

平成26年度

放射性廃棄物共通技術調査等事業

# 放射性廃棄物重要基礎技術研究調査

(国庫債務負担行為に係るもの)

報告書

(平成28年度分)

平成29年3月

公益財団法人 原子力環境整備促進・資金管理センター

本報告書は、経済産業省からの委託事業として、公益財団法人 原子力環境整備促進・資金管理センターが実施した平成26年度「放射性廃棄物共通技術調査等事業（放射性廃棄物重要基礎技術研究調査）（国庫債務負担行為に係るもの）」※の、平成28年度の成果を取りまとめたものです。

（※本事業は平成29年度までの4ヵ年の事業である）

## 【目次】

1. はじめに.....	1
1.1 調査目的と調査内容.....	1
1.1.1 調査目的.....	1
1.1.2 調査内容.....	1
1.2 調査の計画立案と実施方針.....	1
1.2.1 選定した研究開発に関する進捗管理・取りまとめに関する作業計画.....	4
2. 研究開発に関する進捗管理・取りまとめ.....	5
2.1 進捗管理の実施.....	6
2.2 選定された研究テーマの平成 28 年度の成果概要.....	6
2.2.1 実施研究 1 研究者：京都大学 柏谷公希.....	7
2.2.2 実施研究 2 研究者：京都大学 奈良禎太.....	9
2.2.3 実施研究 3 研究者：福島工業高等専門学校 金澤伸一.....	11
2.2.4 実施研究 4 研究者：京都大学 小林大志.....	13
2.2.5 実施研究 5 研究者：東北大学 千田太詩.....	15
2.2.6 実施研究 6 研究者：東京大学 小松崎俊作.....	17
2.3 検討委員会による平成 28 年度の研究成果に対する評価.....	20
2.4 地層処分基盤研究開発に関する検討.....	28
2.4.1 地下研究所を活用した国際共同研究の実施状況.....	29
(1) ユーラトムプロジェクトにおける地下研究所を活用した国際共同研究.....	29
(2) DECOVALEX プロジェクトにおける地下研究所を活用した国際共同研究.....	30
(3) モン・テリプロジェクトにおける地下研究所を活用した国際共同研究.....	32
(4) グリムゼル試験サイトにおける地下研究所を活用した国際共同研究.....	34
(5) SKB タスクフォースにおける地下研究所を活用した国際共同研究.....	35

### 別添資料 実施研究報告

研究報告 1 断層周辺の地下水流動特性および物質移行特性に関する包括的研究

研究報告 2 岩石き裂の治癒作用を利用した不連続面のバリア性能向上に関する研究

研究報告 3 天然バリアと人工バリアの力学特性を考慮した放射性廃棄物処分施設の

長期的な力学挙動予測システムの開発

研究報告 4 硝酸塩影響評価のための高イオン強度下におけるアクチノイドの溶液化学的研究

研究報告 5 地層処分の性能評価の精緻化を目指した薄片状雲母を用いた核種の収着メカニズムに関する基礎的研究

研究報告 6 高レベル放射性廃棄物処分に関わるアジェンダ・セッティング（政策課題設定）の基礎的研究

# 1. はじめに

## 1.1 調査目的と調査内容

### 1.1.1 調査目的

我が国において、これまでの原子力発電の利用に伴って放射性廃棄物が発生しており、その処理処分対策を着実に進める必要がある。高レベル放射性廃棄物の地層処分や長半減期低発熱放射性廃棄物（TRU 廃棄物）をはじめとする低レベル放射性廃棄物の処理処分等に係る政策立案や研究開発については、国や関係機関、処分実施主体（原子力発電環境整備機構：NUMO）等の適切な役割分担のもとで進めていくことが重要である。

これらの背景を踏まえて、本事業では、平成 26 年度より 4 年間の事業期間で高レベル放射性廃棄物の地層処分を中心とした先進的な研究開発を実施するとともに、今後の我が国の基盤研究開発の課題を検討することにより、処分実施主体が将来処分事業を進めるにあたって必要となる技術基盤の整備を図ることを目的とする。

### 1.1.2 調査内容

上記の調査の目的を踏まえ本事業では、処分技術に関連する先進的な研究開発テーマ及び研究実施者を公募したうえで選定し、当該テーマに関する研究開発を実施するとともに、研究の実施に係る進捗管理や成果のとりまとめを行う。さらに、選定した研究開発テーマに関連して、「地層処分基盤研究開発に関する全体計画（平成 25 年度～平成 29 年度）」（以下、全体計画という）に示される研究開発状況の中間評価、及びその後の研究開発状況のチェックアンドレビューも合わせて行う。

## 1.2 調査の計画立案と実施方針

前述した調査内容に基づき、平成 26 年度～平成 29 年度の具体的な作業内容について表 1.2-1 に示す。

表 1.2-1 本事業における平成 26 年度～29 年度の作業内容

(1) 処分技術に関連する先進的な研究開発テーマの選定
① 研究開発テーマの選定
概ね平成 26 年 9 月までに、平成 25 年度放射性廃棄物共通技術調査等事業（放射性廃棄物

重要基礎技術高度化調査)における海外における地層処分や代替処分技術等の最新の研究開発動向調査結果(平成25年度放射性廃棄物共通技術調査等事業放射性廃棄物重要基礎技術高度化調査報告書

[http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity\\_and\\_gas/nuclear/rw/library/library05.html](http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/library05.html)

にて公開)を踏まえてテーマを公募し、処分に見識がある有識者(5名程度を想定)による選考を経て、同年10月までに5テーマ程度を選定する。有識者の選定や選考委員会の実施に当たっては、資源エネルギー庁と調整、相談の上、実施する。

## ② 選定基準

研究開発テーマの選考・選定にあたっては、前述した平成25年度の調査結果等を踏まえるとともに、各分野別(地質環境調査技術、処分場の建設・操業・閉鎖にかかわる工学技術、安全評価技術、使用済燃料直接処分技術)の検討委員会での議論や、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放射性廃棄物ワーキンググループでの議論(地層処分の社会的受容性の拡大に資する技術(回収可能性、代替オプション検討等))を踏まえた選定とする。

## ③ 研究実施者の公募

選定した研究テーマについて公募を行い、研究実施者の決定及び実施に必要な事務手続きなどを行う。公募の手順等については、過去の実績を踏まえ以下の通りとする。

- ・ 公益財団法人原子力環境整備促進・資金管理センター(以下、原環センターという)のホームページ上にて公募要領を掲載する。その後1ヶ月程度公募を実施し応募者を募る。その際、研究開発テーマに関連した学会のメーリングリストなども活用し広く情報を伝えることに留意する。
- ・ 公募期間後に応募者から提出された提案書等について、選考委員会に諮り書類審査を行う(1週間程度)。
- ・ 書類審査を通過した応募者を対象に、速やかに選考委員会を開催し二次審査を行う。二次審査では、研究内容に関する応募者からのプレゼンを行い、最終的な研究実施者を決定する。
- ・ 研究実施者決定後、速やかに研究が開始できるよう、原環センターは研究実施者と再委託契約を行う。なお、再委託契約に伴う全ての権利(知的財産権など)は、原環センターに原則帰属させるよう留意する。また再委託先は原環センターと同様に、秘密の保持に留意し、漏えい防止の責任を負う。

なお、公募に係る手続きなどは資源エネルギー庁の委託事業事務処理マニュアルに準拠する。また、応募者がなかった研究テーマについては、選考委員会の有識者からの推薦により研究実施者を選定することも可とする。

(2) (1) の研究開発に関する進捗管理・取りまとめ

(1) の研究開発に対して、進捗管理や成果の取りまとめを実施する。具体的には、大学等の外部有識者からなる検討委員会（親委員会及び分野別委員会（地質環境、工学技術、性能評価、直接処分の4分野））を設置し、各委員会において、対応する(1)で選定した研究開発内容・進捗状況に関する中間及び最終報告を研究実施者に行わせ、チェックアンドレビューを行う。検討委員会の委員の選定（各委員会で6～8名を委員として選定することを想定）や実施に当たっては、資源エネルギー庁と調整、相談の上、実施する。

また、検討委員会では、上記に関連する「地層処分基盤研究開発に関する全体計画（平成25年度～平成29年度）」に示される平成26年度までの研究開発状況の中間評価も合わせて行うこととし、そのために必要な事務局（日程調整、会議場所の確保、資料の準備、議事録の作成など）も務める。研究開発状況の中間評価に関する検討委員会は、上記4分野の委員会を3回程度、親委員会を2回程度開催する。

表 1.2-1 に示した作業内容についてまとめると、以下のように整理される。

(1) 処分技術に関連する研究開発テーマの選定（平成26年度のみ実施）

- 研究開発テーマの選定（研究テーマについて選定委員会に諮り決定）
- 研究実施者の公募（実施者については選定委員会で審査・決定）

(2) 選定した研究開発に関する進捗管理・とりまとめ（平成26年度～29年度の各年度実施）

- 選定した研究開発テーマ実施に関する進捗管理・取りまとめを行い、その一環として検討委員会を設置し、研究者によるプレゼン報告（中間報告、最終報告）に対してチェックアンドレビューを実施
- 研究管理の進捗・取りまとめに関連して、全体計画に係る研究開発状況に関して、平成26年度に中間評価、及び平成27～29年度はチェックアンドレビューを検討

委員会にて行う。

次節で、平成 28 年度に実施する作業計画を整理する。

### 1.2.1 選定した研究開発に関する進捗管理・取りまとめに関する作業計画

前述の計画立案と実施方針を踏まえて、平成 28 年度における研究開発テーマに関する進捗管理・取りまとめについては、以下を実施することを計画した。

- ・平成 26 年度に選定された研究開発に関する平成 28 年度における進捗管理・取りまとめ
  - ① 検討委員会において中間報告・最終報告を行うことにより進捗管理を行う
  - ② 電子メールや研究者の所属する大学等への訪問し意見交換を実施することにより進捗管理を行う
  - ③ 各研究者から提出された研究報告書の概要を取りまとめる
  
- ・全体計画の中間評価
  - ④ 地層処分基盤研究開発調整会議（以下、調整会議という）における全体計画の中間評価対応や全体計画改訂のための作業について、事務局として支援
  - ⑤ 中間評価を行う検討委員会の運営

①については、表 1.2-1 にも示したように、大学等の外部有識者からなる検討委員会（親委員会及び分野別委員会（地質環境、工学技術、性能評価、直接処分の 4 分野））を設置し、各委員会において、対応する研究開発内容・進捗状況に関する中間及び最終報告（それぞれ 9 月頃と年度末頃に開催）を研究実施者に行わせ、チェックアンドレビューを行う。

②については、上記のように、電子メールや各大学等への訪問により意見交換を実施し、研究の進捗について管理する。なお、大学等への訪問は、今年度の実験・研究実施方針や計画等についての意見交換を行うため、今年度の早い時期に実施することとした。

③については、各研究者から 1 月中旬頃に研究報告書のドラフト版を、3 月中旬に研究報告書の最終版を原環センターに提出することにより、研究の進捗管理を行う。また、研究報告書の概要をとりまとめる。

④⑤については、調整会議における全体計画の中間評価のための対応を行うこととする。（ただし、後述するように調整会議の位置づけの変化に伴い、適宜対応した。）

## 2. 研究開発に関する進捗管理・取りまとめ

本事業で平成 26 年度に選定された処分技術に関連する 6 件の研究テーマについては、平成 29 年度までの毎年度、検討委員会を設置して研究開発内容・進捗状況に関する中間及び最終報告を研究実施者に行わせ、チェックアンドレビューを行うこととしている。平成 28 年度については、9 月頃に中間報告を、年度末頃に最終報告を行うこととした。

中間報告、及び最終報告における 6 件の研究テーマの進捗状況のチェックアンドレビューを実施するための検討委員会（親委員会及び分野別委員会（地質環境、工学技術、性能評価、直接処分の 4 分野））を設置した。なお、この検討委員会は、前述したように、地層処分基盤研究開発に関する全体計画の中間評価及び関係機関における研究開発の進捗に関するチェックアンドレビューも実施することとなっている。

また、上記検討委員会によるチェックアンドレビューの他に、研究実施者との間で電子メールや各研究者が所属する大学等を訪問して意見交換を行うことにより、進捗管理を実施した（2.1 節参照）。

以下の 2.2 節において、6 件の選定された研究テーマの平成 28 年度の成果概要について整理する。2.3 節では、設置した検討委員会による、各研究者から平成 28 年度の研究成果、来年度の計画などの報告に対する評価について取りまとめる。

また、2.4 節において、地層処分基盤研究開発に関する検討に資する情報整備として、諸外国の地下研究所における国際共同研究に関して調査し取りまとめた。

## 2.1 進捗管理の実施

研究実施者が行っている研究の進捗管理については、電子メールによる各研究者からの種々の問い合わせへの対応を行うとともに、研究者が共同研究者等と会議を行う機会などを利用して、大学を訪問し意見交換を実施した。

電子メールによる対応については、研究者による海外出張の計画・実施の管理、経理処理方法に関する質疑応答、研究者の履行体制変更に伴う手続き、学会・シンポジウムや論文での研究成果の発表の管理などを実施した。

さらに、以下の大学の訪問による意見交換を実施した。

日時	訪問場所	研究者名
平成 28 年 5 月 12 日	京都大学	京都大学 奈良禎太、小林大志
平成 28 年 5 月 17 日	福島高専	福島高専 金澤伸一

## 2.2 選定された研究テーマの平成 28 年度の成果概要

- ・実施研究 1 研究者：京都大学 柏谷公希  
断層周辺の地下水流動特性および物質移行特性に関する包括的研究
- ・実施研究 2 研究者：京都大学 奈良禎太  
岩石き裂の治癒作用を利用した不連続面のバリア性能向上に関する研究
- ・実施研究 3 研究者：福島工業高等専門学校 金澤伸一  
天然バリアと人工バリアの力学特性を考慮した放射性廃棄物処分施設の長期的な力学挙動予測システムの開発
- ・実施研究 4 研究者：京都大学 小林大志  
硝酸塩影響評価のための高イオン強度下におけるアクチノイドの溶液化学的研究
- ・実施研究 5 研究者：東北大学 千田太詩  
地層処分の性能評価の精緻化を目指した薄片状雲母を用いた核種の収着メカニズムに関する基礎的研究
- ・実施研究 6 研究者：東京大学 小松崎俊作  
高レベル放射性廃棄物処分に関わるアジェンダ・セッティング（政策課題設定）の基礎的研究

## 2.2.1 実施研究 1 研究者：京都大学 柏谷公希

### 研究テーマ：断層周辺の地下水流動特性および物質移行特性に関する包括的研究

#### (背景・目的)

断層はその両側で変位の認められる割れ目もしくは割れ目ゾーンであり、一般に破碎帯を伴うことが多く、破碎帯を構成する破碎物質はその粒径に応じて細粒なものは断層ガウジ、粗粒なものは断層角礫と呼ばれている。一般に破碎帯は割れ目が発達していることで、母岩と比較して高い透水性を示すことが多いが、主に断層ガウジからなる細粒粘土化帯は、透水性が低く遮水構造として機能し、周辺の地下水流動を制限することが知られている。このように、断層はその内部構造に応じて地下水流動や物質移行における主要な経路（パス）と障壁（バリア）の両方の機能を有すると考えられている。断層の内部構造や不均質性を踏まえ、断層破碎帯が周辺の地下水流動や物質移行に及ぼす影響を明らかにすることにより、より実現象に即した核種移行解析が可能となり、地層処分の安全評価における地下水シナリオの評価を高度化する上で貢献すると考えられる。

上記を背景として本研究では、断層周辺の地下水流動及び物質移行における断層のパスあるいはバリアとしての機能を明らかにすることを目的とする。さらに、断層の地下水流動および物質移行におけるパス、バリアとしての機能を評価するための手法を構築することを目的とする。

\*\*\*\*\*

#### (平成 28 年度の実施計画)

平成 28 年度は、岐阜県瑞浪地域に分布し、平成 26 年度に本研究のモデルサイトとして選定した主立坑断層と月吉断層を対象として、断層周辺に分布する地下水の物理化学パラメータを測定するとともに、地下水試料を採取してその化学特性、同位体特性を分析し、断層周辺におけるそれら特性の空間分布を明らかにする。研究サイトでは、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構（JAEA）により継続的に地下水の分析が行われていることから、その公表されたデータを活用し、空間分布に加えて、研究坑道掘削に伴うこれら特性の時間変化についても検討する。

また、断層の水理特性を考慮した、研究用用地を含む広域的な水理地質モデル（広域モデル）を作成し、地下水流動解析を行う。推定された地下水流動状態に基づいて、塩化物

イオンとトリチウムを対象とした物質移行解析を実施し、地下水分析から明らかとなったこれら特性の空間分布や時間変化と比較する。

\*\*\*\*\*

(平成 28 年度の成果概要)

JAEA 瑞浪超深地層研究所の研究坑道において、深度 200m、300m、400m、500m の各ステージから掘削された 5 本のボーリング孔の 12 の採水区間で地下水試料を採取し、地下水中の主要溶存成分、アルカリ度、微量元素、水素酸素同位体比、溶存ガス、トリチウム、SF<sub>6</sub> (六フッ化硫黄)、CFC (フロンガス) の分析を行った。分析によって得られた地下水の主要成分等のデータ、及び JAEA による地下水のモニタリングデータを合わせて主成分分析を実施した結果、第 1 主成分は浅部と深部の地下水の混合に対応するものと考えられた。また、第 1 主成分スコアは、断層南西側のボーリング孔では時間経過とともに明瞭に減少し、その後一定となるのに対し、断層北東側のボーリング孔では一貫した変化傾向が認められない等、断層の北東側と南西側には水質や同位体組成の違いが認められた。これらの地下水の地球化学的特性の違いは、主立坑断層による遮水性の水理構造の機能による可能性が示唆された。

広域モデルを用いた地下水流動解析では、既存研究におけるボーリング孔で実測された地下水位と標高の関係と整合的な計算結果が得られた。次に、断層モデルを用いて地下水流動解析を行った結果、断層の南西側に比べて北東側で水頭が高くなり、実測値と整合的な結果となった。塩化物イオンとトリチウムを対象に実施した物質移行解析では、断層の北東側では立坑掘削の影響領域が限定されるのに対し、南西側では浅部から塩化物イオン濃度の低い地下水の浸透、及び深部から塩化物イオン濃度の高い地下水の上昇が認められた。これらの解析結果は、地下水試料の分析結果と整合している。しかしながら、解析によって得られた水頭や塩化物イオン濃度、トリチウム濃度は、実測値と一致しない結果となった。そのため、現在考慮できていない水理地質構造や、断層周辺における浸透率の測定結果などをモデルに取り込むことにより、水理地質モデルを改良することが課題と考えられる。

## 2.2.2 実施研究 2 研究者：京都大学 奈良禎太

### 研究テーマ：岩石き裂の治癒作用を利用した不連続面のバリア性能向上に関する研究

#### (背景・目的)

放射性廃棄物の地層処分においては、岩盤を天然バリアとして使用する。このことから、岩盤には高い長期強度と遮蔽性が要求される。岩盤内では、き裂や空隙のネットワークが流体の流路となるため、遮蔽性向上には、き裂の進展を防ぐとともに、き裂や空隙を閉塞させることが効果的であると考えられる。日本では地殻運動が活発であり、地下には断層や節理などの不連続面が数多く分布するが、巨視き裂を含む火成岩では、巨視き裂に断層粘土を含めることにより、透水係数が低下することが期待される。また、岩石とコンクリートを水中と一緒に保存すると、岩石表面にカルシウム化合物が析出することが示されており、これらの効果を利用すれば、治癒した節理や断層を利用する形で岩石の遮蔽性を高められる可能性があり、放射性廃棄物処分で大いに役立つ技術の可能性が期待される。ただし現状では、節理や断層がどの程度バリア性能を有するかについては十分には検討されていない。

本研究では、岩石内の節理や断層の遮蔽性（バリア性能）を、破壊力学試験と透水試験を用いて調べる。特に、岩石のき裂進展とその閉塞を同時に起こす試験を行い、さらに、閉塞に寄与した析出物の同定を行うことにより、析出物の力学的耐久性を理解する。また、節理や断層等の不連続面を有する試験片を用いて透水試験を行うことにより、断層や節理のバリア性能を向上させ、その基礎情報を得ることを目標とする。

\*\*\*\*\*

#### (平成 28 年度の実施計画)

粘土が岩石内のき裂を充填していることが認められることから、透水試験については、原位置岩盤で採取された粘土そのものを用いて透水試験を行い、充填されている粘土の透水係数を明らかにすることとした。さらに、カルシウム化合物や粘土によって閉塞した節理（引張破壊）を持つ岩石を用いて透水試験を行うことにより、析出物によって閉塞した節理を持つ岩石の遮蔽性を調べることとした。

破壊力学試験については、水中環境下において 1 カ月程度連続で破壊力学試験を行い、き裂進展に関するデータを取得するとともに、き裂閉塞に関するデータ取得を行った。特

に、周辺環境のカルシウム濃度が異なる水中で試験を行うことによって、カルシウム濃度がき裂の進展や閉塞に及ぼす影響を調べる。さらに、電子顕微鏡により岩石内部構造の観察を行うとともに、き裂の閉塞に寄与した物質の同定を行うこととした。

\*\*\*\*\*

瑞浪超深地層研究所の研究坑道においてボーリングにより得られたインタクトな土岐花崗岩と坑道壁面から採取された粘土を供試体として、同じトランジェントパルス法による室内透水試験装置で個別に透水係数の測定を行った。その結果、粘土（主成分はイライト）の透水係数は、インタクトな花崗岩より 1 オーダー程度高く、巨視き裂を含む花崗岩よりは 3~4 オーダー低い値となり、粘土層を含む花崗岩と同程度の値となった。この結果から、開口したき裂を有する岩石の透水性は、粘土鉱物によってき裂が充填された場合には、インタクトな岩石の透水性に近づくことが考えられる。

続いて、巨視き裂を含む花崗岩に微細な粘土粒子を含む水を流し続けることにより、フローポンプ法にて透水試験を行った。その結果、試験開始から一週間経過した後に、差圧が上がり始め透水性が低下することが確認された。このことから、巨視き裂を含む花崗岩中での粘土の沈殿によるき裂閉塞により、花崗岩の透水性の低下が生じる可能性が示唆された。

破壊力学試験については、大島花崗岩の供試体に対して初期き裂を導入し、定変位法によるダブルトーション試験を大気環境と水中環境（蒸留水の場合と水酸化カルシウム溶液中の場合）で行った。その結果、大気中よりも水中環境下において、き裂進展速度が高くなり、さらに、同じ水中環境中においても、水酸化カルシウム水溶液中の場合では、蒸留水中よりもき裂進展速度が低くなる結果となった。また、今回の実験により、従来取得できなかった  $10^{-10}\text{m/s}$  程度の、低いき裂進展速度を取得することができた。

### 2.2.3 実施研究 3 研究者：福島工業高等専門学校 金澤伸一

研究テーマ：天然バリアと人工バリアの力学特性を考慮した放射性廃棄物処分施設の長期的な力学挙動予測システムの開発

(背景・目的)

地層処分施設の長期予測解析において、人工バリア（以下、ベントナイト緩衝材）の再冠水時の不飽和状態での膨潤挙動と、その後の飽和時の圧密などの挙動は別々に検討されており、連続的に解かれた例がない。また、天然バリア（以下、岩盤）とベントナイト緩衝材の相互関係の力学挙動を解析した例も無い。しかしながら、近年では個々の事象の予測技術が開発・高度化され、岩盤を含めた処分施設の建設から超長期にわたる挙動を連続的に解析できるところまできている。

本研究では、処分施設の建設から閉鎖までの期間に着目し、岩盤とベントナイト緩衝材の力学特性を考慮できるモデルを組み込んだ、熱／土／水／空気連成有限要素解析を実施し、建設から供用までの力学挙動を連続して解くことで、岩盤とベントナイト緩衝材の長期的（数十万年オーダー）な力学的相互作用を把握することを目的とする。さらに、解析条件の選定や解析結果の評価方法までの一連の流れを整備し、処分施設の長期的力学挙動の予測システムを開発することを目標とする。

\*\*\*\*\*

(平成 28 年度の実施計画)

さまざまな温度変化による吸水過程でのベントナイト膨潤特性、及び温度変化によるベントナイトの一軸強度を、圧密試験機、または一軸試験機を用いた室内実験にて計測する。また、溶存溶解モデル（ヘンリーの法則を考慮した液相・気相の連続条件式）を連成解析コードに組み込むことにより解析シミュレータの開発・高度化を行い、ベントナイト緩衝材内部の封入空気に与える影響を検討する。

\*\*\*\*\*

(平成 28 年度の成果概要)

ベントナイトの飽和度を 30～70%、温度を 30～80℃に変化させて一軸強度を計測した結果、温度が上昇するにしたがって徐々にベントナイトの強度が低下する傾向が確認された。

一方で、飽和度の上昇に伴うベントナイトの強度分布は山なりを示すような結果となった。この結果は、ベントナイトも土の締固め曲線のような力学挙動を示すことを示すものと考えられる。

地下水の再冠水による緩衝材の不飽和～飽和の状態変化および膨潤挙動の解析については、土／水／空気連成有限解析コードの DACSAR-MP を用い、さらに空気溶存を考慮することができるようにした。軟岩系岩盤での処分孔縦置き方式を断面として、地下水浸入による坑道内の飽和度分布の経時変化を解析した。解析の結果、再冠水完了期間 100 年の場合では、地下水浸潤により坑道および処分孔周囲から飽和が進行し、約 60 年で廃棄体周囲の緩衝材が飽和した。一方、再冠水完了期間 10 年の場合ではその期間になっても廃棄体上部の緩衝材に不飽和の部分が存在する結果となった。このことから、早期に再冠水する条件では、外周部の緩衝材が飽和・膨潤し難透水層となる影響により内部の浸潤が遅くなることで再冠水が完了しても不飽和の部分が残るものと考えられた。また、廃棄体近傍の最も飽和が遅い緩衝材に関して、透水係数の違いによる飽和度の変化を再冠水期間を 100 年で設定して解析した結果、透水係数が  $1.0 \times 10^{-12} \text{m/s}$ 、 $1.0 \times 10^{-11} \text{m/s}$  では再冠水期間完了を待たずに緩衝材が飽和したが、透水係数が  $1.0 \times 10^{-13} \text{m/s}$  の条件では再冠水完了期間を過ぎても緩衝材が飽和しない結果となった。

#### 2.2.4 実施研究 4 研究者：京都大学 小林大志

研究テーマ：硝酸塩影響評価のための高イオン強度下におけるアクチノイドの溶液化学的研究

(背景・目的)

TRU 廃棄物の中で、濃縮廃液固化体等の主にグループ 3 の廃棄物は多量の硝酸塩を含み、核種の収着性や核種の溶解度に影響を及ぼす可能性が指摘されている。TRU 廃棄物に含まれる硝酸塩が処分施設内や近傍においてアクチノイドの移行挙動に与える影響を定量的に評価するため、高濃度硝酸ナトリウム溶液中でのアクチノイドの錯生成、酸化還元、コロイド挙動について検討するとともに、反応に関わる熱力学データを取得する。高イオン強度下でのアクチノイドの熱力学モデルを提案し、硝酸塩影響下でのアクチノイドの化学的挙動の理解及びその定量的評価につなげる。

\*\*\*\*\*

(平成 28 年度の実施計画)

4 価アクチノイドの炭酸錯体の生成に及ぼすイオン強度（硝酸ナトリウム濃度）影響について、27 年度はアナログ元素である 4 価ジルコニウムを用いて検討してきたが、28 年度は 4 価プルトニウムを用いた実験を行う。4 価金属水酸化物のコロイド挙動については、27 年度で検討した範囲より幅広いイオン強度におけるゼータ電位の傾向を調べ、熱力学データによるゼータ電位の再現モデル検討の改良を試みる。硝酸イオンのアクチノイドの酸化還元反応に及ぼす影響に関しては、その検討の前段として、硝酸イオンの逐次還元反応に着目し、硝酸イオンの還元反応で生成される亜硝酸イオンの濃度測定を検討する。

\*\*\*\*\*

(平成 28 年度の成果概要)

プルトニウム水酸化物懸濁母溶液に、予め炭酸イオンと硝酸イオン濃度を調整した資料溶液を添加し、3、8、および 21 週間静置した後に、限外ろ過した上澄み液に含まれるプルトニウム濃度を測定した。その結果、3、8 及び 21 週間後のプルトニウム溶解度は、pHc（水素イオン濃度）が 9~10 にかけて増加し、10 以降では減少した。また、プルトニウム溶解度 ( $\log [\text{Pu}]$ ) は、炭酸イオン濃度 ( $\log [\text{C}]_{\text{tot}}$ ) に対して傾きおよそ 4 で増加する傾向

を示し、特に炭酸イオン濃度が低い場合、プルトニウム溶解度のイオン強度依存性はより顕著に表れる結果となった。さらに、得られた溶解度から、熱力学データに基づく解析を行い、プルトニウム加水分解種と炭酸錯体の錯生成定数を求めた。解析では、2元および3元の炭酸錯体を設定し、また、プルトニウム加水分解種及び炭酸錯体の錯生成定数や溶解度積は文献報告値を用い、SITのイオン相互作用係数をパラメータとする解析を行ったが、解析のさらなる信頼性向上が必要と考えられた。

4価ジルコニウム水酸化コロイドのゼータ電位については、硝酸イオン濃度を0.03～0.5Mの範囲で測定を行った。その結果、ゼータ電位の絶対値はイオン強度が低くなるほど大きくなる傾向を示した。また、ジルコニウムの加水分解反応を基にジルコニウム水酸化物の形式電荷を求め、その結果を用いてイオン強度0.03～2.0Mの範囲でゼータ電位を計算してみたところ、実験値で得られたゼータ電位の変化傾向が概ね再現できた。しかしながら、すべり面までの距離やコロイドに取り込まれた溶媒イオン効果のパラメータ値の解釈が課題となった。

硝酸イオンの還元反応では、ヒドロキノン、亜ジチオン酸ナトリウム、スズ2価および鉄粉(Fe(0))共存下(3か月間)の硝酸ナトリウム溶液および亜硝酸ナトリウム溶液のpH、Eh値を測定するとともに亜硝酸イオン濃度を測定した。鉄粉(Fe(0))共存下では硝酸イオンの還元反応が進行したが、ヒドロキノン、亜ジチオン酸ナトリウムおよびスズ2価の共存下では硝酸イオンから亜硝酸イオンへの還元反応がほとんど進行しないことが分かった。

## 2.2.5 実施研究 5 研究者：東北大学 千田太詩

研究テーマ：地層処分の性能評価の精緻化を目指した薄片状雲母を用いた核種の収着メカニズムに関する基礎的研究

(背景・目的)

地層処分システムの天然バリアレファレンスとして使用されている花崗岩については、構成鉱物の一つである黒雲母が高い核種収着性を示すことが知られており、このことにより花崗岩の有する核種移行遅延効果への寄与が大きいと考えられている。一方で、既往の核種収着データのほとんどは一定粒径に粉碎された粉末試料を用いた収着試験によって取得されているため、実際の地下環境における鉱物の物理的および化学的特性を十分に反映できていないと考えられている。実際の地下環境においては、黒雲母は粉碎状態ではなく、花崗岩内に薄片の形状で含有すると想定され、核種収着はその劈開面および断口部で異なると考えられている。

本研究では、雲母の異方性が核種収着挙動に与える影響について基礎的知見を取得し、核種移行評価への反映方法を併せて提示することにより、天然バリア中の核種移行評価(地層処分システムの性能評価)に資することを目的とする。具体的には、薄片状雲母を用いた核種取り込みを実験的手法により調べ、雲母が有する異方性が核種収着挙動に与える影響について基礎的知見を取得する。さらに、取得データをもとにした拡散・収着を考慮した二次元数値解析を実施するとともに、雲母薄片への核種収着に重要となる因子を整理し、核種移行評価への反映手法を提示する。

\*\*\*\*\*

(平成 28 年度の実施計画)

平成 27 年度に実施した薄片状黒雲母による 3 価イオンの Eu の収着試験を継続して実施し、さらに 1 価イオンの Cs と 2 価イオンの Sr の収着実験も実施する。27 年度の Eu 収着に対する pH 依存性に関する検討と同様に、Cs、Sr の収着に関しても収着の pH 依存性について検討する。また、収着されたイオンの収着試験後の黒雲母薄片内分布についても調べる。さらに、黒雲母薄片内への核種の移行挙動について数学モデルにより評価を行う。

また、黒雲母に加えて緑泥石と絹雲母に対する Cs、Sr の収着挙動についても検討する。

\*\*\*\*\*

(平成 28 年度の成果概要)

黒雲母薄片に対する Cs の収着試験結果では、pH 5 に比べて pH 8 において収着が大きくなった。また、Cs の収着は試験開始後に顕著に進み、その後はほとんど変化しないのに対し、Eu の収着は時間の経過とともに増加した。一方で、Sr の収着は Eu、Cs と比較して小さく、溶液中の Sr 濃度低下はわずかであった。より Cs また、収着実験後の黒雲母薄片の中心部分 (center)、片の端面 (edge1)、角の端面 (edge2) における Cs、Sr、Eu の分布について飛行時間型二次イオン質量分析法 (SIMS-TOF) により分析したところ、黒雲母薄片の center では収着元素の検出がバックグラウンドレベルであるのに対し、edge1、edge2 の順に薄片内部へのトレーサー侵入が増加することが確認できた。また、定性的には価数の小さい元素の方が薄片内部へ拡散浸入していることが示唆された。

黒雲母層間内の核種移行評価を行うために、二次元の拡散方程式による数値解析モデルを検討し、黒雲母層間内における Cs、Sr、Eu のみかけの拡散係数を求めたところ、 $10^{-13}$  ~  $10^{-11}$  m<sup>2</sup>/s オーダーと試算され、Eu については文献と調和的であったが、Cs と Sr の拡散係数については文献と一桁オーダーレベルで相違があるため、これらの拡散係数については物質移行定数の適用に関して再検討が必要と考えられた。

## 2.2.6 実施研究 6 研究者：東京大学 小松崎俊作

研究テーマ：高レベル放射性廃棄物処分に関わるアジェンダ・セッティング（政策課題設定）の基礎的研究

（背景・目的）

東日本大震災及び福島第一原子力発電所事故は、それまで気候変動対策やエネルギー安全保障などの観点から世界各国で推進の気運が高まっていた原子力発電政策を大きく転換するきっかけとなり、各国で改めて脱原発を含めたエネルギー政策論争が巻き起こっている。一方で、事故によって放射性廃棄物処分に対する社会的認知が高まったにも関わらず、最も重要な高レベル放射性廃棄物（HLW）の最終処分施設立地についての政策的議論は、これまでのところ実質的にはほぼ進展がなかった。高レベル放射性廃棄物処分を実現するためには、社会全体が処分を「今意思決定・実施すべき政策である」という意識を共有すること、すなわちアジェンダ・セッティング（政策課題設定）が不可欠である。

本研究では、処分事業に対する国民・社会の理解促進と信頼性向上をはかる上での前提条件となるアジェンダ・セッティングについての研究を通じて、社会的意思決定に関わる研究の効率的な進展に貢献し、処分事業の社会的側面に関する理解を深めることを最終目標とする。そのために、本研究は（1）高レベル放射性廃棄物処分のためのアジェンダが設定されるための要因を抽出し、（2）我が国における高レベル放射性廃棄物処分のために有効なアジェンダ・セッティングのあり方を提示することを目的とする。

\*\*\*\*\*

（平成 28 年度の実施計画）

平成 28 年度は、これまで数年にわたって行ってきた社会調査データを活用し、定量データの分析を通じた、具体的施策ないしその影響プロセスについて検討する。また、「科学的有望地」の公表を見据えて、公表の前後での態度変容を観察・分析するための社会調査と、パネルデータを用いた中長期的な態度の変遷を分析するための社会調査を実施する。

具体的には、（1）「周囲の意見」とそれに関する認知が態度形成に与える影響の分析、（2）福島第一原子力発電所事故が人々の態度形成に与えた影響の分析、（3）高レベル放射性廃棄物（HLW）処分に関わる人々の態度についての社会心理学調査、を実施する。

\*\*\*\*\*

(平成 28 年度の成果概要)

「周囲の意見」が態度形成に与える影響については、2016 年にオンラインの質問紙調査で実施した結果を分析した。調査では、2015 年の調査にも参加した回答者を、2015 年の質問「高レベル放射性廃棄物」に関する知識の違いで「高知識群」「低知識群」に分類した。さらに処分地選定の文献調査に対する態度を支持派・反対派に分類したうえで、それぞれのグループに多数派・少数派であることをランダムに示し、その操作後に、高レベル放射性廃棄物の地層処分に対するネガティブな意見及びポジティブな合計 18 の意見に対する、同意の程度を測定した。その結果、「周囲の意見」が精緻化見込みモデル<sup>1</sup>における周辺的情報として機能していること、また、特に文献調査支持派のうち、中心ルートを用いると考えられる高い知識を持つ集団では、支持派が多数と想定される環境において、むしろ手続き等に対する不満が浮上しやすい傾向があることが明らかとなった。本分析結果は、HLW 処分に関する人々の態度形成を理解するうえで、二段階の態度形成過程（二重過程モデル）による解釈が有用なものであることを示すものであり、この結果と解釈について、追加的な調査も含め、今後さらなる検証と検討が求められる。

原発事故が人々の態度形成に及ぼした影響分析に関しては、2011 年の震災直前から 2016 年まで毎年行われたインターネットパネル調査のデータを用いて（ただし、2014 年のみ未調査）、行政への信頼や原発についての評価と HLW 処分場受け入れ態度の関連が、どのように変化したのかをパネル分析によって検討した。その結果、処分場受け入れに関しては、震災直後に人々の受け入れ態度が急激に高まり、policy window が開いていたことが示唆されるが、その効果は 2 年後にはすぐに失われることが示された。行政の信頼の効果は震災によって 1 度消失し人々の態度形成モードが変容したことが推察されるが、3 年ほどで元の態度形成ルート（すなわち周辺ルート）に戻ることを示唆された。原発への評価についての結果は、これらの認知がそもそも、人々の関与度が高まった後の処分場受け入れ態度を形成するための“本質的な”要因として人々にみなされていなかった可能性が示唆された。また、処分場受け入れに係る、中心ルートによる態度形成に影響を及ぼす要因として、公共事業の施策決定の際の手続き的な公正性が考えられた。

HLW 処分に関わる人々の態度についての社会心理学調査については、「科学的有望地」

---

<sup>1</sup> 精緻化見込みモデル：人間の態度形成に、対象となる 이슈の内容を詳細に検討して態度を形成する中心ルートと、詳細に立ち入らず周辺的情報によって判断するルート（周辺ルート）があるとするモデル

の公表が人々のどのような認知につながるのか、結果としてアジェンダ・セッティングにつながるか、HLW 処分事業の進展にポジティブな影響を及ぼしうるかといった点を検討すべく、社会調査に基づく社会心理学的分析を行った。具体的には、インターネットを用いたアンケート調査を、2017年1月上～中旬に全国の1700人を対象として実施した。居住地と科学的有望地において「より適性の高い地域」に分類された地域までの距離に基づいてシナリオを設定し、各シナリオにおいて文献調査への応募と処分施設受け入れに関する態度を調査した結果、距離が近い「自宅が『より適性の高い地域』に入った」シナリオ（シナリオ1-1）で、文献調査への立候補に関して支持しない割合が最も高くなり、距離が離れるほど、「どちらでもない」の回答が増加した。一方で、シナリオ1-1では、立候補の支持の割合も最も高くなる二極化傾向となった。また、処分施設受け入れに関しても、シナリオ1-1で、支持しない割合が最も高くなり、距離が離れるほど、「どちらでもない」の回答が増加した。この場合は支持する割合も距離が近くなると微減した。また、科学的有望地の範囲の認知に係る回答から、国民の多くが自身の居住地が適性のある地域に入るとは考えていないことが推定された。今後、「科学的有望地」公表後の調査を実施し、公表前後の比較をおこなうことが課題である。

## 2.3 検討委員会による平成 28 年度の研究成果に対する評価

平成 26 年度に選定した 6 件の研究テーマについて、設置した検討委員会（主査：朽山修（原子力安全研究協会））において平成 28 年度実施内容等のチェックアンドレビューを以下の中間報告と最終報告の日程で行った。

### ● 中間報告

放射性廃棄物重要基礎技術研究調査 平成 28 年度 第 1 回検討委員会（公募研究評価）

日時：平成 28 年 9 月 13 日（火） 10：00～14：30

場所：原環センター第 1,2 会議室

中間報告では、各研究者から平成 28 年度の研究進捗状況について 20 分の発表を行い、その後委員からの質疑応答・評価記入を 15 分行った。

評価では、平成 28 年度の研究の進捗状況に対する意見、当該年度残りの期間における研究の進め方等に対する助言等を自由意見として記入する形式で行った。委員による意見については今後の研究に役立てられるように事務局でとりまとめて各研究者に通知した。

### ● 最終報告

放射性廃棄物重要基礎技術研究調査 平成 28 年度 第 2 回検討委員会（公募研究評価）

日時：平成 29 年 2 月 27 日（月） 13：00～17：30

場所：経済産業省別館 101-2 共用会議室

最終報告では、各研究者から平成 28 年度の研究成果について、中間評価における評価コメントへの対応等を含めて 25 分の発表を行い、その後委員からの質疑応答・評価記入を 15 分行った。

評価では、以下の項目について評価点数を付け、また平成 28 年度の研究成果に対する意見、及び次年度の研究の方向性等に対するアドバイス等を自由意見として記入する形式で行った。

- ・ 実施研究は計画通りに進められているか。進められていない場合、改善のための工夫や計画の変更を適切に行っているか。
- ・ 実施研究は新規性・独創性があるか
- ・ 地層処分事業へ寄与できる成果が上がっているか

- ・ 次年度以降の研究計画・スケジュールは妥当か

以下に、各研究テーマに対する評価結果を整理する。

平成 28 年度第 2 回検討委員会（公募研究評価）評価結果（その 1）

研究 テーマ	断層周辺の地下水流動特性および物質移行特性に関する包括的研究 柏谷 公希（京都大学）	
	評価項目	評価（平均）
	・実施研究は計画通りに進められているか。進められていない場合、改善のための工夫や計画の変更を適切に行っているか。	3.4
	・実施研究は新規性・独創性があるか	3.6
	・地層処分事業へ寄与できる成果が上がっているか	3.2
	・次年度以降の研究計画・スケジュールは妥当か	3.2
自由 意見	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 広域地下水流動と一般的な物質の移行、注目する放射性核種の移行が、断層（大、小）とどのような関係にあるのかを整理して下さい。</li> <li>・ 結果の利用法についてまとめてほしい。</li> <li>・ 物質移行解析の「物質」とは何を想定しているのか、そのためにはどのような水・岩石反応を考えるべきなのか。一般的な化学物質まで拡大しないで、塩化物イオン、トリチウム等に的を絞った方が良いのではないか。</li> <li>・ 水理と断層の関係は将来大きく問題になるものと思いますので、この研究はそれと解決するひとつの方向を示していると思います。</li> <li>・ 細かな岩質の変化や規模などを考慮しなくても、水理特性を解析しようという方向が優れていると思います。</li> <li>・ 地下水水質のデータ及び環境トレーサーの挙動等も含め、知見の蓄積があると判断されるものの、一方で、主たる研究ターゲットの「断層」が未だ不明瞭の感をぬぐえない。取りまとめにおいては、もう少し地層処分、サイト特性調査等とのリンクを踏まえたものになるといいのではと感じる。</li> </ul>	

（注）評価点数は 5（高い）～1（低い）

平成 28 年度第 2 回検討委員会（公募研究評価）評価結果（その 2）

研究 テーマ	岩石き裂の治癒作用を利用した不連続面のバリア性能向上に関する研究 奈良 禎太（京都大学）	
	評価項目	評価（平均）
	・実施研究は計画通りに進められているか。進められていない場合、改善のための工夫や計画の変更を適切に行っているか。	3.4
	・実施研究は新規性・独創性があるか	2.6
	・地層処分事業へ寄与できる成果が上がっているか	2.6
	・次年度以降の研究計画・スケジュールは妥当か	2.8
自由 意見	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ どのような場合に閉鎖後の状態で自然に岩石亀裂の充填が起こるかを考察して下さい。</li> <li>・ 温度依存性についても測定した方が良い。</li> <li>・ 透水係数のみでなく、流路についての情報も必要。</li> <li>・ 安全評価シナリオへの寄与を目指しているとすれば、EDZ への粘土粒子の閉塞について、以下の 2 点が整理されていると良いでしょう。             <ul style="list-style-type: none"> <li>①粘土が亀裂を閉塞する時、pH はかなりアルカリ条件になっていないか？ （←セメント素材材料を通過した後なので）</li> <li>②粘土が EDZ 領域に負荷されるのは再冠水時ではないか。そうすると時間スケールは 100 年程度で、1000 年以降のシナリオへの影響は考えにくい。</li> </ul> </li> <li>・ 計画された実験は予定通り実施されているとは思いますが、処分事業にかかわる実験である事を考えると、懸濁液の濃度や pH、温度を変えた研究を行う必要がある。また、従来知見に対して新しく得られた成果は何か、定量的に示して欲しかった。</li> <li>・ 粘土鉱物に着目している事（手法・工夫も含め）は評価できるが、EDZ や処分における時空間の、どの断面に対する新規性のある研究なのかを、再度検討して、最終年度への取りまとめ、実施を行って頂ければと考える。</li> </ul>	

（注）評価点数は 5（高い）～1（低い）

平成 28 年度第 2 回検討委員会（公募研究評価）評価結果（その 3）

研究 テーマ	天然バリアと人工バリアの力学特性を考慮した放射性廃棄物処分施設の 長期的な力学挙動予測システムの開発 金澤 伸一（福島高専）	
	評価項目	評価（平均）
	・実施研究は計画通りに進められているか。進められていない場合、改善のための工夫や計画の変更を適切に行っているか。	3.2
	・実施研究は新規性・独創性があるか	3.4
	・地層処分事業へ寄与できる成果が上がっているか	3.4
	・次年度以降の研究計画・スケジュールは妥当か	3.0
自由 意見	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 再冠水と緩衝材の飽和の関係を処分工程の実際と関連させてご説明下さい。</li> <li>・ 温度依存性と熱力学モデルの関係を明確にしてほしい。</li> <li>・ データのまとめ方について、これまでの知見で定性的には知られている結果については定量的な（なぜそのパラメータの変化が物性値の値を変えるのか）定式化が必要です。そうしておかないと、シミュレーターを実際に動かす事が出来ません。例えば、地下水水質と膨潤量との関係等になります。</li> <li>・ H29 年度の予定されている「熱力学」とは具体的にはどのような事を指していますか？</li> <li>・ 解析パラメータの温度依存性について、その重要性を指摘した事、また空気の溶解を考える事を見出した事、以上は本研究で見出した知見です。そして、その結果として冠水時間が早い時に内部に不飽和な部位が残るという結果も興味ある成果です。</li> <li>・ ベントナイトに関する実験が主だが、タイトルが抽象的すぎて実施した研究との間のギャップが大すぎると思われる。研究の目的と実施内容と整理して、処分事業との関係での、この研究の位置付け、成果を明確にした方が良く思う。</li> <li>・ ベントナイトの膨潤挙動のモデリングにおいて、処分場 or 処分ピット閉鎖（プラグ？）後のどの時点を対象とした、解析なのかを再度、明確にした上で、取りまとめを行って頂ければ、進行ポイントがより分りやすくなると思う。</li> </ul>	

（注）評価点数は 5（高い）～1（低い）

平成 28 年度第 2 回検討委員会（公募研究評価）評価結果（その 4）

研究 テーマ	硝酸塩影響評価のための高イオン強度下における アクチノイドの溶液化学的研究 小林 大志（京都大学）	
	評価項目	評価（平均）
	・実施研究は計画通りに進められているか。進められていない場合、改善のための工夫や計画の変更を適切に行っているか。	4.0
	・実施研究は新規性・独創性があるか	3.6
	・地層処分事業へ寄与できる成果が上がっているか	3.4
	・次年度以降の研究計画・スケジュールは妥当か	3.6
自由 意見	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ イオン強度、錯生成、酸化還元がそれぞれ処分環境でどの程度の影響を与える可能性があるのか整理して下さい。</li> <li>・ Pu の測定誤差や測定法の改善を検討してほしい。</li> <li>・ Pu(IV)のデータを取得されたことは高く評価したいと思います。特に Zr(IV)もアナログとして使えるという補強データにもなり、使い途は大いに広がってゆくでしょう。</li> <li>・ SIT に使うイオン相互作用パラメータの傾向について負電荷の錯体の傾向が U,Np のIV価と異なる点が異なるのが気になります。</li> <li>・ TRU 併置の際のデータを集めていると思われるが、処分とのかかわりをもっと具体的に(ケースを整理して)示して欲しい。そうすると、専門外の人にも理解ができると思う。</li> <li>・ TRU 廃棄物の処分システムにおいて、地下環境（想定される）との反応を、より現実的に考えた場合の、今回の研究の意義をもう少し、整理、精査された上で、最終年度の取りまとめを行ってほしい。</li> </ul>	

(注) 評価点数は 5（高い）～1（低い）

平成 28 年度第 2 回検討委員会（公募研究評価）評価結果（その 5）

研究 テーマ	地層処分の性能評価の精緻化を目指した薄片状雲母を用いた 核種の収着メカニズムに関する基礎的研究 千田 太詩（東北大学）	
	評価項目	評価（平均）
	・実施研究は計画通りに進められているか。進められていない場合、改善のための工夫や計画の変更を適切に行っているか。	3.2
	・実施研究は新規性・独創性があるか	3.4
	・地層処分事業へ寄与できる成果が上がっているか	2.6
	・次年度以降の研究計画・スケジュールは妥当か	2.8
自由 意見	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 「収着分配係数」を考えるとという点では意味があるかも知れないが、本当に何らかの寄与ができるかどうか丁寧に議論して下さい。</li> <li>・ 吸着・拡散メカニズム（表面吸着係数・表面析出）も含め検討してほしい</li> <li>・ 安全評価に与える影響についても示してほしい。</li> <li>・ 花崗岩中の黒雲母の中の拡散係数を求める意味について、必ずしも <math>K_d</math> の非平衡性を明らかにする為とは限らないと思います。むしろ黒雲母の大きさを考えると、ある時間以上を経れば、<math>K_d</math> は平衡状態とみなしても差し支えない（熱力学的には正しくない表現ですが）、という結論があっても良いのではないのでしょうか？</li> <li>・ <math>Cs</math> と <math>K</math>、<math>Sr</math> と <math>K</math>、<math>Eu</math> と <math>K</math> のイオン交換選択係数を求める事が出来ませんか？ せっかくデータを取っているのですから、もったいないです。</li> <li>・ 固相中の濃度プロファイルをフィティングして拡散係数を求める方法ならば <math>Cs</math> の拡散係数の精度は良くなるのではないのでしょうか？</li> <li>・ 熱心に詳細な研究を行っている様子は良くわかる。ある意味で非常に基礎的な研究であるが、処分事業での有効性や効果（この研究の位置付け etc）についても説明いただきたいかった。</li> <li>・ マイカ鉱物類における収着、拡散現象についての知見が蓄積され、また実施においての新規性は判断されるものの、これらの細部に至る情報の今後のまとめとのリンクをもう少し精度高く検討されることを期待する。</li> </ul>	

(注) 評価点数は 5（高い）～1（低い）

平成 28 年度第 2 回検討委員会（公募研究評価）評価結果（その 6）

研究 テーマ	高レベル放射性廃棄物処分に関わる アジェンダ・セッティング（政策課題設定）の基礎的研究 小松崎 俊作（東京大学）	
	評価項目	評価（平均）
	・実施研究は計画通りに進められているか。進められていない場合、改善のための工夫や計画の変更を適切に行っているか。	4.6
	・実施研究は新規性・独創性があるか	4.6
	・地層処分事業へ寄与できる成果が上がっているか	4.4
	・次年度以降の研究計画・スケジュールは妥当か	4.0
自由 意見	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 態度形成モデルと社会心理学的分析がよく考察されており、このまま進めていただければと思います。</li> <li>・ 勉強会、一般市民へのアプローチの方法についても示してほしい。</li> <li>・ 我国の進め方「科学的有望地」の提示がどのような相互作用を示すのか、公表前に予想分析を行なう、という事は非常に新鮮です。</li> <li>・ 公表後に予想と実際とを比較する事も、（結果と予想が）合う合わないという事よりも、手法を磨くうえでも重要です。</li> <li>・ （エネルギー問題など）原子力の重要性に関する人々の意見を知りたいと思います。そのようなアンケート項目を入れていただければと思います。</li> <li>・ 現在の日本の HLW の現象解析、アジェンダセッティングについて、具体的な成果が出ていると判断する。特に「科学的有望地」を一つの解析テーマとして選択したのは興味があるので、進めてやっていただきたい。</li> </ul>	

（注）評価点数は 5（高い）～1（低い）

## 2.4 地層処分基盤研究開発に関する検討

平成 17 年 7 月に設置された調整会議の活動をとおして、我が国における地層処分に関する国の基盤研究開発に関する全体計画の初版が平成 18 年 12 月に公表された[1][2](平成 21 年 7 月に改訂版公開)。また、平成 22 年には地層処分と TRU 廃棄物の地層処分に関する全体計画が統合された改訂版の全体計画が公表された[3]。

その後、平成 24 年度に、平成 25～29 年度における地層処分に関する国の基盤研究開発の方針に関する全体計画[4]が策定され、さらに平成 25 年度において、その全体計画に沿って展開される詳細な研究開発計画（研究開発マップ）[5]が策定された。

本事業においては、全体計画（平成 25 年度～平成 29 年度）について、平成 27 年度に地質環境、工学技術、性能評価分野については中間評価を行っている[6]。

一方で、平成 28 年度に原子力委員会放射性廃棄物専門部会により、最終処分関係行政機関等の活動状況に関する評価が行われた。その評価報告書「最終処分関係行政機関等の活動状況に関する評価書」[7]において、調整会議と全体計画に関して以下の評価結果が示されている。

- ・ 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構（JAEA）及びその他関連研究開発機関は、調整会議において、原子力発電環境整備機構（NUMO）が適切に示したニーズを把握しこれを反映した全体計画を策定している。また、これに基づき成果を出し合っ PDCA サイクルを回し、次期全体計画の改訂に反映するという作業を共に行っている。これにより、研究開発主体間での連携が適切に図られているものと考えられる。
- ・ 地層処分基盤研究開発に関する全体計画は、NUMO の実施する技術開発計画と一体化し、いわゆる「真の全体計画」となることが望まれる。

上記の評価を受けて、今後は地層処分基盤研究開発調整会議を拡充し、実施主体・基盤研究機関一体で「真の全体計画」を策定、実施していく予定とされている[8]。

そのため、本年度においては、今後編成される調整会議の議論への反映のため、日本の研究開発機関が海外の地下研究所等に参加するにあたり参考となる、諸外国において実施中の地下研究所を活用した国際共同研究について調査し取りまとめを実施した。以下にその概要を整理する。

## 2.4.1 地下研究所を活用した国際共同研究の実施状況

### (1) ユーラトムプロジェクトにおける地下研究所を活用した国際共同研究

ユーラトム（EURATOM：欧州原子力共同体）は、既存のエネルギー資源不足への対処の有力な手段として原子力産業の発展を目指し、原子力の平和利用を目的とした協力を推進しようとするものとして1957年に設立された。欧州連合（EU）の発足により EURATOM は EU に吸収されたが、現在も独立した法人格を有している。EU は科学分野の研究開発への財政的支援制度として欧州研究開発枠組み計画を策定しており、現在は2014年～2020年の7年間にわたる総額800億ユーロ規模の研究・イノベーション（第8次）枠組み計画「Horizon2020」を実施している。これとは別にユーラトムにおいても、2014～2018年の「原子力の研究・研修活動に関する欧州原子力共同体第8次枠組み計画（2014年～2018年）」が閣僚理事会において決定され実施されている。なお、EU とユーラトムで計画期間が異なるのは研究計画の期間が5年を超えることを、ユーラトム設立条約で禁じているためである。

欧州委員会のデータベース<sup>2</sup>等より、放射性廃棄物管理に係る現在の技術的なプロジェクトとして以下のように整理される。

表1 放射性廃棄物管理に係るユーラトムプロジェクト

プロジェクト	概要	備考
MoDeRn2020	地層処分のためのモニタリング戦略と技術の開発と実証	
Cebama	セメントをベースとした材料、その特性、進展、バリア機能	
MIND	放射性廃棄物地層処分における微生物プロセスの影響に関するセーフティケースの知識ベース	
JOPRAD	放射性廃棄物処分の共同プログラムに向けて	放射性廃棄物管理に係る共同プログラム設立ための調整・支援活動
CAST	金属、イオン交換樹脂、グラファイトからのC-14放出、C-14化学形態の試験とモデル化と理解	第7次枠組み計画から継続（2013～）

MoDeRn2020プロジェクトでは、フィンランド、スウェーデン、フランス及びスイスの処分概念を考慮した、処分場環境条件でのモニタリング技術の実証試験がフィンランド、フランス、スイスで実施されている[9]。また、フランスの規制支援機関である放射線防護・

<sup>2</sup> [リンク参照](#)

原子力安全研究所 (IRSN) のウェブサイト<sup>3</sup>によると、同研究所が所有するトゥルミエールの地下研究施設において、MoDeRn2020 プロジェクトの一環とした地中無線を用いた伝送試験が行われているとしている。

Cebama プロジェクトのウェブサイト<sup>4</sup>では、プロジェクトの目的の一つとしてセメント系材料と母岩（または埋戻し材）の界面における相互作用の理解とその影響による物質移行の評価を実験的に研究することが述べられている。母岩としては、ベルギーのブーム粘土、スイスのオパリナス粘土、フランスのカロボ・オックスフォーディアン層の粘土を対象としている。資料[10]によると、例えばベルギーの HADES 地下研究所で採取されたブーム粘土を用いて、コンクリートとの反応を検討する形での試験が行われており、フランスのビュール地下研究所では低アルカリ性コンクリートと母岩の接触による、熱-水理-力学連成解析に関する現場試験が予定されているとしている。

MIND プロジェクト<sup>5</sup>では、有機物含有長寿命廃棄物の挙動に関するセーフティケースの知識改善や、高レベル放射性廃棄物の地層処分に係る微生物プロセスに関するセーフティケースの知識ベースの改善に関する研究開発が実施されており、その一環として、スイスのモン・テリ岩盤研究所では、オパリナス粘土層での微生物による水素利用原位置試験とキャニスタの微生物誘導腐食に係る試験が実施されている[11]。その他、フィンランドの ONKALO のボーリングコア試料や、スイスのグリムゼル試験サイトにおいて別の研究開発で設置されていたベントナイト試料を用いた室内試験が行われている[11]。

その他の JOPRAD、CAST プロジェクトに関しては、共同プログラムの調整等に係る活動であることや、室内試験をベースとした研究開発のため、地下研究所を活用した研究開発は実施されていない。

## (2) DECOVALEX プロジェクトにおける地下研究所を活用した国際共同研究

DECOVALEX プロジェクト<sup>6</sup>は、放射性廃棄物の地層処分に係る地層及び人工システム内の熱-水-力学 (THM) 及び熱-水-化学 (THC) 連成プロセスの理解と数学的モデルの向上に向けた多国間共同研究である。DECOVALEX は「連成モデルの開発と試験によるその確証」の頭字語である。1992年に開始されたこのプロジェクトは、先進的数値モ

<sup>3</sup><http://www.irsn.fr/dechets/recherche/projets-europeens/modern2020/Pages/Modern2020.aspx>

<sup>4</sup> <http://www.cebama.eu/Home/Objectives>

<sup>5</sup> <http://www.mind15.eu/>

<sup>6</sup> <http://www.decovalex.org/>

デルの開発と確証において重要な発展を遂げ、主要な役割を果たしてきた。このプロジェクトを通じ、様々な母岩地層や緩衝材／埋め戻し材の複雑な THM と THC 挙動について詳細な知識が得られ、それらの定量解析のための数値シミュレーション法において重要な進捗があった。このプロジェクトで蓄積された知識は、大量の研究報告書や、公開文献としての国際的定期刊行物や会議の論文等の形で、参加各国の放射性廃棄物管理プログラムの実施や見直しに効果的に利用されてきている。プロジェクトは、カナダ、中国、フィンランド、フランス、日本、ドイツ、スペイン、スウェーデン、英国、韓国、チェコ共和国及び米国等の多数の放射性廃棄物管理組織や規制機関からの研究チームが実施している。

現在は、DECOVALEX-2019 フェーズとして 2016～2019 年の期間でのタスク A-G までの研究開発が実施されている。表 2 にタスクの概要を示す。

表 2 DECOVALEX-2019 プロジェクトにおける国際共同研究の概要

タスク	概要	地下研究所利用
A	<ul style="list-style-type: none"> <li>2 種類の低透水性物質中のガス移行挙動</li> <li>対象とする低透水性物質は圧縮ベントナイトとカロボ・オックスフォーディアン層の粘土</li> <li>ENGINEER というプロジェクト名称が付けられている</li> </ul>	なし（カロボ・オックスフォーディアン層の粘土を用いた室内試験は実施）
B	<ul style="list-style-type: none"> <li>力学応答と関連する断層の透水性の変化を含めた、小断層、大断層の再活性化のモデルとの比較検証</li> </ul>	スイスのモン・テリ岩盤研究所で断層の再活性化に関する試験を実施
C	<ul style="list-style-type: none"> <li>閉鎖後の坑道の環境回復に係る研究開発</li> <li>日本の瑞浪超深地層研究所において、冠水坑道の冠水後に、地下水の水圧や水質の変化、岩盤変位や透水性の変化のモニタリングを実施し、水理－力学－化学連成モデルとの比較検討を行う。</li> <li>GREET というプロジェクト名称が付けられている</li> </ul>	日本の瑞浪超深地層研究所において実施 [12]
D	<ul style="list-style-type: none"> <li>ベントナイト緩衝材の過渡期における変遷に関する知識ベース、特に最終的な不均質性の予測、の改善</li> <li>等温－非等温状態、自然冠水－人為的冠水、ベントナイトとペレットの複合試料－ベントナイトブロックのみの試料、等の 2 種類の条件でのベントナイト長期試験</li> </ul>	スイスのグリムゼル試験サイトとモン・テリ岩盤研究所でそれぞれ試験を実施
E	<ul style="list-style-type: none"> <li>カロボ・オックスフォーディアン層の粘土を対象とした、小規模から実規模スケールまでの熱－水理－力学連成モデルのスケールアップ</li> <li>擾乱されていない粘土の小規模スケール（数立法メートル）の熱負荷試験及び周辺岩盤と支保（この場合鋳鉄）の相互作用に焦点を当てた坑道セル規模の熱負荷試験</li> </ul>	フランス・ビュールの地下研究所で試験を実施
F	<ul style="list-style-type: none"> <li>岩石中の液体包有物に関する熱－水理－力学－化学連成プロセスの理解</li> </ul>	なし（室内試験、解析等の作業のみ）
G	<ul style="list-style-type: none"> <li>結晶質岩での処分場ライフタイムにわたる透水性の進展に関するシミュレーション</li> </ul>	なし（過去にエスポ岩盤研究所で得られたデータを利用）

### (3) モン・テリプロジェクトにおける地下研究所を活用した国際共同研究

モン・テリプロジェクトは、放射性廃棄物の地層処分に適した粘土／頁岩層の水文地質学、地球化学及び地球工学的な特徴付けを行う国際研究プロジェクトである。1996年に正式に開始されたこのプロジェクトでは、スイス北西部のサン・トゥルザンヌの町の北方の、地表下 300m までの深度の泥質粘土岩（オパリナス粘土）の中に位置する地下研究施設が使用されている。

モン・テリプロジェクトは基本的に共同プログラムとして運営されており、既存の地下研究所（URL）を自由に利用できる。研究プログラムは一連の個々の実験で構成され、7月1日から翌年の6月30日まで実施される年間プロジェクトフェーズに分かれている。スイス国土地理院（Swisstopo）は岩盤研究所の操業と保守を支援し、操業管理と実験のサポートを行っている。長年にわたり、モン・テリプロジェクトに参加してきた組織は多額の経済的投資を行ってきており、これに加え、欧州共同体やスイス連邦教育科学室も追加支援を提供している。

モン・テリプロジェクトのウェブサイト<sup>7</sup>によれば、現在実施されている試験として以下が挙げられている。

#### ○新しい研究・測定技術の開発

新しい掘削方法や、価値のあるドリルコアの採取方法、間隙水圧や岩盤応力の測定方法やモニタリング手法が検討されている。例えば、オパリナス粘土は水がない環境であるため、間隙水圧や透水性のデータ取得のために特殊な水理試験方法の開発が実施されている。また、結晶質岩のためのドリルコア採取方法では粘土層で擾乱の少ないコア試料の採取が難しいため、コア試料採取技術の改善が行われている。

#### ○オパリナス粘土の特性

オパリナス粘土の母岩の特性として、低透水性、クラックや亀裂の自己シール機能特性、核種の保持能力等についての試験が実施されている。一例として、小さいボーリング孔の隔離した部分に水を満たして、トリチウム等を用いた拡散試験が実施されている。

#### ○1:1 実規模実証試験

放射性廃棄物管理共同組合（NAGRA）のウェブサイト<sup>8</sup>によると、FE（Full Scale

<sup>7</sup> <https://www.mont-terri.ch/en/experiments.html>

<sup>8</sup> <http://www.nagra.ch/en/news/mediareleasedetail/experimentonsafedisposalofradioactivewaste.htm>

Emplacement、実規模定置) 試験では、長さ 50m、直径 3m の試験坑道に模擬廃棄体を 3 体定置し、ヒーターにより熱負荷をすることにより、岩盤やベントナイトへの影響を調べているとしている。この試験は将来の処分場の処分概念と 1:1 の実規模スケールで行われ、廃棄体の定置技術の実証も兼ねているとしている。

その他、モン・テリプロジェクトのウェブサイト<sup>9</sup>によると、上記を含めて重要な試験例として以下が紹介されている。

表 3 モン・テリプロジェクトにおける試験例

試験	概要	備考
ガス生成とガス流路	発生したガスの間隙水への溶解挙動やオパリナス粘土層中のクラック発生影響	2015 年終了
拡散と吸着	10m のボーリング孔中にトレーサーとなる核種を注入し、岩盤周囲への核種移行挙動を調査	2015 年終了
モニタリング方法と新しいセンサー	様々な製造品の光ファイバセンサーをボーリング孔に設置し、熱負荷を与え、センサーの耐久性等の特性を調査	2017 年終了予定
砂岩相の情報	モン・テリ岩盤研究所では、母岩を粘土、砂岩相 (sandy facies)、頁岩相 (shaly facies) で区別がされており、地質図と地質構造的な調査を実施	2015 年終了
岩盤中の微生物	ボーリング孔において、水素存在条件下での微生物活動を調査	2020 年頃終了予定 (ユーラトムの MIND プロジェクトの試験に該当すると考えられる)
オパリナス粘土における水素発生	オパリナス粘土中での (微生物活動由来の) 水素発生の可能性調査	2015 年終了
1:1 実規模実証試験	前述の 1:1 実規模実証試験を参照	2025 年以降まで継続予定
工学バリア	水平定置概念による、廃棄体の定置と埋め戻しを実施し、粒状ベントナイトの膨潤特性、キャニスタの腐食、ベントナイトとオパリナス粘土の相互作用等を調査	2014 年終了
ヒーター試験	ベントナイトリングで周囲を覆ったヒーターをボーリング孔に設置し、冠水・熱負荷によるオパリナス粘土の核種保持特性を調査、及び連成モデルとの比較検証。	大規模試験は 2005 年終了。熱-水理-応力連成に係る試験は継続中
断層・破碎帯	地質図、ボーリング調査、薄片観察等による断層・破碎帯の特性調査	継続中 (掘削毎に断層を調査)
CO <sub>2</sub> 試験	二酸化炭素貯留によるオパリナス粘土への影響	2015 年終了

<sup>9</sup> <https://www.mont-terri.ch/en/experiments/the-most-important-experiments.html>

#### (4) グリムゼル試験サイトにおける地下研究所を活用した国際共同研究

グリムゼル試験サイト（GTS）は、スイスアルプスの結晶質の亀裂性母岩内に位置する URL である。この URL は放射性廃棄物の地層処分に関する広範囲の研究プロジェクトをサポートする地下 R&D センターとして 1984 年に設立された。GTS は処分場サイトに類似した環境を提供するため、完全に現実的な条件下で機器、方法及びモデルの開発と試験が可能である。調査では広範囲の放射性トレーサーを使用する場合があるが、GTS は研究施設であり、潜在的な処分場サイトではない。サイトの運営者である NAGRA は、URL 内の大半の実験活動を多国籍の共同プロジェクトとして組織しており、プロジェクトには、通常、欧州、アジア、北米の複数のパートナーが参加している。これらの共同プロジェクトに参加するには、NAGRA とその参加者間で正式なプロジェクト契約を結ぶ必要がある。

グリムゼル試験サイトのウェブサイト<sup>10</sup>によると、現在、2004 年に開始したグリムゼルフェーズ VI と呼ばれる研究開発段階で、放射性廃棄物に係わる研究開発が実施されている。フェーズ VI では、より処分環境に近く、より処分に係わる時間スケールや核種条件に近い現象に関する試験を実施することに焦点をおいているとしている。

フェーズ VI のプロジェクトでは、以下の研究を行うとしている。

- ・ 廃棄体や人工バリア材の輸送、定置、品質管理及びモニタリング（必要に応じて放射性廃棄物の回収）に関する技術の開発と最適化。
- ・ 実際の処分場環境を再現する規模（少なくとも数十メートル）や水理地質条件（例えば低流速域）における試験。これまで実施されてきた天然バリア中の放射性核種の移行現象の解明からさらに一步踏込んだもので、長期にわたる試験の実施が必要。このような試験は今日まで世界中のどの地下研究施設でも実施されたことの無い新たな試み。
- ・ 国際的な地下研究所ネットワークプログラムの一環として、グリムゼル試験サイトは放射性廃棄物処分の分野における現在の世代の専門家達が得てきた知見を、実際に処分場を建設操業する次の世代に継承していくための教育の場としても活用。

また、現在、実施中のプロジェクトとしては以下があるとしている。（アルファベット表記はプロジェクト略称を示す）

- ・ コロイドの形成と移行に関する試験：CFM
- ・ 長期の拡散試験：LTD

---

<sup>10</sup> <http://www.grimself.com/gts-information/japanese-section/japanese-phase-v-vi>

- ・ 長期セメント試験：LCS
- ・ 実規模人工バリア試験：FEBEX-e（Phase V より断続）
- ・ 低アルカリ性プラグ構築：ESDRED Module IV
- ・ モニタリング技術の評価試験：MoDeRn/TEM
- ・ ニアフィールドプロセス試験：NF-PRO
- ・ 空隙構造試験：PSG
- ・ 亀裂評価試験：C-FRS
- ・ プラグ・シールのカラム試験：FORGE
- ・ 透気性ベントナイトシール試験：GAST

#### (5) SKB タスクフォースにおける地下研究所を活用した国際共同研究

スウェーデン核燃料廃棄物管理会社（SKB 社）は、SKB 社における使用済燃料の最終処分のための地層処分場の設計と建設に関する研究の重要な一部として、エスポ岩盤研究所を活用している。エスポ岩盤研究所は、オスカーシャム市の Simpevarp 地域に位置する。SKB 社が地下研究所を建設することを決定した背後にある基本的な理由の一つは、処分場深さでの現実的で平穏な岩盤環境における研究開発及び実証の機会を得ることにあつた。研究所の地下部分は、Simpevarp 半島からエスポ南部まで続く本通路のトンネルから成るが、そこから螺旋状に深さ 460m まで下がる。エスポ岩盤研究所は 1995 年から運用されている。

SKB 社は、エスポ岩盤研究所での研究開発において、天然及び人工バリアシステム内の性能関連プロセスの、概念的及び数値的モデル化の分野における国際組織の交流の場として、次の 2 つのタスクフォースを組織している [13]。

- ・ 地下水流動と物質移行（GWFTS）タスクフォース：地下水流動と物質移行のモデル化で、破壊された岩盤内の地下水の流れと物質移行の定量的な概念のモデル化の領域での協力フォーラム
- ・ 人工バリアシステム（EBS）タスクフォース：人工バリアシステムの THMC モデルの作成で、ベントナイト緩衝材と緩衝材を通してのガス移動から生じる THMC プロセスに関する、コード開発のフォーラム

GWFTS タスクフォースは、これまでタスク 7 までが実施され、現在タスク 8 とタスク 9 が行われている。

タスク 8: 処分孔の岩盤とベントナイトの境界面での相互作用プロセス。このタスクは、2012 年に設置された BRIE (Buffer-rock interaction experiment、緩衝材-岩盤相互作用試験) と称するプロジェクトの中の一つのエスポ試験のモデル化に関するものであるとしている。タスクの主要目的は以下であるとしている。

- ・ベントナイト-岩盤の境界面を横切る水交換の科学的理解
- ・ベントナイト緩衝材の湿潤のよりよい予測
- ・キャニスタ試験孔のよりよい特徴付け方法

タスク 9: マトリックス拡散や収着などの岩盤中の移行特性を調査する試験のモデル化。モデル化の演習のベースとなる試験は、フィンランドの ONKALO で行われている REPRO (岩盤マトリクスによる核種保持特性試験) と、エスポ HRL で行われた LTDE-SD (長期の岩盤への収着拡散試験) である。

EBS タスクフォースは、現在、第 2 フェーズの取組が進められている。また、EBS タスクフォースはさらに熱-水理-応力 (THM) の課題、及び地球化学の課題を扱う 2 つのグループに分かれて研究が進められている。それぞれのグループにおける現在進行中のプロジェクトを以下に示す。

○THM グループ

- ・感度解析
- ・均質化
- ・タスク 8 (GWFTS タスクフォースとの共同研究)
- ・プロトタイプ処分場

○地球化学グループ

- ・Na-モンモリロナイト中の NaCl 及び Ca-モンモリロナイト中の CaCl<sub>2</sub> の拡散
- ・Na-モンモリロナイト中及び Ca-モンモリロナイト中の石こうの溶解と拡散
- ・モンモリロナイト中の Na/Ca イオン交換
- ・圧縮ベントナイト中の多相の移流拡散移行試験
- ・陰イオンの圧縮ベントナイト中の選択的拡散

## 参考資料

- [1] 資源エネルギー庁, (独) 日本原子力研究開発機構, 高レベル放射性廃棄物及びTRU廃棄物の地層処分基盤研究開発に関する全体計画, 2006 (2009改訂版)
- [2] 資源エネルギー庁, (独) 日本原子力研究開発機構, TRU 廃棄物の地層処分基盤研究開発に関する全体基本計画, 2006 (2009改訂版)
- [3] 資源エネルギー庁, (独) 日本原子力研究開発機構, 高レベル放射性廃棄物及び TRU 廃棄物の地層処分基盤研究開発に関する全体計画, 2010
- [4] 地層処分基盤研究開発調整会議, 地層処分基盤研究開発に関する全体計画 (平成 25 年度～29 年度) , 2013
- [5] 地層処分基盤研究開発調整会議, 地層処分基盤研究開発に関する全体計画【研究開発マップ】 (平成 25 年度～29 年度) , 2014
- [6] 原子力環境整備促進・資金管理センター, 平成 26 年度放射性廃棄物共通技術調査等事業 放射性廃棄物重要基礎技術研究調査 (国庫債務負担行為に係るもの) 報告書 (平成 27 年度分) , 2016
- [7] 原子力委員会放射性廃棄物専門部会, 最終処分関係行政機関等の活動状況に関する評価報告書, 2016
- [8] 産業構造審議会産業技術環境分科会 研究開発・イノベーション小委員会評価ワーキンググループ, 放射性廃棄物処分関連分野 (複数課題プログラム) 技術評価結果報告書 (中間評価) (案) , 2017
- [9] MoDeRn 2020, Deliverable D2.1: Repository Monitoring Strategies and Screening Methodologies, 2017
- [10] Francis Claret, et al., CEBAMA D1.01 Detailed WP1 description of scientific work: compilation of partner descriptions, 2015
- [11] Ahonen et al., MIND DELIVERABLE 3.1 - 1 Year one evaluation report, 2016
- [12] 濱他、超深地層研究所計画 年度計画書 (2016 年度) , JAEA-Review 2016-015, 2016
- [13] SKB, Äspö Hard Rock Laboratory – Annual Report 2015, TR-16-10, 2016



別添資料 実施研究報告



# 研究報告 1

断層周辺の地下水流動特性および  
物質移行特性に関する包括的研究

京都大学 大学院工学研究科

柏谷 公希



## 1. 研究の背景と目的

日本では、エネルギー資源の安定供給や廃棄物の減容などの観点(資源エネルギー庁, 2013)から、原子力発電で使用した原子燃料から再度発電に利用可能なウランやプルトニウムを抽出し、発電に用いる原子燃料サイクルが実施されることとなっており、関連技術の研究開発が進められている(図1)。原子燃料サイクルにおいて、使用済燃料の再処理で発生する放射能の高い廃液はガラスとともに溶融・固化され、高レベル放射性廃棄物として処分される。

高レベル放射性廃棄物は、30～50年間冷却のために中間貯蔵された後に、地下300m以深に地層処分される計画となっている。高レベル放射性廃棄物の放射能は含まれる放射性核種が崩壊することで低下するが、十分に低いレベルとなるまでに長い期間を要する(図2, 図3)。その間、処分された廃棄物に含まれる放射性核種が生物圏に悪影響を及ぼさないように、地層処分では処分サイト周辺の岩盤である天然バリアと、ガラス固化体、ガラス固化体を収納するオーバーパック、膨潤性粘土鉱物を主成分とするベントナイト緩衝材からなる人工バリアとの組み合わせによる多重バリアシステムにより廃棄物が封じ込められる(図4)。

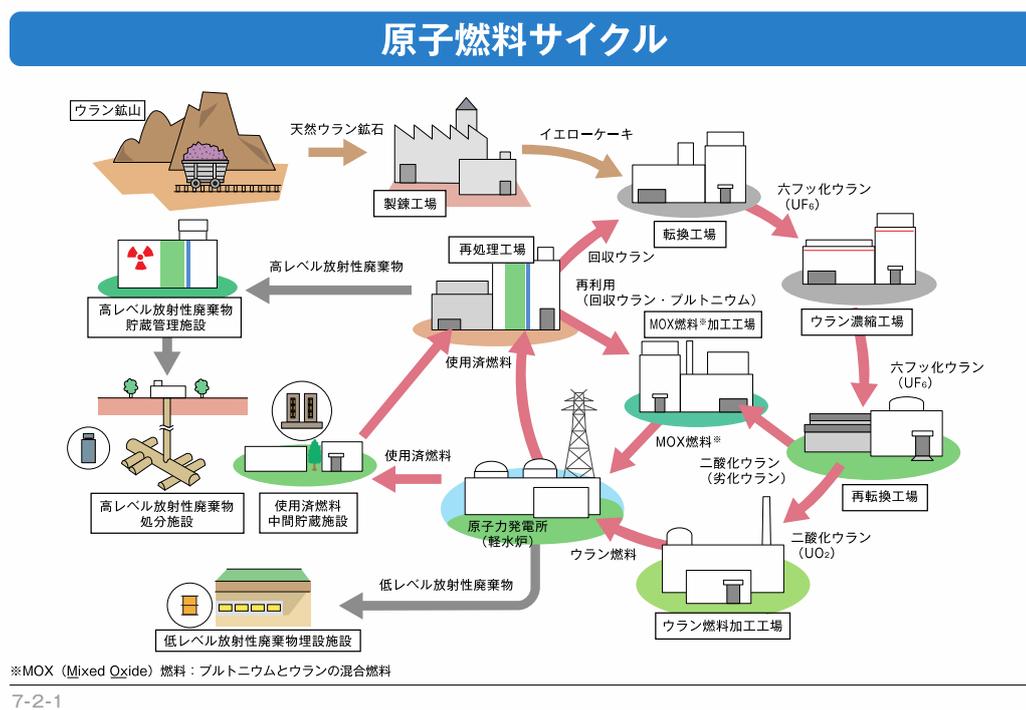


図1 原子燃料サイクルの概要(電気事業連合会, 2016)

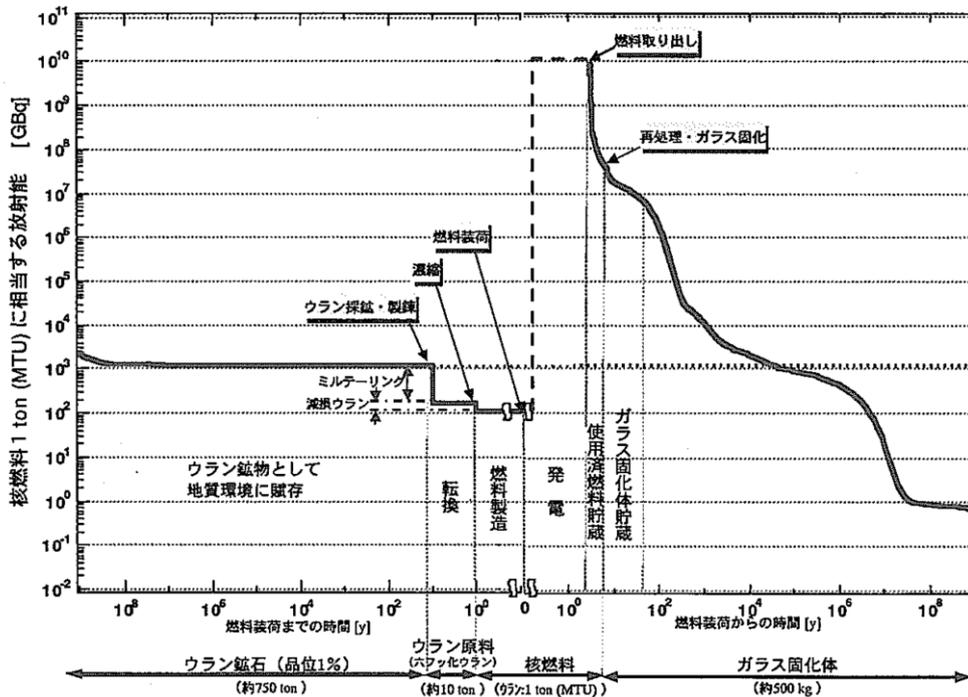


図2 高レベル放射性廃棄物(ガラス固化体)の放射能の減衰  
(濃縮度4.5%の核燃料1MTU相当, 核燃料サイクル開発機構, 1999a)

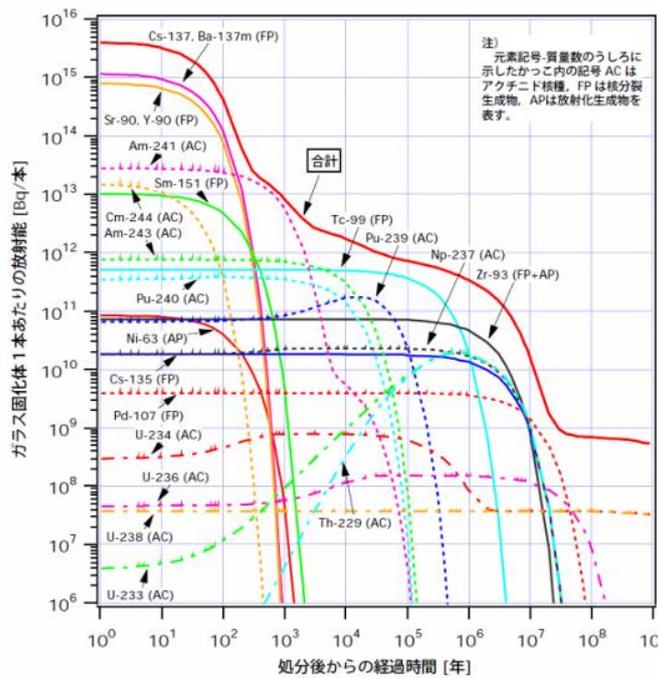


図3 ガラス固化体の放射能及び各放射性核種の放射能の経時変化  
(核燃料サイクル開発機構, 1999a)

## 高レベル放射性廃棄物多重バリアシステム

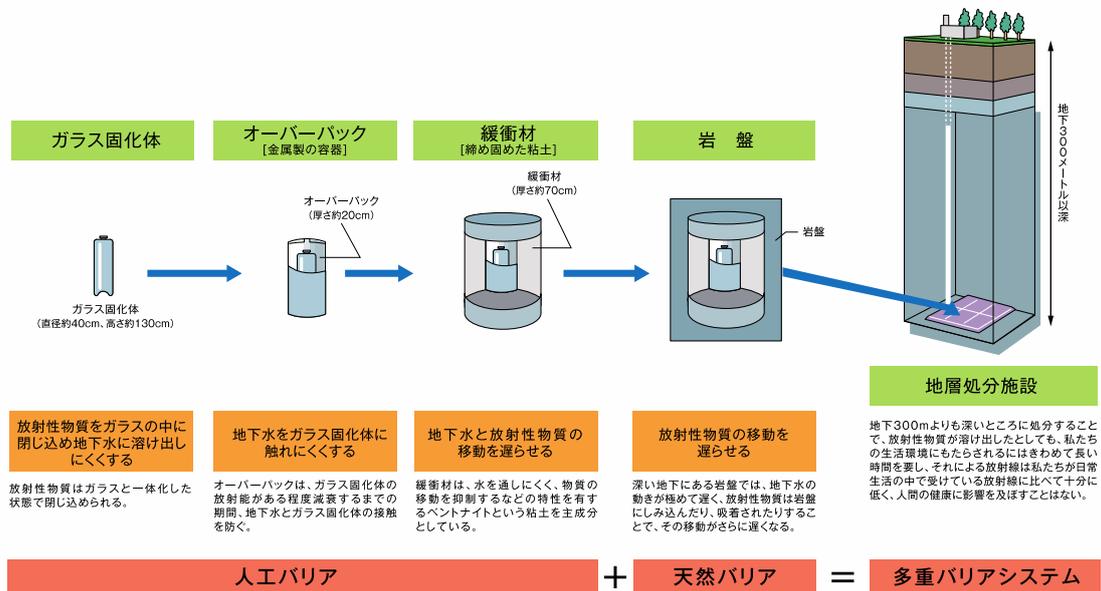


図4 高レベル放射性廃棄物の多重バリアシステム  
(電気事業連合会, 2016; 出典: 原子力発電環境整備機構資料)

高レベル放射性廃棄物の地層処分を実施する上で、その安全性を評価・確認する必要がある。高レベル放射性廃棄物処分の安全評価で考慮されるシナリオは大きく地下水シナリオと接近シナリオに分けることができる(図5)。地下水シナリオは地層処分された廃棄体から地下水の作用により放射性核種が漏出し、生物圏まで移行するとするものである。一方、接近シナリオはマグマが処分場に貫入することで廃棄体が地表まで移動する、隕石の衝突によって廃棄体が露出する、人間が処分サイトに侵入するなどにより廃棄体と人間の接近が生じ、その結果廃棄体による悪影響が生じるとするものである。日本における地層処分の技術的信頼性を示すとともに、処分サイト選定や安全基準策定の技術的根拠と位置付けられる「地層処分研究開発の第二次とりまとめ」(核燃料サイクル開発機構, 1999b)では、サイトが適切に選定され、サイトの特性に応じた工学的対策が達成された場合、接近シナリオで懸念されるような事象が発生する可能性は低いとされており、地層処分の安全評価では地下水シナリオの検討が重要となる。

地下水シナリオの評価では、処分サイト周辺の地下水流動状態を把握することが必要不可欠となる。廃棄体に含まれる核種を封じ込め、生物圏への移行を防ぐという観点から、処分サイトは地下水の流動速度が小さい地質環境に設置されることが望ましいが、地殻を構成する岩石の透水性は不均質である。特に断層は断層角礫や断層ガウジといった内部構造に応じて、

地下水流動の選択的な経路 (conduit) とも障壁 (barrier) とも、それらの複合体 (conduit-barrier combined system) ともなり得ることが知られている (Caine et al., 1996)。

しかしながら、地下水流動や物質移行における断層の機能は十分に理解されているとは言いがたく、その機能を評価し、水理地質モデルで適切に表現するための手法は確立されていない。本研究では、断層周辺の地下水流動状態と物質移行状態を明らかにし、地下水流動と物質移行における断層の機能を理解すること、さらには断層の機能を評価するための手法を確立することを目的とする。上述のように、高レベル放射性廃棄物の地層処分の安全評価を行う上で処分サイト周辺の地下水流動状態や物質移行状態を把握することが求められる。本研究を通して、地下水流動と物質移行における断層の機能に関する知見が得られ、有効な評価手法を確立できれば、処分サイトの選定や処分坑道など施設の配置を決める際に、高透水性の構造として断層をどのようにとらえ、避ければいいのか明らかとなる。あるいは、断層の水理特性の理解が進むことで、そのバリア機能を積極的に活用できる可能性もある。地下水シナリオは地層処分の安全評価において、主要な評価対象であることから、上述のような目標が達成されれば、本研究の地層処分事業に対する意義は大きいものと期待できる。

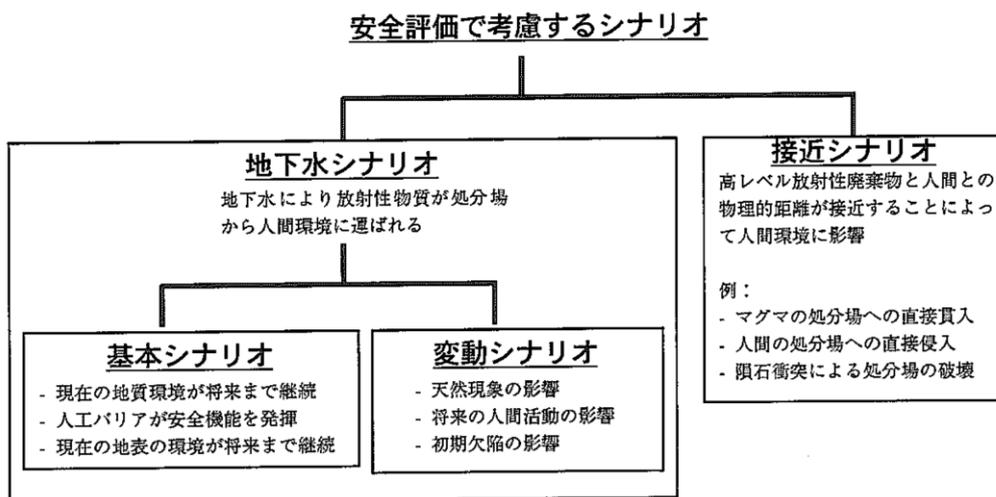


図 5 第二次とりまとめで検討された安全評価シナリオ  
(核燃料サイクル開発機構, 1999b)

## 2. 全体研究計画（4 ヶ年における全体計画）

本研究では、モデルサイトとなる断層周辺において、地下水流動と物質移行に関わる、岩石の透水性、地下水の水理ポテンシャル、岩石の鉱物組成及び化学組成、地下水の化学的及び物理化学特性などのデータを取得し、それらの空間分布を推定する。得られた結果に基づいて水理地質モデルを作成し、地下水流動解析及び物質移行解析を行うことにより、断層周辺の地下水流動及び物質移行における断層の役割を明らかにする。特に、地下水の環境トレーサーの空間分布と、地下水流動解析及び物質移行解析から算出される環境トレーサーの空間分布を比較することにより、水理地質モデル及び解析結果の妥当性を検証する。本研究の研究期間は平成 26 年度から平成 29 年度の 4 年間で、各年度の研究計画は以下の通りである。

平成 26 年度は、日本国内に存在する断層を対象に文献調査を行い、研究対象とする断層を選定した。多数の論文や報告書が公開されている主立坑断層、月吉断層、跡津川断層系、野島断層などについて検討し、断層周辺で地質、水理、水文、地球化学などの各種特性に関するデータが集積、公開されており、本研究でも利用可能であること、本研究の実施期間中も調査、モニタリングが継続されていること、断層直近に研究坑道が分布しており、原位置でのデータ取得が可能であること、各種モデル構築や地下水流動解析が実施されており、本研究で得られる解析結果との比較も可能であることなど、多くの利点を考慮し、岐阜県東濃地域に分布する主立坑断層と月吉断層を対象に研究を実施することとした。また、環境トレーサーの一種であり、地下水の滞留時間推定に近年広く用いられている六フッ化硫黄 ( $\text{SF}_6$ ) の分析システムを構築し、分析手順を確立した。

平成 27 年度は、断層周辺の岩盤を対象に原位置で浸透率測定を行い、その空間変化を明らかにした。また、地下水の水頭の空間分布に関する検討を行った。さらに、断層周辺の岩盤における破碎構造や、岩石の化学組成及び鉱物組成の空間分布に関する検討を行った。これらの概要については平成 27 年度の成果として第 3 章で述べる。

平成 28 年度は、断層近傍の研究坑道において地下水試料を採取し、物理化学特性の測定と環境トレーサーを含む各種地球化学特性の分析を実施している。国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 (JAEA) により公開されている地下水の物理化学特性及び地球化学特性のモニタリングデータと合わせて、これら特性の空間的、時間的な変化を明らかにする。

平成 29 年度は、前年度までに得られたデータに基づいて、断層周辺の水理地質モデルの高度化を進め、地下水流動解析と物質移行解析を実施する。これにより断層周辺の地下水流動状態と物質移行状態を推定し、実測値に基づく空間分布及び時間変化と比較することで、その妥当性を評価、検証する。

### 3. 平成 27 年度の成果概要

平成 27 年度は、断層周辺の地下水流動状態を把握する上で重要な特性である浸透率を、研究サイトである主立坑断層近傍の地下研究坑道で測定し、その空間分布を明らかにした。また、断層周辺における水頭の空間分布に関する検討を行った。さらに、断層周辺の岩石の破碎構造や鉱物組成、化学組成の空間分布についても検討した。

#### 3.1. 断層周辺における浸透率測定

JAEA 瑞浪超深地層研究所の研究坑道で、坑壁に露出する岩盤を対象に浸透率測定を実施した。研究坑道の模式図と浸透率測定箇所を図 6 に示す。

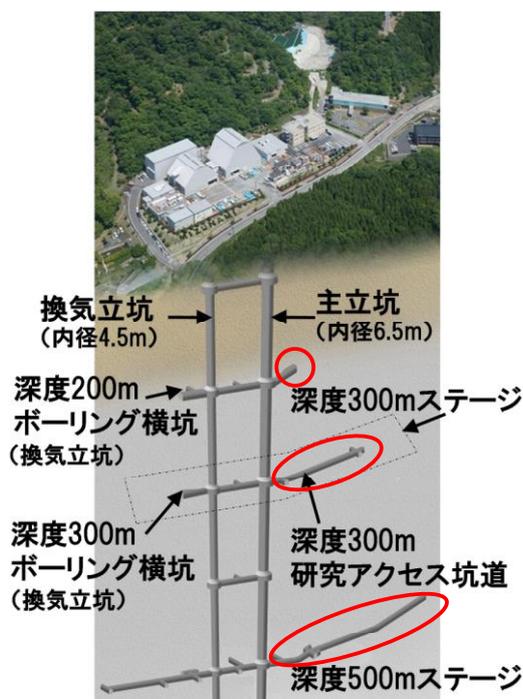


図 6 JAEA 瑞浪超深地層研究所の研究坑道計画図(濱ほか, 2014)と今回浸透率測定を実施した箇所(赤丸で囲んだ部分)

瑞浪超深地層研究所では、2本の立坑のうち主立坑が主立坑断層の直近に位置しており、立坑から100m間隔で水平坑道が設置されている。主立坑断層は、主立坑の坑壁において深度10m程度から、現時点で立坑の最深部である深度500m程度までほぼ鉛直に分布していることが知られている(鶴田ほか, 2013)。そのため、水平坑道に沿って浸透率測定を行うことで、断層からの距離に応じた浸透率の変化を把握することができる。浸透率測定は、深度200m、300m、500mの各ステージの坑道の坑壁を対象に実施し、水平方向に数m間隔で

1～5 点の測定を行った。測定点数は、深度 200m ステージで 12 点、300m ステージで 36 点、500m ステージで 90 点、合計 138 点である。測定値の再現性を確認するため、各点 10 回程度測定値を取得した。

浸透率測定には窒素ガス圧入式パーミアータである Mini permeameter (TEMCO 製 MP-401) を使用した。本装置では、プローブを岩盤表面に押し付けて窒素ガスを流し、窒素ガスの圧力や流量などから岩石表面の浸透率を算出する。予備試験から、本装置で測定される浸透率はプローブを岩盤表面に押し付ける荷重によって変化することが明らかとなっていたため、図 7 に示すような押し付け荷重モニターを備えたプローブホルダーを作製し、押し付け加重を 20N でほぼ一定に保ちながら測定値を記録した。

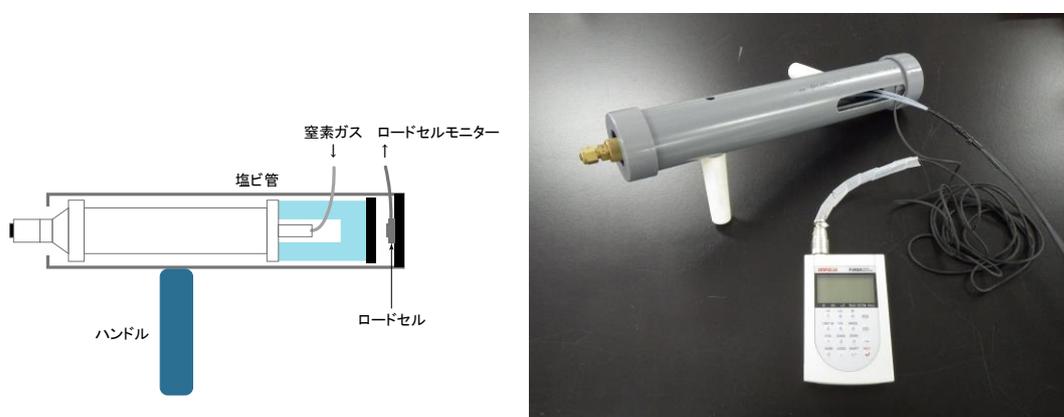


図 7 押し付け加重測定用ロードセルを備えたプローブケースの模式図(左)と外観(右)

測定結果を図 8 に示す。なお、浸透率は主立坑からの距離が近い測定点における測定値の平均として示している。深度 200m と深度 300m では主立坑断層からの距離と浸透率の間には明確な相関が認められないが、深度 500m では主立坑からの距離が増加するとともに浸透率が増加し、最大値を示して減少する傾向が認められる。そこで、浸透率が最大となる地点からの距離と浸透率の関係としてまとめたものを図 9 に示す。浸透率が最大となる地点からの距離が大きくなるにつれて浸透率は減少し、片対数グラフにおいて線形近似できることがわかる。

測定箇所の岩盤等級に基づいて区分した浸透率測定値のボックスプロットを図 10 に示す。なお、瑞浪超深地層研究所では、表 1 のように岩石の強さと不連続面の間隔に基づいて岩盤等級が決定されている。測定数が少ない CL 級を除き、B 級、CH 級、CM 級と岩盤性状が低下するにつれて浸透率のばらつきが大きくなっているのがわかる。

さらに、浸透率と断層周辺の破碎構造との関係について検討するため、坑壁展開図に測線を配置して記載されている巨視的な割れ目について割れ目密度(測線と交差する割れ目の測

線単位長さあたりの本数)を求め、浸透率と比較した結果を図 11 に示す。少なくとも、坑壁展開図に記載された巨視的割れ目に限定すれば、割れ目密度と浸透率の空間変化に明確な相関が認められないことが明らかとなった。

以上から、主立坑断層の近傍では、断層からの距離が大きくなるのに伴い、浸透率が極大、極小を示しながらある値に収束していくとする浸透率の空間分布モデルを構築した(図 12)。

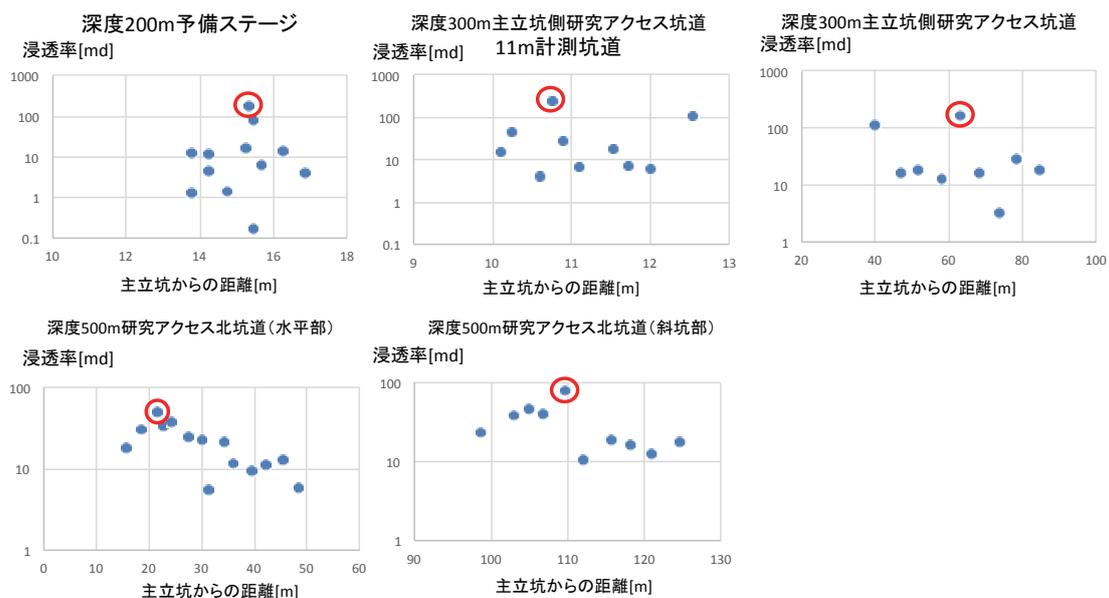


図 8 主立坑からの距離と浸透率の関係(佐藤(2016)を改変, 赤丸は浸透率が最大となる測定点を示す)

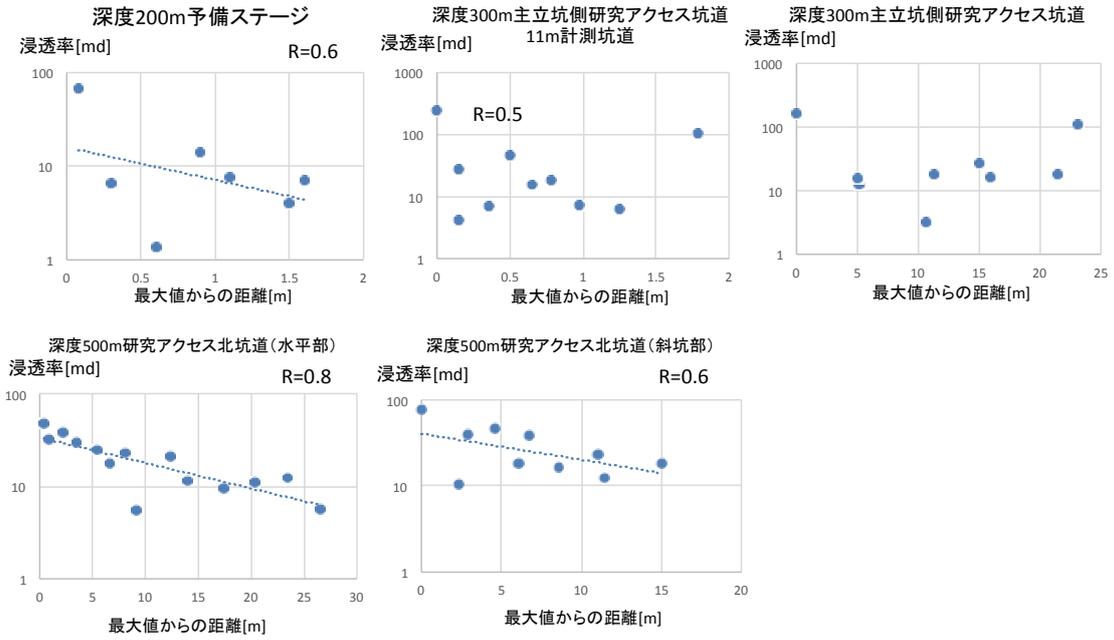


図9 浸透率が最大の測定点からの距離と浸透率の関係(佐藤(2016)を改変)

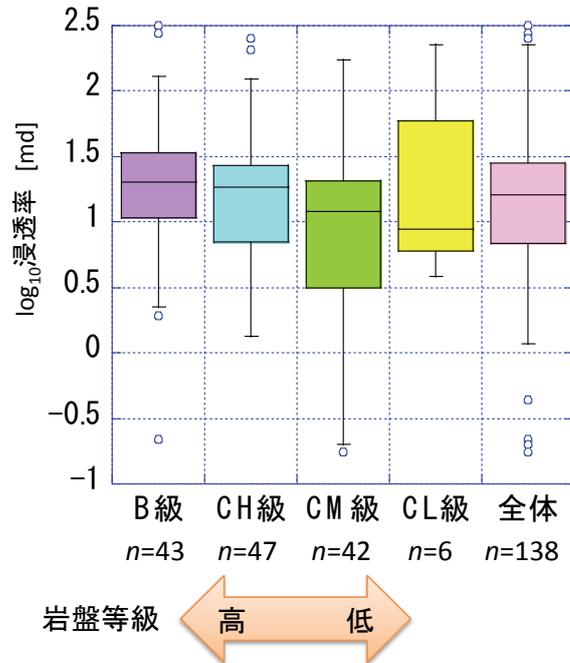


図10 測定点付近の岩盤等級と浸透率の関係(佐藤(2016))

表 1 岩盤等級の評価基準(川本ほか, 2014)

岩芯での岩級判定			岩石の強さ					
				金属音	少し濁った音	鈍い音	ピックで削れる	
			A	B	C	D	E	F
不連続面の 間隔 cm	I	>200	A	B	CH	CM		
	II	200~60	B	CH	CH	CM	CL	
	III	60~20	CH	CH	CM	CM	CL	D
	IV	20~6	CH	CM	CM	CL	CL	D
	V	6~2		CM	CL	CL	D	D
	VI	2以下			CL	D	D	D

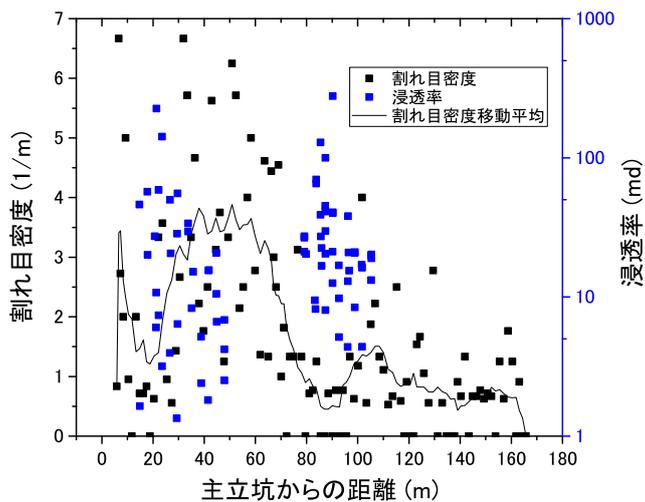
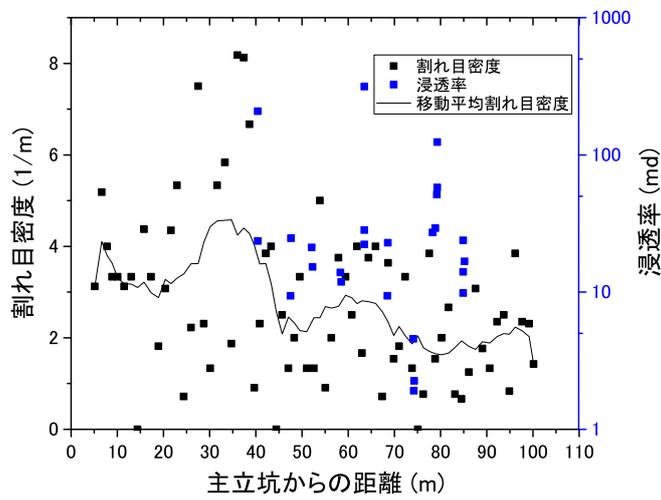
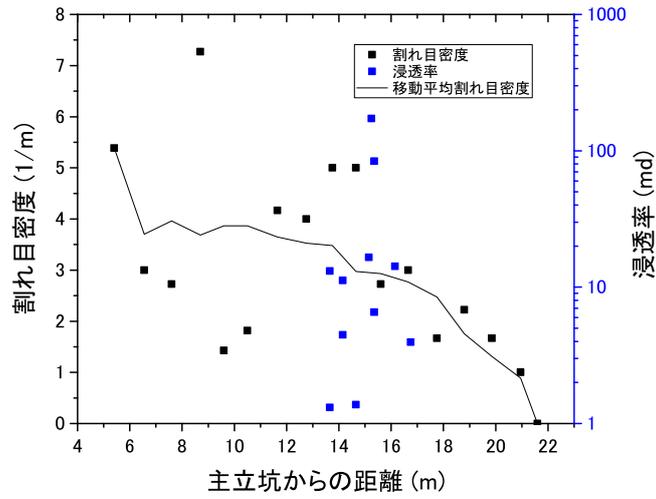


図 11 主立坑断層からの距離と坑壁で観察される割れ目密度及び浸透率の関係(上:深度 200m 予備ステージ, 中:深度 300m 主立坑側研究アクセス坑道, 下:深度 500m 研究アクセス 北坑道)

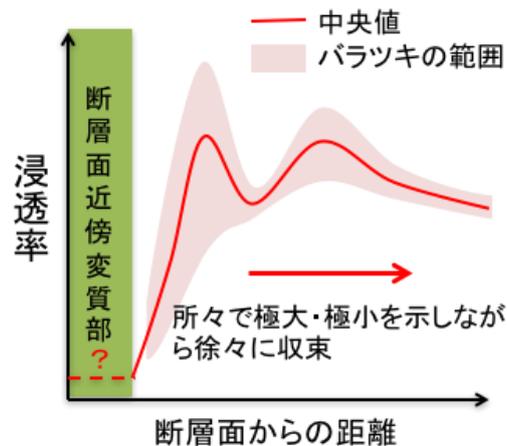


図 12 浸透率測定結果に基づく主立坑断層周辺における浸透率変化の概念モデル

また、断層周辺における岩石の鉱物組成、化学組成の空間分布に関する検討を行った。鉱物組成の定量値として、湯口ほか(2010)による MIZ-1, DH-2, DH-9, DH-11, DH-15, MIU-1, MIU-2, MIU-3, MIU-4 の各孔で採取されたコア試料の分析結果(モード値)を用いた。検討対象は石英、カリ長石、斜長石、黒雲母である。また、全岩化学組成として、湯口ほか(2011)に示される MIZ-1, 08MI13, 09MI20, 09MI21 の各孔で採取された岩石コア試料と、主立坑及び換気立坑で採取されたブロック試料の分析値に加え、湯口ほか(2010)による DH-2, DH-9, DH-11, DH-15, MIU-1, MIU-2, MIU-3, MIU-4 の各孔で採取されたコア試料の分析値を用いた。検討対象は各元素の酸化物である  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{TiO}_2$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ,  $\text{MnO}$ ,  $\text{MgO}$ ,  $\text{CaO}$ ,  $\text{Na}_2\text{O}$ ,  $\text{K}_2\text{O}$  の濃度である。これら岩石試料を採取した位置座標と、分析値に逆距離加重法を適用することにより、全岩化学組成と鉱物組成の空間分布を推定した。一例として、図 13 に  $\text{SiO}_2$  濃度の空間分布の推定結果を、図 14 に石英のモード値の空間分布の推定結果を示す。なお、これらの図には、石橋ほか(2013)及び濱ほか(2015)により作成されている地質モデルにおける月吉断層と主立坑断層もあわせて示している。

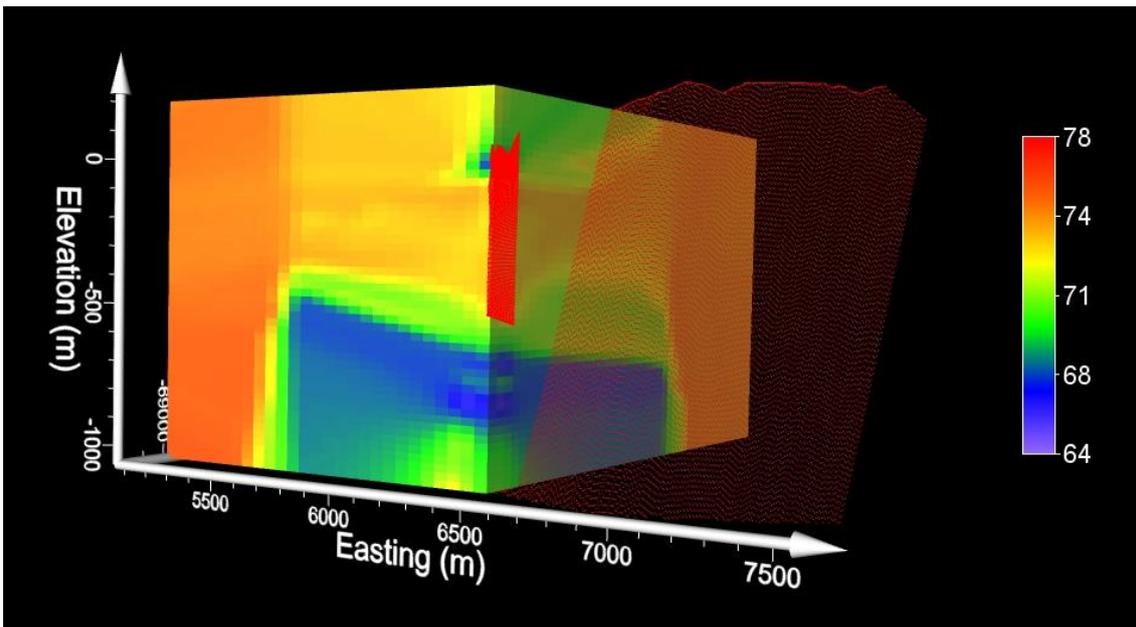
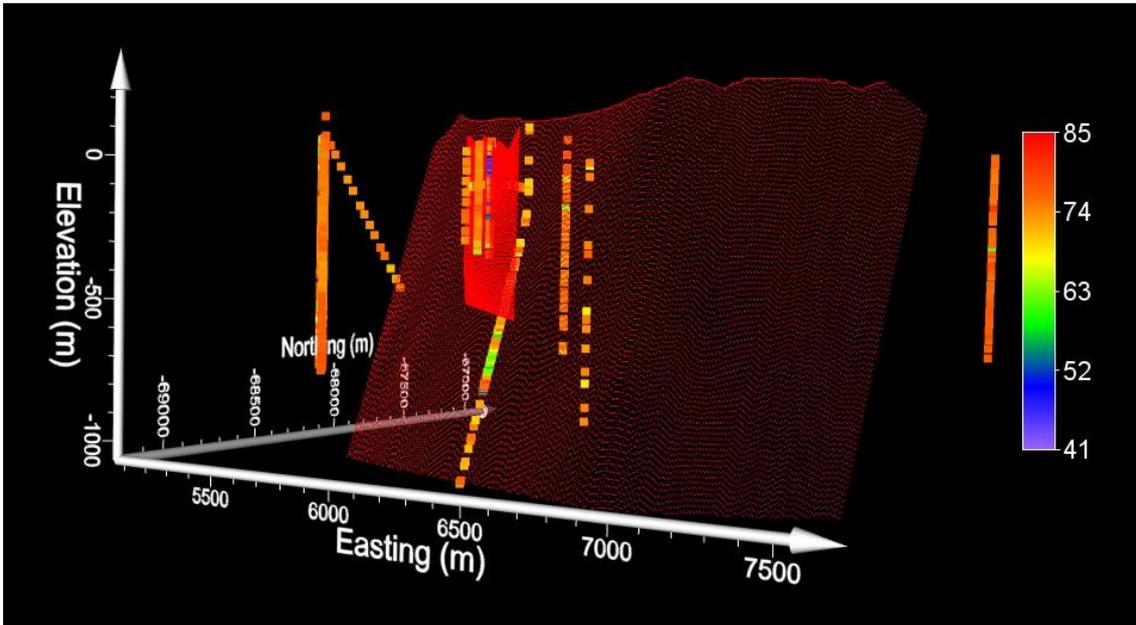


図 13 SiO<sub>2</sub> 濃度の分析値(上, 湯口ほか(2010);湯口ほか(2011))と  
逆距離加重法によって補間された SiO<sub>2</sub> 濃度の空間分布(下)  
(濃度単位は wt%)

