平成２９年度
高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業
ＴＲＵ廃棄物処理・処分技術高度化開発

平成２５年度～２９年度取りまとめ報告書

平成３０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

目　次

第 1 章 全体概要 1-1
1.1 研究開発の背景 1-1
1.2 研究目的 1-2
1.3 実施概要 1-2
1.3.1 ヨウ素 129 対策技術の信頼性向上 1-3
1.3.2 炭素１４長期放出挙動評価 1-4
1.3.3 ナチュラルアナログ調査 1-5
1.3.4 人工バリア材料長期挙動評価・人工バリア評価の初期条件の設定 1-6
1.3.5 ガス移行連成挙動評価手法の開発 1-8
1.4 全体計画 1-10
1.5 とりまとめ報告書の構成 1-11

第 2 章 ヨウ素 129 対策技術の信頼性向上 2-1
2.1 緒言 2-1
2.1.1 TRU 廃棄物グループ 1（廃銀吸着材）の概要 2-1
2.1.2 ヨウ素 129 の評価と代替技術 2-1
2.1.3 開発目標 2-2
2.1.4 各固化体の特徴・概要と開発の方針 2-3
2.2 アルミナ固化技術 2-5
2.2.1 緒言 2-5
2.2.2 アルミナ固化技術の概要 2-5
2.2.3 アルミナ混合固化体の製造条件 2-9
2.2.4 固化体の環境対応性 2-14
2.2.5 ヨウ素放出挙動モデルの検討 2-16
2.2.6 アルミナ固化技術のまとめ 2-19
2.3 BPI ガラス固化技術 2-21
2.3.1 緒言 2-21
2.3.2 BPI ガラス固定化技術の概要 2-21
2.3.3 ヨウ素放出挙動評価のアプローチ方法 2-24
2.3.4 BPI ガラス固化体の化学構造の詳細検討 2-25
2.3.5 BPI ガラス固化体からのヨウ素浸出機構の検討 2-27
2.3.6 BPI ガラス固化体からのヨウ素放出モデルの検討 2-35
2.3.7 BPI ガラス固化技術のまとめ 2-39
2.4 セメント固化技術 2-41
2.4.1 緒言 2-41
2.4.2 発熱影響による物性変化 2-43

2.4.3 ハイドロガーネット固化体の評価 2-44
2.4.4 ヨウ素放出モデルの検証 2-45
2.4.5 セメント固化体の優位性評価 2-46
2.4.6 セメント固化技術のまとめ 2-47
参考文献 2-48

第 3 章 炭素 14 長期放出挙動評価 3-1
3.1 緒言 3-1
3.2 ジルカロイの腐食モデルの検討 3-3
3.2.1 目的 3-3
3.2.2 現実的な腐食速度の評価 3-3
3.2.3 酸化膜の特性評価 3-7
3.2.4 照射済みジルカロイの腐食挙動 3-9
3.2.5 腐食機構の考察 3-12
3.2.6 ジルカロイ腐食のまとめと課題 3-14
3.3 ステンレス鋼の腐食データの取得 3-17
3.3.1 目的 3-17
3.3.2 ステンレス鋼の腐食速度 3-17
3.3.3 ステンレス鋼の不働態皮膜の観察 3-18
3.3.4 ステンレス鋼腐食のまとめ 3-19
3.4 炭素化学形態の調査 3-19
3.4.1 目的 3-19
3.4.2 照射済み燃料被覆管を用いた C-14 の化学形態の評価 3-19
3.4.3 安定炭素を利用した化学形態の調査 3-20
3.5 諸外国含めた最新知見と課題 3-25
参考文献 3-27

第 4 章 ナチュラルアナログ調査 4-1
4.1 調査概要 4-1
4.1.1 背景 4-1
4.1.2 目的 4-4
4.1.3 ルソン島 Saile 鉱山のナチュラルアナログ 4-4
4.1.4 ルソン島 Bigbiga 地区のナチュラルアナログ 4-8
4.2 ナチュラルアナログサイトの地質環境調査 4-11
4.2.1 パラワン島 Narra 地区の地質環境及び地下水環境 4-11
4.2.2 フィールド調査の着目点と試錐調査及びトレンチ調査 4-16
4.2.3 スメクタイト含有砕屑性堆積物の岩石鉱物学的・岩石化学的特性 4-20
4.3 スメクタイトの生成環境と変質プロセス 4-27

4.3.1 EPMA によるスメクタイト化に係る鉱物組成・共生及び組織の観察 4-27
4.3.2 年代測定による反応時間の評価 4-39
4.3.3 地球化学モデルによるナチュラルアナログの解析的評価 4-42
4.3.4 スメクタイトの生成環境と鉱物学的変遷モデルおよび長期的安定性 4-44
4.4 ナチュラルアナログの知見に基づくベントナイトの長期健全性 4-47
4.4.1 調査サイトの環境とナチュラルアナログのコンセプト 4-47
4.4.2 人工バリアの長期健全性に係るナチュラルアナログの知見 4-48

第 5 章 人工バリア材料長期挙動評価・人工バリア評価の初期条件の設定 5-1
5.1 全体概要 5-1
5.1.1 背景 5-1
5.1.2 目的及び検討概要 5-3
5.1.3 前フェーズ(平成 19 年度～24 年度) の成果と課題 5-4
(1) セメント系材料の長期変質挙動の確証試験の成果 5-5
(2) セメントーベントナイト相互影響の確証試験の成果 5-5
(3) 人工バリア性能評価解析の高度化の成果 5-6
(4) 人工バリアの長期挙動の評価で抽出された主な課題 5-7
5.1.4 本フェーズ（平成 25 年度から）の全体計画 5-8
5.2 人工バリア材料の化学変質挙動に関する試験とモデル化 5-11
5.2.1 ベントナイト系材料の変質によるゼオライト系二次鉱物の生成に関するモデル化 5-11
5.2.2 セメントーベントナイト接触部の挙動把握 5-14
5.2.3 ベントナイト系材料の溶解モデルの高度化 5-17
5.2.4 セメント系材料の化学的変質に伴う物質移行特性変化のモデル化 5-19
5.3 緩衝材の化学変質を伴う力学挙動に関する試験とモデル化 5-22
5.3.1 力学挙動に関する試験とモデル化 5-23
5.3.2 水理挙動に関するモデル化 5-25
5.3.3 長期性能評価のための化学・力学連成モデル試験 5-25
5.4 人工バリア評価の初期条件の設定 5-26
5.4.1 セメント系材料の熱影響による結晶化条件に関する試験 5-26
(1) 経年コンクリートの分析 5-26
(2) 粉体の定温度試験結果（セメント系材料の熱変質条件の把握（C-S-H の結晶化条件）） 5-27
(3) 硬化体の定温度試験結果（セメント系材料の熱変質が材料物性値に与える影響） 5-28
(4) セメント系材料の熱変質に関する条件と影響のまとめ 5-29
5.4.2 セメント系材料の部材寸法の特性値への影響に関する検討及びひび割れの非破壊検査手法 5-31

5.5 HMC 連成解析手法の検討 5-32
5.5.1 HMC 連成解析に関わる化学解析手法及び力学解析手法に関する検討 5-33
5.5.2 人工バリアの閉鎖後長期の挙動解析 5-33
(1) HMC 連成解析手法の検討 5-33
(2) 核種移行解析 5-35
(3) 人工バリアの閉鎖後長期の HMC 解析（成果の統合と成立性の考察） 5-40

第 6 章 ガス移行連成挙動評価手法の開発 6-1
6.1 全体の実施概要 6-1
6.2 ガス移行現象のメカニズム解明（ガス移行試験等） 6-2
6.2.1 ベントナイト系材料に係るガス移行現象メカニズム解明 6-2
(1) 低圧注入条件を対象とした検討 6-4
(2) 界面（緩衝材ブロック間の隙間）を対象とした検討 6-6
(3) 不飽和力学特性に関する検討 6-12
6.2.2 その他材料（セメント系材料）に係るガス移行現象メカニズム解明 6-22
(1) ガス移行に係るセメント系材料（モルタル）の基本特性の把握に関する検討 6-23
(2) 界面（同一材料間の打継ぎ面・廃棄体容器表面との接触面）を対象とした検討 6-24
6.2.3 まとめ 6-32
(1) ベントナイト系材料に係るガス移行現象メカニズム解明 6-32
(2) その他材料（セメント系材料）に係るガス移行現象メカニズム解明 6-32
6.3 ガス移行連成挙動解析ツールの高度化（解析検討等） 6-34
6.3.1 ベントナイト系材料特性のモデル化 6-34
6.3.2 材料特性モデルを反映したガス移行解析と挙動評価 6-37
6.3.3 材料特性モデルを反映したガス移行解析と挙動評価 6-39
6.3.4 まとめ 6-41
(1) ベントナイト系材料特性のモデル化 6-41
(2) その他（ベントナイト系以外）の材料特性のモデル化 6-41
(3) 材料特性モデルを反映したガス移行解析と挙動評価 6-41
6.4 ガス移行評価シナリオの拡充 6-45
6.4.1 ガス移行評価シナリオの拡張 6-45
(1) ハイブリッド・アプローチによるシナリオ設定手法 6-46
(2) 廃棄物グループの評価シナリオの特徴と不確実性の整理 6-50
6.4.2 評価体系の整備と重要 FEP の抽出 6-51
(1) ガス挙動を考慮した評価体系の整備 6-51
(2) 統合 FEP と不確実性の抽出と分析 6-51
(3) 評価体系における重要要素と不確実性 6-52
(4) 評価体系の重要要素に係る不確実性の対応 6-53
6.4.3 重要 FEP に基づくガス移行評価シナリオの再構築 6-54

(1) ガス挙動が支配的となるシナリオ：ベントナイトバリアは健全性を維持 6-55
(2) ガス挙動が引き起こす可能性を否定できないシナリオ：ベントナイトバリアが健全性を喪失 6-56
(3) ガス挙動以外の要因でバリアが健全性を喪失するシナリオ 6-57
(4) 複合プロセスに着目したシナリオとモデル化への展開 6-58
(5) 複合プロセスの評価ケースと不確実性への対応策 6-60
(6) 人工バリアシステムの成立性評価に係わる解析的評価での判断尺度例 6-60
6.4.4 まとめ 6-61
(1) ガス移行評価シナリオの拡張 6-61
(2) 評価体系の整備と重要 FEP の抽出 6-61
(3) 重要 FEP に基づくガス移行評価シナリオの再構築 6-62
6.5 ガス移行に係る TRU 廃棄物処分施設の成立性評価 6-63
6.5.1 核種移行解析と挙動評価 6-63
(1) 解析コードの選定 6-63
(2) パラメータの設定 6-63
(3) 核種移行解析の実施等 6-63
(4) 解析モデルの構築 6-73
(5) パラメータ設定 6-74
(6) 核種移行解析の実施 6-76
6.5.2 核種移行解析結果に基づく施設（人工バリア）成立性の評価 6-79
(1) 主要核種への影響 6-79
(2) ガス発生／ガス移行挙動が主要核種の移行挙動へ与える影響を考慮した評価 6-88
6.5.3 まとめ 6-90
(1) 核種移行解析と挙動評価 6-90
(2) 核種移行解析結果に基づく施設成立性の評価 6-90
参考文献 6-91

第 7 章　まとめ 7-1
7.1　ヨウ素 129 対策技術の信頼性向上 7-1
7.2　炭素 14 長期放出挙動評価 7-2
7.3　ナチュラルアナログ調査 7-3
7.4　人工バリア材料長期挙動評価・人工バリア評価の初期条件の設定 7-4
7.5　ガス移行連成挙動評価手法の開発 7-5

図目次

図 1.3.1-1　ＴＲＵ廃棄物処理・処分技術高度化開発の目的と各研究開発とのつながり 1-3
図 1.4.1-1　ＴＲＵ廃棄物処理・処分技術高度化開発の５カ年の全体計画 1-10
図 2.1.2-1　第 2 次 TRU レポート[2]における被ばく評価結果 2-2
図 2.1.2-2　ヨウ素固定化技術による I-129 被ばく線量低減概略図 2-2
図 2.1.3-1　I-129 の最大被ばく線量と浸出期間の関係 2-3
図 2.1.4-1　代替固化技術の概要 2-3
図 2.2.2-1　アルミナ固化体作製フロー 2-6
図 2.2.2-2　水分量と空隙率の関係（圧力 175 MPa、処理時間 3 時間） 2-7
図 2.2.2-3　pH に対する固化体からのアルミとヨウ素の放出挙動の比較（高硫黄濃度条件） 2-8
図 2.2.2-4　アルミナ固化体中の内部構造模式図 2-8
図 2.2.2-5　固化体(空隙率 10～15%)におけるヨウ素放出過程（高濃度 HS^-条件） 2-9
図 2.2.3-1　脱気温度の影響確認試験 2-9
図 2.2.3-2　緻密化条件で廃銀吸着材のみを HIP 処理した固化体の内部構造 2-10
図 2.2.3-3　アルミナ混合率の異なる固化体の内部構造の簡易シミュレーション 2-10
図 2.2.3-4　HIP 温度と空隙率の関係 2-11
図 2.2.3-5　90%アルミナ混合固化体の内部構造 2-11
図 2.2.3-6　3D-SEM による固化体内部構造の観察と解析 2-12
図 2.2.3-7　アルミナ混合率とヨウ素放出速度の関係 2-13
図 2.2.3-8　90%アルミナ混合固化体の浸漬試験の結果（pH12.5） 2-13
図 2.2.3-9　90%アルミナ混合固化体の浸漬試験の結果（pH8） 2-13
図 2.2.3-10　液浸入境界付近の SEM 画像（10000 倍） 2-14
図 2.2.3-11　浸漬後の固化体内部での S および I の濃度分布の例 2-14
図 2.2.4-1　中性付近、低濃度 HS-溶液による浸漬試験結果の例 2-15
図 2.2.4-2　90%アルミナ混合固化体の環境対応マップ 2-15
図 2.2.5-1　Higuchi 式の導出過程で想定された薬剤放出モデル[9] 2-17
図 2.2.5-2　固化体内の AgI の残留プロファイルの時間変化 2-17
図 2.2.5-3　ヨウ素の規格化浸出量の平方根則による整理 2-18
図 2.2.5-4　セルオートマトン法による固化体内の溶液浸入シミュレーション 2-19
図 2.3.2-1　BPI ガラス固化プロセス技術の概要 2-21
図 2.3.2-2　$BiPbO_2I$（BPI）の結晶構造 2-22
図 2.3.2-3　対象とした低溶融鉛ガラスの基本組成 2-22
図 2.3.2-4　BPI ガラス固化体の概念 2-23
図 2.3.3-1　ヨウ素放出挙動評価のアプローチ方法 2-24
図 2.3.4-1　BPI ガラスの実測値及び RMC 計算による構造因子の比較 2-26
図 2.3.4-2　RMC 計算により得られた BPI ガラス固化体の構造モデル 2-26

図 2.3.4-3　BPI ガラス固化体の RMC 及び MD 構造モデル中の O-B-O 結合角分布 2-27
図 2.3.5-1　ベントナイト平衡水における平衡計算結果 2-29
図 2.3.5-2　変質層の SEM 画像と変質層の厚さ 2-29
図 2.3.5-3　BPI ガラス固化体変質層の XRD パターン 2-30
図 2.3.5-4　模擬降水系地下水浸漬試験でのホウ素およびヨウ素の規格化浸出率 2-30
図 2.3.5-5　炭酸イオン影響確認試験におけるホウ素およびヨウ素の規格化浸出率..... 2-31
図 2.3.5-6　変質層の固相分析結果（浸漬期間：600 日） 2-31
図 2.3.5-7　HS-の影響確認試験におけるホウ素およびヨウ素の規格化浸出率 2-32
図 2.3.5-8　変質層の固相分析結果..... 2-32
図 2.3.5-9　リン酸影響確認試験での規格化浸出率（模擬降水系地下水） 2-33
図 2.3.5-10　リン酸影響確認試験での規格化浸出率（模擬海水） 2-33
図 2.3.5-11　BPI ガラスの長期浸漬試験結果 2-34
図 2.3.5-12　SA/V 比の異なる浸漬試験におけるホウ素とヨウ素の規格化浸出率..... 2-35
図 2.3.5-13　SA/V 比の異なる浸漬試験結果のまとめ 2-35
図 2.3.6-1　ホウ素濃度に関する Monte Carlo シミュレーション結果 2-36
図 2.3.6-2　ヨウ素、鉛、ビスマス及び鉛濃度に関する Monte Carlo シミュレーション結果 2-37
図 2.3.6-3　変質層厚さと組成割合に関する Monte Carlo シミュレーション結果 2-37
図 2.3.6-4　BPI ガラスの寿命評価 2-38
図 2.3.6-5　BPI ガラスの寿命と炭酸イオン濃度の関係 2-39
図 2.4.1-1　セメント固化体中での IO_3^- 存在状態の想定 2-41
図 2.4.1-2　廃銀吸着材中のヨウ素のセメント固化プロセスの概要..... 2-42
図 2.4.2-1　固化体サイズのスケールアップと発熱の課題 2-43
図 2.4.2-2　発熱影響によるセメント固化体の鉱物組成とヨウ素固定相の変化..... 2-44
図 2.4.3-1　ヨウ素放出モデルによるエトリンガイト固化体とハイドロガーネット固化体の比較評価 2-44
図 2.4.4-1　液固比の取り扱い検討におけるヨウ素放出割合の変化（純水系)..... 2-46
図 2.4.5-1　セメント固化体とリファレンス OPC 固化体のヨウ素放出のモデル比較 2-47
図 3.1.1-1　ハル・エンドピースの廃棄物概要..... 3-1
図 3.1.1-2　ハル・エンドピースのインベントリ割合[5]と第 2 次 TRU レポートにおける安全評価上の取り扱い（浸出期間[2]） 3-2
図 3.1.1-3　放射化金属廃棄物中の C-14 に関する体系的な安全評価方法の考え方..... 3-2
図 3.2.2-1　ガス蓄積型腐食試験の試験手順[6] 3-5
図 3.2.2-2　ガスフロー試験装置 3-5
図 3.2.2-3　ジルコニウムおよびジルカロイの腐食速度の経時変化..... 3-6
図 3.2.2-4　ジルコニウムおよびジルカロイの腐食にともなう水素吸収率の経時変化..... 3-7
図 3.2.3-1　(a)純水中 5 年間および(b)NaOH 水溶液中 10 年間腐食試験終了後の ジルカロイ 4 表面酸化膜の XRD 結果 3-8

図 3.2.3-2　浸漬試験（NaOH,pH12.5, 30℃, 10 年）後のジルカロイ 4 酸化膜 3-9
図 3.2.4-1　照射済み燃料被覆管浸漬試料の分析フロー 3-10
図 3.2.4-2　気相回収装置と気相 C-14 再回収装置の模式図 3-11
図 3.2.4-3　照射済み被覆管浸漬液中の C-14 濃度の分析装置の模式図 3-11
図 3.2.4-4　照射済み燃料被覆管（BWR）から放出された元素・核種の挙動と経時変化 3-12
図 3.2.5-1　ガスフロー試験で得られたジルカロイ 4 の腐食にともなう水素ガス発生量 A_{gas}（mol/m²）の経時変化 3-13
図 3.2.5-2　放物線則を仮定した腐食速度定数 k_p のアレニウスプロット。右軸は比較として炉内温度で得られている 3 乗則の腐食速度定数 k_C [11]。 3-13
図 3.3.2-1　ステンレス鋼の腐食速度 3-18
図 3.3.3-1　Cs-TEM 観察および EDX マッピング分析結果 3-18
図 3.4.2-1　照射済み燃料被覆管（BWR）から放出された C-14 の化学種割合の経時変化 3-20
図 3.4.3-1　大気非開放サンプリング装置 3-21
図 3.4.3-2　液相サンプリング全体のシステム 3-22
図 3.4.3-3　試験フロー 3-22
図 3.4.3-4　酸性条件の試験における炭素バランス算出結果 3-23
図 3.4.3-5　鉄粉およびジルコニウムから発生した炭素化学形態。上）鉄粉の純水浸漬結果、中）鉄粉の NaOH 水溶液（pH12）浸漬結果、下）ジルコニウムの純水浸漬結果 3-24
図 4.1.1-1　ナチュラルアナログのコンセプト 4-2
図 4.1.1-2　ナチュラルアナログ調査サイト 4-3
図 4.1.3-1　Saile 鉱山およびその周辺地域の地質構造（E-W 系断面図） 4-5
図 4.1.3-2　トレンチ断面の模式断面図と枕状溶岩接触部付近の XRD パターン 4-6
図 4.1.3-3　トレンチ–5 のベントナイト－枕状溶岩の界面の顕微鏡観察と元素マッピング 4-7
図 4.1.3-4　アルカリ環境下の Ca－モンモリロナイトの鉱物学的変遷過程 4-7
図 4.1.4-1　Bigbiga 地区の Compilation Map 4-9
図 4.1.4-2　Bigbiga 地区の二次元水理地質構造概念モデル 4-10
図 4.2.1-1　パラワンオフィオライトの定置 4-12
図 4.2.1-2　パラワンオフィオライトの風化 4-12
図 4.2.1-3　パラワンオフィオライトの浸食－破砕－運搬－堆積による砕屑性堆積物の形成 4-13
図 4.2.1-4　砕屑性堆積物中に浸透する高アルカリ地下水との相互作用 4-13
図 4.2.1-5　Narra3 調査地区の模式層序学的断面図と地下水（湧水）の水質 4-15
図 4.2.2-1　Narra 地区の調査地点（右は Narra3-2 地点のトレンチ調査及び試錐調査エリア） 4-16
図 4.2.2-2　トレンチの壁面写真と試料採取位置（左：トレンチ 2、右：トレンチ 3） 4-18
図 4.2.2-3　トレンチの壁面写真と試料採取位置（左：トレンチ 4、右：トレンチ 5） 4-18
図 4.2.2-4　トレンチの壁面写真と試料採取位置（左：トレンチ 7、右：トレンチ 8） 4-19
図 4.2.2-5　トレンチ 7 の東壁面（左・中写真）～南壁面（右写真）の底部の降下火山灰堆積

物 4-19
図 4.2.2-6　ストリッピング 2 の壁面写真と試料採取位置 4-19
図 4.2.3-1　C-S-H の放射状のトバモライト（トレンチ 2 PWT02-15-Rh-016 の偏光顕微鏡写真） 4-21
図 4.2.3-2　C-S-H と共生するスメクタイトの産状（トレンチ 2 PWT02-15-C2-2-001 の偏光顕微鏡写真） 4-21
図 4.2.3-3　モード分析結果 4-22
図 4.2.3-4　①アルカリ環境下のハルツバージャイト起源の砕屑性堆積物の XRD チャート（トレンチ 7 PWT07-17-Rh-001） 4-23
図 4.2.3-5　②アルカリ環境下の降下火山灰堆積物の XRD チャート（トレンチ 7 PWT07-17-Rh-C02） 4-23
図 4.2.3-6　③風化環境下の蛇紋岩砕屑性堆積物の XRD チャート（ストリッピング 2 PWST02-17-Rh-003） 4-24
図 4.2.3-7　④風化環境下の斑れい岩質砕屑性堆積物の XRD チャート（トレンチ 8 PWT08-17-Rh-001） 4-24
図 4.2.3-8　 Narra 地区の砕屑性堆積物及び Saile 鉱山の XRF による全岩化学組成 4-26
図 4.3.1-1　スメクタイトの組成プロット(Si-Al-Mg+Fe 3 成分系) 4-30
図 4.3.1-2　スメクタイトの組成プロット(XMg vs. Ca) 4-31
図 4.3.1-3　スメクタイトの組成プロット(a: Al vs. Mg; b: Al vs. Fe) 4-31
図 4.3.1-4　スメクタイトの組成プロット(a: Si vs. Mg; b: Si vs. Fe; c: Si vs. Al) 4-32
図 4.3.1-5　斜方輝石を交代するサポナイトの産状（トレンチ 4 PWT04-16-Rh-006） 4-34
図 4.3.1-6　蛇紋石を交代するサポナイトの産状（トレンチ 4 PWT04-16-Rh-006） 4-34
図 4.3.1-7　緑泥石の反応縁を交代するサポナイトの産状（トレンチ 3 PWT03-16-Rh-004） 4-34
図 4.3.1-8　苦鉄質鉱物の粒間に生成する鉄サポナイト（トレンチ 2 PWT02B-15-C2-2-001） 4-34
図 4.3.1-9　マトリックスを充填するサポナイト（トレンチ 5 PWT05-16-Rh-008） 4-35
図 4.3.1-10　C-S-H と共生するサポナイト（その１）（トレンチ 2 PWT02-15-Rh-016） 4-35
図 4.3.1-11　C-S-H と共生するサポナイト（その２）（トレンチ 2 PWT02B-15-C2-2-001） 4-36
図 4.3.1-12　サポナイトに交代・置換されて取り囲まれているスチーブンサイトの産状（トレンチ 4 PWT04-16-Rh-006） 4-36
図 4.3.1-13　③風化環境下の蛇紋岩砕屑性堆積物中で蛇紋石のリムに生成しているノントロナイトの産状（ストリッピング 2 PWST02-17-Rh-003） 4-36
図 4.3.1-14　アルカリ環境下でサポナイトのリムに生成するノントロナイトの産状（左：トレンチ 7①砕屑性堆積物(PWT07-17-Rh-007)、右：トレンチ 7②降下火山灰堆積物(PWT07-17-Rh-C03)） 4-37
図 4.3.1-15　①アルカリ環境下の砕屑性堆積物中の斜長石、斜方輝石の微細集合体を交代す

るサポナイト質ノントロナイトの産状（トレンチ 5 PWT05-16-Rh-010）..... 4-37
図 4.3.1-16　バイデライトの産状（左：トレンチ 8④風化環境下の斑れい岩質砕屑性堆積物＜ゼオライト化した斜長石のリムに生成＞(PWT08-17-Rh-001)、右：トレンチ 7②アルカリ環境下の降下火山灰堆積物＜交代したサポナイトの一部に生成＞(PWT07-17-Rh-C03)) 4-37
図 4.3.1-17　②アルカリ環境下の降下火山灰堆積物中の斜長石を交代したモンモリロナイトの産状（トレンチ 7 PWT07-17-Rh-C03）..... 4-38
図 4.3.2-1　Narra 地区のトレンチ 5（左）及びトレンチ 7（右）の試料採取位置と炭素 14 年代..... 4-40
図 4.3.2-2　スメクタイトの生成と反応時間（右は底部の試料の XRD パターン）..... 4-41
図 4.3.3-1　Al_2O_3-FeO-MgO-CaO-SiO_2-H_2O 系の安定相図（左：SiO_2-MgO、右：FeO-SiO_2）..... 4-43
図 4.3.3-2　Al_2O_3-FeO-MgO-CaO-SiO_2-H_2O 系の安定相図（左：CaO-SiO_2、右：FeO-CaO）..... 4-43
図 4.3.3-3　Al_2O_3-FeO-MgO-CaO-SiO_2-H_2O 系の安定相図（左：Al_2O_3- SiO_2、右：Al_2O_3-FeO）..... 4-43
図 4.3.4-1　パラワン島 Narra 地区の Mg, Fe に富む超苦鉄質岩起源の砕屑性堆積物中のスメクタイト生成に係る鉱物変遷プロセス..... 4-46
図 4.3.4-2　パラワン島 Narra 地区の Al に富む降下火山灰堆積物中のスメクタイト生成に係る鉱物変遷プロセス..... 4-46
図 4.4.1-1　ナチュラルアナログサイトの地質環境のコンセプト..... 4-47
図 4.4.2-1　フィリピンナチュラルアナログのアルカリ変質プロセス（ルソン島 Saile 鉱山の NA とパラワン島 Narra 地区の NA の比較）..... 4-50
図 4.4.2-2　パラワン島 Narra 地区の天然現象の TRU 廃棄物人工バリアにおけるアナログ性 4-..... 4-51
図 5.1.1-1 地層処分事業と技術分野の関連..... 5-1
図 5.1.1-2 TRU 廃棄物処分場の人工バリアの処分概念（グループ 1, 2）の例と その閉鎖後長期の挙動に影響を与える事象..... 5-2
図 5.1.1-3 人工バリアの閉鎖後長期（化学変質）挙動と工学的な性能（水理力学挙動）の関連..... 5-2
図 5.1.1-4 人工バリアの建設から閉鎖後長期の変遷のイメージ..... 5-3
図 5.1.2-1 人工バリアの建設から閉鎖後長期の変遷過程と本検討の関係及び検討概要..... 5-4
図 5.1.3-1 人工バリアの化学変質挙動と力学、透水挙動の関連..... 5-4
図 5.1.4-1 課題の抽出と研究内容の策定..... 5-8
図 5.1.4-2 検討項目の関連と成果目標..... 5-11
図 5.2.1-1 ベントナイトの変質に伴う化学変質挙動のモデル化案の概要..... 5-12
図 5.2.1-2 二次鉱物の生成挙動の確認試験の結果の一例..... 5-12
図 5.2.1-3 過飽和度と二次鉱物の生成待ち時間の関係..... 5-13

図 5.2.1-4　その場観察試験とシリンジ試験で生成を確認した鉱物 5-14
図 5.2.2-1　模擬試料の XAFS 分析（薄片試料による原位置分析）の概念図 5-15
図 5.2.2-2　模擬試料による検討結果のまとめの概略図（セメントーベントナイト相互作用による接触界面の化学的変質挙動） 5-15
図 5.2.2-3 セメント-ベントナイト接触部分の変質状態に関する XAFS による原位置分析結果（建設後 12 年経過の試料） 5-16
図 5.2.3-1　円盤粒子による積層構造の解析結果 5-17
図 5.2.3-2　積層構造からの反応表面積の算定結果(赤色部分がマスキング部分) 5-18
図 5.2.3-3　モンモリロナイトの乾燥密度と実効反応表面積関係の定式化 5-18
図 5.2.3-4　長期化学解析における本検討での実効反応表面積の定式化の効果 5-19
図 5.2.4-1　セメントペーストの拡散係数の予測モデル（拡散係数予測モデル）の概略 5-20
図 5.2.4-2　モルタルの拡散係数の予測モデル（マルチスケール拡散係数予測モデル）の概略 5-20
図 5.2.4-3　変質後のセメント系材料（セメントペースト）の拡散係数のモデルの予測値の実測値との比較 5-21
図 5.2.4-4　溶脱したモルタルの拡散係数の予測フロー 5-22
図 5.3.1-1　緩衝材の力学挙動に関する試験結果（圧密挙動） 5-24
図 5.3.1-2　ベントナイトの膨潤挙動の非可逆比によるモデル化 5-24
図 5.3.1-3　せん断挙動に関する試験結果 5-24
図 5.4.1-1　経年コンクリートの鉱物相の一例（50℃程度の熱に長期間暴露されたと推定される材齢 40 年程度の試料） 5-27
図 5.4.1-2　合成 C-S-H のトバモライト化の割合 5-28
図 5.4.1-3　熱影響による合成 C-S-H 及び合成 C-A-S-H の結晶化条件の整理（概念図） 5-28
図 5.4.1-4　硬化体の定温度試験結果の一例 5-29
図 5.4.1-5　C-S-H の結晶化のメカニズム（推定） 5-30
図 5.4.2-1　セメント系材料の部材寸法の物性値への影響確認の結果 5-32
図 5.5.2-1　人工バリアの化学変質を反映した長期力学挙動解析の結果 （体積ひずみ・10 万年後） 5-34
図 5.5.2-2　力学解析の構成則を弾性モデル及び弾塑性モデルとした長期力学挙動解析の結果の例（緩衝材部分の間隙比 e の分布） 5-35
図 5.5.2-3　各ケースにおける主要核種の人工バリアからの移行率の最大値 5-39
図 5.5.2-4　本フェーズの成果を反映した化学解析結果（緩衝材部分、位置は(c)の A） 5-40
図 5.5.2-5　本フェーズの成果を反映した化学解析結果 5-41
図 5.5.2-6　化学解析結果(本フェーズの成果反映)を考慮した力学解析結果(乾燥密度分布) 5-41
図 6.1.1-1　本事業において対象とする TRU 廃棄物処分施設の人工バリア概念図（廃棄物グループ 2 の例）と人工バリア材料（赤字で追記） 6-1
図 6.2.1-1　試験装置の概念図 6-4
図 6.2.1-2　試験の実施フロー 6-4

図 6.2.1-3　ガス移行試験結果 6-5
図 6.2.1-4　評価対象とする人工バリア内の界面部位と模擬界面供試体および試験装置の概念図 6-6
図 6.2.1-5　試験の実施フロー 6-7
図 6.2.1-6　供試体の作製手順 6-7
図 6.2.1-7　界面無し・有りの供試体を用いたガス移行試験結果の比較 6-9
図 6.2.1-8　界面無し・有りの供試体を用いたガス移行試験結果の比較 6-11
図 6.2.1-9　サクション制御可能なオエドメータ試験装置　(a)試験セル；(b)下部ポーラス メタル上部にセットされた飽和アセチルセルロース膜；(c)試験装置の断面模式図 ；(d)オエドメータ試験装置の概念図 6-13
図 6.2.1-10　取得された水分特性と van Genuchten モデル近似と同定パラメータ 6-14
図 6.2.1-11　取得された水分特性と Narasimuhan モデル近似とモデルパラメータ 6-14
図 6.2.1-12　鉛直方向の拘束ネット応力 200kPa 一定化でのサクションの変化に伴う間隙比の 変化：(a) サクション減少に伴う吸水膨潤過程、(b)サクション増加に伴う排水収縮過程 6-15
図 6.2.1-13　鉛直方向の拘束ネット応力 400kPa 一定化でのサクションの変化に伴う間隙比の変化：(a) サクション減少に伴う吸水膨潤過程、(b)サクション増加に伴う排水収縮過程 6-15
図 6.2.1-14　載荷ネット応力（圧密圧力）－間隙比の関係と 最小近似による圧縮指数（λ）と膨潤指数（κ）の算定 6-17
図 6.2.1-15　圧縮指数，膨潤指数のサクション依存性と BB モデルによるフィッティング 6-18
図 6.2.1-16　膨潤指数に非線形を考慮した場合のフィッティング結果 6-19
図 6.2.1-17　三軸試験より得られた最大軸差応力（q_{ls}）と平均ネット応力（p''）の関係 6-20
図 6.2.1-18　粘着力のサクション依存性 6-21
図 6.2.2-1　人工バリアのイメージとセメント系材料のガス移行経路のモデル 6-22
図 6.2.2-2　水分特性試験結果 6-23
図 6.2.2-3　水分特性曲線（VG モデル近似） 6-24
図 6.2.2-4　透気試験装置概念図 6-27
図 6.2.2-5　透気量および排水量測定例 6-27
図 6.2.2-6　透気係数（ガス相有効浸透率 K）と有効間隙率の関係 6-28
図 6.2.2-7　モルタルの水分特性 6-29
図 6.2.2-8　養生中の供試体温度 6-30
図 6.2.2-9　界面の有無と透水試験から求めた透過係数の関係 6-31
図 6.2.2-10　界面の有無と透気試験から求めた透過係数の関係 6-31
図 6.3.1-1　湿潤過程の同定 2 相流パラメータ（上段：相対浸透率、下段：毛細管圧力） 6-35
図 6.3.1-2　排水過程の同定 2 相流パラメータ（上段：相対浸透率、下段：毛細管圧力） 6-35
図 6.3.1-3　低圧入条件下の試験データを対象とした再現解析によって同定されたパラメータ 6-35

図 6.3.1-4　格子解像度の異なるモデルによるガス移行解析結果 6-36
図 6.3.2-1　セメント系材料の同定された 2 相流パラメータ 6-38
図 6.3.3-1　TRU 廃棄物処分システムを対象とした 3 次元モデル 6-39
図 6.3.3-2　2 次元断面モデルと 3 次元モデルによるガス移行解析結果比較 6-40
図 6.3.3-3　第 2 次 TRU レポート及び最新の同定パラメータによるガス移行解析結果の比較 6-40
図 6.3.4-1　蓄積された相対浸透率曲線（排水過程） 6-42
図 6.3.4-2　解像度（格子数）が異なるモデルによるガス移行解析結果 6-42
図 6.3.4-3　同定パラメータによる低圧入条件下ガス注入試験の再現結果 6-42
図 6.3.4-4　セメント系材料を用いたガス注入試験の再現結果 6-43
図 6.3.4-5　同定されたセメント系材料の相対浸透率と毛細管圧力曲線 6-43
図 6.3.4-6　2 次元断面モデルと 3 次元モデルによるガス移行解析結果比較 6-44
図 6.3.4-7　第 2 次 TRU レポート及び最新の同定パラメータによる 6-44
図 6.4.1-1 ハイブリッド・アプローチによるシナリオ設定手法 6-46
図 6.4.1-2 グループ 2 を対象とした状態変遷表と根拠書整理シート作成例 6-47
図 6.4.1-3 人工バリアシステムの安全機能とその展開例 6-47
図 6.4.1-4 統合 FEP と関連図の作成例 6-48
図 6.4.1-5 グループ 1 と 2 を対象とした統合 FEP 関連図の展開とシナリオ設定例 6-49
図 6.4.1-6 グループ 1 と 2 のシナリオ整理表作成例 6-49
図 6.4.1-7 TRU 廃棄物の分類[22]に一部加筆） 6-50
図 6.4.2-1 ガス挙動を考慮した評価体系 6-51
図 6.4.2-2 評価体系の重要要素に係る不確実性の対応 6-53
図 6.4.2-3 シナリオ設定で対応する最も優先度の高い技術課題と検討方針 6-54
図 6.4.3-1 状態変遷の中でのガス移行と核種移行の複合プロセスのシナリオ模式図 6-55
図 6.4.3-2 ガス挙動が支配的な複合プロセスのシナリオ設定例 6-56
図 6.4.3-3 ガス挙動によりベントナイトバリア健全性が喪失するシナリオ設定例 6-57
図 6.4.3-4 ガス挙動以外の要因でベントナイトバリアの健全性喪失シナリオ例 6-58
図 6.4.3-5 ガス発生を考慮した複合プロセスモデルの模式図 6-59
図 6.4.3-6 ガス影響を考慮した複合プロセスの解析的評価結果の判断指標と尺度例 6-61
図 6.5.1-1　流路拡幅状態の設定に応じた核種移行モデルの考え方(1)～(3)、およびガス移行解析の観測点（廃棄体外側境界と緩衝材外側境界） 6-66
図 6.5.1-2　核種移行解析上のガス移行解析結果の近似（G1W1B1P0） 6-67
図 6.5.1-3　核種移行解析上のガス移行解析結果の近似（G1W2B2P1） 6-68
図 6.5.1-4　核種移行解析上のガス移行解析結果の近似（G1W2B2P2） 6-69
図 6.5.1-5　核種移行解析上のガス移行解析結果の近似（G3W1B2P1） 6-71
図 6.5.1-6　核種移行解析上のガス移行解析結果の近似（G3W1B2P2） 6-72
図 6.5.1-7　核種移行経路の概念図 6-73
図 6.5.1-8　各観測点でのフラックスと線量率（レファレンスケース） 6-76

図 6.5.1-9　各観測点でのフラックスと線量率（G1W1B1P0）.....6-76
図 6.5.1-10　各観測点でのフラックスと線量率（G1W2B2P1）.....6-77
図 6.5.1-11　各観測点でのフラックスと線量率（G1W2B2P2）.....6-77
図 6.5.1-12　各観測点でのフラックスと線量率（G3W1B2P1、開口幅 1.0 m）.....6-78
図 6.5.1-13　各観測点でのフラックスと線量率（G3W1B2P1、開口幅 2.2 m）.....6-78
図 6.5.1-14　各観測点でのフラックスと線量率（G3W1B2P2）.....6-78
図 6.5.2-1　解析ケース毎の人工バリア出口フラックスの比較（C-14 および Ni-63）.....6-79
図 6.5.2-2　解析ケース毎の人工バリア出口フラックスの比較（Sr-90 および C-137）.....6-79
図 6.5.2-3　解析ケース毎の人工バリア出口フラックスの比較（Am-241）.....6-79
図 6.5.2-4　多重バリア内での核種の存在割合（Ni-63）.....6-81
図 6.5.2-5　多重バリア内での核種の存在割合（Sr-90）.....6-82
図 6.5.2-6　多重バリア内での核種の存在割合（Cs-137）.....6-83
図 6.5.2-7　多重バリア内での核種の存在割合（Am-241）.....6-84
図 6.5.2-8　多重バリア内での核種の存在割合（Cl-36）.....6-85
図 6.5.2-9　多重バリア内での核種の存在割合（I-129）.....6-86
図 6.5.2-10　多重バリア内での核種の存在割合（C-14）.....6-87
図 6.5.2-11　ガス移行解析結果の近似と EDZ フラックス（左図）および EDZ フラックス（Sr-90）における解析ケースの比較（右図）.....6-88
図 6.5.2-12　生物圏での線量率における解析ケースの比較（C-14）.....6-89

表目次

表 2.2.3-1　3D-SEM の測定結果をもとにした貫通経路の解析 2-12
表 2.3.2-1　BPI ガラスフリットの化学組成 2-22
表 2.3.2-2　BPI ガラス固化体の化学組成 2-22
表 2.3.2-3　BPI ガラス固化体の仕様及び数量 2-23
表 2.3.2-4　BPI ガラス固化体の物理・化学的特性 2-24
表 2.3.4-1　BPI ガラス固化体の化学構造分析一覧表 2-25
表 2.3.4-2　BPI ガラス固化体の化学構造分析結果のまとめ 2-25
表 2.3.5-1　多様な環境条件における浸漬試験一覧 2-28
表 2.3.5-2　S/V 比の異なる試験体の浸漬試験 2-34
表 2.3.6-1　Monte Carlo シミュレーションに使用した数値 2-36
表 2.4.1-1　セメント固化体の組成 2-41
表 3.2.1-1　ジルカロイ試験片の組成分析結果 3-4
表 3.2.5-1　ジルカロイの腐食挙動のまとめ 3-14
表 4.2.1-1　ナチュラルアナログ調査地点（パラワン島及びルソン島）の水質分析結果 4-15
表 5.1.4-1 5 ヵ年(平成 25～29 年度)の計画 5-10
表 5.3.2-1　Kozeny-Carman 則による透水係数式の検討成果 5-25
表 5.5.2-1　核種移行解析ケースにおける条件設定 5-37
表 5.5.2-2　各ケースにおける人工バリアからの核種移行率の最大値 5-38
表 5.5.2-3　各ケースにおける線量の最大値 5-39
表 6.2.1-1　供試体および試験の概要 6-5
表 6.2.1-2　供試体および試験の概要 6-8
表 6.2.1-3　各試験結果における e～$\ln(s + p_{atm})$関係の傾き 6-16
表 6.2.1-4　吸水膨潤変形および排水収縮変形に関する BB モデルパラメータ表 6-17
表 6.2.1-5　不飽和ベントナイトの圧縮指数、膨潤指数に関わるパラメータ 6-18
表 6.2.1-6　不飽和ベントナイトの膨潤指数の非線形を考慮した場合のパラメータ 6-19
表 6.2.1-7　三軸試験ケース 6-19
表 6.2.2-1　モルタルの配合 6-23
表 6.2.2-2　同一材料界面透気試験のケース一覧 6-24
表 6.2.2-3　一軸圧縮試験と単位体積重量試験結果 6-30
表 6.3.4-1 ベントナイト系材料特性のモデル化検討まとめ 6-42
表 6.3.4-2　その他（ベントナイト系以外の）材料特性のモデル化検討まとめ 6-43
表 6.3.4-3　材料特性モデルを反映したガス移行解析まとめ 6-44
表 6.4.1-1 廃棄物グループ別のシナリオと関連する不確実性の整理 6-50
表 6.4.2-1 グループ 2 の状態変遷表から抽出した重要統合 FEP と不確実性の整理 6-52
表 6.4.2-2 評価体系の各作業から抽出された重要要素に関する評価 6-53
表 6.4.3-1 解析的評価での評価シナリオおよび評価ケース、パラメータ設定例 6-60

表 6.5.1-1　ガス影響を考慮した核種移行解析のケース設定 6-64

第1章 全体概要

1.1 研究開発の背景

ＴＲＵ廃棄物の処分方策については、原子力委員会での方針等（平成６年の原子力長期計画等）を受けて、「ＴＲＵ廃棄物処分概念検討書」（以下、第１次ＴＲＵレポート）、「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－」（以下、第２次ＴＲＵレポート）によって、その地層処分の技術的成立性が示され、平成１９年６月には最終処分法の一部改正により、地層処分の対象廃棄物に追加された。これに伴い、平成２０年３月に「特定放射性廃棄物の最終処分に関する基本方針」及び「特定放射性廃棄物の最終処分に関する計画」が改定され、併置処分の実施も念頭に、TRU 廃棄物と高レベル放射性廃棄物は地層処分事業という統合された計画の中で、最終処分の開始を平成４０年代後半を目途に事業を進めるというスケジュールが示されている。これらの背景を踏まえて、ＴＲＵ廃棄物の処分に向けた技術開発については、TRU 廃棄物の地層処分に関する全体基本計画（以下、基盤研究開発計画）に示されるように、高レベル放射性廃棄物処分の技術開発との整合を図りつつ、地層処分事業のスケジュールを考慮して進める必要がある。そして、NUMO が目的とする技術開発等へ直接的に反映させるために、処分事業に先行して技術基盤の整備を進めることに加え、科学的知見の拡充による技術的信頼性や安全性の向上を図るために、国の基盤研究開発として実施することが期待されている。

ＴＲＵ廃棄物特有の重要課題として、人工バリア材および地質媒体への収着分配係数が小さく、レファレンスケースの被ばく線量評価では高レベル放射性廃棄物に比べ２桁以上高いことが示されている（第２次 TRU レポートから最大線量が処分後 10,000 年で 2μSv/y）ヨウ素 129 および炭素 14 の低減対策に加え、その廃棄体の特性から大量のセメント系材料を使用することや金属腐食等によるガス発生による人工バリアの長期挙動への影響があげられる。

これまでのＴＲＵ廃棄物処分の技術開発において、ＴＲＵ廃棄物処分の重要核種であるヨウ素 129（グループ 1）および炭素 14（グループ 2）の影響を低減するための代替技術の開発として、10 万年以上のヨウ素閉じ込め性能を目標とした複数のヨウ素固化体開発に関して、その処理プロセスの成立性の見通しを示すとともに、長期評価のためのヨウ素放出の評価モデルを提案した。一方、炭素 14 対策としては、ソースタームの現実的な評価として、インベントリ設定方法の基本的な考え方を示すとともに、金属の腐食や炭素 14 浸出率のデータを一部取得して、長期予測のためのモデル化を検討した。さらに、炭素 14 の 10 半減期に相当する 6 万年間の閉じ込めのための容器を開発し、その実現性を示した。このことにより、環境条件に応じた評価・概念設計に対応できる基礎的な技術・手法を整備することができたが、それらの成果を用いて長期安全性評価の信頼性を確保するためには、これまでに提案、構築した評価手法、評価モデルの信頼性を向上させるとともに、その説明の妥当性について十分な根拠を示すことが必要である。また、精密調査地区の選定時に、対象となる地質環境に応じた予備的安全評価や施設の概念設計を実現可能な現実的な条件で実施可能とするため、材料および地質環境の多様性に対応した、人工バリアの長期

挙動に係わるデータ取得ならびに評価モデルの開発が行われたが、さらにその精緻化、信頼性向上が必要である。

1.2 研究目的

ＴＲＵ廃棄物処理・処分技術高度化開発は、ＴＲＵ廃棄物の地層処分における人工バリア材の特性の長期的な変遷及び重要核種の影響について、特に長期評価の信頼性確保の観点から、これまでに明らかになったＴＲＵ廃棄物の処理・処分技術に関わる課題を解決し、安全評価の信頼性向上を図るために、ＴＲＵ廃棄物処理・処分技術分野の課題であるヨウ素１２９及び炭素１４の被ばく線量の低減対策を対象とし、ヨウ素１２９対策技術の信頼性向上及び炭素１４長期放出挙動評価に関する研究開発を行い、ヨウ素・炭素移行挙動評価技術を高度化すること、また、人工バリア材の長期挙動及びガス移行連成挙動評価手法の研究開発を行うとともに、ナチュラルアナログ調査を実施し、人工バリア性能評価に係る技術的信頼性の向上及び技術基盤を確立することを目的とする。

1.3 実施概要

ＴＲＵ廃棄物処分の長期安全性評価の信頼性を確保するためには、これまでに提案、構築した評価手法、評価モデルの信頼性を向上させるとともに、その説明の妥当性を示すための根拠を示すことが重要である。TRU 廃棄物処分の技術的成立性の確保と安全性評価の技術的信頼性の向上を図り、技術基盤を確立するために、本高度化開発では、人工バリア性能の長期的な変遷評価のための現象の確認及びモデル化およびその確証、ソースタームの現実的評価のためのデータ取得、それらの信頼性の担保のための天然事例（ナチュラルアナログ）の評価からなる以下の個別の研究開発を実施する。

(1) ヨウ素・炭素移行挙動評価技術高度化開発
  1) ヨウ素 129 対策技術の信頼性向上
  2) 炭素 14 長期放出挙動評価
(2) 人工バリア特性変化評価技術開発
  1) ナチュラルアナログ調査
  2) 人工バリア材料長期挙動評価・人工バリア評価の初期条件の設定
  3) ガス移行連成挙動評価手法の開発

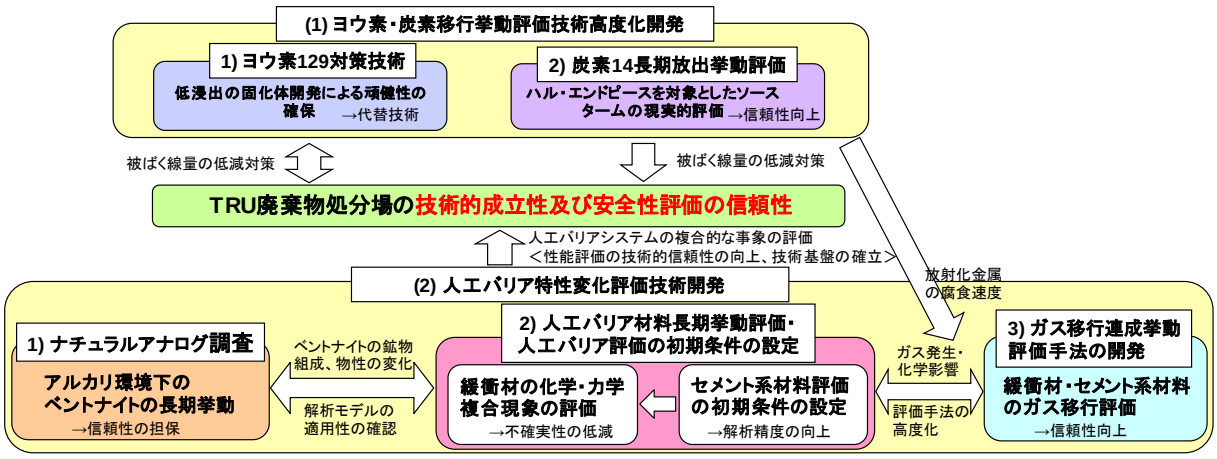


図 1.3.1-1　ＴＲＵ廃棄物処理・処分技術高度化開発の目的と各研究開発とのつながり

1.3.1　ヨウ素 129 対策技術の信頼性向上

再処理施設の燃料溶解工程等で発生するオフガス中のヨウ素（I-129）は、ヨウ素フィルター（銀吸着材：AgA）に吸着・除去され、TRU 廃棄物の安全評価において I-129 が被ばく線量に与える最も重要な核種として位置づけられている。 これは、I-129 が長半減期（1560 万年）であり、地下水中で陰イオン形態となるため移行しやすいこと、セメント混練固化体にはバリア性能を期待しておらず、瞬時放出と仮定されているためである。 I-129 による被ばく線量の低減対策としては、長期の完全閉じ込めに期待するのではなく、ヨウ素浸出を抑制することが効果的であることから、低浸出の固化体開発が期待されている。固化体性能の目標として、地下水流速が速い処分環境条件において、固化体の閉じ込め期間を 10 万年程度とした場合に、被ばく線量の低減効果が大きくなることから、被ばく線量を 1 桁低減させるために、固化体からのヨウ素放出期間を 10 万年以上、ヨウ素回収率を 95%と設定している。

現在開発している低浸出の固化体は三種類あり、アルミナ固化体は、アルミナマトリクスにヨウ素（AgI）を閉じ込める技術であり、廃銀吸着材を直接 HIP 処理するため、処理プロセスは比較的簡易であり、マトリクスの頑健性により固化体性能の処分環境に対する汎用性が高い。 BPI ガラス固化体は、ヨウ素を鉛とホウ素を主成分とする低温溶融ガラスに均質固化する。ガラス溶解モデルが提案されており、HLW ガラスの性能評価研究の一部について応用が期待されている。セメント固化体は、エトリンガイト等のヨウ素と親和性の高い成分比率を高めたアルミナセメントであり、ヨウ素を含有する鉱物の溶解平衡（地球化学解析）によってヨウ素を放出するモデルが提案されている。既存の廃棄物処理プロセス技術の転用が可能である。

各固化体の性能評価としては、ヨウ素固定化原理や固化体の物理化学的特性に応じたヨウ素放出モデルを構築する必要がある。また、実用化のためには、各処理プロセスの検討が必要であり、工学規模試験など将来のスケールアップを念頭に、施設の概念設計の反映させるためのプロセスデータを取得や成立性の評価が必要である。

以上の背景・目的を踏まえ、ヨウ素１２９対策技術の信頼性向上の、平成２５年度から平成２９年度までの５年間の実施内容として、以下の項目を実施する。

(1) ヨウ素固化体の性能評価

特性の異なる複数の固化技術を確保する。それぞれの固化体について、代表的な地質環境条件に対する適性を明確にするため、海水系地下水など影響因子の特定およびその影響を評価する。また、固化体特性に応じたヨウ素抑制のメカニズムの検討や、長期浸出試験による確認等を行い、安全性評価に必要な長期的なモデルの構築へ反映させる。

1.3.2 炭素１４長期放出挙動評価

ハル・エンドピースは、再処理後の使用済みの燃料集合体（せん断片等）を圧縮しキャニスタ内に収納したものであり、TRU 廃棄物のグループ 2 として分類され、地層処分される予定である。ハル・エンドピース廃棄体には、放射化金属（ジルカロイ、ステンレス鋼、ニッケル基合金）の他に、ジルカロイの酸化膜、クラッドや燃料由来の付着成分、ファイン・スラッジ等をろ別した金属フィルターなどが含まれ、比較的発熱性を有する特性がある。

ハル・エンドピース中の C-14 は、主に金属材料中の不純物窒素が 14N(n,p)14C 反応によって放射化生成したものである。第 2 次 TRU レポートにおいて、ハル・エンドピース中の C-14 は被ばく線量評価における重要核種と位置づけられている。その理由として、C-14 の半減期が比較的長く（5730 年）、有機形態では収着などの移行遅延の効果が小さいためと考えられている。また、各評価パラメータが過度に保守的である可能性があるが、これは廃棄物に関する基礎的なデータや R&D による知見が限られていることに起因している。

安全評価では、廃棄体特性（ソースターム）から生物圏まで含めた評価が必要であるが、移行挙動や生物圏における評価には、同位体交換や微生物影響など不確定要素が非常に大きいのが現状である。したがって、事業化へ向けた取り組みとして、インベントリ評価や C-14 放出速度（金属の腐食速度）、さらに、C-14 化学形態などのソースターム評価に注力することが、被ばく線量の低減に有効である。そのため、廃棄物の構成材料毎に、そのインベントリ等から重要度を判断し、適宜、現実的なソースタームデータを取得・評価することで、安全評価の信頼性向上や被ばく線量への低減効果を図る必要がある。

以上の背景・目的を踏まえ、炭素１４長期放出挙動評価の、平成２５年度から平成２９年度までの５年間の実施内容として、以下の項目を実施する。

(1) ジルカロイの腐食挙動の評価

現実的な腐食速度データを取得するため、長期腐食試験を継続する。また、幅広い温度条件による腐食試験を行い、速度論的な考察を行う。さらに、腐食生成物（酸化膜）の詳細な分析、実廃棄物（BWR 被覆管）の腐食データ（14C 浸出）と合わせることで、腐食機構の理解を高

め、高温腐食の適応性について取りまとめる。

(2) ステンレス鋼の腐食データの取得

現実的な腐食速度を取りまとめるため、すでに開始している腐食試験を継続し、予定した腐食データを取得する。

(3) 炭素化学形態の調査

極低濃度の炭素を分析するため、これまで最新の質量分析手法を利用や非開放系でのサンプリングシステムを構築した。それらのシステムの検証のため、鉄粉を用いた腐食試験を行い、液相および気相の安定炭素の化学形態を分析し、物質収支の確認などを行うことで、分析システムを構築する。

(4) 国際的な情報共有・調査

欧州の共同研究である CAST プロジェクトへの参画を継続し、特に炭素 14 化学形態など国際的な最新の知見について整理し、取りまとめに反映させる。

1.3.3 ナチュラルアナログ調査

TRU 廃棄物処分における人工バリアの処分場の性能の低下の原因として考えられる、セメント系材料からのアルカリ影響による緩衝材の変質について、ナチュラルアナログ調査を実施することで、アルカリ－緩衝材反応による緩衝材の長期変遷に関する直接的な根拠となるデータを取得し、それらフィールドデータと解析モデルを活用したアルカリ変質現象の解釈に基づき、アルカリ影響による性能の変化を示すことで、長期挙動評価の信頼性向上を図ることが可能である。

セメント－ベントナイトの相互作用のナチュラルアナログについては、過去にアルカリ性地下水との接触が確認できたベントナイト鉱床（フィリピン北西部の Saile 鉱山とその周辺地区：Fossil Type のナチュラルアナログサイト）におけるナチュラルアナログ調査から、ベントナイトの変質が数 mm 程度に限定されていることが確認され、その長期のアルカリ変質による鉱物変遷シナリオが明らかになり、長期間アルカリ地下水環境下にあってもベントナイトの長期健全性が保たれる可能性を示された。また、現在もアルカリ地下水がベントナイトと接触している（Active Type の NA）可能性が高いサイトの存在も確認され、フィリピン北西部のフィールドが、TRU 廃棄物の地層処分におけるアルカリ－緩衝材反応による緩衝材の長期変遷の評価において多くの有益なデータを取得することが可能なナチュラルアナログサイトであることがわかった。

しかしながら、Fossil Type のサイトでは、相互作用していたアルカリ地下水の詳細な地球化学特性は不明であり、反応時間についても、いつからアルカリ地下水が流出したかを直接評価することは極めて困難であるという課題がある。そのために、現在もアルカリ地下水が流出している Active Type のナチュラルアナログサイトを探査して、高アルカリ地下水の影響範囲やスメクタイトのアルカリ変質に関わる鉱物・地球化学・地下水等のデータを取得し、それらフィールドデ

ータの解釈に基づき、TRU 廃棄物の地層処分の人工バリアとして様々な機能が長期間期待されるベントナイト緩衝材のアルカリ環境下での長期変遷や長期健全性を示す直接的な根拠を示すとともに、アルカリ変質プロセスの現象理解により人工バリア性能評価モデルの信頼性向上を図る必要がある。

以上の背景・目的を踏まえ、ナチュラルアナログ調査の、平成２５年度から平成２９年度までの５年間の実施内容として、以下の項目を実施する。

(1) ナチュラルアナログサイトの探査

現在もアルカリ地下水がベントナイトまたはスメクタイト質粘土層に浸出している Active Type のナチュラルアナログである可能性がある候補地において地質調査、試錐調査等を実施して、Active Type のナチュラルアナログの露頭を特定する。

(2) ナチュラルアナログサイトの地質環境

アルカリ泉やトレンチ等の地下水調査（現地計測及び水試料分析）により、アルカリ性地下水の分布とその地球化学的特性を評価する。現地での地質調査や試錐孔やトレンチで採取した岩石（粘土）試料の鉱物・化学分析から、調査サイトでのベントナイト層またはスメクタイト質粘土層の分布と地質環境の変遷、高アルカリ地下水の影響範囲を評価する。

(3) アルカリ環境下でのベントナイトの長期変質プロセス

ナチュラルアナログ試料の鉱物分析（バルク：XRD・XRF、詳細：EPMA 等）、年代測定による反応時間の評価、ベントナイトのアルカリ変質の地球化学計算を行い、過渡的な状態変遷を含むアルカリ環境下でのベントナイトの長期変質プロセスを明らかにし、人工バリアの長期評価モデルの信頼性向上を図る。

1.3.4 人工バリア材料長期挙動評価・人工バリア評価の初期条件の設定

TRU 廃棄物の地層処分における人工バリアはベントナイト系材料とセメント系材料の併用が検討されている。ベントナイト系材料は、低透水性や膨潤性等による人工バリアの核種移行抑制、自己修復性に寄与するものであるが、セメント成分が溶解して高 pH となった地下水が接触することにより、化学的な変質が起こることが予想される。人工バリア材料の化学的な変質は、力学的な人工バリアの状態に影響を及ぼし、これらは相互に影響を及ぼし合う。そのため、これらの材料の地下環境での長期的変化の及ぼす人工バリアの性能への影響を評価し、人工バリアの成立性の説明、閉鎖後長期の安全評価へ反映することが必要である。

これまでの検討で、多様なセメント種類での溶解変質の解析手法、変質に伴う力学・物質移行特性モデル、ベントナイトの変質解析及び力学解析手法を構築し、一次元の化学力学を連成した長期予測解析手法を示した。

これらの検討より、セメント系材料の熱変質の人工バリア性能への影響の懸念、ベントナイトの変質における主要成分のモンモリロナイトの溶解とそれに伴う二次鉱物の生成とそれによる体積変化の現象把握、水理力学挙動への影響把握及びこれらの解析への反映に加え、二次元での解析手法の構築の必要性が課題として挙げられた。

以上の背景・目的を踏まえ、人工バリア材料長期挙動評価・人工バリア評価の初期条件の設定の、平成２５年度から平成２９年度までの５年間の実施内容として、以下の項目を実施する。

(1) 人工バリア材料長期挙動評価

1) 化学・力学連成挙動に関する試験

処分場の実環境において起こる現象は、化学的な変質と特性変化による力学挙動変化が複雑に絡み合った結果生じるものである。それらの影響因子を組み合わせた小規模試験、及び長期試験により現象を把握し長期挙動評価手法へ反映する。また、セメント系材料及びベントナイト系材料のアナログとなり得る試料を入手し、長期挙動評価手法に反映することを目的に分析する。

2) 化学・力学連成解析のための化学/力学解析手法の信頼性向上

長期挙動を数値解析によって再現する場合、長期間の処分場で起こる複合現象をモデル化し、説明性及び解析精度を高めることが必要である。そのため、化学解析手法と力学現象解析手法双方を構築し、連成させるための手法を検討することによって、長期挙動評価の信頼性を向上させる。以上の検討を基に、性能評価解析を行い、今フェーズの研究の成果のまとめを行う。長期挙動の評価を実施し、性能評価の初期条件となる処分場の閉鎖時の状態(初期条件)と長期挙動の関連を明らかにし、人工バリアの技術的成立性を評価し、設計及び施工方法との関連の評価手法を提示する。

(2) 人工バリア評価の初期条件の設定

約 80 年間熱影響を受けたコンクリートで確認した C-S-H の結晶化が進行する条件を要素試験等により把握し、制限温度(80℃)との関係を明らかにする。また、建設から処分場閉鎖までの時間を踏まえ、アナログ試料（地下水と接触する環境で長期材を経た試料）の分析により確証を高める。本検討では、セメント系材料を主に熱影響に関する検討、データ取得を行い、ベントナイト系材料については、別途行われた国内外の検討を参照し、熱影響の性能評価の初期条件の設定への影響を明らかにする。

セメント系材料の人工バリア評価の初期条件は、材料レベルでの特性値により設定されているが、人工バリアの部材レベルの寸法では部位等により拡散係数や力学特性等が変動する可能性がある。加えて、部材レベルの寸法では、ひび割れの発生も性能評価の特性値に大きく影響し、信頼性に大きく関わるため、検査によりひび割れ量等の初期条件への反映が必要である。人工バリアの長期挙動の説明性や信頼性の向上のために、要素試験等で特性値の変動について把握し初期条件に反映するための検討を行う。ひび割れの検査に関しては、平成 24 年度まで

の非破壊検査技術の成果を元に検査手法を検討し、ひび割れを把握する手法を構築し初期条件の提案に反映する。

以上の熱影響、部材レベルでの検討等を基に初期条件の設定を提案する。

1.3.5 ガス移行連成挙動評価手法の開発

放射性廃棄物処分場では、人工バリア材料及び廃棄物に含まれる金属の還元腐食、地下水の放射線分解による場内での水素ガスの発生、および廃棄体中の有機物の微生物分解等による有機ガス及び水素ガスの発生が想定される。これらガスの発生による内圧の上昇は、処分場内の地下水を場外へ押し出し、結果として放射性核種の移行を早める可能性がある。また、ガス圧の上昇により人工バリアに破過が生じた場合、その時に生じた破過経路が核種の移行経路になると考えられる。このため、処分場で生じるガスの人工バリア内外での移行挙動を予測し、その影響を評価しておくことは重要である。

現状において、人工バリア材料中のガスの移行挙動については一定の知見がこれまでの検討より得られているものの、未だ十分な解明には至っていない。従って、人工バリアの内部挙動の理解を目的として、材料試験によるガス移行挙動の把握、それらを再現できる解析手法、およびガス移行の係る処分シナリオの整備を図り、人工バリア内の材料（セメント系への展開）や構造（界面とその近傍での挙動)、およびシナリオ（破過に至らない移行形態等）を考慮し、ガス移行連成挙動評価を実施する必要がある。

以上の背景・目的を踏まえ、ガス移行連成挙動評価手法の開発の、平成２５年度から平成２９年度までの５年間の実施内容として、以下の項目を実施する。

(1) ガス移行評価シナリオの拡充

ガス移行挙動評価シナリオや構成する FEP 事象について、セメント系等の多様な材料や TRU 廃棄体全グループへの対応や最新の概念を取り入れたシナリオの高度化を図る。「人工バリア材料長期挙動評価」「炭素１４長期放出挙動評価（放射化金属の腐食試験)」にて得られた知見の反映によるシナリオの高度化を図る。

(2) ガス移行連成挙動解析ツールの高度化

ベントナイトを対象に行っていた解析モデルを、セメント系材料を含む人工バリアシステムへ拡張してガス移行試験の検証を行う。既存のガス移行データや新たに得られる試験結果データを反映し、ガス移行評価モデルを高度化し、人工バリアシステムでのガス移行挙動を評価する。解析・モデル化手法の展開検討として、連成挙動評価、発生モデル、不確実性評価等の高度化等に係る課題の解決を行う。

(3) ベントナイト系材料のガス移行挙動に係るデータの拡充

緩衝材におけるガス移行挙動に係る知見の整理をもとに抽出された課題を対象に材料試験を立案/実施する。ベントナイト系材料のガス移行評価のための特性データの取得に係る検討を行い、データ取得を実施する。取得されたデータを連成解析およびシナリオ構築に資する知見として取りまとめる。シナリオ構築等の観点よりガス移行試験の複合システム化について検討する。

(4) セメント系バリアのガス移行挙動データの取得

セメント系バリアにおけるガス移行の考え方（排出/閉じ込め）に係る論点を整理し、そのうえで概念設計に資するレファレンスデータを提示する。セメント系材料のガス移行挙動試験手法の構築を行い、透気特性その他のデータを取得する。取得されたデータを連成解析およびシナリオの高度化に資する知見として取りまとめる。

(5) ガス移行連成挙動解析ツールを用いた人工バリアシステム成立性の評価

多様な材料及びサイト環境への適用性を考慮し、最新の成果・知見を反映して開発した、ガス移行連成挙動評価手法による施設成立性の評価を行う。

1.4　全体計画

高レベル放射性廃棄物との併置処分を想定した TRU 廃棄物の地層処分事業のスケジュールを考慮し、精密調査段階に必要な TRU 廃棄物処理・処分技術分野の課題であるヨウ素・炭素移行挙動評価技術高度化開発、及び人工バリア特性変化評価技術開発の５カ年の全体計画を図 1.4.1-1 示す。

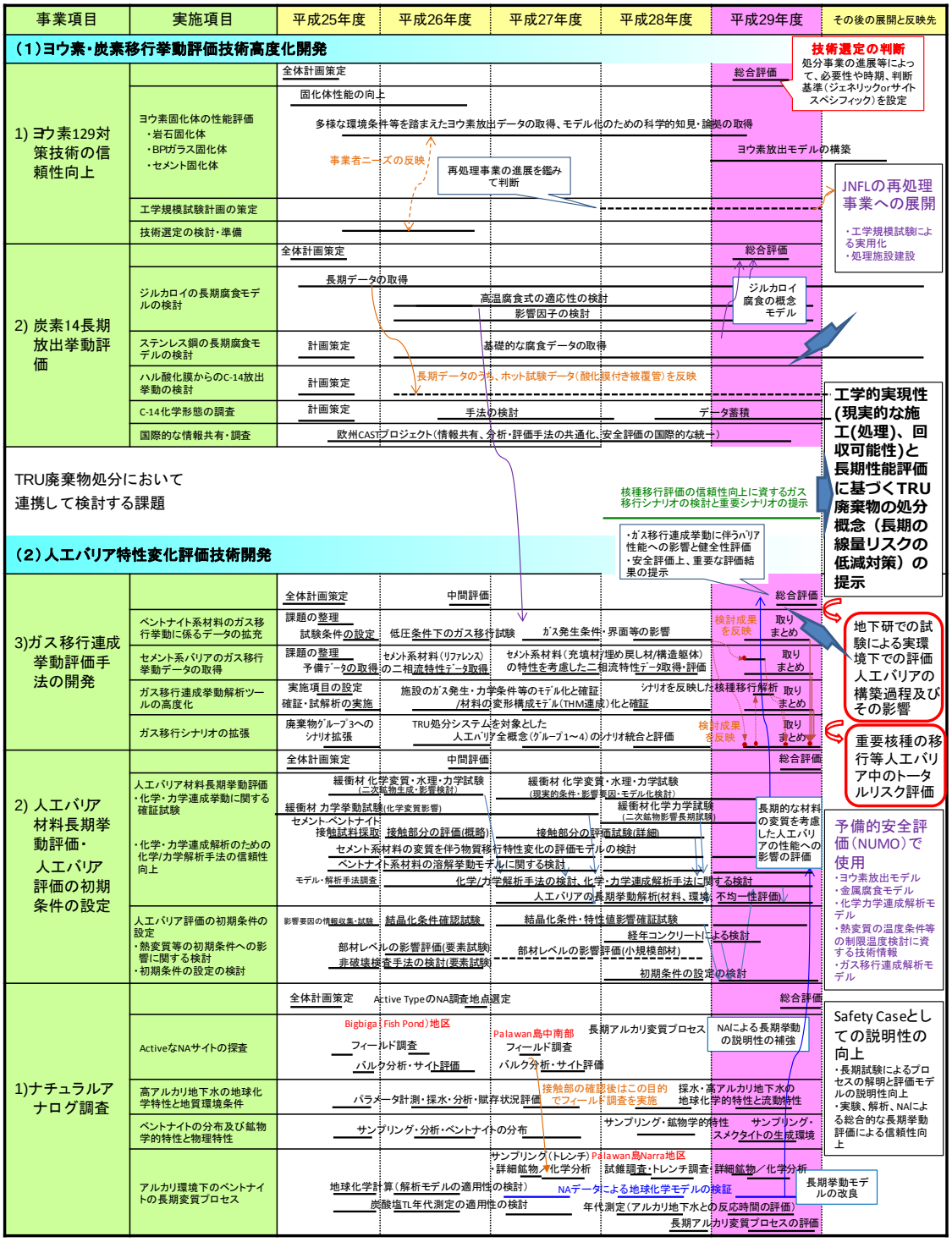


図 1.4.1-1　ＴＲＵ廃棄物処理・処分技術高度化開発の５カ年の全体計画

1.5　とりまとめ報告書の構成

本とりまとめ報告書（平成 29 年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業ＴＲＵ廃棄物処理・処分技術高度化開発 平成 25 年度～29 年度取りまとめ報告書）では、本章（全体概要）で示した、ＴＲＵ廃棄物処理・処分技術高度化開発で実施した５つの研究開発（テーマ）の５か年の成果を第 2 章～第 6 章に記載する。

第 2 章 ヨウ素 129 対策技術の信頼性向上

第 3 章 炭素 14 長期放出挙動評価

第 4 章 ナチュラルアナログ調査

第 5 章 人工バリア材料長期挙動評価・人工バリア評価の初期条件の設定

第 6 章 ガス移行連成挙動評価手法の開発

最後に第 7 章に、開発項目（目的）や達成度も含めて簡潔に取りまとめる。

[参考文献]

第2章ヨウ素 129 対策技術の信頼性向上

2.1 緒言

2.1.1 TRU 廃棄物グループ 1（廃銀吸着材）の概要

核燃料再処理施設の燃料溶解工程等で発生するオフガス中のヨウ素（以下、I-129 という）は、ヨウ素フィルター（銀　吸着材：AgA）に吸着・除去される。銀吸着材は、アルミナを基体として硝酸銀が添着されており、主に $AgNO_3+I \rightarrow AgI+NO_3$ の反応でヨウ素を吸着させる。超ウラン核種を含む廃棄物（以下、TRU 廃棄物という）の処分対策や技術的検討について、核燃料サイクル開発機構と電気事業連合会により平成 12 年 3 月「TRU 廃棄物処分概念検討書」[1]において概念検討が、平成 17 年 3 月「TRU 廃棄物処分技術検討書」[2]（以下、「第 2 次 TRU レポート」という）において技術的検討が公開されている。そこでは、使用済みのヨウ素フィルター（廃銀吸着材）は、TRU 廃棄物のグループ 1 として区分され、セメント混練固化し地層処分することが提案されているが、後述するように代替固化技術の必要性も合わせて提案されている。

2.1.2 ヨウ素 129 の評価と代替技術

第 2 次 TRU レポート[2]において TRU 廃棄物の地層処分の安全評価が行われている。そこでは、グループ 1 の廃銀吸着材に含有される I-129 が被ばく線量評価上の重要核種であると示されている（図 2.1.2-1）。これは、地下水中で陰イオン形態となりバリア材への吸着性が低いことから移行しやすいこと、セメント混練固化体にはバリア性能を期待しておらず、瞬時放出と仮定されていることに起因している。特に、第 2 次 TRU レポートでは、レファレンスの地質環境条件において最大被ばく線量は 10 μSv/y 以下と評価されているが、レファレンスの地質環境よりも水理物質移行の観点から良好とされない条件においては、より大きな被ばく線量となる可能性が指摘されている。したがって、ソースタームの観点から、被ばく線量を低減させるためには、I-129 の放出を制限する必要がある。しかしながら、前述の I-129 の半減期が極めて長いことから、I-129 による被ばく線量の低減対策としては、図 2.1.2-2 に概略図を示すように廃棄体容器等の人工バリアへの完全閉じ込めによる放射能減衰に期待することは困難であるため、固化体からのヨウ素の放出を長期的に抑制可能なヨウ素固定化技術を開発することで被ばく線量ピークの低減を図ることが効果的である。

一方、諸外国においては、使用済燃料の直接処分を予定している国では I-129 を特別に含有する廃棄物（廃銀吸着材のようなヨウ素フィルター等）は発生しない。また、使用済燃料の再処理を行っている国では、環境面への配慮を考えると将来的に回収される可能性も否定できないものの、現状では主に I-129 の海洋放出を行っており積極的な回収や処理は行われていない。一部、フランスでのヨウ素回収等の検討例はあるが効果は示されていない。したがって、ヨウ素固定化技術について諸外国からの技術導入はほとんど期待できないのが現状である。

以上のように、I-129 の影響低減のための代替技術の開発は重要課題であり、第 2 次 TRU レポート[2]や「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」[3]、さらに、「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」（原子力発電環境整備機構、2011）[4]に示されるように、I-129 に対して十分な安全性を確保するための高度化対策（代替技術）として、ヨウ素放出を抑制する固化体の開発が期待されている。また近年は、諸外国でもヨウ素回収や閉じ込め技術への関心が高まりつつあり、基礎的な研究の報告が年々増加傾向にある。

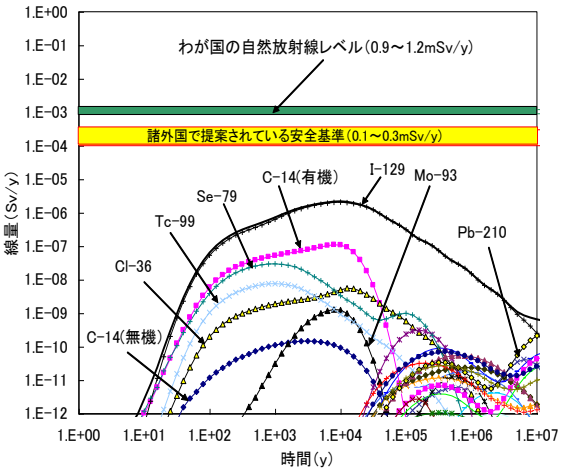


図 2.1.2-1　第 2 次 TRU レポート[2]における被ばく評価結果

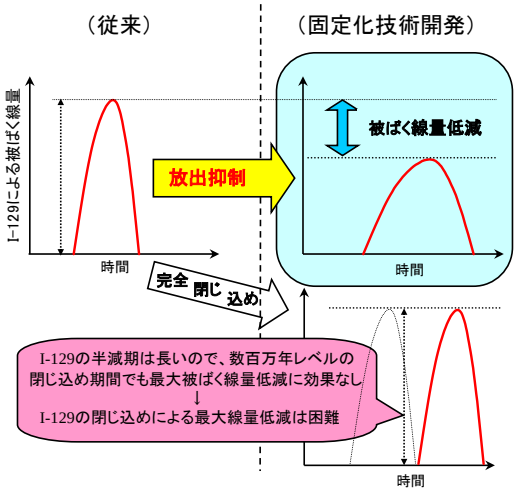


図 2.1.2-2　ヨウ素固定化技術による I-129 被ばく線量低減概略図

2.1.3　開発目標

本技術開発では、現段階で処分サイトが特定されていないことを考慮し、より幅広い地質環境においても安全性を見通すことができるヨウ素固定化の代替技術として、I-129の被ばく線量の低減、固化体からの長期的なヨウ素放出挙動評価の信頼性、及びヨウ素固定化処理プロセスの成立性やコスト等の観点から、ヨウ素固定化技術を開発することを目的としている。

目標とするヨウ素放出抑制能について検討を行うため、固化体からのヨウ素放出期間をパラメータとした核種移行／被ばく線量の感度解析を行った結果を図 2.1.3-1に示す。この解析結果から、地下水流速が速い条件でも固化体からのヨウ素放出期間が10万年以上であれば最大被ばく線量を10 μSv/yよりも1桁低減できることがわかる。したがって、処分場設計等における安全裕度確保の観点(10 μSv/yよりも約1桁低減)から、本技術調査におけるヨウ素放出抑制能の目標値をヨウ素放出期間10万年以上に設定した。

また、ヨウ素処理プロセスにおけるヨウ素回収率は、未回収のヨウ素すなわち2次廃棄物による被ばく量についても考慮する必要がある。被ばく線量を1桁程度低減させる観点から、2次廃棄物中のI-129インベントリを1桁以上減少させることが必要になるが、工学的なゆう度も考慮し、ヨウ素の回収率の目標値を95%以上と設定した。

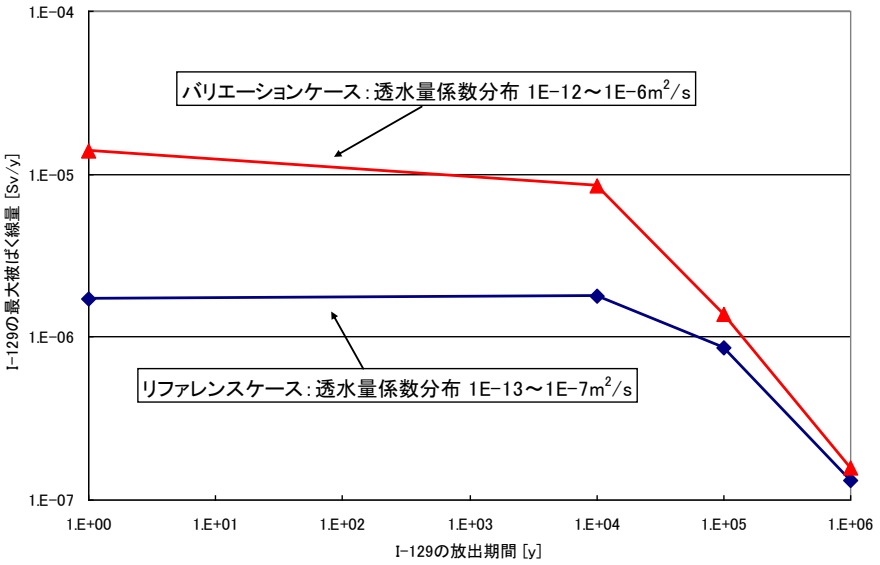


図 2.1.3-1　I-129 の最大被ばく線量と浸出期間の関係

2.1.4　各固化体の特徴・概要と開発の方針

代替固化体として提案されている固化技術は、アルミナ固化体（岩石固化体）、BPI ガラス固化体、セメント固化体である（図 2.1.4-1）。

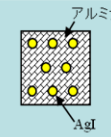
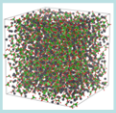
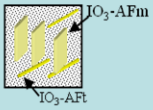
固化体	固化体概略図	固化体組成	ヨウ素固定化原理	処理プロセス	ヨウ素放出モデル
岩石固化体		・Al_2O_3（コランダム） ・AgI（14wt%）	アルミナマトリクス中に物理的に閉じ込める	廃銀吸着材をカプセルに詰め、HIP（熱間等方圧加圧）固化処理	マトリクス溶解モデル
BPIガラス固化体		・PbO-B_2O_3-ZnO ガラス ・$BiPbO_2I$ （ヨウ素：2wt%）	$BiPbO_2I$を鉛ガラス中に均一に固化する	脱離したヨウ素を、無機イオン交換体に吸着させ、Pbガラスフリットと混ぜて低温で溶融固化	ガラス溶解モデル
セメント固化体		・AFm ・AFt ・$Al(OH)_3$ （ヨウ素1.7wt%）	ヨウ素酸の形態でAFm、AFt鉱物に固定化する	脱離したヨウ素を、ヨウ素酸に転換し、アルミナセメントに二水石膏を加えたセメントに混練し固化	鉱物溶解・分配平衡モデル

図 2.1.4-1　代替固化技術の概要

アルミナ固化体は、アルミナマトリクスにヨウ素（AgI）を閉じ込める技術であり、廃銀吸着材を直接 HIP 処理するため、処理プロセスは比較的簡易であり、マトリクスの頑健性により固化体性能の処分環境に対する汎用性が高い。BPI ガラス固化体は、ヨウ素を鉛とホウ素を主成分とする低温溶融ガラスに均質に固化する。ガラス溶解モデルが提案されており、HLW ガラスの性能評価研究の一部について応用が期待されている。セメント固化体は、エトリンガイト等のヨ

ウ素と親和性の高い成分比率を高めたアルミナセメントであり、ヨウ素を含有する鉱物の溶解平衡（地球化学解析）によってヨウ素を放出するモデルが提案されている。既存の廃棄物処理プロセス技術の転用が可能である。

代替技術の実用化に対しては、現段階で処分サイトが特定されていないことを考慮し、より幅広い地質環境においても安全性を見通すことができるヨウ素固定化として、I-129の被ばく線量の低減、固化体からの長期的なヨウ素放出挙動評価の信頼性、さらに、ヨウ素固定化処理プロセスの成立性やコスト等の観点から、ヨウ素固定化技術を開発することが必要であり、これまでに基礎的な評価を行っている[5]。本技術開発では、そのうち、I-129の被ばく線量の低減のための固化体からのヨウ素放出挙動として、ヨウ素固定化原理や固化体の物理化学的特性に応じたヨウ素放出モデルの概念を構築し、特に、多様な処分環境に対する適用性の判断に資する知見に注力した技術開発を継続している。

2.2　アルミナ固化技術

2.2.1　緒言

超ウラン核種を含む放射性廃棄物のうち、安全評価における被ばく線量への寄与が最も大きいとされている廃銀吸着材に含有されるヨウ素 129 について、被ばく線量を低減し地層処分の安全性を向上させることを目的として、固定化技術の開発を行うものである。

アルミナ固化技術とは、活性アルミナに銀を添着した銀アルミナ吸着材にヨウ素が吸着されたもの（廃銀吸着材）を、HIP（Hot Isostatic Pressing：熱間等方圧加圧）処理によって焼結し、廃銀吸着材をアルミナ結晶の固化体にする技術である[6]。この方法によって作製された固化体をアルミナ固化体と称する。

アルミナ固化体は、HIP 法によって焼結された、幅広い環境に対して化学的に安定なアルミナマトリクス中にヨウ素を物理的に閉じ込めるものであるため、地層処分後においても長期に健全性を保つことが期待できる。長期にわたるヨウ素閉じ込め性を確保するには、物理的に閉じ込め性の優れた固化体の作製する必要がある。さらに、ヨウ素放出挙動評価モデルを構築するには、ヨウ素の閉じ込め機構及び放出機構を理解することが求められる。そこで、これまで長期にわたりヨウ素を保持することが可能と考えられる緻密なマトリクスを持つ固化体の作製とその評価、作製したアルミナ固化体からのヨウ素放出挙動を把握するための研究を実施してきた[5]。

アルミナ固化体のヨウ素放出挙動において、下記 3 つの素過程が関与していると想定され、これらの反応機構や反応速度の取得がヨウ素放出挙動評価モデルの構築に必要と考えられる。

① 固化体マトリクスの溶解
② ヨウ化銀（AgI）の溶解
③ マトリクス空隙中の拡散

これまで、これら 3 つの素過程の反応機構の理解や反応速度の取得のための試験を実施し、固化体からのヨウ素の放出には固化体マトリクスの溶解が大きく寄与している可能性が高い[5]。

2.2.2　アルミナ固化技術の概要

(1) アルミナ固化体の特徴

ヨウ素 129 は使用済み燃料の再処理工場のオフガスからヨウ素吸着材により回収される。現在、ヨウ素吸着材はアルミナ（Al_2O_3）を担体として硝酸銀（$AgNO_3$）が担持されたものであり、ヨウ素は主にヨウ化銀（AgI）の形で吸着回収される。

図 2.2.2-1 にアルミナ固化体の作製フローを示す。固化体の作製は、加熱処理工程、カプセルへの充填・密封工程、HIP 処理工程の 3 つの工程からなるシンプルなプロセスである。

アルミナ固化体のプロセスの面の特徴は以下の通りである。

① 高いヨウ素回収率：ヨウ素脱離･回収工程を経ずに廃銀吸着材をそのまま処理するため、ヨウ素回収率はほぼ 100%となる。
② 高い体積減容化：HIP 処理によって廃銀吸着材は圧縮･緻密化されるため、大きな体積

減容化率（約 65%）が得られる。

③　二次廃棄物低減：加熱工程での揮発ヨウ素は再び銀吸着材で回収し、プロセスのハンドリング工程でロスする微粉等を再回収する。これらの量は非常に少なく、また、同じプロセスにフィードバックできるため二次廃棄物をほとんど発生させない。

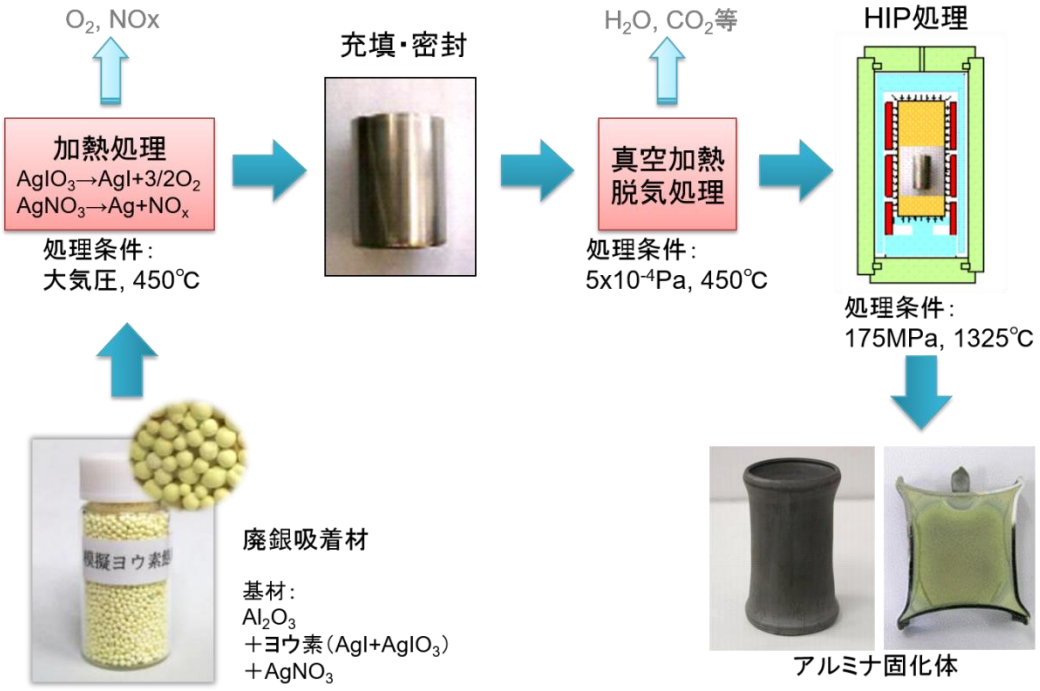
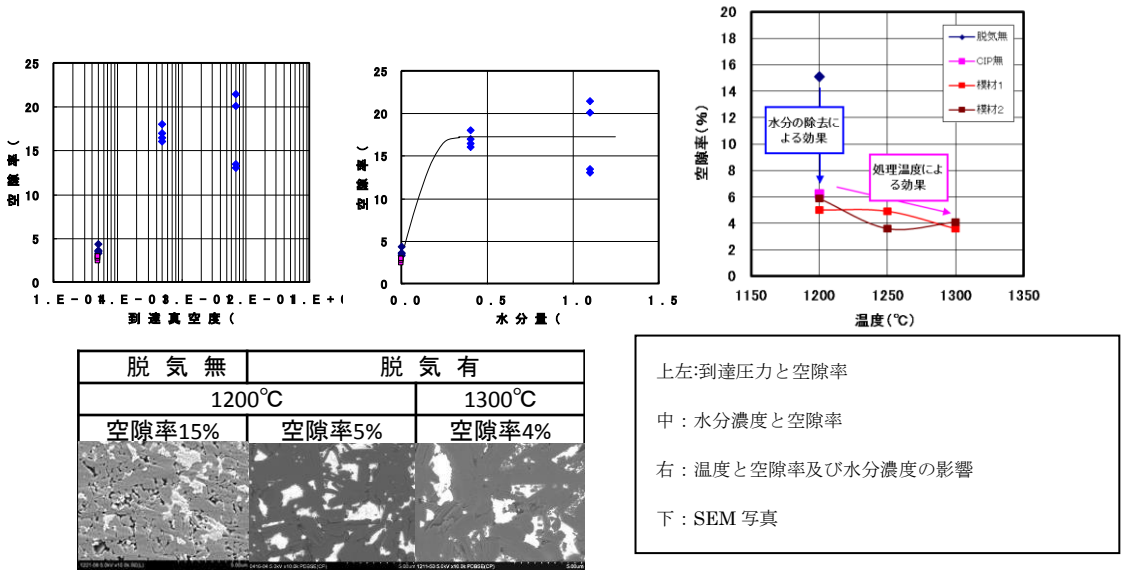


図 2.2.2-1　アルミナ固化体作製フロー

(2) アルミナ固化体の製造条件

HIP 処理条件として温度、圧力および処理時間の影響を検討し、高温・高圧ほど緻密になることが明らかになっている。処理装置の性能上限も鑑み 1200℃、175MPa および 3 時間で行ってきた。さらなる緻密化検討により、HIP 処理の前処理工程における脱気が廃銀吸着材の残留水分量に影響することがわかり、脱気条件が重要であった。水分量と空隙率の関係について評価した結果を図 2.2.2-2 に示す。脱気時の到達圧力を 5×10^{-4} torr（7×10^{-2}Pa）以下に低減することが固化体の空隙率を小さくすることを見出した。脱気時の到達圧力を変えた固化体の水分測定を行うと、到達圧力 5×10^{-4} torr 以下で残留水分濃度が 0.1%になっていることを確認した[5]。



脱 気 無	脱 気 有	
1200℃		1300℃
空隙率15%	空隙率5%	空隙率4%

上左:到達圧力と空隙率

中：水分濃度と空隙率

右：温度と空隙率及び水分濃度の影響

下：SEM 写真

図 2.2.2-2　水分量と空隙率の関係（圧力 175 MPa、処理時間 3 時間）

(3) ヨウ素放出モデル

1) ヨウ素の放出挙動

アルミナ固化体を構成する成分は、マトリクスのアルミナ（コランダム）とヨウ化銀（AgI）である。温度一定の条件では、アルミナの溶解は pH に依存し、AgI の溶解は酸化還元電位および－II 価の硫黄濃度に依存するため、浸漬試験は地下環境を模擬した低酸素グローブボックス中で行い、pH と硫黄濃度をパラメータとして実施した。

図 2.2.2-3 に、初期硫黄(HS^-）濃度が 3×10^{-3} mol･dm^{-3} で、pH が 8 と 12.5 と異なる系の浸漬試験結果を比較したものを示す。HS^-濃度が高いため、試薬の AgI において低 pH でも高 pH でも次の反応式で HS^-濃度に応じてほぼ定量的に溶解する。

$$AgI + 1/2\ HS^- \rightarrow 1/2\ Ag_2S + I^- + 1/2\ H^+$$

しかし、アルミナ固化体からのヨウ素放出速度は pH により異なり、pH8 は pH12.5 に比べてヨウ素の放出が非常に遅くなった（初期 100 日までは開気孔中の AgI 溶解が影響しており違いが現れない)。これは、pH12.5 に比べ pH8 ではアルミナマトリクスが溶け難いことに対応しており、AgI がアルミナマトリクスに取り囲まれて、マトリクス溶解が AgI 溶解とヨウ素の放出を律速、抑制していることを示している。

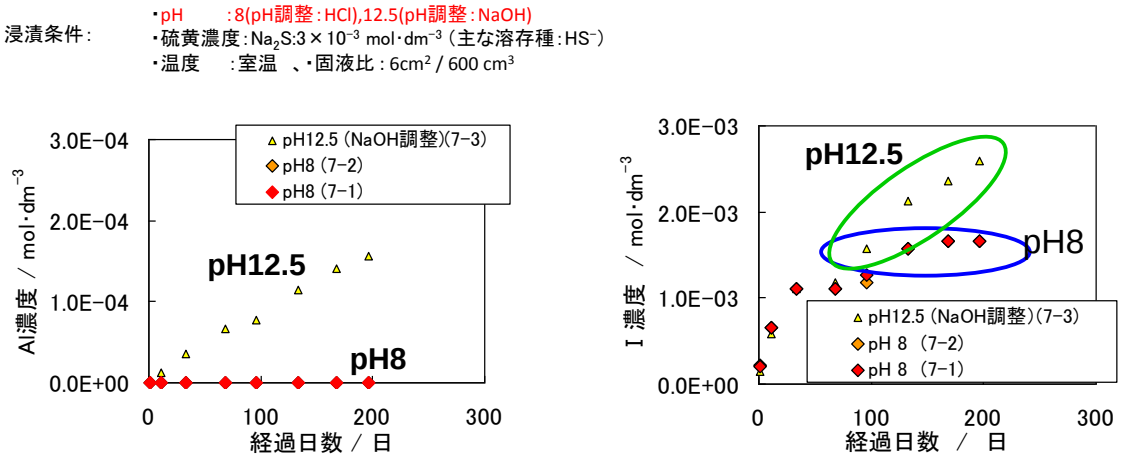


図 2.2.2-3　pH に対する固化体からのアルミとヨウ素の放出挙動の比較（高硫黄濃度条件）

2) ヨウ素放出挙動のモデル化

アルミナ固化体は、ヨウ素吸着材の単体に由来するアルミナおよびヨウ化銀（AgI）の形で固定化されたヨウ素から成り、構造上空隙が存在する。使用済みのヨウ素吸着材（模擬廃銀吸着材）には結晶構造の異なるアルミナも含まれているが、HIP 工程を経ることによってほぼ α-アルミナとなる。また、ヨウ素も AgI やヨウ素酸銀（$AgIO_3$）の形で存在しているが、HIP 前の加熱処理工程によって AgI に単純化されている。

図 2.2.2-4 に、固化体中の破断面の SEM 像とそれを元に模式化した図を示す。アルミナ固化体では、このようにヨウ素が保持されていると考えられる。

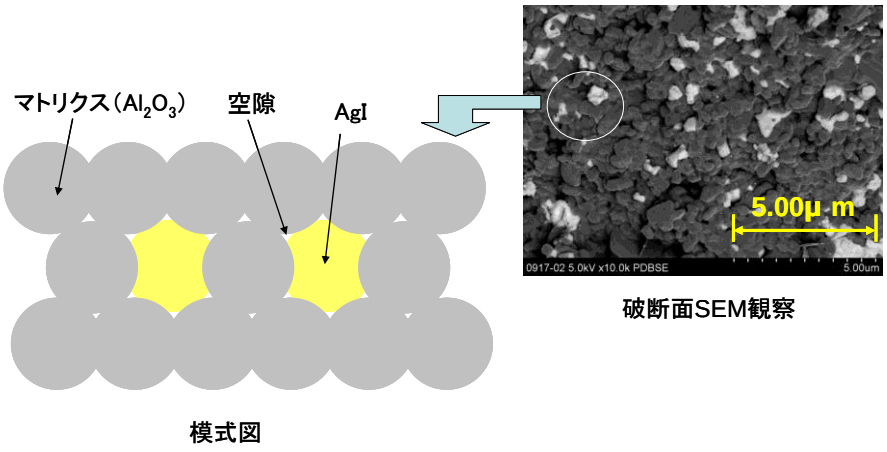


図 2.2.2-4　アルミナ固化体中の内部構造模式図

アルミナ固化体からのヨウ素放出は、マトリクス粒間の溶解に伴い生成した隙間に溶液が浸入して、AgI が溶解することで起こる（図 2.2.2-5）。さらに AgI が Ag_2S に変化する体積収縮によって空隙が生じ、それらが連結して固化体へ溶液の浸入が進むと考えられた。

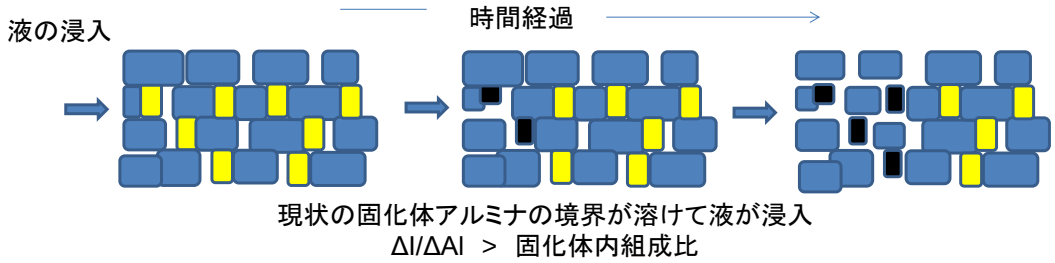


図 2.2.2-5　固化体(空隙率 10～15%)におけるヨウ素放出過程（高濃度 HS^-条件）

2.2.3　アルミナ混合固化体の製造条件

空隙率の高い固化体は、溶液の浸入経路を作ってヨウ素の放出が起こると考え、ヨウ素放出を抑制するために、より低空隙率の固化体を製造する条件を求めた。また、さらなるヨウ素放出の低減を図るために、AgI をアルミナマトリクスで取り囲むような内部構造とするため、廃銀吸着材にアルミナを添加したアルミナ混合固化体を新たに製造して評価した。

(1) 固化体の緻密化

真空加熱による前処理温度の効果を確認した。400～600℃の範囲で、真空脱気処理を行った。真空脱気処理の減圧度は 5×10^{-4} torr とした。このとき、HIP 処理条件は、温度 1250℃～1350℃、圧力 175MPa、処理時間 3 時間とした。

図 2.2.3-1 に、加熱工程での脱気処理を行った温度に対する HIP 処理後の固化体の空隙率の関係を示す。このとき、HIP 処理は、圧力 175MPa、温度 1325℃、時間 3 時間で行った。脱気温度が 400℃～600℃で空隙率 5%以下の緻密な固化体となることが分かった。図 2.2.3-2 にアルミナ固化体の内部構造の観察結果を示す。

