食性材料, 石油公団石油開発技術センター.
- 社団法人土木学会(1999): 土木用語大辞典.
- Shannon, R.D. (1976): Revised Effective Ionic Radii and Systematic Studies of Interatomic Distances in Halides and Chalcogenides, *Acta Cryst.*, A32, pp.751-767.
- Shepard, D. (1968): A two-dimensional interpolation function for irregularly spaced data, In *Proceedings of the 1968 23rd ACM National Conference*, pp.517-523.
- 澁谷朝紀, 西川義朗, 乾真一, 内館信幸, 油井三和(1994): Seの岩石および鉱物に対する吸着挙動に関する研究, *JNC. TN8410*: 94-395.
- 清水浩之, 平野史生, 大野進太郎, 高瀬博康, 本田明(2014): 粒状体個別要素法による鉄筋コンクリートモデルの構築, 資源・素材学会平成26年度(2014年度)春季大会.
- 下茂道人, 西垣誠, 鍵富淳(1982): 瞬時水分計測法の適用限界と泥岩の保水特性について, 第17回土質工学研究発表会E-7, pp.2385-2388.
- 白水晴雄(1988): 粘土鉱物学 —粘土科学の基礎—, 朝倉書店.
- Slater, J.C. (1930): Atomic Shielding Constants, *Phys. Rev.*, 36, pp.57-64.
- Soler, J.M. (2003): Reactive transport modeling of the interaction between a high-pH plume

- and a fractured marl: the case of Wellenberg, *Appl. Geochem.*, 18, pp.1555-1571.
- Soltermann, D., Fernandes, M.M., Baeyens, B., Dähn, R., Miehé-Brendlé, J., Wehrli, B. and Bradbury, M.H. (2013): Fe(II) Sorption on a Synthetic Montmorillonite. A Combined Macroscopic and Spectroscopic Study, *Environ. Sci. Technol.*, 47, pp.6978-6986.
- Steeffel, C.I. and Lichtner, P.C. (1994): Diffusion and reaction in rock matrix bordering a hyperalkaline fluid-filled fracture, *Geochim. Cosmochim. Acta*, 58, pp.3595-3612.
- Stern, J.C., Foustoukos, D.I., Sonke, J.E. and Salters, V.J.M. (2014): Humic acid complexation of Th, Hf and Zr in ligand competition experiments: metal loading and pH effects, *Chem. Geol.* 363, pp.241-249.
- Stokes, R.H. (1964): The van der Waals Radii of Gaseous Ions of the Noble Gas Structure in Relation to Hydration Energies, *J. Am. Chem. Soc.*, 86, pp.979-982.
- Stubican, V. and Roy, R. (1961): Infrared spectra of layer-structure silicates, *Journal of the American Ceramic Society*, v. 44, pp.625-627.
- Sugita, Y., Kwon, S., Lee, C., Massmann, J., Pan, P-Z., and Rutovist, J. (2015): DECOVALEX-2015 project Task B2 final report. KTH architecture and the built environment.
- Szakall, S., Sajo, I., Feher, B. and Bigi., S. (2012): Ammoniomagnesiovoltaite, a new voltaite-related mineral species from Pecs-Vasas, Hungary. *Canadian Mineralogist*, v. 50, pp.65-72
- 杉山大輔, 藤田智成, 中西潔 (2001): TRU廃棄物処分環境におけるセメント系材料の化学的変質評価(その1) -カルシウムシリケート水和物の熱力学的溶解沈殿モデルの提案-, 電力中央研究所報告, T01007.
- Sun, L., Perdue, E.M. and McCarthy, J.F. (1995) : Using reverse osmosis to obtain organic matter from surface and ground waters, *Wat. Res.*, 29, pp.1471-1477.
- 陶山忠宏, 柴田雅博, 笹本 広 (2006): 鉄型化ベントナイト水熱試験 -低酸素雰囲気での高温条件下における鉄型化ベントナイトの変化の同定-, JAEA-Research 2006-064.
- 鈴木英明, 菅野毅, 藤田朝雄 (1996): 緩衝材の水分ポテンシャルと水分拡散係数, PNC-TN8410 96-117
- 舘幸男, 柄木善克, 陶山忠宏, 齋藤好彦, Ochs, M., 油井三和 (2009): 地層処分安全評価のための核種の収着・拡散データベースシステムの開発, JAEA-Data/Code 2008-034.
- Tachi, Y. and Yotsuji, K. (2012): Diffusion and sorption of Sr^{2+} in compacted sodium montmorillonite as a function of porewater salinity. *Clays in Natural and Engineered Barriers for Radioactive Waste Confinement*. 5th International meeting. P/MT/DP/20.
- Tachi, Y. and Yotsuji, K. (2014): Diffusion and sorption of Cs^+ , Na^+ , I^- and HTO in compacted sodium montmorillonite as a function of porewater salinity: Integrated sorption and diffusion model, *Geochim. Cosmochim. Acta*, 132, pp.75-93.
- Tachi, Y., Ochs, M. and Suyama, T. (2014a): Integrated sorption and diffusion model for bentonite. Part 1: clay-water interaction and sorption modeling in dispersed systems. *Journal of Nuclear Science and Technology* 51(10), pp.1177-1190.

- Tachi, Y., Yotsuji, K., Suyama, T. and Ochs, M. (2014b): Integrated sorption and diffusion model for bentonite. Part 2: porewater chemistry, sorption and diffusion modeling in compacted systems, *Journal of Nuclear Science and Technology* 51(10), pp.1191-1204.
- Tachi, Y., Yotsuji, K., Seida, Y. and Yui, M. (2011): Diffusion and sorption of Cs⁺, I⁻ and HTO in samples of the argillaceous Wakkanai Formation from the Horonobe URL, Japan: Clay-based modeling approach, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 75, pp.6742-6759.
- Tachi, Y., Ebina, T., Takeda, C., Saito, T., Takahashi, H., Ohuchi, Y. and Martin, A.J. (2015): Matrix diffusion and sorption of Cs⁺, Na⁺, I⁻ and HTO in granodiorite: laboratory-scale results and their extrapolation to the in situ condition, *J. Contam. Hydrol.*, 179, pp.10-24.
- Tachi, Y., Suyama, T., Yotsuji, K., Ishii, Y. and Takahashi, H. (2016): Clay-based modelling approach for diffusion and sorption in the argillaceous rock from the Horonobe URL: Application for Ni(II), Am(III) and Se(IV), CMS workshop lecture series 21(Filling the gaps - from microscopic pore structures to transport properties in shales), Chap. 19, pp.241-250.
- Takahashi, Y., Chatellier, X., Hattori, K.H. and Kato, K, Fortin, D. (2005): Adsorption of rare earth elements onto bacterial cell walls and its implication for REE sorption onto natural microbial mats, *Chemical Geology* 219, pp.53-67.
- Takahashi, Y., Hirata, T., Shimizu, H., Ozaki, T., and Fortin, D. (2007): A rare earth element signature of bacteria in natural waters? *Chemical Geology* 244, pp.569-583.
- Tanaka, K., Tani, Y., Takahashi, Y., Tanimizu, M., Suzuki, Y., Kozai, N. and Ohnuki, T. (2010): A specific Ce oxidation process during sorption of rare earth elements on biogenic Mn oxide produced by *Acremonium* sp. Strain KR21-2, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 74, pp.5463-5477.
- 谷智弘, 内田善久(1999): セメントミルクの濃度と注入特性の関係について, *ダム工学*, 9, pp.175-186.
- 谷口直樹, 森田光男, 本田明(1999): ベントナイト中における炭素鋼の不動態化条件の検討, *サイクル機構技報*, No.4, pp.87-91.
- Taniguchi, N., Suzuki, H., Kawasaki, M., Naito, M., Kobayashi, M., Takahashi, R. and Asano, H. (2011): Propagation behavior of general and localized corrosion of carbon steel in simulated groundwater under aerobic conditions, *Corrosion Science and Technology*, 46, 2, pp.117-123.
- Terashima, M., Nagao, S., Iwatsuki, T., Fujitake, N., Seida, Y., Iijima, K. and Yoshikawa, H. (2012): Europium-binding abilities of dissolved humic substances isolated from deep groundwater in Horonobe area, Hokkaido, Japan, *J. Nucl. Sci. Technol.*, 49, pp.804-815.
- Tarelco, C., Ochs, M. and Giffaut, E. (2004): Solubility of niobium(V) under cementitious conditions: Importance of Ca-niobate, *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.*, 824, CC.8.31(8 p.).
- Tazi, S., Rotenberg, B., Salanne, M., Sprik, M. and Sulpizi, M. (2012): Absolute Acidity of Clay Edge Sites from Ab-initio Simulations, *Geochim. Cosmochim. Acta*, 94, pp.1-11.

- Thurman, E. M. (1985): Organic geochemistry of natural waters, Martinus Nijhoff/Dr W. Junk Publishers, a member of the Academic publishers group, DORDRECHT / BOSTON / LANCASTER.
- Tipping, E. (2002): Cation binding by humic substances, Cambridge University Press, Cambridge.
- Tosca, N. J., Guggenheim, S. and Pufahl, P. K. (2015): An authigenic origin for Precambrian greenalite: Implications for iron formation and the chemistry of ancient seawater, GSA Bulletin, v.128, pp.511-530.
- Tosca, N. J. and Masterson, A. L. (2014): Chemical controls on incipient Mg-silicate crystallization at 25°C: Implications for early and late diagenesis, Clay Minerals, v. 49, pp.165-194.
- Tochiyama, O., Nibbori, Y., Tanaka, K., Yoshino, H., Kubota, T., Kirishima, A. and Setiawan, B. (2004): Modeling of the complex formation of metal ions with humic acids, Radiochim. Acta, 92, pp.559-565.
- Tsipursky, S. I. and Drits, V. A. (1984): The Distribution of Octahedral Cations in the 2:1 Layers of Dioctahedral Smectites Studied by Oblique-Texture Electron Diffraction, Clay Miner., 19, pp.177-193.
- Tsuda, K., Tanaka, A., Shirai, H., Kozaki, K. and Fujitake, N. (2012): A method for quantitative analysis of aquatic humic substances in clear water based on carbon concentration, Analytical Science, 28, pp.1017-1020.
- Tullborg, E.-L. and Larson, S. Å. (2006): Porosity in crystalline rocks – A matter of scale, Eng. Geol., 84, pp.75-83.
- 植田昌克 (2007): 炭酸ガス及び硫化水素を含む油井環境用の耐食材料開発, 材料と環境, 56, pp.43-50.
- 上野哲朗, 佐藤成二, 竹内竜史 (2014): 超深地層研究所計画における研究坑道での湧水量計測 (2012~2013年) データ集, JAEA-Data/Code 2014-018.
- 上野哲朗, 竹内竜史 (2017): 超深地層研究所計画における研究坑道での湧水量計測データ集 (2014~2015年), JAEA-Data/Code 2017-003 (印刷中).
- 鶴山雅夫, 人見尚, 中嶋悟, 佐藤稔紀, 真田祐幸, 青柳芳明 (2015): 瑞浪超深地層研究所でのプレグラウト領域の岩石の採取と室内分析, JAEA-Research 2015-010.
- van Genuchten, M. Th. (1980): A Closed-Form Equation for Predicting the Hydraulic Conductivity of Unsaturated Soils, Soil Sci. Soc., Vol. 44, pp.892-898.
- Vandergraaf, T. T., Miller, H. G., Jain, D. K., Hamon, C. J. and Stoes-Gascoyne, S. (1997): The effect of biofilms on radionuclide transport in the geosphere: Results from an initial investigation, Atomic Energy of Canada LTD. Technical Report, TR-774, COG-96-635-I.
- Vetter, T. A., Perdue, E. M., Ingall, E., Koprivnjak, J.-F. and Pfromm, P. H. (2007): Combining reverse osmosis and electrodialysis for more complete recovery of dissolved organic matter from seawater, Separation and Purification Technology, 56, pp.383-387.
- Walker, C., Savage, D., Tyrer, M. and Ragnarsdottir, K. (2007): Non-ideal solid solution aqueous solution modeling of synthetic calcium silicate hydrate, Cement and Concrete

- Research, vol 37, pp.502-511
- Walker, C., Sutou, S., Oda, C., Mihara, M., Honda, A. (2016): Calcium silicate hydrate (C-S-H) gel solubility data and a discrete solid phase model at 25°C based on two binary non-ideal solid solutions, *Cement and Concrete Research*, 79, pp.1-30
- Warr, L. and Berger, J. (2007): Hydration of bentonite in natural waters: application of confined volume wet-cell X-ray diffractometry, *Physics and Chemistry of the Earth*, 32, pp.247-258.
- Watson, C., Savage, D., Wilson, J., Benbow, S., Walker, C., Norris, S. (2013): The Tournemire industrial analogue: reactive-transport modelling of a cement-clay interface. *Clay Minerals*, 48, pp.167-184.
- West J.M., McKinley, I.G. and Stroes-Gascoyne, S. (2002): Microbial effects on waste repository materials, In Keith-Roach, M.J. and Livens, (ed.) *Interactions of Microorganisms with Radionuclides*, Elsevier, pp.255-277.
- White, G.N. and Zelazny, L.W. (1988): Analysis and Implications of the Edge Structure of Dioctahedral Phyllosilicates, *Clays Clay Minerals* 36, pp.141-146.
- Widestrand, H., Byegård, J., Nilsson, K., Höglund, S., Gustafsson, E. and Kronberg, M. (2010a): Äspö Hard Rock Laboratory. Long Term Sorption Diffusion Experiment (LTDE-SD). Performance of main in situ experiment and results from water phase measurements, SKB-R-10-67.
- Widestrand, H., Byegård, J., Selnert, E., Skålberg, M., Höglund, S. and Gustafsson, E. (2010b): Äspö Hard Rock Laboratory. Long Term Sorption Diffusion Experiment (LTDE-SD). Supporting laboratory program – Sorption diffusion experiments and rock material characterisation. With supplement of adsorption studies on intact rock samples from the Forsmark and Laxemar site investigations, SKB R-10-66.
- Wieland, E. (2014): Sorption data base for the cementitious near field of L/ILW and ILW repositories for provisional safety analyses for SGT-E2, Nagra Technical Report 14-08.
- Williamson, M.A. and Rimstidt, J.D. (1994): The kinetics and electrochemical rate-determining step of aqueous pyrite oxidation, *Geochemica et Cosmochimica Acta*, Vol. 58, No. 24, pp.5443-5454.
- Wold, S. and Eriksen, T. (2007): Diffusion of humic colloids in compacted bentonite, *Physics and Chemistry of the Earth* 32, 477-484.
- Wrighton, K.C., Thomas, B.C., Sharon, I., Miller, C.S., Castelle, C.J., VerBerkmoes, N.C., Wilkins, M.J., Hettich, R.L., Lipton, M.S., Williams, K.H., Long, P.E. and Banfield, J.E. (2012): Fermentation, hydrogen, and sulfur metabolism in multiple uncultivated bacterial phyla, *Science*, 337, pp.1661-1665.
- Yang, X., Roonasi, P. and Holmgren, A. (2008): A study of sodium silicate in aqueous solution and sorbed by synthetic magnetite using in situ ATR-FTIR spectroscopy, *Journal of Colloid and Interface Science*, v.328, pp.41-47.
- 山本武志, 廣永道彦(2006): セメント系人工バリア材料の溶脱変質特性の実験的検討, 電力中央

報告, N05019.

山本卓也, 下茂道人, 藤原靖, 服部弘道, 各合牧人, 田所照夫, 中垣真一(2005): 幌延深地層研究計画における試錐調査(HDB-6, 7, 8)のうちHDB-6孔, JNC TJ5400 2005-004.

湯口貴史, 石橋正祐紀, 森川佳太, 國丸貴紀(2013): 瑞浪超深地層研究所の深度300m研究アクセス坑道で実施したグラウト充填割れ目を含む岩石試料の採取と薄片作成・観察, JAEA-Data/Code 2013-004.

3. 多様な廃棄物の共処分におけるニアフィールドの影響評価技術開発

3.1 目的と5ヵ年の計画

3.1.1 目的

地層処分対象となる廃棄物は、高レベル放射性廃棄物(ガラス固化体、以下、「HLW」)以外にも再処理施設やMOX燃料の加工施設等から発生する。これらの廃棄物はTRU廃棄物と呼ばれ、HLWと同一サイトでの処分(共処分(あるいは、併置処分とも言う))の概念が、平成17年に取りまとめられたTRU廃棄物処分技術検討書(電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構, 2005)(以下、「第2次TRUレポート」)において示され、内閣府原子力委員会の検討会にて技術的成立性の評価が実施された(原子力委員長半減期低発熱放射性廃棄物処分技術検討会, 2006)。

平成19年には、特定放射性廃棄物の最終処分に関する法律が改正され、地層処分対象低レベル放射性廃棄物(TRU廃棄物)の最終処分が制度化された。処分実施主体が選択可能な事業オプションとして、共処分概念が位置づけられており、最終処分計画に基づく廃棄物量について、TRU廃棄物の処分施設設計例が示されている(原子力発電環境整備機構, 2011)。共処分を行う場合には、HLWの地層処分事業と一部事業が共通化することから、両処分事業あわせて3,000億円程度の節減効果があると試算されている(総合資源エネルギー調査会, 2006)。この共処分概念をより社会に受け入れられるものとしていくためには、共処分評価技術の確証性の検討を十分に行い、適切な共処分概念を提示する必要がある。

第2次TRUレポートでは、HLW及びTRU廃棄物処分施設の相互影響因子を定量的に検討し、図3.1.1-1に示すような共処分概念が提示された。HLWの処分施設からの熱の影響や、TRU廃棄物処分施設からの、廃棄物に含まれる有機物、硝酸塩及びセメント系材料の影響が評価された。第2次TRUレポートでの評価に基づき、硝酸塩の影響が共処分におけるHLWとTRU廃棄物処分施設の離間距離を検討する際に重要との認識から、平成19年度から平成24年度にかけて、経済産業省資源エネルギー庁の委託事業【硝酸塩処理・処分技術高度化開発(H19からH24)】にて、地層処分において硝酸塩の影響評価システム(以下、硝酸塩影響評価システム)のプロトタイプが開発された(日本原子力研究開発機構, 2008, 2009, 2010, 2011, 2012, 2013a, 2013b)。

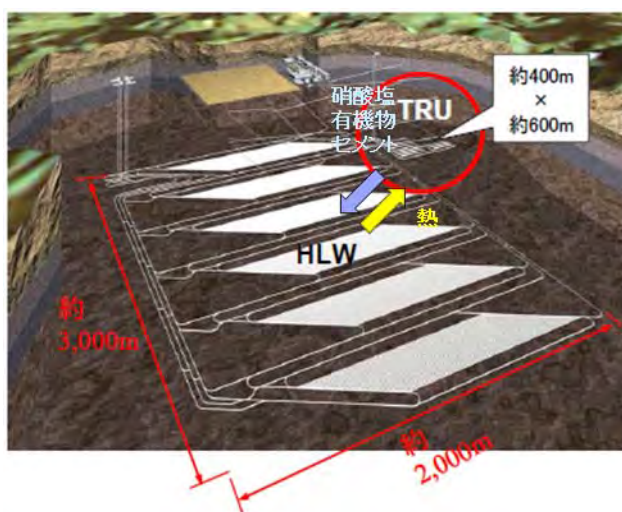


図3.1.1-1 HLWとTRU廃棄物との共処分概念
(電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構, 2005)

本事業では、HLWと多様なTRU廃棄物との共処分におけるニアフィールドの影響評価技術の開発及び確証を行うことにより、多様な廃棄物の特徴を考慮した適切な共処分概念を提示していくものとする。

平成25年度には、ニアフィールドの影響評価技術として、硝酸塩の影響評価技術について、確証技術開発に着手し、地層処分対象となる廃棄物の最新の情報に基づき、廃棄物の特性調査及び廃棄物由来の処分システム性能への影響因子を抽出し、予備的な試験を実施した。さらに、諸外国における共処分概念の調査を行った（日本原子力研究開発機構、2014）。

平成26年度には、平成25年度に検討された分析方法や研究方針に基づき、有機物と硝酸塩との発熱反応や硝酸塩の化学的変遷に関わるデータ取得を行うとともに、硝酸イオン変遷物質の人工バリア候補材料への影響について調査を行った。また、硝酸塩以外の影響因子については、硝酸塩の次に多量に存在する有機物の放射性核種の溶解度に及ぼす影響についても文献調査や予備実験を行った。さらに、平成25年度に調査した諸外国における共処分概念例については、性能評価事例の調査を行い、共処分概念の構築に反映できる評価手法及び技術を抽出した（日本原子力研究開発機構、2015）。

平成27年度には、模擬固化体の発熱反応に関わるデータの蓄積を行い、データの不確実性低減を図るとともに、様々なシナリオを想定し地層処分における安全性の評価を行った。また、廃棄物由来の因子の化学環境への影響を評価するために硝酸塩の化学的変遷モデルの確証のための試験等を継続し、長期データの拡充を図った。バリア候補材料への影響については、スメクタイトへの硝酸塩に由来するアンモニア等の影響に加え、セメント固化体からのアルカリ成分の影響が重畳した場合について、実験的な検討を行った。放射性核種への影響については、硝酸塩の次に多量に存在する有機物（セルロースの分解生成物等）が放射性核種の溶解度に及ぼす影響について、実験的な検討を行った。抽出された評価手法や技術等を参考に、硝酸塩の影響を考慮した共処分概念の例示を行った（日本原子力研究開発機構、2016）。

3.1.2 5ヵ年の計画

共処分概念検討フローと実施項目を図3.1.2-1に示す。本事業の技術開発課題については、大きく3つの実施項目に分けて実施する。最初に、第2次TRUレポート以降に見直された最新の廃棄物情報に基づき、①廃棄物の特性を踏まえた共処分への影響評価技術の開発を行う。次に、これらの影響評価技術の結果を踏まえ、②多様な廃棄物の影響を考慮した共処分概念を構築する。最後に、構築した共処分概念について、放射性核種の地下水への漏えいを想定(地下水シナリオ)した核種移行評価により③処分システムの安全性の評価(線量評価)を実施し、適切な共処分概念を提示する。また、これらの実施項目については、必要に応じて図3.1.2-1に示すようにフィードバックを行うものとする。

3つの実施項目の5ヵ年計画を、図3.1.2-2に示す。廃棄物の特性を踏まえた共処分への影響評価技術開発については、種々の廃棄物の特性評価と廃棄物由来の影響因子の影響調査を行い、これに基づき、処分施設における化学環境影響評価、放射性核種への影響評価、バリア候補材料への影響評価を行っていく。廃棄物の影響因子として、硝酸塩について、平成25年度から影響評価技術の確証を行っていく。硝酸塩以外の影響因子については、平成25年度の種々の廃棄物特性評価を踏まえて、平成26年度から影響評価技術の開発及び確証を行う。共処分の概念構築については、検討手法の調査・手法開発を2年程度で実施し、3年目以降において具体的な共処分概念を提示する。平成28年度からは、提示された共処分概念に基づき安全性の評価を行う。これらの実施項目については、各年度の成果に基づき、適宜計画を見直すものとするが、本事業の3年目にあたる平成27年度において各技術開発項目成果のチ

チェックアンドレビューを行い、目標設定や計画の妥当性を確認しながら、本技術開発を実施していく。

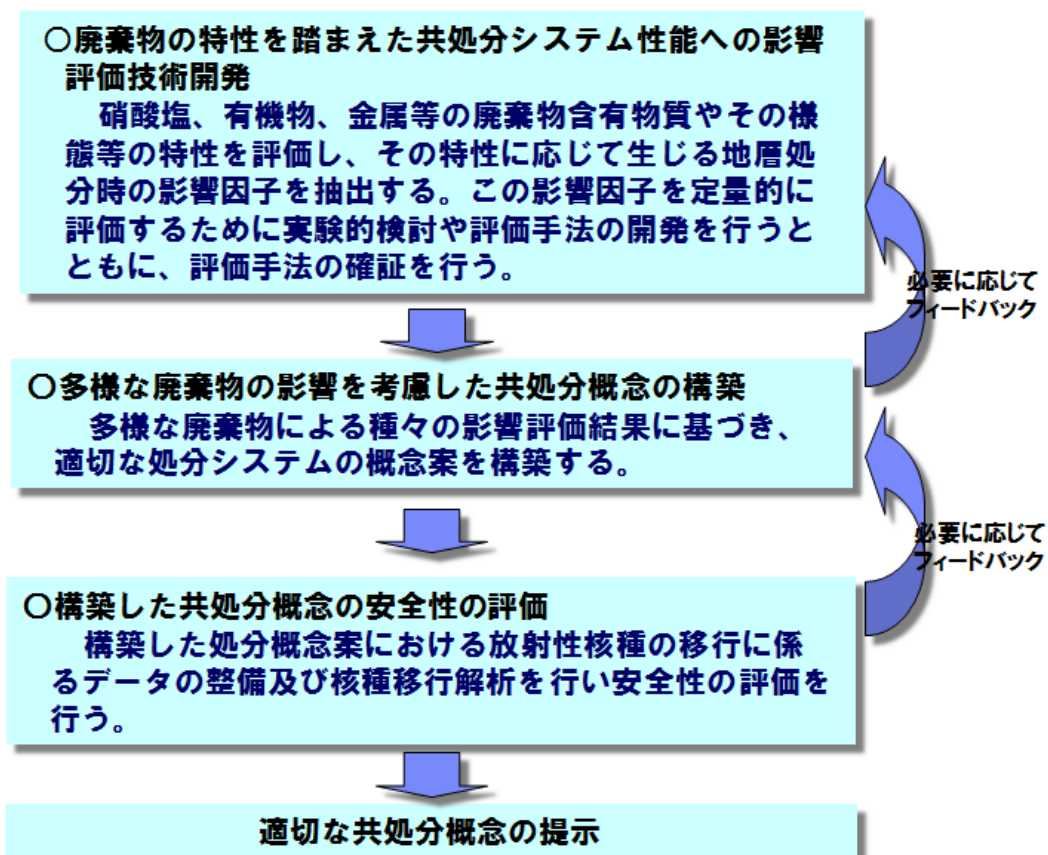


図3.1.2-1 適切な共処分概念の提示フローと実施項目

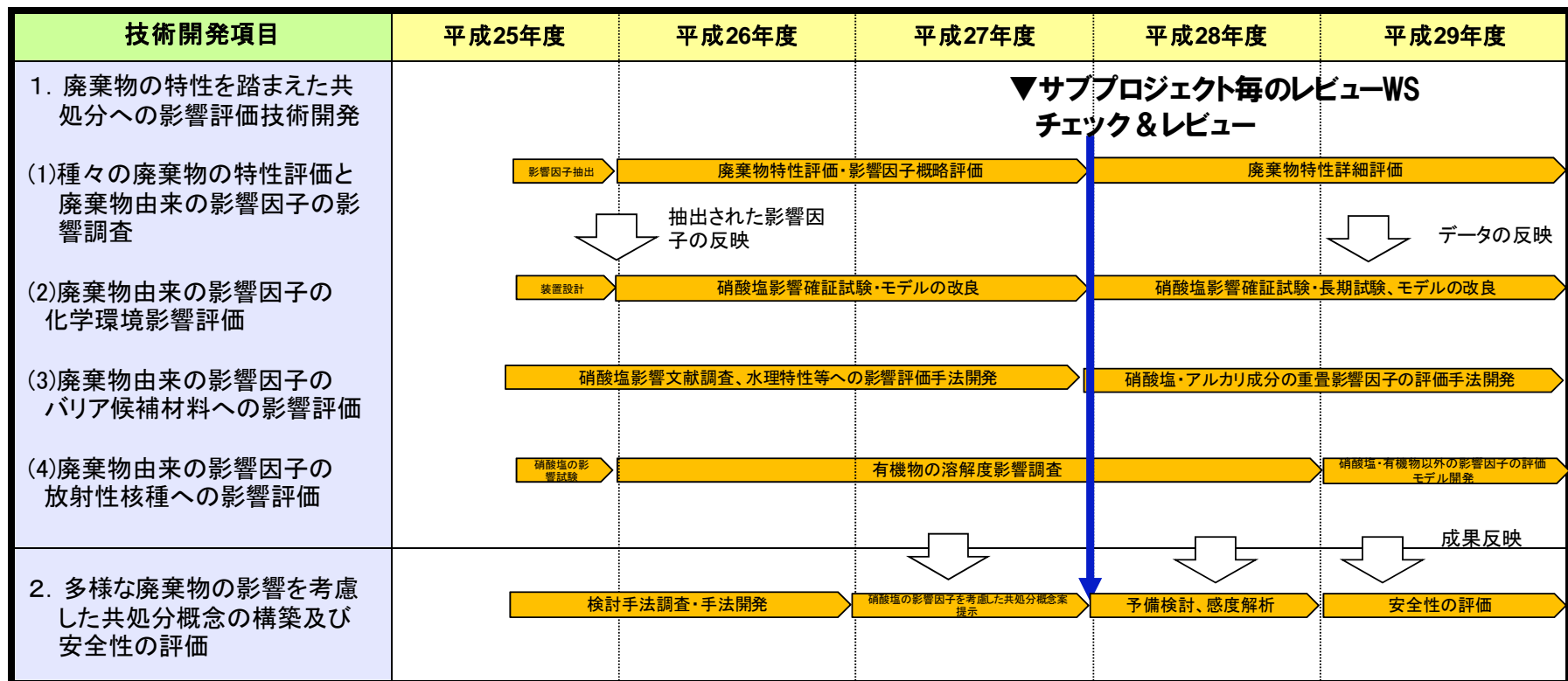


図3.1.2-2 5ヵ年の計画

3.2 廃棄物の特性を踏まえた共処分への影響評価技術開発

平成25年度より、多様な廃棄物の特徴を考慮した適切な共処分概念を提示するため、HLWと再処理施設等から発生する多様なTRU廃棄物との共処分におけるニアフィールドの影響評価技術の開発及び確証を実施してきている。

平成25年度は、第2次TRUレポート以降に見直された廃棄物の情報に基づき、TRU廃棄物の特性と廃棄物由来の処分システム性能への影響因子の調査を行った。多様な廃棄物の中で、硝酸塩及び有機物を含有する廃棄物に着目し、その特性である有機物と硝酸塩との発熱反応を評価する分析手法の提案を行い、予備的な熱分析を行うことにより、その分析手法の適用性を示した。また、化学環境への影響については、硝酸イオンの化学的変遷挙動評価モデルの信頼性を向上させるための手法について検討を行い、その進め方を示した。放射性核種に対する影響については、既往の研究で課題となっている酸化還元電位に酸化状態が鋭敏であるテクネチウムの溶解度に及ぼす硝酸イオンの影響について、酸化還元条件を制御した条件において、実験的な検討を行い、硝酸ナトリウム濃度が 0.1 mol/dm^3 以下では、酸化還元がみられず、テクネチウムの濃度は系の酸化還元電位(実測値)の変化で説明できることが示された。バリア候補材料(ベントナイト)への影響について硝酸イオンの変遷物質(アンモニア/アンモニウムイオン)の文献調査を行い、研究方策を示した。

平成26年度は、前年度に検討された分析方法や研究方策に基づき、有機物と硝酸塩との発熱反応に関して模擬硝酸塩含有廃棄物のデータ取得を行い、得られたデータをもとに、地層処分の安全性の評価に着手した。また、廃棄物由来の化学物質の周辺環境への影響を評価するために開発された硝酸塩の化学的変遷モデルの確証のために試験装置を製作し、試験を行った。さらに、硝酸塩及びその変遷物による種々のバリア材の変質促進の可能性として、スメクタイトへのアンモニアの吸着・固定化とそれに伴う鉱物学的変質挙動等について、実験的な検討に着手した。硝酸塩以外の影響因子については、硝酸塩の次に多量に存在する有機物の放射性核種の溶解度に及ぼす影響についても文献調査や予備実験を行った。

平成27年度は、模擬固化体の発熱反応に関わるデータの蓄積を行い、データの不確実性低減を図るとともに、様々なシナリオを想定し地層処分における安全性の評価等を行った。また、廃棄物由来の因子の化学環境への影響を評価するために硝酸塩の化学的変遷モデルの確証のための試験等を継続し、長期データの拡充を図った。バリア候補材料への影響については、スメクタイトへの硝酸塩に由来するアンモニア等の影響に加え、セメント固化体からのアルカリ成分の影響が重畳した場合について、実験的な調査を行った。放射性核種への影響については、硝酸塩の次に多量に存在する有機物(セルロースの分解生成物等)が放射性核種の溶解度に及ぼす影響について、実験的な検討を行った。

平成28年度は、模擬固化体について、従来から特にデータが不足している低温領域における発熱量測定を行うとともに、得られたデータ等に基づき発熱速度モデルを定式化した。定式化されたモデルに基づき、地層処分の安全性の評価を行った。硝酸塩の化学的変遷モデルの確証については、確証試験等を継続するとともに、自然界における硝酸性窒素の汚染事例に対するモデルの適用性についての成果を取りまとめた。バリア候補材料への影響については、硝酸塩に由来するアンモニア等による緩衝材への影響として、セメント固化体等からのアルカリ成分影響の重畳を考慮し、スメクタイトの膨張性と安定性についての実験的調査を進め、分子動力学シミュレーションの精度向上を図った。放射性核種への影響については、セルロースの分解生成物の影響による放射性核種の溶解度の上昇について、実験的な調査を継続し、影響評価の信頼性向上を図った。

本節以降において、種々の廃棄物の特性評価と廃棄物の影響因子の調査(3.2.1)、続いて化学環境影響評価(3.2.2)、バリア候補材料への影響評価(3.3.3)及び放射性核種への影響評価(3.3.4)について記述する。

3.2.1 種々の廃棄物の特性評価と廃棄物由来の影響因子の影響調査

先に述べたように、平成25年度は原子力発電環境整備機構が公表している資料(原子力発電環境整備機構, 2011)を参考に約70種類のTRU廃棄物について物量及び含有化学物質等の特性並びに、ニアフィールド性能に及ぼす廃棄物由来の影響因子について整理した。これらTRU廃棄物の中から、最も廃棄物由来の影響因子が多い硝酸塩含有廃棄物であるアスファルト固化体をモデル廃棄物として設定した。地層処分におけるモデル廃棄物の特性に関して、有機物と硝酸塩との発熱反応についての知見が不十分であることから、その検討が重要であることを示し、発熱反応の分析・試験手法として熱量測定の適用性を確認した。平成26年度から平成27年度は分析装置の精度や試験条件を検討し、得られた測定データから発熱特性の定式化(発熱速度式)の検討を行った。また、熱収支解析から地層処分環境における熱反応暴走についての予備的な評価を行い、アスファルト固化体の熱反応暴走開始温度(以下、ROT¹)を160°Cと評価した。加えて、地層処分環境でエネルギー供給要因と考えられるものを整理し、微生物活動と高温流体の接近について試行的な評価を行った。

本年度は測定データの蓄積及びこれまでの測定データを参考に、発熱速度式の見直しを行い、改めてROTを算定した。また、見直された発熱速度式を用いて熱反応暴走を誘発する可能性のある要因について評価を行った。

(1) アスファルト固化体の発熱特性の評価

平成26年度から平成27年度においてはアスファルト固化体の発熱特性について、アレニウス則に従うとした発熱速度式及びそのパラメータの算定を行った。

本年度は、より信頼性の高い発熱速度式の構築を目的に、測定データの蓄積及び温度による反応物の固液状態の変化等について検討を行った。

1) 測定データの取得

平成27年度に引き続きマルチチャンネル微小熱量測定装置(以下、TAM IV(TA Instruments社製))及びカルベ式熱量計(以下、C80(SETARAM社製))を用いて、模擬アスファルト固化体の熱量測定を実施した。

TAM IVは測定可能温度が150°Cまでではあるが、非常に高感度な熱量測定装置であり、従来から特にデータが不足している低温領域における熱量測定に優れている。対してC80は感度の点ではTAM IVに劣るものの、測定可能温度領域がTAM IVよりも広いため、模擬アスファルト固化体の主たる発熱が観察される250~280°Cを測定可能であり、これら2つの装置による測定データが発熱特性の検討に有用であると考えられる。模擬アスファルト固化体試料はこれまでと同様のもの(鈴木ほか(1999)における試験-2 RUN10とされるもの(表3.2.1-1では模擬アスファルト固化体①と記載))及び新たに2種の試料(鈴木ほか(1999)における試験-2 RUN8及びRUN9とされるもの(表3.2.1-1ではそれぞれ模擬アスファルト固化体②、③と記載))を用いた。加えて、TAM IVによる測定では実アスファルト固化体に使用された原料アスファルトについても実施した。これら試料は平成27年度と同様に凍結粉碎を行い粒子状に調整した。

¹ ROTは熱反応暴走開始温度(Runaway Onset Temperature)の略として「地層処分環境を想定した場合における熱反応暴走に至る最低温度の目安」の意味で用いる。

C80での測定においては、アスファルト固化体中に存在する硝酸ナトリウムと亜硝酸ナトリウムの組成変化を確認するため、熱量測定を実施していない試料及び220℃まで昇温した試料の陰イオン濃度分析をイオンクロマトグラフ(以下、IC(Thermo Fisher Scientific社製))にて実施した。

測定条件等の分析方法を表3.2.1-1に示す。代表的な測定データとして、TAM IVによる模擬アスファルト固化体①及び原料アスファルトの熱量測定結果を図3.2.1-1に、C80による熱量測定結果を図3.2.1-2に示す。また、陰イオン濃度分析から算出したモル比の変化を表3.2.1-2に示す。

表3.2.1-1 熱量測定及び陰イオン濃度分析の方法

試験	熱量測定		陰イオン(塩)濃度分析
装置	TAM IV	C80	IC (Thermo Scientific ICS-1100)
試料	・ 模擬アスファルト固化体①～③ ・ 原料アスファルト	・ 模擬アスファルト固化体①	・ 模擬アスファルト固化体① (熱量測定を実施していない試料及びC80を用いた熱量測定において220℃まで昇温した試料)
前処理	凍結粉碎 (-15℃程度で粉碎し、粒径1mm程度に調整)		四塩化炭素10mLに試料約0.2gを加えて攪拌し純水5mLを加えてさらに攪拌後、上澄み液を濾過したものを分析した。
測定条件	・ 試料量：約0.5g ・ 雰囲気：Ar ・ 昇温速度：2.0℃/h ・ 測定温度：～150℃ ・ 繰り返し測定実施	・ 試料量：約0.5g ・ 雰囲気：N ₂ ・ 昇温速度：0.6℃/h、12℃/h ・ 測定温度：～300℃	・ カラム：IonPacAG12A + AS12A(4mm) ・ 溶離液：2.7mmol/dm ³ Na ₂ CO ₃ + 0.8mmol/dm ³ NaHCO ₃ ・ 検出器：電気伝導度

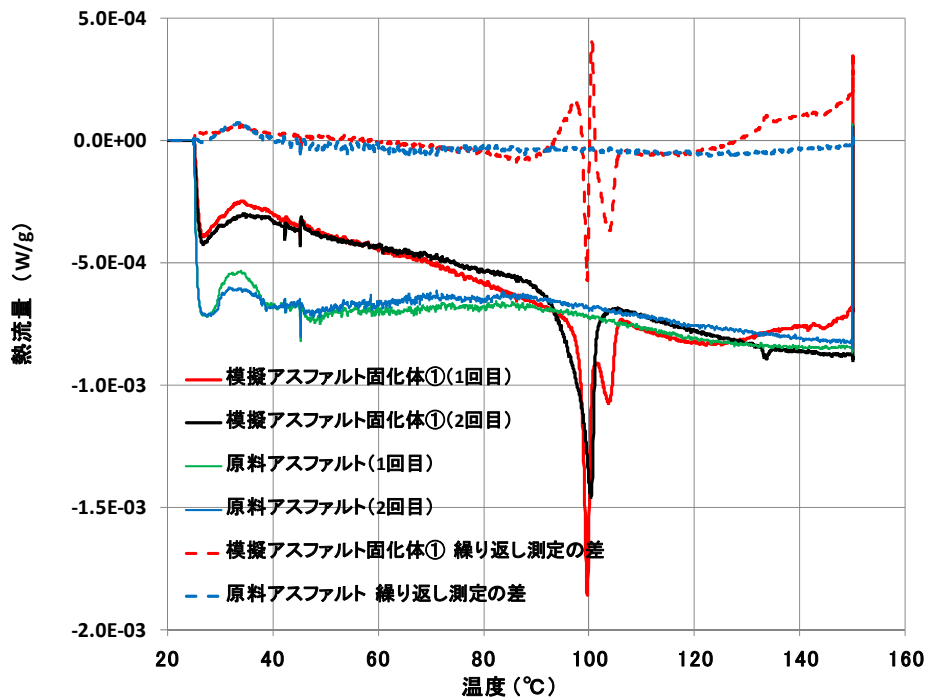


図3.2.1-1 TAM IVによる熱量測定結果 (昇温速度2℃/h)

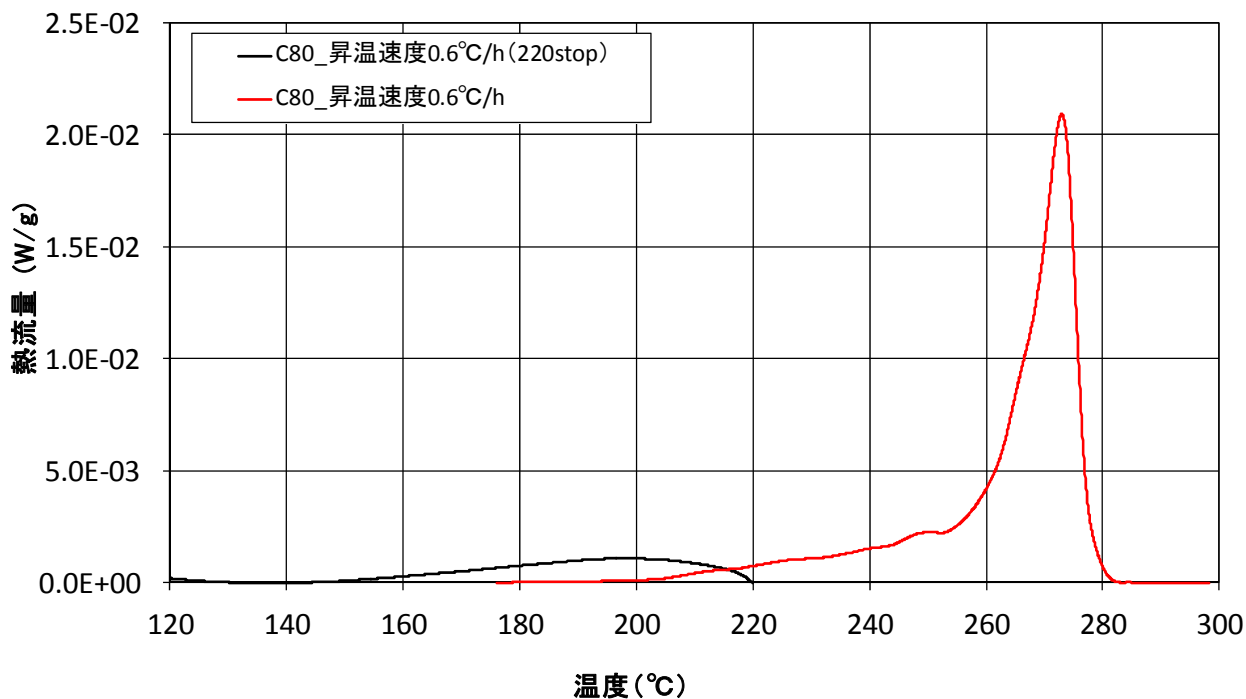


図3.2.1-2 C80による熱量測定結果(昇温速度0.6°C/h)

表3.2.1-2 陰イオン分析結果より算出した塩成分

試料	全塩濃度	NO ₃ ⁻ 及びNO ₂ ⁻ のモル数の和に占めるNO ₂ ⁻ のモル数の百分率	備考
試料製作時の試料	46.8~47.7wt%	11.5%	出典：鈴木ほか(1999)
熱量測定未実施の試料	42wt%	5.86%	
220°Cまで昇温させた試料	42wt%	1.44%未満 (NO ₂ ⁻ 濃度：検出下限値未満)	

図3.2.1-2のC80による熱量測定結果のような、ある温度で急激な熱流量の変化が観察される場合と異なり、図3.2.1-1のような、微弱な熱流量変化が観察された場合には、アスファルトと硝酸塩との反応(化学反応)を検討する場合は注意が必要である。たとえば、定量的な評価においてはベースラインの設定により値が大きく異なるため、不確実性が大きくなる可能性がある。また、試料の比熱容量が温度により変化する場合、比熱容量の変化に伴い熱流量も変化するため、観察される熱流量変化が比熱容量の変化によるものなのか、あるいはアスファルトと硝酸塩との反応によるものなのかを明確に区別することが難しい。一般的に、比熱容量変化のような物理的な変化は可逆的であり、同じ温度条件の下では同様の結果が得られると考えられるが、アスファルトと硝酸塩との反応のような不可逆的な化学反応の場合は繰り返し測定の結果が異なると考えられることから、TAM IVによる熱量測定においては繰り返し測定を実施した。

図3.2.1-1に示した原料アスファルトにおいては、90°C付近まで熱流量の変化はほとんど見られず、90°C~140°C付近までの微弱な吸熱、その後再び熱流量の変化がほとんど見られないことが観察された。90°Cからの微弱な吸熱は原料アスファルトの軟化点が90°Cであることから、試料自身の軟化に伴うも

のと考えられる。2回目の繰り返し測定においても同様の結果が観察されたことから、90°C～140°C付近までの吸熱は軟化(物理的な変化)であり、化学的な変化は生じていないと考えられる。

模擬アスファルト固化体①の繰り返し測定を比較すると、1回目、2回目ともに100°C付近で試料に含まれる水の気化と考えられる吸熱ピークが確認された。この吸熱ピークから得られるエンタルピーは1回目、2回目ともに約5.7J/g(含水率0.25%程度に相当)であり実アスファルト固化体の含水率0.3～0.6%(鈴木ほか, 1999)と同程度であった。また、全体的な傾向として、温度上昇とともに熱流量は吸熱側に推移していることから、吸湿していた硝酸塩の脱水の可能性が考えられる。発熱に関する大きな特徴は、1回目で130°C付近から観察された発熱が2回目では観察されなかった点である。この差より発熱速度を見積もると145°Cにおいて約0.1mW/gであった。なお、模擬アスファルト固化体②及び③についても繰り返し測定の差から同程度の発熱速度を確認した。

実アスファルト固化体(塩含有率45wt%)には、概ね25wt%程度の硝酸ナトリウムに対して5wt%程度の亜硝酸ナトリウムが含まれており(藤根ほか, 1999b)、アスファルトとの反応を考えた場合、反応性の高い亜硝酸ナトリウムが優先的に反応すると考えられる。これを確認するため、熱量測定を実施していない試料と220°Cまで昇温した試料に含まれる陰イオンを分析し、亜硝酸イオン及び硝酸イオンのモル比を確認した。表3.2.1-2中に示すように220°Cまでの昇温条件において亜硝酸イオンが優先的に減少していることが確認された。

2) アスファルト固化体の発熱特性の定式化

平成26年度及び平成27年度は、アスファルトと硝酸塩との反応をアレニウス則に従うと仮定し、式(3.2.1-1)及び式(3.2.1-2)(以下、1成分アレニウスモデル)を用いて発熱特性(発熱速度式)を定式化した。測定結果をうまく再現できていない。

$$S = \rho_{aw} \cdot (1-X) \cdot \Delta H \cdot A \cdot \exp(-E/(RT)) \quad (3.2.1-1)$$

$$X = Q/Q_{all} \quad (Q_{all} = \rho_{aw} \cdot \Delta H \quad Q = \int S dt \quad (Q \geq Q_{all} \text{ のとき } S = 0)) \quad (3.2.1-2)$$

本年度は既往の研究(Hasegawa and Li, 1999)を参考に、アスファルトと硝酸塩の温度による固液状態の変化、生成物層形成による塩の成分の拡散及び塩の成分ごとの寄与に着目した発熱速度式の検討を実施し、熱量測定結果の再現性向上を図った。以降の検討では、アスファルトと硝酸塩との反応に加えて亜硝酸塩との反応に関する検討も実施しており、混乱を避けるため硝酸塩と亜硝酸塩を合わせて塩と記載する。

①温度による固液状態の変化及び生成物層による拡散律速に関する検討

実アスファルト固化体に使用されている原料アスファルトの軟化点(90°C)及び含まれている塩の融点(硝酸ナトリウム: 308°C、亜硝酸ナトリウム: 271°C(化学便覧, 1993))から、これら成分の固液状態は温度の上昇とともにアスファルト(固体)/塩(固体)、アスファルト(液体)/塩(固体)、アスファルト(液体)/塩(液体)と変化することが想定される。したがって、アスファルト固化体の発熱速度は、これら3つの固液状態での発熱速度を組み合わせることで表現できると考えられる。以下、アスファルト(固体)/塩(固体)の状態をSSフェーズ、アスファルト(液体)/塩(固体)の状態をLSフェーズ、アスファルト(液体)/塩(液体)の状態をLLフェーズと定義する。

既往の研究(Hasegawa and Li, 1999)においては、アスファルトと塩の反応に伴う生成物層の形成を仮定し、生成物層における塩の拡散過程を考慮したモデルが提唱されている。図3. 2. 1-3にその概念図を示す。

アスファルト固化体に存在する塩粒子を球状とすると、アスファルトはその周辺に存在していると考えられる。初期においてはアスファルトと塩粒子は接触していると想定されるが、接触界面で反応が生じるとアスファルトと塩粒子の間には生成物層が形成されるため、以降は生成物層を拡散により移動した塩の成分が反応領域に達することでアスファルトと塩の反応が進行する。

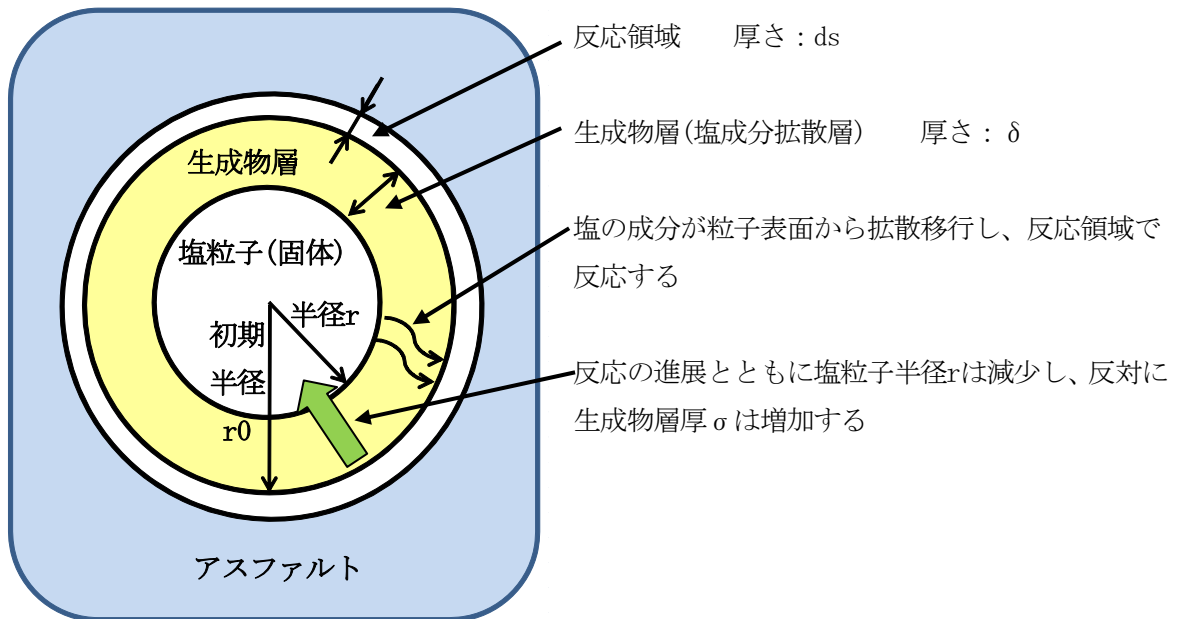


図3. 2. 1-3 アスファルトと塩の反応の概念図

図3. 2. 1-3に示す反応の進展に伴い、塩粒子の縮小(塩粒子半径の減少)及び生成物層厚の増加を考慮したアスファルトと塩との反応による発熱速度の関係式を式(3. 2. 1-3)から式(3. 2. 1-7)のように定義した。なお、図3. 2. 1-3で示した反応の進展は、生成物層が安定に形成されていることを想定したものである。LLフェーズのような塩粒子が溶解するとした高温条件においては、生成物層が安定に存在せず、液体のアスファルトと塩が均一な混合状態であるとし、アレニウス則に従うとした。

$$S = S_{SS} + S_{LS} + S_{LL} \quad (3. 2. 1-3)$$

$$S_{SS} = \rho_{aw} \cdot \Delta H \cdot (1-X) \cdot \text{Area} \cdot N_{SS} \cdot ds \cdot A_{SS}^* \cdot \exp(-E_{SS}/(RT)) \quad (3. 2. 1-4)$$

$$S_{LS} = \rho_{aw} \cdot \Delta H \cdot (1-X) \cdot \text{Area} \cdot N_{LS} \cdot ds \cdot A_{LS}^* \cdot \exp(-E_{LS}/(RT)) \quad (3. 2. 1-5)$$

$$S_{LL} = \rho_{aw} \cdot \Delta H \cdot (1-X) \cdot A_{LL} \cdot \exp(-E_{LL}/(RT)) \quad (3. 2. 1-6)$$

$$X = Q/Q_{all} \quad (Q_{all} = \rho_{aw} \cdot \Delta H \quad Q = \int S dt \quad (Q \geq Q_{all} \text{ のとき } S = 0)) \quad (3. 2. 1-7)$$

ここで、 S (W/m^3) : アスファルト固化体の単位体積あたりの発熱速度、 S_{SS} 、 S_{LS} 、 S_{LL} (W/m^3) : フェーズごとの発熱速度、 ρ_{aw} (kg/m^3) : アスファルト固化体の密度、 ΔH (J/kg) : 初期反応物質の単位重量あたりの反応熱、 X (-) : 反応率、 E_{SS} 、 E_{LS} 、 E_{LL} (J/mol) : フェーズごとの活性化エネルギー、 R ($J/K/mol$) : 気体定数、 T (K) : 温度である。 A_{LL} ($1/s$) はLLフェーズの頻度因子、 A_{SS}^* 及び A_{LS}^* ($1/s$) は、後述するよう

に、それぞれSS及びLSフェーズの補正された頻度因子を意味する。反応率(X)とは、アスファルトと塩の反応の進捗を意味しており、 Q_{all} (J/m³):初期反応物が完全に反応した場合に発する単位体積あたりの熱量(= $\rho_{aw} \cdot \Delta H$)、 Q (J/m³):経過時間までの累積発熱量から算出する(式(3.2.1-7))。

以下に、式(3.2.1-4)及び式(3.2.1-5)を構成する変数または定数であるArea、ds、 N_i 、 A^*_i (添字iはSS、LSフェーズに関する値であることを示す)等について、式(3.2.1-5)を例に示す。なお、熱量測定データからの算定が難しいパラメータ(たとえば、塩粒子半径初期値や反応領域厚等)はHasegawa and Li (1999)を参考に設定した。

Area : 固化体単位重量当たりの塩粒子全表面積[m²/kg]

$$\text{Area} = 4\pi r^2 \cdot n \quad (3.2.1-8)$$

$$r \text{ (塩粒子半径) [m]} = r_0(1-X)^{1/3} \quad (3.2.1-9)$$

$$r_0 \text{ (塩粒子半径初期値) [m]} = 5.0 \times 10^{-5}$$

$$n \text{ (粒子数密度) [粒子数/kg]} = \rho_{aw} \cdot \xi / (4/3 \pi r_0^3 \cdot \rho_{salt}) \\ = 7.01 \times 10^5$$

$$\xi \text{ (アスファルト固化体塩含有率) [-]} = 0.477$$

$$\rho_{salt} \text{ (含有塩密度) [kg/m}^3\text{]} = 1300$$

$$t = 0 \text{ のとき、} r = r_0 \text{ であり、} \text{Area}_0 = 22.02 \text{ [m}^2\text{/kg]}$$

N_{LS} : 反応領域の塩濃度[kg/m³]

$$N_{LS} = N_0 \frac{\frac{k_D}{\delta + \delta^2/r} + k_R \cdot ds \cdot \exp\left(-\left(\frac{k_D}{\delta + \delta^2/r} \cdot \frac{1}{ds} + k_R\right)t\right)}{\frac{k_D}{\delta + \delta^2/r} + k_R \cdot ds} \quad (3.2.1-10)$$

$$k_D = D_0 \cdot \exp(-E_D/(RT)) \quad (3.2.1-11)$$

$$D_0 \text{ (拡散定数) [cm}^2\text{/s]} = \text{表3.2.1-2に記載}$$

$$E_D \text{ (拡散活性化エネルギー) [J/mol]} = \text{表3.2.1-2に記載}$$

$$k_R = A^*_{LS} \cdot \exp(-E_{LS}/(RT)) \quad (3.2.1-12)$$

$$A^*_{LS} : \text{頻度因子(補正) [1/s]} = A_{LS} / (\text{Area}_0 \cdot N_0 \cdot ds) \quad (3.2.1-13)$$

$$ds : \text{反応界面層厚さ [m]} = 10^{-6}$$

$$\delta : \text{生成物層厚さ [m]} = r_0(1+\epsilon X)^{1/3} - r_0(1-X)^{1/3} \quad (3.2.1-14)$$

$$\epsilon \text{ (アスファルト反応補正) [-]} = 0_{balance} \cdot (\rho_{salt} / \rho_{pure asphalt}) \\ = 0.174$$

$$\rho_{salt} \text{ (含有塩密度) [kg/m}^3\text{]} = 1,300$$

$$\rho_{pure asphalt} \text{ (原料アスファルト密度) [kg/m}^3\text{]} = 1,025$$

$$0_{balance} \text{ (単位質量の硝酸塩と反応するアスファルト質量) [-]} = 0.137$$

$$t = 0 \text{ のとき、} N = N_0 = \rho_{aw} \cdot \xi = 620 \text{ [kg/m}^3\text{]}$$

$$r = 0 \text{ のとき、} N = 0$$

②SSフェーズの取扱い

先述のように、SSフェーズはアスファルト(固体)/塩(固体)の状態を想定した式である。しかし、図3.2.1-1の測定データが示すように、発熱は130°C付近から観察されており、これはアスファルトの軟化点90°C以上のLSフェーズにあるため、後段の熱収支解析においては発熱の認められないSSフェーズ(式(3.2.1-4))は考慮しないこととする。

③亜硝酸塩及び硝酸塩に関する検討

表3.2.1-2で示されたように、初期(~200°C付近)においては亜硝酸イオンが優先的に消費されることが確認された。これを受け、LSフェーズにおける発熱速度を亜硝酸塩と硝酸塩の2成分に別け、その足し合わせとして再定義した。

$$S_{LS} = \rho_{aw} \cdot \Delta H_{LS_NO2} \cdot (1-X) \cdot Area \cdot N_{LS_NO2} \cdot ds \cdot A_{LS_NO2}^* \cdot \exp(-E_{LS_NO2}/(RT)) + \rho_{aw} \cdot \Delta H_{LS_NO3} \cdot (1-X) \cdot Area \cdot N_{LS_NO3} \cdot ds \cdot A_{LS_NO3}^* \cdot \exp(-E_{LS_NO3}/(RT)) \quad (3.2.1-15)$$

式(3.2.1-15)のパラメータとしては、添字が示すように亜硝酸塩及び硝酸塩それぞれについて、 ΔH (初期反応物の単位重量あたりの反応熱(J/kg))、式(3.2.1-10)のNに含まれる E_0 (拡散活性化エネルギー(J/mol))及び D_0 (拡散定数(cm²/s))、式(3.2.1-13)のA*に含まれるA(頻度因子(1/s))及びE(活性化エネルギー(J/mol))が必要となる。しかし、これら全てを同定することは困難であるため、式(3.2.1-15)中の ΔH 、式(3.2.1-10)中の E_0 及び D_0 は、亜硝酸塩及び硝酸塩いずれの場合ともこれまでの測定データから算定した共通の値を設定した。E及びAについては亜硝酸塩若しくは硝酸塩とアスファルトの反応が支配的と想定される温度領域の測定データから算定し、それぞれ異なる値を設定した。式(3.2.1-15)は ΔH に共通の値を用いたため、最終的に式(3.2.1-16)となる。表3.2.1-3に式(3.2.1-6)に示したLLフェーズを含め、測定データから設定したパラメータを示す。以降、本検討により定義された発熱速度式をH28検討モデルと呼ぶ。

$$S_{LS} = \rho_{aw} \cdot \Delta H \cdot (1-X) \cdot Area \cdot N_{LS_NO2} \cdot ds \cdot A_{LS_NO2}^* \cdot \exp(-E_{LS_NO2}/(RT)) + \rho_{aw} \cdot \Delta H \cdot (1-X) \cdot Area \cdot N_{LS_NO3} \cdot ds \cdot A_{LS_NO3}^* \cdot \exp(-E_{LS_NO3}/(RT)) \quad (3.2.1-16)$$

表3.2.1-3 H28検討モデルのパラメータ

想定した固液状態及び塩成分	LS(亜硝酸塩:NO ₂)	LS(硝酸塩:NO ₃)	LL
初期反応物の単位重量あたりの反応熱 ΔH (J/kg)	1.5×10 ⁶		
活性化エネルギーE(J/mol)	1.2×10 ⁵	2.8×10 ⁵	5.0×10 ⁵
頻度因子A(1/s)	8.8×10 ⁷	4.4×10 ²³	2.5×10 ⁴³
拡散活性化エネルギーE ₀ (J/mol)	1.7×10 ⁵		—
拡散定数D ₀ (cm ² /s)	1.2×10 ⁵		—

④実測値との比較

H28検討モデル及び1成分アレニウスモデル(平成27年度まで使用)の計算値並びに、熱量測定により得られた実測値を図3.2.1-4に示す。図3.2.1-4に示されるように、H28検討モデルは、実測値における260℃付近までの緩やかな発熱、及びその後の急激な発熱の傾向をこれまで使用していた1成分アレニウスモデルよりも良く再現することができる。

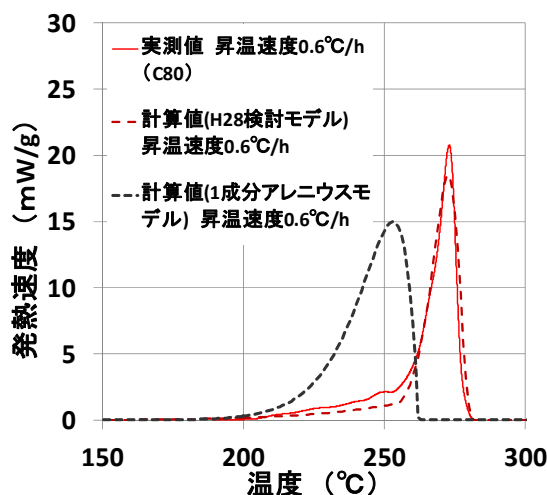


図3.2.1-4 実測値と計算値の比較

(2) 地層処分環境におけるアスファルト固化体のROTの算定

(1)で定式化したH28検討モデルを用いて、アスファルト固化体を地層処分した場合のROTの算定を行う。平成27年度と同様に式(3.2.1-17)に示す非定常の熱伝導方程式を解くことにより、処分施設及びアスファルト固化体の温度変化を計算した。

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho CT) = \nabla(k\nabla T) + S \quad (3.2.1-17)$$

ここで、 ρ (kg/m³): 媒体の密度、 C (J/kg/K): 媒体の比熱容量、 k (W/m/K): 媒体の熱伝導率、 S (W/m³): 媒体内の熱源、 T (K): 媒体の温度である。平成27年度と同様に数値解析法の一つである有限要素法を用いた汎用解析コードCOMSOL Multiphysics®(<http://www.quesco.co.jp/comsol/>)を使用して求解した。

1) 熱収支解析条件

①解析体系

平成27年度と同様に原子力発電環境整備機構(2014)を参考に作成した3次元体系を用いる(図3.2.1-5)。本体系は200Lドラム缶に処理されたアスファルト固化体が4本ごとにパッケージングされ、この廃棄体パッケージが直径12mの処分坑道断面あたり25個定置されることを想定したものである。原子力発電環境整備機構(2014)において、アスファルト固化体が属するTRU廃棄物グループ3は、想定される発生量から長さ160m程度の坑道3本に処分されることが示されているが、ここでは処分坑道の長さは無限(処分坑道の形状を無限円筒)、処分坑道の本数(地下施設レイアウト)は水平方向に無限に連続して並んでいる(連続坑道)とした。周辺の母岩は結晶質岩、深度は1,000mを想定している。

後段の解析結果における評価点は坑道中心付近に存在するアスファルト固化体(200Lドラム缶)の中心とした。

② 発熱条件

H28検討モデルで示される発熱速度式に従い、アスファルト固化体が充填されている200Lドラム缶が発熱すると仮定する。

③体系を構成する要素の設定値

解析体系を構成する要素は、廃棄体パッケージ、廃棄体パッケージ内部の充填材とアスファルト固化体、処分坑道埋め戻し材及び母岩であり、それぞれの密度、比熱容量及び熱伝導率が必要となる。ここでは平成27年度と同様に、既往の検討(原子力発電環境整備機構, 2014)を参考に、廃棄体パッケージ、廃棄体パッケージ内の充填材、及び処分坑道埋め戻し材については、セメント系材料を使用することを想定した。それぞれの物性値を表3.2.1-4に示す。アスファルト固化体の物性値は三浦ほか(1999)、セメント系材料及び母岩の物性値は第2次TRUレポートを参考に設定した。なお、母岩としては結晶質岩を想定した。

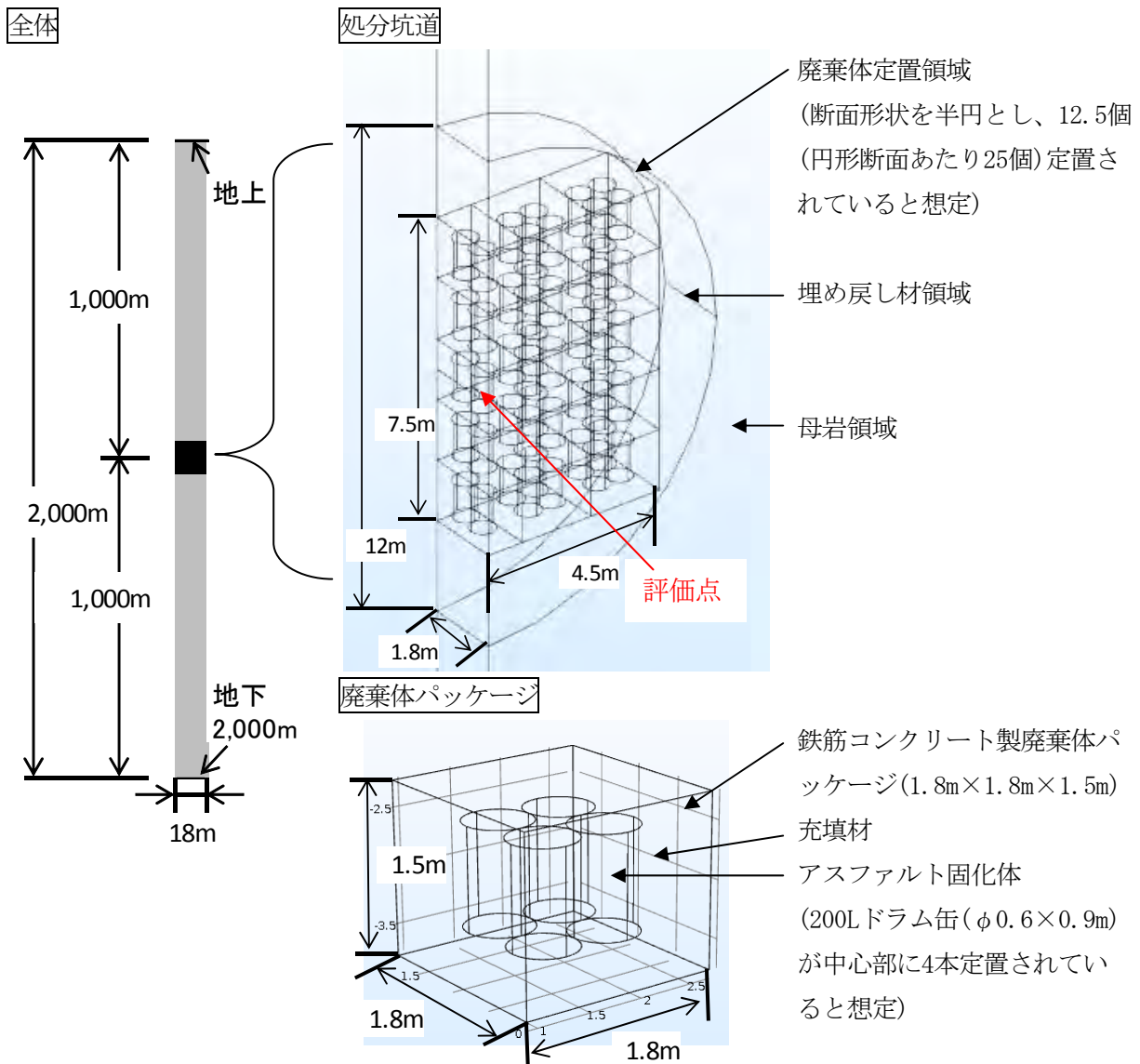


図3.2.1-5 熱収支解析体系(左：全体図、右上：処分坑道、右下：廃棄体パッケージ)

表3. 2. 1-4 熱収支解析における構成要素の物性に関する設定値

構成要素	熱物性			出典
	密度 (kg/m ³)	比熱容量 (J/kg/K)	熱伝導率 (W/m/K)	
アスファルト固化体 (200Lドラム缶)	1,300	732+2.37T T(K)	0.35	三浦ほか (1999)
セメント系材料 (廃棄体パッケージ、廃棄体パ ッケージの充填材、処分坑道 埋戻し材)	2,350	1,050	2.56	電気事業連合会・ 核燃料サイクル 開発機構(2005)
母岩(結晶質岩)	2,670	1,000	2.80	

④境界条件及び初期温度分布

境界条件及び初期温度分布を表3. 2. 1-5に示す。平成27年度と同様に、熱反応暴走を誘発するような熱源の発生位置はアスファルト固化体自身である内部、または外部の2つが想定されるため、初期温度分布として「アスファルト固化体のみが高温の場合」と「体系全てを温度一定にした場合」の2つの条件を与えた。

表3. 2. 1-5 境界条件及び初期温度分布

境界 条件	温度固定境界	地上：15℃(地上平均温度15℃を想定) 地下2,000m:75℃(地上から3℃/100mの温度勾配を仮定して算出)
	断熱境界	温度固定境界以外全て
初期温 度分布	アスファルト固化体のみ高温 (内部からの熱を想定)	アスファルト固化体：温度一定(45、80、120℃～) その他：地上を15℃とし、深さ方向に3℃/100mの温度勾配を想定
	体系全てを温度一定 (外部からの熱を想定)	体系全て：温度一定(45、80、120℃～)

2)解析結果

アスファルト固化体のみが高温である状態を初期状態とする場合の温度の経時変化を図3. 2. 1-6に、体系全体が温度一定である状態を初期状態とする場合の温度の経時変化を図3. 2. 1-7にそれぞれ示す。平成27年度の結果と同様に、初期温度分布の設定によりROTが異なる値をとる結果が得られた。また、前者の場合では、224℃(平成27年度は204℃)で、後者の場合では195℃(平成27年度は160℃)で、急激な温度上昇が確認されており、いずれも平成27年度より高い温度条件で熱反応暴走に至る結果となった。

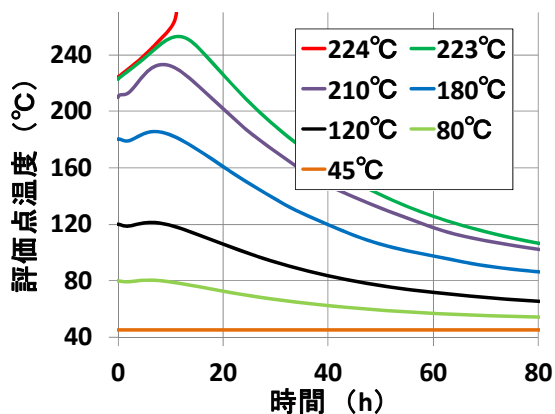


図3.2.1-6 アスファルト固化体のみ高温の場合
(内部からの熱を想定)

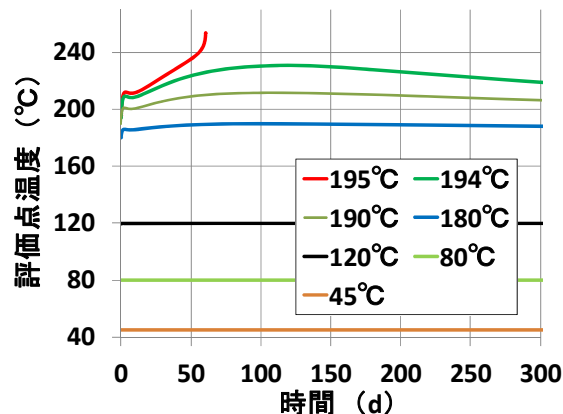


図3.2.1-7 体系全てが温度一定の場合
(外部からの熱を想定)

(3) 熱反応暴走を誘発する可能性のあるシナリオを想定した安全性の試行的評価

平成27年度は地層処分環境でエネルギー供給要因として想定されるものを整理し、ROTを超える可能性のある要因から微生物によるアスファルト固化体の分解に伴う発熱(以下、微生物発熱)及び高温流体の接近について、アスファルト固化体の熱反応暴走を誘発する可能性を検討した。

平成28年度は新たに検討したアスファルト固化体の発熱速度式(H28検討モデル)及び算定したROTを用いて、改めて微生物発熱及び高温流体の接近について検討を行った。さらに、処分施設作業時における熱反応暴走の誘発の可能性として、トンネル火災事故を想定した検討を新たに実施した。なお、前項(2)で示したように、アスファルト固化体のみが高温である状態を初期状態とする場合と、体系全体が温度一定である状態を初期状態とする場合では、後者のROTの値(195°C)の方が、前者(224°C)と比較して低い値となったが、より厳しい値である195°Cを対象とすることにより、いずれの場合も包含することができると考えられたため、ここでは、簡単のため、ROTを195°Cとして検討を行った。

1) 微生物発熱

平成27年度は微生物発熱がアスファルト固化体の熱反応暴走を誘発する可能性について、微生物発熱がアスファルト固化体(200Lドラム缶)表面で生じる場合及び、内部で生じる場合を想定し熱収支解析による検討を行った。その結果、微生物発熱が表面で生じる場合においては、その可能性が低いことが示されたため²、本年度は内部での微生物発熱に関して検討を進めることとした。

① 熱収支解析における条件

既往の研究(産業創造研究所, 1996)では、処分環境下での微生物による炭化水素分解について電子受容体の種類に関する検討を行い、酸素に次いで効率良く利用できるものとして硝酸・亜硝酸イオンを挙げている。これを受け、a)微生物が硝酸・亜硝酸イオンを利用せず原料アスファルトを分解する場合及び、b)微生物が硝酸・亜硝酸イオンを利用して原料アスファルトを分解する場合を想定した熱収支解析を実施した。

² 反応暴走を誘発するためには、これまで報告されている好気性・pHコントロール条件下での微生物によるアスファルトの分解速度 $160\text{g}/\text{m}^2/\text{y}$ の約30倍(20年程度で200Lドラム缶が完全に分解される速度に相当)が必要であり、通常の地層処分環境においては考えにくい。

熱収支解析条件を表 3. 2. 1-6 に示す。平成 27 年度と同様に、3. 2. 1 項の(2)の ROT の算定で使用した条件(体系、境界条件等)を用い、これら条件に加えてアスファルト固化体(200L ドラム缶)内部での微生物発熱を想定し、一定発熱 q (W/m^3) を与えた。ここで一定発熱 q の発熱制限として、a) 微生物が硝酸・亜硝酸イオンを利用しないと想定した場合は、アスファルト固化体に含まれる原料アスファルトが完全に燃焼した際の熱量から $2.87 \times 10^{10} J/m^3$ (落合ほか, 1997)³ を設定した。b) 微生物が硝酸・亜硝酸イオンを利用すると想定した場合は、アスファルトと塩との反応において過少である塩(硝酸・亜硝酸イオン)が微生物によっても利用される。したがって、式(3. 2. 1-18)に示すように H28 検討モデルの反応率(X)の算出においては、一定発熱 q による発熱量を考慮することとし、反応率(X) ≥ 1 のとき、アスファルトと塩との発熱(S)及び、一定発熱 q は 0 と設定した。

$$X = (Q + qt) / Q_{all} \quad (Q_{all} = \rho_{aw} \Delta H \quad Q = \int S dt) \quad ((X \geq 1 \text{ のとき } S = q = 0)) \quad (3. 2. 1-18)$$

(ここで、 q (W/m^3) : 一定発熱、 t (s) : 時間)

表 3. 2. 1-6 内部からの微生物発熱を想定した熱収支解析条件

微生物による原料アスファルトの分解における硝酸・亜硝酸イオン利用の有無及び熱収支解析条件における追加発熱条件	初期温度分布	その他条件
<p>a) 微生物が硝酸・亜硝酸イオンを利用しない</p> <p>アスファルト固化体の発熱に関して、H28 検討モデルに加え、一定発熱 q (W/m^3) を設定した。ただし、q の発熱制限として、アスファルト固化体に含まれる原料アスファルトが完全に燃焼した際の熱量から $2.87 \times 10^{10} J/m^3$ を設ける。</p> <p>○アスファルト固化体(200L ドラム缶)に設定した発熱速度 (W/m^3)</p> <p>= S (H28 検討モデル) + q (微生物発熱を想定した一定発熱)</p> <ul style="list-style-type: none"> ・ S と q は互いに独立 ・ 反応率(X) ≥ 1 のとき、$S=0$ ($X=Q/Q_{all}$ ($Q=\int S dt$ $Q_{all}=\rho_{aw}\Delta H$)) ・ $qt \geq 2.87 \times 10^{10} J/m^3$ のとき、$q=0$ (t (s) : 時間) 	<p>全ての要素について深さ方向に $3^\circ C / 100m$ (地上 $15^\circ C$) の地温勾配</p>	<p>その他条件(体系、境界条件等)は(2)と同様</p>
<p>b) 微生物が硝酸・亜硝酸イオンを利用する</p> <p>アスファルト固化体の発熱に関して、H28 検討モデルに加え、一定発熱 q (W/m^3) を設定した。ただし、H28 検討モデルの反応率(X)の算出における累積発熱量は q を考慮したものとし、$X \geq 1$ の場合、$S=q=0$ とする(式(3. 2. 1-18))。</p> <p>○アスファルト固化体(200L ドラム缶)に設定した発熱速度 (W/m^3)</p> <p>= S (H28 検討モデル) + q (微生物発熱を想定した一定発熱)</p> <ul style="list-style-type: none"> ・ S に含まれる反応率(X)の算出においては q による発熱量を考慮する ($X=(Q+qt)/Q_{all}$ ($Q=\int S dt$, $Q_{all}=\rho_{aw}\Delta H$, t (s) : 時間) ・ 反応率(X) ≥ 1 のとき、$S=q=0$ 		

³アスファルト固化体単位体積あたりに含まれる原料アスファルトの燃焼熱量

原料アスファルトの燃焼熱量 ($9.590 \times 10^3 cal/g$) \times アスファルト固化体密度 ($1.3 \times 10^6 g/m^3$)
 \times アスファルト固化体の原料アスファルト割合 (0.55) $\times 4.18 J/cal \approx 2.87 \times 10^{10} J/m^3$

②結果

3.2.1(2)のROT算定と同様の評価点(図3.2.1-5 評価点)における、a)微生物が硝酸・亜硝酸イオンを利用しないと想定した場合及びb)微生物が硝酸・亜硝酸イオンを利用すると想定した場合の温度変化及び反応率(X)を、それぞれ図3.2.1-8及び図3.2.1-9に示す。なお、3.2.1(2)において行ったROTの算定とは異なり、熱を発生する要因がアスファルトと塩との反応による発熱以外にも存在し、温度変化のみではアスファルトと塩の反応が顕著となる時間及び進捗を観察しにくいいため反応率(X)を併せて示した。

図3.2.1-8より a)微生物が硝酸・亜硝酸イオンを利用しないと想定した場合は60W/m³程度、図3.2.1-9より b)微生物が硝酸・亜硝酸イオンを利用すると想定した場合は300W/m³程度の発熱が継続した場合、熱反応暴走が誘発する可能性が示された。

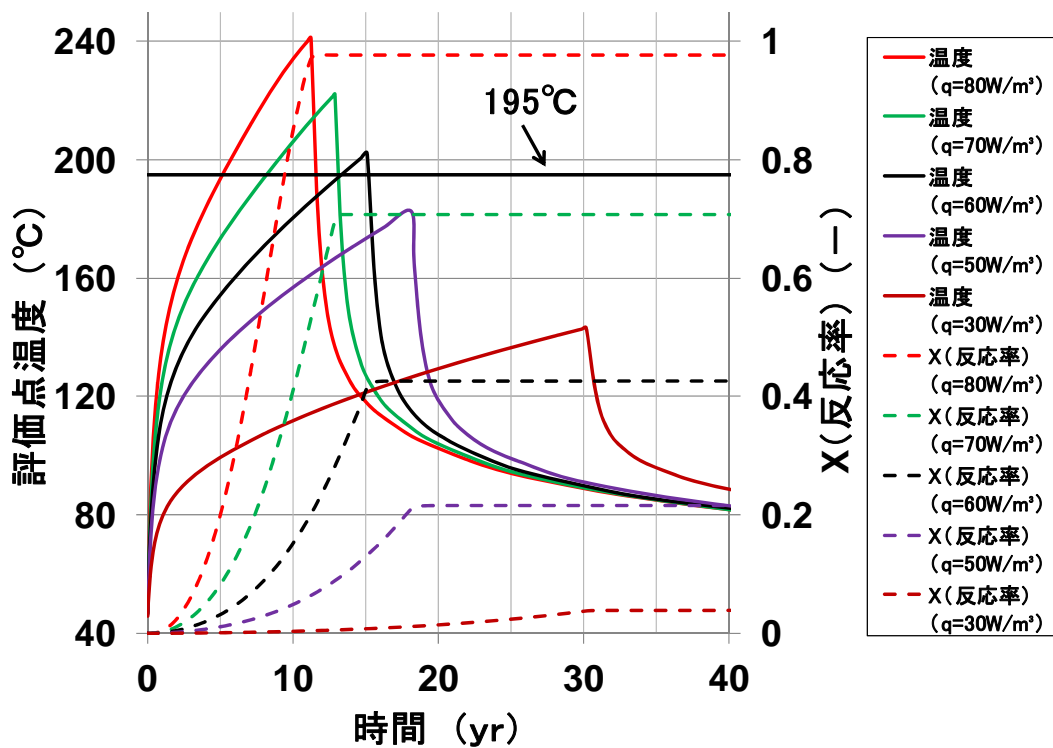


図3.2.1-8 a)アスファルト固化体内部での微生物発熱
(微生物によるアスファルト分解において硝酸・亜硝酸イオン利用なしの場合)

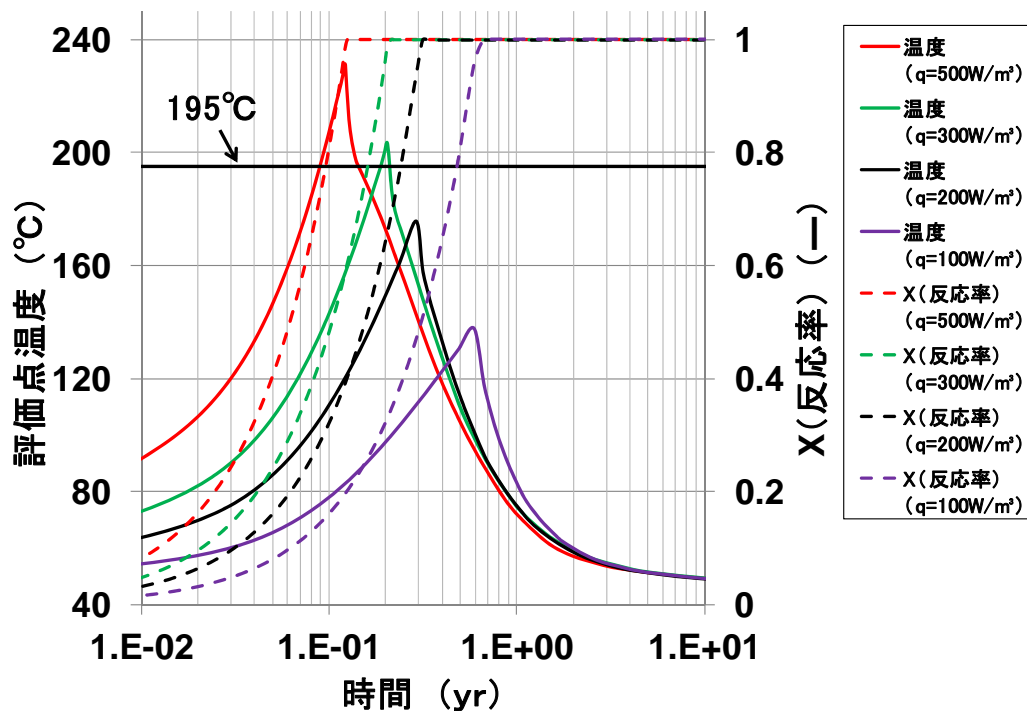


図 3.2.1-9 b) アスファルト固化体内部での微生物発熱
(微生物によるアスファルト分解において硝酸・亜硝酸イオン利用ありの場合)

2) 高温流体の接近

地層処分環境における高温流体としてはマグマ等の火山活動に起因するものが考えられるが、これらの影響はサイト選定により回避することが基本とされている(原子力発電環境整備機構, 2004)。したがって、その直撃等については考慮する必要がないと考えられるが、平成 27 年度は仮想的に 1,400°C のマグマが接近することを想定した熱収支解析を実施し、10m 程度の接近でアスファルト固化体の熱反応暴走が誘発される可能性を示した。本年度は検討されたアスファルト固化体の発熱速度式(H28 検討モデル)及び新たに求められた ROT を用い、改めて熱反応暴走が誘発される離間距離を解析的に求めた。

①熱収支解析における条件

平成 27 年度と同様に、1)微生物発熱の評価に用いたものから一定発熱(q)を除き、処分坑道下側、数 m～数 10m の位置に高さ 5m の高温部を作成した(図 3.2.1-10)。この高温部には岩脈状のマグマを想定し、物性値は母岩と同じ、初期温度は 1,400°C と設定した。これら条件から、坑道壁面と高温部の離間距離(L)を変数とした熱収支解析を行い、アスファルト固化体の熱反応暴走を誘発する高温流体の接近距離を解析的に求めた。

②結果

処分坑道下段に定置された 200L ドラム缶の底面中心を評価点(図 3.2.1-10 解析イメージ)として、温度及び反応率(X)の変化を図 3.2.1-10 に示す。なお、本解析においても、上記 1)微生物発熱と同様

に熱を発生する要因がアスファルトと塩との反応による発熱以外にも存在し、温度変化のみではアスファルトと塩の反応が顕著となる時間及び進捗を観察しにくいいため反応率(X)を併せて示した。

実施した熱収支解析の条件においては、処分坑道と高温部の離間距離(L)が7m以下の場合、最高温度が195°Cを上回り、8m以上の場合には最高温度が195°Cを下回ることが観察された。したがって、高温流体(本検討では岩脈状のマグマを想定し、1,400°C、厚さ5m、物性は母岩(結晶質岩)と設定)が7m程度の距離まで接近することで熱反応暴走が誘発される可能性が示された。

平成27年度の報告書(日本原子力研究開発機構, 2016)にも記載したように、火成活動は大局的にはプレートの配置やその運動等に関連し数十万年～数百万年という地質学的な時間の中である一定の方向を保ちつつ進行することが知られており、10万年程度であれば予測可能であると考えられている(原子力委員会原子力バックエンド対策専門部会, 1997、土木学会原子力土木員会地下環境部会, 2001)。また、既往の研究(中田、田中, 2001)からマグマの活動範囲を考慮し(火山の中心から半径15m程度)、概要調査地区選定時には当該地域は候補地を含めない方針であること(原子力発電環境整備機構, 2004)、加えてその後の精密調査においては現地での調査等を行い、マグマ接近の可能性についてより詳細に検討を行う予定であり、現時点ではマグマ接近によるアスファルト固化体の熱反応暴走誘発の危険性は低いと考えられる。

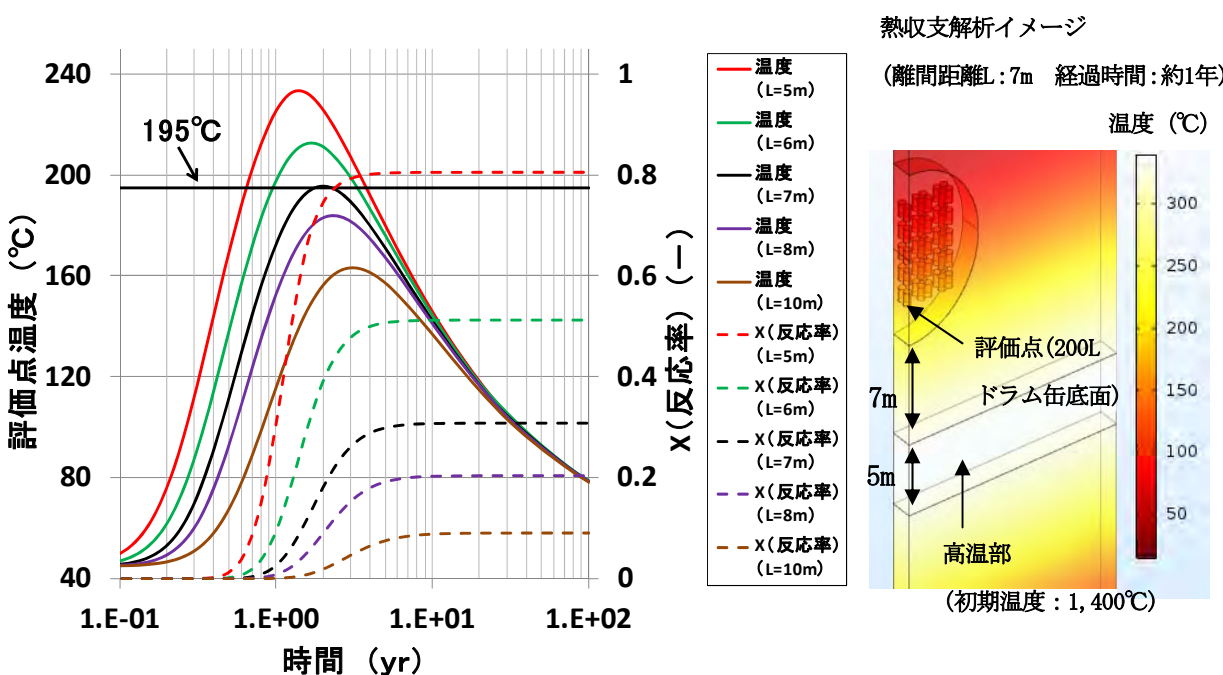


図 3.2.1-10 高温流体(1,400°C)の接近を想定した場合の評価点の温度及び反応率の変化

3) 処分施設操業時におけるトンネル火災事故

これまでのシナリオを想定した安全性の試行的評価では、地層処分環境(閉鎖後)を想定した検討を実施した。しかし、アスファルト固化体の熱反応暴走に関する評価は、閉鎖前の操業時にも必要となると考えられる。ここでは、操業時の事故事象の1つとしてトンネル火災事故に関する検討を実施した。

①熱収支解析における条件

図 3. 2. 1-11 に火災を想定した耐火材の性能試験に用いられている火災曲線を示す。図 3. 2. 1-11 における ISO は国際標準化機構、JIS は日本、RWS はオランダ、ZTV (RABT とも呼ばれる) はドイツで採用されている火災曲線である。RWS 及び ZTV の火災曲線は、トンネル火災を想定したものであり、ISO 及び JIS の曲線は建築火災を想定したものである(小野ほか, 2002)。前者においては、特に、短期間で急激な温度上昇がみられる。現在、JIS によるトンネル火災を想定した火災曲線は規定されておらず、わが国におけるトンネル火災を想定した耐火性能試験では、ZTV 曲線の利用が増えている。

また、自動車火災におけるトンネル内空気の最高温度が世界道路協会 (PIARC) より示されており(表 3. 2. 1-7)、実際にトンネル内でバス(40 席規模)を燃焼させた実験(EUREKA 火災実験)においても、同程度の最高温度(700°C程度)が得られている(小野ほか, 2002)。

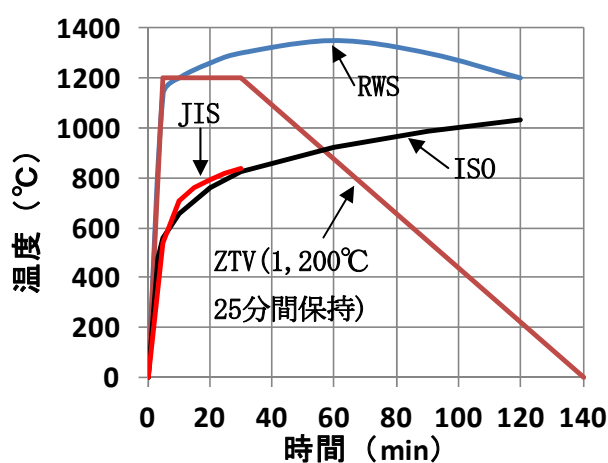


図 3. 2. 1-11 各国の火災曲線

表 3. 2. 1-7 自動車火災におけるトンネル内空気の最高温度(PIARC より)

自動車の規模	最高温度
普通自動車	400°C
バス・小型トラック	700°C
大型トラック	1,000°C
タンクローリ車 (一般のケース)	1,200°C
タンクローリ車 (非常のケース) (油の流出量無制限)	1,400°C

図 3. 2. 1-5 で想定した廃棄体パッケージ 1 体を対象として熱収支解析を実施した。封入されているアスファルト固化体(200L ドラム缶)の発熱特性と廃棄体パッケージの物性等については、これまでと同様とした。廃棄体パッケージの壁面の温度については、境界条件として設定した。具体的には、図 3. 2. 1-11 で示した ZTV の火災曲線と、表 3. 2. 1-7 で示したタンクローリ車(一般のケース)における最高温度の値(1,200°C)を参考に、初期温度を 45°C とし、5 分間で 1,200°C まで昇温させた後に一定時間保持し、その後 110 分間かけて 45°C まで降温させる条件とした。45°C に達した後はそのまま一定とした。これらの条件から、1,200°C の保持時間を変数とした熱収支解析を実施し、熱反応暴走に至る可能性を検討した。なお、操業中の坑道内の温度は、換気によって、深度 1,000m で想定される地温 45°C より低い温度に保たれると考えられるが、ここでは、簡単のため、換気による影響は考慮しなかった。

②結果

評価点を廃棄体パッケージ内の 200L ドラム缶側面(図 3. 2. 1-12)とした場合の温度変化を図 3. 2. 1-12 に示す。実施した熱収支解析の条件においては、1,200°C の保持時間が 85 分の場合、最高温度が 195°C を上回った。したがって、廃棄体パッケージ表面が 85 分間 1,200°C に保持されるような火災においては熱反応暴走が誘発される可能性が示された。

作業時におけるトンネル内火災を想定した安全性評価は、実施段階において改めて検討が行われると思われるが、トンネル内の火災発生防止策として、発火要因や燃えるものを持ち込まないなどの対策が講じられれば、1,200℃の温度を85分程度維持することは難しいと考えられる。

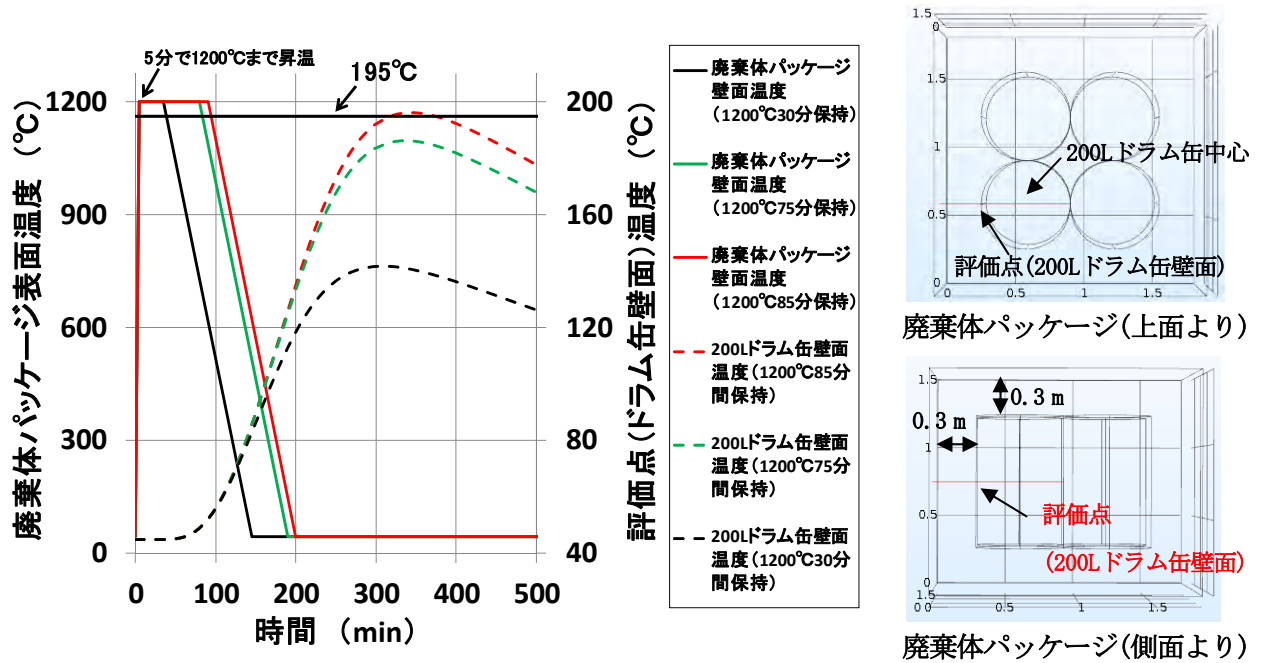


図 3.2.1-12 トンネル火災を想定した評価点(ドラム缶側面)の温度変化

3.2.2 廃棄物由来の影響因子の化学環境影響評価

廃棄物由来の影響因子のうち硝酸塩について、平成19年度から平成24年度にかけて経済産業省の委託事業「硝酸塩処理・処分技術高度化開発」（日本原子力研究開発機構，2008～2013b）が実施され、ニアフィールド環境への硝酸塩の影響評価技術開発が進められた。ニアフィールドの化学環境において、廃棄物から溶出した硝酸イオン(NO_3^-)は、処分施設内の金属との反応、岩石中の鉱物との反応及び微生物との反応により、亜硝酸イオン(NO_2^-)、アンモニア(NH_3)及び窒素ガス(N_2)に変遷しながらニアフィールド中に広がっていくことが想定されるため、これらの反応モデルを考慮した硝酸イオン化学的変遷挙動評価モデル(NEON: Model for Nitrate Evolution due to mineral reaction, microbial activity and metal corrosion)が構築されている(日本原子力研究開発機構，2013b)。本項では、この構築された硝酸イオン化学的変遷挙動評価モデルの信頼性向上を目的とする室内試験の成果、及び室内試験を補完するための天然事例(ナチュラルアナログ)の活用について記載する。

(1) 硝酸イオン化学的変遷挙動評価モデル(NEON)の概要

硝酸イオン化学的変遷挙動評価モデル(以下、NEON)の概念図を図3.2.2-1に示す。NEONは金属、鉱物及び微生物の作用による硝酸イオンの化学的変遷挙動に基づき、化学反応とその反応速度がモデル化されている。

硝酸イオンと金属との反応はアルカリ条件における炭素鋼の腐食に関する研究成果(本田ほか，2006，2009，2011)、鉱物との反応は密封されたアンプル内の硝酸と黄鉄鉱の反応試験(日本原子力研究開発機構，2012)、微生物との反応は密封されたアンプル内の硝酸と微生物の反応試験及びスウェーデンÄspö地下研究所での原位置試験(Masuda et al.，2013)に基づいている。これらの反応モデルは米国地質調査所が開発、公開しているPHREEQCコード(Appelo，2013)に実装されている。さらに、PHREEQCと3次元の物質輸送計算コードを連成させたPHASTコード(Parkhurst et al.，2010)を用いることにより、2次元もしくは3次元体系における硝酸イオンの変遷挙動を計算できる。それぞれの反応モデルについては個別の現象ごとに実験結果や天然事例(農肥料の硝酸塩による地下水汚染の事例)と比較され、解析結果が実験結果と概ね一致することが確認されている(日本原子力研究開発機構，2013b)。一方、TRU廃棄物処分施設の周辺環境温度は80℃以下となると想定される。鉱物反応モデルの反応速度は温度条件80℃以上の試験結果から外挿して算出されているため、80℃以下の温度条件における適応性の確認が必要である。そこで80℃以下の温度条件において実験結果と解析結果を比較したところ乖離が確認された(日本原子力研究開発機構，2016)。そのため、80℃以下の温度条件下における鉱物反応の反応速度については詳細な評価が必要である。また、長期的な硝酸塩挙動に対するNEONの信頼性向上を図るためにはナチュラルアナログを活用し、硝酸性窒素汚染地域におけるフィールドデータの再現解析を実施していくことが有効と考えられる。

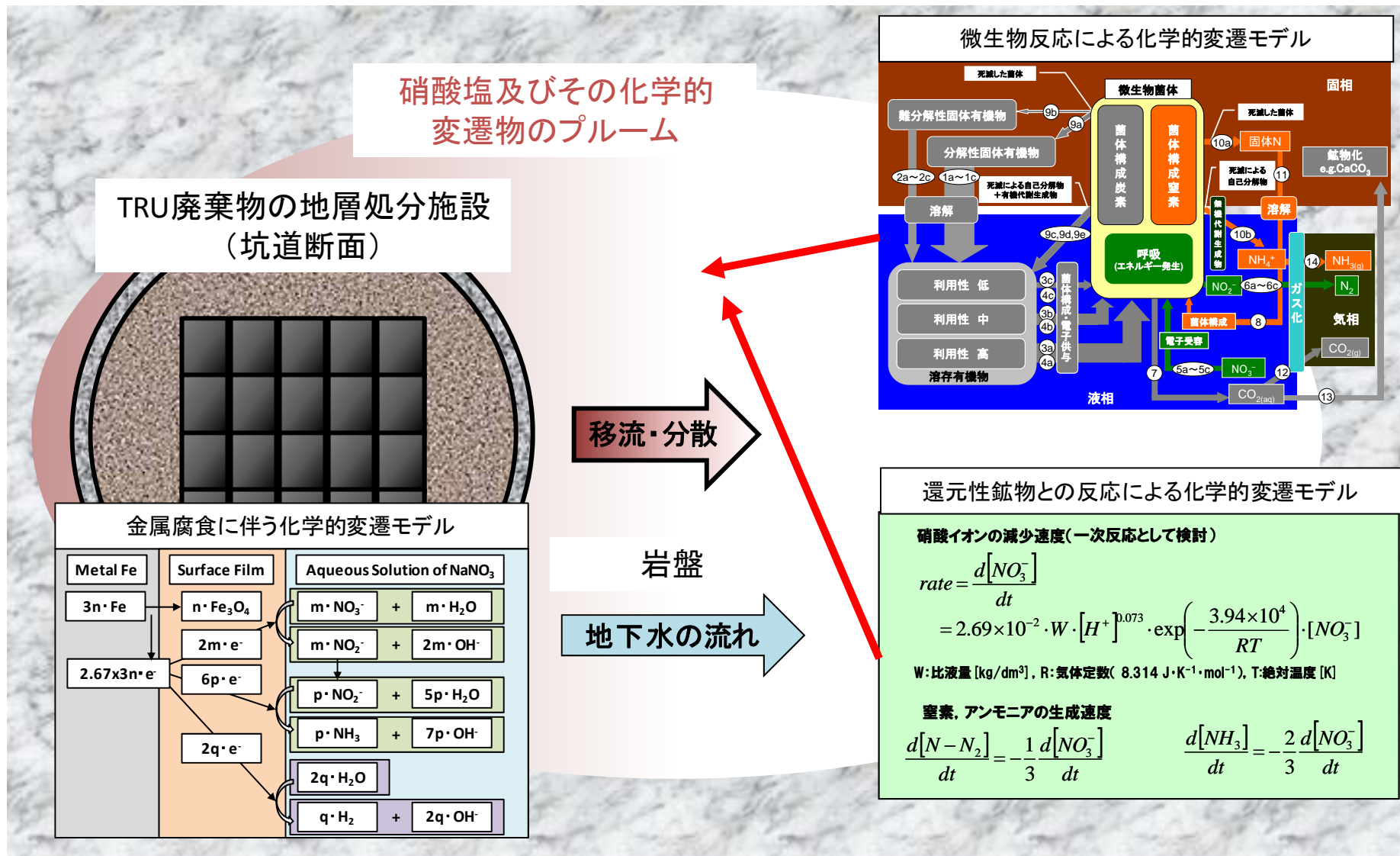


図3. 2. 2-1 硝酸イオン化学的変遷挙動評価モデル (NEON) の概念 (日本原子力研究開発機構, 2013b)

(2) 信頼性向上のための確証試験

NEONの一部である鉍物反応モデルは80℃以上の温度条件で行った反応試験の結果から構築された。そのため、80℃以下の条件においてはその反応速度を外挿により算出している。平成26年度ではTRU廃棄物処分施設の周辺環境温度を想定し、80℃以下の温度条件における鉍物反応モデルの適応性について試験期間90日間のアンプル試験によって確認したところ、NEONを用いた解析の結果とアンプル試験結果との間に乖離が確認された。そこで80℃以下における鉍物反応について評価するため、平成27年度に試験期間を300日としたアンプル試験を開始した。また、平成27年度には温度条件を80℃としたカラム試験も実施したが、結果の一部が解析結果を良く再現できなかった。本年度は、平成27年度に開始したアンプル試験の評価と温度条件を80℃としたカラム試験の再試験を実施した。また、鉍物反応により発生した反応熱量から反応速度を評価する手法について検討するため、鉍物反応の熱量測定を実施した。

1) アンプル試験

温度条件80℃以下における鉍物反応について評価するため、硝酸塩処理・処分技術高度化開発(日本原子力研究開発機構, 2012)に準じた手法でアンプル試験を実施した。試験条件を表3.2.2-1のとおりとし、試験期間は300日とした。

表 3.2.2-1 アンプル試験条件一覧

Run No.	NO ₃ ⁻ 濃度 (mol/dm ³)	固液比 (kg/dm ³)	pH	温度 (°C)
1	4.0E-2	0.5	2	60
2	4.0E-2	0.5	4	50
3	4.0E-2	0.5	4	60
4	4.0E-2	0.5	4	70
5	4.0E-2	0.5	5	60
6	1.0E-2	0.5	4	60
7	1.0E-1	0.5	4	60
8	0	0.5	4	60
9	4.0E-2	0	4	60

①試験概要

試験に使用する溶液組成やアンプル作製手順は硝酸塩処理・処分技術高度化開発(日本原子力研究開発機構, 2012)と同様とした。試料にはスペイン・ナバフン産の黄鉄鉍を使用し、粒径0.032~0.063mmに粉碎・分級した。分級した黄鉄鉍は表面酸化膜及び不純物除去のため、高純度アルゴンガスグローブボックス(酸素濃度1ppm以下、窒素濃度100ppm以下)内にて0.01mol/dm³塩酸中で5分間超音波洗浄した後、イオン交換水で水洗した。その後、さらに上記グローブボックス内にてエタノール置換し粗乾燥した後、7日間静置して風乾することで表面吸着していた酸素と窒素を脱着・除去した。

一方でアンプル試験に用いる硝酸ナトリウム溶液を次のように調製した。まず、溶媒となる緩衝溶液を以下の通りに調製した。

pH2の緩衝溶液 : 0.01mol/dm³塩化カリウム溶液に塩酸を添加し、pHを2に調整

pH4及び5の緩衝溶液 : 0.04mol/dm³酢酸、リン酸、ホウ酸混合溶液に水酸化ナトリウムを添加し、pHを4又は5に調整

その後、表3.2.2-1に示す試験条件となるように秤量した硝酸ナトリウムを所定のpHの緩衝溶液に溶解させ、試験に用いる硝酸ナトリウム溶液とした。

調製した硝酸ナトリウム溶液と前処理した黄鉄鉱を表3.2.2-1に示す固液比となるようにアンプルに封入しアンプル試験体とした。アンプル試験体の作製は高純度アルゴンガスグローブボックス内にて行い、緩衝溶液を調製する際は脱酸素処理を施したイオン交換水を用いた。作製したアンプル試験体は所定の温度に保持された恒温槽内にて試験期間中静置し、試験期間経過後に恒温槽より取り出し、開封して気相及び液相中の以下の項目について分析を実施した。

気相：窒素濃度、亜酸化窒素濃度、アンモニア濃度

液相：pH、硝酸イオン濃度、亜硝酸イオン濃度、アンモニウムイオン濃度、硫酸イオン濃度、酢酸イオン濃度

②試験結果

アンプル試験後の気相分析の結果を表3.2.2-2、液相分析の結果を表3.2.2-3に示す。また、NEONにおける鉱物反応のモデル式を以下に示す。



表 3.2.2-2 アンプル試験気相分析結果

Run No.	試験条件				試験結果		
	NO ₃ ⁻ (mol/dm ³)	固液比 (kg/dm ³)	pH	温度 (°C)	発生量(mol)		
					N ₂	NH ₃	N ₂ O
1	4.0E-2	0.5	2	60	< 1E-7	2E-6	< 2E-6
2	4.0E-2	0.5	4	50	< 1E-7	1E-6	< 2E-6
3	4.0E-2	0.5	4	60	< 1E-7	3E-6	< 2E-6
4	4.0E-2	0.5	4	70	< 1E-7	< 5E-7	< 2E-6
5	4.0E-2	0.5	5	60	< 1E-7	5E-7	< 2E-6
6	1.0E-2	0.5	4	60	< 1E-7	2E-6	< 2E-6
7	1.0E-1	0.5	4	60	< 1E-7	< 5E-7	< 2E-6
8	0	0.5	4	60	< 1E-7	< 5E-7	< 2E-6
9	4.0E-2	0	4	60	< 1E-7	1E-6	< 2E-6

表 3.2.2-3 アンブル試験液相分析結果

Run No.	試験条件				試験結果					
	NO ₃ ⁻ (mol/dm ³)	固液比 (kg/dm ³)	pH	温度 (°C)	pH	濃度 (mol/dm ³)				
						NO ₃ ⁻	NO ₂ ⁻	NH ₄ ⁺	SO ₄ ²⁻	CH ₃ COO ⁻
1	4.0E-2	0.5	2	60	5.4	3.7E-2	< 2E-6	3.3E-3	2.9E-4	-
2	4.0E-2	0.5	4	50	4.7	3.9E-2	< 2E-6	2.3E-3	3.1E-4	4.1E-2
3	4.0E-2	0.5	4	60	4.8	3.9E-2	< 2E-6	2.0E-3	1.8E-4	4.0E-2
4	4.0E-2	0.5	4	70	4.8	3.8E-2	< 2E-6	3.3E-3	3.2E-4	4.0E-2
5	4.0E-2	0.5	5	60	5.8	3.9E-2	< 2E-6	2.3E-3	2.6E-4	4.2E-2
6	1.0E-2	0.5	4	60	4.7	8.0E-3	< 2E-6	2.0E-3	3.1E-4	4.2E-2
7	1.0E-1	0.5	4	60	4.7	1.0E-1	< 2E-6	2.9E-3	1.7E-4	4.2E-2
8	0	0.5	4	60	4.5	0	< 2E-6	4.0E-5	5.1E-4	4.1E-2
9	4.0E-2	0	4	60	4.1	4.0E-2	< 2E-6	< 1E-5	< 1E-5	4.1E-2

平成26年度のアンブル試験は試験期間を30日、60日、90日として実施し、その結果、反応生成物である液相中のアンモニウムイオン濃度が分析定量下限値未満であったものが複数あったため、反応速度式を評価することは困難であった。今回のアンブル試験では試験期間を300日としたことにより、鉱物反応の生成物であるアンモニウムイオンの濃度が有意な値として得られたため、速度式の評価が可能である。一方で式3.2.2-1より反応前の硝酸イオンと反応後の窒素及びアンモニウムイオンとの間には6:1または6:4の量論比があるが、本年度に実施した試験の結果からは窒素の発生が確認されなかった。ここでRun No. 1~5について式3.2.2-1の量論比を用いて本来発生する窒素量を算出したところ、 $2.06 \sim 3.34 \times 10^{-5}$ molの範囲であり、いずれも分析定量下限値より十分に大きく有意な値であった。これまでの試験結果では温度条件を80°C以上としたときに窒素の発生が確認され、本年度のように80°C以下の試験条件においては確認されていない。このことから傾向として、硝酸イオンから窒素へと変遷していく過程が80°C以下では起こらない、またはアンモニウムイオンへの変遷が優先的に起こることで窒素への変遷の速度が著しく小さいことが考えられる。また、硫酸イオンの値に着目するとRun No. 8及び9の結果から、試験後の溶液中の硫酸イオン濃度は硝酸イオンと黄鉄鉱との反応以外に黄鉄鉱の不純物に由来したものが混在しているものと考えられたため、硝酸イオンの還元反応量を裏付けるには至らなかった。硫酸イオンはこれまでの試験結果から、おおよそ $1.0 \sim 5.0 \times 10^{-4}$ mol/dm³程度の不純物由来のものが混在していると推測され、本年度試験においても同様に混在したものと考えられる。

以上のことから、硝酸イオン濃度とアンモニウムイオン濃度の推移に着目し、温度条件50°C~70°CにおけるNEONの鉱物反応速度式の適応性について確認することとした。

③NEONを用いた解析結果との比較

NEONを用いた解析は、PHREEQCにNEONを実装して実施した。熱力学データベースは日本原子力研究開発機構の熱力学データベースのうち、050700c0.tdb (Arthur et al., 2005)を用いた。酢酸の熱力学データに関しては、英国の熱力学データベースHATCHES (Heath et al., 2011)より追加した。なお、硝酸イオンの酸化還元反応は速度論的な計算を行うため、硝酸イオン及びその反応生成物(亜硝酸イオン、アンモニウムイオン等)は別途定義し、化学平衡計算スキームからは除いた。また、本条件ではNEONの金属反応及び微生物反応は起きないものとした。解析条件はアンプル試験結果との比較のため、液相中の硝酸ナトリウム初期濃度、固液比、液相pH、及び液相の温度を表3.2.2-1におけるRun No. 1~5の試験条件と同一とし、1time stepを1日として解析時間を365time stepまでと設定した。ここでRun No. 1~5の試験結果及び平成26年度に実施した試験期間30日、60日、90日の試験結果とNEONを用いた解析の結果を図3.2.2-2及び図3.2.2-3に示す。

図中の実線は解析結果、プロットは試験結果を示している。Run No. 1~5において硝酸イオン、アンモニウムイオンの各濃度はNEONを用いた解析結果と比較し、概ね整合的であった。平成26年度の結果では特にアンモニウムイオン濃度が分析定量下限程度もしくは定量下限値未満であったため50℃~70℃の温度条件下におけるNEONの適応性について評価できなかったが、今回の結果は有意な値であった。しかし、反応速度に着目すると参照できるデータ数が少なく、適応性を評価する上で十分であるとはいえない。そのため、反応速度式について正確な評価をするためには、試験期間をアンモニウムイオンが十分生成されると思われる200日以上に設定したアンプル試験を別途実施し、今回の結果と併せて検討する必要がある。

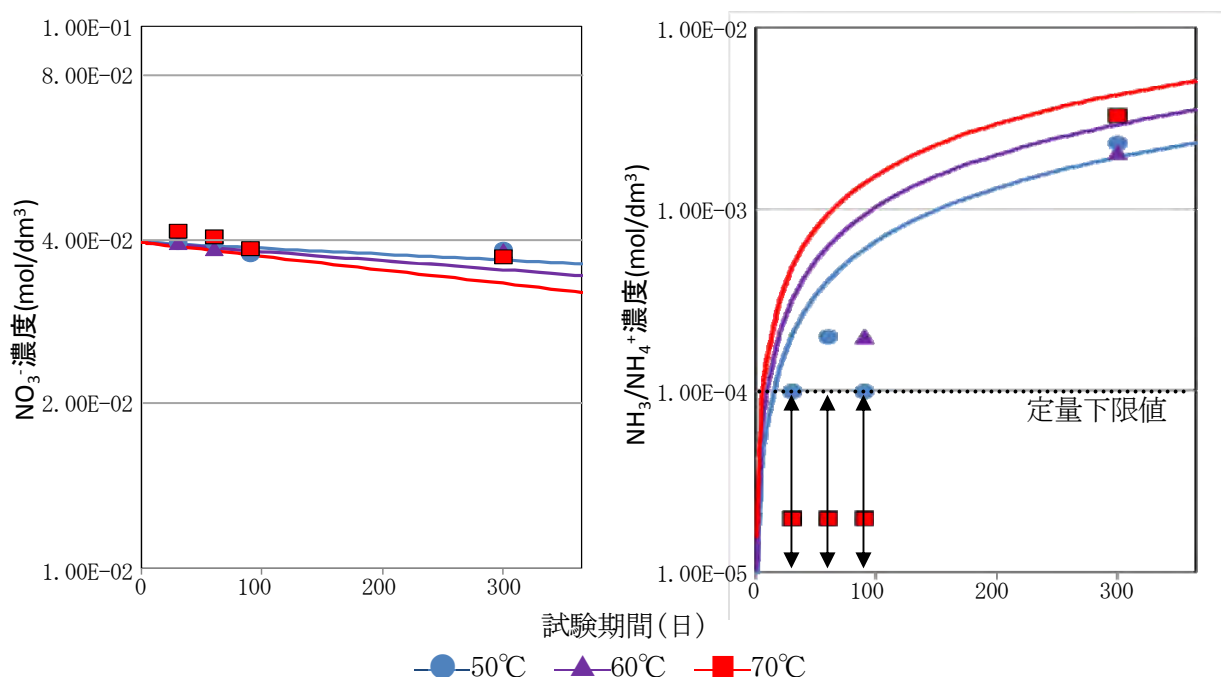


図3.2.2-2 アンプル試験結果とNEONを用いた解析の結果との比較 (pH=4)
(左:硝酸イオン濃度 右:アンモニウムイオン濃度)

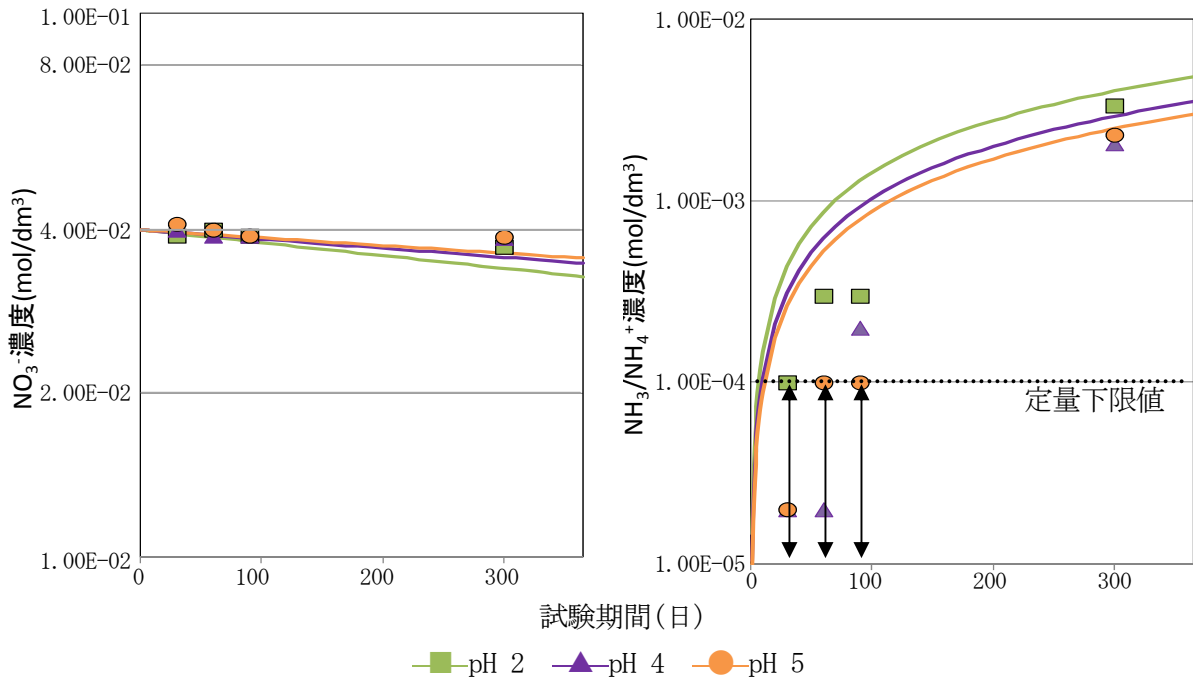


図3. 2. 2-3 アンプル試験結果とNEONを用いた解析の結果との比較(60°C)
(左：硝酸イオン濃度 右：アンモニウムイオン濃度)

2) カラム試験

地層処分環境を模擬したカラムにより硝酸イオンの移行・形態変化を実験的に確認するためにカラム試験を実施した。試験は平成27年度に実施した手順に準じて実施した。平成27年度に実施したカラム試験の結果(日本原子力研究開発機構, 2016)はNEONを用いた解析結果と一部合致しなかったことから、本年度のカラム試験は再度同じ試験条件で実施し、再現性を確認するとともに改めてNEONを用いた解析結果と比較した。

①カラム仕様

カラムの外観及び概要図を図3. 2. 2-4に示す。内径23mmφ、長さ150mmのカラムを連結することにより、合計長さ150、300mmの2水準のカラムを用意し、端部には長さ20mmのカラムエンドを取り付けた。カラムは内部をテフロンコートしたSUS316L配管を使用した。カラム及びカラムエンドの連結部はバイトンゴム製Oリング及びテフロンメッシュ(目開き0.2mm)を間に挟み、ブチルゴムテープを連結部の上から巻き、クランプにより固定した。Oリングとゴムテープによってガスや試験液のリークを防ぎ、テフロンメッシュにより黄鉄鉱の流出を防ぐ仕組みとした。

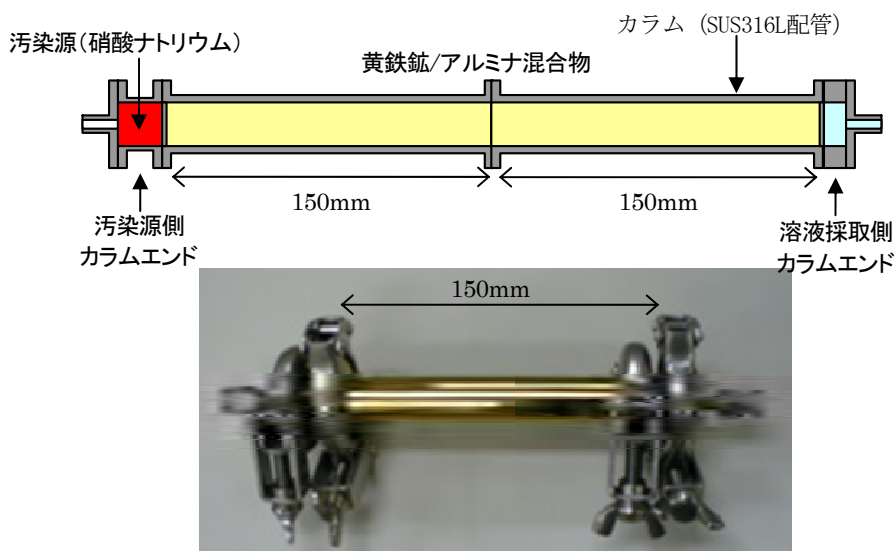


図3.2.2-4 カラムの概要図及び外観

②試験概要

本年度のカラム試験は平成27年度カラム試験の再現性を確認するため、平成27年度カラム試験と同様に低酸素雰囲気下（ O_2 濃度：1ppm未満）で実施した。試験条件を表3.2.2-4に示す。カラム長も同様に150mm及び300mmとし、試験期間も10日及び30日とした。充填物も平成27年度カラム試験と同条件とするため1MPaの油圧条件でカラムにプレス充填した（間隙率：34%程度）。充填後のカラムを雰囲気制御グローブボックス内で $0.01\text{mol}/\text{dm}^3$ 塩酸及びイオン交換水を通水することで黄鉄鉱（粒径：0.032～0.063mm、比表面積： $0.91\text{m}^2/\text{g}$ ）の酸化被膜等の不純物を除去した後、アンプル試験で用いたpH4の緩衝溶液を通液することでカラム内部を置換した。その後、一方のカラムエンドに汚染源としてpH4の緩衝溶液で湿潤させた硝酸ナトリウムを充填し、カラムと連結させて密閉した。この状態で所定の期間、雰囲気制御グローブボックス内でマントルヒータを用いて 80°C に維持した。所定の期間経過後、汚染源を充填していないカラムエンドより試験溶液を採取し、pH測定及び硝酸イオン、亜硝酸イオン、アンモニウムイオン、ナトリウムイオン、硫酸イオン、酢酸イオンの各濃度について分析した。pHについてはガラス電極を用いて測定し、液相中の各成分はイオンクロマトグラフを用いてその濃度を測定した。

表3.2.2-4 カラム試験条件

Run No.	試験条件			
	汚染源	カラム長(mm)	試験期間(日)	初期pH
1	NaNO_3	150	10	4
2	NaNO_3	150	30	4
3	NaNO_3	300	10	4
4	NaNO_3	300	30	4
5	なし	150	30	4
6	なし	300	30	4

③試験結果

カラム試験後の液相の分析結果を表3.2.2-5に示す。また、各分析結果を比較するため表3.2.2-6に平成27年度カラム試験結果(日本原子力研究開発機構, 2016)を示す。

両結果を比較したところ、概ね傾向が一致しており、再現性を確認できた。特に平成27年度試験結果においてNEONを用いた解析結果と乖離していたRun No. 3の試験結果に着目すると、硝酸イオン濃度及びアンモニウムイオン濃度の差が10倍を超えない程度であり、NEONを用いた解析結果との乖離の程度も再現していることから、平成27年度カラム試験結果とNEONを用いた解析結果との間に生じている乖離は偶発的に生じたものではないと推測できる。

表 3.2.2-5 カラム試験結果

Run No.	試験条件			液相分析結果						
	汚染源	カラム長 (mm)	試験期間 (日)	pH	濃度 (mol/dm ³)					
					Na ⁺	NO ₃ ⁻	NO ₂ ⁻	NH ₄ ⁺	SO ₄ ²⁻	CH ₃ COO ⁻
1	NaNO ₃	150	10	3.9	4.7E-2	1.1E-2	<2.0E-6	2.6E-4	4.7E-3	3.9E-2
2	NaNO ₃	150	30	4.1	8.7E-2	2.0E-2	<2.0E-6	4.6E-4	4.6E-3	3.8E-2
3	NaNO ₃	300	10	4.0	5.8E-2	6.0E-3	<2.0E-6	1.6E-4	4.7E-3	3.9E-2
4	NaNO ₃	300	30	4.1	6.7E-2	1.3E-2	<2.0E-6	3.0E-4	4.6E-3	3.9E-2
5	なし	150	30	4.0	5.3E-2	2.0E-5	<2.0E-6	4.0E-5	4.6E-3	3.9E-2
6	なし	300	30	4.0	6.1E-2	<2.0E-5	<2.0E-6	4.0E-5	4.6E-3	3.9E-2

表 3.2.2-6 平成27年度カラム試験結果

Run No.	試験条件			液相分析結果						
	汚染源	カラム長 (mm)	試験期間 (日)	pH	濃度 (mol/dm ³)					
					Na ⁺	NO ₃ ⁻	NO ₂ ⁻	NH ₄ ⁺	SO ₄ ²⁻	CH ₃ COO ⁻
1	NaNO ₃	150	10	4.1	1.0E-1	3.3E-2	<1.0E-6	5.0E-5	5.0E-5	4.1E-2
2	NaNO ₃	150	30	3.9	1.7E-1	1.9E-1	<1.0E-6	3.3E-3	7.1E-3	4.2E-2
3	NaNO ₃	300	10	4.0	9.0E-2	5.5E-3	<1.0E-6	3.0E-5	6.0E-5	4.4E-2
4	NaNO ₃	300	30	4.0	1.1E-1	7.2E-3	<1.0E-6	6.0E-5	5.0E-5	4.1E-2
5	なし	150	30	4.0	1.1E-1	<1.0E-6	<1.0E-6	<1.0E-5	2.0E-5	4.3E-2
6	なし	300	30	4.0	1.1E-1	<1.0E-6	<1.0E-6	<1.0E-5	4.0E-5	4.2E-2

③NEON を用いた解析結果との比較

NEONを用いた解析は、平成27年度カラム試験結果の評価と同様に、PHREEQCにNEONを実装して実施した。熱力学データベースは日本原子力研究開発機構の熱力学データベースのうち、050700c0.tdb(Arthur et al., 2005)を用いた。酢酸の熱力学データに関しては、英国の熱力学データベースHATCHES(Heath et al., 2011)より追加した。なお、硝酸イオンの酸化還元反応は速度論的な計算を行うため、硝酸イオン及びその反応生成物(亜硝酸イオン、アンモニウムイオン等)は別途定義し、化学平衡計算スキームからは除いた。また、本条件ではNEONの金属反応及び微生物反応は起きないものとした。解析はカラムの長さ方向を軸として1次元体系で行った。解析における1セルあたりの長さは10mmとし、カラムの前後にカラム端(長さ20mm)に対応したセルを設置した。物質移行については拡散支配とした。解析条件はカラム試験結果との比較のため、カラム長、解析時間、及び初期pHを表3.2.2-4におけるRun No. 1~4の試験条件と同一とした。2つのカラム端のうち一方に10gの硝酸ナトリウムを溶解した水溶液を設定し汚染源とした。実効拡散係数は既往の文献(佐藤ほか, 1992)を参考に、自由水中における水分子の拡散係数 $2.27 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ (25°C)の温度依存性を考慮して80°Cにおける値に補正するとともに間隙率を乗じて実効拡散係数とし、 $1.99 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ とした。本年度のカラム試験結果と平成27年度カラム試験結果及びNEONによる解析の結果をまとめて図3.2.2-5に示す。

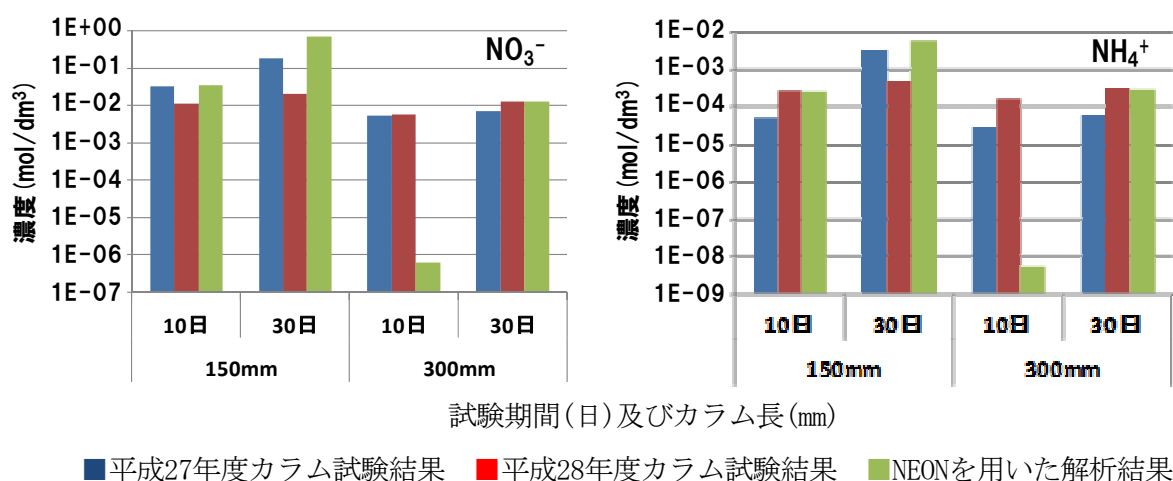


図3.2.2-5 カラム試験結果 (左：硝酸イオン濃度 右：アンモニウムイオン濃度)

平成27年度カラム試験ではRun No. 3の試験結果以外がNEONを用いた解析の結果と概ね一致していたため整合的と判断したが、Run No. 3の試験結果が本年度カラム試験によって再現性のあるデータであることが確認されたため、その原因の解明と改善が必要である。

まず、Run No. 3の試験結果を解析結果と比較すると硝酸イオン、アンモニウムイオンの各濃度がともに1000倍以上である。NEONを用いた解析結果は、鉱物反応の速度式を基とした化学的変遷と、拡散による物質移行との連成によって求められる。NEONの鉱物反応における速度式は80°C~120°Cの温度条件下による実測値から導かれたものであり、本試験の温度条件はこの範囲内であるため、前述のアンプル試験において若干の改良は必要であるとしているものの、カラム試験の結果に対し大きく影響を与えるものではない。また、硝酸イオンとアンモニウムイオンは反応式上、左辺と右辺の関係にあり、反応速度の変化に対してともに増加または減少するものではないため、前述の事象は速度式に由来したものではないと考えられる。従って要因は実効拡散係数の設定値にあると考えられる。

そこで、NEONを用いた解析結果について縦軸に反応時間、横軸に汚染源からの距離とした硝酸イオン濃度及びアンモニウムイオン濃度のコンター図を図3. 2. 2-6に示す。

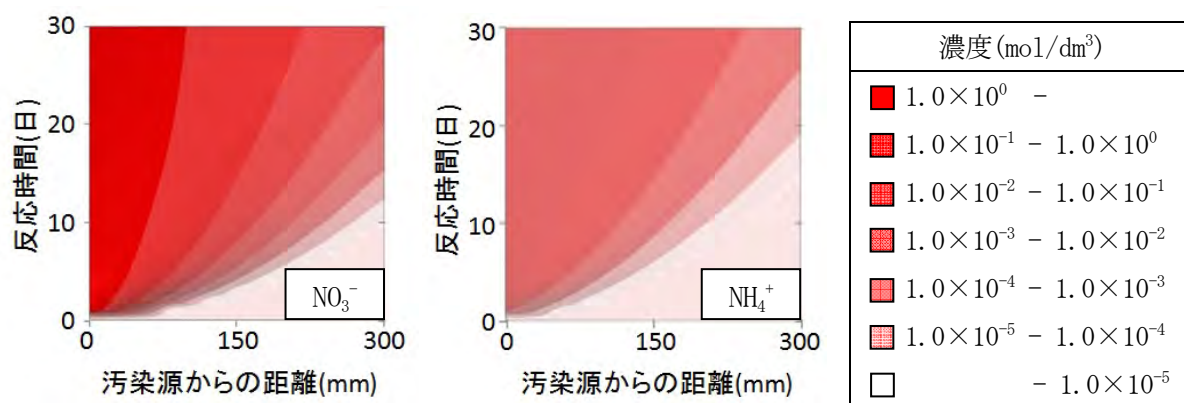


図3. 2. 2-6 NEONを用いた解析結果
(左：硝酸イオン濃度 右：アンモニウムイオン濃度)

図3. 2. 2-5に示したRun No. 3の結果から、反応時間として10日が経過した時点で最も汚染源から遠いカラム端（汚染源からの距離300mm）の硝酸イオン濃度が 1.0×10^{-3} mol/dm³ 以上となっており、同結果30日経過時点と比較して同等な値を示している。それに対し、図3. 2. 2-6に示されたNEONの解析結果では10日経過時点から30日経過時点にかけて硝酸イオンの濃度勾配による拡散が継続的に進んでいる。鉱物反応が起きることで硝酸イオン濃度が減少し、アンモニウムイオン濃度が増加するため、Run No. 3の結果から、鉱物反応の速度に関わらず硝酸イオンが汚染源から300mm離れたカラム端まで10日以内に 1.0×10^{-3} mol/dm³ 以上の濃度で拡散している必要があるため、実際のカラム試験における硝酸イオンの拡散速度がNEONを用いた解析における設定値よりも大きいことが考えられる。

3) 熱量測定

鉱物反応における反応速度の温度依存性を推定する手法として、微小熱量測定装置を用いて反応熱量を測定し、その結果から検討する方法がある。そこで、平成27年度に微小熱量測定装置を用いて熱量測定を実施したところ、継続的な熱の変化を確認したことから鉱物反応によって生じた反応熱を測定できたと考えられた。このことから本年度では、微小熱量測定装置を用いた熱量測定の結果から反応速度を評価する手法について検討した。

①測定概要

熱量測定にはTAインスツルメント社製マルチチャンネル微小熱量測定装置(製品名 TAM IV)を用いた。測定試料は高純度アルゴンガスグローブボックス内にて表3. 2. 2-7のような試験条件で調製し密栓した。熱量測定はそれぞれの試料に対し、測定用アンプルの耐圧の制限から50℃、及び60℃の温度条件下にて7日間実施し、熱流量及び積算熱量の経時変化を測定した。測定後の試料のうち、表3. 2. 2-7におけるRun No. 1と5は固液分離させた後、液相中の硝酸イオン、亜硝酸イオン、硫酸イオン、及びアンモニウムイオンの各濃度を分析した。

表 3. 2. 2-7 熱量測定試験条件

Run No.	温度条件(°C)	固相	液相	液相分析
1	50	黄鉄鉱 1.0g	0.1mol/dm ³ NaNO ₃ 2cm ³	実施
2	50	黄鉄鉱 1.0g	純水 2cm ³	-
3	50	-	0.1mol/dm ³ NaNO ₃ 2cm ³	-
4	50	-	純水 2cm ³	-
5	60	黄鉄鉱 1.0g	0.1mol/dm ³ NaNO ₃ 2cm ³	実施
6	60	黄鉄鉱 1.0g	純水 2cm ³	-
7	60	-	0.1mol/dm ³ NaNO ₃ 2cm ³	-
8	60	-	純水 2cm ³	-

②測定結果

50°C及び60°Cの定温条件下における熱量測定の結果を図3. 2. 2-7及び図3. 2. 2-8に示す。

この系内において測定された熱量には主に①水の蒸発熱、②黄鉄鉱の水への溶解熱、③硝酸イオンの還元反応熱の3つが存在していると思われる。従って、③である硝酸イオンの還元反応熱を評価するためには①及び②の熱量を減算する必要がある。そこで、上記結果から③である硝酸イオンの還元反応熱を算出し、図3. 2. 2-9にまとめた。

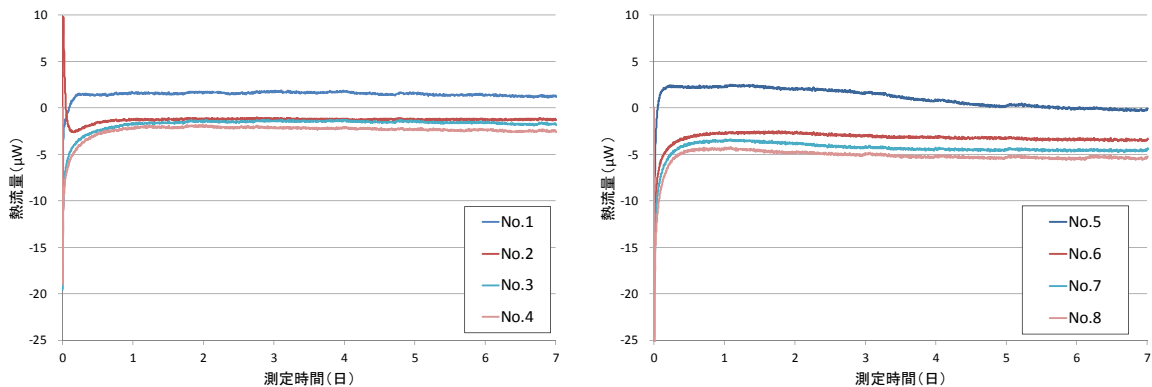


図3. 2. 2-7 鉱物反応における熱流量測定結果 (左: 50°C 右: 60°C)

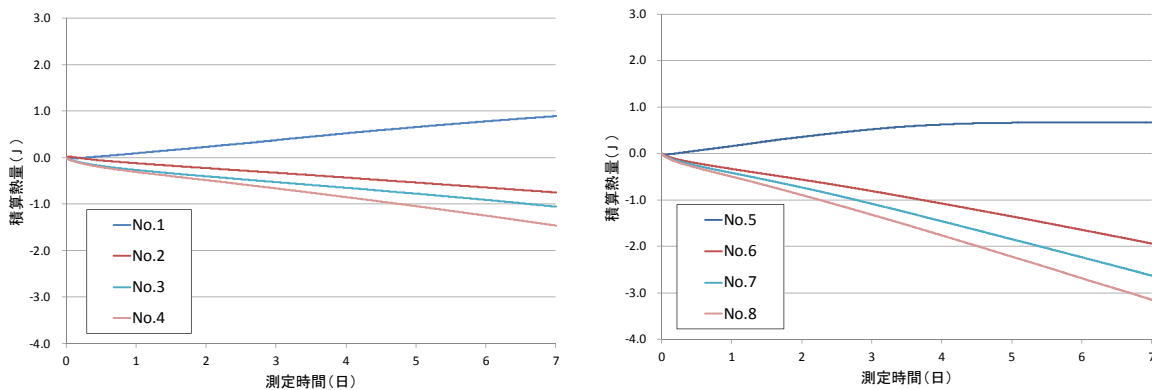


図3. 2. 2-8 鉱物反応における積算熱量測定結果 (左: 50°C 右: 60°C)

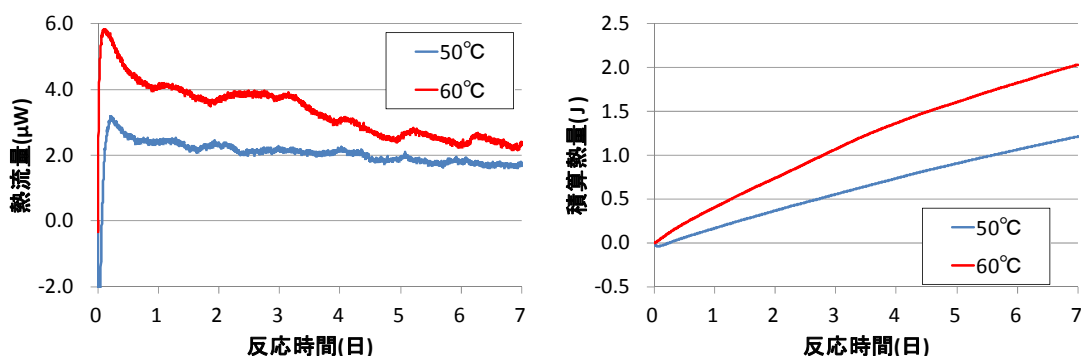


図3.2.2-9 硝酸イオン還元反応熱量推移 (左:熱流量 右:積算熱量)

この熱量が反応時間の経過とともに継続的に起きていることから硝酸イオンの還元反応によるものであると推測される。また、反応時間及び温度条件と積算熱量との間に相関性が確認された。ここで、この相関性が系内における反応量に由来するものであるか確認することとした。

③定量分析結果

Run No. 1及び5について実施した液相分析の結果を表3.2.2-8に示す。両条件において反応生成物であるアンモニウムイオンが有意値として確認された。そこで反応時間経過後のアンモニウムイオン濃度を基に硝酸イオンの還元反応量を算出し、前述の硝酸イオン還元反応熱量との関係について確認した。結果を図3.2.2-10に示す。

表 3.2.2-8 液相分析結果

Run No.	NO ₃ ⁻ 濃度 (mol/dm ³)	NO ₂ ⁻ 濃度 (mol/dm ³)	NH ₄ ⁺ 濃度 (mol/dm ³)	SO ₄ ²⁻ 濃度 (mol/dm ³)
1	9.52E-02	< 2.0E-06	7.78E-04	5.52E-03
5	9.35E-02	< 2.0E-06	1.44E-03	6.35E-03

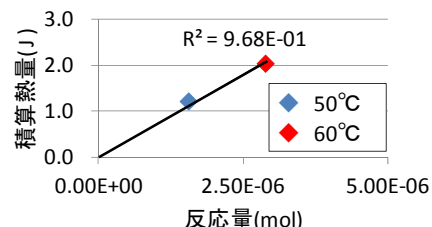


図3.2.2-10 熱量と反応量の関係

Run No. 1及び5における反応時間7日後の熱量と反応量の関係を図3.2.2-10に示す。反応量は表3.2.2-8に示した液相分析の結果より算出した。その際、定量分析の結果から硝酸イオンの反応量が初期濃度と比較して十分に小さいため分析の誤差による影響を考慮し、試験後の硝酸イオン濃度はアンモニウムイオンの定量分析結果を硝酸イオンの初期濃度から差し引いた値を用いた。その結果、測定点数が少ないため断定はできないものの、熱量と反応量との間に比例的な相関が確認できた。ここでRun No. 1及び5において単位反応量当たりの熱量を算出したところRun No. 1では781kJ/mol、Run No. 5では705kJ/molであり近い値を示した。以上より、測定点数を増やすことで実験的に反応熱(J/mol)を求める見通しが得られた。今後、反応熱を求めることができた場合、熱量測定により反応量を評価することが可能となることから、アンプル試験等において液相の定量分析結果が定量下限値未満となりNEONの適応性について適切な評価ができなかった一部の試験条件において、適切に評価できる可能性がある。さらに、高温条件における水溶液試料の熱量測定が実施できるように耐圧性の高い熱量測定

アンブルを導入した。

④反応速度評価

硝酸イオンと黄鉄鉱の反応はこれまでの研究により一次反応と仮定した上でアレニウス型の温度依存性で整理できると考えられている（日本原子力研究開発機構，2012）。そこで前述の測定結果についても同様に一次反応であると仮定し、反応速度定数について以下の式3. 2. 2-2によって算出した。また、既存のNEONにおける鉱物反応の速度式である式3. 2. 2-3からモデル式上の反応速度定数を算出し、これらと比較した。

$$\frac{d[NO_3^-]}{dt} = -k[NO_3^-] \quad \text{式3. 2. 2-2}$$

$$\frac{d[NO_3^-]}{dt} = 2.69 \times 10^{-2} \times W \times [H^+]^{0.073} \times \exp\left(\frac{-39400}{R \cdot T}\right) \times [NO_3^-] \quad \text{式3. 2. 2-3}$$

W：固液比 (kg/dm³)

R：気体定数 (8. 314J/K/mol)

T：絶対温度 (K)

まず、Run No. 1及び5における反応速度定数について、それぞれ k_{50} 及び k_{60} とし、式3. 2. 2-2より求めた。その際、定量分析の結果から硝酸イオンの反応量が初期濃度と比較して十分に小さいため分析の誤差による影響を考慮し、試験後の硝酸イオン濃度はアンモニウムイオンの定量分析結果を硝酸イオンの初期濃度から差し引いた値を用いた。その結果を以下に示す。

$$k_{50} = 1.29 \times 10^{-8}$$

$$k_{60} = 2.41 \times 10^{-8}$$

ここで k_{50}/k_{60} を求めると以下のようなになる。

$$k_{50}/k_{60} = 0.537 \quad \text{式3. 2. 2-4}$$

一方、式3. 2. 2-3から k_{50}/k_{60} を求めると、Run No. 1及び5において固液比とpHが同じ値であるため、

$$\begin{aligned} k_{50}/k_{60} &= \exp\left(\frac{-39400}{8.314 \times 323}\right) / \exp\left(\frac{-39400}{8.314 \times 333}\right) \\ &= 0.644 \quad \text{式3. 2. 2-5} \end{aligned}$$

となり、式3. 2. 2-4とは異なる値が得られた。また、式3. 2. 2-4の k_{50}/k_{60} の値と等しくなるように、式3. 2. 2-3の活性化エネルギーを求めたところ、-55, 658J/molとなり、元の値 (-39, 400J/mol) とは異なる値が得られたことから、50~60°Cの温度条件下における温度依存性についてモデル式の再検討が必要となる可能性がある。

(3) ナチュラルアナログ事例の活用

ここまで NEON の信頼性向上のためにアンブル試験等を実施してきた。その結果、短期間における NEON の信頼性について一定の評価ができた。しかし、地層処分を検討する上で必要となるのは室内実験の可能な時間や空間のスケールを超える評価技術である。従って長期的かつ大域的な硝酸塩の移行・化学的変遷挙動に対する NEON の信頼性向上を図る必要があり、そのためにはナチュラルアナログ事例を活用しフィールドデータを再現することが有効である。

1) 広島県生口島事例

硝酸イオンの変遷に関するナチュラルアナログ事例として、農業用肥料や硝酸含有廃液による地下水汚染が考えられる (Appelo and Postma, 2005 ; Nützmann et al., 2005 ; Stumm and Morgan, 1996)。平成 26 年度は広島県生口島における地下水硝酸性窒素汚染事例について (日本原子力研究開発機構, 2015)、平成 27 年度はカナダのオンタリオ州にある Boyne 川近傍の硝酸性窒素汚染事例について (日本原子力研究開発機構, 2016) NEON を用いた解析を実施し、現地の硝酸性窒素分布を概ね再現することができたが、ナチュラルアナログ事例には解析に必要なパラメータのうち一部が報告されていないものもあり、その際は解析をする上で推定値を用いて実施した。平成 26 年度に解析を実施した生口島の事例は当時の調査結果に間隙率、溶存酸素濃度、溶存有機物濃度等の実測データがなく、推定値を用いて解析を実施したが、その後、それらが調査・報告された。そこで本年度はこの生口島の事例に対し最新の实測データを基に NEON を用いた再現解析を再度試み、NEON の信頼性の詳細な評価を行うとともに、そのパラメータが解析の信頼性に及ぼす影響について考察した。

表 3.2.2-9 過去に実施したナチュラルアナログ事例解析における各パラメータ調査結果の有無

事例 (解析実施年度)	日本 生口島 (平成 26 年度)	カナダ Boyne 川 (平成 27 年度)	日本 生口島 (平成 28 年度)
透水係数	○	○	○
水頭分布	○	○	○
間隙率	×	×	×
硝酸イオン濃度	○	○	○
溶存有機物濃度	×	○	○*
溶存酸素濃度	×	○	○*

※平成 26 年調査結果により追加された項目

① 広島県生口島の事例の概要

再現解析を実施した生口島の調査地域を図 3.2.2-11 に示す。生口島は広島県尾道市瀬戸田町にある瀬戸内海上の、総面積 32.7km²、最高標高 472.3m の花崗岩を基盤としている島である。果樹園面積が島の 40% を占め、施肥に伴う河川水及び地下水の硝酸性窒素濃度の上昇が報告されている (齋藤ほか, 2005)。この生口島の南西部に位置する宮原地区における下流側地下水の硝酸性窒素濃度の減衰が確認されている。この硝酸性窒素濃度の減衰は施肥による窒素負荷量の変動や、海水や降雨水による希釈からは説明が困難であることや、地下水の各成分の変動の具合から微生物活動による硝酸還元・脱窒反応が生じていることが示唆されている (齋藤ほか, 2005, 2009)。このことから生口島の事例と、NEON

の微生物反応を用いた解析値を比較することが可能であると考え、平成 26 年度に NEON を用いた解析を実施し、解析値と実測値である齋藤らの調査結果を比較した。

しかし、当初の調査結果において地下水中の溶存酸素濃度や溶存有機物量が明確になっていなかったため、微生物による還元反応が起こる領域の設定、及び地下水中の溶存有機物量について仮設定の上実施した。その後、図 3.2.2-12 に示すような、大西らによる同地域の調査結果(大西ほか, 2014)により地下水中の溶存酸素濃度分布及び溶存有機物分布等が明確になったため、本年度の解析ではそれらの情報を加え、より詳細な解析を実施した。

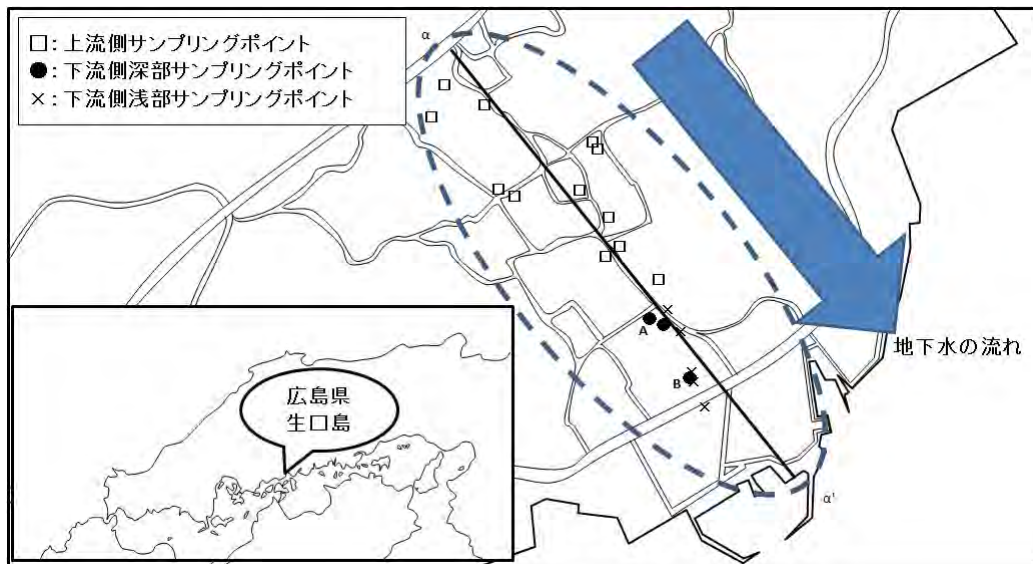


図 3.2.2-11 生口島調査地域(大西らによる文献(大西ほか, 2014)を基に作図)

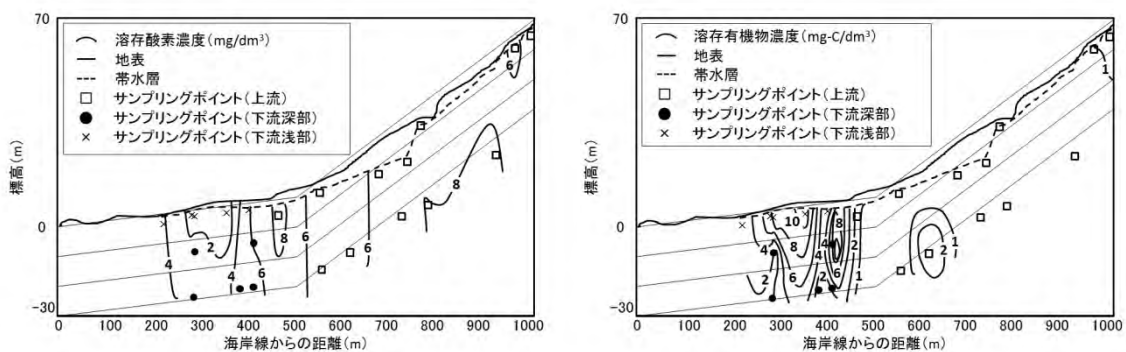


図 3.2.2-12 調査地域における溶存酸素濃度分布(左)と溶存有機物分布(右)
(大西らの調査結果(大西ほか, 2014)を基に作図)

②NEON を用いた解析

本年度の解析は平成 26 年度に実施した解析と同様に化学平衡-物質移行計算コードである PHAST に NEON を実装したものをを用いた。また、熱力学データベースは日本原子力研究開発機構の熱力学データベースのうち、050700c0.tdb を用いた。なお、解析では硝酸イオンの酸化還元反応における速度論的な計算を行うため、硝酸イオン及びその反応生成物(亜硝酸イオン、アンモニウムイオン等)は別途定義し、化学平衡計算スキームからは除いた。また、本条件では NEON の金属反応及び鉱物反応は起きないものとした。

解析体系及び解析条件を表 3.2.2-10 及び図 3.2.2-13 に示す。地質構造、透水係数、動水勾配、各境界条件は文献(齋藤ほか, 2009;大西ほか, 2014)を参考に設定した。地層中の鉍物に関しては、硝酸塩処理・処分技術高度化開発(日本原子力研究開発機構, 2012, 2013a)を参考に、花崗岩系の媒体を想定した。間隙率は花崗岩の風化に関する文献(土質工学会編, 1979; 楠田ほか, 1992)を参考に設定した。微生物の量に関しては、硝酸塩処理・処分技術高度化開発(日本原子力研究開発機構, 2011)を参考に、Äspö 地下研究所で確認された地下水中の微生物量を初期濃度として設定した。浸透する降雨水の成分に関しては、住宅地が多く植物被覆割合が少ない海岸線から 300m までの領域(以下、下流側)と、果樹園が多く存在している 300~1,000m の領域(以下、上流側)に分けて整理し、下流側は pH7 の純水、上流側は地表面で発生する動植物の死骸や堆肥等を考慮し、有機物及び硝酸ナトリウムが溶解した pH7 の水溶液を想定した。

一方で大西らの調査により解析領域の溶存酸素濃度分布が報告されている(大西ほか, 2014)。Hill によると溶存酸素濃度が 2~3 mg/dm³ 以下の条件で、微生物活動により硝酸性窒素濃度が減衰するとされている(Hill et al., 2000)。そこで本年度の解析では、大西らの調査結果を参考に溶存酸素濃度が 2.5 mg/dm³ 以下の地点において微生物による反応が起きるように NEON の微生物反応モデルを設定した。このことから、海岸線から 500m より遠方の領域は微生物反応による影響が十分小さいと考えられたため、解析時間経過後に上流側における硝酸ナトリウム濃度が大西らの調査結果と合うように上流側降雨水中硝酸ナトリウム濃度を調整した。

上流側降雨水中有機物濃度は文献(渡辺ほか, 2009)を参考に設定したが、降雨水中有機物の設定だけでは大西らによる調査結果を満足することができなかつたため、海岸線から 275~425m の領域に固相有機物を設定し、一定の割合で地下水へ溶出するように設定することで総合的な有機物分布が大西らの調査結果に近くなるように調整した。

この解析領域では齋藤らや大西らによるこれまでの調査結果から、硝酸性窒素濃度は季節変動があるものの、経過年数による変動は確認できないとされており、硝酸プルームがほぼ定常的に同一の濃度分布を示しているものと推定できる。そのため解析時間は、解析結果における硝酸分布がほぼ一定となる時間として 20 年に設定した。時間ステップはクーラン数(1time step に水が進む距離 ÷ セルサイズ)を指標とし、1 より十分小さくなるよう設定した。

表 3.2.2-10 生口島事例を対象とした硝酸塩変遷挙動解析の条件

設定項目	設定値	参照元
解析領域	1,000m × 100m	
メッシュ	25m × 2.5m	
分散長	横 100m(解析領域の0.1倍) 深さ 10m(縦分散長の0.1倍)	
標高勾配	海岸線からの距離 勾配	
下流側	0 ~ 500m 2m/100m	齋藤ほか, 2009
上流側	500 ~ 1,000m 12m/100m	
地質	岩石(カルセドニ)	
透水係数	層の種類 層の位置 透水係数(m/s)	
	表面~深度10m 砂礫層(S層) 1.7×10^{-5}	齋藤ほか, 2009
	深度10~20m 風化土層(I層) 6.6×10^{-5}	
	深度20~30m 風化軟岩層(D層) 7.5×10^{-6}	
	深度30m以深 基盤岩盤 透水なし	
間隙率	層の種類 間隙率	
	砂礫層(S層) 0.40	土質工学会, 1979
	風化土層(I層) 0.40	楠田ほか, 1992
	風化軟岩層(D層) 0.10	
動水勾配	海岸線からの距離 勾配	
	0 ~ 300m 0.017	
	300 ~ 500m 0.025	
	500 ~ 700m 0.050	大西ほか, 2014
	700 ~ 1,000m 0.133	
境界条件	海岸線からの距離 条件	
地表側	0 ~ 300m 降雨水が 330mm/y の速度で浸透	
	300 ~ 1,000m 硝酸塩汚染水が 330mm/y の速度で浸透	
地中側	全域 反射境界	
山側	1,000m 地下水流入	
海岸線側	0m 地下水流出	
微生物	微生物初期濃度 $1.0 \times 10^{-4}\text{mol-C/dm}^3$	
降雨水組成	海岸線からの距離 NO_3^- 濃度(mol/dm ³) 溶存有機物濃度(mol/dm ³)	
	海岸線~300m 0 0	
	300~1,000m 3.3×10^{-3} 2.5×10^{-3}	
地下水組成	山側流入地下水 0 0	
地中有機物	海岸線からの距離 深さ 有機物濃度	
	300~350m 0~5m $1.00 \times 10^{-3}\text{mol/dm}^3$ になるように有機物を供給	
	400~425m 5~20m $0.83 \times 10^{-3}\text{mol/dm}^3$ になるように有機物を供給	
	275~300m 0~5m $0.33 \times 10^{-3}\text{mol/dm}^3$ になるように有機物を供給	
	300~350m 5~15m $0.33 \times 10^{-3}\text{mol/dm}^3$ になるように有機物を供給	
時間ステップ	2.5×10^{-4} 年	
解析時間	20年	

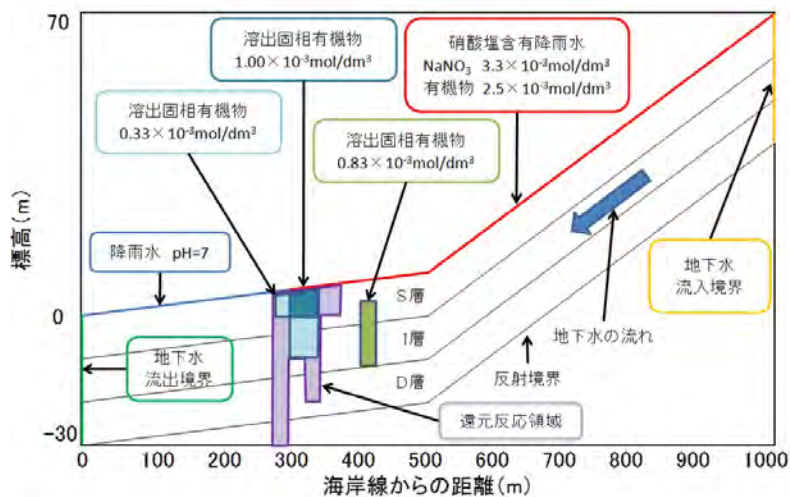


図 3.2.2-13 解析体系模式図

③解析結果と現地調査結果との比較

硝酸イオン濃度について大西らの調査結果及びNEONを用いた解析結果を図3.2.2-14に示す。大西らは海岸線から200m以上離れた領域において調査を実施していることから、同領域において解析結果と調査結果とを比較した。

まず、海岸線から450～550mの領域における硝酸イオン濃度に若干の差が見られた。この領域は微生物による硝酸イオンの還元反応領域よりも上流側に位置していることから還元反応による影響は小さいと考えられるため、この硝酸イオン濃度の差は上流側における細かい地質条件や水理条件を設定しきれなかったことによるものであると思われる。一方で上記領域以外に関しては、概ね再現できていると思われる。特に海岸線から300～400m、深度10m以浅の領域において還元反応が起きていると想定される領域があり、硝酸イオン濃度分布を概ね再現できている。海岸線から300～400m、深度10m以浅の領域は溶存有機物が豊富であり、かつ溶存酸素濃度が $4\text{mg}/\text{dm}^3$ 以下と低く嫌気性条件となっていることから、微生物による硝酸イオンの還元反応が起これ、このような分布になったと推測される。この推測は調査を行った大西らの考察とも一致し、その再現性から設定した微生物反応のモデル式が適切であると考えられる。

次に微生物が硝酸イオンを還元した際に発生するアンモニウムイオンの濃度分布について確認した。大西らの調査結果及びNEONを用いた解析結果を図3.2.2-15に示す。

大西らの調査結果によると、海岸線から300m付近において $1\sim 2\text{mg-N}/\text{dm}^3$ 程度のアンモニウムイオンが確認されている。一方NEONを用いた解析では、大西らの調査結果に比べ濃度・範囲ともに若干小さくはあるものの、アンモニウムイオン濃度分布をある程度再現できた。解析結果におけるアンモニウムイオン濃度は大西らの調査結果を基に設定した上流側の硝酸イオン濃度等の解析条件から算出されており、その結果である濃度分布が大西らの調査結果と概ね一致したことから、その計算過程で用いたモデル式が適切であったことを示している。

以上の硝酸イオン濃度分布及びアンモニウムイオン濃度分布の双方の結果から、間隙率などのパラメータに仮の設定があるものの、より詳細に解析体系を設定したこと、及び溶存酸素濃度分布から適切な微生物反応領域を設定したことにより、生口島の硝酸還元状態がNEONにより精度良く再現された。よって、生口島の事例はNEONの微生物反応について妥当性を示す根拠の1つとして利用可能であり、硝酸イオンの化学的変遷挙動について長期的な評価が可能であると考えられる。

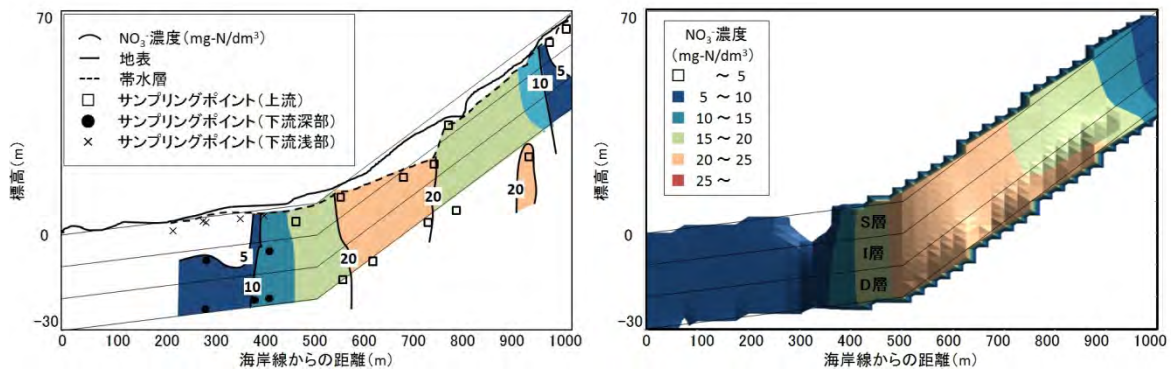


図 3.2.2-14 硝酸イオン濃度分布比較

(左：大西らの調査結果(大西ほか, 2014)を基に作図 右：NEON を用いた解析の結果)

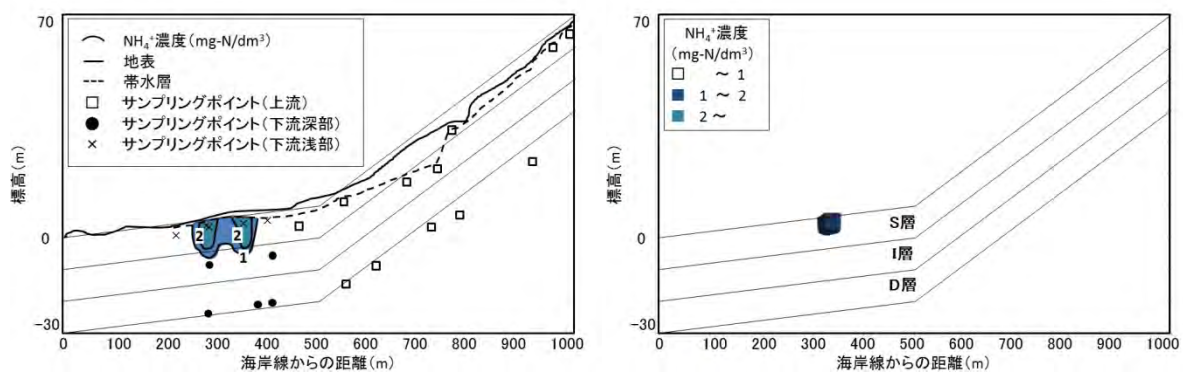


図 3.2.2-15 アンモニウムイオン濃度分布比較

(左：大西らの調査結果(大西ほか, 2014)を基に作図 右：NEON を用いた解析の結果)

2) ナチュラルアナログ事例解析結果のまとめ

平成 26 年度は生口島の事例、平成 27 年度は Boyne 川近傍の事例、本年度は再び生口島の事例について再現解析を実施した。2 件とも NEON を用いた解析により概ね再現できた。平成 26 年度に実施した生口島の事例が溶存酸素濃度及び溶存有機物濃度の分布が明確ではなく詳細な解析ができなかったのに対し、本年度は詳細な解析を実施し、再現性の高い結果が得られた。boyne 川の事例は生口島の事例に比べ対象領域における地下水の動水勾配が小さく、地表の傾斜も緩やかであり地層条件も複雑であったが本年度に実施した生口島の事例と同様に再現性の高い結果が得られた。boyne 川の事例は表 3.2.2-9 に示したように解析に必要となるパラメータの多くが調査されており詳細な解析が可能であったことが要因であると思われる、本年度に実施した生口島の事例とともに詳細な解析により再現性の高い結果が得られたことは NEON が解析の手法として妥当であることを示している。これら 2 件の事例及びモデル開発の経緯から、微生物活動による硝酸イオンの化学的変遷挙動について NEON を用いて検討するにあたり、特に重要な情報は表 3.2.2-11 のとおりであると考えられ、水平方向として 1km 程度、深さ方向として 30m 程度の規模における数十年以内の評価には十分精度が良く、処分場周辺の環境に対して硝酸塩が与える影響を評価するツールの一つとして期待できる。

表 3.2.2-11 解析に重要な情報 (○：重要 △：あると望ましい)

地質・水理情報	重要性
地層構造	○
地層組成	△
間隙率	△
透水係数	○
水頭分布	○
涵養、湧水地点情報	△
汚染期間	○

地下水中の各化学種濃度	重要性
硝酸イオン濃度	○
亜硝酸イオン濃度	△
アンモニウムイオン濃度	△
溶存酸素濃度	○
溶存有機物濃度	○
固相有機物濃度	△
硝酸還元に関する微生物数	△
炭酸イオン濃度	△
その他元素組成	△

3.2.3 廃棄物由来の影響因子のバリア候補材料への影響評価

地層処分システムでは、ベントナイトを用いた人工バリア材料に地下水移動抑制や応力緩衝等の機能が期待される。これは、ベントナイトが低透水性・膨潤性等を有するためであるが、このような特性は、ベントナイトが主に膨潤性粘土鉱物であるスメクタイトによって構成されていることによる。一方、これまでに述べたように、廃棄物から溶出した硝酸イオンは、地下深部の処分環境においてアンモニアやアンモニウムイオンに変化すると考えられる。アンモニウムイオンは、スメクタイトに吸着する性質があるが、吸着に伴うスメクタイトの特性や長期安定性への影響については不明な点が多く、これを明らかにする必要がある。本項では、ベントナイトを用いた人工バリア材料への硝酸イオン変遷物質の影響評価として、スメクタイトの特性や長期安定性に及ぼすアンモニウムイオンの影響について調査を行った。

(1)アンモニウムイオンによるスメクタイトの鉱物学的変化に関する検討

1) 実験的検討によるアンモニウム型スメクタイトの特性評価

平成25年度に実施した文献調査により、アンモニウムイオンが吸着したアンモニウム型スメクタイトは、湿潤乾燥処理(WD処理)条件や高温高压条件では、アンモニウムイオンの固定、脱水、混合層(アンモニウム-イライト成分)の生成、及び非膨張性鉱物(アンモニウム雲母)への変質等の可能性が示されている(Cicel and Machajdik, 1991; Sucha and Siranova, 1991; Miklos and Cicel, 1993; 大原ほか, 2003)。そこで、スメクタイトの非膨張性粘土鉱物への変化を念頭に、WD処理によるアンモニウム型スメクタイトの底面間隔変化を相対湿度制御下XRDにより測定し、層間アンモニウムイオンの固定及び混合層生成の生起可能性を調べた。なお、アンモニウム型と同じく、イオンの固定、混合層生成、非膨潤性鉱物への変質の可能性のあるカリウム型のスメクタイト試料についても、同様の実験に供してアンモニウム型との比較を行った。また本年度は、原子間力顕微鏡(AFM)を用いた底面間隔の評価も併せて行った。

① 実験方法

1. 平成26年度と同じ手順(日本原子力研究開発機構, 2015)で調製したアンモニウム型スメクタイト試料およびカリウム型スメクタイト試料の定方位試料を使用した。定方位試料の作製では、粉体状の試料10mgを、200mlの脱イオン水中に懸濁させ、20分間超音波分散を行った後、スライドガラス上に1.8×2.8cmとなるように均一に塗布して室温で24時間乾燥させた。
2. それぞれの定方位試料を、60°Cの恒温槽の中で12時間以上乾燥させた。
3. 乾燥させた定方位試料を、少量の蒸留水を入れた蓋付きプラスチック容器内に入れて60°Cの恒温槽の中で12時間以上静置し、飽和水蒸気中で浸潤させた。
4. 2, 3の手順を1回のWDサイクルとし、規定の回数まで繰り返した。規定の回数に達した後、容器から取り出してXRD分析を行った。XRD測定は、Cu管球を用い、相対湿度80%とした相対湿度制御下で行った。XRD測定条件は、管電圧30 kV、管電流20 mA、走査速度1°/min、DSスリット1/2°、

SSスリット $1/2^\circ$ 、RSスリット0.15 mmとした。

5. 規定回数が70回（以下、「70WD」のように表現する）に達した際に、アンモニウム型及びカリウム型の定方位試料の一部を採取し、AFMを用いて観察した。
6. 定方位試料から、AFM観察に用いる試料を微量採取し、20 mlの0.02%ピロリン酸ナトリウム水溶液を加えて調製した懸濁液をよく混合するように50rpmで24時間振とうさせた。
7. 振とう後、さらに30分間超音波分散を行った。
8. 懸濁液をスライドガラスに貼りつけた雲母板の上に滴下し、室温で自然乾燥させた。このとき、懸濁液を滴下する前に雲母板の表層1枚を、テープを用いて剥がしておくことで、雲母板の表面の汚れを取り除いた。

② 結果と考察

WDサイクル処理後のアンモニウム型、カリウム型スメクタイトのXRD回折パターンを、それぞれ図3.2.3-1、図3.2.3-2に示す。1~20WDの範囲において、カリウム型試料では、WD処理の回数に伴いわずかではあるが(001)回折ピークが高角側へシフトしていることが確認された。これは、相対湿度80%下のカリウム型試料では、初期には1水分子層の状態が支配的であるものの、WD処理によって層間に水分子層を含まない非膨潤層の割合が増加するために底面間隔が小さくなったためと考えられる。一方、アンモニウム型試料でもカリウム型と同様の傾向が見られるものの、その程度はより小さなものであることが底面間隔値の変化を比較することにより確認できた。

カリウム型スメクタイトはWDサイクルが60回を超えると、回折パターンの傾向に大きな変化が認められた。001反射ピークが低角度側にシフトしており、水分子層が一層以上の構成層の形成が示唆される。80WD処理後のアンモニウム型では、相対湿度0%から80%までの条件で回折パターンを別途確認したところ、ナトリウム型とアンモニウム型が混合したような面間隔変化をたどっているように考えられた。今回定方位試料を作成するのに使用したスライドガラスは一般的なソーダガラスであり、このガラスに含まれるナトリウムイオンの影響を受けている可能性がある。例えば、廃棄物ガラスを 100°C 以下の水蒸気に曝露した試験 (Chaou et al., 2015; Bouakkaz et al., 2015) において、ガラス表面の変質と変質層からのアルカリ成分の浸出が報告されており、このような知見を踏まえると、今回用いたスライドガラスについても、WDサイクル中の水蒸気への曝露による変質に伴ってナトリウムイオンがガラス表面に浸出し、スメクタイト層間のアンモニウムイオンがこのナトリウムイオンに交換されたと考えることができる。また、別途検討した相対湿度0%における80WD試料の底面間隔が、通常アンモニウム型の底面間隔よりも大きな値をとっていることから、当初より存在するアンモニウムイオンとナトリウムイオンが混在している状況で生じた結果と推察している。

先行研究のEberl et al. (1986)やSucha and Siranova (1991)では、WDサイクルの増加に伴い、カリウム、アンモニウム型試料ともにイライト/スメクタイト混合層を形成し、イライト層の増加が確認

されている。他にもMiklos and Cicek (1993)において、WDサイクル処理によりスメクタイトの膨潤が抑制されたと報告されている。これらの先行研究では、本研究と異なり、膨潤化が促進される現象が確認されなかった。

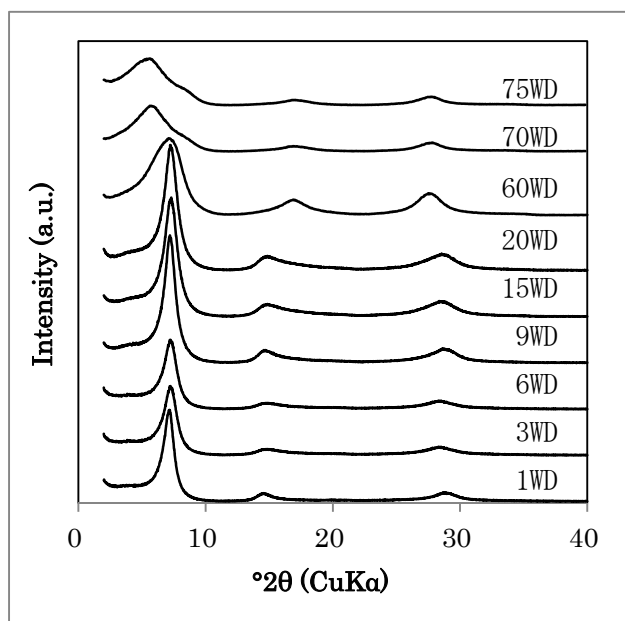


図 3. 2. 3-1 アンモニウム型試料の WD サイクル処理後の XRD パターン

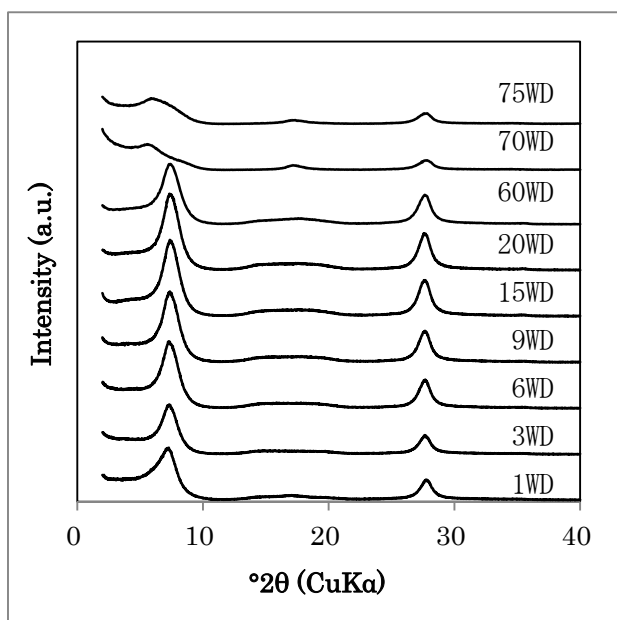


図 3. 2. 3-2 カリウム型試料の WD サイクル処理後の XRD パターン

次に、AFM分析を用いたスメクタイトのイライト化の判定を行った結果を示す。本研究と同様にAFM分析を用いたCuadros and Altaner(1998)では、イライト/スメクタイト混合層中のイライト割合が増加するにつれて、高さ2nm以下の粒子数が減少し、粒子の高さの平均値や最大値が増加していくことが報告されている。

図3. 2. 3-3、に、WD処理前後のアンモニウム型スメクタイト粒子の高さ頻度図を比較した結果を示す。WD処理前後で、高さ2nm以下の粒子数は減少したが、その割合はわずか数%であった。このような傾向はカリウム型でも同様であった。

今回のAFM観察によっては、アンモニウム、カリウム型スメクタイトともに、非膨潤層割合の増加は確認されなかった。つまり、今回の実験条件では、アンモニウム、カリウム型間での相違を認識できるほど、変質していないことがわかった。

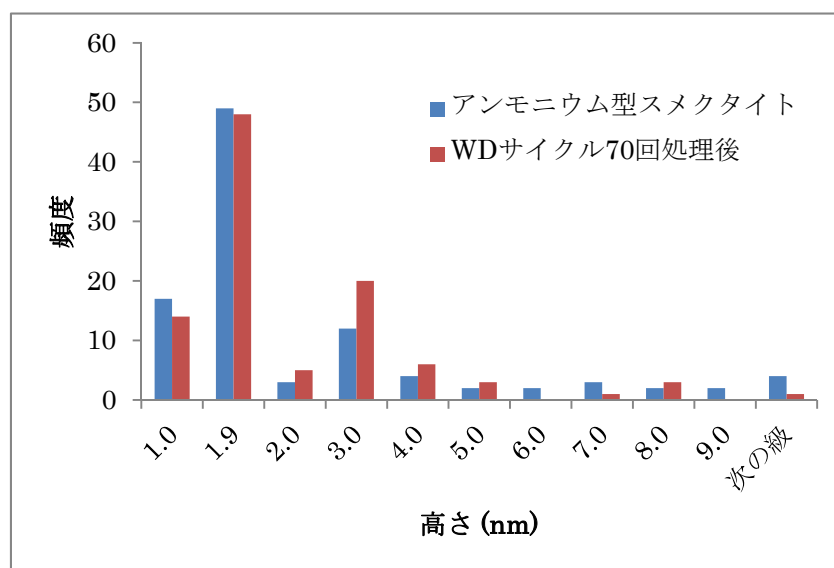


図 3. 2. 3-3 WD 処理によるアンモニウム型スメクタイト粒子の高さ頻度比較

2) 計算科学的手法によるアンモニウム型スメクタイトの特性評価

平成26年度の実験的検討（日本原子力研究開発機構，2015）から、アンモニウム型スメクタイトの層間は、低い相対湿度条件で1-水分子層の状態に膨張することができ、また、1-水分子層の状態にある底面間隔は、他のイオン型に比べてわずかに小さいことが示された。こうした膨張挙動はアンモニウム型に特有であり、アンモニウムイオンとイオン半径が近く、スメクタイトに吸着して膨潤性を低下させるという点で類似するカリウムイオンを含んだカリウム型でも見られなかった。そこで、以上の特徴をスメクタイト、層間のアンモニウムイオン及び水分子間の相互作用によるものとして捉え、分子シミュレーションによる調査を行った。平成26年度には、経験的分子動力学法（古典MD法）により、アンモニウム型、カリウム型、ナトリウム型のスメクタイトの分子モデルを作成し、層間の水分子数を変化させた場合の混合エンタルピーと底面間隔の変化を調べた。層間の水分子数を変化させたのは、相対湿度制御下における層間の水分子数の変化を模擬するためである。この結果、アンモニウム型スメクタイトの混合エンタルピーは、ナトリウム型やカリウム型に比べて少ない水分子数で負の値をとり始めるとともに、少ない水分子数で極小を示すことが明らかとなった。このことは、アンモニウム型スメクタイトが、他のイオン型に比べて少ない水分子数で1-水分子層の状態に膨張できることを示唆している。このことが、実験で示された、アンモニウム型でのみ低い相対湿度条件において1-水分子層に膨張した理由であると考えられた。本年度は、アンモニウム型が少ない水分子数で膨張できるメカニズムや、より水分子数が増大した場合の挙動を調べるために、より定量的な評価を可能とするよう分子シミュレーションの精度向上に取り組んだ。