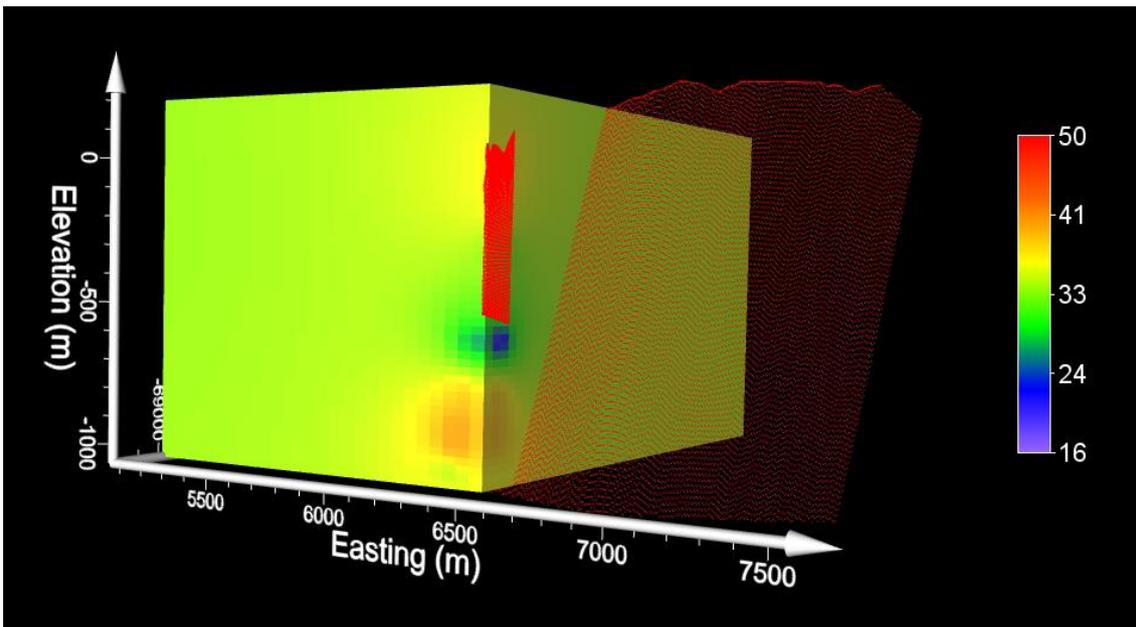
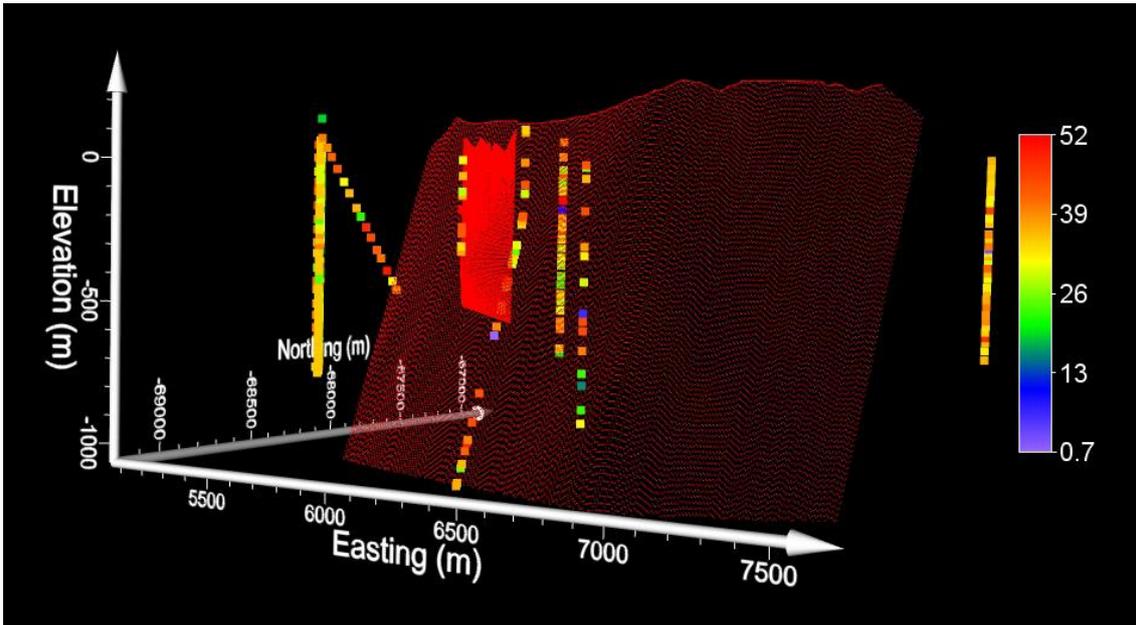


図 14 石英モード値の分析値(上, 湯口ほか(2010))と  
 逆距離加重法によって補間された石英モード値の空間分布(下)  
 (モード値の単位は vol%)

地下水頭の空間分布についても検討を行った。JAEA によりモニタリングされている地下水の全水頭(狩野・竹内, 2012a; 2012b)と測定区間の座標に逆距離加重法を適用することで空間分布を推定した。測定値と得られた全水頭の空間分布を図 15 に示す。

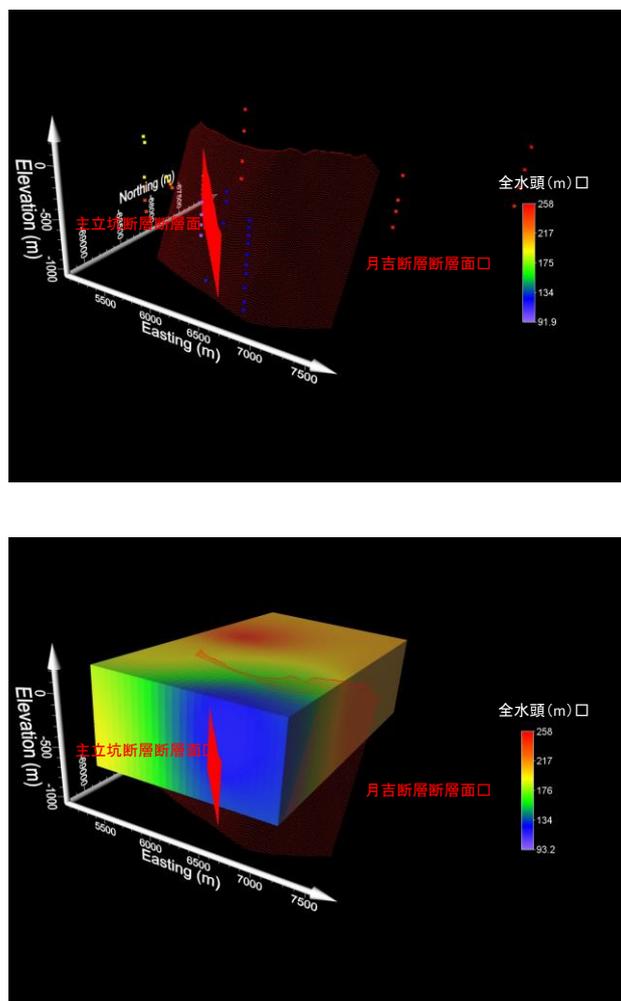


図 15 2010 年 4 月 1 日 0 時 0 分の全水頭測定値(狩野・竹内, 2012a; 2012b)と逆距離加重法によって補間された全水頭の空間分布(下)  
主立坑断層及び月吉断層の表示には、  
石橋ほか(2013)及び濱ほか(2015)により作成されている地質モデルを使用

SF<sub>6</sub>については、平成 26 年度に作製した分析システムの分析精度確認を目的とした検討を行った。SF<sub>6</sub>濃度既知の標準ガスを容積既知のループに分取して、クロマトグラムにおけるピーク面積と SF<sub>6</sub> のモル数の関係である検量線を作成し、未知試料として京都大学桂キャンパス

の実験室大気に含まれるSF<sub>6</sub>を定量した。大気を12回繰り返し測定した結果を表2と図16に示す。測定開始直後の数回は濃度が高いが、測定回数が増加するに従い測定濃度が低下し、後半6回の平均は9.09pptvとなった。なお、アメリカ海洋大気庁が公開している大気中SF<sub>6</sub>濃度のモニタリング結果(NOAA, 2017)に基づいて大気中SF<sub>6</sub>の緯度と時間変化の関係(図17)を求めると、実験室の緯度(北緯34.98°)における2015年12月のSF<sub>6</sub>濃度は8.94pptvとなり、少なくともガス試料については妥当な分析ができているものと評価できた。

表2 実験室大気の繰り返し測定結果

測定回数	ピーク面積	未知試料中 SF <sub>6</sub>	ループ内 SF <sub>6</sub> 体積	ループ内体積	SF <sub>6</sub> 濃度
	uV		famol	mL	
1	37521.5	7.12	1.74E-10	16.2	10.7
2	34993.2	6.64	1.62E-10	16.2	10.0
3	33240.4	6.31	1.54E-10	16.2	9.52
4	33767.9	6.41	1.57E-10	16.2	9.67
5	33523.9	6.37	1.56E-10	16.2	9.60
6	32395.2	6.15	1.50E-10	16.2	9.28
7	31896.5	6.06	1.48E-10	16.2	9.14
8	31807.5	6.04	1.48E-10	16.2	9.11
9	31913.3	6.06	1.48E-10	16.2	9.14
10	31927.4	6.06	1.48E-10	16.2	9.15
11	31456.5	5.97	1.46E-10	16.2	9.01
12	31326.4	5.95	1.45E-10	16.2	8.98

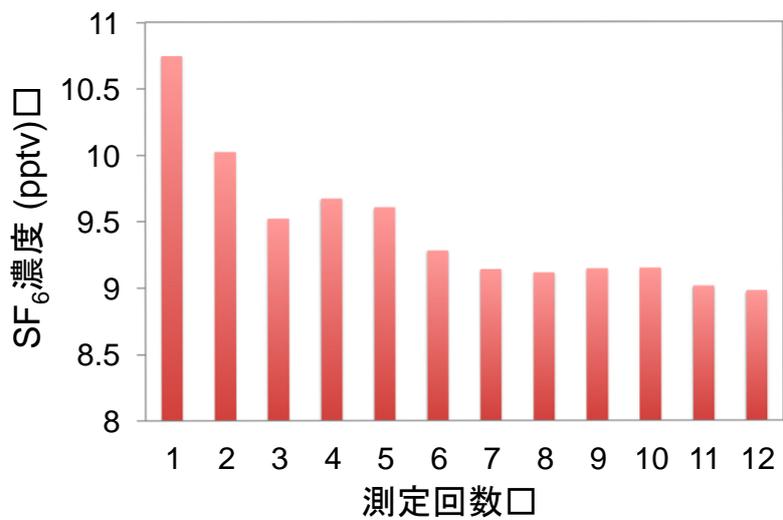


図 16 実験室大気の繰り返し測定結果

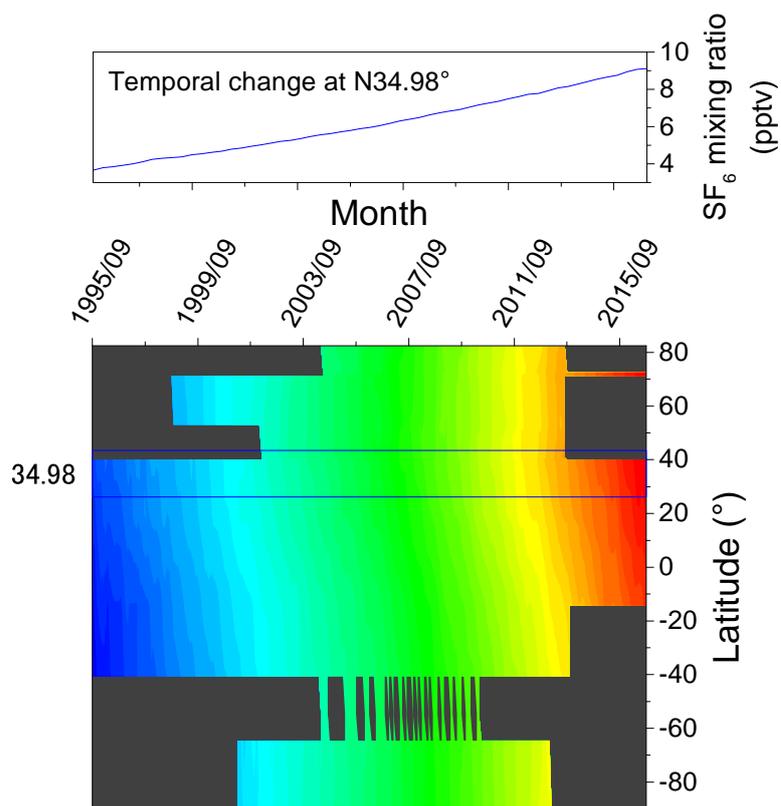


図 17 NOAA のモニタリングデータ(NOAA, 2017)に基づく大気 SF<sub>6</sub>濃度と測定時期及び緯度  
 度の関係(下)と  
 京都大学桂キャンパスの緯度に対応する大気中 SF<sub>6</sub>濃度の時間変化(上)

## 4. 平成 28 年度研究実施内容

### 4.1 平成 28 年度の計画、実施方法

本年度は断層周辺に分布する地下水の物理化学パラメータを測定するとともに、地下水試料を採取してその地球化学特性、同位体特性を分析し、断層周辺におけるそれら特性の空間分布を明らかにする。研究サイトでは、JAEA により継続的に地下水の分析が行われていることから、空間分布に加えて、研究坑道掘削に伴う時間変化についてもあわせて検討し、これら特性の空間分布及び時間変化と断層との関係について把握する。

また、断層の水理特性を考慮した水理地質モデルを作成し、地下水流動解析を行う。推定された地下水流動状態に基づいて、塩化物イオンとトリチウムを対象とした物質移行解析を実施し、地下水分析から明らかとなったこれら特性の空間分布や時間変化と比較した。

#### 4.1.1 地下水の物理化学パラメータ，地球化学特性，同位体特性の空間分布と時間変化の把握

JAEA 瑞浪超深地層研究所の研究坑道において、深度 200m, 300m, 400m, 500m の各ステージから掘削された 5 本のボーリング孔で、12 の採水区間から地下水試料を採取した。研究坑道におけるボーリング孔の位置を図 18 に示す。また、各孔の概要と採水区間を表 3 にまとめる。

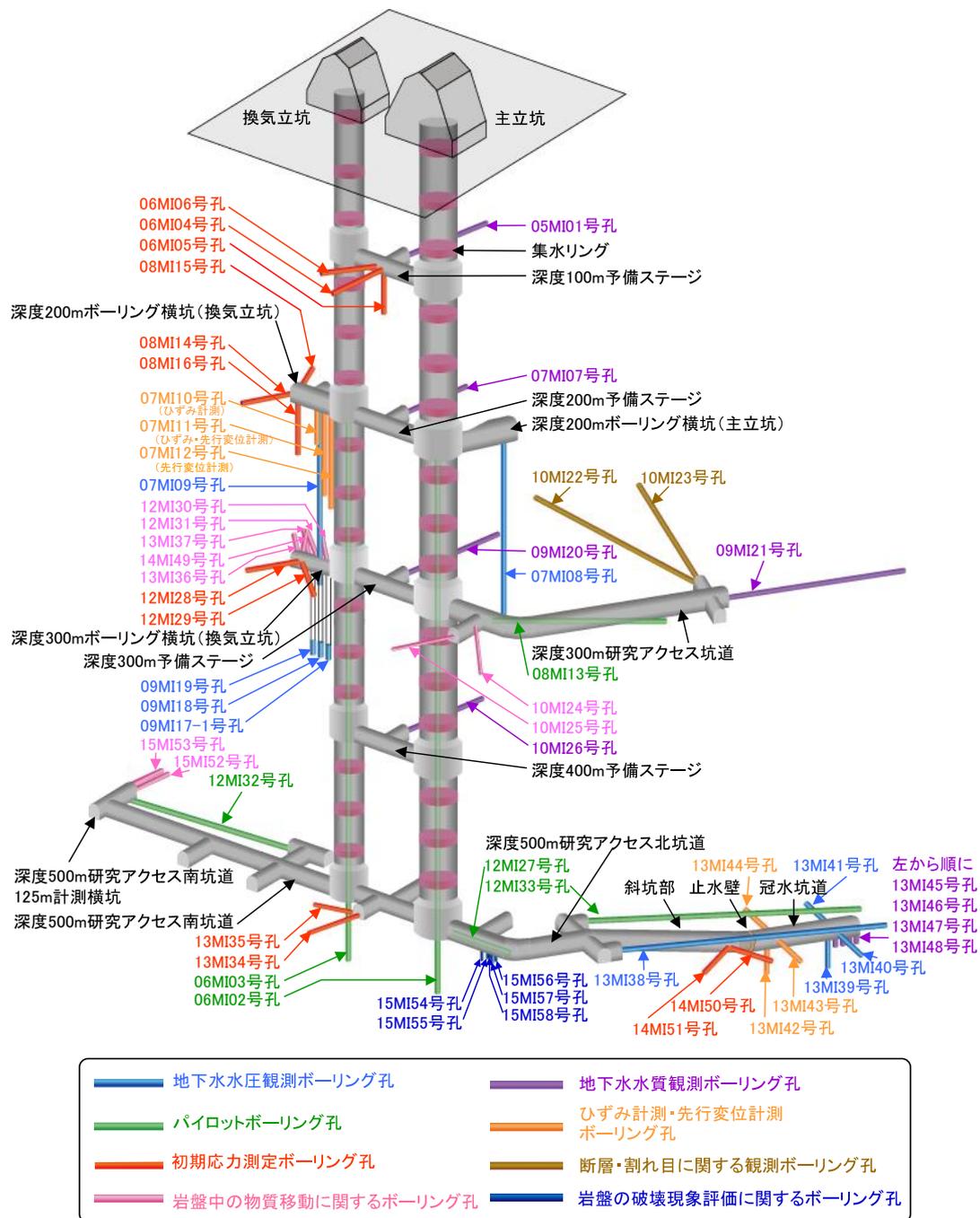


図 18 JAERI 瑞浪超深地層研究所の研究坑道とボーリング孔の配置(濱ほか, 2016)

表 3 地下水試料を採取したボーリング孔の概要と採水区間

深度	ボーリング孔	概要	採水区間	出典
200m	07MI07	方位:N62.23° W 傾斜:-4.61° 掘削長:55.30 mabh	区間1:48.11~55.30 mabh 区間3:31.27~37.79 mabh 区間5:16.93~25.95 mabh	上野ほか, 2012 大森ほか, 2014
300m	09MI20	方位:N56.71° W 傾斜:-2.98° 掘削長:102.00 mabh	区間1:96.08~101.90 mabh 区間3:58.74~83.76 mabh 区間5:19.40~33.92 mabh	上野ほか, 2012 大森ほか, 2014
400m	10MI26	方位:N50° W 傾斜:+2° 掘削長:70.60 mabh	区間1:52.79~70.60 mabh 区間3:37.89~49.64 mabh 区間5:9.99~29.24 mabh	上野ほか, 2012 大森ほか, 2014
500m	12MI33	方位:N10.23° W 傾斜:-3.0° 掘削長:107.00 mabh	区間1:105.43~107.00 mabh	黒岩ほか, 2015 大森ほか, 2014
	13MI38	方位:N10.23° W 傾斜:-3.0° 掘削長:102.10 mabh	区間1:90.41~102.10 mabh 区間5:37.61~49.36 mabh	黒岩ほか, 2015 長谷川ほか, 2015

採水したこれらのボーリング孔ではポンプ等を使用しなくても地下水が流出する。そのため、井戸口元の採水ポートに採水用チューブを接続して容器に導くことで、各種物理化学パラメータの測定と地下水試料のサンプリングを行った。ポータブルメータにより pH, 酸化還元電位 (ORP), 電気伝導度 (EC), 溶存酸素濃度 (DO), 水温を測定し、各パラメータが安定したのを確認した上で値を記録し、室内での分析に供する地下水試料を採取した。採取した地下水試料は、主要溶存成分、アルカリ度、微量元素、水素酸素同位体比、溶存ガス、トリチウム、SF<sub>6</sub>、フロンガス (CFC) を分析するための地下水試料である。各試料の採取方法について、表 4 にまとめる。

表 4 分析用地下水試料の採取方法の概要

分析項目	採取容器	水試料による共洗い	ろ過	その他留意点
主要溶存成分	50mLポリびん	○(3回)	○	気泡を含まないように採取
アルカリ度	100mLポリびん	×	×	気泡を含まないように採取
微量元素	50mLポリびん	○(3回)	○	60%硝酸を2mL添加
水素酸素同位体比	20mLガラスバイアル	○(3回)	○	気泡を含まないように採取
溶存ガス	50mLガラスバイアル	○(外側を軽く流す程度)	×	水中でセプタムを載せ、取り出した後にアルミキャップを載せてクリンパーで密封
トリチウム	1Lポリびん	×	×	オーバーフローさせずにチューブを引き抜く
SF <sub>6</sub>	1Lメジュームびん	○(外側を軽く流す程度)	×	水中で蓋を締め、容器内に気泡が残らないことを確認
CFC	125mLガラスびん	○(外側を軽く流す程度)	×	水中で蓋を締め、容器内に気泡が残らないことを確認

採取した各試料の分析方法について以下にまとめる。

#### 主要溶存成分

主要溶存成分の分析にはイオンクロマトグラフを用いた。濃度既知の標準溶液の分析を行い、クロマトグラムにおける各イオンのピーク面積と濃度の関係から検量線を作成した。同様に

未知試料を分析し(検量線の濃度範囲から外れる場合は希釈して再分析), クロマトグラムにおけるピーク面積を求め, 検量線を用いて各イオンの濃度を算出した。分析対象としたイオンは,  $\text{Li}^+$ ,  $\text{Na}^+$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{F}^-$ ,  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{Br}^-$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{NO}_2^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{PO}_4^{3-}$ である。

### アルカリ度

アルカリ度は硫酸水溶液の滴定により求めた。0.01Mの硫酸水溶液を調製し, デジタルビュレットを用いて50mLの地下水試料に滴下することで, 試料水のpHを4.8とするのに必要な硫酸水溶液の体積を求め, アルカリ度を算出した。アルカリ度は全て重炭酸イオンによるものと仮定し, アルカリ度から重炭酸イオン濃度に換算した。

### 微量元素

微量元素の分析には誘導結合プラズマ質量分析装置(ICP-MS)を用いた。濃度既知の標準溶液の分析を行い, カウント数と濃度の関係から検量線を作成した。同様に希釈した未知試料を分析し, 得られたカウント数と検量線から各元素の濃度を算出した。分析対象とした元素はLi, B, Na, Mg, Al, Si, P, K, Ca, Sc, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, Ga, Ge, As, Se, Rb, Sr, Y, Zr, Mo, Ag, Cd, Sn, Sb, Cs, Ba, La, Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu, W, Pb, Uである。

### 水素酸素同位体比

水の水素酸素同位体比はキャピティリングダウン分光法により分析した。採取した地下水試料を2mLバイアルに分取して分析装置にセットした。未知試料とあわせて水素酸素同位体比が既知の標準試料の分析を行い, 分析値と標準試料の水素酸素同位体比の関係から検量線を作成した。検量線を用いて未知試料の分析値を補正することで, 採取した地下水試料の水素酸素同位体比を求めた。得られた水素酸素同位体比はV-SMOWからの偏差(単位‰)として表した。

### トリチウム

トリチウムの分析は文部科学省の方法(文部科学省, 2002)に準拠し, 液体シンチレーション法で分析した。採取した地下水試料はロータリーエバポレータを用いて蒸留し, 固体高分子電解質膜を備えた電解濃縮装置によりトリチウムを濃縮した。再度ロータリーエバポレータによる蒸留を行った後, 濃縮水約40gと液体シンチレータ約80gを混合し, 低バックグラウンド型の液体シンチレーションカウンターを用いてトリチウムの崩壊で生じる $\beta$ 線を計数した。未知試料と同時に, トリチウムを含まないバックグラウンド試料(京都盆地内の深度1000m程度から採取された温泉水)の分析も行った。未知試料のカウント数からバックグラウンド試料のカウント数を差し引いた上で測定時間で除し, 計数率(単位cpm)を求めた。液体シンチレーション測定で記録される外部標準チャンネル比(ESCR)と計数効率の関係であるクエンチング補正曲線を用

いて、未知試料の液体シンチレーション測定時に記録された ESCR から各試料測定時の計数効率を求め、測定結果を補正した。さらに、トリチウム濃度既知の標準水の電解濃縮を行い、同様に液体シンチレーション測定を行うことで、電解濃縮による濃縮率を算出し、未知試料の液体シンチレーション測定結果を除することで電解濃縮前のトリチウム濃度を求めた。さらに、試料採取時点から分析までの時間経過による濃度低下を考慮し、最終的に試料採取時点での地下水試料のトリチウム濃度を算出した。

## 六フッ化硫黄

地下水試料の六フッ化硫黄(SF<sub>6</sub>)濃度を、平成 26 年度に作製した分析システムを用いてパーミアントラップ GC-ECD 法で分析した。なお、瑞浪で採取された地下水試料の分析を行うにあたり、作製した分析システムで得られる分析値の妥当性検証のため、同一サンプルを複数の研究機関で分析し分析結果のクロスチェックを行った。また、SF<sub>6</sub>が高い濃度で含まれる実試料でも問題なく分析できることを確認するために、京都盆地内に分布する井戸で採取された地下水試料の分析を行った。クロスチェックと京都地下水の分析結果については、付録で示す。

分析は、濃縮部のベースラインの確認、標準ガスの分析による検量線の作成、抽出部も含めた分析システム全体のベースラインの確認、水試料の分析の流れで行った。まず濃縮部のベースラインを確認するため、エタノールにドライアイスを加えたもの(温度約-70℃)でトラップを冷却し、キャリアガスである窒素ガスを通気した。トラップを閉鎖系とした上で 50℃のホットバスで加熱し、得られたガスを GC-ECD に導入してクロマトグラムにピークが生じないこと、すなわち分析系が SF<sub>6</sub>に関して清浄であることを確認した。次に、容積既知のループに濃度既知の SF<sub>6</sub> 標準ガスを分取し、同様に冷却したトラップで捕集した。トラップを閉鎖系とした上で加熱し、GC-ECD で検出し、SF<sub>6</sub>のピーク面積を求めた。4 種類の容積(0.1mL, 0.25mL, 0.5mL, 0.75mL あるいは 1mL)のループに分取された標準ガスの分析で得られたクロマトグラムにおける SF<sub>6</sub>のピーク面積と、標準ガスに含まれる SF<sub>6</sub>のモル数の関係から検量線を作成した。

抽出部も含む分析システム全体が SF<sub>6</sub>に関して清浄であることを確認するため、脱気瓶内のガスを真空ポンプにより真空引きした上でキャリアガスを流し、冷却したトラップで捕集した。トラップを 50℃で加熱し、脱着したガスを再度別の冷却したトラップで捕集した。トラップを加熱し、脱着したガスを GC-ECD に導入して SF<sub>6</sub>のピークが生じないことを確認した。水試料の分析では、脱気瓶内を真空引きし、陰圧により水試料を脱気瓶内に導入した。脱気瓶に窒素ガスを通気し、バブリングすることで水試料に含まれる SF<sub>6</sub>をキャリアガスに抽出し、ベースライン確認と同様に冷却したトラップによる捕集と加熱による脱着を 2 回繰り返し、得られたガスに含まれる SF<sub>6</sub>を GC-ECD で検出した。クロマトグラムの SF<sub>6</sub>ピークの面積を検量線と比較することで、脱気瓶に導入された水試料に含まれる SF<sub>6</sub>のモル数を算出した。さらに、バブリング終了後、脱気瓶から水試料を排出し、質量を測定した。脱気瓶に導入された水試料に含まれる SF<sub>6</sub>のモル数を水試料の質量で除することで、水試料の SF<sub>6</sub>濃度(単位 fmol/kg)を算出した。

サンプリングの時点では、瓶内が完全に試料水で満たされていることを確認しているものの、分析時には瓶内に気泡が遊離していることが多い。水とガスが平衡状態にある場合、SF<sub>6</sub>のヘンリー定数を考慮すると、SF<sub>6</sub>濃度は水よりもガスで高い。そのため、気泡に含まれるSF<sub>6</sub>のモル数を算出し、水試料のSF<sub>6</sub>濃度を補正した。まず、気泡の直径から体積に換算し、次に、水試料の分析結果とSF<sub>6</sub>のヘンリー定数(Bullister et al., 2002)から気泡のSF<sub>6</sub>濃度を算出し、気泡に含まれるSF<sub>6</sub>のモル数を算出した。瓶内の水量と水のSF<sub>6</sub>濃度から採取した水試料に含まれるSF<sub>6</sub>のモル数を算出し、これに気泡中のSF<sub>6</sub>のモル数を足し合わせた上で水の質量で除することにより、気泡中のSF<sub>6</sub>を考慮した補正SF<sub>6</sub>濃度を算出した。

得られたSF<sub>6</sub>濃度は、涵養温度におけるSF<sub>6</sub>のヘンリー定数(Bullister et al., 2002)を用いて涵養時平衡状態にあった大気中のSF<sub>6</sub>濃度に換算した。さらに、推定される涵養標高からList(1949)に従い大気圧を求め、涵養温度における水蒸気圧(Weiss and Price, 1980)を差し引くことで求めた乾燥大気中の分圧で除することで、涵養時に平衡状態にあった乾燥大気中のSF<sub>6</sub>存在比を算出した。

#### 4.1.2 水理地質モデルの構築及び地下水流動解析、物質移行解析

主立坑断層周辺の地下水流動や物質移行に及ぼす影響を可視化し、地下水流動及び物質移行における主立坑断層の役割を把握する目的で、昨年度より水理地質モデルの構築と地下水流動解析を進めている。本年度は昨年度作成した広域的な水理地質モデル(以下、「広域モデル」という)を用いた地下水流動解析を行った。また、断層周辺の水理地質モデル(以下、「断層モデル」という)を新たに作成し、広域モデルを用いて算出された水頭値を境界条件として地下水流動解析を行った。推定された地下水流動状態に基づいて、岩石との反応性が低い塩化物イオンとトリチウムの物質移行解析を実施した。物質移行解析は次年度実施予定であったが、本年度から先行的に着手した。

##### 広域モデルの概要と地下水流動解析

広域モデルには、昨年度作成した水理地質モデルを使用した。本モデルは、以下のように作成した。

まず、デジタル標高モデル(ASTER GDEM Version 2の北緯35°～36°、東経137°～138°のデータ、NASA and MITI (2011))とGISアプリケーションであるArcGISを使用し、研究所用地を含む日吉川、服洞川、狭間川の集水域を抽出した。モデル化領域は水平方向は抽出された分水界内部に相当する南北8.7km×東西6.6kmの領域、深度方向は標高-1000mまでとした。グリッド数は南北方向46グリッド×東西方向44グリッド×深度方向3グリッドとし、深度方向のグリッド境界は上部から瀬戸層群、瑞浪層群、土岐花崗岩の地質境界とした。なお、地質境界は、地質図やJAEAにより掘削されたボーリング孔における地質柱状図から地質境界の座標を収集し、空間補間することにより推定した。透水係数は小坂ほか(2012)を参考

に、瀬戸層群は  $10^{-5}$ m/s, 瑞浪層群は水平方向  $10^{-7}$ m/s, 鉛直方向  $10^{-9}$ m/s, 土岐花崗岩は  $10^{-7}$ m/s とした。また、地下水流動解析における境界条件は、集水域境界に相当するモデルの北, 東, 西側を不透水境界, 土岐川に対応するモデルの南側を固定水頭境界(標高を固定水頭として設定), 底部を不透水境界, 上部を自由水面境界とした。また、河川を固定水頭境界(標高を固定水頭として設定)とした。涵養量は、宮原ほか(2002), 久保ほか(2013)を参考に、 $3.0 \times 10^{-9}$ m/s として定常解析を行った。

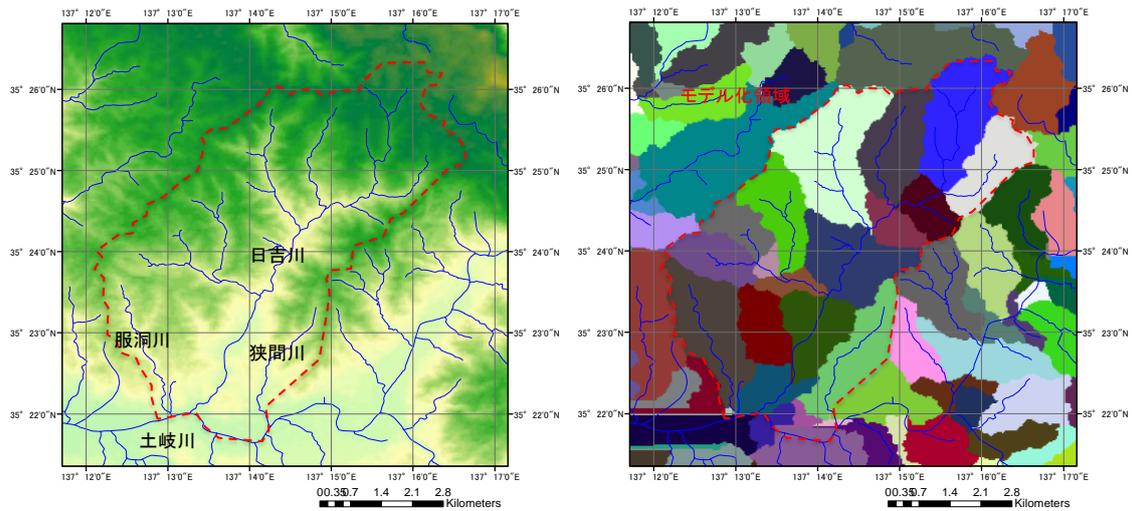


図 19 デジタル標高モデル(左)から抽出された集水域とモデル化領域(右)

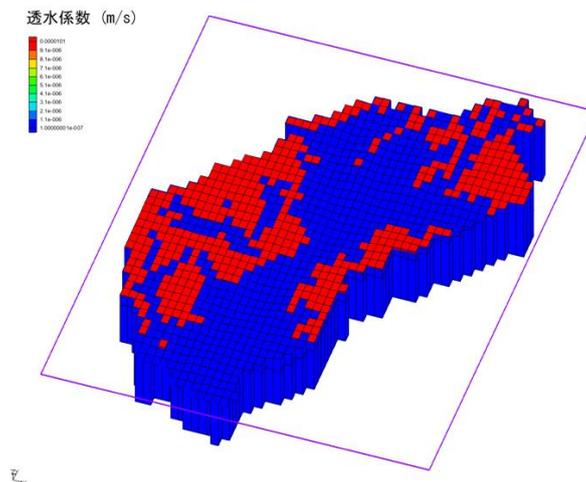


図 20 広域モデルの鳥瞰図

色はグリッドの透水係数を示し、赤が  $10^{-5}$ m/s(瀬戸層群), 青が  $10^{-7}$ m/s(瑞浪層群, 土岐花崗岩, ただし瑞浪層群は透水異方性を考慮し, 鉛直方向の透水係数を  $10^{-9}$ m/s に設定している)

## 断層モデルの作成と地下水流動解析

断層周辺の領域を細かいグリッドに分割した断層モデルを作成し、地下水流動解析を行った。断層モデルのモデル化領域は、広域モデルを用いた地下水流動解析で算出された水頭分布における水頭の等値線などから設定した(図 21)。境界条件は、モデルの北東側境界と南西側境界の一部は、広域モデルを用いた解析で得られた水頭を固定水頭で与えた。底部は不透水境界として、上部は自由水面境界として設定した。モデル化領域内の河川は標高を固定水頭として与えた。モデル化領域は東西 2.0km, 南北 2.3km であり、この領域を断層の走向方向に 100 グリッド, 断層の走向に直交する方向に 70 グリッド, 深度方向に 31 グリッドに分割した。特に断層近傍は断層に直交する方向のグリッド間隔を小さく設定した。深度方向に 1 層目を瀬戸層群, 2~11 層目を瑞浪層群, 12~21 層目を上部割れ目帯, 22~31 層目を下部の割れ目が少ない領域とした。透水係数は小坂ほか(2012)を参考に設定し、瀬戸層群, 瑞浪層群の透水係数は広域モデルと同様とした。土岐花崗岩については、上部割れ目帯を  $10^{-7}$ m/s, 下部を  $10^{-8}$ m/s とした。さらに、断層周辺は厚さ 10m の断層コアの両側に、厚さ 22~23m のダメージゾーンが分布するように設定した。透水係数は断層コアで  $10^{-11}$ m/s, ダメージゾーンで  $10^{-5}$ m/s とした。

## 物質移行解析

地下水流動解析で得られた地下水流動状態に基づいて、塩化物イオンとトリチウムの物質移行解析を行った。塩化物イオン濃度については、坑道建設前は深度方向に増加する濃度分布となっていたことが知られている(Iwatsuki et al., 2005)。そのため、深度方向に濃度が上昇するような初期条件とし、モデル上面から浸透する降水の塩化物イオン濃度は 0 とした。さらに、研究坑道からの排水を考慮した。研究坑道における湧水量は、主立坑から伸びる深度 300m 研究アクセス坑道と、換気立坑の深度 180m 付近で多いことが知られている(萩原ほか, 2015)。そのため、排水箇所は主立坑の深度 300m 地点, 換気立坑の深度 180m 地点で全ての湧水が生じると仮定した。湧水量は萩原ほか(2015)を参考に、 $1.36 \times 10^5$ m<sup>3</sup>/年と設定した。

トリチウムについては、1950 年までを大気中核実験など人為起源トリチウムの影響がない期間とし、瑞浪地域のバックグラウンドトリチウム濃度を 3TU と仮定して 1000 年間降水が浸透した場合のトリチウム濃度分布を求めた。次に、1950 年以降は大気中核実験の影響による降水のトリチウム濃度の上昇を考慮して地下水のトリチウム濃度の空間分布を求めた。ここで、降水のトリチウム濃度データとしては、Kashiwara et al. (2014)がコンパイルしたものをを用いた。本データは、国際原子力機関(IAEA)の Global Network of Isotopes in Precipitation (GNIP)によるワシントン D.C. (1960 年以前), 東京(1961 年~1978 年), 綾里(1979 年~1986 年前半及び 1998 年~2006 年)での測定値と、放射線医学総合研究所による千葉(1986 年後半~1997 年)での測定値を統合したものである。さらに、2000 年台以降は塩化物イオンと同様に研究坑道からの排水についても考慮して地下水のトリチウム濃度の空間分布を求めた。

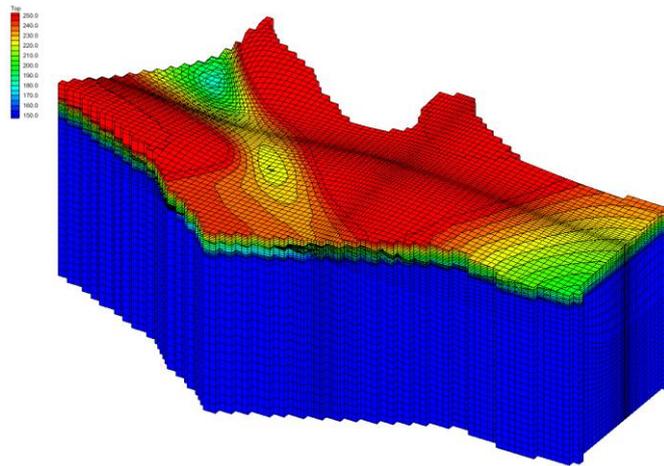
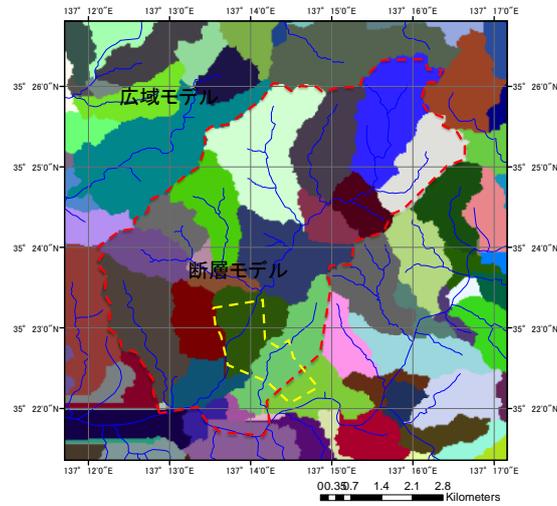


図 21 断層モデルのモデル化領域(上)および断層モデルの鳥瞰図(下)

## 4.2 平成 28 年度の成果内容

### 4.2.1 地下水の物理化学パラメータ，地球化学特性，同位体特性の空間分布の把握

#### 4.2.1.1 物理化学パラメータの原位置測定及び地下水試料の分析結果

表 5 に原位置で測定された地下水の物理化学パラメータを示す。pH は全区間で中性～弱アルカリ性となり，浅部でやや pH が高く，深度 400m ステージで pH が低い傾向が認められた。EC と水温は共に深部で高い。また，ORP は銀-塩化銀電極で測定しており，標準水素電極に

よる酸化還元電位に換算した  $E_{N.H.E.}$  は  $-102 \sim 36.6 \text{ mV}$  の範囲、DO は  $0.09 \sim 0.43 \text{ mg/L}$  の範囲となった。 $E_{N.H.E.}$  および DO の深度依存性は明確でない。

表 5 研究坑道で試料採取時に測定された地下水試料の物理化学パラメータ

深度	ボーリング孔	区間	試料採取日	pH	EC	水温	ORP	$E_{N.H.E.}$	DO
					mS/m	°C	mV	mV	mg/L
200m	07MI07	1	2016/9/9	8.72	37.3	22.3	-254	-46.1	0.12
	07MI07	3	2016/9/9	8.83	49.0	22.3	-291	-83.1	0.10
	07MI07	5	2016/9/9	8.78	56.2	22.2	-310	-102	0.09
300m	09MI20	1	2016/9/9	8.34	37.4	23.8	-269	-62.2	0.11
	09MI20	3	2016/9/9	8.34	40.9	23.9	-274	-67.2	0.09
	09MI20	5	2016/9/9	8.34	37.2	23.4	-289	-81.9	0.12
400m	10MI26	1	2016/9/8	7.53	47.9	25.5	-274	-68.4	0.15
	10MI26	3	2016/9/8	7.54	55.3	25.2	-234	-28.1	0.31
	10MI26	5	2016/9/8	8.16	45.9	24.8	-305	-98.9	0.12
500m	12MI33	1	2016/9/8	8.32	142.5	28.1	-299	-95.2	0.13
	13MI38	1	2016/9/8	8.20	141.5	28.1	-279	-75.2	0.18
	13MI38	5	2016/9/8	8.19	240.0	28.4	-167	36.6	0.43

主要溶存イオンの分析結果を表 6 に示す。陽イオン、陰イオンの電荷バランスの指標であるイオンバランスは全ての試料で  $\pm 5\%$  以下 (09MI20 号孔の区間 1 を除いては  $\pm 3\%$  以下) となり、問題なく分析が行われたと考えることができる。イオンにより、(1) 浅部で相対的に濃度が低く、深部で濃度が高いもの、(2) 浅部で相対的に濃度が高く、深部で濃度が低いもの、(3) ほぼ全ての採水区間で検出限界以下のもの、の 3 グループに分けることができる。各グループのイオンは以下の通りである。

- (1)  $\text{Na}^+$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{Br}^-$ ,  $\text{Mg}^{2+}$
- (2)  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{F}^-$ ,  $\text{HCO}_3^-$
- (3)  $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{NO}_2^-$ ,  $\text{PO}_4^{3-}$

図 19 に主要溶存イオンの分析結果から作成した Piper ダイアグラムを、図 20 に Stiff ダイアグラムを示す。陽イオン組成については Na イオンが主であるが、深度 500m から採取した地下水試料の一部で Ca イオンの比率が高いことがわかる。陰イオン組成については、Cl イオンと  $\text{HCO}_3^-$  イオンが主である。特に深度 300m の試料で  $\text{HCO}_3^-$  イオン濃度が高く、深度 500m の試料では Cl イオンが主要な陰イオンとなることがわかる。

表 6 採取した地下水試料の分析結果

深度	ボーリング孔	区間	試料採取日	Na <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>
				mg/L	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L
200m	07MI07	1	2016/9/9	69.2	0.4	8.2	0.1	ND
	07MI07	3	2016/9/9	87.1	0.5	11.7	0.1	ND
	07MI07	5	2016/9/9	97.7	0.5	13.8	0.1	ND
300m	09MI20	1	2016/9/9	70.7	0.4	7.3	0.1	ND
	09MI20	3	2016/9/9	75.1	0.5	8.6	0.2	ND
	09MI20	5	2016/9/9	71.5	0.4	7.4	0.1	ND
400m	10MI26	1	2016/9/8	87.7	0.7	10.0	0.4	ND
	10MI26	3	2016/9/8	99.4	0.8	13.3	0.6	ND
	10MI26	5	2016/9/8	84.1	0.6	10.4	0.3	ND
500m	12MI33	1	2016/9/8	180.6	1.0	87.3	0.2	ND
	13MI38	1	2016/9/8	180.3	1.0	85.1	0.2	ND
	13MI38	5	2016/9/8	248.4	1.3	215.8	0.3	ND

深度	ボーリング孔	区間	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	F	Cl <sup>-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	NO <sub>2</sub> <sup>-</sup>	Br <sup>-</sup>	PO <sub>4</sub> <sup>3-</sup>	アルカリ度	HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	イオンバランス
			mg/L	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L	meq/L	mg/L
200m	07MI07	1	10.55	10.12	59.73	ND	ND	0.13	ND	1.10	67.36	-1.51
	07MI07	3	8.42	9.54	99.74	ND	ND	0.21	ND	0.90	54.67	0.07
	07MI07	5	7.18	9.56	122.56	ND	ND	0.26	ND	0.70	42.96	1.47
300m	09MI20	1	16.81	8.79	50.35	ND	ND	0.11	ND	1.46	88.84	-3.17
	09MI20	3	12.85	9.67	64.47	ND	ND	0.14	ND	1.26	76.88	-1.69
	09MI20	5	16.93	8.92	51.51	ND	ND	0.11	ND	1.42	86.40	-2.67
400m	10MI26	1	13.39	9.46	84.39	ND	ND	0.18	ND	1.28	77.86	-0.80
	10MI26	3	9.80	9.11	99.60	ND	ND	0.21	ND	1.55	94.46	0.11
	10MI26	5	12.40	9.61	79.82	ND	ND	0.17	ND	1.25	76.39	-0.59
500m	12MI33	1	ND	6.32	394.14	ND	ND	0.77	ND	0.36	21.97	1.84
	13MI38	1	ND	6.17	392.93	ND	ND	0.73	ND	0.35	21.23	1.56
	13MI38	5	ND	5.02	742.51	ND	ND	1.31	ND	0.24	14.40	0.44

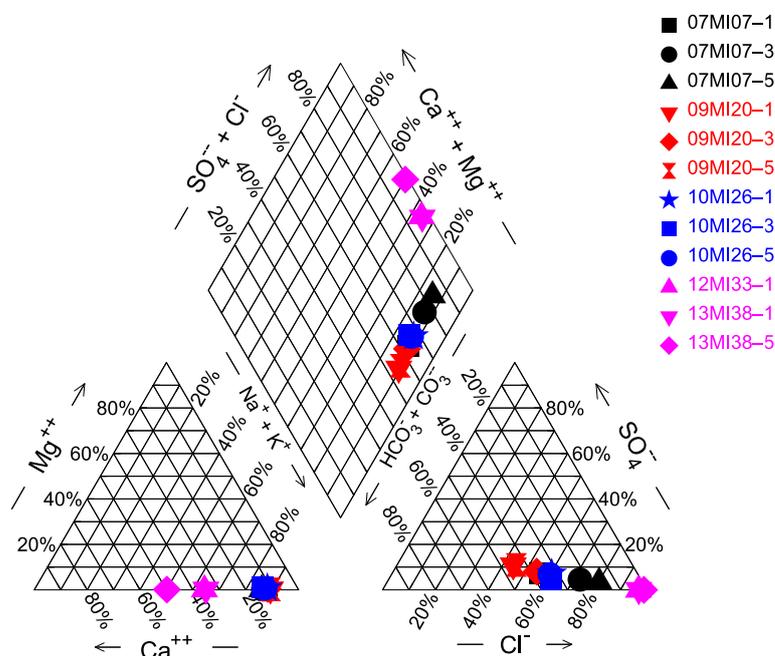


図 22 地下水の主要溶存イオンの Piper ダイアグラム(孔名の後の数字は採水区間を示す)

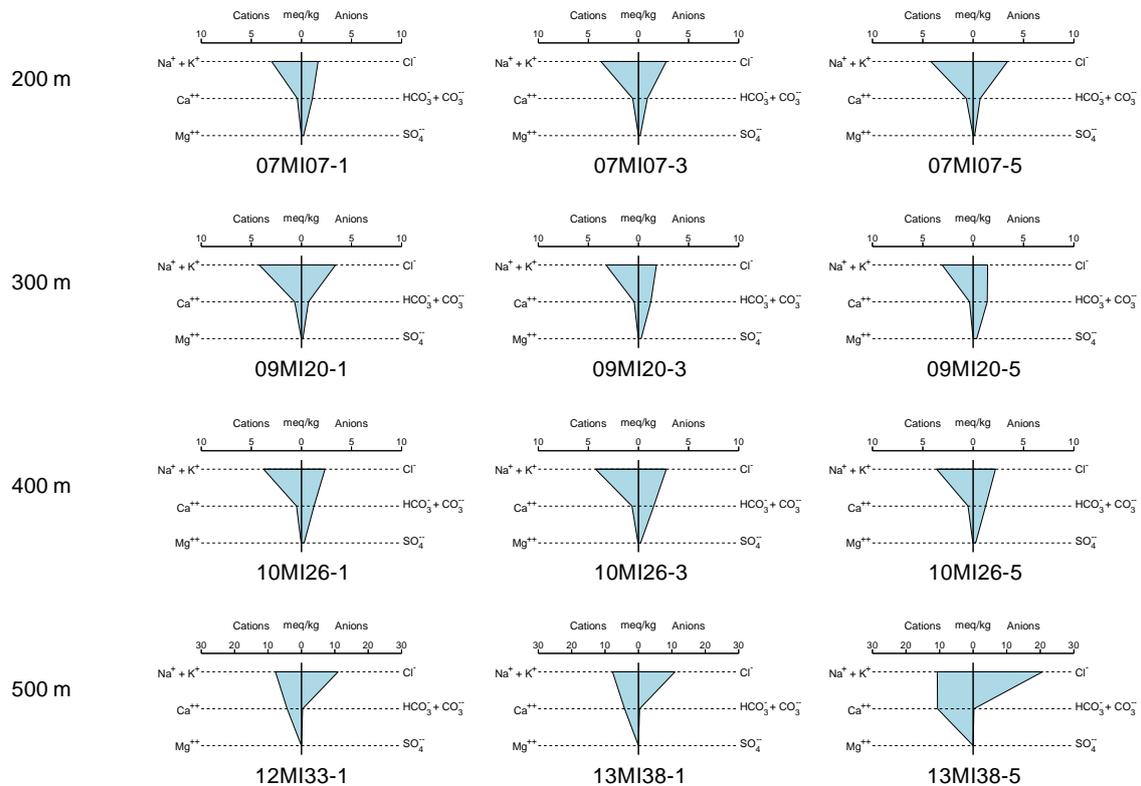


図 23 地下水の主要溶存イオンの Stiff ダイアグラム(孔名の後の数字は採水区間を示す)

次に、微量元素の分析結果を表 7 に示す。元素により、(1)浅部で相対的に濃度が低く、深部で濃度が高いもの、(2)浅部で相対的に濃度が高く、深部で濃度が低いもの、(3)深度依存性が明確でないもの、(4)ほぼ全ての採水区間で検出限界以下のもの、の 4 グループに分けることができる。各グループの元素は以下の通りである。

- (1) Li, B, Na, Mg, K, Ca, Cr, Mn, Fe, Rb, Sr, Mo, Cs, Ba, La, Ce, Nd, Tm
- (2) Ga, Ge, Sn
- (3) Al, Si, Ti, V, As, Y, Zr, Sb, Gd, Tb, Ho, Yb, Lu, W, Pb, U, Zn
- (4) P, Sc, Co, Ni, Cu, Se, Ag, Cd, Pr, Sm, Eu, Dy, Er

表 7 微量元素濃度の分析結果

深度	ボーリング孔	区間	試料採取日	Li	B	Na	Mg	Al	Si	P	K	Ca	Sc	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni
				ppb	ppb	ppb	ppb	ppb	ppb	ppb	ppb	ppb	ppb	ppb	ppb	ppb	ppb	ppb	ppb	ppb
200m	07MI07	1	2016/9/9	40.84	1243	65347	83	8.2	5943	<12	443	8341	<0.04	0.42	0.02	0.082	1.789	0.9	<0.007	<0.02
	07MI07	3	2016/9/9	42.50	1208	83727	81	8.2	5868	<12	476	12190	<0.04	0.33	0.02	0.111	2.121	4.9	<0.007	<0.02
	07MI07	5	2016/9/9	46.21	1166	92309	67	7.2	5741	<12	516	13963	<0.04	0.41	0.01	0.124	1.773	1.3	<0.007	0.11
300m	09MI20	1	2016/9/9	39.09	1041	67639	94	8.4	6066	<12	403	7819	<0.04	0.42	0.02	0.082	2.250	1.2	0.039	<0.02
	09MI20	3	2016/9/9	40.22	1186	71122	207	9.8	5962	<12	534	9339	<0.04	0.38	0.02	0.089	3.178	6.6	<0.007	<0.02
	09MI20	5	2016/9/9	38.62	1065	74374	135	9.3	6728	<12	457	8790	<0.04	0.34	0.01	0.148	2.555	2.9	<0.007	<0.02
400m	10MI26	1	2016/9/8	48.88	1348	85152	399	10.5	6117	<12	666	10680	<0.04	0.31	0.01	0.169	7.114	7.2	0.057	<0.02
	10MI26	3	2016/9/8	51.91	1250	95646	540	8.0	6219	<12	744	13331	<0.04	0.42	0.02	0.104	13.955	8.4	<0.007	<0.02
	10MI26	5	2016/9/8	46.12	1216	79541	266	8.4	5853	<12	607	10572	<0.04	0.40	0.01	0.093	6.042	2.8	<0.007	<0.02
500m	12MI33	1	2016/9/8	154.09	1739	173727	156	10.1	5925	<12	1031	89261	<0.04	0.57	0.02	0.324	10.309	2.5	<0.007	<0.02
	13MI38	1	2016/9/8	154.77	1723	168766	153	18.5	5808	<12	1062	87024	<0.04	<0.04	0.03	0.334	11.277	5.6	<0.007	0.42
	13MI38	5	2016/9/8	236.15	1971	240142	328	8.3	5986	<12	1517	223361	<0.04	0.48	0.05	0.375	25.345	8.7	<0.007	<0.02
深度	ボーリング孔	区間	試料採取日	Cu	Zn	Ga	Ge	As	Se	Rb	Sr	Y	Zr	Mo	Ag	Cd	Sn	Sb	Cs	Ba
				ppb	ppb	ppb	ppb	ppb	ppb	ppb	ppb	ppb	ppb	ppb	ppb	ppb	ppb	ppb	ppb	ppb
200m	07MI07	1	2016/9/9	<0.03	0.9	0.477	17.61	0.06	<0.01	2.11	79.6	0.052	0.12	1.7	<0.007	<0.00	0.016	0.010	0.4534	0.382
	07MI07	3	2016/9/9	<0.03	<0.1	0.464	13.92	0.04	<0.01	2.54	116.4	0.045	0.06	1.9	<0.007	<0.00	0.018	0.006	0.5561	0.629
	07MI07	5	2016/9/9	<0.03	3.1	0.485	12.76	0.06	0.09	2.81	138.4	0.028	0.05	2.3	<0.007	<0.00	0.029	0.008	0.6436	0.481
300m	09MI20	1	2016/9/9	<0.03	1.0	0.443	10.87	0.03	<0.01	1.96	75.1	0.080	0.04	1.2	<0.007	<0.00	0.015	0.009	0.4541	0.403
	09MI20	3	2016/9/9	<0.03	34.3	0.343	15.58	0.03	<0.01	2.12	88.6	0.083	0.04	1.4	<0.007	<0.00	0.012	0.038	0.4544	0.532
	09MI20	5	2016/9/9	<0.03	1.0	0.426	11.07	0.02	<0.01	2.08	78.3	0.076	0.05	1.1	<0.007	<0.00	0.011	0.006	0.4634	0.547
400m	10MI26	1	2016/9/8	<0.03	1.9	0.307	13.28	0.04	<0.01	2.53	122.8	0.150	0.04	1.2	<0.007	<0.00	0.020	0.120	0.5552	1.113
	10MI26	3	2016/9/8	<0.03	0.9	0.173	15.87	<0.00	<0.01	2.94	160.3	0.312	<0.01	1.1	<0.007	0.04	0.011	0.037	0.5966	1.495
	10MI26	5	2016/9/8	<0.03	<0.1	0.231	14.74	0.04	<0.01	2.39	116.8	0.150	<0.01	1.3	<0.007	<0.00	0.008	0.013	0.4820	1.059
500m	12MI33	1	2016/9/8	<0.03	<0.1	0.329	8.28	0.07	<0.01	7.47	891.3	0.067	<0.01	2.5	<0.007	<0.00	<0.001	0.015	2.2226	2.848
	13MI38	1	2016/9/8	<0.03	1.6	0.366	8.75	0.07	<0.01	7.82	898.3	0.089	<0.01	2.5	<0.007	0.08	<0.001	0.011	2.1513	2.549
	13MI38	5	2016/9/8	<0.03	<0.1	0.222	9.69	0.05	<0.01	11.26	2229.1	0.071	<0.01	2.0	<0.007	0.08	<0.001	0.019	3.0516	6.877
深度	ボーリング孔	区間	試料採取日	La	Ce	Pr	Nd	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu	W	Pb	U
				ppb	ppb	ppb	ppb	ppb	ppb	ppb	ppb	ppb	ppb	ppb	ppb	ppb	ppb	ppb	ppb	ppb
200m	07MI07	1	2016/9/9	0.0049	0.0112	0.00189	<0.002	<0.004	<0.001	<0.0013	<0.0001	<0.001	0.00112	<0.002	<0.00028	0.008	0.0024	163.11	0.01	0.0061
	07MI07	3	2016/9/9	0.0069	0.0138	<0.00029	<0.002	<0.004	<0.001	0.0076	0.0008	<0.001	<0.00019	<0.002	<0.00028	<0.001	0.0023	130.36	0.02	0.0051
	07MI07	5	2016/9/9	0.0026	<0.0013	<0.00029	0.011	<0.004	<0.001	<0.0013	<0.0001	<0.001	<0.00019	<0.002	<0.00028	<0.001	0.0028	118.48	0.04	<0.0008
300m	09MI20	1	2016/9/9	0.0033	<0.0013	<0.00029	<0.002	<0.004	<0.001	<0.0013	0.0007	0.007	<0.00019	<0.002	<0.00028	<0.001	0.0025	109.29	0.01	0.0060
	09MI20	3	2016/9/9	0.0073	0.0173	<0.00029	0.013	<0.004	<0.001	0.0070	0.017	<0.001	0.00264	<0.002	0.00218	<0.001	<0.0004	146.00	0.03	0.0082
	09MI20	5	2016/9/9	0.0049	0.0102	<0.00029	<0.002	<0.004	<0.001	<0.0013	0.0011	<0.001	0.00132	<0.002	<0.00028	0.008	<0.0004	119.01	0.07	0.0087
400m	10MI26	1	2016/9/8	0.0115	0.0260	0.00306	0.018	<0.004	<0.001	0.0116	0.0027	0.009	0.00381	0.016	0.00254	0.014	0.0046	170.64	0.04	0.0110
	10MI26	3	2016/9/8	0.0204	0.0477	0.00651	0.027	<0.004	<0.001	0.0200	0.0051	0.022	0.00698	0.027	0.00422	0.020	0.0047	170.68	0.02	0.0117
	10MI26	5	2016/9/8	0.0118	0.0242	0.00235	0.027	<0.004	<0.001	0.0078	0.0013	0.011	0.00406	0.014	0.00201	0.009	0.0042	150.89	0.01	0.0082
500m	12MI33	1	2016/9/8	0.0063	0.0181	<0.00029	0.021	<0.004	<0.001	0.0145	0.0032	<0.001	0.00377	<0.002	0.00409	<0.001	<0.0004	111.49	0.03	<0.0008
	13MI38	1	2016/9/8	0.0172	0.0348	<0.00029	0.026	<0.004	<0.001	<0.0013	0.0023	<0.001	0.00291	<0.002	0.00294	0.016	0.0105	109.27	0.04	<0.0008
	13MI38	5	2016/9/8	0.0125	0.0202	<0.00029	0.024	<0.004	<0.001	0.0218	0.0039	<0.001	<0.00019	<0.002	0.00338	<0.001	0.0050	98.36	0.06	<0.0008

水素酸素同位体比は深度 500m の試料で他の深度と比較して軽い同位体比が得られた。水素酸素同位体比の  $\delta$  ダイアグラムにおいて、地下水試料の分析結果は世界天水線 (Craig, 1961) と日本の天水線 (Matsubaya et al., 1973) の間にプロットされ、天水起源の地下水であることを示している。トリチウム濃度は、深度 200m~400m に比べ深度 500m で低い。一方で、SF<sub>6</sub> 濃度は深度 300m から採取した試料で高く、200m~400m と 500m で濃度の違いは認められなかった。

表 8 地下水試料の水素酸素同位体比, トリチウム濃度, SF<sub>6</sub> 濃度分析結果

深度	ボーリング孔	区間	試料採取日	$\delta^{18}\text{O}$	$\delta\text{D}$	T		SF <sub>6</sub>
				‰	‰	T.U.		fmol/kg
200m	07MI07	1	2016/9/9	-8.51	-56.4	0.51	± 0.06	0.24
	07MI07	3	2016/9/9	-8.72	-57.4	-	-	0.37
	07MI07	5	2016/9/9	-8.81	-57.9	-	-	0.47
300m	09MI20	1	2016/9/9	-8.49	-56.3	0.57	± 0.06	1.25
	09MI20	3	2016/9/9	-8.6	-56.8	-	-	0.46
	09MI20	5	2016/9/9	-8.48	-56.1	-	-	1.17
400m	10MI26	1	2016/9/8	-8.62	-56.9	0.49	± 0.06	0.43
	10MI26	3	2016/9/8	-8.75	-57.7	-	-	0.43
	10MI26	5	2016/9/8	-8.6	-57	-	-	0.44
500m	12MI33	1	2016/9/8	-8.97	-59.3	-	-	0.43
	13MI38	1	2016/9/8	-8.93	-59.3	0.03	± 0.06	-
	13MI38	5	2016/9/8	-8.95	-58.3	-	-	0.51

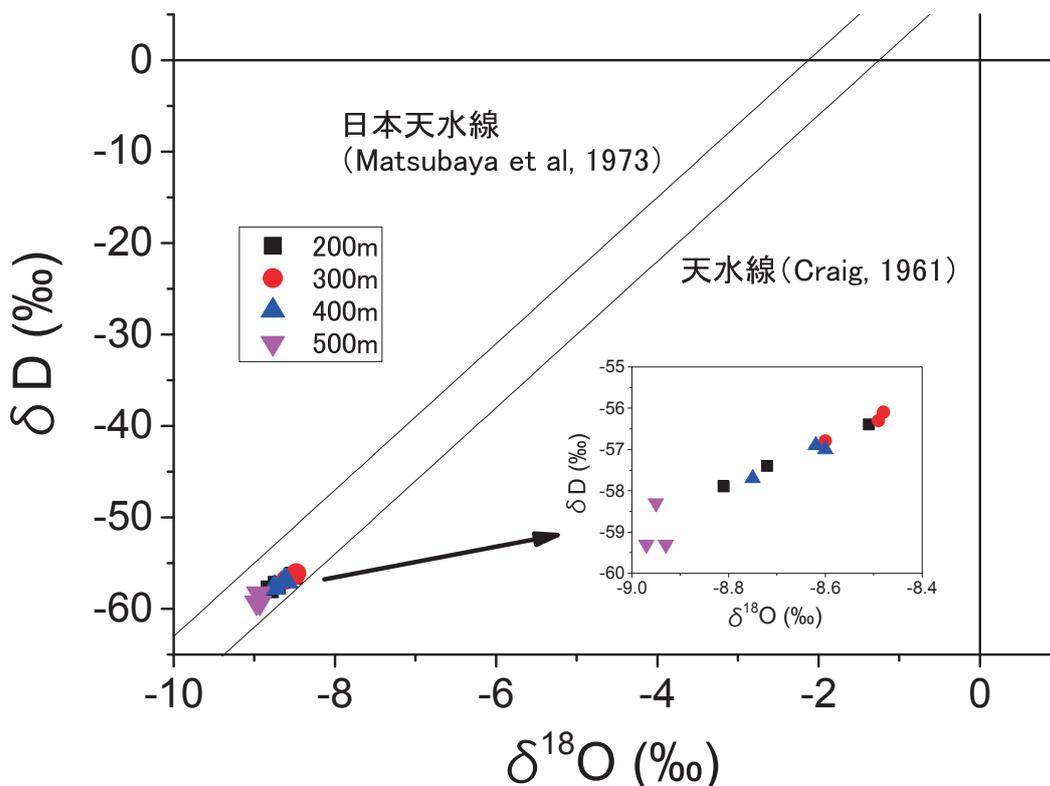


図 24 地下水試料の水素酸素同位体比の  $\delta$  ダイアグラム

立坑掘削に伴う水質分布の経時変化を明らかにするため、今回得られた分析結果と、JAEAにより公開されている地下水の物理化学特性及び地化学特性に関するデータ(齋ほか, 2010; 齋ほか, 2011; 新宮ほか, 2011; 新宮ほか, 2012; 大森ほか, 2013a; 大森ほか, 2013b, 大森ほか, 2014, 林田ほか, 2016)をあわせ、これら特性の時空間変化に関する検討を行った。

図 25 に 2004 年度～2012 年度に立坑周辺で測定された地下水の物理化学パラメータのボックスプロットを示す。また、ボーリング孔の採水区間ごとの物理化学パラメータの時間変化を図 26～30 図に示す。なお、上述のように 07MI07 号孔は立坑内の深度 200m, 09MI20 号孔及び 09MI21 号孔は深度 300m, 10MI26 号孔は深度 400m, 12MI33 号孔は深度 500m の各ステージから横方向に掘削されたボーリング孔であり、MSB-2 号孔, MSB-4 号孔は地表から掘削された鉛直孔である。また、主立孔断層の位置関係に注目すると、07MI07 号孔, 09MI20 号孔, 10MI26 号孔, MSB-2 号孔の各孔は断層の南西側に、09MI21 号孔, 12MI33 号孔, MSB-4 号孔の各孔は断層の北東側に位置する。

pH は坑内で掘削されたボーリング孔(07MI07 号孔, 09MI20 号孔, 09MI21 号孔, 10MI26 号孔, 12MI33 号孔)のうち 09MI21 号孔で高く、分散が大きい、それ以外ではほぼ同程度の値となり、分散が小さい。地表から掘削された MSB-2 号孔と MSB-4 号孔では、中央値は坑内の 09MI21 号孔以外のボーリング孔と同程度であるが、分散が大きい。各ボーリング孔、各採水区間における測定値の経時変化(図 26)から、pH は同じボーリング孔でも採水区間によって異なるが、時間経過に伴う明確な変化傾向は認められない。

EC は、坑内で掘削されたボーリング孔で深部ほど高い値を示す(図 25)。地表から掘削されたボーリング孔では、坑内で比較的浅部に掘削されたボーリング孔(07MI07 号孔, 09MI20 号孔)と同程度かそれよりもやや低い範囲となる。EC では明確な時間変化が認められ、採水区間によって時間とともに EC が上昇する区間、ほとんど変化がない区間、低下する区間が認められた(図 27)。

水温は坑内のボーリング孔では明確な差異は認められないが、MSB-2 号孔と MSB-4 号孔で分散が大きい(図 25)。時間変化では全区間で夏季に水温が高く、冬季に水温が低い傾向が認められる(図 28)。MSB-2 号孔と MSB-4 号孔は地表から掘削されたボーリング孔であるため、気温変化の影響により水温の変化が大きくなっているものと推測される。

$E_{s,H.E.}$  は坑内のボーリング孔では分散が小さく、深部に位置するボーリング孔で高い電位となる(図 25)。MSB-2 号孔と MSB-4 号孔では電位が高く、分散が大きい。坑内で掘削されたボーリング孔では時間とともに  $E_{s,H.E.}$  の上昇が認められる(図 29)。また、MSB-2 号孔と MSB-4 号孔では浅部の採水区間で高い  $E_{s,H.E.}$  を、深部で低い  $E_{s,H.E.}$  を示す。

DO は坑内のボーリング孔では 12MI33 でやや高いが、それ以外の孔では同程度である(図 25)。12MI33 号孔では  $E_{s,H.E.}$  も高く、12MI33 号孔と並行に伸びる深度 500m 研究アクセス北坑道の影響により、DO や  $E_{s,H.E.}$  が高い可能性がある。MSB-2 および MSB-4 は坑内の 12MI33 と同程度の値を示し、やや分散が大きい。時間変化では、坑内のボーリング孔については測定

開始後低下し、その後やや上昇する傾向が認められる(図 30)。MSB-2 と MSB-4 の変化傾向は明確でない。

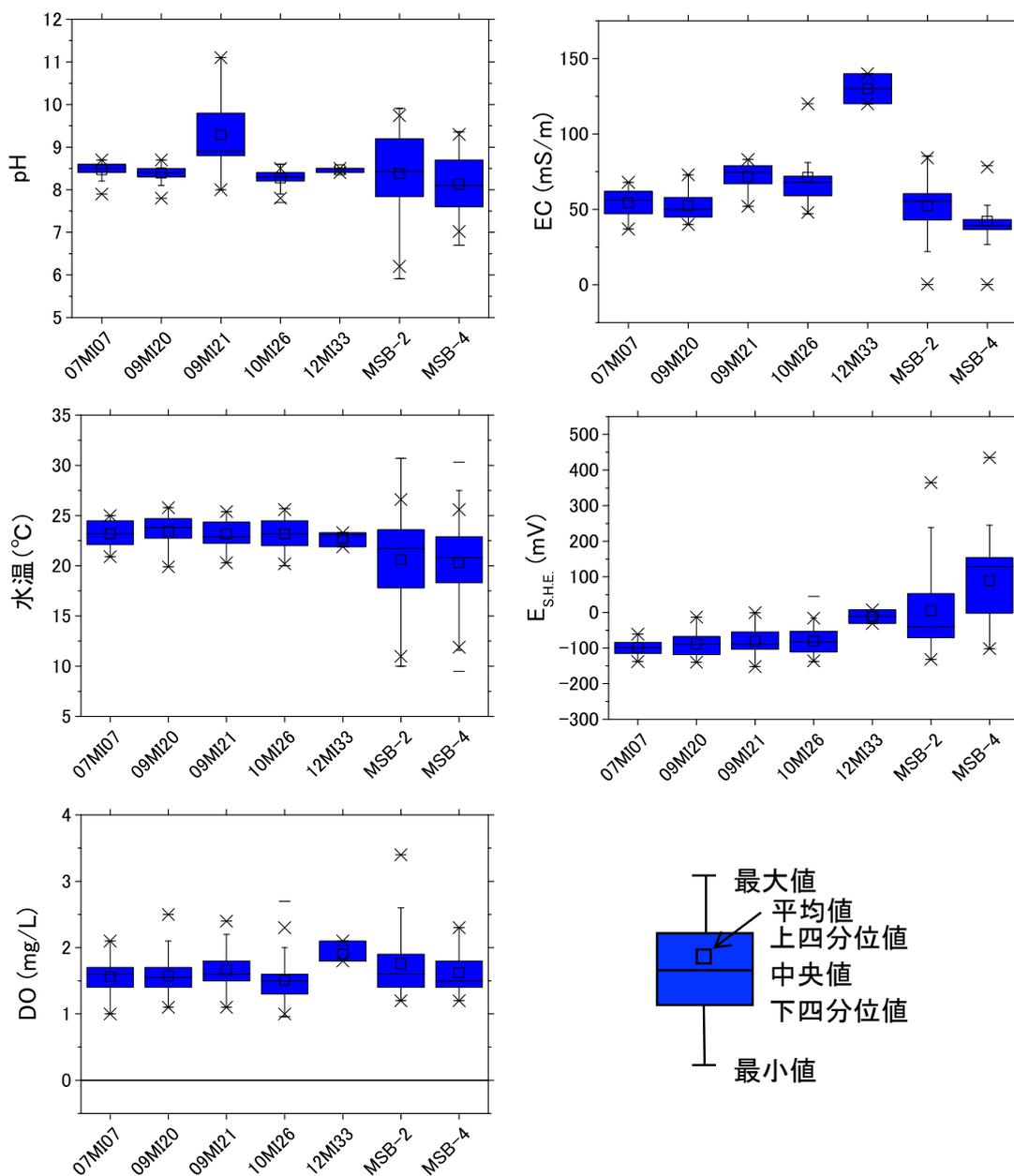


図 25 各ボーリング孔で測定された物理化学パラメータのボックスプロット  
 (齋ほか, 2010; 齋ほか, 2011; 新宮ほか, 2011; 新宮ほか, 2012; 大森ほか, 2013a; 大森ほか, 2013b, から作成)

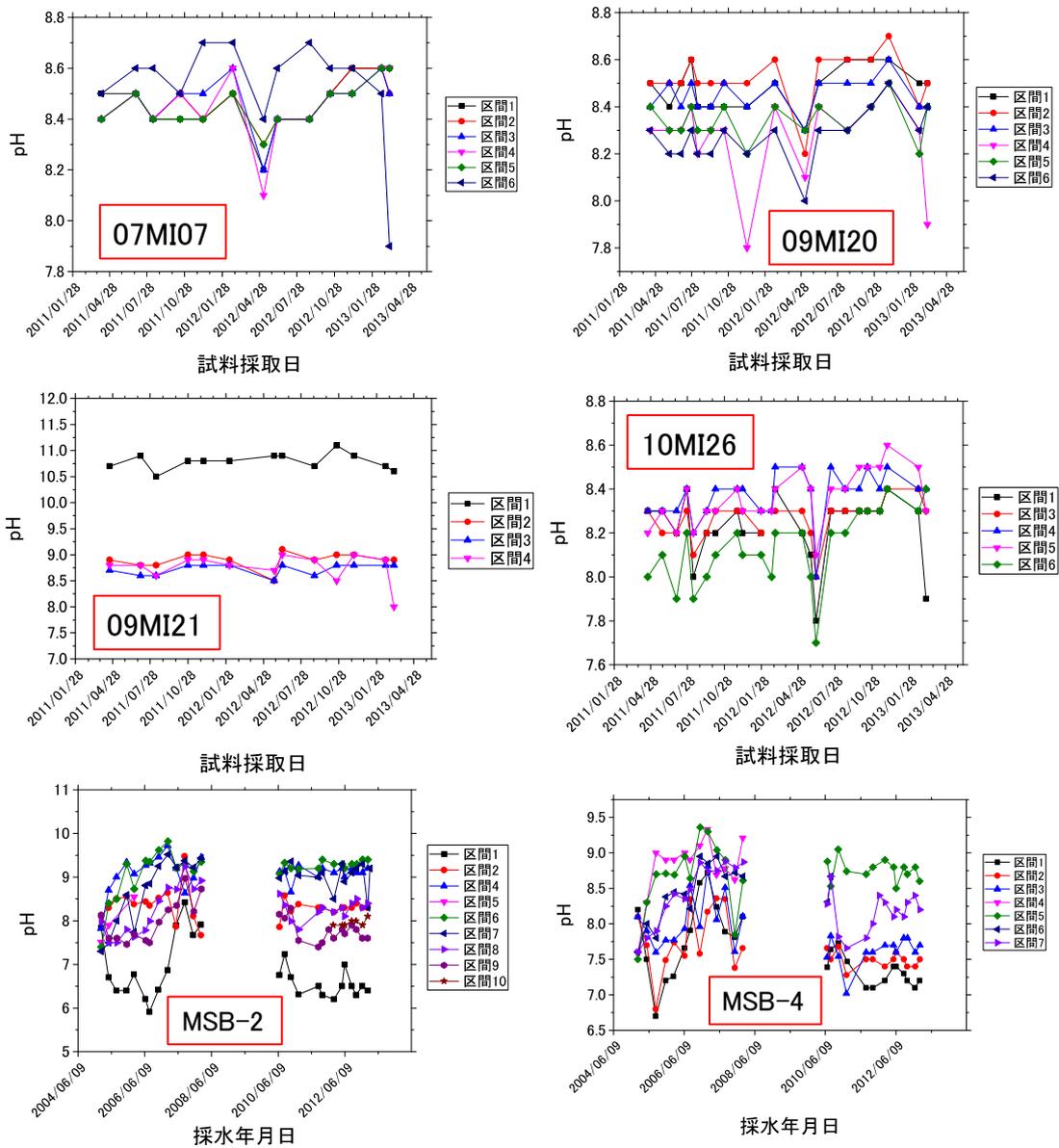


図 26 各ボーリング孔, 採水区間における pH の時間変化

(齋ほか, 2010; 齋ほか, 2011; 新宮ほか, 2011; 新宮ほか, 2012; 大森ほか, 2013a; 大森ほか, 2013b, から作成)

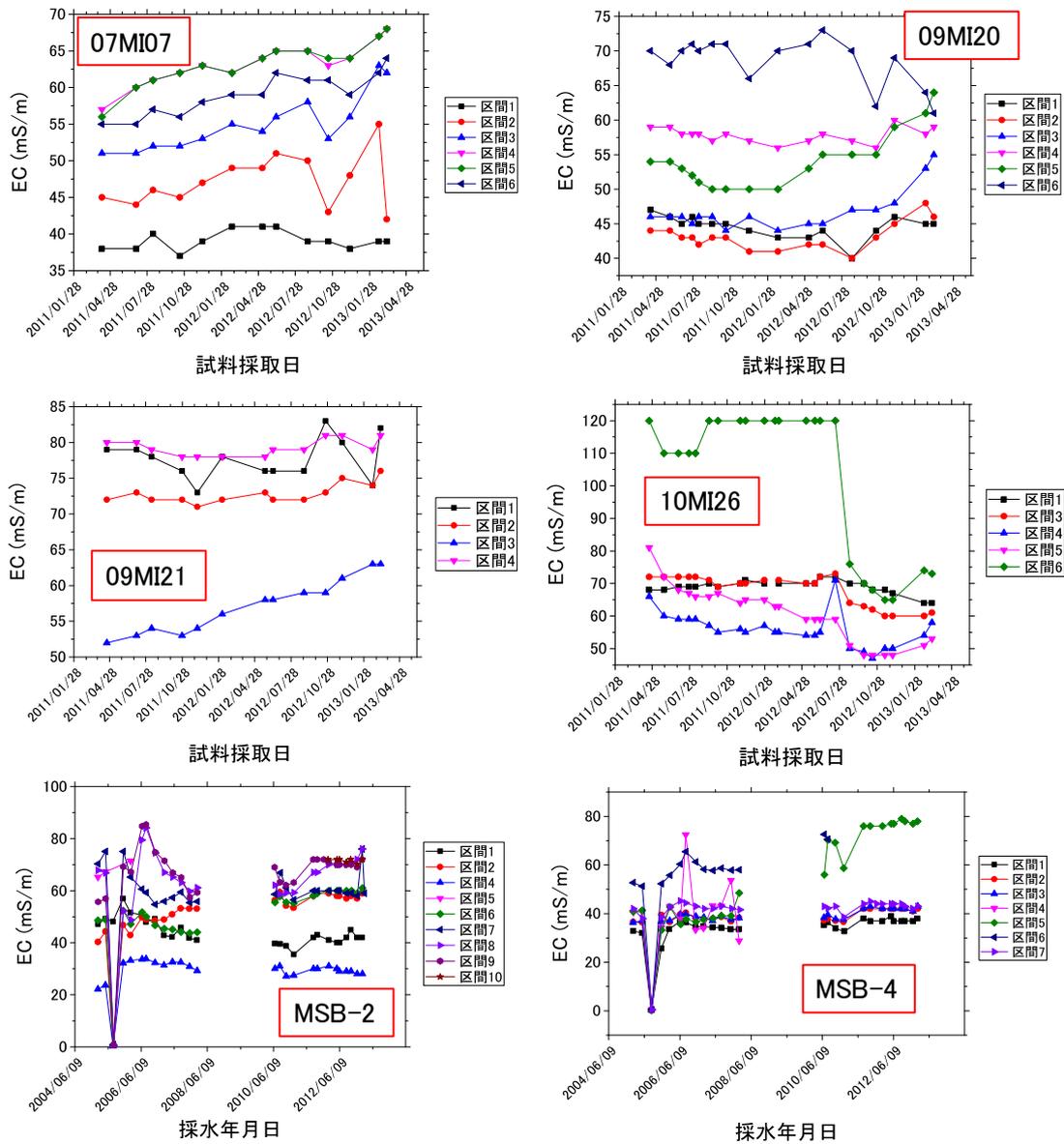


図 27 各ボーリング孔, 採水区間における EC の時間変化

(齋ほか, 2010; 齋ほか, 2011; 新宮ほか, 2011; 新宮ほか, 2012; 大森ほか, 2013a; 大森ほか, 2013b, から作成)

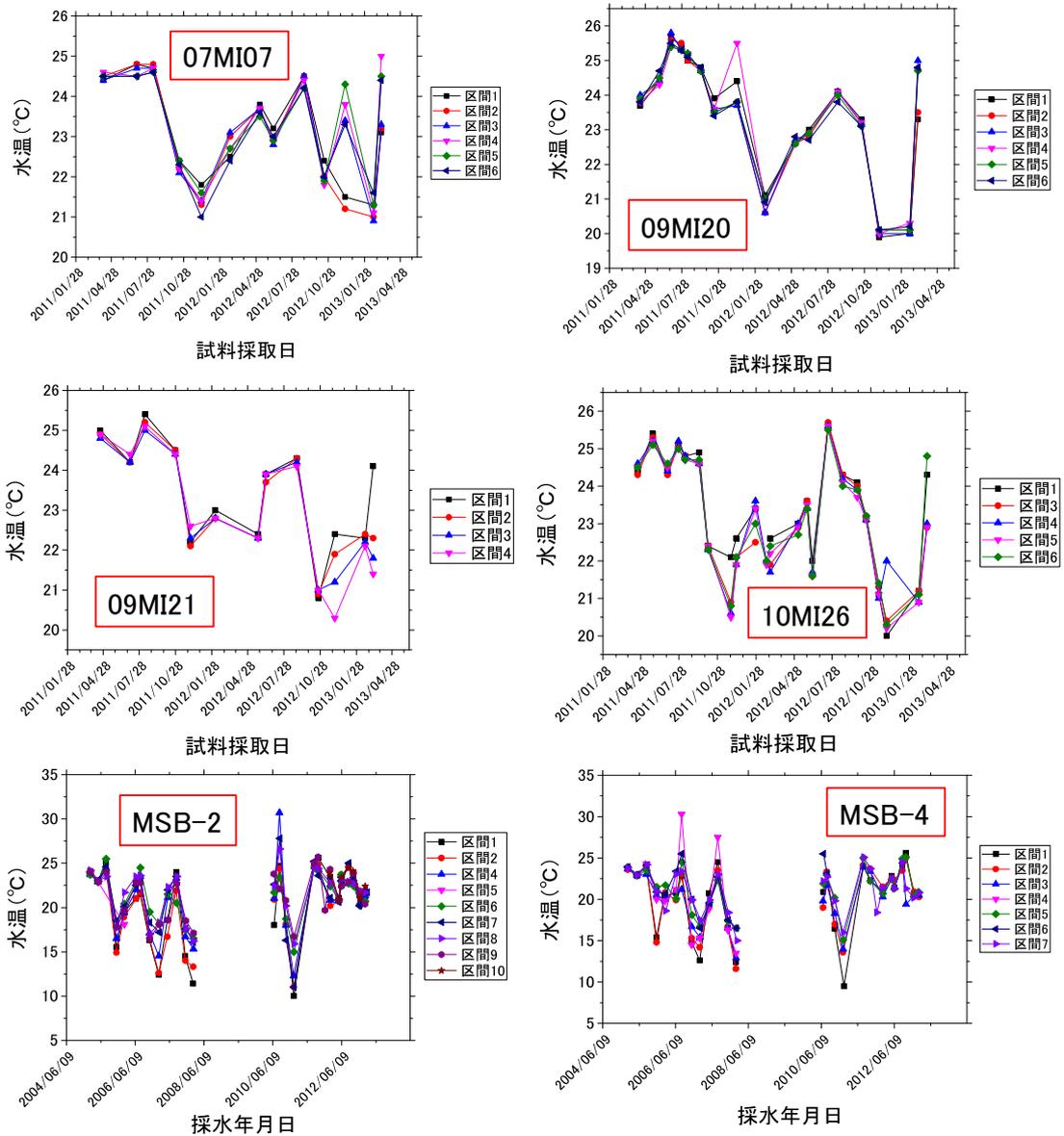


図 28 各ボーリング孔，採水区間における水温の時間変化

(齋ほか, 2010; 齋ほか, 2011; 新宮ほか, 2011; 新宮ほか, 2012; 大森ほか, 2013a; 大森ほか, 2013b, から作成)

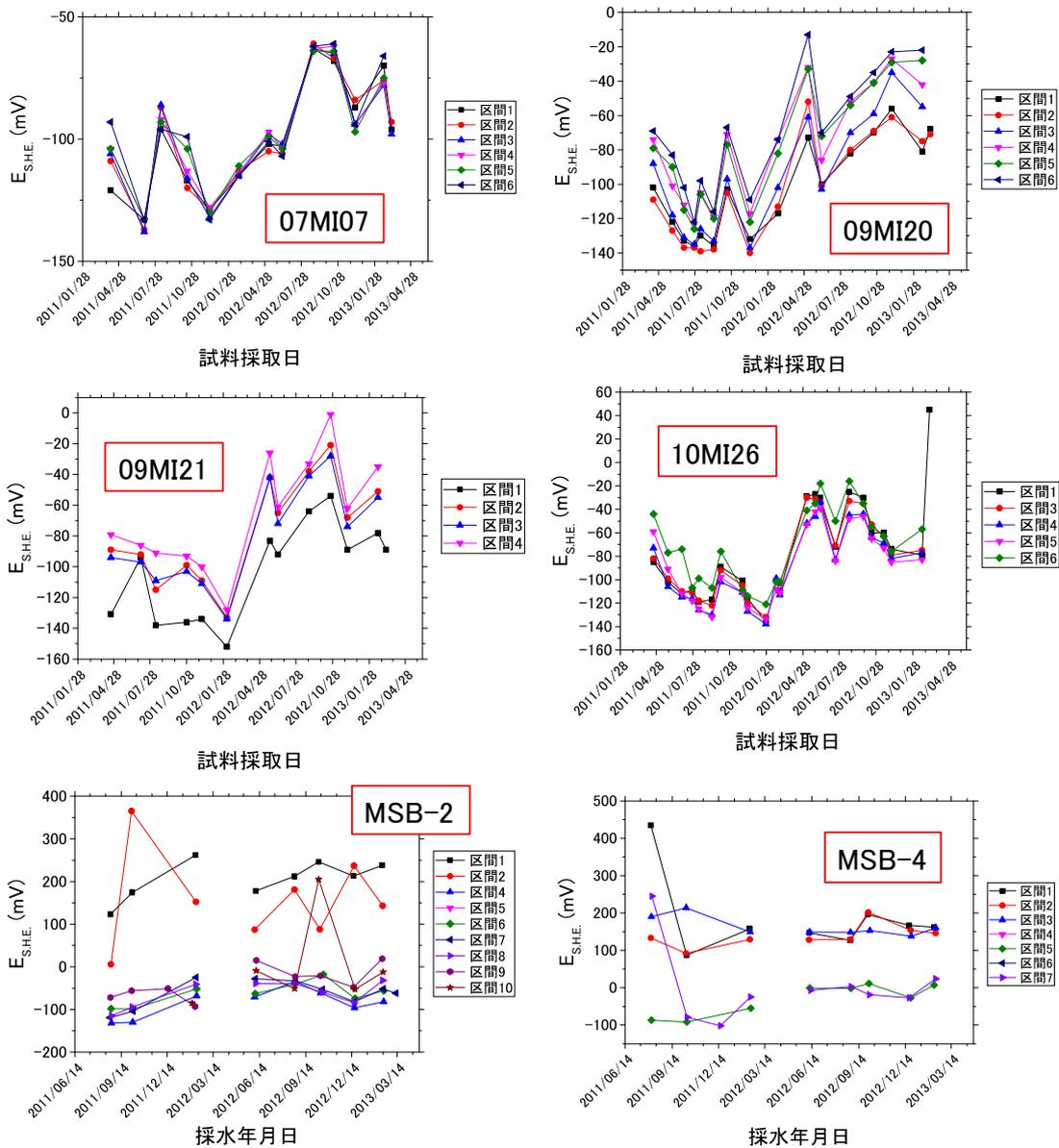


図 29 各ボーリング孔, 採水区間における  $E_{S.H.E.}$  の時間変化  
(大森ほか, 2013a; 大森ほか, 2013b, から作成)

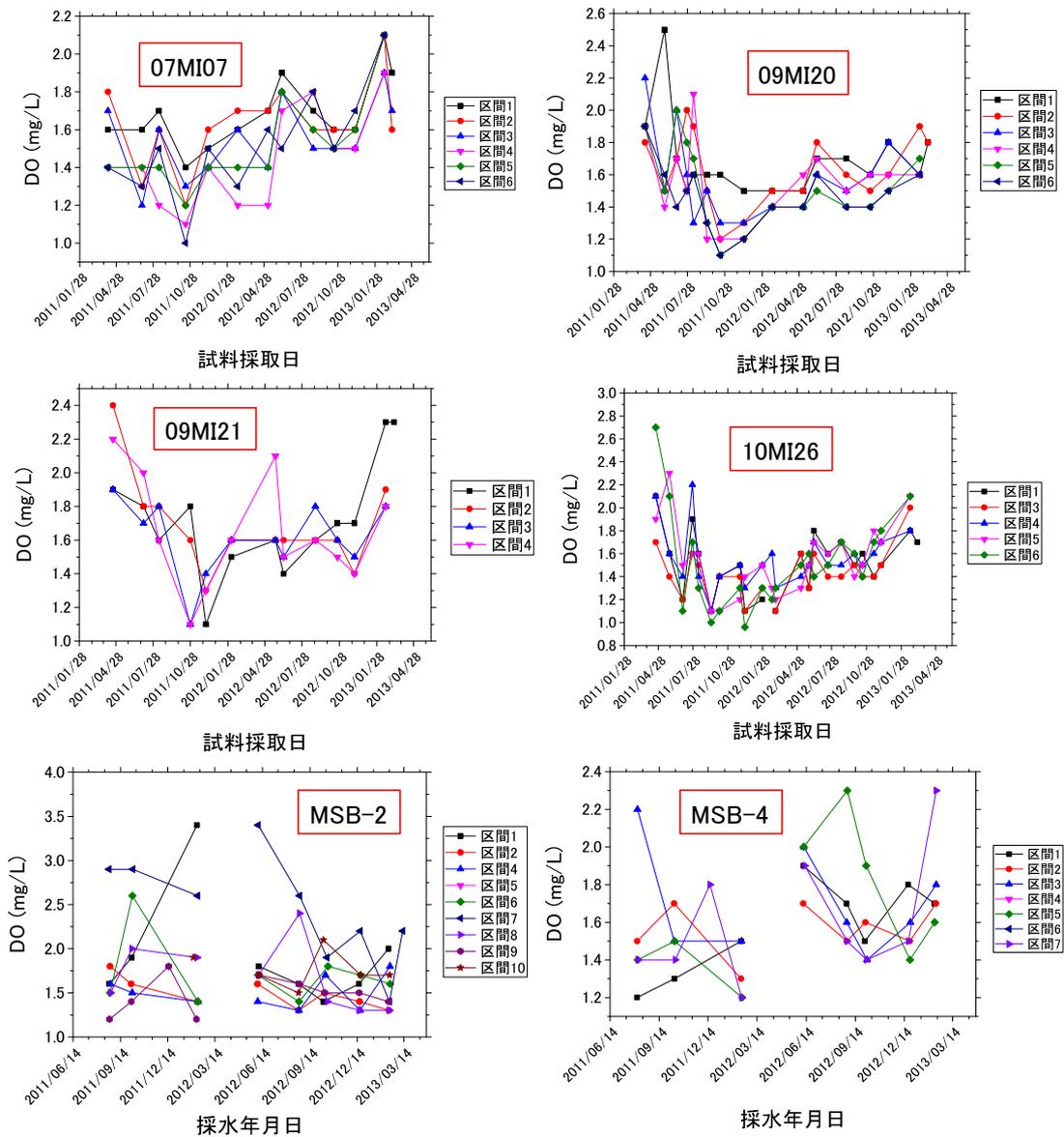


図 30 各ボーリング孔，採水区間における DO の時間変化  
(大森ほか, 2013a;大森ほか, 2013b, から作成)

次に、主要溶存イオン濃度の空間分布と時間変化について検討した。濃度データとしては、本研究で得られた分析結果に加えて、齋ほか(2010)、齋ほか(2011)、新宮ほか(2011)、新宮ほか(2012)、大森ほか(2014)を使用している。多成分の分析値が得られているため、主成分分析を行い、主成分得点を用いて検討することとした。検討対象とした成分は、相対的に濃度が高く、深度に応じて濃度変化が認められた  $\text{Na}^+$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Cl}^-$  (深部で高濃度),  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{F}^-$  (浅部で高濃度) の 6 種類である。

多変量解析における各主成分の固有値と寄与率、累積寄与率を表 9 に示す。また、各主成分の係数を表 10 に示す。表 9 より、累積寄与率は第 2 主成分までで 80%を超過しており、濃度データの情報量のほとんどは第 2 主成分までに含まれる。そのため、今回は第 2 主成分までを用いて議論することとした。次に、主成分の係数に着目すると、第 1 主成分の係数は  $\text{Na}^+$ 、 $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{Cl}^-$  で大きい正の値を示す。これに対して、 $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{F}^-$  の係数は負である。第 2 主成分では、 $\text{K}^+$  が特に大きな正の係数を、 $\text{F}^-$  が負の係数を持つ。ボーリング孔ごとに第 1 主成分スコアと第 2 主成分スコアの関係プロットしたものを図 31 に示す。各ボーリング孔のプロットの多くは第 1 主成分の軸方向に広がって分布している。上述のように、 $\text{Na}^+$ 、 $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{Cl}^-$  のイオン濃度は深部で高く、浅部では  $\text{SO}_4^{2-}$  および  $\text{F}^-$  のイオン濃度が高いことから、第 1 主成分は浅部と深部の水質の違いを反映しており、例えば Iwatsuki et al. (2005) など指摘されているように、これらのボーリング孔における地下水の水質は浅部と深部の地下水の混合で説明できることがわかる。また、07MI07 号孔の一部のプロットは原点から右上方向に、09MI21 号孔の一部のプロットは原点から左下方向および右上方向にも分布しており、これらのボーリング孔では混合以外のプロセスが水質に影響を及ぼしている可能性がある。断層との位置関係に着目すると、断層北側のボーリング孔 (09MI21 号孔および 12MI33 号孔) のプロットは、南側のボーリング孔に比べてやや第 2 主成分スコアが小さく、断層の北と南で水質が異なる可能性が示唆された。

主成分スコアの時間変化を、断層の北東側のボーリング孔と南西側のボーリング孔に分けて図 32 に示す。断層の北側に位置するボーリング孔の第 1 主成分スコアでは、時間が経過してもほぼ変化が認められない (09MI21 号孔)、各採水区間で一貫した変化傾向が認められない (12MI33 号孔)。これに対し、断層の南側に位置するボーリング孔では時間経過に伴い第 1 主成分スコアが減少する傾向が明瞭である。第 1 主成分スコアは断層北側に比べて南側で小さく、水質は浅部地下水の水質に近いことがわかる。第 2 主成分については、断層の北東側と南西側、両方のボーリング孔で主成分スコアが減少し、その後一定となる。主成分スコアは断層の南西側に位置するボーリング孔で大きい。

表 9 主要溶存イオン濃度の主成分分析結果

	固有値	寄与率	累積寄与率
第1主成分	3.8914	64.86%	64.86%
第2主成分	0.97343	16.22%	81.08%
第3主成分	0.7644	12.74%	93.82%
第4主成分	0.27111	4.52%	98.34%
第5主成分	0.09353	1.56%	99.90%
第6主成分	0.00613	0.10%	100.00%

表 10 主要溶存イオン濃度の主成分分析で得られた, 第 1 主成分～第 3 主成分の係数

	第1主成分係数	第2主成分係数	第3主成分係数
Na <sup>+</sup>	0.485	-0.178	-0.099
K <sup>+</sup>	0.231	0.683	0.661
Ca <sup>2+</sup>	0.459	0.055	-0.092
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	-0.376	0.450	-0.491
F <sup>-</sup>	-0.344	-0.504	0.536
Cl <sup>-</sup>	0.491	-0.205	-0.128

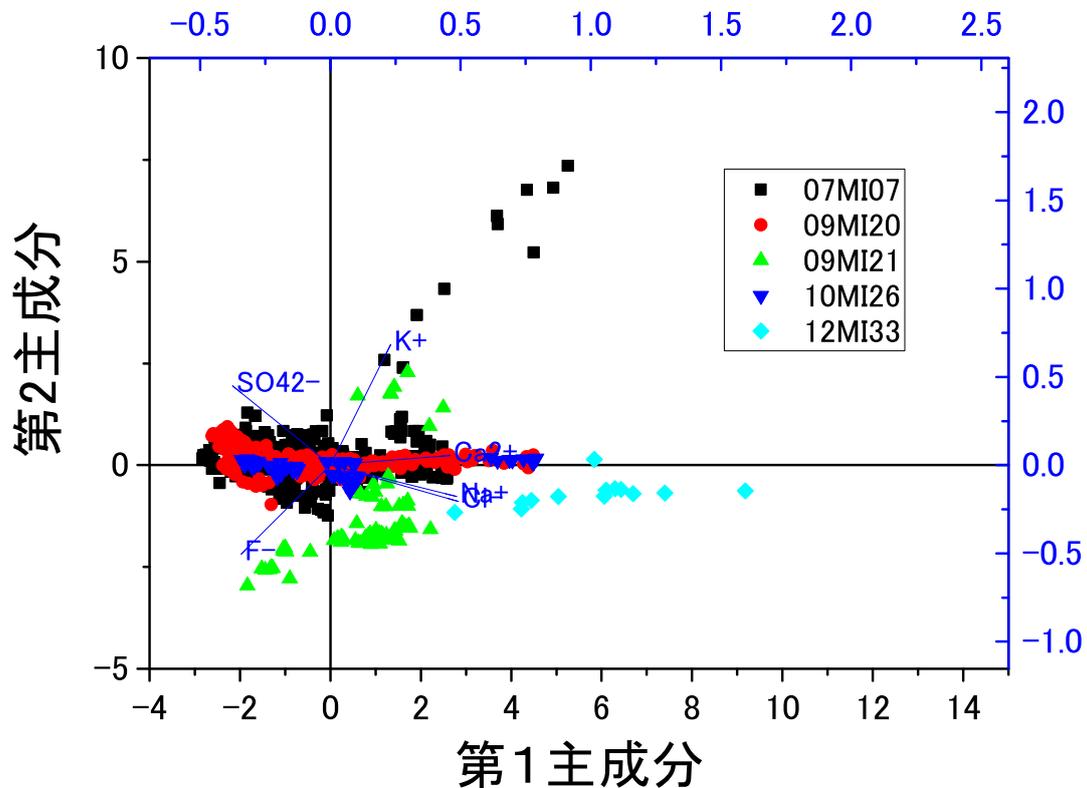


図 31 第 1 主成分スコアと第 2 主成分スコアの相関

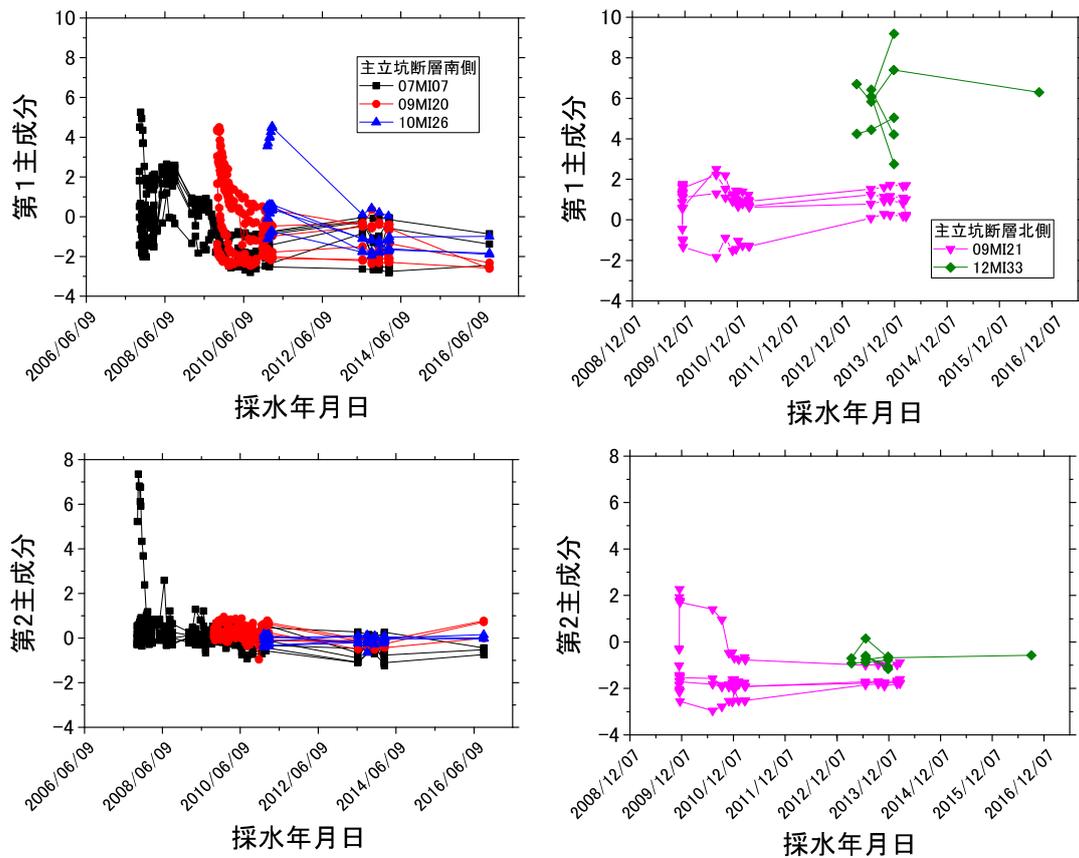


図 32 主成分スコアの時間変化

各ボーリング孔の水素酸素同位体比とトリチウム濃度のボックスプロットを図 33 に示す。これらの図より、坑内のボーリング孔では断層の北東側と南西側で水素酸素同位体比が異なり、断層の北東側よりも南西側で重い水素酸素同位体比を示すことがわかる。また、地表から掘削されたボーリング孔では幅広い水素酸素同位体比を示す。MSB-2 号孔と MSB-4 号孔で採取された地下水の水素酸素同位体比の時間変化(図 34)から、浅部に位置する採水区間で水素酸素同位体比が重く、深部では坑内のボーリング孔と同程度の軽い同位体比となること、値の変動は認められるものの、一貫した変化は生じていないことなどがわかる。また、トリチウム濃度のボックスプロットから、トリチウム濃度も断層の北東側と南西側で異なり、断層の南西側に位置する坑内のボーリング孔ではトリチウムが検出されているのに対し、断層の北側に位置するボーリング孔ではほとんどトリチウムが検出されていない。また、地表から掘削されたボーリング孔ではトリチウム濃度についても幅広い分布を示す。MSB-2 号孔と MSB-4 号孔で採取された地下水のトリチウム濃度の時間変化(図 35)から、浅部の採水区間ではトリチウム濃度が高いこと、MSB-2 号孔の区間 2 のように時間とともにトリチウム濃度が上昇傾向にある採水区間も認められるものの、ほとんどの区間では時間とともに濃度が低下傾向であることが明らかとな

った。坑内のボーリング孔についても同様に、同位体比とトリチウム濃度の時間変化に関する検討を行ったが、明確な変化傾向は認められなかった。

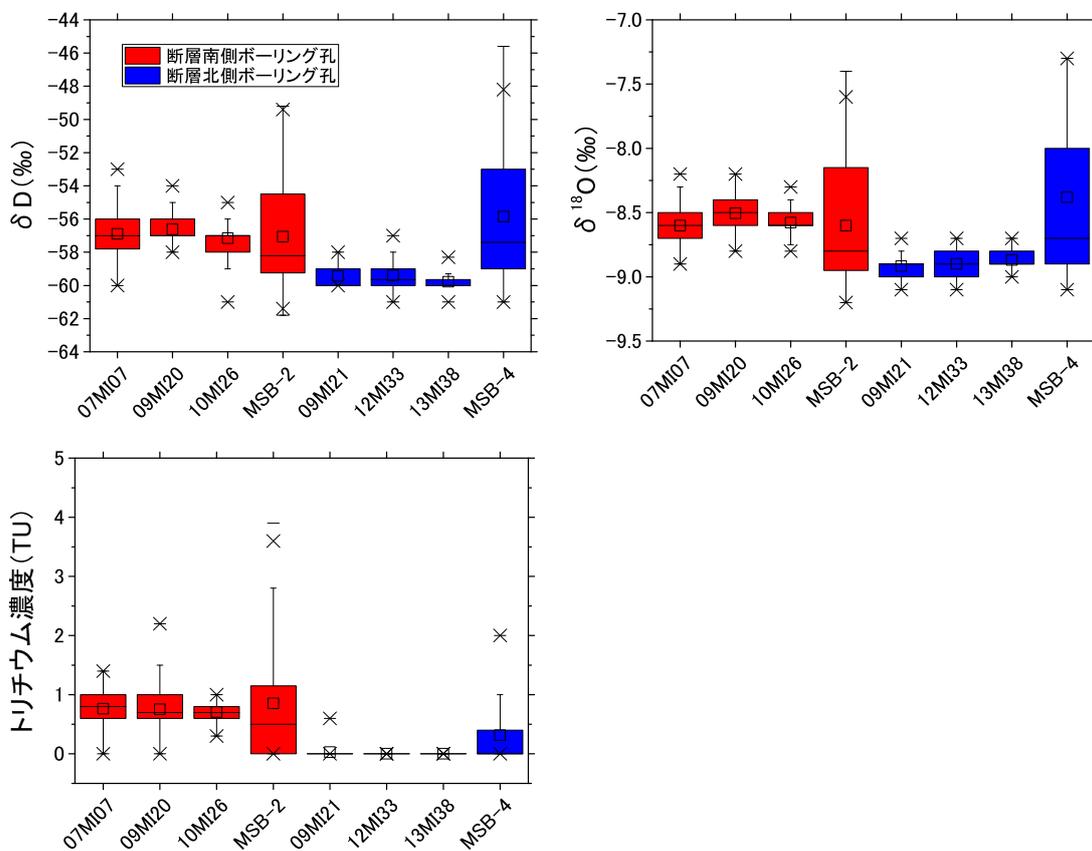


図 33 水素酸素同位体比およびトリチウム濃度のボックスプロット

本研究で得られた分析値に加えて、齋ほか(2010)、齋ほか(2011)、新宮ほか(2011)、新宮ほか(2012)、大森ほか(2013a)、大森ほか(2013b)、大森ほか(2014)、林田ほか(2016)による分析値を用いて描画

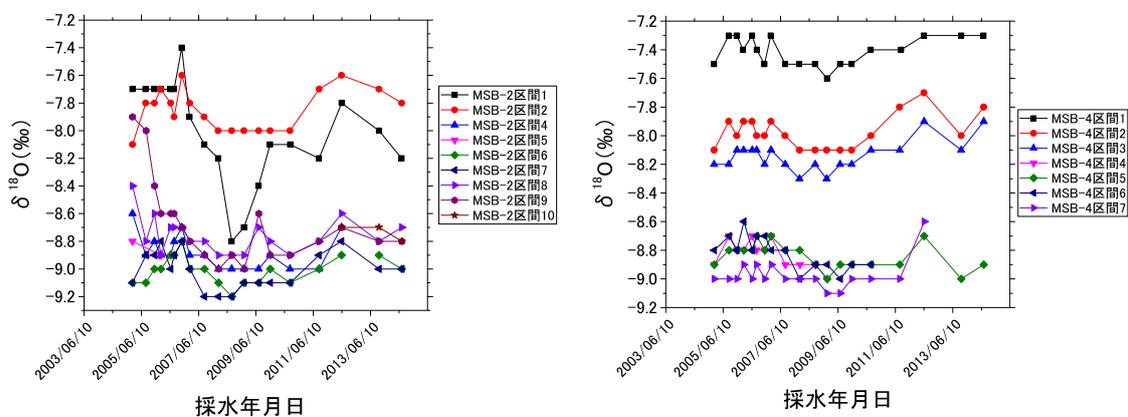


図 34 MSB-2 号孔および MSB-4 号孔地下水の水素酸素同位体比の時間変化

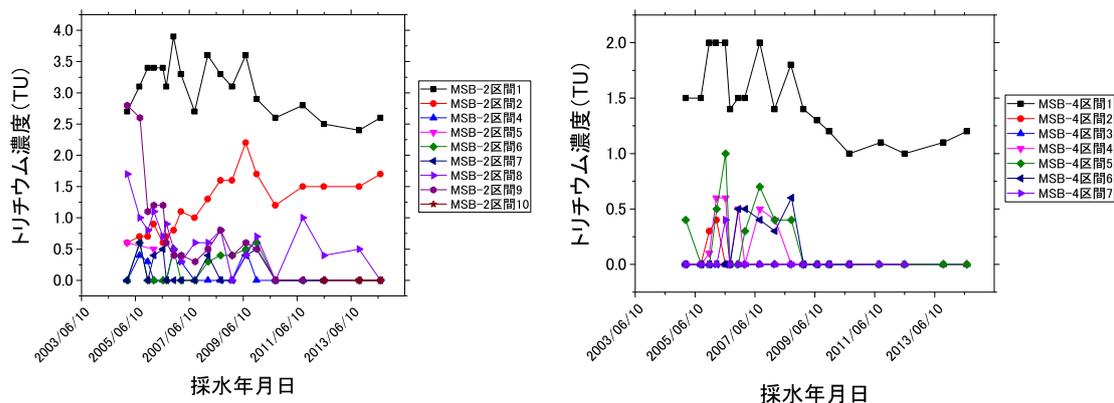


図 35 MSB-2 号孔および MSB-4 号孔地下水のトリチウム濃度の時間変化

以上から、主要溶存イオン濃度については、Na, Ca, Cl のイオン濃度が深部で高い一方で、浅部では相対的に SO<sub>4</sub> 及び F のイオン濃度が高いことが示された。研究用地周辺の水質は、Na-Ca-HCO<sub>3</sub> 型の浅層地下水と、Na-Ca-Cl 型の深層地下水の混合によって形成されていると考えられており (Iwatsuki et al., 2005), 化石海水あるいは古熱水が深層地下水に含まれる塩の起源であると推測されている (Iwatsuki et al., 2005)。SO<sub>4</sub> イオン濃度は MSB-2 号孔及び MSB-4 号孔の浅部の採水区間で特に高く、酸化的环境で H<sub>2</sub>S の酸化 (阿島ほか, 2006) や、堆積岩に含まれる硫化鉱物の酸化により SO<sub>4</sub> イオンが生成しているものと考えられる。また、Abdelgawad et al. (2009) は、瑞浪地域の地下水に含まれる F イオンは、螢石や雲母鉱物起源である可能性を指摘している。本研究で実施した主要溶存イオン濃度を対象とした主成分分析において、断層の北と南に位置するボーリング孔では地下水の水質が異なることが示された。浅部と深部の地下水の混合に対応すると考えられる第 1 主成分スコアは、断層の南側に位置するボーリング孔では時間経過とともに減少し、その後ほぼ一定となるのに対し、断層の北側に位置するボーリング孔では明確な変化傾向が認められないという違いが明らかとなった。また、地下水の水素酸素同位体比は断層の北と南で異なり、断層の南側では北側に比べて重い同位体比を示すことが明らかとなった。Iwatsuki et al. (2005) は、水素酸素同位体比に基づいて、Na-Ca-Cl 型の地下水が Na-Ca-HCO<sub>3</sub> 型の地下水よりも冷涼な時期の降水起源であるとしている。また、長谷川ほか (2010) は、ヘリウム同位体によって推定された地下水年代を考慮し、研究地域周辺の地下水流動系における流出域の地下水は最終氷期に涵養した地下水である可能性を指摘している。さらに、断層の南側のボーリング孔ではトリチウムが検出されるのに対し、北側のボーリング孔ではトリチウム濃度が検出限界以下であった。降水中のトリチウム濃度は 1950 年代以降に実施された大気中核実験により上昇した (例えば, Solomon and Cook, 2000)。それ以前に涵養された地下水では 12.32 年の半減期 (Lucas and Unterweger, 2000) によって濃度が低下していることから、1950 年代以前に涵養された地下水とそれ以降に涵養された地下水を区別できる。断層の北側に位置するボーリング孔ではトリチウムが検出さ

れず、1950 年台以前に涵養した地下水であると考えられる。一方で、断層南側の地下水ではトリチウムが検出され、少なくとも部分的に 1950 年台以降に涵養された地下水を含むことを示す。

深度 300m ステージから掘削されたボーリング孔を用いた長期揚水試験と単孔式水理試験から、揚水に対する水圧応答が主立坑断層の北東側と南西側で異なり、主立坑断層の直交方向の透水性が低く、水理境界であること、主立坑断層周辺の透水係数はその変質状態に応じて変化し、コア全体に変質が及ぶ区間では  $10^{-11}$ m/s 程度であることなどが明らかとなっている(大丸ほか, 2012)。本年度の検討で認められた主立坑断層の北側と南側での溶存イオン濃度、水素酸素同位体比、トリチウム濃度などの違いは、主立坑断層が少なくともその直交方向に遮水性の水理構造として機能し、これら地下水の地球化学特性の空間分布や坑道建設に応じた変化が断層の北東側と南西側で異なることを示す。さらに、主立坑断層の北東側、南東側は周囲に断層など透水性の低い水理地質構造が分布する別のコンパートメント構造と考えられている(大丸ほか, 2012)。断層の北東側と南西側での水質の違いを考慮すると、断層を一種の天然バリアとして利用し、処分サイトからの有害な放射性核種の移行を抑制できる可能性がある。

#### 4.2.2 水理地質モデルの構築及び地下水流動解析

広域モデルを用いた地下水流動解析で得られた水頭分布と地下水流動方向を図 36 に示す。水頭は標高に対応して北部で高く、南部で低い。大局的に北から南に、また、谷に向かう地下水流動を示している。算出された水頭とグリッドの上部標高の関係をプロットすると、土岐花崗岩(第 3 層)の低標高域で水頭が過大評価されているものの、概ねボーリング孔における実測値(核燃料サイクル開発機構, 2005)とよく一致する(図 37)。

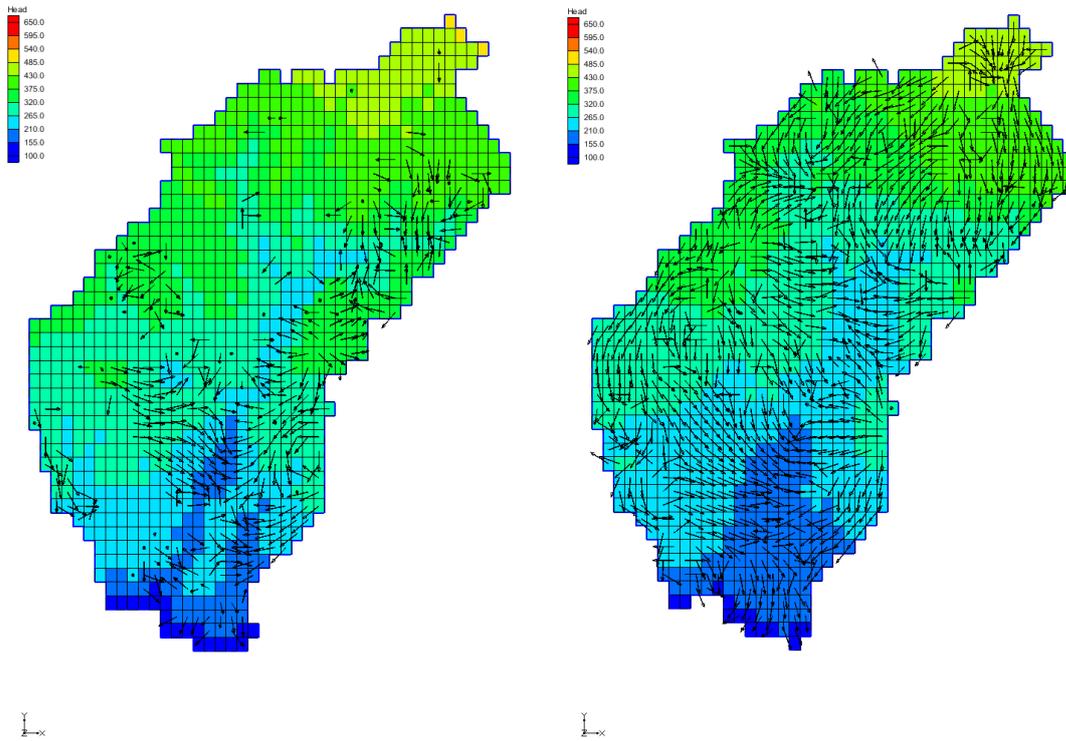


図 36 瀬戸層群(左)および土岐花崗岩(右)における水頭と地下水流動方向

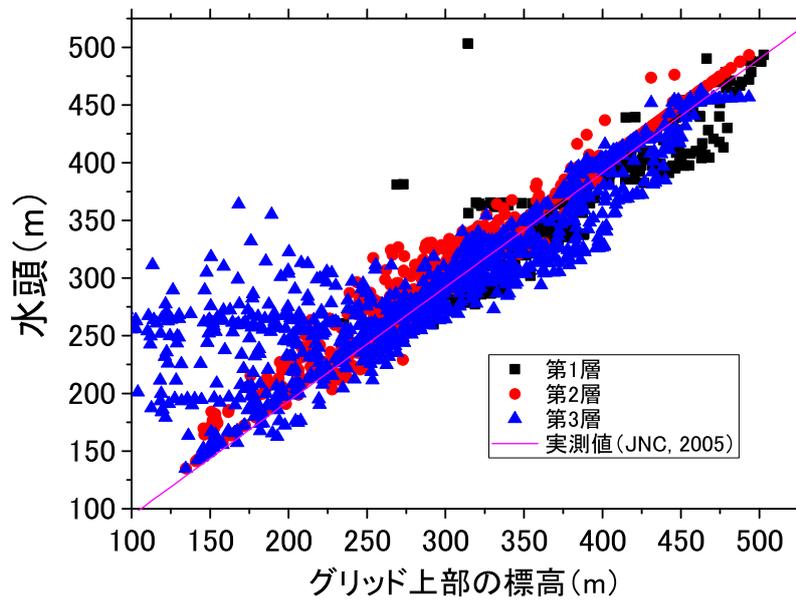


図 37 グリッド上部の標高と水頭の比較

次に、断層モデルを用いた地下水流動解析の結果を図 38～図 43 に示す。図 39 は断層モデルを断層の走向方向から見た場合の図 38 の位置における断面図、図 41 は鉛直下方向を見下ろした場合の図 40 に示すグリッドにおける水頭分布、図 42 は断層の北東側から南西方向を見た場合の図 41 に示す位置における断面図である。図 39 では、中央に主立坑断層が分布しており、ごく表層を除けば断層の北東側で水頭値が高く、南西側で低い。また、立坑の排水箇所は断層直近と断層の南西側に位置しており、排水の影響は断層の南西側で幅広く生じている。図 41 において、5 層目は瑞浪層群に対応しており、断層から離れた領域では、地形に対応して北東及び南西から断層へ向かう流れが認められる。深部では概ね北東から南西に向かう流れが卓越するが、12 層目で換気立坑の排水箇所(青色で示される低水頭の箇所)が、16 層目で主立坑の排水箇所が認められ、周辺では排水箇所に向かう流れが局所的に生じているのが観察される。また、断層に並行な断面図(図 43)では、38 層目と 45 層目で認められるように高透水性に設定したダメージゾーンで地表から深部へ向かう流れが卓越する。断層コア(43 層目)では水頭の高い北東側から水頭が低い南西側への流れが認められ、断層コア中には主立坑の排水箇所が存在するが、低透水性のため影響範囲は限定される。換気立坑の排水箇所が存在する断層の南西側では、広い範囲(30 層目, 38 層目, 40 層目)で排水の影響が生じ、地下水の排水箇所への引き込みが生じている。