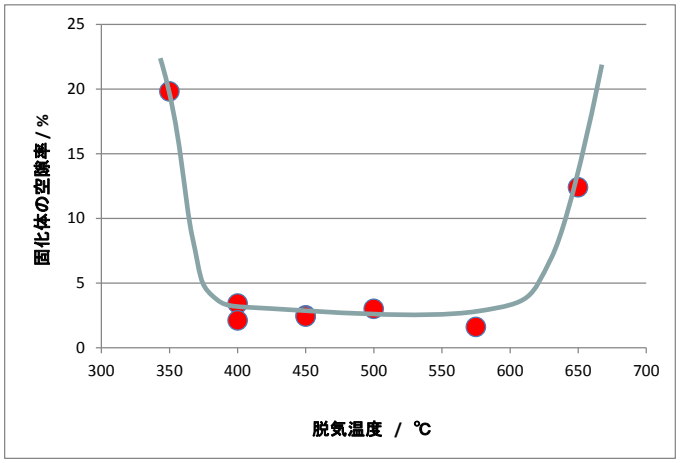


図 2.2.3-1　脱気温度の影響確認試験

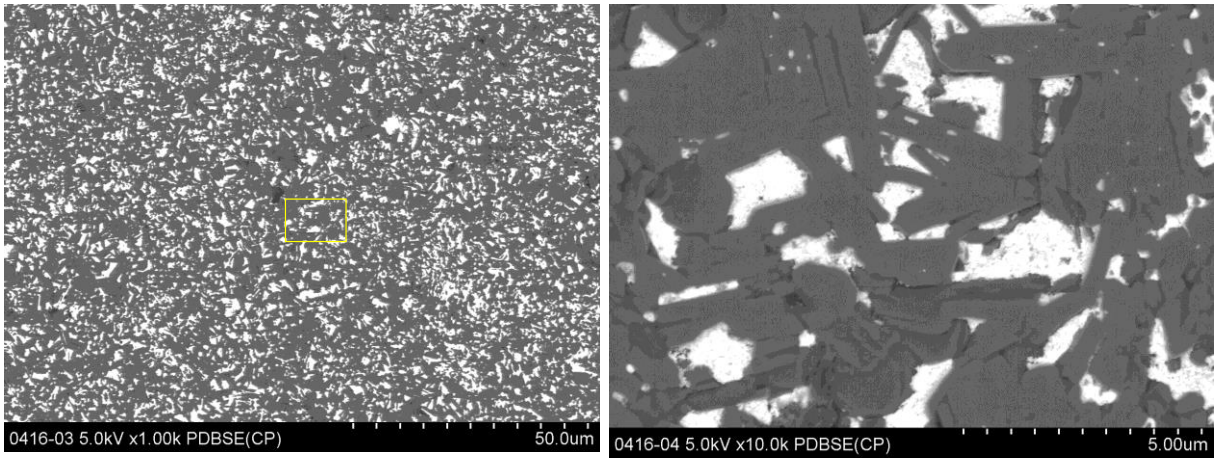


図 2.2.3-2　緻密化条件で廃銀吸着材のみを HIP 処理した固化体の内部構造

(2) アルミナ混合固化体の作製

廃銀吸着材にアルミナを添加して、個々の AgI の距離を離して孤立させるよう、アルミナ混合固化体の製造を検討した。アルミナの添加割合によって得られる効果を、簡易的に示したのが図 2.2.3-3 である。黒（＝AgI）と白（＝アルミナ）のマス目を黒/白の割合を変えてランダムに配置している。図 2.2.3-3 の左図では、黒が隣り合う確率がかなり高くなっているが、右図に向かうに従い、白の比率が増えて黒が孤立していくことが確認できた。

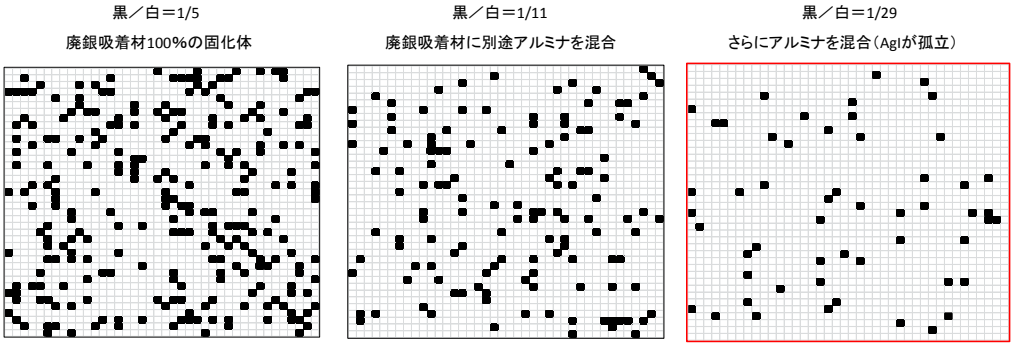


図 2.2.3-3　アルミナ混合率の異なる固化体の内部構造の簡易シミュレーション

アルミナ混合固化体を作製するにあたって、添加するアルミナの種類が重要である。未使用吸着材（AgNO3＋アルミナ）、未使用吸着材から酸洗により AgNO3 を取り除いたアルミナ、市販のα-アルミナ等の比較を行い、空隙の比較から市販のα-アルミナが適していた。また、長期わたる入手性を鑑み、純度 99.99%の市販α-アルミナ（TM-DAR）を混合用アルミナとして選定した。

アルミナ混合固化体において、適当な HIP 処理温度を調べるため、HIP 処理温度と空隙率の関係を求めた（図 2.2.3-4）。α-アルミナのみで HIP 処理したもの、90％α-アルミナ+10％廃銀吸着材の混合物を HIP 処理したもの（以下、90%アルミナ混合固化体という）で検討したところ、1300℃以上の温度であれば十分に低い空隙率となると考えられた[7]。

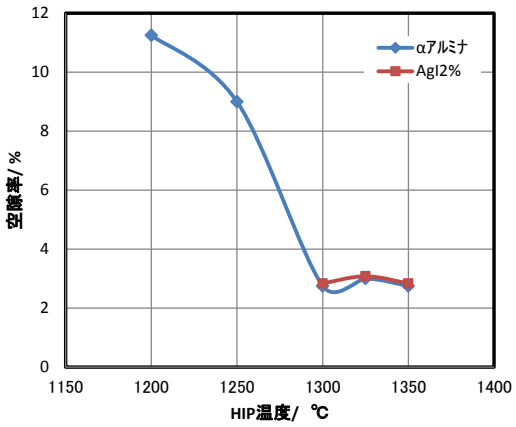


図 2.2.3-4　HIP 温度と空隙率の関係

(3) アルミナ混合固化体の構造

90%アルミナ混合固化体の内部構造を SEM 観察したものを図 2.2.3-5 に示す。未混合の固化体に比べて、AgI の一つ一つが小さな固まりとなっていた。固まりどうしが離れており、期待していた結果と整合した。

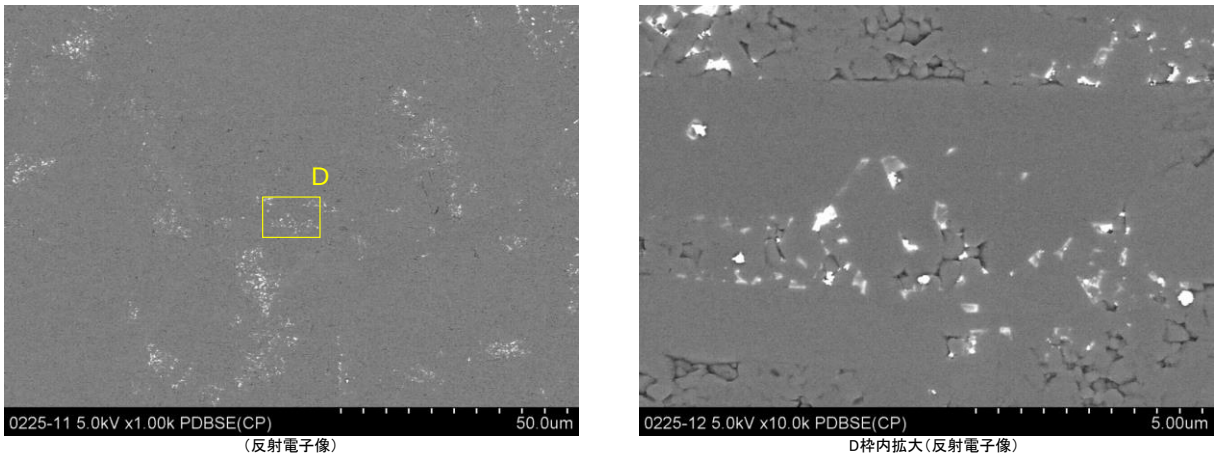
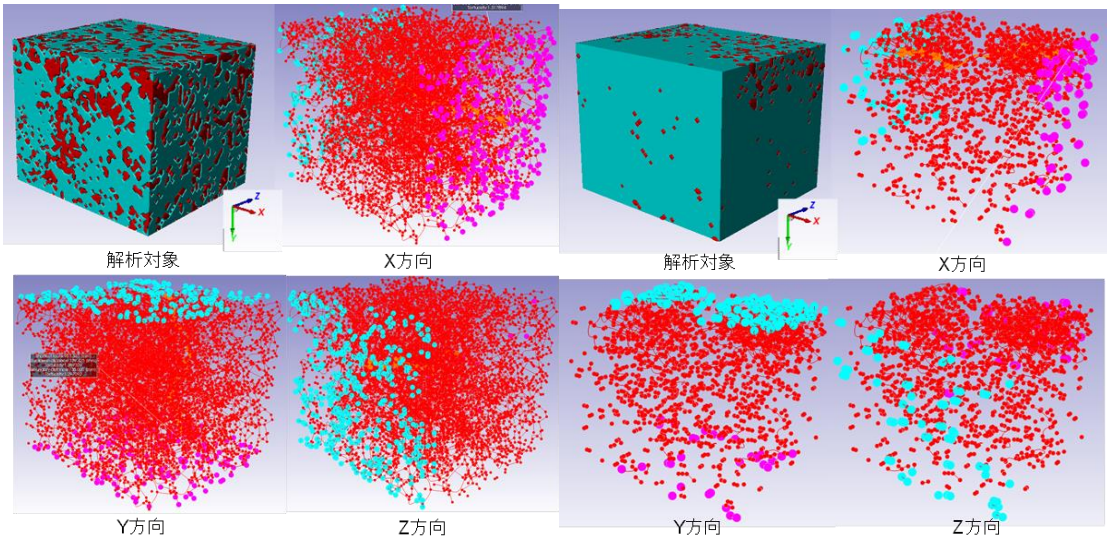


図 2.2.3-5　90%アルミナ混合固化体の内部構造

さらに、固化体の一部を切り出して 3D-SEM 法により 3 次元の内部構造を調査した。サンプル断面を FIB で研磨しながら、深さ方向に複数枚の SEM 観察を行い、その画像を連結して 3 次元構造を構築するものである。画像の色度から、空隙（黒）、アルミナ（灰色）、AgI（白）に分けて、3 次元の空隙の連結度等を解析した。サンプルは、アルミナを添加しない 100%廃銀吸着材固化体、廃銀吸着材に対して 90%および 99%のアルミナを添加したアルミナ混合固化体を用いた。

図 2.2.3-6 に 3D-SEM 法によって構築した 3 次元内部構造を示す。図中で赤く示したものは、空隙と AgI を合わせたもの（AgI は HS-の浸入によりヨウ素を放出したあと Ag_2S となり

体積収縮して液の通り道となるため、両者を合わせたものを擬似空隙として解析した）を示している。解析では、X、Y、Z 方向の各方向からこの疑似空隙が貫通する経路を探索した。解析結果を表 2.2.3-1 に示す。解析結果から、アルミナ未混合の 100%廃銀吸着材固化体ではいずれの方向にも貫通路があるが、90%アルミナ混合固化体では貫通路が限られていることが分かる。アルミナによって AgI や空隙が囲まれ、溶液が浸入しにくい構造になっていると考えられる。この現象が、浸漬試験の結果に表れている[5]。



(1) 100%廃銀吸着材固化体　　(2) 90%アルミナ混合固化体

図 2.2.3-6　3D-SEM による固化体内部構造の観察と解析

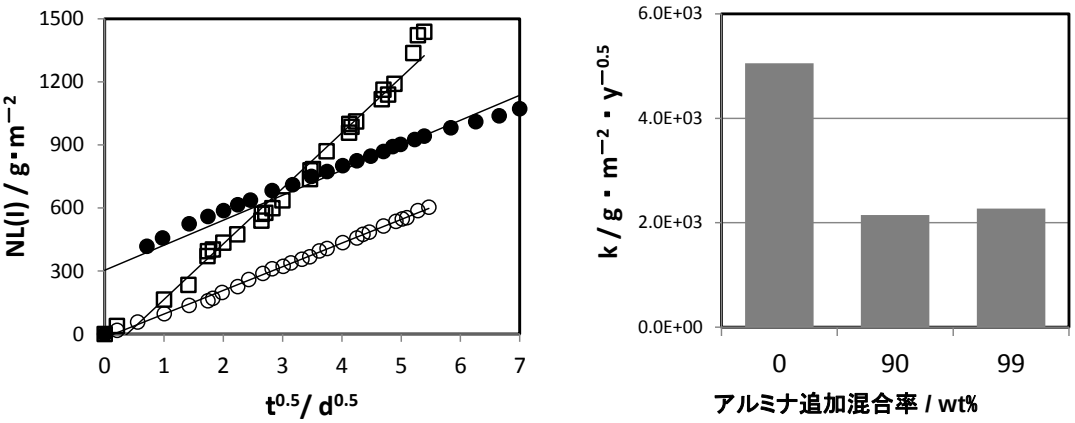
表 2.2.3-1　3D-SEM の測定結果をもとにした貫通経路の解析

解析対象	解析方向	貫通経路の有無	貫通経路の屈曲率
100%廃銀吸着材固化体	X	あり	1.318
	Y	あり	1.297
	Z	あり	1.324
90%アルミナ混合固化体	X	あり	1.349
	Y	なし	－
	Z	なし	－

(4) ヨウ素放出の抑制効果

アルミナ混合の効果を図 2.2.3-7 に示す[8]。アルミナ混合率が 90%以上であれば、未添加に比べて約 50%のヨウ素放出速度を低下させることがわかった。

さらに、長期間の浸漬試験結果を、図 2.2.3-8（pH12.5）と図 2.2.3-9（pH8）に示す。アルミナを未混合の固化体に比べて、ヨウ素の放出量が有意に減少することを示せた[8]。



左図：時間の平方根に対するヨウ素の規格化浸出量　　右図：左図プロットの傾き（NL(I)=k・t0.5）を比較

図 2.2.3-7　アルミナ混合率とヨウ素放出速度の関係

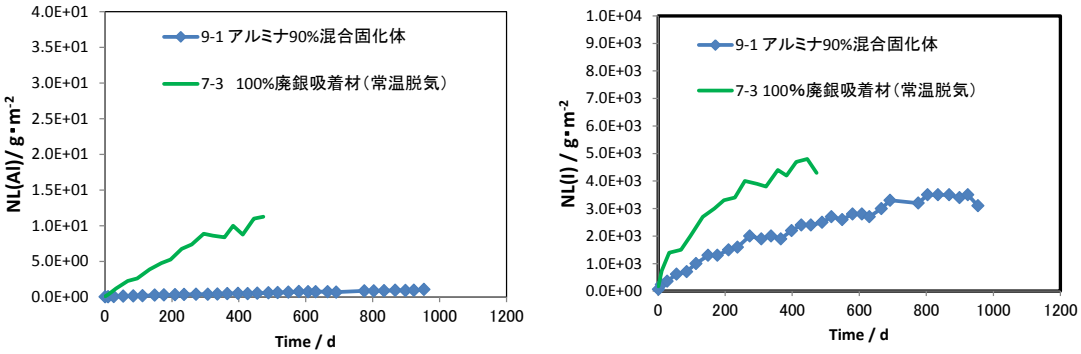


図 2.2.3-8　90%アルミナ混合固化体の浸漬試験の結果（pH12.5）

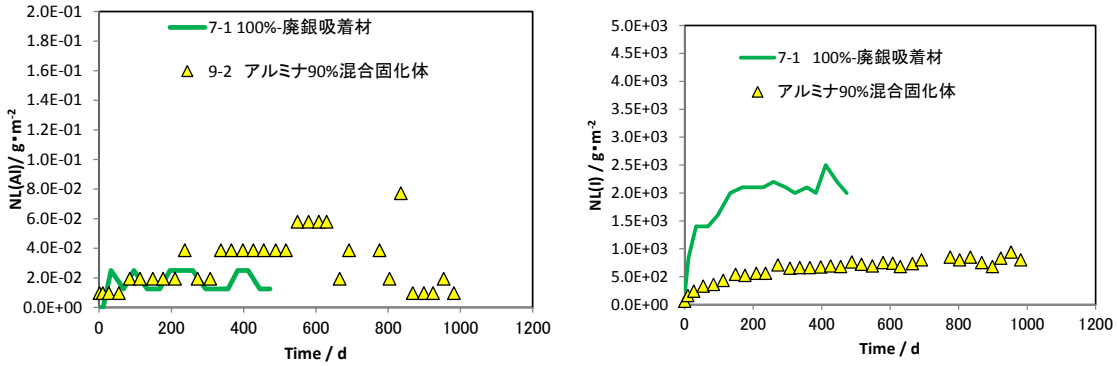
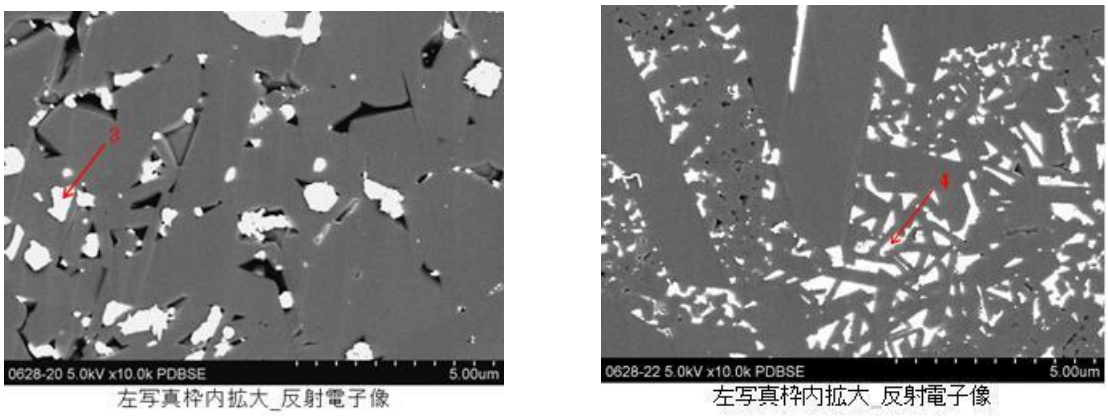


図 2.2.3-9　90%アルミナ混合固化体の浸漬試験の結果（pH8）

アルミナ固化体の浸漬試験後の固化体内部の観察を行った。その結果の一例を図 2.2.3-10 に示す。



(1) 溶液浸入部　　(2) 溶液未浸入部

（90%アルミナ混合固化体、pH12.5、[HS^-]=3×10^{-3} M）

図 2.2.3-10　液浸入境界付近の SEM 画像（10000 倍）

溶液未浸入部（右の SEM 写真）では、AgI（白）とアルミナ（灰色）が隙間なく詰まっているが、溶液浸入部（左の SEM 写真）では、アルミナの結晶の周囲および AgI の周囲に空隙（黒）が現れている。これにより、アルミナの結晶粒の粒界および AgI が選択的に溶けて、水の通り道を形成しているものと考えられる。また、AgI と S の濃度プロファイルを図 2.2.3-11 に示す。両者の分布は溶液浸入の最前線を境にして階段状に変化する。徐々に液が浸入して、浸入のフロント部で AgI と溶液の HS-の反応が進んでいくものと考えられる。

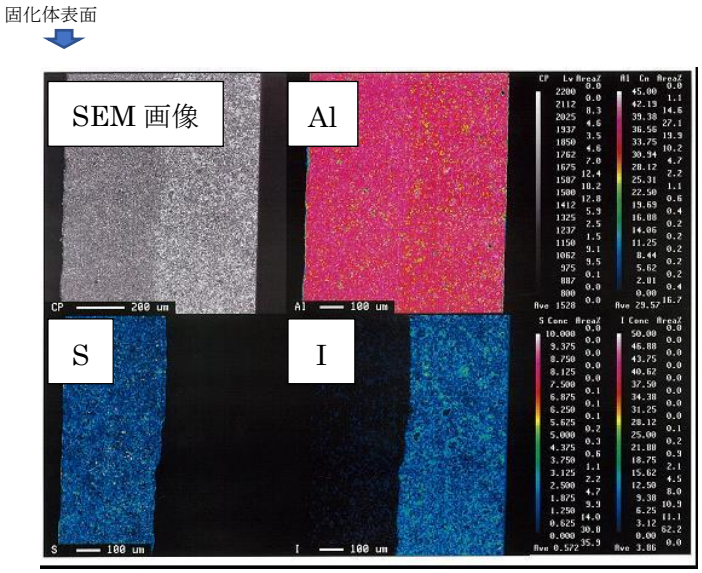


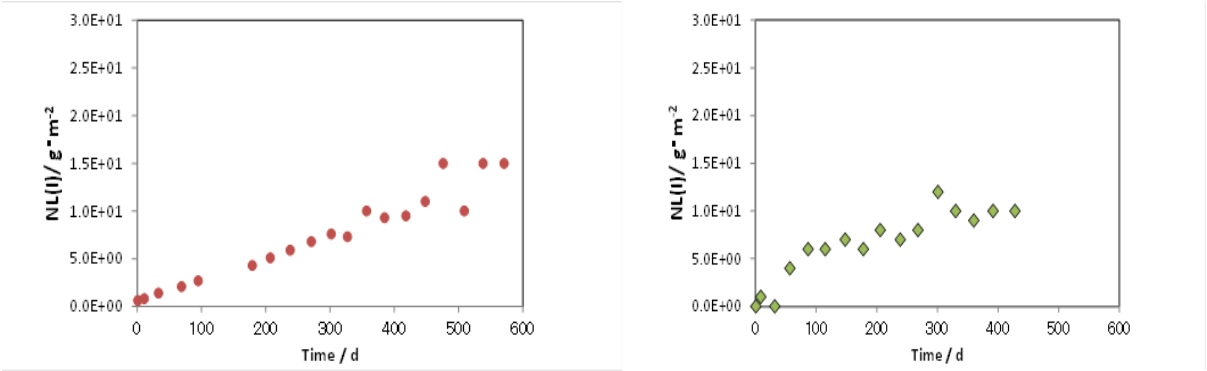
図 2.2.3-11　浸漬後の固化体内部での S および I の濃度分布の例

2.2.4　固化体の環境対応性

地層処分の各種環境におけるアルミナ固化体の性能を評価するため、想定される地下水環境を模擬して浸漬試験を行った。アルミナ固化体の構成するアルミナと AgI は pH と HS-濃度に影響

されるため、両因子を組み合わせた浸漬試験を行った。また、地下環境に想定される地下水組成として、中性近傍の純水、模擬降水系地下水、ベントナイト平衡水においても評価した。

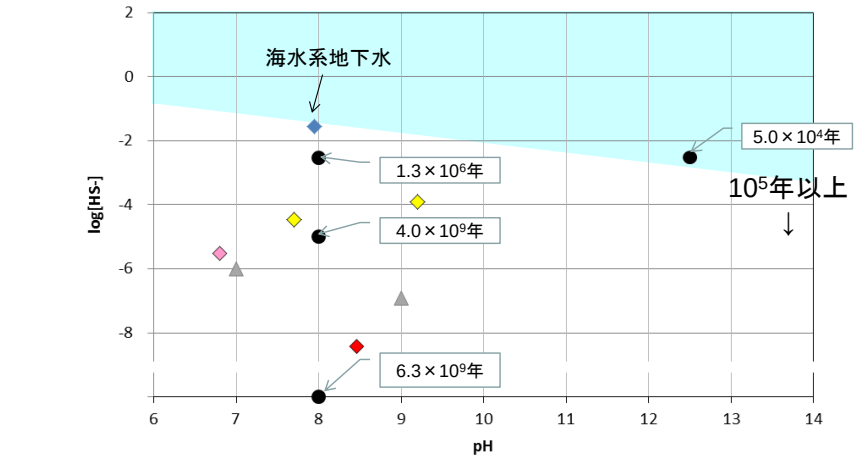
図 2.2.4-1 に、中性付近での浸漬試験結果の代表として模擬降水系地下水中およびベントナイト平衡水中での浸漬試験の結果を示す。降水系地下水、ベントナイト平衡水中のいずれの結果も、500 日経過後してもヨウ素の放出量は規格化浸出量で 10 g・m^{-2} 程度であり、HS-共存下の数千の値に比べて 2 桁程度低くなっていた。これらの条件では固化体の寿命は非常に長い。



(1) 模擬降水系地下水　　(2) ベントナイト平衡水

図 2.2.4-1　中性付近、低濃度 HS-溶液による浸漬試験結果の例

これらを踏まえて、φ260 mm×260 mm L の円筒型固化体を想定し、固化体寿命マップとして pH－[HS^-]マップ上に整理した（図 2.2.4-2）。アルミナ固化体中に保持されたヨウ素は AgI の化学形で存在しているため、溶液中の-2 価の硫黄（HS^-）が存在しないか、低濃度の一般的な地下水であれば、AgI の溶解度が非常に低いためヨウ素の保持性能が高い。一方、溶液中 HS-の影響については、pH を 8～12.5 の範囲で調査し、地下環境で想定される硫黄濃度の範囲では十分な寿命を持つ固化体であると考えられた。



凡例
●：実験ポイント（記入した数値：各条件ポイントにおける浸漬試験結果から計算した固化体寿命）
◆：FRHPの組成，◆：SRHP の組成（Sはすべて還元されると仮定），▲：幌延地下水の組成例(pH7 / 9)
◆：温泉データ：化石地下水型温泉（かつらぎ），◆：温泉データ：和歌山環湯(pH7.7)，宮城白須(pH9.2)

図 2.2.4-2　90%アルミナ混合固化体の環境対応マップ

2.2.5　ヨウ素放出挙動モデルの検討

固化体の内部構造の観察や浸漬試験の結果から、溶液侵入路の形成、AgI の溶解、ヨウ素の放出という過程を経ることが分かった。しかしながら、これらすべてを考慮するには、反応を伴う物質移動と物質移動係数の変化を伴う計算が必要であり、計算モデルが困難である。そこで、以下に示す 3 種類の計算検討を相補的に進めた。

(1) Higuchi の式

Higuchi の式はマトリクス中に保持された薬剤の放出速度を理論的に導いた式[9]であり、薬剤を AgI として解析することができる。マトリクスは溶けず、薬剤は固体で存在し、溶液への溶解速度は早い。また、マトリクス内の拡散は遅いが、皮膚への拡散は速い（perfect sink）といった条件のもと、薬剤の放出量が時間の平方根に比例する式として導かれている。そのため、マトリクスの溶解反応は考慮できず、物質移動経路は予め存在していたと設定した。

ヨウ素放出挙動が√t 則で示し得ることの根拠とするため、Higuchi 式から導かれるヨウ素放出挙動に対するパラメータの依存性が、浸漬試験結果に対応しているかを調べ、妥当性を検討した。

図 2.2.5-1 に Higuchi 式の前提となる対象系の模式図を示す[9]。溶液浸入部の最前線では、未溶解薬剤が多量に残っており、そこから飽和溶解度分の微量の薬剤が溶けて表面まで拡散によって薬剤が放出されるモデルである。

$$\frac{M_t}{A} = \sqrt{(2C_{ini} - C_s) \cdot D \cdot t \cdot C_s}$$

ここで、Mt：時間 0～t の間に放出された薬剤量、A：表面積、Cini：初期薬剤濃度、Cs：薬剤のマトリクス中での飽和濃度、D：拡散係数、t：時間である。

浸漬後の固化体の分析事例（図 2.2.3-10）で示したように、浸漬後のアルミナ固化体においても AgI の分布は Higuchi の式の対象系のように溶液浸入部の最前線で階段状になっている。Higuchi の式によれば、薬剤の放出量の時間変化は時間の平方根に比例し、アルミナ固化体の浸漬試験結果と同様の傾向を示す。このように、アルミナ固化体においてヨウ素放出が時間の平方根則に従う理論的根拠の一例を示した。

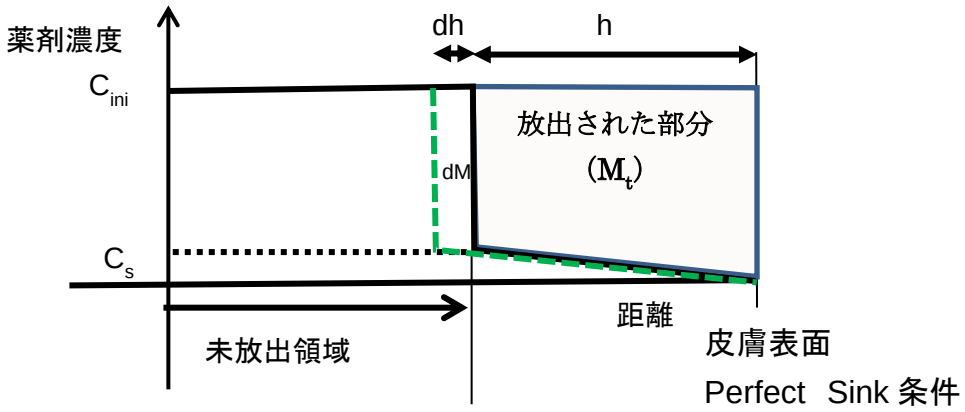


図 2.2.5-1　Higuchi 式の導出過程で想定された薬剤放出モデル[9]

(2) セル反応移動モデル

地球化学や処分場解析等に用いられる溶液化学平衡と物質移行を組み合わせた計算手法であり、将来的にはモデルを多次元に拡張できる。上記 Higuchi の式の数値計算化に近いモデルだが、Higuchi の式で考慮できなかった環境パラメータの影響（温度、溶液組成など）を踏まえた解析が可能である。ただし、溶液の浸入経路はあらかじめ存在しているとの仮定で適用するため、固化体構造の反映は不十分である。

1 次元で基礎的に試計算を行っており、AgI 溶解速度が速く、拡散が遅い系では、固化体内部の AgI（固体）の濃度分布が浸漬試験と同様に階段状分布を示すことを確認した（図 2.2.5-2）。また、ヨウ素の放出量が時間の平方根則に比例することを模擬できた（図 2.2.5-3）。

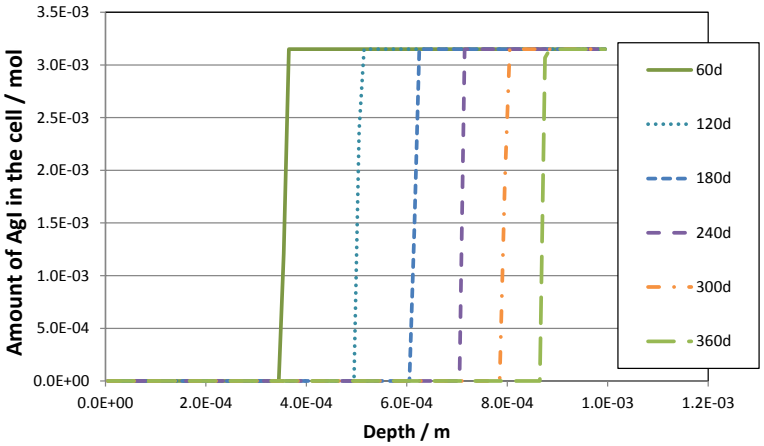


図 2.2.5-2　固化体内の AgI の残留プロファイルの時間変化

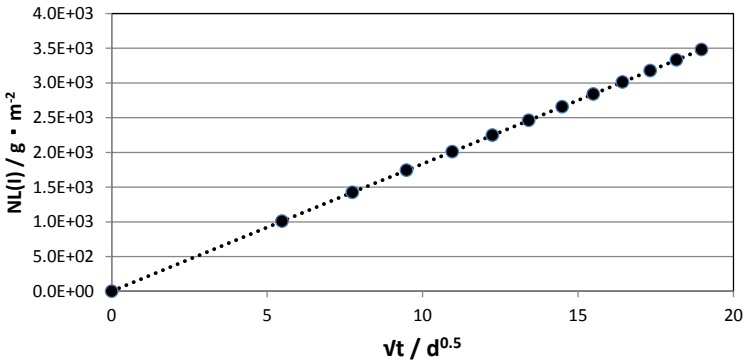


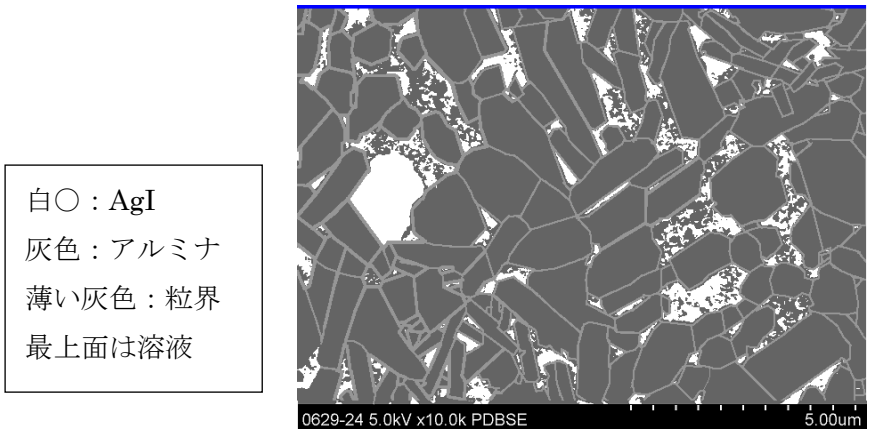
図 2.2.5-3　ヨウ素の規格化浸出量の平方根則による整理

(3) セルオートマトン法による粒界腐食解析

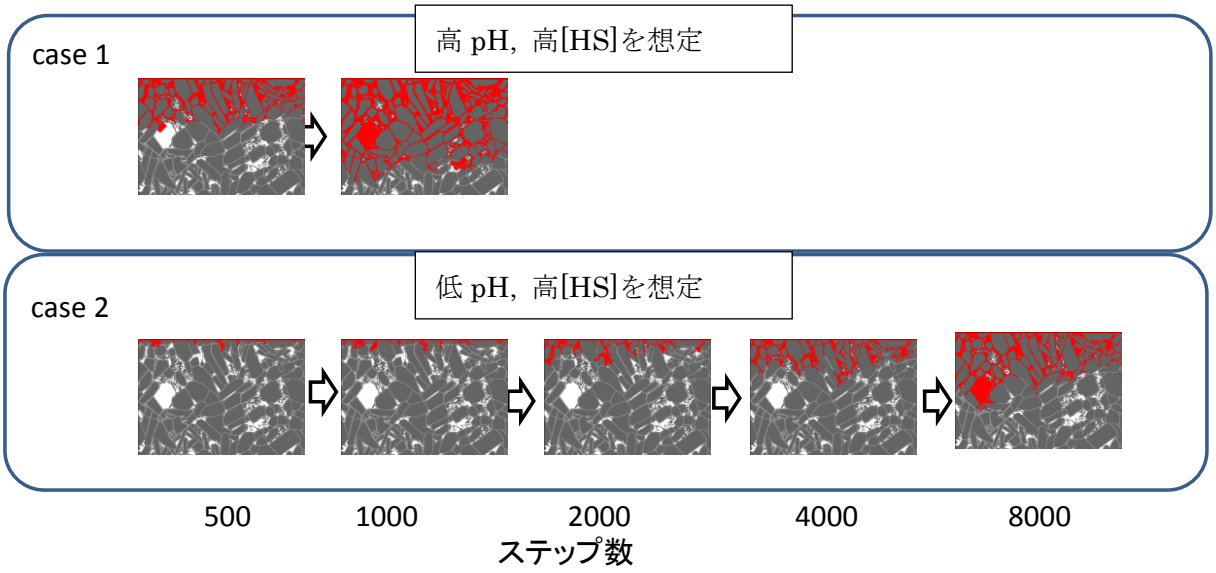
固化体をマトリクス結晶粒子、結晶粒子の粒界、AgI および空隙からなる 2 次元構造を SEM 画像から作成した。結晶粒界にマトリクス結晶粒子より速い溶解速度を与え、粒界が溶けるか AgI が溶けることによって新たな物質移動経路が出現するという現象のモデル化を検討した。

Higuchi の式では、マトリクスの溶解は無視するとの前提があるが、アルミナ固化体では pH の影響が浸漬試験に含まれ、これはマトリクスの溶解が関係していると考えられる。ただし、マトリクスの溶解は浸漬後の固化体の観察結果から均一に生じているのではなく、部分的に起きてマトリクスの大部分は残しながら液が奥に進んでいる。金属等において結晶の粒界は結晶本体に比べ溶けやすいと考えられている。アルミナ固化体においても同様に結晶粒界の溶解速度が速いと仮定して、最初にはなかった溶液浸入経路が粒界の溶解によって、新たに生じるという過程を取り入れたシミュレーションをセルオートマトン法[10]で再現した。

図 2.2.5-4 にその結果の一例を示す。この図は実際の 90%アルミナ混合固化体の SEM 観察像をもとに作成したモデルをもとに計算を行ったものである。case 1 と case 2 において、マトリクスの溶解速度の実験結果から得られている pH8 と 12.5 におけるアルミナの溶解速度の比で、マトリクス結晶および結晶粒界の溶解速度を変化させた。また、結晶粒界と結晶の溶けやすさの比を 100 倍として結晶粒界が選択的に溶けやすいとの仮定で計算した。図に示したように、Higuchi の式で扱えなかった pH の違いによる溶液浸入速度（すなわちヨウ素放出速度）の差をシミュレーションすることができた。



(1) 計算対象モデル　（SEM 画像をもとに作成）



(2) 計算過程のスナップショット

図 2.2.5-4　セルオートマトン法による固化体内の溶液浸入シミュレーション

2.2.6　アルミナ固化技術のまとめ

空隙率が低く、ヨウ素保持性能の高い固化体の製造条件を確立した。前処理として真空下で加熱脱気処理を行うことにより、ヨウ素保持性能に優れた低空隙率（<5%）の HIP 固化体を作製できるようになった。また、AgI どうしを離れさせるため、試薬のα-アルミナを 90%以上混合したアルミナ混合固化体とすることで、ヨウ素保持性能が向上することができた。

アルミナ固化体中に保持されたヨウ素は AgI の化学形で存在しているため、溶液中の-2 価の硫黄（HS-）が存在しないか、低濃度の地下水であれば AgI の溶解度は非常に低く、ヨウ素の保持性能が高かった。また、溶液中 HS-の影響については pH8～12.5 において、地下環境で想定される硫黄濃度の範囲であれば、十分な寿命を持つ固化体であると考えられた。

アルミナ混合固化体の内部構造や浸漬試験結果を踏まえて、ヨウ素の放出挙動について、理論解析やシミュレーションによりヨウ素放出を説明できるモデルを 3 種類相補的に検討した。そのうちのセルオートマトン法による粒界腐食解析では、ヨウ素の動きについて、固化体内に浸入し

た溶液との溶解反応と固化体空隙内の拡散現象で表し、実験結果と矛盾しない結果が得られた。

今後、製造については固化体のスケールアップ、性能評価としては長期の確証試験や実環境での試験が必要とみられた。また、モデルでは推定して用いた値（例えば、粒界の溶解速度）を算出することやニアフィールドとの連成を含む高度化により、さらに固化体の信頼性を向上させることが期待できた。

2.3　BPI ガラス固化技術

2.3.1　緒言

BPI ガラス固化技術は、再処理工場から発生する廃銀吸着材から水素を使用してヨウ素を乾式脱離した後、無機イオン交換体 $BiPbO_2NO_3$（BPN）を使用して $BiPbO_2I$（BPI）に転換し、これを $PbO\text{-}B_2O_3\text{-}ZnO$ ガラスフリットと混合させ、低温にてガラス溶融固化する固定化技術である。本技術の特徴は、ガラス溶融温度が 540℃と比較的低温であることから、溶融中のヨウ素の揮発率が低く、固化ガラスの均質性が期待できることがあげられる[5][11][12]。BPI ガラス固化体の長期性能評価のためのヨウ素放出機構については、ヨウ素をガラス中に均一に分散することにより、ヨウ素の溶出を高レベル放射性廃棄物ガラス固化体と同様にガラスマトリクス溶解で制限できると考えられる。そのため、BPI ガラス固化体の化学構造に関する分析と微視的構造を検討することで、ガラスの溶解に関する基礎的な知見が重要となる。また、ヨウ素浸出機構の詳細化のため、実際の処分環境を想定した多様な条件下における浸漬試験等により、BPI ガラスの溶解とヨウ素やガラス成分の放出挙動を把握することで、長期的なヨウ素放出メカニズムを理解することが技術開発として重要な課題である。

2.3.2　BPI ガラス固定化技術の概要

BPI ガラス固化技術は、還元剤として水素を使用して廃銀吸着材からヨウ素を脱離し、これを独立行政法人 物質・材料研究機構が開発した無機イオン交換体 $BiPbO_2NO_3$ [13][14]（以下、「BPN」という）に吸着させた後、ガラスフリットと混合して低温ガラス固化（溶融温度：540℃）する技術である。BPI ガラス固化プロセスの概要は、図 2.3.2-1 に示すとおりである。

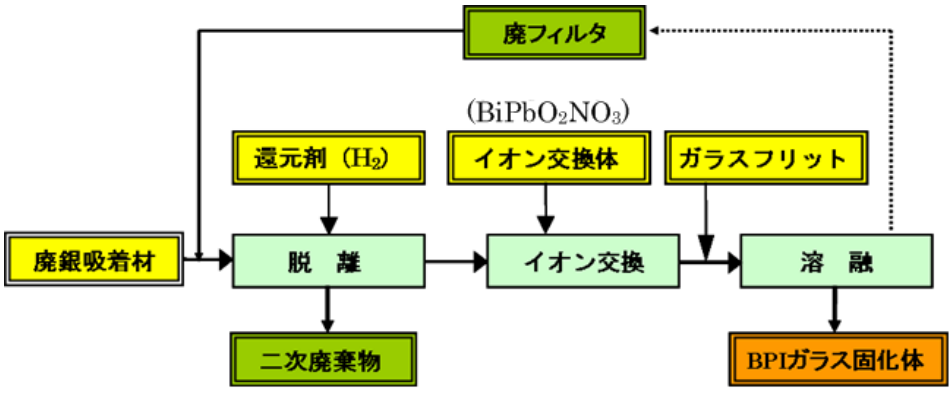


図 2.3.2-1　BPI ガラス固化プロセス技術の概要

BPN は市販の試薬を使用して比較的容易に合成（圧力容器を使用して 380℃、10h で合成可能）できる陰イオン交換体であり、反応式(1)で示される。また、BPN を NaI 溶液に添加し、pH 調整して 90℃で 24h 加熱すれば、$BiPbO_2I$（以下、「BPI」という）が反応式(2)のように合成できる。

$$Bi_2O_3 + PbO + Bi(NO_3)_3 \cdot 5H_2O \rightarrow 3BiPbO_2NO_3 \cdot 5H_2O \qquad (1)$$

$$BiPbO_2NO_3 + I^- \rightarrow BiPbO_2I + NO_3^- \quad (2)$$

BPI の結晶構造は図 2.3.2-2 に示すとおりであり、天然鉱物 Perite（$BiPbO_2Cl$）等と結晶構造が類似しており、化学的に安定している。

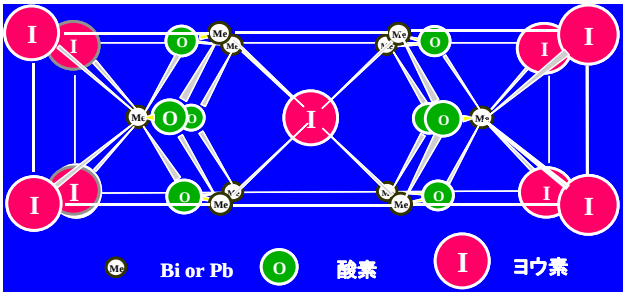


図 2.3.2-2　$BiPbO_2I$（BPI）の結晶構造

上記反応原理に基づき、水素等の還元剤を用いて廃銀吸着材からヨウ素を溶離し、この溶離されたヨウ素ガスをアルカリ溶液中の BPN に吸着させて、BPI の形態で回収する。得られた BPI を固定化する方法としては、I-129 を固化体のマトリクス中に均一分散させるために、融点が低い鉛ガラス固化を採用する。BPI を固定するマトリクス材としてのガラスフリットとしては、浸出性及び製作性を総合的に判断し、PbO-B_2O_3-ZnO 系ガラスの鉛含有率が 65mol%のガラスフリットを採用することとし、ヨウ素含有率は 2wt%に決定した。ガラスフリット及び BPI ガラス固化体の組成は、表 2.3.2-1（図 2.3.2-3 における赤ポイントに相当）及び表 2.3.2-2 に示すとおりである。

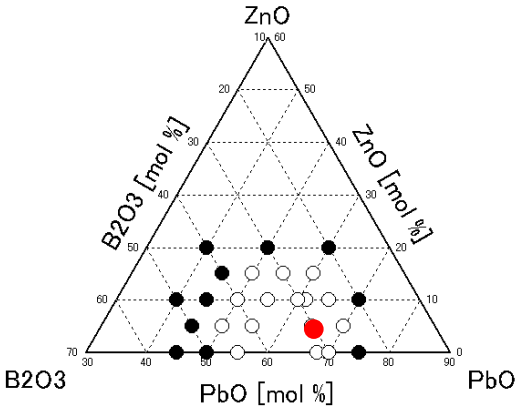


図 2.3.2-3　対象とした低溶融鉛ガラスの基本組成

表 2.3.2-1　BPI ガラスフリットの化学組成

組成	PbO	B_2O_3	ZnO
mol%	65	30	5

表 2.3.2-2　BPI ガラス固化体の化学組成

組成	I	B	Pb	Zn	Bi	O
mol%	1.0	19.8	22.1	1.6	1.0	54.5

BPI ガラス固化体の基本仕様及び物理学的特性を表 2.3.2-3、図 2.3.2-4 及び表 2.3.2-4 に示す。廃棄体容器は、ガラス固化体の製作性及び廃棄体のハンドリングの観点から、高レベルガラス固化体やハル･エンドピースと同じキャニスタを使用する予定であり、廃棄体数は 390 体となる。

また、BPI ガラス固化体は弱アルカリ雰囲気で固化体の閉じ込め性がより一層発揮されること及び人工バリア材であるベントナイト系材料の長期健全性維持の観点から、人工バリアとしてセメント系材料は使用しないこととし、ベントナイト系材料のみを使用した比較的小断面坑道に定置することを想定している。

表 2.3.2-3　BPI ガラス固化体の仕様及び数量

項　目	仕　様
固化体内容積	150L
BPI ガラス固化体密度	6.8kg/L
BPI ガラス固化体重量	1,000kg
ヨウ素 129 含有量	20kg（2wt%）
キャニスタ容器重量	110kg
廃棄体重量	1,100kg
廃棄体総本数	390 体

*1 ヨウ素量＝I-129 放射能量（5.1×10^{13}Bq）×比放射能（1.53×10^{7}g/Bq）

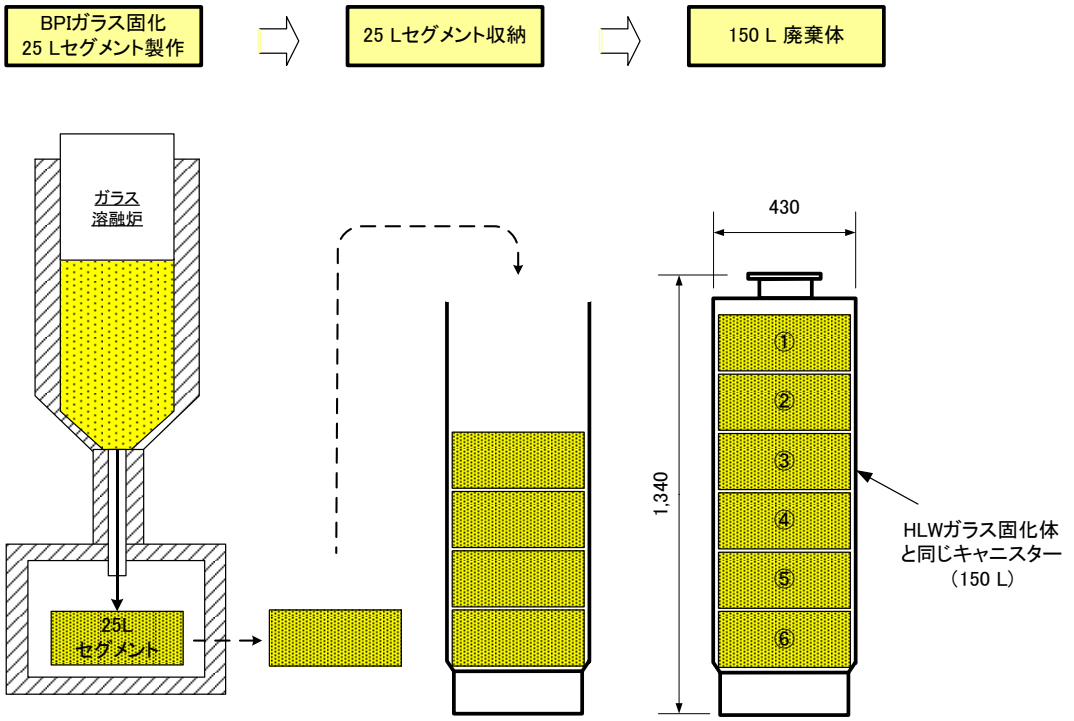


図 2.3.2-4　BPI ガラス固化体の概念

表 2.3.2-4　BPI ガラス固化体の物理・化学的特性

項　目	単位	物性値	分析方法
均一性		均一	EPMA 分析
圧縮強度	MPa	40.8 以上	小型物性試験機、EZ-graph（島津製作所製）
熱伝導率	W/m/K	0.46	レーザーフラッシュ法
熱膨張係数	10^{-7}/℃	122	押し棒式変位検出法
融　点	℃	520	熱重量示差熱分析（TG-DTA）
ガラス転移温度	℃	300	熱重量示差熱分析（TG-DTA）

2.3.3　ヨウ素放出挙動評価のアプローチ方法

BPI ガラス固化体の長期性能評価のためのヨウ素放出機構については、ヨウ素をガラス中に均一に分散することにより、ヨウ素の溶出を高レベルガラス固化体と同様にガラスマトリクス溶解で制限できる可能性がある。そのため、BPI ガラス固化体の化学構造に関する分析と微視的構造を検討することで、ガラスの溶解に関する基礎的な知見が必要となる。

また、ヨウ素浸出機構の詳細化のため、実際の処分環境を想定した多様な条件下における浸漬試験等により、BPI ガラスの溶解とヨウ素やガラス成分の放出挙動を把握することで、長期的なヨウ素放出メカニズムを理解する必要がある。BPI ガラス固化体の長期性能評価のためのヨウ素放出モデルへのアプローチ方法を図 2.3.3-1 に示す。

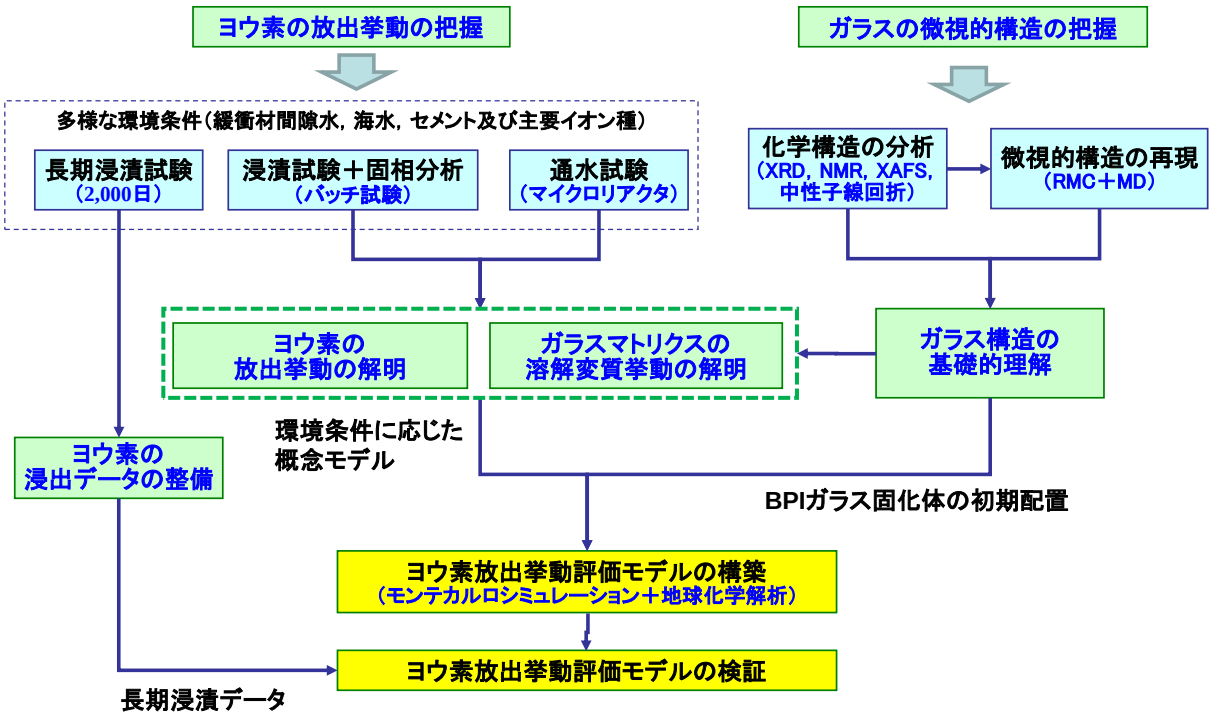


図 2.3.3-1　ヨウ素放出挙動評価のアプローチ方法

2.3.4　BPI ガラス固化体の化学構造の詳細検討

BPI ガラス固化体の性能を評価するためには、ガラス固化体そのものの溶出挙動とヨウ素放出挙動の解明及び物理・化学的な長期安定性に関する評価が重要であり、そのための基礎データとして、ガラスの構造や物理・化学的な特性に関する理解が不可欠である。

高レベルガラス固化体については分子動力学法等のナノスケールモデルによる解析が試みられ、将来的にはガラスの溶解等の挙動解明やモデル化への発展が期待されている。

そのため、BPI ガラス固化体の構成元素であるホウ素、鉛、酸素、ヨウ素、亜鉛及びビスマスについて、①核磁気共鳴分光法（^{11}B MAS NMR）、②X 線光電子分光（XPS）、③X 線回折（XRD）、④X 線吸収微細構造（XAFS）及び⑤中性子線回折（ND）等を使用して分析を実施した。（表 2.3.4-1 参照）各試料を分析した結果、BPI ガラス固化体のホウ素の配位数、鉛の結合及びヨウ素の化学形態等についての情報が得られている（表 2.3.4-2）。

表 2.3.4-1　BPI ガラス固化体の化学構造分析一覧表

分析方法 / 分析試料	XRD	NMR	XPS		XAFS				ND
	動径分布関数	ホウ素周辺構造	酸素周辺構造	ヨウ素周辺構造	鉛周辺構造	ヨウ素周辺構造	亜鉛周辺構造	ビスマス周辺構造	ホウ素周辺構造
①66.7PbO＋33.3B_2O_3ガラス	○	○	○						○
②65PbO ＋ 30B_2O_3 ＋5ZnO ガラス	○	○	○		○		○		○
③BPI ガラス	○	○	○	○	○	○	○	○	○

表 2.3.4-2　BPI ガラス固化体の化学構造分析結果のまとめ

分析方法	分析結果
^{11}B MAS NMR	B3(3 配位)と B4(4 配位)との比は、いずれのガラスサンプルにおいても約 7:3 程度
XRD 分析	①2.4Åの Pb-O と 3.9Åの Pb-Pb のピークを確認 ②3 種類の BPI ガラス（ヨウ素濃度：0.2、1、2 wt%）の RDF は良く相似しており、バルク構造は類似
XPS 分析	①I 3d, O 1s, B 1s, Bi 4f 及び Pb 4f/4d/4p 等の光電子シグナル分離可能 ②BPI ガラス内のヨウ素存在状態は、ヨウ化物イオン（酸化数：－ 1）であり、選択的に Pb-I 結合を生成
XAFS	3 種類の BPI ガラス中のヨウ素周辺構造は同等
中性子線回折	軽元素である B 及び O によるホウ酸塩骨格に対してより高精度で構造再現

上記の分析結果を拘束条件として、リバースモンテカルロ法（RMC 法）により、BPI ガラス固化体の 3 次元構造を再現した。シミュレーション収束後の中性子及び X 線構造因子はいずれ

も実験により得られた曲線と良い一致を示し、ガラス構造について良好な再現性が確認された。[15]（図 2.3.4-1 参照）

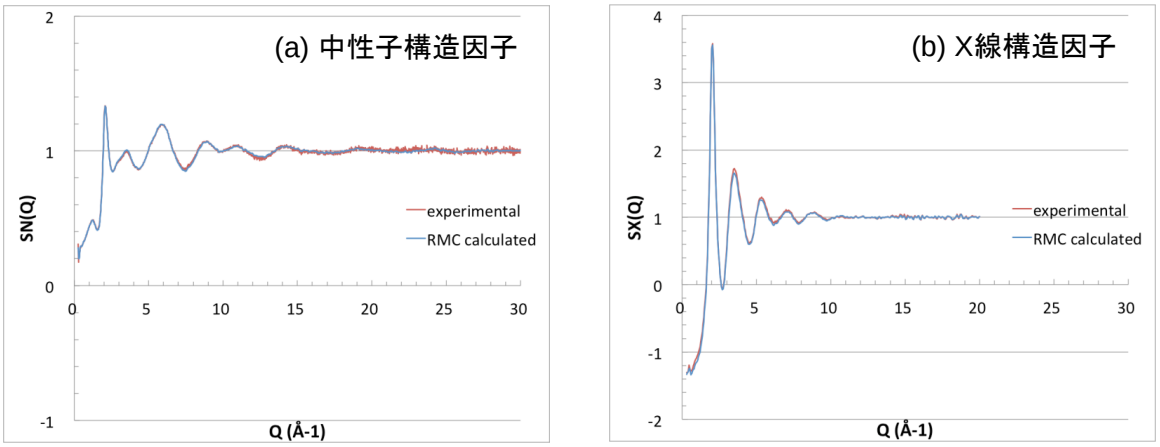


図 2.3.4-1　BPI ガラスの実測値及び RMC 計算による構造因子の比較

続いて、分子動力学法（MD 法）により配置構造の妥当性を有する分子構造と原子間相互ポテンシャルのモデル（MD モデル）の構築を目指し、各元素に関する原子間相互ポテンシャルを最適化し、その信頼性を高めることとした。具体的には、MD モデルにおける計算量の制約上、全粒子数 1184 粒子に減少させることにより、原子間相互ポテンシャルパラメータの最適化を目的とした繰り返し計算の効率性を高めた。その結果、これまでの RMC と比較して少ない粒子数での構造モデル化においても、構造解析実験で得られた構造関数を再現する構造モデルが得られることを確認した。上記において構築した RMC 構造モデルを初期構造として、密度汎関数法（DFT）計算により導出した原子間相互ポテンシャルを適用した MD 計算を実施し、MD 構造モデル中の種々の構造パラメータが RMC 構造モデルのそれらを維持するかに着目し、MD の適用性を検討した。BPI ガラス固化体の MD 構造モデルを図 2.3.4-2 に示す。また、原子間相互ポテンシャル下での O-B-O 結合角の分布の変化を図 2.3.4-3 に示す。O-B-O 結合角等については顕著な改善が見られ、正三角形と正四面体に近い BO_3 及び BO_4 構造単位が再現されていることが示唆された。このことから、RMC による乱れた初期構造に対して、局所的なエネルギー評価が適用されることにより、局所構造の秩序が向上したと考えられる。

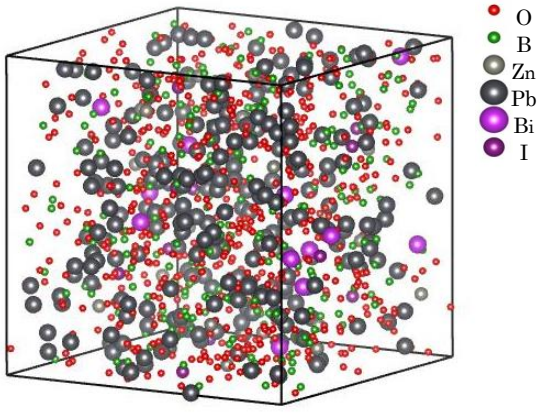


図 2.3.4-2　RMC 計算により得られた BPI ガラス固化体の構造モデル

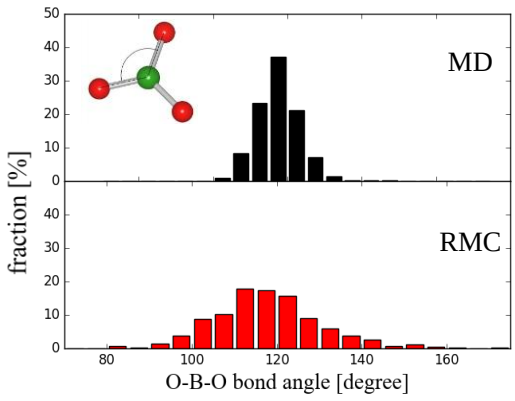
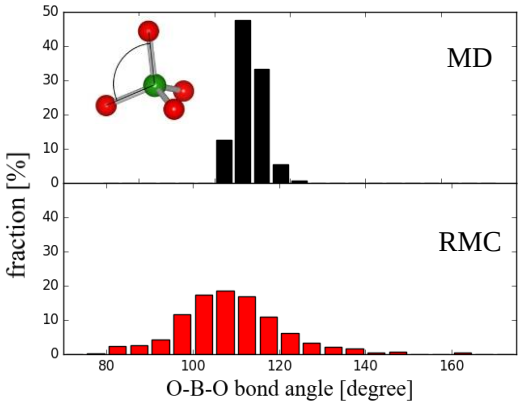
O-B(3)-O 結合角分布	B(4)-O 結合角分布
	

図 2.3.4-3　BPI ガラス固化体の RMC 及び MD 構造モデル中の O-B-O 結合角分布

2.3.5　BPI ガラス固化体からのヨウ素浸出機構の検討

BPI ガラスの性能を評価するためには、BPI ガラス固化体からのヨウ素放出挙動の解明及び BPI ガラス固化体の物理・化学的な長期安定性に関する評価が重要である。長期のヨウ素放出の評価は、短期試験で得られた浸出データの単純な外挿だけでなく、ガラスからのヨウ素放出に関する基本的事象の理解と浸出モデルの構築が必要となり、ガラスの特性に加え、処分環境の条件（地下水組成）の影響を理解することが重要となる。

BPI ガラスからのヨウ素の放出挙動を把握するための試験として、多様な環境条件における浸漬試験を実施し、処分環境を考慮したベントナイト平衡水や代表的な地下水組成について、ガラスの溶出挙動と主要成分であるホウ素、ヨウ素および鉛等の浸出挙動を把握するための試験・評価を実施してきた。多様な環境条件における浸漬試験一覧を表 2.3.5-1 に示す。

表 2.3.5-1　多様な環境条件における浸漬試験一覧

試験条件	浸漬液の種類	溶液性状	雰囲気		還元剤	SA/V (cm^{-1})
			大気	低酸素		
溶液種類	イオン交換水	pH9、pH11、pH12.5	○	○	電解鉄	0.1
	NaCl 溶液	0.0055M、0.055M	－	○	電解鉄	0.1
		0.55M	○	○	電解鉄	0.1
	模擬海水	0.55M NaCl＋0.05M $NaHCO_3$	－	○	電解鉄	0.1
	模擬海水共存イオン影響	硫黄（HS^-）の影響（0.5、30mM Na_2S）	－	○	電解鉄	0.1
		リン酸の影響（3×10^{-4}mM NaH_2PO_4）				
	ベントナイト平衡水	クニゲル V1/イオン交換水＝1/50 (g/ ml)	○	○	電解鉄	0.1
	模擬海水を使用したベントナイト平衡水	クニゲル V1/模擬海水＝1/50 (g/ ml)	－	○	電解鉄	0.1
	ベントナイトセメント平衡水	OPC セメント/クニゲル V1 平衡水 HFSC セメント/クニゲル V1 平衡水	－	○	電解鉄	0.1
	ベントナイト平衡水共存イオン影響	炭酸イオン、硫黄（HS^-）及びリン酸の影響	－	○	電解鉄	0.1
	降水系地下水共存イオン影響	リン酸の影響（3×10^{-3}mM NaH_2PO_4）	－	○	電解鉄	0.1
非調和溶解	イオン交換水	$Ca(OH)_2$ (pH9 に調整)	－	○	電解鉄	0.1
温度依存性	ベントナイト平衡水	10℃、40℃、60℃	浸漬	液調整	電解鉄	0.1
固液比	ベントナイト平衡水	クニゲル V1/イオン交換水＝1/50 (g/ ml)	－	○	電解鉄	0.17～9.0
ガラス原料(鉛丹)	ベントナイト平衡水	クニゲル V1/イオン交換水＝1/50 (g/ ml)	－	○	電解鉄	0.1
	降水系地下水	3.55mM $NaHCO_3$＋0.11mM $CaSO_4$	－	○	電解鉄	0.1
	模擬海水	0.55M NaCl＋0.05M $NaHCO_3$	－	○	電解鉄	0.1
	イオン交換水	$Ca(OH)_2$ (pH9 に調整)	－	○	電解鉄	0.1

(1) 地球化学計算に基づく試験条件の検討

BPI ガラス固化体が地層処分環境下に置かれた状態で想定される地下水性状及び人工バリア構成等を踏まえ、地球化学計算コードを使用したシミュレーションにより、水溶液条件下の Pb の化学種及び鉱物の析出可能性について解析した。

具体的には、我が国における代表的な地下水性状及び緩衝材平衡水を対象として、地球化学計算コード The Geochemist's Workbench v.11 中の Act2 を使用したシミュレーションにより、Pb の化学種及び鉱物の析出可能性について検討した。熱力学データとしては、JAEA 公開の 140331g0.tdb（2014 年 3 月版溶解度計算用 TDB）を使用した。

緩衝材平衡水を対象とした場合には、図 2.3.5-1 に示すように、ハイドロセルサイト（$Pb_3(CO_3)_2(OH)_2$）及びセルサイト（$PbCO_3$）が生成する結果が得られている。本解析結果は、浸漬試験後の固相分析結果とも整合的であることが確認されている。また、我が国の代表的な地下水を対象として解析した結果、降水系地下水と海水系地下水のいずれにおいても、パイロモルファイト（$Pb_5(PO_4)_3Cl$）が生成する結果が得られた。これは、地下水中にリンと塩素が存在するためであるが、現在までの浸漬試験後の固相分析では、パイロモルファイトは確認されていない。

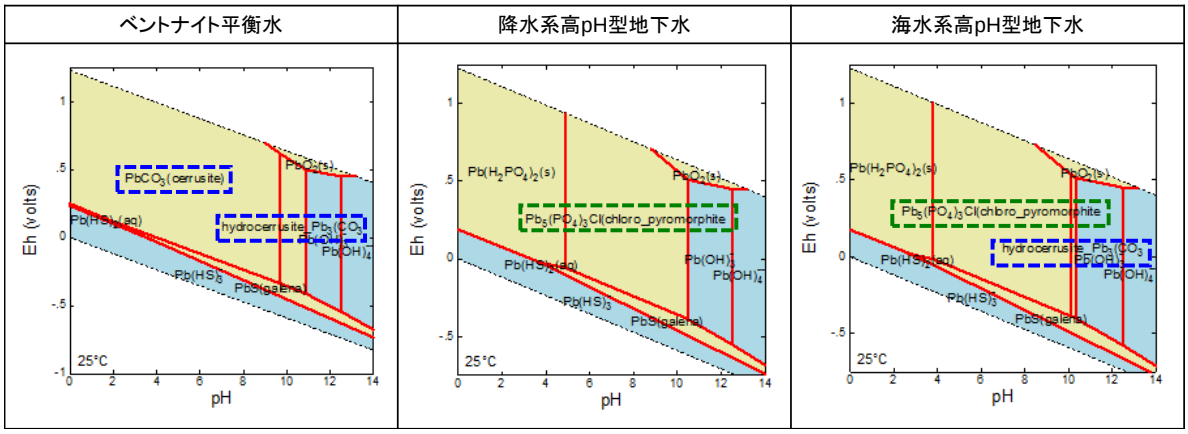


図 2.3.5-1　ベントナイト平衡水における平衡計算結果

(2) ベントナイト平衡水の浸漬試験

ベントナイト平衡水に浸漬した BPI ガラス試料の SEM 画像と SEM 画像から計測した変質層の厚さ及びホウ素溶出量から計算した変質層の厚さの関係を図 2.3.5-2 に示す。表面変質層の厚さは時間とともに増加するが、徐々に低下していく傾向が見られる。SEM の観察結果から評価した表面変質層の厚さの経時変化は、ホウ素浸出量と対応している。

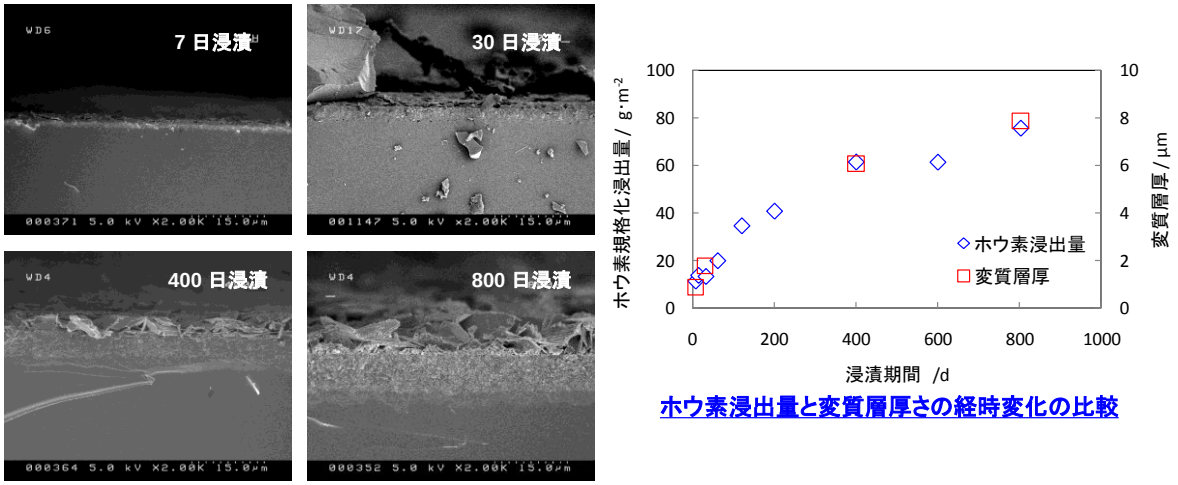


図 2.3.5-2　変質層の SEM 画像と変質層の厚さ

浸漬試験後の BPI ガラスの表面変質層の XRD パターンは図 2.3.5-3 に示すとおりであり、浸漬期間 7 日～800 日までの全期間において主要なピークは、全てハイドロセルサイトに帰属

された。ハイドロセルサイトの炭酸源は、ベントナイト平衡水(クニゲル V1 とイオン交換水を 1：50 の比率で混合し、1 ヶ月振とう後にろ過した溶液)中の CO_3^{2-}に由来するものと考えられる。

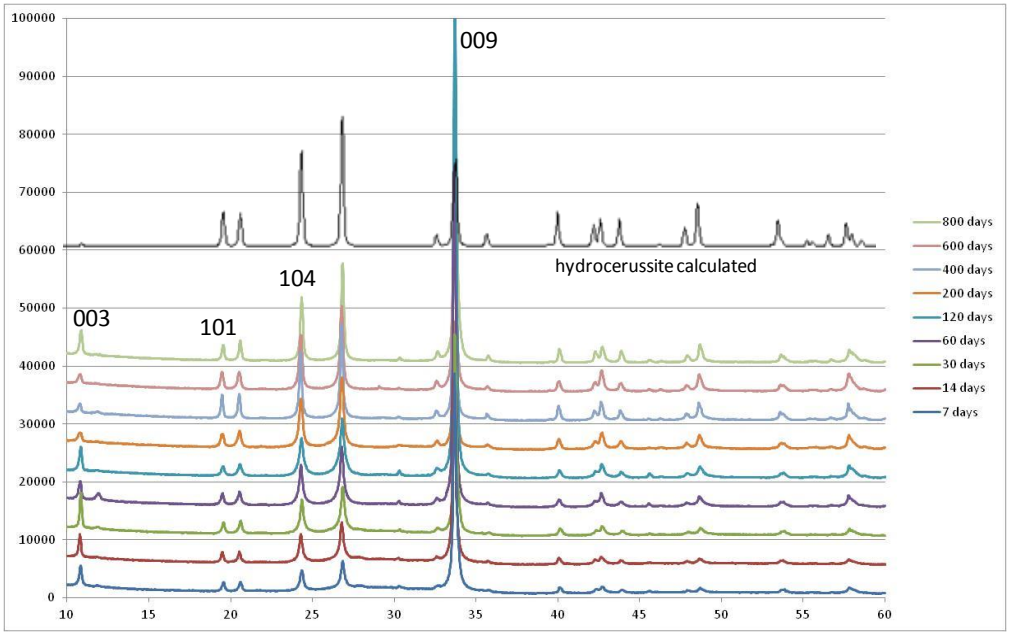


図 2.3.5-3　BPI ガラス固化体変質層の XRD パターン

(3) 降水系地下水の浸漬試験

上記に続いて、降水系地下水での BPI ガラスの溶解挙動と生成する固相を確認するため、模擬地下水を使用した浸漬試験を実施した。降水系地下水の代表的なイオンとして、炭酸イオンと硫酸イオンの影響を確認するため、模擬降水系地下水（3.55mM $NaHCO_3$＋0.11mM $CaSO_4$）を使用した浸漬試験を実施した。その結果、ヨウ素とホウ素は調和的に溶解するとともに、ホウ素とヨウ素の規格化浸出量はベントナイト平衡水よりも低いことが確認された。

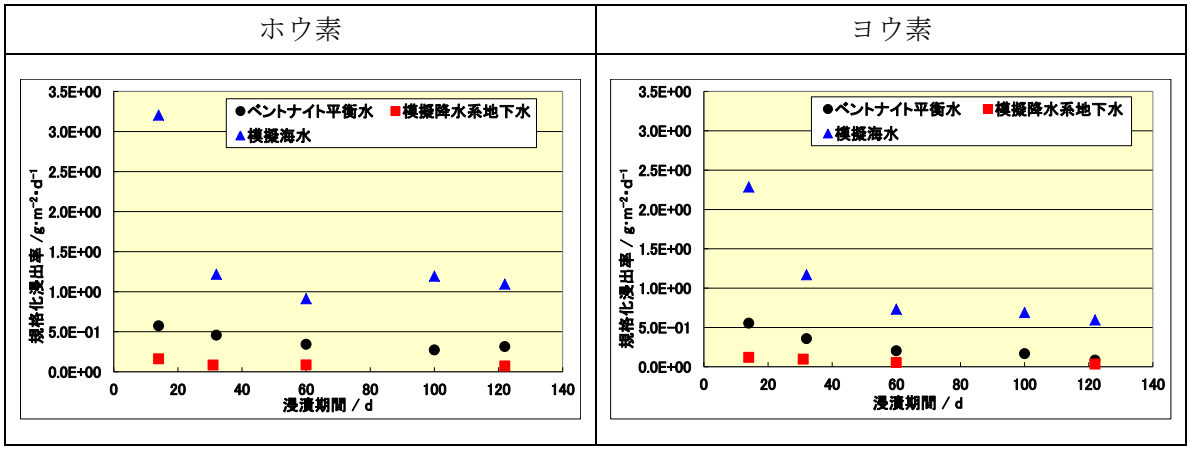


図 2.3.5-4　模擬降水系地下水浸漬試験でのホウ素およびヨウ素の規格化浸出率

(4) 共存イオン濃度依存性確認試験

BPI ガラスが地層処分環境下において溶解する過程においては、その主要構成物質である鉛

が炭酸イオンと反応し、難溶性のハイドロセルサイトまたはセルサイトが変質層を形成することが確認されている。そこで、炭酸イオン濃度がホウ素とヨウ素の規格化浸出量に与える影響を詳細に確認するために、炭酸イオン濃度の異なる浸漬試験を実施した結果、ホウ素とヨウ素の規格化浸出量は炭酸イオン濃度が 0.05M を超えると上昇するが、試験範囲内では調和溶解であることが確認された。（図 2.3.5-5 及び図 2.3.5-6 参照）

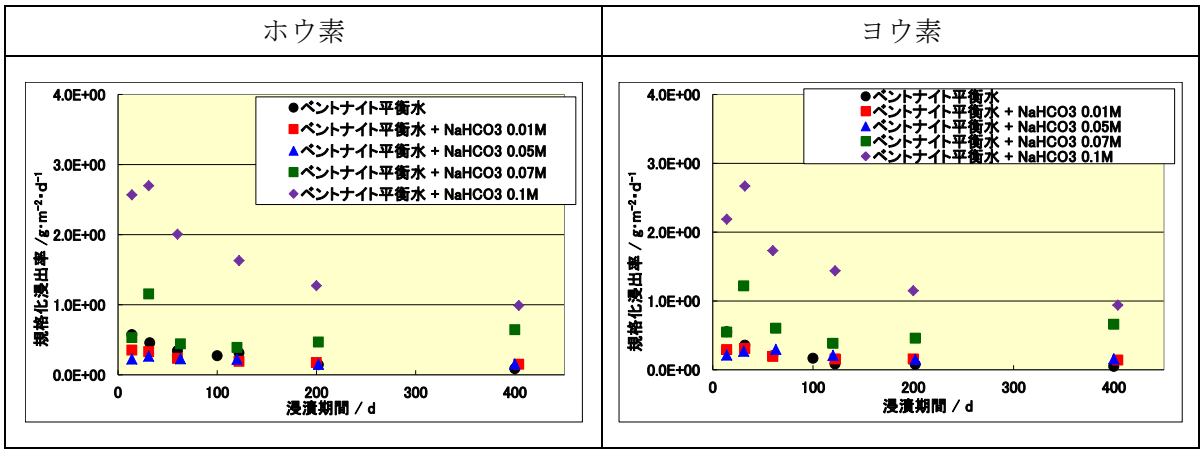


図 2.3.5-5　炭酸イオン影響確認試験におけるホウ素およびヨウ素の規格化浸出率

試験条件	SEM画像	XRD
ベントナイト平衡水＋0.01M CO_3	変質層(12μm)は、ハイドロセルサイトで形成されている。表面も、三角板状のハイドロセルサイトで形成されている。	XRDパターンは、ハイドロセルサイトのピークで説明できる。
ベントナイト平衡水＋0.1M CO_3	変質層及び表面はセルサイト、健全層との境界にはハイドロセルサイトが形成されている。	XRDパターン、セルーサイトのピークでほぼ説明できる。

図 2.3.5-6　変質層の固相分析結果（浸漬期間：600 日）

続いて、地下水中に含まれる硫黄の影響を確認するため、模擬海水に 0.5 及び 30mM Na_2S を添加した浸漬試験を実施した。その結果、ヨウ素とホウ素は調和的に溶解するとともに、ホウ素やヨウ素の溶出は抑制されることが確認された。

また、30mM Na_2S を添加した浸漬試験では、ホウ素及びヨウ素の規格化浸出率は非常に小さい。純水中に NaS が存在する場合の地球化学解析に基づけば、ガレナ（方鉛鉱：PbS）が

形成される。浸漬試験終了後の試験体の表面は銀色の光沢があることから、ガレナが形成され、これが保護膜として機能している可能性がある。また、明瞭な表面析出物及び変質層が観察されていないことは、規格化浸出率は小さいことと整合的である。

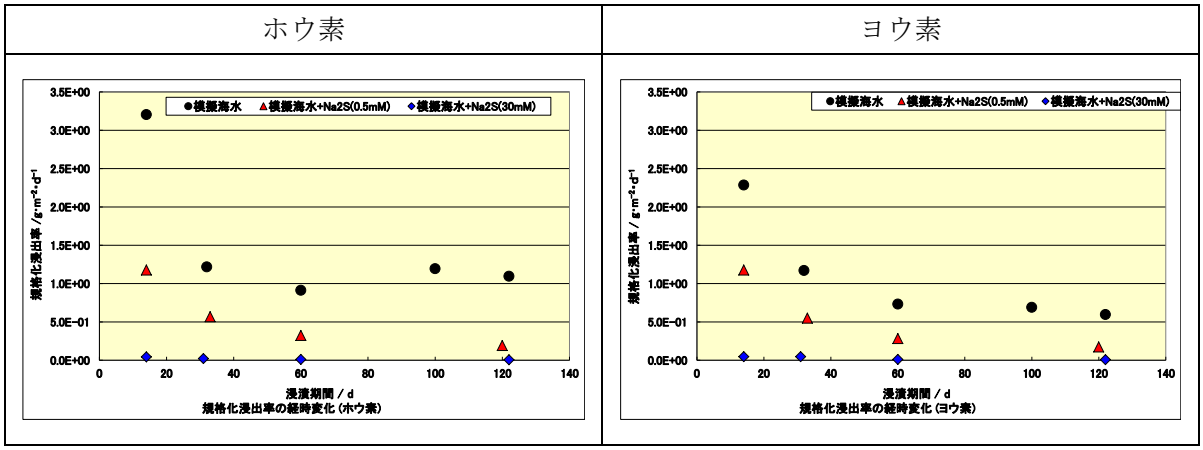


図 2.3.5-7　HS-の影響確認試験におけるホウ素およびヨウ素の規格化浸出率

0.5mM Na_2S を添加した浸漬試験体の表面変質層を XRD 測定したところ、ほとんどのピークはセルサイトで説明することができたが、表面に黒い析出物を測定したところ、ガレナ（PbS）の弱いピークが確認された。一方、30mM Na_2S を添加した浸漬試験体の表面は金属光沢が認められたが、XRD パターンからは、強い鋭いピークは見られなかった。ただし、弱い 6～7 本のピークは観察されたことから、何らかの結晶相の析出が起きていると考えられる。（図 2.3.5-8 参照）

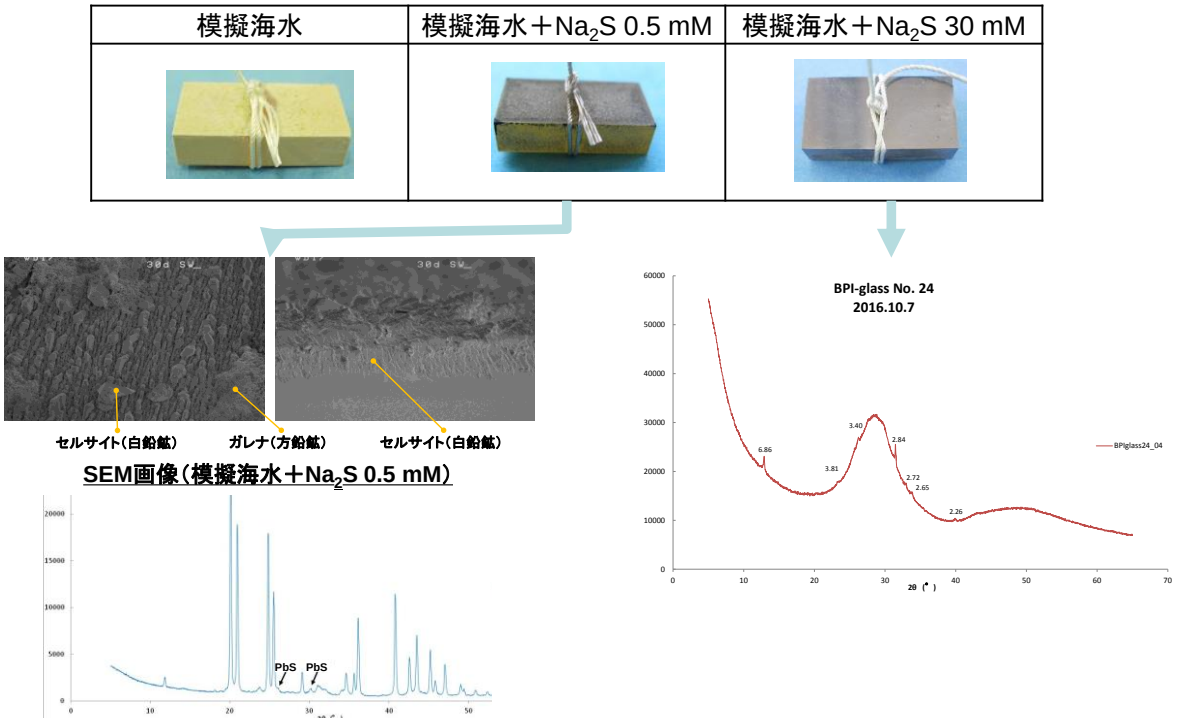


図 2.3.5-8　変質層の固相分析結果

さらに、模擬降水系地下水にリン酸を添加した浸漬試験（模擬降水系地下水＋3×10^{-3}mM

NaH_2PO_4＋1.5×10^{-2}mM NaCl）を実施した結果、ヨウ素とホウ素は調和的に溶解し、規格化浸出率は若干低下することが確認された。（図 2.3.5-9 参照）

同様に、模擬海水（0.55M NaCl＋0.05M $NaHCO_3$）にリン酸を添加した浸漬試験（模擬海水＋3×10^{-4}mM NaH_2PO_4）においても、ヨウ素とホウ素は調和的に溶解し、規格化浸出率は若干低下することが確認された。（図 2.3.5-10 参照）

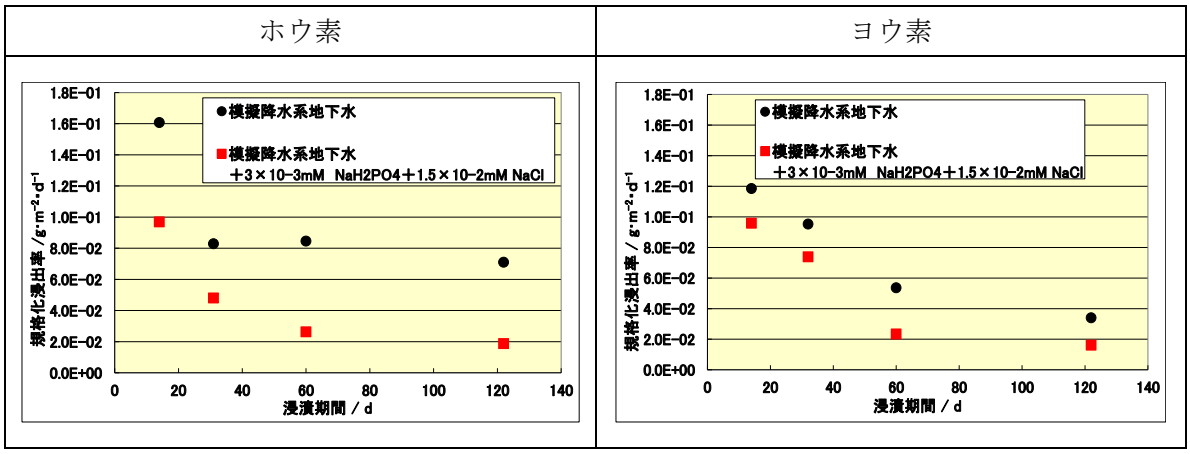


図 2.3.5-9　リン酸影響確認試験での規格化浸出率（模擬降水系地下水）

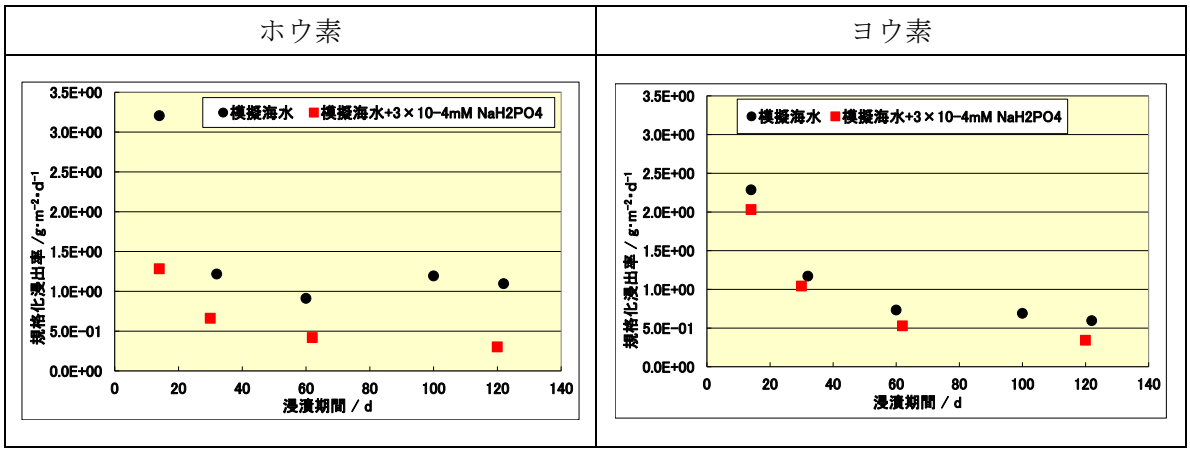


図 2.3.5-10　リン酸影響確認試験での規格化浸出率（模擬海水）

(5) 長期浸漬試験

平成 25 年度までに 800 日までの浸漬データを取得したが、さらに長期の 2,000 日の浸漬試験データが取得された。ヨウ素の規格化浸出量と√t の関係から、2000 日の結果も 800 日までの結果と同一直線上で近似された。

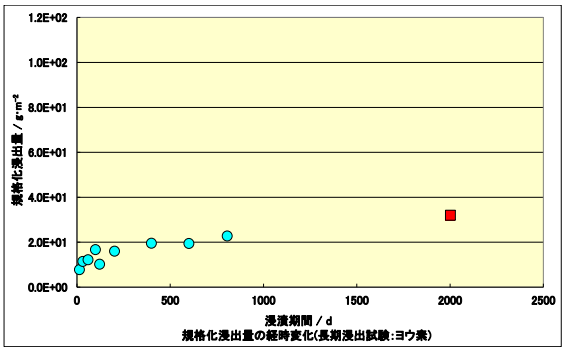
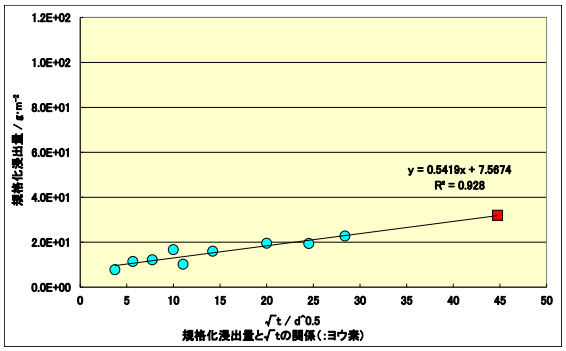
ヨウ素の規格化浸出量の経時変化	ヨウ素の規格化浸出量と平方根則の関係
	

図 2.3.5-11　BPI ガラスの長期浸漬試験結果

(6) ひび割れの影響確認試験

従来の浸漬試験では 2×1×0.5cm サイズの試験体を使用していたが、BPI ガラス固化体のひび割れがヨウ素の浸出率に対する影響を確認するため、SA/V 比（浸漬試料の表面積と浸漬液量の比）の異なる試験体を複数準備し、BPI ガラス固化体の溶解挙動及び主要元素の浸出挙動を確認した。（表 2.3.5-2 参照）

表 2.3.5-2　S/V 比の異なる試験体の浸漬試験

試　料	試料サイズ	試料個数	浸漬液量	SA/V（cm^{-1}）
レファレンス	0.5cm×2cm×1cm	1	70mL	0.10
小ブロック	0.5cm×0.5cm×0.5cm	8		0.17
粉体（粗砕）	0.1cm	－		0.90
粉砕（微砕）	0.01cm	－		9.0

SA/V 比の異なる浸漬試験における各元素の規格化浸出率は、図 2.3.5-12 に示すとおりである。SA/V が大きくなるにつれて、規格化浸出率が低下する傾向が確認された。ホウ素は SA/V が大きいほど高くなる傾向があるものの、比表面積（SA/V）の増大に見合うほどの増加はなく、ヨウ素の濃度は SA/V に関わらずほぼ同じとなったため、ホウ素およびヨウ素鉛の規格化浸出率も SA/V が大きくなるにつれて小さくなった。同様に、JNC TJ8400 2004-019 によれば、ホウケイ酸ガラスにおいても比表面積が 10 倍に変化しても、ホウ素の浸出元素量（規格化濃度）は約 3.5 倍、ケイ素、セシウム等は 1.5 倍程度と報告されている。しかし、本試験においては SA/V=0.86 および 8.6 の試料形態は粉体であり、粉体間の隙間にあるベントナイト平衡水の移動（分散）が制限され、実質的な SA/V が設定値より小さくなり、そのために浸漬液中の元素濃度が SA/V の増大に見合うほどの増加しなかった可能性もある。

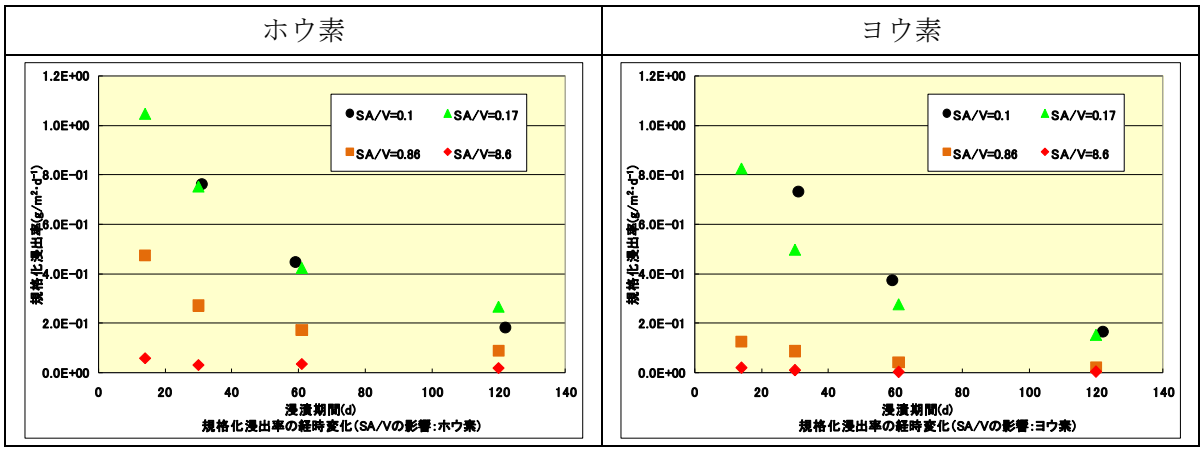


図 2.3.5-12　SA/V 比の異なる浸漬試験におけるホウ素とヨウ素の規格化浸出率

SA/V 比の異なる浸漬試験結果を踏まえた結果を図 2.3.5-13 に示す。上述したように、SA/V 比を変化させたサンプルによる浸漬試験結果からは、幾何表面積が増大するほどにはヨウ素の溶出量は増大しないことが示唆されている。

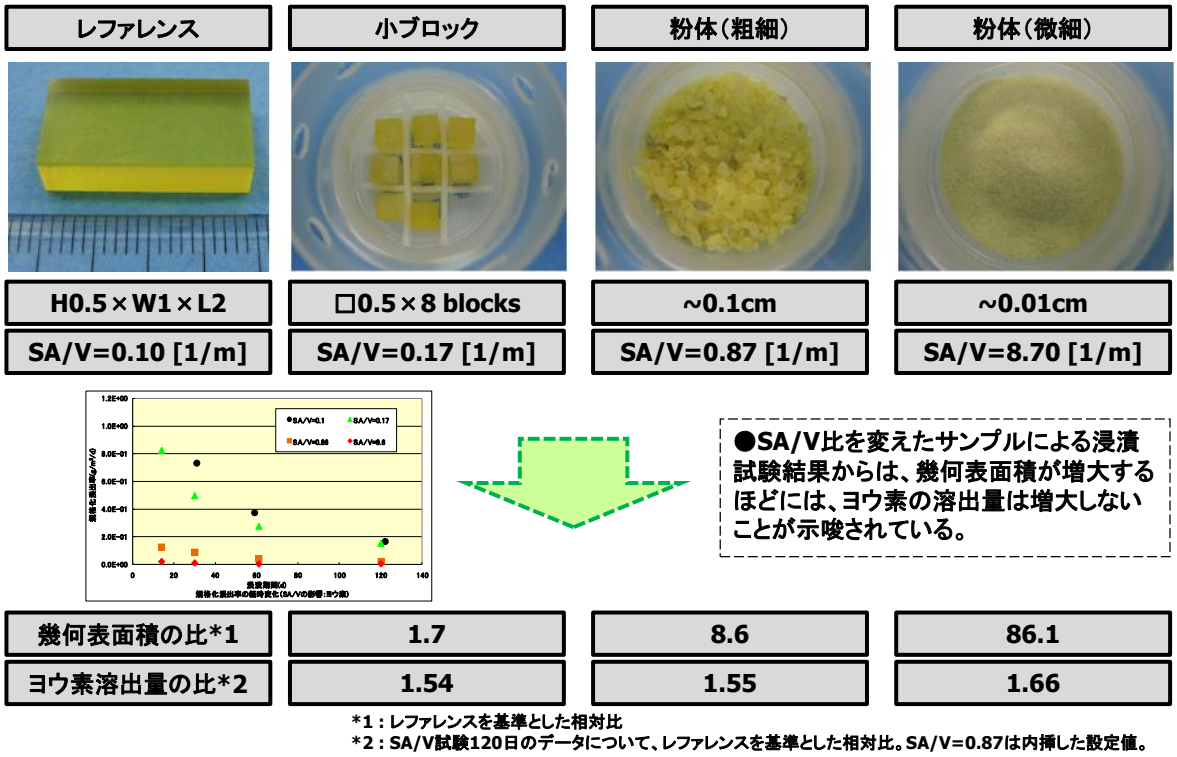


図 2.3.5-13　SA/V 比の異なる浸漬試験結果のまとめ

2.3.6　BPI ガラス固化体からのヨウ素放出モデルの検討

処分環境における BPI ガラス固化体からの長期のヨウ素浸出挙動の信頼性を確保するためには、短期間の浸出データの単純な外挿では不十分であり、浸出メカニズムを理解したうえでモデルを構築することが重要である。特に、本事業の開発目標であるヨウ素の浸出期間が 10 万年以

上であることを適切に説明するためには、BPI ガラス固化体からのヨウ素放出評価モデルを構築し、信頼性を高める必要がある。

(1) Monte Carlo シミュレーションの高度化検討

長期浸漬試験結果（浸漬液：ベントナイト間隙水）の再現性について検討した。Monte Carlo シミュレーションに使用した数値を表 2.3.6-1 に示す。また、シミュレーション結果を図 2.3.6-1 及び図 2.3.6-2 に示す。800 日浸漬試験に使用したパラメータを変更することなく、2,000 日の浸漬結果を良好に再現することができた。この期間内では、ガラスの溶解及び変質メカニズムは変化していないと考えられる。

表 2.3.6-1　Monte Carlo シミュレーションに使用した数値

Pb 溶解度（M）	1×10^{-6}
結合に関するパラメータ	B=2.0, Pb=3.2, Bi=3.2, Zn=3.0
実効拡散係数（m^2/s）	1.8×10^{-19}

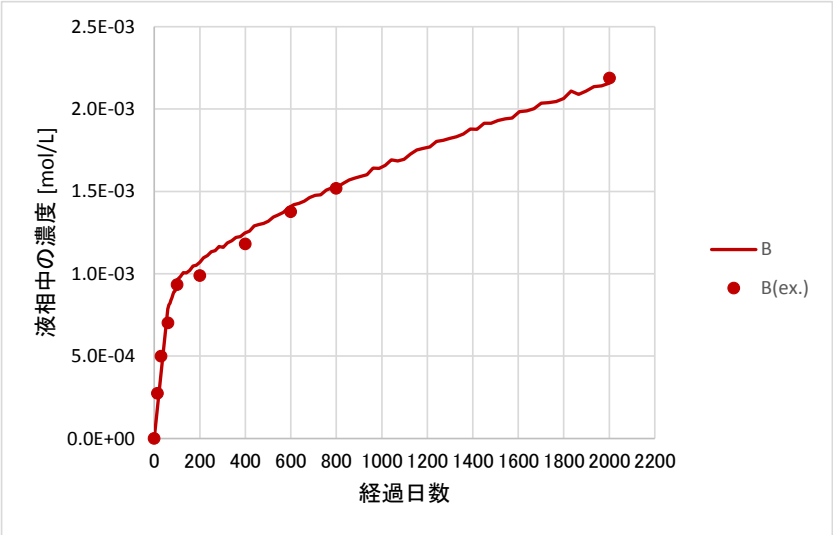


図 2.3.6-1　ホウ素濃度に関する Monte Carlo シミュレーション結果

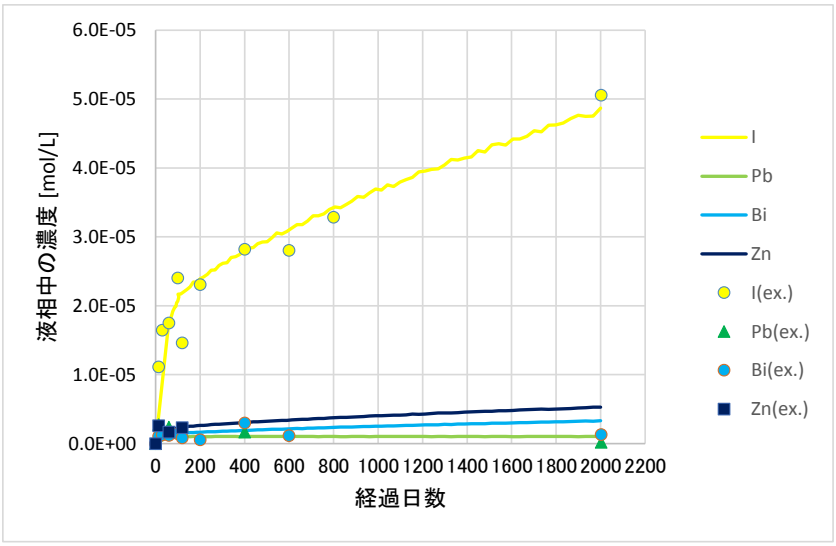


図 2.3.6-2　ヨウ素、鉛、ビスマス及び鉛濃度に関する Monte Carlo シミュレーション結果

また、変質層の厚さ及び成分比に関する解析結果を図 2.3.6-3 に示す。変質層の厚さは、浸漬試験をほぼ再現できている。また、変質層の成分比分布は、変質層には B、Zn 及び I は存在しないことを示している。