① 計算の概要

昨年度までに実施した計算（日本原子力研究開発機構，2016）を継続した。上記の目的から修正した点は以下の通りである。

昨年度までに実施した混合エンタルピーを用いた膨張評価では、アンモニウム型はカリウム型より少ない水分子数で負の値をとる、つまり一層膨潤に達しやすい、といった定性的な議論にとどまり、相対湿度30%で一層膨潤に達する、といった定量的な議論を行うことができなかった。そこで、系の平衡状態を仮定し、混合エンタルピー式中の水のエンタルピー項に化学ポテンシャルを組み込んだ。また、アンモニウム型が少ない水分子数で膨張できるメカニズムが、アンモニウムイオン中の水素原子と粘土表面の酸素原子間に働く水素結合にあると考察し、原子密度分布及び動径分布関数を利用して、その水素結合の存在の検証を行った。

② 結果と考察

上述のように、各イオン型スメクタイトの水和挙動をより定量的に評価するため、これまで用いてきた混合エンタルピー ΔH_{mix} ($= H(MMT+nH_2O) - [H(MMT) + n\mu_{H_2O}]$) を(1)式のように変形した。

$$\Delta H_{mix} = H(MMT + nH_2O) - [H(MMT) + n\mu_{H_2O}] \cdot \cdot (1)$$

(2)式で示される化学ポテンシャル μ は、分圧、つまり相対湿度を含むことから、(1)式に代入することで各相対湿度における混合エンタルピーを算出することが可能となる。

$$\mu(T, P) = \mu^o(T, P) + RT \ln \left[\frac{P}{P^o} \right] \cdot \cdot (2)$$

標準化学ポテンシャル μ^o は(3)式で表される。

$$\mu^o = -RT \ln \left[\left(\frac{q}{V} \right) \frac{k_B T}{P^o} \right] \cdot \cdot (3)$$

(2), (3)式において、相対湿度以外の数値は定数であるので、化学ポテンシャルの導入により相対湿度を変数とした混合エンタルピーを計算することが可能となった。化学ポテンシャルの導入により、今までは第一極小値をとることが水和を示していたものが、混合エンタルピーが負になることが水和を示すこととなり、より定量的な評価ができると考えられる。

アンモニウム、ナトリウム、カリウム、セシウム型の各スメクタイトについて、相対湿度10%および30%における混合エンタルピー変化を計算し、相対湿度制御下で測定した実測水和挙動(図3. 2. 3-4)と比較した。

図3. 2. 3-4に示されるとおり、アンモニウムおよびセシウム型スメクタイトは相対湿度10%で一層膨潤初期段階となる。図3. 2. 3-5は相対湿度10%のときの、混合エンタルピー変化を表した図であるが、アンモニウム型スメクタイトについては第一極小値が負の値をとっていない。同様に、カリウムおよびナトリウム型スメクタイトは相対湿度30%で一層膨潤初期段階となることが図3. 2. 3-4から読み取れるが、相対湿度30%のときの混合エンタルピー変化を表した図3. 2. 3-6において、これらの第一極小値はいずれも負の値をとっていない。

このような実験結果と計算結果の間の乖離を改善するには、例えば、層間の陽イオン位置や層電荷の発現位置を様々に変えて計算を行う、あるいは水を入れた状態の各イオン型スメクタイトを安定化した後に層間水を抜いて計算を行う、といった工夫により計算精度を向上させる必要があると考える。

相対湿度10%では、アンモニウムおよびセシウム型の一層膨潤初期段階である(図3. 2. 3-4)。

図3. 2. 3-6は相対湿度30%のときの、混合エンタルピー変化を表した図である。相対湿度30%では、カリウムおよびナトリウム型の一層膨潤初期段階である(図3. 2. 3-4)。

混合エンタルピーの計算結果が負になる時点が水和状態を示すと考えられたが、実測値との比較から、図3. 2. 3-6においてカリウム型及びナトリウム型の第一極小値が負の値をとるには、縦軸が少なくとも0.5(kJ/mol)程度上昇する必要がある。この場合、相対湿度30%でカリウム型及びナトリウム型は一層膨潤に達する、という実験結果と一致する。同様に考えることで、相対湿度10%での膨張挙動も説明できる。以上より、実験と計算結果間で一致していない傾向を改善するために、計算精度をより向上させる必要がある。例えば、層間の陽イオン位置や層電荷の発現位置を様々に変えて計算を行う、あるいは水を入れた状態の各イオン型スメクタイトを安定化した後に、層間水を抜いて計算を行う、などの工夫が必要となる。

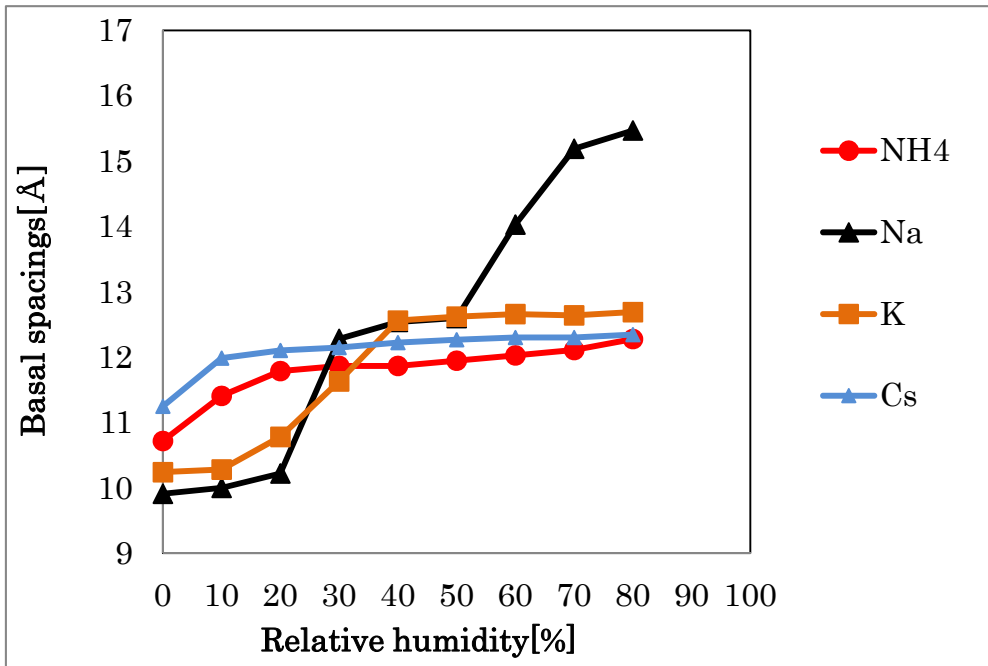


図 3.2.3-4 相対湿度制御時の各イオン型スメクタイトの底面間隔変化

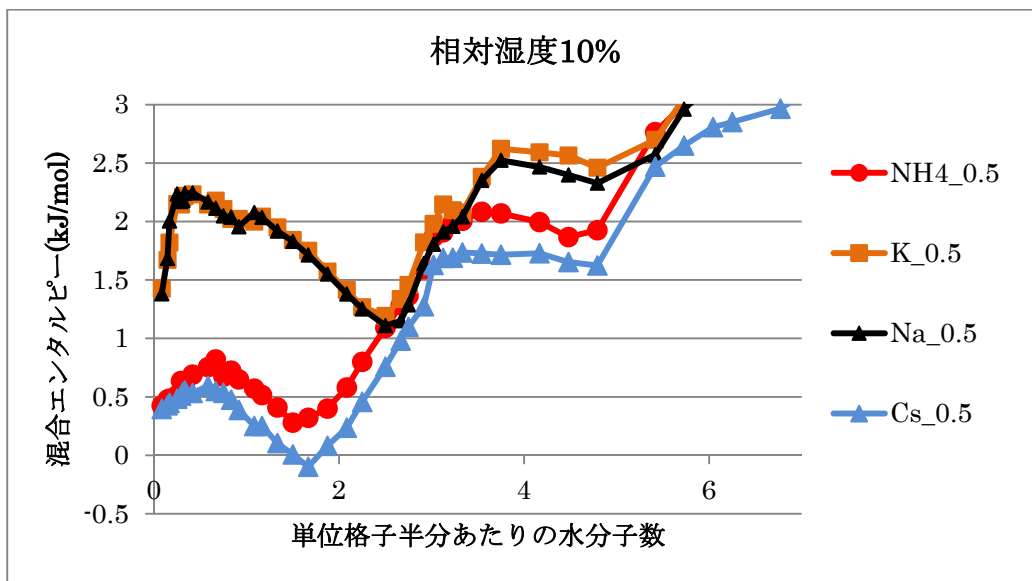


図 3.2.3-5 相対湿度 10%での各イオン型スメクタイトに水を付加したときの混合エンタルピー変化

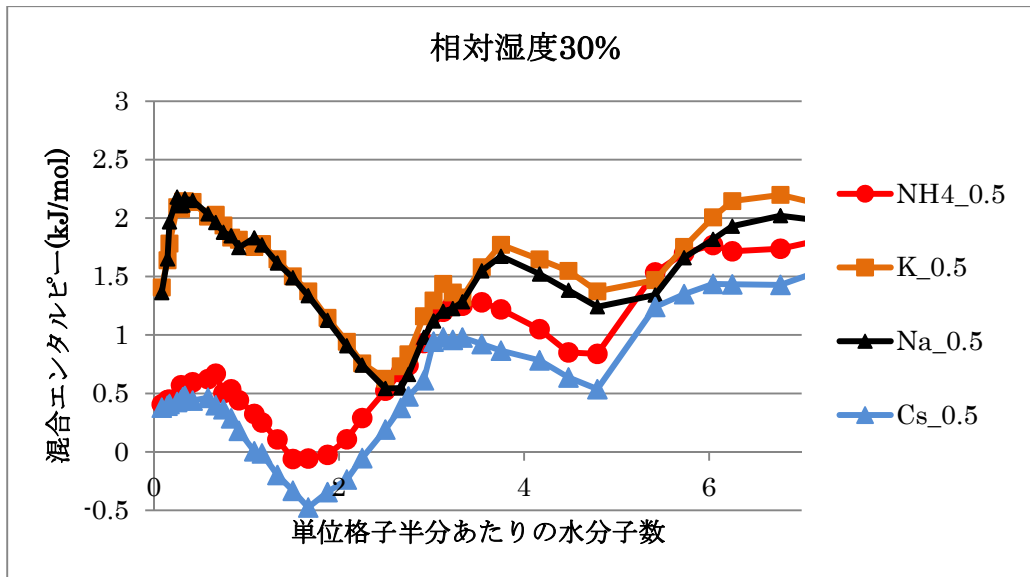


図 3. 2. 3-6 相对湿度 30%での各イオン型スメクタイトに水を付加したときの混合エンタルピー変化

次にアンモニウム型がカリウム型と異なり、低湿度側で膨張しやすい理由を考察した。低湿度側での膨張しやすさは、水素結合によって説明できると考えた。水素結合は、単なる双極子-双極子相互作用ではなく、水素受容体（酸素や窒素原子）と水素原子間の結合の延長線上に異なる水素受容体が位置する、方向性のある結合である。水において、固体の氷のほうが液体の水よりも密度が小さくなるのは、水素結合のもつ方向性によって説明される。氷は水素結合により規則的な構造をとるが、液体の水は水素結合の一部が切れることで、氷の構造中に存在する隙間に水分子が移動する。

アンモニウム型スメクタイトでも同様のことが言え、層間のアンモニウムイオン中の水素原子と粘土の底面酸素間に水素結合が働いており、アンモニウムイオンは層間で構造を作ろうとするので、底面間隔が大きくなる。底面間隔が大きくなると、層間陽イオンが粘土表面を引き付ける力が弱くなるので、アンモニウム型は低湿度側で膨張しやすいと考えた。

そこで、水素結合の存在を検証するために、原子密度分布を算出した。アンモニウムイオンと底面酸素が相互作用を起こしているか検証するために、無水状態と一層膨潤時の原子密度分布を比較した。もし層間アンモニウムと底面酸素間に水素結合が存在すれば、一層膨潤時より無水状態の場合の方が、層間のアンモニウムイオン中の水素原子の分布は底面酸素付近に偏るはずである。

図3. 2. 3-7にアンモニウム型の原子密度分布の結果を示す。無水状態のときの方がアンモニウムイオン中の水素原子が粘土の底面酸素近傍に位置することがわかる。これは水素原子と底面酸素間に相互作用、つまり水素結合が生じていることを示唆している。

次に、カリウム型の原子密度分布を図3. 2. 3-8に示す。アンモニウム型のように水素結合が存在せず、粘土表面との間に方向性のある結合が生じないので、底面間隔がアンモニウム型ほど大きくならない。具体的には、実験結果で無水状態の底面間隔を比較すると、アンモニウム型は10.62Å、カリウム型は10.24Åである。アンモニウム型はカリウム型に比べ、底面間隔がおおよそ0.4Å大きかった。

非膨潤化機構の重要な要因として、層間水の脱水がある。層間水の脱水が進行するにしたがい、「陽イオンが粘土表面を引きつける力（陽イオンの水和を妨げる力）」が強まり、果てには、「陽イオンが水和する力」を上回ることで、非膨潤化すると考えられている。それを裏付ける試験として、乾湿繰り返し試験がある。Eberl et al. (1986)では、様々な産地のカリウム型スメクタイトに対して、乾湿処理を繰り返すことで、非膨潤層が増加することを実験的に示した。Miklos and Cipel (1993)では、アンモニウム、カリウム型スメクタイト間で2層膨潤、1層膨潤、無水状態の3つの層状態の割合が算出・比較されている。その結果、アンモニウム型の方が膨潤層を失い難いことが報告されている。本報告での実験、計算結果により得られた知見によれば、アンモニウム型スメクタイトは、カリウム型と異なり、低湿度側で膨張するため、非膨潤化が比較的起こり難いと考えられる。これはMiklos and Cipel (1993)の結果と調和的である。

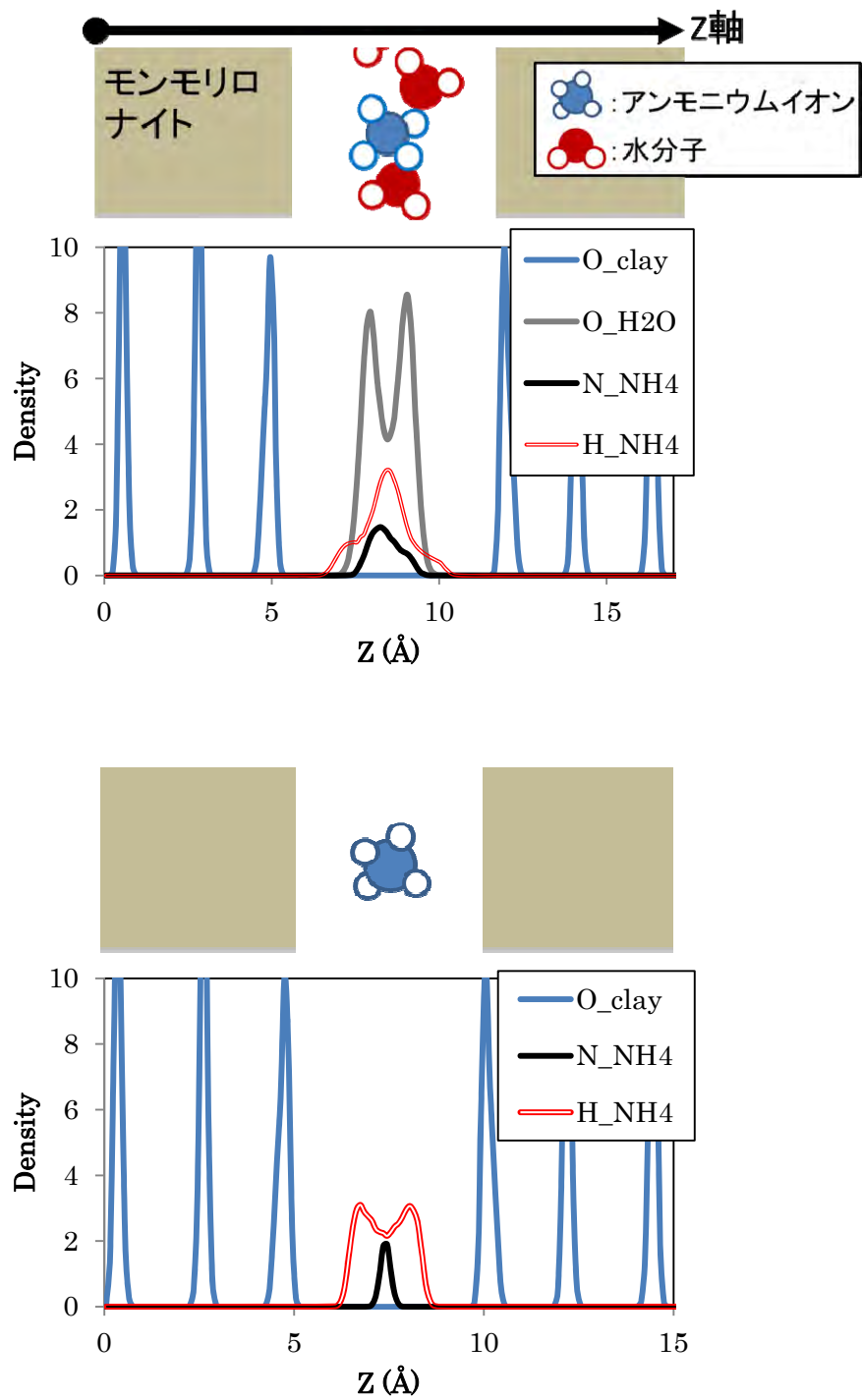


図 3.2.3-7 アンモニウム型スメクタイトの原子密度分布(上：一層膨潤時、下：無水状態)

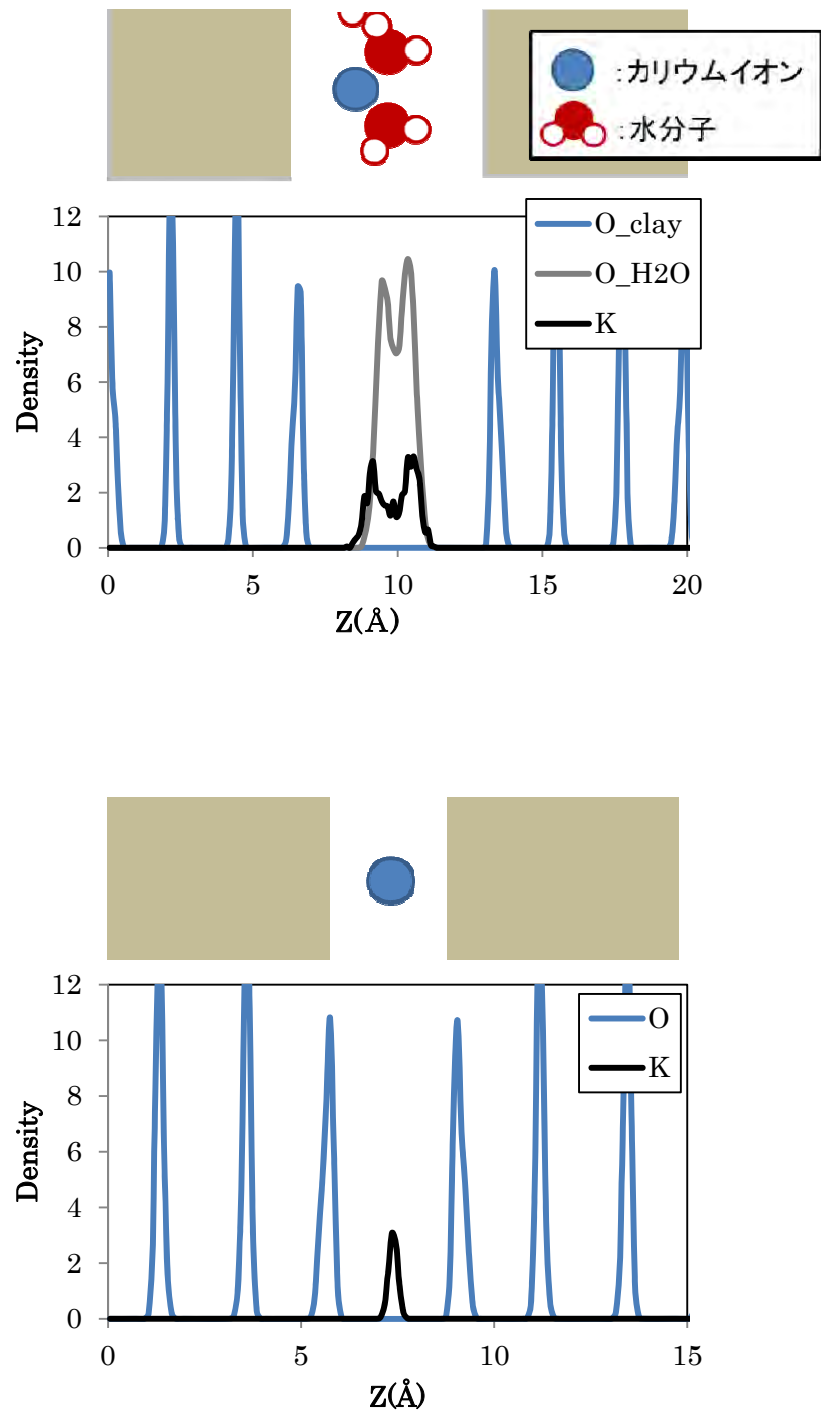


図 3. 2. 3-8 カリウム型スメクタイトの原子密度分布(上：一層膨潤時、下：無水状態)

(2) アンモニウムイオンを含む系での陽イオン交換定数の取得

1) 背景及び文献調査

スメクタイトの層間陽イオンがアンモニウムイオンに交換された場合の諸物性の変化が、平成27年度以前の報告書(日本原子力研究開発機構, 2013; 2014; 2015)や先行研究などで示されている(Gautier et al., 2010)。これらの評価を実際の処分環境に適用するためには、どの程度アンモニウム型スメクタイトに交換されるのかを考慮する必要がある。しかしながら、スメクタイトに関して層間の主要陽イオンとアンモニウムイオンの交換定数を取得している先行研究は数例ほどである(例えば、Laudelout et al., 1968; 山科ほか, 2013)。

上述の2つの先行研究に共通した課題として、スメクタイト層間のアンモニウムイオンと他の陽イオン間でのイオン交換定数を間接的に算出・取得している点が挙げられる。また、直接的にイオン交換定数を求めた例が確認されないため、間接的に算出された値と実測により求められた値に整合性があるかどうかは定かではない。また、処分環境を考慮した場合、層間陽イオンがナトリウムイオンからアンモニウムイオンに変わる反応のみでなく、その逆反応を考慮する必要がある。反応の可逆性、その際のイオン交換定数を取得することにより、より正確なシナリオのモデル化につながると考えられる。

2) 実験方法

実験条件及び手順は山科ほか(2013)と浅野(1994)を参考に決定した。実験条件を表、実験手順を図3.2.3-9に示した。

表 3.2.3-1 $\text{Na}^+\text{-NH}_4^+$ イオン交換実験の条件

項目	条件
固相試料	Na型スメクタイト(クニピアP)
交換性イオン種	NH_4^+
交換性イオンの濃度	0.001~0.1M(イオン強度0.1N)
固液比	0.3g/30mL
接触時間	一週間
温度	25°C
固液分離	遠心分離(20000rpm, 90min)
分析方法	NH_4^+ : 吸光光度法(インドフェノール青)

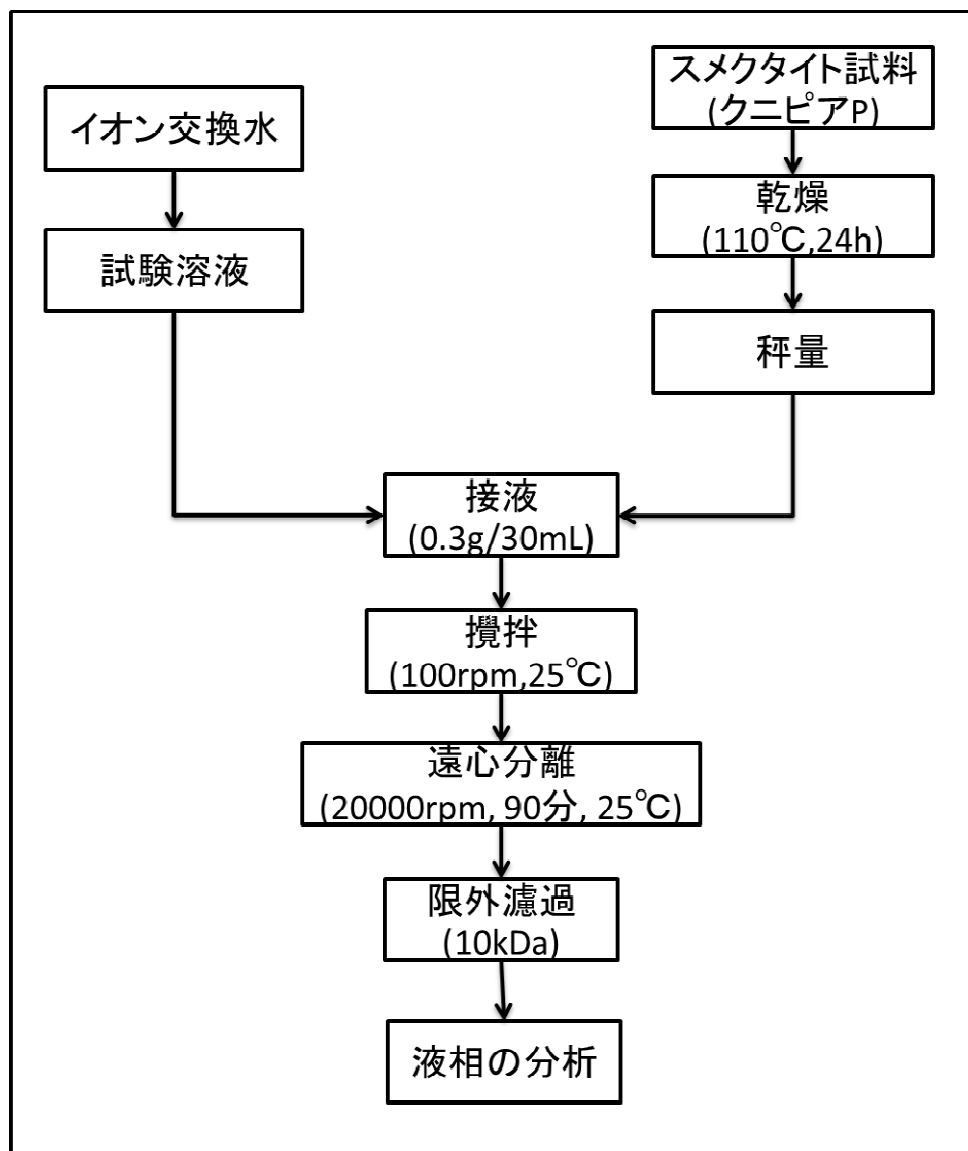


図 3. 2. 3-9 $\text{Na}^+\text{-NH}_4^+$ イオン交換の手順

3) 分析結果

実験より得られた Gaines-Thomas 交換定数 $\log K_{\text{NH}_4/\text{Na}}$ は 0.58 となり、既存の研究で取得されたスメクタイト層間のナトリウムとアンモニウムイオンの交換定数データ (0.52-0.60) と同程度の値を取得した。今後、粘土の層間陽イオンの違いや pH などの条件を増やし、より体系的な知見を得ることとする。

3.2.4 廃棄物由来の影響因子の放射性核種への影響評価

3.1節で述べたとおり、TRU廃棄物に含まれており、HLWとの共処分において核種移行挙動に影響を及ぼすと考えられる因子として、TRU廃棄物に含まれる硝酸塩や有機物、そして処分施設のセメントなどが挙げられる。これらのうち、核種移行に及ぼす硝酸塩の影響評価については、平成19年度から平成24年度にかけて、経済産業省資源エネルギー庁の委託事業「硝酸塩処理・処分技術高度化開発(H19～H24)」(日本原子力研究開発機構、2013)及び平成25年度の本事業(日本原子力研究開発機構、2014)において実施してきた。その結果、テクネチウムは窒素の酸化還元鋭敏であるものの、系の酸化還元電位を用いた熱力学計算結果が実測値とよく一致すること、パラジウムなど一部の元素では硝酸が還元されて生成すると考えられるアンモニアと強く錯生成して溶解度が著しく増大することなどを確認した。平成26～27年度は、影響因子としてTRU廃棄物に含まれる有機物を対象とし、核種移行に及ぼす影響の評価に着手した。候補となる有機物を抽出し、核種移行に及ぼす影響を概括的に調査した上で、実験的な調査を開始した(日本原子力研究開発機構、2015;同、2016)。

平成26年度の調査(日本原子力研究開発機構、2015)において、TRU廃棄物に含まれる有機物として最も処分の核種移行挙動評価に関する基盤データの充実が必要と判断されたものが、イソサッカリン酸(ISA)であった。したがって、金属イオンのISAとの錯生成について、熱力学データの導出を試みるとともに、錯生成のメカニズムについて考察を行うことを最終目標とした。TRU廃棄物処分の性能評価の優先度を考慮して、対象とする金属イオンは酸化数が4(以下、4価)のものとし、酸化還元の影響を受けず、非放射性核種が使用可能で、かつISA錯体の熱力学データの報告値がないジルコニウムを用いることとした。これまでに、ISA及び類似物質のグルコン酸(GLU)共存下におけるジルコニウムの溶解度実験を実施し、実験結果から支配的な溶存化学種(ISA及びGLU錯体種)を推定した上で、反応の平衡定数を導出した(Kobayashi et al., 2017)。

今年度は、錯体種がコロイドを生成している可能性を調査するために、固液分離に用いるフィルターの孔径を3kDa～0.45 μmの範囲で7種類用意し、上澄み液採取を含め8条件における溶存ジルコニウム濃度を調べることで、ジルコニウム-ISA系のコロイド生成について検討した。また、4価アクチノイドとして、既往知見が不足している4価ウラン(U(IV))に着目し、ISA共存下におけるU(IV)の溶解度を測定することとした。ウランは酸化還元鋭敏であり、U(IV)が安定であるはずの還元状態といえどもU(VI)が生成しやすいことから、比較のためU(VI)の溶解度も測定することとした。参考までに、ISA及びグルコン酸の構造を図3.2.4-1に示す。

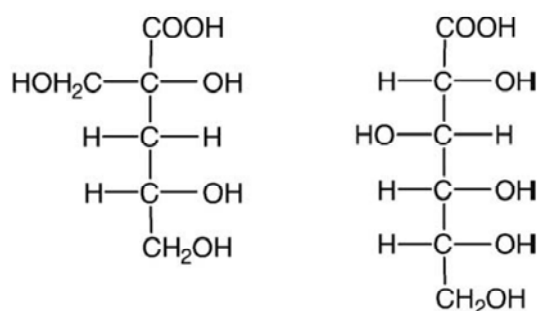


図3.2.4-1 (a) イソサッカリン酸及び (b) グルコン酸の構造式

(1) イソサッカリン酸共存下におけるジルコニウム(IV)の溶解度測定

1) 実験手順

全ISA濃度 ($[ISA]_{tot}$) $0.001\sim 0.1\text{mol}/\text{dm}^3$ を含むジルコニウム試料溶液は、平成27年度に実施した研究（日本原子力研究開発機構，2016）において調製したものをを用いた。

酸性～中性領域での試料溶液は大気雰囲気下、中性～アルカリ性領域での試料溶液はAr雰囲気グローブボックス内にて、pHc測定を行った。pH電極の校正は、 $\text{pH} = 4$ 及び7の校正液を用いて行った。また、本実験ではイオン強度 $I = 0.5$ における試料溶液のpHcを測定するため、NaClによりイオン強度を調整したHClおよびNaOH標準液のpHを予め測定し、測定pHから水素イオン濃度への補正を行った。試料溶液のpHc測定後、上澄み液0.5 mlずつを採取し、分画分子量3, 10, 30, 50, 100 kDaの限外ろ過フィルター及び0.2, 0.45 μm のメンブレンフィルターを用いてそれぞれろ過した。ろ液0.4 mlを回収し、 $0.1\text{mol}/\text{dm}^3$ 硝酸 2.1 mlを加え、硝酸酸性とし、誘導結合プラズマ質量分析装置（ICP-MS）を用いて、ジルコニウム濃度を定量した。比較のため、静置した試料溶液の上澄み液0.4 mlに $0.1\text{mol}/\text{dm}^3$ 硝酸 2.1 mlを加え、硝酸酸性とした試料の溶存ジルコニウム濃度も定量した。溶存ジルコニウム濃度の検出限界はおよそ $1\times 10^{-8.5}\text{mol}/\text{dm}^3$ であった。

2) 結果と考察

10 kDaおよび0.45 μm フィルターろ過後の溶解度（60週間後）を前年度の結果（14週間後）（日本原子力研究開発機構，2016）と比較した結果を図3.2.4-2に示す。図中において、 $\log [ISA]_{tot} = -2$ 、 $\text{pHc} = 12.28$ の条件では60週間後における0.45 μm データを得られなかったため、0.2 μm フィルターろ過後の値を示している。また、図中の灰色の領域中のプロットは、溶解度測定におけるICP-MSの計測値が小さく、バックグラウンド値と非常に近い検出限界で得られた値であることを示す。

ISAの初期濃度が $\log [ISA]_{tot} = -2$ を除いた場合では、60週間後に測定した溶解度は14週間後の値とほぼ同じ値となり、10kDaおよび0.45 μm フィルターろ過後の溶解度の再現性が確認できた。このことから、ISA酸共存下で形成されるジルコニウム錯体やコロイドは、比較的安定に存在することが示唆された。一方、ISAの初期濃度が $\log [ISA]_{tot} = -2$ の場合、特に60週間後の10kDaろ過後の溶解度は、14週間後の値と比較してやや上昇する結果が得られた。60週間後では、加水分解反応による水酸化物沈殿の生成からISAによる錯生成反応が進行した可能性はあるが、詳細は明らかではない。なお、10kDaろ過後の溶解度に対して行われた熱力学計算からは、 $\log [ISA]_{tot} = -2$ におけるジルコニウムの溶解度曲線は、 $\text{pHc} 8\sim 12$ で $[\text{Zr}] = 10^{-6}\text{mol}/\text{dm}^3$ 付近に現れる。今回得られた60週間後の溶解度は、より熱力学計算結果に近い値となることが分かった。

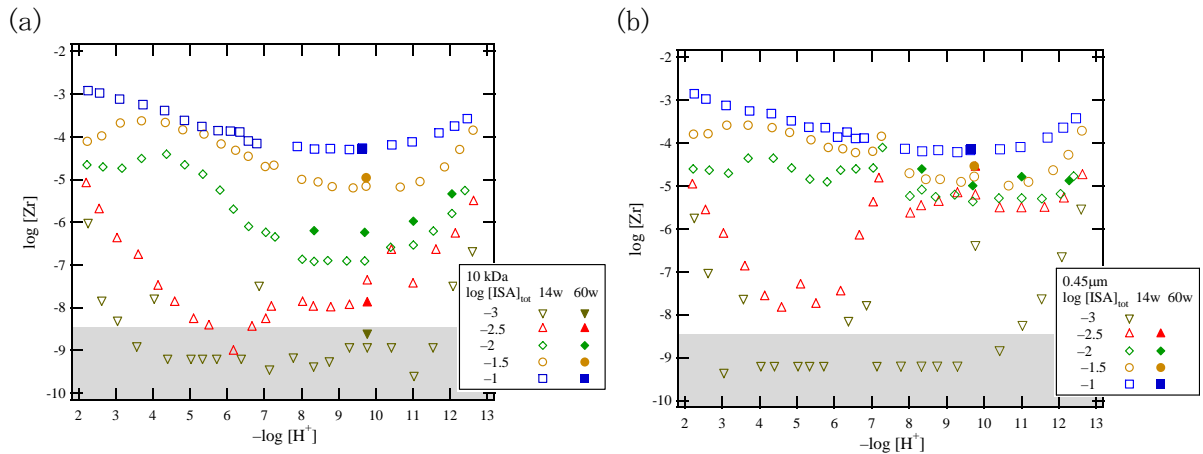


図 3. 2. 4-2 ISA 共存下におけるジルコニウム溶解度
(14 及び 60 週後、(a) 10 kDa、(b) 0.45 μm 通過成分)

次に、ろ過フィルターを3~100kDa、0.2 μm 、0.45 μm としたとき及び上澄み液を測定した場合のジルコニウム溶解度を示す。図3. 2. 4-3はpHc約8.6における溶解度の孔径依存性をイソサッカリン酸濃度毎に整理したものである。3, 10, 30, 50および100 kDaフィルターの孔径をそれぞれ2, 3, 4.2, 5.2および7nmとし、横軸をフィルター孔径 (nm) の対数值とした。ISA濃度が $10^{-1.5}\text{mol/dm}^3$ より低い場合、溶解度のろ過フィルターの孔径依存性が顕著になり、特に100kDa (孔径約 7nm) ろ過後と0.2 μm フィルターろ過後の溶解度には、1桁以上の違いが表れた。このことから、ISA濃度が低い場合は、7nm~0.2 μm のコロイド種が存在していると考えられた。一方、イソサッカリン酸濃度が $10^{-1.5}\text{mol/dm}^3$ より高い場合は、孔径の違いによる溶解度の差は小さく、100kDaと0.2 μm の間でも溶解度の違いはほとんど見られなかったため、コロイド種はほとんど生成しないと考えられた。

また、ISA濃度 10^{-2}mol/dm^3 における溶解度の孔径依存性をpHcで比較した結果を図3. 2. 4-4に示す。pHc 8.01~10.98では、3~100kDaフィルターろ過後の溶解度の値は近く、0.2 μm ろ過後の溶解度はこれより1桁大きい値となった。上述の通り、ISA共存下では2nm以下のZr-OH-ISA錯体に加えて、7 nm~0.2 μm のコロイド種が存在するという「Zr-OH-ISA単核錯体とコロイド種という2極化した溶存状態」が顕著である、と推察された。一方、pHc 12.28での溶解度は、特に小孔径フィルターにおいて緩やかな孔径依存性となっており、より連続的な粒径分布の傾向を示した。なお、ISA共存下でのジルコニウム溶解度 (10kDa通過成分) の熱力学解析からは、pHc 8.01~10.98では $\text{Zr}(\text{OH})_4(\text{ISA})_2^{2-}$ 、pHc 12.28では $\text{Zr}(\text{OH})_5(\text{ISA})_2^{3-}$ (あるいは $\text{Zr}(\text{OH})_4(\text{ISA})(\text{ISA})_4^{3-}$) が支配的なZr-OH-ISA錯体とされている (Kobayashi et al., 2017)。

参考までに、ColasらによるGLU濃度 ($[\text{GLU}]_{\text{tot}}$) $4.5 \times 10^{-3}\text{mol/dm}^3$ ($= 10^{-2.35}\text{mol/dm}^3$) における溶存トリウム濃度の結果 (Colas et al., 2011) を図3. 2. 4-3に示す。Colasらの結果では、1 kDa通過成分と300 kDa通過成分の間に1桁の溶存濃度の違いが表れており、GLUを含んだ多核種が存在している可能性が指摘されているが、詳細については明らかにされていない。1および300kDaフィルターの孔径は約1.2および20nmとされており、GLUやISA共存下での4価金属イオンのコロイド種は、数十nm程度のサイズを有するものと考えられる。

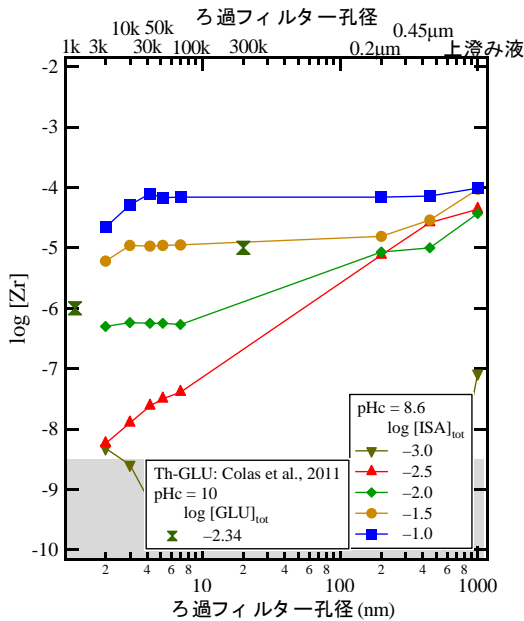


図3. 2. 4-3 ISA共存下における溶存ジルコニウム濃度のろ過フィルター孔径依存性 (pHc = 8.6)

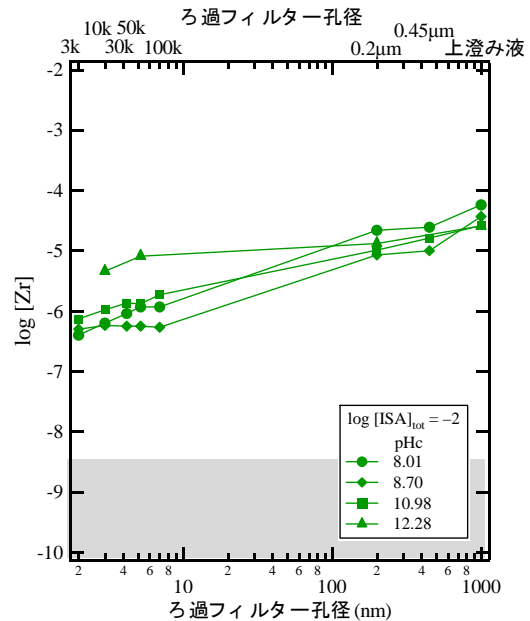


図3. 2. 4-4 ISA共存下における溶存ジルコニウム濃度のろ過フィルター孔径依存性 ([ISA] = 10⁻² mol/dm³)

(2) イソサッカリン酸共存下におけるウラン(VI)の溶解度測定

1) ウラン(VI)試料の調製

硝酸ウラニル (UO₂(NO₃)₂) を超純水に溶解させて6価ウラン溶液を調製し、紫外可視分光光度計 (UV-Vis) によりウラン濃度を定量した。この6価ウラン溶液に、水酸化ナトリウム (NaOH) 水溶液を加えることにより、6価ウランの水酸化物 (UO₂(OH)₂(s)) を沈殿させた。得られた沈殿を超純水により数回洗浄した後、超純水に懸濁させ、懸濁母溶液とした。このとき、懸濁母溶液の濃度は、6価ウラン水酸化物沈殿が全て溶解した場合、0.33mol/dm³となるようにした。

2) 実験手順

ポリプロピレン (PP) 製の試験管に所定量のイソサッカリン酸ナトリウム母溶液、塩酸または水酸化ナトリウム水溶液、塩化ナトリウムおよび超純水を加え、さらに6価ウランの懸濁母溶液を添加し、試料溶液とした。このとき、試料溶液中のイソサッカリン酸濃度 ([ISA]_{tot}) は10⁻³~10⁻¹mol/dm³、pHcは5~12.5、イオン強度はI=0.5となるように調整した。また、固相として投入した6価ウラン水酸化物沈殿が全溶解したときの濃度 ([U]_{tot}) は0.01mol/dm³となるようにした。

所定の期間 (5, 8及び11週間)、試料溶液をAr雰囲気下で静置した後、各試料溶液のpHcを測定した。試料溶液の上澄み液0.5mlを採取、限外ろ過フィルター (10kDa, 孔径約3nm) を用いて限外ろ過し、ろ液0.4mlを回収した。0.1mol/dm³硝酸2.1mlを加え硝酸酸性とし、ICP-MSによりろ液中のウラン濃度を定量した。さらに、試料溶液内に生成し得るコロイド種の影響を調べるため、各試料溶液の上澄み液を0.5mlを採取し、0.45μmフィルターによりろ過し、溶存ウラン濃度を定量した。ICP-MSによる溶存ウラン濃度の検出限界はおおよそ10⁻⁹mol/dm³であった。

3) 結果と考察

8週間経過後の溶存ウラン(VI)濃度の pHc 及び ISA 濃度影響の結果を、ISA 非共存下における文献データ (Kramer et al., 1992, Yamamura et al., 1998, Fujiwara, et al., 2005) とともに図 3.2.4-5 に示す。実験期間 5, 8 及び 11 週間で得られた溶存ウラン(VI)濃度は一定であったことから、本実験は5週間で平衡に到達したと考えられた。

ISAの初期濃度が低い場合、6価ウランの溶解度はpHc 10付近でおよそ 10^{-8} mol/dm³と低く、pHc 12.5付近の高アルカリ性条件では上昇する傾向が見られた。ISAを含まない6価ウランの溶解度を支配する固相(溶解度制限固相)は、中性領域では三酸化ウラン $UO_3 \cdot 2H_2O(s)$ 、アルカリ性領域では重ウラン酸ナトリウム $Na_2U_2O_7 \cdot xH_2O(s)$ とされている。本実験において、ISA濃度が $10^{-4.0} \sim 10^{-2.7}$ mol/dm³と低い場合に得られた溶解度は、ISAを含まない場合の値に概ね近いことがわかった。ただし、pHc 5~6付近では、 $UO_3 \cdot 2H_2O(s)$ の溶解度と比較して2桁程度低い値が得られる結果となった。

一方、ISA濃度が高くなると、中性領域での溶存ウラン(VI)濃度は大きく上昇し、ISA濃度が $10^{-1.5}$ mol/dm³の場合、溶解度は、pHc = 8付近からpHcの上昇とともに傾き約0.5で単調に減少するような傾向を示した。このことから、ISA共存下では、ウラン(VI)は水酸化物イオンおよびISAと三元錯体を生成しているものと考えられた。8週間後の溶存ウラン(VI)濃度をISA濃度の関数としてプロットした結果を図3.2.4-6に示す。pHc 8, 10および12.5のいずれの条件下でも、溶解度はISA濃度に対して単調に増加しており、その傾きはISA濃度が低い領域ではおよそ1、ISA濃度が高い領域ではおよそ2となったため、U(VI)-OH-ISAの三元錯体は、ISAを1つまたは2つ含むような錯体種であることが考えられた。なお、溶存ウラン(VI)濃度のフィルター孔径依存性は確認されず、コロイド種の生成は確認されなかった。また、上澄み液のUV-Visスペクトルでは、ウラン(VI)とISAの相互作用に由来するピークは確認されなかった。

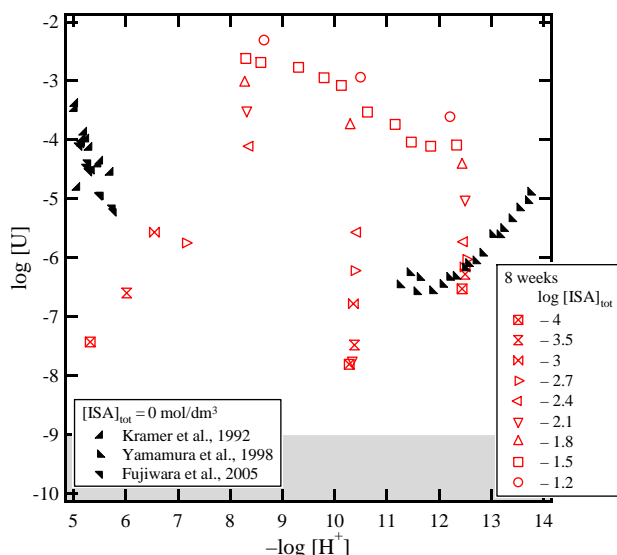


図 3.2.4-5 ISA 共存下における溶存ウラン(VI)濃度の pHc 依存性

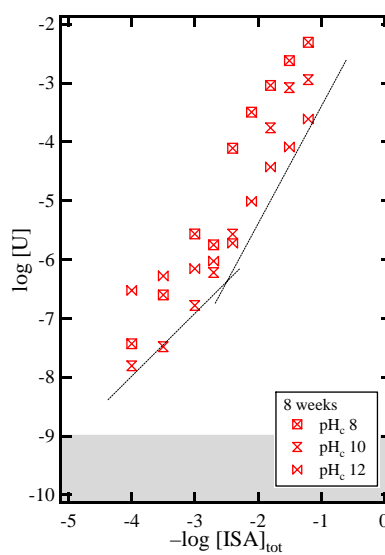


図 3.2.4-6 ISA 共存下における溶存ウラン(VI)濃度の ISA 濃度依存性

得られた溶解度のpH依存性およびISA濃度依存性を基に、10kDaフィルターろ過後の溶解度に対して熱力学データに基づく解析を行った。まず、既往文献で報告されている $\text{UO}_3 \cdot 2\text{H}_2\text{O}(\text{s})$ および $\text{Na}_2\text{U}_2\text{O}_7 \cdot x\text{H}_2\text{O}(\text{s})$ を、それぞれ中性およびアルカリ性領域における溶解度制限固相として仮定した。ウラン(VI)とISAの二元錯体として、Rao et al. (2004) が熱量滴定の結果から報告している6価ウラン-ISAの二元錯体 ($\text{UO}_2(\text{ISA})_m$, $n = 1 \sim 3$) の存在を仮定した。さらに、上述のとおり、ウラン(VI)が水酸化物イオンおよびISAと三元錯体を形成しているものと考えられたことから、 $\text{UO}_2(\text{OH})_2(\text{ISA})_m^{2-}$ ($m: 1, 2$) も支配溶存化学種として仮定し、これら三元錯体の反応の平衡定数の最適値を最小二乗法によって導出した。

最小二乗法による結果の例を図3. 2. 4-7に、使用もしくは導出した反応の平衡定数を表3. 2. 4-1に示す。 $\text{UO}_2(\text{OH})_2(\text{ISA})^-$ の寄与は小さく、その錯生成定数 β_{121} を求めることはできなかった。 $\text{UO}_2(\text{OH})_2(\text{ISA})_2^{2-}$ の錯生成定数は $\log \beta_{122} = 26.6 \pm 0.3$ と得られた。 $\text{UO}_2(\text{OH})_2(\text{ISA})_2^{2-}$ の錯生成定数は本報告で初めて報告されたものである。ウラン(VI)に水酸化物イオンが4つ配位した加水分解種 $\text{UO}_2(\text{OH})_4^{2-}$ の錯生成定数が $\log \beta_{140} = 23.6$ と報告されている (Guillaumont et al., 2003) ことと比較すると、ISAによる錯生成が非常に強いことが示唆される。

弱アルカリ性領域では、熱力学計算による溶解度の値と実験値は近い傾向が表れているが、特にアルカリ性領域では熱力学計算値と実験値には乖離が見られる結果となった。本解析では、溶解度制限固相として $\text{UO}_3 \cdot 2\text{H}_2\text{O}(\text{s})$ および $\text{Na}_2\text{U}_2\text{O}_7 \cdot x\text{H}_2\text{O}(\text{s})$ を仮定したが、X線回折などの固相分析により本実験条件下で生成した固相を確認することが今後の課題である。また、ウラン(VI)は炭酸イオンとも非常に安定な錯体を形成することが知られている (Guillaumont et al., 2003) 。本実験では、カルシウムイソサッカリン酸沈殿からナトリウムイソサッカリン酸母溶液を得る際に炭酸ナトリウム水溶液を用いていることから、溶液調製の際に炭酸イオンが残存していれば、6価ウランの溶解度に影響する可能性もあり、炭酸影響についても確認が必要と考えられる。

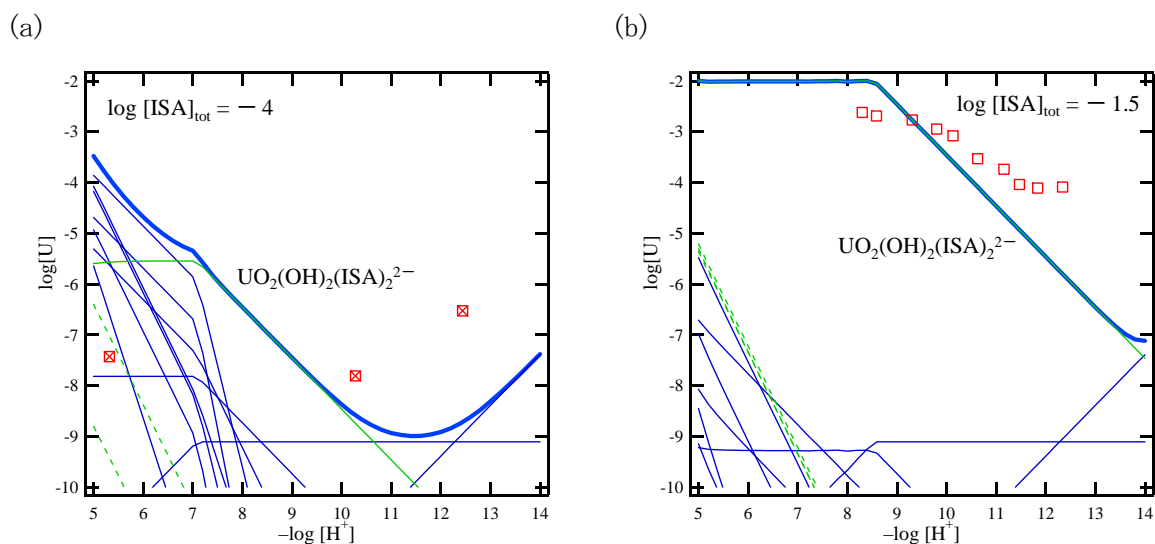


図 3. 2. 4-7 ISA 共存下における溶存ウラン(VI)濃度の pHc 依存性
 ((a) $[\text{ISA}]_{\text{tot}} = 10^{-4}\text{mol}/\text{dm}^3$, (b) $[\text{ISA}]_{\text{tot}} = 10^{-1.5}\text{mol}/\text{dm}^3$)

表 3. 2. 4-1 本報告で使用もしくは導出したウラン(VI)-OH-ISA 系の反応の平衡定数

Reactions		Values	Reference
$\text{UO}_3 \cdot 2\text{H}_2\text{O}(\text{s}) \rightleftharpoons \text{UO}_2^{2+} + 2\text{OH}^- + \text{H}_2\text{O}$	$\log K_{\text{sp6}}^0$	-22. 46	Fujiwara et al., 2005
$\text{Na}_2\text{U}_2\text{O}_7 \cdot \text{H}_2\text{O}(\text{s}) + 2\text{H}_2\text{O} \rightleftharpoons 2\text{Na}^+ + 2\text{UO}_2^{2+} + 6\text{OH}^-$	$\log K_{\text{sp61}}^0$	-29. 45	Yamamura et al., 1998
$\text{UO}_2^{2+} + \text{OH}^- \rightleftharpoons \text{UO}_2\text{OH}^+$	$\log \beta_{110}^0$	8. 75	Guillaumont et al., 2003
$\text{UO}_2^{2+} + 2\text{OH}^- \rightleftharpoons \text{UO}_2(\text{OH})_2(\text{aq})$	$\log \beta_{120}^0$	15. 85	
$\text{UO}_2^{2+} + 3\text{OH}^- \rightleftharpoons \text{UO}_2(\text{OH})_3^-$	$\log \beta_{130}^0$	21. 75	
$\text{UO}_2^{2+} + 4\text{OH}^- \rightleftharpoons \text{UO}_2(\text{OH})_4^{2-}$	$\log \beta_{140}^0$	23. 6	
$2\text{UO}_2^{2+} + \text{OH}^- \rightleftharpoons (\text{UO}_2)_2\text{OH}^{3+}$	$\log \beta_{210}^0$	11. 3	
$2\text{UO}_2^{2+} + 2\text{OH}^- \rightleftharpoons (\text{UO}_2)_2(\text{OH})_2^{2+}$	$\log \beta_{220}^0$	22. 38	
$3\text{UO}_2^{2+} + 4\text{OH}^- \rightleftharpoons (\text{UO}_2)_3(\text{OH})_4^{2+}$	$\log \beta_{340}^0$	44. 1	
$3\text{UO}_2^{2+} + 5\text{OH}^- \rightleftharpoons (\text{UO}_2)_3(\text{OH})_5^+$	$\log \beta_{350}^0$	54. 45	
$4\text{UO}_2^{2+} + 7\text{OH}^- \rightleftharpoons (\text{UO}_2)_4(\text{OH})_7^+$	$\log \beta_{470}^0$	76. 1	
$\text{UO}_2^{2+} + \text{ISA}^- \rightleftharpoons \text{UO}_2\text{ISA}^+$	$\log \beta_{101}^0$	2. 91	Rao et al., 2004
$\text{UO}_2^{2+} + 2\text{ISA}^- \rightleftharpoons \text{UO}_2(\text{ISA})_2(\text{aq})$	$\log \beta_{102}^0$	5. 37	
$\text{UO}_2^{2+} + 3\text{ISA}^- \rightleftharpoons \text{UO}_2(\text{ISA})_3^-$	$\log \beta_{103}^0$	7. 25	
$\text{UO}_2^{2+} + 2\text{OH}^- + \text{ISA}^- \rightleftharpoons \text{UO}_2(\text{OH})_2\text{ISA}^-$	$\log \beta_{121}^0$	Not determined	This work
$\text{UO}_2^{2+} + 2\text{OH}^- + 2\text{ISA}^- \rightleftharpoons \text{UO}_2(\text{OH})_2(\text{ISA})_2^{2-}$	$\log \beta_{122}^0$	$26. 6 \pm 0. 3$	

(3) イソサッカリン酸共存下におけるウラン(IV)の溶解度測定

1) ウラン(IV)試料の調製

前述のとおり、ウラン(IV)は還元条件でも6価に酸化されやすいことから、純粋なウラン(IV)試料を調製することが重要である。本実験では、バルク電気分解法によりウラン(VI)溶液を還元し、4価ウラン溶液を得た。まず、硝酸ウラニルを超純水に溶解させたウラン(VI)溶液を調製し、グローブボックス内にて電気分解法により還元した。このとき、作用電極には多孔性カーボン電極、カウンター電極にはPt電極、参照電極にはAg/AgCl電極を用いた。電位を-0.5 Vおよび-1.0 Vとし、ウラン(VI)溶液の還元を行った際のUV-VISスペクトルの変化を図3. 2. 4-8に示す。実験では、420 nm付近のウラン(VI)に起因するピークが完全に消滅するまでさらに-1.0 Vで2時間、電解還元を行い、0.045mol/dm³のウラン(IV)の硝酸溶液を得た。

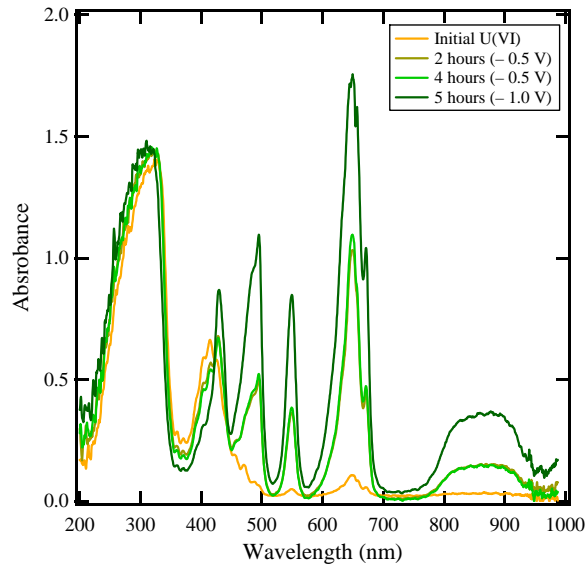


図 3.2.4-8 電解還元によるウランの吸光スペクトル変化

試料溶液の調製は、6価ウランと同様、不飽和法により行い、所定濃度のISA酸を含む試料溶液に4価ウランの水酸化物沈殿 ($U(OH)_4(s)$) を固相として添加した。

まず、4価ウラン硝酸溶液に水酸化ナトリウム水溶液を加えることにより、4価ウランの水酸化物 ($U(OH)_4(s)$) を沈殿させた。得られた沈殿を $1 \times 10^{-3} \text{ mol/dm}^3$ の亜ジチオン酸ナトリウム ($Na_2S_2O_4$, 和光純薬工業) 水溶液により数回洗浄した後、 $1 \times 10^{-3} \text{ mol/dm}^3$ の亜ジチオン酸ナトリウム水溶液に懸濁させ、懸濁母溶液とした。このとき、懸濁母溶液の濃度 ($[U]_{tot}$) は、4価ウラン水酸化物沈殿が全て溶解した場合、 0.045 mol/dm^3 となるようにした。

PP製のチューブに所定量のイソサッカリン酸ナトリウム母溶液、塩酸または水酸化ナトリウム水溶液、塩化ナトリウム、亜ジチオン酸ナトリウム水溶液および超純水を加え、さらに4価ウランの懸濁母溶液を添加し、全量10 mlの試料溶液とした。このとき、試料溶液のISA酸濃度 ($[ISA]_{tot}$) は $10^{-3} \sim 10^{-1} \text{ mol/dm}^3$ 、pHcは7~12.5、イオン強度は $I = 0.5$ となるように調整した。また、固相として投入した4価ウラン水酸化物沈殿が全溶解したときの濃度は 0.01 mol/dm^3 となるようにした。試料溶液を入れたPP製のチューブは、グローブボックス内にてガラス瓶に入れて密栓することにより、溶存酸素による4価ウランの酸化反応の影響を抑えた。以下に本実験において調製した試料溶液の一覧を示す。

2) 実験手順

所定の期間、試料溶液をAr雰囲気下のガラス瓶内で静置した後、各試料溶液のpHcおよび標準水素電極に対する酸化還元電位 (Eh) を測定した。試料溶液の上澄み液0.5mlを、限外ろ過フィルター (10kDa, 孔径約3nm) を用いて限外ろ過し、ろ液0.4mlを回収した。 0.1 mol/dm^3 硝酸2.1mlを加え硝酸酸性とし、ICP-MSによりろ液中のウラン濃度を定量した。コロイドの影響を調べるため、 $0.45 \mu\text{m}$ フィルターによるろ過も実施した。

3) 結果と考察

実験開始から5~11週間後の試料溶液のpHおよびEh値を測定した結果を図3.2.4-9に示す。不活性Ar雰囲気下のグローブボックス内の密栓したガラス容器内に保管した試料溶液のEh値は、11週間後においても非晶質のウラン(IV)水酸化物 ($\text{U}(\text{OH})_4(\text{am})$) が支配的な領域に維持される結果となった。

溶存ウラン濃度の結果の例として、実験開始から8週間後のISA共存下 (ISA濃度 $10^{-1.5}\text{mol}/\text{dm}^3$) における値を図3.2.4-10にプロットとして示す。5週間後以降の溶解度の測定値には大きな違いは見られず、5週間後には定常状態に達したと考えられた。pH 6~11付近までは、pHによらず溶存ウラン濃度はおよそ $10^{-6}\text{mol}/\text{dm}^3$ 程度で一定であり、pH 11以上の高アルカリ性領域では、溶解度がやや上昇する傾向が見られた。ISAを含まない $\text{U}(\text{OH})_4(\text{am})$ の溶解度は、中性領域で $10^{-8}\text{mol}/\text{dm}^3$ 程度と報告されており (Guillaumont et al., 2003)、ウラン(IV)とISAが可溶性の錯体を形成することにより見かけの溶解度が上昇したと考えられる。また、溶存ウラン濃度のフィルター孔径依存性も見られなかったことから、本実験条件ではコロイドの生成は確認されなかった。

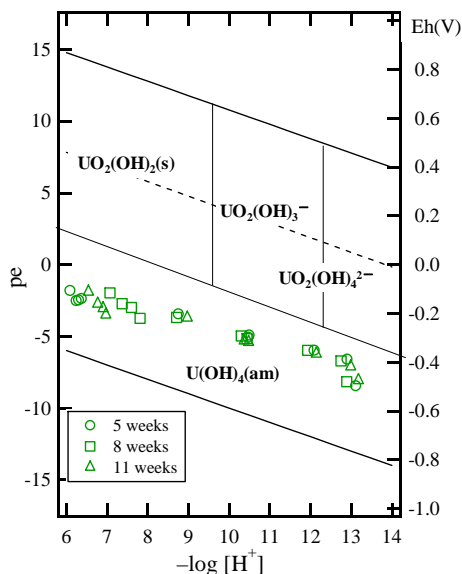


図 3.2.4-9 試料溶液の pH および Eh 測定結果

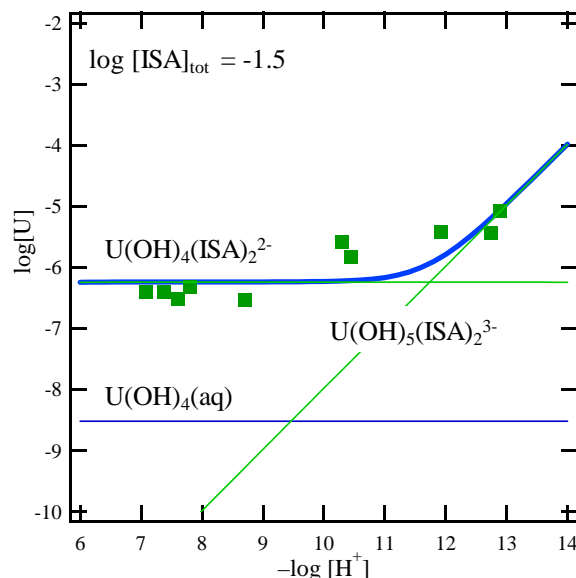


図 3.2.4-10 ISA 共存下での溶存ウラン(IV)濃度の例と最小二乗適合の結果 (8 週間後, ISA 濃度 $10^{-1.5}\text{mol}/\text{dm}^3$)

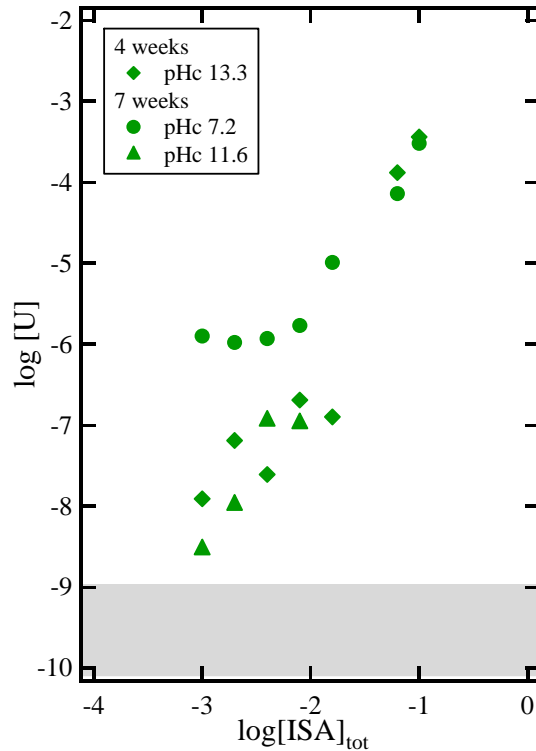


図 3. 2. 4-11 溶存ウラン(IV)濃度の ISA 濃度依存性 (10kDa 通過成分)

得られた溶存ウラン濃度の pH および ISA 濃度依存性について、反応の平衡定数をパラメータとした最小二乗適合を実施した。図 3. 2. 4-11 に示す溶存ウラン(IV)濃度の ISA 依存性が概ね傾き 2 の直線となったことから、支配的な溶存化学種として、ISA 酸共存下でのジルコニウムの溶解度データを解釈する際に提案 (Kobayashi et al., 2017) したものと同組成の錯体である $U(OH)_4(ISA)_2^{2-}$ および $U(OH)_5(ISA)_2^{3-}$ を仮定した。併せて、ウラン(IV)の加水分解種の存在を仮定した。最小二乗適合の結果を図 3. 2. 4-10 の実線で、得られた反応の平衡定数を表 3. 2. 4-2 に示す。 $U(OH)_4(ISA)_2^{2-}$ の錯生成定数の値は、Warwick et al. (2004) の報告値 ($\log \beta_{142}^{\circ} = 49.6$) と近い値を示した。また、 $U(OH)_4(ISA)_2^{2-}$ 及び $U(OH)_5(ISA)_2^{3-}$ の錯生成定数をジルコニウムの報告値 (それぞれ 54.2 及び 55.6) (Kobayashi et al., 2017) と比較すると、いずれもウラン(IV)の値の方が 3~4 桁低いことがわかった。

表 3. 2. 4-2 ウラン(IV)の加水分解種およびイソサッカリン酸錯体の熱力学データ

Reactions	Values	Ref.
$UO_2(am) + 2H_2O \rightleftharpoons U^{4+} + 4OH^{-}$	$\log K_{sp4}^{\circ}$ -54.5	Guillaumont et al., 2003
$U^{4+} + OH^{-} \rightleftharpoons UOH^{3+}$	$\log \beta_{110}^{\circ}$ 13.46	
$U^{4+} + 4OH^{-} \rightleftharpoons U(OH)_4(aq)$	$\log \beta_{140}^{\circ}$ 46	
$U^{4+} + 4OH^{-} + 2ISA^{-} \rightleftharpoons U(OH)_4(ISA)_2^{2-}$	$\log \beta_{142}^{\circ}$ 50.8 ± 0.1	This work
$U^{4+} + 5OH^{-} + 2ISA^{-} \rightleftharpoons U(OH)_5(ISA)_2^{3-}$	$\log \beta_{152}^{\circ}$ 52.1 ± 0.2	

3.3 多様な廃棄物の影響を考慮した共処分概念案の構築

諸外国においても、わが国のTRU廃棄物に相当する廃棄物とHLWとの共処分を想定して、共処分の概念を具体的に提示している事例がみられる。こうした諸外国の検討例を調査し、これに基づき、共処分概念の構築に関する検討を進めていくことが必要である。

平成25年度から平成26年度は、わが国のTRU廃棄物に相当する廃棄物とHLWとの共処分概念を具体的に提示している国を対象に、共処分概念の検討事例及び適切な共処分概念の検討手法の調査を行った。各国(調査対象国: スイス、フランス、ベルギー、英国)ともにHLWとTRU廃棄物の処分施設について熱、水理、力学、化学の観点からの相互作用を低減させるために、数百メートルの離間距離を設けた処分概念が示されていた。具体的な相互作用の検討事例として、TRU廃棄物処分施設からの高pHプルームの影響、及びHLWの発熱のTRU廃棄物処分施設に対する影響が検討されていた。

本事業では、平成25年度から平成26年度にかけて適切な共処分概念を検討するため、汎用のマルチフィジックス解析コードであるCOMSOL Multiphysics®(以下、COMSOL (<http://www.kesco.co.jp/comsol/>))を用いて、熱解析を行った。この熱解析では、第2次TRUレポートの処分坑道レイアウトにおける発熱性のTRU廃棄物グループ2の影響について、非定常の熱伝導解析を行った。その結果、100m程度離れるとグループ2の発熱による温度上昇は、1°C程度であることが示された。フランスでも、発熱性廃棄物の熱影響を考慮した処分施設レイアウトの検討結果が報告されており、熱影響を受けやすいアスファルト固化体について、核種閉じ込め性能が損なわれないように、離間距離を非定常の熱伝導解析により決定している。

平成27年度は、TRU廃棄物の処分坑道を含む1,000m×1,000m×500m規模の3次元体系を使用した硝酸イオンの移行解析を実施した。モデル地下水(降水系高pH型地下水)の全窒素濃度を大きく超える範囲を硝酸イオンの影響範囲とすると、HLWやTRU廃棄物グループ1、2、4の処分坑道パネルから300m程度下流側に硝酸塩を含むTRU廃棄物グループ3を設置する必要があるとの結果が得られた。また、得られた結果を参考に共処分概念を例示した。

平成28年度は、平成27年度に作成した3次元解析体系を見直し、改めて硝酸イオンの移行解析、及び硝酸イオン存在下での放射性核種の移行解析を実施した。硝酸イオンおよび核種のいずれに対しても、平成27年度の検討と同様に、移流分散により移行するものとし、ここでは硝酸イオンの化学変遷については考慮しなかった。放射性核種の移行解析においては、移行パラメータを硝酸イオン濃度の関数として定義し、連続的に移行パラメータが変化する設定とした。また、母岩の透水係数及び処分レイアウトに関する感度解析を実施し、試行的な安全性の評価を実施した。

3.3.1 硝酸塩及び硝酸塩の影響を考慮した放射性核種の移行解析

平成27年度に作成した解析体系を見直し、硝酸イオン及びTRU放射性廃棄物に含まれる放射性核種の中で最も線量に大きく影響するI-129の移行解析を実施した。I-129の移行解析においては、収着分配係数及び実効拡散係数を硝酸イオン濃度の関数として定義し、硝酸イオンの影響により連続的に値が変化する設定とした。

解析結果については、3次元体系各面(図3.3.1-1)からの硝酸イオン及びI-129の流束(mol/y)を確認した。また、TRU廃棄物グループ1のみにI-129を与えた場合及び、TRU廃棄物グループ3のみにI-129を与えた場合を実施しI-129の移行挙動について確認した。加えて、平成27年度と同様に硝酸イオンの拡がりを確認し、その影響範囲について検討を行った。

(1) 解析条件

1) 方程式及び使用解析コード

移行解析には地下水流動解析及び溶存物質の移流分散解析を実施することができる有限要素法の汎用解析コードCOMSOLを使用した。硝酸イオン及びI-129の移行解析は、媒体への線形収着を考慮した移流分散モデル(式(3.3.1-1)及び式(3.3.1-2))であり、地下水流動はダルシー則に基づくモデル(式(3.3.1-3))である。

$$R \frac{\partial C_i}{\partial t} = \nabla \cdot (De_i + \alpha v) \nabla C_i - v \nabla C_i \quad (3.3.1-1)$$

$$R = \phi + \rho Kd_i \quad (3.3.1-2)$$

$$v = -K \nabla p \quad (3.3.1-3)$$

ここで、Rは吸着容量、 C_i は硝酸イオンまたはI-129の濃度、 De_i は硝酸イオンまたはI-129の実効拡散係数、 α は分散長、 v は地下水のダルシー流速、 ϕ は媒体の間隙率、 ρ は媒体のかさ密度、 Kd_i は硝酸イオンまたはI-129の収着分配係数、 K は媒体の透水係数、 p は圧力水頭である。

2) 解析体系

解析体系及び処分坑道レイアウトを図3.3.1-1に示す。平成27年度と同様に、結晶質岩に比べ硝酸イオンの拡がり大きい堆積岩を対象とし、深度500mに処分施設が建設されるものとした。但し、地表から深度200mまでの範囲には堆積層及び帯水層が存在することを想定し、解析体系の上面は帯水層と接しているものとした。図3.3.1-1に示す下流面は地下水の流れ方向に対して下流側であり、第2次TRUレポートのレファレンスケースを参考に、最も近い処分坑道(⑭)の壁面から100mの位置に設定した。上流面、側面(Gr1側)、側面(Gr3側)は最も近い処分坑道壁面から1km、解析体系の下面は深さ2.7kmの位置に設定した。

処分坑道レイアウトは地層処分の実施主体である原子力発電環境整備機構で検討されたもの(原子力発電環境整備機構, 2014)を参考に作成した。図3.3.1-1に示した処分坑道のレイアウトでは、TRU廃棄物グループ1は①、グループ2は②～⑦、グループ4は⑧～⑭、グループ3は⑮～⑰に埋設されるものとした。

処分坑道の断面形状についても(原子力発電環境整備機構, 2014)に基づき作成した。緩衝材を用いた処分坑道(埋め戻し材: ベントナイト系材料を想定)として処分坑道①を、緩衝材を用いない処分坑道(埋め戻し材: セメント系材料を想定)として処分坑道⑮の断面形状を例として図3.3.1-2に示す。処分坑道周囲には、平成27年度と同様に、第2次TRUレポートを参考に幅3mの掘削影響領域を設定した。

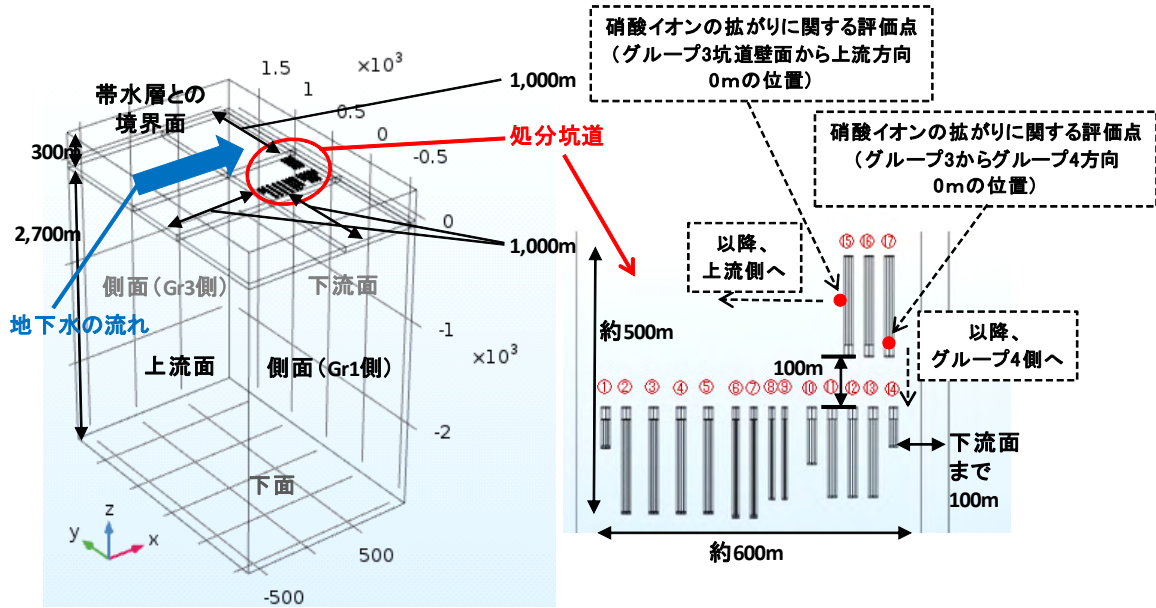


図3.3.1-1 解析体系 (左：全体図、右：処分坑道レイアウト)

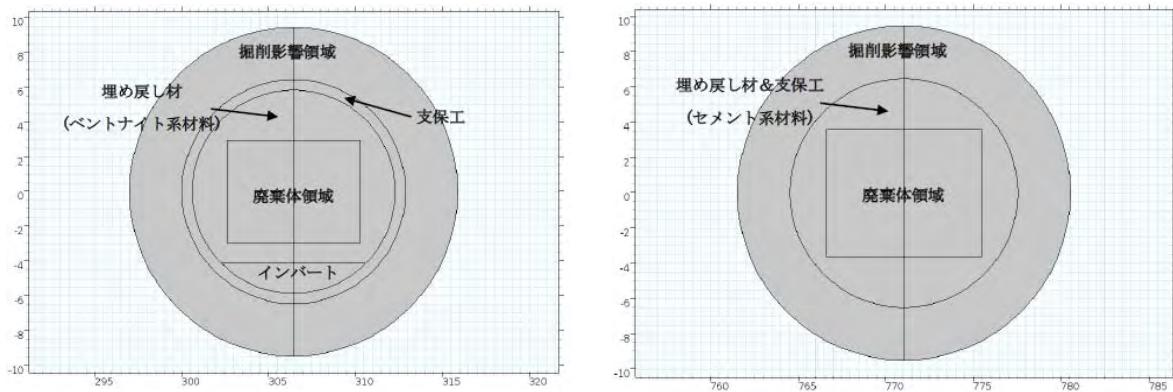


図3.3.1-2 処分坑道断面の例 (左：処分坑道①、右：処分坑道⑮)

3) 設定値

① 物性値

第2次TRUレポートを参考に設定した物性値を表3.3.1-1に示す。母岩は堆積岩を想定し、掘削影響領域の透水係数は、掘削時の影響を受け母岩の透水係数の100倍に上昇したと仮定する。インパート並びに、グループ3及び4の埋め戻し材及び支保工は、W/C=45%のコンクリートを想定した。グループ1及び2の埋め戻し材は圧縮成形ベントナイト(ベントナイト70wt%、砂30wt%)を想定し、初めからCa型ベントナイトになっていると仮定した。先述のように廃棄体領域は種々のTRU廃棄物及び材料により構成されると考えられるが、本解析体系では同一条件のモルタルであることを仮定し、その物性値を設定した。

分散長については、図3.3.1-1に示した初期に設定した地下水の流れ方向を基準にするものではなく、解析により求められた流れ方向を基準に水平方向及び垂直方向を判断し、要素ごとに異なる値を設定

した。処分坑道内の領域の代表長さは埋め戻し材の代表厚さ1mとし、地下水の流れに水平方向(縦分散長)は0.1m(代表長さの10分の1)、垂直方向(横分散長)は0.01m(水平方向設定値の10分の1)を設定した。同様に、掘削影響領域は代表長さを作成した厚さである3mとし、地下水の流れに水平方向は0.3m、垂直方向は0.03mを設定した。母岩は下流面と最も近い処分坑道壁面までの距離である100mで代表させ水平方向は10m、垂直方向は1mと設定した。

表3.3.1-1 体系を構成する領域に設定した物性値

領域	想定した材料	かさ密度 (kg/m ³)	透水係数 (m/s)	間隙率 (-)	分散長(m)	
					水平方向 (縦分散長)	垂直方向 (横分散長)
廃棄体領域	モルタル	2,090	4.0×10^{-6}	0.19	0.1	0.01
グループ1、2の埋め戻し材	ベントナイト系材料	1,600	2.0×10^{-11}	0.40		
グループ3、4の埋め戻し材、支保工、インバート	コンクリート	2,279	4.0×10^{-6}	0.13		
掘削影響領域	堆積岩	1,890	1.0×10^{-7}	0.30	0.3	0.03
母岩		同上	1.0×10^{-9}	同上	10	1

②初期物質質量

原子力発電環境整備機構(2014)を参考に、処分坑道ごと(図3.3.1-1に示す処分坑道①～⑰)に与えた初期物質質量(mol)を表3.3.1-2に示す。複数の処分坑道として示されている値は対象の処分坑道に含まれる合計の値であり、硝酸塩の初期物質質量は発生が想定される硝酸塩を全て硝酸ナトリウムと仮定して算出した。

表3.3.1-2 処分坑道ごとの初期物質質量

処分坑道	初期物質質量(mol)		処分坑道	初期物質質量(mol)	
	I-129	硝酸イオン		I-129	硝酸イオン
①	7.01×10^4	0	⑩	1.78	0
②～⑤	1.94×10^2	0	⑪～⑬	1.33×10^{-1}	0
⑥、⑦	1.19×10^2	0	⑭	1.21×10^{-2}	0
⑧、⑨	3.56	0	⑮～⑰	8.43×10^2	3.99×10^7

※発生から25年経過を想定

③収着分配係数及び実効拡散係数

a. 硝酸イオン

表3.3.1-3に第2次TRUレポートを参考に設定した硝酸イオンの収着分配係数及び実効拡散係数を示す。ただし、ベントナイト系材料における実効拡散係数については、同じ陰イオンであることから、

後述のI-129と共通とした。

b. I-129

硝酸塩の影響を考慮しない場合のI-129の収着分配係数及び実効拡散係数の値を表3.3.1-3に示す。これらの値については、第2次TRUレポートから引用した。

硝酸塩の影響を考慮する場合のI-129の収着分配係数の設定の概念および実効拡散係数の設定の概念を図3.3.1-3、図3.3.1-4及び表3.3.1-4に示す。第2次TRUレポートにおける、硝酸塩を多量に含むTRU廃棄物グループ3を対象とした核種移行解析では、母岩に対する核種の収着分配係数について、硝酸塩の影響を考慮し、一部の核種については、硝酸塩の影響を考慮しない他の廃棄物グループの値より低い値に設定して核種移行解析が行われている。本解析では、図3.3.1-3に示されるように、地下水中の硝酸イオン濃度が、降水系高pH地下水(以下、FRHP)に含まれる全陰イオン濃度の1/10 ($3.9 \times 10^{-4} \text{ mol/dm}^3$ に相当)以上に達すると、収着分配係数の値が低下し始めるものとし、FRHPに含まれる全陰イオン濃度 ($3.9 \times 10^{-3} \text{ mol/dm}^3$)に達すると、硝酸イオンによる影響を考慮しない値の1/100まで低下するものとした。

例えば、セメント系材料の場合では、硝酸イオン濃度が $3.9 \times 10^{-4} \text{ mol/dm}^3$ 以下であれば、収着分配係数は硝酸塩の影響を受けないと想定した場合の値 ($1.25 \times 10^{-4} \text{ m}^3/\text{kg}$)と等しくなるが、 $3.9 \times 10^{-4} \text{ mol/dm}^3$ 以上では、収着分配係数は硝酸イオン濃度の増加と共に減少し、 $3.9 \times 10^{-3} \text{ mol/dm}^3$ 以上では、硝酸塩の影響を受けないと想定した場合の1/100である $1.25 \times 10^{-6} \text{ m}^3/\text{kg}$ まで減少する(図3.3.1-3)。セメント系材料および母岩(掘削影響領域を含む)に対する収着分配係数については、このような考え方にに基づき、硝酸イオン濃度に依存した収着分配係数の値を用いて解析を行った。ベントナイト系材料については、硝酸塩の影響を受けない場合でも収着しないものと想定しているため、硝酸イオン濃度による依存性を考慮せず、収着分配係数が常に0であるとした。

I-129の実効拡散係数については、既往の研究(Ishidera et al., 2008)において、硝酸塩濃度を変化させた場合のベントナイト系材料中での試験データが取得されている。本解析では、これを参考として、図3.3.1-4に示すように、硝酸イオン濃度が 0.1 mol/dm^3 から 5 mol/dm^3 範囲においてI-129の実効拡散係数が増加するとし、試験データを参考にその増加特性を定義した。

表3.3.1-3 硝酸イオンの収着分配係数及び実効拡散係数並びに硝酸塩の影響を受けないと想定したI-129の収着分配係数及び実効拡散係数の設定値

構成要素	収着分配係数 (m^3/kg)		実効拡散係数 (m^2/s)	
	I-129	硝酸イオン	I-129	硝酸イオン
廃棄体領域 セメント系材料 インバート	1.25×10^{-4}	1.00×10^{-4}	8.0×10^{-10}	
ベントナイト系材料	0		4.0×10^{-11}	
掘削影響領域 母岩	1.00×10^{-4}		1.2×10^{-9}	

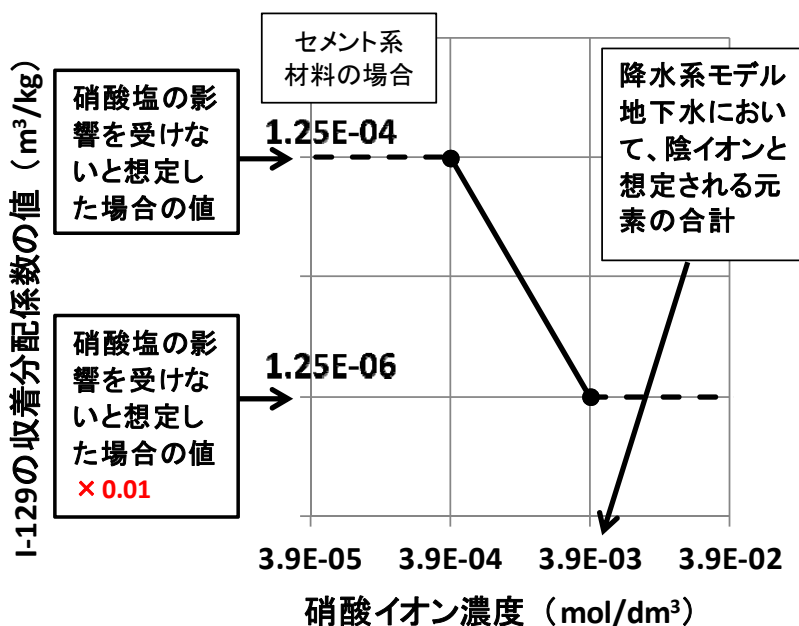


図3.3.1-3 硝酸塩の影響を受けると想定したI-129の収着分配係数の設定

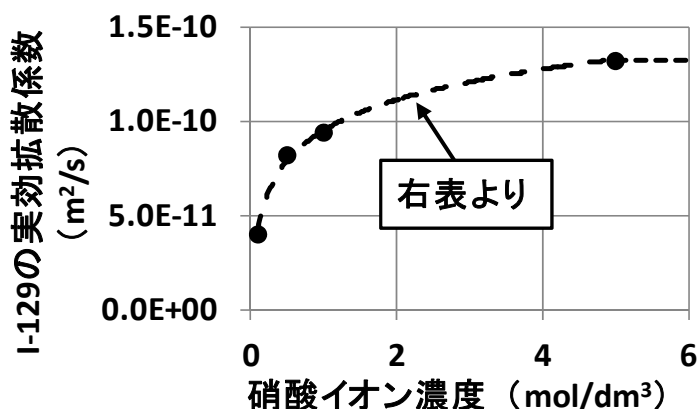


表3.3.1-4 試験データ (Ishidera et al., 2008) を参考に設定したベントナイト系材料に対するI-129の実効拡散係数

硝酸イオン濃度 (mol/dm ³)	I-129の実効拡散係数 (m ² /s)
0.1以下	硝酸イオン濃度 0.1mol/dm ³ と同じ値
0.1	4.0E-11
0.5	8.2E-11
1	9.4E-11
5	1.3E-10
5以上	硝酸イオン濃度 5mol/dm ³ と同じ値

図3.3.1-4 硝酸塩の影響を受けると想定したベントナイト系材料に対するI-129の実効拡散係数の設定

④その他解析条件

その他の解析条件を以下に示す。

- ・動水勾配 : 図3.3.1-1に示す地下水の流れ方向に対して0.01と設定した。
- ・境界条件 : 全ての境界面において濃度を0 mol/dm³に固定した。
上流面及び下流面以外の境界面に対しては、通過するフラックスがゼロとなる条件とした。
- ・初期条件 : 硝酸イオン及びI-129が、図3.3.1-2に示す廃棄体領域において均一に存在するものとした。
- ・I-129の崩壊 : I-129の崩壊による減衰を考慮した(半減期: 1.57×10⁷年)。

(2) 結果

1) 外側境界面からの硝酸イオン及びI-129の流束

図3. 3. 1-5に外側境界面(図3. 3. 1-1)からの硝酸イオンの流束、図3. 3. 1-6に各面からのI-129の流束を示す。

硝酸イオンにおいては下流面からの流束が最も大きく、次いで帯水層との境界面からの流束が大きい結果となった。

I-129においては帯水層との境界面及び下流面からの流束が大きく、特に下流面では約3万年と約50万年に流束が最大となる2つのピークが観察された。この下流面に見られる2つのピーク及び帯水層との境界面からの流束を支配するI-129が含まれるTRU廃棄物グループを確認するため、TRU廃棄物グループ1のみにI-129を与えた場合、及びTRU廃棄物グループ3のみにI-129を与えた場合の核種移行解析を実施した。結果を図3. 3. 1-7及び図3. 3. 1-8に示す。図3. 3. 1-7より、帯水層との境界面からのI-129の流束はTRU廃棄物グループ1に含まれるものが支配的であることを確認した。また、図3. 3. 1-8より、下流面において約3万年後に最大値を持つピークはTRU廃棄物グループ3に含まれるもの、約50万年後に最大値を持つピークはTRU廃棄物グループ1に含まれるものを確認した。

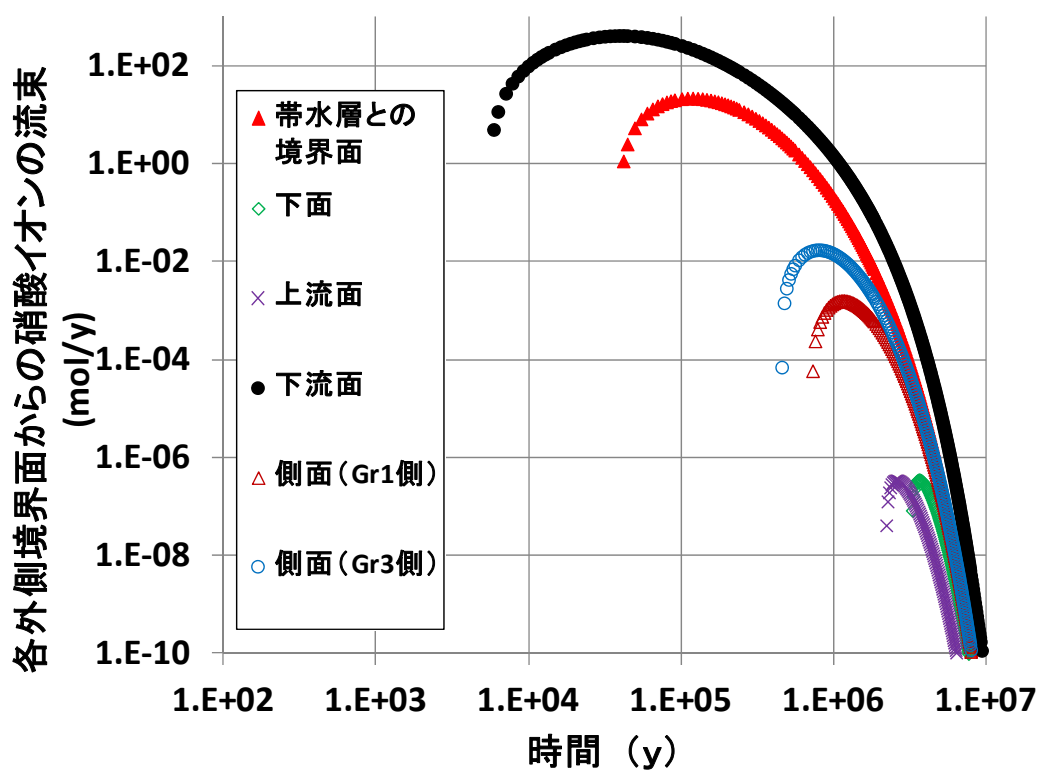


図3. 3. 1-5 各外部境界面からの硝酸イオンの流束

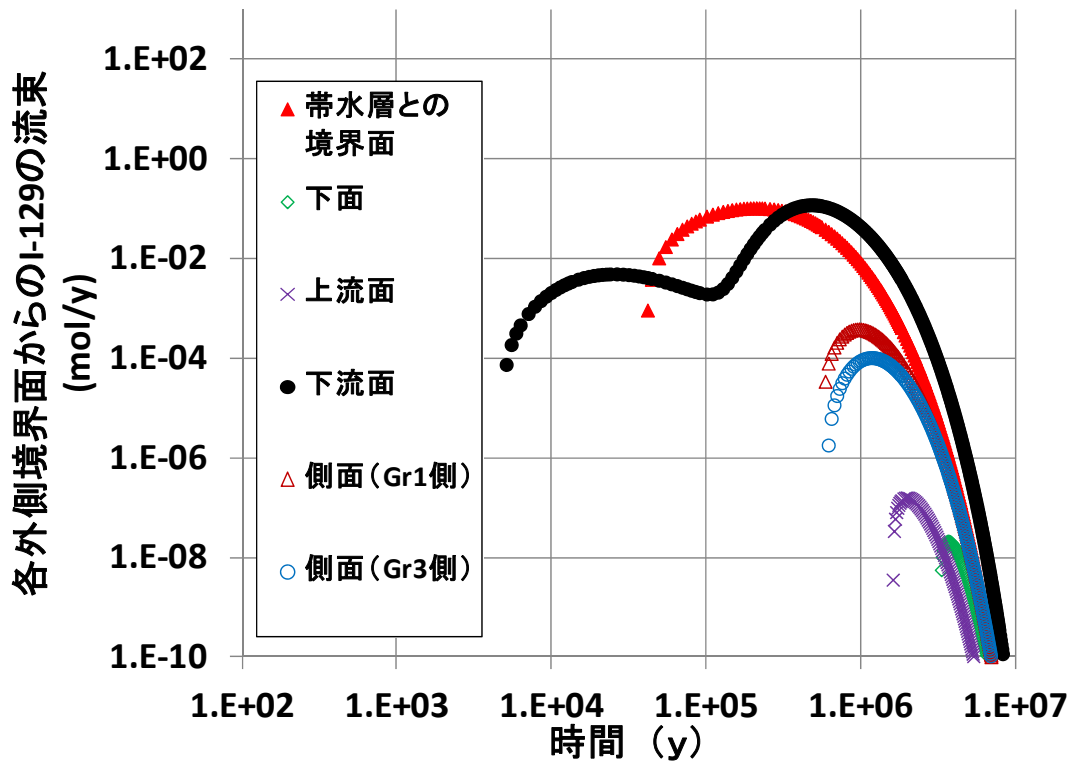


図3. 3. 1-6 各外部境界面からのI-129の流束

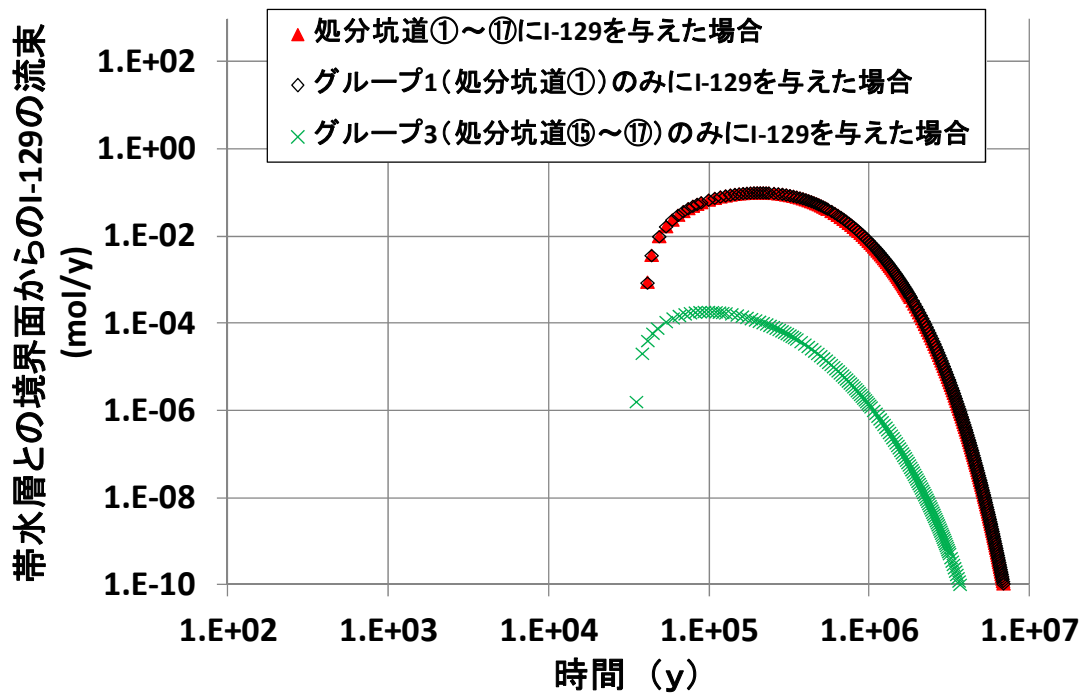


図3. 3. 1-7 初期物質質量を変化させた場合における帯水層との境界面からのI-129の流束

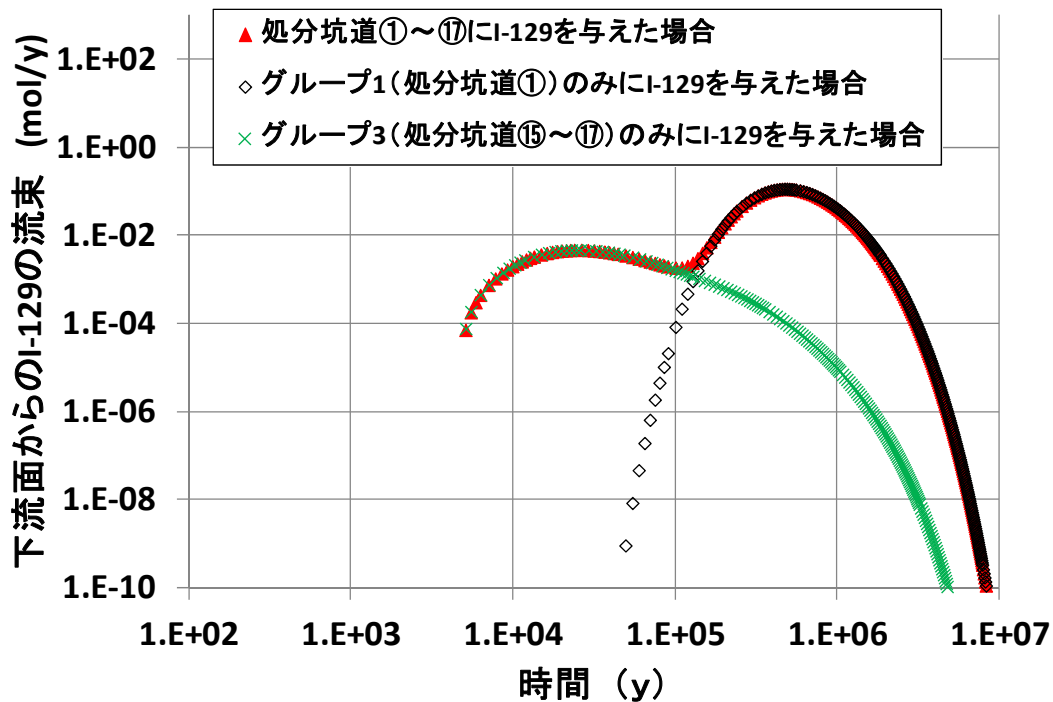


図3. 3. 1-8 初期物質質量を変化させた場合における下流面からのI-129の流束

2) 硝酸イオンの拡がり

TRU廃棄物グループ3に含まれる硝酸イオンの拡がりを確認するため、TRU廃棄物グループ3(処分坑道⑮)から上流側への各位置及び、TRU廃棄物グループ3からTRU廃棄物グループ4方向(処分坑道⑰から処分坑道⑭)への各位置(図3. 3. 1-1 破線枠内)(0m、100m、200m、300m、400m、500m)における硝酸イオン濃度の経時変化を、それぞれ図3. 3. 1-9及び図3. 3. 1-10に示す。

本解析で設定した、I-129の収着分配係数及び実効拡散係数が硝酸イオンの影響を受け、値が変化する下限値($3.9 \times 10^{-4} \text{ mol/dm}^3$ (FRHPに含まれる全陰イオン濃度の10分の1))を基準とすると、その影響範囲は地下水の流れ方向に対して上流方向及び垂直方向のいずれにおいても、200m程度であること確認された。図3. 3. 1-9及び図3. 3. 1-10を比較するとその形状に大きな違いが見られないことから、本解析条件においては移流ではなく、分散による移行が支配的であったと考えられる。

第2次TRUレポートにおける共処分の検討においては、①ベントナイト系材料と母岩の変質への影響、②ベントナイト系材料の透水性に対する影響、③放射性核種の人工バリア・天然バリアへの吸着性への影響、④炭素鋼等の金属腐食に対する影響について検討し、硝酸イオン濃度が $1 \times 10^{-4} \text{ mol/dm}^3$ 程度であれば、①から④に対して有意な影響を生じることはないと判断している。硝酸イオンの影響範囲について、仮に硝酸イオン濃度 $1 \times 10^{-4} \text{ mol/dm}^3$ を基準としても、その影響範囲は300m程度であり、適切な処分レイアウトを検討することで硝酸塩の影響を避けることが可能であると考えられる。

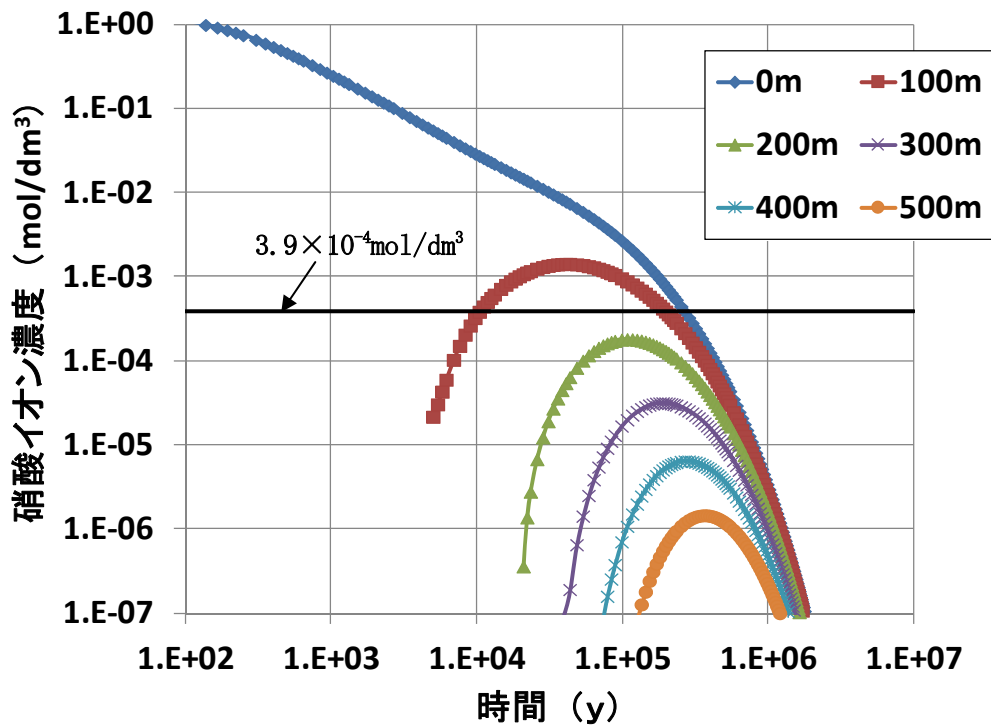


図3.3.1-9 TRU廃棄物グループ3から上流側への硝酸イオンの拡がり

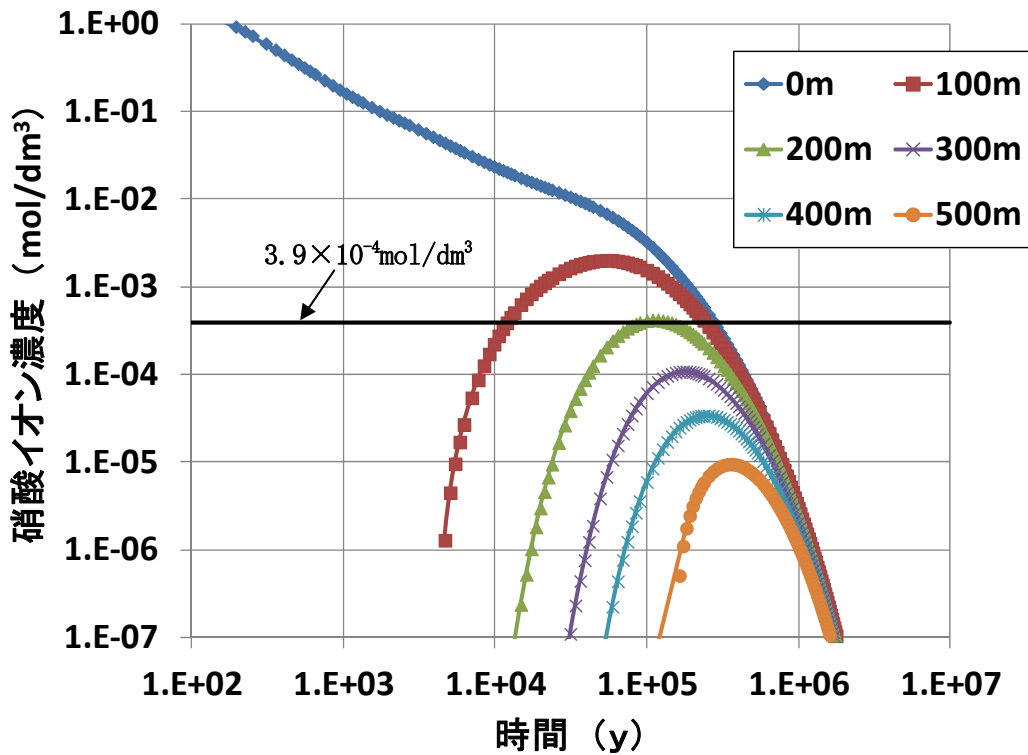


図3.3.1-10 TRU廃棄物グループ3からTRU廃棄物グループ4方向への硝酸イオンの拡がり

3.3.2 感度解析及び試行的な安全性の評価

3.3.1の移行解析の結果より、本解析条件における移行は分散が支配的であると考えられた。これを受け、移流に関する条件を変化させることを目的に、母岩の透水係数に着目した感度解析を実施した。また処分レイアウトに関する感度解析として、平成27年度に作成した処分レイアウト(図3.3.2-1)と本年度作成した処分レイアウト(図3.3.1-1)について核種移行解析を実施した。それぞれの感度解析結果については下流面におけるI-129の流束を線量(Sv/y)に換算し、試行的な安全性の評価を行った。

(1) 感度解析条件及びI-129の線量換算係数

1) 解析条件

① 母岩の透水係数に関する感度解析

先述したように、移流に関する条件を変化させることを目的に、母岩の透水係数を3.3.1の解析条件(母岩の透水係数： 1×10^{-9} m/s)をレファレンスとして、0.1倍、10倍、100倍の3水準についてI-129の核種移行解析を実施した。その他の解析条件は3.3.1と同様である。

表3.3.2-1 母岩の透水係数の設定値

変更パラメータ		その他解析条件
母岩の透水係数(m/s)	備考	
1×10^{-10}	レファレンスの0.1倍	3.3.1で設定した解析条件(体系、構成要素の設定値、移行パラメータ、初期物質質量等)と同様
1×10^{-9}	レファレンス	
1×10^{-8}	レファレンスの10倍	
1×10^{-7}	レファレンスの100倍	

② 処分レイアウトの違いによる影響

処分レイアウトの違いによる影響を把握することを目的として、本年度作成した処分レイアウト(図3.3.1-1)と図3.3.2-1に示すレイアウトのそれぞれを対象として、硝酸塩の影響を考慮したI-129の核種移行解析を実施した。図3.3.2-1に示した処分レイアウトは、平成27年度の検討例と同様にTRU廃棄物グループ3処分坑道3本(処分坑道⑮～⑰)をTRU廃棄物グループ4処分坑道(処分坑道⑭)の下流側に配置したものである。その他解析条件(処分坑道断面、処分坑道から各面までの距離、各構成要素の設定値、処分坑道ごとに与える初期物質質量等)は3.3.1と同様である。

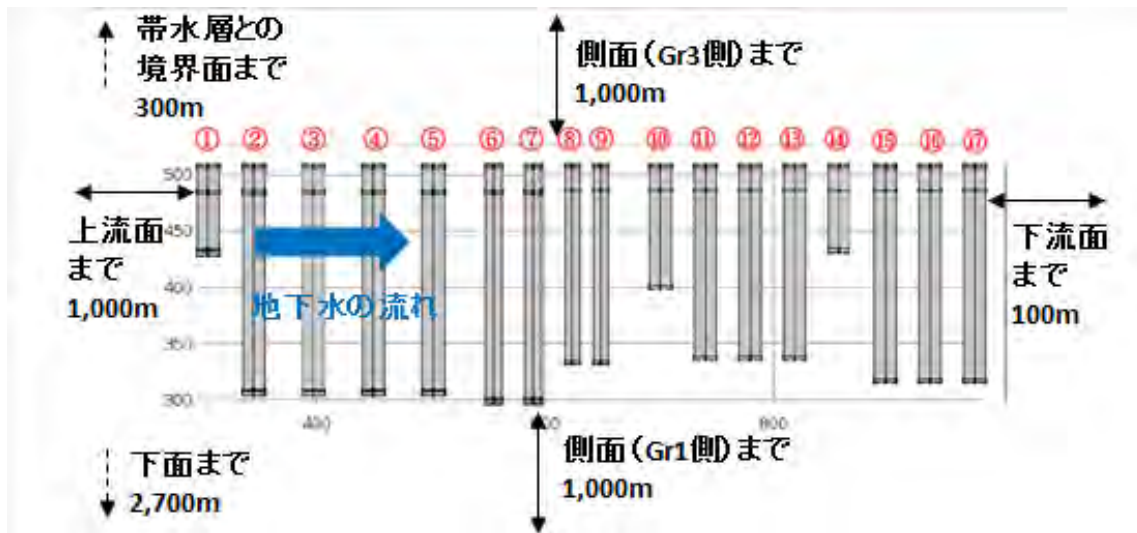


図3. 3. 2-1 平成27年度に作成した処分レイアウト

2) 評価対象の面及びI-129の線量換算係数

先述したように、それぞれの感度解析結果については、試行的な安全性の評価として、算出されたI-129の流束を線量に換算し検討を行った。

評価する面は下流面とし、I-129の線量換算係数は第2次TRUレポートにおける河川水利用シナリオ農作業従事者グループに対する値である $3.2 \times 10^{-15} (\text{Sv/y}) / (\text{Bq/y})$ を用いた。

(2) 結果

1) 母岩の透水係数に関する感度解析

母岩の透水係数 $1 \times 10^{-9} \text{m/s}$ をレファレンスとして、0.1倍($1 \times 10^{-10} \text{m/s}$)、10倍($1 \times 10^{-8} \text{m/s}$)、100倍($1 \times 10^{-7} \text{m/s}$)に設定した場合における下流面からのI-129による線量を図3. 3. 2-2に示す。母岩の透水係数を $1 \times 10^{-10} \text{m/s}$ と設定し、移流による移行が不利な方向に設定した場合、TRU廃棄物グループ3に含まれるI-129が支配的なピークには大きな変化が見られなかった($0.013 \mu \text{Sv/y}$ 程度(約3万年))。一方、TRU廃棄物グループ1に含まれるI-129が支配的なピークは、母岩の透水係数が $1 \times 10^{-9} \text{m/s}$ の場合に約50万年で最大値 $0.3 \mu \text{Sv/y}$ 程度であったのに対し、 $1 \times 10^{-10} \text{m/s}$ の場合は約70万年で最大値 $0.05 \mu \text{Sv/y}$ 程度と減少した。

母岩の透水係数を $1 \times 10^{-8} \text{m/s}$ 、 $1 \times 10^{-7} \text{m/s}$ と設定した場合は、TRU廃棄物グループ3に含まれるI-129が支配的となるピーク及びTRU廃棄物グループ1に含まれるI-129が支配的となるピークともに、最大値の増加及び時間の減少が確認された。

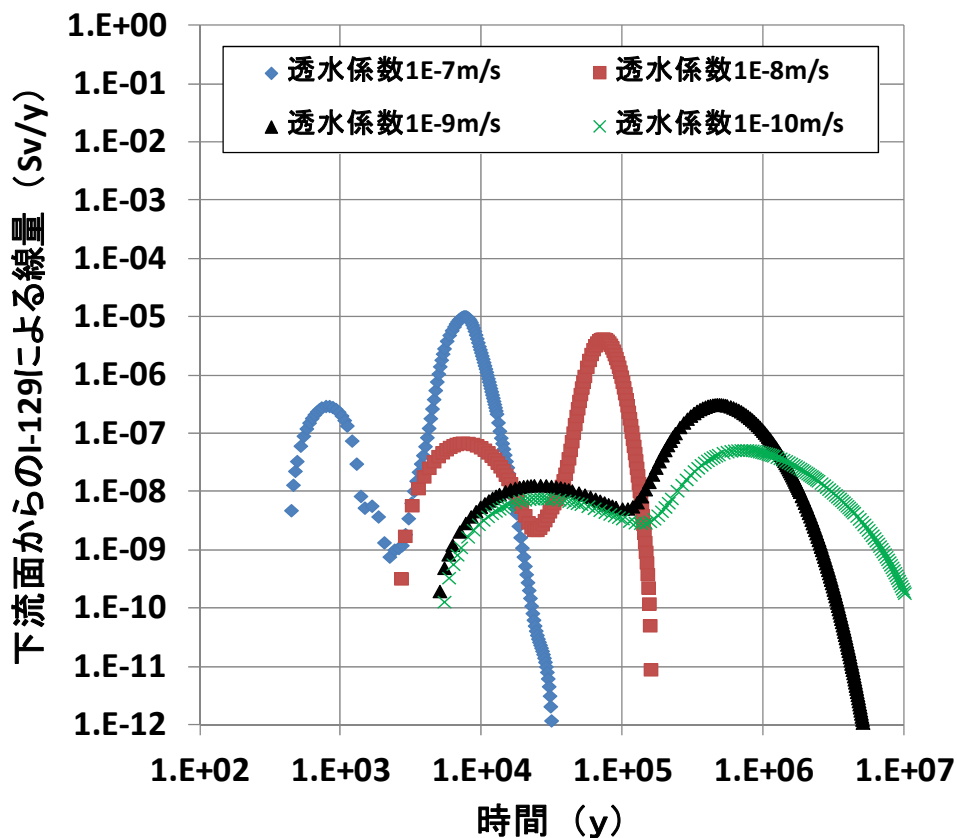


図3.3.2-2 母岩の透水係数を変化させた場合の下流面からのI-129による線量

2) 処分レイアウトの違いによる影響

図3.3.1-1及び図3.3.2-1に示した処分レイアウトによる下流面からのI-129による線量を図3.3.2-3に示す。全体的には大きな違いは見られず、平成27年度に作成した処分レイアウトにおいても、約10万年までのTRU廃棄物グループ3に含まれるI-129が支配的となるピーク及び、その後のTRU廃棄物グループ1に含まれるI-129が支配的となるピークが確認された。しかし、平成27年度に作成した処分レイアウトでは、10万年以降のピーク形状が僅かに長時間側にシフトしている傾向が確認された。この傾向については硝酸イオンの影響やTRU廃棄物グループ1と下流面の距離に影響されたものと考えられる。

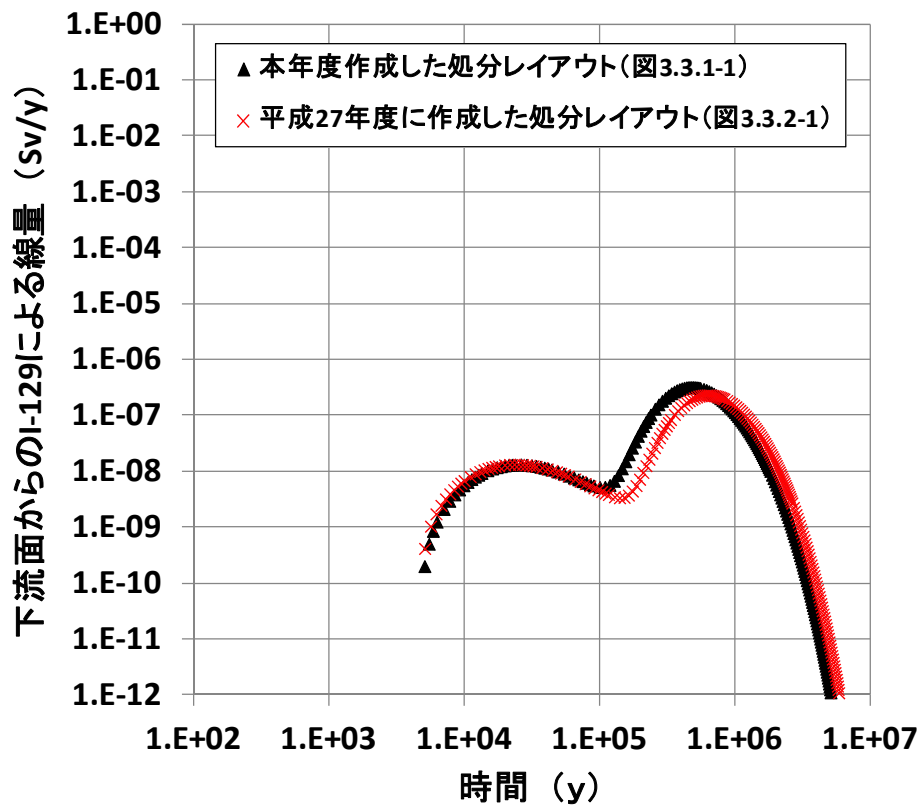


図3.3.2-3 処分レイアウト変更による下流面からのI-129による線量

3.4 まとめ

本章で得られた成果について、以下にまとめる。

3.4.1 廃棄物の特性を踏まえた共処分への影響評価技術開発

(1) 種々の廃棄物の特性評価と廃棄物由来の影響因子の影響調査

硝酸塩含有廃棄物として、模擬アスファルト固化体を対象に従来から特にデータが不足している低温領域における発熱量測定を行った。得られたデータを参考に、アスファルトと硝酸塩の温度による固液状態の変化やアスファルトと硝酸塩の反応によって生じる生成物層の影響を考慮したモデル(H28検討モデル)による定式化を行った。H28検討モデルを用いることにより、アレニウス型モデルよりも測定結果をより良く再現できることが確認された。

H28検討モデルを用い、改めて地層処分環境において、熱反応暴走が誘発される温度について熱収支解析を行った。その結果、地層処分環境が195℃以上の温度条件となる場合、熱反応暴走が誘発される可能性が示された。熱反応暴走を誘発させる事象として微生物活動による発熱や高温流体の接近について評価を行ったが、現時点の知見ではこれらの事象による熱反応暴走の誘発の可能性は小さいことが明らかとなった。さらに、処分施設作業時におけるトンネル火災を想定した熱反応暴走の可能性についても評価したが、トンネル内の火災発生防止策として、発火要因や燃えるものを持ち込まないなどの対策が講じられることにより、その発生の可能性は低いことが示された。

(2) 廃棄物由来の影響因子の化学環境影響評価

硝酸塩の化学的変遷モデルの信頼性向上のための確証試験を実施した。確証試験の実施にあたっては、還元性鉱物との反応による化学的変遷モデルを対象にアンプル試験及びカラム試験を実施した。アンプル試験では、温度80℃以下で300日での黄鉄鉱と硝酸イオンとの反応による変遷データを取得し、現状の化学変遷モデルとの解析結果とを比較した。300日での試験結果は概ね整合的であることが示されたが、経時的なデータ点数が少なく、モデルの適応性を評価する上で十分ではなかった。カラム試験については、昨年度の試験の再現性を確認するために150m及び300mmのカラムにアルミナ及び黄鉄混合物を充てんし、80℃での試験を10日及び30日間実施した。カラム端部からサンプリングした溶液の硝酸イオンとアンモニウムイオン濃度は、昨年度実施した結果とほぼ同等であり、試験の再現性を確認することができた。硝酸イオン変遷モデルによる解析結果との比較では、カラム長300mmの10日間の結果のみうまく再現することができなかった。これは、黄鉄鉱と硝酸イオンとの反応速度の設定よりは、温度80℃における硝酸イオンの拡散係数の設定に問題があると考えられた。自然界における硝酸性窒素の汚染事例に対するモデルの適用性については、広島県生口島での事例に対して、新たに報告された論文の情報を用いて硝酸イオン変遷モデルにて解析を行うことにより、より精度良く再現することができた。さらに、カナダのBoyne川近傍の事例を合わせて、ナチュラルアナログ事例解析結果を取りまとめた。

(3) 廃棄物由来の影響因子のバリア候補材料への影響評価

バリア候補材料への影響については、硝酸塩に由来するアンモニア等による緩衝材への影響を調べるための変質試験及び分子動力学計算による検討を行った。乾湿繰り返し試験によりアンモニウム型スメクタイトの非膨潤鉱物への変質を観察したところ、繰り返し回数75回においても、X線回折分析が

らは非膨潤鉱物への変質は確認されなかった。また、アンモニウムの一部がナトリウムに交換されているような変化を示したことから試料板のソーダガラスからの汚染が疑われ、試験方法を改善する必要性が示された。さらに、原子間力顕微鏡による観察においては、未変質と繰り返し試験後のアンモニウム型スメクタイトに顕著な違いが認められず、非膨潤鉱物への変質は確認されなかった。分子動力学計算においては、昨年度まで実施してきた混合エンタルピーによる水和挙動の評価において、相対湿度での評価が可能となるように化学ポテンシャルによる計算を実施した。その結果、低湿度側ではイオン半径と水和エネルギーが類似した K^+ と NH_4^+ の挙動が異なることが計算からも支持された。

バリア材料中でのスメクタイトのアンモニウム型への交換を定量的に取り扱うため、Na-スメクタイトへの NH_4^+ 吸着試験より陽イオン交換係数 $\log K_{Na/NH_4}$ の値(=0.58)を取得した。既存のデータ(0.52-0.60)と同程度の値を取得した。

(4) 廃棄物由来の影響因子の放射性核種への影響評価

廃棄体由来化学物質の一つであるイソサッカリン酸 (ISA) を用いて、ISA共存下における4価ジルコニウムおよびウラン (IV及びVI) の溶解度におよぼすISA影響を調べた。ISA共存下で生成するジルコニウムのコロイド種に着目し、3 kDaから0.45 μm までの異なる孔径のフィルターを用いてろ過することでコロイド種の粒径分布を調べた。コロイド種の粒径分布は、特にISA濃度 (ISA/Zr比) に応じて大きく変化し、ISA濃度が高い条件下ではコロイド種の生成は顕著ではなく、Zr-OH-ISAの単核錯体が支配種と考えられた一方、ISA濃度が低い条件下では数十nmサイズのコロイド種が生成されると考えられた。コロイド種の粒径が大きいほど、廃棄体周辺の緩衝材や岩盤中でのろ過効果による移行遅延が期待されることから、ISAなどの有機物存在下におけるコロイド種の存在状態を把握し、種々の液性条件下においてそれを予測するためのモデルを開発することは、核種移行評価の信頼性向上に不可欠である。より詳細な検討を進めるためには、粒径分布に留まらず、その生成メカニズムやコロイド種の化学構造などを明らかにすることが今後の課題と考えられる。

ウラン(IV)の溶解度測定では、得られた熱力学データにより溶解度の実験値を概ね再現できることが示され、ジルコニウムの溶解度測定において提案された錯体と同組成の錯体である $U(OH)_4(ISA)_2^{2-}$ および $U(OH)_5(ISA)_2^{3-}$ の存在を仮定し、溶解度実験値の熱力学解析を行うことでそれぞれの錯生成定数を決定することができた。一方、ウラン(VI)の溶解度の場合、 $UO_2(OH)_2(ISA)_2^{2-}$ の存在を仮定し、溶解度実験値の熱力学解析からその錯生成定数の値を求めることができた。しかし、溶解度実験値のpH依存性、特にアルカリ性pH領域でのデータの再現性に改善の余地があり、今後の課題である。

3.4.2 多様な廃棄物の影響を考慮した共処分概念案の構築

平成27年度に作成した3次元の解析体系を見直し、改めて硝酸イオンの移行解析を実施した。また、TRU廃棄物に含まれる代表的な放射性核種としてI-129を選定し、硝酸イオンの影響を受けると想定した核種移行解析を実施した。硝酸イオンの影響についてはI-129の移行パラメータ(各構成要素に対する収着分配係数及びベントナイト系材料に対する実効拡散係数)を硝酸イオン濃度の関数として定義し、連続的に移行パラメータが変化する設定とした。

硝酸イオンの拡がりについては、本解析で設定したI-129の移行パラメータが変化する下限値である $3.9 \times 10^{-4} \text{mol/dm}^3$ を基準とすると、硝酸イオンの影響範囲はTRU廃棄物グループ3の処分坑道から200m程度であることを確認した。I-129の移行挙動については、処分坑道から下流側100mにおける面の流束か

ら、TRU廃棄物グループ1に含まれるI-129及びTRU廃棄物グループ3に含まれるI-129に由来する2つのピークを確認した。

また、母岩の透水係数及び処分レイアウトの変更について感度解析を実施し、得られたI-129の流束結果を線量に換算することで、試行的な安全性の評価を試みた。母岩の透水係数については、 $1 \times 10^{-9} \text{m/s}$ をレファレンスとして0.1倍($1 \times 10^{-10} \text{m/s}$)、10倍($1 \times 10^{-8} \text{m/s}$)、100倍($1 \times 10^{-7} \text{m/s}$)に設定した場合、処分坑道から下流側100mにおいて最大線量が変化することを確認した。処分レイアウトの変更においては、平成27年度に作成した処分レイアウトと本年度作成した処分レイアウトを比較し、結果に大きな違いが見られないことを確認した。

参考文献

- 青木健次(2007)：微生物学，化学同人
- Appelo, C. A. J. (2013): PHREEQC version 3.
- Appelo, C. A. J. and Postma, D. (2005): Geochemistry, groundwater and pollution – second edition, CRC Press, p. 649.
- Bouakkaz R, Abdelouas A, Chaou A and El Mendili Y (2015): A borosilicate glass hydration at low temperature, Journal of Chemical and Pharmaceutical Research, 7(7): 332-337.
- Boudon, S., & Wipff, G. (1991). Free energy calculations involving NH_4^+ in water. Journal of Computational Chemistry, 12(1), 42-51.
- Chaou A, Abdelouas A, El Mendili Y, Bouakkaz R, Utsunomiya S, Martin C and Bourbon X (2015): Vapor hydration of a simulated borosilicate nuclear waste glass in unsaturated conditions at 50 °C and 90 °C, RSC Advances, 5(29): 64538-64549.
- Cicel and Machajdik (1991): Potassium- and ammonium-treated montmorillonite. I Interstratified structures with ethylene glycol and water. Clays and Clay Miner., 39, 40-46.
- Colas, E., Grive, M., Rojo, I., Duro L. (2011): Solubility of $\text{ThO}_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}(\text{am})$ in the Presence of Gluconate, Radiochim. Acta, 99, 269-273.
- 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—第2次TRU廃棄物処分研究開発取りまとめ—, JNC TY1400 2005-013, FEPC TRU-TR2-2005-02.
- 土木学会原子力土木委員会地下環境部会編 (2001)：概要調査地区選定時に考慮すべき地質環境に関する基本的考え方，土木学会.
- 藤根昭彦，今本信雄 (1999)：アスファルト固化処理施設火災爆発事故の中期的課題の対応～ドラムの熱解析 (I)～(研究報告)，JNC TN8410 99-044.
- 藤根幸男，村田幹生，阿部仁，高田準一，塚本導雄，宮田定次郎，井田正明，渡辺眞樹男，内山軍蔵，朝倉俊英，杉川進，岡崎修二，宮内正勝，富樫喜博，茅野政道，永井晴康，加藤正平，中山真一，梅田幹，前田充，井澤直樹，西尾軍治，鴻坂厚夫 (1999b)：アスファルト固化処理施設火災・爆発事故の原因究明試験と環境影響評価，JAERI-Research 99-056.
- Fujiwara, K., Yamana, H., Fujii, T., Kawamoto, K., Sasaki T., Moriyama, H. (2005): Solubility Product of Hexavalent Uranium Hydrated Oxide, J. Nucl. Sci. Technol., 42, 289-294.
- 原子力委員会原子力バックエンド対策専門部会 (1997)：高レベル放射性廃棄物の地層処分研究開発等の今後の進め方について.
- 原子力発電環境整備機構 (2004)：概要調査地区選定上の考慮事項の背景と技術的根拠—「概要調査地区選定上の考慮事項」の説明資料，NUMO-TR-04-02.
- 原子力発電環境整備機構 (2011)：地層処分低レベル放射性廃棄物に関わる処分の技術と安全性 「処分場の概要」の説明資料，NUMO-TR-10-03
- 原子力発電環境整備機構 (2014)：地層処分低レベル放射性廃棄物の安全性向上に関する検討—多様な地質環境においても地層処分低レベル放射性廃棄物の処分の安全性と評価の信頼性をより一層高めることができる処分概念の検討—，NUMO-TR-1403
- 原子力委員長半減期低発熱放射性廃棄物処分技術検討会 (2006)：長半減期低発熱放射性廃棄物の地層処分の基本的考え方—高レベル放射性廃棄物との併置処分等の技術的成立性—

(<http://www.aec.go.jp/jicst/NC/senmon/tyohan/bosyu/060228/05.pdf>).

- Gautier M, Muller F, Le Forestier L, Beny JM and Guegan R (2010): NH₄-smectite: Characterization, hydration properties and hydro mechanical behaviour, *Applied Clay Science*, 49 (3), 247-254.
- Guillaumont, R. (Chair), Fanghänel, Th., Fuger, J., Grenthe, I., Neck, V., Palmer, D., Rand, M. (2003): Update on the Chemical Thermodynamics of Uranium, Neptunium, Plutonium, Americium and Technetium, Chemical Thermodynamics Series Volume 5, Nuclear Energy Agency in Organisation for Economic Co-operation and Development (OECD/NEA).
- 花木啓祐, 鄭紅, 市岡信也, 松尾友矩(1994): 生活排水の窒素除去過程で発生する一酸化二窒素, 土木学会第2回地球環境シンポジウム, p189-194
- 本田明, 加藤卓, 建石剛, 今北毅, 増田薫, 加藤修, 西村務 (2006): アルカリ性条件における炭素鋼の腐食に伴う硝酸イオンの化学的変遷挙動, 材料と環境, 第55巻, p. 458-465.
- 本田明, 増田薫, 今北毅, 加藤修, 西村務 (2009): アルカリ性条件における炭素鋼の腐食に伴う硝酸イオンの化学的変遷挙動のモデル化, 材料と環境, 第58巻, p. 182-189.
- 本田明, 増田薫, 建石剛, 加藤修, 井上博之 (2011): 高アルカリ性・高硝酸ナトリウム濃度条件における炭素鋼の腐食に伴う硝酸イオンの化学的変遷挙動とそのモデル化, 材料と環境, 第60巻, p. 541-552.
- Hasegawa, K., Li, Y. (2000): Explosion investigation of asphalt-salt mixtures in a reprocessing plant, *Journal of Hazardous Materials A79*(2000) 241-267
- Hill, A.R., Devito, K.J., Campagnolo, S. and Sanmugas, K. (2000): Subsurface denitrification in a forest riparian zone: Interactions between hydrology and supplies of nitrate and organic carbon, *Biogeochemistry*, 51, p.193-223.
- Ishidera, T., Miyamoto, S. and Sato, H. (2008): Effect of Sodium Nitrate on the Diffusion of Cl⁻ and I⁻ in Compacted Bentonite, *Journal of NUCLEAR SCIENCE and TECHNOLOGY*, Vol. 45, No. 7, p. 610-616.
- 化学便覧 (1993): 日本化学会編, 改訂4版 化学便覧 基礎編, 丸善, II-654.
- 楠田啓, 西山孝, 西田一彦(1992): 花崗岩の風化に伴う微小割れ目の形成と間隙率の発達について, 土質工学会論文報告集, Vol. 32, No. 2, 169-175
- Katsuyama, M., and Ohte, N. (2002): Determining the sources of stormflow from the fluorescence properties of dissolved organic carbon in a forested headwater catchment, *J. Hydrol.*, 268, p192-202
- Kobayashi, T., Teshima, T., Sasaki, T., Kitamura, A. (2017): Thermodynamic model for Zr solubility in the presence of gluconic acid and isosaccharinic acid, *J. Nucl. Sci. Technol.*, 54, 233-241.
- Kramer-Schnabel, U., Bischoff, H., Xi, R.H., Marx, G. (1992): Solubility products and complex formation equilibria in the systems uranyl hydroxide and uranyl carbonate at 25 °C and I=0.1M, *Radiochim. Acta*, 56, 183-188.
- Laudelot, H, R. van Bladel, G. H. Bolt, and A. L. Page. (1968): Thermodynamics of Heterovalent Cation Exchange Reactions in a Montmorillonite Clay. *Journal of the Chemical Society, Faraday Transactions 64*: 1477-88.

- Masuda, K., Murakami, H., Kurimoto, Y., Kato, O., Kato, K. and Honda, A. (2013) : Use of in-vitro experimental results to model in-situ experiments: bio-denitrification under geological disposal conditions, SpringerPlus, 2, 339.
- Masuda, K., Murakami, H., Kurimoto, Y., Kato, O., Kato, K. and Honda, A. (2013) : Use of in-vitro experimental results to model in-situ experiments: bio-denitrification under geological disposal conditions, SpringerPlus, 2, 339.
- Miklos and Cicel (1993) Development of interstratification in K- and NH₄-smectite from Jelsovy Potok (Slovakia) treated by wetting and drying. Clay Miner., 28, 435-443.
- 嶺達也、三原守弘、大井貴夫、林孔華、川上泰(2000) : 微生物によるアスファルト劣化に関する実験的研究(試験報告), JNC TN8430 2000-003
- 三浦昭彦、今本信雄(1999) : アスファルト固化処理施設火災爆発事故の中期的課題の対応～ドラムの熱解析(1)～, JNC TN8410 99-044.
- 水野敬三、堀口賢一、武田伸児、小原信高、丸屋剛、小林裕、新藤竹文(2006) : 耐火トンネルのニーズ拡大と当社の取り組み, 大成建設技術センター報第39号
- 日本原子力研究開発機構 (2008) : 平成19年度地層処分技術調査等委託費TRU廃棄物処分技術硝酸塩処理・処分技術高度化開発(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/docs/library/rprt4/19fy11.pdf).
- 日本原子力研究開発機構 (2009) : 平成20年度地層処分技術調査等委託費TRU廃棄物処分技術硝酸塩処理・処分技術高度化開発(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/docs/library/rprt4/20fy11.pdf).
- 日本原子力研究開発機構 (2010) : 平成21年度地層処分技術調査等委託費TRU廃棄物処分技術硝酸塩処理・処分技術高度化開発(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/21-11/21fy11.pdf).
- 日本原子力研究開発機構 (2011) : 平成22年度地層処分技術調査等委託費TRU廃棄物処分技術硝酸塩処理・処分技術高度化開発(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/docs/library/rprt4/22-11.pdf).
- 日本原子力研究開発機構 (2012) : 平成23年度地層処分技術調査等委託費TRU廃棄物処分技術硝酸塩処理・処分技術高度化開発(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2011/23-14.pdf).
- 日本原子力研究開発機構 (2013a) : 平成24年度地層処分技術調査等委託費TRU廃棄物処分技術硝酸塩処理・処分技術高度化開発(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2012/24-14-1.pdf).
- 日本原子力研究開発機構 (2013b) : 平成24年度地層処分技術調査等委託費TRU廃棄物処分技術硝酸塩処理・処分技術高度化開発－6カ年研究成果のとりまとめ－(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2012/24-14-2.pdf).
- 日本原子力研究開発機構 (2014) : 平成25年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発報告書 平成26年3月
- 日本原子力研究開発機構 (2015) : 平成26年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発報告書 平成27年3月

- 日本原子力研究開発機構 (2016): 平成27年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発報告書 平成28年3月
- Nützmann, G., Viotti, P. and Aagaard, P. (2005): *Reactive Transport in Soil and Groundwater*, Springer, p.295.
- 落合健一、村山保美、藤田秀人、村永浩太郎、原民男(1997): アスファルト固化体の危険物判定試験 (Ⅲ) (1990年7月), PNC TN8410 97-117
- 小田匡寛(1979): 花崗岩の風化, 土質工学会(編), 風化花崗岩とまさ土の工学的性質とその応用, 土質工学会, p3-15.
- 大原祥平, 掛川武, 赤石寛, 中沢弘基 (2003) ; トベライト (アンモニウムマイカ) の高温高压化での安定性. 粘土科学, 42(3), p.177.
- 大西晃輝, 小野寺真一, 斎藤光代, 清水裕太, 吉川昌志(2014): 大量施肥農業流域における不圧地下水中的での溶存 N_2O の空間分布特性, 陸水学雑誌, 75, p1-11.
- 小野紘一、太田義和(2002): 委員会報告「コンクリート構造物の火災安全性研究委員会報告」, コンクリート工学年次論文集, Vol. 24, No. 1
- Parkhurst, D. L., Kipp, K. L. and Charlton, S. R. (2010) : PHAST Version 2 - A Program for Simulating Groundwater Flow, Solute Transport, and Multicomponent Geochemical Reactions, U.S. Geological Survey Techniques and Methods 6-A35, 235p.
- Rao, L., Garnov, A., Rai, D., Xia, Y., Moore, R. (2004): Protonation and complexation of isosaccharinic acid with U(VI) and Fe(III) in acidic solutions: potentiometric and calorimetric studies, *Radiochim. Acta*, 92, 575-581.
- 斎藤光代, 小野寺真一, 竹井務 (2005) : 沿岸扇状地小流域における硝酸性窒素流出過程, 陸水学雑誌, 66, p1-10.
- 斎藤光代, 小野寺真一 (2009) : 沿岸農業流域における地下水による硝酸性窒素流出の季節変動特性, 陸水学雑誌, 70, p141-151.
- 斎藤光代, 小野寺真一 (2011) : 流域スケール(数 km^2)における地下水中的での硝酸性窒素減衰域の推定—地形及び動水勾配との関係に着目して—, 地下水学会誌, 53(4), p379-390.
- 産業創造研究所(1996): 易溶性核種の挙動及びアスファルトの微生物分解挙動に関する研究(動力炉・核燃料開発事業団 研究委託内容報告書), PNC TZ 1564 96-001
- 総合資源エネルギー調査会電気事業分科会原子力部会放射性廃棄物小委員会 (2006): 放射性廃棄物小委員会報告書 (<http://www.enecho.meti.go.jp/rw/docs/library/rprt/060616.pdf>).
- 鈴木弘, 三浦昭彦 (1999) : アスファルト固化処理施設火災爆発事故の中期的課題の対応～小型2軸エクストルーダ試験～, JNC TN8410 99-041 (<http://jolissrch-inter.tokai-sc.jaea.go.jp/pdfdata/JNC-TN8410-99-041.pdf>)
- Stumm, W. and Morgan, J. J. (1996): *AQUATIC CHEMISTRY - Chemical Equilibria and Rates in Natural Waters - Third Edition*, John Wiley & Sons, Inc., p1022.
- Sucha and Siranova (1991): Ammonium and potassium fixation in smectite by wetting and drying. *Clays Clay Miner.*, 39, 556-559.
- 渡辺 彰, 浅川大地, 川東正幸, 大手信人, 長尾誠也, 眞家永光, 加藤英孝, 竹中 眞(2009) : 土壌—河川—海生態系における溶存有機炭素(DOC)の動態と機能, 日本土壌肥料科学雑誌, 80(1),

p89-94

Warwick, P., Evans, N., Hall, T., Vines, S. (2004): Stability constants of uranium

(IV)- α -isosaccharinic acid and gluconic acid complexes. *Radiochim. Acta* 92, 897-902.

山科友紀, 福士圭介(2013) : 微量のセシウムを取り込んだスメクタイトからの主要陽イオンによるセシウム溶出挙動, *粘土科学*, Vol. 51, No. 3, pp. 88-94.

Yamamura, T., Kitamura, A., Fukui, A., Nishikawa, S., Yamamoto, T., Moriyama H. (1998):

Solubility of U(VI) in Highly Basic Solutions, *Radiochim. Acta*, 83, 139-146.

4. 過酷事象の地層処分システムへの影響に関する評価確証技術開発

4.1 目的と5ヵ年の計画

4.1.1 目的

地層処分が安全で信頼に足るものとして社会に受け入れられるものとするためには、システムとしての評価に関する技術の確証が十分に行われる必要がある。特に、2011年3月に発生した東北地方太平洋沖地震及びそれに伴う東京電力福島第一原子力発電所の事故を受け、地層処分が安全で信頼に足るものとして社会に受け入れられるためには、常に地球科学や社会科学分野の最新の知見を反映して、これまで想定外とされていたあるいは未知の事象を探り出し、地層処分の安全性について示していくことが必要である。この地層処分の安全性を示すことの一環として、東北地方太平洋沖地震を踏まえた過酷事象対策も念頭に置いたシステム概念と評価技術の開発を行うことを目的とする。

4.1.2 5ヵ年の計画

本事業は、地層処分システムにおける過酷事象の概念構築を行った上で抽出された事象に係る評価技術の開発を行う。地層処分システムにおける過酷事象の概念構築では、原子力施設等における過酷事象の考え方を整理したうえで、地層処分システムにおける過酷事象の概念構築（定義）をはかるとともに、地層処分システムにおける過酷事象として考慮すべき事象を抽出し、地層処分システムにおける過酷事象対策技術のあり方を取りまとめる。評価技術の開発では、過酷事象の概念構築に基づいて抽出された事象に対して、過酷事象を評価するためのシナリオ構築手法の開発、過酷事象に繋がり得る発端事象の地質環境及び人工バリアへの影響調査、過酷事象の生起可能性を評価する技術の開発を行う。特に、本章では、2011年3月に発生した東北地方太平洋沖地震及びそれに伴う東京電力福島第一原子力発電所の事故により、一般公衆の漠然とした不安や疑問を持っていると考えられる巨大地震・断層活動を事例としてとりあげ、過酷事象となる可能性の検討を通して評価確証技術の開発を行う。具体的には、巨大地震・断層活動に起因する過酷事象を考慮したシナリオ構築手法を開発するとともに、巨大地震・断層活動の地下水の流動・水質や地下坑道などの地質環境への影響調査や模型試験に基づく人工バリアへの影響調査、さらに、地下施設の耐震安定性評価や人工バリアせん断影響評価を実施し、シナリオに基づく定量的な影響評価技術の開発を行っていく。

上記の全体フレームにしたがい、平成25年度から5ヵ年の期間をスコープにおき、最初の3ヵ年までに基本技術を示し、残り2年で開発された技術の改良・高度化を行っていくこととした（図4.1.2-1）。

平成28年度の地層処分システムにおける過酷事象の概念構築では、地層処分における過酷事象の概念を構築し、過酷事象の候補を具体化する技術、その影響評価技術及び過酷事象への対策技術を整備することを目的とし、実務的な手順を整備した。具体的には、事象・プロセスの連鎖を異なる観点から記述する手順に着目し、2種類の手順に基づき試行した。一つ目は不安や懸念を起点として事象・プロセスの連鎖を記述する手順を具体化し、懸念事項リストの構造に関する見直しを行なった。二つ目は人への甚大な影響を起点として、事象・プロセスを遡って記述する手順を明解化し、異なる被ばく状況に対する解析を実施した。また、重要度評価及び対策技術の検

討として、重要度の評価指標を設定し、対策を考案する際の視点を具体化した。

平成28年度の巨大地震・断層活動を事例とした評価技術開発では、東北地方太平洋沖地震を踏まえ、過酷事象として巨大地震・断層活動に着目し、これまで我が国で確認されている最大規模の地震・断層に対する地層処分の長期安全性に与える影響を評価するための技術を開発することを目的として、安全機能に着目した評価手法の開発、巨大地震・断層活動に関連した個別現象の調査・評価、個別現象の分析及び影響評価の試行を実施した。安全機能に着目した評価手法の開発では、巨大地震・断層活動に関する最新情報を調査・分析して情報共有シートを作成・更新した。この情報共有シートを活用した安全機能への影響を分析し、感度解析を通じて過酷事象に関係し得る安全機能の状態や関連する個別現象の条件の絞り込みを行なった。巨大地震・断層活動に関連した個別現象の調査・評価では、巨大地震・断層活動を発端とした過酷事象の検討において、「起因事象」の特性を設定することを目的として、断層の空間的な広がり、性状、及び透水性等を既存の調査事例から収集し整理した。また、断層の直撃を想定した1/40スケールの断層模擬せん断実験及びその解析、さらに設計用実寸法の人工バリアの非線形大変形せん断衝突解析を実施し、この解析結果により断層のずれにより岩盤と廃棄体がせん断衝突変形した場合のオーバーパックの破損の有無及びガラス固化体と母岩の接触の有無を判断し、性能評価のシナリオ構築のインプットとして反映した。また、巨大地震動による人工バリア・処分施設への影響評価として、日本における最大規模の地震動により廃棄体と母岩との接触の有無や、閉鎖後の坑道（立坑）周辺のEDZが拡大し、水みちが形成されることにより、核種を含んだ地下水が生活圏に影響を及ぼす可能性を評価し、シナリオ構築のインプットとした。これら個別事象の分析を基にして、過酷事象に関係し得る条件の絞り込みを行い、安全機能の劣化・喪失を考慮した感度解析を実施し、影響評価の試行を実施した。

実施内容	平成25年度	平成26年度	平成27年度	平成28年度	平成29年度
	基本技術			改良・高度化	
1. 地層処分システムにおける過酷事象の概念構築			サブプロジェクト毎のレビューWS チェック&レビュー		
① 原子力施設等における過酷事象の考え方	事例収集				
② 地層処分システムにおける過酷事象の概念	定義・フロー構築	適宜見直し			
③ 地層処分システムにおける過酷事象の具体化	事象抽出の考え方提示	事象抽出の方法論の開発		実務的な手順の整備・試行、まとめ	
④ 地層処分システムにおける過酷事象対策技術のあり方	考え方提示	対策技術の検討例提示			対策技術の検討例拡充、まとめ
2. 巨大地震・断層活動を事例とした評価技術開発					
① 安全機能に着目した評価手法の開発 個別現象の分析及び影響評価の試行	考え方提示	構築手順の構築・知見の収集・予察解析	情報共有シート作成	シナリオ構築手順の具体化、影響評価の試行、まとめ	
② 巨大地震・断層活動に関連した個別現象の調査・評価 ・岩盤ひずみの変化に伴う地下水流動の変化 ・透水性の増加に伴う地下水の温度・水質の変化 ・深部流体の温度・化学的性状に関するモデル ・起因事象としての断層の特性の調査 ・断層ずれによる人工バリアへの影響 ・断層起源ガスによる処分場への影響 ・地震動による地下施設(支保工)への影響 ・地震動による人工バリアへの影響		事例調査(岩盤ひずみ、地下水流動の変化)、まとめ 事例調査(地下水の温度・水質)、まとめ 深部流体の温度・化学的性状に関するデータ取得、まとめ		断層の特性の調査、母岩透水性の変化の情報収集、まとめ 断層・解析、実規模廃棄体の解析実施、まとめ	
	断層模擬実験計画の策定	実験・解析	実施		
	岩石試験・溶存ガス調査	岩石の透気特性データ取得、	ガス放出等影響試験、まとめ		
	耐震性評価	耐震性評価(地震観測・余震)	地震動の推定、解析実施	地震動の見直し、解析実施、耐震性評価の実施、まとめ	
	事例調査	繰返し非排水三軸試験、解析実施		地震動の見直し、地震応答解析の実施、まとめ	

図 4.1.2-1 本事業の5ヵ年計画

4.2 地層処分システムにおける過酷事象の概念構築

4.1節で既に述べたように、2011年3月に発生した東北地方太平洋沖地震及びそれに伴う東京電力福島第一原子力発電所の事故を受け、地層処分が安全で信頼に足るものとして社会に受け入れられるためには、常に地球科学や社会科学分野の最新の知見を反映して、これまで想定外とされていたあるいは未知の事象を探索し、地層処分の安全性について示していくことが必要である。このため、本節では、これまでの安全評価とは異なるアプローチを用いて、地層処分システムにおける過酷事象を探索するための枠組みを整備することを目的として、閉鎖後の地層処分システムにおける過酷事象の概念を構築し、シナリオの探索・重要度評価を行う技術及びその対策技術を整備することとした。

原子炉安全の分野においては、東北地方太平洋沖地震及びそれに伴う東京電力福島第一原子力発電所事故を契機として、これまでの想定を超える事象が起り得ると認識することの重要性がより一層高まってきている。すなわち、設計基準事象を大幅に超える過酷事故を考慮して対策を検討することで、より一層の安全性を追求していくことが重要と認識されている。たとえば、経済産業省・総合資源エネルギー調査会では、原子力の自主的安全性向上に関するワーキンググループが設置され、「わが国は、規制水準を満たせばリスクがないとする「安全神話」から決別し、産業界の自主的かつ継続的な安全性向上により、世界最高水準の安全性を不断に追及していくという新たな高みを目指すことが重要」という認識の下、産業界が自主的に安全性を向上していく取組みの在り方について議論が進められた（経済産業省 総合資源エネルギー調査会 電力・ガス事業分科会 原子力小委員会 原子力の自主的安全性向上に関するワーキンググループ、2013）。その結果、このワーキンググループでは、網羅的なリスク評価や残余のリスクの低減、レジリエンスの向上等の観点から、原子力の自主的・継続的な安全性向上に向けた提言が取りまとめられている（経済産業省 総合資源エネルギー調査会 電力・ガス事業分科会 原子力小委員会 原子力の自主的安全性向上に関するワーキンググループ、2014）。

一方、地層処分の分野においては、これまで、第2次取りまとめや第2次取りまとめ以降の継続的な研究開発（例えば、経済産業省の委託事業報告書、原子力発電環境整備機構の技術開発報告書、日本原子力研究開発機構のCoolRep等）において、地層処分システムの長期安全性に係る知識基盤を積み上げてきた。これらのレポートでは、原子力施設における過酷事故に相当すると考えられる稀頻度事象シナリオやwhat-ifシナリオを設定し、地層処分システムをより危険な状況にさらした評価が実施されている。

今後、地層処分システムの頑健性をさらに向上させるため、また、その結果として社会からの受容性を高めるためには、上述の原子炉分野の潮流を踏まえ、原子力施設における過酷事故の考え方を参考として、地層処分における過酷事象の概念を構築することが必要となる。すなわち、地層処分システムの分野においても、現時点において認識できていない事象はあり得るという前提に立ち（未知の未知）、安全機能を著しく低下・劣化させる可能性のある事象をあえて想定することで、より一層の安全性を追求することが極めて重要である。

平成27年度までには、まず、国内外における原子力施設（地層処分を除く）の過酷事故に関する文献調査を行った上で、専門家を集めたワークショップの開催を通じて、地層処分システムにおける過酷事象を「人へ甚大な影響を及ぼしうる程度に、安全機能を著しく低下・喪失させる事

象」と定義するとともに、概略的な検討フローを構築した。さらには、過酷事象となる可能性のある事象を抽出するため、単一/複合/機能共鳴といった複数の観点から記録できる懸念事項リストを試作した。さらに、人への甚大な影響の観点に着目し、過酷事象となる条件の分析及びシナリオの探索に関する試行結果を提示した。

平成28年度は、平成27年度までに整備した検討フローを実務的な手順として具体化するため、以下の課題に取り組んだ。それらの結果を4.2.1項及び4.2.2項に示す。

- ・過酷事象の検討フローの整備
- ・検討フローに基づく試行

4.2.1 過酷事象の検討フローの整備

(1) 検討フローの改良

平成27年度までに、ボトムアップ型とトップダウン型の2つのアプローチにより過酷事象となる可能性のある事象を抽出することに着目して概略的な検討フローを整備した。ここで、ボトムアップ型とは、専門家や一般公衆が抱く「〇〇が起きたらどうなるのか?」といった不安や懸念を起点として、原因の観点から懸念事項を抽出するアプローチを指す。一方、トップダウン型とは、人への甚大な影響を及ぼし得ること（例えば、100mSvの被ばく）を起点として事象やプロセスを遡って分析し、結果の観点から懸念事項を抽出するアプローチを指す。

本年度、この概略的な検討フローに関する議論を深化させた結果、以下の点が課題として認識された。

- ・2つのアプローチの呼称が持つイメージに起因して、検討過程や検討結果がわかりにくく誤解が生じやすい。
- ・網羅性を向上させることに重点を置いた場合、多様な視点でシナリオを記述するために、ボトムアップ型とトップダウン型のより強固な連携（接続）方法を明らかにすることが必要となる。
- ・包括的懸念事項リストに記載された事項とシナリオの網羅性を完全に担保することが困難である。

そこで、想定外を最小化するという観点からこれまでに気付かなかった事象・プロセスの連鎖を発想しやすくすること、及びアプローチ間の連携の在り方を明確にすることを念頭に、以下の観点から検討フローを具体化した。具体化したフローを図4.2.1-1に示す。

- ・これまでの検討フローにおいてトップダウンと呼称していたアプローチを「結果：人への甚大な影響を起点」と改めた。ボトムアップに関しても、同様に「原因：不安や懸念を起点」と呼称を改めた。
- ・これまでの検討フローでは、トップダウン型から得られる成果もボトムアップ型から得られる成果も、一旦「包括的懸念事項リスト」に収斂される流れとなっていたが、今回の検討フローの改良により、各アプローチからの成果は事象・プロセスの連鎖の記述（＝シナリオ）に収斂させることとした。また、これまでの検討フローでは、トップダウン

型がボトムアップ型に従属する位置付けであったが、今回の検討フローの改良により、2つのアプローチは同格となり、各アプローチを説明しやすくなった。

- 各アプローチを効率的に実施するため、アプローチ間の連携の在り方を明確にした。具体的には、「人への甚大な影響を起点とした検討」において、事象・プロセスの連鎖の模索を行う際に、「不安や懸念を起点とした検討」において創出された事象・プロセスの連鎖の記述を参照することで、効率的な模索が可能となる。一方、「不安や懸念を起点とした検討」において、事象・プロセスの連鎖を記述しようとする際に、「人への甚大な影響を起点とした検討」において創出された人への甚大な影響を及ぼす条件を参照することで、無限の広がりを持つ可能性のある事象・プロセスの連鎖から、過酷事象検討で優先して着目すべき事象・プロセスの連鎖を効率的に記述することが可能となる。

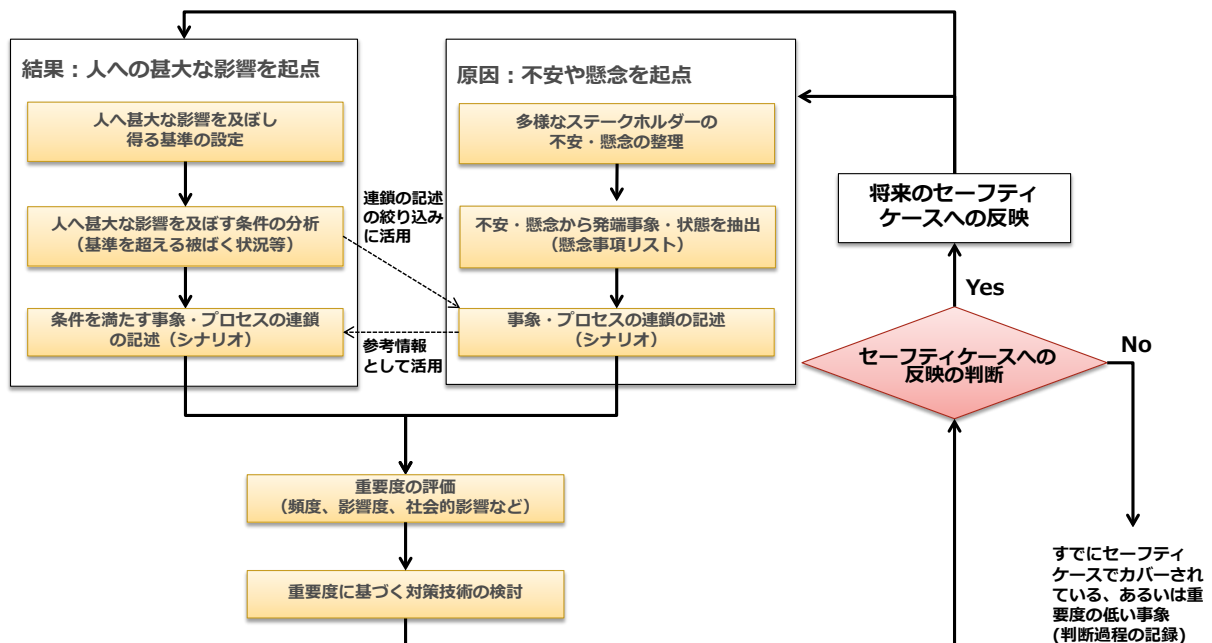


図4.2.1-1 地層処分システムにおける過酷事象の検討フロー

(2) 個別手順の具体化

ここでは、2つのアプローチに対する具体的な手順について記載する。

1) 人への甚大な影響を起点としたアプローチに対する具体的な手順

本アプローチでは、人への甚大な影響を及ぼす条件を明らかにし、それらの条件を満たす事象・プロセスの連鎖を探索する。この様なアプローチは、既往の安全評価とは進め方が異なり過酷事象評価に適したアプローチである。この様なアプローチをとることで、これまでに気付かなかった事象・プロセスの連鎖を発想できることが期待される。具体化したフローを図4.2.1-2に示す。

手順1	基準の設定	■ 基準値の設定
手順2	条件の分析	■ 被ばく経路・形態、対象時刻、対象核種の設定
手順3		■ 数学モデルおよび解析コードの設定、データの設定
手順4	解析	■ 基準値を下回るための条件を把握
手順5	事象・プロセスの連鎖の記述	■ 不安・懸念を起点としたアプローチの結果および科学的な知見を参考としつつ、事象・プロセスの連鎖を記述する

図4.2.1-2 人への甚大な影響を起点としたアプローチに対する具体的な手順

手順1では、人へ甚大な影響を及ぼし得るかどうかの基準値を設定する。

手順2では、被ばく状況の設定を行う。被ばく状況は、大きく分けて内部被ばくと外部被ばくに大別されるが、内部被ばくはさらに摂取経路で区別される。また、外部被ばくも点線源と面線源とでは被ばく状況が異なる。ここでは、その後の手順で想定が必要となる詳細度まで被ばく状況（被ばく期間を含む）を設定することが重要となる。さらに、被ばく時期の設定を行った上で、それに応じた対象核種の選定を行う。

手順3では、手順1で設定した被ばく状況の種類毎に、評価モデル・データを設定する。評価モデルは、手順1で設定した被ばく状況を勘案して、適切なモデルを設定する。一方、データに関しては、取り得る範囲と組合せを考慮した解析（パラメータスタディ）を必要に応じて実施することが有効である。

手順4では、手順2で設定したモデル・データによって解析を行い、過酷事象の定義の暫定値である100mSvを超える（もしくは下回る）条件を明確化する。ここで提示された条件を基に、後段の事象・プロセスの連鎖の探索を行うため、条件の提示は複数の図（異なる軸）で表現されることが探索の手助けとなり、望ましい（例えば、手順2で設定した被ばく期間や被ばく時期を軸とすること、手順2で設定したパラメータを軸とする、等）。

手順5では、基準値を超える条件を満たす様な事象・プロセスの連鎖の探索を行う。ここでは、FEP等の既往の知見に基づき探索することも可能であるが、不安や懸念を起点としたアプローチの成果（懸念事項リスト、事象・プロセスの連鎖）を活用することで、効率的な探索が可能になると期待できる。

2) 不安や懸念を起点としたアプローチに対する具体的な手順

本アプローチでは、多様なステークホルダーの不安や懸念を起点とし、それら不安や懸念が実際に起こった際にどのような事象・プロセスの連鎖があり得るのか、その結果として、人にどの程度の影響を及ぼすのかを検討する。このようなアプローチは、既往の安全評価におけるアプローチと類似しているが、出発点を「多様なステークホルダーの不安や懸念」としている点が特徴的である。このようなアプローチにより抽出された事象・プロセスに対する評価をわかりやすく説明することで、これまでに確立されてきた安全性に関する説明に対する疑念に正面から応えることも

期待される。具体化したフローを図4.2.1-3に示す。

手順1	不安や懸念の調査	■ 過去のシンポジウム・ワークショップ・アンケート等で表出している不安・懸念を整理する。
手順2	懸念事象・状態の抽出	■ 不安・懸念から読み取れる発端事象・状態を抽出し、懸念事項としてリスト化する。→懸念事項リストの整備
手順3	事象・プロセスの連鎖の記述	■ 懸念事項を起点として、科学的な知見を活用しつつ、考え得る地質環境条件の変化や処分場の変化、安全機能の劣化・喪失、被ばく状況を記述する

図4.2.1-3 不安や懸念を起点としたアプローチに対する具体的な手順

手順1では、過去のシンポジウム、ワークショップ、アンケート等で表明されている多様なステークホルダーの不安や懸念を調査し、整理する。

手順2では、手順1で整理された不安や懸念から読み取ることができる発端事象や状態を抽出する（整理したものを懸念事項リストと呼ぶ）。具体的には、シンポジウム等で得られた不安や懸念に関する文章から、自然事象や人為事象に関するキーワードを抽出する。なお、それらのキーワードがどの様に抽出されたのかを追跡可能とするため、手順1で整理した情報からの抽出過程を記録する。自然過程と人為過程では、懸念事項の特性が異なるため、懸念事項リストではこれらを区分して作成する。

手順3では、手順2で整理した懸念事項を起点として、考え得る地質環境条件の変化や処分場の変化を記述する。ここでは、科学的な知見に基づき物理化学的に否定できるものは記載しないこととする。それでも、全ての考え得る変化の連鎖を記述しようとするとその量は膨大となってしまうこと、及び過酷事象に達しないことが明らかな連鎖が数多く含まれることが想定される。そのため、明らかに人への甚大な影響に繋がらないと判断できる連鎖についても記載しないこととする。この判断を行う際には、人への甚大な影響を起点としたアプローチの成果である基準を超える被ばく状況（例えば、100mSvを上回るための放射能濃度）を活用することで、効率的に進めることが可能となる。次に、地質環境条件の変化から安全機能の劣化・喪失、処分システムへの影響、想定される被ばく状況について記述する（事象・プロセスの連鎖の記述）。本過程においては、必要に応じて科学的知見の収集・整理を行う。

4.2.2 検討フローに基づく試行

本年度は、4.2.1項で示した評価フローのうち、2つのアプローチから事象・プロセスの連鎖を記述するための具体的な手順について試行した。その結果を以下に記す。

(1) 人への甚大な影響を起点としたアプローチ

人へ甚大な影響を及ぼし得るかどうかの基準値としては、昨年度まで同様に、ICRPの緊急時被ばくの参考レベルの上限値（ICRP, 2007）である100mSvを設定した。なお、この基準値は、本試

行で暫定的に設定したものであり、ステークホルダーとのコミュニケーションや国内外の動向等により、他の数値を設定することが適切となる場合には基準値を見直すべきものである。

平成27年度は、被ばく経路として内部被ばく（経口摂取）に着目し、核種を含む飲料水を1年間継続的に摂取する場合における100mSvの被ばくをもたらす放射能濃度を算出した。本年度は、被ばく経路として内部被ばく（吸入摂取）を対象とし、100mSvの被ばくをもたらす放射能濃度やその条件を算出した。また、過酷事象による被ばくが生じる（閉鎖後の）時刻としては千年、1万年、10万年を設定した。なお、閉鎖前の安全性考慮する場合には、地震、津波、その他の自然災害、人為的な災害などによるシステムの異常状態を考慮して対象時刻を設定することが必要である。

1) 内部被ばく（吸入摂取）

①被ばく状況の設定

吸入摂取による内部被ばく状況としては、火山の噴火や爆発等により、地下からのマグマが処分場を貫通することにより、ガラス固化体の放射性核種を巻き込み、核種を含んだ噴出物としてガラス固化体が細粒化され核種が大気拡散する状況を想定した。なお、評価対象核種は、既往の安全評価において考慮された核種（核燃料サイクル開発機構、1999c）を対象とした。

②モデル・データの設定

吸入摂取量から実効線量を換算するモデル（(1)式）に基づき、100mSvに相当する放射能濃度を算出するためのモデルを以下のように設定した。なお、各パラメータの記号と名称を表4.2.2-1に示す。

$$D_{inh} = \sum_i (C_i \cdot B \cdot T \cdot DF_{inh,i}) \quad (1)$$

$$C_i = \frac{nA_i}{U} \quad (2)$$

$$C = \frac{\sum_i(A_i)}{U} = \frac{\sum_i(A_i) \cdot D_{inh}}{n \cdot B \cdot T \sum_i(A_i \cdot DF_{inh,i})} \quad (3)$$

表4.2.2-1 各パラメータの記号と名称

記号	名称	記号	名称
D_{inh}	被ばく線量 [mSv]	C_i	核種iの放射能濃度 [Bq/m ³]
$DF_{inh,i}$	核種iの吸入被ばく線量換算係数 [mSv/Bq]	C	放射能濃度 [Bq/m ³]
T	被ばく時間 [h]	n	ガラス固化体の本数 [-]
B	単位時間あたりの吸入量[m ³ /h]	U	体積 [m ³]
A_i	核種iの放射能量 [Bq]		

用いたパラメータ値を表4.2.2-2に示す。吸入摂取した場合の線量換算係数を表4.2.2-3に示す。

表4.2.2-2 吸入摂取による被ばく線量評価に用いたパラメータの一覧

パラメータ[単位]		設定値	設定根拠
D_{inh} [mSv]	経口摂取による被ばく線量	100	ICRP (2007) における緊急時被ばくの上限值
$DF_{inh,i}$ [mSv/Bq]	核種iの吸入による線量換算係数	表4.2.1-3参照	文部科学省告示第五十九号別表第2 (文部科学省, 2012) に基づき設定
T [h]	被ばく時間	1	核種の大気拡散後における避難を想定し、任意の値を設定した。
B [m ³ /h]	単位時間あたりの吸入量	0.6	IAEA SRS No. 19 (IAEA, 2001) に基づき、単位時間あたりの呼吸量を設定
A_i [Bq]	核種iの放射エネルギー	-	既往の安全評価の値 (核燃料サイクル開発機構, 1999c) に基づき核種毎に設定

表4.2.2-3 吸入による線量換算係数

核種	吸入による線量換算係数*1 [mSv/Bq]
Se-79	3.1×10^{-6}
Zr-93	6.6×10^{-6}
Nb-93M	8.6×10^{-7}
Nb-94	2.5×10^{-5}
Tc-99	3.2×10^{-6}
Pd-107	2.9×10^{-7}
Sn-126	1.8×10^{-5}
Cs-135	9.9×10^{-7}
Sm-151	2.6×10^{-6}
Pb-210	1.1×10^{-3}
Ra-226	2.2×10^{-3}
Ac-227	4.7×10^{-2}
Th-229	4.8×10^{-2}
Th-230	7.2×10^{-3}
Th-232	1.2×10^{-2}
Pa-231	1.7×10^{-2}
U-233	6.9×10^{-3}
U-234	6.8×10^{-3}
U-235	6.1×10^{-3}
U-236	6.3×10^{-3}
U-238	5.7×10^{-3}
Np-237	1.5×10^{-2}
Pu-238	1.1×10^{-2}
Pu-239	8.3×10^{-3}
Pu-240	8.3×10^{-3}
Pu-241	8.4×10^{-5}
Pu-242	7.7×10^{-3}
Am-241	2.7×10^{-2}
Am-242M	2.4×10^{-2}
Am-243	2.7×10^{-2}
Cm-245	2.7×10^{-2}
Cm-246	2.7×10^{-2}

*1：文部科学省告示第五十九号別表第2（文部科学省，2012）

③解析の実施（基準値を上回る条件の把握）

(3)式を用いて、100 mSvとなるために必要な放射能濃度を評価対象年代毎に算出した。結果を表4.2.2-4に示す。

表 4.2.2-4 過酷事象となるために必要な最小放射能濃度（吸入摂取）

評価対象年代	放射能濃度 [Bq/m ³]
1,000年	7.2×10^3
10,000年	2.0×10^4
100,000年	1.0×10^5

④事象・プロセスの探索

ここでは、火山噴火による処分場の直撃と火山灰による噴出を想定し、雲仙普賢岳の事例を参照して、大気中の放射能濃度を試算した。

具体的には、まず、雲仙普賢岳の火道域は直径約400mと推定されていること（東京大学地震研究所，2004）を踏まえ、火道域の面積及びその貫通により巻き込まれ破壊される廃棄体の本数を以下のように算出した。

- ・火動域の面積：0.1256 km²
- ・破壊される廃棄体の本数：500本（40,000本×0.1256km²/10km²、処分場面積10km²に4万本の廃棄体が均等に定置されていることを想定）

次に、火口直径と噴出物量の関係を表す三乗根則（Sato and Taniguchi, 1997）に基づき、噴出物量を 3×10^8 m³と算出した。また、噴出物の密度については、花崗岩類の乾燥密度の平均値（佐藤ほか、1992）を適用することとし、 2.63×10^6 g/m³とした。1,000年時点におけるガラス固化体1本中の放射エネルギー 7.71×10^{12} Bqを用いて、噴出物単位重量あたりの放射エネルギーを算出すると以下の通りとなる。

$$\text{放射エネルギー}(10^3\text{年}) = \frac{7.71 \times 10^{12} \times 500}{3 \times 10^8 \times 2.63 \times 10^6} = 4.9 \text{ [Bq/g]}$$

次に、火山灰による大気拡散を考える。富士山宝永噴火相当の大規模な火山噴火における火山灰濃度は降灰分布の主軸上では数百mg/m³となることが知られている（電力中央研究所、2016）。ここでは、火山灰濃度を保守的に1000 mg/m³と設定し、火山灰によって汚染された大気中の放射能濃度を4.9 Bq/m³と試算した。この試算値と表4.2.1-4の値と比較すると、100mSvとなるために必要な放射能濃度よりも低いことがわかる。

さらには、1日当たりの溶岩供給量に基づき噴出物量を設定し、放射能濃度を試算する。1日当たりの溶岩供給量については、1991年の噴火では約 $1 \sim 6 \times 10^5$ m³/日という記録（産業総合研究所、2017）がある。そこで、 3×10^5 m³/日を噴出物量として設定した。この噴出物量を用いて、上記と同様に、火山灰によって汚染された大気中の放射能濃度を試算すると 4.9×10^3 Bq/m³となる。こ

の試算値と表4.2.2-4の値と比較すると、100mSvとなるために必要な放射能濃度よりも低い、桁は一致していることがわかる。

今後は、事象発生時期、噴出物量、火口直径、影響を受ける廃棄体数、被ばく時間などをパラメータとして、100mSvを超える条件を具体化する必要がある。その上で、パラメータ範囲の実現性に関する分析（例えば、処分後千年に火山が処分場に直撃する頻度）を行い、詳細な影響評価や社会的な影響を含めた重要度評価を実施していくことが必要となる。

(2) 不安や懸念を起点としたアプローチ

1) 多様なステークホルダーの不安や懸念の整理

ステークホルダーには、事業者、規制者、地層処分分野の研究者などの専門家から、非専門家の一般公衆等の幅広い層が存在する。これらの立場の違いはそれぞれの考え方に大きな乖離をもたらす場合がある。専門家にとって「既往の想定を越える事象」の関心の大部分は、その事象が生起する可能性にある。一方、一般公衆が持つ関心の大部分は、生起した際の環境や社会及び実生活への影響である。このような同一事象に対して生じる関心事の乖離が、一般公衆の科学技術や専門家への不信感へつながることもあり（例えば、原子力機構，2014；2015；2016）、地層処分システムのConvincingの妨げとなり得る。一般公衆が「既往の想定を越える事象」に対して持つ不安の多くは「未知」に対してであり、正確な情報に対する需要は高く、専門家はそれを提供（供給）する必要がある。しかし、専門家の視点で「既往の想定を越える事象」を取り扱うということは、これまで蓄積してきた知見を揺るがすことにならないかといった不安を内在しているため、慎重に取り扱おうとする傾向がある。このことにより、情報の供給が需要を満足しない状態となり、これにより生起する情報の不均衡が専門家と一般公衆に隔たりを作っている可能性も考えられる。

このような両者の不安は一見異なるもののように映るが、根源には「既往の想定を越える事象が存在、もしくは存在しないことを確認したい」という点で一致している。したがって、情報を供給する側である専門家は、「既往の想定を越える事象」すなわち不安や未知の事象に対し不断の検討を行い、万が一過酷事象が明らかになれば、不確実性を考慮しつつその対策を検討していくことが地層処分システムの頑健性を高めていくことにつながる。また、一般公衆が求める情報の需要を踏まえ、検討の過程で蓄積された知見を丁寧に説明することで信頼性の向上が期待される。ここでは、上記の背景に基づき、多様なステークホルダーの不安や懸念を整理する。

昨年度までに、OECD/NEAが提案しているFEPの分類項目（OECD/NEA，2000）や原子力学会が提案している外部ハザードのリスト（たとえば、日本原子力学会，2014）等を参照しつつ、過酷事象となる可能性のある事象を抽出するとともに、一般の方々が感じる不安や懸念を抽出している。

本年度は、以下のセミナーやシンポジウムを対象として、一般公衆が抱く不安や懸念を整理することとした。整理した不安や懸念を表4.2.2-5に示す。

- ・「特定放射性廃棄物の最終処分に関する基本方針」改定案に対するパブリックコメント

- ・資源エネルギー庁主催の高レベル放射性廃棄物シンポジウムに寄せられた意見
- ・原子力発電環境整備機構が実施した地層処分セミナーに寄せられた意見
- ・本事業で開催した地層処分システムの過酷事象に関するワークショップ等

表4.2.2-5 一般公衆が抱く不安や懸念の整理結果 (1/2)

No.	不安や懸念	出典
1	火山、地震等が多い日本での地層処分は選択すべきでないのではないか？	H27 パブリックコメント ^{*1}
2	処分場近傍や周辺で火山噴火が生じ、火砕流・土石流が発生するのではないか？	H26 ワークショップ ^{*2}
3	火山や活断層の位置がなぜ遠い将来も変わらないといえるのか？	H28 NUMO地層処分セミナー ^{*3}
4	10万年の保管期間にマイナス要件(地震、浸水、火山活動による地層の状態)が変容しないという保証はないのではないか？	H28 パブリックコメント ^{*1}
5	処分場近傍や直下で活断層型地震が発生するのではないか？	H26 ワークショップ ^{*2}
6	沿岸海底下での処分は塩水の影響を受けるのではないか？	H28 パブリックコメント ^{*1}
7	台風や集中豪雨による洪水や土石流の影響を受けるのではないか？	H26 ワークショップ ^{*2}
8	坑道を掘って埋め戻すと、そこが「水みち」になって放射性物質が漏れ出すのではないか？	H28 NUMO地層処分セミナー ^{*3}
9	津波の被害については地下施設も検討されるべきではないか？	H28 パブリックコメント ^{*1}
10	竜巻や飛来物による影響を受けるのではないか？	H26 ワークショップ ^{*2}
11	航空機等の大型飛来物が落下し、処分場に衝突するのではないか？	H26 ワークショップ ^{*2}
12	戦争、テロ等により処分場に破壊行為が生ずるのではないか？	H26 ワークショップ ^{*2}
13	埋め戻した後、もう掘り返さないという話だが、大事故になったらどうするのか？	H28 NUMO地層処分セミナー ^{*3}
14	知識・情報継承の失敗等による当該地域の開発が行われるのではないか？	H26 ワークショップ ^{*2}
15	大きな坑道を掘ることが逆にその付近の地層に影響を及ぼすことはないのか？	H28 NUMO地層処分セミナー ^{*3}
16	建設中にトンネルが崩落してしまったらどうするのか？	H28 NUMO地層処分セミナー ^{*3}
17	処分場は沿岸に造るという説明だったが、津波等の影響はないのか？	H28 NUMO地層処分セミナー ^{*3}
18	今の時点では、説明してもらった方法で十分とされているのだろうが、それは将来に亘っても十分と評価しうる方法なのか？	H28 NUMO地層処分セミナー ^{*3}
19	福島事故のように想定外のことが発生するのではないか？	H28 NUMO地層処分セミナー ^{*3}
20	これまで原子力については「絶対安全だ」という説明がなされてきたと思う。絶対安全なんてあるのか？	H28 NUMO地層処分セミナー ^{*3}
21	現時点で対象地域の地質が長期にわたって安定しているということを立証できるのか？	H28 NUMO地層処分セミナー ^{*3}
22	見えない、全く管理のできないところに放っておいていいのか、大いに疑問。	H28 NUMO地層処分セミナー ^{*3}

*1)資源エネルギー庁(2015):「特定放射性廃棄物の最終処分に関する基本方針」改定案に関する意見照会及びパブリックコメントの実施について、総合資源エネルギー調査会・放射性廃棄物ワーキンググループ、第19回会合、参考資料2

*2)日本原子力研究開発機構(2015):平成26年度地層処分技術調査等事業 処分システム評価検証技術開発 報告書

*3)原子力発電環境整備機構(2016):地層処分セミナーの振り返りについて、総合資源エネルギー調査会、放射性廃棄物ワーキンググループ、第29回会合、参考資料2-2

表4.2.2-5 一般公衆が抱く不安や懸念の整理結果 (2/2)

No.	不安や懸念	出典
23	10万年後、100万年後のシミュレーションがなぜできるのか？	H28 NUMO地層処分セミナー*3
24	安全性への取り組みは理解できた。それでも何か起きたとき、有事の際のケアを考えているのか？	H28 NUMO地層処分セミナー*3
25	1000年先の人に想定外の事故が起きた時どう説明するのか？	H28 NUMO地層処分セミナー*3
26	火山や活断層を本当に避けられるのか？	H28 NUMO地層処分セミナー*3
27	絶対安全といわれてきた福島原発が今回程度の地震、津波でメルトダウンしているの、一つの件で確信を持って肯定することができない？	H28 NUMO地層処分セミナー*3
28	隆起・浸食に関する回避対象について、どのようなデータに基づいて最大-150mとしているのかわからない。	H28 パブリックコメント*1
29	断層について、100分の1程度の範囲を回避するだけでなく、過去の地震の情報をもとに判断すべきではないか？	H28 パブリックコメント*1
30	ガラス固化体の安全確認はどのように行われているのか？	H28 パブリックコメント*1
31	処分場近傍で東北地方太平洋沖地震や想定南海トラフ地震クラスの海溝型大地震による地震動による揺れ、地すべり等、また随伴する津波が発生した場合にどうなるのか？	H26 ワークショップ*2
32	社会変動等により、閉鎖前の管理が想定外に早期に、あるいは不十分なままに終了してしまった場合はどうなるのか？	H26 ワークショップ*2
33	実施主体への信頼性、万一事故が起こったときに誰が対応するのか？	以下のシンポジウムから抽出
34	モニタリングの問題をどのように考えるか？	○経済産業省資源エネルギー庁主催 ・高レベル放射性廃棄物シンポジウム2001(第1回～第11回) ・高レベル放射性廃棄物シンポジウム2002(平成14年9月8日) ・放射性廃棄物地層処分フォーラム(平成18年3月10日)
35	高レベル放射性廃棄物の処理・処分に、地層処分と他の方法(例えば、群分離、消滅処分など)との比較が行われているのか？	・放射性廃棄物地層処分シンポジウム2006 in 九州/四国/中国/近畿 ・放射性廃棄物地層処分シンポジウム2007 in 中部/北陸
36	処分方策については技術的選択肢を提示した上で議論が必要であるが、地層処分以外の選択肢は考えないのか？	○原子力委員会主催 ・高レベル放射性廃棄物処分への今後の取り組みに関する意見交換会(第1回～第5回)(平成9～10年)
37	わが国では、どのくらいの「量」の高レベル放射性廃棄物が発生するか？	○東北大学未来科学技術共同研究センター主催 ・原子力に関するオープンフォーラム:「高レベル放射性廃棄物」に関する専門家と専門家の対話(第1回,第2回)(平成19～20年)
38	地層処分が有望な処分方法とされているのは何故か？	
39	高レベル放射性廃棄物は貯蔵管理の方が良いのではないのか？	
40	高レベル放射性廃棄物物理設後は放置するか、管理するのか？	
41	長寿命核種の分離変換技術の研究開発が進めば、高レベル放射性廃棄物の処分研究は不要ではないか？	
42	処分研究を不要とは言わないまでも、分離変換技術の成熟を待ち、HLW量を減らしてから地層処分すべきではないか？	
43	社会的に安心感を得るため、「処分場閉鎖に伴う管理を行う」という話が最近話題になっているようだが、具体的にどのような行為を行うのか、何をモニターするのか？	
44	ずっと地殻深く埋めてしまったら、どのように点検するのか？	