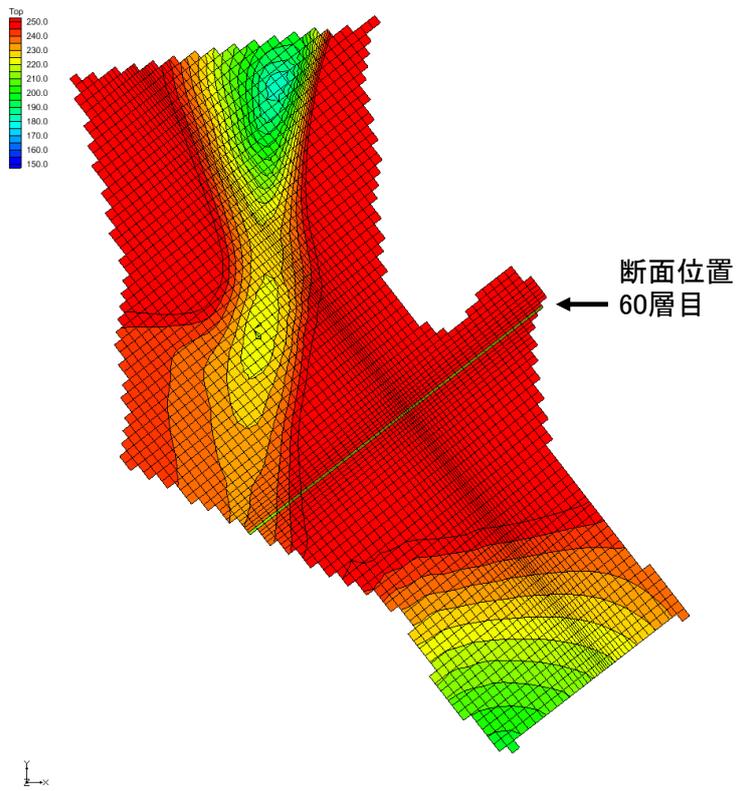


図 38 図 39 の断面位置

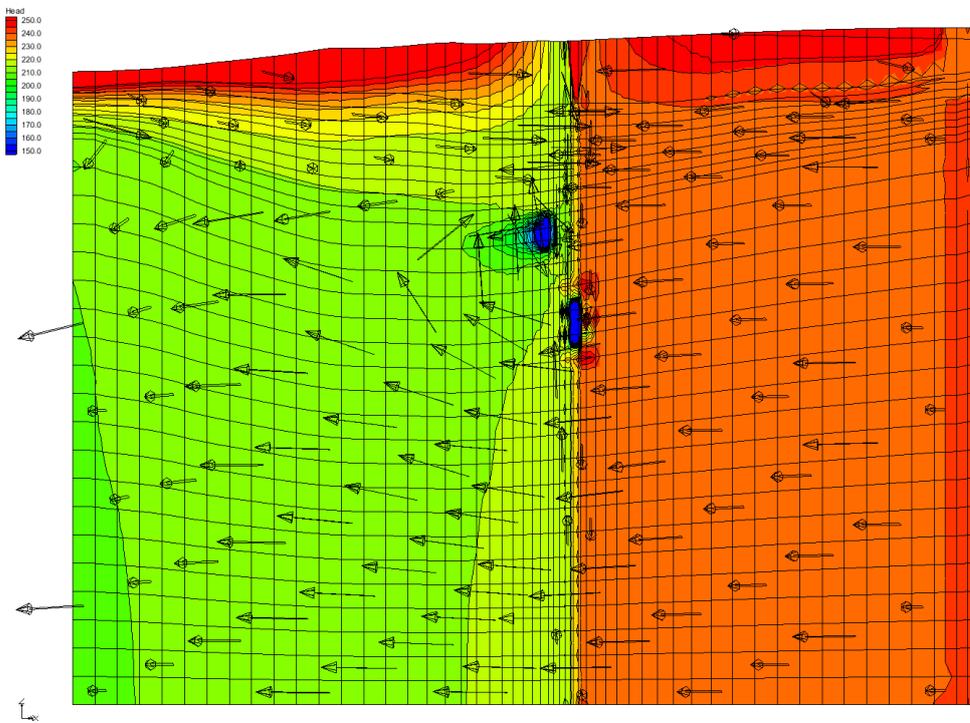


図 39 図 38 の断面における水頭分布と地下水流動方向

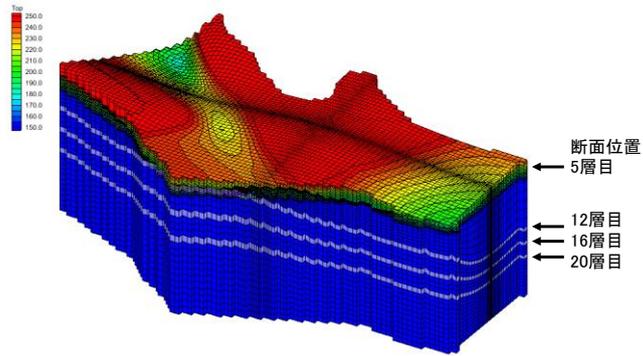


図 40 図 41 のグリッド位置

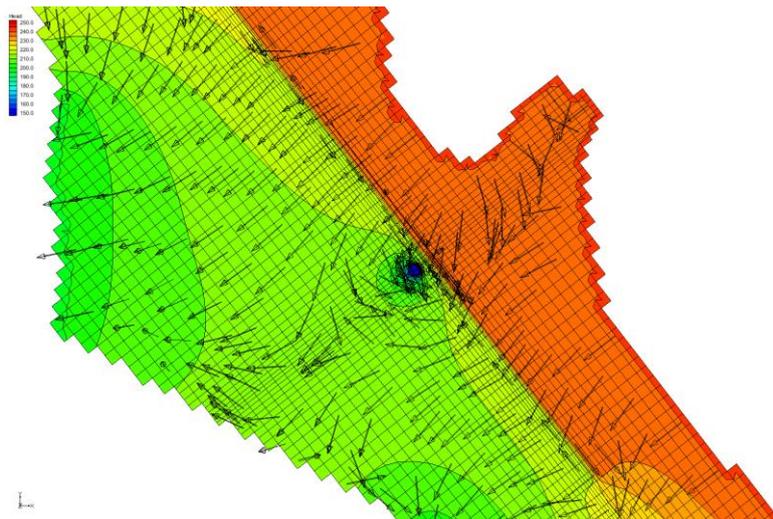
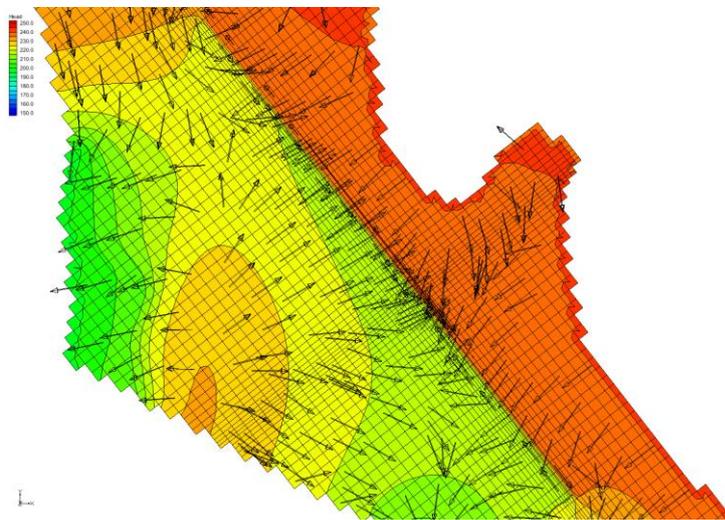


図 41 図 40 のグリッドにおける水頭分布と地下水流動方向(上:5層目, 下:12層目)

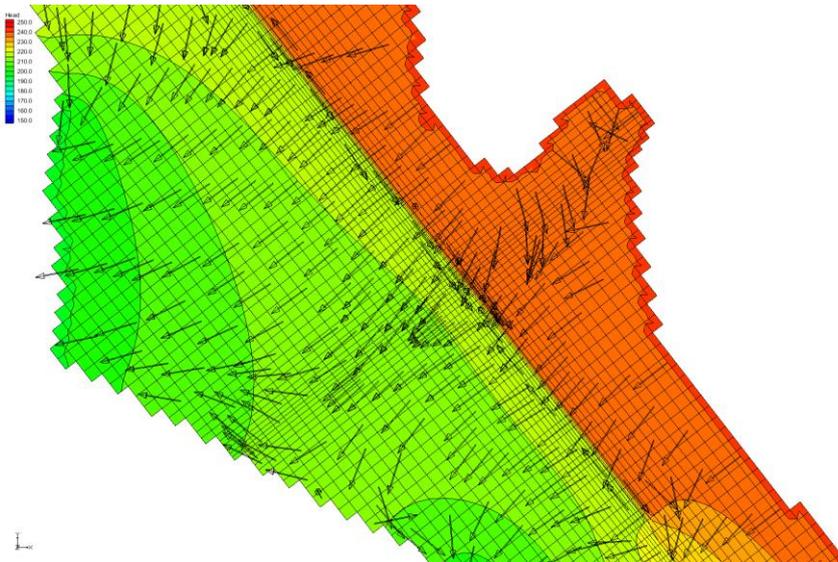
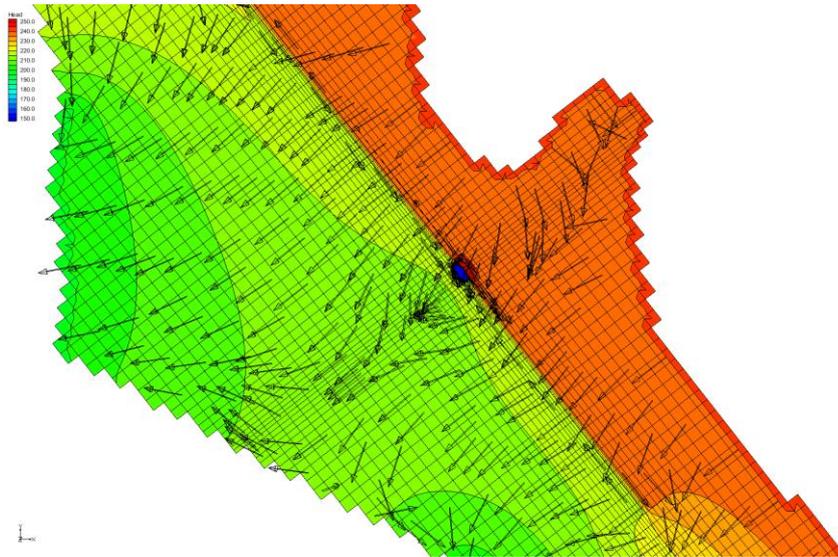


図 41(続き) 図 40 のグリッドにおける水頭分布と地下水流動方向(上:16 層目, 下:20 層目)

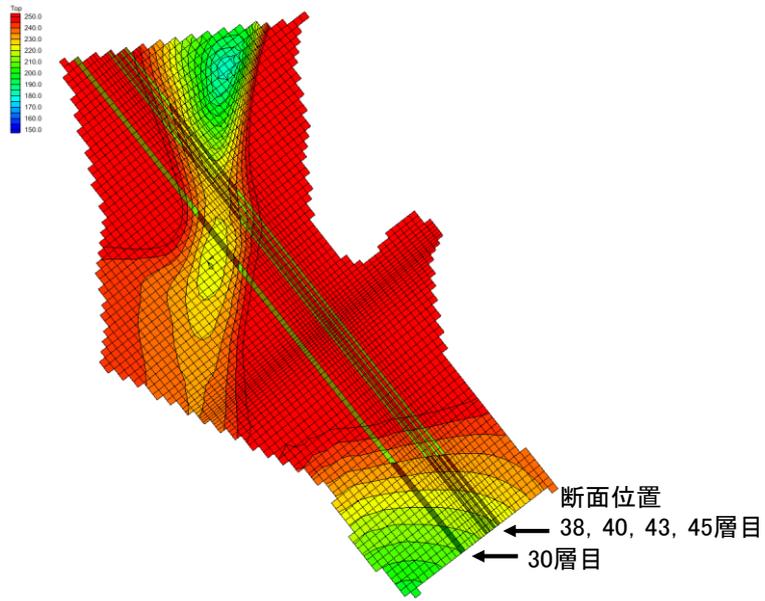


図 42 図 43 の断面位置

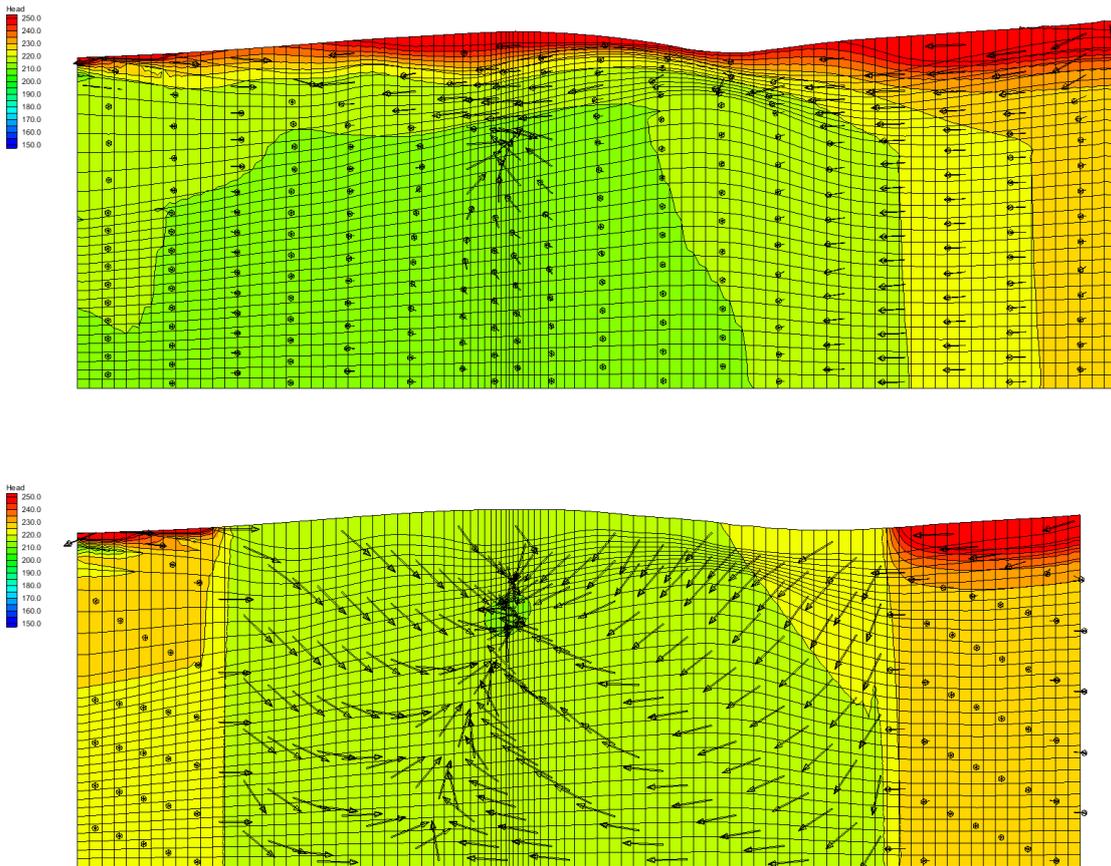


図 43 図 42 に示した断面における水頭分布と地下水流動方向(上:30層目, 下:38層目)

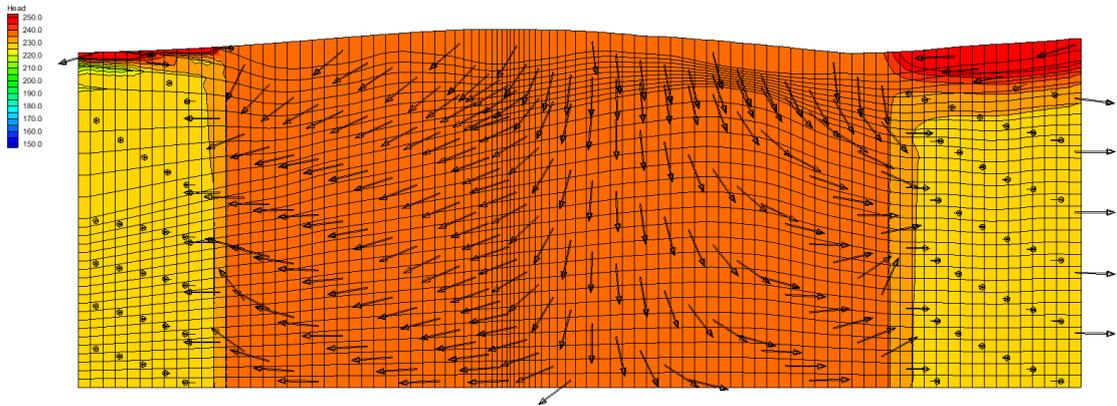
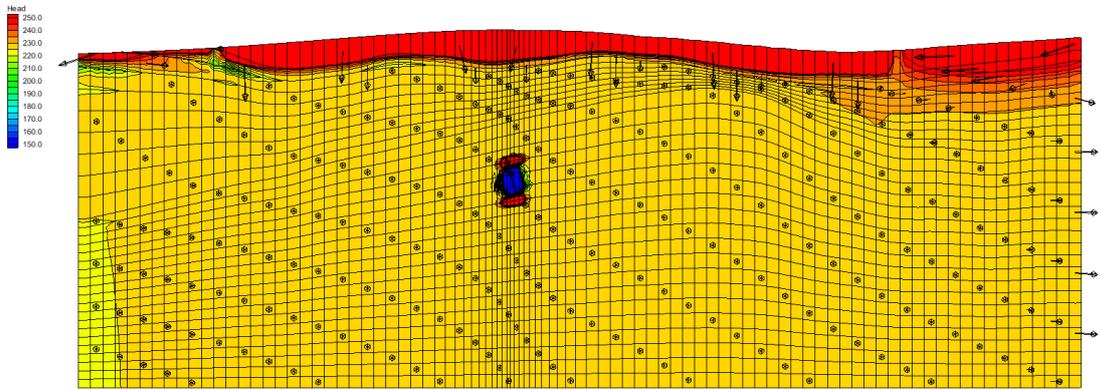
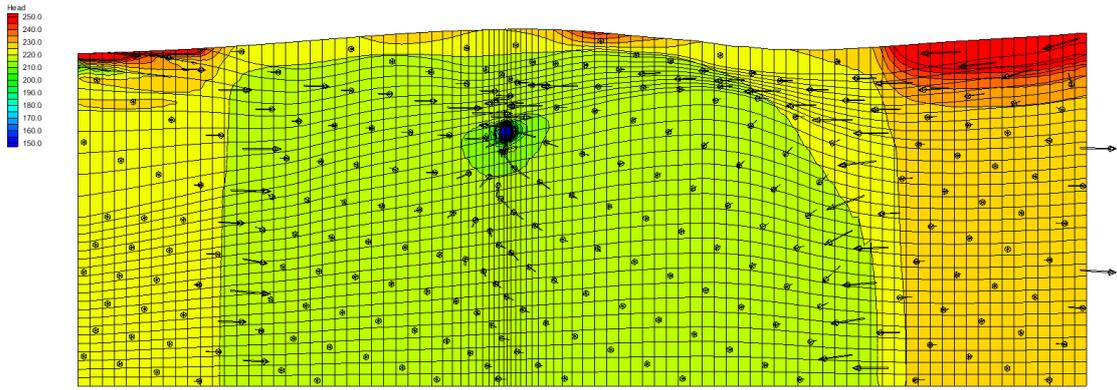


図 43(続き) 図 42 に示した断面における水頭分布と地下水流動方向(上:40 層目, 中:43 層目, 下:45 層目)

上述のような地下水流動状態に基づいて計算された2016年時点の塩化物イオン濃度の空間分布を図44に示す。断層から離れた領域では、塩化物イオン濃度が深部で高く、浅部で低いことから、初期条件からあまり変化していないと考えられる。一方、主立坑断層の近傍では塩化物イオン濃度の空間分布に変化が認められる。断層の北東側では、浅部から相対的に濃度の低い地下水が流下し、やや濃度が低下している領域が認められるのに対し、断層の南西側では、深部まで濃度の低い領域が伸びるとともに、深部からは濃度の高い地下水の上昇が認められる。坑道掘削に伴う深部地下水の上昇(アップコーニング)はこれまでも指摘されているものの(例えば、水野ほか, 2013; Iwatsuki et al., 2015), 深度300mに位置するボーリング孔の主要溶存イオン濃度に主成分分析を適用することで得られた主成分スコアの時間変化は、時間とともに浅層の濃度の低い地下水の影響が大きくなったことを示している。今回の解析結果では、深度300m付近に位置する主立坑の排水地点よりも上部まで塩化物イオン濃度が高い深部地下水が上昇しており、深部地下水の影響、すなわち塩化物イオン濃度を過大に評価する結果となっている。

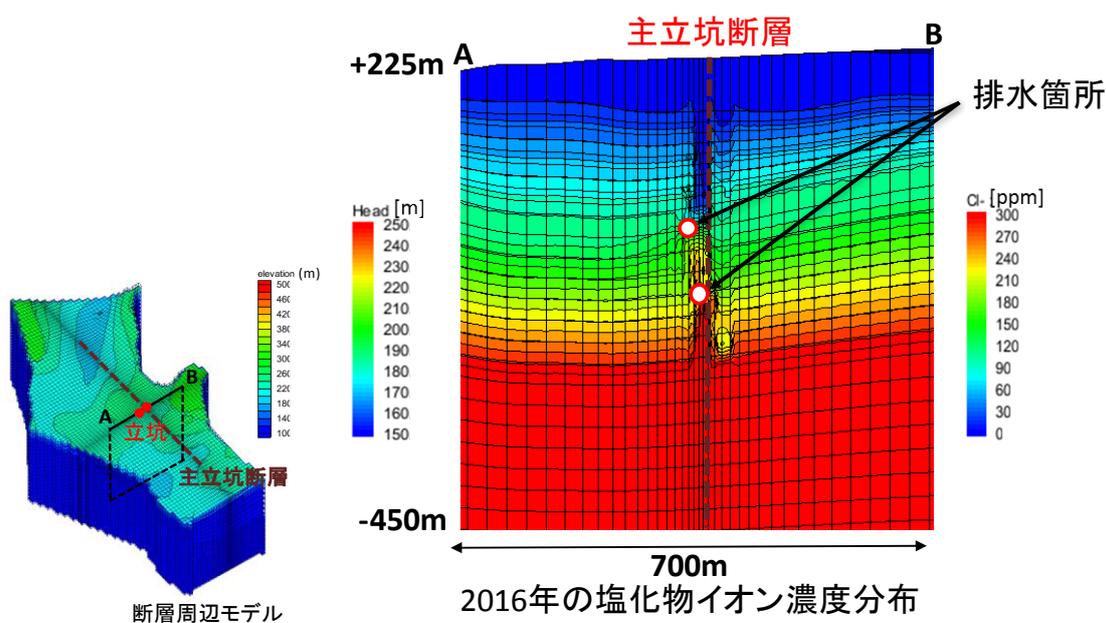


図44 物質移行解析で得られた塩化物イオン濃度の空間分布

次に、トリチウムを対象とした物質移行解析の結果(図45)について述べる。大気中核実験により降水のトリチウム濃度が上昇する前の時点では、トリチウム濃度が高い領域は地表付近に限られる。瑞浪層群については異方性を考慮して透水係数を設定しており、地下水が浸透しにくいものと考えられる。また、断層のダメージゾーンでは上述のように地表からの地下水の浸透が生じているが、トリチウムの崩壊により濃度の上昇は生じない。降水中のトリチウム濃度が上昇し、坑道建設が始まる前の段階では、全体的に浅層のトリチウム濃度が上昇しており、さらに、断層のダメージゾーンで深部までトリチウム濃度が高い領域が伸びていることがわかる。坑道建設により排水が始まっても、トリチウム濃度の高い領域はあまり変化しない。その原因として、トリチウムの崩壊による濃度低下と、大気中核実験が行われなくなったことによる降水のトリチウム濃度の低下が考えられる。地下水のトリチウム濃度の測定結果と比較すると、断層の南側に位置するボーリング孔で深部までトリチウムが検出されている。また、地表から掘削されたMSB-2号孔とMSB-4号孔では、浅い採水区間ほど高いトリチウム濃度が得られ、これらは解析結果と整合的である。

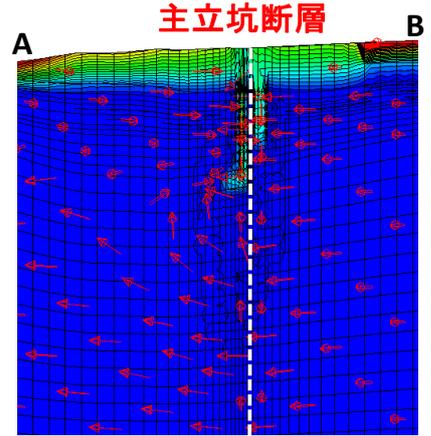
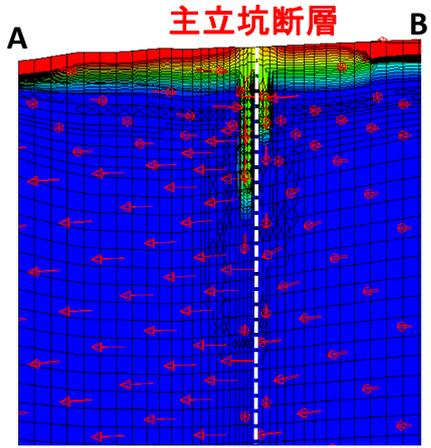
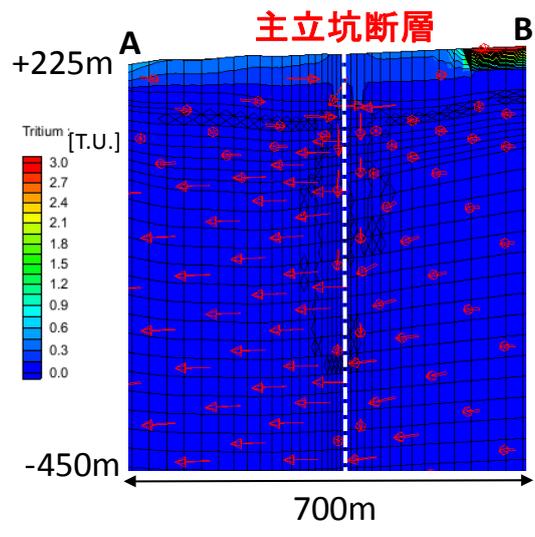


図 45 物質移行解析で得られたトリチウム濃度の空間分布  
 (上:1949年, 中:2006年, 下:2016年の各時点のトリチウム濃度分布)

### 4.3 残された課題と今後の計画

地下水試料の分析結果に基づく検討と地下水流動解析及び物質移行解析では、定性的に整合的な結果、すなわち遮水性の水理地質構造である主立坑断層の南西側では表層から主要イオン濃度などの低い地下水が深部まで流入しており、深部までトリチウムが検出される一方で、断層の北東側では坑道建設の影響範囲が限られ、トリチウムを含む地下水が分布する範囲も南西側に比べて浅いことなどが明らかとなった。また、水頭についても主立坑断層の北東側に比べ、南西側で低いことが知られており(例えば、別府ほか、2013)、この点でも解析結果と整合的であった。

しかしながら、地下水流動解析と物質移行解析の結果は、水頭や濃度分布を定量的には再現できていない。上述のように、主立坑断層の北東側、南西側は、主立坑断層を含む複数の低透水性の断層に囲まれることで、周囲から水理的に孤立したコンパートメント構造であるとの指摘がある(大丸ほか、2012)。また、瑞浪層群の泥質層も水理的な境界として機能していると考えられており(岩月ほか、2007)、土岐花崗岩と瑞浪層群ではダメージゾーンの幅が異なるとの報告がある(窪島ほか、2013)。これらの地質構造は、主立坑断層周辺の地下水流動状態に大きく影響するものと考えられることから、今後はこれらの構造も考慮したモデル化を進める。また、昨年度の測定で得られた断層周辺の浸透率変化をモデルに組み込み、浸透率の不均質性を考慮することによる解析結果への影響についても検討する。

本年度は塩化物イオンやトリチウムといった、物質移行過程で水-岩石反応が生じる可能性が低い成分に着目し、物質移行解析を実施した。来年度は、断層周辺の鉱物分布モデルや地下水の物理化学パラメータの分布モデルなど、水-岩石反応の支配因子の空間分布について再検討した上で、水-岩石反応を考慮する必要がある成分についても物質移行解析を行う予定である。

## 5. まとめ

本年度は、研究サイトである国立研究開発法人日本原子力研究開発機構(JAEA)瑞浪超深地層研究所の研究坑道において地下水の物理化学パラメータの原位置測定と、溶存成分や同位体組成を分析するための地下水試料のサンプリングを実施した。採取試料の分析結果と、これまで JAEA により蓄積された地下水の地球化学特性のモニタリングデータをあわせ、主立坑断層周辺に分布する地下水の物理化学パラメータや地球化学特性の空間分布及び時間変化について検討した。

また、広域モデルを用いた地下水流動解析を行い得られた水頭分布を境界条件として、断層周辺部の水理地質モデルを作成し、地下水流動解析と物質移行解析を実施した。得られた結果は以下の通りである。

- 地下水の物理化学パラメータの検討から、各パラメータは坑内のボーリング孔(07MI07 号孔, 09MI20 号孔, 09MI21 号孔, 10MI26 号孔, 12MI33 号孔)では分散が小さく、地表から掘削されたボーリング孔(MSB-2 号孔, MSB-4 号孔)では分散が大きいことが明らかとなった。電気伝導度は坑内、地表からのボーリング孔を含めて浅部で低く、深部で高い傾向が認められた。酸化還元電位は地表からのボーリング孔に比べて坑内のボーリング孔で低い。坑内のボーリング孔では時間とともに上昇し、還元的環境から酸化的な環境へと変化していることが示唆された。特に 12MI33 号孔では、並行して伸びる研究坑道の影響で、酸化還元電位や溶存酸素濃度が上昇している可能性がある。これらの物理化学パラメータから、浅部は酸化的で温度変化も大きく、溶存成分濃度が低い地下水が分布する環境であり、深部は還元的で、温度変化が小さく、溶存成分濃度の高い地下水が分布する環境と解釈できる。また、これらの物理化学パラメータについて断層の北東側と南西側で比較した場合、pH、水温、酸化還元電位、溶存酸素濃度については明確な違いは認められなかったが、電気伝導度は南西側よりも北東側で高いことが明らかとなった。
- 主要溶存イオン濃度の主成分分析から、第 1 主成分スコアは浅層地下水と深層地下水の寄与度に対応するものと考えられた。第 1 主成分スコアは、断層南西側のボーリング孔では時間経過とともに明瞭に減少し、その後一定となるのに対し、断層北東側のボーリング孔では一貫した変化傾向が認められなかった。また、断層の北東側のボーリング孔は南西側のボーリング孔に比べて第 2 主成分スコアがやや小さく、水質が異なることが示された。断層の南西側では、北東側に比べて重い水素酸素同位体比を示し、深部に位置するボーリング孔でもトリチウムが検出される。このように、断層の北東側と南西側には水質や同位体組成の違いが認められた。
- 広域モデルを用いた地下水流動解析では、ボーリング孔で実測された地下水位と標高の関係(核燃料サイクル開発機構, 2005)と整合的な計算結果が得られた。さらに、断層モデルを用いて行った地下水流動解析では、断層の南西側に比べて北東側で水頭が高い結果となり、実測値と整合的であった。さらに、塩化物イオンとトリチウムを対象に実施した物質移行解析では、断層の北東側では立坑掘削の影響領域が限定されるのに対し、南西では浅部から塩化物イオン濃度が低い地下水の浸透が、深部から塩化物イオン濃度の高い地下水の上昇が認められた。また、トリチウムは断層の南西側で深部まで濃度の高い領域が分布することが示され、これらも地下水試料の分析結果と整合する結果となった。しかしながら、水頭や塩化物イオン濃度、トリチウム濃度は実測値と一致しないことから、現在考慮できていない水理地質構造や断層周辺における浸透率の測定結果などをモデルに取り込むことにより、地下水流動解析と物質移行解析で使用する水理地質モデルの改良を進める。

## 参考文献

- 阿島秀司, 戸高法文, 岩月輝希, 古江良治, 2006, 多変量解析による瑞浪超深地層研究所周辺の地下水化学モデルの構築, 応用地質, 47, 120-130.
- 石橋正祐紀, 笹尾英嗣, 窪島光志, 松岡稔幸, 2013, 超深地層研究所計画におけるサイトスケール地質構造モデルの構築 -第2段階における Shaft460 および Shaft500 地質構造モデルへの更新-, JAEA-Research 2013-019.
- 岩月輝希, 天野由記, 井岡聖一郎, 三枝博光, 竹内竜二, 2007, 大規模地下施設の建設に伴う周辺地下水環境の変化, 日本原子力学会和文論文誌, 6, 73-84.
- 上野孝志, 徳安真吾, 川本康司, 窪島光志, 石橋正祐紀, 鶴田忠彦, 笹尾英嗣, 池田幸喜, 見掛信一郎, 原郁夫, 山本勝, 2012, 超深地層研究所計画瑞浪超深地層研究所研究坑道におけるボーリングデータ集, JAEA-Data/Code 2012-008.
- 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, 2013a, 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, 2013b, 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, 2014, 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.
- 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—, 総論レポート, 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3 地層処分システムの安全評価, JNC TN1400 99-023.
- 核燃料サイクル開発機構, 2005, 高レベル放射性廃棄物の地層処分技術に関する知識基盤の構築—平成17年取りまとめ— 一分冊1 深地層の科学的研究—, JNC TN1400 2005-014.
- 狩野智之, 竹内竜史, 2012a, 広域地下水流動研究における地下水の水圧長期モニタリング (2010年度), JAEA-Data/Code 2012-001.
- 狩野智之, 竹内竜史, 2012b, 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.
- 川本康司, 村上裕晃, 石橋正祐紀, 笹尾英嗣, 渡辺和彦, 見掛信一郎, 池田幸喜, 2014, 超深地層研究所計画瑞浪超深地層研究所深度500mステージの壁面地質調査データ集, JAEA-Data/Code 2014-014.

- 久保大樹, 小池克明, 劉春学, 栗原新, 松岡稔幸, 2013, 地球統計学的手法による亀裂性花崗岩体の 3 次元透水係数モデリングと広域地下水流動解析への応用, 地学雑誌, 122, 139-158.
- 窪島光志, 石橋正祐紀, 笹尾英嗣, 鶴田忠彦, 田上雅彦, 湯口貴史, 2012, 超深地層研究所計画 地質・地質構造に関する調査研究—深度 300m までの地質・地質構造—, JAEA-Research 2012-037.
- 黒岩 弘 川本 康司 山田 信人 笹尾 英嗣, 2015, 超深地層研究所計画瑞浪超深地層研究所研究坑道におけるボーリングデータ集(12MI27 号孔～14MI51 号孔), JAEA-Data/Code 2015-003.
- 小坂寛, 三枝博光, 栗原新, 尾上博則, 2012, 超深地層研究所計画(岩盤の水理に関する調査研究)サイトスケールの地下水流動解析及び粒子追跡解析, JAEA-Research 2012-012, 2012.
- 齋正貴, 萩原大樹, 松島博之, 野田正利, 納多勝, 安藤賢一, 田中達也, 上田正, 本田ゆう子, 水野崇, 2010, 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—(2004 年 4 月～2008 年 3 月), JAEA-Data/Code 2010-010.
- 齋正貴, 新宮信也, 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—(2008 年度), JAEA-Data/Code 2011-003.
- 佐藤開, 2016, 土岐花崗岩における浸透率の空間分布と断層との関連性評価, 京都大学工学部卒業論文.
- 資源エネルギー庁, 2013, 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(平成 25 年度第 1 回)配布資料, [http://www.meti.go.jp/committee/sougouenergy/denkijigyou/houshasei\\_haikibutsu/25\\_01\\_haifu.html](http://www.meti.go.jp/committee/sougouenergy/denkijigyou/houshasei_haikibutsu/25_01_haifu.html), 2017 年 1 月 11 日閲覧.
- 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.
- 大丸修二, 尾上博則, 竹内竜史, 2012, 超深地層研究所計画(岩盤の水理に関する調査研究)主立坑断層を対象とした水理学的調査, JAEA-Research 2012-008.
- 電気事業連合会, 2016, 原子力・エネルギー図面集, <http://www.fepc.or.jp/library/pamphlet/zumenshu/>, 2016 年 1 月 14 日閲覧.

- 鶴田忠彦, 田上雅彦, 天野健治, 松岡稔幸, 栗原新, 山田泰広, 小池克明, 2013, 瑞浪超深地層研究所における深部地質環境のモデル化を目指した地質学的調査, 地質学雑誌, 119, 59-74.
- 萩原大樹, 岩月輝希, 長谷川琢磨, 中田弘太郎, 富岡祐一, 2015, 大規模地下施設の建設, 排水に伴う浅層地下水の地下深部への侵入— $^3\text{H}$ , CFCs,  $\text{SF}_6$  トレーサーを用いた評価—, 日本水文科学会誌, 45, 1-18.
- 長谷川隆, 川本康司, 山田信人, 大貫賢二, 大森一秋, 竹内竜史, 岩月輝希, 佐藤稔紀, 2015, 深度 500m 研究アクセス北坑道におけるボーリング調査報告書(13MI38 号孔～13MI44 号孔), JAEA-Technology 2015-011.
- 濱克宏, 見掛信一郎, 西尾和久, 笹尾英嗣, 三枝博光, 岩月輝希, 池田幸喜, 佐藤稔紀, 大澤英昭, 小出馨, 2014, 超深地層研究所計画年度計画書(2014 年度), JAEA-Review 2014-035.
- 濱克宏, 竹内竜史, 岩月輝希, 笹尾英嗣, 見掛信一郎, 池田幸喜, 松井裕哉, 大澤英昭, 超深地層研究所計画年度計画書(2016 年度), 2016, JAEA-Review 2016-015.
- 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—(2014 年度), JAEA-Data/Code 2016-001.
- 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.
- 水野崇, 青才大介, 新宮信也, 萩原大樹, 山本祐平, 福田朱里, 2013, 瑞浪超深地層研究所の建設に伴う地下水水質の変化, 日本原子力学会和文論文誌, 12, 89-102.
- 宮原智哉, 稲葉薫, 三枝博光, 竹内真司, 2002, 広域地下水流動研究実施領域における水収支観測結果と地下水流動スケールの検討, サイクル機構技報, 16, 137-148.
- 文部科学省, 2002, トリチウム分析法(2 訂), 127p.
- 湯口貴史, 鶴田忠彦, 西山忠男, 2010, 中部日本土岐花崗岩体の岩相と化学組成の累帯変化, 岩石鉱物科学, 39, 50-70.
- 湯口貴史, 鶴田忠彦, 水野崇, 國丸貴紀, 2011, 瑞浪超深地層研究所用地で採取された岩石試料の岩石学的・鉱物学的データ—全岩化学組成, 含有鉱物および鉱物組成—, JAEA-Data/Code 2011-009.
- Abdelgawad, A.M., Watanabe, K., Takeuchi, S., Mizuno, T., 2009. The origin of fluoride-rich groundwater in Mizunami area, Japan – Mineralogy and geochemistry implications, Engineering Geology, 108, 76-85.
- Bullister, J.L., Wisegarver, D.P., Menzia, F.A., 2002. The solubility of sulfur hexafluoride in water and seawater. Deep-Sea Research I. 49, 175-187.
- Caine, J.S., Evans, J.P., Forster, C.B., 1996. Fault zone architecture and permeability structure. Geology. 24, 1025-1028.

- Craig, H., 1961. Isotopic variations in meteoric waters. *Science*. 133, 1702-1703.
- Iwatsuki, T., Furue, R., Mie, H., Ioka, S., Mizuno, T., 2005. Hydrochemical baseline condition of groundwater at the Mizunami underground research laboratory (MIU), *Applied Geochemistry*, 20, 2283-2302.
- Iwatsuki, T., Hagiwara, H., Ohmori, K., Munemoto, T., Onoe, H., 2015. Hydrochemical disturbances measured in groundwater during the construction and operation of a large-scale underground facility in deep crystalline rock in Japan, *Environmental Earth Sciences*, 74, 3041-3057.
- Kashiwaya, K., Hasegawa, T., Nakata, K., Tomioka, Y., Mizuno, T., 2014. Multiple tracer study in Horonobe, northern Hokkaido, Japan: 1. Residence time estimation based on multiple environmental tracers and lumped parameter models, *J. Hydrol.* 519, 532-548.
- List, R.J., 1949. *Smithsonian Meteorological Tables*, sixth ed. Smithsonian Institution Press, Washington, DC.
- Lucas, L.L., Unterweger, M.P., 2000. Comprehensive review and critical evaluation of the half-life of tritium, *J. Res. Nat. Inst. Stand. Technol.* 105, 541-549.
- Matsubaya, O., Sakai, H., Kusachi, I., Satake, H., 1973. Hydrogen and oxygen isotopic ratios and major element chemistry of Japanese thermal water system. *Geochemical Journal*. 7, 123-151.
- NASA and METI, 2011, ASTER GDEM version 2, <https://reverb.echo.nasa.gov/>.
- NOAA, 2017. ESRL Global Monitoring Division - halocarbons and other atmospheric trace gases, <http://www.esrl.noaa.gov/gmd/hats/combined/SF6.html>, accessed on 6<sup>th</sup> Jan. 2017.
- Solomon, D.K., Cook, P.G., 2000.  $^3\text{He}$  and  $^3\text{He}$ . In: Cook, P., Herczeg, A.L. (Eds.), *Environmental Tracers in Subsurface Hydrology*. Kluwer Academic Publishers, Norwell, 397-424.
- Weiss, R.F., Price, B.A., 1980. Nitrous oxide solubility in water and seawater. *Mar. Chem.* 8, 347-359.

## 謝辞

本研究の実施にあたり、笹尾英嗣氏、岩月輝希氏、石橋正祐紀氏をはじめとする日本原子力研究開発機構の諸氏には、坑内での採水作業や各種データ提供などで研究全体を通して多大なるご協力をいただきました。山形大学湯口貴史先生には土岐花崗岩の全岩化学組成と鉱物組成の分析データを提供いただきました。また、大阪産業大学碯隆太先生、東京工業大学佐久間洋一先生にはトリチウムの液シン測定でご協力をいただきました。ここに記して関係各位に感謝の意を表します。

## 外部発表リスト

### 【学術論文】

論文 1 編を準備中

### 【口頭発表】

柏谷公希, 久保大樹, 佐藤開, 松田典大, 小池克明, 2016, 原位置パーミアメータ測定で明らかとなった断層周辺岩盤の浸透率の空間分布特性, 日本地球惑星科学連合 2016 年大会. (2016 年 5 月 24 日発表)

Kashiwaya, K., Kubo, T., Sato, K., Matsuda, N., Koike, K., 2016. Development of hydrogeological model and groundwater flow analysis considering permeability distribution around faults, 43rd International IAH Congress. (2016 年 9 月 27 日発表)

Kashiwaya, K., Kubo, T., Sato, K., Matsuda, N., Koike, K., 2016. Spatial variation of permeability around faults in Toki granite, Workshop on properties of active fault damage zones and fault dating. (2016 年 7 月 5 日発表)

柏谷公希, 多田洋平, 堀太至, 碯隆太, 佐久間洋一, 小池克明, 2017, 複数の地化学指標に基づく京都盆地地下水の滞留時間推定, 資源・素材学会平成 29 年度春季大会. (2017 年 3 月 27 日発表予定)

岡嶋純也, 柏谷公希, 多田洋平, 小池克明, 2017, 地下水の地球化学分析と物質移行解析による断層の水理特性の把握, JpGU-AGU Joint Meeting 2017. (2017 年 5 月 23 日発表予定)

他 1 件準備中

## 付録

### 六フッ化硫黄分析システムの妥当性検証

作製した六フッ化硫黄分析システムによる分析値の妥当性検証のため、(1)複数機関による同一試料の分析と、(2)京都盆地地下水の分析を実施した。

#### (1)複数機関による同一試料の分析

同一試料を複数の機関で分析し、分析結果を比較することにより作製した分析システムで得られる分析値の妥当性について検討した。

比較用試料は相対的に SF<sub>6</sub>濃度が高いもの(試料 H とする)と低いもの(試料 L とする)を用意した。試料 H は京都大学桂キャンパスの水道水を樹脂製コンテナに入れて 2 日半ほど大気中に放置し、各機関に送付する全ての瓶と蓋を水に浸けて 1 時間程度経過した後に、水中で蓋を締めたものである。試料 L は京大桂キャンパスの水道水を樹脂製コンテナに入れて窒素ガスで 1 時間バブリングし、その後 1 時間大気中に放置、さらに瓶と蓋を浸けて 1 時間程度経過した後に、水中で蓋を締めたものである。

京都大学(以下、「京大」という)に加え、2つの機関での分析値を表に示す。作製した分析システムによる試料 H の分析結果は、機関 A よりも低く、機関 B よりも高い。また、試料 L の分析結果は、京大と機関 A では同程度の値が得られている。試料 L については、機関 B では輸送中の容器破損のため分析値が得られなかった。以上から、作製した分析システムにより問題無く濃度測定が行えているものと評価できる。

表 A-1 比較用 SF<sub>6</sub> 試料の分析結果

分析機関	試料H SF <sub>6</sub> 濃度	試料L SF <sub>6</sub> 濃度
	fmol/kg	fmol/kg
京大	3.06	0.31
機関A	3.23	0.33
機関B	2.23	輸送中の容器破損により分析できず

#### (2)京都盆地地下水の分析

滞留時間の短い地下水が分布し、高濃度で SF<sub>6</sub>が検出されることが期待できる京都盆地から地下水試料を採取し、作製した分析システムを用いて SF<sub>6</sub>濃度測定を実施した。

分析で得られた SF<sub>6</sub>濃度をボックスプロットとして図 A-1 に示す。瑞浪で採取した地下水試料の SF<sub>6</sub>濃度と比較し、京都盆地の地下水試料のはるかに高い SF<sub>6</sub>濃度を示す。瑞浪地域の地下水の滞留時間は、放射性炭素に基づく推定から堆積岩中部で 9300 年程度、花崗岩で

5000年以上という報告があり(Iwatsuki et al., 2005), 浅層地下水の混合によりSF<sub>6</sub>が検出されると考えられている(萩原ほか, 2015)。これに対して, 京都盆地には透水性の高い未固結の堆積物が分布しており, 滞留時間が短いことで高いSF<sub>6</sub>濃度を示すものと解釈できる。さらに, 今回分析を行った地下水試料の半数程度は, 大気平衡では説明できない高いSF<sub>6</sub>濃度を示した。SF<sub>6</sub>濃度は特に都心部の井戸で高いことから, 産業利用されているSF<sub>6</sub>の汚染による濃度上昇と考えられる。今回の比較では, 水理地質特性や既存の知見などと矛盾のない結果が得られ, 作製した分析システムを用いて得られたSF<sub>6</sub>濃度の分析値の妥当性が示された。

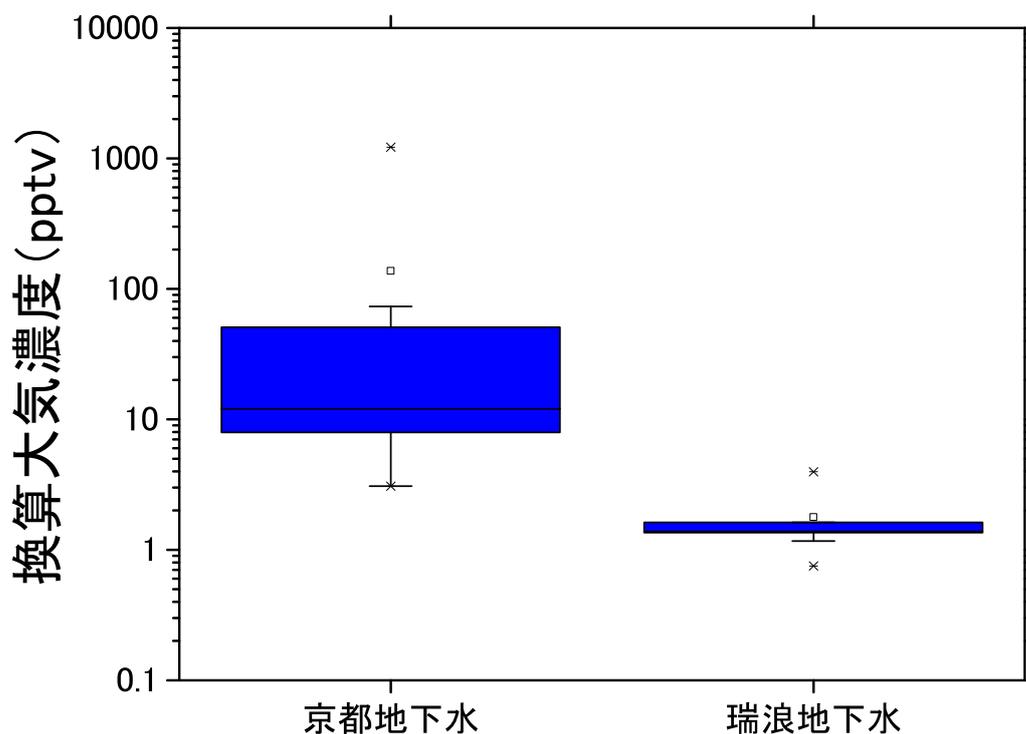


図 A-1 京都盆地地下水と瑞浪地下水の SF<sub>6</sub> 濃度の比較

### シュミットロックハンマー測定に関する予備検討

昨年度実施した断層周辺での浸透率測定結果と比較し, 浸透率変化が生じた原因を解釈するため, 浸透率を測定した岩盤壁面を対象としたシュミットロックハンマー測定を計画している。本年度は予備検討として, 様々な岩石試料を対象にシュミットロックハンマー測定を行い, 岩石の見かけ密度と比較した。

シュミットロックハンマー測定を行った供試体は、全て岩種の異なる 12 試料である(一覧を測定結果とともに表 A-2 に示す)。供試体は約 10cm 四方の立方体であり、シュミットロックハンマーにより 6 つの面の中央部でそれぞれ 1 回ずつ、合計 6 回の反発硬度測定を行った。なお試料は、測定時床に置き、鉛直下向きにシュミットロックハンマーを押し付けることで測定を行った。ノギスにより供試体の大きさを測定するとともに、電子天秤を用いて質量を求めた。供試体の体積と質量から見かけ密度を算出し、シュミットロックハンマー測定で得られた反発硬度の平均値と比較した。

供試体の一覧と、反発硬度の平均値、見かけ密度の測定結果を表 A-2 に示す。また、見かけ密度と反発硬度の平均値の相関を図 A-2 に示す。図 A-2 から明らかのように、反発硬度と見かけ密度は強い正の相関を示す( $R^2=0.94$ )。岩種により構成鉱物は異なるものの、一般的な造岩鉱物の密度にはそれほど大きな違いがないことを考慮すると、これら岩石試料の見かけ密度の違いは主に空隙率の違いに起因すると推測される。その場合、シュミットロックハンマー測定により、岩盤の空隙率やマイクロクラックの頻度の違いを検出できる可能性がある。岩石組織など他の因子も反発硬度に影響する可能性があるが、昨年度浸透率を測定した箇所は全て土岐花崗岩で同一の岩石であり、今回測定した試料に比べて岩石組織や鉱物組成の違いの影響も小さいことから、さらに明瞭に空隙率や力学特性の差異を検出できることが期待され、本手法の有効性を確認できた。

表 A-2 シュミットロックハンマーによる反発硬度と見かけ密度の測定結果

No.	岩種	反発硬度平均値	見かけ密度
		-	kg/m <sup>3</sup>
1	軽石凝灰岩	25	1485
2	黒雲母流紋岩	46	2034
3	頁岩	60	2706
4	カンラン石玄武岩	57	2688
5	凝灰質砂岩	37	2038
6	溶結凝灰岩	27	1251
7	安山岩	59	2595
8	デイサイト	52	2501
9	斑禰岩	62	2891
10	花崗閃緑岩	61	2669
11	石英閃緑岩	63	2783
12	閃緑岩	63	2672

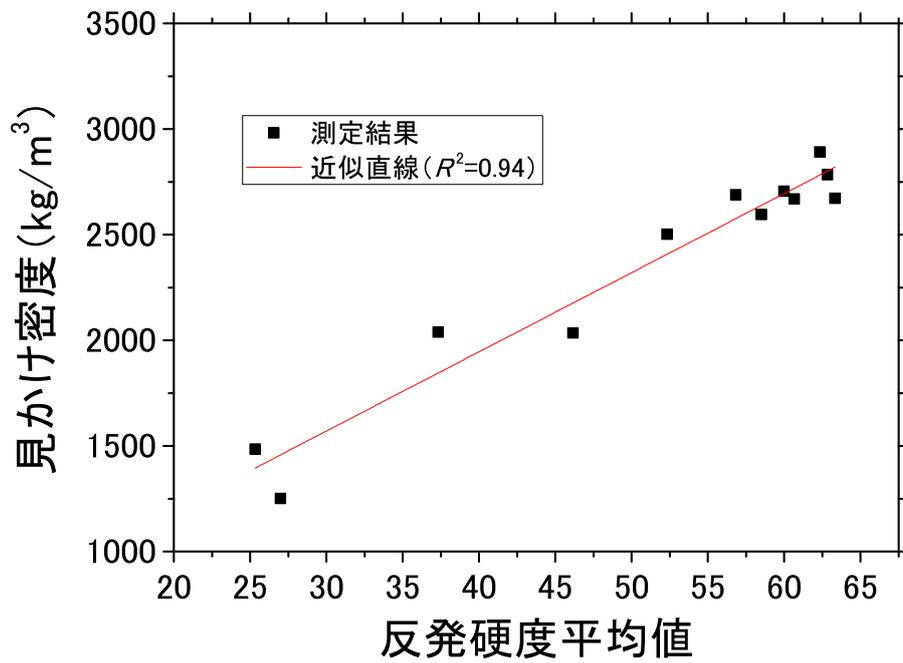


図 A-2 反発硬度と見かけ密度の相関



## 研究報告 2

# 岩石き裂の治癒作用を利用した不連続面の バリア性能向上に関する研究

京都大学 大学院工学研究科

奈良 禎太



## 1. 背景・目的

放射性廃棄物の地層処分では、岩盤を天然バリアとして使用する。天然バリアとなる岩盤には、放射性物質の移行を抑制する機能が期待される。岩盤内では、き裂や空隙のネットワークが流体の流路となるため<sup>1)</sup>、遮蔽性向上には、き裂の進展を防ぐこと及び、き裂や空隙を閉塞させることが効果的であると考えられる。

また、天然バリアとなる岩盤には、高い長期強度があることが望ましい。水は岩石の強さ<sup>2-6)</sup>および破壊じん性<sup>7,8)</sup>に顕著に影響することが知られている。例えば、含水率が高い場合、岩石の強さは低下する。そのため、遮蔽性が高い領域で囲まれた岩盤は、水の流入が抑制されるため、強度が高い状態が確保されやすく、力学的に安定しやすい状況になると考えられる。き裂開口幅やき裂・空隙のネットワークの形状は流れに影響を及ぼすことが知られている<sup>9-16)</sup>。特に、開口幅が小さい場合や、流路の形状が複雑なほど流れは抑制される。さらに、微細な粒子が密に詰まった部分では遮蔽性は高くなる。

北欧（フィンランドやスウェーデン）での放射性廃棄物処分においては、結晶質岩盤が用いられている。北欧の結晶質岩の場合、き裂密度が極めて低いことが知られている。一方、日本では地殻運動が活発であり、地下には断層や節理などの不連続面が数多く分布する。そのため、日本の花崗岩は、北欧のものよりも一般にき裂が多く含まれ、10倍以上き裂密度が高いと言われている<sup>17)</sup>。ゆえに、地下利用の際、不連続面を完全に避けることは困難である。

ただし、岩石に巨視き裂が含まれる場合でも、必ずしも透水係数が高くなるとは限らないという報告がいくつか存在する。例えば、火成岩に断層が含まれる場合（巨視き裂に微細な粒子が含まれている状態）、透水係数が低下することが示されている<sup>16)</sup>。Ishibashi et al.<sup>18)</sup>は、岩石内に地下水が流れ込み、微細な粘土鉱物がき裂表面に沈殿して、き裂が充填されるということを報告している。このような、粘土による岩石内のき裂の充填現象を利用すれば、閉塞した節理や断層を利用する形で岩石の遮蔽性を高められる可能性があり、放射性廃棄物処分で大いに役立つ技術を確立できると考えられる。

また、放射性廃棄物処分施設を地下岩盤に設ける場合、大量のセメント系材料が使用されることとなる。ゆえに、周辺の地下水は、カルシウムイオン濃度が高い状態となると予想される。地下水中のカルシウムイオン濃度が高い場合、岩盤表面にはカルシウム化合物が析出し、き裂が充填される可能性がある。この現象は室内試験でも認められている。例えば、Nakao et al.<sup>19)</sup>による、岩石とコンクリートを水中と一緒に保存する試験や、Nara et al.<sup>20)</sup>による、岩石を水酸化カルシウム水溶液中に保存する試験では、岩石表面にカルシウム化合物が沈殿

することが示されている。通常岩石内には多くのき裂が存在し、天然バリアとしての遮蔽性能が十分であるか否かが問題となることがある。しかし、放射性廃棄物処分施設の建設のために用いられるセメント系材料由来のカルシウムが豊富に含まれる地下水の影響により、カルシウム化合物の沈殿によってき裂が充填され、岩石の透水係数も低く保たれる可能性がある。

このように、岩石内のき裂が粘土やカルシウム化合物の沈殿で充填される場合は、透水係数が低く保たれ、岩盤が天然バリアとして十分な遮蔽性能を保持できるということが考えられる。ただし現状では、き裂の充填がどの程度岩石の透水係数に影響するかについては十分には検討されていない。

そこで本研究では、粘土及び破壊した岩石の遮蔽性を、透水試験を用いて調べる。特にここでは、粘土の透水係数を測定するとともに、粘土がき裂を充填する場合に透水係数がどのように変化するかを調べることにした。

また、岩石のき裂進展の時間依存性挙動を、破壊力学試験を用いて調べる。特に、長期間にわたる試験を水中環境下で行うことによって、極めて低い速度のき裂進展を測定することを目指すとともに、カルシウムイオン濃度が高い水中環境下で試験を行い、蒸留水中で得られた結果と比較することによって、カルシウムイオン濃度がき裂進展速度にどのように影響するかを調べる。なお本研究では、結晶質岩石を対象として研究を進めることとし、花崗岩を岩石試料として用いる。

上記の一連の研究成果により、放射性廃棄物処分施設ニアフィールドの天然バリアの長期性能が明らかとなることが本研究を行う意義である。特に、未だ不明である修復されたき裂を含む岩石の透水特性や、極めて遅いき裂進展の計測によって、長期にわたる岩石の材料特性が明らかになり、放射性廃棄物処分プロジェクトに代表される岩盤の長期的な利用に大きく貢献できる成果が挙げられることが期待できる。

## 2. 全体研究計画（4 カ年における全体計画）

平成 26 年度は，破壊力学及び透水試験を行う環境を整備し，予備試験を実施する．なお，試験に用いる岩石の強度，弾性率，弾性波速度等の材料物性を予め調べておく．

### (1) ダブルトーション法による長期破壊力学試験の予備実験・データ取得環境整備

破壊力学試験法であるダブルトーション法による測定を予備実験として 1～2 週間程度連続で行うことにより，長期連続測定によるき裂進展データ取得環境の整備を実施する．可能であれば，1 カ月間近く連続して測定する実験を行う．

### (2) 岩石を用いた透水試験の予備実験・データ取得環境整備

岩石試料（花崗岩または砂岩）を用いて透水試験の予備実験を行うことにより，岩石の遮蔽性（バリア性能）に関するデータ取得環境の整備を実施する．

平成 27 年度からは，破壊力学試験及び透水試験によるデータ取得を本格的に行うこととする．また，顕微鏡観察を行い，岩石内部の観察やき裂閉塞に寄与した物質の同定を行う．

さらに，本研究の検討内容の妥当性，研究を進めるべき方向性などについて，専門家・有識者らを訪問・招聘し，研究内容について議論し，研究の有効性向上に努める．

### (1) 長期破壊力学試験によるき裂進展・閉塞同時検出試験の実施

大気中及び水中環境下において，1 カ月間程度連続で破壊力学試験を行い，き裂進展に関するデータを取得する．さらに，き裂閉塞に関するデータの取得を目指す．

### (2) 岩石内部の観察

光学顕微鏡や電子顕微鏡を用いることにより，岩石内部構造の観察を行うとともに，き裂の閉塞に寄与した物質の同定を行う．

### (3) 節理を含む岩石での透水試験の実施

節理（巨視的な引張き裂）が含まれている岩石試料で透水試験を行い，巨視き裂が岩石の遮蔽性に及ぼす影響を調べる．

### (4) 粘土層を含む岩石での透水試験の実施

巨視き裂を含む岩石試料（花崗岩）が粘土層で充填されている場合の透水係数を測定し，断層粘土が岩石の遮蔽性に及ぼす影響を調べる．

平成 28 年度は，前年度と異なる条件下での破壊力学試験及び透水試験を行

うことにより、岩石のバリア性能に関するデータ収集を行う。また、顕微鏡やX線回折分析を行い、岩石内部の観察やき裂閉塞に寄与した物質の同定を行う。

前年度同様、本研究の検討内容等について議論を深めるために、国内外の専門家を訪問または招聘し、議論を行い、研究内容の向上に努める。

(1) 長期破壊力学試験によるき裂進展・閉塞同時検出試験の実施

水中環境下において1カ月間程度連続で破壊力学試験を行い、き裂進展に関するデータを取得するとともに、き裂閉塞に関するデータの取得を目指す。特に、前年度とは異なる環境下で試験を行うこととし、周辺環境のカルシウム濃度が異なる水中環境下で試験を行うことによって、カルシウム濃度がき裂の進展や閉塞に及ぼす影響を調べる。

(2) 顕微鏡観察及びX線回折分析による岩石内部の観察

前年度同様、顕微鏡を用いることにより、岩石内部構造の観察を行う。さらに、岩石表面において、カルシウム化合物の析出が生じやすい場所、生じにくい場所について調べる。また、X線回折分析を行うことによって、き裂の閉塞に寄与した物質の同定を行う。

(3) 閉塞した節理を含む岩石での透水試験の実施

カルシウム化合物や粘土によって閉塞した節理（引張破壊）を持つ岩石で透水試験を行うことにより、析出物によって閉塞した節理を持つ岩石の遮蔽性を調べる。

平成29年度は、破壊力学及び透水試験に関するデータを取得するとともに、データの取りまとめを行い、総括報告書を作成する。

この年度においても、本研究の検討内容等について議論を深めるために、国内外の専門家等を訪問・招聘して議論を行い、研究内容の向上に努める。

(1) 長期破壊力学試験によるき裂進展・閉塞同時検出試験の実施

カルシウム濃度の異なる水中環境下において1カ月間程度連続で破壊力学試験を行い、き裂進展及び修復に関するデータを取得し、これまでのデータを取りまとめることにより、カルシウム濃度がき裂の進展や閉塞に及ぼす影響について解明する。

(2) 顕微鏡観察及びX線回折分析による岩石内部の観察

顕微鏡観察により、岩石中でのカルシウム化合物の析出が生じやすい場所と生じにくい場所を解明する。また、X線回折分析によって、き裂の閉塞に寄与した物質を同定し、き裂閉塞部の耐久性について解明する。

(3) 閉塞した節理を含む岩石での透水試験の実施

カルシウム化合物の析出によって閉塞した節理（引張き裂）を持つ岩石での透水試験を進め、得られたデータを取りまとめることにより、析出物によって閉塞した節理を持つ岩石の遮蔽性を評価する。

(4) 粘土層を含む岩石での透水試験の実施

粘土層を導入した岩石の透水試験を進め，得られたデータを取りまとめることにより，粘土が岩石の遮蔽性に及ぼす影響を評価する．

### 3. 平成 27 年度の成果概要

平成 27 年度は、岩石内の不連続面（節理や断層）の遮蔽性を調べるために、インタクトな岩石、巨視き裂を含む岩石、粘土層でき裂が充填された岩石を用いて透水試験を行った。また、長期間にわたるダブルトーション試験法での測定により、極めて低い速度のき裂進展を測定した。さらに、岩石のき裂進展を進めながら同時に鉱物の析出によるき裂閉塞を起こす試験を行い、き裂進展が抑制できるか否かを調べた。

透水試験装置の置かれた断熱室の室内温度を強制的に変化させ、それに伴い取得される貯留槽圧力やその差圧及び封圧のデータにどの程度影響が出るのかを実験的に確かめた結果、供試体の上流側と下流側に接続されている貯留槽の圧力差（差圧）と貯留槽圧そのもの、それから封圧については、この順番で環境温度変化に対して敏感に反応することが示された。透水試験では、周辺環境の顕著な温度の変動はもちろんのこと、微小な温度変化でさえ、実験データに影響を及ぼすことが示された。環境温度変化の影響を抑えるためには試験時間を短くする工夫は有効であるが、比較的短時間で実施可能なランジェントパルス透水試験でさえも、実験環境の温度変化には注意が必要であることがわかった。

また、土岐花崗岩を用いて室内透水試験を行った結果、インタクトな供試体及び緑泥石で充填された層を含む供試体においては、透水係数が低くなり、またこれらの供試体では、透水係数の圧力依存性もほとんど認められないことが示された。一方、巨視き裂を含む供試体では、透水係数が極めて高くなった。また、巨視き裂を含む供試体では、圧力の増大に伴い、透水係数が低下することが示された。イライトで充填された層を含む供試体では、巨視き裂入りの供試体よりも 3 オーダー程度透水係数が低く、インタクトな供試体との透水係数の差は 1 オーダー程度であった。また、圧力の増大に伴い、透水係数が低下することが示された。

カルシウム濃度が異なる 6 種類の水中に岩石を 1 ヶ月間保存し、カルシウムイオン濃度測定、重量測定、走査型電子顕微鏡による表面観察を行うことによって、水中保存前後で試験片表面への鉱物析出を評価した。その結果、すべての岩石試験片において鉱物の析出が確認でき、その析出量は水中のカルシウムイオン濃度に依存することが示された。この結果により、カルシウム化合物が析出することによって、岩石内のき裂を修復することが可能であると考えられる。

定変位ダブルトーション法による測定を 1～2 週間程度連続で行うことにより、どの程度低いき裂進展速度まで測定できたか、き裂進展限界の検出は可能か等を検討した。その結果、従来得られているものよりも低いオーダーのき裂

進展速度まで測定できた。ただし、き裂進展限界は認められなかった。また、カルシウムイオン濃度が高い環境下では、き裂進展速度がより低くなり、サブクリティカルき裂進展が抑制されることが示された。

## 4. 平成 28 年度研究実施内容

### 4.1 平成 28 年度の計画, 実施方法

平成 28 年度では, 前年度と異なる条件下で透水試験及び破壊力学試験を行うこととした。

透水試験においては, 粘土が岩石内のき裂を充填していることが認められることから, 原位置岩盤で採取された粘土を用いて透水試験を行い, 粘土の透水係数を明らかにすることとした。さらに, カルシウム化合物や粘土によって閉塞した節理(引張破壊)を持つ岩石で透水試験を行うことにより, 析出物によって閉塞した節理を持つ岩石の遮蔽性を調べることとした。

破壊力学試験では, 水中環境下において 1 カ月間程度連続で破壊力学試験を行い, き裂進展に関するデータを取得するとともに, き裂閉塞に関するデータの取得を目指すこととした。特に, 周辺環境のカルシウム濃度が異なる水中で試験を行うことによって, カルシウム濃度がき裂の進展や閉塞に及ぼす影響を調べる。さらに, 顕微鏡を用いることにより, 岩石内部構造の観察を行うとともに, き裂の閉塞に寄与した物質の同定を行うこととした。

## 4.2 粘土の透水係数測定

### 4.2.1 序論

日本のような変動帯地下環境においては、地下の岩盤に断層や節理といった不連続面が数多く分布している。したがって、地下利用の際、不連続面を完全に避けることは困難である。しかし、岩盤のき裂は、鉱物の沈殿により充填され、遮蔽性能を回復している場合が見受けられる。このような環境は、岩盤を天然バリアとして利用する放射性廃棄物の地層処分において好ましいものである。加藤ら<sup>21)</sup>は、土岐花崗岩を用いて、健全な岩石、天然の巨視き裂を含む岩石、天然の地下環境下で修復されたき裂（鉱物脈）を含む岩石を供試体として、室内透水試験を実施して透水係数を測定している。そして、その結果に基づき、き裂が修復される（鉱物で充填される）ことによって、それを含む岩石の見かけの透水係数がどの程度回復する（低下する）のかを検討している。修復されたき裂を含む岩石の透水係数は、き裂を修復（充填）している物質の性質、すなわち透水特性に大きく影響されると考えられる<sup>16)</sup>。そこで本章では、瑞浪超深地層研究所の研究坑道においてボーリングにより得られたインタクトな土岐花崗岩と坑道壁面から採取された粘土を供試体として、同じ室内試験装置でそれぞれ個別に透水係数の測定を行い、透水特性の評価をしておくことにした。

粘土は、岩石と違い自立していないため、一般に剛性の高い容器に詰め、圧密度と飽和度を調整して透水試験は実施される。しかし、本研究では、岩石供試体用の透水試験装置を用いるため、粘土供試体に対しても上下をステンレス製のエンドピースではさみ、側面は柔軟なゴムスリーブで包み込んでいる。透水試験の際には封圧と間隙圧を個別に設定することによって供試体の応力状態を調整するが、粘土の Skempton の  $B$  値は 1 に近いいため、封圧を変化させるとそれに比例して間隙圧も変化してしまう。そのため、有効封圧は 0 に近い条件となる。また、供試体の透水性が低いためトランジェントパルス法を採用しているが、間隙圧を急激に上昇させると圧力容器の容量の関係で間隙圧が封圧を上回り、間隙水が封圧媒体に漏出することになる。本研究では、これらの問題に対処して、インタクトな岩石と粘土を供試体として同一の実験装置で透水試験を実施し、それぞれ個別に透水特性を評価した結果を報告する。

### 4.2.2 透水試験法の理論

透水性の低い岩石の水理特性を評価するための室内透水試験法としては、トランジェントパルス法<sup>22)</sup>が適している。トランジェントパルス法の厳密な解析

解は Hsieh et al.<sup>23)</sup> によって導かれており，次式で表される．

$$\frac{\Delta h(t)}{H} = \frac{h_u(t) - h_d(t)}{H} = 2 \sum_{m=1}^{\infty} \frac{\exp(-\alpha \phi_m^2) \left\{ \beta(1 - \sec \phi_m) + \frac{\gamma \phi_m^2}{\beta} (\gamma + \sec \phi_m) \right\}}{\frac{\gamma^2 \phi_m^4}{\beta^2} + \frac{\phi_m^2}{\beta} (\gamma^2 \beta + \gamma^2 + \gamma + \beta) + \beta^2 + \gamma \beta + \beta} \quad (1)$$

ただし， $\alpha$ ， $\beta$ ， $\gamma$  は，次式で定義される無次元パラメータである．

$$\alpha = \frac{Kt}{l^2 S'}, \quad \beta = \frac{S' A l}{S_u}, \quad \gamma = \frac{S_d}{S_u} \quad (2)$$

これらの意味するところは， $\alpha$  が無次元時間， $\beta$  が上流側貯留槽の圧縮貯留量  $S_u$  [m<sup>2</sup>] に対する供試体の圧縮貯留量の比， $\gamma$  が上流側貯留槽の圧縮貯留量に対する下流側貯留槽の圧縮貯留量  $S_d$  [m<sup>2</sup>] の比である．無次元時間  $\alpha$  は，供試体の透水係数  $K$  [m/s] や比貯留率  $S'$  [m<sup>-1</sup>]，高さ  $l$  [m] の影響を取り除いた試験時間を表わしている．そのほか， $t$  は水頭パルス負荷後の経過時間 [s]， $h_u(t)$  及び  $h_d(t)$  はそれぞれ経過時間  $t$  における上流側及び下流側の貯留槽内の水頭[m] であり，その差を  $\Delta h(t)$  とする． $H$  は水頭パルスの大きさ[m] であり， $\Delta h(0)$  に等しい． $A$  は供試体の断面積[m<sup>2</sup>] である． $\phi_m$  ( $m = 1, 2, \dots$ ) は次の非線形方程式の非零で正の実数根であり，無数に存在する．

$$\tan \phi = \frac{(1 + \gamma) \phi}{\frac{\gamma \phi^2}{\beta} - \beta} \quad (3)$$

なお， $\beta$  が十分小さい場合，すなわち供試体自体の圧縮貯留量が貯留槽の圧縮貯留量に比べて無視できるほど小さい場合には，次式で与えられる Brace et al.<sup>12)</sup> の近似解を適用可能である．

$$\frac{\Delta h(t)}{H} = \exp \left\{ -\frac{K A t}{l} \left( \frac{1}{S_u} + \frac{1}{S_d} \right) \right\} \quad (4)$$

### 4.2.3 試料

本研究では、試料として、岩石試料と粘土試料の二つを用意した。前者は、インタクトな花崗岩試料であり、瑞浪超深地層研究所の研究坑道（GL-200m）においてボーリングにより得られた中粒～粗粒の黒雲母花崗岩（土岐花崗岩）である。後者は、研究坑道（GL-200m）の壁面から採取された雲母粘土鉱物である。

花崗岩試料は、ボーリングコアの健全な部分を抽出し、直径 5.0 cm、高さ 2.5 cm のディスク状に整形した。図 1 に整形した花崗岩試料を示す。整形後の供試体は、デシケーター内で蒸留水に沈めた状態で数時間真空脱気し、含水飽和させている。真空脱気後は、圧力容器にセットするまでの間、蒸留水に沈めたまま真空状態で保管した。



図 1 透水試験で用いた花崗岩試料

粘土は、岩石と違い自立していないため、一般に透水試験の際には剛性の高い容器に詰め、圧密度と飽和度を調整して測定は実施される。しかし、本研究では、装置の違いの影響を避けるため、岩石供試体の測定に用いたものと同じ透水試験装置を使用している。そのため、粘土試料に対しても、最終的に岩石供試体と同様の形状となるようにゴムスリーブに試料を詰めて上下をエンドピースではさむようにしている。図 2 に原位置岩盤中に存在している粘土の写真、図 3 に走査型電子顕微鏡で撮影された粘土の画像を示す。



(a)



(b)

図2 粘土試料.

(a): 原位置岩盤（花崗岩）中に存在する粘土, (b): 原位置岩盤より取り出した粘土

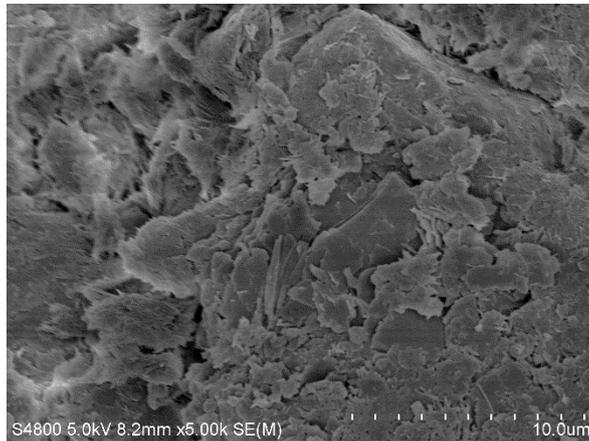


図3 粘土試料の走査型電子顕微鏡画像

粘土試料を用いて行われた X 線回折分析の結果を図4に示す。この図より、主な粘土鉱物はイライトであることがわかる。また、石英や長石等の明瞭なピークの外、方解石や緑泥石のピークも認められている。

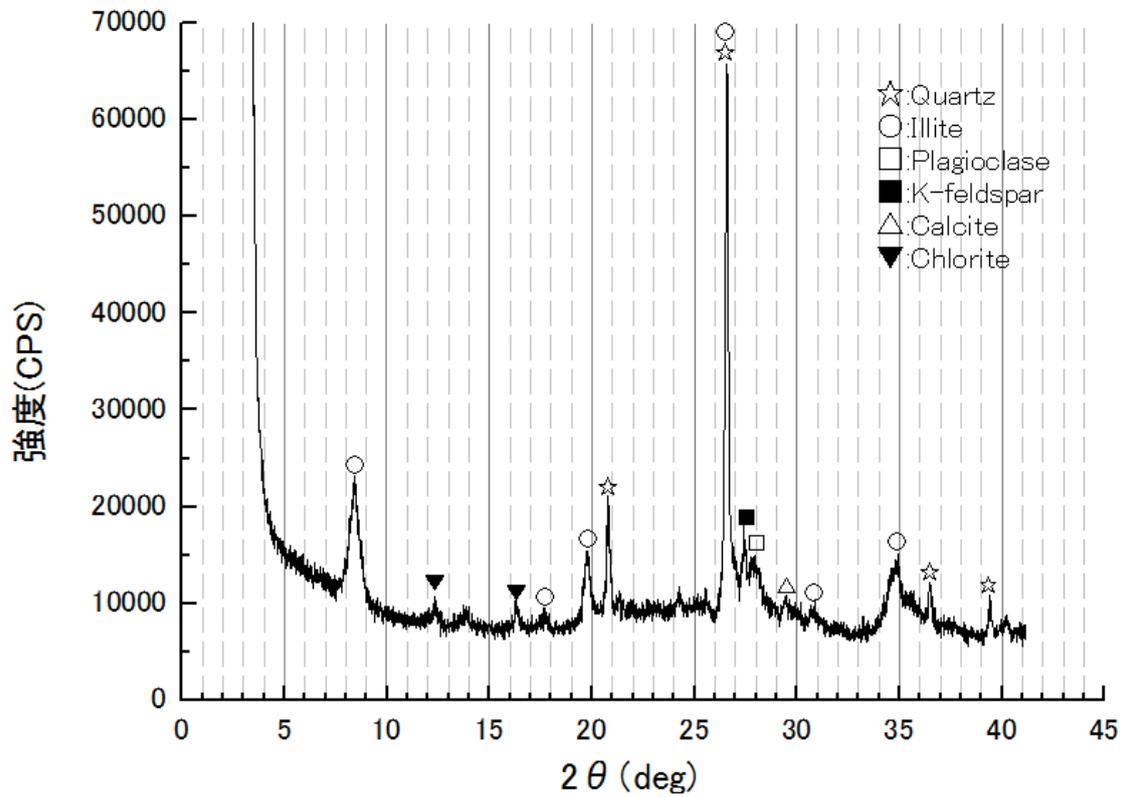


図4 粘土試料におけるX線回折分析結果

レーザー回折式の粒子径分布測定装置を用いて得られた粘土試料の粒径分布を図5に示す. 50%通過径を平均粒径とすると, 平均粒径は7.445 $\mu\text{m}$ となった.

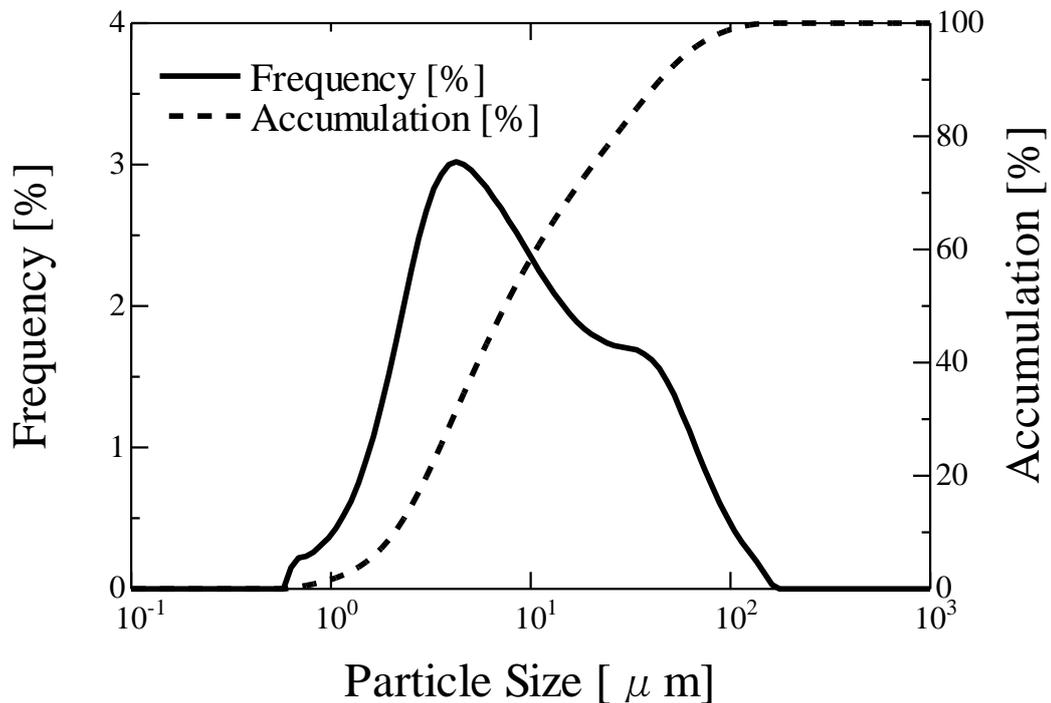


図5 粘土試料の粒径分布

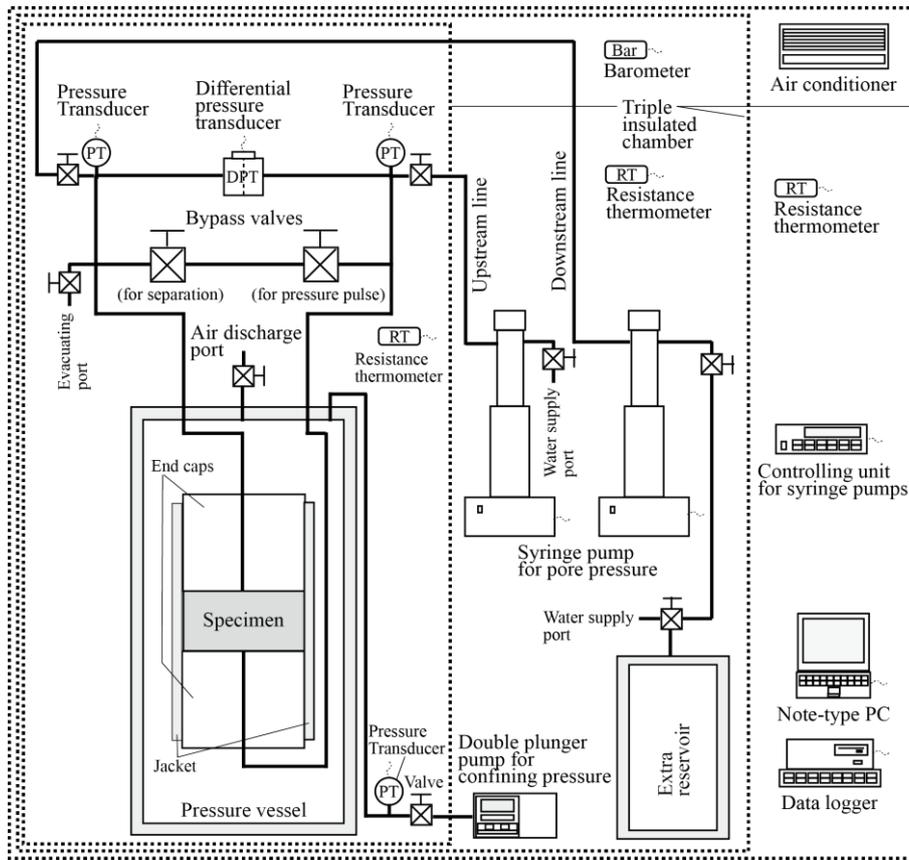
一般に、花崗岩と粘土の違いは次のようである。花崗岩は、高剛性であり、空隙率が低く、低透水性で低貯留性である。一方、粘土については、低透水性という点だけは花崗岩と同じであるが、それ以外はすべて逆である。すなわち、低剛性、高空隙率、低透水性、高貯留性ということになる。さらに、花崗岩の Skempton の  $B$  値が  $0.55\sim 0.85$  であるのに対して、粘土のそれは  $0.99$  という値が示されている<sup>24)</sup>。したがって、粘土に関しては、封圧と間隙圧を完全に独立に制御することは難しく、有効封圧がほぼ  $0$  の状態で透水試験を実施しなければならない。そのため、透水試験に際しても後述するような工夫が必要となる。

#### 4.2.4 試験装置

本研究では、温度調整が可能な透水試験システム<sup>25-28)</sup>を使用した(図6)。本システムの特徴は、実験室内に建てられた恒温室が三重の断熱構造となっており、恒温室内の一番外側にエアコンを設置して空調し、圧力容器が置いてある一番内側の断熱スペースには熱源や光源を置いていないことである。



(a)



(b)

図6 トランジェントパルス透水試験装置. (a): 写真, (b): 概要図

本システムは、大きく分けて、拘束流体系、間隙流体系、制御・記録系及び独立した温度制御系から構成されている。

拘束流体系には、供試体を設置する圧力容器、拘束圧用ポンプ、配管類が含まれる。今回使用した小型圧力容器は静水圧で耐圧 10MPa である。配管類は、高圧条件下における水漏れを避けるため、超高圧用のチューブやバルブを使用している。また、拘束圧用ポンプとしてはダブルプランジャーポンプ（ジーエルサイエンス社製 PU610-0X）を利用している。

間隙流体系は、シリンジポンプ（ISCO 社製 100DX, 2 台）、貯留槽、セパレート用バルブを含む配管類から成る。シリンジポンプは、一定圧力あるいは一定流量で流体挙動を制御可能であり、流量に関しては 50 mL/min から 0.01  $\mu$ L/min の範囲を $\pm$ 3%の精度で、圧力に関しては 1 kPa の分解能で、最大 69 MPa まで制御できる。シリンジポンプを上流側と下流側それぞれに 1 台ずつ接続し、間隙水を供給し、間隙水圧を調整している。透水試験に際しては、シリンジポンプのシリンダーが貯留槽の役割を担う。なお、下流側の圧力を安定させるために接続されている追加の貯留槽（850 mL）は今回使用していない。配管類は、高圧条件下における漏水を防ぐために、超高圧用のチューブやバルブを使用している。

制御・記録系には、データロガーとシリンジポンプ用コントローラー及び各種計測計（差圧計、圧力計、温度計）が含まれる。圧力としては、拘束圧、上流側及び下流側配管内の水圧、2 台のシリンジポンプ内の圧力、気圧、そして上流一下流間の差圧が計測されている。差圧計（Validyne 社製 DP15-42）は高線形性を有し、本実験で重要となる供試体の両端の間隙圧の差を計測するために使われる。また、シリンジポンプ内蔵の圧力計は、配管内の圧力を計測するために使われ、配管の漏水をチェックする時にも使われる。

差圧は温度変化に敏感に反応するため、試験中の温度変化をなるべく小さく抑えたい。そこで、前述のように、恒温室内の一番外側にエアコンを設置して空調し、圧力容器が置いてある一番内側の断熱スペースには熱源や光源を置いていない。これらの結果として、圧力容器周囲の温度変化は、試験中は $\pm$ 0.1 $^{\circ}$ C以下に抑えられている。

#### 4.2.5 試験手順

前節で説明した透水試験システムは、複数種類の透水試験手法を連続して適用可能である。本研究では、試験時間を要する低透水性の供試体に対する透水試験を実施するため、トランジェントパルス法<sup>22)</sup>を採用した。本システムは岩石試料用に設計されたものであるため、粘土試料に適用する際には、いくつか

の工夫が必要である。岩石試料の透水試験の際には封圧と間隙圧を独立に設定することによって供試体の応力状態を調整するが、粘土試料の場合には、その Skempton の  $B$  値がほぼ 1 であり、柔軟なゴムスリーブを使用していることもあり、封圧を変化させると間隙圧も変化し、間隙圧を変化させれば封圧も変化することになり、有効封圧は 0 に近い状態となっている。したがって、封圧や間隙圧を変化させるときには、間隙圧が封圧を超えないように注意が必要である。例えば、トランジェントパルス法を採用しているが、間隙圧を急激に上昇させると圧力容器の容量の関係で間隙圧が封圧を上回り、間隙水が封圧媒体に漏出することになる。このように間隙流体と封圧媒体が混合した場合には試験の中止が妥当である。

岩石試料に対する透水試験の手順は加藤ら<sup>28)</sup>を参照されたい。ここでは、粘土試料に対して、その特性を踏まえた実験手順を以下に示す。

- (1) 所定の長さのバイトンゴムスリーブの片側にだけエンドピースを差し込んだ状態にして、ゴムスリーブの中に均等に粘土試料を詰める。このとき、粘土試料の体積は岩石試料のそれに近づくように努める。粘土試料を詰め終わった後に、もう片方のエンドピースを差し込み、それを固定円盤にはさみ、圧力容器の上蓋の裏側（内側）に設置し、間隙水配管類を接続する。そして、封圧媒体（水）で満たされている圧力容器内に収める。
- (2) ダブルランジャーポンプで封圧を 500 kPa 程度まで上げ、それを一定に維持した状態で、貯留槽や配管・継手・バルブに残っている空気や間隙水に溶解している気泡を取り除くために真空脱気をする。ここで、粘土試料の水分が抜け切るのを防ぐため、脱気は数十分程度とした。脱気後はシリンジポンプを使って間隙水を供給し、間隙圧が封圧を上回らないように注意しながら所定の圧力まで上げ、それを維持する。
- (3) 断熱室内の温度変化や一定圧力で動作させているシリンジポンプの流量をモニタリングする。これにより、室温の安定化を図ると同時に漏水のチェックも行う。上述した温度制御を達成するまでには、この状態で数日を要する。また漏水を発見した場合には、配管の継手やバルブ等の閉め具合を確認し、漏れがなくなるまで監視を続ける。
- (4) 室温の変化と漏水に関して問題がないと判断した時点で、ポンプを操作し封圧と間隙水圧を所定の値に設定する。粘土試料の実験では、封圧を 1 MPa から 4 MPa まで上げていき、間隙圧は封圧の上昇に伴って自然と上昇している。
- (5) 静かにセパレートバルブ（上流側と下流側を切り離すバルブ）を閉じる。このとき、もし前段階で発見できなかった微小な漏水が起こっていた場合には、それが差圧の変化に表れることになる。その場合、(3) の手順に戻り、再度調整を実施する。なおセパレートバルブを閉じた後に供試体内の水頭分布が

同様となるには、供試体の透水性にもよるが、数時間が必要である。

- (6) 差圧の変動が見られなくなっていれば、所定のパルス圧力を上流側に負荷する、すなわち上流側の間隙水圧を上げるトランジェントパルス透水試験を行う。ただし、粘土の場合、通常の透水試験と同じように数十 kPa のパルス圧力を瞬時に負荷すると、間隙圧が封圧を超える可能性があったため、パルス圧力を昇圧ではなく減圧する、すなわち下流側の間隙水圧を下げることによってトランジェントパルス透水試験を行うことにした。上流側の貯留槽圧が下げられた後、上流側の貯留槽圧は上昇していき、下流側の貯留槽圧は低下していく。そして、差圧がパルスをかける前の状態に戻ったときに実験終了とする。
- (7) 透水試験で得られた差圧のデータに対して、Hsieh et al.<sup>23)</sup> の解析解に基づく非線形最小二乗法によるデータ解析を行い、供試岩石の水理定数（透水係数と比貯留率）を評価する。ただし、Hsieh et al.<sup>23)</sup> を用いたときに水理定数の解が収束しない場合は、Brace et al.<sup>22)</sup> の解を用いて透水係数だけを評価している。

#### 4.2.6 試験結果

有効封圧が 1MPa の条件下において、上流側の間隙水圧を上げるトランジェントパルス法と下流側の間隙水圧を下げるトランジェントパルス法による差圧の経時変化をそれぞれ図 7、図 8 に示す。上流側の間隙水圧を上げるトランジェントパルス法を用いると、透水係数は  $4.32 \times 10^{-12}(\text{m/s})$  で相関係数は 0.99 となる。下流側の間隙水圧を下げるトランジェントパルス法を用いると、透水係数は  $3.77 \times 10^{-12}(\text{m/s})$  で相関係数は 0.97 となる。両者の試験で得られた差圧と Brace の近似解の減衰曲線は非常によくフィッティングしており、差圧も滑らかに減衰していることから、透水係数はよく評価できたといえる。また、下流側の間隙水圧を下げるトランジェントパルス法によっても非透水性試料の透水係数を評価できるといえる。

様々な有効封圧下での土岐花崗岩の透水試験の結果を図 9 に示す。Hsieh et al.<sup>23)</sup> の解析解を用いた非線形最小二乗解析で得られた水理定数は、透水係数と比貯留率がセットとなっている。唯一有効封圧 7 MPa 付近における実験データの解析においては、Hsieh et al.<sup>23)</sup> では解が収束しなかったため、Brace et al.<sup>22)</sup> により透水係数だけが評価されている。なお、同じ有効封圧条件で複数回透水試験を実施し、再現性の確認もおこなっている。得られた土岐花崗岩の透水係数は、有効封圧 1~9 MPa、間隙圧 1 MPa において、透水係数は  $21 \sim 2.6 \times 10^{-11} \text{ m/s}$  であり、比貯留率は  $1.2 \sim 23 \times 10^{-7} \text{ 1/m}$  の範囲であった。なお、有効封圧が 1 MPa

と 2 MPa の間に、2 か月間程度をかけて温度変化試験を実施している。それがこの透水係数の開きに影響したかもしれない。なお、有効封圧 2 MPa 以降はほぼ連続して透水試験を実施している。

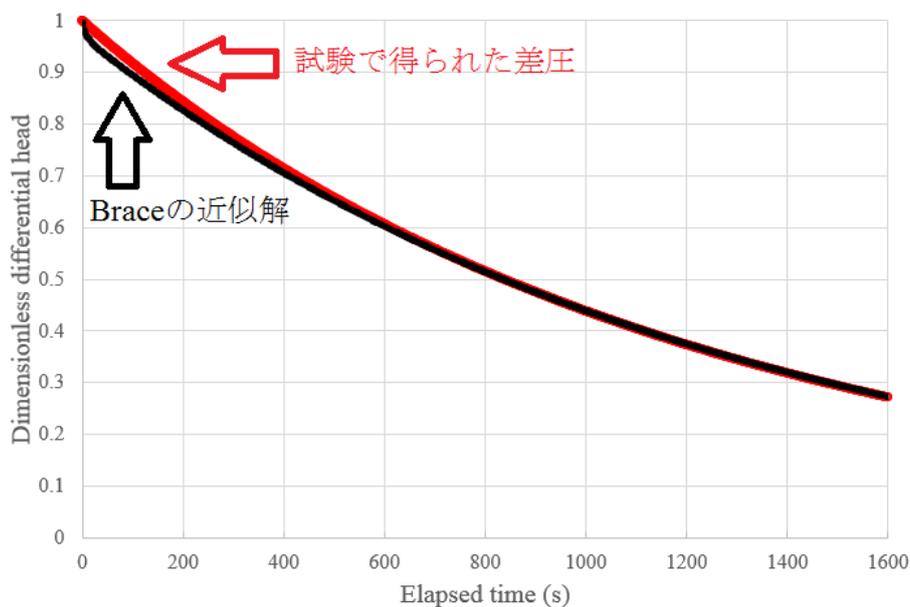


図 7 上流側の間隙水圧を上げるトランジェントパルス試験による花崗岩での差圧の経時変化

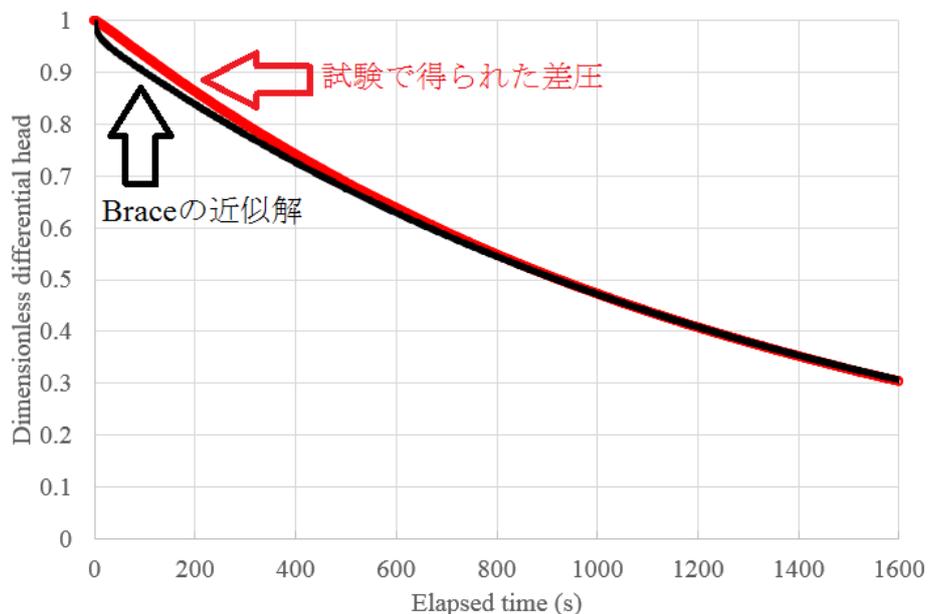


図 8 下流側の間隙水圧を上げるトランジェントパルス試験による花崗岩での差圧の経時変化

下流側の間隙水圧を下げるトランジェントパルス法の差圧の経時変化を図 9 に示す。下流側の間隙水圧を下げるトランジェントパルス法より粘土の透水係数を評価すると、透水係数は  $2.05 \times 10^{-11}$  (m/s) で相関係数は 0.70 となる。

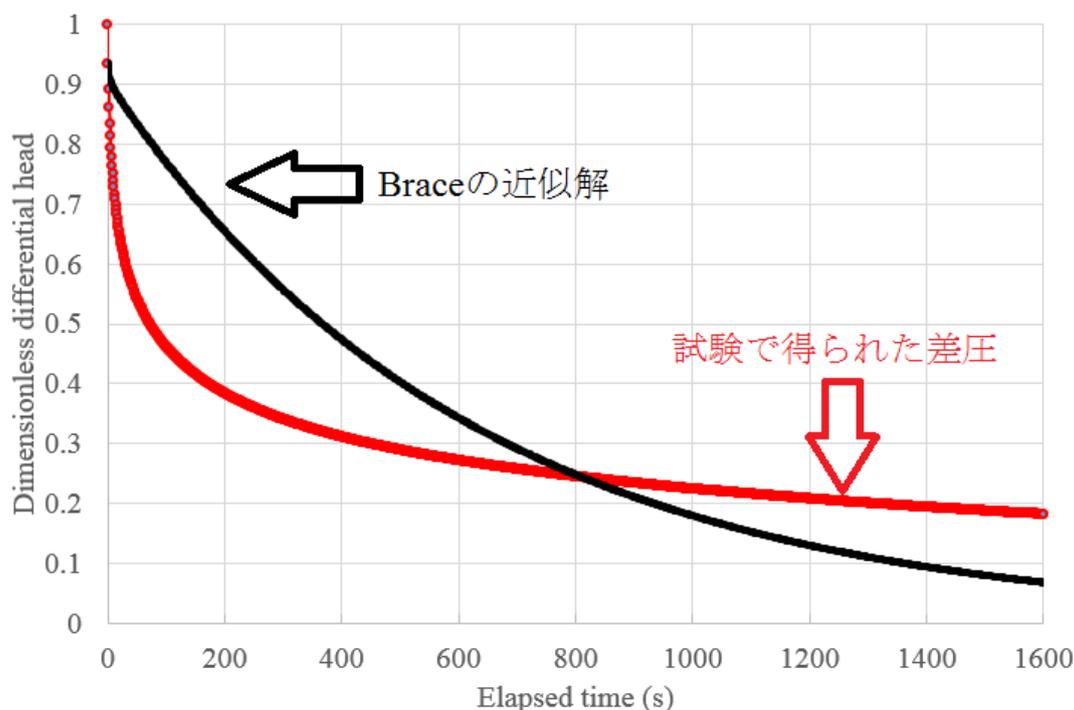


図 9 粘土における下流側の間隙水圧を下げるトランジェントパルス法による差圧の経時変化

粘土を供試体として実施した、異なる有効封圧下でのトランジェントパルス法による透水試験の結果を図 10 に示す。実験データの解析においては、Hsieh et al.<sup>23)</sup>では解が収束しなかったため、Brace et al.<sup>22)</sup>により透水係数だけを評価している。得られた粘土の透水係数は、封圧 0.5~4 MPa, 有効封圧 40~70 kPa において、透水係数は  $1.7 \sim 2.8 \times 10^{-11}$  m/s の範囲であった。なお、図 10 には、Brace et al.<sup>22)</sup> の近似解を用いた非線形最小二乗解析で得られたエラーバーも併せて掲載した。

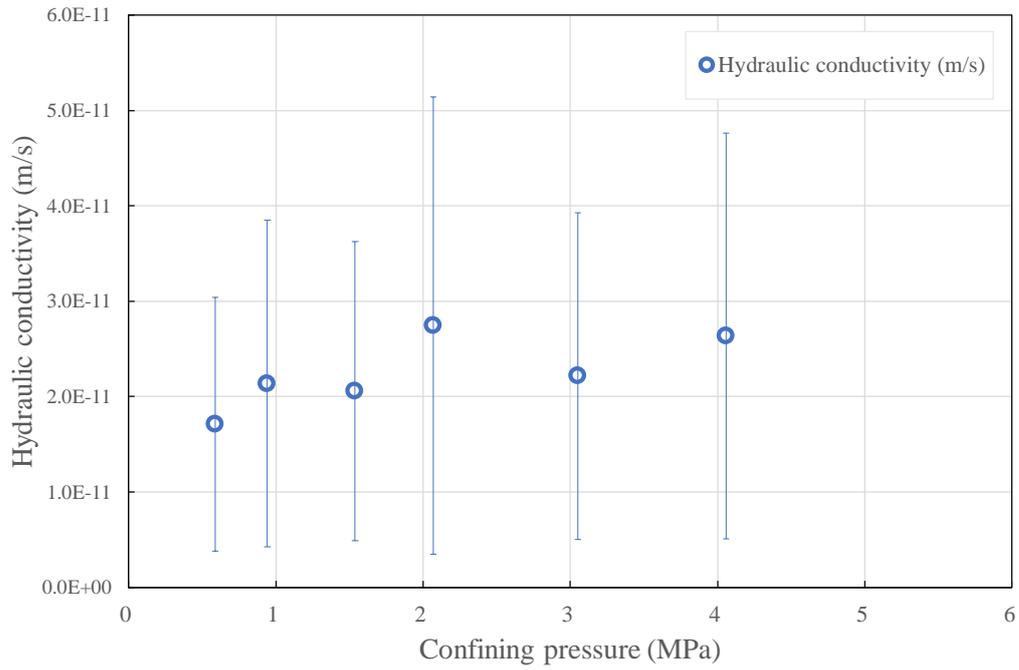


図 10 粘土における透水係数

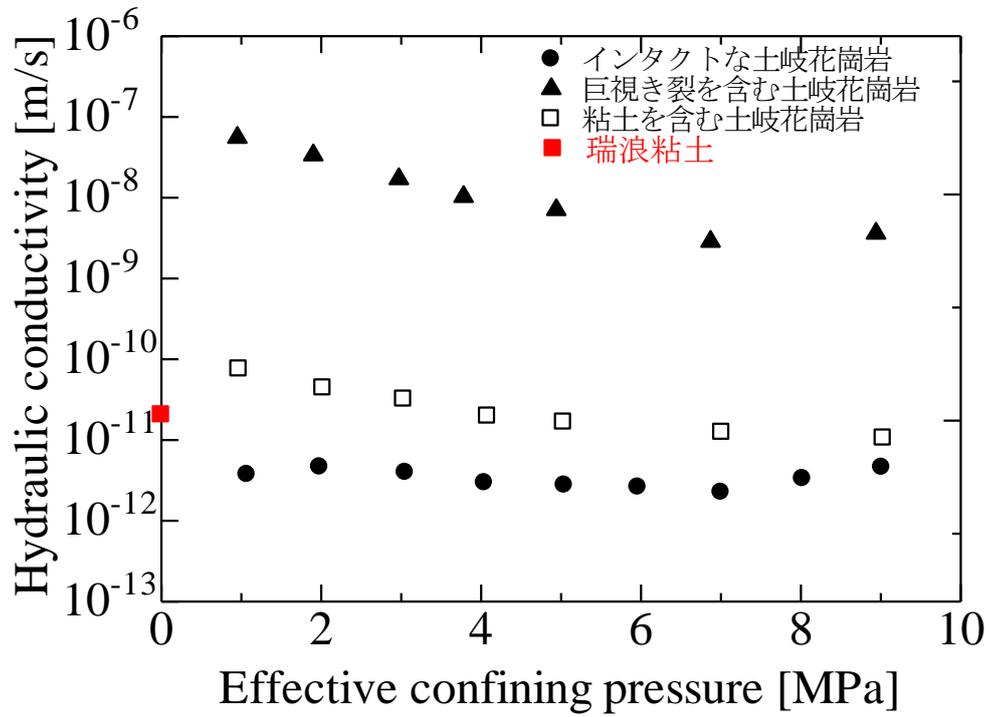


図 11 粘土と花崗岩の透水係数

#### 4.2.7 考察

岩石用の室内透水試験装置を用いて、花崗岩と粘土の透水試験を実施した。インタクトな土岐花崗岩及び巨視き裂を含む土岐花崗岩と比較すると（図 11）、粘土の透水係数は、インタクトな土岐花崗岩よりは1オーダーほど高いものの、巨視き裂を含む花崗岩よりは3～4オーダー低い値となっている。粘土層で充填されている花崗岩と同程度の透水係数であることから、き裂を充填する物質の透水係数が、破壊した岩石の透水係数を決定していると考えられる。また、この傾向は、Wang et al.<sup>16)</sup>で示されている結果と調和的である。

土岐花崗岩の透水試験に関しては、精度の高い実験データが得られており、理論の前提条件も満足しているため、解析結果も高い精度を保持している。一方、粘土の透水試験に関しては、有効封圧が0に近く、封圧と間隙圧を独立に制御することが難しかった。結果として、粘土試料の透水試験データには、見かけ上、パルス負荷後の差圧の減衰が大きく表れている。これは、粘土のSkemptonのB値が1に近いことから説明できる。トランジェントパルス透水試験において、間隙圧の瞬時の変化が封圧の影響ですぐに元に戻ろうとするためであり、これが理論の前提条件とは異なる挙動を示すということになり、実験データの精度を低下させている。

粘土の実験データには上記のような挙動が表れてはいるが、粘土の透水係数はエラーバーを付与して評価可能である。結果として、粘土自身も花崗岩と同程度に低透水性であることが示された。したがって、岩石がき裂を有している場合でも、粘土鉱物によってき裂が充填された場合には、岩石の遮水性は回復するものと考えられる。

#### 4.2.8 結論

瑞浪超深地層研究所の研究坑道においてボーリングにより得られたインタクトな土岐花崗岩と坑道壁面から採取された粘土を供試体として、同じ室内試験装置で個別に透水係数の測定をおこなった。粘土は、岩石と違い自立していないため、一般に剛性の高い容器に詰め、圧密度と飽和度を調整して透水試験は実施される。しかし、本研究では、岩石供試体用の透水試験装置を用いるため、粘土供試体に対しても上下をステンレス製のエンドピースではさみ、側面は柔軟なゴムスリーブで包み込んでいる。透水試験の際には封圧と間隙圧を個別に設定することによって供試体の応力状態を調整するが、粘土のSkemptonのB値は1に近いため、封圧を変化させるとそれに比例して間隙圧も変化してしまう。そのため、有効封圧は0に近い条件となる。また、供試体の透水性が低い

トランジェントパルス法を採用しているが、間隙圧を急激に上昇させると圧力容器の容量の関係で間隙圧が封圧を上回り、間隙水が封圧媒体に漏出することになる。そこで、上流側端面のパルス圧を負値として実験を実施した。その結果、インタクトな花崗岩と粘土の透水係数は同じオーダーの値を示した。それゆえ、開口したき裂を有する岩石の透水性は、粘土鉱物によってき裂が充填された場合、すなわち、き裂が修復された場合には、インタクトな岩石の透水性に近づくことが期待される。したがって、岩石がき裂を有している場合でも、充填鉱物の有無が岩石の透水性に大きく影響を与えることが示唆された。

## 4.3 粘土がき裂を充填する過程での岩石の透水係数測定

### 4.3.1 序論

放射性廃棄物処分を行う上で、岩盤の遮蔽性能を損なわず、かつ向上させることは、極めて重要である。岩盤内ではき裂や空隙のネットワークが流体の水みちとなるため、遮蔽性向上にはき裂の進展を防ぐと共に、き裂や空隙を閉塞させることが効果的である。

Nara et al.<sup>15)</sup>や Wang et al.<sup>16)</sup>は、様々な圧力下で破壊した岩石の透水係数の測定を行っており、圧力の上昇に伴ってき裂が閉塞することにより、岩石の透水係数が低下することを報告している。これは、力学的な影響によるき裂の閉塞が地下環境下で起こりうることを示したものである。

また、力学的影響と化学的影響の相互作用によってき裂・空隙の閉塞が起こる現象としては、圧力溶解が挙げられる<sup>29-34)</sup>。この現象は、水中環境下において、鉱物粒子が接触し、かつ周辺から圧力を受けることによって、水中への鉱物粒子の溶解が促進されるとともに、鉱物粒子表面への沈殿が起こることによって、接触している2つの鉱物粒子が接合し、き裂・空隙が閉塞する、という現象である。安原ら<sup>35)</sup>及び Yasuhara et al.<sup>36, 37)</sup>は、圧力溶解の促進によって、岩石の透水係数が低下することを示している。

力学的な影響を受けないき裂・空隙の閉塞についても報告されている。Nara et al.<sup>20)</sup>は、カルシウムイオン濃度の高い水中環境下にある岩石では、岩石表面にカルシウム化合物が析出し、き裂が閉塞するというを示している。Ishibashi et al.<sup>18)</sup>は、地下水中の微細な粘土鉱物が沈殿することによって、き裂の閉塞が生じるということを報告している。これらの現象も、岩石の透水特性に影響を及ぼすと考えられる。ただし、透水係数への影響についてはまだ調べられておらず、沈殿現象が岩石の透水係数に及ぼす影響は不明である。

そこで本研究では、微細な粘土粒子を含む水を、破壊した岩石（花崗岩）に流し続けることによって、水の流れやすさ、すなわち透水係数がどのように変化するのかを調べることにした。

### 4.3.2 試料

岐阜県瑞浪市の国立研究開発法人日本原子力研究開発機構の超深地層研究所内で採取された花崗岩（土岐花崗岩）を用いた。特に本章では、巨視き裂を含む花崗岩を用いることとした。図12に、巨視き裂を含む花崗岩試料の写真を示す。この図において、花崗岩試料の直径は50mm、厚さは25mmである。



図 12 巨視き裂を含む土岐花崗岩（直径 50mm，厚さ 25mm）

また，花崗岩と同じく，岐阜県瑞浪市の日本原子力研究開発機構の超深地層研究所内で採取された粘土を蒸留水に懸濁して，岩石に流すこととした．ここで用いた粘土は，4.2 節で用いたものと同一の場所で採取されたものである．

#### 4.3.3 試験方法

前にも述べたように，岩石（花崗岩）に水を流し続けながら，流れやすさの変化を調べることを目的としているため，ここではフローポンプ法<sup>38)</sup>を試験方法として採用した．フローポンプ法は，上流側貯留槽に流れる単位時間当たりの流量を一定にして水頭差を測定することで透水係数を評価する方法である．

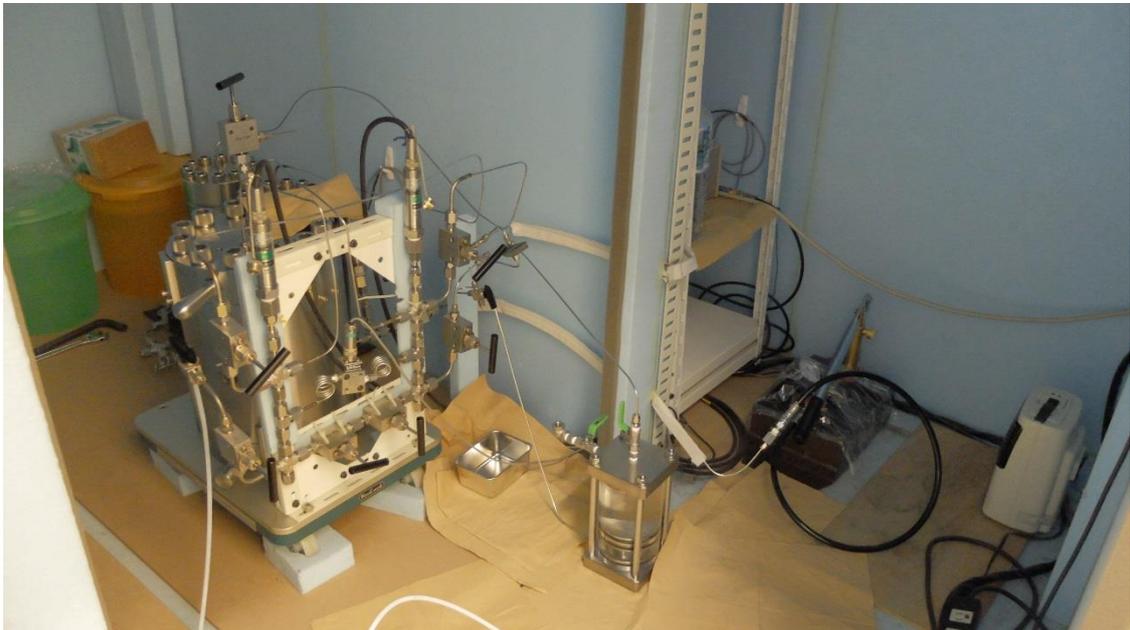
フローポンプ透水試験法は，Olsen<sup>38)</sup>によって提唱された試験方法である．この方法は，供試体の一端から一定流量の流体を注入した時の供試体間の水頭差を測定するものである．定常状態に達して水頭差が一定になった時に次式で透水係数を評価できる．

$$K = \frac{QL}{A(h_1 - h_2)} \quad (5)$$

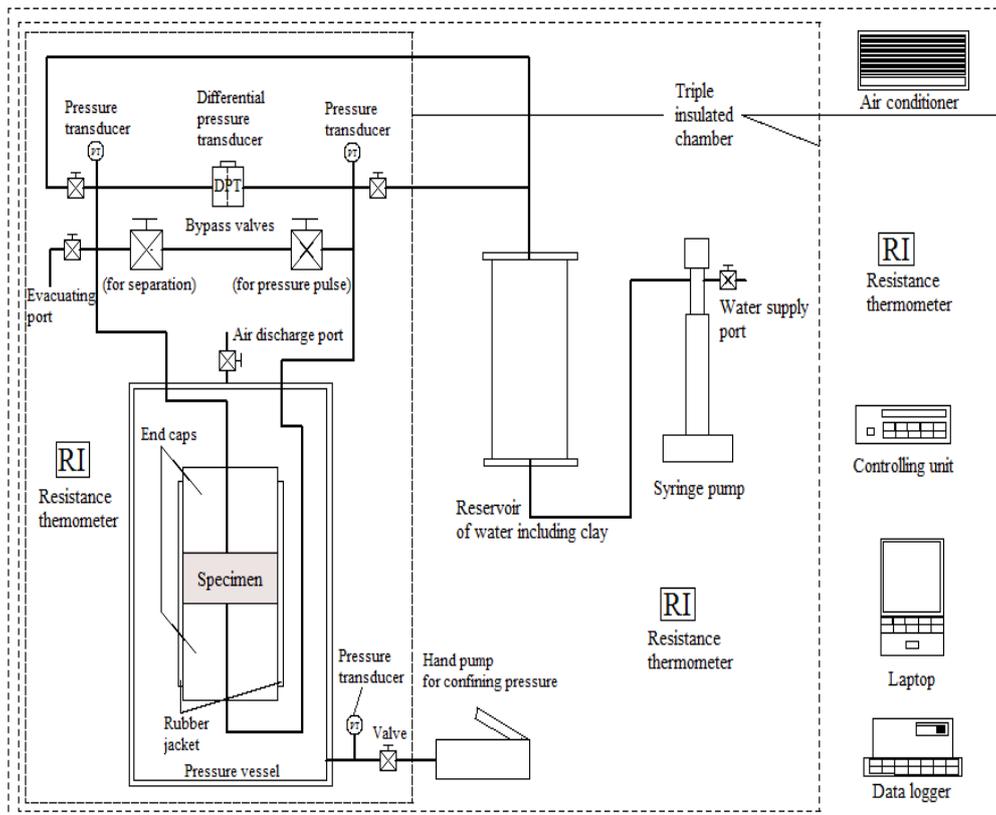
ここで  $K$  は透水係数[m/s]， $L$  は供試体の厚さ[m]， $Q$  は流量(m<sup>3</sup>/s)， $A$  は供試体の断面積[m<sup>2</sup>]， $h_1$  は上流側圧力[Pa]， $h_2$  は下流側圧力[Pa]である．