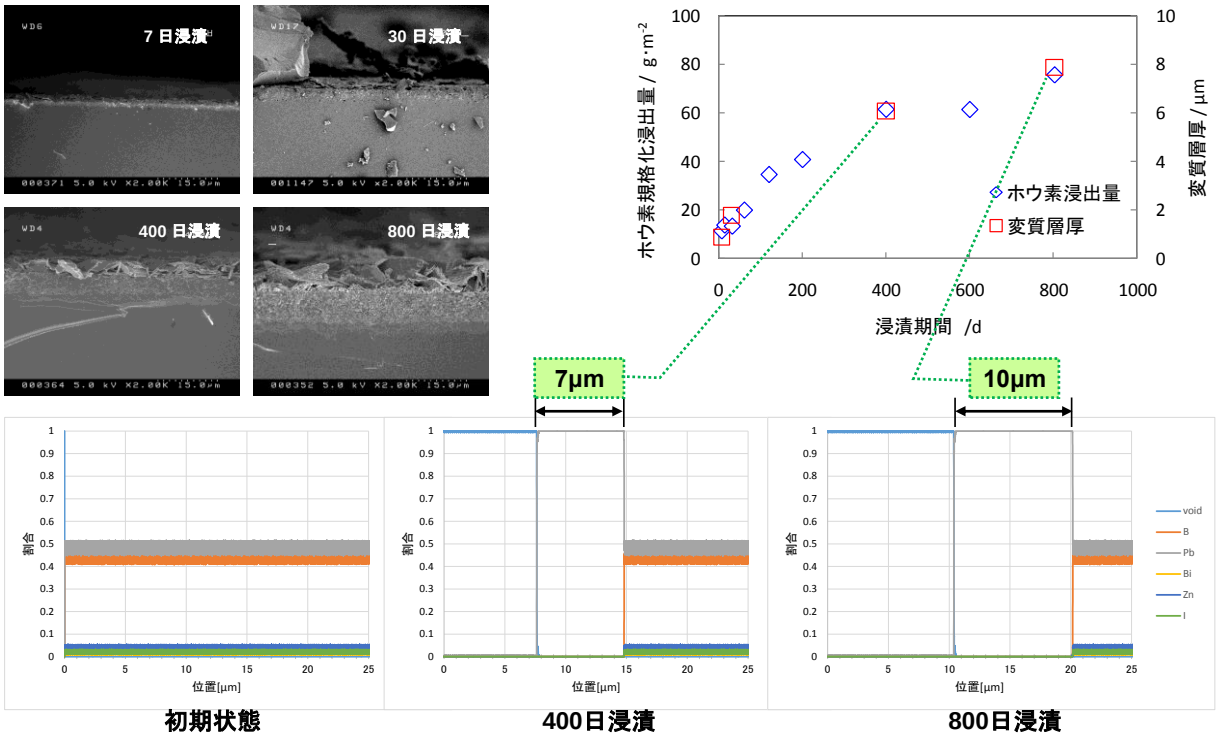


図 2.3.6-3　変質層厚さと組成割合に関する Monte Carlo シミュレーション結果

(2) BPI ガラス固化体の寿命評価

ヨウ素の規格化浸出量の経時変化に(1)式に示す拡散則を適用し、各浸漬条件における BPI ガラス固化体中のヨウ素を放出する期間を計算した。(1)式から、ある規格化浸出量に到達する時間は(2)式で表されるので、固化体が全量溶解する時間（ヨウ素を放出する期間）は、固

化体の重量と表面積から計算できる。なお、BPI ガラス固化体の重量は、キャニスタ 1 本分の重量として 10^6g/体とし、表面積は 1.7m²/体を使用した。

$$NL = a \times \sqrt{t} + b \quad \cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots (1)$$

$$t = \left((NL - b)/a\right)^2 \quad \cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots (2)$$

NL：規格化浸出量 [g/m²]，a：定数 [g/m²/d$^{0.5}$]，t：時間 [day]，b：定数[g/m²]

BPI ガラスの寿命をセメント影響（pH で代表、横軸）と海水影響（炭酸イオン濃度で代表、縦軸）で評価した結果を図 2.3.6-4 に示す。図中プロット脇の数字は、BPI ガラスの寿命を年単位で示しており、黒数字は 10 万年以上の寿命を、赤数字は 10 万年以下の寿命であることを示している。pH11 以下では、炭酸イオン（ここでは、無機炭素濃度として表示）濃度が 0.05M より高くなると 10 万年以下の寿命となる傾向が認められるが、同じ炭酸イオン濃度でもリン酸イオンや HS-共存下では寿命が長くなっている。pH11 以下における BPI ガラスの寿命と炭酸イオン濃度の関係を図 2.3.6-5 に示す。非常に低濃度のリン酸イオン（3×10^{-7}～3×10^{-6}M）が共存しただけで、固化体に寿命は 1 桁から 2 桁向上した。同様に HS^-も共存量高いほど固化体の寿命が長くなる傾向が認められた。

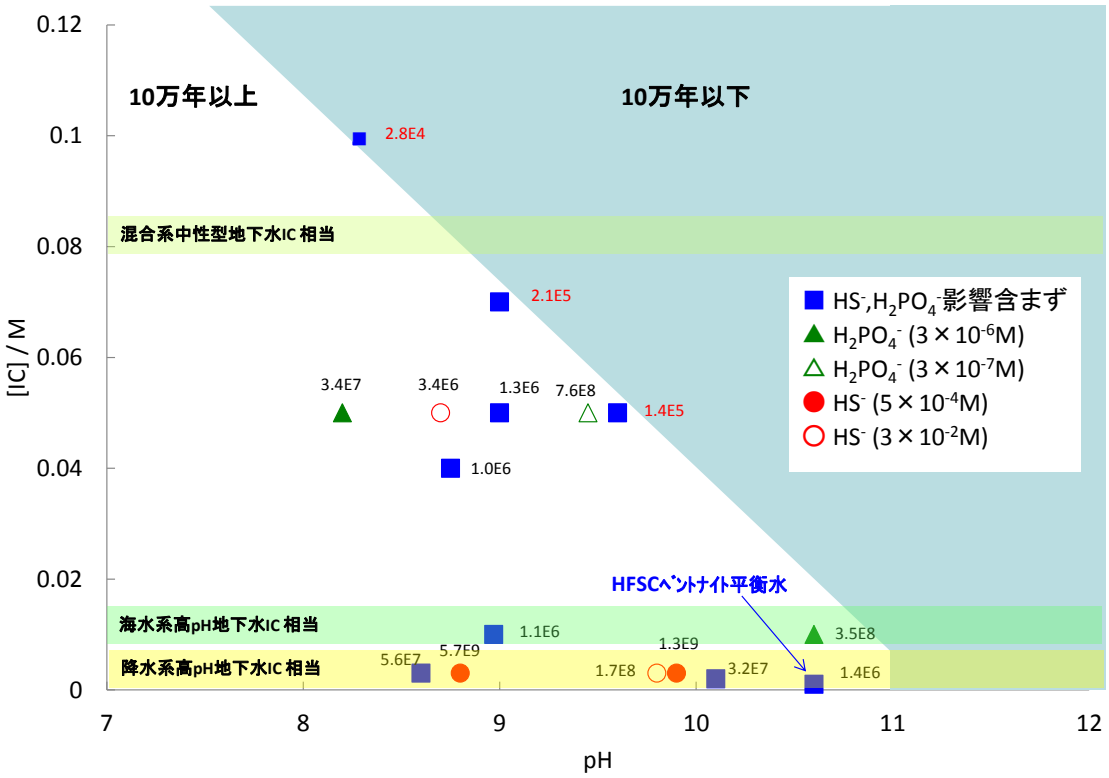


図 2.3.6-4　BPI ガラスの寿命評価

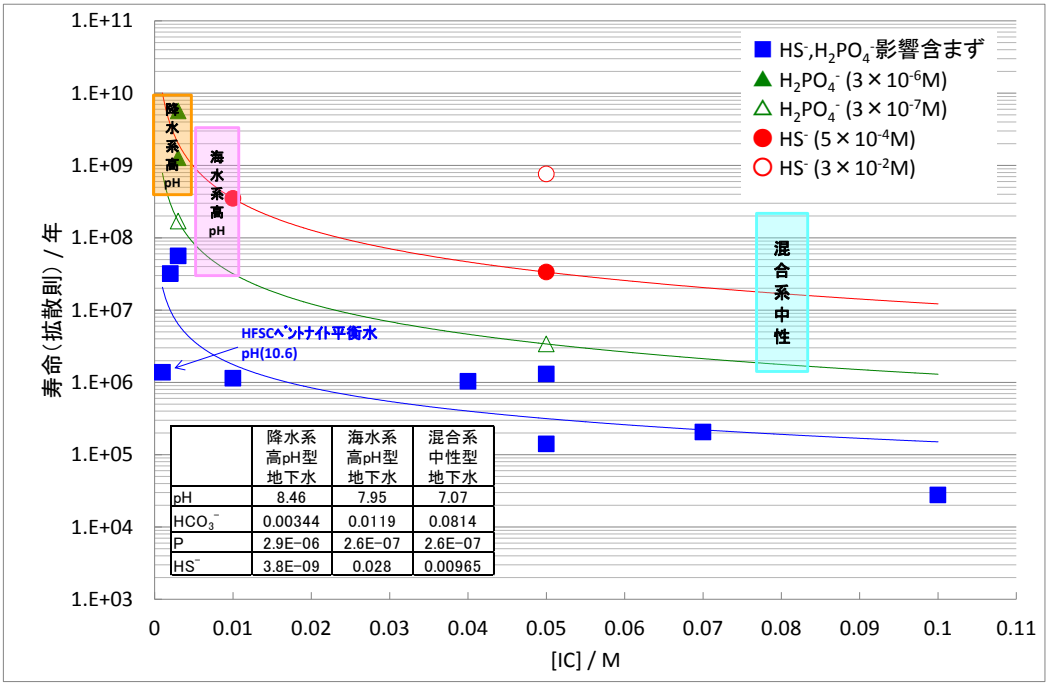


図 2.3.6-5　BPI ガラスの寿命と炭酸イオン濃度の関係

2.3.7　BPI ガラス固化技術のまとめ

BPI ガラス固化体の化学構造の詳細検討として、リバースモンテカルロ法で再現した 3 次元構造モデルを対象とし、結合エネルギーの感度解析を実施した結果、鉛の結合エネルギーが大きくなれば、液相中の鉛およびホウ素の濃度上昇は緩やかになるとともに、ガラスの変質が遅くなり、厚みが減少することが確認された。また、BPI ガラス固化体の溶出モデルを構築するために、表面構造の設定及び溶出の素過程のモデル化について検討した結果、BPI ガラスの構造モデルを用いた溶出過程のモデル化が可能であることが示された。しかしながら、表面変質層を含めた溶出過程の表面構造を化学構造の観点で理解し、エネルギー的な側面で評価するとともに、溶出化学種の濃度を評価し、熱力学計算と結合することにより精密なモデル化への展開が必要である。

BPI ガラス固化体からのヨウ素浸出機構を解明するため、多様な地下水環境条件で得られた試験結果を整理し、BPI ガラス固化体の性能に関する情報を体系的に構築するとともに、その寿命を評価した。また、ホウ素とヨウ素が非調和溶解になる浸漬試験を実施し、PbI_2 が形成されるかどうかを固相分析により確認し、想定した仮定及び地球化学シミュレーション結果との整合性を確認するとともに、異なる温度条件で浸漬した固化体や海水系ベントナイト平衡水に浸漬した固化体の固相分析を実施し、その影響を確認した。さらに、ベントナイト平衡水中での 2,000 日の浸漬試験データが取得された。今後は、PO_4^{3-}及び HS^-の添加量を増量した浸漬試験を実施し、パイロモルファイト及びガレナが生成するかどうかを確認するとともに、これらが保護層として機能するかどうかを確認する必要があると考えられる。また、炭酸塩影響確認試験を継続実施し、ハイドロセルサイトの生成が長期的に支配的であるかどうかを観察する必要がある。

BPI ガラス固化体からのヨウ素放出モデルの検討として、Monte Carlo シミュレーションについては、長期浸漬試験結果の再現性を検討したところ、800 日浸漬試験と使用したパラメータを

変更することなく、2,000 日の浸漬結果を良好に再現することができた。また、変質層の厚さについても、浸漬試験をほぼ再現できたが、鉛の液相中の濃度は再現できていないことから、さらなる検討が必要である。反応移動連続体モデルについては、昨年度までのモデルに時間依存項を追加し、浸漬試験結果の再現を試みたが、十分に再現することはできなかった。今後は、海外研究機関におけるモデル化について詳細に調査するとともに、必要に応じてモデルを改良し、長期的な溶出メカニズムを再現することを検討する必要があると考えられる。

2.4　セメント固化技術

2.4.1　緒言

本セメント固化技術は、陰イオンに対する収着性の高いセメント鉱物であるエトリンガイト（AFt）やモノサルフェート（AFm）の含有量を高めることで、陰イオン形態のヨウ素を化学的に閉じ込めるヨウ素固定化技術であり、TRU 廃棄物グループ 1 の代替固化技術として位置づけられている[2]。固化材料としてアルミナセメント、二水石膏を用い、混練水中のヨウ素形態をヨウ素酸イオン（IO_3^-）とすることで、ヨウ素をセメント固化体中に固定化することができる（セメント固化体と称する）。セメント固化体の鉱物相組成を表 2.4.1-1 に示す。なお、HG については XRD による結晶構造は同定されていない。図 2.4.1-1 に現状想定されているセメント固化体中でのヨウ素酸イオンの存在状態を示す。ヨウ素は、これらの鉱物の溶解にともなって放出されると考えられる。

表 2.4.1-1　セメント固化体の組成

組　成		割合
アルミン酸硫酸カルシウム系鉱物 エトリンガイト（AFt）	$Ca_6[Al(OH)_6]_2 \cdot 24H_2O(SO_4)_3 \cdot 2H_2O$	13 %
モノサルフェート（AFm）	$[Ca_2Al(OH)_6]_2(SO_4) \cdot 6H_2O$	21 %
ハイドロガーネット（HG）	$3CaO \cdot Al_2O_3 \cdot 6H_2O$	17 %
ギブサイト・アルミナゲル（Al 相）	$Al(OH)_3$	33 %
その他	（未水和成分含む）	16 %

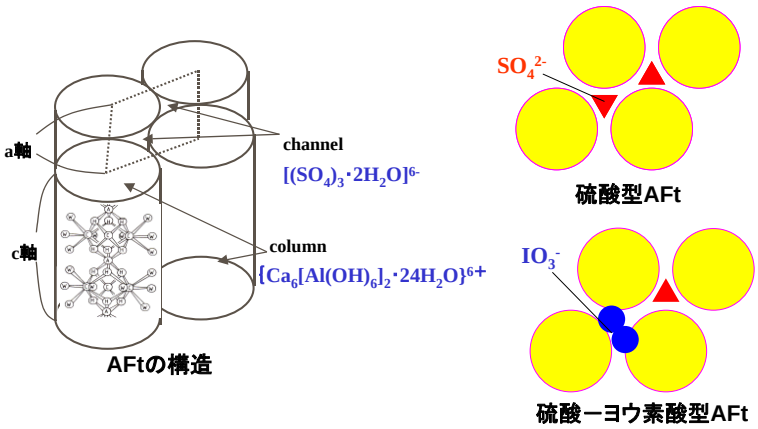


図 2.4.1-1　セメント固化体中での IO_3^- 存在状態の想定

セメント固化プロセス概要を図 2.4.1-2 に示す。本プロセスは、前処理プロセスと固定化プロセスとから構成される。このうち前処理プロセスは、廃銀吸着材からのヨウ素の脱離を硫化ナト

リウム（Na_2S）による還元処理で行なう脱離工程と、二次廃棄物低減の観点からヨウ素の酸化処理をオゾンにより IO_3^- 形態に転換する転換工程からなる。混練の最適条件は、水／セメント比 0.56、濃縮溶液中の IO_3^- 濃度 0.4 mol·dm^{-3} としている。実際のヨウ素固定化セメントサイズとして、200 L ドラム缶規模を想定して検討を進めてきており、これまでに 200 L ドラム缶規模の 1/10 スケールである 20 L ペール缶規模で固化体を作製した実績がある。

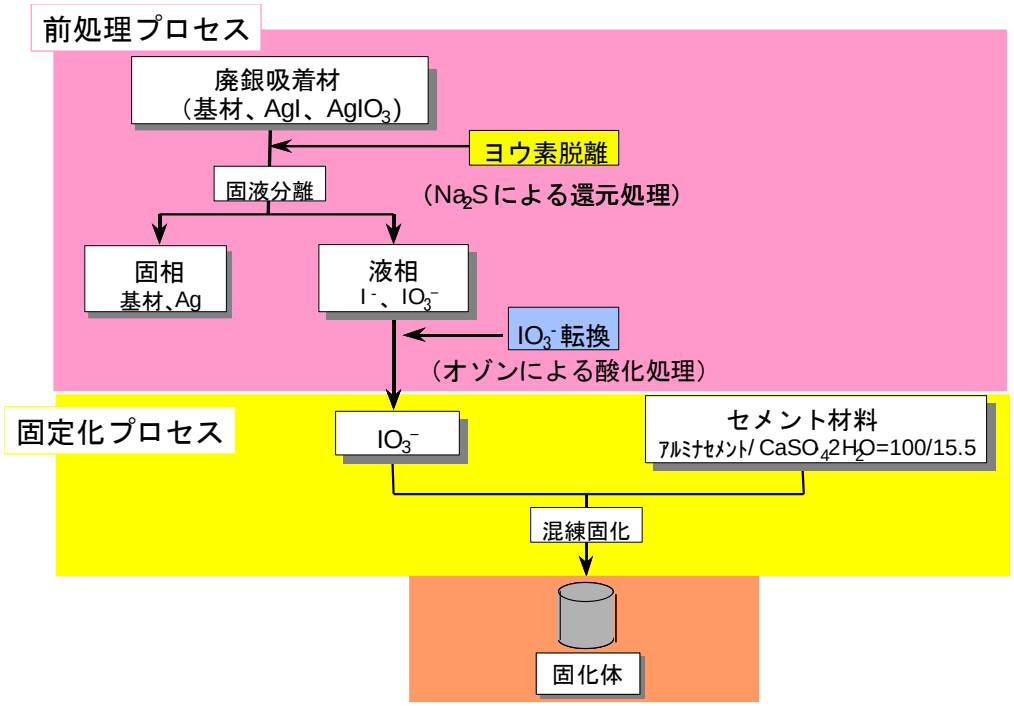


図 2.4.1-2　廃銀吸着材中のヨウ素のセメント固化プロセスの概要

これまでにセメント固化体の性能を評価するため、主にセメント固化体のヨウ素閉じ込め性能に関して検討してきた。セメント固化体の長期にわたるヨウ素閉じ込め性能を評価するためには、閉じ込めおよび放出の機構を理解し、その機構に基づく解析評価モデルを構築することが望まれる。これまで、実験室スケールでのヨウ素放出の機構、ヨウ素の存在形態、セメント固化体中の水和物および評価上必要な物理量データの取得についての研究を進めてきており、平成 24 年度にまとめている[5]。セメント固化体粉末試料の液交換試験（加速的な浸出試験）により、ヨウ素を含む水和鉱物中の変化およびヨウ素放出量を評価できることが示されている。また、鉱物の溶解平衡に基づいたヨウ素放出モデルを構築し、これにより、実験結果をおおむね再現できることを示した。その一方で、セメント水和時の発熱によって固化体特性が影響を受けることがわかっており、固化体サイズのスケールアップに課題がある。したがって本技術開発では、スケールアップにともなう温度影響について検討を行った。さらに、熱影響を踏まえ、これまでに構築したヨウ素放出モデルについての検証も行い、技術開発の課題を整理した。

2.4.2　発熱影響による物性変化

本研究開発では、ヨウ素（IO_3)と親和性の高いセメント水和鉱物（エトリンガイト）の含有量を増加させたアルミナセメントを用いて、ヨウ素をセメント鉱物中に固定化するコンセプトを採用している。これまでの実験室スケールの試験により、セメント固化体中の鉱物組成や、ヨウ素を含む水和鉱物中の変化およびヨウ素放出量を評価できることが示されている。また、鉱物の溶解平衡に基づいたヨウ素放出モデルを構築した。その一方で、セメント水和時の発熱によって固化体特性が影響を受ける可能性がある（図 2.4.2-1)。そのため、スケールアップした固化体を作製し、養生時の温度変化測定したところ、図 2.4.2-2 に示すように、固化体サイズの 200 ml から 20 L への増大にともなって固化体内部温度が 30℃から 150℃に変化した[7][11]。その際、鉱物組成は変化しないが、ヨウ素固定層がエトリンガイトからハイドロガーネット（HG）へ変化した[11]。このことから、エトリンガイトへのヨウ素固定化をコンセプトとした固化体評価の見直しが必要と考えられる。

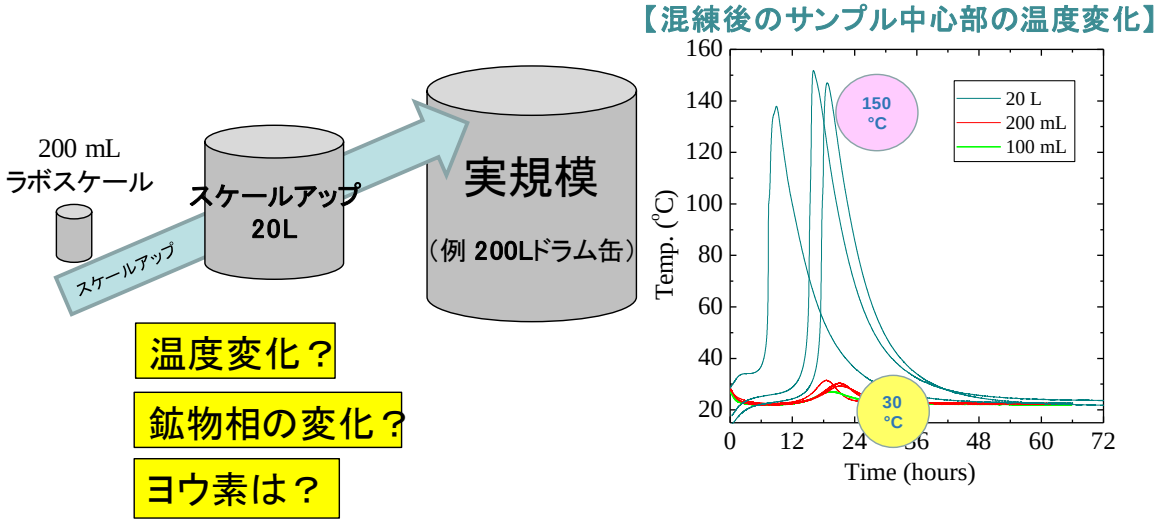


図 2.4.2-1　固化体サイズのスケールアップと発熱の課題

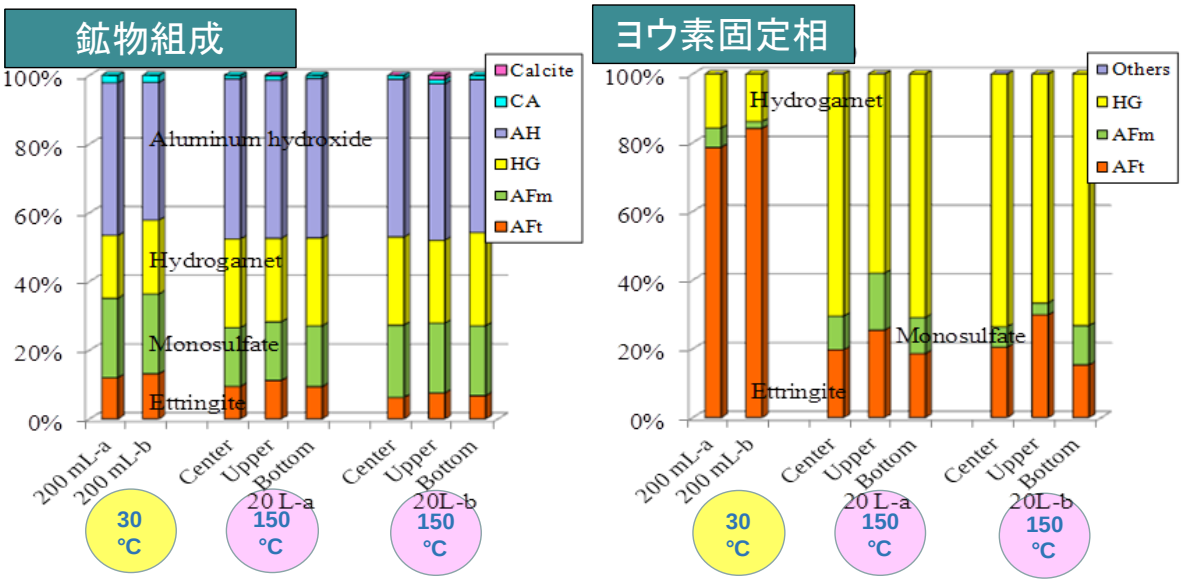


図 2.4.2-2　発熱影響によるセメント固化体の鉱物組成とヨウ素固定相の変化

2.4.3　ハイドロガーネット固化体の評価

スケールアップにともない発熱影響を受けた固化体では、ヨウ素固定相がハイドロガーネットとなる。このハイドロガーネット固化体について、これまで構築したヨウ素放出モデル[5]を用いてそのヨウ素放出特性を評価し、従来のコンセプトであるエトリンガイト固化体と比較した[11]。その結果、図 2.4.3-1 に示すように、モデル上はエトリンガイト固化体との相違はないヨウ素放出挙動を示す。このことは、両者が同じヨウ素放出特性を有するとも考えられるが、このモデル自体にその要因を求めることが合理的と考えられるため、これまでに構築したモデルについての検証を行った。

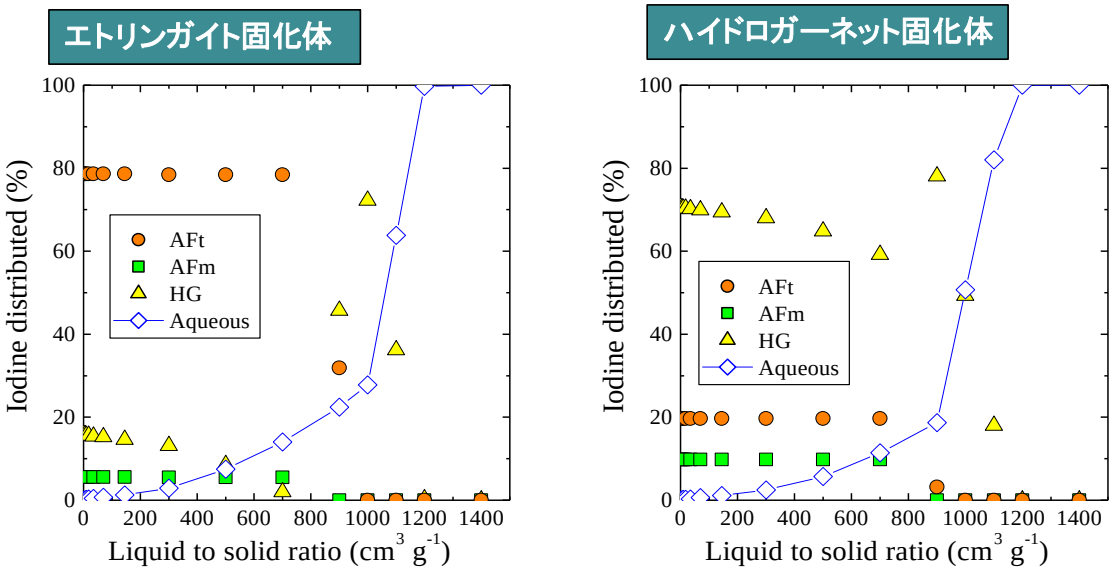


図 2.4.3-1　ヨウ素放出モデルによるエトリンガイト固化体とハイドロガーネット固化体の比較評価

2.4.4　ヨウ素放出モデルの検証

セメント固化体からのヨウ素放出を評価するためのモデルとして、セメント固化体を構成する鉱物の溶解平衡に基づくモデルが構築された[5]。このモデルでは、セメント固化体粉末の液交換試験よる鉱物組成変化やヨウ素放出量を再現させるため、以下の仮定を行っている。

① ヨウ素の化学形はヨウ素酸（IO_3^-）のみ。ヨウ化物（I^-）に還元されない

② ヨウ素は 3 つのセメント水和物のみに分配し、それぞれ固溶体を生成

a. エトリンガイト(IS-AFt)： $Ca_6(Al(OH)_6)_2\cdot((IO_3)_{0.5}(OH)_{0.5}(SO_4)_{0.5})_3\cdot 24.5H_2O$

b. モノサルフェート（IO_3-AFm）： $(CaO)_3\cdot Al_2O_3\cdot Ca(IO_3)_2\cdot 12H_2O$

c. ハイドロガーネット（I-HG）： $Ca_3Al_2(OH)_8(IO_3)_4$

d. IS-AFt、IO_3-Afm の溶解度(log K)は、合成試料の溶解試験で取得

③ IS-AFt のみ再析出させない

④ HG がヨウ素を取り込むという知見はない。I-HG の log K はフィッティングパラメータ

①については熱力学的に矛盾しており、また、このような想定を行う場合、計算機への負荷が極めて高く解析エラーの主要因となる。②については、このような鉱物組成であることの検証が十分にできていない。特に、ハイドロガーネットについてはヨウ素を取り込む、もしくはヨウ素と相互作用するという知見はこれまで得られておらず、このモデルでのみ取り扱っている鉱物である。さらに、エトリンガイトについてはヨウ素酸イオンの置換率に限界があることに論理的な裏付けがない。一方で、モノサルフェートについてはヨウ素酸イオンの置換率に限界がなく、すべての陰イオン交換チャンネルを占めることができるとしている。③④については液交換試験にモデル結果が合うようにフィッティングした結果であり、根拠はない。

また、このモデルは平衡モデルであり、液交換試験に対応したものである。したがって、液固比の取り扱い、すなわち溶解平衡の計算回数が異なることにより、評価結果が影響する可能性がある。例えば、液固比が 1 ずつ増加し 1000 まで平衡を繰り返した場合と、液固比 1000 の条件で平衡に到達した場合では、同じ液固比であっても鉱物組成やヨウ素放出が異なる可能性がある。なお、実際の処分環境では、地下水と固化体は液交換のようなバッチ式の接触によって相互作用するわけではないことにも留意する必要がある。ここでは、解析的に液固比の影響を検討した。図 2.4.4-1 に液固比の 1 ml/g ごとに増加させた場合（ケース 1、ケース 3）と、所定の液固比での平衡（ケース 1m、ケース 3m）との比較の解析結果を示す[8]。この結果から、1ml/g ごとに液交換した場合のほうが、ヨウ素の全量放出が極めて早くなることがわかる。なお、図中のアルミナセメントとは本セメント固化体、OPC とは次項で説明する OPC 固化体のことである。

したがって、本モデルの適用にあたっては、処分場の設計や地下水の流動条件などから平衡条件の取扱を決定させる必要があり、液固比の取扱の観点からこのモデルの難しさが課題として指摘できる。

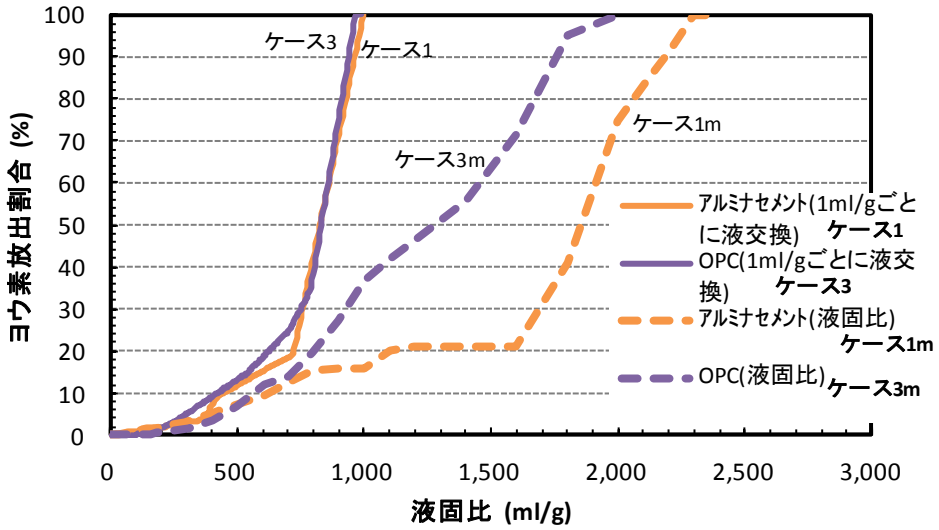


図 2.4.4-1　液固比の取り扱い検討におけるヨウ素放出割合の変化（純水系）

2.4.5　セメント固化体の優位性評価

2.4.4 で記載したとおり、セメント固化体に適用しているヨウ素放出モデルには課題が指摘されるが、さらに検討を進めるため、このモデルが適用できると仮定して、セメント固化体と類似固化体との比較を行った[8]。比較対象は、第二次 TRU レポートでリファレンスとなっている廃銀吸着材を普通ポルトランドセメントと混練させた OPC セメント固化体である[2]。図 2.4.5-1 に解析結果を示す。この解析では、OPC セメント固化体の組成およびヨウ素含有率を初期組成とし、液交換を模擬した溶解平衡計算を行っている。その結果、ヨウ素の放出変遷については、純水においても海水系地下水（SRHP）においても、セメント固化体（アルミナセメント）と OPC 固化体とでほぼ同等となった。液相が海水系の場合は液固比約 100 でヨウ素が全量放出され、純水系では液固比約 1,000 でヨウ素が全量放出される結果となった。以上のように、このヨウ素放出モデルで評価する限り、セメント固化体とリファレンスである OPC 固化体に性能の差がなく、セメント固化体を代替技術として採用する優位性を見出すことができなかった。

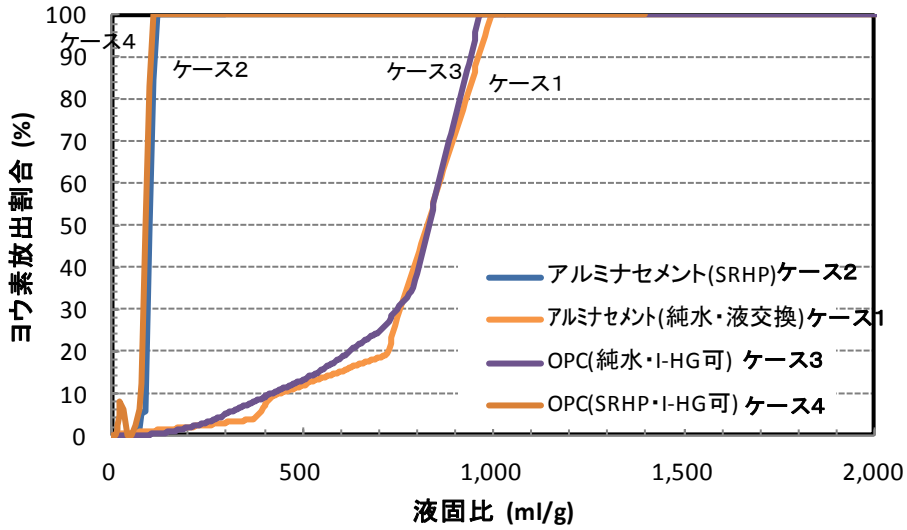


図 2.4.5-1　セメント固化体とリファレンス OPC 固化体のヨウ素放出のモデル比較

2.4.6　セメント固化技術のまとめ

これまでエトリンガイトにヨウ素（ヨウ素酸イオン）を固定化させるというコンセプトのもと、セメント固化体の開発を行ってきた。実験室スケールではセメント鉱物の溶解平衡に基づいた評価によってヨウ素放出挙動に一定の説明性が得られてきた。しかし、実用化を見据えたスケールアップによって、発熱影響が顕著となり、以下のような開発課題が整理され明確になった。

- スケールアップにともなう発熱をマネジメントするため、冷却システムの導入や固化体サイズなど、処理プロセスの見直しが必要である
- エトリンガイト相にヨウ素が固定されるとしたコンセプトを見直す必要がある
- これまで構築したヨウ素放出モデル（鉱物の溶解平衡モデル）は、大胆な仮定・想定に基づいており、適用性を慎重に見極める必要がある
- 海水系環境では、固化体性能が著しく低下する（炭酸イオン影響）

その一方で、これまでの検討によってセメント水和物とヨウ素の相互作用について重要な知見が多く得られた。ヨウ素 129 対策としては、固化体によるソースターム評価だけではなく、ニアフィールド・ファーフィールド含めたトータルシステムの評価が重要であり、セメントとヨウ素の関係は引き続き重要な課題である。特に、熱影響を受けたセメント水和物とヨウ素との相互作用は重要な知見である。

さらに近年、諸外国においてはセメント系材料の特性評価が国際プロジェクトとして取り組まれており、今後、原位置でのセメント材料中でのヨウ素の移行試験も計画されている。国内でも、セメント水和物へのヨウ素の取り込みや吸着などの研究も実施され、セメント系材料とヨウ素の相互作用や移行遅延についての重要性が認識されるとともに、知見が得られつつある。したがって、今後は本技術開発でこれまでに得られた知見を活用し、特にヨウ素の移行特性（分配係数など）の評価として、ヨウ素 129 に対する安全対策として成果を発展させて行く必要がある。

参考文献

[1] 核燃料サイクル開発機構，電気事業連合会：TRU 廃棄物処分概念検討書，JNC TY1400 2000-001，TRU TR-2000-01 (2000).

[2] 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とりまとめ－ (2005).

[3] 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、2009 年 7 月.

[4] 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、NUMO-TR-10-03、2011 年 1 月.

[5] 公益財団法人　原子力環境整備促進･資金管理センター：平成 24 年度 地層処分技術調査等 TRU 廃棄物処分技術　ヨウ素・炭素処理・処分技術処理・処分技術開発　平成 19 年度～平成 24 年度の取りまとめ報告書 平成 25 年 3 月.

[6] 西村ら，特許第 3720620 号「廃棄物固化体及びその製造方法」，株式会社神戸製鋼所

[7] (財)原子力環境整備促進・資金管理センター,「平成 25 年度 地層処分技術調査等委託費 TRU 廃棄物処分技術　ヨウ素・炭素処理・処分技術高度化開発　報告書（第 1 分冊）－ヨウ素固定化処理技術開発－」，平成 26 年 3 月.

[8] (財)原子力環境整備促進・資金管理センター,「平成 27 年度 地層処分技術調査等委託費 TRU 廃棄物処分技術　ヨウ素・炭素処理・処分技術高度化開発　報告書（第 1 分冊）－ヨウ素 129 対策技術の信頼性向上－」，平成 28 年 3 月.

[9] T. Higuchi, "Rates of Release of Medicaments from Ointment Bases Containing Drugs in Suspension", Journal of Pharmaceutical Sciences, vol.50(10), p.874,1961.笹本広、由井三和、「高レベル放射性廃棄物地層処分の性能評価における地下水水質設定の考え方」、サイクル機構技報、No.7、p.59-69, 2000.

[10] 五十嵐誉廣、小松篤史、本岡隆文、上野文義、加治芳行、山本正弘，「セルオートマトンを用いたステンレス鋼粒界腐食形態のシミュレーション」,材料と環境、Vol. 63,431-437, 2014.

[11] 公益財団法人　原子力環境整備促進･資金管理センター：平成 26 年度 地層処分技術調査等事業　TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発　報告書(第 1 分冊) ―ヨウ素 129 対策技術の信頼性向上―　平成 27 年 3 月.

[12] A. Mukunoki, T. Chiba, “Development of an Iodine Immobilization Technique by Low Temperature Vitrification with BiPbO2I”, ICEM07-7142 (2007).

[13] H. Kodama, A. Dyer, M. J. Hudson, P. A. Williams, Progress in Ion Exchange, The Royal Society of Chemistry, Cambridge, UK, 1997, p39.

[14] H. Kodama, N. Kabay; “Reactivity of Inorganic Anion Exchanger $BiPbO_2NO_3$ with Ions in Solution” Solid State Ionics 141-142 (2001) p603-607.

[15] A. Mukunoki, T. Chiba, Y. Benino, T. Sakuragi, “Microscopic Structural Analysis of Lead Borate-Based Glass”, Vol. 91, pp339-344, Progress in Nuclear Energy (2016).

第3章　炭素 14 長期放出挙動評価

3.1　緒言

地層処分対象の TRU 廃棄物のうち、ハル・エンドピースと呼ばれる燃料被覆管のせん断片や燃料集合体末端片についてはグループ 2 に分類され、一軸圧縮処理された後、ステンレス製のキャニスタに封入され、処分される計画となっている（図 3.1.1-1）。TRU 廃棄物処分概念検討書[1]及び TRU 廃棄物処分技術検討書（第 2 次 TRU レポート）[2]において、ハル・エンドピースに含まれる C-14 については、図 3.1.1-2 のような存在割合および放出期間が設定されており、TRU 廃棄物の安全評価において被ばく線量が高く重要核種として位置づけられている。これは、C-14 は半減期が 5730 年と比較的長く、廃棄物中のインベントリが高いことに加え、廃棄体から短期間に放出されると設定されているからである。さらに、廃棄体から放出される形態は有機物であり、C-14 の各種バリア材への収着性が低いと評価されていることにも起因している。



図 3.1.1-1　ハル・エンドピースの廃棄物概要

これまで、商業用加圧水型原子炉（PWR）にて実際に照射された燃料被覆管を用いて C-14 濃度が測定され、また、浸出試験によって 11.5 ヶ月までの浸出率が取得された[3]。その際に、C-14 は有機形態にて浸出すると報告されているが、ごく微量であったことから化学種の同定までは至っていない[3]。この研究成果は、TRU 廃棄物処分概念検討書[1]及び第 2 次 TRU レポート[2]の安全評価における C-14 のインベントリ、放出率に関する根拠として使用された。しかし、この研究における知見は、PWR の燃料被覆管に関するもののみであること、浸出試験が 11.5 ヶ月と短期間であることなど、代表性に乏しく限られたものである。したがって、第 2 次 TRU レポートにおける C-14 被ばく線量の評価の際に、これらを勘案した過度に保守的な設定がなされた可能性がある。安全評価の信頼性向上ためには、沸騰水型原子炉(BWR)も含めた合理的なインベントリの設定、現実的な浸出速度の設定、放出される C-14 の化学種の同定、C-14 化学種の安定性や収着挙動などの移行パラメータ評価、さらに生物圏における炭素循環を含め、総合的な C-14 の影響評価手法の確立が必要である（図 3.1.1-3）。そのため平成 18 年度までに、ハル・エンドピース

の特性に関わる情報収集等を行い、各試験計画の立案を行うとともに、各基礎試験を実施し、一部のデータを取得した。平成 19 年度から平成 24 年度までに、インベントリの評価、10 年を目途とした長期試験の開始など、本格的な試験を開始させた[4]。

それら実績を踏まえ、被ばく線量への影響の大きいソースターム評価として、金属材料を対象として、平成 25 年度からはジルカロイの長期腐食モデルの検討、ステンレス鋼の長期データの取得、さらに、C-14 化学形態の検討調査を開始した。特に、現実的なデータに基づく安全評価を行うために、被ばく評価に係わるソースタームデータを高い精度で測定・蓄積することで評価の信頼性の向上を目指すとともに、被ばく線量の低減を図ることとした。さらに、ソースタームの長期評価について、科学的な論拠に基づいた検討を行うことで、安全評価の信頼性向上を図ることとした。そのため、コールド試験によって金属腐食などの機構・プロセスについて検討するとともに、実際に商用原子炉で照射された放射化金属を用いた浸漬試験とあわせて検討を実施する。また、欧州の共同研究である CAST（CArbon14 Source Term）プロジェクトへ参画することで、課題等を適宜全体計画へ反映させ、研究開発を合理的に実施する。

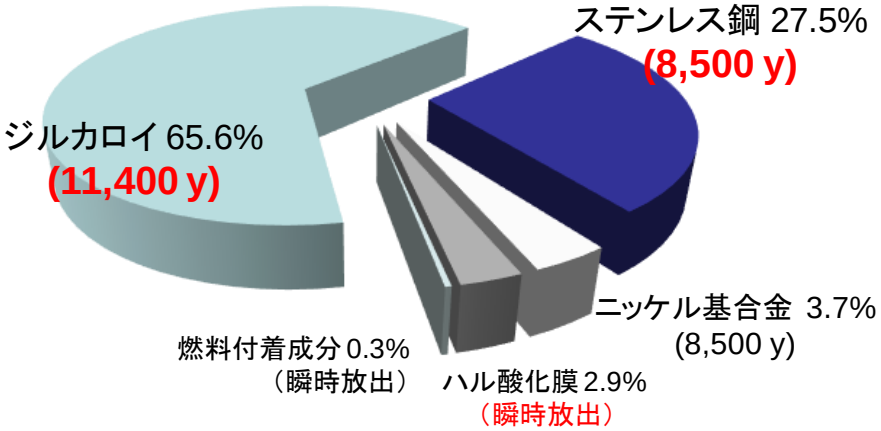


図 3.1.1-2　ハル・エンドピースのインベントリ割合[5]と第 2 次 TRU レポートにおける安全評価上の取り扱い（浸出期間[2]）

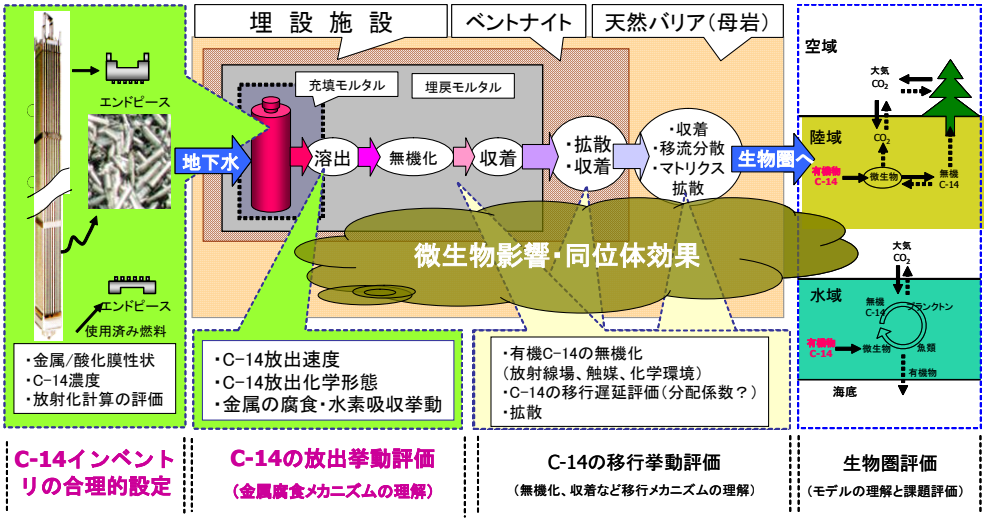


図 3.1.1-3　放射化金属廃棄物中の C-14 に関する体系的な安全評価方法の考え方

3.2　ジルカロイの腐食モデルの検討

3.2.1　目的

ジルカロイ被覆管に放射化生成物として含まれる炭素14（以下、C-14）は、地層処分において安全評価上の重要核種である。C-14等の放射化生成物はジルカロイ金属の腐食と調和的に放出されると仮定されており[2]、C-14放出挙動評価にはジルカロイ被覆管の長期腐食挙動の予測が不可欠である。想定されている処分環境は、再冠水（処分場が地下水で満たされる）までの500年程度は酸化性雰囲気で、それ以降は還元性雰囲気と想定されている。その溶液組成は地下水とセメント系材料の接触が考慮されたアルカリ性が想定され、温度は処分場内の人工バリアの性能低下を防止する観点から最高80℃になるよう設定される予定である[2]。

上記想定処分環境ではジルカロイの腐食速度は極めて小さく、一般的な重量法による腐食速度算出は不可能である。このためHansson[6]は電気化学的手法を用いて評価し、腐食速度を20 nm/y以下（ジルカロイ-2、セメント模擬水中、窒素ガス雰囲気）と報告した。また、三原ら[7]は、ガラス製容器に試験片と溶液を封入する試験システム（本田ら[8]）のもと水素測定法を用いて評価することで、さらに小さい腐食速度 5 $\times 10^{-3}$ μ m/y（ジルカロイ-4、pH12.5、温度 50℃窒素ガス雰囲気）を算出できている。加えて、本田ら[9]はジルカロイ-4 の水素吸収割合を測定し、放出された水素ガス量と比較して 3 倍の水素が吸収されると報告しているが、知見としては限られている。そこで、腐食にともなって発生する極微量の水素ガスおよびジルカロイに吸収された水素を測定することで現実的な腐食速度の評価を行った。また、地層処分環境でのジルカロイの腐食モデルについて検討するため、長期の腐食速度のデータを取得するとともに、酸化膜などの特性評価を行い、知見が豊富な高温腐食[10][11]の適用性について検討を行った。あわせて腐食の与える環境影響についてもデータ取得を行った。さらに、照射されたジルカロイの腐食試験を行い、核種浸出特性についても検討を行った。

3.2.2　現実的な腐食速度の評価

現実的な腐食速度を評価するために、腐食にともなって生成する水素を測定した。分析に必要な腐食に伴い発生する放出された水素ガス量を確保するため、ジルカロイ板材を圧延し比表面積を大きくした箔材（0.1mm^{t}および0.05mm^{t}）を用いた。腐食試験に用いた材料の組成分析結果を表 3.2.1-1 に示す。いずれの成分値も JIS H 4751 ジルコニウム合金管の規格値の範囲内であった。

表 3.2.1-1　ジルカロイ試験片の組成分析結果

		各元素の濃度 ／ 重量%						
		Sn	Fe	Cr	Ni	O	H	N
ジルカロイ-4	JIS H 4751	1.20 | 1.70	0.18 | 0.24	0.07 | 0.13	<0.0070	－	<0.0025	<0.0080
	分析結果	1.24	0.18	0.10	<0.006	0.15	0.0010[*1)] 0.0009[*2)]	0.002
ジルカロイ-2	JIS H 4751	1.20 | 1.70	0.07 | 0.20	0.05 | 0.15	0.03 | 0.08	－	<0.0025	<0.0080
	分析結果	1.23	0.13	0.10	0.04	0.13	0.0007[*1)] 0.0006[*2)]	0.002

注記[*1)] 0.1 mm^t 試験片（放出された水素ガス量測定用の平均値）

[*2)] 0.05 mm^t 試験片（吸収された水素量測定用の平均値）

ガラスアンプル試験は、日本国特許第 2912365 号[6]の技術の許諾のもと、低酸素環境下での浸漬試験として、ガラス（パイレックス）製密封容器を用いた水素測定試験を実施した。アンプル内の雰囲気を低酸素（<0.1 vol. ppm）に保持するために雰囲気制御グローブボックスを用いた。ガスフロー試験は、二重容器とした装置[4]内でサンプルを NaOH 水溶液（pH 12.5）に浸漬させた．所定の温度に維持しながらアルゴンガスを通気させ，通気ガス中の水素濃度を大気圧イオン化質量分析装置（API-MS）で連続的に測定した.

浸漬後の水素吸収量測定用試験片の水素濃度を、不活性ガス融解－ガスクロマトグラフ法により測定し、試験前の水素濃度との差から水素吸収量を求めた。また、の腐食反応による水素生成反応として下式を仮定した。

水素生成反応：$Zr + 2H_2O \rightarrow ZrO_2 + 4H$

これより、ジルカロイの腐食量は、腐食反応によって生成した水素量（放出水素ガス量と水素吸収量の和）から算出することが可能となる。

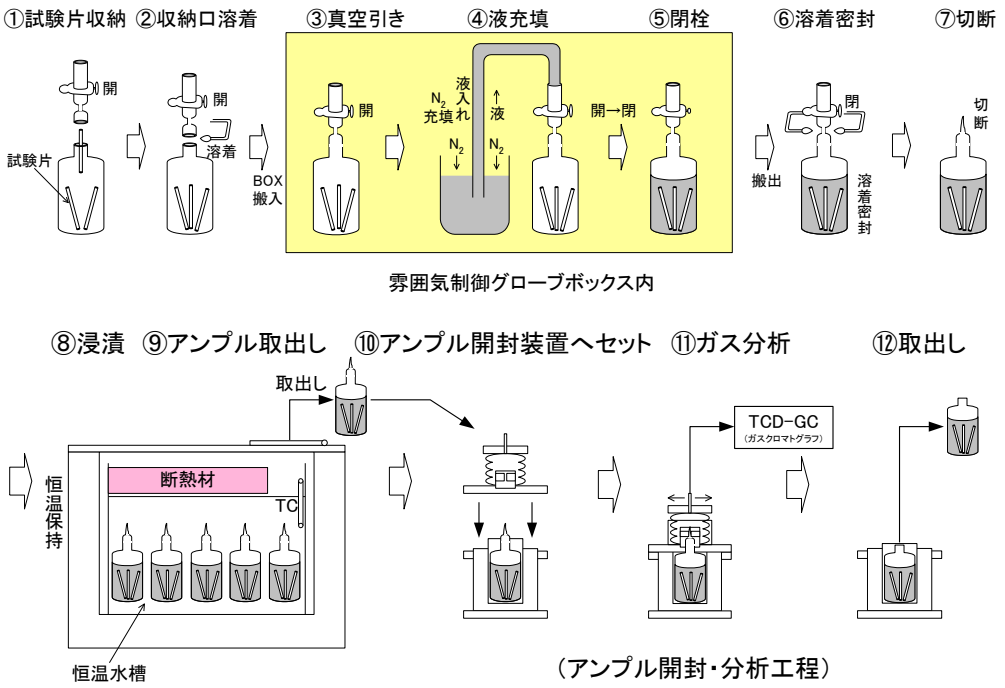


図 3.2.2-1　ガス蓄積型腐食試験の試験手順[6]

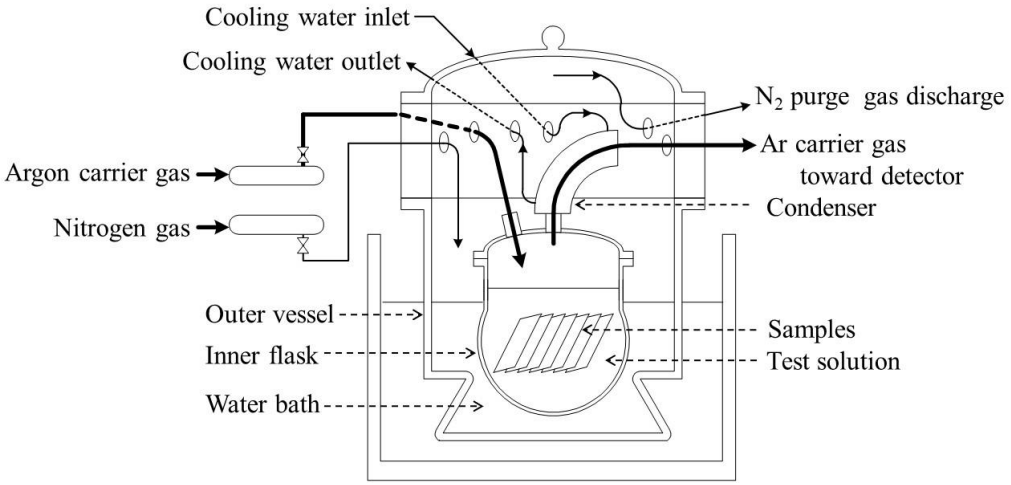


図 3.2.2-2　ガスフロー試験装置

腐食速度および水素吸収率の経時変化を図 3.2.2-3 および図 3.2.2-4 に示す。いずれのケースにおいても腐食速度は経時的に減少する。温度依存性が認められ、材料の違いに依らず、温度が高くなると腐食速度が増加する傾向となった。また、ジルカロイ-2 とジルカロイ-4 で比較すると若干ジルカロイ-2 のほうが低い傾向となっているが明確ではない。また、共存イオンの影響として、$Ca(OH)_2$ 水溶液や模擬地下水（CementWater）における腐食速度は、NaOH を用いたときに比べて顕著の差は見られなかった。一方で、純水系では全体的に腐食速度が小さくなる傾向にあるが、極端に腐食速度が小さいケースも見られた。これは、後述する水素吸収率が極めて少なか

ったことが要因である。長期の腐食速度として 10 年後では、温度による差はあるが概ね数 nm/y 程度であった。水素吸収率の経時変化は比較的短期間に増加し、その後はほぼ一定となった。温度依存性が認められ、材料の違いに依らず、温度が高くなると水素吸収率が高くなる。共存イオンの影響等はほぼ見られなかった。しかしながら、純水系ではまったく水素を吸収しないケースが見られた。水素吸収量の絶対量が非常に少ないため、腐食前に存在する水素量との差分が十分でないことも要因の可能性はあるが、純水系では特異的な水素吸収挙動の可能性もあり、今後詳細な検証・評価が求められる。また、水素吸収率が高い可能性が示されたことから、水素化による腐食速度への影響や、水素化物の安定性含めた処分後の水素ガス発生への影響などが課題として挙げられる。

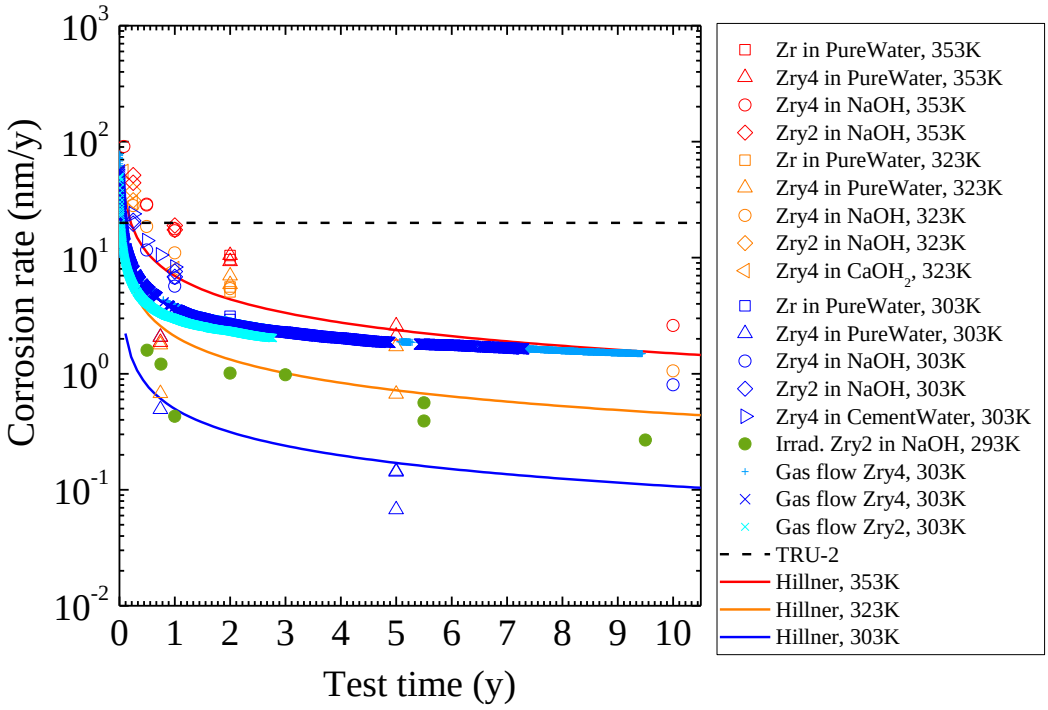


図 3.2.2-3　ジルコニウムおよびジルカロイの腐食速度の経時変化

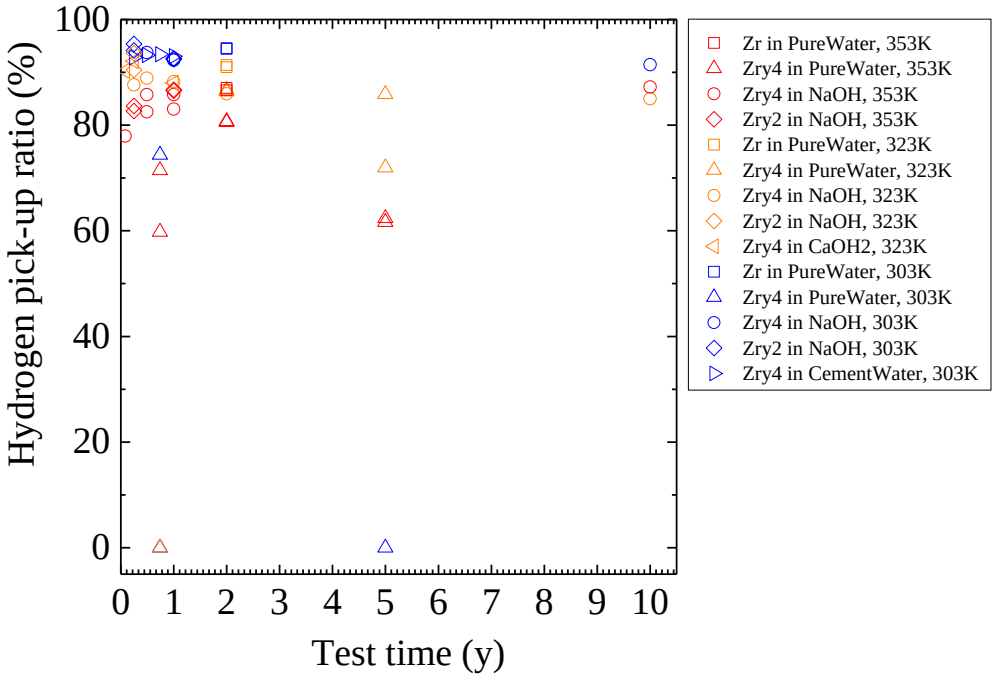


図 3.2.2-4　ジルコニウムおよびジルカロイの腐食にともなう水素吸収率の経時変化

3.2.3　酸化膜の特性評価

ジルカロイの腐食メカニズムを明らかにするうえで、酸化膜の特性評価は必要不可欠である。従来、主な研究対象は原子炉運転時における高温水中のジルカロイ腐食挙動であり、数μm 以上の厚さに成長した酸化膜の結晶構造や不定比性が調べられてきた。深地層処分環境（室温付近・還元環境の水中）におけるジルカロイの腐食挙動については、その腐食速度が極めて小さいため、数十 nm 以下の厚さをもつ極薄い酸化膜の特性を評価する必要がある。しかし、酸化膜が薄くなるほど、各種分析手法における信号強度が小さくなるので、実験研究は困難になる一方であり、これまで極薄い酸化膜に関する特性評価がほとんど実施されてこなかった。そこで、放射光の高強度 X 線および球面収差補正 TEM（Spherical aberration corrected TEM；Cs-TEM）を利用することにより、数 nm～数十 nm 厚さの極薄いジルカロイ-4 酸化膜の結晶構造を調べた。

薄膜 XRD 実験は佐賀県立九州シンクロトロン光研究センター（SAGA-LS）のビームライン 15（BL-15）にて実施した。基板に相当するジルカロイ母材の影響を小さくするため、X 線入射角度を 0.3° として 2θ法を用いた。図 3.2.3-1 に、(a) 純水中で 5 年および(b) NaOH 水溶液中で 10 年、腐食試験を実施したジルカロイ-4 表面酸化膜の XRD 結果を示す。純水中 5 年間腐食試験において、腐食温度 30℃では、Zry4 表面に正方晶（Tetragonal）の(1 1 1)のピーク（t(1 1 1)）だけが観察されたが、腐食温度 50℃および 80℃では、t(1 1 1)および単斜晶の(1 1 -1)のピーク（m(1 1 -1)）が観察され、t(1 1 1)のピーク強度が m(1 1 -1)よりもやや高いことがわかった。NaOH 水溶液中 10 年腐食試験においても、腐食温度 30℃では、t(1 1 1)のみが観察されたが、腐食温度 50℃および 80℃では、t(1 1 1)および m(1 1 -1)のピークが明瞭に観察され、t(1 1 1)よりも m(1 1 -1)のピーク強度が高くなる傾向が見られた。

球面収差補正 TEM では、収束イオンビーム加工観察装置（FIB：日立製作所製 FB2000A）を用いて薄膜試料の作製を行った。電子線回折により酸化皮膜の結晶構造を解析し、FFT（Fast Fourier Transform：高速フーリエ変換）像を求め結晶構造の同定を試みた。図 3.2.3-1 に代表例として NaOH 水溶液中で 10 年腐食試験を実施したジルカロイ 4 の結果を示す。この場合は立方晶が同定されているが、純水浸漬では単斜晶も確認されている。薄膜 XRD の結果と必ずしも一致しない結果となったが、酸化膜がナノメートルオーダーと非常に薄く、電子線回折による結晶構造の同定が困難であったためと考えられる。なお、球面収差補正 TEM 分析では金属側の測定も行った。すべてのケースでジルコニウムの六方晶が確認され、水素化物など水素吸蔵を直接的に示すデータは得られなかった。

以上に結果、分析方法による若干の差異はあったものの、処分環境で想定される 80℃以下において、酸化膜は明瞭に結晶化していることがわかった。詳細な結晶構造としては、単斜晶、正方晶、また一部は立方晶も確認され、炉内環境温度で生成する酸化膜の結晶構造と類似する結果が得られた。

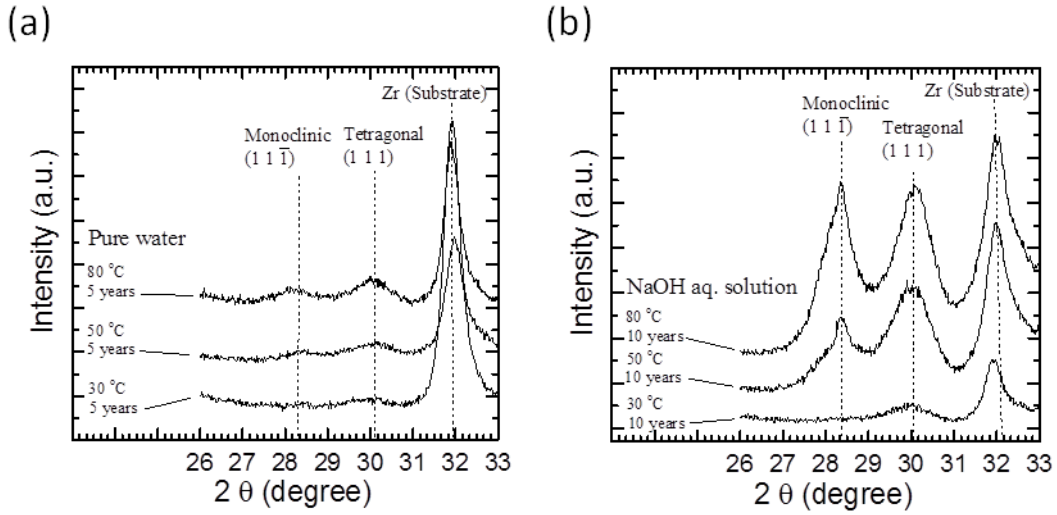
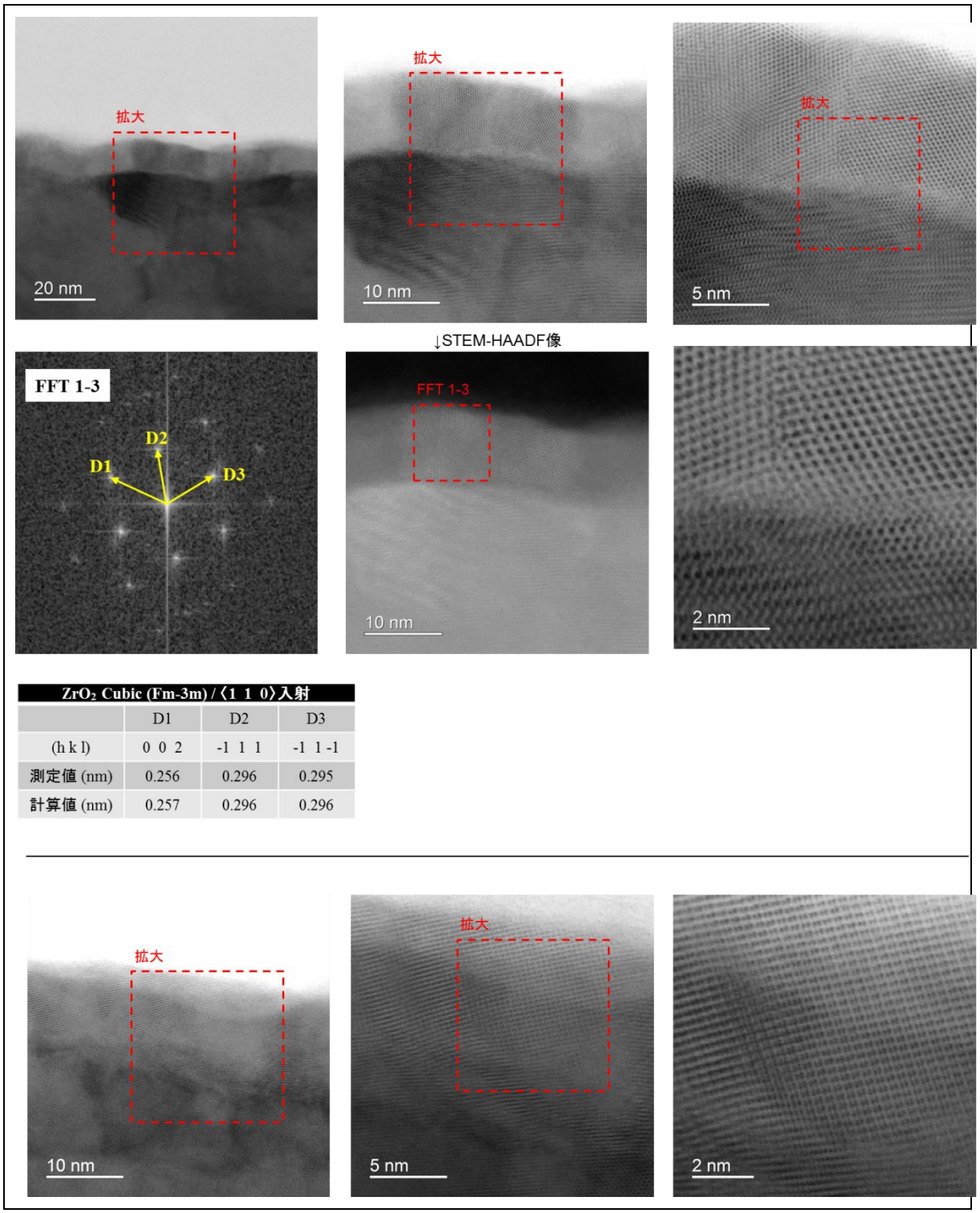


図 3.2.3-1 (a)純水中 5 年間および(b)NaOH 水溶液中 10 年間腐食試験終了後のジルカロイ 4 表面酸化膜の XRD 結果



ZrO_2 Cubic (Fm-3m) / 〈1 1 0〉入射			
	D1	D2	D3
(h k l)	0 0 2	-1 1 1	-1 1 -1
測定値 (nm)	0.256	0.296	0.295
計算値 (nm)	0.257	0.296	0.296

図 3.2.3-2　浸漬試験（NaOH,pH12.5, 30℃, 10 年）後のジルカロイ 4 酸化膜

3.2.4　照射済みジルカロイの腐食挙動

ジルカロイ腐食への照射影響の観点も含め、照射済みジルカロイの腐食挙動として、BWR 燃料被覆管（ジルカロイ 2）を用いた長期浸漬試験を行い、C-14 等の浸出挙動の評価を行った。長期浸出試験を継続している試料は、平成 19 年度に浸漬を開始した STEP Ⅰ 燃料被覆管母材、およ

び、平成 22 年度に浸漬を開始した STEPIII 燃料被覆管母材である。分析対象は、C-14 等の放射化生成物に加え、ジルカロイ 2 に含まれる合金成分とした。

図 3.2.4-1 に照射済み燃料被覆管浸漬試料の分析フローを示す。図 3.2.4-2 に示すように気相 C-14 回収操作は 2 段階で行い、まずアルカリトラップ（NaOH 溶液）で C-14 を回収した後、液体シンチレーションカウンター（LSC）出力値の影響を考慮し、カーボソーブに再抽出して C-14 を測定した。また、浸漬液の一部を分取し、Ge 半導体検出器によりγ線放出核種の測定を実施した。その後、非放射性元素濃度の分析を誘導結合プラズマ質量分析装置で行った。対象元素は Zr、Sn、Fe、Cr、Ni とした。残りの溶液は C-14 全量分析および無機/有機分析に供した。全 C-14 は、浸漬液にキャリア、酸化剤、酸化触媒を加え、硫酸酸性とした上で反応容器を加熱（80℃、60 分）することで、有機 C-14 を湿式酸化分解し、無機 C-14 と共にカーボソーブで捕集、LSC で測定した。無機 C-14 は浸漬液にキャリアを添加した後に硫酸酸性とし、バブリングすることで、カーボソーブに回収した。有機 C-14 は、無機 C-14 回収後の溶液に酸化剤および酸化触媒を加え、硫酸で液性を酸性とし、反応容器を加熱（80 ℃、60 分）することで有機 C-14 を酸化分解してカーボソーブに回収した。回収したカーボソーブは LSC で測定した。上記の各 LSC 測定結果に回収率等の補正を加え、浸出した C-14 量の定量値とした。浸漬試験で使用された内容器に残留する C-14 量把握のため、回収した浸漬内容器に対し、燃焼法により分析したところ、ほぼ無視できるレベルであることを確認した。なお、気相や液相の有機無機比率の結果については 3.2.4 で評価する。

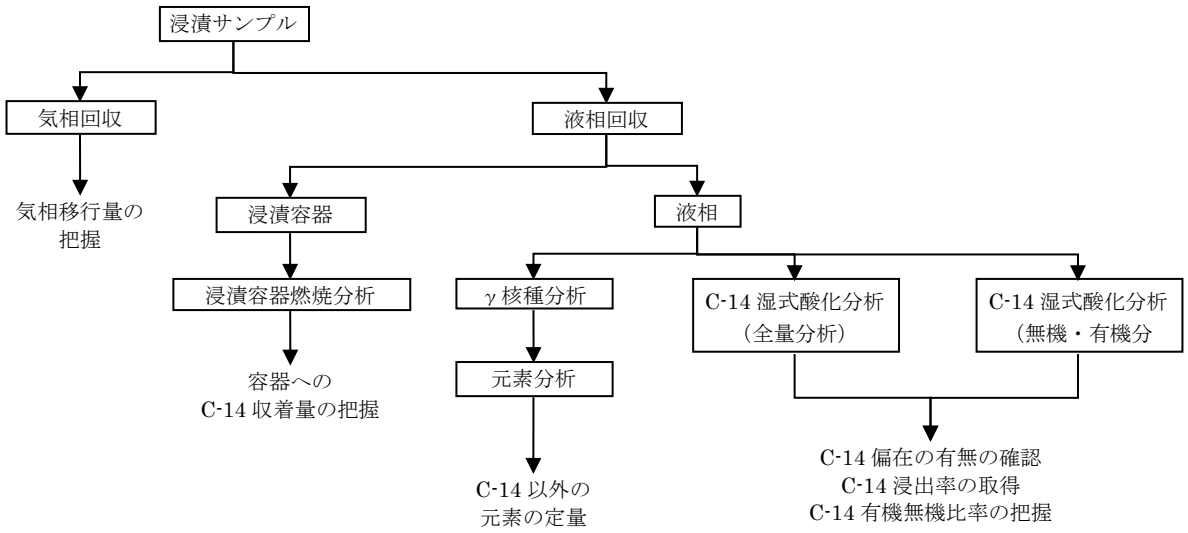


図 3.2.4-1　照射済み燃料被覆管浸漬試料の分析フロー

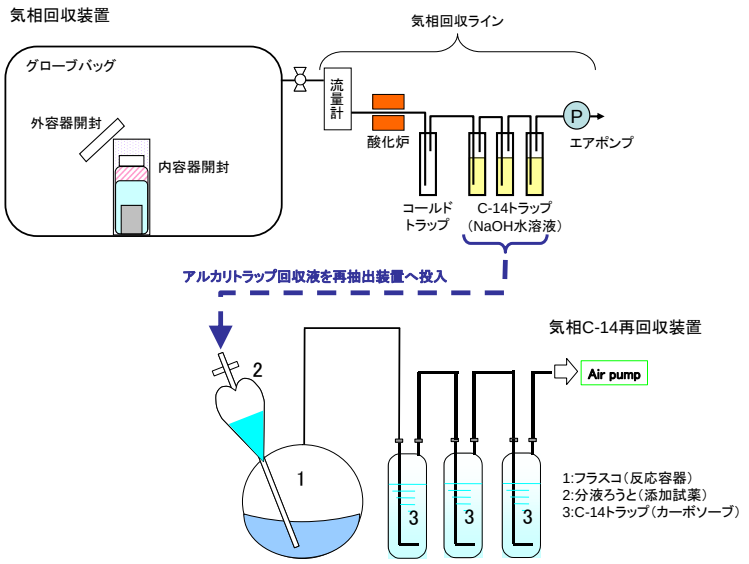


図 3.2.4-2　気相回収装置と気相 C-14 再回収装置の模式図

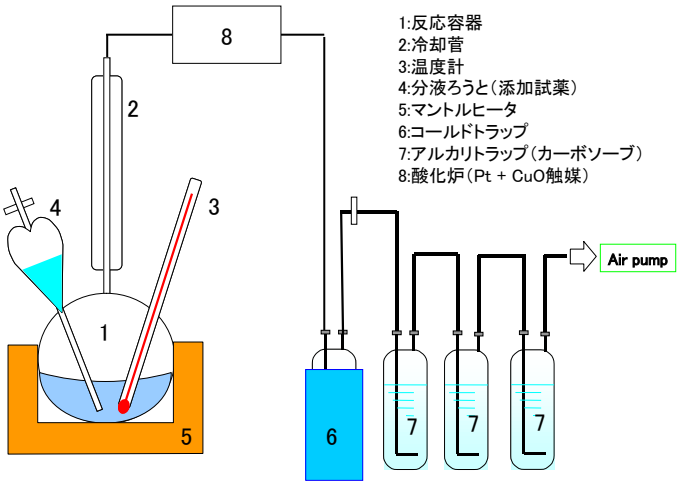


図 3.2.4-3　照射済み被覆管浸漬液中の C-14 濃度の分析装置の模式図

図 3.2.4-4に浸出試験の結果を示す。いずれの元素・核種についても、浸出量aは腐食量と調和的に浸出すると仮定し、腐食速度 = aL/2Atの式から算出した。ここで、Lは被覆管の厚さ、Aは被覆管に含まれる元素・核種の総量、tは浸漬期間である。破線は第2次TRUレポート[2]における腐食速度、実線はHillnerの高温腐食式[11]を20℃に外挿した値である。いずれの元素・核種も経時的な腐食速度（すなわち浸出率）の変動は明確でない。また、第2次TRUレポート[2]で仮定されているような腐食と調和的な浸出であれば、すべての元素・核種は同じ腐食速度となるはずであるが、本試験の結果から元素・核種ごとの放出には大きな差異があり、調和浸出とはならない結果が示された。ここで、Sb-125は添加元素のSn、Co-60は不純物Coがそれぞれ主な由来元素である。また、ジルカロイ2合金中において、ZrやSn固溶し、Fe, Cr, Niは粒界析出元素である。これら元素・核種の溶出はおおきく2つのグループ（固溶グループおよび非固溶グループ）に分けることができることから、合金中の存在状態によって浸出挙動が影響を受ける可能性が示唆される。C-14は、合金中の窒素不純物が生成起源であるが、浸出挙動の結

果から非固溶グループに近い挙動であることから、炭化物（ZrC）として存在する可能性が示唆される。以上により、腐食との核種浸出の関係については、単純な調和浸出で説明するのは難しく、ジルカロイ合金中での存在状態や合金成分の酸化プロセスなどの特性に応じて、それらの放出特性（調和性）が影響されると考えられるため、今後より詳細な検討が必要である。

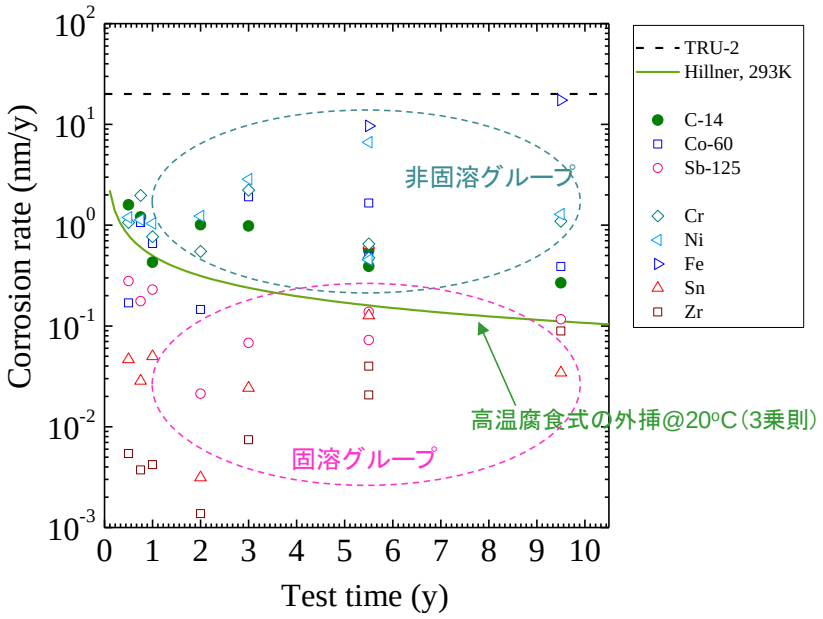


図 3.2.4-4　照射済み燃料被覆管（BWR）から放出された元素・核種の挙動と経時変化

3.2.5　腐食機構の考察

ジルカロイの腐食機構の検討として、研究実績や知見が豊富な炉内温度の条件では、酸化膜の特性と合わせて速度論に基づく議論がなされている[10] [11]。ここでは、3.2.2 のガスフロー試験で得られた水素ガス発生量から、速度論的な考察を行う。試料単位面積あたりの原子数換算の水素ガス発生量を A_{gas}（mol/m²）とし、時間 t の n 乗に比例するとすると、$A_{gas} = a\ t^n$ と定義できる（a は速度定数）。図 3.2.4-1 に対数換算した A_{gas} と t の関係を示す。温度 30℃から 80℃の範囲で n はほぼ 0.5 となることから、ジルカロイ腐食は放物線則に従うと推察できる。従って、放物線則を仮定した式、$A_{gas} = k_P\ t^{0.5}$（k_P は放物線則腐食速度定数）から k_P を求め、アレニウスプロットした結果を図 3.2.5-2 に示す。図の傾きから腐食の活性化エネルギーはおよそ 85.3 kJ/mol が得られた。炉内温度の腐食の活性化エネルギー（3 乗則）は 113 から 135 kJ/mol が報告されており[11]、処分環境温度の活性化エネルギーはそれらより低い値であった。

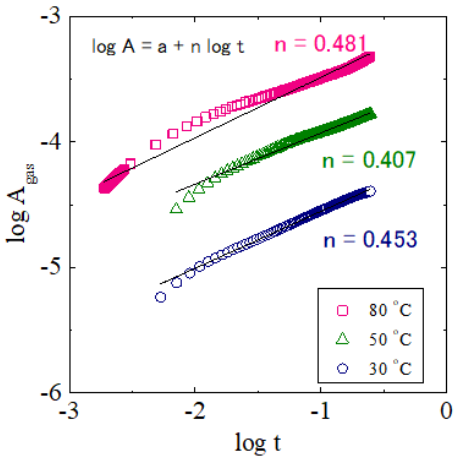


図 3.2.5-1　ガスフロー試験で得られたジルカロイ 4 の腐食にともなう水素ガス発生量 A_{gas}（mol/m²）の経時変化

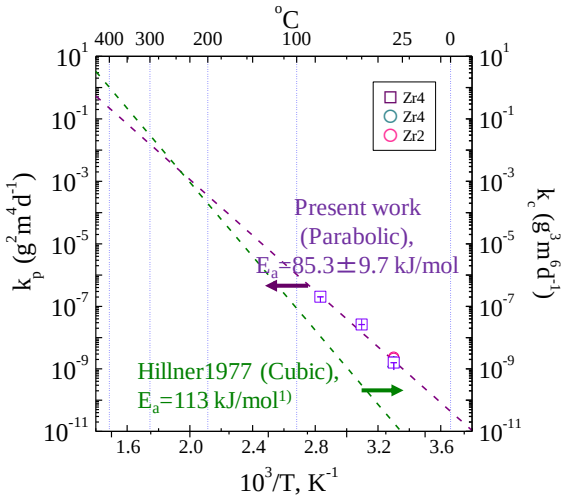


図 3.2.5-2　放物線則を仮定した腐食速度定数 k_p のアレニウスプロット。右軸は比較として炉内温度で得られている 3 乗則の腐食速度定数 k_C [11]。

表 3.2.5-1 に高温から低温までのジルカロイ腐食挙動について、これまでに得られた結果のまとめを示す。一般的に速度式は、1000℃以上の高温では放物線則、原子炉運転時の温度範囲では 3 乗則になると説明されている[10]。一方、処分環境の温度領域では、上記のとおり放物線則となるデータが得られた。しかし、データが限られていることや、若干 3 乗則にも近い結果でもあることから、現状では「3 乗則から放物線則」という理解とした。ここで、3 乗則の速度式では、腐食機構として、拡散に加えて複合的な反応の寄与がある、と説明されている[10]。放物線則は一般に拡散律速と説明されていることから、両者に大きな違いはないと考えられ、より処分環境の方が単純な拡散支配の近い腐食機構と理解できる。なお、炉内環境と処分環境で生成する酸化膜の結晶状態はおおむね類似的であること、また、反応の寄与の分だけ 3 乗則の活性化エネルギーが大きいエネルギーになると考えられることから、上記の腐食機構を支持することができる。ただし、律速に寄与する酸化膜中の拡散種については、酸素や水素などの議論が長年行われているが[10]、本検討も特定するには至っておらず、事故時含めたジルカロイ腐食全般の課題である。

一方、ジルカロイの腐食で重要となるのは、腐食が加速的に変化する遷移という現象である。炉内環境では、酸化膜が 1-2 ミクロンに成長すると遷移が起きると言われているが、この現象が処分環境の温度で生じるかどうかは、今後の課題である。

表 3.2.5-1　ジルカロイの腐食挙動のまとめ

環境	事故時（LOCA）[12]	炉内環境 [10][11]	処分環境
温度℃	1500 - 1000	400 - 260	80 - 30
速度式	放物線則 $\Delta w^2=kt$	3 乗則 $\Delta w^3=kt$	3 乗則から放物線則
活性化エネルギー (kJ/mol)	およそ 160 (114 - 201)	113 - 135	100 以下
酸化膜（安定相）	正方晶が想定されている（正方晶）	正方晶/単斜晶（単斜晶）	正方晶/単斜晶（単斜晶）
腐食機構	拡散	拡散に加えて複合的な反応の寄与がある	酸化膜中の単純な拡散機構に近いと推定される
遷移（Breakaway）※腐食の加速現象	（あり）	あり	不明

3.2.6　ジルカロイ腐食のまとめと課題

ジルカロイの腐食に関する成果を簡潔にまとめると以下となる。

- 腐食速度は経時的に低下し、約 10 年後には 5 nm/y 程度と極めて遅くなることが分かった。ただし、温度依存性が高いことから、実際の安全評価ではサイトの温度特性を考慮した評価が必要である。
- 処分環境温度の腐食は、酸化膜の特性など炉内腐食の特徴との類似性があるが、より単純な拡散律速に近い腐食機構と推察できる。したがって、一定程度には、豊富な炉内腐食挙動の知見を低温の長期腐食の加速条件として参考にできると考えられる。
- 一方、金属中への水素吸収は 8-9 割以上であり、炉内環境より高い吸収率であることが分かった。
- 核種の浸出速度と腐食速度の関係は核種や親元素の特性に依存し、少なくともすべての核種が調和的とは言えず、ジルカロイ金属中における存在状態や合金成分の酸化特性に依存して変化すると考えられる。

一方、処分の安全性の向上や安全評価システムへの反映等が必要な課題について以下が挙げられる。なお、これらの課題には本検討の対象外であるものと、本検討の成果として明らかになった課題が含まれる。

- 実廃棄物の特性（照射、水素化物、酸化膜、再処理プロセスによる初期状態）を反映した腐食速度
- 水素吸収による腐食速度への影響評価
- 遷移（ブレイクアウェイ）
- 腐食への材料影響（ジルカロイ合金種や PWR 被覆管に関する知見）
- 硝酸や海水などの環境影響

・ガルバニック腐食
・腐食と核種放出の相関（調和性）
・IRF（付着、酸化膜などのいわゆる瞬時放出の評価）

まず、実廃棄物の特性として、実廃棄物は炉内中性子等による照射損傷や水素化物による脆化などが起きており、また、炉内水腐食で生成した数ミクロン以上の酸化膜を有している。本検討で得られた腐食速度は、それらの影響のない無垢のジルカロイ金属を用いた結果である。一般に、照射や水素化によって腐食速度は速くなると考えられているが[10][13] [14]、特に、炉内で腐食されたジルカロイは、いわゆる遷移領域の腐食[11]である可能性が高く、後述するように処分環境における遷移の可能性と合わせて腐食挙動に大きな影響を与える。一方、再処理過程で被覆管は圧縮処理等のプロセスを経るため、一部、もしくは多くの酸化膜ははく離した状態である可能性がある。その場合には遷移領域の腐食ではなく、無垢材の腐食挙動を適用することが妥当と考えられるが、いずれにしても実際の廃棄物の状態・特性を明らかにする必要がある。

水素吸収による腐食速度への影響は、多く分けて、前述のとおり既に存在する水素化物や処後に生成した水素化物によって直接的に腐食速度が速くなる可能性と、水素化によるジルカロイの消費反応が変化する場合とが想定される。前者は、実廃棄物の特性に関する課題と同様であるが、後者は特に処分後の腐食寿命を想定するうえで重要である。すなわち、ジルコニウムの腐食反応は一般的に酸化反応のみを考慮し、

$$Zr + 2H_2O \rightarrow ZrO_2 + 2H_2$$

と記述される。一方、水素吸収率を x とし、腐食反応を考えると以下のようになる[15][16]。なお、ここでの腐食反応とは酸化と水素化を含めた反応である。

$$(2x+1)Zr + 2H_2O \rightarrow ZrO_2 + 2x \cdot ZrH_2 + 2(1-x)H_2$$

本検討によって水素吸収率が極めて高いことが分かったため、仮に x=1 とすると、

$$3Zr + 2H_2O \rightarrow ZrO_2 + 2ZrH_2$$

となり、水腐食によって消費される金属 Zr は化学量論比から酸化 1 に対して水素化では 2 となる。すなわち、酸化だけを考慮した場合に比べて腐食量（Zr の消費量）は 3 倍となる。第 2 次 TRU レポートでは水素化による Zr 消費は考慮しておらず、酸化速度からジルコニウム金属の寿命を 11,400 年と想定しているが[2]、すべての水素が水素化に寄与する場合には、その寿命は 1/3 の 3800 年となり、安全評価への負のインパクトが極めて大きい。また、水素化物の組成式は理想的には ZrH_2 であるが、実際には $ZrH_{1.7}$ などが知られており、水素化した際の組成比によっても腐食挙動へ影響するため、より正確な腐食速度を評価するためには、水素化物の性状（組成比）にも留意する必要がある。

遷移とは腐食挙動が大きく変化する現象であり、前述のとおり、炉内環境温度では酸化膜が 1-2 ミクロンに成長した際に生じる。具体的には、炉内の腐食速度は 3 乗則に従って経時的に低下していくが、遷移領域まで腐食が進むと線型腐食となり、腐食速度としては加速する現象である。これは酸化膜の性状に起因すると考えられている。一方、低温での腐食速度は数 nm/y と極めて遅く、酸化膜がミクロンオーダーに成長する過程を実験的に把握することは不可能である。しかし、酸化膜の結晶性が高温と低温で類似していることから、遷移の可能性は否定できないと考えられる。そこで、酸化膜が 1 ミクロンまで成長するのに要する時間を腐食速度から試算すると、第 2 次 TRU レポート[2]の腐食速度 20 nm/y（線型）では 50 年、本検討で取得した腐食速度 5

nm/y（線型）では 200 年、本検討で取得した放物線則腐食速度（$\Delta W^2 = 1.01\times10^8\exp(-10{,}250/T)\times t$, at 30℃）を用いると 300 万年、Hillner の 3 乗則腐食速度（$\Delta W^3 = 6.36\times10^{11}\exp(-13{,}636/T)\times t$, at 30℃）[11]を用いるとおよそ 5 億年となる。線型以外の腐食を想定した場合には C-14 の半減期を十分に期待できるが、線型で評価する場合には遷移の問題が顕著となる。

腐食への材料影響として、本検討ではジルカロイ 2 やジルカロイ 4、さらに純ジルコニウムを用いて比較検討を行った。これら材料間の腐食への影響は明確ではなかったが、データが限られていること、合金組成や処分環境の多様性を考慮すると、より詳細な検討が求められる。また、照射済みジルカロイの腐食挙動は BWR（ジルカロイ 2）のみのデータを取得した。被覆管の組成や加工方法は年代とともに変化しており、また、PWR の被覆管（ジルカロイ 4）の特性についても核種浸出等のデータの取得・蓄積が望まれる。

ジルカロイ腐食への環境影響として、本検討では純水からアルカリ環境、Ca イオンやセメント影響などを検討した。それらの影響はある程度は見られたが、極めて大きな影響ではなかった。一方で、処分環境の多様性を考えると、海水系地下水や炭酸塩などの影響について詳細に検討する必要がある。また、TRU 廃棄物には硝酸塩を多量に含むものがあり、廃棄物の配置や地下水流動によっては腐食に対する硝酸塩の影響が懸念される。

また、被覆管（ジルカロイ）はステンレス鋼等を材料とする構造材（エンドピース等）と混合された状態で圧縮処理され、それらと接触した状態で処分される計画である。そのため、異種金属の接触によるガルバニック腐食の発生が想定される。ガルバニック腐食による核種放出などについて検討する必要がある。

腐食と核種放出の相関については、現状、第 2 次 TRU レポート[2]等の安全評価では腐食速度と核種浸出速度は等しいとする、いわゆる調和浸出モデルで評価されている。処分環境において金属の腐食が核種浸出のひとつの重要なプロセスであることは十分な理解が得られるが、すべての核種に対してその速度や浸出率が腐食と調和的と説明するのは、3.2.3 項で明らかになったように、基本的に難しい。本検討では金属中における核種の存在状態が、浸出特性に影響する可能性が示されたため、今後は各成分の酸化プロセスなどの特性も含め、各核種の特性を考慮した放出特性の評価が必要である。また、調和浸出で評価するためには、金属中に目的核種が均一に分布していることが前提となることにも留意する必要がある。

IRF とはいわゆる瞬時放出率（Instant Release Fraction）のことであり、安全評価において廃棄物・廃棄体として核種閉じ込め機能を有していない状態の核種インベントリ割合を意味している。IRF そのものは直接的にジルカロイの腐食挙動と関連はないが、使用済み被覆管の処分の安全評価の観点では重要なのでここで記載する。第 2 次 TRU レポート[2]ではジルカロイハルの核種インベントリの 20%が IRF と仮定されており（残りは腐食速度で浸出率を評価）、それは被覆管表面の酸化膜のインベントリに相当している。その結果、安全評価における IRF の影響が顕著になっておりその低減が望まれることから、被覆管が有する酸化膜物量の調査や放射化計算による詳細な評価を行った結果、酸化膜のインベントリ割合は 20%より十分に小さくなることが示された[4]。また、実際に酸化膜を有する被覆管からの C-14 浸出率を測定したところ、IRF は極めて小さいことが確認されたが[17]、論拠となるデータや検証は不十分である。今後は、酸化膜からの核種浸出のメカニズムの評価と合わせて、IRF について詳細な検討や被ばく線量低減のために安全評価システムへの反映が求められる。

3.3 ステンレス鋼の腐食データの取得

3.3.1 目的

燃料集合体はエンドピースなどステンレス鋼の構造材が利用されており、原子炉内での照射により C-14 等の放射化生成核種を含んでいる。半減期の長い放射性元素（C-14：5730 年）は処分環境下のステンレス鋼の腐食減肉にともなって放出されると想定され、地下水移行シナリオによる被ばく線量への寄与の大きい核種の 1 つとして評価されている。地下水移行シナリオを考えるにあたり、処分環境における現実的な腐食速度や、ステンレス鋼の腐食を長期的に評価するためのモデル化や腐食機構の理解が必要である。

一般に、ステンレス鋼のような不働態皮膜の作用により耐食性を発現する材料は、全面腐食と局部腐食の 2 パターンが想定される。全面腐食については主に高温（250℃以上）での検討例が多く、この温度で生成する皮膜は Fe、Cr、Ni の混合酸化物であることが報告されていた。また溶液 pH により皮膜の安定層が変化すること、溶液中の溶存酸素量が少ない場合は大気腐食環境下のような不働態皮膜による保護作用が期待できない可能性もあった。また、腐食速度は、大気腐食環境では 1 μm/年以下（最大でも 10 μm/年程度）であることが判明し、温度、pH や塩化物イオン等により局部腐食が発生すると考えられた。

今フェーズでは、処分環境を見据えた現実的な腐食速度を求めるために、基礎的なデータを取得し、今後、長期的なステンレス鋼の腐食機構を評価していく一助とした。

3.3.2 ステンレス鋼の腐食速度

ステンレス鋼の腐食速度は、均一腐食を仮定し、腐食にともなって生成する水素ガス量から評価した。そのため、ガスフロー型腐食試験により 30℃の条件で連続的に腐食速度を取得し、経時的な変化を評価した。また、アンプルを用いたガス蓄積型腐食試験も併用して行い、温度影響を評価した。その結果を第 2 次 TRU レポート[2]で報告されている腐食速度 20 nm/y（試験期間約 600 日，pH12.4，Cl^-濃度 3,200ppm，35℃）とあわせ、図 3.3.2-1 に NaOH 水溶液（pH 12.5）での試験結果を示す。なお、その際の腐食反応は、に次の式とした。なお、ステンレス鋼は鉄、クロムやニッケルから成る合金であるが、第 2 次 TRU レポートと同様に、その成分主体である鉄の腐食反応式（$3Fe+4H_2O \rightarrow Fe_3O_4+4H_2$）を仮定して算出した。

腐食速度は 2 年程度まで漸減していき、それ以降はほぼ一定値に安定している。pH12.5（30℃）は 2 年以降、腐食速度はおよそ 0.4 nm/y を示し、第 2 次 TRU レポートの値の 1/50 であった。30，50，80℃のアンプル試験も似た経時挙動を示した。

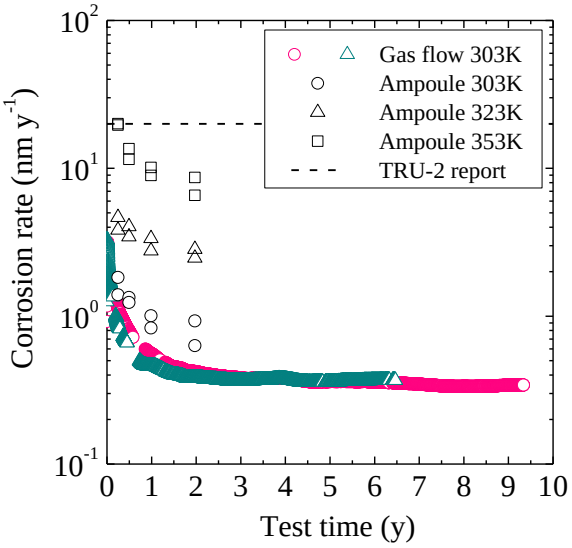


図 3.3.2-1　ステンレス鋼の腐食速度

3.3.3　ステンレス鋼の不働態皮膜の観察

ステンレス鋼の腐食速度およびその経時変化に対して、ステンレス鋼表面に形成する不働態皮膜の観察・分析を行ってきた。このうち、TEM を用いて調査を行った一例として純水系の 80℃、2 年の結果を図 3.3.3-1 に示す。表面に薄く存在する酸化膜はほぼ鉄と酸素から成り、一般的にステンレス鋼の耐食性を説明するクロムからなる表面酸化物層の確認はできなかった。これはクロム酸化物が極めて薄いため観察できなかった可能性があり、処分環境での耐食性や腐食機構を説明するための分析や評価については今後の課題である。

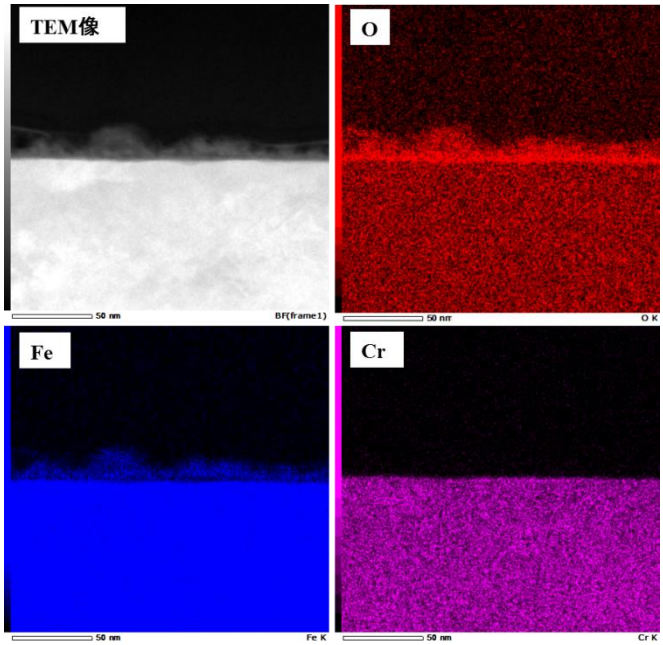


図 3.3.3-1　Cs-TEM 観察および EDX マッピング分析結果

3.3.4　ステンレス鋼腐食のまとめ

エンドピース中の C-14 の放出挙動を検討するため、想定される処分環境下でのステンレス鋼の基礎的な腐食速度・挙動を評価してきた。およそ 10 年間にわたる腐食試験により、ステンレス鋼の腐食速度は 30℃では 0.4 nm/y 程度であり、温度に依存性に留意する必要はあるが、第 2 次 TRU レポートにおける評価値の 1/50 以下となることを示した。このように、事業者による安全評価に際し、より現実的な値を提示することができた。一方、電気化学試験によりすきま腐食の発生可能性を否定できず、局部腐食の問題が残されており、また、ジルカロイやニッケル合金との異種金属接触腐食の評価も必要である。あわせて、腐食速度に根拠を与えるため、TEM 等を用いて腐食により形成する酸化膜の経時的な観察や分析を行うことが求められる。今後、腐食速度の妥当性を議論していく必要があるとともに、海水や炭酸イオンなどの環境因子が腐食速度に与える影響評価等も必要である。ステンレス鋼腐食の長期予測は将来残された大きな課題である。