*1)資源エネルギー庁(2015):「特定放射性廃棄物の最終処分に関する基本方針」改定案に関する意見照会及びパブリックコメントの実施について、総合資源エネルギー調査会・放射性廃棄物ワーキンググループ、第19回会合、参考資料2

*2)日本原子力研究開発機構(2015):平成26年度地層処分技術調査等事業 処分システム評価確認技術開発 報告書

*3)原子力発電環境整備機構(2016):地層処分セミナーの振り返りについて、総合資源エネルギー調査会、放射性廃棄物ワーキンググループ、第29回会合、参考資料2-2

2) 懸念事項リストの整備

ここでは、まず、表4.2.2-5に示した不安や懸念が具体的にどのような事象に対して向けられているのかを類推し、以下の考え方に基づき、過酷事象につながる可能性のある事象を発端事象

として整理した。不安や懸念と発端事象との対応を表4.2.2-6に示す。

- ・ここでいう発端事象とはステークホルダーが抱く不安や懸念の背景にある自然事象もしくは人為事象で、直接または間接的に処分システムの安全性に相応の影響を及ぼす可能性のあるものを指す。たとえば、“火山が噴火したらどうなるのか”という不安や懸念は、火山噴火によって処分場が破壊されることを懸念していると解釈し、「マグマ上昇経路の変化・新生、爆発的噴火」を発端事象とした。同様に不安や懸念に“断層”の文言があった場合は「断層の派生または新規発生」を発端事象とした。
- ・一方で、不安や懸念には“想定外のことが発生するのではないか”といった具体的な発端事象を類推し難い場合がある。このような場合は、他の「不安や懸念」から関連づけられる発端事象全般を含んでいると考え、発端事象は「全般」とした。
- ・なお、不安や懸念に対応する発端事象は、立地時点で避けることが想定されている活断層や第四紀火山等も含めており、すべての事象が生じ得ると仮定して抽出している。実際にこれらの発端事象が過酷事象に該当するか否かを評価する際には、これらの事象が生じ得る場所や時間も考慮すべきであるが、まずはステークホルダーの不安や懸念に答える観点から抽出した。

昨年度に整理した懸念事項リストでは、発端事象、事前シーケンス（プロセス）、安全機能の低下・喪失に大別した。その上で、発端事象については、単一事象と複合事象ならびに自然過程と人為過程に分類して、人へ甚大な影響を及ぼし得る懸念事項を整理した。本年度は、発端事象に着目し、昨年度の分類項目を踏襲した上で、表4.2.2-6において整理した発端事象を加えるとともに、以下の観点から発想した懸念事項を拡充した。懸念事項リストの例を表4.2.2-7に示す。特に、一般公衆が抱く不安や懸念から抽出・具体化された事象は赤字で区別した。

- ・既往の安全評価でFEPリストに含まれていない事象
- ・既往の安全評価でFEPリストに含まれつつもサイト選定・工学的対策・頻度・システムへの影響の観点から評価対象外とした事象
- ・既往の安全評価で具体的に評価されたシナリオであるが、その影響の程度をより大きく変動させた場合

なお、表4.2.2-6においては、以下の文献に示された構造や現象を参考とした。

- ・OECD/NEAが提案しているFEPの分類項目（OECD/NEA, 2000）
- ・原子力学会が提案している外部ハザードのリスト（日本原子力学会, 2014）
- ・その他の現象リスト（島崎ほか, 1995）

表4. 2. 2-6 一般公衆が抱く不安や懸念に基づく発端事象の抽出結果 (1/4)

No.	不安や懸念	発端事象	
1	火山、地震等が多い日本での地層処分は選択すべきでないのではないのか？	自然	<ul style="list-style-type: none"> ・マグマ上昇経路の変化・新生 ・爆発的噴火 ・断層の派生または新規発生
2	処分場近傍や周辺で火山噴火が生じ、火砕流・土石流が発生するのではないのか？	自然	<ul style="list-style-type: none"> ・周辺の火山の噴火 (火砕流、土石流・火山泥流の発生を含む)
3	火山や活断層の位置がなぜ遠い将来も変わらないといえるのか？	自然	<ul style="list-style-type: none"> ・マグマ上昇経路の変化・新生 ・断層の派生または新規発生
4	10万年の保管期間にマイナス要件 (地震、浸水、火山活動による地層の状態) が変容しないという保証はないのではないのか？	自然	<ul style="list-style-type: none"> ・マグマ上昇経路の変化・新生 ・断層の派生または新規発生 ・気候変化 (降水量の増加、減少)
5	処分場近傍や直下で活断層型地震が発生するのではないのか？	自然	<ul style="list-style-type: none"> ・断層の派生または新規発生 ・地震の発生
6	沿岸海底下での処分は塩水の影響を受けるのではないのか？	自然	<ul style="list-style-type: none"> ・海水準の変化
7	台風や集中豪雨による洪水や土石流の影響を受けるのではないのか？	自然	<ul style="list-style-type: none"> ・降水量の増加 ・土石流の発生 ・洪水の発生
8	坑道を掘って埋め戻すと、そこが「水みち」になって放射性物質が漏れ出すのではないのか？	人為	<ul style="list-style-type: none"> ・EDZに沿った高透水帯の形成 ・埋戻し不良による高透水帯の形成
9	津波の被害については地下施設も検討されるべきではないのか？	自然	<ul style="list-style-type: none"> ・津波 (波食、地表の浸水)
10	竜巻や飛来物による影響を受けるのではないのか？	自然	<ul style="list-style-type: none"> ・竜巻 (風食) ※飛来物11で検討
11	航空機等の大型飛来物が落下し、処分場に衝突するのではないのか？	自然	<ul style="list-style-type: none"> ・隕石の落下
		人為	<ul style="list-style-type: none"> ・航空機の墜落
12	戦争、テロ等により処分場に破壊行為が生ずるのではないのか？	人為	<ul style="list-style-type: none"> ・意図的な坑道掘削による人間侵入 ・意図的な開削による廃棄体の露呈
13	埋め戻した後、もう掘り返さないという話だが、大事故になったらどうするのか？	全般	
14	知識・情報継承の失敗等による当該地域の開発が行われるのではないのか？	人為	<ul style="list-style-type: none"> ・意図せずに掘削したボーリングによるコアや岩屑の採取 ・意図せずに掘削したボーリング孔の放置 ・意図せずに掘削した坑道を経由した人間の進入 ・意図せずに掘削した坑道の放置 ・意図せずに開削したピットによる廃棄体の露呈

表4. 2. 2-6 一般公衆が抱く不安や懸念に基づく発端事象の抽出結果 (2/4)

No.	不安や懸念	発端事象	
15	大きな坑道を掘ることが逆にその付近の地層に影響を及ぼすことはないのか？	人為	<ul style="list-style-type: none"> ・EDZに沿った高透水帯の形成 ・埋戻し不良による高透水帯の形成
16	建設中にトンネルが崩落してしまったらどうするのか？	人為	<ul style="list-style-type: none"> ・施工不良による廃棄体近傍での高透水帯の形成
17	処分場は沿岸に造るという説明だったが、津波等の影響はないのか？	自然	<ul style="list-style-type: none"> ・津波（波食、地表の浸水）
18	今の時点では、説明してもらった方法で十分とされているのだろうが、それは将来に亘っても十分と評価しうる方法なのか？	全般	
19	福島事故のように想定外のことが発生するのではないのか？	全般	
20	これまで原子力については「絶対安全だ」という説明がなされてきたと思う。絶対安全なんてあるのか？	全般	
21	現時点で対象地域の地質が長期にわたって安定しているということを立証できるのか？	全般	
22	見えない、全く管理のできないところに放っておいていいのか、大いに疑問。	全般	
23	10万年後、100万年後のシミュレーションがなぜできるのか？	全般	
24	安全性への取り組みは理解できた。それでも何か起きたとき、有事の際のケアを考えているのか？	全般	
25	1000年先の人に想定外の事故が起きた時どう説明するのか？	全般	
26	火山や活断層を本当に避けられるのか？	自然	<ul style="list-style-type: none"> ・マグマ上昇経路の変化・新生 ・断層の派生または新規発生
27	絶対安全といわれてきた福島原発が今回程度の地震、津波でメルトダウンしているので、一つ一つの件で確信を持って肯定することができない？	全般	
28	隆起・浸食に関する回避対象について、どのようなデータに基づいて最大-150mとしているのかわからない。	自然	<ul style="list-style-type: none"> ・隆起速度の増加 ・海水準の変化
29	断層について、100分の1程度の範囲を回避するだけでなく、過去の地震の情報をもとに判断すべきではないか？	自然	<ul style="list-style-type: none"> ・断層の派生または新規発生 ・地震の発生

表4. 2. 2-6 一般公衆が抱く不安や懸念に基づく発端事象の抽出結果 (3/4)

No.	不安や懸念	発端事象	
30	ガラス固化体の安全確認はどのように行われているのか？	人為	・ 欠陥のあるガラス固化体の設置
31	処分場近傍で東北地方太平洋沖地震や想定南海トラフ地震クラスの海溝型大地震による地震動による揺れ、地すべり等、また随伴する津波が発生した場合にどうなるのか？	自然	・ 地すべりの発生 ・ 津波（波食） ・ 地震の発生 ・ 沈降（大地震後の余効変動を含む）
32	社会変動等により、閉鎖前の管理が想定外に早期に、あるいは不十分なままに終了してしまった場合はどうなるのか？	人為	・ 不完全な埋戻し ・ 操業途中での放棄 ・ 調査孔、モニタリング孔の放置
33	実施主体への信頼性、万一事故が起こったときに誰が対応するのか？	人為	・ 社会制度の崩壊による閉鎖前の事業放棄 ・ 知識、情報継承の失敗による意図しない坑道掘削による人間侵入
34	モニタリングの問題をどのように考えるか？	人為	・ 社会制度の崩壊によって異常事態を認識できず、意図せずにボーリング掘削、坑道掘削を行う ・ 知識、情報継承の失敗によって異常事態を認識できず、意図せずにボーリング掘削、坑道掘削を行う ・ 初期欠陥を認識できず、意図せずにボーリング掘削、坑道掘削を行う
35	高レベル放射性廃棄物の処理・処分に関し、地層処分と他の方法（例えば、群分離、消滅処分など）との比較が行われているのか？	全般	
36	処分方策については技術的選択肢を提示した上での議論が必要であるが、地層処分以外の選択肢は考えないのか？	全般	
37	わが国では、どのくらいの「量」の高レベル放射性廃棄物が発生するか？	全般	
38	地層処分が有望な処分方法とされているのは何故か？	全般	
39	高レベル放射性廃棄物は貯蔵管理の方が良いのではないか？	全般	

表4. 2. 2-6 一般公衆が抱く不安や懸念に基づく発端事象の抽出結果 (4/4)

No	不安や懸念	発端事象	
40	高レベル放射性廃棄物埋設後は放置するか、管理するのか？	人為	<ul style="list-style-type: none"> ・ 知識、情報継承の失敗によって管理ができなくなることによる意図しない坑道掘削による人間侵入
41	長寿命核種の分離変換技術の研究開発が進めば、高レベル放射性廃棄物の処分研究は不要ではないか？	全般	
42	処分研究を不要とは言わないまでも、分離変換技術の成熟を待ち、HLW量を減らしてから地層処分すべきではないか？	全般	
43	社会的に安心感を得るため、“処分場閉鎖に伴う管理を行う”という話が最近話題になっているようだが、具体的にどのような行為を行うのか、何をモニターするのか？	人為	<ul style="list-style-type: none"> ・ 社会制度の崩壊によって管理ができなくなることによる意図しない坑道掘削による人間侵入 ・ 知識、情報継承の失敗によって管理ができなくなることによる意図しない坑道掘削による人間侵入 ・ 初期欠陥を見過ごしたことによる安全機能の低下
44	ずっと地殻深く埋めてしまったら、どのように点検するのか？	人為	<ul style="list-style-type: none"> ・ 社会制度の崩壊によって管理ができなくなることによる意図しない坑道掘削による人間侵入 ・ 知識、情報継承の失敗によって管理ができなくなることによる意図しない坑道掘削による人間侵入 ・ 初期欠陥を見過ごしたことによる安全機能の低下

表4. 2. 2-7 懸念事項リストの例

自然過程		人為過程	
<p>1 地球外の現象</p> <p>1.1 巨大隕石の衝突</p> <p>1.2 太陽からの著しい輻射</p> <p>2 地質学的事象</p> <p>2.1 プレート運動/テクトニクスの急激な変化</p> <p>2.2 地磁気の著しい変化</p> <p>2.3 大規模な火山・火成活動</p> <p>2.3.1 マグマの上昇経路の新生・変化</p> <p>2.3.2 爆発的噴火</p> <p>2.3.3 熱水・深部流体の上昇経路の変化・形成</p> <p>2.3.4 火砕流</p> <p>2.4 大規模な変成作用</p> <p>2.5 大規模な結成作用</p> <p>2.6 著しい隆起・沈降・侵食・堆積</p> <p>2.7 海溝型大地震による揺れ、地滑り</p> <p>2.8 大規模な断層の派生・新生</p> <p>2.8 大規模な津波</p> <p>2.9 大規模な異常間隙水圧(泥火山)</p> <p>2.10 岩盤の顕著な不均質性(透水性、鉱物組成等)</p> <p>3 気候学的事象</p> <p>3.1 降雨、気温、土壌の水収支の著しい変化</p> <p>3.2 台風や集中豪雨による大規模な洪水・土石流</p> <p>3.3 著しい海面変動</p> <p>3.4 大規模な永久凍結層の形成</p> <p>3.5 大規模な氷河作用(氷河侵食等)</p> <p>3.6 大規模な竜巻やその飛来物</p> <p>4 地形学的事象</p> <p>4.1 大規模な地滑り</p> <p>4.2 大規模な表面削剥</p> <p>4.3 大規模な河川侵食</p> <p>4.4 著しい河川の蛇行</p> <p>4.5 著しい海食</p> <p>4.6 著しい堆積作用</p> <p>4.7 著しい寒冷気候化(ソリフラクション等)</p> <p>4.8 大規模な侵食作用と風化作用</p>	<p>5 水理学的事象</p> <p>5.1 著しい不均質場での地下水流動</p> <p>5.2 地下水流動状況の著しい変化</p> <p>5.3 地下水系への大量の海水の侵入</p> <p>5.4 塩淡水境界の著しい変化</p> <p>5.5 被圧帯水層の自噴による地下水の流入</p> <p>5.6 地熱の著しい変化</p> <p>6 物質移動および地球化学的現象</p> <p>6.1 ガスを媒体とした物質移動</p> <p>6.2 多相流およびガスに駆動された地下水流動</p> <p>6.3 コロイドの生成、溶解および移動</p> <p>6.3 錯形成種</p> <p>6.4 亀裂表面の風化および鉱物化</p> <p>6.5 土壌や有機物の残骸の蓄積</p> <p>6.6 再濃集</p> <p>6.7 pHの変動</p> <p>6.8 酸化性雰囲気</p> <p>7 生態学的事象</p> <p>7.1 植物による大規模な吸入</p> <p>7.2 動物による大規模な吸入</p> <p>7.3 土壌および堆積物中の大規模なバイオターベーション</p> <p>7.4 大規模な土壌生成作用</p> <p>7.5 大規模な化学的変化</p> <p>7.6 微生物との相互作用</p> <p>7.7 生態系の著しい変化(山火事等)</p> <p>7.8 大規模な気候変動への生態系の追従(砂漠化等)</p>	<p>1 処分場の設計および建設</p> <p>1.1 未検出の過去の掘削(試験孔等)</p> <p>1.2 調査用試験孔の閉鎖欠陥あるいは閉鎖材劣化</p> <p>1.3 立坑または連絡坑道の閉鎖欠陥あるいは閉鎖材劣化</p> <p>1.4 応力場の変化(地盤沈下、沈降、空洞の形成)</p> <p>1.5 母岩の脱水</p> <p>1.6 人工材料の欠陥(オーバーバックの早期破壊、ガラス固化体の欠陥等)</p> <p>1.7 温泉の見落とし</p> <p>2 操業および閉鎖</p> <p>2.1 緩衝材または埋め戻し材の圧縮あるいは空隙の生成</p> <p>2.2 廃棄物の不均質性(物理的あるいは化学的)</p> <p>2.3 バリア構成要素の初期欠陥(多数)</p> <p>2.4 閉鎖前の管理が不十分なまま放置</p> <p>3 閉鎖後の地下活動(処分場への侵入)</p> <p>3.1 廃棄物あるいは資材回収</p> <p>3.2 テロ行為あるいは戦争</p> <p>3.3 試験</p> <p>3.4 探鉱</p> <p>3.5 地熱エネルギー生産</p> <p>3.6 資源採取</p> <p>3.7 トンネル工事利用</p> <p>3.8 地下構造物建設(居住、他の廃棄物の処分)</p> <p>3.9 考古学的調査</p> <p>3.10 液体廃棄物等の注入</p> <p>3.11 地下水のくみ上げ</p> <p>3.12 地下居住の一般化</p> <p>3.13 掘削したボーリング孔・坑道の放置</p>	<p>4 閉鎖後の地表の活動</p> <p>4.1 記録の喪失</p> <p>4.2 ダム、貯水池の建設、放水</p> <p>4.3 河川の引水</p> <p>4.4 灌漑</p> <p>4.5 土壌改良および地下水水質制御</p> <p>4.6 農(酪農を含む)林水産業</p> <p>4.7 人口変化および都市開発</p> <p>4.8 人間活動による気候変化(温室効果等)</p> <p>4.9 採石・泥炭採取</p> <p>4.10 社会制度の崩壊</p> <p>4.11 強酸・強アルカリの地下への大量排水(長期間)</p> <p>4.12 知識・情報継承の失敗</p> <p>4.13 大型飛来物(航空機等)</p>
		複合事象*	
		<p>1 隆起・侵食/地震・断層活動</p> <p>2 地震・断層活動/深部流体</p> <p>3 隆起・侵食/隕石衝突</p> <p>4 社会制度の崩壊/不十分な埋戻し</p> <p>5 地下居住の一般化/記録喪失</p> <p>6 緩衝材外側での核種の沈殿・濃集/急激な環境変化による核種の溶解・移行**</p> <p>7 オーバーバック早期開口/緩衝材の止水性喪失/人工バリアの内側から外側への物質移動の促進**</p>	

*: 複合事象については、平成27年度までの研究で挙げられた組合せを記述した。

** : レジリエンス工学のFRAM法を地層処分システムに適用して抽出された機能共鳴パターン(日本原子力研究開発機構, 2014)を記述した。

赤字:一般公衆が抱く不安や懸念から抽出・具体化された事象

3) 事象・プロセス連鎖の記述

ここでは、懸念事項リストを起点として不安・懸念をシナリオに落とし込む（翻訳する）ために、過酷事象として想定しうる処分システムへの影響を列挙した。具体的には、1) 2) で整理したステークホルダーの不安や懸念の要因となる発端事象のうち、「火山、地震等が多い日本での地層処分は選択すべきでないのではないか？（マグマ上昇経路の変化・新生、爆発的噴火、断層の派生または新規発生）」及び「処分場近傍や周辺で火山噴火が生じ、火砕流・土石流が発生するのではないか？（周辺の火山の噴火）」を対象として、その発端事象の発生または継続による地質環境条件の変化、さらにそれらの事象の発生による地層処分システムへの影響を整理した。結果を表4.2.2-8に示す。整理に際しては、OECD/NEAの国際FEP(OECD/NEA, 2000)、産業技術総合研究所による国際FEP仮訳（産業技術総合研究所, 2007）、宮城（2007）、酒井ほか

（2011）、産業技術総合研究所（2014）による自然事象の連関図等を参照した。ひとつの発端事象を起点として複数の地質環境が変化する事象・プロセス連鎖が派生し得るが、ここでは、以下の方針に基づき、処分場の状態に変化を生じる可能性のある地質環境の連鎖を可能な限り抽出した。

- ・現在の科学的知見に基づき物理・化学的に考えられない事象は除外する。
- ・抽出した連鎖が過酷事象に該当するか否かについては、ここでは判断せず、処分場へ与える影響の大きさまたは規模による足切はしていない。ただし、埋没深度の増加や動水勾配の低下のように処分システムによる隔離機能や閉じ込め機能等の安全性に対して有利に働くと考えられる事象は整理対象から除外する。

今後は、以下の観点から、「処分システムへの影響」を組み合わせることでシナリオを具体化していくことが必要である。その上で、詳細な影響評価や頻度の分析を行い、重要度を評価していくことが必要である。

- ・過酷事象となり得る条件を軸に探索：地表接近（含、移行経路の短縮）、溶解の促進、希釈水量の減少
- ・この際、人への甚大な影響(e. g. 100mSvの被ばく)を起点とした成果も活用

表4.2.2-8 不安や懸念を起点とした自然事象の連鎖 (1/2)

不安や懸念	発端事象		地質環境の変化		処分システムへの影響		状態の変化
火山、地震等が多い日本での地層処分は選択すべきではないのか？	1-A	マグマ上昇経路の変化・新生	処分施設を直撃するマグマの貫入	火山の噴火（溶岩の流出）	破壊・溶融された廃棄体が溶岩と一緒に噴出する	・地表放出	
				火山の噴火（火山灰の噴出）	廃棄体の破片や溶融したガラス固化体が火山灰と一緒に噴出する	・地表放出	
				火山の噴火（火砕流の発生）	廃棄体の破片や溶融した廃棄体を含む火砕流が発生する	・地表放出	
				火山噴火の未遂	地表には達しないが、廃棄体が破壊されバリア機能が損なわれる	・溶解の促進	
	1-B		マグマが処分場近傍に達して、地下水が高温、低pHとなる	分配係数、溶解度が変化し、バリア機能が劣化する	・溶解の促進 ・核種濃度の増加		
	1-C		カルデラの形成	破壊された廃棄体が火山灰や火砕流と共に噴出する	・地表放出		
	1-D	爆発的噴火	処分施設を直撃する爆発的噴火	火山灰の噴出	廃棄体の破片や溶融した廃棄体が火山灰と一緒に噴出する	・地表放出	
				火砕流の発生	廃棄体の破片や溶融した廃棄体を含む火砕流が発生する	・地表放出	
	1-E		爆発的噴火による火山体の崩壊	火山体の崩壊と崩壊土砂の堆積	火山体の崩壊によって廃棄体の埋没深度が浅くなる	・移行経路の短縮	
					廃棄体を含んだ崩壊土砂が下流に堆積する	・地表放出	
	1-F	断層の派生または新規発生	岩盤の破壊・破碎帯の形成	廃棄体の破壊を伴う水みちの形成	ガラス固化体と地下水の接触面積が増加し、新たな移行経路が形成される	・溶解の促進 ・移行経路の短縮	
				廃棄体の破壊を伴う深部流体上昇経路の形成	ガラス固化体と地下水の接触面積が増加し、廃棄体が高温・低pHの地球化学的環境にさらされる。また、新たな移行経路が形成される	・移行経路の短縮	
				廃棄体の破壊を伴わない水みちの形成	廃棄体の近傍に新たな移行経路が形成される	・溶解の促進 ・移行経路の短縮	
廃棄体の破壊を伴わない深部流体上昇経路の形成				廃棄体周辺の地化学環境が高温・低pH環境に変化する	・溶解の促進 ・移行経路の短縮		

表 4. 2. 2-8 不安や懸念を起点とした自然事象の連鎖 (2/2)

不安や懸念	発端事象		地質環境の変化		処分システムへの影響	状態の変化
火山、地震等が多い日本での地層処分は選択すべきでないのではないか？	1-G	断層の派生または新規発生	断層変位に伴ってしゅう曲・撓曲が形成されしゅう曲軸に沿って割れ目が発生	廃棄体の破損・変形を伴う水みちの形成	廃棄体と地下水の接触面積が増加し、新たな移行経路が形成される。	・溶解の促進 ・移行経路の短縮
				廃棄体の破損・変形を伴う深部流体上昇経路の形成	廃棄体と地下水の接触面積が増加し、廃棄体が高温・低pHの地化学環境にさらされる。また、新たな移行経路が形成される。	・溶解の促進 ・移行経路の短縮
				廃棄体の破損・変形を伴わない水みちの形成	廃棄体に接触した地下水の新たな移行経路が形成される。	・移行経路の短縮
				廃棄体の破損・変形を伴わない深部流体上昇経路の形成	廃棄体周辺の地化学環境が高温・低pH環境に変化する。	・溶解の促進 ・移行経路の短縮
	1-H		断層変位に伴ってしゅう曲・撓曲が形成され、異常間隙水圧が発生する	泥火山の地表への噴出	破壊された廃棄体が泥流とともに噴出する。	・溶解の促進 ・核種濃度の増加
				泥ダイアピルの形成（噴出未遂）	地表には達しないが、廃棄体の破壊や緩衝材の変形・流失等によりバリア機能が損なわれる。	・溶解の促進
				泥チャンバーの形成	高温地下水が流入する。	・溶解の促進
	1-I		断層変位に伴ってしゅう曲・撓曲が形成され隆起する	廃棄体埋没深度の減少	廃棄体が酸化環境にさらされるとともに隔離機能が損なわれる。	・移行経路の短縮
				起伏量の増加による崩壊の発生（深層崩壊）	処分施設の直上または周辺が喪失し、処分施設または処分施設の一部が地表に露出する。	・地表放出
	処分場近傍や周辺で火山噴火が生じ、火砕流・土石流が発生するのではないか？		2-A	周辺の火山の噴火	火砕流の発生	地表付近の温度が上昇し、地下水流動場の変化あるいは母岩の変質が進行する。

4.3 巨大地震・断層活動を事例とした評価技術開発

4.3.1 安全機能に着目した評価手法の開発

ここでは、東北地方太平洋沖地震を踏まえ、特に多くの人々が不安に思う事象であると考えられる地震・断層活動を事例として、4.2の「不安や懸念を起点としたアプローチ」を踏まえて過酷事象が地層処分の長期安全性に及ぼす影響に関する評価技術を開発することを目的としている。

過酷事象の評価にあたっては、地震・断層活動に係るさまざまな現象の中から、過酷事象（たとえば100mSvの被ばくを超える状況）に関係し得る現象やその条件を絞り込むことでシナリオを具体化し、それらの発生可能性を含む重要度評価を行なうことが必要である。平成27年度までの検討では、処分システムの安全機能やバリア性能の劣化・喪失に着目して感度解析を行なうことで、過酷事象につながる安全機能の状態・組み合わせを効果的に抽出できる見通しが得られた（日本原子力研究開発機構，2014，2015）。こうした過酷事象につながる安全機能の状態から、過酷事象につながる現象やその条件を抽出し、重要度評価につなげるためには、個別現象研究の成果を適切にシナリオの検討に反映し、感度解析を含む「安全機能の分析」と「個別現象の調査・評価」を反復的に行うことが必要である（図4.3.1-1）。平成28年度は、図4.3.1-1に示した一連の手順のうち、「安全機能の分析」と「個別現象の調査・評価」及びそれらを踏まえた「過酷事象に関係し得る条件の絞り込み」を試行した。この際、科学的な知見を反映して過酷事象に関係し得る安全機能の状態や個別現象を探索するための基礎情報として、探索に必要な科学的な知見を、関係者が共有・記録するための「情報共有シート」を作成し、活用した。

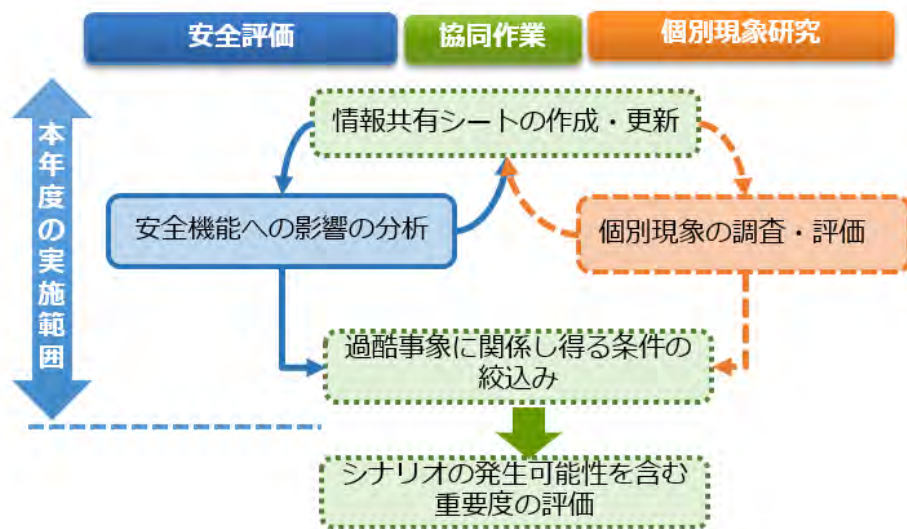


図4.3.1-1 安全機能に着目した影響評価の手順

4.3.2 巨大地震・断層活動に関連した個別現象の調査・評価

本節では、巨大地震・断層活動に関連した個別現象の調査・評価を実施した。具体的には、まず、巨大地震・断層活動を発端とした過酷事象の検討において、前提条件となる「起因事象」の特性を設定した。また、断層の直撃を想定した縮尺1/40の断層模擬せん断衝突模型実験及びその解析、さらに設計用実寸法の人工バリアの非線形大変形せん断衝突解析を通じて、断層のずれによるオーバーパックへの影響について検討した。また、巨大地震動による人工バリア・処分施設への影響について検討した。これら個別事象の分析を基にして、過酷事象に関係し得る条件の絞り込みを行い、安全機能の劣化・喪失を考慮した感度解析を実施し、影響評価の試行を実施した。

(1) 起因事象としての断層の特性

1) はじめに

① 目的

地震・断層活動は地層処分の根幹である地質環境の長期安定性に影響を及ぼす天然現象の一つとして、第2次取りまとめ（核燃料サイクル開発機構, 1999）において、地震・断層活動の様式、活断層の分布、断層活動の影響範囲、及び地震による地質環境への影響に関する知見が取りまとめられた。これらの知見を基に、地質環境の長期安定性に関するサイト選定の要件の一つ「断層活動の影響（岩盤の破断・破砕、変位）によって、地層処分システムの所期の性能が損なわれるような場所ではないこと」として、適切なサイト選定の必要性を述べており、「この要件を満たす場所は、主要な活断層（過去数十万年以内に繰り返して活動している断層）から十分に離すことにより確保できる」とし、地震・断層活動の有意な影響が及ぶ範囲を適切に回避する論拠を示している。地層処分実施主体である原子力発電環境整備機構においても、「概要地区選定上の考慮事項と背景の技術的根拠」（原子力発電環境整備機構, 2004）、「地層処分事業の安全確保（2010年度版）」（原子力発電環境整備機構, 2011）の中で、継続的に実施されている地震・断層活動に関する知見の更新、評価技術や調査技術開発等が取りまとめられている。平成25年に経済産業省の総合エネルギー調査会電力・ガス事業分科会原子力小委員会の下に、「第2次取りまとめから10年以上経過し研究開発が進展するとともに、東北地方太平洋沖地震をはじめとする自然事象が発生していることから、地層処分の技術的信頼性について、改めて最新の科学的知見を反映した再評価を行い、今後の研究課題を明らかにする」ことを目的の一つにおいた、地層処分技術ワーキンググループが設置された。ここでは第2次取りまとめ以降の最新の知見に基づいた、断層活動の考え方、適切な回避等について審議を行っており、「最新の科学的知見に基づく地層処分技術の再評価—地質環境特性及び地質環境の長期安定性について—」、及び「科学的有望地の要件・基準に関する地層処分技術WGにおける中間整理」（総合エネルギー調査会電力・ガス事業分科会原子力小委員会地層処分技術ワーキンググループ, 2014）をとりまとめている。このように、地震・断層活動に関して、複数の機関、委員会等において検討が行われており、最新の知見をもとに整備された地震・断層活動を回避するための条件を提示している。

本検討では、上記の回避条件を満足させてもなお残る不確実性への対応を目的として、断層の活動を起因として、過酷事象に至るシナリオ探索、及び影響評価を実施するにあたり必要となるパラメータを調査し、知見として整備する。

② 検討の概要

断層の活動を起因として、過酷事象に至るシナリオ探索、及び影響評価を実施するにあたり必要となるパラメータの調査、知見整備に際し、下記について検討を行った。

a. 地層処分における地震・断層活動の考え方

これまで、地層処分において検討されてきた地震・断層活動に関する調査及び研究開発について、第2次取りまとめからの経緯を概観し、地震・断層活動の発生メカニズム等の基本事項を確認するとともに、地震・断層活動の有意な影響が及ぶ範囲を適切に回避するための条件等を整理する。

b. 起因事象として考慮すべき断層の特性に関する検討

断層の活動を起因として、過酷事象に至るシナリオ探索、及び影響評価を実施するにあたり必要となる断層のパラメータを調査、考察し、取りまとめる。

- ・ 起因事象として考慮しうる最大規模の地震・断層に関する議論
- ・ 断層の影響範囲
- ・ 断層の傾斜角
- ・ 断層の変位量、活動間隔
- ・ 断層の影響範囲における透水性

2) 地層処分における地震・断層活動の考え方

① 地層処分における地震・断層活動の考え方に関する検討の経緯

a. 第2次取りまとめにおける地震・断層活動の考え方

第2次取りまとめでは、その包括的な目標である「わが国における地層処分技術の信頼性を示す」ことを「高レベル放射性廃棄物を地層処分するための、実用可能かつ合理性を備えた技術の存在を明らかにすること、さらにそのような技術と適切な地質環境によって長期にわたる地層処分の安全性が保たれることを、科学的な根拠に基づいて示すこと」と認識し、これに対し「地質環境条件の調査研究」「処分技術の研究開発」「性能評価研究」の研究開発成果を取りまとめ、わが国においても、地層処分に適切な地質環境を選定し、その地質環境に適合した処分場を設計・施工することにより、長期間安全性を維持できる地層処分システムを構築することが可能であることを示している。本項で対象としている地震・断層活動は、「地質環境条件の調査研究」において、地質環境の長期安定性に影響を与える可能性のある天然現象ひとつとして、火山・火成活動、隆起・沈降・侵食、気候・海水準変動とならび取り上げられている。これらの活動痕跡調査、年代測定等の事例研究、地球科学を基とした活動履歴の整理から、現象の種類や地域によって違いがあるものの、おおむね過去数十万年までさかのぼって活動の場所や規模を追跡でき、火山活動や断層活動は、限られた地域で繰り返し起こっていることが示された。また、これらの活動の影響は、それぞれ火山、活断層の距離によって限定できる目安が示された。これにより、火山活動や断層活動による影響を被らない地域がわが国にも存在し、「火山活動、断層活動の可能性とその影響範囲を考慮して処分地を適切に選定し、また処分場を適切に設計することにより、地層処分システムに対する影響を回避することが可能」としている。

この地質環境の長期安定性を示すための手法として、過去を踏まえて将来を外挿する予測の考

え方があり、「各天然現象の過去における活動様式や変動の規模あるいはそれらの時間的・空間的な変化を理解することにより、過去から現在に継続する変化の延長として将来の姿が類推される。現在の地質や地形に残された過去の天然現象の活動履歴を追跡していけば、過去から現在までの変化の中に一定の傾向や規則性を見出すことができ、これに基づき将来における天然現象の活動の可能性や変動の規模等を推察することができる。【分冊1：要約（核燃料サイクル開発機構，1999a）】」としており、地層処分システムの長期安定性を述べる上で根幹となる重要な考え方である。「地球の歴史の中で最も新しい地質時代である第四紀（約170万年前～現在）、とくに最近数十万年程度については、過去における天然現象の活動の痕跡が現在の地質や地形に比較的良好に保存されており、年代に関する情報も豊富である。また、プレートの配置やその相対運動が支配する日本列島のテクトニクスの場合において、地殻の応力状態などの変動は、数十万年～数百万年という地質学的な時間の中で、一定の傾向を保ちつつ進行していく。したがって、将来数十万年程度における天然現象の活動を評価する場合には、過去数十万年程度における活動の様式や変動傾向が、同様に継続していくとみなすことが妥当と考えられる。【分冊1：要約（核燃料サイクル開発機構，1999a）】」と述べている。「わが国における主な断層活動は、過去数十万年程度にわたり、既存の活断層帯において同様の活動様式で繰り返し起こっており、この間、地殻応力場はおおむね安定して継続してきたとみなすことができる」とし、将来数十万年はこの活動様式が継続すると述べている。したがって、「主要な活断層の周辺は処分地の選定に際して避けるべき」と述べ、わが国における主な活断層の分布は概ね把握されていること、断層活動によって岩盤が破断・破碎された領域（断層破碎帯の幅）等を示している。また、伏在断層や断層の分岐等の選定に際しての注意すべき項目を挙げている。

b. 第2次取りまとめ以降の地震・断層活動の考え方

第2次取りまとめ以降、地層処分の実施主体である原子力発電環境整備機構、経済産業省の総合エネルギー調査会電力・ガス事業分科会原子力小委員会地層処分技術ワーキンググループ（以降、地層処分WG）においても、地質環境の長期安定性に関する検討や審議がこれまで継続されている。地質環境の長期安定性に関する考え方は、第2次取りまとめを踏まえた将来予測を基本的な考え方としている。

原子力発電環境整備機構では、「概要地区選定上の考慮事項と背景の技術的根拠」（原子力発電環境整備機構，2004）において、最終処分法及び同施行規則に示された概要調査地区選定段階の選定要件に関する事項の具体化を図っている。地震・断層活動は「地震」として、法定要件に関する事項とされている。この中で、地震が処分場に及ぼす影響として、①地震を発生させ、地層の変位・変形を起こす「断層活動」、②地震の「ゆれ」（地震動）、③地震に伴う岩盤の亀裂の発生、地下水の動きや化学的性質の変化等の地震発生前後における「地質環境の変化」を想定し、②「ゆれ」、③に関しては、それぞれは処分場に大きな影響を与えるものではないとして、概要地区選定段階での評価は行わないとしている。一方、地層の変位・変形を生じさせる①「断層活動」が発生する場所は、第2次取りまとめを踏まえ、処分場の選定に際して避けるべきとし、「全国一律に評価する事項」、「個別地区ごとに評価する事項」に区別し、評価の考え方、基準等を具体化し、次のように、考慮事項が設定されている。

○「断層活動」に関連する「全国一律に評価する事項」

陸域では空中写真判読等、海域では海上音波探査等に基づいて全国的に調査された文献に示されている活断層がある場所は含めないように、概要調査地区を選定する。

○「断層活動」に関連する「個別地区ごとに評価する事項」

繰り返し活動し、変位の規模が大きい活断層等について、次の事項に該当すると明確に判断される場所、範囲は含めないように、概要調査地区を選定する。

①全国一律に評価する事項で用いた以外の文献によって認められる活断層がある場所

②活断層の幅（断層破砕帯）及びその外側の変形帯に含まれる範囲

③活断層の分岐等の発生の可能性が高い範囲

④顕著な活動を継続している活褶曲や活撓曲の分布範囲

(原子力発電環境整備機構, 2002)

上記「①全国一律に評価する事項で用いた以外の文献によって認められる活断層がある場所」の設定の背景には、全国規模で抽出された既知の断層以外に、活断層の存在が後に指摘された事例（たとえば、2000年鳥取県西部地震など）、伏在断層の事例（深谷断層とその周辺地域に関する物理探査事例）などがある。また、②から④に関しても第2次取りまとめを踏まえ、新たな知見を加え、評価の考え方を示している。

処分技術WG中間とりまとめ（2014）において、断層の影響を「将来も活動する可能性が高く、繰り返し活動し、変位の規模が大きい断層は回避する必要がある」としており、第2次取りまとめからの考え方を踏襲しつつ、「第2次取りまとめ以降に示された地質環境の長期安定性に関する見解についての検討」（原子力発電環境整備機構, 2013）として、新たな知見を整備し、地質環境の長期安定性の確保に関する検討、「回避すべき天然事象」、「回避すべき範囲」、「回避が好ましい範囲」等を取りまとめ、処分技術WG中間整理（2014）では「科学的有望地選定における要件・基準」について検討を行っている。第2次取りまとめ、2000年以降の知見の例に、全国規模で抽出された既知の活断層以外で、規模の大きな地震が発生し、活断層の存在が後に指摘された主な事例（2000年鳥取県西部地震、2004年新潟県中越地震、2005年福岡県西方沖地震、2007年能登半島地震、2007年新潟県中越沖地震、2008年岩手・宮城内陸地震）を挙げており、既存の活断層の存在は、全国規模のデータベースの情報だけでなく、より綿密な空中写真判読、地表調査、物理探査、ボーリング調査等の現地調査に基づいて、上述の2000年以降に発生した地震とその後の活断層調査の知見を踏まえて確認する必要性を述べている。

c. 地震・断層活動の回避条件

地震・断層活動を回避するための条件は、第2次取りまとめ、概要調査地区選定上考慮事項、地層処分技術WG審議で大きく変わらず、サイト選定の段階で、「活断層周辺」の「断層の影響範囲」を避けるとしており、表4.3.2-1にその概要を示す。

地層処分技術WGでは、回避の設定を具体的に、既往の断層長さと同断層破砕帯及びプロセスゾーン幅の関係に関する知見から回避の範囲を断層長さの1/100程度と示している。また、「回避す

べき範囲」と「回避が好ましい範囲」を図4.3.2-1に示すように設定している。

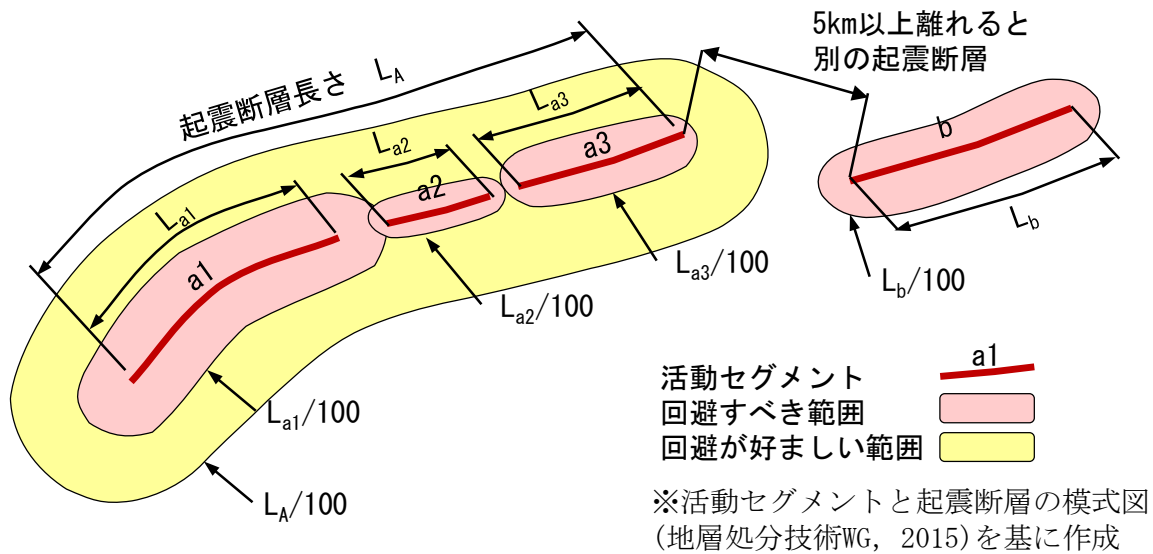


図4.3.2-1 地層処分技術WGによる回避範囲のイメージ

3) 起因事象として考慮すべき断層の特性に関する検討

断層の活動を起因として、過酷事象に至るシナリオ探索、及び影響評価を実施するにあたり必要となる断層のパラメータを調査、考察し、取りまとめる。

①起因事象として考慮しうる最大規模の地震・断層に関する議論

まず既往の想定を超える事象としての断層を、「断層に関する段階的な調査を経たにもかかわらず生じた断層」として捉え、その規模を国内の内陸型地震で最大規模であった濃尾地震を参考にM=8.0とした。

断層長は、断層長とマグニチュードの関係（松田，1975）より算出する。

$$\log L = 0.6M - 2.9 \text{ [km]}$$

ここに、Lは断層長、Mはマグニチュードである。M=8.0として算出した断層長はL=80kmとなる。

②断層の影響範囲

既往の断層の長さや破砕帯及びプロセスゾーンの幅に関する知見から、金折（2001）によれば、断層破砕帯、及びプロセスゾーンの片側幅はそれぞれ下記のとおりである。

断層破砕帯及びプロセスゾーンの概念図を図4.3.2-2に示す。

- 断層破砕帯の片側幅： $T \text{ [m]} = 0.83 \times 10^{-3} L^{1.15} \text{ [m]}$
- プロセスゾーンの片側幅： $P \text{ [m]} = 1.6 \times 10^{-2} L \text{ [m]}$

上式と、地層処分技術WGにおいて参考とされている、下記に示す断層長さや断層破砕帯幅、プロ

セスゾーン幅のうち大きい値を採用する。

・断層破碎帯の片側幅： $T[m] = L/150[m]$

・プロセスゾーンの片側幅： $P[m] = L/100[m]$

上記の断層規模から、破碎帯片側幅は540m、プロセスゾーンの片側幅は1300mとなった。

表4.3.2-1 地層処分における地震・断層活動の考え方(1/3)

	第2次取りまとめ	原子力発電環境整備機構 概要調査地区選定上の考慮事項	地層処分技術WG審議
地震・断層活動の様式	<p>わが国における主な地震・断層活動は、既存の活断層帯において、過去数十万年程度にわたり同様の活動様式で繰り返し起こっており、この間、地殻応力場おおむね安定して持続してきたとみなすことができる。このことから、十万年程度の将来についても、現在の活動の場が継続するもの考えることができる。ただし、逆断層帯の幅の拡大など、地域によって活動性や活動様式が異なるため、地域の特徴を十分に考慮し、検討する必要がある。</p> <p>(分冊1:2.3.3まとめ 核燃料サイクル開発機構, 1999a)</p> <p>活断層が現存しない地域において、地質環境に重大な影響を与える断層が、将来新たに発生する可能性は小さいと考えられる。しかし、水理学的、地質学的に特異で、過去に群発地震が発生したような地域や、規模の大きい活断層の延長にある主要な非活断層帯については、注意が必要である。</p> <p>(分冊1:2.3.1わが国における断層活動の特徴 核燃料サイクル開発機構, 1999a)</p>	<p>第2次取りまとめと同様に、過去の変動の傾向を将来へ延長して予測する外挿法を適用。この前提となる情報の充実を図っている。</p>	<p>同左。</p>
地震による影響	<p>地下数百m以深では一般に地震動による影響は小さいと考えられる。</p> <p>(分冊1:2.3.3まとめ 核燃料サイクル開発機構, 1999a)</p> <p>地震前後の地下水流動や水質の変化は、季節変動などの経時変化に比べて小さい。また、仮に大きな地震があったとしても、その変化は一時的であり、数ヵ月後には元の水位に戻ると思われる。</p> <p>(分冊1:2.3.2地震断層活動が地質環境に及ぼす影響 核燃料サイクル開発機構, 1999a)</p>	<p>一般に地下深部の「ゆれ」(地震動)が地上に比べて小さいことを考慮し、概要調査地区の選定段階での評価は行わないものとする。</p>	<p>2011年東北地方太平洋沖地震のような規模の極めて大きな地震に老いても、地震動は地表に比べて地下深部では小さいことが確認。また、地下水流動や水質の変化は、季節変動などの経時変化に比べて小さいこともある。ただし、2011年4月11日の福島県浜通り地震に伴う地下水の自噴が2年以上継続していることもあり、情報の収集が必要。</p>

表4.3.2-1 地層処分における地震・断層活動の考え方(2/3)

		第2次取りまとめ	概要調査地区選定上の考慮事項	地層処分技術WG審議
サイト選定要件・考慮事項等	設定・考え方	<p>断層活動の影響（岩盤の破断・破砕、変位）によって、地層処分システムの所期の性能が損なわれるような場所ではないこと。</p> <p>この要件を満たす場所は、主要な活断層（過去数十万年以内に繰り返し活動している断層）から十分に離すことにより確保できる。</p> <p>（分冊1：4.1.2サイト選定の要件 核燃料サイクル開発機構，1999a）</p>	<p>概要調査地区選定上の考慮事項として「断層活動」を設定。</p> <p>全国一律に評価する事項 陸域では空中写真判読等、海域では海上音波探査等に基づいて全国的に調査された文献に示されている活断層がある場所は含めないように、概要調査地区を選定する。</p> <p>個別地区ごとに評価する事項 繰り返し活動し、変位の規模が大きい活断層等について、次の事項に該当すると明確に判断される場所、範囲は含めないように、概要調査地区を選定する。</p> <p>①全国一律に評価する事項で用いた以外の文献によって認められる活断層がある場所 ②活断層の幅（断層破砕帯）及びその外側の変形帯に含まれる範囲 ③活断層の分岐等の発生の可能性が高い範囲 ④顕著な活動を継続している活褶曲や活撓曲の分布範囲 （原子力発電環境整備機構，2002）</p>	<p>断層活動により、地下深部から地方・地下浅部に達するような断層のずれが発生し、処分場が力学的に破壊される場合、および、断層の擦れに伴い断層およびその周辺岩盤の透水性が増加し、地下水の以降経路が変化した場合について、著しい影響があると考えられる。そのため、将来も活動する可能性が高く、繰り返し活動し、変位の規模が大きい断層は回避する必要がある。 （地層処分技術WG，2015）</p>
	活断層の分布	<ul style="list-style-type: none"> ・200万分の1活断層図編纂ワーキンググループ(1999)：200万分の1活断層分布図、活断層研究，19 ・活断層研究会(1991)：新編日本の活断層 分布図と資料，東京大学出版会 	<p>「断層活動」に関連する「全国一律に評価する事項」に対する活断層分布として下記を選定。</p> <ul style="list-style-type: none"> ・[陸域] 中田高・今泉俊文編(2002)：「活断層詳細デジタルマップ」付図 200 万分の1日本列島活断層図，東京大学出版会 ・[海域] 徳山英一ほか(2001)：「日本周辺海域の中新世最末期以降の構造発達史」付図 日本周辺海域の第四紀地質構造図，海洋調査技術，第13 巻第1 号，海洋調査技術学会 	<p>繰り返し活動し、変位の規模の大きい断層の分布については、既存の活断層の存在は、全国規模のデータベースの情報だけでなく、より綿密な空中写真判読、地表調査、物理探査、ボーリング等の現地調査に基づいて、2000年以降に発生した地震とその後の断層調査の知見を踏まえて確認する必要がある。</p> <p>全国規模で利用可能な文献・データの例</p> <ul style="list-style-type: none"> ・中田高・今泉俊文編(2002)：「活断層詳細デジタルマップ」付図 200 万分の1日本列島活断層図，東京大学出版会 ・「活断層データベース（産業技術総合研究所ウェブサイト）」

表4.3.2-1 地層処分における地震・断層活動の考え方(3/3)

		第2次取りまとめ	概要調査地区選定上の考慮事項	地層処分技術WG審議
サイト選定要件・考慮事項等	影響範囲	<p>断層活動による地質環境への影響は、主に活断層破砕帯及びその周辺に限られる。活断層破砕帯の幅は数mから最大でも数百m程度であり、また、断層活動にともない、周辺岩盤中にずれ変位が生じる可能性のある小断層などの分布範囲は、大きな活断層でも数km程度以内と考えられる。</p> <p>断層活動による影響範囲は、活断層の大きさによって異なるため、個々の地域については、近傍の活断層を詳細に調査し、その影響範囲を検討する必要がある。また、伏在断層の有無や小規模な活断層の分布を調べることも重要である。</p> <p>(分冊1：2.3.3まとめ 核燃料サイクル開発機構，1999a)</p>	<p>既存の活断層の直接的な影響が及ぶ範囲については、断層活動により破砕された痕跡である断層岩の分布に基づき捉えることができる。しかし、断層周辺に認められる断層岩のうち、どこまでを活断層の影響が及ぶ「断層破砕帯」とみなすかについては、いくつかの見解があり、考慮事項においては「第2次取りまとめ」の見解を踏まえることとし、断層ガウジ、断層角礫、カタクレーサイト等から構成される範囲を、断層破砕帯とし、この領域を活断層の活動による岩盤の破断、破砕作用等の影響が将来直接及ぶ幅をもった領域と捉え、その分布や規模に関して、調査・検討を行うものとする。そして、個別地区ごとの文献調査により、前掲の①で存在を特定した活断層の各々に関して、断層破砕帯の分布や幅に関する情報が得られた場合には、当該断層線上にその幅を加味して、断層活動による破断・破砕が及ぶ領域としてその場所は含めないように、概要調査地区を選定する。</p> <p>(原子力発電環境整備機構，2014)</p>	<p>断層活動の影響範囲は、目安となる破砕帯の幅として、保守的には断層長さの1/100程度^{※1}とすることが考えられる。また、サイトごとに個別に評価するが、将来の断層活動の範囲として、断層の進展や分岐が発生する可能性がある領域(活断層帯)を回避する。さらに、変形帯や活褶曲・活撓曲についても、地層処分システム全体への影響が著しい範囲は回避することを検討する。</p> <p>断層長さの1/100程度の範囲を回避に関する範囲とすることとし、「断層の長さ」のとらえ方には幾つか種類があることから、短い長さ(活動セグメント長さ^{※2})で影響範囲である幅が狭くなる場所を「回避すべき範囲」、長い長さ(起震断層長さ^{※3})で影響範囲である幅が広がる場合を「回避が好ましい範囲」とすることが適当であると考えられる。</p> <p>(地層処分技術WG, 2015)</p>
		<p>※1：既往の断層長さと同破砕帯およびプロセスゾーン幅の関係に関する知見(例えば、破砕帯幅は断層長さの1/350～1/150程度、プロセスゾーンの幅は断層長さの1/100程度)が示されている。</p> <p>※2：活断層を過去の活動時期、平均変位速度、平均活動間隔、変位の向きなどに基づいて区分した断層区間。固有地震を繰り返す活断層の最小単位。</p> <p>※3：活断層は、条件により単独で活動したり、幾つかの断層が同時に活動したりすることが知られている。松田(1990)は断層線の位置関係により、まとめて一つの地震を発生させる可能性が高い断層のグループを定義し、これを起震断層と呼んだ。松田(1990)は、起震断層の認定に際して、世界の主要な主断層帯の幅や主断層を構成する地震断層線とそれに付随して動いた副断層の中点との間の距離などから、相互間隔の目安を5kmと設定した。</p> <p>(地層処分技術WG, 2015)</p>		

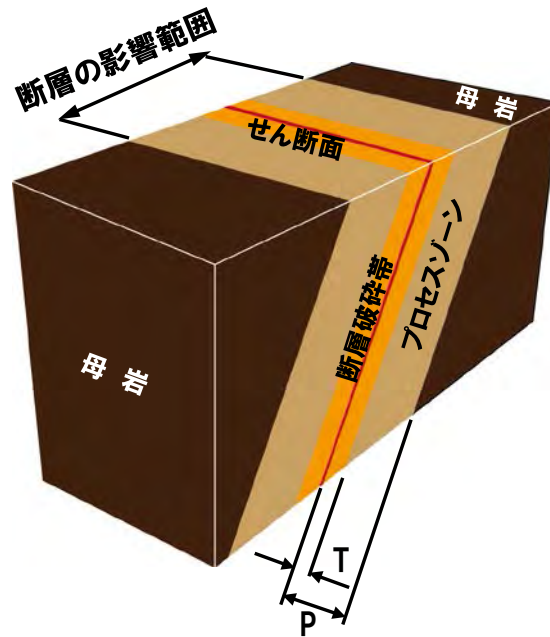


図4.3.2-2 断層破碎帯及びプロセスゾーンからなる断層の影響範囲概念図

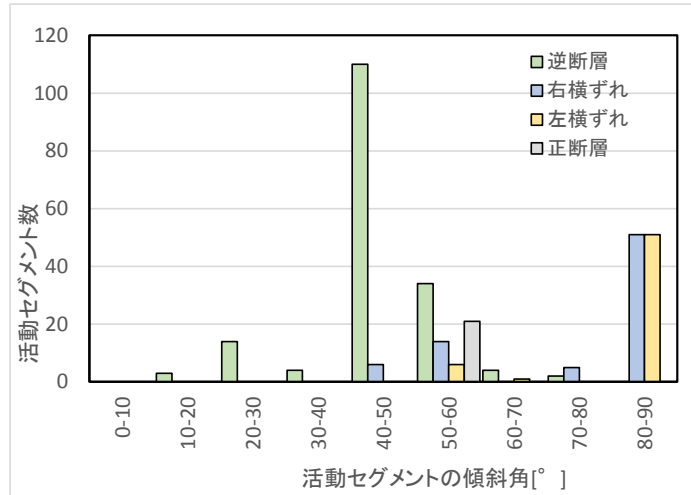
③断層の傾斜角

産業技術総合研究所の活断層データベース(2016)の活動セグメントデータより、傾斜角の分布を調査した結果、図4.3.2-3に示すような分布が得られた。横ずれ断層系に高角度が多く、逆断層系は低角度が多いことがわかった。

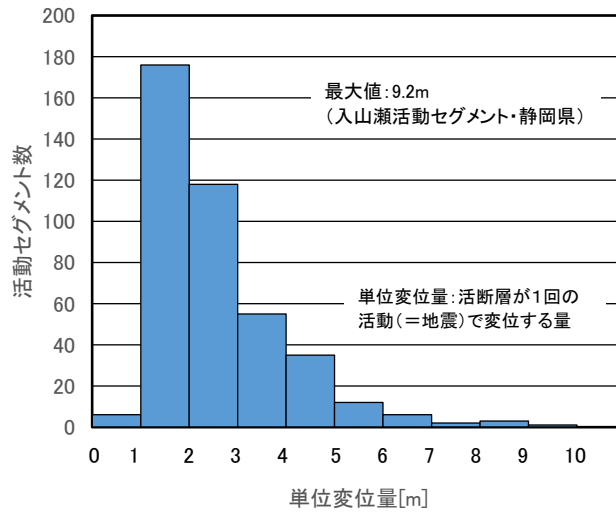
④断層の変位量、活動間隔

産業技術総合研究所の活断層データベース(2016)の活動セグメントデータより、単位変位量(一回の活動で変位する量、単位m)、及び活動間隔を調査した結果を図4.3.2-3に示す。活動セグメントの単位変位量は1~5mに分布が集中しており、最大値は9.2mであり、富士川河口起震断層・入山瀬活動セグメント(静岡県)であった。濃尾地震の際に出現した濃尾起震断層・根尾谷活動セグメントの単位変位量は4.9mであった。この単位変位量は人工バリアのサイズを超える変位となる。

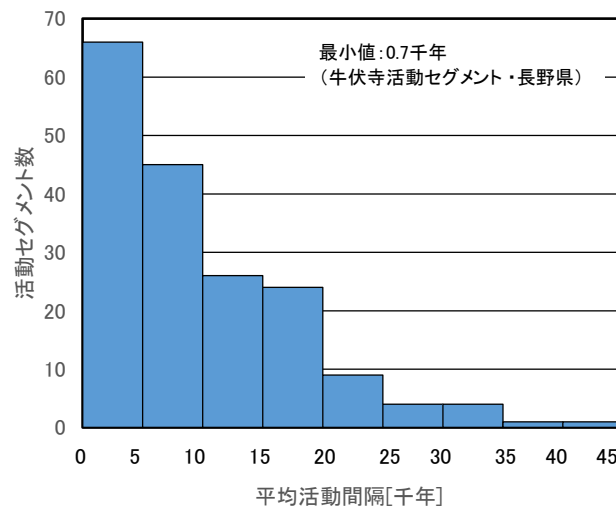
活動セグメントの活動間隔は、10千年に大部分が集中しており、最小活動間隔は0.7千年の糸静起震断層・牛伏寺活動セグメント(長野県)であった。濃尾起震断層・根尾谷活動セグメントの活動間隔は2.6千年であった。



(1) 傾斜角の分布



(2) 単位変位量の分布



(3) 活動間隔の分布

図4.3.2-3 活動セグメントに関する調査結果 (産業技術総合研究所, 2016)

⑤断層の影響範囲における透水性

a. 地層処分研究における水理試験結果

図4.3.2-4は、地層処分研究において調査されてきた岩盤及び断層の透水係数分布である。図4.3.2-4の上段は、ダム基礎やトンネルで調査された断層粘土、断層破碎帯の透水係数分布（古屋ほか，1999）である。中段は、硬岩（花崗岩）を対象とした水理試験結果における透水係数分布を示しており、瑞浪超新地層研究所計画における単孔式水理試験結果（竹内ほか，2005a；竹内ほか，2005b；大丸ほか，2012；尾上ほか，2016）、及び地層科学研究で調査された釜石鉱山における単孔水理試験結果（新見ほか，1994）をそれぞれ示している。下段は軟岩を対象とした水理試験結果における透水係数分布を示している。

図に示した透水係数の分布を中央値で比較する。上段の「断層」の透水係数分布は対象が地表付近のデータが多いため、硬岩、軟岩に比べ、2オーダーほど高い値を示している。

中段に示している硬岩については、健岩部は概ね 10^{-8} m/sの透水係数が大部分を占めている。劣化部に相当する風化部、上部割れ目帯は、健岩部より1オーダー高い値を示している。断層部に関しては、低透水部を含む断層主部が健岩部と同程度の透水係数を示しており、断層周辺割れ目はこれより1オーダー弱、大きな透水係数を示している。

下段に示している軟岩の透水係数は、幌延の堆積岩である勇知層、稚内層が 10^{-9} m/s、声間層が 10^{-8} m/sの透水係数を示している。一方、瑞浪堆積岩である明世累層、土岐挟炭累層は 10^{-7} m/sの透水係数となっている。また、大曲断層を含む断層を含む透水係数は 10^{-7} m/sであった。

b. 断層影響範囲における透水性

a. に示したように、断層主部は粘土化等により低透水であり、断層周辺割れ目帯は主部よりも中央値で1オーダーほど高い値を示すことがわかった。また、得られた結果から、断層破碎帯の透水性は硬岩、軟岩に係わらず同程度のオーダーであることがわかった。ただし、地表付近の断層の透水性は、地下深部よりも2オーダー以上高い値となっている。

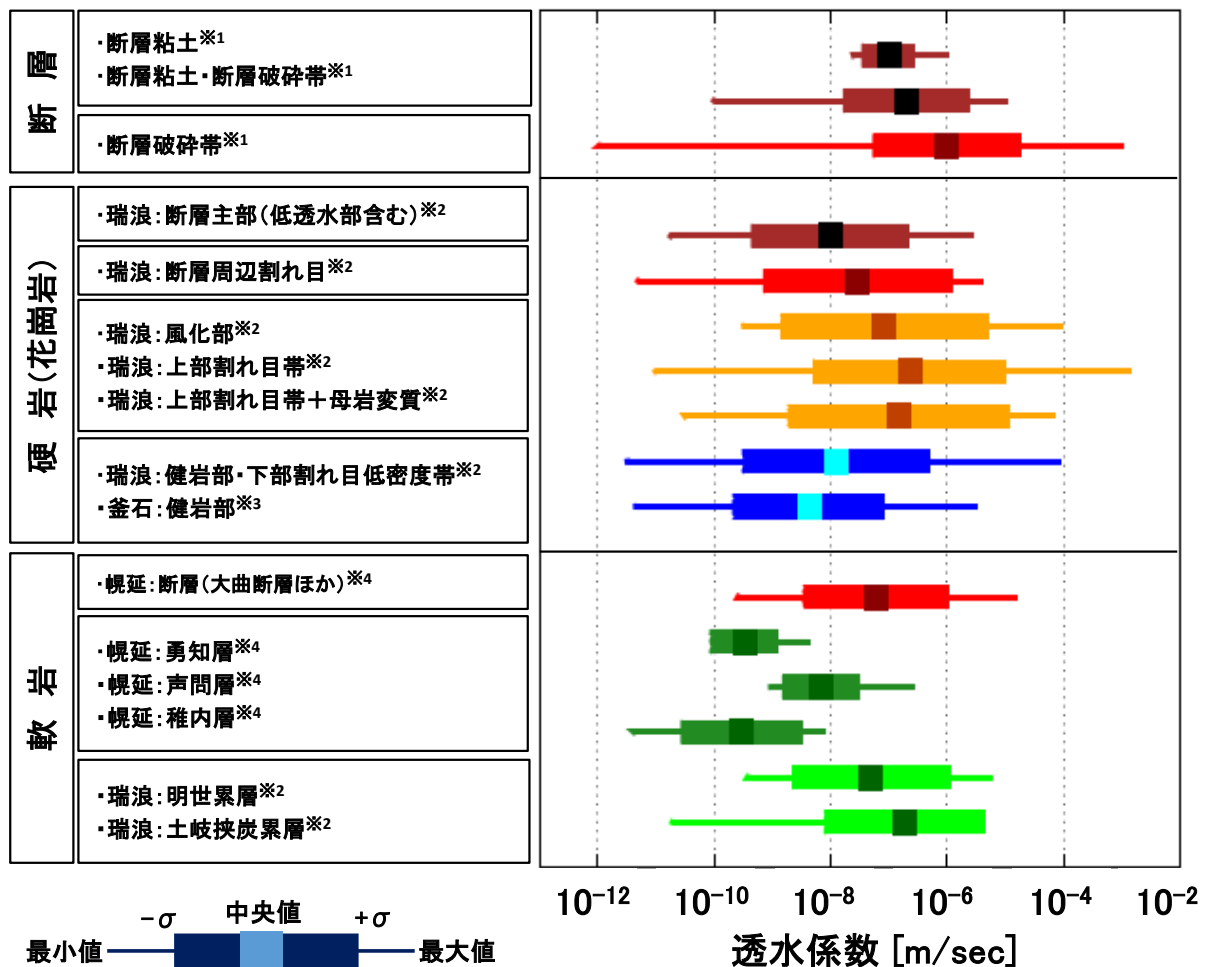
c. 断層活動直後の透水性に関する調査結果

活動直後の断層の透水性に関する文献は全体に事例が少ないが、1995年兵庫県南部地震において、淡路島北西部に出現した地表地震断層である野島地震断層の調査事例が充実している。野島断層の場合は、地下水位の変動等の観測結果の数値解析による再現から、断層破碎帯の透水係数が活動直後 10^{-6} m/sになっていた可能性があるという報告がある。また、同断層の透水性が時間とともに低下する観測例の報告などがあり、これを「断層の回復」と表現しており、断層活動に伴って生じた高透水性が長期間にわたって継続しないことがわかった（Kitagawa, 2007）。

d. 断層の透水性に関連した想定事象に関する考察

断層活動によって人工バリアが損傷し、核種が地下水に溶出した状況を想定する。まず核種の移行経路として、断層周辺の割れ目（断層破碎帯）を通過して地表に至るケースが考えられる。断層周辺割れ目が高透水性を永久的に維持するのであれば、このケースの影響は大きいと判断される。一方、c. に示したように、断層の透水性が時間の経過とともに回復（低下）すると考えた場合を考察する。①複数の廃棄体から地下水に溶出した核種が、主要な透水経路となった断層破碎帯に集中、②断層の透水性回復により核種の移行が停滞・濃集、③断層の再動し、④再動により高透水化した断層破碎帯沿いに核種の濃集部が移動、⑤最終的に核種が濃集した地下水、また

は断層破碎帯が地表に至るプロセスが考えられる。



※1(古屋ほか, 1999) ※2(竹内ほか, 2005a; 竹内ほか, 2005b; 大丸ほか, 2012; 尾上ほか, 2016)
 ※3(新見ほか, 1994) ※4(操上ほか, 2007)

図4.3.2-4 地層処分研究における透水係数調査結果

4) まとめ

サイト選定段階で回避する天然事象として挙げられている断層に対して、回避条件を満足させてもなお残る不確実性への対応を目的として、断層の活動を起因として過酷事象に至るシナリオ探索、及び影響評価を実施するにあたり必要となる断層の考え方について検討を行った。その結果、検討を行う断層の規模として、既往の内陸型地震で最大であった濃尾地震の規模であるマグニチュード8.0と想定し、マグニチュードと断層長さの関係(松田, 1975)より、断層長さ $L=80\text{km}$ 、また、断層長さと同断層破碎帯幅・プロセスゾーン幅の関係(金折, 2001)より、断層破碎帯の片側幅は540m、プロセスゾーンの片側幅は1300mとなった。この規模の断層が、低角度で処分場を直撃した場合、処分場の大部分が断層影響範囲に入ると想定され、単位変位量(1回の活動における変位量)から推定されるせん断変位は9.2mであり、人工バリア及び処分坑道断面規模を上回る。

断層の透水性は、硬岩の場合、健岩部より1オーダー程度高い透水係数となり、軟岩では健岩部より2オーダー高い透水係数を示すことが調査結果よりわかった。また、活動直後に高透水となった断層が、時間の経過とともに透水性が低下する現象（断層の透水性回復）が、1995年兵庫県南部地震で出現した野島地表断層の調査結果で報告されている。これより、断層活動に伴って生じた高透水性が長期間にわたって継続しない可能性もあることがわかった。

(2)断層のずれによる人工バリアのせん断変形の影響

1)はじめに

①背景と目的

断層のずれによる人工バリアへの影響に関する検討は、4.3.2(1)起因事象としての断層の特性で示したように、地層処分システムへ著しい影響を与えるような地震・断層活動はサイト選定によって適切に回避することとしており、この前提のもとで、地層処分システムに影響を与える可能性のある断層として、変位量、平均変位速度が小さいC級断層（松田，1975）を想定し、この断層が人工バリアを横切った場合の影響を、模型実験による現象の理解と実験の再現解析をとおして、解析精度向上の研究、及び実寸法モデルへの解析の展開等が行われている（平井ほか，2003；齋藤ほか，2008）。平井ほか（2003）、齋藤ほか（2008）の研究において、岩盤とオーバーパックが接触することのないせん断変位量であれば、緩衝材に期待される力学的緩衝機能によりオーバーパックが損傷しないことが確認されている。一方、本検討は、既往の地震・断層活動を回避する条件を満足してもなお残る不確実性への対応として、国内最大の内陸地殻内地震であった濃尾地震の規模（マグニチュード8.0）を踏まえた断層が地層処分システムを直撃した場合の、大きな断層のずれに対する緩衝材の機能の確認、岩盤とオーバーパックの衝突により、人工バリアや周辺岩盤が受ける力学的影響を設計用実寸法スケールの数値解析により評価し、断層のずれにより岩盤と廃棄体がせん断衝突変形した場合のオーバーパックの破損の有無及びガラス固化体と母岩の接触の有無の判断に資する情報を提供して、性能評価のシナリオ構築に反映することを目的とする。

②実施内容

平成28年度は、模擬岩盤と模擬オーバーパックが衝突する断層模擬せん断衝突模型実験（以降、せん断衝突実験）を行い、その再現解析を実施した。数値解析モデルの妥当性を確認するために、実験結果と解析結果の比較を通じて再現性について確認し、設計用実寸法スケールの解析に向けた留意点等を把握した。そのうえで、設計実寸法スケールの人工バリアの3次元モデルによる非線形大変形せん断衝突解析を実施し、この解析結果によりオーバーパックの破損の有無等を判断し、性能評価のシナリオ構築のインプットとして反映した。

2)断層模擬せん断衝突模型実験

①これまでの経緯

平成25年度は、後述する断層模擬試験設備の载荷装置の最大せん断変位量、設備を損傷させない条件などを踏まえ、同設備を使用してオーバーパックと岩盤の衝突を模擬する、模擬岩盤、緩衝材、模擬オーバーパックより構成される試験体を設計（日本原子力研究開発機構，2014）し

た。その縮尺は第2次取りまとめ（核燃料サイクル開発機構，1999）で設定した人工バリアの1/40となった。また、実験計画の策定、及び緩衝材の飽和・膨潤、せん断時の緩衝材挙動を確認するため土圧計の配置等の整備を行った。

平成26年度は、平成25年度に策定した実験計画をもとに、表4.3.2-2に示すせん断衝突実験ケースを設定し、最終的に模擬岩盤と模擬オーバーパックが衝突するせん断衝突実験を計画した。せん断変位量は設備への影響を考慮し、20mm、25mm、26mm、30mmと段階的に実施していくこととした。Case1の実験を実施し、緩衝材の膨潤過程及びせん断過程における土圧の変化、模擬オーバーパックの回転を確認し、既往の試験結果（平井ほか，2003；齋藤ほか，2008）と同様の傾向が得られることがわかった。

平成27度は、模擬岩盤と模擬オーバーパックの衝突を見据え、表4.3.2-2のせん断変位20mmのCase2、せん断変位25mmのCase3、Case4と段階的にせん断変位を大きくして実験を実施した。また、せん断変位量が増加すると、せん断部が不安定になることが予想され、試験体をせん断容器から取り出す際にせん断部分を固定する方法を検討し、「試料ホルダー」及び「試料押し治具」を製作した。実際にCase4の実験時に使用し、せん断部分を極力乱さずに移動することが可能となり、X線CT測定等が容易になった。

平成28度は、表4.3.2-2のせん断変位26mmのCase5、せん断変位30mmのCase6の模擬岩盤と模擬オーバーパックのせん断衝突実験を実施した。

②実験の仕様

a. 断層模擬試験設備の概要

せん断衝突実験は、処分坑道横置き方式で人工バリアの中央に鉛直方向の断層ずれが発生した場合を想定したせん断試験が実施可能な断層模擬試験設備（BORE-SHEAR）を用いた（平井ほか，2003；齋藤ほか，2008）。試験設備の概略図及び試験設備の外観を図4.3.2-5に示す。この試験設備は、試験容器中央で分割された鋼製容器（以下、せん断容器）、せん断载荷装置、空気・水系制御装置、油圧発生装置、自動計測・制御システムで構成される。

せん断衝突試験は、せん断容器に後述の試験体を設置し、せん断载荷装置により可動側のせん断容器を一定速度で移動させることにより行う。

b. 試験体の仕様

断層模擬試験設備の载荷装置の最大せん断変位量、設備を損傷させない条件などを踏まえ、試験体の設計、作成を行った。試験体は、軟岩相当の弾性係数をもつ樹脂製の模擬岩盤と緩衝材、及びアルミ製の模擬オーバーパックより構成される。模擬岩盤には、緩衝材の膨潤圧、及びせん断衝突実験時の土圧変化を計測するための土圧センサーを設置した。試験体の概略を図4.3.2-6、土圧センサーを設置した模擬岩盤を図4.3.2-7に、圧縮成型した緩衝材、及びアルミ製の模擬オーバーパックを図4.3.2-8に示す。試験体はせん断容器に設置され、図4.3.2-9に示すように、せん断時にはせん断変形する。

(a) 模擬岩盤

模擬岩盤は、直径150mm、長さ175mmで緩衝材を入れるため、中心部に直径50mm程度の穴を設けたドーナツ型で樹脂製（ポリアセタール：POM）のものを土圧センサーの設置してある可動側模

擬岩盤と土圧センサーを設置していない固定側模擬岩盤の2つを用いた。

(b) 模擬オーバーパック

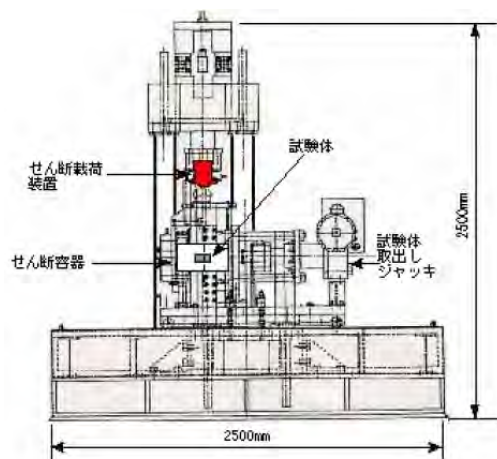
模擬オーバーパックは、直径18mm、長さ39mmのアルミニウム製とした。模擬岩盤と模擬オーバーパックの接触を想定したCase5では模擬岩盤の損傷を軽減するために中空型のアルミ製模擬オーバーパックを使用し、その他のケースでは充実型のアルミ製オーバーパックを使用した。

(c) 緩衝材

図4.3.2-6に示すように、せん断部緩衝材を1点、可動側緩衝材、固定側緩衝材をそれぞれ3点ずつ、計7点の圧縮成型した緩衝材を模擬岩盤内に設置する。図4.3.2-8に示すように、模擬オーバーパックを設置するせん断部緩衝材のみ、直径18mm、長さ39mm程度の穴の開いたドーナツ型のものを用い、可動側、固定側緩衝材には、直径50mm、長さ50mm、55mmの円柱型を用いた。緩衝材の仕様は、表4.3.2-2に示すとおりである。

(d) 試料ホルダー及び試料押し治具

せん断衝突実験終了後、せん断変位を受けた試験体は、図4.3.2-10に示すように、せん断部分が不安定であり、これを解消するために、図4.3.2-11、図4.3.2-12に示す試料ホルダーと試料押し治具を使用する。



a) 試験設備の概略図



b) 試験設備外観

図 4.3.2-5 断層模擬試験設備 (BORE-SHEAR)

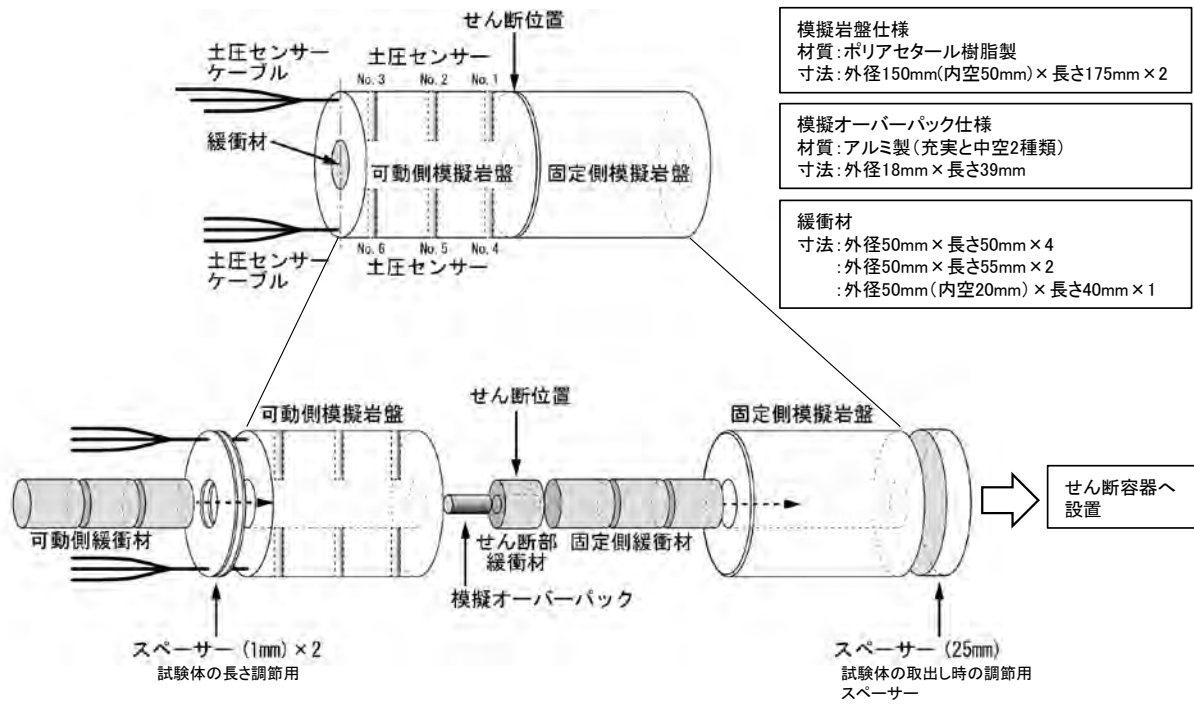
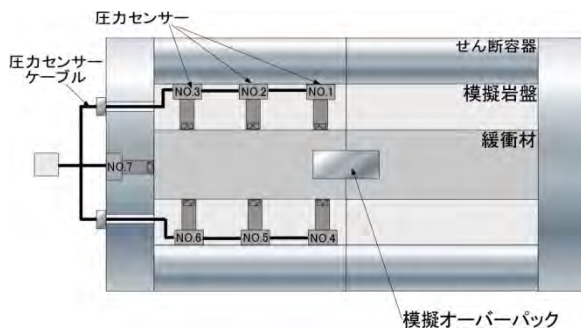


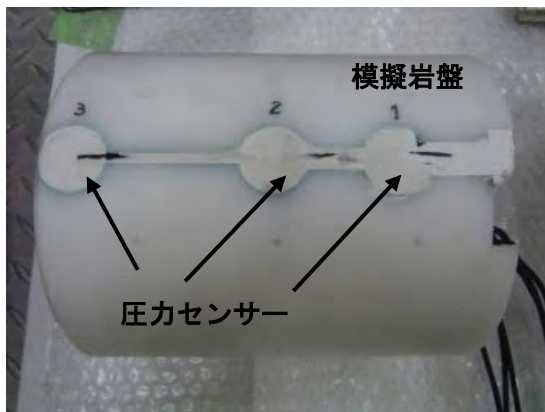
図4. 3. 2-6 試験体の概要図



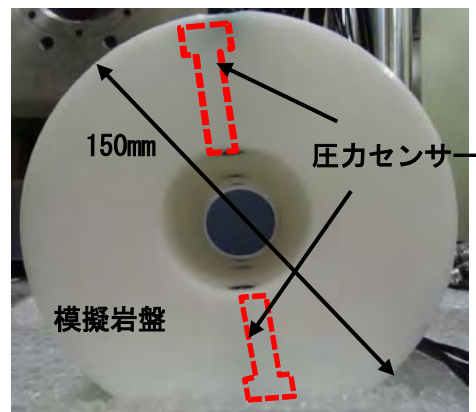
a) 模擬岩盤中における圧力センサー設置箇所



b) 圧力センサー



c) 模擬岩盤の側面



d) 模擬岩盤の横断面

図4. 3. 2-7 土圧センサーを設置した模擬岩盤

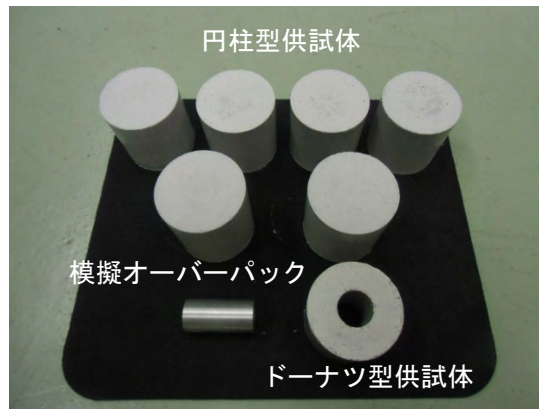


図4.3.2-8 圧縮成型した緩衝材及びアルミニウム製の模擬オーバーパック

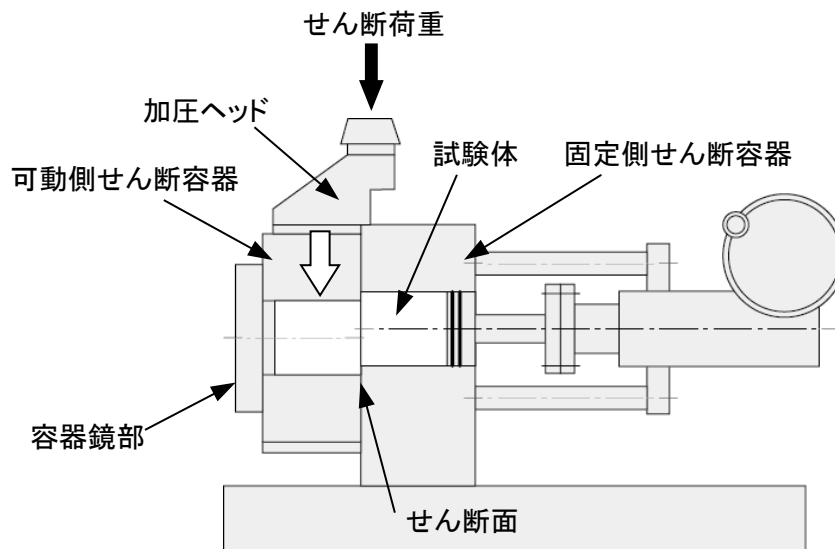


図4.3.2-9 せん断時のせん断容器及び試験体

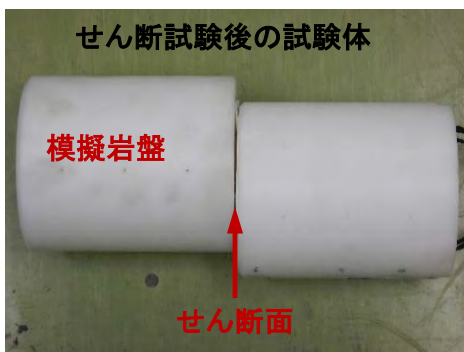


図4.3.2-10 せん断後の試験体の状況

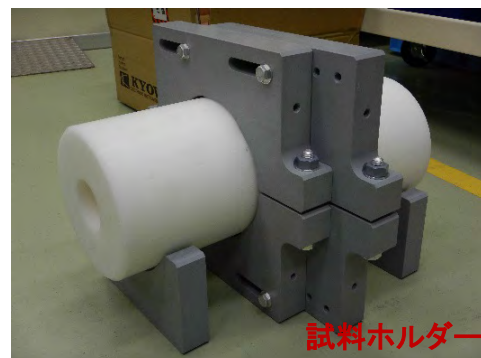


図4.3.2-11 試験体ホルダー

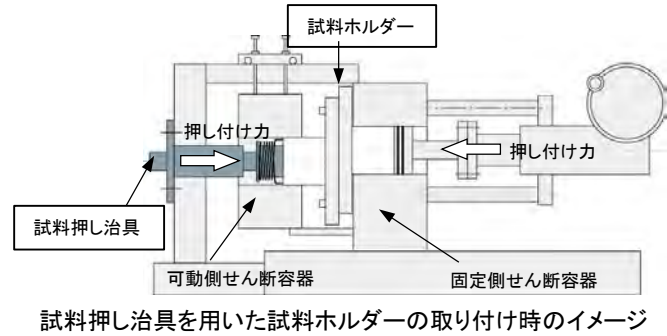
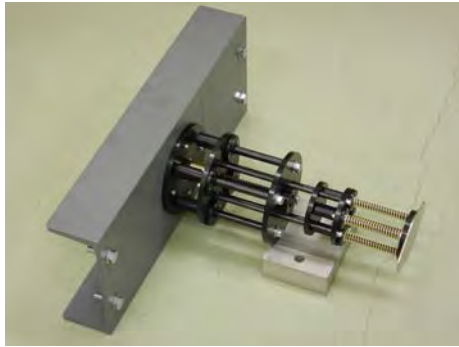


図4.3.2-12 試料押し治具と使用時のイメージ

c. 実験ケース

せん断模型実験の実験ケースを表4.3.2-2に示す。また、表4.3.2-3に緩衝材の仕様を示す。

表4.3.2-2 せん断模型実験ケース一覧

試験ケース		平成26年度	平成27年度				平成28年度	
		Case1	Case2	Case3	Case4	Case5	Case6	
試験の想定		非衝突	非衝突	非衝突	非衝突	接触	衝突	
試験条件	せん断変位 (mm)	20	20	25	25	26	30	
	せん断速度 ※1 (mm/sec)	100	100	100	100	100	100	
人工バリアの仕様	緩衝材 ※2	タイプ1	タイプ2	タイプ2	タイプ1	タイプ1	タイプ1	
	模擬岩盤	樹脂製 (POM) φ150mm×350mm						
	模擬オーバーパック	φ20mm×40mmアルミニウム製充実型 (Case5のみアルミニウム製中空型)						

※1:断層模擬試験設備の限界せん断速度は100mm/sである。

※2:緩衝材のタイプは表4.3.2-3参照。

表4.3.2-3 緩衝材の仕様

緩衝材の仕様	タイプ1	タイプ2
ベントナイト系材料	Na型クニゲル®V1	
ケイ砂混合率	30wt%	0%
乾燥密度	1.60Mg/m ³	1.37Mg/m ³
有効粘土密度	1.37Mg/m ³	1.37Mg/m ³
含水比	約17%	約26%
試験溶液	蒸留水	
注水圧	0.2MPa	
寸法	φ50×350mm	

次項のせん断衝突実験のフローに示すように、実験後にX線CT計測を行う。タイプ1のようにケイ砂を含む場合には、X線CT値が乱れることがわかっているため、タイプ2は、ケイ砂を含まない仕様とし、せん断後の試験体の内部状況を確認するために設定したものである。

d. せん断衝突実験のフロー

せん断衝突実験は、図4.3.2-13に示す8つの工程で実施する。4番目の工程において、緩衝材の飽和の確認は、有効粘土密度と膨潤圧の関係から、所要の膨潤圧が発生した時点で緩衝材が飽和したものと判断した。

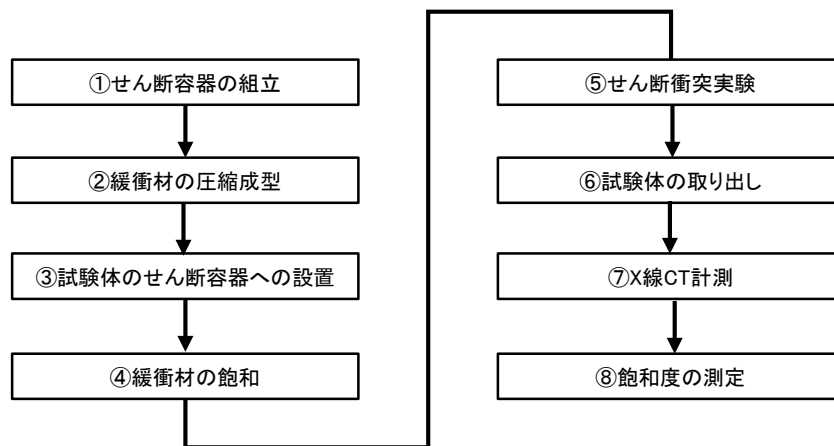


図4.3.2-13 せん断衝突実験のフロー図

③実験結果

a. 緩衝材の膨潤圧計測結果

試験設備のせん断容器に試験体を設置し、模擬岩盤に設けた注水孔からメンブレンフィルターを介して、0.2MPaの水圧で試験溶液（蒸留水）を注水し緩衝材を飽和させた。飽和過程では、試験溶液注水開始後の緩衝材中の膨潤圧を模擬岩盤に設置した土圧センサーで測定した。せん断容器に設置した試験体は、せん断試験が終了するまで内部の状況を確認できないため、図4.3.2-14に示す緩衝材基本特性データベース（日本原子力研究開発機構，2016）に登録されている既往の膨潤圧と当試験の膨潤圧を比較し、安定した膨潤圧がこれと同程度であれば飽和状態にあると判断した。また、図4.3.2-15は、緩衝材飽和過程における膨潤圧の経時変化例である。

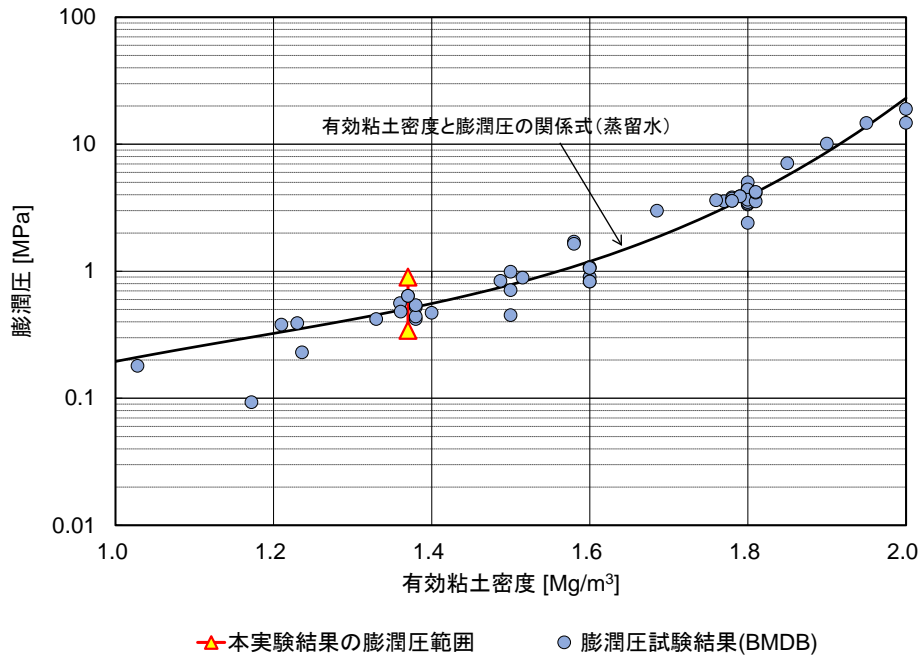


図4.3.2-14 飽和膨潤過程終了後の膨潤圧と膨潤圧試験結果との比較

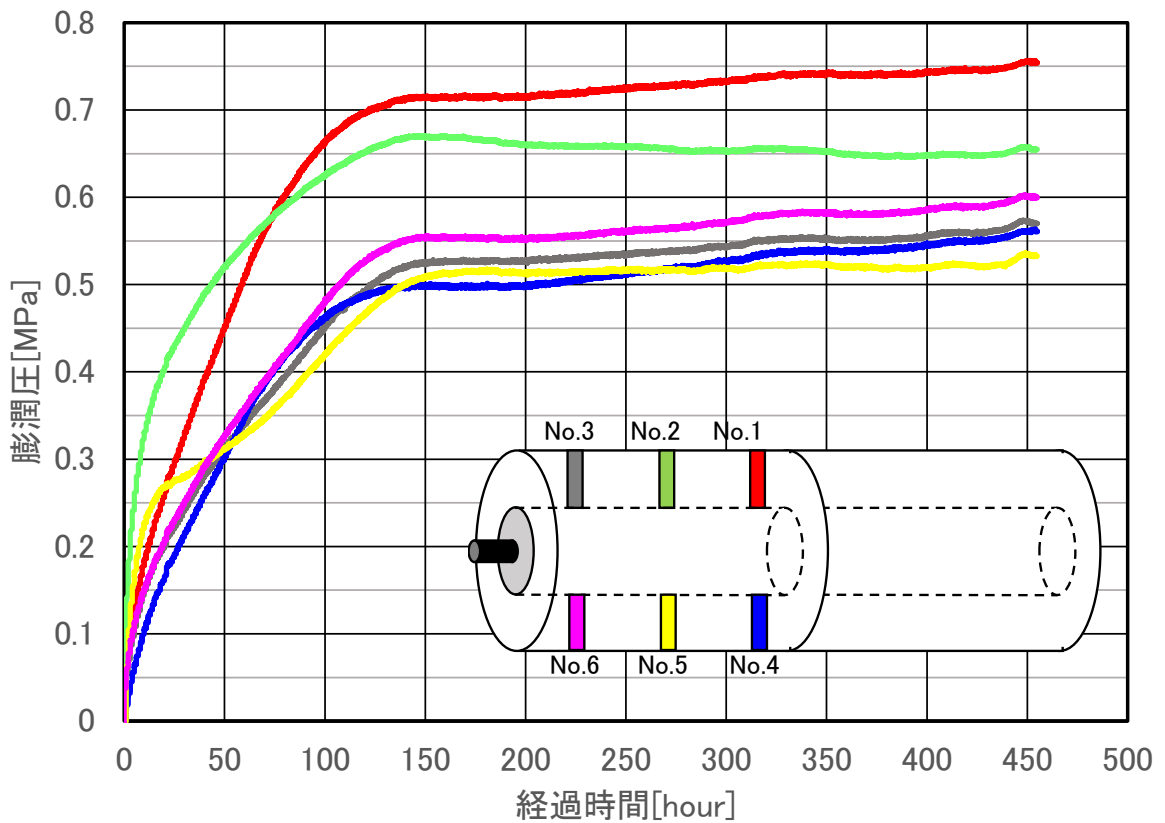


図4.3.2-15 緩衝材飽和過程の膨潤圧の経時変化例 (Case6)

b. せん断衝突実験結果

平成28年度は、表4.3.2-2に示すCase5、Case6の実験を実施した。このうちCase5は、Case6の模擬岩盤と模擬オーバーパックのせん断衝突に先立ち、両者が接触する変位量を確認するために実施した実験ケースである。Case6はCase5の結果を踏まえて、せん断変位量を30mmに設定し、せん断衝突実験を実施した。表4.3.2-4にCase6のせん断衝突実験結果の概要を示す。表4.3.2-4中において模擬オーバーパックの挙動を表す実験結果として示している離間や回転角は、図4.3.2-16に示すように定義している。同図は、せん断過程における試験体挙動の概念図を示しており、試験体中心のせん断ずれが生じる面を「せん断面」、せん断に伴い模擬オーバーパックが模擬岩盤に接近する側を「圧縮領域」、模擬オーバーパックが離れる側を「引張領域」とそれぞれ定義した。図4.3.2-17は取り出した試験体（せん断面より片側）を撮影した画像、及び図4.3.2-18はX線画像により、試験体内部の緩衝材、模擬オーバーパックの状態を示したものである。これらの図より、模擬岩盤と模擬オーバーパックが衝突している様子が確認できる。また、模擬オーバーパックの回転により、模擬オーバーパック端面に接触していた緩衝材部分に空隙が生じていることが確認できる。

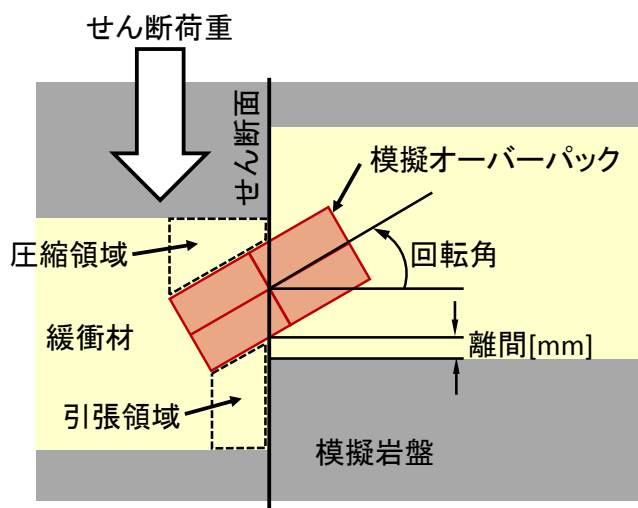


図4.3.2-16 せん断過程における試験体挙動の概念図

表4. 3. 2-4 せん断衝突実験結果概要

ケース名		Case6		
緩衝材仕様		タイプ 1		
過程	飽和膨潤	膨潤期間 (h)	455	
		膨潤圧 ^{※1} (MPa)	0.53 ~ 0.75	
せん断試験	試験条件	せん断速度 (mm/s)	100	
		せん断変位量 (mm)	30	
	試験結果	実せん断変位量 (mm)	28.9	
		模擬オーバーパックの挙動 ^{※2}	回転角 (°)	42.4 (50.3)
			離間 (mm)	0 (4.1)
		試験後の緩衝材の状態	飽和度 (%)	100
乾燥密度 (Mg/m ³)	1.6			

※1：膨潤開始から350時間経過時の膨潤圧 (No. 1～No. 7の最小値と最大値)。

※2：回転角と離間は図4. 3. 2-16参照。下段の数値は回転角と離間の想定値を示している。



図4. 3. 2-17 取り出した試験体の状況 (Case6)

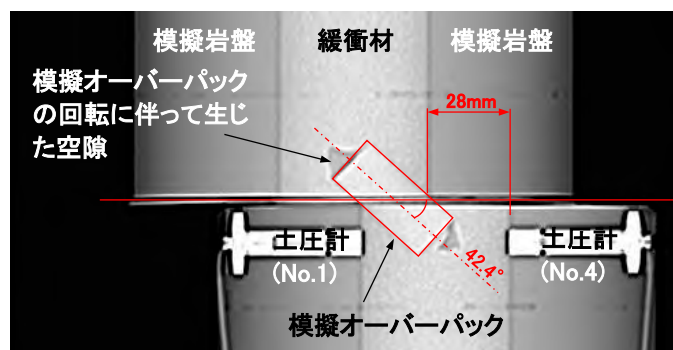


図4. 3. 2-18 X線CT画像を用いた挙動確認例 (Case6)

④まとめ

平成25年度から平成27年度にかけて、試験体の設計、せん断による模擬オーバーパックの挙動確認等を行ってきた。平成28年度において、模擬岩盤と模擬オーバーパックが衝突する断層模擬せん断衝突模型実験を実施し、模擬岩盤と模擬オーバーパックの衝突を、X線CT計測による画像、及び実験後の試験体の状況から確認した。

3)断層のずれによる人工バリアの非線形大変形せん断衝突解析

①はじめに

4.3.1項で述べたように、巨大地震・断層活動を事例としたシナリオとして、断層のずれにより岩盤と廃棄体がせん断衝突変形した場合のオーバーパックの破損の有無及びガラス固化体と母岩の接触の有無を評価するために、断層模擬実験の非線形大変形せん断衝突解析及び設計用実寸法の人工バリアの非線形大変形せん断衝突解析を実施した。

平成25年度は、断層模擬実験設備（BORE-SHEAR）を用いて過去に実施された人工バリアのせん断影響を模擬した非衝突模型実験の再現解析を行い、せん断模型実験結果と解析結果における模擬オーバーパックのせん断変形挙動や緩衝材の土圧変化時刻歴がほぼ同等になり、本解析手法の妥当性を概ね確認した（日本原子力研究開発機構，2015）。平成25年度の課題として、陰解法を用いた有限要素法による解析では、せん断変位の増加に伴い緩衝材と模擬オーバーパック間の接触境界における緩衝材のメッシュの変形量が増大することにより、計算が途中で発散し、岩盤と模擬オーバーパックが衝突するまでの計算ができないことが挙げられた。

平成26年度は、断層直撃によって岩盤と模擬オーバーパックが衝突するまでの計算ができるように解析手法の見直しを行い、陽解法を用いた2次元モデルによる非線形大変形せん断衝突解析により、断層直撃によって岩盤と模擬オーバーパックが衝突する場合の応力状態を把握した。

平成27年度は、模擬オーバーパック等のモデル化の方法を2次元モデルではなく3次元モデルに変更して、陽解法を用いた3次元モデルによる非線形大変形せん断衝突解析を実施した。平成27年度に設定した条件下では、岩盤と模擬オーバーパックが衝突することにより模擬オーバーパックの一部は損傷する可能性があることが示唆された。

平成28年度は、これまでの成果をベースにして、模擬岩盤と模擬オーバーパックのせん断衝突模型実験の再現解析を実施する。これにより、実験結果と解析結果の比較を通じて再現性について確認し、設計用実寸法の人工バリアの解析に向けた留意点等を把握する。そのうえで、設計用実寸法の人工バリアの3次元モデルによる非線形大変形せん断衝突解析を実施する。この解析結果によりオーバーパックの破損の有無等を判断し、性能評価のシナリオ構築のインプットとして反映する。

②解析条件

a. 解析モデル

(a)断層模擬実験の解析モデル

平成28年度の断層模擬実験の解析モデルとして、模擬岩盤：外径150mm×内径50mm×全長350mm、緩衝材：直径50mm×全長350mm、充実型の模擬オーバーパック：直径20mm×40mmをモデル化した。解析モデルは、模擬岩盤、緩衝材、模擬オーバーパックの対称性を考慮し、1/2対称モ

デルとした。図4.3.2-19に断層模擬実験の解析モデルを示す。解析モデルの規模は、総節点数：40188、総要素数：34449である。

(b)設計用実寸法人工バリアの解析モデル

設計用硬岩系岩盤の処分深度は 1000m である。設計用硬岩系岩盤・横置き方式の処分パネル詳細図（核燃料サイクル開発機構，1999）より、表 4.3.2-5 に設計用実寸法人工バリアの解析モデルの寸法を示す。解析モデルは、表 4.3.2-5 のモデル寸法により、岩盤、緩衝材、廃棄体（中空円筒容器のオーバーパック、ガラス固化体約 500kg（核燃料サイクル開発機構，1999）の重量のみを考慮）をモデル化した。ガラス固化体は構造部材ではないことと、断層のずれにより岩盤と中空円筒容器のオーバーパックがせん断衝突した際、ガラス固化体を無しとした場合、オーバーパック内が中空のため内側に変形しやすくなり、オーバーパックの発生応力値も増えて厳しい評価になるため、ガラス固化体はモデル化しないこととした。ただし、ガラス固化体約 500kg の重量のみをオーバーパックに付加して考慮した。解析モデルは、設計用硬岩系岩盤・横置き方式の坑道断面及び坑道奥行き方向の対称性を考慮し、1/2 対称モデルとした。図 4.3.2-20 に設計用実寸法人工バリアの解析モデル（全体図、緩衝材・廃棄体付近の拡大図）を示す。解析モデルの規模は、総節点数:319670、総要素数:292592 である。

なお、本解析の単位系は、N、mm、MPa、kg、sec である。

表 4.3.2-5 設計用実寸法人工バリアの解析モデルの寸法

項目	値	備考
廃棄体オーバーパック	外径 820mm×長さ 1730mm、 内径 440mm×内側の長さ 1350mm、 胴部・蓋部・底板の厚さ 190mm	(核燃料サイクル開発機構，1999)
緩衝材	直径 2220mm	
廃棄体と岩盤の間隔	700mm	
処分坑道長手方向の廃棄体と 廃棄体の端面間の距離	1400mm	
廃棄体の間隔	3130mm	
隣接する処分坑道の間隔	13320mm	
鉛直方向の岩盤の範囲	15540mm	処分坑道径の 7 倍とした

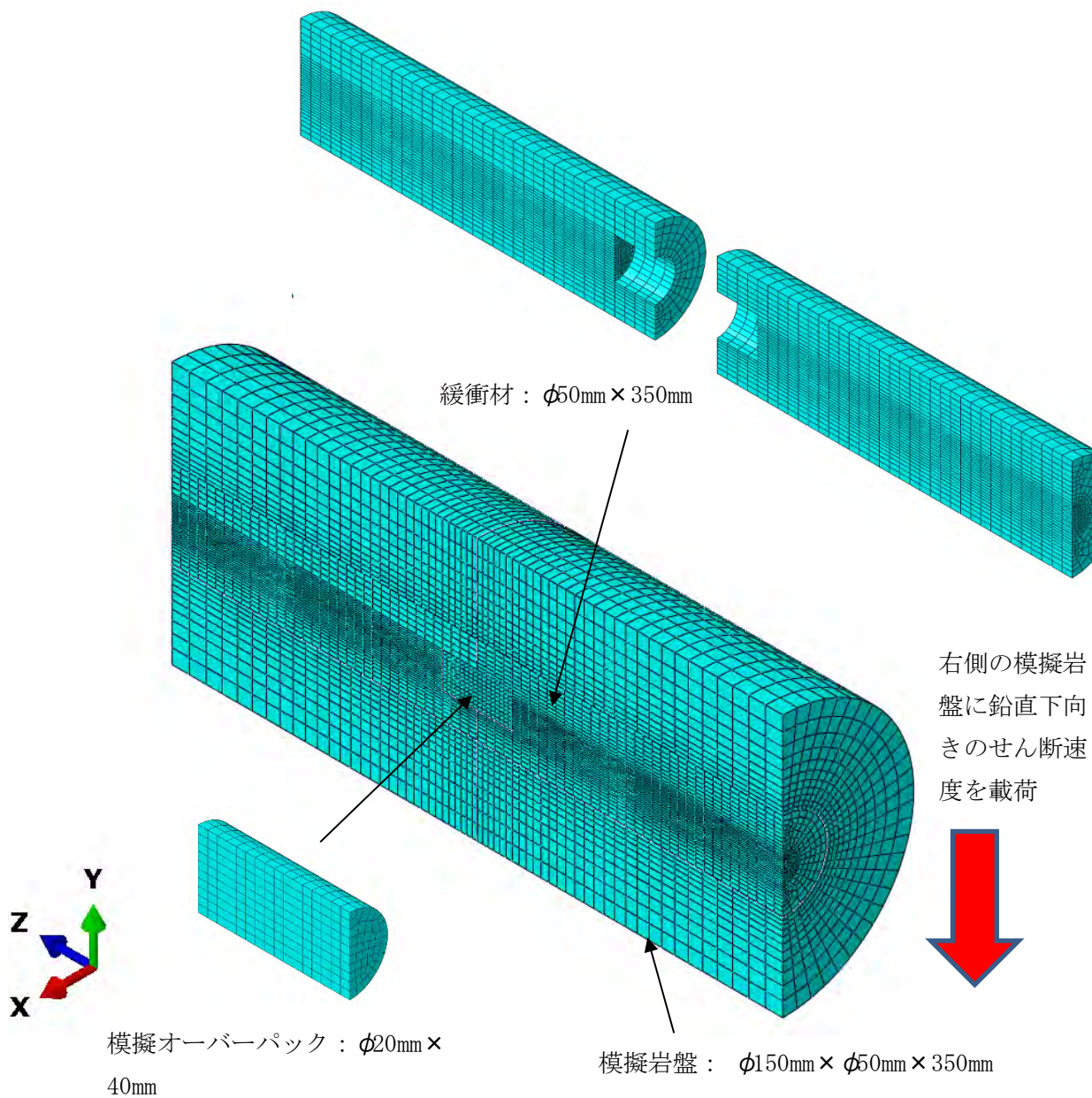


図4.3.2-19 断層模擬実験の解析モデル

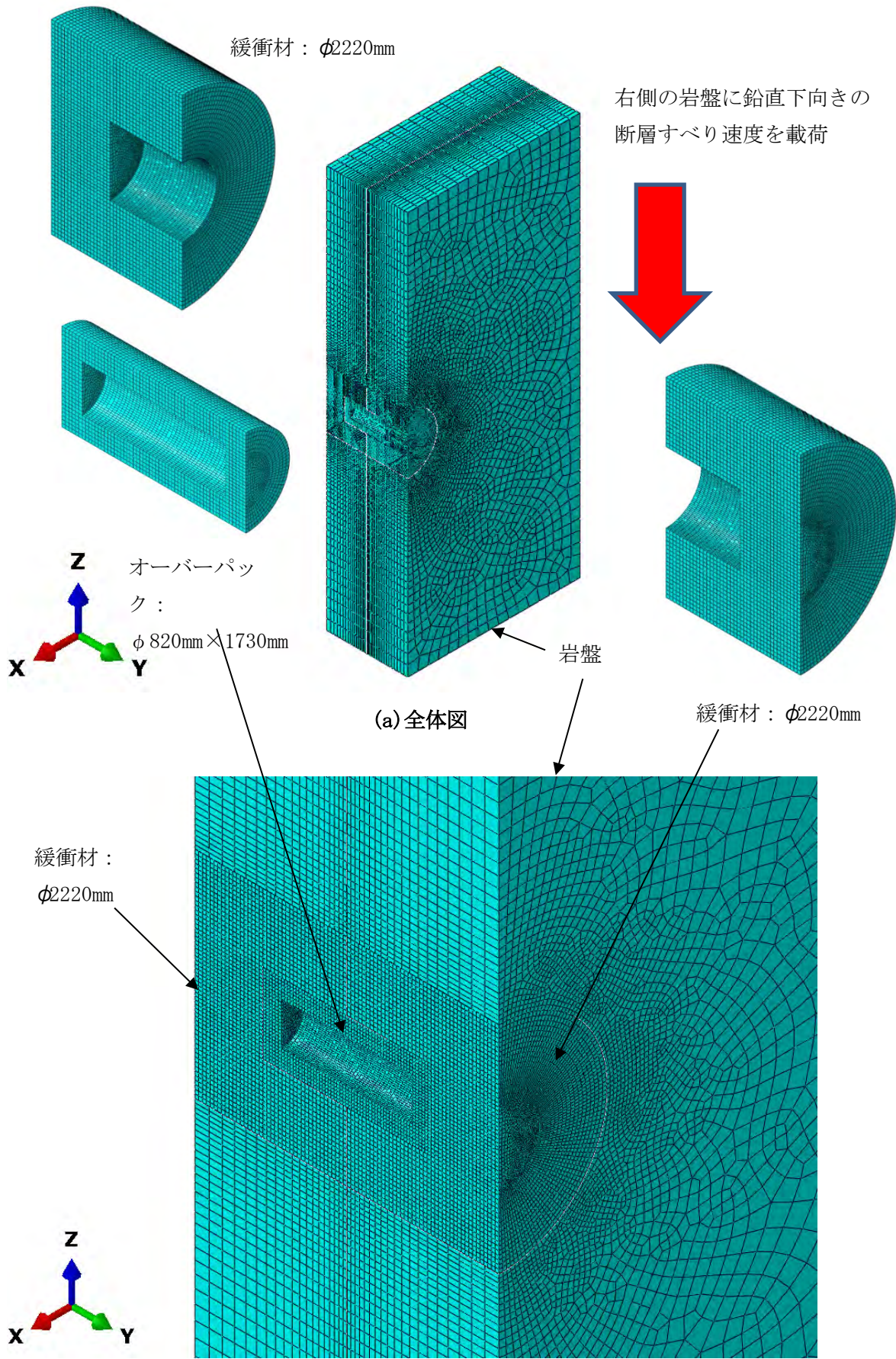


図4. 3. 2-20 設計用実寸法人工バリアの解析モデル

b. 物性値

(a) 断層模擬実験の解析の物性値

断層模擬実験の模擬岩盤の材質は、POM（ポリアセタール）樹脂であり、断層模擬実験解析モデルの模擬岩盤の物性値を表4.3.2-6に示す。模擬岩盤の構成則モデルは、降伏応力及び引張強さを用いた多直線近似の非線形モデルを適用した。

断層模擬実験の模擬オーバーパックの材質は、アルミニウム合金棒A5056BD-H34であり、断層模擬実験解析モデルの模擬オーバーパックの物性値を表4.3.2-7に示す。模擬オーバーパックの構成則モデルは、降伏応力及び引張強さを用いた多直線近似の非線形モデルを適用した。

本解析に使用する緩衝材の物性値は、室内試験等で得られた第2次取りまとめ（核燃料サイクル開発機構, 1999）に示すものを使用した。緩衝材の材質は、ベントナイト70wt%/ケイ砂30wt%、乾燥密度 $1.60\text{Mg}/\text{m}^3$ とした。緩衝材の物性値を表4.3.2-8に示す。緩衝材の構成則モデルは、修正Cam-Clayモデルを適用した。ただし、下記に示す解析コードのAbaqusを用いた陽解法による解析では、緩衝材の変形の弾性部分を線形弾性材料モデルで定義する必要があるため、本解析では、表4.3.2-8に示す緩衝材のヤング係数を使用した。

(b) 設計用実寸法人工バリアの解析の物性値

本解析に使用する物性値は、各種室内試験等で得られた第2次取りまとめ（核燃料サイクル開発機構, 1999）に示すものを使用した。硬岩のヤング係数は、軟岩に比べて約10倍大きく、岩盤とオーバーパックが衝突した場合、軟岩に比べて硬岩の方がオーバーパックに生じる応力及びひずみが大きくなり、より危険側になるため、本解析では第2次取りまとめに示す硬岩系の岩盤とした。岩盤の物性値を表4.3.2-9に示す。岩盤の構成則モデルは、モール・クーロンによる破壊を考慮したモデルを適用した。

緩衝材の材質は、ベントナイト70wt%/ケイ砂30wt%、乾燥密度 $1.60\text{Mg}/\text{m}^3$ とした。緩衝材の物性値を表4.3.2-8に示す。緩衝材の構成則モデルは、修正Cam-Clayモデルを適用した。ただし、下記に示す解析コードのAbaqusを用いた陽解法による解析では、緩衝材の変形の弾性部分を線形弾性材料モデルで定義する必要があるため、本解析では、表4.3.2-8に示す緩衝材のヤング係数を使用した。

オーバーパックの材質は圧力容器用炭素鋼とし、廃棄体・オーバーパックの物性値を表4.3.2-10に示す。ただし、ガラス固化体は、約500kgの重量のみをオーバーパックに付加して考慮した。オーバーパックの構成則モデルは、降伏応力及び引張強さを用いた多直線近似の非線形モデルを適用した。

表4.3.2-6 断層模擬実験解析モデルの模擬岩盤の物性値

	項目	値	備考
POM (ポリ アセター ル) 樹脂	密度 ρ (Mg/m ³)	1.41	(ポリプラスチック, 2016)
	ヤング係数E (MPa)	2700	
	ポアソン比 ν (-)	0.35	(東レプラスチック精工, 2016)
	降伏応力 σ_y (MPa)	20	降伏応力は引張強さの1/3とした。
	引張強さ σ_t (MPa)	62	(ポリプラスチック, 2016)
	伸び 引張破壊ひずみ (-)	0.35	

表4.3.2-7 断層模擬試験解析モデルの模擬オーバーパックの物性値

	項目	値	備考
アルミニウム 合金棒 A5056BD-H34	密度 ρ (Mg/m ³)	2.64	(UACJ押出加工名古屋 名古屋製作所, 2015)
	ヤング係数E (MPa)	70600	
	ポアソン比 ν (-)	0.33	(日本アルミニウム協会, 2001)
	耐力 (降伏応力) σ_y (MPa)	226	
	引張強さ σ_t (MPa)	312	
	伸び (-)	0.26	

表 4.3.2-8 緩衝材の物性値 (核燃料サイクル開発機構, 1999)

	項目	記号	単位	値	備考
乾燥密度 1.6Mg/m ³ (ケイ砂 30%配 合)	乾燥密度	ρ_d	Mg/m ³	1.600	
	間隙比	e	-	0.656	$\rho_s=2.65\text{Mg/m}^3$
	圧縮指数 (対数体積塑性率)	λ	-	0.117	
	膨潤指数 (対数体積弾性率)	κ	-	0.070	
	ヤング係数	E	MPa	116.0	(高治, 谷口, 1999)
	ポアソン比	ν	-	0.42	Jakyの式より ($\phi=16.6^\circ$)
	限界状態応力比	M	-	0.630	
	先行圧密降伏応力	P_0^*	MPa	0.900	
	膨潤圧 (初期応力)	P_{sw}	MPa	0.5	

表 4.3.2-9 岩盤（硬岩系）の物性値（核燃料サイクル開発機構，1999）

対象岩盤		硬岩系岩盤
物理特性	飽和密度 ρ [Mg/m ³]	2.67
	真密度 ρ_R [Mg/m ³]	2.7
	有効間隙率 n_e [%]	2
力学特性	一軸圧縮強度 q_u [MPa]	115
	弾性係数 E [MPa]	37000
	ポアソン比 ν [—]	0.25
	粘着力 c [MPa]	15
	内部摩擦角 ϕ [°]	45
	引張強度 σ_t [MPa]	8
	側圧係数 K_0 [—]	$164/h+0.74$ (h:深度[m])
	初期鉛直応力 σ_v [MPa]	$\rho h/100$ ($\doteq \rho gh/1000$)
	初期水平応力 σ_h [MPa]	$K_0 \times \sigma_v$

表4.3.2-10 廃棄体・オーバーパックの物性値（核燃料サイクル開発機構，1999）

項目	記号	単位	値	備考
密度	ρ	Mg/m ³	7.85	
弾性係数	E	MPa	200000	
ポアソン比	ν	—	0.30	
降伏応力	σ_y	MPa	205	SFVC1（圧力容器用炭素鋼）
引張強さ	σ_t	MPa	410	SFVC1（圧力容器用炭素鋼）
伸び	—	—	0.21	SFVC1（圧力容器用炭素鋼）
ガラス固化体の重量	—	kg	500	ガラス固化体は、約500kgの重量のみをオーバーパックに付加して考慮した。

c. 初期条件

(a) 断層模擬実験の解析の初期条件

緩衝材には膨潤圧0.5 (MPa)を初期応力として考慮した。模擬岩盤には注水圧0.2 (MPa)を初期応力として考慮した。

(b) 設計用実寸法人工バリアの解析の初期条件

緩衝材には膨潤圧0.5 (MPa)を初期応力として考慮した。岩盤には深度に応じた初期地圧応力（設計用硬岩系岩盤の処分深度1000m）を考慮した。

d. 境界条件

(a) 断層模擬実験の解析の境界条件

断層模擬実験の解析における境界条件は、図 4.3.2-19 の解析モデルの左右岩盤の側面を水平 Z 方向変位拘束（鉛直ローラー境界）、左側岩盤の外周部を水平 X 方向及び鉛直 Y 方向変位拘束、モデル中央面を対称境界とした。また、不連続の 2 つの物体が互いに接触した時に、接触面に対して垂直方向の力がそれらの物体間に作用する。物体間の接触相互作用（接触、はく離、滑り）を考慮して物体間の力を伝達させるために、各材料間には、自己接触を含む接触条件（左右の模擬岩盤間の接触、模擬岩盤と緩衝材間の接触、左右の緩衝材間の接触、緩衝材の自己接触、緩衝材と模擬オーバーパック間の接触、模擬岩盤と模擬オーバーパック間の接触）を考慮した。

(b) 設計用実寸法人工バリアの解析の境界条件

設計用実寸法人工バリアの解析の境界条件は、第2次取りまとめに示す設計用硬岩系岩盤の地質構造（単一の結晶質岩）による対称性を考慮して、図4.3.2-20の解析モデルの左右岩盤の側面を水平X方向及びY方向変位拘束（鉛直ローラー境界）、左側岩盤の上下面を鉛直Z方向変位拘束（水平ローラー境界）、モデル中央面を対称境界とした。また、不連続の2つの物体が互いに接触した時に、接触面に対して垂直方向の力がそれらの物体間に作用する。物体間の接触相互作用（接触、はく離、滑り）を考慮して物体間の力を伝達させるために、各材料間には、自己接触を含む接触条件（左右の岩盤間の接触、岩盤と緩衝材間の接触、左右の緩衝材間の接触、緩衝材の自己接触、緩衝材とオーバーパック間の接触、岩盤とオーバーパック間の接触）を考慮した。

e. 荷重条件

(a) 断層模擬実験の解析の荷重条件

断層模擬実験の解析に用いる荷重条件として、断層模擬実験と同様に断層模擬実験装置の限界のせん断速度 $V=100$ (mm/s)とし、図4.3.2-19に示すように、右側の模擬岩盤に鉛直下向きのせん断速度を載荷した。

(b) 設計用実寸法人工バリアの解析の荷重条件

断層のずれによるオーバーパックへの岩盤直撃は、動的事象であるため、本解析では、断層のずれによる強制変位を作用させるのではなく、断層すべり速度を荷重として作用させる。これは、自動車の衝突問題に例えると、20km/hよりも100km/hで衝突した場合の方が衝撃エネルギー及び損傷も大きくなり、衝突速度が重要になるためである。

1999年に発生したM7.6の台湾集集地震の断層すべり速度の最大値は、高精度の地震計記録及びGPS変動記録を用いた台湾チェルンプ断層の地震時の滑り挙動の詳細な解析により、4.5(m/s)としている（廣野ほか, 2013）。また、日本の最大の内陸地震は、1891年に発生したM8.0の濃尾地震であり、濃尾地震断層系は全長約80km、根尾谷断層で最大横ずれ8m、水鳥での隆起量は最大6mであったが、濃尾地震の断層すべり速度については不明である（内閣府中央防災会議, 2006a）。そこで、地震調査研究推進本部 地震調査委員会の「震源断層を特定した地震の強震動予測手法」を用いて、M8.0クラスの内陸地震の断層すべり速度を推定することとした。この強震動予測手法は、地震調査委員会において実施してきた強震動評価に関する検討結果から、強震動予測手法の構成要素となる震源特性、地下構造モデル、強震動計算、予測結果の検証の現状における手法や震源特性パラメータの設定にあたっての考え方について取りまとめたものである（地震調査研究推進本部 地震調査委員会, 2016）。以下に、設計用実寸法人工バリアの解析に用いるM8.0クラスの内陸地震の最大断層すべり速度の設定について示す。

内陸地震の最大すべり速度 V_m (m/s)は、次式で求まる（地震調査研究推進本部 地震調査委員会, 2016）。

$$V_m = \Delta \sigma_a \times (2f_c \times W_a \times V_r)^{1/2} / \mu$$

ここに、 $\Delta \sigma_a$ ：アスペリティの静的応力降下量 (MPa)

f_c ：ローパスフィルタのコーナー周波数(f_{max} と同等) (Hz)

W_a ：アスペリティの幅 (km)

V_r ：平均破壊伝播速度 (km/s)

μ ：剛性率（岩のせん断弾性定数） (N/m^2)

震源断層全体の静的応力降下量 $\Delta \sigma$ は、 $\Delta \sigma = 3.1$ (MPa) としている（地震調査研究推進本部 地震調査委員会, 2016）。

アスペリティ（震源断層の中で特に強い地震波を生成する領域であり、すべり量や応力降下量が多い領域）の静的応力降下量 $\Delta \sigma_a$ は、 $\Delta \sigma_a = (S/S_a) \times \Delta \sigma$ (MPa)であり、ここに、 S ：震源断層全体の面積 (km^2)、 S_a ：アスペリティの総面積 (km^2) である。 S と S_a の比率は、約22%としている（地震調査研究推進本部 地震調査委員会, 2016）。よって、アスペリティの静的応力降下量 $\Delta \sigma_a$ は、 $\Delta \sigma_a = (1/0.22) \times 3.1 \times 10^6 = 14.091 \times 10^6$ (N/m^2)となる。

ローパスフィルタのコーナー周波数 f_c は、 $f_c = f_{max} = 6$ (Hz)としている（地震調査研究推進本部 地震調査委員会, 2016）。

断層幅 W は、 $W = 15$ (km) = 15000 (m) であり（内閣府中央防災会議, 2006a）、アスペリティの幅 W_a は断層幅 W の50%程度としており（内閣府中央防災会議, 2006b）、 $W_a = 7.5$ (km) = 7500 (m) とする。

平均破壊伝播速度 V_r は、 $V_r = 2.7$ (km/s) = 2700 (m/s) としている（地震調査研究推進本部 地震調査委員会, 2016）。

剛性率（岩のせん断弾性定数） μ は、 $\mu = \rho \times \beta^2$ (N/m^2)から算出する。ここに、 ρ ：地震発生層の密度 (kg/m^3)、 β ：地震発生層のS波速度 (km/s) である（地震調査研究推進本部 地震調査委員会, 2016）。地震発生層の密度は、第2次取りまとめの硬岩系により $\rho = 2670$ (kg/m^3) とし（核燃料サイクル開発機構, 1999）、地震発生層のS波速度は $\beta = 3.4$ (km/s) とする（地震調査研究推進本部 地震調査委員会, 2016）。よって、剛性率（岩のせん断弾性定数） μ は、 $\mu = 2670 \times 3400^2 = 3.0865 \times 10^{10}$ (N/m^2)となる。

以上により、M8.0クラスの内陸地震の最大断層すべり速度 V_m として、以下のように推定される。

$$\begin{aligned} V_m &= \Delta \sigma_a \times (2f_c \times W_a \times V_r)^{1/2} / \mu \\ &= 14.091 \times 10^6 \times (2 \times 6 \times 7500 \times 2700)^{1/2} / (3.0865 \times 10^{10}) \\ V_m &= 7.1 \text{ (m/s)} \end{aligned}$$

設計用実寸法人工バリアの解析に用いる荷重条件として、M8.0クラスの内陸地震の最大断層すべり速度 $V_m = 7100$ (mm/s)とし、図4.3.2-20に示すように、右側の岩盤に鉛直下向きの断層すべり

速度を載荷した。表4.3.2-11に最大断層すべり速度の設定用パラメータ一覧を示す。

表4.3.2-11 最大断層すべり速度の設定用パラメータ一覧

各種パラメータ	値	備考
断層長さL (m)	80000	(内閣府中央防災会議, 2006a)
断層幅W (m)	15000	(内閣府中央防災会議, 2006a)
マグニチュードM	8.0	(内閣府中央防災会議, 2006a)
断層面積S (m ²)	1.2×10^9	$S=L \times W$ (地震調査研究推進本部 地震調査委員会, 2016)
アスペリティの総面積S _a (m ²)	0.264×10^9	Sの約22% (地震調査研究推進本部 地震調査委員会, 2016)
震源断層全体の静的応力降下量 $\Delta \sigma$ (N/m ²)	3.1×10^6	(地震調査研究推進本部 地震調査委員会, 2016)
アスペリティの静的応力降下量 $\Delta \sigma_a$ (N/m ²)	14.091×10^6	$\Delta \sigma_a = (S/S_a) \times \Delta \sigma$ (地震調査研究推進本部 地震調査委員会, 2016)
アスペリティの幅W _a (m)	7500	Wの50%程度 (内閣府中央防災会議, 2006b)
平均破壊伝播速度V _r (m/s)	2700	(地震調査研究推進本部 地震調査委員会, 2016)
ローパスフィルタのコーナー周波数f _c (Hz)	6.0	(地震調査研究推進本部 地震調査委員会, 2016)
地震発生層のS波速度 (m/s)	3400	(地震調査研究推進本部 地震調査委員会, 2016)
地震発生層の密度 (kg/m ³)	2670	第2次取りまとめの硬岩系 (核燃料サイクル開発機構, 1999)
剛性率 (岩のせん断弾性定数) μ (N/m ²)	3.0865×10^{10}	$\mu = \rho \times \beta^2$ (地震調査研究推進本部 地震調査委員会, 2016)
本解析に使用する最大断層すべり速度V _m (m/s)	7.1	$V_m = \Delta \sigma_a \times (2f_c \times W_a \times V_r)^{1/2} / \mu$ (地震調査研究推進本部 地震調査委員会, 2016)

③解析コード及び解析手法

解析には、汎用有限要素法解析ソフトウェアAbaqus 2016 (Abaqus, 2016) を使用した。本研究では、断層直撃による場合を想定し、岩盤とオーバーパックが衝突する場合の計算ができる陽解法による非線形大変形せん断衝突解析を実施した。陽解法は、連立方程式の解法を行わない代わりに、物体の運動方程式を陽的中央差分法により計算する数値計算法である。陽解法の長所として、連立方程式の解法を行わないため計算時間を短縮でき、高速な動的現象、大規模で複雑な接触問題、大変形及び大回転問題、破壊現象などを非常に効率良く計算できる長所がある。

④解析結果

a. 断層模擬せん断衝突実験の解析結果

断層模擬実験の3次元モデルによる非線形大変形せん断衝突解析結果として、鉛直変位コンタを図4.3.2-21に示す。右側模擬岩盤への鉛直下向きのせん断速度（100mm/sec）载荷により、せん断変位の増加に伴い緩衝材中の模擬オーバーパックがX軸回りに回転し、鉛直変位25mmで模擬岩盤と模擬オーバーパックが衝突した。断層模擬実験結果と解析結果の整合性についての考察として、上記、2)の断層模擬せん断衝突実験後のX線CT画像に示すように、模擬岩盤と模擬オーバーパックがせん断衝突し、模擬オーバーパックの回転に伴いその両端部の緩衝材に空洞部が生じている。解析結果でも同様に、模擬岩盤と模擬オーバーパックがせん断衝突し、模擬オーバーパックの回転に伴いその両端部の緩衝材に空洞部が生じており、実験結果と解析結果のせん断挙動について概ね同等となっている。

解析結果のミーゼス相当応力コンタを図4.3.3-22に示す。ミーゼス相当応力は、実際の構造物内で発生している3軸の応力場における降伏（金属材料に加える力を増加させると、弾性変形が生じるが、加えた力を除けば変形はゼロに戻る。加える力を増加させ、力を除いても変形が残ることがあり、この変形を永久変形または塑性変形といい、永久変形が生じる限界点を降伏点という。）を判断する指標であり、金属材料の降伏を判断するのに用いられている。模擬岩盤との衝突により模擬オーバーパックには最大109MPaのミーゼス相当応力が発生しているが、模擬オーバーパックの材質であるアルミニウム合金の降伏応力226MPaの1/2よりも小さく、模擬岩盤との衝突により模擬オーバーパックは損傷しない結果となっている。なお、上記、2)の断層模擬せん断衝突実験で記載したように、実験後の目視により模擬オーバーパックは損傷していないことを確認しており、実験結果と解析結果は同等となっている。なお、断層模擬せん断実験装置の大きさの制限により、模擬オーバーパックが直径20mm×長さ40mmと小さいため、その外表面にひずみゲージを取り付けることができずこのため、模擬オーバーパックの応力値を計測することは現段階では実施できない。

断層模擬実験結果と解析結果による緩衝材の土圧変化—せん断変位関係を図4.3.2-23に示す。図中の赤点線及び青点線が既往の実験結果によるせん断中心付近の緩衝材の上側及び下側の土圧変化—せん断変位関係を示し、赤丸線及び青丸線が解析結果のものを示す。実験の上側の土圧変化量（赤点線）が25mm付近で下がっているのは、25mmの変位で終了させ、その変位に接近するにつれてせん断変位速度を落としているためである。実験結果と解析結果による緩衝材の土圧変化—せん断変位関係は、ほぼ同等になっている。

以上により、実験結果と解析結果の比較を通じて再現性について確認した。なお、設計用実寸法の人工バリアの解析への留意点として以下の知見が得られた。

- ・断層のずれによりせん断衝突が生じる付近の岩盤、緩衝材及びオーバーパックのメッシュ分割を細かくすること。
- ・各材料に対して適切な構成則モデルを使用すること。
- ・大規模で複雑な接触問題及び大変形及び大回転問題などを非常に効率良く計算できる陽解法による非線形大変形せん断衝突解析を実施することが重要である。

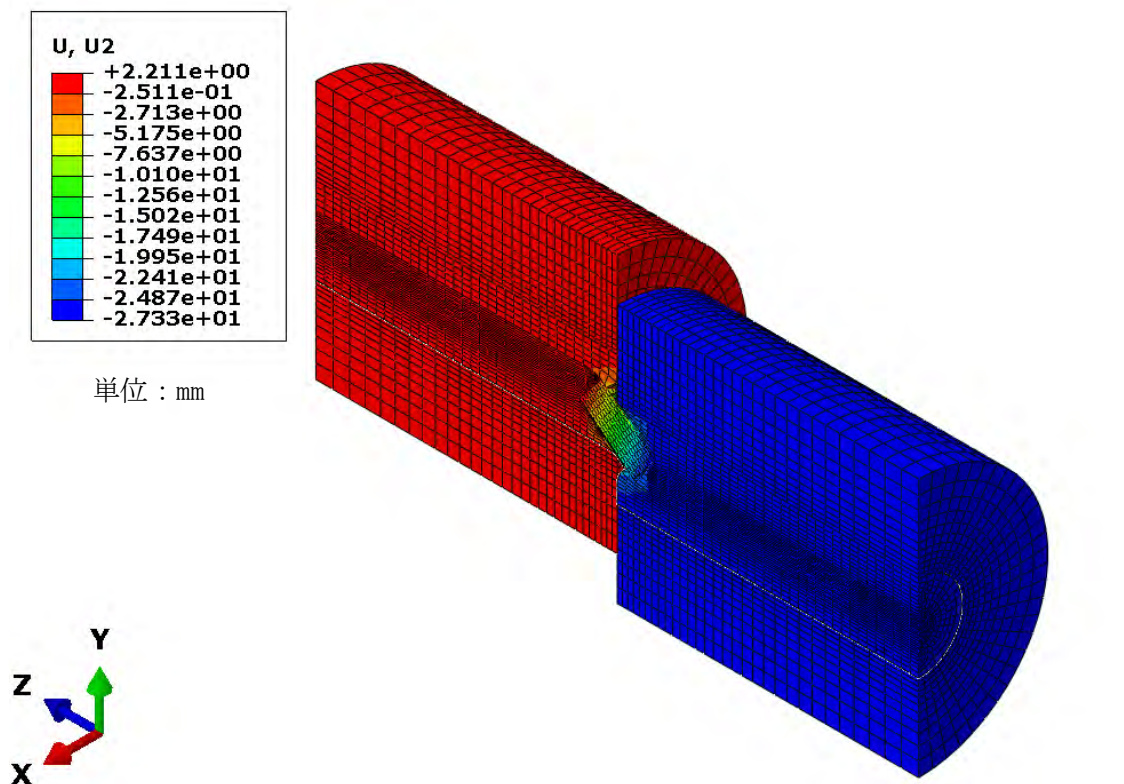


図 4.3.2-21 断層模擬実験の非線形大変形せん断衝突解析結果（鉛直変位コンタ）

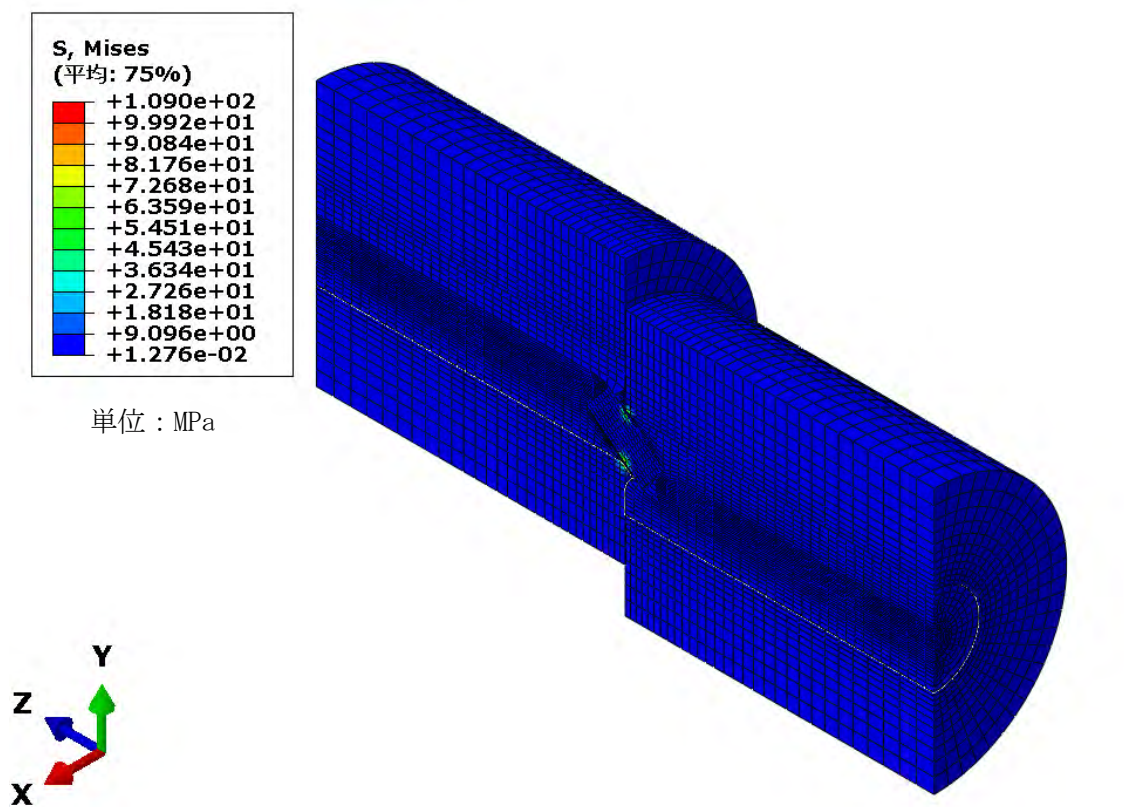


図 4.3.2-22 断層模擬実験の非線形大変形せん断衝突解析結果（ミーゼス相当応力コンタ）

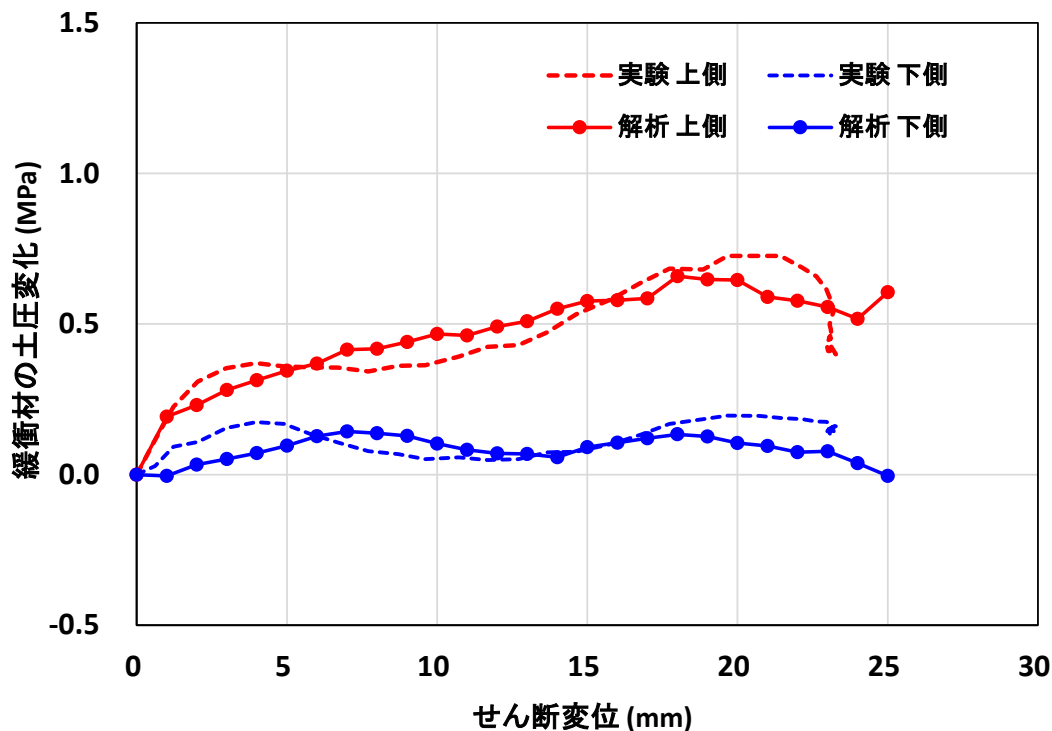
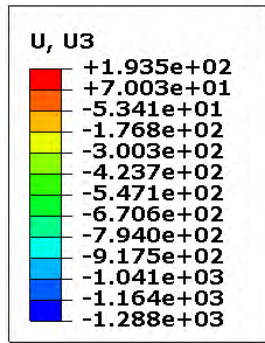


図 4. 3. 2-23 断層模擬実験結果と解析結果による緩衝材の土圧変化—せん断変位関係

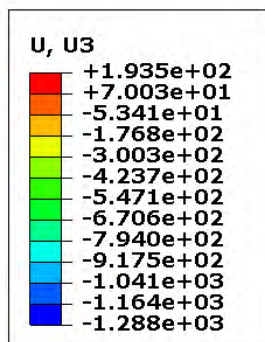
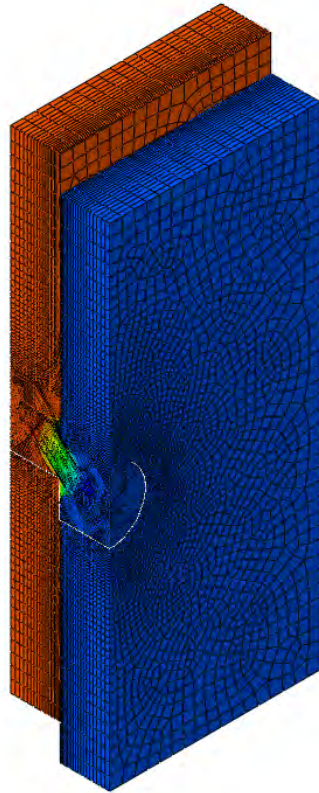
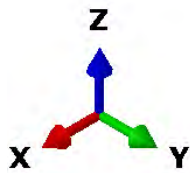
b. 設計用実寸法人工バリアのせん断衝突解析結果

設計用実寸法人工バリアの3次元モデルによる非線形大変形せん断衝突解析結果として、鉛直変位コンタを図4. 3. 2-24に示す。右側岩盤への鉛直下向きの断層すべり速度（7100mm/sec）载荷により、せん断変位の増加に伴い緩衝材中のオーバーパックがX軸回りに回転し、鉛直変位1122mmで岩盤とオーバーパックが衝突した。岩盤とオーバーパックがせん断衝突し、オーバーパックの回転に伴いその両端部の緩衝材に空洞部が生じている。なお、岩盤とオーバーパックがせん断衝突するまでの計算はできたが、岩盤にオーバーパックが挟まり、岩盤とオーバーパック間の緩衝材の要素が歪むことにより、坑道径以上の大きなせん断変位が生じるまでの計算ができなかった。坑道径以上の大きなせん断変位が生じるまでの計算については、今後の課題である。

オーバーパックのミーゼス相当応力コンタを図4. 3. 3-25に示す。岩盤との衝突によりオーバーパックの胴部外表面の一部に最大295MPaのミーゼス相当応力が発生しており、オーバーパックの材質である压力容器用炭素鋼の降伏応力205MPaよりも大きい、引張強さ410MPaよりも115MPa小さな値であるため、オーバーパックの破損の可能性は小さいと考えられる。



単位 : mm



単位 : mm

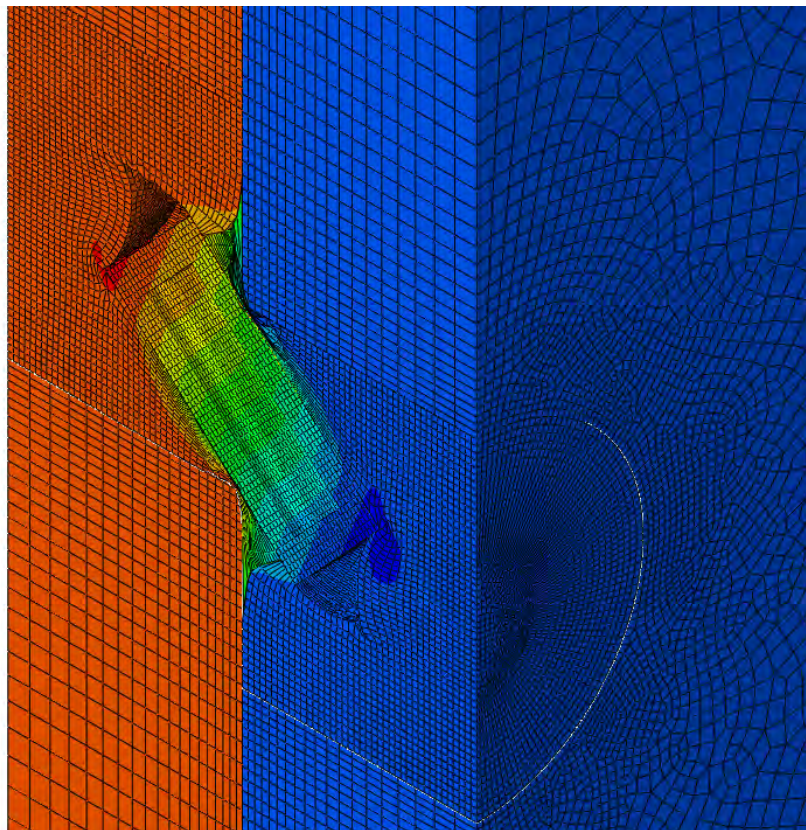
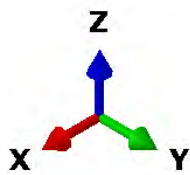
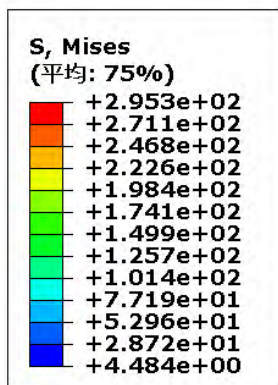


図4.3.2-24 設計用実寸法人工バリアの3次元モデルによる非線形大変形せん断衝突解析結果
(鉛直変位コンタ)



単位 : MPa

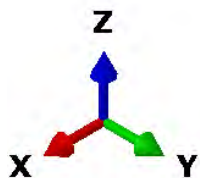
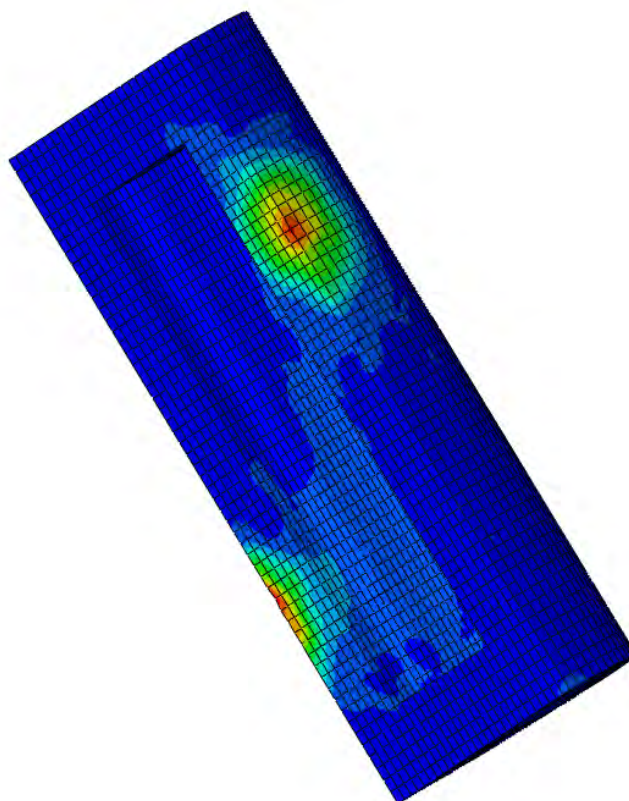


図4. 3. 2-25 設計用実寸法人工バリアの3次元モデルによる非線形大変形せん断衝突解析結果
(オーバーパックのミーゼス相当応力コンタ)

(3)地震動による人工バリア・処分施設への影響

1)はじめに

地層処分システムは、従来の地下施設に比べて、地下深部に建設する構造物であること、大規模な広い面積に設置される構造物であること、閉鎖後長期の安全性を確保する必要があることなど特殊性を有している。

プレート沈み込み帯に位置する我が国では、これまでに平成7年兵庫県南部地震（阪神・淡路大震災）、平成23年東北地方太平洋沖地震（東日本大震災）など、多大な被害を受けてきた。特に、東北地方太平洋沖地震では、その震源域で大地震が発生する可能性について従来から危惧され、これまで多くの調査研究が行われていた。しかし、予想されていた海溝型のM8前後の地震ではなく、複数同時に発生する連動型地震であり、東北太平洋沖でこのような連動型地震が発生する事態は「想定外」であった。また、地震の規模だけでなく、東日本全体に大きな地殻変動と多くの余震・誘発地震を引き起こした。本震に伴う地殻変動は、本震発生時に宮城県石巻市の牡鹿半島周辺で東南東方向へ約5.3m動き、上下方向に約1.2m沈下（国土地理院，2016）するなど、極めて大きな地殻変動が観測され、余震活動も極めて活発で、岩手県から千葉県北東部にかけての沿岸及びその沖合の広い範囲で発生し、余震域で発生したM5.0以上の地震は、本震発生後1年間で650回を超えた。さらに、内陸の非常に広い地域で誘発された地震活動が認められた。

近年、かつては海外でしか得られなかった大加速度記録が数多く記録され、地震観測精度の向上により、地表・地中を問わず岩盤における強震観測も充実されてきた。一般的には、地下数百m以深では、地震動の構造物に対する影響は小さいと考えられるが、2004年新潟県中越地震、2008年岩手・宮城内陸地震において、地中でも大きな地震動（たとえば、2008年岩手・宮城内陸地震では、地中深度260mにおいて水平動（南北）加速度で1,036galを観測（防災科学技術研究所，2016））が観測されたことから、地震動の影響を無視できない可能性がある。

地層処分施設の耐震性については、第2次取りまとめ（核燃料サイクル開発機構，1999）において検討が行われている。人工バリアの地震による振動に対する影響の検討では、模型試験と地震応答解析を実施している。模型試験としては、中型緩衝材振動試験を実施しており、緩衝材の破壊、液状化の発生等は確認されなかった（志水・谷口，1995；谷口，高治，森ほか，1999）。また、地震応答解析コードの開発、振動試験の概要とモデルの適用性の確認、人工バリアの耐震安定性解析評価を実施しており、緩衝材のせん断ひずみは微小でありせん断破壊することはない、という結果が示されている（谷口，高治，杉野ほか，1999；谷口，高治，森ほか，1999）。

一方、地震・断層活動に起因する安全機能に着目した評価手法の開発（4.3.1項）においては、閉じ込め機能の劣化・喪失につながるプロセスとして、地震動による人工バリア・処分施設（立坑）への影響を抽出している。本調査では、地震動が処分システムに及ぼす影響事例として、人工バリアに対する地震動の影響と処分施設（立坑）に対する地震動の影響を別々に扱い、シナリオに取り込むべき地震動の影響（例えば、繰返し地震動による廃棄体の移動や地下水の動きなど）について評価を行った。

2)地震動による振動影響評価

①目的

a. 人工バリアの振動解析

わが国で検討されている高レベル放射性廃棄物の地層処分概念における廃棄体と緩衝材とは大きく密度が異なるため、地震により人工バリアが振動した場合においても、人工バリアがシステムとして健全であり、人工バリアに期待される安全機能（閉じ込め機能等）が長期的に確保できることを示すことが重要である。

本調査では、新たに国内で記録された強震記録を収集し、強震記録をもとに内陸地殻内地震の地震動により廃棄体が母岩と接触し、緩衝材の安全機能（閉じ込め機能等）が喪失する可能性を評価し、地震動が処分システムに及ぼす影響事例として、個別現象を探索するための基礎情報とすることを目的とする。

b. 処分施設の振動解析

処分施設閉鎖後の地震・活断層に伴う振動の影響について、日本最大級の内陸地震に基づく入力地震波を用い、深度 500m までの埋戻された状態での地下施設（立坑）周辺の EDZ が拡大に伴う、水みち形成により、核種を含んだ地下水が生活圏に影響を及ぼす可能性について評価を行うことを目的とする。

②評価に用いた地震動

国内の主な大規模地震一覧を表4.3.2-12に示す。一般に震度、最大加速度、SI値（スペクトル強度、大崎，1994）などは、被害との対応を見るのによく用いられている指標の一つであるが、地上構造物を対象としたものである。地中構造物の被害に有効な指標となると、地盤ひずみによる検討（例えば、鈴木，2005）なども行われているが、明確になっていないのが現状である。よって、ここでは国内最大加速度を記録した岩手・宮城内陸地震の地震波記録の中から、一関西、東成瀬観測所の地震波を選定し、SI値による比較検討を行うこととした。また、最終的にはFEMモデルに入力した際に発生するひずみ量の比較での確認も行った。地震波記録については、防災科学技術研究所が公開している強震観測網（K-NET、KiK-net）（防災科学技術研究所，2016）を利用することとした。

表4.3.2-12 国内の主な大規模地震一覧

地震発生時刻	地震名称	震源地	規模 Mj	最大 震度	地表最大加速度 (gal)				地震のタイプ	震源の深さ (km)
					北南	東西	上下	3成分合成		
1993.01.15.20:06:07	釧路沖地震	釧路沖(釧路市南方沖15km)	7.5	6	814.9	919.3	465.4	1040.6	プレート内の地震	101.0
1993.07.12.20:17:12	北海道南西沖地震	北海道南西沖(奥尻島北方沖)	7.8	5	216.0	202.2	51.0	218.9	日本海東縁部の地震	35.0
1994.10.04.22:22:57	北海道東方沖地震	東方沖(根室半島東方沖約200km)	8.2	6	455.0	473.4	192.9	564.4	プレート内の地震	24.0
1994.12.28.21:19:21	三陸はるか沖地震	三陸沖	7.6	6	602.3	488.4	94.1	673.5	プレート境界の地震	ごく浅い
1995.01.17.05:46:52	兵庫県南部地震	兵庫県北淡町	7.3	7	818.0	617.3	332.2	891.0	陸域の浅い地震	16.0
1997.05.13.14:38:28	鹿児島県北西部地震	鹿児島県薩摩地方	6.1	6弱	902.1	201.1	287.6	976.8	陸域の浅い地震	9.0
1998.09.03.16:58:17	岩手県内陸北部地震	岩手県内陸北部	6.2	6弱	103.8	81.4	37.4	119.0	陸域の浅い地震	10.0
2000.10.06.13:30:18	鳥取県西部地震	鳥取県西部(鳥取県米子市南方約20km)	7.3	6強	927.2	753.0	775.8	1142.4	陸域の浅い地震	9.0
2001.03.24.15:27:00	芸予地震	安芸灘	6.4	6弱	414.5	831.9	217.7	852.6	プレート内の地震	51.0
2003.05.26.18:24:33.4	宮城県沖の地震(三陸南地震)	宮城県沖	7.0	6弱	1103.5	1111.6	825.0	1571.3	プレート内の地震	72.0
2003.07.26.07:13:31	宮城県北部の地震	宮城県中部(宮城県東松島市付近)	6.2	6強	555.0	513.4	284.7	559.2	陸域の浅い地震	12.0
2003.09.26.04:50:07	十勝沖地震	十勝沖(襟裳岬南東沖80km)	8.0	6弱	754.2	874.2	217.0	1091.0	プレート境界の地震	45.0
2004.10.23.17:56:00	新潟県中越地震	新潟県中越地方	6.8	7	1715.5	849.6	564.4	1750.2	陸域の浅い地震	13.0
2004.11.29.03:32:14	釧路沖の地震	釧路沖	7.1	5強	756.5	562.5	629.0	879.5	プレート境界の地震	50.0
2005.03.20.10:53:40.3	福岡県西方沖の地震	福岡県北西沖	7.0	6弱	231.8	355.8	80.7	360.4	陸域の浅い地震	9.0
2005.08.16.11:46:25	宮城県沖の地震	宮城県沖	7.2	6弱	514.0	381.6	111.0	564.1	プレート境界の地震	42.0
2007.03.25.09:41:58	能登半島地震	能登半島沖(石川県輪島市西南西沖40km)	6.9	6強	717.5	849.1	462.2	945.4	陸域の浅い地震	11.0
2007.07.16.10:13:23	新潟県中越沖地震	新潟県上中越沖	6.8	6強	667.0	513.6	369.0	812.7	陸域の浅い地震	17.0
2008.06.14.08:43:45	岩手・宮城内陸地震	岩手県内陸南部	7.2	6強	1143.2	1432.6	3866.0	4022.1	陸域の浅い地震	8.0
2008.07.24.00:26:20	岩手県沿岸北部地震	岩手県沿岸北部	6.8	6弱	1019.3	683.8	593.5	1185.9	プレート内の地震	108.0
2009.08.11.05:07:00	駿河湾地震(静岡県沖地震)	静岡県御前崎沖	6.5	6弱	608.5	402.2	124.1	618.8	プレート内の地震	23.0
2011.03.11.14:46:18.1	東北地方太平洋沖地震	三陸沖(仙台市の東方70km)	9.0	7	2699.9	1268.5	1879.9	2933.2	プレート境界の地震	24.0
2011.03.12.03:59:15	長野県北部地震	長野県北部	6.7	6強	535.7	703.7	316.2	803.5	陸域の浅い地震	8.0
2011.03.15.22:31:46	静岡県東部地震	静岡県東部	6.4	6強	501.3	981.7	746.9	1075.6	陸域の浅い地震	14.0
2011.04.07.23:32:43	宮城県沖の地震	宮城県沖	7.1	6強	1356.2	1328.7	301.6	1495.8	プレート内の地震	66.0
2011.04.11.17:16:00	福島県浜通り地震	福島県浜通り	7.0	6弱	659.0	624.0	418.6	745.8	陸域の浅い地震	6.0
2013.04.13.05:33:00	淡路島地震	淡路島付近	6.3	6弱	360.7	573.9	176.4	586.1	陸域の浅い地震	15.0
2014.11.22.22:08:00	長野県北部の地震	長野県北部	6.7	6弱	570.0	218.9	278.2	589.0	陸域の浅い地震	5.0
2016.04.14.21:26:34.4	熊本地震 前震	熊本県熊本地方	6.5	7	759.8	925.0	1399.4	1579.7	陸域の浅い地震	11.0
2016.04.16.01:25:5.4	熊本地震 本震	熊本県熊本地方	7.3	7	653.0	1156.9	873.4	1362.1	陸域の浅い地震	12.0
2016.10.21.14:07:22.6	鳥取県中部の地震	鳥取県中部地方	6.6	6弱	732.1	1381.3	386.8	1494.0	陸域の浅い地震	11.0

a. 検討で用いる地盤モデル

人工バリアへの振動影響評価を行うにあたり、入力地震動の選定を行った。

検討では、軟岩系岩盤モデル（核燃料サイクル開発機構，1999）について地表面から観測波を入力し、一次元波動論による地震応答解析、SHAKE（Schnabel et al., 1972）により処分深度における地震動の引き戻し計算（逆応答計算）を実施し、引き戻し波の比較を行った。

b. 解析条件

地震波の引き戻しにおける解析条件は以下のとおりとした。

- ・地盤の動的変形特性は考慮せず線形とした
- ・地盤モデルの基盤は剛体とした
- ・考慮する上限周波数は15Hzとした
- ・地表面の観測波（2E波）を一次元モデル上面に入力した
- ・処分深度（地下500m）の引き戻し波（E+F波）を抽出した
- ・水平動検討時の地盤剛性はせん断弾性係数（G）を用いた
- ・鉛直動検討時の地盤剛性は体積弾性係数（ ρVp^2 ）を用いた

c. 地盤特性の検討

(a) 固有周期の検討

軟岩系岩盤モデルの動的特性を調べるため、地表面に100galのパルス波を入力し、人工バリアの処分深度地下500mにおける応答値について検討を行った。

a) 水平動

図4. 3. 2-26に水平動による固有周期の応答スペクトルを示す。

加速度応答スペクトルは、周期0.14秒（7.1Hz）、0.24秒（4.2Hz）、0.63秒（1.6Hz）付近でピークがみられ、速度応答スペクトルは、周期0.14秒（7.1Hz）、0.24秒（4.2Hz）、0.75秒（1.3Hz）付近でピークがみられる。概ね加速度応答スペクトルと同様なピーク周期となっている。応答加速度及び応答速度は、これらの周期成分を持つ地震動に対して共振しやすいと考えられる。

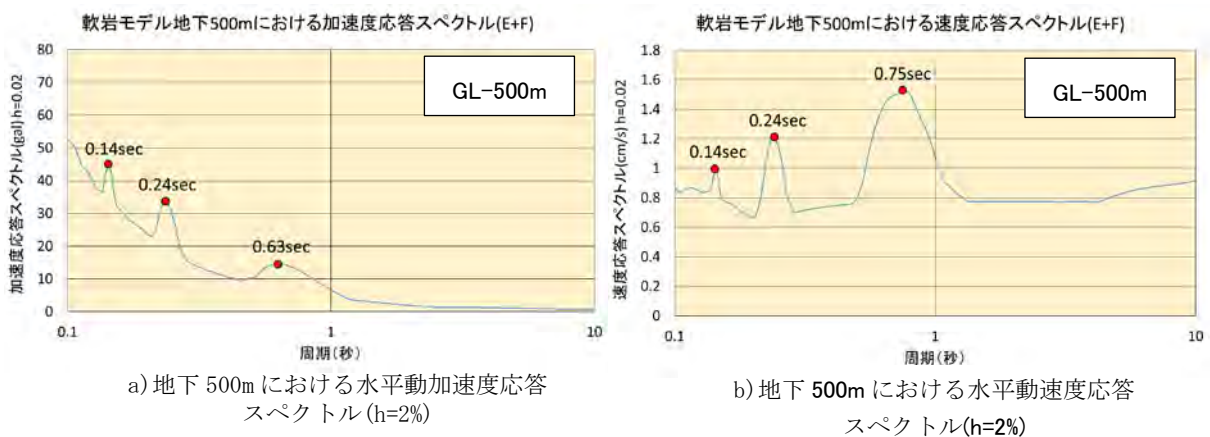


図4. 3. 2-26 水平動による固有周期の応答スペクトル

b) 鉛直動

図4. 3. 2-27に鉛直動による固有周期の応答スペクトルを示す。

加速度応答スペクトルは、周期0.11秒 (9.1Hz) 、0.17秒 (5.9Hz) 、0.31秒 (3.2Hz) 付近でピークがみられ、速度応答スペクトルは、周期0.12秒 (8.7Hz) 、0.17秒 (5.9Hz) 、0.38秒 (2.6Hz) 付近でピークがみられる。概ね加速度応答スペクトルと同様なピーク周期がみられる。応答加速度、応答速度はこれらの周期成分を持つ地震動に対して共振しやすいと考えられる。

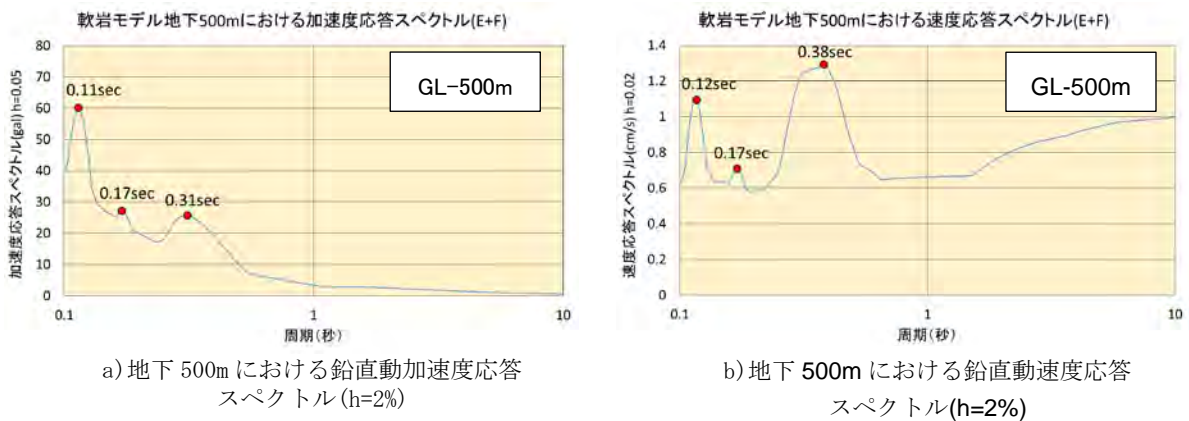


図4. 3. 2-27 鉛直動による固有周期の応答スペクトル

(b) 増幅率の検討

図4. 3. 2-28に伝達関数 (増幅率) を示す。

伝達関数は通常、地中から地表への増幅率を示す場合が多いが、地表観測波から地中への引き戻しにより入力地震動を作成することを考慮し、以後検討に用いる伝達関数は地表に対する地中への伝達関数を用いることとした。

ピーク周期は、パルス波を用いた検討結果と同様な周期となっている。

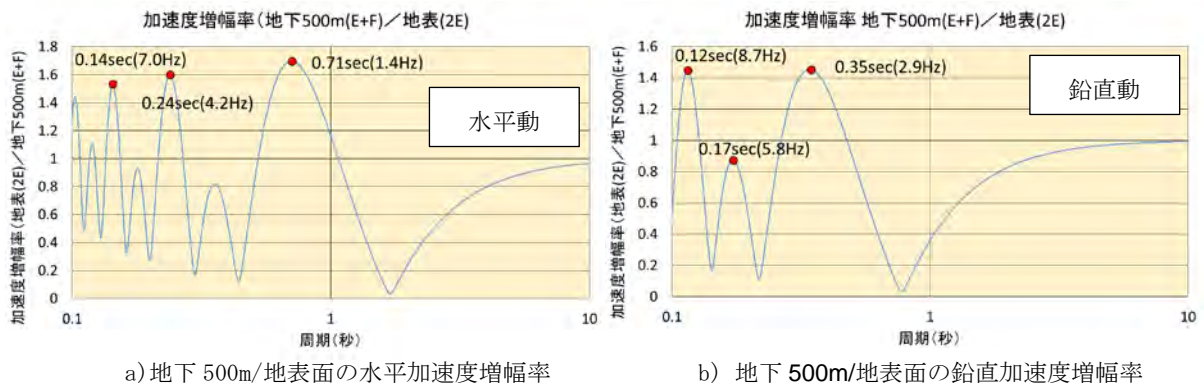


図4. 3. 2-28 加速度伝達関数 (増幅率)

d. 観測波形を用いた地震動の引き戻し

(a) 地表面観測波を用いた引き戻し計算

一次元地震応答解析による地表から処分深度地下500mへの地震波の引き戻し計算を行い、地震波の比較を行った。最大加速度応答深度分布、最大速度深度分布、最大せん断ひずみ深度分布を図4.3.2-29に示す。

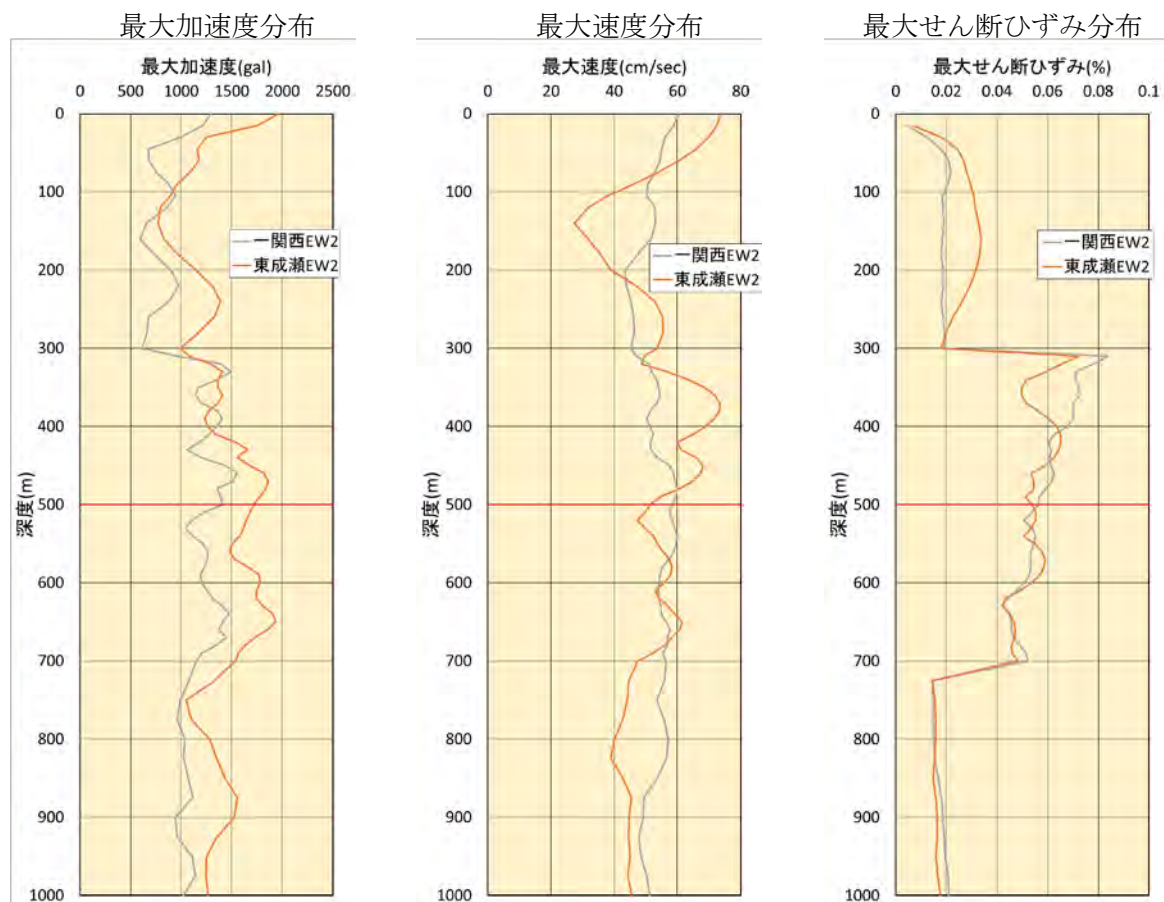


図4.3.2-29 水平動の最大応答深度分布（軟岩系岩盤モデル）

(b)SI値による地震動の比較

a)SI値

地震動による人工バリアへの影響について、SI値（スペクトル強度）を指標とした地震動のエネルギーの比較を行った。SI値は構造物が概ね地震動の影響を受けやすい周期0.1秒から2.5秒までの速度応答スペクトルの積分値をとるもので、この値が相対的に大きい方がより影響力の大きい地震動と判断するものである。

積分範囲の周期0.1秒から2.5秒は地上構造物が影響を受けやすい周期を想定しているもので、処分深度で影響を受けやすい周期とは異なると考えられる。しかし処分深度における周期の積分範囲の設定の根拠が明確に示すことが困難であること、積分値の相対的な比較については積分範囲の違いによる結果は変わらないという仮定からSI値の定義式をそのまま用いることとした。

b)SI値による引き戻し波の比較

図4.3.2-30、図4.3.2-31に水平動及び鉛直動の速度応答スペクトル、伝達関数（処分深度地下500m(E+F)／地表2E）及び一関西、東成瀬の引き戻し波のSI値を示す。

速度応答スペクトル及び伝達関数のピーク周期をみると概ね同じピーク周期となっており、こ

の周期で地震波が増幅されていることがわかる。

一関西及び東成瀬の引き戻し波のSI値を比較すると、僅かながら一関西引き戻し波の方が東成瀬引き戻し波より大きな値となっている。よって、一関西引き戻し波の方が東成瀬引き戻し波より、人工バリアにとって過酷な事象になると判断される。一関西引き戻し波の方が東成瀬引き戻し波より大きなSI値となった理由として、一関西引き戻し波の応答スペクトルのピーク周期が東成瀬引き戻し波に比べ短周期側にあり、軟岩系モデルの卓越周期と共振しやすいことがあげられる。

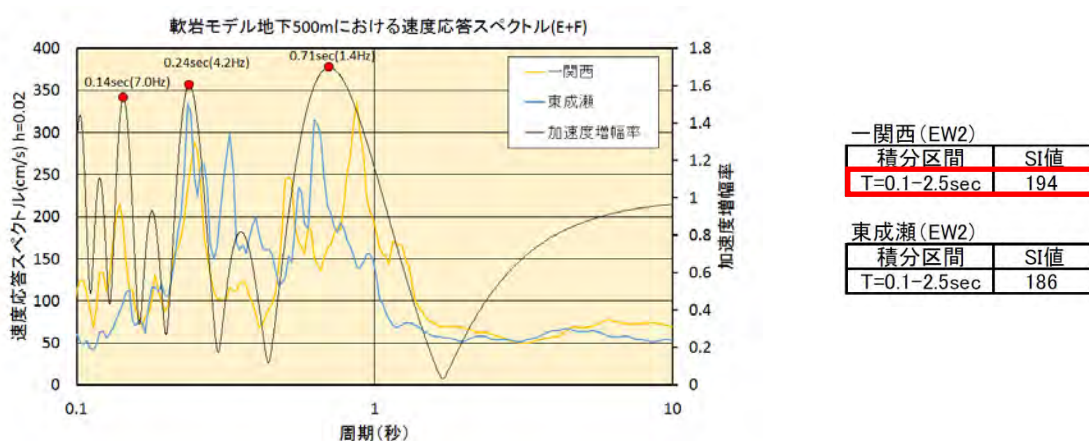


図4.3.2-30 引き戻し波の速度応答スペクトルとSI値（水平動）

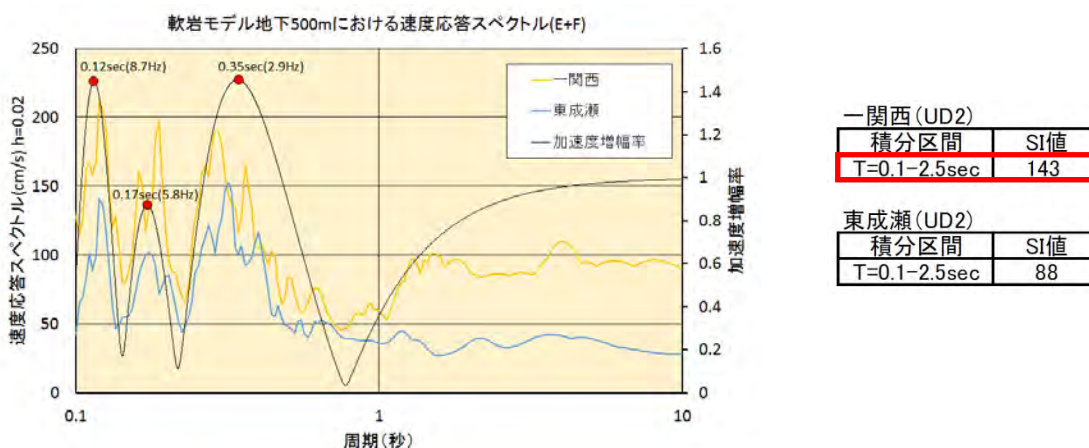


図4.3.2-31 引き戻し波の速度応答スペクトルとSI値（鉛直動）

e. 入力地震動の設定

SI値による引き戻し波の比較の結果、一関西引き戻し波を入力地震動として選定することとした。観測波の継続時間は300秒であるが、動的解析時の計算時間の効率性を考慮して加速度振幅が大きい区間を抽出した。具体的には図4.3.2-32に示す加速度振幅値（絶対値）の累積傾向及び抽出開始・終了時刻の振幅が小さいことを考慮し、引き戻し波（2E波）の11.95秒～41.94秒の30秒間を抽出し、入力地震動とした。設定した入力地震動を図4.3.2-33に示す。

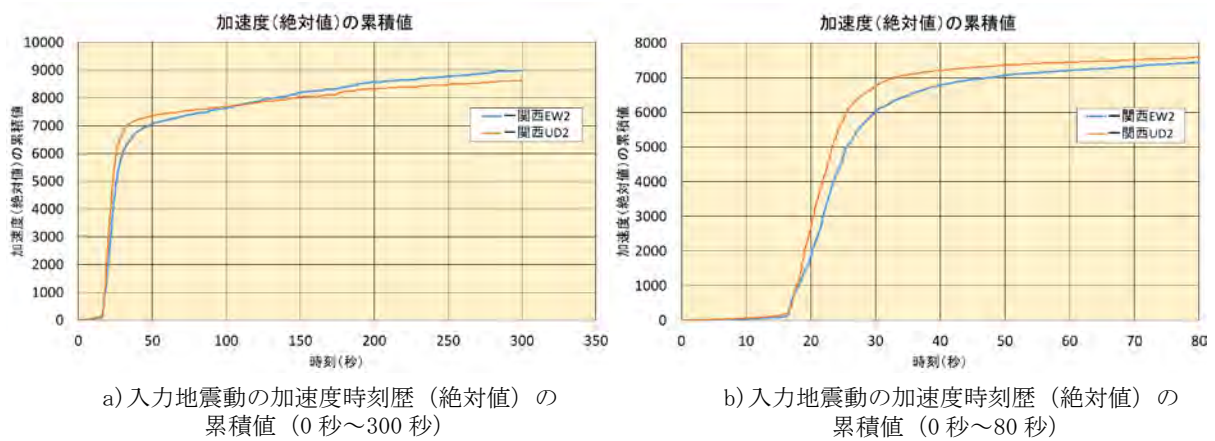
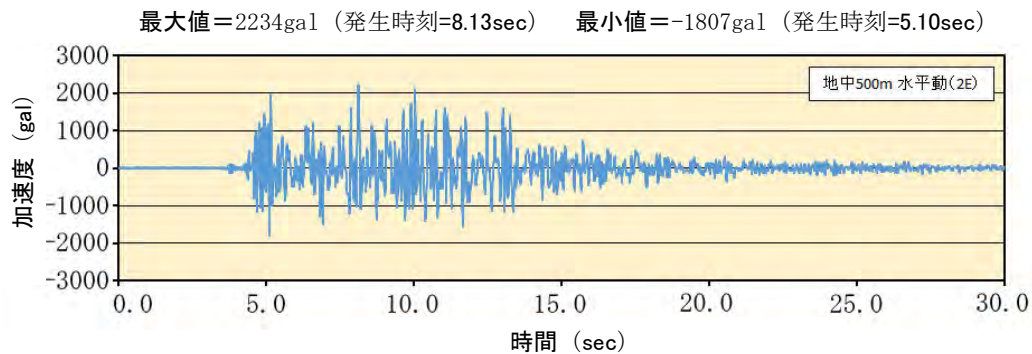
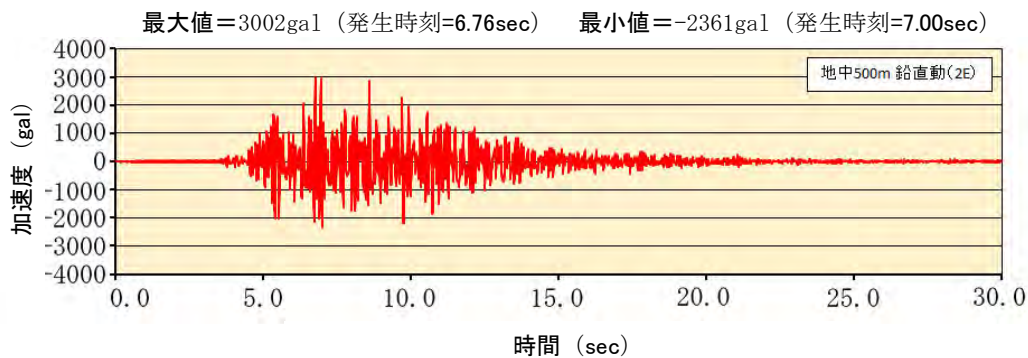


図4.3.2-32 入力地震動の加速度時刻歴（絶対値）の累積



a) 入力地震動（水平動）



b) 入力地震動（鉛直動）

図4.3.2-33 検討に用いる入力地震動（2E）

③人工バリアの振動影響評価

緩衝材飽和後の長期間における繰返し地震動による影響を評価するため、人工バリアと周辺岩盤の大変形効果を考慮した2次元地震応答解析（全応力）（FLIPコンソーシアム，2016）を実施した。

本検討のモデルでは、処分坑道横置き定置方式（軟岩系岩盤）の人工バリアとした。また、閉鎖後長期の人工バリアの状態を考慮し、廃棄体定置後、周辺岩盤からの地下水の浸潤に伴う緩衝

材の飽和・膨潤により、処分坑道壁と緩衝材は密着している状態を基本ケースと考えた。

a. 解析条件の設定

(a) 解析モデル

本解析では、第2次取りまとめで示された処分坑道横置き定置方式（軟岩系岩盤）の人工バリアと周辺岩盤を対象とした（核燃料サイクル開発機構，1999）。処分坑道のイメージ図を図4.3.2-34、人工バリアの仕様例を図4.3.2-35に示す。また、処分坑道横置き定置方式（軟岩系岩盤）の仕様を表4.3.2-13に示す。