この方法は，供試体や試験装置の貯留性によって定常状態に至るまでに，長い時間を要することがある．しかし，現在一般的に用いられる定水位法や変水位法及び難透水性岩石に適用されるトランジェントパルス法に比べ，試験初期に供試体端面に発生する動水勾配を小さくできるという利点がある．また，一定圧力に制御して排水量を測定する定水位法に比べ，フローポンプ法は流量を

一定にして圧力を測定することから、制御精度及び測定精度ともに優れている。  
 図 13 に、本研究で使用したフローポンプ試験装置を示す。



(a)



(b)

図 13 フローポンプ試験装置. (a): 装置の写真, (b): 装置の概要図

#### 4.3.4 試験手順

初めに、図 12 に示した直径 50mm、厚さ 25mm の巨視き裂を含む花崗岩供試体をデシケータ内で蒸留水に浸し、真空ポンプを用いてデシケータ内を真空状態にし、その状態で一か月間以上保存することによって、円柱試験片を蒸留水で飽和させた。次に、供試体上端と下端をステンレス製のエンドピース（図 14）で挟み、封圧媒体である水の浸入を防ぐために、熱収縮チューブを使用して供試体を被覆した（図 15）。これを圧力容器のふたにセットした後（図 16）、圧力容器に設置し（図 17）、配管を接続することにより、供試体に封圧を加え、水を流し続けられる状態とした（図 18）。供試体に流す水は、シリンジポンプを用いて流すこととし、供試体へ加える封圧は、手動ポンプで加えることとした。

供試体に流す水の流量は 0.01ml/min と設定した。この状態から水頭差の経時変化を測定し、透水係数を評価する。

本研究では、蒸留水 1ℓに 1250mm<sup>3</sup>（約 5.3g）の粘土を懸濁して、岩石供試体に流すこととした。これは、本研究で用いた土岐花崗岩内の巨視き裂を充填している粘土層の幅が 1mm 未満であったことから（図 19）、岩石供試体の断面積（50mm × 25mm）に厚さ 1mm を加えることによって算出した体積である。この水を図 19 に示す容器に入れ、マグネチックスターラーで外部から攪拌しながら（図 20）、岩石供試体に流すこととした。



図 14 飽和後の花崗岩とエンドピース



図 15 供試体を被覆している様子



図 16 圧力容器のふたにセットした供試体



図 17 圧力容器に供試体を入れる様子



図 18 圧力容器に配管をつないだ写真



図 19 粘土懸濁水貯留タンク  
(粘土を攪拌した蒸留水を入れる容器)

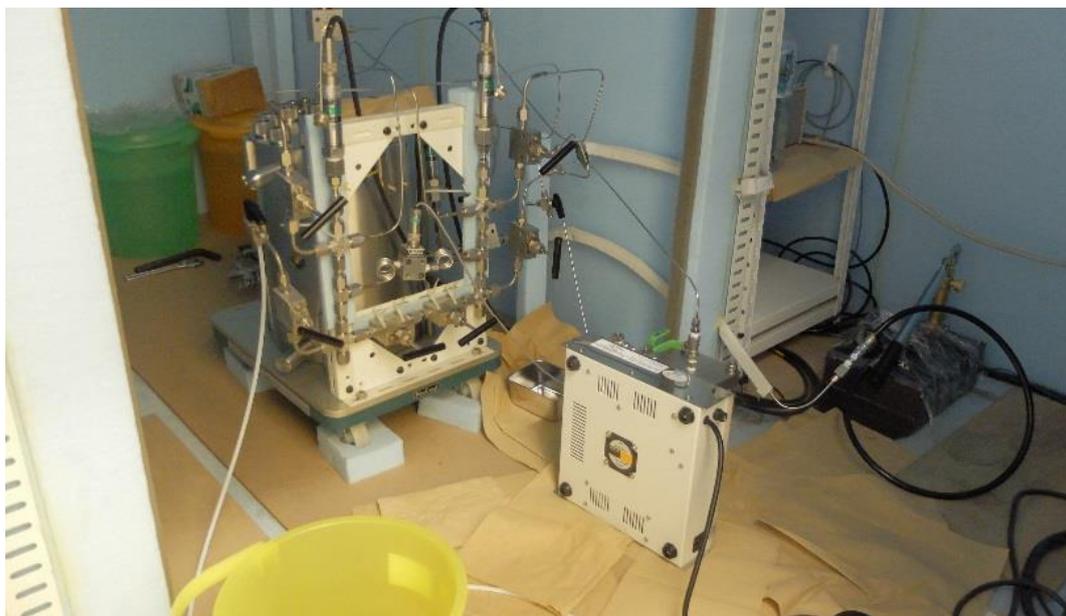


図 20 粘土懸濁水貯留タンクをマグネットスターラーで攪拌している様子

#### 4.3.5 試験結果

巨視き裂を含む花崗岩に粘土懸濁水を流す過程での、1週間ごとの差圧変化と恒温室内の温度変化の様子を図 21～25 に示す。それを全てまとめたものを図 26 に示す。恒温室は三重となっているので、温度は内、中、外で分けてある。

また試験開始から 1 日、3 日、1 週間、2 週間、3 週間、4 週間、5 週間経過した時の透水係数を表 1 に示す。

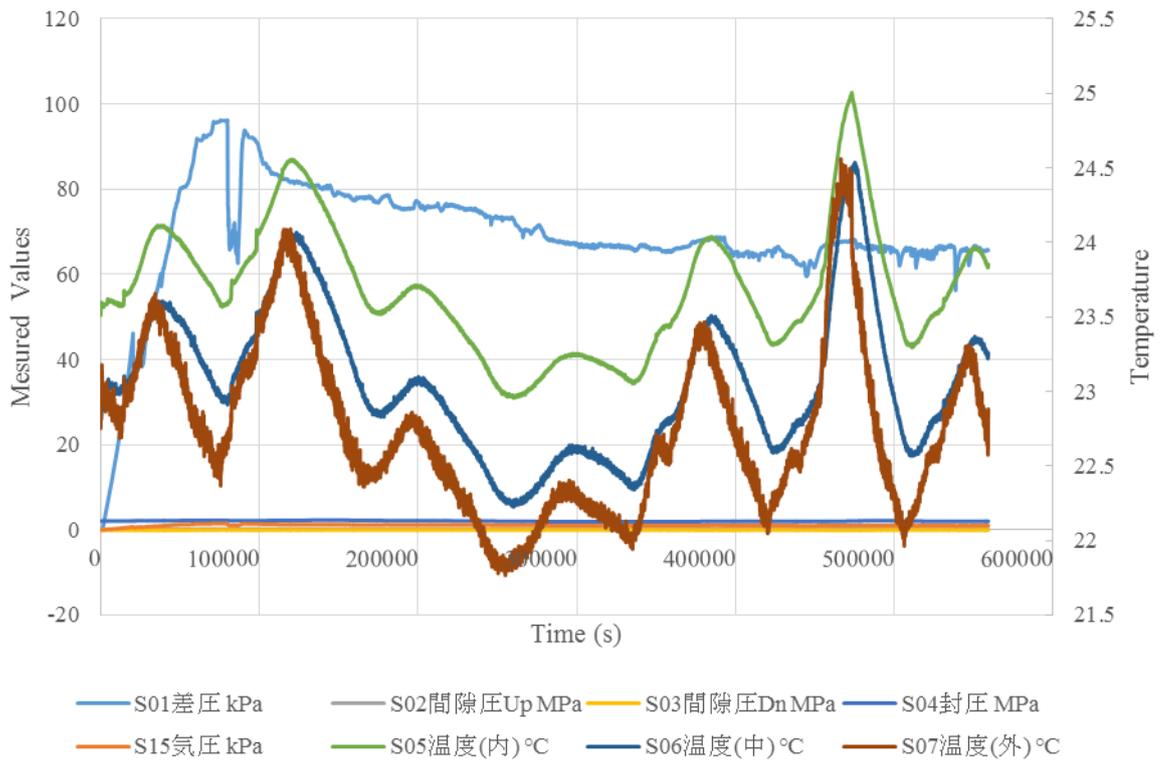


図 21 試験開始 1 週目の差圧と温度変化

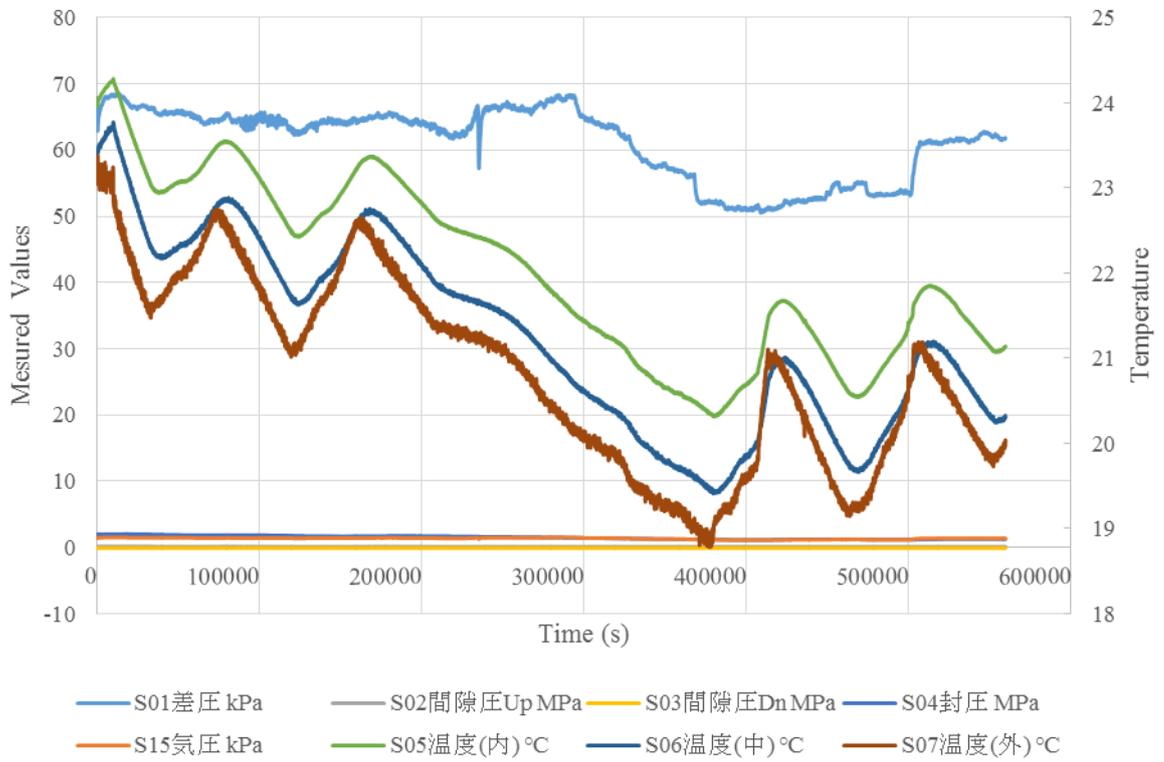


図 22 試験開始 2 週目の差圧と温度変化

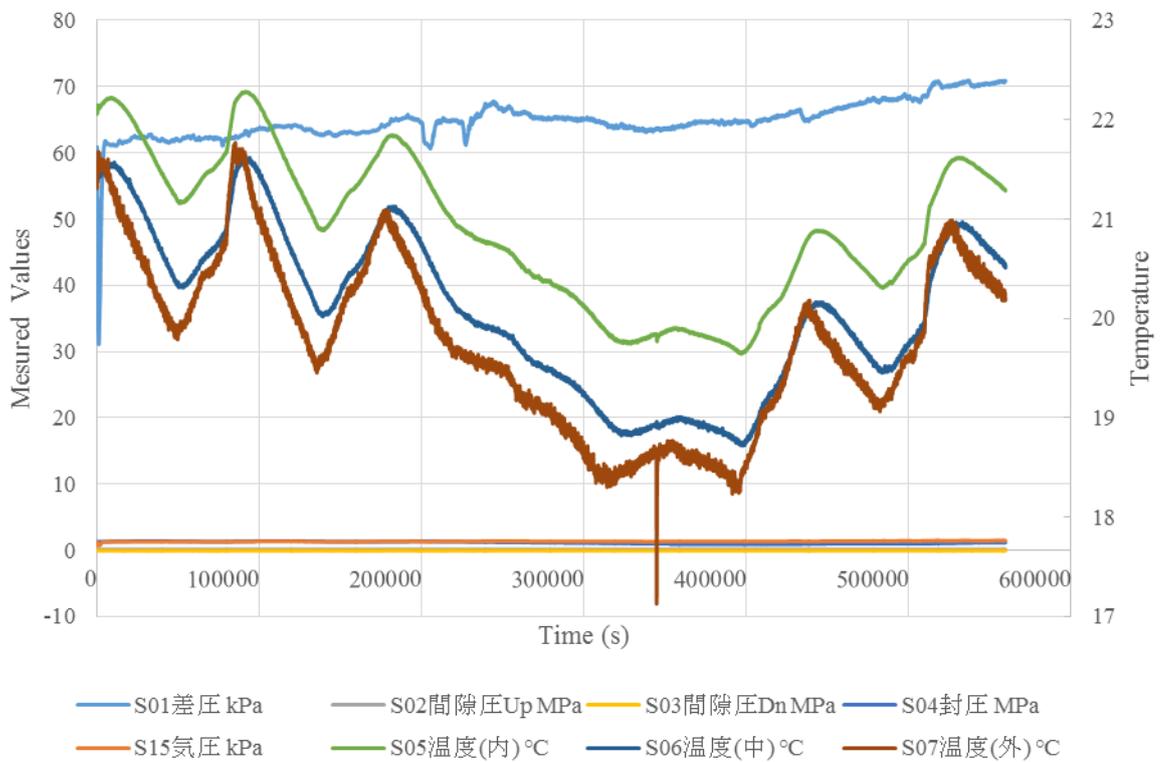


図 23 試験開始 3 週目の差圧と温度変化

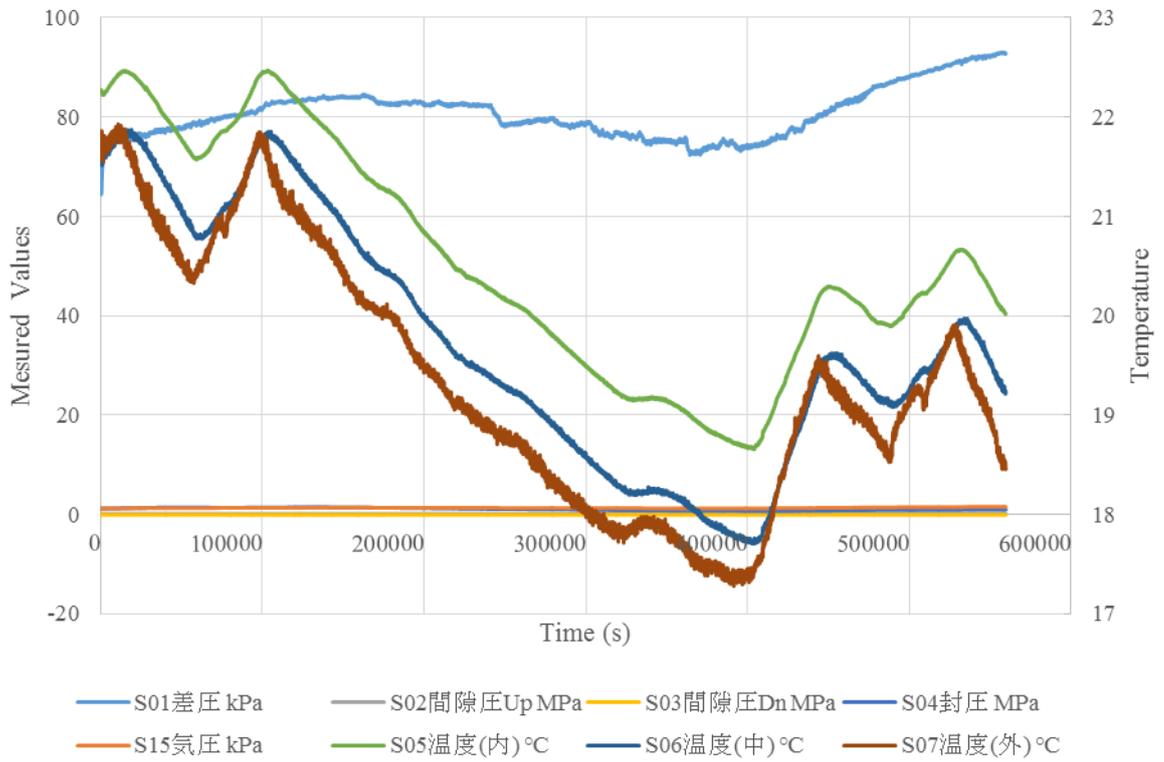


図 24 試験開始 4 週目の差圧と温度変化

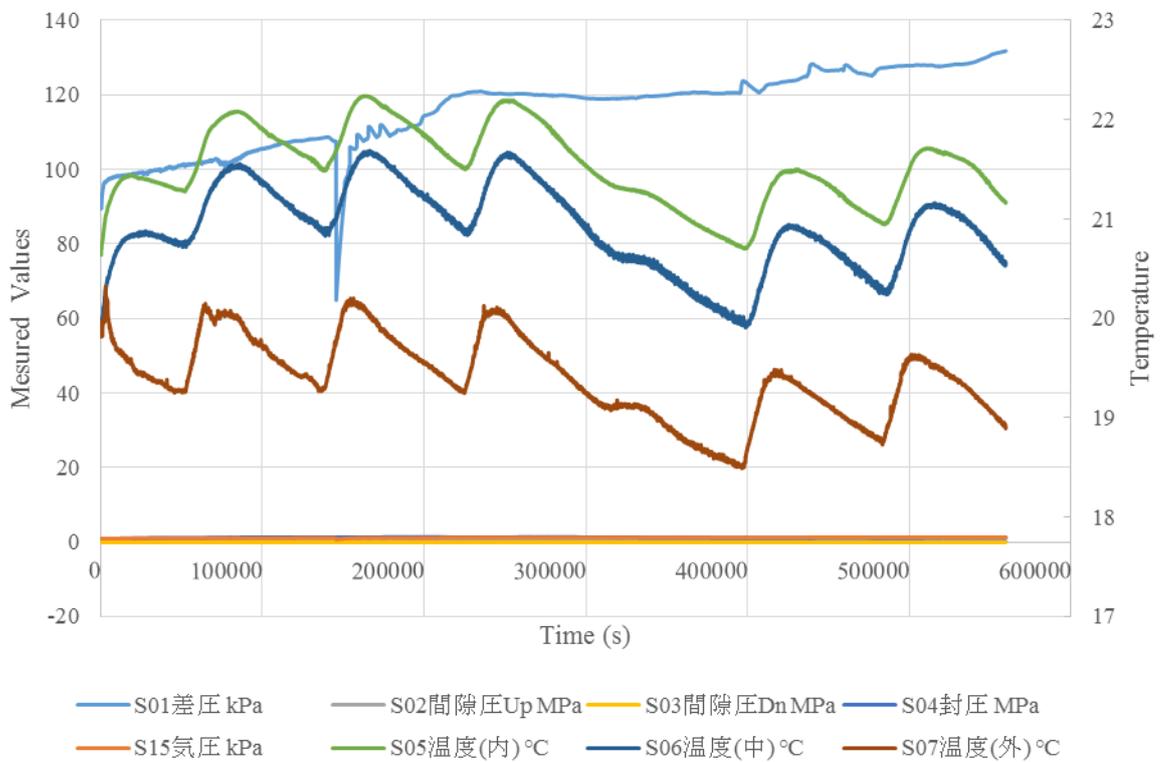


図 25 試験開始 5 週目の差圧と温度変化

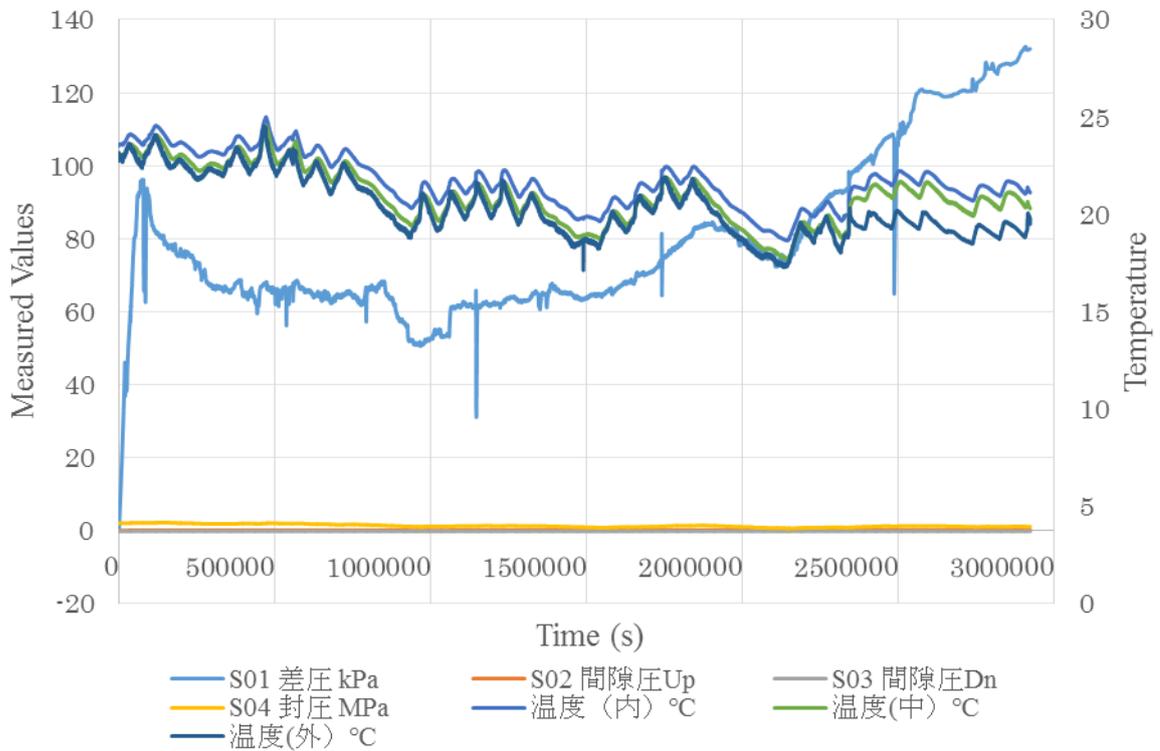


図 26 き裂を含む花崗岩に粘土懸濁水を流す過程での差圧と恒温室内の温度の変化

表 1 き裂を含む花崗岩に粘土懸濁水を流す過程での透水係数

時間	透水係数 (m/s)
1 日	$3.18 \times 10^{-10}$
3 日	$2.84 \times 10^{-10}$
1 週間	$3.20 \times 10^{-10}$
2 週間	$3.06 \times 10^{-10}$
3 週間	$2.89 \times 10^{-10}$
4 週間	$2.26 \times 10^{-10}$
5 週間	$1.60 \times 10^{-10}$

#### 4.3.6 考察

き裂を含む岩石に粘土が充填されることにより、インタクトな岩石の透水性に近い値を示す可能性があると考えられる。またき裂が粘土によって修復された岩石の透水係数は、本実験で評価した粘土の透水係数とほぼ同じ値を示して

いる。よってき裂に粘土が埋まることで透水係数は低下するが、その透水性は粘土に支配されることが考えられる。

き裂を含む花崗岩に粘土懸濁水を通水させると、試験開始直後は差圧が急激に上がり、その後減衰しある値で一定になっている。これは粘土懸濁水貯留タンク内において、試験開始時に停止しているステンレスの底盤が動き出すまでに、静止摩擦力によって抵抗したためであると考えられる。

試験開始から一週間経過した後に、差圧が上がり始め透水係数が低下した。これは流量を低くして試験を行っているため、粘土懸濁水が供試体に達するまでに時間がかかったことが原因であると考えられ、最終的にはき裂に粘土が充填されて、透水係数が低下したと考えられる。

差圧の値が上下に動いているところがあるが、これは冬の気温の低下に伴い恒温室内の温度が一定に制御できなかったことが原因であると考えられる。

粘土の透水係数を測定するにあたり攪乱試料を用いて試験を行ったが、不攪乱試料においても試験を行うことは将来的な展望である。

#### 4.3.7 結論

本研究では、微細な粘土粒子を含む水を、巨視き裂を含む花崗岩に流し続けることによって、透水係数がどのように変化するかを調べた。その結果、時間の経過とともに透水係数が低下する様子が確認できた。これは、き裂内部での粘土の沈殿によるき裂閉塞を示すものと考えられる。ゆえに、本章で行った試験より、地下水中に含まれる粘土の沈殿により、岩石内のき裂が閉塞し、透水係数の低下が生じると結論づけられる。

## 4.4 岩石のサブクリティカルき裂進展に及ぼすカルシウムイオンの影響

### 4.4.1 緒言

天然バリアとなる岩盤には、高い長期強度があることが望ましい。岩石の長期強度の評価のためには、岩石破壊の時間依存性に関する情報が必要である。ここで、岩石の破壊は微視き裂の発生、伸長及び集積、局所化によって説明される。そのため、岩石内のき裂進展に関する研究が重要となる。

従来の破壊力学では、き裂先端の応力拡大係数がある臨界値、すなわち破壊じん性に達したとき、き裂の進展が起こると考えられてきた。しかし、実際は、応力拡大係数が破壊じん性に達していない状態においても、き裂は緩やかに進展する。このき裂進展現象は、サブクリティカルき裂進展<sup>39-42)</sup>と呼ばれ、き裂進展の時間依存性の代表的なものとして挙げられる。特にケイ酸塩岩石においては、引張応力を受けたき裂先端部のシロキサン結合が、水と化学反応を起こして劣化・分断する現象である応力腐食<sup>39, 43)</sup>が、サブクリティカルき裂進展の主要な機構であると考えられている。

一般に、サブクリティカルき裂進展におけるき裂進展速度  $da/dt$  と応力拡大係数  $K_I$  の関係は、次の指数則<sup>44, 45)</sup>と累乗則<sup>46, 47)</sup>の2通りの関係でまとめられる。

$$\frac{da}{dt} = v_0 \exp\left(\frac{-E^\ddagger + \beta K_I}{RT}\right) \quad (6)$$

$$\frac{da}{dt} = AK_I^n \quad (7)$$

ここで、 $E^\ddagger$ は活性化エネルギー、 $R$ はガス定数、 $T$ は絶対温度であり、その他は実験より求められる定数である。岩石破壊の時間依存性を考える場合には、上記のき裂進展速度と応力拡大係数の関係を求めるとともに、上記の関係式から得られる定数について十分な情報を得る必要がある。これまで行われたサブクリティカルき裂進展に関する研究では、測定されているき裂進展速度の範囲は、おおよそ  $10^{-2} \sim 10^{-8}$  m/s のオーダーである<sup>40-42, 48)</sup>。

放射性廃棄物の地層処分のように極めて長い期間岩盤を利用するようなことを考える場合、より低いオーダーのき裂進展速度を測定し、応力拡大係数とき裂進展速度の関係をより明確にする必要があると考えられる。そのためには、試験時間も長期にわたる必要がある。ゆえに、長期にわたるサブクリティカルき裂進展計測を実現できる設備を開発し、実際に長期間にわたってき裂進展計

測を行うことが、従来よりも低いき裂進展速度の測定において必要と言える。

また、放射性廃棄物処分施設を地下岩盤内に建設する際、大量のセメント系材料が用いられると考えられる。このような場合、周辺岩盤内の水の pH やカルシウムイオン濃度は高くなると予想される。ケイ酸塩鉱物や岩石のサブクリティカルき裂進展に及ぼす水質の影響に関する研究が過去になされており<sup>49-52)</sup>、特に pH が高くなる場合には、中性環境下よりもき裂進展速度が高くなるという報告がある。ただし、カルシウムイオンの濃度がサブクリティカルき裂進展に及ぼす影響についてはまだ調べられていない。

そこで本研究では、破壊力学試験法であるダブルトーション (Double Torsion, DT) 試験法<sup>50, 53-56)</sup>による測定を 1～2 週間程度連続で行う、長期連続測定によるき裂進展データ取得を実施する。さらに、蒸留水中と水酸化カルシウム水溶液中においてサブクリティカルき裂進展の測定を行い、カルシウムイオンがサブクリティカルき裂進展に及ぼす影響を調べる。

#### 4.4.2 試験方法

前述の通り、サブクリティカルき裂進展を測定するために用いられる代表的な破壊力学試験方法である DT 試験法<sup>50, 53-56)</sup>を用いた。DT 試験法は、応力拡大係数の評価にき裂の長さの計測が不要である、試験片形状が単純である、载荷形式が単純であるなどの利点をもつことから、岩石のような不透明な材料でのき裂進展速度測定のための試験法として広く用いられてきた試験方法である。

図 27 に、DT 試験片の概要図を示す。この図に示されるように、DT 試験は、4 点曲げの要領で試験片に载荷し、下側の面に引張応力を作用させることによってき裂進展を起こす破壊力学試験法である。DT 試験片の形状は、長方形断面の薄板状である。試験片の中央部には、き裂を進展させるためにガイド溝が形成され<sup>57, 58)</sup>、さらにイニシャルノッチが切り込まれることが多い。今回の試験では、図 27 に示されるように、ガイド溝とイニシャルノッチを切り込んだ形状の試験片を用いた。

本研究では、定変位法<sup>54, 55)</sup>による DT 試験を用いて、き裂進展速度と応力拡大係数の関係を求めることとした。定変位法では、着力点の変位を一定に保ち、き裂進展に伴う荷重緩和を測定することによって、き裂進展速度と応力拡大係数が評価される。この方法では、試験片に加えられる荷重が時間の関数となり、き裂進展速度が荷重緩和速度から求められるので、1 回の試験から広い範囲 (通常  $10^{-2} \sim 10^{-8}$  m/s) のき裂進展速度と応力拡大係数の関係が得られる。ゆえに、定変位法は、多くの研究者によって用いられてきた方法である<sup>48, 59)</sup>。

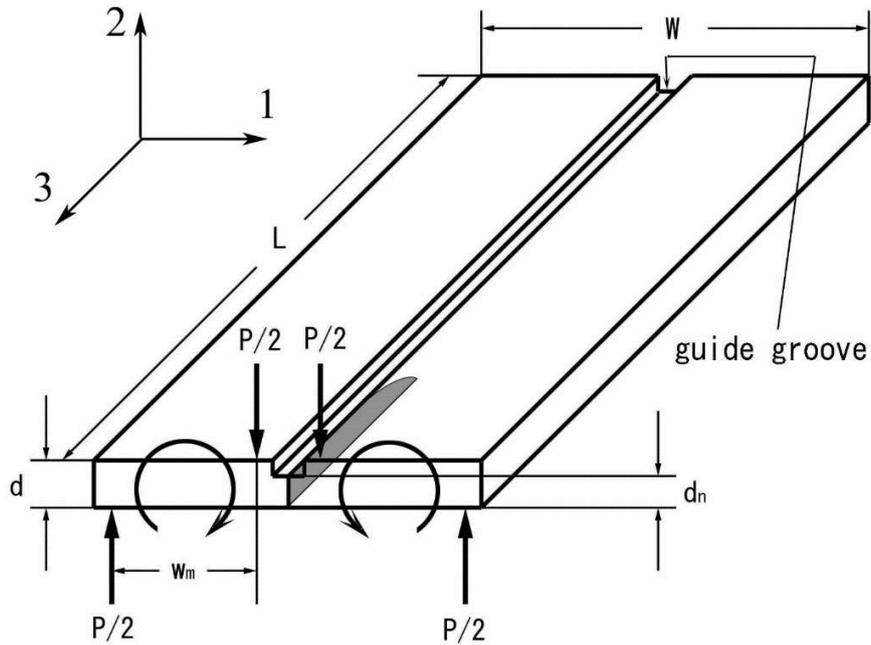


図 27 ダブルトーション試験片の形状と荷形式の概要図

材料が等方性である場合、応力拡大係数  $K_I$  及びき裂進展速度  $da/dt$  は、次のように表される<sup>55)</sup>。

$$K_I = Pw_m \sqrt{\frac{3(1+\nu)}{Wd^3d_n}} \quad (8)$$

$$\frac{da}{dt} = -C_a \frac{P_1 \lambda_1}{BP^2} \frac{dP}{dt} \quad (9)$$

ここで、 $P$  は荷重、 $\nu$  はポアソン比、 $P_0$  は荷重の初期値、 $S_0$  はコンプライアンスの初期値、 $dP/dt$  は荷重の低下率、 $G$  は剛性率、 $C_a$  はクラックフロントの形状に依存する定数であり、他の定数は図 27 と同様である。

一方、材料が直交異方性であり、荷重方向が図 27 のような場合、 $K_I$  及び  $da/dt$  は、次のように表される<sup>50)</sup>。

$$K_I = \left( \frac{3P^2 w_m s_{55}}{(2d^3 d_n (2s_{11}((s_{33}s_{11})^{1/2} + s_{31} + s_{55}/2))^{1/2})} \right)^{1/2} \quad (10)$$

$$\frac{da}{dt} = -C_a \frac{2P_i \lambda_i d^3}{3s_{55} w_m P^2} \frac{dP}{dt} \quad (11)$$

ここで、 $s_{ij}(i,j=1\sim6)$ は、異方性材料におけるコンプライアンス定数である。載荷方向が図 27 の場合と異なるときは、 $s_{ij}$ の添字の変換を行えばよい。弾性コンプライアンス定数  $s_{ij}$  が等方性を示し、 $w_m = W/2$  となるとき、等方性仮定の評価式（式(8)または(9)）と異方性仮定の評価式（式(10)または(11)）は一致する。また本研究では、Williams and Evans<sup>50</sup>及び Atkinson<sup>60</sup>の研究を参考にして、 $C_a = 0.2$ としてき裂進展速度の評価を行った。

上記の式が成立するためには、DT 供試体の寸法に関する制約条件が必要となる。Evans et al.<sup>61</sup>及び Atkinson<sup>62</sup>は、供試体の幅  $W$  と厚さ  $d$  に関する制約条件として、次の式を実験的に得ている。

$$W \geq 12d \quad (12)$$

なお、Ciccotti は一連の研究で、上式で示される条件よりも相対的に厚い供試体を利用して DT 試験を行っている<sup>63-66</sup>。

また、Trantina<sup>67</sup>は、幅  $W$ 、長さ  $L$  及びき裂の長さ  $a$  に関して、有限要素法を用いて、次の式を満たす場合に、 $K_I$ が  $a$  に依存しないことを示している。

$$0.55W < a < L - 0.65W \quad (13)$$

さらに、Shetty and Virkar<sup>68</sup>、Pletka et al.<sup>69</sup>、Shyam and Lara-Curzio<sup>70</sup>、Madjoubi et al.<sup>71</sup>らの研究によれば、 $K_I$ が  $a$  に依存しないような領域を十分に確保するために、長さ  $L$  が幅  $W$  よりも十分に大きくすることが望ましく、特に Pletka et al.<sup>69</sup>は長さ  $L$  が幅  $W$  の 2 倍以上とすることを推奨している。

本研究で用いた供試体のサイズは、 $W=45[\text{mm}]$ 、 $d=3[\text{mm}]$ 、 $d_n=2[\text{mm}]$ 、 $L=150[\text{mm}]$  であり、上記の制約条件を満たしている（図 28 参照）。また、き裂の長さに関しては、DT 試験で必須である初期き裂の導入を行うときに、試験装置（図 29 参照）に取り付けてあるデジタルマイクロスコープ（キーエンス(株)製、VH-7000）を用いて、式(13)の条件を満たす長さになるように確認している。

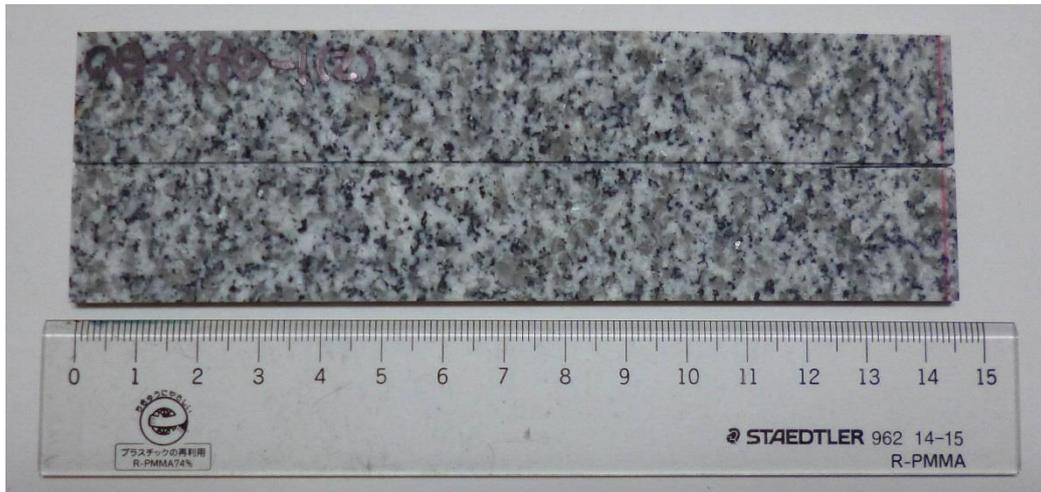


図 28 ダブルトーション供試体の写真

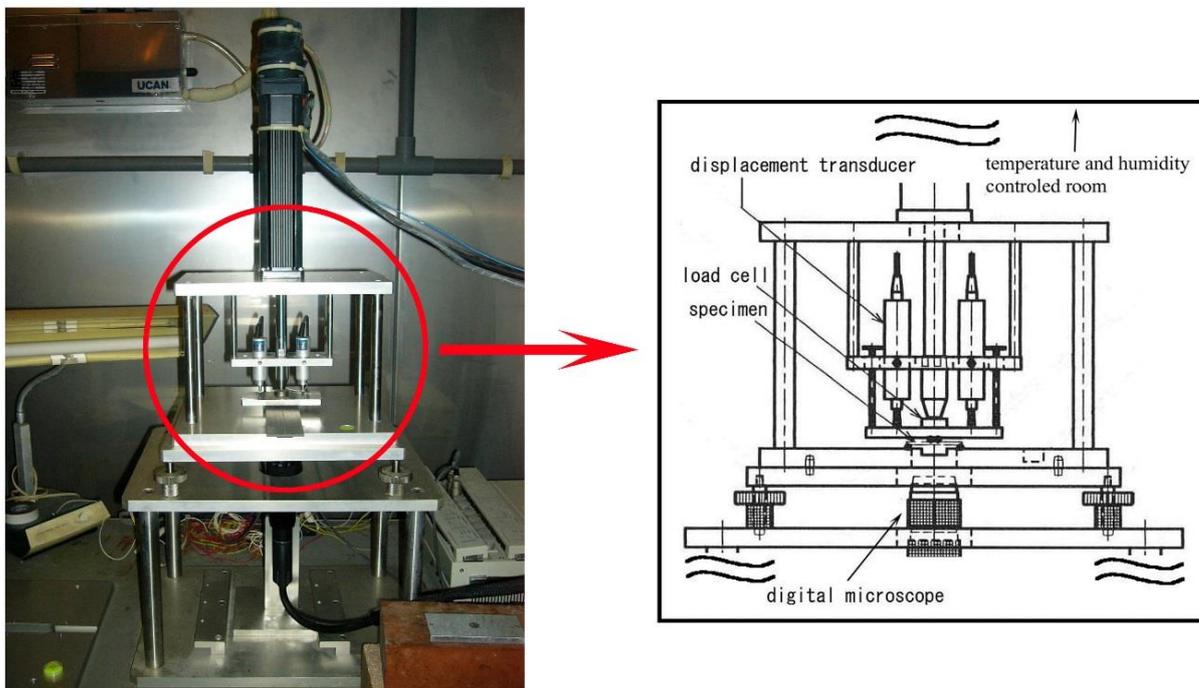


図 29 初期き裂導入時に用いた試験装置

#### 4.4.3 岩石試料

愛媛県大島産の大島花崗岩を試料として用いた。大島花崗岩は異方性材料であることが知られている<sup>72-75)</sup>。特に、物理的・力学的性質には、先在微視き裂の分布の選択的配向性に起因した直交異方性があることが知られている<sup>72, 73)</sup>。大島花崗岩では、「目」と呼ばれる面が最も割れやすい面であり、それに直交する二番目に割れやすい面が「二番」、これらに直交する割れにくい面が「しわ」と呼ばれる<sup>76)</sup>。海外では、「目」「二番」「しわ」に相当する面は、それぞれ「Rift Plane」「Grain Plane」「Hardway Plane」と呼ばれることが多い<sup>77)</sup>。本研究では、「しわ」を面1、「二番」を面2、「目」を面3と呼び、これらの面に垂直な方向を、それぞれ軸1、軸2、軸3と呼ぶこととする。本研究では、軸3方向に進行し、軸1方向に開口する試験片を用いてき裂進展を測定した。

#### 4.4.4 試験手順

初めに、初期き裂の導入を行った。このプロセスは、「pre-cracking」と呼ばれ、DT 試験法においては必須のプロセスである。本研究における初期き裂の導入は、DT 試験片を試験装置に設置して、着力点を約  $4\mu\text{m}$  変位させた後変位を一定に保つという手順を繰り返すことによって行った。また、デジタルマイクロスコブにより、この間のき裂伸長を観察し、き裂長が Trantina<sup>67)</sup>によって示されている下限値に相当する  $25\text{mm}$  に達するまで繰り返した。

初期き裂の導入後は、試験片を試験環境に馴染ませるために、無負荷状態で、き裂進展速度測定時と同一の環境条件下に約 20 時間静置させた。

この後、き裂進展速度の計算に必要な試験片のコンプライアンスの初期値  $\lambda_0$  の測定を行った。 $\lambda_0$  は、き裂のさらなる進展が起らないように、着力点を約  $4\mu\text{m}$  ずつ緩やかに変位させることによって荷重と変位を測定し、荷重が  $14\text{N}$  に達するまでの着力点の変位と荷重との関係から評価した。

このような操作の後に、定変位試験を行った。定変位試験では、試験片に  $13\sim 14\text{N}$  の予荷重を緩やかに加えた後、着力点を急速に変位させ、その変位を約 2 時間一定に保った。予荷重を加えた後の着力点の変位量は、Nara and Kaneko<sup>58)</sup> に従い、 $0.24\text{mm}$  とした。

#### 4.4.5 試験結果

式(8)~(11)より、応力拡大係数の計算には荷重  $P$  の値が、き裂進展速度の計算には、荷重  $P$  とその低下率、すなわち荷重緩和速度  $dP/dt$  が必要となる。荷重緩和速度は、荷重緩和曲線の傾きに相当する。本研究では、荷重緩和曲線において、荷重が  $0.4\text{N}$  減少する範囲のデータを、最小二乗法を用いて直線近似することによって評価した。荷重  $P$  には、その範囲での荷重の平均値を用いた。

本実験で得られた荷重緩和曲線を図 30 に示す。この図より、大気中よりも水中環境下（蒸留水中及び水酸化カルシウム水溶液中）において、荷重が低くなっていることがわかる。さらに、水酸化カルシウム水溶液中で得られた曲線は、蒸留水中で得られたものよりも、荷重が高くなっていることがわかる。

図 31 に、本実験で得られたき裂進展速度と応力拡大係数の関係を示す。この図より、大気中よりも水中環境下（蒸留水中及び水酸化カルシウム水溶液中）において、き裂進展速度が高くなっていることがわかる。また、水酸化カルシウム水溶液中では、蒸留水中よりもき裂進展速度が低いことがわかる。さらに、従来の研究<sup>48)</sup>より低い速度である  $10^{-10}\text{m/s}$  程度のき裂進展速度まで測定を行うことができた。

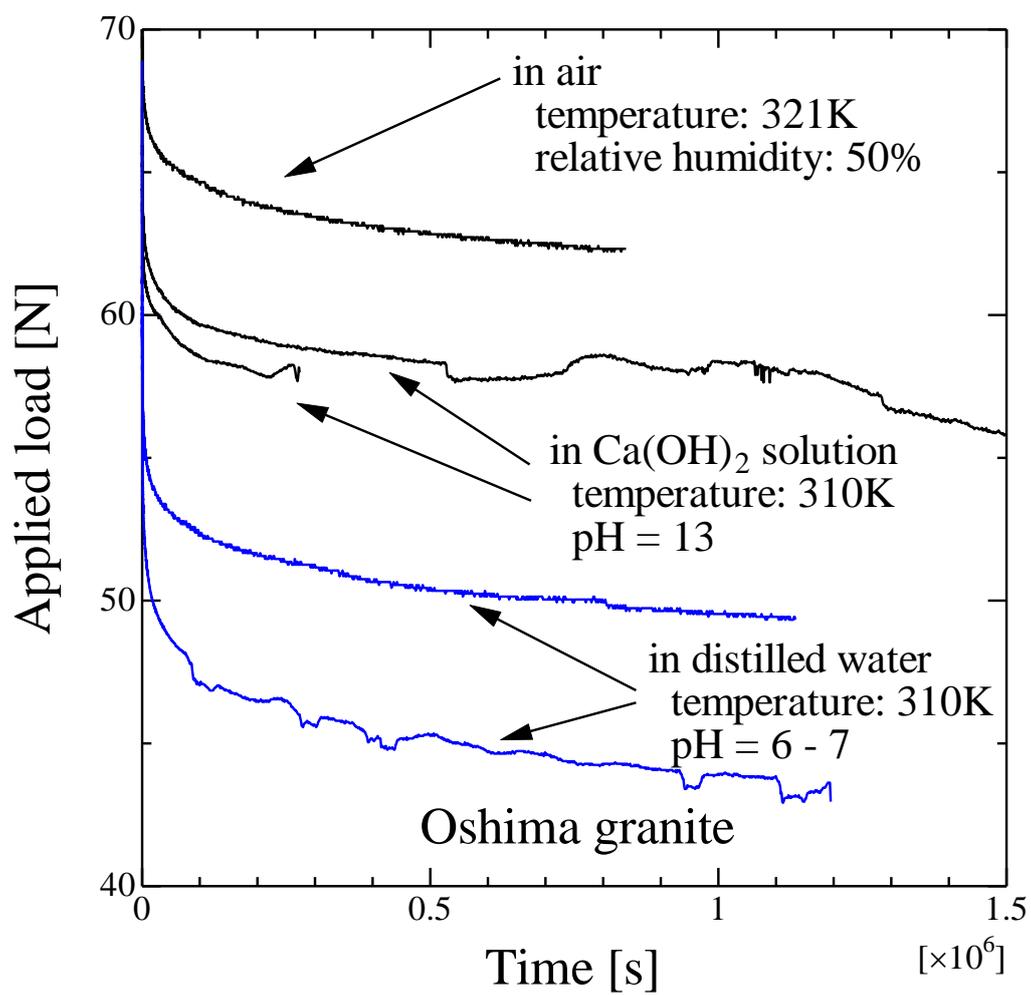


図 30 荷重緩和曲線

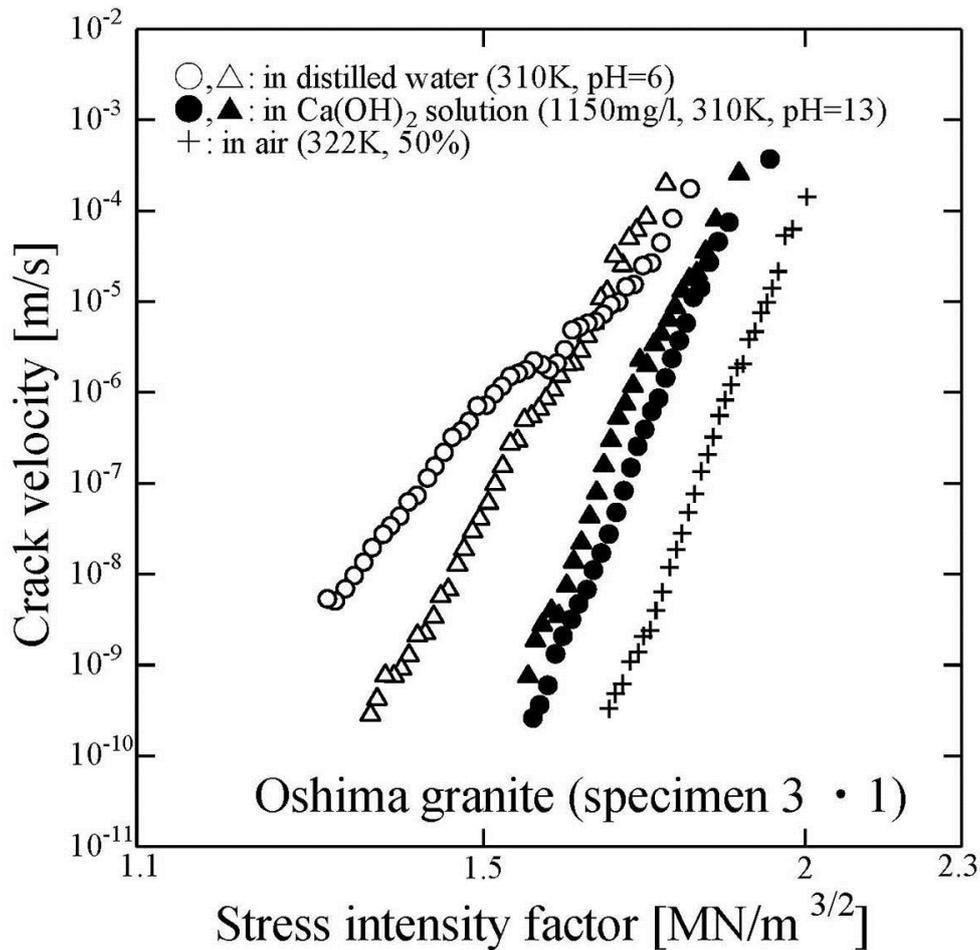


図 31 大島花崗岩におけるき裂進展速度と応力拡大係数の関係

#### 4.4.6 考察

本実験で得られた結果より，大気中よりも水中環境下で，同一応力拡大係数におけるき裂進展速度が高くなることが示された．この傾向は，様々な岩石で行われたサブクリティカルき裂進展の研究で得られているものと同様である<sup>6, 50, 51, 78-80</sup>．例えば，火成岩や砂岩のようなケイ酸塩材料では，引張を受けたき裂先端付近のシロキサン結合（Si-O-Si）が水と化学反応を起こし，劣化・分断する「応力腐食」がサブクリティカルき裂進展の支配機構であると考えられている<sup>39, 41, 81</sup>．また，大気中では水蒸気の毛管凝縮によって，き裂先端に吸引力が作用しているものの，水中ではそれが作用しなくなることも，水中でのき裂進展速度上昇の要因の一つと考えられている<sup>82</sup>．サブクリティカルき裂進展の測定結果を基にした計算より，岩石の長期強度は，大気環境下よりも水中で低くなることも示されているため<sup>6, 83</sup>，水中環境では岩石の劣化が進みやすく，注意

が必要であることがいえる。

ただし、水酸化カルシウム水溶液中では、蒸留水中よりもき裂進展速度が低くなっていることから、周辺環境の水質が岩石破壊の進みややすさに影響することが示唆される。本実験で用いた水酸化カルシウム水溶液の pH は 13 とアルカリ性を示しており、一方で蒸留水の pH は 6 である。Atkinson and Meredith<sup>59)</sup>や Sano and Kudo<sup>50)</sup>は、石英やケイ酸塩岩石を用いた試験において、アルカリ性の水中では中性の水中よりもき裂進展速度は高くなると報告している。Nara et al.<sup>51)</sup>では、き裂進展速度は周辺環境の pH に依存しないことが示されている。本試験で得られた結果は、pH が高い環境下でき裂進展速度が低くなっており、Atkinson and Meredith<sup>59)</sup>、Sano and Kudo<sup>50)</sup>、Nara et al.<sup>73)</sup>等の研究で得られた傾向とは異なっている。

本研究では pH が高い環境下であってもき裂進展速度が低くなるという結果を得たのでカルシウムイオンがき裂進展速度の低下、き裂進展の抑制に影響している可能性があると考えられる。カルシウムイオン濃度が高い環境下では、岩石表面にカルシウム化合物の析出が生じる。ゆえに、ダブルトーション試験の際にも、き裂の進展と同時に、カルシウム化合物の析出によるき裂の閉塞が生じていた可能性がある。例えば、既に進展したき裂経路にカルシウム化合物の析出が起こることによって、析出物による架橋が生じる可能性が指摘できる。また、き裂の進展と同時に析出による閉塞が起こり、見かけ上き裂進展が起らなくなるような現象も指摘できる。そこで、き裂内部で起こっている現象を調べるためにき裂経路を走査型電子顕微鏡 (Scanning Electron Microscope, 以下、「SEM」という) で観察した。SEM で観察する際には本研究で用いた実験後の供試体の引張面から厚さ 30 $\mu\text{m}$  の研磨薄片を用意し、その表面にカーボンコーティングを施したものを使用する。

図 32 に、SEM で撮影した供試体の一部の画像を、図 33 にその部分をエネルギー分散型 X 線分析装置 (EDS) による元素マッピングを行った画像を示す。図 32 の SEM 画像において、黒色の線状で写されている部分はき裂である。その中央に架け橋状に写されている物質が確認できる。この部分を元素マッピングの画像と重ね合わせるとカルシウムの存在が確認できた。また、図 34 に先程と異なる場所を SEM で撮影した画像を、図 35 に元素マッピングした画像を示す。図 34 の SEM 画像において左上の黒色の部分がき裂であるが、分岐したき裂が中央に写されている。この部分を元素マッピングの画像と重ね合わせてみるとカルシウムの存在が確認できた。このように、き裂に架け橋状にカルシウムが析出することや、き裂を塞ぐようにカルシウムが析出することで、蒸留水中と比較してき裂進展速度の低下がもたらされたと考えられる。これらのことより、岩石・岩盤の長期安定性確保にはカルシウムリッチな環境は有効である

可能性がある。

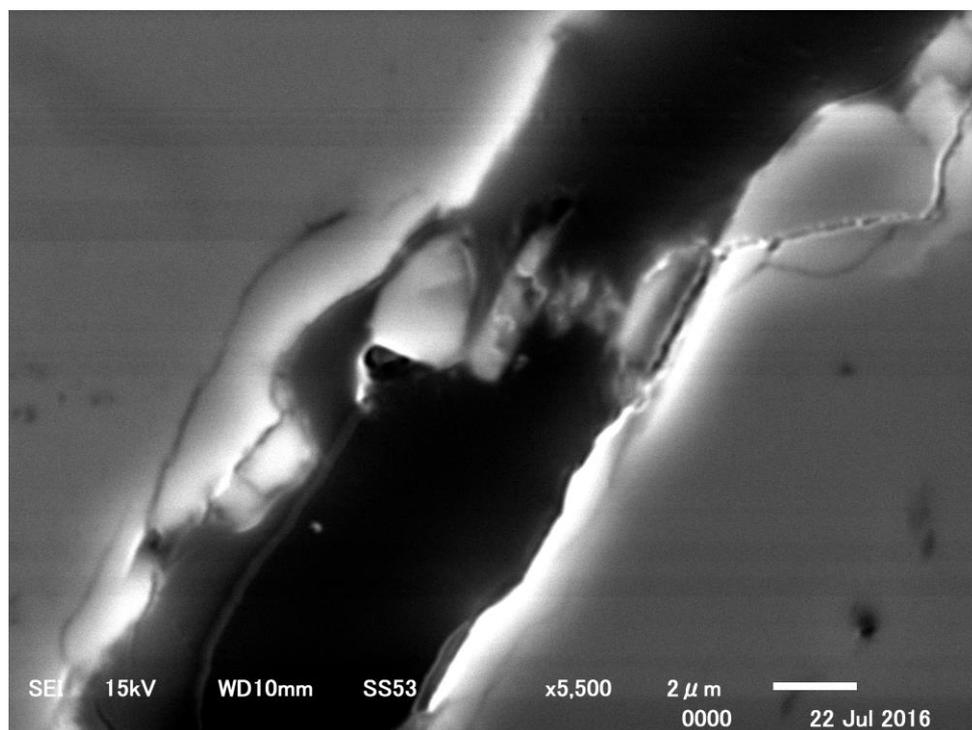


図 32 架橋が認められるき裂経路の SEM 画像

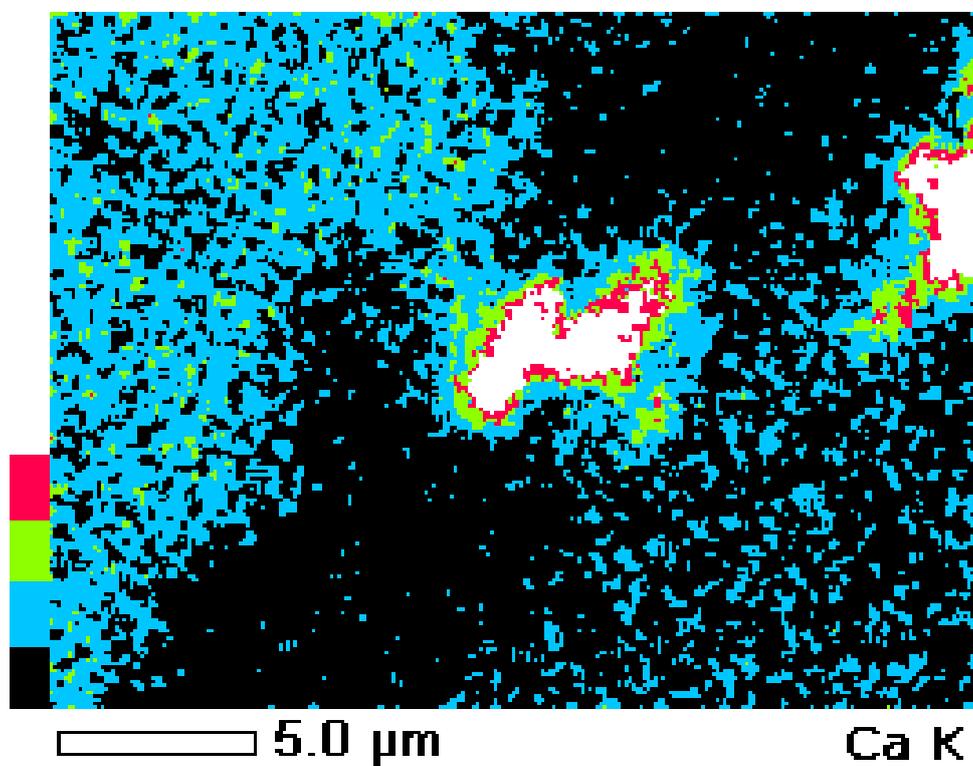


図 33 架橋が認められるき裂経路の元素マッピング画像（カルシウム）

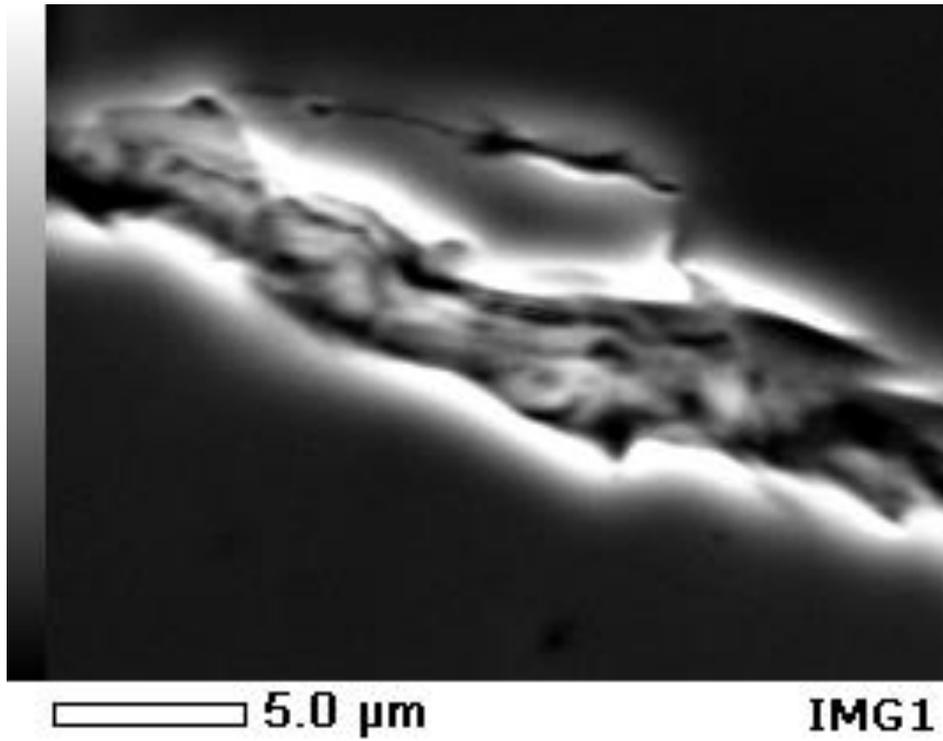


図 34 充填されているき裂の SEM 画像

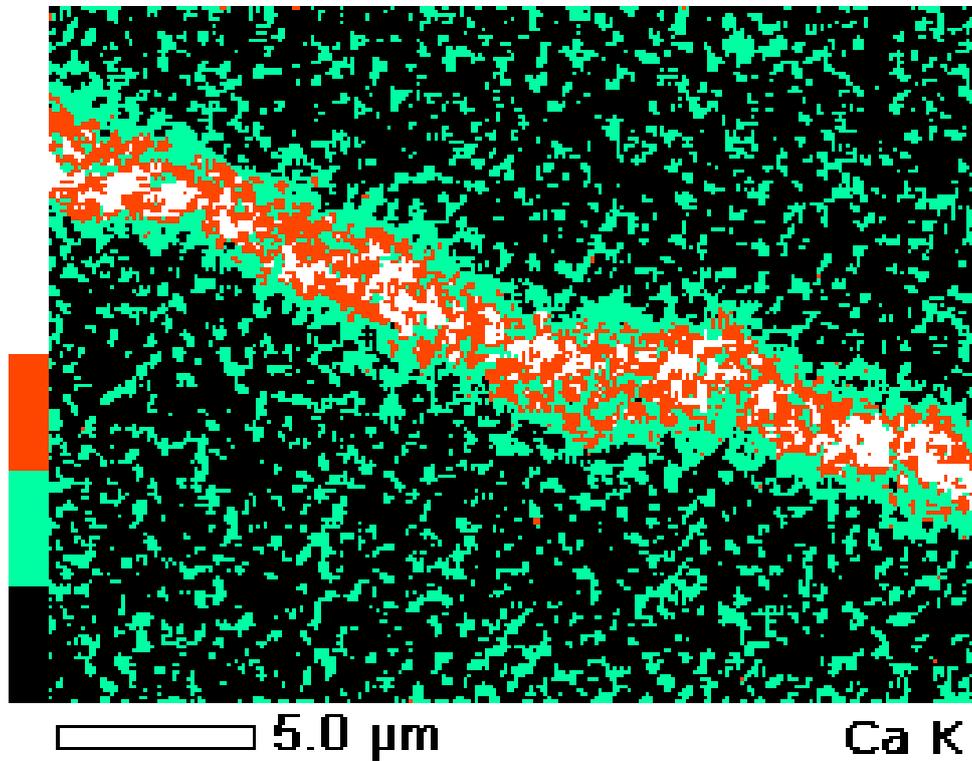


図 35 充填されているき裂の元素マッピング画像

#### 4.4.7 結言

本実験では、定変位ダブルトーション法による測定を1～2週間程度連続で行う長期連続測定により、サブクリティカルき裂進展データの取得を実施した。さらに、蒸留水中と水酸化カルシウム水溶液中で試験を行うことにより、岩石のき裂進展に及ぼすカルシウムイオン濃度の影響について考察した。その結果、従来得られているものよりも低いオーダーのき裂進展速度まで測定が行えた。また、カルシウムイオン濃度が高い環境下では、き裂進展速度がより低くなることが示された。

#### 4.5 残された課題と今後の計画

本研究では、室内透水試験を行うことによって、巨視き裂や粘土が結晶質岩（花崗岩）の透水係数にどのように影響するかを実験的に調べた。また、ダブルトーション試験法を用いたサブクリティカルき裂進展測定を行うことによって、花崗岩における低速でのき裂進展の検出を可能とするとともに、カルシウムイオンがき裂進展速度に及ぼす影響を調べた。

透水特性に関しては、供試体に流す粘土の量について再検討する必要があると考えている。特に、水に含まれる粘土の量をより少なくすることによって、粘土の沈殿がき裂閉塞を引き起こし、透水係数に変化が出るか否かを調べる必要があると考えている。さらに、原位置岩盤で同様の試験を行うことにより、より大きなスケールにおいても粘土によるき裂閉塞が透水係数に影響するか否かを確認する必要があると考えている。さらに、原位置岩盤においてカルシウム化合物の析出によるき裂閉塞が認められていることから、これによる透水係数の変化を調べる必要があると考えている。

これらの課題を踏まえ、平成 29 年度では、カルシウム化合物の析出が透水係数に及ぼす影響や、き裂の充填の程度と透水係数との関係を明らかにすることを目指したい。また、原位置での透水試験を行い、原位置岩盤でもき裂の閉塞によって透水係数に影響が出るのかどうについて調べることを考えている。

## 5. まとめ

本研究では、粘土及び破壊した岩石の遮蔽性を、透水試験を用いて調べた。特に、粘土の透水係数を求め、さらに粘土がき裂を充填する場合に透水係数がどのように変化するかを、粘土を含む水を花崗岩に流し続けることによって調べた。その結果、粘土（主成分はイライト）の透水係数は、インタクトな花崗岩より 1 オーダー程度高く、巨視き裂を含む花崗岩よりは 3～4 オーダー低い値となり、粘土層を含む花崗岩と同程度の値となった。このことより、巨視き裂を充填する物質の性質が、巨視き裂を含む結晶質岩石の透水係数を決定すると考えられる。また、粘土を含む水を流し続けると、時間の経過とともに、岩石の透水係数が低下する様子が示された。これは、粘土の沈殿によりき裂が充填されていることを示すものである。

また、岩石のき裂進展の時間依存性挙動を、破壊力学試験を用いて調べた。特に、長期間にわたる試験を水中環境下で行うことによって、極めて低い速度のき裂進展測定を目指した。さらに、カルシウムイオン濃度が高い水中環境下で試験を行い、蒸留水中で得られた結果と比較することによって、カルシウムイオン濃度がき裂進展速度にどのように影響するかを調べた。その結果、従来の研究で示されているものよりも低い速度のき裂進展を測定できた。さらに、カルシウムイオン濃度が高い環境下では、蒸留水中よりも、き裂進展速度が低くなることが示された。この結果から、多くのセメント系材料を用いて放射性廃棄物処分施設を建設する場合、岩盤の安定性を保ちやすい環境が実現できる可能性が考えられる。

## 参考文献

- 1) Y. Gueguen and J. Dienes, 1989. Transport properties of rocks from statistics and percolation. *Math. Geol.* Vol. 21, pp. 1-13.
- 2) K. Masuda, 2001. Effects of water on rock strength in a brittle regime. *J. Struct. Geol.*, Vol. 23, pp. 1653-1657.
- 3) P. Baud, W. Zhu and T. -F. Wong, 2000. Failure mode and weakening effect of water on sandstone. *J. Geophys. Res.*, Vol. 105, pp. 16371-16389.
- 4) D. Li, L.N.Y. Wong, G. Liu and X. Zhang, 2012. Influence of water content and anisotropy on the strength and deformability of low porosity meta-sedimentary rocks under triaxial compression. *Eng. Geol.*, Vol. 126, pp. 46-66.
- 5) H.S. Jeong, S.S. Kang and Y. Obara, 2007. Influence of surrounding environments and strain rates on the strength of rocks subjected to uniaxial compression. *Int. J. Rock Mech. Min. Sci.*, Vol. 44, pp. 321-331.
- 6) Y. Nara, H. Yamanaka, Y. Oe and K. Kaneko, 2013. Influence of temperature and water on subcritical crack growth parameters and long-term strength for igneous rocks, *Geophys. J. Int.*, Vol. 193, pp. 47-60.
- 7) Y. Nara, K. Morimoto, N. Hiroyoshi, T. Yoneda, K. Kaneko and P.M. Benson, 2012. Influence of relative humidity on fracture toughness of rock: implications for subcritical crack growth, *Int. J. Solids Struct.*, Vol. 49, pp. 2471-2481.
- 8) M. Kataoka, Y. Obara and M. Kuruppu, 2015. Estimation of fracture toughness of anisotropic rocks by Semi-Circular Bend (SCB) tests under water vapor pressure. *Rock Mech. Rock Eng.*, Vol. 48, pp. 1353-1367.
- 9) J.B. Walsh, 1980. Effect of pore pressure and confining pressure on fracture permeability. *Int. J. Rock Mech. Min. Si. & Geomech. Abstr.*, Vol. 18, pp. 429-435.
- 10) P.A. Witherspoon, J.S.Y. Wang, K. Iwai and J.E. Gale, 1980. Validity of Cubic Law for fluid flow in a deformable rock fracture. *Water Resour. Res.*, Vol. 16, pp. 1016-1024.
- 11) K.G. Raven and J.E. Gale, 1985. Water flow in a natural rock fracture as a function of stress and sample size. *Int. J. Rock Mech. Min. Sci.*, Vol. 22, pp. 251-261.
- 12) A.J.A. Unger and C.W. Mase, 1993. Numerical study of the hydrochemical behavior of two rough fracture surfaces in contact. *Water Resour. Res.*, Vol. 29, pp. 2101-2114.
- 13) B. Amadei and T. Illangasekare, 1994. A mathematical model for flow and solute transport in non-homogeneous rock fractures. *Int. J. Rock Mech. Min. Si. & Geomech. Abstr.*, Vol. 31, pp. 719-731.

- 14) C. David, 1993. Geometry of flow paths for fluid transport in rocks. *J. Geophys. Res.*, Vol. 98, pp. 12267-12278.
- 15) Y. Nara, P.G. Meredith, T. Yoneda and K. Kaneko, 2011. Influence of macro-fractures and micro-fractures on permeability and elastic wave velocities in basalt at elevated pressure. *Tectonophysics*, Vol. 503, pp. 52-59.
- 16) G. Wang, T.M. Mitchell, P. Meredith, Y. Nara and Z. Wu, 2016. Influence of gouge thickness on permeability of macro-fractured basalt. *J. Geophys. Res. Solid Earth*, Vol. 121, pp. 8472-8487.
- 17) 吉田英一, 2012. 地層処分—脱原発後に残される科学課題—. 近未来社.
- 18) M. Ishimashi, H. Yoshida, E. Sasao and T. Yaguchi, 2016. Long term behavior of hydrogeological structures associated with faulting: An example from the deep crystalline rock in the Mizunami URL, Central Japan. *Eng. Geol.*, Vol. 208, pp. 114-127.
- 19) A. Nakao, Y. Nara, K. Kashiwaya, T. Ishida and H. Ogawa, 2014. Observation of mineral precipitation on rock surface. *Proc. 8th Asian Rock Mechanics Symposium*, pp. 303-309, Sapporo, Japan, Oct. 14-16, 2014.
- 20) Y. Nara, R. Kuwatani, M. Kohno, Y. Hamada, M. Kato, Tsutomu Sato and Toshinori Sato, 2016. Precipitation of calcium compound on silicate rock surfaces. *Proc. 2016 Korea-Japan Joint Symposium on Rock Engineering*, pp. 34-37, Daejeon, Korea, May 19-20, 2016.
- 21) 加藤昌治, 奈良禎太, 河野勝宣, 佐藤稔紀, 佐藤努, 福田大祐, 高橋学, 2017. 花崗岩のき裂の透水性に及ぼす充填鉱物の影響. 第 14 回岩の力学国内シンポジウム論文集, 論文番号 68.
- 22) W.F. Brace, J.B. Walsh and W.T. Frangos, 1968. Permeability of granite under high pressure. *J. Geophys. Res.*, Vol. 73, pp. 2225-2236.
- 23) P.A. Hsieh, J.V. Tracy, C.E. Neuzil, J.D. Bredehoeft and S.E. Sillman, 1981. A transient laboratory method for determining the hydraulic properties of 'tight' rocks – I. theory. *Int. J. Rock Mech. Min. Sci. & Geomech. Abstr.*, Vol. 18, pp. 245-252.
- 24) H.F. Wang, 2000. *Theory of Linear Poroelasticity with Applications to Geomechanics and Hydrogeology*. Princeton University Press, Princeton, New Jersey, USA.
- 25) 加藤昌治, 高橋学, 金子勝比古, 2013. トランジェントパルス法を用いた低透水性岩石の水理定数の高精度評価. *Journal of MMIJ*, Vol. 129, pp. 472-478.
- 26) 加藤昌治, 高橋学, 金子勝比古, 2013. 多孔質材料の水理定数評価のための室内透水試験法の理論. *Journal of MMIJ*, Vol. 129, pp. 409-417.
- 27) 加藤昌治, 2014. 低透水性岩石の水理・圧密特性の評価に関する研究. 北海道

大学博士論文.

- 28) 加藤昌治, 奈良禎太, 福田大祐, 河野勝宣, 佐藤稔紀, 佐藤努, 高橋学, 2016. 岩石の透水試験における環境温度の制御の重要性. 材料, Vol. 65, pp. 489-495.
- 29) E.S. Sprunt and A. Nur, 1976. Reduction of porosity by pressure solution: Experimental verification. *Geology*, Vol. 4, pp. 463-466.
- 30) E.S. Sprunt and A. Nur, 1977. Experimental study of the effects of stress on solution rate. *J. Geophys. Res.*, Vol. 82, pp. 3013-3022.
- 31) A. Polak, D. Elsworth, H. Yasuhara, A.S. Grader and P.M. Halleck, 2003. Permeability reduction of a natural fracture under net dissolution by hydrothermal fluids. *Geophys. Res. Lett.*, Vol. 30, NO. 20, 2020, doi: 10.1029/2003GL017575.
- 32) A. Polak, D. Elsworth, J. Liu and A.S. Grader, 2004. Spontaneous switching of permeability changes in a limestone fracture with net dissolution. *Water Resour. Res.*, Vol. 40, W03502, doi: 10.1029/2003WR002717.
- 33) H. Yasuhara, D. Elsworth and A. Polak, 2003. A mechanistic model for compaction of granular aggregates moderated by pressure solution. *J. Geophys. Res.*, Vol. 108, NO. B11, 2530, doi: 10.1029/2003JB002536.
- 34) H. Yasuhara and d. Elsworth, 2004. Evolution of permeability in a natural fracture: Significant role of pressure solution. *J. Geophys. Res.*, Vol. 109, B03204, doi: 10.1029/2003JB002663.
- 35) 安原英明, 緒方奨, 木下尚樹, 岸田潔, 2015. 圧力溶解現象を考慮した数値解析モデルによる岩盤の長期透水特性評価, 土木学会論文集 C, Vol. 71, pp. 292-300.
- 36) H. Yasuhara, N. Kinoshita, H. Ohfuji, M. Takahashi, K. Ito and K. Kishida, 2015. Long-term observation of permeability in sedimentary rocks under high-temperature and stress conditions and its interpretation mediated by microstructural investigations. *Water Resour. Res.*, Vol. 51, pp. 5425-5449.
- 37) H. Yasuhara, N. Kinoshita, S. Ogata, D.S. Cheon and K. Kishida, 2016. Coupled thermo-hydro-mechanical-chemical modeling by incorporating pressure solution for estimating the evolution of rock permeability. *Int. J. Rock Mech. Min. Sci.*, Vol. 86, pp. 104-114.
- 38) H.W. Olsen, 1966. Darcy's law in saturated kaolinite. *Water Resour. Res.*, Vol. 2, pp. 287-295.
- 39) O.L. Anderson, and P.C. Grew, 1977. Stress corrosion theory of crack propagation with applications to geophysics. *Rev. Geophys. Space Phys.*, Vol. 15, pp. 77-104.
- 40) B.K. Atkinson, 1982. Subcritical crack-propagation in rocks – theory, experimental results and applications. *J. Struct. Geol.*, Vol. 4, pp. 41-56.

- 41) B.K. Atkinson, 1984. Subcritical crack growth in geological materials. *J. Geophys. Res.*, Vol. 89, pp. 4077-4114.
- 42) B.K. Atkinson and P.G. Meredith, 1987. The theory of subcritical crack growth with applications to minerals and rocks. In: Atkinson, B.K. (Ed.), *Fracture Mechanics of Rock*, Academic Press, London, UK, pp. 111-166.
- 43) T.A. Michalske and S.W. Freiman, 1982. A molecular interpretation of stress corrosion in silica. *Nature*, Vol. 295, pp. 511-512.
- 44) S.M. Wiederhorn, 1967. Influence of water vapor on crack propagation in soda-lime glass. *J. Am. Ceram. Soc.*, Vol. 50, pp. 407-414.
- 45) S.M. Wiederhorn and L.H. Bolz, 1970. Stress Corrosion and Static Fatigue of Glass. *J. Am. Ceram. Soc.*, Vol. 53, pp. 543-548.
- 46) R.J. Charles, 1958. Static fatigue of glass I. *J. Appl. Phys.*, Vol. 29, pp. 1549-1553.
- 47) R.J. Charles, 1958. Static fatigue of glass II. *J. Appl. Phys.*, Vol. 29, pp. 1554-1560.
- 48) 奈良禎太, 2007. 岩石のサブクリティカル亀裂進展に関する既往の研究と新たな展開 -亀裂進展の時間依存性挙動の把握を目指して-, *Journal of MMIJ*, Vol. 123, pp. 2-9.
- 49) B.K. Atkinson and P.G. Meredith, 1981. Stress corrosion cracking of quartz: a note on the influence of the chemical environment. *Tectonophysics*, Vol. 77, pp. T1-T11.
- 50) O. Sano and Y. Kudo, 1992. Relation of fracture resistance to fabric for granitic rocks. *Pure Appl. Geophys.*, Vol. 138, pp. 657-677.
- 51) Y. Nara, M. Takada, T. Igarashi, N. Hiroyoshi and K. Kaneko, 2009. Subcritical crack growth in rocks in an aqueous environment. *Explor. Geophys.*, Vol. 40, pp.163-171.
- 52) Y. Nara, R. Nakabayashi, M. Maruyama, N. Hiroyoshi, T. Yoneda and K. Kaneko, 2014. Influences of electrolyte concentration on subcritical crack growth in sandstone in water. *Eng. Geol.*, Vol. 179, pp. 41-49.
- 53) J.A. Kies and A.B.J. Clark, 1969. Fracture propagation rates and times to fail following proof stress in bulk glass. In: Platt, P.L. (Ed.), *Fracture 1969*, Chapman and Hall, London, pp. 483-491.
- 54) A.G. Evans, 1972. A method for evaluating the time-dependent failure characteristics of brittle materials – and its application to polycrystalline alumina. *J. Mater. Sci.*, Vol. 7, pp. 1137-1146.
- 55) D.P. Williams and A.G. Evans, 1973. A simple method for studying slow crack growth. *J. Test. Eval.*, Vol. 1, pp. 264-270.
- 56) O. Sano, 1988. A revision of the double-torsion technique for brittle materials. *J. Mater. Sci.*, Vol. 23, pp. 2505-2511.
- 57) R.F. Pabst and J. Weick, 1981. Double-torsion measurements with and without a

- guiding notch, *J. Mater. Sci.*, Vol. 16, pp. 836-838.
- 58) Y. Nara and K. Kaneko, 2005. Study of subcritical crack growth in andesite using Double Torsion test, *Int. J. Rock Mech. Min. Sci.*, Vol. 42, pp. 521-530.
  - 59) B.K. Atkinson and P.G. Meredith, 1987. Experimental fracture mechanics data for rocks and minerals. *Fracture Mechanics of Rock* (ed. B.K. Atkinson) pp. 477-525.
  - 60) B.K. Atkinson, 1979. A fracture mechanics study of subcritical tensile cracking of quartz in wet environments. *Pure Appl. Geophys.*, Vol. 117, pp. 1011-1024.
  - 61) A.G. Evans, M. Linzer and L.R. Russell, 1974. Acoustic emission and crack propagation in polycrystalline alumina. *Mater. Sci. Eng.*, Vol. 15, pp. 253-261.
  - 62) B.K. Atkinson, 1979. Fracture toughness of Tennessee sandstone and Carrara marble using the double torsion testing method. *Int. J. Rock Mech. Min. Sci. & Geomech. Abstr.*, Vol. 16, pp. 49-53.
  - 63) M. Ciccotti, 2000. Realistic finite-element method for double-torsion loading configuration. *J. Am. Ceram. Soc.*, Vol. 83, pp. 2737-2744.
  - 64) M. Ciccotti, N. Negri, L. Sassi, G. Gonzato and F. Mulargia, 2000. Elastic and fracture parameters of Etna, Stromboli, and Vulcano lava rocks. *J. Volcanol. Geother. Res.*, Vol. 98, pp. 209-217.
  - 65) M. Ciccotti, G. Gonzato and F. Mulargia, 2000. The double torsion loading configuration for fracture propagation: an improved methodology for load relaxation at constant displacement. *Int. J. Rock Mech. Min. Sci.*, Vol. 37, pp. 1103-1113.
  - 66) M. Ciccotti, N. Negri, G. Gonzato and F. Mulargia, 2001. Practical application of an improved methodology for the double torsion load relaxation method. *Int. J. Rock Mech. Min. Sci.*, Vol. 38, pp. 569-576.
  - 67) G.G. Trantina, 1977. Stress analysis of the double-torsion specimen. *J. Am. Ceram. Soc.*, Vol. 60, pp. 338-341.
  - 68) D.K. Shetty and A.V. Virkar, 1978. Determination of the useful range of crack lengths in Double Torsion specimen, *J. Am. Ceram. Soc.*, Vol. 61, pp. 93-94.
  - 69) B.J. Pletka, E.R. Fuller Jr. and B.G. Koepke, 1979. An evaluation of double-torsion testing – Experimental. *ASTM STP 678*, pp. 19-37.
  - 70) A. Shyam and E. Lara-Curzio, 2006. The double-torsion testing technique for determination of fracture toughness and slow crack growth behaviour of materials: a review. *J. Mater. Sci.*, Vol. 41, pp. 4093-4104.
  - 71) M.A. Madjoubi, M. Hamidouche and N. Bouaouadja, 2007. Experimental evaluation of the double torsion analysis on soda-lime glass. *J. Mater. Sci.*, Vol. 42, pp. 7872-7881.
  - 72) O. Sano, Y. Kudo and Y. Mizuta, 1992. Experimental determination of elastic

- constants of Oshima granite, Barre granite, and Chelmsford granite. *J. Geophys. Res.*, Vol. 97, pp. 3367-3379.
- 73) Y. Nara and K. Kaneko, 2006. Sub-critical crack growth in anisotropic rock. *Int. J. Rock Mech. Min. Sci.*, Vol. 43, pp.437-453.
- 74) Y. Nara, K. Koike, T. Yoneda and K. Kaneko, 2006. Relation between subcritical crack growth behavior and crack paths in granite. *Int. J. Rock Mech. Min. Sci.*, Vol. 43, pp. 1256-1261.
- 75) Y. Nara, 2015. Effect of anisotropy on the long-term strength of granite, *Rock Mech. Rock Eng.*, Vol. 48, pp. 959-969.
- 76) 工藤洋三, 佐野修, 1993. 石目と花崗岩の力学的性質. *地質ニュース*, Vol. 470, pp. 36-45.
- 77) 工藤洋三, 橋本堅一, 佐野修, 中川浩二, 1986. 花崗岩の力学的異方性と岩石組織欠陥の分布. *土木学会論文集*, Vol. 370/III-5, pp. 189-198.
- 78) T. Waza, K. Kurita and H. Mizutani, 1980. The effect of water on the subcritical crack growth in silicate rocks. *Tectonophysics*, Vol. 67, pp. 25-34.
- 79) P.G. Meredith and B.K. Atkinson, 1983. Stress corrosion and acoustic emission during tensile crack propagation in Whin Sill dolerite and other basic rocks. *Geophys. J. R. Astr. Soc.*, Vol. 75, pp. 1-21.
- 80) Y. Nara, K. Morimoto, T. Yoneda, N. Hiroyoshi and K. Kaneko, 2011. Effects of humidity and temperature on subcritical crack growth in sandstone. *Int. J. Solids Struct.*, Vol. 48, pp.1130-1140.
- 81) T.A. Michalske and S.W. Freiman, 1982. A molecular interpretation of stress corrosion in silica. *Nature*, Vol. 295, pp. 511-512.
- 82) Y. Nara, N. Hiroyoshi, T. Yoneda and K. Kaneko, 2010. Effects of relative humidity and temperature on subcritical crack growth in igneous rock. *Int. J. Rock Mech. Min. Sci.*, Vol. 47, pp. 640-646.
- 83) Y. Nara, M. Takada, D. Mori, H. Owada, T. Yoneda and K. Kaneko, 2010. Subcritical crack growth and long-term strength in rock and cementitious material, *Int. J. Fract.*, Vol. 164, pp. 57-71.

【学術論文】

1. 加藤昌治・奈良禎太・福田大祐・河野勝宣・佐藤稔紀・佐藤努・高橋学 (2016), 岩石の透水試験における環境温度の制御の重要性. 材料, Vol.65, No.7, pp.489-495.

【口頭発表】

1. 加藤昌治・奈良禎太・二里竜平・河野勝宣・佐藤稔紀・佐藤努・福田大祐・高橋学 (2016), 岩石の透水性に及ぼすき裂修復の影響. 日本材料学会第 65 期学術講演会, 2016 年 5 月 28 日.
2. 加藤昌治・奈良禎太・岡崎勇樹・河野勝宣・佐藤稔紀・佐藤努・福田大祐・高橋学 (2016), 岩石と粘土におけるトランジェントパルス法を用いた透水係数測定. 資源・素材 2016 (盛岡), 2016 年 9 月 15 日.
3. 加藤昌治・奈良禎太・河野勝宣・佐藤稔紀・佐藤努・福田大祐・高橋学 (2016), (2017), 花崗岩のき裂の透水性に及ぼす充填鉱物の影響. 第 14 回岩の力学国内シンポジウム, 論文番号 68, 2017 年 1 月 9 日.
4. Yoshitaka Nara, Ryuta Kuwatani, Masanori Kohno, Yusaku Hamada, Masaji Kato, Tsutomu Sato and Toshinori Sato (2016), Precipitation of calcium compound on silicate rock surfaces, Proc. 2016 Korea-Japan Joint Symposium on Rock Engineering, pp.34-37, Daejeon, Korea, May 19-20, 2016.
5. Masaji Kato, Yoshitaka Nara, Daisuke Fukuda, Masanori Kohno, Toshinori Sato, Tsutomu Sato and Manabu Takahashi (2016), Importance of temperature control during permeability test for measuring hydraulic constants of rock. Proceedings of EUROCK 2016, pp.259-263, Cappadocia, Turkey, Aug. 29-31, 2016.

【ポスター発表】

1. 春井友貴・奈良禎太 (2017), 高いカルシウムイオン濃度環境下における岩石のサブクリティカルき裂進展. 第 14 回岩の力学国内シンポジウム, 論文番号 6, 2017 年 1 月 9 日.



## 研究報告 3

天然バリアと人工バリアの力学特性を考慮した  
放射性廃棄物処分施設の長期的な力学挙動予測  
システムの開発

(処分施設の建設～操業～閉鎖～)

福島工業高等専門学校 建設環境工学科

金澤 伸一



## 1. 背景<sup>1)2)</sup>

これまで我が国では、他国に依存しないエネルギー保有の観点から原子力発電が重要視されてきた。原子力発電では放射性廃棄物の発生が避けられず、その放射性廃棄物の処分方法として地中に埋設して処分する地層処分が検討されてきた。

現在、地層処分施設の長期予測解析において、人工バリア（以下、ベントナイト緩衝材）の再冠水時の不飽和状態での膨潤挙動と、その後の飽和時の圧密などの挙動は別々に検討され、連続的に解いたものは著者の知る限り見当たらない。さらに、天然バリア（岩盤）とベントナイト緩衝材の相互関係の力学挙動を解いたものも見当たらない。しかしながら近年では、個々の事象の予測技術が開発・高度化され、岩盤を含めた処分施設の建設から超長期にわたる挙動を連続的に解析できるところまできている。

そこで本研究では、施設の建設から閉鎖に着目し、岩盤とベントナイト緩衝材の力学特性を考慮できるモデルを組み込んだ、熱／固相／液相／気相連成有限要素解析を実施し、建設から供用までの力学挙動を連続して解くことで、岩盤とベントナイト緩衝材の長期的（数十万年オーダー）な力学的相互作用を把握する。さらに、解析条件の選定や解析結果の評価方法までの一連の流れを整備し、処分施設の長期的力学挙動の予測システムを開発することで、地層処分事業における評価解析手法の確立をめざす。

## 2. 目的

高レベル放射性廃棄物の地層処分における人工バリアとその周辺岩盤を含むニアフィールド環境では、ガラス固化体に含まれる核種の崩壊熱やベントナイト緩衝材内への地下水侵入などの現象が相互に影響し合う熱－水－応力の連成プロセスが進行すると考えられる。この連成プロセスにおけるベントナイト緩衝材の力学挙動を解析により評価するためには、力学特性に与える温度や飽和度の影響を実験により把握し、これらの影響を反映できる構成モデルを構築する必要がある。これまで、地層処分施設におけるベントナイトの力学挙動を把握するため、ベントナイトに関する既往の研究では、ベントナイト緩衝材の最大圧縮強度を把握<sup>3)</sup>する実験が行われている。さらに、飽和ベントナイトの力学特性の把握<sup>4)</sup>、圧密特性の把握<sup>5) 6) 7) 8)</sup>、ダイレイタンス特性の把握<sup>9) 10)</sup>、膨潤特性の把握<sup>11) 12)</sup>、不飽和圧縮特性の把握<sup>13)</sup>、ベントナイトの水分特性の把握<sup>14) 15) 16) 17) 18)</sup>がなされているが、これらは全て常温の下で行われた実験である。実際の処分施設におけるガラス固化体は、核種の崩壊熱によって高温状態となることから、ベントナイト緩衝材もそれに準ずる高温に晒されることとなる。しかしながら、温度の影響を考慮したベントナイトの力学特性に関する実験はこれ

まであまり行われていないのが現状である。

そこで本研究では、温度変化の影響を考慮した膨潤量試験、温度変化を考慮した圧密試験、温度変化による一軸強度試験のデータを取得する環境を整備し、予備試験を実施する。さらに、解析シミュレータの開発と高度化を実施する。

### 3. 全体研究計画（4 ヶ年における全体計画）

平成 26 年度は、ベントナイトに関する各種（温度変化を考慮した、圧密・膨潤量・一軸強度）データを取得する環境を整備し、予備試験を実施する。さらに、解析シミュレータの開発と高度化を実施する。

#### (1) 圧密試験機、一軸試験機を用いた温度効果を確認する室内実験装置の製作

温度を変化させた吸水過程でのベントナイト膨潤量、膨潤圧、圧密の計測のため、圧密試験機を改良する。さらに温度変化によるベントナイトの一軸強度を計測するため、高強度まで計測できる一軸試験機に改良し、予備試験及び各種データ取得環境の整備を実施する。

#### (2) 解析シミュレータの開発・高度化

筆者らが保有している 2 次元の有限要素解析コードに、コンプライアンス可変型構成モデル（通称、大久保モデル）を組み込む。

#### (3) 地層処分施設の長期挙動の解析条件の整備

組み込んだモデルのパラメータの選定を行う。パラメータの選定には、岐阜県瑞浪市の花崗岩に対して実施されてきた室内試験の実験データを利用する。また、第 2 次 TRU レポート<sup>19)</sup><sup>20)</sup>ならびに地層処分研究開発第 2 次取りまとめ等<sup>18)</sup>を参考に、解析対象とする処分施設の形状や人工バリアの解析パラメータの選定を行う。その際、TRU 処分施設や高レベル放射性廃棄物処分施設などの複数の解析対象を設定する。

平成 27 年度は、ベントナイトに関する各種（膨潤量、膨潤圧、温度変化による一軸強度）データを取得する。さらに、解析シミュレータの開発と高度化を図り、要素解析を実施する。

#### (1) 圧密試験機、一軸試験機を用いた室内実験の実施

改良した試験機を用いて、温度変化による吸水過程でのベントナイト膨潤量の計測及び、温度変化によるベントナイトの一軸強度を計測する。

#### (2) 解析シミュレータの開発・高度化

溶存溶解モデル（ヘンリーの法則を考慮した液相・気相の連続条件式）を解析コードに組み込み、ベントナイト緩衝材内部の封入空気を与える影響を検討する。

平成 28 年度は、TRU 廃棄物処分施設の幌型断面を対象に行う。それに加え、得られている知見を踏まえ、多連設坑道の設計の手順・方法の詳細化を図るため

の基礎的な解析を実施する。

#### (1) 解析シミュレータの開発・高度化

廃棄体の温度によるベントナイト緩衝材への影響を長期的に把握するために、熱力学（潜熱/顕熱変化）を組み込む。温度変化を考慮した一軸試験との実験結果の整合性を確認する。

#### (2) 地層処分施設の長期挙動解析の実施

これまで整備してきた解析条件を用い、地層処分施設の長期挙動解析を実施する。H28年度では、TRU 廃棄物処分施設の幌型断面を対象に行う。それに加え、得られている知見を踏まえ、多連設坑道の設計の手順・方法の詳細化を図るための基礎的な解析を実施する。

平成 29 年度は、地層処分施設の長期挙動解析のケーススタディを実施する。特に再冠水後の挙動に着目し、各種データを取得し、データの取りまとめを行い、総括報告書を作成する。

#### (1) 処分施設の建設～操業～閉鎖～までの解析

TRU 処分施設と高レベル放射性廃棄物処分施設の処分形状の違いや、想定する深度の違いなどが岩盤とベントナイト緩衝材の力学的相互作用に与える影響を検討する。また、本研究で整備した解析手法の適用性、実用性を評価・検討し最終年度の締めくくりとする。

### 4. 平成 27 年度の成果概要

放射性廃棄物の地層処分では、ガラス固化体をオーバーパックに封じ込め、さらにその周囲を緩衝材であるベントナイトで覆った後、坑道内の処分ピットに廃棄する（その後、冠水）方法が検討されている。この方法であれば廃棄体からの放射線の漏れは抑えられるが問題点もある。廃棄体は地下 300m の応力（水圧も含め）状態にあり、また常に高温で接しているベントナイトも高温（～100℃ほど）になるため、温度変化によるベントナイトの力学特性を把握することは急務であると考えられる。さらに処分ピット内のベントナイトは、冠水過程に温度変化の影響を受けながら圧密されることとなる。そこで本実験では、温度変化を考慮したベントナイトの圧密試験を実施し、高温状態に晒されるベントナイトの冠水における圧密特性の把握を試みる。特に、圧密試験の結果から得られる間隙比-応力関係 ( $e-\log p'$ ) が温度変化によってどのような影響を受けるか把握する。また、温度変化による膨潤量の変化、さらには温度変化によるベントナイトの強度特性の把握を行った。

ベントナイトに関する各種（温度変化を考慮した膨潤量、一軸強度）データを取得する。さらに、解析シミュレータの開発と高度化を図り、要素解析を実施する。

#### (1) 圧密試験機、一軸試験機を用いた室内実験の実施

改良した試験機を用いて、温度変化による吸水過程でのベントナイト膨潤量、膨潤圧の計測及び、温度変化によるベントナイトの一軸強度を計測する。

#### (2) 解析シミュレータの開発・高度化

溶存溶解モデル（ヘンリーの法則を考慮した液相・気相の連続条件式）を解析コードに組み込み、ベントナイト緩衝材内部の封入空気に与える影響を検討する。

### 4.1 温度変化を考慮した圧密試験の実施

通常の圧密試験と同様の試験を行なうが、本研究では高圧力まで荷重を与えられ、さらに温度変化を考慮できるよう試験機を改良した。

#### (1) 実験方法

- ① ベントナイトを試料に用いた直径 3cm、高さ 2cm の供試体を作製する。
- ② 供試体から含水比を測定する。
- ③ 作製した供試体を圧密容器に入れ、温度管理ができる容器内にセットして周りを水で満たす。
- ④ 温度を室温に設定して圧密を開始。変位計の読みと、その時の経過時間を測定する。
- ⑤ ①～④の動作を、圧密時の温度を変化させながら繰り返す（室温～90℃まで約 20℃刻み）。
- ⑥ 測定結果を用いて圧密係数や圧縮曲線、間隙比－応力関係（ $e-\log p'$ ）曲線を求め、圧密時の特性が温度変化によりどのような影響を受けるのか検証する。

### 4.2 温度変化を考慮した膨潤量試験

地層処分では、処分ピット内において、廃棄体の周りをベントナイト緩衝材で封じ込め冠水させる。ベントナイトの特性として、非常に透水係数が小さく、水分を吸収すると通常の土とは異なり自身の体積以上に膨張することで透水性の低下が起こる、またスライム状になるため放射線が外に漏れなくなると考えられる。また膨潤することで岩盤との応力均衡が期待できる。しかしながら一方で、放射性廃棄物は高温（～100℃ほど）であるため、ベントナイト緩衝材の温度変化による膨潤量の特性を把握することが急務である。そこで本実験では、処分ピットでの岩盤とベントナイトの応力均衡を把握するため、高温に晒されることになるベントナイトの膨潤特性が温度変化によってどのように変化するのか把握する。

## (1) 実験方法

通常の圧密試験の手順で温度変化を考慮しながら試験を行う。圧密試験機にベントナイトをセットした後、周りを水で満たし温度を変化（室温～99℃まで10℃刻み）させながら吸水させ、上部は固定せずベントナイトが膨潤することで起きる上部の変位量で膨潤量を測定する（図 - 1）。

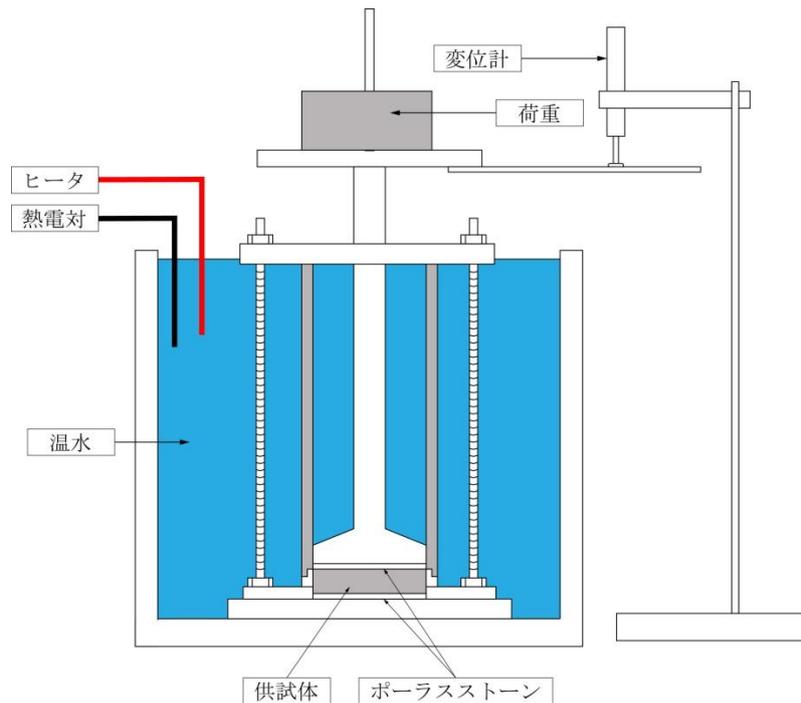


図 - 1 膨潤量試験機概要図

## (2) 実験結果

実験結果を以下に示す。図 - 2 の赤いプロットは40℃、青いプロットは常温（20℃）での膨潤量試験の結果である。この結果より、温度が高まるとベントナイトがより膨潤する結果となった。また、水分の供給となる上部と下部ではほぼ含水比の差はみられないが、中心部に向かうにつれ40℃の方が、含水比が高く、より水分供給が行われていることが確認できた。この結果より、高温にさらされる可能性のあるピット内では、ベントナイトの膨潤が期待され、安全側に向かう可能性があると考えられる。温度変化による膨潤量の差は、温度変化によるベントナイトの透水係数の変化によるものであると考えられるが、ベントナイトは通常の試料とは異なり、それだけでは説明できない。そのため、現在も継続して50℃、60℃の実験を行っており、さらにデータ収集を行い検討していく。

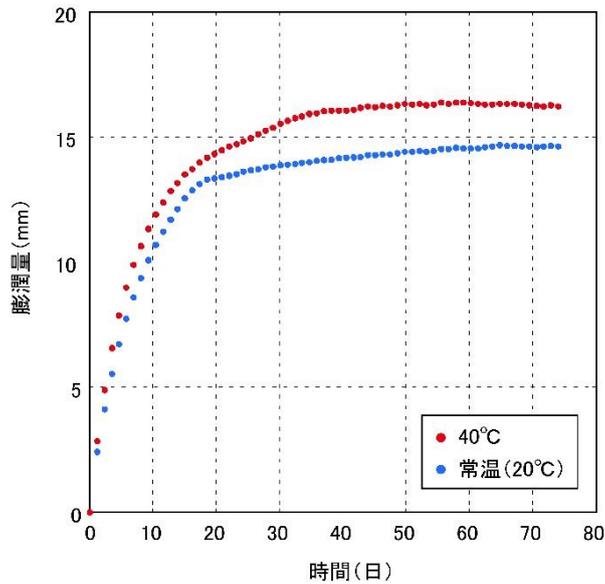


図 - 2 膨潤量試験

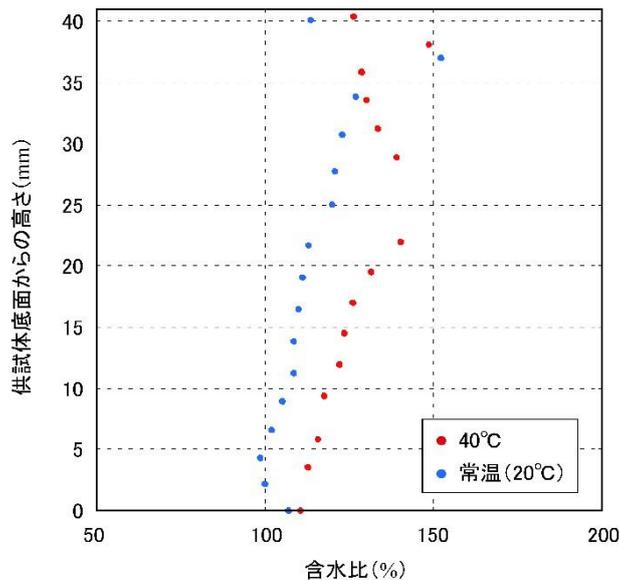


図 - 3 高さごとの含水比試験

#### 4.3 高温変化を考慮したベントナイトの一軸強度の把握

処分ピット内におけるベントナイト緩衝材の温度変化による強度を知るために一軸圧縮試験を行う。一軸圧縮試験は、供試体に拘束圧を作用させない状態で圧縮し土の強度を求める試験であり、本実験では温度変化に対応できる機構を備えたものである。20~100℃の間で加熱した供試体を一軸圧縮試験機にセットし試験を行い、温度変化時の供試体の圧縮強度を調べる。

## (1) 実験方法

試料は、ベントナイトと珪砂5号を7:3の割合で混合し、自然含水比で調整する。高さ10cm、直径5cmの供試体を作製し、1日かけて各温度に調整した温度調整機(温水)に供試体をセットする。取りだした供試体の温度が変化しない様に、試験中も設定した温度調整機を用いた状態でせん断する(図-4)。実験は、温度変化の考慮なし・ありを行った。

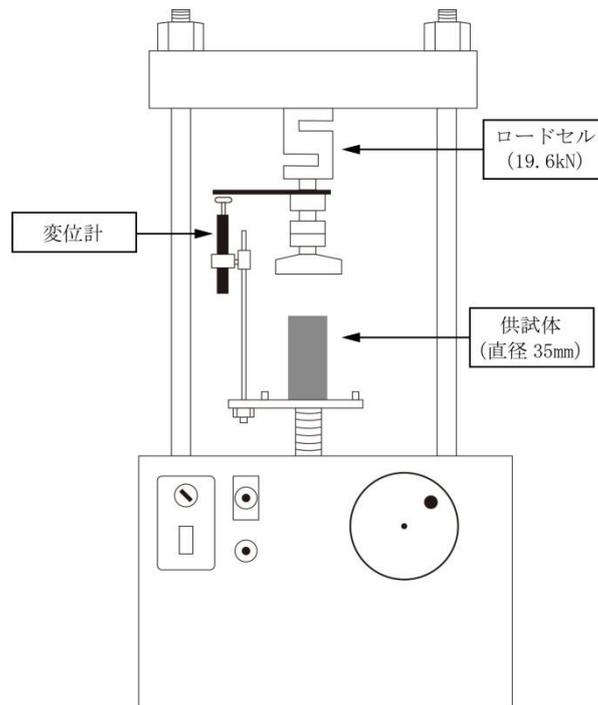


図 - 4 一軸試験装置概要図

## (2) 実験結果

### ①温度変化を考慮しない場合

実験は初期のゆるみを考慮した場合(ゴムスリーブなし)と考慮しない場合(ゴムスリーブあり)とに分けて行った(図-5~8, 乾燥密度ごとの結果)。

最大圧縮応力に関して、乾燥密度が上がるとともに圧縮応力も上昇していく結果となり、さらに弾性係数も上昇する結果となった。密度の違いによって、強度増加が見込め、さらに弾性係数の増加も見込める結果となった。しかしながら、

初期の乾燥密度が 1.64 (g/cm<sup>3</sup>) と 1.90 (g/cm<sup>3</sup>) では、最大で 6 倍もの強度差があり、弾性係数も最大で約 4 倍程度の差があることが確認された。

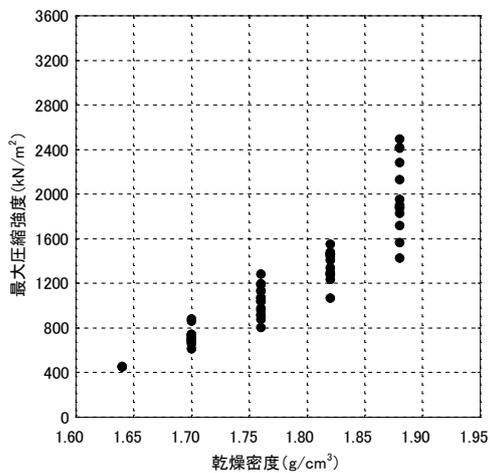


図 - 5 最大圧縮強度 (ゴムスリーブなし)

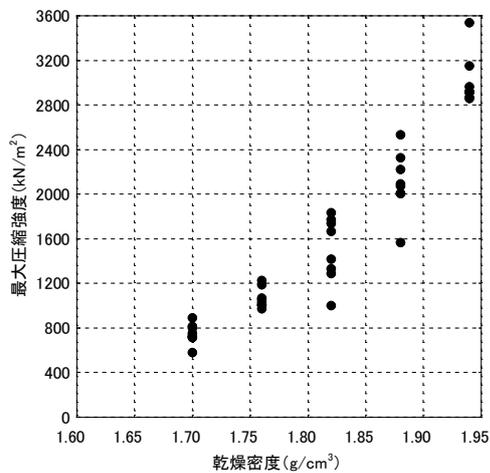


図 - 6 最大圧縮強度 (ゴムスリーブあり)

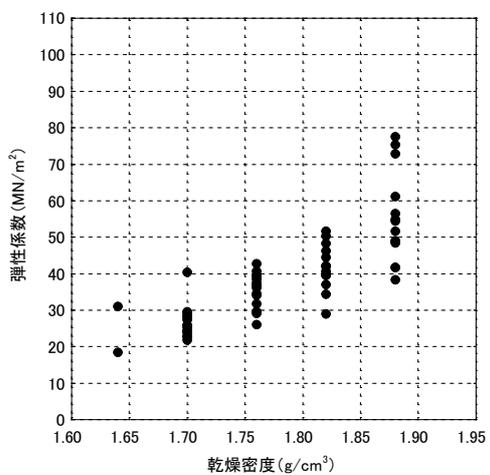


図 - 7 弾性係数 (ゴムスリーブなし)

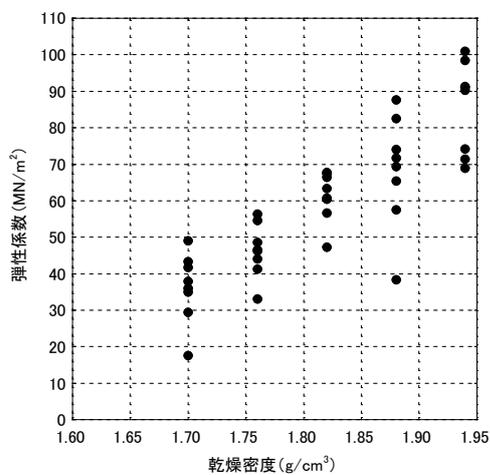


図 - 8 弾性係数 (ゴムスリーブあり)

## ②温度変化を考慮した場合

本実験では、30℃～70℃まで温度を変化させて実験を行った（図-9、10は各温度での応力-ひずみ関係）。その結果、温度が上昇すると徐々に最大圧縮応力が低下していく傾向がみられ、さらには弾性係数も低下する傾向となった。最大圧縮応力をみると、温度が上昇するにつれ徐々に低下していき、30℃と80℃に至っては、1.5倍程度の強度差がある。一方、弾性係数も温度が上昇するにつれ徐々に低下していき、30℃と80℃に至っては、倍以上のもの差となった。これらの結果より、処分ピット内は高温にさらされる（～100℃程度）可能性があるため、温度が上昇すると強度低下、さらには弾性係数の低下が懸念される。つまり施工の初期条件設定が非常に重要であると示唆される結果となった。

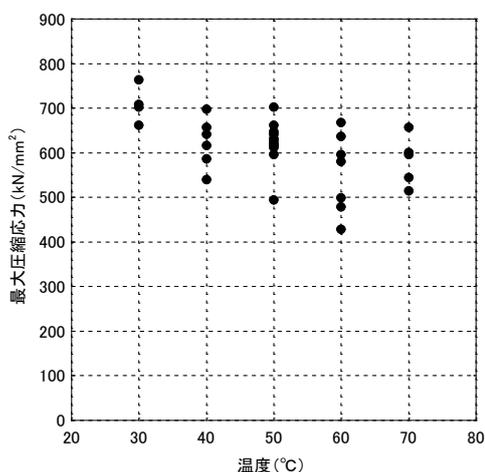


図-9 最大圧縮強度

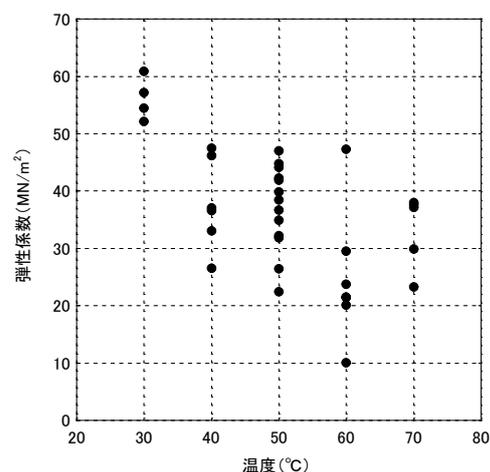


図-10 弾性係数

## 5 平成 28 年度研究実施内容

### 5.1 平成 28 年度の計画, 実施方法

昨年度の実験結果より, 熱の影響によってベントナイトの膨潤量が増加すると考えられる一方, 温度が上昇するとベントナイトの強度低下, さらには弾性係数の低下が明らかとなった. つまり施工の初期条件設定が非常に重要であると示唆されることから, 高レベル放射性廃棄物の地層処分における人工バリアとその周辺岩盤を含むニアフィールド環境では, ガラス固化体に含まれる核種の崩壊熱やベントナイト緩衝材内への地下水侵入などの現象が相互に影響し合う, 熱-水-応力の連成プロセスが進行すると考えられる. そこで, 温度変化によるベントナイトの力学を精緻かつ, より詳細に把握する必要がある. また, 並行して詳細的な予測手法である解析プログラムの高度化も行わなければならない.

#### (1) 圧密試験機, 一軸試験機を用いた室内実験の実施

さまざまな温度変化による吸水過程でのベントナイト膨潤特性及び, 温度変化によるベントナイトの一軸強度を計測する.

#### (2) 解析シミュレータの開発・高度化

溶存溶解モデル(ヘンリーの法則を考慮した液相・気相の連続条件式)を解析コードに組み込み, ベントナイト緩衝材内部の封入空気を与える影響を検討する.