3.4　炭素化学形態の調査

3.4.1　目的

放射化金属廃棄物（ハル・エンドピース）から C-14 が放出される。C-14 は半減期が 5000 年程度と長く、TRU 廃棄物の安全評価上、重要な核種となっているため、インベントリの合理的な設定方法や C-14 放出挙動などの検討を行い、ソースタームを現実的・合理的に評価設定することが必要である。また、C-14 は、無機化合物や有機化合物などの様々な化学形態を取りうると考えられ、その化学形態の違いによってバリア材への収着特性などの移行挙動が異なると予想される。しかしながら、これまでの安全評価では、化学形態の定量的な特定が難しいことから、保守的に収着特性はほとんど考慮されておらず、単一の化学形態が想定されている。したがって、将来、現実的で合理的な C-14 の移行特性の評価に反映させるためには、放射化金属から放出される C-14 を含む化合物の化学形態をより現実的に評価することが必要である。そのため、照射済みの燃料被覆管を用いた浸漬試験を行い、生成した C-14 化学種のグループ化の分析を行った。また、将来の化学形態生成プロセスの検討等に資するために、安定炭素を用いた化学種の分析方法の構築を行った。

3.4.2　照射済み燃料被覆管を用いた C-14 の化学形態の評価

3.2.3項で示した試験・手法で得た、被覆管から放出されたC-14の化学種グループの結果を図3.4.2-1に示す。浸漬初期は、ガス成分のC-14の割合が多いが、1年後からその割合は小さくなり、全期間を通じて数%程度であった。一方、溶存形態としては有機成分が優勢であり、全体としては概ね6割程度であった。これまでの安全評価ではすべて溶存有機として評価されているが、一定割合のガス成分や溶存無機成分も存在することが確認できた。そのため、安全評価において、核種移行シナリオや、移行パラメータの再検討が必要となる可能性がある。特に、金属の腐食等にともなって発生する水素ガスをキャリアとしたガス移行シナリオが、今後、重要となる可能性が

ある。なお、本検討の範囲では、各成分ともに詳細な化合物の特定までには至らなかった。浸出するC-14量が極めて少ないこと、目的の化合物に分画するために高度な技術が必要であることなどがその理由である。将来は、加速器質量分析などの高感度な手法を取り入れて、具体的な化合物の特定・定量の実施とともに、炭素化合物の生成機構が明らかになることが期待される。

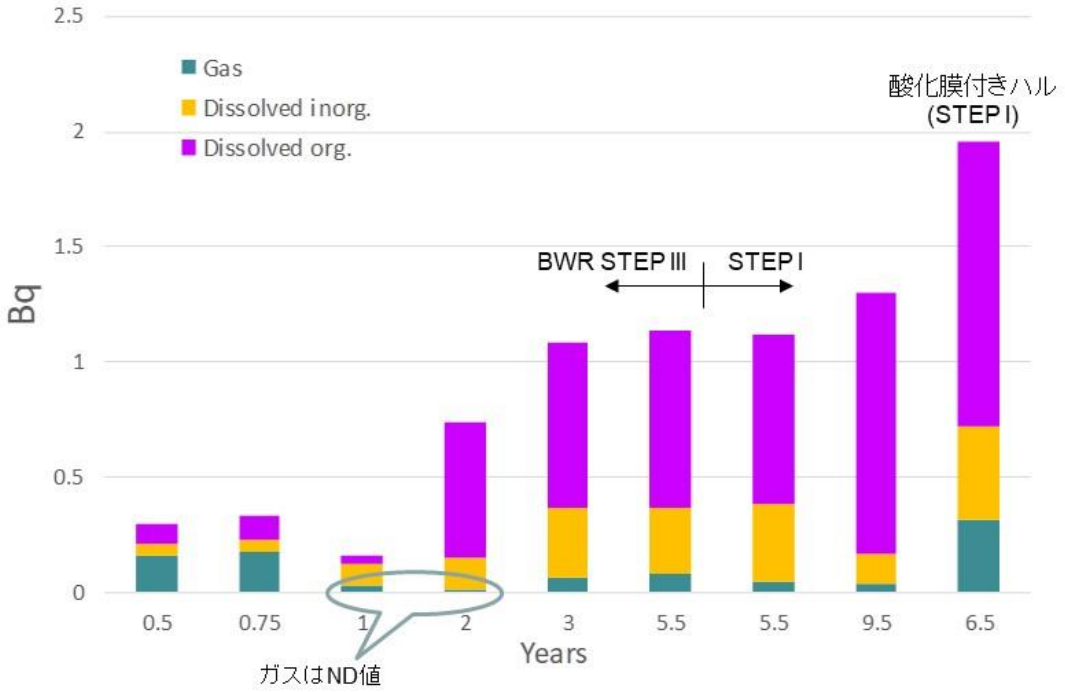


図 3.4.2-1　照射済み燃料被覆管（BWR）から放出された C-14 の化学種割合の経時変化

3.4.3　安定炭素を利用した化学形態の調査

(1) 想定される化学形態についての調査と結果

金属の腐食に伴い放出される炭素化合物（炭素の化学形態）を同定、定量するには、気相中とともに、水溶液中の炭素化合物の測定を高精度で行う必要がある。そのためには、化学形態の分析機器・手法の調査を行うに当たり、どのような化合物を分析し、どの程度の検出下限が必要とされるか把握する必要がある。本調査では、既往文献の調査等をもとに、想定される化学形態などについて調査した。その結果、有機炭素の化学形態の可能性については、Sabatier 反応や Fischer-Tropsch 反応機構などによって、無機形態の炭素からの還元反応によるメタン生成や、炭素-炭素結合を生じることにより、炭素数の大きな有機化合物の生成する可能性のあることが分かった。

(2) 化学形態の評価手法の構築

試験において、必要とされる炭素の分析機器・手法の調査を行った。金属腐食に伴う炭素化合物の生成について既往の知見を調査した結果、高感度かつ化学形態の特定に有効な分析方法として、気相部では四重極質量分析計（Q-MS）、ガスクロマトグラフィー（GC-TCD、FID）、液相部

ではイオンクロマトグラフ、液体クロマトグラフ-飛行時間型質量分析計（LC-TOF/MS）、TOC 分析計を適用することにより、目標とする成分の分析評価が可能であると考えられた。

気相部の分析方法として、図 3.4.3-1 にガラスアンプル開封器を Q-MS に直結したガス成分の分析システムを構築した。この装置では、ガラスアンプル開封器を質量分析計にセットした後、系内を不活性雰囲気にする。その後、蛇腹管を外から折り曲げることにより、ガラスアンプルの先端部を開封し、大気からのコンタミを極力減らした状態でガス成分を質量分析計に導入する。また、系内の途中にあるバッファータンクに残っているガスを用いて気相中の無機ガス分析を行った。アンプル開封器は、定量下限の維持のため、デッドスペースを極力減らした設計とした。

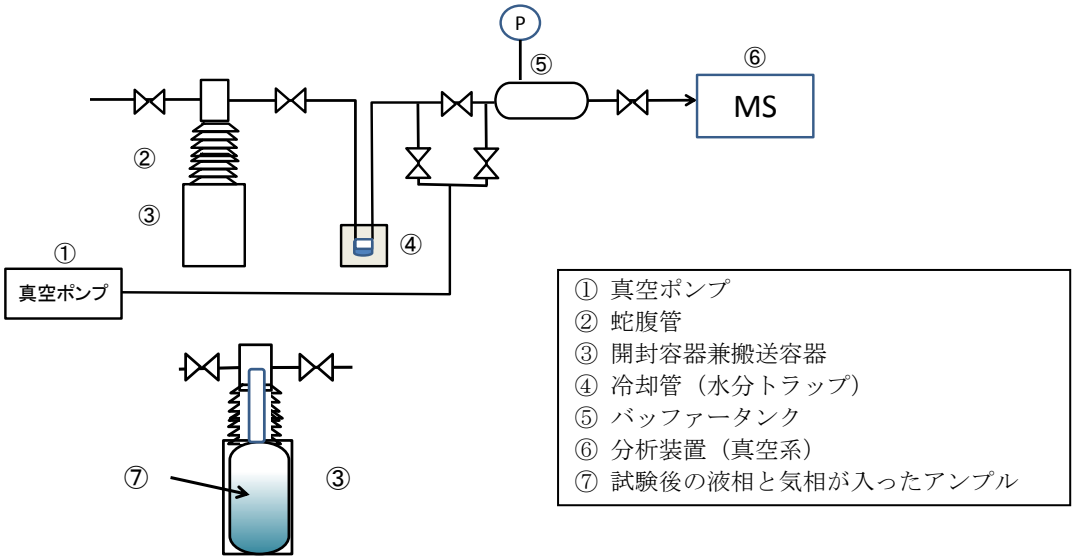


図 3.4.3-1　大気非開放サンプリング装置

液相部の分析には、クリーンルーム環境を活用することにより汚染レベルの低減を行った。既往の研究によれば、溶液成分としては、酢酸、ギ酸等の低分子有機酸、あるいはメタノールやエタノール等が検出されたとされている。しかし、これらは、実験室や一般環境の大気中 VOC 成分、あるいは実験員などの皮膚からの汚染も考えられる成分である。そこで、粒子フィルターおよびケミカルフィルターを装備したようなクリーンルーム内での分析や前処理を行うものとした。また、ガラスアンプル開封器をグローブボックス内に持込み、そこでサンプリングする方法も考えられたが、グローブボックスから取り出し分析装置まで持っていく間、さらに分析のためにシリンジで注入する際に大気と触れてしまう可能性が避けられないと考えられた。そこで、非大気開放条件で分析ができるシステムを構築した。ガスクロなどに用いられるインジェクションバルブ内に液相試料をサンプリングし、直接分析装置に注入できるものとした。このシステムの概念を図 3.4.3-2 に示す。

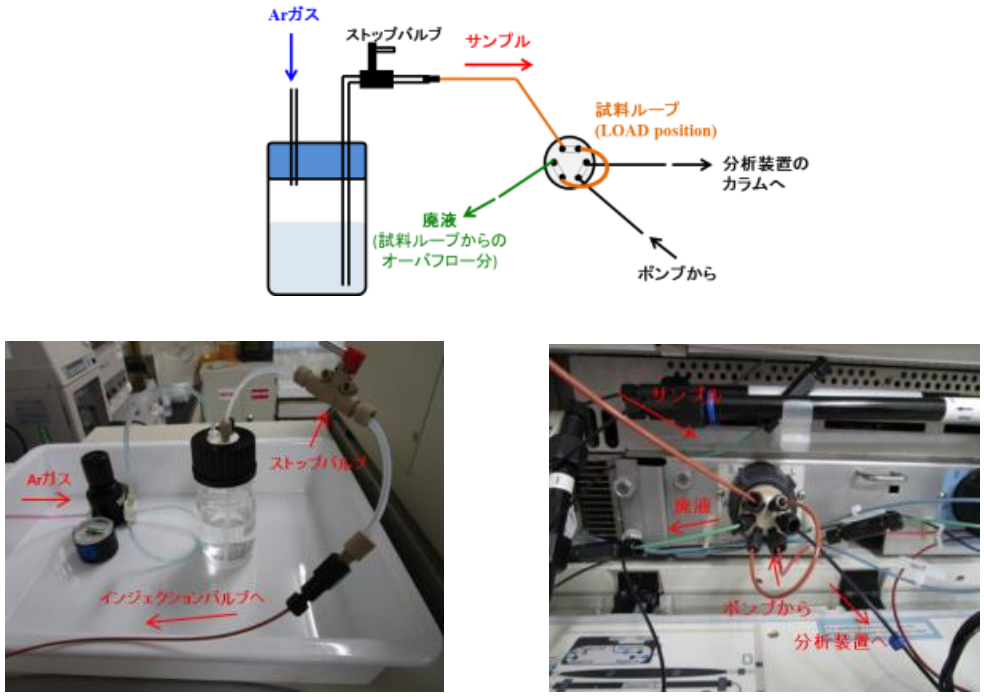


図 3.4.3-2　液相サンプリング全体のシステム

上記分析手法を用いた金属の腐食に伴い生成する炭素化合物の評価について、ガラスアンプル試験の試験フローを図 3.4.3-3 に示す。アンプル試験のメリットとして、腐食試験の開始からアンプル開封まで、環境からの炭酸等の目的炭素化合物の汚染が起こり得ないことが挙げられる。

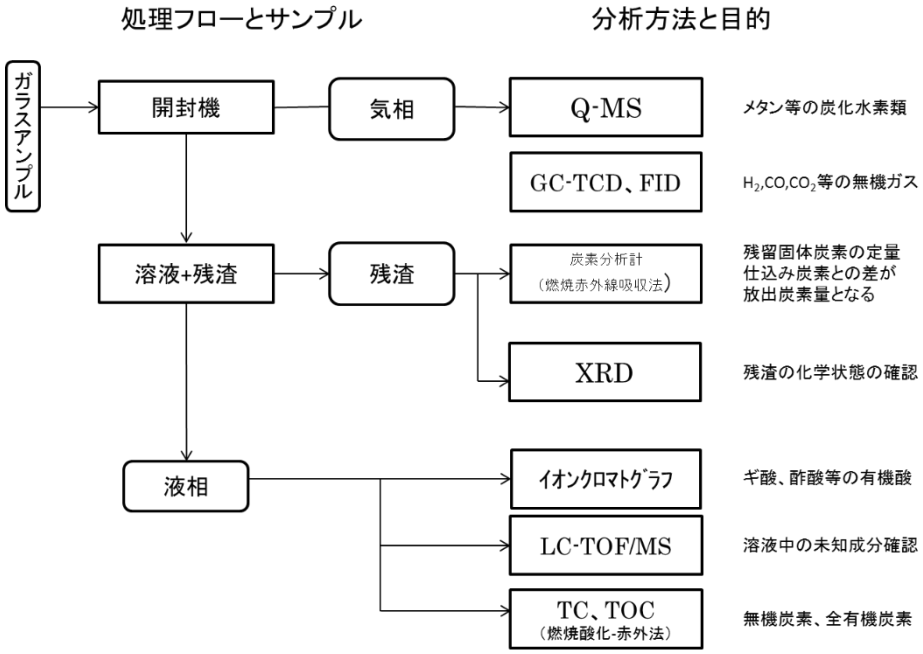


図 3.4.3-3　試験フロー

ガラスアンプル試験の本評価への適用の妥当性を確認するため、1%の炭素を含む鉄粉（高純度化学研究所）を用いたガラスアンプル試験を行った。試験前に鉄粉表面に付着していると考えられる有機酸類を除去するため、塩酸と純水で作成した洗浄溶液中に鉄粉を浸し、15 分間超音波洗浄を行い試験試料とした。腐食試験は酸性条件（希塩酸水溶液）で行い、鉄粉すべてを溶解させることで炭素をアンプル内に放出させた。収支の結果を図 3.4.3-4 に示す。なお、この結果の液相分析はクリーンルーム環境ではあるが大気開放下で行った結果である。その結果、炭素収支は非常に良い一致を示しており、液相成分より気相成分の生成が多いことが確認できた。また、環境・試薬等からの汚染の影響はないことが確認でき、高構築した試験手法の妥当性が確認できた。なお、中性やアルカリ条件で腐食試験を行った場合、一部の鉄粉のみ溶解する結果となった。溶解残渣の炭素量から求めた物質収支はいずれも炭素収支は整合せず、残渣の定量法に問題がある可能性がある。

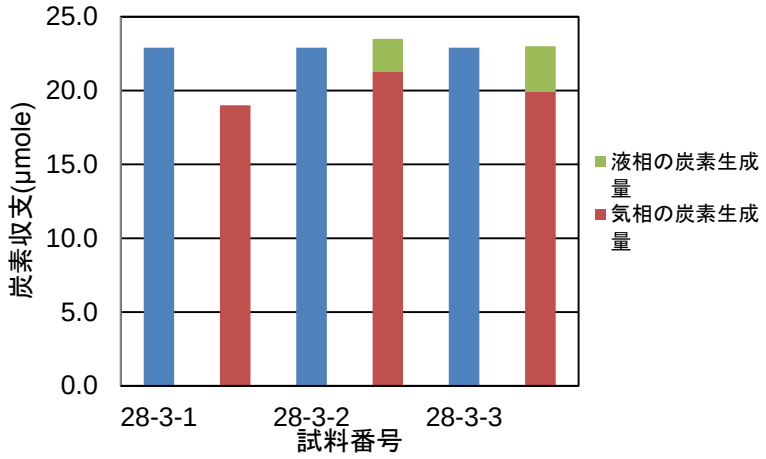
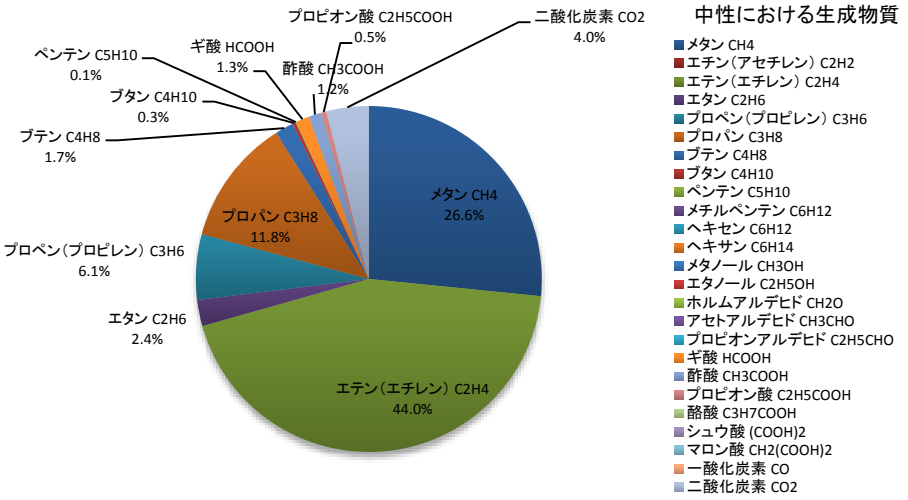
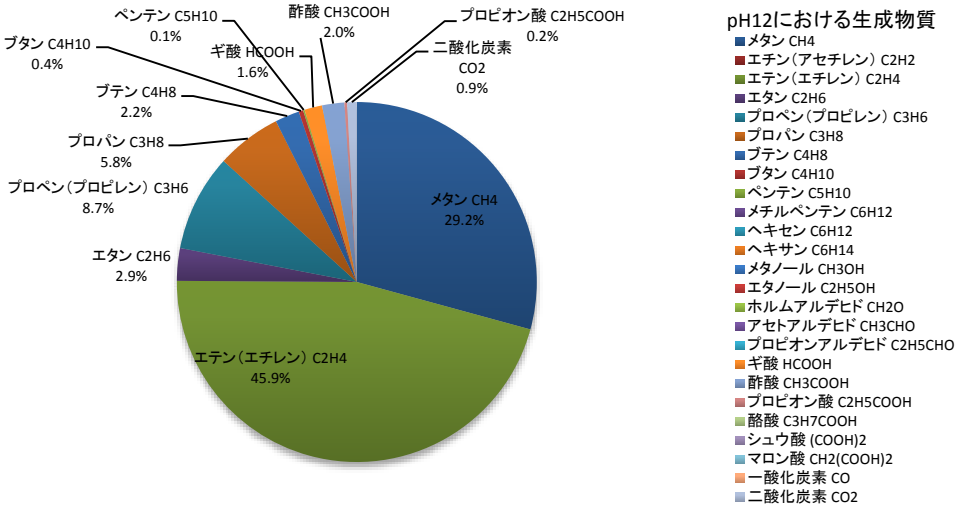


図 3.4.3-4　酸性条件の試験における炭素バランス算出結果

(3) 炭素化学形態の分析結果

鉄粉およびジルコニウム粉末を用いた中性（純水中）からアルカリ性（NaOH 水溶液）における腐食試験および上記手法で取得された炭素化学形態の結果を図 3.4.3-5 に示す。各材料について一定量の炭酸が確認されたが、分析システムにおける環境からの混入の可能性があるため留意した評価が必要であるが、おおむね以下の結果が得れれた。鉄粉では液性による影響は少なく、気相中の成分であるメタンおよびエチレンを主とした炭素化合物が支配的であり、ギ酸等の溶存の有機酸は僅かであった。一方、中性条件のジルコニウム粉末では、ギ酸、酢酸等の溶存有機酸で全体の 7 割程度を占め、メタン等のガス成分の炭化水素は 2 割弱と、鉄粉とは異なる化学種の構成であった。しかしながら、3.4.2 項で得られた照射済みのジルカロイから放出された C-14 の化学形態と同様の傾向が得られたことから、金属の種類によって炭素の化学形態は異なるが、未照射材のデータを照射材である実廃棄物の化学形態の推定や生成機構の検討に適用できる可能性がある。今後、材料の種類や、特に地下水環境による化学形態への影響などについて、詳細な検討・評価が期待される。なお、C-14 の化学形態の評価については、浸出時のみならず、処分システム全体での安定性や化学種の変化についても重要な課題である。





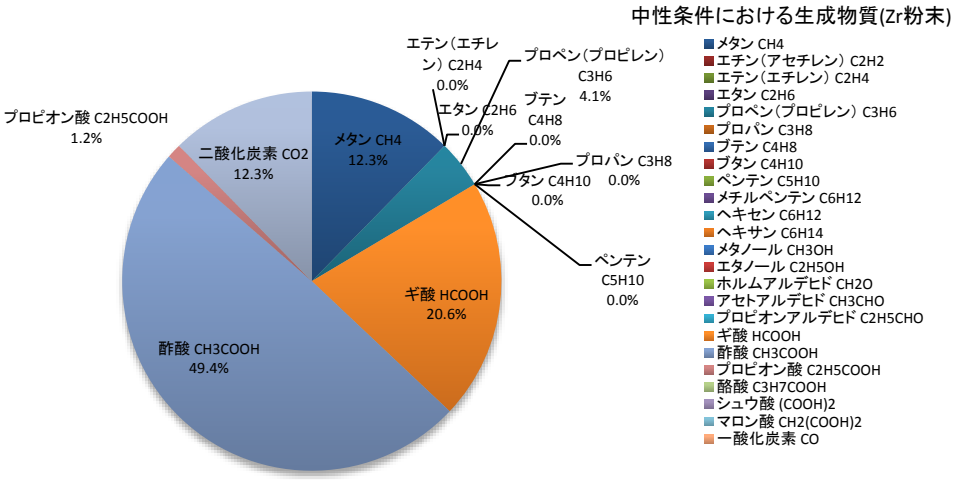


図 3.4.3-5　鉄粉およびジルコニウムから発生した炭素化学形態。上）鉄粉の純水浸漬結果、中）鉄粉の NaOH 水溶液（pH12）浸漬結果、下）ジルコニウムの純水浸漬結果

3.5 諸外国を含めた最新知見と課題

近年、欧州を中心に C-14 に関する課題が注目されてきており、EU（欧州連合）の研究プロジェクトのひとつとして、2013 年から CAST（Carbon 14 Source Term）プロジェクトが開始され、2018 年 3 月に終了を迎える。このプロジェクトは、放射化金属などの廃棄物を対象に、C-14 のソースタームの課題を評価・検討する国際共同研究であり 30 以上の機関が参加している。ソースタームのなかでも特に C-14 の化学形態の評価への関心が高く、分析手法の開発から照射済みの各種材料を用いた腐食試験等が行われている。試験期間は短期であるが、特に、照射済みの鋼材（ステンレス鋼等）を用いた C-14 浸出データは貴重な知見であり、以下のような国際的な最新の知見・情報が得られた。

まず、照射済みの鋼材の浸出試験や C-14 化学形態に関して概ね以下のような成果が得られている。

- C-14 インベントリは放射化計算で解析評価が可能であるが、計算の不確実性は 3-4 倍と見積もられる
- C-14 の浸出挙動は、初期に酸化膜由来と考えられる一定量の瞬時放出 C-14 が存在するが、その割合はインベントリの 1%以下と極めて少ない
- C-14 浸出率は経時的に低下し、ステンレス鋼の極めて遅い腐食速度と相関すると考えられる。
- C-14 の浸出形態は溶存種（カルボン酸）が多く、ガス成分（メタン）も一定量含まれるが、pH や金属種の影響は少ない。
- カルボン酸はアルカリ条件では不安定であり、高温では分解が確認される。

一方、照射済みのジルカロイに関しての成果は、上記鋼材と共通する部分もあるが以下のようにまとめられる。

- C-14 インベントリは放射化計算による解析と実験データが比較的良く一致するが、C-14 濃度は酸化膜が金属母材より高い。
- 極低濃度の C-14 浸出量の分析方法はチャレンジングであり、再現性など試験結果が整合しないケースがあるが、分析が非常に困難であり、高感度な手法を必要としていることに起因する。
- 浸出試験の結果、放出される溶存 C-14 は有機が無機より多く（一部異なる結果もある）、カルボン酸が主要な形態。ガス成分は炭化水素と二酸化炭素。また、合金タイプによる化学形態への影響は確認できない。
- 腐食速度は時間とともに低下する。酸化膜による遅延効果がある他、塩化物イオンの影響の可能性がある。
- 照射材と未照射材では腐食速度に違いがある。腐食速度は測定方法によって結果が大きくことなるが、水素発生量測定が最も信頼性が高い。
- 腐食と核種浸出の調和性は確認できなかった。
- IRF（瞬時放出率）は 10%以下。

プロジェクト全体の課題としては、特に炭素の化学形態の課題を中心に、安全評価への反映の観点から以下のようにまとめられた。

- 炭素化学形態については、今後のデータ蓄積とともに、生成プロセスの検討や、特に有機酸類の安定性が課題である。
- 腐食挙動や化学形態に対する処分環境や材料特性の影響を詳細に検討する必要がある。特にジルカロイについては水素吸収や水素化物による影響が懸念される。
- 瞬時放出（IRF）について安全評価への影響が大きいため、詳細な検討が必要である。
- 本プロジェクトでは短期のデータが中心であった。腐食速度や化学形態の評価では長期データが必要性であり、試験の継続が望まれるとともに、ジルカロイの腐食挙動については、遷移現象について検討する必要がある。
- 安全評価への反映としては、特にガス状 C-14 や水素ガスをキャリアとしたガス移行シナリオの検討、また化学形態の情報を反映した移行パラメータの評価等が今後重要となる。

以上の成果や課題から、本プロジェクトについて外部評価委員からは、これまで例がなかったプロジェクトであり、非常に難しい課題である C-14 の問題に取り組んだ姿勢が高く評価された。また、達成度として、全般的な課題に対する科学的な理解については明らかに達成できており、特に、腐食の専門家からは、得られた成果についても、スチールやジルカロイの腐食の分野でも新しい多くの知見が本プロジェクトで得られたと評価された。また、安全評価への反映の観点では、安全評価解析に使用できる有用なパラメータが多く取得され、特に、安全評価をサポートする基礎的な情報が取得できている。さらに、成果の普及の観点、人材育成の面でも高く評価された。一方で、今後も最新の C-14 分析技術などを活用し、継続的に C-14 問題に取り組んで欲しいとの期待も示された。

なお、上記の課題については、上記各節 3.2~3.4 で挙げられた本調査研究の課題とほぼ一致することから、国際的に課題を共有できたことも本調査の重要な成果である。特に、安全評価の観点から、C-14 の化学形態の詳細やその安定性・移行挙動が極めて重要である。また、金属の腐食等にともなって発生する水素ガスをキャリアとしたガス移行シナリオについて、今後の留意すべき課題として挙げられる。

参考文献

[1] 核燃料サイクル開発機構, 電気事業連合会 : TRU 廃棄物処分概念検討書, JNC TY1400-2000-001，TRU TR-2000-01 (2000).

[2] 電気事業連合，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 年 9 月 (2005).

[3] Yamaguchi, T., Tanuma, S., Yasutomi, I., Nakayama, T., Tanabe, H., Katsurai, K., Kawamura, W., Maeda, K., Kitao, H., Saigusa, M.: A Study on Chemical forms and Migration Behavior of Radionuclides in HULL Waste. Proceedings of ICEM 99, September, Nagoya, Japan (1999).

[4] 原子力環境整備促進・資金管理センター：平成 24 年度地層処分技術調査等 TRU 廃棄物処分技術ヨウ素・炭素処理・処分技術高度化開発－平成 19 年度～平成 24 年度の取りまとめ報告書－平成 25 年 3 月(2013).

[5] Sakuragi, T., Tanabe, H., Hirose, E., Sakashita, A., Nishimura, T.: Estimation of Carbon 14 Inventory in Hull and End-piece Wastes from Japanese Commercial Reprocessing Operation, Proceedings of the ASME 2013, 15th International Conference on Environmental Remediation and Radioactive Waste Management, ICEM2013, September 8-13, 2013, Brussels, Belgium (2013).

[6] Hansson, C. M.: The corrosion of steel and zirconium in anaerobic condition, Mat.Res.Soc.Symp.Proc.Vol.50 (1985).

[7] 三原ら：低酸素かつアルカリ条件における炭素鋼、ステンレス鋼及びジルカロイからのガス発生率及び腐食速度の評価.サイクル機構技報、NO.15 2002.6

[8] 本田ら：試験用容器および測定用容器，日本国特許第 2912365 号(1998).

[9] 本田ら：炭素鋼の腐食に伴う硝酸イオンの化学的変遷のモデル化、JNC TN8400 2005-023(2005).

[10] 財）原子力安全研究協会：軽水炉燃料のふるまい編集委員会,実務テキストシリーズ No.3 軽水炉燃料のふるまい 平成 10 年 7 月,(1998).

[11] Hillner, E.: Corrosion of Zirconium-Base Alloys-An Overview, Zirconium in the Nuclear Ineustry ,ASTM STP 633, 211-235 (1977).

[12] OECD NEA: Nuclear Fuel Behaviour in Loss-of-coolant Accident (LOCA) Conditions. 6846 (2009).

[13] Hillner, H., Franklin, E. G., Smee, J. E.: Long-term Corrosion of Zircaloy before ane after Irraeiation., Journal of Nuclear Materials 278, 334-345 (2000).

[14] Kido, T., Kanasugi, K., Sugano, M., Komatsu, K.: PWR Zircaloy cladding corrosion behavior: quantitative analyses, Journal of Nuclear Materials 248, 281-287 (1997).

[15] Sakuragi, T., Miyakawa, H., Nishimura, T., Tateishi, T., Corrosion Rates of Zircaloy 4 by

Hydrogen Measurement under High pH, Low Oxygen and Low Temperature Conditions, Mater. Res. Soc. Symp. Proc. 1475, 311-316 (2012).

[16] Sakuragi, T., Miyakawa, H., Nishimura, T., Tateishi, T., Long-term Corrosion of Zircaloy 4 and Zircaloy 2 by Continuous Hydrogen Measurement under Repository Condition, Mater. Res. Soc. Symp. Proc. 1518, 173-178 (2013).

[17] Sakuragi, T., Yamashita, Y., Akagi, M., Takahashi, R.: Carbon 14 distribution in irradiated BWR fuel cladding and released carbon 14 after aqueous immersion of 6.5 years, Procedia Chemistry 21, 341-348 (2016).

第4章 ナチュラルアナログ調査

4.1 調査概要

4.1.1 背景

(1) TRU 廃棄物の地層処分におけるセメントーベントナイト相互作用とナチュラルアナログ

地層処分システムの長期にわたる安全評価において、地層処分に対応する長期の時間スケールに着目し、安全評価上考慮すべき現象と類似した天然現象を、バリアシステムの長期挙動等の”現象理解”や放射性核種の移行挙動等の”性能評価”に活用する研究が「ナチュラルアナログ（NA: Natural Analogue）研究」といわれる。

本事業で対象とする TRU 廃棄物では、オーバーパックの機能がない坑道集積型の TRU 廃棄物処分場の人工バリアの基本構成として支保工、グラウト、インバートコンクリート、構造躯体、廃棄体間／内充填材等にセメント系材料の使用が想定されている。ベントナイト系緩衝材は人工バリアシステムの中での核種移行抑制において重要な構成要素の一つであり、ベントナイト自身の基本的な性能を長期にわたり確保機能が求められる[1][2]。これらの観点から、TRU 廃棄物処分場のベントナイト系緩衝材の長期健全性に係るセメント系材料との相互作用の長期評価は、高レベル放射性廃棄物の人工バリアシステム以上に重要課題として位置付けられている。

この相互作用におけるキープロセスは、セメント系材料から溶出する高アルカリ性の間隙水によるベントナイト（主にモンモリロナイト等のスメクタイト族粘土鉱物（以下、スメクタイトという。）を主要成分とする膨潤性粘土）中のスメクタイトの変質反応（Ca 型化、二次鉱物の生成、C-S-H 化やゼオライト化など）であり、この変質により、ベントナイトはその膨潤性が低下し、また、間隙水中の塩濃縮の結果セメンテーションや亀裂が発生し、低透水性の喪失等の人工バリアシステムの劣化を引き起こすことが指摘されている[3][4][5]。

これまでに、高アルカリ影響による緩衝材の変質に関する個別現象に関する研究[6][7]や、処分場における高アルカリ成分の影響に関する長期予測の検討[3][4][5]が実施されてきた。さらに、上記短期間の試験では得られていなかった現象や、長期予測によって得られたセメント系材料と緩衝材との相互作用による変質についても、比較的長期間の確証試験によってその一部が確認されてきている[8][9]。しかし、これらは実験室で得られたデータを入力情報として得られた解析結果、及び、その解析結果に関して小規模な試験体系で数年～10 年程度の間に確認したものであり、処分場における数万年以上にわたる人工バリア材の挙動をすべて確証することは困難である。

そのため、ナチュラルアナログにより長期挙動の直接的な証拠を取得してベントナイトの長期変質プロセスの現象理解を深め、さらに既存の室内実験や解析モデルと連携させて、それぞれのアプローチの特徴を踏まえて地層処分システムの長期健全性評価の信頼性を高めること

が重要であると考える。

(2)　ナチュラルアナログの要件とフィリピンのアナログサイトとしての優位性

地層処分システムにおけるセメント系材料によって生成される高アルカリ浸出水の生成・流出プロセスに酷似する自然系での地球化学的環境として、オフィオライトの蛇紋岩化作用（Serpentinization）が知られている。ここで、オフィオライトとは、過去の海洋性地殻が造山運動によって大陸地殻に衝上（のしあげ）した、玄武岩・斑れい岩・かんらん岩（超塩基性岩）などの数種類の岩石の組み合わせから成る層状複合岩体である。このオフィオライトでの蛇紋岩化作用に由来する高アルカリ地下水（温泉水も含む）の生成は、オフィオライトを構成するかんらん岩等の主構成鉱物であるかんらん石や輝石が天水との水－岩石反応により蛇紋石に変質する一連の反応過程によるものであることが解っている。この一連の反応過程で生成される低温蛇紋岩化作用を起源とする高アルカリ（高 pH、高 Ca 濃度）、還元性、発熱性などの地下水環境は、セメント系材料を大量に使用する TRU 廃棄物の処分場の環境と類似しており、ナチュラルアナログ研究の対象の場として絶好の環境条件である。

したがって、ベントナイト緩衝材とセメント系材料の相互作用に係わるナチュラルアナログにおいて必要な環境条件は、①ベントナイト層（Sediment）あるいはスメクタイトに富む粘土層、②高アルカリ地下水（Fluid）、③高アルカリ地下水の経路となる断裂系（Fracture）が存在することである。このような地質環境において、本ナチュラルアナログのコンセプトとして、スメクタイトに富む粘土層が断裂系に沿って上がってきている高アルカリ地下水と接触し、長期にわたりベントナイトと高アルカリ地下水の相互作用が生じている状態を考えている（図 4.1.1-1）。

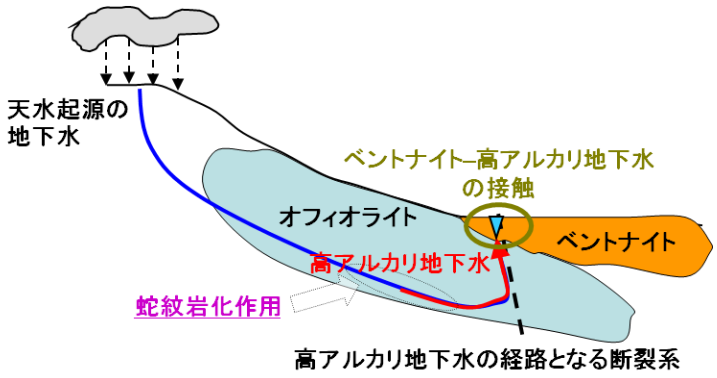


図 4.1.1-1　ナチュラルアナログのコンセプト

一方、このようなオフィオライトの蛇紋岩体の分布は世界的にみて特定の地域に限られ、フィリピンやキプロス[10]など極めて限られた地域にしか存在しない。

フィリピンの調査サイト（図 4.1.1-2）は本ナチュラルアナログの環境要件を満たす以下の特徴を有する。

① 蛇紋岩化作用が進行中で、高アルカリ地下水を生成するオフィオライトが広く、数多く分布し、それらの高アルカリ地下水の湧出水路として断裂系が存在すること

② 火山砕屑性堆積物起源のベントナイト鉱床やベントナイト層が高アルカリ地下水を湧出しているオフィオライトに直接または近接して分布していること

③ 島弧型の変動帯に属し、わが国の弧状列島のテクトニクスの場と酷似しているために、データ・知見の汎用性（適用性）があること

ルソン島北西部ではアルカリ温泉水が湧出するザンバレス(Zambales)オフィオライトとベントナイト鉱山（サイリー(Saile)鉱山）が近接して存在しており、高アルカリ地下水とベントナイト層が近接している。パラワン島中南部にもパラワン(Palawan)オフィオライトが存在し、蛇紋岩化作用に伴い形成される pH11 を超える高アルカリ湧水が見られ、それに近接してスメクタイトを含む堆積層が分布している。また、わが国の弧状列島のテクトニクスの場と変遷史に多くの共通な地質事象（地質構造発達事象とプロセス）があり、フィリピンにおけるベントナイトの生成環境と高アルカリ地下水の形成・進化過程に深く関与する地質環境が極めて類似しているために、取得したデータや解釈の汎用性が高いことが特筆される。

これらの地質環境と地球化学的現象の多くが想定された処分環境にアナログできることが、フィリピンでのナチュラルアナログ調査の有意性を示す最大の理由である。

本章では、前フェーズで実施したルソン島 Saile 鉱山のナチュラルアナログ及び平成 26 年度まで実施したルソン島 Bigbiga 地区のナチュラルアナログ調査で得られた知見と課題を踏まえ、パラワン島 Narra 地区で実施したナチュラルアナログ調査の結果を中心に取りまとめる。

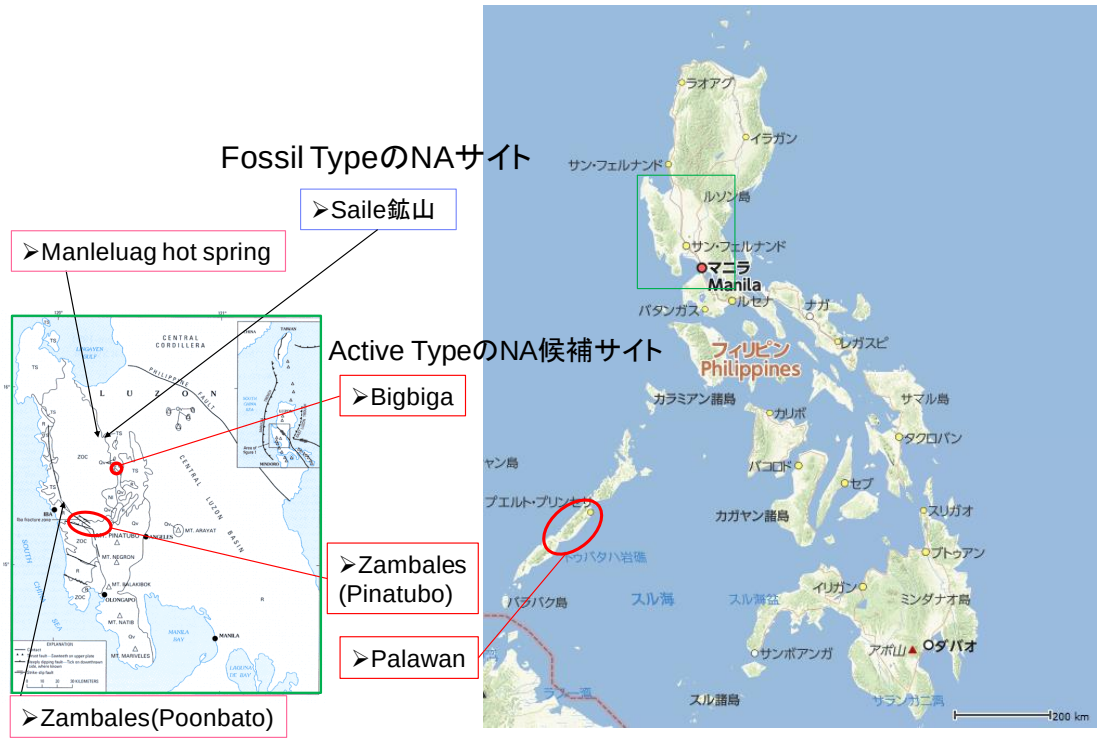


図 4.1.1-2 ナチュラルアナログ調査サイト

4.1.2　目的

本調査では、平成２５年度から５年程度の期間で人工バリア性能評価に係る技術的信頼性の向上及び技術基盤を確立するために、TRU 廃棄物処分における人工バリア性能評価に係るセメント系材料の影響による人工バリア（ベントナイト）の長期健全性について、ナチュラルアナログ調査を実施することで、アルカリ－緩衝材反応による緩衝材の長期変遷に関する直接的な根拠となるデータを取得し、それらフィールドデータと解析モデルを活用したアルカリ変質現象の解釈に基づき、その長期挙動評価の信頼性向上を図ることを目的としている。

そのために、セメントーベントナイト相互作用のナチュラルアナログが成立する環境である、現在も高アルカリ地下水が湧出し、スメクタイトを含む粘土質堆積物に浸出しているフィリピン国パラワン島中部（Narra 地区）を主な対象として、フィールド調査においてトレンチや試錐孔掘削等を実施して、調査サイトのスメクタイトの分布と地質環境の変遷等の地質環境を評価する。また、トレンチやアルカリ泉等の湧水から水試料を採取し、物理化学パラメータの現地計測や溶存イオン濃度等の分析から高アルカリ地下水の分布と地球化学的特性を評価する。

トレンチ等で採取したナチュラルアナログとなる岩石試料の鉱物・化学分析及び地下水の化学分析等を行いアルカリ変質に伴う鉱物変遷を明らかにし、スメクタイトの生成や安定性を評価する。さらに、アルカリ地下水により生じた炭酸塩層やそれに含まれる有機物等の年代測定を実施し、ベントナイトと高アルカリ地下水との反応時間について検討し、TRU のナチュラルアナログとしてとりまとめる。加えて、既にアルカリーベントナイトの相互作用が確認された事例を活用して、ベントナイトー基盤岩接触部で確認したアルカリ変質鉱物の生成に着目して地球化学モデル検証のための計算を実施して、ナチュラルアナログを活用した人工バリアの長期挙動モデルの高度化について検討する。

ナチュラルアナログ調査で得られた成果は、実際の処分環境とのアナログ性を明確にし、実験や計算モデルに基づく既存研究でのアルカリ環境下のベントナイトの長期挙動評価との比較・考察（長期評価モデルの検証）をおこない、長期評価モデルの信頼性向上を図る。

4.1.3　ルソン島 Saile 鉱山のナチュラルアナログ

(1)　Saile 鉱山周辺の地質環境と高アルカリ地下水ーベントナイト層の相互作用

Saile 鉱山地区、マンレルアッグ(Manleluag)温泉保養施設地区等はルソン島北西部に位置する。この地域には、フィリピン群島中で最大規模を有する世界有数の Zambales オフィオライトが、約 30~40km 幅でほぼ南北系に総延長約 130km で分布し、ルソン島西部の海岸山脈を形成している。調査地区に分布しているオフィオライトは、主に Saile 鉱山地区では、枕状玄武岩で、Manleluag 温泉保養施設地区では、細粒の斑れい岩（一部自破砕玄武岩溶岩が伴う）が優勢であり、より苦鉄質な岩相では蛇紋岩化された露頭が観察される。

このオフィオライトに整合関係で累重するアクシテロ(Aksitero)累層が Saile 鉱山のベント

ナイトの胚胎層であり、ベントナイトの主な構成鉱物は、モンモリロナイト、Ca－沸石（少量のモルデン沸石・斜プチロル沸石・輝沸石）、方解石、斜長石、石英と少量の普通輝石、不透明鉱物（磁鉄鉱・クロム鉄鉱）である。これらのベントナイト－沸石類を形成した初源物質（原岩）は、火山ガラス・火山軽石（パミス）・火山灰などを含有する凝灰岩質火山砕屑性堆積物であるが、一部遠洋性の浮遊性生物遺骸から形成された石灰質物質（燐灰石、方解石、コッコリスなど）が包有されている。ベントナイト層は、沸石層とほぼ水平な互層関係で堆積しており、モンモリロナイの自生鉱物としての特徴や熱水溶液との反応で生成された特徴的な変質鉱物の沈殿（結晶化）と分帯構造などや、第四紀の火山プラグの貫入による熱の影響を示す熱変質鉱物も観察されないことから、このベントナイト－沸石は、埋没・続成作用による地球化学的反応により形成されたものと解釈できる。

Zambales オフィオライトが分布する各調査地点のアルカリ地下水は、環境安定同位体比から測定値がフィリピン天水起源ライン[11]の $\delta D = 6\delta^{18}O + 7$ に乗ることから天水起源であり、高アルカリ（pH11 以上）、高 Ca 濃度（Mg 濃度は極めて低い）、還元性、温泉水程度の温度という低温型蛇紋岩作用などにともなう高アルカリ地下水生成の典型的な特性をもつ。これは地層処分での使用が想定される低アルカリセメント浸出水との高いアナログ性を示す。また、普通ポルトランドセメント(OPC)の $Ca(OH)_2$ の溶解平衡にある溶液（RegionII）としても、ルソン島の調査サイトの pH は OPC の RegionII 浸出水に比べると低いがアナログであるといえる。

Saile 鉱山では、ベントナイト層に直接アルカリ地下水が浸水している露頭観察されていないが、トレンチ底面の断裂系・破砕岩の内側の蛇紋石と外側の炭酸塩鉱物、採石場の多数の断裂系の存在と断層岩及びベントナイト表層の γ－水マンガン鉱（Manganite: MnO(OH)）の産状、ベントナイト層の重金属・軽希土類元素の濃度特性、基盤岩との接触界面のカリ長石など特徴的なアルカリ変質鉱物の産状等これらの地質鉱物学的証拠から、過去に高アルカリ地下水が断裂系に沿って上昇し、ベントナイト層に浸水していた Fossil Type のナチュラルアナログサイトとみることができる（図 4.1.1-1）。

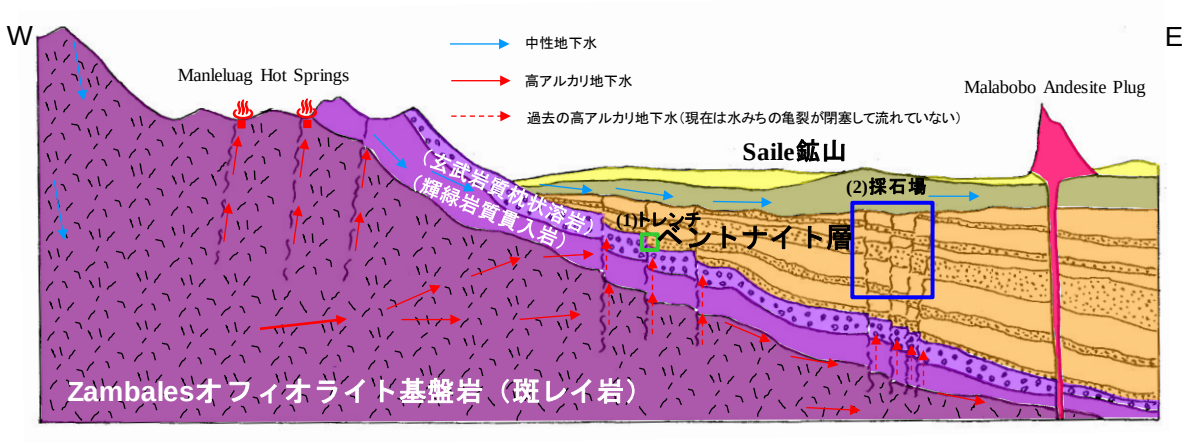


図 4.1.3-1　Saile 鉱山およびその周辺地域の地質構造（E-W 系断面図）

(2)　高アルカリ地下水環境下におけるベントナイトのアルカリ変質反応

Saile 鉱山鉱区内のトレンチで確認した基盤岩（枕状溶岩）直上のコンタクト部のベントナイトには、枕状玄武岩の波状的な表面からほぼ等距離の幅（約 40cm 程度）で主に炭酸塩鉱物（方解石）による特徴的な白色変質帯(Bleached Zone)が見られるが（図 4.1.3-2)、露頭スケールでスメクタイトのアルカリ変質の傾向を示す明確な鉱物組成の変化はみられなかった。また、この変質部は枕状溶岩の波状的な表面からほぼ等距離の幅で分布していることから、高アルカリ地下水が、オフィオライト基盤岩の断裂系を流路として浸水し、ベントナイトには拡散支配で移行したと考えられる。

Bleached Zone の方解石を含むベントナイトは、未変質帯ベントナイトに比べ、スメクタイト含有率が小さく、間隙率が小さく（乾燥密度が大きく)、含水比が小さい傾向がある。これは、ベントナイトの空隙に方解石が沈殿したことが主要因であり、空隙の減少で物質移行を抑制した結果ベントナイトの変質が抑制されたものと考えられる。

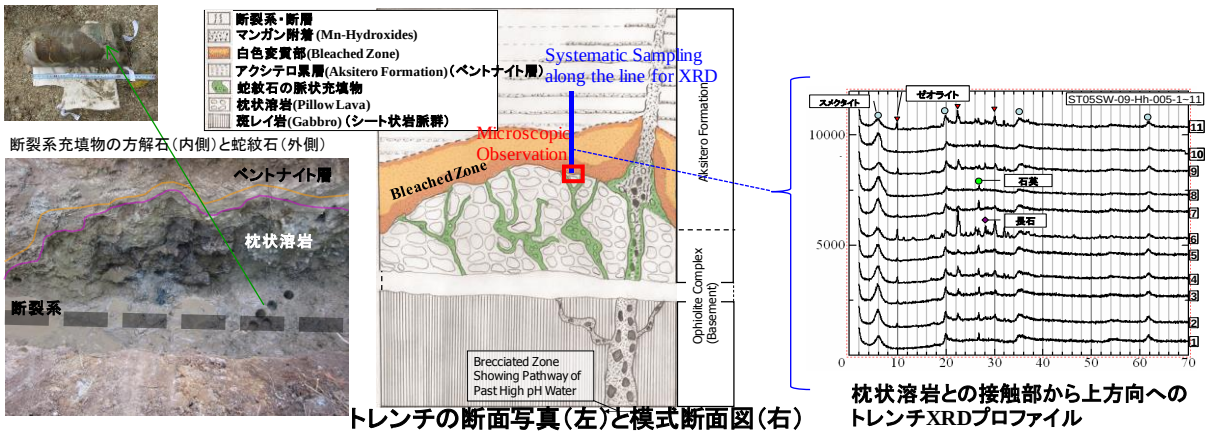
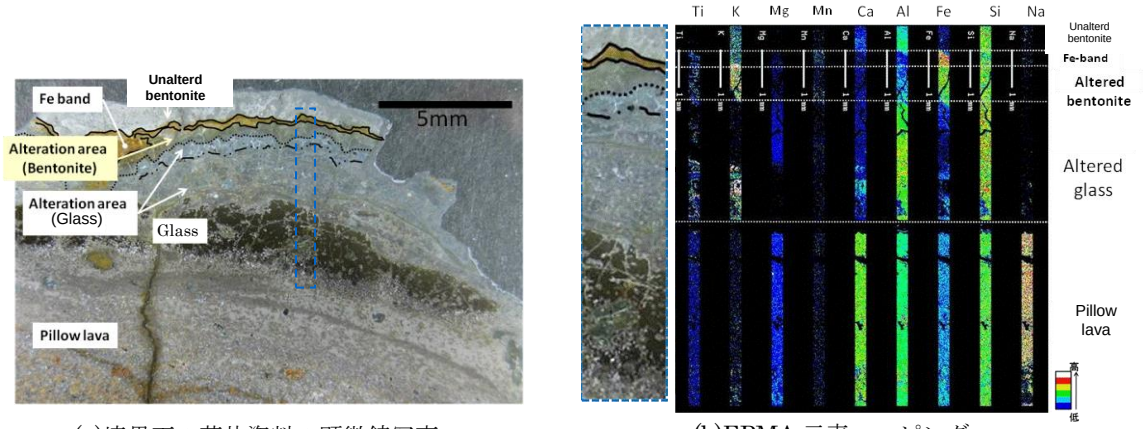


図 4.1.3-2　トレンチ断面の模式断面図と枕状溶岩接触部付近の XRD パターン

トレンチの枕状溶岩ーベントナイトの接触界面では、アルカリ変質反応により生成した、密度の低い変質ベントナイトゾーンと密度の高い鉄濃集帯(Fe-band)が確認され（図 4.1.3-3)、図 4.1.3-4 に示すように、変質ベントナイトゾーンでは、Fe 型モンモリロナイト、鉄サポナイト、Ca–沸石、シリカ鉱物及びカリ長石、鉄濃集帯では、粒状組織の針鉄鉱（ゲーサイト）と羽毛状のノントロナイトとカリ長石が同定された。。この変質反応による影響範囲は、約 5mm に制限されており、鉄濃集帯の外側は未変質ベントナイトであることから、この鉄濃集帯による空隙閉塞（クロッギング）によりアルカリ溶液の移行が抑制された結果、ベントナイトの変質が限定されたものと考えられる。

高アルカリ地下水とベントナイトの反応時間スケールについては、ベントナイト層に浸出していた基盤岩の断裂系からの高アルカリ地下水が止まった時間として、断裂系充填物の方解石の熱ルミネッセンス（TL: Thermo-Luminescence）法年代測定により数 10Ka(Kilo-annum：

1000 年前)オーダーであることを示した。また、超微化石による相対年代の評価から[12]、Aksitero 累層（ベントナイト）で 37.2~23.0Ma(Mega-anuum：100 万年前)（後期始新世～前期漸新世)、その上位の Moriones 累層で 23.0~15.9Ma（前期中新世）であり、Saile 鉱山採石場の断裂系が Aksitero 累層を切っているのに対し、不整合に上部に堆積している Moriones 累層を切っていないことから、断裂系が生じた際に高アルカリ地下水の湧水があったと仮定すると、23Ma 以前～数十 Ka までの長期にわたり高アルカリ地下水とベントナイト層との相互作用があった可能性が考えられる。



(a)境界面の薄片資料の顕微鏡写真　　(b)EPMA 元素マッピング

図 4.1.3-3　トレンチ–5 のベントナイト－枕状溶岩の界面の顕微鏡観察と元素マッピング

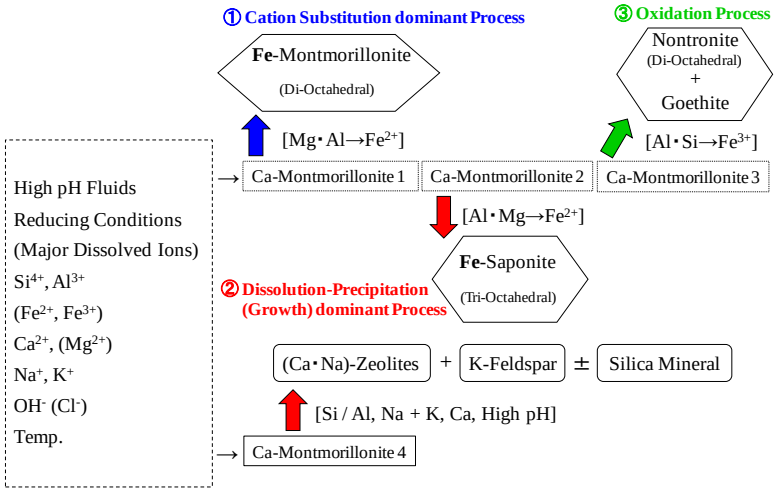


図 4.1.3-4　アルカリ環境下の Ca－モンモリロナイトの鉱物学的変遷過程

(3)　Saile 鉱山のナチュラルアナログから得られた知見と課題

Saile 鉱山のナチュラルアナログからは、天然でのベントナイトとアルカリ地下水との長期にわたる相互作用により明確にアルカリ変質生じていたことが世界で初めて確認された事例

である。しかしながら、アルカリ変質が生じていても鉄粘土鉱物等のクロッギングにより変質層が限定され、大部分のベントナイト鉱床が未変質で残存している。

ベントナイトのアルカリ変質の抑制のキーとなるのは、アルカリ環境下で溶存している Fe 成分が二次鉱物の生成に影響していることであり、この現象に係る反応プロセスとそれが生じる環境条件の範囲を今後より明確に解明する必要がある。また、当ナチュラルアナログサイトは Fossil Type のサイトであり、既にアルカリ地下水の供給が止まっているため、相互作用していたアルカリ地下水そのものの詳細な地球化学特性は不明であり、反応時間についても、いつからアルカリ地下水が流出したかを直接評価することは極めて困難である。これらの Fossil Type のサイトであるが故の限界から、現在もアルカリ地下水が流出している Active Type のナチュラルアナログサイトとして、次項に示す Bigbiga 地区において調査を開始した。

4.1.4　ルソン島 Bigbiga 地区のナチュラルアナログ

(1)　Bigbiga の地質環境と低アルカリ地下水による変質プロセス

Bigbiga 地区は Saile 鉱山の南南東 30km に位置する（図 4.1.4-1 右下）。Saile 鉱山と同様に西部の Zambales オフィオライトが西部の海岸山脈を形成している。Bigbiga 地区に分布しているオフィオライトは主に枕状玄武岩である。

このオフィオライト基盤岩に整合的に堆積層であるアクシテロ(Aksitero)累層が累重する点も Saile 鉱山と共通するが、Saile 鉱山周辺に分布する Aksitero 累層の岩相・岩質はより凝灰岩質砂岩～粘土岩であり、その原岩組成は安山岩質からデ―サイト質で、軽石. パミス、火山灰や斜長石、石英、少量の輝石などが含有しているのに対し、Bigbiga 地区では、石灰岩質砂岩～泥岩～シルト岩と塊状な石灰岩が優勢であるが、薄層のベントナイト質砂岩やベントナイト質泥岩は、特徴的な伸長されたパミスが観察される。

Bigbiga 地区の特徴的なナチュラルアナログサイトとしての利点は、Aksitero 累層の分布域に pH9.3 のアルカリ地下水の自噴井が存在することである。また、Bigbiga 地区の試錐孔（DH08 及び DH10）から採取したそれぞれのコア試料からは、アルカリ地下水がベントナイト質の粘土岩に作用していたと考えられることから、低アルカリ地下水が長期間ベントナイト質堆積層に作用する現象を自然界で適切に抽出可能なナチュラルアナログと位置付けられる。

既存井戸(Well-1)とその近傍の試誰孔(DH08)、および、これらの南西に位置する既存井戸(Well-3)とその直近の試誰孔(DH10)を包含した概念的な二次元水理地質構造モデル（図 4.1.4-2）から、低アルカリ性地下水の流動位置（深度）を検討すると、その流動位置は、基盤岩内および近傍に発達している断裂帯内部にあることから、DH08 孔では 11m、DH10 孔では、34m と算定できる。その流動方向について試誰柱状図から基盤岩深度から動水勾配を想定すると、低アルカリ性地下水は、DH08 孔（基盤深度：約 11m）から東の既存井戸(Well-1)へ流動し、南に位置する DH10 孔（基盤深度：約 34m）へ流動するものと考えられる。更に、DH08 孔（基盤深度：約 11m）において、堀削深度約 15m近傍から自墳開始し、その自墳量

は深度約 22m(pH 9.1)で最大になった。その後、堀削深度約 28m で既存井戸(Well-1)が堀削泥剤により白濁した。この白濁現象は、DH08 孔と既存井戸(Well-1)の低アルカリ地下水の裂か水の主要な水路が連結していることを意味する。

この自墳深度や白濁深度での母岩は、細粒斑れい岩 / 輝緑岩の岩脈である。この岩脈は、断裂系（割れ目帯）がよく発達しているために、おそらく、低アルカリ地下水の水路としての空間場の提供に寄与したものと考えられる。また、この岩脈の上位には、脈状の非晶質シリカ鉱物の充填が顕著で、おそらく上方への定常量の流入を低減するようなキャップロック（遮水帯）としての役割も担っていたものと考えられる。

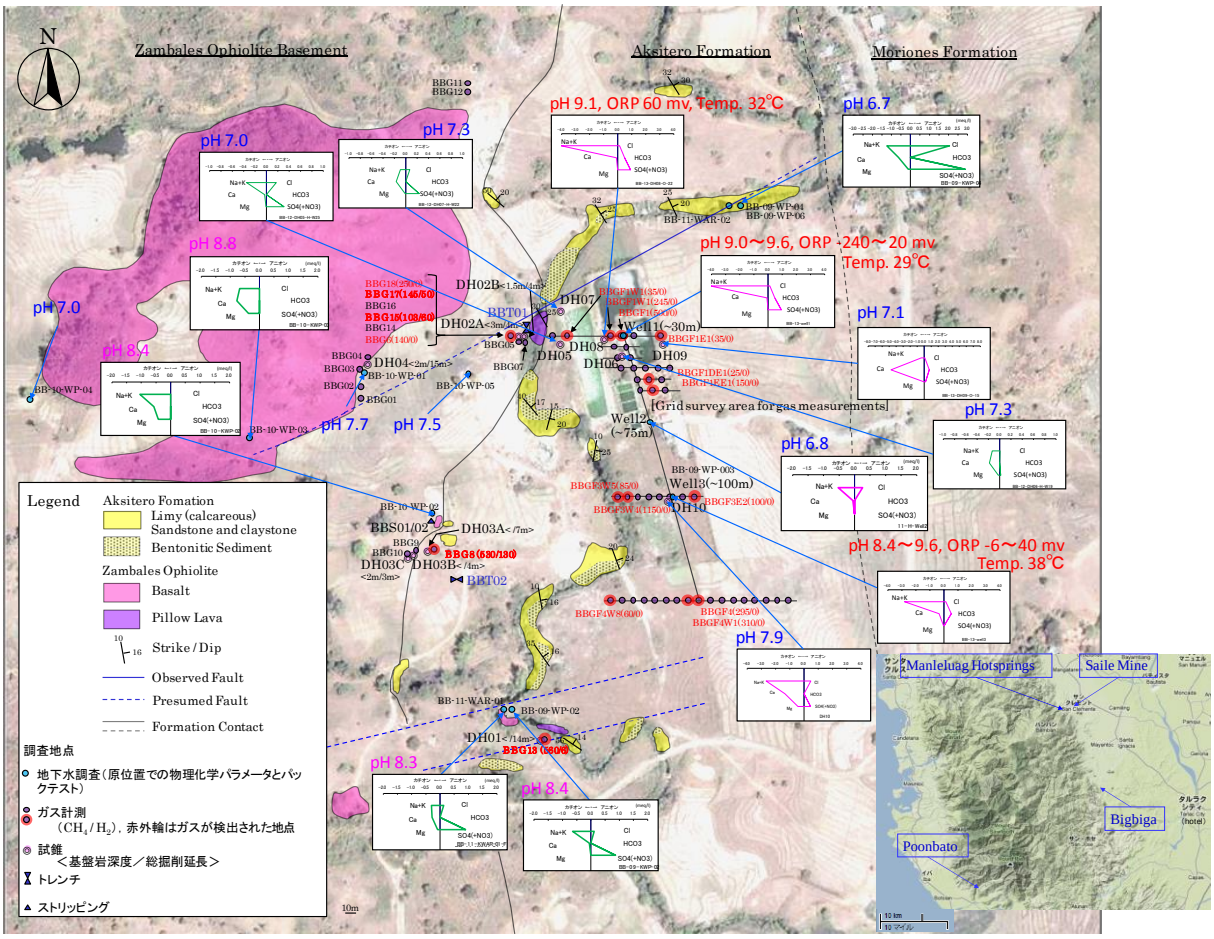


図 4.1.4-1 Bigbiga 地区の Compilation Map

このような環境下でのベントナイト質堆積物に含有されているモンモリロナイトの低アルカリ性地下水との変質反応をまとめると以下のようになる。

① モンモリロナイトの鉄イオンとの反応を伴う変質（溶解・沈殿）反応

(Ca)-モンモリロナイト（2 八面体型）→ サポナイト（3 八面体型）/ 1 部 鉄サポナイト

(Ca・Mg →Fe^{2+})

→ ノントロナイト（2 八面体型）

(Al・Si→Fe^{3+})

② モンモリロナイトの溶解・沈殿反応

(Ca)-モンモリロナイト→斜プチロル沸石＋カリ長石＋方解石＋非晶質シリカ鉱物

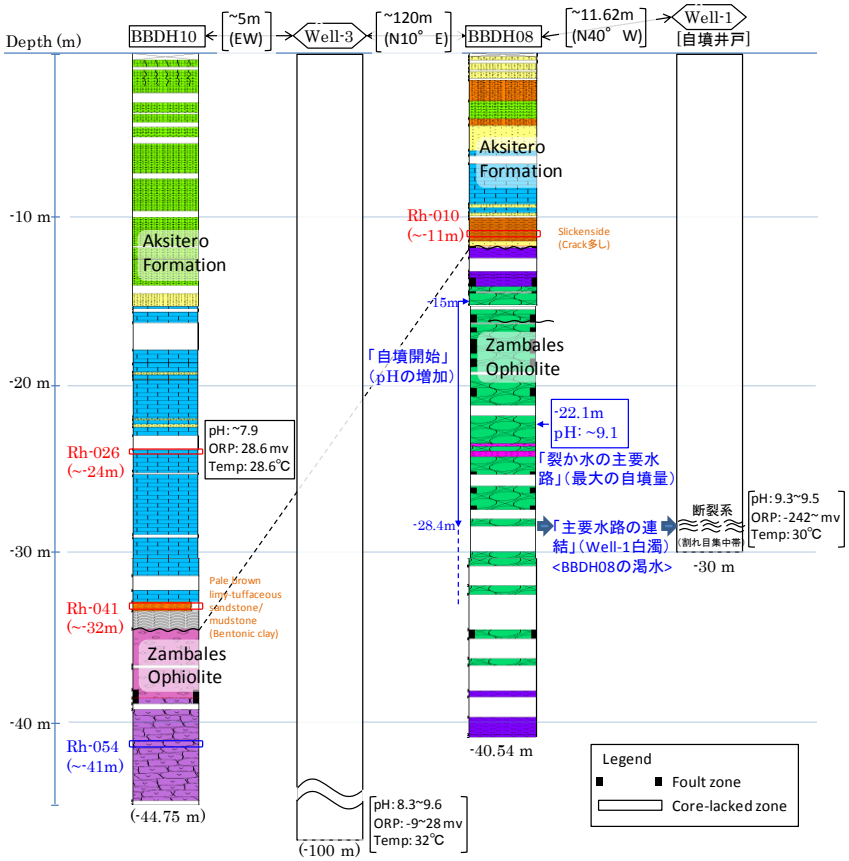


図 4.1.4-2 Bigbiga 地区の二次元水理地質構造概念モデル

(2) Bigbiga 地区のナチュラルアナログから得られた知見と課題

Bigbiga のナチュラルアナログでは、時間スケールは明確でないが、低アルカリ条件でも長期の相互作用ではモンモリロナイトがアルカリ変質する事例が観察された。

しかしながら、当ナチュラルアナログサイトにはベントナイトの溶解が顕著な条件でない pH9.5 程度の低アルカリの地下水しか存在せず、またベントナイト質堆積物とのコンタクト部が深部にあるため、その影響範囲の観察・評価が難しい。

したがって、これら Bibiga 地区の調査結果を踏まえ、pH11 を超える高アルカリ地下水が現在も進出し、かつ変質による鉱物組成や物理状態の空間的な変化を把握するためのサンプリングが可能なサイトとして、pH11 を超えるアルカリ湧水を複数地点で確認したパラワン島中部においてナチュラルアナログ調査を進めることとなった。

4.2 ナチュラルアナログサイトの地質環境調査

4.2.1 パラワン島 Narra 地区の地質環境及び地下水環境

(1) 地質概要

Narra 地区は、パラワン島州都・プエルトプリンセサから南東約 35km に位置する Narra 州・Caguisan 地域・Panacan 地区にある。調査サイトは、パラワン島東部にあるスール一海（フィリピン諸島とボルネオ島北部の間の内海）の海岸線から約 6km 西方に位置し、その標高は海抜約 60m で、東へ緩傾斜する平坦地（河川扇状地様地形）である。この調査サイト規模は東西約 80m、南北約 150m の範囲である。

Narra サイトに分布する原岩は典型的なマントル起源のオフィオライト火成岩類で、主にハルツバージャイトと、少量のレールゾライトで代表されるいわゆる超苦鉄質複合岩体(Beaufort Ultramafic Complex)で、その後貫入したスタバーリイ斑れい岩(Staverly Gabbro)の岩脈・岩床で構成されている[13]。班れい岩の岩脈は小高い丘を形成するような地形的な高まりで特徴づけられる。また、Babatou 滝のクリーク上流部に、ハルツバージャイトに貫入した班れい岩の岩脈が観察できる。

このサイトの地質構造学的発展は、①パラワンオフィオライト（ハルツバージャイト質超塩基性岩体）の定置・隆起（図 4.2.1-1)、②パラワンオフィオライトの風化（図 4.2.1-2)、③パラワンオフィオライトの浸食－破砕－運搬－堆積による砕屑性堆積物の形成（図 4.2.1-3)、④砕屑性堆積物中に浸透する高アルカリ地下水との相互作用（図 4.2.1-4）と解釈することができる。

また、図 4.2.1-1～図 4.2.1-4 にはこのような地質環境においてスメクタイトの形成にかかわった源岩の鉱物組成と化学成分を合わせて示す。Narra サイトで同定・観察されたスメクタイトは、パラワンオフィオライト（超苦鉄質複合岩体）が定置後(33~23 Ma[14][15])、地表に露出し、風化作用（浸食・破砕・削離・運搬・沈積・堆積/再堆積プロセス）により供給された砕屑性堆積物（堆積性の超苦鉄質岩礫あるいは、超苦鉄質岩起源鉱物粒子）の堆積過程で形成された風化起源のものと、その後、この風化作用で形成されたスメクタイトが、母層であるこの砕屑性堆積物の固結過程（岩石化）で、蛇紋岩化作用により生成・進化したアルカリ地下水との接触によりアルカリ変質反応の地球化学的場（系）に晒されたものとに区別できる。

その堆積環境からは、その形成過程が、いわゆる「風化－侵食・削剥－運搬－堆積－岩石化（続成作用）プロセス」を示す現地性の砕屑性堆積物で、この堆積物に層間内礫として挟在する礫の大きさや扁平された亜礫の形状から判断して、その運搬距離は遠いものではないといえる。また、堆積物には班れい岩起源の礫や降下火山灰層を確認しており、貫入した班れい岩質の砕屑物や近隣の火山島からの火山灰が堆積したイベントが過去に生じていたと考えられる。

更に、砕屑性堆積物に現生化石であるカワニナ（沿岸域で棲息し、淡水・海水を棲み分ける）が観察・同定されていることから、一時期、浅海性（沿岸域）環境下での堆積／再堆積があったことが考えられる。

Major Constituent Minerals				
	Main Minerals	Mineral Composition	Modal Volume	Main Components
Harzburgite	Mafic Minerals	Opx***	◎	Mg, (Fe), Si, (Al)
		Ol***	◎	Mg, (Fe), Si
		(Cpx)**	△	Mg-Ca, (Fe), Si, (Al)
		(Amph)*	△	Mg, Ca, (Fe), Si, Al, Na, K
	Opaque Minerals	Chr	△	Cr, Mg, Fe
		Cr	△	Cr, Mg, Fe, Al
		Mt	△	(Mg), Fe
Gabbro	Mafic Minerals	Cpx*	○	Mg-Ca, (Fe), Si, (Al)
		Opx*	○	Mg, (Fe), Si, (Al)
		(Ol)**	△	Mg, (Fe), Si
		(Amph)*	△	Mg, Ca, (Fe), Si, Al, Na, K
	Feldspars	Plag	◎	Ca, Si, Al, Na, K
		K-Feld	○	
	Silica Minerals	Qz	◎	Si
	Opaque Minerals	Mt	△	Fe

Initial Alteration of Palawan Ophiolite	
① Serpentinization* (Low Temp. Type SP)	
Chrysotile	Mg, Si
Lizardite	Mg, Si
② Chloritization* (Low Temp. Type Chl)	
Mg-Chlorite	Mg, (Fe), Si, Al

*Forbes et al.(2011); Aurelio and Pena (2010)

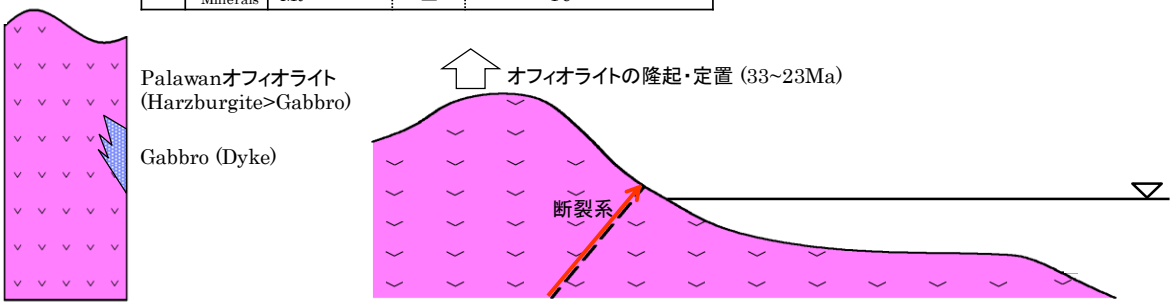


図 4.2.1-1 パラワンオフィオライトの定置

Weathering Processes		
Starting Materials		Formation of Smectite
Serpentinized Harzburgite Clasts (Rock Fragments)	Mg, (Fe), Si	(Mg-rich / Al-poor Smectite) Mg-Saponite [Trioctahedral Type] $[ExMg_3(Al_{0.33}Si_{3.67})O_{10}(OH)_2 \cdot nH_2O]$
Aggregates of Altered Mafic Minerals	Mg, (Ca), (Fe), Si, (Al)	(Fe-rich / Al-poor Smectite) Nontronite [Dioctahedral Type] $[ExFe^{3+}{}_2(Al_{0.33}Si_{3.67})O_{10}(OH)_2 \cdot nH_2O]$
Altered Gabbro Clasts	Mg, Ca, (Fe), Si, Al, Na, K	(Al-rich / Mg-poor Smectite) Beidellite [Dioctahedral Type] $[ExAl_2(Al_{0.33}Si_{3.67})O_{10}(OH)_2 \cdot nH_2O]$

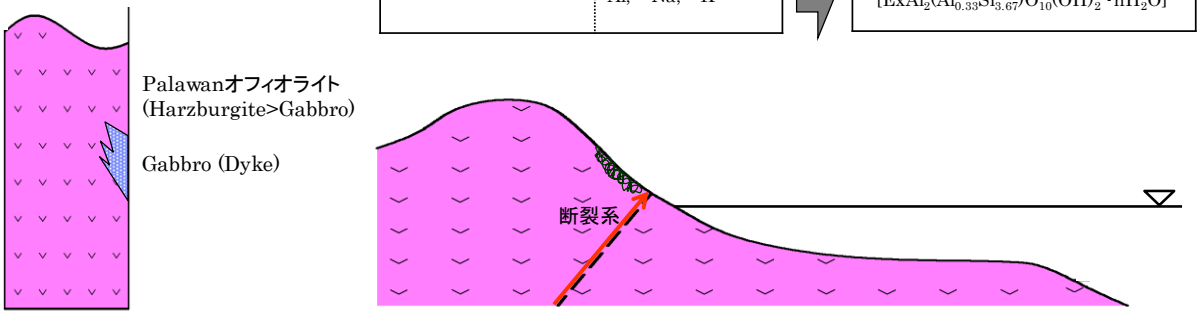


図 4.2.1-2 パラワンオフィオライトの風化

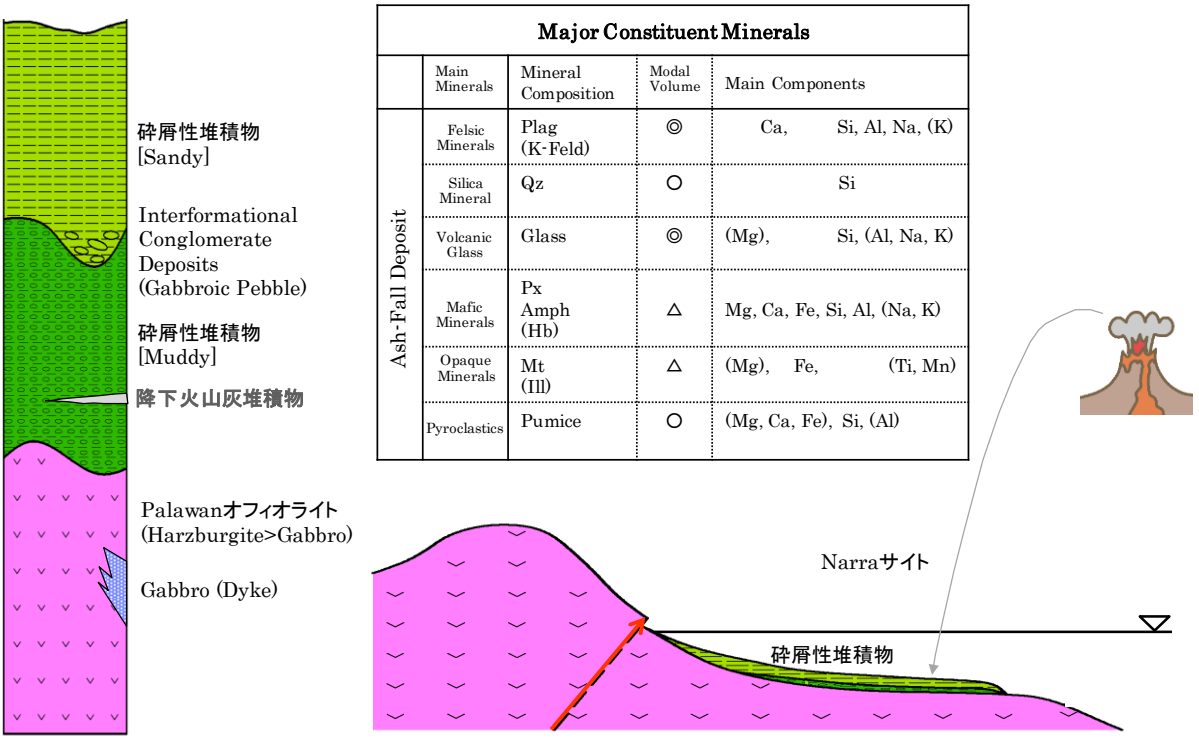


図 4.2.1-3　パラワンオフィオライトの浸食－破砕－運搬－堆積による砕屑性堆積物の形成

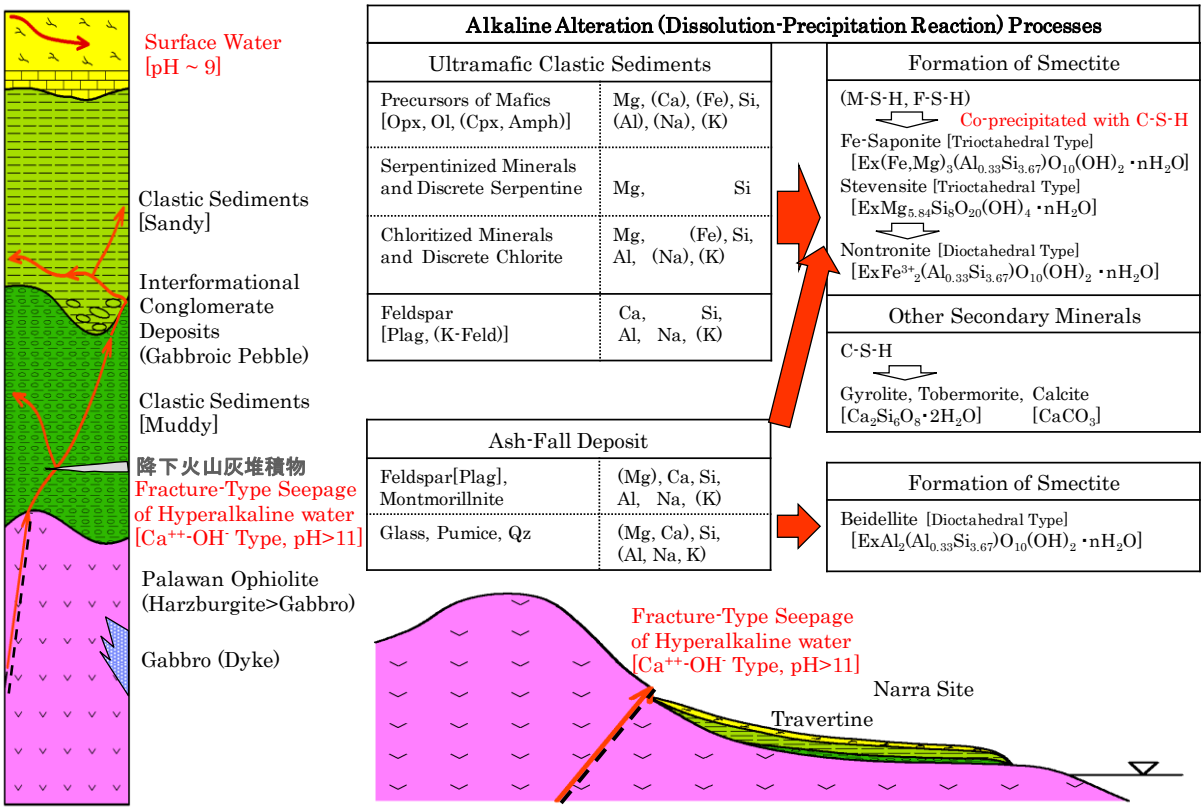


図 4.2.1-4　砕屑性堆積物中に浸透する高アルカリ地下水との相互作用

(2) 地下水の地球化学特性

Narra 地区におけるアルカリ湧水の流動系は、パラワンオフィオライト基盤岩の断裂系より湧水する裂罅水が、当サイトのアルカリ源泉地点(Narra3-1)を基点として、東方に開いた河川系扇状地様の緩慢な傾斜に沿って表層部を流下（ここでは表層水と呼称する）している。

表層地質は、前述しているように、表層部はトラバーチン（石灰華）起源のルーズな炭酸塩沈殿物である。局所的ではあるが深部へ向かって固結化（岩石化）が進み、炭酸塩堆積層または、塊状の炭酸塩岩が観察される。

トレンチ調査でのトレンチ 1～7 及び試錐調査での 4 孔において、アルカリ湧水位置（湧水源）は、砕屑性堆積物層まで届いていないトレンチ 1 を除き、炭酸塩堆積物（一部、炭酸塩岩）と下位の砂質で粗粒な砕屑性堆積物の境界及び、砂質な砕屑析堆積物と泥質な砕屑性堆積物の境界付近からである。これらのアルカリ湧水をここでは、浅層アルカリ地下水(pH > 11)と呼称する。

また、表層水を試錐掘削時に使用したにも拘わらず、すべての試錐孔内水は、アルカリ地下水(pH > 11)である。これらの事実から、浅層アルカリ地下水は、独立した水理場での流動系を保持しているものと考えられる。

一方、細いクリークを流下している表層水は弱アルカリ性（pH:上流は 9.2、中流は 9.6、下流は 9.6）を示す。この pH の差異は、浅層地下水のアルカリ湧水とは異なる水理場と流動系を持ち、降雨水との混和による希釈と、溶存している炭酸イオンによる緩衝により低減されたものと考えられる。

このアルカリ地下水の水理場やその流動系から、上位の砂質で粗粒な砕屑性堆積物、下部層・下位の泥質な砕屑性堆積物ともアルカリ地下水との確実な接触（貯留）する地球化学的な場（環境）であることが示唆される。

パラワン島の Narra 地区及びその他の湧水・地下水の水質データは、平成 26 年度報告書 2.5.7(p.230~245)[16]、平成 27 年度報告書 2.5(p.81~108)[17]、平成 28 年度報告書 2.4(p.92～108)[18]、平成 29 年度報告書 2.4(p.85～93)[19]に示し、これらの内、代表的な湧水（地下水）の地球化学的特性を表 4.2.1-1 及び図 4.2.1-5 に示す。

図 4.2.1-5 のヘキサダイアグラムから、トレンチ内からの湧水組成は、一部アルカリ金属イオンと炭酸・炭酸水素イオン濃度に若干の差はあるが、全体としての水質パターンは類似し、Narra サイトのアルカリ源泉のものと酷似している。アルカリ成分や塩素イオン濃度は、おそらく海水の影響を受けた証拠として考えられる。更に、殆ど検出限界濃度の Mg イオンは、世界的にオフィオライト起源の蛇紋岩化作用に伴うアルカリ湧水（地下水）組成に確認される普遍的な特性である。Zambales オフィオライトのアルカリ地下水(Poonbato)との比較では、Ca イオンより Na イオンが高い点は異なるが、Narra3-1 は海水影響があることも考慮すると、オフィオライト基盤岩中で生成されたアルカリ地下水の組成は比較的近いものと推測される。

このような pH と温度が高く、酸化還元電位が低い（還元性の）高アルカリ地下水との長期の相互作用をもたらす環境は、TRU 廃棄物の地層処分のプロセスアナログとして、高アルカリ環境下でのスメクタイト形成・進展についての考察が有効であることが示唆される。

表 4.2.1-1　ナチュラルアナログ調査地点（パラワン島及びルソン島）の水質分析結果

Site	Palawan Riotuba-Waterfall	Palawan Brooke's Point - 7 Falls	Palawan Narra -1 Hot Spring	Palawan Narra -3.2 Trench5	Palawan Narra -3.2 Trench6	Palawan Narra -3.2 Trench7	Palawan Narra -3.1 Hot Spring	Luzon Poonbato	Luzon Manleluag Hot Spring – M1	Luzon Bigbiga - Well-1	Low alkali cement leachates (PNC 1997)*
採取年 Sample No.	2015 Riotuba Mine O	2015 7 Falls 1 O	2015 Narra1 G	2017 Narra3-2 Trench5 O	2017 Narra3-2 Trench5 O	2017 Narra3-2 Trench5 O	2017 Narra3-1 O	2013 P-2 G	2013 M1 G	2014 Well1 G	1997
pH	10.01	9.31	10.50	11.27	10.96	11.16	11.28	11.41	10.80	9.52	11.09
ORP(Eh) [mV]	119	-387	-435	-100	-107	-141	-221	-111	-420	8	-
Temp [°C]	29.3	37.9	47.2	29.0	27.2	27.7	32.3	28.0	32.9	29.2	60
CH_4 [ppm]	0	0	>700	-	-	-	-	> 5000	2090	0 (0~560)	-
H_2 [ppm]	0	0	0	-	-	-	-	50~1320	0 (0~62)	0 (0~130)	-
Na^+ [ppm]	2.00	164	96.4	45.4	50.1	49.1	42.9	24.3	26.3	100.6	43
K^+ [ppm]	0.44	3.38	1.46	2.16	2.18	2.02	2.26	1.45	0.375	1.05	13
Ca^{2+} [ppm]	5.00	3.80	3.78	25.5	24.6	26.8	41.3	92.5	29.9	1.63	16.8
Mg^{2+} [ppm]	16.4	1.31	0.17	0.01	0.01	0	0	0.24	0.03	0.02	-
Si^{2+} [ppm]	< 0.5	31	86.4	3.46	5.77	4.27	0.40	11	17	72.3	
Al^{3+} [ppm]	< 0.01	< 0.01	0.19	0.14	0.19	0.18	0.30	1.41	1.05	0.97	0.3
$Fe^{(2^+3^+)}$ [ppm]	0.08	0.02	0.06	0	0.02	0.02	0	0.18	< 0.001	0.0058	-
Cl^- [ppm]	28.6	162	56.5	27.8	28.5	28.6	27.2	12.9	17.8	4.50	-
SO_4^{2-}[ppm]	0.03	15.7	6.34	0.08	1.92	0.63	0.02	0.05	0.364	48.0	-
HCO_3^-* [ppm]	21.2	121.0	-	3.0	9.2	8.9	1.6	1.6	30.0	135.6	-

* wt % - Portlandite Cement: Silica Fume: Fly Ash=40: 20: 40
**HCO_3^- - アルカリ度滴定結果から算出したHCO_3^- + CO_3^{2-}の値

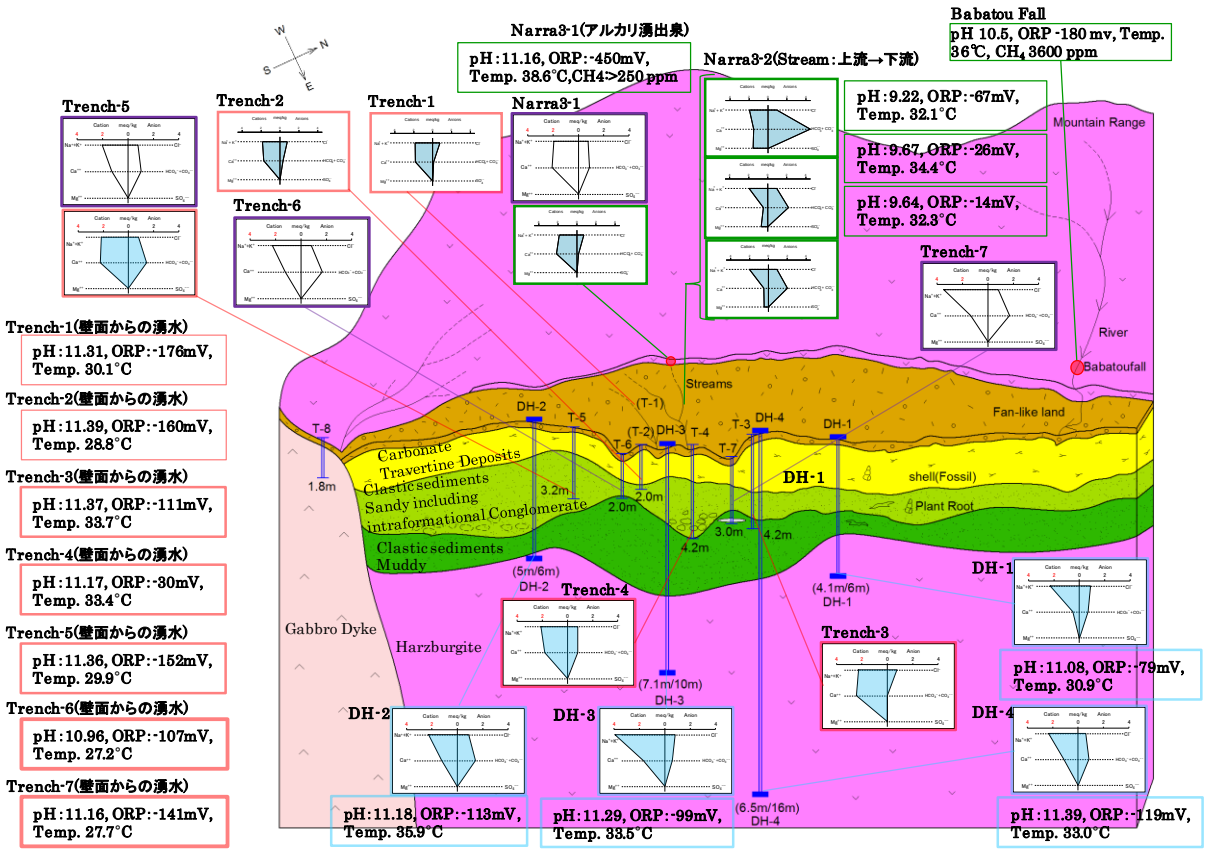


図 4.2.1-5　Narra3 調査地区の模式層序学的断面図と地下水（湧水）の水質

4.2.2　フィールド調査の着目点と試錐調査及びトレンチ調査

(1)　フィールド調査の概要と着目点

セメントーベントナイトのナチュラルアナログ調査研究は、文献調査（第一段階）→調査地の選定（第二段階）→アナログサイト選定のための地質概査（第三段階）→ナチュラルアナログ詳細調査（第四段階）→地層処分のナチュラルアナログとしての取りまとめ（第五段階）とする全体計画から、単年度のフィールド調査計画を立案して進めた[20]。

パラワン島でのナチュラルアナログ調査は、ルソン島 Bigbiga 地区のナチュラルアナログ調査での課題を踏まえ、全体計画の第三段階に相当する、pH11 を超えるアルカリ地下水の条件の新規のナチュラルアナログサイトの概査として、平成 26 年度[16]より開始した。その結果、pH11 を超えるアルカリ湧水を複数地点で確認した、パラワン島中央部の東部沿岸域に位置する Narra 地区（図 4.2.2-1）をナチュラルアナログの候補地として絞り込んだ。

平成 27 年度[17]の調査では、高アルカリ地下水がスメクタイト含有粘土層に直接浸水している Active Type のナチュラルアナログを探査・選定することを目的として、Narra 地区を中心に、地質概査、地下水調査及びトレンチ調査（トレンチ 1～2）を実施した。その結果、石灰華（Travertine）の平坦地となっている Narra3-2 地点で掘削したトレンチ 2 において、pH11 を超える高アルカリ地下水がスメクタイトを含む粘土質堆積物に浸出している露頭を初めて確認し、第四段階の調査に進めることとなった。

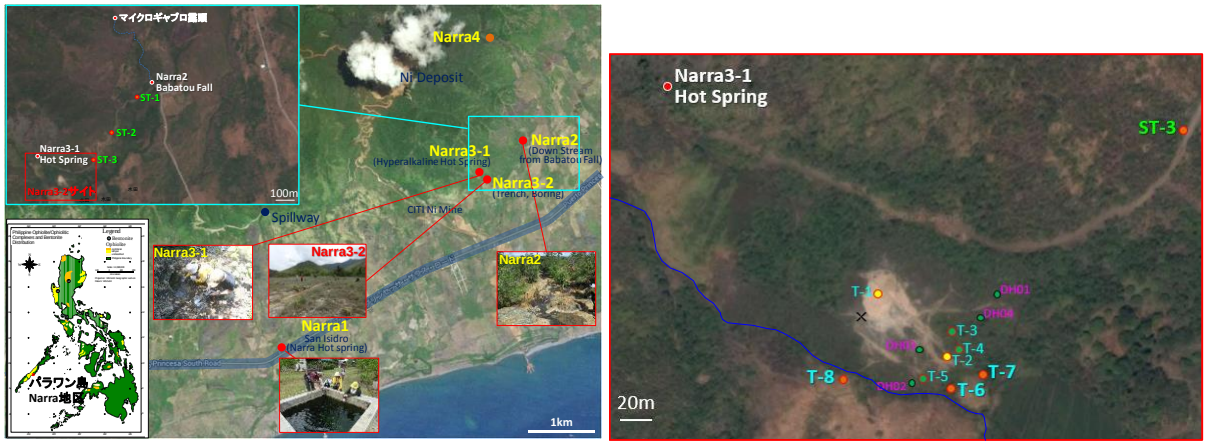


図 4.2.2-1　Narra 地区の調査地点（右は Narra3-2 地点のトレンチ調査及び試錐調査エリア）

平成 28 年度[18]の調査では、スメクタイトを含有する砕屑性堆積物の分布とその地質構造やアルカリ地下水の流動を把握することを目的とした試錐調査（試錐孔 DH01～DH04）、アルカリ環境下でのスメクタイトの生成や安定性に関わる現象を直接観察・分析するための試料採取を目的としたトレンチ調査（トレンチ 3～5）を実施した。その結果、Narra 地区でのパラワンオフィオライトの地質構造学的発展と砕屑性堆積物の形成過程の知見が得られ、砕屑性堆積物での変質反応によるスメクタイトの生成は、風化作用によるものとアルカリ溶液による溶

解・沈殿反応によるものがあると評価された。

平成 29 年度[19]の調査では、スメクタイトの生成についてアルカリ地下水との相互作用かアルカリ地下水を介しない風化によるものとの差を明らかにすることを目的として、アルカリ影響を受けていない露頭及びアルカリ環境下にある平原（Narra3-2 サイト）におけるトレンチ調査（トレンチ 6～8）及びストリッピング調査（ストリッピング 1～3）を実施した。

(2) 試錐調査

Narra3-1 地点の高アルカリ源泉の南東約 100m 下流側に分布する石灰華の平坦地となっている Narra3-2 地点での構造試錐 4 孔のコア観察結果及び鉱物学的特性・岩石化学特性（平成 28 年度報告書 2.5(p.92～144)[18]参照）から、パラワンオフィオライトの基盤深度は現地形、特に、古河川系に規制された地形面起伏の谷様窪み（凹部）に支配されており、基盤深度の大きなところでは砕屑性堆積物が厚く堆積し、下部層の層厚が厚く、局所的ではあるが黒色の粘土化が顕著である。これは堆積環境での間隙水との変質反応などによる粘土化のためだと考えられる。これらの結果を図 4.2.1-5 に示す Narra 地区の層序学的断面図に反映した。

(3) トレンチ調査（ストリッピング調査）

Narra3-2 地点におけるにおける 8 か所のトレンチ調査(トレンチ 1, 2（平成 27 年度報告書 2.6(p.109～238)[17]、トレンチ 3～5（平成 28 年度報告書 2.6(p.145～232)[18])、トレンチ 6～8（平成 29 年度報告書 2.5(p.94～109)[19]）参照)では、トレンチ 2～7 において、pH11 を超える高アルカリ地下水が浸出する、スメクタイトを含有する黒色粘土質の砕屑性堆積物を炭酸塩層の下位で確認した。

トレンチ壁面（図 4.2.2-2～図 4.2.2-4 参照）の観察結果と試錐調査で得られた柱状図の解析から、Narra3-2 地点の岩質は、図 4.2.1-5 に示すように最上位から、(i)未固結なトラバーチン起源の炭酸塩沈殿物、(ii)比較的固結した炭酸塩堆積物、(iii)黒色で粗粒砂質な砕屑性堆積物で、パッチ状に粘土質マトリックスが偏在的に挟在、(iv)(iii)の下位にルーズで不規則に配列したパラワンオフィオライト起源（一部班れい岩を含有）の扁平な巨礫や亜円礫が層間内礫層として挟在、(v)トレンチ底部の黒色の泥質（一部粘土化）な砕屑性堆積物である。ただし、トレンチ 7 でのみ、その床面近傍に、特異的な淡灰色からクリーム色な層厚約 20cm で、ほぼ水平に連続性のある降下火山灰堆積物（一部泥質なマトリックス）を確認している（図 4.2.2-5）。

トレンチ 4 及び 5 の西壁から採取した層内礫岩は、砕屑性堆積物・下部層に位置し、礫分布密度が乏しく、その産状に規則性のない層内礫岩層を構成している。この層内礫層は、おそらく、緩慢な平坦地形面に水量が多くない浅いクリーク（小川）が分布する小規模な氾濫性堆積物（層）の礫層として取り込まれたものと考えられる。礫岩は暗緑色から暗灰色の塊状で扁平な人指サイズの小さな礫岩である。これらの礫岩には、灰白色の脈状な繊維状鉱物が観察される。これらの礫岩の主要な構成鉱物は、斜方輝石・珪灰石・透角閃石で、少量であるが滑石と、一部苦鉄質鉱物の交代反応による緑泥石及び特異的である自形から半自形のジルコンが観察される。但し、これらの構成鉱物から一般的な斑れい岩特有の岩石鉱物学的特性が乏しく、石

灰質なケイ酸塩鉱物(例えば、スカルン鉱物)を形成するようなCa－富む熱水による交代作用を受けた岩石（例えば、珪灰岩）の可能性がある。

Narra3-2 サイトの南西部の小高い丘を形成している地点のトレンチ 8 はアルカリ地下水浸出の痕跡は見られないが、斜長石（曹長石)、普通輝石、角閃石、蛇紋石で構成される斑れい岩由来の風化堆積物であり、トレンチ 5 で一部 Al 成分の高い原因として考えられる層内礫層にはこのような斑レイ岩起源の岩石が含まれている可能性がある。