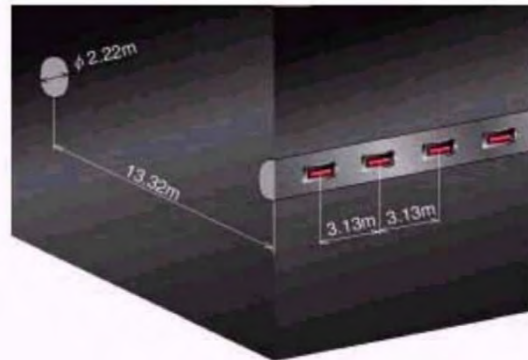


図4.3.2-34 処分坑道横置き定置方式（軟岩系岩盤）の処分坑道のイメージ図
（核燃料サイクル開発機構，1999）

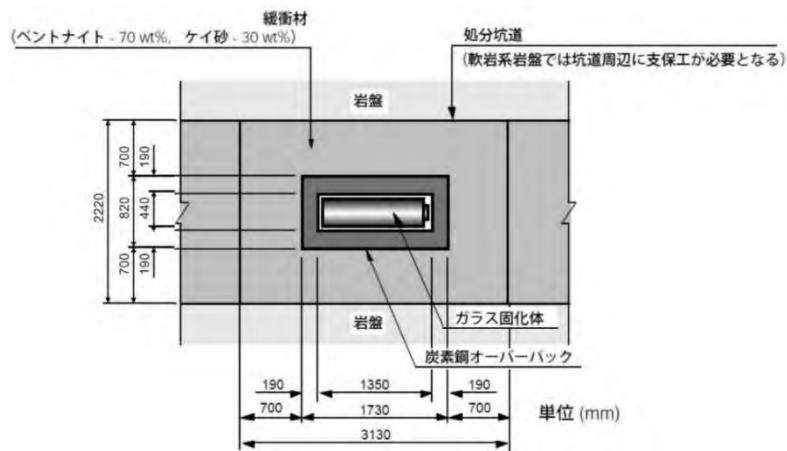


図4.3.2-35 処分坑道横置き定置方式（軟岩系岩盤）の人工バリアの仕様例
（核燃料サイクル開発機構，1999）

表4.3.2-13 処分坑道横置き定置方式（軟岩系岩盤）の仕様
（核燃料サイクル開発機構，1999）

地質条件		軟岩系材料
処分深度		500m
処分坑道内径		2.22m
廃棄体ピッチ		3.13m
処分坑道離間距離		9.99m
覆工コンクリートの厚さ		0.1m
人工バリア	ガラス固化体の外寸	直径440mm、長さ1,350mm
	オーバーパックの外寸	直径820mm、長さ1,730mm
	ガラス固化体1個に対する緩衝材の外寸	直径2,220mm(処分坑道内径) 長さ3,130mm(廃棄体ピッチ)

注) 覆工コンクリートはモデル化しない

解析対象は、岩盤・オーバーパック・緩衝材の3材料で構成した。処分深度は、第2次取りまとめの軟岩系岩盤モデルで地表から深さ500mとし、地中の一部分をモデル化した2次元モデルについて検討を行った。

(b) 入力物性値

a) 人工バリア、岩盤、緩衝材

ガラス固化体、オーバーパック及び岩盤は、第2次取りまとめ（核燃料サイクル開発機構，1999）と同じ仕様、物性値とした。初期応力解析における物性値を表4.3.2-14と表4.3.2-15に示す。単位体積重量については、水圧を考慮した。緩衝材のヤング率Eは、拘束圧依存性を考慮し、緩衝材が吸水膨張したときの有効応力0.5MPaにおける換算値を用いた。表4.3.2-16に動的解析に用いた物性値を示す。

表4.3.2-14 初期応力解析における物性値及び荷重
（カッコ内は水中密度を示す）

材料	モデル化	特性	物性値	備考
物性値	線形要素 拘束圧依存性 なし	単位体積重量(Mg/m ³)	2.20 (1.20)	谷口・長谷川 1999
		弾性係数E(MPa)	3500	
		ポアソン比 ν	0.30 ¹⁾	
荷重	—	鉛直方向(MPa)	1.08×10	谷口，高治，杉野ほか 1999
		側方向(MPa)	1.08×10	

- 1) 側圧係数1.0になるように調整する必要があったため、計算ではポアソン比0.49999とした

表4.3.2-15 人工バリア自重解析に用いた物性値

(カッコ内は水中密度を示す)

材料	モデル化	特性	物性値	備考
ガラス 固化体	線形弾性	ヤング率E (MPa)	8.04×10^4	谷口, 高治, 杉野ほか 1999
		ポアソン比 ν	0.25	
		密度 ρ (Mg/m ³)	2.10 (1.10)	
オーバー パック	線形弾性	ヤング率E (MPa)	2.06×10^4	谷口, 高治, 杉野ほか 1999
		ポアソン比 ν	0.3	
		密度 ρ (Mg/m ³)	7.77 (6.77)	
緩衝材 (飽和)	マルチ スプリング 要素 ¹⁾ (非線形を 考慮)	最大せん断剛性率 (MPa)	38.6	H27年度報告書より
		ポアソン比 ν	0.49	谷口, 高治, 杉野ほか 1999
		密度 ρ (Mg/m ³)	2.00 (1.00)	
		粘着力C (MPa)	0.1	藤田・五月女・原 1992
		内部摩擦角 ϕ (deg)	10	$\tau f = \sigma m' \times \sin \phi$ より逆算
		間隙率n	0.39	高治・谷口 1999

1) FLIPコンソーシアム, 2016

表4.3.2-16 動的解析に用いた物性値

材料	モデル化	特性	物性値	備考
ガラス 固化体	線形 弾性	ヤング率E (MPa)	8.04×10^4	谷口, 高治, 杉野ほか 1999
		ポアソン比 ν	0.25	
		密度 ρ (Mg/m ³)	2.1	
		減衰定数h	—	
オーバー パック	線形 弾性	ヤング率E (MPa)	2.06×10^4	谷口, 高治, 杉野ほか 1999
		ポアソン比 ν	0.3	
		密度 ρ (Mg/m ³)	7.77	
		減衰定数h	0.005	
緩衝材 (飽和)	マルチ スプリング 要素 (大変形を 考慮)	最大せん断剛性率 (MPa)	38.6	H27年度報告書より
		ポアソン比 ν	0.49	谷口, 高治, 杉野ほか 1999
		密度 ρ (Mg/m ³)	2.0	
		粘着力C (MPa)	0.1	藤田・五月女・原 1992
		内部摩擦角 ϕ (deg)	10	$\tau f = \sigma m' \times \sin \phi$ より逆算
		間隙率n	0.39	高治・谷口 1999
軟岩系 岩盤	線形 弾性	ヤング率E (MPa)	7.60×10^3	谷口, 高治, 杉野ほか 1999
		ポアソン比 ν	0.369	
		密度 ρ (Mg/m ³)	2.2	

b) 緩衝材の構成則

平成28年度の検討では、緩衝材は、Total Lagrangian法による大変形効果を考慮し、全応力解析を行った（液状化を考慮しない）。また、ひずみに依存する非線形特性（動的変形特性）を考慮して、非線形モデルとした。非線形モデルにおいて、設定方法は種々あるが、FLIP TULIPの多重せん断モデル（FLIPコンソーシアム，2016）の構成則は、双曲線モデル（修正H-Dモデル）を採用しているため、既往検討におけるR-0モデルのパラメータをそのまま用いることができない。このため、第2次取りまとめ（核燃料サイクル開発機構，1999）における緩衝材の動的三軸試験結果について過年度検討方法に準じたR-0モデルのフィッティングを行った後に同等となるような修正H-Dモデルを設定した。

双曲線モデルの特徴は、せん断応力が τ_{max} を超えないことである。モデルのパラメータは、 γ_r （基準ひずみ）、 h_{max} （最大減衰定数）の2つのパラメータで動的変形特性を表現している。H-Dモデルは、ひずみが大きくなると h （減衰定数）が大きくなりすぎるのが指摘されている。そのため、修正H-Dモデルでは、減衰を調整するため、実際の骨格曲線とは異なる仮定の骨格曲線を考え、これにMasing則を適用しようとするものである。

表4.3.2-17に緩衝材の動的三軸試験結果（高治・谷口，1999）を示す。

平成27年度のR-0モデルのフィッティング方法でフィッティングを行った後のR-0モデルと修正H-Dモデルとの比較を図4.3.2-36に示す。

表4.3.2-17 既往資料緩衝材の動的三軸試験結果（高治・谷口，1999）

動的三軸試験結果(5サイクル目)			
片振幅せん断ひずみ γ (%)	等価せん断剛性率 G_{eq} (MN/m ²)	せん断応力 τ (MN/m ²)	履歴減衰率 h (%)
1.10E-03	38.700	4.26E-04	4.79
2.00E-03	38.900	7.78E-04	5.02
3.80E-03	38.500	1.46E-03	4.93
6.50E-03	38.000	2.47E-03	5.03
1.17E-02	37.200	4.35E-03	5.14
2.27E-02	34.900	7.92E-03	5.41
4.39E-02	31.800	1.40E-02	5.86
8.97E-02	27.100	2.43E-02	6.71
1.94E-01	20.700	4.02E-02	8.32
3.30E-01	16.100	5.31E-02	9.91

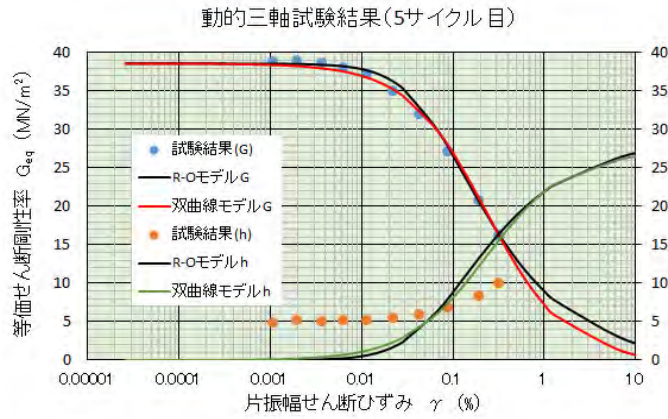


図4.3.2-36 見直し前後の動的変形特性の比較

(c) 境界条件

自重解析時、地震応答解析時における境界条件を示す。なお、自重解析時はモデル上面に有効土被り圧相当の等分布荷重を作用させた。

自重解析時：

- 側方境界：鉛直ローラー
- 底面境界：水平ローラー

地震応答解析：

- 側方境界：粘性境界
- 底面・上面境界：粘性境界

(d) 減衰定数

材料のレーレー減衰はFLIP TULIPでは剛性比例係数 β により設定する。これにより、材料の微小な減衰を考慮することができ、数値計算の安定性も向上する。

剛性比例係数 β は自由地盤部の一次元解析を用いて、自重解析、動的解析を行い、 β をそれ以上減じても、最大応答変位の分布が変化しなくなるような β の限界値を用いた。剛性比例係数 β と最大応答変位の関係より $\beta = 0.001$ とした。

(e) 入力地震動

入力地震動は、図4.3.2-33に示した一関西における地表面観測波を軟岩系岩盤モデルで処分深度GL-500mに引き戻した地震動を用いた。解析モデルへの地震動の入力は水平動、鉛直動の同時加振とした。

(f) 解析ケース

長期、複数回の巨大地震においてオーバーパックが岩盤に接触する可能性について検討する

にあたり、以下の観点について入力地震動を設定した解析（パラメトリック・スタディ）を実施した。

- ・地震動の大きさ（振幅の係数倍）の設定

地震動の大きさは、オーバーパックが岩盤に接触する大きさの地震動となるように地震動の振幅を係数倍して設定した。

- ・地震動の繰返し回数（繰返し加振）

地震動の繰返し回数は、振幅を係数倍した地震動を繰返し加振してオーバーパックが岩盤に接触するまでの回数を求めた。

具体的な検討ケースについては、解析結果において詳述する。

(g) 解析ステップ

表4.3.2-18 解析ステップ一覧

STEP	解析種類	概念図	拘束条件	備考
1	静的解析		側方： 鉛直ローラー — 底面： 水平ローラー —	<ul style="list-style-type: none"> • 処分深度（軟岩系岩盤500m）相当の土被り圧及び側圧を分布荷重として作用させる。 • 側圧は側圧係数$K=1.0$となるように物性値を調整する。 • 地山は水中重量とする。
2				<ul style="list-style-type: none"> • 処分坑道を掘削（掘削解放率 0%：掘削による応力解放を考慮しない） • 掘削面の節点を固定し、節点力を取得する。
3				<ul style="list-style-type: none"> • 緩衝材を構築。 • オーバーパック側面（次ステップで構築）から放射状に等分布荷重0.5MPa（膨潤応力）を作用させる。
4				<ul style="list-style-type: none"> • ガラス固化体、オーバーパックを構築。 • オーバーパック側面から中心部に等分布荷重0.5MPa（膨潤応力）を作用させる。
5		動的解析		

b. 解析結果

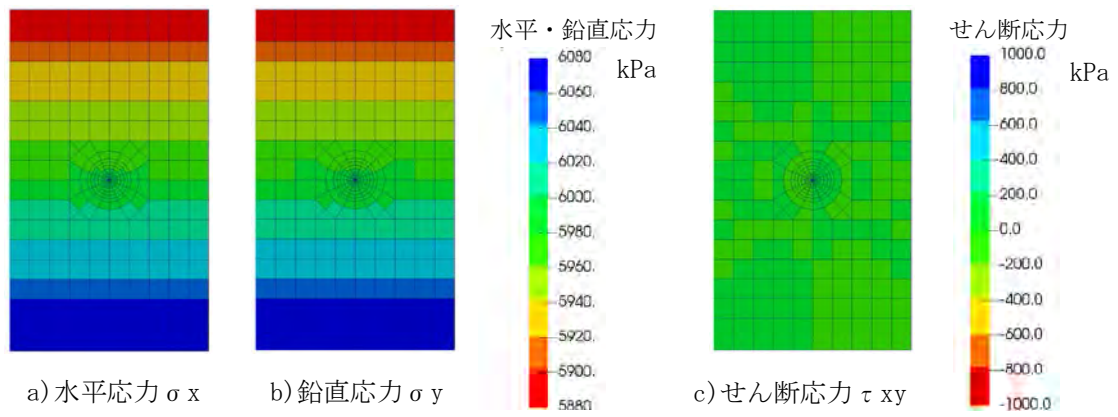
当初緩衝材の構成則として大変形効果を考慮した非線形モデルを用いて解析検討を行っていたが、オーバーパックが岩盤に接するような大きな変形を伴う解析が安定して計算できなかったため、緩衝材を非線形モデルとして扱った場合、緩衝材のひずみに依存する非線形特性を考慮しない線形モデル（ただし、大変形効果は考慮）として扱った場合について取りまとめた。

(a) 初期自重解析

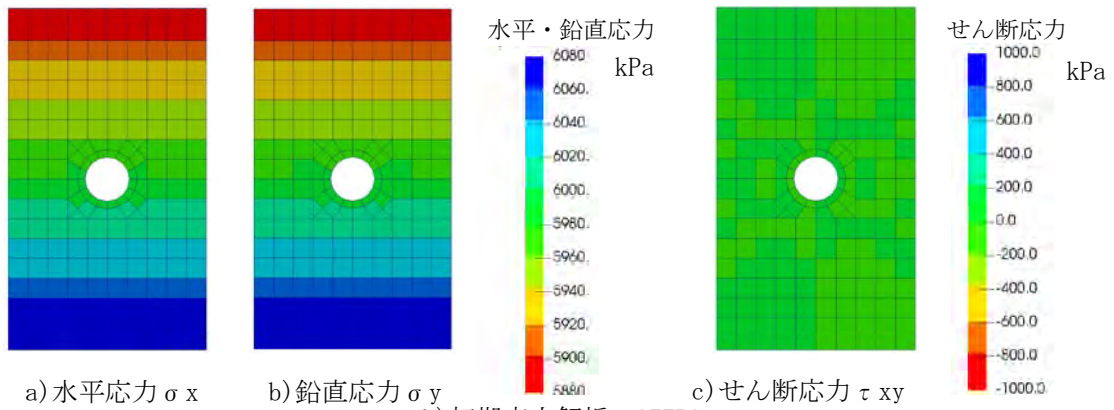
初期応力は施工過程を考慮して段階的に行った。

図4.3.2-37に各解析ステップにおける応力図を示す。鉛直応力分布 σ_y の分布をみると、浮力を考慮した上載荷重と岩盤の単位体積重量に応じた応力分布が深度方向に一様増加している。また、水平応力分布 σ_x も鉛直応力分布 σ_y 相当の応力状態となっており、土圧係数 $K_0=1.0$ の状況が確認できる。

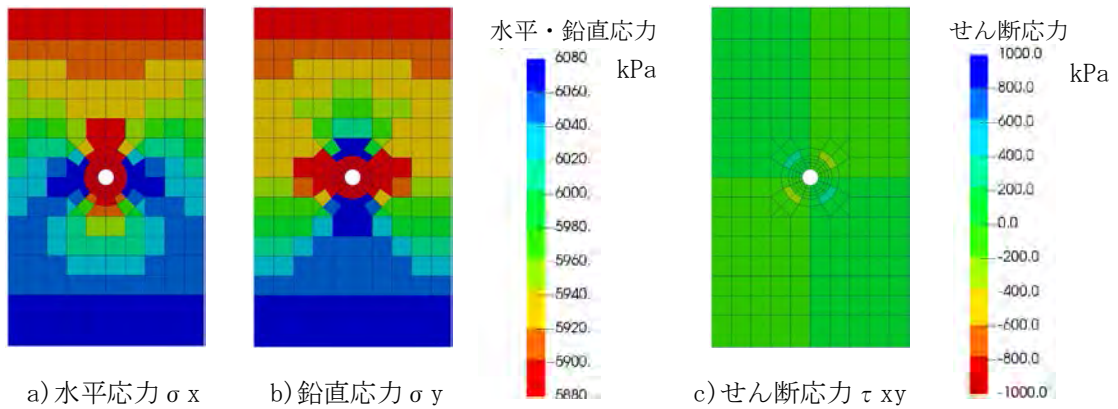
せん断応力分布 τ_{xy} の応力分布をみると σ_x 、 σ_y に比べ小さな値となっており、岩盤が等方圧縮状態になっている。



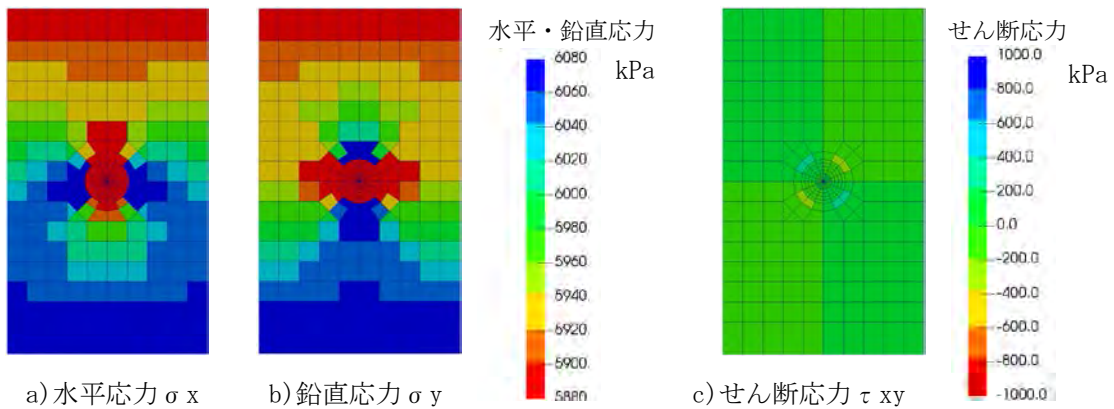
a) 初期応力解析 STEP1



b) 初期応力解析 STEP2



c) 初期応力解析 STEP3



d) 初期応力解析 STEP4

図4.3.2-37 初期応力解析における応力分布

(b) 動的解析

a) 地震動を係数倍増幅・繰返し加振したケース（緩衝材を双曲線モデルとした場合）

入力地震動の加速度を係数倍した場合におけるオーバーパックと岩盤との離隔について検討を行った。

図4. 3. 2-38に入力地震動への振幅倍率を1倍としたときの最大加速度分布と最大せん断ひずみ分布 γ xy分布を示し、図4. 3. 2-39に最大変位分布、安全率分布を示す。

最大加速度分布をみると、水平加速度で2300gal程度、鉛直加速度で3100gal程度となっており、入力地震動の各成分の最大加速度程度となっている。

モデル底部、上端部、側部にそれぞれ粘性境界を配置しているため、加速度分布はモデル中央部で大きくなる傾向がみられるが、概ね一様な加速度分布となっている。

変位分布をみると、オーバーパック周辺の変位が大きくなっており、加速度分布に対応した分布状況となっている。振幅倍率1倍時で最大変位は、0.08mm程度である。

また、最小安全率分布図から、 $0.1350 \leq 1/Sf \leq 0.4113$ であることから、緩衝材は破壊していないことが確認できる。

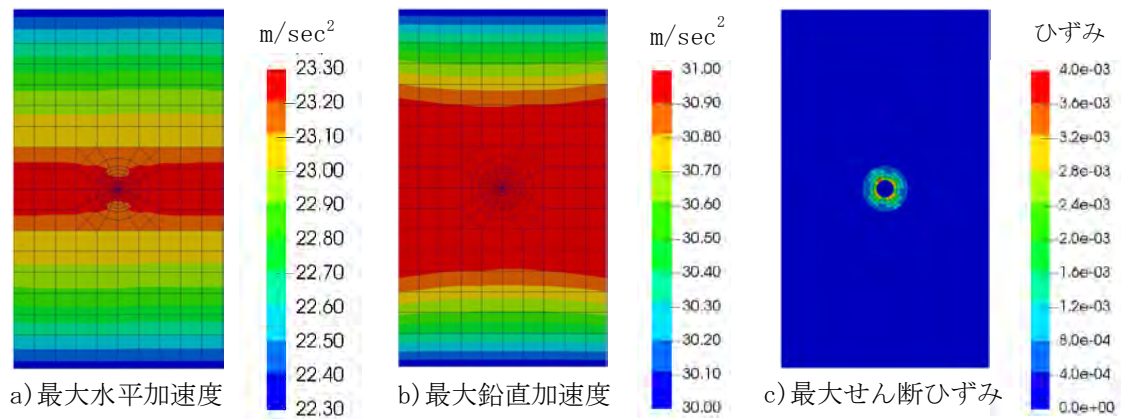


図4. 3. 2-38 振幅倍率1倍時における加速度、せん断ひずみ分布

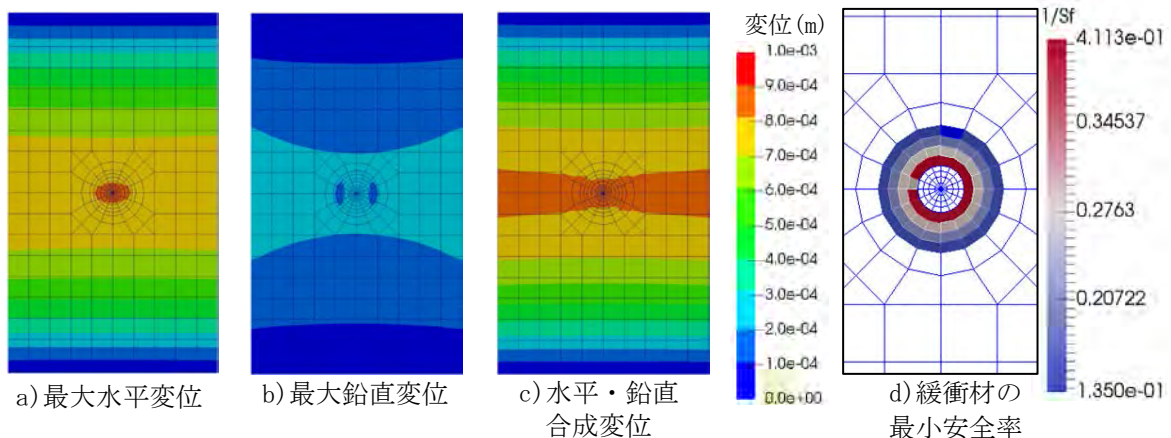


図4. 3. 2-39 振幅倍率1倍時における変位・安全率分布

入力地震動の水平動、上下動の同時加振に伴いオーバーパックは2次元的な挙動をする。同時に地震動が大きくなると岩盤の変形も無視できなくなる。このため、オーバーパックと岩盤との離隔について、以下のようにまとめた。

加振中、オーバーパックと岩盤との離隔が最小となる相対変位の位置は時々刻々と変化する。このため最小離隔、最大変位の抽出にあたっては、各解析時刻においてオーバーパック表面を構成する節点と坑道を構成する節点との相対変位を節点間の組み合わせの総当たりで算定し、最も小さな離隔を当該時刻の離隔とした。このようにして求められた離隔の時刻歴のなかで最も離隔が小さくなる時刻の離隔を最小離隔 (=最大変位) として求めた。

表4.3.2-19にオーバーパックと岩盤との最小離隔、最大変位を示す。図4.3.2-41、図4.3.2-42に加振回数別に分けて示す。なお、ケース10、11、18は計算が途中で発散し、結果を得ることができなかった。

加振回数1回のケース1～11に関しては、最小離隔は振幅倍率の増加とともに狭まっている。振幅倍率10倍まではほぼ同時刻で最小離隔が算定されている。しかし振幅倍率12倍以降からは最小離隔の発生時刻が不規則となり、最大変位量が下位の倍率時の増加傾向に比べ急激に増加している。

図4.3.2-43に示す最小離隔の時刻歴をみると、振幅倍率12倍以上では、下位の倍率における時刻歴に比べ波形が異なっている。このことから振幅倍率12倍以降は解析が不安定で解析精度が劣っていると考えられる。

最大変位量も比較的安定した解析を行った振幅倍率10倍で1mm程度であり、振幅倍率を大きくしてオーバーパックが岩盤に接するまでの解析は困難であった。

逐次積分における時間刻みは0.01秒で行ったが、時間刻みを細かくしても安定した計算ができるとは限らず、緩衝材を双曲線モデルとした物性設定では大きな変位を想定した計算をすることができなかった。

図4.3.2-44に示す岩盤と緩衝材のせん断ひずみ履歴をみると、岩盤は線形モデルのため、応力-ひずみ関係に線形の相関が確認できる。一方、緩衝材のせん断ひずみ履歴を見ると、振幅倍率10倍まではひずみ履歴は紡錘形をなし、双曲線モデルの挙動が確認できるものの、振幅倍率12倍以降は紡錘形が崩れ始めている。このことから振幅倍率12倍以降は解析が不安定になっていると思われる。

加振回数33回のケース12～18に関しては、最小離隔の加振回数の増加による変化はほとんどみられない。振幅倍率10倍では1回目加振から2回目加振にかけてわずかに変化は見られるものの、3回目加振以降では変化はほとんどみられない。なお、振幅倍率12倍は計算が途中で発散し、結果を得ることができなかった。

最大変位量は計算可能であった振幅倍率10倍時でも1mm程度であり、緩衝材を双曲線モデルとした物性設定では大きな変位を想定した繰返し加振入力による計算をすることができなかった。

表 4.3.2-19 入力地震動を係数倍増幅したケースの最小隔離と最大変位

ケース	地震動の振幅に掛ける倍数	最小隔離(m)	最大変位 ¹⁾ (m)	時間 ²⁾ (秒)	節点間	加振回数(継続時)
1	1倍	0.6999	8.0E-05	6.97	160 - 156	1回 (30秒)
2	2倍	0.6999	1.5E-04	6.77		
3	4倍	0.6997	3.2E-04	6.78		
4	6倍	0.6995	5.1E-04	6.97		
5	8倍	0.6993	7.3E-04	6.97		
6	10倍	0.6990	1.01E-03	6.97		
7	12倍	0.6986	1.42E-03	8.61		
8	14倍	0.6973	2.72E-03	11.68	203 - 231	
9	16倍	0.6689	3.107E-02	13.30	160 - 156	
10	18倍 ³⁾	—	—	—	—	
11	20倍 ³⁾	—	—	—	—	
12	1倍	0.69992	8.0E-05	6.97 ⁴⁾	160 - 156	33回 (990秒)
13	2倍	0.69985	1.5E-04	6.77 ⁴⁾		
14	4倍	0.6997	3.2E-04	6.78 ⁴⁾		
15	6倍	0.6995	5.1E-04	6.97 ⁴⁾		
16	8倍	0.6993	7.3E-04	36.97 ⁴⁾		
17	10倍	0.6989	1.01E-03	66.97 ⁴⁾		
18	12倍 ³⁾	—	—	—		

- 1) 初期隔離 (0.7m) -最小隔離より算定
- 2) 逐次積分時間刻み0.01秒にて解析
- 3) 解析途中で発散 (計算不可能)
- 4) この時刻以降の各加振時の最大発生変位も同地

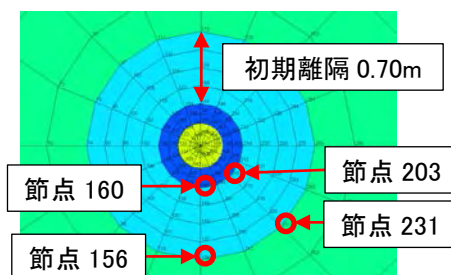


図 4.3.2-40 オーバーパック外面と岩盤の節点番号

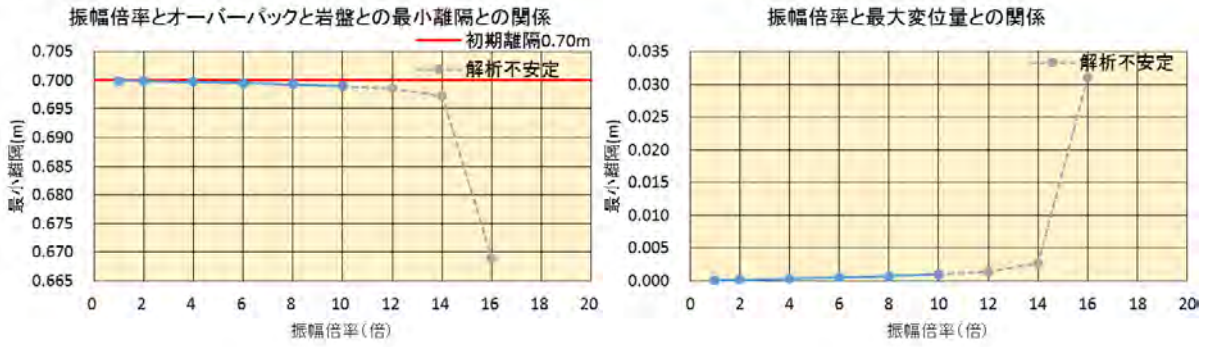


図4.3.2-41 振幅倍率とオーバーバックと岩盤の最小離隔の関係(ケース1~9)

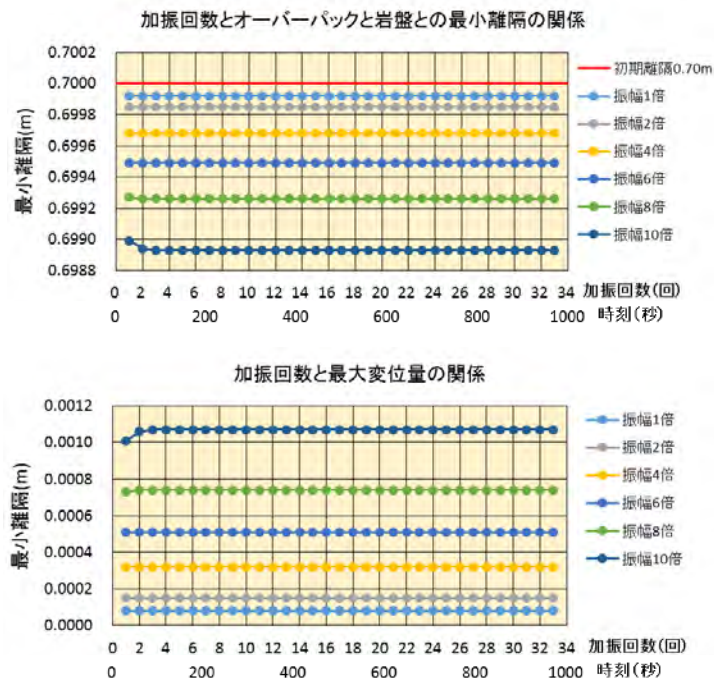


図4.3.2-42 振幅倍率とオーバーバックと岩盤の最小離隔の関係(ケース12~17)

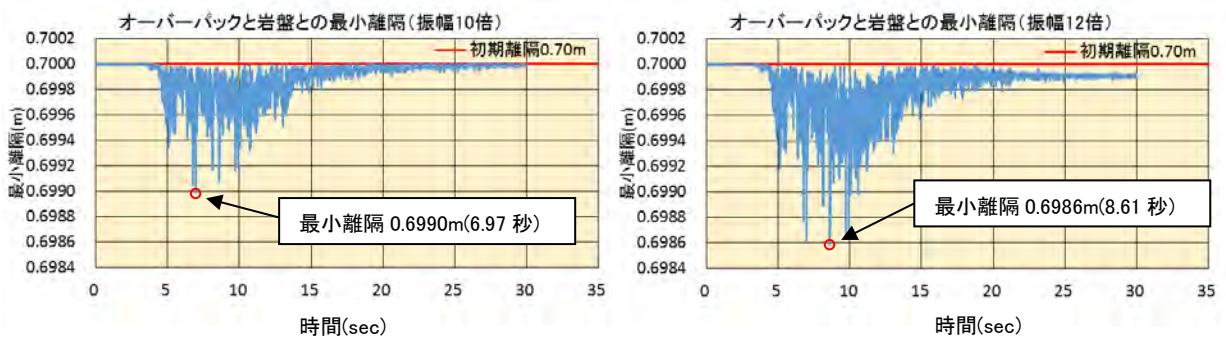


図4.3.2-43 オーバーバックと岩盤の最小離隔の時刻歴

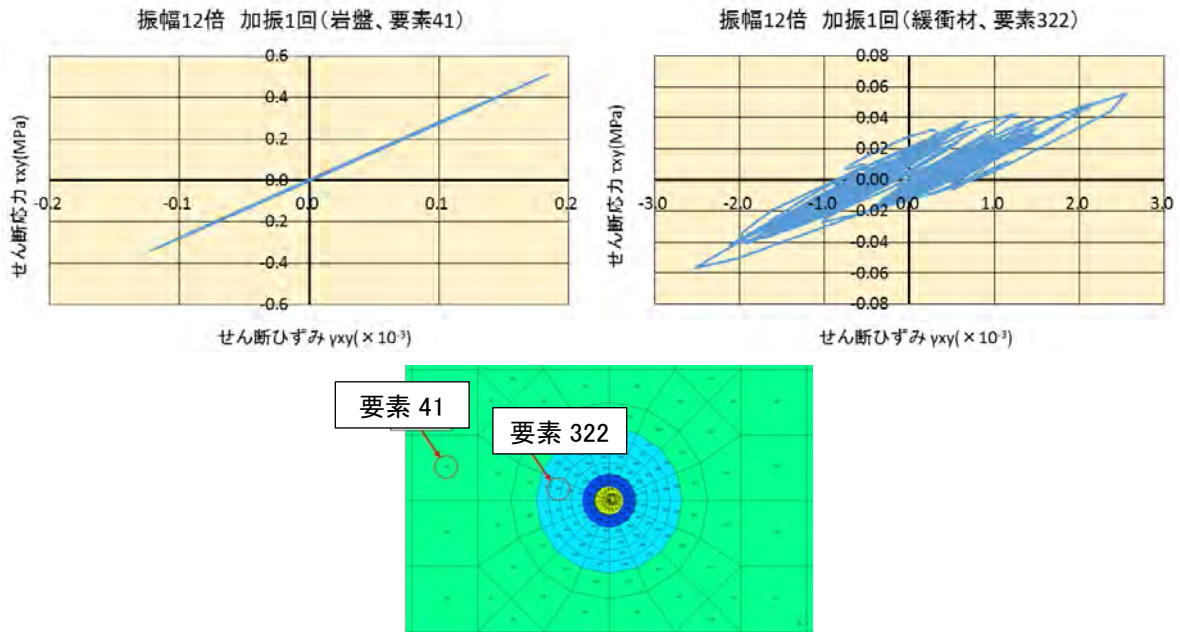


図4.3.2-44 岩盤と緩衝材のせん断ひずみ履歴

b)地震動を係数倍増幅したケース（緩衝材を線形モデルとした場合）

入力地震動の加速度を係数倍した場合におけるオーバーパックと岩盤との離隔について検討を行った。

表4.3.2-20に地震動を係数倍した場合のオーバーパックと岩盤との最小離隔、最大変位を示し、図4.3.2-46に振幅倍率とオーバーパックと岩盤の最小離隔の関係図を示す。なお、ケース9は当初、振幅16,000倍として計算したものの、計算が途中で発散したため振幅倍率15,500倍に変更して計算結果を得た。

逐次積分における時間刻みは0.0001秒で行ったが、緩衝材を線形モデルとした場合は時間刻みを細かくすることで計算の安定性の向上がみられたため、緩衝材を双曲線モデルとした場合（0.01秒）に比べ時間刻みは小さくなっている。

最小離隔は振幅倍率の増加とともに狭まっている。振幅12,000倍まではほぼ同時刻で最小離隔が算定されている。しかし振幅14,000倍以降からは最小離隔の発生時刻が不規則となり、最小離隔が下位の倍率時の増加傾向に比べ変則的な増加傾向となっている。

図4.3.2-47に示す最小離隔の時刻歴をみると、最小離隔の時刻歴をみると振幅倍率14,000倍以上では、下位の倍率における時刻歴に比べ波形が異なっている。このことから振幅倍率14,000倍以上では解析が不安定で解析精度が劣っていると考えられる。

最大変位量は安定した解析を行った振幅倍率12,000倍で47.9cm（最小離隔22.1cm）程度である。振幅倍率12,000倍までの最小離隔の傾向から1次式で近似するとオーバーパックが岩盤に接する振幅倍率は16,000倍程度と推定される（図4.3.2-46）。

緩衝材を線形モデルにすることで非線形モデルとした場合に比べて大きな変位まで解析が可能となり、オーバーパックが岩盤に接する状況が推察される結果を得ることができた。しかし、残留変形が蓄積されるため、極めて保守的な結果であることに留意する必要がある。なお、線形モデルでは、ひずみに依存する非線形特性が考慮できないため、緩衝材のひずみ依存による剛性低

下を概略的に考慮するための方法として等価線形化法の考え方をを用いて検討した。次項c)に検討方法及び検討結果を示す。

表4.3.2-20 地震動を係数倍増幅した場合の最小隔離と最大変位

ケース	地震動の振幅に掛ける倍数	最小隔離 (m)	最大変位 ¹⁾ (m)	時間 ²⁾ (秒)	節点間
1	1倍	0.6999	6.0E-05	6.7714	160 - 156
2	2,000倍	0.582	0.118	6.7751	
3	4,000倍	0.483	0.217	6.9648	
4	6,000倍	0.401	0.299	6.9646	
5	8,000倍	0.332	0.368	6.9644	
6	10,000倍	0.272	0.428	6.9644	
7	12,000倍	0.221	0.479	6.9641	
8	14,000倍	0.144	0.556	5.1519	116 - 78
9	15,500倍	0.113	0.587	5.1515	
10	18,000倍	0.107	0.593	5.1512	125 - 97
11	20,000倍	0.090	0.610	4.9303	

1) 初期隔離 (0.7m) -最小隔離より算定

2) 逐次積分時間刻み0.0001秒にて解析

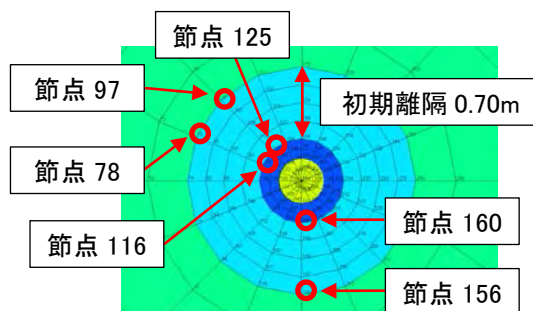


図4.3.2-45 オーバーパック外面と岩盤の節点番号

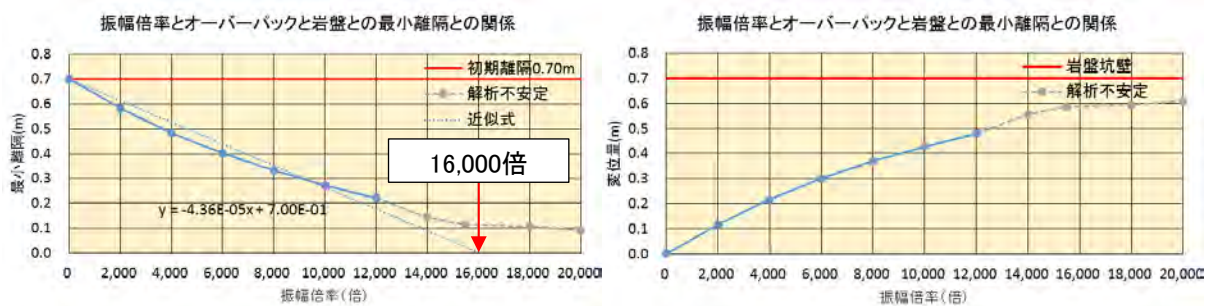


図4.3.2-46 振幅倍率とオーバーパックと岩盤の最小隔離の関係

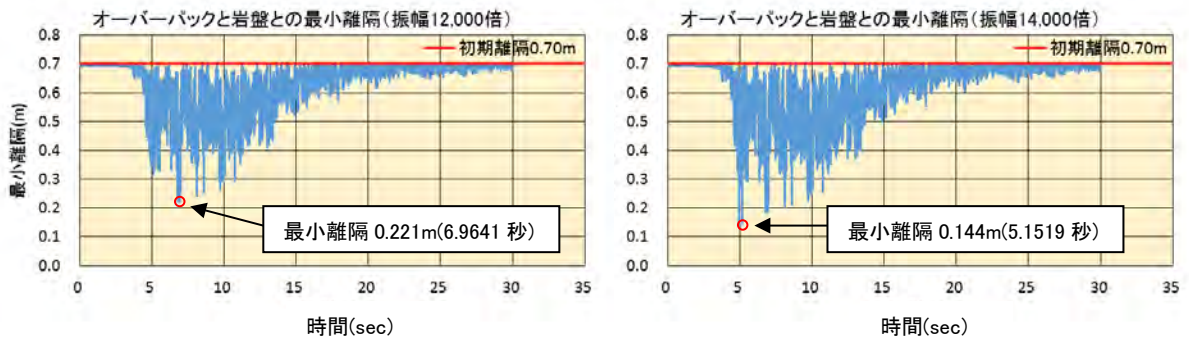


図 4. 3. 2-47 オーバーパックと岩盤の最小隔離の時刻歴

図4. 3. 2-48に岩盤と緩衝材のせん断ひずみ履歴を示す。岩盤と緩衝材のせん断ひずみ履歴をみると、岩盤は剛性が高い線形モデルのため、振幅倍率20, 000倍においても応力-ひずみ関係は比較的線形関係を保っている。一方、同じ線形モデルの緩衝材のせん断ひずみ履歴を見ると、振幅倍率12, 000倍まではひずみ履歴は線形をなし、線形モデルの挙動が確認できるものの、振幅倍率14, 000倍以降は線形関係が崩れ始めている。このことから振幅倍率14, 000倍以上では解析が不安定になっていると思われる。

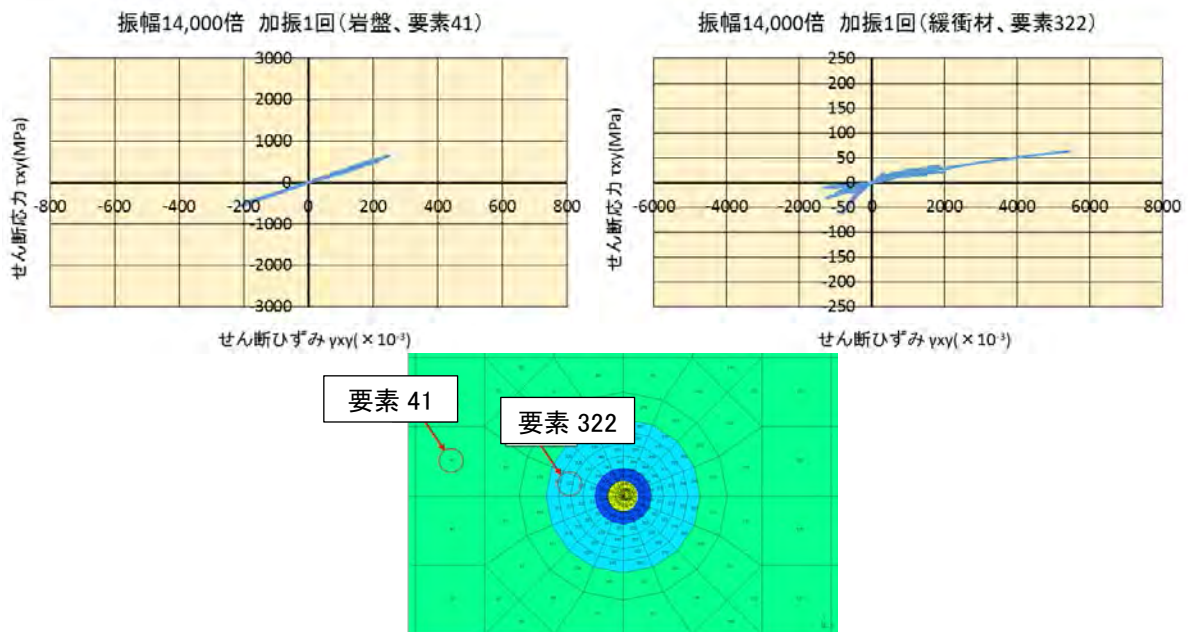


図4. 3. 2-48 岩盤と緩衝材のせん断ひずみ履歴

c) 地震動を繰返し加振したケース（緩衝材の剛性低下を考慮し、線形モデルとした場合）

緩衝材のひずみ依存による剛性低下を考慮した場合のオーバーパックが岩盤に到達するまでに要する地震動の繰返し加振回数について検討を行った。

緩衝材のひずみ依存による剛性低下の方法として等価線形化法の考えを用いた。前項で示した緩衝材のR-0モデルに、初期剛性とした場合の解析で得られた緩衝材のせん断ひずみレベルを適用した場合の等価せん断剛性率を適用した。せん断ひずみレベルは等価線形化法の考え方になら

い、有効ひずみを用いる。有効ひずみは、緩衝材の剛性を初期剛性とした場合に得られた最大せん断ひずみに係数 α を乗じた下式によって求めた。

$$\text{有効ひずみ } \gamma_{\text{eff}} = \alpha \times \gamma_{\text{max}}$$

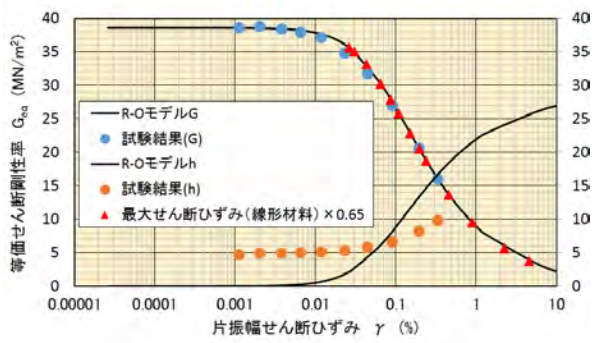
ここに α は調整用のパラメータで、一般に用いられる値である0.65とした。

表4.3.2-21、図4.3.2-49に有効ひずみと低減させた等価せん断剛性率を示す。

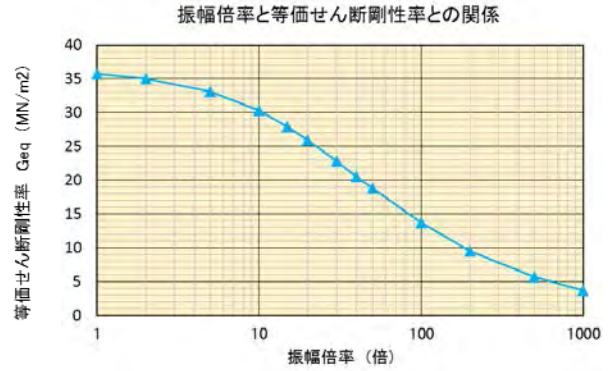
表 4.3.2-21 最大せん断ひずみを考慮したせん断剛性率の設定

振幅倍率	緩衝材（線形） の最大せん断 ひずみ γ_{max} (%) ¹⁾	有効ひずみ $\gamma_{\text{max}} \times \alpha$ ($\alpha = 0.65$)	せん断剛性 G (MN/m ²)	E (kPa)	ヤング率 ²⁾ E (kPa) ($\nu = 0.49$)
1倍	4.013E-02	2.608E-02	35.7	0.925	1.06E+05
2倍	4.676E-02	3.039E-02	35.0	0.908	1.04E+05
5倍	6.666E-02	4.333E-02	33.1	0.859	9.87E+04
10倍	9.985E-02	6.490E-02	30.3	0.785	9.02E+04
15倍	1.331E-01	8.649E-02	27.9	0.723	8.31E+04
20倍	1.663E-01	1.081E-01	25.9	0.671	7.72E+04
30倍	2.328E-01	1.513E-01	22.8	0.592	6.80E+04
40倍	2.995E-01	1.946E-01	20.6	0.533	6.12E+04
50倍	3.662E-01	2.380E-01	18.8	0.487	5.60E+04
100倍	7.011E-01	4.557E-01	13.7	0.355	4.09E+04
200倍	1.377E+00	8.952E-01	9.56	0.248	2.85E+04
500倍	3.448E+00	2.241E+00	5.68	0.147	1.69E+04
1,000倍	6.996E+00	4.548E+00	3.74	0.097	1.12E+04

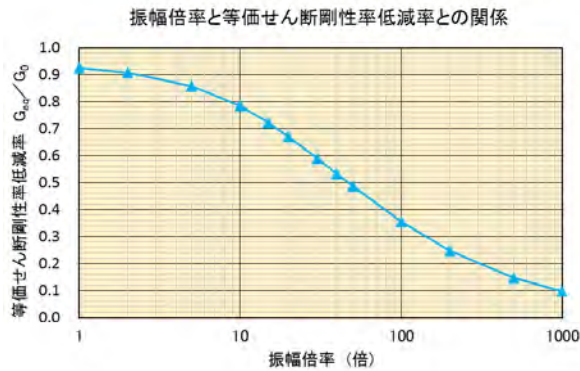
- 1) 緩衝材の剛性を初期剛性（38.6MPa）とした場合のせん断ひずみ τ_{xy} の絶対最大値
- 2) ポアソン比0.49として算出（線形材料のヤング率として）



a) 緩衝材の R-0 モデルにおける有効ひずみ



b) 振幅倍率と剛性低下の関係



c) 振幅倍率と等価せん断剛性低減率の関係

図4. 3. 2-49 有効ひずみを用いた緩衝材の剛性率の低減

表4. 3. 2-22に緩衝材の剛性のひずみ依存性を考慮した場合における地震動の各振幅倍率における最小離隔、最大変位、オーバーパックが岩盤に接するに至る所要加振回数を示す。振幅倍率1倍時では約10,000回、振幅倍率1,000倍時では1.7回程度でオーバーパックが岩盤に接する結果となった。

図4. 3. 2-50に地震動の各増幅倍率におけるオーバーパックが岩盤に接するまでの所要加振回数の低減率及び緩衝材のR-0モデルにおける剛性のひずみ依存特性 (G/G_0) との関係を示す。これを見ると、振幅倍率における所要加振回数の低減傾向と入力した緩衝材の剛性の低減率 (G/G_0) は概ね対応し、緩衝材の材料非線形の特徴を示す結果となった。

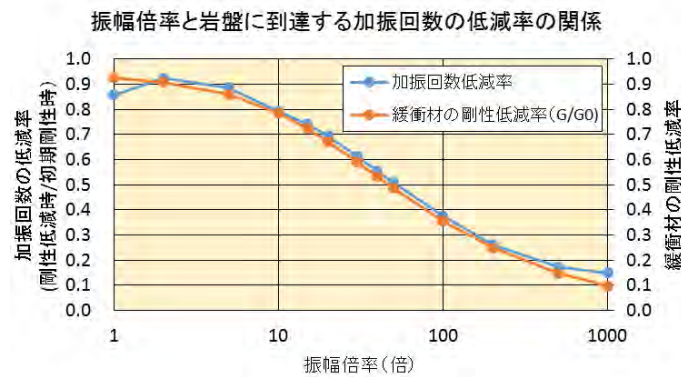


図4. 3. 2-50 加振回数の低減率・緩衝材の剛性低減率の関係

表 4. 3. 2-22 振幅倍率とオーバーパックが岩盤に接するまでに要する加振回数との関係

ケース	地震動の振幅に掛ける倍数	最小離隔 (m)	最大変位 ¹⁾ (m)	時間 ²⁾ (秒)	節点間	岩盤に接するまでの回数 ³⁾
1	1倍	0.6999	7.00E-05	6.7744	160-156	10,000
2	2倍	0.6999	1.30E-04	6.7726	160-156	5,385
3	5倍	0.6997	3.50E-04	6.7742	160-156	2,000
4	10倍	0.6992	7.70E-04	6.7754	160-156	909
5	15倍	0.6988	1.24E-03	6.7753	160-156	565
6	20倍	0.6982	1.77E-03	6.7755	160-156	395
7	30倍	0.6970	3.00E-03	6.9659	160-156	233
8	40倍	0.6956	4.42E-03	6.9659	160-156	158
9	50倍	0.6940	6.02E-03	6.9659	160-156	116
10	100倍	0.6836	1.64E-02	6.9662	160-156	43
11	200倍	0.6532	4.68E-02	6.7750	160-156	15.0
12	500倍	0.5230	1.77E-01	6.9662	160-156	4.0
13	1,000倍	0.2946	4.05E-01	6.7662	160-156	1.7

- 1) 初期隔離 (0.7m) -最小隔離より算定
- 2) 逐次積分時間刻み0.0001秒にて解析
- 3) 初期隔離 (0.7m) を1回加振の最大変位で除した値

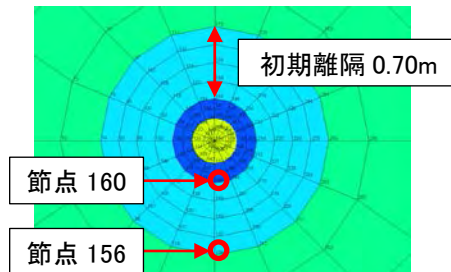


図4. 3. 2-51 オーバーパック外面と岩盤の節点番号

④ 処分施設の振動解析

a. 一次元応答解析

(a) 解析条件等

処分施設の対象を深度延長 500m の立坑とし、図 4.3.2-52 に示す速度モデルに前項②で得られた水平地震動（図 4.3.2-38）を入力した。物性値は、表 4.3.2-23 に示す通り「わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性地層処分研究開発第 2 次取りまとめ - 分冊 2 地層処分の工学技術」（核燃料サイクル開発機構，1999）の「付録 A 岩盤特性の設定」に基づき設定した。解析コードは、SHAKE 相当の成層地盤地震応答解析プログラム「ArkQuake Version 3.08 Lev. 01」（ArkQuake, 2016）を適用した。

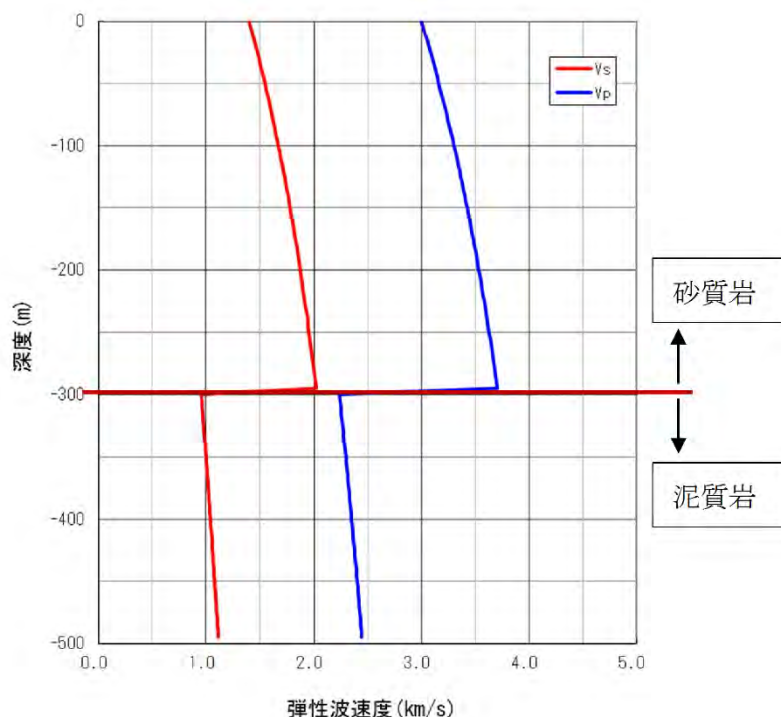


図 4.3.2-52 弾性波速度の深度方向分布

表 4.3.2-23 入力物性値

岩種	深度 (m)	飽和密度 ρ (Mg/m ³)	弾性波速度 (km/s ²)		動せん断剛性 Gd (MPa)	減衰定数 h (%)
			Vp	Vs		
砂質岩	0~300	2.2 ^{※1)}	$3.0+1.3\{1-\exp(-0.00120 \rho h)\}^{※5)}$	$1.4+1.1\{1-\exp(-0.00128 \rho h)\}^{※5)}$	$\rho \cdot V_s^2$ ^{※3)}	2.0 ^{※4)}
泥質岩	300~500		$1.8+1.4\{1-\exp(-0.00057 \rho h)\}^{※2)}$	$0.6+1.0\{1-\exp(-0.00066 \rho h)\}^{※2)}$		

※1)~4)核燃料サイクル開発機構(1999), 5)電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構(2005)

なお、嶋ほか（1983）によれば、砂岩、泥岩及び花崗岩における減衰定数は、おおむね 2%程度であり、ひずみ依存性はほとんどないとされていることから、本解析において、岩盤のひずみ依存性は考慮しないものとした。

(b) 解析結果

一次元応答解析結果のうち、深度方向の相対変位ならびに加速度を表 4.3.2-24 及び表 4.3.2-25、同じく深度方向のせん断ひずみならびにせん断応力度を表 4.3.2-26 及び表 4.3.2-27 に示す。このうち、最大加速度ならびに最大せん断ひずみが得られた深度とその際の相対変位を表 4.3.2-28 に示す。また、最大加速度、最大相対変位、最大せん断ひずみ、及び最大せん断応力度の深度方向分布を図 4.3.2-53 に示す。

表 4.3.2-24 一次元応答解析結果 (最大相対変位、最大加速度)

層上面位置 (m)	相対変位 (cm)	絶対加速度 (gal)	層上面位置 (m)	相対変位 (cm)	絶対加速度 (gal)
0	14.32	1,294.24	-150	13.24	635.71
-5	14.32	1,283.77	-155	13.20	609.84
-10	14.31	1,253.22	-160	13.15	619.32
-15	14.29	1,203.91	-165	13.11	676.15
-20	14.27	1,137.43	-170	13.06	715.44
-25	14.25	1,105.63	-175	13.01	768.56
-30	14.22	965.45	-180	12.96	817.05
-35	14.19	876.11	-185	12.90	851.39
-40	14.15	775.31	-190	12.84	871.20
-45	14.11	664.72	-195	12.78	910.49
-50	14.07	627.43	-200	12.71	947.11
-55	14.03	665.43	-205	12.64	973.29
-60	13.98	711.44	-210	12.56	988.26
-65	19.94	736.66	-215	12.48	991.44
-70	13.90	740.86	-220	12.40	982.52
-75	13.86	745.09	-225	12.32	961.45
-80	13.82	804.33	-230	12.23	928.45
-85	13.78	863.50	-235	12.14	884.02
-90	13.73	907.33	-240	12.05	828.91
-95	13.69	934.98	-245	11.95	764.16
-100	13.65	948.35	-250	11.86	690.97
-105	13.61	942.79	-255	11.76	668.78
-110	13.56	918.58	-260	11.66	659.40
-115	13.52	878.14	-265	11.56	651.62
-120	13.48	825.28	-270	11.47	640.76
-125	13.43	759.61	-275	11.37	624.45
-130	13.39	688.26	-280	11.27	606.17
-135	13.36	676.92	-285	11.18	596.17
-140	13.32	668.36	-290	11.09	593.81
-145	13.28	655.29	-295	10.99	601.23

表 4.3.2-25 一次元応答解析結果 (最大相対変位、最大加速度)

層上面位置 (m)	相対変位 (cm)	絶対加速度 (gal)	層上面位置 (m)	相対変位 (cm)	絶対加速度 (gal)
-300	10.91	621.83	-450	2.79	1,474.65
-305	10.52	834.25	-455	2.48	1,519.72
-310	10.16	990.98	-460	2.22	1,532.88
-315	9.96	1,291.59	-465	1.96	1,504.84
-320	9.74	1,467.34	-470	1.68	1,435.18
-325	9.52	1,501.75	-475	1.40	1,325.40
-330	9.30	1,464.47	-480	1.12	1,354.69
-335	9.07	1,402.83	-485	0.84	1,422.90
-340	8.84	1,263.16	-490	0.56	1,437.38
-345	8.60	1,179.90	-495	0.28	1,394.29
-350	8.35	1,180.51	-500	0.00	1,330.55
-355	8.11	1,156.02			
-360	7.86	1,094.20			
-365	7.62	1,160.38			
-370	7.37	1,269.39			
-375	7.13	1,348.76			
-380	6.88	1,393.73			
-385	6.63	1,422.59			
-390	6.36	1,411.37			
-395	6.09	1,358.10			
-400	5.80	1,321.16			
-405	5.52	1,283.89			
-410	5.23	1,186.57			
-415	4.93	1,176.83			
-420	4.64	1,123.05			
-425	4.33	1,020.26			
-430	4.03	1,067.69			
-435	3.72	1,142.57			
-440	3.41	1,280.25			
-445	3.10	1,393.92			

表 4.3.2-26 一次元応答解析結果 (最大せん断ひずみ、最大せん断応力度)

層中心位置 (m)	せん断ひずみ (%)	せん断応力度 (MPa)	層中心位置 (m)	せん断ひずみ (%)	せん断応力度 (MPa)
-2.5	1.63×10^{-3}	0.07	-152.5	1.88×10^{-2}	1.29
-7.5	4.77×10^{-3}	0.21	-157.5	1.89×10^{-2}	1.31
-12.5	7.71×10^{-3}	0.34	-162.5	1.88×10^{-2}	1.32
-17.5	1.04×10^{-2}	0.47	-167.5	1.86×10^{-2}	1.32
-22.5	1.29×10^{-2}	0.60	-172.5	1.86×10^{-2}	1.33
-27.5	1.50×10^{-2}	0.71	-177.5	1.89×10^{-2}	1.37
-32.5	1.69×10^{-2}	0.81	-182.5	1.92×10^{-2}	1.40
-37.5	1.85×10^{-2}	0.91	-187.5	1.93×10^{-2}	1.43
-42.5	1.97×10^{-2}	0.99	-192.5	1.94×10^{-2}	1.45
-47.5	2.07×10^{-2}	1.06	-197.5	1.94×10^{-2}	1.46
-52.5	2.14×10^{-2}	1.11	-202.5	1.94×10^{-2}	1.47
-57.5	2.18×10^{-2}	1.15	-207.5	1.92×10^{-2}	1.48
-62.5	2.19×10^{-2}	1.18	-212.5	1.91×10^{-2}	1.48
-67.5	2.18×10^{-2}	1.19	-217.5	1.89×10^{-2}	1.48
-72.5	2.15×10^{-2}	1.19	-222.5	1.87×10^{-2}	1.48
-77.5	2.10×10^{-2}	1.18	-227.5	1.88×10^{-2}	1.50
-82.5	2.04×10^{-2}	1.17	-232.5	1.89×10^{-2}	1.51
-87.5	1.96×10^{-2}	1.14	-237.5	1.89×10^{-2}	1.53
-92.5	1.88×10^{-2}	1.11	-242.5	1.89×10^{-2}	1.54
-97.5	1.78×10^{-2}	1.06	-247.5	1.92×10^{-2}	1.58
-102.5	1.83×10^{-2}	1.11	-252.5	1.95×10^{-2}	1.62
-107.5	1.87×10^{-2}	1.15	-257.5	1.97×10^{-2}	1.64
-112.5	1.90×10^{-2}	1.18	-262.5	1.98×10^{-2}	1.67
-117.5	1.92×10^{-2}	1.21	-267.5	1.99×10^{-2}	1.68
-122.5	1.93×10^{-2}	1.23	-272.5	1.99×10^{-2}	1.69
-127.5	1.94×10^{-2}	1.25	-277.5	1.98×10^{-2}	1.70
-132.5	1.93×10^{-2}	1.26	-282.5	1.96×10^{-2}	1.70
-137.5	1.92×10^{-2}	1.27	-287.5	1.94×10^{-2}	1.69
-142.5	1.90×10^{-2}	1.28	-292.5	1.92×10^{-2}	1.68
-147.5	1.88×10^{-2}	1.28	-297.5	1.90×10^{-2}	1.68

表 4.3.2-27 一次元応答解析結果 (最大せん断ひずみ、最大せん断応力度)

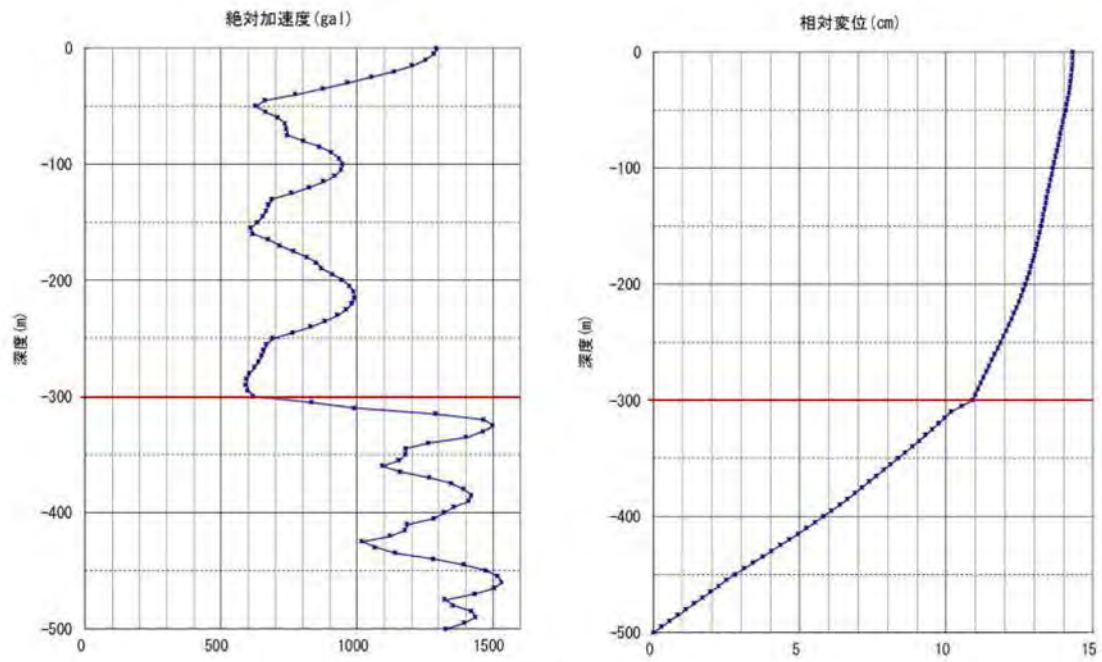
層中心位置 (m)	せん断ひずみ (%)	せん断応力度 (MPa)	層中心位置 (m)	せん断ひずみ (%)	せん断応力度 (MPa)
-302.5	8.47×10^{-2}	1.67	-452.5	6.38×10^{-2}	1.61
-307.5	8.25×10^{-2}	1.64	-457.5	6.32×10^{-2}	1.61
-312.5	7.97×10^{-2}	1.60	-462.5	6.20×10^{-2}	1.59
-317.5	7.63×10^{-2}	1.55	-467.5	6.02×10^{-2}	1.55
-322.5	7.25×10^{-2}	1.48	-472.5	5.81×10^{-2}	1.51
-327.5	7.11×10^{-2}	1.47	-477.5	5.70×10^{-2}	1.49
-332.5	7.15×10^{-2}	1.49	-482.5	5.72×10^{-2}	1.50
-337.5	7.17×10^{-2}	1.51	-487.5	5.67×10^{-2}	1.50
-342.5	7.32×10^{-2}	1.55	-492.5	5.61×10^{-2}	1.49
-347.5	7.37×10^{-2}	1.58	-497.5	5.52×10^{-2}	1.48
-352.5	7.33×10^{-2}	1.58			
-357.5	7.22×10^{-2}	1.57			
-362.5	7.07×10^{-2}	1.55			
-367.5	6.99×10^{-2}	1.55			
-372.5	7.06×10^{-2}	1.58			
-377.5	7.09×10^{-2}	1.60			
-382.5	7.06×10^{-2}	1.60			
-387.5	6.96×10^{-2}	1.59			
-392.5	6.78×10^{-2}	1.56			
-397.5	6.56×10^{-2}	1.53			
-402.5	6.31×10^{-2}	1.48			
-407.5	6.12×10^{-2}	1.45			
-412.5	6.21×10^{-2}	1.48			
-417.5	6.25×10^{-2}	1.50			
-422.5	6.23×10^{-2}	1.50			
-427.5	6.20×10^{-2}	1.51			
-432.5	6.16×10^{-2}	1.51			
-437.5	6.23×10^{-2}	1.54			
-442.5	6.33×10^{-2}	1.57			
-447.5	6.38×10^{-2}	1.60			

表 4.3.2-28 最大せん断ひずみ最大絶対加速度及び最大相対変位

イベント	深度 (m)	相対変位 (cm)	絶対加速度 (gal)	せん断ひずみ (%)
最大せん断ひずみ発生	302.5	10.91	621.83	8.466×10^{-2}
最大絶対加速度発生	460.0	2.22	1532.88	6.200×10^{-2}
最大相対変位発生	0.0	14.32	1294.24	1.634×10^{-3}

(c) 考察

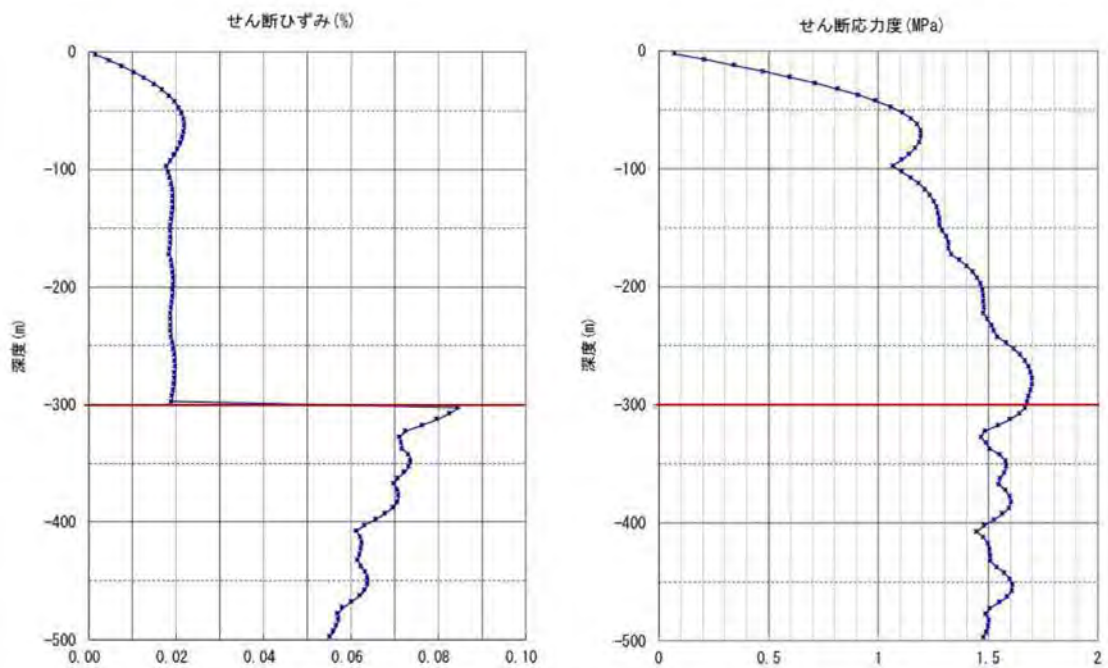
本件において想定している地層構成は深度 300mを境目に、それ以深は S 波速度の小さい泥岩となっているため、深度 300m以深の絶対加速度やせん断ひずみの最大応答値が大きくなり、深度 300m以浅の絶対加速度やせん断ひずみの最大応答値が小さくなっている。



(層上面位置で描画)

絶対加速度の最大値 (gal)

相対変位の最大値 (cm)



(層中心位置で描画)

せん断ひずみの最大値 (%)

せん断応力度の最大値 (MPa)

図 4.3.2-53 一次元応答解析結果

b. 二次元震度法による地震応答解析

立坑周辺地盤の累積損傷を表現するため、モール・クーロンの破壊を考慮したモデルを用い、前項 a. で求められた加速度を繰り返し作用させ、長期間における周辺地盤の損傷による影響評価を行った。

解析条件は、堆積軟岩を対象に立坑延長 500m のうち、評価対象とする立坑の二次元水平断面を 5 箇所設定し、一次元応答解析で算定された加速度を作用させた。この加速度は長期を想定し、複数回作用させるものとし、周辺岩盤は、完全弾塑性体としてモール・クーロンによる破壊を考慮した。さらに覆工コンクリートは長期を想定し、剛性低下を考慮した。

(a) 立坑仕様

立坑の仕様を図 4.3.2-54 に示す。

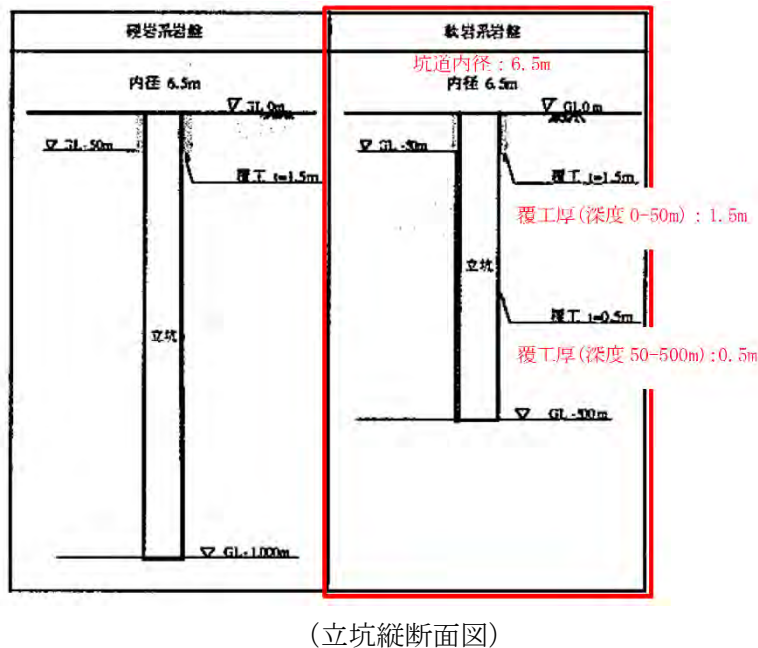
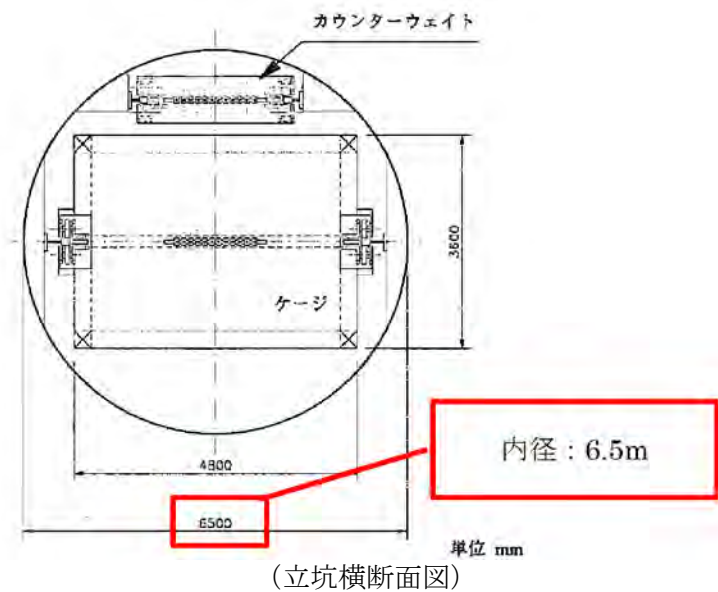


図 4.3.2-54 立坑仕様

(b) 評価対象断面

一次元応答解析結果及び施設の設置条件を考慮し、二次元解析の評価対象断面として表 4.3.2-29 に示す検討ケースを設定した。

表 4.3.2-29 評価対象断面（検討ケース）一覧

ケース No.	深度 (m)	一次元解析モデル 層番号 i	検討要因
1	2.5	1	表層
2	72.5	15	砂質岩 せん断ひずみ最大
3	302.5	61	せん断ひずみ最大
4	457.5	92	泥質岩 せん断応力度最大
5	492.5	99	処分深度(500m)直近

(c) 入力物性値

・岩盤

岩盤は、完全弾塑性モデルとし、モール・クーロンの破壊基準を適用した。入力物性値を表 4.3.2-30 に示す。

表 4.3.2-30 岩盤の入力物性値

項目	記号	単位	物性値
飽和密度	ρ	Mg/m ³	2.20
弾性係数	E	MPa	3500
ポアソン比	ν	—	0.30
粘着力	c	MPa	92
内部摩擦角	ϕ	degree	99

核燃料サイクル機構(1999)

・覆工コンクリート

覆工コンクリートは、長期の供用を想定し、剛性低下を考慮した。覆工コンクリートの入力物性値を表 4.3.2-31 に示す。

なお、剛性低下については、「TRU 廃棄物処分技術検討書—第 2 次 TRU 廃棄物処分研究開発取りまとめ—」の「3.3.2 ニアフィールドの長期力学的安定性に及ぼす影響の評価」p.3-55 「e. セメント系材料の力学特性」より、カルシウム溶出割合と弾性係数の関係を用いて評価を行った。また、カルシウム溶出割合は「TRU 廃棄物地層処分施設の力学挙動解析

コード(MACBECE)の開発」(日本原子力研究開発機構, 2010) p. 71 より、カルシウム溶出割合が1 となるのは10 万年後とし、その間のカルシウム溶出割合は線形的に変化するものとした。これらに基づき、経過年と弾性係数の関係を設定した。経過年と弾性係数の関係を図4.3.2-55 に示す。

表 4.3.2-31 覆工コンクリートの入力物性値

項目	記号	単位	物性値
単位体積重量	γ_c	KN/m ³	24.10
ヤング率	E_c	MPa	3.04×10^4
ポアソン比	ν_c	—	0.20

※5) 日本原子力研究開発機構(2016)

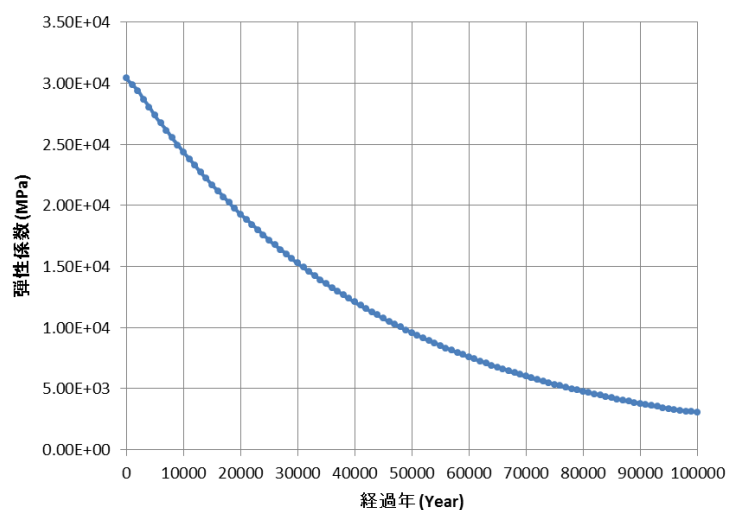


図 4.3.2-55 覆工コンクリートの経過年と弾性係数

(d) 解析モデル

a) 解析モデルの概要

二次元解析のモデル化概要を図 4.3.2-56 に示す。最初に選定した地層 i に対して、高さ ΔH_i の薄層を抽出してモデル化する。次に地層 i における一次元地震応答解析結果 τ_i を作用外力とし、薄層の頂面に作用させる。このとき薄層の底面を固定すれば、薄層のひずみは一次元地震応答ひずみと同じとなり、ファーフィールドの一次元地震時の応力-ひずみ状況を再現することとなる。最後に、立坑と地盤を入れた全体モデル（高さ ΔH_i で底面固定の薄層）に τ_i を作用させ、立坑と地盤の相互作用による周辺岩盤（ニアフィールド）への影響を把握する。

二次元解析のモデル範囲は、端部境界条件の影響を除くため、内径 $\phi 6.5\text{m}$ に対して立坑外形から概ね 10ϕ 程度（ 69.75m ）とした。また、岩盤、立坑（覆工コンクリート）及び埋戻し材は厚さ $\Delta H=0.50\text{m}$ のソリッド要素でモデル化した。なお、解析モデルは覆工厚が変化する深度 50m を境に別モデルとした。この解析モデルのメッシュ分割を図 4.3.2-57 に示す。

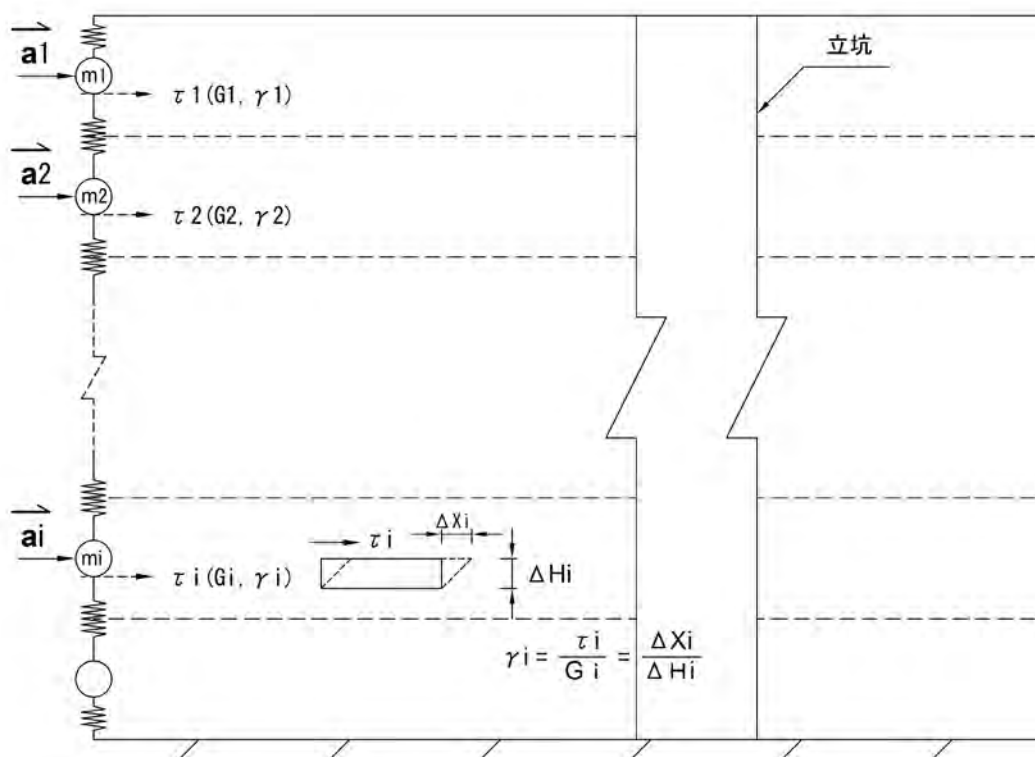
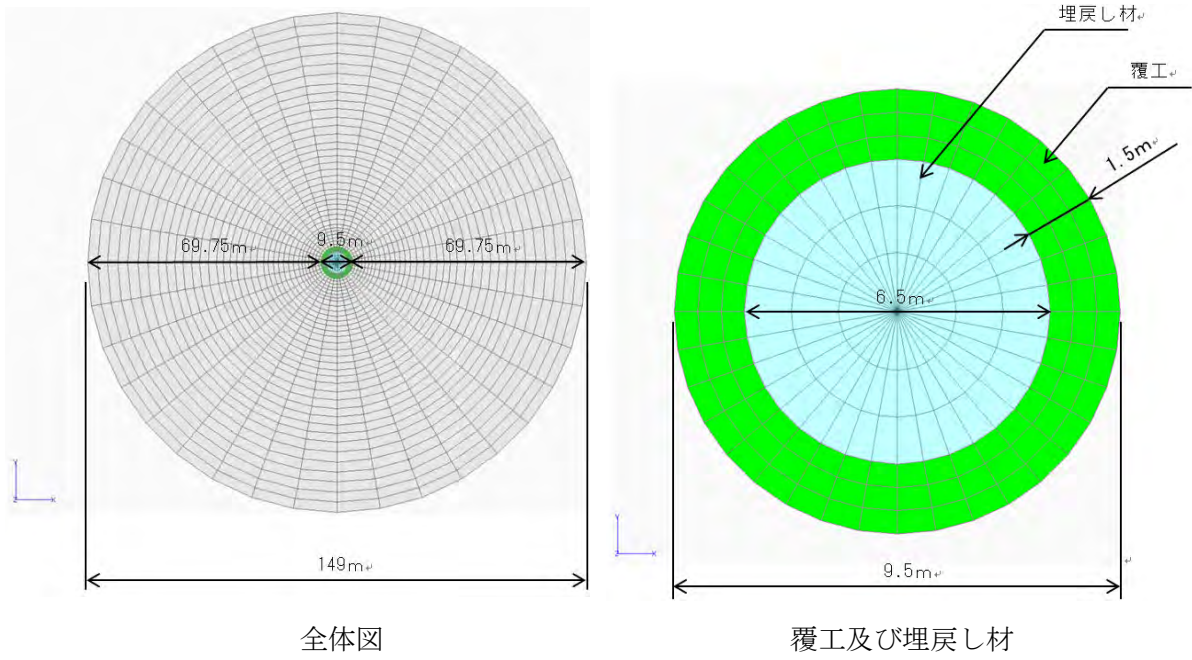
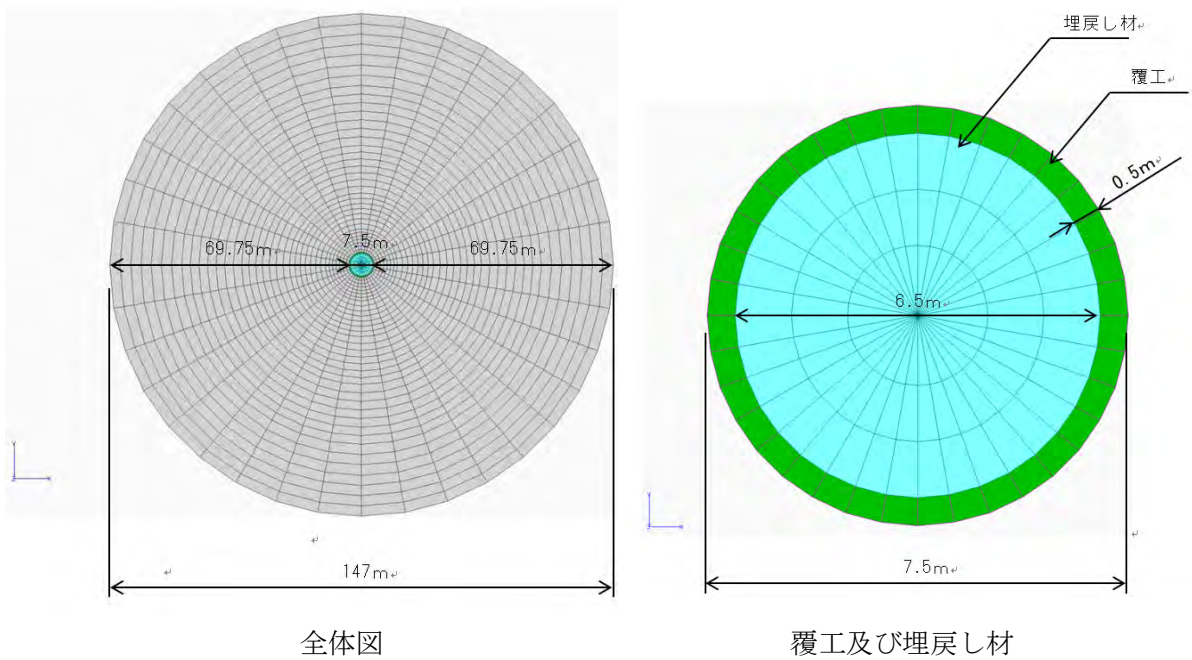


図 4.3.2-56 二次元解析モデル：モデル化概要図



深度50m以浅の解析モデル



深度50m以深の解析モデル

図 4.3.2-57 二次元解析モデル：メッシュ図

b) 境界条件

境界条件を図 4.3.2-59 に示す。

・荷重条件

岩盤に作用する荷重は、一次元解析結果より得られた評価対象断面位置におけるせん断応力 τ を適用した。また、大規模地震の発生頻度を 5 千年に 1 回と仮定し、10 万年を目標として 10 万年 / (5 千年 / 1 ステップ) = 20 ステップ で荷重を作用させた。

なお、1 ステップ当たりの载荷サイクルは図 4.3.2-58 の模式図に示す通り、水平地震動の振幅を表現するため、①解析モデル X 軸の正方向に载荷 → ②除荷 → ③解析モデル X 軸の負方向に载荷 → ④除荷 とした。

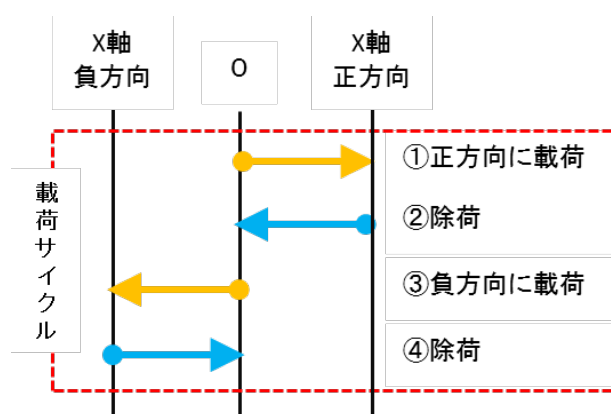


図 4.3.2-58 大規模地震 1 回あたりの载荷サイクル模式図

・接触条件

岩盤と立坑の覆工の間には接触条件を設ける。すなわち、岩盤の引張抵抗を考慮せず、岩盤が立坑から離れる方向へ変形した場合は、立坑との間に隙間が生じものとし、岩盤が立坑と接触した場合は、その接触剛性が無限大（剛結合）とした。

・拘束条件

解析においては、ソリッド要素の底面節点を完全固定とする。せん断応力 τ に相当する水平力をソリッド要素の頂面節点に作用し、せん断変形を引き起こさせる設定とした。図 4.3.2-59 に境界条件の模式図を示す。

(e) 解析コード

本解析には、三次元 FEM 非線形解析プログラムの Abaqus 6.11 (Dassault Systemes S.A.) を適用した。

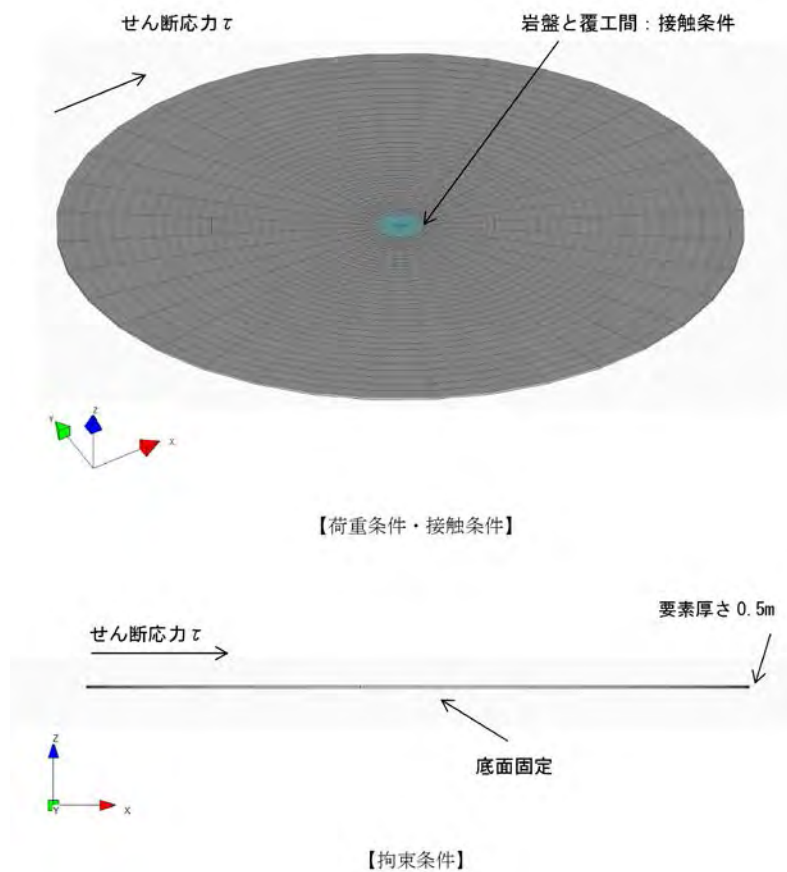


図 4.3.2-59 境界条件

c. 解析結果

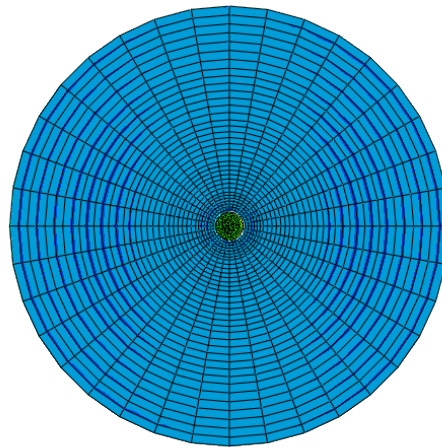
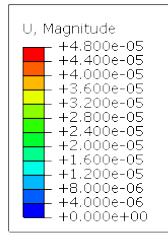
表 4.3.2-29 に示した各ケースの解析結果における岩盤の変形、岩盤の最大主ひずみ、岩盤の最小主ひずみ、岩盤のせん断ひずみ、岩盤の塑性化領域並びに立坑との間隙の形成状況についてとりまとめた。

以下に各ケースにおける各計算ステップの最終サイクル（図 4.3.2-58, ③負方向に载荷）の結果を示す。

(a) ケース 1 (表層 : 深度 2.5m)

解析の結果、立坑周辺に生じたせん断ひずみは、最大 1.94×10^{-5} 程度で塑性化には至らなかった。表層 (深度 2.5m) における 10 万年後を模した最終ステップにおける立坑並びに周辺岩盤の変形を図 4.3.2-60、岩盤の最大主ひずみ、最小主ひずみコンター並びに岩盤のせん断ひずみコンターを図 4.3.2-61、図 4.3.2-62 及び図 4.3.2-63 に水平断面図として示す。

また、最終ステップにおける岩盤の塑性領域・立坑との間隙分布を図 4.3.2-64 に示した。載荷過程中において、岩盤と立坑の間に最大 0.02mm の間隙が生じたが、塑性化していなかったため、除荷後に間隙は 0mm となった。

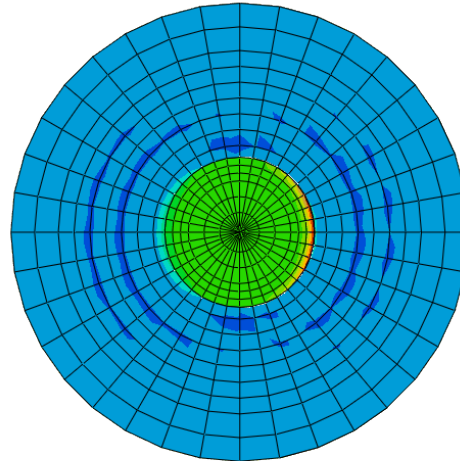
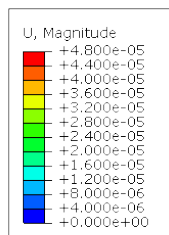


ODB: 2.5m.odb Abaqus/Standard 6.11-1 Wed Jan 25 10:30:59 GMT+08:00 2017

Y ↑

Step: Step-20-X-
 Increment 200: Step Time = 1.000
 Primary Var: U, Magnitude
 Deformed Var: U Deformation Scale Factor: +1.000e+03

解析モデル全体



ODB: 2.5m.odb Abaqus/Standard 6.11-1 Wed Jan 25 10:30:59 GMT+08:00 2017

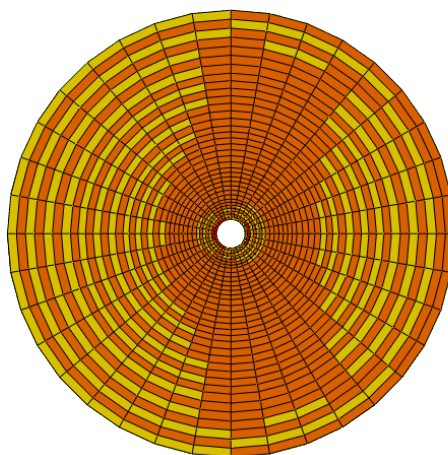
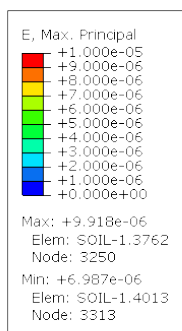
Y ↑

Step: Step-20-X-
 Increment 200: Step Time = 1.000
 Primary Var: U, Magnitude
 Deformed Var: U Deformation Scale Factor: +1.000e+03

立坑周辺拡大

(単位 : m)

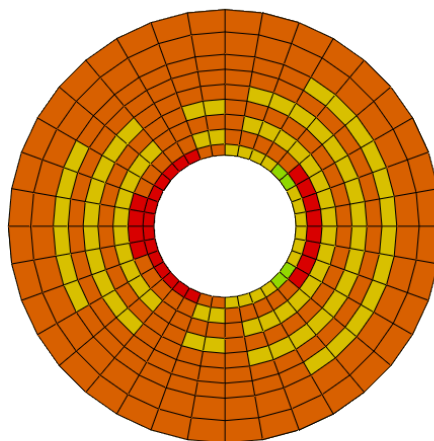
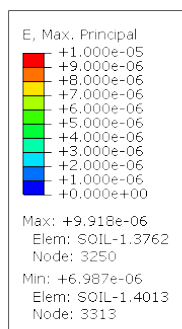
図 4.3.2-60 ケース 1 変形図[深度 2.5m]
 (step20 (10 万年経過) , 変形拡大倍率 : 10,000 倍)



Y ODB: 2.5m.odb Abaqus/Standard 6.11-1 Wed Jan 25 10:30:59 GMT+08:00 2017

Step: Step-20-X-
Increment: 200; Step Time = 1.000
Primary Var: E, Max. Principal
Deformed Var: U Deformation Scale Factor: +1.000e+03

解析モデル全体

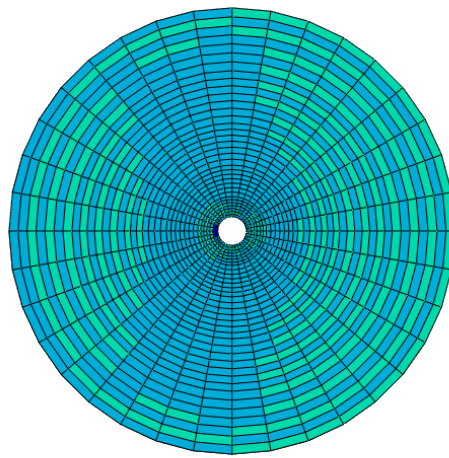
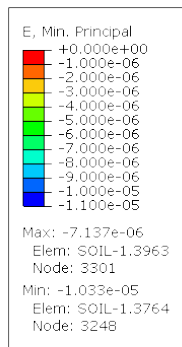


Y ODB: 2.5m.odb Abaqus/Standard 6.11-1 Wed Jan 25 10:30:59 GMT+08:00 2017

Step: Step-20-X-
Increment: 200; Step Time = 1.000
Primary Var: E, Max. Principal
Deformed Var: U Deformation Scale Factor: +1.000e+03

立坑周辺拡大

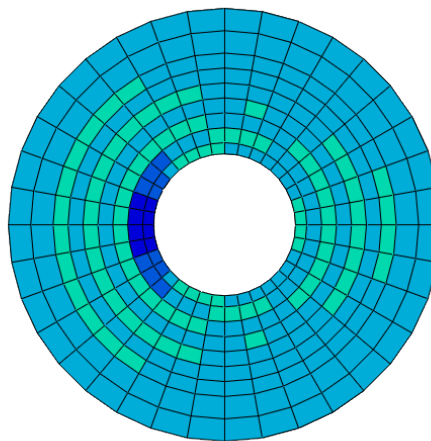
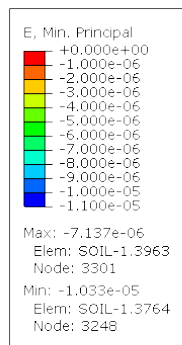
図 4.3.2-61 ケース 1 岩盤の最大主ひずみコンター図[深度 2.5m]
(step20 (10 万年経過) , 変形拡大倍率 : 1,000 倍)



Y ODB: 2.5m.odb Abaqus/Standard 6.11-1 Wed Jan 25 10:30:59 GMT+08:00 2017

Step: Step-20-X-
Increment: 200; Step Time = 1.000
Primary Var: E, Min. Principal
Deformed Var: U Deformation Scale Factor: +1.000e+03

解析モデル全体

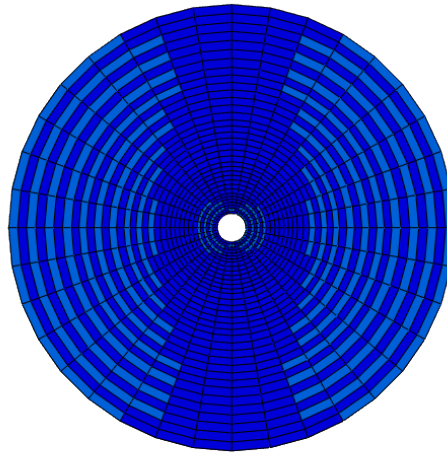
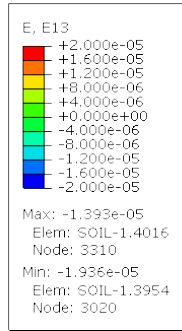


Y ODB: 2.5m.odb Abaqus/Standard 6.11-1 Wed Jan 25 10:30:59 GMT+08:00 2017

Step: Step-20-X-
Increment: 200; Step Time = 1.000
Primary Var: E, Min. Principal
Deformed Var: U Deformation Scale Factor: +1.000e+03

立坑周辺拡大

図 4.3.2-62 ケース 1 岩盤の最小主ひずみコンター図[深度 2.5m]
(step20 (10 万年経過) , 変形拡大倍率 : 1,000 倍)

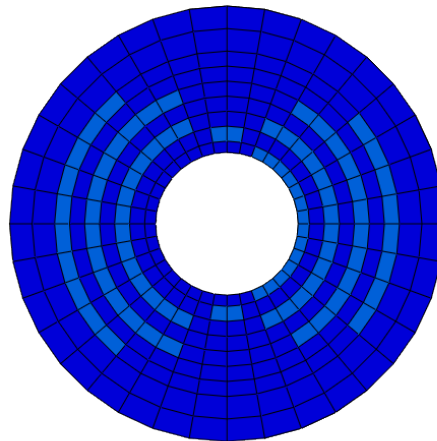
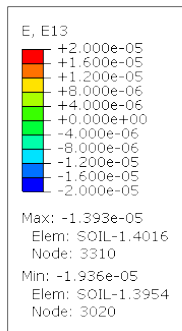


ODB: 2.5m.odb Abaqus/Standard 6.11-1 Wed Jan 25 10:30:59 GMT+08:00 2017

Y ↑

Step: Step-20-X-
Increment: 200; Step Time = 1.000
Primary Var: E, E13
Deformed Var: U Deformation Scale Factor: +1.000e+03

解析モデル全体



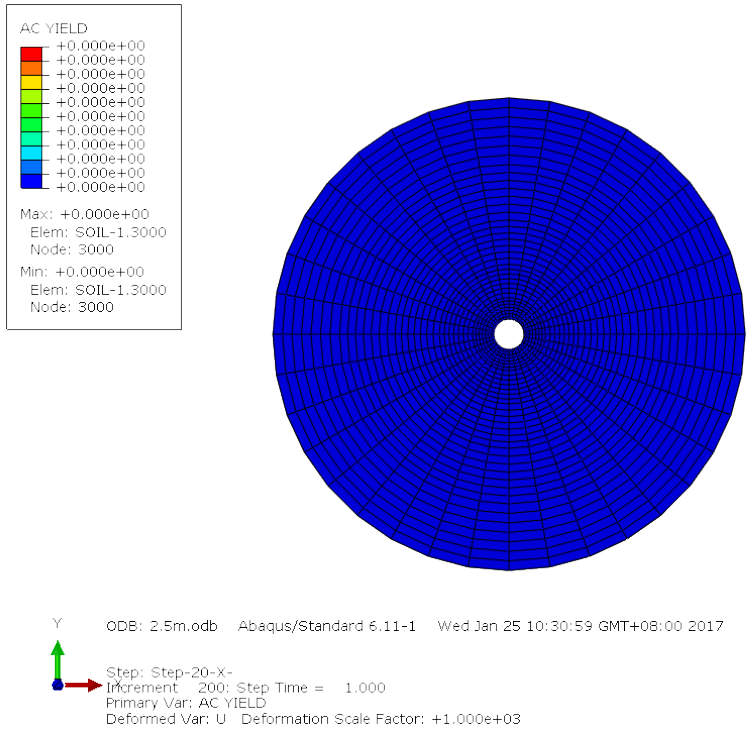
ODB: 2.5m.odb Abaqus/Standard 6.11-1 Wed Jan 25 10:30:59 GMT+08:00 2017

Y ↑

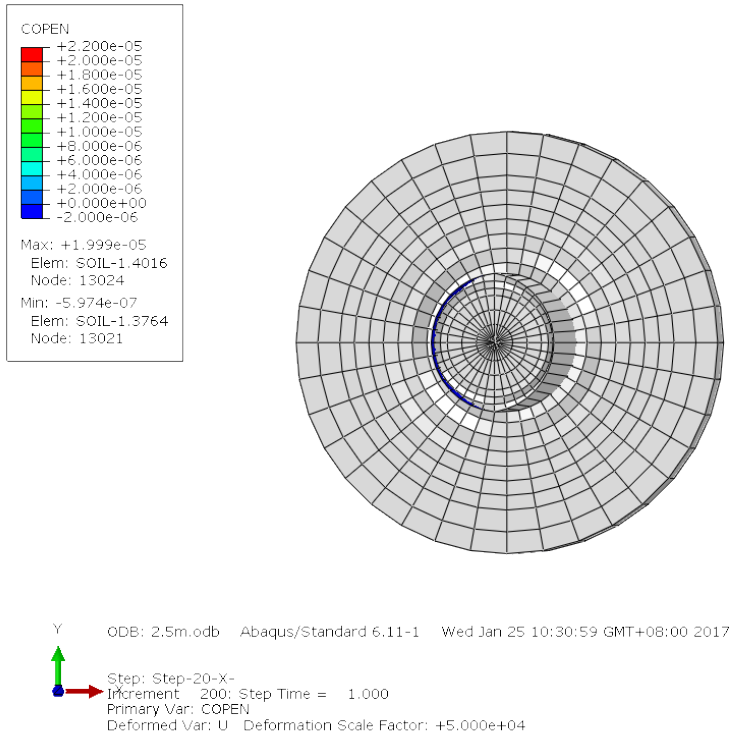
Step: Step-20-X-
Increment: 200; Step Time = 1.000
Primary Var: E, E13
Deformed Var: U Deformation Scale Factor: +1.000e+03

立坑周辺拡大

図 4.3.2-63 ケース 1 岩盤のせん断ひずみコンター図[深度 2.5m]
(step20 (10 万年経過) , 変形拡大倍率 : 1,000 倍)



塑性化領域



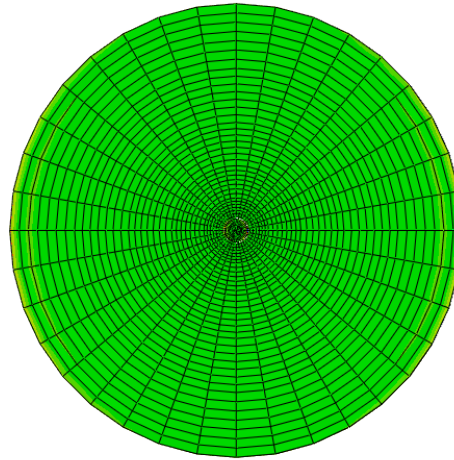
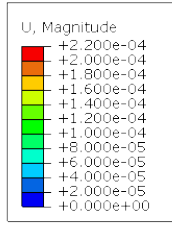
岩盤と立坑の間隙 (単位：m)

図 4.3.2-64 ケース 1 岩盤の塑性化領域・立坑との間隙分布図[深度 2.5m]
(step20 (10 万年経過) , 変形拡大倍率 : 50,000 倍)

(b) ケース 2 (砂質岩せん断ひずみ最大：深度 72.5m)

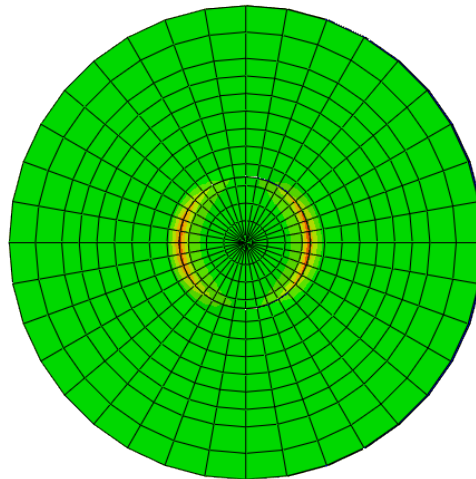
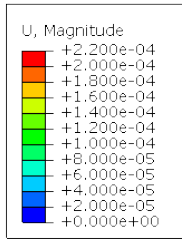
解析の結果、立坑周辺に生じたせん断ひずみは、最大 2.39×10^{-5} 程度で塑性化には至らなかった。砂質岩におけるせん断ひずみ最大箇所（深度 72.5m）における 10 万年後を模した最終ステップにおける立坑並びに周辺岩盤の変形を図 4.3.2-65、岩盤の最大主ひずみ、最小主ひずみコンター並びに岩盤のせん断ひずみコンターを図 4.3.2-66、図 4.3.2-67 及び図 4.3.2-68 に水平断面図として示す。

また、最終ステップにおける岩盤の塑性領域・立坑との間隙分布を図 4.3.2-69 に示したが、載荷過程中において、岩盤と立坑の間に最大 0.06mm の間隙が生じたが、塑性化していなかったため、除荷後に間隙は 0mm となった。



Y ODB: 72.5m.odb Abaqus/Standard 6.11-1 Wed Jan 25 10:39:24 GMT+08:00 2017
 Step: Step-20-X-
 Increment: 200; Step Time = 1.000
 Primary Var: U, Magnitude
 Deformed Var: U Deformation Scale Factor: +1.000e+03

解析モデル全体

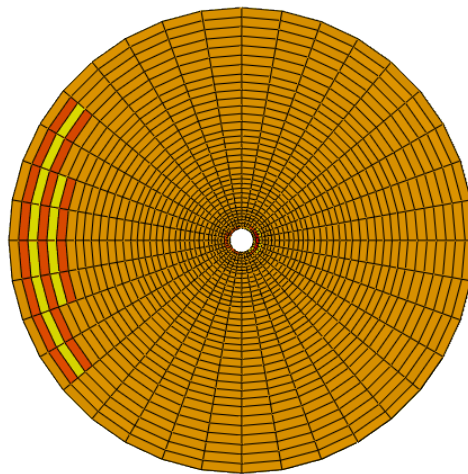
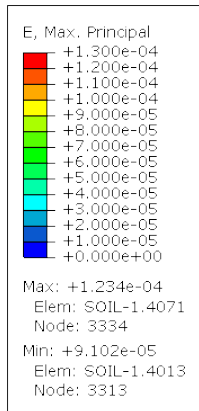


Y ODB: 72.5m.odb Abaqus/Standard 6.11-1 Wed Jan 25 10:39:24 GMT+08:00 2017
 Step: Step-20-X-
 Increment: 200; Step Time = 1.000
 Primary Var: U, Magnitude
 Deformed Var: U Deformation Scale Factor: +1.000e+03

立坑周辺拡大

(単位 : m)

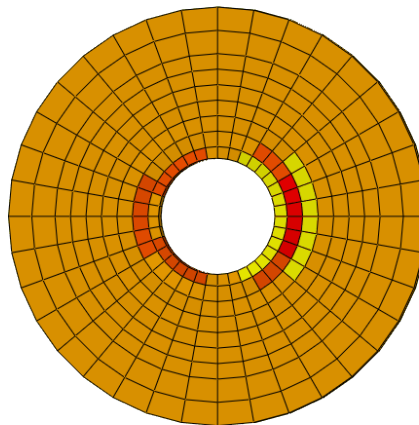
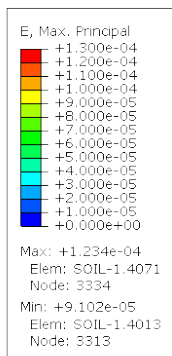
図 4.3.2-65 ケース 2 変形図[深度 72.5m]
 (step20 (10 万年経過) , 変形拡大倍率 : 1,000 倍)



Y ODB: 72.5m.odb Abaqus/Standard 6.11-1 Wed Jan 25 10:39:24 GMT+08:00 2017

Step: Step-20-X-
Increment: 200; Step Time = 1.000
Primary Var: E, Max. Principal
Deformed Var: U; Deformation Scale Factor: +1.000e+03

解析モデル全体

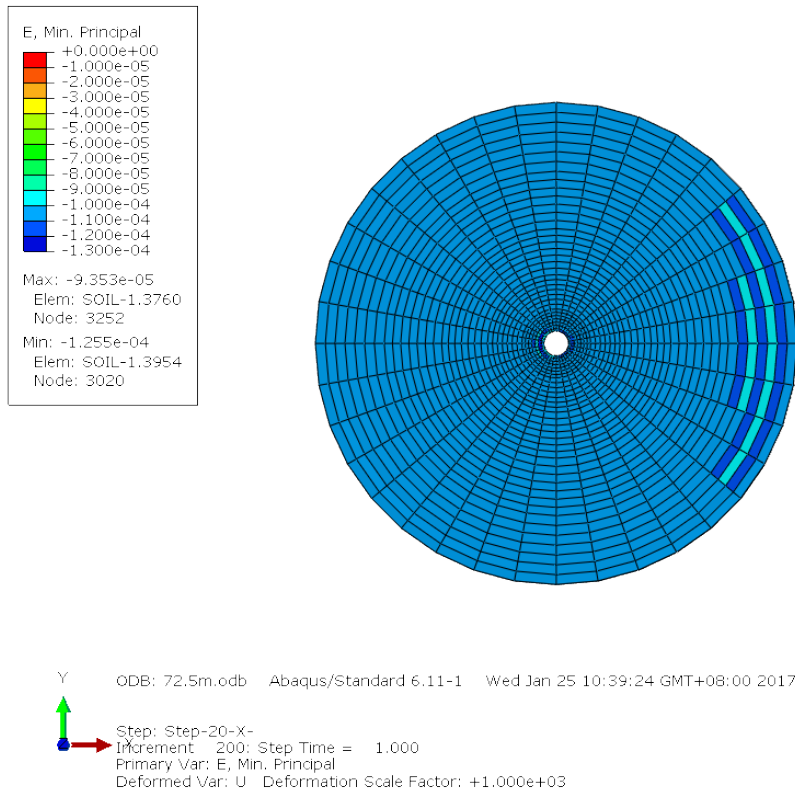


Y ODB: 72.5m.odb Abaqus/Standard 6.11-1 Wed Jan 25 10:39:24 GMT+08:00 2017

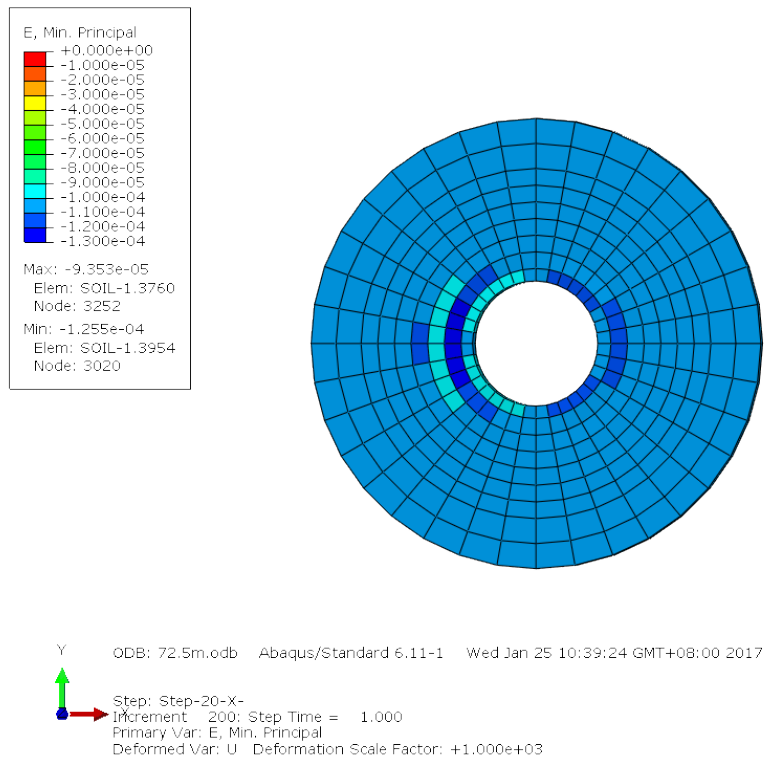
Step: Step-20-X-
Increment: 200; Step Time = 1.000
Primary Var: E, Max. Principal
Deformed Var: U; Deformation Scale Factor: +1.000e+03

立坑周辺拡大

図 4.3.2-66 ケース 2 岩盤の最大主ひずみコンター図[深度 72.5m]
(step20 (10 万年経過) , 変形拡大倍率 : 1,000 倍)

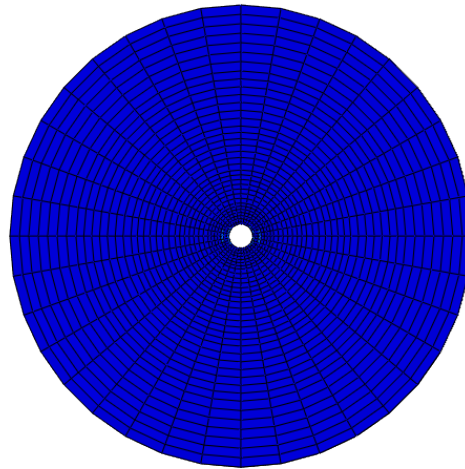
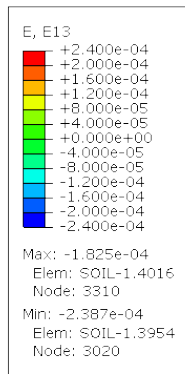


解析モデル全体



立坑周辺拡大

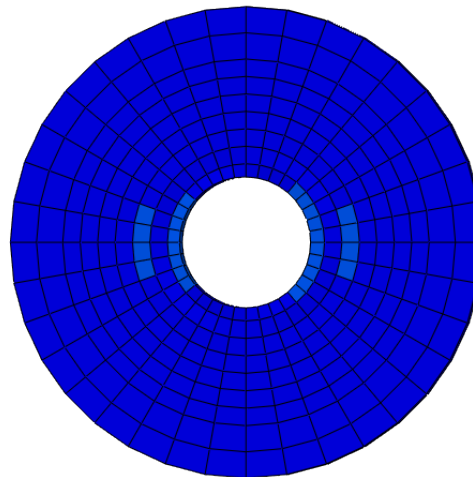
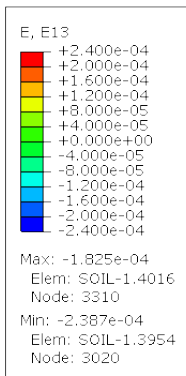
図 4.3.2-67 ケース 2 岩盤の最小主ひずみコンター図[深度 72.5m]
(step20 (10 万年経過) , 変形拡大倍率 : 1,000 倍)



Y ODB: 72.5m.odb Abaqus/Standard 6.11-1 Wed Jan 25 10:39:24 GMT+08:00 2017

Step: Step-20-X-
Increment: 200; Step Time = 1.000
Primary Var: E, E13
Deformed Var: U Deformation Scale Factor: +1.000e+03

解析モデル全体

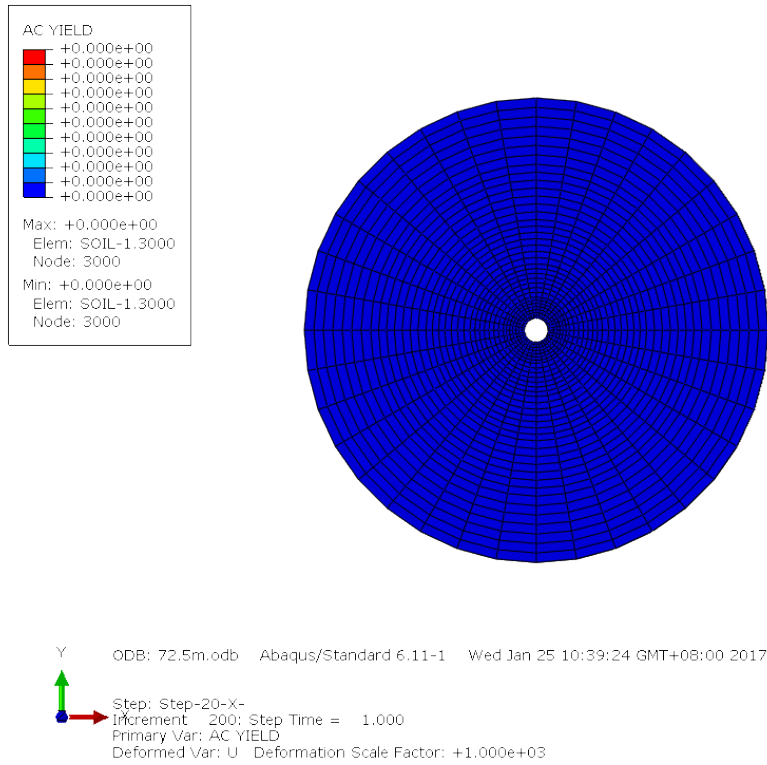


Y ODB: 72.5m.odb Abaqus/Standard 6.11-1 Wed Jan 25 10:39:24 GMT+08:00 2017

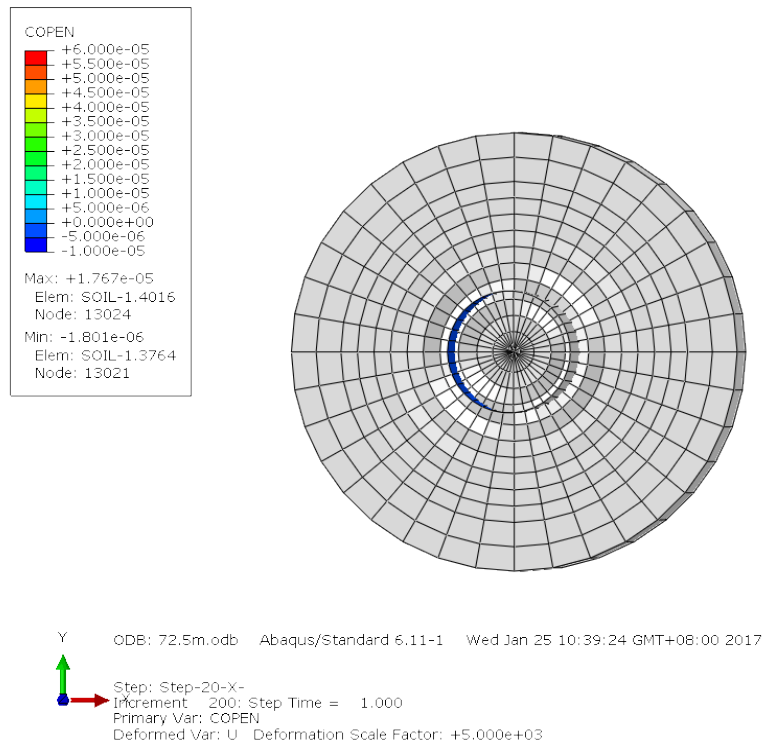
Step: Step-20-X-
Increment: 200; Step Time = 1.000
Primary Var: E, E13
Deformed Var: U Deformation Scale Factor: +1.000e+03

立坑周辺拡大

図 4.3.2-68 ケース 2 岩盤のせん断ひずみコンター図[深度 72.5m]
(step20 (10 万年経過) , 変形拡大倍率 : 1,000 倍)



塑性化領域



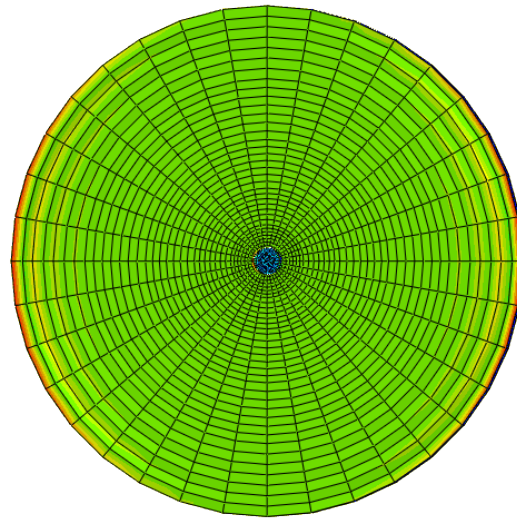
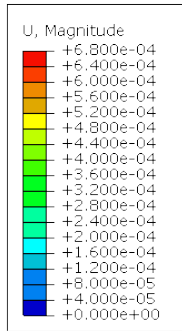
岩盤と立坑の間隙（単位：m）

図 4.3.2-69 ケース 2 岩盤の塑性化領域・立坑との間隙分布図[深度 72.5m]
(step20 (10 万年経過) , 変形拡大倍率 : 5,000 倍)

(c) ケース 3 (せん断ひずみ最大：深度 302.5m)

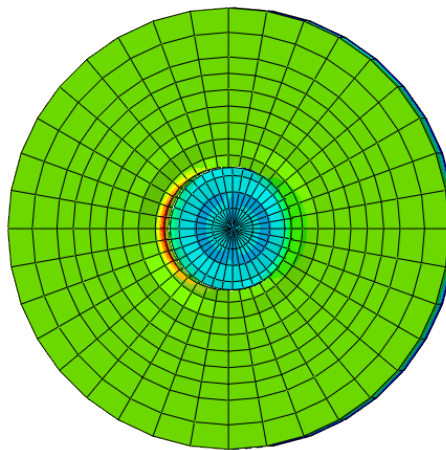
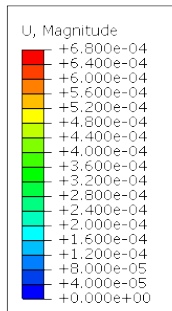
解析の結果、立坑周辺に生じたせん断ひずみは、最大 9.28×10^{-4} 程度で塑性化には至らなかった。せん断ひずみ最大箇所（深度 302.5m）における 10 万年後を模した最終ステップにおける立坑並びに周辺岩盤の変形を図 4.3.2-70、岩盤の最大主ひずみ、最小主ひずみコンター並びに岩盤のせん断ひずみコンターを図 4.3.2-71、図 4.3.2-72 及び図 4.3.2-73 に水平断面図として示す。

また、最終ステップにおける岩盤の塑性領域・立坑との間隙分布を図 4.3.2-74 に示したが、載荷過程中において、岩盤と立坑の間に最大 0.38mm の間隙が生じたが、塑性化していなかったため、除荷後に間隙は 0mm となった。



Y ODB: 302.5m.odb Abaqus/Standard 6.11-1 Wed Jan 25 11:18:32 GMT+08:00 2017
 Step: Step-20-X-
 Increment: 200; Step Time = 1.000
 Primary Var: U, Magnitude
 Deformed Var: U Deformation Scale Factor: +1.000e+03

解析モデル全体

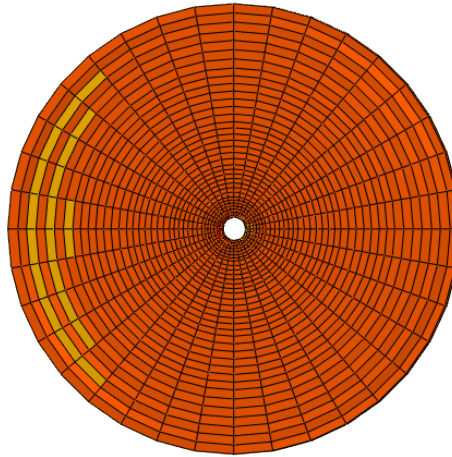
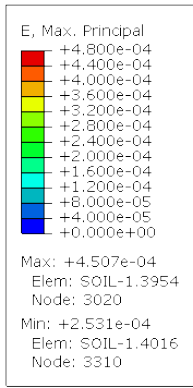


Y ODB: 302.5m.odb Abaqus/Standard 6.11-1 Wed Jan 25 11:18:32 GMT+08:00 2017
 Step: Step-20-X-
 Increment: 200; Step Time = 1.000
 Primary Var: U, Magnitude
 Deformed Var: U Deformation Scale Factor: +1.000e+03

立坑周辺拡大

(単位 : m)

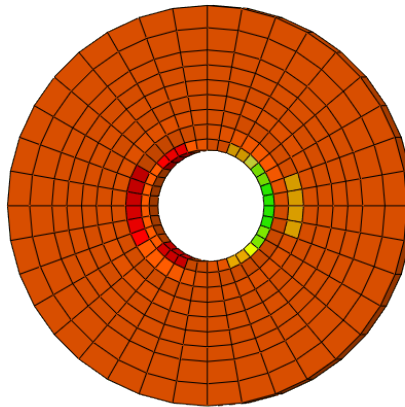
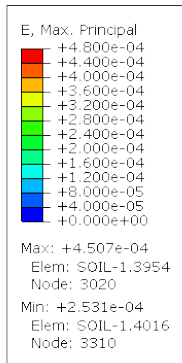
図 4.3.2-70 ケース 3 変形図[深度 302.5m]
 (step20 (10 万年経過) , 変形拡大倍率 : 1,000 倍)



Y ODB: 302.5m.odb Abaqus/Standard 6.11-1 Wed Jan 25 11:18:32 GMT+08:00 2017

Step: Step-20-X-
Increment: 200; Step Time = 1.000
Primary Var: E, Max. Principal
Deformed Var: U Deformation Scale Factor: +1.000e+03

解析モデル全体

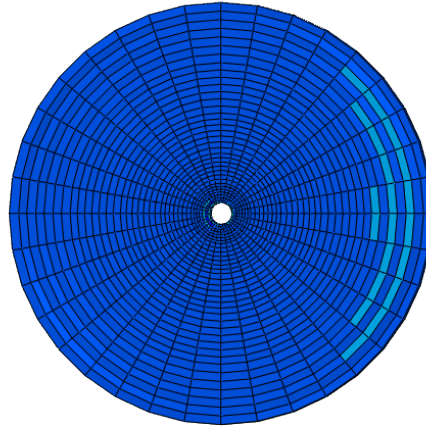
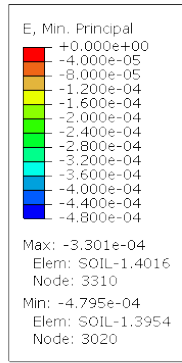


Y ODB: 302.5m.odb Abaqus/Standard 6.11-1 Wed Jan 25 11:18:32 GMT+08:00 2017

Step: Step-20-X-
Increment: 200; Step Time = 1.000
Primary Var: E, Max. Principal
Deformed Var: U Deformation Scale Factor: +1.000e+03

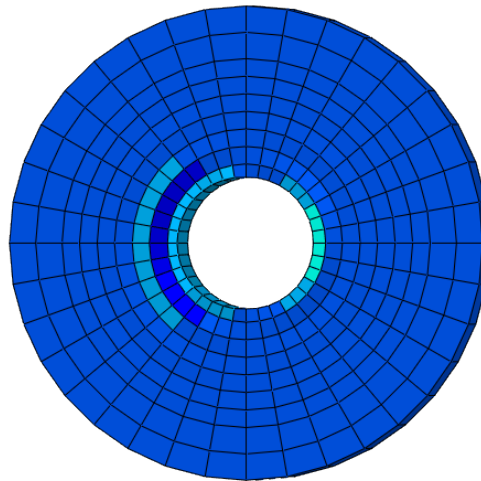
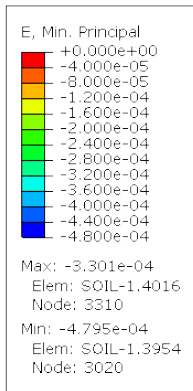
立坑周辺拡大

図 4.3.2-71 ケース 3 岩盤の最大主ひずみコンター図[深度 302.5m]
(step20 (10 万年経過) , 変形拡大倍率 : 1,000 倍)



Y ODB: 302.5m.odb Abaqus/Standard 6.11-1 Wed Jan 25 11:18:32 GMT+08:00 2017
 Step: Step-20-X-
 Increment: 200; Step Time = 1.000
 Primary Var: E, Min. Principal
 Deformed Var: U Deformation Scale Factor: +1.000e+03

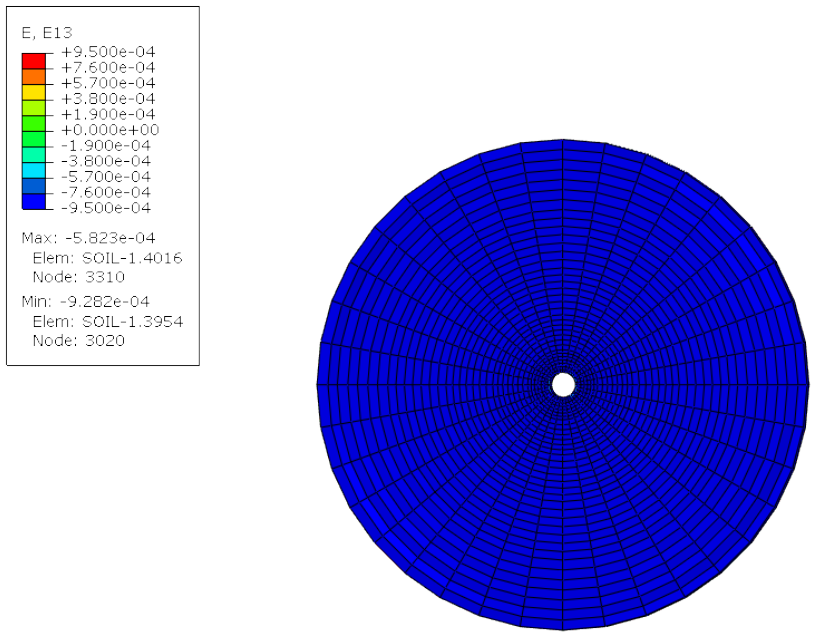
解析モデル全体



Y ODB: 302.5m.odb Abaqus/Standard 6.11-1 Wed Jan 25 11:18:32 GMT+08:00 2017
 Step: Step-20-X-
 Increment: 200; Step Time = 1.000
 Primary Var: E, Min. Principal
 Deformed Var: U Deformation Scale Factor: +1.000e+03

立坑周辺拡大

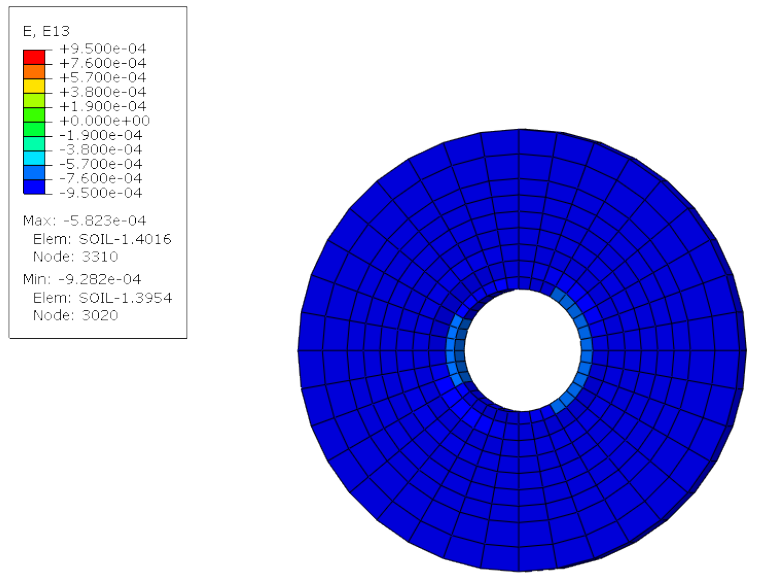
図 4.3.2-72 ケース 3 岩盤の最小主ひずみコンター図[深度 302.5m]
 (step20 (10 万年経過) , 変形拡大倍率 : 1,000 倍)



Y ODB: 302.5m.odb Abaqus/Standard 6.11-1 Wed Jan 25 11:18:32 GMT+08:00 2017

Step: Step-20-X-
Increment: 200; Step Time = 1.000
Primary Var: E, E13
Deformed Var: U Deformation Scale Factor: +1.000e+03

解析モデル全体

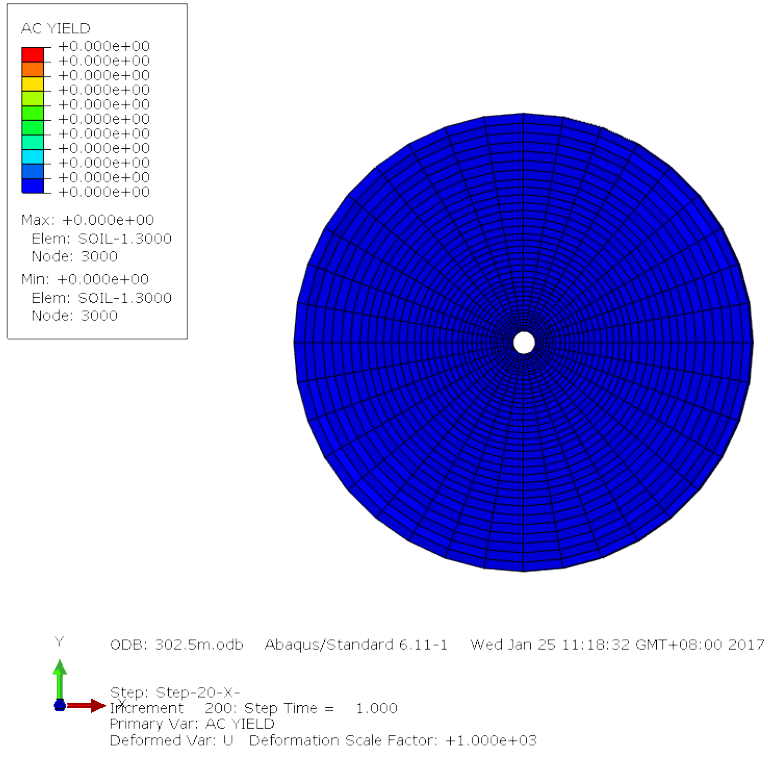


Y ODB: 302.5m.odb Abaqus/Standard 6.11-1 Wed Jan 25 11:18:32 GMT+08:00 2017

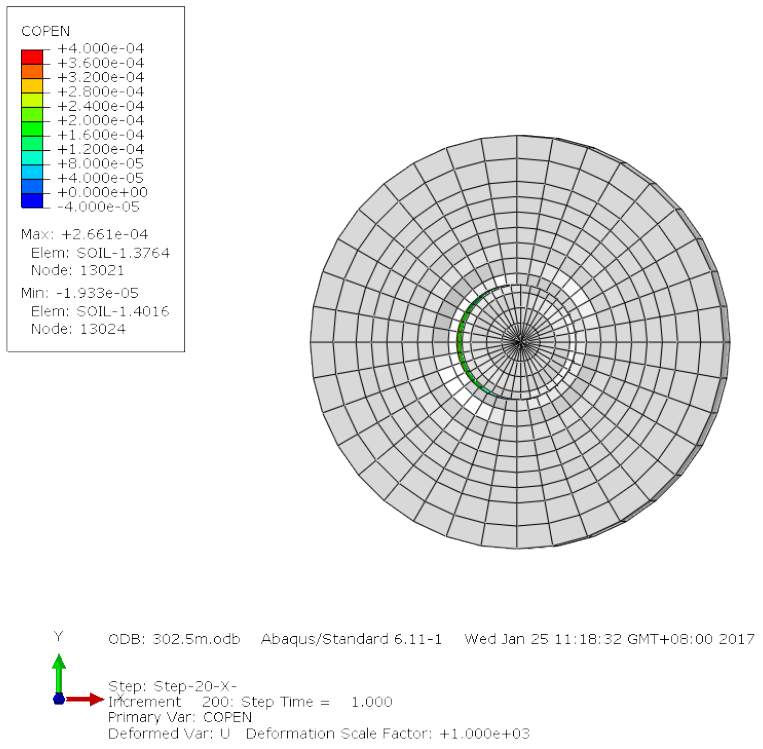
Step: Step-20-X-
Increment: 200; Step Time = 1.000
Primary Var: E, E13
Deformed Var: U Deformation Scale Factor: +1.000e+03

立坑周辺拡大

図 4.3.2-73 ケース 3 岩盤のせん断ひずみコンター図[深度 302.5m]
(step20 (10 万年経過) , 変形拡大倍率 : 1,000 倍)



塑性化領域



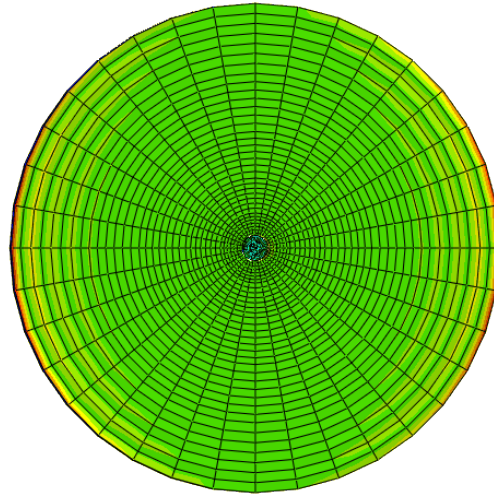
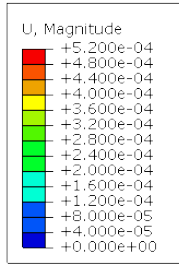
岩盤と立坑の間隙 (単位 : m)

図 4.3.2-74 ケース 3 岩盤の塑性化領域・立坑との間隙分布図[深度 302.5m] (step20 (10 万年経過), 変形拡大倍率 : 1,000 倍)

(d) ケース 4 (泥質岩せん断応力度最大：深度 457.5m)

解析の結果、立坑周辺に生じたせん断ひずみは、最大 6.94×10^{-4} 程度で塑性化には至らなかった。泥質岩せん断ひずみ最大箇所（深度 457.5m）における 10 万年後を模した最終ステップにおける立坑並びに周辺岩盤の変形を図 4.3.2-75、岩盤の最大主ひずみ、最小主ひずみコンター並びに岩盤のせん断ひずみコンターを図 4.3.2-76、図 4.3.2-77 及び図 4.3.2-78 に水平断面図として示す。

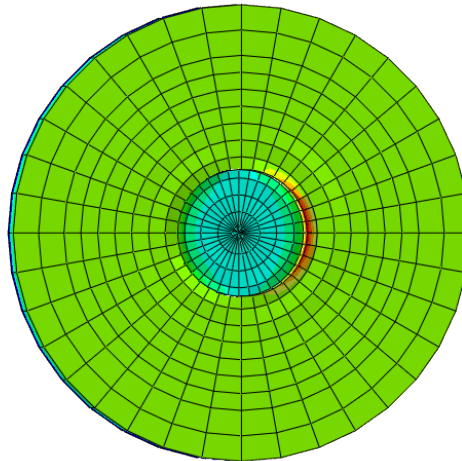
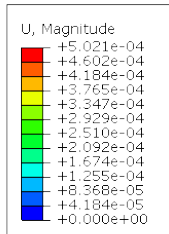
また、最終ステップにおける岩盤の塑性領域・立坑との間隙分布を図 4.3.2-79 に示したが、載荷過程中において、岩盤と立坑の間に最大 0.06mm の間隙が生じたが、塑性化していなかったため、除荷後に間隙は 0mm となった。



Y ODB: 457.5m.odb Abaqus/Standard 6.11-1 Wed Jan 25 11:49:22 GMT+08:00 2017

Step: Step-20-X-
 Increment: 200; Step Time = 1.000
 Primary Var: U, Magnitude
 Deformed Var: U Deformation Scale Factor: +1.000e+03

解析モデル全体



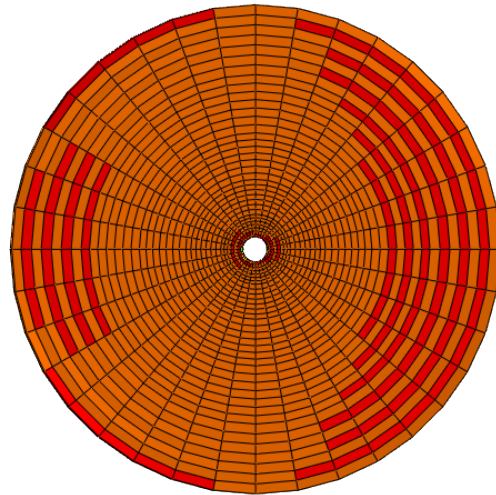
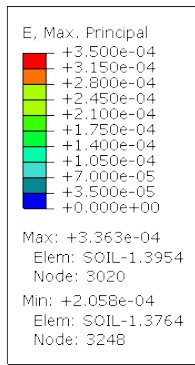
Y ODB: 457.5m.odb Abaqus/Standard 6.11-1 Wed Jan 25 11:49:22 GMT+08:00 2017

Step: Step-20-X-
 Increment: 200; Step Time = 1.000
 Primary Var: U, Magnitude
 Deformed Var: U Deformation Scale Factor: +1.000e+03

立坑周辺拡大

(単位：m)

図 4.3.2-75 ケース 4 変形図[深度 457.5m]
 (step20 (10 万年経過) , 変形拡大倍率 : 10,000 倍)

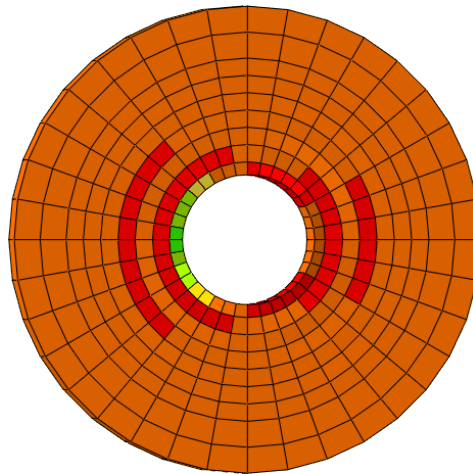
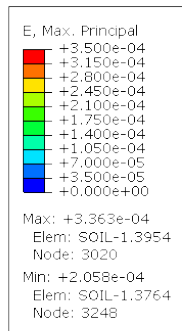


Y ODB: 457.5m.odb Abaqus/Standard 6.11-1 Wed Jan 25 11:49:22 GMT+08:00 2017

X

Step: Step-20-X-
Increment: 200; Step Time = 1.000
Primary Var: E, Max. Principal
Deformed Var: U Deformation Scale Factor: +1.000e+03

解析モデル全体



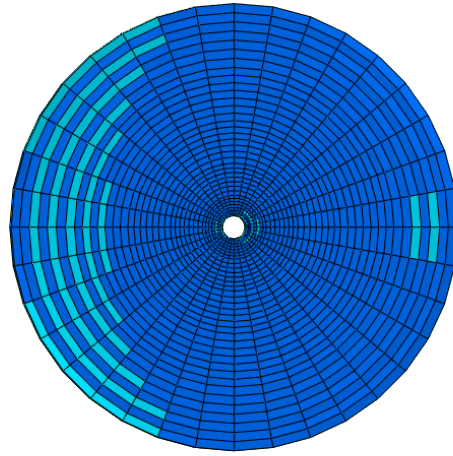
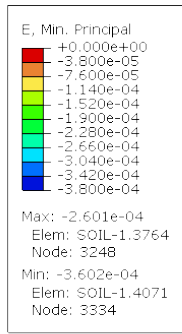
Y ODB: 457.5m.odb Abaqus/Standard 6.11-1 Wed Jan 25 11:49:22 GMT+08:00 2017

X

Step: Step-20-X-
Increment: 200; Step Time = 1.000
Primary Var: E, Max. Principal
Deformed Var: U Deformation Scale Factor: +1.000e+03

立坑周辺拡大

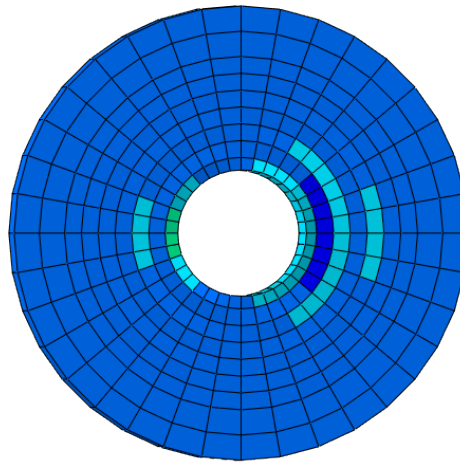
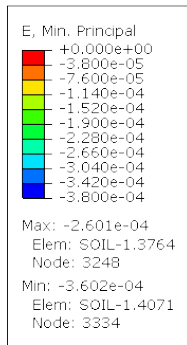
図 4.3.2-76 ケース 4 岩盤の最大主ひずみコンター図[深度 457.5m]
(step20 (10 万年経過) , 変形拡大倍率 : 1,000 倍)



Y ODB: 457.5m.odb Abaqus/Standard 6.11-1 Wed Jan 25 11:49:22 GMT+08:00 2017

Step: Step-20-X-
Increment: 200; Step Time = 1.000
Primary Var: E, Min. Principal
Deformed Var: U; Deformation Scale Factor: +1.000e+03

解析モデル全体

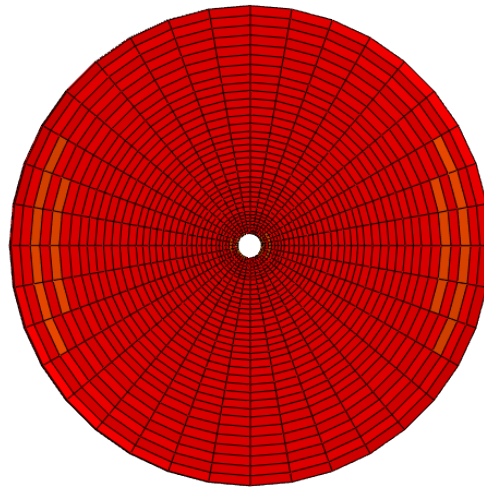
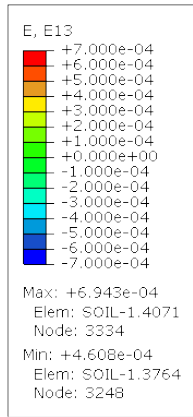


Y ODB: 457.5m.odb Abaqus/Standard 6.11-1 Wed Jan 25 11:49:22 GMT+08:00 2017

Step: Step-20-X-
Increment: 200; Step Time = 1.000
Primary Var: E, Min. Principal
Deformed Var: U; Deformation Scale Factor: +1.000e+03

立坑周辺拡大

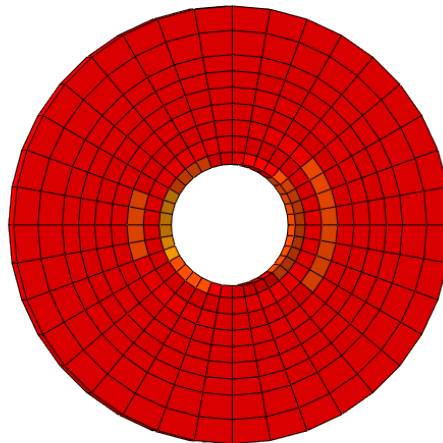
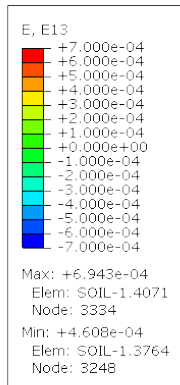
図 4.3.2-77 ケース 4 岩盤の最小主ひずみコンター図[深度 457.5m]
(step20 (10 万年経過) , 変形拡大倍率 : 1,000 倍)



Y ODB: 457.5m.odb Abaqus/Standard 6.11-1 Wed Jan 25 11:49:22 GMT+08:00 2017

Step: Step-20-X-
Increment: 200; Step Time = 1.000
Primary Var: E, E13
Deformed Var: U Deformation Scale Factor: +1.000e+03

解析モデル全体

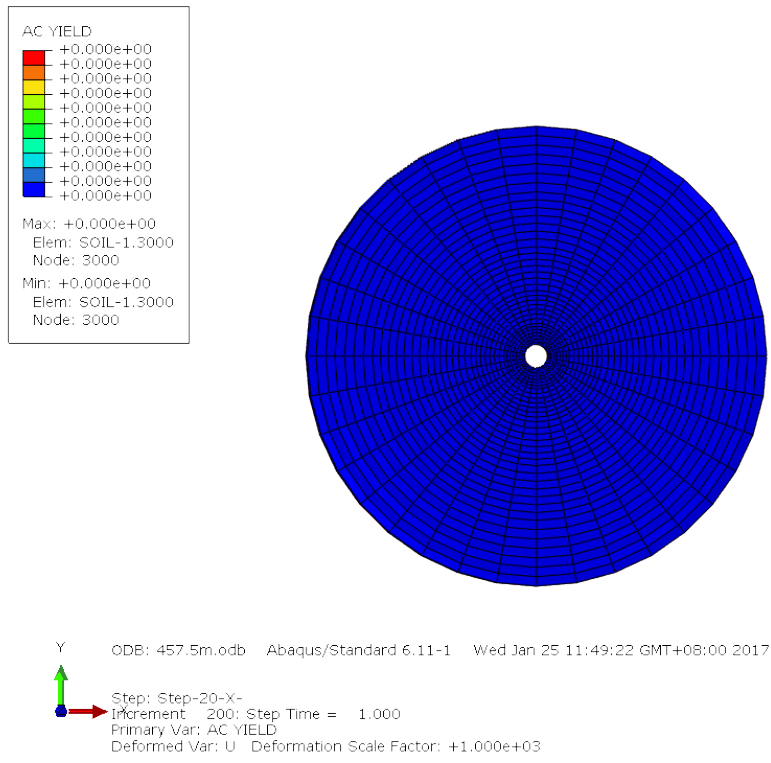


Y ODB: 457.5m.odb Abaqus/Standard 6.11-1 Wed Jan 25 11:49:22 GMT+08:00 2017

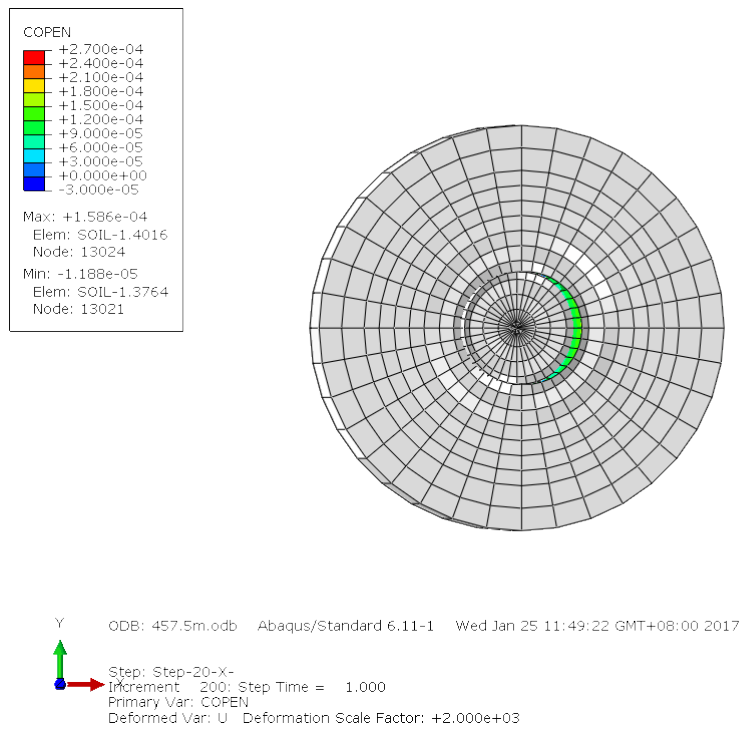
Step: Step-20-Y-
Increment: 200; Step Time = 1.000
Primary Var: E, E13
Deformed Var: U Deformation Scale Factor: +1.000e+03

立坑周辺拡大

図 4.3.2-78 ケース 4 岩盤のせん断ひずみコンター図[深度 457.5m]
(step20 (10 万年経過) , 変形拡大倍率 : 1,000 倍)



塑性化領域



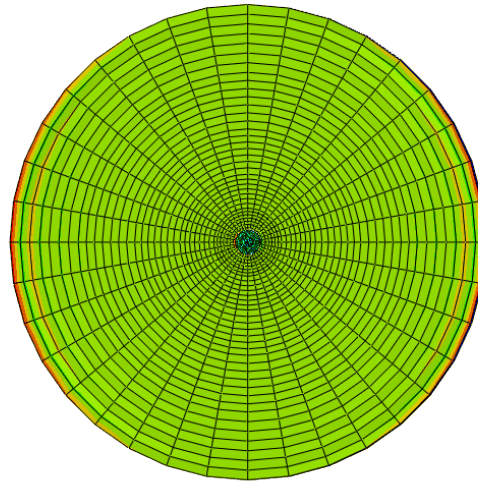
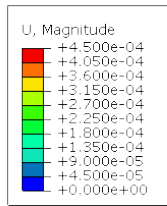
岩盤と立坑の間隙 (単位 : m)

図 4.3.2-79 ケース 4 岩盤の塑性化領域・立坑との間隙分布図[深度 457.5m]
(step20 (10 万年経過) , 変形拡大倍率 : 2,000 倍)

(e) ケース 5 (処分深度直近：深度 492.5m)

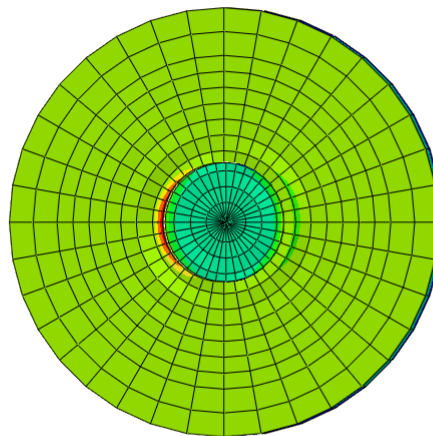
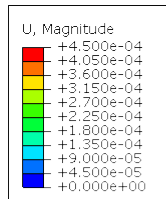
解析の結果、立坑周辺に生じたせん断ひずみは、最大 6.14×10^{-4} 程度で塑性化には至らなかった。処分深度直近（深度 492.5m）における 10 万年後を模した最終ステップにおける立坑並びに周辺岩盤の変形を図 4.3.2-80、岩盤の最大主ひずみ、最小主ひずみコンター並びに岩盤のせん断ひずみコンターを図 4.3.2-81、図 4.3.2-82 及び図 4.3.2-83 に水平断面図として示す。

また、最終ステップにおける岩盤の塑性領域・立坑との間隙分布を図 4.3.2-84 に示したが、載荷過程中において、岩盤と立坑の間に最大 0.23mm の間隙が生じたが、塑性化していなかったため、除荷後に間隙は 0mm となった。



Y ODB: 492.5m.odb Abaqus/Standard 6.11-1 Wed Jan 25 10:26:10 GMT+08:00 2017
 Step: Step-20-X-
 Increment: 200; Step Time = 1.000
 Primary Var: U, Magnitude
 Deformed Var: U Deformation Scale Factor: +1.000e+03

解析モデル全体

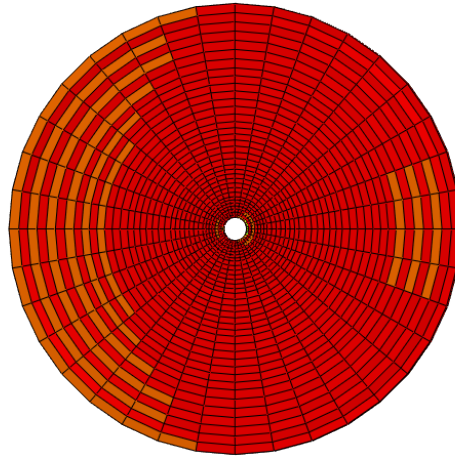
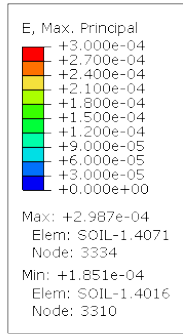


Y ODB: 492.5m.odb Abaqus/Standard 6.11-1 Wed Jan 25 10:26:10 GMT+08:00 2017
 Step: Step-20-X-
 Increment: 200; Step Time = 1.000
 Primary Var: U, Magnitude
 Deformed Var: U Deformation Scale Factor: +1.000e+03

立坑周辺拡大

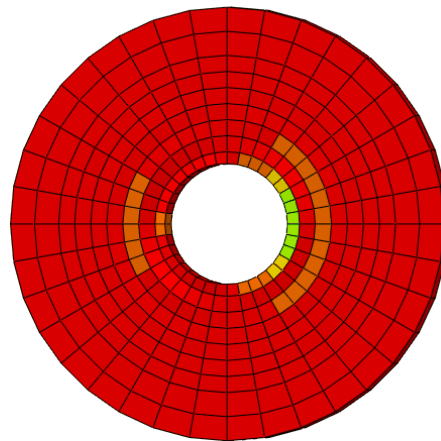
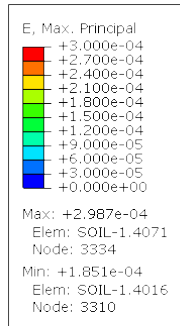
(単位 : m)

図 4.3.2-80 ケース 5 変形図[深度 492.5m]
 (step20 (10 万年経過) , 変形拡大倍率 : 10,000 倍)



Y ODB: 492.5m.odb Abaqus/Standard 6.11-1 Wed Jan 25 10:26:10 GMT+08:00 2017
 Step: Step-20-X-
 Increment 200: Step Time = 1.000
 Primary Var: E, Max. Principal
 Deformed Var: U Deformation Scale Factor: +1.000e+03

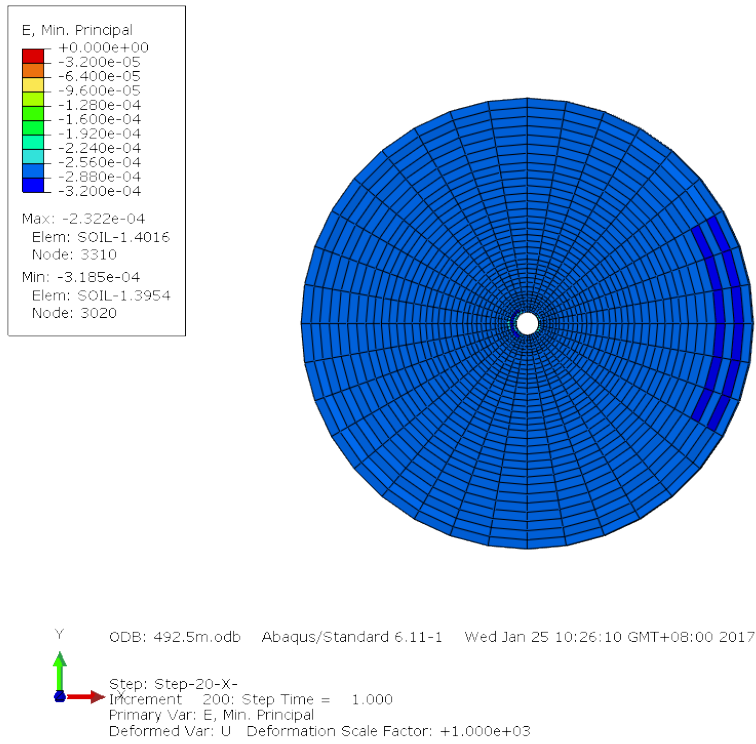
解析モデル全体



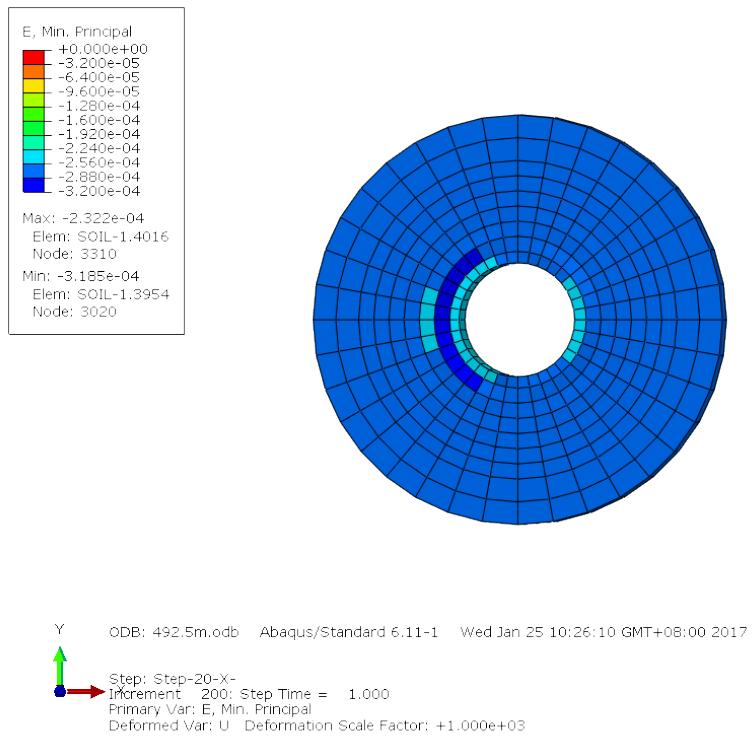
Y ODB: 492.5m.odb Abaqus/Standard 6.11-1 Wed Jan 25 10:26:10 GMT+08:00 2017
 Step: Step-20-X-
 Increment 200: Step Time = 1.000
 Primary Var: E, Max. Principal
 Deformed Var: U Deformation Scale Factor: +1.000e+03

立坑周辺拡大

図 4.3.2-81 ケース 5 岩盤の最大主ひずみコンター図[深度 492.5m]
 (step20 (10 万年経過) , 変形拡大倍率 : 1,000 倍)

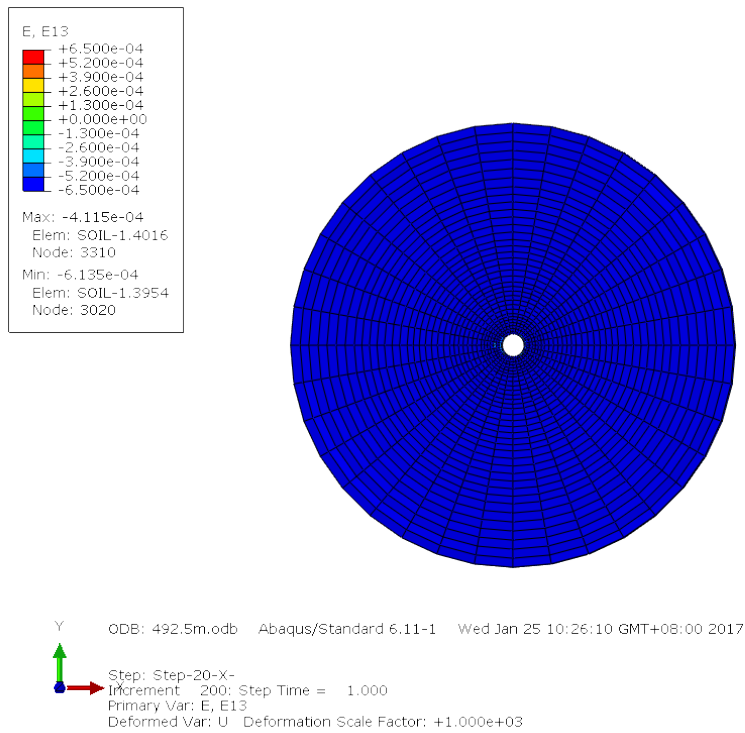


解析モデル全体

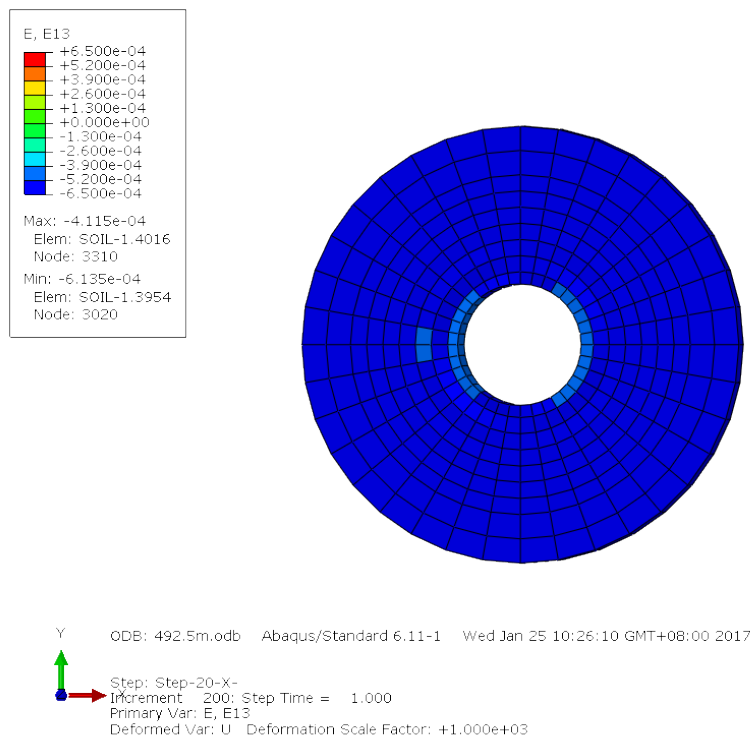


立坑周辺拡大

図 4.3.2-82 ケース 5 岩盤の最小主ひずみコンター図[深度 492.5m]
(step20 (10 万年経過) , 変形拡大倍率 : 1,000 倍)

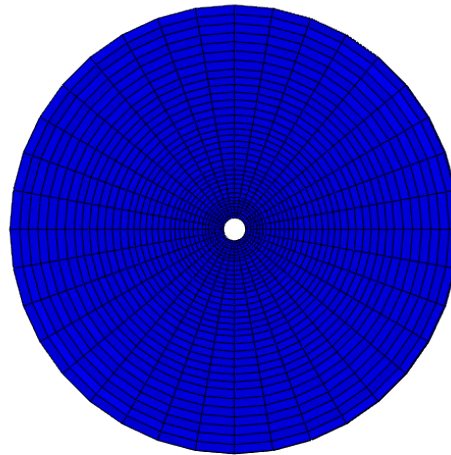
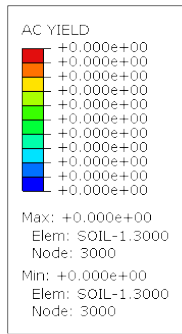


解析モデル全体



立坑周辺拡大

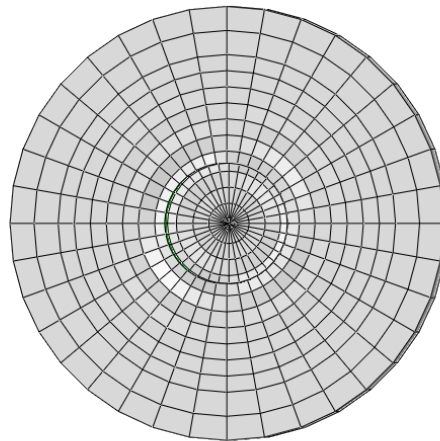
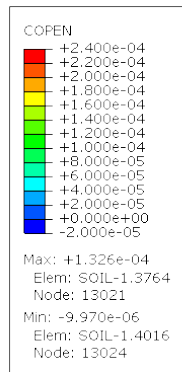
図 4.3.2-83 ケース 5 岩盤のせん断ひずみコンター図[深度 492.5m]
(step20 (10 万年経過) , 変形拡大倍率 : 1,000 倍)



Y ODB: 492.5m.odb Abaqus/Standard 6.11-1 Wed Jan 25 10:26:10 GMT+08:00 2017

Step: Step-20-X-
Increment 200; Step Time = 1.000
Primary Var: AC YIELD
Deformed Var: U Deformation Scale Factor: +1.000e+03

塑性化領域



Y ODB: 492.5m.odb Abaqus/Standard 6.11-1 Wed Jan 25 10:26:10 GMT+08:00 2017

Step: Step-20-X-
Increment 200; Step Time = 1.000
Primary Var: COPEN
Deformed Var: U Deformation Scale Factor: +1.000e+03

岩盤と立坑の間隙 (単位: m)

図 4.3.2-84 ケース 5 岩盤の塑性化領域・立坑との間隙分布図[深度 492.5m]
(step20 (10 万年経過), 変形拡大倍率: 1,000 倍)

d. 考察

岩盤、立坑（覆工コンクリート）及び埋戻し材を1層のソリッド要素でモデル化し、その要素底面節点を完全固定とし、地震時のせん断応力に相当する水平力を要素の頂面節点に作用させ、せん断変形とする二次元解析を行った。立坑周辺地盤の累積損傷を表現するため、モール・クーロンの破壊を考慮したモデルを用いた。岩盤と立坑の覆工の間には接触条件を設けた。また、覆工コンクリート及び埋戻し材は長期の供用を想定し、剛性低下を考慮した。立坑における5つの水平断面を選定、地盤の一次元応答解析で求められた当該一断面要素に対し、せん断応力を繰り返し作用させ、長期間における周辺地盤の損傷による影響について評価を行った。

今回の解析結果をまとめて表 4.3.2-32 に示す。

先ず、立坑周辺（ニアフィールド）の岩盤のせん断ひずみは、最大応答値が一次元応答解析のせん断ひずみ、すなわち、立坑から離れたファーフィールドの岩盤せん断ひずみに比べて約1割～2割程度大きかった。これは、立坑の剛性は周辺岩盤より大きく、岩盤の変形に追従できないことから、立坑と岩盤の相互作用によって局所的な応力集中が生じた。しかし、ニアフィールドにおいて弾性限界となる岩盤せん断ひずみに比べると最大7割程度となり、岩盤の非線形性を生じさせるほどではなかった。

次に载荷過程で生じた岩盤と立坑の間隙に関しては、最も大きな値となったケース No. 3（せん断ひずみが最大となる断面）の履歴を図 4.3.2-85 に示す。第一回目の载荷（5千年経過）において最大 0.38mm の間隙が生じたが、塑性化が生じなかったため、除荷後には 0 となった。また、その後は覆工コンクリート及び埋戻し材の剛性低下に伴い、载荷過程で生じた岩盤と立坑の間隙が次第に小さくなっていく。

表 4.3.2-32 解析結果一覧

ケース No.	検討要因	深度 (m)	弾性限界のせん断ひずみ γ_f	せん断応力 応答値 τ_r (MPa)	せん断ひずみ 応答値 (ファーフィールド) γ_r	立坑周辺岩盤のせん断ひずみ (ニアフィールド)		
						最大 応答値 γ_{max}	γ_{max} / γ_r	γ_{max} / γ_f
1	表層	2.5	6.076×10^{-4}	0.07	1.63×10^{-5}	1.94×10^{-5}	118.7%	3.2%
2	砂質岩 せん断ひずみ 最大	72.5	4.685×10^{-4}	1.19	2.15×10^{-4}	2.39×10^{-4}	111.0%	51.0%
3	せん断ひずみ 最大	302.5	1.319×10^{-3}	1.67	8.47×10^{-4}	9.28×10^{-4}	109.6%	70.4%
4	泥質岩 せん断応力度 最大	457.5	1.022×10^{-3}	1.61	6.32×10^{-4}	6.94×10^{-4}	109.8%	67.9%
5	処分深度 (500m) 直近	492.5	9.757×10^{-4}	1.49	5.61×10^{-4}	6.14×10^{-4}	109.5%	62.9%

岩盤と立坑の間隙：ケースNo. 3

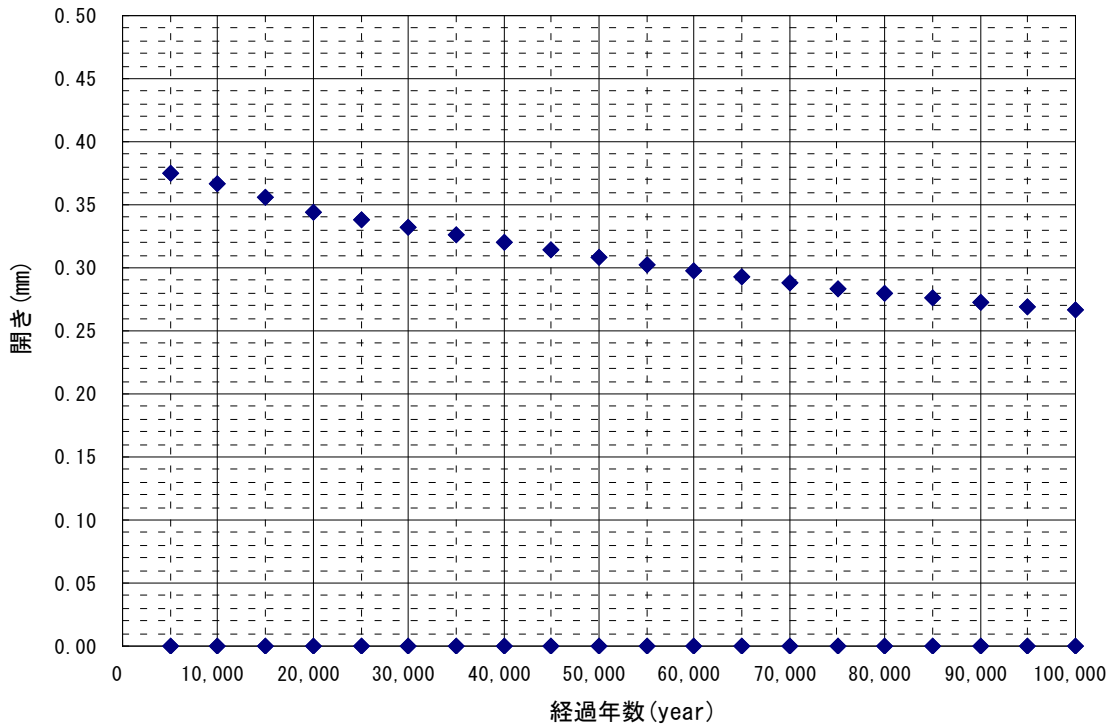


図 4.3.2-85 岩盤と立坑の間隙 (例：ケース 3)

今回、処分施設閉鎖後の地震・断層活動に伴う振動の影響について、日本最大級の内陸地震に基づく入力地震波を用い、深度500mまでの埋戻された状態での地下施設（立坑）周辺岩盤について、一次元地盤の地震応答解析、二次元モデルを用いた静的解析による長期間における周辺地盤の損傷による影響について評価を行った。表4.3.2-32に示したとおり、地震時の立坑周辺岩盤のせん断ひずみは、深さ300mの位置（砂岩と泥岩の境目）において最大 9×10^{-4} 程度で、降伏時（塑性化発生）のせん断ひずみの7割程度となり、岩盤の非線形性を生じさせるほどではなかった。また、処分深度（500m）においては最大 6×10^{-4} 程度で、降伏時（塑性化発生）のせん断ひずみの6割程度であった。すなわち、本件のような内陸地震の規模でも立坑周辺地盤岩盤が弾性状態を保ち、地下施設建設時（常時）において各坑道の力学的安定性が確保されていれば、立坑の地震時健全性は確保できると考えられる。

金子ほか（2005）によれば、岩盤ひずみの変化に伴う透水係数の変化について、室内試験において、限界せん断ひずみに達するまでは透水係数の変化は認められないとの結果が得られており、今回の解析結果のような地震時のせん断ひずみがせん断降伏ひずみを超えない場合は、透水係数の変化が生じないものと考えられる。また、長ほか（2009）によれば、処分深度（500m）においては、側圧比（水平拘束圧と鉛直土圧の比）を1.5と仮定すると、拘束圧は、 $2200/9.8 \times 500 \times 1.5 = 1.68\text{MPa}$ となるが、宇野ほか（2004）は、このような高拘束圧条件下において、破壊近傍で20～30%程度透水係数が大きくなるものの、低拘束圧条件のような急激な透水係数の変化は認められないとしている。したがって、今回設定した内陸地震規模以上の地震力が生じ、処分深度周辺の岩盤にせん断破壊（塑性化）が生じた場合においても、透水係数の急激な変化はな

く、地震前に比べて概ね2～3割の増大となることが想定される。このように地下施設建設時（常時）において、透水係数の安定性を確保することにより、処分深度における地震時健全性が確保できるものと考えられる。

⑤まとめ

a. 人工バリアの振動解析

閉鎖後の長期の地層処分システムに及ぼす地震・断層活動に伴う振動の影響を検討するために、有限要素法モデルでの振動影響解析を実施し、シナリオに取り込むべき地震動の影響について評価を行った。

ニアフィールドを対象とした動的解析として、軟岩系岩盤モデル、処分深度500mの地中部の2次元モデルを用いて緩衝材の大変形効果を考慮した解析を行った。緩衝材の物性は、構成則をH-Dモデルを設定した。入力地震波は、2008年岩手・宮城内陸地震波より処分深度GL-500mに引き戻した入力地震波を設定した。

(a) 緩衝材を双曲線モデルとした場合の地震動影響評価

当初、緩衝材の材料非線形性を考慮するため室内試験結果をR-0モデルに適用し、フィッティングにより材料パラメータを設定した。FLIP TULIPは材料の非線形性を双曲線モデルで表すため、設定したR-0モデルとほぼ等価な双曲線モデルのパラメータを割り当てた。

a) 入力地震動を係数倍した場合の影響

地震動を1倍～20倍まで係数倍した場合におけるオーバーパックと岩盤との最小離隔、最大変位の状況について解析を行った。

振幅倍率12倍程度から解析が発散しやすい状況となり、それ以上の振幅倍率における解析ができなかった。振幅倍率10倍時のオーバーパックの最大変位は1mm程度であり、オーバーパックが岩盤に接する状況を解析することが困難であった。

b) 入力地震動を繰返し加振した場合の影響

地震動を33回繰返し加振してオーバーパックの変位の累積傾向を調べたところ、加振によるオーバーパックの累積変位の増加は確認できなかった。振幅倍率も12倍程度で解析が発散し、最大変位も1mm程度であった。このためオーバーパックが岩盤に接する状況を解析することが困難であった。

以上の状況から緩衝材に双曲線モデルを適用した解析による検討は困難と判断した。

(b) 緩衝材を線形モデルとした場合の地震動影響評価

オーバーパックが岩盤に接するような大きな変形を想定した解析条件においても安定した解析が行えるように緩衝材を線形材料とした（ただし、大変形効果は考慮した）。

しかし、線形モデルでは、ひずみに依存する非線形特性が考慮できないことから、緩衝材のひずみ依存による剛性低下の方法として等価線形化法の考え方をを用いて、緩衝材の剛性低下を考慮した場合として検討を追加した。

a) 入力地震動を係数倍した場合の影響

振幅倍率12,000倍時でオーバーパックと岩盤との最小離隔は0.2m程度となった。

比較的安定した振幅倍率における最小離隔の傾向から16,000倍時にオーバーパックが岩盤に接

すると推定された。

緩衝材を線形材料とすることで大変形を伴う地震力でも安定した解析を行うことができた。

b) 入力地震動を繰返し加振した場合の影響（緩衝材の剛性低下を考慮した場合）

緩衝材のひずみ依存による剛性低下の方法として等価線形化法の考えを用いた。緩衝材の試験結果からのフィッティングによって求めたR-0モデルに緩衝材の剛性を初期剛性とした場合に得られたせん断ひずみレベルを適用した場合の等価せん断剛性率を適用した。せん断ひずみレベルは、等価線形化法の考え方にならない、緩衝材の剛性を初期剛性とした場合に得られた最大せん断ひずみに係数 α (0.65) を乗じた有効ひずみを用いた。