### 5.2 平成 28 年度の成果内容

#### 5.2.1 温度変化を考慮した強度試験の実施

##### (1) 温度と飽和度の変化によるベントナイトの強度変化

昨年度の実験結果に引き続き, ベントナイトの強度に対する温度の影響の試験を行った(実験方法については 4.2 を参照)。

図 - 11～図 - 17 までは, 温度と飽和度の変化によるベントナイトの強度変化を示した図である。この結果より, 温度が上昇するにしたがって徐々に強度が低下する傾向がみてとれる。また, 飽和度が上がるにしたがって, 強度分布が山なりを示すような結果となった。つまり, ベントナイトも土の締固め曲線のような力学挙動を示す結果となった。しかしながら一方で, 実際の処分施設内にて, 高温にさらされるベントナイトの強度低下を示す結果ともなった。

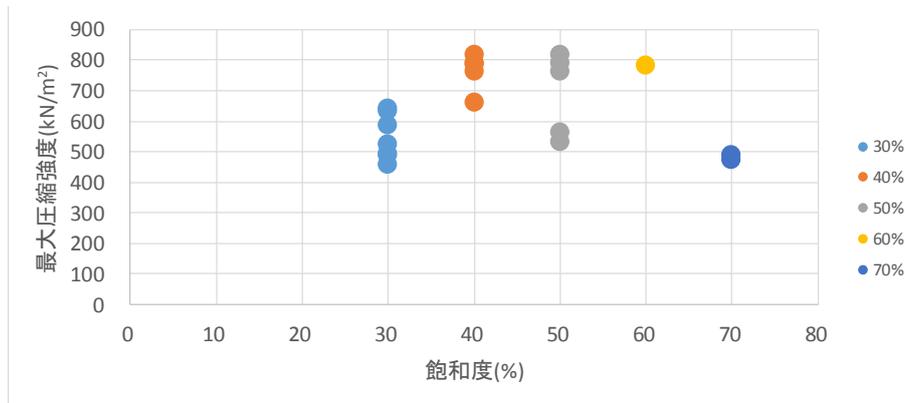


図 -11 温度・飽和度変化による強度分布(30 度)

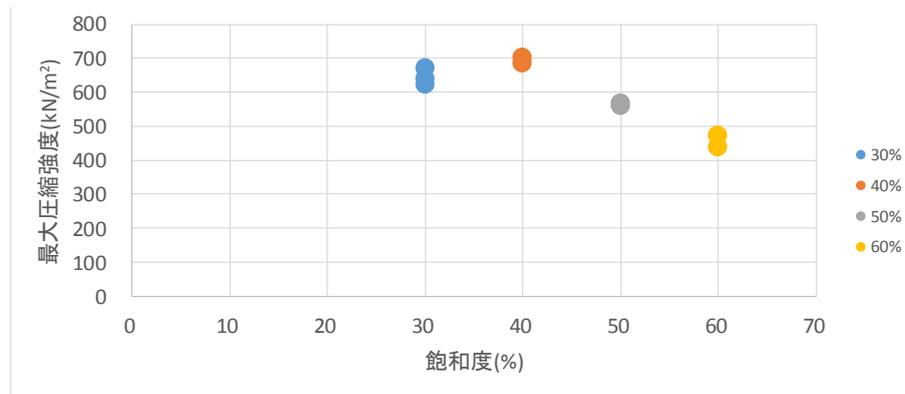


図 -12 温度・飽和度変化による強度分布(40 度)

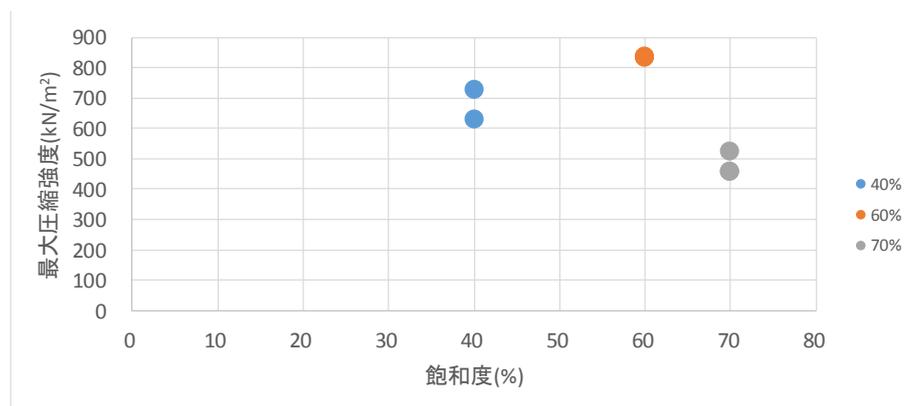


図 -13 温度・飽和度変化による強度分布(50 度)

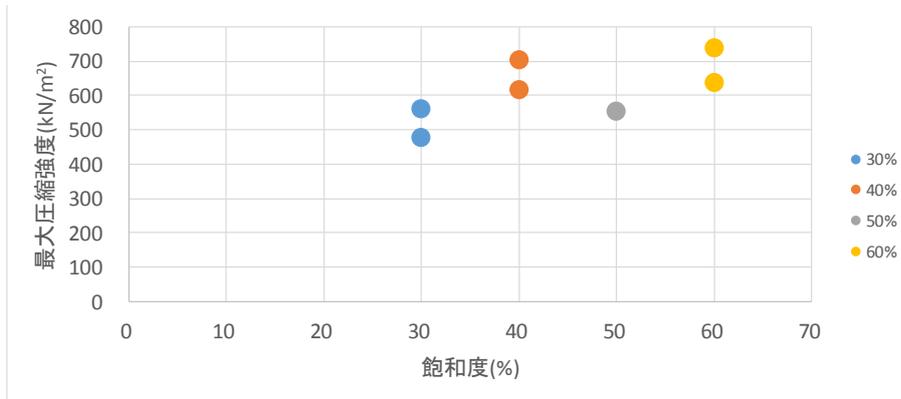


図 -14 温度・飽和度変化による強度分布(60 度)

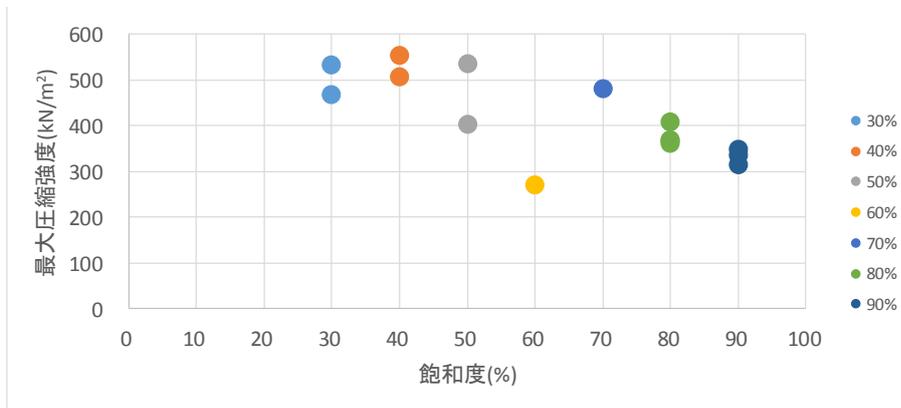


図 -15 温度・飽和度変化による強度分布(70 度)

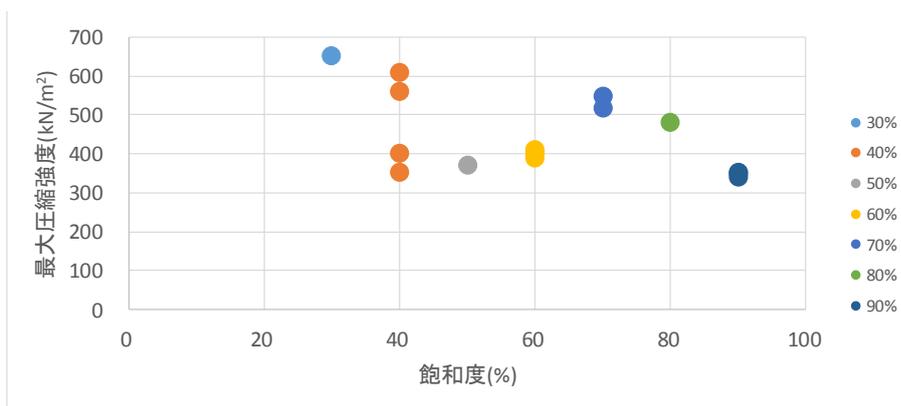


図 -16 温度・飽和度変化による強度分布(80 度)

## (2) 温度変化による飽和度と変形係数の関係

図 - 17～図 - 22 までは、温度変化による飽和度と変形係数の関係を示した図である。この結果より、温度が上昇するにしたがって徐々に変形係数が低下する傾向がみてとれる。また、飽和度が上がるにしたがって、変形係数が山なりを示すような結果となった。この結果からも、ベントナイトは飽和度によってピーク

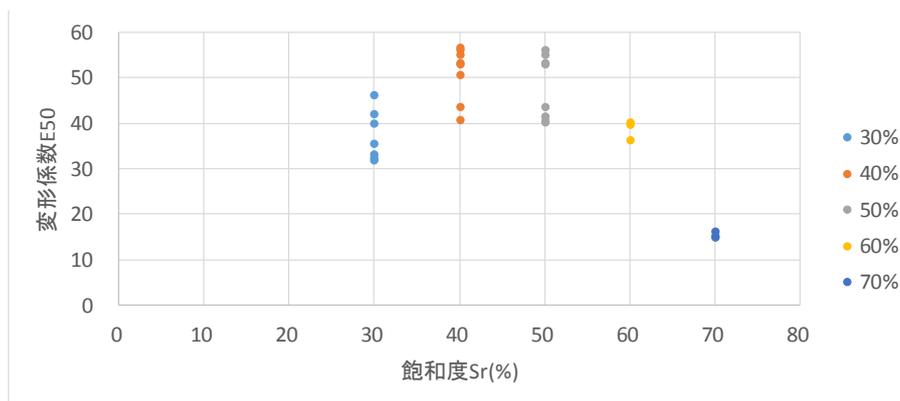


図 - 17 飽和度・変形係数の関係(30度)

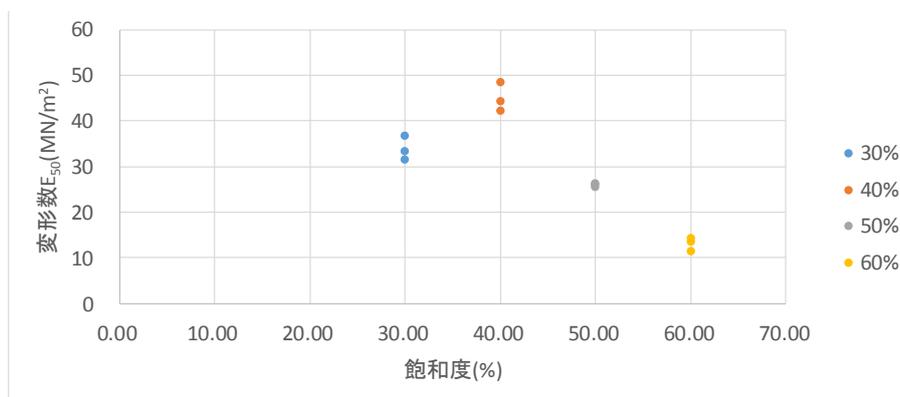


図 - 18 飽和度・変形係数の関係(40度)

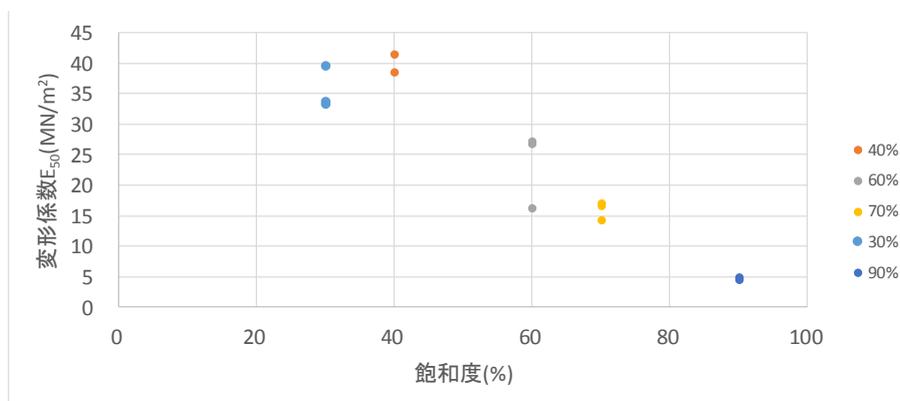


図 - 19 飽和度・変形係数の関係(50度)

を示す結果となった。強度と同様に、実際の処分施設内にて、高温にさらされるベントナイトの変形係数の低下を示す結果ともなった。

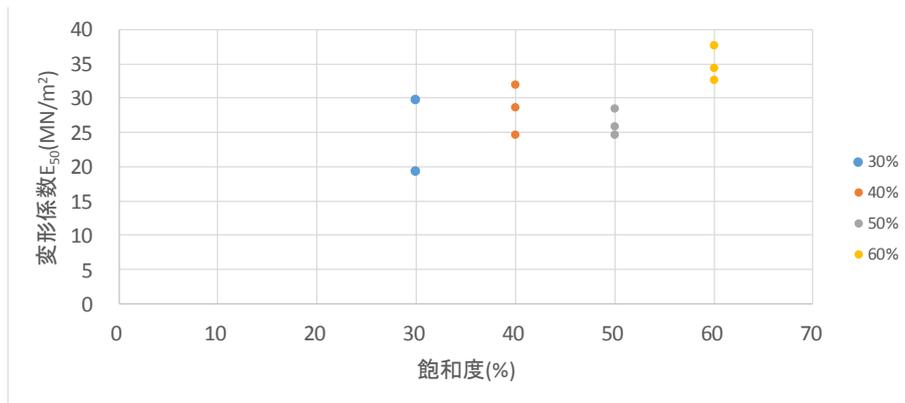


図 -20 飽和度・変形係数の関係(60 度)

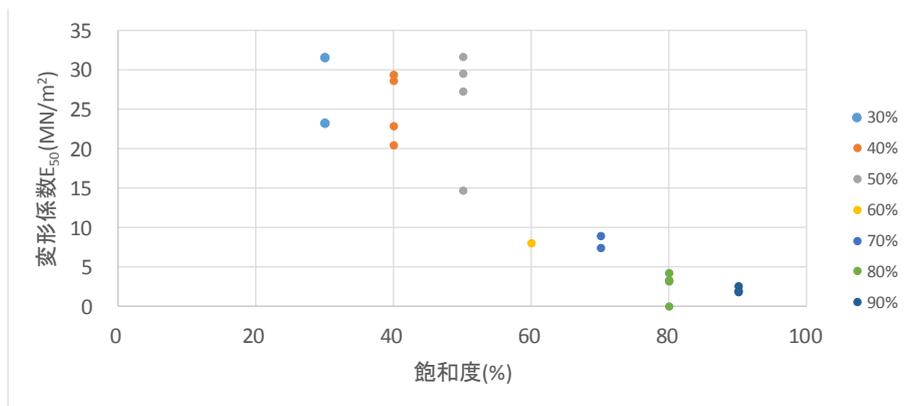


図 -21 飽和度・変形係数の関係(70 度)

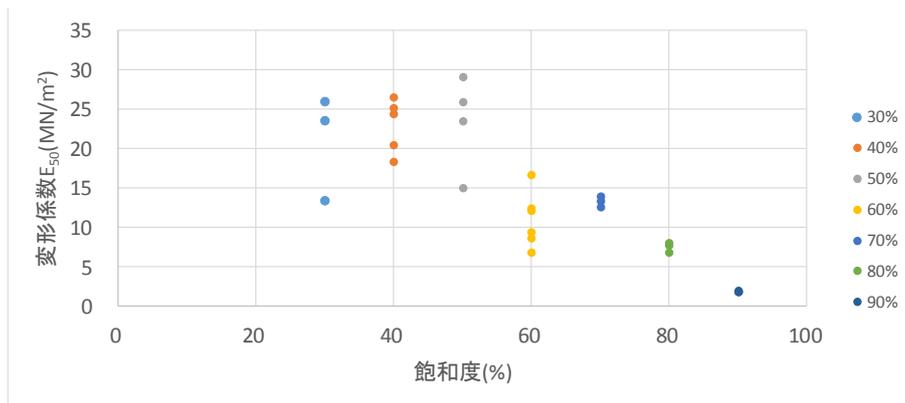


図 -22 飽和度・変形係数の関係(80 度)

## 5.2.2 解析シミュレータの開発・高度化

地層処分における緩衝材は、廃棄体定置時点では不飽和状態にあり、処分孔や処分坑道の埋め戻しが行われた時点から再冠水が始まり徐々に飽和が進行して行くものと想定されている。このとき、処分孔の施工及び廃棄体の定置に伴い残存した間隙内の空気は、地下水の緩衝材への浸潤により外部へ排気または地下水に溶存することにより、緩衝材は飽和状態となる。

地層処分の安全性を評価する上で再冠水による緩衝材の状態変化と、それに伴う処分孔または処分坑道にある廃棄体への影響を数値解析で再現し、把握することはきわめて重要であると考えられる。本章では、熱の影響は考慮せず、地層処分に関わる事象を再現できる数値解析プログラムの整備の一環として、まずは地下水の再冠水による緩衝材の不飽和～飽和の状態変化及び膨潤挙動を数値解析的に表現し、再冠水の期間の長さの違いによる緩衝材の挙動について検討した。

### (1) 解析条件

検討に用いた解析プログラムは、土／水／空気連成有限解析コード **DACSAR-MP** である。また緩衝材と埋戻し材を不飽和土として捉え、緩衝材を構成するベントナイトの膨潤性を表現できる高山ら<sup>19)</sup>が提案した構成モデルをもとに空気溶存を考慮したものを使用した。図-23に示すような解析モデルは第二次取りまとめ<sup>18)</sup>の処分孔縦置き方式軟岩系岩盤の断面とする。解析は処分坑道を閉塞した時を初期状態とし、坑道及び処分孔周囲からの地下水浸入は徐々に水頭が上昇して一定期間で最終的に水頭が地下300mになるように設定した。再冠水完了までの期間をパラメーターとして1年から100年で設定し、解析の対象期間は1000年とした。解析に用いた主な物性値を表-1<sup>17)</sup>に示す。

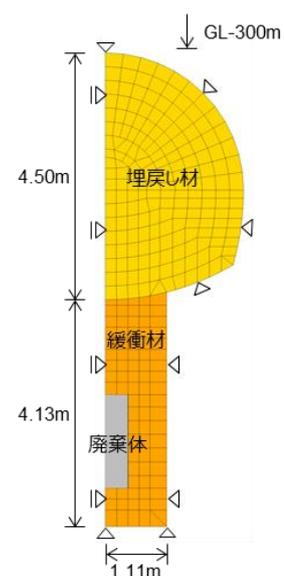


図-23 メッシュ図・境界条件

表-1 材料パラメータ

	乾燥密度 Mg/m <sup>3</sup>	初期間 隙比	初期飽和度	透水係数 m/sec
緩衝材	1.6	0.640	0.5	1.0×10 <sup>-12</sup>
埋戻し材	1.4	0.691	0.5	1.0×10 <sup>-10</sup>

## (2) 解析結果

飽和度分布の経時変化を図-24,25, 着目点の飽和度の経時変化を図-26 に示す。地下水浸潤により坑道及び処分孔周囲から飽和が進行し再冠水完了期間 100 年 の場合では、約 60 年で廃棄体周囲の緩衝材が飽和する。一方、再冠水完了期間 10 年ではその期間になっても廃棄体上部の緩衝材に不飽和の部分が存在する。その後、不飽和部分も浸潤が進み飽和度が 0.95 以上となりほぼ飽和する。早期に再冠水すると外周部の緩衝材が飽和・膨潤し難透水層となるため内部への浸潤が遅くなることにより再冠水が完了しても不飽和の部分が残るものと考えられる。再冠水が緩やかに進むと外部の緩衝材の飽和が急激に進まないため内部への浸潤が進むことにより再冠水が完了する前に飽和になると考えられる。

再冠水時、地下水の浸潤が最も遅い廃棄体上部の緩衝材について、再冠水完了期間による挙動の違いを図-27 に示す。着目点の緩衝材の飽和度はすべて 0.95 以上となっているが、再冠水期間が 50 年より短いものは完全飽和に至らないまま一定となっている。これは外周部の緩衝材が難透水層となり水の供給が減少した影響と考える。早期に再冠水しても廃棄体周りの緩衝材が飽和するまでには 10 年程度かかることが分かる。

廃棄体近傍の最も飽和が遅い緩衝材について透水係数の違いによる飽和度の変化の比較を図-28 に示す。透水係数が  $1.0 \times 10^{-12} \text{m/s}$ 、 $1.0 \times 10^{-11} \text{m/s}$  では再冠水期間完了を待たずに飽和しているが、透水係数が  $1.0 \times 10^{-13} \text{m/s}$  では再冠水完了期間を過ぎても飽和に至っていない。

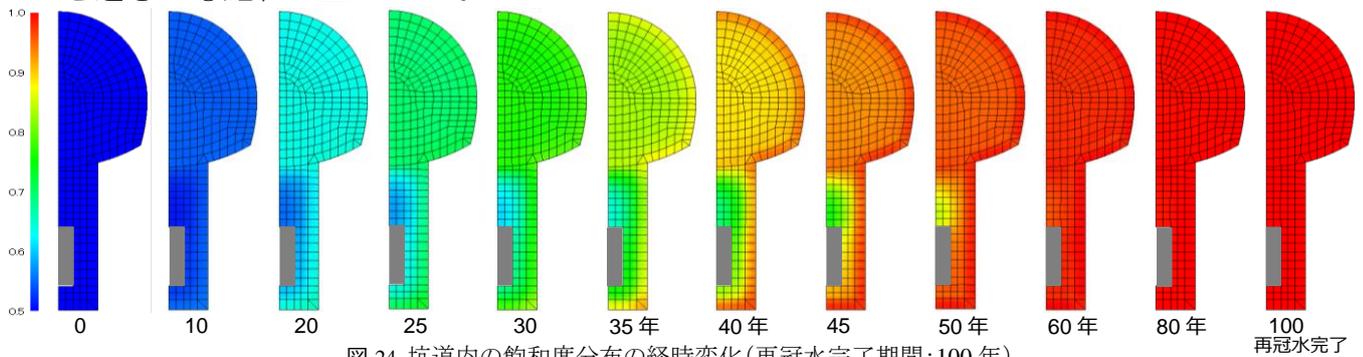


図-24 坑道内の飽和度分布の経時変化(再冠水完了期間:100年)

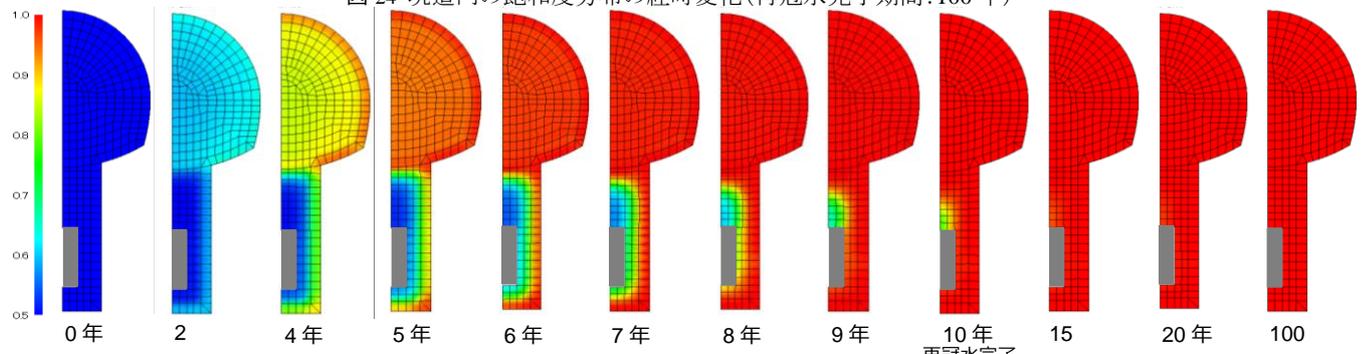


図-25 坑道内の飽和度分布の経時変化(再冠水完了期間:10年)

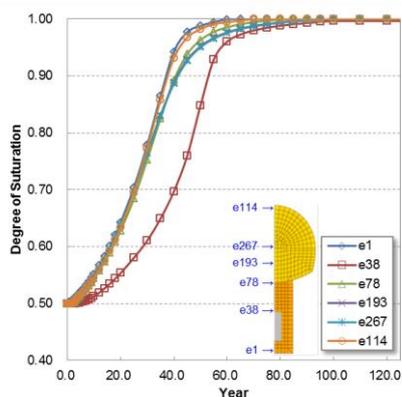


図-26 着目点における飽和度の経時変化 (再冠水完了期間: 100年)

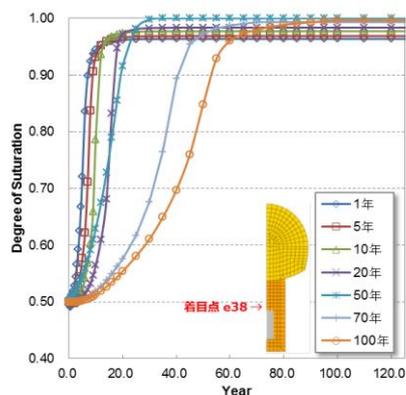


図-27 再冠水完了期間による飽和度の経時変化の比較

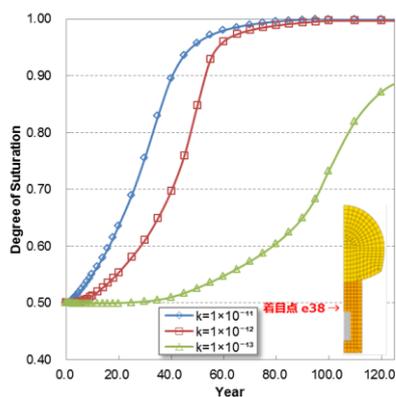


図-28 緩衝材の透水係数による飽和度の経時変化の比較(再冠水完

## 6. 残された課題と今後の計画

実験について、現在も進行しているが、特に 90℃ 付近の結果まで含めた形で結論づけ、さらに、より精度の高い実験結果で精査することが課題である。

今後は、廃棄体の温度によるベントナイト緩衝材への影響を長期的に把握するために、熱力学（潜熱/顕熱変化）を組み込み、温度を考慮した一軸試験との実験結果との整合性を確認する。さらに、廃棄体の温度によるベントナイト緩衝材への影響を長期的に把握するために、これまで整備してきた解析条件を用い、地層処分施設の長期挙動解析を実施する。TRU 廃棄物処分施設の幌型断面を対象に行う。それに加え、得られている知見を踏まえ、多連設坑道の設計の手順・方法の詳細化を図るための基礎的な解析を実施する。

## 7. まとめ

本年度は、実験と解析を行った。実験においては温度変化を考慮したベントナイトの要素試験を実施した。特に、熱の影響によって、高温にさらされる可能性のあるピット内では、ベントナイトの膨潤が期待され安全側に向かう可能性があると考えられる。しかしながら一方で、温度が上昇するとベントナイトの強度低下、さらには変形係数の低下が懸念される。つまり施工の初期条件設定が非常に重要であると示唆される結果となった。

解析については、地層処分堅置き方式を対象として地下水の再冠水に伴う緩衝材挙動の解析を実施し、再冠水完了期間による緩衝材の飽和挙動を再現・検討した。再冠水完了期間の長さは緩衝材への地下水の浸潤量に影響し、期間が短いと再冠水期間以上に飽和時間が必要となり、逆に期間が長いとその期間より短い飽和時間になることが分かった。また、透水係数が低いと長い飽和期間が必要となる。廃棄体周囲の緩衝材は飽和が遅く不飽和状態が一定期間存在することがどのように処分システムに影響するか検討を進めていきたいと考えている。

最終年度は、実験結果を数値解析に反映する形で取りまとめていく。

### ・参考文献

- [1] 通商産業省，特定放射性廃棄物の地層処分に関する基本方針を定めた件，通商産業省告示第 591 号
- [2] 資源エネルギー庁 電力・ガス事業部 放射性廃棄物対策課のホームページ，[http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity\\_and\\_gas/nuclear/rw/](http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/)
- [3] 笹倉剛，畔柳幹雄，小林一三，岡本道考(2003)．ベントナイト変遷挙動のモデル化のためのデータ取得Ⅱ．核燃料サイクル機構契約業務報告書．JNC TJ8400 2003-048.
- [4] Ladd,C.C.,Foott,R.,Ishihara.K.,Schlosser.F. & Poulos.H.G.(1997).Stress-Deformation and Strength Characteristics. 9th international conference on soil mechanics and foundation engineering,Japan,421-494
- [5] 笹倉剛，畔柳幹雄，岡本道考(2002)．ベントナイト変遷挙動のモデル化のためのデータ取得Ⅱ．核燃料サイクル機構契約業務報告書．JNC TJ8400-2002-025.
- [6] Kobayashi,I.,Owada,H. & Ishii,T.(2011).Hydraulic / Mechanical modeling of smectitic materials for HMC analytical evaluation of the long-term performance of TRU geological repository. Proceedings of the 14th International Conference

- on Environmental Remediation and Radioactive Waste Management,ICEM2011-59090,France.
- [7] 石川博久, 石黒勝彦, 並河努, 菅野毅(1997). 緩衝材の圧密特性. PNC TN8410 97-051.
- [8] 石橋直樹, 小峯秀雄, 安原一哉, 村上哲, 森拓雄, 伊藤弘志(2011). ベントナイトの圧密特性に及ぼすモンモリロナイト含有率の影響. 第 46 回地盤工学会研究発表会
- [9] 高治一彦, 鈴木英明(1999). 緩衝材の静的力学特性. PNC TN8400 99-041
- [10] 崔紅斌, 孫德安, 松岡元. (2006). 等方および異方応力状態でのベントナイトと砂の混合材の浸水変形特性. 土木学会論文集, 62, No.3, 657-666.
- [11] 鈴木英明, 藤田朝雄(1999). 緩衝材の膨潤特性. JNC TN8400 99-038.
- [12] 小林一三, 戸井田克, 笹倉剛, 太田秀樹(2007). 等含水比線と等飽和度線を用いた締固めベントナイトの圧縮・膨潤挙動の解釈. 土木学会論文集, 63, No.4, 1065-1078.
- [13] Kobayashi,I.,Owada,H & Ishii,T.(2011).Hydraulic / Mechanical modeling of smectitic materials for HMC analytical evaluation of the long-term performance of TRU geological repository. Proceedings of the 14th International Conference on Environmental Remediation and Radioactive Waste Management,ICEM2011-59090,France.
- [14] Sato,H.(2008)"Thermodynamic Model on Swelling of Bentonite Buffer and Backfill Materials", Physics and Chemistry of the Earth33,S538-S543
- [15] 鈴木英明, 千々松正和, 藤田朝雄, 中野政詩(2002). 不飽和圧縮ベントナイト中の水分移動パラメータに関する考察. 土木学会論文集, 58, No.701, 107-120(in Japanese)
- [16] Wan,A.W.L.(1996).The use of thermocouple psychrometers to measure in situ suctions and water contents in compacted clays. Doctoral Thesis of University of Manitoba.
- [17] Agus,S.S.,Schanz,T. & Fredlund,D.G.(2010).Measurements of suction versus water content for bentonite-sand mixtures. Canadian Geotechnical Journal 47,583-594.
- [18] 西村友良, 古関潤一(2012). 加圧板法を用いた圧縮ベントナイトの水分特性曲線の測定. 土木学会第 67 回年次学術講演会
- [19] TRU 廃棄物処分施設技術検討書 第二次 TRU 廃棄物処分研究開発取りまとめ
- [20] TRU 廃棄物処分施設技術検討書 第二次 TRU 廃棄物処分研究開発取りまとめ根拠資料集 分冊 1~3

## ・外部発表リスト

### 【学術論文】

- 1) 金澤伸一, 林久資, 高山裕介, 石山宏二, 飯塚敦: 温度変化を考慮したベントナイトの膨潤特性について, 土木学会論文集, 投稿準備中.
- 2) 金澤伸一, 林久資, 高山裕介, 石山宏二, 飯塚敦: 温度変化を考慮したベントナイトの強度特性について, 土木学会論文集, 投稿準備中

### 【口頭発表】

- 3) 宮脇公平, 金澤伸一, 林久資, 石山宏二: 温度変化を考慮したベントナイトの圧縮特性, 第 51 回地盤工学研究発表会講演集, pp.735-736, 2016.
- 4) 坂本美咲, 林久資, 金澤伸一, 緑川猛彦, 山崎雅直, 石山宏二, 大谷達彦, 進士正人, : 数値解析やクラックテンソルによる大深度立坑掘削時の力学的影響に関する検討, 平成 28 年度土木学会全国大会, 第 70 回年次学術講演会, CS12-046, pp. 91-92, 2016.
- 5) 真田昌慶, 石山宏二, 金澤伸一, 福井勝則: 連設坑道における岩盤の長期力学挙動評価手法の検討, 平成 28 年度土木学会全国大会, 第 70 回年次学術講演会, CS12-045, pp. 89-90, 2016.
- 6) 吉野修, 石山宏二, 金澤伸一, 飯塚敦: 高レベル放射性廃棄物の地層処分における緩衝材の再冠水挙動に関する解析的検討, 平成 28 年度土木学会全国大会, 第 70 回年次学術講演会, CS13-039, pp. 77-78, 2016.
- 7) 渡部滉大, 林久資, 金澤伸一, 石山宏二, 温度変化を考慮したベントナイト一軸圧縮試験機の開発および基礎実験, 平成 28 年度土木学会全国大会, 第 70 回年次学術講演会, CS13-032, pp. 63-64, 2016.
- 8) 佐藤文啓, 金澤伸一, 林久資, 高山裕介, 石山宏二: 温度変化を考慮したベントナイト緩衝材の膨潤量の計測について 平成28年度土木学会全国大会, 第70回年次学術講演会, CS13-031, pp. 61-62, 2016.
- 9) 吉野修, 石山宏二, 金澤伸一, 飯塚敦: 地層処分における緩衝材の再冠水挙動に関する解析的検討, 平成 27 年度土木学会全国大会, 第 70 回年次学術講演会, CS12-031, pp. 59-61, 2015.



## 研究報告 4

硝酸塩影響評価のための高イオン強度下における  
アクチノイドの溶液化学的研究

京都大学大学院 工学研究科

小林 大志



## 1 背景・目的

### 1.1 はじめに

核燃料サイクルにおける再処理施設や MOX 燃料加工施設では、操業に伴って様々な性状の放射性廃棄物が発生する。これら放射性廃棄物は長半減期低発熱放射性廃棄物（以下、「TRU 廃棄物」という）と総称され、平成 17 年に取りまとめられた TRU 廃棄物処分技術検討書（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、放射性物質の濃度に応じて適切な処分方法を取ることが述べられている。第 2 次 TRU レポートでは、全  $\alpha$  核種濃度に対して 1GBq/ton という区分目安値が設けられ、この値より高い  $\alpha$  核種の放射能濃度を持つと考えられるハル・エンドピースや濃縮廃液固化体などの廃棄物は地層処分対象とされている。

TRU 廃棄物の地層処分にあたっては、高レベル放射性廃棄物（以下、「HLW」という）の地層処分と整合性を取りつつ、人工バリア・天然バリアからなる多重バリアによる長期的な安全確保を行うことが求められる。TRU 廃棄物の物理的・化学的性状及び含まれる核種の種類や濃度は多様であるため、その特性に応じて TRU 廃棄物を 4 つのグループに分類し、それぞれの人工バリアを構成することが提案されている。グループ 1 及び 2 は、廃銀吸着剤のセメント固化体及びハル・エンドピースの圧縮収納体であり、I-129 や C-14 など地下水により比較的移行しやすい核種を含んでいることから止水性能の高い緩衝材をバリアとして設置するとされている。一方、濃縮廃液固化体などのグループ 3 及び焼却灰、不燃物セメント固化体などその他の廃棄物であるグループ 4 については、緩衝材は設置せず、セメント系材料により埋め戻すことが検討されている（表 1-1）。

表 1-1 TRU 廃棄物のグルーピング（第 2 次 TRU レポート）

グループ	内容	廃棄体発生量	バリア	特性
1	廃銀吸着剤のセメント固化体	318 m <sup>3</sup>	止水性能の高いバリア（緩衝材）を設置	半減期が長く、地下水により移行しやすい核種（I-129）を含む
2	ハル・エンドピース圧縮収納体	6,732 m <sup>3</sup>		発熱性の核種を含む。半減期が長く、移行しやすい核種（C-14）を含む
3	アスファルト固化体等の濃縮廃液固化体	6,175 m <sup>3</sup>	止水性能の高いバリア（緩衝材）は設置せず	硝酸塩を多く含む核種の収着性・溶解度への影響を及ぼす可能性がある
4	焼却灰・不燃物セメント固化体等	13,416 m <sup>3</sup>		その他の廃棄体

TRU 廃棄物の地層処分を行うにあたり、廃棄物処分合理化の観点から TRU 廃棄物と HLW の両地層処分施設を同一サイト内に処分する併置処分の概念が第 2 次 TRU レポートにおいて示され、その技術的成立性の評価が進められている（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）。併置処分の概念を社会に受容可能なものとするためには、それぞれの処分施設の安全評価に加え、両施設間で相互に影響を及ぼし得る因子（相互影響因子）の評価が不可欠であり、第 2 次 TRU レポートでは、熱、有機物、硝酸塩及び高 pH プルームなどが相互影響因子として取り上げられている。

○熱影響：熱影響は、主に HLW に含まれる核種の崩壊熱によるもので、HLW 処分施設から TRU 廃棄物処分施設へと影響する因子と考えられている。廃棄体の発熱により人工バリア内の温度が上昇すると、核種の溶解度、分配係数及び拡散係数などの移行挙動に影響を及ぼすとともに、人工バリアの変質が促進される可能性がある。第 2 次 TRU レポートでは、特に TRU 廃棄物処分施設の人工バリアの変質を抑えるため、人工バリアの上限温度(80℃)を設定し、これを超えないような離間距離を設けることが提案されている。

○有機物影響：有機物影響は、多様な化学物質を含む TRU 廃棄物から有機物が溶出した場合、核種と相互作用し、特に核種の溶解度や収着挙動などに影響を与えることを懸念したものである。例えば、セルロース系有機物の分解生成物であるイソサッカリン酸は、多価の金属イオンに対して高い錯生成能を持つ物質として着目されており、イソサッカリン酸濃度が  $1 \times 10^{-6}$  mol/dm<sup>3</sup> を超えるような場合は、核種の溶解度及び収着挙動に影響が表れるとされている。

○高 pH 影響：高 pH 影響は、TRU 廃棄物処分施設で多量のセメント系材料が使用されることに由来する。セメント系材料の溶出により間隙水の初期 pH は 12.5 以上となり、Na や K が天然バリアへと散逸した後は、水酸化カルシウム (Ca(OH)<sub>2</sub>) の溶解平衡により pH は 12.5 程度になると指摘されている。セメント系材料に起因する高 pH プルームにより、ベントナイト系材料や天然バリア中の母岩の変質やそれによる移行挙動の変化が起こる可能性が挙げられている。

○硝酸塩影響：硝酸塩影響は、有機物影響や高 pH 影響と同様、TRU 廃棄物に由来する相互影響因子であり、特に、再処理工程で発生する硝酸ナトリウム (NaNO<sub>3</sub>) がグループ 3 に分類される濃縮廃液固化体に多量に含まれることに由来する。硝酸塩は可溶性であることから、処分施設内に侵入した地下水に容易に溶解し、閉鎖後の処分施設近傍において高濃度の硝酸塩環境を形成する。廃棄体物量と硝酸塩量から施設内間隙水の硝酸ナトリウム濃度を計算した場合、その濃度はほぼ飽和濃度に達することが指摘されている。硝酸塩影響が処分システムのバリア性能に与える影響としては、ベントナイト系材料や岩盤の鉱物学的な変質、核種の収着挙動への影響、オーバーパックなどの腐食に対する影響及び硝酸イオンによる核種の酸化還元状態への影響などが挙げられる。

HLW と TRU 廃棄物の併置処分を行うためには、相互影響因子が処分施設あるいは放射性核種の移行挙動に及ぼす影響のメカニズムを理解するとともに、その程度を定量的に評価することで、処分施設の設計にフィードバックすることが求められる。第 2 次 TRU レポートでは、その評価例が提示されているが、各相互影響因子が、核種の移行挙動や処分施設のバリア性能に影響を与えるメカニズムの理解は十分ではなく、過度に保守的な設定が行われていると思われるケースが存在する。硝酸塩影響は、HLW 処分施設への影響を低減するために取るべきとされる離間距離が数百 m と大きく、また、酸化還元反応や錯生成反応などにより核種の化学状態が変化すれば、処分施設内のみならずその周辺環境での核種の移行挙動を大きく変える可能性がある。そこで、本研究では、TRU 廃棄物に起因する硝酸塩影響を検討することとした。

## 1.2 研究の背景

### 1.2.1 想定される硝酸塩環境

硝酸塩影響の評価では、まず、グループ 3 の廃棄体に含まれる硝酸塩が地下水によって溶出した際に廃棄体近傍及び処分場内に形成される硝酸塩環境を想定する必要がある。第 2 次 TRU レポートでは、処分場内の間隙水中の硝酸ナトリウム濃度は最大で飽和濃度に達することが指摘されているが、ここでは想定される硝酸塩環境について改めて整理する。

まず、硝酸塩を含むグループ 3 の廃棄体近傍の環境に着目する。グループ 3 の廃棄物は 200L ドラム缶または角型容器、BNGS500L ドラム缶に収納され、地下施設における搬送及び定置を効率化するため、200L ドラム缶や BNGS500L ドラム缶については、何本かを合わせたパッケージとして取り扱うことが検討されている（図 1-1）。このとき、パッケージの空隙部はセメントモルタルで充填するとされており、地下水によりグループ 3 に含まれる硝酸塩が溶出した場合、形成される硝酸塩環境は、周辺のセメント影響（高 pH 及び高 Ca 濃度）を受けると考えられる。また、グループ 3 の廃棄体に対しては止水性の高い緩衝材を設置することが想定されていないため、高濃度の硝酸塩環境はグループ 3 の廃棄体を中心とし、地下水流動に伴って処分場内外に形成されると考えられる。

このとき、硝酸塩溶液中の硝酸イオン ( $\text{NO}_3^-$ ) は、処分施設内に存在する還元性物質（金属製容器や有機物）により亜硝酸イオン ( $\text{NO}_2^-$ ) やアンモニアイオン ( $\text{NH}_4^+$ ) に還元される可能性が指摘されている。既往研究では、金属 (Fe) 腐食に伴う  $\text{NO}_3^-$  の化学的変遷の他、脱窒菌による  $\text{NO}_3^-$  の還元作用も組み込んだ  $\text{NO}_3^-$  の化学的変遷の評価モデルの構築が進められており（日本原子力研究開発機構、2011、日本原子力研究開発機構、2013）、現在の解析ケースでは、硝酸塩濃度は処分開始時点の発生源（グループ 3 の廃

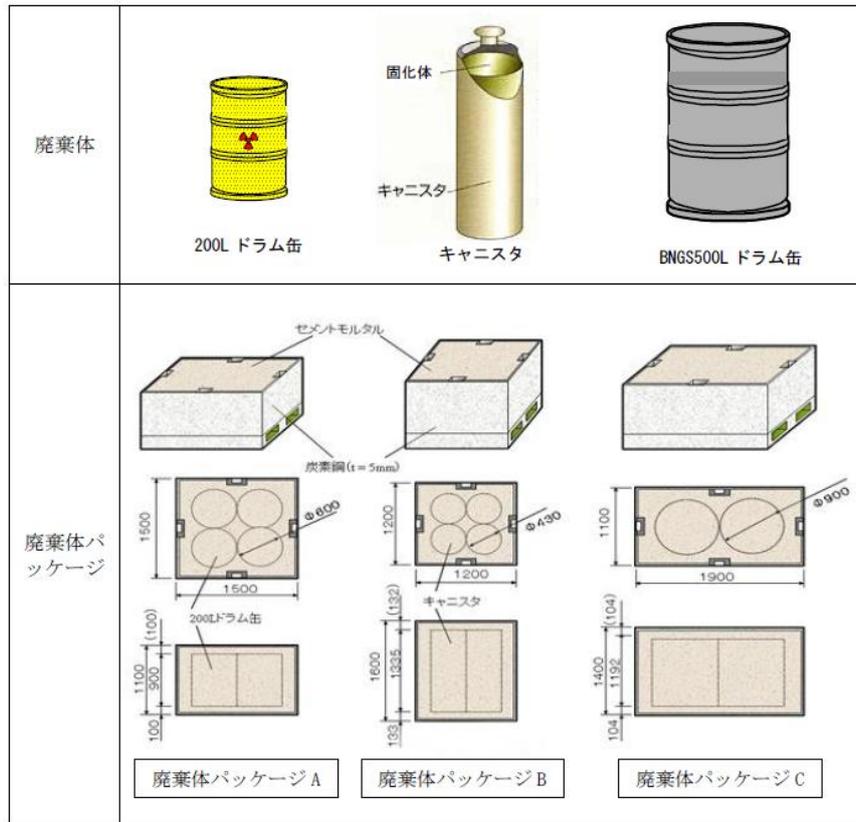


図 1-1 廃棄体及び廃棄体パッケージ（第 2 次 TRU レポート）

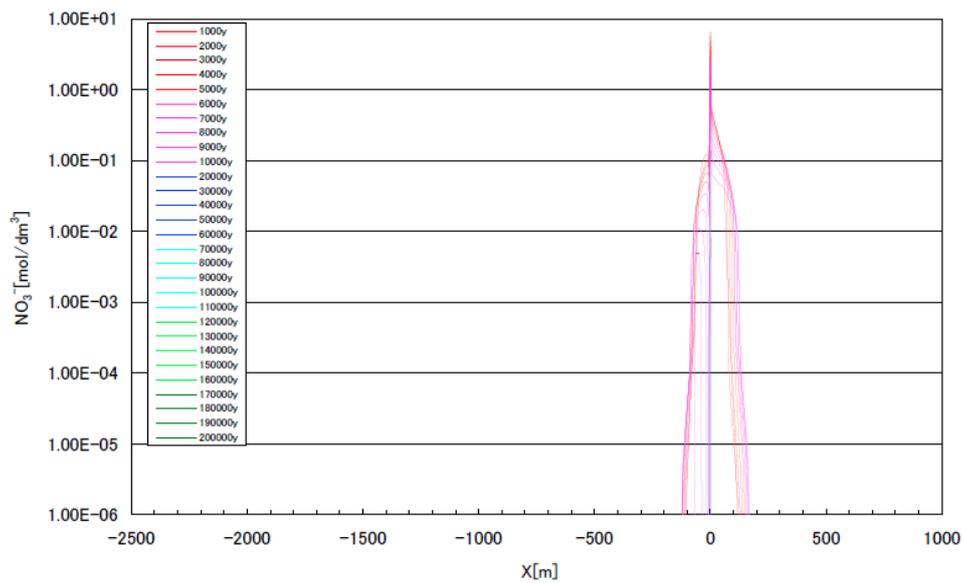


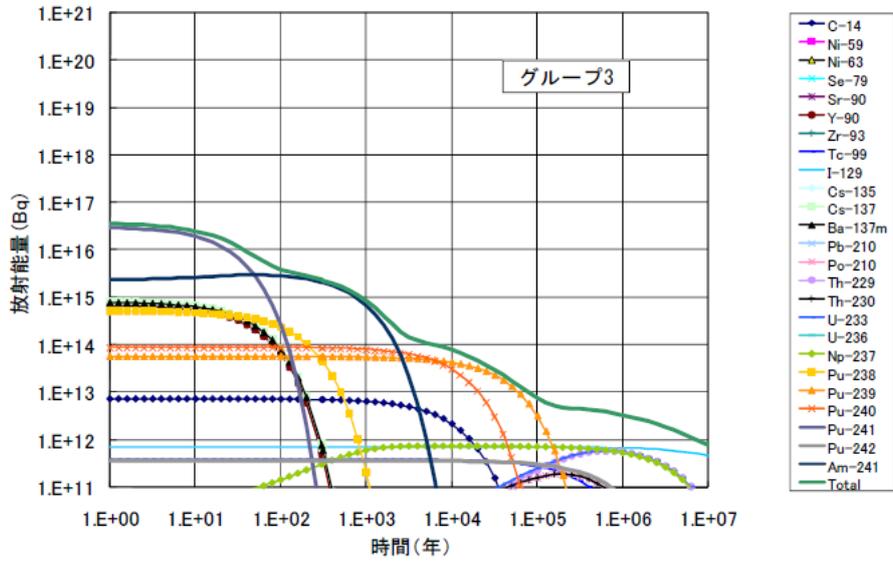
図 1-2 解析体系 X 軸上の硝酸イオン濃度分布（日本原子力研究開発機構、2013）

棄体)、において最大濃度となった後、数 100m 程度範囲の高濃度の硝酸塩環境を形成しつつ、その濃度は  $\text{NO}_3^-$  の還元反応の進行とともに減少し、およそ 40000 年後には消失すると考えられている (図 1-2)。現在の評価モデルでは、 $\text{NO}_3^-$  は主に微生物や黄鉄鉱 ( $\text{FeS}$ ) により還元されるとされているが、硝酸ナトリウム水溶液に黄鉄鉱を浸漬させた試験では、323 K (50°C)、365 日後においても黄鉄鉱による  $\text{NO}_3^-$  の還元反応は確認されなかったことから (日本原子力研究開発機構、2011)、処分環境における  $\text{NO}_3^-$  の還元反応は非常に遅い反応であると考えられる。この場合、初期にグループ 3 の廃棄体近傍で形成された飽和濃度付近の  $\text{NaNO}_3$  溶液条件が長期にわたって維持されるとともに、高濃度の  $\text{NaNO}_3$  溶液がグループ 3 の廃棄体近傍や処分施設内からより広範な領域に拡がる可能性も考えられる。第 2 次 TRU レポートで示された軟岩系岩盤レファレンスケースの処分場レイアウトでは、グループ 3 の廃棄体は処分場の最深部に置かれ、上部の隣接するグループ 4 の廃棄体や最深部の処分場境界までは数 10m の離間距離が設定されている。また、処分場の横方向の大きさは数 100 m 程度とされている。このため、硝酸塩影響の評価では、特に、硝酸塩の発生源であるグループ 3 や隣接するグループ 4 に含まれる核種が低濃度から高濃度までの硝酸塩溶液下でどのような挙動をするのかを明らかにする必要がある。

#### 1.2.2 対象となる核種及びその移行挙動

図 1-3 はグループ 3 に含まれる主要な核種の放射エネルギーの時間変化を表したものであり (原子力発電環境整備機構、2011)、処分後は Pu-241、Am-241、Pu-240、Pu-239、Np-237 などのアクチノイドが順次放射エネルギーを支配するとされている。同様の傾向は、グループ 4 に含まれる主要核種の放射エネルギーの時間変化にも表れており (図 1-4)、特に、プルトニウムは放射エネルギーの総量を長期に亘って支配する重要核種の一つと位置付けられる。図 1-3 及び図 1-4 に表れるアクチノイド核種のうち、プルトニウムやネプツニウムは還元的な地下水では、4 価金属イオンとして振る舞い、処分場内で想定される中性 pH からアルカリ性 pH 領域では、難溶性の水酸化物沈殿固相を形成するため、その移行挙動は、4 価の水酸化物沈殿固相の溶解度により支配される。一般に、4 価金属イオンの水酸化物沈殿の溶解度は非常に低いが、4 価金属イオンと可溶性錯体を形成するような配位子が共存する場合及びコロイドを形成する場合は、見かけの溶解度が上昇することで核種の移行が促進される可能性がある。

表 1-2 は地層処分第 2 次取りまとめにおいて設定されたレファレンスケースにおける地下水と間隙水の組成を示したものである。例えば、炭酸イオンは、無機炭素として地下水中に  $1 \times 10^{-3}$  M 程度存在するとされており、地下水の他、処分場内の緩衝材に含まれるカルサイト ( $\text{CaCO}_3$ ) も炭酸イオンの供給源となり得ることから、処分環境において比較的豊富に存在し得る配位子と言える。この炭酸イオンは、4 価金属イオンと安定



(c) グループ3の主要な核種の放射エネルギーの時間変化

図 1-3 グループ3に含まれる主要な核種の放射エネルギーの時間変化（原子力発電環境整備機構、2011）

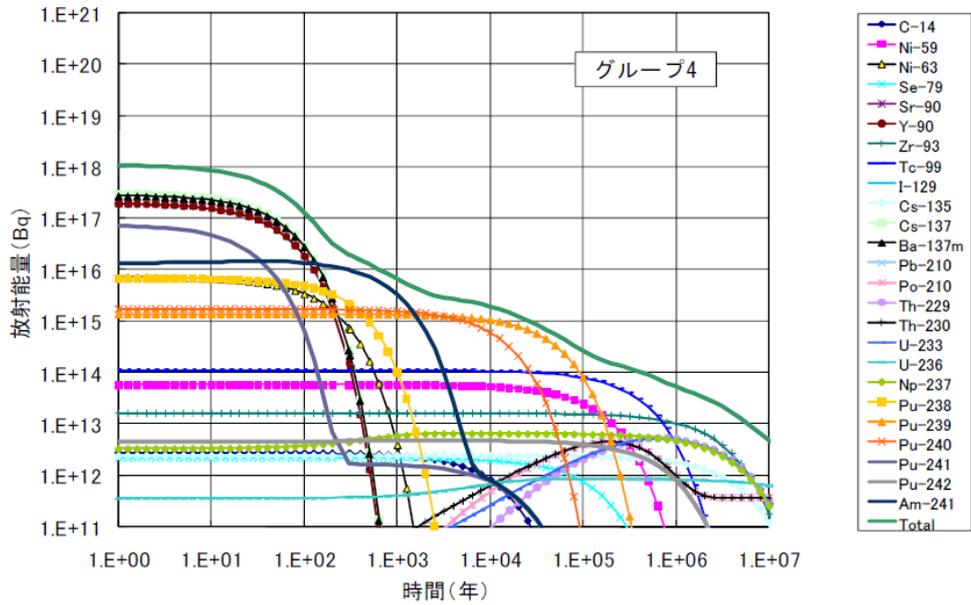


図 1-4 グループ4に含まれる主要な核種の放射エネルギーの時間変化（原子力発電環境整備機構、2011）

表 1-2 レファレンスケースにおける地下水と間隙水の組成（地層処分第2次取りまとめ）

表 5.3.1-3 レファレンスケースにおける地下水と間隙水の組成

	地下水（降水系）	間隙水 *5
pH	8.5	8.4
Eh [mV]	-281	-276
単位：[mol l <sup>-1</sup> ]		
Na (Total)	$3.6 \times 10^{-3}$	$2.8 \times 10^{-2}$
Ca (Total)	$1.1 \times 10^{-4}$	$5.3 \times 10^{-5}$
K (Total)	$6.2 \times 10^{-5}$	$1.2 \times 10^{-4}$
Mg (Total)	$5.0 \times 10^{-5}$	$4.2 \times 10^{-6}$
Fe (Total)	$9.7 \times 10^{-10}$	$2.0 \times 10^{-9}$
Al (Total)	$3.4 \times 10^{-7}$	$3.4 \times 10^{-7}$
C (Total)	$3.5 \times 10^{-3}$ *1	$1.6 \times 10^{-2}$ *6
S (Total)	$1.1 \times 10^{-4}$ *2	$1.1 \times 10^{-4}$ *7
B (Total)	$2.9 \times 10^{-4}$ *3	$2.9 \times 10^{-4}$
P (Total)	$2.9 \times 10^{-6}$ *3	$2.9 \times 10^{-6}$
F (Total)	$5.4 \times 10^{-5}$ *3	$5.4 \times 10^{-5}$
N (Total)	$2.3 \times 10^{-5}$ *3	$2.3 \times 10^{-5}$
Cl (Total)	$1.5 \times 10^{-5}$ *4	$1.5 \times 10^{-5}$
Si (Total)	$3.4 \times 10^{-4}$	$3.4 \times 10^{-4}$

\*1 無機炭素 =  $3.5 \times 10^{-3}$  mol l<sup>-1</sup>, CH<sub>4</sub>(aq) =  $1.5 \times 10^{-10}$  mol l<sup>-1</sup>

\*2 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> =  $1.1 \times 10^{-4}$  mol l<sup>-1</sup>, HS<sup>-</sup> =  $3.8 \times 10^{-9}$  mol l<sup>-1</sup>, H<sub>2</sub>S(aq) =  $1.2 \times 10^{-10}$  mol l<sup>-1</sup>

\*3 実測地下水の平均値より設定

\*4 電荷バランスをとるために調整

\*5 次項 (5.3.1.2.3) 参照

\*6 無機炭素 =  $1.6 \times 10^{-2}$  mol l<sup>-1</sup>, CH<sub>4</sub>(aq) =  $8.1 \times 10^{-10}$  mol l<sup>-1</sup>

\*7 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> =  $1.0 \times 10^{-4}$  mol l<sup>-1</sup>, HS<sup>-</sup> =  $3.7 \times 10^{-9}$  mol l<sup>-1</sup>, H<sub>2</sub>S(aq) =  $1.3 \times 10^{-10}$  mol l<sup>-1</sup>

な可溶性錯体を形成することが指摘されており、4価金属イオンの見かけの溶解度の上昇を引き起こす要因の一つである。また、TRU 廃棄物にはセルロースなどの有機物が含まれており、これらが分解することによって生じる有機酸も4価金属イオンと安定な錯体を形成することによって見かけの溶解度を上昇させ得ることが指摘されている（有機物影響）。

また、4価金属イオンは、加水分解反応により水酸化物コロイドを形成することが知られている。既往研究では、弱酸性 pH から中性 pH 領域にかけて数 nm から数 μm の粒径分布を持つ4価ジルコニウムやトリウムの水酸化物コロイドが報告されている（Sasaki et al., 2006, Altmaier et al., 2004, Kobayashi et al., 2009 他）。これらのコロイドは 10<sup>-8</sup>~10<sup>-6</sup> M 程度の濃度で数ヶ月から年単位で溶液中に安定に存在するとされている。水酸化物コロイドの存在は見かけの溶解度の上昇に寄与するとともに、その移行特性も溶存種とは異なる。即ち、コロイドの粒径が大きい場合は緩衝材あるい

は周辺岩盤によるろ過効果により移行が遅延される一方、粒径が小さい場合は緩衝材や岩盤と相互作用せず移行が促進される可能性が考えられる。このため、コロイドの移行特性評価にあたっては、見かけの溶解度へのコロイドの寄与を定量するとともにコロイドの粒径を把握することが重要である。

### 1.2.3 硝酸塩環境下での移行挙動

上述のような 4 価アクチノイドの移行挙動に硝酸塩環境が与え得る影響について以下の項目に分けて考える。

#### ・硝酸イオンと 4 価アクチノイドの錯生成反応

硝酸イオン濃度が高い場合、4 価アクチノイドは硝酸イオンと錯生成することが既往研究において指摘され、その錯生成定数が報告されている (Guillaumont et al., 2005)。そこで、予め 4 価アクチノイドの加水分解定数及び硝酸錯体の錯生成定数の報告値を用いて熱力学計算を行い、水酸化物の溶解度への硝酸錯体の寄与を調べた。中性からアルカリ性 pH 領域における硝酸錯体の溶解度への寄与は、飽和濃度 (6 M) の硝酸ナトリウム水溶液においても非常に小さく、加水分解種と比較するとほぼ無視できることが示唆された。

#### ・高濃度の硝酸イオンによる活量低下が錯生成反応に及ぼす影響

処分場内あるいは処分場近傍の高濃度の硝酸塩環境下では、水溶液中の各イオンの活量は低下する。このため、高濃度の硝酸イオン共存下での 4 価アクチノイドの溶解度を正確に評価するためには、沈殿溶解反応や錯生成反応などの平衡反応において活量補正を行う必要がある。比較的高いイオン強度まで適用可能な活量補正モデルとして、SIT (Specific Ion interaction Theory) や Pitzer モデルが確立されているが、いずれもモデルパラメータを設定する必要がある。モデルパラメータの決定には、4 価アクチノイドの錯生成反応に関する高イオン強度 (高硝酸イオン濃度) 下での実験データが必要であるが、十分なデータが得られておらず、信頼性の高い活量補正が行えるとは言い難いのが現状である。

#### ・水酸化物コロイドの凝集分散挙動に及ぼす硝酸イオン濃度の影響

4 価アクチノイドと可溶性錯体を形成する炭酸イオンやその他の配位子が高濃度で存在するような条件下では、4 価アクチノイドの溶解度はこれら配位子との錯生成反応によって支配されるが、加水分解反応が優勢となるような条件下 (低い配位子濃度や高 pH など) では、4 価アクチノイドの水酸化物コロイドが支配的な化学種となる。コロイドの移行特性を評価するためには、先に述べたようにコロイド粒径の把握が重要であるが、その値はコロイドの凝集分散によって変化する。このコロイドの凝集分散挙動の指標の

一つが、コロイドのすべり面の電位であるゼータ電位であり、コロイドが存在する溶液の電解質やその濃度に大きな影響を受けるとされる。DLVO 理論などコロイドに関する既往の理論では、電解質濃度、即ち、硝酸イオンや共存するカチオンの濃度に応じて 4 価アクチノイドの水酸化物コロイドのゼータ電位が変化すると考えられるが、実験的な検証は十分でなく、またその変化傾向を定量的に予測できるようなモデルは確立されていない。

・硝酸イオンによる核種の酸化反応

ウラン、プルトニウム、ネプツニウムなどのアクチノイド核種は水溶液中で 4 価のみならず、5 価や 6 価など複数の酸化状態を取り得る。硝酸塩によって酸化的な雰囲気が形成されれば、これら核種が 4 価の酸化状態から酸化される可能性が考えられる。難溶性の 4 価水酸化物沈殿固相による溶解度制限が無くなれば、核種の溶解度は大幅に増加するとともに、支配的な溶存化学種も変化することにより移行挙動が大きく変化することが懸念される。図 1-5 はプルトニウム及びネプツニウムの電位-pH 図（プールベダイアグラム）と硝酸イオンのプールベダイアグラムを重ねたものである。硝酸イオンから亜硝酸イオンへの還元反応が酸化剤として働けば、ネプツニウムは 4 価から 5 価に酸化される可能性が示されている。一方、プルトニウムの 4 価と 5 価の酸化還元電位は硝

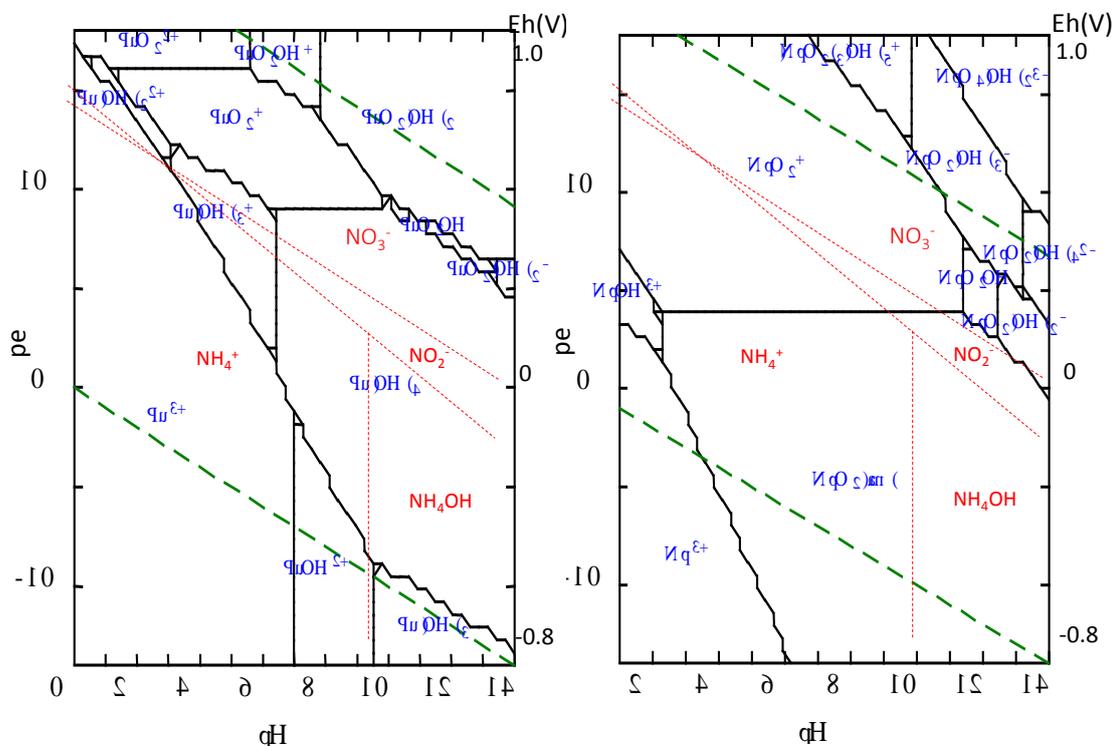


図 1-5 プルトニウム及びネプツニウムのプールベダイアグラム  
 ( $[Pu]_{tot}, [Np]_{tot}=10^{-5} M, I = 0$ )

酸イオン、亜硝酸イオンの酸化還元電位より高く、硝酸塩環境下でもプルトニウムは4価が安定と考えられる。これまで、4価ネプツニウムを含めた幾つかの核種の硝酸イオンによる酸化反応に関する研究が行われてきたが、中性 pH からアルカリ性 pH 領域における酸化剤としての硝酸イオンの働きは明確になっていないのが現状である。

・他の相互影響因子の影響

1.1 節で述べたように TRU 廃棄物及び HLW の地層処分施設間の相互影響因子のうち、有機物影響と高 pH 影響は、硝酸塩影響と同じく TRU 廃棄物に由来する影響因子である。特に、グループ 3 及びグループ 4 の廃棄体の充填材であるセメントは、地下水との接触により、可溶性成分が溶脱し、地下水の組成や pH を変化させる。セメントと地下水が接触した初期では、pH 13 以上の高アルカリ pH 環境が形成され、その後は水酸化カルシウム ( $\text{Ca}(\text{OH})_2$ ) との溶解平衡、C-S-H ゲルからの Ca の選択的溶出により、pH は連続的に低下すると想定されている (図 1-6)。また、溶液中に豊富に存在するカルシウムイオンは、水酸化カルシウムの他、地下水中の炭酸イオンとの反応によるカルサイト ( $\text{CaCO}_3$ ) の沈殿、 $\text{SO}_4^{2-}$  との反応によるエトリンガイト及び石膏の沈殿、 $\text{Cl}^-$  との反応によるフリーデル氏塩の沈殿を生成する可能性が指摘されている。セメント系材料の種類や接触する地下水の化学的條件、廃棄体から溶出する化学成分の影響により、セメント系材料間隙水の組成は変化する。上述の硝酸塩環境下での影響に加えて、セメント系材料による高 pH 及び高いカルシウムイオン濃度も考慮することが重要と考えられる。

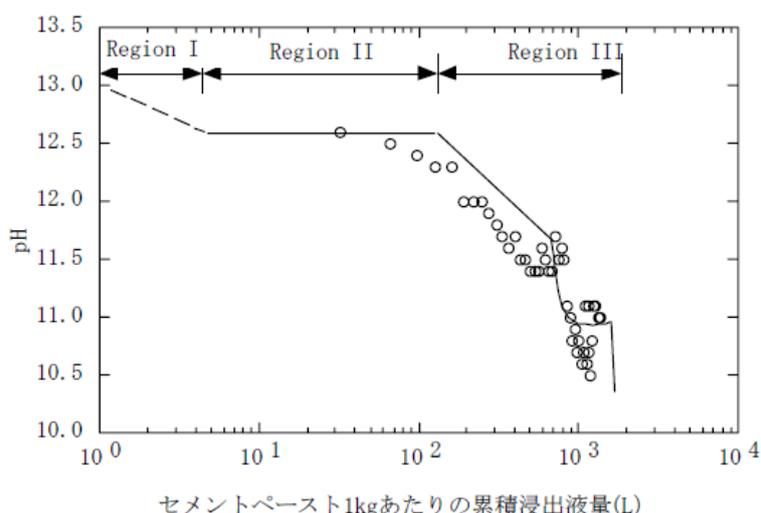


図 1-6 セメントと接触する溶液組成の変遷 (第2次 TRU レポート)

### 1.3 本研究の目的

1.2.3 に述べたような硝酸塩環境下で想定される事象の整理に基づき、本研究では、硝酸塩環境下での4価アクチノイドの移行挙動を評価する上で、その見かけの溶解度に影響を与え得る以下の3つの項目について検討する。

- ・高濃度の硝酸イオンによる活量低下が錯生成反応に及ぼす影響
- ・水酸化物コロイドの凝集分散挙動に及ぼす硝酸イオン濃度の影響
- ・硝酸イオンによる核種の酸化反応

「高濃度の硝酸イオンによる活量低下が錯生成反応に及ぼす影響」では、4価アクチノイドである4価プルトニウム(Pu(IV))と処分場内の間隙水あるいは処分場近傍の地下水に広範に存在する炭酸イオン( $\text{CO}_3^{2-}$ )の錯生成反応を対象とすることとした。4価プルトニウムと炭酸イオンの錯生成反応に関する研究は、Yamaguchiら(Yamaguchi et al., 1994)やRaiら(Rai et al., 1999)によって行われ、 $\text{Pu}(\text{CO}_3)_5^{6-}$ や $\text{Pu}(\text{CO}_3)_4^{4-}$ 、 $\text{Pu}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_2^{2-}$ が支配的溶存種として報告されている。しかし、いずれの実験も試料溶液のイオン強度( $I$ )は低く( $I < 0.3$ )、高イオン強度下での支配的溶存種や活量補正パラメータは十分明らかになっていない。高イオン強度下(高濃度の硝酸ナトリウム溶液下)での実験データを取得し、SITやPitzerモデルなど既存の活量補正モデルの適用を試みる。イオン相互作用係数など活量補正に必要なモデルパラメータを求め、錯生成反応におけるイオン強度の影響を定量的に評価することを目指す。本研究ではまず4価プルトニウムのアナログ元素である4価ジルコニウムを用いて、低イオン強度から高イオン強度までの炭酸イオン共存下での溶解度を測定し、ジルコニウム-炭酸錯生成反応に及ぼすイオン強度の影響について検討をすすめる。

「水酸化物コロイドの凝集分散挙動に及ぼす硝酸イオン濃度の影響」では、コロイドの凝集分散を表す指標であるコロイドのゼータ電位に着目する。ジルコニウム水酸化物コロイドのゼータ電位の実測値については、これまで報告例がほとんどなく、実験ではまず様々なイオン強度(硝酸ナトリウム濃度)下でのジルコニウム水酸化物コロイドのゼータ電位を測定することとした。一方、水酸化物コロイドの生成機構については、既往研究(Sasaki et al., 2006, Kobayashi et al., 2009)において、加水分解種がランダムな方向に成長することによるものとの仮説が述べられ、粒径分布の再現が試みられている。そこで、本研究では、加水分解種から成る水酸化物コロイドの平均電荷とゼータ電位の実測値との相関について調べることにした。コロイドの凝集分散の指標であるゼータ電位の把握及び予測を目指すことで、コロイドの粒径評価、さらに移行特性評価に資することを目的とする。

「硝酸イオンによる核種の酸化反応」では、中性からアルカリ性pH領域における硝酸イオンの酸化性について調べるため、まず、様々な濃度の硝酸ナトリウム溶液のpH及

び酸化還元電位 (Eh) を調べることにした。また、酸化還元対を形成し得る幾つかの還元剤を投入し、pH 及び Eh の値の変化を調べるとともに、硝酸イオンの還元生成物である亜硝酸イオンの濃度を測定することで、硝酸イオンの酸化性について検討する。

以上の項目について得られた知見を基に、4 価アクチノイドの見かけの溶解度に及ぼす硝酸塩の影響について総合的に評価する。図 1-2 に示すような硝酸イオンの時間及び距離に応じた分布及び炭酸イオン濃度や pH、Eh、カルシウム濃度の設定値を参考に幾つかの硝酸塩環境を設定し、錯生成定数や活量補正パラメータ、酸化還元電位など熱力学データから 4 価アクチノイドの見かけの溶解度を予測する。また、水酸化物コロイドが支配的化学種となるような条件下では、コロイドのゼータ電位から予想される粒径分布の傾向についても考察を行う。硝酸塩影響下での 4 価アクチノイドの見かけの溶解度やコロイド状態に関する成果は、溶解度のみならず、収着や移流分散など硝酸塩影響を考慮した核種移行パラメータの設定及びその信頼性向上に資することが期待できる。

## 2 全体研究計画（4 ヶ年における全体計画）

図 2-1 は本研究において想定する 4 価アクチノイドの硝酸塩環境下での化学的挙動を模式的に表したものである。TRU 廃棄物から溶出した 4 価アクチノイドは、廃棄体近傍において難溶性の水酸化物沈殿 ( $\text{An(IV)(OH)}_4(\text{am})$ ) を形成し、液相中の 4 価アクチノイドイオン ( $\text{An(IV)}^{4+}$ ) の濃度は、水酸化物沈殿との沈殿溶解反応により制限される。廃棄体近傍のセメント環境下ではカルシウムイオンの濃度が高く、炭酸イオン濃度は炭酸カルシウム ( $\text{CaCO}_3$ ) 固相の生成により制限され、4 価アクチノイドの加水分解反応が支配的と考えられる。水酸化物コロイドの凝集分散挙動に及ぼす硝酸イオン濃度の影響として、4 価アクチノイドのアナログである 4 価ジルコニウムの水酸化物コロイドを調製し、凝集分散挙動の指標となるゼータ電位を測定する。さらに、既往の熱力学データを用いてゼータ電位の pH や硝酸塩濃度に対する変化傾向の解釈を試みる。実験は平成 27 年度から開始し、ゼータ電位を測定するとともにモデルの構築を進める。

また、廃棄体近傍の高濃度の硝酸塩環境下では、硝酸イオンによる酸化的雰囲気形成されると考えられる。酸化還元に鋭敏な幾つかの核種は、硝酸イオンによって酸化される可能性が指摘されている。例えば、テクネチウムの場合、硝酸溶液中では 4 価テクネチウム固相 ( $\text{TcO}_2 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ ) は 7 価テクネチウムイオン ( $\text{TcO}_4^-$ ) に酸化されることが報告されている（日本原子力研究開発機構、2015）。しかし、硝酸イオンによる直接の影響は明確ではなく、4 価ネプツニウムや金属セレンなどでは硝酸塩による酸化状態への有意な影響は確認されなかったと報告されている（第 2 次 TRU レポート）。そこで、本研究では、様々な濃度の硝酸ナトリウム溶液の pH 及び酸化還元電位 (Eh) を調べるとともに硝酸イオンの還元生成物である亜硝酸イオンの濃度を測定することで、硝酸イオンの酸化性について検討する。pH 及び Eh 測定実験は平成 27 年度、亜硝酸イオン濃度の測定実験は平成 28 年度から開始し、硝酸イオンの酸化性について検討を進める。

一方、セメント系材料に由来するカルシウム濃度がある程度低い条件下では、炭酸イオンが 4 価アクチノイドと安定な炭酸錯体を形成すると考えられる。本研究では、4 価プルトニウム及びそのアナログ元素であるジルコニウムと炭酸イオンの錯生成反応について、特に高イオン強度下での活量の低下が及ぼす影響に着目して調べる。希薄濃度から高濃度までの硝酸ナトリウム溶液に炭酸イオンを共存させ、4 価プルトニウム水酸化物及びジルコニウム水酸化物の溶解度実験を実施する。炭酸イオン共存下での溶解度を解析することにより、支配的な炭酸錯体の錯生成定数とともに活量補正パラメータを求める。平成 27 年度にジルコニウムの溶解度実験、平成 28 年度にプルトニウムの溶解度実験及び解析を実施し、炭酸錯体を含む溶解度に及ぼすイオン強度（活量）の影響について考察する。

最終年度である平成 29 年度は、前年度まで得られた結果を整理し、4 価アクチノイドの見かけの溶解度に及ぼす硝酸塩の影響について総合的に評価する。

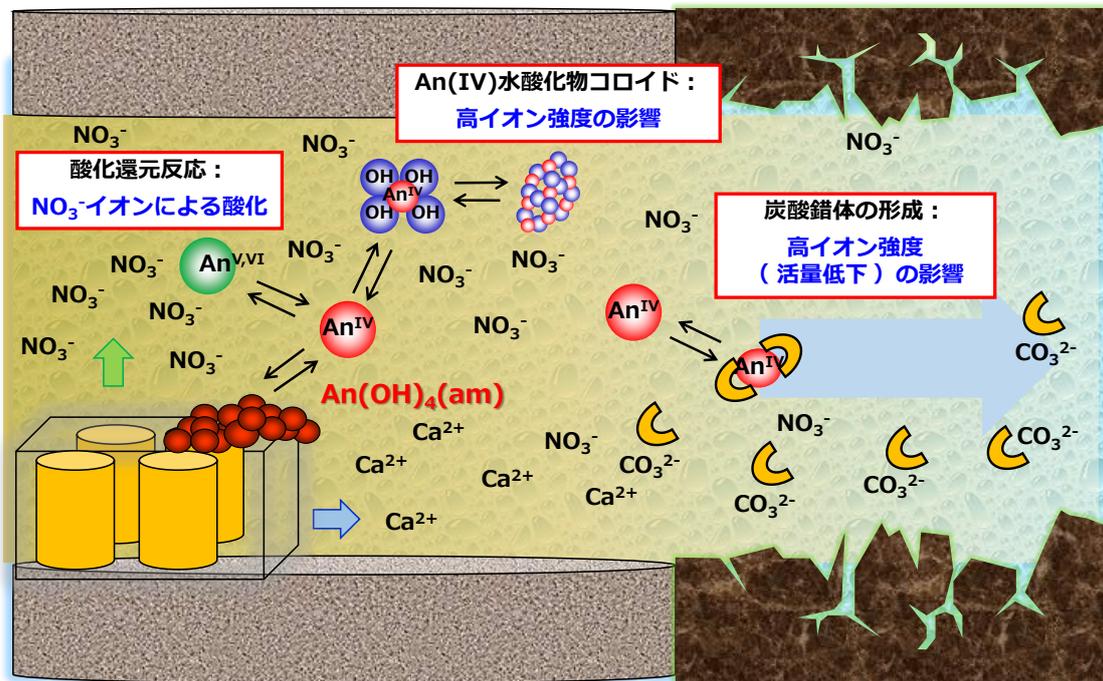


図 2-1 硝酸塩環境下での 4 価アクチノイドの溶液化学反応

### 3 平成 27 年度の成果概要

平成 27 年度は、4 価ジルコニウムに着目し、ジルコニウム炭酸錯体の生成に及ぼす硝酸ナトリウム濃度の影響について調べた。0.1~5.0 M の  $\text{NaNO}_3$  溶液中において、様々な pHc 及び炭酸イオン濃度条件下でのジルコニウム水酸化物の溶解度を測定し、錯生成に及ぼす硝酸ナトリウム濃度（イオン強度）の影響を SIT 法によるイオン強度補正を用いた熱力学解析により検討した。また、コロイド挙動に関する研究として、ジルコニウム水酸化物コロイドを調製し、そのゼータ電位を測定した。ゼータ電位の値の pHc 依存性や硝酸ナトリウム濃度（イオン強度）依存性について、加水分解定数などの熱力学データに基づく解釈を試みた。また、硝酸イオンが酸化還元反応へ及ぼす影響の検討として、様々な濃度の硝酸ナトリウム水溶液中でのヒドロキノンの酸化還元電位（Eh 値）を測定した。硝酸イオン及びヒドロキノンのプールベダイアグラムに基づき、硝酸イオンが酸化還元反応に及ぼす影響について検討した。以下にそれぞれの概略を示す。

#### 3.1 ジルコニウム炭酸錯体生成に及ぼす $\text{NaNO}_3$ 濃度影響

硝酸ナトリウム濃度が 0.1~5.0 M までの溶液中において様々な濃度の炭酸イオンを共存させ、ジルコニウムのアモルファス水酸化物固相 ( $\text{Zr}(\text{OH})_4(\text{am})$ ) の見かけの溶解度を測定した。

炭酸イオンを含まないジルコニウム溶解度 ( $\text{NaClO}_4$  溶液または  $\text{NaCl}$  溶液) と比較すると、pH 8~11 では共存する炭酸イオン濃度の上昇に伴ってジルコニウム溶解度が上昇し、ジルコニウム炭酸錯体の形成が示唆された。また、pH 11 以上では炭酸イオン濃度の違いが溶解度に及ぼす影響は小さくなり、加水分解反応が優位になったと考えられた。炭酸イオン濃度を一定にし、イオン強度を  $\text{NaNO}_3$  により 0.1、0.5、2.0 及び 5.0 としたとき、pH 10 以下ではイオン強度とともに溶解度がわずかに上昇する傾向が得られた。一方、pH 10 以上では、イオン強度による溶解度の違いはほとんど表れなかった。ジルコニウム溶解度に対するイオン強度の影響については、先行研究である 4 価トリウムの溶解度と比較すると、その違いが顕著な結果となった。Altmaier らは 0.04 M の炭酸イオン共存下で  $\text{NaCl}$  によりイオン強度を 0.1~4.0 M まで変化させた場合、 $I = 0.1$  から 4.0 にかけてトリウム溶解度が 2 桁以上上昇することを報告しており (Altmaier et al. 2006)、ジルコニウムの結果と比較すると、その増加量は 1 桁ほど大きくなった。

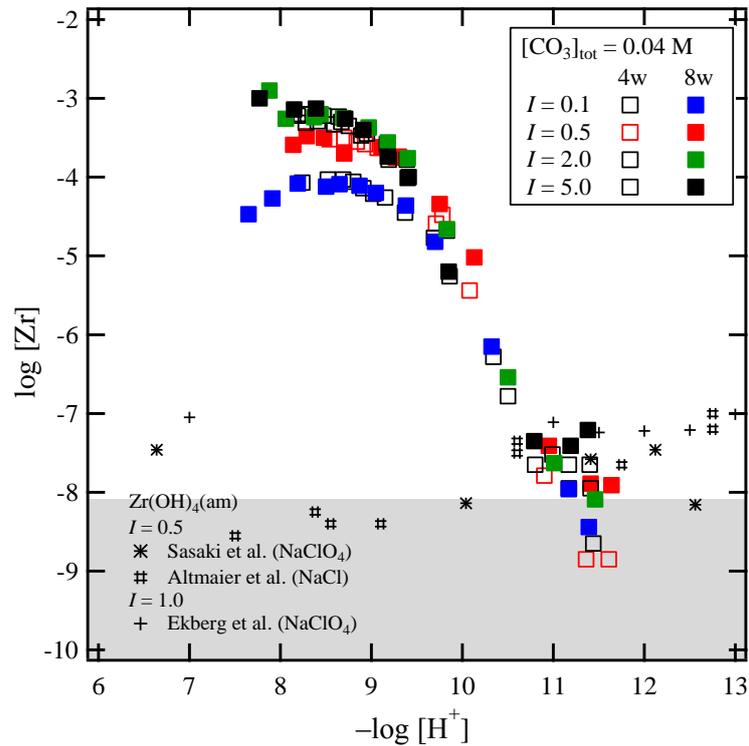


図 3-1 炭酸イオン共存下におけるジルコニウム溶解度 ( $[\text{CO}_3]_{\text{tot}}=0.04 \text{ M}$ )

得られたジルコニウム溶解度の pH 依存性及び炭酸イオン濃度依存性から、溶解度データに対して熱力学データに基づく解析を行った。水酸化物イオンと炭酸イオンの数から考え得る 3 元錯体の組み合わせは多数あるため、熱力学データに基づく溶解度の解析を行う前に、 $I=0.5$  の酸性 pH からアルカリ性 pH までの実験データを用いて、溶解度実験値を再現するため、各 2 元及び 3 元錯体の錯生成定数の上限値を見積もった。その結果、既往文献において報告されている 2 元錯体の  $\text{Zr}(\text{CO}_3)_4^{4-}$  の他  $\text{Zr}(\text{OH})(\text{CO}_3)_3^{3-}$  及び  $\text{Zr}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_2^{2-}$  が支配的溶存種と考えられ、これら錯体の存在を仮定して熱力学解析を行った。このとき、異なるイオン強度の溶解度実験値も併せて解析し、SIT によるイオン強度補正を行うことで、それぞれの化学種のイオン相互作用係数を求めた。得られた熱力学データにより実験値は良く再現でき、また、 $\text{Zr}(\text{CO}_3)_4^{4-}$  の錯生成定数として求められた値 ( $\log \beta_{1,0,4} = 42.2 \pm 0.1$ ) は、NEA-TDB により報告されている値 ( $\log \beta_{1,0,4} = 42.9 \pm 1.0$ ) (Brown et al., 2005) と良く一致する結果となった。一方、SIT のイオン相互作用係数として求められた値は、いずれも正の値となり、負の値として報告されているトリウム炭酸錯体の SIT のイオン相互作用係数 (Rand et al., 2009) とは大きく異なる結果となった。

### 3.2 ジルコニウム水酸化物コロイド挙動の熱力学的検討

実験では、ジルコニウム母溶液に水酸化ナトリウム水溶液を滴下し、過飽和法によって水酸化物コロイドを調製した。このとき、イオン強度は硝酸ナトリウムにより  $I = 0.5$  及び  $2.0$  に調整した。試料溶液は、真空容器に入れ、1 カ月間、振とう攪拌装置を用いて攪拌した。試料溶液の pHc を測定した後、それぞれ 1mL を採取し、ゼータサイザーナノ ZS (Malvern) を用いて上澄み液のゼータ電位を測定した。25°C で電気泳動移動度 ( $u = V/E$  ( $\mu\text{m} \cdot \text{s}^{-1}/\text{V} \cdot \text{cm}^{-1}$ ))、 $V$ : 電気泳動速度、 $E$ : 外部電場の大きさ) から Smoluchowski の近似式を用いてゼータ電位を算出した。

0.5 M 硝酸ナトリウム水溶液の場合、ゼータ電位の値は pH 2 付近ではおよそ +30 mV の値を示し、pH の増加とともに減少するような傾向が表れた。pH 8 付近で 0 mV となり、アルカリ性 pH 条件下では負の値となった。2.0 M 硝酸ナトリウム水溶液の場合、ゼータ電位の値は、酸性 pH 及びアルカリ性 pH で 0.5 M の値と比較して 10 mV 程度、絶対値が小さくなる傾向が見られた。ただし、中性 pH では両者に差異はほとんど表れない結果となった。0.5 M 及び 2.0 M 硝酸ナトリウム溶液いずれの場合においても、pH とともにゼータ電位の値が低下する傾向が表れたため、コロイドのゼータ電位は pH とともに進行する加水分解反応と密接に関連するものと考えられた (図 3-2)。

そこで、水酸化物コロイドを形成する単核加水分解種の平均電荷を加水分解定数から計算し、ゼータ電位との相関について考察した。まず、単核種を半径  $r_1$  の球とし、これが  $n$  個集まって半径  $R$  の球状のコロイド粒子を形成すると仮定した。このとき、コロイド内には、単核加水分解種の他に  $\text{Na}^+$  や  $\text{ClO}_4^-$  など溶媒中のイオンが存在している可能性があり、単核種間の平均距離を表すため、単核加水分解種の半径より大きな見かけの半径を考えた。簡単のため、コロイドの表面電位  $\Phi_0$  とコロイドのすべり面における電位であるゼータ電位  $\Phi_\zeta$  が近似的に等しいと仮定し、ゼータ電位  $\Phi_\zeta$  を以下のような式で表した。

$$\Phi_\zeta = \frac{e(Z + \Delta Z)}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r r_1 f} \quad (3-1)$$

ここで、 $e$ 、 $\epsilon_0$  及び  $\epsilon_r$  はそれぞれ電気素量、真空中の誘電率及び水の比誘電率を表し、水酸化物コロイド内部に取り込まれた溶媒イオンの効果を  $\Delta Z$ 、 $f$  は水酸化物コロイドを形成する単核加水分解種間の平均距離の  $r_1$  に対する比とした。

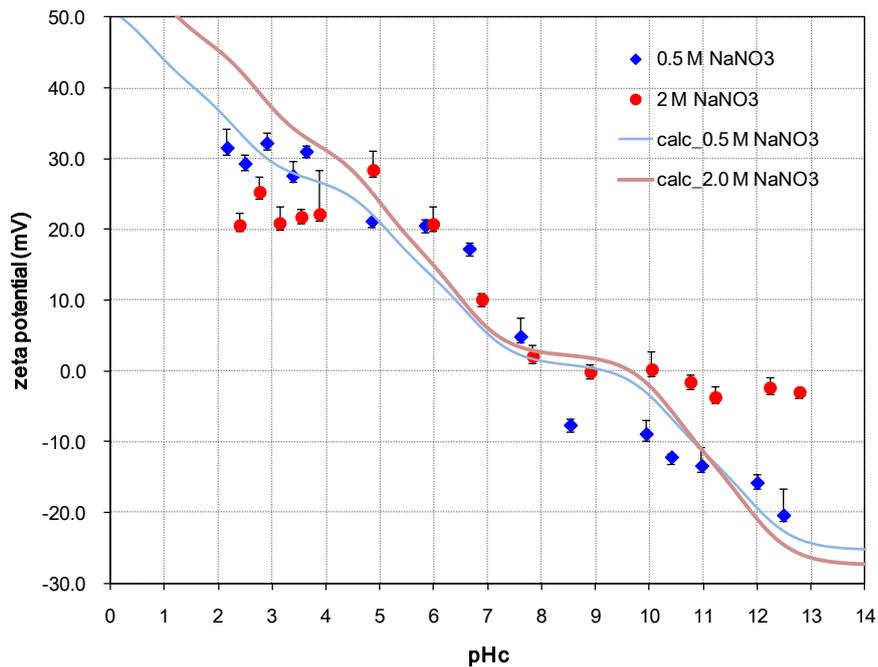


図 3-2 ジルコニウム水酸化物コロイドのゼータ電位の実験値と計算値 ( $I = 0.5$ 、 $2.0$ )

$\Delta Z$  及び  $f$  の値は  $I = 0.5$  及び  $2.0$  それぞれについて、 $\Delta Z = 0.06$ 、 $f = 5.7$  及び  $\Delta Z = 0.15$ 、 $f = 5.0$  となった。 $I = 0.5$  の場合、水酸化物コロイドの平均電荷  $Z$  とゼータ電位の pH 依存性がほぼ同じ傾向を示しており、水酸化物コロイド内部に取り込まれた溶媒イオンの効果 ( $\Delta Z$ ) と単核加水分解種間の平均距離の値によってゼータ電位の実験値を良く再現する結果となった。一方、 $I = 2.0$  の場合、ゼータ電位の計算値は、酸性 pH 条件では実験値より高く、アルカリ性 pH 条件では実験値より低くなる結果となった。本研究では、水酸化物コロイド表面と拡散電気二重層中におけるすべり面の位置を近似的に同じと考えており、高イオン強度下でのゼータ電位の実験値の解釈には、モデルの改良が必要と思われた。

### 3.3 $\text{NaNO}_3$ による酸化還元反応の検討

一般に、硝酸イオンは窒素の高い酸化状態 (+5) から酸化剤として働くことが知られており、処分環境においても処分場内の構造物やオーバーパック、さらに廃棄体に含まれる核種を酸化する可能性が指摘されている (電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構、2005)。地下の還元的な環境下において 4 価金属イオンとして振舞うアクチノイド核種やテクネチウムなどの放射性核種は、難溶性の 4 価金属水酸化物沈殿を形成することにより、その移行が遅延される。しかし、より高い酸化状態に酸化されれば核種の溶解度は大幅に増加し、その移行が促される懸念がある。平成 27 年度は、処分環境下における硝酸イオンの酸化剤と

Oxidation state								
5		4		3		0	-3	
	0.803		1.07		1.454		0.275	
$\text{NO}_3^-$	—————	$\text{N}_2\text{O}_4$	—————	$\text{HNO}_2$	—————	$\text{N}_2$	—————	$\text{NH}_4^+$
			0.94				0.864	

図 3-3 酸性 pH 領域における窒素の標準酸化還元電位

Oxidation state										
5		4		3		0	-3			
	-0.86		0.867		0.15		-1.05	0.42		
$\text{NO}_3^-$	—————	$\text{N}_2\text{O}_4$	—————	$\text{NO}_2^-$	—————	$\text{N}_2\text{O}$	—————	$\text{NH}_2\text{OH}$	—————	$\text{NH}_4\text{OH}$
			0.01							

図 3-4 アルカリ性 pH 領域における窒素の標準酸化還元電位

しての能力に着目し、硝酸イオンを含む試料溶液の pH 及び酸化還元電位 (Eh 値) を測定することで、核種の酸化状態に及ぼし得る影響について検討した。

硝酸イオンを含む窒素のラティマー図によれば、酸性及びアルカリ性 pH 下での硝酸イオンの酸化還元反応及び標準酸化還元電位は図 3-3 及び図 3-4 のように表される (Bard et al., 1985)。また、これを元に pH 及び Eh 値によって支配的な化学種を示したプールベ図を図 3-5 に示す。

実験では、ヒドロキノン (1 mM) を含む 0.1~5.0 M の塩化ナトリウムまたは硝酸ナトリウム溶液を調製し、その pHc 及び Eh の値を測定した。硝酸ナトリウム濃度が Eh 測定値に及ぼす影響は確認されず、また、塩化ナトリウム溶液との違いもほとんど表れない結果となった。ラティマー図に示すように、硝酸イオンの還元反応では  $\text{NO}_3^- \rightarrow \text{NO}_2^- \rightarrow \text{NH}_4^+$  の逐次還元反応が提案されているが、常温では反応速度が非常に遅いことが指摘されている (日本原子力研究開発機構, 2011)。また、還元性鉱物 (黄鉄鉱 ( $\text{FeS}_2$ )) による硝酸イオンの還元試験では、pH8、323K (50°C) 下では 365 日経過後も還元反応が進行しなかったものの、363K (90°C) 下では  $\text{FeS}_2$  が酸化し、 $\text{N}_2$  と  $\text{NH}_3$  が発生したことが述べられている。本研究では、298K (25°C) 及び 333K (60°C) 下で測定された pH 及び Eh 値に明確な違いは表れない結果となった。

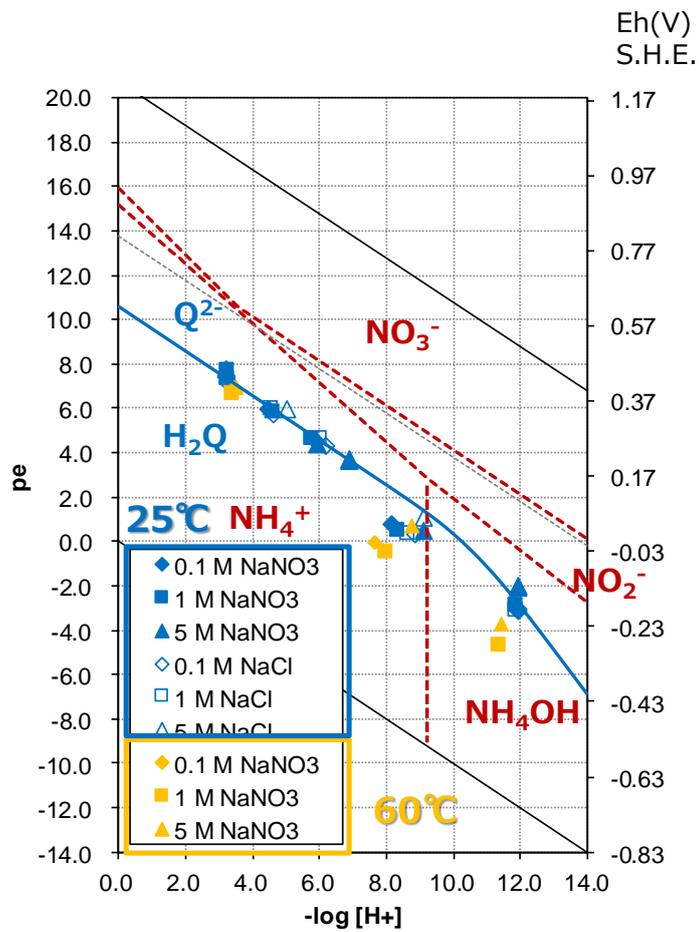


図 3-5 0.1~5.0 M NaCl 及び NaNO<sub>3</sub> 溶液中でのヒドロキノンの Eh-pH 値及び N-O-H の Eh-pH ダイアグラム

## 4 平成 28 年度研究実施内容

### 4.1 平成 28 年度の計画、実施方法

平成 27 年度は、4 価アクチノイドのアナログ元素である 4 価ジルコニウムを用いて、高イオン強度（高濃度  $\text{NaNO}_3$  溶液）条件下での炭酸イオンとの錯生成反応及び水酸化物コロイドの挙動について検討を行った。

ジルコニウムの炭酸錯体生成に関する研究では、平成 27 年度は、炭酸イオンを含む 0.1~5.0 M の硝酸ナトリウム溶液中でのジルコニウムの溶解度を測定し、溶解度の pH 依存性、炭酸濃度依存性及びイオン強度（硝酸ナトリウム濃度）依存性を調べた。溶解度の pH 依存性及び炭酸濃度依存性から中性からアルカリ性 pH 領域における支配的なジルコニウム炭酸錯体を推定するとともに、溶解度のイオン強度依存性を、SIT 法を用いて解析することにより、ジルコニウム炭酸錯体のイオン相互作用係数を求めた。平成 28 年度は、ジルコニウム炭酸錯体及び 4 価アクチノイドの炭酸錯体に関する既往文献との比較検討を進め、炭酸イオン共存下におけるジルコニウム溶解度の熱力学モデルの見直しを行った。その結果、pH 依存性及び炭酸濃度依存性から中性からアルカリ性 pH 領域では、 $\text{Zr}(\text{CO}_3)_4^{4-}$ 、 $\text{Zr}(\text{CO}_3)_5^{6-}$  及び  $\text{Zr}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_2^{2-}$  が支配的な溶存種と推定され、錯生成定数のイオン強度依存性を、SIT 法を用いて解析することにより、各炭酸錯体のイオン相互作用係数の値を求めた。これまでの研究では、ジルコニウム炭酸錯体  $\text{Zr}(\text{CO}_3)_4^{4-}$  のイオン相互作用係数として、4 価ウランの炭酸錯体  $\text{U}(\text{CO}_3)_4^{4-}$  の値が代用されてきたが、ジルコニウム溶解度のイオン強度依存性から求めた値は、これと大きく異なる結果となった。

そこで、平成 28 年度は、4 価アクチノイドの炭酸錯体の生成に及ぼすイオン強度（硝酸ナトリウム濃度）影響についてさらに検討するため、4 価プルトニウムを用いた実験を行った。4 価プルトニウムの炭酸錯体に関する既往研究では、2 元錯体である  $\text{Pu}(\text{CO}_3)_4^{4-}$  や  $\text{Pu}(\text{CO}_3)_5^{6-}$ 、3 元錯体である  $\text{Pu}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_2^{2-}$  の錯生成定数及びそれぞれのイオン強度補正パラメータがこれまで報告されている (Yamaguchi et al., 1994, Rai et al., 1999)。しかし、既往の実験データはいずれも塩化ナトリウム溶液や過塩素酸ナトリウム溶液下などで得られたものであり、硝酸塩環境下での実験データは得られていない。また、高イオン強度下での実験データも少なく、幅広いイオン強度下において、炭酸錯体の錯生成反応に及ぼすイオン強度影響を明らかにするためには、新たな実験データの取得が不可欠と考えた。ジルコニウム炭酸錯体の熱力学モデルを参考にし、プルトニウム炭酸錯体生成に及ぼす硝酸ナトリウム濃度影響について考察した。

4 価金属水酸化物のコロイド挙動については、平成 27 年度は過飽和法によりジルコニウムの水酸化物コロイドを調製し、0.5 M 及び 2.0 M の硝酸ナトリウム水溶液中でのゼータ電位を測定した。ゼータ電位の値は、pH 2 付近から pH とともに単調に低下し、pH 12 付近では数十 mV の値を示した。また、溶液のイオン強度が高いほど、ゼータ電

位の絶対値は小さくなる傾向が見られた。ジルコニウムの加水分解種によって水酸化物コロイドが形成されると仮定し、その形式電荷から得られたゼータ電位の実験値の解釈を試みたが、 $I = 2.0 \text{ M}$ での値の再現及びパラメータ値の設定が課題であった。ゼータ電位のイオン強度に対する傾向をより詳細に調べるため、 $I = 0.03 \text{ M}$ 及び $0.1 \text{ M}$ と低いイオン強度での試料を新たに調製し、ゼータ電位を測定することとした。より幅広いイオン強度下でのゼータ電位の傾向を調べ、熱力学データによるゼータ電位値の再現モデルの改良を試みた。

硝酸イオンがアクチノイドの酸化還元反応に及ぼす影響については、平成 27 年度は硝酸ナトリウム溶液中でのヒドロキノンの酸化還元反応に着目し、 $0.1 \sim 5.0 \text{ M NaCl}$ 及び $\text{NaNO}_3$ 溶液中でのヒドロキノン ( $1 \text{ mM}$ )の酸化還元電位 (Eh) の測定を行った。その結果、Eh の測定値に硝酸ナトリウム濃度の影響はほとんど表れないことが分かった。そこで、平成 28 年度は、硝酸イオンの逐次還元反応 ( $\text{NO}_3^- \rightarrow \text{NO}_2^- \rightarrow \text{NH}_4^+$ ) に着目し、亜硝酸イオンの濃度を直接測定することにより、硝酸イオンによる酸化還元反応の進行を確認する。還元剤としてヒドロキノンの他、亜ジチオン酸ナトリウム、塩化スズ (II) 及び鉄粉を用い、亜硝酸イオンの定量には、ナフチルエチレンジアミン吸光光度法 (NEDA 法) を用いた。

## 4.2 平成 28 年度の成果内容

### 4.2.1 ジルコニウム炭酸錯体生成に及ぼす $\text{NaNO}_3$ 濃度影響

#### 4.2.1.1 炭酸イオン共存下の硝酸ナトリウム溶液におけるジルコニウム溶解度熱力学モデルの検討

平成 27 年度は、 $0.1 \sim 5.0 \text{ M}$  の硝酸ナトリウム溶液中において、炭酸イオン濃度を  $0.001 \sim 0.1 \text{ M}$  まで変化させたときのジルコニウムのアモルファス水酸化物固相 ( $\text{Zr(OH)}_4(\text{am})$ ) の見かけの溶解度を様々な pH 条件下で測定した。幾つかのジルコニウム炭酸錯体の存在を仮定し、2 元炭酸錯体である  $\text{Zr(CO}_3)_4^{4-}$  の他  $\text{Zr(OH)(CO}_3)_3^{3-}$  及び  $\text{Zr(OH)}_2(\text{CO}_3)_2^{2-}$  を支配的溶存種とし、溶解度の熱力学解析を行った。平成 28 年度は、支配的なジルコニウム炭酸錯体について、報告されている 4 価アクチノイドの炭酸錯体を参考に、さらに検討を進めた (Kobayashi et al., 2017)。

溶解度制限固相をジルコニウムのアモルファス水酸化物とすると、その溶解平衡反応及びジルコニウムの 2 元または 3 元錯体の生成反応は下式で表される。



$$\log K_{sp} = [\text{Zr}^{4+}][\text{OH}^-]^4, \quad (4-2)$$



$$\log \beta_{1,xy} = [\text{Zr}(\text{OH})_x(\text{CO}_3)_y^{4-x-2y}] / [\text{Zr}^{4+}][\text{OH}^-]^x[\text{CO}_3^{2-}]^y, \quad (4-4)$$

このとき、 $K_{sp}$  及び  $\beta_{1,xy}$  はそれぞれ水酸化物固相の溶解度積及び炭酸錯体の錯生成定数を表す。ここで、任意のイオン強度での  $K_{sp}$  及び  $\beta_{1,xy}$  は、SIT 法によってイオン強度  $I = 0$  での値である  $K_{sp}^0$  及び  $\beta_{1,xy}^0$  を用いて下式のように表される。

$$\begin{aligned} \log K_{sp} &= \log K_{sp}^0 + \log \gamma_{\text{Zr}^{4+}} + 4 \log \gamma_{\text{OH}^-} \\ &= \log K_{sp}^0 + 20D - \left\{ \varepsilon(\text{Zr}^{4+}, \text{NO}_3^-) + 4\varepsilon(\text{OH}^-, \text{Na}^+) \right\} \cdot I_m \end{aligned} \quad (4-5)$$

$$\begin{aligned} \log \beta_{1,xy} &= \log \beta_{1,xy}^0 + \log \gamma_{\text{Zr}(\text{OH})_x(\text{CO}_3)_y^{4-x-2y}} - (\log \gamma_{\text{Zr}^{4+}} + x \log \gamma_{\text{OH}^-} + y \log \gamma_{\text{CO}_3^{2-}}) \\ &= \log \beta_{1,xy}^0 + \left\{ (4-x-2y)^2 - 16 - x - 4y \right\} D \\ &\quad - \left\{ \varepsilon(\text{Zr}(\text{OH})_x(\text{CO}_3)_y^{4-x-2y}, \text{Na}^+) - \varepsilon(\text{Zr}^{4+}, \text{NO}_3^-) - x\varepsilon(\text{OH}^-, \text{Na}^+) - y\varepsilon(\text{CO}_3^{2-}, \text{Na}^+) \right\} \cdot I_m \end{aligned} \quad (4-6)$$

ここで、 $\varepsilon(\text{Zr}(\text{OH})_x(\text{CO}_3)_y^{4-x-2y}, \text{Na}^+)$ 、 $\varepsilon(\text{Zr}^{4+}, \text{NO}_3^-)$ 、 $\varepsilon(\text{OH}^-, \text{Na}^+)$ 、および  $\varepsilon(\text{CO}_3^{2-}, \text{Na}^+)$  はそれぞれのイオン相互作用係数である、 $D$  は  $25^\circ\text{C}$  での Debye-Hückel 項を表す。このとき、炭酸錯体および加水分解種の濃度和であるジルコニウムの溶解度 ( $[\text{Zr}]_{\text{tot}}$ ) は、以下のように表される。

$$\begin{aligned} [\text{Zr}]_{\text{tot}} &= \sum_m [\text{Zr}(\text{OH})_m^{4-m}] + \sum_{x,y} [\text{Zr}(\text{OH})_x(\text{CO}_3)_y^{4-x-2y}] \\ &= K_{sp} / [\text{OH}^-]^4 \left( 1 + \sum_m \beta_{1m0} [\text{OH}^-]^m + \sum_{x,y} \beta_{1,xy} [\text{OH}^-]^x [\text{CO}_3^{2-}]^y \right) \end{aligned} \quad (4-7)$$

ジルコニウムの炭酸錯体として、まず、2 元の 1:4 錯体である  $\text{Zr}(\text{CO}_3)_4^{4-}$  の存在を仮定した。 $\text{Zr}(\text{CO}_3)_4^{4-}$  は既報のジルコニウム炭酸錯体に関する文献の中で最もその存在が指摘されている錯体種である (Derwin, 1972、Malinko et al., 1980、Karlysheva et al., 1982、João et al., 1987、Veyland et al., 1999、Veyland et al., 2000、Pouchon et al.,

2001)。例えば、Dervin や Malinko らは、 $[\text{CO}_3]/[\text{Zr}]$ 比が 1:2-60 の条件下での電位差滴定の結果を解釈するため、 $\text{Zr}(\text{CO}_3)_4^{4-}$  を支配的溶存種として提案している。また、Veyland らはエレクトロスプレーイオン化質量分析法によるジルコニウム炭酸錯体の測定を行い、 $\text{Zr}(\text{CO}_3)_4^{4-}$  のフラグメンテーションによる質量分析のピークを観測している。本研究においても、ジルコニウム溶解度の炭酸イオン濃度に対する傾きはほぼ 4 であり、炭酸イオンが過剰に存在する条件下での支配的な錯体種は、 $\text{Zr}(\text{CO}_3)_4^{4-}$  と考えた。中性 pH 領域での溶解度の実験結果は、 $\text{Zr}(\text{CO}_3)_4^{4-}$  を考慮することにより良く再現できたが、高イオン強度のアルカリ性 pH 領域での溶解度の実験値は、 $\text{Zr}(\text{CO}_3)_4^{4-}$  による熱力学計算結果とは乖離する傾向がみられ、 $\text{Zr}(\text{CO}_3)_4^{4-}$  とは異なるジルコニウム炭酸錯体の存在が示唆された。

そこで、1:5 の 2 元錯体である  $\text{Zr}(\text{CO}_3)_5^{6-}$  を  $\text{Zr}(\text{CO}_3)_4^{4-}$  に加えて考慮することとした。 $\text{Zr}(\text{CO}_3)_5^{6-}$  は、ジルコニウム炭酸錯体の既往文献では Pouchon らが言及しているのみである (Pouchon et al., 2001) が、4 価アクチノイドでは、支配的な炭酸錯体として幅広い核種でその存在が指摘されている (Altmaier et al., 2005、Altmaier et al., 2006、Rai et al., 1998、Rai et al. 1999)。例えば、Rai らは 0.1 M 以上の高い炭酸イオン濃度条件下における  $\text{PuO}_2(\text{am})$  の見かけの溶解度を  $\text{Pu}(\text{CO}_3)_5^{6-}$  の存在を仮定することで説明している (Rai et al., 1999)。また、1:5 錯体と同様、4 価アクチノイドの炭酸錯体としてその存在が提案されている 1:2:2 の 3 元錯体である  $\text{Zr}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_2^{2-}$  も支配的な溶存種として仮定することとした。これらの炭酸錯体の仮定に基づき、溶解度データの熱力学解析を行い、ジルコニウムの炭酸錯体の錯生成定数及びイオン相互作用係数の値を求めた。

解析に用いた値及び得られた値と熱力学データに基づき溶解度計算を行った結果を表 4-1、表 4-2、図 4-1 及び図 4-2 に示す。 $\text{Zr}(\text{CO}_3)_4^{4-}$  の錯生成定数として求められた値は、 $\log \beta^\circ_{104} = 42.4 \pm 0.1$  となり、Brown らによる報告値 ( $\log \beta^\circ_{104} = 42.9 \pm 1.0$ ) (Brown et al., 2005) と非常に近い値となった。一方、SIT のイオン相互作用係数として得られた値は、 $\epsilon(\text{Zr}(\text{CO}_3)_4^{4-}, \text{Na}^+) = 0.64 \pm 0.06$  となっており、Brown らによる報告値 ( $-0.09 \pm 0.20$ ) とは大きく異なる結果となった。Brown らによる報告値は  $\text{U}(\text{CO}_3)_4^{4-}$  として求められた値であり、4 価アクチノイドの炭酸錯体とジルコニウムの炭酸錯体では、錯生成に及ぼすイオン強度の影響が異なる可能性も考えられる。

表 4-1 ジルコニウムの加水分解定数及び炭酸錯体の錯生成定数 ( $I=0$ )

Reactions		Values	Reference
$Zr(OH)_4(am) \rightleftharpoons Zr^{4+} + 4OH^-$	$\log K_{sp4}^\circ$	-56.94	Sasaki et al., 2006
$Zr^{4+} + OH^- \rightleftharpoons ZrOH^{3+}$	$\log \beta_{110}^\circ$	14.29	
$Zr^{4+} + 2OH^- \rightleftharpoons Zr(OH)_2^{2+}$	$\log \beta_{120}^\circ$	26.66	
$Zr^{4+} + 3OH^- \rightleftharpoons Zr(OH)_3^+$	$\log \beta_{130}^\circ$	35.85	Sasaki et al., 2008
$Zr^{4+} + 4OH^- \rightleftharpoons Zr(OH)_4(aq)$	$\log \beta_{140}^\circ$	43.12	
$Zr^{4+} + 5OH^- \rightleftharpoons Zr(OH)_5^-$	$\log \beta_{150}^\circ$	46.52	
$Zr^{4+} + 6OH^- \rightleftharpoons Zr(OH)_6^{2-}$	$\log \beta_{160}^\circ$	48	
$H_2O + CO_2(aq) \rightleftharpoons H^+ + HCO_3^-$	$\log K_{a1}$	-6.354	Brown et al., 2005
$HCO_3^- \rightleftharpoons H^+ + CO_3^{2-}$	$\log K_{a2}$	-10.329	
$Zr^{4+} + 5CO_3^{2-} \rightleftharpoons Zr(CO_3)_5^{6-}$	$\log \beta_{105}^\circ$	$41.6 \pm 0.2$ 43	This study Pouchon et al., 2001
$Zr^{4+} + 4CO_3^{2-} \rightleftharpoons Zr(CO_3)_4^{4-}$	$\log \beta_{104}^\circ$	$42.4 \pm 0.1$ 42.9 42	This study Brown et al., 2005 Pouchon et al., 2001
$Zr^{4+} + 2OH^- + 2CO_3^{2-} \rightleftharpoons Zr(OH)_2(CO_3)_2^{2-}$	$\log \beta_{122}^\circ$	$46.9 \pm 0.1$	This study

表 4-2 ジルコニウムの加水分解種及び炭酸錯体の SIT におけるイオン相互作用係数

	Values	Reference
$\varepsilon (Zr^{4+}, NO_3^-)$	0.33	
$\varepsilon (ZrOH^{3+}, NO_3^-)$	0.26	Brown et al., 2005
$\varepsilon (Zr(OH)_2^{2+}, NO_3^-)$	0.16	
$\varepsilon (Zr(OH)_3^+, NO_3^-)$	0	-
$\varepsilon (Zr(OH)_4(aq), NO_3^-)$	0	-
$\varepsilon (Zr(OH)_5^-, Na^+)$	0	-
$\varepsilon (Zr(OH)_6^{2-}, Na^+)$	0	-
$\varepsilon (CO_3^{2-}, Na^+)$	-0.08	Brown et al., 2005
$\varepsilon (HCO_3^-, Na^+)$	0.00	
$\varepsilon (Zr(CO_3)_5^{6-}, Na^+)$	$0.95 \pm 0.18$	This study
$\varepsilon (Zr(CO_3)_4^{4-}, Na^+)$	$0.64 \pm 0.06$ -0.09	This study Brown et al., 2005
$\varepsilon (Zr(OH)_2(CO_3)_2^{2-}, Na^+)$	$-0.01 \pm 0.04$	This study

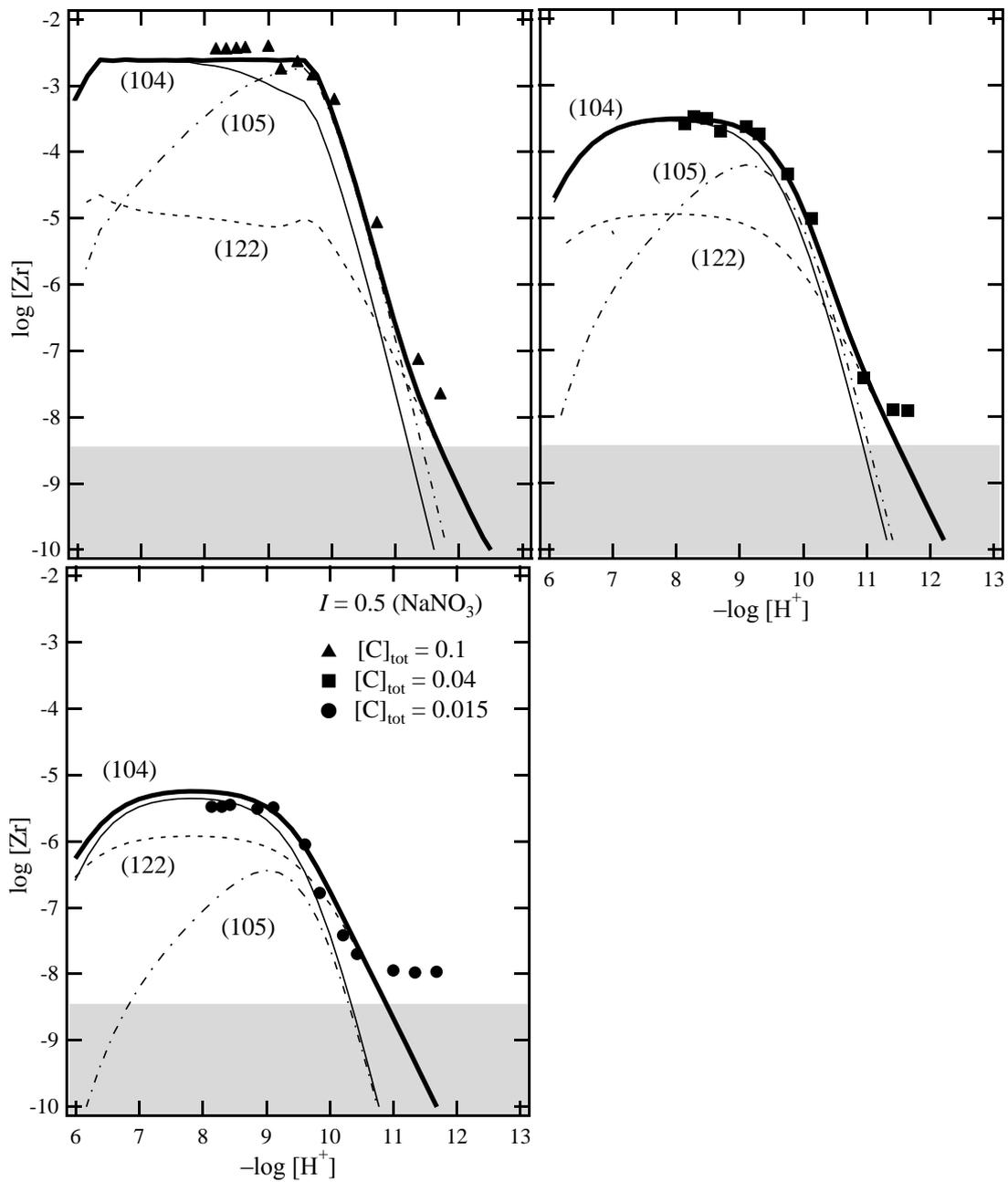


図 4-1 炭酸イオン濃度 ( $[\text{C}]_{\text{tot}}$ ) 0.015, 0.04 及び 0.1 M、イオン強度( $I$ ) 0.5 におけるジルコニウム溶解度実験値及び熱力学計算値

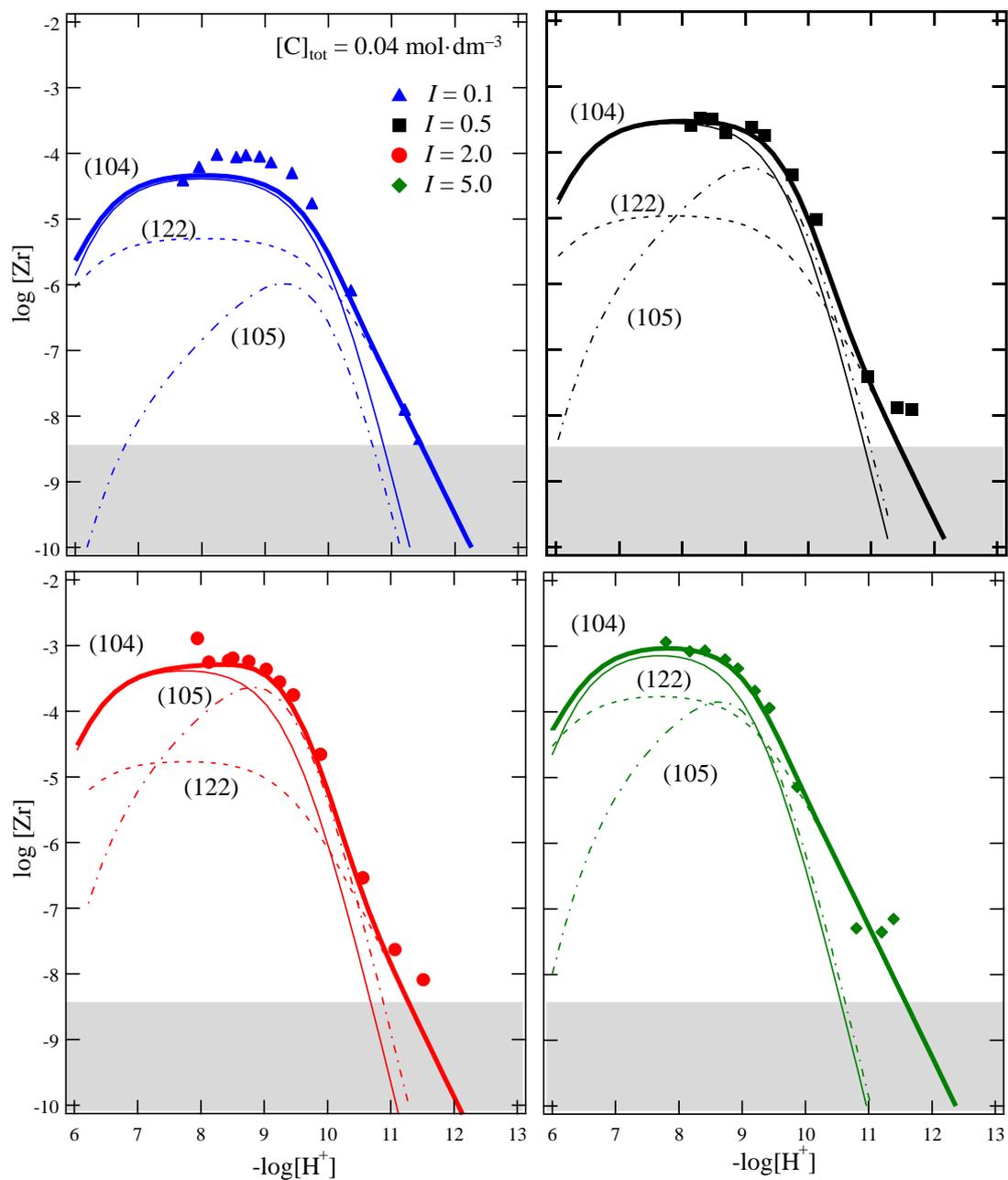


図 4-2 炭酸イオン濃度 ( $[C]_{\text{tot}}$ ) 0.04 M 及びイオン強度 ( $I$ ) 0.1、0.5、2.0 及び 5.0 におけるジルコニウム溶解度実験値及び熱力学計算値