なお、トレンチ 1 は炭酸塩層が厚く砕屑性堆積物層まで達しなかったため、炭酸塩層しか観察できなかった。

ストリッピング調査（平成 29 年度報告書 2.5(p.113～119)[19]）参照)では、各ストリッピングにおいて細層化の度合いに差がみられるものの、大きな違いはなく、基盤岩の表層部は、塊状で、節理周辺での角礫化と、割れ目系優勢部での細礫化に伴う岩屑が顕著な物理的風化堆積物で構成されている（図 4.2.2-6)。細礫化が顕著である風化堆積物では、アルカリ地下水を介しない風化によるスメクタイト生成がみられる。

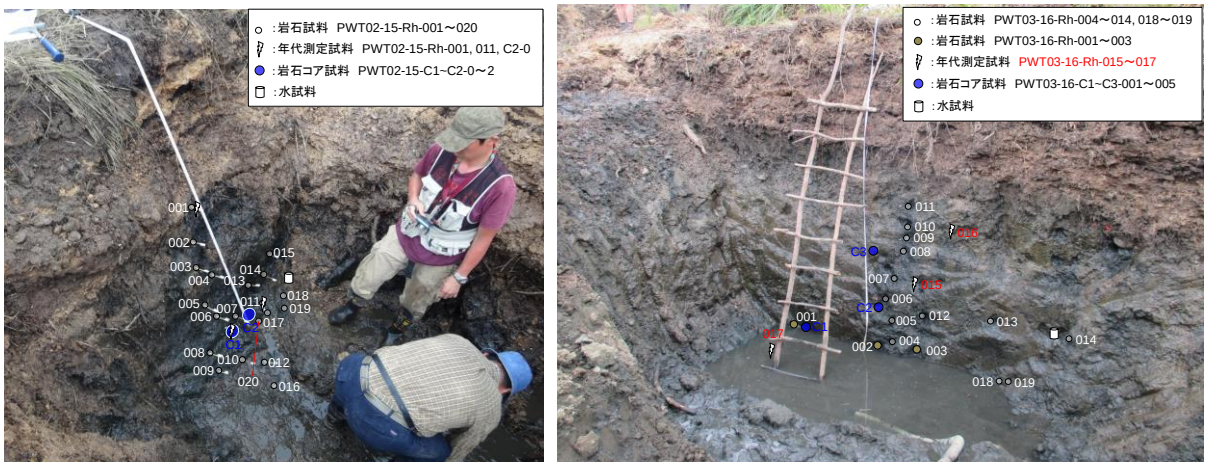


図 4.2.2-2　トレンチの壁面写真と試料採取位置（左：トレンチ 2、右：トレンチ 3)

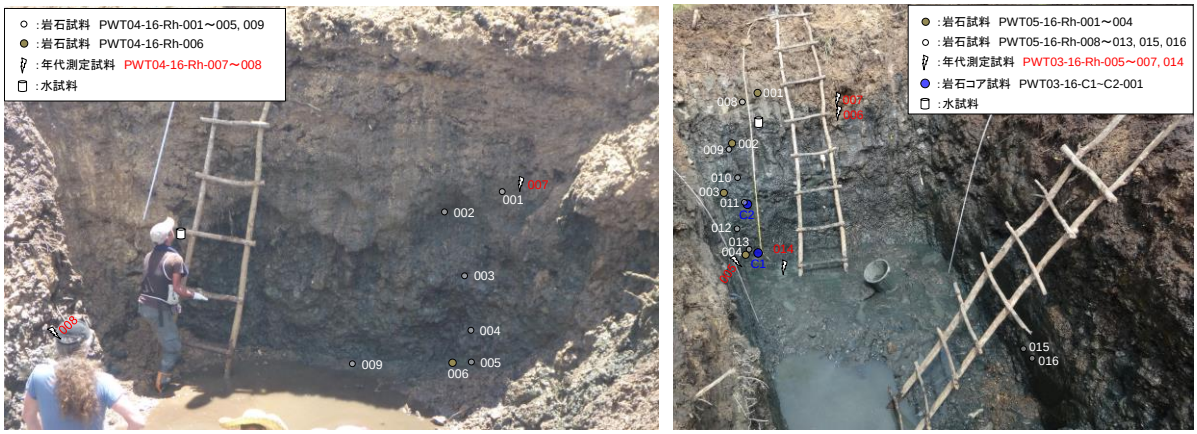


図 4.2.2-3　トレンチの壁面写真と試料採取位置（左：トレンチ 4、右：トレンチ 5)

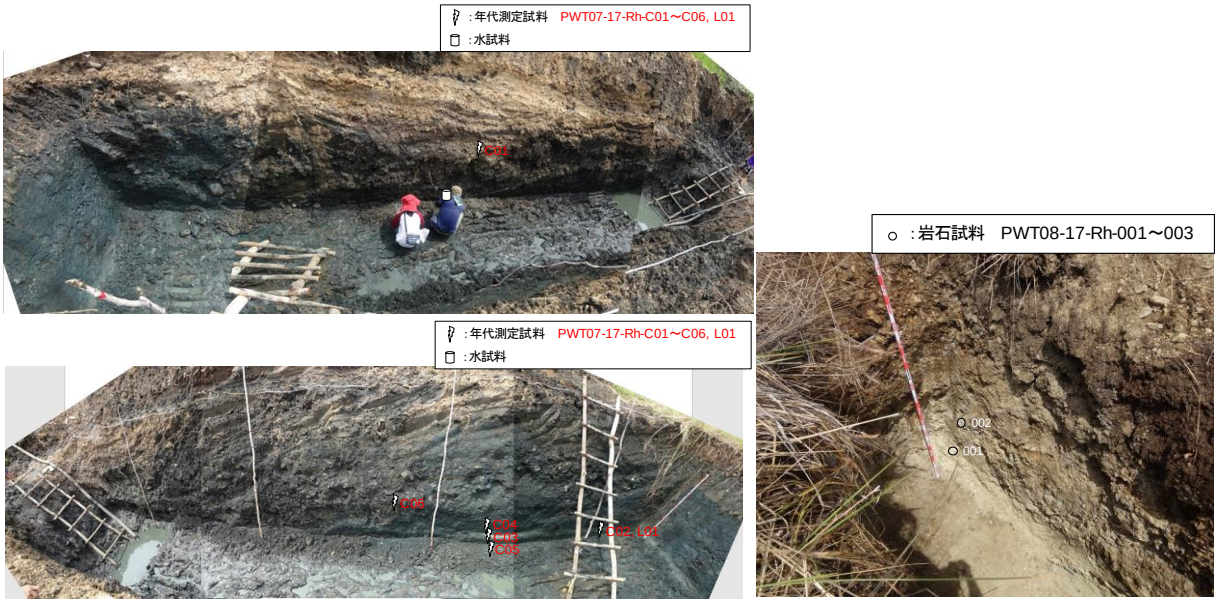


図 4.2.2-4　トレンチの壁面写真と試料採取位置（左：トレンチ 7、右：トレンチ 8）

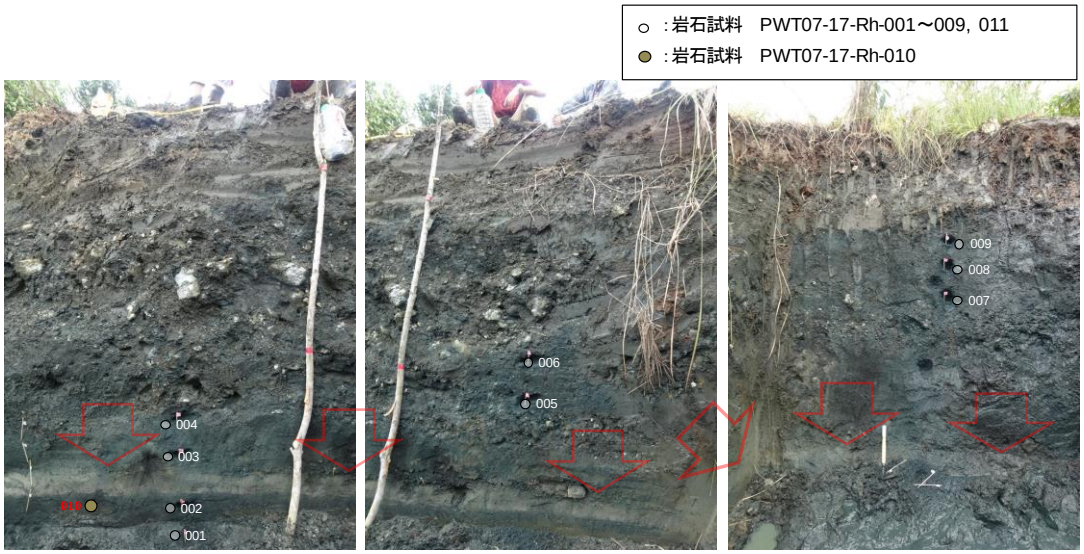


図 4.2.2-5　トレンチ 7 の東壁面（左・中写真）～南壁面（右写真）の底部の降下火山灰堆積物



図 4.2.2-6　ストリッピング 2 の壁面写真と試料採取位置

4.2.3　スメクタイト含有砕屑性堆積物の岩石鉱物学的・岩石化学的特性

スメクタイトの形成・進化プロセスを考察する上で、スメクタイトの形成環境は、パラワンオフィオライト（基盤岩：超苦鉄質複合岩類／超塩基性岩類：Narra サイトでは、主にハルツバージャイトと少量の細粒・粗粒の完晶質斑レイ岩）の隆起・侵食・運搬・堆積過程で特徴付けられる物理的風化環境プロセスで形成されたものと、アルカリ地下水環境下で形成したものの二つの反応が考えられる。

そのために、ナチュラルアナログサイトである Narra 地区のトレンチ、ストリッピングと試錐コアから採取した試料について、光学顕微鏡観察及び XRD による鉱物同定により、スメクタイト含有の砕屑性堆積物の岩石鉱物学的特性を調べた。また、スメクタイト化の度合いを把握するためモード分析によりスメクタイト等の定量を行った。さらに、XRF によって、岩石化学的特性を調べた。

(1)　光学顕微鏡観察による岩石鉱物学的特性

砕屑性堆積物の光学顕微鏡観察（平成 27 年度報告書 2.6.4(4)(p.194～238)[17]、平成 28 年度報告書 2.6.3(6)(p.190～232)[18]、平成 29 年度報告書 2.7.5(p.160～202)[19]）から、砕屑性堆積物中のスメクタイトについては、アルカリ環境下にある①（トレンチ 2～7 の）ハルツバージャイト起源の砕屑性堆積物と②（トレンチ 7 底部の）降下火山灰堆積物、アルカリとの相互作用のない物理的風化環境下の③（ストリッピングの）蛇紋岩砕屑性堆積物、④（トレンチ 8 の）班れい岩質砕屑性堆積物、に分類して、それらの鉱物組み合わせを以下にまとめる。

②アルカリ環境下の降下火山灰堆積物については、基質はスメクタイトが少なく、火山灰や火山ガラス、普通角閃石、斜長石などが散在し、岩片・鉱物片は、初生鉱物であるかんらん石は蛇紋岩化作用に伴い殆どが蛇紋石（リザルダイト・クリソタイル）に、斜方輝石も蛇紋石に変質し、一部、自形のアンチゴライト、磁鉄鉱、ブルーサイト、タルク、クロムスピンネル、不透明鉱物、粘土鉱物などである。

③物理的風化環境下の蛇紋岩砕屑性堆積物については、基質はスメクタイトが優勢であるがその量比は①よりも少なく、岩片・鉱物片は、初生鉱物（出発物質）であるかんらん石の殆どが、蛇紋岩化作用に伴い蛇紋石（低温型のクリソタイル・リザルダイト）、一部、自形の高温型アンチゴライトと、少量の磁鉄鉱、ブルーサイト、タルク、不透明鉱物などである。

④物理的風化環境下の班れい岩質砕屑性堆積物については、基質はスメクタイトが少なく沸石等が存在する可能性があり、岩片・鉱物片は、岩片として班れい岩（完晶質・等粒状、斜長石、斜方輝石＜紫蘇輝石の可能性>、単斜輝石、極少量のかんらん石（赤褐色に変質））と蛇紋岩（リザルダイトークリソタイルのメッシュ組織、蛇紋石の大部分が風化鉱物）、鉱物片として、斜方輝石は蛇紋石に交代、未変質な単斜輝石や斜長石である。

①アルカリ環境下のハルツバージャイト起源の砕屑性堆積物のアルカリ環境下での変質プロセスは、前駆鉱物の結晶構造を残存した固体状態で、反応縁や角閃石を取り巻くような交代・置換反応である。粘土鉱物の産状については、砕屑性堆積物の基質を充填するものと、主

に、蛇紋岩質岩石の蛇紋石粒間（間隙）を充填する 2 つのタイプがある。主要な粘土鉱物はスメクタイト（3 八面体型サポナイト）で、主に蛇紋石・透角閃石・緑泥石などからの交代・置換反応で形成されたものと考えられる。このスメクタイトの形成にとって、角閃石・緑泥石・斜方輝石からの Al・Mg・Si・Ca の供給源として提供したものと考えられる。また、班れい岩質の層内礫岩層や②降下火山灰堆積物から供給された長柱状から柱状の自形を示し、一部緑泥石やスメクタイトへ変質している斜長石がみられる部分もあり、この斜長石がスメクタイトの生成において Al・Si・Ca・Na の供給源として寄与していると考えられる。

C-S-H の生成が顕著なトレンチ 2 では、顕微鏡スケールで、この木根の内部に C-S-H 固相の沈殿が観察される。また、放射状（図 4.2.3-1）や羽毛状に結晶する特徴的な構造や炭酸塩との共存（図 4.2.3-1～図 4.2.3-2）も確認される。泥質な砕屑性堆積物中に顕微鏡スケールの C-S-H 固相と共生関係を示すシリカ鉱物がコロフォーム状に成長を示しているのも観察される。これはアルカリ地下水環境下での C-S-H 準安定相からの析出（結晶成長）を示す証拠になり得るものである。さらに、この C-S-H 固相と共存状態を示すスメクタイトが観察されている（図 4.2.3-2）。 このスメクタイトはこのアルカリ地下水環境下における沈殿した非晶質物質からの新たなスメクタイトの形成を示唆するものである。

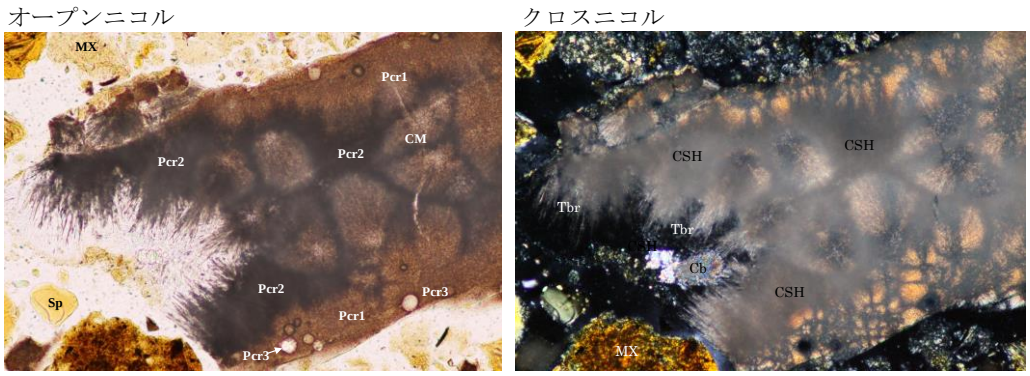


図 4.2.3-1　C-S-H の放射状のトバモライト（トレンチ 2 PWT02-15-Rh-016 の偏光顕微鏡写真）

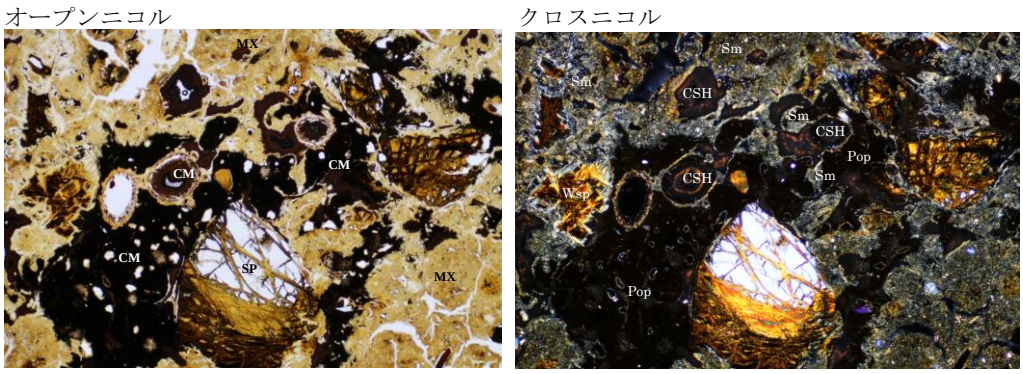


図 4.2.3-2　C-S-H と共生するスメクタイトの産状（トレンチ 2 PWT02-15-C2-2-001 の偏光顕微鏡写真）

(2)　スメクタイトの定量分析

スメクタイト化の定量（平成 29 年度報告書 2.7.6(p.200～213)[19]）については、モード分析（図 4.2.3-3）から、①アルカリ環境下のハルツバージャイト起源の砕屑性堆積物で 39.3～44.1%、③物理的風化環境下の蛇紋岩砕屑性堆積物で 33.0%、②アルカリ環境下の降下火山灰堆積物で 16.4%であり、XRD のピークの強さとほぼ整合するが、XRD からは①アルカリ環境下のハルツバージャイト起源の砕屑性堆積物はさらにスメクタイト化が進んでいる可能性がある。また、粘土成分の定量分析結果からも、アルカリ環境下の砕屑性堆積物の粘土成分にはばらつきがあるものの、総じて風化環境下の砕屑性堆積物よりも粘土成分が多い傾向を示す。②アルカリ環境下の降下火山灰堆積物はスメクタイト化が最も進んでないことから、火山ガラスはアルカリ環境下でそれほど変質しないということがいえる。④物理的風化環境下の班れい岩質砕屑性堆積物は風化環境の苦鉄質砕屑性堆積物と粘土成分について大差はみられない。したがって、Al 成分の量比そのものがスメクタイト化に影響するということではなく、堆積物中の主要鉱物が風化過程あるいはアルカリ環境下でどの程度溶解が進むかが、スメクタイト化の割合を律速しているものと推察される。

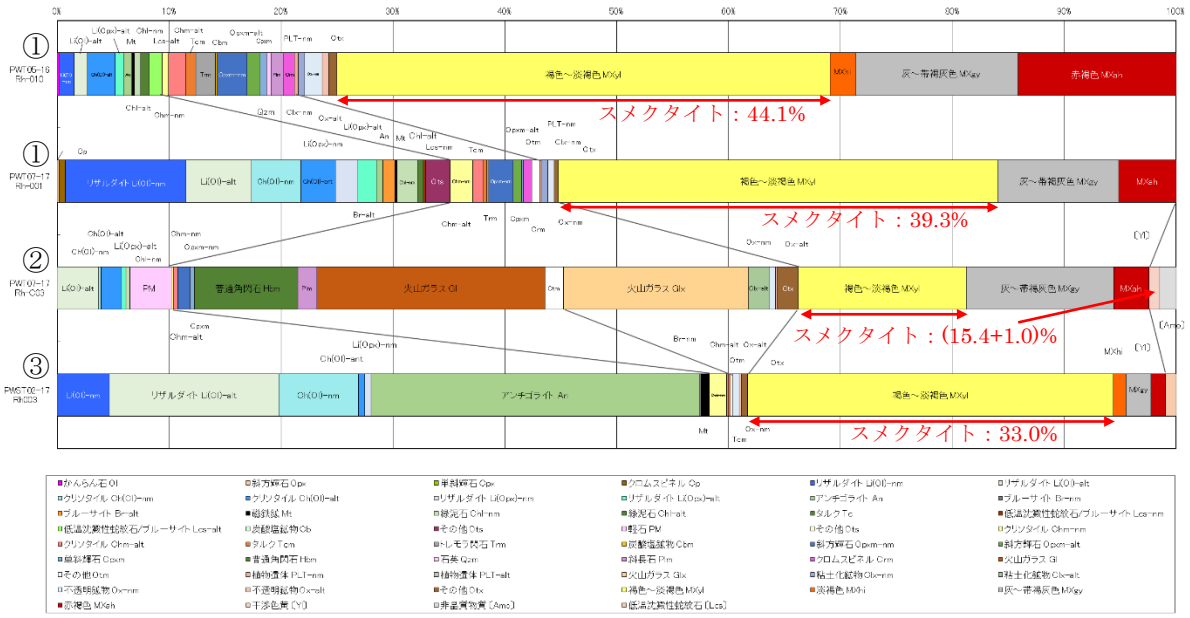


図 4.2.3-3　モード分析結果

(3)　XRD 回析による鉱物学的特性

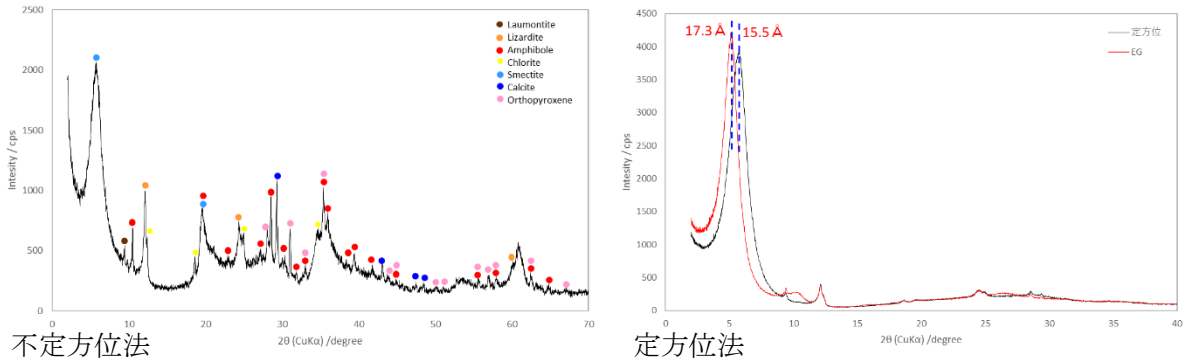
上記①～④の堆積物で分類される試料の XRD による鉱物分析の結果（平成 27 年度報告書 2.6.4(2)(p.143～172)[17]、平成 28 年度報告書 2.5.5(2),(3)(p.126～138)及び 2.6.3(2),(3)(p.162～175)[18]、平成 29 年度報告書 2.7.3(p.123～141)[19]）から、トレンチ（トレンチ 2～8）、ストリッピング（ストリッピング 1～3）と試錐コア（試錐孔(DH01, 02, 03, 04)）で採取したすべての堆積物で、定方位法 X 線回折パターンのエチレングリコール処理後のピークシフトか

らスメクタイトを同定した。

①アルカリ環境下のハルツバージャイト起源の砕屑性堆積物（図 4.2.3-3）はスメクタイト化が進んでいるが、②アルカリ環境下の降下火山灰堆積物（図 4.2.3-4）及び④風化環境下の班れい岩質砕屑性堆積物（図 4.2.3-6）はスメクタイトの相対強度は低く、スメクタイト含有量は少ないとみられる。

④風化環境下の班れい岩質砕屑性堆積物には班れい岩由来であることを示す斜長石（曹長石）、普通輝石、角閃石、蛇紋石が同定されている。一方、②アルカリ環境下の降下火山灰堆積物も斜長石（曹長石）、角閃石の相対強度が高いが、石英がみられるのに対し普通輝石が全くみられない点が、④風化環境下の班れい岩質砕屑性堆積物の鉱物組み合わせとは異なる。

③風化環境下の蛇紋岩砕屑性堆積物（図 4.2.3-5）は、蛇紋石が主要な鉱物であり、トレンチの超塩基性岩起源の砕屑性堆積物に比べるとスメクタイトの相対強度は低く、また鉱物のバリエーションが圧倒的に少ない特徴をもつ。



不定方位法　　定方位法

図 4.2.3-4　①アルカリ環境下のハルツバージャイト起源の砕屑性堆積物の XRD チャート（トレンチ 7 PWT07-17-Rh-001）

不定方位法　　定方位法

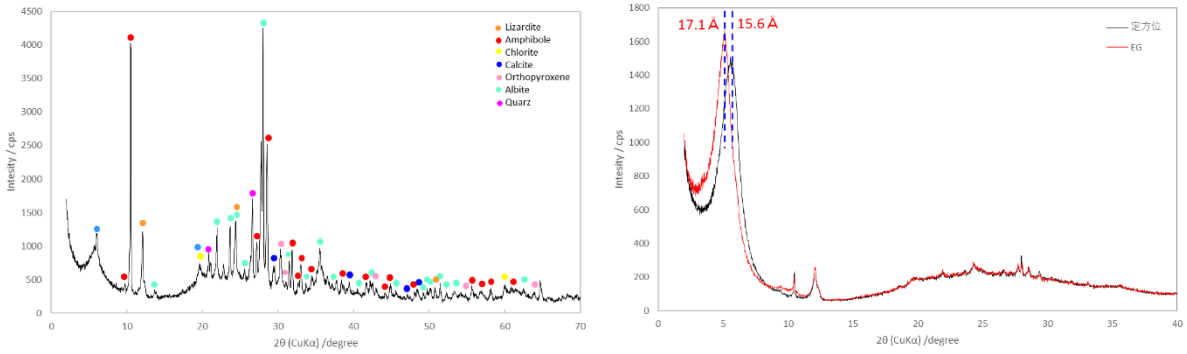


図 4.2.3-5　②アルカリ環境下の降下火山灰堆積物の XRD チャート（トレンチ 7 PWT07-17-Rh-C02）

不定方位法　　定方位法

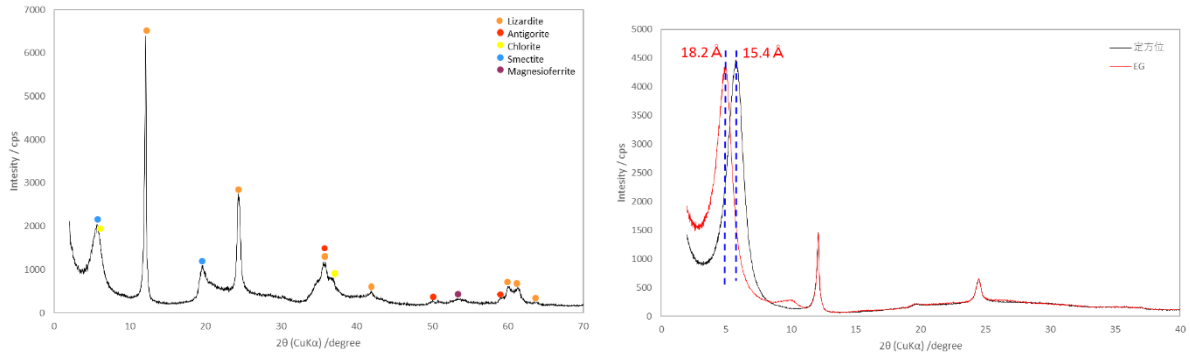


図 4.2.3-6　③風化環境下の蛇紋岩砕屑性堆積物の XRD チャート（ストリッピング 2 PWST02-17-Rh-003）

不定方位法　　定方位法

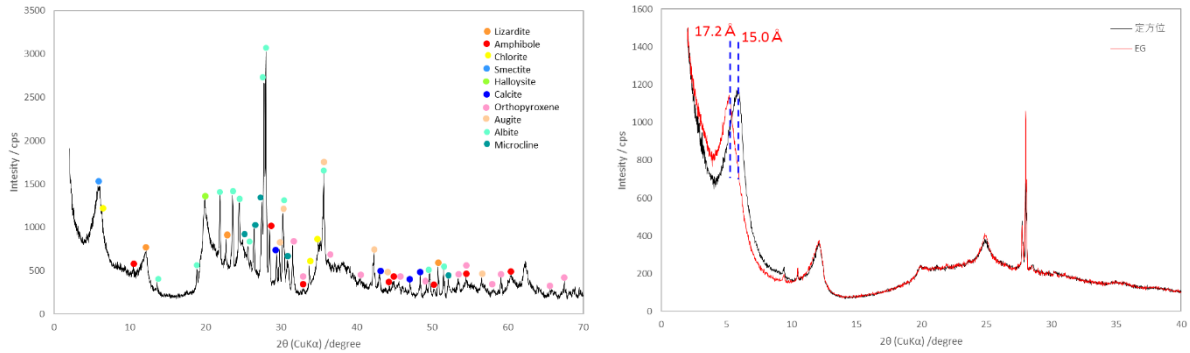


図 4.2.3-7　④風化環境下の班れい岩質砕屑性堆積物の XRD チャート（トレンチ 8 PWT08-17-Rh-001）

(4)　XRF 分析による岩石化学的特性

XRD による鉱物同定に供した試料すべてを対象に XRF によるバルク組成の化学分析を実施した（平成 27 年度報告書 2.6.4(3)(p.173～191)[17]、平成 28 年度報告書 2.5.5(4)(p.138～143) 及び 2.6.3(4)(p.175～188)[18]、平成 29 年度報告書 2.7.4(p.142～159)[19]）。ここでは、砕屑性堆積物中のスメクタイトの形成・進展の深く関与している地球化学的な形成環境を理解するために、図 4.2.3-8 に示す Narra 地区のトレンチ及びストリッピングで採取した砕屑性堆積物及び Saile 鉱山のベントナイト層の全岩のバルク組成による、岩石化学的特性を解析した。

スメクタイトの形成・進展を考察する上で、地球化学的場の提供する主要な初生鉱物は、砕屑性堆積物の原岩であるパラワンオフィオライト超苦鉄質複合岩体を構成する斜方輝石・かんらん石・単斜輝石・少量の Ca-角閃石・クロム鉄鉱・磁鉄鉱そして、極少量の斜長石である。更に、この原岩と水和反応（特徴的な蛇紋岩化作用）により形成された蛇紋石（主に、低温型のクリソタイル）、滑石、磁鉄鉱などである。更に、この蛇紋岩化作用に随伴したとされる比較的低温での緑泥石化作用により形成された緑泥石である。また、アルカリ地下水環境下で沈

殿（結晶化）した準安定固相の C-S-H 固相も考慮することとする。

砕屑性堆積物（層）におけるスメクタイトの形成・進展のための地球化学的な場として想定出来るバルク成分は、主に苦鉄質鉱物からの MgO、FeO、SiO_2、少量の CaO、極少量の Al_2O_3 に加え、斜長石から Al_2O_3 とアルカリ地下水からの Ca 等のアルカリ成分などである。特に、アルミ成分・シリカ成分の濃度とそれらの地球化学的挙動（活動度）がスメクタイト形成にとって必要不可欠な成分になる。

パラワンオフィオライト超苦鉄質複合岩体を構成する蛇紋岩化が進んだ①アルカリ環境下のハルツバージャイト起源の砕屑性堆積物と③風化環境下の蛇紋岩砕屑性堆積物は原岩のバルク組成を反映し、MgO, Fe_2O_3 に富み、CaO, Al_2O_3 に著しく乏しく、Na_2O, K_2O にも乏しい。また、シリカ成分(SiO_2)に乏しい不飽和な超塩基性岩としての特性もある。

トレンチの①アルカリ環境下のハルツバージャイト起源の砕屑性堆積物の下位層・上位層の関係では、下位の深度が深くなるほど（より泥質になるほど）SiO_2 含有率は低くなるのに対して、逆に MgO は高くなる傾向がある。これは高アルカリ地下水との反応の程度と関係している可能性がある。

①アルカリ環境下のハルツバージャイト起源の砕屑性堆積物と③風化環境下の蛇紋岩砕屑性堆積物の比較では、③風化環境下の蛇紋岩砕屑性堆積物は、スメクタイト化がより進んでいる①アルカリ環境下のハルツバージャイト起源の砕屑性堆積物に比べて SiO_2 が少なく、CaO はほとんどない。CaO の違いは、アルカリ環境下で CaO が供給されるトレンチ試料と違い、風化過程で Ca 成分が溶脱しているためだと考えられる。

また、①アルカリ環境下のハルツバージャイト起源の砕屑性堆積物だけでもいえるが、同じハルツバージャイトを起源とする③風化環境下の蛇紋岩砕屑性堆積物も含めて、SiO_2 と MgO では明確な負の相関がみられる。

一方、④風化環境下の斑れい岩質砕屑性堆積物と②アルカリ環境下の降下火山灰堆積物については、他の試料よりも Al_2O_3 が多く、MgO と Fe_2O_3 が少ない傾向が明確にみられた。これらの堆積物に多く見られる斜長石の Al が反映されているためだと考えられる。トレンチ 7 の①アルカリ環境下のハルツバージャイト起源の砕屑性堆積物では、②アルカリ環境下の降下火山灰堆積物に近接する部分はその影響を受けて Al_2O_3 がやや多い。このような現象はトレンチ 5 の①アルカリ環境下のハルツバージャイト起源の砕屑性堆積物でもみられ、斑レイ岩質の礫岩の影響を受けた部分は Al_2O_3 含有量が多いが、スメクタイト化の程度にはそれほど違いは見られない。

アルカリ環境下での C-S-H の生成については、トレンチ 2 では顕著であったが、トレンチ 6,7 ではほとんど見られなかった。この原因として、CaO の量比の違いが考えられ、トレンチ 2(8.18－21.1wt%)に対してトレンチ 6(2.16－5.53wt%)、トレンチ 7(2.05－6.19wt%)はかなり少なく、C-S-H 形成に十分な Ca がトレンチ 6,7 では供給されてないためだと考えられる。トレンチ 2 の試料はトレンチ 6,7 に比べると表層の炭酸塩層から近い砕屑性堆積物層から採取しており、高アルカリ地下水中の Ca 濃度が、炭酸塩層に近い浅層部の上位層の砕屑性堆積物と比較的離れた下位層の砕屑性堆積物で異なっている可能性が考えられる。

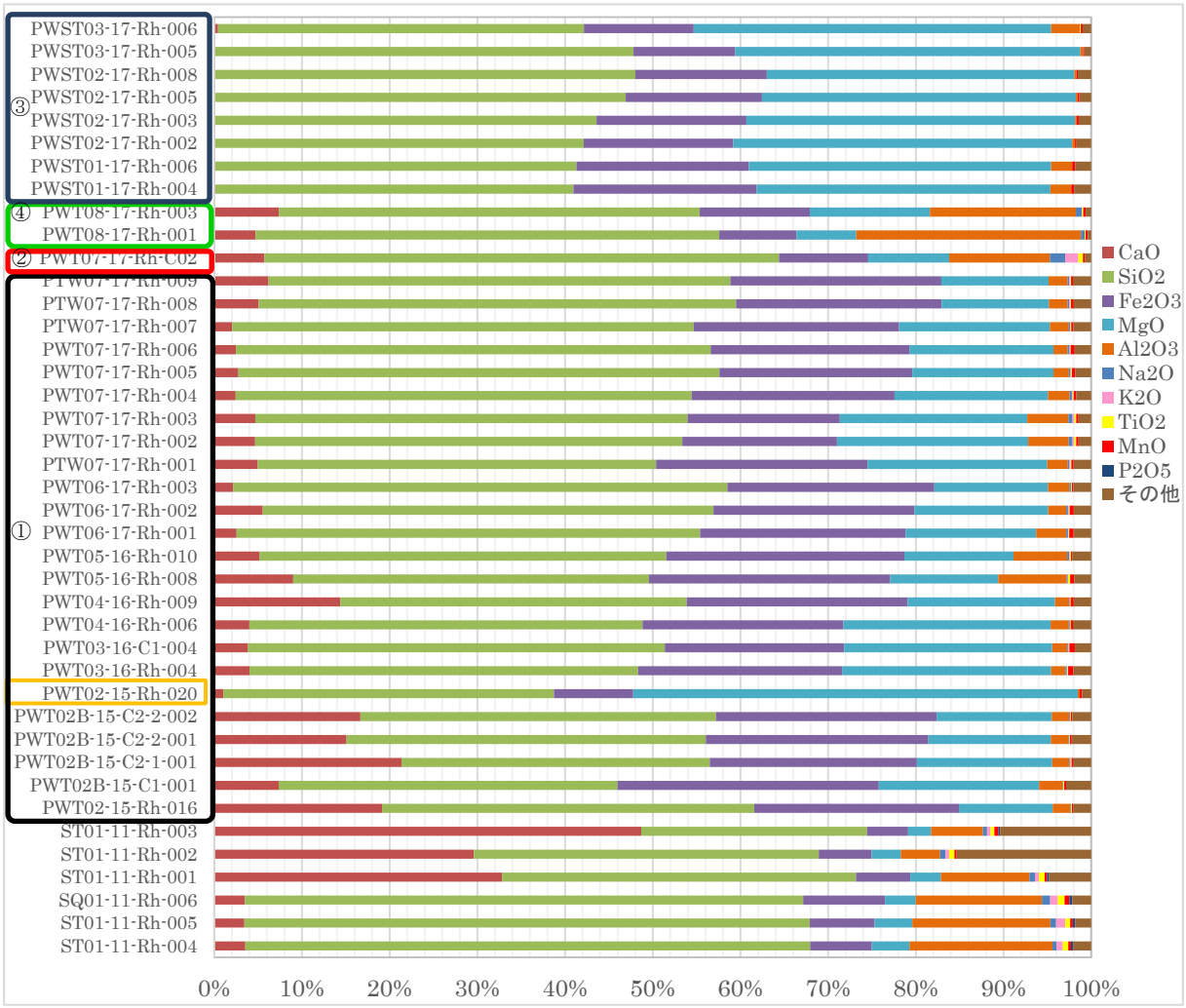


図 4.2.3-8　Narra 地区の砕屑性堆積物及び Saile 鉱山の XRF による全岩化学組成

4.3　スメクタイトの生成環境と変質プロセス

4.3.1　EPMA によるスメクタイト化に係る鉱物組成・共生及び組織の観察

トレンチ調査及びストリッピング調査から採取したスメクタイトがみられる砕屑性堆積物について、バルク分析や顕微鏡観察の結果から分類できる、アルカリ環境下にある①（トレンチ 2～7 の）ハルツバージャイト起源の砕屑性堆積物と②（トレンチ 7 底部の）降下火山灰堆積物、アルカリとの相互作用のない風化環境下の③（ストリッピングの）蛇紋岩砕屑性堆積物、④（トレンチ 8 の）班れい岩質砕屑性堆積物を対象に、スメクタイトの形成・進展プロセスを検討する上で、極めて重要且つ不可欠であるスメクタイトの組成・共生関係・組織・構造について、EPMA による観察・分析を実施した（平成 27 年度報告書 4.2.3～4.2.5(p.296～379)[17]、平成 28 年度報告書 4.2.3～4.2.5(p.290～353)[18]、平成 29 年度報告書 4.2.4(p.270～327)[19]）。

砕屑性堆積物におけるスメクタイトの形成・進展（鉱物学的変遷）を考察する上で、まず、スメクタイトの形成のための出発物質となり得るパラワンオフィオライトの原岩を構成する初生構成鉱物と、その後の岩石－水相互作用で生起した蛇紋岩化作用および緑泥石化作用により形成された変質鉱物の組成とその組成変化を明らかにすることが必要である。それらの鉱物組成としては、前者の初生鉱物は、主要である苦鉄質鉱物（斜方輝石・かんらん石・単射輝石・Ca-/Mg-角閃石）とスピネル鉱物（磁鉄鉱・クロマイト質鉄鉱）、一部貫入した班れい岩起源の斜長石・石英、で構成されている。後者の変質鉱物は、蛇紋石（低温型のクリソタイル）と緑泥石である。これらの鉱物のバルク組成としては、Mg-Fe-Ca-Si-Al 成分系で代表される。

ここでは、EPMA 分析の結果から、スメクタイトの形成・進展に密接に関与した特定鉱物（前駆鉱物や共生鉱物）の組成・成因・共生関係・組織・構造などと、その供給源としての必要成分については検討・要約する。

(1)　かんらん石

組成上は苦土かんらん石(Mg_2SiO_4)で、多くは蛇紋石へ変質しており、その蛇紋石化作用の反応生成物として微細な磁鉄鉱物がかんらん石に包含される特徴的な組織を示す。

スメクタイト形成にとって、Mg, Fe の供給となり、スピネル周縁部では層状構造を示す粘土鉱物（サポナイト）の生成もみられる。

(2)　輝石

①アルカリ環境下の苦鉄質砕屑性堆積物に最も普遍的に存在する鉱物である。組成上は、単射輝石として透輝石（端成分 : $Ca(Mg, Fe)Si_2O_6$）と、斜方輝石として頑火輝石（端成分 : $(Mg, Fe)SiO_3$）で構成されている。特に、トレンチ 5 の斜方輝石は、Fe に富む組成を示す。全体的には組成変化が一様でない。輝石の 4 配位の Al とチェルマック輝石成分の 6 配位の Al とには殆ど組成変化がなく、Al の含有量にも相関が認められない。

スメクタイト形成にとって、これらの輝石からの $Al(Al_2O_3$: ~2.25 wt %)の供給源としては少量である。

(3) スピネル鉱物

輝石と同様に①アルカリ環境下の苦鉄質砕屑性堆積物に普遍的に存在する鉱物である。組成上は、$MgAl_2O_4$-$FeCr_2O_4$-Fe_3O_4 の固溶体であり、スピネル―クロム鉄鉱（クロマイト）－磁鉄鉱（マグネタイト）の端成分がある。産状としては輝石内に包有（共存）しているが、変質した蛇紋石や緑泥石の内部に溶解組織を示すものやスピネル周縁部がマグネタイトに置換されている産状が観察される。このことは、これらのスピネル鉱物が部分溶解を示唆するものである。超塩基性岩のスピネルは $MgAl_2O_4$-$FeCr_2O_4$ 系の中央付近に分布するが、クロマイト成分を含みながらマグネタイトまでの変化を示す。

スメクタイト形成にとって、モード比から極少量ではあるが Al(Al_2O_3: ~26.6 wt %), Mg, Fe の供給源として期待される。

(4) 斜長石

②降下火山灰堆積物や④班れい岩質砕屑性堆積物に多く見られる。組成上は、Ca に富む斜長石(An_{78-81})と、一部少量であるが Na に富む。斜長石の一部がゼオライトやモンモリロナイトに変質した産状も見られる。

スメクタイト形成にとって、Al (Al_2O_3: ~32.3 wt %), Si, Ca(CaO: ~15,4 wt %)の供給源としては重要な鉱物である。

(5) 角閃石

組成上は、Ca-角閃石（普通角閃石・アクチノ角閃石<陽起石>)、Mg-角閃石（カミングトン角閃石）で、その組成上の多様性が特徴である。これらの角閃石は鉱物縁（リム）が溶解しているのが多く観察される。少量であるがその本来の形状を失う構造を示し、一部は緑泥石に交代されている。トレンチ３で、このような角閃石を交代して成長した緑泥石は、Al に富む組成を示す。また、4 配位の Al が 6 配位の Al と Cr の 3 価の陽イオンと典型的なチェルマック置換を示す。一般的に、Al に乏しい角閃石の多くは斑レイ岩起源のものと考えられる。

スメクタイト形成にとって、Ca(CaO; ~12.9 wt %), Al(Al_2O_3: ~12.4 wt %), (Na, K)の供給源としては大いに期待できる。

(6) 蛇紋石

蛇紋石は輝石の交代相として重要であり、今回対象とした全ての試料に認められる。組成上は、低温型のクリソタイルが主要である。 Mg の含有量に変動幅があるが、Fe との交換性はない。多くの蛇紋石は斜方輝石の蛇紋石化作用による形成が卓越している。その内部に沈殿組織を残す微細な磁鉄鉱を伴うのが、かんらん石を交代・置換した蛇紋石である。風化試料である、③風化環境下の蛇紋岩質砕屑性堆積物と④風化環境下の班れい岩質砕屑性堆積物はほとんど Ca を含まないが、①アルカリ環境下のハルツバージャイト起源の砕屑性堆積物は Ca に富み。これらの蛇紋石は Fe(FeO: ~12.1 wt %)と Ni (NiO: ~o.59 wt %)・Ca(CaO: ~2.34 wt %)である。

スメクタイト形成にとって、Mg, Si の供給源として期待される。

(7) 緑泥石

組成上は、Mg・Ca・Fe 含有量の変化が顕著で、トレンチ３では Mg に富み、Ca が少なく、

トレンチ 4 では Fe と Ca に富むのが目立つ。但し、深度とこれらの組成変化の相関は認められないが、トレンチ 4 や 7 で、角閃石と共生している緑泥石は Al(Al_2O_3: ~14.2 wt %)に富む特徴がある。角閃石の交代相としてみられる緑泥石は、源岩の角閃石を含む超塩基性岩をおそらく retorograde 変成過程の高温流体で変質させたものと考えられる。

スメクタイト形成にとって、Al (Al_2O_3; ~17.6 wt %), Fe (FeO: 28.5 wt %)の供給源として期待される。

(8) 炭酸塩鉱物

組成上は、ほとんどが方解石で、ドロマイト成分(MgO: ~0.29 wt %)に乏しい。

(9) C-S-H

C-S-H 固相（準安定相）は、バルクの Ca 成分に富むトレンチ 2～4（特に Ca 含有量の多いトレンチ 2 では目視可能）で確認される。その産状は、トレンチ 3 では放射状・羽毛状に結晶する特徴的な構造（組織)、トレンチ 4 では空隙を充填する構造がみられる。トレンチ 2 では様々なタイプがみられ、トレンチ 3、4 でみられた空隙充填型、放射状・羽毛状の成長に加え、六角柱状や植物置換型も存在する。また、炭酸塩との共存も確認される。また、充填型 C-S-H の周囲は水和したリム（沈殿生成物）で包まれる特徴的な構造を示す。その組成はトバモライトからジャイロライトと同定される。但し、Ca/Si 比の変動幅(0.5~1.02)は大きい。

セメントーベントナイトのナチュラルアナログにおいてキーとなる鉱物で、当サイトにおいて最も詳細な観察が必要な鉱物はスメクタイトである。砕屑性堆積物の岩石鉱物学的・地球化学的特性に拘束されそうなスメクタイトは、風化段階の風化過程で形成されたものと、堆積段階、すなわちアルカリ地下水環境下でのスメクタイトの形成・進展するものとに大別して考察する必要がある。特に、EPMA による分析結果の中で、スメクタイトの形成・進展プロセスを検討する上で、極めて重要且つ不可欠であるスメクタイトの組成・共生関係・組織・構造などを以下にまとめる。

(10) スメクタイト

スメクタイトの種類と組成について示す。スメクタイトは砕屑性堆積物に普遍的に含まれており、図 4.3.1-1 の Si-Al-(Fe+Mg)の 3 成分三角プロットに示すように、Fe、Mg に富むサポナイト（3 八面体型スメクタイト)、ノントロナイト（2 八面体型スメクタイト)、スチーブンサイト（3 八面体型スメクタイト）組成のスメクタイトが多く、特に超苦鉄質岩起源の砕屑性堆積物中のスメクタイトはほとんどがこのような組成のスメクタイトである。EPMA の産状観察結果も考慮すると、Narra の高アルカリ環境では、サポナイトあるいは鉄サポナイトが主として生成し、条件によって一部ノントロナイトやスチーブンサイトが生成していると考えられる。苦鉄質の砕屑性堆積物を構成している蛇紋石・輝石・角閃石・炭酸塩鉱物などの産状に特徴的な差異はないが、これらの共生鉱物のモード比が、バルク組成を変化させ、その結果、モード比の高い泥質な砕屑性堆積物の方がスメクタイトの形成・進展に優位性を与えているように考えられる。また、図 4.3.1-4 から、苦鉄質の砕屑性堆積物中のスメクタイトには Si と Mg

に負の相関、Si と Fe に正の相関がみられることから、スメクタイト化が進んでシリケートが生成するのに伴い、Mg が減少し、Fe に富む組成になる傾向がみられる。

これらに対して、Al に富む③物理的風化環境下の班れい岩質堆積物と①アルカリ環境下の降下火山灰堆積物では、Fe, Mg に富むサポナイトに分類されるスメクタイトがある、一方で、モンモリロナイトやバイデライトに分類される Al に富むスメクタイトも多くみられる。

アルカリとの相互作用のない③風化環境下の蛇紋岩砕屑性堆積物と④風化環境下の班れい岩質砕屑性堆積物中のスメクタイトには Ca が非常に少ない特徴が示される（図 4.3.1-2）。これらはそれぞれノントロナイトとバイデライトに分類されるものである。バイデライトは③風化環境下の蛇紋岩砕屑性堆積物と同様に Al 含有量の多い②アルカリ環境下の白色細粒砂質堆積物にも認められるが、これには Ca が含まれている。したがって、アルカリとの相互作用により Ca がスメクタイトに供給されていると考えられる。

Narra の高アルカリ環境では、①ハルツバージャイト起源の砕屑性堆積物だけでなく②降下火山灰堆積物でも、Fe-rich、Mg-rich であるサポナイトが主として生成する。①アルカリ環境下にあるハルツバージャイト起源の砕屑性堆積物中のアルカリ変質により生成した鉄サポナイトは、Ca に富む特徴を示している。ただし、サポナイトのリムにノントロナイトが生成している産状も見られ、酸化環境の物理的風化過程だけでなく、還元性のアルカリ環境下でも Fe^{3+}をもつノントロナイトが一部生成する。また、微量のスチーブンサイトの生成もみられ、砕屑性堆積物のアルミナ成分に乏しい地球化学的な場（状態）が環境条件で、Al 成分に乏しいスチーブンサイトが形成されたものと示唆される。

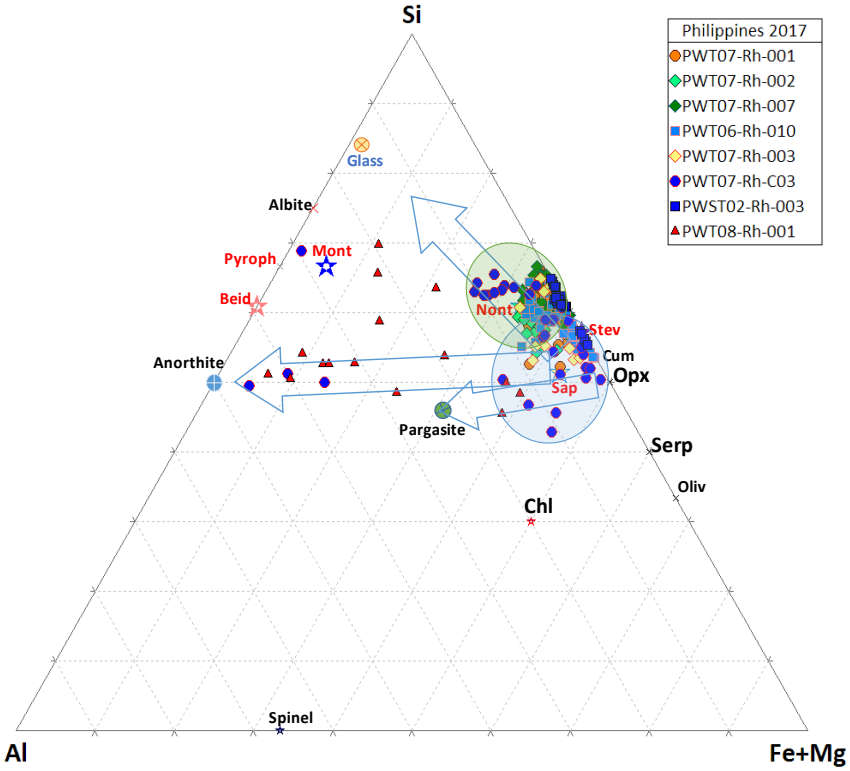


図 4.3.1-1　スメクタイトの組成プロット(Si-Al-Mg+Fe 3 成分系)

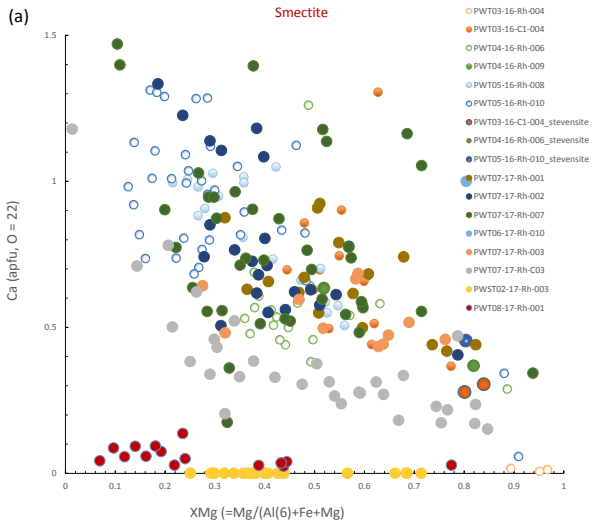


図 4.3.1-2　スメクタイトの組成プロット(XMg vs. Ca)

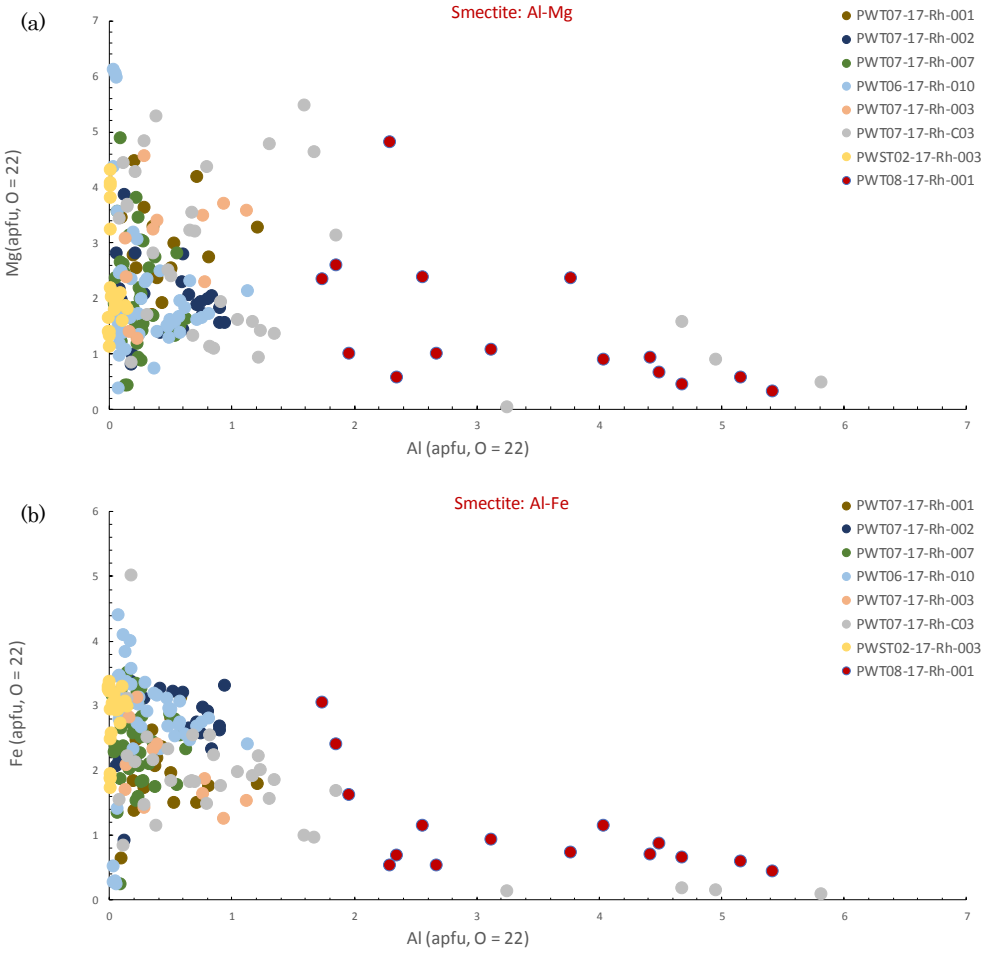


図 4.3.1-3　スメクタイトの組成プロット(a: Al vs. Mg; b: Al vs. Fe)

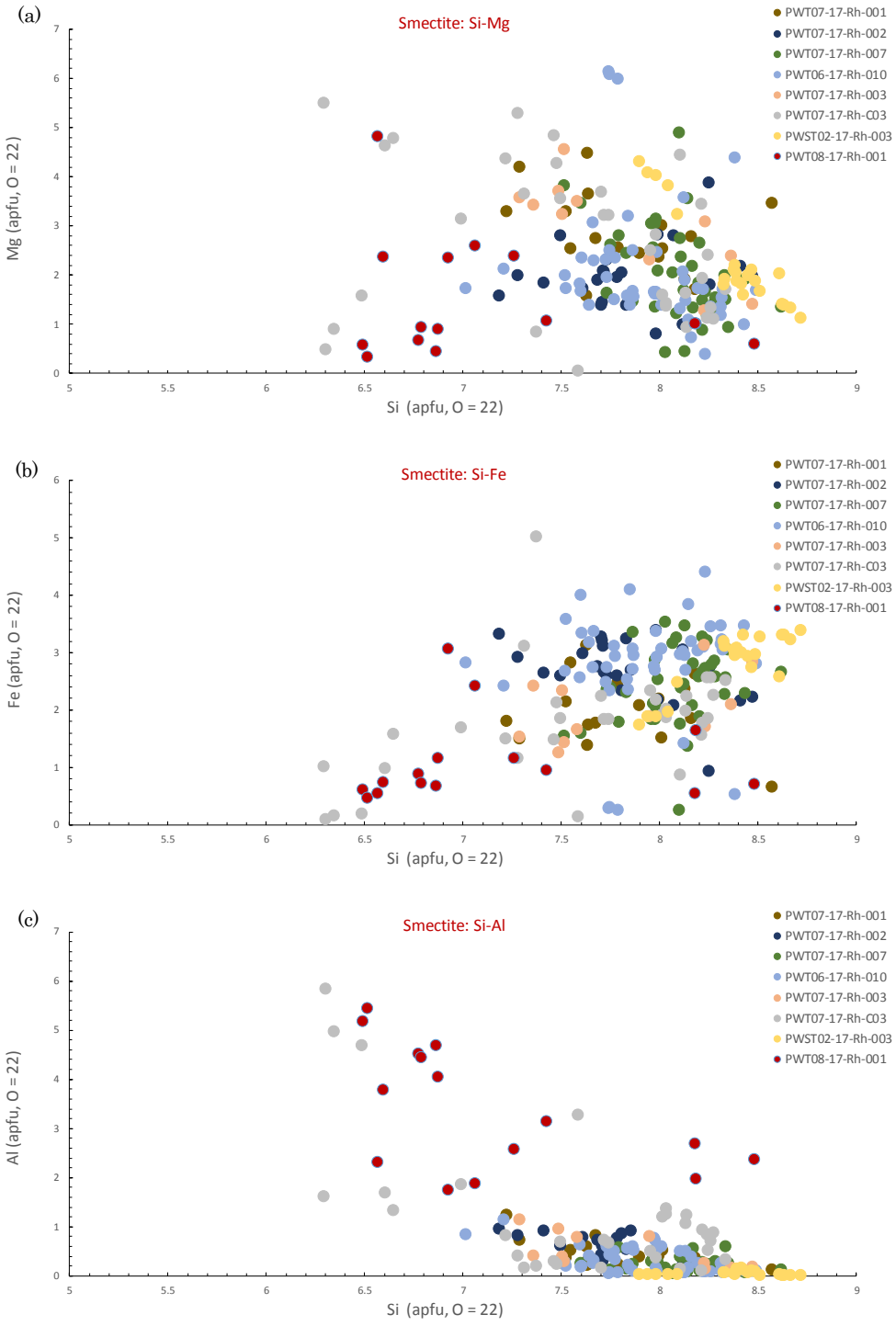


図 4.3.1-4　スメクタイトの組成プロット(a: Si vs. Mg; b: Si vs. Fe; c: Si vs. Al)

バイデライトが主である④風化環境下の班れい岩質砕屑性堆積物中のスメクタイトは明らかにAl成分が多い。一方で、XRFでも確認されているが、トレンチ5の試料も班れい岩起源の層内礫層の影響で比較的Al含有量が多く、アルカリ相互作用により生成したサポナイトやノントロナイトにもAlが取り込まれている。②アルカリ環境下の降下火山灰堆積物中のスメクタイトはAl含有量の差が大きく、源岩の組成を反映したAlを含むバイデライトとAlの少ないサポナイトが共存していると考えられる。AlとFe, Mgには負の相関があることが見て取れる（図 4.3.1-3)。

②降下火山灰堆積物では、ベントナイトの主要粘土鉱物であるモンモリロナイトが同定された。2八面体型のモンモリロナイトはアルカリ環境下で一部は溶解していると考えられるが、処分環境よりもはるかに移流による物質移動が大きいパラワンの環境でも、数千年にわたりアルカリ環境下で残存している。一方で周囲に苦鉄質鉱物が存在するアルカリ環境下でFe, Mgに富むサポナイト化も見られが、苦鉄質の堆積物に比べると、その程度は小さい。

次に、スメクタイトの共生関係・組織・構造について示す。

サポナイトの産状は、①アルカリ環境下にあるハルツバージャイト起源の砕屑性堆積物中の斜方輝石（図 4.3.1-5)・かんらん石の蛇紋石化作用により形成された蛇紋石（図 4.3.1-6）や、それを部分的(蛇紋石縁・微小な割れ目・へき開など)に交代した緑泥石の反応縁(図 4.3.1-7)を交代・置換したものと、苦鉄質鉱物（角閃石も含む）の粒間（図 4.3.1-8）やマトリックスを充填して（図 4.3.1-9）存在するものがある。さらに、C-S-Hと共生する産状（図 4.3.1-10～図 4.3.1-11）が多くみられ、これはアルカリ環境下でC-S-Hと共沈したサポナイト、すなわち、アルカリ溶液からの沈殿によりサポナイトが形成された痕跡と考えられる。また、②アルカリ環境下の降下火山灰堆積物でも蛇紋石や角閃石を交代・置換した産状がみられる。

スチーブンサイトは、①アルカリ環境下にあるハルツバージャイト起源の砕屑性堆積物中で斜方輝石やCa-rich角閃石を交代・置換している産状、緑泥石を交代・置換し、その外縁部がサポナイトに交代している産状やサポナイトに交代・置換されてサポナイトに取り囲まれている（図 4.3.1-12）産状がみられる。

ノントロナイトは、③風化環境下の蛇紋岩砕屑性堆積物中の蛇紋石のリムに生成している（図 4.3.1-13)。また、アルカリ環境下でもハルツバージャイト起源の砕屑性堆積物（図4.3.1-14左図）や降下火山灰堆積物（図 4.3.1-14右図）中で生成したサポナイトのリムに生成している。①アルカリ環境下にあるハルツバージャイト起源の砕屑性堆積物中ではCa成分に富む斜長石、斜方輝石や単斜輝石、緑泥石と Caー角閃石・緑泥石の微細集合体からの交代・置換でFe成分に富むのサポナイト質ノントロナイトの生成（図 4.3.1-15）がみられる。

バイデライトは、斜長石が多く、Al成分に富む④風化環境下の班れい岩質砕屑性堆積物（図4.3.1-16左図）と②アルカリ環境下の降下火山灰堆積物（図 4.3.1-16右図）でみられる。班れい岩質砕屑性堆積物では（一部ゼオライト化した）斜長石の反応縁に生成している。降下火山灰堆積物ではアルカリ環境下で交代したサポナイトの一部にバイデライトが生成している。

モンモリロナイトは②アルカリ環境下の降下火山灰堆積物（図 4.3.1-17）のみでみられ、斜長石を交代して生成している。

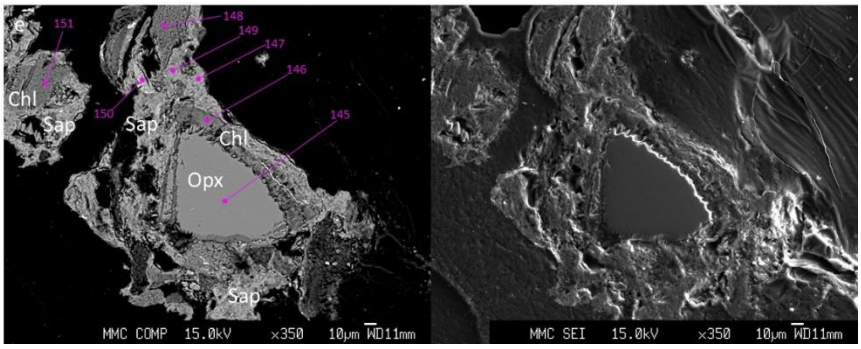


図 4.3.1-5　斜方輝石を交代するサポナイトの産状（トレンチ 4 PWT04-16-Rh-006）

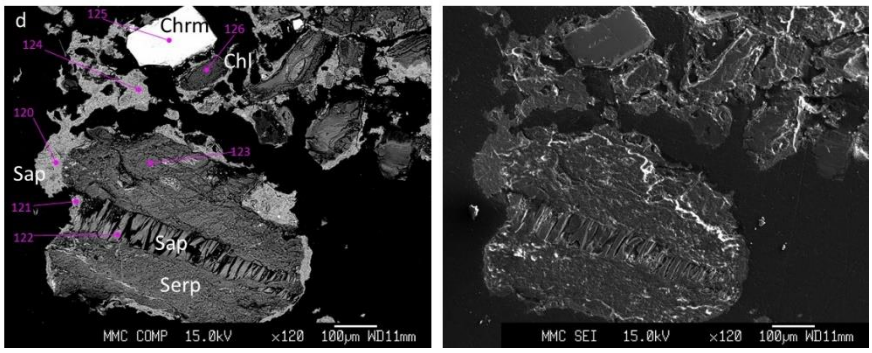


図 4.3.1-6　蛇紋石を交代するサポナイトの産状（トレンチ 4 PWT04-16-Rh-006）

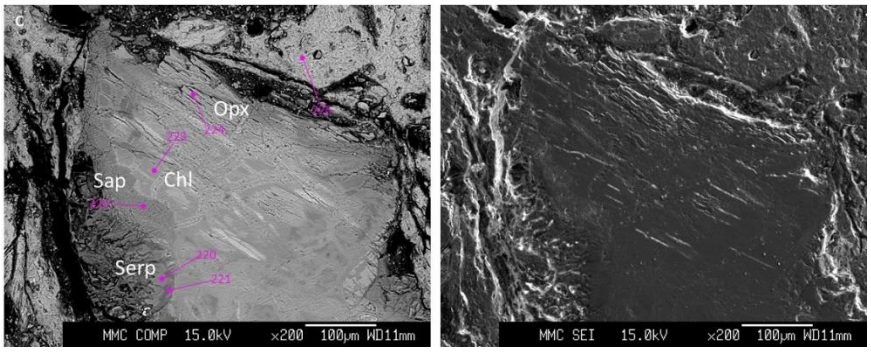


図 4.3.1-7　緑泥石の反応縁を交代するサポナイトの産状（トレンチ 3 PWT03-16-Rh-004）

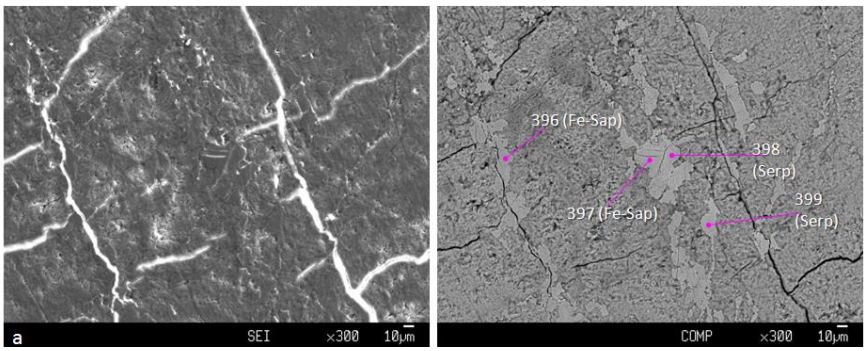


図 4.3.1-8　苦鉄質鉱物の粒間に生成する鉄サポナイト（トレンチ 2 PWT02B-15-C2-2-001）

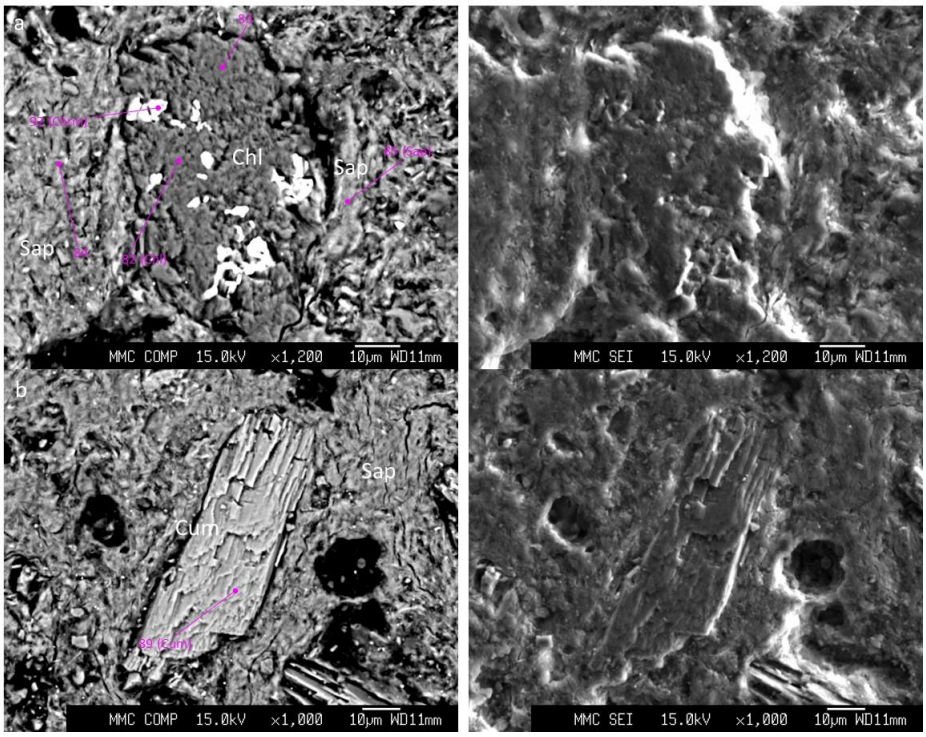
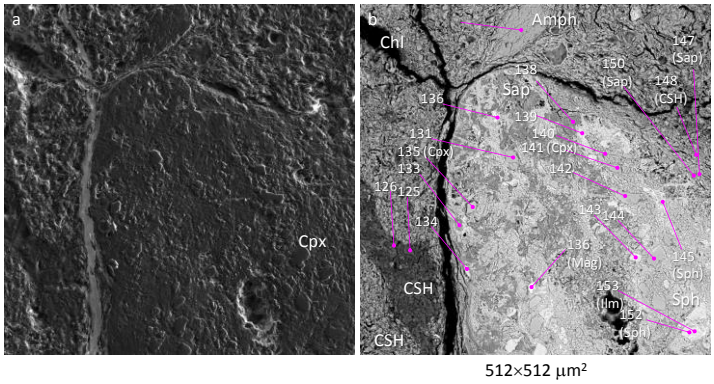


図 4.3.1-9　マトリックスを充填するサポナイト（トレンチ 5 PWT05-16-Rh-008）



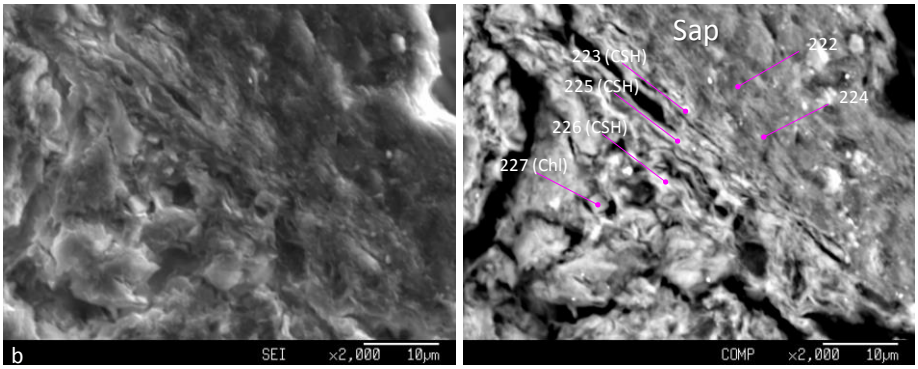


図 4.3.1-10　C-S-H と共生するサポナイト（その 1）（トレンチ 2 PWT02-15-Rh-016）

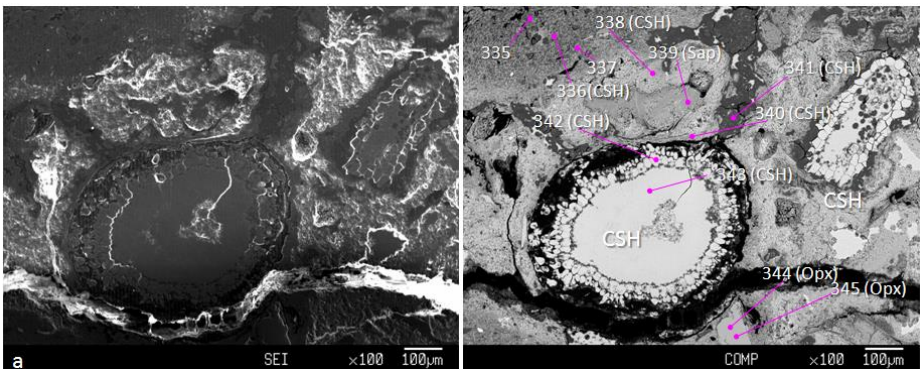


図 4.3.1-11　C-S-H と共生するサポナイト（その２）（トレンチ 2 PWT02B-15-C2-2-001）

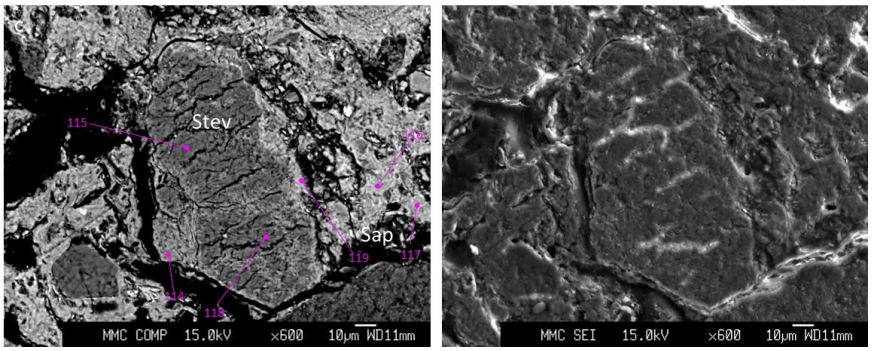


図 4.3.1-12　サポナイトに交代・置換されて取り囲まれているスチーブンサイトの産状（トレンチ 4 PWT04-16-Rh-006）

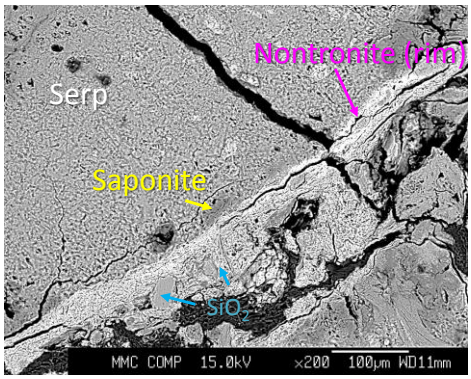


図 4.3.1-13　③風化環境下の蛇紋岩砕屑性堆積物中で蛇紋石のリムに生成しているノントロナイトの産状（ストリッピング 2 PWST02-17-Rh-003）

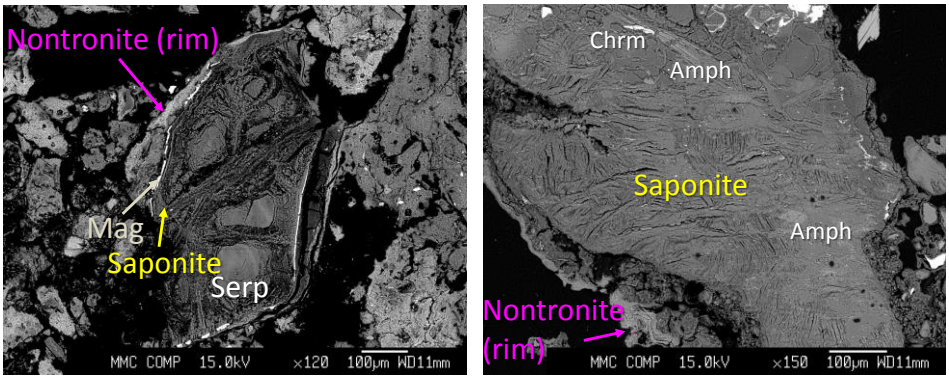


図 4.3.1-14　アルカリ環境下でサポナイトのリムに生成するノントロナイトの産状（左：トレンチ 7①砕屑性堆積物(PWT07-17-Rh-007)、右: トレンチ 7②降下火山灰堆積物(PWT07-17-Rh-C03)）

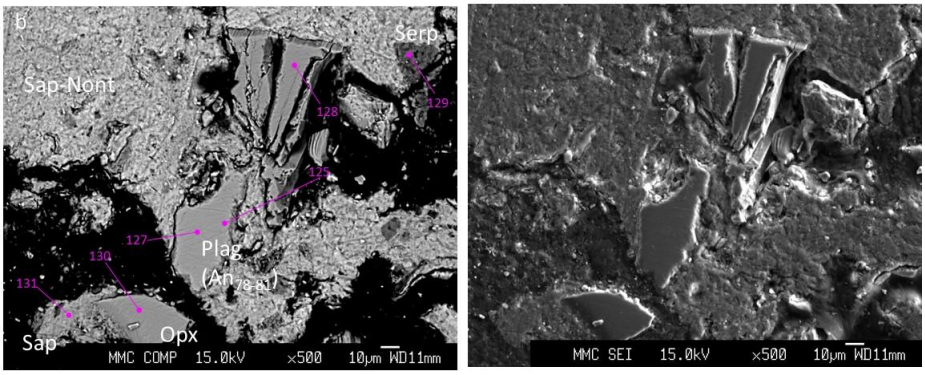


図 4.3.1-15　①アルカリ環境下の砕屑性堆積物中の斜長石、斜方輝石の微細集合体を交代するサポナイト質ノントロナイトの産状（トレンチ 5 PWT05-16-Rh-010）

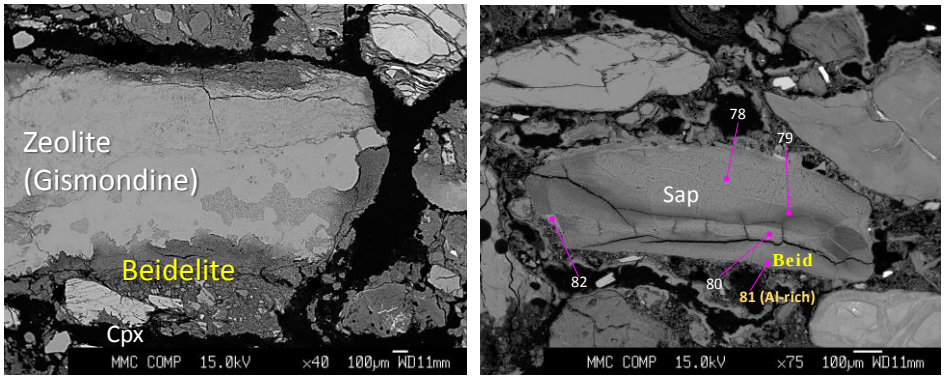


図 4.3.1-16　バイデライトの産状（左：トレンチ 8④風化環境下の斑れい岩質砕屑性堆積物＜ゼオライト化した斜長石のリムに生成＞(PWT08-17-Rh-001)、右：トレンチ 7②アルカリ環境下の降下火山灰堆積物＜交代したサポナイトの一部に生成＞(PWT07-17-Rh-C03)）

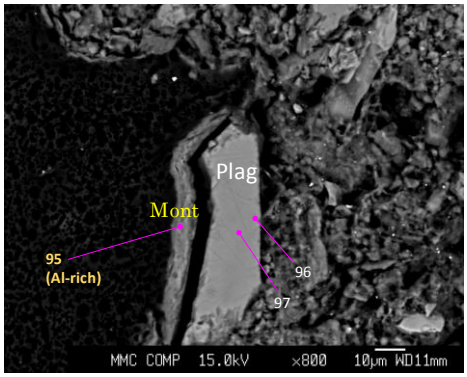


図 4.3.1-17　②アルカリ環境下の降下火山灰堆積物中の斜長石を交代したモンモリロナイトの産状（トレンチ 7 PWT07-17-Rh-C03）

これらの鉱物学的特性（組成・鉱物組み合わせ・共生関係など）からスメクタイトの形成・進展を解析すると、パラワンオフィオライト定置後のいわゆる風化過程で、パラワンオフィオライト定置後のいわゆる風化過程で、パラワンオフィオライトの蛇紋岩化が進んだハルツバージャイト風化に伴う交代・置換反応により形成された 2 八面体型スメクタイト（ノントロナイト）と少量の 3 八面体スメクタイト（サポナイト）と斜長石に富む基盤岩に貫入した斑レイ岩の風化に伴う変質で形成された Al 成分に富む 2 八面体型スメクタイト（バイデライト）と少量の Mg, Fe に富む 3 八面体型サポナイト、その後、侵食・運搬・堆積を経て、高アルカリ地下水環境下で形成・進展（オストワルド熟成）した 3 八面体型スメクタイト（Mg-Fe-Al サポナイト、Fe サポナイト）と少量の 2 八面体型ノントロナイト及び 3 八面体型スメクタイト（スチーブンサイト）が考えられる。

高アルカリ地下水との相互作用により斜長石由来のバイデライトは一部溶解が進んだと思われるが、主としてサポナイト生成によるスメクタイト化（粘土化）が、高アルカリ地下水反応時間の増加する、より下位層の砕屑性堆積物になるほど進んでいると考えられる。

4.3.2　年代測定による反応時間の評価

パラワン島 Narra 地区のナチュラルアナログは現在もアルカリ地下水が湧出する Active Type のサイトであり、高アルカリ地下水が湧出した初期の年代がわかれば、反応時間の最小値として時間スケールを評価することが可能である。ナチュラルアナログサイトである Narra3-2 地点のトレンチでは、アルカリ地下水によって生成・堆積した炭酸塩や土壌（腐葉土）及びそれらの中に取り込まれた木片や貝殻見られ、放射性炭素(14C)年代法の適用が可能である。14C 年代で評価可能な年代よりさらに古い年代なら、熱ルミネッセンス(TL)法も適用できる可能性がある。このような観点から、木片、貝殻、腐葉土、炭酸塩の 14C 年代測定を実施した（平成 27 年度報告書第 3 章(p.244～291)[17]、平成 28 年度報告書第 3 章(p.238～286)[18]、平成 29 年度報告書第 3 章(p.220～263)[19]）。

各種試料の 14C 年代測定結果から、トレンチの底部付近で採取した土壌試料（ヒューミン）が、最も古い年代を示した。土壌（砕屑性堆積物）中のヒューミンは土壌腐食物質のうちアルカリ、酸ともに不溶性の有機物であり、その 14C 年代が堆積年代を示すと考えられる。トレンチ 6（4,008±73 年：PWT06-17-Rh-C06 ヒューミン）、トレンチ 7（4,516±74 年：PWT07-17-Rh-C05 ヒューミン）（図 4.3.2-1）という結果から、平成 29 年度に掘削したトレンチの砕屑性堆積物の堆積年代が 4,000～4,500 年程度と推察される。平成 28 年度に掘削したトレンチでは、トレンチ 3（9,721±57 年：PWT03-16-Rh-017 ヒューミン）、トレンチ 5（9,647±56 年：PWT05-16-Rh-014 ヒューミン）（図 4.3.2-1）であったことを踏まえると、扇状地様である Narra3 サイト（Narra3-1 の源泉から Narra3-2 のトレンチ掘削地点にわたる調査サイト）において走行方向での砕屑性堆積物の堆積年代の差はほとんどない、一方で傾斜方向では下部層（東南）方向の堆積年代の方が 5,000 年程度若いことがわかる。トレンチ 2（2,413±82 年：PWT02-15-Rh-011 ヒューミン）については、トレンチ 3～7 に比べると上位の炭酸塩層に近い砕屑性堆積物であり、堆積年代が最も若いことは整合する。

木片の 14C 年代については、トレンチ 1 の炭酸塩中の木片（4,554±82 年：PWT01-15-Rh-025）、トレンチ 2 の砕屑性堆積物中の木片（1,363±75 年：PWT02-15-Rh-001、1,675±82 年：PWT02B-15-C2-0）、トレンチ 3 の砕屑性堆積物中の木片（4,669±48 年：PWT03-16-Rh-016）、トレンチ 4 の砕屑性堆積物中の木片（3,681±48 年：PWT04-16-Rh-007）、トレンチ 5 の炭酸塩中の木片（1,209±46 年：PWT05-16-Rh-007B）（図 4.3.2-1）、砕屑性堆積物中の木片（2,443±46 年：PWT05-16- Rh-005）、トレンチ 6 の炭酸塩中の木片（818±71 年：PWT06-17-Rh-C03）、砕屑性堆積物中の木片（1,227±72 年：PWT06-17-Rh-C04、762±71 年：PWT06-17-Rh-C05）、トレンチ 7 の礫混合炭酸塩中の木片（698±72 年：PWT07-17-Rh-C06）（図 4.3.2-1）であった。木片の年代はばらつきが多く、埋没していた砕屑性堆積物の堆積年代と一致しないケースが多い。この原因としては、木片については、断続的に生じていたと考えられるオフィオライトの浸食・運搬・埋没過程において、埋没した木片の位置が移動していた可能性が考えられる。

貝殻については、亜熱帯～熱帯の淡水～汽水産に広く分布するカワニナの貝殻であり、砕屑性堆積物から採取したトレンチ 3 の貝殻は 5,203±62 年であった。炭酸塩中から採取したトレンチ

4 の貝殻は 3,725±48 年、トレンチ 5 の貝殻は 2,401±46 年であった。

炭酸塩の ^{14}C 年代については、トレンチ 5（1,965±46 年：PWT05-16-Rh- 007）（図 4.3.2-1）、トレンチ 6 の炭酸塩（1,703±72 年：PWT06-17-Rh-C01、942±71 年：PWT06-17-Rh-C02）、トレンチ 7 の炭酸塩（2,771±73 年：PWT07-17-Rh-C01）（図 4.3.2-1）である。炭酸塩については、アルカリ地下水と大気中の炭酸ガスとの相互作用により方解石の沈殿によって形成したものが主であり、アルカリ地下水が連続して流出している間にさらに古い時代に生成した炭酸塩や不純物を固結しながら堆積したと考えられるため、アルカリ地下水との接触期間という意味では、その生成年代がもっとも接触時間と直結する年代と考えられる。また、したがって、最も古い年代を示す PWT07-17-Rh-C01 の ^{14}C 年代から、アルカリ地下水が少なくとも 2,800 年程度前からこのサイトに流出し、砕屑性堆積物にも進出していたことが言える。

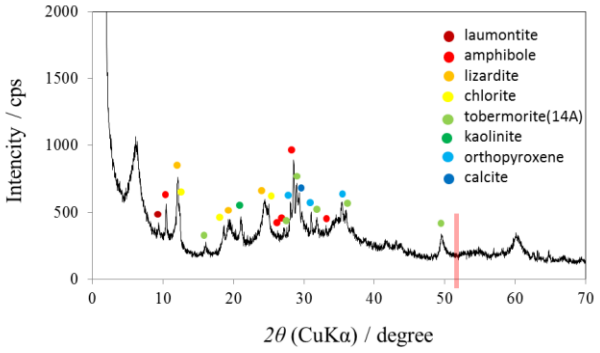


図 4.3.2-1　Narra 地区のトレンチ 5（左）及びトレンチ 7（右）の試料採取位置と炭素 14 年代

反応時間については、土壌試料（ヒューミン）の ^{14}C 年代から考察できる。アルカリ地下水との直接の反応時間は、炭酸塩の ^{14}C 年代から、少なくとも 2,800 年程度であることはいえるが、砕屑性堆積物が堆積した時代からアルカリ地下水との相互作用あったと考えると、図 4.3.2-2 に示す土壌試料（ヒューミン）の ^{14}C 年代である、トレンチ 2（^{14}C 年代：2,413±82 年）、トレンチ 7（^{14}C 年代：4,516±74 年）、トレンチ 3（^{14}C 年代：9,721±57 年）が高アルカリ地下水との相互作用期間と仮定できる。トレンチ 2 では空隙等を充填するスメクタイトと共生する C-S-H が多くみられることから、アルカリ環境下において、苦鉄質鉱物等溶解に伴い、Si と Mg、Fe との結合による M-S-H や F-S-H の形成と、アルカリ溶液からの Ca と Si との結合による C-S-H の形成は、高アルカリ地下水が浸出してそれほど時間を経ずに生じ、M-S-H や F-S-H は速やかにスメクタイト質に変化したものと考えられる。一方、図 4.3.2-2 に示すように、XRD のトレンチ 2 のスメクタイトのピークはトレンチ 7 やトレンチ 3 よりもやや弱く、これは過渡期のスメクタイト化を示している考えられる。従って、アルカリによる溶解を伴う変質反応により生じた沈殿は速やかにスメクタイト質になるが、より Si-rich な結晶質のスメクタイトに成長・進展する反応は、アルカリとの相互作用が始まって 2,400 年～4,500 年程度の長期の反応であることがいえる。

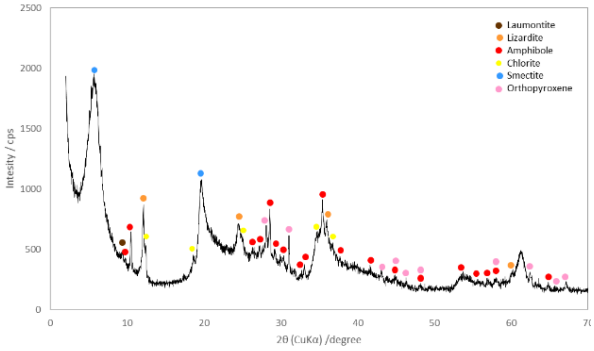


トレンチ 2 底部の砕屑性堆積物のヒューミン
^{14}C 年代：2368±77 年(PWT02-15-Rh-011)





トレンチ 6 底部の砕屑性堆積物のヒューミン
^{14}C 年代：4008±73 年(PWT06-17-Rh-C06)





トレンチ 5 底部の砕屑性堆積物のヒューミン
^{14}C 年代：9647±56 年(PWT05-16-Rh-014)

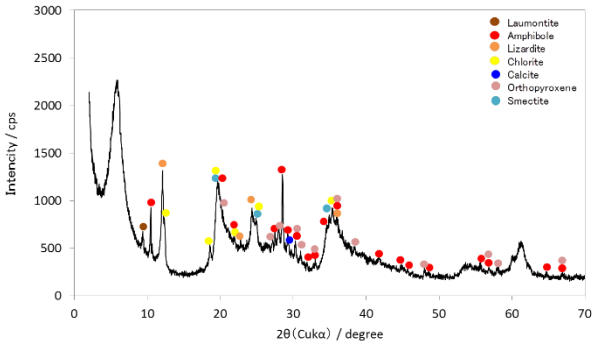


図 4.3.2-2　スメクタイトの生成と反応時間（右は底部の試料の XRD パターン）

一方、Narra のトレンチの炭酸塩試料について、SARA 法による TL 年代を検討した結果、トレンチの炭酸塩試料はアラゴナイト型の発光曲線を示した。アラゴナイトを含まない方解石のみの試料でもこのような発光特性を示すため、このアラゴナイト型の 350℃発光の大部分は天然環境下で蓄積された放射線欠損ではなく、構造欠陥によるものだと考えられる。結晶度測定や微量元素濃度測定を行い、構造欠陥（アラゴナイト型に成る）要因を調査したが、決定するには至らず、TL 年代の評価はできなかった。構造欠陥によるルミネッセンスについてのさらなる研究が必要である。

4.3.3　地球化学モデルによるナチュラルアナログの解析的評価

オフィオライトの蛇紋岩化作用過程で生成した高アルカリ地下水とベントナイトとの相互作用において、アルカリ環境下のスメクタイトの安定性やアルカリ溶液からの二次鉱物生成挙動のベントナイトのアルカリ変質に伴う状態変遷評価について、パラワン島及びルソン島のナチュラルアナログを対象として以下の地球化学計算を実施した（平成 25 年度報告書第 4 章(p.325～348)[20]、平成26年度報告書第5章(p.344～361)[16]、平成27年度報告書第5章(p.410～446) [17]、平成 28 年度報告書第 5 章(p.408～433)[18]、平成 29 年度報告書第 5 章(p.388～412)[19])。

パラワン島 Narra 地区のナチュラルアナログ環境での安定相の解析から、Narra 地区で採取された地下水は、概ねサポナイトの安定領域にプロットされており（図 4.3.3-1～図 4.3.3-3)、特に、サポナイトや鉄サポナイト等の 3 八面体型スメクタイトの前駆体の主要成分である、Mg, Fe, Si 濃度が高い領域において、サポナイトが安定相であることが確認できた。これらは Narra 地区のナチュラルアナログサイトの砕屑性堆積物中での観察結果と整合することから、高アルカリ地下水によってスメクタイト化が進んだことが地球化学計算の観点からもいえる。

Ca については、C-A-S-H とサポナイトの境界付近に Narra 地区の地下水はプロットされている（図 4.3.3-2)。これは、C-S-H とサポナイトの共生が多く確認された、Ca 濃度が高いトレンチ 2 の砕屑性堆積物中の鉱物の産状と整合する。Al については、Al-rich のスメクタイトであるバイデライトと Fe, Mg-rich のスメクタイトであるサポナイトの境界付近にプロットされている（図 4.3.3-3)。これは、降下火山灰堆積物中のスメクタイトで類似した産状がみられ、アルカリ変質によって、Al 成分の多いところはバイデライト、Fe, Mg 成分の多いところはサポナイトが生成することを、地球化学計算でも示している。また、縦軸を Al_2O_3、横軸 SiO_2 にとった安定相図では、Narra 地区の地下水のプロット点はサポナイトの安定領域外ではあるが、地下水の溶存シリカの活量が実測値よりも高い濃度（10^{-3} mol/L 程度）であれば、サポナイトの安定領域内に存在することとなる。溶存シリカの活量が高いと、サポナイトが安定することが分かった。

一方、セメント平衡水またはセメントーベントナイト平衡水の化学組成でも、Narra 地区の NA サイトと同様、サポナイトの安定領域内に存在していることが確認された。間隙水が pH12.5 付近の場合、Mg^{2+}の活量が 10^{-7} mol/L 程度($\log([Mg^{2+}]/[H^+]^2 = 16.8$)であれば、サポナイトの安定領域である。現状のセメント平衡水のデータでは、Fe, Mg の影響は評価されていないが、処分場においては海水や鉄部材からの Fe, Mg の影響で、ゼオライトが安定相とはならないケースも十分考えられ、この評価は今後の課題である。

ルソン島 Saile 鉱山のナチュラルアナログの高アルカリ地下水との相互作用があったベントナイトと枕状溶岩の接触部の変質解析から、二次鉱物の溶解は、拡散速度より反応速度が十分遅いとみられ、反応速度を設定することで、実現象の固相組成・固相分布の再現性が向上することが確認された。また、M-S-H および F-S-H を二次鉱物の設定に追加したことにより、M-S-H または F-S-H と鉄サポナイトがアルカリ変質鉱物(二次鉱物)として生成していることが確認された。パラワン島 Narra 地区のナチュラルアナログの観察結果や安定相の解析結果から、アルカリ溶液から沈殿形成して生成していたスメクタイトについては、M-S-H がその前駆体である可能性が示

唆されたが、ルソン島の Saile 鉱山のナチュラルアナログサイトの変質解析においても M-S-H と鉄サポナイトが同時に生成することが確認され、サポナイトの生成に M-S-H が影響を与える可能性があることを解析上でも確認できた。ただし、酸化還元電位が変化しない条件では、Saile 鉱山のナチュラルアナログの鉄濃集帯におけるノントロナイトと針鉄鉱の生成は解析では確認されなかった。

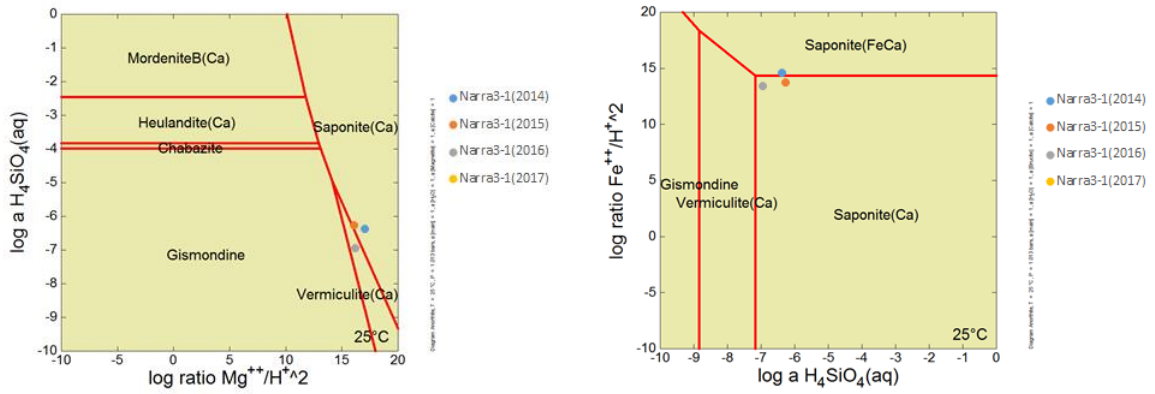


図 4.3.3-1　Al_2O_3-FeO-MgO-CaO-SiO_2-H_2O 系の安定相図（左：SiO_2-MgO、右：FeO-SiO_2）

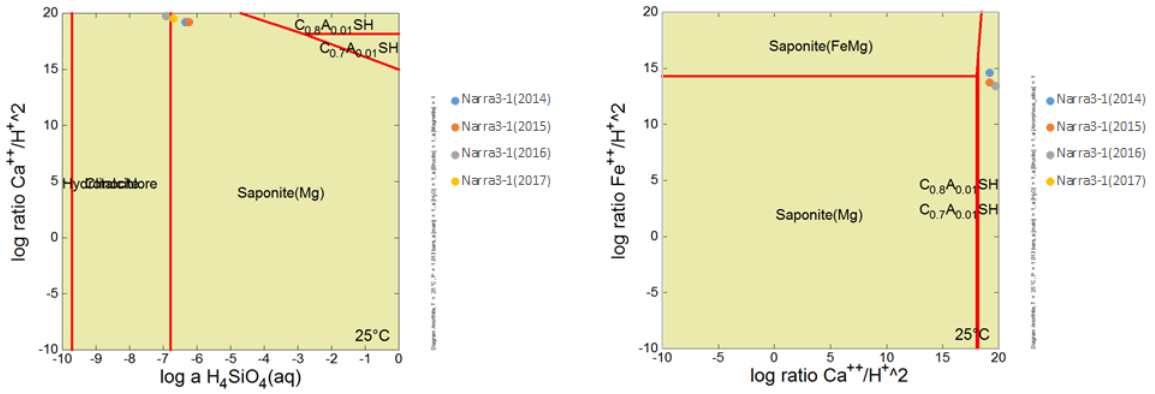


図 4.3.3-2　Al_2O_3-FeO-MgO-CaO-SiO_2-H_2O 系の安定相図（左：CaO-SiO_2、右：FeO-CaO）

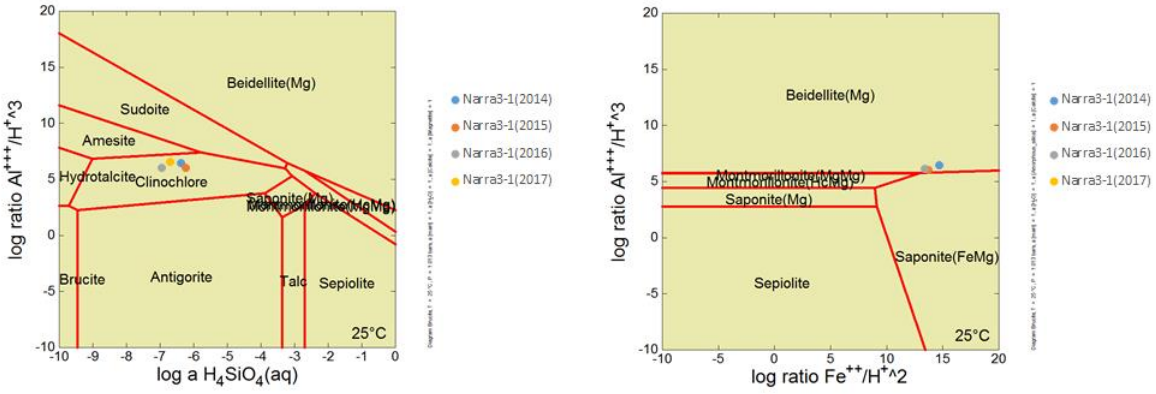


図 4.3.3-3　Al_2O_3-FeO-MgO-CaO-SiO_2-H_2O 系の安定相図（左：Al_2O_3- SiO_2、右：Al_2O_3-FeO）

4.3.4　スメクタイトの生成環境と鉱物学的変遷モデルおよび長期的安定性

(1)　スメクタイトの生成環境

パラワン島 Narra 地区におけるスメクタイトの形成環境と変質反応プロセスを考察する上で、スメクタイトの母層である砕屑性堆積物の形成－堆積過程を考察することが必要である。この過程は基盤岩であるパラワンオフィオライトのテクトニックス変遷過程を理解することから始まる。このオフィオライトは SSZ 型（プレート沈み込み帯に起因）で、34Ma に海底地殻として誕生し、その後、23Ma に定置され陸化したものである[14]。

その後、いわゆる風化－侵食－破砕－運搬－沈積などをくり返しながら、地形的には東方のスールー海(Sulu Sea)に向かう緩傾斜の河川系に支配されている、扇状地様地形面で特徴付けられる沿岸域（カワニナの存在）に堆積したものと解釈される。