所要加振回数の低減率は入力地震動の振幅倍率の増加とともに顕著となり、振幅倍率1倍時では約10,000回、振幅倍率1,000倍時では1.7回程度でオーバーパックが岩盤に接する結果となった。

増幅倍率の増加に伴うオーバーパックが岩盤に接するまでの加振回数の低減率は緩衝材のR-0モデルにおける剛性のひずみ依存特性 (G/G_0) に概ね対応するもので、緩衝材の材料非線形特性を示す結果となった。

線形モデルで緩衝材の剛性低下を考慮した場合、オーバーパックが岩盤に接するには、仮に、本検討で用いた入力地震動と同じとして、10,000回程度発生することとなる。

以上の検討結果からオーバーパックが岩盤に接するような地震動の大きさ、地震動の繰返し回数は、現実的ではない非常に大きな値が算定され、緩衝材は十分な耐震性能を有していると結論された。

b. 処分施設の振動解析

処分施設閉鎖後の地震・断層活動に伴う振動の影響について、人工バリア同様、日本最大級の内陸地震に基づく入力地震波を用い、施設閉鎖後の地下施設（立坑）周辺岩盤の振動影響評価を行った。まず、第2次取りまとめに示された砂質岩と泥質岩からなる軟岩系岩盤モデルに基づき、深度500mに入力した地震波による一次元応答解析により、深度方向の最大加速度並びに最大変位等の地盤応答値を得た。次に立坑周辺地盤の累積損傷を表現するため、モール・クーロンの完全弾塑性破壊を考慮したモデルを用い、10万年間に20回（5千年に1回の頻度）の巨大地震発生を想定し、先の一次元応答解析により求められた加速度を繰返し作用させ、長期間における周辺地盤の損傷による影響について評価を行った。

この結果、地下施設（立坑）深度方向において、せん断ひずみが最大となる最も厳しい条件である深度（302.5m）において、周辺地盤に生じるせん断ひずみは、最大 9.28×10^{-4} 程度となり、立坑から離れたファーフィールドにおける岩盤のせん断ひずみに比べて約1割大きい結果となった。しかし、岩盤の弾性限界となるせん断ひずみの約7割（安全率約1.4倍）にとどまっており、周辺地盤は塑性化に至らなかった。また、巨大地震発生時には、覆工コンクリートと周辺岩盤の間に最大で幅0.38mm間隙が生じるものの、周辺岩盤は塑性化しないため、地震後（除荷後）には、間隙が元に戻る（幅0mm）となる結果となった。なお、覆工コンクリートや埋め戻し材の剛性低下に伴い、地震発生時に生じるこれらの隙間は、時間の経過とともに小さくなっていくことが判明した。

以上のことから、地下施設閉鎖後10万年程度を想定した長期間に繰り返し発生する巨大地震により、立坑周辺岩盤のEDZは拡大せず、仮に人工バリアから核種が漏れ出したとしても、立坑周辺岩盤に生じたEDZを経由して、生活圏へ到達する可能性は低いものと考えられる。

4.3.3 個別現象の分析を踏まえた影響評価の試行

(1) 個別現象に関する分析

本検討では、処分システムの安全機能に影響を及ぼす可能性のある個別現象として、1) 起因事象としての断層の特性、2) 深部流体の影響、3) 地表水の流入の影響、4) 断層のずれによる人工バリアのせん断変形の影響、5) 母岩の透水性への影響、6) 地震動による人工バリア・処分施設への影響、7) 断層起源ガスの発生の影響の7種類の現象に着目し、それぞれ個別現象研究を進めている。4.3.1で述べたように、過酷事象につながる安全機能の状態から、過酷事象につながる現象やその条件を抽出するためには、「安全機能の分析」と「個別現象の調査・評価」を反復的に行うことが必要である。そこで、本検討では、科学的な知見を反映して過酷事象に関係し得る安全機能の状態や個別現象を探索するための基礎情報として、探索に必要な科学的な知見を、関係者が共有・記録するための「情報共有シート」を作成した。作成した情報共有シートのフォーマットを図4.3.3-1に示す。

情報共有シート

基本情報	整理番号		A
	タイトル		
	事象の定義		
	担当者		
当該事象が処分システムに与える影響	影響の種類	影響の有無	どのような影響か?
	T1 温度の増加		
	T2 湿度分配の増加		
	T3 その他の熱的影響		
	H1 特徴的な地下水流動経路の発生		
	H2 大規模な地下水流動の増加(透水性の増加)		
	H3 大規模な地下水流動の増加(動水分配の増加)		
	H4 その他の水理学的影響		
	M1 母岩のせん断変形の発生		
	M2 母岩の微小亀裂の発生		
	M3 母岩の膨張の発生		
	M4 その他の力学的影響		
	C1 pHの低下(酸性)		
	C2 pHの増加(アルカリ性)		
	C3 塩の増加(塩化塩)		
	C4 溶解イオン濃度の増加(硫酸、硝酸/塩化物、塩)		
C5 微生物の影響の顕在化			
C6 その他の化学的影響			
前提条件	起因事象		D
	起因事象の発生原因(起因事象のみ)		
研究状況	当該事象を考慮するための前提条件(起因事象に係る設定等)		E
	前記等4項目での影響の顕在化		

A 基本情報
整理番号、タイトル、担当者名等の基本的な情報を記載

B 影響の有無
当該事象が、人工バリア（オーバーパック、ガラス固化体、緩衝材、支保工等）および天然バリア（母岩）のTHMCに与える影響の有無を下記から選択
●：影響がある可能性が高い
○：影響がある可能性は低いが否定はできない
×：影響がない
-：判断を保留

C どのような影響か？
左記で「●」または「○」をつけた選択肢について、考えられる影響の内容を具体的に記載

D 前提条件
当該事象を考慮するために必要となる前提条件を記載（起因事象、岩種、変位量などの条件とその設定・設定値等を記載）

E 研究状況
当該事象によって、B欄やC欄に記載された影響が起きるかどうか、起きるとすればどの程度起きるか（最大どこまで考え得るか）について、D欄の前提条件下での影響の程度や発生頻度等を記載

図4.3.3-1 情報共有シートのフォーマット

本検討で実施している1)~7)の各個別現象研究の状況については情報共有シート（付録参照）に

まとめるとともに、以下に概要をまとめる。

1) 起因事象としての断層の特性

サイト選定段階で回避する天然事象として挙げられている断層に対して、回避条件を満足させてもなお残る不確実性への対応を目的として、断層の活動を起因として過酷事象に至るシナリオ探索、及び安全影響評価を実施するにあたり必要となる断層の考え方について検討を行った。その結果、検討を行う断層の規模として、既往の内陸型地震で最大であった濃尾地震の規模であるマグニチュード8.0を想定し、マグニチュードと断層長さの関係（松田，1975）より、断層長さ $L=80\text{km}$ 、また、断層長さと同断層破砕帯幅・プロセスゾーン幅の関係より、断層破砕帯の片側幅は540m（断層長さの1/150）、プロセスゾーンの片側幅は1300m（金折，2001）となった。この規模の断層が、低角度で処分場を直撃した場合、処分場の大部分が断層影響範囲に入ると想定され、単位変位量（1回の活動における変位量）から推定されるせん断変位は9.2mであり、人工バリア及び処分坑道断面規模を上回るものとなる。

2) 深部流体の流入による影響

深部流体は、沈み込むスラブやマントル起源の流体が断裂系等を通じて地表付近に上昇する（産業技術総合研究所，2012）と考えられている。地震活動（断層運動）に伴い、地下深部から上昇した流体の混入によって、地表付近における地下水の化学組成が変化した顕著な事例としては、1965年から始まった松代群発地震の活動域での水質変化が挙げられる（例えば、大竹，1976；奥澤・塚原，2001）。これらの研究によると、松代群発地震の発生に伴って湧出した地下水は、約1千万t/4ヵ月に達する（中村，1971）。また、その湧水は、地表付近の通常の循環水とは異なり、極めて高濃度の Cl^- を主要溶存成分とする塩水であり（Kitano et al., 1967；Yoshioka et al., 1970）、その濃度は地震発生前の2～3倍に増加したと報告されている（奥澤・塚原，2001）。流入した地下水の起源については諸説あるが、断層から採取した土壌ガス中のヘリウム同位体比（ $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比）から、マントル起源の流体であるとも指摘されている（Wakita et al., 1978）。ただし、このような地震活動に伴う深部流体の流入に関する事例は、極めて少ないのが現状である。

地層処分システムへの影響を評価するために必要な深部流体の性状を知る手掛かりの一つとして、非火山地帯での熱水活動があげられる。わが国において非火山性の熱水が分布する地域として、常磐地域、能登半島、新潟平野、紀伊半島、有馬温泉等が報告されている（例えば、田中ほか，2004；産業技術総合研究所，2007；産業技術総合研究所，2012）。このうち、有馬型熱水（例えば、松葉谷ほか，1974）の典型例として知られる有馬－高槻構造線沿いの有馬温泉では、沸騰温度の自然湧出が認められている（産業技術総合研究所，2012）。また、紀伊半島の温泉井及び掘削井における地化学調査の結果（新エネルギー・産業技術総合開発機構，1996）によると、深部からの熱水（約210℃）の上昇により、1500m深度で100～180℃、地表では最大92.0℃の温泉が自噴していると報告されており、これらは海洋スラブからの脱水に起因する深部流体が関与すると指摘されている（西村，2000）。

また、化学場に関する情報として、有馬型熱水の元になる地下深部から上昇する流体に多量の

CO₂が含まれているとした場合、1000m 深度におけるCO₂による飽和条件下ではpH=3 の酸性を示すと考えられる（産業技術総合研究所, 2012）との指摘がある。このほか、有馬型熱水が湧出する地域の地下には、塩化物イオン濃度が海水の約2倍程度（約50g/l）となる熱水が存在し、それが天水起源の地下水によって希釈されたものが有馬型熱水である（網田ほか, 2005）と推定されている。また、炭酸化学種濃度については、わが国の深層地下水データベース（高橋ほか, 2011）に基づく付加コンプレックスの地下水の炭酸化学種（重炭酸HCO₃⁻）濃度は184~4432mg/lの範囲であり、平均値は799mg/lを示すことが示されており、これらが地下深部から上昇してくるマントル起源のガスに由来する可能性が指摘されている（尾山ほか, 2011）。

これまで本事業では、各地の温泉井において地下水と遊離ガスを採取し、その化学的性状に関するデータの取得を行った。また、これらと「ヘリウム同位体比データベース」（草野ほか, 2012）に掲載される地下水化学組成等のデータに基づいて、非火山性の深部流体と考えられるデータを抽出した上で、深部流体及びそれ以外の地下水について的水温、pH、炭酸化学種（HCO₃⁻）濃度の累積度数分布を示した。その結果によると、pH及びHCO₃⁻濃度については、深部流体とそれ以外の地下水の傾向に明瞭な差は認められない。その一方で、水温については両者に差が認められ、深部流体はそれ以外の地下水に比べて高温である傾向を示した。また、非火山性の深部流体として抽出された地下水のHCO₃⁻濃度は26~8097 mg/lの範囲であり、その平均値（1576mg/l）は、深部流体以外の地下水の平均値（803mg/l）や付加コンプレックスにおける地下水の平均値（799mg/l, 尾山ほか, 2011）に対して高く、深部流体の特徴的な化学的性状を示している可能性を示唆する結果が得られている。

3) 地表水の流入による影響

経済産業省の総合エネルギー調査会に設置された地層処分技術ワーキンググループが取りまとめた「最新の科学的知見に基づく地層処分技術の再評価」（総合エネルギー調査会電力・ガス事業分科会原子力小委員会地層処分技術ワーキンググループ, 2014）では、最新の科学的知見を踏まえて、好ましい地質環境特性に著しい影響を与える事象が整理された。このうち化学場に関する好ましい地質環境特性としては、「地下水が高pHあるいは低pHではないこと」、「酸化性雰囲気でないこと」及び「炭酸化学種濃度が高くないこと」が挙げられている。また、それらに対する影響要因の一つとして「酸化性地表水の流入」が示されており、処分深度に到達している断層が活動した際に断層の透水性が増加することにより、地表水が地下に向けて流入する可能性が指摘されている。

一般に、地下水の化学的性状は、天水に含まれている成分と地中で水に溶け込む成分によって決まるが、天水に含まれている主要溶存成分はわずかである。また、地殻内に存在する間隙や割れ目帯は、それぞれの場所により異なる化学組成を有する地下水等の流体で満たされている。地震に伴って岩盤の変形が起こった場合は、割れ目の開口等により透水性が増加（Bernard, 2001）することによって、新たに流入した地下水との混合や水-岩石反応が生じ、地下水の水質変化等が引き起こされると考えられている（King et al., 2006）。また、このような選択的な地下水の流入経路周辺の地層では、酸素を含む地表付近からの地下水との反応によって、還元状態となっている岩体中の鉱物が酸化され、酸化還元フロントを形成することが知られている（吉

田・山本, 2004)。

地震活動(断層運動)に伴って、酸化性の地表水が地下に向けて引き込まれたと推定されている事例として、1995年に兵庫県南部地震(M 7.3)を引き起こした野島断層を対象とした一連の研究があげられる。このうち、野島断層を貫くボーリングコア試料の観察等では、酸化割れ目や炭酸塩・粘土鉱物からなる軟質褐色粘土脈が、深度1800mの孔底に至るまで認められた。これらは、断層破砕帯沿いに地表付近の地下水が流入したことによると推定されている(宇田ほか, 1998; Uda et al., 2001)。さらに、このボーリング孔を利用した繰り返し注水実験によって、地震発生後、時間の経過とともに透水性が低下するといった観測結果が報告されている(北川ほか, 2001, 2004; Kitagawa et al., 2002)。一方、地震観測データのS波スプリッティング解析に基づいて推定された地震波速度の異方性によると、地震発生から9~12か月後においては断層運動に伴う破砕帯(割れ目帯)の存在を示唆する、断層に沿う方向の異方性の卓越が認められた(Tadokoro et al., 1999)。しかしながら、地震発生から33~45か月後を対象とした同様の解析結果においては、それらが広域応力場に対応する方向に回転していることから、地震発生後にみられた割れ目帯の特性が、本震発生の33か月後にはhealing(回復)していたと指摘されている(Tadokoro and Ando, 2002)。また、このような断層深部への天水や海水の引き込みは、比較的規模の大きな地震活動(断層運動)に伴って繰り返し生じているとのモデルが示されている(Lin et al., 2003)。

4) 断層のずれによる人工バリアのせん断変形の影響

地層処分システムにおける閉じ込め機能の喪失につながる事象の一つとして断層活動があり、地下深部から処分深度を経て地表まで達する断層のずれを引き起こす事象は、力学場に関する地質環境特性の長期安定性に著しい影響を与える事象であると考えられている。

4.3.2(2)に示すように、巨大地震・断層活動を事例としたシナリオとして、断層のずれにより岩盤と廃棄体がせん断衝突変形した場合のオーバーパックスの破損の有無及びガラス固化体と母岩の接触の有無を評価するために、模擬岩盤と模擬オーバーパックスが衝突する断層模擬せん断衝突模型実験を実施し、模擬オーバーパックスのせん断挙動を把握した。断層模擬実験の再現解析及び設計用実寸法の人工バリアの3次元モデルによる非線形大変形せん断衝突解析を実施した。地質環境に著しい影響を与える可能性のある活断層を回避し、かつ、未確認の断層が多数存在している可能性が高いものの中で、最大級のM8.0クラスの断層ずれ(最大断層すべり速度 $V_m=7100\text{mm/s}$)の直撃により、硬岩系岩盤とオーバーパックスがせん断衝突した場合、オーバーパックスの胴部外表面の一部において最大295MPaのミーゼス相当応力が発生し、オーバーパックスの材質である圧力容器用炭素鋼の降伏応力205MPaよりも大きい、引張強さ410MPaよりも115MPa小さな値であるため、オーバーパックスの破損の可能性は小さいと考えられる。

5) 断層起源ガスの発生の影響

Wakita et al. (1980)は、地下深部で断層運動によって破砕された岩石の表面と地下水とが反応して、水素ガスが発生するというメカニズムを考え、その後の室内試験で実際にそのような条件下で水素ガスが発生することを報告している。また、Hirose et al. (2011)は、回転式高速度摩

擦試験機を用いて地震断層運動を実験室で再現し、地震時に発生する水素ガスの量とマグニチュードの規模との間に強い相関関係があることを見出した。地層処分システムにおける閉じ込め機能の喪失につながる事象のひとつとして、このような断層運動に伴うガスの発生・移行による地下水流動場や力学的な変動が想定されることから、これらの事象の可能性について評価しておくことが必要である。

Hirose et al. (2011)は、回転式高速度摩擦試験機を用いた実験時の摩擦エネルギーとマグニチュードの関係から見出した地震のマグニチュードと水素ガスの発生量との相関式より地震時に発生する水素ガス量を見積もったところ、小規模の地震の場合でも断層帯の流体中の水素ガス濃度が1.1mol/kg以上になることを報告している。

上記の実験結果をもとに巨大地震を対象とした水素ガス発生量を算出するためには、想定される最大のマグニチュードを決定することが必要となる。そのため横軸にマグニチュード、縦軸に地震累積数の対数をとると、ほぼ一直線で近似できるというグーテンベルグ・リヒター則から地震の規模を推定することが考えられるが、宇津(1984)は、日本とその付近に起きた浅い地震（深さ60km以浅）のマグニチュード別地震発生頻度が、マグニチュード8より大きくなるとグーテンベルグ・リヒター則の直線関係から徐々に下側にずれてくることを報告している。また、Well and Coppersmith(1994)におけるマグニチュードと地震パラメータ（変位量、破碎面積など）の相関が整理可能な最大のMwは7.9であることが報告されている。

以上の知見から、マグニチュードを7.9とした場合の水素ガス発生量をHirose et al. (2011)の実験結果による相関関係から求めると約 5.9×10^8 molとなる。なお、ここで推定した水素ガス発生量に必要な水の量は、 2.1×10^4 m³となるが、Well and Coppersmith(1994)における相関式から、Mw（モーメントマグニチュード）=7.9の場合の断層帯の間隙体積を推定すると、 2.2×10^7 m³（断層の間隙比を仮に0.1とした場合）となり、水素ガス発生に必要な水量は十分存在可能であると考えられる。

本事業では、Hirose et al. (2011)の相関式により求めた水素ガス発生量を考慮し、断層シナリオの性能評価に用いるパラメータ（緩衝材からの押し出し流量など）を明確化するための解析を行った。解析では、Hirose et al. (2011)の相関式により求めた水素ガス発生量を基本に、その1/10及び1/100とした場合のガス相圧力を考慮するとともに、45度の傾斜でガラス固化体の中心を通る断層を想定しガス流入量などの変化を求めた。その結果、解析モデル上設定した断層を経由して断層起源ガスが流入するとともにガス相圧力が上昇し、埋め戻し部、緩衝材及び岩盤において、ガス圧による破碎を起こすことが示唆された。また、流出側に断層が存在する場合は、緩衝材に到達したガスは、周辺の断層を伝って移動するため、緩衝材からの押し出し流量はみられなかった。

本事業での影響評価解析では、Hirose et al. (2011)の実験結果から断層運動に伴う水素ガスの発生量を推定したが、断層起源ガス発生については、未だ不確実な面もあることから、今後の更なる研究の進展に期待すべき点が多い。

6) 母岩、断層の透水性及び岩盤ひずみ変化に伴う地下水流動への影響

断層の透水性は、硬岩の場合、健岩部（ 10^{-8} m/s程度）より1オーダー程度高い透水係数（ 10^{-

7m/s 程度)となり、軟岩では健岩部 (10^{-9}m/s 程度)より2オーダー高い透水係数 (10^{-7}m/s 程度)を示すことが調査結果よりわかった。また、活動直後に高透水となった断層が、時間の経過とともに透水性が低下する現象(断層の透水性回復)が、1995年兵庫県南部地震で出現した野島地表断層の調査結果で報告されている。これより、断層活動に伴って生じた高透水性が長期間にわたって継続しないことがわかった。

巨大地震・断層活動に伴う地質環境への影響に関するデータとして、東北地方太平洋沖地震を事例に、震央から150km程度の距離に位置する岩手県釜石鉱山坑道(以降、釜石)、及び国立天文台水沢VLBI観測所附属江刺地球潮汐観測施設(以降、江刺)で観測されている岩盤ひずみ、弾性波、間隙水圧を調査した結果、江刺で観測された岩盤ひずみは地震前後で伸縮方向の反転、以降その傾向が継続していること、釜石の弾性波速度変化から、地震時に伸張した岩盤が徐々に収縮しつつあること、釜石の間隙水圧は地震時の変化よりも季節変動が大きいこと、いずれの観測地点でも坑道の崩壊がないことが確認された。これらより、震源から離れた観測地点では、過酷事象に結びつくような岩盤の損傷や透水性の増大には至っていないことが示唆される調査結果が得られた。一方、東北地方太平洋沖地震から数年経過し、江刺の岩盤ひずみは地震直後のような大きな変化がないこと、釜石の弾性波速度変化は地震前に見られた季節変動が確認されるようになってきたことなどより、今後観測値が安定していくことが予想される(日本原子力研究開発機構, 2014; 2015; 2016)。

7) 地震動による人工バリア・処分施設への影響

① 地震動による人工バリアへの影響

わが国で検討されている高レベル放射性廃棄物の地層処分概念における廃棄体と緩衝材とでは大きく密度が異なるため、地震活動による地震動により人工バリアが振動した場合においても、人工バリアがシステムとして健全であり、人工バリアに期待される安全機能が確保できることを示すことが重要である。

第2次取りまとめ(核燃料サイクル開発機構, 1999)では、閉鎖後におけるニアフィールドを対象として地震動による影響の検討している。人工バリアは岩盤と一体となって振動すること、緩衝材が地震によりせん断破壊しないこと、緩衝材が液状化しないこと、人工バリアは耐震安定性を有することが示されている。

その後の新たな知見として、地表より250m以深での地震加速度は、地表の最大加速度に対して $1/3\sim 1/5$ 程度であること、深度に依存しないことが報告されている(藤川ほか, 2012)。しかし、地震動が繰返し起こることによる長期的な影響については、事例等は報告されていない。世界で発生する地震のおよそ10%が日本とその周辺で発生していること、内陸型地震の発生間隔、あるいは活断層の再来周期が、数百年から数千・数万年といわれていることから、繰返し地震動が人工バリアに如何なる影響を及ぼすのか、これらの事象の可能性について評価しておくことが必要である。

これまで本調査では、繰返し起こる地震動による人工バリアの閉じ込め機能の劣化・喪失につながるプロセスについて検討評価を行った。

地震時におけるオーバーパックと軟岩系岩盤掘削面との離隔の変化量は最大で0.1mm以下であ

り、最小安全率分布から、緩衝材は破壊していないことが確認できた。このことから、想定地震における緩衝材への影響は微少であり、緩衝材の健全性は保たれるものと推察された。また、オーバーパックが岩盤に接するまでに要する振幅倍率・加振回数の検討では、線形モデルで緩衝材の剛性低下を考慮しても、オーバーパックが岩盤に接するには、本検討で用いた入力地震動と同じとして、10,000回程度発生することとなる。

以上の検討結果からオーバーパックが岩盤に接するような地震動の大きさ、地震動の繰返し回数は、現実的ではない非常に大きな値が算定され、緩衝材は十分な耐震性能を有していると結論された。

②地震動による処分施設への影響

今回の解析結果により、閉鎖後の長期を見据えた巨大地震による地下施設への影響評価として、立坑周辺岩盤におけるEDZIは拡大せず、よって透水性の増大する可能性は低いものと評価された。また、仮に今回の想定以上の巨大地震に遭遇した場合でも、透水係数は2～3割程度増加することが想定されるが、地下施設閉鎖時点で、天然バリアの性能を満たす透水係数が確保されていれば、核種の移行が加速する事象は生じにくいものと考えられる。

(2) 個別現象の分析を踏まえた影響評価の試行

1) はじめに

ここでは、地震・断層活動に起因する過酷事象になり得る安全機能の状態・組み合わせ、及びそのような状態・組み合わせに至ることに関係し得る個別現象を抽出すること、関連する現象の研究において着目すべき重要な項目や課題をフィードバックすることを目的とした検討を実施した。

上記の検討のためには、科学的な知見を反映して過酷事象に関係し得る安全機能の状態や個別現象を探索することが重要となる。

本検討では、個別現象の分析を通じて作成した情報共有シートを活用した安全機能の劣化・喪失の分析、及び感度解析を通じて過酷事象となり得る安全機能の状態や関連する個別現象を抽出するための手法の検討と試行を行った。試行にあたっては、H12レポートのレファレンスケースに準拠した設定（モデル、パラメータ、対象核種等）を起点とした。

2) 安全機能の分析

ここでは情報共有シートの記載内容を分析し、地震・断層活動による人工バリア・天然バリアにおけるTHMC影響によって物理・化学的に可能性のある、最も過酷な安全機能の劣化・喪失の状態を、①情報共有シートの集計、②時間枠及び前提条件の設定、③安全機能の劣化・喪失の分析の手順で設定した。

①情報共有シートの集計

個別現象ごとに作成された情報共有シートに記載されている、THMC影響の有無とその内容に関する記述を集計し、1枚のリストに集約した。情報共有シートに記されている情報について、横軸に事象、縦軸にTHMC影響を配した集計表を表4.3.3-1に示す。表4.3.1-1からは以下のことが言える。THMC影響のうち、熱的影響（T）について明確に影響があるのは深部の地下水の流入に起

因する事象のみである。一方、断層のずれによる人工バリアのせん断変形では断層のずれ面での摩擦による温度上昇が指摘されているものの、長期的な観点からは影響がないとされている。したがって、長期的な視点から温度上昇が継続する可能性がある事象は、深部の地下水の流入だけとなる。水理学的影響 (H) については、全ての事象で影響があるまたは可能性があるとしてされている。これらの事象のうち、断層のずれによる人工バリアのせん断変形、地層処分における人工バリアの振動影響については概ね母岩と廃棄体の接触による短絡パスの形成が主なものとなっている。一方、母岩の透水性の変化については亀裂の増加、それによる高透水性化が影響の主なものとなっている。力学的影響 (M) については、断層のずれによる人工バリアのせん断変形が主な事象となっている。化学的影響 (C) については、深部の地下水の流入によるものが地下水pHの低下と溶存イオン成分の増加、地表水の流入ではEhの増加（酸化性化）が主な影響として上がっている。一方、母岩の透水性の変化でもpHの低下・増加、Ehの増加に「○」がついているが、全て透水性の変化による別の地下水（あるいは地表水）の流入による影響となっている。以上より、情報共有シートで整理された事象について、考え得るTHMC影響が抽出された。

表4.3.3-1 情報共有シートの取りまとめ表

事象	性の深部の深部流下体（の非流入火山	地表面の地下水の流入	バリアのせん断変形人工	断層のずれによる発生	断層起源ガスの発生	母岩の透水性の変化	バリアの振動影響人工
	①	②	③	④	⑤	⑥	
	影響の種類		影響の有無				
T1	●	×	×	×	○	×	
T2	○	×	×	×	○	×	
T3	-	×	×	×	-	×	
H1	○	○	●	○	●	●	
H2	×	×	×	×	●	×	
H3	-	-	×	×	○	-	
H4	○	-	●	○	-	●	
M1	×	×	●	×	×	○	
M2	×	×	●	○	×	○	
M3	×	×	●	×	-	○	
M4	×	×	●	×	○	●	
C1	●	×	×	×	○	×	
C2	-	×	×	×	○	×	
C3	-	●	×	×	○	×	
C4	●	×	×	×	-	×	
C5	-	-	×	×	-	×	
C6	×	×	×	×	-	×	

②時間枠及び前提条件の設定

ここでは、影響評価の前提となる断層の特性、発生時期及び処分場との関係及び評価で考慮する時間枠を設定した。設定にあたっては、情報共有シート及び4.3.2項にまとめられた知見を踏まえて、物理・化学的に可能性のある最も過酷な設定となるように断層の特性や発生時期、処分場との位置関係を設定した。

a. 時間枠の設定

地震・断層活動に起因する諸現象が安全機能の劣化・喪失に与える影響は、時間枠によって異なることから、安全機能の時間的な変遷を踏まえて影響評価の前提となる時間枠を設定し、設定した時間枠ごとに、安全機能への影響を抽出することとした。ここでは、オーバーパックスの健全性が維持される閉鎖直後～閉鎖後1000年、オーバーパックスの開口後、ガラス固化帯による移行抑制が維持される閉鎖後1000年～7万年、及びそれ以降の3つの時間枠を設定した。

b. 断層の特性・発生時期

4.3.2項に記載されているように、今まで繰り返し活動し、将来も活動する可能性が高く、変位の規模が大きい断層については、サイト選定時に回避されるものの、回避条件を満足してもなお不確実性が残ることから、物理・化学的に可能性のある最大規模の断層として、国内で過去に発生した最大規模の内陸型地震である濃尾地震（M8.0）の起震断層に相当する規模の断層を想定する。この断層の特性については、4.3.2項での整理結果を踏まえ、破砕帯の幅、プロセスゾーンの幅、断層の傾斜をそれぞれ540m（片側幅）、1300m（片側幅）、 20° に設定する。また、発生時期については、最も過酷な設定として、処分場の閉鎖直後に最初の断層活動が生じるとともに、4.3.2項での整理を踏まえて、その後、700年周期で再活動を繰り返すものとする。

一方、断層の水理学的な特性については、4.3.2項の整理や情報共有シートを参照して設定した。このうち破砕帯は周囲の母岩よりも透水係数が1～2桁程度高い（4.3.2項）ことから、顕著な水みちとなることが推定される。一方、情報共有シート2）（深部流体の流入）及び3）（地表水の流入）を踏まえると、断層を介した深部地下水の地表への流出と、地表水の地下深部への引き込みの双方の事例が認められることから、ここではそれぞれ別々の設定として考慮する。断層面については断層粘土等により局所的に透水性が低くなっている場合も想定されるが、せん断面の幅が狭く、かつせん断面の幅に係る統計的な情報が収集されていないことから、本検討では周囲の破砕帯と同等の水理特性を考慮することとする。一方、プロセスゾーンは、破砕帯から健岩部にかけて漸移する領域と考えられることから、母岩よりも1桁程度高い透水係数を設定するとともに、深部地下水の流出を考慮する場合には断層に向かう流れを、地表水の引き込みを考慮する場合には、断層から周囲に向かう流れを考慮する。

c. 処分場と断層との位置関係

処分場については、2km×2kmのフットプリントを考慮するとともに、計4万体の廃棄体がこの中に等間隔に配置されているものと仮定する。断層と処分場との位置関係については、破砕帯等によって影響を受ける処分場の面積が最も広くなるように、正方形のフットプリントの対角線と断層面が重なるように設定した。この時、フットプリントの対角線上に位置する廃棄体200体が断層面に位置するものとし、残りの廃棄体39800体については、破砕帯の幅（片側幅）540m及びプロセスゾーンの幅（片側幅）1,300mを考慮してフットプリントの中で破砕帯、プロセスゾーン、健岩部が占める面積を計算し、これらの面積比により、破砕帯、プロセスゾーン、健岩に含まれる廃棄体の数を、それぞれ24516体、15025体、260体と計算した。

本検討で設定した、影響評価の前提となる断層の特性、発生時期及び処分場との関係をを図4.3.3-2にまとめた。

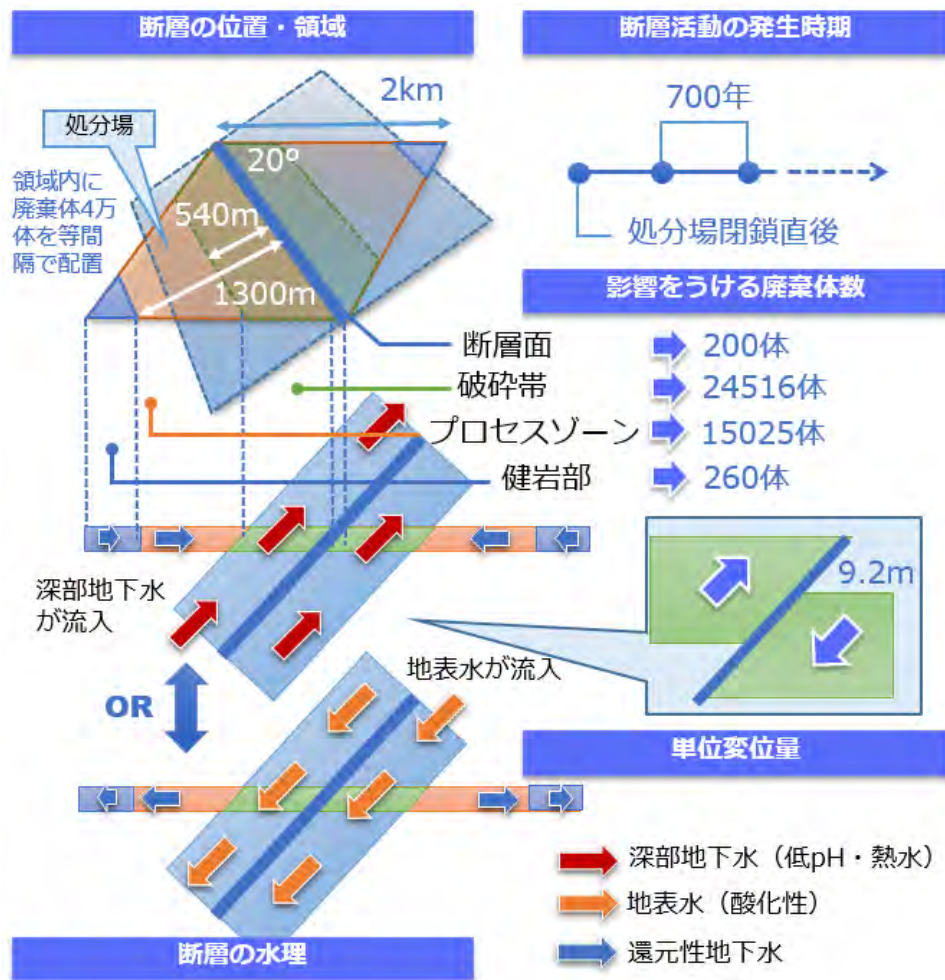


図4.3.3-2 影響評価の前提となる断層の特性・発生時期の設定

③安全機能の劣化・喪失の分析

ここでは、着目する人工バリア及び天然バリアに関わる安全機能を列挙した上で、②で検討した時間枠・前提条件の各パターンに対して、①で集計したTHMC影響から、物理・化学的に可能性のある、最も過酷な安全機能の劣化・喪失の状態を設定した。このうち、断層面（せん断面）に位置する廃棄体については、断層によるせん断変形の影響を直接受ける。上記のように単位変位量は9.2m（4.3.2項及び情報共有シート1）参照）であることから、直径約2.2mの処分孔が1回の断層活動で完全にずれることとなり、緩衝材が変形するとともに、廃棄体と母岩が直接接触する可能性が高く、これにより、緩衝材の機能が完全に喪失することが想定される。また、オーバーパックの健全性が想定される1000年以前においては、廃棄体と母岩の接触によってオーバーパックが破損した場合、オーバーパックによる閉じ込め機能が喪失する。廃棄体と母岩の接触によってオーバーパックの破損が生じるかどうかについては引き続き実験・解析を通じて確認を進めている（4.3.2項及び情報共有シート4）参照）。仮にオーバーパックによる閉じ込め機能が喪失し

た場合、地下深部から非火山性の熱水が供給される場合、深部地下水とガラス固化体が直接接触することによって、ガラスの溶解速度が増加することが想定される。

一方、破砕帯に位置する廃棄体については、せん断変形の影響はほとんど受けないものの、深部地下水や地表水による化学的な影響や、透水性の増加による水理学的な影響を受けると考えら得る。このうち、深部地下水による化学的な影響としては、100℃程度の熱水と、pH3程度の酸化性地下水の影響が想定され（情報共有シート2）参照）、これにより、緩衝材中または母岩中のKd等が変化することで、核種移行遅延機能が低下することが想定される。一方、水理学的な影響については、透水係数が母岩に比べて1~2桁程度上昇することで顕著な水みちとなる一方、1回の断層活動から次の断層活動までの間に亀裂開口幅の減少や亀裂の充填によって透水性が低下し、次の断層活動の際に透水性が回復するサイクルを繰り返す可能性が指摘されており（4.3.2項参照）、この場合、700年周期で核種の蓄積と放出が繰り返される可能性が想定される。

プロセスゾーンに位置する廃棄体について、水理学的な影響のみを受けることが想定される。時間枠・領域ごとに設定した安全機能の劣化・喪失の組み合わせを図4.3.3-3にまとめる。今後はこれらの安全機能の劣化・喪失の組み合わせを踏まえて感度解析を実施するとともに、その結果を踏まえて過酷事象（ここでは被ばく線量が100mSvを超える事象）につながる個別現象を絞り込む予定である。

時間枠		閉鎖後～1000年				1000年～7万年				7万年～			
		領域				領域				領域			
安全機能		断層面	破砕帯	プロセスゾーン	健岩部	断層面	破砕帯	プロセスゾーン	健岩部	断層面	破砕帯	プロセスゾーン	健岩分
C1	OPによる閉じ込め	×	■	■	■	-	-	-	-	-	-	-	-
E1	ガラスによる移行抑制	▲	■	■	■	▲	▲	■	■	-	-	-	-
E2	溶解度制限	×	▲	■	■	×	▲	■	■	×	▲	■	■
E3	緩衝材中の拡散	×	▲	■	■	×	▲	■	■	×	▲	■	■
E4	緩衝材中の収着	×	▲	■	■	×	▲	■	■	×	▲	■	■
E5	母岩の移行抑制	▲	▲	▲	■	▲	▲	▲	■	▲	▲	▲	■

×：機能の喪失 ▲：機能の低下 ■：健全 -：機能を期待しない

図4.3.3-3 時間枠・領域ごとに設定した安全機能の劣化・喪失の組み合わせ
(深部地下水の上昇を考慮する場合)

4.4 まとめ

4.4.1 地層処分システムにおける過酷事象の概念構築

地層処分システムにおける過酷事象の評価手法を高度化することを目的として、平成27年度までに整備した過酷事象の検討フローに基づき、これまでに気付かなかった事象・プロセスの連鎖を発想しやすくするという観点から、人への甚大な影響を起点としたアプローチ、及び不安や懸念を起点としたアプローチに対する具体的な手順を整備した。

また、人への甚大な影響を起点としたアプローチに基づき、吸入被ばくに対する事象・プロセスの連鎖の探索を試行した。さらには、不安や懸念を起点としたアプローチに基づき、発端事象に着目して懸念事項リストを拡充するとともに、発端事象の発生からそれらが地層処分システムに与える影響を記述する試行を実施した。

4.4.2 巨大地震・断層活動を事例とした評価技術開発

(1) 安全機能に着目した評価手法の開発

巨大地震・断層活動を事例とした過酷事象を評価することを目的として、過酷事象に関係し得る安全機能の状態や個別現象を探索するための基礎情報とすべく、巨大地震・断層活動に関連する最新の科学的な知見を取りまとめ、関係者で共有・記録するための「情報共有シート」として整理した。さらに、情報共有シートを活用しつつ、感度解析を含む「安全機能の分析」と「個別現象の調査・評価」を反復的に行うことで、過酷事象につながる現象やその条件を抽出し、重要度評価につなげるための一連の手順を具体化した。

(2) 巨大地震・断層活動に関連した個別現象の調査・評価

1) 起因事象としての断層の特性

サイト選定段階で回避する天然事象として挙げられている断層に対して、回避条件を満足させてもなお残る不確実性への対応を目的として、断層の活動を起因として過酷事象に至るシナリオ探索、及び影響評価を実施するにあたり必要となる断層の考え方について検討を行った。その結果、検討を行う断層の規模として、既往の内陸型地震で最大であった濃尾地震の規模であるマグニチュード8.0を想定し、マグニチュードと断層長さの関係より、断層長さ $L=80\text{km}$ 、また、断層長さ L と断層破碎帯幅・プロセスゾーン幅の関係より、断層破碎帯の片側幅を 540m 、プロセスゾーンの片側幅を 1300m と設定した。この規模の断層が、低角度で処分場を直撃した場合、断層による破壊の影響を直接被る部分や、間接的な影響で周辺岩盤の透水性が高くなる部分などにより、処分場の大部分が断層による影響範囲に入ると想定され、単位変位量（1回の活動における変位量）から推定されるせん断変位は 9.2m であり、人工バリア及び処分坑道断面規模を上回る。

断層の透水性は、硬岩の場合、健岩部より1オーダー程度高い透水係数となり、軟岩では健岩部より2オーダー高い透水係数を示すことが既往の水理試験及び文献の調査結果よりわかった。また、断層の活動に伴い生じた高透水性が長期間にわたって継続しない可能性があることがわかった。

2) 断層のずれによる人工バリアのせん断変形の影響

巨大地震・断層活動を事例としたシナリオとして、断層のずれにより岩盤と廃棄体がせん断衝突変形した場合のオーバーパックの破損の有無及びガラス固化体と母岩の接触の有無を評価するために、模擬岩盤と模擬オーバーパックが衝突する断層模擬せん断衝突模型実験を実施し、模擬オーバーパックのせん断挙動等を把握した。また、断層模擬せん断衝突模型実験の再現解析及び設計用実寸法の人工バリアの3次元モデルによる非線形大変形せん断衝突解析を実施した。この結果、最大級のM8.0クラスの断層ずれ（最大断層すべり速度 $V_m=7100\text{mm/s}$ ）の直撃により、硬岩系岩盤とオーバーパックがせん断衝突した場合、オーバーパックの胴部外表面の一部において最大295MPaのミーゼス相当応力が発生し、オーバーパックの材質である压力容器用炭素鋼の降伏応力205MPaよりも大きい、引張強さ410MPaよりも115MPa小さな値であるため、オーバーパックの破損の可能性は小さいと考えられる。

3) 地震動による人工バリア・処分施設への影響

地震動により廃棄体が母岩と接触し緩衝材の安全機能が機能しない可能性を評価するため、処分場閉鎖後の人工バリアを対象として、人工バリアと周辺岩盤の2次元地震応答解析（全応力）を実施した。入力地震波は、2008年岩手・宮城内陸地震より処分深度GL-500mに引き戻した入力地震波を設定した。

解析の結果、地震時におけるオーバーパックと軟岩系岩盤掘削面との離隔の変化量は最大で0.1mm以下であり、緩衝材も破壊しないことがわかった。このことから、想定地震における緩衝材への影響は微少であり、緩衝材の健全性は保たれるものと推察された。

また、オーバーパックが岩盤に接するまでに要する振幅倍率・加振回数の検討では、線形モデルで緩衝材の剛性低下を考慮した結果では、オーバーパックが岩盤に接するには、本検討で用いた入力地震動と同じとして、10,000回程度発生することとなる。

以上の検討結果からオーバーパックが岩盤に接するような地震動の大きさ、地震動の繰り返し回数は、通常では考えられない非常に大きな値が算定され、緩衝材は十分な耐震性能を有していると結論された。

巨大地震による立坑への影響については、立坑周辺岩盤においてEDZは拡大せず、透水性の増大する可能性は低いと評価される。仮に今回の想定以上の巨大地震に遭遇した場合、透水係数は2～3割程度増加するが、地下施設建設時（常時）に極端な透水係数の増加が見込まれなければ、核種の移行が加速する事象は生じにくい。

(3) 個別現象の分析及び影響評価の試行

1) 個別現象に関する分析

処分システムの安全機能に影響を及ぼす可能性のある個別現象として、①起因事象としての断層の特性、②深部流体の影響、③地表水の流入の影響、④断層のずれによる人工バリアのせん断変形の影響、⑤母岩の透水性への影響、⑥地震動による人工バリア・処分施設への影響、⑦断層起源ガスの発生の影響の7種類の現象に着目し、それぞれ個別現象研究を進めるとともに、科学的な知見を反映して過酷事象に関係し得る安全機能の状態や個別現象を探索するための基礎情報

として、「情報共有シート」を作成した。

2) 個別現象の分析を踏まえた影響評価の試行

情報共有シートを用いて地震・断層活動に関する最新情報を調査・分析した結果、起回事象として考慮しうる最大規模の断層の形状と影響範囲、及び物理・科学的に可能性のある最も過酷な安全機能の劣化・喪失の状態とその組み合わせが抽出された。

参考文献

- Abaqus(2016) : Abaqus finite element system, Dassault Systèmes Simulia Corp., Providence, RI, USA.
- ArkQuake (2016) : SHAKE 相当の成層地盤地震応答解析プログラム「ArkQuake Version 3.08 Lev.01」, 株式会社アーク情報システム, 2016.
- Bernard, P. (2001) : From the search of ‘precursors’ to the research on ‘crustal transients’, Tectonophysics, Vol. 338, pp. 225-232.
- 防災科学技術研究所 (2016) : K-NET、KiK-netデータ。
<http://www.kyoshin.bosai.go.jp/kyoshin/quake/>
- 長秋雄, 国松直, 金川忠, 藤井真希, 横山幸也, 小川浩司, 田中正弘 (2009) : 我が国における地下岩盤内の初期地圧状態—応力解放法による実測データに基づく—, 地質調査研究報告, 第60巻, 第7/8号, p. 426-427.
- 大丸修二, 竹内竜史, 尾上博則, 三枝博光 (2012) : 超深地層研究所計画の第2段階における単孔式水理試験結果, 日本原子力研究開発機構, JAEA-Data-Code-2012-020.
- 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—第2次TRU廃棄物処分研究取りまとめ—, 電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構, JNC TY1400 2005-002, FEPC TRU-TR2-2005-01, 平成17年7月.
- 電力中央研究所 (2016) : 数値シミュレーションによる降下火山灰の輸送・堆積特性評価法の開発 (その2), 報告書番号015004.
- 土木学会原子力土木委員会地下環境部会編 (2001) : 概要調査地区選定時に考慮すべき地質環境に関する基本的考え方, 土木学会, 102p.
- FLIPコンソーシアム (2016) : FLIPの高度利用について, 一般社団法人FLIPコンソーシアム。
http://flip.or.jp/flip_history.html
- 藤田朝雄, 五月女敦, 原啓二 (1992) : 緩衝材の力学試験, 動燃技術資料, PNC TN8410 92-170.
- 古屋和夫, 児玉敏雄 (1999) : 断層活動が地下の水理に与える影響に関する調査, 核燃料サイクル開発機構, 契約業務報告書, JNC-TJ7420-2005-039.
- 原子力発電環境整備機構 (2002) : 概要調査地区選定上の考慮事項, 高レベル放射性廃棄物の最終処分施設の設置可能性を調査する区域の公募関係資料—3.
- 原子力発電環境整備機構 (2004) : 概要調査地区選定上の考慮事項の背景と技術的根拠—「概要調査地区選定上の考慮事項」の説明資料—, NUMO-TR-04-02.
- 原子力発電環境整備機構 (2011) : 地層処分事業の安全確保 (2010年度版) —確かな技術による安全な地層処分の実現のために—, NUMO-TR-11-01.
- 原子力発電環境整備機構 (2013) : 「第2次とりまとめ」に示された地質環境の長期安定性と地質環境特性に関する見解についての検討, 総合エネルギー調査会電力・ガス事業分科会原子力小委員会地層処分技術ワーキンググループ (第1回) 参考資料2.
- 原子力発電環境整備機構 (2016) : 地層処分セミナーの振り返りについて, 総合資源エネルギー調査会 放射性廃棄物ワーキンググループ, 第29回会合, 参考資料2-2.
- 平井卓, 棚井憲治, 菊池広人, 鈴木英明, 高治一彦, 大沼敏 (2003) : 断層ずれに伴う人工バリア

- の力学的挙動評価, JNC TN8400 2003-009.
- 廣野哲朗, 小村健太郎, 藤本光一郎, 伊藤久男, ジェームズモリジロウ, 佐藤比呂志 (2013): 断層掘削研究によって明らかになった地震時の断層滑り挙動とその物理化学的側面, 地学雑誌, Vol122, No. 2, pp. 323-342.
- Hirose, T., Kawaguchi, S. and Suzuki, K. (2011): Mechanoradical H₂ generation during simulated faulting: implications for an earthquake-driven subsurface biosphere, Geophysical Research Letters, VOL. 38, L17303, doi:10.1029/2011GL048850, 2011.
- IAEA (2000): Generic Procedures for Assessment and Response during Radiological Emergency, IAEA-TECDOC-1162.
- IAEA (2001): Generic Models for Use in Assessing the Impact of Discharges of Radioactive Substances to the Environment, IAEA Safety Reports Series No. 19.
- ICRP (2007): The 2007 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection, ICRP Publication 103, Annals of the ICRP, 37, (2-4).
- 地震調査研究推進本部 地震調査委員会 (2016): 震源断層を特定した地震の強震動予測手法(「レシピ」), 地震調査研究推進本部 地震調査委員会, 平成28年6月.
- 核燃料サイクル開発機構 (1999a): わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性—地層処分研究開発第2次取りまとめ—分冊1 わが国の地質環境, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN1400 99-021.
- 核燃料サイクル開発機構 (1999b): わが国における高レベル放射性廃棄物 地層処分の技術的信頼性—地層処分研究開発第2次取りまとめ—分冊2 地層処分の工学技術, サイクル機構技術資料, JNC TN1400 99-022.
- 核燃料サイクル開発機構 (1999c): わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性—地層処分研究開発第2次取りまとめ—分冊3.
- 核燃料サイクル開発機構 (1999d): わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性—地層処分研究開発第2次取りまとめ—別冊 地層処分の背景.
- 金折裕司 (2001): 断層の影響はどこまで及んでいるか, 応用地質, 41(6), pp. 323-332.
- 金子岳夫, 小山俊博, 鈴木康正, 加藤和之, 久米田正邦, 高橋一憲 (2005): 堆積軟岩のひずみレベルと透水特性に関する考察, 土木学会第34回岩盤力学に関するシンポジウム講演論文集.
- 経済産業省 総合資源エネルギー調査会 電力・ガス事業分科会 原子力小委員会 原子力の自主的安全性向上に関するワーキンググループ (2013): 総合資源エネルギー調査会基本政策分科会 第1回会合 資料1 平成25年7月.
- 経済産業省 総合資源エネルギー調査会 電力・ガス事業分科会 原子力小委員会 原子力の自主的安全性向上に関するワーキンググループ (2014): 原子力の自主的・継続的な安全性向上に向けた提言、平成26年5月.
- 経済産業省 総合エネルギー調査会 電力・ガス事業分科会 原子力小委員会 地層処分技術ワーキンググループ (2014): 最新の科学的知見に基づく地層処分技術の再評価—地質環境特性および地質環境の長期安定性について—.

- 経済産業省 総合エネルギー調査会 電力・ガス事業分科会 原子力小委員会 放射性廃棄物ワーキンググループ (2014) : 放射性廃棄物WG中間とりまとめ.
- 経済産業省 総合エネルギー調査会 電力・ガス事業分科会 原子力小委員会 地層処分技術ワーキンググループ (2015) : 科学的有望地の要件・基準に関する地層処分技術WGにおける中間整理.
- 経済産業省 資源エネルギー庁 (2015) : 「特定放射性廃棄物の最終処分に関する基本方針」改定案に関する意見照会及びパブリックコメントの実施について、電力・ガス事業分科会 放射性廃棄物ワーキンググループ, 第19回会合, 参考資料2.
- King, C. L., Zhang, W. and Zhang, Z. (2006) : Earthquake induced groundwater and gas changes, *Pure Appl. Geophys.*, Vol.163, pp.633-646.
- 北川有一, 藤森邦夫, 小泉尚嗣 (2004) : 大地震発生後の断層帯の透水性の時間変化—繰り返し注水実験による測定—, *地質ニュース*, Vol.596, pp.29-34.
- 北川有一, 藤森邦夫, 小泉尚嗣, 野津憲治, 五十嵐丈二 (2001) : 繰り返し注水実験による淡路島800m孔の湧水量変化から推定された岩盤の透水性の時間変化, *地球*, Vol.23, pp.245-249.
- Kitagawa, Y., Fujimori, K. and Koizumi, N. (2002) : Temporal change in permeability of the rock estimated from repeated water injection experiments near the Nojima fault in Awaji Island, Japan, *Geophys. Res. Lett.*, Vol.29, doi:10.1029/2001GL014030.
- Kitagawa, Yuichi(2007) : Temporal change in permeability of the Nojima fault zone by repeated water injection experiments, *Tectonophysics*, 443, pp.183-192.
- Kitano, Y., Yoshioka, R., Okuda, F. and Kazuo, K. (1967) : Geochemical study of ground waters in the Matsushiro area. Part 1: Chemical composition of ground waters, *Bull. Disas. Prev. Res. Inst.*, Vol.17, pp.47-71.
- 国土地理院 (2016) : 【特集】平成23年(2011年)東北地方太平洋沖地震に対する5年間の国土地理院の対応 GPS連続観測から得られた電子基準点の地殻変動 市町村ごとの地殻変動量(暫定).
<http://www.gsi.go.jp/common/000059961.pdf>
- 操上広志(2007) : 幌延深地層研究計画における地下水流動解析—平成17年度までの調査結果を踏まえた再解析—, JAEA-Research-2007-036.
- 草野友宏, 浅森浩一, 梅田浩司 (2012) : 日本列島における地下水・温泉ガスのヘリウム同位体比データベースの作成, 日本原子力研究開発機構, JAEA-Data/Code 2012-017.
- Lin, A., Tanaka, N., Uda, S. and Satish-Kumar, M. (2003) : Repeated coseismic infiltration of meteoric and seawater into deep fault zones: a case study of the Nojima fault zone, Japan, *Chemical Geology*, Vol.202, pp.139-153.
- 松葉谷 治, 酒井 均, 鶴巻道二 (1974) : 有馬地域の温泉, 鈹泉の水素と酸素の同位体比について, *岡山大学温泉研究所報告*, Vol.43, pp.15-28.
- 松田時彦(1975) : 活断層から発生する地震の規模と周期について, *地震(II)*, 第28巻, pp.269-

- 松田時彦(1990)：最大地震規模による日本列島の地震分帯図，地震研究所彙報，65，pp. 289-319.
- 宮城磯治 (2007)：高レベル放射性物質の廃棄に関する本格研究 現在火山が無い場所は，将来も火山岩無いのか？，産総研Today，Vol. 7，No. 2，pp. 14-15.
- 文部科学省(2012)：放射線を放出する同位元素の数量等を定める件（平成十二年科学技術庁告示第五号），文部科学省告示第五十九号，最終改正 平成二十四年三月二十八日.
- 内閣府中央防災会議 (2006a)：1891濃尾地震報告書，災害教訓の継承に関する専門調査会，内閣府中央防災会議，平成18年3月.
- 内閣府中央防災会議 (2006b)：東南海、南海地震等に関する専門調査会，中部圏・近畿圏の内陸地震の震度分布等について，検討資料集，断層のモデル化，平成18年12月.
- 中村一明 (1971)：松代地震から学んだこと一手に入れた地震制御へのデーター，Vol. 10，pp. 127-133.
- 日本アルミニウム協会 (2001)：社団法人日本アルミニウム協会編，アルミニウムハンドブック（第6版），2001年.
- 日本原子力学会 (2013)：日本原子力学会標準 浅地中ピット処分の安全評価手法：2012，AESJ-SC-F023:2012.
- 日本原子力学会 (2014)：日本原子力学会標準 外部ハザードに対するリスク評価方法の選定に関する実施基準：2014，AESJ-SC-RK008:2014.
- 日本原子力研究開発機構 (2014)：平成25年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発 報告書.
- 日本原子力研究開発機構 (2015)：平成26年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発 報告書.
- 日本原子力研究開発機構 (2016)：平成27年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発 報告書.
- 日本原子力研究開発機構 (2016)：緩衝材基本特性データベース，
<https://bufferdb.jaea.go.jp/bmdb/>
- 新見 健，大澤英昭，柳沢孝一，杉原弘造，吉田英一，瀬尾俊弘，北山 真，仙波 毅，佐藤稔紀，笹本 広，清水 功(1994)：釜石鉱山における地層科学研究－第1フェーズ総括報告書－，動力炉・核燃料開発事業団，PNC ZN7410 94-022.
- 西村 進 (2000)：紀伊半島の温泉とその熱源，温泉科学，Vol. 51，pp. 98-107.
- OECD/NEA (2000) Features, Events and Processes (FEPs) for Geologic Disposal of Radioactive Waste, An International Database, OECD Publishing, 92p.
- 尾上博則，竹内竜史(2016)：超深地層研究所計画における単孔式水理試験結果（2012年度～2015年度），日本原子力研究開発機構，JAEA-Data-Code-2016-012.
- 奥澤 保，塚原弘昭 (2001)：松代群発地震地域に湧出する深層地下水，地震 第2輯，Vol. 53，pp. 241-253.
- 大崎順彦 (1994)：新・地震動のスペクトル解析入門，鹿島出版会，p. 148.
- 大竹政和 (1976)：松代地震から10年，科学，Vol. 46，pp. 306-313.

- 尾山洋一, 高橋正明, 塚本 斉, 風早康平, 安原正也, 高橋 浩, 森川徳敏, 大和田道子, 芝原暁彦, 稲村明彦 (2011) : 日本列島の非火山地域における深層地下水水質と地質との関係について, 原子力バックエンド研究, Vol. 18, pp. 25-34.
- ポリプラスチック (2016) : POM ポリアセタール樹脂, POM M90-44 物性表, ポリプラスチック株式会社, 2016年.
- 斎藤雄也, 棚井憲治, 菊池広人, 平井卓, 西村繭果 (2008) : 断層ずれに伴う人工バリアの力学的挙動評価 (II), JAEA - Research 2008-010.
- 産業技術総合研究所 (2007) : 概要調査の調査・評価項目に関する技術資料—長期変動と地質環境の科学的知見と調査の進め方—, 産業技術総合研究所地質調査総合センター研究資料集, No. 459.
- 産業技術総合研究所 (2012) : 概要調査の調査・評価項目に関する技術資料—立地要件への適合性とその根拠となる調査結果の妥当性—, 産業技術総合研究所地質調査総合センター研究資料集, No. 560.
- 産業技術総合研究所深部地質環境研究コア (2014) : 平成25年度 地質・気候関連事象の将来予測における不確実性の検討, 37p.
- 産業技術総合研究所 (2016) : 活断層データベース, https://gbank.gsj.jp/activefault/index_gmap.html
- 産業技術総合研究所地質調査総合センター (2017) : 「活火山データベース > 雲仙」, 第4図 (一日あたりの溶岩噴出量の時間変化)
https://gbank.gsj.jp/volcano/Act_Vol/unzen/text/exp08-3.html
- 酒井隆太郎・武田聖司・木村英雄・松葉 久 (2011) : 地質・気候関連事象に関するFEPデータベースの整備—隆起・沈降・地震活動・気候変動—, JAEA-Data/Code 2011-005, 107p.
- Sato, H, Taniguchi, H (1997): Relationship between crater size and ejecta volume of recent magmatic and phreato-magmatic eruptions: Implications for energy partitioning, GEOPHYSICAL RESEARCH LETTERS, VOL. 24, NO. 3, pp. 205-208, FEBRUARY 1.
- 佐藤稔紀, 石丸恒存, 杉原弘造, 清水和彦 (1992) 文献調査によるわが国の岩石の物理的特性に関するデータの収集, PNC TN7410 92-018.
- Schnabel, P. B., Lysmer, J. and Seed, H. B. (1972) : SHAKE A Computer program for earthquake response analysis of horizontally layered sites, Report No. EERC72-12, University of California, Berkeley.
- 嶋悦三, 太田外気晴, 高橋克也, 石田寛 (1993) : 鉛直アレー地震観測による地震動特性の研究 その3 : 地盤の減衰性調査, 日本建築学会学術講演梗概集 (北陸), p. 641-642.
- 島崎英彦, 新藤静夫, 吉田鎮男 (1995) : 放射性廃棄物と地質科学—地層処分の現象と課題—, 東京大学出版会, p. 349-351.
- 志水伸二, 谷口航 (1995) : 深部地下空洞および内部構造物の振動挙動に関する研究 (1), 動燃技術資料, PNC TN8410 95-099.
- 新エネルギー・産業技術総合開発機構 (1996) : 本宮地域—地熱開発促進調査報告書—, No. 37.

- Sugimura A. (1960) : Zonal Arrangement of Some Geophysical and Petrological Features in Japan and Its Environs, Journal of The Faculty of Science, The University of Tokyo, Vol. 12, pp. 133-153.
- 鈴木崇伸 (2005) : 地下構造物と地震動の関係について—強震記録から地下構造物に被害をもたらす地盤ひずみを算定する方法, Proc. 28th JSCE Earthquake Engineering Symposium 2005.
- Tadokoro, K. and Ando, M. (2002) : Evidence for rapid fault healing derived from temporal changes in S wave splitting, Geophys. Res. Lett., Vol. 29, doi: 10.1029/2001GL013644.
- Tadokoro, K., Ando, M. and Umeda, Y. (1999) : S wave splitting in the aftershock region of the 1995 Hyogo-ken Nanbu earthquake, J. Geophys. Res., Vol. 104, pp. 981-991.
- 高橋正明, 風早康平, 安原正也, 塚本斉, 佐藤努, 高橋浩, 森川徳敏, 大和田道子, 尾山洋一, 芝原暁彦, 稲村明彦, 鈴木秀和, 半田宙子, 仲間純子, 松尾京子, 竹内久子, 切田司, 大丸純 (2011) : 深層地下水データベース, 地質調査総合センター研究資料集, No. 532.
- 高治一彦, 谷口航 (1999) : 緩衝材の動的力学特性, サイクル機構技術資料, JNC TN8400 99-042.
- 竹内真司, 天野健治, 藤田有二 (2005a) : 広域地下水流動研究における単孔式水理試験データ, 核燃料サイクル開発機構, JNC-TN7450-2005-010.
- 竹内真司, 藤田有二 (2005b) : 超深地層研究所計画における単孔式水理試験データ, 核燃料サイクル開発機構, JNC-TN7450-2005-011.
- 田中明子, 山野 誠, 矢野雄策, 笹田政克 (2004) : 日本列島およびその周辺地域の地温勾配及び地殻熱流量データベース, 数値地質図P-5, 産業技術総合研究所地質調査総合センター.
- 谷口航, 高治一彦, 森康二, 御子柴正 (1999) : 深部地下空洞及び内部構造物の振動挙動に関する研究 (2) , サイクル機構技術資料, JNC TN8400 99-055.
- 谷口航, 高治一彦, 杉野弘幸, 森康二 (1999) : ニアフィールドの耐震安定性能評価, サイクル機構技術資料, JNC TN8400 99-054.
- 谷口航, 長谷川宏 (1999) : 地層処分場設計のための地質環境基本特性, サイクル機構技術資料, JNC TN8400 99-053.
- 東京大学地震研究所 (2004) : 「雲仙火山」火道掘削工事終了の報告 (平成16年7月13日プレス発表資料) , <http://www.eri.u-tokyo.ac.jp/koho/press/unzen/index.html>. (最終閲覧日: 2017年1月5日)
- 東レプラスチック精工 (2016) : TPS-POM ポリアセタール樹脂 物性データ, 東レプラスチック精工株式会社, 2016年.
- 網田和宏, 大沢信二, 杜 建国, 山田 誠 (2005) : 大分平野の深部に賦存される有馬型熱水の起源, 温泉科学, Vol. 55, pp. 64-77.
- UACJ押出加工名古屋 名古屋製作所 (2015) : アルミニウム合金棒A5056BD-H34の材料検査成績表, 株式会社UACJ押出加工名古屋 名古屋製作所, 2015年4月.
- 宇田進一, 林 愛明, 竹村恵二 (1998) : ボーリングコアから見た野島断層破碎帯の地下水の流動, 地球, 号外No. 21, pp. 171-175.

- Uda, S., Lin, A. and Takemura, K. (2001): Crack-filling clays and weathered cracks in the DPRI 1800m core near the Nojima Fault, Japan: Evidence for deep surface-water circulation near an active fault, *Island Arc*, Vol.10, pp.439-446.
- 宇野晴彦, 田坂嘉章, 谷智之, 古川和夫 (2004) : 軟岩空洞周辺の透水係数と岩石供試体せん断時の透水特性, 土木学会第33回岩盤力学に関するシンポジウム講演論文集.
- 宇津徳治 (1984) : 震度-震央距離-マグニチュードの関係その1, 東日本太平洋岸沖合を除く日本の浅発地震, *地震研究所彙報*, 59, 219-233, 1984.
- Wakita, H., Fujii, N., Matsuo, S., Notsu, K. and Takaoka, N. (1978) : “Helium Spots” : Caused by a Diapiric Magma from the Upper Mantle, *Science*, Vol.200, pp.430-432.
- Wakita, H., Nakamura, Y., Kita, I., Fujii, N. and Notsu, K. (1980): Hydrogen release: new indicator of fault activity, *Science*, 210, 188-190, doi:10.1126/science.210.4466.188., 1980.
- 吉田英一, 山本鋼志 (2004) : 酸化還元反応と長期的天然バリア機能, *地球*, Vol. 26, pp.475-479.
- Yoshioka, R., Okuda, S. and Kitano, Y. (1970) : Calcium chloride type water discharged from the Matsushiro area in connection with swarm earthquakes, *Geochem. J.*, Vol.4, pp.61-74.

5. 可逆性と回収可能性などを考慮した地層処分システム概念の提示

5.1 目的とこれまでの経緯

「可逆性と回収可能性などを考慮した地層処分システム概念」とは、処分計画の意思決定に関与する多様なステークホルダが地層処分の実施について確信を持つことができるものを指す。このような「確証性の高い（ステークホルダにとって納得のいく）地層処分システム概念」を構築するためには、従来から行ってきた科学・技術的根拠の提示以外に、概念構築過程での意思決定プロセスの公正性の確保が不可欠な要素となる。このような観点から、本サブプロジェクト「可逆性と回収可能性などを考慮した地層処分システム概念の提示」は、確証性の高い処分システム概念を構築するうえで有効な方法論やそれを支援する技術の開発および構築に必要な知見を整備することを目的として開始した。このうち、前者の「科学・技術的根拠の提示」については、特に「①レジリエンス的視点に基づく地層処分システムのロバスト性概念」に焦点をあてて検討を行い、それに応じた科学・技術的基盤を整備していくこと、また後者の「概念構築過程での公正性確保」については「②公正性に根ざした合意形成型の処分概念構築手法の開発」として取り組んできた。なお、前者の「科学・技術的根拠の提示」と後者の「概念構築過程での意思決定プロセスの公正性確保」はそれぞれ独立したものではなく、相互に密接に連携させていくことが重要であり、特に、

- 計画段階での科学・技術的予測や（許認可等の）事前評価の妥当性を確認するためのモニタリング
- 閉鎖の意思決定を行うまでの建設・操業段階において地層処分システムの状態が初期の計画段階での予測や事前評価から大きく逸脱した場合の計画の可逆性や廃棄体等の回収
- 想定外の事象に対するシステムの頑健性を示すためのストレステスト

といった技術や対策は、前者の科学的・技術的根拠に基づく評価の限界を補い、後者の合意形成に至るための鍵となる境界領域と考えられる。このような観点から、この境界領域について、本サブプロジェクトでは、上記①②に加え「③合意形成の促進に資するモニタリング技術等の開発」として検討を進めてきた。

上記①から③の検討について、平成25年度よりそれぞれのテーマごとに進めてきたが、平成27年度からはそれぞれのこれまでの成果を基に、成果全体の取りまとめに向け、図5.1-1に示す枠組みに沿って検討を進めてきている。

平成25年度～26年度	平成27年度～	
①レジリエンス的視点に基づく地層処分システムのロバスト性概念の検討	(1) 閉鎖後長期安全性に関するロバスト性の高い地層処分システム概念構築 (5.2項)	(3) 多様なステークホルダ間の合意形成に向けた協働の試行 (5.4項)
③合意形成の促進に資するモニタリング技術等の検討・開発	(2) 受動的な安全系へ推移するまでの期間におけるレジリエンス的取り組みの具体化 (5.3項)	
②公正性に根ざした合意形成型の処分概念の構築手法の開発		

図 5.1-1 成果の取りまとめに向けたアプローチ

今年度は、主に「(3)多様なステークホルダ間の合意形成に向けた協働の試行」に焦点をあて、以下を実施した。

平成27年度までに実施したフォーカスグループインタビュー¹、オンラインディスカッション²等により得られた成果を踏まえ、一連の活動に参加する可能性のある候補者を対象とし、地層処分及び他の技術的対策の原理や安全性に関する脅威となり得る現象等についてのサイエンスコミュニケーション³を行う。また、これまでの検討の成果である「ロバスト性の高い地層処分システム及び受動的な安全系へ推移するまでの期間におけるレジリエンス的取り組み」などを具体的に提示して、フォーカスグループインタビュー、オンラインディスカッションを実施し、そのような新たな概念と従来の概念との比較に関する意見の抽出、新たな概念及び従来の概念それぞれの選好理由について分析を加える。さらに、高レベル放射性廃棄物対策に関するアコモデーション⁴を目標としたワークショップを行う。以上の結果を取りまとめ、高レベル放射性廃棄物対策に関する異なる意見や態度の存在及びこれらが派生する原因について考察する。また、サイエンスコミュニケーションを通じた知識共有、種々のステークホルダのニーズや懸念に配慮した新たな処分概念の提示及び多様なステークホルダ間の話し合いによるアコモデーションといった活動がそれぞれどのように合意形成に寄与し得るかについて整理し、この結果を踏まえて今後の課題を抽出する。

具体的には、まず、多様なステークホルダ間の合意形成に向けた協働に焦点をあて、種々の模擬ステークホルダから成るコミュニティに対して、種々の政策や技術のオプション間のリスクトレードオフなどに焦点をあてた「共同事実確認 (joint fact-finding)」を行う (5.2項)。ここで、共同事実確認とは、「多様な、時には結論が対立する科学的情報を吟味し、背後にある前提条件、モデル、感度分析等を含めて公開した上で、関係者がある程度納得できる科学的情報と、現在の科学の限界とを整理することで、社会的意思決定をできるだけ科学的情報に基づくものとする取り組み」(Ozawa and Susskind, 1985) と定義され、科学的情報を必要とする合意形成において、異なる意見を持った人々が異なるエビデンス (根拠) に基づいてお互い相容れない主張を繰り返すことを防ぐことに資する。

次に、いわゆる非専門家である一般市民が有する地層処分に対する懸念や要求 (要望) と地層処分概念の技術的/社会的因子を関連づけるための「品質機能展開 (Quality Function Deployment: QFD)」に関する協働を行う (5.3項)。ここで、品質機能展開とは、「新製品の開発において、顧客ニーズと設計特性とをリンクさせることにより、課題や問題点を明らかにし、主に開発設計段階で確実な品質を作りこむことを目的とした設計アプローチ」(赤尾, 1977) であり、一般に多くの非専門家から出される要求について予めいくつかの処分概念の技術因子と関係づけておくことにより、概念構築の議論が円滑に進むことが期待される。

これら共同事実確認及び非専門家である一般市民の懸念や要求 (要望) と処分場の技術的/社会的因子とを関連づけた品質機能展開 (品質表) の事例を踏まえ、上記のコミュニティに参加する

¹ : 検証したい仮説に対し想定されるターゲット層の意識や深層心理を把握することができる座談会形式のインタビュー調査

² : オンライン (インターネット) を介した討議

³ : 非専門家との科学に関する対話

⁴ : 「合意」と言ってもそれぞれの意見の「完全なる一致」ではなく、各意見そのものの根本にあるもの、本質的な考え方、そのような意見や考えが生まれる環境や世界観など各人にとっての共通の認識を意味する合意

非専門家と専門家によるワークショップを開催し、「可逆性と回収可能性などを考慮した地層処分システム」というある程度幅の広いカテゴリーの中でより多くのステークホルダの合意を得ることのできるような概念を具体化する（5.4項）。

また、このワークショップにおける数度の対話によって生じる各参加者の意見や態度の変容についての傾向分析を行い、その結果を基にマルチエージェントシミュレーション⁵モデルを構築し、シミュレーションを用いることにより、異なる類型に属するメンバーによって導き出されるかもしれない代替的な結論や意見形成の経路等について予測的な知見を得る（5.5項）。

一方、5.3項に関連して非専門家を含む多様なステークホルダが地層処分概念について容易に理解（専門家と共有）できるよう、何らかの方法で地層処分の安全確保の仕組みを“見える”もしくは“実感できる”ようにする（「見える化」）ための候補技術について検討を加える（5.6項）。

なお、これらの取り組みにおいては、継続的かつ効率的な対話と協働を促進するために、昨年度までに開発した「合意形成型処分概念構築支援システム」を活用し、昨年度までの検討を通じて、非専門家を含む多様なステークホルダ間の合意を得つつ処分概念構築を行う上での課題として挙げられた以下の事項を踏まえて、合意形成型の処分概念構築技術の開発を目指す。

- 地層処分場の概念に関する議論に先立ちあるいはこれと並行して、原子力発電や核燃料サイクル等に関する政策オプション、長期貯蔵や他の代替的対策選択の可否といった事項についての知識が共有されること
 - 非専門家を含む多様なステークホルダが放射性廃棄物対策に求める要件には概念的あるいは感覚的なものも多く含まれ、専門家が処分場概念構築や設計において検討対象とする技術的因子とは大きく異なる。このため、これらの要件と技術的因子とを関連づけること
- 上記の目的を達成するための実施フローと、各実施課題の位置づけを図 5.1-2 に示す。

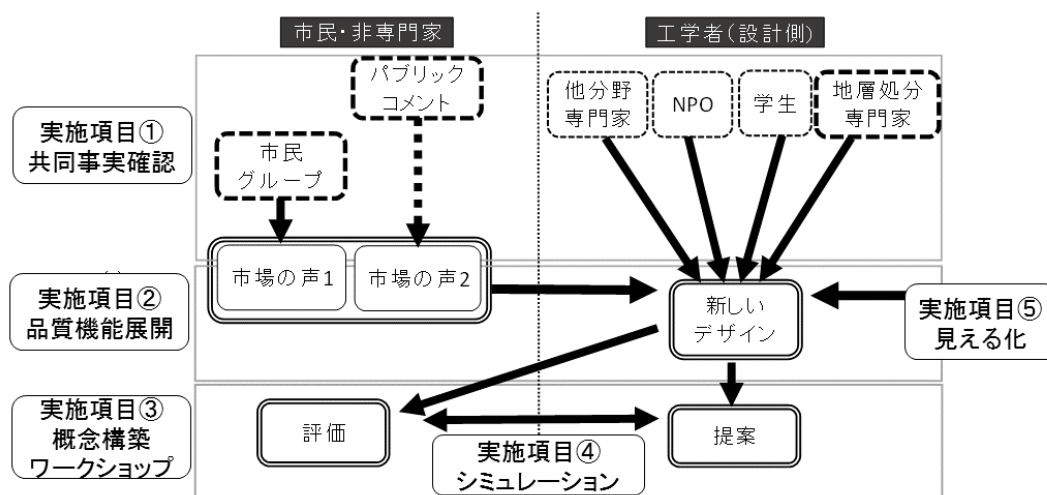


図 5.1-2 実施フローと課題の位置づけ

⁵：自然科学分野にみられるような現実を模擬するシミュレーションではなく、非一様な行動モデルを持つ行動主体（人間や組織を単位とする個別のエージェントとして表現）が相互に作用することによって様々な社会現象を生み出すシミュレーションを指す。マルチエージェントシミュレーションを、実社会に適用可能な社会システムや制度を創造する手段として用いるには、個々のエージェントには、現実の人間行動の再現性が高い水準で求められ、そのためには、実際の問題環境に接近して人間の振る舞いを観察し、人間の行動を理解・解釈し、計算モデル化するための技術と方法論が重要となる。

5.2 種々の政策や技術的オプション間のリスクトレードオフに関する共同事実確認

5.2.1 共同事実確認の実施

共同事実確認 (joint fact-finding) は、上述の定義から、例えば放射性廃棄物処分等のように対象となる分野が横断的で社会全体の合意が必要となる問題について、科学的な視点だけでなく、関係する各ステークホルダ間の利益の分配にも配慮しながら議論を進めていく手法の一つである。今回地層処分の問題に対して共同事実確認を適用するにあたっては、様々な考えや認識の程度が異なる構成員を模擬したステークホルダを本件では組織し、彼らが地層処分について抱く認識や懸念について、科学的根拠を含む「事実となるエビデンス (根拠)」部分とそれぞれの立場における価値観に基づく部分との違いを明確に区別し、区別された前者の「エビデンス部分の事実」を、非専門家を含む多様なステークホルダ間で共有することを目的に実施した。

この共同事実確認において重要なことは、ゆるぎない「事実となるエビデンス (根拠)」部分と各個人の「価値観」に基づく部分とを区分することである。そのためステークホルダは、共有すべき事実を知るため検討の過程において外部の科学者・専門家等の有識者に対し様々な視点からの質問を投げかけ、その回答の中から「事実となるエビデンス (根拠)」の選別を自ら判断し共有することになる。このようにして導き出され共有された「事実となるエビデンス (根拠)」の存在によって、後続の段階において利害が対立するステークホルダが共同で行う意思決定の際にも論点がぶれず、議論の発散を最小限に抑えることが期待される。

この共同事実確認による効果を知るために、ここでは放射性廃棄物の特徴や地層処分を含む種々の対策オプションに関する客観的な事実を説明し、その後有識者への質疑を行うという共同事実確認を行う前と後で、参加者の認識や意見の変容を把握した。得られた意見は、次の段階 (5.2.2 参照) において処分場概念構築の設計に活かすための基本データ (市場の声) として整理した。具体的には、平成 26 年度～27 年度に行ったオンラインディスカッションやフォーカスグループインタビュー及び、最近の公開されている地層処分に関する非専門家からの意見データに基づき、市場の声を抽出した。

5.2.2 市場の声の抽出と整理

(1) 抽出方法

まず、市場の声の基本データとなる意見データの収集のため、図5.2-1の市民・非専門家コミュニティ群を対象として以下のように意見データを収集し、その整理を行った。

- 平成26年度の主婦等のフォーカスグループ及び平成27年度の学生(文系や理系の大学生と大学院生)のフォーカスグループからの意見(図5.2-1の「市民グループ」のコミュニティ)
- 本年度の学生を対象としたグループインタビューのコミュニティ(図5.2-1の「市民グループ」のコミュニティ)
- 「科学的有望地の提示に係る要件・基準の検討結果(地層処分技術WGとりまとめ)(案)」パブリックコメントに寄せられた意見(地層処分技術WG, 2016)」(図5.2-1の「パブリックコメント」のコミュニティ)

なお、平成26年度の意見については、共同事実確認というステップを踏んで得られたものではないが、平成27年度と本年度得られた学生グループの意見については、以下の方法により共同事

実確認を行い、基本となる知識情報がある程度共有したうえでの意見データとして収集した。

共同事実確認にあたっては、一連の放射性廃棄物対策と地層処分の現状に関する事実（ファクト集）の説明を行った後、廃棄物の関連政策や地層処分等の対策オプション等について現状の問題意識や非専門家の関心を喚起するような具体的なメニューを作成し、共有認識の程度と問題意識など論点発掘のためのフォーカスグループインタビューを実施した。また、ファクト集の紹介にあたっては、それぞれの対策概念や処分方式の是非には触れず、まずは広く浅く話題提供を行いながら適宜質問を受け、さらに政策・技術オプションに関して多様な認識や論点の共有を明らかにするために、特に意見や認識の相違にかかわらず、ありのままの意見をデータに取り入れることとした。共同事実確認の項目は次の通りである。

- 地層処分
 - ✓ 高レベル放射性廃棄物と地層処分の概要
 - ✓ 地層処分の安全性と技術的成立性
 - 地層の長期安定性と特性
 - 処分施設の設計
 - 安全性の評価
 - ✓ 長期安全性に関する不確実性の存在
 - ✓ 地層処分のコスト
 - ✓ 地層処分事業の計画及び現在の進展状況
- 他の対策オプション
 - ✓ 長期貯蔵
 - 長期貯蔵の概念
 - 貯蔵コスト
 - 施設の耐用年数
 - 核物質防護の必要性
 - ✓ 代替処分概念
 - 氷床処分
 - 宇宙処分
 - 核種分離・変換

平成26-27年度及び本年度に得られた意見データを整理し、その内容を代表する市場の声(要求概念)のデータとしてまとめた。このうち、平成26年度の主婦等及び平成27年度と本年度の学生(文系や理系の大学生と大学院生)からのものを「市場の声1」とし、また「科学的有望地の提示に係る要件・基準の検討結果(地層処分技術WGとりまとめ)(案)パブリックコメントに寄せられた意見(地層処分技術WG, 2016)」からのものを「市場の声2」とした。

整理にあたってはKJ法⁶でメッセージの類似性に着目したグルーピングを行い、要求概念を抽出

⁶ : 文化人類学者の川喜田二郎(東京工業大学名誉教授)がデータをまとめるために考案した手法。集まった膨大な情報をいかにまとめるか、試行錯誤を行った結果、カードを使ってまとめていく方法を考え、これをKJ法と名付けた(川喜田、1967)。KJは考案者のイニシャルに因む。

し、市場の声データとして整理した。具体的には、次のような手順で行った（図5.2.2-1）。

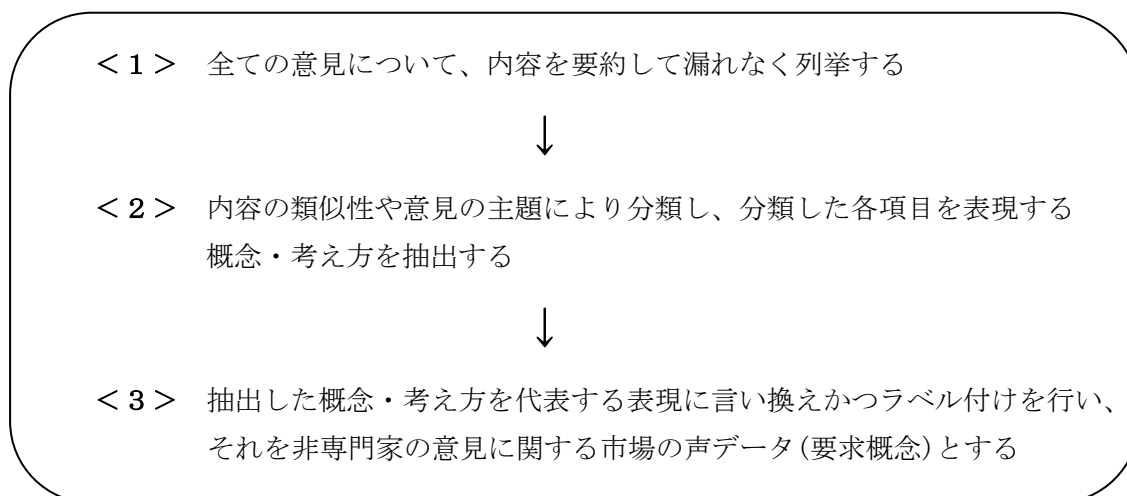


図5.2.2-1 市場の声として抽出する手順について

(2) 結果及びその整理

集まった意見やコメントの集計結果は次の通りである。

- 意見・コメントデータ総数 291
 - 「市場の声1」の抽出において用いたデータ数 168
(平成26年度:25、平成27年度:136、平成28年度:7)
 - 「市場の声2」の抽出において用いたデータ数 123
- 抽出した市場の声の数 16

図5.2.2-1の整理手順における< 2 >と< 3 >の結果を表5.2.2-1及び表5.2.2-2にまとめるとともに、個々の意見コメントから市場の声について以下に説明する。（収集・整理した付録表のフォーマットについては、[付録表参照](#)）。

1) 市場の声の抽出結果の例（市場の声1:平成26年度フォーカスグループ）

- 予測は万全ではなく想定外の事象の可能性は否定できない
 - 処分方法は多分、大丈夫なのだろうと思うが、仮説に対するリスク、想定されているものが網羅されているのか
 - 想定されるリスクは国土が火山国であることと、地震の影響がある
 - 人間が作るものには、欠陥がある
- 社会的公正さを重視した意思決定プロセスが必要
 - 正しい情報提供のもとで、世論調査、国民投票を行うことができると良い
 - 国民全員が同じ知識レベルで理解できる訳ではないので、国民的合意は無理だと思う。当事者でないものは、関心度が異なる。議会にゆだねることになる
 - 住民以外とのコンセンサスをとるための別の決まりが必要である
- 地層処分の安全性が見えるようにすべき
 - 勝手に掘り起こさないか不安。管理の方法をきちんとすべき

- 3代目以降には情報が薄れてしまう
等が挙げられた。

2) 市場の声の抽出結果の例（市場の声1:平成27年度フォーカスグループ）

平成26年度と同じような意見として、「予測は万全でなく想定外の事象の可能性は否定できない」があった一方で、「保管・貯蔵を長期化すべきではない」という意見があった。それぞれの意見をさらに細分化すると、以下のような意見であった。

■ 予測は万全ではなく想定外の事象の可能性は否定できない

- 処分方法は多分、大丈夫なのであろうと思うが、仮説に対するリスク、想定されているものが、網羅されているのか
- 想定されるリスクは国土が火山国であることと、地震の影響がある
- 人間が作るものには、欠陥がある

■ 保管・貯蔵を長期化すべきではない

- 中間貯蔵施設による地上管理は、管理費がかさむこと、次世代負担への配慮、劣化時の建物の建て替えコスト、テロのリスクがあり、あまり良い選択でない
- 地上管理はコストが高く、持続的な運営困難
- 地表保管で起こり得る事故は、地震、津波、隕石、爆発、テロ、戦争

等が挙げられた。その他、「正確で中立性のある情報発信が必要」、「国が場所を決めて、受け入れられる人がその地域に住めば良い」、「日本国内のエネルギー消費に応じて分散して複数の処分場を立地すべき」といった意見もみられた。

3) 市場の声の抽出結果の例（市場の声1:平成28年度学生グループ）

平成28年度は原子力やエネルギーの工学的知見をある程度備えた学生3名にインタビューを行い、次のような意見が得られた。

- 技術は提供する代わりに適地の特性を備えた他国で処分してもらうことは可能か
- とりあえず地層処分をするが、取り出し可能にする
- 無人島に廃棄施設を建設する
- 技術は十分にそろっているように感じる
- 地域選びが大変、市民を説得するのが難しい
- 技術を育てることが必要、かつ一般人の知識の向上も必要
- 科学的に地層処分が現状で正しい方法とは思いますが、それを実際に実施する場合、地域を選ぶ段階から難しいと思います。地域に住んでいる住民の合意を得るためには地層処分の安全性を市民に普及することが大切だと思います。

等が挙げられた。

4) 市場の声の抽出結果の例（市場の声2:「地層処分技術WGとりまとめ(案)のパブリックコメントに寄せられた意見（地層処分技術WG, 2016）」）

平成28年度は、上記パブリックコメントで寄せられた意見の集計結果も用いて集約を行った。

平成26-27年度では挙げられなかった新たな意見として、例えば以下のようなものがある。

- 原子力発電や核燃料サイクルの継続を前提とした地層処分ありきの説明は受け入れられない
 - 再処理をすることが前提となっている有望地の提示の目的は、破たんした
 - 核燃料サイクルの延命にすり替わっていないか
 - 原発の目的が電気をつくることのみにあるならば、ヨーロッパのように自然エネルギーをさらに活用してはどうか
- 安全性に確信が持てない
 - 福島事故も想定外であり、安全と言える根拠なし
 - 津波が防げなかった時代の情報を基に要件、基準を議論すべきでない
 - ガラス固化体について、地震動により収納管が歪んだり、落下するなどして収納管から取り出せなくなった場合の対処はどうなっているか
- 可逆性や回収可能性を確保すべき
 - 事業化の流れを止める、または可逆とするような判断も踏まえた計画とすべき
 - 自治体が文献調査を受けた後撤回したい場合の撤回要件は設定しないのか

等が挙げられた。

表 5.2.2-1 非専門家の意見に基づく市場の声（要求概念）の抽出（1/2）

市場の声 (要求概念)	非専門家の意見
社会・経済的観点から 処分サイトを決める べき	エネルギーを最も消費した東京あるいはその他の大都市で処分すべき
	原発その他の原子力施設や同地域内で処分すべき
	日本国内のエネルギー消費に応じ分散して複数の処分場を立地すべき
	既に放射能によって汚染されている福島において処分すべき
	人口密集地域や国立公園等は除外すべき
	他の施設の跡地や建設予定地を転用すべき 国が場所を決めて、受け入れられる人がその地域に住めば良い
技術的観点から処分 サイトを決めるべき	地震の多い日本では無理なので国外の安定な場所を選ぶべき
	破壊的な事象や地質環境の大きな変化の可能性のある場所は避けるべき
	地下水を介した放射性物質の漏洩・移行のできるだけ少ない場所を選ぶべき
	建設・操業時の安全性を確保できる場所を選ぶべき
	技術的要件を軽視して経済的理由でサイト選定すべきではない
安全性に確信が持て ない	予測は万全ではなく想定外の事象の可能性は否定できない
	長期間の安全確保は困難である（少なくとも現状では不十分）
	技術が未成熟である
	地下の状況を正確に知ることはできない
	処分場建設・操業時の地下環境に対する人為的擾乱の影響をきちんと把握すべき
	将来の人間活動によって安全性が脅かされる可能性がある
地層処分の安全性を 高めるべき	より深い場所に処分すべき
	人工バリアの安全性を高めるべき
	地質環境に適応した処分場を設計すべき
地層処分の安全性が 見えるようにすべき	放射線やその影響が見えるようにすべき
	地下で生ずる現象が見えるようにすべき
	将来の状態を継続して監視すべき
可逆性や回収可能性 を確保すべき	処分事業の可逆性を保つべき
	廃棄物の回収性を確保すべき
	放射性物質漏洩時の修復を可能とすべき
地層処分以外の処分 方法	宇宙処分を行うべき
	宇宙処分を行うべきではない
	氷床処分を行うべき
	氷床処分を行うべきではない
群分離・核種変換	廃棄物の危険性を低減する努力を行った後に処分すべき
	地層処分事業と並行して群分離・核種変換の研究開発を継続すべき
	群分離・核種変換は有効な選択肢ではないので研究開発を行うべきではない
保管・貯蔵	当面は暫定的に保管し技術開発を待つべき
	当面は暫定的に保管し社会的合意形成に努めるべき
	目の届く場所で貯蔵し管理すべき
	保管・貯蔵を長期化すべきではない
処分場の価値を 高めることを考える べき	処分場自体の付加価値を高める必要がある
	補償等により地元や周辺地域のメリットを増す必要がある
	交付金等では（あるいはのみでは）不十分であり、地元の人々が納得するために主体的に活動できる仕組みが必要

表5.2.2-2 非専門家の意見に基づく市場の声（要求概念）の抽出（2/2）

市場の声 （要求概念）	非専門家の意見
地層処分についての正しい問題設定をしてから議論することが必要	原子力発電や核燃料サイクルの継続を前提とした地層処分ありきの説明は受け入れられない
	地層処分の問題と原子力発電や原子力政策の問題は切り離して考えるべき
廃棄物問題に関する責任の所在を明確にすべき	国や事業者の責任を明確にすべき
	国民全体が責任を認識し当事者意識を持つべき
市民の目線での議論や問題解決を重視すべき	感情や情緒的な問題の解決が必要
	市民はわからないから反対しているので理解してもらえば賛成するはずという決めつけは間違っている
	倫理的な問題の解決が重要
社会的公正さを重視した意思決定プロセスが必要	民主的な意思決定のしくみが必要
	合意に基づき事業を行うことが必要
	十分な対話や公衆参加を通じて様々なステークホルダと一緒に考えて行くプロセスが重要
コミュニケーションや教育が重要	地層処分に関する情報公開と透明性の向上が必要
	正確で中立性のある情報発信が必要
	地層処分に関する専門的知識の普及（教育）が必要
社会の意思決定の基礎となるような中立で公平な専門的評価が重要	公平で中立性のある専門家による評価や判断が必要
	専門家の責任範囲を明確にすべき

5.3 非専門家からの要求と技術的因子とを関連づけるための品質機能展開

5.3.1 概要

高レベル放射性廃棄物（HLW）の地層処分場概念は、処分場閉鎖後の長期安全性を示すセーフティケース作成の容易さを重視する1970～1980年代に開発された基本概念に基づいて、多重バリアシステムを構築するための安全機能に焦点をあてて開発されてきた。

この20年ほどの間に、いくつかの国の処分場プロジェクトが事業の実施段階に近づくにつれて、施設の建設と操業の合理性に対する最適化、人工バリアや処分施設の品質保証や施設の操業安全性、あるいは閉鎖までの回収可能性を考慮した処分場設計に重点が置かれるようになってきた。特に、日本では、福島第一原子力発電所の事故後、操業時の安全性への懸念から、擾乱事象に対して復元性のある「レジリエントな処分場設計」への関心が高まっている。

パブリック・アクセプタンスを得る重要性に鑑み、処分サイトの選定プロセスは、いくつかの国において、国や実施主体が処分サイトを指名するという従来のアプローチから公募に基づいたものに置き換えられてきている。公募方式の場合、処分場設計はサイト選定以前に確立された概念から出発するのではなく、応募サイトの特性調査で見いだされる地質環境条件に合わせて柔軟に対応することが合理的と考えられる。

日本においては、原子力発電環境整備機構（NUMO）が処分概念カタログを用意し、幅広い処分場概念のオプションを公開している（NUMO, 2004）。しかしながら、10年以上前に公募が開始されたものの、未だ自治体が正式に決まっておらず、その後の福島第一原子力発電所の事故により、公衆の原子力産業に対する不信感が著しく増加し、地層処分の安全性に納得を得ることはさらに困難になっている。このような社会的環境を考えると、地層処分に関するステークホルダとの対話において出される懸念や不安に応えることができる概念や対策を地層処分概念に積極的に取り入れ、その構築過程の透明性を高めることが特に重要な課題となってきた。

このような背景に基づき、5.2で得られた市場の声データ（表5.2.2-1及び表5.2.2-2）を踏まえて、各データの要求や懸念を社会的、倫理的、経済的、感覚的、技術的特性に対応づけ、設計者の観点から整理を行った上で、市場の声に応えるための新しい考え方に基づく処分場概念構築の検討を実施した（図5.2-1における「新しいデザイン」に対応）。この処分概念の新提案を基に、次の段階で行う処分場概念の具体化に向けたワークショップでの議論の出発点とした（5.4項）。以下では表5.3.1-1に示した市場の声に基づく品質機能展開について説明する。

市場の声に基づく処分概念の新提案は、次の手順により作成した。5.2項で説明した試行において抽出した概念・意見を基に、地層処分概念に関する技術的・社会倫理的な要件に展開し、設計上の実現可能性を踏まえつつ概念設計を行った。具体的には、市場の声から抽出した要求概念（表5.3.1-1の各行）を処分概念に関わる設計特性（表5.3.1-1の各列）に変換し、設計上の実現可能性等の要因も考慮しつつ検討した。なお、表5.3.1-1における要求概念は、次に説明する新提案に関するもののみを抽出したものであり、5.2項の試行で得られた市場の声（全16項目、付録）の一部である。

表5.3.1-1 市場の声に基づく品質機能展開の例

(次頁以降に記した新しい処分概念提案で着目した要求概念のみ記載)

		社会的特性		倫理的 特性		経済的特性			感覚的 特性		技術的特性															
											自然 環境		処分場建 設・操業			処分場閉 鎖			多重バリア システム							
		法 制 度	市 民 参 加 *	立 地 環 境	世 代 間 公 平 性	地 域 間 公 平 性	コ ス ト	費 用 負 担	補 償 入	*	*	地 質 環 境	深 度	輸 送	地 上 施 設	安 全 管 理	安 全 確 認 ・ 監 視 *	埋 め 戻 し *	閉 鎖 後 管 理 *	廃 棄 体 容 器	人 工 バ リ ア	岩 盤 影 響 領 域	天 然 バ リ ア			
本資料における新たな概念構築で着目する市場の声	地層処分の安全性が見えるようにすべき																									
	可逆性や回収可能性を確保すべき																									
	処分場の価値を高めることを考えるべき																									
	市民の目線での議論や問題解決を重視すべき																									
	コミュニケーションや教育が重要																									
	社会の意思決定の基礎となるような中立で公平な専門的評価が重要																									
：	：	：	：	：	：	：	：	：	：	：	：	：	：	：	：	：	：	：	：	：	：	：	：	：	：	
検討と評価																										

- ・ 行：新提案の基となった市場の声（整理抽出された要求概念）
- ・ 列：市場の声から変換した設計特性
- ・ *マーク及び網掛け：新提案検討において注目した設計特性

5.3.2 品質機能展開に基づく新たな処分場概念の提案の例

5.2 項で抽出した市場の声は多岐にわたり、種々の方向性（社会制度等も含む）での処分概念が有する科学的・倫理的な特性についてのシステム構築や改良が可能である。一例として、本調査においては、表 5.2.1-1 及び表 5.2.1-2 の着眼点の要求に最大限応えることが可能な新しい処分概念を提案した(図 5.3.2-1)。

高レベル放射性廃棄物の放射能が有意に問題となる期間にわたって安全性を確保しなければならないことから、専門家は数十万年間にわたる閉鎖後安全の保証を重視するが、非専門家のステークホルダの意見は必ずしもそうではない可能性がある。むしろ、地層処分場が操業されている期間のようにタイムスケールが短い間の安全性を見えるようにしてほしいという要求があるが、これまで、これに十分応えていない傾向がある。また、閉鎖後の長期の安全性については、確立された知識や情報を外挿するモデルの結果により間接的に安全性を示すことができるという専門家のコンセンサスがあるとしても、非専門家はとても確信が持てない。したがって、非専門家は広範なモニタリングや検査可能性を含む、より直接的な安全性の実証を望み、何かが間違っている場合には、元に戻すという計画の可逆性や廃棄物の回収可能性の容易さの保証に、より高い関心を示している。そのようなモニタリングや検査可能性の要件を満たす概念として、これまでに、例えば後述する CARE (CAvern REtrievable) 概念が提案されている(Masuda et al., 2004)。

処分概念の実現可能性を検討するにあたっては、科学技術のみならず、社会経済・倫理的な観点も不可欠となることから、品質機能展開により個々の市民の声と処分場の設計因子（概念技術的・社会倫理的な特性）との関連づけを予め行い、市民の声に応える新たな概念の設計に資することが重要となる。提案内容については、ワークショップ(5.4 項)やシミュレーション(5.5 項)を通じてさらなる検討を行い、多様なステークホルダの合意が得られるよう調整・改良を経て、最終的な提案を提示することを目標とした。

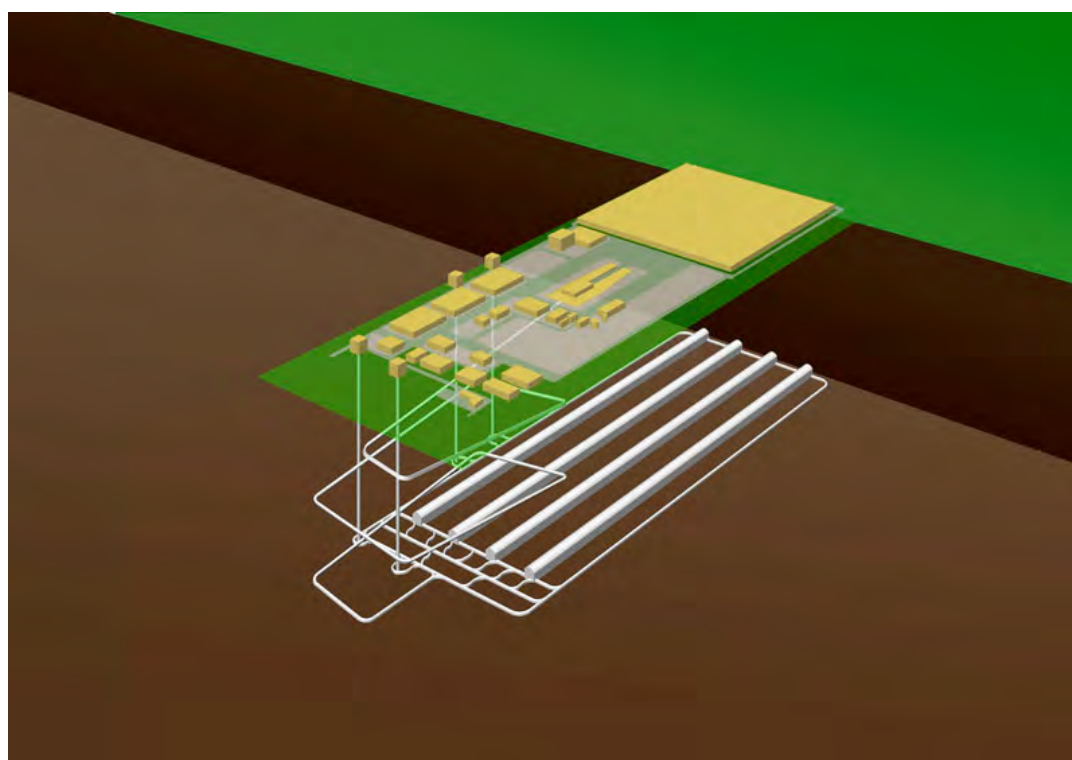
表 5.3.2-1 新たな処分場概念「市民参加型の長期監視・可逆型処分施設の機能と特色」

機能	特色
1. CARE 型処分場地下施設	廃棄物の回収可能性を一定期間保持し、その間に廃棄物の状態を監視し続けることの可能な CARE 型の地下施設
2. 処分場環境情報に関するモニタリングシステム	地下の廃棄物や人工バリアシステム及び周辺の岩盤や地下水流動・水質等の情報を多角的に監視するとともに、可視化し常時公開・発信するシステム
3. 市民参加と合意形成の殿堂	地上施設には、セキュリティを確保しつつ多様なステークホルダが来場し、地層処分事業の進め方や安全確認の方法等について公衆参加で議論するフォーラムや関連する科学・技術的知識を学ぶ教育センターを設置（他のプロジェクト（CCS や遺伝子組み換え技術等）についても同様の場を提供する「市民参加と合意形成の殿堂」として地域における施設の価値を高める）

新しい提案は、表 5.3.2-1 の機能 1～3 を備えた市民参加型の処分施設である。各機能を活かした施設の具体的な特色は次のように整理される。

(1) 機能 1. CARE 型概念 (Masuda et al., 2004) の地下施設

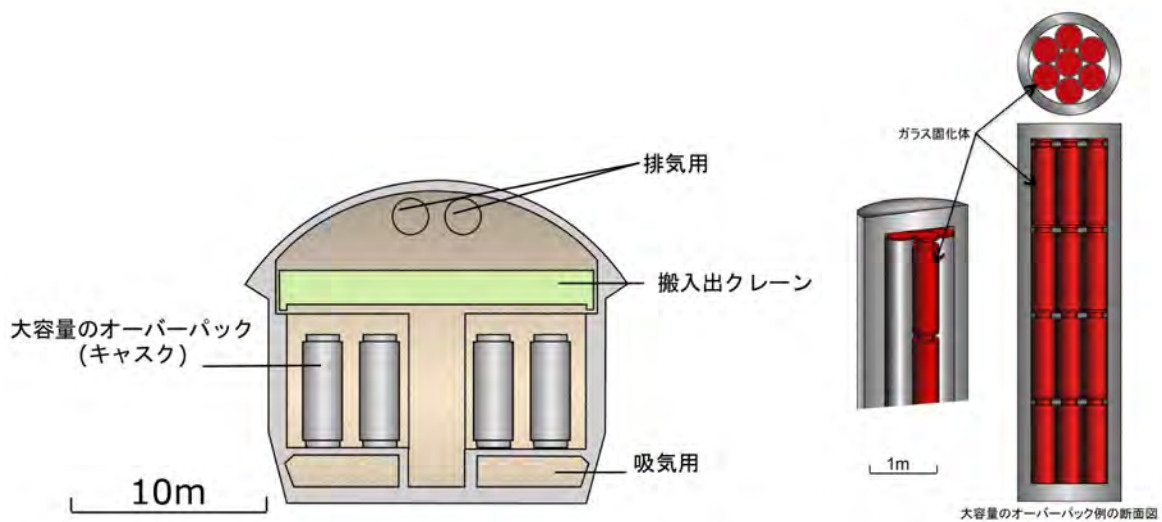
CARE型の処分場概念の特徴は、図5.3.2-1に示すように、地下の処分施設を閉鎖する決定がなされるまで最終的な埋め戻しをせず、再取り出しと長期モニタリングの継続実施の容易さが確保されるとともに、施設閉鎖の決定がなされれば直ちに埋め戻しへの対応が可能となる柔軟な設計となっている。この結果、施設の埋め戻し（完全閉鎖）決定がなされるまでの期間にわたり地下に定置した高レベル放射性廃棄物（廃棄体）への直接的な監視が可能となり、また、それまでの期間、放射性崩壊により廃棄体の発熱特性の減衰が期待できることから、埋め戻しの時期に応じた廃棄体の定置密度の最適化を図ることが可能となる。



- 地下300 m以深に斜坑と立坑を有する大空洞トンネルの処分場システムを建設
- 斜坑では、多目的（輸送/貯蔵装置/処分）のキャスク（複数のガラス固化体を収納した大容量のオーバーパック）を地下施設へ輸送
- 地下の大空洞トンネル断面の概念を図5.3.2-2に提示

図5.3.2-1 CARE型処分場システム概念 (NUMO, 2004)

この概念では、複数のガラス固化体を収納した大容量のオーバーパック（キャスク）が用いられ、埋め戻し後に人工バリアの機能を果たすことが期待される。このキャスクは、オーバーパックよりも頑丈な多目的のキャスク（MPC；Multi-Purpose Cask）（NUMO, 2004）と呼ばれ、地下施設となる大空洞（Cavern）にそのまま定置される（図5.3.2-2）。施設を埋め戻す最終の意思決定がなされるまでは、地上の貯蔵管理施設と同様、廃棄体からの発熱は換気空調システムによって冷却され、作業員が直接接近して視認管理可能な状態が維持される。



- 複数のガラス固化体を収納した大容量のオーバーパック（キャスク）は地下の大空洞施設のコンクリートライナー上に定置
- キャスクからの発熱は換気によって冷却される
- 閉鎖決定がなされるまで大空洞トンネルは常時モニターされ、いつでも監視のための視認や再取り出しなどの移動が容易に実施可能
- 施設の最終閉鎖後の状態は通常の処分概念と同様の受動的な安全系となる多重バリアシステムを構成

図5.3.2-2 CARE型処分場システムの地下空洞施設（左図）と地下に定置する大容量のオーバーパック（キャスク）（右図）の概念図（NUMO, 2004）

処分場が埋め戻されるまでの人間による管理の期間中、空洞とそこに定置されるキャスクに収納された廃棄物は検査可能で、何か異常があれば、どのキャスクも、いつでも再取り出しすることができる。万一廃棄物を再取り出しする必要が生じた場合でも、取り出した固化体を地下で別のキャスクに移し替えることにより、専用のスペースを予め地上に準備しておく必要が無い。

最終的に地下施設を閉鎖する意思決定が下された段階では、操業のための全ての設備が撤去され、空洞は埋め戻され、施設は密閉される。その後は、従来の地層処分概念と同様に、天然バリアと人工バリアからなる多重バリアシステムが構成され、人間の生活圏から廃棄物を隔離・閉じ込める機能が発揮される。

(2) 機能2. 処分場環境情報に関するモニタリングシステム

このようなCARE概念の原設計について、市民の声にある「地層処分の安全性が見えるようにすべき」のニーズに応える「見える化」（5.6項参照）の機能を強化する手段として、空洞内の様子をテレビカメラで常時モニターし、ビジターセンターで放映したり、映像をウェブサイトに掲載したりするなどによって、関心のある人は誰でもキャスクの状態をいつでも見ることができるよう機能を追加することが考えられる。

また、キャスクの表面に無機シンチレータ⁷をコーティングすることによって、キャスクからの放射線や赤外線カメラによるキャスク表面温度の可視化も考えられる。さらに、キャスクの一部

⁷：放射線が入射した際に発光現象を起こす物質。無機シンチレータとしては、NaI(Tl)、CsI(Tl)、Gd₂SiO₅、LaBr₃(Ce)などがある（大家・坂下、2008）。

を遮蔽用鉛ガラスで構成することによって、キャスクの内部のオーバーパックを直接観察できるような構造にすることも、選択肢の一つとなり得る。

CAREの長期保管期間中は、使用されているキャスクによる放射線遮蔽性が高いので、キャスクによる地表貯蔵と同じように廃棄体に直接接近して検査することが可能である。

しかしながら、作業員以外の一般の訪問者が放射線管理区域である空洞の内部に入ることは放射線管理上問題になる可能性があるため、例えば地層処分施設の建設に先立って処分サイトの地質環境特性調査に使用された地下研究施設をそのまま残しておき、地層処分施設の放射線管理区域とは独立した出入管理システムによりアクセスすることができる別個のギャラリーを設け、放射線遮蔽ガラスの入った窓から処分空洞内を見ることができるよう設計も考えられる（図5.3.2-3）。

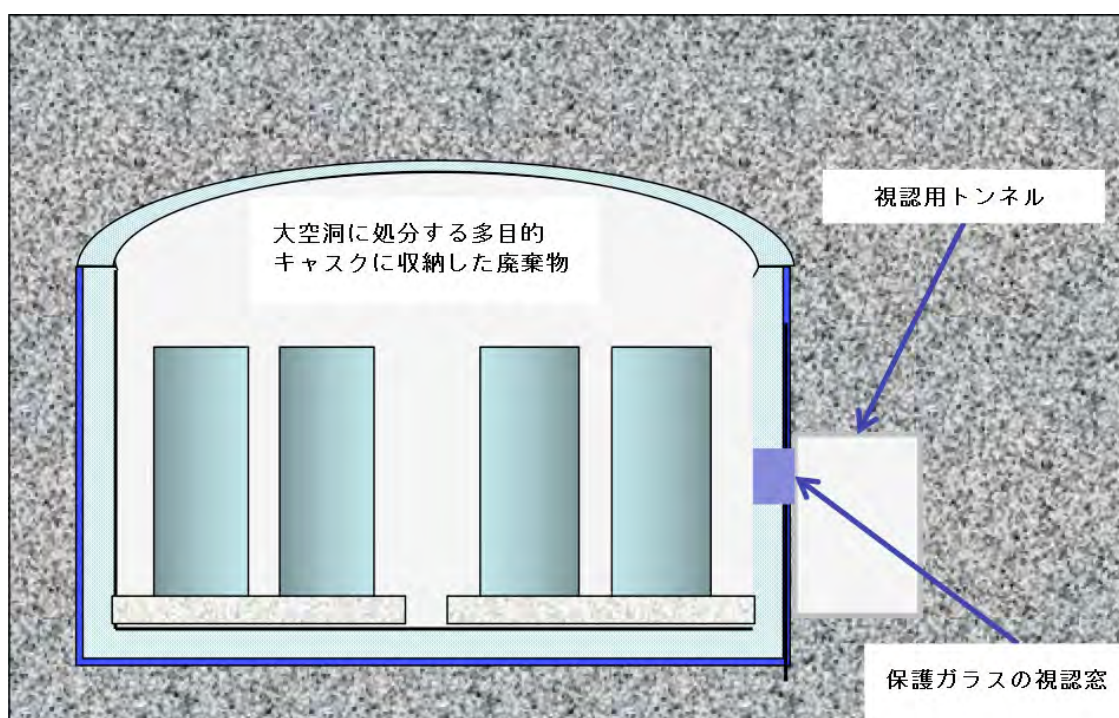


図5.3.2-3 貯蔵期間中の目視を可能とするCARE概念

CAREのような長期貯蔵は、直ちに埋め戻す通常の処分概念に比べると、空洞が開いている期間にわたって擾乱に対する潜在的な脆弱性が問題になる可能性がある。したがって、一般的な処分概念に対する閉鎖前の安全評価で想定されているシナリオに加えて、例えば、開放している大空洞に対しては、より甚大な影響を与えるかもしれない大洪水や津波のような地表で生じる自然事象、あるいは暴動や戦争等の人為的災害によって操業中の処分場の管理機能が失われることによる擾乱、といったシナリオも想定しておく必要がある。このような操業中の過酷事象シナリオの評価に基づき、懸念を軽減することを保証できるレジリエントな設計となっていなければならない。

なお、廃棄物や処分場環境方法可視化と情報公開については、以下の監視項目を補足情報とし

て示す。長期的安全確保のためには、定置後の廃棄体や人工バリアの状態の監視（モニタリング）が重要な要件になり、例えば次の目的に資する機能も期待できる。

- 可逆的処分場管理の支援
 - 操業と閉鎖後の長期安全性への貢献
 - 地質学的な付加的情報（リアルタイムの地温や地下水水位などの情報）の提供
- モニタリングのパラメータ例
- 廃棄体セル、立抗および坑道のコンクリートの変形、
 - 掘削影響領域（EDZ）の変動、圧力、相対湿度、含水量、温度、有害ガス濃度、
 - 容器の腐食 等

なお、モニタリングの内容項目については、5.6項において「見える化技術」の検討と併せて整理を行っている。

(3) 機能 3. 市民参加と合意形成の殿堂

市民参加型の施設としての特色を有効活用するための機能として、社会的受容性の必要な先端的な科学技術課題を適切に扱うための考え方や活動の枠組みを適切に活用することを検討する。例えば、次のようなコンセプトに基づき、施設の運用を考える。

➤ サイエンスコミュニケーション

知識・情報伝達と共有、討論のための市民フォーラムや教育活動の実施

- 専門的情報や知識をわかりやすく、かつ魅力的な形で伝達
- 情報の公開のみでなく、魅力的な内容・価値の提供
- 理科実験による非専門家の興味や関心喚起

➤ サイエンスコート⁸・テクノロジーアセスメント

諸課題の認識・議論・解決の過程全般にわたって検討する枠組みを構築し、技術的側面から社会的影響までを含む総合的評価を支援・実施

- 合意形成が必要な問題に対して、複数の対立概念や見解をオープンにして、中立性と客観性を保った上で議論の場を提供
- 現状の課題の認識・提示・対応策の検討と将来予測（シミュレーションと併用など）
- 不確実性が高い問題の整理及び意見の分れる問題に対する建設的な意思決定支援
- 関連政策機関に対する評価・分析結果の提示

➤ 電子民主主義

ITの利便性や利用機会拡大を生かし、処分候補（決定）地のなるべく多くの住民の意識や意見を反映させ、合意形成を促進するとともに、課題・情報を管理

⁸：科学法廷。アメリカの科学者アーサー・カントロビッツ（Arthur Kantrowitz）が、科学技術の問題から政治的な関与を取り除くために、1967年に提唱したInstitute for Scientific Judgmentの通称。1975～1976年には米国フォード大統領の諮問機関であるAnticipated Advances in Science and Technologyへと発展。

- 知識・情報伝達と共有、討論のための市民フォーラムや教育活動の実施
- 専門的情報や知識をわかりやすく、かつ魅力的な形で伝達
- 情報の公開のみでなく、魅力的な内容・価値の提供

5.3.3 CARE概念を取り入れる場合の設計上の他の検討

(1) 空洞開放期間の安全性確保を考慮したレジリエントな設計

空洞が開放されている操業期間中に擾乱事象が生じた場合の影響を低減できるようなレジリエントな設計要求の解決策として、CAREの大型貯蔵キャスクをより小さなサイズのPEM (Prefabricated Engineered barrier system Module:プレハブ型人工バリアモジュール) (NUMO, 2004) に置き換える設計が考えられる。PEM方式は、地上施設で予めガラス固化体、オーバーパック、緩衝材を容器内に格納し、そのモジュールごと処分場へ搬送・定置する方式である(例えば、原子力発電環境整備機構, 2011)。標準のCAREキャスクには最大21体のガラス固化体が収納されるが、この代替設計では、6体程度をPEM型オーバーパックに収納して定置する(図5.3.3-1)。これにより、空洞内の廃棄体定置密度が小さくなる分だけ熱負荷が少なくなるので、熱負荷の観点から空洞を埋め戻すことが可能となる時期が短縮される。

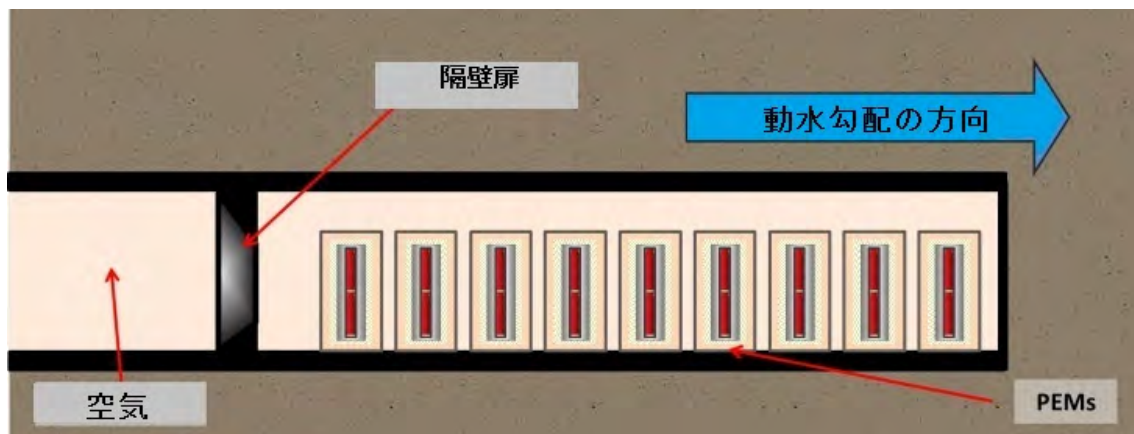


図5.3.3-1 PEM収納オーバーパックの空洞内定置オプション

また、ベントナイト緩衝材は、定置前にすでにPEMの中に組み込まれているため、政策変更など何らかの廃棄物管理の方針が変更となり緊急に空洞を埋め戻す事態が生じたとしても、定置そのままの状態です速かつ容易に埋め戻しができるため、地層処分状態への移行は速やかに行うことが可能という利点を有している。

(2) CARE概念の閉鎖前後の安全性を両立させるための矛盾する要件の解決策

操業中および閉鎖後の安全性と坑道や大空洞の安定性の理由から、できるだけ早く廃棄体ゾーンを閉鎖するべきという要件と、広範な監視と潜在的検査可能性を維持するために空洞をできるだけ長期間埋め戻さずに開放しておくという要件は、本質的に矛盾している。

相反する課題の解決に対しては、矛盾を特定し解消する方法の開発につながる水平思考を促進するために考案されたTRIZ (発明的問題解決理論、ロシア語の頭文字をとったもの) 法を用いて

対策設計を検討することが考えられる。

TRIZの矛盾マトリックスを参照すると、「閉鎖後の安全性」と「空洞の開放」の間にある矛盾は、「形状」と「明るさ」が最も近いものと思われる。この二つの矛盾に着目して、TRIZの「40の発明原理」を探求すると、「発明原理30. 薄膜利用原理」と「発明原理32. 変色利用原理」に分類されるというヒントが得られた。これを基に解決策を模索すると、従来のベントナイトの代わりに、透明性のある樹脂をCARE型の空洞に充填するという選択肢が発想された（図5.3.3-2）。

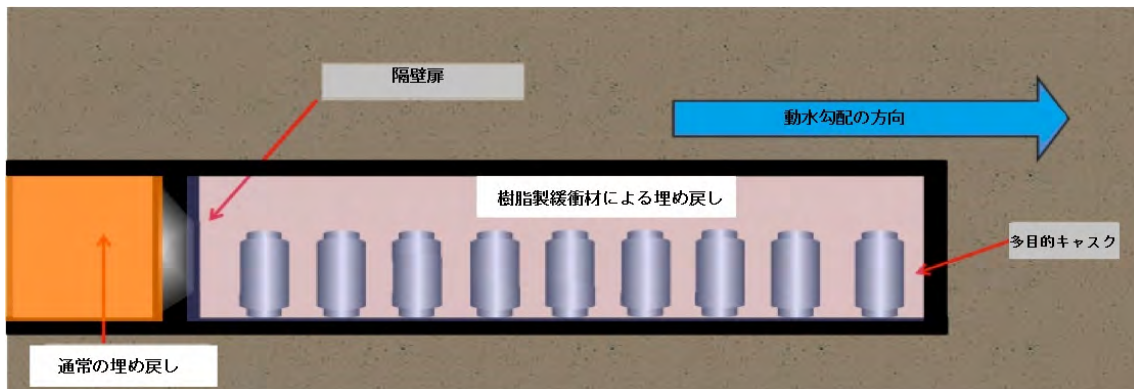


図5.3.3-2 樹脂製充填材を用いるCARE概念

従来の処分概念は、利用可能な技術や材料の制約が現在よりも厳しかった40年ほど前に開発されたものであり、緩衝材の候補材料も限られていたが、例えば、樹脂技術の急速な進歩により、安定で可塑性のある丈夫で透明なシリコン樹脂（Silicone）（図5.3.3-3）は、上記のような相互に矛盾する要求を満たす可能性がある。

「シリコーン(Silicone)」とは、ケイ素樹脂とも呼ばれるものであり、金属「シリコン(Silicon)」とは異なるものである。シリコーンの樹脂（レジン）は、ガラスを構成するケイ素骨格にメチル基やベンゼン環などの有機性基を導入してできる樹脂で、ゴム状のものから硬い樹脂まで幅広いものがある。透明性、撥水性、耐放射線性、耐酸化性、耐熱性に優れ、化学的に不活性で他の物質との両立性がある。



図5.3.3-3 高透明性シリコーン樹脂

このような大量の樹脂（レジン）を必要とすることになるオプションは、従来の埋め戻し材による方法よりも高価になる可能性があるが、キャスクを寝かせて並べて置き、その周囲に樹脂性緩衝材を充填し、残りの空隙にはより安価な埋め戻し材（例えば、粉碎された岩石）を充填することによって、合理的な範囲で空洞内をモニタリングするための観察トンネルの使用が可能となる（図5.3.3-4）。

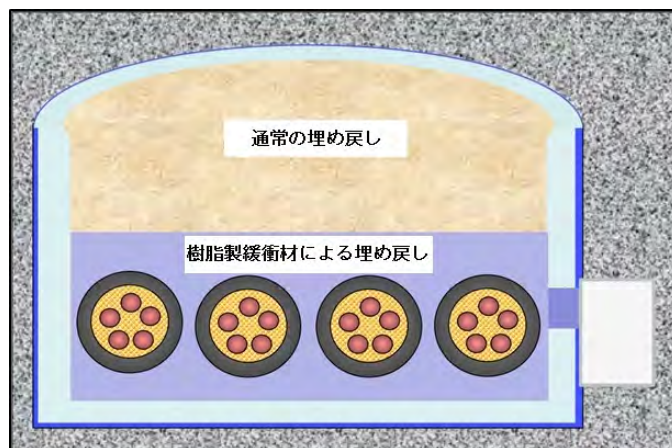


図5.3.3-4 樹脂製充填材仕様を最適化したCARE概念

さらに、シリコン樹脂（レジン）に無機シンチレータを混合することによって「放射線を可視化する」ことにすれば、廃棄物パッケージを検査するだけでなく、放射線の漏れを容易に識別することもできるようになる。

このような埋め戻し方法は、早期の埋め戻しと検査の容易さとの間の矛盾を解決するが、閉鎖後の長期安全性が損なわないことも保証されなければならない。現在の日本の処分概念におけるセーフティケースでは、緩衝材としてベントナイトが用いられており、ガラス固化体を収納するオーバーパックの1,000年以上の寿命を保証するための保護と、オーバーパック破損後は、コロイドフィルターとして作用し、いくつかの重要核種の溶解度制限と収着遅延が適用できるようにするという2つの重要な役割を担っている。

樹脂性充填材は、オーバーパック保護の役割においてはベントナイトの性能と同等であるかそれを上回る可能性があるが、オーバーパック破損後に期待されるベントナイト緩衝材の機能と同等の役割を果たすことは期待できそうにない。しかしながら、樹脂による閉じ込め機能が発揮される可能性については、何千万年の時間スケールで繊細な有機構造体さえも保存している「虫入り琥珀(図5.3.3-5)」によるナチュラルアナログで説明できる可能性がある。琥珀は、樹脂が地中で固化してできるものであるため、内部に昆虫や植物の葉などが混入しているものも多く発見されている。昆虫やクモ類などが通常の化石ではあり得ないような細部まで保存されているという事実は、閉じ込め機能を証明する証拠として有用である。

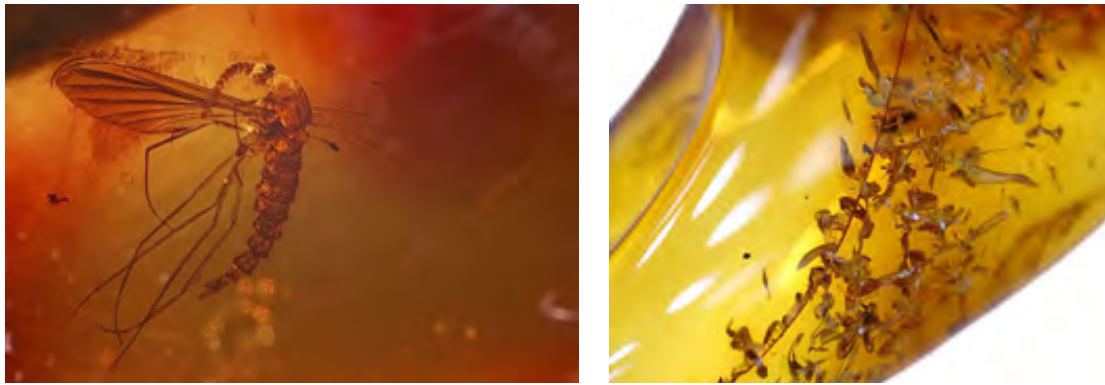


図5.3.3-5 虫入り琥珀（佐々木，1994）

さらに、CARE概念における閉じ込め機能を保証する論拠として、鉄製キャスクの機能がベントナイトの機能をある程度補完できる可能性がある。

キャスクは、閉鎖後に従来型の処分概念におけるオーバーパックの役割を果たすことになるが、オーバーパックに比べて2.5倍ほど肉厚なので、オーバーパックによる地下水接触抑制効果は1,000年以上にわたって期待できる長寿命な人工バリアとなる。また、ニアフィールドの地球化学特性は、大量の鉄成分（オーバーパック方式に比べて15倍）による還元性維持効果が期待できるので、アクチニドの溶解度制限効果については、ベントナイト緩衝材の役割をある程度代用できる可能性がある。それでも、樹脂の長期バリア性能の不確実性を完全には解決できない場合、PEM概念に基づいてベントナイトと樹脂を組み合わせる設計が考えられる（図5.3.3-6）。

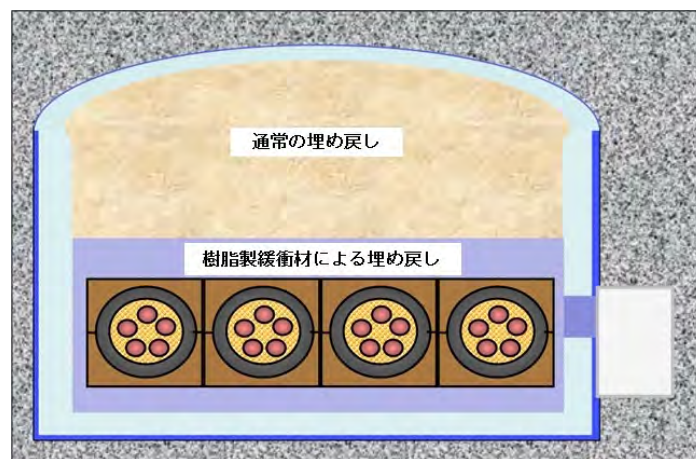


図5.3.3-6 PEM型ベントナイトで包み込んだMPCキャスク

この場合、キャスクを直接観察することはできず、PEMの外殻（シェル）の外面のみを検査することになるが、樹脂中のシンチレータが封じ込め機能の喪失があるかどうかを示されることによって、間接的にモニタリングすることが可能である。

充填材の存在は、必然的に廃棄体の回収をより困難にすることになるが、空洞部からの回収作業は規模が大きいことから、トンネル式の処分概念の場合よりは容易となり、万が一異常が観察され、回収される場合には、個々の廃棄体を回収することも可能である。回収技術は、従来型の処分概念における緩衝材や埋め戻し材の削剥試験においてすでに実証（例えば、Kalbantner and

Sjöblom, 2000) されており、樹脂の除去に関する根本的な問題はないものと考えられる。

5.4 処分場概念構築に向けたワークショップの試行

5.4.1 概要

5.3 項で提案した新しい処分場概念を軸に検討・調整を行うことを目的としたワークショップを実施した。このワークショップでは、模擬ステークホルダとして市民の代表者、地層処分の専門家と他分野の専門家に参加してもらい、提案した新たな処分場概念を基に、各参加者の多様な見解や認識を共有しながら議論を行うことにより、種々の関連技術内容の理解の向上と認識の曖昧さの回避を図り、あわせて、放射性廃棄物対策に対する多様なステークホルダの要望を最大限に取り入れ具体化を行うことにより、参加者の合意を形成するための知見の共有を目指した。

(1) 参加者

- 工学（設計側）については、4つのグループを設定した（図 5.2-1 参照）。
 1. 他分野専門家、 2. NPO、 3. 学生、 4. 地層処分専門家1-3 のグループについては、チューターとして1名の専門家を組み込んだ。
- 参加者の設定が適切・公平なものになるかは、結果の整理の際にも重要となる（例 男女、専門家と非専門家のバランス等）。基本的には、昨年度まで試行したワークショップ（以下の参考 1、 2）の設定に準じたために問題ないと考えられた。ただし、より市民の声を反映させた概念構築を目指すために、5.4.3 項で述べるようなフォーカスグループインタビューも実施して、結果の整理に活かすこととした。

（参考 1）：昨年度例 - 市民グループ：主婦、環境問題に興味を持つ市民

（参考 2）：工学（設計側）グループ：地層処分専門家、他分野の学識経験者（CO₂ 地中貯留の専門家、日本学術会議の参加者等）、学生（文系：法学部等、理系：資源工学、海洋シミュレーション等）

(2) ワークショップの構成と内容

5.3 項で提案した新たな処分施設案（市民参加型の処分施設）を対象に、関連する技術的・社会的な論点整理や参加者のありのままの意見を収集することを目的としてワークショップを実施した。具体的な留意点は次の通りである。

- 放射性廃棄物の地層処分やその他、提案内容に関する処分技術及び制度・政策に関する基本的な知識や客観的事実を十分共有した上で、議論の土台となる論点を提示すること
- 最終的な目標として、提案内容を実現する上で、何が明確となっており、どこに不確実性が残されているかについて参加者が共通の認識（及び可能であればその解決法に関しても）を持つこと

➤ ワークショップ議事次第

1. 専門家からの話題提供：

- 趣旨説明
- 「市場の声」に基づく地層処分システムへの要求事項の抽出
（表 5.3.1-1 の分析資料を素材とした問題提示と概要説明）
- 地層処分概念の変遷
- ステークホルダのニーズを踏まえた地層処分概念の構築(Developing HLW disposal concepts)

that meet stakeholder requirements)

- 原子力・エネルギーに関するコミュニケーションの取り組み事例
 - 「地層処分見える化技術」(5.6項)に関する話題提供
2. グループディスカッション
 - 基調講演に基づき、グループ毎に処分概念に関する課題を様々な観点から議論
 3. まとめと課題整理
 - 議論2で得られた意見や疑問を整理し、参加者で共有するとともに、今後の課題を提示

5.4.2 ワークショップの結果(議論のまとめと課題)

今回のワークショップで得られた新しい処分場概念に対する参加者の意見は、次のようにまとめられる。数ある意見の中で、関心が高くかつ将来に向けての課題解決のためのアイデアが具体的に示されたのは、以下に示す(1)-(3)の視点である。これらについては、①~⑥のように具体的な解決策を併せて以下に示す。

(1) 処分方法(集中又は分散方式、最終処分までの段取り)

- 問題意識「選定方法」、「住民の合意」

処分地の選定においては、例えば、住民の合意が得られるような検討を行うことの重要性と、NIMBY問題⁹への対応への工夫等について議論があった。地層処分そのものを進めることは止むを得ない状況であることは認識した上で、特定の場所のみ負担を押し付けることの適切さや、コスト負担の分配の工夫、現世代の施策が次の世代、さらに将来へ配慮したものであるかなど世代間の公平性にも議論が及んだ。
- 具体的な対策
 - ① 乾式キャスクに収納した廃棄物を各地に配分し、市民が慣れて受け入れられるようになった時点で処分に移行する。
 - ② 配分にあたっては、各都道府県について電気使用量等に比例した廃棄物を割り当て、乾式キャスク等に収納した貯蔵管理を継続する(ただしコストは徐々に増大)。ある時点で処分に移行するかは住民の意思に委ねる。
 - ③ 例えば2年、5年といった期限を設定した短期・暫定的な貯蔵管理(CARE型での廃棄物の定置等)を行い、設定期限がきた段階で廃棄物を取り出し、問題が生じていないかどうかを確認したうえで、処分に移行する。

(2) 地層処分見える化(関連説明5.3.2節)

- 問題意識「見えない不安に対する工夫」

地層処分は、地中に廃棄物を隔離して閉じ込め、生活圏から遠ざけることにより、例えば廃棄物からの直接的な放射線影響から生活環境を防御することができ、安心感が得られる。しかし、地下に処分した廃棄物は直接見て確認することができないため、廃棄物や処分場の状態に関する一切の対応を処分事業者任せに委ねなければならない、一般市民は不

⁹ : NIMBY (ニンビー) とは、英語の “Not In My Back Yard” (我が家の裏には御免) の略語で、「施設の必要性は認めるけれども、我が家の裏庭(自らの居住地域)には建てないでくれ」と主張する住民たちや、その態度を指す言葉。日本語では、この種の施設を「迷惑施設」などと呼んでいる。

安や懸念を感じざるを得ない。このような見えないこと、あるいは直観できないことに対する工夫について議論を行った。

- 具体的な対策

- ④ 樹脂（レジン）粘土を緩衝材として用いた透明の処分場概念を構築する。

- ⑤ 樹脂（レジン）粘土に埋め込んだシンチレータによる放射線場の可視化技術や各種のセンサー等によって廃棄体や人工バリア内の温度、水分飽和度、緩衝材の間隙水質や緩衝材内の応力や歪み等を常時モニタリングしてリアルタイムで情報を多元的に発信する。

(3) 可逆性と回収可能性等の柔軟性をもった概念（関連説明5.3.2節）

- 問題意識「リスクや技術的信頼性に関する対応」

最終処分に至るまでのある程度の期間において、廃棄物の再取り出しが必要となる状態が起り得るものと想定し、処分場閉鎖後の長期モニタリングの実施や、可逆性と回収可能性などを保証する概念設計について要望があった。また、モニタリングを工夫することにより、(2)の「見える化」と合わせて廃棄物の状態確認に関する技術的な信頼を獲得するなど、従来の処分概念では困難だった対処についても検討されることが望ましい等の議論があった。

- 具体的な対策

- ⑥ 時代の変遷とともに変化し得る社会的な要請に対応できるような柔軟な技術オプション-CARE型の処分場を採用する。従来のオーバーバックや処分容器と比べ、閉鎖前の安全性確保と閉鎖後の長期の閉じ込め性能が期待できる。

(2)、(3)に関連する設計要件として、従来の処分場概念では処分場閉鎖後の長期安全性の確保に焦点があてられていたのに対して、新たな概念では、検査・モニタリングの可能性に関する要望が求められた。

5.4.3 ワークショップで整理された新たな処分場概念設計に関するアイデアに対する市民の意見

今回のワークショップで提案された新しい処分場概念に関する様々な意見や要望について、概念構築の出発点となった市場の声（5.2.2参照）を踏まえ、もともとの要望や疑問に応えたものとなっているかどうか確認する必要がある。このため、一般市民を対象としたフォーカスグループインタビューにより検証を行った。

(1) 調査概要

原子力発電及び高レベル放射性廃棄物の問題に対して関心を持つ次の3つのグループのメンバーを対象とした。各グループは6名から構成される。

G1:学生グループ 大学生の男女

G2:主婦グループ 20代～50代の主婦

G3:ビジネスマングループ 30代～50代のビジネスマン

インタビューのフローは次の通りである。項目<1>～<7>の説明及び最後の<8>全体議論の後に、

質問・意見交換を実施し、回答結果のデータを収集した。得られた結果と解釈を次項2)に示す。

- 〈1〉 イントロダクション（趣旨説明）、自己紹介
- 〈2〉 地層処分に関する認知
- 〈3〉 高レベル放射性廃棄物の概要
- 〈4〉 従来型地層処分概念
- 〈5〉 CARE型概念
- 〈6〉 分散型地上保管
- 〈7〉 最終処分へのプロセス概念
- 〈8〉 全体議論
- 〈9〉 クロージング

(2) 回答結果と解釈

1) 項目〈2〉地層処分に関する認知と認知経路

学生グループでは、「数万年で安全が確保される、安定する」という認識がみられた。認知経路としては、テレビとインターネットが挙げられ、一部の学生からは学校の授業も挙げられた。

主婦グループでは、「ガラス固化体そのものを地下深くに埋める」という認識がみられたが、一方でガラスが廃棄物からの放射線を遮へいするといった誤解も寄せられた。認知経路としては、高校生時代の現代社会の授業、テレビのニュースや特集番組、インターネットなどが挙げられた。

2) 項目〈3〉高レベル放射性廃棄物の概要

高レベル放射性廃棄物の概要説明に対しては、表面温度、冷却方法、地層内での漏出などについての質問がなされた。高レベル放射性廃棄物の対策として、「人間が管理し続けるべき（貯蔵保管）」と「地下深部に閉じ込めて生活圏から隔離すべき（地層処分）」のどちらが良いかという問いに対しては、学生とビジネスマングループでは地層処分という回答が多かったが、主婦のグループでは地上での貯蔵保管が多かった（表5.4.3-1）。

表 5. 4. 3-1 高レベル放射性廃棄物対策についての意見（地層処分概念の説明前）

	G1:学生グループ	G2:主婦グループ	G3:ビジネスマングループ
人間が管理し続けるべき（貯蔵）	①⑤	③④⑤	⑥
どちらとも言えない		①	
地下深部に閉じ込めて生活圏から隔離すべき（地層処分）	②③④⑥	②⑥	①②③④⑤

注) 表中の丸付き数字はグループの構成員の個人番号を示す。

「貯蔵管理」が良いとする理由としては、地下だと管理が不透明になる、雇用を生む、日本は地震が多いので手の届かないところに貯蔵するのは不安といったことが挙げられた。

「地層処分」が良いとする理由としては、地上でも地下でもリスクは同じで、そうであれば生活圏より遠いところが良い、人間が管理すると安心というのは正しくない、生活圏内に置くより安全、地層の方が人間の管理より安全といったことが挙げられた。

廃棄物対策を実施する場所について、どのように決めるのが良いかの問いに対しては、「使った電気の量に応じた廃棄物を都道府県ごとに引き受けるべき（分散立地）」よりも「安全性や経済性の観点からある地点を選んで置くべき（集中立地）」が圧倒的に多かった（表5. 4. 3-2）。

表 5. 4. 3-2 高レベル放射性廃棄物対策の実施場所に対する意見（地層処分概念の説明前）

	G1:学生グループ	G2:主婦グループ	G3:ビジネスマングループ
使った電気の量に応じて各都道府県で引き受けるべき（分散立地）	②		
どちらとも言えない			
安全性や経済性の点で優れた場所を選んで置くべき（集中立地）	①③④⑤⑥	①②③④⑤⑥	①②③④⑤⑥

注) 表中の丸付き数字はグループの構成員の個人番号を示す。

「分散配置」が良いという理由としては、リスクの観点から分散させたほうがそれぞれの被害が少なくなることが挙げられた。一方、「集中立地」が良いという理由としては、1箇所に設置した方が、混乱が少ない、管理しやすい、分散すると日本全体が不安になる、管理コストが高くなる、東京に置くと危険などの理由が挙げられた。

3) 項目<4>従来の地層処分概念について

地層処分概念に関する説明を行った後に出された質問としては、

- 活断層がなくて隆起もなくて浸食速度が遅いところを重ねると場所が限られるのではない
- 地盤に問題があると後でわかった場合に場所を移動することができるのか
- 具体的な候補地はあるのか
- 助成金は出るのか
- 掘って埋め戻すときに地盤が弱くなるではないか
- 地下水は大丈夫か

といったものが挙げられた。

また、調査の開始から処分(処分場の閉鎖)までに100年かかるということは驚きをもって受け止められた。さらに、海外で処分ができないのか、今はどこで保管されているのかといった質問もみられた。

次に、高レベル放射性廃棄物に対する技術的な対策として、「人間が管理し続けるべき(貯蔵)」と「地下深部に閉じ込めて生活圏から隔離すべき(地層処分)」のどちらの方策が良いかの問いに対しては、学生と主婦のグループでは「どちらとも言えない」が多く、ビジネスマングループでは「地層処分」の答えが多かった(表5.4.3-3)。

表 5.4.3-3 高レベル放射性廃棄物対策に対する意見(地層処分概念の説明後)

	G1:学生グループ	G2:主婦グループ	G3:ビジネスマングループ
人間が管理し続けるべき(貯蔵)		④⑤	⑥
どちらとも言えない	②③④⑤⑥	①③⑥	
地下深部に閉じ込めて生活圏から隔離すべき(地層処分)	①	②	①②③④⑤

注) 表中の丸付き数字はグループの構成員の個人番号を示す。

「貯蔵」が良いとする理由としては、

- 突発的な地震、火山、地下水汚染への対応や未来世代への影響を考えるべき、
- 技術革新や地球環境の変化への対応、
- 今の知識でやってしまうのはおごりのように感じる、
- 風評被害を含めた影響への責任を持ち続けたほうがいい、
- 「臭い物に蓋をして終わり」という考え方が納得できない、

といったことが挙げられた。

一方、「地層処分」が良いという理由としては、地上より地下の方が、天然のバリアがあり、外的影響を受けにくいのでリスクが低く、安全だろうとするものが多かった。

さらに、「どちらとも言えない」理由としては、事故が起こらないとは限らない、何かあった

ときに救出作業ができない、移動が難しい、地層処分の場合も遠隔管理が必要、1 万年以上バリアが耐えられるか、300 mがそんなに深いと思えないなどが挙げられた。

また、高レベル放射性廃棄物対策を実施する場所についてはどのように決めるのが良いかの問いに対して、全員が「安全性や経済性の点で優れた場所を選んで置くべき（集中立地）」という立場を取った（表5.4.3-4）。

表 5.4.3-4 高レベル放射性廃棄物対策の実施場所に対する意見（地層処分概念の説明後）

	G1:学生グループ	G2:主婦グループ	G3:ビジネスマングループ
使った電気の量に応じて各都道府県で引き受けるべき (分散立地)			
どちらとも言えない			
安全性や経済性の点で優れた場所を選んで置くべき (集中立地)	①②③④⑤⑥	①②③④⑤⑥	①②③④⑤⑥

注) 表中の丸付き数字はグループの構成員の個人番号を示す。

なお、「集中立地」が良いとする理由としては、地域の経済発展や活性化の起爆剤にもなるといった意見も挙げられた。

4) 項目<5>CARE 型 (+可視化) 概念

5.3.3で提案されたCARE型 (+可視化) 概念 (図5.3.3-2) については、従来の地層処分概念が処分場の閉鎖 (埋め戻し) 後の管理を放棄することに対し、閉鎖後においても管理・可視化・回収を継続可能にするという機能を有することで、肯定的に受け止めた参加者が多く見受けられた。

一方で、地層処分に比べて、継続モニタリング機能を持たせることにより処分システムとしての隔離性能が落ちること、長期の期間内にはモニタリングのセンサーなどが壊れること、コストが余計にかかることなどを懸念する意見もみられた。また、異常・災害等が発生した際に、モニタリング機能が有効に働くかに加え、通常モードに戻すための対処ができるか、代替オプションの対策案が実用化されるまでの引き伸ばしではないかといった疑問も聞かれた。CARE型 (+可視化) 概念に対する質問としては、埋める場所の地質、深さ、広さなどのほか、必要に応じて取り出すというのは、どういう場合なのかといったものもあった。

アンケートの時点では、CARE型が「地層処分」もしくは「貯蔵」のどちらに該当するかの質問がなされたため、双方の中間形態となることから、回答としては「どちらとも言えない」の属性として統一することとした。

このCARE型概念の説明後に、高レベル放射性廃棄物の技術対策として「人間が管理し続けるべき (貯蔵)」と「地下深部に閉じ込めて生活圏から隔離すべき (地層処分)」のどちらが良いか

の問いを再度行ったところ、学生と主婦のグループでは、先の従来の処分概念を説明した時よりも「どちらとも言えない」との答えが増えたが、ビジネスマングループでは「地層処分」が多いままの結果となった（表5.4.3-5）。

表 5.4.3-5 高レベル放射性廃棄物対策に関する意見（新概念の提案後）

	G1:学生グループ	G2:主婦グループ	G3:ビジネスマングループ
人間が管理し続けるべき（貯蔵）		⑤	
どちらとも言えない	①②③④⑤⑥	①②③④⑥	④
地下深部に閉じ込めて生活圏から隔離すべき（地層処分）			①②③⑤⑥

注) 表中の丸付き数字はグループの構成員の個人番号を示す。

CARE型概念の説明をした際に、高レベル放射性廃棄物対策を実施する場所について、どのように決めるのが良いかの問いを再度行ったところ、全員が「安全性や経済性のから優れた場所を選んで置くべき（集中立地）」との答えのままで、前回の従来の地層処分概念を説明した時と比べ、認識の変化はなかった（表5.4.3-6）。

表 5.4.3-6 高レベル放射性廃棄物対策の実施場所に対する意見（新概念提案後）

	G1:学生グループ	G2:主婦グループ	G3:ビジネスマングループ
使った電気の量に応じて各都道府県で引き受けるべき（分散立地）			
どちらとも言えない			
安全性や経済性の点で優れた場所を選んで置くべき（集中立地）	①②③④⑤⑥	①②③④⑤⑥	①②③④⑤⑥

注) 表中の丸付き数字はグループの構成員の個人番号を示す。

5) 項目<6>分散型地上保管概念

分散型の地上保管概念を説明した後に参加者から出された質問としては、どう処理をするか、テロリストに狙われる可能性、地層処分とのコストの違い、六ヶ所での再処理・保管施設についてなどが挙げられた。

この分散型の地上保管概念を説明した時点で、再度、高レベル放射性廃棄物対策として「人間が管理し続けるべき（貯蔵）」と「地下深部に閉じ込めて生活圏から隔離すべき（地層処分）」

のどちらの方策が良いかの同じ質問を行ったところ、学生グループでは、前回のCARE型概念説明時と同じく全員が「どちらとも言えない」の答えを、主婦グループにおいても前回「貯蔵」と答えた人が認識を変え、全員が「どちらとも言えない」と回答した。一方、ビジネスマングループでは前回「地層処分」とした1名が認識を変え「どちらとも言えない」と回答した(表5.4.3-7)。

表 5.4.3-7 高レベル放射性廃棄物対策に対する意見(分散型地上保管概念の説明後)

	G1:学生グループ	G2:主婦グループ	G3:ビジネスマングループ
人間が管理し続けるべき(貯蔵)			
どちらとも言えない	①②③④⑤⑥	①②③④⑤⑥	④⑥
地下深部に閉じ込めて生活圏から隔離すべき(地層処分)			①②③⑤

注) 表中の丸付き数字はグループの構成員の個人番号を示す。

回答が変わった理由は、次のようなものである。

分散型の地上保管概念を説明した後に、再度、高レベル放射性廃棄物対策を実施する場所については、どのように決めるのが良いかの問いを行ったところ、学生とビジネスマンのグループでは全員が「安全性や経済性から優れた場所を選んで置くべき(集中立地)」という認識を維持し、それまでの従来の地層処分概念やCARE型概念を説明したときの回答と変化はみられなかった。一方、主婦グループでは、2名が認識を変え「どちらとも言えない」の回答にシフトした(表5.4.3-8)。

表 5.4.3-8 高レベル放射性廃棄物への技術対策に関する意見(分散型地上保管概念の説明後)

	G1:学生グループ	G2:主婦グループ	G3:ビジネスマングループ
使った電気の量に応じて各都道府県で引き受けるべき(分散立地)			
どちらとも言えない		③⑤	
安全性や経済性の点で優れた場所を選んで置くべき(集中立地)	①②③④⑤⑥	①②④⑥	①②③④⑤⑥

注) 表中の丸付き数字はグループの構成員の個人番号を示す。

「集中立地」のほうが良いという理由には、分散型概念の場合、地層処分にとって安全でないところに設置もしくは安全な場所が狭まってくる可能性があること、集中型よりもコストがかかること、ある程度まとめて実施した方が効率性が良いこと、分散するとテロに遭遇する危険性が

増すこと、リスクが拡散し潜在的危険性が広がること、管理体制にばらつきが生じ管理品質の維持が保てなくなることなどが挙げられている。一方、「分散配置」が良いという理由としては、日本全国に3つくらい設置し、1つが何らかの理由で諦めざるを得なくなったときの逃げ場を備えておいたほうが良いこと、日本で一番電気を消費している東京も一部の廃棄物を引き受けるなどこの問題に対して何らかの責任を示すべきとの道義的責任を挙げている。しかし、ビジネスマングループでは、電力の消費量に応じて分配することの公平性に疑問を呈する意見もみられ、人が集まるところに廃棄物が増えていくというのが不合理であり、また地域の財政状況等の社会的環境に応じて廃棄物管理にもばらつきが出るとの指摘も出された。また、地上よりも地下で管理したほうが良いとの意見もあった。

6) 項目<7>最終処分へ至るプロセス

最終処分へと進めていくプロセスのうち、CARE型概念での定期的な監視チェックに対する理解度は高かった。一方で、都道府県ごとの分散配置における最終処分に移行するプロセスについては、多くの確認や質問が寄せられた。また、CARE型概念における定期的な監視チェックについても、廃棄物を直接取り出さず遠隔操作による監視チェックで良いとの意見があった。さらに、定期的なチェックは賛成だが、都道府県ごとの分散配置の貯蔵から最終処分に移行するプロセスについては反対との意見が多かったが、分散配置により住民の意見を盛り込めるとの肯定的な評価もみられた。しかし、自治体の鼻先に人參をぶら下げているようで怪しい、科学的に最適な場所ではなく、多数決で決めるのはおかしい、住民間に対立を生みそうとの苦言もあった。

最終処分に進めていくプロセスの説明後に、高レベル放射性廃棄物対策として「人間が管理し続けるべき（貯蔵）」と「地下深部に閉じ込めて生活圏から隔離すべき（地層処分）」のどちらが良いかの問いに対しては、学生のグループではCARE型概念の時と同じく全員が「どちらとも言えない」、主婦グループでは1名が認識を変えて「どちらとも言えない」から「貯蔵」へとシフトした。一方で、ビジネスマングループでは前回と同じ回答だった（表5.4.3-9）。このうち、主婦グループの1名の回答で認識を変えた理由は、こういった形であれ管理する状況は作っておいた方が良好とするものであった。

表 5.4.3-9 高レベル放射性廃棄物術対策に対する意見（最終処分へのプロセスの説明後）

	G1:学生グループ	G2:主婦グループ	G3:ビジネスマングループ
人間が管理し続けるべき（貯蔵）		⑤	
どちらとも言えない	①②③④⑤⑥	①②③④⑥	④⑥
地下深部に閉じ込めて生活圏から隔離すべき（地層処分）			①②③⑤

注) 表中の丸付き数字はグループの構成員の個人番号を示す。

最終処分に進めていくプロセスの説明を行った段階で、対策を実施する場所はどのように決めるのが良いかについては、学生で「集中立地」から「どちらとも言えない」へのシフトが2名みられ、主婦グループでは逆に、「どちらとも言えない」から「集中立地」へのシフトが1名みられた。ビジネスマングループでは前回同様に全員が「集中立地」となっていた（表5.4.3-10）。

表 5.4.3-10 高レベル放射性廃棄物対策の実施場所に対する意見(最終処分へのプロセス概念説明後)

	G1:学生グループ	G2:主婦グループ	G3:ビジネスマングループ
使った電気の量に応じて各都道府県で引き受けるべき (分散立地)			
どちらとも言えない	④⑥	③	
安全性や経済性の点で優れた場所を選んで置くべき (集中立地)	①②③⑤	①②④⑤⑥	①②③④⑤⑥

注) 表中の丸付き数字はグループの構成員の個人番号を示す。

7) 項目<8>全体議論

① 全体を通しての各処分概念の評価

これまで提示してきた従来の地層処分概念といくつかの新たな処分概念について、全体を通じて理想的な概念はどれかという問いを行った。

学生と主婦のグループでは、CARE型概念が最適とする人がほとんどだった。また、集中型と分散配置プロセスを経ての集中型最終処分が分かれた。

廃棄物対策の実施場所については、集中型の概念が良いとしつつ、3カ所から電力会社ごとの数カ所も良いとする意見も少なくなかった。一方で、全国47都道府県ごとの分散配置には否定的な意見が多かった。

学生グループでは、専門家に任せるほうが良いとする意見が2名、みんなの意見を反映するプロセスが必要とする意見が4名で、プロセスが必要とする人からは、知識獲得のプロセスにはコンセンサス会議のような場が必要との意見が出された。一方、知識のある有識者に決断はまかせ、受入自治体と住民にお金を換言すれば良いとの意見も出された。

将来の処分実施のための人材育成の必要性や別の新たな安全対策への期待を示す意見もみられた。性別では、男性は、「地層処分」を支持する人が多く、全員が「集中立地」を支持しており、学生や主婦の支持していた「CARE型概念」に対する支持は少なかった。

② フォーカスグループインタビューを通じての態度変容

フォーカスグループインタビューにおいて、各段階の説明後に行ったアンケートの結果を以下に整理した。インタビューでの発言や挙手で行ったこれまでの本文での集計結果と異なる場合もあり得る。

このアンケート結果の回答の推移を見ると、当初、「地層処分」と「集中立地」に偏っていた態度が、「CARE型」という「地層処分」と「貯蔵」の中間的な新たな概念提示によって、まず技術的対策が「どちらとも言えない」にシフトした。特に、学生と主婦のシフトが顕著にみられた。その後、プロセス概念の提示と全体議論を経て、実施場所の「集中立地」から「どちらとも言えない」への態度変容のシフトがみられた。これも学生と主婦のグループに顕著であった。一方で、ビジネスマングループの態度の変化はあまりみられず、当初の「地層処分」と「集中立地」の態度が維持されていた。

5.5 ワークショップの結果に基づくマルチエージェントシミュレーション

5.5.1 概要

フォーカスグループインタビューにおける各参加者の態度や合意形成の可否等は、比較的小規模のグループの構成や議論の経緯によって変動する可能性があり、必ずしも蓋然性の高いものと言うことはできない。これを踏まえ、フォーカスグループインタビューにおける数度の対話における各参加者の意見や態度変容の傾向について、とりうる状態が離散的で、次の段階の挙動が現段階の値だけで決定され、過去の状態と無関係であることを仮定した「マルコフ連鎖モデル」により、いくつかのパターンに類型化することを試みた。これら類型化された傾向を、エージェントの行動ルールとして定義したマルチエージェントシミュレーションモデルを構築し、異なる類型に属するメンバーの相対的比率を種々に変動させた統計的シミュレーションを行うことにより、同様のメンバーによって導きだされるかもしれない代替的な結論や意見形成の経路等について知見を得た。なお、このシミュレーションには、昨年度までに本事業で導入したマルチエージェントシミュレーションツールCaymansを用いることとし、必要に応じてモデルに改良を施した。

5.5.2 ワークショップで新しく提案された処分概念からの軸の抽出

ワークショップにおいては、以下のような新しい処分場の概念が提案された。これらの新しい処分場概念と従来の地層処分概念から、処分概念に関する世界観に対応した空間を構築するための2つの主な軸および対極的な処分概念を抽出した。ワークショップで提示された新しい処分概念は、5.4.2節で述べたとおりである。

抽出された軸：

- ▶ 高レベル放射性廃棄物への技術的対策について、
 - A) 「地下深部に閉じ込めて生活圏から隔離すべき（地層処分）」
 - B) 「人間が管理し続けるべき（貯蔵）」
- ▶ 上記の対策を実施する処分場の立地方法について、
 - A) 「安全性や経済性の点で優れた場所を選んで置くべき（集中立地）」

B) 「使った電気の量等に応じて各都道府県で引受けるべき（分散配置）」

以下の図に示すように技術的対策の軸および立地方法の軸それぞれに対して対極的処分概念およびそれらの中間意見（どちらとも言えない）の3つに区分し、それらを組み合わせて図5.5.2-1に示す9つの概念オプションとして位置づけた。各概念オプションの詳細は、5.4.3節で述べたとおりである。



図 5.5.2-1 処分場概念オプション

5.5.3 参加者の意見や合意形成の可否に関する態度変容の傾向のパターンの抽出手順

各行程を経て起こり得る各参加者の態度変容についてのデータは、以下の手順で収集した。

(1) 初回アンケートの実施

始めに、今回の処分の対象となる高レベル放射性廃棄物の概要について説明を行い、各ステークホルダの初期段階での各処分概念についての態度を把握するためのアンケート(図5.5.3-1)を実施した。アンケートの実施前には、上記の技術的対策の軸及び立地方法の軸における位置づけの概要、及び各軸における対極的な主要処分オプションについて簡潔に説明を実施した。

初回 アンケート

高レベル放射性廃棄物への技術的対策としてどれが良いと思いますか？

人間が管理し続けるべき (貯蔵)	どちらとも言えない	地下深部に貯蔵することで 生活圏から隔離すべき (地層処分)
---------------------	-----------	--------------------------------------

上記の対策を実施する場所はどのように決めるのが良いと思いますか？

使った電気の量等に応じて 各都道府県で分散させるべき (分散配置)	どちらとも言えない	安全性や経済性の点で 決めた場所を選んで置くべき (集中立地)
---	-----------	---------------------------------------

■ それぞれについて選択した理由を簡潔にご記入下さい。


 QJ Science

図 5.5.3-1 アンケート例

(2) 各処分場概念オプションの説明およびアンケートの実施

次に、従来の処分場概念およびワークショップで提示された新しい処分概念について、表 5.5.3-1の順序で説明を行った。各処分概念の説明（図5.5.3-2）の後、質問に応じるとともに、説明された処分概念について、「賛成か、反対か？」「賛成できないとすればどのような点についてか？」「どのように改善できると考えられるか？」といった点について、意見表明や簡単な議論を行った。議論の後、図5.5.3-1と同様のアンケートを実施して、各段階における各参加者の態度変容についてのデータを収集した。

表 5.5.3-1 各処分場概念オプションの説明およびアンケートの順序

1) 高レベル放射性廃棄物について	・説明実施後にアンケートの内容説明を行い、初回アンケートを実施
2) 従来の地層処分概念について	・説明実施後に質問・議論を行い、第2回アンケートを実施
3) CARE型(+可視化)概念について	・説明実施後に質問・議論を行い、第3回アンケートを実施
4) 分散型地上保管概念について	・説明実施後に質問・議論を行い、第4回アンケートを実施
5) 最終処分へと進めていくプロセスに関する概念について	・説明実施後に質問・議論を行い、第5回アンケートを実施
6) 全体を踏まえての最終議論	・最終議論後に質問・議論を行い、最終のアンケートを実施



図 5. 5. 3-2 従来の地層処分概念の説明例 (出典 NUMO より)

(3) アンケート結果に基づく意見の集計方法

各回のアンケート結果に基づき、各参加者の意見が図5. 5. 3-3に示すような処分概念オプション①～⑨のどこに位置するかを集計し、アンケート毎に①～⑨の位置にそれぞれ何人の参加者が含まれるかを集計して意見分布ベクトルを生成した (図5. 5. 3-4)。

		技術的対策の軸		
		人間が管理し続けるべき (貯蔵)	どちらも言えない	地下深部に閉じ込めて生活圏から隔離すべき(地層処分)
立地方法の軸	健全な地層環境が作り出され、新たな自然環境として受け入れられるべき(分散型)	① 地上型 概念	② CARE型 可処分 概念	③ 従来の 地層処分 概念
	どちらも言えない	④	⑤	⑥
	健全な地層環境が作り出されず、自然環境として受け入れられない(分散型)	⑦ 分散型 地上型 概念	⑧ 可処分 概念	⑨ 従来の 地層処分 概念

図 5. 5. 3-3 意見位置についての番号の対応

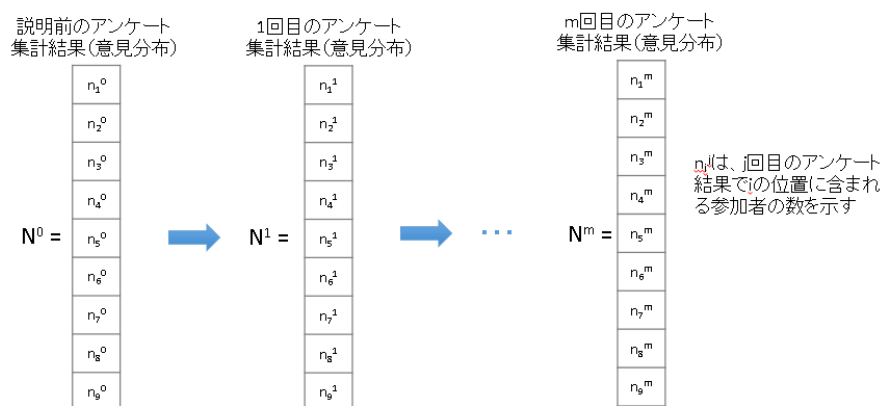


図 5. 5. 3-4 アンケート結果に基づく意見の集計（意見分布）

(4) 態度変容行列の構成

各回の概念オプションの説明前後で各位置にある参加者がどのように変化したかを図5. 5. 3-5のように態度変容行列として表現する。

i回目の概念オプションの説明前後での態度変容行列 $W^i = \{w_{jk}^i\}$ において、 w_{jk}^i は、説明前にkの位置にあった参加者のうち説明後にjの位置に変化した人の割合を示す。このため、各列の和は1 ($\sum_j w_{jk}^i = 1$) となるが、説明前に該当する参加者が不在の位置については0とする。

$$W^i = \begin{matrix} & \begin{matrix} W_{11}^i & W_{12}^i & W_{13}^i & W_{14}^i & W_{15}^i & W_{16}^i & W_{17}^i & W_{18}^i & W_{19}^i \end{matrix} \\ \begin{matrix} W_{21}^i \\ W_{31}^i \\ W_{41}^i \\ W_{51}^i \\ W_{61}^i \\ W_{71}^i \\ W_{81}^i \\ W_{91}^i \end{matrix} & \begin{matrix} W_{22}^i & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot \\ \cdot & W_{33}^i & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot \\ \cdot & \cdot & W_{44}^i & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot \\ \cdot & \cdot & \cdot & W_{55}^i & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot \\ \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & W_{66}^i & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot \\ \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & W_{77}^i & \cdot & \cdot & \cdot \\ \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & W_{88}^i & \cdot & \cdot \\ \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & W_{99}^i \end{matrix} \end{matrix}$$

図 5. 5. 3-5 態度変容行列の構成

(5) 態度変容行列の積による参加者の意見分布の変遷の表現（マルコフ連鎖モデル）

i回目の意見分布ベクトル N^i は、初期状態ベクトル N^0 に対して1回目からi回目までの態度変容行列を順に作用させることによって、意見分布ベクトル N^i および態度変容行列 W^i を用いて、以下の式で再現される。

$$N^i = W^i \cdot \dots \cdot W^2 W^1 N^0$$

5.5.4 フォーカスグループインタビューからのアンケート集計結果

フォーカスグループインタビューから集計したアンケート結果を表5.5.4-1に示す。

表 5.5.4-1 集計した意見分布一覧

初回アンケート (高レベル放射性廃棄物の説明後)	第4回アンケート (分散型地上保管概念の説明後)																		
<table border="1"> <tr><td>6</td><td>1</td><td>10</td></tr> <tr><td></td><td></td><td></td></tr> <tr><td></td><td></td><td>1</td></tr> </table>	6	1	10						1	<table border="1"> <tr><td></td><td>12</td><td>4</td></tr> <tr><td>1</td><td>1</td><td></td></tr> <tr><td></td><td></td><td></td></tr> </table>		12	4	1	1				
6	1	10																	
		1																	
	12	4																	
1	1																		
第2回アンケート (従来型の地層処分の説明後)	第5回アンケート (プロセス型概念の説明後)																		
<table border="1"> <tr><td>3</td><td>7</td><td>8</td></tr> <tr><td></td><td></td><td></td></tr> <tr><td></td><td></td><td></td></tr> </table>	3	7	8							<table border="1"> <tr><td>1</td><td>10</td><td>4</td></tr> <tr><td></td><td>3</td><td></td></tr> <tr><td></td><td></td><td></td></tr> </table>	1	10	4		3				
3	7	8																	
1	10	4																	
	3																		
第3回アンケート (CARE型概念の説明後)	第6回アンケート (全体議論後)																		
<table border="1"> <tr><td>1</td><td>11</td><td>5</td></tr> <tr><td></td><td>1</td><td></td></tr> <tr><td></td><td></td><td></td></tr> </table>	1	11	5		1					<table border="1"> <tr><td></td><td>7</td><td>4</td></tr> <tr><td></td><td>7</td><td></td></tr> <tr><td></td><td></td><td></td></tr> </table>		7	4		7				
1	11	5																	
	1																		
	7	4																	
	7																		

上記の位置をアンケートの集計結果を用いて N_0 から N_m までの意見分布のベクトルを作成した。意見分布ベクトルを表5.5.4-2に示す。

表5.5.4-2 意見分布ベクトル一覧

N ₀	N ₁	N ₂
$\begin{pmatrix} 6 \\ 1 \\ 10 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix}$	$N_1 = \begin{pmatrix} 3 \\ 7 \\ 8 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}$	$N_2 = \begin{pmatrix} 1 \\ 11 \\ 5 \\ 0 \\ 1 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}$
N ₄	N ₅	N ₆
$\begin{pmatrix} 0 \\ 12 \\ 4 \\ 1 \\ 1 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}$	$N_4 = \begin{pmatrix} 1 \\ 10 \\ 4 \\ 0 \\ 3 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}$	$N_5 = \begin{pmatrix} 0 \\ 7 \\ 4 \\ 0 \\ 7 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}$

また、上記の意見分布ベクトルを元に計算した態度変容行列を表5.5.4-3に示す。

表 5. 5. 4-3 態度変容行列一覧

W ₁	W ₂
$\begin{pmatrix} 0.5 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0.33 & 1 & 0.3 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 \\ 0.17 & 0 & 0.7 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} 0.33 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0.33 & 0.86 & 0.5 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0.33 & 0 & 0.5 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0.14 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$
W ₃	W ₄
$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0.91 & 0.2 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0.8 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0.09 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0.83 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0.17 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$
W ₅	
$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0.7 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 1 & 0.3 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$	

5. 5. 5 統計的シミュレーション (モンテカルロシミュレーション)

i-1回目にkの位置にある参加者数が n_k^{i-1} である場合、[0, 1]の乱数を n_k^{i-1} 回発生させ、以下の規則に従いそれぞれi回目にはどの位置に行くべきかをモンテカルロシミュレーションを用いて統計的に決定した。

態度変容行列のk番目の列における成分 $\{w_{jk}^i\}$ (総和は1であることに注意) を逐次足し合わせた累積確率曲線に対して[0, 1]の乱数を対応させることで次のi回目に行くべき位置を決める (図 5. 5. 5-1)。例えば、上記においてp回目に発生させた乱数 r_{kp}^{i-1} が以下のように累積確率曲線で j^* 番目と j^*-1 番目の節点の間にある場合、次回の意見は j^* であるとする (図5. 5. 5-2)

$$\text{If } \sum_{j=1}^{j^*-1} w_{jk}^i < r_{kp}^{i-1} \leq \sum_{j=1}^{j^*} w_{jk}^i, \text{ then go to position } j^*$$

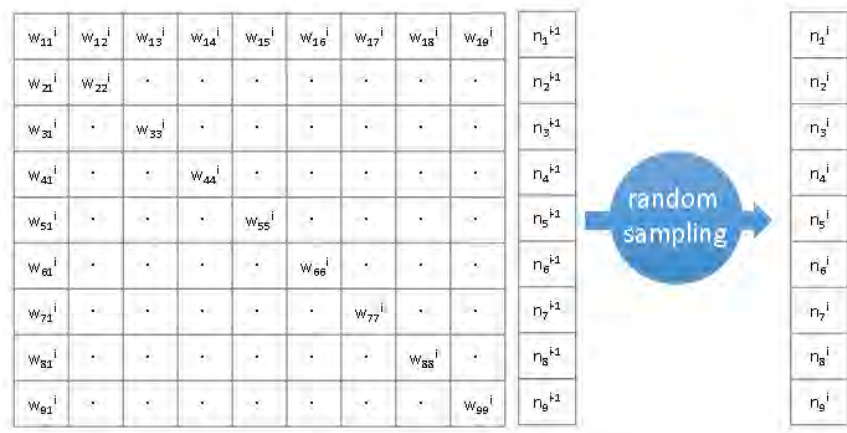


図 5.5.5-1 統計的シミュレーション

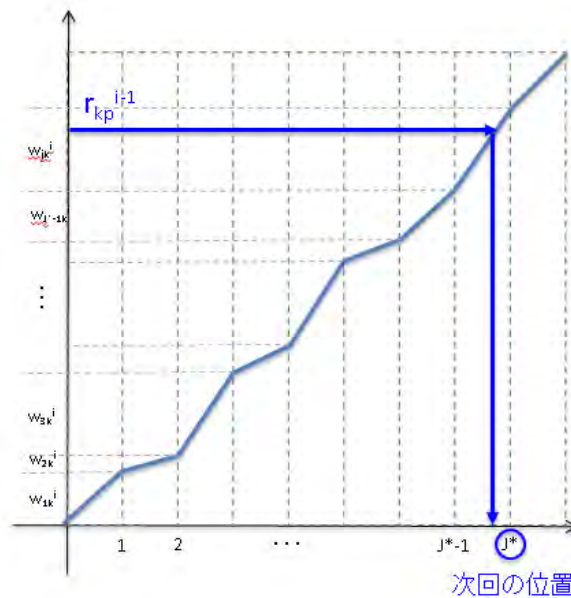


図 5.5.5-2 ランダムサンプリングによる態度変容決定の概念

(1) ケーススタディ 1 (説明順序による説明順序への依存性の検討)

ケーススタディ1として、上記の行列を作用させる順序を変えて計算を行い、その結果を比較することによって説明順序への依存性の有無を検討した。また、母集団のサイズによるばらつきの程度を把握するために、メンバー数を2倍、5倍、10倍にそれぞれ変化させてケーススタディを行った。

CARE型、分散型地上保管型の説明順序を入れ替えた場合をケーススタディ1-1 (表5.5.5-1)、従来の地層処分、CARE型、分散型地上保管型の説明順序を入れ替えた場合をケーススタディ1-2 (表5.5.5-2)、全体議論をCARE型の説明の後に行う場合をケーススタディ1-3 (表5.5.5-3) とし、以下に示した。

表 5.5.5-1 ケーススタディ 1-1 結果

CARE型、分散型地上保管型の説明順序を入れ替えた場合 (W5*W4*W2*W3*W1*N0)																			
母集団=18	母集団=36																		
<table border="1"> <tr><td></td><td>9</td><td>3</td></tr> <tr><td></td><td>2</td><td></td></tr> <tr><td></td><td></td><td></td></tr> </table>		9	3		2					<table border="1"> <tr><td></td><td>5</td><td>8</td></tr> <tr><td></td><td>17</td><td></td></tr> <tr><td></td><td></td><td></td></tr> </table>		5	8		17				
	9	3																	
	2																		
	5	8																	
	17																		
母集団=90	母集団=180																		
<table border="1"> <tr><td></td><td>34</td><td>18</td></tr> <tr><td></td><td>26</td><td></td></tr> <tr><td></td><td></td><td></td></tr> </table>		34	18		26					<table border="1"> <tr><td></td><td>67</td><td>28</td></tr> <tr><td></td><td>50</td><td></td></tr> <tr><td></td><td></td><td></td></tr> </table>		67	28		50				
	34	18																	
	26																		
	67	28																	
	50																		

表 5.5.5-2 ケーススタディ 1-2 結果

従来の地層処分、CARE型、分散型地上保管型の説明順序を入れ替えた場 合 (W5*W4*W1*W2*W3*N0)																			
母集団=18	母集団=36																		
<table border="1"> <tr><td></td><td>1</td><td>8</td></tr> <tr><td></td><td>2</td><td></td></tr> <tr><td></td><td></td><td></td></tr> </table>		1	8		2					<table border="1"> <tr><td></td><td>8</td><td>6</td></tr> <tr><td></td><td>6</td><td></td></tr> <tr><td></td><td></td><td></td></tr> </table>		8	6		6				
	1	8																	
	2																		
	8	6																	
	6																		
母集団=90	母集団=180																		
<table border="1"> <tr><td></td><td>20</td><td>17</td></tr> <tr><td></td><td>16</td><td></td></tr> <tr><td></td><td></td><td></td></tr> </table>		20	17		16					<table border="1"> <tr><td></td><td>41</td><td>28</td></tr> <tr><td></td><td>33</td><td></td></tr> <tr><td></td><td></td><td></td></tr> </table>		41	28		33				
	20	17																	
	16																		
	41	28																	
	33																		

表 5.5.5-3 ケーススタディ 1-3 結果

全体議論をCARE型の説明の後に行う場合 (W4*W3*W5*W2*W1*N0)																			
母集団=18	母集団=36																		
<table border="1"> <tr> <td></td> <td>9</td> <td>3</td> </tr> <tr> <td></td> <td>6</td> <td></td> </tr> <tr> <td></td> <td></td> <td></td> </tr> </table>		9	3		6					<table border="1"> <tr> <td></td> <td>22</td> <td>5</td> </tr> <tr> <td></td> <td>9</td> <td></td> </tr> <tr> <td></td> <td></td> <td></td> </tr> </table>		22	5		9				
	9	3																	
	6																		
	22	5																	
	9																		
母集団=90	母集団=180																		
<table border="1"> <tr> <td></td> <td>54</td> <td>20</td> </tr> <tr> <td></td> <td>16</td> <td></td> </tr> <tr> <td></td> <td></td> <td></td> </tr> </table>		54	20		16					<table border="1"> <tr> <td></td> <td>124</td> <td>29</td> </tr> <tr> <td></td> <td>27</td> <td></td> </tr> <tr> <td></td> <td></td> <td></td> </tr> </table>		124	29		27				
	54	20																	
	16																		
	124	29																	
	27																		

ケーススタディ1-1については、実際のアンケート結果と比較して、立地方法の軸においては、集中立地が集まる傾向がややみられ、技術的対策の軸については、どちらとも言えない (CARE型) を選択する割合がやや大きくなった。

ケーススタディ1-2については、実際のアンケート結果と比較して、立地方法の軸および技術的対策の軸において、ほぼ割合の変化はみられなかった。

ケーススタディ1-3については、実際のアンケート結果と比較して、立地方法の軸においては、集中立地が集まる傾向がかなり強まったが、技術的対策の軸についても、どちらとも言えない (CARE型) を選択する傾向が強くなった。

ケーススタディ1-1から1-3の結果からは、態度変容行列の順序を変えることにより、結果がことなってくることから、説明順序への依存性が推測された。また、母集団のサイズによるばらつきについては規模が90人から180人程度になるとばらつきが安定してくる傾向がみられた。

(2) ケーススタディ 2 (初期条件への依存性の検討)

ケーススタディ2として、初期条件を実際のフォーカスグループインタビューでの初期意見分布とは異なる状態を入力して結果を比較することにより、初期状態への依存性を検証した。全員が初期位置③にいた場合をケーススタディ2-1 (表5.5.5-4)、全員が初期位置⑨にいた場合をケーススタディ2-2 (表5.5.5-5)、全員が初期位置①にいた場合をケーススタディ2-3 (表5.5.5-6)、初期位置が①③⑨に均等分布していた場合をケーススタディ2-2 (表5.5.5-7) として、ケーススタディの結果を以下に示す。

表 5.5.5-4 ケーススタディ 2-1 結果

全員が初期位置③にいた場合																			
<table border="1" style="margin: auto;"> <tr> <td></td> <td></td> <td style="background-color: red;"></td> </tr> <tr> <td></td> <td></td> <td></td> </tr> <tr> <td></td> <td></td> <td></td> </tr> </table>																			
母集団=18	母集団=36																		
<table border="1" style="margin: auto;"> <tr> <td></td> <td style="text-align: center;">4</td> <td style="text-align: center;">4</td> </tr> <tr> <td></td> <td style="background-color: red; text-align: center;">10</td> <td></td> </tr> <tr> <td></td> <td></td> <td></td> </tr> </table>		4	4		10					<table border="1" style="margin: auto;"> <tr> <td></td> <td style="background-color: red; text-align: center;">16</td> <td style="text-align: center;">9</td> </tr> <tr> <td></td> <td style="background-color: #f0f0f0; text-align: center;">11</td> <td></td> </tr> <tr> <td></td> <td></td> <td></td> </tr> </table>		16	9		11				
	4	4																	
	10																		
	16	9																	
	11																		
母集団=90	母集団=180																		
<table border="1" style="margin: auto;"> <tr> <td></td> <td style="background-color: red; text-align: center;">40</td> <td style="text-align: center;">22</td> </tr> <tr> <td></td> <td style="background-color: #f0f0f0; text-align: center;">28</td> <td></td> </tr> <tr> <td></td> <td></td> <td></td> </tr> </table>		40	22		28					<table border="1" style="margin: auto;"> <tr> <td></td> <td style="background-color: red; text-align: center;">70</td> <td style="background-color: #f0f0f0; text-align: center;">57</td> </tr> <tr> <td></td> <td style="background-color: #f0f0f0; text-align: center;">53</td> <td></td> </tr> <tr> <td></td> <td></td> <td></td> </tr> </table>		70	57		53				
	40	22																	
	28																		
	70	57																	
	53																		

表 5.5.5-5 ケーススタディ 2-2 結果

全員が初期位置⑨にいた場合																			
<table border="1" style="margin: auto;"> <tr><td></td><td></td><td></td></tr> <tr><td></td><td></td><td></td></tr> <tr><td></td><td></td><td style="background-color: red;"></td></tr> </table>																			
母集団=18	母集団=36																		
<table border="1" style="margin: auto;"> <tr><td></td><td style="background-color: red;">9</td><td></td></tr> <tr><td></td><td style="background-color: red;">9</td><td></td></tr> <tr><td></td><td></td><td></td></tr> </table>		9			9					<table border="1" style="margin: auto;"> <tr><td></td><td>17</td><td></td></tr> <tr><td></td><td style="background-color: red;">19</td><td></td></tr> <tr><td></td><td></td><td></td></tr> </table>		17			19				
	9																		
	9																		
	17																		
	19																		
母集団=90	母集団=180																		
<table border="1" style="margin: auto;"> <tr><td></td><td style="background-color: red;">49</td><td></td></tr> <tr><td></td><td>41</td><td></td></tr> <tr><td></td><td></td><td></td></tr> </table>		49			41					<table border="1" style="margin: auto;"> <tr><td></td><td style="background-color: red;">98</td><td></td></tr> <tr><td></td><td>82</td><td></td></tr> <tr><td></td><td></td><td></td></tr> </table>		98			82				
	49																		
	41																		
	98																		
	82																		

表 5.5.5-6 ケーススタディ 2-3 結果

全員が初期位置①にいた場合																			
<table border="1" style="margin: auto;"> <tr> <td style="background-color: red;"></td> <td></td> <td></td> </tr> <tr> <td></td> <td></td> <td></td> </tr> <tr> <td></td> <td></td> <td></td> </tr> </table>																			
母集団=18	母集団=36																		
<table border="1" style="margin: auto;"> <tr> <td></td> <td style="text-align: center;">3</td> <td style="background-color: red; text-align: center;">7</td> </tr> <tr> <td></td> <td style="background-color: red; text-align: center;">8</td> <td></td> </tr> <tr> <td></td> <td></td> <td></td> </tr> </table>		3	7		8					<table border="1" style="margin: auto;"> <tr> <td></td> <td style="background-color: #f0f0f0; text-align: center;">9</td> <td style="text-align: center;">8</td> </tr> <tr> <td></td> <td style="background-color: red; text-align: center;">19</td> <td></td> </tr> <tr> <td></td> <td></td> <td></td> </tr> </table>		9	8		19				
	3	7																	
	8																		
	9	8																	
	19																		
母集団=90	母集団=180																		
<table border="1" style="margin: auto;"> <tr> <td></td> <td style="background-color: red; text-align: center;">39</td> <td style="text-align: center;">12</td> </tr> <tr> <td></td> <td style="background-color: red; text-align: center;">39</td> <td></td> </tr> <tr> <td></td> <td></td> <td></td> </tr> </table>		39	12		39					<table border="1" style="margin: auto;"> <tr> <td></td> <td style="background-color: red; text-align: center;">71</td> <td style="text-align: center;">45</td> </tr> <tr> <td></td> <td style="background-color: red; text-align: center;">64</td> <td></td> </tr> <tr> <td></td> <td></td> <td></td> </tr> </table>		71	45		64				
	39	12																	
	39																		
	71	45																	
	64																		

表 5.5.5-7 ケーススタディ 2-4 結果

初期位置が①③⑨に均等分布していた場合	
母集団=18	母集団=36
母集団=90	母集団=180

ケーススタディ2-1については、実際のアンケート結果と比較して、集中立地型でCARE型のオプションを選択する割合が最大となった。従来の地層処分オプション及び、集中立地と分散配置の中間型のオプションとの割合はほぼ同数の形となっていた。実際のアンケート結果と比較した全体の傾向としては、技術的対策において、生活圏に隔離すべきであるという従来の地層処分オプションの割合がやや大きくなっていた。

ケーススタディ2-2については、立地方法の軸において、集中立地型および集中立地と分散配置の中間型のオプションがほぼ同数になったが、実際のアンケート結果と比較して、従来の集中立地型の地層処分オプションは選択されていなかった。

ケーススタディ2-3については、実際のアンケート結果と比較して、立地方法の軸におよび技術的対策の軸についても、ほぼ同様な傾向となった。

ケーススタディ2-4については、実際のアンケート結果と比較して、技術的対策の軸については、CARE型を選択する割合が多くなったが、立地方法の軸については、中間型よりも集中立地型のオプションの割合がやや多い傾向がみられた。

ケーススタディ2-1から2-4の結果からは、初期位置の配置により、結果が異なってくるこ

から、初期状態への依存性が推測された。また、ケース1と同様に、母集団のサイズによるばらつきについても規模が90人から180人程度になるとばらつきが安定してくる傾向がみられた。