#### 4.2.2 プルトニウム炭酸錯体生成に及ぼす $\text{NaNO}_3$ 濃度影響

##### 4.2.2.1 炭酸イオン共存下におけるプルトニウム溶解度実験

プルトニウムは、平成 27 年度に精製した Pu-239 (100%) の母溶液を用い、実験は京都大学原子炉実験所ホットラボのジュニアケブ室のグローブボックス内で行った。図 4-3 は Pu-239 の精製フローシートを示す。

精製したプルトニウムの母溶液 ( $[\text{Pu}] = \text{約 } 3 \text{ mM}, 8.8 \text{ mL}$ ) に 50 mM 塩酸ヒドロキシルアミン ( $\text{H}_3\text{NO}\cdot\text{HCl}$ , 和光純薬工業, 99%) 1 mL 及び 100 mM 亜硝酸ナトリウム ( $\text{NaNO}_2$ , 和光純薬工業, 98.5%) 1 mL を添加し、プルトニウムの酸化状態を 4 価に調整した。このときのプルトニウム母溶液の UV-Vis スペクトルを図 4-4 に示す。480, 550, 656, 710 及び 800 nm 付近に硝酸溶液中での 4 価プルトニウムの吸光ピークが見られており、また 5 価や 6 価のプルトニウムに相当するピークは確認できなかった。また、480 nm の吸光ピークに対するモル吸光係数 ( $3.031 \text{ g/L}$ ) から母溶液のプルトニウム濃度は 3.84 mM と求められた。

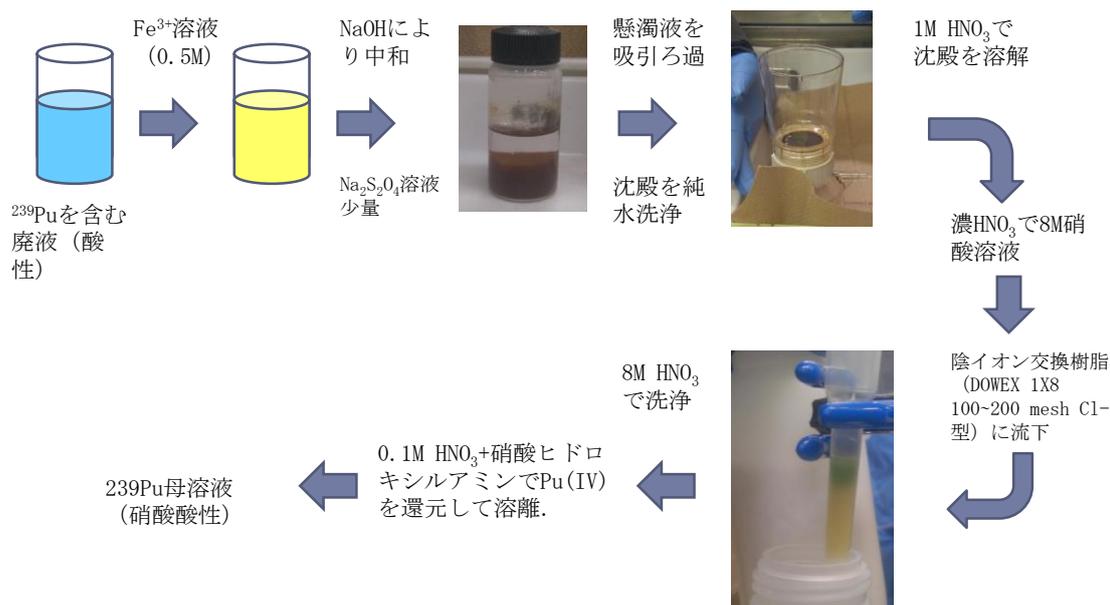


図 4-3  $^{239}\text{Pu}$  の精製フローシート

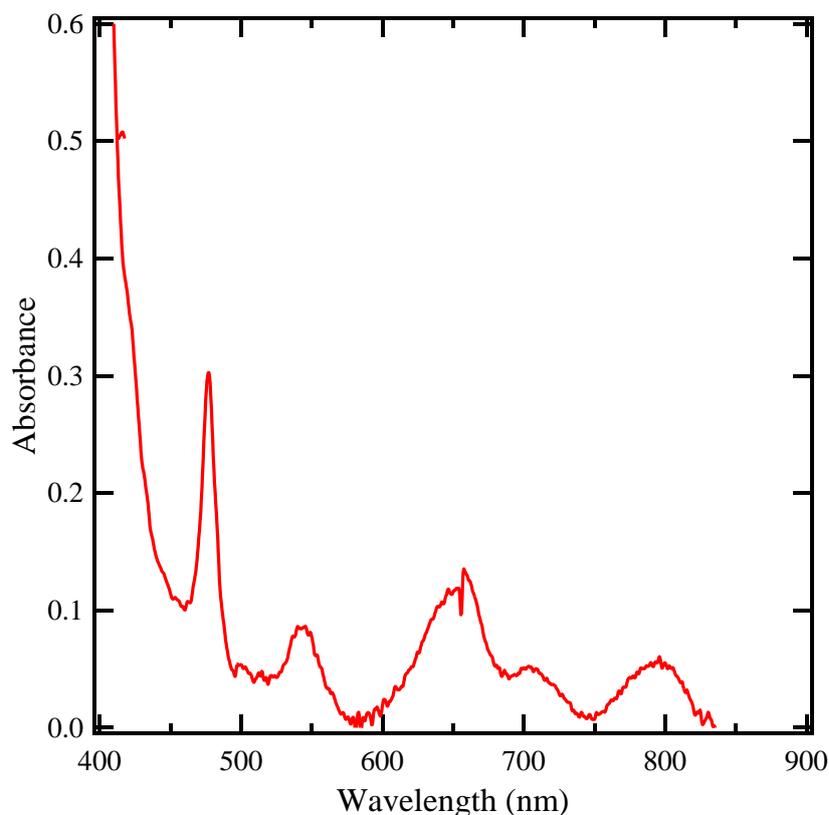


図 4-4 Pu 母溶液の UV-Vis スペクトル

次に、試料溶液を不飽和法により調製するため、4 価プルトニウムの母溶液に水酸化ナトリウム水溶液 (NaOH, 和光純薬工業, 99%) を加え、プルトニウム水酸化物 ( $\text{Pu}(\text{OH})_4(\text{am})$ ) を沈殿させた懸濁母溶液を作成した。プルトニウム水酸化物の懸濁母溶液を PP 製試験管チューブに分取し、予め、硝酸 ( $\text{HNO}_3$ , 和光純薬工業, 99%) または水酸化ナトリウム水溶液により pH、炭酸水素ナトリウム ( $\text{NaHCO}_3$ , 和光純薬工業, 99%) により炭酸イオン濃度 ( $[\text{C}]_{\text{tot}}$ ) 及び硝酸ナトリウム ( $\text{NaNO}_3$ , 和光純薬工業, 99%) によりイオン強度 ( $I$ ) を調整した試料溶液を添加した。このとき、分取したプルトニウム水酸化物の量は、固相が全溶解した場合の濃度が  $1 \times 10^{-4} \text{ M}$  となるようにした。また、還元雰囲気を維持するため、亜ジチオン酸ナトリウムを濃度が 1 mM となるように添加した。調製した試料溶液の一覧を表 4-3 に示す。なお、プルトニウム固相及び試料溶液の調製は全て Ar 雰囲気グローブボックス内 ( $\text{O}_2 < 1 \text{ ppm}$ ) にて行った。

表 4-3 プルトニウム-炭酸試料溶液一覧

Sample No.	目標 pHc	$I$	$\log [C]_{\text{tot}}$	$[\text{NaNO}_3]$ M	Volume (mL)
PCN-1	8	0.1	-2	0.1	8
PCN-2	8	0.1	-1.6	0.1	8
PCN-3	8	0.1	-1.2	0.0	8
PCN-4	8	0.1	-0.8	-0.1	8
PCN-5	8	0.5	-2	0.5	8
PCN-6	8	0.5	-1.6	0.5	8
PCN-7	8	0.5	-1.2	0.4	8
PCN-8	8	0.5	-0.8	0.3	8
PCN-9	8	2	-2	2.0	8
PCN-10	8	2	-1.6	2.0	8
PCN-11	8	2	-1.2	1.9	8
PCN-12	8	2	-0.8	1.8	8
PCN-13	8	2	-0.5	1.7	8
PCN-14	8	5	-2	5.0	8
PCN-15	8	5	-1.6	5.0	8
PCN-16	8	5	-1.4	5.0	8
PCN-17	8	5	-1.2	4.9	8
PCN-18	8	5	-0.9	4.9	8
PCN-19	8.5	0.5	-0.8	0.3	8
PCN-20	9	0.5	-0.8	0.3	8
PCN-21	9.5	0.5	-0.8	0.3	8
PCN-22	10	0.5	-0.8	0.3	8
PCN-23	10.5	0.5	-0.8	0.3	8
PCN-24	11	0.5	-0.8	0.3	8
PCN-25	8.5	2	-0.8	1.8	8
PCN-26	9	2	-0.8	1.8	8
PCN-27	9.5	2	-0.8	1.8	8
PCN-28	10	2	-0.8	1.8	8
PCN-29	10.5	2	-0.8	1.8	8
PCN-30	11	2	-0.8	1.8	8



図 4-5 4価プルトニウム水酸化物の懸濁母溶液

所定の期間後、グローブボックス内にて各試料溶液の水素イオン濃度 (pHc) 及び酸化還元電位 (Eh 値) を測定した。pHc は堀場製作所社製の pH メータ (D-50) 及び温度補償型 pH 複合電極 (9615-10D, 堀場製作所社製) を用いて測定した。pH 電極は、pH 電極校正液 (pH4, 7: 堀場製作所社製) を用いて校正を行った。各イオン強度における校正曲線は、 $\text{NaNO}_3$  によりイオン強度を調整した  $\text{HNO}_3$  及び  $\text{NaOH}$  標準液 (和光純薬工業) 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。Eh 測定には、堀場製作所社製の ORP 電極 (9300-10D, 堀場製作所社製) を用いた。測定値は、 $pe = (Eh \text{ (mV)} + 208) / 1000 / 0.059$  により標準水素電極電位 (N. H. E.) による pe 値に換算した。



図 4-6 4価プルトニウム試料溶液 (PCN-5)

試料溶液の pHc 及び Eh 測定を行った後、上澄み液  $300 \mu\text{l}$  を採取、限外ろ過フィル

ター（10 kDa, 孔径約 3nm, マイクロコン、ミリポア）を用いて限外ろ過した。回収したろ液から 20  $\mu$ l を分取し、ステンレス製パンの上で赤外線ランプにより乾固させ、 $\alpha$ 線スペクトロメトリ用の試料とした。

$\alpha$ 線測定にはキャンベラジャパン社製のアルファスペクトロメータ（7401 型）及びアルファ PIPS 検出器（A1200-32AM）を用いた。まず、アルファ線測定におけるエネルギー校正及び検出効率補正を行うため、 $^{241}\text{Am}$ （ $\alpha$ 線 5.486MeV, 85.1%）の標準線源を測定した。次に、プルトニウム試料の  $\alpha$ 線（Pu-239 ; 5.244MeV, 100%）を測定し、検出効率からろ液に含まれるプルトニウム濃度を決定した。このとき、プルトニウム濃度の検出限界はおよそ  $1 \times 10^{-8}$  M であった。

#### 4.2.2.2 結果と考察

全炭酸イオン濃度 0.16 M における 3、8 および 21 週間後のプルトニウム試料溶液の pHc 及び Eh 値を図 4-8、10kDa フィルターろ過後の溶解度を図 4-8 に示す。なお、図中の灰色で示した網掛け領域は、 $\alpha$ 線スペクトロメトリにおいて、バックグランドと非常に近いカウント数から得られた濃度（検出限界）であることを示す。pHc 及び Eh は 3、8 及び 21 週間後でほぼ同じ値を示しており、試料溶液の雰囲気は、4 価プルトニウムが支配的な領域に維持されていることが分かった。図 4-8 に示すようにプルトニウムの溶解度についても 3、8 及び 21 週間後でほぼ同じ値を示し、いずれのイオン強度でも pHc 9~10 にかけて増加し、pHc 10 以降では単調に減少する傾向が表れた。また、イオン強度  $I = 2.0$  の溶解度は、 $I = 0.5$  の溶解度よりわずかに高い値を示した。中性 pH から弱アルカリ性 pH 領域における 4 価プルトニウム水酸化物の溶解度は、 $10^{-10}$  M 程度と報告されており（Rai et al., 1999）、4 価プルトニウムの炭酸錯体を形成することによって見かけの溶解度が上昇したと考えられる。

図 4-9 に  $I = 0.1 \sim 5.0$  において、炭酸イオン濃度を  $\log[C]_{\text{tot}} = -2 \sim -0.5$  まで変化させた場合の pH-Eh 値を示す。pH 及び Eh 測定値に対する顕著なイオン強度依存性は見られず、4 価プルトニウムが支配的であることが示唆された。図 4-10 にイオン強度毎の溶解度の炭酸濃度依存性を示す。プルトニウム溶解度 ( $\log [\text{Pu}]$ ) は、炭酸イオン濃度 ( $\log [C]_{\text{tot}}$ ) に対して傾きおよそ 4 で増加する傾向を示し、特に炭酸イオン濃度が低い場合、プルトニウム溶解度のイオン強度依存性はより顕著に表れる結果となった。図 4-11 は平成 27 年度に得られた炭酸イオン共存下でのジルコニウム溶解度をプルトニウム溶解度と比較した結果を示す。0.16 M 炭酸イオン共存下でのプルトニウムの溶解度は、ジルコニウムのそれと比較して 3 桁程度低い値を示す結果となった。

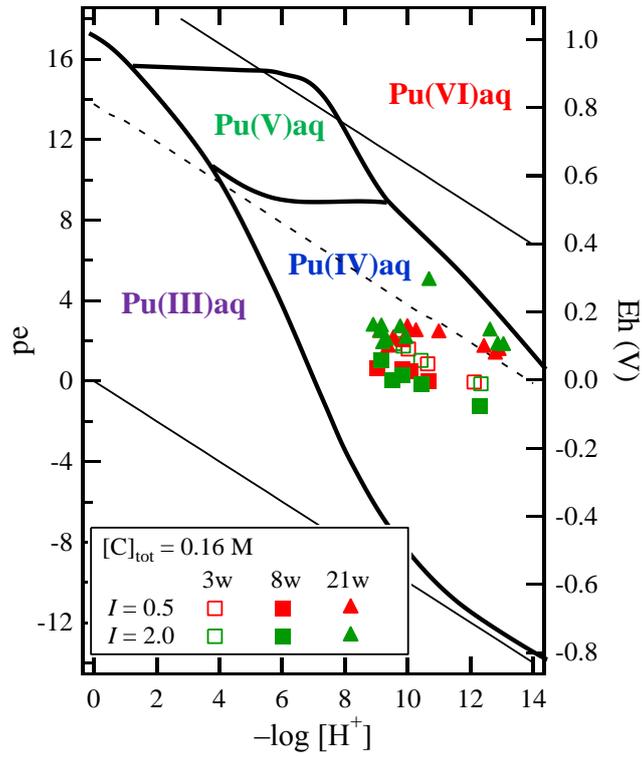


図 4-7 炭酸イオン (0.16 M) 共存下における 4 価プルトニウムの pHc 及び Eh 値

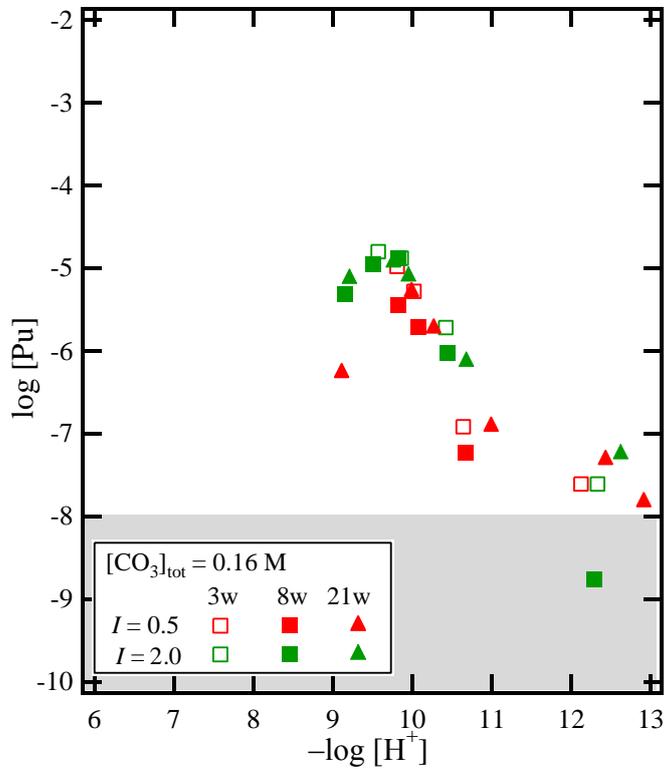


図 4-8 炭酸イオン (0.16 M) 共存下における 4 価プルトニウム溶解度

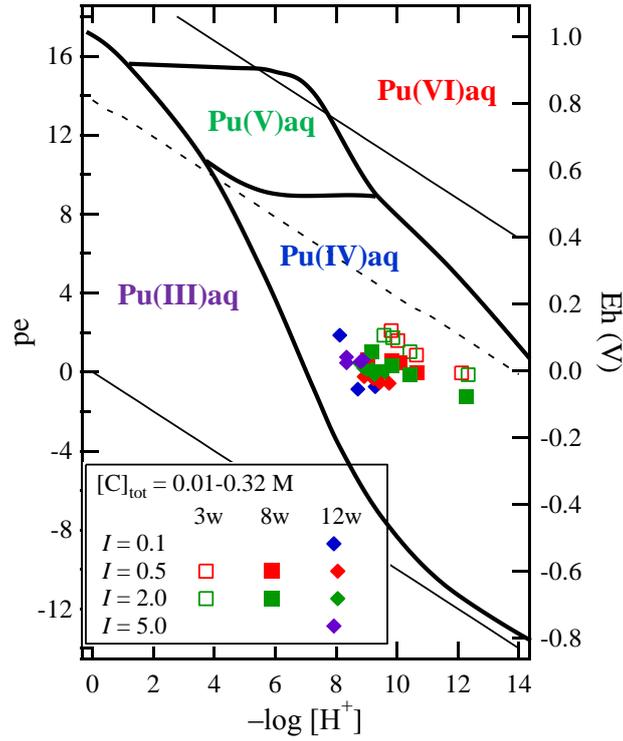


図 4-9 炭酸イオン (0.01-0.32 M) 共存下における 4 価プルトニウムの pHc 及び Eh 値

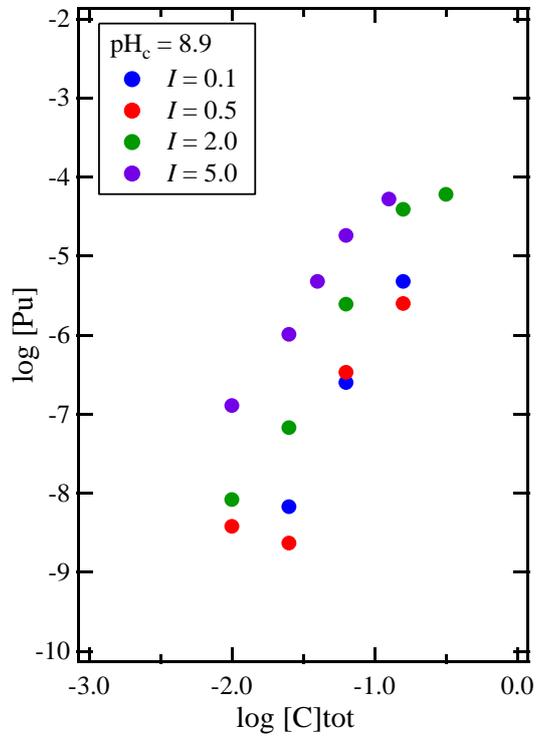


図 4-10 pHc 8.9 における 4 価プルトニウム溶解度の炭酸濃度依存性

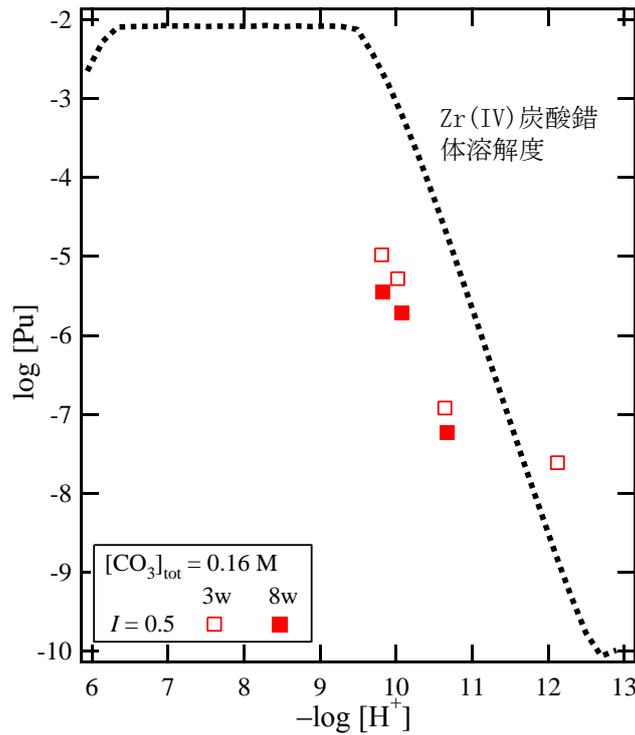
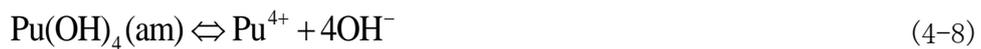


図 4-11 炭酸イオン (0.16 M) 共存下における 4 価プルトニウム及びジルコニウム溶解度の比較

得られたプルトニウム溶解度の pH 依存性及び炭酸イオン濃度依存性から、溶解度データに対して熱力学データに基づく解析を行った。4 価ジルコニウムは 4 価プルトニウムと類似した化学的挙動を示すアナログ元素であることから、本研究では、炭酸イオン共存下でのジルコニウム溶解度を解析した際に仮定した炭酸錯体と同種の錯体をプルトニウムに対しても仮定することとした。

まず、溶解度制限固相を  $\text{Pu}(\text{OH})_4(\text{am})$  とし、プルトニウムイオン ( $\text{Pu}^{4+}$ ) の濃度を溶解度積 ( $K_{\text{sp}4}$ ) により下式で表す。



$$K_{\text{sp}4} = [\text{Pu}^{4+}][\text{OH}^-]^4 \quad (4-9)$$

また、炭酸イオン濃度 ( $[\text{CO}_3^{2-}]$ ) は、全炭酸濃度 ( $[\text{CO}_3]_{\text{tot}}$ ) を用いて下式で表される。

$$[C]_{\text{tot}}=[\text{H}_2\text{CO}_3]+[\text{HCO}_3^-]+[\text{CO}_3^{2-}] \quad (4-10)$$

$$[\text{CO}_3^{2-}]=\frac{[C]_{\text{tot}}}{(10^{-(2 \times \text{pHc} + \text{pKa}_1 + \text{pKa}_2)} + 10^{-(\text{pHc} + \text{pKa}_2)} + 1)} \quad (4-11)$$

ここで、 $\text{pKa}_1$  及び  $\text{pKa}_2$  は炭酸イオンの解離定数 ( $\text{pKa}_1=6.35$ 、 $\text{pKa}_2=10.33$ 、 $I=0$ ) であり、SITにより各イオン強度での値に補正して用いた。

4価ジルコニウムの場合、溶解度の pH 依存性及び炭酸イオン濃度の依存性から、炭酸錯体として  $\text{Zr}(\text{CO}_3)_4^{4-}$ 、 $\text{Zr}(\text{CO}_3)_5^{6-}$  及び  $\text{Zr}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_2^{2-}$  を仮定した。そこで、4価プルトニウムの炭酸錯体として、以下の式で表される同種の錯体を仮定した。



$$\beta_{104} = \frac{[\text{Pu}(\text{CO}_3)_4^{4-}]}{[\text{Pu}^{4+}][\text{CO}_3^{2-}]^4} \quad (4-13)$$



$$\beta_{105} = \frac{[\text{Pu}(\text{CO}_3)_5^{6-}]}{[\text{Pu}^{4+}][\text{CO}_3^{2-}]^5} \quad (4-15)$$



$$\beta_{122} = \frac{[\text{Pu}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_2^{2-}]}{[\text{Pu}^{4+}][\text{OH}^-]^2[\text{CO}_3^{2-}]^2} \quad (4-17)$$

また、4価プルトニウムの加水分解種として、 $\text{Pu}(\text{OH})_m^{(4-m)+}$  ( $m = 1-6$ ) を考慮した。このとき、プルトニウムの溶解度 ( $[\text{Pu}]_{\text{tot}}$ ) は、下式で表される。

$$\begin{aligned}
[\text{Pu}]_{\text{tot}} &= \sum_m [\text{Pu}(\text{OH})_m^{4-m}] + \sum_{x,y} [\text{Pu}(\text{OH})_x(\text{CO}_3)_y^{4-x-2y}] \\
&= K_{\text{sp4}} / [\text{OH}^-]^4 \left( 1 + \sum_m \beta_{1m0} [\text{OH}^-]^m + \sum_{x,y} \beta_{1xy} [\text{OH}^-]^x [\text{CO}_3^{2-}]^y \right)
\end{aligned}
\tag{4-18}$$

また、溶解度積およびそれぞれの錯生成定数の値は、下式で示すように SIT 法によりイオン強度補正を行った。

$$\begin{aligned}
\log K_{\text{sp4}} &= \log K_{\text{sp4}}^\circ + \log \gamma_{\text{Pu}^{4+}} + 4 \log \gamma_{\text{OH}^-} \\
&= \log K_{\text{sp4}}^\circ + 20D - \left\{ \varepsilon(\text{Pu}^{4+}, \text{NO}_3^-) + 4\varepsilon(\text{OH}^-, \text{Na}^+) \right\} \cdot I_m
\end{aligned}
\tag{4-19}$$

$$\begin{aligned}
\log \beta_{1xy} &= \log \beta_{1xy}^\circ + \log \gamma_{\text{Pu}(\text{OH})_x(\text{CO}_3)_y^{4-x-2y}} - (\log \gamma_{\text{Pu}^{4+}} + x \log \gamma_{\text{OH}^-} + y \log \gamma_{\text{CO}_3^{2-}}) \\
&= \log \beta_{1xy}^\circ - \left\{ (4-x-2y)^2 - 16 - x - 4y \right\} D \\
&\quad - \left\{ \varepsilon(\text{Pu}(\text{OH})_x(\text{CO}_3)_y^{4-x-2y}, \text{Na}^+) - \varepsilon(\text{Pu}^{4+}, \text{NO}_3^-) - x\varepsilon(\text{OH}^-, \text{Na}^+) - y\varepsilon(\text{CO}_3^{2-}, \text{Na}^+) \right\} \cdot I_m
\end{aligned}
\tag{4-20}$$

異なる pHc、炭酸イオン濃度及びイオン強度下で得られたプルトニウム溶解度の実験値を、(4-18)～(4-20)を用いて最小二乗法により解析し、パラメータ値を決定した。ここで、表 4-4 に示すように、 $\text{Pu}(\text{OH})_4(\text{am})$  の溶解度積  $K_{\text{sp4}}$ 、加水分解定数  $\beta_{1m0}$  及び炭酸錯体の錯生成定数  $\beta_{1m0}$  は、文献値を用い、SIT 法におけるイオン相互作用係数  $\varepsilon$  の値をフリーパラメータとして求めた (表 4-5)。このとき、1:4 錯体である  $\text{Pu}(\text{CO}_3)_4^{4-}$  のイオン相互作用係数  $\varepsilon$  の誤差が非常に大きくなったため、 $\text{Pu}(\text{CO}_3)_4^{4-}$  の存在を除き、 $\text{Pu}(\text{CO}_3)_5^{6-}$  及び  $\text{Pu}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_2^{2-}$  の存在のみを仮定して再解析を行い、それぞれのイオン相互作用係数を求めることとした。得られたイオン相互作用係数の値は、それぞれ  $\varepsilon(\text{Pu}(\text{CO}_3)_5^{6-}, \text{Na}^+) = 0.45 \pm 0.37$  及び  $\varepsilon(\text{Pu}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_2^{2-}, \text{Na}^+) = -0.07 \pm 0.10$  となった。3 元錯体である  $\text{Pu}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_2^{2-}$  の  $\varepsilon$  の値は、これまで報告されている他の 4 価アクチノイドの  $\text{An}(\text{IV})(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_2^{2-}$  の  $\varepsilon$  値と近い値を示し、また 4.2.1 において報告したジルコニウムの結果とも概ね同じ値となった。

図 4-12 にプルトニウム溶解度の炭酸濃度依存性の実験値及び熱力学計算結果を示す。イオン強度の高いほど溶解度が高い実験の結果が再現されるような溶解度の熱力学計算結果が得られている。また、種々のカチオン、アニオンの組み合わせによる SIT のイ

オン相互作用係数の値 (Guillaumont et al., 2005) を図 4-13 に整理した。正電荷を持つ錯体では、一般に電荷の値が大きくなるほど、イオン相互作用係数の値も大きくなるような傾向がこれまでに見られている。一方、負電荷を持つ錯体では、負の値を持つイオン相互作用係数がこれまで報告されてきたが、前年度および今年度を実施したジルコニウム及びプルトニウムの炭酸錯体 ( $Zr(CO_3)_4^{4-}$ ,  $Zr(CO_3)_5^{6-}$  及び  $Pu(CO_3)_5^{6-}$ ) のイオン相互作用係数は、既報値とは異なり正の値を示す結果となった。

表 4-4 プルトニウム加水分解種及び炭酸錯体の錯生成定数 ( $I = 0$ )

Reaction	$\log K^0$	Reference
$Pu(OH)_4(am) \Leftrightarrow Zr^{4+} + 4OH^-$	-56.85	Rai et al., 1999
$Pu^{4+} + OH^- \Leftrightarrow PuOH^{3+}$	14.6	
$Pu^{4+} + 2OH^- \Leftrightarrow Pu(OH)_2^{2+}$	28.6	
$Pu^{4+} + 3OH^- \Leftrightarrow Pu(OH)_3^+$	39.7	
$Pu^{4+} + 4OH^- \Leftrightarrow Pu(OH)_4(aq)$	47.8	Guillaumont et al., 2005
$Pu^{4+} + 4CO_3^{2-} \Leftrightarrow Pu(CO_3)_4^{4-}$	-	
$Pu^{4+} + 5CO_3^{2-} \Leftrightarrow Pu(CO_3)_5^{6-}$	35.65	
$Pu^{4+} + 2OH^- + 2CO_3^{2-} \Leftrightarrow Pu(OH)_2(CO_3)_2^{2-}$	44.76	

表 4-5 プルトニウム加水分解種及び炭酸錯体のイオン相互作用係数

Species	Values	Reference
$\epsilon (Pu^{4+}, NO_3^-)$	0.82	Guillaumont et al., 2005
$\epsilon (PuOH^{3+}, NO_3^-)$	0.50	Guillaumont et al., 2005
$\epsilon (Pu(OH)_2^{2+}, NO_3^-)$	0.52	Fujiwara et al., 2005
$\epsilon (Pu(OH)_3^+, NO_3^-)$	0.23	Fujiwara et al., 2005
$\epsilon (Pu(OH)_4(aq), NO_3^-)$	0	-
$\epsilon (Pu(CO_3)_4^{4-}, Na^+)$	-	
$\epsilon (Pu(CO_3)_5^{6-}, Na^+)$	$0.45 \pm 0.37$	This study
$\epsilon (Pu(OH)_2(CO_3)_2^{2-}, Na^+)$	$-0.07 \pm 0.10$	This study

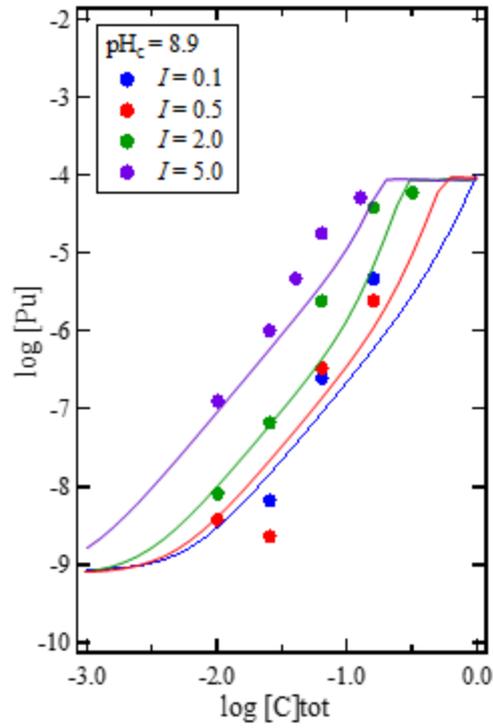


図 4-12 pHc 8.9 における 4 価プルトニウム溶解度の炭酸濃度依存性の熱力学計算結果

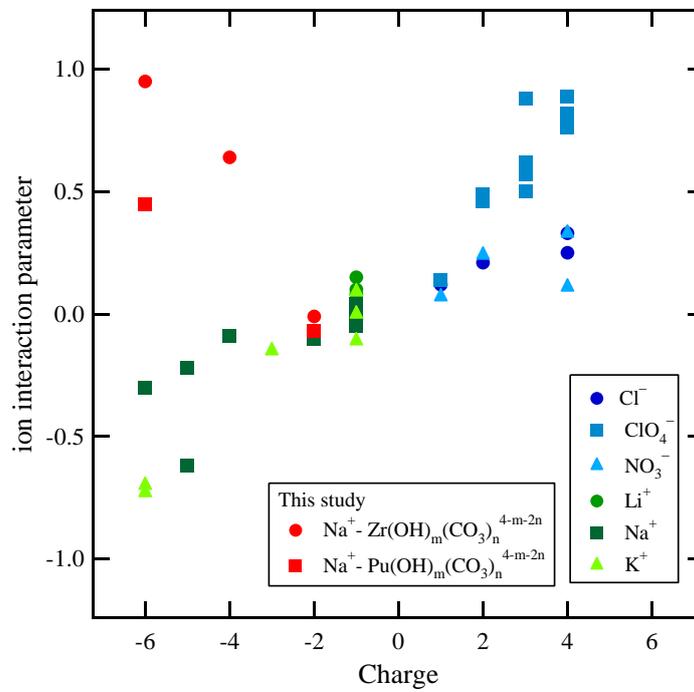


図 4-13 SIT におけるイオン相互作用係数の比較

#### 4.2.2 4 価金属水酸化物コロイド挙動の熱力学的検討

##### 4.2.2.1 Zr 水酸化物コロイドのゼータ電位測定

試料溶液の調製は平成 27 年度と同様、過飽和法により、Ar 雰囲気グローブボックス内 ( $O_2 < 0.1 \text{ ppm}$ ) にて行った。塩化ジルコニウム ( $ZrCl_4$ , Aldrich, 99%) を超純水 (Milli-Q, Millipore) に溶解し、水酸化ナトリウム (NaOH, 和光純薬工業, 99%) 水溶液を加えてアモルファス水酸化物固相を沈殿させた。超純水により沈殿を数回洗浄した後、硝酸 ( $HNO_3$ , 和光純薬工業, 99%) に溶解し、ジルコニウム母溶液 ( $[Zr]=0.32 \text{ M}$ ) とした。500 mL テフロンビーカーに母溶液 14 mL、5.0 M 硝酸ナトリウム水溶液 9 mL 及び超純水を加え、全量を 450 mL (ジルコニウム初期濃度は 0.01 M、硝酸ナトリウム濃度は 0.1 M) とした。スターラーで攪拌しながら、水酸化ナトリウム水溶液を添加し、溶液の pHc を 2 から 12.5 まで調整し、所定の pHc において 50 mL 遠沈管に 30mL ずつ分取し、試料溶液とした。また、同様の手順により、硝酸ナトリウム濃度を 0.01 M とした試料溶液を調製した。このとき、ジルコニウムの初期濃度は 0.001 M とし、イオン強度は  $I = 0.03$  となった。

調製した試料溶液は、真空容器に入れ、1 カ月間、振とう攪拌装置を用いて攪拌した。グローブボックス内にて試料溶液の pHc を測定した後、それぞれ 1mL を採取し、ゼータサイザー ナノ ZS (Malvern) を用いて上澄み液の電気泳動移動度 ( $u = V/E (\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1} / \text{V}\cdot\text{cm}^{-1})$ )、 $V$ : 電気泳動速度、 $E$ : 外部電場の大きさ) を測定し、Smoluchowski の近似式を用いてゼータ電位を求めた。なお、測定は一つの試料に対して 3 回繰り返す、その平均値をゼータ電位測定値とした。

##### 4.2.2.2 結果と考察

図 4-14 に  $I = 0.03 \sim 2.0 \text{ M}$  の硝酸ナトリウム水溶液中におけるジルコニウム水酸化物コロイドのゼータ電位の測定結果を示す。 $I = 0.03$  及び 0.1 M では酸性 pH 領域及びアルカリ性 pH 領域において、ゼータ電位の絶対値はイオン強度が低くなるほど大きくなる傾向を示した。また、 $I = 0.03$  及び 0.1 M においても、 $I = 0.5$  及び 2.0 M の場合と同様、ゼータ電位の値は、pH の増加とともに減少する傾向が見られているが、中性 pH 領域ではゼータ電位の値が顕著に低下することが分かった。

平成 27 年度と同様、得られたゼータ電位の pH 及びイオン強度に対する変化傾向を加水分解定数など既存の熱力学データを基に解釈することを試みた。ジルコニウムの単核加水分解反応は以下の式で表され、 $25^\circ\text{C}$ 、 $I = 0$  におけるそれぞれの加水分解定数は既往文献により報告されている。

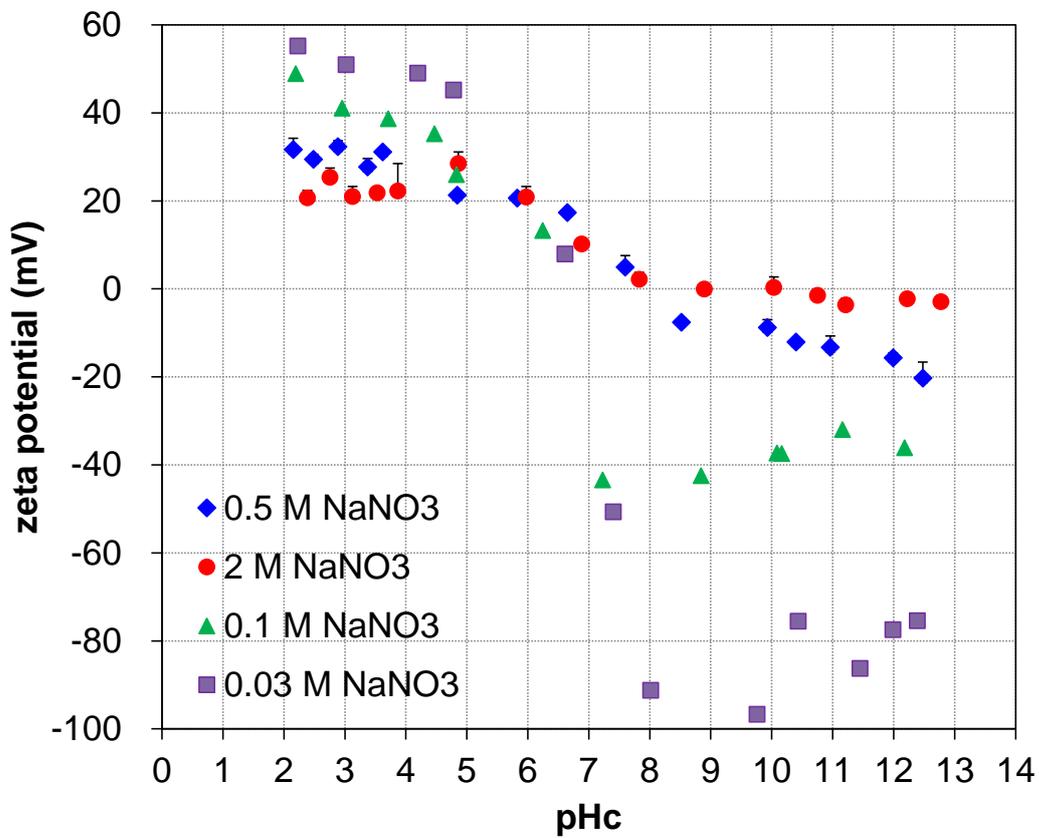
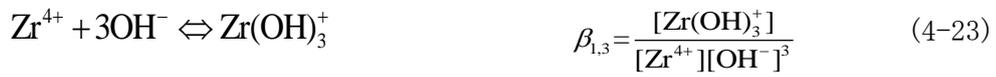
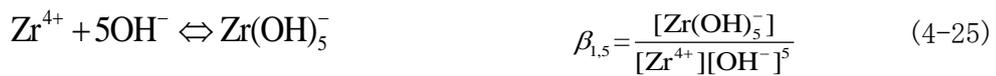


図 4-14 硝酸ナトリウム溶液中におけるジルコニウム水酸化物コロイドのゼータ電位



SIT法により  $I = 0.03 \sim 2.0$  におけるそれぞれの加水分解定数を計算し、その存在割合でそれぞれの加水分解種の形式電荷を重み付けし、水酸化物コロイドの平均電荷  $Z$  を計算した。

$$Z = 4r_{Zr^{4+}} + 3r_{ZrOH^{3+}} + 2r_{Zr(OH)_2^{2+}} + r_{Zr(OH)_3^+} - r_{Zr(OH)_5^-} - 2r_{Zr(OH)_6^{2-}} \quad (4-27)$$

ここで、 $r_{Zr(OH)_n(4-n)^+}$  はそれぞれの加水分解種の存在割合を示す。求められた水酸化物コロイドの平均電荷  $Z$  を pH の関数として図 4-15 に表す。

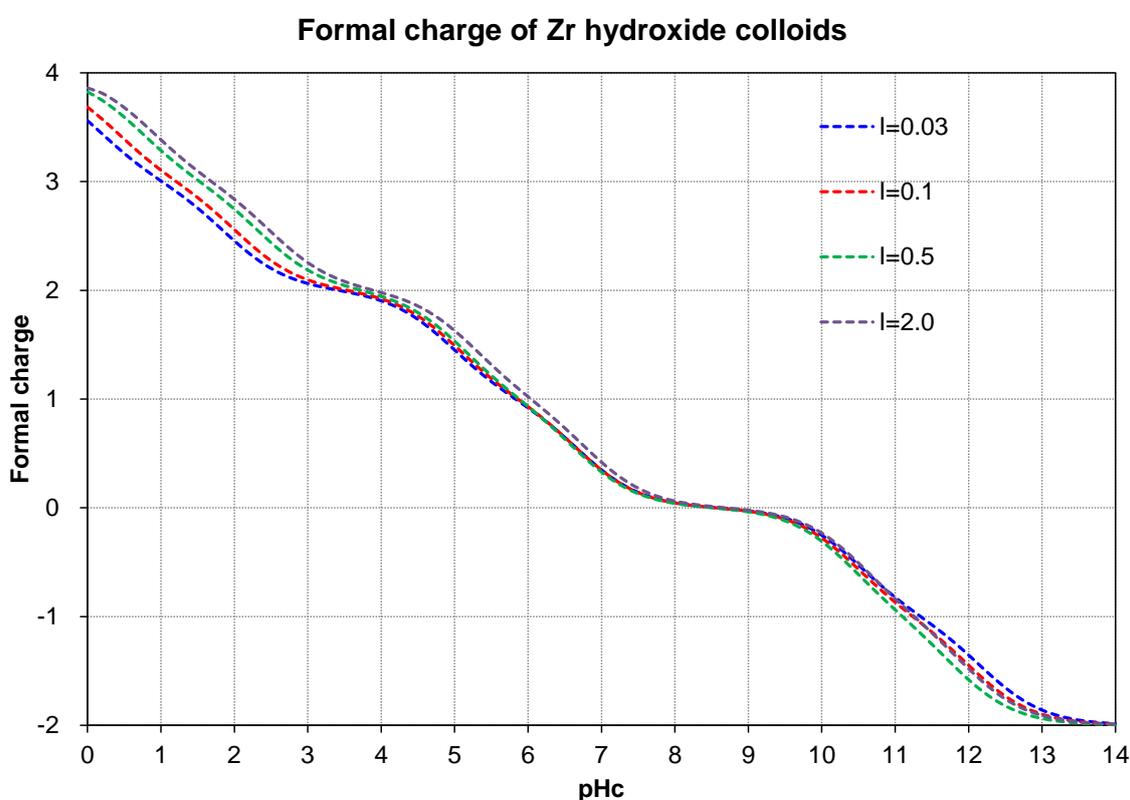


図 4-15 ジルコニウム水酸化物コロイドの平均電荷 ( $I = 0.03 \sim 2.0$ )

既往研究における粒径分布測定の結果より水酸化物コロイドは単核加水分解種に対して十分大きいと考えられたことから、水酸化物コロイドの表面を平板状に並んだ単核加水分解種から構成されるものと近似的に仮定した。単核加水分解種を、平均電荷  $Z$  を持つ半径  $r_0$  の球体とし、単核加水分解種の寄与によりコロイド表面に現れるゼータ電位 ( $\Phi_\zeta$ ) を以下の式で表した。 $I = 0.03 \sim 2.0$  では、ゼータ電位の実験値に大きなイオン強度依存性が見られたことから、ここでは新たに電気二重層を仮定し、 $\kappa$  を (4-22) 式で表される電気二重層厚さ、 $x_\zeta$  をすべり面までの厚さとした。

$$\Phi_{\zeta} = \frac{e(Z + \Delta z)}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r r_0 f} \exp(\kappa x_{\zeta}) \quad (4-28)$$

$$\kappa = \sqrt{\frac{2nz^2e^2}{\epsilon_0\epsilon_r kT}} \quad (4-29)$$

e は素電荷、 $\epsilon_0$  は真空中の誘電率、 $\epsilon_r$  は水の比誘電率とし、水酸化物コロイド内部に取り込まれた溶媒イオンの効果を  $\Delta z$ 、水酸化物コロイドを形成する単核加水分解種間の平均距離の  $r_0$  に対する比を  $f$  で表した。

図 4-14 に示す  $I = 0.03 \sim 2.0$  のゼータ電位の実験値に対して、 $\Delta z$ 、 $f$  及び  $x_{\zeta}$  をフリーパラメータとする最小二乗法による解析を試みたが、 $f$  と  $x_{\zeta}$  を同時に決定することは困難であったため、 $f=1$  とし、 $\Delta z$  及び  $x_{\zeta}$  のみをフリーパラメータとする解析を行い、それぞれの値を求めた、得られた結果を図 4-16 および表 4-6 に示す。

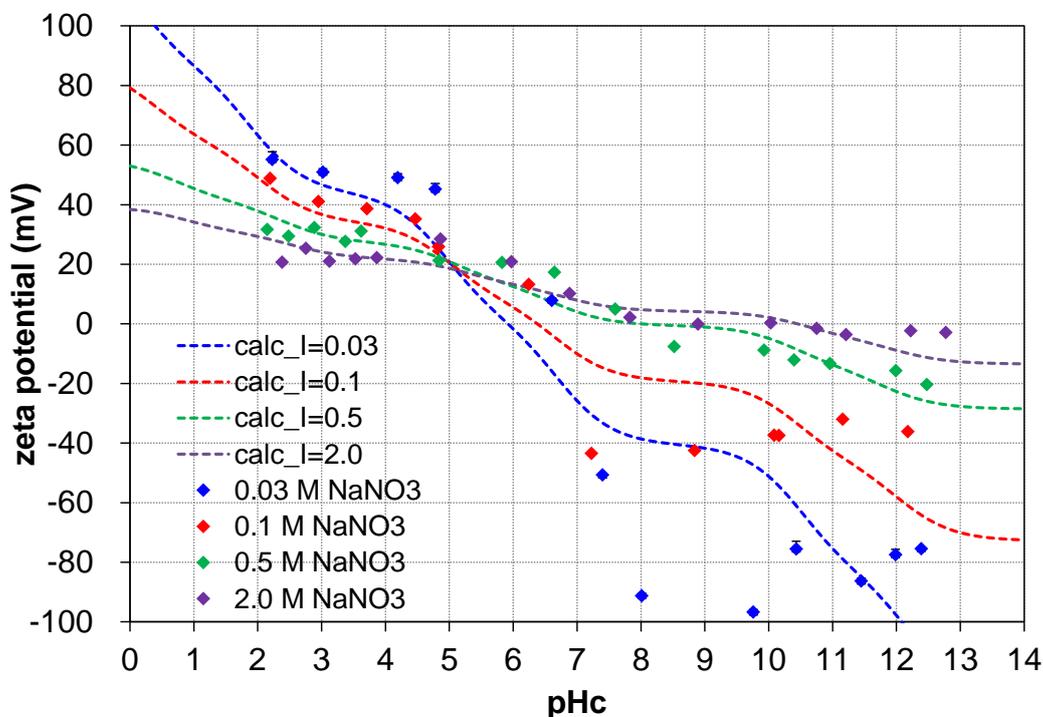


図 4-16 ジルコニウム水酸化物コロイドのゼータ電位の実験値と計算値 ( $I=0.03 \sim 2.0$ )

表 4-6 ゼータ電位の解析により得られたパラメータ値

	<i>I</i>			
	0.03	0.1	0.5	2.0
$\Delta z$	0.96	0.72	0.04	-0.48
<i>f</i>	1.00	1.00	1.00	1.00
$X_{\zeta}$ (nm)	0.98	0.97	0.71	0.45

すべり面までの距離  $x_{\zeta}$  は、イオン強度が高くなるほど小さくなっており、高イオン強度ほど電解質によってすべり面が圧縮される効果が表れていると考えられた。ただし、(4-22)式より、 $I = 0.03$  及び  $2.0$  での電気二重層厚さを計算すると、それぞれ  $1.7$  nm、 $0.2$  nm となり、特に高イオン強度では  $x_{\zeta}$  の値が電気二重層厚さよりも厚いという過大評価されるような傾向となった。また、コロイド内部に取り込まれたイオンの効果とした  $\Delta z$  はイオン強度が高くなるほど小さくなる傾向を示しており、これらパラメータ値の解釈が今後の課題と考えられる。

#### 4.2.3 硝酸イオンによる酸化反応の影響

##### 4.2.3.1 還元剤共存下での $\text{NaNO}_3$ 及び $\text{NaNO}_2$ 濃度測定

平成 27 年度までの検討では、硝酸イオンを含む試料溶液の pH 及び Eh 値を測定したが、その値に硝酸イオンによる影響は見られなかった。そこで、平成 28 年度は、pH 及び Eh 値を測定するとともに、硝酸イオンの濃度変化を直接調べることによって硝酸イオンの酸化剤としての働きについて検討するとした。中性及びアルカリ性 pH 領域において、硝酸イオンによる酸化反応が起こった場合、硝酸イオン自身は、下式のように亜硝酸イオン、アンモニアイオンに段階的に還元されるとされている。



還元剤として、ヒドロキノン ( $\text{C}_6\text{H}_4(\text{OH})_2$ )、亜ジチオン酸ナトリウム ( $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ )、塩化スズ(II) ( $\text{Sn}(\text{II})\text{Cl}_2$ ) 及び鉄粉 ( $\text{Fe}(0)$ ) を用い、これらを共存させた硝酸ナトリウム水溶液及び亜硝酸ナトリウム水溶液中の亜硝酸イオンの濃度を測定することとした。

試料溶液の調製は Ar 雰囲気グローブボックス内 ( $\text{O}_2 < 0.1$  ppm) にて行った。硝酸

ナトリウム (NaNO<sub>3</sub>, 和光純薬工業, 99%) 及び亜硝酸ナトリウム (NaNO<sub>2</sub>, 和光純薬工業, 99%) を用いてそれぞれの濃度が 5.0 M 及び 0.1 M となる母溶液と調製した。5.0 M 硝酸ナトリウム母溶液を希釈し、水酸化ナトリウムまたは硝酸により pH を 8 または 12 となるようにした。さらに、還元剤として上述したヒドロキノン (C<sub>6</sub>H<sub>4</sub>(OH)<sub>2</sub>, 和光純薬工業, 99%)、亜ジチオン酸ナトリウム (Na<sub>2</sub>S<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, 和光純薬工業, 99%)、塩化スズ(II) (Sn(II)Cl<sub>2</sub>, 和光純薬工業, 99%) 及び鉄粉 (Fe(0), 和光純薬工業, 99%) を所定量ずつ加え、全量が 30mL となるようにした。なお、このときの硝酸ナトリウム濃度は 0.1 M とし、各還元剤の濃度または量は表 4-7 に示す通りとした。亜硝酸イオンを出発物質とする実験では、0.1 M 亜硝酸ナトリウム母溶液をその濃度が 0.01 M となるように希釈し、水酸化ナトリウムまたは硝酸により pH を 8 または 12 に調整した。還元剤として、ヒドロキノン、亜ジチオン酸ナトリウム、塩化スズ(II) 及び鉄粉 (Fe(0)) を所定量ずつ加え、全量が 30mL となるようにした。表 4-7 に試料溶液条件を示す。

各試料溶液は、Ar 雰囲気グローブボックス内にて所定の期間静置した後、水素イオン濃度 (pHc) 及び標準酸化還元電位 (Eh 値) を測定した。pHc は堀場製作所社製の pH メータ (D-50) 及び温度補償型 pH 複合電極 (9615-10D, 堀場製作所社製) を用いて測定した。pH 電極は、pH 電極校正液 (pH4, 7: 堀場製作所社製) を用いて校正を行った。各イオン強度における校正曲線は、NaNO<sub>3</sub> によりイオン強度を調整した HNO<sub>3</sub> 及び NaOH 標準液 (和光純薬工業) 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。Eh 測定では、メトローム社製の pH メータ 826 型及び複合白金リング電極を用い、キンヒドロン標準液 (+256 mV, 25°C, 堀場製作所社製) により校正した。測定 Eh の値は、 $pe = (Eh + 208) / 1000 / 0.059$  により標準水素電極電位 (N. H. E.) による pe 値に換算した。

表 4-7 硝酸ナトリウム及び亜硝酸ナトリウム還元実験の試料溶液条件

項目	条件
硝酸イオン/亜硝酸イオン 初期濃度	0.1 M (NaNO <sub>3</sub> ) または 0.01 M (NaNO <sub>2</sub> )
還元剤	ヒドロキノン: $1 \times 10^{-3}$ M Na <sub>2</sub> S <sub>2</sub> O <sub>4</sub> : $1 \times 10^{-3}$ M Sn(II): $1 \times 10^{-3}$ M Fe(0): 30 mg / 10 mL
目標 pHc	8.0 および 12.0

試料溶液の pH 及び Eh の値を測定した後、上澄み液 1mL を分取し、上澄み液に含まれる亜硝酸イオンの濃度をナフチルエチレンジアミン吸光光度法 (NEDA 法) により定量した。NEDA 法は、亜硝酸イオンを含む試料溶液にスルファニルアミドを加え、ジアゾニウム塩を生成した後、ナフチルエチレンジアミンを加えてジアゾカップリング反応を起こすことでアゾ化合物を生成させる方法である。生成したアゾ化合物は 540nm に吸光ピークを有するため、吸光度によって亜硝酸イオンを定量することができる。実験では、塩酸酸性スルファニルアミド塩酸溶液 (5 g/L) ( $C_6H_8N_2O_2S$ , 和光純薬工業, 99%) 500  $\mu$ L、N-1-ナフチルエチレンジアミン二塩酸塩溶液 (1 g/L) ( $C_{10}H_7NHCH_2CH_2NH_2 \cdot 2H$ , 和光純薬工業, 95.0%) 250  $\mu$ L 及び超純水 3750  $\mu$ L を加えた溶液に試料溶液 500  $\mu$ L を添加した。このとき、試料溶液は必要に応じて希釈した。1 時間程度放置した後、光路長 1m のセルを用いて、紫外可視分光光度計 (SEC2000-UV/VIS スペクトロメーターシステム, ビー・エー・エス) により 540nm に表れる吸光ピークを観察した。試料溶液の測定に先立ち、亜硝酸イオン標準液 (1000ppm, 和光純薬工業, 99%) を希釈し、540 nm に表れる吸光度を測定することで、モル吸光係数を求めた。

#### 4.2.3.2 結果と考察

亜硝酸イオン濃度 0.1~10ppm の範囲に調整した標準溶液の NEDA 法による UV-Vis スペクトルを 図 4-18 に示す。図 4-19 に示すように、540 nm の吸光度と亜硝酸イオン濃度の間には比例関係が成り立つことが確認でき、得られた関係式から試料溶液中の亜硝酸イオン濃度を定量することとした。

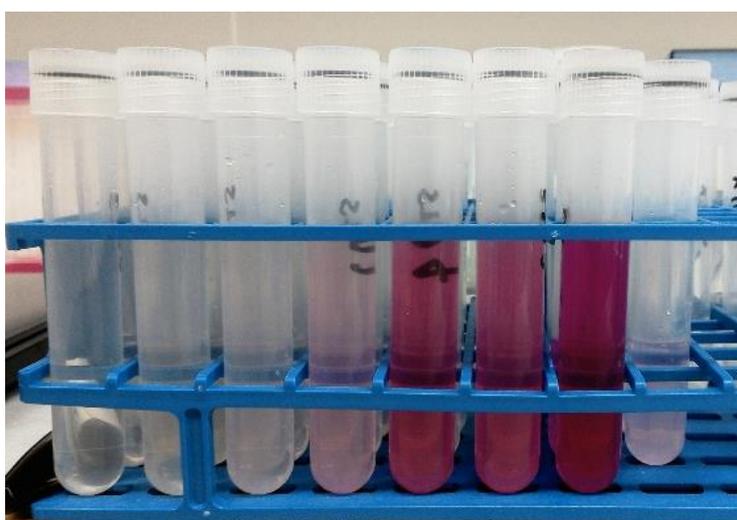


図 4-17 亜硝酸イオン濃度検量線溶液

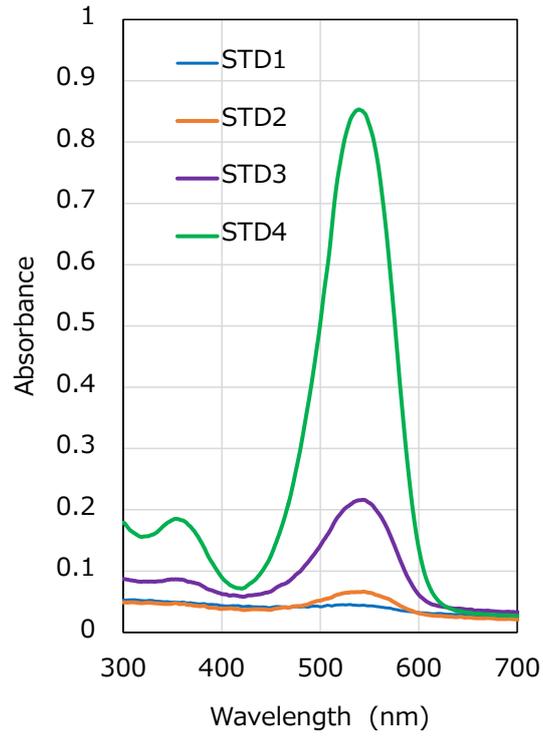


図 4-18 NEDA 法による UV-Vis スペクトル

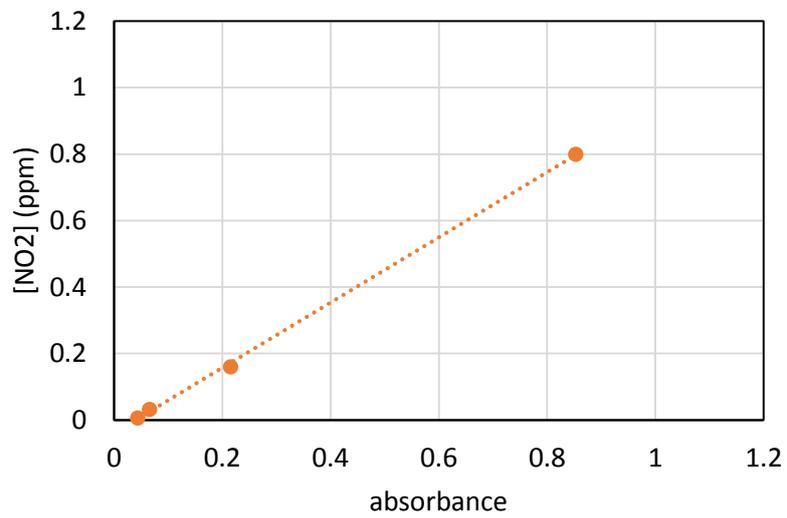


図 4-19 NEDA 法による亜硝酸イオンの検量線

まず、硝酸ナトリウム溶液の還元剤による還元実験の結果について述べる。図 4-20

にヒドロキノン(HQ)、亜ジチオン酸ナトリウム( $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ )、スズ(Sn(II))及び鉄粉(Fe(0))を3カ月間、共存させた硝酸ナトリウム溶液のpH及びpe値を示す。ヒドロキノン共存下でのpH及びpe値は図3-5に示す平成27年度の値を再現する結果となった。いずれの系におけるpe値も硝酸イオン( $\text{NO}_3^-$ )と亜硝酸イオン( $\text{NO}_2^-$ )または亜硝酸イオン( $\text{NO}_2^-$ )とアンモニウム( $\text{NH}_3$ )の酸化還元電位より低い値を示している。このとき、各試料溶液の上澄み液1 mlを採取し、試料溶液中に含まれる亜硝酸イオン濃度を測定した結果を図4-21に示す。鉄粉(Fe(0))共存下では、 $10^{-3}$  M程度の亜硝酸イオンが測定され、硝酸イオンの還元反応が進行していると考えられた。Fe(0)固相による硝酸イオンの還元は、これまでの研究でも報告されている。一方、HQ、 $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ 、及びSn(II)を共存させた系では、亜硝酸イオン濃度は検出限界以下( $< 10^{-5}$  M)となり、硝酸イオンの亜硝酸イオンへの還元反応はほとんど進行していないことが示唆された。Sn(II)は中性及びアルカリ性pHでは、水酸化物沈殿( $\text{Sn}(\text{OH})_2(\text{s})$ )を形成するが、還元性の固相共存下でも硝酸イオンの還元反応は起こりにくいと考えられた。

還元剤を共存させた亜硝酸ナトリウム溶液のpH及びpe値を図4-22に示す。pH及びpe値は、硝酸ナトリウム溶液の値(図4-20)とほぼ同じ値を示し、亜硝酸イオン( $\text{NO}_2^-$ )とアンモニウム( $\text{NH}_3$ )の酸化還元電位より低くなった。このとき、亜硝酸ナトリウム溶液中の亜硝酸イオン濃度の変化を測定した結果を図4-23に示す。還元反応の進行は、還元剤によって異なっており、Fe(0)固相では初期の亜硝酸イオン濃度が1/10程度に低下したのに対し、ヒドロキノンや亜ジチオン酸ナトリウムでは初期の亜硝酸イオン濃度はわずかに低下するに留まった。

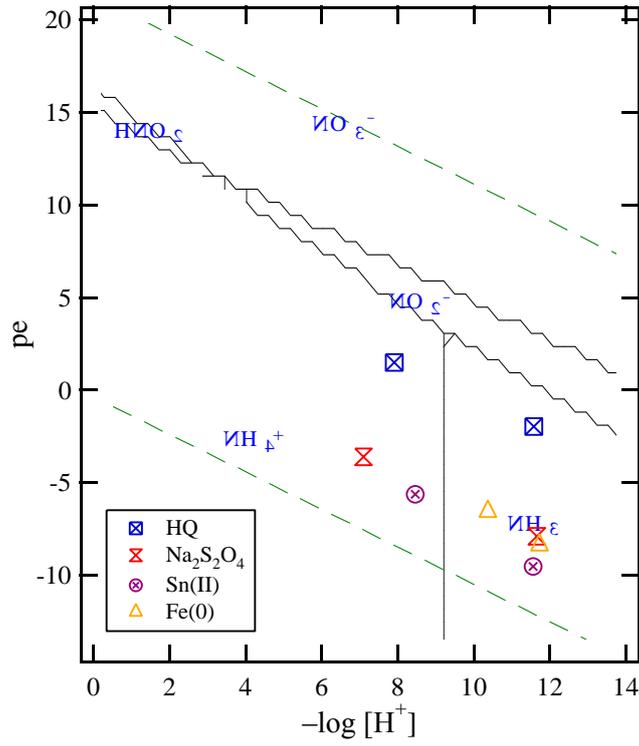


図 4-20 還元剤共存下での硝酸ナトリウム試料溶液の pH 及び pe 値 (3 カ月後)

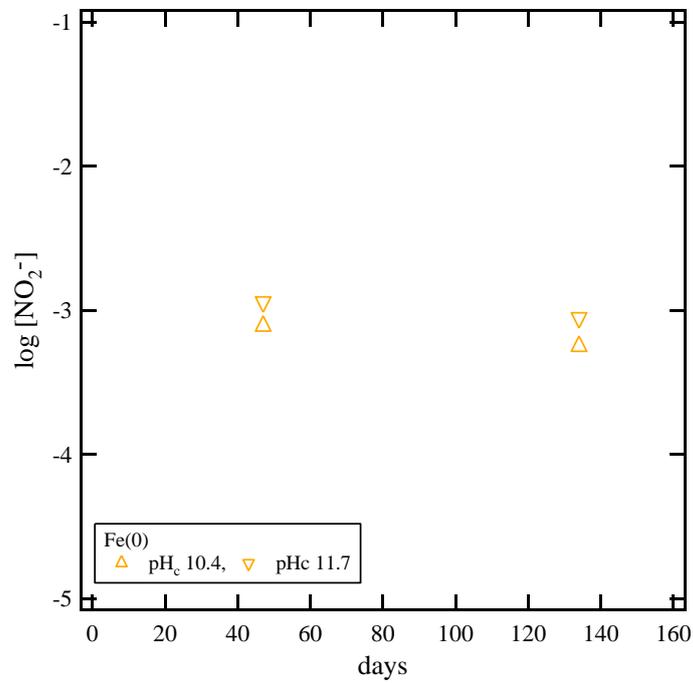


図 4-21 還元剤共存下での硝酸ナトリウム試料溶液中の亜硝酸イオン濃度

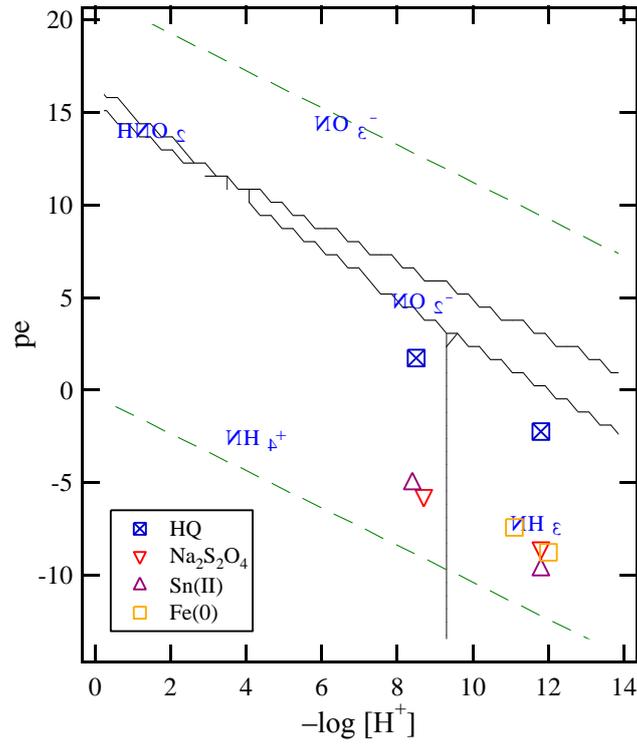


図 4-22 還元剤共存下での亜硝酸ナトリウム試料溶液の pH 及び pe 値 (3 カ月後)

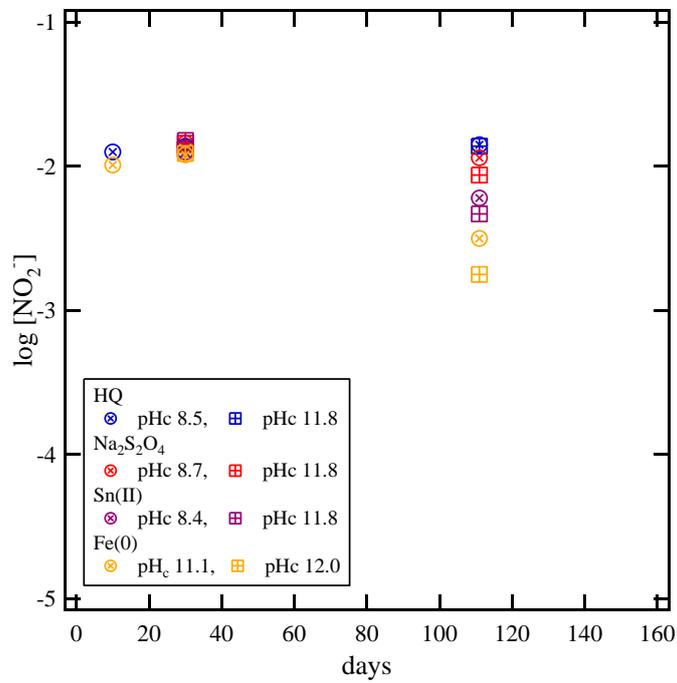


図 4-23 還元剤共存下での亜硝酸ナトリウム試料溶液中の亜硝酸イオン濃度

#### 4.3 残された課題と今後の計画

4 価プルトニウムと炭酸イオンの錯生成反応に及ぼすイオン強度影響の評価では、0.1 M～5.0 M までの硝酸ナトリウム水溶液下において、炭酸イオンを共存させたプルトニウム水酸化物の溶解度を測定した。同じ条件下でのジルコニウム水酸化物の溶解度と比較すると、プルトニウムの溶解度は 2～3 桁程度低い値を示した一方、イオン強度に対する依存性はほぼ同様の傾向を示した。解析では、ジルコニウムと同種の 2 元及び 3 元の炭酸錯体を設定、錯生成定数や溶解度積は文献報告値を用い、SIT のイオン相互作用係数のみをパラメータとして求めた。実験結果を概ね再現することができたが、得られた一部のパラメータ値については誤差が大きく、解析の信頼性向上が必要と考えられる。また、ジルコニウム、プルトニウムの 2 元炭酸錯体 ( $M(\text{CO}_3)_4^{4-}$ ,  $M(\text{CO}_3)_5^{6-}$ ) のイオン相互作用係数の値は、他のアニオン錯体の既報値とは異なる傾向を示した。イオン相互作用係数の解釈について更なる検討が重要と考えられる。

硝酸ナトリウム水溶液中での水酸化物コロイドの挙動を評価するために行ったゼータ電位測定では、新たに低イオン強度として  $I = 0.03$  及び  $0.1$  でジルコニウム水酸化物コロイドを調製し、そのゼータ電位を測定した。ゼータ電位の値にはイオン強度依存性が見られ、イオン強度が大きいほどゼータ電位の実験値は小さくなる傾向が表れた。電気二重層を仮定し、コロイド種を構成する加水分解種の形式電荷からゼータ電位の値の再現を試みた。すべり面までの距離  $x_\zeta$  は、イオン強度が高くなるほど小さくなっており、高イオン強度ほど電解質によってすべり面が圧縮される効果が表れていると考えられたが、特に高イオン強度では  $x_\zeta$  の値が過大評価される傾向となった。また、コロイド内部に取り込まれたイオンの効果とした  $\Delta z$  はイオン強度が高くなるほど小さくなる傾向を示しており、これらパラメータ値の解釈が今後の課題である。

また、硝酸イオンの還元反応では、既報文献で指摘されている通り、鉄粉 ( $\text{Fe}(0)$ ) 共存下では硝酸イオンの還元反応が進行したが、その他の還元剤であるヒドロキノン、亜ジチオン酸ナトリウム及びスズ 2 価の共存下では硝酸イオンの還元反応はほとんど進行しないことが分かった。プールベダイアグラムでは、これら溶液の pH 及び Eh 値はいずれも硝酸イオンの還元を示す領域にあり、硝酸イオンの還元反応の進行をプールベダイアグラムから単純に予想することは困難と考えられる。

平成 29 年度は、上述のような各項目の課題に取り組むとともに、想定される硝酸塩環境下での 4 価アクチノイドの化学的挙動に得られた知見を適用することを目指す。このためには、TRU 廃棄物処分場内や処分場境界などいくつかの場を具体的に設定する必要がある。例えば、処分場内のグループ 3 廃棄体の近傍では、廃棄体由来するセメント影響により高 pH 及び高カルシウム濃度環境が硝酸塩環境に加えて合わせて存在すると予想される。錯生成、コロイド及び酸化還元に関して得られた知見をそれぞれの環境に適用し、4 価アクチノイド溶解度に対する硝酸塩影響の総合的な評価を行う。

## 5 まとめ

TRU 廃棄物処分の安全評価における硝酸塩影響評価の信頼性向上に資するため、平成 28 年度は、4 価プルトニウムを用いて、高イオン強度（高濃度  $\text{NaNO}_3$  溶液）条件下での炭酸イオンとの錯生成反応について実験に基づく検討を行った。炭酸イオン共存下の 0.1 M~5.0 M までの硝酸ナトリウム水溶液におけるプルトニウム水酸化物の溶解度を測定し、ジルコニウムと同種の 2 元及び 3 元の炭酸錯体を設定し熱力学解析を行った。錯生成定数や溶解度積は文献報告値を用い、SIT のイオン相互作用係数をパラメータとする解析を行ったが、解析のさらなる信頼性向上が必要である。また、水酸化物コロイドのゼータ電位に関する検討では、低イオン強度下でのジルコニウム水酸化物コロイドのゼータ電位を測定し、イオン強度の低下とともにゼータ電位の絶対値が増加する傾向が顕著に表れた。そこで、コロイド表面に電気二重層を仮定し、コロイド種を構成する加水分解種の形式電荷からゼータ電位の値の再現を試みたところ、ゼータ電位の変化傾向は概ね再現したが、すべり面までの距離  $x_z$  やコロイド内部に取り込まれたイオンの効果とした  $\Delta z$  などモデルにおけるパラメータ値の解釈を今後進めていく必要があると考えられた。硝酸イオンの還元反応では、ヒドロキノン、亜ジチオン酸ナトリウム、スズ 2 価及び鉄粉 ( $\text{Fe}(0)$ ) 共存下の硝酸ナトリウム溶液及び亜硝酸ナトリウム溶液の pH、Eh 値を測定するとともに亜硝酸イオン濃度を測定した。鉄粉 ( $\text{Fe}(0)$ ) 共存下では硝酸イオンの還元反応が進行したが、ヒドロキノン、亜ジチオン酸ナトリウム及びスズ 2 価の共存下では硝酸イオンから亜硝酸イオンへの還元反応がほとんど進行しないことが分かった。

## 参考文献

- Altmaier, M., Neck, V., Fanghänel, Th.: Solubility and colloid formation of Th(IV) in concentrated NaCl and MgCl<sub>2</sub> solution. *Radiochim. Acta* **92**, 537 (2004).
- Altmaier, M., Neck, V., Müller, R., Fanghänel, Th.: Solubility of ThO<sub>2</sub>·xH<sub>2</sub>O(am) in carbonate solution and the formation of ternary Th(IV) hydroxide-carbonate complexes. *Radiochim. Acta* **93**, 83-92 (2005).
- Altmaier, M., Neck, V., Denecke, M. A., Yin R., Fanghänel, Th.: Solubility of ThO<sub>2</sub>·xH<sub>2</sub>O(am) and the formation of ternary Th(IV) hydroxide-carbonate complexes in NaHCO<sub>3</sub>-Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> solutions containing 0-4M NaCl, *Radiochim. Acta* **94**, 495 (2006).
- Bard, A. J., Parsons, R., Jordan, J.: *Standard potentials in aqueous solution*, Dekker, New York (1985).
- Brown, P., Curti, E., Grambow, B., Ekberg, C.: *Chemical Thermodynamics of Zirconium*, In: *Chemical Thermodynamics* (Eds.: F. J. Mompean et al.) Vol. 8. Elsevier, North-Holland, Amsterdam (2005).
- 電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構: 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 (2005) .
- Dervin, J.: *Sur la structure et la stabilité des carbonates complexes de Thorium(IV), Cerium(IV), Zirconium(IV), Hafnium(IV)*. Ph. D. Thesis, Univ. of Reims Champagne-Ardenne (1972).
- Fujiwara, K., Yamana, H., Fujii, T., Moriyama, H.: Determination of uranium(IV) hydrolysis constants and solubility product of UO<sub>2</sub>·xH<sub>2</sub>O. *Radiochim. Acta* **91**, 345 (2003).
- Guillaumont, R., Fanghänel, Th., Fuger, J., Grenthe, I., Neck, V., Palmer, D., Rand, M.: *Update on the Chemical Thermodynamics of Uranium, Neptunium, Plutonium, Americium and Technetium*, In: *Chemical Thermodynamics* (Eds.: F. J. Mompean et al.) Vol. 5. Elsevier, North-Holland, Amsterdam (2003).
- 原子力委員会長半減期低発熱放射性廃棄物処分技術検討会: 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— (2006).
- (<http://www.aec.go.jp/jicst/NC/senmon/tyohan/bosyu/060228/05.pdf>) .
- 原子力発電環境整備機構: 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—付録資料—, NUMO-TR-10-04 (2011).

- Hummel, W., Anderegg, G., Rao, L., Puigdomènech, I., Tochiyama, O., “*Chemical Thermodynamics of Compounds and complexes of U, Np, Pu, Am, Tc, Se, Ni and Zr with selected organic ligands,*” In: *Chemical Thermodynamics* (Eds.: F. J. Mompean et al.) Vol. 9, Elsevier, North-Holland, Amsterdam (2005).
- João, A., Bigot, S., Fromage, F.: Etude des carbonates complexes des éléments IVB II. Détermination des constants d'équilibre de formation des tétracarbonatozirconates(IV) et -hafnates(IV). Bull. Soc. Chim. Fr. 943-947 (1987).
- 核燃料サイクル機構:我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 (1999) .
- Karlysheva, K.F., Chumakova, L.S., Malinko, L.A., Sheka, I.A.: Reaction of zirconium and hafnium oxide chlorides with sodium carbonate in solution. Russ. J. Inorg. Chem. **27**, 1582-1585 (1982).
- Kobayashi, T., Sasaki, T., Takagi, I., Moriyama, H. Solubility of Thorium(IV) in the Presence of Oxalic and Malonic Acids. J. Sci. Nucl. Technol., **46**, 1085-1090 (2009).
- Kobayashi, T., Sasaki, T. Solubility of Zr(OH)4(am) and the formation of Zr(IV) carbonate complexes in carbonate solutions containing 0.1-5.0 mol·dm<sup>-3</sup> NaNO<sub>3</sub>. J. Solution Chem. (2017) in press.
- Malinko, L.A., Chumakova, L.S., Arsenin, K.I., Karlysheva, K.F., Sheka, I.A.: The interaction of zirconium sulphate with sodium carbonate in solution. Russ. J. Inorg. Chem. **25**, 1184-1188 (1980).
- 日本原子力研究開発機構: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), pp. 2-87 - 2-156 (2011) .
- 日本原子力研究開発機構:平成24年度地層処分技術調査等事業(TRU廃棄物処分技術 硝酸塩処理・処分技術高度化開発), pp. 2-1 - 2-81 (2013) .
- 日本原子力研究開発機構:平成26年度経済産業省委託事業「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(2015) .
- Pouchon, M.A., Curti, E., Degueldre, C., Tobler, L.: The influence of carbonate complexes on the solubility of zirconia: new experimental data. Prog. Nucl. Energy **38**, 443-446 (2001).
- Rai, D., Felmy, A. R., Hess, N. J., Moore, D. A., Yui, M.: A thermodynamic model for the solubility of UO<sub>2</sub>(am) in the aqueous K<sup>+</sup>-Na<sup>+</sup>-HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>-CO<sub>3</sub><sup>2-</sup>-OH<sup>-</sup>-H<sub>2</sub>O system, Radiochim. Acta **82**, 17-25 (1998).
- Rai, D., Hess, N. J., Felmy, A. R., Moore, D. A., Yui, M., Vitorge, P.: A thermodynamic model for the solubility of PuO<sub>2</sub>(am) in the aqueous K<sup>+</sup>-HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>-

- $\text{CO}_3^{2-}$ -OH $^-$ -H $_2$ O system, *Radiochim. Acta*, **86**, 89 (1999).
- Rand, R., Fuger, J., Grenthe, I., Neck, V., Rai, D.: *Chemical Thermodynamics of Thorium*, In: *Chemical Thermodynamics* (Eds.: F. J. Mompean et al.) *Vol. 11*, Elsevier, North-Holland, Amsterdam (2009).
- Sasaki, T., Kobayashi, T., Takagi, I., Moriyama, H.: Solubility measurement of zirconium(IV) hydrous oxide. *Radiochim. Acta* **94**, 489-494 (2006).
- Veyland, A., Rimbault, J., Dupont, L., Pierrard, J.C., Aplin-court, M., Bourg, S., Nuzillard, J.M., Angiboust, J.F.: Coordination mode and kinetic behavior of the tetracarbonatozirconate ion. *Helv. Chim. Acta* **82**, 2003-2014 (1999).
- Veyland, A., Dupont, L., Rimbault, J., Pierrard, J.C., Aplin-court, M.: Aqueous chemistry of zirconium(IV) in carbonate media. *Helv. Chim. Acta* **83**, 414-427 (2000).
- Veyland, A., Dupont, L., Pierrard, J.C., Rimbault, J., Aplin-court, M., Devoldere, L.: Investigation of the tetracarbonatozirconate ion by electrospray mass spectrometry in aqueous media. *Inorg. Chem. Commun.* **3**, 600-607 (2000).
- Yamaguchi, T., Sakamoto, Y., Ohnuki T.: Effect of the Complexation on Solubility of Pu(IV) in Aqueous Carbonate System. *Radiochim. Acta* **66/67**, 9 (1994).

平成 28 年度 外部発表

【査読付論文】

1. T. Kobayashi, T. Sasaki, “Solubility of  $Zr(OH)_4(am)$  and the formation of Zr(IV) carbonate complexes in carbonate solutions containing 0.1–5.0 mol·dm<sup>-3</sup> NaNO<sub>3</sub>,” Journal of Solution Chemistry, in press (2017).

【ポスター発表】

1. Kobayashi et al., Thermodynamic model of Zr-OH-CO<sub>3</sub> in dilute to concentrated NaNO<sub>3</sub> solutions, ISSP 17, Geneva (2016 年 7 月).

## 研究報告 5

地層処分の性能評価の精緻化を目指した  
薄片状雲母を用いた核種の収着メカニズム  
に関する基礎的研究

東北大学 大学院工学研究科

千田 太詩



## 1. 背景と目的

### 1.1 本研究の背景

使用済燃料の再処理に伴い発生する高レベル放射性廃棄物(HLW)の処分方法として、わが国では、300 m以深の深地層に埋設する地層処分が計画されている。地層処分においては、高レベル放射性廃液を固化したガラス固化体をオーバーパック(炭素鋼)や緩衝材(ベントナイト)といった人工バリアで覆うとともに、深地層の安定した岩盤にも天然バリアとしての機能を期待する多重バリアシステムによって、廃棄物の放射能レベルが十分に低減されるまで生活圏から隔離することを狙う。深地層の岩盤中では、地下水の流れが非常に緩やかであるために放射性核種の移行が制限されることに加え、核種の岩盤構成鉱物への収着によって核種移行がさらに遅延される効果が期待される。地層処分の成立性を示した「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—」(以下、第2次取りまとめ)[1]では、結晶質岩系の天然バリアとしてはわが国に広く分布する花崗岩が想定されており、核種収着や花崗岩内拡散、水理特性など核種移行評価に関連した研究が進められてきた。表1に示すように石英や長石、黒雲母等で構成される花崗岩の核種収着能は、これら種々の鉱物が有する収着能の複合として現れる[2]。例えば図1は花崗岩及び花崗岩を構成する各鉱物種に対するユウロピウム(Eu)の収着挙動であるが、鉱物の種類によって収着能が大きく異なるとともに、花崗岩の核種収着能には黒雲母の寄与が非常に大きいことがわかる[3]。そのため本研究では、黒雲母に対する放射性核種の収着挙動に着目する。しかしながら、図1に限らず、既往の核種収着データの多くは一定粒径に粉砕された粉末試料を用いた収着試験によって取得されており、鉱物質量と収着に寄与する界面面積の比が一定であるという前提のもとで評価に適用されている。一方で、粉砕によって表面の状態が実際の地下環境における条件と異なる可能性もあり、鉱物の物理的及び化学的特性が十分に反映されていないことが懸念される[4]。特に、黒雲母は一般に $K(Mg, Fe, Al)_3(Si, Al)_4Si_3O_{10}(OH, F)_2$ の化学式で表され、(001)に平行な劈開が著しい層状ケイ酸塩鉱物(粘土鉱物)である。そして、シリカ四面体及びアルミナ等の八面体からなる層状構造の層間に交換性陽イオン(カリウム, K)を有するために、陽イオン核種をよく収着する。黒雲母は図2に示すように劈開面と断口部を有しており、イオン交換が活発に生じる断口部において核種収着が顕著であるとされている。この黒雲母を細かく粉砕した場合には、質量あたりの断口部の割合が非常に大きくなり、断口部における核種との相互作用が主に収着挙動を支配する。実際の地下環境において黒雲母は花崗岩内に薄片の形状で含有すると想定され、断口部のみならず劈開方向の奥行きが存在する黒雲母の異方性を考慮する必要がある。粉末試料を用いた断口部のみにおける核種収着の評価が天然バリア中の黒雲母の核種収着能を適切に表現しているとは言い難い。

表 1 花崗岩に含有する主な鉱物[2].

主な鉱物	Weight (%)
Quartz: 石英	40
Microcline: 微斜長石	22.5
Albite/anorthite: 曹長石/灰長石	22.5
Biotite: 黒雲母	5
Impurities: その他	10

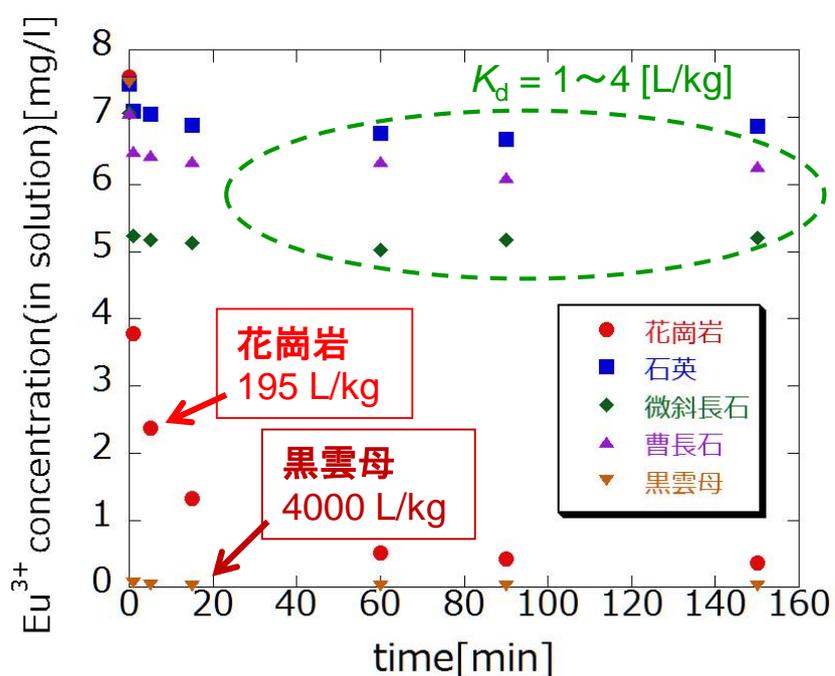


図 1 花崗岩及び主要構成鉱物へのユウロピウムの収着挙動(粒径 75-150  $\mu\text{m}$ )[3].

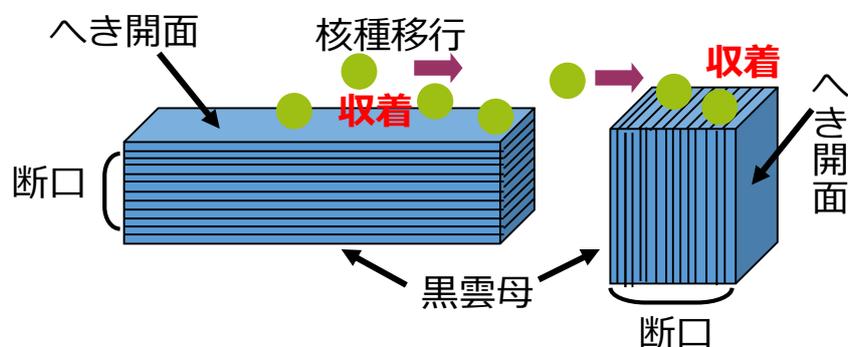


図 2 黒雲母の異方性による収着挙動の変化.

一方、第2次取りまとめにおける岩盤中の核種移行解析モデルにおいては、図3に示すように亀裂内における移流・分散による核種移行と、亀裂から岩石基質内へ拡散するマトリクス拡散が考慮されている[1]。さらに、マトリクス拡散に伴い、岩石基質内において構成鉱物へ収着する効果が含まれている(そのため亀裂表面における収着は考慮されていない)。ここで核種収着効果として適用される分配係数  $K_d$  は、前述のようにその多くが一定粒径に調整した粉末試料を用いた収着試験によって取得されており、固相質量と収着に寄与する界面面積が一定に保たれると仮定している。そして、遅延効果の設定には、マトリクス拡散を想定して分配係数  $K_d$  に岩石の密度及び間隙率が加味される。しかし、黒雲母の異方性を考慮する場合、岩石基質中のマトリクス拡散に加え、黒雲母内部への拡散・収着過程が付与されることになる。このことは、花崗岩に含有する黒雲母の全量が、他の岩石基質と同じく一様に核種収着に寄与するとは限らないことを意味する。そのため、マトリクス拡散と黒雲母内拡散といった異なる拡散場が混在する媒体内の物質移行を移行評価に組み入れる必要がある。例えば、黒雲母内部への浸入拡散がマトリクス拡散よりも大幅に遅い場合には、収着に寄与する黒雲母量が実際の含有量と比べて見かけ上小さくなり、分配係数  $K_d$  と岩石密度による評価と比べて岩石基質内の収着能が低下する可能性がある。このような収着及び拡散が局所的に不均一となるマトリクス内では、核種は一様にマトリクス拡散するとは限らず、収着性が低く、かつ拡散しやすい部分を選択的に拡散移行することも否めない。

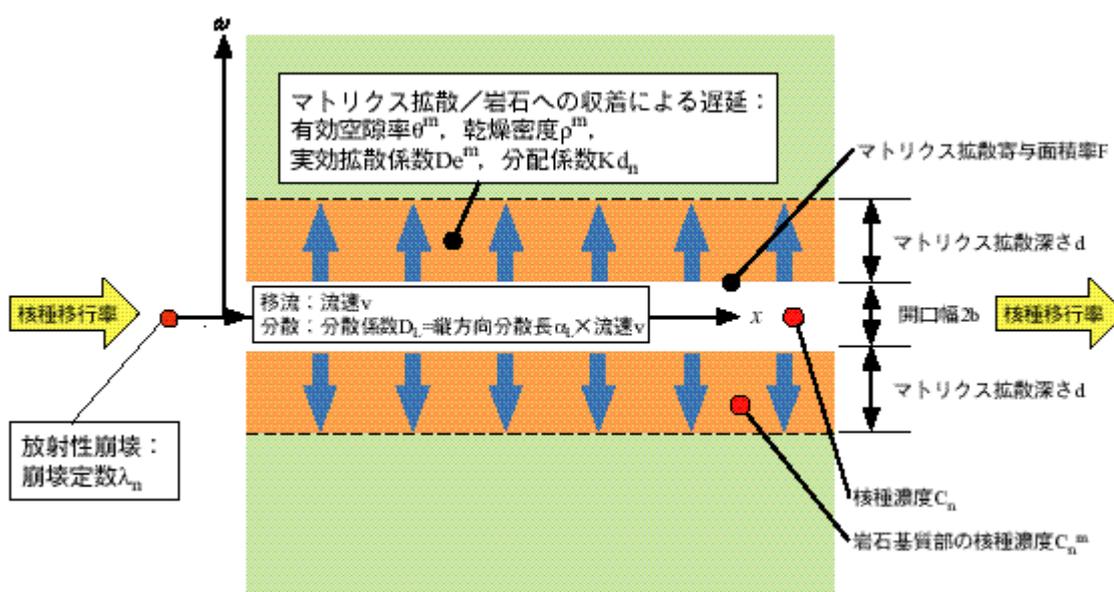


図3 第2次取りまとめにおける一次元平行平板モデル概念図[1]

そこで本研究では、より実環境の状態に近い、粉碎していない薄片状の黒雲母を用いた核種収着挙動検討を実施する。特に、黒雲母薄片の断口部に収着した核種が拡散によって層間内部へ浸入することが予想され、これを考慮した収着挙動評価が重要となる。これまでの粉末試料による黒雲母の核種収着評価ではこのような層間への拡散効果は考慮されておらず、黒雲母の異方性に起因した核種収着及び拡散の過程を適切に核種移行評価へ取り込むことは、処分システムの核種閉じ込め性能評価の精緻化、及び説明性向上に資する。

また、これまで花崗岩及び黒雲母について述べてきたが、実際の地下環境においては、地下水と接触している花崗岩表面が熱水等により変質を受ける場合も想定される。亀裂(水みち)が形成された後に熱水変質を受けた花崗岩亀裂表面では、本研究で注目する黒雲母は層状ケイ酸塩鉱物である緑泥石(*Chlorite*,  $(\text{Mg}_5\text{Al})(\text{Si}_3\text{Al})\text{O}_{10}(\text{OH})_8$  (*Clinochlore*))へ変質することが知られている。加えて、花崗岩に豊富に含有する長石類の変質により、雲母鉱物の一種である絹雲母(*Sericite*,  $\text{KAl}_2(\text{Si}_3\text{Al})\text{O}_{10}(\text{OH})_2$ )が生成して花崗岩表面を覆うことも報告されている[5-7]。このような熱水に起因した鉱物変質は、花崗岩がマグマから固結した後に熱水が花崗岩の亀裂表面や鉱物粒界に接することにより生じると予想され、比較的新しい亀裂以外の地下水接触面では広く分布している可能性がある。そのため、亀裂表面近傍におけるマトリクス拡散及び核種収着には、これらの変質鉱物の寄与も考慮する必要がある。本研究では、核種収着挙動の異方性に注目する黒雲母とともに、熱水変質によって生成する緑泥石や絹雲母についても核種収着挙動を調べ、比較検討する。

## 1.2 研究の目的及び概要

本研究では、黒雲母の異方性が核種収着挙動に与える影響について基礎的知見を取得し、核種移行評価への反映方法を併せて提示することにより、天然バリア中の核種移行評価(地層処分システムの性能評価)に資することを目的とする。この目的に向けて、実環境の状態に近いと考えられる薄片状の黒雲母を用いた核種の収着試験を軸に、種々の分析及び数値解析を実施する。

収着試験は、固相として主に薄片状の黒雲母を用い、窒素雰囲気下でバッチ式により行う。収着元素(トレーサー)には、HLW に含有する長半減期核種の一つであるアメリカシウム(*Am*)の代替元素としてユウロピウム(*Eu*)を主に使用するとともに、比較としてセシウム(*Cs*)やストロンチウム(*Sr*)を用い、価数や元素の違いについて検討する(いずれも安定同位元素とする)。液固比や pH、経時変化等を主なパラメータとし、特に pH についてはユウロピウムが  $\text{Eu}^{3+}$  として存在する pH 3 程度から実環境の地下水を想定した中性領域(pH 8, *Eu* の加水分解が生じる)の範囲を対象とする。液相中のトレーサーの濃度変化を誘導結合プラズマ発光分析装置(ICP-AES)及び原子吸光分析装置(AAS)による測定から得ることで、黒雲母薄片への収着性を調べる。さらに、黒雲母の層間の陽イオンが収着挙動に関連することが予想されるため、併せて層間の陽イオン(黒雲母では主にカリウム(*K*))についても液相中の濃度変化を測定することにより収着とイオン交換の関連について知見を得る。

収着試験後の黒雲母薄片については、薄片内部への拡散に着目した分析を実施する。既往研究に見られる黒雲母を粉砕した粉末試料では大部分が断口部となるとともに、核種の収着性は断口部の収着サイトを考慮した断口部表面積で整理され得ると考えられる。しかし、薄片状の黒雲母では断口部の収着に加え、断口部から劈開方向に沿って薄片内部へ拡散が生じると予想されるため、本研究では飛行時間型二次イオン質量分析(TOF-SIMS)を用いた黒雲母薄片の直接分析により内部拡散挙動を明らかにする。TOF-SIMS分析では、イオンビームを用いたスパッタにより試料を二次イオン化して分析することによりスパッタ深さ方向の元素分布が得られるため、黒雲母薄片内部のトレーサの分布及び拡散挙動を直接的に調べることが可能である。また、収着試験後のEuの状態について、蛍光分光分析により蛍光スペクトルや蛍光寿命から情報を取得する。さらに、収着試験の固相として黒雲母に加え、同じ層状ケイ酸塩鉱物であるものの構造が若干異なる白雲母や金雲母を用いることで収着及び内部拡散挙動を比較検討する。種々の収着試験では、花崗岩の熱水変質を考慮した緑泥石や絹雲母についても併せて検討する。

上述の実験的検討に加え、二次元の拡散・収着を考慮した数値解析を実施する。液相中の元素濃度変化と黒雲母薄片内への元素拡散を関連づけた数値解析により、黒雲母薄片内の拡散係数を評価する。そして、これらの比較検討を通して、黒雲母薄片への核種収着挙動を評価する上で重要となる因子を整理し、核種移行評価への反映方法を提示する。

本研究において期待される成果として、収着試験及び数値解析から以下のような内容が挙げられる。まず、種々のパラメータによる系統的なデータ取得から、実環境における黒雲母(及び変質鉱物)と核種の相互作用把握に資する基礎的知見が提示される。加えて、黒雲母薄片内部における拡散現象の直接的分析というこれまで研究事例のないデータ取得から、黒雲母の異方性が核種収着に及ぼす影響を明らかにする。そして、数値解析を通して収着や拡散に関するパラメータ、及び黒雲母への核種収着に影響の大きい因子を提示する。これらの成果により、粉末試料によって得た分配係数 $K_d$ を単純に適用するのみでは実現象に即さない可能性がある黒雲母のような要素がマトリクス内に含まれる場合の核種移行評価をより精緻にすることが期待される。本研究では、これら反映手法についても併せて検討を行い、処分システムの核種閉じ込め評価の精緻化及び説明性向上に資する。

## 2. 全体研究計画

本研究の計画策定時における各年度の実施計画を以下に示す。また、研究実施工程を表2に示す。

### (1)H26年度実施内容

黒雲母薄片を用いたEuの収着試験に着手する。Euが $\text{Eu}^{3+}$ として存在するpH3程度の酸性領域における黒雲母へのEu収着挙動を調べる。また、収着試験後の黒雲母薄片を用いた

表 2 研究工程表.

	H26年度	H27年度	H28年度	H29年度	最終 取り まとめ
雲母薄片による 核種収着実験	<ul style="list-style-type: none"> <li>・実験系の確認</li> <li>・機器分析の条件設定</li> <li>・Euの収着実験開始</li> </ul>	黒雲母へのEu収着の pH依存性検討	CsおよびSrの黒雲母 への収着実験	金雲母や白雲母に よる核種収着実験	
核種収着および 拡散についての 数値解析	—	一次元モデル による解析	二次元モデル による解析	二次元モデル による解析	

蛍光分光分析及び SIMS 分析に関して、各々について本研究の収着実験条件における黒雲母薄片内の Eu 拡散挙動観察に適した分析条件の設定を目指す。蛍光分光分析では、Eu の蛍光スペクトルや蛍光減衰の測定条件を確認する必要がある。SIMS 分析では、イオンビーム選択や測定対象元素の質量干渉の有無を確認した上で分析を実施する。また、黒雲母が変質した緑泥石についても併せて収着試験に着手する。

#### (2) H27 年度実施内容

前年度に確認された収着試験系により、Eu の収着試験を継続する。前年度に開始した低 pH 領域の収着挙動に加え、当該年度では実際の処分環境における地下水 pH を想定した中性領域(pH 8 程度)における Eu の収着挙動について調べる。Eu は pH 6 以上の範囲において加水分解してコロイド状態の  $\text{Eu}(\text{OH})_3$  を形成することが知られており (Am も同様)、この場合の黒雲母への収着を前年と同様に液相分析及び蛍光分光分析や SIMS 分析によって検討する。黒雲母に加え、変質鉱物である緑泥石及び絹雲母についても同様の収着試験を実施する。また、黒雲母薄片内の核種拡散・収着に関して、物質収支を考慮した一次元数学モデルによる解析に着手する。

#### (3) H28 年度実施内容

前年度に引き続き、収着試験を継続する。当該年度では Eu の他に、一価及び二価の金属イオンであり、線量評価においても寄与が大きい Cs や Sr を併せてトレーサーとして用いる収着試験を予定する。Cs 及び Sr の黒雲母への収着挙動は、価数の違いから黒雲母層間におけるイオン交換や層間内の拡散挙動が三価の Eu とは異なることが予想され、これらを系統的に整理することを目指す。また、前年度の数学モデル検討をもとに二次元モデルに拡張し、層間内の拡散係数評価、及び取得した実験結果との比較検討を行う。

#### (4) H29 年度実施内容

前年度に引き続き、収着試験及び数学モデル解析を実施する。収着試験については、黒雲母と同じ雲母族である金雲母や白雲母についても収着試験を試みる(なお、緑泥石や絹雲

母については当該年度に限らず随時収着試験を実施する)。いずれも黒雲母と同様に劈開性を示し核種収着に対しても異方性があるものと考えられるが、層構造を構成する Al 及び Mg 等の八面体の違い等に起因した収着挙動を比較検討することが期待できる。また、研究総括として、当該年度までの雲母薄片を用いた収着挙動検討についてとりまとめ、花崗岩を想定した天然バリア中の核種遅延効果に影響が大きい因子を整理し、より実現象に即した核種移行評価(処分システムの性能評価)に反映する手法を提示する。

### 3. 平成 27 年度の成果概要

平成 27 年度は、収着試験に関しては前述した研究計画の通りに実施された[8]。実環境の地下水 pH を考慮した pH 3~8 の条件における薄片状黒雲母への Eu の収着試験においては、pH 3 及び pH 5 と比べて pH 8 では液相の Eu 濃度が大幅に低下した(図 4)。これは、pH 8 の条件下においては Eu の加水分解種である  $\text{Eu}(\text{OH})_3$  がコロイド状態で存在するため、黒雲母の添加によって沈殿、及び固相への付着が速やかに進んだことによると考えられる。

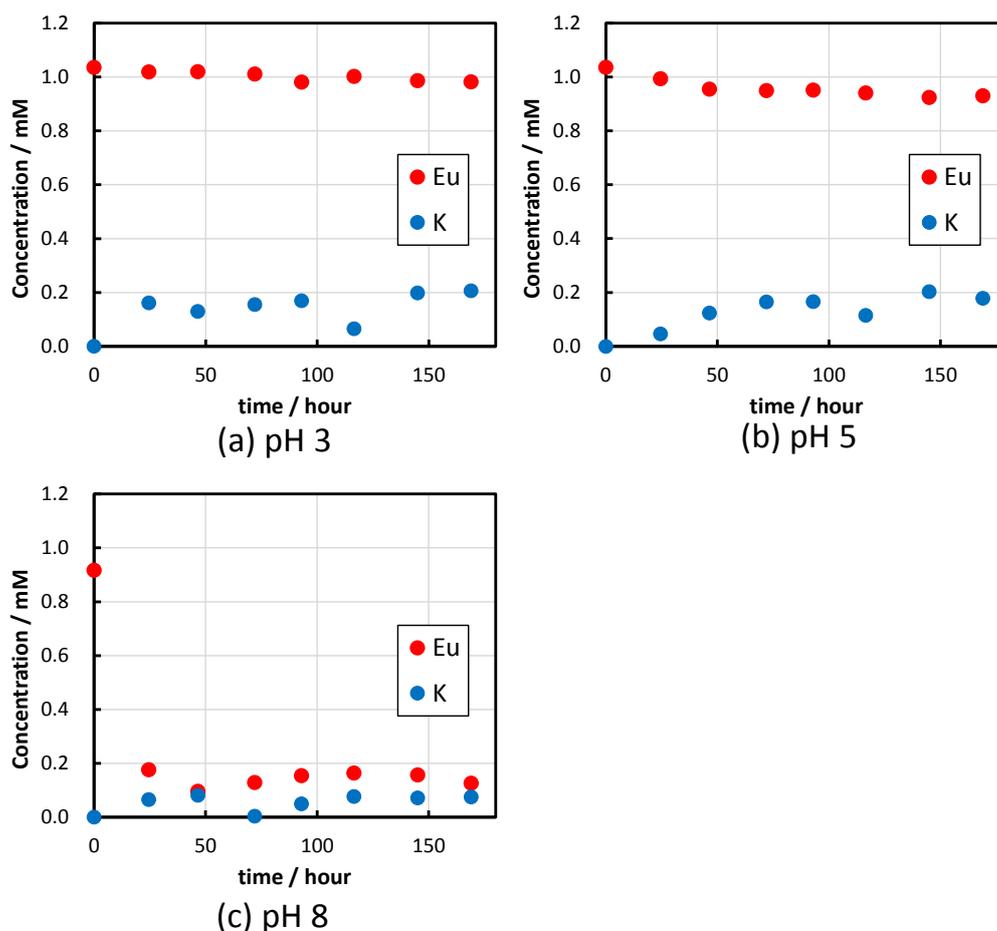


図 4 黒雲母薄片に対する Eu 収着の pH 依存性[8].

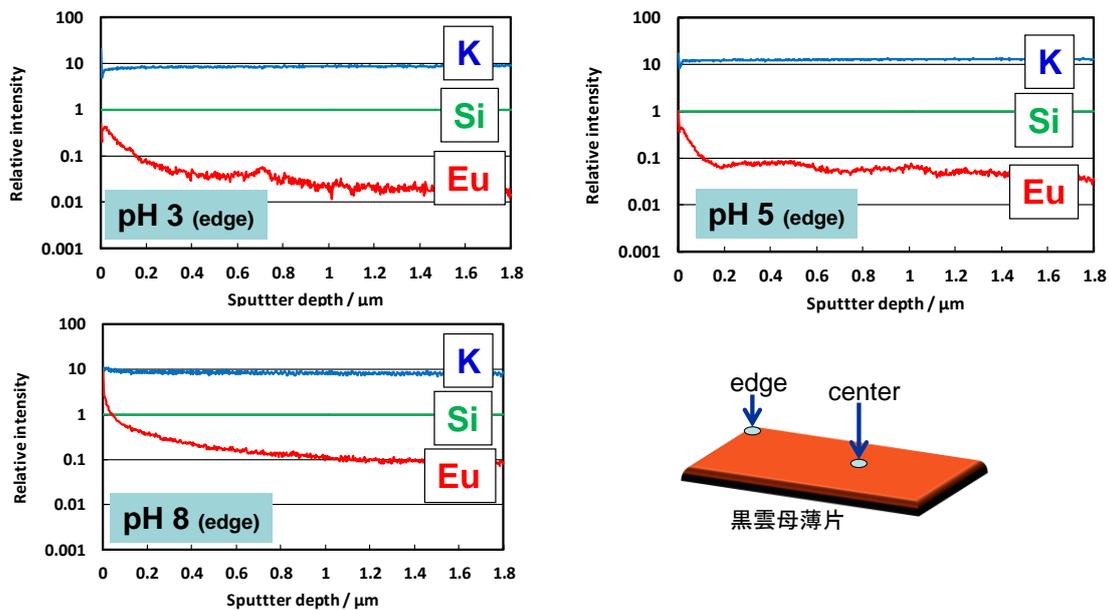


図5 収着試験後の黒雲母薄片内部へのEu 浸入拡散に関する pH 依存性[8].

一方で SIMS 分析から、黒雲母薄片内部への Eu 浸入が pH 3 及び 5 に比べて pH 8 においてより顕著になることが明らかになった(図 5)。この結果は、Eu がイオン形態よりも加水分解種として存在する条件下において黒雲母薄片内部へより拡散浸入したことを意味しており、その理由については検討中である。熱水変質により花崗岩表面や亀裂部に遍在するとされる緑泥石及び絹雲母についても同様の Eu 収着試験を行い、いずれも Eu に対して大きな収着能を示すことが確認された。また、数値解析については当該年度では一次元モデルに取り組む予定であったが、実現象を鑑み、一次元モデル検討を省略して二次元モデルに着手し、液相中の元素濃度変化と黒雲母薄片内へのトレーサー拡散を関連づけた数値解析による薄片状黒雲母内の拡散係数評価の目処が得られた。

#### 4. 平成 28 年度の研究実施内容

##### 4.1 平成 28 年度の実実施計画

平成 28 年度は、前述の研究計画に沿って、平成 26 年度及び 27 年度に確認された収着試験系により薄片状黒雲母への収着試験を継続した。三価の Eu に加え、一価の Cs 及び二価の Sr を用いた収着試験を実施し、収着の経時変化を取得するとともに、収着試験後には SIMS 分析による黒雲母薄片内の元素分布を分析した。なお、平成 27 年度には前章に述べたように Eu 収着の pH 依存性を報告したが、Cs 及び Sr についても pH を 5 及び 8 と設定して地下水 pH 範囲近傍における pH 依存性を調べた。使用する鉱物には黒雲母薄片に加え、変質鉱物である緑泥石及び絹雲母についても同様に Cs 及び Sr の収着試験を実施した。

## 4.2 研究実施内容

以下に収着試験および分析について示す。

### 4.2.1 鉱物試料への Cs, Sr 及び Eu の収着試験

本研究では、平成 26 年度及び 27 年度に確認した収着試験系[8][9]によって、黒雲母薄片及び緑泥石、絹雲母への Cs, Sr 及び Eu の収着についてバッチ式の収着試験を行った。図 6 に収着試験の概要を示す。鉱物試料はいずれも株式会社ニチカより購入し、黒雲母は Nellore, Andhra, Pradesh, India 産の約 5 mm × 6 mm 程度(目視観察により大きさを選り分け)の薄片試料を、緑泥石は長崎県西彼杵群三和町蚊焼産の粉末試料(粒径 75~150 μm, 取扱が粉末試料のみであったため)を、絹雲母は岡山県備前市三石産の粉末試料(粒径 75 μm 以下, 取扱が粉末試料のみであったため)を使用した。Cs 溶液は硝酸セシウム, Sr 溶液は硝酸ストロンチウム六水和物, Eu 溶液は硝酸ユウロピウム(III)六水和物から調整した。これらを含め、本研究において使用した試薬類は和光純薬工業製の特級試薬を特に精製せずに使用した。溶液調整に使用する超純水は日本ミリポア社製 Millipore (Milli-Q Labo)により精製した。収着試験時の各濃度は、Cs を 2.0 mM, Sr 及び Eu を 1.0 mM とした。PPCO(ポリエチレン共重合)製の 10 mL ネジ蓋付遠沈管(シーリングキャップ仕様)に Cs, Sr あるいは Eu 溶液を 6.0 mL, 及び液固比(mL/g)が 10 になるように秤量した黒雲母薄片 0.6 g を加えて密封後、恒温振とう機(EYELA 社製 MMS-1)により 25°C に保ち一週間に亘って振とうさせた。遠沈管への添加から密封までは、窒素雰囲気下のグローブバッグ内で行った。また、pH 依存性を調べるため、収着試験時の溶液の pH を 5 及び 8 の二通りに調整した。なお、pH 8

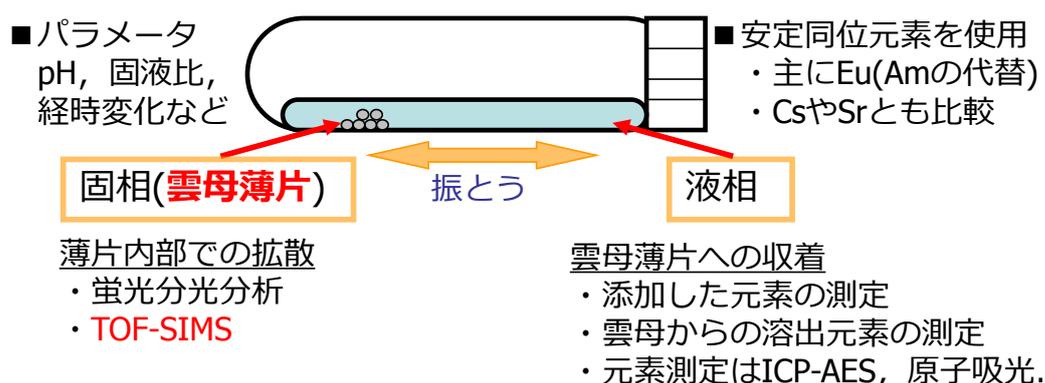


図 6 収着試験概要[8].

の溶液調整においては、中性領域のために pH が変動しやすいことを考慮して、pH 緩衝剤として MES (2-morpholinoethanesulfonic acid, monohydrate)と THAM (Tris (hydroxymethyl)

aminometane)を適宜混合, 添加した. 所定時間振とう後, メンブレンフィルター(ADVANTEC社製, 孔径 0.45  $\mu\text{m}$ )で固液分離した. 収着試験期間は7~8日とし, 一日ごとにサンプリングした. 液相分析は, Cs 濃度については原子吸光分析装置(AAS, Thermo Fisher Scientific社製, iCE330)を, その他の元素濃度については誘導結合プラズマ発光分析装置(ICP-AES, Seiko Instrument社製, SPS7800)を用いて定量した. 測定元素は, 添加したCsやSr, Euに加え, 交換性陽イオンとして黒雲母に含有するK, 各鉱物に含有する元素(Mg, Al, Si)を対象とした.

Euは図7(Chemical Equilibrium Diagram “MEDUSA”により作成[10])に示すように, pH6程度より高いpH領域において加水分解することが知られている. よって, 実際の地下環境を想定したpH8の溶液条件では,  $\text{Eu}(\text{OH})_3$ の形態で沈殿することが予想される. 本試験においては, 鉱物試料に添加する直前にEu溶液のpH調整を行ったが, pH8の場合においても液相は無色透明であり調整直後の沈殿生成も目視では確認できなかったことから,  $\text{Eu}(\text{OH})_3$ はコロイドとして液相中に分散している状態と考えられる. このようにして調整したpH8のEu溶液は, フィルター濾過等を行わずにICP-AESにて濃度を測定したところ, 概ね設定通りの濃度(約1.0 mM)であることが確認された.