この砕屑性堆積物は、基盤岩であるパラワンオフィオライト超塩基性複合岩体を構成する、蛇紋岩化作用を受けたハルツバージャイトと、少量の班れい岩を起源物質とする。この砕屑性堆積物は上位からトラバーチン起源の炭酸塩沈殿物（主成分は方解石）が比較的厚く（恐らく厚いところでは 5m を越える)、ルーズで塊状な堆積構造を示すが、一部、層理面をもつ成層構造による固結化（岩石化）が観察される。その下位の砕屑性堆積物は大別すると、上位部は砂質で、下位部は泥質である。砂質部には原岩（パラワンオフィオライト）の亜角礫で扁平な礫が、層間内礫層として古河川系の凹部に挟在する。これらの砕屑性堆積物は、定置後のテクトニックな構造的擾乱はなく、地質学的には静穏な堆積環境であったものと推察できる。

また、砕屑性堆積物の下位部（トレンチ 7 の床面のみ分布）に特異的な降下火砕堆積物起源の火山灰・新鮮な火山ガラス・斜長石などから構成される火山砕屑性物質が観察される。この供給源は明らかではないが、あまり遠くない火山の新しい火山活動からと推察される。

Narra サイトでは、基盤岩の北東系に優勢な割れ目（断裂系）からアルカリ湧水(pH> 11)が観察され、その湧水源周辺には、特徴的なトラバーチン起源の炭酸塩沈殿物が広く随伴する。

このサイトの高アルカリ地下水は蛇紋岩化作用に伴う代表的な Ca－OH タイプの水質で、還元環境を示し、トレンチ壁面観察から砕屑性堆積物の砂質－泥質部境界近傍で湧出している。この湧水近傍の炭酸塩や土壌中のヒューミン物質の炭素同位体（^{14}C 年代測定）測定から、その年代は 1,000 年～10,000 年と算出されていることから、この期間にわたり、高アルカリ地下水が砕屑性堆積物中に浸出していたものと推察される。

(2)　スメクタイトの鉱物学的変遷モデルおよび長期的安定性

Narra 地区のスメクタイトの形成環境と変質反応プロセスは、物理的風化環境と、アルカリ地下水環境に区別される。

物理的風化環境下でのスメクタイトの形成環境と変質反応プロセスについては、苦鉄質鉱物を主成分とする砕屑性堆積物の地球化学的環境下(Mg·Fe-rich, Al-free)でのスメクタイト形成プロセスとしては、前駆鉱物とこのような溶液との相互作用により、2 八面体型のスメクタイト（ノントロナイト）と 3 八面体型で Al-poor な Mg－Fe スメクタイト（サポナイト）が初

生鉱物である。その後、Fe-rich なサポナイトへ鉱物学的な組成変化（変換） をする。一方、珪長質鉱物と少量な苦鉄質鉱物を主成分とする砕屑性堆積物の地球化学的環境下(Al·Si-rich)でのスメクタイトの形成は、2 八面体型の Al-rich で Mg-poor なスメクタイト（バイデライト）と苦鉄質鉱物を交代して生成した 3 八面体型スメクタイト（サポナイト）である。

アルカリ地下水環境下でのスメクタイトの形成環境と変質反応プロセスについては、Mg, Fe に富む超苦鉄質岩起源の砕屑性堆積物では、図 4.3.4-1 に示すように、高アルカリ地下水との相互作用により、苦鉄質鉱物や蛇紋石、緑泥石が溶解して、Mg, Fe, Si が溶解し、高アルカリ地下水中の Ca、少量の班れい岩由来の斜長石から溶出する Al によって、スメクタイトの前駆体となる M-S-H や F-S-H と C-S-H が沈殿する。Fe や Al も容易に取り込み、M-F-A-S-H のようなやや複雑な組成にもなりうる M-S-H から、（Mg）サポナイト、鉄サポナイト、スチーブンサイト等の 3 八面体型のスメクタイトが生成し、さらに、Fe-rich の 3 八面体型スメクタイトの周囲では、より安定なノントロナイトが生成する。一方、C-S-H は数千年の時間スケールでジャイロライト等に一部結晶化したり、カルサイトに変化したりする。

Al に富む降下火山灰堆積物では、図 4.3.4-2 に示すように、高アルカリ地下水との相互作用により、降下火山灰堆積物中の斜長石や火山ガラス、パミス（軽石）が一部溶解して、Al, Si が溶解し、高アルカリ地下水中の Ca、周囲の苦鉄質鉱物等から溶出する Mg, Fe によって、Al-rich なところでは 2 八面体型のバイデライト、Fe-rich なところでは超苦鉄質岩起源の砕屑性堆積物と同様にサポナイト等の 3 八面体型のスメクタイトが生成し、一部その反応リムにノントロナイトの生成がみられる。

アルカリ地下水環境下でのスメクタイト生成過程について、Mg, Fe に富む超苦鉄質岩起源の砕屑性堆積物、Al に富む降下火山灰堆積物との比較では、スメクタイトの定量分析から、苦鉄質堆積物のほうがスメクタイトの度合いが大きい。また、斑れい岩由来礫等からの Al は、スメクタイト化を妨げず、容易に 3 八面体型のサポナイト等に取り込まれているのに対し、降下火山灰堆積物では変質していない火山ガラスが多くみられることから、Al 成分の量比そのものがスメクタイト化に影響するということではなく、高アルカリ地下水と反応する堆積物中の主要鉱物の溶解の程度が、スメクタイト化の割合を律速していると考えられる。また、トレンチでの観察した岩質から、降下火山灰堆積物はアルカリ環境下でスメクタイト化が顕著でない一方、苦鉄質堆積物に比べて緻密で固結化がより進んでいるという特徴もある。

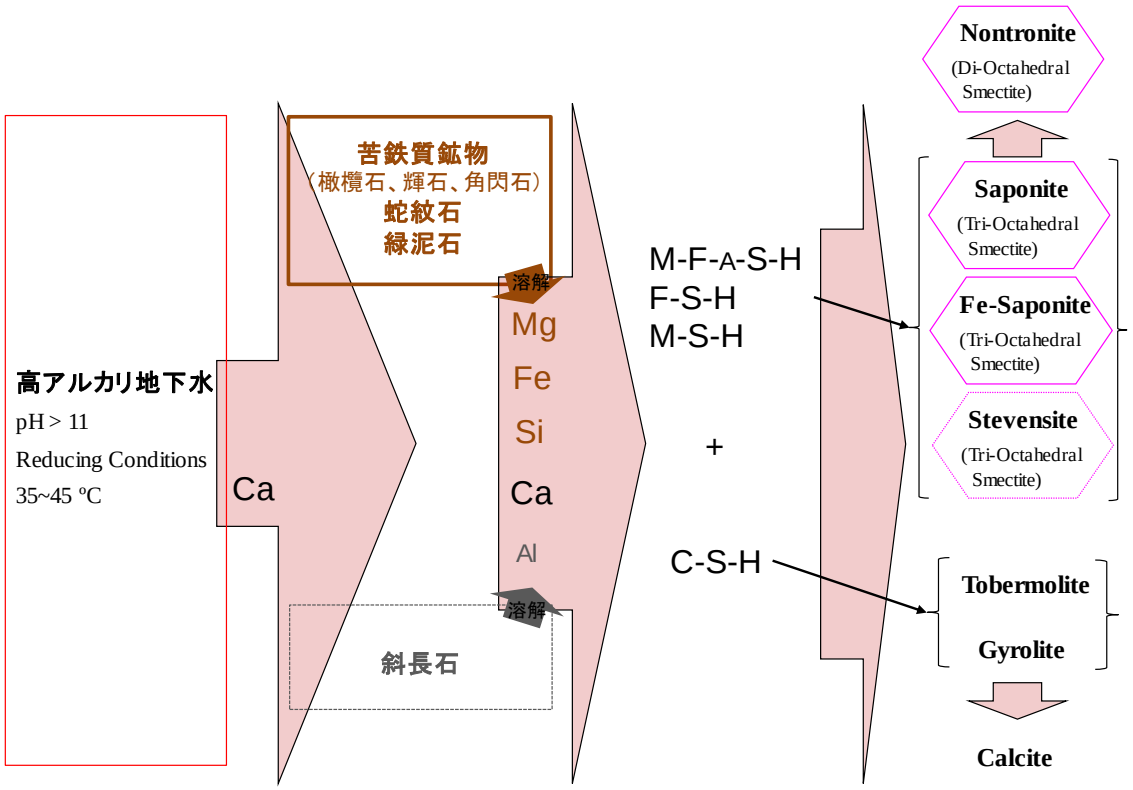


図 4.3.4-1　パラワン島 Narra 地区の Mg, Fe に富む超苦鉄質岩起源の砕屑性堆積物中のスメクタイト生成に係る鉱物変遷プロセス

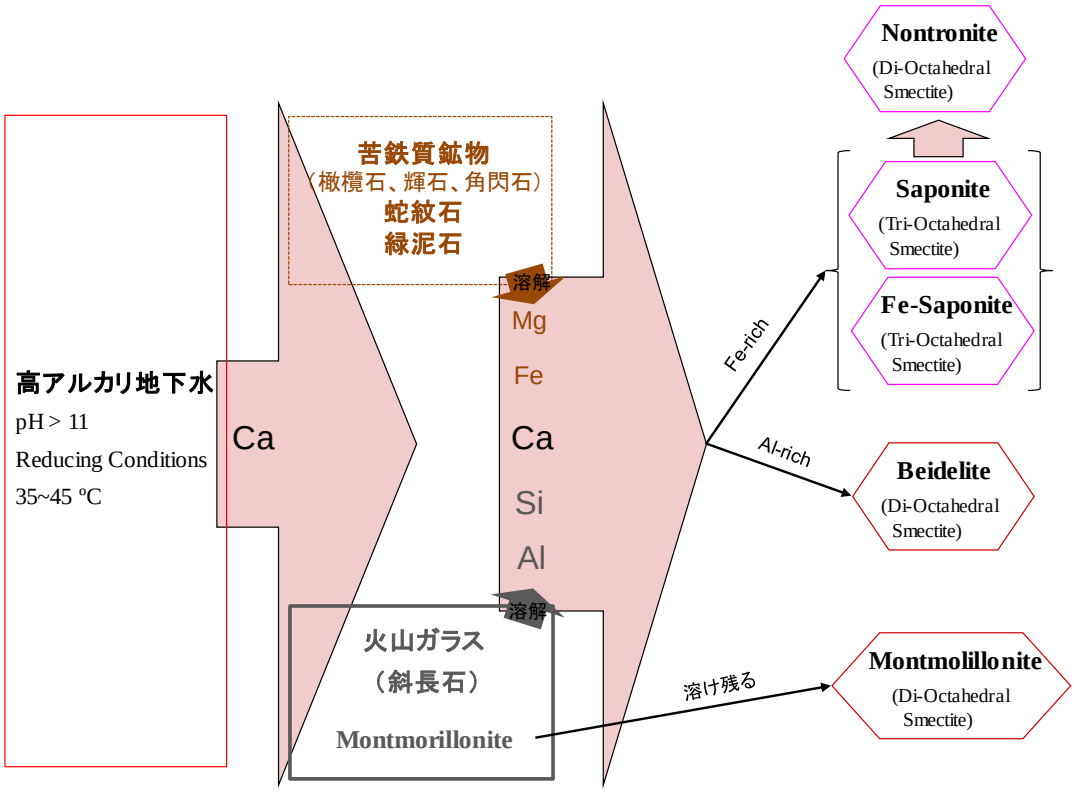


図 4.3.4-2　パラワン島 Narra 地区の Al に富む降下火山灰堆積物中のスメクタイト生成に係る鉱物変遷プロセス

4.4　ナチュラルアナログの知見に基づくベントナイトの長期健全性

4.4.1　調査サイトの環境とナチュラルアナログのコンセプト

TRU 廃棄物の地層処分場の人工バリアシステムには、構造躯体や充填材等に大量のセメント系材料の使用が考えられており、そのセメント系材料からの高アルカリ浸出水によるスメクタイトの溶解・変質によるベントナイトの不安定化が、緩衝材としての機能が期待される長期にわたりどの程度生じるのか、ということが本事業の大きな課題である。そのような長期の性能評価にナチュラルアナログを活用して現象理解を深め、長期評価モデルの向上ならびに直接的な証拠（ナチュラルアナログ）そのものによる説明性の向上を図ることを目的としている。

そのようなナチュラルアナログサイトの必要要件は、(A)ベントナイト層（Sediment）あるいはスメクタイトを含有する粘土層、(B)高アルカリ地下水（Fluid）、(C)高アルカリ地下水の経路となる断裂系（Fracture）のすべてが存在する地質環境である。

パラワン島 Narra 地区のナチュラルアナログサイトの地質環境のコンセプトは図 4.4.1-1 下であり、(C)オフィオライトの基盤岩の複数の亀裂を流路とする、(B)pH11 が超える高アルカリが、(A)スメクタイトを含有する粘土層に今現在も進出しており、このサイトでは前述したような高アルカリ地下水による様々な変質プロセスを確認している。このパラワン島 Narra 地区のナチュラルアナログと図 4.4.1-1 上の Saile 鉱山のナチュラルアナログの地質環境のコンセプトと比較すると、高アルカリ地下水が作用する初生物質が Saile 鉱山ではベントナイトであるのに対して、パラワン島 Narra 地区ではスメクタイトを含むもののベントナイトそのものではないという点が大きく異なる。すなわち、Saile 鉱山では、ベントナイトと高アルカリ地下水の相互作用そのものを観察することができる、非常に単純明快な地質環境条件を有する、地層処分場の人工バリア**”システムのナチュラルアナログ”**だったのに対し、パラワン島 Narra 地区は、ベントナイトそのものの変質現象が観察されるサイトではないため、ベントナイトを構成要素とする TRU 廃棄物処分場の人工バリアでのアルカリ変質**”プロセスのナチュラルアナログ”**といえる。

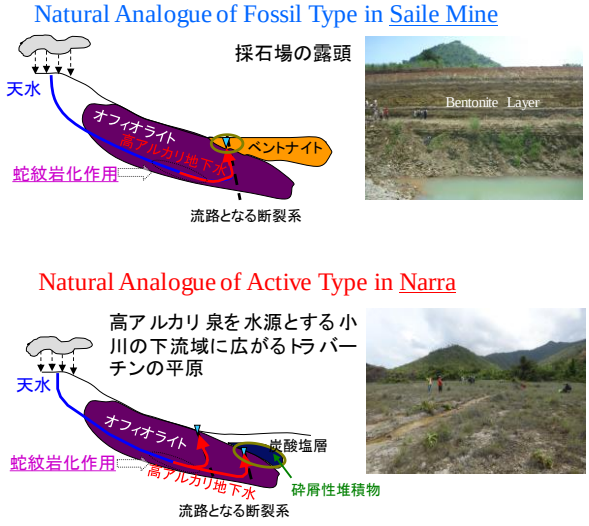


図 4.4.1-1　ナチュラルアナログサイトの地質環境のコンセプト

4.4.2　人工バリアの長期健全性に係るナチュラルアナログの知見

これまでのパラワン島 Narra 地区のナチュラルアナログ調査から得られた知見を以下のメッセージにまとめる。

- **高アルカリ溶液はスメクタイトを生成させる環境になりうる。**

TRU 廃棄物の地層処分場でのベントナイトーセメント相互作用での最も重要な反応は、ベントナイトの主要粘土鉱物であるスメクタイト（2 八面体型のモンモリロナイト）の高アルカリ溶液による溶解・変質である。しかしながら、Narra 地区のサイトでは、高アルカリ環境(pH > 11)がスメクタイト（Mg, Fe に富むスメクタイト（3 八面体型のサポナイト、2 八面体型のノントロナイト等)）を生成する環境でもあることを示している。もちろん、このようなスメクタイトが生成する高アルカリ環境では、スメクタイトが長期にわたり安定に存在する。

このキーとなるのは Mg, Fe の存在であり、GWB（Geochemist's WorkBench）による地球化学計算でも、Narra 地区の地下水環境ではサポナイトが安定相と評価された。この高アルカリがサポナイトを生成するという環境は、このようなフィリピンの苦鉄質鉱物に富み高アルカリ地下水が浸出する極めて特殊なパラワン島 Narra 地区に限ったものではなく、国内の地質環境にも当たり前に存在する Mg, Fe が高アルカリに溶出すると、高アルカリ溶液による変質鉱物がスメクタイトになることは十分ありうる話である。実際、ルソン島のベントナイトではサポナイトが生成している。また、セメント浸出水の安定相図から、高アルカリ条件で Mg^{2+}の活量が上がるとサポナイトの安定領域になることを確認している。

- **Fe, Mg に富む高アルカリ環境での二次鉱物はゼオライトではなくスメクタイトである。**

前述したメッセージと重なる点でもあるが、Narra 地区の地下水環境はこのキーとなるのは Mg, Fe の存在であり、地球化学計算からサポナイトが安定相であり、実際に Narra 地区のアルカリ環境下の堆積物中にはゼオライトはほとんど存在せず、アルカリ変質によって生成したスメクタイトは主に 3 八面体型のサポナイトである。アルカリ変質反応でキーとなるのは Si の挙動であり、Fe, Mg に富む高アルカリ環境では、Si は、アルカリに取り込まれてゼオライトが生成するのではなく、Fe, Mg と結びついて前駆体となる M-S-H や F-S-H 等で沈殿し、それらが（Mg）サポナイト、鉄サポナイト、スチーブンサイト等の 3 八面体型のスメクタイトが生成する。降下火山灰堆積物でも、Al-rich なところでは、2 八面体型のバイデライトも生成するが、サポナイトの生成のほうが多い。

実際には、M-S-H は Fe や Al も容易に取り込み、M-F-A-S-H のようなやや複雑な組成のものができるとみられる。M-S-H については、熱力学データ等も整備されつつあるが、F-S-H（特に Fe^{2+}のデータ）は実験的に難しい点もあるためほとんど取られておらず、当然このサイトでみられるような M-F-A-S-H の評価は現状ではできないため、現実的なアルカリ変質の解析のためにこれらの熱力学データの取得が課題である。

- **高アルカリ環境でのスメクタイト質の M-S-H の生成は速やかに生じるが、スメクタイトの結晶化は 2,400～4,500 年程度の長期にわたる反応である。**

Narra 地区の苦鉄質の堆積物中で生成するスメクタイトには C-S-H と共生している産状が多くみられる。アルカリ溶液からの Ca と Si との結合による C-S-H の形成は、高アルカリ地下水が浸出してそれほど時間を経ずに生じ、M-S-H や F-S-H は速やかにスメクタイト質に変化したものと考えられる。Mg 鉱物への変質プロセスでは、M-S-H の生成（沈殿）速度ではなく、高アルカリ溶液と反応する出発物質の溶解速度に律速すると考えられる。ただし、そのようなアルカリとの相互作用により生成した M-S-H や F-S-H は時間をそれほど経ずにスメクタイト質に変化するが、堆積年代の異なるトレンチの砕屑性堆積物のスメクタイトのピーク強度の差から、アルカリとの相互作用が始まって 2,400 年～4,500 年程度の長期の時間を経て、より Si-rich な結晶質のスメクタイトに成長・進展する。

- **ベントナイトは高アルカリ溶液で一部変質するかもしれないが、概ね、長期間健全である（緩衝材としての機能が損なわれない）。**

パラワン島 Narra 地区のサイトではスメクタイトのアルカリ変質プロセスを直接観察できるナチュラルアナログサイトであるが、ここで主にみられるスメクタイトは、サポナイト、ノントロナイト、スチーブンサイトといった Fe と Mg 成分に富むスメクタイトであることである。処分場の変質プロセスを考えた場合、珪長質成分に富むモンモリロナイトや随伴鉱物で構成されるベントナイトのアルカリ変質で、当ナチュラルアナログサイトで観察される Fe, Mg 成分に富むスメクタイト現実的に生成するのかという点を考慮しなければならない。

ここで、改めてルソン島 Saile 鉱山のナチュラルアナログにおけるアルカリ変質プロセスについて説明する。このサイトでは（Ca 型モンモリロナイトを主要鉱物とする）Ca 型ベントナイトに基盤岩（玄武岩質枕状溶岩）の亀裂を流路とする pH11 程度の高アルカリ地下水が接触し、枕状溶岩－ベントナイト界面で 5mm 程度のベントナイトのアルカリ変質が確認された。この微小の変質領域でのアルカリ変質による二次鉱物を同定しており、界面付近の玄武岩ガラスの溶解に伴い溶出した 2 価の Fe イオンの一部が、2 八面体型モンモリロナイトの層間陽イオンである Ca との陽イオン交換反応により Fe 型化（Fe 型モンモリロナイト）し、一部は溶解反応を伴い鉄サポナイトとして沈殿し、その後、酸化環境下で余剰の 3 価の Fe が、ノントロナイトと針鉄鉱を晶出（沈殿）させ、特徴的な鉄濃集帯を形成したものである。

この Saile 鉱山でのアルカリ変質プロセスと現状までの知見で得られたパラワン島 Narra 地区のナチュラルアナログのアルカリ変質プロセスを合わせて図 4.4.2-1 に示す（図 4.4.2-1 の青点線より上が Saile 鉱山、赤点線より下（及びノントロナイトと方解石の生成）が Narra 地区の反応プロセス）。ここでまず着目されるのは、モンモリロナイトを含むベントナイトのアルカリ変質反応において、Fe イオンの影響を強く受け、Fe を含むスメクタイト等の鉄粘土鉱物が二次鉱物として生成されることである。鉄を含むスメクタイト（3 八面体型サポナイトや 2 八面体型ノントロナイト）については、Saile 鉱山では、Ca 型モンモリロナイトのアルカリ溶液への溶解・沈殿反応により、玄武岩ガラス等から供給される Fe^{2+}を使って鉄を含むスメクタイトが生成してい

るのに対し、Narra 地区では、アルカリ溶液に超塩基性岩起源の砕屑物中の前駆鉱物（初生苦鉄質鉱物と蛇紋石・緑泥石の変質鉱物）の溶解によって供給される Mg, Fe, Al, Si が過飽和になり、C-S-H を伴って、サポナイト等の Mg-Fe rich スメクタイトが生成し、それらの一部から 2 八面体型ノントロナイトが生成（進展）する。

すなわち、Narra 地区でのアルカリ溶液から鉄を含むスメクタイトが生成するプロセスは、Saile 鉱山のアルカリ変質プロセスと共通しており、アルカリによって Fe を含むスメクタイトが生成するプロセスはベントナイトーアルカリ相互作用でも生じる可能性が高いと考えられる。その場合は、Saile 鉱山のナチュラルアナログが示すように、アルカリ変質反応に伴い生成した鉄を含むスメクタイトのクロッギング（空隙閉塞）が物質移行を抑制し、それによって変質反応が抑制されることが期待できる。

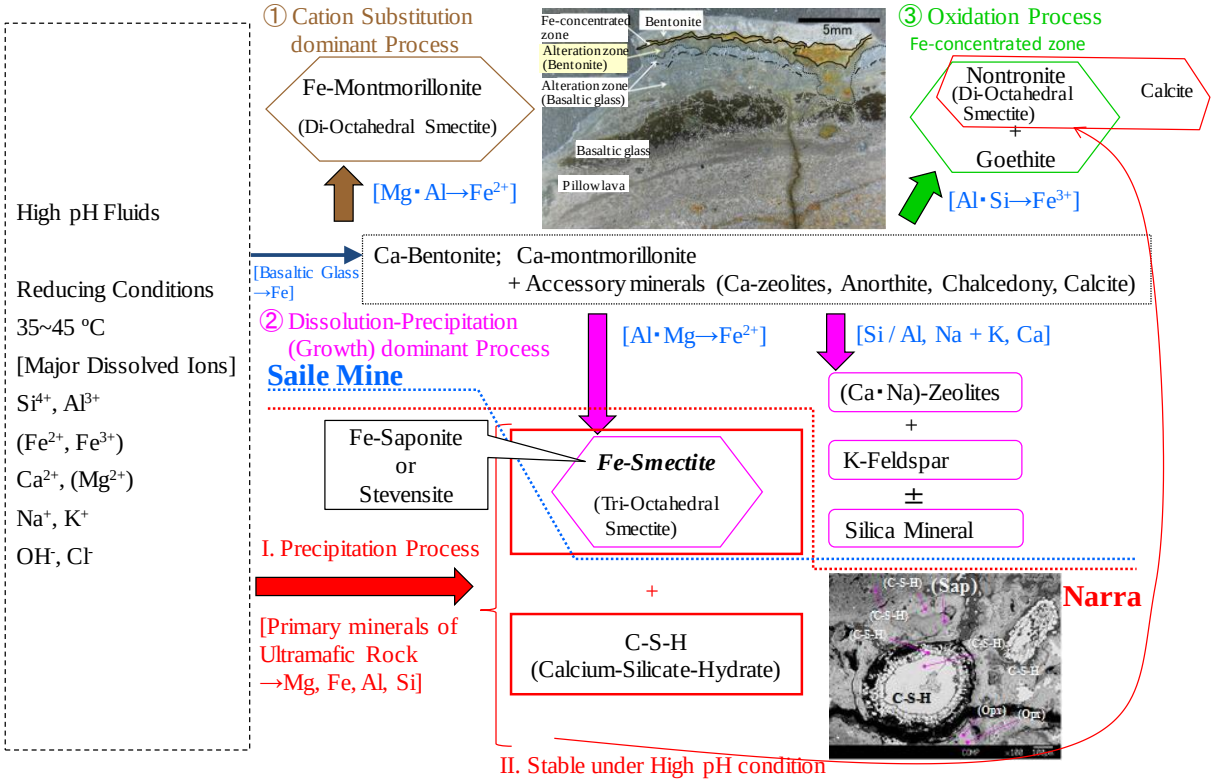


図 4.4.2-1　フィリピンナチュラルアナログのアルカリ変質プロセス（ルソン島 Saile 鉱山の NA とパラワン島 Narra 地区の NA の比較）

TRU 廃棄物の処分環境を考えた場合（図 4.4.2-2 参照）、高 pH での鉄の溶解度は低く、鉄筋コンクリートや鉄製容器のようなベントナイトと直接接していない部材からの鉄の供給によるアルカリ変質は、それほど顕著に起きないと想定できる。しかしながら、施工時には様々な鉄部材が処分場に持ち込まれ、酸化環境での鉄部材の影響が緩衝材に残ったり、あるいは海水環境における Fe, Mg イオンの流入、コロイドによる Fe イオンの流入等が生じたりすることが想定され、

Narra 地区や Saile 鉱山でみられる Mg, Fe, Al, Si に過飽和なアルカリ溶液による変質反応が、TRU 廃棄物処分場のベントナイト緩衝材においても生じる可能性は十分ある。

従って、そのような処分場のアルカリ環境は、スメクタイトを生成する環境でもあるため、高アルカリ浸出水によりモンモリロナイトの溶解・変質が生じても、スメクタイトが生成することで、緩衝材中のスメクタイト含有量の大幅な低下は見込まれず、緩衝材の膨潤性や収着性といった機能の低下・喪失が引き起こされるほどのベントナイトの変質が生じる可能性は低いといえる。

ただし、Fe, Mg が少ない環境でのベントナイトのアルカリ変質については、このナチュラルアナログは直接の証拠とはならない。このような環境では、室内実験でみられるように、アルカリ環境下で生成する安定相はスメクタイトでなく沸石であるかもしれない。ただし、その場合でも処分場と同様の圧密条件では、Fe, Mg があるフィリピンのナチュラルアナログと同様に、界面でのクロッギングにより見かけ上変質が進んでいない現象もみられている。生成する二次鉱物の種類に係る化学的な条件と反応に係る物質移行に係る物理的な条件との組み合わせが界面のクロッギングの生成条件になると考えられるが、その（二次鉱物が空隙をクロッギングする）生成プロセスは明らかでないため、その解明が実験、ナチュラルアナログ両方の残された課題である。

高アルカリがスメクタイトを生成する環境は危険側になるのではなく、むしろベントナイト緩衝材にとって好ましい環境であるため、処分場の成立性を左右する課題とはならないが、一方で、これまでの一部のアルカリ変質の評価では、室内実験等の外装から過度に保守的な評価をされていたことも否めない。より現実的な評価により、ベントナイトの長期健全性を示すことも必要である。

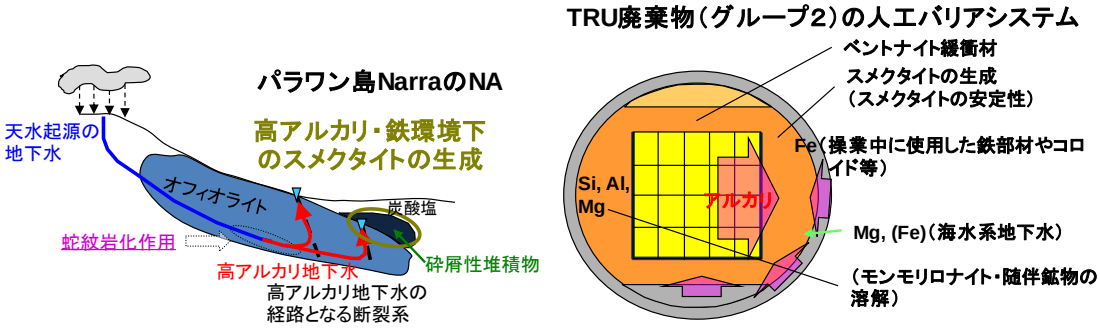


図 4.4.2-2　パラワン島 Narra 地区の天然現象の TRU 廃棄物人工バリアにおけるアナログ性

- **高アルカリ環境でも（火山）ガラスは 4,500 年程度では一部しか変質せず、未変質のまま残存するものが多い。**

Narra 地区のアルカリ環境下の Al に富む降下火山灰堆積物では、超苦鉄質岩起源の砕屑性堆積物に比べるとスメクタイト化が進んでいない。高アルカリ環境下におけるスメクタイト化は出発物質の溶解速度に律速しており、降下火山灰堆積物の顕微鏡観察では、多くの鉱物片サイズの火山ガラスが未変質のまま残存し、基質の鉱物も変質した年度鉱物は３割程度で、半数は火山ガラスのままであることを確認している。高アルカリ環境下で火山ガラスの溶解が進まない理由は現

状まだ明らかでないが、既に変質して粘土化したスメクタイト等の変質鉱物が溶解を妨げている可能性が考えられる。これは、降下火山灰の堆積過程生成したモンモリロナイトが比較的流量のあるアルカリ環境下でも残存していることでも、変質鉱物が溶解・変質妨げるという同じ理由であるかもしれない。また、トレンチのサンプリング時に岩質の違いが明確に体感しており、火山ガラスを含む降下火山灰堆積物は苦鉄質堆積物に比べて緻密で固結化がより進んでいるという特徴もあった。

パラワン島の地質関連の既存論文では、このような降下火山灰堆積物の記載がみられず、予想外の成果であった。そのため、現地において降下火山灰堆積物と認識できなかったため、十分なサンプリングができていない。この降下火山灰堆積物のサンプリングし、さらに分析データを追加することで、本研究の趣旨ではないが、高レベル放射性廃棄物のガラス固化体のナチュラルアナログとなる、アルカリ環境下の（火山）ガラス溶解の知見、特に、なぜ溶解が制限されているかについての現象理解が深まるとともに、ベントナイトのアナログにより近いモンモリロナイトのアルカリ環境下での長期安定性に関わる知見も得られる可能性が高い。

[参考文献]

[1] NAGRA: Kristallin-I, Safety Assessment Report. Nagra Techinical Report NTB 93-22, NAGRA, Wettingen, Switzerland (1994).
[2] 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－. JNC TN1400 99-023, 1999 年 11 月 (1999).
[3] NUMO: 高レベル放射性廃棄物地層処分の技術と安全性－「処分場の概要」の説明資料－. NUMO-TR-04-01 (2004).
[4] 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 年 9 月 (2005).
[5] （財）原子力環境整備促進・資金管理センター: 平成 14 年度地層処分技術調査等委託費 TRU 廃棄物処分技術　人工バリア長期性能確証試験　報告書 (2003).
[6] 久保博, 黒木泰貴, 三原守弘: ベントナイト系緩衝材のコンクリート間隙水による長期変質の基礎研究, 地盤工学会誌 46(10), 31 (1998).
[7] Johnston, R.M. and Miller, H.G.: The effect of pH on the stability of smectite. AECL-8366 (1984)
[8] （財）原子力環境整備促進・資金管理センター: 平成 18 年度地層処分技術調査等委託費 TRU 廃棄物処分技術　人工バリア長期性能確証試験　報告書 (2007).
[9] （財）原子力環境整備促進・資金管理センター: 平成 20 年度地層処分技術調査等委託費 TRU 廃棄物処分技術　人工バリア長期性能評価技術開発　報告書（第 1 分冊） (2009).
[10] Alexander, W.R. and Milodowski, A.E.: Cyprus Natural Analogue Project (CNAP) Phase II Final Report. POSIVA Working Report 2011-08, Posiva, Olkiluoto, Finland (2011).
[11] Abaya, J.G.: Determination of Recharge from Stable Isotope Datato the Hydrological Systems in the Southern Negros Geothermal Field and its Environs, Philippines. Proceedings World Geothermal Congress 2005, Antalya, Turkey, 24-29 (2005).
[12] Schweller, W.J., Roth, P. H., Karig, D. E. and Bachman, S. B.: Sedimentation history and biostratigraphy of ophiolite-related Tertiary sediments, Luzon, Philippines. Geological Society of America Bulletin 95, 1333-1342 (1984).
[13] Forbes, M.T., Mapaye, C.B. and Baculd, J.A.: Strucural characterization of off-shore Suthwest Palawan, Philippines using the most recent 2D / 3D seismic data. In Proceedings of Southeast Asia Petroleum Exploration (SEAPEX) Meeting, Manila, Philippines, 6 April (2011).
[14] Aurelio, M.A. and Pena, R.E., (Eds.): Geology of the Philippines Tectonics and Stratigraphy, second ed., vol.1, Mines and Geosciences Bureau, Department of Environment and Narural resoutces, Quezon City, Philippines (2010).
[15] Aurelio, M.A., Franke, D., Savva, D. and Steur, S.: Middle to Late Cenozoic tectonicevents in South and central Palawan (Philippines) and their implications to the evolution of the south-eastern margin of South China Sea: Evidence. Marine and Petroleum Geology, p1-16 (2013).
[16]（公財）原子力環境整備促進・資金管理センター: 平成 26 年度地層処分技術調査等事業　TRU 廃棄物処理・処分高度化開発報告書（第 3 分冊）－ナチュラルアナログ調査－ (2015).
[17]（公財）原子力環境整備促進・資金管理センター: 平成 27 年度地層処分技術調査等事業　TRU 廃棄物処理・処分高度化開発報告書（第 3 分冊）－ナチュラルアナログ調査－ (2016).
[18]（公財）原子力環境整備促進・資金管理センター: 平成 28 年度地層処分技術調査等事業　TRU 廃棄物処理・処分高度化開発報告書（第 3 分冊）－ナチュラルアナログ調査－ (2017).
[19] （公財）原子力環境整備促進・資金管理センター: 平成 29 年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業　TRU 廃棄物処理・処分高度化開発報告書（第 3 分冊）－ナチュラルアナログ調査－ (2018).
[20]（公財）原子力環境整備促進・資金管理センター: 平成 25 年度地層処分技術調査等事業　TRU 廃棄物処理・処分高度化開発報告書（第 3 分冊）－ナチュラルアナログ調査－ (2014).

第5章　人工バリア材料長期挙動評価・人工バリア評価の初期条件の設定

5.1　全体概要

5.1.1　背景

本事業は、再処理工場から及び MOX 燃料加工施設から発生する超ウラン元素を含む放射性廃棄物（以下、TRU 廃棄物という）のうち地層処分が想定されているものを対象としている。「はじめに」にもあるとおり、「特定放射性廃棄物の最終処分に関する基本方針」及び「特定放射性廃棄物の最終処分に関する計画」が平成 20 年 3 月に改定され、TRU 廃棄物は高レベル廃棄物との併置処分の実施も念頭に、地層処分事業という統合された計画とすることが決められ、同改正法は平成 20 年 4 月より施行されている。最終処分の開始を、平成 40 年代後半を目途に事業を進めるというスケジュールが掲げられ、現在、NUMO が高レベル放射性廃棄物の地層処分に加え、TRU 廃棄物の地層処分の実施主体となり、事業を行うための検討がなされている[1]。

TRU 廃棄物の地層処分に向けた検討課題は、各研究開発機関等を中心とした「地層処分基盤研究開発調整会議」によって取りまとめられ、緊喫に調査を実施すべき課題として挙げられている。図 5.1.1-1 に、地層処分事業と検討している技術分野の関連を示す。

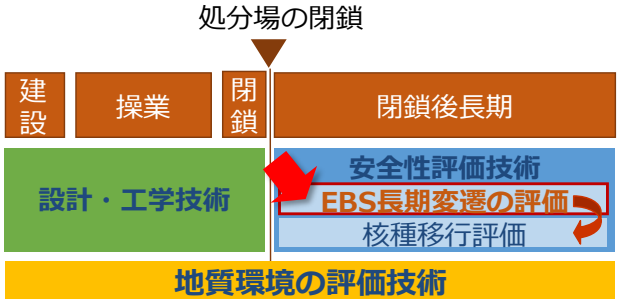


図 5.1.1-1 地層処分事業と技術分野の関連

こうした背景の中、TRU 廃棄物の処分に係わる人工バリア（EBS）の閉鎖後長期変遷の評価に関して、平成 24 年度までの課題をもとに調査することとした。第 2 次 TRU レポート[2]における閉鎖後長期の安全評価では（地下水シナリオ）、人工バリア内の緩衝材（ベントナイト）の乾燥密度が均一でかつ飽水状態にある等の仮定をしている。平成 24 年度までの検討成果を踏まえると、処分場閉鎖後長期の変遷の解析には以下の点を確認し、考慮していくことが必要である（図 5.1.1-2）。

・処分場閉鎖時点でも、緩衝材の密度分布は施工時の不均一な状態が残る。また、閉鎖時までにセメント系材料は、熱変質が起こる懸念がある。なお、閉鎖時点の状態が長期解析の初期条件である。

・閉鎖後長期において、セメント成分溶解のため高 pH になった地下水との接触による緩衝材の化学変質が起き、緩衝材の膨潤性の変化に伴い、緩衝材が沈下により断面上部の密度低下、緩衝材の核種移行抑制機能の低下等の人工バリア性能への影響が懸念される。

・人工バリアの閉鎖後長期の評価において、緩衝材の圧密状態での溶解とそれに伴い生成する二次鉱物の種類や生成条件、さらに、これらの化学変質を力学挙動及び透水係数モデルへの考慮する事が必要である。加えてセメント系材料も含めた多様な材料及び環境への対応は、人工バリア材料の長期挙動評価に重要な事項である。

図 5.1.1-3 に示す様に、人工バリアの工学技術と閉鎖時の性能、閉鎖後の長期変遷及び各種現象が関連する。また、人工バリアに使用される材料であるベントナイト系材料（緩衝材）及びセメント系材料の化学的な変遷（組成の変化）と力学的な変遷の相互影響を図 5.1.1-4 に示す。以上のことから、閉鎖時の状態及び閉鎖後長期の化学変質を考慮して力学挙動や透水性の変化を評価可能な水理･力学･化学(HMC)連成解析手法を構築し、閉鎖後長期の人工バリアの成立性について示していく必要がある。成立性の可否によっては、設計・工学的技術による対策での検討課題を示していくことも必要である。

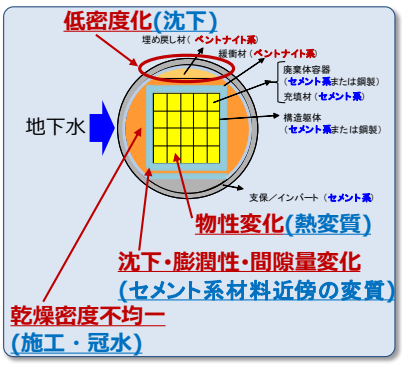


図 5.1.1-2 TRU 廃棄物処分場の人工バリアの処分概念（グループ 1, 2）の例と
その閉鎖後長期の挙動に影響を与える事象

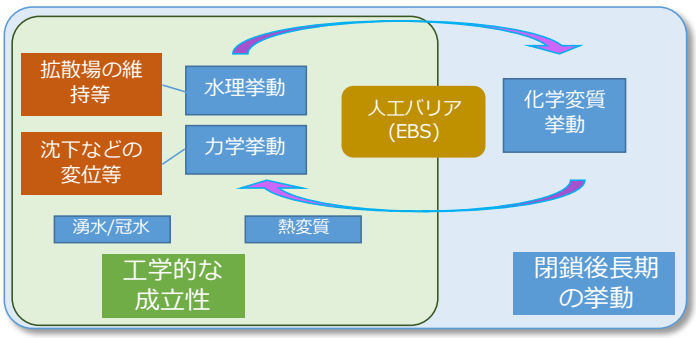


図 5.1.1-3 人工バリアの閉鎖後長期（化学変質）挙動と工学的な性能（水理力学挙動）の関連

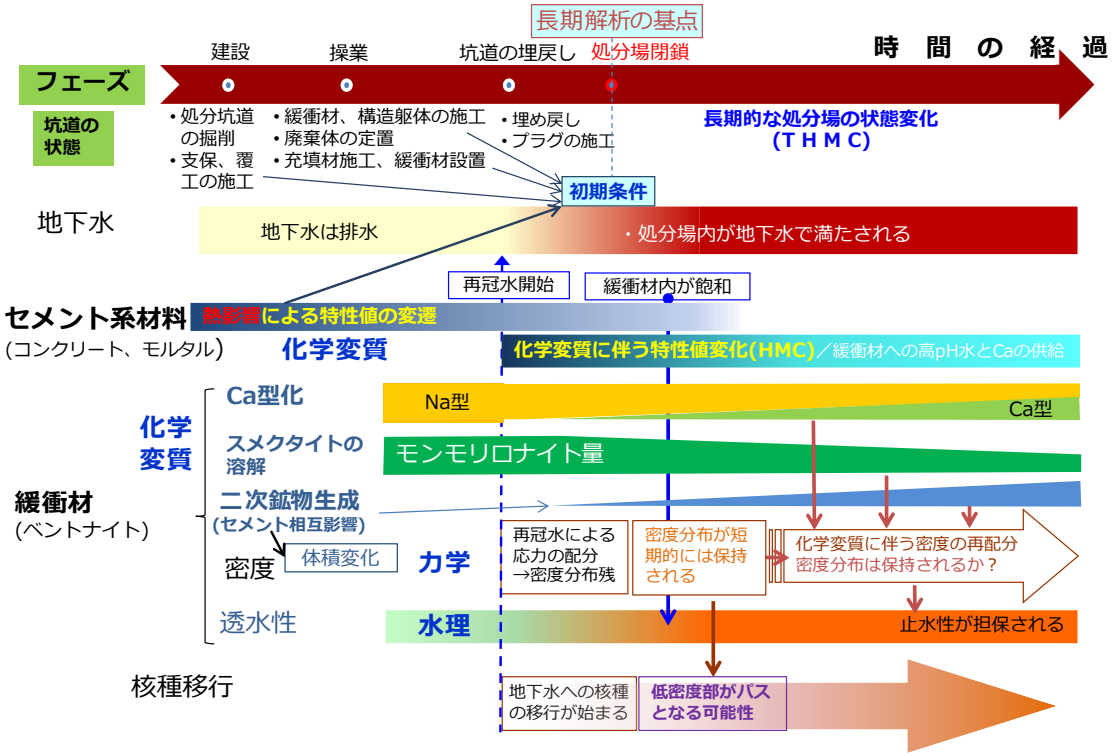


図 5.1.1-4 人工バリアの建設から閉鎖後長期の変遷のイメージ

5.1.2 目的及び検討概要

本事業は、TRU 廃棄物の地層処分における人工バリアの閉鎖後長期の変遷に関して、材料の化学的変質と性能の変化、それによる人工バリアの性能への影響の評価を目的とする。平成 24 年度までに本事業において抽出された課題を踏まえつつ、人工バリアの主な構成材料であるセメント系材料及びベントナイト系材料の化学変質と力学挙動の関連等を考慮した現象のモデル化や解析手法の検討等を実施する。それらの検討成果をもとに、人工バリアの長期予測手法を構築し、核種移行抑制、構造安定性等の性能の維持もしくは変遷を説明すると共に、長期的変遷のバリア性能への影響の評価を行ない、成立性を示していく。

平成 25 年度からの 5 カ年の事業として、図 5.1.2-1 に示す様に「人工バリア材料長期挙動評価」では、主に緩衝材を対象に、HMC 連成挙動の評価及び解析による長期挙動評価の信頼性を高めるために、確証試験とその成果の解析への反映を検討する。一方、「人工バリア評価の初期条件の設定」では、セメント系材料を主として、長期挙動評価の初期条件の設定及び初期条件の違いが評価結果に及ぼす影響に着目し、解析精度の向上のために操業中の熱及び施工による初期設定への影響等を検討する。

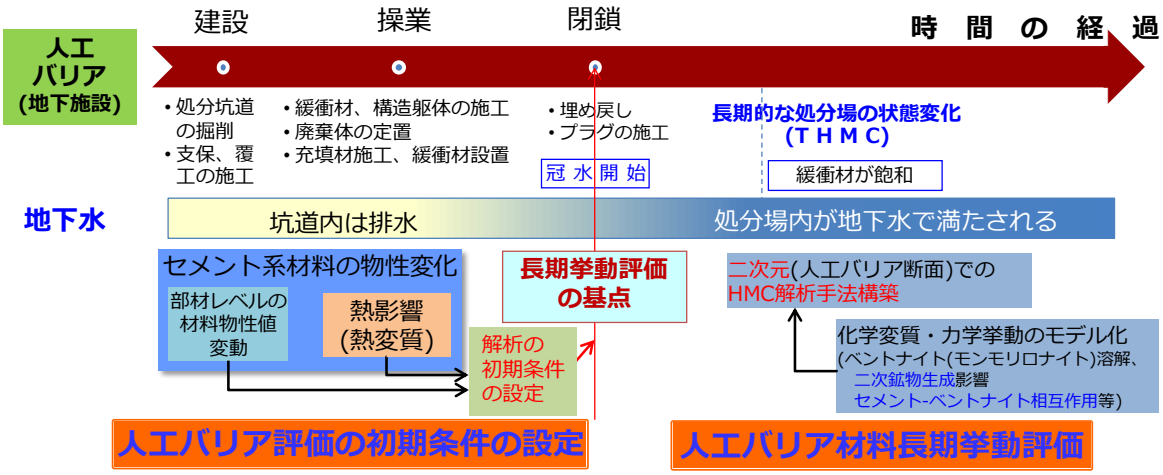


図 5.1.2-1 人工バリアの建設から閉鎖後長期の変遷過程と本検討の関係及び検討概要

5.1.3 前フェーズ(平成 19 年度～24 年度) の成果と課題

平成 24 年度までの「人工バリアの長期挙動の評価」[3]は、図 5.1.3-1 に示す様に人工バリアの長期変遷における現象の関連をとらえ、図中に赤枠で示した部分について、①多様なセメント系材料の長期変質挙動の確証試験、②セメントーベントナイト相互影響の確証試験、及び③人工バリア性能評価解析の高度化として調査を行った。これにより、地下環境条件に対応した人工バリア材料の多様性を考慮したセメント系材料及びベントナイト系材料の変質データを取得した。また、変質に伴う物質移行特性及び力学特性の変化に関するデータを取得し、得られたデータを元に人工バリアの長期性能評価手法の構築及び高度化を目標として実施した。

以下、項目毎の主な成果を(1)～(3)に、抽出された課題を(4)にそれぞれ示す。

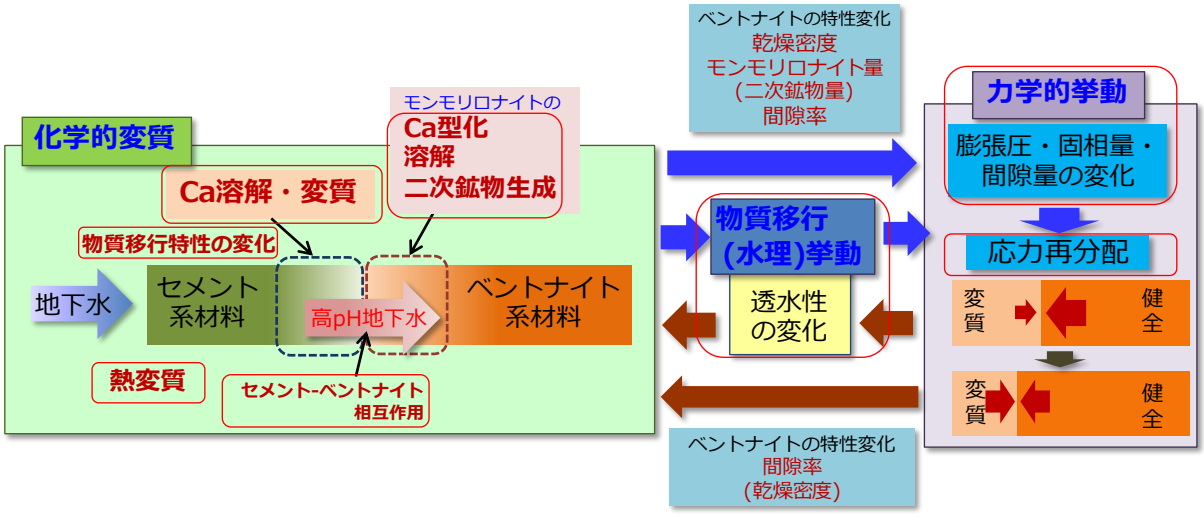


図 5.1.3-1 人工バリアの化学変質挙動と力学、透水挙動の関連

(1) セメント系材料の長期変質挙動の確証試験の成果

1) セメント系材料の物質移行・力学特性変化に関する計算手法の高度化

人工バリアの長期の化学解析で必要となるセメント系材料の物質移行特性及び力学特性の多様な材料への対応のための統一的な特性値の評価モデルを検討し、健全なセメント系材料の物性値から変質過程の拡散係数を算定できる見通しを得た。力学特性値に関しては、空隙率との関係により算定できるものと判断した。

2) セメント系材料の溶解変質モデルの構築に係わる試験

化学解析における多様なセメント系材料への対応のために、混合セメントに適用可能な溶解変質モデルを検討した。溶解変質試験により、BFSC や SC の変質において、初期鉱物及び二次鉱物がこれまでに確認した OPC や FAC の変質とほぼ同様であるという結果を得た。多様なセメント系材料の溶解変質解析は、OPC の変質解析に適切な鉱物設定を行い、変質の進行速度を考慮することで対応が可能と考えられる。

3) 経年コンクリート(アナログ試料)の分析

40～90 年程度経過した経年コンクリートの分析により長期の化学解析の基点のセメント系材料の状態、及び経年コンクリートの溶解試験によりその変質過程について、それぞれ妥当性の検証を行い、化学解析への反映事項や今後の検討課題を抽出した。化学解析の鉱物設定及び変質過程はこれまでの化学解析と大きく変わらないが、熱影響(温度推定値 70~100℃)による C-S-H の結晶化の進行が一部で起こり溶解が起きにくい点、及び $Ca(OH)_2$ が検出されない点が異なっていた。

(2) セメントーベントナイト相互影響の確証試験の成果

1) セメントーベントナイト接触供試体の界面近傍の分析

セメントーベントナイト接触部での、セメント影響によるベントナイトの変質により C-S-H 等の二次鉱物が生成する可能性を確証するために、模擬試料を用いてベントナイトの接触面から深さ方向への変質状況（C-S-H 等の二次鉱物の生成）を確認した。XAFS 分析では C-S-H の Ca/Si 比を特定できないことが明らかになった。また、薄片試料を用いた XAFS 分析による原位置測定から、セメント―ベントナイト接触部における変質に伴う C-S-H の生成やその分布が把握できた。

2) 圧縮系でのベントナイトの溶解速度に関する試験

現実的な人工バリアの条件におけるセメント影響によるベントナイト系材料の変質挙動を化学解析に反映していくために、圧縮条件下で、アルカリ溶液中でのモンモリロナイトの溶解速度を in-situ で測定した。その結果、圧縮系での溶解速度は分散系より 1 桁以上遅くなることを確認した。これにより、これまで使われてきた分散系での溶解速度が安全側であるということが確認できた。

溶解速度を定式化するにあたり、化学的要因（ΔG の変化）の寄与はわずかであり、物理的要因（反応比表面積の変化の効果）が大きいことがわかった。

3) 粘土系材料の変質に関する天然事例の調査

人工バリアのセメント影響に伴うベントナイト系材料の変質挙動に関して、長期挙動評価の信頼性を向上させるために、Ca が含まれ、アルカリ性である温泉水の賦存する地域でのナチュラルアナログの調査を行った。スメクタイトがゼオライトに変質、あるいはその逆の経路での変質の痕跡が観察された。変質にかかる時間については明確にできなかったため地化学解析（PHREEQC[4]を使用）を行って評価した結果、変質鉱物の組成は Na 型及び Ca 型モンモリロナイト、サポナイト、Ca ゼオライトが共存することが示された。この結果は、安全評価におけるスメクタイトの変質が十分に保守的であることの傍証であると考えられる。

4) 力学・物質移動特性変化に関する試験

ベントナイト系材料の人工バリアにおける長期の力学・水理挙動に関し、化学的な変質の影響を考慮するために、圧縮したベントナイト系材料の変質に伴う力学特性と水理特性の取得を、各種の材料について行った。力学特性については、①Ca 型化による力学特性変化の取得、②モンモリロナイト含有率の変化と力学特性変化の関係式の提示をした。また、水理特性については、①Kozeny-Carman 則による透水係数式[6]を導入し、比表面積と Ca 型化率、モンモリロナイト含有率の関係式を提示し、②内間隙と外間隙の調和平均に基く透水係数式による予測値と既往の透水係数の実測値で整合することを示した。

(3) 人工バリア性能評価解析の高度化の成果

1) セメント系材料の変質解析手法の高度化

化学解析におけるセメント系材料の初期鉱物設定を試験により得られた鉱物組成を基に変更した結果、Al 濃度の解析による再現が向上した。また、化学解析における二次鉱物の生成挙動の再現についても改善し、現実的なセメント二次鉱物の設定を提案することができた。

2) ベントナイト系材料の変質解析手法の高度化

ベントナイト系材料の化学解析では、試験より解析の変質速度が非常に速いことが課題であった。速度に関しては、(2) 2)項の試験で得られたモンモリロナイトの溶解速度を用いることにより、実効反応表面積に関する不確実性が低減された。また、(2) 4)項で検討した Kozeny-Carman 則による透水係数式の導入による透水係数の低減によっても、変質速度が遅く見積もられたが、液相濃度の影響が考慮されていないことが影響している可能性があった。

3) ベントナイト系材料の化学・力学連成モデル構築

1 次元の解析体系を採用し、化学・力学とも同じメッシュで、一定時間経過後にデータを受け渡す弱連成解析を行い、連成解析の効果を検討した。

ベントナイト系材料の化学的な変質は、Ca 型化率を除いてほとんどが廃棄体との接触部分の一層目のみにとどまった。力学解析による挙動の反映により内側から応力がかかって密度が再分配された事により、変質の幅は狭められるが、その分健全なベントナイト部分の密度は低くなると考えられる。透水係数の変化は連成の有無でわずかではあるが差があり、弱連成をした場合には透水係数の変化がほとんどなく、連成により化学変質の進行が抑えられる効果があることが示された。

4) 人工バリアの変質解析（総合評価）

① 地化学解析による評価

前項までに示したモデルを採用した地化学的変質解析を行った。その結果は、透水係数は最内層の変化が大きく異なっており、基本ケース（これまでのモデルを使用したケース）に比べ変化が小さいと共に 3 万年付近の変曲点も見られなかった。これは、採用した透水係数式が液相濃度（イオン強度）に依存しない関数であったことも原因と考えられる。

②核種移行計算による評価

①の設定に従って、人工バリアの不確実性低減を目的とし、核種移行計算を行った。人工バリアに関する効果を見ることを計算の目的としたため、主に、「人工バリアからの移行率」で結果を考察した。ほとんどのケースで人工バリアからの移行率は第 2 次 TRU レポート[2]の結果よりも低くなっており、より実際に近い設定での評価により、これまでの評価が尤度を持っており、安全側での評価であったことを示すことができた。

(4) 人工バリアの長期挙動の評価で抽出された主な課題

1) セメント系材料の長期変質挙動の確証試験

- セメント系材料の物質移行・力学特性変化に関する計算手法：多様なセメント種類、骨材を含むモルタル・コンクリート等の現実的な材料への対応
- 経年コンクリート(アナログ試料)の分析：熱影響を受けた経年コンクリートで確認した、C-S-H がトバモライトへ結晶化する熱変質の、制限温度 80℃以下での発生の可能性とその人工バリアの長期挙動への影響の検討

2) セメントーベントナイト相互影響の確証試験

- 圧縮条件下におけるアルカリ溶液中でのモンモリロナイトの溶解速度：定式化とシミュレーション等による現象モデルの信頼性向上
- 化学・力学連成モデル試験：力学挙動でのレラクゼーション影響が見られるため、試験の継続による挙動確認、化学/力学平衡状態の遷移状況の確認

3) 人工バリア性能評価解析の高度化

- ベントナイト系材料の化学･力学連成モデル構築:2 次元での解析手法の構築と長期評価、力学解析における固相の体積変化の考慮

5.1.4　本フェーズ（平成 25 年度から）の全体計画

前項で示した平成 19 年度から平成 24 年度の成果をもとに、課題が残っているテーマ、及び人工バリアの長期挙動評価に対しての効果が高いために優先的に研究を進めるべきテーマについてまとめた。また、抽出された内容をもとに、研究内容を策定した。図 5.1.4-1 にその全体概要を示す。

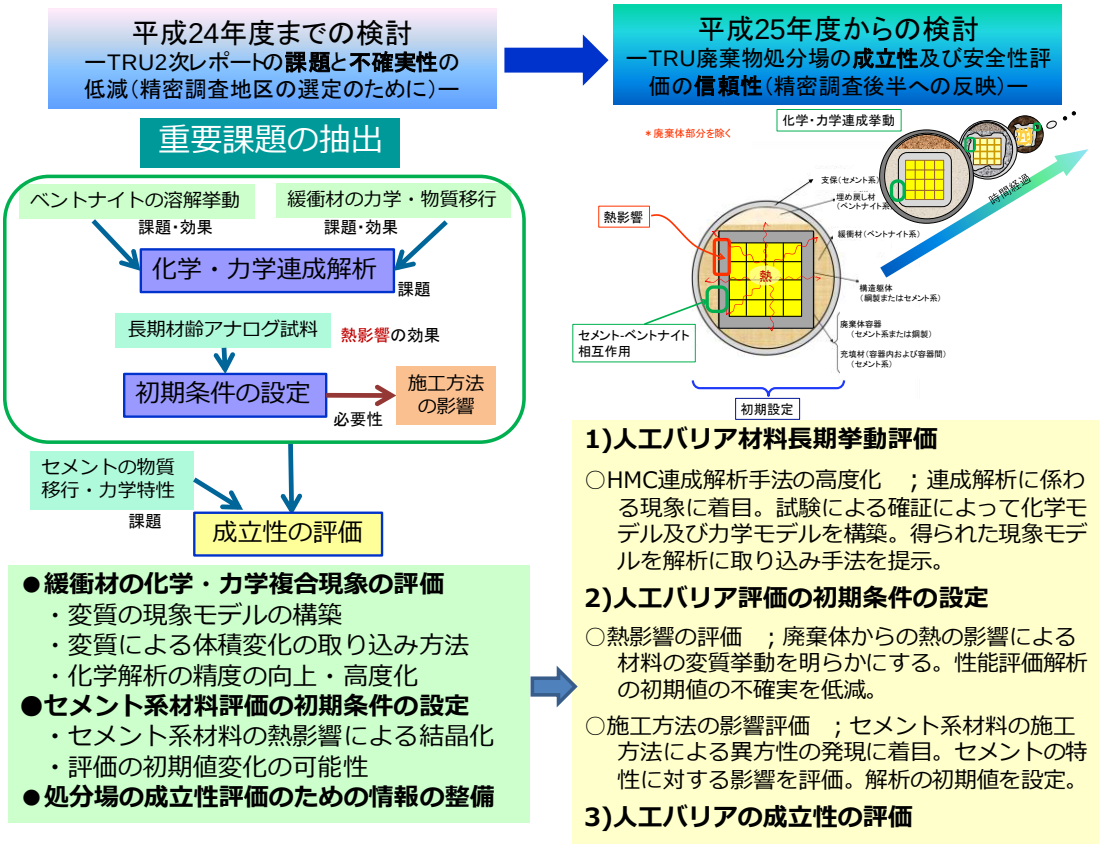


図 5.1.4-1　課題の抽出と研究内容の策定

平成 24 年度までの研究で、特に重要な課題であるとして抽出されたのは、図中にも示した通り、緩衝材の「化学・力学連成解析」に関わる内容と、セメント系材料の「初期条件の設定」に関わるものであった。また、これまでは材料の多様性に適用できるデータ取得をする、という目的を持って進めていたが、研究してきた材料を使用して処分場が成立することを示していくことが今後取り組むべきテーマであると考えた。そのために、今後取り組むべき研究項目として、以下に示すものを抽出した。

- 緩衝材の化学・力学複合現象の評価
  - 変質の現象モデルの構築

・ 変質による体積変化の解析への取り込み方法
・ 化学解析の精度の向上・高度化

● セメント系材料評価の初期条件の設定
・ セメント系材料の熱影響による結晶化
・ 評価の初期条件変化の可能性

● 処分場の成立性評価のための情報の整備

この内容をもとに、平成 25 年度以降の研究は、「人工バリア材料長期挙動評価・人工バリア評価の初初期条件の設定」として、以下のような視点を持って技術開発を実施することとした。

➢ 人工バリアの長期挙動を評価するためのツールとして数値解析によるシミュレーションは必要不可欠である。評価の精度向上のために、解析手法の高度化が重要であり、HMC 連成解析が注目されている。平成 24 年度までの検討により、化学変質が力学挙動に大きな影響をもたらす可能性が大きいことが明らかとなり、この影響の評価のためには、長期試験を含む実試験による現象のモデル化、そのモデルを取り込むための解析の高度化が必要であることがわかった。こうした課題を解決するために、試験による現象モデル（化学モデル及び力学モデル）の構築及びそのモデルの解析による検証を行う。

➢ 精密調査後半の処分事業への反映に対しては、人工バリアの成立性を評価し、その仕様に対する情報を蓄積することが必要である。人工バリアの成立性の評価を行うためには、長期挙動の評価解析のためのより現実的な材料及び系でのデータ収得、及び基礎データの精度を高めることが必要である。また、施工方法の影響を考慮した初期条件の設定は、解析評価に重要である。具体的には、性能評価の初期条件の精度を高めるために、施工方法による特性への影響、操業中の熱の影響を試験により検討する。また、ベントナイトの仕様決定のためにより現実的な特性の測定を行う。

➢ 人工バリアの長期挙動評価、材料の施工とその仕様に関しては処分場の設計のための重要な研究課題であり、国内の関係機関及び国際的にも各国で取り組まれている。そのため、国内外の関係機関や大学等との間で研究協力、及び情報交換を実施し、研究効率の向上をはかると共に、成果の普及に努める。

➢ この検討は、「ナチュラルアナログ調査」及び「ガス移行連成挙動評価手法の開発」と連携しつつ、NUMO が策定している計画[1]にのっとり、精密調査後半へ人工バリアの長期挙動の評価の技術及び知見を反映することを念頭に行う。

本フェーズ（平成 25～29 年度）の目標は、以下の通りである。

1) 人工バリア材料長期挙動評価

HMC 連成解析手法の高度化：連成解析に係わる現象に着目し、試験による確証を得ながら、化学モデル及び力学モデルを構築する。この現象モデルを取り込んだ解析手法を検討し提示すると共に人工バリアの成立性を示す。

2) 人工バリア評価の初期条件の設定

・ 熱影響の評価：処分場操業中から起こる廃棄体からの熱の影響による材料の変質に関する試験を行い、その挙動を明らかにする。これによって、性能評価解析の初期

条件が現状と変わる可能性があり、評価の不確実を低減する。

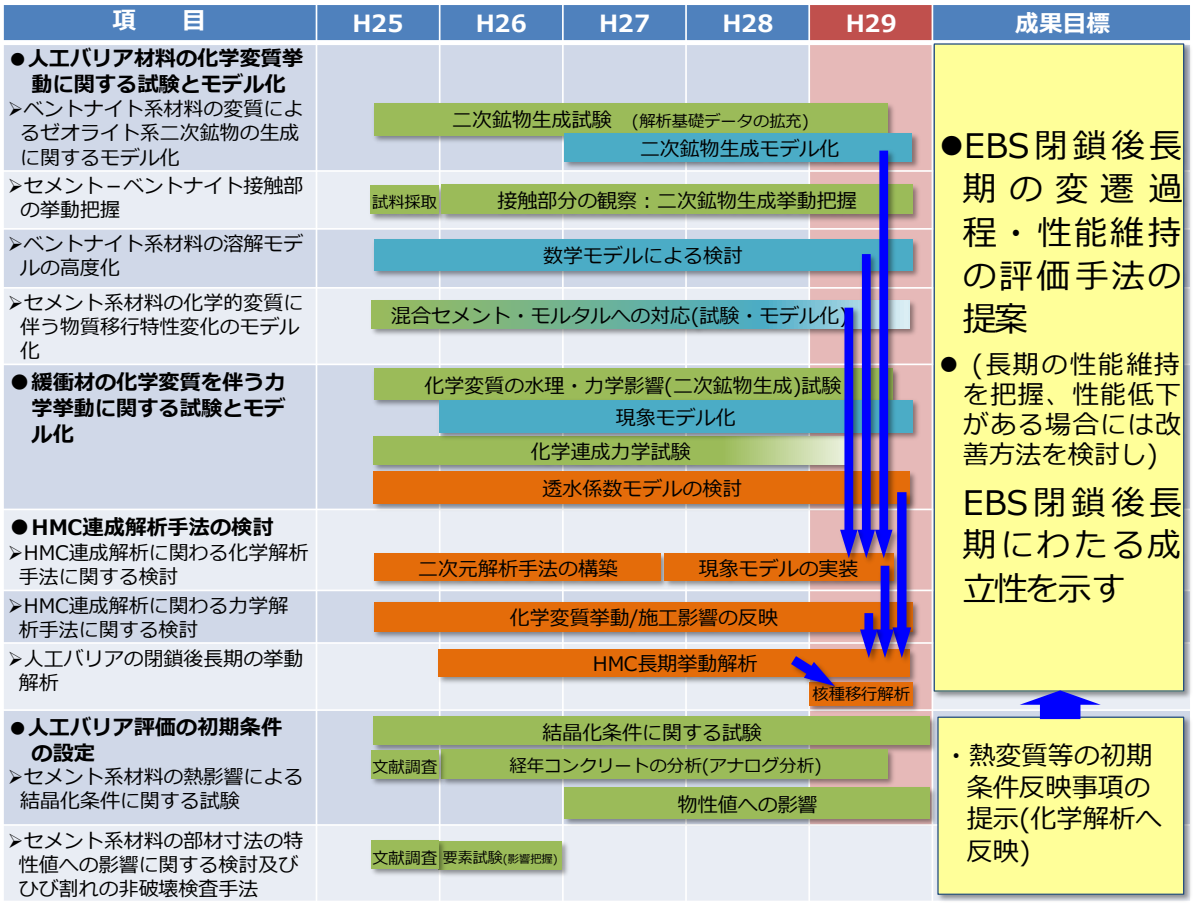
・ 施工方法の影響評価：特にセメント系材料の施工方法による異方性等の発現に着目し、セメントの特性に対する影響を評価し、解析の初期条件の設定方法を明らかにする。

上記の内容について、高度化された性能評価手法をもとに、精密調査後半で行われる、人工バリアの仕様の決定のために人工バリアの成立性を視点も踏まえ、成果をまとめることとした。

5 ヵ年のスケジュールを表 5.1.4-1 に、HMC 連成解析とそれに考慮する化学変質挙動、水理挙動及び力学挙動の検討項目の関連を図 5.1.4-2 に示す。

平成 25 年度は、主に、全体計画の策定とそれに資する文献の調査、試験方法の確認と試験の条件設定のための予備試験を行った。平成 26 年度からは試験によりデータ取得し、化学的な材料の変質挙動やそれに伴う特性に関するモデル化、初期条件の設定に関する検討を行った。並行して、化学変質の解析手法、力学挙動の解析手法及び HMC 連成解析について手法の検討を行い、前述のモデル等を反映すると共に人工バリアの閉鎖後長期の挙動評価を進めた。5 ヵ年の終わりには、核種移行解析等も行って成果をまとめ、HMC 連成解析の提示、人工バリアの成立性及び安全性評価に対しての反映を図った。

表 5.1.4-1 5 ヵ年(平成 25～29 年度)の計画



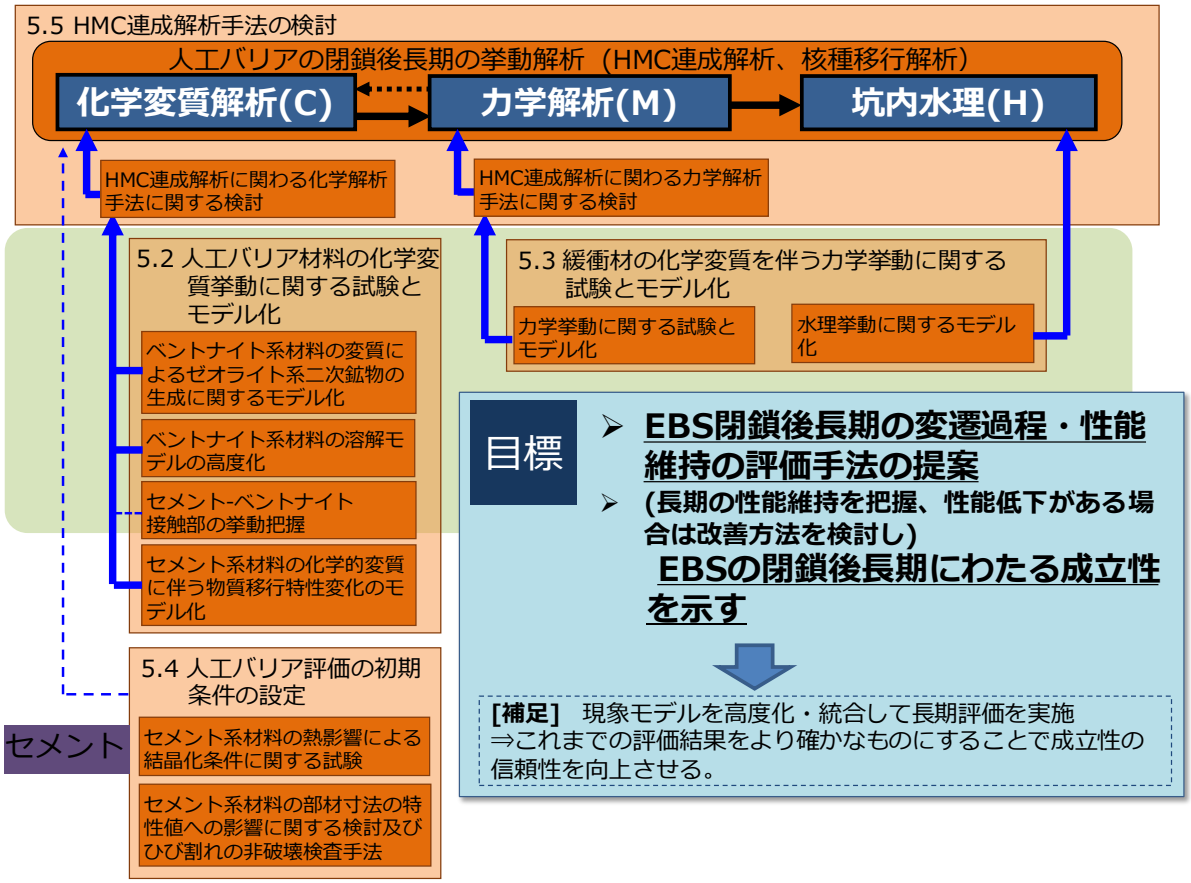


図 5.1.4-2 検討項目の関連と成果目標

表 5.1.4-1 に示した平成 25 年度からの全体計画の各項目について、5 年間の成果[5][6][7][8][9]の概要を以下に示す。

5.2 人工バリア材料の化学変質挙動に関する試験とモデル化

ここでは、HMC 連成解析手法に関わる、人工バリア材料であるベントナイト系材料の化学変質挙動について、HMC 連成に必要となるベントナイト系材料の二次鉱物の生成に関するモデル化、化学解析の信頼性や不確実性の低減するための各種挙動のモデル化に関して検討を行った。

5.2.1 ベントナイト系材料の変質によるゼオライト系二次鉱物の生成に関するモデル化

ベントナイト系材料は、セメント影響によるモンモリロナイトの溶解や、ゼオライト化等のよる二次鉱物の生成によって、乾燥密度が変化する。この化学的な変質挙動に伴い力学的特性も変化する。ここでは、人工バリアの長期挙動を HMC 連成解析により予測するにあたり、ベントナイト系材料のセメント影響による化学変質（図 5.2.1-1）のうち、二次鉱物生成挙動（生成する二次鉱物の種類と生成のタイミング）に関して試験により把握しモデル化を行った。

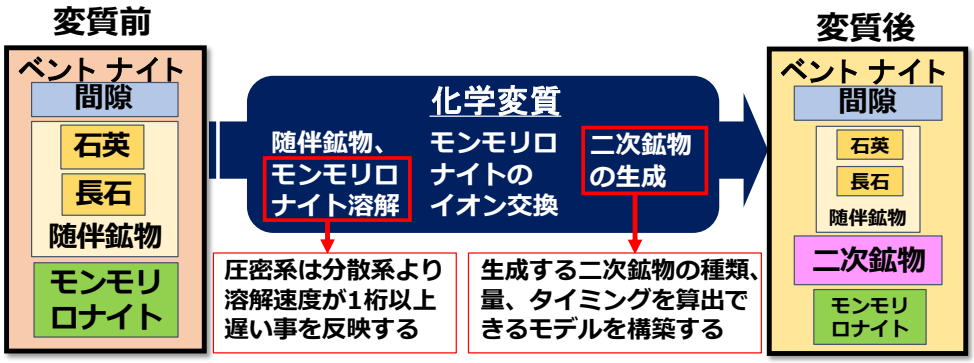
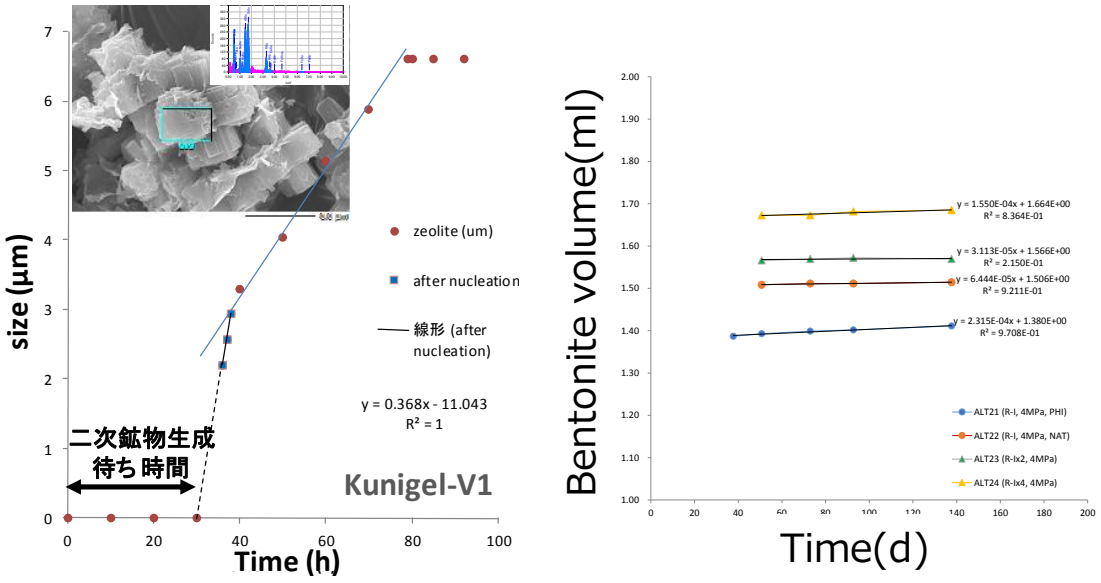


図 5.2.1-1 ベントナイトの変質に伴う化学変質挙動のモデル化案の概要
モンモリロナイト溶解については、5.2.3　に記載

セメント浸出水のアルカリによるモンモリロナイトの溶解に伴い二次鉱物として生成するゼオライトの生成について、干渉計によるその場観察試験（図 5.2.1-2）、シリンジにベントナイトを入れ、シリンジ内でベントナイトとアルカリ浸出水を反応させたピストンの移動から二次鉱物の生成を検討したシリンジ試験により挙動を把握した。モデル化案を策定、また、力学挙動に影響する二次鉱物生成による体積変化挙動を把握するために試験を行った。平成 26 年度までに試験で確認したアナルサイム及びクリノプチロライトの生成挙動に加え、平成 27 年度はフィリップサイトの生成挙動を確認し、これらの比較によりベントナイトに含まれるカルセドニ（SiO_2）及び長石の溶解がゼオライトの生成条件に関連することなどがわかった。



(a)干渉計によるその場観察試験　　(b)シリンジ試験による体積変化測定

図 5.2.1-2 二次鉱物の生成挙動の確認試験の結果の一例

図 5.2.1-2(a)に示した二次鉱物の生成待ち時間を考慮すべく、古典的核形成理論の不均質核形成の考え方（系内にある粒子表面での核形成を想定）に基づき、過飽和度の逆数の対数と二次鉱物の生成待ち時間の対数が直線関係となるモデル式案を検討した。試験にて得られた二次鉱物の生成待ち時間と過飽和度は概ね直性関係を示し（図 5.2.1-3）、このことから、溶液の過飽和度とその維持時間により二次鉱物の生成タイミングを本モデル式で整理できるものと考えられる。試験で生成を確認したゼオライトの組成を図 5.2.1-4 に整理して示す。生成するゼオライトの種類は、セメント浸出水に加えてベントナイトの溶解や生成の種結晶として添加したゼオライト溶解により構成される化学組成に依存することが分かった。また、ゼオライト表面の界面自由エネルギーが小さいほど生成しやすい傾向があった。そのためクニゲル V1 では、随伴鉱物として含有するクリノプチロライトより界面自由エネルギーが小さいフィリップサイトやナトロライトが、溶液のアルカリ濃度に応じて生成したと考えられる。

以上の知見に基づき、二次鉱物の生成挙動をモデル化することにより、化学解析に反映することで、生成する二次鉱物の種類やタイミングを長期挙動の解析に適切に反映できるものと考えられる。なお、化学解析における二次鉱物の生成挙動をより現実的な条件や挙動に対応させていくには、セメント系材料の変質段階がより進んだ Reigon II 以降の溶液条件、かつ、地下水条件を加えて試験データを拡充することによるモデル信頼性の向上および、ゼオライトの生成挙動への影響が認められた長石及び石英等の随伴鉱物の溶解挙動及びゼオライトの生成時の前駆体の生成等についてのモデル上での取り扱い、待ち時間と過飽和度の関係での二次鉱物生成挙動の化学解析手法への反映方法を検討していく必要がある。

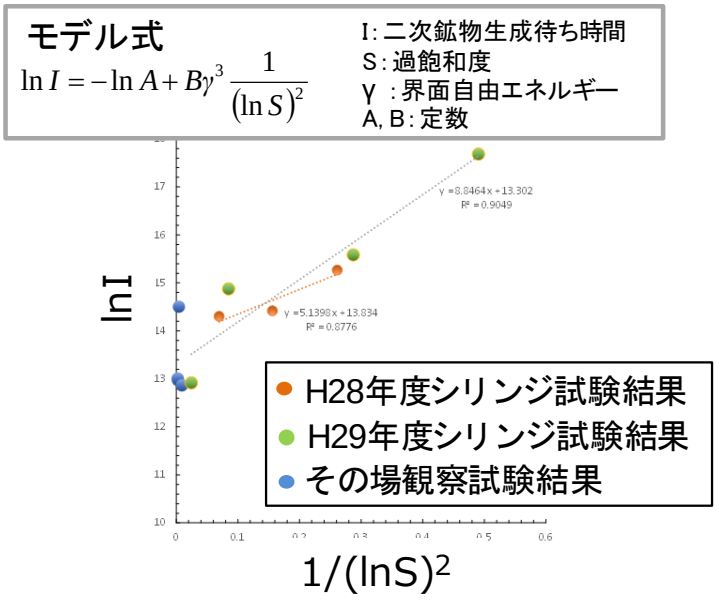


図 5.2.1-3 過飽和度と二次鉱物の生成待ち時間の関係

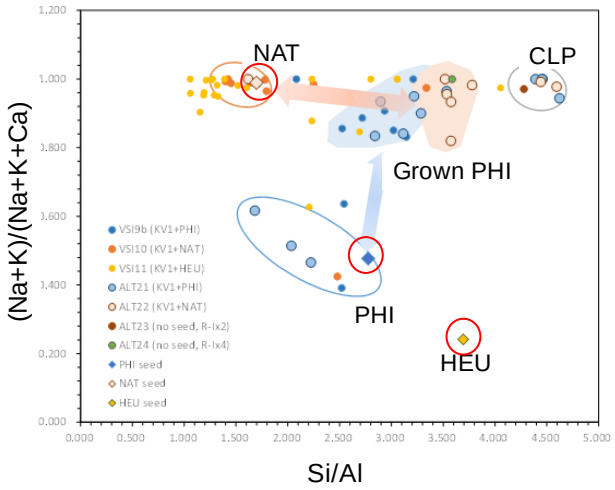


図 5.2.1-4　その場観察試験とシリンジ試験で生成を確認した鉱物

(○はベントナイトに添加した生成の種結晶のゼオライト鉱物)

5.2.2　セメントーベントナイト接触部の挙動把握

人工バリアのセメントとベントナイトの接触部分で生成が想定される二次鉱物のうち、珪酸カルシウム水和物（C-S-H）は、ベントナイトの変質を抑制する可能性がある。これに関して平成 24 年度までにも試験室で浸漬した試料（模擬試料）を(共)高エネルギー加速器研究機構（KEK）の放射光施設の X 線吸収微細構造（XAFS）分析システムを使用してその挙動を把握してきた。ここでは、より現実的な条件での挙動の把握と化学解析の検証を目的とし、放射性廃棄物管理協同組合（Nagra、スイス）の グリムゼル試験場（Grimsel Test Site: GTS）の構造物から採取した建設後 12 年間を経過した試料[5]、及び室内試験の試料の XAFS 等による分析を平成 26 年度から実施した。

模擬試料のベントナイト相については、マイクロビームを用いた XAFS 分析にて薄片を 100 μm 間隔で原位置分析した結果、これまでに適用したことがあるフォトダイオード検出器を用いた多測定点の同時分析[3]と同様に、線分析データを得る事が出来た（図 5.2.2-1）[8]。また、7 年間 60℃で浸漬したセメントーベントナイト接触試料の分析より、モンモリロナイトのイオン型は長期的にはカリウム型化よりもカルシウム型化が卓越し、これまでの化学解析結果との整合を確認した[6]。

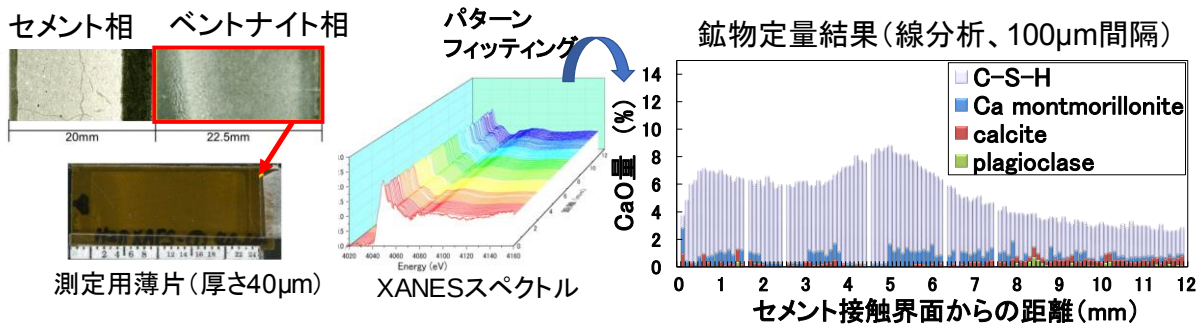


図 5.2.2-1 模擬試料の XAFS 分析（薄片試料による原位置分析）の概念図
（平成 28 年度報告書 2-75 ページ図 2.2.1-3、2-91 ページ図 2.2.1-22、2-94 ページ図 2.2.1-27 を編集）

前フェーズも含めた模擬試料の分析結果から、セメント系材料と接触するベントナイトはセメント系材料の溶解変質による影響のために以下の様な化学変質を生じる事を確認した。模擬試料による検討結果を図 5.2.2-2 に示す[10][11][12]。

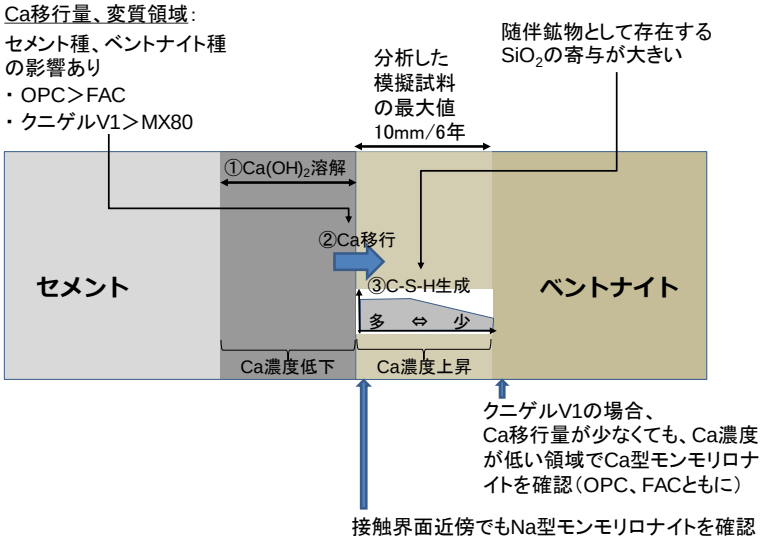


図 5.2.2-2 模擬試料による検討結果のまとめの概略図
（セメントーベントナイト相互作用による接触界面の化学的変質挙動）

セメントーベントナイト接触試料ではセメント側から $Ca(OH)_2$ が選択的に溶脱し、ベントナイト側では二次鉱物である C-S-H が生成していた。また、C-S-H の生成にはベントナイト中の随伴鉱物として存在する SiO_2 の溶解の寄与が大きい事、Na 型モンモリロナイトの Ca 型化は Ca が少ない接触界面から離れた領域においても生じる一方で、Ca の供給が十分な接触界面においても Na 型モンモリロナイトが残存していた。また、セメント及びベントナイト共に材料種により変質度合いが異なる事を確認した。

一方、Nagra の構造物の試料については、以下の状況におけるセメントーベントナイト接触部の化学変質のケースの試料として分析した。

a）地下水流動が無い状況、飽和度 0.9 程度（Box-Core-1）

b）地下水流動が無くセメントが炭酸化した状況、飽和度 0.9 程度（Box-Core3）

c）混合セメントを使用し、地下水に冠水していた状況（Silo-Core-1）

当初、試料を 3mm 間隔に粉末化して確認した結果、セメントと接触したベントナイト部分は変質が進んでおらず、XAFS 分析による定量では C-S-H の量は少なかった[6][7]。C-S-H は、接触部のごく近傍で生成している可能性があるため、高分解能な XAFS による原位置分析等による確認を検討した。Nagra の構造物の試料の場合はベントナイト中に骨材の砂が含まれているため、薄片を模擬試料のように薄くできなかった。そのため、模擬試料で実施した透過光によるピーク検出ではピーク強度が小さくなり、パターンフィッティングによる鉱物定量が困難と判断した。そこで、Nagra の構造物の試料は蛍光によるピーク検出結果から鉱物定量を実施した。また、測定の際に砂を回避してベントナイト部を測定するため、まず、Ca 及び Si の蛍光 X 線マッピングを行い、この結果を参考に XAFS の分析位置を決定した[8][9]。

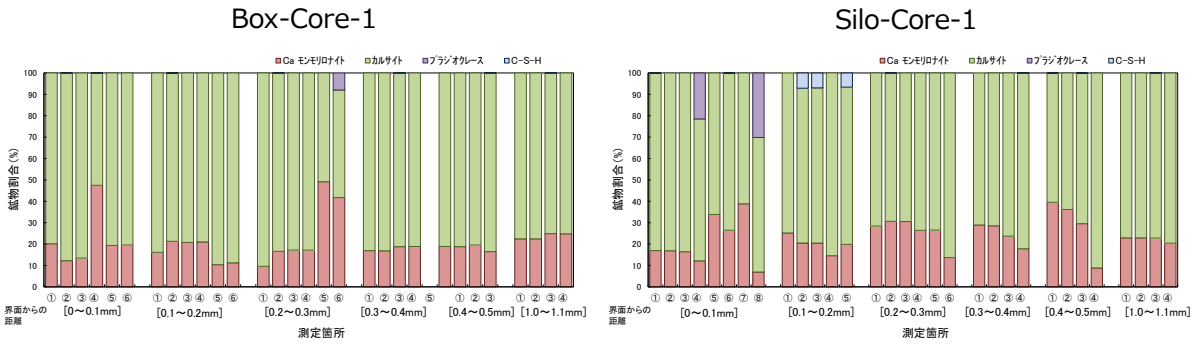


図 5.2.2-3 セメント-ベントナイト接触部分の変質状態に関する XAFS による原位置分析結果
（建設後 12 年経過の試料）
（平成 29 年度報告書 2-124 ページ図 2.2.1-11、2-130 ページ図 2.2.1-17）

XAFS 分析による鉱物定量分析結果を図 5.2.2-3 に示す。Nagra の構造物の試料では、多くの測定点でカルサイトと Ca 型モンモリロナイトの 2 種類の鉱物に割り当てられた。以下に、前述のケース毎に得られた知見を記載する。いずれもベントナイトの変質（C-S-H の生成）は限定的であった。

a） 地下水流動が無い状況、飽和度 0.9 程度（Box-Core-1）

コンクリートからのベントナイト側への Ca の移行は少なく、ベントナイト側では Ca 型モンモリロナイトは確認されたが、C-S-H の生成は確認されなかった。

b） 地下水流動が無くセメントが炭酸化した状況、飽和度 0.9 程度（Box-Core3）

コンクリート側の炭酸化の影響と推測されるが、コンクリートからの Ca の溶脱は認められなかった。また、ベントナイト側においても C-S-H の生成や Ca 型化のようなセメントによる影響は認められなかった。

c） 混合セメントを使用し、地下水に冠水していた状況（Silo-Core-1）

コンクリート側における Ca の溶脱範囲は非常に少なく、ベントナイトへの Ca 移行は僅かであった。コンクリートに混合セメントが使用されており、OPC に比較して $Ca(OH)_2$ 量が少なかったため、セメント影響によるベントナイト側の変質が少なかったものと考えられる。

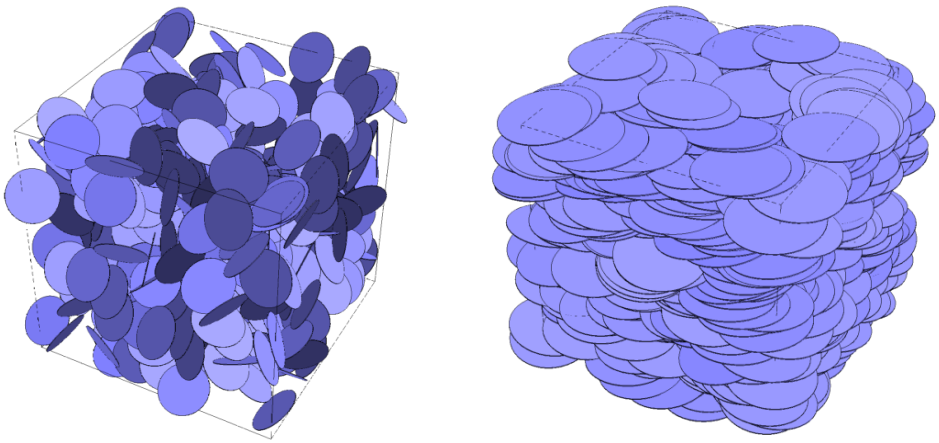
C-S-H による Ca 移行等の変質の抑制については、ベントナイトの変質過程を経時的に分析する等、更なる検討が必要である。

今後、本検討により得られた知見を化学解析の検証に活用し、解析の高度化に役立てていく。

5.2.3 ベントナイト系材料の溶解モデルの高度化

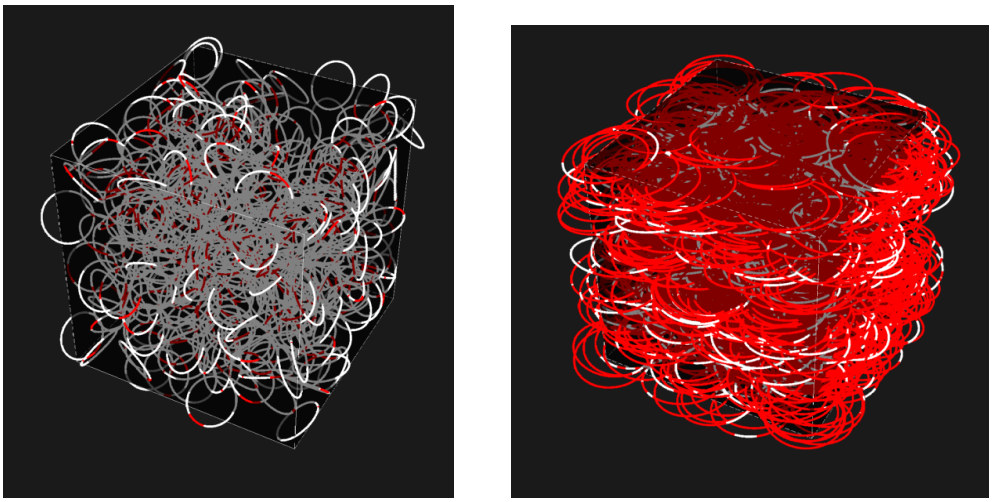
人工バリアの長期挙動の化学解析におけるモンモリロナイトの溶解速度式の高度化を目的とし、圧密状態での実効反応表面積についてモデル化を行った。圧縮系でのベントナイトの溶解速度に関する試験で把握した、圧密状態でのモンモリロナイトの粒子端面のマスキングによる溶解速度の低下について、モンモリロナイトの溶解速度式の実効反応表面積を試験結果に基づく数学モデルにすることにより信頼性を向上させることを目的とした。

モンテカルロシミュレーションで円盤状粒子の積層の平衡状態を計算し、円盤端面が他の円盤状粒子によりマスキングされることを考慮して実効反応表面積を算出した。モンモリロナイトの乾燥密度 0.05Mg/m³以下での分散状態での積層状態の再現（四重極ポテンシャルを考慮）および、1.2Mg/m³程度までの現実的な圧密系の乾燥密度での再現（剛体ポテンシャルを考慮）を行い（図 5.2.3-1）、実効反応表面積の算出を行った（図 5.2.3-2）。



(a) 乾燥密度 0.05Mg/m³以下の例　　(b) 乾燥密度 0.05～1.2Mg/m³の例

図 5.2.3-1　円盤粒子による積層構造の解析結果



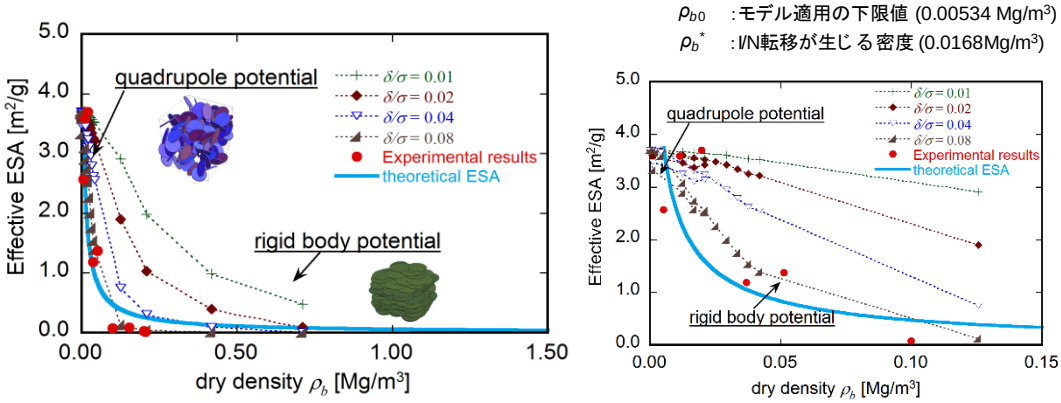
(a) 乾燥密度 0.05Mg/m³ 以下の例　　(b) 乾燥密度 0.05～1.2Mg/m³ の例

図 5.2.3-2　積層構造からの反応表面積の算定結果(赤色部分がマスキング部分)

積層構造の解析による実効反応表面積の算定結果および試験結果も鑑み、粒子間距離と乾燥密度の関係の理論式[13]を参考に、モンモリロナイトの実効反応表面積が圧密状態で減少する事を乾燥密度と実効反応表面積の関係で定式化した(図 5.2.3-3)。これらにより、分散状態のモンモリロナイトの表面積と比較して、圧密状態の実効反応表面積は 2 桁程度減少することを示している。定式化した実効反応表面積は、化学解析に使用するモンモリロナイトの溶解速度式に反映した。モンモリロナイトの圧密状態の実効反応表面積を溶解速度式に反映した場合の人工バリアを模擬した長期解析結果を図 5.2.3-4 に示す。

$$(\text{Effective ESA})=\begin{cases}\text{ESA}_0 & (0\le\rho_b\le\rho_{b0})\\ \dfrac{\text{ESA}_0}{\left(\dfrac{\rho_b}{\rho_b^*}\right)^{\frac{1}{3}}+\left(\dfrac{\rho_b}{\rho_b^*}\right)} & (\rho_{b0}\le\rho_b)\end{cases}$$

ESA_0 : 希薄極限の実効比端面積 (3.7 m^2/g)
ρ_b : 乾燥密度
ρ_{b0} : モデル適用の下限値 (0.00534 Mg/m^3)
ρ_b^* : I/N転移が生じる密度 (0.0168Mg/m^3)



※低密度部分

図 5.2.3-3 モンモリロナイトの乾燥密度と実効反応表面積関係の定式化

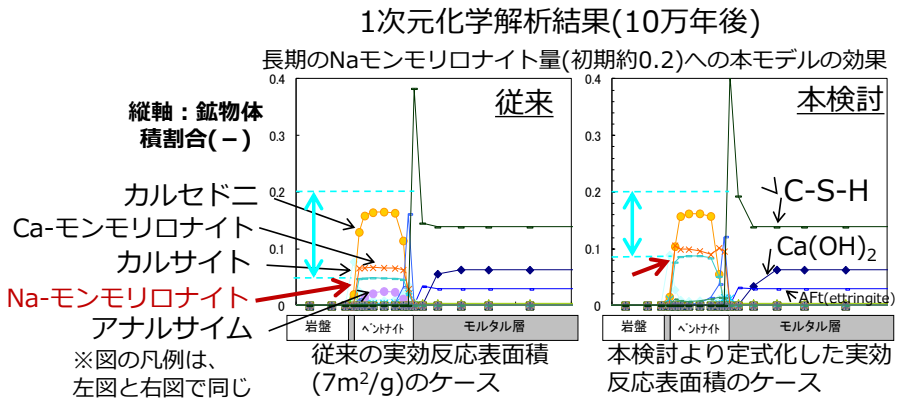


図 5.2.3-4 長期化学解析における本検討での実効反応表面積の定式化の効果

5.2.4 セメント系材料の化学的変質に伴う物質移行特性変化のモデル化

人工バリアの長期挙動の化学解析に必要とされる、セメント系材料の物質移行特性（拡散係数）は、地下水による溶解変質により変化する。第 2 次 TRU レポート[2]では、拡散係数は空隙率との関数とし、配合や材料毎、変質段階毎に試験により拡散係数を測定しているために多大な時間と労力がかかっていた。本モデルは、セメント系材料の初期状態の物性値情報があれば、変質（地下水による Ca 成分の溶解）の程度によって変わる拡散係数が予測できることをコンセプトとして検討している。平成 24 年度までに、OPC のセメントペーストの溶解に伴い変化する拡散係数をモデル化した。平成 25 年度から平成 29 年度までの本フェーズでは、より現実的なセメント系材料の拡散係数の算定を可能とするために、混合セメントの使用及び骨材を含むコンクリート、モルタル等の材料へ対応するためのモデルの高度化を課題として検討した。

検討している拡散係数予測モデルの概略を図 5.2.4-1 及び図 5.2.4-2 に示す。本モデルは、健全試料の SEM 観察像の情報から構成要素ごとに相を分離（セメントペーストの場合は、未水和セメント、ポルトランダイト、C-S-H、空隙の 4 相。モルタルの場合は、セメントペースト、骨材、これらの界面である遷移帯の 3 相。）して 3 次元モデルを作成、各々の相ごとに変質挙動を考慮した拡散係数を設定し、ランダムウォーク法により材料全体の拡散係数を算定するものである。イオンは粗大空隙と C-S-H を拡散するとした。また、ポルトランダイトは溶脱後に空隙となり、C-S-H は溶脱に伴い拡散係数が変化するとした。

セメントペーストの拡散係数予測における混合セメントへの対応については、溶脱に伴い変化する C-S-H の拡散係数の予測手法が課題であった。これについては、セメント種ごとに変質の程度に応じた C-S-H の拡散係数を予測する相関式を構築する事で、健全試料の情報から変質過程の拡散係数を算定できる見通しを得た（図 5.2.4-3）[8]。