(3) ケーススタディ 3 (グループごとの態度変容行列の差異の検討)

ケーススタディ3として、各参加者グループの意見分布に対して他のグループの態度変容行列を作用させて結果に差異が生ずるか否かの検討を行った。学生の態度変容行列を全体に作用させた場合をケーススタディ3-1 (表5.5.5-8)、主婦の態度変容行列を作用させた場合をケーススタディ3-2 (表5.5.5-9)、ビジネスマンの態度変容行列を全体に作用させた場合をケーススタディ3-3 (表5.5.5-10) として以下に結果を示す。

表 5.5.5-8 ケーススタディ 3-1 結果

学生の態度変容行列を全体に作用させた場合																			
母集団=18	母集団=36																		
<table border="1"> <tr><td></td><td>7</td><td></td></tr> <tr><td></td><td>10</td><td></td></tr> <tr><td></td><td></td><td></td></tr> </table>		7			10					<table border="1"> <tr><td></td><td>12</td><td></td></tr> <tr><td></td><td>22</td><td></td></tr> <tr><td></td><td></td><td></td></tr> </table>		12			22				
	7																		
	10																		
	12																		
	22																		
母集団=90	母集団=180																		
<table border="1"> <tr><td></td><td>55</td><td></td></tr> <tr><td></td><td>30</td><td></td></tr> <tr><td></td><td></td><td></td></tr> </table>		55			30					<table border="1"> <tr><td></td><td>91</td><td></td></tr> <tr><td></td><td>79</td><td></td></tr> <tr><td></td><td></td><td></td></tr> </table>		91			79				
	55																		
	30																		
	91																		
	79																		

表 5.5.5-9 ケーススタディ 3-2 結果

主婦の態度変容行列を作用させた場合																			
母集団=18	母集団=36																		
<table border="1"> <tr><td></td><td>7</td><td></td></tr> <tr><td></td><td>10</td><td></td></tr> <tr><td></td><td></td><td></td></tr> </table>		7			10					<table border="1"> <tr><td></td><td>16</td><td></td></tr> <tr><td></td><td>18</td><td></td></tr> <tr><td></td><td></td><td></td></tr> </table>		16			18				
	7																		
	10																		
	16																		
	18																		
母集団=90	母集団=180																		
<table border="1"> <tr><td></td><td>25</td><td></td></tr> <tr><td></td><td>60</td><td></td></tr> <tr><td></td><td></td><td></td></tr> </table>		25			60					<table border="1"> <tr><td></td><td>57</td><td></td></tr> <tr><td></td><td>113</td><td></td></tr> <tr><td></td><td></td><td></td></tr> </table>		57			113				
	25																		
	60																		
	57																		
	113																		

表 5.5.5-10 ケーススタディ 3-3 結果

ビジネスマンの態度変容行列を全体に作用させた場合																			
母集団=18	母集団=36																		
<table border="1"> <tr><td></td><td>6</td><td>10</td></tr> <tr><td></td><td></td><td></td></tr> <tr><td></td><td></td><td></td></tr> </table>		6	10							<table border="1"> <tr><td></td><td>9</td><td>23</td></tr> <tr><td></td><td></td><td></td></tr> <tr><td></td><td></td><td></td></tr> </table>		9	23						
	6	10																	
	9	23																	
母集団=90	母集団=180																		
<table border="1"> <tr><td></td><td>18</td><td>62</td></tr> <tr><td></td><td></td><td></td></tr> <tr><td></td><td></td><td></td></tr> </table>		18	62							<table border="1"> <tr><td></td><td>52</td><td>108</td></tr> <tr><td></td><td></td><td></td></tr> <tr><td></td><td></td><td></td></tr> </table>		52	108						
	18	62																	
	52	108																	

ケーススタディ3-1については、実際のアンケート結果と比較して、集中立地かつCARE型の割合が集中型かつ分散型の中間的な立地方法でCARE型のオプションよりも選択される割合が高くなる

傾向がみられた。また、従来の集中立地型の地層処分オプションは選択されなかった。

ケーススタディ3-2については、実際のアンケート結果と比較して、集中立地かつCARE型よりも集中型かつ分散型の中間的な立地方法でCARE型のオプションが選択される割合が大きくなった。

ケーススタディ3-3については、実際のアンケート結果と比較して、従来の集中立地型の地層処分オプションが選択される割合が大きくなった。立地方法の軸については、集中立地のみが選択される結果となった。

ケーススタディ3-1から3-3の結果からは、各参加者グループの意見分布に対して他のグループの態度変容行列を作用させて結果に差異が生じてくることが推測された。また、ケーススタディ1、ケーススタディ2と同様に、今回のケーススタディ3においても、母集団のサイズによるばらつきについても規模が90人から180人程度になるとばらつきが安定してくる傾向がみられた。

5.5.6 ケーススタディ結果まとめ及び今後の課題

ケーススタディ1では、態度変容行列の順序を変えることにより、説明順序への依存性が推測された。また、ケーススタディ2では、初期位置の配置により、結果が異なってくることから、初期状態への依存性が推測された。さらに、ケーススタディ3からは、各参加者グループの意見分布に対して他のグループの態度変容行列を作用させた場合、それぞれのグループごとの傾向が生じてくることが推測された。母集団のサイズによるばらつきについては規模が90人程度になるとばらつきが安定してくる傾向がみられた。

以上から、比較的小規模のグループの態度や合意形成の蓋然性を高めていくためにも、このようなグループの特徴を捉えたシミュレーションにより確認していくことが重要である。その有効性をより高めていくための今後の課題としては、分析検討した結果を基に、統計シミュレーションの設定のためのサンプル数のサイズを大きくすることや、同一属性内（グループ）においても説明の順序などにバリエーションを持たせた場合の結果を検証し、それらをどの様な形でシミュレーションに取り入れて行くかといった点が挙げられる。

5.6 地層処分概念の「見える化」の検討

5.6.1 概要

地層処分することを同じスケールの時空間で実証的に再現することはできない。このため、予測解析という科学的手段によってその概念を浮かび上がらせるために、1970年代に“性能評価”という科学的な方法が用いられるようになった。そして、各国で性能評価を司令塔においた包括的な研究開発が進められ、地層処分場とそのセーフティケースを構築するための技術情報が各国で相次いで取りまとめられてきた。これにより専門家間で地層処分概念やその安全性が“見える”ようになってきた。

一方、社会一般における地層処分概念の理解はわが国を含め多くの国において顕著には進んでいない。その理由として、知識や情報によって科学的に理解することに不慣れな一般公衆にとって、地層処分概念はあまりにも難解であるという事実が挙げられる。専門家と一般市民の理解のメカニズムの違いを例えてみれば、音楽の専門家である指揮者や演奏家は楽譜を見ただけで曲の内容を理解できるが、普通の人に楽譜を見せてベートーヴェンの交響曲を分からせようとするよ

うなことになる。“百聞は一見にしかず”というが、廃棄物の危険性のもととなる放射能は目に見えない、地下深部は直接見るができない、また、処分後の振る舞いが気になる遠い将来は経験できない、と地層処分概念には本質的に“一见”を拒否する側面があるので、そのままでは感覚的な理解はとても無理である。楽譜ではなく曲を演奏して聞かせ、感覚に訴えるという例えに倣うと、地層処分概念を何らかの方法で一部でも見える、あるいは何かしら実感できるような工夫が加えられれば、専門家以外の人々でも地層処分概念を理解する助けになることは間違いない。

ここで、見えるようにする工夫とは、地層処分概念を示す様々な側面に応じて、目視できる、近寄れる、想像できる、いつでも検査でき、異常が見つければ取り出せる状態にあるので安心できるなど、感覚的・心情的に理解できるような技術を用意することである。

例えば、地層処分した後の地下深部の状態や、地下にあるガラス固化体を埋め戻した後も見ることができれば、安心感が増して理解を促進する技術として有効となる可能性がある。

本項では、まず出発点として、そのような、地層処分を“見える”ようにするための技術の候補となり得る方法について検討を行った。その結果、物理探査技術やモニタリング技術などを発展させて地下空間や処分システムの状態を可視化する手段、ヴァーチャル・リアリティ（VR：Virtual Reality）や拡張現実（AR：Augmented Reality）などコンピュータが現実のシステムを再現・拡張する手段について技術の現状を調査した。

また、別のアプローチとして、非専門家にとっても地層処分概念を理解しやすい処分場の仕様として、廃棄物や処分システムを直接あるいは間接的に観察できるような処分施設概念の検討を行った。

5.6.2 見える化の候補技術の探索・提示

(1) 物理探査技術の分類

地盤は一般的に小石・砂・粘土・水などが多様に混在する土や各種の岩石により複雑に構成されている。光以外の様々な物理現象を仲介として、間接的に地盤の中の物理的性質と状態を地表から調査する手法を「物理探査 (Geophysical Exploration)」という (物理探査学会, 2008a, 2008b, 2016 ; 中国地質調査業協会Website)。

表5.6.2-1に、物理探査技術の分類例を示す。物理探査は、対象とする物理現象と取得データの種類によって「弾性波探査」「電気探査」「電磁探査」「放射能探査^{注10}」「重力探査」「地温探査」「磁気探査」等に分けられる (中国地質調査業協会Website)。

➤ 分類1 物理現象と取得データによる分類 (中国地質調査業協会)

- 弾性波 (音波、地震波含む) 探査
- 電気探査
- 電磁探査
- その他 ; 放射能探査、重力探査、地温探査、磁気探査

^{注10}「放射能探査」とは地球内部から放出される放射能の強度を測定することにより、断層や地質境界等の地質情報を検出する手法である (物理探査学会, 2008b)。測定項目が放射線強さであるために「放射線探査」という用語が用いられている文献もあるが、本報告書では「放射線探査」という用語は用いず「放射能探査」に統一する。

表5.6.2-1 物理探査技術の分類例

地盤調査における物理探査方法の一覧					
方法	物理現象	測定項目	主な利用		
弾性波探査	屈折法	弾性実体波	弾性波速度	地盤構成・物性	広域
	反射法	弾性実体波	反射係数	地盤構成	
	音波探査	音波	反射係数	海底地盤構成	ニアフィールド
	常時微動測定	地盤振動	卓越周期	地盤特性	
	表面波探査	弾性表面波	伝播速度	浅部地盤特性・物性	
	浅層反射法	弾性実体波	反射係数	地盤構成	
	弾性波トモグラフィ	弾性実体波	弾性波速度	詳細地盤構成・物性	
電気探査	比抵抗法	電流・電位差	見掛け比抵抗	地盤構成・地下水	
	IP法	電気分極	周波数効果・充電率	熱水変質帯判別	
	電位法	自然電位	電位差	変質帯判別	
	比抵抗トモグラフィ	電流・電位差	見掛け比抵抗	詳細地盤構成	
電磁探査	MT法	電流・電位	見掛け比抵抗	深部地盤構成	
	地下レーダー	電磁波	反射係数	深部地盤構成	
	電磁波トモグラフィ	電磁波	電磁波速度・減衰	詳細地盤構成	
その他	磁気探査	静磁気・地磁気	磁気異常	磁性物質分布	
	重力探査	重力	重力異常	地質構造	
	放射線探査	放射能	放射線強さ	断層	
	地温探査	地中熱	地中温度	水みち	
	リモートセンシング	電磁波	スペクトル	地質構造	

* (中国地質調査業協会)に地層処分を想定し適用可能な対象領域を加筆(四角で囲み)

* (表中には「放射線探査」という用語が記されているが、本報告書では「放射能探査」ととらえる。)

また、物理現象(例えば弾性波の伝わり方と速度)を観察するためには、対象物に“シグナル”、言い換えれば“エネルギー”(例えばp波、s波)が与えられていることが必要である。このシグナルとエネルギーの発生源によっても物理探査は分類できる。

➤ 分類2 シグナルとエネルギーの源による分類

- 人工的にシグナル・エネルギーを発信
弾性波、電流・電位差、電磁波

- 自然界のシグナル・エネルギーの利用
地磁気、微小電流、地中熱、重力、宇宙線
- 探査対象物自体からのシグナル・エネルギーの利用
放射線、熱流、微小破壊音(AE; Acoustic Emission)

(2) 物理探査技術の事例

本節では、地層処分分野の技術開発で実績のある、あるいは将来適用の可能性のあるいくつかの手法と実施例を紹介する^{注11}。

1) 弾性波探査

弾性波探査は、地表付近で発破等によって人工的に弾性波（地震波）を発生させ、地下の地層境界で屈折して戻って来た屈折波を地表で観測し、各地層の層厚や弾性波の伝わる速度等の地下の速度構造を求める探査法である（物理探査学会，2008b）。地層処分の広域調査への適用性の研究は広く行われている。

2) 電気探査；比抵抗トモグラフィー

対象を取り囲むように電極を配置し、地中に人工的に直流電流を流して発生する電位を多数点で測定することで地盤の電氣的性質である比抵抗を計算し、その値の分布から地質構造、地下水、温泉、金属鉱物等の地下資源の存否、断層等の位置を推定する電気探査比抵抗法の一つである（物理探査学会，2008b）。地層処分の分野では、地下空洞周辺の緩み域の探査や緩衝材中への地下水の浸潤のモニタリングへの適用が検討されている。

3) 電磁波探査；MT法、AMT法

MT法（Magnetotelluric method）は、地磁気地電流法とも呼ばれ、自然磁場が変化することによって地中に誘導される電流の変動を観測し、地下の比抵抗の分布を測定する物理探査法である。

観測する周波数帯域がMT法（およそ300～0.001 Hz）とAMT法（Audio-magnetotellurics method）（10,000～0.3 Hz）で異なり、MT法は深部の構造を、AMT法はより浅部の構造を詳しく調べるのに適している（西本，2011）。また、現在では3次元の探査画像を得ることも可能となっている（産業技術総合研究所物理探査研究グループWebsite）。

4) 電磁探査；PLMT法

PLMT法（Power Line Magneto-Telluric Method）とは、商業用送電線を用いた地磁気地電流法である（中山ほか，2016）。前述のMT法が自然磁場の変化を用いるのに対して、PLMT法は送電線が作る電磁界が地下に発信される電磁界の源となる。電磁界の変化に伴い地下で誘導される電流が作る2次電磁場を測定する。測定結果から求められる比抵抗分布により地質構造が推定できる。

地下数百メートルまでの広域の比抵抗分布を高い信頼度で簡便に得ることが特徴である。MT

^{注11} 本節では、従来の物理探査技術に加え、宇宙線を利用したトモグラフィーの1種である「ミュオグラフィー」も最新技術として調査した。

法との測定結果の比較も行われ、良い一致が報告されている（産業技術総合研究所地質調査総合センターWebsite）。

5) 電磁探査；地中レーダー探査

地中レーダー探査(Ground-penetrating Radar)は地中に電磁波を放射し、電気特性（導電率と誘電率）の異なる境界で反射した電磁波を捉えることにより、地中を探査する方法である。空洞、埋設管・埋設物、地層境界、亀裂や破砕帯、構造物や廃棄物の上面等が電気特性の異なる境界として検出される（物理探査学会，2008b；鈴木ほか，1993；佐藤，2001）。

6) 放射能探査

放射能探査は、地球内部から放出される放射線の強度を測定することにより、断層や地質環境等の地質情報を検出する手法である。 ^{222}Rn （ラドン）、 ^{214}Bi （ビスマス）、 ^{208}Tl （タリウム）が測定される。広域の断層分布の確認に適する（物理探査学会，2008b）。

7) ミュオグラフィ

宇宙線であるミュオン粒子が物質を透過することを利用した放射線トモグラフィ。ミュオン粒子は、同じ厚さであれば密度の高い物質ほど吸収されやすく、密度の低い物質ほど透過しやすい。人工的な発信源が不要で大規模構造物の探査が可能である。研究的な段階ではあるが、火山体内部のマグマの分布や火道の位置の検出、ピラミッドの内部構造調査、さらに原子炉圧力容器内の密度分布測定に試行されている（産業技術総合研究所物理探査研究グループWebsite*）。

(3) 見える化への物理探査技術の適用

1) 適用の目標と課題

高レベル放射性廃棄物を埋設する処分施設は、廃棄体からの発熱や人工バリアへの地下水の浸潤の影響を受ける。表5.6.2-2に、人工バリア性能確認のための計測項目を示す。埋設初期では、緩衝材や埋戻し材に、温度上昇や水分飽和度の上昇といった過渡的な変化が生じると予測されている。このような状態の変化は、埋設後100年程度には穏やかになると予測されるが、この期間に発生する現象の観察と数値解析による予測が処分システムの評価や設計において重要と考えられている（核燃料サイクル開発機構，1999）。

よって、“見える化への物理探査の適用”における技術目標を、ここでは仮に「埋設後100年まで処分システムの様子を知ることができる技術」とした。この目標を達成するためのいくつかの課題を以下に挙げる。

① 可視化対象

高レベル放射性廃棄物の地層処分におけるモニタリングに関しては、その位置づけや技術的課題が幅広く検討されてきている（IAEA，2001；原子力環境整備促進・資金管理センター，2001；核燃料サイクル開発機構，2004）。モニタリングでは技術的・社会的信頼性の向上を目的にして、次頁に述べるような対象物と計測項目が示されている。しかし、本調査の目的に適合するためには「見える化の対象物と計測項目」をステークホルダとの関係で、あらためて明確にすることが重要である。

* : https://gbank.gs.j.ri.go.jp/volcano/Act_Vol/usu/vr/doc/005.html

表5.6.2-2 人工バリア性能確認のための計測項目(核燃料サイクル開発機構, 2004に加筆修正)

温度	温度	温度	温度	応力・ひずみ・変形	温度	応力・ひずみ・変形
応力・ひずみ	位置 変位・沈下	応力・ひずみ・変形	応力・ひずみ・変形	背面空隙	応力・ひずみ・変形	変位
間隙水圧	腐食量(鉄酸化物)	間隙水圧	間隙水圧		湧水量	水分量
地下水流向・流速	放射線量	水分量	水分量		間隙水圧	間隙水の地球化学(pH、Eh、組成)
地下水位		間隙水の地球化学(pH、Eh、組成)	間隙水の地球化学(pH、Eh、組成)		地下水流向・流速	
地下水の地球化学(pH、Eh、組成)		放射線量	放射線量		緩み領域の特性(幅、透水係数)	
放射線量		隙間	天端部空隙		地下水の地球化学(pH、Eh、組成)	
有機物、微生物		密度/間隙率	密度/間隙率		放射線量	
隆起侵食		ガス圧力			有機物、微生物、コロイド	
岩盤変位、移動						

注) 上記の項目のうち、人工バリア性能確認のために重要な計測項目を枠で囲む

人工バリア性能確認のための
「定置後計測項目」
予測との比較のための計測項目

人工バリア性能確認のための
「定置前計測項目」
初期条件、初期環境として操業
終了まで

② 解像度と範囲

物理探査での測定範囲と解像度は逆相関にある。例えば現状の技術で数cmの解像度を得る探査範囲は数10 cm～1 m程度に限られる。対象物の位置や挙動に応じた解像度と探査範囲を設定し、これに対応する技術を選定していくことが課題となる。

③ 環境条件

物理探査では環境条件（温度、水分、応力、密度）が測定データに影響を与える。過渡期のニアフィールドでは環境条件の変化が激しく、これを考慮する必要がある。

④ 機器の耐久性

発信機や受信センサーを埋設する必要性が生じたとき、それら機器の耐久性の向上が課題となる。例えば、光ケーブルの耐用年数については水の影響のない屋内敷設において20-30年が目安とされている（富士電線，2012）。

2) 方法論

前節で示した目標と課題を念頭に、物理探査適用の方法論（Methodology）を示すと以下のようになる。

① ステークホルダの要求を明らかにする

物理探査技術の適用は5.5.2(1)で述べた「見えるようにする工夫」のひとつである。ここでは、いつ、何を見るかを明らかにする必要がある。そのための検討の一例として、本報告書5.3.1節で「非専門化のステークホルダの要求」の分析を示す。このような分析をすすめ、現状技術の適用と改良の目標を明らかにすることが重要である。

② 複数の物理探査手法を組み合わせる

複数の手法を組み合わせることで、環境条件の変化や目標の解像度／範囲に適合する物理探査システムを構築することが可能となる。

③ 探査対象物から発生するエネルギーやシグナル、自然界に存在するエネルギーやシグナルを積極的に利用する

廃棄体から放出される放射線には γ 線、中性子線があり(図5.6.2-1)、それぞれの特徴を生かした測定の可能性がある。また、宇宙線の利用は最新の物理探査技術であり、今後の発展が期待されている。

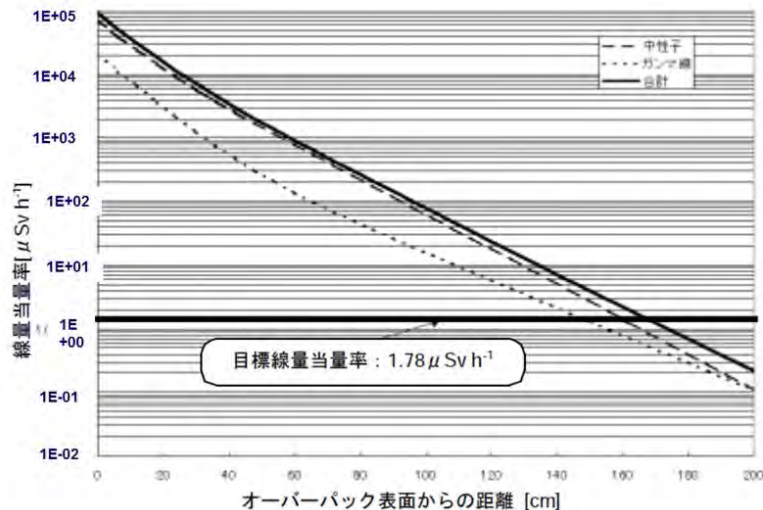


図5.6.2-1 廃棄体からの放射線（緩衝材の遮蔽効果）（核燃料サイクル開発機構，1999）

④ 地層処分システムに物理探査技術を組み込む

地下の状況を把握するために、地表からの探査、ボーリング孔を用いた検層やトモグラフィー、トンネルや人工バリア周辺からのトモグラフィーなどが実施されている。地層処分の分野でも地下研究施設（URL）を用い、これらの技術開発や実証が進められている。

「実廃棄体の様子を知る」ためには、処分システムの性能を保ちつつ、これらの物理探査技術や5.3.3節に記したような可視化機能を有する設計を組み込むことが効果的である。具体的には、地表からの広域物理探査、処分施設近くにあるURLや実証施設での人工バリアやニアフィールドのトモグラフィー、URL・実証施設を利用した処分施設の精密探査や処分場からの可視化情報の受信などが考えられる。

5.6.3 ヴァーチャル・リアリティ（VR）や拡張現実（AR）

昨今、ヴァーチャル・リアリティ（VR）や拡張現実（AR）などコンピュータが現実のシステムを再現・拡張する技術が進展している。とりわけ、エンターテインメントの分野では、架空の人物等と架空の場所でやりとりするゲームが販売されるなど、若い世代を中心に人気を集めている。

また、エンターテインメント以外にも、城跡などの史跡を往時の姿に再現し、観光施設としての魅力を高める試みや、災害時の対応を疑似体験する防災目的の技術開発も進められており、その適用先は多岐にわたっている。このようにVRやARは、人々にとって身近になってきている技術であり、地層処分を“見える”ようにするため、候補となり得る技術である。VRとARの技術の現状等を以下に整理する。

(1) VRとARの定義

VRやARは類似の概念のように見えるが、具体的に以下のように定義されている（IT用語事典）。

- VR：人間の感覚器官に働きかけ、現実ではないが実質的に現実のように感じられる環境を人工的に作り出す技術の総称
- AR：現実の環境から視覚や聴覚、触覚などの知覚に与えられる情報を、コンピュータによる

処理で追加あるいは削減、変化させる技術の総称

したがって、構成要素がすべて仮想情報であるVRに対し、ARの構成要素は現実+仮想の情報となる点が最も大きな違いである（田上・飛澤，2016）。この定義から、ゲームでの架空の人等とのやりとりや、仮想空間を現実のように感じさせるものはVRに分類でき、現実の空間（現実の町や教室のような）に津波や火災の様な場面を追加する災害の模擬体験に活用されるものはARに分類されることになる。

(2) VR技術の事例

VRは、まず、視覚に訴えることが基本である。一般家庭用のテレビのディスプレイでは、VRを体験するには物足りず、映像を視野全体に行き渡らせる必要がある。VRを実現するための視覚装置には、以下のようなものがある。

- ヘッドマウントディスプレイ (Head Mounted Display : HMD) (図5.6.3-1)

図5.6.3-1のように頭部に装着して、眼前に映像を表示する装置である。代表的なものとして、Oculus Rift (オキュラス・リフト) テクノロジーがあり、これは、HMDとVR映像を計算・出力するPC (ソフトウェア) を組み合わせたシステムより構成されている。HMDによってリアルな景色を視覚から排除したり、頭の傾き、つまり視線の方向に応じて提示するパノラマ映像の向きを切り替えたりすることで、VR空間への没入感を高めている（田上・飛澤，2016）。



図5.6.3-1 ヘッドマウントディスプレイの例 (NAGRAのVRプロジェクト) (出典:Nagra Website*)

- イマーシブプロジェクションディスプレイ (Immersive Projection Display : IPD)

ディスプレイを大形化し、大画面で利用者の周りを取り囲むことにより、広視野角を得られ、映像への没入感を得るものである。代表的なものとしては、イリノイ大学で開発されたCAVEがある。

視覚以外の技術として、シューティングゲームなどでは、モーションコントローラと組み合わせ

* : <http://www.nagra.ch/de/news/newsletterlehrkraefte-detail/lehrernewsletter-april-2016-2.htm>

せたゲームをより実感できるものまで開発され、販売されている。また、Manaus・VR社は、グローブ型VRコントローラーを開発しており、米国のNASAが宇宙飛行士の訓練用に活用することになっている (Manaus・VR, 2015)。これは、訓練者の手の動きに合わせて、HMDに映し出されるVR上の手の動きがリンクするものである。

VR技術については、触覚、味覚、嗅覚への範囲拡大に向けた開発が進められている。触覚については、KICKSTARTER社がTeslasuitを開発した (KICKSTARTER**, 2017)。なお、Teslasuitは、表面に多数のチャンネルを配置したスーツであり、チャンネルからの電気刺激により触覚を体験できるものである。

また、地層処分概念を“見える”ようにする観点からは直接関係ないが、味覚に関しても電気味覚 (舌が電気刺激を受けた際に感じられる味覚) の活用が開発されつつある (情報処理推進機構***; 中村・宮下, 2016)。

これらの視覚装置を利用したVR技術の事例を以下に示す。

1) エンターテイメント (VR ZONE Project I Can in Odaiba)

バンダイナムコ社では、VRの体験を期間限定の「VR zone Project i Can」 (2016年4月15日～10月10日) を開催し、その中で「スキーロデオ」の体験を行っている。体験者は、HMDを装着し、グリップとスキー板を模擬したモーションコントローラを用いて仮想空間でのスキーを体験している。

2) 防災

防災目的の事例としては、大型ドライビングシミュレーターによる津波・冠水体感が開発されている (板宮, 2015)。この事例では、HMDの装着ではなく、大型ディスプレイを用いているが、さらなる開発により、Oculus社のHMDとモーションコントローラとしてハンドル等を組み合わせたシステムも開発されている (板宮, 2015)。

また、教室を模擬した部屋で、災害を模擬した映像を投影し、防災訓練を行えるシステムも開発されている (白木, 2014)。

3) 産業

産業レベルでもVRの活用が進められている。山崎ほか (2013) は、「3D VR (バーチャルリアリティ) 技術の活用によるバリューチェーンイノベーション」として、原寸大立体視をはじめとするVR技術を業務に活用により、設計、解析、製造及び営業ステージでの活用について報告している。この報告では、3D VRの業務適用におけるシステム構成として、核となるデータの活用先はCAVEシステムでの原寸大立体表示であるとしている。

** : <https://www.kickstarter.com/projects/247607504/teslasuit-feel-what-you-play>

*** : https://jinzaipedia.ipa.go.jp/mitou_ipedia/development_result/post/電気味覚を活用した新たな食物コンテンツの提案

(3) AR技術の事例

ARでは、現実の環境へ情報を付加することから、シースルーHMD、タブレットPC、スマートフォン、ヘッドアップディスプレイ（HUD）等を活用することになる。2016年に人気を博したスマートフォンを活用する「ポケモンGo」は、ARの代表例である。AR技術は、その仕組みから以下の様に分類されている（みずほ情報総研，2016）。

- ロケーションベースAR（位置情報型AR）

撮影時のカメラの位置や方角、角度といった情報を取得し、その上で、被写体を推定し認識する手法のことである。多くのスマートフォンにはGPS、電子コンパス、加速度センサーなどが搭載されているため、これらを使うことで被写体を推定することが可能となる。

- ビジョンベース（画像認識型）AR（マーカー型）

「マーカー」と呼ばれるコンピュータで認識しやすい画像を使う技術である。このマーカーは、黒いふちのある画像を使うことが多い。撮影された画像のみを使い、マーカーの有無やカメラに対する角度を認識する。マーカーを検出した場合、その上にコンピュータが様々な情報を付与して表示する。（マーカーとしては、図5.6.3-2のような黒いふちのある画像やQRコードの様なものが挙げられる。）

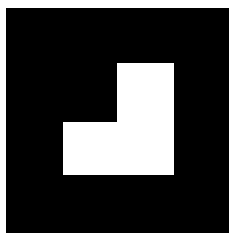


図5.6.3-2 ARマーカーの例

- ビジョンベース（画像認識型）AR（マーカーレス型）

認識したい画像をマーカーとすることで、特別なマーカーを使わずにARを実現する技術である。画像を解析（トラッキング）する部分は、基本的にはマーカー型と同じであるものの、ロゴやポスター、地図などをそのまま使うことが可能となる。

現状のAR技術の事例は、多種多様であり、各社がAR開発用のライブラリを設けている。代表的なものは、表5.6.3-1のとおりである。

表5.6.3-1 ARのライブラリ

ライブラリ (参照)	概要
ARToolkit	マーカー系のARライブラリであり、現在、オープンソース化されている。
NyARToolKit (NyARToolkit project)	ARToolkitを元に実装したビジョンベースARライブラリを開発するもの。
Qoncept AR Engine	日本のQoncept社のARライブラリであり、マーカー型、マーカーレス型、センサー型 (位置情報型) の各ARに対応。
SmartAR (サイバーネット)	ソニーが研究開発を進めてきた「物体認識技術」と、ソニー独自の「3D空間認識技術」を統合した高機能・高精度なARエンジン。マーカーレスARのライブラリ。
Vuforia	最新のMicrosoft HoloLens (自己完結型ホログラフィックコンピューター) に対応するARライブラリ。
Wikitude	ロケーションベース型ARと画像認識型ARの双方に対応するAR開発用のソフトウェア開発キット。

* (山崎ほか, 2013) と各ライブラリのウェブサイトを参照し作成

前述のように、ARに関しては技術的進展があるものの、田上・飛澤 (2016) が以下のような現状の課題を挙げている。

- 認識技術の課題：空間情報の正確な把握のことであり、多くの物体があふれ、それが増え続けている中で、それらすべてを正確に認識し判別することは、現状の技術ではロジック的にも計算速度的にも難しい。
- 表示デバイスの課題：表示デバイスの課題は多方面にわたる。日常的な使用にはユーザーの負担にならない装着感、重量、表示方法が必要で、快適な使用にはマシンパフォーマンスの向上や、ひいては通信回線の安定化・高速化など外部環境の整備も必要となる。
- コンテンツ生成の運用面の課題：モノが増え続け、それに伴う認識対象の数も爆発的なスピードで増えている。そのスピードに追い付こうとした場合、大量の人的リソースか、効率的な自動コンテンツ生成の仕組みが必要となる。

ARの事例としては、次のようなものがある。

1) 防災

タブレットをかざすことで、GPSによる位置情報から、現在地での洪水や津波に伴う浸水深度を

表示するARが各自治体で提供されている。名古屋市地震防災アプリでは、実際の風景の中でどこまで津波が来るのかをARで可視化できること、平面地図とあわせて確認することで、ユーザー自身がどこを向いていて、どこまでが浸水エリアなのかを判断しやすくなるとしている。これは、GPS情報と連動して、カメラで撮影された実写の映像に現在位置の防災情報が合成され表示されるものである。

また、砂防分野では、AR技術を用いて各種情報を端末の画面上に表示することで、従来、現地では得ることのできなかった情報（災害発生前や工事着手前の現場の様子など）を現地で見ることができる、あるいは、現地でしか見られなかった景観などを離れた場所で各種情報とともに見ることができるシステムの開発が報告されている（永田ほか，2014）。この報告では、砂防分野でのAR概念を示し、想定されるARの利用場面を挙げている。

2) 観光

観光へのARの適用例は多数あり、例えば城跡に、タブレットをかざすことで、往事の状況が再現されるアプリが開発されている。国内の代表的な城跡の観光用に広く活用されている（金沢城（石川県金沢市）、名護屋城（佐賀県）、滝山城（東京都八王子市）、高槻城（大阪府高槻市）等）。また、城跡以外にも、例えば、東京大学と株式会社アスカラボとの共同研究を通して作成された奈良県明日香村の「バーチャル飛鳥京」*のような地域の文化遺産を扱うARの適用事例もある（山崎ほか，2013；明日香村）。

3) 教育等

書籍の写真や図面をスマートフォンやタブレットでトラッキングすることで、様々なものを立体的に表示するデジタルコンテンツが開発されており、実際に教科書ARも開発されている。

(4) 地層処分概念の見える化へのVR・AR技術の適用

前述の通り、VR、AR共に、すでに技術が進展してきており、様々な分野に適用されている。これらの技術を専門家以外の人々に地層処分概念を理解してもらうために適用する場合、例えば、表5.6.3-2のようなケースが考えられる。

表5.6.3-2 地層処分を“見える”ようにする想定されるケース

対象技術	想定される状況
VR	<ul style="list-style-type: none"> 存在しない地層処分を仮想空間で現実のように感じさせる。 閉鎖された地層処分または現実には存在しない地層処分が閉鎖された場合を透視の形で描写し、遠い将来の変遷や火山活動や断層などの擾乱事象が生じた際の変化を描写する。
AR	<ul style="list-style-type: none"> 存在しない地層処分を現実の空間に追加する。例えば、坑道や空洞で、地層処分場の情報（イメージ）を追加すること。

* : http://www.asukamura.jp/topics/virtual_asukakyo_2013/

VRは既に地層処分分野に活用されてきている。例えばスイスの放射性廃棄物管理組合(NAGRA)はVRプロジェクトを立ち上げており、HMDを装着した体験者の写真がWebサイトで紹介されている(図5.6.3-1)(Nagra, 2015)。体験者がHMDを通して見ている映像は、例えば地上施設の様子、地下施設にあるキャスクが搬入されたときの様子などである(図5.6.3-3、4)。体験者は、仮想の樹木や作業員などから、施設やキャスクの大きさを、映像を通して実感することができる。



図5.6.3-3 NAGRAのVRプロジェクトで“見える”映像(地上施設の景観)(出典:Nagra*)



図5.6.3-4 NAGRAのVRプロジェクトで“見える”映像(地下施設におけるキャスク搬入の様子)(出典:Nagra*)

また、HMDを装着してVRを体感するものではないが、わが国の経済産業省資源エネルギー庁では、バーチャル処分場のWebサイト(経済産業省Website**)を開設している。これは、まだ存在しない高レベル放射性廃棄物の地層処分施設とはどのようなものかを多くの人々に知ってもらうことを目的として、VRによる仮想の処分場施設内を自由に見て、触り、移動することができるよう作られている。視聴に際しては、利用のPC端末にアプリケーションとしてUnityをインストールする必要

* : <https://www.youtube.com/watch?v=13tSuDeINqI>

** : http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/rikai/virtual/index.html

がある。

このバーチャル処分場のコンテンツは、オープニングムービーでの地層処分施設を地層ごと抜き出す描写、ハイパージオラマでの「処分場の操業コース」と「処分場の建設から埋め戻しコース」の2つのコース内に設置されたポイントの訪問（図5.6.3-5）、ツアームービー（バーチャル処分場内の訪問ポイントの概要を動画と音声で案内）、VRウォーク（図5.6.3-6）、訪問者の理解をサポートする情報を提供する説明パネル（動画・静止画・文字情報）及び簡単説明クイックビュー（図5.6.3-7）より構成されている。

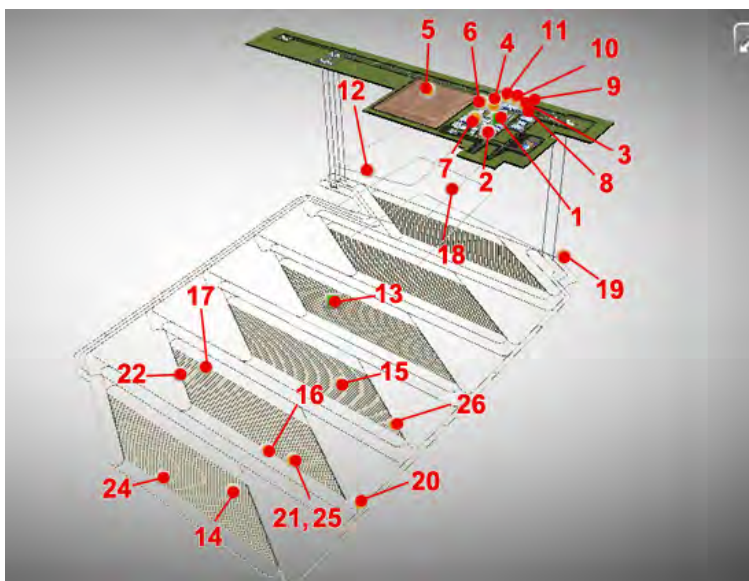


図5.6.3-5 バーチャル処分場の訪問ポイント（経済産業省Website*）



（VRウォークでは施設内の要点がわかる説明パネルのアイコン（黄色く点灯）が表示される。このアイコンが表示される場所で、キーボードの「Enter」キーを押すと説明パネルのクリックボタンが表示され、クリックすると説明パネルが別画面で立ち上がる仕組みとなっている。）

図5.6.3-6 VRウォークの画面（経済産業省Website*）

* : http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/rikai/virtual/index.html

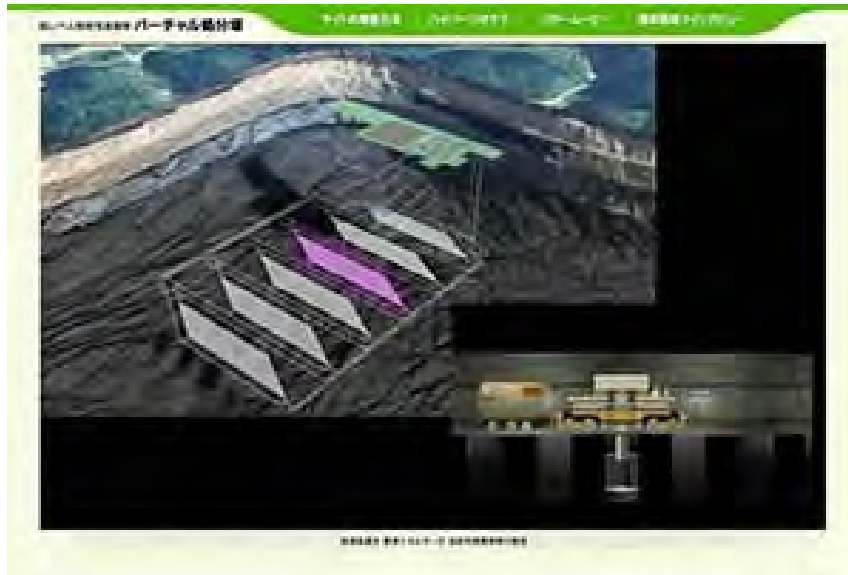


図5.6.3-7 簡単説明クイックビューの画面（高レベル放射性廃棄物の地層処分について、要点をまとめたショートムービー）（経済産業省Website*）

この他、DM Multimedia社が、地層処分に関連する精巧な描画の例を同社のWebサイト[#]に提示している（DM Multimedia）。

VRについては、さらなるリアリティが追求されている。HMDを通した映像や音声は、かなりのリアリティを得られるようになってきており、地層処分を“見える”ようにする技術の有望な候補といえる。一方、仮想の地層処分でのオーバーパックや緩衝材に触れて体感する触感に関しては、まだ開発段階となっている。

ARでは、AR開発ライブラリが整備され、地層処分に適用できるAR開発のインフラも整備されている。従来の書籍の写真や図をマーカーとするARのデジタルコンテンツも、3Dで地層処分を表現できる手のひらサイズの“見える化”の手法となり得る。その一方で、認識技術の課題、表示デバイスの課題及びコンテンツ生成の運用面の課題も残されている点もある（田上・飛澤，2016）。

VR、ARとも、両者を実現するための装置は、既存の技術があるものの、最終的には、データ作成や付加情報の質と量、またコンテンツの内容によってリアリティをもって体感する（地層処分を“見える”ようにする）度合いが変わってくる。地層処分の操業段階であれば、施設や機器などの諸元が入力できれば、NAGRAのプロジェクト(Nagra, 2015)やわが国の資源エネルギー庁のバーチャル処分場（経済産業省）のように既に“見える化”の技術は実現している。また、DM Multimedia社の事例（DM Multimedia）*のように、精巧な描画も既に存在している。

地層処分の長期の変遷や擾乱事象による地層処分への影響を表す場合については、よりリアル

[#] : http://dmmultimedia.com/scientific_general_illustrations.htm

* : http://dmmultimedia.com/scientific_general_illustrations.htm

に地層処分を“見える”ようにすべく、科学的知見や解析コードを用いて得られたデータに基づく映像作成が課題として挙げることができ、触感の表現技術の開発やその技術が実現できれば、対象物の触感の変化をどのように感じさせるかが、今後の課題となる。

5.7 まとめ

本章「可逆性と回収可能性などを考慮した地層処分システム概念の提示」のプロジェクトでは、平成25年度より3つの項目（「①レジリエンス的視点に基づく地層処分システムのロバスト性概念の検討」、「②公正性に根ざした合意形成型の処分概念の構築手法の開発」、「③合意形成の促進に資するモニタリング技術等の検討・開発」）に大別して検討を行ってきたが、平成27年度からは成果の集約取りまとめに向け、これまでの成果をもとに、「(1)閉鎖後長期安全性に関するロバスト性の高い地層処分システムの概念構築」、「(2)受動的な安全系へ推移するまでの期間におけるレジリエンス的取り組みの具体化」、「(3)多様なステークホルダ間の合意形成に向けた協働」として検討を行ってきた。今年度は、後者の「(3)多様なステークホルダ間の合意形成に向けた協働」に焦点をあて、これまでのパブリックコメント等での非専門家からの処分概念に対するニーズを「市場の声」として抽出し、それに対応する処分概念の技術的・社会的因子とを品質機能展開の手法を導入し関連付けを行った。その中で主要な市場の声に対する事例として3つの概念（CARE型地下施設概念、処分場の見える化、市民参加と合意形成）を提案し、学生や有識者による処分場概念構築ワークショップを開催し、提案概念の補強を行った。その結果、CARE型地下施設概念については、地下施設を開放している期間に応じて閉鎖後の性能に影響を与えるリスクが増大することから、2つ目の概念である処分場の見える化の技術も取り入れ、ベントナイトの代わりにレジジン（樹脂）を用いた透明のCARE型地下施設の概念を提案した。市民参加と合意形成を取り入れた概念としては、NIMBY問題や世代内/世代間の公平性に配慮する観点から、従来の1箇所の集中型ではなく、複数の地点に廃棄体を配分するという分散配置の概念を事例として示した。これら多様なステークホルダを模擬したグループを対象に本件ではフォーカスグループインタビューやワークショップを行ってきたが、そのような少人数の議論で出た結果が、どの程度安定しているか、メンバーや条件が変わったら全く異なってしまうものなのかといった点について確認することを目的に、議論の過程での参加者の態度変容の時系列データを基にマルコフ連鎖モデルを作成し、モンテカルロシミュレーションを行った。その結果、ステークホルダへの説明順序や、最初の意見分布（初期状態）、参加者グループごとの態度変容の傾向への依存性が推測されるとともに、母集団のサイズも90人程度になると意見の分布が安定してくる傾向が見られた。さらに分析の適用性を高めるためには、今後、例題への試行を通じて知見の蓄積と手法の改良を行うことが重要となる。

参考文献

- 赤尾洋二 (1977): 品質機能展開の現況と今後の課題, 品質, Vol.7, No.4, pp.23-32.
- 明日香村Website: http://www.asukamura.jp/topics/virtual_asukakyo_2013/
- ARToolkit Website: <http://artoolkit.org/>
- 物理探査学会 (2008a): 最新の物理探査適用事例集.
- 物理探査学会 (2008b): 物理探査適用の手引き.
- 物理探査学会 (2016): 物理探査ハンドブック.
- CAD CENTER Website: 名古屋市消防局 名古屋市地震防災アプリ:
http://www.cadcenter.co.jp/casestudy/ar/ar_detail03.html
- 地層処分技術WG (2016): 「科学的有望地の提示に係る要件・基準の検討結果(地層処分技術WGとりまとめ)(案)」パブリックコメントに寄せられた意見について, 第29回放射性廃棄物WG, 参考資料3, 平成28年10月18日.
- 中国地質調査業協会Website: わかりやすい地質百科
<http://www.chugoku-geo.or.jp/taxonomy/term/140>
- DM Multimedia:http://dmmultimedia.com/scientific_general_illustrations.htm
- 富士電線 (2012): 技術資料, 光ケーブルの耐用年数, TR0-4-1, 2012.6.
- 原子力環境整備促進・資金管理センター(2001): 平成12年度高レベル放射性廃棄物処分事業推進調査報告書(第3分冊), モニタリング技術高度化調査(1/2)地層処分モニタリングシステム技術の開発.
- 原子力発電環境整備機構(2011): 地層処分事業の安全確保(2010年度版)ー確かな技術による安全な地層処分の実現のためにー, NUMO-TR-11-01.
- IAEA (2001): Monitoring of Geological Repositories for High Level Radioactive Waste, IAEA-TECDOC-1208, Vienna.
- IT用語事典Website: <http://e-words.jp/w/VR.html>
- 板宮朋基 (2015): Unityを活用したVR/ARによる災害想定没入型疑似体験システムの開発と市民啓発への活用, 愛知工科大学 板宮研究室.
- 情報処理推進機構: 電気味覚を活用した新たな食物コンテンツの提案ー21世紀の新調味料, 電気ー(https://jinzaipedia.ipa.go.jp/mitou_ipedia/development_result/post/電気味覚を活用した新たな食物コンテンツの提案)
- 核燃料サイクル開発機構(1999): わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性ー地層処分研究開発第2次取りまとめー, 分冊2, 1999年11月.
- 核燃料サイクル開発機構(2004): 業務委託報告書, 人工バリア性能確認に関する基盤情報取得方法の調査研究, JNC TJ8400 2003-090, 2004年2月.
- Kalbantner, P. and Sjöblom, R. (2000): Techniques for freeing deposited canisters, Final report, Technical Report TR-00-15, SKB, June 2000.
- 川喜田二郎 (1967): 『発想法 - 創造性開発のために』, 中公新書 1967年 ISBN 978-4-12-100136-8.
- 経済産業省 資源エネルギー庁, 高レベル放射性廃棄物バーチャル処分場:
http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/rikai/virtual/index.html

KICKSTARTER Website:

<https://www.kickstarter.com/projects/247607504/teslasuit-feel-what-you-play>

金政浩(2016): 地中空洞探査に向けたミュオグラフィ検出器開発, 日本原子力学会誌, Vol. 58, No. 9, pp. 47-51.

Manaus・VR Website: <https://manus-vr.com/>

Masuda, S., Kawamura, H., McKinley, I. G., Neall, F.B. and Umeki, H. (2006): Optimising Repository Design for the CARE Concept, IHLRWM 2006, Las Vegas, NV, April 30-May 4, 2006.

Masuda, S., McKinley, I., Hardie, S. (2016): Public acceptance driven repository design, 2016.12, in preparation.

Masuda, S., Umeki, H., McKinley, I. G., Kawamura, H. (2004): Management with CARE, Nuclear Engineering International, 49 (604), pp. 26-29.

宮寺晴夫(2014): 宇宙線ミュオン散乱による原子炉イメージング, 放射線計測フォーラム福島, 2014年12月3日.

みずほ情報総研(2016): 平成27年度 広域関東圏におけるAR・VR 関連事業者の地域参入に向けた実態把握調査 調査報告書, 平成28年3月.

名古屋大学理学研究科 Website: 宇宙線ミュオンラジオグラフィ, 素粒子宇宙物理系, F研 基本粒子研究室: <http://flab.phys.nagoya-u.ac.jp/2011/appli/muon/>

中村裕美, 宮下芳明(2016): 電気味覚メディア構築のための生理学的知見, コンピュータソフトウェア, Vol. 33, No. 2, pp. 43-55.

中山雅, 大野宏和, 大成・大林・三井住友JV, 白瀬光泰, 丹生屋純夫(2016): 幌延URLにおける人工バリア性能確認試験の現状, 原子力学会バックエンド部会第32回バックエンド夏期セミナー, 2016年8日.

永田雅一, 安井広之, 植田芳弘, 坂野弘太郎, 青木信哉, 島田徹, 清水幹輝(2014): AR(拡張現実)を利用した防災コンテンツ ~紀伊半島大水害を事例として~, 第63回 砂防学会研究発表会概要集, pp. 1-8.

Nagra (2015): New exhibition: "Journey through time to a deep repository": http://www.nagra.ch/en/news/newsdetailen/neueausstellungzeitreisezumtiefenlager_e.htm

Ozawa, C.P. and Susskind, L. (松浦正浩, 渡邊倫 訳) (1985): 「科学の影響が強い政策論争のメディアエーション」原典: "Mediating Science-Intensive Policy Disputes" Journal of Policy Analysis and Management, Vol. 5, No. 1, pp. 23-39.

西本壮志(2011): 高レベル放射性廃棄物の地層処分におけるジオトモグラフィ法の適用性評価 - ニアフィールド可視化モニタリングの検討, 電力中央研究所調査報告N10011, 2011年1月.

日鉄鉱コンサルタントWebsite: 技術リーフレット(探査)
<http://www.nmconsults.co.jp/resources/exploration/>

NUMO (2004): NUMO, Development of repository concepts for volunteer siting environments, NUMO-TR-04-03.

NyARToolkit project Website: <http://nyatla.jp/nyartoolkit/wp/>

大家敬志, 坂下健郎(2008): 「無機シンチレータを用いた γ 線測定」
http://www-cr.scphys.kyoto-u.ac.jp/gakubu/P6/2007/P6_2007_scinti_report.pdf

Qconcept Website : <http://qconcept.co.jp/ja/technology.html#ar>

Quantec Geoscience Website: <http://www.quantecgeoscience.com/mineral-exploration>

サイバーネット Website : <http://www.cybernet.co.jp/ar-vr/products/smarter/>

産業技術総合研究所物理探査研究グループWebsite:
<https://unit.aist.go.jp/georesenv/explogeo/casestudy1.html>

産業技術総合研究所地質調査総合センターWebsite:火山研究解説集 地球物理学的研究からみた
地下構造 https://gbank.gsj.jp/volcano/Act_Vol/usu/vr/doc/005.html

佐藤源之(2001) : 東北大学東北アジア研究センター物理探査セミナー, 「地中レーダ」, 2001
年7月, pp.1-13.

白木渡 (2014) : 3次元バーチャルリアリティ技術を用いた災害状況再現・対応能力訓練システ
ムの開発, 四国情報通信懇談会「ICTを活用した防災技術に関するセミナー」平成26年9
月26日.

鈴木浩一, 藤光康宏, 田辺一夫, 天野雄二(1993) : 孔内型岩盤レーダーによる電磁波トモグラフ
ィー法の地質・岩盤特性調査への適用性, 電中研研究報告U92059, 1993年3月.

田上慎, 飛澤健太 (2016) : AR (拡張現実) は, 人間が手にした新たな未来 ARの変遷と展望, 情
報管理, Vol. 59, No. 8, pp. 526-534.

東京電力ホールディングス (2016) : 福島第一原子力発電所2号機ミュオン測定による炉内燃料
デブリ位置把握について
<http://irid.or.jp/wp-content/uploads/2016/07/20160728.pdf>

東京書籍(a)Website:「ARで手にとるようにわかる3D宇宙大図鑑」 :
<http://www.tokyo-shoseki.co.jp/books/3D-Space/>

東京書籍(b)Website: 教科書・シラバスのご紹介, 理科, 化学(4単位), 「教科書AR」のご紹
介 : https://ten.tokyo-shoseki.co.jp/text/hs/science/level5/rika_08_04.htm

TRIZ Website:「40の発明原理」
http://ishiirikie.sakura.ne.jp/sblo_files/ishiirikie/image/worksheet_all.pdf

TRIZ Website: 矛盾マトリックス
http://ishiirikie.sakura.ne.jp/sblo_files/ishiirikie/image/worksheet_all.pdf

坪田浩二ほか(1988) : 商用周波数およびその高調波を利用した簡易電磁探査法の開発,
PNC-TN7410-89-006, 1988年11月.

VR ZONE Project i Can in Odaiba (BNDAI NAMCO: スキーロデオ) Website :
<http://project-ican.com/>

Visbox, VisCube M2, M4™ Cave Immersive 3D Display Website:
<http://www.visbox.com/VisCube-models.pdf>

Vuforia : <https://www.vuforia.com/>

和田恭 (2010) : 米国における拡張現実 (AR) の導入に係る動向, ニューヨークだより2010年9月.

Wikitude Website : <https://wikitude.grapecity.com/>

「発明的問題解決理論, TRIZとは」 : http://www.trizjapan.org/about_TRIZ.html.

山崎知之, 仲谷尚郁, 原口延寿(2013) : 3D VR (バーチャルリアリティ) 技術の活用によるバリ
ューチェーンイノベーション, 三菱重工技報, Vol. 50, No. 1.

付録表1 市場の声抽出のための基本資料 (1/2)

		社会的特性		倫理的的特性		経済的特性				感覚的特性		技術的特性															
		法制度		市民参加		立地環境		世代間公平		地域間公平		コスト	費用負担	補償	収入	自然環境		処分場建設・操業			処分場閉鎖			多重バリアシステム			
		法制度	市民参加	立地環境	世代間公平	地域間公平	コスト	費用負担	補償	収入	地質環境	深度	輸送	地上施設	安全管理	安全確認	埋め戻し	閉鎖後管理	廃棄体容器	人工バリア	EDZ	天然バリア					
社会・経済的観点から処分サイトを定めるべき	エネルギーを最も消費した東京あるいはその他の大都市で処分すべき																										
	原発その他の原子力施設や同地域内で処分すべき																										
	日本国内のエネルギー消費に応じ分散して複数の処分場を立地すべき																										
	既に放射能によって汚染されている福島において処分すべき																										
	人口密集地域や国立公園等は除外すべき																										
	他の施設の跡地や建設予定地を転用すべき																										
	国が場所を決めて、受け入れられる人がその地域に住めば良い																										
技術的観点から処分サイトを定めるべき	地震の多い日本では無理なので国外の安定な場所を選ぶべき																										
	破壊的な事象や地質環境の大きな変化の可能性のある場所は避けるべき																										
	地下水を介した放射性物質の漏洩・移行のできるだけ少ない場所を選ぶべき																										
	建設・操業時の安全性を確保できる場所を選ぶべき																										
	技術的要件を軽視して経済的理由でサイト選定すべきではない																										
安全性に確信が持てない	予測は万全ではなく想定外の事象の可能性は否定でき長期間の安全確保は困難である（少なくとも現状では不十分）																										
	技術が未成熟である																										
	地下の状況を正確に知ることができない																										
	処分場建設・操業時の地下環境に対する人為的擾乱の影響をきちんと把握すべき 将来の人間活動によって安全性が脅かされる可能性が																										
地層処分の安全性を高めるべき	より深い場所に処分すべき																										
	人工バリアの安全性を高めるべき 地質環境に適応した処分場を設計すべき																										
地層処分の安全性が見えるようにすべき	放射線やその影響を見えるようにすべき																										
	地下で生ずる現象を見えるようにすべき 将来の状態を継続して監視すべき																										
可逆性や回収可能性を確保すべき	処分事業の可逆性を保つべき																										
	廃棄物の回収性を確保すべき 放射性物質漏洩時の修復を可能とすべき																										

付録表1 市場の声抽出のための基本資料 (2/2)

		技術的特性																										
		社会的特性				倫理的的特性				経済的特性				感覚的特性		自然環境		処分場建設・作業				処分場閉鎖			多重バリアシステム			
		法制度	市民参加	立地環境	世代間公平	地域間公平	コスト	費用負担	補償	収入			地質環境	深度	輸送	地上施設	安全管理	安全確認	埋め戻し	閉鎖後管理	廃棄体容器	人工バリア	EDZ	天然バリア				
地層処分以外の処分方法	宇宙処分を行うべき																											
	宇宙処分を行うべきではない																											
	水床処分を行うべき																											
	水床処分を行うべきではない																											
群分離・核種変	廃棄物の危険性を低減する努力を行った後に処分すべき																											
	地層処分事業と並行して群分離・核種変換の研究開発を継続すべき																											
	群分離・核種変換は有効な選択肢ではないので研究開発を行うべきではない																											
保管・貯蔵	当面は暫定的に保管し技術開発を待つべき																											
	当面は暫定的に保管し社会的合意形成に努めるべき																											
	目の届く場所で貯蔵し管理すべき																											
	保管・貯蔵を長期化するべきではない																											
処分場の価値を高めることを考えるべき	処分場自体の付加価値を高める必要がある																											
	補償等により地元や周辺地域のメリットを増す必要がある																											
	交付金等では(あるいはのみでは)不十分であり、地元の人々が納得するために主体的に活動できる仕組みが必要																											
地層処分についての正しい問題設定をしてから議論することが必要	原子力発電や核燃料サイクルの継続を前提とした地層処分ありきの説明は受け入れられない																											
	地層処分の問題と原子力発電や原子力政策の問題は切り離して考えるべき																											
廃棄物問題に関する責任の所在を明確にすべき	国や事業者の責任を明確にすべき																											
	国民全体が責任を認識し当事者意識を持つべき																											
市民の目線での議論や問題解決を重視すべき	感情や情緒的な問題の解決が必要																											
	市民はわからないから反対しているの理解してもらえば賛成するはずという決めつけは間違っている																											
	倫理的な問題の解決が重要																											
コミュニケーションや教育が重要	地層処分に関する情報公開と透明性の向上が必要																											
	正確で中立性のある情報発信が必要																											
	地層処分に関する専門的知識の普及(教育)が必要																											
社会の意思決定の基礎となるような中立で公平な専門的評価が重要	公平で中立性のある専門家による評価や判断が必要																											
	専門家の責任範囲を明確にすべき																											

6. 処分事業に資するための地層処分システム評価確証技術の統合化

6.1 目的と5ヵ年の計画

6.1.1 目的

第1章で述べたように、資源エネルギー庁より受託している本プロジェクト（「処分システム評価確証技術開発」）の主たる目的は、先端科学技術を駆使した解析評価技術を開発するとともに、こうした評価技術と関連させ、地層処分にかかわる意思決定プロセスにおけるシステム評価の確証性を高めていくための仕組みを備えた地層処分システム開発の方法論を構築することである。このために、システムの拡張ロバスト性概念の構築を行い、これに基づいて処分場閉鎖前から閉鎖後の長期にわたる処分場近傍（ニアフィールド）領域を中心としたシステム変遷と核種移行を評価するための先端的評価技術（第2章）、高レベル放射性廃棄物や多様な長半減期低発熱放射性廃棄物（TRU 廃棄物）の共処分によるニアフィールドの影響評価技術（第3章）、及び断層発生などの過酷事象の地層処分システムへの影響に関する評価確証技術の開発（第4章）、可逆性と回収可能性などを考慮した処分システム概念の提示（第5章）に向けた検討をそれぞれ行っている。

これらの開発を通じ、処分実施主体が行う処分場設計や性能評価の科学技術的基盤を与え、安全裕度の定量化等に資すると同時に、安全規制の策定に対しても科学技術的基盤を提供し、地層処分技術の社会的受容性向上に貢献することが求められている。このような観点から、本章のサブプロジェクト「地層処分事業に資するための地層処分システム評価確証技術の統合化」では、上記の第2章から第5章それぞれの各サブプロジェクトの成果について、

- 事業主体が行う処分場設計技術や性能評価技術の科学技術的基盤の構築
- 安全規制策定のための技術基盤の構築
- 地層処分技術の社会的受容性向上

それぞれに資することを目的に、相互の関連性を踏まえ、先端的技術等を反映した各要素技術の統合化と知識の体系化を行うことを目的としている。

6.1.2 5ヵ年の計画

本サブプロジェクトの5ヵ年の計画を図6.1.2-1に示す。この計画に沿って、評価確証技術の統合化に向けた全体的な枠組みを構築し、そのための統合プラットフォームを開発してきている。また、これまで、専門家間の知識共有及びステークホルダとの対話・協働の試行を行い、その過程で得られた知見をもとに統合プラットフォームの改良を加えるとともに、段階的な技術と知識の体系化を図ってきた。

事業項目	平成25年度	平成26年度	平成27年度	平成28年度	平成29年度
(5)処分事業に資するための地層処分システム評価確証技術の統合化	チェック&レビュー				
①評価確証技術の統合化と知識の体系化	<p>← 評価確証技術統合化に向けた全体的な枠組みの構築</p> <p>← 統合プラットフォームの開発</p>	<p>← 統合プラットフォームを用いた専門家間の知識共有およびステークホルダ間での対話と協働の試行</p> <p>← 統合プラットフォームの改良</p>			<p>← 技術と知識の段階的体系化</p>

図 6.1.2-1 「地層処分事業に資するための地層処分システム評価確証技術の統合化」の5 年計画

6.1.3 今年度の実施内容

本プロジェクトで対象とする評価確証技術の要素技術の体系化と得られた知識の共有化の概念は以下の2点であり、それらを図式化したものを図 6.1.3-1 に示す。

- 専門家と非専門家を含む多様なステークホルダ間の連携の各局面における知識の生成・格納・利用等の一連のプロセスを支援するためのツールとして統合プラットフォームを構築する
- 統合プラットフォームを用いて知識管理やステークホルダ間の対話と協働を試行する

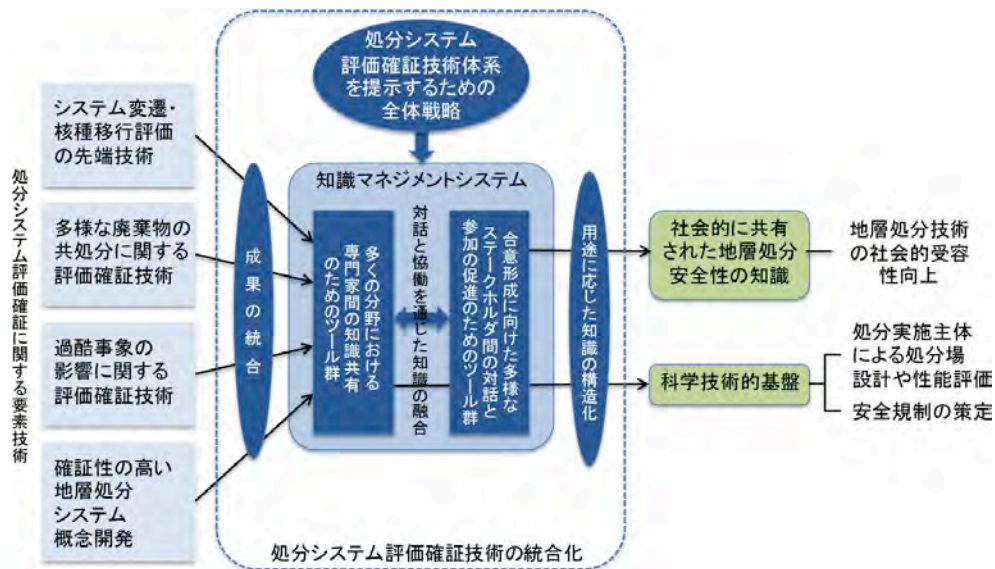


図 6.1.3-1 処分システム評価確証技術の統合化

この共有化の概念を踏まえ、本年度は以下の項目についての検討を実施した。

(1) 処分システム評価確証技術の統合化に関する試行 (6.2 項)

- ポータルサイトのコンテンツの拡充
- グループウェアを用いたオンラインでの議論の試行とシステムの適用性評価
- ポータルサイト開発 (改良) と適用性の評価

(2) 処分システム評価確証技術の認知拡大に関する試行 (6.3 項)

- わかりやすい情報コンテンツ作成のための方法論の調査
- 技術情報に関する知識共有を図るための双方向コミュニケーションの調査
- 処分システム評価確証技術の認知の拡大に関する試行

6.2 処分システム評価確証技術の統合化に関する試行

知識の生成と利用を円滑に行うための知識ベースの枠組みを、確証性の高い地層処分システムの要件と関連付けて整理を行なった。

6.2.1 ポータルサイトのコンテンツの拡充

これまで、本事業の各サブプロジェクト（SP）の成果を体系的に取りまとめ、ポータルサイトのコンテンツを拡充するために、下記の手順にて成果の統合化を検討し必要な整理を行った。

- ① 合意形成のために求められる成果の要件の整理
- ② 各分野における成果と①の成果の要件とのマッピング
- ③ 分野横断的連携及び成果の融合
- ④ 研究開発成果の可視化

なお、上記①～④は、本件で既に開発したグループウェアを用いて、知識共有や分野横断的なテーマについてオンラインでの議論を通じて行った。

確証性の高い地層処分システムの構築に向けた多様なステークホルダ及び多分野の専門家間の対話と協働による知識の融合と構造化についての概念図を示す（図 6.2.1-1）。ここでは、地層処分システムの構築に係るステークホルダには、直接的利害関係者のほか、政策決定者、社会科学系学識経験者、環境／エネルギー政策に興味を持つ市民、専門家、科学・技術系学識経験者、科学・技術に興味を持つ市民等を対象とした。各要素技術の統合においては、当該分野の専門家だけでなく、研究の進捗に応じてこれらの非専門家から構成されるステークホルダとの議論を通じて成果の共有や目標設定の見直し等を行う必要があると考えられる。

多様なステークホルダが上述した①～④の研究成果は、ソーシャルウェアにおける対話や双方向型コミュニケーション機能やグループウェアでの多分野の専門家間の知識共有が可能な機能を実装することによって図られる。

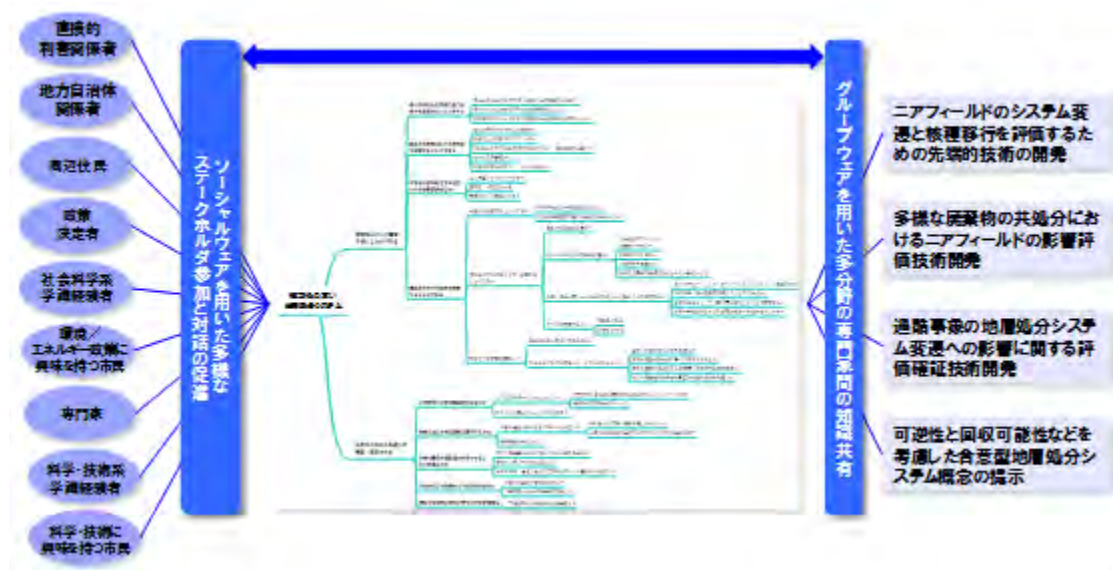


図 6. 2. 1-1 確証性の高い地層処分システムの構築に向けた多様なステークホルダ 及び多分野の専門家間の対話と協働による知識の融合と構造化

平成 27 年度では、「確証性の高い地層処分システム」から展開される要件を抽出し、ツリー構造に整理された。ツリー構造の最下位には、「ニアフィールド先端技術開発」、「共処分ニアフィールド影響評価」、「過酷事象影響評価技術開発」、「可逆性と回収可能性などを考慮した合意型処分システム概念の提示」、「処分事業に資するための地層処分システム評価確証技術の統合化」において要件と適合する成果と対応付け、研究成果を可視化し、分野横断的に研究成果を連携もしくは融合が行なわれる（図 6. 2. 1-2）。

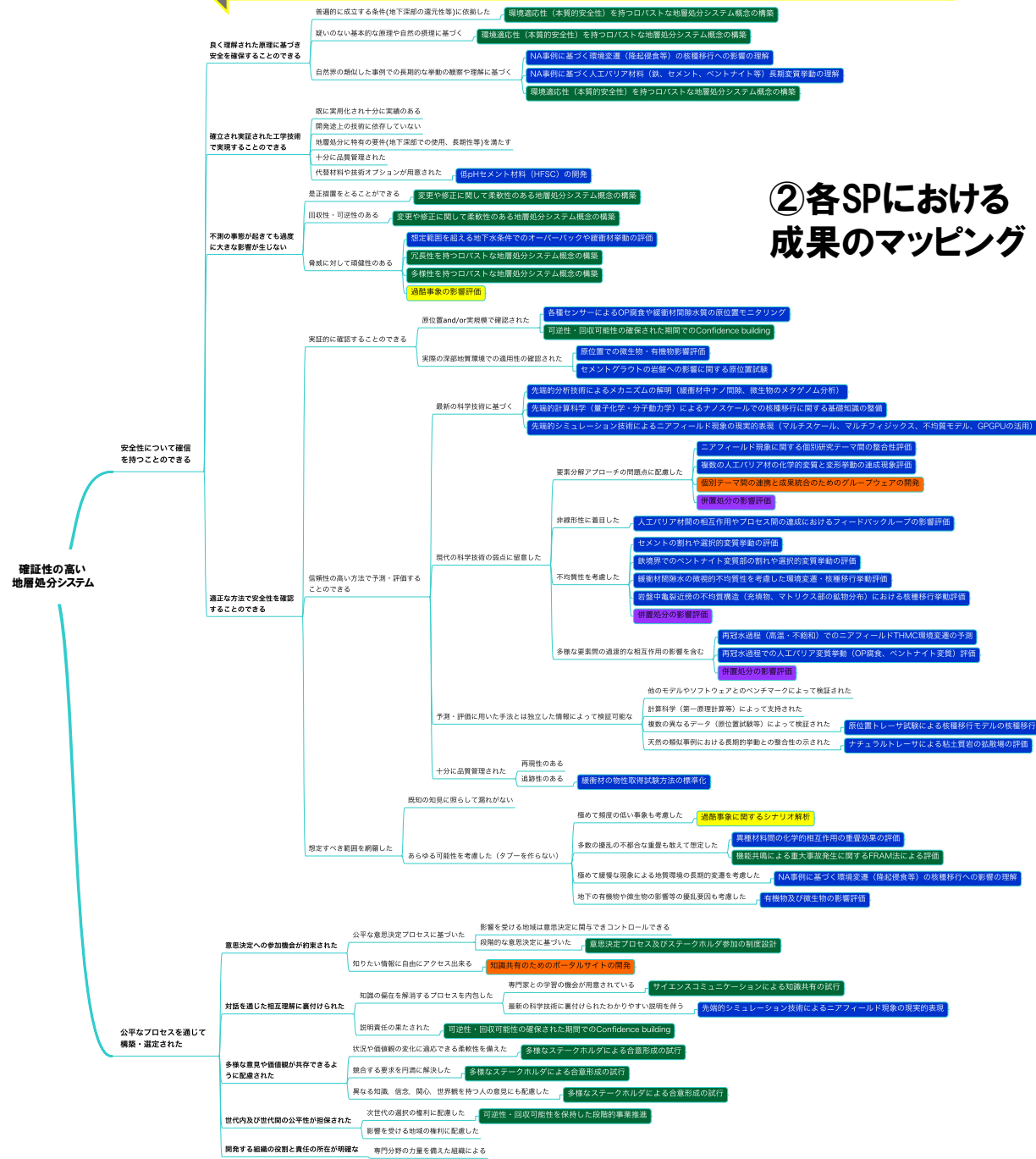
本年度は、これらの整理を基に知識ベースの枠組みについて検討を行った。要件の整理では、「確証性の高い」というキーワードから「何が」、「どのように」、「なぜ」などのニーズに対応した文脈を重視して整理されたが、ここでは知識ベースの枠組みとして、すなわちデータベース化に伴う情報の整理やアクセスの基本的枠組みとなるような観点から、目的の端的な表現や選択分岐の分かりやすい対応を考慮して整理を行った。知識ベースの枠組みの整理項目と要件の整理結果を表 6. 2. 1-2 知識ベースの枠組みと各 SP 成果の統合整理に示す。さらに図 6. 2. 1-2 を知識ベースの枠組みで再整理した結果を各要素技術開発（SP）の成果と対応させて示す（表 6. 2. 1-2 知識ベースの枠組みと各 SP 成果の統合整理）。

①合意形成のために求められる成果の要件

④研究開発成果の可視化

②各SPにおける成果のマッピング

③分野横断的連携及び成果の融合



- SP1:ニアフィールド先端評価技術開発
- SP2:共処分ニアフィールド影響評価
- SP4:過酷事象影響評価技術開発
- SP4:R&Rを考慮した合意型処分システム概念構築
- SP5:処分システム確証評価技術の統合化

図 6.2.1-2 成果統合の手順

表 6.2.1-1 知識ベースの枠組みと成果の要件

知識ベースの枠組み	成果の要件
自然科学的安全性評価	安全性について確信を持つことができる
社会科学的安全性評価	公平なプロセスを通じて構築・選定された
理論・観察の評価	良く理解された原理に基づき安全を確保することのできる
技術の評価	確立され実証された工学技術で実現することのできる
性能の評価	不測の事態が起きても過度に大きな影響が生じない
安全性の評価	適正な方法で安全性を確認することのできる
意思決定型評価	意思決定への参加機会が約束された
対話型評価	対話を通じた相互理解に裏付けられた
価値観配慮型評価	多様な意見や価値観が共存できるように配慮された
公平性に基づく評価	世代内及び世代間の公平性が担保された
役割・責任の評価	開発する組織の役割と責任の所在が明確な
普遍的条件	普遍的に成立する条件(地下深部の還元性等)に依拠した
自然の摂理	疑いのない基本的な原理や自然の摂理に基づく
挙動観察・理解	自然界の類似した事例での長期的な挙動の観察や理解に基づく
実用的技術	既に実用化され十分に実績のある
開発中技術	開発途上の技術に依存していない
地層処分特有の技術	地層処分に特有の要件(地下深部での使用、長期性等)を満たす
技術の品質管理	十分に品質管理された
代替材料・技術オプション	代替材料や技術オプションが用意された
是正措置可能性	是正措置をとることができる
回収性・可逆性	回収性・可逆性のある
頑健性	脅威に対して頑健性のある
実証結果	実証的に確認することのできる
予測評価方法	信頼性の高い方法で予測・評価することのできる
評価の想定範囲	想定すべき範囲を網羅した
意思決定プロセス	公平な意思決定プロセスに基づいた
情報アクセス	知りたい情報に自由にアクセス出来る
対話プロセス	知識の偏在を解消するプロセスを内包した
説明責任	説明責任の果たされた
状況や価値観の変化	状況や価値観の変化に適応できる柔軟性を備えた
競合する要求の円満解決	競合する要求を円満に解決した
異なる知識、信念、関心、世界観を持つ人の意見を配慮	異なる知識、信念、関心、世界観を持つ人の意見にも配慮した
次世代の選択の権利に配慮	次世代の選択の権利に配慮した
影響を受ける地域の権利に配慮	影響を受ける地域の権利に配慮した
専門分野の力量を備えた組織	専門分野の力量を備えた組織による
原位置and/or実規模	原位置and/or実規模で確認された
実際の深部地質環境	実際の深部地質環境での適用性の確認された
最新の科学技術	最新の科学技術に基づく
現代の科学技術の弱点への対応	現代の科学技術の弱点に留意した
予測手法と独立した情報による検証	予測・評価に用いた手法とは独立した情報によって検証可能な
手法の品質管理	十分に品質管理された
既知の知見に照らして漏れないケース	既知の知見に照らして漏れない
あらゆる可能性を考慮したケース	あらゆる可能性を考慮した(タブーを作らない)
意思決定の管理	影響を受ける地域は意思決定に関与できコントロールできる
段階的な意思決定	段階的な意思決定に基づいた
専門家との学習	専門家との学習の機会が用意されている
科学的説明	最新の科学技術に裏付けされたわかりやすい説明を伴う
要素分解アプローチ	要素分解アプローチの問題点に配慮した
非線形	非線形に着目した
不均質性	不均質性を考慮した
相互作用	多様な要素間の過渡的な相互作用の影響を含む
モデルやソフトウェアでの検証	他のモデルやソフトウェアとのベンチマークによって検証された
計算科学(第一原理計算等)による検証	計算科学(第一原理計算等)によって支持された
複数の異なるデータ(原位置試験等)による検証	複数の異なるデータ(原位置試験等)によって検証された
天然の類似事例による検証	天然の類似事例における長期的挙動との整合性の示された
再現性	再現性のある
追跡性	追跡性のある
稀頻度事象	極めて頻度の低い事象も考慮した
多数の擾乱や不都合な重量を想定	多数の擾乱の不都合な重量も敢えて想定した
緩慢な地質環境の長期的変遷	極めて緩慢な現象による地質環境の長期的変遷を考慮した
地下の有機物や微生物の影響等の擾乱要因	地下の有機物や微生物の影響等の擾乱要因も考慮した

表 6.2.1-2 知識ベースの枠組みと各 SP 成果の統合整理

自然科学的 安全性評価	理論・観察の評価	普遍的条件	環境適応性(本質的安全性)を持つロバストな地層処分システム概念の構築	
		自然の摂理	環境適応性(本質的安全性)を持つロバストな地層処分システム概念の構築	
		挙動観察・理解	NA事例に基づく環境変遷(隆起侵食等)の核種移行への影響の理解 NA事例に基づく人工バリア材料(鉄、セメント、ベントナイト等)長期変質挙動の理解 環境適応性(本質的安全性)を持つロバストな地層処分システム概念の構築	
	技術の評価	実用的技術		
		開発中技術		
		地層処分特有の技術		
	システム性能の 評価	技術の品質管理		
		代替材料・技術オプション		
		是正措置可能性	低pHセメント材料(HFSC)の開発	
	安全性の評価	実証結果	原位置and/or実規模	変更や修正に関して柔軟性のある地層処分システム概念の構築 変更や修正に関して柔軟性のある地層処分システム概念の構築 想定範囲を超える地下水条件下でのオーバーバックや緩衝材挙動の評価
実際の深部地質環境			冗長性を持つロバストな地層処分システム概念の構築 多様性を持つロバストな地層処分システム概念の構築 過酷事象の影響評価	
予測評価方法		最新の科学技術	各種センサーによるOP腐食や緩衝材間隙水質の原位置モニタリング 可逆性・回収可能性の確保された期間でのConfidence building	
		現代の科学技術の 弱点への対応	要素分解アプローチ	原位置での微生物・有機物影響評価 セメントグラウトの岩盤への影響に関する原位置試験 先進的分析技術によるメカニズムの解明(緩衝材中ナノ間隙、微生物のメタゲノム分析) 先進的計算科学(量子化学・分子動力学)によるナノスケールでの核種移行に関する基礎知識の整備 先進的シミュレーション技術によるニアフィールド現象の現実的表現(マルチスケール、マルチフィジクス、不均質モデル、GPUの活用)
			非線形	ニアフィールド現象に関する個別研究テーマ間の整合性評価 複数の人工バリア材の化学的変化と変質挙動の連成現象評価 個別テーマ間の連携と成果統合のためのグループウェアの開発
			不均質性	併置処分の影響評価 人工バリア材間の相互作用やプロセス間の連環におけるフィードバックループの影響評価 セメントの割れや選択的変質挙動の評価 鉄境界でのベントナイト変質部の割れや選択的変質挙動の評価 緩衝材間隙水の微視的不均質性を考慮した環境変遷・核種移行挙動評価 岩盤中亀裂近傍の不均質構造(充填物、マトリクス部の鉱物分布)における核種移行挙動評価 併置処分の影響評価
		相互作用	再冠水過程(高温・不飽和)でのニアフィールドTHMC環境変遷の予測 再冠水過程での人工バリア変質挙動(OP腐食、ベントナイト変質)評価 併置処分の影響評価影響評価	
		予測手法と独立した 情報による検証	モデルやソフトウェアでの検証 計算科学(第一原理計算等)による検証 複数の異なるデータ(原位置試験等)による検証 天然の類似事例による検証	原位置トレーサー試験による各種以降モデルの核種移行 ナチュラルトレーサーによる粘土質岩の拡散場の評価
手法の品質管理		再現性 追跡性	緩衝材の物性取得試験方法の標準化	
評価の想定範囲		既知の知見に照らして漏れがないケース	稀頻度事象	過酷事象に関するシナリオ解析
	あらゆる可能性を 考慮したケース	多数の擾乱や不都合な重畳を想定 機能共鳴による重大事故発生に関するFRAM法による評価 緩慢な地質環境の長期的変遷 NA事例に基づく環境変遷(隆起侵食等)の核種移行への影響の理解 地下の有機物や微生物の影響等の擾乱要因	異種材料間の化学的相互作用の重畳効果の評価 機能共鳴による重大事故発生に関するFRAM法による評価 NA事例に基づく環境変遷(隆起侵食等)の核種移行への影響の理解 有機物及び微生物の影響評価	
社会科学 的安全性評価	意思決定型評価	意思決定プロセス 情報アクセス	意思決定プロセス及びステークホルダ参加の制度設計 知識共有のためのポータルサイトの開発	
	対話型評価	対話プロセス 説明責任	サイエンスコミュニケーションによる知識共有の試行 先進的シミュレーション技術によるニアフィールド現象の現実的表現 可逆性・回収可能性の確保された期間でのConfidence building	
	価値観配感型評価	状況や価値観の変化 適合する要求の円滑解決	多様なステークホルダによる合意形成の試行 多様なステークホルダによる合意形成の試行	
	公平性に基づく評価	異なる知識・信念・関心・世界観を持つ人の意見を配慮 次世代の選択の権利に配慮	多様なステークホルダによる合意形成の試行 可逆性・回収可能性を保持した段階的事業推進	
	役割・責任の評価	影響を受ける地域の権利に配慮 専門分野の力量を備えた組織		

- SP1: ニアフィールド先端評価技術開発
- SP2: 共処分ニアフィールド影響評価
- SP3: 過酷事象影響評価技術開発
- SP4: R6Rを考慮した合意形成処分システム概念構築
- SP5: 処分システム検証性評価技術の統合化

6.2.2 グループウェアを用いたオンラインでの議論の試行とシステムの適用性評価

前項までの結果を踏まえ、一般市民と他分野の専門家にわかりやすく各実施項目の主要な成果を伝えるための情報提供のあり方を検討し、非専門家向けポータルサイトのプロトタイプを構築した。なお、同ポータルサイトの構築にあたっては、これまでに機構が開発した知識マネジメントシステム（KMS）のうち、電子報告書‘CoolRep’の構成やコンテンツ、討論ダイアグラムエディター等を参考にした。

分野間の協働を支援するため、下記のような手順でグループウェアの開発と協働の試行・検討を行った。

- 成果の統合に向けたグループウェアの活用方法
- 協働を支援するグループウェアの機能
- グループウェアの活用による協働の試行例
- FRAM 法構築ツールを組み込んだモデルベースシステム
- オンラインコミュニティや討論型世論調査での活用
- 各要素技術開発におけるグループウェアの利用

また、上記に加えて、ソーシャルウェアとしてのポータルサイトの構築をするとともに、ポータルサイトを用いて、高レベル放射性廃棄物対策としての地層処分を事例に取り上げ、市民による社会的受容性に関する意識調査を試行した。非専門家用のポータルサイトは、協働作業は行わない非専門家が、専門家の検討内容や協議内容に適切なガイダンスと共にアクセスし、オンラインコミュニティや討論型世論調査にスムーズに参加することができるようなサイトを目指した。

グループウェアの活用による協働として、本件ではこれまでリスク分析の方法論である FRAM 法（機能共鳴分析手法）（Hollnagel, 2012）を用いた情報の整理の支援や環境あるいはエネルギー分野に興味を持つ市民からなるグループによるオンラインコミュニティの支援などを試行してきた。ここでは、特にオンラインコミュニティの支援として、電子掲示板を用いた試行とともに、討論型世論調査ツールを用いたアンケートを実施した。その結果を以下に示す。なお、ここで利用したグループウェアの機能には、「情報の共有」、「意見の投稿」、「関連情報へのリンク」、「図への書き込み」があり、これらには「双方向性」、「リアルタイム性」といった特徴がある。

(1) 討論型世論調査ツールを用いたアンケート調査

高レベル放射性廃棄物の地層処分に対する市民の社会的受容性を定量的に把握するために Web アンケート調査を行った。調査対象は、全国の性・年齢別人口比に応じて無作為抽出した全国の 20 歳～69 歳の男女個人である。

1) 環境・社会問題に対する関心度

アンケートの質問は、「次にあげるような環境問題や社会問題に対して、あなたは普段どの程度関心がありますか？」である。図 6.2.2-1 に示すとおり、環境・社会問題のうち最も関心が高いのが「地震」、次いで「年金破たん」、「戦争・テロ」と続く。「高レベル放射性廃棄物の地層処分」の関心度は、「交通事故」に次いで 12 番目となっている。

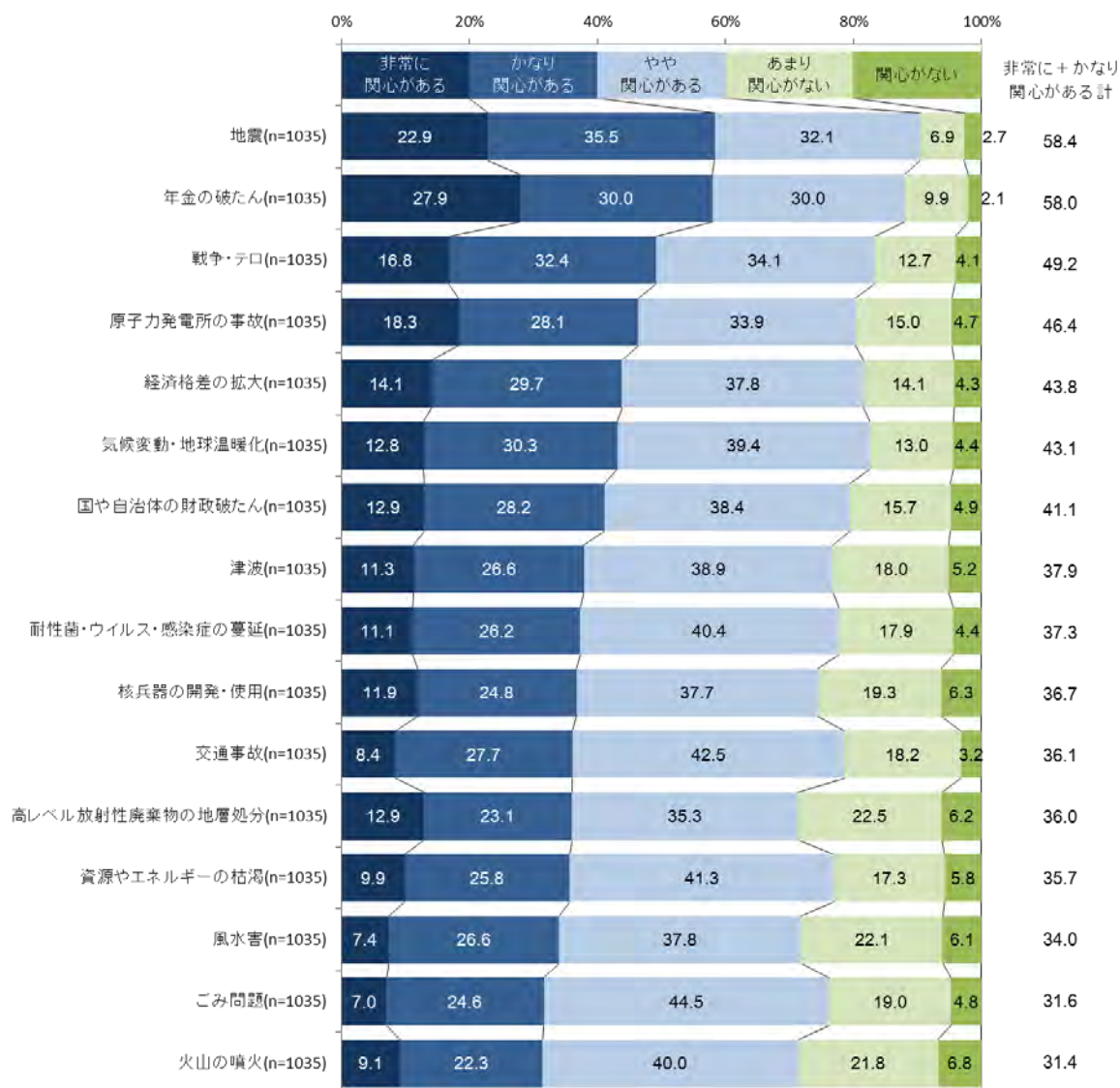


図 6.2.2-1 環境・社会問題に対する関心度

「高レベル放射性廃棄物の地層処分」への関心度を属性別にみると、性別では大きな差はなく、年代別では年代が高くなるほど関心度も高くなる傾向がみられる（図 6.2.2-2）。また、学歴別でも大きな差はなく、子どもの有無別では年代の差を反映して一番下の子どもが高校生以上の層で関心度が高くなっている。居住地では郡部で「非常に興味がある」が若干高めになっている。

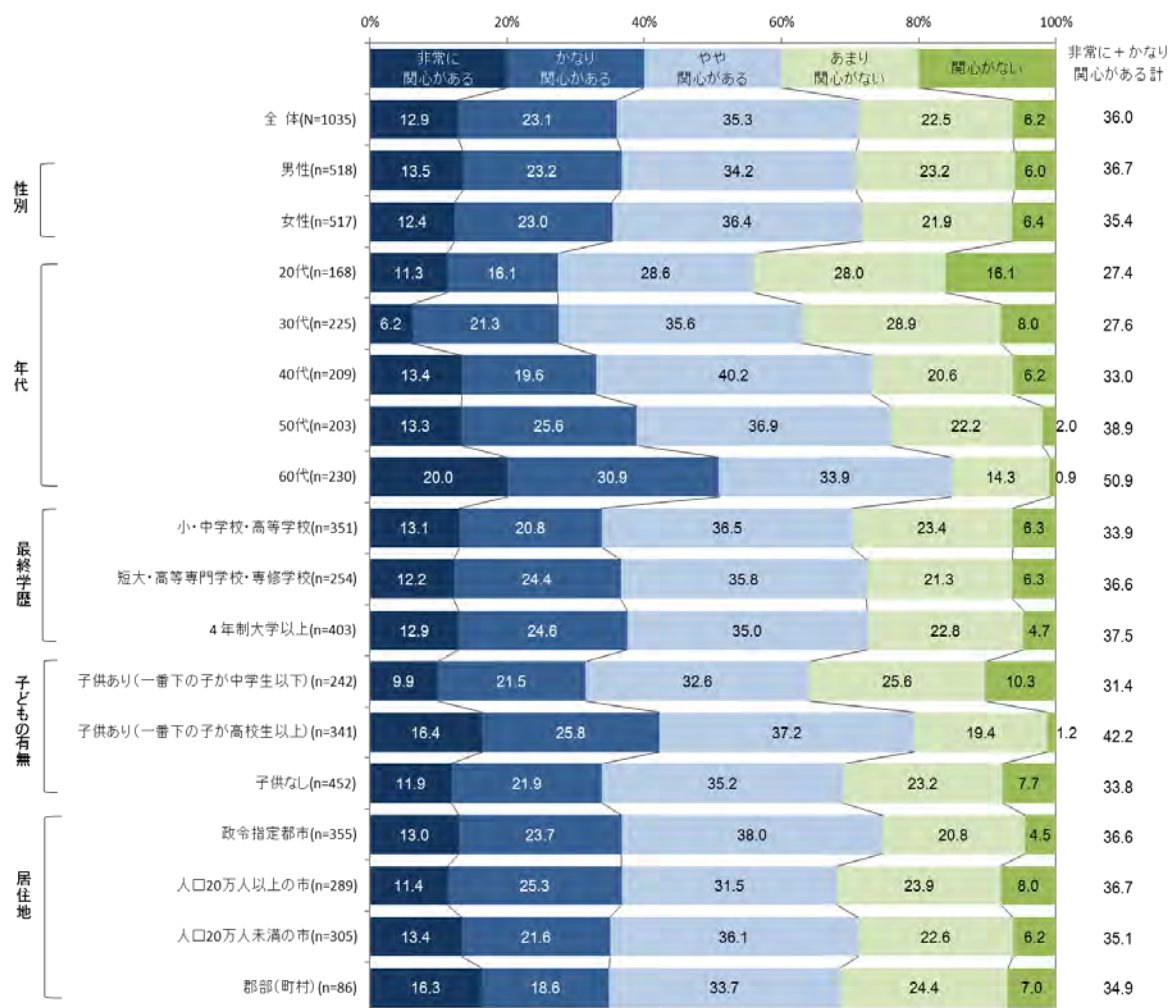


図 6.2.2-2 高レベル放射性廃棄物の地層処分に対する関心度（属性別）

図 6.2.2-3 は、高レベル放射性廃棄物対策としての地層処分に対する態度別の関心度を示す。地層処分に怖さを感じている人ほど、また地層処分に関する認知度が高い人ほど地層処分への関心度は高い傾向がみられる。態度別にみると、「他の処分方法を考えたほうがよい」という人が最も関心度が高く、「わからない」あるいは「できれば海外で実施してほしい」という人の関心度は低くなっている。また、エコ（自然環境保全）の観点からは、エコに対する思い入れの高い層ほど地層処分への関心が高い傾向がある。ただし、まったくエコに関心を払わないアンチエコ層よりも最小限のエコに配慮するプチエコ層の関心度はより低い結果となっている。

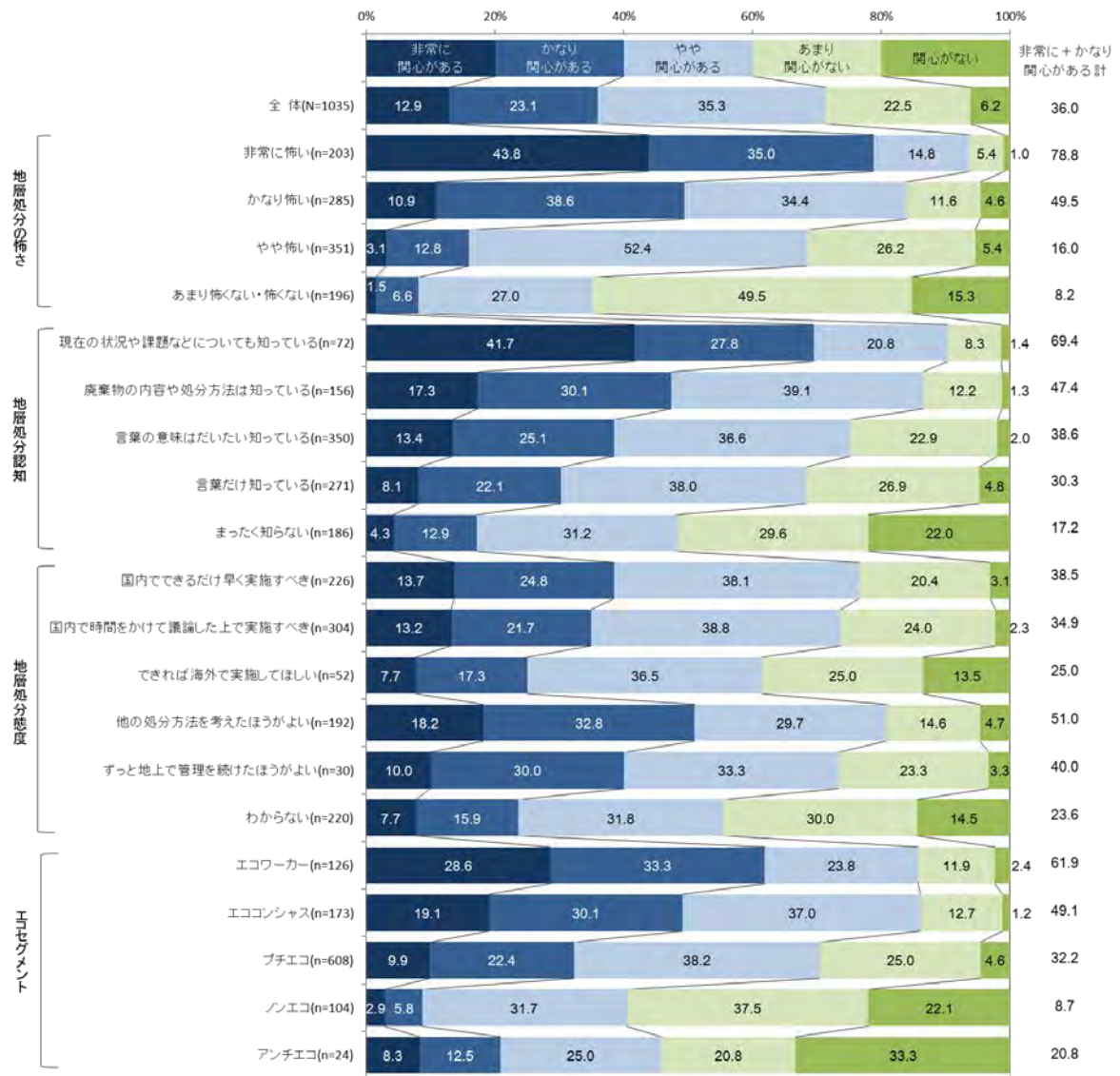


図 6.2.2-3 高レベル放射性廃棄物の地層処分に対する関心度（態度別）

2) 環境・社会問題に対する怖いと感じる恐怖の程度

次の質問は、「あなたは次にあげるような環境問題や社会問題に対して、普段どの程度怖いと感じていますか。」である。結果を図 6.2.2-4 に示す。数ある環境・社会問題のうち最も怖いとされているのが「地震」、次いで「戦争・テロ」、「原子力発電所の事故」と続く。「高レベル放射性廃棄物の地層処分」の怖さは、「交通事故」に次いで9番目となっている。

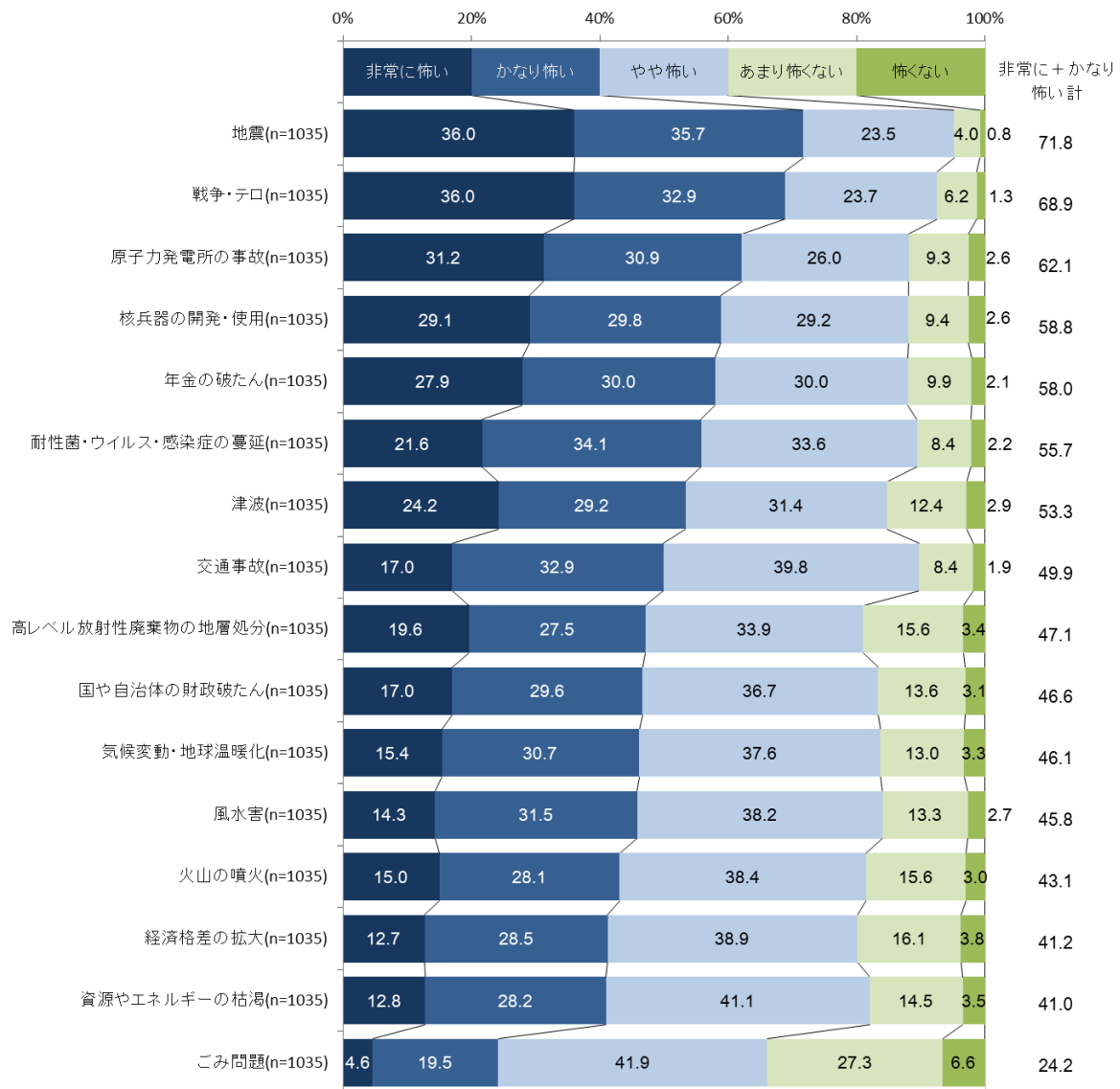


図 6.2.2-4 環境・社会問題に怖いと感じる程度

「高レベル放射性廃棄物の地層処分」に対する怖さは、男性よりも女性で高く、年代別で見ると40代が最も低く、60代で最も高くなっている。学歴別では、大卒が高卒や短大卒よりも低くなっている。子どもの有無別では年代の差を反映して一番下の子どもが高校生以上の層で高くなっている。居住地別では郡部で都市部より低めになっている。

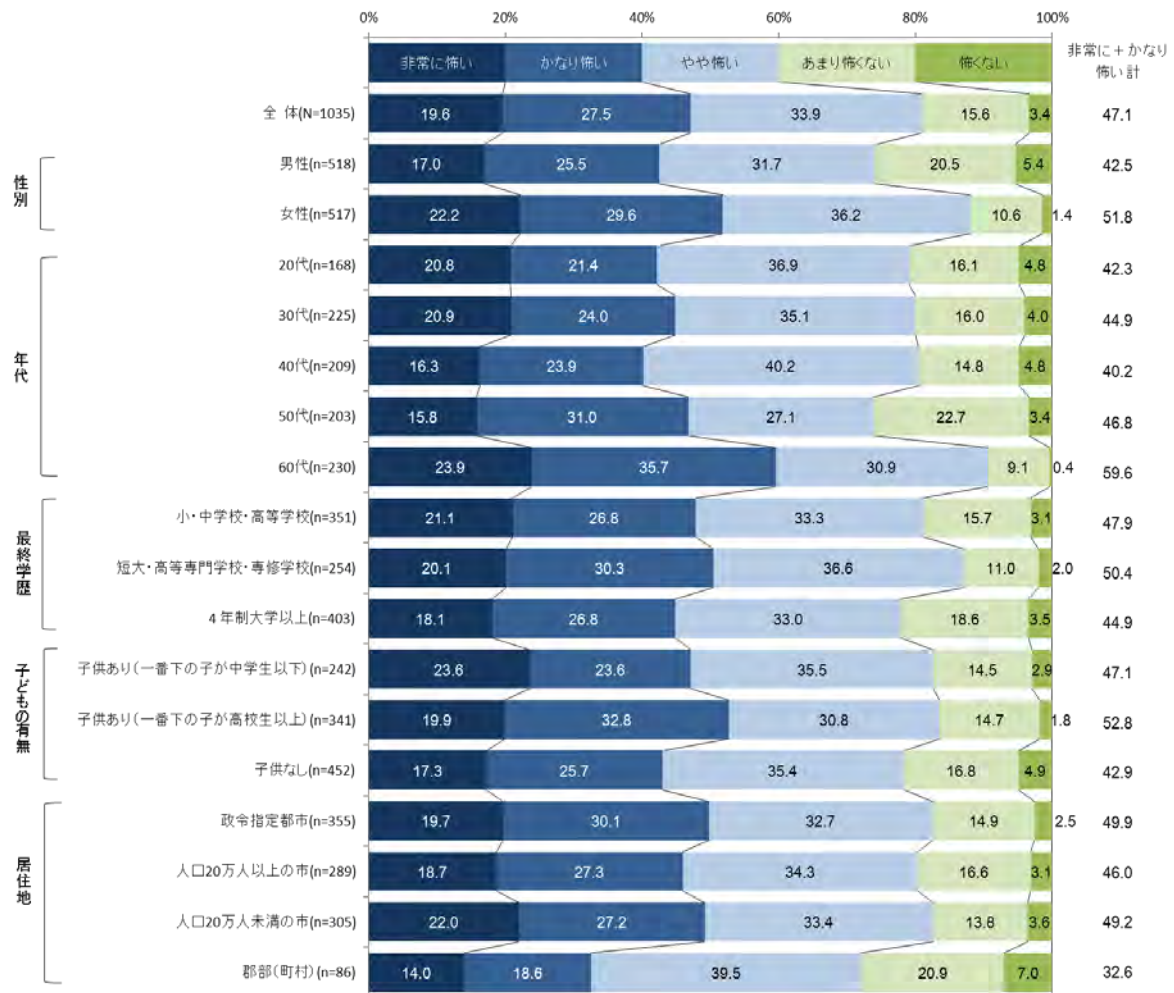


図 6. 2. 2-5 高レベル放射性廃棄物の地層処分に怖いと感じる程度 (属性別)

地層処分に關心度の高い人ほど、また地層処分に関する認知度が高い人ほど地層処分を怖いと感じている傾向がみられる。

地層処分に関する態度別にみると、「他の処分方法を考えたほうがよい」という人が最も怖いと感じており、「できれば海外で実施してほしい」という人は怖さをあまり感じていない。

エコセグメント別では、エコ活性度の高い層ほど地層処分を怖いと感じる傾向がみられる。

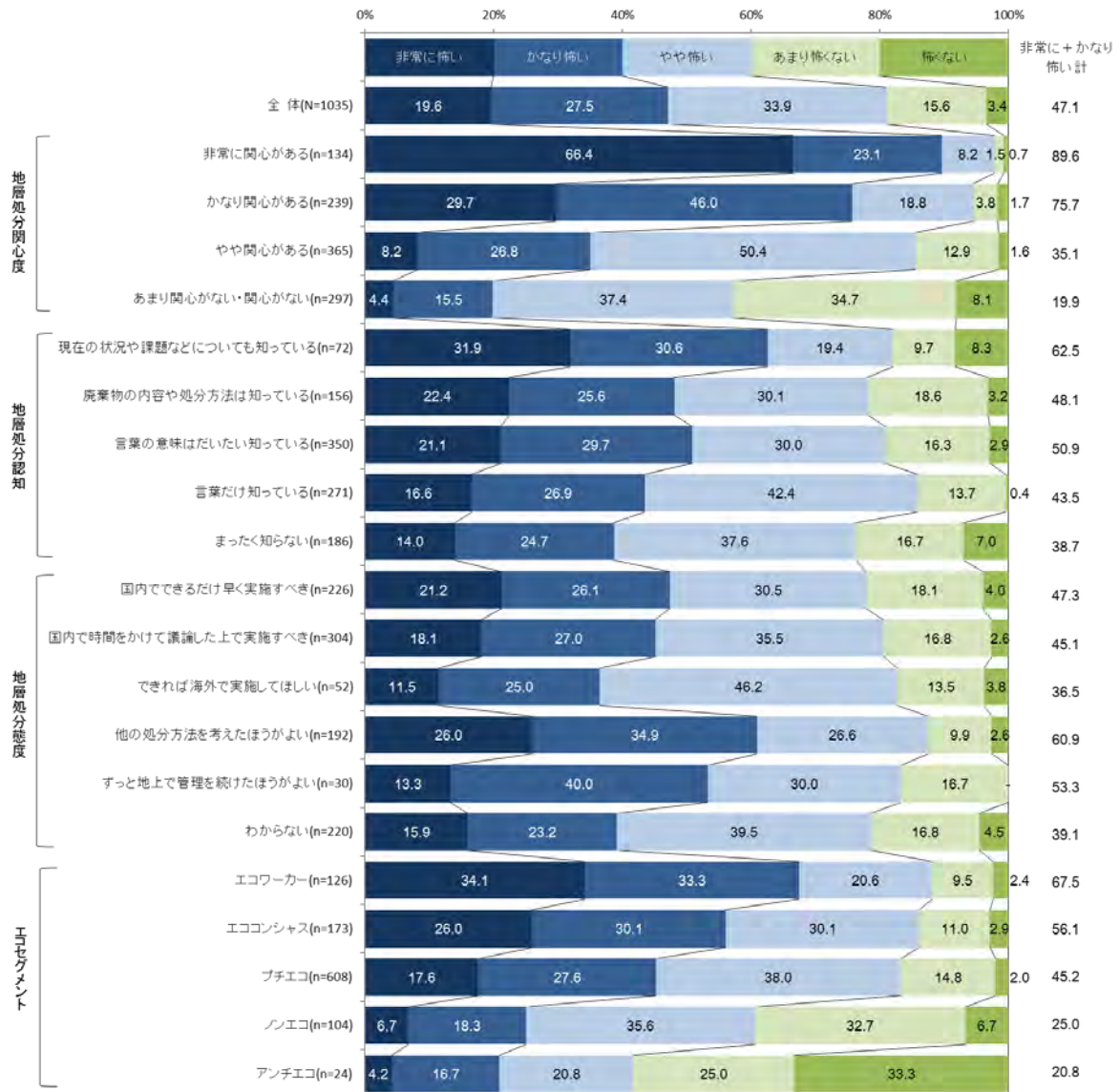


図 6.2.2-6 高レベル放射性廃棄物の地層処分に怖いと感じる程度（関心度等別）

以上の結果をもとに、横軸に「非常に+かなり関心がある計」の率、縦軸に「非常に+かなり怖い計」の率を取って、16項目の環境・社会問題をプロットしたのが図 6.2.2-7 である。

関心度も怖さもともに高い項目としては、「地震」「年金破たん」「戦争・テロ」「原子力発電所の事故」が挙げられる。なお「高レベル放射性廃棄物の地層処分」は関心度も怖さもそれほど高くない位置にプロットされている。

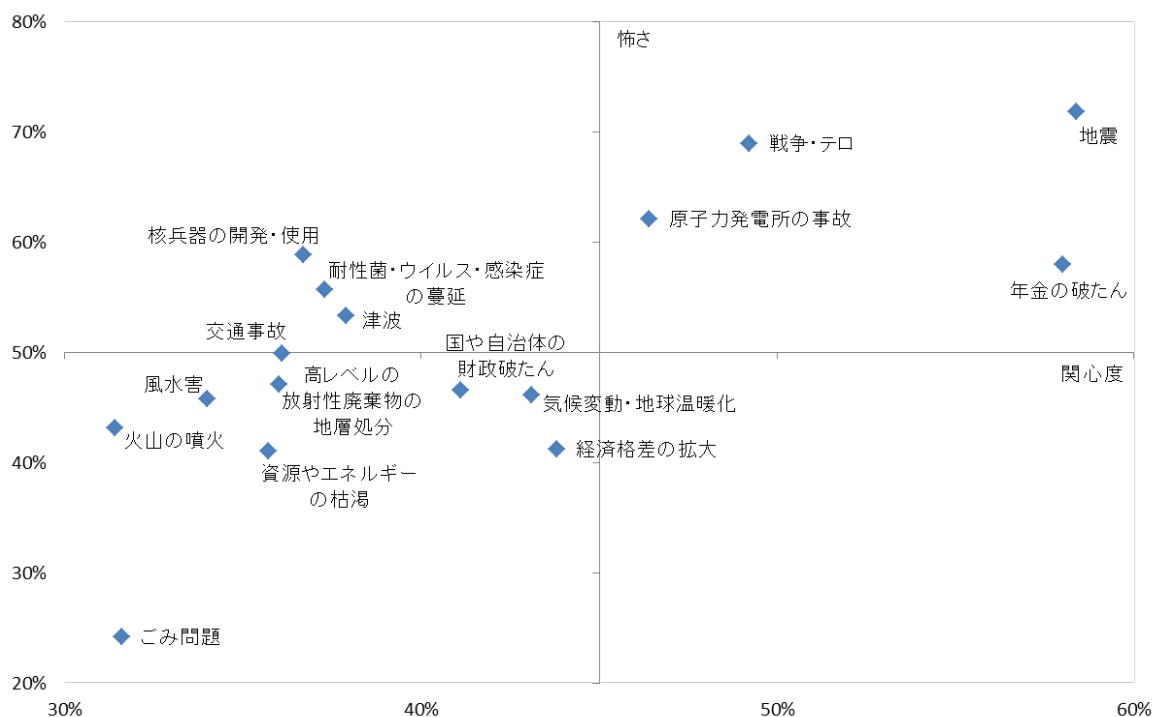


図 6.2.2-7 環境・社会問題に対する関心度と怖さの関係

6.2.3 ポータルサイト開発（改良）と適用性の評価

(1) ナビゲーション機能

処分システム評価確証技術の各 SP の成果を段階的に統合し、ポータルサイトのコンテンツとして追加していくにあたり、時間の経過とともにコンテンツの量が増大していくことから、閲覧者が興味のあるコンテンツにアクセスすることが難しくなることが想定される。このため、閲覧者が興味のあるコンテンツに容易にアクセスすることができるよう、インターフェイス（ナビゲーション機能）を強化することが求められる。この観点から強化する必要があると考えられるナビゲーション機能を表 6.2.3-1 に示す。

表 6.2.3-1 ナビゲーション機能の一覧

ナビゲーション機能	内容
成果マップ	知識ベースの枠組みとして構造化して表示
人気記事リスト	過去の特定の期間に閲覧されたページの上位をリスト表示
最新記事リスト	新しいコンテンツを自動的に特定のページにリスト表示
関連記事リスト	各コンテンツにキーワードを設定可能とし、キーワードから関連する記事をリスト表示
閲覧履歴リスト	閲覧者が最近見たページをリスト表示

閲覧者が興味のあるコンテンツにアクセスするためにポータルサイトのナビゲーション機能について検討を行い、平成 27 年度に開発したポータルシステムに対して表 6.2.3-1 のナビゲーション

ョン機能を追加するとともに、以下のメニューおよびコンテンツ内容の整理と階層化を行った。コンテンツ内容および階層化とナビゲーション機能のイメージを図 6.2.3-1 に示す。

(2) ポータルサイトのメニュー

従来のメニューバーからのアクセスをコンテンツの内容で整理したパネル表示に変更し、視覚的にもコンテンツの種類が見やすく、アクセスできる仕様にした。コンテンツの種類は、現時点において、「成果」、「記事」、「閲覧履歴」、「サイトマップ」、「お知らせ」を作成した。コンテンツの種類が増えた場合は、同様のパネルメニューが随時、新規に追加されていくことを想定している。

(3) 成果のメニュー

ポータルサイトにある「成果」のパネルメニューから遷移する画面には、成果のコンテンツとして「成果マップ」と「H26 成果」を準備した。これらのパネルメニューから、それぞれのコンテンツを表示するページに遷移する。本ページも成果のコンテンツが増えた場合は、同様のパネルメニューとして追加される。成果マップの画面遷移機能については(5)で述べる。

(4) 記事のメニュー

ポータルサイトにある「記事」のパネルメニューから遷移する画面は、記事のコンテンツとして「人気記事」、「最新記事」、「関連記事」を準備した。これらのパネルメニューからそれぞれのコンテンツを表示するページに遷移することができる。人気記事、最新記事、関連記事のコンテンツ（リスト）内容は、表 6.2.3-1 に示したとおりである。各リストから当該ページに遷移することができる。

(5) 閲覧履歴のメニュー

ポータルサイトにある「閲覧履歴」のパネルメニューからは、閲覧履歴リストを表示するページに遷移する。閲覧履歴リストは、閲覧者が最近見たページをリストとして表示し、各リストを選択することで当該ページに遷移することが出来る。

(6) 成果マップのメニュー

「成果」のページにある「成果マップ」のパネルメニューから、6.2.1 で整理した「確証性の高い地層処分システム」から展開される要件整理を基に知識ベースの枠組みに整理された表 6.2.1-2 の成果を反映した。最初のページの「自然科学的安全性評価」と「社会科学的安全性評価」の選択から、それぞれの下層に各知識ベースの整理項目の枠組みをツリーで示した（図 6.2.3-2）。

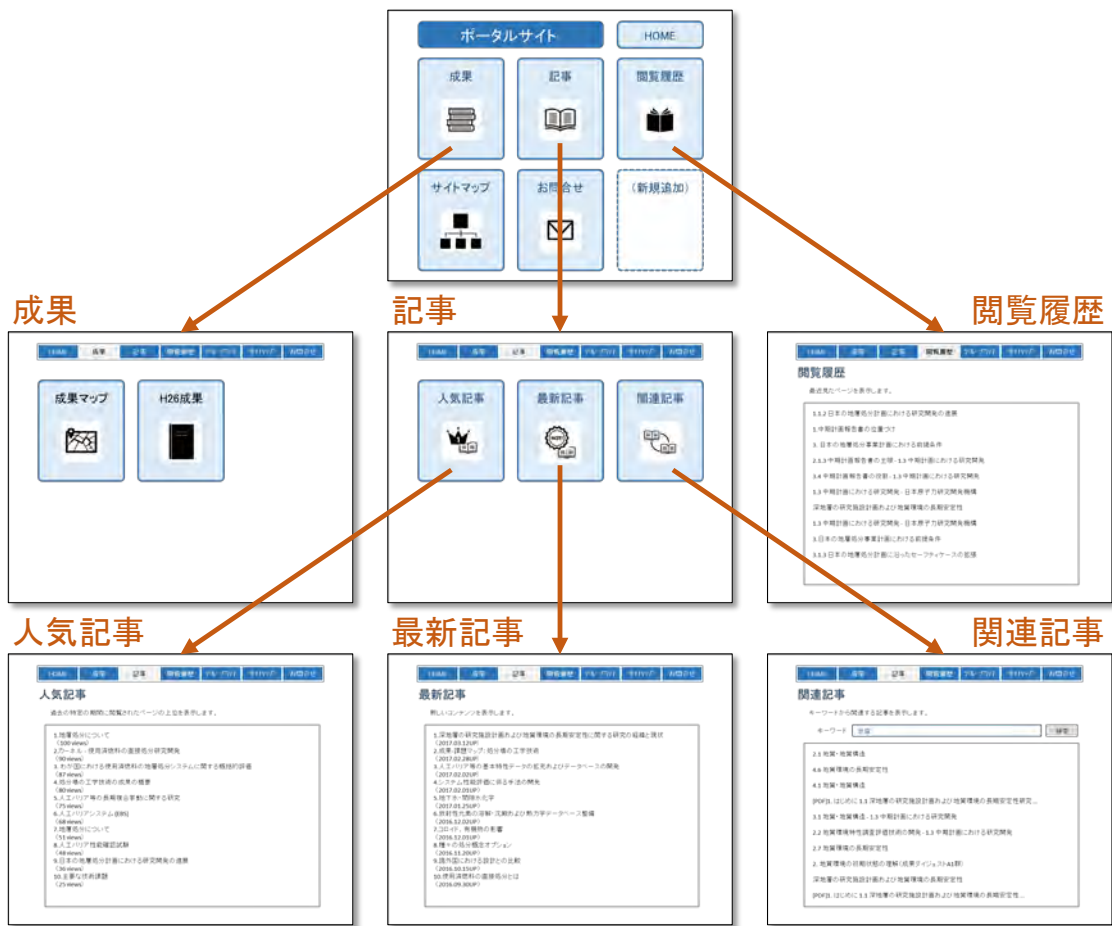


図 6.2.3-1 ポータルサイトにおけるナビゲーション機能の例

成果マップ

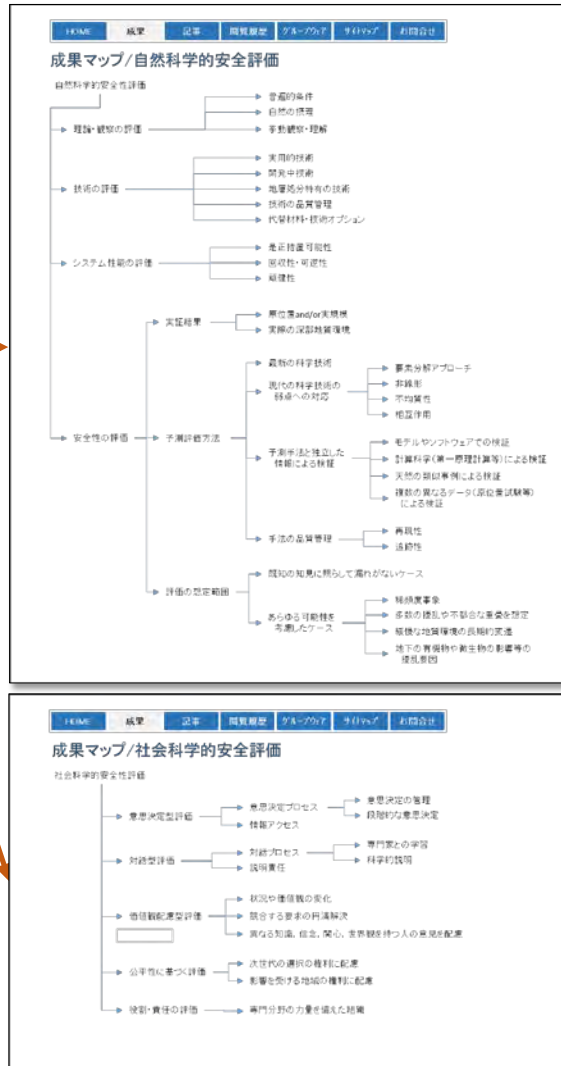


図 6.2.3-2 ポータルサイトにおける知識ベースの枠組みを反映した成果マップ

(7) ポータルサイトの適用性と課題

多くの種類や内容を対象にした情報を効率良く効果的に利用するためには、情報へのアクセスをいかにストレスなく容易に達成できるかが鍵となり、ポータルサイトを作成する上で重要な要素となる。ここでは、情報コンテンツを内容ごとに整理しアクセスし易いパネルメニューを導入することによって、概ね分かりやすいという好評を得ることができた。

また、本件の要である成果技術の統合もしくは情報の融合という観点で、今後、さらにアクセスのためのナビゲーションや情報の整理方法を検討し改善していく必要がある。

本件では、コンテンツマネジメントシステム (Joomla!) を用いて、ポータルサイトの構築を行っている。Joomla!では、ポータルサイトの Web ページを作成し、また管理する機能は充実している。そのため、ポータルサイトをシステム担当者が開発する必要はなく、Joomla!の機能を用いて比較的容易に各分野の成果をポータルサイトに反映することが可能となっている。

しかしながら、Joomla!には、既存の拡張モジュールを導入することにより機能を追加できる仕組みとなっているが、現在、ほとんどの機能は拡張モジュールとして存在していない状況であ

る。そのため、これまでは、WEB サイト作成に必須の言語である HTML や CSS (カスケーディングスタイルシート) などが書ける人しか触れなかった Web コンテンツを、Web 担当者以外でも簡単に管理できるように開発された「WordPress」に代表される他のコンテンツマネジメントシステム(CMS)の活用も今後検討していく必要がある。

6.3 処分システム評価確証技術の認知の拡大に関する試行

6.3.1 わかりやすい情報コンテンツ作成のための方法論の調査

地層処分システム評価技術の社会的受容性を向上させる目的の一つとして、本プロジェクト(処分システム評価確証技術開発)で実施されているそれぞれの要素技術について、他のステークホルダとの議論を通じて成果の共有や目標設定の見直しなどの試みを行った。その過程においては、一般に馴染みのない地層処分技術について社会的受容性の向上や他のステークホルダと成果の共有を図るためにも、関心をもたせ情報をわかりやすく伝える手法が不可欠となる。このため、本項では、まず情報をわかりやすく伝えるという観点から、これまでに調査・検討・作成したブランドデザインに関する手法や広報ツールに加え、今年度から新たに「情報デザイン」、「情報アーキテクチャ」、「デザインマネジメント」や「サービスデザイン」といった広告あるいは市場調査の分野で開発・利用されている手法について調査を実施した。

(1) 情報デザイン

デザインとは、「広辞苑」(新村, 2008)によると、

「1. 下絵、素描、図案、2. 意匠計画。製品の材質・機能および美的造形性などの諸要素と、技術・生産・消費面からの各種の要求を検討・調整する総合的造形計画」

としている。したがって、デザインには、色や形といった意匠的な意味だけでなく、それらを含めた総合的な設計や計画といった意味も持っており、本検討で用いるデザインも後者を意味する。これを踏まえ、「情報デザイン」とは、様々な規模の情報を、何らかの物理的実体を介して表現する行為全体を指し、以下の事例に示すように広範囲にわたり日常生活に深く浸透している(杉山ほか, 2008)。

- 電子メールの作文
- 電子レンジ等の生活器具の表面に付ける使用法表示の設計
- 駅の案内板等の公的表示一般の設計
- 新聞や雑誌に表示する広告のデザイン
- マニュアルや旅行ガイド等の「情報本」の作成
- 博物館等の展示
- プレゼンテーションや教室等での授業
- メッセージ性を持つ芸術作品の作成
- ドキュメンタリー番組や映画の作成
- 研究や調査目的で数値データの可視化

(2) 情報アーキテクチャ

Web サイトを情報のかたまりでできた建築物のように組み立てていく手法のこと。ウェブペー

ジの見た目ではなく、サイトの構造全体を考慮しながらそこを訪れたユーザーにとっての使い勝手を高めるデザインを高める上で欠かせない（渡辺，2001）。

長谷川（2015）はWeb サイトにおける情報アーキテクチャに課せられた課題と役割は、以下の3点に集約させた。

- 利用者が情報を発見できるようにする

これがWeb デザインにおいて、情報アーキテクチャ設計を行う一番大きな目的となる。サイトの規模が大きくなり、扱われる情報が増えてくると、情報を探している人が目的の情報に到達できない。これを解決するのが情報アーキテクチャ設計のもっとも主要な目的となる。この目的の達成のためには、「誰が利用者か」「こういった情報が必要なのか」を明示化する必要がある。

- 情報提供者が自分の意図通りに情報を提示できるようにする

これは、情報提供者、つまりサイトの運営者が提供したい情報を適切に届けることを意味する。Web サイトを立ち上げる際には、企業であれ個人であれ、なんらかの目的や意図が存在する。しかしながらただ情報を置いただけではその意図は利用者には伝わらず、「見せたいものが見てもらえない」「想定と違った見方をされてしまう」「せっかく作ったのにアクセスされない」といったことが起こる。こういった状況を避け、提供者の意図を反映させたWeb サイトを構成することが情報アーキテクチャ設計のもうひとつの主要な目的となる。

- サイト内での情報の変化、増減によるクオリティの低下を防ぐ

「情報の変化・増減に対応する」ことが情報アーキテクチャ設計の隠れた効果となる。情報アーキテクチャ設計プロセスの中ではコンテンツを解体し分析する。その中で、変化することがわかっている要素、追加される要素、属性が変化する要素（「今後の予定」が「過去の予定」に変化する、など）について、予めその変化を明示しておくことで、サイト構造やナビゲーションを設計する際にそのことを見込んだ形にしておくことができる。

(3) デザインマネジメント

デザインマネジメントとは、デザインを取り入れた戦略の事である。ここでのデザインは、情報デザインで述べたように総合的な計画を指している。したがって、デザインを戦略的な目標を達成するのに有効な手段として、これを中心に据えてプロジェクトをマネジメントする手法である。

田子ほか（2014）によると、デザインマネジメントのプロセスは、

- 課題の発見と抽出
- 革新的なシナリオ構築
- シナリオの具体化
- システム全体を統合した情報処理

となっている。このプロセスを適用することによりビジョンが明確になり、

- プロジェクトチームが活性化する
- リソース（人的物的）を有効に活用する
- 戦略を創る

- 考えが深まる
- 本質を捉える

等の効果が得られる。(田子ほか, 2014)

(4) サービスデザイン

サービスデザインとは、「顧客が求めていることをきちんと提供すればそこに価値が生まれる」という原理を再現したもので、ビジネスを顧客の視点から体系的に編成する取組みである。また、顧客が何かを購入するかどうか(サービスを受けるかどうか)を検討しはじめた瞬間からスタートし、その購入品のライフ・サイクルが終了するまでのサービス全体をデザインする手法とも言える。この目的は、企業と顧客のインタラクション(接点)のあらゆる局面において、快適なカスタマーエクスペリエンス(顧客経験価値:商品やサービスを購入したり使用したりする経験によって得られる感覚的、感情的な付加価値)を提供することにある(クラール, 2015)。

サービスデザインの手法の一つに「カスタマージャーニーマップ」がある。これは「カスタマージャーニー(顧客の行動)」を可視化し、それと結びつけたマーケティング施策を実施する際のツールであり、あらゆるマーケティング施策を実践する際に欠かせない顧客の行動や思考を把握するための手法となっている。表 6.3.1-1 に、鉄道チケットを購入する顧客(旅行者)の行動を事例とするカスタマージャーニーマップに必要な仕様と Website の URL を示す。この出典の Website では、旅行代理店が顧客(旅行者)の満足度を上げるためには、どの部分(タッチポイント)を改善すべきかを把握することを目的としている。この事例での「ペルソナ」*は顧客(旅行者)を指す。スタートは旅行に行きたいという要求から始まり、そのための

「Research & Planning(計画を練るところ)」から旅行代理店のサービスを体験する旅が開始する。ゴールは「Post Travel(旅行後)」であるが、帰宅時点でなく、帰宅後に旅行代理店から返金というサービスを受けるため、返金を得た段階で一連のサービスの旅が終わっている。

計画・購入の初期の段階では、「DOING(タッチポイント行動)」として、代理店の Web サイト、他の Web サイト、友人と複数のタッチポイントに接している。次段階の「Shopping(購入)」では、縦軸「FEELING(感情)」の欄の1つ目に「当該代理店が信用できない」としており、その下の「EXPERIENCE(体験)」欄の「Enjoyability」の満足度を示す棒グラフが低下しているのが分かる。また、「Post-Booking」段階において縦軸「THINKING(思考)」の欄の3つ目に「時間内にチケットが届かなかっただろうすればいいか」と心配しており、縦軸「EXPERIENCE(体験)」の欄に示される「Helpfulness of Rail Europe」の満足度の棒グラフが低下している。そのため、下欄の「Opportunities(機会)」では「適切なタイムラインで発送する」とコメントしている。

地層処分技術に関するステークホルダとの知識共有にあたり、この「カスタマージャーニーマップ」を導入することによって、ステークホルダ(顧客)の行動プロセスの全体像を可視化し、それぞれの段階での行動・思考・感情・体験を推定・分析することにより、顧客が満足するためには何が必要か、どのように改善すれば良いかといった取るべき施策や必要なフィードバックを

*: 「ペルソナ」の語源は元々古典劇において役者が用いた「仮面」から来ており、心理学者ユングはそれを人間の外的側面、つまり仮面をかぶった人格という意味を込めてペルソナと表現している。マーケティングにおいては、企業等が製品の提供やサービスを行ううえで、最も理想とされる顧客像を1人の架空の人物として定義している。

スムーズに行うことが可能となる。これがカスタマージャーニーマップを地層処分技術の知識共有に採用する利点である。

表 6.3.1-1 旅行代理店のカスタマージャーニーマップの仕様例

ケース	旅行代理店経由で鉄道チケットを購入	サービス	チケット購入
企業	旅行代理店 (Rail Europe)	顧客	旅行者
スタート	旅行の計画 (旅行に行きたい)	ゴール	旅行後
マップ 参考 URL	https://experiencematters.blog/2013/04/03/seven-steps-for-developing-customer-journey-maps/		

6.3.2 技術情報に関する知識共有を図るための双方向コミュニケーションの調査

処分事業の進展にともない、実際に「確証性の高い地層処分システム概念」を今後構築していくうえでは、ステークホルダ（利害関係者）として、政策決定者、周辺住民、地方自治体関係者、社会科学系や科学技術系の学識経験者など様々な人々が関係する。このため、地層処分というこれまで一般に馴染みのない技術について、専門的知識を持つ者と持たない者あるいは利害等の立場の異なる人々の間で知識共有や対話を行い相互の信頼関係を築き上げていく必要があることから、実社会ですでに展開され機能している双方向のコミュニケーション手法について調査を行った。

(1) コミュニケーションの分類

科学技術の開発や応用とそれに係る事業化においては、これまで様々な影響評価が試みられてきた。テクノロジーアセスメント (Technology Assessment : TA) もその一つであり、近年では市民参加によるコンセンサスや合意形成、意見収集など一般市民と専門家や行政とのコミュニケーションが注目され、様々な形式や方法が検討・議論されている。例えば、道路環境整備における公共政策において、自動車の交通処理だけではなく、歩行者、自転車、公共交通機関を初め、さらには市民の価値観の多様化や高齢化等に対応する高質化が求められている。このような背景の中、大阪大学コミュニケーションデザイン・センター (CSCD) では、これからの道路環境整備に係る様々なニーズや課題に関して、地域住民との対話や熟議が重要であり、地域住民が自発的にインフラの維持・活用に参画するような取り組みが行われている。そこでは、交通・まちづくりに関する地域内での対話経験、総合的施策形成における行政内部での調整経験、ドイツや米国における行政・市民間の仲介者の動向に関する調査結果、法定外での紛争解決 (ADR: Alternative Dispute Resolution) 等に関する知見等を交えた討議から、施策形成場面における熟議・合意形成にむけて必要とされるコミュニケーションを、「モデレーション」、「ファシリテーション」、「コーディネーション」、「メディエーション」の4つに分類し、熟議を形成するメカニズム (民主的メカニズム。ソクラテスのメカニズム) 及びコミュニケーションの形態 (伝える。まとめる) の2軸で構造化できる (図 6.3.2-1) との仮説が提起されている (板倉ほか, 2015 ; 板倉ほか, 2016)。「熟議」とは、「多くの当事者による熟慮と討議を重ねながら課題解決・政策形成をしていくこと」 (文部科学省, 2012) であり、Chambers (2005) による

と、ある議論が熟議的であるためには、二つの要素が必要としている。一つは「ソクラテス的メカニズム」（自分の主張をできるだけきちんと説明すること）であり、もう一つは「民主的メカニズム」（自分の主張が一般的に受け入れられるようにすること）である。前者は閉じられた場では働きやすいが、開かれた場では働きにくい、後者はその逆とされており（田村，2010）、その両立が課題となる。このため欧米では、討論型世論調査* (Deliberative Polling : DP)、コンセンサス会議**、プランニングセル***会議等の手法が編み出されている（板倉，2015）。

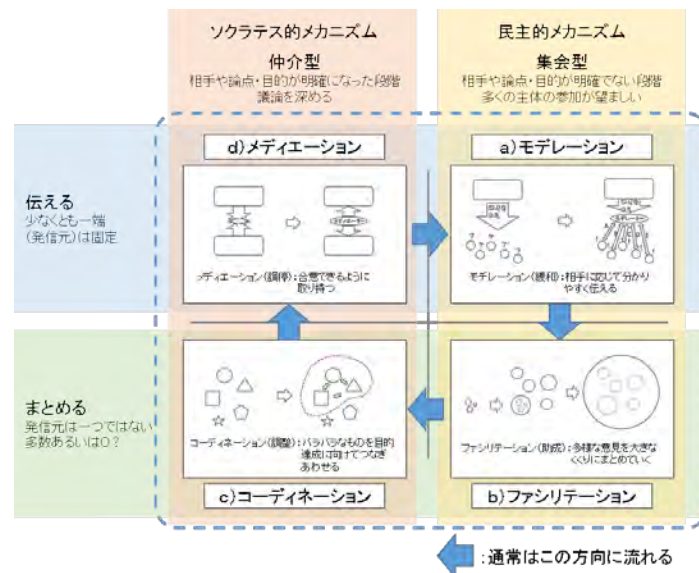


図 6.3.2-1 施策形成のためのコミュニケーション過程の構造化
（板倉ほか，2016 より改変）

地域住民のニーズにあったまちづくりやみちづくりのための総合的施策を、行政・地域住民の協働で実現するには、4つのコミュニケーションにおいて、以下①～④の機能を担う「地域公共人材」及び公的議論に参加できる資質を持つ「市民」の育成が望まれるとしている（板倉ほか，2016）。

- ① 高度に専門化、分業化された行政施策について市民に分かりやすく話すことのできる者（モデレーター）
- ② 個別分節化した市民の意見を大きくとりまとめ、かつ、大筋で合意可能なイメージとして集約することができる者（ファシリテーター）
- ③ 合意可能なイメージの施策化に向け関係者を組織化する者（コーディネーター）
- ④ 施策が具体的になるにつれて発生する利害関係者同士の対立を調整する者（メディエーター）

* : 通常の世論調査とは異なり、1 回限りの表面的な意見を調べる世論調査だけではなく、討論のための資料や専門家から十分な情報提供を受け、小グループと全体会議でじっくりと討論した後に、再度、調査を行って意見や態度の変化を見るという社会実験

** : 1985 年にデンマークにおいて開発された、市民参加のテクノロジー・アセスメントの一つ

*** : プランニングセルは、市民の中から無作為に選ばれたメンバーが、少人数の基本単位（細胞）に分れて討議し、討議のもとについて提言を作成して計画づくりの指針とする制度

米国では、すでに対立する二者間を調停し、合意形成に到らせるメディエーターが確立しており、都市計画の分野において導入されている。また、ドイツにおいては、行政施策の説明者であるモデレーター(実際には行政施策の説明だけではなく、地域内の意見形成のためのファシリテーター、必要に応じて関係機関間の調整を行うコーディネーターの役割も果たしている)の役割が重視されている(板倉, 2015)。

(2) コミュニケーションデザイン

一般に、異なる分野と分野の間に存在する、あるいは複数の分野にまたがり結果的にどの分野にも属さないという問題は多く存在する(ここで「分野」を「個人」もしくは「グループ」にも置き換えることができる)。この類の問題は、ある一つの分野からの視点のみでは、いかなる手法や技術をもっても解決できない。何が問題で何が解決であるかを決めることができないからである。すでに事業の段階に入った放射性廃棄物の地層処分に関わる問題は多岐の分野にわたり多様なステークホルダが関係する。このため、ここでの問題解決に向けた取り組みは、あまり馴染みのない(よく知らない)ことへの関心や懸念の度合いが異なるステークホルダ同士のゆるいつながりの中で行われることになる。このような特徴を有する地層処分などの公共性の高い問題の解決に向けては、対話(コミュニケーション)が成立するための意識的なデザインが必要であるとしている(西條, 2014)。

「コミュニケーションデザイン」とは、このような問題解決に向けた対話(コミュニケーション)を設計(デザイン)することであり、その考え方は学際的で多岐の分野の問題解決にも参照できるとされ、以下のように定義される(西條, 2014)。

「問題の全体を人との相互行為により管理可能なものにしていくこと。何のためにという「目的」を明確にし、誰にどうなってほしいのか、誰と一緒にどうなりたいのかの「計画」を立て、そのための方法を考えて「実践」し、結果を観察して「考察」する。目的が達成できていなければ計画あるいは実践に、目的が達成されていれば目的にフィードバックして、新たな課題を設定する。」

この一連のプロセスにおいて最も大切に困難なことは「目的」の設定であるとしている。というのは、問題と対峙するとき、人は必ず何らかの視点から問題を見ている(本人の意識としては、視点を選ぶほどには意識的ではないことも多いが、様々な見方の中から一つを選択して問題を見ていることは事実のようである)。このため、その見方の選択をもっと意識的なものにし、かつ、個々の細かい視点からではなく問題の全体像を俯瞰できるよう問題の中から課題を抽出し目的を設定することが重要であるとしている。このような目的設定の観点から、コミュニケーションデザインの考え方は、図 6.3.2-2 に示す「目的 (Goal)」－「計画 (Plan)」－「実践

(Implementation)」－「考察 (Observation)」からなる「GPIO サイクル」を経て、相手との相互作用の中から新たな視点を獲得し、問題を管理可能なものとしていくことである(西條, 2014)。



図 6.3.2-2 GPIO サイクルの運用 (西條, 2014)

(3) コミュニケーションの方法論

市民参加は、公衆を何らかの活動に関与させるまたは参加させることを指す言葉であるが、公衆の関与（巻き込み）もしくは参加といっても様々なレベルがある。その参加の段階をレベル分けしたもの（原科ほか, 2005）として、「米国のアーンスタインの“8 段梯子”」、「原科の“参加の 5 段階”」、「国際市民参画協会 (IAP2) の“参加のレベル”」がある。この分類を整理したものを図 6.3.2-3 に示す。従来、わが国で使われている「市民参加」は、アーンスタインの“8 段梯子”の分類にしたがえば、「3. 情報提供」から「8. 市民による管理」までを指している（石田, 2001）。

8. 市民による管理 citizen control	市民権力としての参加	5. パートナershipp	5. 権限付与
7. 権限委譲 delegated power			4. 協働
6. パートナershipp partnership	形式だけの参加	4. 意味のある応答 3. 形だけの応答 2. 意見聴取	3. 関与
5. 権限委譲 placation			2. 協働
4. 相談 consultation			1. 情報提供
3. 情報提供 informing	参加不在		
2. 不精回避策 therapy			
1. 世論操作 manipulation			
アーンスタイン「参加の8段梯子」		原科「参加の5段階」	IAP2「参画のレベル」

図 6.3.2-3 参加の段階的モデルの整理 (石田, 2001 を改変)

コミュニケーションは、目的や対象者等に応じて適切な手法を選択し実践する必要があることから、参加者の特徴に応じて用いられる手法について検討が行われている（若松, 2010）。ここでは、IAP2 の“参画のレベル”の分類にしたがい、利害関係者の参加程度が低い順に、「情報提供」、「意見聴取」、「関与」、「協働」、「権限付与」として検討が行われている。それぞれの参加程度の定義を以下に示す。

- 情報提供：情報を提供する
- 意見聴取：意見を収集し、意思決定の参考とする
- 関与：意見を収集し、課題の解決、計画への反映を行う
- 協働：計画立案から意思決定まで関与する
- 権限付与：意思決定までの過程を委ねる

また、活用できる参加型コミュニケーション手法を、この参加の度合いに応じて整理したものを表 6.3.2-1 に示す（表の右に行くほど参加結果のインパクトは強くなる）。表中の赤字は本プロジェクトの検討において特に着目したものを示す。

表 6.3.2-1 参加型コミュニケーション手法の分類

分類	情報提供	意見聴取	関与	協働	権限付与
手法	ストーリーテリング		サイエンスカフェ	参加型テクノロジーアセスメント	投票
	理科実験	フィードバック・グループ	シナリオ・ワークショップ	コンセンサス会議	代表者による決定
	ホームページ	カフェ・セミナー	プランニング・セル	ディープ・ダイアログ	

(4) テクノロジーアセスメント

テクノロジー・アセスメント (TA) とは、

「従来の研究開発・イノベーションシステムや法制度に準拠することが困難な先進技術に対し、その技術発展の早い段階で将来の様々な社会的影響を予期することで、技術や社会のあり方についての問題提起や意思決定を支援する制度や活動を指す」

と定義されている（吉澤，2009；城山，2010；鈴木，2010）。また、その特徴は、

- ① 評価対象を技術自体だけではなくその社会的影響とすることであり、その評価は基本的に政治的・社会的プロセスを伴うこと
- ② その評価には技術専門家だけでは不十分であるため、学際的アプローチや不確実性及び価値の多様性を考慮に入れることが必要不可欠であること
- ③ 成果は、政策提言ではなく意思決定を支援するための選択肢の提示とその比較を行うこととされている（鈴木，2010）。

技術開発は人間や社会にとって利益をもたらすだけでなく、自然環境の破壊、伝統的な文化の破壊など様々な不利益ももたらす可能性があり、しばしば問題とされている。これを踏まえ、TA では、技術の開発や適用に伴う人間社会、地球環境に及ぼす影響を多角的・客観的に調査し、事前に利害損失を総合的に評価することで、発生しうる弊害への対応策の策定や開発方向の修正などに資することを目的とした分析的評価の側面も有している。このように TA の活動は、関連する専門家や関係者を含む多様なステークホルダの協働を通じ、技術が及ぼす影響を幅広く俯瞰でき、新たな課題やその対応策の方向性を提示することが可能となる。

(5) コンセンサス会議

近年における高度な科学技術（例えば、遺伝子組換え技術、クローン技術、原子力技術など）については、それが新たに及ぼす影響に対する一般市民の理解や受容が社会的課題となりつつあり、その対応は政治・行政上の課題となっている。従来のテクノロジー・アセスメント (TA) のように専門家やごく限られた範囲の関係者による評価に代わり、一般市民の参加による専門家との双方向のコミュニケーションを介して対象となる科学技術の影響評価を行う試みが行われるようになり、そのための仕組みや活動がコンセンサス会議と呼ばれる。

Joss & Durant (1994) は、

「コンセンサス会議とは、政治的、社会的利害をめぐって論争状態にある科学的もしくは技術的課題に関して、素人からなるグループが専門家に質問し、専門家の答えを聞いた後で、この話題に関する合意を形成し、最終的にかれらの見解を記者会見の場で公表するためのフォーラムである」と定義している。また Grundahl (1995) は、

「コンセンサス会議とは、技術評価の一方法であり、専門家のパネルと市民のパネルの聞の会議として組織される。市民パネルは社会的に議論を呼ぶような技術の開発を評価する」と定義している。

コンセンサス会議の実施にあたって、特定の科学技術テーマの選定、「市民パネル」の募集と「専門家パネル」の選定が行われる。市民パネルは、議論するテーマと利害関係のない十数名の市民を募り、専門家パネルには大学教授、企業の従業員、公務員、民間団体の活動家などの数名が選出される。一般に、会議では専門家が市民パネルにテーマに関する科学技術の状況についてわかりやすい説明をし、市民パネルと質疑応答を行う。その後、市民パネルだけで議論を行い、その科学技術に対する判断や意見をまとめる。これがコンセンサスと呼ばれ、発表や新聞の記事として公開され、政治家や行政府などにコンセンサス会議報告書が配布され参考にされる。このような形で世論形成と政策形成に利用される。ただし、これらの意見には法的な拘束力はないとされている（木場，1999）。

このようなコンセンサス会議については、1987年に遺伝子工学をテーマにデンマークにおいて初めての試みが行なわれ、それ以降はヨーロッパを中心に各国の社会的・政治的事情を取り入れられながら様々な試みや活動が行なわれている。

これまでコンセンサス会議を行なった国や地域は、デンマーク、オランダ、英国、ニュージーランド、ノルウェー、米国（マサチューセッツ州）、スイス、フランス、韓国、カナダ、オーストラリア、日本がある（木場，1999）。わが国では、1998年に国内初の会議が開催され、それから十数年の間におよそ10回程度のコンセンサス会議が開かれている（三上，2010）。表6.3.2-2に日本で開催された主なコンセンサス会議を示す。

表 6.3.2-2 日本で開催された主なコンセンサス会議

開催年月	テーマ	運営主体	主なスポンサー等	備考	参考
1998.1~3.	遺伝子治療	研究者グループ	民間財団		1, 2
1999.5~7.	高度情報社会・インターネット	研究者グループ	東京電機大, 民間財団		1, 2
2000.9~11.	遺伝子組換え作物	運営委員会+農林水産先端技術産業振興センター	農水省	01~03年にも同テーマで開催	1, 2
2005.1~3.	脳死・臓器移植	研究者グループ	民間財団	ディープダイアログ方式	1, 4
2006.11 ~ 2007.2.	遺伝子組換え作物の栽培	実行委員会+北海道庁	北海道庁, 北大	道条例見直しへのリンク	1, 3
2008.9~10.	ナノテクノロジーの食品への応用	研究者グループ	科研費, 振興調整費	計3日間のミニ・コンセンサス会議	1, 5
2009.9	地球温暖化に関する世界市民会議 (World Wide Views)	大阪大学, 上智大学, 北大 CoSTEP, デンマーク技術委員会 (DBT)	各組織の資金, DBT等が獲得した助成金	異なる文化, 言語, 教育背景, 経済背景をもつ世界の国々が, 同日に「共通の」会議を行った。	6
2012.9	生物多様性に関する世界市民会議 (World Wide Views)	科学技術振興機構日本科学未来館, デンマーク技術委員会 (DBT)			7

1:三上 (2010)、2:小林 (2004)、3:三上 (2007)、4:若松 (2010)、5:三上 (2009)、6:八木 (2010)、7:郡 (2013)

八木・中川（2011）は、「中関心層」（科学技術の問題について具体的な行動を起こさない場合でも、問題について考えたい、議論したいと感じている人々）を対象に、科学技術に関するさまざまな論点を可視化する「論点抽出カフェ」の提案をし、企画、実施方法等のマニュアルを公開している。

(6)サイエンスカフェ

サイエンスカフェは、1992年にパリで始まった哲学カフェをモデルにして、1997年以降に英国やフランスで始まった、研究者と市民が一緒になって科学技術をめぐる話題について語ろうとする取り組みである。ここでは、日常のカフェのような場で、コーヒーやビールを片手に、科学者と市民とのあいだの双方向的なコミュニケーションを行ったり、専門家に限らない広範な人々の間で科学技術について議論するような場（基本的には小規模）を創出しようとするものとして実施されている（中村，2008）。

英国では、通常、一人のゲストが招かれ、特定のトピックをめぐって20分程度の話提供の後、休憩時間をはさんで、ゲストと参加者のあいだの質疑や意見交換、議論が1時間程度にわたって行われる。ここで、重要とされるのが、休憩時間を挟むことで、ゲストによる話提供をめぐって参加者のあいだで雑談がなされ、他の参加者も自分と同様の疑問を持っていることを知り、消極的になることなくディスカッションに参加できるようになることによって、参加者の自由な発言を軸としたディスカッションが実現できると考えられている（Dallas, 2006）。また、講義のような雰囲気を作ることを避けるため、パワーポイントや黒板の使用を出来るだけ避け、ゲストにファーストネームで呼びかけたりすることで、サイエンスカフェをディスカッションの場として成立させるために工夫されている（小林ほか，2004；中村，2008）。

フランスでは、通常、多様なバックグラウンドを持つ3名から4名程度のゲストが招かれて行なわれる。これは、先端的な科学研究においては、科学者のあいだでも共通した見解を見出すことが難しく、むしろ論争の存在こそが科学研究のダイナミクスを特徴づけるものであることを考慮したものである。また、科学研究には、科学技術では解決できない倫理的・社会的な問題が深く介在しており、それらの問題を議論するためには、科学研究者にとどまらないさまざまな人々による多様な角度からの検証や論点の提示が求められるからでもある。サイエンスカフェでは、冒頭にゲストがそれぞれ2分程度の簡単な自己紹介を行ったのち、会場を交えた議論や質問、意見交換に入る。その際、英国の場合と同様に、パワーポイントは用いられないことが一般的である（中村，2008）。

(7)理科実験

理科実験（実験、観察、工作など）は、参加者の興味・関心の喚起における実験の有効性や、実体験による先入観の変革への効果が指摘されている。これまでも理科授業や生徒・学生への科学教育啓発のために、教育現場を初め公共スペースにおいて理科実験を体験させる活動が行なわれている。ここでは、「実験は設備のそろった施設で行うもの」という印象を変化させるようなDNA実験や調査・観察を主体としたフィールドワークを組み込んだ実践など様々な分野での試みが「出前実験（授業）」として行われている。サイエンスカフェに対して出前実験の最も大きな違いは、サイエンスカフェが不特定な参加者を対象に行うものであることに対して、出前実験は

事前に参加対象者が想定されていることである（児玉・竹本，2011）。

(8) ストーリーテリング

ストーリーテリングは、1960年代米国や英国の図書館の児童サービスの一環として始められ、本と子どもを結びつける一つの手だてとして普及してきた。言葉こそ目新しかったものの、内容は、昔から語りつがれてきた「お話」（語り）の流れを汲むものである。その特徴として、語り手側はお話を語る際の声や表現力、表情如何で話が面白くもつまらなくもなる（浅木，2014）。

1) デジタル・ストーリーテリング

デジタルストーリーテリング（DST）は、一般の人々が、家族や身の回りの出来事、自分の思い、考え、記憶を題材にして、2～3分の映像作品を作成する活動である。ワークショップ形式で取り組まれ、写真（時に短い動画）と自分の声で吹き込んだナレーションに音楽や効果音を編集して制作される。ワークショップでは自分の想いを「語る」ことが強調され、PC操作よりも「ストーリーサークル」と呼ばれる物語を生み出すプロセスが重視される（土屋，2015）。

DSTの活動は、個人において自覚や自立を促し、集団において関係性の構築に役立つとされる方法論であり、臨床心理や福祉分野の大学や専門学校などの教育機関のカリキュラムにも導入されている。米国では社会的な方法論として定着していることからDSTは単なる映像制作や表現活動にとどまらない方法論であることがわかる（池田，2012）。

DSTの取り組みは1990年代始めに米国カリフォルニアで始まり、北米、ヨーロッパ、オセアニア、アジア、南米、アフリカと世界中で取り組まれている（土屋，2015）。インターネットのWEBサイトを立ち上げている約300の活動団体（プログラム）の多くが2000年代初期から活動しており、一番多いのは教育機関の123プログラム、次が地域のコミュニティ・センターやコミュニティ組織で71プログラム、文化機関が51、さらに公共放送、企業やコンサルタント、保健機関、教会などの政府、企業、宗教団体が55であった（McWilliam，2009）。

日本におけるDSTの取り組みは、愛知淑徳大学メディアプロデュース学部の「メディア・コンテ」や三重大学教育学部附属教育実践総合センター、任意団体のデジタル・ストーリーテリング研究所、学校教育を対象としたデジタル表現研究会「D-project」などがある（土屋，2015）。

2) ラジオにおけるストーリーテリングの実践

ラジオを通じたメディア・リテラシーの実践の中で、ストーリーテリング番組として、市井の人々と制作者の何気ない対話の中からその人の人生や家族の歴史、地域の問題などに深く入り込んでいくタイプの番組に新たなラジオの未来の可能性が見出されている。これらは、従来の社会問題を暴き出す調査報道の様式に則ったラジオ・ドキュメンタリー番組とは大きく異なり、人々が身近なことがら、社会的に大きな争点とは言えないが個人や地域にとって意味のあることがらを丁寧に取り上げ、多面的に物語っていくタイプのものである。

ストーリーテリング・ラジオの特徴は、録音構成作品として独自のコミュニティを持つことから、それは国境を超え、時間を超え、さらに何度でも聴くことができる作品として電波とデジタルの融合した中に存在することである。さらに、ストーリーテリング・ラジオは、マスメディアが志向する大きな物語ではなく、小さな物語を録音構成作品とすることを目的としている。ある

ときには身近な環境問題に警鐘を鳴らし、またあるときには音声の芸術的表現の可能性を実験するといった志向性が、ラジオの新たなコミュニティの成立に不可欠であると考えられている（水越，2016）。

3) 授業におけるデジタルストーリーテリングの実践

DST は、様々なテーマを対象にして全教科・領域で学習者が取り組める手法である。学習者が、学習環境の中で、情報を受信または発信するためには、様々な知識が必要であるが、この情報を受信・発信する言語的な知識は以下のレベルに分類することが出来る。

- ①単語レベル
- ②文レベル
- ③文章レベル
- ④文脈・背景レベル

これまでの我が国の教育では、一斉指導型授業が主流で、知識が身に付いたかどうかはペーパーテストで、「①単語レベル」での正誤判定が行われてきた。すなわち、学校や受験のテストでは、単語レベルでの答を求める形式のものがほとんどで、そのテストを用いて学力が評価されてきた。しかし、このような単語レベルでの知識だけでなく、回答が複数存在したり、理由や背景を述べるような「③文章レベル」の発信型知識を身につける取り組み（1分間スピーチやペーパーレポートなど）が行なわれつつある。しかし、口頭だけの「語り」は伝達が不十分であり、ペーパーレポートは、教師が読むだけで返却や廃棄されてしまう。このような背景の中で、学習者による DST の実践は、③文章レベル、④文脈・背景レベルの発信型知識を習得・活用することにつながっていくことが期待されている（須曾野，2009）。

学習者による DST 過程を ADMSAR プロセス*として図示した（図 6.3.2-4）。

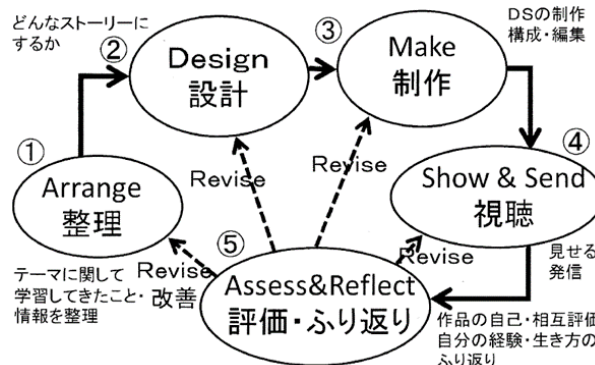


図 6.3.2-4 デジタルストーリーテリングでの ADMSAR プロセス（須曾野，2009 を改変）

(9) 双方向型コミュニケーション手法の比較

「コミュニケーション」という言葉自体に互いに伝達し合うことの意味があることから、あえて「双方向」と付す必要はないかもしれないが、地層処分に限らず一般に原子力技術に関する情報伝達の場面においては、事業者等の「情報の発信者」と一般市民を含む非専門家の「情報の受

* : 図中の「整理」, 「設計」, 「制作」, 「視聴」, 「評価・振り返り」の英語の頭文字 (ADMSAR) をとった一連の流れのプロセス

け手」という関係になりがちで、双方が有する情報の非対称性もあり、結果として一方的な方向の情報伝達のコミュニケーションとなってしまっている。しかしながら、事業の段階に入った我が国の地層処分計画において、その意思決定に関与するステークホルダの多くは専門家ではない。地層処分技術は一般に馴染みがなく、また「発信者」側から供給されるその情報はこれまで専門家の目線で作成され従来の方法によって伝達されるため、「受け手」の非専門家にとってその理解は容易ではなく知識は共有されていない。したがって、一般に馴染みのない地層処分技術について、如何にして非専門家を含む多様なステークホルダに関心や興味を抱かせ、地層処分に対する彼らの要望や意見を引き出し地層処分の計画や研究開発に適宜フィードバックさせ、双方で地層処分に関する知識の共有を図っていくことが重要となる。そのため、すでに実際に機能し実績のある双方向型のコミュニケーション手法について、それぞれの比較を行っておくことが重要である。

本節では、上記で述べた双方向型のコミュニケーション手法であるテクノロジーアセスメント(TA)、コンセンサス会議、サイエンスカフェ、ストーリーテリング、理科実験を対象に、それぞれの概要、特徴、手法および有効性について比較分析を行った(表 6.3.2-3、表 6.3.2-4)。

ここで、TAやコンセンサス会議は、成果を議会に反映させる趣が強く、政治と密接な関係にある。特に、コンセンサス会議については、

- 1) 主催者と参加者の双方にとって負担が大きい、
- 2) 大掛かりなため、開催数が限られ、また緊急の問題に対し柔軟に対応できない、
- 3) 参加できる市民の数が少数であり、様々な視点からの検討に限界がある、

といった課題が考えられる。

サイエンスカフェは、開催しやすさや参加の気軽さを重視した場であり、相対的に低い関心の人でも、気軽に科学技術について話ができる場である。参加者が議論しやすい場の雰囲気重視の方法であるが、わが国ではカフェで行う講演会的な内容のものが多くみられる。ストーリーテリングおよび理科実験は、どのように参加者に興味付けて内容を理解させるかということの主眼にした取り組みであるといえる。特にデジタル機器を用いたデジタルストーリーテリングは、広義ではそれらを用いてストーリーを絡めたお話形式で理解を促すことも当てはまるが、参加者が自ら作成する本来のデジタルストーリーテリングは、その内容の理解や成果物の保管・利用の観点からコミュニケーションの効果が期待されている。また、理科実験においても、学生・生徒の理科離れなどの社会的問題とも対峙して、自ら体験させて理解を深める学習効果が大きいことや参加者からも好印象が得られている。

表 6.3.2-3 双方向コミュニケーション手法の比較（概要・特徴・手法）

手法	概要	特徴	手法
テクノロジーアセスメント	<ul style="list-style-type: none"> 先進技術のもたらす影響について、技術発展の早い段階で将来の様々な社会的影響を予測することで、技術や社会のあり方についての問題提起や意思決定を支援する制度や活動。 1990年代の原子力や遺伝子組み換え問題を背景に、一般市民による意思決定への参加や課題設定のため「参加型TA」が誕生した。 	戦略的TA、参加型TA、構築的TA等の手法がある。	TAの手法は特に確立されていない。市民参加のTA手法としては、「コンセンサス会議」が開発された。国内においては、「コンセンサス会議」「ディープ・ダイアログ」「シナリオ・ワークショップ」「討論型世論調査」等の手法活用事例がある。
コンセンサス会議	市民参加によるテクノロジーアセスメントとして、デンマークにおいて開発された手法。社会的に争点のある具体的な科学技術に関して、専門家と一般市民の対話を通じて、一般市民による科学技術の評価や提言をまとめる。	一般市民が会議の主導権を持つ。	運営委員会（司会）、専門家パネル、市民パネルで構成され、専門家による説明、ディスカッションを経てコンセンサスを得る。
サイエンスカフェ	くつろいだ雰囲気の中で科学技術に関する話題について話し合う取り組み。比較的小規模な場所で行う。	話題提供者と参加者、参加者同士の双方向のコミュニケーションをとる。	<ul style="list-style-type: none"> 専門家の話題提供のあと、グループディスカッションを行い、専門家との質疑応答をおこなう。 参加者に配布する「コミュニケーションカード」の活用。 体験型や手法の実験的検証などの試験的な取り組み。
ストーリーテリング	伝えたいコンセプトや思いを、それらを想起させる印象的な実体験などの物語を通して、強く印象付ける手法。	伝えたいコンセプトや思いを、それらを想起させる印象的な実体験などの物語を通して、強く印象付ける手法。	<ul style="list-style-type: none"> 語り手がテキストを見ずに語る「お話」、「語り」、「素話」 集中力、思考力、想像力を使って、自分自身でストーリーを組み立て、頭の中にイメージを作っていく作業 PC、カメラ、ビデオ等メディアツールを用いたオーラルストーリーやプレゼンテーションの作成（デジタル・ストーリーテリング）
理科実験（実験、観察、工作）	実験、観察、工作などを通して参加者が直接体験することによって、原理や仕組みなどの理解を深めることが出来る。	理解と感動の体験を通して、自然科学への興味の上と視野を広げ、サイエンスコミュニケーション力の育成に資することが期待出来る。	<ul style="list-style-type: none"> 短時間で可能な安全な理科実験（中高理科教育での実験） 身の回りの自然観察（天文観察、生物モニタリング） 科学の原理を利用した道具や玩具などの作成

表 6.3.2-4 双方向コミュニケーション手法の比較（有効性の分析）

手法	主に利用している国・団体	参加規模	実施日数	活用事例	本事業における有効性
テクノロジーアセスメント	<ul style="list-style-type: none"> ・日本、オーストリア、デンマーク、フィンランド、フランス、ドイツ、ギリシャ、オランダ、ノルウェー、スウェーデン、スイス、イギリス、ポーランド、アメリカ、ロシア、ワロン地域（ベルギー）、カタール・ニヤ州（スペイン）、欧州議会、欧州評議会（14カ国、2地域、2機関） 	開催形式によって異なる。	開催形式によって異なる。	<ul style="list-style-type: none"> ・わが国では、1975年まで検討されたが、実施の義務付けは見送られた経緯がある。その後、プロジェクト単位でのTAや技術フォーサイトのTAが行なわれている。 ・1980年代以降は国家技術戦略としてのTAが実施され、研究評価の制度化が行なわれた（吉澤，2009）。 ・欧州では1980年代から各国ごとに議会テクノロジーアセスメント機関が設立され、1990年にはそれらのネットワーク機関として欧州議会テクノロジーアセスメント（EPTA）が設立された。 	テクノロジーアセスメントの本来の意義は、国の科学技術政策や議会の決定に資することを目的とするが、広義では、本プロジェクトの取り組みはそれに資する試みの一つとして位置付けられる。
コンセンサス会議	<ul style="list-style-type: none"> ・日本、デンマーク、アメリカ、ベルギー、カナダ、オーストラリア、ニュージーランド、スイス、アルゼンチン、オーストリア、インド、オランダ、ノルウェー、韓国、イギリス、ブラジル、フランス、ドイツ、イスラエル、ジンバブエ、欧州議会（20カ国、1機関） ・わが国では、1998年～2008年まで6テーマで主要な会議が実施された（三上，2010）。 	10～20人程度	2～3日	<ul style="list-style-type: none"> 遺伝子治療（1998.1-3） 高度情報社会・インターネット（1999.5-7） 遺伝子組換え作物（2000.9-11） 脳死・臓器移植（2005.1-3） 遺伝子組換え作物の栽培（2006.11-2007.2） ナノテクノロジーの食品への応用（2008.9-10） 地球温暖化に関する世界市民会議（WorldWide Views,2009.9） 	<p>専門家と市民の双方向型のコミュニケーションによって、理解の深下や新たな視点を得ることの目的は一致する。本プロジェクトの成果を発展・拡大してコンセンサスを得ることを目的とする場合に手法の様式として有用である。</p>
サイエンスカフェ	<ul style="list-style-type: none"> ・わが国では、2004年からサイエンスカフェが実施され、現在では産、官、学、民間（財団、NPO、市民グループ）等で約180団体が活動している。 ・北大CoSTEPの活動では、サイエンスカフェを通して、学生へのファシリテーションの演習や、体験型の試み、成果（効果）の解析等幅広く取り組んでいる。 ・熊大製政策造研究教育センターの活動では、パブリックインボルプメントの手法としての試みが実施されている（渡辺，2016）。 ・学習支援センターの活動では、11テーマの実験と工作が実施されている（赤澤&野田，2014）。 ・サイエンスアゴラに多くの団体が所属し、交流の場となっている。 ・海外のグループではCafe Scientifique（英）、Junior Cafe Scientifique（英）、sciencecafes.org（米）のWEBサイトがある。 	主催者によって異なり、20-30人規模から100名程度まで	主催者によって異なり、1日から連続で3回程度まで	<ul style="list-style-type: none"> 29都道府県38の団体（2006，2007年サイエンスカフェポスター展） サイエンスカフェポータルサイトに登録されている団体（180団体） <p><主な活動団体></p> <ul style="list-style-type: none"> 日本学術会議サイエンスカフェ（238回，共催含） 科学カフェ京都（134回） サイエンス・カフェ札幌（92回） 三省堂サイエンスカフェ（64回） ミニ・サイエンストーク（24テーマ） 東北大学サイエンスカフェ（134回） 東北大学リベラルアーツサロン（44回） 日立財団環境サイエンスカフェ（32回） カフェ DE サイエンス（60回） 武田計測先端財団Wecafe（57回） など 	<ul style="list-style-type: none"> ・上記の様式と比較して、短期間かつ少人数で実施することが出来る。 ・全国で様々な取り組みが実施されており、参考事例が多い。 ・コミュニケーションで内容や手法において試験的な取り組みが可能で、効果の検証を目的とすることが出来る。 ・上記より、最適な手法の様式であると考えられる。
ストーリーテリング	<ul style="list-style-type: none"> ・世界各地にみられる口承による言い伝えやお話は、この要素を含んでいるといわれる。 ・国語教育の「読み・書き」に加えて、「聞く・話す」ことの重要性が指摘されている。 			<ul style="list-style-type: none"> ・新しい情報を正しく、速やかに理解していくためには、具体的な論理構成と創造しやすい話（または画像）による本手法は効果的である。 	
理科実験（実験、観察、工作）	<ul style="list-style-type: none"> ・現代の「理科離れ」の原因の一つに体験型教育が不十分であることが指摘されている。 ・実際に見て、聞いて、感じるという実体験が、自然科学に対する興味や理解、考え方を深めることに貢献することが出来る。 			<ul style="list-style-type: none"> ・原子力や放射能の理解を深めるための教材を通して実体験させ、知識の理解と深下の一助とする。 ・既存の資料や情報とメディア機器を利用して、主体的な成果物を作成する。 	

6.3.3 処分システム評価確証技術の認知の拡大に関する試行

本節では、上記調査で示した方法論やコミュニケーション手法について、模擬ステークホルダを対象に実際に適用を試み、その有効性を評価する。具体的には、コミュニケーションを図るためのコンテンツを実際に作成し、上記で調査した方法論や手法を適用して、廃棄物対策としての地層処分概念の優位性に関する知識共有を目指したワークショップを実施し、その結果を分析することにより、個々の手法の有効性を分析する。

(1) ワークショップ

概要を前節の GPIO サイクルに当てはめて整理をすると、ワークショップでは、安全性の観点から非専門家に地層処分のメリットを理解してもらうことを目的として、上記方法論や手法を用いて、安全性に関するテーマで実施する。そして、地層処分の安全性についてどこまで理解できたかを考察し、方法論や手法の評価を行う。これらを GPIO サイクルで表示したのが以下の図である。

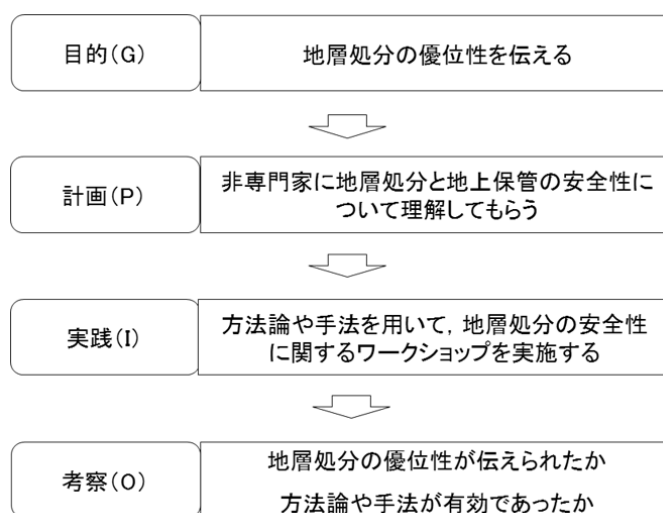


図 6.3.3-1 ワークショップにおける GPIO サイクル

具体的な手順としては、まず、調査した方法論やコミュニケーション手法の中から有効性が高いものを選定する。次に、「処分システム評価確証技術開発」のプロジェクトとして実施している項目に関する例題を設定する。また、ワークショップで内容の理解を促せるようなコンテンツを作成する。そして、放射性廃棄物の非専門家を対象に、選定された方法論及び手法や例題に基づいたワークショップを実施し、双方向コミュニケーションを通じた知識共有を試行する。この試行の経過や結果を分析することにより、手法等の適用性を評価する。

(2) ワークショップに用いる方法論及び手法

1) サービスデザイン

サービスデザインで用いられているカスタマージャーニーマップをワークショップの結果として用いる。ワークショップから、非専門家の地層処分の安全性に対する信頼度を向上させるために必要な要素を見つけ出すためには、顧客の満足度を向上するために必要なプロセ

スを検証できるカスタマージャーニーマップが有効だと判断されるためである。

2)サイエンスカフェ

双方向コミュニケーションのためには、スピーチのような話題提供者が一方的に語り掛けるのではなく、聴講者の非専門家も気軽に質問や意見が述べられるような雰囲気が必要である。そこで、サイエンスカフェ形式の場で実施することとした。

3)ストーリーテリング

地層処分の安全性という専門的かつ馴染みの無いテーマのため、非専門家には敷居の高いテーマとなり、また学会発表のような専門的な技術開発の説明となってしまう可能性もはらんでいる。そこで、内容をかみ砕き、物語風で説明する事で、不慣れなテーマを分かりやすく伝える事が可能となる。したがって、ストーリーテリング形式で説明を行うこととした。

4)フォーカス・グループ

ワークショップ参加者に対するインタビューの手法として、フォーカス・グループ形式をとる。紙形式によるアンケートだけであると、書かれる内容が端的になってしまったり、回答も参加者からの一方通行であったりと、参加者の意図している内容を正確に捉える事が難しい。また、他の参加者の発言内容を聞くことで、発言しやすい雰囲気になったり、新たな思考を思いついたり、ワークショップの内容が充実する。したがって、フォーカス・グループによるインタビューを行うこととした。

(3)ワークショップに用いる例題

ワークショップでは、処分場への人間侵入をテーマとする。人間侵入の説明には専門的な知識を多く用いる必要はなく、比較的イメージが湧きやすいテーマであるため、限られた時間で地層処分システムの安全性について話すテーマとして設定した。人間侵入は、一般に偶発的要因と人為的な要因が考えられる。偶発的要因とは、地下資源探索等を目的としている活動において偶発的に地下深部の処分場にアクセスしてしまう事象である。一方、人為的（意図的な）な要因としては、テロリスト等の悪意を持った人間が目的をもって意図的に地下の処分場にアクセスする事象である。

本ワークショップでは、このうち人為的な要因である「廃棄物の奪取」を目的とした集団による侵入をテーマとした。このため、集団による処分場への侵入の視点から高レベル放射性廃棄物等の処分の安全性に関わる説明を非専門家に対して行い、知識共有の度合いを測ることとした。

ワークショップの進行は、参加者8名と専門家1名に加え、ファシリテーターによるストーリーテリング形式のシナリオに沿って行った。参加者には、原子力発電及び高レベル放射性廃棄物に関心のある非専門家の20歳代、30歳代、40歳代、50歳代の男女各1名、計8名とした。また、参加者はシナリオに基づく集団の構成員の役柄（ロールプレイング方式）が与えられ、また参加者の議論の過程で生じる疑問などに答えるアドバイザーとして地層処分の専門家1名も参加し、シナリオに沿ったフェーズごとにワークシートを記入しながら質

問・意見交換をした。

(4) ワークシートの内容

ストーリーに関する前の質問として、環境問題や社会問題に関するアンケートをワークシートに記入する形で実施した。これは、高レベル放射性廃棄物の地層処分以外に、本ストーリーの背景となる「戦争・テロ」、「核兵器の開発・使用」に対する関心を確認するためである。また、ここでのアンケート内容は、昨年度に実施した Web アンケート内容と同じであり、社会情勢の変化等に伴う一般市民の関心の変化を確認することにも活用できる。例えば、フランスにおけるテロ、ジカウィルス感染症、熊本での地震等の影響により、社会の関心が増える等である。次に、各フェーズ特有の質問（フェーズ1なら、地上保管施設と地層処分施設、あなたはどちらのほうが侵入しやすいと思いましたか。）を行う。

(5) 各フェーズの進め方

フェーズ毎に作成された各侵入ルートシナリオに基づくスライドを用いて内容説明が行われ、説明後に参加者で議論を行った。シナリオに基づく内容説明においては、たとえば、地層処分を海底から侵入して廃棄物を奪取する作戦計画の場面では、100年後にマリンドリラーなる掘削機械が開発されていることを想定している。スライドの一部には、処分関係のWEBサイトで得られた情報も引用し、ストーリーにリアリティを加えている。また、スライドに基づく参加者のロールプレイングの過程では、必要に応じて、アドバイザーである専門家から補足説明が行われた。

(6) ワークショップ及び Web アンケートの結果の分析

1) カスタマージャーニーマップを用いたワークショップのまとめ

ワークショップの結果はカスタマージャーニーマップ形式にまとめた。参加者にはロールプレイング形式により違法侵入者という立場で処分施設に侵入するという疑似体験をしてもらい、その時に思った事、感じた事を基に同マップに反映した。このマップから、どの状況でどのようにどちらのシステムが侵入の観点から困難かが参加者によって評価され、それを基に高レベル放射性廃棄物対策についての双方向コミュニケーションの対象となる非専門家への今回のコミュニケーションの試みの有効性を判断できるようにして作成された地上保管と地層処分場それぞれのカスタマージャーニーマップを以下に示す。

① 地上保管施設のカスタマージャーニーマップ

地上保管施設のカスタマージャーニーマップを図 6.3.3-2 に示す。計画フェーズでは、地上施設の方が侵入の観点で難しいという意見があり、これは地層処分では地層の厚みによる深さがある分、警備が手薄になるという理由からである。準備フェーズでは、侵入者が被ばくすると意見が挙がっている。キャスクが持つ放射能の遮蔽性が一般市民の心配事である事が分かるので、保管状態のキャスクを始めとした遮蔽性についてのさらなる説明が必要かと思われる。実行フェーズでは、侵入に対する警備体制と回収に対する準備に関心が寄せられた。このため、警備体制の十分性を説明する事が大切である。輸送フェーズでは、輸送

方法に難があることが認識された。

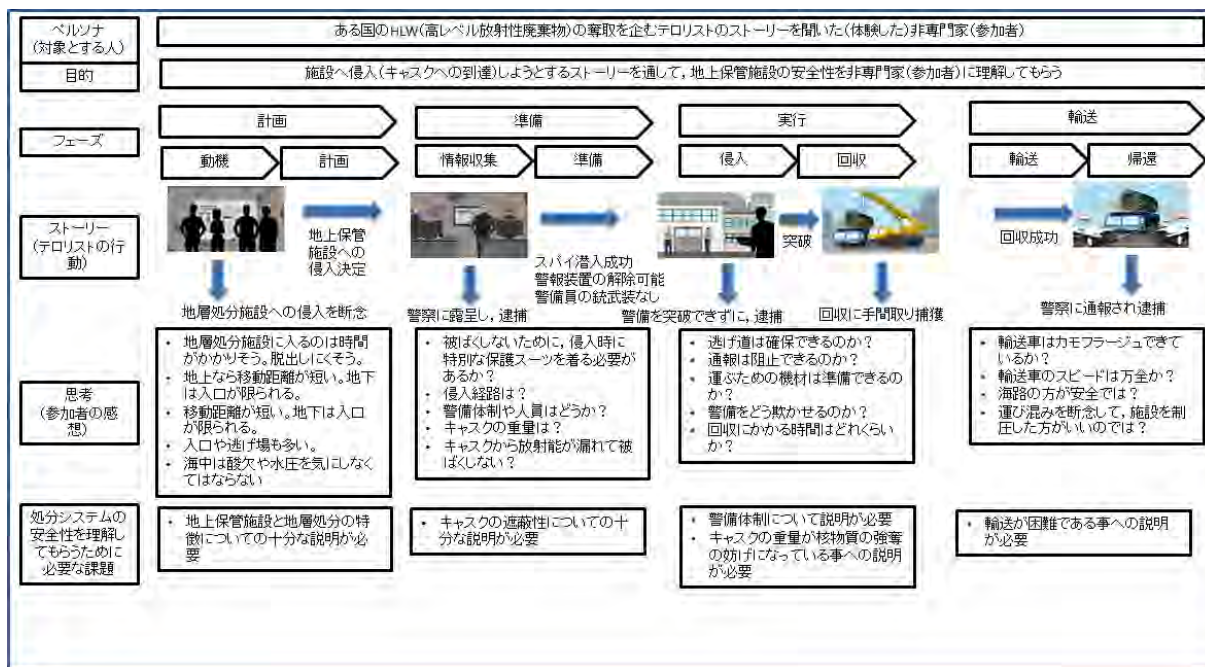


図 6.3.3-2 地上保管施設を対象とした集団の侵入

②地層処分施設のカスタマージャーニーマップ

地層処分施設のカスタマージャーニーマップを図 6.3.3-3 に示す。計画フェーズでは、被ばくを懸念してオーバーパックごと回収するという意見で一致した。さらに、地層処分場への侵入を実行できる環境を整えるため、マリンドリラー*という架空の掘削機械を想定した。この機械がなければ、ボーリングで回収を試み侵入者が被ばくする、もしくは地層処分場への侵入を諦める、の2種類となり、ストーリーが進まなくなるからである。準備フェーズでは、新型の機械の影響もあり、簡単に掘削できる意見が多かった。地層が果たすバリア機能（放射性核種の移行阻止でなく、人間の侵入阻止）について十分に説明する必要があると思われる。実行フェーズでは、新型機械が海底下の目的物に正確にたどり着けるかが話題となり、石油発掘で用いている圧力・温度等のセンサーをうまく活用すれば成功率が高まるという意見が多数上った。このような楽観的な印象を与えていることに対しては、地層処分が持つ深度というバリアを十分に説明する必要がある。輸送フェーズでは、海底火山の影響を心配する声も挙がった。海底火山はテロリスト侵入との関連性は薄いと思われるが、地層処分を考える過程において疑問が湧いてきたと思われる。このように、一つのテーマから複合的に地層処分について考えてもらえる機会となった事は有益な結果であり、これは地層処分の安全性を理解してもらううえでの望ましいプロセスの一つと思われる。

* : 海中を推進し、海底下の目標に向けて海底から掘削しながらアクセスすることができる有人の掘削マシン

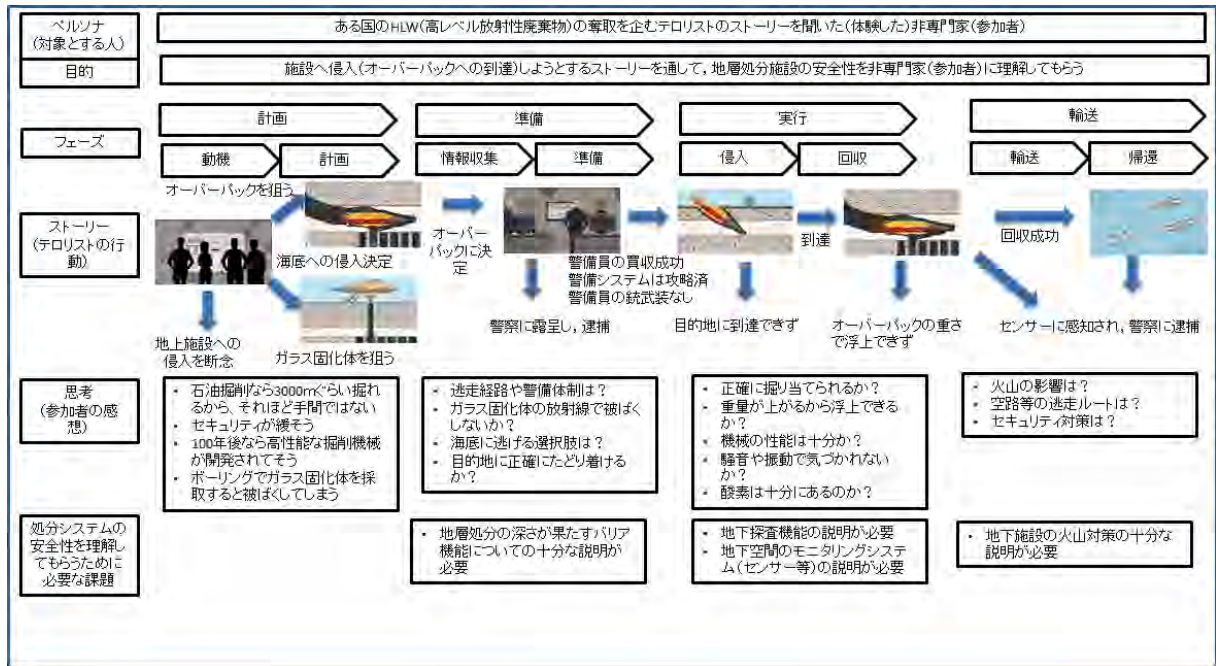


図 6.3.3-3 地層処分施設を対象とした集団の侵入

2) Web アンケート

地層処分の技術開発で得られた成果を Web で分かりやすく情報公開するため、Web アンケートも行った。アンケートに用いる例題は、ワークショップと同じ、高レベル放射性廃棄物対策の「地層処分」と「地上保管（暫定保管・貯蔵）」とした。本アンケートで用いるコンテンツは次に示す各団体の Web サイトで、見やすさ、分かりやすさ等を評価してもらった。

①NUMO : <http://www.numo.or.jp/chisoushobun/>

②地層処分ポータル : <http://chisoushobun.jp/>

③電気事業連合会 : <http://www.fepec.or.jp/nuclear/index.html>

調査対象は全国の 20 歳～69 歳の男女個人で、Web アンケートモニターから全国の性・年齢別人口比に応じて無作為抽出し、有効回収サンプル数が 1000 になるようにアンケートを行った。

「地層処分ポータル」は知りたい情報へのたどり着きやすさ、分かりやすさで一番であり、総合的な評価が高かった。次いで「NUMO」の評価が高く、電気事業連合会のサイトは、コンテンツの多さや階層の深さから、評価は高くなかった。「地層処分ポータル」が分かりやすい理由としては、「内容が頭に入りやすい」、「全体的にシンプルですっきりしている」などを挙げている。今回のアンケートでは、各ポータルサイトを見た後で、高レベル放射性廃棄物対策の方法についても質問している。「地層処分」と「地上保管（暫定保管・貯蔵）」のどちらを支持するかについては、「どちらともいえない」が 50.0%と半数を占めているが、どちらかを選択した答えをみると、「地層処分」は「地上保管（暫定保管・中間貯蔵）」の約 5 倍となっていて、サイトの内容を見て地層処分を選択した人も複数いる。一方、「地上保管（暫定保管・貯蔵）」を選ぶ人は、将来何が起こるか分からないことを理由に挙げる人が多かった。

6.4 まとめ

本章「処分事業に資するための処分システム評価確証技術の統合化」の主たる成果は、2つの項目（「(1)システム評価確証技術の統合化に関する試行」、「(2)処分システム評価確証技術の認知拡大に関する試行」）に大別される。このうち前者については専門家間のニーズに応じて従来から行われている技術の統合の実績があるが、後者については、地層処分で用いられる技術がとくに非専門家にとってはまったく馴染みのないものであるから、地層処分技術について非専門家の関心を引きつけ、その仕組みや原理の理解といった知識の共有を容易なものとしていくための取り組みが重要となっている。この観点から、これまで地層処分技術（事例として、火山等の自然事象の影響評価やナチュラルアナログ）のブランディング化に取り組み、そのブランドに対する共感や信頼といった非専門家にとっての価値を高めていく試みを行ってきた。今年度は、既存の双方向コミュニケーション（コミュニケーションデザイン）の考え方と手法を取り入れ、非専門家に対して地層処分技術（事例として、廃棄物施設への人間侵入評価）の知識共有を試みた。これら取り組みが有効に機能したかどうかの評価は主婦や学生等からなる非専門家グループへの事後評価のインタビューを通じて行い、その結果を評価し、次の段階に向けた改善点等を課題として抽出した。

参考文献

Adaptive path Website : <http://adaptivepath.org/>

- 浅木尚美 (2014) : ストーリーテリング (お話) と国語教育, 淑徳短期大学研究紀要, 53, pp. 53-67.
- Chambers, S. (2005): Measuring publicity's effect: Reconciling empirical research and normative theory, *Acta Politica*, 40 (2) , pp.255-266.
- クラール, J・マルゴス (2015) : サービス・デザイン入門, ビー・エヌ・エス新社.
- Dallas, D. (2016): *Cafe Scientifique Deja Vu*, *Cell*, 126, pp. 227-229.
- Grundahl, J. (1995): The Danish consensus conference model, *Public Participation in Science*, edited by Simon Joss and John Durant, Science Museum, p31.
- 郡伸子 (2013) : 地球規模での「科学技術への市民参加」はいかにして可能か? : 生物多様性に関する WWViews の討論過程の参与観察から, *科学技術コミュニケーション*, 13, pp. 31-46.
- 長谷川敦士 (2015) : 情報をわかりやすく伝える技術-情報アーキテクチャ, *情報の科学と技術*, 65 巻, 11 号.
- Hollnagel, E. (2012): *FRAM: The Functional Resonance Analysis Method: Modelling Complex Socio-technical Systems*, Ashgate.
- 池田佳代 (2012) : 人の成長を促す参加型教育の方法論-デジタル・ストーリーテリングのワークショップ分析-, *龍谷大学大学院政策学研究*, 1, pp. 1-19.
- 板倉信一郎 (2015) : わが国における地域インフラの維持・活用に向けたメディエーターの必要性.
- 板倉信一郎, 森栗茂一, 土井勉, 辻寛, 武知俊輔 (2016) : まち・みちづくりを通じた“公”の形成, *Communication-Design*, 14, pp. 1-18.
- 石田東生 (2001) : みちづくりと対話型行政, *道路行政セミナー*, 11(12), pp. 7-10.
- Joss, S. and Durant, J. (1994): *Consensus conferences: A review of the Danish, Dutch and UK approaches to this special form of technology assessment, and an assessment of the options for a proposed Swiss consensus conference*, London Science Museum, p12.
- 木場隆夫 (1999) : コンセンサス会議の社会的意義についての考察-日本とデンマークの比較を通して-, *総合政策*, 1(2), pp. 229-241.
- 小林信一, Hope, T. E., 草深美奈子, 両角亜希子 (2004) : 科学技術と社会の楽しい関係: *Café Scientifique (イギリス編)*, 産業技術総合研究所技術と社会研究センター.
- 小林傳司 (2004) : 誰が科学技術について考えるのか, 名古屋大学出版会, p406.
- 児玉耕太, 竹本寛秋 (2011) : サイエンス・カフェに「粘菌」の実物を持ち込むことから見る来場者の意識変化に関する考察: 科学技術コミュニケーションにおける実体験の重要性, *科学技術コミュニケーション*, 10, pp. 16. 32
- McWilliam, Kelly (2009) : "The Global Diffusion of a Community Media Practice:

Digital Storytelling Online,” John Hartley and Kelly McWilliam (eds.),
Story Circle: Digital Storytelling Around the World, Wiley-Blackwell,
pp. 37-75.