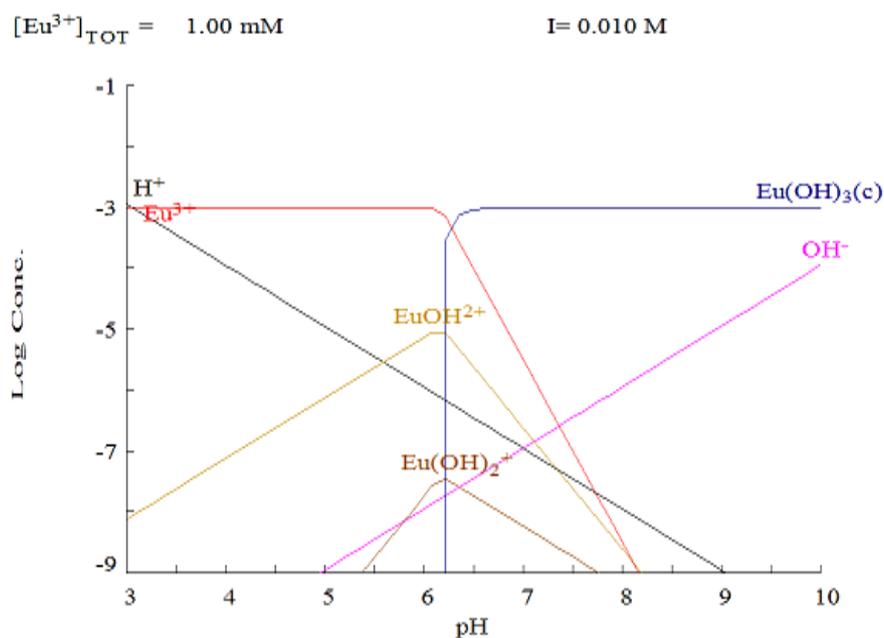


図7 Eu化学種のpH依存性[10]

#### 4.2.2 蛍光分光分析

蛍光分光分析では, 高速蛍光寿命測定装置 FluoroCube(堀場製作所製 3000U, 波長 390 nm のLEDで励起)を使用して蛍光の減衰挙動を測定した. FluoroCubeは, パルス幅の短いLED

を光源としており、測定物質を励起してから蛍光測定を開始するまでの時間を指定して蛍光の減衰挙動を測定することができる。蛍光分光分析は Eu について行うこととし、収着試験後の鉍物試料を試料溶液とともに測定用石英セルに入れて蛍光減衰挙動を分析した。測定においては、平成 27 年度までの測定条件検討に基づき[8]、Eu の蛍光スペクトルに観察されるピークの中から  ${}^5D_0 \rightarrow {}^7F_1$  遷移に相当する 592 nm のピークを選択した。

#### 4.2.3 SIMS 分析

前述したように、黒雲母薄片の断口部に収着した元素は、層間内部へ拡散することが予想される。この挙動を直接分析するために、二次イオン質量分析装置(SIMS, 日立ハイテック社製 TOF-SIMS5 (ION-TOF))を使用した。SIMS は、一次イオンビームの照射によって固体試料の最表面部をイオン化することで発生する二次イオンを質量分析することにより、固体試料に含有する元素量や構造を直接的に測定する分析法である[11]。本研究の分析においては、一次イオンとして質量数が大きくクラスターの発生量が多いビスマス(Bi)を用いるとともに、スパッターイオン(酸素,  $O_2$ )を併用したデュアルビーム分析を行った。使用した装置の質量分析方法には、一定の加速電圧を印加された二次イオンが検出器までの一定距離を飛行する時間を計測して質量分離する飛行時間型(TOF)が採用されている。SIMS 分析に用いた黒雲母薄片試料は、収着試験後に固液分離し真空デシケーター内で十分乾燥させて用いた。本研究では、黒雲母薄片内部へのトレーサの拡散を議論するため、図 8 に示すように edge 1, edge 2 及び center の三点で測定を行うこととした。

今年度はこれまで分析対象としていた Eu に加え、Cs 及び Sr の層間内への浸入拡散を調べる。そこで、収着試験に供する前の黒雲母薄片の SIMS 分析を行い、各元素のバックグラウンドを確認した結果が図 9 である。SIMS 分析においては、分析時に生成する二次イオン量は常に一定とは限らず、測定対象の表面状態にも大きく依存するため、得られた各元素の検出強度を黒雲母内に均一に含有する Si で規格化することにより、スパッタリングに起因する強度の揺らぎを補正した。図 9 が Cs, Sr 及び Eu のバックグラウンドであり、収着試験後の試料分析においてはこれらと比較して有意であるか確認することとなる。

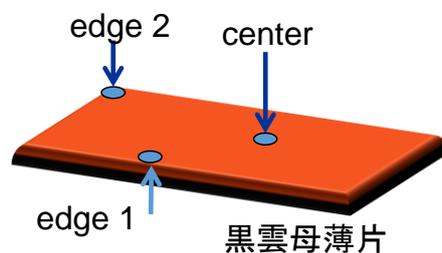


図 8 SIMS 分析時の測定ポイント

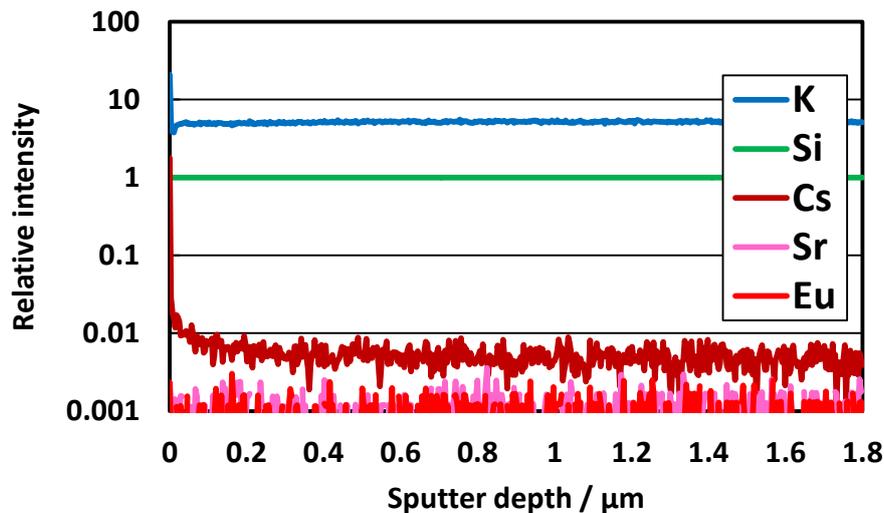


図9 収着試験に供する前の黒雲母薄片の SIMS 分析(測定箇所：edge 2).

#### 4.3 平成 28 年度の研究成果内容

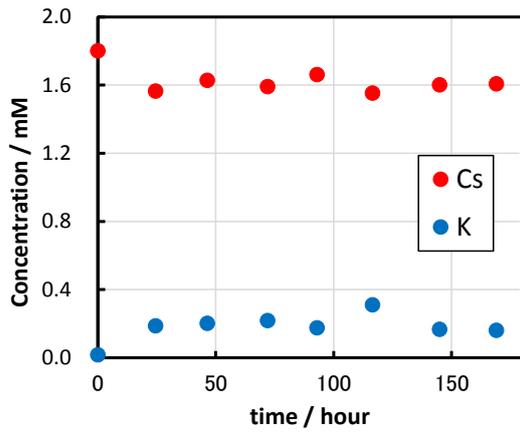
平成 28 年度の成果について、黒雲母薄片を用いた収着挙動検討と、緑泥石及び絹雲母を用いた検討に大別して示す。

##### 4.3.1 黒雲母薄片への Cs, Sr 及び Eu の収着挙動検討

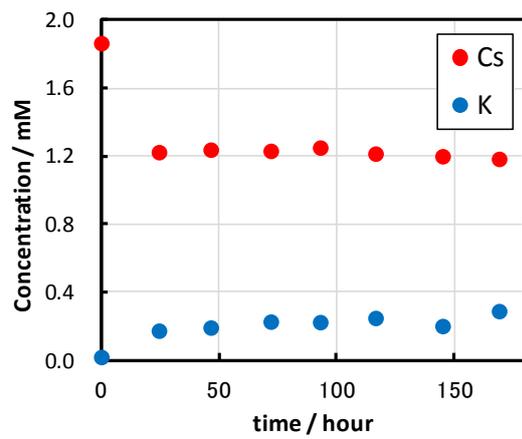
トレーサーの価数の違いに着目した、黒雲母薄片への Cs, Sr 及び Eu の収着試験結果及び考察を以下に示す。なお、Eu の結果は平成 27 年度のものである[8]。Eu の蛍光分光分析も併せて平成 27 年度に実施済みであるため、本報告では割愛する。

##### 黒雲母薄片への Cs, Sr 及び Eu の収着試験結果

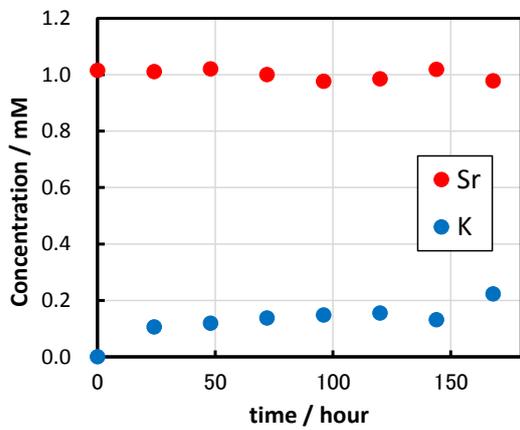
図 10 は、液相の pH を 5 及び 8 とした場合の黒雲母薄片への Cs, Sr 及び Eu の収着試験結果である。図 10(a)及び(b)に示す Cs の収着試験結果では、pH 5 に比べて pH 8 において収着が大きくなった。また、図 10(a)の pH 5 の場合には、Cs の収着量と黒雲母が有する交換性陽イオン K の溶出量の比が 1 に近いことから、主にイオン交換によって Cs が黒雲母に収着したと考えられる。一方、図 10(b)では K の溶出量に対して Cs の収着量が過剰になっており、黒雲母の等電点が 8 程度[12]であることを考慮すれば、黒雲母表面が負に帯電しやすくなるために陽イオンである Cs の収着が増加したと推測される。前年度まで検討した Eu 収着(図 10(e)及び(f))と比べて特徴的な点としては、収着試験開始直後に Cs の収着が顕著に進み、その後は液相の Cs 濃度の低下がほとんど見られないことが挙げられる。Cs 収着量が継続的に増加しないことから、黒雲母薄片内部への拡散浸入が制限されている可



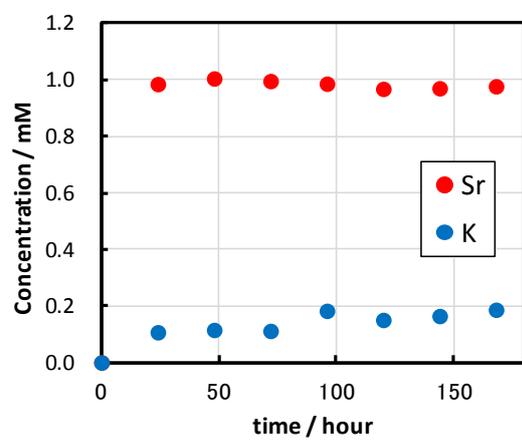
(a) Csの黒雲母への収着(pH 5)



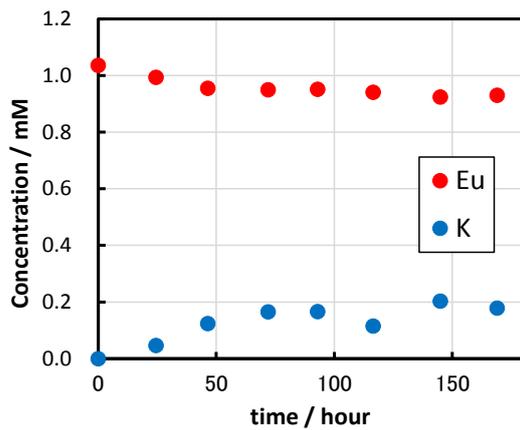
(b) Csの黒雲母への収着(pH 8)



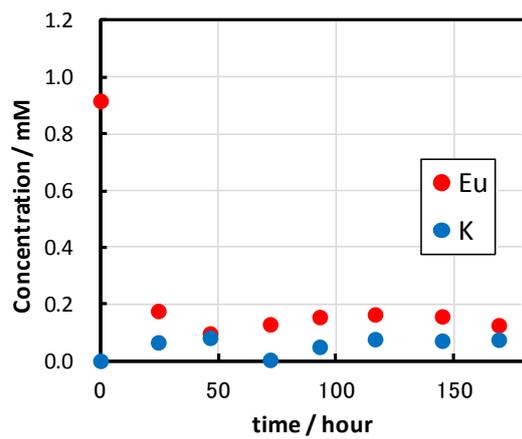
(c) Srの黒雲母への収着(pH 5)



(d) Srの黒雲母への収着(pH 8)



(e) Euの黒雲母への収着(pH 5)



(f) Euの黒雲母への収着(pH 8)

図 10 黒雲母薄片への Cs, Sr および Eu の収着挙動 ((e), (f)は前年度報告書を引用[8]).

能性がある。一般的に、黒雲母のような 2:1 型層状ケイ酸塩鉱物は、四面体シートの Si が Al に同型置換されているために 2:1 型の単位層が負に帯電し、その層間に K のような陽イオンを挟み込むことにより多層構造をなす。このような鉱物の層状構造の端部(断口部)においては図 11 のような収着サイトが想定されており、特に Cs の収着に関しては、ほつれたエッジサイト(図 11 内の(d))の負に帯電した部分に Cs イオンが収着すると層が閉じられ、構造が安定化することで Cs が固定化されると考えられている[13][14]。図 10(a)及び(b)に示すように Cs の黒雲母薄片への収着が一定時間後以降において停滞したのは、このような Cs の層構造内部への更なる収着及び拡散が抑制されることが一因であるかもしれない。膨潤性に乏しい黒雲母においても同様の現象が生じるかについては疑問が残るが、使用した黒雲母薄片の端部がパーミキュライトのように風化状態にある場合には、端部における Cs 収着に伴う層構造変化が生じる可能性がある。

図 10(c)及び(d)はトレーサーとして Sr を使用した場合の収着試験結果であるが、Sr 濃度は時間経過とともに僅かに低下、あるいはほとんど変化が見られなかった。また、図 10(e)の pH 5 における Eu 収着も、Cs 収着と比較すると収着量は微小であった。なお、図 10(f)の pH 8 における Eu 収着は、コロイドとして浮遊していた加水分解種の  $\text{Eu}(\text{OH})_3$  が固相添加に伴って速やかに収着、あるいは沈殿したものと考えられる。一価の Cs よりも二価の Sr、及び三価の Eu の収着が小さいことについては、ストークス半径が関与していると考えられ

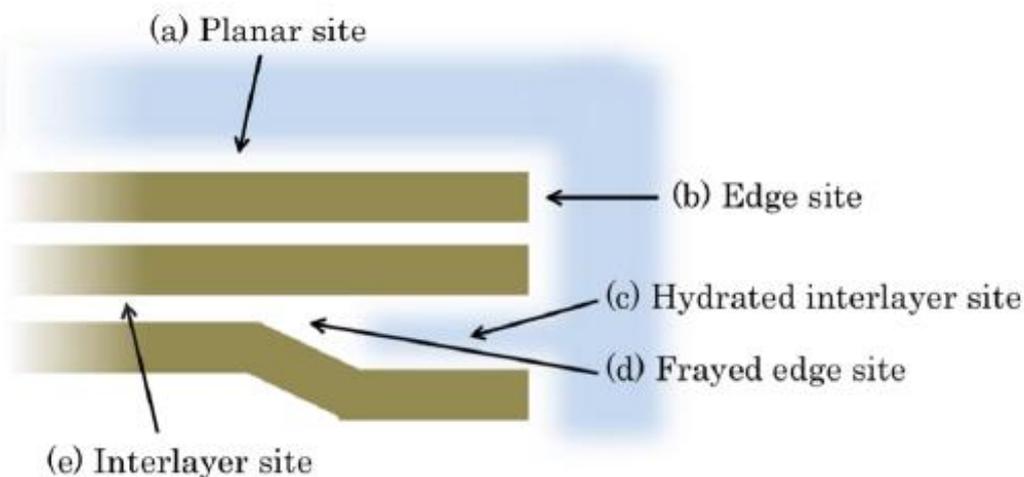


図 11 雲母様鉱物の収着サイト[14][15].

表 3 使用したトレーサーのストークス半径 [16].

元素	Cs	Sr	Eu
イオンの価数	+1	+2	+3
ストークス半径 [Å]	4.3	6.4	11.0

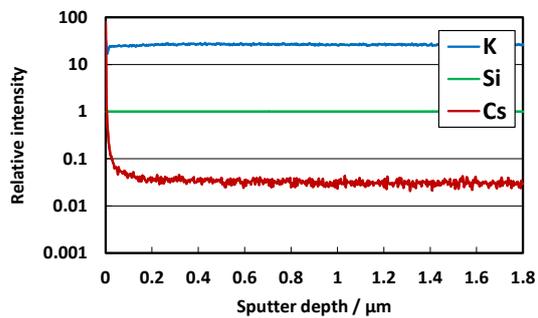
る。Cs はストークス半径が小さいため、Cs の正電荷と層間の負電荷の距離が近くなりやすく相互作用が大きくなるとされている[15]。Sr 及び Eu は多価陽イオンであり、表 3[16]に示すようにストークス半径が Cs より大きく、黒雲母内の負電荷との相互作用が水和水によって低減されるため、Cs よりも収着量が小さくなった可能性がある。その一方で、前年度までの報告書においても述べているが、図 10(e)に示すように Eu の黒雲母薄片への収着は時間の経過とともに増加しており、黒雲母薄片内への収着及び拡散が継続していると言える。これは、収着に際してほつれたエッジサイト部が閉じられるという Cs 収着の場合とは異なり、Eu の場合には四面体シートの負電荷との相互作用が比較的弱いために層が閉じられず、層構造内への収着及び拡散浸入が緩やかに続く状態が保たれるためと推測される。なお、本報告書には示さないが、実施中の Sr 収着に関する予備検討からは、0.1 mM 程度では Sr 濃度が経時的に低下することや、黒雲母粉末を用いた場合には有意に収着することが確認されつつあり、次年度以降に試験条件を見直した上で Cs や Eu も併せてデータを追加取得する。また、実環境における核種収着に影響が大きいと考えられるイオン強度の依存性についても併せて検討する予定である。

#### SIMS 分析による黒雲母薄片内部への拡散浸入検討

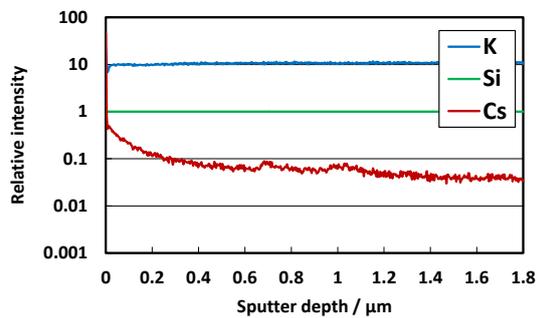
図 12～図 17 は、TOF-SIMS により得られた収着試験後の黒雲母薄片内の元素分布である。これらの分析には、収着試験開始から 7 日後の黒雲母薄片試料を使用した。図 12～図 17 の各元素データは、黒雲母薄片内部に均一に存在すると考えられる Si の分析強度を 1 として規格化されている。これら TOF-SIMS の測定結果は、黒雲母薄片の劈開面(薄片の上面)に対して一次イオンを照射して連続的にスパッタし、劈開面からの深さ方向の元素分布を取得している。そのため、黒雲母薄片の断口部から劈開方向への元素浸入の度合いを比較するには、薄片表面に残存した元素の影響が小さいと判断しうる程度のスパッタ深さ(例えば図 12～図 17 の横軸 Sputter depth が 0.5  $\mu\text{m}$  以深)で各測定結果を比較することになる。なお、図 12～図 17 について、SIMS 分析によって得られる Intensity は元素毎に固有であるため、単純に元素間の比較を行うことはできない点に注意する必要がある。

図 9 と図 12～図 17 を比較し、測定部位 center においてはバックグラウンドに近い測定結果が見られるが、その他の測定部位では有意なトレーサー収着及び拡散浸入が観察された。図 12～図 17 の測定部位の比較では、いずれのトレーサー及び pH 条件においても center, edge 1, edge 2 の順に薄片内部へのトレーサーの浸入が増加することがわかる。そして、トレーサーの増加に伴って K が減少しており、Cs や Sr, Eu の収着及び拡散浸入に伴ってイオン交換した K が浸出したことに起因するものと考えられる。

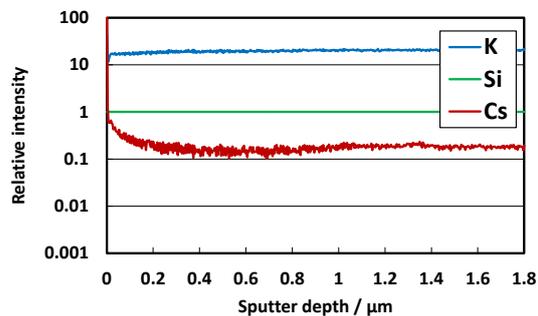
図 12 及び図 13 の黒雲母薄片内の Cs 測定結果から、pH 5 よりも pH 8 において黒雲母薄片内の Cs 分布が増加しており、図 10(a)(b)に見られる pH 依存性とも整合する。一方で、黒雲母薄片の端部から離れた center 部においてもバックグラウンドと比べて Cs 分布が有意に増加した。図 10(a)(b)の Cs 収着試験結果に関する前述の議論における、黒雲母薄片端部



(a) center (Cs, pH 5)

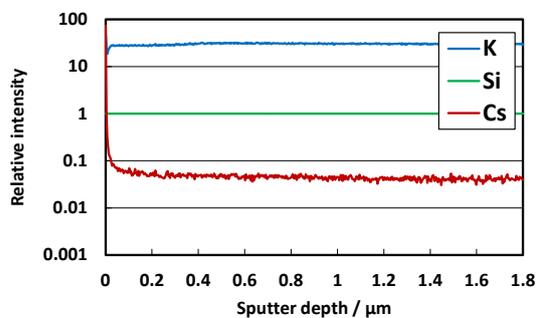


(b) edge 1 (Cs, pH 5)

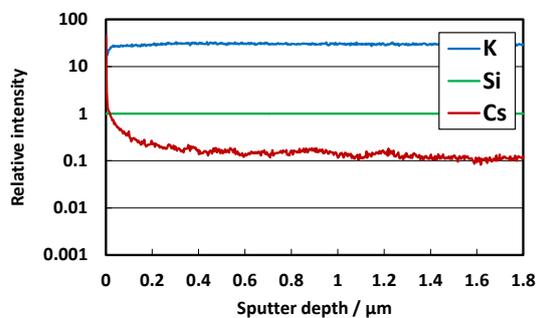


(c) edge 2 (Cs, pH 5)

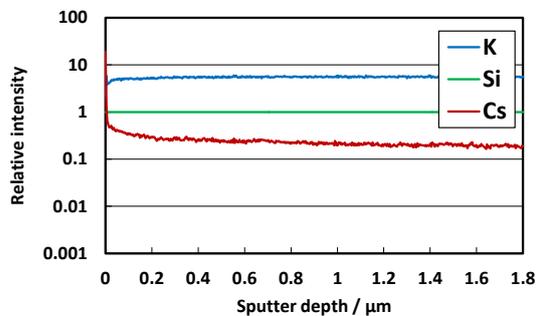
図 12 Cs 収着試験後の黒雲母薄片内の元素分布(pH 5).



(a) center (Cs, pH 8)

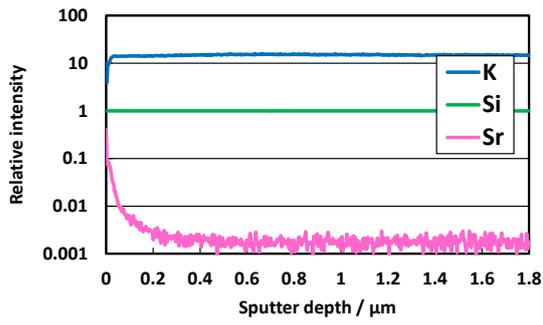


(b) edge 1 (Cs, pH 8)

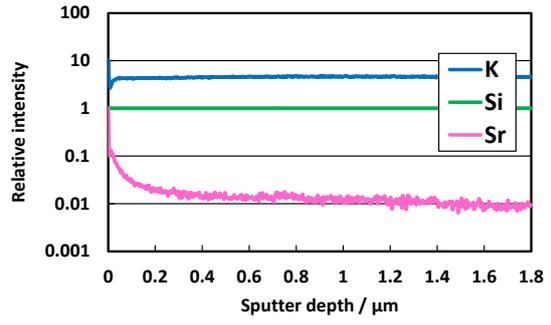


(c) edge 2 (Cs, pH 8)

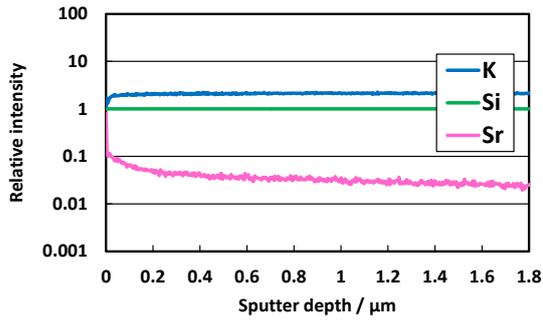
図 13 Cs 収着試験後の黒雲母薄片内の元素分布(pH 8).



(a) center (Sr, pH 5)

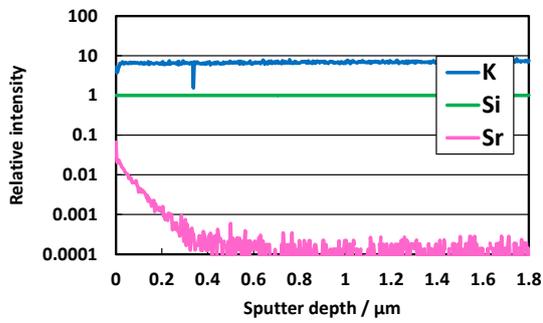


(b) edge 1 (Sr, pH 5)

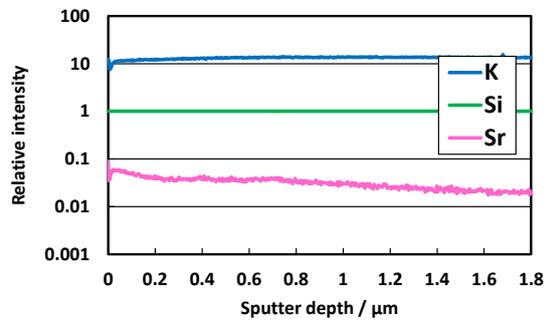


(c) edge 2 (Sr, pH 5)

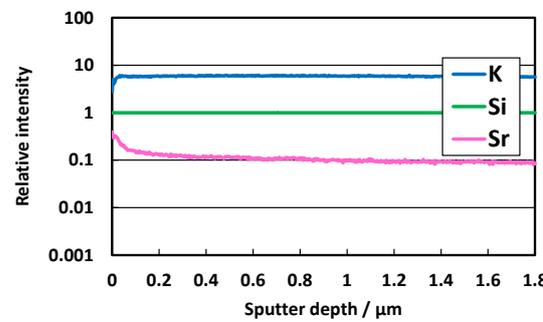
図 14 Sr 収着試験後の黒雲母薄片内の元素分布(pH 5).



(a) center (Sr, pH 8)



(b) edge 1 (Sr, pH 8)



(c) edge 2 (Sr, pH 8)

図 15 Sr 収着試験後の黒雲母薄片内の元素分布(pH 8).

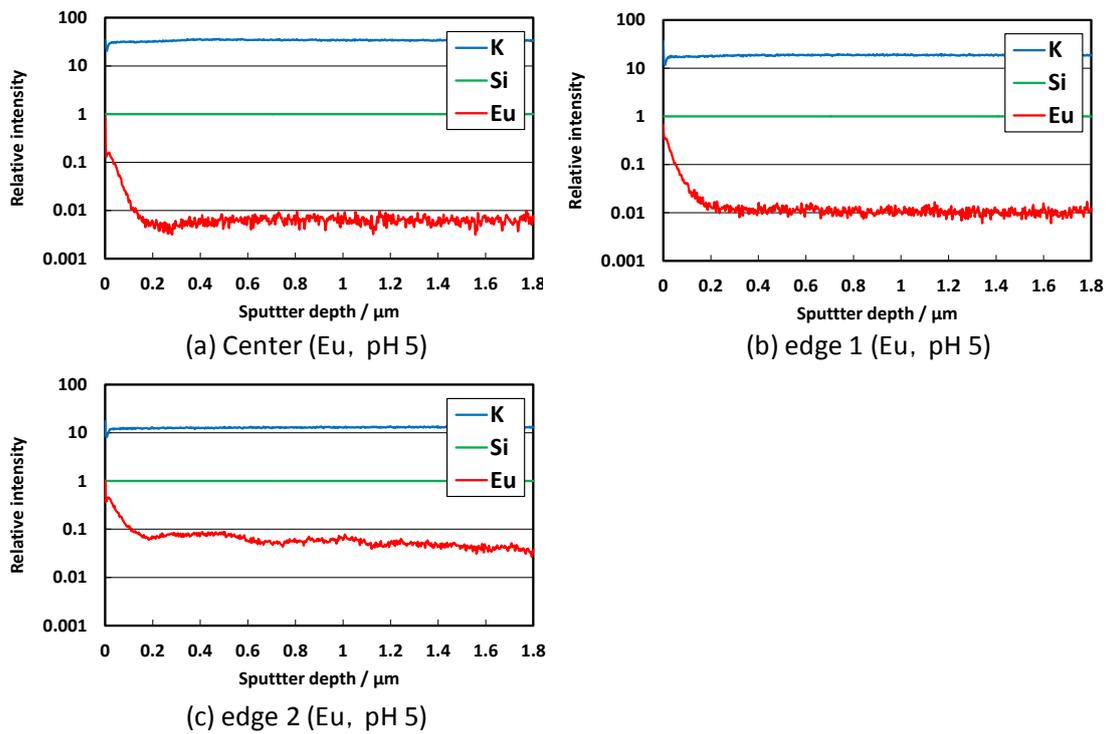


図 16 Eu 収着試験後の黒雲母薄片内の元素分布(pH 5)[8].

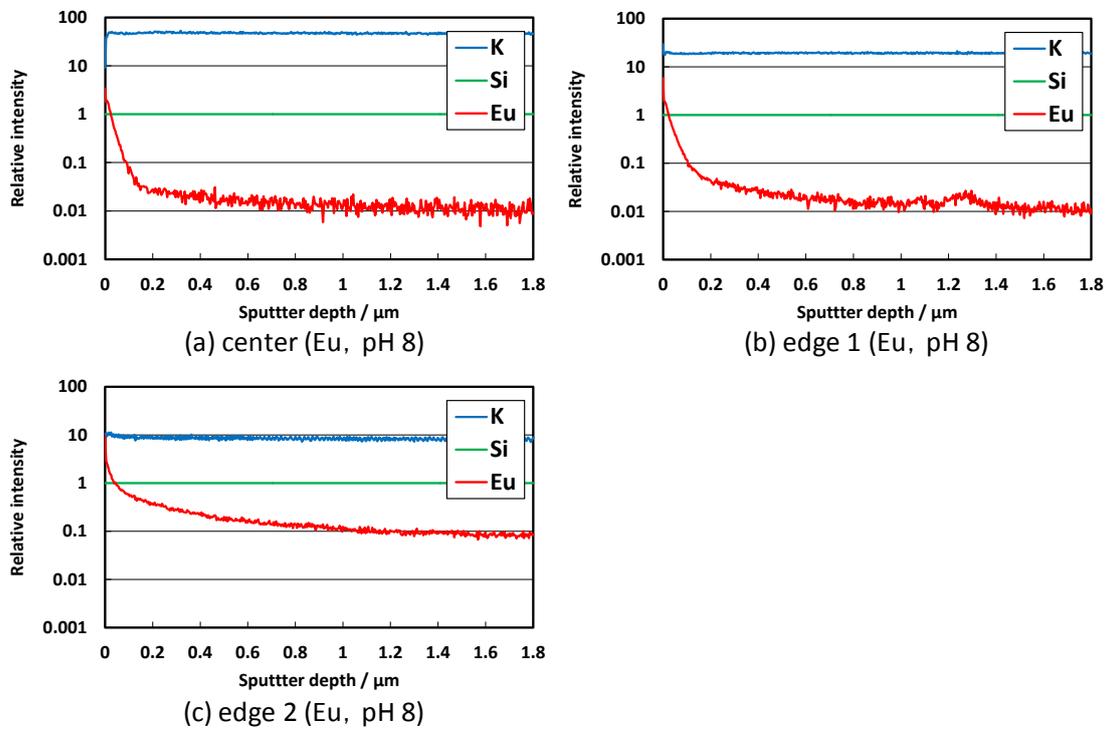


図 17 Eu 収着試験後の黒雲母薄片内の元素分布(pH 8)[8].

のほつれたエッジサイトへの Cs 収着によって層間が閉じられ層構造内部への拡散浸入が抑制されるとした推測との整合性については、今後の検討課題である。

Sr については、図 10(c)(d)の収着試験結果では液相の Sr 濃度がほとんど減少していなかったものの、図 14 及び図 15 に見られるように黒雲母薄片の端部(edge 1 及び edge2)において有意な Sr 分布の増加が生じており、Sr もまた黒雲母への収着が期待できることが確認された。

Cs, Sr 及び Eu の黒雲母薄片内への拡散浸入については、図 12～図 17 のデータ間で単純に比較することはできないが、バックグラウンドからの分布増加という観点で考えると、価数の小さい元素の方がより薄片内へ拡散浸入しているように見える。今後は、収着期間やトレーサー濃度を考慮しながら、edge 部から center 部の間における分布変化の勾配をとることで、トレーサー間の比較検討を試みる。

#### 数学モデルによる黒雲母薄片内の拡散係数評価

本研究では、黒雲母薄片内の層間における核種の移行挙動を二次元の拡散方程式により評価する。前述の収着試験結果を基に、液相におけるトレーサー濃度の変化と黒雲母薄片内のトレーサーの拡散移行を関連づけた数学モデル解析を行い、黒雲母薄片内におけるみかけの拡散係数の評価を試みる。導出の詳細は前年度報告書を参照されたい[8]。

二次元の拡散方程式に基づく黒雲母薄片内部におけるトレーサーの濃度変化が式(1)、トレーサーの液相中の濃度変化が式(2)となる。

$$\frac{\partial C}{\partial T} \frac{1}{t^*} = \frac{D}{x_1^2} \left( \frac{\partial^2 C}{\partial X^2} + \frac{\partial^2 C}{\partial Y^2} \right) \quad (1)$$

$$\frac{dC_B}{dT} = S_h \gamma \int (C_B - C_{edge}) dS \quad (2)$$

$$\frac{\omega L^2}{V} = \gamma \quad (\text{無次元数}[-]) \quad (3)$$

$$\frac{kx_1}{D} = S_h \quad (\text{シャーウッド数}[-]) \quad (4)$$

ここで、 $D$  は黒雲母薄片内におけるみかけの拡散係数[m<sup>2</sup>/s]、 $x_1$  は代表長さ(移行距離)[m]、 $X$  及び  $Y$  は無次元長さ(= $x/x_1$ , および  $y/x_1$ )、 $t^*$  は代表時間[s](= $D/x_1^2$ )、 $T$  は無次元時間(= $t/t^*$ )、 $C$  は無次元濃度(= $c/c_B^*$ )、 $c_B^*$  は溶液中における溶質の初期濃度[mol/m<sup>3</sup>]、 $C_B$  は液相中における溶質の無次元濃度、 $C_{edge}$  は黒雲母薄片の端部における無次元濃度、 $V$  は溶液体積[m<sup>3</sup>]、 $\omega$  は黒雲母層厚さ[m]、 $S$  は薄片の辺の無次元長さ(= $s/x_1$ )、 $s$  は薄片の辺[m]、 $L$  は黒雲母の代表長さ[m](= $x_1$ )、 $k$  は物質移動係数[m/s]である。これらのパラメータは、シャーウッド数

$S_h$ を除いて収着試験条件から与えられる。式(2)の  $S_h(C_B - C_{edge})$ の値は、黒雲母薄片の edge 部における固相側の濃度勾配に等しいことから、それらを数値解の二次近似により逐次求めた。

図 18 は、図 10(e)に示した pH 5 における黒雲母薄片への Eu 収着試験結果に対して、数学モデルを適用した例である。同様のフィッティングにより取得した各トレーサー及び条件におけるみかけの拡散係数を表 4 に示す。pH 8 における Eu 収着については、Eu 加水分解種の固相への付着及び沈殿が液相濃度変化に含まれていると予想されることから、本研究の数学モデルにおける想定と異なると考え拡散係数評価を行わなかった。

表 4 に示すように、使用したトレーサーに対して  $10^{-13} \sim 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$  のオーダーの拡散係数が得られた。第 2 次レポートにてレファレンスケースとして設定されている母岩中の実効拡散係数  $3 \times 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$  と比較すると[1]、Eu では同程度であるが、Cs については一桁大きく、Sr については一桁小さく見積もられた。ただし、今回の拡散係数評価においては、今後確認しなければならない点がある。一つは、式(4)内の物質移行係数  $k$  の扱いである。今回の解析において物質移行係数  $k$  は、前年度の Eu 収着に関する試行にて良好な解析結果が得られた値に固定した。しかし、Cs 及び Sr についても Eu と同じ物質移行係数を適用す

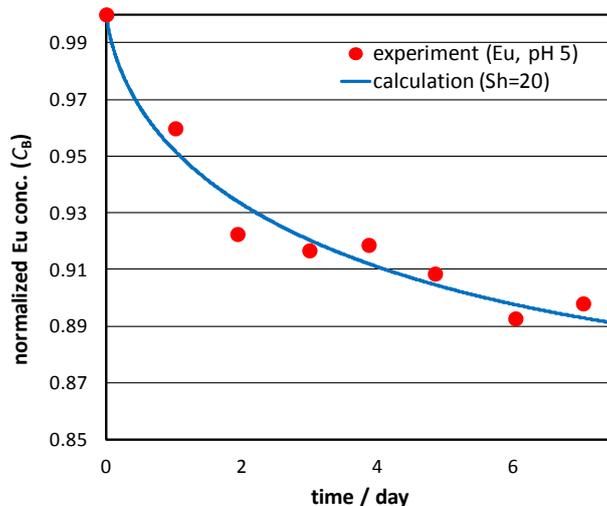


図 18 収着実験結果(液相側)への数学モデルの適用例(Eu, pH 5).

表 4 数学モデルより得た黒雲母薄片内のみかけの拡散係数[m<sup>2</sup>/s].

	Cs	Sr	Eu
pH 5	$3.0 \times 10^{-11}$	$2.0 \times 10^{-13}$	$3.0 \times 10^{-12}$
pH 8	$4.0 \times 10^{-11}$	$1.7 \times 10^{-13}$	—

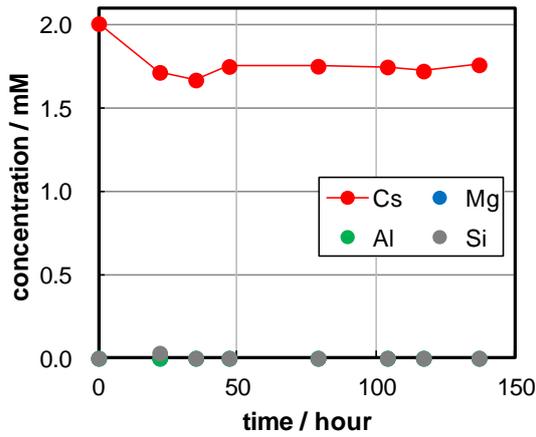
ることの妥当性については、改めてパラメトリックな検討を行い確認する必要があると考えられる。また、収着試験結果においても言及したように、図 10(c)(d)の Sr 収着試験結果のように液相濃度変化の勾配が非常に小さいデータもあるため、試験条件を見直した収着試験を実施した上で拡散係数評価も再度検討する。

#### 4.3.2 緑泥石及び絹雲母への Cs, Sr 及び Eu の収着挙動検討

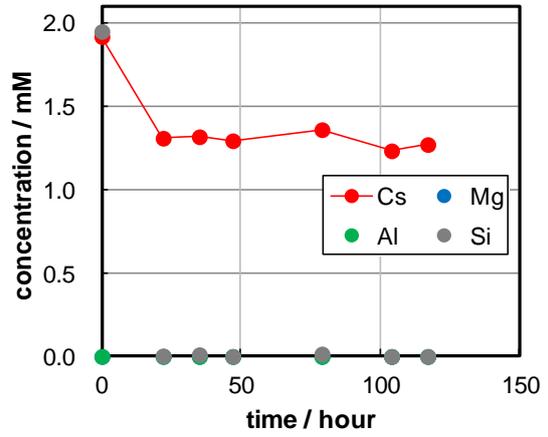
黒雲母薄片と同様に、緑泥石及び絹雲母の粉末試料を用いた Cs, Sr 及び Eu の収着試験を行った。図 19 は緑泥石を用いた場合の収着試験結果、図 20 は絹雲母を用いた場合の収着試験結果である。液相濃度測定は、トレーサーとして添加した Cs, Sr, Eu に加え、緑泥石及び絹雲母に含有する K, Mg, Al, Si について行った。緑泥石、絹雲母ともに、いずれのトレーサーも顕著に収着しており、特に絹雲母の陽イオン収着能は非常に大きいと言える。トレーサー間の比較においては、価数の大きいトレーサーの方がより多く収着する傾向が見られた。

各鉱物の組成や構造を基に、これらの収着挙動について考察する。緑泥石(Chlorite,  $(\text{Mg}_5\text{Al})(\text{Si}_3\text{Al})\text{O}_{10}(\text{OH})_8$  (Clinochlore))は 2:1:1 型層状ケイ酸塩であり、2:1 型の同型置換による負電荷と水酸化アルミニウム層の  $\text{OH}^-$  欠損による正電荷が層構造内に存在するため静電的に結合している。また、絹雲母(Sericite,  $\text{KAl}_2(\text{Si}_3\text{Al})\text{O}_{10}(\text{OH})_2$ )はイライトに類似にするとされ、同様の構造と考えた場合、2:1 型の同型置換が他鉱物より多く、負電荷を中和する K が隙間なく層間に挟み込まれる構造となるため、この K は黒雲母と異なりイオン交換し難い状態にある。このように、各鉱物の特性から考えると陽イオンの収着がさほど期待されないが、図 19 及び図 20 に示すように各トレーサーが顕著に収着した。この理由として、粉末試料であるために端部の割合が大きかったことが挙げられる。前出の図 11 に示すように、層状ケイ酸塩鉱物の端部では同型置換に起因した負電荷が陽イオンの収着に寄与しやすい状態であることから、重量あたりの端部の割合が陽イオン収着に大きく影響したと考えられる。また、絹雲母が緑泥石よりも多くの陽イオンを収着していることについては、絹雲母(イライト)が 2:1 型層状ケイ酸塩の中では同型置換の量が多いためと予想される。ただし、鉱物間の比較については表面積も併せて考える必要があり、各鉱物の比表面積を今後取得する予定である。図 19 及び図 20 においてはトレーサーの収着と併せて K や Mg, Al の溶出が確認されているが、収着したトレーサーとの電荷的な相関は特に見られない。特に絹雲母では Si の溶出も顕著であることから、これらの鉱物含有成分の溶出は端部における鉱物自体の溶解に伴うものである可能性がある。今後、緑泥石及び絹雲母のブランク(トレーサーを添加しない)による浸漬試験によって鉱物成分の溶出を確認する予定である。

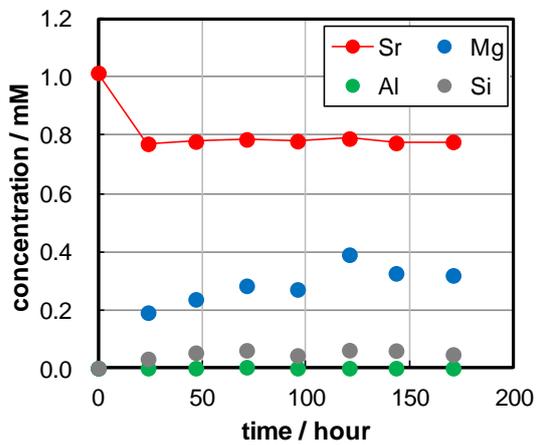
図 19 及び図 20 において pH 5 と 8 について比較すると、pH が高い方がトレーサーの収着が増加していることがわかる。これは、これまで言及した層間の負電荷とは別に、層状



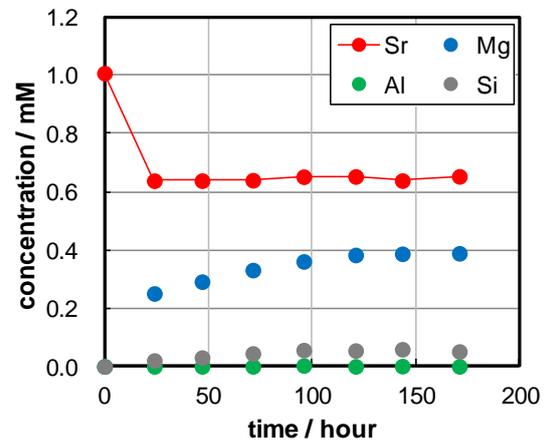
(a) Csの緑泥石への収着(pH 5)



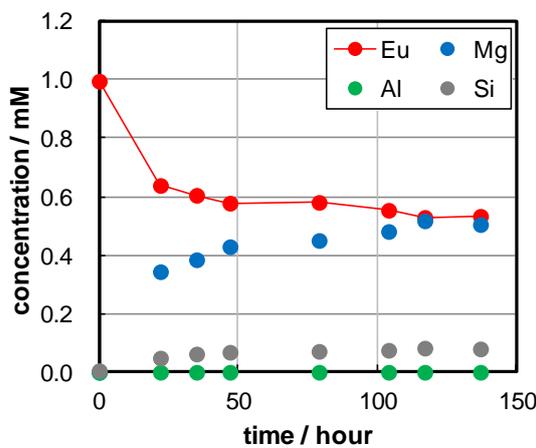
(b) Csの緑泥石への収着(pH 8)



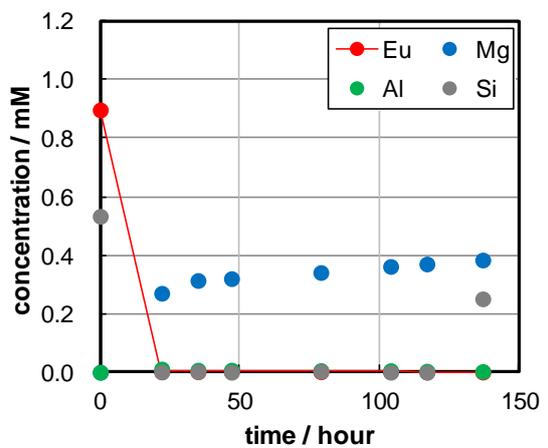
(c) Srの緑泥石への収着(pH 5)



(d) Srの緑泥石への収着(pH 8)

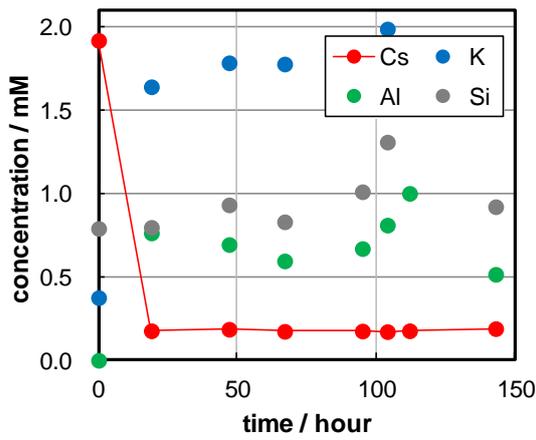


(e) Euの緑泥石への収着(pH 5)

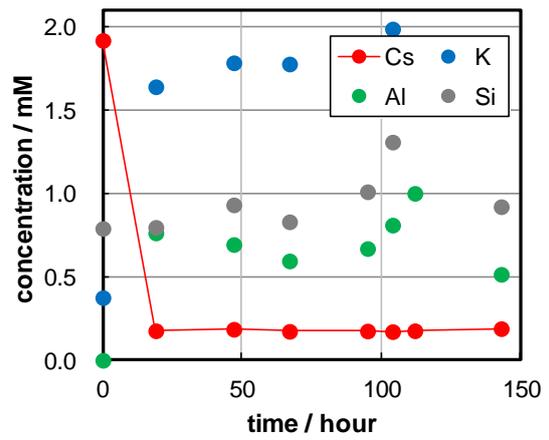


(f) Euの緑泥石への収着(pH 8)

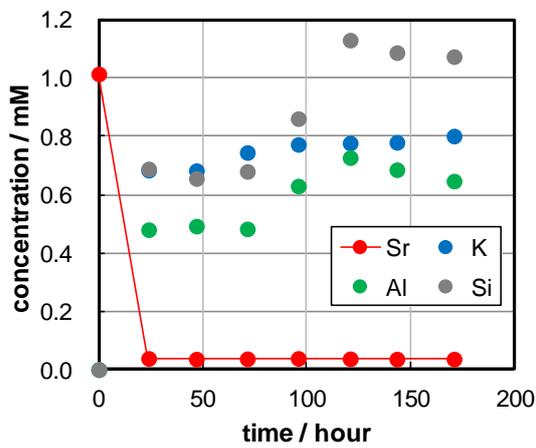
図 19 緑泥石粉末への Cs, Sr および Eu の収着挙動。



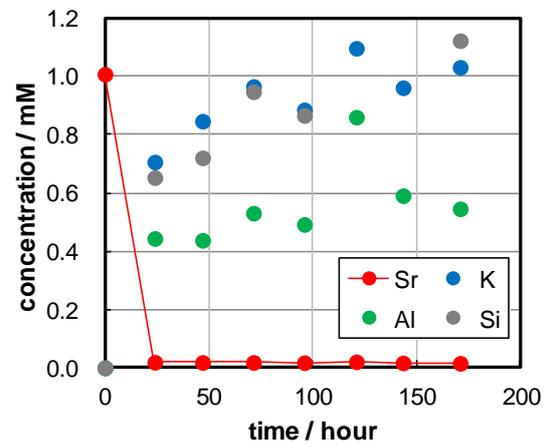
(a) Csの絹雲母への収着(pH 5)



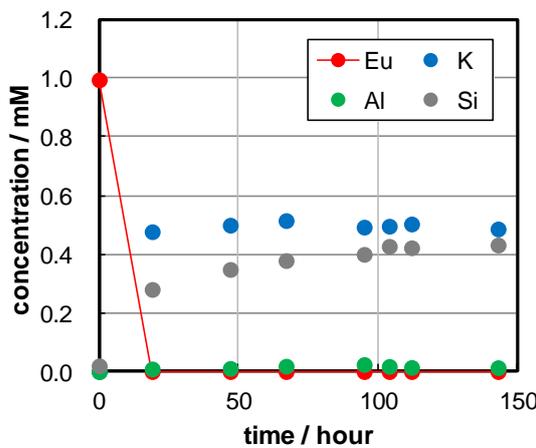
(b) Csの絹雲母への収着(pH 8)



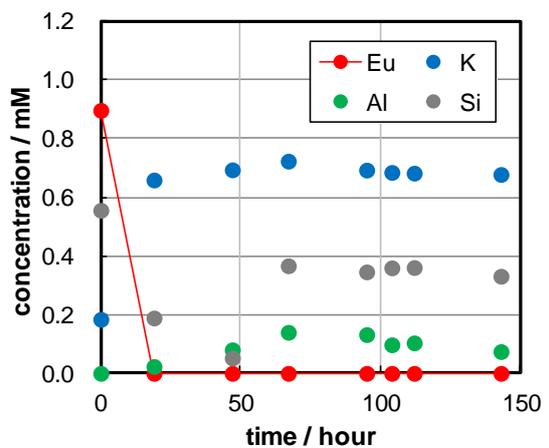
(c) Srの絹雲母への収着(pH 5)



(d) Srの絹雲母への収着(pH 8)



(e) Euの絹雲母への収着(pH 5)



(f) Euの絹雲母への収着(pH 8)

図 20 絹雲母粉末への Cs, Sr および Eu の収着挙動。

ケイ酸塩鉱物の末端の OH 基との相互作用に起因するものと考えられる。Hussain らは緑泥石及びイライトのゼータ電位測定から等電点を評価しており[17]、緑泥石については 2.5、イライトについては 3.0 としている。また、本研究の pH 範囲に対するゼータ電位は、緑泥石及びイライトともにはほぼ同じく、pH 5 については約  $-25$  mV、pH 8 については約  $-30$  mV と得られている。これらから、本研究の pH 範囲においては緑泥石及び絹雲母の表面が負に帯電しており、pH 5 よりも pH 8 において負電荷が大きくなるために、トレーサー収着が増加したと考えられる。

図 21 は、Eu 溶液及び Eu 収着試験後の蛍光減衰挙動である。有意な蛍光強度が測定できた範囲について強度の規格化を行い整理した。Eu 溶液について見ると、pH 5 よりも pH 8 において蛍光寿命が長くなった。一般に、液相中の Eu イオン( $\text{Eu}^{3+}$ )は蛍光発光エネルギーが水分子の OH 振動によって奪われるために蛍光寿命が短くなる。一方、pH 8 において Eu は加水分解により  $\text{Eu}(\text{OH})_3$  のコロイド状態として凝集し、Eu 一つあたりに影響する内圏の水分子数が  $\text{Eu}^{3+}$  よりも少なくなるため、蛍光寿命が長くなると考えられる。収着試験後に関して図 21 には pH 5 における緑泥石を用いた場合のみを示しているが、蛍光強度自体が Eu 溶液のみと比べて非常に小さかったことに加え、蛍光減衰も速やかだったことから、蛍光エネルギーが顕著に奪われるような、Eu と固相との密接な相互作用が生じていると推測される。なお、pH 8 における緑泥石への収着試験、及び pH 5 と pH 8 における絹雲母への収着試験についても蛍光分光分析を行ったが有意な蛍光強度が得られなかった。特に、pH 8 において蛍光減衰が取得できなかったことについては、pH 8 における Eu の加水分解種が図 21 のように観察できたことを考慮すると、加水分解種として沈殿しているのみならず、緑泥石及び絹雲母と密接に相互作用している可能性が示唆される。

今後は、実環境における核種収着に影響が大きいと考えられるイオン強度の依存性についても検討する予定である。

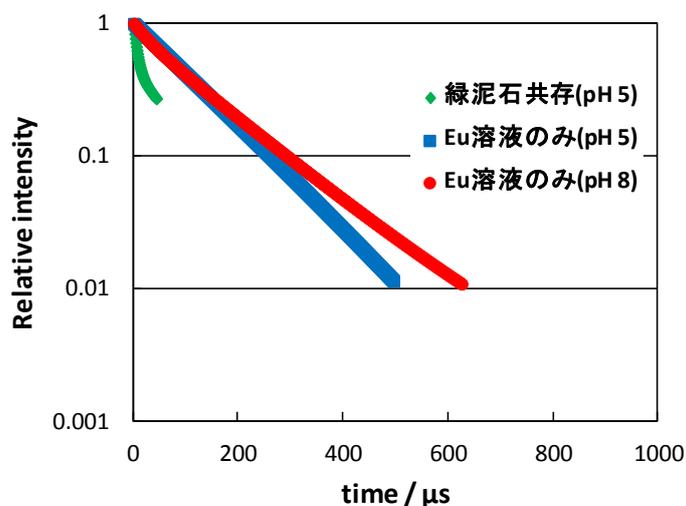


図 21 各条件における Eu の蛍光減衰挙動。

#### 4.4 残された課題と今後の計画

平成 28 年度は、概ね計画通りに収着試験や分析、解析を実施した。前節においても言及した今後の検討課題について本節にまとめる。

黒雲母薄片を用いた Cs, Sr 及び Eu の収着試験においては、有意な収着挙動が確認できなかった試験条件もあったため、トレーサー濃度等の試験条件を見直し改めて収着試験を実施する。数学モデルによる黒雲母薄片内のトレーサーの拡散係数評価に関しても、再取得したデータを基に解析を実施するとともに、再考が必要なパラメータ(物質移行係数)についても検討する。緑泥石及び絹雲母を用いた収着試験に関しては、各鉱物試料の比表面積を取得するとともに、鉱物からの成分溶出を確認する。また、黒雲母薄片ならびに変質鉱物を用いた収着試験については、実環境を考慮すると核種収着には共存イオンの影響が大きいことを考慮して、イオン強度の影響について検討する必要がある。

平成 29 年度は、2 章に示した全体計画に沿えば白雲母及び金雲母薄片を用いた収着試験に取り組むことになる。白雲母( $\text{KAl}_2(\text{Si}_3\text{Al})\text{O}_{10}(\text{OH})_2$ )は花崗岩に含有される場合があるとともに、絹雲母と組成が類似するため絹雲母の層構造内への核種収着と関連づけた検討が期待される。また、金雲母( $\text{KMg}_3\text{AlSi}_3\text{O}_{10}(\text{OH})_2$ )は黒雲母の八面体部分から同型置換の Al と Fe が抜けた組成であり、八面体部分に起因した負電荷の有無による収着挙動を比較できると考える。加えて、2 八面体の白雲母と 3 八面体の金雲母といった構造の違いが収着に及ぼす影響についても調べられよう。しかしながら、今年度までの検討を通じて残された優先度の高い課題が前述のように多々あることから、白雲母及び金雲母に関する検討はある程度試験条件を絞り可能な範囲で実施することを検討する。また、研究総括として、当該年度までの雲母薄片や変質鉱物を用いた収着挙動検討についてとりまとめ、花崗岩を想定した天然バリア中の核種遅延効果に影響が大きい因子を整理し、より実現象に即した核種移行評価(処分システムの性能評価)に反映する手法の提示を目指す。

#### 5. まとめ

平成 28 年度は、前年度までに引き続き、黒雲母薄片及び変質鉱物を用いた収着試験を実施した。トレーサーとして、これまで実施した Eu に加え、Cs 及び Sr を用い、pH をパラメータとして収着挙動を調べた。黒雲母薄片に対する収着検討においては、Eu と比べて Cs の収着が大きく、薄片内部にも相当量の浸入が確認された。一方で、Cs の場合は試験開始直後に収着がほぼ終了するのに対し、Eu は緩やかに薄片への収着及び拡散浸入が続くことが確認された。このようなトレーサーによる違いについては、収着データが適切に取得できなかった Sr の再試験を含めて、今後検討を継続する。また、緑泥石及び絹雲母への収着検討においては、価数の大きいトレーサーほど収着が大きくなる傾向が確認された。緑泥石及び絹雲母は粉末試料を用いたことから、トレーサーと接触しやすい端部割合が非常に大きく、端部に露出している負の層電荷に対して価数に応じて収着したためと考えられる。

黒雲母薄片内のみかけの拡散係数は  $10^{-13} \sim 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$  オーダーと試算されたが、再試験結果の適用と使用パラメータ見直しという点で検討の余地がある。

## 引用文献

- [1] 核燃料サイクル開発機構：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 次取りまとめ一分冊 3 地層処分システムの安全評価 (1999).
- [2] Y. Niibori, H. Futamata and H. Mimura: Evaluation of Radionuclide Transport in Rock Matrix with Heterogeneous Distribution of Retardation Coefficient. Proc. of 16th Pacific Basin Nuclear Conference (16PBN), P16P1074, 1-6 (2008).
- [3] 式又裕文, 新堀雄一, 三村均：マイクロモックアップ法による遅延効果の空間分布の評価手法の検討, 日本原子力学会東北支部第 31 回研究交流会講演要旨集, 9-10 (2007).
- [4] 朽山修, 高須亜紀, 池田孝夫, 木村英雄, 佐藤正知, 長崎晋也, 中山真一, 新堀雄一, 古屋廣高, 三頭聰明, 山口徹治：核種移行モデルにおける収着分配係数の概念とその適用性, *原子力バックエンド研究*, **5**(1), 3-19 (1998).
- [5] 吉田英一, 西本昌司, 長秋雄, 山本鋼志, 勝田長貴：地下花崗岩体の変質とその形態－産総研岡山応力測定用深部花崗岩コア試料の変質を例に－, *応用地質*, **49**(5), 256-265 (2008).
- [6] S. Nishimoto, H. Yoshida: hydrothermal alteration of deep fractured granite: Effects of dissolution and precipitation, *Lithos*, **115**, 153-162 (2010).
- [7] S. Nishimoto, H. Yoshida, Y. Asahara, T. Tsuruta, M. Ishibashi, N. Katsuta: Episyenite formation in the Toki granite, central Japan, *Contrib Mineral Petrol*, 1-12 (2014).
- [8] 原環センター：平成 26 年度放射性廃棄物共通技術調査等事業 放射性廃棄物重要基礎技術研究調査(国庫債務負担行為に係るもの) 報告書(H27 年度分), 研究報告 5. (2016).
- [9] 原環センター：平成 26 年度放射性廃棄物共通技術調査等事業 放射性廃棄物重要基礎技術研究調査(国庫債務負担行為に係るもの) 報告書(H26 年度分), 研究報告 5. (2015).
- [10] <https://www.kth.se/en/che/medusa>
- [11] 南條光章：分析化学実技シリーズ応用分析編 1 巻 表面分析, 共立出版 (2011).
- [12] 澁谷朝紀, 西川義朗, 乾真一, 内館信幸, 油井三和：Se の岩石および鉱物に対する吸着挙動に関する研究, 動力炉・核燃料開発事業団 東海事業所 (1994).
- [13] 奥村雅彦, 中村博樹, 町田昌彦：福島環境修復に向けた計算科学技術：セシウム汚染廃棄土壌減容のための第一原理計算, *Computational Science & Engineering (計算科学技術部会 ニュースレター)*, **20**, 10-23 (2013).
- [14] B. Delvaux, N. Kruyts, E. Maes, et al.: Fate of Radiocesium in Soil and Rhizosphere, *Trace Elements in the Rhizosphere* (edited by G.R. Gobran, W.W. Wenzel, E. Lombi),

CRC Press, Florida, 61-91 (2001).

[15] M. B. McBride: *Environmental chemistry of soils*, Oxford University Press, New York (1994).

[16] Yizhak Marcus : *Ion properties*, CRC press (1997).

[17] S. A. Hussain, S. Demirci, G. Özbayoğlu: Zeta Potential Measurements on Three Clays from Turkey and Effects of Clays on Coal Flotation, *J. Colloid Interface Sci.*, **184**, 535-541 (1996).

## 平成 28 年度 外部発表

<外部発表>

[1] 千田太詩, 豊田丈通, 新堀雄一: 緑泥石および絹雲母への陽イオン核種収着挙動, 第 32 回バックエンド夏期セミナー要旨集 (2016). 【ポスター発表】

[2] 豊田丈通, 千田太詩, 新堀雄一: 薄片状黒雲母へのユウロピウムの収着における pH 依存性, 日本原子力学会「2016 年秋の大会」要旨集, 1D21 (2016). 【口頭発表】

[3] Taiji Chida, Tomoyuki Toyota, Yuichi Niibori: Sorption Behavior of Cationic Radionuclides on Biotite Flakes at pH 5, Proceedings of WM2017 Conference, Phoenix, USA, March 5-9, Paper No. 17326 (2017). 【査読有り論文, ポスター発表】 (accepted)

<受賞>

第 32 回バックエンド夏期セミナーにて「緑泥石および絹雲母への陽イオン核種収着挙動」を発表し, 日本原子力学会バックエンド部会よりポスター賞を受賞.



## 研究報告 6

# 高レベル放射性廃棄物処分に関わる アジェンダ・セッティング（政策課題設定）の 基礎的研究

東京大学 大学院工学系研究科

小松崎 俊作



## I. 研究題目

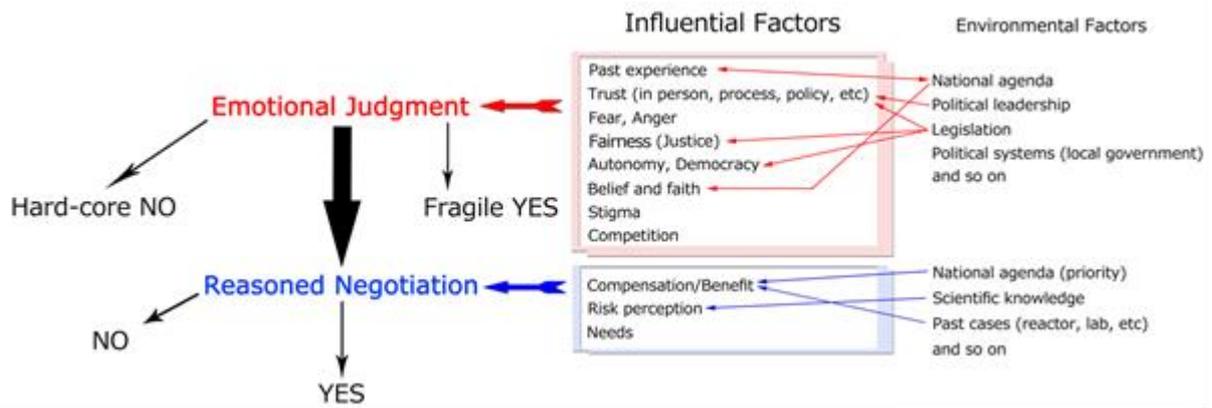
高レベル放射性廃棄物処分に関わるアジェンダ・セッティング（政策課題設定）の基礎的研究

## II. 研究の背景・目的

東日本大震災及び福島第一原子力発電所事故は、それまで気候変動対策やエネルギー安全保障などの観点から世界各国で推進の気運が高まっていた原子力発電政策を大きく転換するきっかけとなり、各国で改めて脱原発を含めたエネルギー政策論争が巻き起こっている。一方で、原子力発電の継続の如何に関わらず、少なくとも過去の発電等で生じた放射性廃棄物について処分政策を検討する必要があるのはどの国も同じであり、また我が国においては事故・除染由来の廃棄物なども新たに発生し、放射性廃棄物の処分はより重要性を増した政策課題となった。しかし、事故によって高まった放射性廃棄物処分に対する社会的認知にも関わらず、最も重要な高レベル放射性廃棄物(HLW)の最終処分施設立地についての政策的議論は、これまでのところ実質的にはほぼ進展がなかった。これは、例えば、1990～1991年のフランスで、全国的な反対運動を受けて首相が処分地選定事業を中止し、1年間のモラトリアムの間にクリスチャン・バタイユ国会議員による総合調査を行い、抜本的な政策改善を図った例や、韓国において2003～2004年に全羅北道扶安郡で起こった処分施設立地に関わる紛争を踏まえて、イ・ヘチャン国務総理大臣らの主導で大幅な政策転換を図った例とは対照的である。

筆者らはこれまでに日本・スイス・フランス・韓国における放射性廃棄物処分施設立地に関わる紛争事例を調査・研究し（Komatsuzaki, 2013; 山口ら, 2011; Komatsuzaki, et al., 2010; 西郷ら, 2010 など）、その結果、下図 1 に示すようなステークホルダーの態度形成モデルを構築するに至った。高レベル放射性廃棄物処分を実現するためには、まず福島第一原子力発電所事故で大きく損なわれた専門家や政府に対する信頼を回復し、人々が納得する政策を提示する必要がある（社会的意思決定を行う「素地」が醸成される必要がある）。そのためには、社会全体が処分を「今意思決定・実施すべき政策である」という意識を共有すること、すなわちアジェンダ・セッティング（政策課題設定）が不可欠である。ただし、アジェンダ・セッティングのあり方は国の制度・文化等のコンテキストを踏まえて検討するべきである。

そこで、本研究では、処分事業に対する国民・社会の理解促進と信頼性向上をはかる上での前提条件となるアジェンダ・セッティングについての研究を通じて、社会的意思決定に関わる研究の効率的な進展に貢献し、処分事業の社会的側面に関する理解を深めることを最終目標とする。そのために、本研究は（1）高レベル放射性廃棄物処分のためのアジェンダが設定されるための要因を抽出し、（2）我が国における高レベル放射性廃棄物処分のために有効なアジェンダ・セッティングのあり方を提示することを目的とする。



(図 1：放射性廃棄物処分施設/政策受け入れに関わるステークホルダーの態度形成モデル)

本研究では、それ以前の研究も含めて多くの事例研究を実施して、アジェンダ・セッティングのプロセスについては一定の定性的理解を得た。放射性廃棄物処分事業が進展している国には限りがあり、過去の研究対象となった事例の多くは海外事例であった。我が国の文脈を踏まえてアジェンダ・セッティングを設計するためには、国内事例・環境の研究も必要であるが、やはり対象となり得る事例には制約がある。また、現実の行政・政策実施の観点から、地元住民などへのインタビュー調査を含めた研究を遂行することが、必ずしも受け入れられない可能性もある。

一方で、処分地選定に向けた第一歩として、いわゆる「科学的有望地」の公表など、具体的政策が実施される見通しがあり、処分施設立地という目標を達成するため、具体的な方策（特にアジェンダ・セッティングの観点で）がより強く求められるという状況もある。HLW 処分とは必ずしも一致しない政策領域だが、近年設定された「地方創生」というアジェンダ・セッティングは、地方自治体が原子力あるいは放射性廃棄物処分事業をまちづくりの観点で見直すきっかけとなるかもしれない。

こうした状況、タイミングを踏まえて、平成 28 年度は、これまで数年にわたって行ってきた社会調査データを活用して、定量データの分析を通じた、具体的施策、ないしその影響プロセスの検討に注力することとした。また、「科学的有望地」の公表を見据えて、公表の前後での態度変容を観察・分析するための社会調査と、パネルデータを用いた中長期的な態度の変遷を分析するための社会調査を実施した。加えて、本研究事業が後半 2 年に入ったことも考慮して、過去の研究成果を対外発表することにも積極的に取り組んだ。

第一に、「周囲の意見」とそれに関する認知が態度形成に与える影響について、過去の社会調査データを用いた定量的分析を行った。これまでに行った定性的事例研究では、特に受け入れを検討する自治体において、社会一般で観察されるほどには HLW 処分施設受け入れに対して強硬に反対する市民ばかりではなかった。一方で、2011 年の福島第一原子力発電所事故後には、当研究における社会調査で、HLW 処分施設を受け入れてもよいとする回答者の割合が増加していたが、例えばそうした回答者の居住する自治体が実際に文献調査に応募するとなった場合、必ずしもその態度を維持するとは言い切れないという疑問もあった。アジェンダ・セッティングと直接関係しない論点であるが、このような「ホンネとタテマエ」を理解することは、(1) アジェンダ・セッティングによって形成された「ホンネ」を実行に移す、あるいは (2) 「ホンネ」があったとし

ても、コミュニティの維持・一体感のために「タテマエ」で行動する、といったことのために必要な施策を検討することにつながる。こうした「周囲の意見」とそれに対する認知が態度形成に与える影響を考慮すれば、アジェンダ・セッティングや合意形成、公衆討議において、効果的な「範囲」（有権者・参加者等）の設定ができるようになることが期待される。

第二に、2011年の福島第一原子力発電所事故が人々の態度形成に与えた影響の分析を継続した。単に事故が及ぼした影響を把握することが主眼ではなく、態度形成過程を理解するため、事故を「自然実験」と見なした検討を行う。具体的には、アジェンダ・セッティング（ないしそのきっかけとなった施策）による態度形成への影響を把握し、有効な施策を検討するために、人々の態度形成過程を定量的に検証することが必要である。そこで、過去の定性的研究で推定されてきた二段階の態度形成過程（二重過程モデル）を検証するため、人々の原子力・HLW 処分に対する関心（態度形成過程（精緻化見込みモデル（ELM）でいう「中心ルート処理」か「周辺ルート処理」か）を決める要因）が、福島第一原子力発電所事故によってどのように変化したかを分析した。

第三に、これまで継続して実施してきた、HLW 処分に関わる人々の態度についての社会心理学的調査を継続した。ただし、今年度は「科学的有望地」の公表が予定されているため、そうした情報提供、フレーミングが態度形成に与える影響を分析するため、例年実施するパネル調査とは別に、「科学的有望地」の公表前後で実施する社会調査も設計した。これは「周囲の意見」による影響と同様、当事者意識、「範囲」の設定など、態度形成（ないし表出）に影響を与える要因の抽出につながる。

### III. 研究成果

#### 1. 「周囲の意見」が態度形成に与える影響の分析

##### 1.1. 研究の背景と目的

東日本大震災、及びその後の福島第一原子力発電所の事故は、原子力規制委員会の設立や、ドイツの脱原発への動きなど、国内外の原子力発電・サイクル政策論議に大きな影響を与えたことは言うまでもない。しかしながら、我が国においては、事故後、事故由来の新たな放射性廃棄物の処分ニーズや、放射性廃棄物に対する社会的認知が高まったにもかかわらず、高レベル放射性廃棄物（HLW）処分についての政策的な議論は進展していない。このことは、放射性廃棄物処分に関する社会的関心が高まった後に、放射性廃棄物処分に関する議論が進展した他国の事例<sup>1</sup>とは対照的である。

今後、我が国が原子力発電に頼ることになるか否かにかかわらず、これまでに生成された放射性廃棄物は何らかの形で処分を行わなければならない。その意味で、原子力が持続可能なエネルギー源であるかどうかといった議論は、放射性廃棄物の処理方法に関する何らかの決定や合意がなされない限り、そもそも現実的ではないということになる。

<sup>1</sup> 例えば、1990～1991年のフランスでは、HLW 処分地の決定過程において全国的な反対運動が発生し、首相による1年間のモラトリアムが宣言された後、バタイユ議員による抜本的な政策改善の提案があった。2003～2004年の韓国においては、全羅北道扶安郡での紛争のあと、イ・ヘチャン国務総理らによる抜本的な政策の改善がなされている。

また、エネルギー供給のサステナビリティのみならず、放射性廃棄物処分をどのようにして行うのかという政策的課題は、ガバナンスのサステナビリティという観点からも極めて重要な課題であるといえる。我が国においては、2007年1月に、HLW 処分場の立地検討に先立つ文献調査に、高知県東洋町が初めて応募を行っている。しかし、応募前後を通じて、町内は賛否に揺れて混乱し、結果として応募を主導した町長が4月に辞職、選挙を経て応募反対の立場をとる新町長によって応募が取り下げられるに至った（和田ら 2009；西郷ら 2010；Komatsuzaki, 2014）。政治的決定としては一定の決着が見たことになるが、事後、反対派にとってみても、このような決着が町全体のガバナンスにとって禍根を残した決着であったという指摘もなされている（Komatsuzaki, 2014）。

こうしたエネルギーやそれをめぐる政策やコミュニティに関するサステナビリティにとって重要な HLW 処分の問題について、東日本大震災や、その後の福島第一原子力発電所の事故といった大きな事象が発生したにもかかわらず、なぜ我が国においては政策課題の設定（アジェンダ・セッティング）が行われなかったのであろうか。

一つのルートとして、震災後の原子力に関連する 이슈 についての人々の態度形成の在り方が重要であると考えられる。震災以降、多くの人が放射能に恐怖を感じ、不安の声が大きくなる状況の中では、おそらく多数派であろう原発・処分場の反対派は声を上げやすくなり、賛成派は声が小さくなっていったことが予想される。このようなプロセスは、社会心理学において、「沈黙の螺旋」として理論化されており（Noelle-Neumann, 1993）、人々が賛成派・反対派に分かれる社会的な態度をめぐって、一般的に見られる現象である。

特に、HLW 処分のような、本音で態度を表明しにくい対象の場合、自分が多数派か少数派かという認知が、態度の表明に影響を与えやすと考えられる。このような場合、自派が多数らしいと認識した人々は、自説を主張しやすくなり、公的な意見表明としてよりいっそう「聞こえやすく」なる。一方、少数派の側は主張しにくく沈黙しがちになる。このような過程が繰り返されることを「螺旋過程」と呼ぶ。螺旋過程が生じる結果、もともとの差が小さくても、結果として大きな差異が生み出され、多数派形成が進行していく。すなわち、「もともとの差が小さくても」、すなわち両方の派閥に考慮されるべき重要な論点があったとしても、螺旋過程が生じる結果、圧倒的な大差となり一方の意見が黙殺されることが起こりうるのである。

こうした「沈黙の螺旋」過程は、より一般的な態度形成に関する「二重過程モデル」の中に位置づけることもできる。二重過程モデルとは、人間には二つの情報処理様式があるとする理論的枠組みであり、関連する多くのモデルが提案されているが、心理学の分野におけるもっとも代表的なものに精緻化見込みモデル（Petty and Cacioppo, 1986）がある。精緻化見込みモデルとは、人間の態度形成に、対象となる 이슈 の内容を詳細に検討して態度を形成する中心ルートと、詳細に立ち入らず、周辺的情報によって判断するルート（周辺ルート）があると考えられるモデルであり、現在でもマーケティングや政策の満足度に関する研究への応用が多く行われている<sup>2</sup>。特に原子力に関連する 이슈 のように、リスクを伴う科学技術に関する住民の態度形成の分析にはしばしば活用されており、例えば先に挙げた高知県東洋町の事例について、和田ら（2009）や

---

<sup>2</sup> 前者の例として、後に紹介する Liu and Shrum（2009）、後者の最新の研究として、Andersen and Hjortskov（2016）がある。

Komatsuzaki (2014) が、二重過程モデルによる解釈を試みている。これらの研究では、周辺ルートによって住民の態度形成が行われることが課題設定の阻害要因となりうることが指摘されている。

ここで、HLW 処分に関するイシューに関して、中心ルートによる態度形成に用いられる「中心的情報」と周辺ルートによる態度形成に用いられる「周辺的情報」にはどのようなものが考えられるのだろうか。前者については、科学的根拠のあるリスクやベネフィットの情報が考えられ、後者としては、情報源の信頼性や同じ主張をしている情報の量などが指摘されている（中谷内，2004；和田ら，2009）。この見方からすれば、先に挙げた「沈黙の螺旋」は、「周囲の意見」を周辺的情報として周辺ルートを用いて態度形成をしたものであると解釈することも可能である。人が周辺ルートを用いるか中心ルートを用いるかは、関与度（対象となるイシューへの関心やこだわり）や知識による。すなわち、関与度や知識が高い人々は対象に対して熟考することが動機づけられ中心ルートによる態度形成を行うが、関与度や知識が低い人々は熟慮のための動機付けや能力が低いために周辺的情報を用いた周辺ルートによる態度形成を行う（深田，2004）

HLW 処分の文脈において、「周囲の意見」は、ここでの解釈のように、周辺的情報の一部として効果を持つものなのであろうか。また、中心ルートを用いて態度形成を行う集団には、「周囲の意見」はどのような効果を持つのであろうか。さらに、国内外の事例分析から明らかのように（西郷ら 2010；山口ら 2011），HLW 処分場受け入れの支持派と反対派で、また HLW 処分に関連する影響の諸側面について異なった態度形成が行われていると考えられることも重要である。

以上を踏まえ、本稿では、HLW 処分に関する態度形成の過程について、以下の問いに答えることを目的とする。

- 中心ルートを用いると考えられる集団と周辺ルートを用いると考えられる集団では、態度形成において「周囲の意見」がもたらす影響は異なっているのか？
- この影響は支持派と反対派で、あるいは、態度形成の対象となるイシューによって異なっているのか？

これらの問いに答えるため、本研究では、2016年2月～3月に実施したオンラインによる質問紙調査の結果を分析する。この分析を通じて、社会的影響の一つの形態であると考えられる「周囲の意見」が、HLW 処分に関するイシューの態度形成において、二重過程モデルに基づく情報処理の中でどのように機能するかについて、支持派と反対派、またイシューに関連する複数の態度について検討し、HLW 処分についての政策課題の設定に関する含意を導く。

本稿の構成は以下のとおりである。次節では、二重過程モデルに基づく本研究の枠組みと、それに基づいて仮説を提示する。1.3 節では本研究で実施した調査の概要と、本稿における変数の操作化について述べる。1.4 節では分析の結果を提示し、1.5 節でまとめと示唆、本研究の限界と今後の展望を述べる。

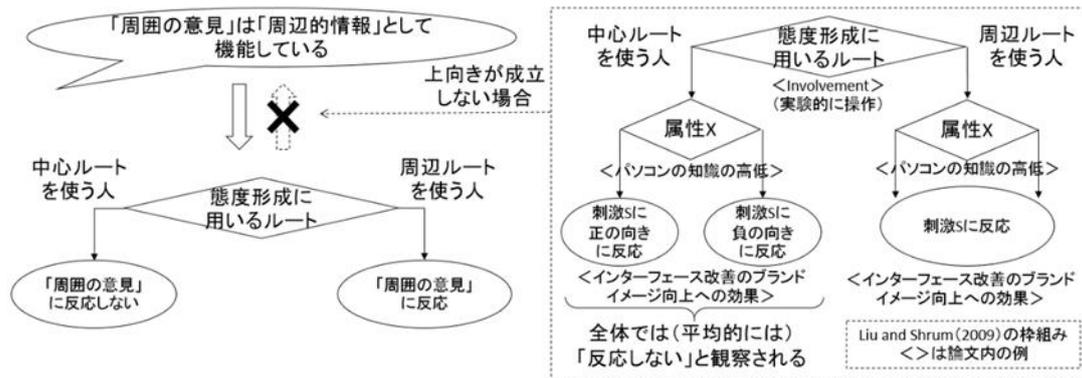


図 1-1 「周遍的情報」の判別と Liu and Shrum (2009) の枠組み

## 1.2. 分析の枠組み

ある情報（本稿では「周囲の意見」）が、精緻化見込みモデルでいう、周辺ルートで用いられる情報（周遍的情報）なのか、中心ルートで用いられる情報（中心的情報）なのかについて観察されたデータをもとに判別する際には以下に述べるような注意が必要となる。もし、「周囲の意見」を、周遍的情報（であり、中心的情報ではない）と考えるのであれば、周辺ルートを用いると考えられる集団では、周囲の意見によって意見が異なり、中心ルートを用いると考えられる集団では、周囲の意見に関する情報の違いによって意見に変化はないという結果が観察されることになる（図 1-1 左の下向きの矢印）。しかしながら、逆に、中心ルートを用いると考えられる集団の意思決定に関して、平均としては刺激の効果が調査の結果において検出されない場合でも、それは必ずしも「周囲の意見」が周遍的情報としてのみ用いられていることを意味しない（図 1-1 左の上向きの矢印）。

このことを説明する枠組みとして、周辺ルートを用いると考えられる集団に「周遍的情報」として用いられる情報が、中心ルートを用いると考えられる集団にも用いられており、その効果の方向性が集団内の性質の違いによって異なる場合がある（その結果、中心ルートを用いると考えられる集団全体でみると、その情報の効果は「平均的には」観察されない）ことが Liu and Shrum (2009) によって指摘されている（図 1-1 右）。

Liu and Shrum (2009) はまず、電気製品を紹介するウェブサイトのインターフェイスの向上が、ブランドイメージに与える影響について、被験者の関与度の高低（中心ルートか周辺ルートか；実験的に操作している）に応じて平均的な効果が異なることを示している。具体的には、関与度の低い（周辺ルートを用いていると考えられる）集団では、インターフェイスの向上がブランドイメージの向上に結びついているが、関与度の高い（中心ルートを用いていると考えられる）集団では、インターフェイスの向上がブランドイメージの向上に結びつかない。

しかしながら、中心ルートを用いると考えられる集団について、ウェブサイトのインターフェイスの向上がブランドのイメージに結びつかないのが、インターフェイスの向上が「周遍的情報」に過ぎないとするのは、製品選択の際の判断要素としてのインターフェイスの現実における重要性を鑑みると、自然ではない。そこで、Liu and Shrum (2009) はパソコンについての知識の高低でさらにそれぞれの集団を分け、分析を実施した。その結果、関与度の低い（周辺ルートを

用いていると考えられる) 集団では、知識の高低にかかわらず、インターフェイスの向上がブランドイメージの向上に結びついているために、全体としてもインターフェイスの向上の効果が検出されているが、関与度の高い(中心ルートを用いていると考えられる) 集団では、知識の高いサブ集団において、インターフェイスの向上の正の効果が検出される一方、知識の低いサブ集団においては、インターフェイスの向上の負の効果が検出され、その結果、全体平均としてインターフェイスの向上の効果が検出されなくなっていることが明らかとなった。これは、周辺ルートを用いると考えられる集団は、インターフェイスの内容について詳細に検討することなしに、「インターフェイスが良い」ということのみをもってブランドイメージを向上させるのに対し、中心ルートを用いると考えられる集団は、よくなったインターフェイスそのものの内容を踏まえ、もともとそうしたインターフェイスの扱いに慣れている集団(コンピュータの知識が高い集団)においては、そのインターフェイスの良さが認識されて、それがブランドのイメージ向上に結びついている一方、インターフェイスの扱いに慣れていない集団(コンピュータの知識が低い集団)においては、かえってブランドのイメージが低下していることを示している。すなわち、中心ルートを用いると思われる集団内においても、その中の属性の違いによってさらに態度形成過程が異なることが示唆されているのである。

本稿で扱う HLW 処分場の受け入れに関する態度形成において、「沈黙の螺旋」理論でいう「周囲の意見」は、周辺ルートの態度形成で用いられる情報(周知的情報)として、あるいは、中心ルートの態度形成で用いられる情報(中心的情報)として機能するのだろうか。以上の枠組みを踏まえると、集団の属性(ここでは支持派か反対派か)や態度形成の対象となる 이슈によって、「周囲の意見」が果たす機能に差異が存在すると考えられ、この点にも注意が必要である。そこで本稿では、後述する 18 項目と、支持派・反対派それぞれの集団における態度形成について、「周囲の意見」が、支持派・反対派、それぞれの集団において、どのように用いられるのかについて検討する。

### 1.3. 調査の概要と変数の操作化

#### 1.3.1. 調査期間・対象

2016 年 2 月中旬～3 月上旬にかけて、日本全国を対象に、オンラインによる質問紙調査を行った。調査は震災前の 2011 年から継続的に実施しており(高浦ら, 2013)、本調査では、計 1194 名から回答を得た。このうち、本稿の分析対象は、前年調査の質問項目を用いたことから、2015 年 2 月に行われた調査から継続して調査に参加したパネル回答者 954 名である。この 954 名と、新たに調査に参加した新規回答者 240 名のサンプルはいずれも(株)クロスマーケティングの保有するモニターから得たものである。ここでの分析対象であるパネル回答者の性別は、男性 610 名、女性 344 名で、平均年齢は 51.5 歳であった。

このように、本研究の分析対象は、調査会社のモニターから選ばれた、オンラインの質問紙調査への回答者であり、しかもパネル調査への回答者であることから、結果の外的妥当性は、自ずと限定的なものにならざるを得ない。しかしながら、以下に述べるように、「周囲の意見」に関する環境については、ランダムに割り付けを行ったため、パネル回答者の集団の中での環境の効果に関しては妥当な推論が可能である。

### 1.3.2. 質問項目

本調査では、高浦ら（2013）で報告されている 2011 年の調査内容を継続して尋ねている。詳細な質問内容については高浦ら（2013）に記載があるので、ここでは本稿で着目する質問についてのみ述べるにとどめる。

まず、Liu and Shrum（2009）の分析では、中心ルートによる態度形成と周辺ルートによる態度形成を実験的に操作しているが、質問紙調査においてはこのような認知に係る操作を実施することは極めて難しい。一方、二重過程モデルを参照した原子力に関する研究を見ると、原子力発電への態度の規定因について検討した角田（2000）や大山（2001）は、知識の高低によって態度を規定する因子が異なることを示しており、本稿では、これらの研究に倣って、中心ルートを用いていると想定される集団と周辺ルートを用いていると想定される集団の分類を、知識の高低で分類することとした。2016 年の調査には、原子力に関する知識を質問に含んでいないため、前述のように、本分析では対象をパネル回答者に絞り、2015 年調査における知識に関する質問への回答を基準に知識の高低を分類した。具体的には、「あなたは、原子力発電に関する以下の事柄について、どのくらいよく知っていますか。」という質問群のうち、「高レベル放射性廃棄物」について、「1.人に説明できる」「2.よく知っている」「3.聞いたことはある」「4.まったく知らない」の 4 件法で回答を得たものから、前二者の回答者を「高知識群」、後二者の回答者を「低知識群」と分類した。

この分類を前提に、本稿の分析では、以下に示すように、「周囲の意見」が態度形成に及ぼす影響を、特に着目すべき回答者の属性—ここでは「HLW 処分場立地の受容」の程度—と、形成の対象となる態度別に検討した。(2)では群を分けた実験的操作を行っている。

(1)調査時に処分施設誘致の文献調査に対する態度を測定し、回答者を反対派もしくは支持派にグループピングした。

(2)それぞれのグループに、「自分の意見は多数派である」もしくは「自分の意見は少数派である」ことを示す統計情報のどちらか一方をランダムな確率で提示した。

(3)上記の操作後、高レベル放射性廃棄物の地層処分に対するネガティブな意見及びポジティブな意見に対する、同意の程度を測定した。

(1)本研究では、特に着目する回答者の属性に関する変数として、「HLW 処分場立地の受容」の程度を取り上げた。具体的には、「もしあなたのお住いの自治体が、高レベル放射性廃棄物処分施設誘致の文献調査に立候補した場合、あなた自身はそれを支持しますか。」という質問について、「1.支持する」「2.やや支持する」「3.あまり支持しない」「4.支持しない」の 4 件法で回答を尋ね、前二者の回答者を「支持派」、後二者を「反対派」と分類した。

(2)本稿の分析で検討したい主要な効果は、「周囲の意見」が態度形成に及ぼす影響である。「周囲の意見」を実験的に操作するため、(1)のグループそれぞれについて、以下の二つのシナリオのうちいずれかをランダムに提示した。反対派多数シナリオは、支持派にとっては「自分の意見がマイノリティ」、反対派にとっては「自分の意見がマジョリティ」、支持派多数シナリオは逆に、支持派にとっては「自分の意見がマジョリティ」、反対派にとっては「自分の意見がマイノリティ」として認識されることを意図した実験的刺激である。なお、シナリオ内の統計情報は、調査者が意図的に操作したものであることから、調査終了時に、そのような操作があったことを開示し、

回答者に謝罪した。

- 反対派多数シナリオ：「本調査における既回答者から抽出した結果では、自分の自治体が文献調査に立候補した場合、「支持する」が3割、「支持しない」が7割であることがわかっています。」
- 支持派多数シナリオ：「本調査における既回答者から抽出した結果では、自分の自治体が文献調査に立候補した場合、「支持する」が7割、「支持しない」が3割であることがわかっています。」

ここまでの分類の結果として得られた各群のサンプル数を表 1-1 に示す。

表 1-1 群の分類とサンプル数

(表中数字は N)	高知識/反対	高知識/支持	低知識/反対	低知識/支持	計
反対派多数シナリオ	128	78	219	54	479
支持派多数シナリオ	133	63	222	57	475
計	261	141	441	111	954

(3)本研究で検討の対象とする態度としては、放射性廃棄物処分場が立地したとしたときの、ポジティブな影響とネガティブな影響、それぞれ9項目、計18個の言説に対する賛否を用いる。ネガティブな影響に関する言説は、「1.人々の意見を尊重していない」「2.特定の関係者の利益のために行われている」「3.立地場所が公正な方法で決められていない」「4.やり方に無駄が多い」「5.役に立たないものを造る」「6.環境を破壊している」「7.税金を無駄遣いしている」「8.安全性が確保されていない」「9.情報が適切に公開されていない」の9項目、ポジティブな影響に関する言説は、「10.人々の暮らしに役立つ」「11.人々の生命と財産の安全のために役立つ」「12.雇用の促進に役立つ」「13.日本経済に貢献する」「14.美しい国土づくりのために必要」「15.私たちの世代にとって必要」「16.子どもや孫の世代にとって必要」「17.科学技術によって安全性が確保されている」「18.危険性などの情報が適切に公開されている」の9項目である。それぞれの言説に対する賛否を「1.そう思う」「2.ややそう思う」「3.あまりそう思わない」「4.そう思わない」の4件法で尋ね、回答を比較した。

「沈黙の螺旋」理論からは、少数派と認識した回答者は、自派と一致する意見への同意の程度が弱まり、反対に、多数派と認識した回答者は自派と一致する意見への同意の程度が強まることが予想される。つまり、「沈黙の螺旋」理論が正しければ、支持派多数の環境下では、ポジティブ情報に対する賛成が増え、ネガティブ情報に対する反対が増える一方、反対派多数の環境下では、ポジティブ情報に対する反対が増え、ネガティブ情報に対する賛成が増えるはずである。また、この「周囲の意見」が精緻化見込みモデルにおける周辺的情報として機能しているとすれば、周辺ルートを用いると考えられる集団（ここでは低知識群）においてこうした傾向がみられる一方で、中心ルートを用いると考えられる集団（ここでは高知識群）においてはそうした傾向はみられないといった現象が観察されることが考えられる。

## 1.4. 結果

図 1-2・図 1-3 は、支持派多数の環境と反対派多数の環境における態度を、知識の高低の各群（それぞれ中心ルート・周辺ルートを用いて態度形成を行うと考えられる群で、前者を実線、後者を破線で示している）と、支持派・反対派を分けて、18 項目の 이슈別 に示したものである（図 1-2・図 1-3 はそれぞれネガティブ情報・ポジティブ情報に対する態度に関する結果である）。縦軸方向の数値は、それぞれの情報に対して、「そう思う」と回答した場合を 4、「そう思わない」と回答した場合を 1 としたときの、それぞれの環境と群における回答の平均値をとっている。まず、基本的に確認できることとして、ネガティブ情報への賛否（図 1-2）については、反対派の方が同意の度合いが高く、支持派の方で同意の度合いが低い。同様に、ポジティブ情報への賛否（図 1-3）については、支持派の方が同意の度合いが高く、反対派の方で同意の度合いが低い。

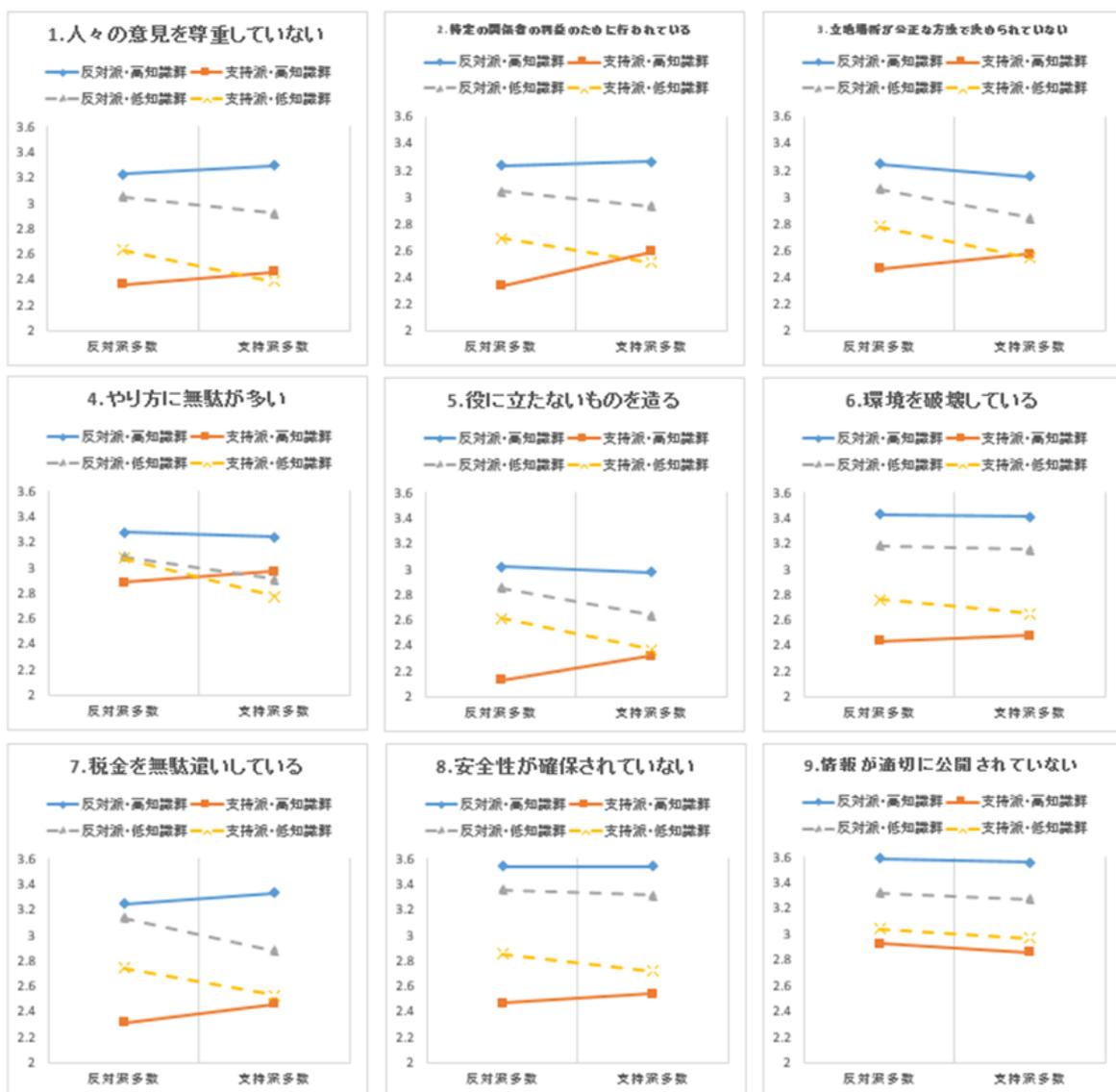


図 1-2 支持派多数・反対派多数の環境の違いによるネガティブ情報に対する態度の違い

次に、二重過程モデルによる解釈の妥当性を確認するため、二つのシナリオの下での高知識群（実線；中心ルートで態度形成を行うと考えられる集団）と低知識群（破線；周辺ルートで態度形成を行うと考えられる集団）の態度の差（各グラフにおける傾き）を考える。「周囲の意見」が周辺の情報として用いられると考えられる場合、支持派・反対派問わず、周辺ルートで態度形成を行うと考えられる集団（低知識群）において「沈黙の螺旋」現象が観察され、中心ルートで態度形成を行うと考えられる集団（高知識群）においては「沈黙の螺旋」現象は観察されないはずである。つまり、「周囲の意見」を周辺の情報として用いると想定した精緻化見込みモデルに基づく態度形成が行われるとしたとき、低知識群（破線、すなわち周辺ルートで態度形成を行うと考えられる集団）について、ネガティブ情報（図 1-2）への態度で右下がり、ポジティブ情報（図 1-3）への態度について右上がり、また、高知識群（実線、すなわち中心ルートで態度形成を行うと考えられる集団）においてはいずれも傾きがない場合に予測通りの現象が観察されていることになる。

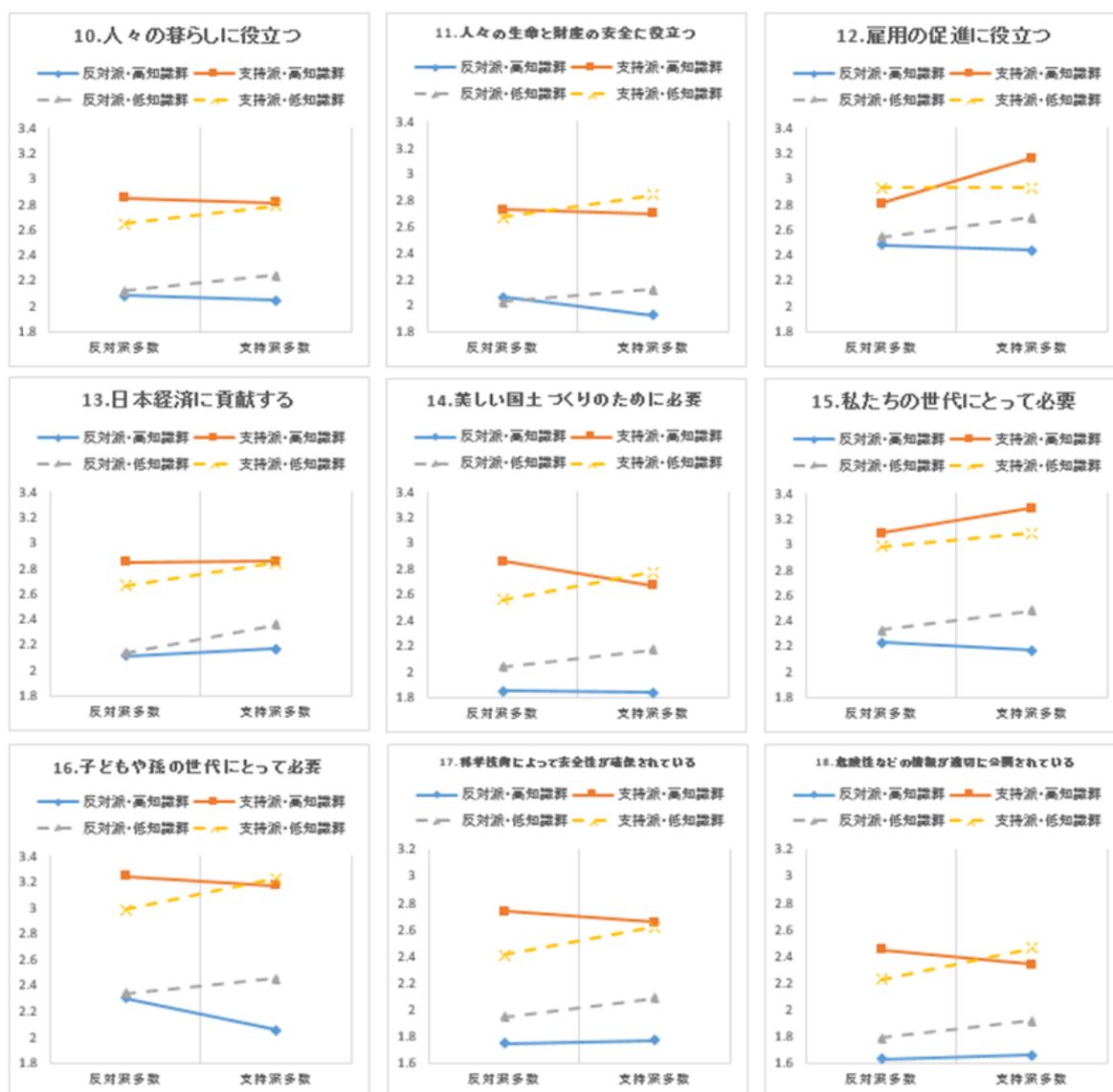


図 1-3 支持派多数・反対派多数の環境の違いによるポジティブ情報に対する態度の違い

表 1-2 は、ネガティブ情報・ポジティブ情報それぞれの態度について、四つの群について、支持派多数の環境と反対派多数の環境で差異がみられるか否か（「沈黙の螺旋」現象がみられたかどうか、グラフ上で有意な傾きがあるかどうか）について、平均値の差の検定結果をまとめたものである。支持派の低知識群（周辺ルートで態度形成を行うと考えられる群）ではサンプル数が限られていることもあり、有意な差を見出すまでには至らない項目もあるが、図 1-2・図 1-3 も合わせて見ると、多くの項目において<sup>3</sup>、支持派・反対派を問わず、高知識群（中心ルートで態度形成を行うと考えられる群）では、多数派か否かにかかわらず態度は比較的不变であるのに対し、低知識群（周辺ルートで態度形成を行うと考えられる群）では、「沈黙の螺旋」理論の予測する通りの社会的影響を受けていることが分かる。この結果は、放射性廃棄物処分に関するいくつかの 이슈において、「周囲の意見」が周情的情報として用いられている場合があることを示しているものと考えられる。

表 1-2 支持派多数の環境と反対派多数の環境での態度（平均）の差に関する検定結果

		【反対派】		【支持派】	
		周辺ルート	中心ルート	周辺ルート	中心ルート
		(低知識群)	(高知識群)	(低知識群)	(高知識群)
<b>「沈黙の螺旋」理論の予測</b>		<b>+</b>		<b>+</b>	
ネガティブ情報	1 人々の意見を尊重していない	+		++	
	2 特定の関係者の利益のために行われている	(+)		(+)	--
	3 立地場所を公正な方法で決められていない	+++		++	
	4 やり方に無駄が多い	++		++	
	5 役に立たないものを造る	+++		(+)	
	6 環境を破壊している				
	7 税金を無駄遣いしている	+++		(+)	
	8 安全性が確保されていない				
	9 情報が適切に公開されていない				
ポジティブ情報	10 人々の暮らしに役立つ	(+)			
	11 人々の生命と財産の安全に役立つ	(+)			
	12 雇用の促進に役立つ	++			+++
	13 日本経済に貢献する	+++			
	14 美しい国土づくりのために必要	+		(+)	
	15 私たちの世代にとって必要	++			(+)
	16 子どもや孫の世代にとって必要	(+)	--	++	
	17 科学技術によって安全性が確保されている	+++		(+)	
	18 危険性などの情報が適切に公開されている	++		++	

注: +は「沈黙の螺旋」理論が予測する方向に、-は予測とは逆の方向に統計的に有意な差が見出されることを示す(平均値の差に関するt検定)。1~18で示した行の符号の個数は有意水準を示し、+++は1%、++/--は5%、+は10%水準で(以上は両側検定)、(+は片側検定で10%水準で有意な差があることを示す。

<sup>3</sup> 一部、「周囲の意見」に関する環境条件が変化をもたらさない項目を見ると、「6.環境を破壊している」「8.安全性が確保されていない」「9.情報が適切に公開されていない」といった言説に対する賛否の態度がこれに該当しており、これらのイシューについては、態度形成において「周囲の意見」が情報として用いられないものと解釈できる。

このように、多くの 이슈について、周辺ルートを用いると考えられる集団（低知識群）においてのみ「周囲の意見」の影響がみられることは、「周囲の意見」を精緻化見込みモデルにおける周情的情報と考える 1.2 節で示した枠組みから解釈可能であるが、興味深いのは、中心ルートを用いると考えられる集団（高知識群）において、周囲の意見が態度形成に影響を及ぼしているとみられる（すなわち図 1-2・図 1-3 で支持派多数と反対派多数の環境間で差異（傾き）が観察される）項目である。

第一に、中心ルートを用いると考えられる集団（高知識群）においても、「沈黙の螺旋」理論の予測する通りの社会的影響を受けている場合である。「12.雇用の促進に役立つ」「15.私たちの世代にとって必要」への賛否では、支持派の中心ルートを用いると考えられる集団（高知識群）において、支持派が多数の環境において反対派が多数の環境に比べて賛成が多くなっている。（加えて、支持派の周辺ルートを用いると考えられる集団（低知識群）ではむしろ「周囲の意見」の影響が見られない。）いずれの項目も、中心ルートを用いると考えられる集団、つまり高知識の集団だからこそ考えるような、タブーとなっている HLW 処分場立地のメリットについての認識であり、中心ルートを用いると考えられる高知識群の支持派ですらも、少数派の環境では言いづらいが、多数派の環境になって初めて言及できるようになる様子を示しているものと思われる。

第二に、精緻化見込みモデルによれば、中心ルートを用いると考えられる集団（高知識群）は、自らの意見が多数派か少数派かによって意見を変えないことになるはずであるが、むしろ、自らの意見が多数派の場合に、それを支持する情報に対する「反対」を強化し、支持しない情報に対する「賛意」を強化するといったことが観察されることである。

図 1-2・図 1-3 を見ると、こうした現象は、支持派について多く観察される。（支持派の高知識群について、図 1-2 では右肩下がり、図 1-3 では右肩上がりの傾きが観察されない—周囲の意見に左右されない—のではなく、むしろ図 1-2 では右肩上がり、図 1-3 では右肩下がりの傾きが観察される項目である。）例えば、このうち統計的に有意な差を持つ、「2.特定の関係者の利益のために行われている」について考えてみると、支持派の中心ルートを用いると考えられる集団も、こうした手続き面での不満を抱えており、自らが少数派の環境においては、反対派の議論に加担することになるために強調しないが、自らの意見が多数派の環境において、はじめてそうした不満を表出していると解釈することができる。

反対派ではこうした項目は多くないが、唯一「16.子どもや孫の世代にとって必要」に対する賛否でこうした傾向が見られている。支持派の場合と同様に、自らが少数派の環境においては、支持派の議論に加担することになるために強調しないが、自らの意見が多数派の環境においては、処分場立地の必要性に関する自らの態度をはじめて表出できるようになると解釈することができる。

## 1.5. まとめと示唆

本稿では、「沈黙の螺旋」理論が扱うような、「周囲の意見」が人々の態度形成において果たす役割が、精緻化見込みモデルの「周情的情報」として位置付けて理解することができるか否かについて、オンラインで実施した質問紙調査の結果から計測した、HLW 処分場の立地に関する様々な 이슈への態度を題材に検討した。その結果、HLW 処分に関する多くの 이슈に関する

人々の態度形成において、「周囲の意見」が精緻化見込みモデルにおける周辺的情報として機能していること、また、特に文献調査支持派のうち、中心ルートを用いると考えられる高い知識を持つ集団では、支持派が多数と想定される環境において、むしろ手続き等に対する不満が浮上しやすい傾向があること、が明らかとなった。

本研究で得られた知見は、HLW 処分場選定という政策課題の設定の難しさを再確認するものである。第一に、分析の結果、多くの項目において、支持派・反対派を問わず、高知識群（中心ルートで態度形成を行うと考えられる群）では、多数派か否かにかかわらず態度は比較的不変であるのに対し、低知識群（周辺ルートで態度形成を行うと考えられる群）では、「沈黙の螺旋」理論の予測する通りの社会的影響を受けていることが分かった。

本稿の分析では、仮想的な「周囲の意見」に対する人々の態度の差異を計測したが、この現象が理論通り「螺旋過程」として生じると、片方の意見が圧倒的な大差となり一方の意見が黙殺される可能性がある。このような状況に陥ると、支持派・反対派で話し合い、両方の意見を汲み取り、熟考して態度を決めていくことが不可能となる。また、少数派は意見を主張できなくなるため、こちらもまた本音と乖離した意見表明にとどまってしまう可能性がある。こうした態度形成が行われた場合、冒頭で示したように、処分場の受け入れに関する最終的な意思決定が、それぞれの市民の望むとおりになるか否かにかかわらず、関係したコミュニティに禍根を残す可能性がある。

第二に、以上の結果は、片方の立場を説得したいアクターに対しては、全体として「多数派か少数派か」といったフレーミングが態度形成に影響を与えるため、そうしたフレーミングに成功するか否かが重要であるという示唆を導くことになるが、特に支持派の立場をこうした形で広めようとするには、大きな困難が伴う。なぜなら、本稿での分析によれば、支持派の中心ルートを用いると考えられる集団（ここでの分析では高知識群）には、多数派になればなるほど、むしろ手続きなどに対する疑問が浮上しやすいといった傾向があり、仮にこの集団に対してフレーミングによる態度形成を成功させたとしても、支持派の高知識群（中心ルートを用いると考えられる集団）という処分事業推進の核ともいべきこのグループが多数派になると（例えばある自治体での推進が現実的になると）、それまで黙認していたデメリットや不満を（あえて）述べるようになる可能性があることが示唆されるからである。

もちろん、本研究の手法にはいくつかの限界があり、導かれた結果や含意の妥当性については、今後さらなる検討が必要である。本研究の分析が抱える限界について、三点に言及しておきたい。第一に、サンプルの代表性である。1.3 節で述べたように、本稿の分析の対象は、調査会社のモニターから選ばれた、オンラインの質問紙調査への回答者である。さらに、本稿の分析では、パネル調査の二波にわたる質問項目を利用して分析を行ったことから、分析の対象をパネル回答者に絞っており、分析結果の外的妥当性は、自ずと限定的なものにならざるを得ない。

第二に、本研究において、中心ルートと周辺ルート、それぞれを用いると考えられる集団の区別は、先行研究に従い知識の高低で行っているが、どちらのルートを用いているかの判断として適切な基準になっているかどうかは明らかでない。したがって、本稿とは別の基準でのルートの区分を試みることは重要であると考えられる。特に、HLW 処分に関して、中心ルートを用いて態度形成を行うか、周辺ルートを用いて態度形成を行うかは、例えば回答者の周囲に原子力関連

の施設がもともと立地していたか否か、また、東日本大震災や福島第一原子力発電所の事故の影響を受けた地域かどうか等、他の基準でも分けられうるものだと考えられる。加えて、本分析での知識の高低は、知識に関する自己申告に拠って分類したが、客観的な知識レベルをもとに分類した方が、態度形成において用いられるルートを選択とよく対応する可能性がある。

第三に、質問紙調査での分析では、環境の差異（本稿では「周囲の意見」）がもたらす効果は、短期的なものでしかない。現実の態度形成と、質問紙で実験的に与えた環境の差異に対する反応の間には距離があるものと考えられ、より長期にわたる態度形成と本稿のような質問紙調査の分析結果の整合性に関する検討が不可欠である。

本章冒頭で述べたように、HLW 処分に関する人々の態度について理解することは、複数の意味でサステナビリティを考える上で重要な示唆を持つ。本稿の分析結果は、HLW 処分に関する人々の態度形成を理解するうえで、二重過程モデルによる解釈が有用なものであることを示すものであり、この結果と解釈について、追加的な調査も含め、今後さらなる検証と検討が求められる。

## 2. 2011年福島第一原子力発電所事故が人々の態度形成に与えた影響の分析

### 2.1. はじめに

本研究では、平成22年2月と平成23年2月、平成24年2月、平成27年2月、平成28年2月に、一般の回答者に対してインターネットを用いたアンケート調査を実施してきた。主な検討内容は、行政の信頼と高レベル放射性廃棄物処理事業に対する態度の関係、高レベル放射性廃棄物処分場立地において提案されている複数の政策（1か所立地、複数立地、中間貯蔵継続）に対する人々の選好などについてである。また、平成23年3月における東日本大震災を受け、原子力発電に関する事業における行政の信頼にどのような変化があったのか、その変化の大きさを規定する要因は何であったのか、といった点も、震災前後の調査の両方に回答した回答者のデータを用いて検討した。こうした社会心理学的分析は、アジェンダ・セッティングの文脈では、市民の態度形成要因を踏まえて「どのようなアジェンダを設定すべきか（どのような政策課題がアジェンダたり得るのか）」という研究課題に応えるものである。

過去のアンケート調査の結果から、震災後に処分場の受け入れ態度は「受容」の方向に一時的に変化しており、このことから、HLW処分の政策過程において「震災後」はpolicy windowが開いていた（アジェンダ・セッティングが可能となる）タイミングであると推定される。しかしながら、その後処分についての議論が進行しなかったことは、そのタイミングにおいて、HLW処分に関わる政策形成過程に入るためのアジェンダ・セッティングがなされなかったためであると解釈することができる。

一方で、これまで処分場受け入れ態度に対して影響を与える因子として信頼と原子力発電のメリットとリスクの認識を考えてきた。震災後4年で、原子力発電のリスク認識そのものは従来の水準に戻つつあるが、震災後に「行政への信頼」や「原子力発電の経済性」の受け入れ態度に対する効果が弱くなっていることが明らかとなった。従って、今後HLW処分に関するアジェンダ・セッティングを実現するためには、政府に対する信頼や、原子力発電のメリット認識を高めること以外に、処分場受け入れの心理的障害の特定し、それを除去する方策を考えることがこれまで以上に必要となると考えられる。

### 2.2. 二重過程モデル

原子力発電所や高レベル放射性廃棄物処分場のような、立地に社会的な受容を要するような公共事業についての態度形成要因としては、設置主体である行政の信頼性の評価や、安全性・経済性といった施設そのものへの評価などがある（Flynn et al., 1992; Slovic, 1987; 田中, 1997）。しかしながら、それらの態度形成要因と態度の関連の強さは、人々が置かれている文脈によって異なる。社会心理学におけるヒューリスティック・システムティックモデル（heuristic systematic model: HSM）（Chaiken et al., 1989）や精緻化見込みモデル（elaboration likelihood model: ELM）（Petty and Cacioppo, 1986）といった人々の態度形成に関する理論においては、人々がある事物への態度を形成する際、その事物についての知識や関心（関与度）が高い場合、人々は情報をよく吟味し賛成か反対かを分析的に判断するシステムティック処理（HSM）及び中心ルート処理（ELM）を行うとされる。一方、人々の関与度が低ければ、認知的な負担の軽減のために情報の吟味を避け、周辺的な手がかりをもとにした直感的な判断を行うヒューリスティック処理（HSM）

及び周辺ルート処理（ELM）を行うと考えられる。

これらのモデルを高レベル放射性廃棄物処分場立地の文脈に適用すると、原子力発電や処分場そのものの安全性・経済性・環境性（環境に優しいこと）を評価し受け入れ態度を規定するルートは中心ルート（もしくはシステムティック処理）と考えることができる。一方、事業主体である行政への信頼によって態度を規定する（すなわち、信頼できる者に「おまかせ」する）ルートは周辺ルート（もしくはヒューリスティック処理）と見なすことができる（高浦ら, 2013）。

もしそうであれば、人々の態度の規定因としての行政への信頼は、福島第一原発事故前（2011年3月以前）と比較して、原子力発電や高レベル放射性廃棄物への関与度が高まった震災後においては、その重要性が減少すると考えられる。一方、原発についての評価は、震災の後、態度の規定因としての重要性が上昇することが考えられる（図2-1）。すなわち、態度を規定する要因の構造が、原発事故前後で変化することが予想される。社会心理学分野においては、公共事業への賛否を決める重要な要因として、これまで行政への信頼が重点的に検討されてきたが（Bord and O' Connor, 1990; 山崎ら, 2008）、もし上記の仮設が正しいならば、行政への信頼を高めることによって事業を社会的に受容してもらおうというストラテジーが、震災以降はもはや通用しなくなっているということを示唆する。すなわち、信頼できる政府への「おまかせ」で社会的決定を達成するのではなく、国民が情報をよく吟味し分析的に判断し態度を形成することを目指すステージに移行していると考えられる。しかしながら、震災後にそのような中心ルートが主流になった（policy window が開いた）としても、時間とともに人々の関与度が低下すれば、再び周辺ルートの態度形成の重要性が高まるだろう。

これらの考察から、人々の態度形成要因は動的であり、その時々タイミングに合った態度形成を促す戦略を取ることの重要性が示唆される。このような人々の動的な態度形成要因を捉えるためには、震災前後の調査データを含む時系列的分析が必要となる。ここでは2011年の震災直前から2016年まで毎年行われたインターネットパネル調査のデータを用いて（ただし、2014年のみ未調査）、行政への信頼や原発についての評価とHLW処分場受け入れ態度の関連が、どのように変化したのかをパネル分析によって検討することを目的とした。

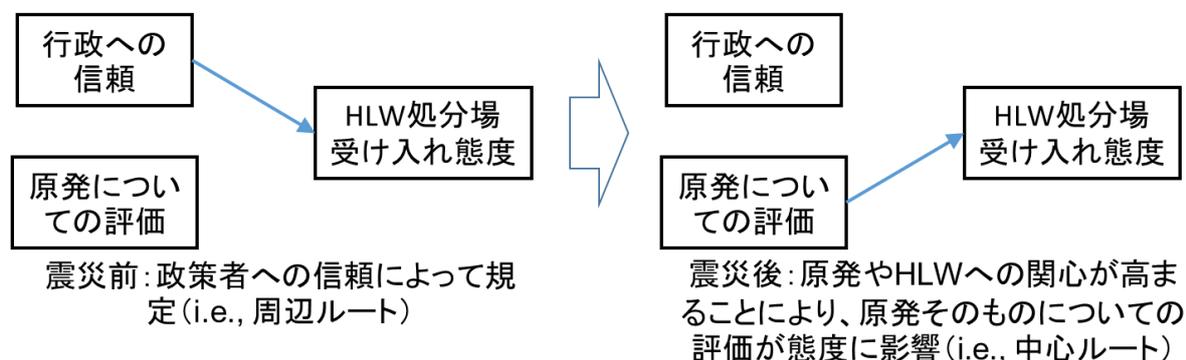


図 2-1 : 原発事故が態度形成過程に与えた影響についての仮説

### 2.3. 原発事故が態度形成過程に与えた影響の推定

前年度、これらの受け入れ態度に与える影響の大きさやその経時的な変化を調べるため、各調

査年度につき、処分場の受け入れ態度を応答変数とし、政府への信頼やメリット認識を説明変数とした多変量分析を行った（重回帰分析・順序ロジット分析）。この分析の結果を示したものが表 2-1・表 2-2 である（なお、政府の信頼とメリット認識に関しては、数値が低いほど、高い信頼やメリット認識を示す尺度となっているため、負の符号を示すとき信頼・メリット認識が高く受け入れ態度も高いことを示す）。このうち、原子力発電の経済性・環境への優しさ・安全性に関するメリット認識も投入して分析した結果が、表 2-1・2-2 の右半分に示したものである。

表 2-1 : 推定結果 (重回帰分析)

Table 1: Regression results (OLS)

	without perceptions on nuclear energy				with perceptions on nuclear energy			
	2011	2012	2013	2015	2011	2012	2013	2015
female	-0.236*** (0.036)	-0.155*** (0.036)	-0.161*** (0.030)	-0.166** (0.055)	-0.165*** (0.033)	-0.128*** (0.035)	-0.122*** (0.028)	-0.118* (0.054)
living years	-0.001 (0.001)	0.001 (0.001)	-0.003*** (0.001)	-0.001 (0.002)	-0.002* (0.001)	0.001 (0.001)	-0.003** (0.001)	-0.000 (0.002)
trust in gov'n't	-0.243*** (0.032)	-0.071* (0.033)	-0.071** (0.027)	-0.134** (0.051)	-0.120*** (0.030)	-0.053 (0.033)	-0.044 (0.026)	-0.091 (0.050)
ethics of gov'n't	0.049** (0.019)	0.019 (0.020)	0.028 (0.017)	0.028 (0.029)	0.054** (0.017)	0.008 (0.019)	0.010 (0.016)	0.016 (0.028)
fairness of gov'n't	-0.016 (0.017)	-0.007 (0.017)	0.008 (0.015)	0.049 (0.027)	-0.008 (0.015)	-0.003 (0.017)	0.005 (0.014)	0.035 (0.026)
ability of gov'n't	0.038* (0.017)	0.014 (0.018)	0.015 (0.015)	-0.023 (0.029)	0.026 (0.016)	0.018 (0.018)	0.020 (0.015)	0.004 (0.028)
surveillance of gov'n't	0.037** (0.013)	0.027 (0.014)	0.042*** (0.012)	0.035 (0.022)	0.017 (0.013)	0.016 (0.014)	0.026* (0.011)	0.018 (0.021)
transparency of gov'n't	-0.004 (0.012)	0.010 (0.018)	-0.031* (0.015)	-0.038 (0.026)	0.016 (0.011)	0.027 (0.018)	0.003 (0.014)	0.002 (0.025)
inability of citizens	0.019 (0.011)	0.022* (0.011)	0.027** (0.009)	0.041* (0.016)	0.025** (0.010)	0.020 (0.011)	0.025** (0.008)	0.036* (0.016)
risk (scale) recognition	-0.142*** (0.012)	-0.100*** (0.013)	-0.137*** (0.010)	-0.172*** (0.020)	-0.097*** (0.011)	-0.075*** (0.013)	-0.102*** (0.010)	-0.124*** (0.019)
risk (prob.) recognition	-0.097*** (0.006)	-0.086*** (0.007)	-0.048*** (0.006)	-0.077*** (0.010)	-0.061*** (0.006)	-0.067*** (0.007)	-0.025*** (0.006)	-0.050*** (0.010)
economy					-0.052* (0.024)	-0.006 (0.021)	-0.012 (0.016)	0.024 (0.034)
environment friendliness					-0.182*** (0.027)	-0.073** (0.026)	-0.129*** (0.022)	-0.137** (0.043)
safety					-0.363*** (0.027)	-0.288*** (0.031)	-0.304*** (0.025)	-0.304*** (0.048)
constant	4.084*** (0.146)	3.658*** (0.153)	3.235*** (0.117)	3.828*** (0.218)	4.833*** (0.139)	4.522*** (0.163)	4.208*** (0.122)	4.414*** (0.218)
<i>N</i>	3360	4000	5200	1450	3360	4000	5200	1450
<i>R</i> <sup>2</sup>	0.206	0.094	0.102	0.189	0.329	0.136	0.180	0.251
log likelihood	-4764.330	-6058.040	-7570.706	-2047.273	-4482.911	-5963.594	-7334.378	-1990.257
aic	9552.660	12140.080	15165.413	4118.546	8995.821	11957.189	14698.755	4010.515
bic	9626.097	12215.609	15244.090	4181.898	9087.617	12051.600	14797.101	4089.704

Standard errors in parentheses. Only 2011 survey was before the earthquake.