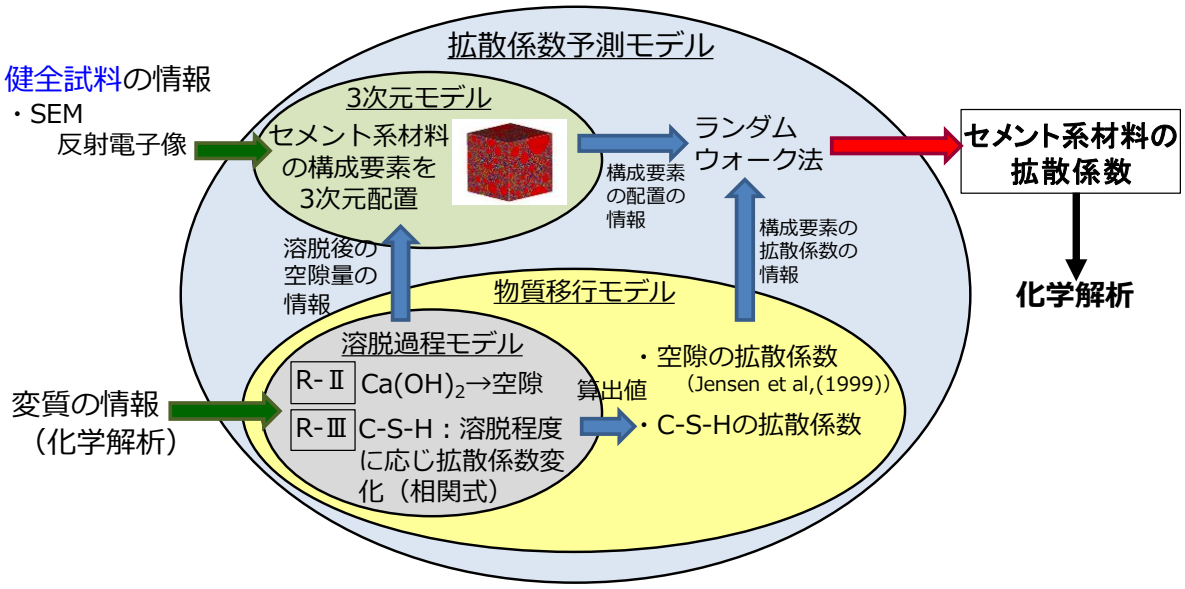


図 5.2.4-1 セメントペーストの拡散係数の予測モデル（拡散係数予測モデル）の概略

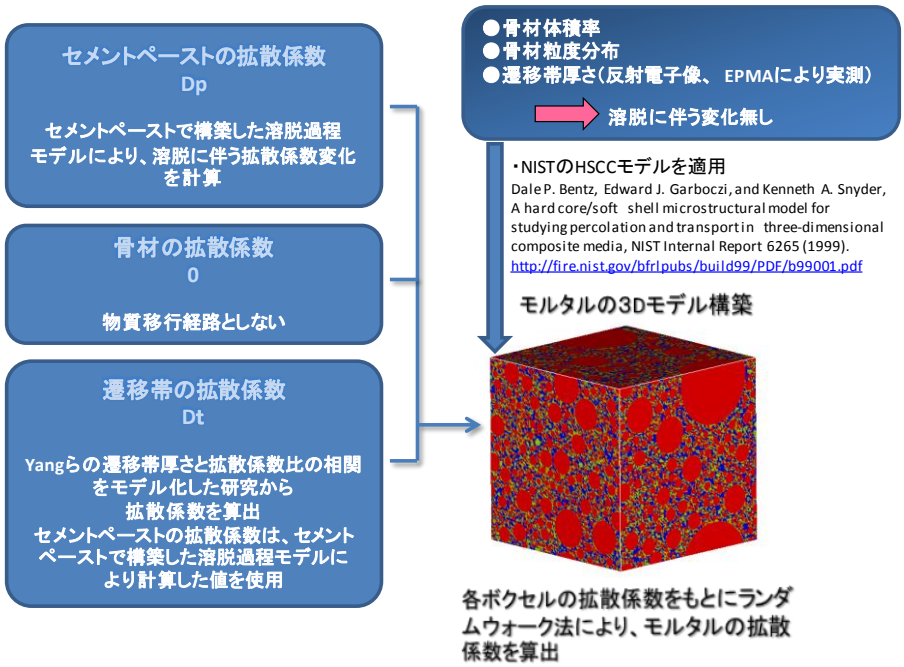


図 5.2.4-2 モルタルの拡散係数の予測モデル（マルチスケール拡散係数予測モデル）の概略

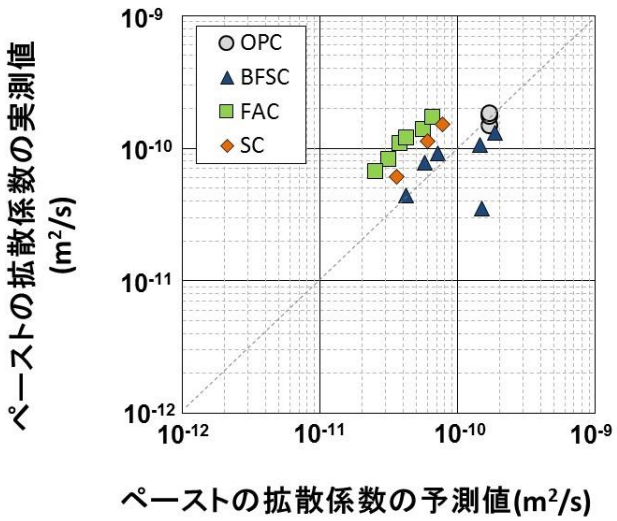


図 5.2.4-3 変質後のセメント系材料（セメントペースト）の拡散係数のモデルの予測値の実測値との比較

（平成 28 年度報告書、2-156 ページ図 2.4.1-16 を編集）

骨材を含むモルタルへの対応については、マルチスケールモデル（HSCC モデル[14]）等の適用によるモデルの拡張及び遷移帯の拡散係数の設定について検討した。マルチスケール拡散係数予測モデルにおいては、セメントペーストと遷移帯をイオンの移行経路とし、セメントペーストの拡散係数は拡散係数予測モデル（セメントペーストの拡散係数を予測するモデル）から算出するものとした。また、遷移帯については、溶脱にともなって OPC では SEM/EDS 等の分析では遷移帯部分の空隙は多くなっている事が確認された事、混合セメントでは溶脱に伴いセメントペースト部分の空隙も多くなったため SEM/EDS 等の分析では明確に遷移帯部分を区別することはできなかったが、骨材周囲の $Ca(OH)_2$ やエトリンガイトが多いポーラスな部分が物質の通り道になるという遷移帯の定義はセメント種によって変わらない事を勘案し、遷移帯部分の空隙はセメントペースト部分よりも多くなっており遷移帯の厚さは溶脱に伴い変化しない、と仮定した。この事から、溶脱前後の遷移帯の拡散係数は、既往の研究[15]に基づき、セメントペーストの拡散係数と一定の比率を持つ値として算出した。

以上の検討からモルタルの構成要素の拡散係数をモデル化し、マルチスケール拡散係数予測モデルを適用した結果、初期状態がわかれば溶脱変質した状態の拡散係数を予測できると判断した。

モルタルの拡散係数の予測フローを図 5.2.4-4 に示す。セメントペースト部分の拡散係数を予測するための、C-S-H からの CaO 溶脱量と C-S-H の拡散係数の相関式は、平成 29 年度に検討したモルタルの溶脱試験結果から逆算して求めた相関（文献[9]、図 2.4.2-12～図 2.4.2-14）を使用する事とする。

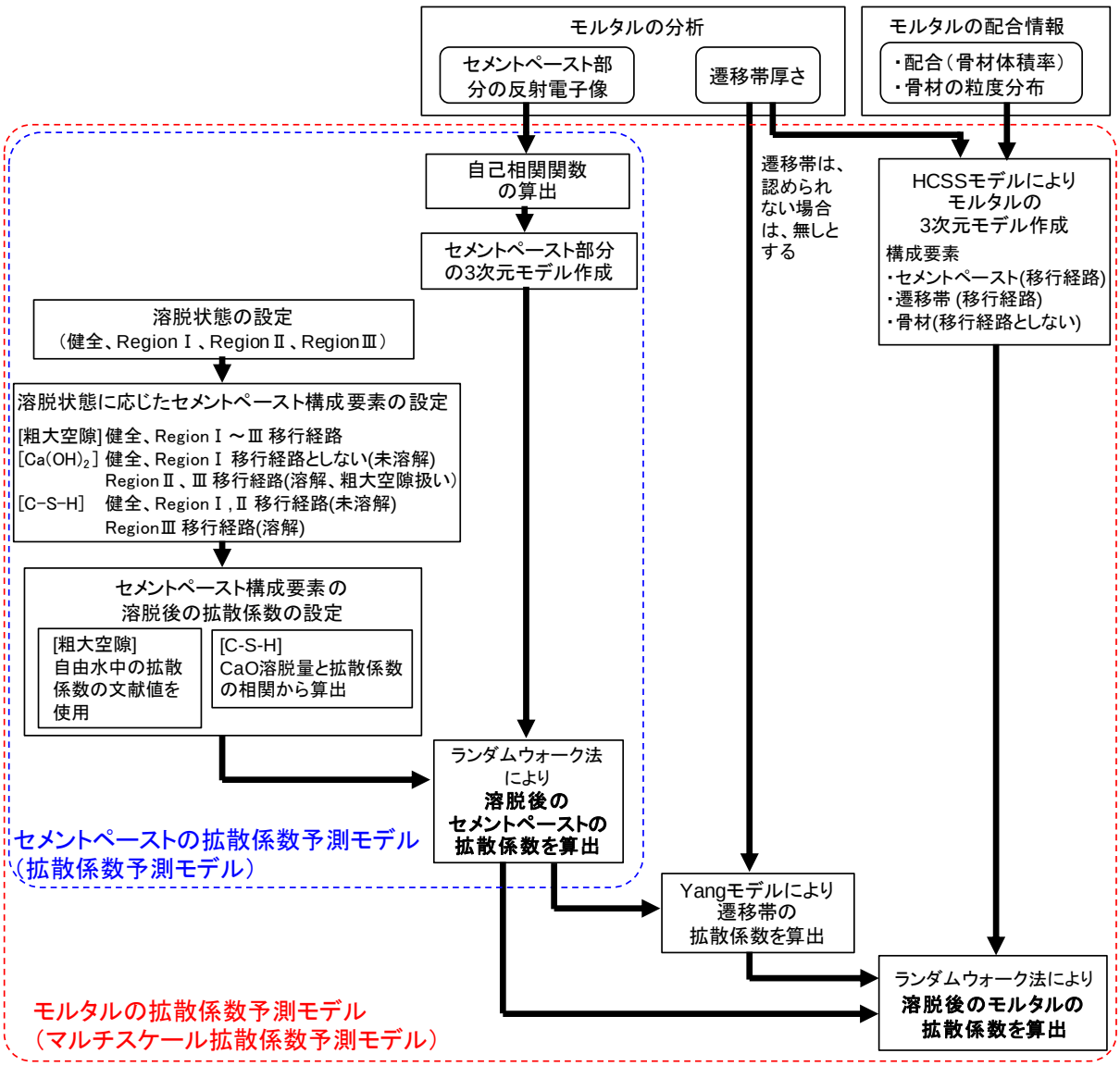


図 5.2.4-4　溶脱したモルタルの拡散係数の予測フロー

セメント系材料は、実際にはコンクリートとして使用されることも想定され、コンクリートは粗骨材を使用し、骨材料も多いことから、遷移帯の影響はさらに大きいと推察される。今後、遷移帯の設定（厚さや拡散係数）に関して、多くの事例から検討することが必要であり、コンクリートの溶脱についても検討していくことが必要である。

なお、平成 28 年度時点の成果に基づきモルタルの拡散係数を予測し、平成 29 年度の化学解析に反映した。今後、本業務の成果を人工バリア閉鎖後の長期挙動評価に活用していく。

5.3　緩衝材の化学変質を伴う力学挙動に関する試験とモデル化

ここでは、HMC 連成解析手法に関わる、ベントナイト系材料の水理力学挙動のモデルに化学変

質挙動を考慮するための検討を行う。ベントナイトの化学変質に伴う二次鉱物の生成は、膨張圧の減少と固相体積の増減により間隙量が変化し、有効応力の増減へ影響する。平成 24 年度までに検討したモンモリロナイトの溶解を考慮した水理挙動及び力学挙動モデルを、平成 25 年度からは二次鉱物の生成を考慮したモデルへ拡張するとともに、圧密膨潤の力学挙動に加えせん断挙動のモデル化、さらにセメントの影響を考慮したベントナイト中のモンモリロナイトの溶解、Ca 型化及び液相のイオン強度の力学挙動への影響に関して、長期試験による検討を行う。

5.3.1 力学挙動に関する試験とモデル化

緩衝材の連成解析に関わる力学特性に関する試験では、ベントナイトの圧密変形（完全飽和線）に関して、モンモリロナイトが溶解した場合に加えて二次鉱物（アナルサイム）が生成した場合および溶液の組成の影響（イオン強度で整理）を力学挙動に関する試験データをもとに、平成 24 年度までのモデルと同様に圧密変形の挙動は完全飽和線（正規圧密曲線）の移動で表現できることを確認し定式化した（図 5.3.1-1）。これまで試験が難しかった完全飽和線の低応力部分についてもデータを取得して完全飽和線を高度化した。

膨張挙動に関しては、変質が進行すると完全飽和線まで膨張しないため、非可逆比により整理することによりその現象のモデル化を検討した（図 5.3.1-2）。Na 型ベントナイトの溶解に加え Ca 型化等の変質の影響を検討してモデル化した。

加えて、せん断挙動について、等体積一面せん断試験を行い、これまで知見が少なかったベントナイトの限界状態線に関する知見を拡充した。その結果、限界状態線は乾燥密度と拘束圧の関係において完全飽和線と平行な関係にある事、限界状態線に至る過程は溶液の種類によって大きな差がない事を確認した（図 5.3.1-3）。また、簡便さでは一面せん断試験に劣るものの、より有効なデータが取得可能な三軸 $\overline{CU}$ 試験について、従来のφ5cm×10cm より小さいφ2cm×4cm の供試体で実施する手法を寸法効果の影響、混合する珪砂の粒子の影響がないこと、三軸試験での拘束圧の設定について検討して整理を行った。なお、人工バリアのベントナイトの力学挙動に関する今後の課題としては、せん断挙動(変形)への化学変質の及ぼす影響、ガス移行挙動によるサクションの変化等の応力場の変化の考慮、セメンテーションの力学挙動モデルへの解析への反映を踏まえた考慮などが挙げられ、検討していく必要がある。

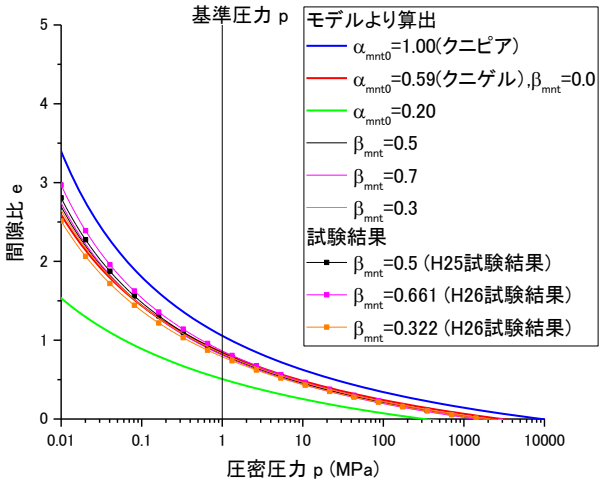


図 5.3.1-1 緩衝材の力学挙動に関する試験結果（圧密挙動）
(平成 29 年度までの検討で得られた数式と試験条件[9]より作成)

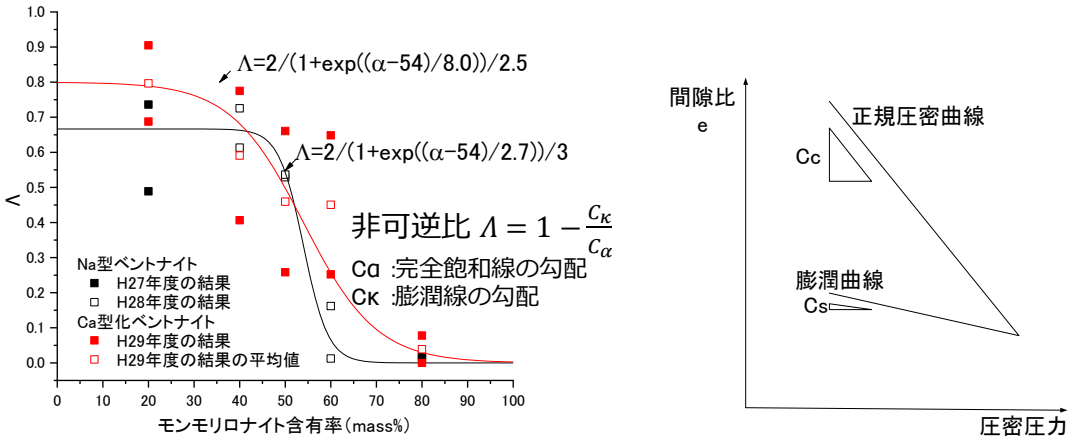


図 5.3.1-2 ベントナイトの膨潤挙動の非可逆比によるモデル化

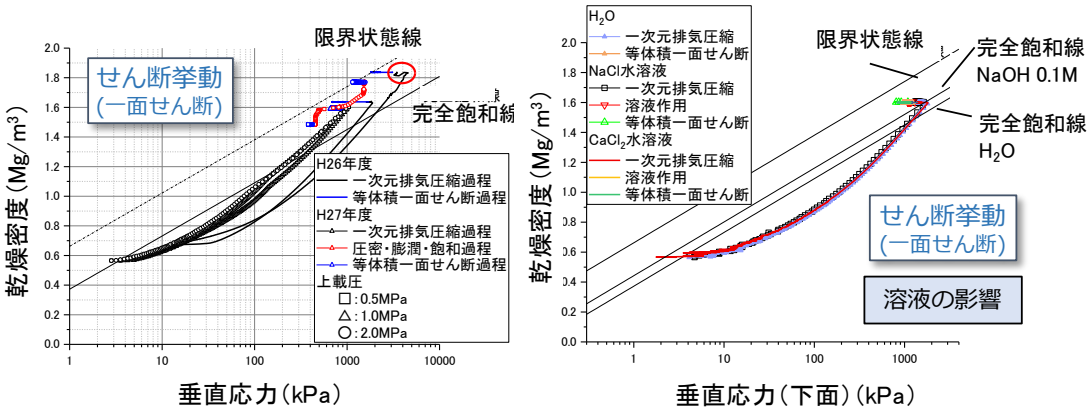


図 5.3.1-3 せん断挙動に関する試験結果

5.3.2　水理挙動に関するモデル化

ここでは、これまでに検討、提案した化学変質を考慮した Kozeny-Carman 則による透水係数式について、改良等の検討を実施した（表 5.3.2-1）。形状係数を屈曲度の関数にすることでベントナイトが Ca 型化した場合の透水係数の算定の信頼性を高めた。加えて、吸着水の体積を式に考慮したことにより、Na 型ベントナイトでの透水係数の算定の信頼性を高めた。屈曲度の設定の方法、屈曲度からペクレ数を算定する方法についても検討して水理挙動の評価の一助とした。改良した式を HMC 長期解析へ反映した。なお、Kozeny-Carman 則による透水係数式への形状係数及び吸着水の体積の考慮の成果は、個別の式で提示しているため、解析手法へ反映するためには、今後、統一した式にする検討も必要である。

表 5.3.2-1　Kozeny-Carman 則による透水係数式の検討成果

	モデル	理論的	実験事実との整合性	パラメータ決定の容易さ	Ca型化への対応	備考
～H24	Kozeny-Carman（KC）則 $k=\frac{1}{C}\frac{\rho g}{\mu}\frac{1}{S_v^2}\frac{e^3}{1+e}$	理論から導き出されている。パラメータの物理的意味が明確（形状係数以外）。	Na型では透水係数が実験事実よりも高めになる。	比表面積の求め方が困難。	Ca型化の影響を表現できない。	前フェーズにて検討
	吸着水を考慮して比表面積を求めるKC則	理論から導き出されている。パラメータの物理的意味が明確。	Na型では透水係数が実験事実よりも高めになる。	形状係数以外は全て実験で求められる	Ca型化の影響を表現できるがその大きさが小さめになる。	
	内・外間隙を分離したKC則	概ね理論から導き出されている。	Na型では透水係数が実験結果に整合する。	内間隙の定義、内間隙、外間隙及び全体の透水係数の算出に仮定が必要。	Ca型化の影響を表現できるがその大きさが小さめになる。	
H29	**吸着水の体積を考慮したKC則** $k=\frac{1}{C}\frac{\rho g}{\mu}\frac{1}{S_v^2}\frac{e^{*3}}{1+e^*}$ $e^*=\frac{\rho_s}{\rho_d^*}-1$ $\rho_d^*=(1+w^*)\rho_d$	理論から導き出されている。パラメータの物理的意味が明確。	Na型では透水係数が実験結果により整合する。	形状係数以外は全て実験で求められる	Ca型化の影響を表現できるがその大きさが若干小さめになる。	
H28	**屈曲度を考慮したKC則** KC則において $C=\frac{\tau^2}{C^*}$ $\tau=0.35+0.65*\exp(1.26*\rho_d)$ (佐藤1998) $C^*=a\left(1.0+\frac{CR^f}{1+\exp(b-c*(\rho_d-d))}\right)$	概ね理論から導き出されている。物理的意味が不明確なパラメータが多い。	Na型では透水係数が実験結果に整合する。	実験事実を表現するために適切なパラメータ設定が必要。	Ca型化の影響を表現できる。	H29年度のHMC連成解析に反映

5.3.3　長期性能評価のための化学・力学連成モデル試験

セメント浸出水を含む地下水によるモンモリロナイトの Ca 型化、溶解及び液相のイオン強度の影響をベントナイト系材料が受ける場合の力学挙動の把握を目的に長期試験を実施した。長期試験は前フェーズより継続し、これまでに上記に述べた化学的な変質を伴う力学挙動について把握した。一部の試験体を解体して分析することにより、現実的な圧密状態における溶解速度のこれまでの検討との整合性があること等の成果を得た。

5.4　人工バリア評価の初期条件の設定

人工バリアの長期挙動評価の解析の起点は、図 5.1.1-2 に示す様に処分場が建設、操業を経て閉鎖された時点である。この解析の起点における材料特性値等の初期条件は、長期の解析結果に影響を及ぼすため、より正確な設定が必要である。そのため、解析の初期条件は、従来用いられてきた材料自体の特性に関する情報に加え、建設や閉鎖までの影響を考慮する必要がある。

ここでは、長期の解析の初期条件の設定に考慮すべき事項の提示を目標に、セメント系材料の材料特性値（拡散係数、力学特性等の物性値）に対する、処分場の閉鎖までの放射性廃棄物の熱による変質の影響、及び、人工バリアのセメント系材料の部材の大きさでの部位の違いによる特性値の変動について検討した。加えて、人工バリアの長期性能、初期条件等への影響が考えられるセメント系材料のひび割れに関する非破壊検査手法について検討した。

5.4.1　セメント系材料の熱影響による結晶化条件に関する試験

セメント系材料の熱変質は、熱履歴による C-S-H のトバモライト化（結晶化）によるもので、平成 24 年度までに建設後 80 年程度の熱履歴（推定温度 70~100℃）を受けたコンクリート（経年コンクリート）試料により確認し、TRU 廃棄物処分における人工バリアの制限温度の 80℃以下での結晶化が懸念される。この結晶化により、セメント浸出水の pH の低下が期待される一方、材料特性値の変化が懸念される。そこで、本フェーズでは、人工バリアでのセメント系材料の結晶化条件を確認し、制限温度の 80℃以下での結晶化が起こる可能性がある場合は、材料特性値への影響を確認し、化学解析手法等の対策を講じる必要がある事項を明らかにするための検討を行う事とした。

(1)　経年コンクリートの分析

処分場環境において想定される温度環境におけるコンクリートの結晶性の変化を調査した事例は少なく、熱影響を受けたコンクリートの調査から得られる知見は実験結果の検証においても重要である。また、長期にわたる熱による変質に関する知見を得る事が可能である。そこで本検討では、熱に曝された条件に対して変質程度がどのくらいかを確認する事を目的に、経年コンクリート（普通セメントコンクリート）を分析した[5] [6] [8]。試料としては、複数のセメント工場のキルンの基礎コンクリート（熱影響あり：地上部分、熱影響なし：地下部分）とした。熱影響を受けた試料の温度環境（推定 40～100℃）は、TRU 廃棄物の地層処分場で想定される温度と近い条件であった。

分析結果からは、熱の影響を受けた方が C-S-H の Ca/Si の低下がより大きい事、熱を受けた期間が長い（本フェーズで分析した試料では最大 73 年）方が C-S-H の Ca/Si モル比の低下が大きい事、C-S-H の Ca/Si モル比が低い（最も低い試料で 0.84）ほど結晶化が顕著な傾向にある事、等を確認した[5] 。また、微細組織の構成元素の分析結果からは、分析した経年コンクリート試料では、骨材とセメントの反応による Ca/Si モル比の低下が起きている事が示唆された

[6]。平成 28 年度に実施した経年コンクリートの分析においても、50℃程度の熱に長期間暴露されたと推定される材齢 40 年程度の試料にて、C-S-H の Ca/Si モル比が一般的なセメント水和物よりも低くなっていた（1.04、EDS による 20 点の測定値の平均）のに加え、結晶化の兆候が認められた（図 5.4.1-1）[8]。これらの結果は、TRU 廃棄物の地層処分場において 80℃以下で操業期間内にセメント系材料が結晶化する可能性がある事を示唆していると考えられる。

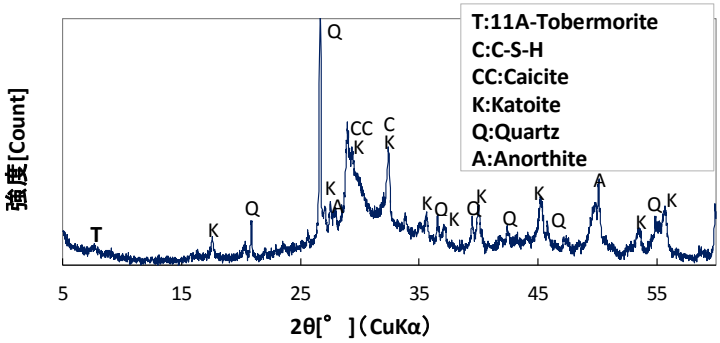


図 5.4.1-1 経年コンクリートの鉱物相の一例（50℃程度の熱に長期間暴露されたと推定される材齢 40 年程度の試料）
（平成 28 年度報告書 4-102 ページ図 4.3.4-8）

(2) 粉体の定温度試験結果（セメント系材料の熱変質条件の把握（C-S-H の結晶化条件））

80℃以下で結晶化が起こるのか、また、その場合の結晶化条件について明らかにするため、粉末の合成 C-S-H 及び合成 C-A-S-H を一定温度の水中に保管する定温度試験を実施した[5][6][7][9]。その結果、50℃以上での C-S-H の結晶化を確認し、50～90℃では高温ほど早く結晶化する傾向が認められた（図 5.4.1-2）。また、合成 C-S-H 及び合成 C-A-S-H の粉末では、Ca/(Si+Al)モル比がトバモライトの組成の 0.83 程度で結晶化しやすい傾向が認められた（図 5.4.1-3）。更に、Al を含有していると結晶化しやすい傾向が認められた。

セメント系材料での現実的な条件に近い条件設定とした、石英粉を添加した普通セメント水和物粉体の定温度試験においても結晶化が認められた[6][7]。この試料の浸漬液の分析からは Ca 及び Si の溶解が確認されており、それにより C-S-H の Ca/Si モル比が低下し結晶化しやすい 0.83 程度になったと推定される。また、石英粉を添加した混合セメント水和物紛体による定温度試験でも、反応期間 26 週で 80℃においては、結晶化の兆候であるトバモライトのピークが確認され、50℃条件下でも結晶化の兆候が確認された[9]。

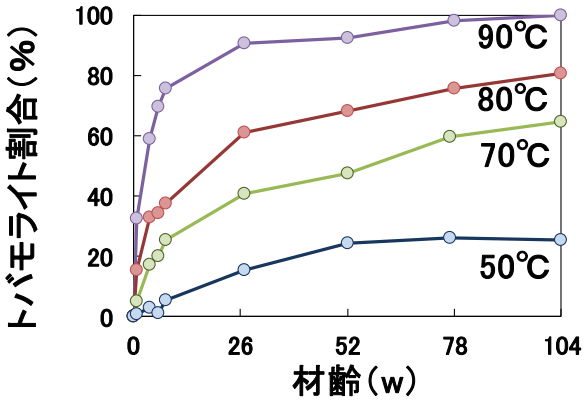


図 5.4.1-2　合成 C-S-H のトバモライト化の割合

下図（図 5.4.1-3）の四角で囲った 4 試料について XRD のパターンフィッティングにより算出

（平成 29 年度報告書 4-25 ページ図 4.1.2-1）

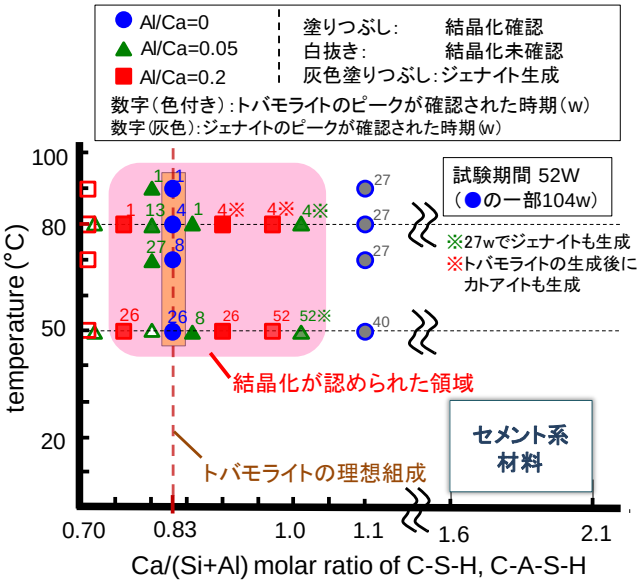


図 5.4.1-3 熱影響による合成 C-S-H 及び合成 C-A-S-H の結晶化条件の整理（概念図）

セメント系材料中の骨材（石英）溶解による C-S-H への Si 供給に伴う Ca/Si モル比または Ca/(Si+Al)モル比の 0.83 程度への低下は、地層処分場においても起こり得ると考えられる。したがって、これまでの試験結果は、80℃以下で地層処分場においてセメント系材料が結晶化する可能性がある事を示唆していると考えられる。

(3)　硬化体の定温度試験結果（セメント系材料の熱変質が材料物性値に与える影響）

セメント系材料の熱変質（C-S-H の結晶化）が材料物性値に与える影響を確認する目的で、各種セメントの硬化体（作製時に石英微粉を添加）の定温度試験を実施している。これまでに、

試験体には明確な結晶化が認められていないが、結晶化に至る過程についての知見が得られた。

硬化体の定温度試験結果の一例を図 5.4.1-4 に示す[9]。OPC 硬化体では、分析から C-S-H の Ca/Si 比の低下及び粗大空隙の減少が認められ、結晶化へ向けた前段階にあると考えられる。一方で、FAC30 では 6 か月の段階で XRD にて結晶化の兆候が認められた。このことから、結晶化のしやすさはセメント種によって異なる可能性が考えられる。今後、継続的に状態を確認すると共に C-S-H の結晶化による強度特性など物性への影響を試験により明らかにすることが必要である。

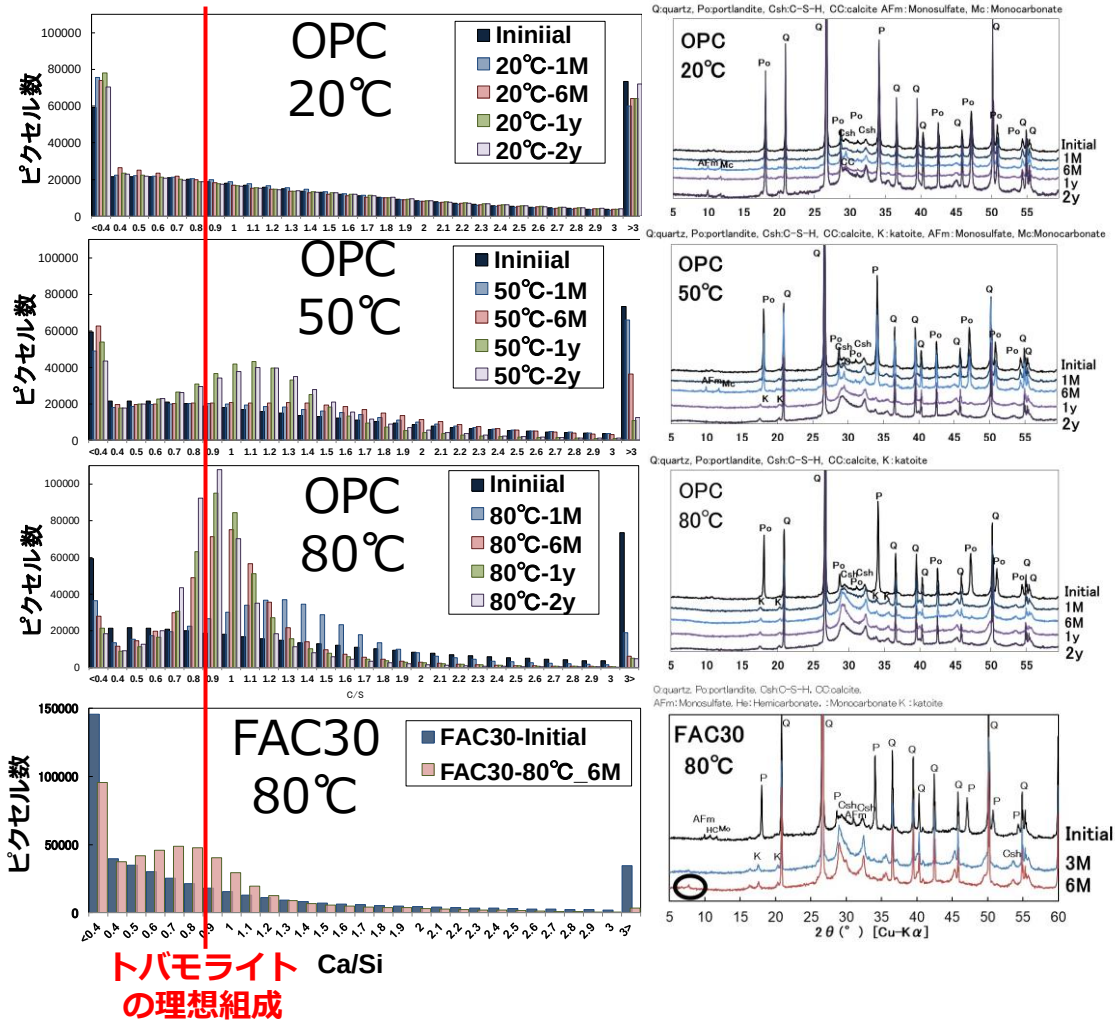


図 5.4.1-4 硬化体の定温度試験結果の一例

（平成 29 年度報告書 4-49 ページ図 4.2.1-5、4-52 ページ図 4.2.1-8、4-56 ページ～4-58 ページ図 4.2.1-10～12、4-62 ページ図 4.2.1-18、より抜粋）

(4) セメント系材料の熱変質に関する条件と影響のまとめ

以上の検討からは、高温であるほど、かつ、C-S-H の Ca/Si モル比または Ca/(Si+Al)モル比

がトバモライト組成に近いほど結晶化が顕著な傾向にある事を確認すると共に、骨材とセメントの反応による Ca/Si モル比の低下が起きている事が示唆された。これらの結果に基づき、C-S-H の結晶化のメカニズムを図 5.4.1-5 の様に推定した。

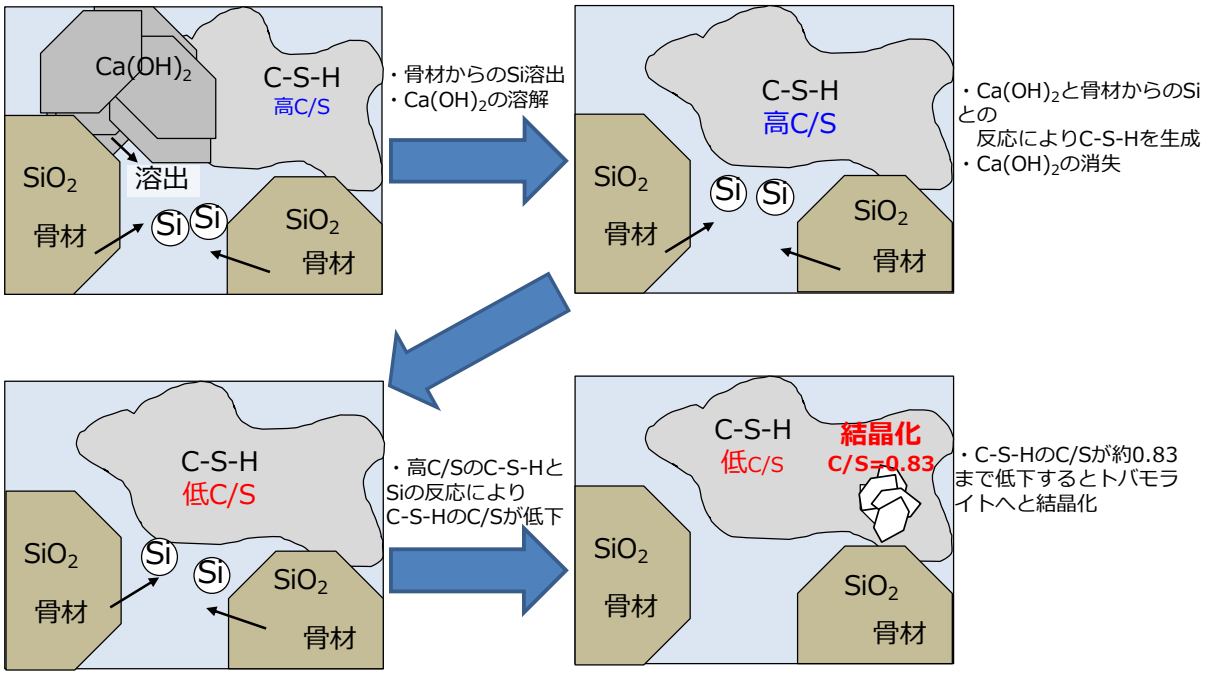


図 5.4.1-5 C-S-H の結晶化のメカニズム（推定）

・骨材等から供給される Si と $Ca(OH)_2$ が反応し C-S-H を生成する。さらに、冠水前は $Ca(OH)_2$ が消費されると高 Ca/Si の C-S-H と骨材等からの Si が反応し C-S-H の Ca/Si が低下すると考えられる。冠水後は、高 Ca/Si の C-S-H から Ca が溶脱して C-S-H の Ca/Si が低下すると考えられる。

・結晶化は Ca/Si、または、Ca/(Si+Al)がトバモライト組成の 0.83 付近となることが条件であるため、C-S-H の Ca/Si、または、Ca/(Si+Al)が 0.83 程度まで低下するとトバモライトへと結晶化する。

・Si と Ca の反応および結晶化への変化は、環境温度が高いほど促進される。

・Al を含む C-A-S-H は、Al を含まない C-S-H よりも結晶化しやすい傾向にある。

なお、合成 C-S-H 及び合成 C-A-S-H の定温度試験は、図 5.4.1-5 の下段の段階に相当すると考えられる。この段階では、前述のように Ca/Si モル比または Ca/(Si+Al)モル比がトバモライトの理想組成の 0.83 に近い 0.8～1.0 程度で高温ほど早く結晶化している事が確認された。その前段の過程については、経年コンクリートの分析及び硬化体の定温度試験から、熱の影響を受けた方が C-S-H の Ca/Si の低下がより大きい事及び熱の影響を受けた期間が長い方が C-S-H の Ca/Si モル比の低下が大きい事が確認されている。本フェーズで分析した経年コンクリートでは、骨材から溶解した Si はコンクリート中の間隙水を介して C-S-H へ供給されることが

考えられ、現実のコンクリート中での C-S-H の Ca/Si モル比の 0.83 程度までの低下は、熱の影響を受けても数 10 年単位のオーダーの時間を要すると推測される。

以上のように、C-S-H の結晶化の要因としては環境温度の影響が大きいが、セメント系材料を構成する材料特性（混和材、骨材等）にも影響されることが確認された。なお、本フェーズで分析した経年コンクリートの様に、冠水前は骨材から供給される Si と C-S-H のセメント系材料内部における反応により Ca/Si 比が低下する事が考えられるが、冠水後はセメント系材料からの Ca の溶脱により C-S-H の Ca/Si 比が低下する事が考えられる。このように、様々な因子が複雑に影響することからセメント系材料の熱影響に関するデータをさらに拡充し、結晶化に与える要因を整理することが必要であると考えられる。

50℃以上の環境条件で 100 年まで経過しない期間にセメント系材料は結晶化が生じる可能性があること、また、これまでの試験から結晶化は環境温度が高いほど促進されることが確認されたことから、廃棄物の温度に応じて結晶化の長期解析の初期条件への反映が必要となる可能性がある。一方で、結晶化が物性値に及ぼす影響は平成 29 年度までの結果では明確になっておらず、今後、結晶化に及ぼす様々な要因を整理するとともに、結晶化したセメント系材料の特性を検討し、長期解析の初期条件への反映の要否を検討していく必要がある。

5.4.2 セメント系材料の部材寸法の特性値への影響に関する検討及びひび割れの非破壊検査手法

人工バリアのセメント系材料の部材は、位置による特性値の変動が懸念され、長期挙動評価の結果にも影響を及ぼすことが考えられる。そこで、コンクリート部材における特性値の変動に関して把握することを目的に検討を行った。これまでに、文献調査により、コンクリートの打設方法による部位毎の特性値の違い、打ち継ぎ、打ち重ね部分が地下水の選択的流路となる場合、及び、乾燥を受けた場合等の養生状態と関連があることがわかっている。このうち打設方法及び養生方法の影響については、それぞれ要素試験で検討した。打設方法に関して高流動コンクリートを用いた水平部材（長さ 6m）及び垂直部材（高さ 1m）の施工試験で空隙率、拡散係数及び圧縮強度の変動は少ないこと、また、養生状態で拡散係数が変動するがそれと相関のある空隙特性で変動を把握できることを確認した。一連の検討から、以下の様に初期条件、施工等への反映事項が得られた[6]。

- 使用するセメント種類や混和材によっては、養生条件による物質移行特性への感度に差があり、水和反応が緩慢な材料を用いる場合には、処分場閉鎖等の長期評価開始時の材齢を考慮した値を設定する必要がある。
- 部材内の骨材量および空隙量の変動が一定範囲内であれば、物質移行特性の差はほとんど認められないが、対象部材の施工条件が一定の変動範囲に収まることを確認した上で、初期条件を設定する必要がある。

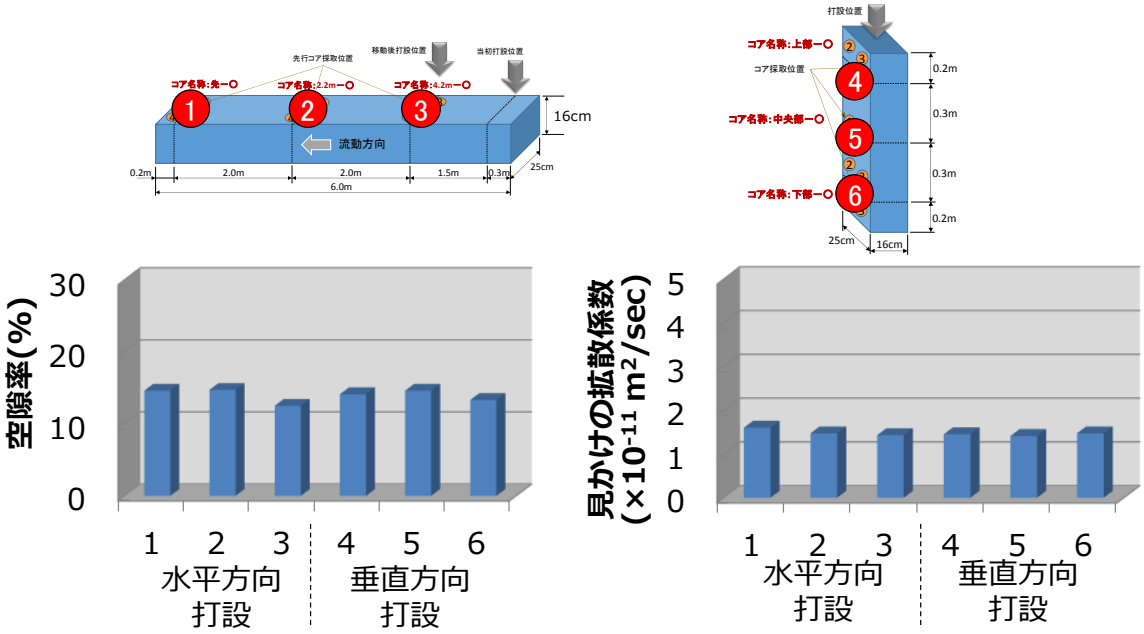


図 5.4.2-1 セメント系材料の部材寸法の物性値への影響確認の結果
（平成 26 年度報告書 5-120 ページ表 5.2.2-15、5-131 ページ表 5.2.2-21 よりグラフを作成）

セメント系材料のひび割れの非破壊検査手法に関する検討は、視覚的な検査が難しい部材の内部及び裏面側のひび割れを超音波法により検査する手法に関するもので、平成 24 年度までに圧縮強度 200MPa の高強度高緻密コンクリートで検討してきた技術を高度化すると共に、人工バリアのセメント系材料への適用可能性を検討することを目的としたものである。これまでに、セメント系材料の様に超音波が減衰しやすい材料に有効なステップ型パルサ（広帯域周波数）を適用し、緻密で超音波が伝播しやすい高強度高緻密コンクリート（圧縮強度 200MPa）でその有効性を確認し、加えて、検査手法の構築のために必要な要素技術とその課題を抽出した。抽出した要素技術のうち、ひび割れ検出精度を高める超音波集束技術及び広範囲の検査のための Time of Flight Difference（TOFD）法とその画像化技術による手法の有効性を確認した。なお、人工バリアのセメント系材料のうち超音波伝播特性が比較的良好な高強度コンクリート（圧縮強度 60MPa）において、本手法を用いても超音波伝播時の減衰が大きく検査に支障があるため、減衰を改善する方策に大きな課題がある[5][6]。

5.5 HMC 連成解析手法の検討

ここでは、多様な条件での人工バリアの閉鎖後長期の挙動を評価し、その成立性の確認のための 2 次元の HMC 連成解析手法を検討した。5.2、5.3 及び 5.4 で検討した化学変質挙動、化学変質を考慮した力学挙動及び水理挙動に関するそれぞれのモデル、人工バリアの施工時および再冠水を経た緩衝材の乾燥密度の解析結果を、閉鎖後長期の解析の初期条件に反映も検討した。

5.5.1　HMC 連成解析に関わる化学解析手法及び力学解析手法に関する検討

ここでは、本事業で検討した化学変質挙動と力学挙動のモデルとその関連を考慮した HMC 連成解析の構築を目的とし、化学解析、及び力学解析の個別の手法について検討を実施した。

これまでに、化学解析に関しては、平成 24 年度までの課題として挙げた、解析体系の 2 次元化を行った（地球化学・物質移動連成解析コード PHREEQC-TRANS[16]）。力学解析に関しては、これまで構成モデルが化学変質による固相量や鉱物種の変化による体積変化が質量保存則により考慮できなかった点を改良し、2 次元有限要素法（FEM）化することで化学解析との連成が可能となった（土/水連成有限要素プログラム DACSAR-BA[12]）。また、力学解析の構成則は体積変化の考慮により弾性モデルとしていたが、弾塑性モデル化にすることにより過圧密などの現実的な挙動が表現できるようになった。

5.5.2　人工バリアの閉鎖後長期の挙動解析

(1)　HMC 連成解析手法の検討

HMC 連成解析手法に関する検討では、2 次元での力学解析と化学解析の弱連成手法を構築し、加えて施工から長期挙動までの一連の人工バリアの評価の手法を検討することで、現実的な人工バリアの長期挙動の評価及び人工バリアの成立性の検討を可能とすることを目標とした。

これまでに、5.5.1 で得られた解析手法を使用した HMC の弱連成解析による人工バリアの円形坑道断面の長期解析を検討した。化学解析の解析条件の検討、ベントナイトの密度分布に施工の条件を考慮する手法の検討、化学変質を考慮した際の長期の力学挙動の解析による評価など、連成解析に関する検討を実施し、これにより緩衝材の長期力学挙動の評価への化学変質の影響の考慮が可能になった。化学変質を考慮した力学挙動については、モンモリロナイトの溶解に加え二次鉱物の生成を考慮して長期の解析をすると、二次鉱物の生成を考慮しない場合に比べて変形が少ないことや生成する二次鉱物の種類によって力学挙動が異なること等、より現実的な長期解析が可能となった（図 5.5.2-1）。

また、化学力学連成解析における力学解析の構成則に弾塑性モデルを取り入れた長期解析を行った（1 次元）。この解析においては、施工における上下方向の初期密度分布の影響も検討した。弾塑性モデルによる解析では、弾性モデルと比較して、過圧密の挙動により各層の密度差が長期経過後も残存した上に、初期乾燥密度が低い層において間隙比が部分的に高くなる局所領域の形成が予測された（図 5.5.2-2）。

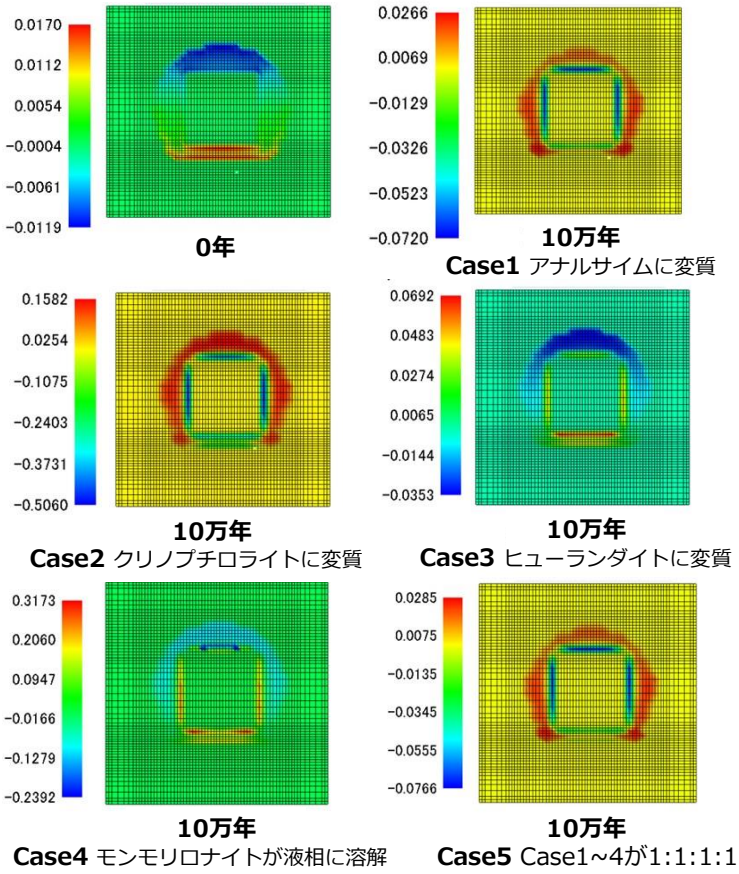


図 5.5.2-1 人工バリアの化学変質を反映した長期力学挙動解析の結果

（体積ひずみ・10 万年後）

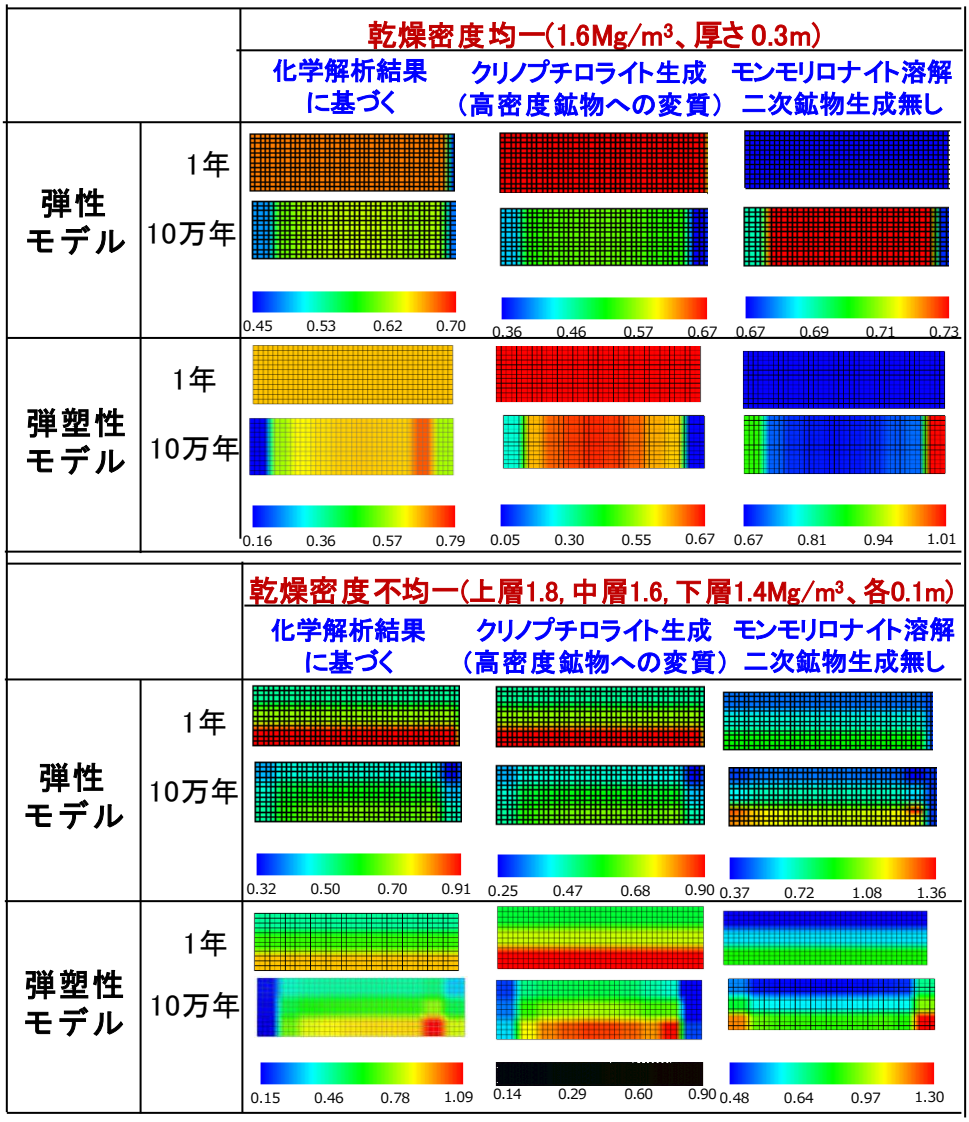


図 5.5.2-2 力学解析の構成則を弾性モデル及び弾塑性モデルとした長期力学挙動解析の結果の例（緩衝材部分の間隙比 e の分布）

(2) 核種移行解析

本事業では、平成 25 年度より TRU 廃棄物の地層処分における人工バリアの長期挙動の評価及びその手法の構築に関する検討を実施している。本業務では、高度化された HMC 連成解析から得られたパラメータを用いた核種移行解析を実施することにより、人工バリアの成立性を考察することを目的とした。

具体的には、平成 28 年度に実施された HMC 連成解析結果[8]から導き出される核種移行パラメータを用いて主要核種の核種移行解析を行い、平成 24 年度の核種移行解析結果[12]、及び TRU2 次レポートの核種移行解析結果[2]と比較検討した。加えて、解析結果に基づいて、核種移行に影響が大きい因子及び人工バリアの成立性について考察した。

1) 解析対象

解析対象は、TRU 廃棄物のグループ 2 の人工バリアとした。人工バリアの構成及び処分坑道断面の寸法仕様は、TRU2 次レポート [17]の Gr2-C に準拠した。

2) 解析ケース

表 5.5.2-1 に解析ケースを示す。解析ケースは、TRU2 次レポートの再現性を確認する「H29 核種ケース 1」、H24 年度報告書の化学解析ケース 2 の条件に相当し、以降のケースとの比較のベースとする「H29 核種ケース 2」、平成 28 年度報告書において化学解析ケース 2 と弱連成した力学解析結果に基づくパラメータを用いる「H29 核種ケース 3」及び「H29 核種ケース 4」、さらに H29 核種ケース 5 及び H29 核種ケース 6 の計 6 ケースとした。

なお、H29 核種ケース 5 及び H29 核種ケース 6 の解析条件は H29 核種ケース 3 及び H29 核種ケース 4 の結果に基づいて設定した。

表 5.5.2-1　核種移行解析ケースにおける条件設定

解析ケース	インベントリ	緩衝材			セメント		その他(EDZ,母岩)	水理条件	備考
		密度	拡散係数	分配係数	溶解度	分配係数			
H29 核種ケース 1	TRU2※1	TRU2※1	TRU2※1	TRU2※1	TRU2※1	TRU2	TRU2※1	TRU2※1	第 2 次 TRU レポートレファレンスケースの設定に従う
H29 核種ケース 2	NUMO※2	H28 化学ケース 2※3	H28 化学ケース 2※3	TRU2 各層個別に pH で設定	TRU2 各層個別に pH で設定※8	TRU2 各層個別に pH で設定※9	TRU2※1	H28 化学ケース 2※3	前フェーズ[12]相当（比較対象）
H29 核種ケース 3	NUMO※2	H28 力学 CASE_02※4	H28 力学 CASE_02※4	TRU2 各層個別に pH で設定	TRU2 各層個別に pH で設定※8	TRU2 各層個別に pH で設定※9	TRU2※1	H28 力学 CASE_02※4	昨年度力学解析に基づくパラメータスタディ
H29 核種ケース 4	NUMO※2	H28 力学 CASE_06※5	H28 力学 CASE_06※5	TRU2 各層個別に pH で設定	TRU2 各層個別に pH で設定※8	TRU2 各層個別に pH で設定※9	TRU2※1	H28 力学 CASE_06※5	昨年度力学解析に基づくパラメータスタディ（緩衝材中の二次鉱物の生成を考慮しない）
H29 核種ケース 5	NUMO※2	※6	※6	TRU2 各層個別に pH で設定	TRU2 各層個別に pH で設定※8	TRU2 各層個別に pH で設定※9	TRU2※1	※6	上記ケース 4 で最も変質した物性を緩衝材の全領域に適用
H29 核種ケース 6	NUMO※2	※6	※6	TRU2 各層個別に pH で設定	TRU2 各層個別に pH で設定※8	TRU2 各層個別に pH で設定※9	※7	※7	上記ケース 5 に対し母岩及び EDZ の水理条件を変更

※1）TRU2 次レポートのレファレンスケースの条件
※2）NUMO-TR-14-03[18]
※3）平成 28 年度報告書の化学解析ケース 2 の結果（平成 24 年度報告書と同等の手法・条件）を用いる
※4）平成 28 年度報告書において化学解析ケース 2 と弱連成した力学解析 CASE_02 の結果を用いる（具体的な物性値はセンター殿から提示頂く）
※5）平成 28 年度報告書において化学解析ケース 2 と弱連成した力学解析 CASE_06 の結果を用いる（具体的な物性値はセンター殿から提示頂く）
※6）力学解析 CASE_06 の結果のうち、最も変質の進んだ部位・時刻のパラメータを緩衝材の全領域及び全時刻に適用。
※7）解析条件はセンター殿と協議の上で設定する。
※8）SEF 補正を実施
※9）SRF 補正を実施

3) 解析条件

H29 核種ケース 2～6 のパラメータの設定にあたっては、平成 28 年度に実施された化学解析及び力学解析の結果[8]に基づく設定値を用いた。この際、地下水化学条件（間隙水の pH）に依存する溶解度及び分配係数については、RAMDA（JAEA-Review2006-011）[19]の設定に準拠して設定した。具体的には、平成 24 年度の解析手法[12]を踏襲し以下のように設定した。なお、本検討では降水系地下水（FRHP）を解析対象とした。また、解析コードは GoldSim[20]を使用した。解析条件の詳細は、平成 29 年度報告書[9]に記す。

- セメント領域を複数のセルで連続する核種移行経路として取り扱い、セル間の移行に拡散係数を設定した。
- セメント系材料の溶解度及び分配係数の設定については、化学解析から得られた pH 値に基づき、セルごとにモルタル層の pH が 12.5 を超える場合では Region-Ⅰの値、pH 12.5 以下では Region-Ⅱの値を使用した。これは、化学解析及び HMC 連成解析期間である 10 万年間においてモルタル層のほとんどの部分の pH が 12.4 より高く、RAMDA において 11.4<pH<12.5 に対応するとされた Region-Ⅲ溶液のパラメータより、pH≒12.5 の Region-Ⅱ溶液のパラメータを使った方が合理的と判断したためである。
- 緩衝材の分配係数は、化学解析から得られた pH 値に基づき、セルごとに<pH11 または pH11<のいずれかに対応する値を使用した。
- 解析物性の時間変化の取扱いに関しては、平成 24 年度の設定に倣って設定した。すなわち、実効拡散係数や透水係数等の各パラメータは基本的に時間軸上で線形補完して連続的に変化するものとして扱い、分配係数については階段状の不連続な関数として設定された値を用いることとした。

4) 解析結果と考察

H29 核種ケース 2～H29 核種ケース 6 の結果として、人工バリアからの核種移行率及び生活圏における線量の最大値、最大値発生時刻と支配核種を表 5.5.2-2 及び表 5.5.2-3 に示す。また、各ケースにおける主要核種の人工バリアからの移行率の最大値を図 5.5.2-3 に示す。なお、核種移行解析結果の詳細は平成 29 年度報告書[9]に示す。

表 5.5.2-2 各ケースにおける人工バリアからの核種移行率の最大値

ケース	人工バリアからの移行率の最大値[Bq/y]	最大値発生時刻[y]	支配核種	備考
H29 核種ケース 2	2.0E+10	110	Sr90	母岩透水係数：2E-10[m/s], 動水勾配：0.01
H29 核種ケース 3	2.0E+10	110	Sr90	
H29 核種ケース 4	2.0E+10	110	Sr90	
H29 核種ケース 5	3.6E+10	85	Sr90	
H29 核種ケース 6	5.1E+12	78	Sr90	母岩透水係数：2.7E-8[m/s], 動水勾配：0.05

（平成 29 年度報告書 5-140 ページ表 5.3.5-1）

表 5.5.2-3　各ケースにおける線量の最大値

ケース	線量の最大値[Sv/y]	最大値発生時刻[y]	支配核種	備考
H29 核種ケース 2	8.9E-8	10,000	C14(有機)	母岩透水係数：2E-10[m/s], 動水勾配：0.01
H29 核種ケース 3	8.9E-8	10,000	C14(有機)	
H29 核種ケース 4	8.8E-8	10,000	C14(有機)	
H29 核種ケース 5	8.2E-8	10,000	C14(有機)	
H29 核種ケース 6	4.2E-6	150	C14(有機)	母岩透水係数：2.7E-8[m/s], 動水勾配：0.05

（平成 29 年度報告書 5-140 ページ表 5.3.5-2）

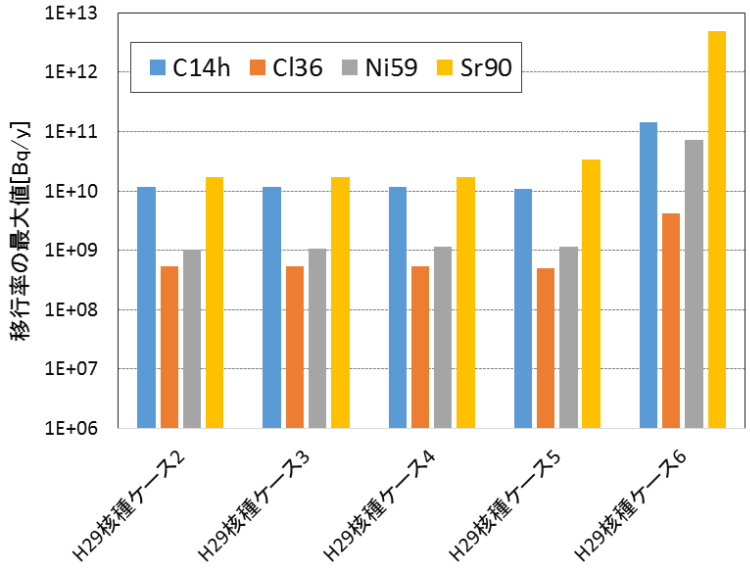


図 5.5.2-3　各ケースにおける主要核種の人工バリアからの移行率の最大値

（平成 29 年度報告書 5-141 ページ図 5.3.5-29）

図表に示す通り、人工バリアからの移行率は H29 核種ケース 2～H29 核種ケース 4 では違いがなく、H29 核種ケース 5 においてやや最大値が増加している程度であった。また、線量の最大値は H29 核種ケース 2～H29 核種ケース 5 でほぼ同じであった。本業務では HMC 連成解析の結果に基づく緩衝材中の長期力学状態の変化を考慮して核種移行解析を実施したが、H29 核種ケース 3 に用いたパラメータは応力の再分配を考慮しても緩衝材中央部の健全部分が核種の移行を抑制し、結果として H29 核種ケース 2 と比較してバリア性能の差異は認められなかった。また、変質が大きくなるようパラメータ設定をした H29 核種ケース 4 及び H29 核種ケース 5 においても、拡散場が維持されたために核種移行に差異が生じなかった。なお、H29 核種ケース 5 に対して母岩の水理条件を変更した H29 核種ケース 6 では、人工バリアからの核種移行率が 2 桁程度増加した。ただしその理由は EDZ の地下水通過流量の増加に

よるものであり、緩衝材中の地下水流速の増加によるものではないと考えられる。

以上の様に、平成 28 年度の化学解析及びこれと弱連成した力学解析の結果に基づいて核種移行パラメータを設定し、TRU2 次レポートに準じた 1 次元の評価体系により核種移行評価を行った結果、TRU2 次レポートとりまとめに対し、本検討の結果は人工バリアの裕度が大きいものと考えられる。このことから、充填材及び緩衝材の長期的な劣化・変質を考慮しても、人工バリアの成立性は確保される見通しが得られたといえる。

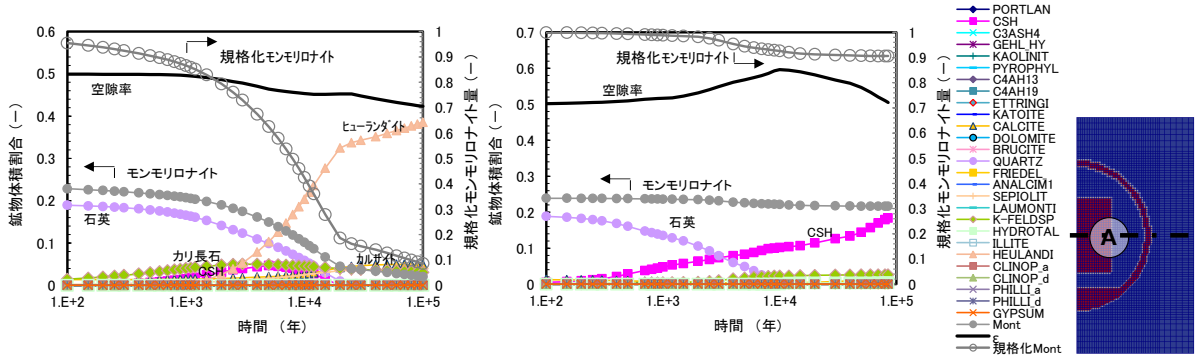
なお、平成 29 年度の化学解析に基づく核種移行を、核種移行パラメータのそれぞれの観点から考察した。その結果として、平成 29 年度の化学解析に基づく核種移行評価は、平成 28 年度の化学解析及びこれと弱連成した力学解析の結果に基づいて核種移行パラメータを設定した核種移行解析と大きな差が生じないと考えられ、今フェーズの検討成果である現象モデルの反映の有無により核種移行に大きな差異が生じないものと考えられる。

今後の課題として、人工バリアの変質や空間的な不均質性の影響をより詳細に検討するにあたっては、評価モデルの 2 次元化や緩衝材中のモンモリロナイト含有量と収着性能を対応させることなどが考えられる。

(3) 人工バリアの閉鎖後長期の HMC 解析（成果の統合と成立性の考察）

TRU 廃棄物の地層処分における人工バリアの閉鎖後長期の変遷に関して、HMC 連成解析による長期挙動評価の信頼性を高める事を目的に、化学変質、力学挙動、水理挙動に関する現象モデルの検討成果を HMC 連成解析に反映し、長期挙動の解析を実施し、その人工バリアの長期変遷への影響を確認しつつ、人工バリアの成立性について考察を行った。

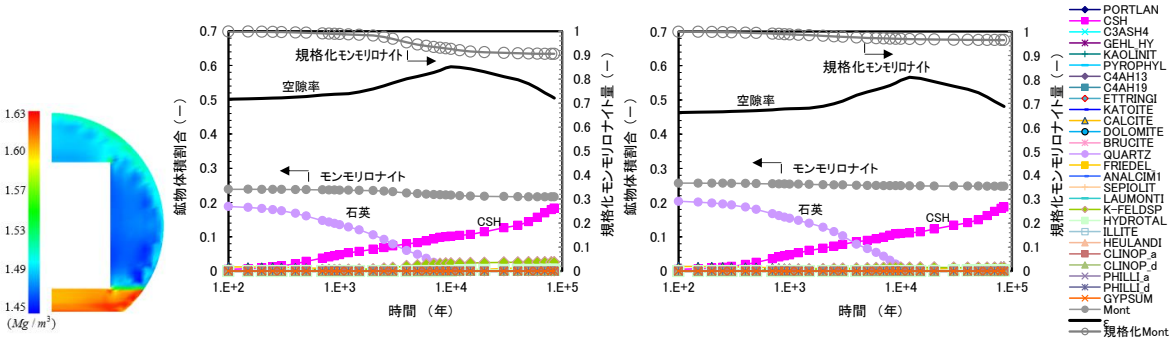
5.2 節にて検討した現象モデルを反映した化学解析結果を図 5.5.2-4 に示す。圧密状態におけるモンモリロナイトの溶解速度と二次鉱物の生成タイミングの遅れを考慮した事により、モンモリロナイトの溶解およびゼオライトの生成が減少し、化学変質は従来よりも進行しない結果となった。しかし、他成分の溶解挙動については瞬時平衡としており、石英は C-S-H 生成に伴い溶解が進む結果となった。現実的な挙動も考慮しつつ、石英等の鉱物の溶解速度等の設定を検討していく必要がある。



(a)前フェーズまでの成果反映　　(b)今フェーズの成果反映　　(c)解析体系

図 5.5.2-4 本フェーズの成果を反映した化学解析結果（緩衝材部分、位置は(c)の A）

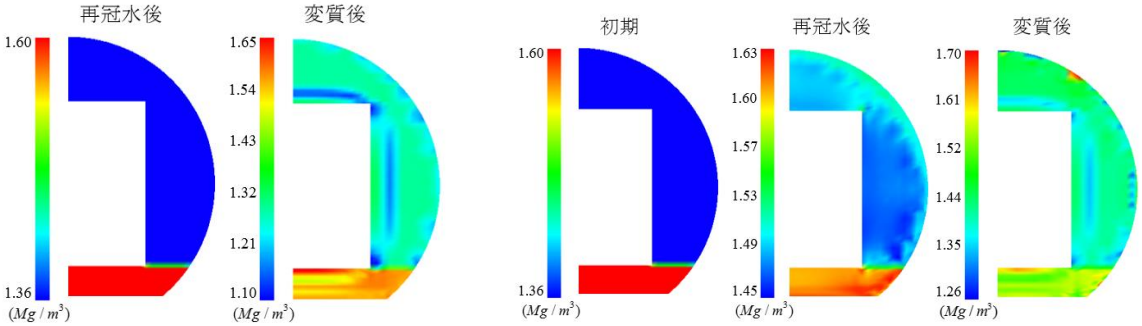
冠水過程に伴う緩衝材の密度分布を考慮し化学解析を実施した結果を図 5.5.2-5 に示す。(a)は、地下 300m の処分坑道（上部及び緩衝材乾燥密度 1.36Mg/m³、底部緩衝材 1.6 Mg/m³）に対して、水頭を 300m まで上昇させた後の乾燥密度分布である。冠水前と比べると乾燥密度のむらがあるが、いずれの部位も値が大きくなっている。(c)の再冠水後の乾燥密度分布を初期条件にした化学解析は、(b)の考慮しないものに対して、変質挙動に大きな違いはなく 1 割程度のモンモリロナイト量の差異が認められた程度であった。



(a) 再冠水後乾燥密度分布　(b)初期条件に再冠水未考慮　(c)初期条件に再冠水考慮

図 5.5.2-5　本フェーズの成果を反映した化学解析結果
（緩衝材部分、位置は図 5.5.2-4(c)の A）

本フェーズの成果を反映した化学解析の結果を考慮した力学解析結果の乾燥密度分布を図 5.5.2-6 示す。変質後の結果は、いずれも 8.5 万年後のものである。緩衝材の乾燥密度の不均一さは、再冠水過程よりも化学変質条件がより支配的な要因であることを確認し、8.5 万年後の人工バリアの緩衝材は、時間が経過したときに残留する乾燥密度の不均一さが認められるが、上部及び側部の緩衝材等に乾燥密度分布が均質な方向の傾向が認められ、かつ乾燥密度の値としては大きな変化はなく、人工バリアの二次元の断面の多くに健全部が維持される傾向が認められた。



(a)初期条件に再冠水未考慮　(b)初期条件に再冠水考慮

図 5.5.2-6　化学解析結果(本フェーズの成果反映)を考慮した力学解析結果(乾燥密度分布)

よって、長期にわたる透水性等の水理挙動は、透水係数が部分的に低下する可能性があるが、人工バリアの二次元断面の中央から外部への方向には多くの健全部があることにより全体として低透水性は維持されるものと考えられる。力学的挙動のうち有効応力の低下の傾向があるが、体積ひずみは変質部において増加するが、他の部分に大きな変化がないことから、人工バリアの力学的な安定性の観点からも長期的な成立性を有するものと考えられる。

(2)の核種移行解析においても、HMC 連成解析により緩衝材における化学変質に加え応力の再分配を考慮しても、核種移行解析には大きな差異が生じなかった。緩衝材中心部分の健全部が存在しており、これが核種の移行を抑制しているためと考えられる。

以上の本検討の解析手法とその解析結果より、人工バリアの閉鎖後長期に渡る成立性について考察する。本検討で提示した化学解析手法では、モンモリロナイトの溶解に圧密系での挙動を考慮していることから、変質が少なく、再冠水による緩衝材の密度分布が生じたとしても応力の再分配により密度分布が均整化される傾向にある。核種移行解析の結果からも、変質等の長期変遷を経ても人工バリアからの核種の移行量が多くなることはない傾向にある。よって、現状の人工バリアの設定であれば基本シナリオにおいて種々の変質を考慮した場合にも、拡散場が担保され性能を保つと考えられる。ただし、化学解析におけるベントナイト中の石英の溶解が顕著なケース等、解析には現実と乖離している部分がまだ残っている。また、人工バリア閉鎖後長期の挙動を正確に把握するために、試験及びアナログ試料から得られた知見の解析への反映、二次鉱物生成モデルの解析への反映方法の高度化、連成解析のデータの双方向の受渡し等の検討が課題である。

今後、今回抽出された課題を検討することにより、人工バリア閉鎖後長期の挙動のより信頼性の高い評価が可能となると考えられる。

5 章の参考文献

[1] 原子力発電環境整備機構、「地層処分事業の技術開発計画－概要調査段階および精密調査段階に向けた技術開発－」、NUMO-TR-13-02、(2013) など

[2] 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とりまとめ－JNC TY1400 2005-013, FEPC TRU-TR2-2005-02, (2005)

[3] (公財) 原子力環境整備促進・資金管理センター, 平成 24 年度 地層処分技術調査等事業 TRU 廃棄物処分技術　人工バリア長期性能評価技術開発　平成 19 年度～24 年度取りまとめ報告書 (2013)

[4] Parkhurst, D.L. and Appelo, C.A.J.: User's guide to PHREEQC (version 2)—A computer program for speciation, batch-reaction, one-dimensional transport, and inverse geochemical calculations, U.S. Geological Survey Water-Resources Investigations Report 99-4259 (1999)

[5] (公財) 原子力環境整備促進・資金管理センター, 平成 25 年度 地層処分技術調査等事業 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発 (第 4 分冊) －人工バリア材料長期挙動評価・人工バリア初期条件の設定－(2014)

[6] (公財) 原子力環境整備促進・資金管理センター, 平成 26 年度 地層処分技術調査等事業 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発 (第 4 分冊) －人工バリア材料長期挙動評価・人工バリア初期条件の設定－(2015)

[7] (公財) 原子力環境整備促進・資金管理センター, 平成 27 年度 地層処分技術調査等事業 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発 (第 4 分冊) －人工バリア材料長期挙動評価・人工バリア初期条件の設定－(2016)

[8] (公財) 原子力環境整備促進・資金管理センター, 平成 28 年度 地層処分技術調査等事業 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発 (第 4 分冊) －人工バリア材料長期挙動評価・人工バリア初期条件の設定－(2017)

[9] (公財) 原子力環境整備促進・資金管理センター, 平成 29 年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業　TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発 (第 4 分冊) －人工バリア材料長期挙動評価・人工バリア初期条件の設定－(2018)

[10](公財) 原子力環境整備促進・資金管理センター, 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　人工バリア長期性能評価技術開発　報告書 (第 1 分冊) ―人工バリアの長期挙動の評価― (2011)

[11] (公財) 原子力環境整備促進・資金管理センター, 平成 23 年度　地層処分技術調査等事業 TRU 廃棄物処分技術　人工バリア長期性能評価技術開発　報告書 (第 1 分冊) ―人工バリアの長期挙動の評価― (2012)

[12] (公財) 原子力環境整備促進・資金管理センター, 平成 24 年度　地層処分技術調査等事業 TRU 廃棄物処分技術　人工バリア長期性能評価技術開発　報告書 (第 1 分冊) ―人工バリアの長期挙動の評価― (2013)

[13] E. Paineau, I. Bihannic, C. Baravian, A. M. Philippe, P. Davidson, P. Levitz, S. S. Funari, C. Rochas and L.J. Michot, Aqueous suspensions of natural swelling clay minerals. 1. Structure and electrostatic, Langmuir, 27, 5562 (2011) .

[14] Dale P. Bentz, Edward J. Garboczi, and Kenneth A. Snyder, A hard core/soft shell microstructural model for studying percolation and transport in three-dimensional composite media、NIST Internal Report 6265 (1999).

[15] C.C Yang, J K Su, Approximate migration coefficient of interfacial transition zone and the effect of aggregate content on the migration coefficient of mortar, Cement and Concrete Research, Volume 32, Issue 10, October 2002, P1559-1565.

[16] 電気事業連合，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ー，JNC TY1400 2005-013，FEPC TRU-TR2-2005-02，根拠資料集 4-2（2005）

[17]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とりまとめ－JNC TY1400 2005-013，FEPC TRU-TR2-2005-02.，(2005)

[18]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の安全性向上に関する検討，NUMO-TR-14-03，（2014）

[19] 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の安全性向上に関する検討，NUMO-TR-14-03，（2014）

[20] Golder Associates：GoldSim Contaminant Transport Module, User’s Guide, Golder Associates Inc.、2001

第 6 章　ガス移行連成挙動評価手法の開発

6.1　全体の実施概要

TRU 廃棄物処分においては、処分施設内の構造材や廃棄体に含まれる金属の腐食等に起因したガスの発生が懸念されるが、ガスの施設外へ向けての移行や蓄圧等の現象が生じた場合、人工バリアの長期健全性に影響を及ぼす可能性がある。

上記の影響評価に係る課題は「第 2 次 TRU レポート」[1]及び「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」[2]にて提示されており、特にベントナイト系緩衝材中の力学連成を伴うガス移行を考慮した評価モデルの開発、掘削影響領域を含むニアフィールド全体におけるガス移行評価モデルの開発等の必要性が提言されている。

本事業では、図 6.1.1-1 に示す TRU 廃棄物処分施設の人工バリア概念（TRU 廃棄物グループ 2 の例[1][3]）と人工バリア材料を対象として、主に赤字で示すベントナイト系/セメント系材料の課題解決に係る「ガス移行連成挙動の評価手法」を開発・整備して人工バリア性能への影響評価を行い、その上で人工バリアの健全性を示すことを目標としている。

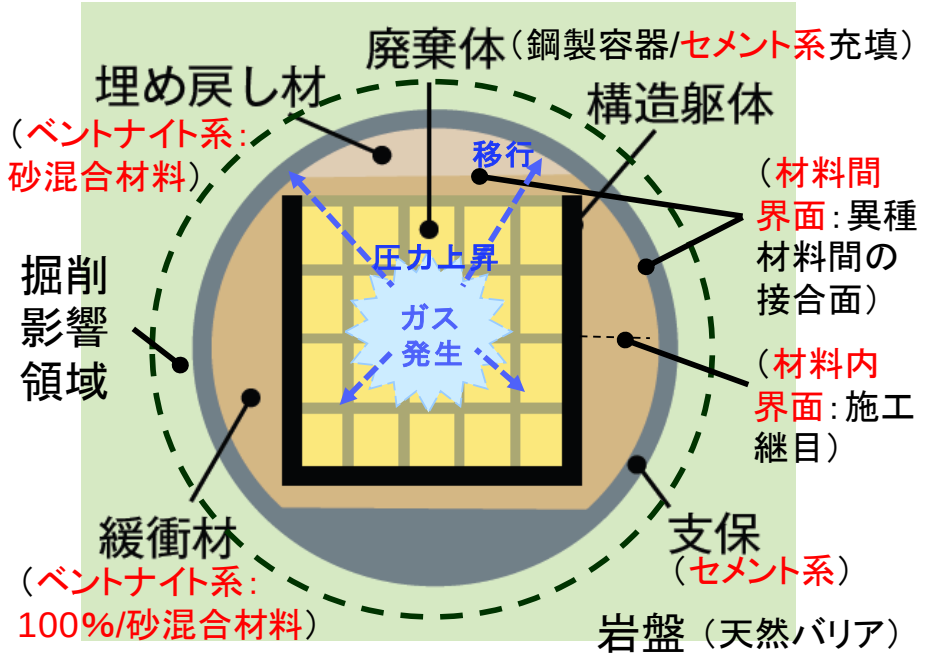


図 6.1.1-1　本事業において対象とする TRU 廃棄物処分施設の人工バリア概念図（廃棄物グループ 2 の例）と人工バリア材料（赤字で追記）[1][3]

なお、「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」[2]では、地層処分の事業化フェーズである国の基盤研究開発を、サイト選定プロセスを考慮し段階的に成果を反映させることを念頭に置き、フェーズ１～３として定義しているが、本事業においても当該計画に沿う形で検討を進めた。

このうち、フェーズ２（平成 19～24 年度）に対応した検討[4]では、人工バリアのうちベント

ナイト緩衝材中のガスの移行挙動解明に向け、水とガスの透過性及び力学特性データの取得やガス移行解析モデルの構築／高度化を推進した他、人工バリアの周辺岩盤を含むガス移行挙動を評価するためのシナリオ構築、及びシナリオ評価手法を整備した。しかし、その一方で、現実的なガス移行挙動を評価するには、不確実性を有する多くの課題（多様な人工バリア材料に対するガス移行挙動の解明やモデル化が必要であること、また、多様な廃棄物処分概念を考慮した評価シナリオの構築と根拠の拡充が必要であること 等）が残された。

これを踏まえ、フェーズ３（平成 25～29 年度）に対応した平成 28 年度までの検討[5][6][7][8]では、ベントナイト系緩衝材のみならず、セメント系材料中におけるガス移行挙動の不確実性の把握・理解に係る知見（室内試験によるデータ取得）を拡充していく他、把握されたガス移行挙動の素過程（現象）の理解とモデル化を進めつつ、試験結果を再現できる解析・評価手法の信頼性向上を図っていくこととした。また、材料単体のみならず、人工バリア内のガス移行経路になることが懸念される材料界面（異種材料間/同種材料間）を考慮した複合システムとしてのガス移行連成挙動の評価手法の高度化、及び多様な処分概念への対応に向けた評価シナリオとシナリオ構築に係る FEP（Features, Events and Processes）を拡張することにより、人工バリア性能に対する現実的な影響評価に向けた検討を推進していくこととした。

本章（第 6 章）は、上記の平成 28 年度までの検討成果に加え、本年度（平成 29 年度）に実施した成果も踏まえて構築した「ガス移行連成挙動評価手法」により、ガス影響の観点から人工バリアの成立性について評価した結果を取りまとめたものである。

6.2　ガス移行現象のメカニズム解明（ガス移行試験等）

本節は、これまで（平成 19-24 年度）に実施した「ガス移行挙動の評価　材料試験データの取得」[4]において得られた知見（再冠水試験、飽和および不飽和ベントナイト供試体を用いたガス移行（透気）試験における大破過※を伴うガス移行挙動および基本特性や寸法効果に対する評価による）を基盤として、ガス移行挙動評価に係る残された課題の解決を目的として取り組んだ一連の成果を取り纏めたものである。

主な課題としては、人工バリア全体のガス移行挙動評価において、これまでに得たベントナイト系材料のガス移行メカニズムについての知見では十分とは言い切れず、一方でセメントについては殆ど把握されていないことがある。

次項以降に、これらの課題解決のために実施した取り組みと成果の概要について述べる。

6.2.1　ベントナイト系材料に係るガス移行現象メカニズム解明

平成 19-24 年度の「ガス移行挙動の評価　材料試験データの取得」においては、ベントナイト緩衝材中のガス移行に係る特性評価を目的とした試験を行い、小型供試体（圧縮ベントナイト）を用いて実施した試験においては、圧縮ベントナイト（クニゲル V1）中における水とガスの透

※　『ガス加圧中に排気量が急激に増大する現象』と定義。一般財団法人　電力中央研究所, 2012.8. 処分施設条件を考慮した締固めたベントナイトのガス移行特性評価　電力中央研究所報告

過性および力学特性に係るデータを取得した他、ダイレイタンシーの作用による破過現象を確認し、大破過を伴うガス移行現象理解において一定の知見が得られた。

一方、ガス移行挙動の寸法効果の把握を目的とした大型供試体のガス移行試験では破過は生じず（ダイレイタンシーの作用を伴わず)、供試体へのガス侵入と間隙水の押し出しのみによって生じた「ガス移行フロント」と思われる水分分布状態が認められたことから、大破過を伴わない気液二相流のみを伴ったガス移行現象が生じ得る可能性が示唆された。

以上のようなガス移行試験で得られた知見を基盤に、平成 25 年度[5]および平成 26 年度[6]においては、供試体中に気液二相流のみが生じることを想定した低注入圧条件（ベントナイト供試体の平衡膨潤圧以下のガス注入圧）によるガス注入試験を実施・データ取得・整理のうえ、取得目的の観点からガス移行挙動の評価を行った[5][6]。

さらに、人工バリアシステム内において卓越したガス移行経路となることが懸念されるバリア材料間（ベントナイト系／セメント系材料間）の界面について、そのガス移行特性を把握することが人工バリアシステムのガス移行挙動の理解においても特に重要な課題であることから、平成 27 年度[7]および平成 28 年度[8]は、当該課題の解決に向けて人工バリア材料界面を模擬した供試体によるガス移行試験を実施し、取得データを整理することによってガス移行特性を評価した。

一方で、人工バリアシステムの構成材料のうち底部緩衝材の候補材料となっているベントナイト・砂混合材料について、当該材料のガス移行（サクションの変動）に伴う詳細な力学特性を把握することも重要な課題であるが、これに必要なデータのうち特に重要なものを取得した。

具体的には、平成 25 年度[5]に「水分特性（飽和度とサクションの相関性)」、平成 26 年度[6]に「膨潤変形挙動のサクション依存性」、平成 27 年度[7]は「圧密変形挙動のサクション依存性」、平成 28 年度[8]に「せん断強度特性のサクション依存性」に係るデータを取得し、それらを整理することによって力学特性を評価した。

次項以降に、実施成果の概要について述べる。

(1) 低圧注入条件を対象とした検討

試験装置の概念図を図 6.2.1-1 に、飽和供試体作製（注水試験）～ガス注入試験（ガス移行試験）の実施フローを図 6.2.1-2 に示す。

なお、供試体の膨潤圧については、まず試験装置底面の荷重計で全応力を計測し、その全応力値から流体圧（飽和過程では注水圧、ガス注入過程では注ガス圧から背圧を差し引いた「有効ガス圧」）としての間隙圧（間隙水圧および間隙ガス圧）を差し引いた「有効な底面応力」と同値であるとして計測した。

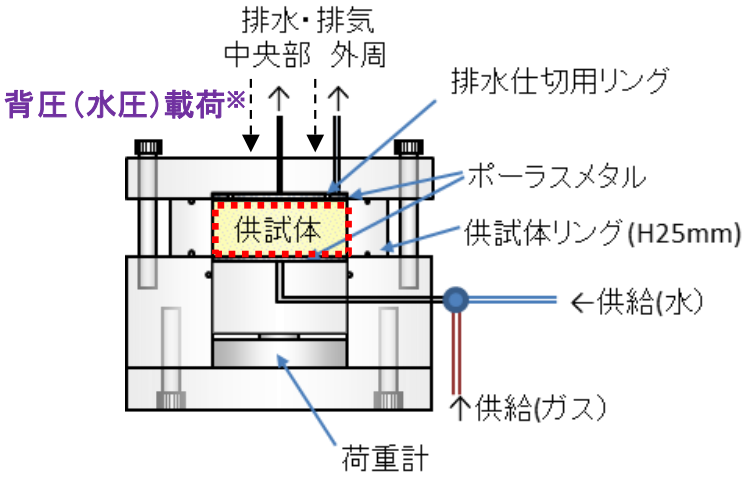


図 6.2.1-1　試験装置の概念図

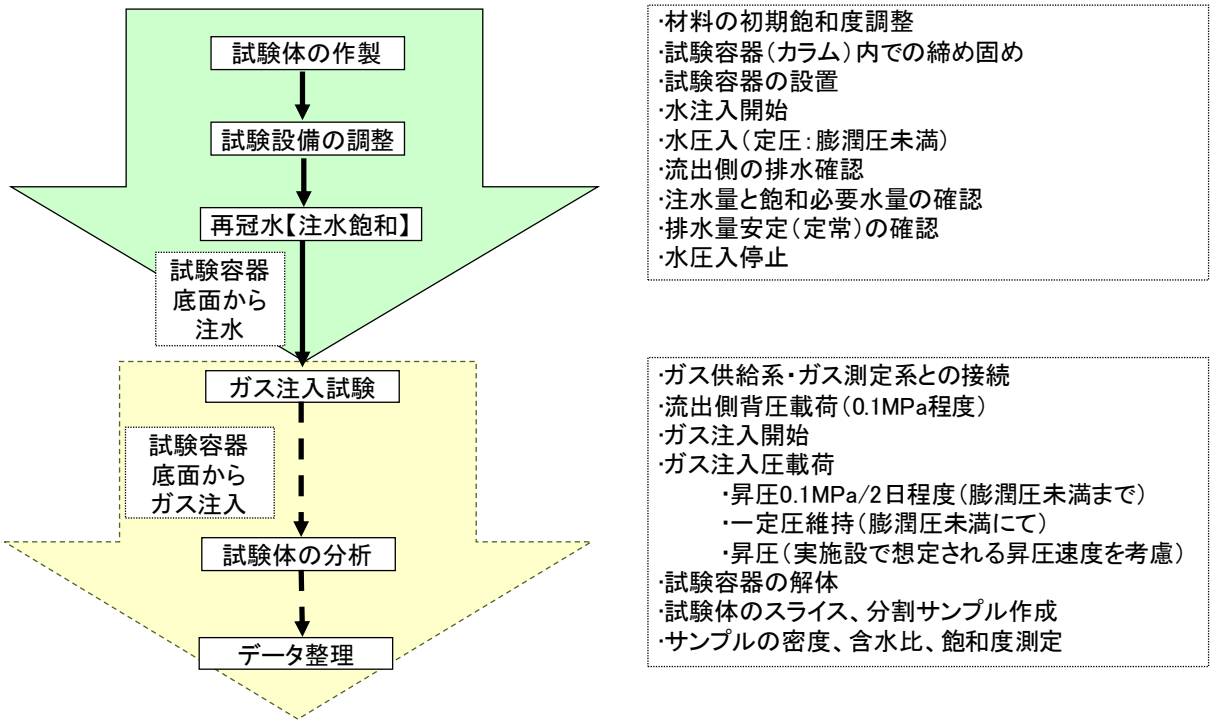


図 6.2.1-2　試験の実施フロー

作製した供試体および試験の概要を表 6.2.1-1 に示す。表に示すように、データ（飽和後の平衡膨潤圧等）のバラつきの考慮や比較検討を目的として、供試体は同一の作製条件にて 3 体（供試体 No.1～No.3）準備した。

表 6.2.1-1　供試体および試験の概要

供試体 No.	供試体 寸法	乾燥 密度	初期 飽和度	飽和完了直後の 膨潤圧 （有効な底面応力）	備考
No.1	直径 φ ：60 mm 高さ h： 25 mm	1.36 Mg/m^3	90 %	0.342 MPa	
No.2				0.387 MPa	144 日経過時で終了
No.3				0.377 MPa	

ガス移行試験結果を図 6.2.1-3 に示す。各供試体ともにガス注入開始直後から約 40 日～50 日にかけて一定勾配の排水挙動が観測された後、有効な底面応力の変化に応じて低勾配に転じることが観測された。

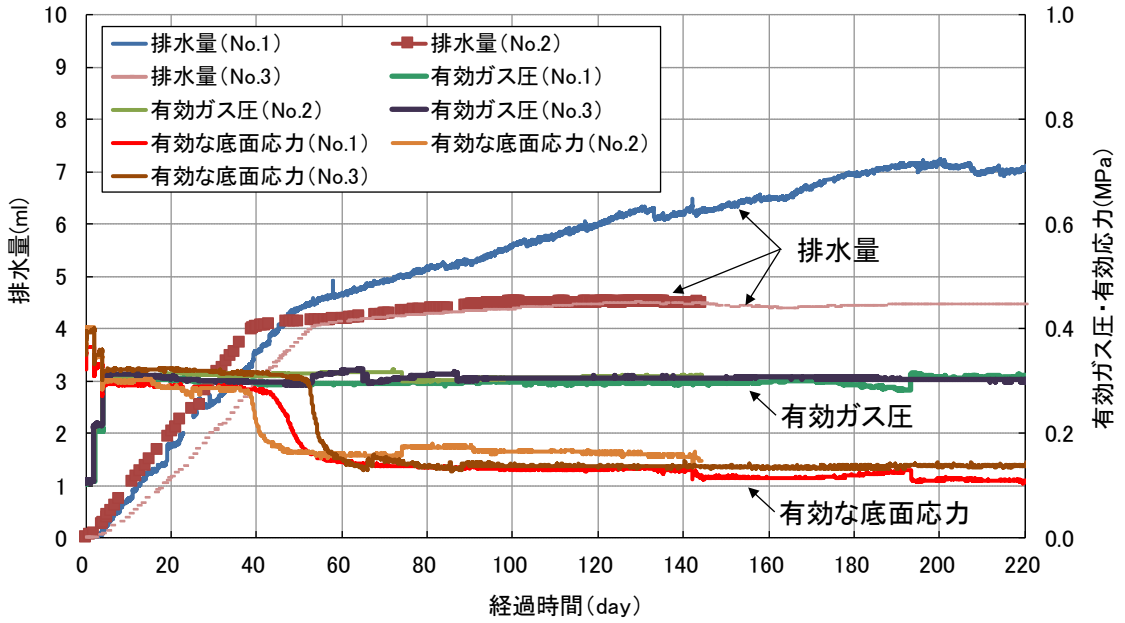


図 6.2.1-3　ガス移行試験結果[5][6]

これは、図 6.2.1-1 に示すように試験装置底部のポーラスメタル内の間隙水の排水に約 40 日～50 日を要した後、ガスが供試体内に浸入したために生じた現象だと推測した。そして排水挙動が低勾配に転じた後も供試体 No.1 は一定勾配で継続的な排水が確認された一方で、供試体 No.2 は約 140 日経過以降に排水が確認されなくなった。これは、供試体 No.1 については気液二相流によるガス移行フロントの進展に伴った排水挙動が観測される一方で、供試体 No.2 につ

いては膨潤圧が No.1 と比較して大きいことや、有効ガス圧に対しても大きいことに起因して気液二相流形態によるガス移行フロントの進展が停滞し、供試体間隙水中への溶解と拡散によるガス浸入が支配的になったためと推測した。このような供試体 No.2 で見られた傾向は、140 日以降の試験挙動を把握するために準備した供試体 No.3 においても確認されたことから、同様なメカニズムによりガス浸入が支配的に継続し得ることが裏付けられた。

(2) 界面（緩衝材ブロック間の隙間）を対象とした検討

評価対象とする人工バリア内の界面部位（上部緩衝材ブロック間の隙間）と模擬界面供試体および試験装置の概念図を図 6.2.1-4 に示す。

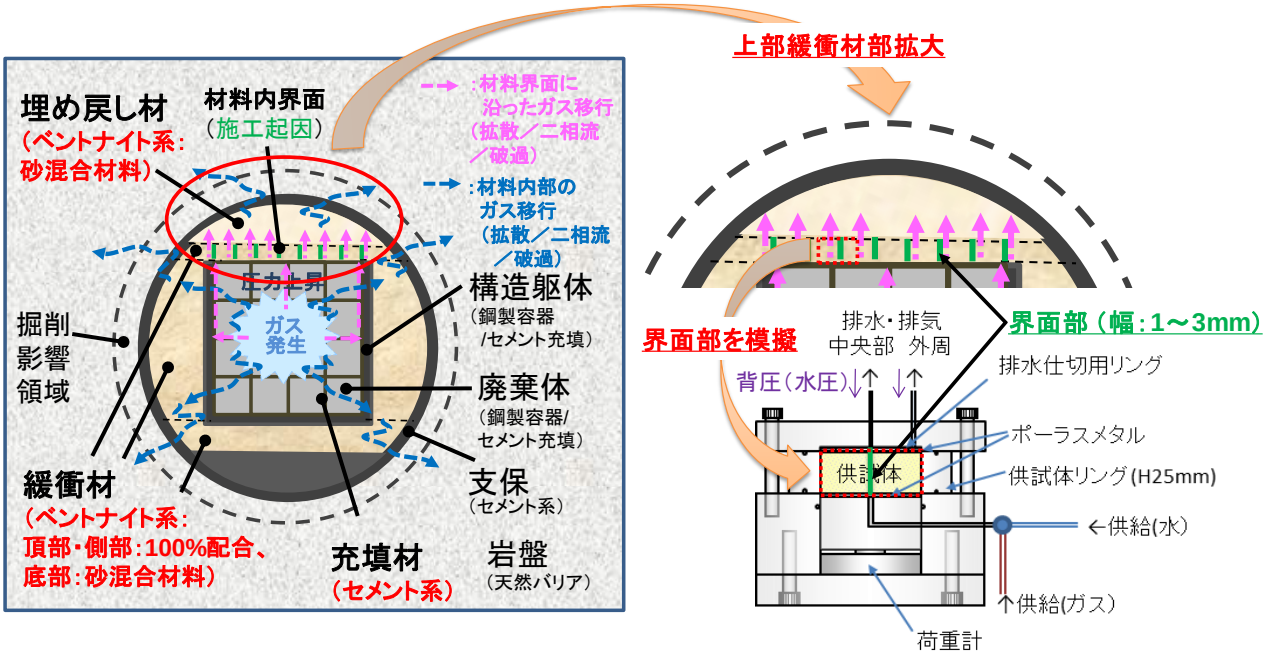


図 6.2.1-4　評価対象とする人工バリア内の界面部位と模擬界面供試体および試験装置の概念図

また、飽和供試体作製（注水試験）～ガス注入試験（ガス移行試験）の実施フローを図 6.2.1-5 に、供試体の作製手順を図 6.2.1-6 に示す。モールドの中央に界面用の厚さ 1mm（または 3mm）のスリット作製用スペーサーを設置し、その両側に含水比を調整したベントナイトを充填した後、静的載荷で上面から圧縮成型（締固め）した。締固め時の載荷速度は 1mm/min の一定載荷速度とした。締固めは 2 層に分けて行い、1 層目を所定の高さまで締め固め後、含水比調整済みのベントナイト試料を再度投入し、1 層目と同様に静的締固めを行い、供試体の作製を終了した。