- 三上直之 (2007) : 実用段階に入った参加型テクノロジーアセスメントの課題 : 北海道
「GM コンセンサス会議」の経験から, 科学技術コミュニケーション, 1, pp. 84-95.
- 三上直之 (2009) : 「上流での参加」にコンセンサス会議は使えるか : 食品ナノテクに関
する「ナノトライ」の実践事例から, 科学技術コミュニケーション, 6, pp. 34-49.
- 三上直之 (2010) : 日本でのコンセンサス会議の展開とその課題, 計画行政, 33
(3), pp. 15-20
- 水越伸 (2016) : ラジオの奥底にあるもの : 古いメディアについての新しい覚書, 東京大学
大学院情報学環紀要, 90, pp. 39-53.
- 文部科学省 (2012) : 「熟議」の取り組み紹介スライド,
<http://www.mext.go.jp/jukugi/archive/582.pdf>
- 中村征樹 (2008) サイエンスカフェ 現状と課題, 科学技術社会論研究, 5, pp. 31-43.
- 新村出 (編) (2008) : 広辞苑, 第六版, 岩波書店.
- 日本学術会議 (2012) : 回答 高レベル放射性廃棄物の処分について, 2012年9月11日.
- 西條美紀 (2014) : コミュニケーションデザイン, くろしお出版, p216.
- 城山英明 (2010) : テクノロジーアセスメントの展望と課題, ジュリスト, 1409, pp. 2-6.
- 杉山公造, 永田晃也, 下嶋篤, 梅本勝博, 橋本敬 (2008) : ナレッジサイエンス, 近代科
学社.
- 鈴木達治郎 (2010) : テクノロジーアセスメント (技術の社会影響評価) と原子力政策, 駒
沢大学実践メディアビジネス講座Ⅲ, 講演資料.
- 須曾野仁志 (2009) : 全教科・領域で学習者がとり組めるデジタルストーリーテリングの実
践と原理, 科教研報, 24 (6), pp. 5-10.
- 田子學, 田子裕子, 橋本寛 (2014) : デザインマネジメント, 日経 BP 社.
- 田村哲樹 (編) (2010) : 語る 熟議/対話の政治学, 風行社, p56.
- 土屋裕子 (2015) : 世界で広がるデジタルストーリーテリング : 越境し変容するメディア実
践, メディアと社会, 7, pp. 77-84.
- 若松征男 (2010) : 科学技術政策に市民の声をどう届けるか : コンセンサス会議, シナリ
オ・ワークショップ, ディープダイアログ, 東京電機大学出版局, p242.
- 渡辺保史 (2001) : 情報デザイン入門, 平凡社.
- 八木絵香 (2010) : グローバルな市民参加型テクノロジーアセスメントの可能性 : 地球温
暖化に関する世界市民会議 (World Wide Views) を事例として, 科学技術コミュニ
ケーション, 7, pp. 3-17.
- 八木絵香, 中川智絵 (2011) : 科学技術に関するさまざまな論点を可視化する, 科学技術に
関する「論点抽出カフェ」の提案, Communication-Design, 4, pp. 47-64.
- 吉澤剛 (2009) : 日本におけるテクノロジーアセスメントー概念と歴史の再構築, 社会技術
研究論文集, 6, pp. 42-57.

7. 結言

7.1 平成28年度における主な成果

本事業において、得られた主な成果を以下に記述する。

2章「ニアフィールドのシステム変遷と核種移行を評価するための先端的技術の開発」では、処分場の閉鎖前から閉鎖後の長期にわたって処分場近傍（ニアフィールド）において発生することが想定される様々な複合現象と核種移行について、地質環境が本来的に有している不均質性等も考慮し、先端的な計算科学/分析技術の活用や深地層の研究施設での原位置試験等への適用に重点をおいて、それら評価技術を構築・確認することを目指して、5つのサブタスクを進めた。

まず、「システムの過渡的変化評価技術開発」として、処分システムで生じる過渡的変化がシステムの長期安全性に及ぼす影響を評価するため、これまでに整備を行った連成解析コードを用いて、既往の研究では考慮されていなかった処分場閉鎖直後からの地下水位の変遷を考慮したニアフィールドの化学的な環境の変化を定量的に示した。また、連成解析コードの改良を実施するとともに、緩衝材の力学モデルの高度化に資するデータを拡充した。オーバーパックの腐食挙動に関する調査については、幌延URLでの原位置試験に適用されている腐食センサーを用いて腐食モニタリングを継続するとともに、推定された腐食速度の妥当性を、同じセンサーを用いた室内試験における腐食速度の推定値と実際の腐食量との比較により確認した。また、従来の想定範囲を超える地下水水質でのオーバーパックの腐食試験、緩衝材の膨潤圧試験及び透水試験を継続しデータを拡充した。緩衝材間隙水のpHを連続的に把握するための計測技術として、光学式pHセンサーに用いる粒状発色材の呈色状況の確認を実施した。鉄-ベントナイトの相互作用評価に関しては、モンモリロナイトの変質環境を制御した条件での室内試験を実施し、異なる溶液条件や試験期間をパラメータにモンモリロナイトの変質量について評価を行った。

次に、「人工バリア中の核種移行に係る不確実性要因分析とそれに基づく性能評価技術開発」においては、緩衝材中の核種移行に係る最新の現象理解を反映したモデルの精緻化、システム変遷を考慮した評価を可能とするためのデータ整備及びモデル開発を進めた。圧縮ベントナイト中の収着・拡散挙動に及ぼす温度や層間イオン（Ca型化）の影響、及びコロイドろ過機能の成立条件に関する基礎データを取得した。また、先端的な分析技術を活用して、圧縮ベントナイト中の間隙構造をNMRによって定量的に評価するとともに、NMRやXAFS等によるCsやSeのモンモリロナイトへの収着メカニズムの解明に資する知見を得た。さらに、分子動力学計算技術及び量子化学計算技術を適用した評価によってモンモリロナイト中の収着・拡散モデルの裏付けとなる知見を拡充するとともに、それらを反映した収着・拡散モデルの精緻化を進めた。炭素鋼オーバーパックの腐食に伴うニアフィールドシステム変遷の影響評価に関しては、Fe(II)と核種のモンモリロナイトへの競合収着に係るデータを取得したほか、ガラス溶解への影響評価に資するためFe(II)とSiの相互作用によって生成する固相についての知見を得た。

第3に、「天然バリア中の核種移行に係る不確実性要因分析とそれに基づく性能評価技術開発」においては、岩盤中の割れ目等の不均質性や有機物・微生物等が核種移行に及ぼす影響評価手法に着目し、原位置試験とも連携したデータの拡充とモデルの高度化を進めた。岩石の割れ目等での核種移行に関する研究としては、スイスグリムゼル花崗岩のマトリクス部と割れ目部を対象に、鉱物・間隙の不均

質性の定量化と、その不均質性等をより忠実に反映したモデルの妥当性を確認した。また、スウェーデンのエスポ等の原位置試験データを活用して、これまでグリムゼル花崗岩を対象として整備してきた核種移行モデル及びデータの原位置への適用性を確認した。一方、幌延泥岩については、原位置トレーサー試験評価のための室内補完データを取得し、その結果も考慮した原位置試験結果の解析評価を行うとともに、地質環境の変遷等を考慮したより現実的な境界条件やパラメータを設定することによってナチュラルトレーサー分布を解釈できる可能性を提示した。有機物・微生物については、幌延の深地層研究施設から採取した地下水試料等を用いたデータ取得を進め、有機物については、低濃度のIII価核種との錯生成評価に対して信頼性の高いモデルパラメータを整備するとともに、地下水中の溶存有機物の組成分析から腐植物質の有機配位子としての代表性を確認した。一方、微生物については、地下水中での微生物コロイドの濃度やそれらへの希土類元素の分配係数について、異なる深度の地下水試料を対象にデータを拡充し、核種移行に対する影響評価に資するより現実的なパラメータセットの整備を進めるとともに、希土類元素に対して応答・活性化する微生物種の存在を確認した。また、幌延の深部地下環境に存在する微生物特性（群集組成等）の評価における遺伝子解析技術の適用性を確認した。

第4に、「セメント系材料影響評価技術開発」においては、セメント系材料の長期挙動評価モデルの開発として、マグネシウムシリケート水和物の溶解度データ、及びカルシウムシリケート水和物と海水成分との相互作用に関するデータを取得し、低アルカリ性セメント（HFSC）の化学モデルに反映させるとともに、コンクリートの割れの発生・進展について、セメント系材料の溶脱および鉄の腐食の進展による力学特性の変化を考慮して解析するための力学解析モデルの高度化を図った。核種移行への影響評価では、セメント環境中での収着挙動に関する実験的調査として、アルカリ性水溶液中におけるナトリウム型及びカルシウム型ベントナイトに対するニオブ及びモリブデンの収着分配係数を取得した。また、セメント系材料によるニアフィールド岩盤への影響の把握のため、瑞浪超深地層研究所で採取されたグラウト材料を含むボーリングコア試料の観察・分析を行い、原位置で生ずる地下水-セメント系材料-周辺岩盤の相互作用についてのデータの蓄積を図った。

最後に、「ニアフィールド複合現象／核種移行の体系的評価に向けた技術開発」については、先端的な計算科学を取り入れたニアフィールド総合評価技術として、鉄腐食膨張によるコンクリートのひび割れ発生・進展とこれに対する化学的変質による影響を例題とし、化学-物質輸送-力学現象に跨るフィードバックループを反映して現象解析を行うためのニアフィールド複合現象解析モデルの開発を実施した。ひび割れの進展や化学的変質に伴う場の物質輸送特性の変化とそれに伴う場の化学的条件の変化を反映して核種移行解析を実施するニアフィールド核種移行解析モデルの開発を進めた。

3章「多様な廃棄物の共処分に於けるニアフィールドの影響評価技術開発」の主たる成果は、2つに大別される。まず、「廃棄物の特性を踏まえた共処分概念の影響評価技術開発」として、模擬アスファルト固化体を対象に従来から特にデータが不足している低温領域における発熱量測定を行いデータの蓄積を図った。得られたデータを参考に、アスファルトと硝酸塩の温度による固液状態の変化やアスファルトと硝酸塩の反応によって生じる生成物層の影響を考慮したモデルを構築し、発熱速度式の定式化を行った。平成27年度まで検討を行ってきた単純なアレニウス型のモデルよりも測定結果をより良く再現できることが確認された。さらに、定式化された発熱速度式を用いて、地層処分環境にお

けるアスファルト固化体の熱反応暴走に至る最低温度を195℃と評価し、アスファルト固化体処分における熱反応暴走を誘発する可能性がある微生物活動による発熱及び高温流体の接近について、評価を行ったが、現時点の知見ではこれらの事象による熱反応暴走の誘発の可能性は小さいことが明らかとなった。新たに、処分施設操業時におけるトンネル火災を想定した熱反応暴走の可能性については、発火要因や燃えるものを持ち込まないなどの対策が講じられることにより、その発生の可能性は低いことが示された。さらに、硝酸イオン化学的変遷挙動評価モデルの信頼性向上を目的とする確証試験を実施した。還元性鉱物との反応による化学的変遷モデルを対象にアンプル試験及びカラム試験を実施し、化学変遷モデルとの解析結果と比較した。アンプル試験（温度80℃以下、300日間）の結果は、解析結果と概ね整合的であったが、経時的なデータ点数が少なく、モデルの適用性を評価する上で十分ではなかった。カラム試験（温度80℃）については、試験結果をうまく再現できないケースがあったが、化学変遷モデルの反応式より、むしろ硝酸イオンの拡散係数の設定に問題があると考えられた。自然界における硝酸性窒素の汚染事例に対するモデルの適用性については、広島県生口島での事例について新たな情報を基に再度解析を行うとともに、カナダのBoyne川近傍の事例とも合わせて、ナチュラルアナログ事例解析結果を取りまとめた。バリア候補材料への影響については、硝酸塩に由来するアンモニア等による緩衝材への影響を調べるための変質試験及び分子動力学計算による検討を行った。乾湿繰り返し試験によりアンモニウム型モンモリロナイトの非膨潤鉱物への変質を観察したところ、繰り返し回数75回においても、X線回折分析からは非膨潤鉱物への変質は確認されなかった。分子動力学計算においては、昨年度まで実施してきた混合エンタルピーによる水和挙動の評価において、相対湿度での評価が可能となるように化学ポテンシャルによる計算を実施し、低湿度側ではイオン半径と水和エネルギーが類似したKとNH₄の挙動が異なることが計算からも支持された。さらに、バリア材料中のモンモリロナイトのアンモニウム型への交換を定量的に取り扱うため、Na-モンモリロナイトへのNH₄吸着試験より陽イオン交換係数を取得した。廃棄体由来化学物質として、セルロースの分解生成物であるイソサッカリン酸 (ISA) について、ジルコニウム及びウランの溶解度に及ぼす影響について調べた。ジルコニウムについては、ISA濃度に応じてコロイドが生成されることが確認された。ウランについては、4価の酸化状態について、溶解度の実験値を概ね再現できる熱力学データを得ることができた。6価の酸化状態についても熱力学データを得たが、溶解度実験値のpH依存性について、改善の余地があることが示された。

次に、「多様な廃棄物の影響を考慮した共処分概念案の構築」においては、硝酸を含む廃棄物の処分施設の配置を変えた2種類のレイアウトに対して硝酸塩と核種 (I-129) の移行計算を行った。I-129の移行パラメータについては、硝酸イオンの濃度の関数として定義し、連続的に移行パラメータが変化する設定とした。地下水の流向に対して、処分坑道から下流側100mの面のI-129の流束から線量に換算したが、I-129の線量の最大値に大きな違いが見られないことが分かった。

4章「過酷事象の地層処分システムへの影響に関する評価確証技術開発」における(1)「地層処分システムにおける過酷事象の概念構築」では、地層処分システムにおける過酷事象の評価手法を高度化することを目的として、平成27年度までに整備した過酷事象の検討フローに基づき、これまでに気付かなかった事象・プロセスの連鎖を発想しやすくするという観点から、人への甚大な影響を起点としたアプローチ、及び不安や懸念を起点としたアプローチに対する具体的な手順を整備した。また、人

への甚大な影響を起点としたアプローチに基づき、吸入被ばくに対する事象・プロセスの連鎖の探索を試行した。さらに、不安や懸念を起点としたアプローチに基づき、発端事象に着目して懸念事項リストを拡充するとともに、発端事象を起点として環境変化、地層処分システムへの影響、安全機能の変化までの一連の関係を明らかにした。

次に、(2)「巨大地震・断層活動を事例とした評価技術開発」のうち、1)「安全機能に着目した評価手法の開発」では、過酷事象に関係し得る安全機能の状態や個別現象を探索するための基礎情報とすべく、巨大地震・断層活動に関連する最新の科学的な知見を取りまとめ、関係者で共有・記録するための「情報共有シート」として整理した。さらに、情報共有シートを活用しつつ、感度解析を含む「安全機能の分析」と「個別現象の調査・評価」を反復的に行うことで、過酷事象につながる現象やその条件を抽出し、重要度評価につなげるための一連の手順を具体化した。

2)「巨大地震・断層活動に関連した個別現象の調査・評価」では、①「起因事象としての断層の特性」において、サイト選定段階で回避する天然事象として挙げられている断層に対して、回避条件を満足させてもなお残る不確実性への対応を目的として、断層の活動を起因として過酷事象に至るシナリオ探索、及び影響評価を実施するにあたり必要となる断層の考え方について検討を行い、既往の内陸型地震で最大であった濃尾地震の規模であるマグニチュード8.0を想定し、これに対する断層の規模や空間的分布を経験式や既往の活断層データより設定した。また、既往の水理試験の調査結果より、断層破砕帯の透水係数が母岩よりも1~2オーダー高いことなどが確認された。②「断層のずれによる人工バリアのせん断変形の影響」では、模擬岩盤と模擬オーバーパックが衝突する断層模擬せん断衝突模型実験を実施し、断層模擬せん断実験の再現解析及び設計用実寸法の人工バリアの3次元モデルによる非線形大変形せん断衝突解析を実施した。この結果、最大級のM8.0クラスの断層ずれが直撃してもオーバーパックの破損の可能性は小さいことがわかった。③「地震動による人工バリア・処分施設への影響」では、処分場閉鎖後の人工バリアを対象として、人工バリアと周辺岩盤の2次元地震応答解析（全応力）を実施し、オーバーパックが岩盤に接するまでに要する入力地震波の加速度振幅倍率・加振回数は、通常では考えられない非現実的な大きな値が算定された。巨大地震による立坑への影響については、立坑周辺岩盤においてEDZは拡大せず、透水性の増大する可能性は低いと評価された。

3)「個別現象の分析及び影響評価の試行」として、①「個別現象に関する分析」では、処分システムの安全機能に影響を及ぼす可能性のある個別現象として、a. 起因事象としての断層の特性、b. 深部流体の影響、c. 地表水の流入の影響、d. 断層のずれによる人工バリアのせん断変形の影響、e. 母岩の透水性への影響、f. 地震動による人工バリア・処分施設への影響、g. 断層起源ガスの発生の影響の7種類の現象に着目し、それぞれ個別現象研究を進めるとともに、科学的な知見を反映して過酷事象に関係し得る安全機能の状態や個別現象を探索するための基礎情報として、「情報共有シート」を作成した。②「個別現象の分析を踏まえた影響評価の試行」では、情報共有シートを用いて地震・断層活動に関する最新情報を調査・分析した結果、起因事象として考慮しうる最大規模の断層の形状と影響範囲、及び物理・科学的に可能性のある最も過酷な安全機能の劣化・喪失の状態とその組み合わせを明らかにした。

5章「可逆性と回収可能性などを考慮した地層処分システム概念の提示」では、平成25年度より3つの項目（「①レジリエンス的視点に基づく地層処分システムのロバスト性概念の検討」、「②公正性

に根ざした合意形成型の処分概念の構築手法の開発」、「③合意形成の促進に資するモニタリング技術等の検討・開発」)に大別して検討を行ってきたが、平成27年度からは成果の集約取りまとめに向け、これまでの成果をもとに、「(1)閉鎖後長期安全性に関するロバスト性の高い地層処分システムの概念構築」、「(2)受動的な安全系へ推移するまでの期間におけるレジリエンス的取り組みの具体化」、「(3)多様なステークホルダ間の合意形成に向けた協働」として検討を行ってきた。今年度は、後者の「(3)多様なステークホルダ間の合意形成に向けた協働」に焦点をあて、これまでのパブリックコメント等での非専門家からの処分概念に対するニーズを「市場の声」として抽出し、それに対応する処分概念の技術的・社会的因子とを品質機能展開の手法を導入し関連付けを行った。その中で主要な市場の声に対する事例として3つの概念(CARE型地下施設概念、処分場の見える化、市民参加と合意形成)を提案し、学生や有識者による処分場概念構築ワークショップを開催し、提案概念の補強を行った。その結果、CARE型地下施設概念については、地下施設を開放している期間に応じて閉鎖後の性能に影響を与えるリスクが増大することから、2つ目の概念である処分場の見える化の技術も取り入れ、ベントナイトの代わりにレジジン(樹脂)を用いた透明のCARE型地下施設の概念を提案した。市民参加と合意形成を取り入れた概念としては、NIMBY問題や世代内/世代間の公平性に配慮する観点から、従来の1箇所の集中型ではなく、複数の地点に廃棄体を配分するという分散配置の概念を事例として示した。これら多様なステークホルダを模擬したグループを対象に本件ではフォーカスグループインタビューやワークショップを行ってきたが、そのような少人数の議論で出た結果が、どの程度安定しているか、メンバーや条件が変わったら全く異なってしまうものなのかといった点について確認することを目的に、議論の過程での参加者の態度変容の時系列データを基にマルコフ連鎖モデルを作成し、モンテカルロシミュレーションを行った。その結果、ステークホルダへの説明順序や、最初の意見分布(初期状態)、参加者グループごとの態度変容の傾向への依存性が推測されるとともに、母集団のサイズも90人程度になると意見の分布が安定してくる傾向が見られた。さらに分析の適用性を高めるためには、今後、例題への試行を通じて知見の蓄積と手法の改良を行うことが重要となる。

6章「処分事業に資するための処分システム評価確証技術の統合化」の主たる成果は、2つの項目(「(1)システム評価確証技術の統合化に関する試行」、「(2)処分システム評価確証技術の認知拡大に関する試行」)に大別される。このうち前者については専門家間のニーズに応じて従来から行われている技術の統合の実績があるが、後者については、地層処分で用いられる技術がとくに非専門家にとってはまったく馴染みのないものであるから、地層処分技術について非専門家の関心を引きつけ、その仕組みや原理の理解といった知識の共有を容易なものとしていくための取り組みが重要となっている。この観点から、これまで地層処分技術(事例として、火山等の自然事象の影響評価やナチュラルアナログ)のブランディング化に取り組み、そのブランドに対する共感や信頼といった非専門家にとっての価値を高めていく試みを行ってきた。今年度は、既存の双方向コミュニケーション(コミュニケーションデザイン)の考え方や手法を取り入れ、非専門家に対して地層処分技術(事例として、廃棄物施設への人間侵入評価)の知識共有を試みた。これら取り組みが有効に機能したかどうかの評価は主婦や学生等からなる非専門家グループへの事後評価のインタビューを通じて行い、その結果を評価し、次の段階に向けた改善点等を課題として抽出した。

7.2 おわりに

本年度はプロジェクトの開始から4年目に当たる。昨年度実施したワークショップでの国内有識者からの意見を反映し、本プロジェクトを実施している。これによりプロジェクト成果の有効性が高まるとともに、地層処分システムが、ステークホルダーにとってより納得のいく (Convincing) ものとなることを期待している。

付録1

平行平板モデルにおける割れ目およびマトリクスの核種移行支配方程式
と定流量通液試験に用いたパラメータ一覧

(1) モデル形状および核種移行支配方程式

定流量通液試験に用いた平行平板モデルにおける概略を図1に示す。また、割れ目中の移流・分散および、マトリクス部の収着・拡散に関する核種の移行方程式を図2に示す。

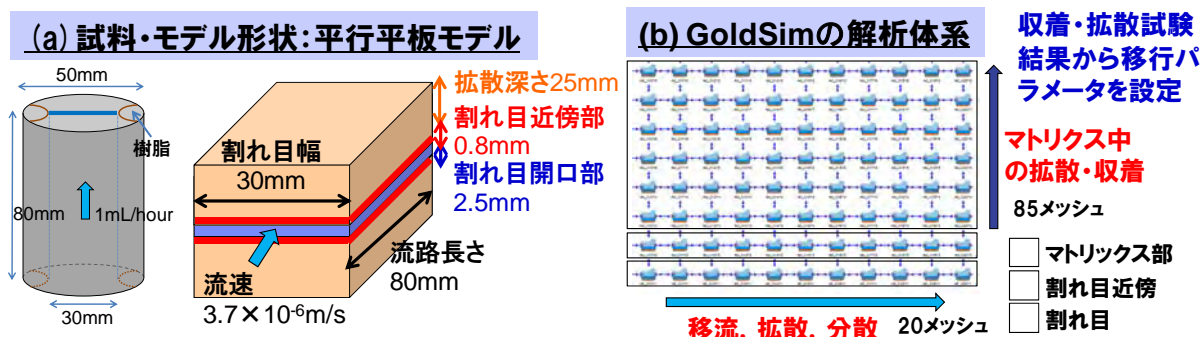


図1 平行平板モデル概略図

①割れ目中

$$\frac{\partial C_n^f}{\partial t} + v \frac{\partial C_n^f}{\partial x} - D_L \frac{\partial^2 C_n^f}{\partial x^2} - \frac{D_e^m}{b} \frac{\partial C_n^m}{\partial y} = 0$$

割れ目内分散係数[m²/s]

$$D_L = \alpha_L v + D_0$$

実効拡散係数[m²/s]

$$D_e^m = \theta^m D^m$$

パラメータ	単位
v	割れ目内流速 [m/s]
b	割れ目開口幅の1/2 [m]
α_L	分散長 [m]
D_0	自由水中の拡散係数 [m ² /s]
θ^m	マトリクスの間隙率 [-]
D_e^m	マトリクス部の間隙中の拡散係数 [m ² /s]
C_n^f, C_n^m	割れ目,マトリクス部における核種濃度 [mol/m ³]
ω	マトリクス拡散深さ [m]
ρ^m	乾燥密度 [kg/m ³]
Kd_n^m	分配係数 [m ³ /kg]

添え字nおよびmはそれぞれ核種およびマトリクス部を示す

②マトリクス中

$$R_n^m \frac{\partial C_n^m}{\partial t} - D_e^m \frac{\partial^2 C_n^m}{\partial y^2} = 0$$

マトリクス中の遅延係数

$$R_n^m = 1 + \frac{\rho^m Kd_n^m}{\theta^m}$$

(初期条件)
 割れ目およびマトリクス中全域でトレーサ初期濃度はゼロ： $C_n^f(x, 0) = 0, C_n^m(x, y, 0) = 0$
 (境界条件)
 割れ目への注入量と流出量一定： $V = \text{constant}$
 割れ目入口でのトレーサ濃度は一定： $C_n^f(t) = C_0$

図2 割れ目およびマトリクスに関する核種移行支配方程式

(2) 均質系モデル

均質系モデルにおけるパラメータを表1および表2に示す。

表1 均質系モデルにおけるパラメータ

パラメータ	値	単位
b : 割れ目開口幅の1/2	1.25×10^{-3}	[m]
v : 割れ目内流速	3.70×10^{-6}	[m/s]
α_L : 分散長	3.85×10^{-4}	[m]
ω : マトリクス拡散深さ	0.025	[m]
θ^m : 間隙率	0.0185	[-]
ρ^m : 乾燥密度	2660	[kg/m ³]

表2 均質系モデルにおける各核種のパラメータ

	自由水中の 拡散係数 m ² /s	実効拡散係数 m ² /s	収着分配係数 m ³ /kg	通水液濃度 mol/L
HDO	2.24×10^{-9}	2.89×10^{-12}	0	4.99×10^{-4}
I	2.00×10^{-9}	1.31×10^{-12}	0	1.00×10^{-5}
Cs	2.07×10^{-9}	7.45×10^{-12}	1.04×10^{-3}	1.00×10^{-5}
Se	9.46×10^{-10}	6.05×10^{-13}	4.48×10^{-5}	1.00×10^{-4}
Ni	6.79×10^{-10}	8.66×10^{-13}	0.203	1.00×10^{-6}
Eu	2.24×10^{-9}	3.52×10^{-13}	0.587	1.00×10^{-6}

(3) 2層モデル

割れ目表層から 0.0-0.8mm の区間の空隙率を 0.015、実効拡散係数および分配係数を表 3 に示す。また、マトリクス部の実効拡散係数および分配係数を均質系のパラメータに同じとした。

表3 2層モデルにおける 0.0-0.8mm 層の実効拡散係数および分配係数

	実効拡散係数 m ² /s	収着分配係数 m ³ /kg
HDO	1.74×10^{-12}	0
I	9.57×10^{-13}	0
Cs	4.42×10^{-12}	0.068
Se	4.42×10^{-13}	2.63×10^{-4}
Ni	5.20×10^{-13}	2.03
Eu	2.57×10^{-13}	5.87

(4) 3層モデル

割れ目表層から 0.0-0.2mm の区間の空隙率を 0.24 に乾燥重量を 2022 kg/m³ とし、実効拡散係数および分配係数を表 4 に示す値とした。また、割れ目表層から 0.2-0.8mm の区間の実効拡散係数および分配係数を表 3 の値とし、マトリクス部は均質系のパラメータに同じとした。

表 4 3層モデルにおける 0.0-0.2mm 層の実効拡散係数および分配係数

	実効拡散係数 m ² /s	収着分配係数 m ³ /kg
H ₂ O	3.75×10^{-11}	0
I	1.70×10^{-11}	0
Cs	9.66×10^{-11}	0.068
Se	7.85×10^{-12}	2.63×10^{-4}
Ni	1.12×10^{-11}	2.03
Eu	4.56×10^{-12}	5.87

付録 2

低アルカリ性セメントの水和反応モデル

HFSC 水和反応モデルでは、OPC の水和物と、未水和フライアッシュ及び未水和シリカフェームを出発とし、これらのポゾラン物質が Shrinking Core モデルの反応式に伴い液相に対して溶出した成分と、その時点で固相に存在する成分とが瞬時に平衡に到達するものと仮定した。

1. Shrinking Core モデルの概要

友澤（1974）は、Shrinking Core モデルを適用したセメントの水和反応モデルとして、図 1 に示す粒子の反応を想定した式 1～式 4 を提案している。なお、上記の文献では未反応率を α とした式で示されているが、ここでは反応率を α とした式に変換した。このモデルは、付加的、補正的なパラメータや項が少なく、基本的な水和反応のモデルに則していることが特徴として挙げられる。従って、本検討ではこれを基本モデルとして用いることとした。

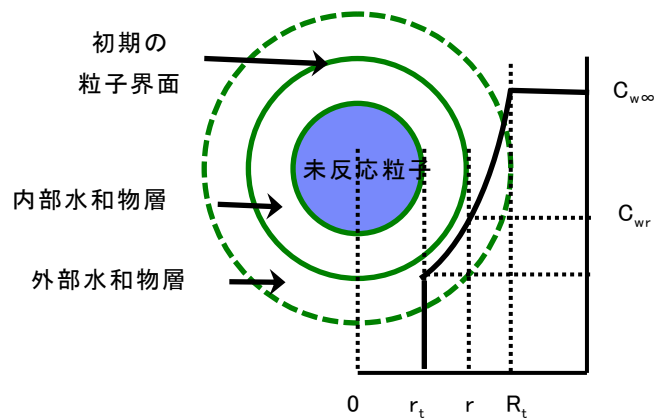


図 1 Shrinking Core モデルにおける粒子の反応の概念図（友澤, 1974）

$$\frac{d\alpha}{dt} = \frac{3C_{w\infty}}{\nu\rho_c r_0^2} \left(\frac{1}{\frac{1}{k_d r_0} + \frac{(1-\alpha)^{-1/3} - (1+\alpha)^{-1/3}}{De} + \frac{1}{k_r r_0 (1-\alpha)^{2/3}}} \right) \quad (1)$$

α : 反応率 (—)

t : 時間 (hour)

$C_{w\infty}$: 水の存在濃度 (=1.0)

ν : 水とセメントの反応の化学量論比 (セメントでは 0.12)

ρ_c : 未反応セメントの比重 (セメントでは 3.15)

r_0 : 反応開始前の未水和セメントの粒子半径 (cm)

k_d : 物質移動係数 (cm/hour)

k_r : 反応面単位面積あたりの反応速度係数 (cm/hour)

De : 水和生成物相中の水の有効拡散係数 (cm²/hour)

また、式 1 中の K_d , De については反応率 α の関数として次のように与えている。

$$k_d = \frac{B_d}{\alpha} + C_d \alpha^2 \quad (2)$$

$$De = D_E \left(\ln \frac{1}{\alpha} \right)^2 \quad (3)$$

ここで、 k_d , De は温度 θ の影響を反映させたものとし、式 2、式 3 の各係数については、式 4 の通り与えている。下式の係数において、20 の添え字があるものは、温度 20℃におけるそれぞれの値である。

$$\left. \begin{aligned} B_d &= B_{d20} \sqrt{\theta/293} \\ C_d &= C_{d20} \cdot \exp\{-\beta_1(1/\theta - 1/293)\} \\ k_r &= k_{r20} \cdot \exp\{-\beta_2(1/\theta - 1/293)\} \\ D_E &= D_{E20} \cdot \exp\{-\beta_3(1/\theta - 1/293)\} \end{aligned} \right\} \quad (4)$$

2. フライアッシュの水和反応モデル

式 1 に示す既存のモデルでは、 kr (反応粒子界面における反応面単位面積あたりの反応速度係数) を含む項には、水和反応の進行に伴って変動するようなパラメータは含まれておらず、温度を固定すると k_r は一定値となる。一方、フライアッシュ溶解速度の pH 依存性に関する実験的検討 (日本原子力研究開発機構, 2015) では、フライアッシュの溶解速度は pH に対する依存性を持ち、溶液の pH が低くなるほど溶解速度は低下することが示されている。そこで、ここではフライアッシュやシリカフェームの水和の進行による間隙水 pH の低下により、フライアッシュの反応速度は低下するものと考え、この現象をモデルへ反映させることとした。具体的には、間隙水 pH の変化によるフライアッシュ反応速度の変化を反映させるため、 k_r に対して間隙液中の水酸化物イオンの活量の影響を受ける項を追加し、フライアッシュの反応率を式 5 の通り与えることとした。

$$\frac{d\alpha}{dt} = \frac{3C_{w\infty}}{v\rho_c r_0^2} \left(\frac{1}{\frac{1}{k_d r_0} + \frac{(1-\alpha)^{-1/3} - (1+\alpha)^{-1/3}}{De} + \frac{1}{x(a_{OH^-})^y \cdot k_r r_0 (1-\alpha)^{2/3}}} \right) \quad (5)$$

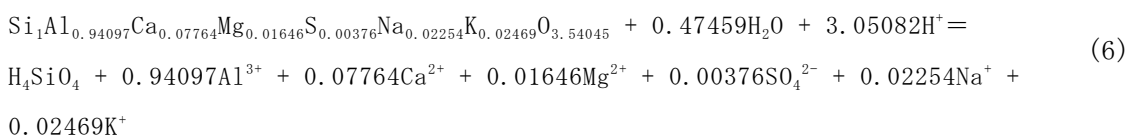
ここで、 a_{OH^-} ：水酸化物イオンの活量，

x, y ：パラメータ

ρ_c には本報で用いたフライアッシュの分析結果に基づき 2.19 を、 R_0 には 0.0005 (cm) を用いた。水とフライアッシュの化学量論比である ν には、Narmluk et al. (2011)が用いている 0.1 を与えた。その他のパラメータについては、実験結果とのフィッティングから得られた値を与えた。

また、フライアッシュの化学組成に基づいて、Si のモル量を 1 とした組成式を $Si_1Al_{0.94097}Ca_{0.07764}Mg_{0.01646}S_{0.00376}Na_{0.02254}K_{0.02469}O_{3.54045}$ と設定し、対応する水和反応式を式 6 のように設定した。実際のフライアッシュ中には Fe の含有も認められるが、現状の水和物溶解沈殿モデルでは、Fe の溶解析出反応は考慮しないものとしていることから、組成式には Fe は含まれないものとして与えた。フライアッシュについては、実際には単一の組成を持つ鉱物からではなく、ガラス相、クォーツ、ムライトなどの鉱物から成っている。従って、実際の現象をより忠実に再現するといった観点からは、これら各鉱物に対してモデルを設定するのが好ましいとも考えられるが、ここではより簡便化されたモデルであること、また概略的な HFSC の水和反応評価が可能であることなどを踏まえ、フライアッシュを単一相とみなすこととした。

フライアッシュの反応式

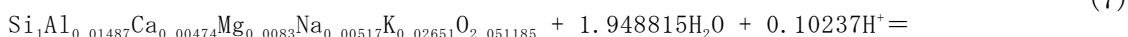


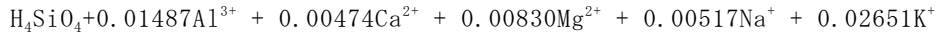
3. シリカフェームの水和反応モデル

シリカフェームの反応率についても、フライアッシュと同様に前項の式 5 に示される反応速度の関数を適用した。 ρ_c には本報で用いたシリカフェームの分析結果に基づき 2.22 を、 R_0 には 0.00001 (cm)を用いた。その他のパラメータについては、実験結果とのフィッティングから得られた値を与えた。本年度は、水とシリカフェームの化学量論比である ν には、後述の反応式 7 から算出した値として 0.56 を与えた。

また、シリカフェームの化学組成に基づいて、Si のモル量を 1 とした組成式を $Si_1Al_{0.01487}Ca_{0.00474}Mg_{0.0083}Na_{0.00517}K_{0.02651}O_{2.051185}$ と設定し、対応する水和反応式を式 7 のように設定した。フライアッシュの場合と同様、組成式には Fe は含まれないものとして与えた。

シリカフェームの反応式





4. HFSC の水和反応挙動評価

前項で示したフライアッシュ及びシリカフェームの水和反応モデルを、本文の 2.5.1(2) 項、表 2.5.1-11 に示した水和物溶解沈殿モデルに組み込むことにより HFSC の水和反応モデルを構築し、HFSC の経時的な水和反応挙動の解析に用いた。HFSC 水和反応モデルの概要を以下に示す。

はじめに、HFSC の初期鉱物の設定方法を以下に示す。HFSC 中の OPC については、水和反応の開始段階（材齢 0 日）で既に水和が完了した状態にあるものと仮定し、OPC の水和に起因する成分を水和物として与えた。この OPC 起源の水和物の組成は、OPC の化学組成に、その含有率を乗じた化学分量をもとに化学量論的に求めた。初期状態として与えた OPC 硬化体の設定水和物を表 1 に示す。

フライアッシュとシリカフェームの水和反応モデルにおけるパラメータの設定値を表 2 に示す。それぞれが反応して間隙に溶出した成分と水和物が新たな平衡に到達する際の固相及び液相の計算には、本文の 2.5.1(2) 項、表 2.5.1-11 に示した水和物溶解沈殿モデルを用いた。なお、平衡計算のプログラムの都合上、設定を要するフライアッシュ及びシリカフェームの化学反応式 6、式 7 の平衡定数には、便宜的に十分に大きな値 ($\log K=100$) を設定した。

以上の条件のもと、HFSC の水和反応評価を行った。

表 1 初期状態として与えた OPC 硬化体の設定水和物

セメント種類	設定水和物
OPC 硬化体	Portlandite、CSH(1.65)、NaOH(s)、KOH(s)、Ettringite-Al、Monosulfate-Al、Katoite-Al、Katoite-Fe、Hydrotalcite-M4A

表 2 水和反応モデルにおけるフライアッシュ及びシリカフェームのパラメータの設定

係数	シリカフェーム	フライアッシュ	係数	シリカフェーム	フライアッシュ
$C_{w\infty}(-)$	1.0	1.0	$B_{d20}(cm/hour)$	7.0×10^{-9}	7.0×10^{-9}
$\nu(-)$	0.56	0.10	$C_{d20}(cm/hour)$	1.0×10^{-2}	1.0×10^{-2}
$\rho_c(-)$	2.22	2.19	$D_{E20}(cm^2/hour)$	8.0×10^{-15}	8.0×10^{-15}
$r_0(cm)$	0.00001	0.0005	$\beta_1(-)$	1	1
$k_{r20}(cm/hour)$	4.0×10^{-2}	4.0×10^{-2}	$\beta_2(-)$	1	1
$x(-)$	1	1	$\beta_3(-)$	1	1
$y(-)$	3.5	3.5			

参考文献

友澤史紀 (1974) : セメントの水和反応モデル, セメント技術年報, No. 28, 53-57.

Narmluk, M., Nawa, T., (2011) : Effect of fly ash on the kinetics of Portland cement hydration at different curing temperatures, Cement and Concrete Research, 41, 579-589

日本原子力研究開発機構(2015): 平成 26 年度 地層処分技術調査等事業 セメント材料
影響評価技術高度化開発報告書 平成 27 年 3 月.

付録 3

化学物質輸送解析に用いるパラメータ

ニアフィールド総合評価プラットフォーム（本文 2.6 章参照）に含まれる共通モデル・シナリオ及び共通データベースの整備の一環として、化学-物質輸送解析に用いるパラメータ（熱力学データ、反応速度データ等）の整理を行っている。本付録ではそれらの詳細について記載する。前年度からの主な変更点は、熱力学データベースの更新（JAEA β -TDB v1.06→v1.07）である。

なお、本文中の 2.6.4(1)における、化学-物質輸送(GARFIELD-CHEM)-力学(DEAFRAP)連成を用いた小領域の解析においては、計算負荷軽減のため簡略化したパラメータセットを用いている（「付録 3 6. 化学-物質輸送-力学連成解析で用いたパラメータ」参照）。

1. 各材料の仕様

1.1 緩衝材（ベントナイト）

緩衝材の仕様については表 1 に示す通り、TRU 廃棄物処分技術検討書－第 2 次 TRU 廃棄物処分研究開発取りまとめ－（電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構，2005；以下、「第 2 次 TRU レポート」と称す）における降水系地下水を用いた設定に従うものとする。なお、モンモリロナイトは Na 型、Ca 型、K 型、Mg 型、及び Fe 型が存在するものとし、それぞれの比は初期の交換性陽イオン組成の比とする。

表 1 緩衝材の仕様

パラメータ	設定値
乾燥密度 [kg/dm ³]	1.6
ベントナイト配合率 [%]	70
ケイ砂配合率 [%]	30

初生鉱物の組成を表 2 に示す。ベントナイトの鉱物組成は第 2 次 TRU レポートにおける降水系地下水を用いた設定に従うものとし、ケイ砂は全量石英とした。また、鉱物のモル体積とモル質量は JAEA β -TDB v1.06 の値を引用し、密度はモル質量とモル体積から算出した。なお、第 2 次 TRU レポートで設定されている斜長石は曹長石と灰長石に等量で配分した。また、黄鉄鉱は反応に寄与しない鉱物として扱う。モンモリロナイトは 48.0%とあるが、ここではモンモリロナイトの全量を Na 型に代表させて設定した。これらのデータから算出された初生鉱物の設定値を表 3 に示す。

表 2 緩衝材における初生鉱物の組成

	ベントナイト [wt%]	ケイ砂 [wt%]	緩衝材 [wt%]	mol 体積 [cm ³ /mol]	mol 質量 [g/mol]	密度 [g/cm ³]
Montmor-Na	48.0		33.6	134.271	367.0171	2.7334
Quartz	0.6	100	30.42	22.688	60.0843	2.6483
Chalcedony	38.0		26.6	22.688	60.0843	2.6483
Calcite	2.4		1.68	36.934	100.0869	2.7099
Dolomite	2.4		1.68	64.365	184.4008	2.8649
Albite	2.35		1.645	100.25	262.223	2.6157
Anorthite	2.35		1.645	100.79	278.2073	2.7604
Analcime-I	3.3		2.31	97.1	220.1540	2.2673
Pyrite	0.6		0.42	23.94	119.9770	5.0116

表3 緩衝材における初生鉱物の設定値

	体積分率[%]	濃度[mol/dm ³]
Montmor-Na	19.633	1.462
Quartz	18.378	8.100
Chalcedony	16.042	7.071
Calcite	0.990	0.268
Dolomite	0.937	0.146
Albite	1.004	0.100
Anorthite	0.952	0.094
Analcime-I	1.627	0.168
間隙率	40.225	

モンモリロナイトのイオン交換選択係数は第2次 TRU レポートの設定に Fe²⁺を (Kamei et al., 1999) を追加し、表4の通りとする。

表4 モンモリロナイトのイオン交換選択係数

	イオン交換反応選択係数 logK
2ZNa-Z ₂ Ca	0.69
ZNa-ZK	0.42
2ZNa-Z ₂ Mg	0.67
2ZNa-Z ₂ Fe	0.27

1.2 坑道支保（コンクリート）

セメント系材料として OPC を設定する。OPC の配合は第2次 TRU レポートに準拠するものとし、表5で表わされる。なお、コンクリートの水セメント比は55%とした。また、セメントの化学成分は日本原子力研究開発機構（2014）に倣い、表6のように設定した。

表5 OPCの配合

	単位セメント量 [kg/m ³]	単位水量 [kg/m ³]	細・粗骨材 [kg/m ³]
コンクリート(W/C=55%)	300	165	1877
モルタル	483	266	1449
セメントペースト	300	165	0

表6 OPCの化学成分

wt%	ig	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	CaO	MgO	SO ₃	Na ₂ O	K ₂ O
OPC	0.73	21.57	5.3	2.76	64.3	1.95	1.95	0.26	0.46

初期水和物とする鉱物とその密度を表7に示す。鉱物のモル体積は日本原子力研究開発機構（2014）の値を用いた。また、モル質量は化学式から、密度はモル質量とモル体積から算出した。Na と K の配分は熱力学データベースに合わせて Na₂O および K₂O とした。

表7 OPCの初期水和物として設定する鉱物とその密度

	モル体積 [cm ³ /mol]	モル質量 [g/mol]	密度 [g/cm ³]
Portlandite	33.06	74.0927	2.2411
C-S-H(1.65)	77.406	190.745	2.4642
Ettringite-Al	707.030	1255.1072	1.7752
Katoite-Al	150.000	378.2852	2.5219
Katoite-Fe	155.000	436.0121	2.8130
Brucite	24.63	58.3197	2.3678
Na ₂ O	25.000	61.9789	2.4792
K ₂ O	40.380	94.1960	2.3327

初期水和物量は下記の方法で算定した。

- OPCは完全に水和したものとする
- Sを全てEttringite-Alに配分する
- Feを全てKatoite-Feに配分する
- Mgを全てBruciteに配分する
- Siを全てCSH(1.65)に配分する
- Naを全てNa₂Oに配分する
- Kを全てK₂Oに配分する
- C-S-Hゲルに取り込まれるAlをHonda et al. (2009)の方法により算出し、系から除外する
- 残りのAlを全てKatoite-Alに配分する
- 残りのCaを全てPortlanditeに配分する

計算の結果を表8に示す。

表8 OPCの初期水和物量

	コンクリート		モルタル		ペースト	
	体積分率 [%]	水和物 [mol/dm ³]	体積分率 [%]	水和物 [mol/dm ³]	体積分率 [%]	水和物 [mol/dm ³]
Portlandite	4.028	1.218	6.501	1.966	14.990	4.534
CSH(1.65)	8.219	1.062	13.266	1.714	30.590	3.952
Ettringite-Al	1.698	0.024	2.740	0.039	6.319	0.089
Katoite-Al	0.619	0.041	1.000	0.067	2.305	0.154
Katoite-Fe	0.792	0.051	1.279	0.083	2.949	0.190
Brucite	0.352	0.143	0.569	0.231	1.312	0.533
Na ₂ O	0.031	0.012	0.050	0.020	0.115	0.046
K ₂ O	0.058	0.014	0.094	0.023	0.217	0.054
間隙率%	14.362		20.452		41.203	

表8ではNa₂OとK₂Oを固相としているが、両鉱物とも初期間隙水に全て溶解してしまうため、初期水和物量から除外する必要がある。さらに、セメントにおける鉄鉱物の挙動が不明な点が多いため、液相でFeを考慮しているものの、Katoite-Feを反応に寄与しない鉱物として扱う。上記を反映し、計算コードに入力した初期水和物量を表9に示す。

表9 OPCの初期水和物量（計算コードに入力したもの）

	コンクリート		モルタル		ペースト	
	体積分率 [%]	水和物 [mol/dm ³]	体積分率 [%]	水和物 [mol/dm ³]	体積分率 [%]	水和物 [mol/dm ³]
Portlandite	4.028	1.218	6.501	1.966	14.990	4.534
CSH(1.65)	8.219	1.062	13.266	1.714	30.590	3.952
Ettringite-Al	1.698	0.024	2.740	0.039	6.319	0.089
Katoite-Al	0.619	0.041	1.000	0.067	2.305	0.154
Brucite	0.792	0.051	1.279	0.083	2.949	0.190
間隙率%	14.451		20.596		41.535	

1.3 地下水および間隙水の組成

地下水は降水系地下水 FRHP（核燃料サイクル機構，1999）とした。緩衝材初期間隙水は、第2次 TRU レポートで用いられた手法（小田ほか，1999）から TDB を JAEA β-TDB v1.06 に変えて算出した。セメント系材料の初期間隙水組成は、表9のコンクリートを降水系地下水 FRHP と 25℃で平衡にさせて初期間隙水を算出した。計算コードには PHREEQC（Parkhurst and Appelo（1999））を用いた。以上の結果を表10に示す。

表10 地下水および緩衝材・コンクリートの初期間隙水組成の組成

	FRHP [mol/dm ³]	緩衝材 [mol/dm ³]	コンクリート [mol/dm ³]	モルタル [mol/dm ³]	ペースト [mol/dm ³]
pH	8.46	8.371	13.397	13.446	13.498
Al	3.43E-07	3.43E-07	1.25E-03	1.41E-03	1.60E-03
C	3.54E-03	1.59E-02	2.31E-04	3.08E-04	4.21E-04
Ca	1.09E-04	5.13E-05	9.05E-04	7.91E-04	6.85E-04
Cl	1.46E-05	1.46E-05	1.47E-05	1.47E-05	1.47E-05
K	9.73E-10	7.98E-08	9.76E-10	9.77E-10	9.77E-10
Mg	6.15E-05	1.29E-04	2.02E-01	2.29E-01	2.62E-01
Na	5.00E-05	4.20E-06	2.59E-09	2.33E-09	2.09E-09
S	3.55E-03	2.84E-02	1.77E-01	2.00E-01	2.29E-01
Si	1.11E-04	1.11E-04	6.13E-04	8.37E-04	1.18E-03

2. 鉱物の溶解・生成反応モデル

鉱物の溶解・生成反応速度式には平成25年度に整備したデータセット（日本原子力研究開発機構，2014）を用いた。

2.1 一般鉱物の溶解速度式

ギブス自由エネルギー ΔG_r を非線形関数とした場合の溶解反応速度式は(1)式で表される。

$$r = A \cdot \left[k_a \cdot \exp\left\{\frac{-e_a}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0}\right)\right\} \cdot a_{H^+}^l + k_n \cdot \exp\left\{\frac{-e_n}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0}\right)\right\} + k_b \cdot \exp\left\{\frac{-e_b}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0}\right)\right\} \cdot a_{H^+}^n \right] \cdot \left[1 - \exp\left\{m \cdot \left(\frac{\Delta G_r}{RT}\right)\right\} \right]^p \quad (1)$$

ここで、 r は溶解速度 [mol m⁻³ s⁻¹]、 k_a 、 k_n および k_b は酸性領域、中性領域およびアルカリ性領域での単位比表面積当たりの溶解定数 [mol m⁻² s⁻¹]、 A は水溶液の単位体積当たりの反応表面積 [m⁻¹]、 e_a 、 e_n および e_b は酸性領域、中性領域およびアルカリ性領域でのみかけの活性化エネルギー [J mol⁻¹]、 R は気体定数 [J mol⁻¹ K⁻¹]、 T および T_0 は絶対温度および 25℃における絶対温度 [K]、 a_{H^+} はイオン活量 [-]、 l 、 m 、 n 、 p はパラメータ [-] を表す。

また、ギブス自由エネルギー ΔG_r は(2)式で表される。

$$\Delta G_r = RT \cdot \ln\left(\frac{IAP}{K}\right) \quad (2)$$

ここで、IAP は反応の化学量論に応じた溶存化学種の活量積[-]、K は反応平衡定数[-]を表す。さらに、一部の鉱物において m のパラメータは (3) 式で表される。

$$m = \exp\{4.75 \cdot \log(T) - 0.27 \cdot \text{pH} - 13.39\} \quad (3)$$

なお、m=p=1 の場合、(2) 式は飽和指数 SI を用いて、(4) 式とも表される

$$r = A \cdot \left[k_a \cdot \exp\left\{\frac{-e_a}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0}\right)\right\} \cdot a_{\text{H}^+}^1 + k_n \cdot \exp\left\{\frac{-e_n}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0}\right)\right\} + k_b \right. \\ \left. \cdot \exp\left\{\frac{-e_b}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0}\right)\right\} \cdot a_{\text{H}^+}^n \right] \cdot [1 - 10^{\text{SI}}] \quad (4)$$

表 11 に各鉱物毎の、(3) 式を用いる場合の溶解速度式中の定数を示す。なお、反応表面積 (式中の A) については別途記述する。また、C-S-H ゲルをはじめとした、反応速度が温度・pH に依存しないと仮定した鉱物については後述する。

表 11 (1) 式を用いる場合の溶解速度式中の定数

	k_a [mol m ⁻² s ⁻¹]	k_n [mol m ⁻² s ⁻¹]	k_b [mol m ⁻² s ⁻¹]	e_a [kJ mol ⁻¹]	e_n [kJ mol ⁻¹]	e_b [kJ mol ⁻¹]	l	n	m	p
Albite	-	3.98E-13	5.25E-17	-	56.63	34.82	-	-0.5	(3)式	3
Anorthite	-	3.98E-13	5.25E-17	-	56.63	34.82	-	-0.5	(3)式	3
K-Feldspar	-	3.89E-12	6.31E-22	-	38	94.1	-	-0.823	(3)式	3
Illite	-	2.82E-14	2.82E-15	-	22	22	-	-0.22	(3)式	3
Analcime	-	-	3.91E-12	-	-	77.1	-	0	1	1
Chalcedony	-	-	3.09E-15	-	-	108.4	-	-0.52	1	1
Brucite	-	-	5.75E-9	-	-	42.0	-	0	1	1
Sepiolite	-	-	3.98E-13	-	-	29.0	-	0	1	1
Hydrotalcite	-	-	5.75E-9	-	-	42.0	-	0	1	1
Fe(OH) ₂	2.24E-8	3.16E-12	2.24E-17	-	-	-	0.992	-0.784	1	1
Magnetite	2.57E-9	1.66E-11	-	-	-	-	0.279	-	1	1
Berthierite	-	6.61E-14	8.91E-18	-	22.2	17.9	-	-0.472	1	1
Greenalite	-	6.61E-14	8.91E-18	-	22.2	17.9	-	-0.472	1	1

2.2 モンモリロナイトの溶解速度式

モンモリロナイトは各イオン型共通で (5) 式で表される。

$$r = A \cdot \left[k_b \cdot a_{\text{H}^+}^n \cdot \exp\left\{\frac{-e_b}{RT}\right\} \right] \cdot \left[1 - \exp\left\{m \cdot \left(\frac{\Delta G_r}{RT}\right)\right\} \right]^p \quad (5)$$

表 12 にモンモリロナイトの溶解速度式中の定数を示す。

表 12 モンモリロナイトの溶解速度式中の定数

	$-k_b \cdot a_{\text{H}^+}^n$ [mol m ⁻² s ⁻¹]	e_b [kJ mol ⁻¹]	m	p
Montmorillonite	$10^{0.212 \cdot \text{pH} - 6.40}$	38.7	(3)式	3

2.3 炭酸を含む鉱物の溶解速度式

炭酸を含む鉱物は CO₂ 分圧 P_{CO₂} を用いて (6) 式で表される。

$$r = A \cdot \left[k_a \cdot a_{\text{H}^+}^1 + k_n \cdot \exp\left\{\frac{-e_n}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0}\right)\right\} + k_b \cdot \exp\left\{\frac{-e_b}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0}\right)\right\} \cdot P_{\text{CO}_2}^n \right] \\ \cdot \left[1 - \exp\left\{m \cdot \left(\frac{\Delta G_r}{RT}\right)\right\} \right]^p \quad (6)$$

表 13 に各鉱物に対応するこれらの定数・パラメータの値を示す。

表 13 炭酸を含む鉱物の溶解速度式中の定数

	k_a [mol m ⁻² s ⁻¹]	k_n [mol m ⁻² s ⁻¹]	k_b [mol m ⁻² s ⁻¹]	e_a [kJ mol ⁻¹]	e_n [kJ mol ⁻¹]	e_b [kJ mol ⁻¹]	l	n	m	p
Calcite	5.01E-1	1.55E-6	3.31E-4	14.4	23.5	35.4	1	1	1	1
Dolomite	6.46E-4	2.95E-8	3.09E-6	36.1	52.2	34.8	0.5	0.5	1	1
Siderite	5.01E-1	1.55E-6	3.31E-4	14.4	23.5	35.4	1	1	1	1

2.4 石英の溶解速度式

石英は Al(OH)₄⁻ の反応抑制を考慮して (7) 式で表される。

$$r = A \cdot \left[k_a \cdot \exp \left\{ \frac{-e_a}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0} \right) \right\} \cdot a_{H^+}^1 + (1 - S) \cdot k_b \cdot \exp \left\{ \frac{-e_b}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0} \right) \right\} \cdot a_{H^+}^n \right] \cdot \left[1 - \exp \left\{ m \cdot \left(\frac{\Delta G_r}{RT} \right) \right\} \right]^p \quad (7)$$

ここで、S は Al(OH)₄⁻ の物質量 [Al(OH)₄⁻] [mol/kg] を用いて (8) 式で表される

$$S = \frac{(-3000 \cdot \text{pH} + 39700) \cdot (-0.196 \cdot \text{pH} + 2.94) \cdot [\text{Al}(\text{OH})_4^-]}{1 + (-3000 \cdot \text{pH} + 39700) \cdot [\text{Al}(\text{OH})_4^-]} \quad (8)$$

以上の速度式を用い、各鉱物の溶解反応速度式を決定する。石英のパラメータは表 14 のようにまとめられる。

表 14 石英の溶解速度式中の定数

	k_a [mol m ⁻² s ⁻¹]	k_b [mol m ⁻² s ⁻¹]	e_n [kJ mol ⁻¹]	e_b [kJ mol ⁻¹]	l	n	m	p
Quartz	4.34E-12	8.22E-15	87.6	8.6 · pH + 13.06 (上限 100)	0.3	-0.3	1	1

2.5 反応速度が温度、pH に依存しないものと仮定した鉱物の溶解速度式

これらの鉱物の場合、(4) 式をさらに簡略化した形式になり、溶解速度は以下のように表される。

$$r = A \cdot k \cdot [1 - 10^{SI}] \quad (9)$$

JAEA β TDB v1.07 では、C-S-H ゲルは Ca/Si 比 0.55-1.65 (0.1 刻み) の離散化モデルにより表現されている (Walker et al., 2016)。速度定数については、Trapote-Barreira et al. (2014) によって提案された溶解反応速度式を C/S を 0.1 刻みで離散化して用いた (表 15)。また表 16 に反応速度が温度、pH に依存しないものと仮定したその他の鉱物の溶解速度定数を示す。

表 15 C/S 比に依存した C-S-H ゲルの速度定数

	logk
CSH165	-8.44
CSH155	-8.50
CSH145	-8.65
CSH135	-9.19
CSH125	-9.97
CSH115	-10.66
CSH105	-10.96
CSH095	-10.86
CSH085	-10.87

表 16 その他、設定した鉱物の速度定数

	logk	根拠
Portlandite	-6	C-S-H ゲルより溶解が早い
Ettringite-Al	-10.94	CSH(1.0)と同じ
Monosulfate-Al	-10.94	Ettringiteと同じ
Laumontite	-11.41	25°Cにおけるゼオライトの沈殿速度式 (全型)
Phillipsite	-11.41	Laumontiteと同じ (全型)
Heulandite	-11.41	Laumontiteと同じ (全型)
C4AH13	-10.94	CSH(1.0)と同じ
C4AH19	-10.94	CSH(1.0)と同じ
Katoite-Al	-10.94	CSH(1.0)と同じ
Katoite-AlSi084	-10.94	CSH(1.0)と同じ
Stratlingite	-10.94	CSH(1.0)と同じ
Friedel_Salt	-10.94	Ettringiteと同じ

2.6 鉱物の比表面積

鉱物の比表面積は、間隙率の減少に伴って鉱物と間隙水の接する面積を減らす効果を入れるため、以下の式に従って入力するものとする。

$$A = A_0 \left(\frac{n}{n_0} \right)^{2/3} \quad (10)$$

ここで A_0 は初期の比表面積 (表 17)、 n は現在の間隙率、 n_0 は初期の間隙率である。

表 17 鉱物の初期比表面積

鉱物	比表面積(m ² /g)	鉱物	比表面積(m ² /g)
Calcite	10.00	Friedel_Salt-Al	9.80
Dolomite	10.00	Pyrophyllite	10.00
Illite	5.4	Gypsum	10.00
K-Feldspar	10.00	Phillipsite (全型)	10.00
Quartz	0.1	CSH165	22.43
Portlandite	10.44	CSH155	29.11
Ettringite-Al	9.80	CSH145	35.78
Hydrotalcite-Al	11.94	CSH135	42.46
Katoite-Al	10.00	CSH125	49.13
Katoite-AlSi084	10.00	CSH115	55.81
Stratlingite	10.00	CSH105	62.48
Brucite	10.00	CSH095	69.16
Analcime-I	10.00	CSH085	75.84
Montmorillonite (全型)	7.00	Fe(OH) ₂	1.76
Chalcedony	0.23	Magnetite	0.12
Laumontite (全型)	10.00	Siderite	0.16
Sepiolite	10.00	Berthierine	8.16
Monosulfate-Al	10.00	Greenalite	8.16
Heulandite (-dia)	10.00	Gypsum	10.00
C ₄ AH ₁₃	10.00	Monocarbonate-Al	10.00
C ₄ AH ₁₉	10.00	Hemicarbonate-Al	10.00

3. 考慮する鉱物

3.1 セメントの初期水和物と溶解・変質に伴う二次鉱物

セメントで生成する可能性がある二次鉱物は、第 2 次 TRU レポートで考慮したものに加え、日本原子力研究開発機構（2013）で追加されたことを受けて 2 水石膏も考慮する（表 18）。

表 18 セメント系材料の化学モデルで考慮した二次鉱物

C-S-H gel (CSH155-CSH085)	Calcite
Katoite-AlSi084	Monocarbonate-Al
C4AH13	Hemicarbonate-Al
C4AH19	Monosulfate-Al
Stratlingite-Al	Friedel_Salt-Al
Sepiolite	Analcime-I
Hydrotalcite-Al	Laumontite-Ca
Gypsum	

3.2 ベントナイトの溶解・変質に伴い生成する二次鉱物

緩衝材中で生成する可能性がある二次鉱物は、第 2 次 TRU レポートに記載されている鉱物と鉄ケイ酸塩とする。ただし、C-S-H 化合物に関しては C-S-H ゲルとして沈殿するとし、結晶性 C-S-H（トバモライト等）は考慮しない。

表 19 ベントナイトの溶解・変質に伴い生成する二次鉱物*

Phillipsite (-dia, -alk, -Na, -K) **	Illite
Heulandite (-dia, -Ca) **	K-Feldspar
Clinoptilolite (-dia, -alk, -Na, -K, -Ca) **	Analcime
Katoite-AlSi084	Laumontite (-Ca, -dia) **
Ettringite-Al	Greenalite
Monosulfate-Al	Berthierine
Friedel_Salt-Al	Portlandite
Monocarbonate-Al	Brucite
Hemicarbonate-Al	Calcite
Hydrotalcite-Al	Dolomite
Sepiolite	C-S-H gel (CSH165-CSH085)

* 膨潤性のサポナイトやバイデライトは生成しても緩衝材の機能への影響が小さいと考えられるため除外している。生成の可能性自体を否定するものではないため、解析目的に応じて追加すること

** ゼオライト系鉱物の種類は解析目的に応じて選択することが望ましい

4. 拡散係数

4.1 セメント領域における拡散係数

セメントにおける実効拡散係数 D_e [m²/s] は、(11) 式で表される。

$$D_e = 2.272 \times 10^{-9} \times \varepsilon^{3.05} \quad (11)$$

ここで、 ε は間隙率[-]を表す。

4.2 緩衝材領域における拡散係数

緩衝材が変質した場合に MACBECE 内の該当要素の力学的性質をグリーンタフ相当（弾性体）として扱うこととし、その場合の条件は、モンモリロナイト残存量が初期値の 7 割を下回った場合とする。

(1) 未変質の緩衝材の実効拡散係数

通常の QPAC 解析での未変質緩衝材中の実効拡散係数は、TRU2 次報告書と同様、以下のベントナイト

の実効拡散係数の評価式 (25°C) に従って計算した。

$$D_e = 2.27 \times 10^{-9} \times \theta^n \quad [\text{m}^2/\text{s}] \quad (12)$$

$$n = 2.22 \times f_s^{0.13} + 1$$

ここに θ はベントナイトの間隙率、 f_s はベントナイト中のモンモリロナイト含有割合である。なお、本検討では緩衝材の変質後も上記の評価式を用いて実効拡散係数の評価を行っているが、緩衝材が (例えば鉄影響により) 変質した後の実効拡散係数の評価については、今後の課題として挙げられる。

(2) 圧縮などによる体積変化を考慮した未変質の緩衝材の実効拡散係数

MACBECE 解析による体積変化 (MACBECE の「体積ひずみ」アウトプット) を、まず緩衝材の間隙率に反映させ、それを式(12)に適用することで実効拡散係数に反映させる手法について述べる。体積ひずみ ε_v と間隙率 θ の関係については、以下のように考えた (図1も参照のこと)。

まず、体積ひずみの定義より (圧縮を正とする)、 ε_v は次式で表される (但し、力学と化学の両方を同時に考慮する場合の全体積 V は、力学変形のみを考慮した場合の全体積 V^M と等しいと仮定する)。

$$\varepsilon_v = \frac{V_0 - V^M}{V_0} = 1 - \frac{V^M}{V_0} = 1 - \frac{V_L + V_s}{V_0} = 1 - \frac{V_L}{V_0} - \frac{V_s}{V_0} = 1 - \frac{V_s}{V_0} - \frac{V_L}{V_0} = \theta^c - \frac{V_L}{V_0} = \theta^c - \frac{V_s}{V_0} \cdot \frac{V_L}{V_s} = \theta^c - (1 - \theta^c) \cdot e \quad (13)$$

上式より、力学と化学の両方を同時に考慮したときの間隙比 e は次式で表される。

$$e = \frac{\theta^c - \varepsilon_v}{1 - \theta^c} \quad (14)$$

さらに、間隙比と間隙率の関係式から、力学と化学の両方を同時に考慮したときの間隙率 θ は次式で表される。

$$\theta = \frac{e}{1+e} = \frac{\theta^c - \varepsilon_v}{1 - \varepsilon_v} \quad (15)$$

上式を用いて MACBECE の体積ひずみ ε_v から間隙率 θ を計算する。

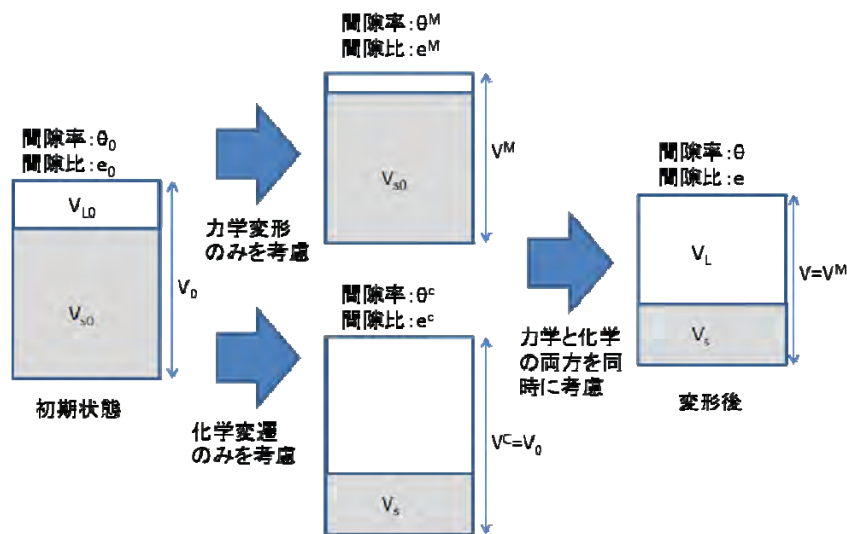


図1 体積ひずみを考慮した間隙率変化の概念図

(3) 「割れ」の入った変質後緩衝材の実効拡散係数

上記のモデルオプション1の部分で述べたように、MACBECE 解析で緩衝材変質部（上記のグリーンタフ相当に変質した部分）のうち引っ張り応力が強度を上回る領域があった場合、その部分の実効拡散係数を上昇させてQPAC 解析を行う。この際の実効拡散係数は以下のように取り扱うこととした。

1. 「割れ」が生じたと判定された要素の最小主ひずみの値をQPACに渡す
2. 上記の最小主ひずみに相当する部分の実効拡散係数は自由水中の実効拡散係数（ 2.27×10^{-9} [m²/s]）であり、該当要素のその他（「割れ」以外）の部分は下記(16)式で計算されるグリーンタフを想定した場合の実効拡散係数で表されると仮定する
3. 上記の仮定に従い、要素全体の実効拡散係数がそれらの体積の重みを考慮した平均で表されるものとして計算する。例えば、上記の最小主ひずみが3%程度であった場合、「割れ」以外の部分の実効拡散係数が、間隙率 $\theta = 0.4$ の場合の値（ $D_e = 1.45 \times 10^{-10}$ [m²/s]）であった場合は以下のように計算する：

$$D_e = 1.45 \times 10^{-10} \times 0.97 + 2.27 \times 10^{-9} \times 0.03 = 2.01 \times 10^{-10} \text{ [m}^2\text{/s]}$$

なお、グリーンタフ化した部分（「割れ」以外の部分）の実効拡散係数については、第2次とりまとめ中の凝灰岩の実効拡散係数の評価などを参照し、以下の式において $n=1$ とし、間隙率に比例するものと仮定した（従って、緩衝材からグリーンタフに変化した瞬間は当該要素の実効拡散係数が不連続に変化する）。

$$D_e = 2.27 \times 10^{-9} \times \theta^n \text{ [m}^2\text{/s]} \quad (16)$$

5. 熱力学データベースの改良

28 種類の元素、207 種類の液相種や錯体種、410 種類の鉱物、13 種類のガスについて、熱力学特性 ($\Delta_f G^0$, $\Delta_f H^0$, S^0 , V^0)、Helgeson-Kirkham-Flowers (H-K-F) 式のパラメータ (a_{1-4} , $c_{1,2}$, ω^0) (Tanger IV and Helgeson, 1988)、Maier-Kelly 式による熱容量の温度依存式を適用した場合の各係数を入れるために JAEA β -TDB (v1.07) を更新した。主な更新内容の概要は表 20 に、詳細は表 21 から表 32 および図 2 から図 11 に示す。

表 20 JAEA β -TDB (v1.07) における主な更新内容

Item	Description
New and/or revised entries	New and/or revised entries include 68 aqueous species/complexes, 292 minerals and 1 gas.
Elements	Barium (Ba), cesium (Cs), copper (Cu), lithium (Li), manganese (Mn), nickel (Ni), rubidium (Rb), titanium (Ti), and zinc (Zn) have been added to the JAEA TDB (v1.07), including all necessary basis species, relevant hydrolysis reactions and redox reactions for aqueous species/complexes, elements in their reference states, minerals, and solid phases. These elements were added for calibration of the polymer model used to predict the thermodynamic properties of clay and zeolite minerals.
Cement minerals	The thermodynamic properties of all AFt, AFm, katoite (hydrogarnet), and hydrotalcite minerals have been revised to provide a match to log equilibrium constants, log K_{eq} values derived from experimental solubility data. Binary non-ideal solid solution models have been developed to describe the variable composition and solubility behavior of the Al and Fe bearing katoite minerals.
Clay minerals	Clay mineral compositions have been revised to be more consistent with those reported in the literature and to include more Fe-rich compositions to allow for Fe substitution into the octahedral and tetrahedral layers. A polymer model has been developed to predict the Gibbs free energy of formation, $\Delta_f G^0$ (kcal/mol) for any clay mineral solely as a function of its composition. A polymer model was used for clay minerals to account for the large number of compositional changes in the cationic interlayer species K^+ , Na^+ , Cs^+ , NH_4^+ , Ca^{2+} , Fe^{2+} , and Mg^{2+} and substitutions in the octahedral and tetrahedral layers. Additive principles used to provide estimates of entropy, S^0 (cal/mol/K) and heat capacity, C_p (cal/mol/K) for all clay minerals have been derived from newer, more reliable data sources. Entropy estimates now also account for changes in the configurational entropy contributions. Molar volumes, V^0 (cm^3/mol) of clay minerals are calculated from published unit cell dimensions wherever possible, otherwise they have been estimated using additive principles.
Zeolites [1]	The thermodynamic properties of 8 zeolite minerals that were measured calorimetrically or solved by phase relations have been reinstated. Estimated values using the polymer model (see Zeolites [2] below) are also provided for direct comparison wherever possible.
Zeolites [2]	Zeolite mineral compositions and molar volumes have been revised to be consistent with those reported in the literature (Armbruster and Gunter, 2001; Deer et al., 1966). A polymer model (Arthur et al., 2011) to predict $\Delta_f G^0$ and the enthalpy of formation, $\Delta_f H^0$ (kcal/mol) of zeolite minerals has been updated to include all thermodynamic data in the available literature and the update to the silica species $H_4SiO_{4(aq)}$ as reported in JAEA TDB (v1.06). A polymer model was used for zeolite minerals to account for compositional variability in the cationic interlayer species K^+ , Na^+ and Ca^{2+} , molar Al/Si ratios and water contents.
Layer silicates	A polyhedral model has been developed to describe the $\Delta_f G^0$ of layer silicates. A polyhedral model was used to provide estimates for layer silicates as a sum of their structural, 'silicated' oxide and hydroxide components without the need to consider interlayer species as found in clays and zeolites. Additive principles are used to provide estimates of S^0 and C_p from structurally equivalent or similar minerals. Molar volumes, V^0 (cm^3/mol) of the layer silicates have been calculated from published unit cell dimensions.
Phase relations in silicate minerals	Values of $\Delta_f G^0$ and $\Delta_f H^0$ of silicate minerals obtained by phase relations have been revised to be consistent with the update to the silica species $H_4SiO_{4(aq)}$ reported in JAEA TDB (v1.06).
Miscellaneous revisions	Revisions have been made to the thermodynamic properties of 43 minerals in making the above changes and also a number of other miscellaneous revisions that were missed in previous versions of the JAEA-TDB.
Gas	Thermodynamic properties of $Br_2(g)$ have been changed to use CODATA (Cox, 1978) recommended values.

表 21 JAEA β -TDB (v1.07)における Ba、Cs、Cu、Li、Mn、Ni、Rb、Ti、Zn と関連する液相種および錯体の熱力学特性と H-K-F 式のパラメータ ($t = 25^\circ\text{C}$ and $P = 1$ bar)

Species/ Complex (A-Z) ^{*,†}	$\Delta_f G^{0,i,\ddagger}$	$\Delta_f H^{0,i,\ddagger}$	$S^{0,i,\ddagger}$	$C_p^{0,i,\ddagger}$	$V^{0,iii}$	Revised H-K-F equation-of-state parameters							Der [§]	Ref
						$a_1 \times 10^{iv}$	$a_2 \times 10^{-2v}$	a_3^{vi}	$a_4 \times 10^{-4vii}$	c_1^{ii}	$c_2 \times 10^{-4vii}$	$\omega^0 \times 10^{-5v}$		
Ba ²⁺ ^a	-133.27 ± 0.4	-127.78 ± 0.4	2.10 ± 0.1	-12.2 ± 5	-12.901	0.3737	-6.8688	8.4498	-2.4950	8.0327	-5.5401	0.9850	C,So	[1,2]
BaCl ^b	-163.99 ± 0.5	-165.57 ± 1.6	20.7 ± 5	6.7 ± 5	11.812	3.4533	0.6505	5.4943	-2.8059	11.8213	-1.6759	0.1895	R	[3,4,5]
BaCO _{3(aq)} ^b	-263.14 ± 0.5	-285.75 ± 1.6	14.0 ± 5	-34.4 ± 5	-11.798	0.1361	-7.4490	8.6778	-2.4711	-14.3440	-10.0418	-0.0380	So	[3,5,6]
BaF ^{†b}	-200.37 ± 0.5	-212.89 ± 1.6	5.8 ± 5	11.0 ± 5	-7.470	0.9161	-5.5445	7.9292	-2.5498	16.7731	-0.8065	0.4561	R	[3,4,5]
BaOH ⁺	-171.58 ± 0.6	-175.15 ± 1.6	27.5 ± 5	-22.4 ± 5	9.159	3.0700	-0.2825	5.8541	-2.7672	-5.7064	-7.5974	0.1362	R	[7,8]
Cs ⁺ ^a	-69.710 ± 0.05	-61.670 ± 0.03	31.750 ± 0.01	-6.3 ± 5	21.391	6.1475	-0.1309	4.2094	-2.7736	6.2700	-5.7360	0.0974	R	[1,9]
CsBr _(aq)	-94.61 ± 0.6	-89.02 ± 1.6	57.3 ± 5	-26.6 ± 5	57.001	9.5646	15.5757	-0.3789	-3.4228	-9.4143	-8.4469	-0.0010	K	[3,10]
CsCl _(aq)	-100.90 ± 0.6	-99.23 ± 1.6	52.6 ± 5	-24.0 ± 5	47.940	8.4010	12.7344	0.7379	-3.3054	-6.0563	-7.9234	0.2000	K	[3,10]
CsI _(aq)	-83.46 ± 0.6	-75.69 ± 1.6	60.3 ± 5	-24.4 ± 5	71.970	11.6513	20.6709	-2.3815	-3.6335	-7.2120	-8.0048	0.1000	K	[3,10]
CsOH _(aq)	-105.00 ± 0.6	-112.30 ± 1.6	35.9 ± 5	-31.9 ± 5	28.610	5.6685	6.0571	3.3740	-3.0293	-12.8052	-9.5325	-0.0300	R	[7]
Cu ⁺	11.95 ± 0.2	17.13 ± 0.2	9.7 ± 2	13.7 ± 5	-8.124	0.8070	-5.8040	8.0165	-2.5390	17.9233	-0.2438	0.4046	R	[7,11]
Cu ²⁺ ^a	15.675 ± 0.05	15.700 ± 0.19	-23.20 ± 0.3	-2.1 ± 5	-25.052	-1.1021	-10.4726	9.8662	-2.3461	20.3000	-4.3900	1.4769	R	[1,9]
CuCl _(aq)	-22.61 ± 0.6	-26.34 ± 1.6	22.1 ± 5	19.6 ± 5	17.230	4.1084	2.2530	4.8575	-2.8721	17.3292	0.9670	-0.0380	R	[3,12]
CuCl ⁺	-16.25 ± 0.6	-23.85 ± 1.6	-6.5 ± 5	29.5 ± 5	-1.921	1.7480	-3.5103	7.1228	-2.6338	29.3560	2.9530	0.6472	R	[3,12]
CuCl ₂ ⁻	-58.04 ± 0.6	-72.90 ± 1.6	27.0 ± 5	33.1 ± 5	45.055	8.3943	12.7182	0.7442	-3.3047	36.7555	3.6846	1.2219	R	[3,12]
CuCl _{2(aq)}	-46.14 ± 0.6	-64.16 ± 1.6	0.8 ± 5	54.2 ± 5	24.335	5.0806	4.6270	3.9244	-2.9702	37.5948	8.0108	-0.0380	R	[3,13]
CuCl ₃ ⁻	-75.34 ± 0.6	-106.85 ± 1.6	-2.2 ± 5	72.6 ± 5	52.837	9.6259	15.7252	-0.4377	-3.4290	63.8881	11.7108	1.6605	R	[3,13]
CuCl ₃ ²⁻	-89.96 ± 0.6	-118.52 ± 1.6	23.3 ± 5	54.0 ± 5	75.985	13.2482	24.5700	-3.9140	-3.7947	63.9808	7.9089	2.8579	R	[3,12]
CuCl ₄ ²⁻	-103.58 ± 0.6	-152.53 ± 1.6	-18.5 ± 5	84.2 ± 5	84.612	14.6696	28.0407	-5.2782	-3.9382	87.5037	14.0532	3.4923	R	[3,13]
CuF ⁺	-53.74 ± 0.6	-64.28 ± 1.6	-18.8 ± 5	33.7 ± 5	-21.178	-0.8164	-9.7719	9.5838	-2.3750	33.5733	3.8226	0.8334	R	[3,12]
CuO _(aq) (+ H ₂ O = Cu(OH) ₂)	-20.80 ± 0.6	-34.20 ± 1.6	-12.4 ± 5	-1.3 ± 5	-17.826	-0.3937	-8.7360	9.1675	-2.4178	12.1490	-3.3197	0.7384	R	[7,14]
CuO ₂ ²⁻ (+ 2H ₂ O = Cu(OH) ₄ ²⁻)	-41.20 ± 0.6	-74.40 ± 1.6	-23.1 ± 5	-53.1 ± 5	-18.391	0.6024	-6.3038	8.2129	-2.5183	7.6532	-13.9325	3.5647	R	[7,14]
CuOH ⁺	-30.20 ± 0.6	-41.70 ± 1.6	-6.1 ± 5	16.1 ± 5	-14.898	-0.0277	-7.8416	8.8142	-2.4547	21.5062	0.2246	0.6472	R	[7,14]
HCuO ₂ ⁻ (+ H ₂ O = Cu(OH) ₃ ⁻)	-60.10 ± 0.6	-86.30 ± 1.6	0.3 ± 5	-24.6 ± 5	-4.767	1.3202	-4.5527	7.5282	-2.5907	-3.2749	-8.0659	0.5464	R	[7,15]
HMnO ₂ ⁻ (+ H ₂ O = Mn(OH) ₃ ⁻)	-121.00 ± 0.6	-149.90 ± 1.6	-9.1 ± 5	-3.1 ± 5	-10.241	1.0354	-5.2480	7.8003	-2.5619	20.5255	-3.7067	1.7685	E	[7,8]
HNiO ₂ ⁻ (+ H ₂ O = Ni(OH) ₃ ⁻)	-81.98 ± 0.6	-118.76 ± 1.6	-36.0 ± 5	48.2 ± 5	-24.863	-0.8143	-9.7619	9.5688	-2.3753	54.2564	6.7430	2.1664	K	[7,16]
HTiO ³⁺ ^b	-153.10 ± 1.2	-165.73 ± 1.9	-41.7 ± 5	10.6 ± 5	-2.476	2.2998	-2.1659	6.6013	-2.6895	33.4148	-0.9287	2.3000	R	[3,17]
HTiO ₂ ⁺ ^b (+ H ₂ O = H ₃ TiO ₃ ⁺)	-204.75 ± 0.7	-219.57 ± 1.6	6.7 ± 5	-39.2 ± 5	13.243	3.7443	1.3609	5.2151	-2.8353	-12.7886	-11.0351	0.4400	K	[17-20]
HTiO ₃ ^b (+ 2H ₂ O = H ₅ TiO ₅ ⁻)	-242.56 ± 0.8	-276.91 ± 1.7	-18.7 ± 5	18.6 ± 5	12.807	3.4528	0.6491	5.4949	-2.8058	27.0224	-4.9001	-0.1705	K	[19,20]
HZnO ₂ ⁻ (+ H ₂ O = Zn(OH) ₃ ⁻)	-110.72 ± 0.6	-142.38 ± 1.6	-16.0 ± 5	20.2 ± 5	-13.971	0.5623	-6.4047	8.2588	-2.5141	35.0874	1.0394	1.8669	K	[7,21-23]
Li ⁺ ^a	-69.935 ± 0.02	-66.552 ± 0.02	2.701 ± 0.05	14.3 ± 5	-1.019	-0.0237	-0.0690	11.5800	-2.7761	19.2000	-0.2400	0.4862	R	[1,9]
LiCl _(aq)	-99.25 ± 0.6	-105.68 ± 1.6	13.1 ± 5	20.3 ± 5	28.012	5.5837	5.8554	3.4416	-3.0210	17.7136	1.1006	-0.0380	K	[3,10]
LiOH _(aq)	-108.015 ± 0.08	-121.5 ± 2	1.9 ± 7	6.8 ± 5	3.809	2.2749	-2.2242	6.6181	-2.6870	9.8752	-1.6493	-0.0300	K	[7,15]
Mn ²⁺ ^a	-55.10 ± 0.7	-52.90 ± 0.3	-16.2 ± 2	-4.0 ± 5	-17.529	-0.1015	-8.0040	8.8400	-2.4480	16.6672	-3.8697	1.4006	C	[7,24]
Mn ³⁺	-20.30 ± 0.6	-30.70 ± 1.6	-74.0 ± 5	-25.3 ± 5	41.827	-2.9320	-14.9340	11.6041	-2.1615	16.0611	-8.2492	2.7025	R	[7,25]
MnCl ⁺	-86.29 ± 0.6	-88.29 ± 1.6	12.0 ± 5	25.2 ± 5	6.627	2.8119	-0.9126	6.1017	-2.7412	24.2838	2.0824	0.3686	R	[3]
MnF ⁺	-123.64 ± 0.6	-132.45 ± 1.6	-13.3 ± 5	29.5 ± 5	-12.684	0.3136	-7.0128	8.4994	-2.4890	30.2840	2.9518	0.7483	R	[3]

表 21 (続き)

Species/ Complex (A-Z) ^{*,†}	$\Delta_f G^{\circ}$ ^{i,‡}	$\Delta_f H^{\circ}$ ^{i,‡}	S° ^{ii,‡}	C_p° ^{ii,‡}	V° ⁱⁱⁱ	Revised H-K-F equation-of-state parameters							Der [§]	Ref
						$a_1 \times 10^{\text{iv}}$	$a_2 \times 10^{-2 \text{v}}$	a_3^{vi}	$a_4 \times 10^{-4 \text{vii}}$	c_1^{ii}	$c_2 \times 10^{-4 \text{vii}}$	$\omega^{\text{v}} \times 10^{-5 \text{v}}$		
MnO (+ H ₂ O = Mn(OH) ₂)	-81.50 ± 0.6	-91.84 ± 1.6	-2.5 ± 5	-12.7 ± 5	-13.091	-0.0376	-7.8656	8.8229	-2.4537	-1.5528	-5.6215	-0.0300	E	[7,8]
MnO ₂ ²⁻ (+ 2H ₂ O = Mn(OH) ₄ ²⁻)	-102.60 ± 0.7	-133.34 ± 1.7	-15.2 ± 5	-71.1 ± 5	-14.053	1.1489	-4.9713	7.6937	-2.5734	-4.0375	-17.5991	3.4408	K	[7,8]
MnO ₄ ⁻	-107.60 ± 0.6	-129.90 ± 1.6	46.5 ± 5	-1.7 ± 5	41.718	7.8248	11.3277	1.2912	-3.2472	13.6317	-3.4012	0.9248	R	[7,24]
MnO ₄ ²⁻	-120.4 ± 2	-156.6 ± 20	15.5 ± 20	-66.1 ± 5	20.189	5.6596	6.0368	3.3786	-3.0285	-5.2910	-16.5602	2.9803	R	[7,11]
MnOH ⁺ ^b	-97.341 ± 0.06	-106.81 ± 1.0	0.43 ± 3.4	8.6 ± 5	-11.964	0.3320	-6.9707	8.4899	-2.4908	16.1066	-1.3011	0.5376	K	[7,8,15]
MnSO ₄	-235.64 ± 0.6	-267.95 ± 1.6	5.0 ± 5	-20.6 ± 5	2.812	2.1354	-2.5645	6.7510	-2.6729	-6.2564	-7.2308	-0.0380	K	[3,12,26]
Ni ²⁺ ^a	-10.9 ± 2	-12.9 ± 2	-30.8 ± 2	-11.5 ± 5	-29.461	-1.6942	-11.9181	10.4344	-2.2863	13.1905	-5.4179	1.5067	R	[1,11]
NiCl ⁺	-40.92 ± 0.6	-51.40 ± 1.6	-17.0 ± 5	8.2 ± 5	-6.878	1.1319	-5.0147	7.7140	-2.5716	18.3863	-1.3846	0.8111	K	[7,27]
NiF ⁺	-79.77 ± 0.6	-92.32 ± 1.6	-26.4 ± 5	12.6 ± 5	-26.119	-1.4455	-11.3080	10.1875	-2.3115	22.3170	-0.4857	0.9570	R	[7,12]
NiO (+ H ₂ O = Ni(OH) ₂)	-39.34 ± 0.6	-48.63 ± 1.6	25.0 ± 5	10.0 ± 5	-23.291	-1.4334	-11.2786	10.1751	-2.3126	11.7507	-0.9975	-0.0300	K	[7,16]
NiO ₂ ²⁻ (+ 2H ₂ O = Ni(OH) ₄ ²⁻)	-64.20 ± 0.6	-101.85 ± 1.6	-38.9 ± 5	-17.1 ± 5	-26.963	-0.4814	-8.9493	9.2495	-2.4089	30.9114	-6.5993	3.7992	E	[7,8]
NiOH ⁺	-52.85 ± 0.6	-67.66 ± 1.6	-18.0 ± 5	31.1 ± 5	-20.352	-0.7075	-9.5051	9.4760	-2.3860	31.9091	3.2801	0.8222	K	[7,16,26]
Rb ⁺ ^a	-67.800 ± 0.05	-60.020 ± 0.03	28.800 ± 0.05	-3.0 ± 5	14.215	4.2913	-0.9041	7.4070	-2.7416	5.7923	-3.6457	0.1502	R	[1,9]
RbBr	-91.01 ± 0.6	-85.74 ± 1.6	54.2 ± 5	-19.2 ± 5	49.004	8.4668	12.8952	0.6747	-3.3120	-5.1720	-6.9436	-0.0100	K	[3,10]
RbCl	-97.87 ± 0.6	-96.80 ± 1.6	48.6 ± 5	-20.0 ± 5	41.604	7.4542	10.4227	1.6465	-3.2098	-5.6468	-7.1086	-0.0100	K	[3,10]
RbF	-136.45 ± 0.6	-139.73 ± 1.6	31.6 ± 5	-16.0 ± 5	19.001	4.3647	2.8788	4.6115	-2.8980	-3.2196	-6.2938	-0.0010	K	[3,10]
RbI	-78.90 ± 0.6	-71.72 ± 1.6	56.3 ± 5	-17.0 ± 5	64.001	10.5225	17.9145	-1.2982	-3.5195	-3.8174	-6.5015	-0.0010	K	[3,10]
RbOH	-105.10 ± 0.6	-113.00 ± 1.6	32.0 ± 5	-27.5 ± 5	20.710	4.5875	3.4168	4.4132	-2.9202	-10.2264	-8.6363	-0.0300	R	[7,29]
TiO ₂ ²⁺ ^b (+ H ₂ O = H ₂ TiO ₂ ²⁺)	-150.80 ± 0.7	-155.98 ± 1.6	-16.7 ± 5	-41.9 ± 5	1.851	2.5273	-1.6106	6.3830	-2.7124	-6.1015	-11.5896	1.3400	K	[17,20,30]
TiO ₂ ^{a,b} (+ 2H ₂ O = H ₄ TiO ₄)	-201.20 ± 1.0	-220.70 ± 2.3	-9.0 ± 9	-25.0 ± 5	9.445	3.0430	-0.3514	5.8881	-2.7645	-12.8922	-6.1306	-0.0380	K	[8,18-20, 30,31]
Zn ²⁺ ^a	-35.200 ± 0.07	-36.660 ± 0.05	-26.20 ± 0.2	-5.4 ± 5	-24.746	-1.0676	-8.9290	6.1282	-2.4098	18.7400	-5.3700	1.4574	R	[7,9]
ZnCl ⁺	-66.85 ± 0.6	-66.25 ± 1.6	23.0 ± 5	19.9 ± 5	-1.342	1.6583	-3.7293	7.2088	-2.6248	19.6947	1.0191	0.2025	K	[3,27]
ZnCl ₂	-98.30 ± 0.6	-109.11 ± 1.6	27.0 ± 5	34.7 ± 5	24.832	5.1486	4.7929	3.8592	-2.9771	26.1528	4.0338	-0.0380	K	[3,27,32]
ZnCl ₃ ⁻	-129.31 ± 0.6	-153.32 ± 1.6	25.0 ± 5	42.1 ± 5	53.518	9.5636	15.5732	-0.3779	-3.4227	42.2912	5.5147	1.2513	K	[3,27]
ZnCl ₄ ²⁻	-161.89 ± 0.6	-195.22 ± 1.6	36.0 ± 5	43.6 ± 5	86.856	14.6628	28.0213	-5.2636	-3.9374	56.1061	5.7856	2.6662	R	[3,33]
ZnF ⁺	-104.11 ± 0.6	-123.37 ± 1.6	-21.8 ± 5	24.5 ± 5	-20.746	-0.7395	-9.5843	9.5101	-2.3827	28.5991	1.9435	0.8803	K	[3,12]
ZnO (+ H ₂ O = Zn(OH) ₂)	-67.42 ± 0.6	-78.29 ± 1.6	-2.0 ± 5	-10.0 ± 5	-21.891	-1.2418	-10.8072	9.9819	-2.3321	0.0295	-5.0715	-0.0300	K	[7,22,34]
ZnO ₂ ²⁻ (+ 2H ₂ O = Zn(OH) ₄ ²⁻)	-93.29 ± 0.6	-132.11 ± 1.6	-40.0 ± 5	-14.6 ± 5	-27.569	-0.5559	-9.1347	9.3301	-2.4013	32.5837	-6.0900	3.8216	K	[7,21-23]
ZnOH ⁺	-81.19 ± 0.6	-87.00 ± 1.6	15.0 ± 5	10.0 ± 5	-5.400	1.1499	-4.9677	7.6896	-2.5735	15.0306	-0.9975	0.3260	K	[7,22, 23,35]

ⁱ kcal/mol, ⁱⁱ cal/mol/K, ⁱⁱⁱ cm³/mol, ^{iv} cal/mol/bar, ^v cal/mol, ^{vi} calK/mol/bar, ^{vii} calK/mol. * All species/complexes shown above are new entries in the JAEA-TDB (v1.07). † Parentheses are used to show equivalent hydrated species used in GWB16.dat and PHREEQC16.dat TDBs. ‡ Uncertainties represent the 95% confidence interval (2σ). § Derivation of Δ_rG⁰: R : as Reported. C : Calorimetry. So : Solubility. E : Estimated. K : Fitted to log K_{eq} data. ^a Basis species. ^b See Figure 1-2. **References:** [1] (Shock and Helgeson, 1988), [2] (Parker, 1995), [3] (Sverjensky et al., 1997), [4] (Majer and Stulik, 1982), [5] Updated to be consistent with the thermodynamic properties of Ba²⁺ reported by Parker [2]. [6] (Busenberg and Plummer, 1986). [7] (Shock et al., 1997). [8] (Baes and Mesmer, 1976). [9] (Cox, 1978). [10] (Oelkers and Helgeson, 1988). [11] (Wagman et al., 1982). [12] (Turner et al., 1981). [13] (Nikolaeva et al., 1972). [14] (Sillén and Martell, 1971). [15] (Baes and Mesmer, 1981). [16] (Tremaine and LeBlanc, 1980). [17] (Liberti et al., 1963). [18] (Vasil'ev et al., 1974). [19] (Knauss et al., 2001). [20] (Schmidt and Vogelsberger, 2009). [21] (Dirske et al., 1954; Fulton and Swinehart, 1954). [22] (Khodakovskiy and Yelkin, 1975; Plyasunov et al., 1988). [23] (Reichle et al., 1975). [24] (Gedansky and Hepler, 1969). [25] (Latimer, 1952). [26] (Wheat and Carpenter, 1988). [27] (Ruaya and Seward, 1986). [28] (Perrin, 1964). [29] (Bard et al., 1985). [30] (Ziemniak et al., 1993). [31] (Brown and Ekberg, 2016). [32] (Bourcier and Barnes, 1987; Marcus and Maydan, 1963). [33] (Sverjensky, 1990). [34] (Ziemniak et al., 1992). [35] (Gubeli and Ste-Marie, 1967)

表 22 JAEA β -TDB (v1.07)におけるBa、Cs、Cu、Li、Mn、Ni、Rb、Ti、Znと関連する鉱物の熱力学特性とMaier-Kelley式の係数($t = 25^\circ\text{C}$ and $P = 1 \text{ bar}$)

Mineral/ Phase (A-Z) *	Composition	$\Delta_f G^{\circ i,t}$	$\Delta_f H^{\circ i,t}$	$S^{\circ ii,t}$	$V^{\circ iii}$	$C_p^{\circ ii,t}$	Maier-Kelley Coefficients [†]			$C_{p,vi}$ T_{max}	Der [§]	Ref
							a ⁱⁱ	b $\times 10^{iv}$	c $\times 10^{-5v}$			
Alabandite	MnS	-52.16 ± 0.5	-51.00 ± 0.5	19.20 ± 0.2	21.460	11.94 ± 0.2	11.400	1.800	0	1803	C,So	[1,2]
Anatase	TiO ₂	-211.11 ± 0.5	-224.36 ± 0.5	12.020 ± 0.08	20.458	13.21 ± 0.2	18.107	0.277	-4.426	1949	C	[3]
Azurite	Cu ₃ (OH) ₂ (CO ₃) ₂	-334.4 ± 3	-390.1 ± 2	67.0 ± 5	91.010	58.934	36.880	77.440	-0.920	780	R	[1,4]
Ba(OH)2(s)	Ba(OH) ₂	-205.44 ± 1.6	-226.17 ± 1.5	25.60 ± 2.0	33.600	24.28 ± 1.0	27.358	5.308	-4.142	681	C	[3]
BaO(s)	BaO	-124.360 ± 0.40	-131.000 ± 0.40	17.225 ± 0.09	25.588	11.36 ± 0.1	11.790	1.880	-0.880	2000	C	[5,6]
Barite	BaSO ₄	-325.3 ± 2	-352.1 ± 2	31.60 ± 0.2	52.100	24.32 ± 0.2	33.800	0	-8.430	1422	C	[5,7]
Barium	Ba	0 ± 0	0 ± 0	14.93 ± 0.2	37.936	6.54 ± 1.3	-7.297	32.773	3.612	582.53	C	[3,6]
Bornite	Cu ₅ FeS ₄	-86.70 ± 1.0	-79.922	99.290	98.600	58.70 ± 0.1	49.760	35.080	-1.350	485	P	[1,8]
Bunsenite	NiO	-50.57 ± 0.1	-57.30 ± 0.1	9.080 ± 0.04	10.970	10.591	-4.990	37.580	3.890	525	C	[1,5,7]
Cesium	Cs	0 ± 0	0 ± 0	20.35 ± 0.1	68.863	7.752	8.541	-2.646	0	301.55	R	[3,9]
Chalcocite	Cu ₂ S	-20.61 ± 0.3	-19.00 ± 0.3	28.9 ± 1	27.480	18.241	12.630	18.820	0	376	C	[1,2]
Chalcocopyrite	CuFeS ₂	-44.90 ± 1.0	-44.453	31.150	42.830	23.10 ± 0.1	20.790	12.800	-1.340	830	C,P	[1,8]
Copper	Cu	0 ± 0	0 ± 0	7.923 ± 0.02	7.113	5.857	5.410	1.500	0	1357	R	[5,9]
Covellite	CuS	-12.6 ± 1	-12.5 ± 1	15.90 ± 0.4	20.420	11.387	10.600	2.640	0	1273	R	[1,2]
Cs2O(s)	Cs ₂ O	-73.70 ± 0.3	-82.690 ± 0.29	35.10 ± 0.2	60.604	20.971	27.991	-10.820	-3.373	763	R	[4,10]
CsCl(s)	CsCl	-99.03 ± 0.2	-105.84 ± 0.2	24.183 ± 0.05	42.195	12.534	11.025	5.179	-0.032	743	C	[3]
CsOH(s)	CsOH	-88.60 ± 0.4	-99.60 ± 0.3	23.60 ± 1.0	40.737	16.227	12.324	14.005	-0.242	410	C	[3]
Cuprite	Cu ₂ O	-35.38 ± 0.4	-40.83 ± 0.3	22.08 ± 1.0	23.437	14.978	14.080	5.880	-0.760	1515	C	[1,11]
Li2O(s)	Li ₂ O	-134.33 ± 0.5	-143.10 ± 0.5	8.980 ± 0.02	14.760	12.950	14.940	6.080	-3.380	1200	R	[5,7]
LiOH(s)	LiOH	-104.91 ± 0.1	-115.90 ± 0.1	10.234 ± 0.05	16.440	11.893	11.990	8.240	-2.270	744.3	C	[3,5]
Lithium	Li	0 ± 0	0 ± 0	6.960 ± 0.05	12.974	5.894	1.640	11.100	0.840	453.7	R	[5,9]
Malachite	Cu ₂ (OH) ₂ (CO ₃)	-214.18 ± 0.8	-251.90 ± 0.5	44.5 ± 2	54.860	39.306	27.760	43.780	-1.340	780	R	[1,3,12]
Manganese	Mn	0 ± 0	0 ± 0	7.651 ± 0.02	7.526	6.314	5.689	3.391	-0.343	980	R	[3]
Manganosite	MnO	-86.74 ± 0.2	-92.08 ± 0.2	14.27 ± 0.2	13.221	10.70 ± 0.2	11.110	1.940	-0.880	1800	R	[1,4]
Mn(OH)2(s)	Mn(OH) ₂	-147.8 ± 1	-167.1 ± 2	23.10 ± 5.0	27.088	20.127	25.498	3.750	-5.768	573	So	[13,14]
Ni(OH)2-beta	Ni(OH) ₂	-109.25 ± 0.3	-129.61 ± 0.4	19.12 ± 0.2	23.470	19.602 ± 0.07	5.460	47.434	0	300	R	[15]
Nickel	Ni	0 ± 0	0 ± 0	7.14 ± 0.2	6.588	6.16 ± 0.2	4.060	7.040	0	633	R	[1,4]
Nontro_Parent ^a	K _{0.02} Ca _{0.247} (Mg _{0.066} Fe _{1.688} Al _{0.268} Ti _{0.007}) (Al _{0.542} Si _{3.458} O ₁₀ (OH) ₂)	-1119.40 ± 1.4	-1203.25 ± 1.3	79.53 ± 1.7	136.380	80.102 ± 0.08	69.266	86.764	-13.363	375	C	[16]
Pollucite	CsAlSi ₂ O ₆	-694.4 ± 1	-734.2 ± 1	49.8 ± 2	96.313	41.4 ± 1	46.713	17.480	-9.358	1000	C	[17]
Rb2O(s)	Rb ₂ O	-71.7 ± 20	-81.0 ± 20	30.000 ± 0.05	46.735	22.226	21.144	1.289	0.620	NR	R	[4,14,18]
RbOH(s)	RbOH	-89.37 ± 0.4	-100.10 ± 0.4	22.47 ± 0.7	58.894	16.49 ± 0.5	13.096	11.389	0	508	E	[19]
Rhodochrosite	MnCO ₃	-195.045 ± 0.33	-212.521 ± 0.29	23.90 ± 0.5	31.075	19.49 ± 0.5	21.990	9.300	-4.690	700	R	[1,7]
Rubidium	Rb	0 ± 0	0 ± 0	18.351 ± 0.07	55.788	7.580	7.580	0	0	312	R	[5,9]
Rutile	TiO ₂	-212.88 ± 0.8	-226.10 ± 0.8	12.020 ± 0.04	18.820	11.349	15.014	2.721	-3.979	1155	P	[20]
Saponite_Parent ^a	Na _{0.394} K _{0.021} Ca _{0.038} (Mg _{2.948} Fe _{0.021} Mn _{0.001}) (Al _{0.397} Fe _{0.034} Si _{3.569} O ₁₀ (OH) ₂)	-1343.748 ± 1.17	-1432.562 ± 1.16	75.189 ± 0.37	141.660	82.930 ± 0.42	82.997	65.650	-17.459	520	C	[16]
Smithsonite	ZnCO ₃	-174.85 ± 0.2	-194.26 ± 0.2	19.70 ± 2.0	28.275	19.14 ± 0.2	9.300	33.000	0	780	R	[1,4]
Sphalerite	ZnS	-47.93 ± 0.5	-49.00 ± 0.5	14.020 ± 0.04	23.830	10.771	11.770	1.260	-1.160	1300	R	[1,2,21]
Tenorite	CuO	-30.56 ± 0.5	-37.20 ± 0.5	10.18 ± 0.1	12.220	10.11 ± 0.1	11.530	1.880	-1.760	1600	C	[1,21]
Titanite	CaTiSiO ₅	-587.13 ± 1.0	-621.0 ± 1	30.88 ± 0.2	55.650	33.220	42.234	5.704	-9.525	1670	C,P	[20]
Titanium	Ti	0 ± 0	0 ± 0	7.35 ± 0.2	10.637	6.032	5.133	3.012	0	1166	R	[3]

表 22 (続き)

Mineral/ Phase (A-Z)	Composition	$\Delta_f G^{0,i,\dagger}$	$\Delta_f H^{0,i,\dagger}$	$S^{0,ii,\dagger}$	$V^{0,iii}$	$C_p^{0,ii,\dagger}$	Maier-Kelley Coefficients [‡]			$C_p^{vi,\dagger}$ T_{max}	Der [§]	Ref
							a ⁱⁱ	b × 10 ^{iv}	c × 10 ^{-v}			
Witherite ^b	BaCO ₃	-271.12 ± 0.5	-289.92 ± 0.5	26.79 ± 0.5	45.810	20.399	21.500	11.060	-3.910	1079	C,K	[5,6,22]
Wulfingite	Zn(OH) ₂	-133.73 ± 0.4	-154.79 ± 0.7	19.5 ± 2	32.443	20.293	21.692	8.219	-3.422	573	C,So	[5,14,23]
Wurtzite	ZnS	-44.81 ± 0.2	-45.85 ± 0.2	14.064 ± 0.04	23.846	10.996	11.820	1.160	-1.040	1300	C	[1,2,21]
Zinc	Zn	0 ± 0	0 ± 0	9.950 ± 0.03	9.158	6.066	5.350	2.400	0	693	R	[5,9]
Zincite	ZnO	-76.596 ± 0.07	-83.762 ± 0.06	10.43 ± 0.1	14.338	9.621	11.710	1.220	-2.180	2000	R	[5,9]

ⁱ kcal/mol, ⁱⁱ cal/mol/K, ⁱⁱⁱ cm³/mol, ^{iv} cal/mol/K², ^v calK/mol, ^{vi} K. * All minerals shown above are new entries in the JAEA-TDB (v1.07). [†] Uncertainties represent the 95% confidence interval (2σ). [‡] $C_p = a + b \cdot T + c/T^2$ (Maier and Kelly, 1932) up to the temperature limit shown under C_p T_{max} (K). [§] Derivation of $\Delta_f G^0$: R : as Reported. C : Calorimetry. P: Phase relations. So : Solubility. E : Estimated. K : Fitted to log K_{eq} data. ^a Parent minerals are used to provide estimates of S^0 and C_p for structurally equivalent or similar minerals based on additive principles described by Eq. (75) and Eq. (85), respectively, in Helgeson et al. (Helgeson et al., 1978) ^b See Figure 1-3. **References:** [1] (Helgeson et al., 1978). [2] (Mills, 1974). [3] (Chase, 1998). [4] (Wagman et al., 1982). [5] (Kelley, 1960). [6] (Parker, 1995). [7] (Robie and Waldbaum, 1968). [8] (Pankratz and King, 1970). [9] (Cox, 1978). [10] (Settle et al., 1974). [11] (Mah et al., 1967). [12] (Richardson and Brown, 1974). [13] (Baes and Mesmer, 1976; Shock et al., 1997) [14] Missing thermodynamic properties estimated using additivity principles described in Helgeson et al. [1]. [15] (Gamsjager et al., 2005; Sorai et al., 1969). [16] (Gailhanou et al., 2013). [17] (Semenov et al., 1993). [18] (Barin, 1993). [19] (Gurvich et al., 1997). [20] (Bowers and Helgeson, 1983; Robie et al., 1978). [21] (Stull and Prophet, 1971). [22] (Busenberg and Plummer, 1986). [23] (Dirkse, 1986).

表 23 JAEA β -TDB (v1.07)におけるエトリングサイト(Aft)、モノサルフェート水和物(Afm)、カトアイト (ハイドロガーネット)、ハイドロタルサイト(LDH)の熱力学特性と Maier-Kelley 式の係数($t = 25^\circ\text{C}$ and $P = 1$ bar)

Mineral/Phase (A-Z by group) ^{*,†}	Composition	$\Delta_f G^{\circ}$ [‡]	$\Delta_f H^{\circ}$ [‡]	S° [‡]	V° [‡]	C_p° [‡]	Maier-Kelley Coefficients [§]			$C_{p,vi,S}$ [§]	Der ^a	Ref
							a [¶]	b $\times 10^3$ ^v	c $\times 10^{-5}$ ^v			
Ettringite-Al	Ca ₆ Al ₂ (SO ₄) ₃ (OH) ₁₂ (H ₂ O) ₂₆	-3635.95 ± 1.6	-4196.93 ± 6.1	440 ± 30	707.030	519 ± 11	463.13	188.000	0	333	K	[1-10]
Ettringite-CO3	Ca ₆ Al ₂ (CO ₃) ₃ (OH) ₁₂ (H ₂ O) ₂₆	-3483.06 ± 1.4	-4022.416	420.000	650.400	507.160	449.2	194.400	0	333	K	[11]
Ettringite-Fe	Ca ₆ Fe ₂ (SO ₄) ₃ (OH) ₁₂ (H ₂ O) ₂₆	-3413.91 ± 2.2	-3971.512	450.608	717.560	528.147	482.549	152.938	0	333	K	[12]
Thaumasite	Ca ₆ Si ₂ O ₆ (SO ₄) ₂ (CO ₃) ₂ (H ₂ O) ₃₀	-3616.55 ± 1.7	-4160 ± 20	450 ± 50	660.000	504.153	454.998	183.644	-4.977	333	K	[9,13,14]
C2AH75	Ca ₂ Al ₂ O ₅ (H ₂ O) _{7.5}	-1124.03 ± 0.8	-1263.30 ± 3.1	107 ± 10	180.000	133.192	90.651	160.391	-4.693	328	K	[15-22]
*C2AH8	Superseded by C2AH75	-1152.150	-1300.143	105.607	183.860	133.431	85.738	176.719	-1.774	323	R	[11,58]
C2FH8	Ca ₂ Fe ₂ (OH) ₁₀ (H ₂ O) ₃	-935.14 ± 2.4	-1077.447	124.100	193.590	148.365	87.36	187.790	4.458	328	E	[23]
C4AH13	Ca ₄ Al ₂ (OH) ₁₄ (H ₂ O) ₆	-1752.9 ± 2	-1991.3 ± 6	150 ± 20	274.000	212.075	119.827	276.051	8.839	328	E	[24]
C4AH19	Ca ₄ Al ₂ (OH) ₁₄ (H ₂ O) ₁₂	-2093.6 ± 2	-2401.9 ± 6	250 ± 20	371.000	301.435	172.214	402.548	8.179	328	K	[3,11,15-21, 25-27]
C4FH13	Ca ₄ Fe ₂ (OH) ₁₄ (H ₂ O) ₆	-1537.8 ± 8	-1764 ± 30	190 ± 100	286.000	233.046	135.993	294.245	8.288	328	K	[28]
Friedel_Salt	Ca ₄ Al ₂ (OH) ₁₂ Cl ₂ (H ₂ O) ₄	-1635.7 ± 3	-1829.860	160.000	265.530	197.730	115.691	248.838	6.976	363	K	[29]
Friedel_Salt-Al	Ca ₄ Al ₂ (OH) ₁₂ Cl ₂ (H ₂ O) ₄	-1630.12 ± 1.4	-1824.3 ± 6	160.0 ± 20	265.530	197.730	115.691	248.838	6.976	363	K	[6,26, 30-33]
Friedel_Salt-Fe	Ca ₄ Fe ₂ (OH) ₁₂ Cl ₂ (H ₂ O) ₄	-1411.1 ± 4	-1587 ± 30	220 ± 100	278.040	206.467	109.862	265.789	15.432	328	K	[28]
Hemicarbonate-Al	Ca ₄ Al ₂ (CO ₃) _{0.5} (OH) ₁₃ (H ₂ O) ₅₋₅	-1755.06 ± 1.6	-1976.0 ± 6	178 ± 20	284.515	216.177	143.275	258.946	-3.825	363	K	[11,26,34]
Hemicarbonate-Fe	Ca ₄ Fe ₂ (CO ₃) _{0.5} (OH) ₁₃ (H ₂ O) ₃₋₅	-1424.0 ± 2	-1585 ± 30	266 ± 100	289.000	199.201	127.475	233.776	1.801	328	K	[28]
Kuzel_Salt	Ca ₄ Al ₂ (SO ₄) _{0.5} Cl(OH) ₁₂ (H ₂ O) ₆	-1802.70 ± 1.4	-2033.1 ± 6	176 ± 20	287.734	221.874	141.381	269.974	0	363	K	[6,33,35]
Monocarbonate-Al	Ca ₄ Al ₂ (CO ₃)(OH) ₁₂ (H ₂ O) ₅	-1755.45 ± 1.1	-1971.18 ± 4.6	165.0 ± 15	261.958	213.254	128.507	272.384	3.143	353	K	[10,26,29, 34,36-38]
Monocarbonate-Fe	Ca ₄ Fe ₂ (CO ₃)(OH) ₁₂ (H ₂ O) ₆	-1594.7 ± 2	-1819.4 ± 12	190 ± 40	292.000	235.326	126.244	313.175	13.964	328	K	[12,38]
Monoiodide-Al [§]	Ca ₄ Al ₂ (I ₂)(OH) ₁₂ (H ₂ O) ₄	-1590.86 ± 1.2	-1765.5 ± 6	200 ± 20	308.171	207.525	138.312	232.142	0	333	K	[39]
Mononitrate-Al	Ca ₄ Al ₂ (OH) ₁₂ (NO ₃) ₂ (H ₂ O) ₄	-1620.46 ± 2.6	-1855.6 ± 6	162 ± 20	296.685	207.525	138.312	232.142	0	333	K	[40]
Mononitrite-Al	Ca ₄ Al ₂ (OH) ₁₂ (NO ₂) ₂ (H ₂ O) ₄	-1580.93 ± 2.1	-1805.0 ± 6	150 ± 20	274.734	221.709	153.76	227.901	0	333	K	[40]
Monosulfate-Al	Ca ₄ Al ₂ (SO ₄)(OH) ₁₂ (H ₂ O) ₆	-1861.49 ± 1.2	-2095.6 ± 3	190 ± 20	309.030	225.094	141.91	279.000	0	353	K	[3,6,10,11, 29,33,39, 41-43]
Monosulfate-Fe	Ca ₄ Fe ₂ (SO ₄)(OH) ₁₂ (H ₂ O) ₆	-1644.83 ± 1.6	-1863.8 ± 12	240 ± 40	321.000	233.833	136.069	295.973	8.462	353	K	[12,44]
Stratlingite-Al	Ca ₂ Al ₂ SiO ₂ (OH) ₁₀ (H ₂ O) ₃	-1365.18 ± 1.0	-1517.4 ± 3	145 ± 10	216.120	150.248	104.403	179.032	-6.697	363	K	[4,11,45]
Stratlingite-Fe	Ca ₂ Fe ₂ SiO ₂ (OH) ₁₀ (H ₂ O) ₃	-1147.95 ± 2.5	-1302.280	137.300	227.000	158.991	98.577	195.994	1.759	353	E	[23]
Katoite-Al	Ca ₃ Al ₂ (OH) ₁₂	-1198.56 ± 0.9	-1322.28 ± 1.7	110.0 ± 10	150.000	106.470	69.76	134.000	0	473	K	[6,10,11, 15-17, 19, 21,25,27,33 46-48]
Katoite-AlSi040 ^b	Ca ₃ Al ₂ (SiO ₄) ₀₋₄ (OH) ₁₀₋₄	-1242.43 ± 0.9	-1360.4 ± 3	106 ± 10	146.710	105.531	74.328	118.401	-3.643	373	K[ss]	[11,27, 47-51]
Katoite-AlSi080 ^b	Ca ₃ Al ₂ (SiO ₄) ₀₋₈ (OH) ₈₋₈	-1282.02 ± 1.1	-1394.9 ± 3	100 ± 10	143.410	101.349	78.896	102.800	-7.286	373	K[ss]	[11,27, 47-51]
Katoite-Fe	Ca ₃ Fe ₂ (OH) ₁₂	-983.36 ± 2.7	-1078.6 ± 18	205 ± 60	155.000	118.449	63.801	151.222	8.499	353	K	[27]
Katoite-FeSi084	Ca ₃ Fe ₂ (SiO ₄) ₀₋₈₄ (OH) ₈₋₆₄	-1071.0 ± 3	-1156.2 ± 18	190 ± 60	148.800	109.113	77.064	115.061	-2.006	323	K[ss]	[27]
Katoite-FeSi134	Ca ₃ Fe ₂ (SiO ₄) ₁₋₃₄ (OH) ₆₋₆₄	-1118.74 ± 1.5	-1190.8 ± 18	205 ± 60	144.700	102.813	86.016	90.656	-9.096	323	K[ss]	[27]
CAH10	CaAl ₂ (OH) ₈ (H ₂ O) ₆	-1106.98 ± 0.7	-1260.24 ± 4.5	165.0 ± 15	193.000	125.633	49.298	251.109	1.304	303	K	[18-20, 22,25]

表 23 (続き)

Mineral/Phase (A-Z by group) *†	Composition	$\Delta_f G^{\circ}$ i,†	$\Delta_f H^{\circ}$ i,†	S° ii,†	V° iii	C_p° ii	Maier-Kelley Coefficients §			C_p T_{max} vi,§	Der ^a	Ref
							a ⁱⁱ	b × 10 ³ iv	c × 10 ⁻⁵ v			
Hydrotalcite-M4A	Mg ₄ Al ₂ (OH) ₁₄ (H ₂ O) ₃	-1520.14 ± 4.3	-1715.1 ± 13	120 ± 40	219.260	154.030	154.03	0	0	363	K	[48,52]
Hydrotalcite-M4Ac ^b	Mg ₄ Al ₂ (OH) ₁₂ (CO ₃)(H ₂ O) ₃	-1588.40 ± 3.2	-1779.712	126.880	219.260	153.908	153.908	0	0	353	K	[53]
Hydrotalcite-M6A ^b	Mg ₆ Al ₂ (OH) ₁₈ (H ₂ O) ₅	-2053.3 ± 16	-2327.082	143.600	228.000	212.744	212.744	0	0	353	K	[4]
Hydrotalcite-M6Ac	Mg ₆ Al ₂ (OH) ₁₆ (CO ₃)(H ₂ O) ₅	-2081.0 ± 10	-2350.048	153.800	229.440	211.904	211.904	0	0	353	K	[54,55]
Hydrotalcite-M6ACI ^b	Mg ₆ Al ₂ (OH) ₁₆ Cl ₂ (H ₂ O) ₅	-2018.2 ± 18	-2279 ± 30	160 ± 80	236.600	209.712	209.712	0	0	338	K	[56]
Hydrotalcite-M6Fc	Mg ₆ Fe ₂ (OH) ₁₆ (CO ₃)(H ₂ O) ₅	-1857.0 ± 8	-2123.184	162.800	237.480	220.642	220.642	0	0	353	K	[54,55]
Hydrotalcite_Parent ^{b,c}	Mg _{0.74} Al _{0.26} (OH) ₂ (CO ₃) _{0.13} (H ₂ O) _{0.39}	-249.302 ± 0.49	-278.676 ± 0.49	20.450 ± 0.04	36.542	24.140	24.14	0	0	298.15	C	[57]
*Hydrotalcite-Al	Mg ₄ Al ₂ (OH) ₁₄ (H ₂ O) ₃	-1530.231	-1721.717	131.160	220.200	155.414	80.609	325.714	-19.829	373	So	[58-60]
*Hydrotalcite-CO3	Mg ₃ Al(OH) ₈ (CO ₃) _{0.5} (H ₂ O) _{2.5}	-1038.203	-1166.255	98.281	115.000	122.514	122.514	0	0	353	So	[55,58]
*Hydrotalcite-CO3II	Mg ₄ Al ₂ CO ₃ O ₆ (H ₂ O) ₉	-1574.576	-1764.273	132.285	220.400	155.074	76.193	334.247	-18.467	303	R	[58,59]
*Hydrotalcite-Fe	Mg ₃ Fe(OH) ₈ (CO ₃) _{0.5} (H ₂ O) _{2.5}	-927.974	-1055.217	100.692	119.000	124.587	124.587	0	0	343	So	[55,58]
*Hydrotalcite-FeI	Mg ₄ Fe ₂ (OH) ₁₄ (H ₂ O) ₃	-1314.262	-1503.122	139.950	232.400	161.557	76.609	341.512	-15.000	373	R	[58,59]

ⁱ kcal/mol, ⁱⁱ cal/mol/K, ⁱⁱⁱ cm³/mol, ^{iv} cal/mol/K², ^v calK/mol, ^{vi} K. * Mineral names preceded by an asterisk (*) are considered obsolete, but are included for future reference. † Suffix notation: -Al, -Fe, -CO₃, -Si, -M4A, etc. refers to compositional changes of the same mineral/mineral group. -II Refers to a mineral of similar composition, but the thermodynamic properties were obtained using difference methods. _Parent : A parent mineral. † Uncertainties represent the 95% confidence interval (2σ). § $C_p = a + b \cdot T + c/T^2$ (Maier and Kelly, 1932) up to the temperature limit shown under C_p , T_{max} (K).^a Derivation of $\Delta_f G^{\circ}$: R : as Reported. C : Calorimetry. P: Phase relations. So : Solubility. E : Estimated. K : Fitted to log K_{eq} data (See Figures 1-4, 1-5, 1-6, and 1-7). [ss] A non-ideal solid solution model was used. ^b New entry in the JAEA-TDB (v1.07). ^c Parent minerals are used to provide estimates of S° and C_p for structurally equivalent or similar minerals based on additive principles described by Eq. (75) and Eq. (85), respectively, in Helgeson et al. (Helgeson et al., 1978). **References:** [1] (Lea and Desch, 1956). [2] (Ghorab and Kishar, 1985). [3] (Atkins et al., 1991). [4] (Atkins et al., 1992b). [5] (Warren and Reardon, 1994). [6] (Glasser et al., 1999). [7] (Perkins and Palmer, 1999). [8] (Baur et al., 2004). [9] (Macphee and Barnett, 2004). [10] (Ederova and Satava, 1979). [11] (Matschei et al., 2007). [12] (Möschner et al., 2008). [13] (Mittermayr et al., 2013). [14] (Matschei and Glasser, 2015). [15] (Wells et al., 1943). [16] (D'Ans and Eick, 1953). [17] (Peppler and Wells, 1954). [18] (Buttler and Taylor, 1958). [19] (Carlson, 1958). [20] (Percival and Taylor, 1959). [21] (Roberts, 1968). [22] (Lothenbach et al., 2012). [23] Estimated using methods described in the Appendix of Lothenbach et al. (Lothenbach et al., 2008). [24] Derived from the thermodynamic properties of C4AH19 as described in Lothenbach et al. [21]. [25] (Faurie-Mounier, 1966). [26] (Hobbs, 2001). [27] (Dilnesa et al., 2014). [28] (Dilnesa, 2011). [29] (Zhang et al., 1980). [30] (Birnin-Yauri and Glasser, 1998). [31] (Bothe and Brown, 2004). [32] (Honda et al., 2009). [33] (Balonis et al., 2010). [34] (Damidot et al., 1994). [35] (Stronach, 1996). [36] (Carlson and Berman, 1960). [37] (Nishikawa et al., 1992). [38] (Dilnesa et al., 2011). [39] (Aimoz et al., 2012). [40] (Balonis et al., 2011). [41] (Ghorab et al., 1998). [42] (Zhang, 2000). [43] (Leisinger et al., 2012). [44] (Dilnesa et al., 2012). [45] (Quillin and Majumdar, 1994). [46] (Von Nacken and Mosebach, 1936). [47] (Bennett et al., 1992). [48] (Atkins et al., 1994). [49] (Atkins et al., 1992a). [50] (Jappy and Glasser, 1992). [51] (Quillin and Majumdar, 1994). [52] (Gao and Li, 2012). [53] (Johnson and Glasser, 2003). [54] (Rozov et al., 2010). [55] (Rozov et al., 2011). [56] (Rozov et al., 2013). [57] (Allada et al., 2005). [58] (Arthur et al., 2012). [59] (Lothenbach et al., 2008). [60] (Lothenbach and Winnefeld, 2006).

表 24 JAEA β -TDB (v1.07)における粘土鉱物の熱力学特性と Maier-Kelley 式のパラメータ ($t = 25^\circ\text{C}$ and $P = 1 \text{ bar}$)

Mineral/ Phase (A-Z) ^{*,†}	Composition [‡]	$\Delta_f G^{0,i,\$}$	$\Delta_f H^{0,i,\$}$	$S^{0,ii,\$}$	$V^{0,iii}$	$C_p^{0,ii,\$}$	Maier-Kelley Coefficients ^a			C_p T_{max} ^{vi,a}	Der ^b	Ref
							a ⁱⁱ	b $\times 10^{3,iv}$	c $\times 10^{5,v}$			
Beidel-Ca	Ca _{0.165} (Al ₂)(Al _{0.33} Si _{3.67})O ₁₀ (OH) ₂	-1283.2 ± 3	-1370.6 ± 3	66.2 ± 5	136.192	74.427	63.744	81.163	-12.015	520	E[pm]	[1]
Beidel-Ca(avg)	Ca _{0.2} (Mg _{0.1} Fe _{0.3} Al _{1.65})(Al _{0.45} Si _{3.55})O ₁₀ (OH) ₂	-1261.0 ± 3	-1347.4 ± 3	70.7 ± 5	136.781	76.295	63.976	82.992	-11.045	520	E[pm]	[1]
Beidel-CaFe(avg) ^c	Ca _{0.2} (Fe _{0.4} Al _{1.65})(Al _{0.45} Si _{3.55})O ₁₀ (OH) ₂	-1253.1 ± 3	-1339.1 ± 3	71.7 ± 5	136.856	76.581	64.176	83.016	-10.975	520	E[pm]	[1]
Beidel-Cs ^c	Cs _{0.33} (Al ₂)(Al _{0.33} Si _{3.67})O ₁₀ (OH) ₂	-1287.1 ± 3	-1374.8 ± 3	70.4 ± 5	141.503	76.199	66.437	79.201	-12.313	520	E[pm]	[1]
Beidel-Cs(avg) ^c	Cs _{0.4} (Mg _{0.1} Fe _{0.3} Al _{1.65})(Al _{0.45} Si _{3.55})O ₁₀ (OH) ₂	-1265.8 ± 3	-1352.5 +/- 3	75.8 +/- 5	145.549	78.442	67.239	80.614	-11.407	520	E[pm]	[1]
Beidel-CsFe(avg) ^c	Cs _{0.4} (Fe _{0.4} Al _{1.65})(Al _{0.45} Si _{3.55})O ₁₀ (OH) ₂	-1257.8 ± 3	-1344.1 ± 3	76.8 ± 5	145.624	78.728	67.439	80.639	-11.337	520	E[pm]	[1]
Beidel-Fe	Fe _{0.165} (Al ₂)(Al _{0.33} Si _{3.67})O ₁₀ (OH) ₂	-1266.0 ± 3	-1352.9 ± 3	67.3 ± 5	135.406	74.701	63.819	81.327	-11.881	520	E[pm]	[1]
Beidel-Fe(avg)	Fe _{0.2} (Mg _{0.1} Fe _{0.3} Al _{1.65})(Al _{0.45} Si _{3.55})O ₁₀ (OH) ₂	-1240.1 ± 3	-1325.8 ± 3	72.1 ± 5	135.828	76.626	64.066	83.190	-10.883	520	E[pm]	[1]
Beidel-FeX2(avg) ^c	Fe _{0.2} (Fe _{0.4} Al _{1.65})(Al _{0.45} Si _{3.55})O ₁₀ (OH) ₂	-1232.2 ± 3	-1317.6 ± 3	73.1 ± 5	135.903	76.913	64.26	83.224	-10.810	520	E[pm]	[1]
Beidel-K	K _{0.33} (Al ₂)(Al _{0.33} Si _{3.67})O ₁₀ (OH) ₂	-1285.3 ± 3	-1373.1 ± 3	68.3 ± 5	140.088	76.055	64.873	82.413	-11.902	520	E[pm]	[1]
Beidel-K(avg)	K _{0.4} (Mg _{0.1} Fe _{0.3} Al _{1.65})(Al _{0.45} Si _{3.55})O ₁₀ (OH) ₂	-1263.5 ± 3	-1350.3 ± 3	73.3 ± 5	141.504	78.268	65.344	84.507	-10.909	520	E[pm]	[1]
Beidel-KFe(avg) ^c	K _{0.4} (Fe _{0.4} Al _{1.65})(Al _{0.45} Si _{3.55})O ₁₀ (OH) ₂	-1255.6 ± 3	-1342.1 ± 3	74.3 ± 5	141.579	78.554	65.538	84.540	-10.836	520	E[pm]	[1]
Beidel-Mg	Mg _{0.165} (Al ₂)(Al _{0.33} Si _{3.67})O ₁₀ (OH) ₂	-1279.5 ± 3	-1366.9 ± 3	65.7 ± 5	135.282	74.230	63.499	81.272	-12.001	520	E[pm]	[1]
Beidel-Mg(avg)	Mg _{0.2} (Mg _{0.1} Fe _{0.3} Al _{1.65})(Al _{0.45} Si _{3.55})O ₁₀ (OH) ₂	-1256.5 ± 3	-1342.9 ± 3	70.1 ± 5	135.678	76.054	63.678	83.124	-11.029	520	E[pm]	[1]
Beidel-MgFe(avg) ^c	Mg _{0.2} (Fe _{0.4} Al _{1.65})(Al _{0.45} Si _{3.55})O ₁₀ (OH) ₂	-1248.6 ± 3	-1334.7 ± 3	71.1 ± 5	135.753	76.340	63.872	83.157	-10.956	520	E[pm]	[1]
Beidel-Na	Na _{0.33} (Al ₂)(Al _{0.33} Si _{3.67})O ₁₀ (OH) ₂	-1282.3 ± 3	-1370.0 ± 3	67.6 ± 5	137.551	75.454	64.83	81.792	-12.234	520	E[pm]	[1]
Beidel-Na(avg)	Na _{0.4} (Mg _{0.1} Fe _{0.3} Al _{1.65})(Al _{0.45} Si _{3.55})O ₁₀ (OH) ₂	-1259.9 ± 3	-1346.6 ± 3	72.4 ± 5	138.428	77.539	65.292	83.755	-11.311	520	E[pm]	[1]
Beidel-NaFe(avg) ^c	Na _{0.4} (Fe _{0.4} Al _{1.65})(Al _{0.45} Si _{3.55})O ₁₀ (OH) ₂	-1251.9 ± 3	-1338.3 ± 3	73.4 ± 5	138.503	77.825	65.486	83.788	-11.238	520	E[pm]	[1]
Beidel-NH4 ^c	(NH ₄) _{0.33} (Al ₂)(Al _{0.33} Si _{3.67})O ₁₀ (OH) ₂	-1275.9 ± 3	-1370.4 ± 3	68.8 ± 5	141.587	78.343	65.962	86.432	-11.902	520	E[pm]	[1]
Beidel-NH4(avg)	(NH ₄) _{0.4} (Mg _{0.1} Fe _{0.3} Al _{1.65})(Al _{0.45} Si _{3.55})O ₁₀ (OH) ₂	-1252.1 ± 3	-1347.1 ± 3	73.9 ± 5	143.320	81.040	66.664	89.378	-10.909	520	E[pm]	[1]
Beidel-NH4Fe(avg) ^c	(NH ₄) _{0.4} (Fe _{0.4} Al _{1.65})(Al _{0.45} Si _{3.55})O ₁₀ (OH) ₂	-1244.2 ± 3	-1338.8 ± 3	74.9 ± 5	143.395	81.326	66.866	89.399	-10.840	520	E[pm]	[1]
Beidel_Parent ^c	K _{0.104} Ca _{0.185} (Mg _{0.09} Fe _{0.112} Al _{1.812}) (Al _{0.426} Si _{3.574})O ₁₀ (OH) ₂	-1280.41 ± 1.6	-1367.28 ± 1.6	70.150 ± 0.10	137.980	76.122 ± 0.08	64.754	81.957	-11.616	520	C	[2]
Illite	K _{0.6} (Mg _{0.25} Al _{1.8})(Al _{0.5} Si _{3.5})O ₁₀ (OH) ₂	-1307.1 ± 3	-1395.4 ± 3	71.7 ± 5	139.304	75.173	74.682	64.189	-16.576	480	E[pm]	[1,3]
Illite(avg) ^c	K _{0.65} (Mg _{0.25} Fe _{0.2} Al _{1.6})(Al _{0.5} Si _{3.5})O ₁₀ (OH) ₂	-1289.7 ± 3	-1377.4 ± 3	74.6 ± 5	139.304	76.517	74.581	65.738	-15.702	480	E[pm]	[1]
Illite_Parent ^{c,d}	K _{0.762} Na _{0.044} (Mg _{0.241} Fe _{0.376} Al _{1.427}) (Al _{0.613} Si _{3.387})O ₁₀ (OH) ₂	-1277.53 ± 2.0	-1365.02 ± 2.0	77.658 ± 0.04	139.180	78.416 ± 0.02	75.87	66.714	-15.418	480	C	[2]
Montmor-Ca	Ca _{0.165} (Mg _{0.33} Al _{1.67})(Si ₄)O ₁₀ (OH) ₂	-1271.3 ± 3	-1358.4 ± 3	66.8 ± 5	135.843	74.553	73.114	67.013	-16.482	520	E[pm]	[1]
Montmor-Ca(avg)	Ca _{0.2} (Mg _{0.4} Fe _{0.2} Al _{1.45})(Al _{0.1} Si _{3.9})O ₁₀ (OH) ₂	-1260.3 ± 3	-1346.5 ± 3	70.8 ± 5	135.843	76.306	73.812	67.950	-15.792	520	E[pm]	[1]
Montmor-Cs ^c	Cs _{0.33} (Mg _{0.33} Al _{1.67})(Si ₄)O ₁₀ (OH) ₂	-1275.2 ± 3	-1361.0 ± 3	76.2 ± 5	162.728	76.323	75.806	65.050	-16.316	520	E[pm]	[1]
Montmor-Cs(avg) ^c	Cs _{0.4} (Mg _{0.4} Fe _{0.2} Al _{1.45})(Al _{0.1} Si _{3.9})O ₁₀ (OH) ₂	-1265.1 ± 3	-1350.2 ± 3	80.7	162.728	78.122	73.189	67.175	-16.349	520	E[pm]	[1]
Montmor-Fe	Fe _{0.165} (Mg _{0.33} Al _{1.67})(Si ₄)O ₁₀ (OH) ₂	-1254.0 ± 3	-1340.1 ± 3	69.7 ± 5	141.503	74.826	73.189	67.175	-16.349	520	E[pm]	[1]
Montmor-Fe(avg)	Fe _{0.2} (Mg _{0.4} Fe _{0.2} Al _{1.45})(Al _{0.1} Si _{3.9})O ₁₀ (OH) ₂	-1239.4 ± 3	-1324.4 ± 3	74.0 ± 5	141.503	76.306	73.812	67.950	-15.792	520	E[pm]	[1]
Montmor-K	K _{0.33} (Mg _{0.33} Al _{1.67})(Si ₄)O ₁₀ (OH) ₂	-1273.3 ± 3	-1360.7 ± 3	69.4 ± 5	141.503	76.179	74.242	68.262	-16.370	520	E[pm]	[1]
Montmor-K(avg)	K _{0.4} (Mg _{0.4} Fe _{0.2} Al _{1.45})(Al _{0.1} Si _{3.9})O ₁₀ (OH) ₂	-1262.8 ± 3	-1349.4 ± 3	73.6 ± 5	141.503	77.947	75.089	69.267	-15.818	520	E[pm]	[1]
Montmor_KunipiaF	K _{0.005} Na _{0.375} Ca _{0.06} (Mg _{0.31} Fe _{0.1} Al _{1.56}) (Al _{0.09} Si _{3.91})O ₁₀ (OH) ₂	-1269.1 ± 3	-1355.9 ± 3	71.3 ± 5	138.031	76.559	75.028	67.907	-16.637	520	E[pm]	[1]
Montmor-Mg	Mg _{0.165} (Mg _{0.33} Al _{1.67})(Si ₄)O ₁₀ (OH) ₂	-1267.6 ± 3	-1354.1 ± 3	68.4 ± 5	142.918	74.354	72.868	67.122	-16.469	520	E[pm]	[1]
Montmor-Mg(avg)	Mg _{0.2} (Mg _{0.4} Fe _{0.2} Al _{1.45})(Al _{0.1} Si _{3.9})O ₁₀ (OH) ₂	-1255.8 ± 3	-1341.4 ± 3	72.3 ± 5	142.918	75.734	73.423	67.885	-15.938	520	E[pm]	[1]
Montmor_MX80	K _{0.002} Na _{0.21} Mg _{0.018} Ca _{0.036} (Mg _{0.24} Fe _{0.2} Al _{1.55}) (Al _{0.04} Si _{3.96})O ₁₀ (OH) ₂	-1249.9 ± 3	-1336.6 ± 3	69.4 ± 5	133.783	75.750	73.541	68.664	-16.235	520	E[pm]	[1]
Montmor-Na	Na _{0.33} (Mg _{0.33} Al _{1.67})(Si ₄)O ₁₀ (OH) ₂	-1270.3 ± 3	-1357.8 ± 3	67.8 ± 5	135.843	75.578	74.199	67.642	-16.702	520	E[pm]	[1]
Montmor-Na(avg)	Na _{0.4} (Mg _{0.4} Fe _{0.2} Al _{1.45})(Al _{0.1} Si _{3.9})O ₁₀ (OH) ₂	-1259.2 ± 3	-1345.9 ± 3	72.0 ± 5	135.843	77.218	75.037	68.515	-16.220	520	E[pm]	[1]
Montmor-NH4 ^c	(NH ₄) _{0.33} (Mg _{0.33} Al _{1.67})(Si ₄)O ₁₀ (OH) ₂	-1263.9 ± 3	-1357.4 ± 3	71.9 ± 5	150.418	78.467	75.331	72.281	-16.370	520	E[pm]	[1]
Montmor-NH4(avg) ^c	(NH ₄) _{0.4} (Mg _{0.4} Fe _{0.2} Al _{1.45})(Al _{0.1} Si _{3.9})O ₁₀ (OH) ₂	-1251.4 ± 3	-1345.6 ± 3	76.1 ± 5	150.418	80.719	76.409	74.139	-15.818	520	E[pm]	[1]
Montmor_Parent ^{c,d}	K _{0.024} Na _{0.409} Ca _{0.009} (Mg _{0.214} Fe _{0.208} Al _{1.596}) (Al _{0.262} Si _{3.738})O ₁₀ (OH) ₂	-1265.10 ± 1.6	-1351.90 ± 1.6	72.16 ± 0.1	134.920	76.123 ± 0.02	76.379	67.419	-17.440	520	C	[2]

表 24 (続き)

Mineral/ Phase (A-Z) *†	Composition ‡	$\Delta_i G^{0,§}$	$\Delta_i H^{0,§}$	$S^{0,§}$	V^{III}	$C_p^{0,§}$	Maier-Kelley Coefficients ^a			C_p $T_{max}^{vi,a}$	Der ^b	Ref
							a ⁱⁱ	b × 10 ^{iv}	c × 10 ^{-v}			
Nontro-Ca	Ca _{0.165} (Fe ₂)(Al _{0.33} Si _{3.67})O ₁₀ (OH) ₂	-1070.8 ± 3	-1154.7 ± 3	77.2 ± 5	137.122	80.620	88.798	45.262	-19.266	375	E[pm]	[4]
Nontro-Ca(avg)	Ca _{0.2} (Mg _{0.1} Fe _{1.65} Al _{0.3})(Al _{0.45} Si _{3.55})O ₁₀ (OH) ₂	-1117.6 ± 3	-1201.4 ± 3	78.9 ± 5	136.184	79.647	90.924	41.581	-21.045	375	E[pm]	[4]
Nontro-CaFe(avg) ^c	Ca _{0.2} (Fe _{1.75} Al _{0.3})(Al _{0.45} Si _{3.55})O ₁₀ (OH) ₂	-1109.7 ± 3	-1193.1 ± 3	79.9 ± 5	136.259	79.934	91.135	41.586	-20.979	375	E[pm]	[4]
Nontro-CaFeX2(avg) ^c	Ca _{0.2} (Mg _{0.1} Fe _{1.95})(Fe _{0.45} Si _{3.55})O ₁₀ (OH) ₂	-1038.0 ± 3	-1121.2 ± 3	80.5 ± 5	137.946	82.925	88.738	47.939	-17.873	375	E[pm]	[4]
Nontro-Cs ^c	Cs _{0.33} (Fe ₂)(Al _{0.33} Si _{3.67})O ₁₀ (OH) ₂	-1074.7 ± 3	-1158.9 ± 3	81.4 ± 5	144.356	82.392	69.021	88.764	-11.640	375	E[pm]	[4]
Nontro-Cs(avg) ^c	Cs _{0.4} (Mg _{0.1} Fe _{1.65} Al _{0.3})(Al _{0.45} Si _{3.55})O ₁₀ (OH) ₂	-1122.4 ± 3	-1206.5 ± 3	84.0 ± 5	144.952	81.792	71.718	84.667	-13.482	375	E[pm]	[4]
Nontro-CsFe(avg) ^c	Cs _{0.4} (Fe _{1.75} Al _{0.3})(Al _{0.45} Si _{3.55})O ₁₀ (OH) ₂	-1114.5 ± 3	-1198.3 ± 3	85.0 ± 5	145.027	82.081	71.918	84.692	-13.412	375	E[pm]	[4]
Nontro-CsFeX2(avg) ^c	Cs _{0.4} (Mg _{0.1} Fe _{1.95})(Fe _{0.45} Si _{3.55})O ₁₀ (OH) ₂	-1042.7 ± 3	-1126.3 ± 3	85.6 ± 3	146.714	85.072	69.532	91.024	-10.311	375	E[pm]	[4]
Nontro-Fe	Fe _{0.165} (Fe ₂)(Al _{0.33} Si _{3.67})O ₁₀ (OH) ₂	-1053.6 ± 3	-1137.0 ± 3	78.4 ± 5	136.336	80.893	88.875	45.420	-19.133	375	E[pm]	[4]
Nontro-Fe(avg)	Fe _{0.2} (Mg _{0.1} Fe _{1.65} Al _{0.3})(Al _{0.45} Si _{3.55})O ₁₀ (OH) ₂	-1096.8 ± 3	-1180.0 ± 3	80.3 ± 5	135.231	79.980	91.017	41.774	-20.883	375	E[pm]	[4]
Nontro-FeX2(avg) ^c	Fe _{0.2} (Fe _{1.75} Al _{0.3})(Al _{0.45} Si _{3.55})O ₁₀ (OH) ₂	-1088.8 ± 3	-1171.6 ± 3	81.3 ± 5	135.306	80.266	91.211	41.808	-20.810	375	E[pm]	[4]
Nontro-FeX3(avg) ^c	Fe _{0.2} (Mg _{0.1} Fe _{1.95})(Fe _{0.45} Si _{3.55})O ₁₀ (OH) ₂	-1017.1 ± 3	-1099.7 ± 3	81.9 ± 5	136.993	83.257	88.831	48.133	-17.712	375	E[pm]	[4]
Nontro-K	K _{0.33} (Fe ₂)(Al _{0.33} Si _{3.67})O ₁₀ (OH) ₂	-1072.9 ± 3	-1157.2 ± 3	79.3 ± 5	141.019	82.247	89.927	46.510	-19.154	375	E[pm]	[4]
Nontro-K(avg)	K _{0.4} (Mg _{0.1} Fe _{1.65} Al _{0.3})(Al _{0.45} Si _{3.55})O ₁₀ (OH) ₂	-1120.1 ± 3	-1204.4 ± 3	81.5 ± 5	140.907	81.620	92.292	43.094	-20.908	375	E[pm]	[4]
Nontro-KFe(avg) ^c	K _{0.4} (Fe _{1.75} Al _{0.3})(Al _{0.45} Si _{3.55})O ₁₀ (OH) ₂	-1112.2 ± 3	-1196.1 ± 3	82.5 ± 5	140.982	81.906	92.486	43.128	-20.835	375	E[pm]	[4]
Nontro-KFeX2(avg) ^c	K _{0.4} (Mg _{0.1} Fe _{1.95})(Fe _{0.45} Si _{3.55})O ₁₀ (OH) ₂	-1045.5 ± 3	-1124.2 ± 3	83.1 ± 5	142.669	84.897	90.106	49.452	-17.737	375	E[pm]	[4]
Nontro-Mg	Mg _{0.165} (Fe ₂)(Al _{0.33} Si _{3.67})O ₁₀ (OH) ₂	-1067.1 ± 3	-1151.1 ± 3	76.7 ± 5	136.212	80.422	88.553	45.370	-19.253	375	E[pm]	[4]
Nontro-Mg(avg)	Mg _{0.2} (Mg _{0.1} Fe _{1.65} Al _{0.3})(Al _{0.45} Si _{3.55})O ₁₀ (OH) ₂	-1113.2 ± 3	-1196.8 ± 3	78.3 ± 5	135.081	79.406	90.626	41.712	-21.029	375	E[pm]	[4]
Nontro-MgFe(avg) ^c	Mg _{0.2} (Fe _{1.75} Al _{0.3})(Al _{0.45} Si _{3.55})O ₁₀ (OH) ₂	-1105.2 ± 3	-1188.7 ± 3	79.3 ± 5	135.156	79.693	90.821	41.745	-20.956	375	E[pm]	[4]
Nontro-MgFeX2(avg) ^c	Mg _{0.2} (Mg _{0.1} Fe _{1.95})(Fe _{0.45} Si _{3.55})O ₁₀ (OH) ₂	-1033.5 ± 3	-1116.8 ± 3	79.9 ± 5	136.843	82.684	88.44	48.070	-17.857	375	E[pm]	[4]
Nontro-Na	Na _{0.33} (Fe ₂)(Al _{0.33} Si _{3.67})O ₁₀ (OH) ₂	-1069.8 ± 3	-1154.0 ± 3	78.6 ± 5	138.481	81.647	89.884	45.890	-19.485	375	E[pm]	[4]
Nontro-Na(avg)	Na _{0.4} (Mg _{0.1} Fe _{1.65} Al _{0.3})(Al _{0.45} Si _{3.55})O ₁₀ (OH) ₂	-1116.5 ± 3	-1200.6 ± 3	80.6 ± 5	137.831	80.892	92.24	42.343	-21.310	375	E[pm]	[4]
Nontro-NaFe(avg) ^c	Na _{0.4} (Fe _{1.75} Al _{0.3})(Al _{0.45} Si _{3.55})O ₁₀ (OH) ₂	-1108.6 ± 3	-1192.4 ± 3	81.6 ± 5	137.906	81.178	92.434	42.376	-21.237	375	E[pm]	[4]
Nontro-NaFeX2(avg) ^c	Na _{0.4} (Mg _{0.1} Fe _{1.95})(Fe _{0.45} Si _{3.55})O ₁₀ (OH) ₂	-1036.8 ± 3	-1120.4 ± 3	82.2 ± 5	139.593	84.169	90.054	48.700	-18.139	375	E[pm]	[4]
Nontro-NH4	(NH ₄) _{0.33} (Fe ₂)(Al _{0.33} Si _{3.67})O ₁₀ (OH) ₂	-1063.4 ± 3	-1154.4 ± 3	79.9 ± 5	142.517	84.536	68.547	95.994	-11.229	375	E[pm]	[4]
Nontro-NH4(avg)	(NH ₄) _{0.4} (Mg _{0.1} Fe _{1.65} Al _{0.3})(Al _{0.45} Si _{3.55})O ₁₀ (OH) ₂	-1108.7 ± 3	-1201.1 ± 3	82.1 ± 5	142.723	84.393	71.143	93.432	-12.984	375	E[pm]	[4]
Nontro-NH4Fe(avg) ^c	(NH ₄) _{0.4} (Fe _{1.75} Al _{0.3})(Al _{0.45} Si _{3.55})O ₁₀ (OH) ₂	-1100.8 ± 3	-1192.9 ± 3	83.1 ± 5	142.798	84.679	71.345	93.453	-12.915	375	E[pm]	[4]
Nontro-NH4FeX2(avg) ^c	(NH ₄) _{0.4} (Mg _{0.1} Fe _{1.95})(Fe _{0.45} Si _{3.55})O ₁₀ (OH) ₂	-1029.1 ± 3	-1121.0 ± 3	83.7 ± 5	144.485	87.670	68.961	99.782	-9.815	375	E[pm]	[4]
Nontro_Parent ^{c,d}	K _{0.02} Ca _{0.247} (Mg _{0.066} Fe _{1.688} Al _{0.268} Ti _{0.007}) (Al _{0.542} Si _{3.458})O ₁₀ (OH) ₂	-1119.40 ± 1.4	-1203.25 ± 1.3	79.53 ± 1.7	136.380	80.102 ± 0.08	69.266	86.764	-13.363	375	C	[5]
Saponite-Ca	Ca _{0.165} (Mg ₃)(Al _{0.33} Si _{3.67})O ₁₀ (OH) ₂	-1346.4 ± 3	-1435.2 ± 4	71.5 ± 5	139.680	81.088	80.693	65.255	-16.944	520	E[pm]	[4]
Saponite-Ca(avg)	Ca _{0.225} (Mg _{2.8} Fe _{0.1} Al _{0.05})(Al _{0.5} Si _{3.5})O ₁₀ (OH) ₂	-1344.9 ± 3	-1433.2 ± 3	73.5 ± 5	138.906	81.134	81.85	64.688	-17.781	520	E[pm]	[4]
Saponite-CaFe ^c	Ca _{0.165} (Fe ₃)(Al _{0.33} Si _{3.67})O ₁₀ (OH) ₂	-1096.4 ± 9	-1175.0 ± 9	101.7 ± 5	141.936	89.675	86.518	66.253	-14.753	520	E[pm]	[4]
Saponite-CaFe(avg) ^c	Ca _{0.225} (Fe _{2.9} Al _{0.05})(Al _{0.5} Si _{3.5})O ₁₀ (OH) ₂	-1110.7 ± 9	-1189.4 ± 9	101.8 ± 5	141.012	89.149	87.286	65.620	-15.736	520	E[pm]	[4]
Saponite-Cs ^c	Cs _{0.33} (Mg ₃)(Al _{0.33} Si _{3.67})O ₁₀ (OH) ₂	-1350.3 ± 3	-1439.3 ± 3	75.7 ± 5	146.913	82.858	83.385	63.292	-17.243	520	E[pm]	[4]
Saponite-Cs(avg) ^c	Cs _{0.45} (Mg _{2.8} Fe _{0.1} Al _{0.05})(Al _{0.5} Si _{3.5})O ₁₀ (OH) ₂	-1350.2 ± 2	-1438.8 ± 3	79.3 ± 5	148.770	83.549	85.521	62.012	-18.188	520	E[pm]	[4]
Saponite-CsFe ^c	Cs _{0.33} (Fe ₃)(Al _{0.33} Si _{3.67})O ₁₀ (OH) ₂	-1100.3 ± 3	-1179.1 ± 3	105.9 ± 5	149.169	91.445	89.210	64.290	-15.052	520	E[pm]	[4]
Saponite-CsFe(avg) ^c	Cs _{0.45} (Fe _{2.9} Al _{0.05})(Al _{0.5} Si _{3.5})O ₁₀ (OH) ₂	-1116.0 ± 3	-1195.1 ± 3	107.5 ± 5	150.876	91.301	87.646	67.502	-14.641	520	E[pm]	[4]
Saponite-Fe	Fe _{0.165} (Mg ₃)(Al _{0.33} Si _{3.67})O ₁₀ (OH) ₂	-1329.2 ± 3	-1417.5 ± 4	72.6 ± 5	138.894	81.362	80.769	65.415	-16.810	520	E[pm]	[4]
Saponite-Fe(avg)	Fe _{0.225} (Mg _{2.8} Fe _{0.1} Al _{0.05})(Al _{0.5} Si _{3.5})O ₁₀ (OH) ₂	-1321.4 ± 3	-1409.0 ± 3	75.1 ± 5	137.834	81.508	81.952	64.910	-17.598	520	E[pm]	[4]
Saponite-FeX2 ^c	Fe _{0.165} (Fe ₃)(Al _{0.33} Si _{3.67})O ₁₀ (OH) ₂	-1079.1 ± 9	-1157.1 ± 9	102.9 ± 5	141.150	89.948	86.594	66.413	-14.620	520	E[pm]	[4]
Saponite-FeX2(avg) ^c	Fe _{0.225} (Fe _{2.9} Al _{0.05})(Al _{0.5} Si _{3.5})O ₁₀ (OH) ₂	-1087.2 ± 9	-1165.3 ± 9	103.3 ± 5	139.940	89.521	87.388	65.841	-15.554	520	E[pm]	[4]
Saponite-K	K _{0.33} (Mg ₃)(Al _{0.33} Si _{3.67})O ₁₀ (OH) ₂	-1348.5 ± 3	-1437.7 ± 4	73.6 ± 5	143.576	82.715	81.821	66.504	-16.831	520	E[pm]	[4]
Saponite-K(avg)	K _{0.45} (Mg _{2.8} Fe _{0.1} Al _{0.05})(Al _{0.5} Si _{3.5})O ₁₀ (OH) ₂	-1347.7 ± 3	-1436.5 ± 3	76.5 ± 5	144.220	83.353	83.388	66.392	-17.627	520	E[pm]	[4]
Saponite-KFe ^c	K _{0.33} (Fe ₃)(Al _{0.33} Si _{3.67})O ₁₀ (OH) ₂	-1098.4 ± 9	-1177.4 ± 9	103.8 ± 5	145.832	91.301	87.646	67.502	-14.641	520	E[pm]	[4]
Saponite-KFe(avg) ^c	K _{0.45} (Fe _{2.9} Al _{0.05})(Al _{0.5} Si _{3.5})O ₁₀ (OH) ₂	-1113.5 ± 9	-1192.8 ± 9	104.7 ± 5	146.325	91.366	88.824	67.323	-15.583	520	E[pm]	[4]
Saponite-Mg	Mg _{0.165} (Mg ₃)(Al _{0.33} Si _{3.67})O ₁₀ (OH) ₂	-1342.7 ± 3	-1431.5 ± 4	70.9 ± 5	138.770	80.889	80.447	65.363	-16.931	520	E[pm]	[4]
Saponite-Mg(avg)	Mg _{0.225} (Mg _{2.8} Fe _{0.1} Al _{0.05})(Al _{0.5} Si _{3.5})O ₁₀ (OH) ₂	-1339.9 ± 3	-1428.2 ± 3	72.9 ± 5	137.665	80.864	81.514	64.837	-17.762	520	E[pm]	[4]

表 24 (続き)

Mineral/ Phase (A-Z) *,†	Composition ‡	$\Delta_f G^{0\text{ i},§}$	$\Delta_f H^{0\text{ i},§}$	$S^{0\text{ ii},§}$	$V^{0\text{ iii}}$	$C_p^{0\text{ ii},§}$	Maier-Kelley Coefficients ^a			$C_p^{0\text{ vi},a}$ T_{max}	Der ^b	Ref
							a ⁱⁱ	$b \times 10^{\text{iv}}$	$c \times 10^{\text{v}}$			
Saponite-MgFe ^c	Mg _{0.165} (Fe ₃)(Al _{0.33} Si _{3.67})O ₁₀ (OH) ₂	-1092.7 ± 9	-1171.3 ± 9	101.2 ± 5	141.026	89.476	86.272	66.362	-14.740	520	E[pm]	[4]
Saponite-MgFe(avg) ^c	Mg _{0.225} (Fe _{2.9} Al _{0.05})(Al _{0.5} Si _{3.5})O ₁₀ (OH) ₂	-1105.6 ± 9	-1184.4 ± 9	101.1 ± 5	139.771	88.877	86.95	65.768	-15.718	520	E[pm]	[4]
Saponite-Na	Na _{0.33} (Mg ₃)(Al _{0.33} Si _{3.67})O ₁₀ (OH) ₂	-1345.5 ± 3	-1434.6 ± 4	72.8 ± 5	141.039	82.114	81.778	65.883	-17.163	520	E[pm]	[4]
Saponite-Na(avg)	Na _{0.45} (Mg _{2.8} Fe _{0.1} Al _{0.05})(Al _{0.5} Si _{3.5})O ₁₀ (OH) ₂	-1343.6 ± 3	-1432.3 ± 3	75.4 ± 5	140.759	82.534	83.33	65.546	-18.080	520	E[pm]	[4]
Saponite-NaFe ^c	Na _{0.33} (Fe ₃)(Al _{0.33} Si _{3.67})O ₁₀ (OH) ₂	-1095.4 ± 9	-1174.3 ± 9	103.1 ± 5	143.295	90.701	87.603	66.882	-14.972	520	E[pm]	[4]
Saponite-NaFe(avg) ^c	Na _{0.45} (Fe _{2.9} Al _{0.05})(Al _{0.5} Si _{3.5})O ₁₀ (OH) ₂	-1109.3 ± 9	-1188.5 ± 9	103.7 ± 5	142.865	90.548	88.766	66.478	-16.035	520	E[pm]	[4]
Saponite-NH4 ^c	(NH ₄) _{0.33} (Mg ₃)(Al _{0.33} Si _{3.67})O ₁₀ (OH) ₂	-1339.1 ± 3	-1435.0 ± 3	74.1 ± 5	145.075	85.003	82.91	70.523	-16.831	520	E[pm]	[4]
Saponite-NH4(avg) ^c	(NH ₄) _{0.45} (Mg _{2.8} Fe _{0.1} Al _{0.05})(Al _{0.5} Si _{3.5})O ₁₀ (OH) ₂	-1334.9 ± 3	-1432.9 ± 3	77.2 ± 5	146.263	86.472	84.874	71.872	-17.628	520	E[pm]	[4]
Saponite-NH4Fe ^c	(NH ₄) _{0.33} (Fe ₃)(Al _{0.33} Si _{3.67})O ₁₀ (OH) ₂	-1089.0 ± 3	-1174.7 ± 3	104.4 ± 5	147.331	93.589	88.735	71.521	-14.641	520	E[pm]	[4]
Saponite-NH4Fe(avg) ^c	(NH ₄) _{0.45} (Fe _{2.9} Al _{0.05})(Al _{0.5} Si _{3.5})O ₁₀ (OH) ₂	-1100.6 ± 3	-1189.1 ± 3	105.4 ± 5	148.368	94.486	90.323	72.781	-15.589	520	E[pm]	[4]
Saponite_Parent ^{c,d}	Na _{0.394} K _{0.021} Ca _{0.038} (Mg _{2.948} Fe _{0.021} Mn _{0.001}) (Al _{0.397} Fe _{0.034} Si _{3.569})O ₁₀ (OH) ₂	-1343.75 ± 1.2	-1432.56 ± 1.2	75.19 ± 0.4	141.660	82.930 ± 0.42	82.997	65.650	-17.459	520	C	[5]

ⁱ kcal/mol, ⁱⁱ cal/mol/K, ⁱⁱⁱ cm³/mol, ^{iv} cal/mol/K², ^v calK/mol, ^{vi} °C. * Mineral names in the SUPCRT TDB format are limited to 20 characters. With the additional use of suffix notation [†], this character limit affects Beidellite, Montmorillonite and Nontronite, which are instead named Beidel, Montmor, and Nontron, respectively. [†] Suffix notation: -Al, -Ca, -Fe, -K, -Mg, -Na, and -NH4, and combinations thereof, are idealized end-member stoichiometries. FeX2 and FeX3 are used in reference to multiple site occupancies by Fe (II,III). (avg): Average composition. _Parent : a 'parent' mineral ^d. [‡] Compositions of average (avg) clay minerals have been revised to be more representative of typical clay compositions reported in the literature. [§] Uncertainties represent the 95% confidence interval (2σ). ^a $C_p = a + b \cdot T + c/T^2$ (Maier and Kelly, 1932) up to the temperature limit shown under C_p T_{max} (K). ^b Derivation of $\Delta_f G^0$: C : Calorimetry. E : Estimated. [pm] A polymer model was used (see Figure 1-8). ^c New entry in the JAEA-TDB (v1.07). ^d Parent minerals are used to provide estimates of S^0 and C_p for structurally equivalent or similar minerals based on additive principles described by Eq. (75) and Eq. (85), respectively, in Helgeson et al. (Helgeson et al., 1978). **References:** [1] Beidellite SBld-1, Illite IMt-2 and smectite MX-80 reported in Gailhanou et al. [2] were used as parent minerals to estimate entropies and heat capacities for all beidellites, illites and montmorillonites, respectively, using additive principles described in Helgeson et al. (Helgeson et al., 1978). [2] (Gailhanou et al., 2012). [3] (Helgeson and MacKenzie, 1970). [4] Nontronite NAu-1 and saponite Sap-Ca-1 reported in Gailhanou et al. [5] were used as parents to estimate entropies and heat capacities for all nontronites and saponites, respectively, using additive principles described in Helgeson et al. (Helgeson et al., 1978). [5] (Gailhanou et al., 2013).

表 25 JAEA β -TDB (v1.07)におけるゼオライトの熱力学特性と Maier-Kelley 式のパラメータ ($t = 25^\circ\text{C}$ and $P = 1 \text{ bar}$)

Mineral/ Phase (A-Z) *	Composition †	$\Delta_f G^{\circ i,\ddagger}$	$\Delta_f H^{\circ i,\ddagger}$	$S^{\circ ii,\ddagger}$	$V^{\circ iii}$	$C_p^{\circ ii,\ddagger}$	Maier-Kelley Coefficients §			$C_p^{\circ vi,\S}$	Der ^a	Ref
							a ⁱⁱ	b $\times 10^3$ ^{iv}	c $\times 10^{-5}$ ^v			
Analcime	NaAlSi ₂ O ₆ (H ₂ O)	-738.50 ± 1.0	-790.6 ± 1	56.00 ± 0.6	97.100	50.698	53.49	24.140	-8.880	1000	C,P	[1,2]
Analcime-deh	NaAlSi ₂ O ₆	-674.989	-714.678	41.900	89.100	39.298	42.09	24.140	-8.880	1000	C,P	[1,3]
Laumontite-Ca	Ca ₄ (Al ₈ Si ₁₆ O ₄₈)(H ₂ O) ₁₆	-6404.231	-6932.10 ± 2.0	464.150	824.000	470.393	323.404	612.580	-31.692	403	C,P	[4]
Leonhardite	Ca ₄ (Al ₈ Si ₁₆ O ₄₈)(H ₂ O) ₁₄	-6293.11 ± 5.5	-6794.70 ± 5.4	440.80 ± 3.2	815.720	449.104	470	177.880	-65.720	1000	C	[4]
Natrolite	Na ₂ (Al ₂ Si ₃ O ₁₀)(H ₂ O) ₂	-1270.70 ± 1.2	-1366.78 ± 1.2	85.90 ± 0.2	169.100	85.86 ± 0.2	72.169	90.076	-11.705	660	C	[5]
Scolecite	Ca ₈ (Al ₁₆ Si ₂₄ O ₈₀)(H ₂ O) ₂₄	-10703.2 ± 8	-11565.6 ± 8	702.56 ± 1.6	1380.720	731.95 ± 1.6	258.488	1588.008	0	470	C	[5]
Wairakite	Ca ₈ (Al ₁₆ Si ₃₂ O ₉₆)(H ₂ O) ₁₆	-11870.663	-12708.8 ± 12	766.160	1528.720	769.993	484.856	1117.745	-42.774	403	C	[4,6]
Yugawaralite	Ca ₂ (Al ₄ Si ₁₂ O ₃₂)(H ₂ O) ₈	-4016.540	-4326.62 ± 5.0	291.492	531.706	289.418	115.702	520.398	16.498	1000	C	[4]

ⁱ kcal/mol, ⁱⁱ cal/mol/K, ⁱⁱⁱ cm³/mol, ^{iv} cal/mol/K², ^v calK/mol, ^{vi} °C. * Suffix notation: -deh: Dehydrated. -Ca: Idealized Ca end-member. † Compositions represent 1 unit cell (Z = 1) stoichiometries as given in Armbruster and Gunter (Armbruster and Gunter, 2001). ‡ Uncertainties represent the 95% confidence interval (2 σ). § $C_p = a + b \cdot T + c/T^2$ (Maier and Kelly, 1932) up to the temperature limit shown under C_p . T_{\max} (K).^a Derivation of $\Delta_f G^{\circ}$: C : Calorimetry. P : Phase relations. **References:** [1] (Helgeson et al., 1978) [2] (King, 1955). [3] (Barany, 1962). [4] (Kiseleva et al., 1996a). [5] (Johnson et al., 1983). [6] (Neuhoff and Wang, 2007).

表 26 JAEA β -TDB (v1.07)におけるゼオライト類似鉱物の熱力学特性と Maier-Kelley 式のパラメータ ($t = 25^\circ\text{C}$ and $P = 1 \text{ bar}$)

Mineral/ Phase (A-Z) *†	Composition ‡	$\Delta_f G^{0,i,\$}$	$\Delta_f H^{0,i,\$}$	$S^{0,i,\$}$	$V^{0,iii}$	$C_p^{0,ii}$	Maier-Kelley Coefficients ^a			C_p $T_{\text{max},vi,a}$	Der ^b	Ref
							a ⁱⁱ	b $\times 10^3$ ^{iv}	c $\times 10^5$ ^v			
Analcime-II	NaAlSi ₂ O ₆ (H ₂ O)	-739.0 ± 1	-790.9 ± 2	56.7 ± 8	97.100	49.776	37.638	57.297	-4.396	500	E[pm]	[1,2]
Analcime-SiR06	Na ₂ Al ₂ Si ₃ O ₁₀ (H ₂ O) ₂	-1274.8 ± 2	-1365.8 ± 3	102.8 ± 12	167.721	88.908	69.66	89.618	-6.642	500	E[pm]	[1-3]
Chabazite-alk	K _{0.3} Na _{1.6333} Ca _{0.2667} (Al _{2.4667} Si _{9.5333} O ₂₄)(H ₂ O) ₁₂	-3303.0 ± 4	-3601.4 ± 9	343.4 ± 35	499.333	270.753	171.598	414.325	-21.669	500	E[pm]	[1,2,4]
Chabazite-dia	K _{0.6667} Na _{1.2333} Ca _{0.4} (Al _{2.7} Si _{9.3} O ₂₄)(H ₂ O) ₁₂	-3324.1 ± 4	-3622.9 ± 9	344.7 ± 34	499.333	273.713	172.991	417.753	-21.184	500	E[pm]	[1,2,4]
Chabazite-Ca	Ca ₂ (Al ₄ Si ₈ O ₂₄)(H ₂ O) ₁₂	-3429.4 ± 4	-3740.3 ± 8	296.8 ± 29	483.498	273.234	196.071	328.735	-18.534	500	E[pm]	[1,2,5]
*Chabazite-Call	Ca ₂ (Al ₄ Si ₈ O ₂₄)(H ₂ O) ₁₂	-3429.4 ± 4	-3737.839	305.800	495.520	281.552	292	88.940	-32.860	1000	E[pm]	[1,6]
Chabazite-K	K ₄ (Al ₄ Si ₈ O ₂₄)(H ₂ O) ₁₂	-3440.3 ± 4	-3732.2 ± 8	403.3 ± 31	483.498	301.481	173.597	498.315	-18.391	500	E[pm]	[1,2,5]
Chabazite-Na	Na ₄ (Al ₄ Si ₈ O ₂₄)(H ₂ O) ₁₂	-3409.5 ± 4	-3710.4 ± 8	360.4 ± 31	483.498	281.933	196.44	355.947	-18.341	500	E[pm]	[1,2,5]
Clinoptilolite-alk	K _{2.3} Na _{1.7} Ca _{1.4} (Al _{6.8} Si _{29.2} O ₇₂)(H ₂ O) ₂₆	-9315.4 ± 13	-10093.1 ± 29	852 ± 110	1264.100	708.457	440.296	1146.282	-65.428	500	E[pm]	[1,2,4]
Clinoptilolite-dia	K _{0.8} Na _{0.4} Ca _{2.8} (Al _{6.8} Si _{29.2} O ₇₂)(H ₂ O) ₂₆	-9317.8 ± 13	-10106.1 ± 29	791 ± 110	1264.100	695.037	448.604	1073.845	-65.545	500	E[pm]	[1,2,4]
Clinoptilolite-Ca	Ca ₃ (Al ₆ Si ₃₀ O ₇₂)(H ₂ O) ₂₀	-8915.3 ± 13	-9635.2 ± 29	669 ± 110	1257.605	622.140	406.678	974.362	-66.709	500	E[pm]	[1,2,5]
Clinoptilolite-K	K ₆ (Al ₆ Si ₃₀ O ₇₂)(H ₂ O) ₂₀	-8931.7 ± 13	-9622.7 ± 29	829 ± 110	1257.605	664.512	372.967	1228.733	-66.494	500	E[pm]	[1,2,5]
Clinoptilolite-Na	Na ₆ (Al ₆ Si ₃₀ O ₇₂)(H ₂ O) ₂₀	-8885.4 ± 14	-9589.9 ± 29	765 ± 110	1257.605	635.190	407.232	1015.180	-66.419	500	E[pm]	[1,2,5]
Dachiardite-Ca	Ca ₂ Al ₄ Si ₂₀ O ₄₈ (H ₂ O) ₁₈	-6208.1 ± 9	-6742.3 ± 19	524.1 ± 72	824.550	463.078	297.886	723.517	-44.913	500	E[pm]	[1,2,5]
Epistilbite	Ca ₃ (Al ₆ Si ₁₈ O ₄₈)(H ₂ O) ₁₆	-6249.9 ± 8	-6770 ± 20	475 ± 70	810.454	453.003	316.335	611.269	-40.519	500	E[pm]	[1,2,5]
*Epistilbite-II	Ca ₃ (Al ₆ Si ₁₈ O ₄₈)(H ₂ O) ₁₅	-6193.3 ± 8	-6701.848	458.700	802.680	451.893	471.12	182.610	-65.490	848	E[pm]	[1,6]
Erionite-alk	K _{2.8} Na _{3.4} Ca _{0.8} (Al _{7.8} Si _{28.2} O ₇₂)(H ₂ O) ₃₀	-9613 ± 10	-10435 ± 30	950 ± 100	1344.000	762.417	475.547	1202.145	-63.603	500	E[pm]	[1,2,4]
Erionite-dia	K ₃ Na _{1.2} Ca ₂ (Al _{8.2} Si _{27.8} O ₇₂)(H ₂ O) ₃₀	-9655 ± 10	-10484 ± 30	920 ± 100	1344.000	761.171	480.205	1179.545	-62.861	500	E[pm]	[1,2,4]
Erionite-K	K ₁₀ (Al ₁₀ Si ₂₆ O ₇₂)(H ₂ O) ₂₈	-9707 ± 10	-10490 ± 30	1038 ± 100	1386.502	796.856	456.221	1363.956	-58.695	500	E[pm]	[1,2,5]
Faujasite-Ca	Ca(Al ₂ Si ₄ O ₁₂)(H ₂ O) ₈	-1828.1 ± 2	-2006.8 ± 4	181.8 ± 15	280.160	157.324	109.507	196.057	-9.456	500	E[pm]	[1,2,7]
Faujasite-Na	Na ₂ (Al ₂ Si ₄ O ₁₂)(H ₂ O) ₈	-1818.1 ± 2	-1991.7 ± 4	214.0 ± 16	280.160	161.675	109.692	209.663	-9.359	500	E[pm]	[1,2,7]
Gismondine	Ca ₄ (Al ₈ Si ₈ O ₃₂)(H ₂ O) ₁₆	-4779.5 ± 5	-5205.9 ± 8	375.2 ± 32	629.977	378.488	301.322	330.902	-19.105	500	E[pm]	[1,2,5]
Heulandite-dia	K _{0.4} NaCa _{3.3} (Al ₈ Si ₂₈ O ₇₂)(H ₂ O) ₂₆	-9406.8 ± 13	-10200.9 ± 27	780 ± 100	1266.100	699.897	468.859	1012.634	-63.007	500	E[pm]	[1,2,4]
Heulandite-Ca	Ca _{4.5} (Al ₉ Si ₂₇ O ₇₂)(H ₂ O) ₂₄	-9374.9 ± 12	-10155.2 ± 26	713.0 ± 98	1257.605	679.504	474.502	916.903	-60.779	500	E[pm]	[1,2,5]
*Heulandite-Call	Ca ₄ (Al ₉ Si ₂₈ O ₇₂)(H ₂ O) ₂₄	-9297.2 ± 12	-10070.405	729.600	1265.480	690.634	718.64	276.280	-98.120	848	E[pm]	[1,6]
Heulandite-Na	Na ₉ (Al ₉ Si ₂₇ O ₇₂)(H ₂ O) ₂₄	-9330.1 ± 13	-10087.3 ± 27	856 ± 100	1257.605	699.080	475.333	978.131	-60.343	500	E[pm]	[1,2,5]
Laumontite-dia	K _{0.4} Na _{0.4} Ca _{3.6} (Al ₈ Si ₁₆ O ₄₈)(H ₂ O) ₁₆	-6404.3 ± 8	-6930.1 ± 16	478.2 ± 59	812.800	467.331	344.045	550.390	-36.280	500	E[pm]	[1,2,4]
Laumontite-Call	Ca ₄ (Al ₈ Si ₁₆ O ₄₈)(H ₂ O) ₁₈	-6518.6 ± 8	-7071.0 ± 16	493.3 ± 59	833.865	484.344	357.727	562.400	-36.502	500	E[pm]	[1,2,5]
Leonhardite-II	Ca ₄ (Al ₈ Si ₁₆ O ₄₈)(H ₂ O) ₁₄	-6291.4 ± 8	-6797.3 ± 16	426.5 ± 59	813.985	442.928	334.783	499.021	-36.125	500	E[pm]	[1,2,5]
Mordenite-dia	K _{1.2} Na _{2.6} Ca ₂ (Al ₈ Si ₄₀ O ₉₆)(H ₂ O) _{29.3333}	-12028.0 ± 13	-13006.7 ± 39	1013 ± 150	1698.000	871.694	551.049	1411.324	-89.019	500	E[pm]	[1,2,4]
Mordenite-Ca	Ca ₄ (Al ₈ Si ₄₀ O ₉₆)(H ₂ O) ₂₈	-11962.6 ± 18	-12938.5 ± 39	915 ± 140	1678.004	843.325	549.885	1320.275	-89.071	500	E[pm]	[1,2,5]
Mordenite-Na	Na ₈ (Al ₈ Si ₄₀ O ₉₆)(H ₂ O) ₂₈	-11922.8 ± 18	-12877.6 ± 39	1044 ± 140	1678.004	860.725	550.623	1374.700	-88.684	500	E[pm]	[1,2,5]
Natrolite-II	Na ₂ (Al ₂ Si ₃ O ₁₀)(H ₂ O) ₂	-1274.8 ± 2	-1365.8 ± 3	102.8 ± 12	169.100	88.908	69.66	89.618	-6.642	500	E[pm]	[1,2,5]
*Natrolite-III	Na ₂ (Al ₂ Si ₃ O ₁₀)(H ₂ O) ₂	-1274.8 ± 2	-1366.217	101.600	169.720	90.768	95.76	40.080	-15.060	848	E[pm]	[1,6]
Phillipsite-alk	K _{1.4} Na _{1.6} Ca _{0.4} (Al _{3.8} Si _{12.2} O ₃₂)(H ₂ O) ₁₂	-4222.6 ± 6	-4572.9 ± 12	403.4 ± 45	609.100	328.111	207.827	506.933	-27.431	500	E[pm]	[1,2,4]
Phillipsite-dia	K _{0.8} Na _{0.7} Ca _{1.2} (Al _{3.7} Si _{12.3} O ₃₂)(H ₂ O) ₁₂	-4217.1 ± 6	-4573.1 ± 12	368.6 ± 45	609.100	319.972	210.743	470.922	-27.714	500	E[pm]	[1,2,4]
Phillipsite-Ca	Ca ₃ (Al ₆ Si ₁₀ O ₃₂)(H ₂ O) ₁₂	-4397.5 ± 5	-4768.7 ± 10	323.8 ± 37	599.766	326.440	248.458	348.081	-22.933	500	E[pm]	[1,2,5]
Phillipsite-K	K ₆ (Al ₆ Si ₁₀ O ₃₂)(H ₂ O) ₁₂	-4413.9 ± 6	-4756.2 ± 10	483.6 ± 40	599.766	368.812	214.747	602.452	-22.718	500	E[pm]	[1,2,5]
Phillipsite-Na	Na ₆ (Al ₆ Si ₁₀ O ₃₂)(H ₂ O) ₁₂	-4367.6 ± 6	-4723.4 ± 10	419.2 ± 40	599.766	339.490	249.012	388.899	-22.643	500	E[pm]	[1,2,5]
*Phillipsite-Call	Ca _{2.2857} (Al _{4.5714} Si _{11.4286} O ₃₂)(H ₂ O) _{11.4286}	-4254.2 ± 5	-4595.822	380.800	605.700	320.001	333.3	120.390	-43.730	848	E[pm]	[1,6]
*Phillipsite-KII	K _{4.5714} (Al _{4.5714} Si _{11.4286} O ₃₂)(H ₂ O) _{11.4286}	-4266.7 ± 5	-4618.939	393.400	605.700	342.553	348.94	137.690	-42.170	848	E[pm]	[1,6]
*Phillipsite-Nall	Na _{4.5714} (Al _{4.5714} Si _{11.4286} O ₃₂)(H ₂ O) _{11.4286}	-4231.5 ± 5	-4579.177	394.100	605.700	334.218	348.34	129.100	-46.770	848	E[pm]	[1,6]
Scolecite-II	Ca ₈ (Al ₁₆ Si ₂₄ O ₈₀)(H ₂ O) ₂₄	-10731 ± 10	-11593 ± 20	701.5 ± 90	1380.720	759.293	601.69	734.853	-54.664	500	E[pm]	[1,2,5]
Stilbite	NaCa ₄ (Al ₈ Si ₂₇ O ₇₂)(H ₂ O) ₃₀	-9710.1 ± 12	-10557.7 ± 26	829.1 ± 98	1330.596	743.804	509.01	1018.776	-61.296	500	E[pm]	[1,2,5]
*Stilbite-II	Ca ₃ (Al ₆ Si ₁₈ O ₄₈)(H ₂ O) ₁₅	-6193.3 ± 8	-6701.848	458.700	802.680	451.893	471.12	182.610	-65.490	848	E[pm]	[1,6]
Stilbite-Ca	Ca _{4.5} (Al ₉ Si ₂₇ O ₇₂)(H ₂ O) ₃₀	-9715.0 ± 12	-10564.6 ± 26	813.2 ± 98	1330.596	741.628	508.918	1011.973	-61.345	500	E[pm]	[1,2,5]

表 26 (続き)

Mineral/ Phase (A-Z) ^{*,†}	Composition [‡]	$\Delta_f G^{0\text{ i},§}$	$\Delta_f H^{0\text{ i},§}$	$S^{0\text{ ii},§}$	$V^{0\text{ iii}}$	$C_p^{0\text{ ii}}$	Maier-Kelley Coefficients ^a			C_p $T_{\text{max}}^{\text{vi,a}}$	Der ^b	Ref
							a^{ii}	$b \times 10^3$ ^{iv}	$c \times 10^{-5}$ ^v			
Thomsonite	$\text{Na}_4\text{Ca}_8(\text{Al}_{20}\text{Si}_{20}\text{O}_{80})(\text{H}_2\text{O})_{24}$	-11021.8 ± 12	-11892.1 ± 21	734.3 ± 81	1359.600	789.258	661.9	600.948	-46.060	500	E[pm]	[1,2,5]
Wairakite-II	$\text{Ca}_8(\text{Al}_{16}\text{Si}_{32}\text{O}_{96})(\text{H}_2\text{O})_{16}$	-11903.4 ± 15	-12775.3 ± 32	653 ± 120	1524.224	761.608	600.736	807.902	-71.118	500	E[pm]	[1,2,5]
*Wairakite-III	$\text{Ca}_8(\text{Al}_{16}\text{Si}_{32}\text{O}_{96})(\text{H}_2\text{O})_{16}$	-11819.46 ± 1.0	-12635.336	840.800	1494.960	761.407	803.2	355.760	-131.440	1000	P	[1,6]
Yugawaralite-II	$\text{Ca}_2(\text{Al}_4\text{Si}_{12}\text{O}_{32})(\text{H}_2\text{O})_8$	-4015.46 ± 5.4	-4331.0 ± 12	272.3 ± 43	528.038	274.392	195.594	365.260	-26.761	500	E[pm]	[1,2,5]
ZeoliteP-Ca	$\text{CaAl}_2\text{Si}_{2.66}\text{O}_{9.32}(\text{H}_2\text{O})_4$	-1329.0 ± 1	-1444.0 ± 3	100.8 ± 10	196.000	101.647	79.038	99.210	-6.196	196	E[pm]	[1,2,8]

ⁱ kcal/mol, ⁱⁱ cal/mol/K, ⁱⁱⁱ cm³/mol, ^{iv} cal/mol/K², ^v calK/mol, ^{vi} °C. * Mineral names preceded by an asterisk (*) are considered obsolete, but are included for future reference. [†] Suffix notation: -Ca, -K, -Na : Idealized end-member stoichiometries. -SiR06 is used in reference to the composition of this zeolite-like phase (see Oda et al. (Oda et al., 2014)). -II,-III : Variants of the same mineral derived from different sources and/or methods. -alk, -dia : Zeolites formed in saline alkaline lake, diagenetic environments (see Chipera and Apps (Chipera and Apps, 2001)). [‡] Compositions represent 1 unit cell (Z = 1) stoichiometries as given in Armbruster and Gunter (Armbruster and Gunter, 2001). [§] Uncertainties represent the 95% confidence interval (2σ). ^a $C_p = a + b \cdot T + c/T^2$ (Maier and Kelly, 1932) up to the temperature limit shown under C_p T_{max} (K). ^b Derivation of $\Delta_f G^0$: P : Phase relations. E : Estimated. [pm] A polymer model was used (see Figure 1-9). **References:** [1] Updated polymer model based on Arthur et al. (Arthur et al., 2011). [2] (Vieillard, 2010) [3] (Oda et al., 2014). [4] (Chipera and Apps, 2001). [5] (Armbruster and Gunter, 2001). [6] (Helgeson et al., 1978). [7] (Deer et al., 1966) [8] (Atkins et al., 1994).