\*  $p < 0.05$ , \*\*  $p < 0.01$ , \*\*\*  $p < 0.001$

表 2-2 : 推定結果 (順序ロジット分析)

Table 2: Regression results (Ordered Logit)

	without perceptions on nuclear energy				with perceptions on nuclear energy			
	2011	2012	2013	2015	2011	2012	2013	2015
female	-0.385*** (0.066)	-0.215*** (0.059)	-0.212*** (0.052)	-0.236* (0.104)	-0.277*** (0.067)	-0.176** (0.059)	-0.160** (0.053)	-0.154 (0.105)
living years	-0.002 (0.002)	0.002 (0.002)	-0.005*** (0.002)	-0.001 (0.003)	-0.005* (0.002)	0.002 (0.002)	-0.004** (0.002)	0.000 (0.003)
trust in gov'n't	-0.463*** (0.060)	-0.131* (0.056)	-0.148** (0.049)	-0.275** (0.097)	-0.241*** (0.063)	-0.109 (0.056)	-0.112* (0.049)	-0.218* (0.099)
ethics of gov'n't	0.091** (0.035)	0.027 (0.033)	0.066* (0.030)	0.030 (0.053)	0.104** (0.035)	0.008 (0.033)	0.038 (0.031)	0.011 (0.054)
fairness of gov'n't	-0.031 (0.031)	-0.012 (0.029)	-0.001 (0.027)	0.107* (0.052)	-0.008 (0.031)	-0.005 (0.029)	-0.006 (0.027)	0.084 (0.052)
ability of gov'n't	0.073* (0.033)	0.032 (0.031)	0.017 (0.027)	-0.048 (0.055)	0.046 (0.033)	0.043 (0.031)	0.029 (0.028)	0.013 (0.056)
surveillance of gov'n't	0.086*** (0.025)	0.059* (0.024)	0.092*** (0.021)	0.079 (0.041)	0.052* (0.026)	0.038 (0.024)	0.064** (0.021)	0.037 (0.042)
transparency of gov'n't	-0.006 (0.021)	0.019 (0.030)	-0.060* (0.027)	-0.079 (0.049)	0.035 (0.022)	0.046 (0.030)	0.004 (0.027)	-0.002 (0.050)
inability of citizens	0.033 (0.020)	0.041* (0.018)	0.053*** (0.016)	0.083** (0.030)	0.054** (0.020)	0.041* (0.018)	0.055*** (0.016)	0.077* (0.031)
risk (scale) recognition	-0.247*** (0.022)	-0.165*** (0.021)	-0.232*** (0.018)	-0.300*** (0.038)	-0.184*** (0.023)	-0.125*** (0.021)	-0.184*** (0.018)	-0.227*** (0.038)
risk (prob.) recognition	-0.188*** (0.012)	-0.148*** (0.012)	-0.098*** (0.011)	-0.167*** (0.020)	-0.133*** (0.012)	-0.119*** (0.012)	-0.059*** (0.011)	-0.117*** (0.021)
economy					-0.141** (0.051)	-0.017 (0.036)	-0.043 (0.031)	0.066 (0.066)
environmental friendliness					-0.369*** (0.055)	-0.130** (0.045)	-0.236*** (0.041)	-0.317*** (0.083)
safety					-0.775*** (0.057)	-0.485*** (0.053)	-0.568*** (0.047)	-0.606*** (0.093)
cut1	-4.246*** (0.280)	-3.110*** (0.256)	-2.467*** (0.213)	-3.821*** (0.422)	-6.373*** (0.305)	-4.688*** (0.284)	-4.468*** (0.238)	-5.308*** (0.450)
cut2	-2.715*** (0.275)	-1.717*** (0.253)	-1.220*** (0.211)	-2.440*** (0.415)	-4.646*** (0.297)	-3.252*** (0.280)	-3.133*** (0.234)	-3.833*** (0.441)
cut3	-1.002*** (0.272)	-0.178 (0.252)	0.487* (0.212)	-0.548 (0.412)	-2.712*** (0.290)	-1.659*** (0.276)	-1.315*** (0.232)	-1.816*** (0.431)
cut4	0.412 (0.276)	1.149*** (0.254)	1.556*** (0.218)	0.542 (0.420)	-1.160*** (0.291)	-0.298 (0.277)	-0.195 (0.236)	-0.664 (0.436)
<i>N</i>	3360	4000	5200	1450	3360	4000	5200	1450
<i>R</i> <sup>2</sup>								
log likelihood	-4527.932	-5829.065	-6858.091	-1863.341	-4226.566	-5731.212	-6617.140	-1800.977
aic	9085.863	11688.131	13746.181	3756.682	8489.132	11498.425	13270.280	3637.953
bic	9177.659	11782.541	13844.528	3835.871	8599.286	11611.718	13388.295	3732.981

Standard errors in parentheses. Only 2011 survey was before the earthquake.

\*  $p < 0.05$ , \*\*  $p < 0.01$ , \*\*\*  $p < 0.001$

メリット認識に関する変数を投入すると、重回帰分析の結果（表 2-1）においては、震災直前の 2011 年に受け入れ態度に有意な影響を持っていた政府への信頼が、震災後の二年間においては有意な影響をもたなくなっており、順序ロジット分析の結果（表 2-2）でも、震災一年後の 2012 年においては政府への信頼は処分場の受け入れ態度に対して有意な説明力を持っていない。

これと同様の傾向を持つのが、原子力発電についてのメリット認識のうちの「経済性」である。重回帰分析においても順序ロジット分析においても、震災直前の調査では処分場の受け入れ態度に対して有意な影響を持っていた原子力発電の経済性についての認識は、震災後においては有意な影響を持たなくなっている。これに対して、原子力発電についてのメリット認識のうち、「環境への優しさ」「安全性」に関しては、震災一年後の 2012 年について若干影響の大きさを示す係数値の低下がみられるものの、震災後も受け入れ態度に対して有意な影響を引き続き持っている。また、統制変数として投入した、処分場における事故のリスクについての認知は、その大きさについても確率についても一貫して受け入れ態度に対して有意な影響を持っている。

上記の分析において、行政への信頼や原発への評価に関する変数の回帰係数や有意確率が、調査年によって変動していたことが示唆された。そこで、2016 年 2 月に収集された第 5 波の調査データも加えて、行政への信頼、原発への評価（経済性、環境への優しさ、安全性）、及び調査年を説明変数に、そして高レベル放射性廃棄物処分場の受け入れ態度を被説明変数に用いた重回帰分析を行った。また、行政への信頼及び原発への評価と被説明変数の関連の強さが年によって異なるかどうかを検討するために、行政への信頼×調査年、原発の経済性認知×調査年、環境性認知×調査年、安全性認知×調査年の各交互作用項を説明変数としてモデルに投入し、その効果を検討した。分析モデルは、回答者が複数の調査データを持つパネルデータの構造になっているため、各年の回答が各回答者にネストしているランダム効果モデルを適用した。なお、交互作用項を用いた分析モデルは説明変数間の多重共線性が高くなる傾向があるため、行政への信頼と原発への各評価の説明変数ごとに別々のモデルを作成して分析を行った。

ここでは、各変数の数値が大きいほど、それぞれの指標へのあてはまりが高いことを示している（例えば、行政への信頼は数値が大きいほど行政を信頼していることを表し、原発の経済性認知も数値が大きいほど「原子力発電は経済的である」と考える傾向が強いことを意味する。高レベル放射性廃棄物処分場の受容についても、数値が大きいほど「受け入れてもよい」という肯定的態度となっていることを意味する。）。

表 2-3 に行政への信頼と調査年の交互作用効果の分析結果を示す。なお、coefficient は（非標準化）回帰係数を、95% CI は 95%信頼区間を表している。

表 2-3 : HLW 処分施設の受容に対する, 行政への信頼の影響

被説明変数: 高レベル放射性廃棄物処分場の受容		
	Coefficient	95% CI
切片	2.611 *	(0.818, 4.403)
性別(男=1, 女=0)	-0.301	(-1.256, 0.653)
年齢	-0.001	(-0.037, 0.036)
調査年		
2011年	0.127 *	(0.035, 0.219)
2012年	0.534 *	(0.479, 0.589)
2013年	Reference	
2015年	0.013	(-0.081, 0.107)
2016年	-0.012	(-0.139, 0.115)
行政への信頼	-0.006	(-0.063, 0.051)
深刻さ認知	-0.055 *	(-0.072, -0.039)
生起確率認知	-0.004 *	(-0.005, -0.003)
原発の経済性	-0.024	(-0.053, 0.006)
原発の環境性	0.041 *	(0.006, 0.077)
原発の安全性	0.134 *	(0.094, 0.174)
.....		
交互作用項		
2011年×行政への信頼	0.088 *	(0.011, 0.166)
2012年×行政への信頼	0.001	(-0.061, 0.062)
2013年×行政への信頼	Reference	
2015年×行政への信頼	0.023	(-0.059, 0.104)
2016年×行政への信頼	0.141 *	(0.047, 0.234)

\* $p < .05$

表 2-3 から, 調査年の主効果に関しては, reference とした 2013 年と比較して, 2011 年 (Coefficient [coef.] = 0.127, 95% CI: 0.035, 0.219) と 2012 年 (coef. = 0.534, 95% CI: 0.479, 0.589) に HLW 処分場の受け入れ態度が高かったことが示されている。一方, 行政への信頼は, 主効果は統計学的に有意ではなかったが (coef. = -0.006, 95% CI: -0.063, 0.051), 2011 年×行政への信頼 (coef. = 0.088, 95% CI: 0.011, 0.166) 及び 2016 年×行政への信頼 (coef. = 0.141, 95% CI: 0.047, 0.234) の交互作用項が統計学的に有意であった。図 2-2 に, 各年における行政への信頼が最大値の回答者と最低値の回答者それぞれの受け入れ態度の予測値を示す。

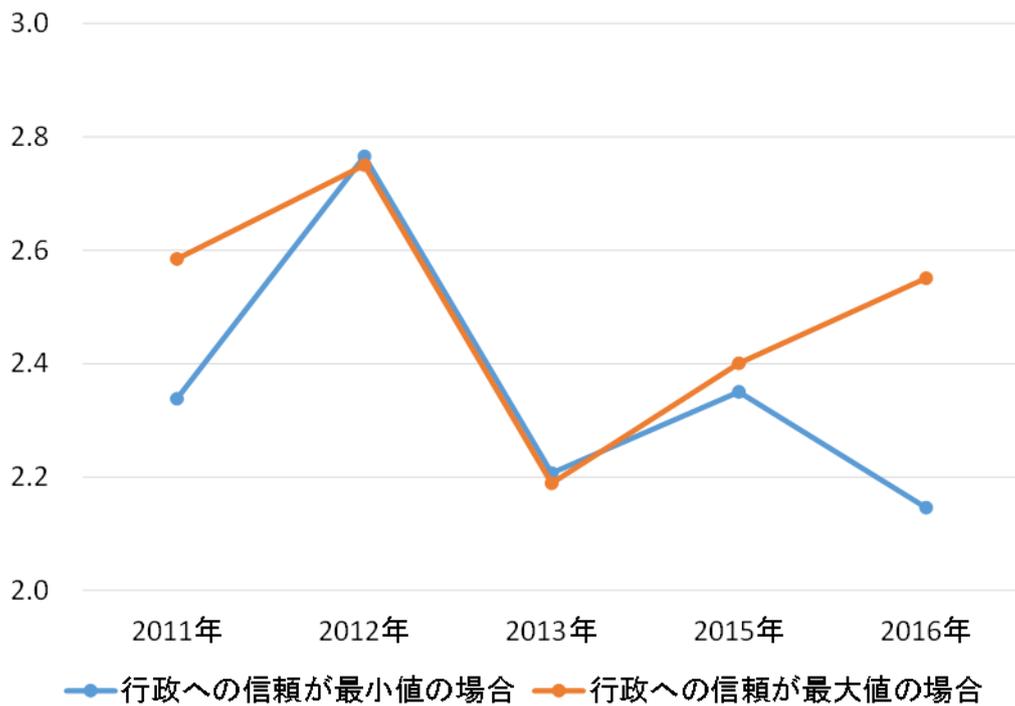


図 2-2 : 受け入れ態度と行政への信頼との関連の時間的変遷

図 2-2 から、上で述べたように、2011 年と 2016 年のみ、行政への信頼の高低によって受け入れ態度に差が生じていることが示されている。

次に、表 2-4 に原発の経済性認知の主効果及び調査年との交互作用効果を示す。また、分析結果から得られた交互作用項の予測値を図 2-3 に示す。

表 2-4：HLW 処分施設の受容に対する，原発の経済性認知の影響

被説明変数：高レベル放射性廃棄物処分場の受容	Coefficient	95% CI
	切片	2.441
性別(男=1, 女=0)	-0.249	(-1.201, 0.704)
年齢	0.000	(-0.037, 0.037)
調査年		
2011年	0.089	(-0.004, 0.182)
2012年	0.533 *	(0.478, 0.588)
2013年	Reference	
2015年	0.017	(-0.077, 0.111)
2016年	-0.013	(-0.139, 0.114)
行政への信頼	0.025	(-0.011, 0.062)
深刻さ認知	-0.055 *	(-0.071, -0.038)
生起確率認知	-0.004 *	(-0.005, -0.003)
原発の経済性	-0.023	(-0.063, 0.017)
原発の環境性	0.040 *	(0.004, 0.075)
原発の安全性	0.128 *	(0.088, 0.168)
交互作用項		
2011年×原発の経済性	0.125 *	(0.063, 0.187)
2012年×原発の経済性	-0.063 *	(-0.105, -0.021)
2013年×原発の経済性	Reference	
2015年×原発の経済性	0.001	(-0.055, 0.058)
2016年×原発の経済性	0.033	(-0.032, 0.098)

\* $p < .05$

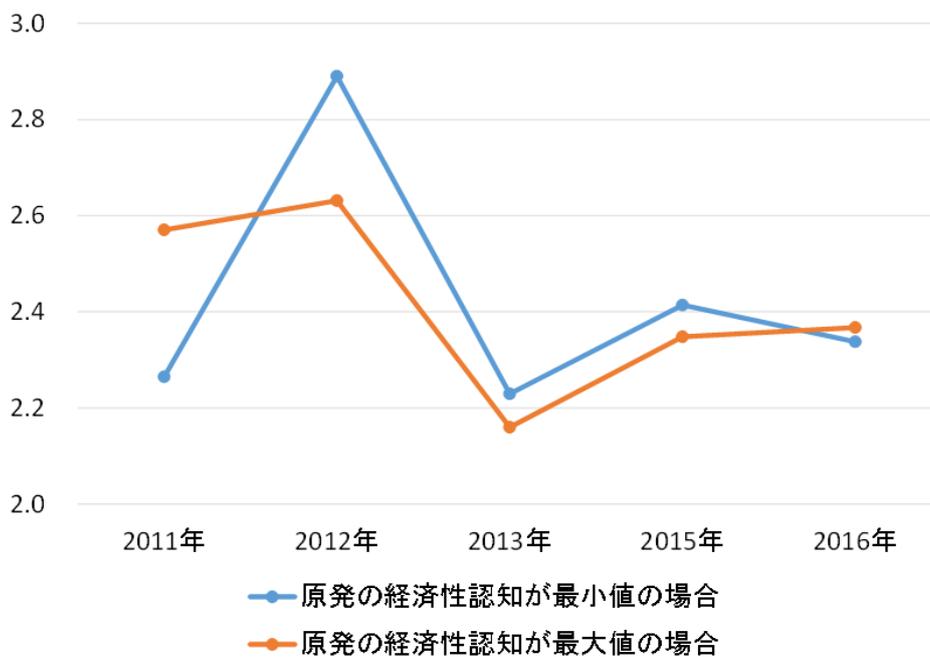


図 2-3：受け入れ態度と原発の経済性認知との関連の時間的変遷

表 2-4 及び図 2-3 から、信頼の分析と同様に、2012 年に処分場の受け入れ態度が高まっていることが示されている (coef. = 0.533, 95% CI: 0.478, 0.588)。一方、経済性認知と調査年の交互作用効果については、行政への信頼とは異なるトレンドが示された。すなわち、2011 年には原発の経済性を高く評価している回答者ほど受け入れ態度について肯定的に回答する傾向があったが (coef. = 0.125, 95% CI: 0.063, 0.187)、2012 年には符号が逆転している (coef. = -0.063, 95% CI: -0.105, -0.021)。その結果、2012 年には、原発の経済性を高く評価している人のほうが処分場受容に対して否定的な態度を示すようになっている。

次に、原発の環境性認知の主効果と、調査年との交互作用効果を表 2-5 と図 2-4 に示す。

表 2-5 : HLW 処分施設の受容に対する、原発の環境性認知の影響

被説明変数:	高レベル放射性廃棄物処分場の受容	
	Coefficient	95% CI
切片	2.574 *	(0.787, 4.362)
性別(男=1, 女=0)	-0.240	(-1.191, 0.711)
年齢	0.000	(-0.037, 0.037)
調査年		
2011年	0.080	(-0.012, 0.173)
2012年	0.532 *	(0.477, 0.587)
2013年	Reference	
2015年	0.018	(-0.076, 0.111)
2016年	-0.019	(-0.145, 0.108)
行政への信頼	0.022	(-0.015, 0.058)
深刻さ認知	-0.054 *	(-0.070, -0.038)
生起確率認知	-0.004 *	(-0.005, -0.003)
原発の経済性	-0.022	(-0.051, 0.007)
原発の環境性	0.036	(-0.012, 0.083)
原発の安全性	0.123 *	(0.082, 0.163)
交互作用項		
2011年×原発の環境性	0.141 *	(0.082, 0.200)
2012年×原発の環境性	-0.067 *	(-0.114, -0.020)
2013年×原発の環境性	Reference	
2015年×原発の環境性	0.007	(-0.054, 0.069)
2016年×原発の環境性	0.027	(-0.043, 0.096)

\* $p < .05$

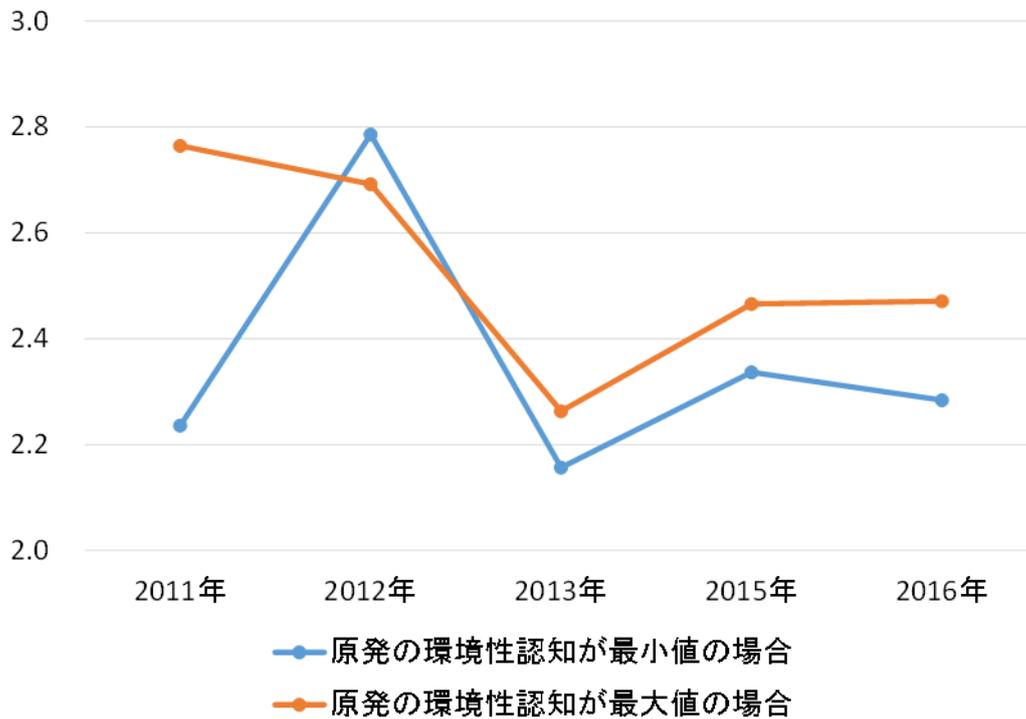


図 2-4 : 受け入れ態度と原発の環境性認知との関連の時間的変遷

表 2-5 と図 2-4 から、環境性認知も経済性認知と同様に、震災前は環境性認知が態度の規定因であったが（2011 年×原発の環境性の交互作用項：coef. = 0.141, 95% CI: 0.082, 0.200）、2012 年には交互作用効果が負となり、環境性認知の効果が縮小したことが示されている（2012 年×原発の環境性の交互作用項：coef. = -0.067, 95% CI: -0.114, -0.020）。また、2013 年以降は、環境性認知は態度を規定する要因としての作用が小さいまま、それが 2016 年まで維持されている。

最後に、表 2-6 と図 2-5 に原発の安全性認知の主効果及び調査年との交互作用効果を示す。

表 2-6：HLW 処分施設の受容に対する，原発の安全性認知の影響

被説明変数：高レベル放射性廃棄物処分場の受容		
	Coefficient	95% CI
切片	2.674	(0.886, 4.461)
性別(男=1, 女=0)	-0.245	(-1.197, 0.707)
年齢	0.001	(-0.036, 0.038)
調査年		
2011年	0.084	(-0.009, 0.177)
2012年	0.526 *	(0.471, 0.581)
2013年	Reference	
2015年	0.016	(-0.077, 0.110)
2016年	-0.021	(-0.148, 0.105)
行政への信頼	0.022	(-0.015, 0.058)
深刻さ認知	-0.054 *	(-0.070, -0.038)
生起確率認知	-0.004 *	(-0.005, -0.003)
原発の経済性	-0.018	(-0.048, 0.011)
原発の環境性	0.041 *	(0.006, 0.077)
原発の安全性	0.119 *	(0.063, 0.176)
交互作用項		
2011年×原発の環境性	0.136 *	(0.067, 0.206)
2012年×原発の環境性	-0.091 *	(-0.151, -0.031)
2013年×原発の環境性	Reference	
2015年×原発の環境性	0.015	(-0.059, 0.089)
2016年×原発の環境性	0.011	(-0.069, 0.092)

\* $p < .05$

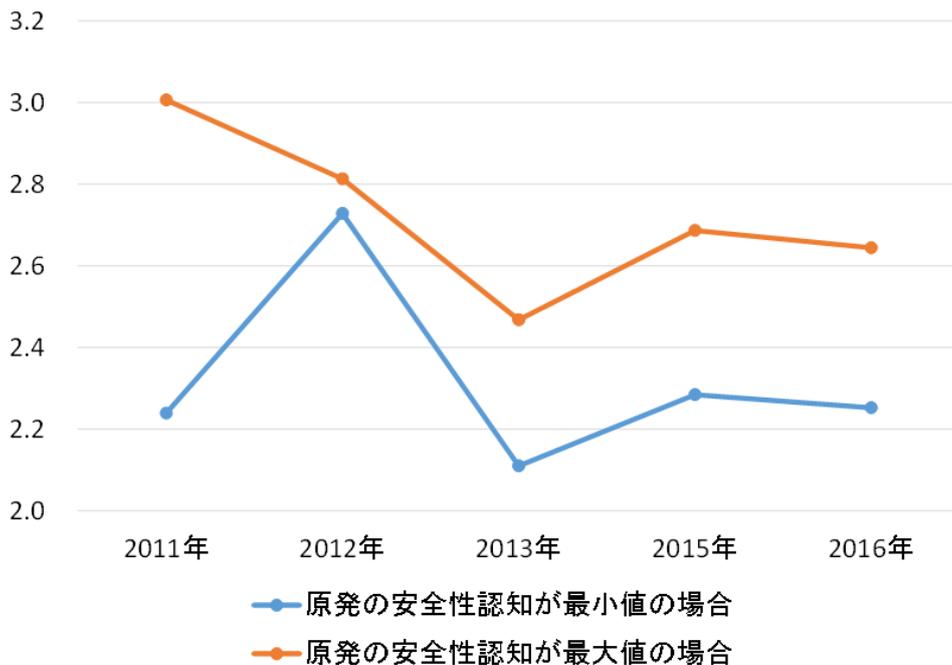


図 2-5：受け入れ態度と原発の安全性認知との関連の時間的変遷

経済性認知及び環境性認知とは異なり、原発の安全性の主効果は統計学的に有意に HLW 処分場の受け入れ態度と関連していた (coef. = 0.119, 95% CI: 0.063, 0.176)。一方、調査年との交互作用は上述の 2 つの認知と同様に、2011 年との交互作用が正の方向 (coef. = 0.136, 95% CI: 0.067, 0.206)、2012 年との交互作用が負の方向 (coef. = -0.091, 95% CI: -0.151, -0.031) に、それぞれ統計学的に有意に受け入れ態度と関連していた。すなわち、2011 年は安全性の効果が大きく、2012 年には安全性の効果が小さくなったことを意味している。そして、図 2-5 から示唆されるように、2013 年以降は、安全性評価の高低により HLW 処分場への態度に再び差が生じるようになってきていることが示されている。

## 2.4. 考察

まず、調査年の主効果に関しては、全てのモデルを通じて、震災直後の 2012 年は他の年よりも HLW 処分場の受け入れ態度が高かったことが示された。これは、震災直後に国民が原子力発電所や放射性廃棄物のことをこれまでよりも詳しく知ったことにより、「なんとかしなければ」という危機感や責任感が喚起され、受容態度が高まったものと推察される。しかしながら、人々の危機感が落ち着いた 2013 年には震災以前よりもむしろ受容態度は減少し、2016 年までその水準が維持されていることが示された。

行政への信頼の効果については、人々の関与度が低かったと考えられる震災前は、行政への信頼と受け入れ態度が正の関連を示していたものの、震災後には行政への信頼は態度規定因として作用しなくなり、2016 年に再び態度規定因として効果を持ち始めた。ヒューリスティック・システムティックモデルや精緻化見込みモデルの観点から考えると、人々の関与度が低かった震災前には行政への信頼による「おまかせ」の態度決定が可能であったのに対し、2012 年から 2015 年までは人々の関与度が高まったためにそのような態度形成がなされなくなったと推察される。2016 年に再び態度への行政への信頼の効果が出現したのは、人々の関与度が低下したため周辺ルートの意思決定に戻ったためであろう。現在、多くの国民が周辺ルートに戻っているとすれば、行政への信頼を高める方略によって、間接的に当事業の態度を形成することが可能かもしれない。

しかしながら、関連政策の今後の進展によって、再び人々の態度形成モードが変容する（すなわち中心ルートになる）ことは十分に考えられる。例えば、今後日本全体を処分場建設の科学的有望性の観点から 3 段階（「適性の低い地域」「適性のある地域」「より適性の高い地域」）に分類することが検討されているが（総合資源エネルギー調査会, 2016）、本研究のロジックに基づけば、科学的適正地が公表されることによって、特に「より適性の高い地域」の人々の関与度が再び高まり、行政への信頼が態度を規定しなくなることが考えられる。

一方、原発についての評価のうち経済性認知と環境性認知は、震災前には処分場受け入れ態度と正の関連を示していたが、震災直後の 2012 年にはこれらを高く評価する人々の受け入れ態度を抑制する方向に作用していた。そして、2013 年以降、原発の経済性・環境性の認知は態度を規定しなくなり、2016 年までそのトレンドが続くという結果となっている。すなわち、震災直後に人々の態度形成モデルが変容し、震災から 2 年を経てさらに再び変容したことが示唆される（しかし、行政への信頼とは異なり、これらの認知の効果は 2016 年になっても「復活」しな

った).

また、安全性の評価は原発の評価に関する上記の 2 指標と異なり、主効果が統計学的に有意であった。すなわち、調査年に関係なく、原発の安全性を高く評価している人ほど HLW 処分場の受け入れ態度を肯定的に回答していた。しかし、交互作用項を見てみると、原発の安全性は全体的に受容態度と関連するものの、2011 年にはその関連が強く（つまり、原発の安全性を高く評価している人々と低く評価している人々の差が大きく）、2012 年のみ、その関連がほぼ消失していた。

以上の結果をまとめると、まず調査年の主効果の結果から、震災直後に人々の受け入れ態度が急激に高まり、policy window が開いていたことが示唆されるが、その効果は 2 年後にはすぐに失われることが示された。行政の信頼の効果は震災によって 1 度消失し人々の態度形成モードが変容したことが推察されるが、3 年ほどで元の態度形成ルート（すなわち周辺ルート）に戻ることが示唆された。その間に中心ルートによる態度形成を促す要因によって人々の意思決定を進めるという方略が考えられるが、本研究で扱った原発への評価はそのような規定要因としては作用していなかった。これらの結果は、震災後関心が高まることにより、これらの原発についての“本質的な”情報が態度に影響を与えるという、HSM や ELM からの予測とは異なる結果であった。

原発への評価についての結果は、これらの認知がそもそも、人々の関与度が高まった後の態度を形成するための“本質的な”要因として人々にみなされていない可能性を示唆する。それでは、中心ルートによる態度形成に影響を与える要因は何であろうか？本研究で扱われていなかった要因として、公共事業の施策決定の際の手続き的公正が挙げられる (Leventhal, 1980)。特に、放射性廃棄物処分場のように、日本のいずれかの地域が受け入れなければならないような NIMBY 事象の場合には、それがどのように決められているのか、その手続きが公正であったのかといった手続き的公正が中心ルートによる態度形成に強い影響を与えることは十分に考えられる。それというのも、上述のように科学的有望地を選定・公表するという施策が今後行われるとすれば、その選定過程の公正性は、人々の態度を形成する要因として、原発の評価よりも熟考すべき“本質的なもの”とみなされる可能性が高いからである。また、科学的有望地が公表された際、有望地として選定された地域の住民は関与度が高まり、行政への信頼が態度を規定しない態度形成モデルに移行することが予想される。

今後は、人々の関与度が高まった際に人々の態度がどのように変容するのか、処分場選定過程の手続き的公正を含めどのような要因が態度に影響を与えるようになるのかを検討するために、科学的有望地選定に関するシナリオ実験を検討する予定である（すでに 2017 年 2 月に調査実施済み）。加えて、来年度以降、実際に科学的有望地が公表された際に、人々の態度やその規定要因がどのように変動するのかをパネル調査を用いて社会実験的に検討する予定である。これらの検討により、人々の関心が高まった際の、人々の態度形成を促す施策——すなわち、アジェンダ・セッティング——のヒントを得る予定である。

## 2.5. 「周囲の意見」が態度形成に与える影響（再）—パネルデータを利用した分析に向けて

1 章において、一回のサーベイ実験結果をもとに「沈黙の螺旋」的な現象、すなわち、「周

「囀の意見」をもとに人々が HLW 処分場の立地に関する態度を形成している可能性について検討したが、分析の限界について言及した通り、ここで観察された効果は、あくまで短期的なものでしかない。1.1 で述べたように、「螺旋過程」とは、人々の中の態度におけるもともとの差が小さくても、自派が多数らしいと認識した人々は、自説を主張しやすくなり、公的な意見表明としてよりいっそう「聞こえやすくなる一方、少数派の側は主張しにくく沈黙しがちになる結果、動的に大きな差異が生み出され、多数派形成が進行していくというものである。（このため、「もともとの差が小さくても」、すなわち両方の派閥に考慮されるべき重要な論点があったとしても、圧倒的な大差となり一方の意見が黙殺されることが起こりうる。）このように、「沈黙の螺旋」現象は本来、動的過程としてとらえるべきであり、本節で分析の対象とした経時的調査は、このような動的過程を追う上で重要な素材を提供している。

また、本章の分析で明らかになったように、信頼と処分場の受け入れ態度の関係が、一時的である可能性があるものの、震災または原発事故によって失われたことは、震災や原発事故といった「経験」によって人々の態度形成が変化しうる可能性があることを示唆している。そうだとすれば、震災や原発事故の被害の大きさや、震災前から原子力関連施設立地があるか否か、といった地域による「経験の差」によって人々の態度形成が異なる可能性もある。1 章の分析では、「中心ルート」と「周辺ルート」のどちらを取るかは、放射性廃棄物処分に関する知識の高低で分類したが、パネルデータを利用することにより、こうした地域の違いと、震災や原発事故発生という事象のタイミングを利用して、より精緻な分析が可能になると考えられる。

すでに一昨年度の報告書において、地域別の態度変化の相違に関して、回答者の居住地を (i)原子力関連施設が存在しているか否か、(ii)震災の被害が大きい地域だったか否か、で 4 つに分類し、HLW 処分場で事故が発生した場合の人的被害の大きさの認知の経時的な変化が異なっていることを示した。被害の大きさ認知の他にも、本節で説明変数・被説明変数として扱った、HLW 処分場の受け入れ態度や、原子力発電に対する認知（環境性・安全性・経済性）についても同様の分析が可能である。それぞれについて、2011 年（震災前）・2012 年（震災後）・2013 年（震災後）における態度の変動を観察し、その結果をまとめたものが、表 2-7 である。

表 2-7 でまとめた結果は、それぞれの調査の対象者が（パネル対象者を含んでいるとはいえ）異なる以上、あくまで基礎的な観察に過ぎない。来年度は、昨年 7 月に取得した回答者の登録居住地情報を利用し、パネル回答者での傾向性も併せて確認しながら、以上の基礎的な観察結果が、各調査対象者の違いを考慮してもなお頑健なものかどうか検討を進める。また、地域の属性分類も、より詳細な市町村の居住地データから分類し、より精緻な分析を行いたい。

表 2-7：HLW 処分場の受け入れ態度、処分場事故時の被害の大きさ認知、原子力発電に対する認知（環境性・安全性・経済性）に関する時系列的変化の地域差の観察結果

(i)地域の分類：

	震災被害大	震災被害小
原子力関連施設あり	(a)	(b)
原子力関連施設なし	(c)	(d)

(ii)観察結果：

HLW 処分場受け入れ態度	<ul style="list-style-type: none"><li>・HLW 処分場の受け入れ態度は、震災前は関連施設の有無によって差がある。</li><li>・震災 1 年後には、(c)以外の地域において、受け入れ態度が上昇している（平均的な変化についてすでに指摘済み）。</li><li>・震災 2 年後には、受け入れ態度が震災前に比べても低下。特に震災被害の大きかった地域(a)(c)において顕著。</li></ul>
処分場事故時のリスク認知	<ul style="list-style-type: none"><li>・事故発生時の人的被害の大きさの認知は、震災後、平均的には上昇した。震災被害と関連施設のいずれかを有する地域(b)(c)において特に顕著である。</li><li>・震災二年後において関連施設のある地域(a)(b)ではリスク認知が震災前の水準、またはそれ未満に低下している一方、関連施設のない地域(c)(d)において最も強く残っている。</li></ul>
原子力発電に対する認知① 環境性	<ul style="list-style-type: none"><li>・原子力発電に対する環境性の認知は、震災前は関連施設の有無によって差がある。</li><li>・震災一年後は、全体的に環境性認知は低下。特に震災被害のあった地域(a)(c)で著しい。このうち、関連施設がない地域(c)については二年後に復調がみられるが、ある地域(a)についてはさらに悪化している。</li></ul>
原子力発電に対する認知② 安全性	<ul style="list-style-type: none"><li>・原子力発電に対する安全性の認知は、震災一年後に全体的に低下したが、震災二年後には震災前の水準には至らないものの、回復傾向にある。</li><li>・震災一年後の安全性の認知低下は、関連施設のある地域(a)(b)の方が小さく、その結果、震災二年後の安全性認知も関連施設のある地域(a)(b)の方が高い。</li></ul>
原子力発電に対する認知③ 経済性	<ul style="list-style-type: none"><li>・原子力発電に対する経済性の認知は、震災前は関連施設の有無によって差がある。</li><li>・震災一年後は、全体的に経済性認知は低下。しかし、関連施設か震災被害のどちらかがある地域では震災二年後に経済性認知が回復しているのに対し、どちらもない地域(d)ではさらに認知の低下がみられる。</li></ul>

### 3. HLW 処分に関わる人々の態度についての社会心理学的分析

#### 3.1. 平成 28 年度の調査設計

##### 3.1.1. 「科学的有望地」の公表による態度変容に関する社会調査

これまでの研究から、平成 23 年 3 月の東日本大震災は、人々の態度形成に影響を与えるアジェンダ・セッティングにつながったと推測される。しかし、震災後 6 年が経過して、震災によるアジェンダ・セッティングは風化し、人々は従来の態度形成に回帰しつつあるように見える。HLW 処分の着実な進展のためには、災害や事故などの偶発的クライシスにアジェンダ・セッティングを頼るべきではなく、政治家や行政、専門家などによる能動的なアジェンダ・セッティングを目指すべきである。

平成 26 年ごろから政府は、HLW 処分事業に関する国民の理解・関心の促進を目的として、いわゆる「科学的有望地」（現在は呼称変更を視野に入れた議論がなされている）の公表に向けて準備を進めている。この「科学的有望地」とは、安全性と社会的影響の観点で、日本全国を「適性の低い地域」、「適正のある地域」、「より適性の高い地域」に三区区分した地図を公表するという施策である。HLW 処分事業はこれまで震災直後を除き、大多数の国民にとって「他人事」であり続けた。そのため、感情的な反対態度を形成するにとどまり、政府や処分実施主体である原子力発電環境整備機構（NUMO）などから提供される安全性に関わる情報などを得ても、合理的な態度形成過程に入っていないために効果が小さかった。「科学的有望地」の公表は、「適正のある地域」、「より適性の高い地域」に入った国民にとっては、処分事業が他人事ではないという認知を与えることになる、一種のフレーミング効果を持った施策であると考えられる。「科学的有望地」の公表によって、HLW 処分事業が国民に幅広く「今検討すべき政策である」と認識されれば（アジェンダ・セッティング）、これまでと違って科学・技術的な情報の提供が有効に作用する、あるいは少なくとも聞く耳を持ってもらえる可能性がある。逆に、そもそもアジェンダ・セッティングとして作用しない、あるいは、「政府は信用できない情報を出す」として国民の怒りを喚起することになってしまう可能性もある。

そこで本研究では、「科学的有望地」の公表が人々のどのような認知につながるのか、結果としてアジェンダ・セッティングにつながるか、HLW 処分事業の進展にポジティブな影響を及ぼしうるかといった点を検討すべく、社会調査に基づく社会心理学的分析を行うこととした。具体的には、インターネットを用いたアンケート調査を、2017 年 1 月上旬から中旬に全国の 1700 人を対象として実施した。サンプル数に制約があるため、「海岸線を持つ自治体」のうち、「東京 23 区・横浜市と隣接する川崎市、それ以外に人口 200 万人以上の大阪市、名古屋市の 5 都市を除く市」から 1400 人、「九州・四国・西日本・東海・東日本・北海道の 6 地域から内陸市（飯塚市・美馬市・三好市・吉野川市・津山市・中津川市・青梅市・旭川市）」から 300 人のサンプルを得た。回答者の基本属性（性別・年齢）は図 3-1 のとおりである。

なお、「科学的有望地」公表が態度形成に与えた影響を把握するため、公表後に同じ質問票を用いて再実施する（来年度の実施になる見込み）。その際、「科学的有望地」の名称等に変化が生じた場合は、その変化の影響を把握するための質問も追加する。

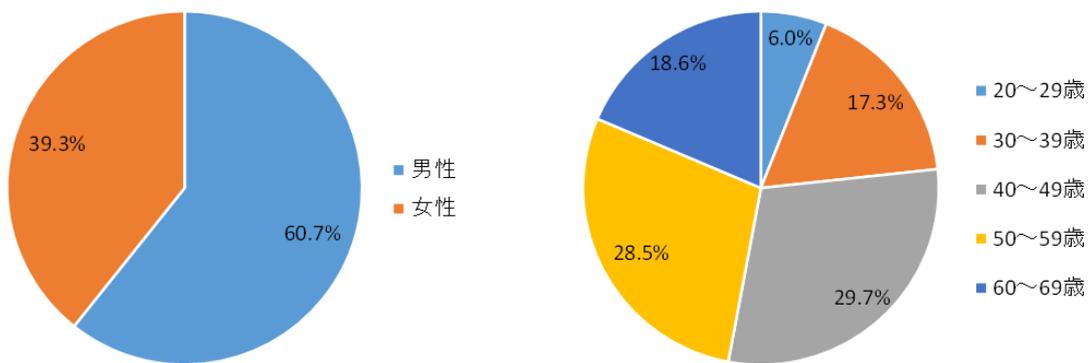


図 3-1 : 回答者の基本属性 (性別・年齢)

以下、「科学的有望地」公表の影響を測定する社会調査の単純集計結果を示す。

○回答者の属性

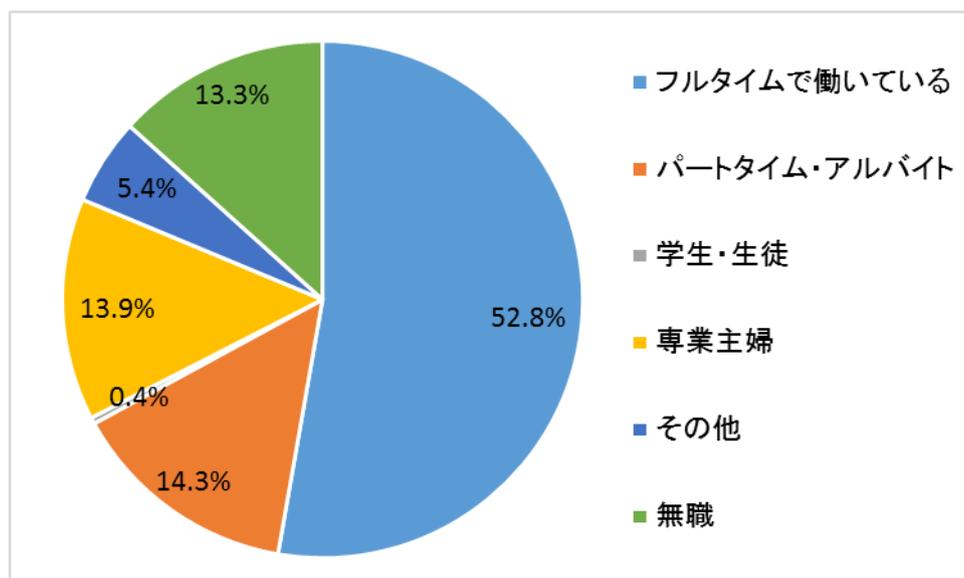


図 3-2 : 就労状況

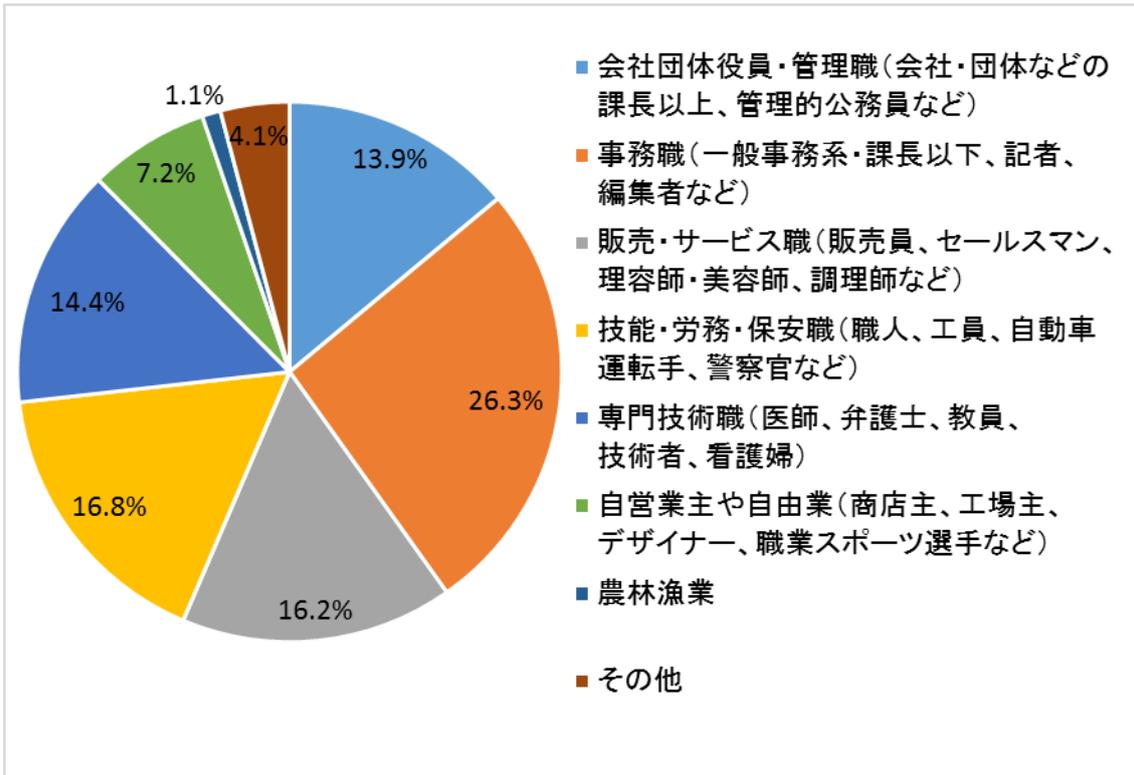


図 3-3 : 職業

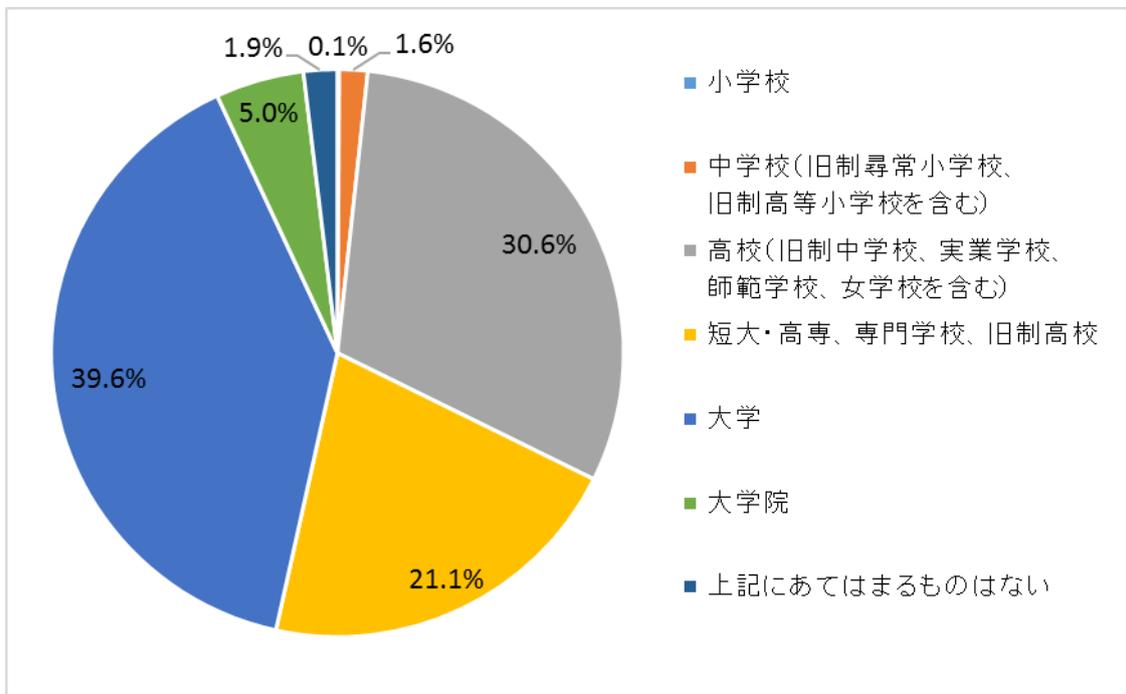


図 3-4 : 最終学歴

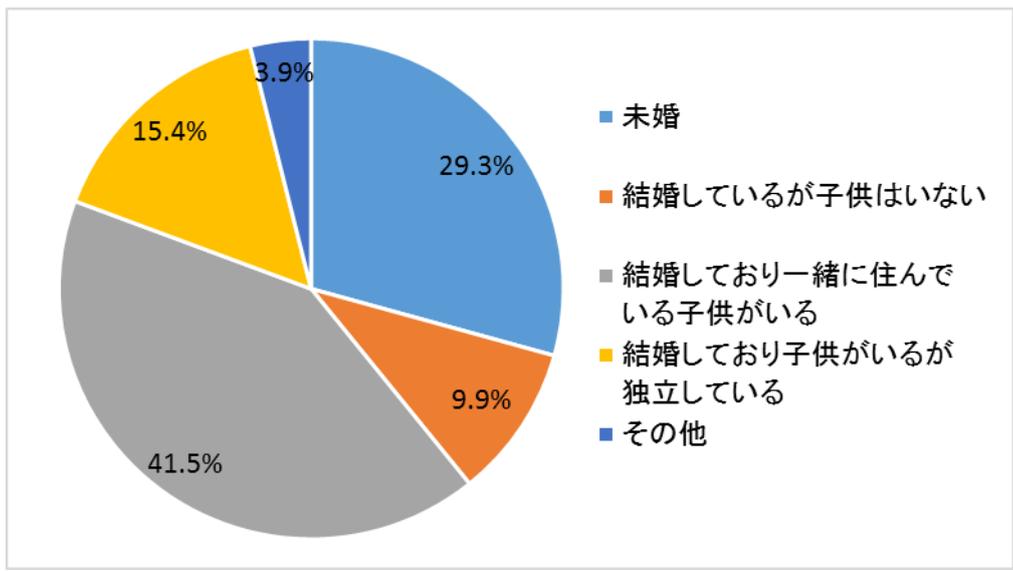


図 3-5 : 婚姻状況

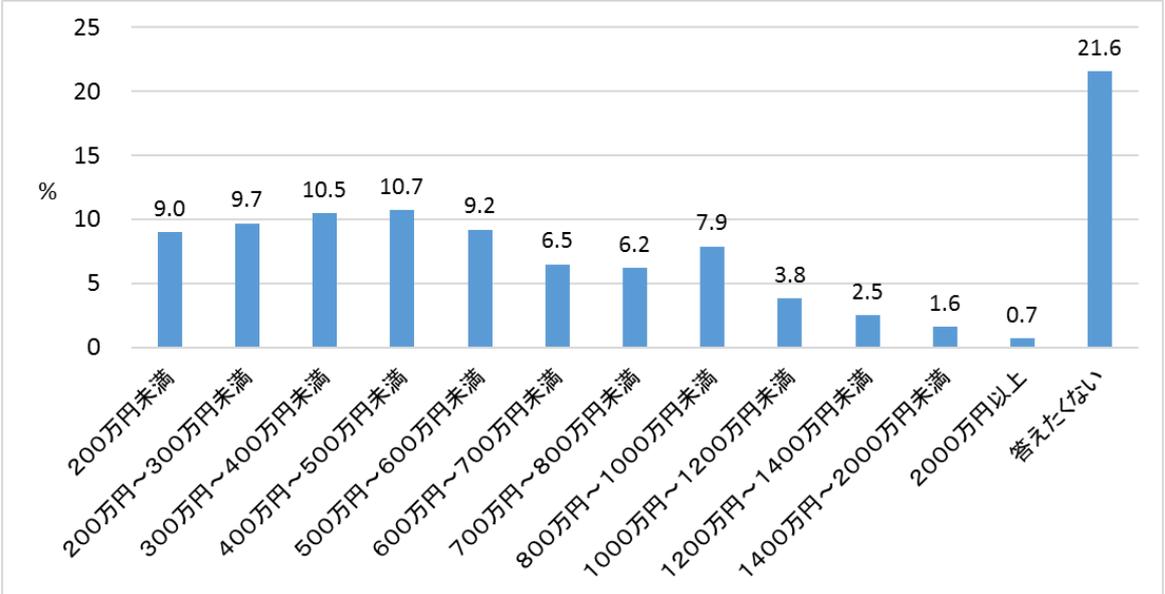


図 3-6 : 年収

○行政・科学者・技術者・専門家集団に対する信頼に関する項目

「あなたは、国の行政機関はどの程度信頼できると思いますか」「あなたは、科学者の話は信頼できると思いますか」「あなたは、技術者の話は信頼できると思いますか」「あなたは、学会等の専門家集団は信頼できると思いますか」(1「全く信頼できない」～5「信頼できる」の5件法)

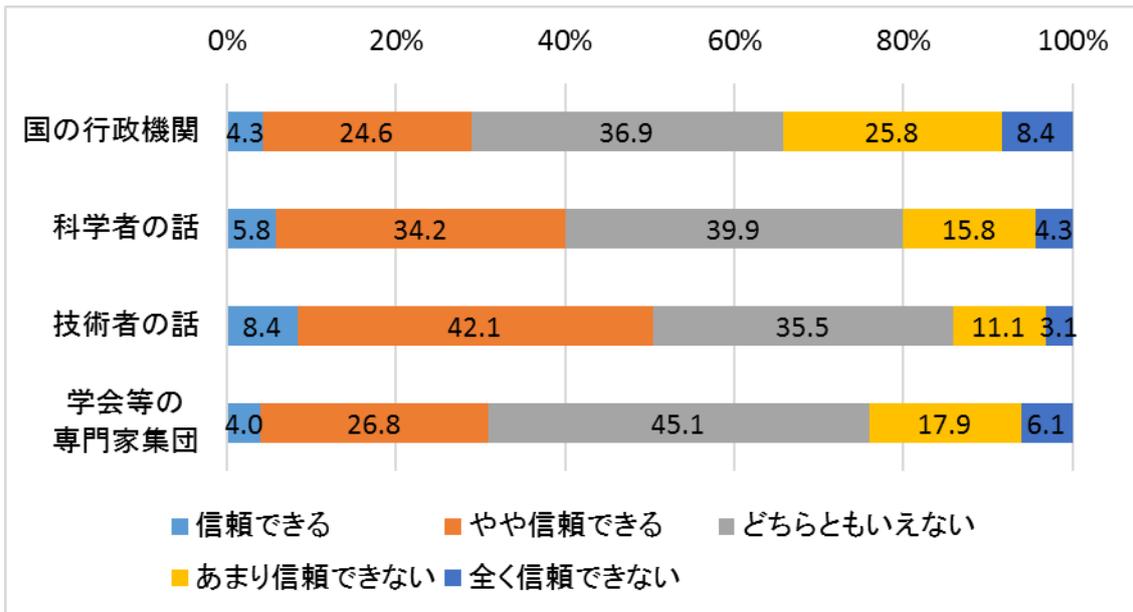


図 3-7：国の行政・科学者・技術者・専門家集団への信頼

○コミュニティ意識・帰属意識

「あなたは以下の地域の範囲のうち、どの範囲が自分の属するコミュニティであると感じますか。意識の強い順に回答を選んでください。」

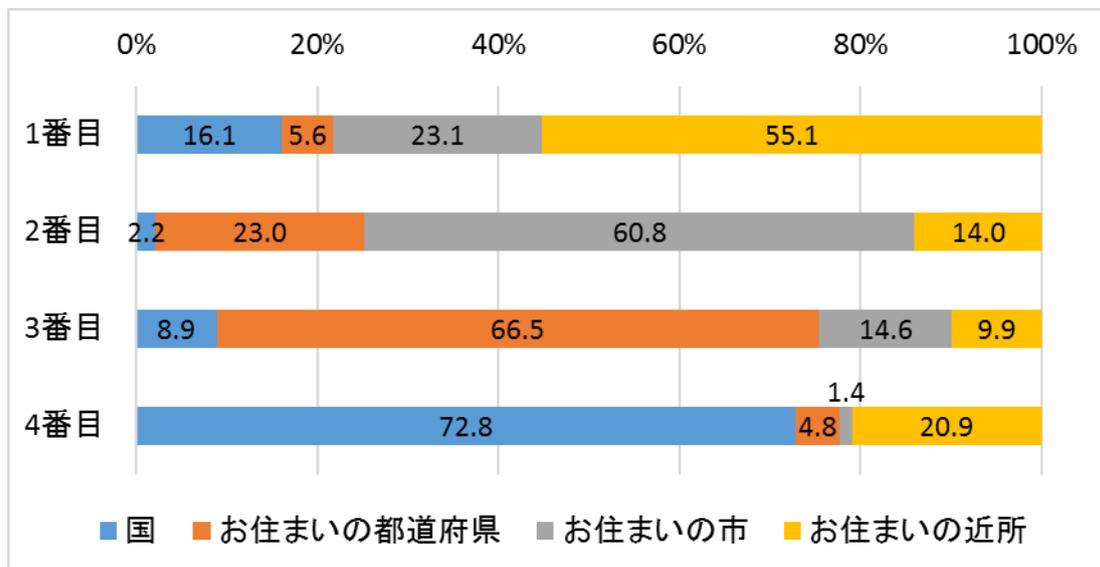


図 3-8：帰属意識を有するコミュニティ

「あなたのお住まいの地域では、人付き合いがどのくらいあると思いますか。あてはまる数字ひとつにつき○をつけてください。」

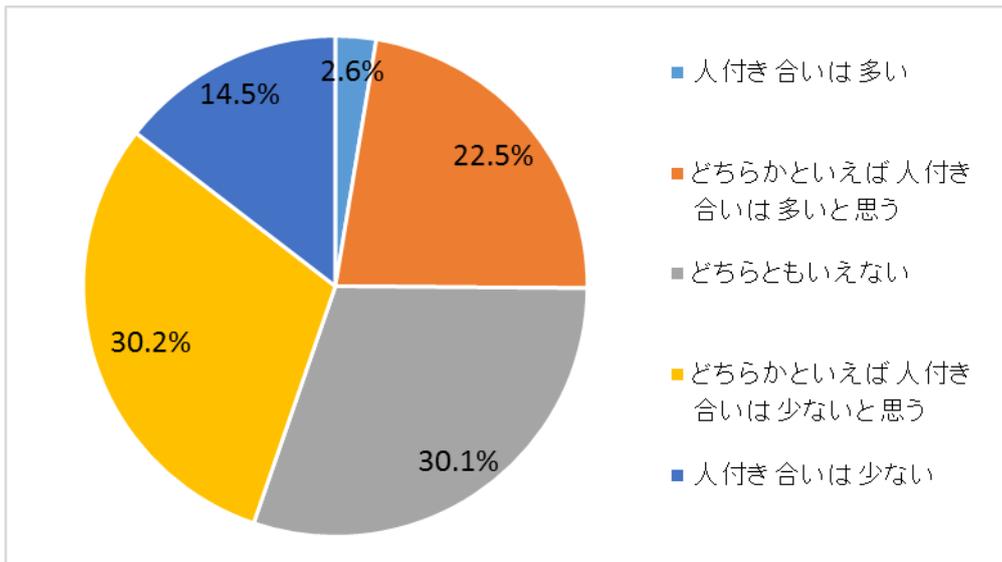


図 3-9 : 居住コミュニティの人的つながり認知

「あなたは、あなたのお住まいの市にまとまりがあると思いますか。あてはまる数字ひとつに○をつけてください。」「あなたは、あなたのお住まいの都道府県にまとまりがあると思いますか。あてはまる数字ひとつに○をつけてください。」

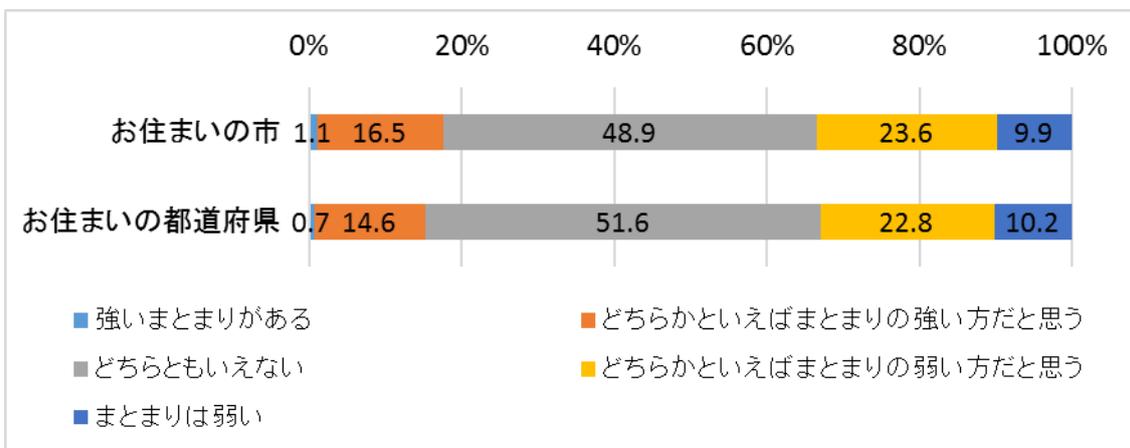


図 3-10 : 居住する市および都道府県の連帯感認知

○高レベル放射性廃棄物処分施設誘致の文献調査への態度

「もしあなたのお住いの自治体が、高レベル放射性廃棄物処分施設誘致の文献調査に立候補した場合、あなた自身はそれを支持しますか」(1「支持する」～5「支持しない」の5件法)

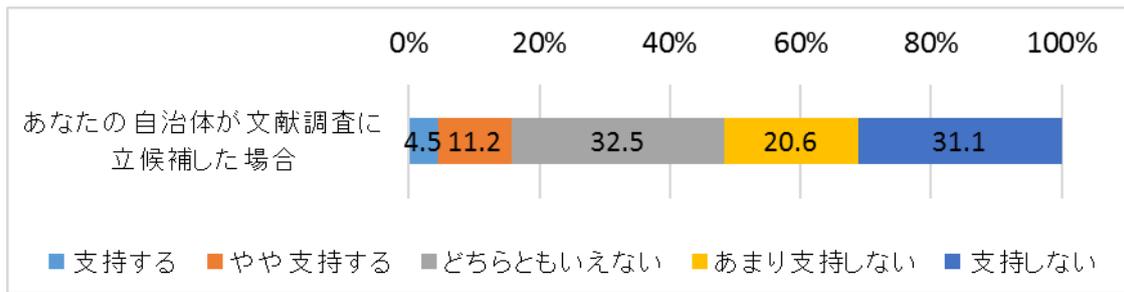


図 3-11：文献調査への態度

○高レベル放射性廃棄物の地層処分施設の受け入れ態度

「仮に、あなたのお住いの自治体に高レベル放射性廃棄物の地層処分施設が建設されると想定した場合、そのことについてどう思いますか」(1「絶対に受け入れたくない」～5「受け入れてもよい」の5件法)

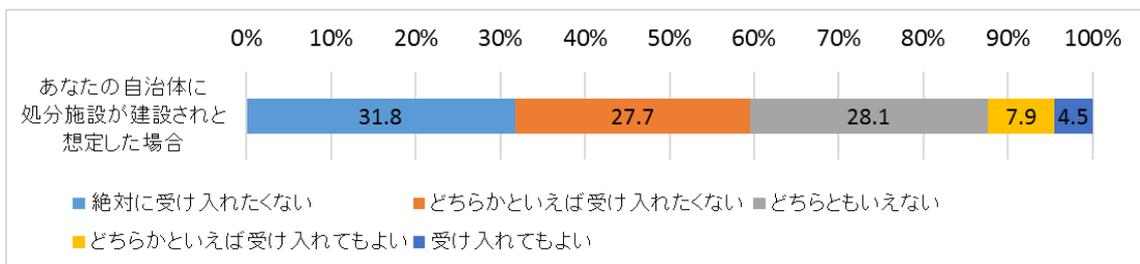


図 3-12：地層処分施設の受け入れ態度

○処分施設受け入れを意思決定する主体の範囲に関する認知

「高レベル放射性廃棄物の地層処分施設の建設について、最終的に受け入れの意思決定を行う主体の範囲は、次のうちどれが適切だと思いますか。もっともあてはまる数字ひとつに○をつけてください。」

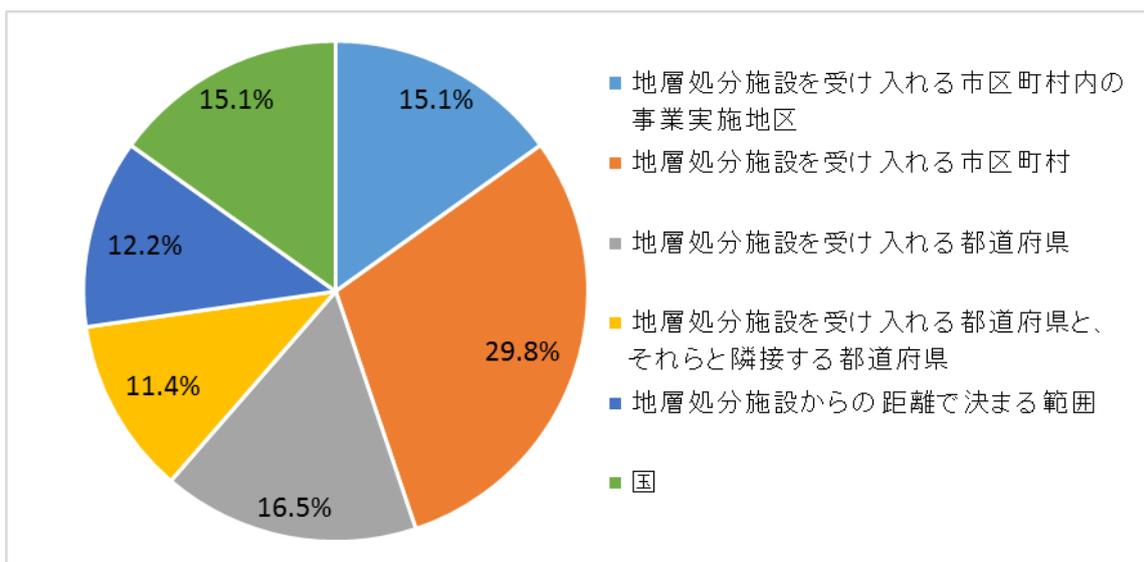


図 3-13：意思決定の範囲に関する認知

○応募に伴う交付金への態度

「応募に伴う交付金によって、自治体が発展する」「応募に伴う交付金によって、住民一人一人の生活が向上する」(1「全くそう思わない」～4「そう思う」の4件法)

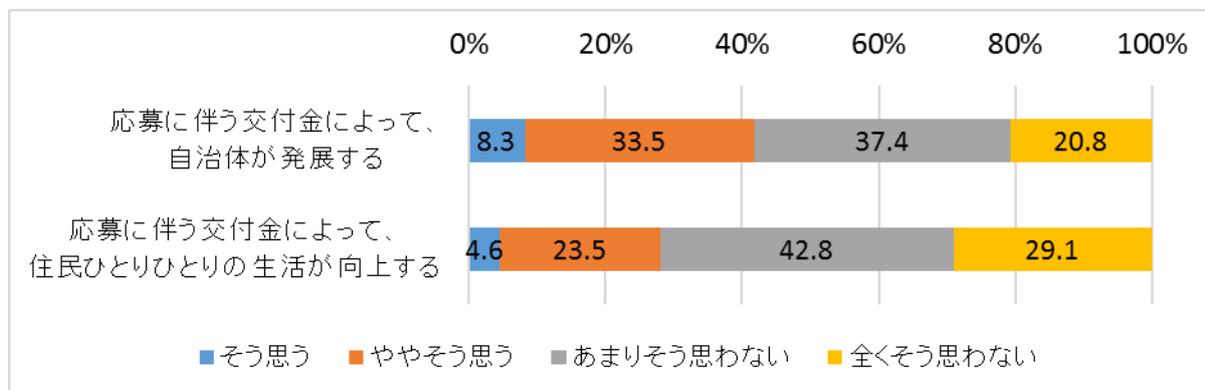


図 3-14 : 交付金への態度

○補償受け入れの範囲に関する認知

「高レベル放射性廃棄物の地層処分施設の建設について、最終的に補償を受けるべき主体の範囲は、次のうちどれが適切だと思いますか。もっともあてはまる数字ひとつに○をつけてください。」

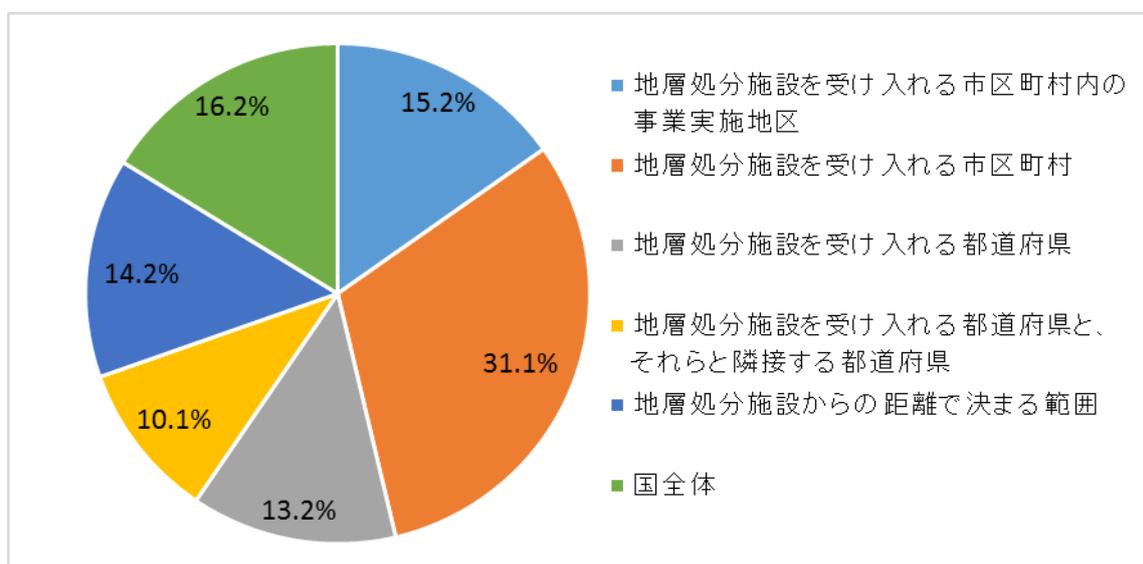


図 3-15 : 補償受け入れの範囲に関する認知

○被害の大きさの見積もり

「高レベル放射性廃棄物の地層処分において事故が発生したとしたら、その際に直接的・間接的に被害を受ける人は何人いると思いますか」(1「0人」、2「1～9人」、3「10～99人」、4「100～1000人未満」、5「1000～1万人未満」、6「1万～10万人未満」、7「10万人以上」)

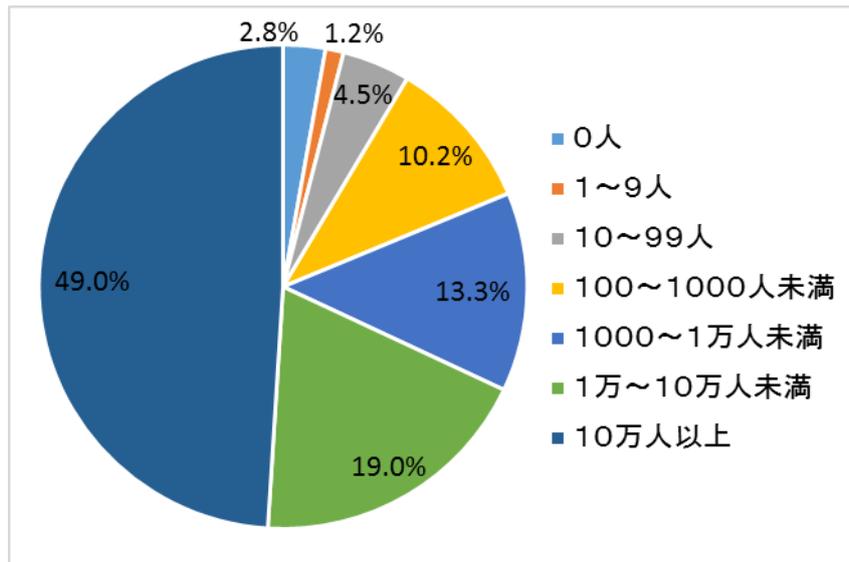


図 3-16：地層処分施設における事故の、被害の大きさの見積もり

○被害の生起確率の見積もり

「高レベル放射性廃棄物の地層処分施設の建設から 20 年以内に、放射能漏れなどの事故が起きる確率は何%ぐらいあると思いますか」(1「0%」～11「100%」までの 10%刻みで測定)

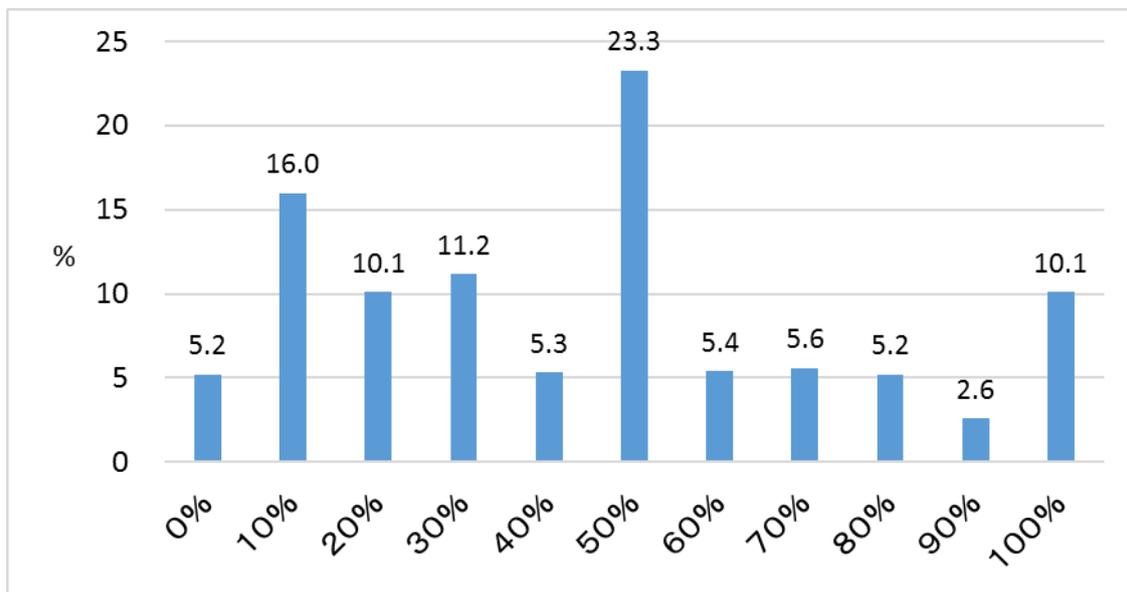


図 3-17：地層処分場における、事故の生起確率の見積もり

○処分の場所

「あなたは、日本で生じた高レベル放射性廃棄物を国内で処分すべきだと思いますか」(1「国内で処分すべき」～5「国外で処分すべき」の 5 件法)

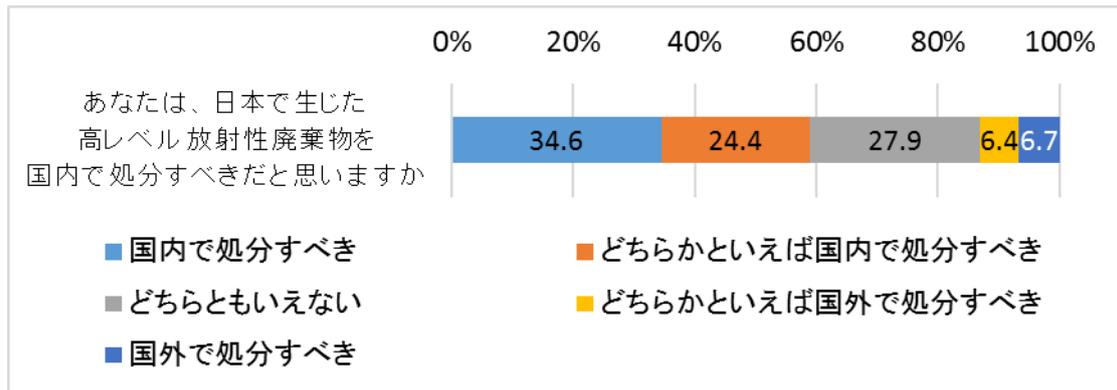


図 3-18 : 処分すべき場所

○現世代での処分

「あなたは、すでに存在する高レベル放射性廃棄物の処分を、現世代が実施すべきだと思いますか」(1「実施すべきでない」～5「全くその通りだ」の5件法)

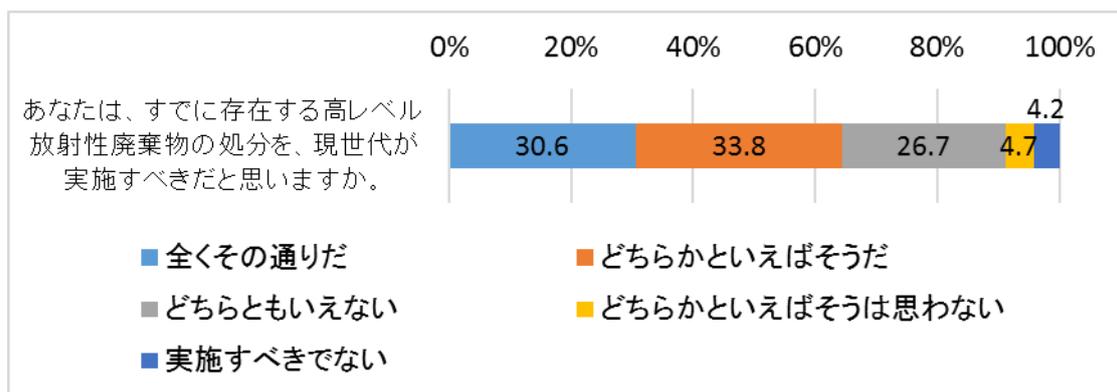


図 3-19 : 現世代で処分すべきか

○原子力発電の増設への賛否

「ある人々は日本のエネルギー問題を解決するために原子力発電を増やすべきだと言っています。あなたはこれに賛成ですか反対ですか」(1「反対」～4「賛成」の4件法)

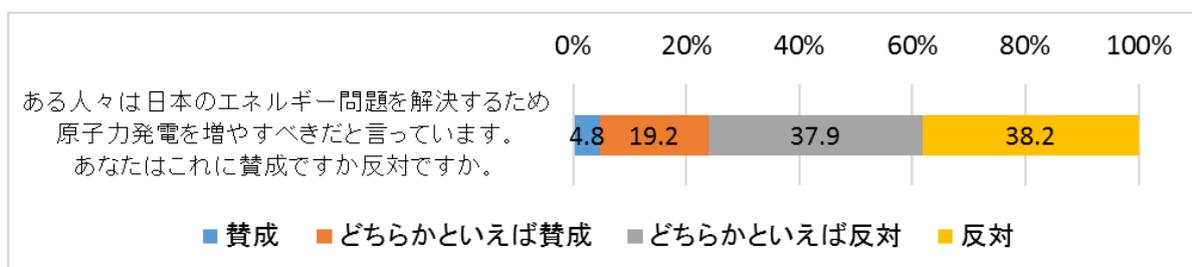


図 3-20 : 原子力発電増設への賛否

○原子力発電のメリットについての認知

「原子力発電は、他のエネルギーに比べて経済性に優れている」「原子力発電は、他のエネルギーに比べて環境に優しい」「原子力発電は、他のエネルギーに比べて安全性に優れている」(1「全くそう思わない」～4「そう思う」の4件法)

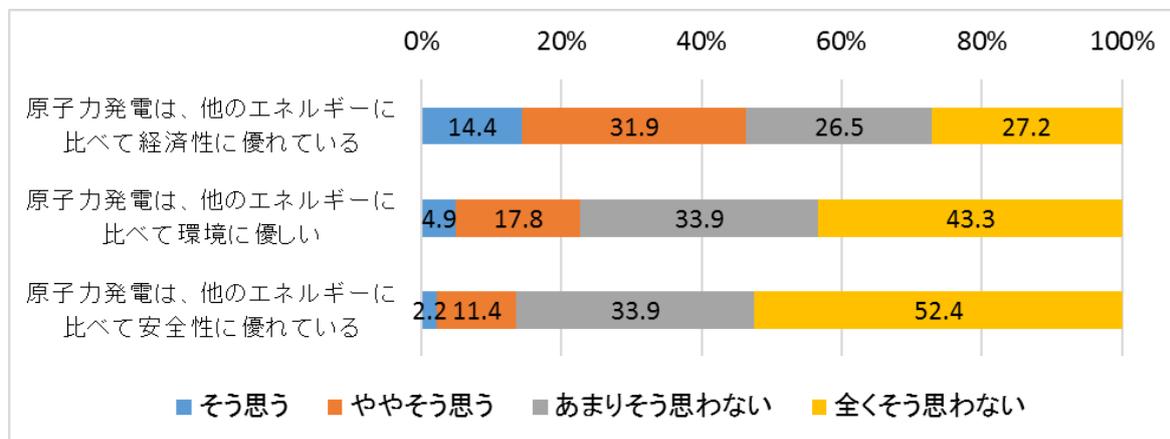


図 3-21：原子力発電のメリットについての認知

○原子力に関わる知識

「あなたは、原子力発電に関する以下の事柄について、どのくらいよく知っていますか。あてはまるものをひとつずつお選びください。」(1「人に説明できる」～4「まったく知らない」の4件法)

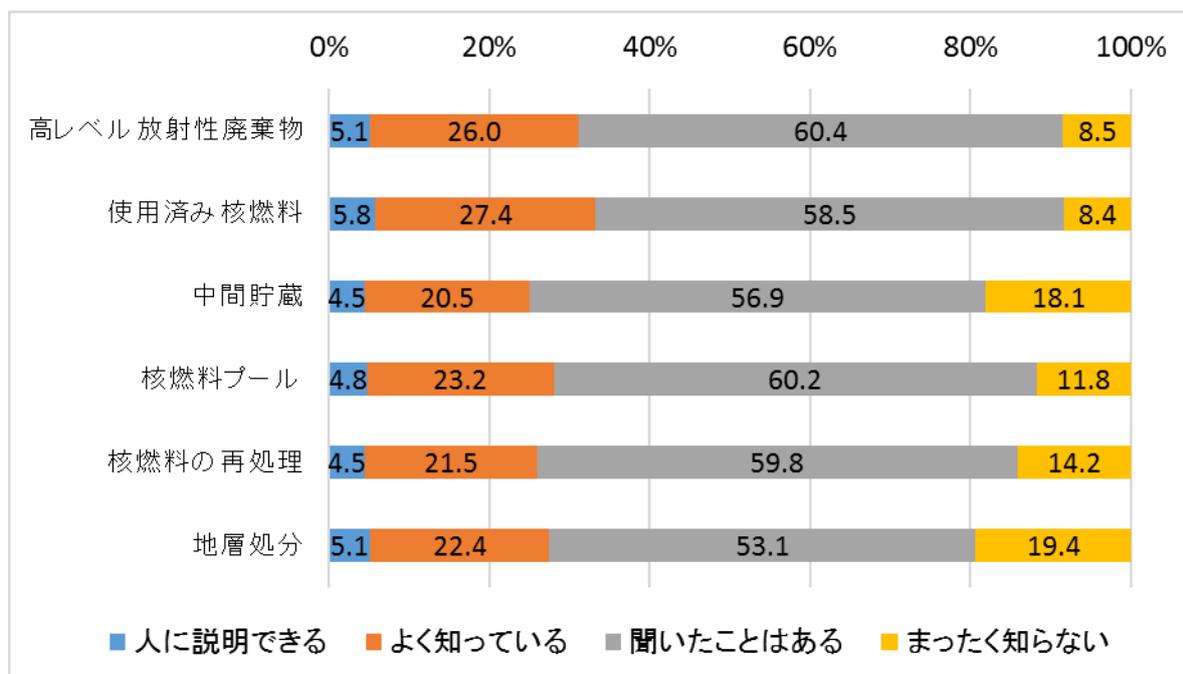


図 3-22：原子力に関わる知識

○原子力関連の報道に対する注意

「あなたはふだん、原子力発電に関する報道にどれくらい注意を払っていますか。あてはまるものひとつをお選びください。」(1「いつも注意を払っている」～4「全く注意を払っていない」の4件法)

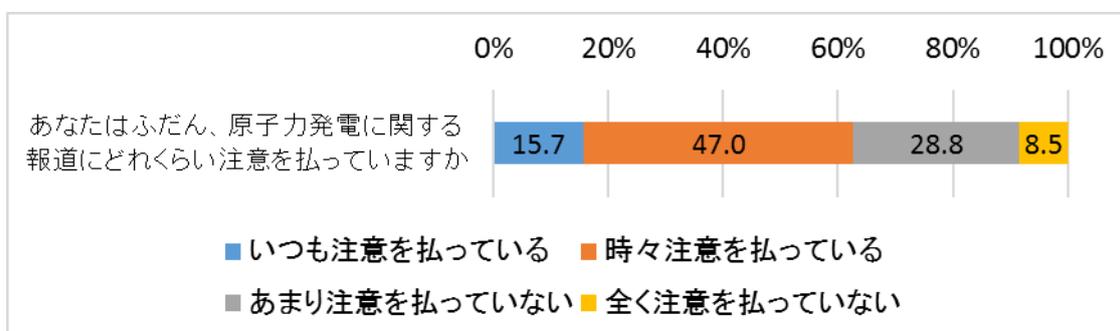


図 3-23：原子力関連の報道に対する注意

○「科学的有望地」の設定による態度形成への影響

「科学的有望地」について、回答者には以下の情報を提供した。

現在、高レベル放射性廃棄物の最終処分施設建設地を、前の設問で示した「法令に基づく多段階の処分地選定調査（文献調査、概要調査、精密調査）」によって選定する**前段階**として、「**科学的有望地**」を国が指定することが予定されています。

「**科学的有望地**」とは、現時点で一般的に入手可能な文献・データに基づいて、最終処分施設建設地としての適性を、科学的な観点から、「**適性の低い地域**」「**適性のある地域**」「**より適性の高い地域**」の三つに分類し、日本地図を色分けする形で国が提示するものです。

「**科学的有望地**」の提示にあたっては、最終処分施設に求められる**地質環境特性とその長期的安定性**、及び、地層処分事業の**操業時の安全性**の確保に影響を与える事項を検討し、回避すべきあるいは回避が好ましい範囲（地域）と評価された場合は「**適性の低い地域**」、「**適性の低い地域**」にあたらぬ地域のうち、積極的に考慮することで地層処分システムの安全性が向上する可能性や、考慮することで実現可能性を大きく高める可能性のある地域が「**より適性の高い地域**」、それ以外の地域が「**適性のある地域**」に区分されます。

その上で、「より適性の高い地域」からの距離に基づいて、以下の5つのシナリオを作成した。

シナリオ1：居住する市に「より適性の高い地域」が設定された

シナリオ1-1：自宅が「より適性の高い地域」に入った

シナリオ1-2：自宅は「より適性の高い地域」に入らなかったが、近くに領域が設定された

シナリオ1-3：自宅から離れた地区に「より適性の高い地域」が設定された

シナリオ2：居住する市の隣の市に「より適性の高い地域」が設定された

シナリオ3：居住する都道府県の隣の都道府県に「より適性の高い地域」が設定された

これら 5 つのシナリオにおいて、「お住まいの市が、高レベル放射性廃棄物処分施設誘致の文献調査に立候補した場合、あなた自身はそれを支持しますか。」(1「支持する」～5「支持しない」の 5 件法)、「あなたのお住まいの市に高レベル放射性廃棄物の地層処分施設が建設されると想定した場合、そのことについてどう思いますか。」(1「絶対に受け入れたくない」～5「受け入れてもよい」の 5 件法) という 2 つの質問にそれぞれ回答してもらった。このとき、シナリオの順序をランダムで表示させて、回答を得た。

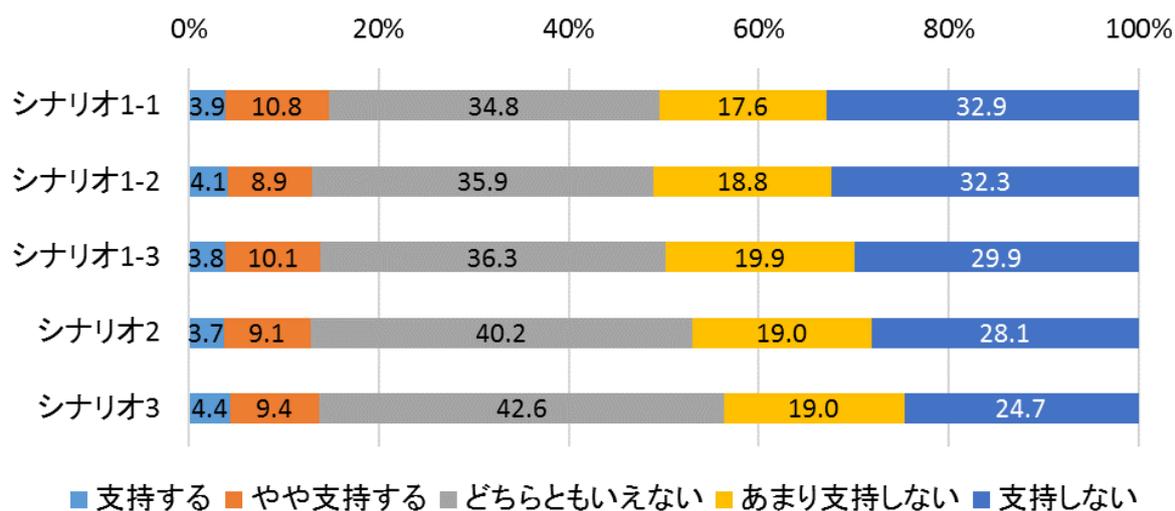


図 3-24 : シナリオごとの文献調査への態度

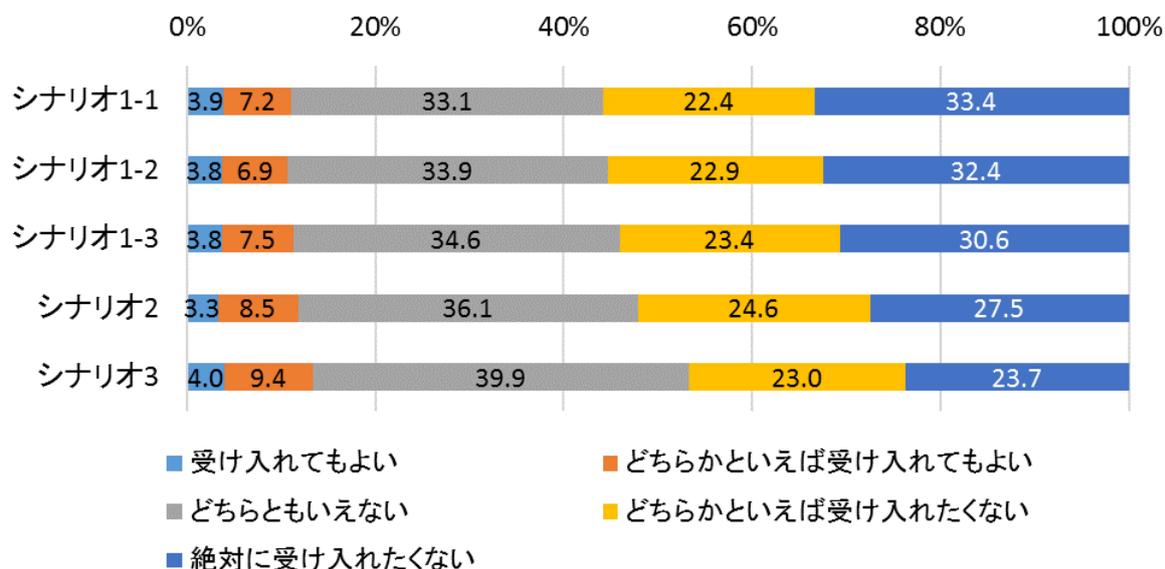


図 3-25 : シナリオごとの地層処分施設受け入れ態度

○ 「科学的有望地」の公正性認知

「以上のような「適性の低い地域」「適性のある地域」「より適性の高い地域」による「科学的有

望地」の選定は公正なものだと思いますか。」(1「そう思う」～5「そう思わない」の5件法)

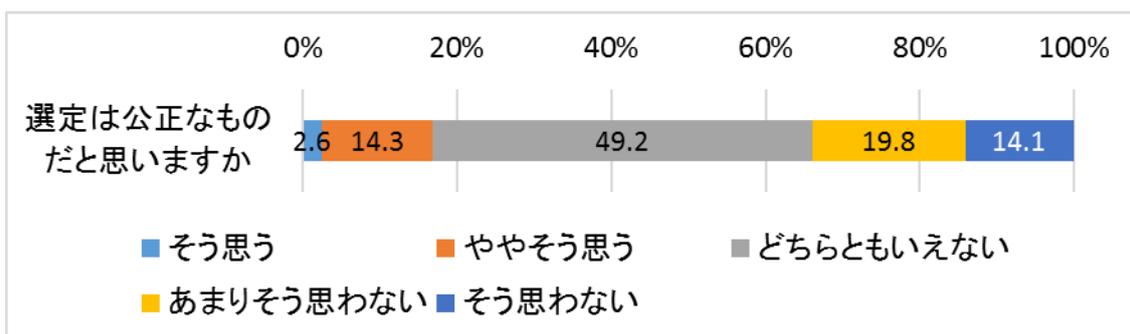


図 3-26 : 「科学的有望地」の公正性認知

○ 「科学的有望地」に対する合理的判断

「あなたのお住まいの市が、「適性の低い地域」「適性のある地域」「より適性の高い地域」に分類される確率はどのくらいあると思いますか。合計が 100%になるようにお答えください。」

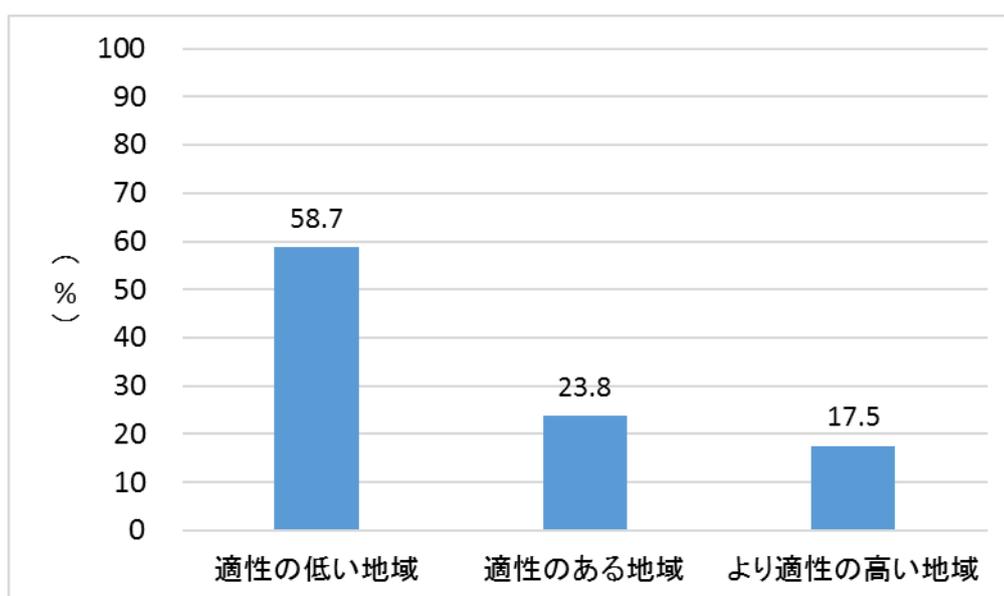


図 3-27 : 「科学的有望地」の範囲に関する認知

○ 「科学的有望地」の設定による影響の基礎的検討

文献調査応募に関する各シナリオにおける態度をまとめた図 3-24 を見ると、「より適性の高い地域」が自宅に近いほど、「どちらともいえない」が減少し、不支持が増加している (図 3-28)。一方で、支持については直線的な関係は観察されず (図 3-29)、意外なことにシナリオ 1-1 (自宅が領域内) において、最も支持が多くなった。回答者が支持・不支持を決める際に影響する要因を検討するため、多項ロジスティック回帰分析を行った結果が、表 3-1 である。なお、シナリオは被験者内計画としてデザインされているので、各回答者の 5 つのシナリオについての回答をプールして分析した。その際、同一の回答者の回答の級内相関を考慮したロバスト標準誤差を使っ

て信頼区間を求めている。

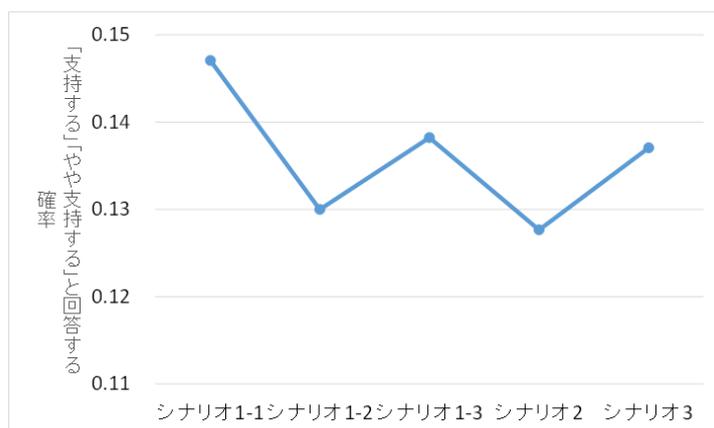


図 3-28 : 各シナリオにおいて支持的態度を表明した回答者の割合

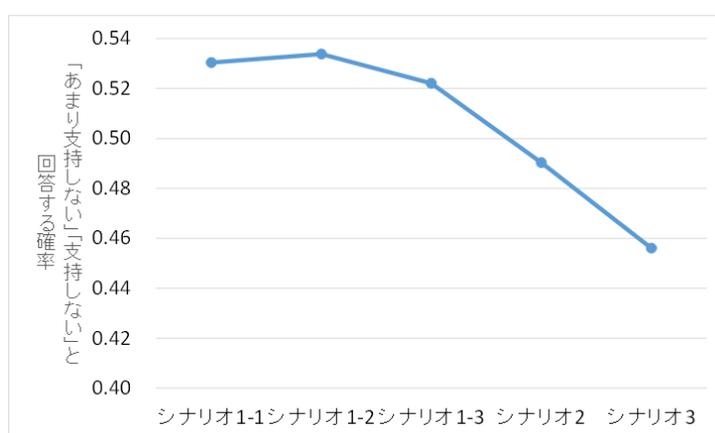


図 3-29 : 各シナリオにおいて不支持的態度を表明した回答者の割合

表 3-1 : 文献調査への態度を決める要因に関する多項ロジスティック回帰分析

	文献調査への態度			
	支持する・やや支持する		あまり支持しない・支持しない	
	RRR	95% CI	RRR	95% CI
市の境近くに居住	1.12	(0.84, 1.48)	1.02	(0.84, 1.25)
都道府県の境近くに居住	1.15	(0.78, 1.71)	1.18	(0.87, 1.60)
内陸自治体	1.04	(0.73, 1.47)	1.19	(0.94, 1.52)
シナリオ				
1-1	1.32 *	(1.15, 1.52)	1.43 *	(1.30, 1.57)
1-2	1.13 †	(0.99, 1.29)	1.40 *	(1.28, 1.53)
1-3	1.19 *	(1.04, 1.36)	1.35 *	(1.24, 1.47)
2	0.99	(0.87, 1.12)	1.14 *	(1.06, 1.24)
3	Reference		Reference	

\* $p < .05$ , † $p < .10$

性別、年齢、収入、学歴を調整

RRR: relative risk ratio

ベースアウトカムは「どちらともいえない」

自宅の近くに「より適性の高い地域」が設定されたシナリオ（1-1）では、支持・不支持の両方が増加していることがわかった。これは、「科学的有望地」の設定によって、文献調査への応募を「自分事」としてとらえるようになり、態度を明確にした（二極化した）と解釈できる。一方で、自宅の遠くに領域が設定されたシナリオ（2及び3）では、「どちらともいえない」が増加している。「科学的有望地」への近接性により、文献調査への応募についての自らの関与度が変化し、関与度が低いと明確な態度が形成されないことを示唆している。

一方、同様に地層処分施設受け入れに関する各シナリオにおける態度をまとめた図 3-25 を見ると、「より適性の高い地域」が自宅に近いほど、「どちらともいえない」が減少し、不支持が増加、支持が微減している（図 3-30, 図 3-31）。文献調査同様、多項ロジスティック回帰分析を行った結果が、表 3-2 である。

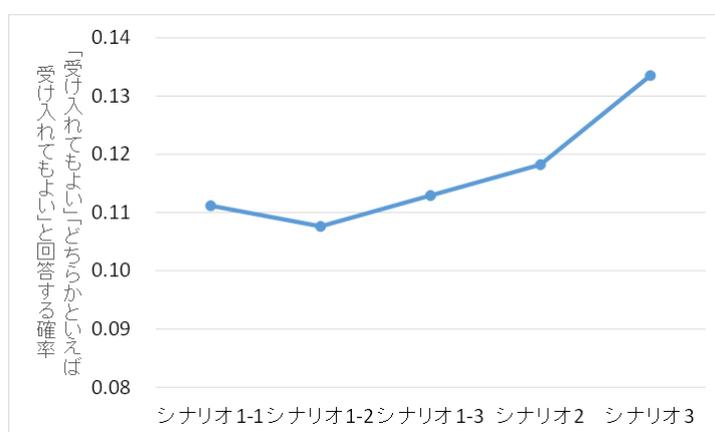


図 3-30：各シナリオにおいて支持的態度を表明した回答者の割合

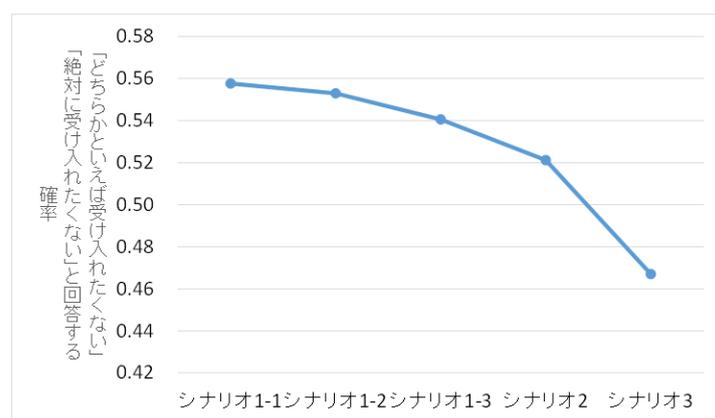


図 3-31：各シナリオにおいて不支持的態度を表明した回答者の割合

表 3-2：地層処分施設受け入れへの態度を決める要因に関する多項ロジスティック回帰分析

	処分場建設への態度			
	受け入れてもよい・どちらかといえば受け入れてもよい		どちらかといえば受け入れたくない・絶対に受け入れたくない	
	RRR	95% CI	RRR	95% CI
市の境に居住	1.25	(0.93, 1.70)	1.07	(0.88, 1.32)
都道府県の境に居住	1.22	(0.79, 1.88)	1.17	(0.86, 1.59)
内陸自治体	0.91	(0.63, 1.33)	0.98	(0.77, 1.25)
シナリオ				
1-1	1.00	(0.87, 1.15)	1.45 *	(1.33, 1.59)
1-2	0.95	(0.82, 1.09)	1.40 *	(1.29, 1.53)
1-3	0.97	(0.85, 1.12)	1.34 *	(1.23, 1.46)
2	0.98	(0.86, 1.11)	1.24 *	(1.15, 1.34)
3	Reference		Reference	

\* $p < .05$ , † $p < .10$

性別、年齢、収入、学歴を調整

RRR: relative risk ratio

ベースアウトカムは「どちらともいえない」

文献調査への態度に関する分析で見られたような、シナリオ 1-1 における態度の二極化は、地層処分施設受け入れについては観察されなかった。また、「より適性の高い地域」と自宅との間の距離が遠いほど不支持が減少し、支持が増加するという直線的な関係（ただし後者は統計的に有意ではない）にある。このことは、「科学的有望地」の設定が、文献調査応募に対する態度形成過程には影響を与えうるが、地層処分施設受け入れに対する態度形成過程にはそれほどでもないことを示唆している。地層処分施設の受け入れについては、二重過程モデルでいう「周辺ルート」的な情報処理にとどまっているため、「科学的有望地」の設定は「怖いものが近くに/遠くに来る」から情動的な不支持を強める/弱めることになるかと解釈できる。一方で、文献調査への応募については、「科学的有望地」が自宅近隣に設定されることで、住民の態度形成過程を二重過程モデルの「中心ルート」的な情報処理に変化させうる。地層処分施設受け入れという具体的な想像が働きにくい施策と比較して、文献調査への応募は（実は）現実感を持って受け止めうる施策であることが推測される。さらに踏み込んで推測すると、図 3-18、3-19 では人々は HLW を国内・現世代で処分すべきとする態度を示しているように見えるが、これはあくまでタテマエであって、ホンネでは「どうせ処分は実施されない」、「自分（ないし一般国民・現世代）は処分事業に関わり合いたくない」といった態度を有している可能性すらある。

しかし、文献調査への応募については、「中心ルート」的な情報処理によって、合理的判断から支持を表明する市民が現れうること、適性の高い地域から離れた国民は明確な態度形成を行わないことが示唆されている。現段階で「科学的有望地」の公表により「中心ルート」的な態度形成過程をとる市民に対して、科学・技術・社会的リスクと補償に関する適切な情報提供を行い、安全かつ公正なプロセスで処分地選定を進めることが、最終的な処分施設受け入れについても合理的な態度形成過程をとってもらうために重要であろう。この観点でいえば、「科学的有望地」の設定

は、適正のある地域の住民の間にアジェンダを設定し、事業進展にポジティブな影響を及ぼしうる政策であるといえる。

ただし、図 3-26 に示されたように、国民は「科学的有望地」の選定方法について、どちらかといえば懐疑的な態度を有している。また、図 3-27 の結果から、国民の多くはまさか自宅が「適正のある地域」、「より適性の高い地域」に入るとは思っていないことが推定される。「科学的有望地」の設定基準に基づけば、「適性の低い地域」は限定的になると推測される。市民の感覚と異なって、予想より広い範囲が適性を有するとする「科学的有望地」マップが公表された場合、科学者・技術者・専門家集団らへの信頼が変化（毀損）される危険性がある。ある施策が有するアジェンダ・セッティングの有効性が、「市民の予測」との整合性に影響を受ける（整合性が低いと、情報として受容されずにアジェンダ・セッティングにつながらない）という仮説については、次項 3.1.2 に記載したパネル調査と、「科学的有望地」公表前後の比較により検証することとする。

### 3.1.2. パネルデータによる中長期的な態度の変遷に関する社会調査

すでに述べたとおり、本研究では、平成 22 年 2 月と平成 23 年 2 月、平成 24 年 2 月、平成 27 年 2 月、平成 28 年 2 月に、一般の回答者に対してインターネットを用いたアンケート調査を実施してきた。これは、文献調査応募や地層処分施設受け入れに関する態度形成過程に影響を与える要因、信頼の規定因、平成 23 年 3 月の東日本大震災・福島第一原子力発電所事故の影響分析（平成 24 年の調査以降）などについて、社会心理学的な分析を行うための調査である。

今年度も同様に、平成 29 年 2 月にインターネットを用いたアンケート調査を実施した。調査票は、本報告書別添の参考資料に示す通りである。この調査では、質問票の操作を行わないパネル群（500 人、過去の調査に回答したパネル回答者）に加え、パネル回答者 400 人と新規回答者 400 人を、それぞれ 100 人ずつ 4 つのシナリオ（シナリオ A1 群、A2 群、B 群、C 群）にランダムに割り振った。合計サンプル数は 1300 人となった。

本調査は平成 29 年 2 月下旬に実施したため、年度内に集計結果を示すことができなかった。結果については、次年度に報告を行う。

## IV. 平成 29 年度の研究方針

平成 29 年度は最終年度であることを念頭に置き、定性的分析（事例研究）と定量的分析の両面から、具体的な施策を俯瞰的に示すことを目指す。アジェンダ・セッティングの事例研究は、平成 26・27 年度に集中的に実施して、すでにアジェンダ・セッティングの類型化、アジェンダ・セッティングにつながる施策の特徴（特にフレーミングに着目）に関する一定の知見が得られている。定量的分析については、膨大なパネルデータについて未だ十分な分析ができているとはいえないが、二重過程モデルを想定して、沈黙の螺旋理論を活用した集会の設計等、具体的な施策につながりうる示唆も得られつつある。

パネルデータによる社会調査については、3.1.2 にて前記の通り、平成 28 年度調査の集計・分析が直近の課題となる。また、過去の調査について、回答者の登録居住地情報を追加で獲得した

(H28年度に外注)。元々、平成23年の調査から継続して原子力関連施設立地地域、平成27年の調査から財政健全化指数等の社会経済的困窮度の高い地域のサンプルを一定数抽出している。これらの居住地情報を有効に活用すれば、パネルデータの詳細な分析において、地理的・行政的特徴が及ぼす影響を検討することができる。

「科学的有望地」については、適性を有する領域と自宅との間の距離が態度に影響を与える仮説が得られているが、それ以外にも市区町村境、都道府県境に居住している住民にとってはこれら境界が態度形成に影響を与える可能性がある。また、これも3.1.1に前述の通り、「科学的有望地」（もしくは名称変更後の施策）公表後の調査を実施し、前後の比較を行うことも重要な課題である。

文献調査へ応募したり、地層処分施設を受け入れたりする自治体の住民が、情動的には事業について議論することに納得し、合理的に議論することが理想的である。平成19年に東洋町で見られたように、住民が推進派・反対派の激しい対立に巻き込まれ、情動的な態度形成しかできない状況に陥るのは、住民間に禍根を残してしまう。適切なフレーミング施策により、対象自治体においては「自分事」として「中心ルート」的な態度形成過程をとり、対象から離れた国民は明確な態度形成を行わない（静観）状況を創造することは、ひとつの「望ましい」政治過程と考えられる。このようなフレーミングにつながる施策を、これまでの定性的・定量的研究から導出することこそ、平成29年度の最終的な目的となる。

【参考文献】

- Andersen, S. C. and M. Hjortskov, 2016. "Cognitive Biases in Performance Evaluations," *Journal of Public Administration Research and Theory*, 26(4): 647-662.
- Bord, R. J. & O'Connor, R. E. (1990). Risk communication, knowledge, attitudes: Explaining reactions to a technology perceived as risky. *Risk Analysis*, 10, 499-506.
- Flynn, J., Burns, W., Mertz, C. K., Slovic, P. (1992). Trust as a determinant of opposition to a high-level radioactive waste repository: Analysis of a structural model. *Risk Analysis*, 12, 417-429.
- 深田博己. 2004. 『説得心理学ハンドブック：説得コミュニケーション研究の最前線』 北大路書房.
- 角田勝也. 2000. 「JCO 事故直後の原子力発電に関する一般住民の意見とその形成要因」 『INSS Journal』 7: 55-66.
- Komatsuzaki, S., 2014. "Undesirable facility siting and democracy: A comparative analysis of radioactive waste repository siting in Japan, South Korea, and France," Ueta K. and Y. Adachi ed., *Transition Management for Sustainable Development*, Tokyo: United Nations Press, 293-316.
- Leventhal, G. S. (1980). What should be done with equity theory? New approaches to the study of fairness in social relationship. In K. Gergen, M. Greenberg, & R. Willis (Eds.), *Social exchange* (pp. 27-55). New York: Plenum.
- Liu, Y. and L. J. Shrum, 2009. "A Dual-Process Model of Interactivity Effects," *Journal of Advertising*, 38(2): 53-68.
- Noelle-Neumann, E., 1993. "Spiral of Silence: Public opinion—Our social skin (2<sup>nd</sup> ed.)," Chicago: University of Chicago Press.
- 大山七穂. 2010. 「価値と政治意識」 池田謙一 編 『政治行動の社会心理学—社会に参加する人間のこころと行動 (シリーズ 21 世紀の社会心理学)』 北大路書房, 74-85.
- Petty, R. E. and T. Cacioppo, 1986. "The elaboration likelihood model of persuasion," Berkowitz, L. ed., *Advances in Experimental Social Psychology*, New York: Academic Press, 123-205.
- 西郷貴洋・小松崎俊作・堀井秀之. 2010. 「高知県東洋町における高レベル放射性廃棄物処分地決定に係る紛争の対立要因と解決策」 『社会技術研究論文集』 7: 87-98.
- Slovic, P. (1987). Perception of risk. *Science*, 236, 280-285.
- 高浦佑介・高木大資・池田謙一. 2013. 「高レベル放射性廃棄物処分場立地の受容に関する心理学的要因の検討—福島第一原子力発電所事故前データの分析と考察—」 『環境科学会誌』 26(5): 413-20.
- 田中豊 (1997). 科学技術のベネフィット認知に関する研究. 実験社会心理学研究, 37, 195-202.
- 和田隆太郎・田中知・長崎晋也. 2009. 「高レベル放射性廃棄物処分場の立地確保に向けた社会受容プロセスモデル」 『日本原子力学会和文論文誌』 8(1): 19-33.
- 山口陽央・小松崎俊作・堀井秀之. 2011. 「韓国における放射性廃棄物処分場立地過程の政治過程

分析」 『社会技術研究論文集』 8: 60-73.

山崎瑞紀・高木彩・池田謙一・堀井秀之 (2008). 鉄道事業者に対する社会的信頼の規定因：共分散構造分析を用いたモデルの構成. 社会心理学研究, 24, 77-86.