表 27 JAEA β -TDB (v1.07)における層状ケイ酸塩鉱物のギブス自由エネルギー $\Delta_f G^0$ (kcal/mol)の見積りに用いた多面体モデルの導出 (表 28 参照)

Mineral/ Phase (A-Z) *†	Composition	Polyhedral units (n) ‡											$\Delta_f G^0$ estimated by polyhedral model †§	$\Delta_f G^0$ in JAEA TDB (v1.07) †	Der. ^a	Ref
		K2O	Na2O	CaO	Mg(OH)2	MgO	Fe(OH)2	FeO	Fe2O3	Al2O3	SiO2	H2O				
Annite	$KFe_3AlSi_3O_{10}(OH)_2$	0.5	—	—	—	—	1	2	—	0.5	3	—	-1148.25 ± 3.1	-1147.16 ± 1.0	P	[1]
Chrysotile	$Mg_3Si_2O_5(OH)_4$	—	—	—	2	1	—	—	—	—	2	—	-965.57 ± 1.4	-964.87 ± 1.0	P	[1-3]
Clinochlore-7A	$Mg_{2.5}Al_{0.5}(Al_{0.5}Si_{1.5})O_5(OH)_4$	—	—	—	2	0.5	—	—	—	0.5	1.5	—	-978.94 ± 1.3	-978.55 ± 0.5	S,St	[1]
Daphnite-7A	$Fe_{2.5}Al_{0.5}(Al_{0.5}Si_{1.5})O_5(OH)_4$	—	—	—	—	—	2	0.5	—	0.5	1.5	—	-773.71 ± 1.5	-773.45 ± 0.9	P	[1,4]
Hematite	Fe_2O_3	—	—	—	—	—	—	—	1	—	—	—	-178.16 ± 0.8	-178.16 ± 0.3	C	[1,5,6]
Kaolinite	$Al_2Si_2O_5(OH)_4$	—	—	—	—	—	—	—	—	1	2	2	-906.04 ± 2.3	-906.02 ± 1.0	C,P	[1,3,7]
Magnetite	Fe_3O_4	—	—	—	—	—	—	1	1	—	—	—	-242.57 ± 1.4	-242.57 ± 1.0	C,P	[1,6]
Margarite	$CaAl_2Al_2Si_2O_{10}(OH)_2$	—	—	1	—	—	—	—	—	2	2	1	-1394.11 ± 4.1	-1394.15 ± 1.0	P	[1,8]
Muscovite	$KAl_2AlSi_3O_{10}(OH)_2$	0.5	—	—	—	—	—	—	—	1.5	3	1	-1335.18 ± 3.1	-1336.30 ± 1.0	P	[1,9]
Paragonite	$NaAl_2AlSi_3O_{10}(OH)_2$	—	0.5	—	—	—	—	—	—	1.5	3	1	-1325.98 ± 3.1	-1326.01 ± 0.9	C,P	[7]
Phlogopite	$KMg_3AlSi_3O_{10}(OH)_2$	0.5	—	—	1	2	—	—	—	0.5	3	—	-1397.27 ± 2.7	-1396.19 ± 1.0	R	[1,9]
Pyrophyllite	$Al_2Si_4O_{10}(OH)_2$	—	—	—	—	—	—	—	—	1	4	1	-1257.05 ± 2.3	-1256.00 ± 0.4	C,P	[1,3,7]
Quartz	SiO_2	—	—	—	—	—	—	—	—	—	1	—	-204.75 ± 0.4	-204.646 ± 0.41	C,P	[1,5,10]
Ripidolite-7A	$Mg_{1.5}Fe(AlSi_{1.5})O_5(OH)_4$	—	—	—	1.2	0.3	0.8	0.2	—	0.5	1.5	—	-896.8 ± 1.2	-897.511	E[ss]	[11]
Talc	$Mg_3Si_4O_{10}(OH)_2$	—	—	—	1	2	—	—	—	—	4	—	-1319.14 ± 2.4	-1320.30 ± 1.0	C,P	[1,3,10]

Polyhedral units	K2O	Na2O	CaO	Mg(OH)2	MgO	Fe(OH)2	FeO	Fe2O3	Al2O3	SiO2	H2O
Silicated $\delta_f G^0$ †§	-186.20	-167.80	-167.00	-204.00	-148.07	-122.30	-64.41	-178.16	-379.56	-204.75	-58.49
(± 2 σ)	2.7	2.9	2.3	0.4	1.0	0.5	1.2	0.8	1.6	0.4	0.8

[†] kcal/mol. * Calibration minerals consist of layer silicates and oxides. † Suffix notation: -7A basal reflection in angstroms (Å); note $RO_5(OH)_4$ stoichiometry. ‡ Minerals are composed of a number (n) of oxide and hydroxide polyhedral units as shown. § Multiple linear regression is used to derive values of silicated $\delta_f G^0$, shown at the bottom of the table, from the relation:

$$\Delta_f G^0 = \Sigma(n \cdot \delta_f G^0) \quad (17)$$

by providing a match between $\Delta_f G^0$ estimated by the polyhedral model and $\Delta_f G^0$ values for these minerals already in the JAEA TDB (v1.07). Note that the silicated $\delta_f G^0$ values do not correspond to the $\Delta_f G^0$ values of equivalent oxides and hydroxides in the JAEA-TDB (v1.07) and the above $\Delta_f G^0$ values estimated by the polyhedral model are not used in the JAEA TDB (v1.07). $\Delta_f G^0$ values estimated by the polyhedral model can be seen to be in excellent agreement with the values already in the JAEA TDB (v1.07). ^a Derivation of $\Delta_f G^0$: P : Phase relations. S,St : Solubility & stability relations. C : Calorimetry. R : as reported. E[ss] Estimated by treating Ripidolite-7A as an ideal solid solution between Clinochlore-7A and Daphnite-7A end-members. **References:** [1] (Helgeson et al., 1978). [2] (King et al., 1967). [3] Updated to be consistent with the changes made to the thermodynamic properties of $H_4SiO_4(aq)$ in JAEA-TDB (v1.06). [4] Difference in $\Delta_f G^0$ of -4.6 kcal/mol between Clinochlore-14Å and 2 × Clinochlore-7Å (Helgeson et al., 1978) is assumed to be the same for Daphnite-14Å (Saccoccia and Seyfried, 1993) and 2 × Daphnite-7Å. [5] (Kelley, 1960). [6] (Haas and Robie, 1973). [7] (Robie and Hemingway, 1995). [8] Updated to be consistent with changes in the thermodynamic properties of Ca^{2+} made by Shock et al. (Shock and Helgeson, 1988) with respect to the solubilities of the $CaCO_3$ polymorphs reported by Plummer & Busenberg (Plummer and Busenberg, 1982). [9] (Sverjensky et al., 1991). [10] (Robie and Waldbaum, 1968). [11] (Wolery and Jove-Colon, 2007).

表 28 JAEA β -TDB (v1.07)における層状ケイ酸塩鉱物のギブス自由エネルギー $\Delta_f G^0$ (kcal/mol)の見積りに用いた多面体モデル

Mineral/ Phase (A-Z) *	Composition	Polyhedral units (n) [†]											$\Delta_f G^0$ estimated by polyhedral model ^{1,‡}
		K2O	Na2O	CaO	Mg(OH)2	MgO	Fe(OH)2	FeO	Fe2O3	Al2O3	SiO2	H2O	
Amesite-7A [§]	Mg ₂ Al ₂ Si ₁ O ₅ (OH) ₄	—	—	—	2	—	—	—	—	1	1	—	-992.31 ± 1.8
Berthierine-7A	Fe ₂ Al ₂ SiO ₅ (OH) ₄	—	—	—	—	—	2	—	—	1	1	—	-828.91 ± 1.9
Celadonite	KMgAlSi ₄ O ₁₀ (OH) ₂	0.5	—	—	1	—	—	—	0.5	4	—	—	-1305.88 ± 2.2
Cronstedtite-7A [§]	Fe ₃ (FeSi)O ₅ (OH) ₄	—	—	—	—	—	2	—	1	—	1	—	-627.51 ± 1.3
Greenalite-7A [§]	Fe ₃ Si ₂ O ₅ (OH) ₄	—	—	—	—	—	2	1	—	—	2	—	-718.51 ± 1.7
Minnesotaite	Fe ₃ Si ₄ O ₁₀ (OH) ₂	—	—	—	—	—	1	2	—	—	4	—	-1070.12 ± 2.8
Odinite-7A(avg) [§]	Mg _{0.85} Fe _{1.12} Al _{0.58} Si _{1.88} O ₅ (OH) ₄	—	—	—	0.85	—	0.32	—	0.4	0.29	1.88	0.83	-827.35 ± 1.2
Polyhedral units		K2O	Na2O	CaO	Mg(OH)2	MgO	Fe(OH)2	FeO	Fe2O3	Al2O3	SiO2	H2O	
Silicated $\delta_f G^0$^{1,‡}		-186.20	-167.80	-167.00	-204.00	-148.07	-122.30	-64.41	-178.16	-379.56	-204.75	-58.49	
(± 2σ)		2.7	2.9	2.3	0.4	1.0	0.5	1.2	0.8	1.6	0.4	0.8	

¹ kcal/mol. * Suffix notation: -7A basal reflection in angstroms (Å). (avg) average composition based on natural samples of odinite reported in the literature (Bailey, 1988). [†] Minerals are composed of a number (n) of oxide and hydroxide polyhedral units as shown. [‡] Estimated $\Delta_f G^0$ calculated from $\Delta_f G^0 = \sum(n \cdot \delta_f G^0)$, where silicated $\delta_f G^0$ values shown at the bottom of the above table were derived in Table 1-27. [§] New entry in JAEA-TDB (v1.07)

表 29 JAEA β -TDB (v1.07)における層状ケイ酸塩鉱物の熱力学特性と Maier-Kelley 式のパラメータ ($t = 25^\circ\text{C}$ and $P = 1$ bar)

Mineral/ Phase (A-Z) ^{*,†}	Composition	$\Delta_f G^{\circ}$ ^{i,‡}	$\Delta_f H^{\circ}$ ^{i,‡}	S° ^{ii,‡}	V° ⁱⁱⁱ	C_p° ⁱⁱ	Maier-Kelley Coefficients [§]			C_p ^{vi,§} T_{\max}	Der ^a	Ref
							a ⁱⁱ	$b \times 10^{-3}$ ^{iv}	$c \times 10^{-5}$ ^v			
Amesite-7A ^b	Mg ₂ Al(AlSi)O ₅ (OH) ₄	-992.3 ± 2	-1071.243	52.000	103.000	65.648	81.03	24.738	-20.230	1000	E[ph]	[1,2]
Berthierine-7A	Fe ₂ Al(AlSi)O ₅ (OH) ₄	-828.9 ± 2	-900.992	72.302	104.940	71.372	84.899	25.426	-18.763	1000	E[ph]	[1,2]
Celadonite	K(MgAl)(Si ₄)O ₁₀ (OH) ₂	-1305.9 ± 2	-1394.912	74.900	157.100	66.937	80.25	25.300	-18.540	1000	E[ph]	[1,2]
Cronstedtite-7A ^b	Fe ₂ Fe(FeSi)O ₅ (OH) ₄	-627.5 ± 1	-699.055	73.500	110.900	83.230	84.79	41.840	-12.476	950	E[ph]	[1,2]
Greenalite-7A ^b	Fe ₃ Si ₂ O ₅ (OH) ₄	-718.5 ± 2	-789.733	72.600	115.000	74.057	81.65	32.600	-15.390	1000	E[ph]	[1,2]
Minnesotaite	Fe ₃ Si ₄ O ₁₀ (OH) ₂	-1070.1 ± 3	-1153.4 ± 3	83.5 ± 1	147.860	88.471	88.31	42.610	-11.150	800	E[ph]	[1,2]
Odinite-7A(avg) ^b	Mg _{0.85} Fe _{1.12} Al _{0.46} (Al _{0.12} Si _{1.88})O ₅ (OH) ₄	-827.3 ± 1	-902.158	58.302	107.793	66.860	71.642	36.908	-14.033	1000	E[ph]	[1,3]

ⁱ kcal/mol, ⁱⁱ cal/mol/K, ⁱⁱⁱ cm³/mol, ^{iv} cal/mol/K², ^v calK/mol, ^{vi} °C. * Minerals previously shown in Table 1-28. † Suffix notation: -7A : Basal reflection in angstroms (Å). (avg) average composition based on natural samples of odinite reported in the literature (Bailey, 1988). ‡ Uncertainties represent the 95% confidence interval (2 σ). § $C_p = a + b \cdot T + c/T^2$ (Maier and Kelly, 1932) up to the temperature limit shown under C_p T_{\max} (K). ^a Derivation of $\Delta_f G^{\circ}$: E : Estimated. [ph] A polyhedral model was used (see Tables 1-27 and 1-28). ^b New entry in JAEA-TDB (v1.07) **References:** [1] $\Delta_f G^{\circ}$ estimated using the polyhedral model as shown in Table 1-28. [2] (Helgeson et al., 1978). [3] Estimated using additive principles described in Helgeson et al. (Helgeson et al., 1978).

表 30 JAEA β -TDB (v1.07)におけるケイ酸塩鉱物の熱力学特性と Maier-Kelley 式のパラメータ ($t = 25^\circ\text{C}$ and $P = 1 \text{ bar}$)。H₄SiO_{4(aq)}の熱力学特性の改訂に伴い導出

Mineral/ Phase (A-Z) *	Composition	$\Delta_f G^{0,i,\dagger}$	$\Delta_f H^{0,i,\dagger}$	$S^{0,ii,\dagger}$	$V^{0,iii}$	$C_p^{0,ii,\dagger}$	Maier-Kelley Coefficients [‡]			$T_{\max}^{C_p,vi,\ddagger}$	Der [§]	Ref
							a^{ii}	$b \times 10^3^{iv}$	$c \times 10^{-5}^v$			
Analcime	NaAlSi ₂ O ₆ (H ₂ O)	-738.50 ± 1.0	-790.6 ± 1	56.00 ± 0.6	97.100	50.698	53.490	24.140	-8.880	1000	C,P	[1-3]
Andalusite	Al ₂ SiO ₅	-583.60 ± 0.5	-619.02 ± 0.5	21.84 ± 0.1	51.520	28.94 ± 0.2	43.685	4.414	-14.276	1800	C,P	[1,2,4]
Antigorite	Mg ₄₈ Si ₃₄ O ₈₅ (OH) ₆₂	-15808.00 ± 1.0	-17071.684	861.360	1749.130	1059.129	1228.450	513.760	-286.680	848	C,P	[1,2]
Chrysotile	Mg ₃ Si ₂ O ₅ (OH) ₄	-965.04 ± 1.0	-1043.3 ± 1	52.90 ± 0.8	108.500	65.5 ± 1	75.820	31.600	-17.580	1000	P	[1,5,6]
Kaolinite	Al ₂ Si ₂ O ₅ (OH) ₄	-908.37 ± 1.0	-985.2 ± 1	47.90 ± 0.5	99.520	58.19 ± 0.6	77.412	12.622	-20.431	1000	C,P	[1,2,4]
Kalsilite	KAlSiO ₄	-482.85 ± 1.0	-510.6 ± 1	31.850 ± 0.30	59.890	28.621	29.430	17.360	-5.320	810	C,P	[1,2,7]
Muscovite(dis)	K(Al ₂)(AlSi ₃)O ₁₀ (OH) ₂	-1338.13 ± 1.2	-1428.01 ± 1.2	73.231 ± 0.02	140.810	77.82 ± 0.4	99.046	26.939	-26.012	1000	C,P	[1,2,4]
Nepheline	NaAlSiO ₄	-473.37 ± 1.0	-500.8 ± 1	29.720 ± 0.30	54.160	29.590	35.908	6.458	-7.328	1500	C,P	[1,2,4]
Paragonite(dis)	Na(Al ₂)(AlSi ₃)O ₁₀ (OH) ₂	-1328.34 ± 0.9	-1418.02 ± 0.9	70.70 ± 0.2	132.100	76.87 ± 0.6	88.422	39.947	-20.856	800	C,P	[1,2,4]
Pyrophyllite	Al ₂ Si ₄ O ₁₀ (OH) ₂	-1258.63 ± 0.4	-1348.00 ± 0.4	57.22 ± 0.1	128.100	70.24 ± 0.6	83.117	34.603	-20.619	800	C,P	[1,2,4]
Talc	Mg ₃ Si ₄ O ₁₀ (OH) ₂	-1320.30 ± 1.0	-1411.1 ± 1	62.340 ± 0.15	136.250	79.880	82.482	41.614	-13.342	800	C,P	[1,2,7]

ⁱ kcal/mol, ⁱⁱ cal/mol/K, ⁱⁱⁱ cm³/mol, ^{iv} cal/mol/K², ^v calK/mol, ^{vi} °C. * Suffix notation: (dis) disordered. † Uncertainties represent the 95% confidence interval (2σ). ‡ $C_p = a + b \cdot T + c/T^2$ (Maier and Kelly, 1932) up to the temperature limit shown under $C_p T_{\max}$ (K). § Derivation of $\Delta_f G^0$: C : Calorimetry. P : Phase relations. **References:** [1] Updated to be consistent with the revision to the thermodynamic properties of H₄SiO_{4(aq)} reported in JAEA TDB (v1.06). [2] Estimated using methods described in Helgeson et al. (Helgeson et al., 1978). [3] (King, 1955) [4] (Robie and Hemingway, 1995). [5] (King et al., 1967). [6] (Helgeson et al., 1978). [7] (Robie and Waldbaum, 1968).

表 31 JAEA β -TDB (v1.07)における鉱物及び固相（上記に記載されていないもの）の熱力学特性と Maier-Kelley 式のパラメータ ($t = 25^\circ\text{C}$ and $P = 1 \text{ bar}$)

Mineral/ Phase (A-Z) *	Composition	$\Delta_f G^{0, \dagger}$	$\Delta_f H^{0, \dagger}$	$S^{0, \dagger}$	$V^{0, \text{iii}}$	$C_p^{0, \text{ii}, \dagger}$	Maier-Kelley Coefficients [†]			$T_{\text{max}}^{C_p, \text{vi}, \dagger}$	Der [§]	Ref
							a^{ii}	$b \times 10^{3, \text{iv}}$	$c \times 10^{-5, \text{v}}$			
Al(OH)3(mic)	Al(OH) ₃	-275.297 ± 0.34	-297.7 ± 3	52 ± 10	32.000	21.922	13.073	40.696	-2.920	333	K	[1]
Amesite-14A	Mg ₄ Al ₂ (Al ₂ Si ₂)O ₁₀ (OH) ₈	-1989.2 ± 4	-2145.624	108.900	205.400	136.143	172.590	34.980	-41.670	848	E	[2,3]
B2O3(s) ^a	B ₂ O ₃	-285.07 ± 0.5	-303.99 ± 0.5	12.90 ± 0.1	27.302	14.96 ± 2.1	15.615	14.953	-4.546	723	R	[4]
Boron ^a	B	0 ± 0	0 ± 0	1.410 ± 0.02	4.377	2.70 ± 0.2	5.296	0.898	-2.644	2300	C	[4,5]
Brucite	Mg(OH) ₂	-198.55 ± 0.7	-220.31 ± 0.8	15.1 ± 1	24.630	18.470	24.147	4.012	-6.110	900	K	[6,7,8]
CaBr2(s) ^a	CaBr ₂	-147.9 ± 1	-163.29 ± 1.0	31.0 ± 1	106.418	17.94 ± 1.6	16.665	4.406	-0.039	1015	C	[4]
CaI2(s) ^a	CaI ₂	-127.41 ± 0.5	-128.30 ± 0.5	34.725 ± 0.05	74.214	18.35 ± 0.1	17.260	4.510	-0.230	1052	C	[4]
Celestite	SrSO ₄	-321.619 ± 0.25	-348.76 ± 0.6	28.0 ± 2	46.250	25.765	21.800	13.300	0	1200	K	[3,6,9,10]
Daphnite-14A	Fe ₂ Al(AlSi ₃)O ₁₀ (OH) ₈	-1551.52 ± 1.7	-1696.56 ± 1.7	139.2 ± 8	213.420	151.211	176.210	43.760	-33.820	1000	P	[2,11]
Fe(OH)2(s)	Fe(OH) ₂	-120.1 ± 2	-140.0 ± 3	20.0 ± 7	26.430	10.362	6.650	12.450	0	561	So	[12,13]
Fe(OH)3(am)	Fe(OH) ₃	-168.81 ± 0.9	-197.35 ± 0.5	31.07 ± 2.4	26.987	26.615	5.747	54.053	4.224	423	E	[13]
Fe(OH)3(mic)	Fe(OH) ₃	-169.82 ± 0.9	-198.36 ± 0.5	31.07 ± 2.4	26.987	26.290	10.160	49.168	1.307	423	C,So	[13]
FeO(s)	FeO	-60.10 ± 0.6	-65.02 ± 0.5	14.52 ± 0.4	12.000	11.931 ± 0.13	12.122	2.072	-0.750	1600	R	[3,7,14]
Ferrosilite	FeSiO ₃	-267.59 ± 1.0	-285.658	21.630	32.952	21.758	26.490	5.070	-5.550	413	P	[3,15]
Fluorapatite ^a	Ca ₁₀ (PO ₄) ₆ F ₂	-3085.94 ± 1.2	-3267.75 ± 1.3	185.40 ± 0.9	315.120	179.632	226.700	27.240	-49.060	1600	R	[6,16]
Hydroxyapatite ^a	Ca ₁₀ (PO ₄) ₆ (OH) ₂	-3004.83 ± 1.2	-3195.76 ± 1.3	186.60 ± 0.9	319.200	184.066	228.500	39.620	-50.000	1500	R	[6,16]
KI(s) ^a	KI	-77.20 ± 0.3	-78.37 ± 0.1	25.4 ± 1	53.206	12.609	11.160	4.860	0	954	C	[4]
KNO2(s) ^a	KNO ₂	-73.27 ± 0.2	-88.49 ± 0.2	36.35 ± 0.2	44.441	25.67 ± 0.2	25.670	0	0	350	R	[8]
KNO3(s) ^a	KNO ₃	-94.37 ± 0.2	-118.25 ± 0.2	31.8 ± 2	48.144	23.017	14.550	28.400	0	401	R	[6,8]
Kyanite	Al ₂ SiO ₅	-583.90 ± 0.5	-619.93 ± 0.5	19.79 ± 0.5	44.150	29.07 ± 0.2	43.670	4.492	-14.165	1800	C,P	[17]
Lawsonite	CaAl ₂ Si ₂ O ₇ (OH) ₂ (H ₂ O)	-1073.41 ± 1.0	-1158.104	55.800	101.320	70.473	81.800	23.360	-16.260	848	P	[3,18]
Lepidocrocite ^a	FeO(OH)	-114.70 ± 0.5	-131.26 ± 0.5	15.554 ± 0.07	22.393	16.506 ± 0.13	13.502	16.021	-1.576	387	C	[13]
Leucite	KAlSi ₂ O ₆	-687.354 ± 0.68	-726.255 ± 0.66	47.850 ± 0.40	88.390	39.230	35.461	32.100	-5.157	955	C	[16]
Mullite	Al ₆ Si ₂ O ₁₃	-1537.114 ± 0.53	-1627.730 ± 0.53	64.4 ± 1	134.550	77.483	111.613	12.816	-33.736	1800	R	[16]
Muscovite	K(Al ₂)(AlSi ₃)O ₁₀ (OH) ₂	-1335.67 ± 1.0	-1427.644	70.000	140.710	76.807	97.560	26.380	-25.440	1000	P	[3,19]
Muscovite(ord) ^a	K(Al ₂)(AlSi ₃)O ₁₀ (OH) ₂	-1340.43 ± 1.2	-1431.64 ± 1.2	68.762 ± 0.02	140.810	77.82 ± 0.4	99.046	26.939	-26.012	1000	C,P	[16]
Na2O(s)	Na ₂ O	-89.871	-99.140 ± 0.07	17.935	25.000	16.457	18.250	4.890	-2.890	1000	P	[3,14,20]
Na2SO4(s)	Na ₂ SO ₄	-303.53 ± 0.1	-331.69 ± 0.1	35.750 ± 0.02	53.330	28.232	23.500	15.870	0	450	C	[16,21]
NaI(s) ^a	NaI	-68.01 ± 0.3	-68.80 ± 0.2	23.5 ± 1	40.843	12.486	11.990	2.530	-0.230	933	C	[4]
NaOH(s)	NaOH	-90.78 ± 0.4	-101.80 ± 0.4	15.40 ± 0.2	18.780	14.23 ± 0.1	8.049	20.715	0	572	C	[4]
Nesquehonite	MgCO ₃ (H ₂ O) ₃	-412.035 ± 0.12	-472.576 ± 0.11	46.760 ± 0.14	74.790	0	-1574.804	3899.173	-417.325	306.5	C	[3,22]
NH4I(s) ^a	NH ₄ I	-26.8 ± 1	-48.3 ± 1	27.00 ± 1.5	57.746	19.540	14.460	17.040	0	1300	R	[4]
N5NO(l) ^a	NH ₄ OH	-60.71 ± 0.2	-86.33 ± 0.2	39.57 ± 0.2	39.825	37.022	37.022	0	0	298.15	C	[9,23]
H8N2O(l) ^a	(NH ₄) ₂ O	-63.80 ± 0.2	-102.94 ± 0.2	63.94 ± 0.2	63.508	56.355	56.355	0	0	298.15	C	[9,23]
P4O10(s) ^a	P ₄ O ₁₀	-650.9 ± 2	-719.4 ± 2	54.68 ± 0.1	123.430	49.11 ± 4.7	64.976	40.294	-24.787	1500	R	[4]
Palygorskite ^a	Mg ₂ Al ₂ (Si ₆ O ₂₀)(OH) ₂ (H ₂ O) ₄	-2549.0 ± 6	-2756.9 ± 6	161.4 ± 5	359.000	168.037	175.041	105.154	-34.096	800	E	[24,25]
Paragonite(dis) ^a	Na(Al ₂)(AlSi ₃)O ₁₀ (OH) ₂	-1328.34 ± 0.9	-1418.02 ± 0.9	70.70 ± 0.2	132.100	76.87 ± 0.6	88.422	39.947	-20.856	800	C,P	[17]
Paragonite(ord) ^a	Na(Al ₂)(AlSi ₃)O ₁₀ (OH) ₂	-1330.91 ± 0.9	-1421.92 ± 0.9	66.23 ± 0.2	132.100	76.87 ± 0.6	88.422	39.947	-20.856	800	C	[17]
Ripidolite-14A ^a	Mg ₃ Fe ₂ Al(AlSi ₃)O ₁₀ (OH) ₈	-1799.624	-1948.467	130.407	209.634	142.625	170.384	42.764	-36.010	900	R	[26]
Sillimanite	Al ₂ SiO ₅	-582.96 ± 0.5	-618.09 ± 0.5	22.80 ± 0.1	49.860	29.58 ± 0.2	42.747	4.843	-12.985	1800	C,P	[17]
SrO(s) ^a	SrO	-134.32 ± 0.8	-141.50 ± 0.8	13.72 ± 0.1	20.690	10.810	11.931	1.601	-1.421	2938	C	[4]
Strontianite	SrSO ₄	-273.59 ± 0.2	-292.68 ± 0.3	24.20 ± 1.7	39.010	19.690	23.520	6.320	-5.080	1197	K	[6,27]
Syngenite	K ₂ Ca(SO ₄) ₂ (H ₂ O)	-689.54 ± 0.4	-761.1 ± 3	68 ± 10	127.540	69.200	69.200	0	0	441	K	[28]
Whitlockite ^a	Ca ₃ (PO ₄) ₂	-920.152 ± 0.51	-976.560 ± 0.50	56.40 ± 0.2	98.660	54.406	48.200	39.680	-5.000	1600	R	[6,16]

表 31 (続き)

ⁱ kcal/mol, ⁱⁱ cal/mol/K, ⁱⁱⁱ cm³/mol, ^{iv} cal/mol/K², ^v calK/mol, ^{vi} °C. * Suffix notation: (mic) microcrystalline. (s) solid. (am) amorphous. (ord) ordered. (dis) disordered. (l) liquid. -14A refers to the 14 Å basal reflection. † Uncertainties represent the 95% confidence interval (2σ). ‡ $C_p = a + b \cdot T + c/T^2$ (Maier and Kelly, 1932) up to the temperature limit shown under C_p , T_{max} (K). § Derivation of $\Delta_r G^0$: C : Calorimetry. P : Phase relations. a New entry in JAEA TDB (v1.07). **References:** [1] (Buttler and Taylor, 1958; Capmas and Menetrier-Sorrentino, 1989; Carlson and Berman, 1960; D'Ans and Eick, 1953; Faurie-Mounier, 1966; Lothenbach et al., 2012) [2] Difference in $\Delta_r G^0 = -4.6$ kcal/mol assumed between Amesite-14Å and 2 × Amesite-7Å (Table 8). [3] (Helgeson et al., 1978). [4] (Chase, 1998). [5] (Cox, 1978). [6] (Kelley, 1960). [7] (Robie and Waldbaum, 1968). [8] (Brown et al., 1996; McGee and Hostetler, 1977; Travers and Nouvel, 1929; Xiong, 2008). [9] (Wagman et al., 1982). [10] (Reardon and Armstrong, 1987). [11] (Saccocia and Seyfried, 1993). [12] (Ziemniak et al., 1995). [13] (Lemire et al., 2013). [14] (Stull and Prophet, 1971). [15] (Helgeson, 1985). [16] (Robie et al., 1978). [17] (Robie and Hemingway, 1995). [18] Updated to be consistent with changes in the thermodynamic properties of Ca²⁺ made by Shock et al. (Shock and Helgeson, 1988) with respect to the solubilities of the CaCO₃ polymorphs reported by Plummer & Busenberg (Plummer and Busenberg, 1982). [19] (Sverjensky et al., 1991). [20] (O'Hare, 1972). [21] (Coughlin, 1955). [22] (Robie and Hemingway, 1972; Robie and Hemingway, 1973). [23] (Hildenbrand and Giaque, 1953). [24] Additive principles described in Helgeson et al. (Helgeson et al., 1978). [25] (Ogorodova et al., 2015). [26] Treated as an ideal binary solid solution between Clinocllore-14A and Daphnite-14A end-member components (Wolery and Jove-Colon, 2007). [27] (Busenberg et al., 1984). [28] (Clarke and Partridge, 1934; Freyer and Voigt, 2004; Hill, 1934).

表 32 JAEA β -TDB (v1.07)における臭素ガスの熱力学特性と Maier-Kelley 式のパラメータ ($t = 25^\circ\text{C}$ and $P = 1 \text{ bar}$)

Gas (A-Z)	Composition	$\Delta_f G^{\circ i,*}$	$\Delta_f H^{\circ i,*}$	$S^{\circ ii,*}$	$v^{\circ iii}$	$C_p^{\circ ii}$	Maier-Kelley Coefficients [†]			C_p Tmax ^{vi,‡}	Der [‡]	Ref
							a ⁱⁱ	b × 10 ^{3 iv}	c × 10 ^{-5 v}			
Br2(g)	Br2	0.743 ± 0.027	7.388 ± 0.026	58.666 ± 0.013	0.000	8.618	8.920	0.120	-0.300	3000	R	[1]

ⁱ kcal/mol, ⁱⁱ cal/mol/K, ⁱⁱⁱ cm³/mol, ^{iv} cal/mol/bar, ^v cal/mol, ^{vi} calK/mol/bar, ^{vii} calK/mol. * Uncertainties represent the 95% confidence interval (2 σ). [†] $C_p = a + b \cdot T + c/T^2$ (Maier and Kelly, 1932) up to the temperature limit shown under C_p Tmax (K). [‡] Derivation of $\Delta_f G^{\circ}$: R : as Reported. **References:** [1] (Cox, 1978; Kelley, 1960)

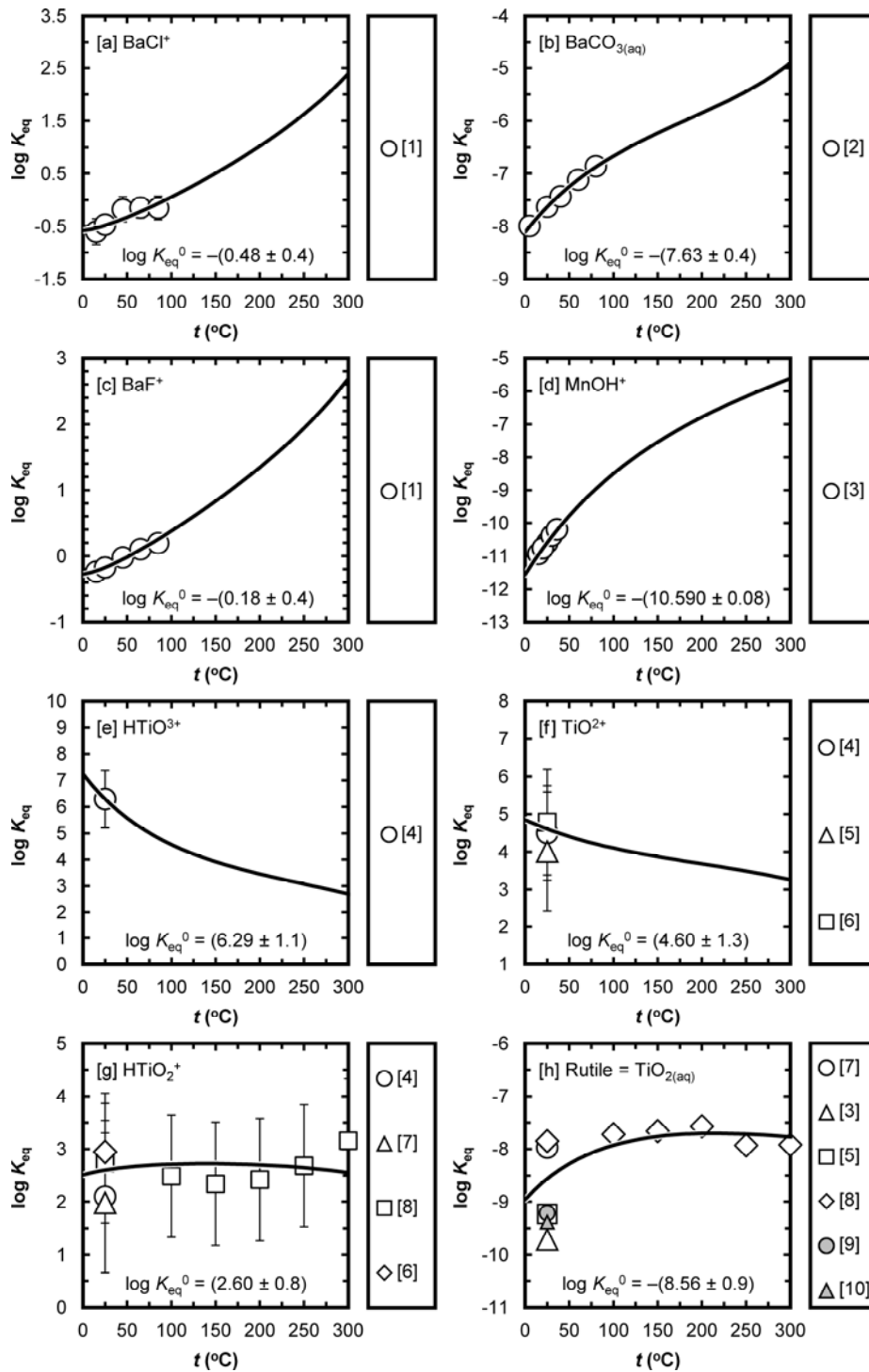


図 2 [a-i] JAEA β -TDB (v1.07) を用いて計算した平衡定数 K_{eq} の温度依存性と実験値との比較。生成反応は[h]を除き H_2O 、 H^+ 、 Ba^{2+} 、 Cl^- 、 HCO_3^- 、 F^- 、 Mn^{2+} 、 $\text{TiO}_{2(\text{aq})}$ といった basis を用いて記述される。実験値で誤差が示されているものは表記 (2σ)。[j] 25 $^{\circ}\text{C}$ における Ti を含む化学種の活量比の pH 依存性。[i] HTiO_3^{3+} 、[ii] TiO_2^{2+} 、[iii] HTiO_2^+ 、[iv] $\text{TiO}_{2(\text{aq})}$ 、[v] HTiO_3^- 。参考文献：[1] (Majer and Stulik, 1982)。[2] (Busenberg and Plummer, 1986)。[3] (Baes and Mesmer, 1976; Baes and Mesmer, 1981)。[4] (Liberti et al., 1963)。

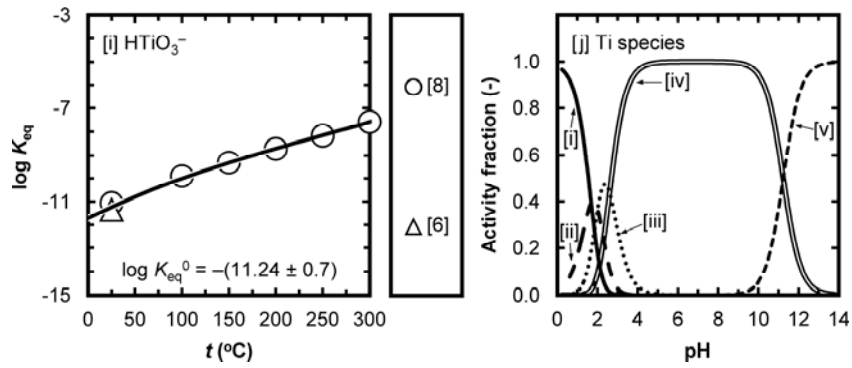


図2 (続き) [5] (Ziemniak et al., 1993). [6] (Schmidt and Vogelsberger, 2009). [7] (Vasil'ev et al., 1974). [8] (Knauss et al., 2001). [9] (Stefánsson, 2001). [10] (Brown and Ekberg, 2016).

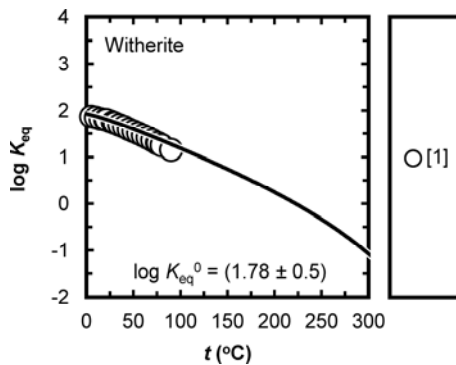


図3 JAEA β -TDB (v1.07)を用いて計算した毒重石(Witherite)の溶解反応の平衡定数 K_{eq} の温度依存性と実験値との比較。参考文献：[1] (Busenberg and Plummer, 1986)。

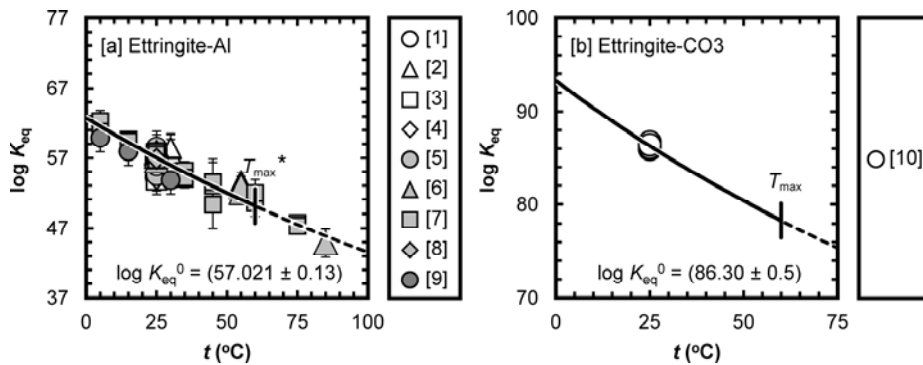


図4 JAEA β -TDB (v1.07)を用いて計算したエトリンガイト(Aft)の溶解反応の平衡定数 K_{eq} の温度依存性と実験値との比較。溶解反応は H^+ 、 Ca^{2+} 、 Al^{3+} 、 Fe^{2+} 、 $O_{2(aq)}$ 、 HCO_3^- 、 SO_4^{2-} 、 $H_4SiO_{4(aq)}$ 、 H_2O といった basis を用いて記述される。 T_{max} は鉱物が安定して存在する上限として現状知られている温度である。[a]における T_{max} より高温側のプロットは準安定状態と考えられる。参考文献：[1] (Lea and Desch, 1956). [2] (Ghorab and Kishar, 1985). [3] (Atkins et al., 1991). [4] (Atkins et al., 1992b). [5] (Warren and Reardon, 1994). [6] (Glasser et al., 1999). [7] (Perkins and Palmer, 1999). [8] (Baur et al., 2004). [9] (Macphee and Barnett, 2004). [10] (Matschei et al., 2007). [11] (Möschner et al., 2008). [12] (Mittermayr et al., 2013). [13] (Matschei and Glasser, 2015)。

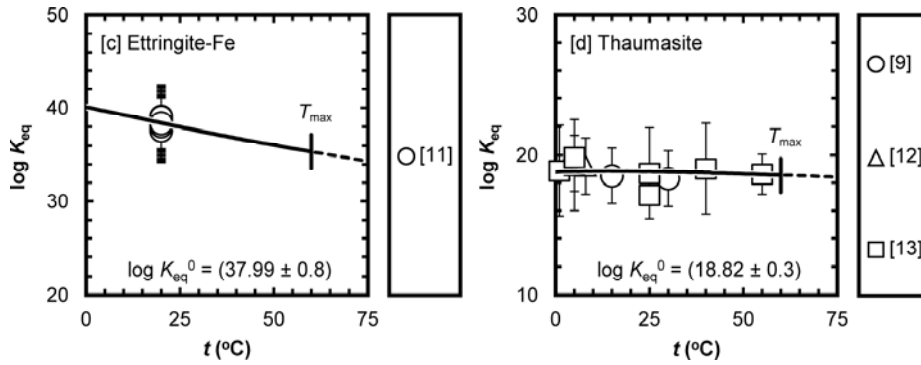


図 4 (続き)

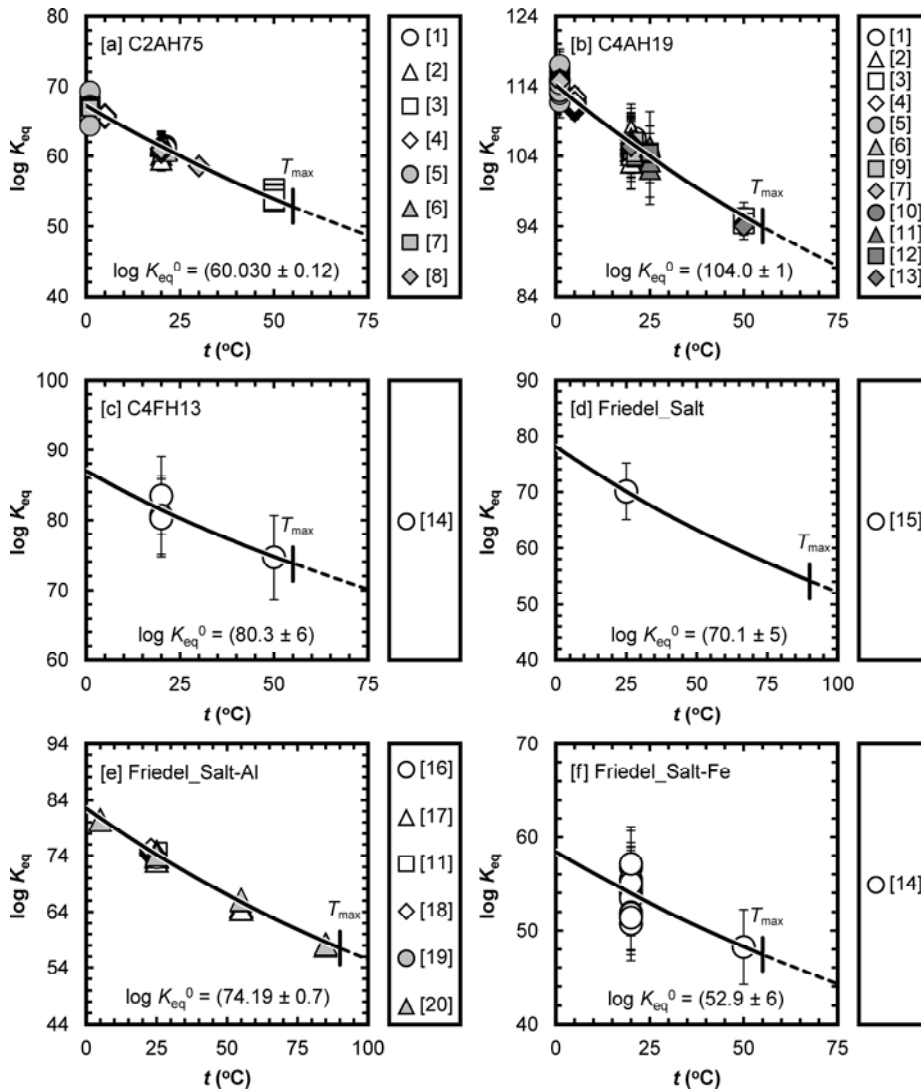


図 5 JAEA β -TDB (v1.07)を用いて計算したモノサルフェート水和物 (AFm) の溶解反応の平衡定数 K_{eq} の温度依存性と実験値との比較。溶解反応は H^+ 、 Ca^{2+} 、 Al^{3+} 、 Fe^{2+} 、 $O_{2(aq)}$ 、 $NH_{3(aq)}$ 、 Cl^- 、 I^- 、 HCO_3^- 、 SO_4^{2-} 、 $H_4SiO_{4(aq)}$ 、 H_2O といった basis を用いて記述される。 T_{max} は鉱物が安定して存在する上限として現状知られている温度である。[i]および[n]における T_{max} より高温側のプロットは準安定状態と考えられる。参考文献：[1] (Wells et al., 1943). [2] (D'Ans and Eick, 1953). [3] (Peppler and Wells, 1954). [4] (Buttler and Taylor, 1958). [5] (Carlson, 1958).

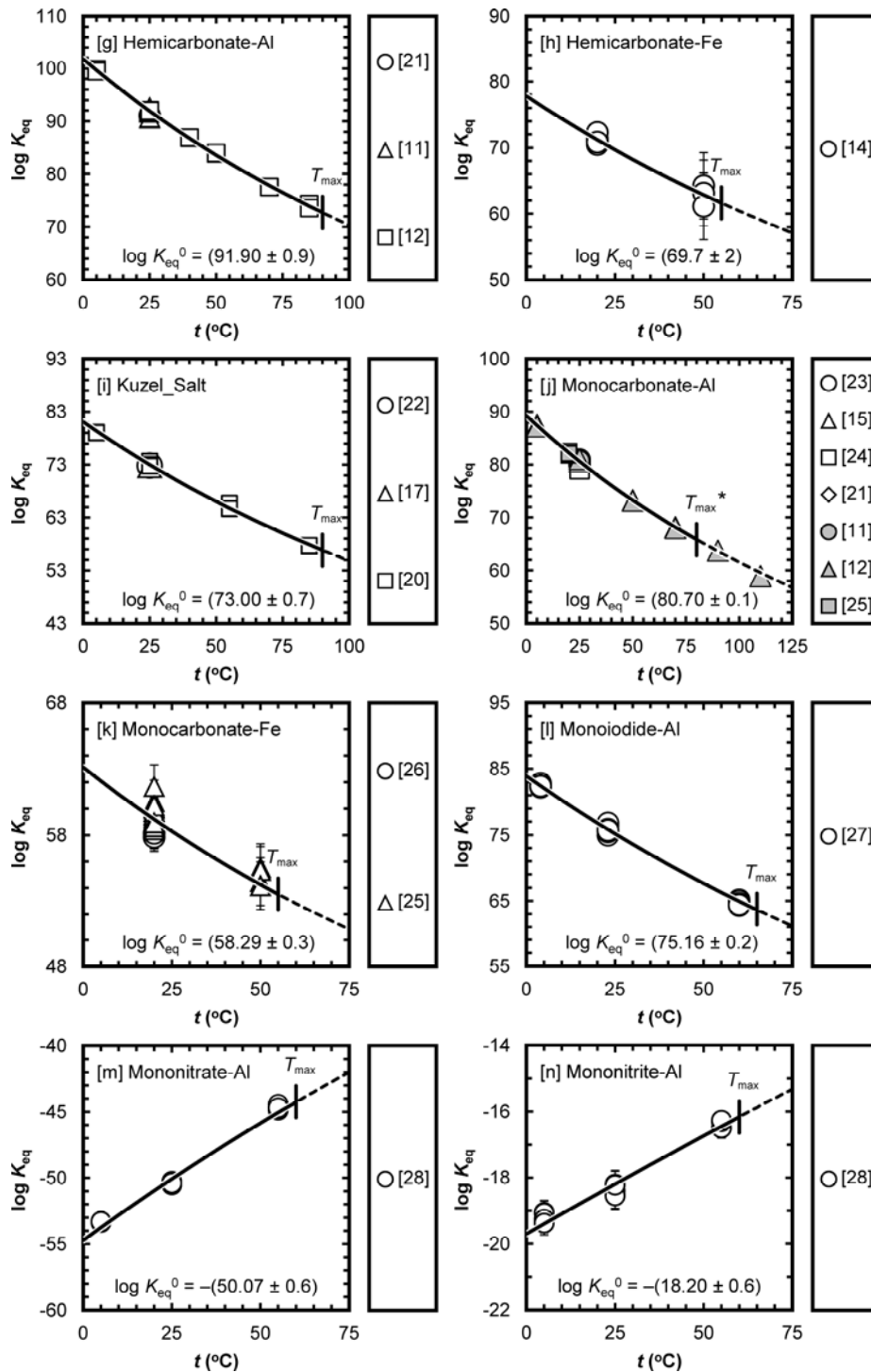


図 5 (続き) [6] (Percival and Taylor, 1959). [7] (Roberts, 1968). [8] (Lothenbach et al., 2012). [9] (Faurie-Mounier, 1966). [10] (Atkins et al., 1991). [11] (Hobbs, 2001). [12] (Matschei et al., 2007). [13] (Dilnesa et al., 2014). [14] (Dilnesa, 2011). [15] (Zhang et al., 1980). [16] (Birnin-Yauri and Glasser, 1998). [17] (Glasser et al., 1999). [18] (Bothe and Brown, 2004). [19] (Honda et al., 2009). [20] (Balonis et al., 2010). [21] (Damidot et al., 1994). [22] (Stronach, 1996). [23] (Carlson and Berman, 1960). [24] (Nishikawa et al., 1992). [25] (Dilnesa et al., 2011). [26] (Möschner et al., 2008) [27] (Aimoz et al., 2012). [28] (Balonis et al., 2011). [29] (Ghorab et al., 1998). [30] (Zhang, 2000). [31] (Leisinger et al., 2012). [32] (Dilnesa et al., 2012). [33] (Atkins et al., 1992b). [34] (Quillin and Majumdar, 1994).

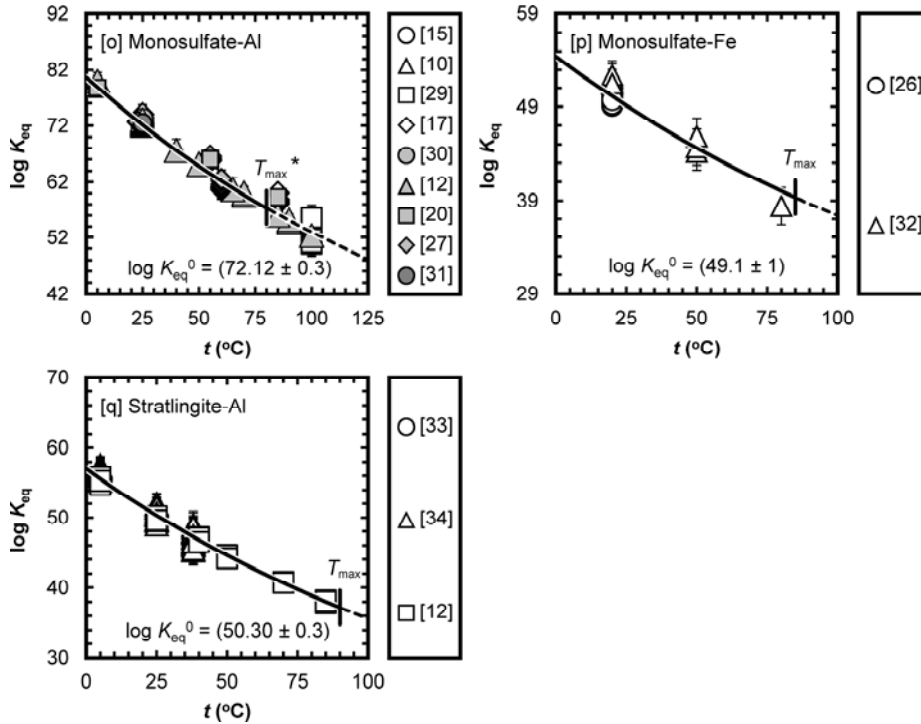


図 5 (続き)

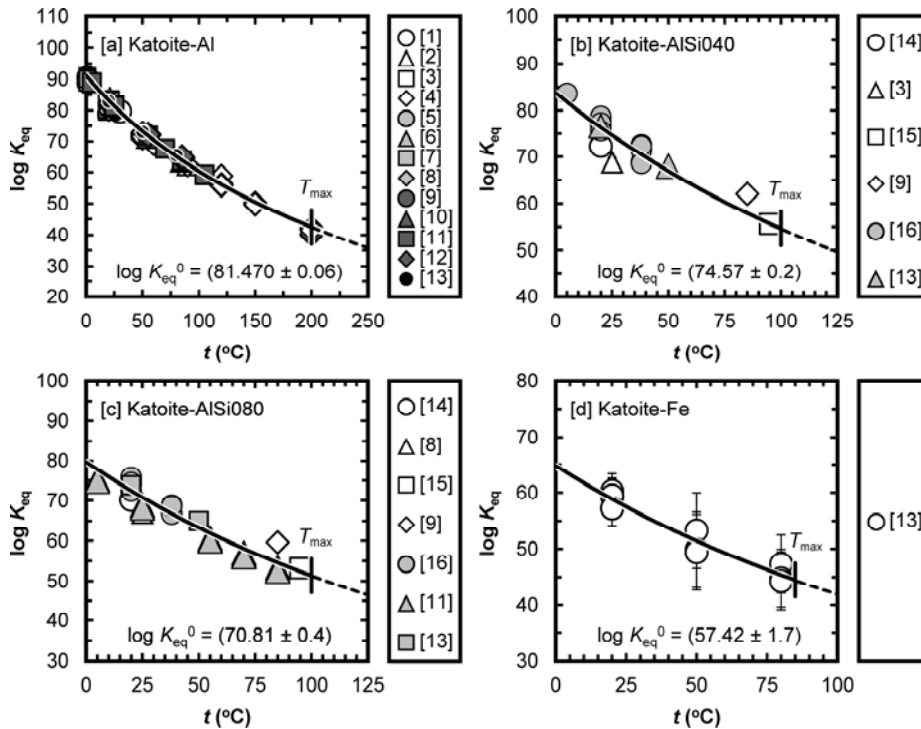


図 6 JAEA β -TDB (v1.07)を用いて計算したセメント性カトアイト (ハイドロガーネット) の溶解反応の平衡定数 K_{eq} の温度依存性と実験値との比較。溶解反応は H^+ 、 Ca^{2+} 、 Al^{3+} 、 Fe^{2+} 、 $O_{2(aq)}$ 、 $H_4SiO_{4(aq)}$ 、 H_2O といった basis を用いて記述される。 T_{max} は鉱物が安定して存在する上限として現状知られている温度である。参考文献：[1] (Von Nacken and Mosebach, 1936). [2] (Wells et al., 1943). [3] (D'Ans and Eick, 1953). [4] (Pepler and Wells, 1954). [5] (Carlson, 1958). [6] (Faurie-Mounier, 1966). [7] (Roberts, 1968). [8] (Bennett et al., 1992). [9] (Atkins et al., 1994). [10] (Glasser et al., 1999). [11] (Matschei et al., 2007).

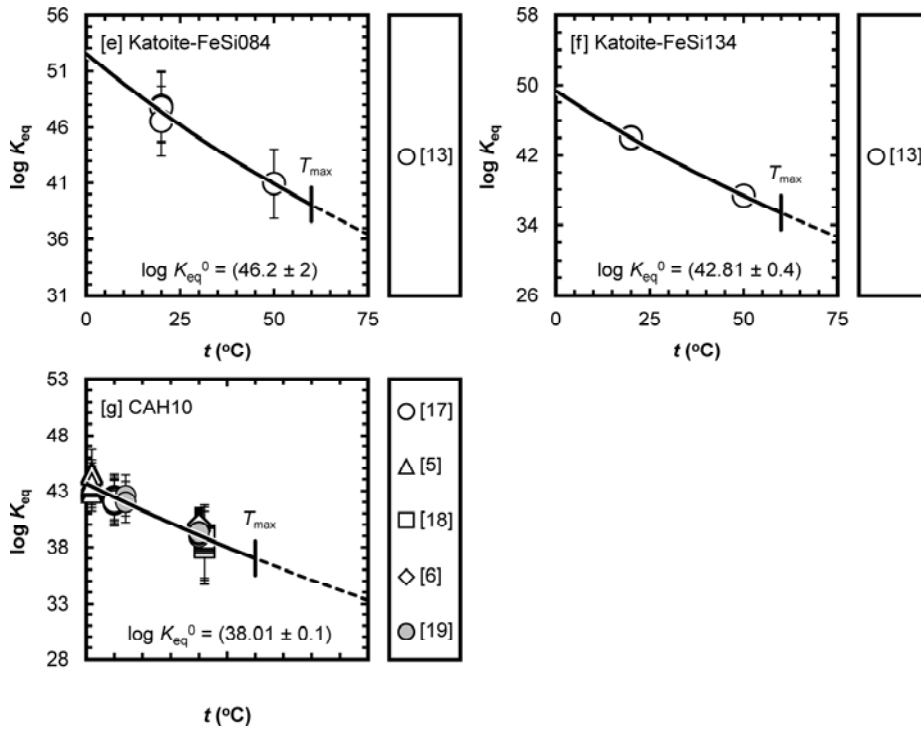


図 6 (続き) [12] (Balonis et al., 2010). [13] (Dilnesa et al., 2014). [14] (Atkins et al., 1992a). [15] (Jappy and Glasser, 1992) [16] (Quillin and Majumdar, 1994). [17] (Buttler and Taylor, 1958). [18] (Percival and Taylor, 1959). [19] (Lothenbach et al., 2012).

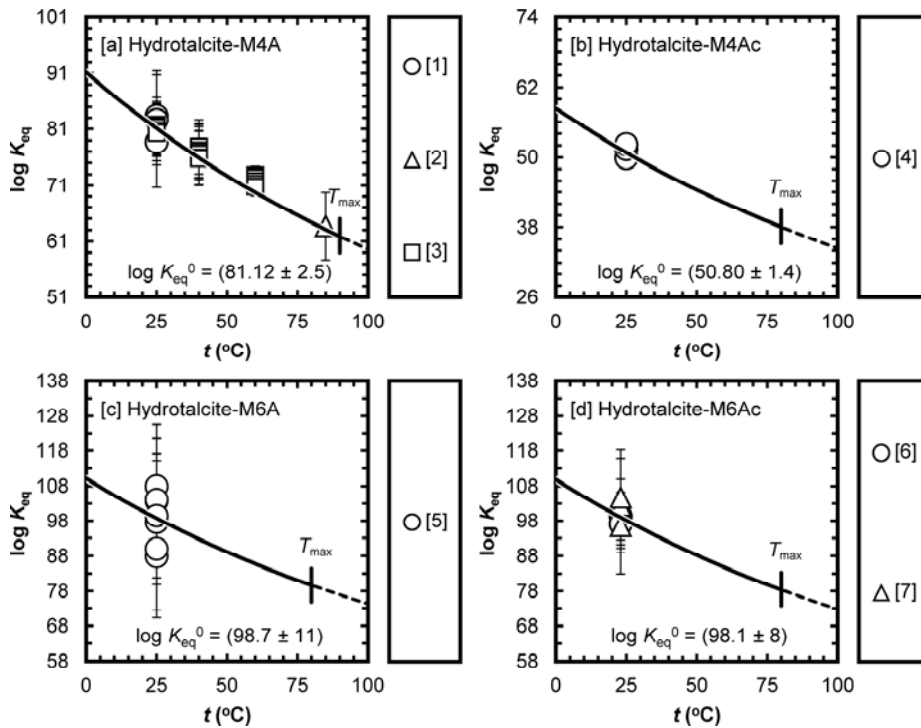


図 7 JAEA β -TDB (v1.07)を用いて計算したセメント性水ドロタルサイト (LDH)の溶解反応の平衡定数 K_{eq} の温度依存性と実験値との比較。溶解反応は H^+ 、 Mg^{2+} 、 Al^{3+} 、 Fe^{2+} 、 $O_{2(aq)}$ 、 Cl^- 、 HCO_3^- 、 H_2O といった basis を用いて記述される。 T_{max} は鉱物が安定して存在する上限として現状知られている温度である。

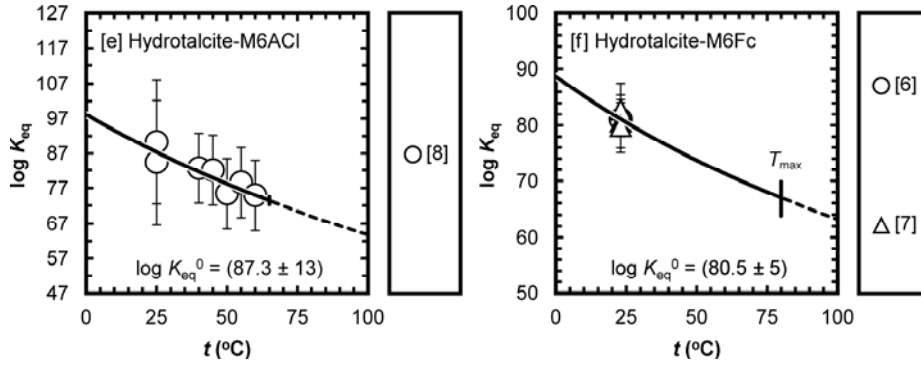


図 7 (続き) 参考文献: [1] (Bennett et al., 1992). [2] (Atkins et al., 1994). [3] (Gao and Li, 2012). [4] (Johnson and Glasser, 2003). [5] (Atkins et al., 1992b). [6] (Rozov et al., 2010). [7] (Rozov et al., 2011). [8] (Rozov et al., 2013).

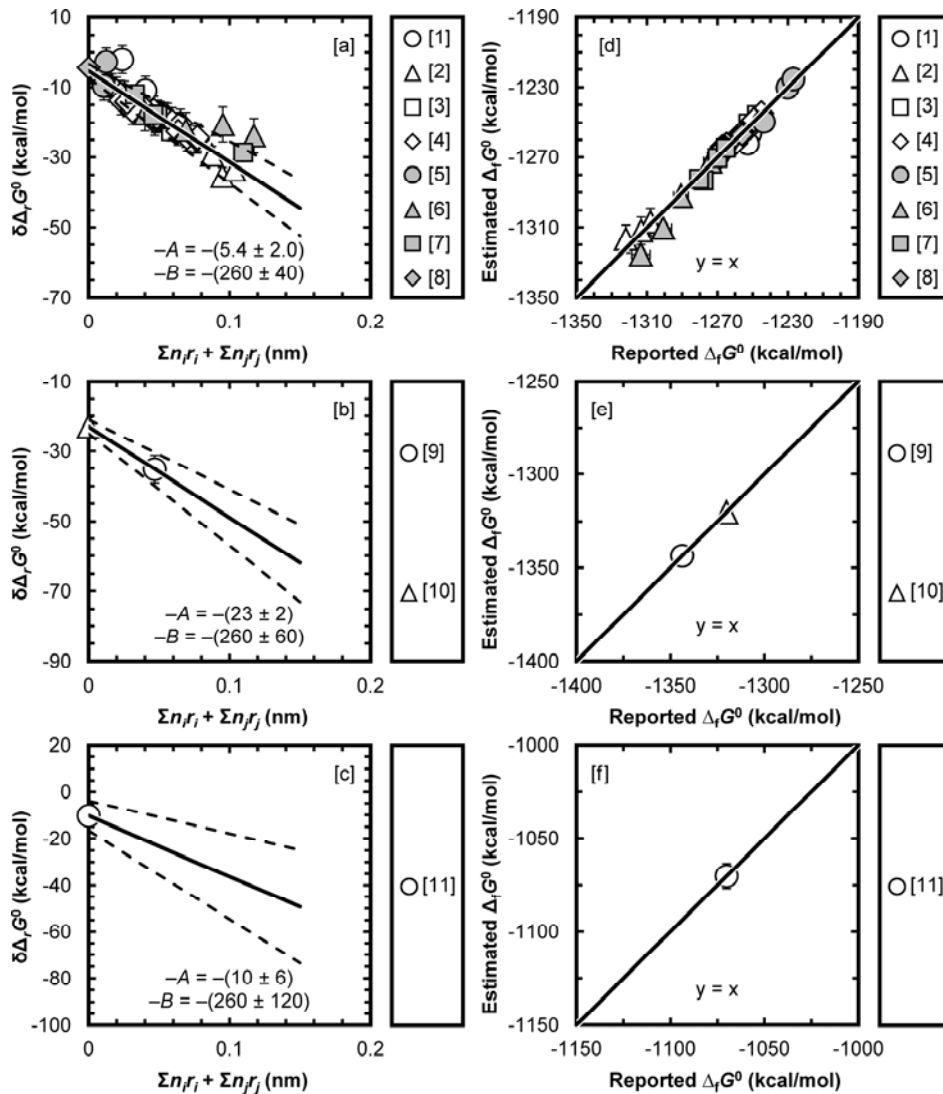


図 8 [a-c] ポリマーモデルにおける、層間イオン半径の総和 ($\sum n_i r_i + \sum n_j r_j$ (nm)) に対する反応ギブス自由エネルギー $\delta \Delta_r G^0$ (kcal/mol)。[a] 2 八面体スメクタイト (バイデライト、モンモリロナイト、ノントロナイト) 及びイライト、[b] 3 八面体スメクタイト (Mg サポナイト)、[c] 3 八面体スメクタイト (Fe(II) サポナイト)。表中の $-A$ と $-B$ は直線の切片と傾きにそれぞれ対応 (重み付き線形回

帰により導出、点線は 2σ 区間)。Y 軸上 ($\sum n_i r_i + \sum n_j r_j = 0$) のプロットは [a] パイロフィライト ($\text{Al}_2\text{Si}_4\text{O}_{10}(\text{OH})_2$)、[b] タルク ($\text{Mg}_3\text{Si}_4\text{O}_{10}(\text{OH})_2$)、[c] ミネソタイト ($\text{Fe}_3\text{Si}_4\text{O}_{10}(\text{OH})_2$) にそれぞれ対応。[d-f] ポリマーモデルにおける生成ギブス自由エネルギー $\Delta_f G^0$ (kcal/mol)。[d] 2 八面体スメクタイト (バイデライト、モンモリロナイト、ノントロナイト) 及びイライト、[e] 3 八面体スメクタイト (Mg サポナイト)、[f] 3 八面体スメクタイト (Fe(II)サポナイト) の生成ギブス自由エネルギー $\Delta_f G^0$ (kcal/mol) に対してそれぞれプロット。参考文献：[1] (Huang and Keller, 1973)。[2] (Reesman, 1974)。[3] (Misra and Upchurch, 1976)。[4] (Mattigod and Sposito, 1978)。[5] (Karathanasis and Hajek, 1983)。[6] (Aja, 1995)。[7] (Gailhanou et al., 2012; Gailhanou et al., 2007)。[8] (Robie and Hemingway, 1995)。[9] (Gailhanou et al., 2013)。[10] (Helgeson et al., 1978; Robie and Waldbaum, 1968)。[11] (Helgeson et al., 1978)。

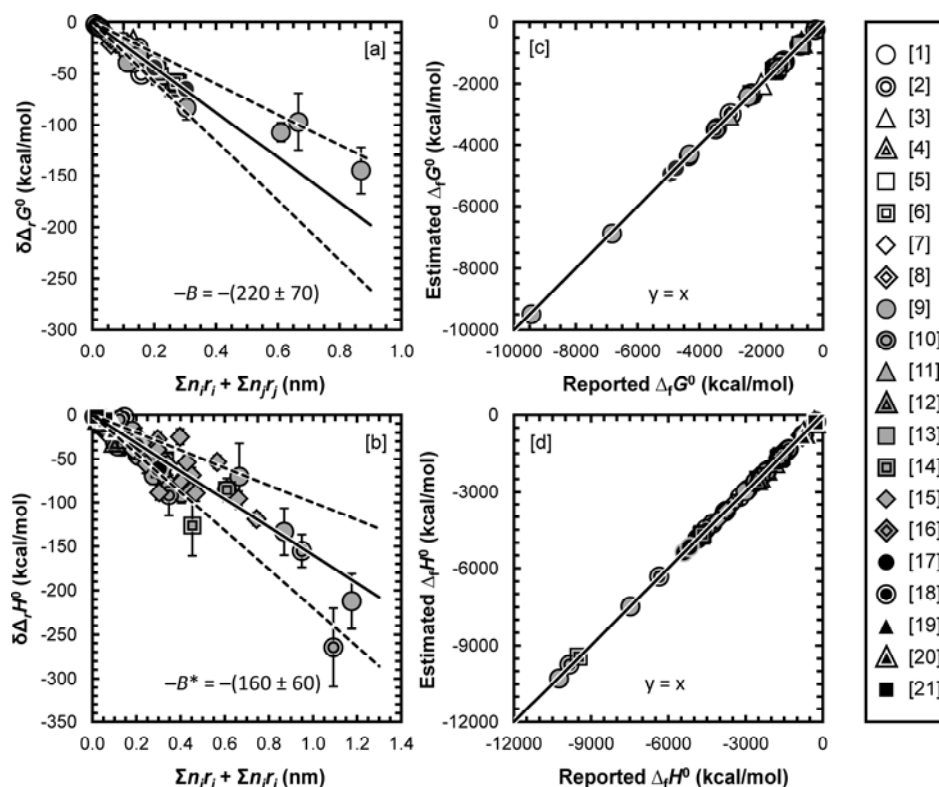


図 9 ポリマーモデルにおける、ゼオライト鉱物の層間イオン半径の総和 ($\sum n_i r_i + \sum n_j r_j$ (nm)) に対する [a] 反応ギブス自由エネルギー $\delta\Delta_f G^0$ (kcal/mol) 及び [b] 反応エンタルピー $\delta\Delta_f H^0$ (kcal/mol)。 $-B$ と $-B^*$ は直線の傾き (重み付き線形回帰により導出、点線は 2σ 区間)。[c] ポリマーモデルにおけるゼオライト鉱物の生成ギブス自由エネルギー $\Delta_f G^0$ (kcal/mol)。[d] ポリマーモデルにおけるゼオライト鉱物の生成エンタルピー $\Delta_f H^0$ (kcal/mol)。既往の報告値に対してプロット。参考文献：[1] (Helgeson et al., 1978)。[2] (Johnson et al., 1982; Johnson et al., 1985; Johnson et al., 1983; Johnson et al., 1992)。[3] (Zeng and Liou, 1982)。[4] (Bennington et al., 1983)。[5] (Cho et al., 1987)。[6] (Donahoe et al., 1990a; Donahoe et al., 1990b)。[7] (Howell et al., 1990)。[8] (Hemingway and Haselton, 1994)。[9] (Kiseleva et al., 2001a; Kiseleva et al., 2001b; Kiseleva et al., 1996a; Kiseleva et al., 1996b; Kiseleva et al., 2001c; Kiseleva et al., 1998; Kiseleva et al., 1997)。[10] (Ogorodova et al., 2007a; Ogorodova et al., 2002; Ogorodova et al., 1996; Ogorodova et al., 2000; Ogorodova et al., 1999; Ogorodova et al., 2007b; Ogorodova et al., 2008; Ogorodova et al., 2003)。[11] (Murphy et al., 1996)。[12] (Petrova, 1997)。[13] (Wilkin and Barnes, 1998)。[14] (Mel'chakova et al., 2003; Mel'chakova et al., 2004; Mel'chakova et al., 1999)。[15] (Shim et al., 1999)。[16] (Benning et al., 2000)。[17] (Fridriksson et al., 2001)。[18] (Yang et al., 2001)。[19] (Neuhoff et al., 2004)。[20] (Turner et al., 2008)。[21] (Wu et al., 2013)。

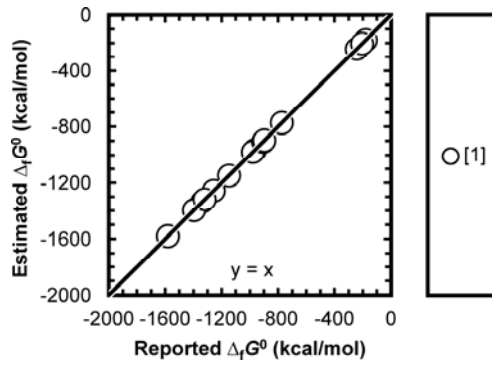


図 10 多面体モデルにおける層状ケイ酸塩鉱物の生成ギブス自由エネルギー $\Delta_f G^0$ (kcal/mol)。既往の報告値に対してプロット。参考文献：[1] Calibrant minerals shown in Table 8.

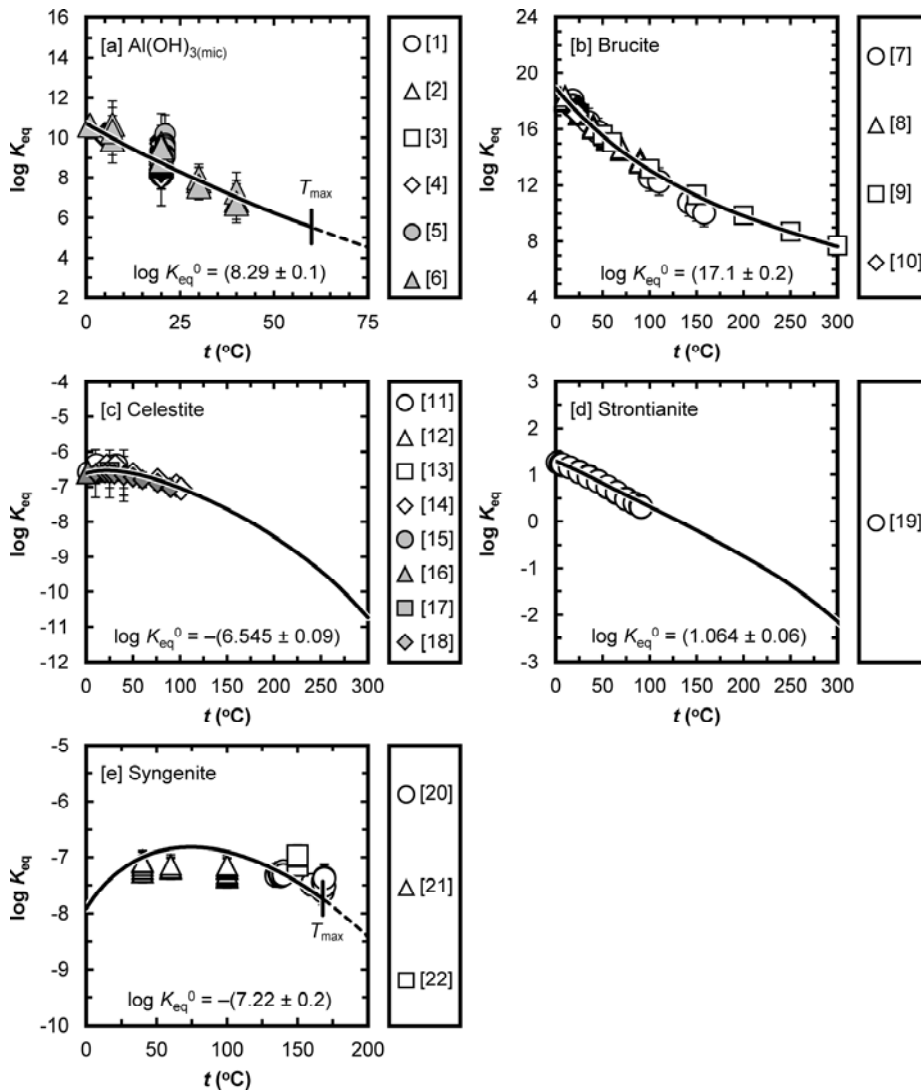


図 11 JAEA β -TDB (v1.07)を用いて計算した鉱物溶解反応の平衡定数 K_{eq} の温度依存性と実験値との比較。溶解反応は H^+ 、 K^+ 、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 Sr^{2+} 、 Al^{3+} 、 HCO_3^- 、 SO_4^{2-} 、 H_2O といった basis を用いて記述される。 T_{max} は鉱物が安定して存在する上限として現状知られている温度である。参考文献：[1] (D'Ans and Eick, 1953). [2] (Buttler and Taylor, 1958). [3] (Carlson and Berman, 1960). [4] (Faurie-Mounier, 1966)

図 11 (続き) [5] (Capmas and Menetrier-Sorrentino, 1989). [6] (Lothenbach et al., 2012). [7] (Travers and Nouvel, 1929). [8] (McGee and Hostetler, 1977). [9] (Brown et al., 1996). [10] (Xiong, 2008). [11] (Kohlrausch, 1908). [12] (Campbell and Cook, 1935). [13] (Belfiori, 1940). [14] (Strübel, 1966). [15] (Davis and Collins, 1971). [16] (North, 1974). [17] (Culberson et al., 1978). [18] (Reardon and Armstrong, 1987). [19] (Busenberg et al., 1984). [20] (Clarke and Partridge, 1934). [21] (Hill, 1934). [22] (Freyer and Voigt, 2004).

6. 化学-物質輸送-力学連成解析で用いたパラメータ

ここでは、本年度の化学-物質輸送 (GARFIELD-CHEM)-力学 (DEAFRAP) 連成による小領域の解析 (本文 2.6.4(1)参照) で用いたパラメータについて記載する。

6.1 解析領域の設定および境界条件

解析開始時点のグリッドを図 12 に示す。大きさは DEAFRAP の解析ドメインのサイズに合わせて 0.09x0.1m であり、厚さは 0.01m である。

GARFIELD-CHEM のセルサイズは、図 12 に示した状態から、化学濃度勾配に従ってグリッドリファインを繰り返していく。特に系内にひび割れが入った場合に、そのひび割れに対して十分な大きさのセルサイズ (例えば開口幅の同程度~1/10 程度) を設定すると問題の自由度が大きくなりすぎてしまい、現実的な時間内で計算を完了することが不可能になってしまう。今回の計算では、考慮するひび割れ開口幅を $\geq 10\mu\text{m}$ とし、最小セルサイズをその 200 倍の 2 mm とした。

また、境界条件については、図 13 で示す形を取り扱う。

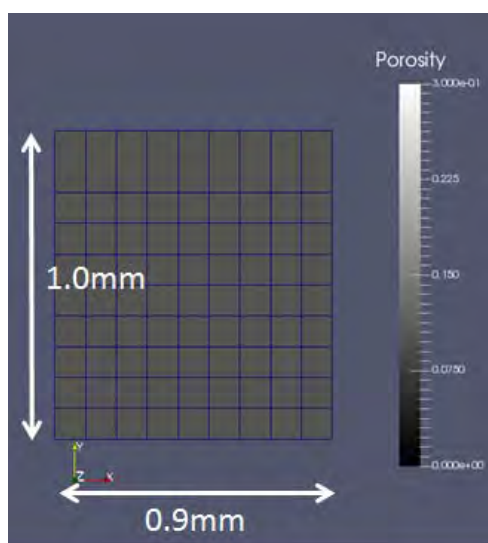


図 12 GARFIELD-CHEM の解析ドメイン (初期状態)

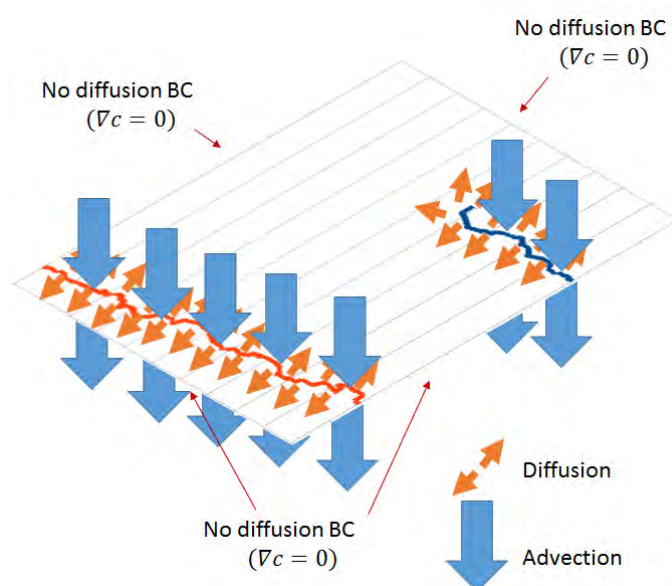


図 13 GARFIELD-CHEM 解析の境界条件

6.2 物質輸送パラメータ

この状態ではひび割れはセル内の 1/200 の面積しか占めていないため、流速の値も、セル全体の流速が正しい値になるように、同じだけ (200 倍) スケールしている。流速を設定する際の動水勾配の値は 1 [m/m] である。セル全体の透水係数は Kozeny-Carmen 則により決定している：

$$K(\theta) = K_0 \frac{(1-\theta_0)^2}{\theta_0^3} \frac{\theta^3}{(1-\theta)^2},$$

ここに、 θ_0 (-) はセメントの初期間隙率、 K_0 (m/s) は $\theta = \theta_0$ のときの透水係数である。ひび割れ中のダルシー流速 q (m/s) は以下の式で与えられる：

$$q = - \frac{d_{cell}}{w_{crack}} K(\theta) \nabla h$$

ここに ∇h (m/m) は動水勾配、 d_{cell} (m) はセルサイズ、 w_{crack} (m) はひび割れの幅である。

本例題で用いた、上記の移流パラメータを表 33 にまとめた。

表 33 本例題で用いた移流パラメータ*

Parameter	Value
θ_0 (-)	0.13
K_0 (m/s)	1.3×10^{-8}
∇h (m/m)	100
w_{crack} (m)	(varies)
d_{cell} (m)	(varies)

*仮想的な値であることに注意

また、実効拡散係数 D_{eff} (m²/s) は Archie 則によって定めた：

$$D_{eff}(\theta) = D_{eff,0} \left(\frac{\theta}{\theta_0} \right)^m.$$

ここに $D_{eff,0}$ (m²/s) は初期の実効拡散係数であり、 m (-) はセメンテーションファクターである。解析に使用したパラメータを表 34 にまとめる。

表 34 本例題で用いた拡散パラメータ*

Parameter	Value
$D_{eff,0}$ (m ² /s)	1.0×10^{-10}
m (-)	1

*仮想的な値であることに注意

6.3 考慮する化学種および反応

例題で考慮する鉱物はポルトランダイト、ジェナイト、トバモライト、カルサイトである (表 35)。これらの特性は JAEA β -TDB v1.02 に基づいている。

セメントの初期鉱物組成を表 36 に示した。これは例題用に簡単化したものであるが、本例題の目的の 1 つである計算性能の把握に必要な数の鉱物を残している。

表 35 本例題で考慮した鉱物

Mineral	Reaction	K_{25C}	Mol. Vol. (cc/mol)
Portlandite	$\text{Ca}(\text{OH})_2 + 2\text{H}^+ = \text{Ca}^{2+} + 2\text{H}_2\text{O}$	22.790	33.056
Jennite(gel)	$\text{Ca}_{1.66}\text{SiO}_{3.66}(\text{H}_2\text{O})_{2.1} + 3.33\text{H}^+$ $= 1.66\text{Ca}^{2+} + \text{H}_4\text{SiO}_{4(aq)}$ $+ 1.76 \text{H}_2\text{O}$	29.042	78.4
Tobermorite-14A	$\text{Ca}_5\text{Si}_6\text{O}_{16}(\text{OH})_2(\text{H}_2\text{O})_{9.5} + 10\text{H}^+$ $= 5\text{Ca}^{2+} + 6\text{H}_4\text{SiO}_{4(aq)}$ $+ 3.5\text{H}_2\text{O}$	63.845	372.555
Calcite	$\text{CaCO}_3 + \text{H}^+ = \text{Ca}^{2+} + \text{HCO}_3^-$	1.849	36.934

表 36 セメントの初期鉱物組成

Mineral	Abundance (mol/m ³)
Portlandite	4189.35
Jennite(gel)	1326.53
Tobermorite-14A	187.39
Calcite	7215.573
Porosity	0.13

これらの鉱物の溶解・沈殿反応速度 R (mol m⁻³ s⁻¹) は Transition State Theory (TST)により与えられる：

$$R = k_0 A \left(\frac{Q}{K} - 1 \right).$$

ここに、 k_0 (mol m⁻² s⁻¹)は速度定数、 Q は関連するイオンの活量(GARFIELD-CHEM により時間の関数として計算される)、 K は TDB より得られる室温での平衡定数である (表 35)。 A (m²/m³) は鉱物の比表面積であり、以下の式で与えられる：

$$A = c A_s W$$

ここで c (mol/m³) は鉱物の濃度 (GARFIELD-CHEM により時間の関数として計算される)、 A_s (m²/g) は鉱物の表面積、 W (g/mol)は鉱物のモル質量である。各鉱物に対するこれらのパラメータを表 37 に示す。

表 37 鉱物の反応速度計算に用いられたパラメータ

Mineral	k_0 (mol/m ² /s)	A_s (m ² /g)	W (g/mol)
Portlandite	1.0×10^{-6}	0.22	74.0927
Jennite(gel)	$1.0 \times 10^{-7.5}$	0.22	191.3806
Tobermorite-14A	$1.0 \times 10^{-7.5}$	0.22	739.9768
Calcite	3.3×10^{-3}	0.22	100.0872

セメント間隙水は FRHP を想定して計算したが、pH は意図的に高い値に設定した (表 38)。この値は必ずしもセメントと平衡なものではなく、計算開始時に即座に平衡になるようなものを想定している。また地下水の設定を表 39 に示した。この設定も FRHP を基本としているが、Ca 濃度は、ポルトランドイトの溶解が速く進むように低く設定してある。

表 38 初期間隙水組成

Species	Molality
Ca	1.09×10^{-4}
C	3.54×10^{-3}
Si	3.39×10^{-4}
Cl (tracer)	1.00×10^{-6}
pH	12

表 39 地下水組成

Species	Molality
Ca	1.00×10^{-6}
C	3.54×10^{-3}
Si	3.39×10^{-4}
Cl (tracer)	1.00×10^{-2}
pH	8.5

また、設定した基礎化学種は H^+ 、 Ca^{2+} 、 HCO_3^- 、 $H_4SiO_4(aq)$ 、 Cl^- である。Complex は表 40 のように設定した (JAEA β -TDB v1.02 に基づく)。

表 40 設定した Complex

Species	Reaction	K_{25c}
OH^-	$OH^- + H^+ = H_2O$	13.995
$CO_{2(aq)}$	$CO_{2(aq)} + H_2O = H^+ + HCO_3^-$	-6.3447
CO_3^{2-}	$CO_3^{2-} + H^+ = HCO_3^-$	10.3288
$CaCO_{3(aq)}$	$CaCO_{3(aq)} + H^+ = Ca^{2+} + HCO_3^-$	7.0017
$CaHCO_3^+$	$CaHCO_3^+ = Ca^{2+} + HCO_3^-$	-1.0467
$CaOH^+$	$CaOH^+ + H^+ = Ca^{2+} + H_2O$	12.8333

参考文献

- Aimoz, L., Kulik, D.A., Wieland, E., Curti, E., Lothenbach, B., and Mader, U. (2012) Thermodynamics of AFm-(I2,S04) solid solution and of its end-members in aqueous media. *Applied Geochemistry*, 27, 2117-2129.
- Aja, S.U. (1995) Thermodynamic properties of some 2:1 layer clay minerals from solution-equilibration data. *European Journal of Mineralogy*, 7, 325-555.
- Allada, R.K., Navrotsky, A., and Boerio-Goates, J. (2005) Thermochemistry of hydrotalcite-like phases in the MgO-Al₂O₃-CO₂-H₂O system: A determination of enthalpy, entropy and free energy. *American Mineralogist*, 90, 329-335.
- Armbruster, T., and Gunter, M.E. (2001) Crystal structures of natural zeolites. In D.L. Bish, and D.W. Ming, Eds. *Natural zeolites: Occurrence, properties, applications, Reviews in Mineralogy and Geochemistry*, 45, p. 1-67. The Mineralogical Society of America, Washington, DC, USA.
- Arthur, R.C., Sasamoto, H., Walker, C., and Yui, M. (2011) Polymer model of zeolite thermochemical stability. *Clays and Clay Minerals*, 59(6), 626-639.
- Arthur, R.C., Sasamoto, H., Walker, C.S., and Yui, M. (2012) Development of a consistent set of standard thermodynamic properties for clay minerals, zeolites and Portland cement hydrates. 5th International Meeting on Clays in Natural and Engineered Barriers for Radioactive Waste Containment. October 22nd-25th 2012, Montpellier, France.
- Atkins, M., Bennett, D., Dawes, A., Glasser, F.P., Kindness, F.P., and Read, D. (1992a) A thermodynamic model for blended cements, p. 178. Department of the Environment, UK.
- Atkins, M., Glasser, F.P., and Kindness, A. (1992b) Cement hydrate phases: solubility at 25°C. *Cement and Concrete Research*, 22(2-3), 241-246.
- Atkins, M., Glasser, F.P., Moroni, L.P., and Jack, J.J. (1994) Thermodynamic modelling of blended cements at elevated temperature (50-90°C). Department of the Environment (UK) HMIP report, DoE/HMIP/RR/94.011, 1-193.
- Atkins, M., Macphee, D.E., Kindness, A., and Glasser, F.P. (1991) Solubility properties of ternary and quaternary compounds in the CaO-Al₂O₃-SO₃-H₂O system. *Cement and Concrete Research*, 21(6), 991-998.
- Baes, C.F., and Mesmer, R.E. (1976) *The hydrolysis of cations*. 490 p. John Wiley & Sons, Inc., New York, NY, USA.
- Baes, C.F.J., and Mesmer, R.E. (1981) The thermodynamics of cation hydrolysis. *American Journal of Science*, 281, 935-962.
- Bailey, S.W. (1988) Odinite, a new dioctahedral-trioctahedral Fe³⁺ rich 1:1 clay mineral. *Clay Minerals*, 23, 237-247.
- Balonis, M., Lothenbach, B., Le Saout, G., and Glasser, F.P. (2010) Impact of chloride on the mineralogy of hydrated Portland cement systems. *Cement and Concrete Research*, 40(7), 1009-1022.
- Balonis, M., Medala, M., and Glasser, F.P. (2011) Influence of calcium nitrate and nitrite on the constitution of AFm and AFt cement hydrates. *Advances in Cement Research*, 23(3), 129-143.
- Barany, R. (1962) Heats and free energies of formation of some hydrated and anhydrous sodium and calcium aluminum silicates. United States Bureau of Mines Report of Investigations, 6251, 17.
- Bard, A.J., Parsons, R., and Jordan, J. (1985) *Standard potentials in aqueous solution*. IUPAC. Marcel Dekker, New York, NY, USA.
- Barin, I. (1993) *Thermochemical data of pure substances*. 1739 p. Verlag Chemie, Weinheim, Germany.

- Baur, I., Keller, P., Mavrocordatos, D., Wehrli, B., and Johnson, C.A. (2004) Dissolution-precipitation behaviour of ettringite, monosulfate, and calcium silicate hydrate. *Cement and Concrete Research*, 34(2), 341-348.
- Belfiori, P. (1940) The effect of alkali nitrites on several difficulty soluble sulfates. *Annali di Chimica Applicata*, 30, 233-237.
- Bennett, D.G., Read, D., Atkins, M., and Glasser, F.P. (1992) A thermodynamic model for blended cements. II: Cement hydrate phases; thermodynamic values and modelling studies. *Journal of Nuclear Materials*, 190, 315-325.
- Benning, L.G., Wilkin, R.T., and Barnes, H.L. (2000) Solubility and stability of zeolites in aqueous solution: II. Calcic clinoptilolite and mordenite. *American Mineralogist*, 85, 495-508.
- Bennington, K.O., Beyer, R.P., and Johnson, G.K. (1983) Thermodynamic properties of pollucite (a cesium-aluminum-silicate). United States Bureau of Mines Report of Investigations, 8779, 18.
- Birnin-Yauri, U.A., and Glasser, F.P. (1998) Friedel's Salt, $\text{Ca}_2\text{Al}(\text{OH})_6(\text{Cl},\text{OH})_0_6 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$: Its Solid Solutions and Their Role in Chloride Binding. *Cement and Concrete Research*, 28(12), 1713-1724.
- Bothe, J.V., and Brown, P.W. (2004) PhreeqC modeling of Friedel's salt equilibria at 23 +/- 1°C. *Cement and Concrete Research*, 34(6), 1057-1063.
- Bourcier, W.L., and Barnes, H.L. (1987) Ore solution chemistry - VII. Stabilities of chloride and bisulfide complexes of zinc to 350°C. *Economic Geology*, 82(1839-1863).
- Bowers, T.S., and Helgeson, H.C. (1983) Calculation of the thermodynamic and geochemical consequences of nonideal mixing in the system $\text{H}_2\text{O}-\text{CO}_2-\text{NaCl}$ on phase relations in geologic systems: Equation of state for $\text{H}_2\text{O}-\text{CO}_2-\text{NaCl}$ fluids at high pressures and temperatures. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 47, 1247-1275.
- Brown, P.L., Drummond, S.E.J., and Palmer, D.A. (1996) Hydrolysis of magnesium (II) at elevated temperatures. *Journal of the Chemical Society Dalton Transactions*, 3071-3075.
- Brown, P.L., and Ekberg, C. (2016) Hydrolysis of metal ions (Vol. 2). Wiley-VCH, Weinheim, Germany.
- Busenberg, E., and Plummer, L.N. (1986) The solubility of $\text{BaCO}_3(\text{cr})$ (witherite) in $\text{CO}_2-\text{H}_2\text{O}$ solutions between 0 and 90°C, evaluation of the association constants of $\text{BaHCO}_3^+(\text{aq})$ and $\text{BaCO}_3^0(\text{aq})$ between 5 and 80°C, and a preliminary evaluation of the thermodynamic properties of $\text{Ba}^{2+}(\text{aq})$. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 50, 2225-2233.
- Busenberg, E., Plummer, L.N., and Parker, V.B. (1984) The solubility of strontianite (SrCO_3) in $\text{CO}_2-\text{H}_2\text{O}$ solutions between 2 and 91°C, the association constants of $\text{SrHCO}_3^+(\text{aq})$ and $\text{SrCO}_3^0(\text{aq})$ between 5 and 80°C, and an evaluation of the thermodynamic properties of $\text{Sr}^{2+}(\text{aq})$ and $\text{SrCO}_3(\text{cr})$ at 25°C and 1 atm total pressure. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 48, 2021-2035.
- Buttler, F.G., and Taylor, H.F.W. (1958) The system $\text{CaO}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{H}_2\text{O}$ at 5°C. *Journal of the Chemical Society*, 2103-2110.
- Campbell, A.N., and Cook, E.J.R. (1935) A study of the precipitation from supersaturated solutions of strontium sulfate. *Journal of the American Chemical Society*, 57, 387-390.
- Capmas, A., and Menetrier-Sorrentino, D. (1989) The effect of temperature of the hydration of calcium aluminate cement. *Proceedings of the Unified International Technical Conference on Refractories*, p. 1157-1170, Anaheim, CA, USA.
- Carlson, E.T. (1958) The system lime-alumina-water at 1°C. *Journal of Research of the National Bureau of Standards*, 61, 1-11.
- Carlson, E.T., and Berman, H.A. (1960) Some observations on the calcium aluminate carbonate hydrates. *Journal of Research of the National Bureau of Standards*, 64, 333-341.

- Chase, M.W.J. (1998) NIST-JANAF Thermochemical tables (4th ed.) Part 1, Al-Co. Journal of Physical and Chemical Reference Data, Monograph 9, 1951p.
- Chipera, S.J., and Apps, J.A. (2001) Geochemical stability of natural zeolites. In D.L. Bish, and D.W. Ming, Eds. Natural zeolites: Occurrence, properties, applications, 45, p. 117-161. The Mineralogical Society of America, Washington, DC, USA.
- Cho, M., Maruyama, S., and Liou, J.G. (1987) An experimental investigation of heulandite-laumontite equilibrium at 1000 to 2000 bar P_{fluid} . Contributions to Mineralogy and Petrology, 97, 43-50.
- Clarke, L., and Partridge, E.P. (1934) Potassium sulfate from syngenite by high temperature extraction with water. Journal of Industrial and Engineering Chemistry, 26, 897-903.
- Coughlin, J.P. (1955) High temperature heat contents, heats of transition and heat of fusion of anhydrous sodium sulfate. Journal of the American Chemical Society, 77, 868-870.
- Cox, J.D. (1978) CODATA recommended key values for thermodynamics, 1977 Report of the CODATA task group on key values for thermodynamics, 1977. Journal of Chemical Thermodynamics, 10, 903-906.
- Culberson, C.H., Latham, G., and Bates, R.G. (1978) Solubilities and activity coefficients of calcium and strontium sulphates in synthetic seawater at 0.5°C and 25°C. Journal of Physical Chemistry, 82, 2693-2699.
- D'Ans, J.D., and Eick, H. (1953) Das system $\text{CaO-Al}_2\text{O}_3\text{-H}_2\text{O}$ bei 20°C und das erhärten der tonerde zemente. Zement Kalk Gips, 6, 197-210.
- Damidot, D., Stronach, S., Kindness, A., Atkins, M., and Glasser, F.P. (1994) Thermodynamic investigation of the $\text{CaO-Al}_2\text{O}_3\text{-CaCO}_3\text{-H}_2\text{O}$ closed system at 25°C and the influence of Na_2O . Cement and Concrete Research, 24(3), 563-572.
- Davis, J.W., and Collins, A.G. (1971) Solubility of barium and strontium sulfates in strong electrolyte solutions. Environmental Science and Technology, 5, 1039-1043.
- Deer, W.A., Howie, R.A., and Zussman, J. (1966) An introduction to the rock forming minerals. Longman Scientific and Technical, Harlow.
- Dilnesa, B.Z. (2011) Fe-containing hydrates and their fate during cement hydration: thermodynamic data and experimental study. Laboratoire des matériaux de construction, Ph.D., p. 208. École Polytechnique Fédérale de Lausanne, Lausanne.
- Dilnesa, B.Z., Lothenbach, B., Le Saout, G., Renaudin, G., Mesbah, A., Filinchuk, Y., Wichser, A., and Wieland, E. (2011) Iron in carbonate containing AFm phases. Cement and Concrete Research, 41(3), 311-323.
- Dilnesa, B.Z., Lothenbach, B., Renaudin, G., Wichser, A., and Kulik, D.A. (2014) Synthesis and characterization of hydrogarnet $\text{Ca}_3(\text{Al}_x\text{Fe}_{1-x})_2(\text{SiO}_4)_y(\text{OH})_{4(3-y)}$. Cement and Concrete Research, 59(May), 96-111.
- Dilnesa, B.Z., Lothenbach, B., Renaudin, G., Wichser, A., and Wieland, E. (2012) Stability of monosulfate in the presence of iron. Journal of the American Ceramic Society, 95(10), 3305-3316.
- Dirkse, T.P. (1986) Copper, silver, gold, and zinc, cadmium, mercury oxides and hydroxides. 360 p. Pergamon Press, Oxford, UK.
- Dirske, T.P., Postmus, C.J., and Vandenbosch, R. (1954) A study of alkaline solutions of zinc oxide. Journal of the American Chemical Society, 76, 6022-6024.
- Donahoe, R.J., Hemingway, B.S., and Liou, J.G. (1990a) Thermochemical data for merlinoite: 1. Low-temperature heat capacities, entropies, and enthalpies of formation at 298.15 K of six synthetic samples having various Si/Al and Na/(Na + K) ratios. American Mineralogist, 75(1-2), 188-200.
- Donahoe, R.J., Hemingway, B.S., and Liou, J.G. (1990b) Thermochemical data for merlinoite: 2. Free energies of formation at 298.15 K of six synthetic samples having various

- Si/Al and Na/(Na + K) ratios and application to saline, alkaline lakes. *American Mineralogist*, 75(1-2), 201-208.
- Ederova, J., and Satava, V. (1979) Heat capacities of C_3AlH_6 , $C_4Al_2H_{12}$ and $C_6Al_3H_{32}$. *Thermochimica Acta*, 31, 126-128.
- Faurie-Mounier, M.T. (1966) Contribution à l'étude du système Ca-Al₂O₃-H₂O. *Revue des Matériaux de Construction*, 635-636, 305-312.
- Freyer, D., and Voigt, W. (2004) The measurement of sulfate mineral solubilities in the Na-K-Ca-Cl-SO₄-H₂O system at temperatures of 100, 150 and 200°C. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 68(2), 307-318.
- Fridriksson, T., Neuhoff, P.S., Arnórsson, S., and Bird, D.K. (2001) Geological constraints on the thermodynamic properties of the stilbite-stellerite solid solution in low-grade metabasalts. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 65(21), 3993-4008.
- Fulton, J.W., and Swinehart, D.F. (1954) The equilibria of crystalline zinc hydroxide in dilute hydrochloric acid and sodium hydroxide at 25°C. The first and second acidic dissociation constants of zinc hydroxide. *Journal of the American Chemical Society*, 76, 864-867.
- Gailhanou, H., Blanc, P., Rogez, J., Mikaelian, G., Horiuchi, K., Yamamura, Y., Saito, K., Kawaji, H., Warmont, F., Greneche, J.-M., Vieillard, P., Fialips, C.I., Giffault, E., and Gaucher, E.C. (2013) Thermodynamic properties of saponite, nontronite, and vermiculite derived from calorimetric measurements. *American Mineralogist*, 98, 1834-1847.
- Gailhanou, H., Blanc, P., Rogez, J., Mikaelian, G., Kawaji, H., Olives, J., Amouric, M., Denoyel, R., Bourrelly, S., Montouillout, V., Vieillard, P., Fialips, C.I., Michau, N., and Gaucher, E.C. (2012) Thermodynamic properties of illite, smectite and beidellite by calorimetric methods: Enthalpies of formation, heat capacities, entropies and Gibbs free energies of formation. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 89, 279-301.
- Gailhanou, H., van Miltenburg, J.C., Rogez, J., Olives, J., Amouric, M., Gaucher, E.C., and Blanc, P. (2007) Thermodynamic properties of anhydrous MX-80, Illite IMt2 and mixed layer illite-smectite ISCz-1 as determined by calorimetric methods, Part 1: Heat capacities, heat contents and entropies. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 71, 5463-5473.
- Gamsjager, H., Bugajski, J., Gajda, T., Lemire, R.J., and Preis, W. (2005) Chemical thermodynamics of nickel. 617 p. OECD Nuclear Energy Agency, Issy-les-Moulineaux, France.
- Gao, W., and Li, Z. (2012) Solubility and K_{sp} of $Mg_4Al_2(OH)_{14} \cdot 3H_2O$ at the various ionic strengths. *Hydrometallurgy*, 117-118, 36-46.
- Gedansky, L.M., and Hepler, L.G. (1969) Thermochemistry of the aqueous manganous ion. *Canadian Journal of Chemistry*, 47(4), 699-701.
- Ghorab, H.Y., and Kishar, E.A. (1985) Studies on the stability of the calcium sulfoaluminate hydrates. Part 1: Effect of temperature on the stability of ettringite in pure water. *Cement and Concrete Research*, 15, 93-99.
- Ghorab, H.Y., Kishar, E.A., and Abou Elfetouh, S.H. (1998) Studies on the stability of the calcium sulfoaluminate hydrates, Part III: The monophases. *Cement and Concrete Research*, 28(5), 763-771.
- Glasser, F.P., Tyrer, M., Quillin, K., Ross, D., Pedersen, J., Goldthorpe, K., Bennett, D., and Atkins, M. (1999) The chemistry of blended cement and backfills intended for use in radioactive waste disposal, p. 333. Environment Agency, Bristol, UK.
- Gubeli, A.O., and Ste-Marie, J. (1967) Stabilité des complexes hydroxo et produits de solubilité des hydroxydes de métaux. I. Argent et zinc. *Canadian Journal of Chemistry*, 45, 827-832.

- Gurvich, L.V., Bergman, G.A., Gorkhov, L.N., Iorish, V.S., Leonidov, V.Y., and Yungman, V.S. (1997) Thermodynamic properties of alkali metal hydroxides. Part II. Potassium, rubidium, and cesium hydroxides. *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, 26(4), 1031-1110.
- Haas, J.L., and Robie, R.A. (1973) Thermodynamic data for wustite, $\text{Fe}_{0.947}\text{O}$, magnetite, Fe_3O_4 , and hematite, Fe_2O_3 . *American Geophysical Union Transactions*, 54, 483.
- Helgeson, H.C. (1985) Some thermodynamic aspects of geochemistry. *Pure and Applied Chemistry*, 57(1), 31-44.
- Helgeson, H.C., Delany, J.M., Nesbitt, H.W., and Bird, D.K. (1978) Summary and critique of the thermodynamic properties of rock-forming minerals. *American Journal of Science*, 278a, 1-229.
- Helgeson, H.C., and MacKenzie, F.T. (1970) Silicate-sea water equilibria in the ocean system. *Deep Sea Research*, 17, 877-892.
- Hemingway, B.S., and Haselton, H.T.J. (1994) A reevaluation of the calorimetric data for the enthalpy of formation of some K- and Na-bearing silicate minerals, p. 33. *United States Geological Survey*, Reston, VA, USA.
- Hildenbrand, D.L., and Giaque, W.F. (1953) Ammonium oxide and ammonium hydroxide. Heat capacities and thermodynamic properties from 15 to 300°K. *Journal of the American Chemical Society*, 75(12), 2811-2818.
- Hill, A.E. (1934) Ternary systems XIX. Calcium sulfate, potassium sulfate and water. *Journal of the American Chemical Society*, 56, 1071-1078.
- Hobbs, M.Y. (2001) Solubilities and ion exchange properties of solid solutions between the OH, Cl and CO₃ end members of the monocalcium aluminate hydrates. *Earth Sciences*, Ph.D., p. 206. *University of Waterloo*, Waterloo, Ontario, Canada.
- Honda, A., Masuda, K., Nakanishi, H., Fujita, H., and Negishi, K. (2009) Modeling of pH elevation due to the reaction of saline groundwater with hydrated ordinary Portland cement phases. *Materials Research Society Symposium Proceedings*, 1124(Q10-12), 365-372.
- Howell, D.A., Johnson, G.K., Tasker, I.R., O'Hare, P.A.G., and Wise, W.S. (1990) Thermodynamic properties of the zeolite stilbite. *Zeolites*, 10(Jul-Aug), 525-531.
- Huang, W.H., and Keller, W.D. (1973) Gibbs free energies of formation calculated from dissolution data using specific mineral analyses. III. Clay minerals. *American Mineralogist*, 58, 1023-1028.
- Jappy, T.G., and Glasser, F.P. (1992) Synthesis and stability of silica-substituted hydrogarnet $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{Si}_{3-x}\text{O}_{12-x}(\text{OH})_{4x}$. *Advances in Cement Research*, 4(1), 1-8.
- Johnson, C.A., and Glasser, F.P. (2003) Hydrotalcite-like minerals $(\text{M}_2\text{Al}(\text{OH})_6(\text{CO}_3)_{0.5} \cdot x\text{H}_2\text{O})$, where M = Mg, Zn, Co, Ni) in the environment: synthesis, characterization and thermodynamic stability. *Clays and Clay Minerals*, 51(1), 1-8.
- Johnson, G.K., Flotow, H.E., and O'Hare, P.A.G. (1982) Thermodynamic studies of zeolites: analcime and dehydrated analcime. *American Mineralogist*, 67(7-8), 736-748.
- Johnson, G.K., Flotow, H.E., and O'Hare, P.A.G. (1985) Thermodynamic studies of zeolites: heulandite. *American Mineralogist*, 70(9-10), 1065-1071.
- Johnson, G.K., Flotow, H.E., O'Hare, P.A.G., and Wise, W.S. (1983) Thermodynamic studies of zeolites: natrolite, mesolite and scolecite. *American Mineralogist*, 68, 1134-1145.
- Johnson, G.K., Tasker, I.R., Flotow, H.E., O'Hare, P.A.G., and Wise, W.S. (1992) Thermodynamic studies of mordenite, dehydrated mordenite, and gibbsite. *American Mineralogist*, 77, 85-93.
- Karathanasis, A.D., and Hajek, B.F. (1983) Transformation of smectite to kaolinite in naturally acid soil systems: Structural and thermodynamic considerations. *Soil Science Society of America Journal*, 47, 158-163.

- Kelley, K.K. (1960) Contributions to the data in theoretical metallurgy XIII: High temperature heat content, heat capacities and entropy data for the elements and inorganic compounds. United States Bureau of Mines Bulletin, 584, 1-232.
- Khodakovskiy, I.L., and Yelkin, A.Y. (1975) Measurement of the solubility of zincite in aqueous NaOH at 100, 150 and 200°C. *Geochemistry International*, 12(5), 127-133.
- King, E.G. (1955) Low temperature heat capacity and entropy at 298.16°K of analcite. *Journal of the American Chemical Society*, 77(8), 2192-2193.
- King, E.G., Barany, R., Weller, W.W., and Pankratz, L.B. (1967) Thermodynamic properties of forsterite and serpentine. United States Bureau of Mines Report of Investigations, 6962, 19.
- Kiseleva, I., Navrotsky, A., Belitsky, I., and Fursenko, B. (2001a) Thermochemical study of calcium zeolites - heulandite and stilbite. *American Mineralogist*, 86(4), 448-455.
- Kiseleva, I.A., Navrotsky, A., Belitskii, I.A., and Fursenko, B.A. (2001b) Thermodynamic properties of the calcium zeolites stilbite and stellerite. *Geochemistry International*, 39(2), 170-176.
- Kiseleva, I.A., Navrotsky, A., Belitsky, I.A., and Fursenko, B.A. (1996a) Thermochemistry and phase equilibria in calcium zeolites. *American Mineralogist*, 81, 658-667.
- Kiseleva, I.A., Navrotsky, A., Belitsky, I.A., and Fursenko, B.A. (1996b) Thermochemistry of natural potassium sodium calcium leonhardite and its cation-exchanged forms. *American Mineralogist*, 81, 668-675.
- Kiseleva, I.A., Ogorodova, L.P., Mel'chakova, L.V., and Belitskii, I.A. (2001c) Thermodynamic properties of zeolites of chabasite and phillipsite groups. *Experiments in Geosciences*, 10(1), 53-54.
- Kiseleva, I.A., Ogorodova, L.P., Mel'chakova, L.V., Belitskii, I.A., and Fursenko, B.A. (1998) Thermodynamic characteristics of thomsonite and edingtonite. *Vestnik Moskovskogo Universiteta Seria 4 Geologiya*, 4, 27-32.
- Kiseleva, I.A., Ogorodova, L.P., Mel'chakova, L.V., Belitsky, I.A., and Fursenko, B.A. (1997) Thermochemical investigation of natural fibrous zeolites. *European Journal of Mineralogy*, 9, 327-332.
- Knauss, K.G., Dibley, M.J., Bourcier, W.L., and Shaw, H.F. (2001) Ti(IV) hydrolysis constants derived from rutile solubility measurements made from 100 to 300°C. *Applied Geochemistry*, 16, 1115-1128.
- Kohlrausch, F. (1908) Saturated aqueous solutions of sparingly soluble salts (II). The solubilities and their change in temperature. *Zeitschrift für Physikalische Chemie*, 64, 129-169.
- Latimer, W.M. (1952) *Oxidation potentials*. Prentice-Hall, New York, NY, USA.
- Lea, F., and Desch, C. (1956) *The chemistry of cement and concrete* (2nd ed.). St. Martin's Press, New York, NY, USA.
- Leisinger, S.M., Lothenbach, B., Le Saout, G., and Johnson, A. (2012) Thermodynamic modeling of solid solutions between monosulfate and monochromate $3\text{CaO}\cdot\text{Al}_2\text{O}_3\cdot\text{Ca}[(\text{CrO}_4)_x(\text{SO}_4)_{1-x}]\cdot n\text{H}_2\text{O}$. *Cement and Concrete Research*, 42(1), 158-165.
- Lemire, R.J., Berner, U., Musikas, C., Palmer, D.A., Taylor, P., and Tochiyama, O. (2013) *Chemical thermodynamics of Iron*, Part 1. OECD Nuclear Energy Agency, Issy-les-Moulineaux, France.
- Liberti, A., Chiantella, V., and Corigliano, F. (1963) Mononuclear hydrolysis of titanium (IV) from partition equilibria. *Journal of Inorganic Nuclear Chemistry*, 25, 415-427.
- Lothenbach, B., Matschei, T., Möschner, G., and Glasser, F.P. (2008) Thermodynamic modelling of the effect of temperature on the hydration and porosity of Portland cement. *Cement and Concrete Research*, 38(1), 1-18.
- Lothenbach, B., Pelletier-Chaignat, L., and Winnefeld, F. (2012) Stability in the system $\text{CaO}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{H}_2\text{O}$. *Cement and Concrete Research*, 42(12), 1621-1634.

- Lothenbach, B., and Winnefeld, F. (2006) Thermodynamic modelling of the hydration of Portland cement. *Cement and Concrete Research*, 36(2), 209-226.
- Möschner, G., Lothenbach, B., Rose, J., Ulrich, A., Figi, R., and Kretzschmar, R. (2008) Solubility of Fe-ettringite ($\text{Ca}_6[\text{Fe}(\text{OH})_6]_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 26\text{H}_2\text{O}$). *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 72(1), 1-18.
- Macphee, D.E., and Barnett, S.J. (2004) Solution properties of solids in the ettringite-thaumasite solid solution series. *Cement and Concrete Research*, 34(9), 1591-1598.
- Mah, A.D., Pankratz, L.B., Weller, W.W., and King, E.G. (1967) Thermodynamic data for cuprous and cupric oxides. United States Bureau of Mines Report of Investigations, 7026, 20.
- Maier, C.G., and Kelly, K.K. (1932) An equation for the representation of high temperature heat content data. *Journal of the American Chemical Society*, 54(8), 3243-3246.
- Majer, V., and Stulik, K. (1982) A study of the stability of alkaline-earth metal complexes with fluoride and chloride ions at various temperatures by potentiometry with ion-selective electrodes. *Talanta*, 29(2), 145-148.
- Marcus, Y., and Maydan, D. (1963) Anion exchange of metal complexes. VIII. The effect of the secondary cation. The zinc-chloride system. *Journal of Physical Chemistry*, 67, 979-983.
- Matschei, T., and Glasser, F.P. (2015) Thermal stability of thaumasite. *Materials and Structures*, 48(7), 2277-2289.
- Matschei, T., Lothenbach, B., and Glasser, F.P. (2007) Thermodynamic properties of Portland cement hydrates in the system $\text{CaO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2\text{-CaSO}_4\text{-CaCO}_3\text{-H}_2\text{O}$. *Cement and Concrete Research*, 37(10), 1379-1410.
- Mattigod, S.V., and Sposito, G. (1978) Improved method for estimating the standard free energies of formation ($\Delta G^{0f, 298.15}$) of smectites. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 42(12), 1753-1762.
- McGee, K.A., and Hostetler, P.B. (1977) Activity-product constants of brucite from 10° to 90°C. *United States Geological Survey Journal of Research*, 5(2), 227-233.
- Mel'chakova, L.V., Ogorodova, L.P., Kiseleva, I.A., and Belitskii, I.A. (2003) A calorimetric study of natural zeolites: Phillipsite and harmotome. *Russian Journal Of Physical Chemistry A*, 77(1), 1-4.
- Mel'chakova, L.V., Ogorodova, L.P., Kiseleva, I.A., and Belitskii, I.A. (2004) Thermodynamic properties of ferrierite-mordenite-group natural zeolite. *Russian Journal of Physical Chemistry*, 78(12), 2037-2038.
- Mel'chakova, L.V., Ogorodova, L.P., Kiseleva, I.A., Belitskii, I.A., and Fursenko, B.A. (1999) Thermochemical investigations of natural bikitaite. *Geochemistry International*, 37(12), 1224-1227.
- Mills, K.C. (1974) Thermodynamic data for inorganic sulphides, selenides and tellurides. 845 p. Butterworths, London, UK.
- Misra, U.K., and Upchurch, W.J. (1976) Free energy of formation of beidellite from apparent solubility measurements*. *Clays and Clay Minerals*, 24, 327-331.
- Mittermayr, F., Baldermann, A., Kurta, C., Rinder, T., Klammer, D., Leis, A., Tritthart, J., and Dietzel, M. (2013) Evaporation - A key mechanism for the thaumasite form of sulfate attack. *Cement and Concrete Research*, 49, 55-64.
- Murphy, W.M., Pabalan, R.T., Prikryl, J.D., and Goulet, C.J. (1996) Reaction kinetics and thermodynamics of aqueous dissolution and growth of analcime and Na-clinoptilolite at 25°C. *American Journal of Science*, 296(Feb), 128-196.
- Neuhoff, P.S., Hovis, G.L., Balassone, G., and Stebbins, J.F. (2004) Thermodynamic properties of analcime solid solutions. *American Journal of Science*, 304(Jan), 21-66.
- Neuhoff, P.S., and Wang, J. (2007) Heat capacity of hydration in zeolites. *American Mineralogist*, 92, 1358-1367.

- 日本原子力研究開発機構 (2013) : 地層処分技術調査等事業TRU廃棄物処分技術セメント材料影響評価技術高度化開発報告書. 2013. 3.
- 日本原子力研究開発機構 (2014) : 地層処分技術調査等事業セメント材料影響評価技術高度化開発報告書. 2014. 3.
- 日本原子力研究開発機構 (2015) : 地層処分技術調査等事業セメント材料影響評価技術高度化開発報告書. 2015. 3.
- Nikolaeva, N.M., Yerenburg, A.M., and Antinina, V.A. (1972) Temperature dependence of the standard potential of halide complexes of gold. *Izvest Sib Otd Akad SSSR, Ser Khim*, 4, 126-129.
- Nishikawa, T., Sato, K., Ito, S., and Suzuki, K. (1992) Thermal and chemical stability of AFm phase-isostructural group. *Proceedings of the 9th International Congress on the Chemistry of Cement, I*, 437-442.
- North, N.A. (1974) Pressure dependence of SrSO₄ solubility. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 38, 1075-1081.
- O'Hare, P.A.G. (1972) Thermochemical and theoretical investigations of the sodium-oxygen system. I The standard enthalpy of formation of sodium oxide (Na₂O). *Journal of Chemical Physics*, 56(9), 4513-4516.
- Oda, C., Walker, C.S., Chino, D., Honda, A., Sato, T., and Yoneda, T. (2014) Na-montmorillonite dissolution rate determined by varying the Gibbs free energy of reaction in a dispersed system and its application to a coagulated system in 0.3 M NaOH solution at 70 °C. *Applied Clay Science*, 93-94, 62-71.
- 小田治恵, 柴田雅博, 油井三和 (1999) : 地層処分研究開発第 2 次取りまとめにおける緩衝材間隙水化学の評価 JNC TN8400 99-078
- Oelkers, E.H., and Helgeson, H.C. (1988) Calculation of the thermodynamic and transport properties of aqueous species at high pressures and temperatures. Dissociation constants for supercritical alkali metal halides at temperatures from 400° to 800°C and pressures from 500 to 4000 bars. *Journal of Physical Chemistry*, 92(6), 1631-1639.
- Ogorodova, L.P., Kiseleva, I.A., and Mel'chakova, L.V. (2007a) Calorimetric determination of the enthalpy of formation of partheite, a calcium zeolite. *Russian Journal of Physical Chemistry A*, 81(2), 315-316.
- Ogorodova, L.P., Kiseleva, I.A., Mel'chakova, L.V., and Belitskii, I.A. (2002) Thermodynamic properties of calcium and potassium chabazites. *Geochemistry International*, 40(5), 466-471.
- Ogorodova, L.P., Kiseleva, I.A., Mel'chakova, L.V., Belitskii, I.A., and Fursenko, B.A. (1996) Enthalpies of formation and dehydration of natural analcime. *Geochemistry International*, 34(11), 980-984.
- Ogorodova, L.P., Mel'chakova, L.V., Kiseleva, I., and Belitskii, I.A. (2000) Thermodynamic characteristics of mordenite group zeolite: Epistilbite. *Vestnik Moskovskogo Universiteta Seria 4 Geologija*, 55(61-64).
- Ogorodova, L.P., Mel'chakova, L.V., and Kiseleva, I.A. (1999) Calorimetric study of natural epistilbite. *Experiments in Geosciences*, 8(2), 88-89.
- Ogorodova, L.P., Mel'chakova, L.V., and Kiseleva, I.A. (2007b) A study of dachiardite, a natural zeolite of the mordenite group. *Russian Journal of Physical Chemistry A*, 81, 1748-1750.
- Ogorodova, L.P., Mel'chakova, L.V., and Kiseleva, I.A. (2008) Enthalpy of formation for natural paulingite zeolite. *Russian Journal of Physical Chemistry A*, 82(1), 138-139.
- Ogorodova, L.P., Mel'chakova, L.V., Kiseleva, I.A., and Belitskii, I.A. (2003) Thermodynamic properties of natural zeolites of the gismondine-harronite group. *Russian Journal of Physical Chemistry A*, 77(9), 1543-1545.

- Ogorodova, L.P., Vigasina, M.F., Melchakova, L., Krupskaya, V.V., and Kiseleva, I. (2015) Thermochemical study of natural magnesium aluminum phyllosilicate: Palygorskite. *Journal of Chemical Thermodynamics*, 89(Oct), 205-211.
- Pankratz, L.B., and King, E.G. (1970) High-temperature enthalpies and entropies of chalcopyrite and bornite. *United States Bureau of Mines Report of Investigations*, 7435, 10.
- Parker, V.B. (1995) Thermodynamic properties of aqueous Ba²⁺ ion and the key compounds of barium. *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, 24(2), 1023-1036.
- Parkhurst, D.L., and Appelo, C.A.J. (1999) Users guide to PHREEQC (Version 2): A computer program for speciation, batch-reaction, one-dimensional transport, and inverse geochemical calculations. *Water Resources Investigations Report* p. 312. United States Geological Survey, Denver, CO, USA.
- Peppler, R.B., and Wells, L.S. (1954) The system of lime, alumina and water from 50°C to 250°C. *Journal of Research of the National Bureau of Standards*, 52, 75-94.
- Percival, A., and Taylor, H.F.W. (1959) Monocalcium aluminate hydrate in the system CaO-Al₂O₃-H₂O at 21°. *Journal of the Chemical Society*, 526, 2629-2631.
- Perkins, R.B., and Palmer, C.D. (1999) Solubility of ettringite (Ca₆[Al(OH)₆]₂(SO₄)₃·26H₂O) at 5-75°C. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 13/14, 1969-1980.
- Perrin, D.D. (1964) The hydrolysis of metal ions. Part IV. Nickel (II). *Journal of the Chemical Society*, 3644-3648.
- Petrova, N. (1997) Enthalpy of formation of chabazite, heulandite and clinoptilolite. *Comptes Rendus de l'Academie Bulgare des Sciences*, 50, 69-72.
- Plummer, L.N., and Busenberg, E. (1982) The solubilities of calcite, aragonite and vaterite in CO₂-H₂O solutions between 0 and 90°C, and an evaluation of the aqueous model for the system CaCO₃-CO₂-H₂O. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 46(6), 1011-1040.
- Plyasunov, A.V., Belonozhko, A.B., Ivanov, I.P., and Khodakovskiy, I.L. (1988) Solubility of zinc oxide in alkaline solutions at 200-350°C under saturated steam pressure. *Geochemistry International*, 25, 77-85.
- Quillin, K.C., and Majumdar, A.J. (1994) Phase equilibria in the CaO-Al₂O₃-SiO₂-H₂O system at 5°C, 20°C and 38°C. *Advances in Cement Research*, 6(22), 47-56.
- Rearson, E.J., and Armstrong, D.K. (1987) Celestite (SrSO₄(s)) solubility in water, seawater and NaCl solution. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 51(1), 63-72.
- Reesman, A.L. (1974) Aqueous dissolution studies of illite under ambient conditions. *Clays and Clay Minerals*, 22, 443-454.
- Reichle, R.A., McCurdy, K.G., and Helper, L.G. (1975) Zinc hydroxide: Solubility product and hydroxy-complex stability constants from 12.5-75°C. *Canadian Journal of Chemistry*, 53, 3841-3845.
- Richardson, D.W., and Brown, R.R. (1974) Enthalpy of formation of malachite [Cu₂(CO₃)(OH)₂]. *United States Bureau of Mines Report of Investigations*, 7851, 5.
- Roberts, M.H. (1968) Synopsis. *Proceedings of the 5th International Congress on the Chemistry of Cement*, 2, 67-71.
- Robie, R.A., and Hemingway, B.S. (1972) The heat capacities at low-temperature and entropies at 298.15 K of nesquehonite, MgCO₃·3H₂O, and hydromagnesite. *American Mineralogist*, 57, 1768-1781.
- Robie, R.A., and Hemingway, B.S. (1973) The enthalpies of formation of nesquehonite, MgCO₃·3H₂O, and hydromagnesite, 5MgO·4CO₂·5H₂O. *United States Geological Survey Journal of Research*, 1(5), 543-547.
- Robie, R.A., and Hemingway, B.S. (1995) Thermodynamic properties of minerals and related substances at 298.15 K and 1 bar (10⁵ pascals) pressure and at higher temperatures. *United States Geological Survey Bulletin*, 2131, 461.

- Robie, R.A., Hemingway, B.S., and Fisher, J.R. (1978) Thermodynamic properties of minerals and related substances at 298.15K and 1 bar (10^5 pascals) pressure and at higher temperatures. United States Geological Survey Bulletin, 1452, 456.
- Robie, R.A., and Waldbaum, D.R. (1968) Thermodynamic properties of minerals and related substances at 298.15oK (25.0oC) and one atmosphere (1.013 bars) pressure and at higher temperatures. United States Geological Survey Bulletin, 1259, 1-256.
- Rozov, K., Berner, U., Kulik, D.A., and Diamond, L.W. (2011) Solubility and thermodynamic properties of carbonate-bearing hydrotalcite-pyroaurite solid solutions with a 3:1 Mg/(Al+Fe) mole ratio. *Clays and Clay Minerals*, 59, 215-232.
- Rozov, K., Berner, U., Taviot-Gueho, C., Leroux, F., Renaudin, G., Kulik, D., and Diamond, L.W. (2010) Synthesis and characterization of the LDH hydrotalcite-pyroaurite solid-solution series. *Cement and Concrete Research*, 40, 1248-1254.
- Rozov, K., Curtius, H., Neumann, A., and Bosbach, D. (2013) Synthesis characterization and stability properties of Cl-bearing hydrotalcite-pyroaurite solids. *Radiochimica Acta*, 101, 101-109.
- Ruaya, J.R., and Seward, T.M. (1986) The stability of chlorozinc(II) complexes in hydrothermal solutions up to 350°C. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 52, 1539-1550.
- Saccocia, P.J., and Seyfried, W.E.J. (1993) A resolution of discrepant thermodynamic properties for chamosite retrieved from experimental and empirical techniques. *American Mineralogist*, 78(5-6), 607-611.
- Schmidt, J., and Vogelsberger, W. (2009) Aqueous long-term solubility of titania nanoparticles and titanium(IV) hydrolysis in a sodium chloride system studied by adsorptive stripping voltammetry. *Journal of Solution Chemistry*, 38, 1267-1282.
- Semenov, Y.V., Bychkov, A.M., Krestina, N.V., and Khodakovsky, I.L. (1993) Thermodynamic properties of Cs-silicates and -aluminosilicates. Fourth International Conference on the Chemistry and Migration Behavior of Actinides and Fission Products in the Geosphere p. 63-69. Verlag, Munchen, Germany, Charleston, SC, USA.
- Settle, J.L., Johnson, G.K., and Hubbard, W.N. (1974) The enthalpy of formation of dicesium monoxide (Cs_2O). *Journal of Chemical Thermodynamics*, 6, 263-269.
- Shim, S.-H., Navrotsky, A., Gaffney, T.R., and MacDougall, J.E. (1999) Chabazite: Energetics of hydration, enthalpy of formation, and effect of cations on stability. *American Mineralogist*, 84(11-12), 1870-1882.
- Shock, E.L., and Helgeson, H.C. (1988) Calculation of the thermodynamic and transport properties of aqueous species at high pressures and temperatures: Correlation algorithms for ionic species and equation of state predictions to 5kb and 1000degC. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 52, 2009-2036.
- Shock, E.L., Sassani, D.C., Willis, M., and Sverjensky, D.A. (1997) Inorganic species in geological fluids: Correlations among standard molal thermodynamic properties of aqueous ions and hydroxide complexes. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 61(5), 907-950.
- Sillén, L.G., and Martell, A.E. (1971) Stability constants of metal-ion complexes. Chemical Society, London, UK.
- Sorai, M., Kosaki, A., Suga, H., and Seki, S. (1969) Particle size effect on the magnetic and surface heat capacities of β -Co(OH)₂ and Ni(OH)₂ crystals between 1.5 and 300 K. *Journal of Chemical Thermodynamics*, 1(2), 119-140.
- Stefánsson, A. (2001) Dissolution of primary minerals of basalt in natural waters I. Calculation of mineral solubilities from 0°C to 350°C. *Chemical Geology*, 172, 225-250.
- Strübel, G. (1966) Die hydrothermale Löslichkeit von conlestin im system SrSO₄-NaCl-H₂O. *Neues Jahrbuch für Mineralogie*, 1966, 99-107.
- Stronach, S.A. (1996) Thermodynamic modelling and phase relations of cementitious systems. Department of Chemistry, Ph.D., p. 224. University of Aberdeen, Aberdeen, Scotland.

- Stull, D.R., and Prophet, H. (1971) JANAF Thermochemical Tables, p. 1141. National Bureau of Standards, Washington DC, USA.
- Sverjensky, D.A. (1990) Thermodynamic properties of aqueous inorganic metal complexes. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, in preparation, (ref. 5 in SPRONS92.dat).
- Sverjensky, D.A., Hemley, J.J., and D'Angelo, W.M. (1991) Thermodynamic assessment of hydrothermal alkali feldspar-mica-aluminosilicate equilibria. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 55(4), 989-1004.
- Sverjensky, D.A., Shock, E.L., and Helgeson, H.C. (1997) Prediction of the thermodynamic properties of aqueous metal complexes to 1000 C and 5 kb. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 61(7), 1359-1412.
- Tanger IV, J.C., and Helgeson, H.C. (1988) Calculation of the thermodynamic properties of aqueous species at high pressures and temperatures: Revised equations of state for the standard partial molal properties of ions and electrolytes. *American Journal of Science*, 288, 19-98.
- Trapote-Barreira, A., Cama, J. and Soler, J.M. (2014): Dissolution kinetics of C-S-H gel: Flow-through experiments. *Physics and Chemistry of the Earth*, Vol.70-71, 17-31.
- Travers, A., and Nouvel. (1929) Sur la solubilité de $Mg(OH)_2$ aux températures élevées. *Comptes Rendus Hebdomadaires des Seances de l'Academie*, 188, 499-501.
- Tremaine, P.R., and LeBlanc, J.C. (1980) The solubility of nickel oxide and hydrolysis of Ni^{2+} in water to 573K. *Journal of Chemical Thermodynamics*, 12, 521-538.
- Turner, D.R., Whitfield, M., and Dickson, A.G. (1981) The equilibrium speciation of dissolved components in freshwater and seawater at 25°C and 1 atm pressure*. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 45(6), 855-881.
- Turner, S., Sieber, J.R., Vetter, T.W., Zeisler, R., Marlow, A.F., Moreno-Ramirez, M.G., Davis, M.E., Kennedy, G.J., Borghard, W.G., Yang, S., Navrotsky, A., Toby, B.H., Kelly, J.F., Fletcher, R.A., Windsor, E.S., Verkouteren, J.R., and Leigh, S.D. (2008) Characterization of chemical properties, unit cell parameters and particle size distribution of three zeolite reference materials: RM 8850 - zeolite Y, RM 8851 - zeolite A and RM 8852 - ammonium ZSM-5 zeolite. *Microporous and Mesoporous Materials*, 107, 252-267.
- Vasil'ev, V.P., Vorob'ev, P.N., and Khodakovskii, I.L. (1974) Standard formation potentials at constant pressure for the formation of hydroxyl complexes of titanium and the Ti^{4+} ion in aqueous solution. *Russian Journal of Inorganic Chemistry*, 19, 1481-1483.
- Vieillard, P. (2010) A predictive model for the entropies and heat capacities of zeolites. *European Journal of Mineralogy*, 22, 823-836.
- Von Nacken, R., and Mosebach, R. (1936) Untersuchungen an den vierstoffsystemen $CaO-Al_2O_3-CaCl_2-H_2O$ und $CaO-SiO_2-CaCl_2-H_2O$. *Zeitschrift für Anorganische und Allgemeine Chemie*, 228, 19-27.
- Wagman, D.D., Evans, W.H., Parker, V.B., Schumm, R.H., Halow, I., Bailey, S.M., Churney, K.L., and Nuttall, R.L. (1982) The NBS tables of chemical thermodynamic properties, selected values for inorganic and c1 and c2 organic substances in SI units. *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, 11(2), 1-392.
- Walker, C.S., Sutou, S., Oda, C., Mihara, M., Honda, A. (2015) Calcium silicate hydrate (C-S-H) gel solubility data and a discrete solid phase model at 25°C based on two binary non-ideal solid solutions. *Cement and Concrete Research* 79, 1-30.
- Warren, C.J., and Reardon, E.J. (1994) The solubility of ettringite at 25°C. *Cement and Concrete Research*, 24(8), 1515-1524.
- Wells, L.S., Clarke, W.F., and McMurdie, H.F. (1943) Study of the system $CaO-Al_2O_3-H_2O$ at temperatures of 21°C and 90°C. *Journal of Research of the National Bureau of Standards*, 30, 367-409.

- Wheat, C.G., and Carpenter, R. (1988) MnCl^+ and MnSO_4^0 association constants at 170°C. *Journal of Solution Chemistry*, 17, 467-480.
- Wilkin, R.T., and Barnes, H.L. (1998) Solubility and stability of zeolites in aqueous solution: I. Analcime, Na-, and K-clinoptilolite. *American Mineralogist*, 83(7-8), 746-761.
- Wolery, T.J., and Jove-Colon, C.F. (2007) Qualification of thermodynamic data for geochemical modeling of mineral-water interactions in dilute systems, p. 392. Sandia National Laboratories, Las Vegas, NV, USA.
- Wu, L., Navrotsky, A., Lee, Y., and Lee, Y. (2013) Thermodynamic study of alkali and alkaline-earth cation-exchanged natrolites. *Microporous and Mesoporous Materials*, 167, 221-227.
- Xiong, Y. (2008) Thermodynamic properties of brucite determined by solubility studies and their significance to nuclear waste isolation. *Aquatic Geochemistry*, 14, 223-228.
- Yang, S., Navrotsky, A., and Wilkin, R. (2001) Thermodynamics of ion-exchanged and natural clinoptilolite. *American Mineralogist*, 86(4), 438-447.
- Zeng, Y., and Liou, J.G. (1982) Experimental investigation of yugawaralite-wairakite equilibrium. *American Mineralogist*, 67(9-10), 937-943.
- Zhang, F., Zhou, Z., and Lou, Z. (1980) Solubility product and stability of ettringite. *Proceedings of the 7th International Symposium on the Chemistry of Cement*, II, 88-93.
- Zhang, M. (2000) Incorporation of oxyanionic B, Cr, Mo, and Se into hydrocalumite and ettringite: Application to cementitious systems. *Earth Sciences*, Ph.D., p. 172. University of Waterloo, Waterloo, Ontario, Canada.
- Ziemniak, S.E., Jones, M.E., and Combs, K.E.S. (1992) Zinc (II) oxide solubility and phase behavior in aqueous sodium phosphate solutions at elevated temperatures. *Journal of Solution Chemistry*, 21, 1153-1176.
- Ziemniak, S.E., Jones, M.E., and Combs, K.E.S. (1993) Solubility behavior of titanium(IV) oxide in alkaline media at elevated temperatures. *Journal of Solution Chemistry*, 22(7), 601-623.
- Ziemniak, S.E., Jones, M.E., and Combs, K.E.S. (1995) Magnetite solubility and phase stability in alkaline media at elevated temperatures. *Journal of Solution Chemistry*, 24(9), 837-877.

付録4

情報共有シート

表1 深部の地下水の流入に関する情報共有シート (1/2)

基本情報	整理番号			
	タイトル	深部の地下水（非火山性の深部流体）の流入		
	事象の定義	新たに形成された断層・割れ目を通じた深部の地下水（非火山性の深部流体）の流入		
	担当者	浅森		
	最終更新日	2016年6月27日		
	ステータス	CLOSED		
当該事象が処分システムに与える影響	影響の種類	影響の有無	どのような影響か？	
	T1 温度の増加	●	廃棄体とその周囲の温度が上昇する	
	T2 温度勾配の増加	○	廃棄体とその周囲の温度勾配が増加する	
	T3 その他の熱的影響	-		
	H1 卓越的な地下水流動経路の発生	○	短絡するパスの地下水流動速度が増加する（上昇流）	
	H2 大局的な地下水流動の増加（透水性の増加）	×		
	H3 大局的な地下水流動の増加（動水勾配の増加）	-		
	H4 その他の水理学的影響	○	サイト周辺で熱水対流系が形成される	
	M1 母岩のせん断変形の発生	×		
	M2 母岩の微小亀裂の発生	×		
	M3 母岩の偏圧の発生	×		
	M4 その他の力学的影響	×		
	C1 pHの低下（酸性）	●	廃棄体とその周囲のpHが低下する	
	C2 pHの増加（アルカリ性）	-		
	C3 Ehの増加（酸化性）	-		
	C4 溶存イオン濃度の増加（炭酸、硫酸/硫化物、塩分）	●	廃棄体とその周囲の炭酸、硫化物、塩分濃度が増加する	
	C5 微生物の影響の顕在化	-	???	
	C6 その他の化学的影響	×		
前提条件	起回事象	処分場内での断層の新生		
	起回事象の発生原因（起回事象のみ）			
	当該事象を考慮するための前提条件（起回事象に係る設定等）	条件/パラメータ	値/設定	
		断層の傾斜と透水係数	（他項目より）	
		破砕帯の幅と透水係数	（他項目より）	
		発生時期	（他項目より）	
		継続期間	数万年間？	
研究状況	前提条件下での影響の具体化	影響の種類	影響の有無/定量化	
		T1	最大事例 210℃	
		C1	最小事例 pH=3	
		C4	最大事例 塩化物イオン濃度 50g/l	
		C4	最大事例 炭酸化学種（HCO ₃ ⁻ ）濃度 4432mg/dm ³	

表1 深部の地下水の流入に関する情報共有シート (2/2)

	影響の種類	設定・考え方
		上記の影響の設定・考え方
設定の根拠	文献1	松葉谷 治, 酒井 均, 鶴巻道三 (1974) : 有馬地域の温泉, 鉱泉の水素と酸素の同位体比について, 岡山大学温泉研究所報告, 43, 15-28.
	文献2	産業技術総合研究所 (2012):概要調査の調査・評価項目に関する技術資料-立地要件への適合性とその根拠となる調査結果の妥当性-, 地質調査総合センター研究資料集, no.560.
	文献3	新エネルギー・産業技術総合開発機構 (1996) : 本宮地域-地熱開発促進調査報告書-No.37, p.885.
	文献4	西村 進 (2000) : 紀伊半島の温泉とその熱源, 温泉科学, 51, 98-107.
	文献5	網田和宏, 大沢信二, 杜 建国, 山田 誠 (2005) : 大分平野の深部に賦存される有馬型熱水の起源, 温泉科学, 55, 64-77.
	文献6	高橋正明, 風早康平, 安原正也, 塚本 斉, 佐藤努, 高橋浩, 森川徳敏, 大和田道子, 尾山洋一, 芝原暁彦, 稲村明彦, 鈴木秀和, 半田宙子, 仲間純子, 松尾京子, 竹内久子, 切田司, 大丸純 (2011) : 深層地下水データベース, 地質調査総合センター研究資料集, No.532.
	文献7	尾山洋一, 高橋正明, 塚本 斉, 風早康平, 安原正也, 高橋 浩, 森川徳敏, 大和田道子, 芝原暁彦, 稲村明彦 (2011) : 日本列島の非火山地域における深層地下水水質と地質との関係について, 原子力バックエンド研究, 18, 25-34.
	文献8	総合エネルギー調査会 電力・ガス事業分科会 原子力小委員会 地層処分技術ワーキンググループ (2014) : 最新の科学的知見に基づく地層処分技術の再評価-地質環境特性および地質環境の長期安定性について-.
	文献9	
	文献10	

表2 地表水の流入に関する情報共有シート (1/2)

基本情報	整理番号			
	タイトル	地表水の流入		
	事象の定義	新たに形成された断層・割れ目を通じた地表水の流入		
	担当者	浅森		
	最終更新日	2016年6月27日		
	ステータス	CLOSED		
当該事象が処分システムに与える影響	影響の種類		影響の有無	どのような影響か？
	T1	温度の増加	×	
	T2	温度勾配の増加	×	
	T3	その他の熱的影響	×	
	H1	卓越的な地下水流動経路の発生	○	短絡するパスの地下水流動速度が増加する（下降流）
	H2	大局的な地下水流動の増加（透水性の増加）	×	
	H3	大局的な地下水流動の増加（動水勾配の増加）	-	
	H4	その他の水理学的影響	-	
	M1	母岩のせん断変形の発生	×	
	M2	母岩の微小亀裂の発生	×	
	M3	母岩の偏圧の発生	×	
	M4	その他の力学的影響	×	
	C1	pHの低下（酸性）	×	
	C2	pHの増加（アルカリ性）	×	
	C3	Ehの増加（酸化性）	●	廃棄体とその周囲のEhが増加する
	C4	溶存イオン濃度の増加（炭酸、硫酸/硫化物、塩分）	×	
C5	微生物の影響の顕在化	-		
C6	その他の化学的影響	×		
前提条件	起回事象	処分場内での断層の新生		
	起回事象の発生原因（起回事象のみ）			
	当該事象を考慮するための前提条件（起回事象に係る設定等）	条件/パラメータ	値/設定	
		断層の傾斜と透水係数	（他項目より）	
		破碎帯の幅と透水係数	（他項目より）	
		発生時期	（他項目より）	
		継続期間	数ヶ月以上	

表2 地表水の流入に関する情報共有シート (2/2)

研究状況	前提条件下での影響の具体化		影響の種類	影響の有無/定量化
			C3	天水または対象域における地表付近地下水のEh, pH
			-	
			-	
	上記の影響の設定・考え方	影響の種類	設定・考え方	
		-	<p>・(1995年兵庫県南部地震を引き起こした野島断層について、)宇田ほか(1998)は、深度1,300mのカタクレーサイト中の開口性割れ目にFe₂O₃を多く含む粘土鉱物が生じていることから、開口性割れ目に沿って地表近くの酸化的な水が深部まで流入したものと解釈している(JNC, 1999)。</p>	
		-		
		-		
		-		
	設定の根拠	文献1	宇田進一, 林 愛明, 竹村恵二(1998): ボーリングコアから見た野島断層破碎帯の地下水の挙動, 月刊地球, 号外21, 171-174.	
		文献2	核燃料サイクル開発機構(1999)わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性—地層処分研究開発第2次取りまとめ—分冊1わが国の地質環境—, JNC TN1400 99-02.	
		文献3		
		文献4		
		文献5		
		文献6		
文献7				
文献8				
文献9				
文献10				

表3 断層のずれによる人工バリアのせん断変形に関する情報共有シート (1/4)

基本情報	整理番号	03-1		
	タイトル	断層のずれによる人工バリアのせん断変形		
	事象の定義	硬岩系岩盤と廃棄体（オーバーパック及びガラス固化体）がせん断衝突変形すること		
	担当者	星名、森田、長谷川		
	最終更新日	2016年12月22日		
	ステータス	OPEN		
当該事象が処分システムに与える影響	影響の種類		影響の有無	どのような影響か？
	T1	温度の増加	×	断層が発生することにより、断層ずれ面で瞬間的に高温になるとの情報があるが、長期では温度の増加の影響はないと考えられる。
	T2	温度勾配の増加	×	断層が発生することにより、断層ずれ面で瞬間的に高温・温度勾配が生じるとの情報があるが、長期では温度勾配の増加の影響はないと考えられる。
	T3	その他の熱的影響	×	
	H1	卓越的な地下水流動経路の発生	●	廃棄体と母岩が接触することにより、緩衝材を短絡するパスが形成される。
	H2	大局的な地下水流動の増加（透水性の増加）	×	
	H3	大局的な地下水流動の増加（動水勾配の増加）	×	
	H4	その他の水理学的影響	●	EDZや他の亀裂との連結性向上により、卓越的な地下水流動経路の発生
	M1	母岩のせん断変形の発生	●	閉鎖後の断層の発生後、長期間に複数回の断層が発生
	M2	母岩の微小亀裂の発生	●	母岩とオーバーパックのせん断衝突により、局所的に母岩に微小き裂の発生
	M3	母岩の偏圧の発生	●	廃棄体と母岩が衝突することにより、局所的に通常よりも大きな付加がかかる
	M4	その他の力学的影響	●	<ul style="list-style-type: none"> 硬岩系岩盤と廃棄体（オーバーパック及びガラス固化体）がせん断衝突変形することにより、オーバーパックが破損する可能性がある。 硬岩系岩盤と廃棄体（オーバーパック及びガラス固化体）がせん断衝突変形することにより、オーバーパックと母岩が接触する可能性がある。 硬岩系岩盤と廃棄体（オーバーパック及びガラス固化体）がせん断衝突変形することにより、ガラス固化体の破砕が進み表面積が増加する可能性がある。
	C1	pHの低下（酸性）	×	
	C2	pHの増加（アルカリ性）	×	
	C3	Ehの増加（酸化性）	×	
	C4	溶存イオン濃度の増加（炭酸、硫酸/硫化物、塩分）	×	
C5	微生物の影響の顕在化	×		
C6	その他の化学的影響	×		

表3 断層のずれによる人工バリアのせん断変形に関する情報共有シート (2/4)

前提条件	起回事象	処分場内での断層の新生		
	起回事象の発生原因 (起回事象のみ)			
	当該事象を考慮するための前提条件 (起回事象に係る設定等)	条件/パラメータ	値/設定	
		地震断層の規模	M8.0 (地質環境に著しい影響を与える可能性のある活断層を避け、かつ、未確認の断層が多数存在している可能性が高いものの中で最大級の断層を設定し、日本の最大の内陸地震であるM8.0の1891年濃尾地震を参考とした)	
		岩種	硬岩系岩盤 (硬岩のヤング係数は、軟岩に比べて約10倍大きく、岩盤とオーバーバックがせん断衝突した場合、硬岩の方がオーバーバックに生じる応力及びびずみが大きくなるため)	
		発生時期	1000年以内	
		断層変位量	〇〇 (起回事象より、解析に使用する前提条件ではない、H28解析結果を参照)	
		断層すべり速度	7.1(m/sec) (起回事象より、M8.0の推定値、解析条件、詳細は報告書を参照)	
		破砕帯の幅	0(mm) (起回事象より、解析条件)	
		断層の傾斜	90° (起回事象より、解析条件)	
解析モデルの寸法	<ul style="list-style-type: none"> ・ 処分坑道横置き方式より、廃棄体：φ820×1730mm、緩衝材：φ2220mm、廃棄体と岩盤の間隔：700mm、処分坑道長手方向の廃棄体と廃棄体の端面間の距離：1400mm、廃棄体の間隔：3130mm、隣接する処分坑道の間隔 (処分坑道径の6倍)：13320mm、なお、本解析モデルの鉛直方向の距離は処分坑道径の7倍：15540mmによりモデル化する。 			
岩盤の物性値、構成モデル	<ul style="list-style-type: none"> ・ 硬岩系岩盤 (第2次取りまとめに示すものを使用、詳細な値は報告書を参照) ・ モール・クーロンによる破壊を考慮したモデル 			

表3 断層のずれによる人工バリアのせん断変形に関する情報共有シート (3/4)

		緩衝材の物性値、構成モデル	<ul style="list-style-type: none"> ・ベントナイト70wt%/ケイ砂30wt%、乾燥密度ρ $d=1.60\text{Mg}/\text{m}^3$ (第2次取りまとめリファレンスを使用、詳細な値は報告書を参照) ・修正Cam-Clayモデル、ただし、Abaqusを用いた陽解法による解析では、緩衝材の変形の弾性部分は線形弾性材料モデル
		オーバーパックの物性値、構成モデル	<ul style="list-style-type: none"> ・圧力容器用炭素鋼 (詳細な値は報告書を参照) ・実寸法で中空円筒容器のオーバーパック ・降伏応力及び引張強さを用いた多直線近似の非線形モデル
		ガラス固化体	<ul style="list-style-type: none"> ・ガラス固化体は構造部材ではないためモデル化しない (岩盤との衝突時、オーバーパックにせん断応力の他に曲げ応力が加わり厳しい評価になる)。ただし、ガラス固化体約500kgの重量のみを考慮する。
		解析手法	陽解法による非線形大変形せん断衝突解析
		解析コード	汎用有限要素法解析ソフトウェア Abaqus 2016
研究状況	前提条件下での影響の具体化	影響の種類	影響の有無/定量化
		M4	オーバーパックの破損の有無/ (H28解析結果より確認する)
		M4	オーバーパックと母岩の接触の有無/ (H28解析結果より確認する)
		-	
	上記の影響の設定・考	影響の種類	設定・考え方
	M4	<ul style="list-style-type: none"> ・オーバーパックの破損の有無：断層のずれによる人工バリアの非線形大変形せん断衝突解析にM8.0の断層すべり速度$V=7.1(\text{m}/\text{sec})$を使用し、解析結果のオーバーパックのミーゼス相当応力及び相当塑性ひずみにより、オーバーパック破損の有無を判断できると考えられる。 	
	M4	<ul style="list-style-type: none"> ・オーバーパックと母岩の接触の有無：断層のずれによる人工バリアの非線形大変形せん断衝突解析にM8.0の断層すべり速度$V=7.1(\text{m}/\text{sec})$を使用し、解析結果の変形状態により、オーバーパックと母岩の接触の有無を判断できると考えられる。 	

表3 断層のずれによる人工バリアのせん断変形に関する情報共有シート (4/4)

設定の根拠	-	
	文献1	内閣府中央防災会議（2006）：1891濃尾地震報告書,災害教訓の継承に関する専門調査会,平成18年3月.
	文献2	地震調査研究推進本部 地震調査委員会（2016）：震源断層を特定した地震の強震動予測手法（「レシピ」）,地震調査研究推進本部 地震調査委員会,平成28年6月.
	文献3	内閣府中央防災会議（2006）：東南海、南海地震等に関する専門調査会,中部圏・近畿圏の内陸地震の震度分布等について,検討資料集,断層のモデル化,平成18年12月7日.
	文献4	核燃料サイクル開発機構（1999）：わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性－地層処分研究開発第2次取りまとめ－分冊2 地層処分の工学技術, JNC TN1400 99-022.
	文献5	廣野哲朗, 小村健太郎, 藤本光一郎, 伊藤久男, ジェームズモリジロウ, 佐藤比呂志 (2013)：断層掘削研究によって明らかになった地震時の断層滑り挙動とその物理化学的側面, 地学雑誌, Vo122, No.2, pp. 323-342.
	文献6	
	文献7	
	文献8	
	文献9	

表4 母岩の透水性変化に関する情報共有シート (1/5)

基本情報	整理番号	06		
	タイトル	母岩の透水性の変化		
	事象の定義	地震・断層発生を起点として、断層により形成されるダメージゾーンの性状変化とそれに伴う透水性変化		
	担当者	森田		
	最終更新日	2016年3月29日		
	ステータス	OPEN		
当該事象が処分システムに与える影響	影響の種類		影響の有無	どのような影響か？
	T1	温度の増加	-	断層活動時に断層せん断面が高温となり（シュードタキライトの生成など；高木ほか，2001；大槻ほか，1997）、周辺岩盤及び地下水の温度が増加する可能性、及び高透水化した断層破碎帯が熱水の流入を促す可能性が考えられる（田中ほか，2013；網田ほか，2005；風早ほか，2014；村上ほか，2015；北岡ほか，2014）。これによって断層近傍の人工バリアおよび岩盤の温度が上昇する可能性が考えられる。
	T2	温度勾配の増加	-	T1に伴う地温勾配の増加の可能性が考えられる。
	T3	その他の熱的影響	-	
	H1	卓越的な地下水流動経路の発生	●	主として断層破碎帯に沿った地下水流動経路の発生。（プロセスゾーンの高透水化程度によっては、地下水流動経路が、断層破碎帯より広範囲になる可能性が考えられる。）
	H2	大局的な地下水流動の増加（透水性の増加）	●	主として断層破碎帯の高透水化
	H3	大局的な地下水流動の増加（動水勾配の増加）	●	主として断層破碎帯が高透水化することにより、断層破碎帯部と周辺岩盤間の動水勾配が増加
	H4	その他の水理学的影響	-	断層破碎帯の透水性の回復
	M1	母岩のせん断変形の発生	×	
	M2	母岩の微小亀裂の発生	×	
	M3	母岩の偏圧の発生	×	
	M4	その他の力学的影響	×	
	C1	pHの低下（酸性）	-	地震・断層活動に伴った地下水のpHの低下は考えにくい（日本原子力研究開発機構，2013）。ただし、高透水化した断層破碎帯が低pHの地下水の流入を促す可能性が考えられる。
	C2	pHの増加（アルカリ性）	-	断層破碎帯を通過する地下水が高pH化する可能性が考えられる（日本原子力研究開発機構，2013）。また、高透水化した断層破碎帯が高pHの地下水の流入を促す可能性が考えられる。

表4 母岩の透水性変化に関する情報共有シート (2/5)

当該事象が処分システムに与える影響	C3	Ehの増加 (酸化性)	-	地震・断層活動に伴った地下水の酸化は考えにくい (日本原子力研究開発機構, 2013)。ただし、高透水化した断層破砕帯が酸化性の地下水の流入を促す可能性が考えられる。	
	C4	溶存イオン濃度の増加 (炭酸, 硫酸/硫化物, 塩分等)	-	地震・断層活動に伴った地下水の溶存イオン濃度の増加は考えにくい (日本原子力研究開発機構, 2013)。ただし、高透水化した断層破砕帯が溶存イオン濃度の高い地下水の流入を促す可能性が考えられる。	
	C5	微生物の影響の顕在化	-		
	C6	その他の化学的影響	-		
前提条件	起回事象		処分場内での断層の新生		
	起回事象の発生原因 (起回事象のみ)				
	当該事象を考慮するための前提条件 (起回事象に係る設定等)			条件/パラメータ	値/設定
		断層規模		断層長さL=80km 【07 断層の特性より、日本国内の内陸型地震の最大規模である濃尾地震 (M8.0) 規模を想定した】	
		断層破砕帯幅		断層せん断面を中心に片側540m (L/150) 【07 断層の特性より】	
		プロセスゾーン幅		断層せん断面を中心に片側1300m 【07 断層の特性より】	
		断層の傾斜角		20° 【07 断層の特性より】	
		母岩の透水係数分布 (結晶質岩)		$10^{-9} \sim 10^{-7}$ [m/s]	
		母岩の透水係数分布 (堆積岩)		$10^{-10} \sim 10^{-8}$ [m/s]	
		断層破砕帯の透水係数		(母岩の透水係数) $\times 10^1 \sim 10^2$ 程度	

表4 母岩の透水性変化に関する情報共有シート (3/5)

		影響の種類	影響の有無/定量化
研究状況	前提条件下での影響の具体化	H1	断層破碎帯が高透水となる事例は多数確認でき（向井ほか, 2003 ; 山口ほか, 2002 ; Lin et al.,2007 ; Niwa et al.,2011 ; 丹羽ほか, 2008 ; 阿部ほか, 1999 ; 吉田ほか, 2009 ; 長友ほか, 2009）、前提条件下において地層処分施設に対し大きな影響を及ぼすと判断される。 プロセスゾーンに関しては具体的な範囲を設定し、水理的な調査を行った例がない。
		H2	単孔式透水試験の結果を基に、母岩及び断層破碎帯の透水係数を調査した結果、結晶質岩（花崗岩：釜石鉱山、瑞浪）の透水係数が $10^{-9} \sim 10^{-7}$ [m/s]程度、堆積岩（幌延）の透水係数が $10^{-10} \sim 10^{-8}$ [m/s]であった。断層破碎帯は母岩の透水係数よりも $10^1 \sim 10^2$ 程度大きな値となっている（古屋ほか, 1999 ; 竹内ほか, 2005a ; 竹内ほか, 2005b ; 大丸ほか, 2012 ; 尾上ほか, 2016 ; 新見ほか, 1994, 繰上ほか, 2007）。
		H3	断層破碎帯周辺の高透水化による、地下水の上昇流（Boullier et al.,2004）/下降流（Lin et al., 2003 ; 渋谷, 1996）の発生が考えられるが、その際に生じている動水勾配の具体的な大きさは不明。
		H4	断層破碎帯の透水性の回復 兵庫県南部地震（1995）において発生した野島断層の事例では、地震の発生から7年程度で透水係数が1/3程度に低下したことが確認されている（Boullier et al.,2004 ; Lin et al.,2003 ; Kitagawa et al., 2007 ; Murakami et al., 2007）。主な原因は炭酸塩鉱物による断層破碎帯内の亀裂の充填とされている（新井ほか, 2003 ; Lin et al., 2003）。
		-	
		-	
		-	
		-	
-			

表4 母岩の透水性変化に関する情報共有シート (4/5)

研究状況	設定の根拠	文献1	阿部寛信, 酒井隆太郎(1999) : 地震・断層活動が水理環境に及ぼす影響, サイクル機構技報, (5), pp.77 - 83.
		文献2	網田和宏, 大沢信二, 杜 建国, 山田 誠(2005) : 大分平野の深部に賦存される有馬型熱水の起源, 温泉科学, 55, pp.64-77.
		文献3	新井崇史, 塚原弘昭, 森清寿朗(2003) : カルサイトの炭素・酸素同位体比から見た野島断層浅部破碎帯のシール過程の解明, 地学雑誌, 112(6), pp.915-925.
		文献4	Boullier. A.M. et al. (2004) : Textural evidence for recent co-seismic circulation of fluids in the Nojima fault zone, Awaji island, Japan, Tectonophysics, 378.
		文献5	大丸修二, 竹内竜史, 尾上博則, 三枝博光(2012) : 超深地層研究所計画の第2段階における単孔式水理試験結果, 日本原子力研究開発機構, JAEA-Data-Code-2012-020.
		文献6	古屋和夫, 児玉敏雄(1999) : 断層活動が地下の水理に与える影響に関する調査, 佐藤工業, 核燃料サイクル開発機構, 契約業務報告書, JNC-TJ7420-2005-039.
		文献7	風早康平ほか(2014) : 西南日本におけるスラブ起源深部流体の分布と特徴, 日本水文科学会誌, 44(1), pp.3-16.
		文献8	Kitagawa, Y., Fujimori, K., and Koizumi N. (2007) : Temporal change in permeability of the Nojima fault zone by repeated water injection experiments, Tectonophysics, 443, pp183-192.
		文献9	北岡豪一, 吉岡龍馬, 西田良平, 山口一裕, 竹内 徹(2014) : 山陰地方における花崗岩割れ目系の深部地下水循環による高温温泉水の形成, 温泉科学, 64, pp.77-106.
		文献10	操上広志(2007) : 幌延深地層研究計画における地下水流動解析－平成17年度までの調査結果を踏まえた再解析－, JAEA-Research-2007-036.
		文献11	Lin. A. et al. (2003) : Repeated coseismic infiltration of meteoric and seawater into deep fault zones, a case study of the Nojima fault zone, Japan, Chemical Geology, 202.
		文献12	Lin. A. et al. (2007) : Tectonic implications of damage zone-related fault-fracture networks revealed in drill core through the Nojima fault, Japan, Tectonophysics, 443.
		文献13	向井厚志, 藤森邦夫(2003) : 注水試験に伴うひずみ変化から推定される野島断層近傍の破碎帯の透水性, 地震(2), 56, pp.171-719
		文献14	Mukai. A. and Fujimori. K. (2007) : Secular change of permeability in the fracture zone near the Nojima fault, Tectonophysics, 443.
		文献15	Murakami. H. et al. (2007) : Time evolution of hydraulic and electrokinetic parameters around the Nojima fault, Japan, Tectonophysics, 443.
		文献16	村上裕晃, 田中和広(2015) : 島根県津和野地域に分布する高塩濃度地下水の地球化学的特徴と湧出機構, 地下水学会誌, 57(4), pp.415-433
		文献17	長友晃夫, 吉田英一 (2009) : 断層と割れ目系およびその充填鉱物を用いた阿寺断層の地質的履歴解析, 地質学雑誌, 第115巻, 第10号, pp.512-527.

表4 母岩の透水性変化に関する情報共有シート (5/5)

研究状況	文献18	日本原子力研究開発機構(2013)：先進的地層処分概念・性能評価技術高度化開発－巨大地震・津波を含む想定外事象への対応－，地層処分技術調査等事業 高レベル放射性廃棄物処分関連 報告書。
	文献19	新見 健，大澤英昭，柳沢孝一，杉原弘造，吉田英一，瀬尾俊弘，北山 真，仙波毅，佐藤稔紀，笹本 広，清水 功(1994)：釜石鉱山における地層科学研究－第1フェーズ総括報告書－，動力炉・核燃料開発事業団，PNC ZN7410 94-022.
	文献20	丹羽正和，島田 耕史，黒澤 英樹，三輪 敦志(2008)：圧縮性ステップにおける破砕帯の構造－岐阜県飛騨市の跡津川断層西部の例－，地質学雑誌，114(10)，pp.495-515.
	文献21	Niwa. M., Kurosawa. H. and Ishimaru. T. (2011)：Spatial distribution and characteristics of fracture zones near a long-lived active fault; A Field-based study for understanding changes in underground environment caused by long-term fault activities, Engineering Geology, 119(1-2), pp.31 - 50.
	文献22	尾上博則，竹内竜史(2016)：超深地層研究所計画における単孔式水理試験結果（2012年度～2015年度），日本原子力研究開発機構，JAEA-Data-Code-2016-012.
	文献23	大槻憲四郎，皆川 潤，青野正夫，大竹政和(1997)：兵庫県南部地震時に刻まれた野島断層の湾曲した断層条線について，地震(2)，49，pp.451-460.
	文献24	渋谷明貫，秋山清悟，上田晃司(1996)：野島断層周辺の地下水に関するデータの収集作業，動力炉・核燃料開発事業団，報告書，PNC-TJ7305-96-001.
	文献25	高木秀雄，島田耕史，坂 幸恭，荒井誠一，小針雄一郎，岡本孝之(2001)：領家帯から産出するシュードタキライト，地質学雑誌，107(2).
	文献26	竹内真司，天野健治，藤田有二(2005a)：広域地下水流動研究における単孔式水理試験データ，核燃料サイクル開発機構，JNC-TN7450-2005-010.
	文献27	竹内真司，藤田有二(2005b)：超深地層研究所計画における単孔式水理試験データ，核燃料サイクル開発機構，JNC-TN7450-2005-011.
	文献28	田中和広，東田優記，村上裕晃(2013)：紀伊半島の中央構造線付近に見られる深部流体と地質・地質構造，日本水文科学会誌，43(4)，pp.137-150.
	文献29	山口 覚，首藤史朗，橋本武志，村上英記，高木典子(2002)野島断層南部の2次元比抵抗構造および断層活動度との関連，地震(2)，55，pp.143-151.
	文献30	吉田英一，大嶋章浩，吉村久美子，長友晃夫，西本昌司(2009)：断層周辺に発達する割れ目形態とその特徴－阿寺断層における‘ダメージゾーン’解析の試み－，応用地質，第50巻 第1号，pp.16-28.

表5 地層処分における人工バリアの振動影響評価に関する情報共有シート (1/3)

基本情報	整理番号	09		
	タイトル	地層処分における人工バリアの振動影響評価		
	事象の定義	地震動によりオーバーパックが移動し、岩盤と接触すること		
	担当者	長谷川		
	最終更新日	2017年1月6日		
	ステータス	OPEN		
当該事象が処分システムに与える影響	影響の種類		影響の有無	どのような影響か？
	T1	温度の増加	×	
	T2	温度勾配の増加	×	
	T3	その他の熱的影響	×	
	H1	卓越的な地下水流動経路の発生	●	母岩とオーバーパックが接触することにより緩衝材を短絡するパスが形成される
	H2	大局的な地下水流動の増加 (透水性の増加)	×	
	H3	大局的な地下水流動の増加 (動水勾配の増加)	-	2011年の福島県浜通りの地震にともなって、27℃の温泉が自噴し、地震発生から2年以上にわたり継続しているとの報告あり。一般には、1年以内に地震発生前の状態に回復する。
	H4	その他の水理学的影響	●	母岩とオーバーパックが接触することによりオーバーパックの腐食速度の増大
	M1	母岩のせん断変形の発生	○	複数回の地震動により肩部にひずみが集中し母岩のせん断変形が発生。一般に地下深部の加速度は地表の1/2~1/4、1/3~1/5など程度であると言われている。影響がある可能性は低いと否定はできない。
	M2	母岩の微小亀裂の発生	○	複数回の地震動より母岩の微小亀裂の発生および累積する。一般に地下深部の加速度は地表の1/2~1/4、1/3~1/5など程度であると言われている。影響がある可能性は低いと否定はできない。
	M3	母岩の偏圧の発生	○	複数回の地震動より母岩の不連続面や岩盤弱部への応力の集中。一般に地下深部の加速度は地表の1/2~1/4、1/3~1/5など程度であると言われている。影響がある可能性は低いと否定はできない。
	M4	その他の力学的影響	●	母岩とオーバーパックが接触することにより緩衝材を短絡するパスが形成される
	C1	pHの低下 (酸性)	×	
	C2	pHの増加 (アルカリ性)	×	
	C3	Ehの増加 (酸化性)	×	
	C4	溶存イオン濃度の増加 (炭酸, 硫酸/硫化物, 塩分)	×	
	C5	微生物の影響の顕在化	×	
C6	その他の化学的影響	×		
前提条件	起回事象	処分場近傍での地震の発生		
	起回事象の発生原因 (起回事象のみ)	陸側のプレート内部での断層運動により発生		

表5 地層処分における人工バリアの振動影響評価に関する情報共有シート (2/3)

	当該事象を考慮するための前提条件 (起因事象に係る設定等)	条件/パラメータ		値/設定	
		地盤		軟岩系地盤（地震動のサイト特性により地震動が大きくなる）	
		地震規模		国内最大の内陸地震での加速度（岩手・宮城内陸地震（Mj7.2）一関西観測所）	
		時期		緩衝材が飽和、オーバーパック腐食が発生していない、処分孔と岩盤が密着している（閉鎖後の人工バリアの最も基本的なケース）	
		緩衝材の変形特性		2次元モデル：H-Dモデル（解析ソフトの仕様、フィッティング状況により）、大変形を考慮する	
		緩衝材の物性値		ベントナイト70wt%/ケイ砂30wt%、乾燥密度 $\rho_d=1.60\text{Mg/m}^3$ （第2次取りまとめリファレンスを使用）	
		解析領域		2次元モデル：幅9.99m、奥行き3.13m、高さは17.22m	
		境界条件		上面、底面、側方：波動伝播の連続性を考慮して粘性境界	
		解析手法	2次元モデル：逐次非線形および線形解析における直接積分法		
研究状況	前提条件下での影響の具体化	影響の種類	影響の有無/定量化		
		M4	母岩とオーバーパックの接触の有無（解析結果より評価する）		
		-			
		-			
	上記の影響の設定・考え方	影響の種類	設定・考え方		
		M4	複数回の巨大地震の発生により、大きな加速度が岩盤及び人工バリアを振動する。解析結果よりオーバーパックと岩盤の離隔距離により、オーバーパックと母岩の接触の可能性の有無を判断できると考えられる。		
		-			

表5 地層処分における人工バリアの振動影響評価に関する情報共有シート (3/3)

設定の根拠	-	
	文献1	核燃料サイクル開発機構（1999）：わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性－地層処分研究開発第2次取りまとめ－分冊2 地層処分の工学技術, JNC TN1400 99-022.
	文献2	核燃料サイクル開発機構（1999）：ニアフィールドの耐震安定性評価, JNC TN8400 99-054.
	文献3	防災科学技術研究所(2016)：K-Net,Kik-Netデータ.
	文献4	
	文献5	
	文献6	
	文献7	
	文献8	
	文献9	
	文献10	

表6 断層起源ガスの発生に関する情報共有シート (1/2)

基本情報	整理番号	04		
	タイトル	断層起源ガスの発生		
	事象の定義	断層起源ガスの流入に伴う圧力上昇によって、岩盤や緩衝材中に短絡パスを形成する		
	担当者	棚井		
	最終更新日	2016年6月27日		
	ステータス	OPEN		
当該事象が処分システムに与える影響	影響の種類	影響の有無	どのような影響か？	
	T1 温度の増加	×		
	T2 温度勾配の増加	×		
	T3 その他の熱的影響	×		
	H1 卓越的な地下水流動経路の発生	●	断層起源ガスの流入、圧力上昇による岩盤又は緩衝材の短絡パスの形成	
	H2 大局的な地下水流動の増加 (透水性の増加)	×		
	H3 大局的な地下水流動の増加 (動水勾配の増加)	×		
	H4 その他の水理学的影響	○	断層起源ガスの移動に伴う緩衝材からの排水の増加	
	M1 母岩のせん断変形の発生	×		
	M2 母岩の微小亀裂の発生	○	断層起源ガスの流入、圧力上昇による岩盤亀裂の形成	
	M3 母岩の偏圧の発生	×		
	M4 その他の力学的影響	×		
	C1 pHの低下 (酸性)	×		
	C2 pHの増加 (アルカリ性)	×		
	C3 Ehの増加 (酸化性)	×		
	C4 溶存イオン濃度の増加 (炭酸, 硫酸/硫化物, 塩分)	×		
	C5 微生物の影響の顕在化	×		
C6 その他の化学的影響	×			
前提条件	起回事象	処分場内での断層の新生		
	起回事象の発生原因 (起回事象のみ)			
	当該事象を考慮するための前提条件 (起回事象に係る設定等)	条件/パラメータ	値/設定	
		断層起源ガス発生量	Mw = 7.9とした場合の発生量 5.9×10^8 molを基本に1/10及び1/100	

表6 断層起源ガスの発生に関する情報共有シート (2/2)

研究状況	前提条件下での影響の具体化		影響の種類	影響の有無/定量化	
			H1	有(解析結果より)	
			H4	無(解析結果より)	
			M2		
			-		
	上記の影響の設定・考え方	影響の種類	設定・考え方		
		H1	岩盤におけるガス圧力は、断層起源ガスの発生量に応じて、約11MPaから最大約90MPaまで上昇することから、埋め戻し材、緩衝材及び岩盤においてガスフラクチャリングが生じることが示唆された。		
		H4	断層起源ガスは、処分孔の左下隅角部からガラス固化体の中心をとり、45度の傾斜を持つ断層を通して流入すると仮定し、流出側に断層がある場合と無い場合を想定。断層起源ガスの流入による緩衝材からの押し出し水量は、最大でも5.5×10 ⁻⁵ m ³ と非常に少ない量であった。また、流出側に断層が存在する場合には、緩衝材に到達したガスは、周辺の断層を伝って移動するため、緩衝材からの押し出し水量は0m ³ となった。		
		M2			
		-			
	設定の根拠	文献1	Hirose, T., Kawaguchi, S. and Suzuki, K. (2011): Mechanoradical H ₂ generation during simulated faulting : implications for an earthquake-driven subsurface biosphere, Geophysical Research Letters, VOL.38, L17303, doi:10.1029/2011GL048850.		
		文献2	Donald L. Wells and Kevin J. Coppersmith (1994): New Empirical Relationship among Magnitude, Rupture Length, Rupture Width, Rupture Area and Surface Displacement, Bulletin of the Seismological Society of America, Vol. 84, No. 4, pp. 974-1002.		
		文献3			
		文献4			
		文献5			
文献6					
文献7					
文献8					
文献9					
文献10					

表7 断層の特性に関する情報共有シート (1/3)

基本情報	整理番号	07		
	タイトル	断層の特性		
	事象の定義	断層発生時の断層ダメージゾーンの規模や影響に関する情報		
	担当者	山口、浅森、森田		
	最終更新日	2017年3月7日		
	ステータス	OPEN		
当該事象が処分システムに与える影響	影響の種類		影響の有無	どのような影響か？
	T1	温度の増加	-	
	T2	温度勾配の増加	-	
	T3	その他の熱的影響	-	
	H1	卓越的な地下水流動経路の発生	●	せん断破壊によって生じた断層のダメージゾーン（せん断面、破碎帯、プロセスゾーン）が、地下水流動経路となる。
	H2	大局的な地下水流動の増加（透水性の増加）	-	
	H3	大局的な地下水流動の増加（動水勾配の増加）	-	
	H4	その他の水理学的影響	-	
	M1	母岩のせん断変形の発生	●	断層のずれによる母岩のせん断変形の発生（せん断面の形成）。
	M2	母岩の微小亀裂の発生	●	せん断変形に伴う母岩の亀裂発生（亀裂高密度部：破碎帯、断層先端の伸展に伴う影響部：プロセスゾーン）。
	M3	母岩の偏圧の発生	-	
	M4	その他の力学的影響	-	
	C1	pHの低下（酸性）	-	
	C2	pHの増加（アルカリ性）	-	
	C3	Ehの増加（酸化性）	-	
	C4	溶存イオン濃度の増加（炭酸、硫酸/硫化物、塩分）	-	
	C5	微生物の影響の顕在化	-	
C6	その他の化学的影響	-		
前提条件	起回事象	-		
	起回事象の発生原因（起回事象のみ）	プレートテクトニクスにより地殻内に蓄積されたひずみエネルギーが岩盤の強度を超えた際に断層が生じ、ひずみエネルギーが一気に解放され、地震波が発生する。		
	当該事象を考慮するための前提条件（起回事象に係る設定等）	条件/パラメータ	値/設定	
	地震の規模	M8.0（内陸型地震で国内最大の濃尾地震観測記録より）		
	断層の長さ（地震の規模をM8.0として推定）	80km（推定式;松田,1975）		

表7 断層の特性に関する情報共有シート (2/3)

		単位変位量 (活断層が一回の活動で変位する量)	9.2m (入山瀬活動セグメント) 活断層データベース(2016)の最大値	
		平均活動間隔	0.7千年 (牛伏寺活動セグメント) 活断層データベース(2016)の最小値	
		せん断面幅		
		破碎帯幅 (断層長さ80kmとして推定)	片側540m (L/150)	
		プロセスゾーン幅 (断層長さ80kmとして推定)	片側1.3km (推定式;金折,2001)	
		せん断速度	7m/sec (情報共有シートNo.3参照)	
		断層の傾斜	20° 活断層データベース(2016)の最小値	
研究状況	前提条件下での影響の具体化	影響の種類	影響の有無/定量化	
		M1	せん断速度7m/sec、平均すべり長さ6m	
		M2	破碎帯幅：540m (片側) プロセスゾーン幅：1.3km (片側) 傾斜：20°	
		H1	断層ダメージゾーン (せん断面、破碎帯、プロセスゾーン)	
		-		
		-		
	上記の影響の設定・考え方	影響の種類	設定・考え方	
		M1	地震の規模をM8.0 (濃尾地震)として想定した、平均すべり長さ6m、およびせん断速度7m/sec。(ただし、地震調査研究推進本部の長期予測でマグニチュード8.0以上の地震が発生する可能性の記載がある。)	
		M2	地震の規模をM8.0 (濃尾地震)として想定した断層長80kmを入力として推定した断層ダメージゾーン (せん断面、破碎帯、プロセスゾーン) 幅。 傾斜角30°は現時点での事例中で最も小さい傾斜であり、水平方向の断層ダメージゾーン幅が大きくなる。	
		H1	M1,M2より推定される断層ダメージゾーンを地下水流動経路と想定	
-				

表7 断層の特性に関する情報共有シート (3/3)

設定の根拠	文献1	松田時彦(1975)：活断層から発生する地震の規模と周期について，地震(Ⅱ)，第28巻，pp.269-283.
	文献2	金折裕司(2001)：断層の影響はどこまで及んでいるか，応用地質，第41巻，第6号，pp.323-332.
	文献3	佐藤良輔ほか(1989)：日本の地震断層パラメーター・ハンドブック，鹿島出版会.
	文献4	地震調査研究推進本部地震調査委員会（2009）：付録3 震源断層を特定した地震の強震動予測手法（「レシピ」），地震調査研究推進本部地震調査委員会,平成21年12月21日.
	文献5	産業技術総合研究所(2016)：活断層データベース， https://gbank.gsj.jp/activefault/index_gmap.html
	文献6	
	文献7	
	文献8	
	文献9	
	文献10	