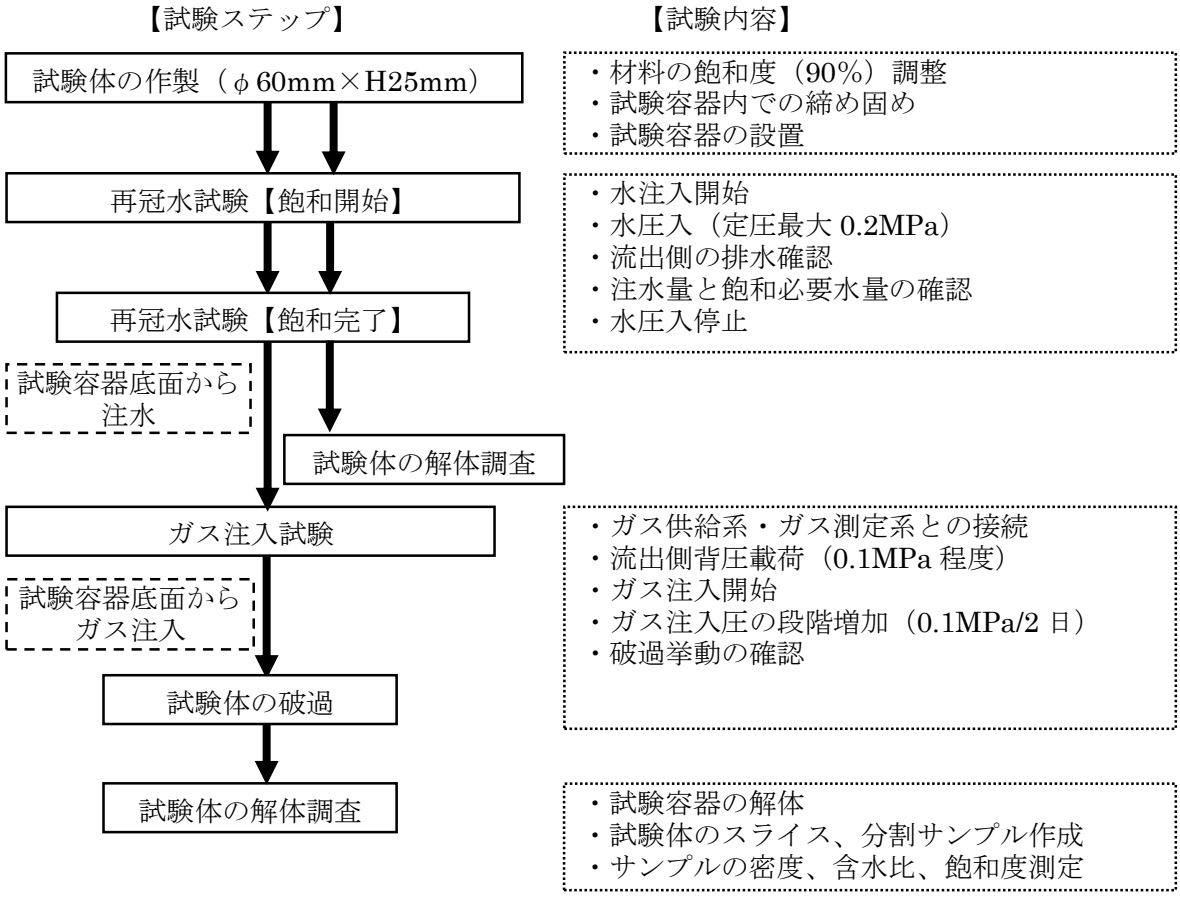


図 6.2.1-5　試験の実施フロー

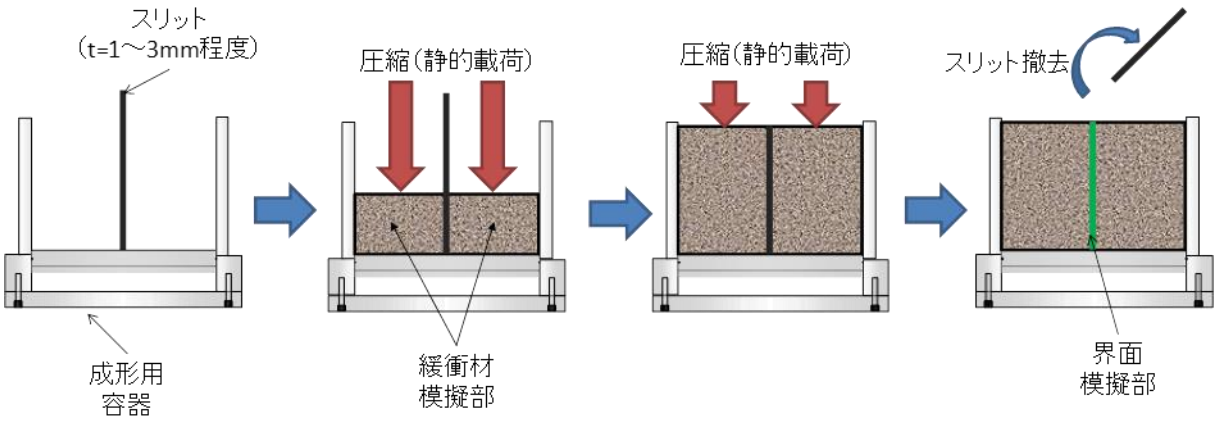


図 6.2.1-6　供試体の作製手順

なお、供試体の膨潤圧については前項「6.2.1　(1) 低圧注入条件を対象とした検討（p.6-4)」で手順と同様に、まず試験装置底面の荷重計で全応力を計測し、その全応力値から流体圧（飽和過程では注水圧、ガス注入過程では注ガス圧から背圧を差し引いた「有効ガス圧」）としての間隙圧（間隙水圧および間隙ガス圧）を差し引いた「有効な底面応力」と同値であるとして計測した。

さらに、試験装置のガス・水排出系統は供試体の中央（界面付近）および側方（外周）の 2

系統とし、破過の直前における排水挙動がどちら系統で卓越するかを確認することで、破過直前に形成され得るガス移行の経路過程に界面の介在がどのような影響を与えるかを推定することとした。

作製した供試体および試験の概要を表 6.2.1-1 に示す。表には、比較対象として界面無しの供試体で実施したガス移行試験[4]の条件も併せて示した。なお、界面有りの両供試体については、飽和完了時に膨潤によって（若干の乾燥密度の低下を伴うものの）界面が閉塞している状況が確認できている。

表 6.2.1-2　供試体および試験の概要

供試体 概要	供試体 寸法	乾燥 密度	初期 飽和度	飽和完了直後の 膨潤圧 （有効な底面応力）	備考
界面無し	直径 ϕ ：60 mm 高さ h： 25 mm	1.36 Mg/m^3	90 %	0.700 MPa	前フェーズ（平成 24 年度）に取得したデータ[4]
				0.369 MPa	低圧注入条件を対象とした試験結果
界面有り （幅 1mm）				0.273 MPa	飽和後（膨潤による界面閉塞後）の乾燥密度は 1.33 Mg/m^3
界面有り （幅 3mm）				0.351 MPa	飽和後（膨潤による界面閉塞後）の乾燥密度は 1.29 Mg/m^3

図 6.2.1-7 は、界面無し・有りの供試体の注入完了後の含水比、乾燥密度分布の比較である。

界面を含む供試体中央部分の範囲について、他の周辺の場所に比べて含水比が大きい。また、その傾向は界面幅 1mm に比べ界面幅 3mm の供試体の方がよりその差が顕著で、界面幅の大きさが界面部分の飽和後の状態に影響することが確認できるが、後述のようにその影響は破過圧に対して影響は小さいこともあわせて確認できている。

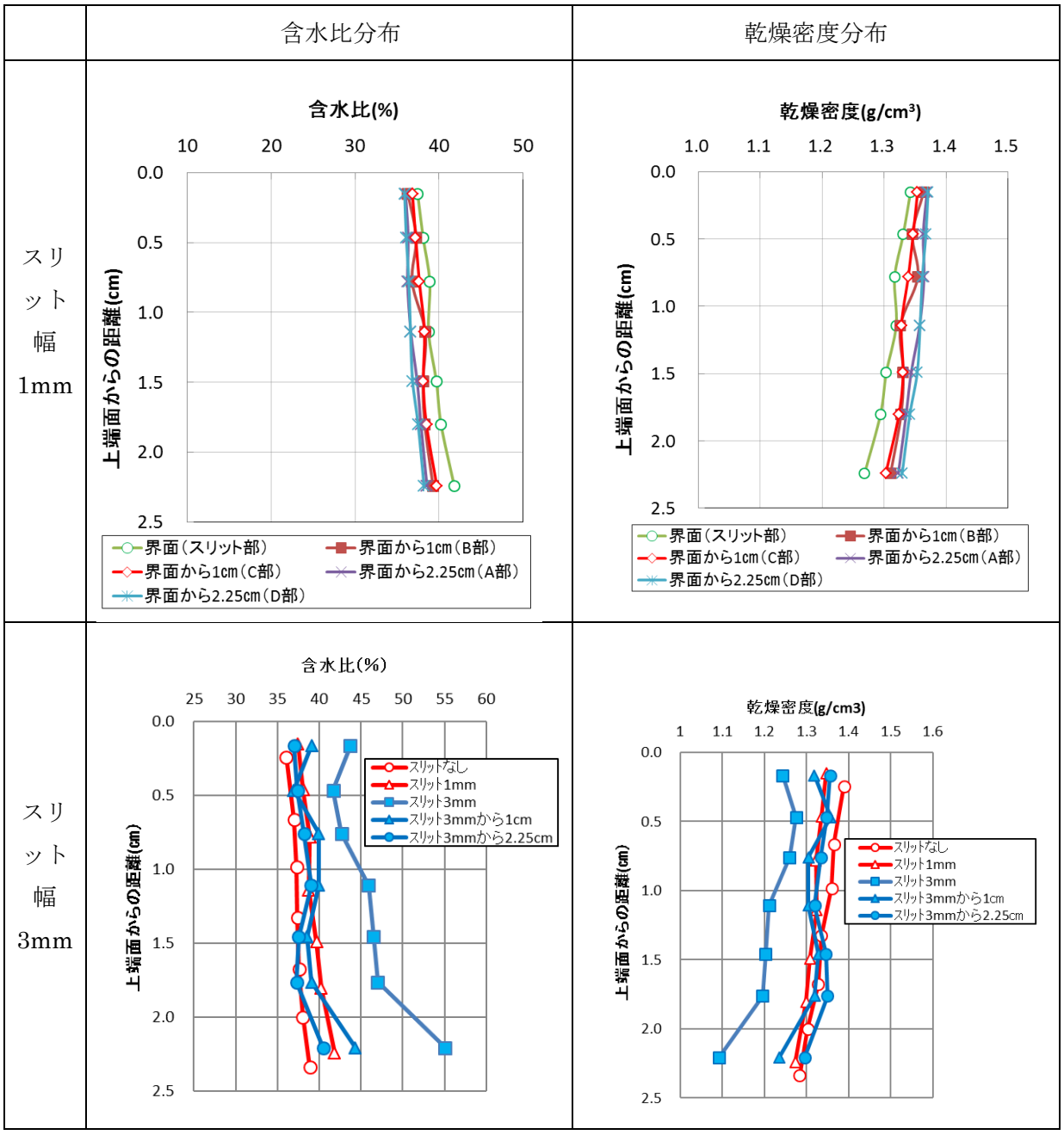


図 6.2.1-7　界面無し・有りの供試体を用いたガス移行試験結果の比較[7][8]

ガス移行試験結果を図 6.2.1-8 に示す。各供試体ともにガス注入開始直後から一定勾配の排水挙動が観測された後、界面幅 1mm の供試体については有効ガス圧が 1.0 MPa に達した段階で有効な底面応力（膨潤圧）が徐々に低下し、その 2 日後にゼロとなった時点でベントナイト粒子構造のダイレイタンシーを伴ったガス移行経路が供試体内に形成され、その後の有効ガス圧の増加に伴ってガス移行経路が進展し、1.3 MPa に達した時点で破過に至ったものと推定した。

なお、既往試験（界面の無い供試体）で確認された破過圧も同様に 1.3 MPa であったことから、幅 1mm 程度の状態では、界面は飽和過程での膨潤によって（全体の密度低下を伴うものの）閉塞し、界面が無い状態とほぼ同じになったものと推定した。一方で、界面幅 3mm の供試体についても破過に至るまでのメカニズムはその他の供試体と同様だと推定できるが、ガス移行経路

が形成されて破過に至るまでの排水挙動を両者で比較したところ、界面幅 1mm では供試体の側方（界面位置では無い外周部）から卓越しているのに対し、界面幅 3mm では供試体の中央（界面付近）で卓越していることから、ガス移行経路が形成された箇所は界面付近であると推定した。さらに、破過が生じた際の有効ガス圧（破過圧）も 1.1 MPa であり、界面幅 1mm の場合と比較して若干小さかったことから、健全箇所と比較しても界面幅 3mm の箇所では破過が生じやすくなるものと推定した。

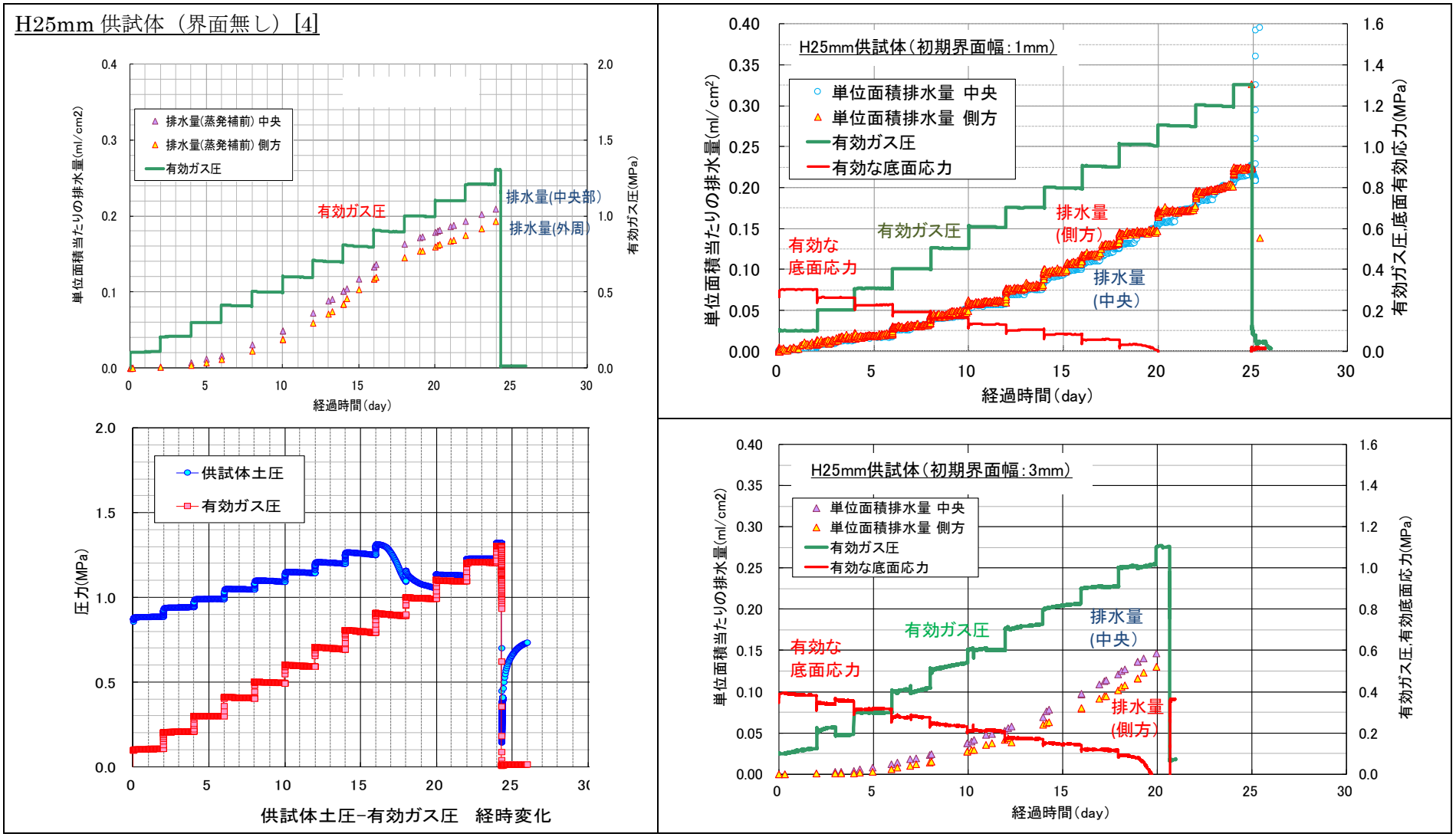


図 6.2.1-8　界面無し・有りの供試体を用いたガス移行試験結果の比較[7][8]

(3) 不飽和力学特性に関する検討

TRU 廃棄物処分場のガス発生影響評価において、発生したガスの人工バリア中の移行挙動を詳細に把握・理解するためには、処分システムの「気液二相流析」や「力学挙動を連成させた二相流解析」を行う必要がある。本研究では、これらの解析に必須の「水分特性（飽和度とサクションの相関性）」、「膨潤変形挙動のサクション依存性」、「圧密変形挙動のサクション依存性」、「せん断強度特性のサクション依存性」に関するデータを取得した。なお、対象とした材料は下記に示す第 2 次 TRU レポート[1]において人工バリアの底部緩衝材に想定されているベントナイト系材料（ベントナイト・砂混合材料）である。

＜対象材料：ベントナイト・砂混合材料＞

- 混合乾燥重量比（ベントナイト：砂）＝7：3
- 初期乾燥密度 1.6 Mg/m^3（静的締固めにて作製）
- 間隙比 0.725
- 真密度 2.76 Mg/m^3
- 初期飽和度 64.7%（初期含水比 17.0%）
  ① ベントナイト：クニゲル V1（クニミネ工業製）
  ② 砂：3 号ケイ砂および 5 号ケイ砂を重量比で 1:1 で混合

ここでは、サクションおよびネット応力を以下のように定義する。

（サクション s）＝（間隙空気圧）－（間隙水圧）

（ネット応力）＝（全応力）－（間隙空気圧）

なお、サクション除荷過程を吸水過程、サクション載荷過程を排水過程とも呼ぶ。

1）水分特性

a） 試験装置

試験に用いたサクション制御可能なオエドメータ試験装置および試験装置の概念図を図 6.2.1-9(a)～(d)に示す。上部および下部のペデスタルにはポーラスメタルがセットされており上部から空気圧（u_a）を、下部から水圧（u_w）を独立作用させることができる構造となっている。

また、上部から作用させる空気圧が下部から抜けることなく保持されるよう、下部のポーラスメタルと供試体の間には空気侵入圧の高い飽和したアセチルセルロース膜（Spectra/Pro membrane MWCO:6-8000）が敷いてある。これにより上部からの空気圧（u_a）を一定に保った状態で下部からの水圧（u_w）を $u_w < u_a$ の範囲で制御することで、供試体のサクション（$u_a - u_w$）を制御することができる。なお、上載圧（鉛直荷重）も同時に載荷できる機構となっている。

b） 試験方法

初期状態（含水比 0.17、初期サクション 0～2.0MPa）から、湿潤過程の水分特性を取得するために、5 水準のサクション 1.3，1.0，0.5，0.3，0.1 MPa（および飽和時は 0 MPa）をそれぞれ別の供試体で作用させ、供試体内のサクションが平衡状態になったと考えられる時点で試験を終了し試料の含水比を測定して飽和度を求めた。次に、飽和後の乾燥過程における水分特性試験を実施した。試料を飽和させた後（飽和時のサクションは 0 MPa）、5 水準のサクション 0.1,

0.3, 0.5, 0.8, 1.3 MPa をそれぞれ別の供試体で作用させ、供試体内のサクションが平衡状態になったと考えられる時点で試験を終了し試料の含水比を測定して飽和度を求めた。なお、試験中の体積変化を最小限に抑えるために湿潤過程も乾燥過程も平衡膨潤圧に相当する 400 kPa の一定鉛直荷重を作用させて試験を行った。

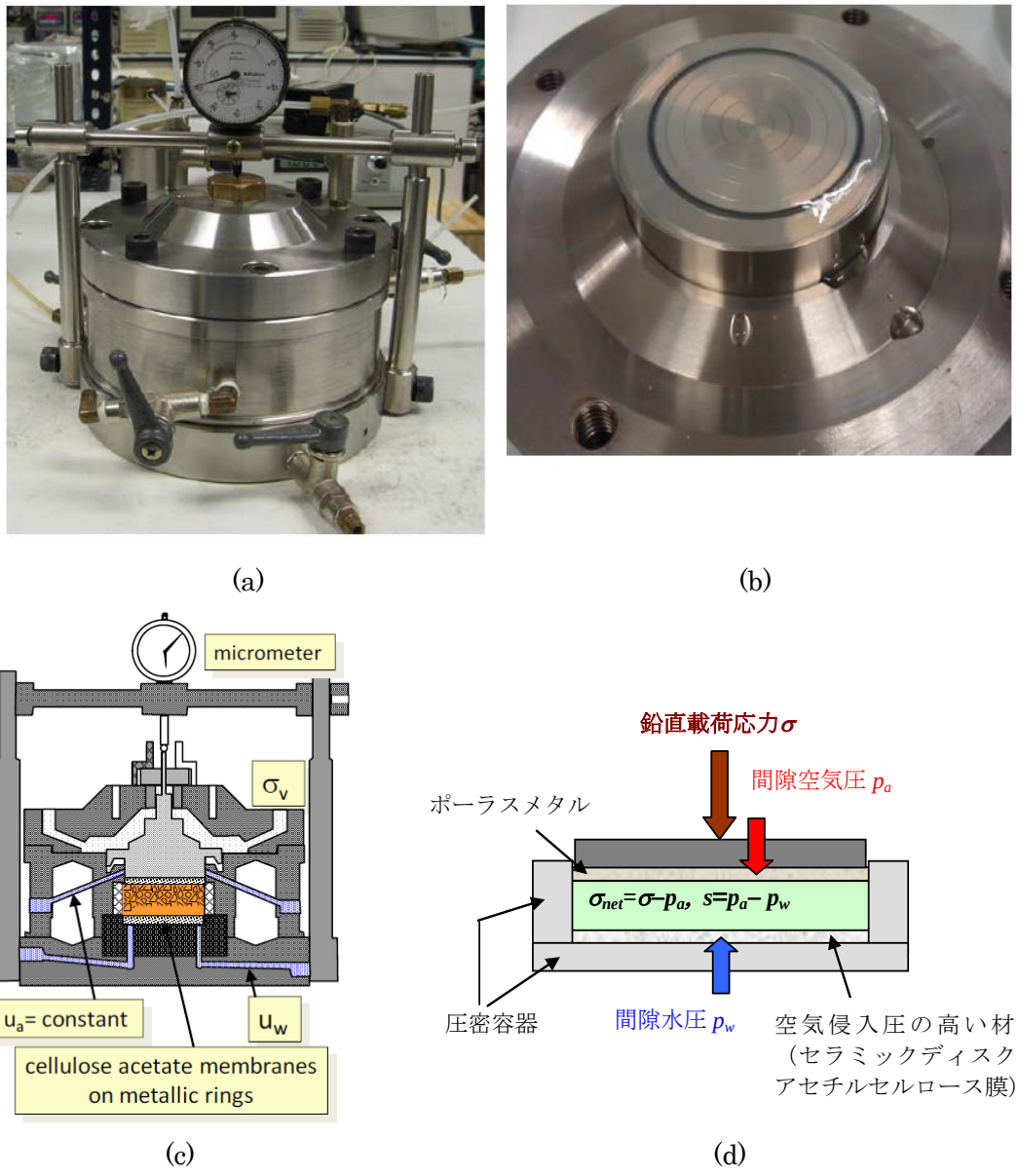
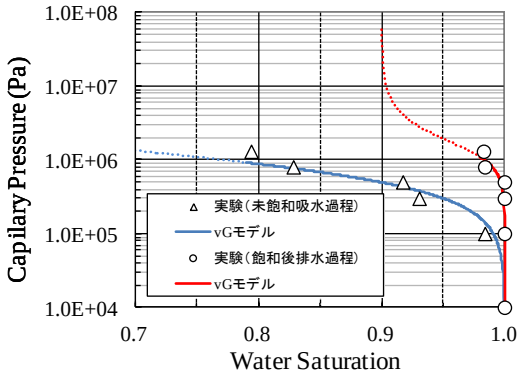


図 6.2.1-9　サクション制御可能なオエドメータ試験装置　(a)試験セル；(b)下部ポーラスメタル上部にセットされた飽和アセチルセルロース膜；(c)試験装置の断面模式図；(d)オエドメータ試験装置の概念図

c) 試験結果

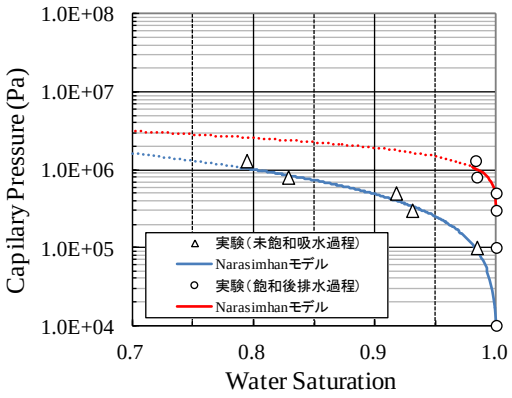
図 6.2.1-10 および図 6.2.1-11 に取得された水分特性（プロット）と 2 種類の水分特性モデルによる最小二乗近似の結果および同定されたモデルパラメータを示す。

van Genuchten モデル（以下、「vG モデル」と称す）[11]および Narashimhan モデル（以下、「Na モデル」と称す）[12]とも，実験結果を良好に近似できる結果となった。なお、同定したモデルパラメータは、飽和度の比較的高い限定された飽和度領域でのみ適用可能であることに注意が必要である（図 6.2.1-10 および図 6.2.1-11 では実線で示される飽和度の範囲に限定）。



近似モデル	パラメータ	パラメータ値	
		未飽和 吸水過程	飽和後 排水過程
van Genuchten $P_c = P_0\left(S_e^{-1/\lambda} - 1\right)^{1-\lambda}$ $S_e = (S_l - S_{lr})/(S_{ls} - S_{lr})$	適用範囲	Sr＞0.79	Sr＞0.98
	P_0 (MPa)	1.00	1.50
	λ	1.60	2.70
	Slr	0.00	0.90
	Sls	1.00	1.00

図 6.2.1-10　取得された水分特性と van Genuchten モデル近似と同定パラメータ



近似モデル	パラメータ	パラメータ値	
		未飽和 吸水過程	飽和後 排水過程
Narashimhan $P_c = P_e + P_0\left(\frac{(1-S_l)}{(S_l - S_{lr})}\right)^{\frac{1}{\eta}}$	適用範囲	Sr＞0.79	Sr＞0.98
	Pe （MPa）	0.01	0.30
	P_0 （MPa）	3.50	4.00
	η	1.10	2.40
	Slr	0.00	0.00

図 6.2.1-11　取得された水分特性と Narasimuhan モデル近似とモデルパラメータ

2) 膨潤変形挙動のサクション依存性

a) 試験装置

試験には水分特性試験と同じサクション制御可能なオエドメータ試験装置（図 6.2.1-9 参照）を用いた。

b) 試験方法

サクションを減少させる吸水膨潤過程の試験とサクションを増加させる排水収縮試験を行った。吸水過程の試験では、鉛直方向の拘束ネット応力を 200kPa および 400kPa 一定でサクションを 1,300 kPa⇒800 kPa⇒500 kPa⇒300 kPa⇒100 kPa⇒10 kPa（≒飽和）の順に段階的に変化させ、その間の鉛直変位を計測して供試体の間隙比の変化を評価した。

一方、排水過程については、まず、鉛直方向の拘束ネット応力を 200kPa および 400kPa 一定下でサクションを 10 kPa まで下げることで試料を飽和させた後に、サクションを 10 kPa⇒100 kPa⇒300 kPa⇒500 kPa⇒800 k⇒Pa1,300 kPa の順に変化させ、その間の間隙比の変化を評価した。なお、各サクション作用段階では試料の変形が収束するまで一定サクションを維持した後、次段階のサクションを作用させる方法を採った。また、試験中の作用間隙空気圧は 1.4MPa 一定として間隙水圧を制御することでサクションを制御した。

c) 試験結果

鉛直方向の拘束ネット応力 200kPa および 400kPa の場合について、吸水過程および排水過程におけるサクションと間隙比の関係をそれぞれ図 6.2.1-12、図 6.2.1-13 に示す。ここに、横軸はサクション s に大気圧 p_{atm} を加えたもの（$s+p_{atm}$）を対数軸で示している。図中の直線は最小二乗近似直線を示している。

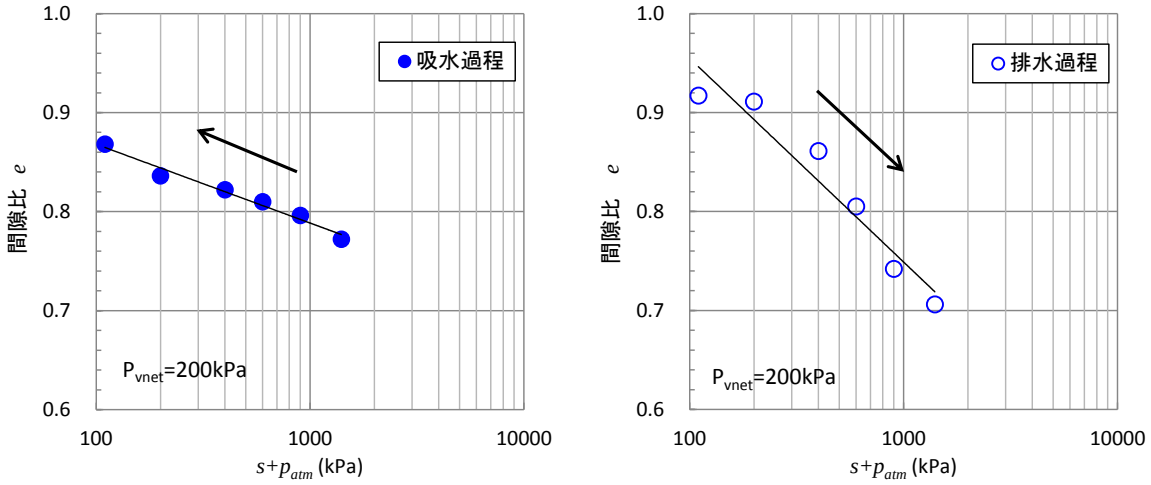


図 6.2.1-12　鉛直方向の拘束ネット応力 200kPa 一定化でのサクションの変化に伴う間隙比の変化：(a) サクション減少に伴う吸水膨潤過程、(b)サクション増加に伴う排水収縮過程

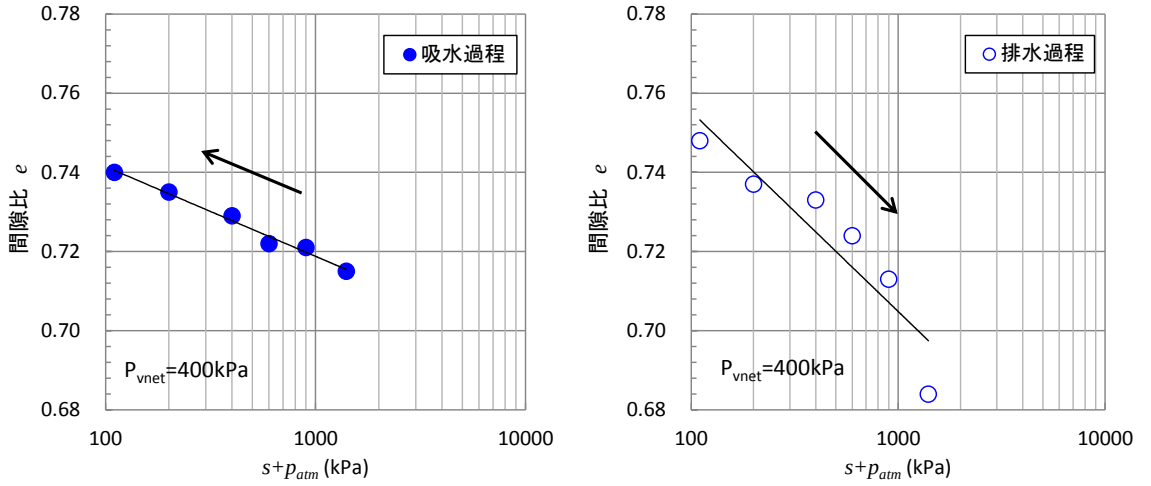


図 6.2.1-13　鉛直方向の拘束ネット応力 400kPa 一定化でのサクションの変化に伴う間隙比の変化：(a) サクション減少に伴う吸水膨潤過程、(b)サクション増加に伴う排水収縮過程

次に、上記の実験結果から飽和・不飽和弾塑性構成モデル Barcelona Basic Model（BB モデル、Alonso et al. , 1990[14]）の吸水膨潤変形および排水収縮変形に関するパラメータを求める。BB モデルではサクションの変化に伴う間隙比の変化を次式で表している。これは、飽和過程（サクション減少過程）においてはいわゆる膨潤変形を表す。

$$de = -\kappa_s \frac{ds}{s + p_{atm}} \qquad \text{式 6.2.1-1}$$

$$\kappa_s = \kappa_{s0}\left(1 + \alpha_{sp} \ln\frac{p}{p_{ref}}\right)\exp(\alpha_{ss} \cdot s) \qquad \text{式 6.2.1-2}$$

ここに、e は間隙比、s はサクション、p は平均ネット応力，p_{atm} は大気圧(100kPa)，κ_{s0}, α_{sp}, α_{ss}, p_{ref} （参照応力、通常 100kPa）は材料パラメータである．なお，κ_s のサクション依存性が無視できる場合にはα_{ss} =0 としては次式で表すことができる。

$$\kappa_s = \kappa_{s0}\left(1 + \alpha_{sp} \ln\frac{p}{p_{ref}}\right) \qquad \text{式 6.2.1-3}$$

式 6.2.1-1 のκ_sは図 6.2.1-12、図 6.2.1-13 の e～ln(s + p_{atm})関係の傾きを表していることから、最小二乗近似によりこれらの傾きを求めることで各試験におけるκ_s を求めることができる。山本ら[15]は圧縮ベントナイトで同様の試験を行い e～ln(s + p_{atm})関係が直線近似できることを示しており、本実験結果でも同様の結果が見られる。表 6.2.1-3 に e～ln(s + p_{atm})を線形とした場合の各試験のκ_s（傾き）を平均ネット応力 p と共に示す。ここに、平均ネット応力 p は式 6.2.1-4 で表されるが、水平方向のネット応力 p_h は Jaky 式[16]（式 6.2.1-5）に基づいて求めた。

$$p = (p_v + 2p_h)/3 \qquad \text{式 6.2.1-4}$$

$$p_h = (1 - \sin\phi')p_v \qquad \text{式 6.2.1-5}$$

ここに、ϕ' は有効内部摩擦角であり文献[17]の値（16.6°）を用いた。

参照応力 p_{ref}=100kPa とすると、式 6.2.1-2 の未知パラメータはκ_{s0}, α_{sp} の２つであるが、２水準の平均ネット応力 p に対してκ_s既知なので連立方程式を解いてこれらのパラメータ値を求めた。結果を表 6.2.1-4 に示す。

表 6.2.1-3　各試験結果における e～ln(s + p_{atm})関係の傾き

鉛直ネット応力 p_v (kPa)	平均ネット応力 p (kPa)	吸水過程のκ_s	排水過程のκ_s
200	161.9	0.0345	0.0894
400	323.8	0.00984	0.0219

表 6.2.1-4　吸水膨潤変形および排水収縮変形に関する BB モデルパラメータ表

過程	α_{ss}	p_{ref}（kPa）	α_{sp}	κ_{s0}
吸水	0	100	-0.689	0.052
排水	0	100	-0.714	0.136

3）圧密変形挙動のサクション依存性

a） 試験装置

試験には水分特性試験と同じサクション制御可能なオエドメータ試験装置（図 6.2.1-9 参照）を用いた。

b） 試験方法

サクションを一定に保った状態で圧密載荷、除荷試験を実施した。サクションは 0kPa、400kPa、900kPa の 3 水準を設定し、圧密荷重は載荷過程では鉛直ネット応力 0.1, 0.2, 0.45, 1.0, 3.0 MPa の 6 段階、除荷過程では鉛直ネット応力 3.0, 1.5, 1.0, 0.5 MPa の 4 段階とした。

c） 試験結果

載荷ネット応力と間隙比の関係を図 6.2.1-14 に示す。図において直線区間できると考えらえる区間の最小二乗近似により、圧密降伏後の勾配である圧縮指数（λ）と除荷時の勾配である膨潤指数（κ）をサクション 400kPa および 900kPa の場合に関して求めた。

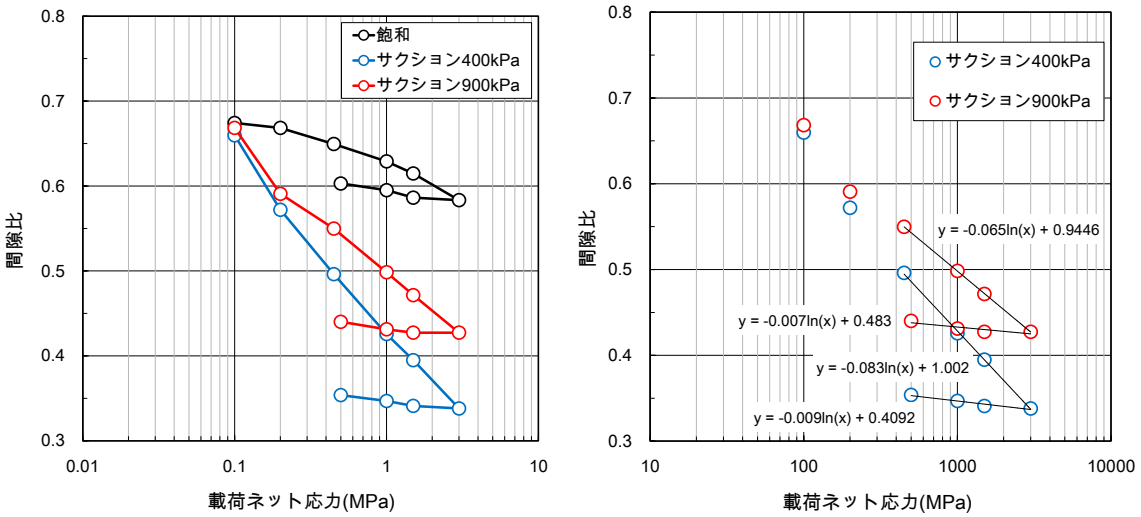


図 6.2.1-14　載荷ネット応力（圧密圧力）ー間隙比の関係と
最小近似による圧縮指数（λ）と膨潤指数（κ）の算定

BB モデル[14]において、圧縮指数λ(s)、膨潤指数κ(s)のサクション依存性は次式で表される。

$$\lambda(s) = \lambda_0\left[(1-\gamma)\exp(-\beta \cdot s) + \gamma\right] \qquad \text{式 6.2.1-6}$$

$$\kappa(s) = \kappa_0(1+\alpha \cdot s) \qquad \text{式 6.2.1-7}$$

ここに、λ_0、κ_0は飽和時の圧縮指数、膨潤指数、α、β、γは材料パラメータである。

図 6.2.1-15 に、実験から得られたサクションと膨潤指数、圧縮指数の関係をプロットするとともに、実験結果を BB モデルでフィティングしたものを実線で示している。なお、サクションゼロ（飽和試料）の膨潤指数と圧縮指数は既往の JAEA のデータ[18]を用いた。フィティングにより求められたモデルパラメータは表 6.2.1-5 の通りである。フィッティング結果は、圧縮指数に関しては実験結果とよく一致しているが、膨潤指数に関しては、やや整合度が低くなっているのがわかる。

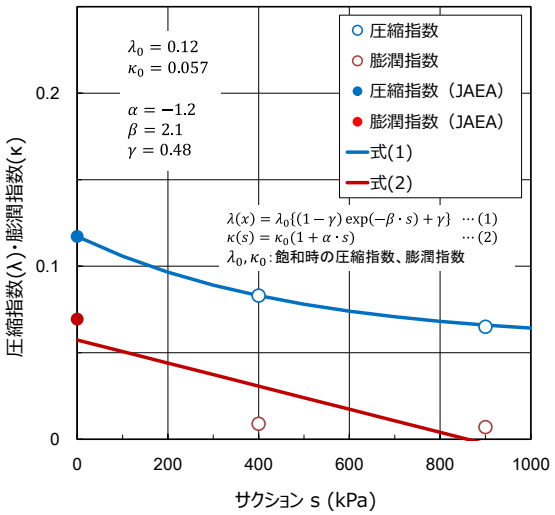


図 6.2.1-15　圧縮指数，膨潤指数のサクション依存性と BB モデルによるフィッティング

表 6.2.1-5　不飽和ベントナイトの圧縮指数、膨潤指数に関わるパラメータ

パラメータ	λ_0	κ_0	α	β	γ
値	0.12	0.057	-1.2	2.1	0.48

膨潤指数に関して、BB モデルにおいては膨潤指数のサクション依存性は線形関係で表現されているが（式 6.2.1-7）、今回の試験結果（図 6.2.1-15）において膨潤指数には線形性が認められない。そこで、膨潤指数についても、圧縮指数と同様の指数関数（式 6.2.1-8）により近似することを試みた。

$$\kappa(s) = \kappa_0\{(1-\alpha_1)\exp(-\alpha_2 \cdot s) + \alpha_1\} \qquad \text{式 6.2.1-8}$$

ここに、κ_0：飽和時の膨潤指数，α_1，α_2：材料定数

試験結果を式、および式によりフィッティングした結果を図 6.2.1-16 に示す。図中、実線（青線、赤線）は、圧縮指数と膨潤指数を式 6.2.1-6、 式 6.2.1-8 によりフィッティングした結果である（破線は、式 6.2.1-7 による膨潤指数の直線関係でのフィッティング）。膨潤指数を圧縮指数同様の指数関数で近似することにより、圧縮指数，膨潤指数ともに，試験結果と良好な一致を得ることができる結果となった。

式 6.2.1-6 および式 6.2.1-8 により得られた各パラメータを表 6.2.1-6 に示す。

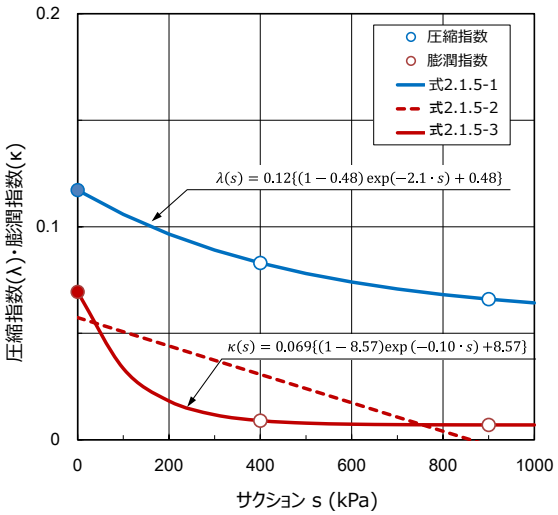


図 6.2.1-16　膨潤指数に非線形を考慮した場合のフィッティング結果

表 6.2.1-6　不飽和ベントナイトの膨潤指数の非線形を考慮した場合のパラメータ

材料定数	λ_0	κ_0	α	α_1	α_2	β	γ	適用式
圧縮指数	0.12	---	---	---	---	2.1	0.48	式 6.2.1-6
膨潤指数	---	0.069	---	8.57	0.10	---	---	式 6.2.1-8

4）せん断強度特性のサクション依存性

a） 試験装置

試験にはサクション制御可能な三軸圧縮試験装置を用いた。なお、供試体は試験時間を短縮するため標準的な寸法より小さい直径 38mm、高さ 40mm を用いた。

b） 試験方法

２水準の一定サクション（400kPa および 800kPa）、３水準の一定ネット応力 600kPa，900kPa，1200kPa の側圧（側方ネット応力）条件で応力制御により排水三軸圧縮試験を行った。軸応力の載荷速度は 0.05kPa/min とした。試験ケースを表 6.2.1-7 に示す。

表 6.2.1-7　三軸試験ケース

サクション s（kPa）	拘束ネット応力（側圧）（kPa）	軸圧縮方法
400	600	応力制御（0.05kPa/min）
	900	
	1200	
800	600	応力制御（0.05kPa/min）
	900	
	1200	

c) 試験結果

図 6.2.1-17 に三軸圧縮試験の結果として得られた最大軸差応力（q_{ls}）と平均ネット応力（p''）の関係を示している。ここに、試験は応力制御のため次節で示すように軸差応力ピーク（軟化挙動）は発現しないので、軸差応力がほぼ一定となる比較的大きなひずみ（軸ひずみが 15%～20%）での軸差応力と平均ネット応力値を採用した。図の破線は最小二乗近似直線であり、その傾き M はサクション s=400kPa、s=800kPa のそれぞれで、M =0.415、M =0.414 である。図より、最大軸差応力（q_{ls}）と平均ネット応力（p''）は線形関係にあること、また、その傾きはほぼ等しく、有効内部摩擦角ϕ'はサクション s に依存しないことがわかる。ここに、M とϕ'の関係は下記の通りである。

$$M = \frac{6sin\phi'}{3 - sin\phi'} \qquad \text{式 6.2.1-9}$$

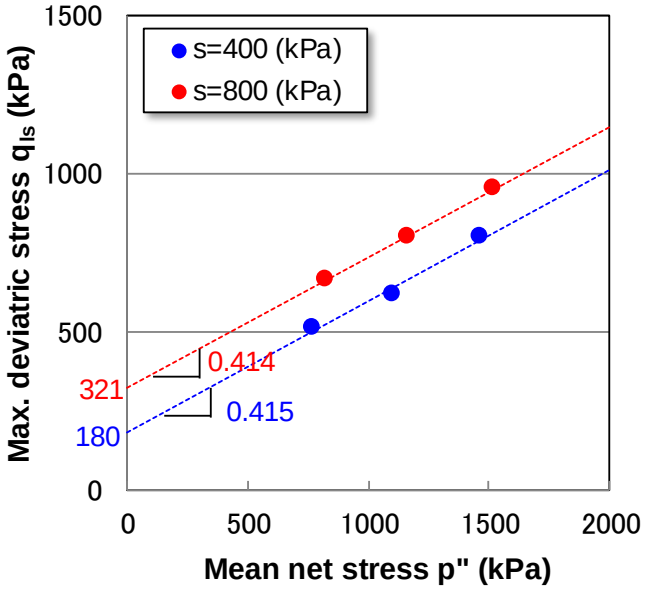


図 6.2.1-17　三軸試験より得られた最大軸差応力（q_{ls}）と平均ネット応力（p''）の関係

一方で、高治ら[18]が行った同仕様のベントナイト・ケイ砂混合土に対する飽和非排水三軸圧縮試験によると、軸差応力ピーク値から算定された有効内部摩擦角は 16.6° （M =0.63）と報告されている。本試験と同程度の軸ひずみ（15%）における応力から有効内部摩擦角を算定し直しても 15.9° であり、今回のサクション制御三軸試験結果のϕ'≒11.2° （サクションに依らず一定）と 整合しない。原因として、サクション制御の有無の他に、排水条件、ひずみ速度、供試体寸法などの違いが考えられるが明らかではない。

次に、試験結果に基づいて粘着力 c'のサクション依存性を定量化する。

Mohr-Coulomb の破壊基準に基づけば、最大軸差応力（q_{ls}）と平均ネット応力（p''）、有効内部摩擦角ϕ'、粘着力 c'の関係は以下の通りである。

$$q_{ls} = \frac{6 \cdot sin\phi'}{3 - sin\phi'} p'' + \frac{6 \cdot c'(s) \cdot cos\phi'}{3 - sin\phi'} \qquad \text{式 6.2.1-10}$$

式 6.2.1-9 を考慮すれば、

$$q_{ls} = Mp'' + Mc'(s) \cdot cot\phi' \qquad \text{式 6.2.1-11}$$

そこで、M =0.415（ϕ'=11.2°）一定として、図 6.2.1-17 の切片値から式 6.2.1-11 に基づいて c'を求めた結果を図 6.2.1-18 に示す。直線は、飽和の場合（s=0）には粘着力 c'=0 と仮定して求めた最小二乗近似線を示している。図より粘着力はサクションに比例して増大し、c'=0.20s で近似できるのがわかる。

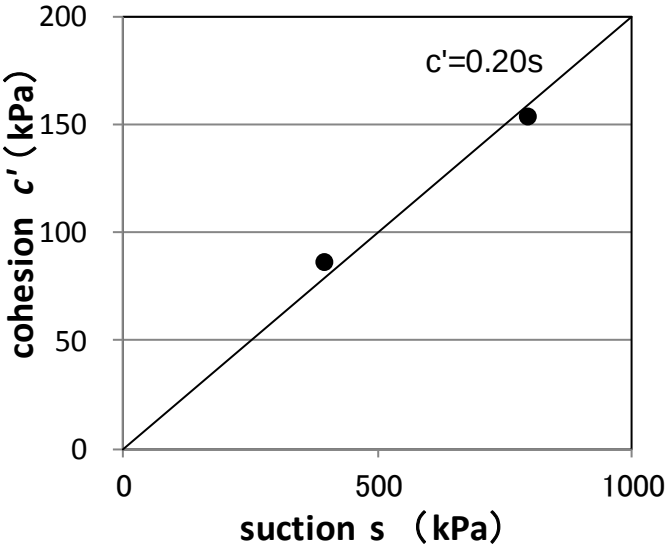


図 6.2.1-18　粘着力のサクション依存性

以上から以下のことが言える。

- 今回の試験条件の範囲（s<800kPa、600<p''<1200kPa）では内部摩擦角ϕ'はサクションの影響を受けない。
- 今回の試験条件の範囲では見かけの粘着力 c'はサクションに比例する（c'=0.20s）
- 上記の特性は Alonso et al.のモデル（BB モデル）[14]と一致する

6.2.2　その他材料（セメント系材料）に係るガス移行現象メカニズム解明

TRU 廃棄物処分概念（グループ 2）における人工バリアのイメージとセメント系材料のガス移行経路のモデルを図 6.2.1-1 に示す。

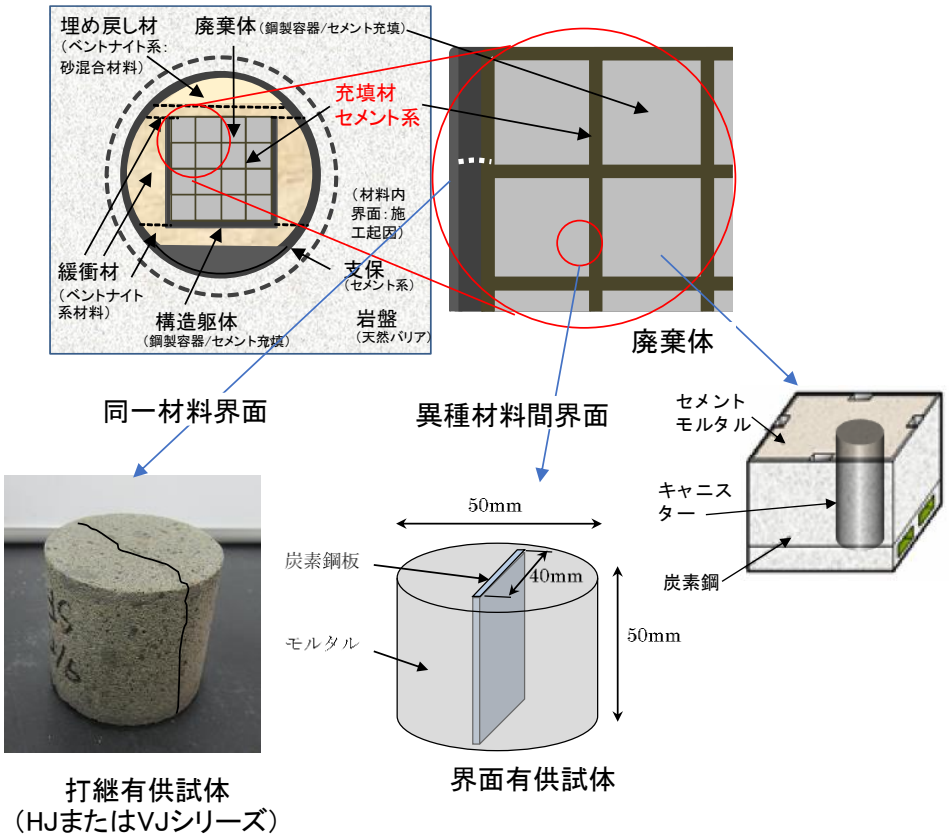


図 6.2.2-1　人工バリアのイメージとセメント系材料のガス移行経路のモデル

TRU 廃棄物処分場にけるセメント系材料におけるガス移行特性を詳細に把握するためには、

①セメント系材料（モルタル）自身

②打継などによるセメント系材料内の界面である同一材料界面

③廃棄体とセメント系材料間という異種材料の境界面である異種材料間界面

それぞれのガス移行特性を考慮した気液二相流解析や力学を連成させた二相流解析を行う必要がある。

そのためには、構成材料の気液二相流特性データ（透水・透気係数、モデルパラメータ等）の取得が必須である。

廃棄体間がセメント系充填材で充填されるため、そこに異種材料間界面が介在することになる。

本検討においては、これらのパラメータ取得・評価法の確立に向けた基礎データ取得を目的に、人工バリアの構成材料である廃棄体パッケージの充填材として想定されているモルタル材料の特にガス移行過程（排水過程）の詳細な挙動把握に主眼を置いた気液二相流特性データ取得試験を実施し、その結果を整理した。

(1) ガス移行に係るセメント系材料（モルタル）の基本特性の把握に関する検討

モルタルの水分特性を把握するために、加圧チャンバー法とサイクロンメータ法により水分特性試験を実施した。モルタルの配合表を表 6.2.2-1 に示す。

表 6.2.2-1　モルタルの配合

ケース	W/C (%)	S/C (−)	単位重量(kg/m³)					計測値
			W	C	S	混和剤 (×1000)	消泡剤 (×5)	エア量 (%)
混和剤有	65	1.5	407	626	938	5.2	2.1	11.8
混和剤無	65	1.5	407	626	938	なし	2.1	10.5

水分特性曲線を図 6.2.2-2 に示した。体積含水率θ（飽和度 S_r）は pF の増加とともに減少し，風乾状態ではほぼ 0 の値を示した。

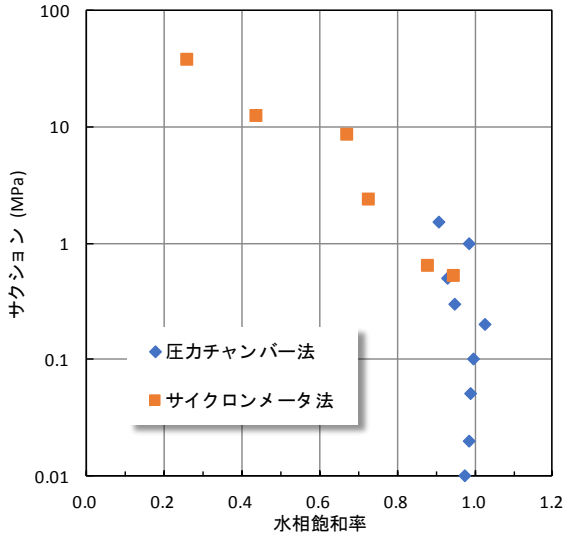


図 6.2.2-2　水分特性試験結果

水分特性曲線の解析にあたり、測定データを次に示す van Genuchten (1980)式（以下，VG 式）[11]で回帰した。

$$\theta(\psi) = \theta_r + (\theta_s - \theta_r)\left[\frac{1}{1+(\alpha|\psi|)^n}\right]^m \qquad \text{式 6.2.2-1}$$

ここで、θ_s：飽和体積含水率($cm^3\ cm^{-3}$)，θ_r：残留体積含水率($cm^3\ cm^{-3}$)，α, n, m (=1-1/n)：フィッティングパラメータである。

VG 式による回帰を図 6.2.2-3 に示した。各回帰式のパラメータを表 3.3-2 に示した。VG 式により，pF >4.0 の高 pF 領域を除き、測定データを比較的精度良く回帰できることが分かった。

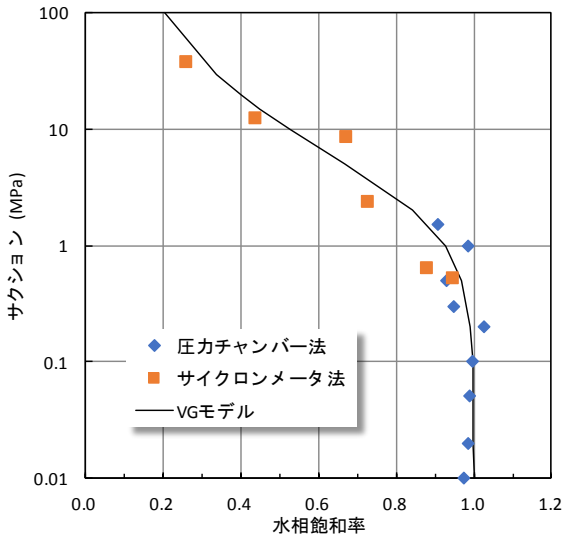


図 6.2.2-3　水分特性曲線（VG モデル近似）

(2) 界面（同一材料間の打継ぎ面・廃棄体容器表面との接触面）を対象とした検討

1) 同一材料界面を含むセメント系材料のガス移行特性に関する検討

人工バリア内での卓越したガス移行経路になることが想定される充填材（セメント系材料であるモルタル）の打継面について、水平打継面（HJ シリーズ）と鉛直打継面（VJ シリーズ）を模擬して供試体を作成した。

試験ケースを表 6.2.2-2 に示す。

表 6.2.2-2　同一材料界面透気試験のケース一覧

Case	打継J	混和剤T	透気条件
HJ-S	水平HJ	無	水飽和S
HJ-T-S	水平HJ	有T	水飽和S
HJ-D	水平HJ	無	絶乾D
HJ-T-D	水平HJ	有T	絶乾D
NJ-S	無NJ	無	水飽和S
NJ-T-S	無NJ	有T	水飽和S
NJ-D	無NJ	無	絶乾D
NJ-T-D	無NJ	有T	絶乾D
VJ-T-S	鉛直VJ	有T	水飽和S
VJ-T-D	鉛直VJ	有T	絶乾D
NJ2-T-S	無	有T	水飽和S
NJ2-T-D	無	有T	絶乾D

a.　鉛直打継界面

鉛直打継面は、直径 100mm のサミット管に 24 時間の間隔を置いて 2 回打設を行うことにより作成した。鉛直打継モルタル（VJ および NJ2 シリーズ）は混和剤を用いたものだけで作成した。ただし、混和剤の量を 75%と 50%としたものを含んでいる。

写真 6.2.2-1 から写真 6.2.2-6 に鉛直打継界面供試体の作製状況を示す。



写真 6.2.2-1　1 次打設状況（打継面）



写真 6.2.2-2　打継状況

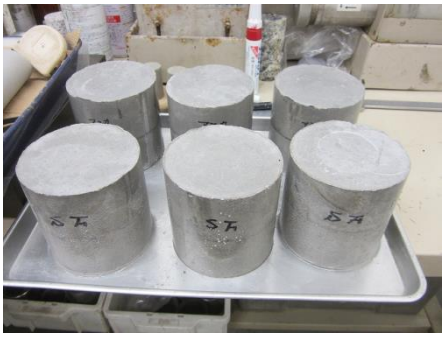


写真 6.2.2-3　脱型状況

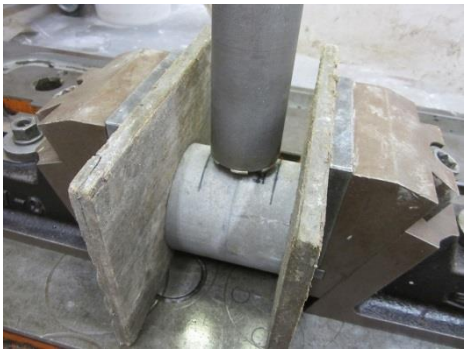


写真 6.2.2-4　コアリング状況



写真 6.2.2-5　整形された供試体

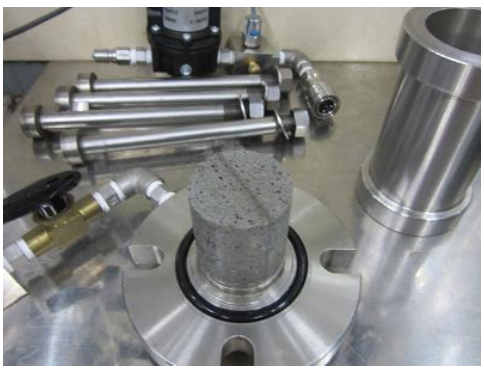


写真 6.2.2-6　供試体セット状況

b.　水平打継界面

水平打継面は、幅 60mm、高さ 100mm、長さ 500mm の型枠に端部より約 40mm 厚でモルタルを打設し、24 時間後にさらに 40mm 厚で打設により作成した打継面である。水平打継面の作成に当たっては、ブリージングを許容するように水中不分離性混和剤（アスカクリーン；信越化学

工業㈱製、以下混和剤と略す）を用いないケースを実施することにより、材料分離による打継面の状態にバラつきを持たせた。

水平打継面の作製状況を写真 6.2.2-7 と写真 6.2.2-8 に示す。

水平打継に関しては、材料分離を促進するために、混和剤を用いないケースも実施した。

写真 6.2.2-9 には、混和剤を用いた場合の打継面の状況、写真 6.2.2-10 には混和剤を用いない場合の打継面の状況を示した。

写真 6.2.2-11 と写真 6.2.2-12 にはそれぞれ混和剤有供試体と混和材無供試体を示した。



写真 6.2.2-7　水平打継面製作状況



写真 6.2.2-8　水平打継面製作状況



写真 6.2.2-9　混和剤有の打継面状況



写真 6.2.2-10　混和剤無の打継面状況

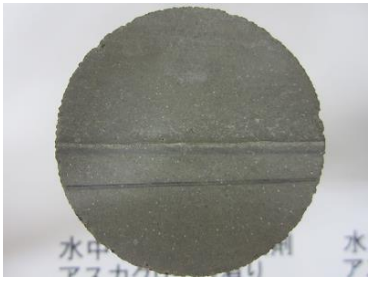


写真 6.2.2-11　混和剤有打継面供試体



写真 6.2.2-12　混和剤無打継面供試体

91 日水中養生の後、真空槽を用いた脱気浸水を 48 時間行い、透水試験を実施した後に初期透気試験を行った。初期透気試験において定常状態が得られたところで、水飽和の透気係数を算定した。その後、60℃の乾燥炉で 48 時間乾燥させた時点を絶対乾燥状態として透気試験を行い、透気係数を算定した。透水試験および透気試験の供試体は、直径 50mm×高さ 50mm で、ゴムジャケットを被せ、試験装置にセットした。ここで、側部から供試体への水の浸透を防ぐためにネオプレーンスリーブの厚さ 0.45mm の不透水メンブレンと厚さ 1.0mm の通常のメンブレンを二重にし、間には信越化学㈱製の信越シリコーン KF 96 を塗布し、さらにメンブレンの上から 1.0mm の針金で上下台座に固定し止水した。ゴムジャケットと供試体の間の通水防止のため、透水圧と側部拘束圧とは 0.2MPa 以上の差圧を負荷することとした。

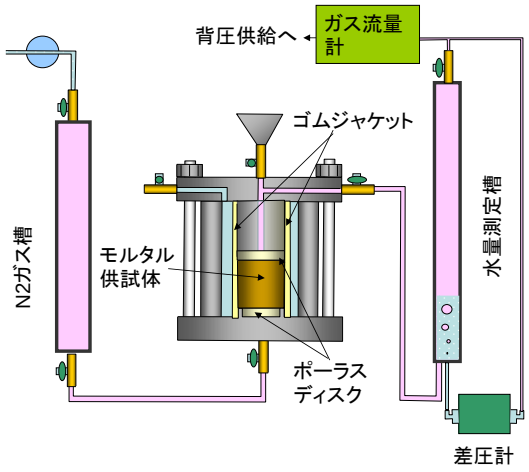


図 6.2.2-4　透気試験装置概念図

モルタル供試体の透気試験における時間～排水量関係と時間～透気量関係の一例を図 6.2.2-5 に示す。

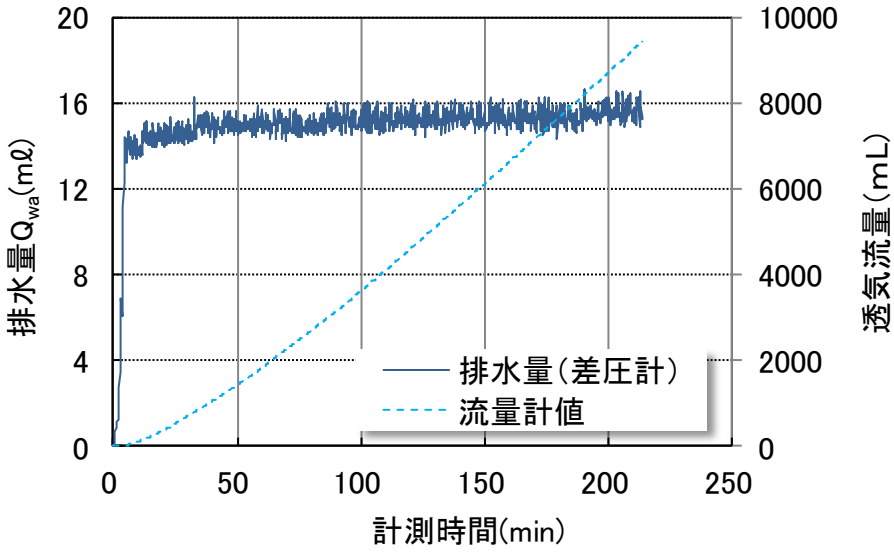


図 6.2.2-5　透気量および排水量測定例

図 6.2.2-5 のプロットで示す（透気）流量計値の定常状態区間から透気係数（水で飽和した多孔質媒体中におけるガス相の有効浸透率 K）を次式により算定した。

$$K = \frac{2Q\mu p_a}{A}\frac{L}{p_0^2 - p_L^2}$$

ここで、K：ガス相有効浸透率(m^2)、Qは大気圧下における透気体積(m^3)、μは気体の粘性係数（ここでは窒素を用いたので、$1.76\times10^{-5}(Pa\cdot s)$）、$A$は供試体断面積$(m^2)$、$L$は供試体の長さ$(m)$、$p_a$は大気圧$(Pa)$、$p_0$と$p_L$はそれぞれ供試体の気体入口と出口の境界圧力$(Pa)$である。

求めたガス相有効浸透率を有効間隙率(%)に対してプロットしたのが図 6.2.2-6 である。

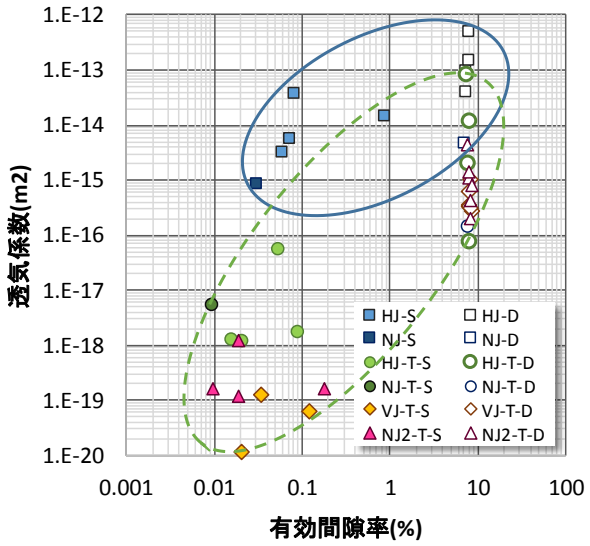


図 6.2.2-6　透気係数（ガス相有効浸透率 K）と有効間隙率の関係

色塗の印は、それぞれ透水試験後に窒素ガスを圧入した場合の初期の透気試験結果である。有効間隙率は、試験前の供試体重量 W_{int} と透気流量が定常となった状態で計測した供試体重量 W_{sat}、また、絶対乾燥状態での試験終了時の供試体重量を W_{dry} とし、初期有効間隙率は $W_{int}-W_{sat}$、絶乾状態での有効間隙率は $W_{int}-W_{dry}$ をそれぞれ V で除したもので定義した。白抜き印で示した絶乾状態の有効間隙率は混和剤の有無によらず 7.21～7.97%の範囲であった。初期透気試験での有効間隙率は、ほとんどのケースで 0.1%以下の小さな間隙をガスが透過していくものであった。混和剤が無いケース（実線で囲んだ範囲、マークで T 添え字の無いシリーズ）では、混和剤を用いたケース（破線で囲んだ範囲）と比べて明らかに透気係数が高くなり、飽和時と絶乾時の有効間隙率の差も小さい。1 点との比較となるが、打継無に比べて打継有は透気係数が大きい。一方、混和剤を用いたケースは、飽和時と絶乾時でおよそ 4 桁の違いがあるが、打継無と打継有供試体に明確な違いがない。従って、処分場スケールで材料特性を考える場合、充填材については、水飽和時から絶対乾燥状態まで同程度のバラ付を持って分布させることが考えられる。

水相飽和状態から乾燥状態までの不飽和状態での透気係数の変化を知るために水分特性を調べ

た結果を図 6.2.2-7 に示す。図には飽和時点での透気試験結果を併記してた。van Genuchten モデルで回帰できることが分かった。

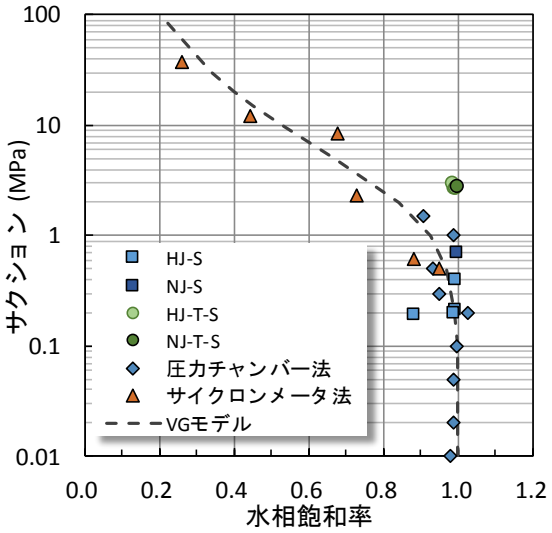


図 6.2.2-7　モルタルの水分特性

2）異種材料界面を含むセメント系材料のガス移行特性に関する検討

TRU 廃棄物（グループ 2）を収めたキャニスターは熱（80℃程度）を発することから、これに起因して熱を持った廃棄体容器（炭素鋼）周辺に打設された充填材（モルタル）は、比較的短時間で廃棄体と同一温度となることが予想される。そこで、炭素鋼板を入れた供試体（界面有供試体）を常温で打設し、写真 6.2.2-13 に示すようにモールドのまま耐熱性のビニール袋で密封し、80℃の熱水中に浸漬（封緘養生）することで、モルタルが廃棄体容器表面に接する状態を模擬した。



写真 6.2.2-13　熱水中へ浸漬するための封緘状況

その後、所定の期間養生を行い、常温で透水・透気試験を実施した。比較のため、炭素鋼板を入れない供試体（界面無供試体）について、常温の水中養生と 80℃熱水養生の 2 ケースを実施した。

80℃養生の影響を調べるために，別途一軸圧縮試験用供試体も作成した．さらに直径 50mm 高さ 100mm の一軸圧縮試験用供試体には，熱電対を挿入し，養生時の供試体内の温度を計測した．計測結果を図 6.2.2-8 に示す．水温 80℃の水槽に初期温度 25℃の供試体を浸漬すると 30 分で同一温度となり，2 時間後に 80℃に達して以降は定常状態が維持できていることを確認した。

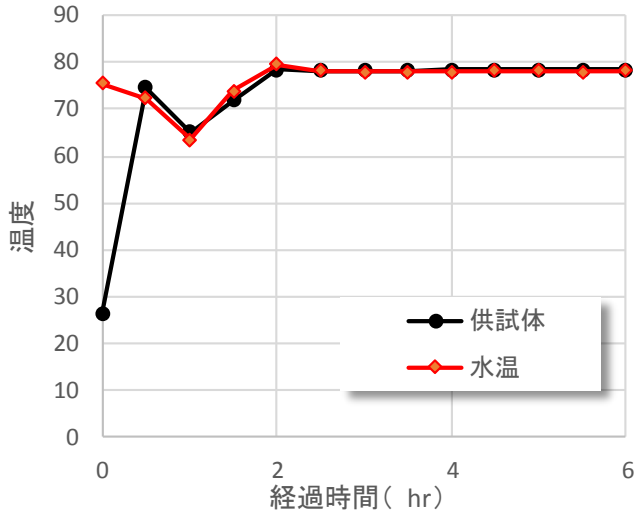


図 6.2.2-8　養生中の供試体温度

a.　一軸圧縮試験結果

養生温度の違いによる一軸圧縮強さと単位体積重量の計測結果を表 6.2.2-3 に示す。80℃養生では、28 日養生で 89%、91 日養生で 84%まで低下する。同様な実験結果[13]からは、80℃養生の圧縮強度は 20℃養生のそれの約 1/3 まで低下しており、今回の結果に比べて大きな低下を示している。

単位体積重量については、80℃養生の方が 28 日養生で 2%、91 日養生で 3%の低下で非常に小さいが、少なくともこの分 80℃養生の方が間隙が多いことになる。

表 6.2.2-3　一軸圧縮試験と単位体積重量試験結果

	一軸圧縮強さ（MPa）	
	28日	91日
20℃養生	21.26	26.00
80℃養生	18.95	21.94
	単位体積重量（kN/m^3）	
	28日	91日
20℃養生	0.1920	0.1926
80℃養生	0.1886	0.1863

b.　透水試験結果

透水試験から求めた透過係数を図 6.2.2-9 に示す。28 日養生では、養生温度によらず界面有供試体の方が 1 桁大きな透過係数となった。しかし、91 日養生の四角印の場合には 20℃養生と 80℃養生で大きな違いが出たが、界面の有無による違いは無いといえる結果となった。

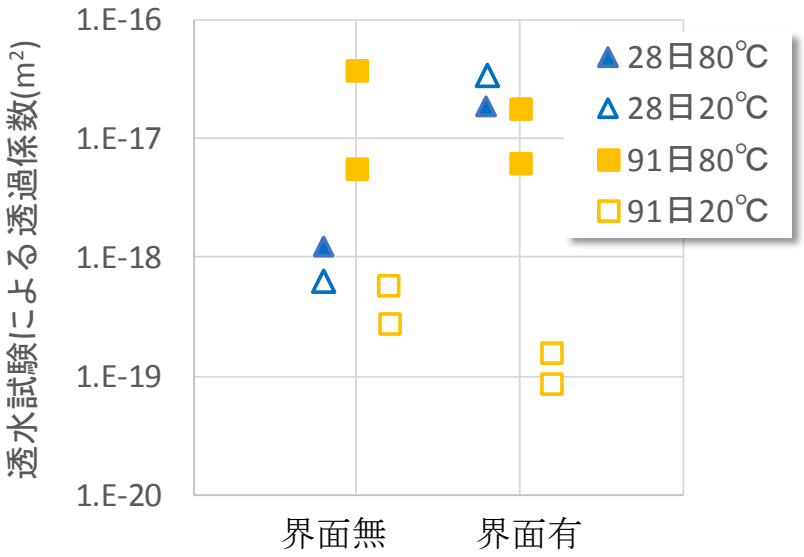


図 6.2.2-9　界面の有無と透水試験から求めた透過係数の関係

c.　透気試験結果

透水試験後の飽和状態からガスを透過させた試験における透過係数と界面有無の関係を示したのが図 6.2.2-10 である。プロットは全て 91 日養生のもので、80℃養生では、界面有供試体の透過係数が界面無供試体のものより大きい傾向にある。20℃養生では、バラつきが大きく、界面の影響は明確ではない結果となった。

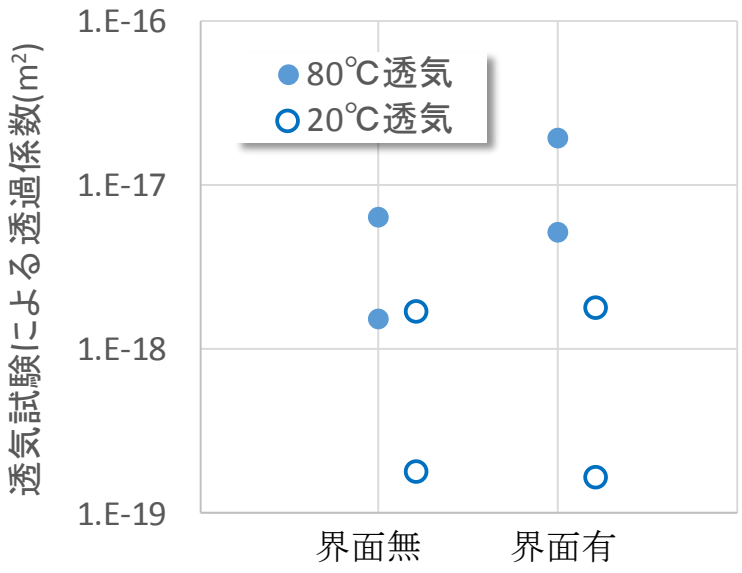


図 6.2.2-10　界面の有無と透気試験から求めた透過係数の関係

6.2.3　まとめ

(1) ベントナイト系材料に係るガス移行現象メカニズム解明

1) 低圧注入条件を対象とした検討

・　一方、ガス移行挙動の寸法効果の把握を目的とした大型供試体のガス移行試験では破過は生じず（ダイレイタンシーの作用を伴わず)、供試体へのガス侵入と間隙水の押し出しのみによって生じた「ガス移行フロント」と思われる水分分布状態が認められたことから、大破過を伴わない気液二相流のみを伴ったガス移行現象が生じ得る可能性が示唆された。

・　以上のようなガス移行試験で得られた知見を基盤に、平成 25 年度[5]および平成 26 年度[6]においては、供試体中に気液二相流のみが生じることを想定した低注入圧条件（ベントナイト供試体の平衡膨潤圧以下のガス注入圧）によるガス注入試験を実施し、表 4.2.1 1 に示すデータを取得・整理のうえ、取得目的の観点からガス移行挙動の評価を行った。

2) 界面（緩衝材ブロック間の隙間）を対象とした検討

・　界面を模擬した圧縮ベントナイト供試体を用い、人工バリアの再冠水過程およびガス移行過程の特性評価試験を実施した。

・　圧縮ベントナイト供試体の寸法（円筒形；φ60 mm、H 25 mm）に対し、模擬界面の幅を 1 mm および 3 mm（1.0m 四方のブロック寸法換算では約 18mm～54mm 程度の隙間に相当）としたガス移行試験を行った結果、両ケースとも再冠水過程を模擬した注水過程において界面は閉塞し、その透水特性（透水係数等）は無垢な状態と同等となるが、ガス移行特性は界面 1mm 幅に対して 3mm 幅の方が破過圧が低くなることが分かった。

3) 不飽和力学特性に関する検討

・　人工バリアシステムの構成材料のうち、底部緩衝材の候補材料となっているベントナイト・砂混合材料を対象に、当該材料のガス移行特性評価で重要な指標である水分特性（飽和度とサクションの関係）および力学特性（膨潤、収縮、圧密、せん断強度特性）の飽和度（サクション）依存性を把握するため、各種試験を実施した。

・　このうち収縮、圧密特性については、飽和度の上昇（サクションの減少）に伴って大きくなる（収縮、圧密され易くなる）一方、せん断特性のうち内部摩擦角は飽和度によらず（サクション変化によらず）一定である（材料そのものの強度特性に依存する）ことが分かった。

(2) その他材料（セメント系材料）に係るガス移行現象メカニズム解明

・　セメント系材料のガス移行特性を把握するために、「①セメント系材料（モルタル）自身」、「②打継などによるセメント系材料内の界面である同一材料界面」、③廃棄体とセメント系材料間という異種材料の境界面である異種材料間界面それぞれのモルタル供試体を作製して、透気試験によってガス移行特性を検討した。

・　その結果、以下のような知見が得られた。

①　セメント系材料（モルタル）自身については、土質材料等で提案された不飽和水分特性を用

いて、透気特性を表現することが可能である。

② 同一材料界面については、混和剤を用いず材料分離を許すようなモルタルの場合は、目視では密着していたような打継面であっても無垢の材料と比較してガス相有効浸透率が 4～44 倍程度まで上昇したことから、打継面がガスの卓越した移行経路になる可能性がある。その一方で混和剤を用い、材料分離を抑制したモルタルの場合には、その打継面の透過性は無垢の材料程度であったことから、ガスの卓越した移行経路となる可能性は小さく、寧ろ材料自身の品質に起因した透過性のバラつきを考慮すべきである。

③ 異種材料間界面については、充填材としての施工時の廃棄体の温度を考慮して 80℃養生を行って界面の影響を調べた結果、透気特性に関しては、実施工時の温度条件に近い 80℃養生の方が常温養生時と比較して透過性が大きくなり、その条件に加えて界面が有る方が更に透過性が大きくなったことから、当該条件においてはガスの移行経路となる可能性がある。

・ 以上の知見から、今後の課題としては廃棄体の温度を考慮した状態でのモルタル自身の二相流パラメータの取得、同一材料における打継面の高温状態での二相流パラメータの取得を実施していく必要がある。

6.3　ガス移行連成挙動解析ツールの高度化（解析検討等）

本節は、平成 19 年度から平成 24 年度にかけて検討した「ガス移行挙動の評価」[4]におけるガス移行挙動の解析手法・モデル化の高度化研究成果を基盤として、TRU 廃棄物処分システム（人工バリア）におけるガス移行の連成挙動を評価可能な解析ツールの高度化を推進し、残された課題の解決に取り組んだ一連の成果を取り纏めたものである。

主な課題は以下の通りである。

- 水分状態と関連付けた 2 相流パラメータの動的変化のモデル化と実測データによる検証
- 媒体変形と水・ガス 2 相流れの挙動を関連付ける構成モデルの開発・検証（力学連成）
- ガス発生機構のモデル化（腐食反応、酸素消費、微生物活動の影響など）
- セメント系材料、岩盤、材料界面などを対象としたガス移行挙動の実態解明
- ガス移行挙動に関連する素過程及び関連パラメータのフィールドスケールへの適用性検討

次項以降に、これらの課題解決のために実施した取り組みと成果の概要について述べる。

6.3.1　ベントナイト系材料特性のモデル化

ベントナイト系材料特性のモデル化では、ベントナイト系材料のパラメータの蓄積と同定パラメータの適用性や次元性、不均質性、アップスケーリングに対しての評価を目的とし、以下に示す項目について検討を行った。

- 実測データに基づく確証計算と蓄積
- 同定パラメータを用いた異なる試験条件への適用性検証
- 解像度の相違によるガス移行解析への影響検討
- 材料界面を模擬した供試体による確証計算

これらの検討を通じて得られた成果は次のようにまとめられる。

実測データを用いた確証計算を通じて、これまでに開発、検証してきた流路拡幅モデルの適用性を改めて確認することができた。その結果、本検討を通じて、湿潤過程 11 パターン（図 6.3.1-1）、排水過程 5 パターン（図 6.3.1-2）のパラメータの組合せを蓄積した。一連の確証計算を通じて、平成 19 年度から平成 24 年度にかけて検討した「ガス移行挙動の評価」において同定されたものと大きく異なるパラメータが得られることは無く、不確実性の幅が絞り込まれてきていることを確認することができた。

また、異なる試験条件（低圧入条件）下であっても、これまでに同定してきたパラメータの範囲内で現象の説明が可能であることを確認した（適用性を確認）（図 6.3.1-3）。

さらに、人工バリアの 2 次元鉛直断面モデルを用いたガス移行解析を通じて、格子解像度（格子数）を大きく変えても結果に対する影響は大きくなく、パラメータの適用性を確認することができた（図 6.3.1-4）。

材料界面を模擬した供試体であっても、ベントナイトの膨潤によって、材料界面が無い供試体と同等の挙動を示すことが分かった。

今後の課題としては、実スケールに適用した際の適用性の検証や不均質性の評価が挙げられる。

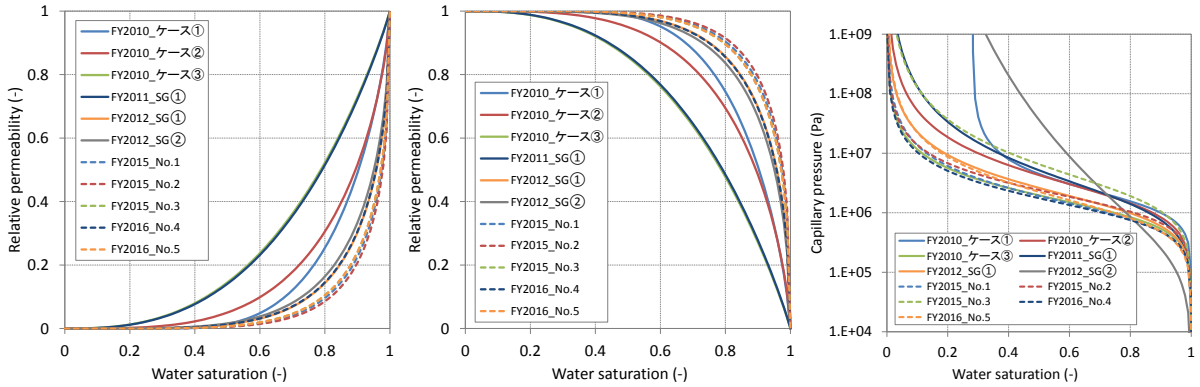


図 6.3.1-1　湿潤過程の同定 2 相流パラメータ（上段：相対浸透率、下段：毛細管圧力）

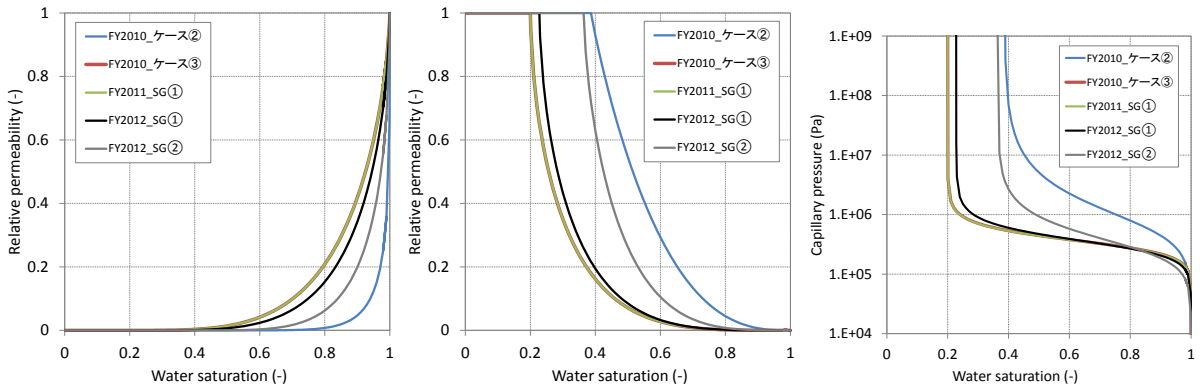


図 6.3.1-2　排水過程の同定 2 相流パラメータ（上段：相対浸透率、下段：毛細管圧力）

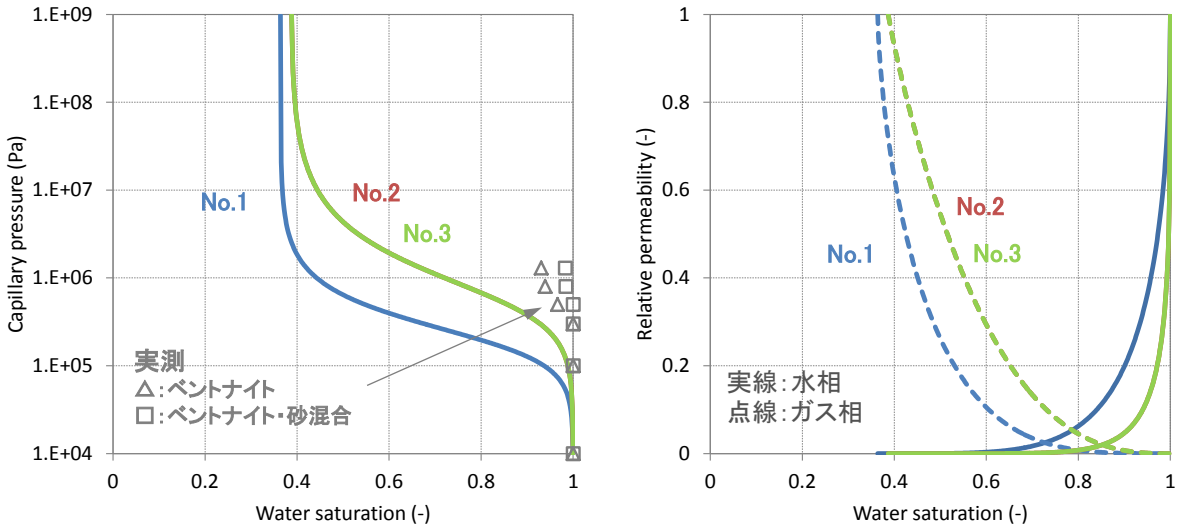


図 6.3.1-3　低圧入条件下の試験データを対象とした再現解析によって同定されたパラメータ

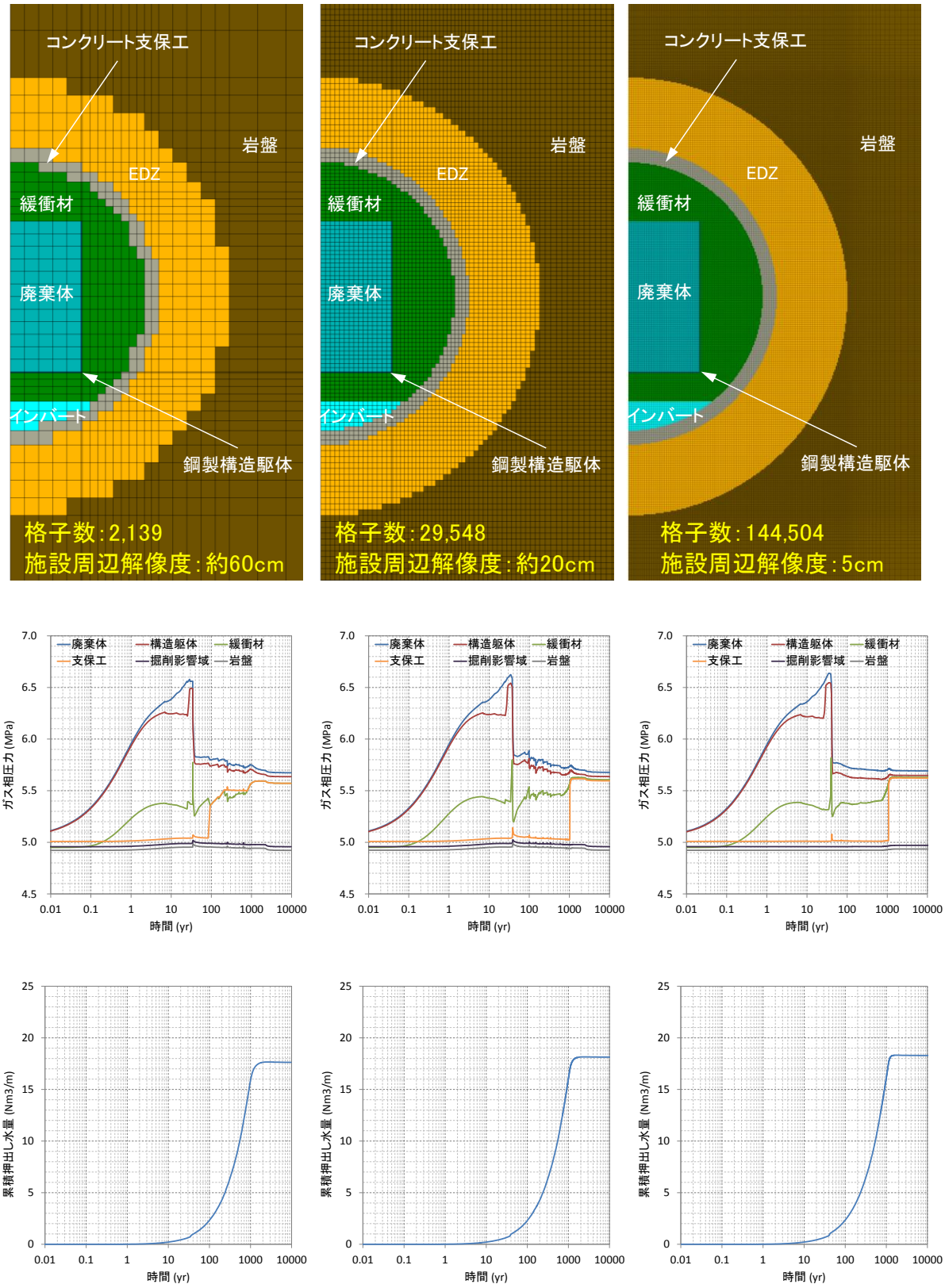


図 6.3.1-4　格子解像度の異なるモデルによるガス移行解析結果

6.3.2　材料特性モデルを反映したガス移行解析と挙動評価

セメント系材料特性のモデル化では、ベントナイト系材料以外のパラメータの蓄積を目的とし、セメント系材料を用いた室内ガス移行試験の確証計算を実施した。

この検討を通じて得られた成果は次のようにまとめられる。

セメント系材料の室内ガス移行試験データを通常の水・ガス 2 相流モデルによって再現することが可能であることが分かった。確証計算を通じて、排水過程のセメント系材料のパラメータの組合せ 13 パターンを同定することができた（図 6.3.2-1）。

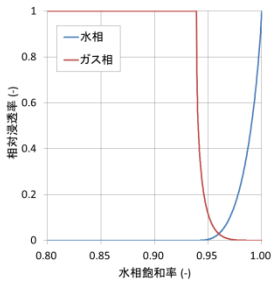
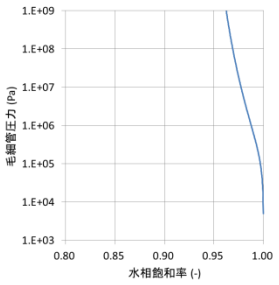
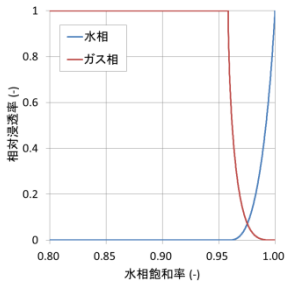
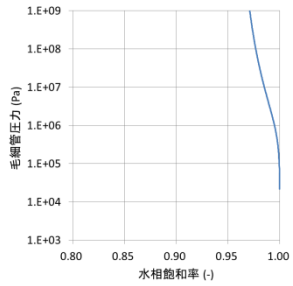
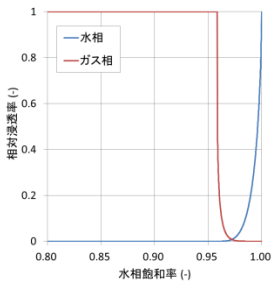
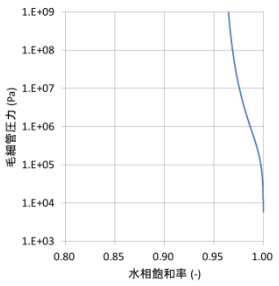
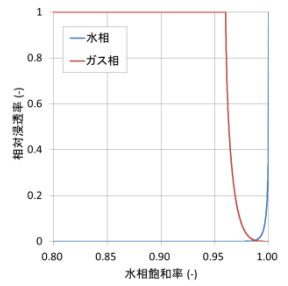
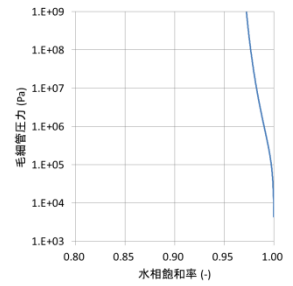
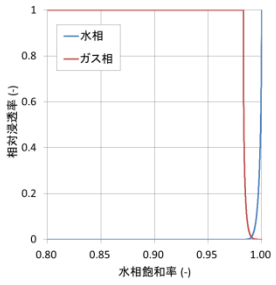
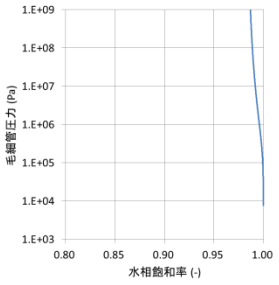
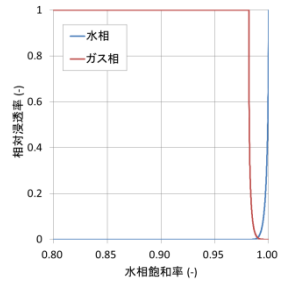
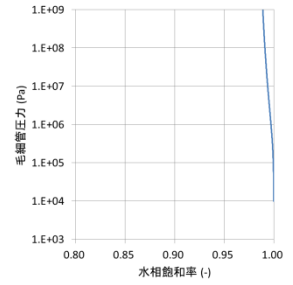
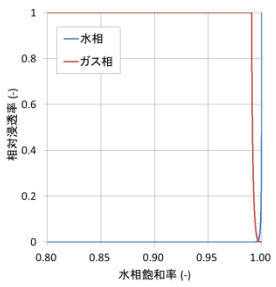
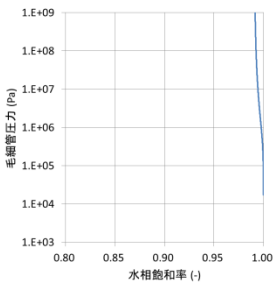
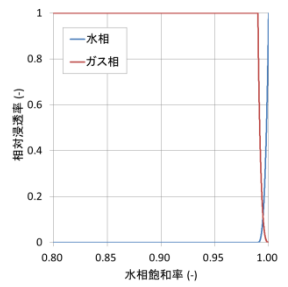
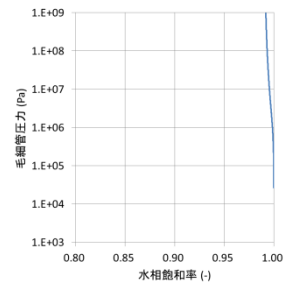
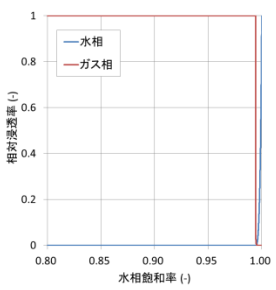
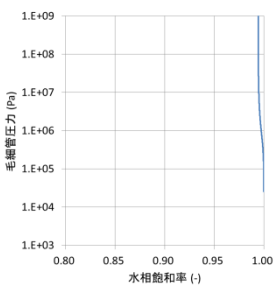
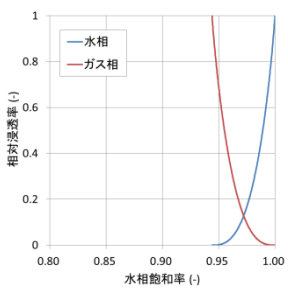
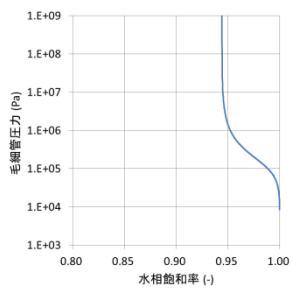
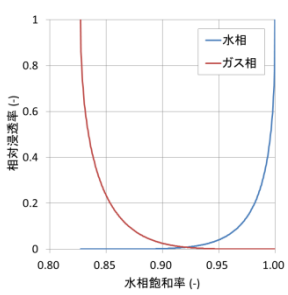
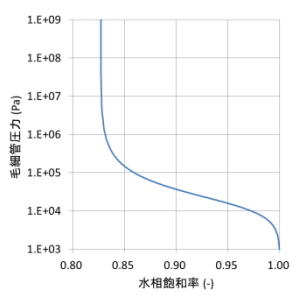
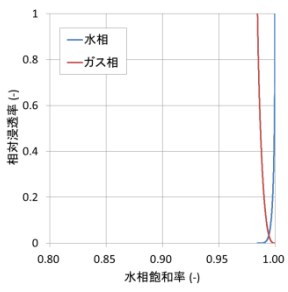
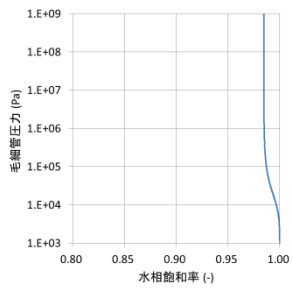
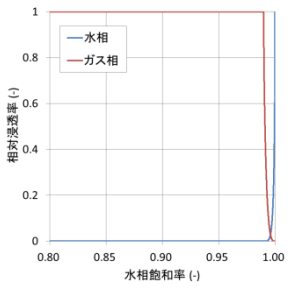
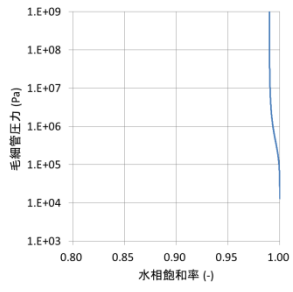
2016 年度			2017 年度		
ケース名	相対浸透率	毛細管圧力	ケース名	相対浸透率	毛細管圧力
配合ケース 1 打継無			混和剤有り No.3		
配合ケース 2 No.1			混和剤有り No.4		
配合ケース 2 No.2			混和剤有り No.5		
配合ケース 2 打継無			混和剤有り 打継無		
配合ケース 4 No.1			混和剤無し No.3		
			混和剤無し No.4		
			混和剤無し No.5		
			混和剤無し 打継無		

図 6.3.2-1　セメント系材料の同定された 2 相流パラメータ

6.3.3　材料特性モデルを反映したガス移行解析と挙動評価

材料特性モデルを反映したガス移行解析と挙動評価では、データ（材料パラメータ）やモデルの不確実性を考慮し、実スケールのガス移行挙動評価のモデル化方法の整備を目的とし、以下に示す項目について検討を行った。

- 2 次元鉛直断面モデルと 3 次元モデルによる次元性の検討
- 解像度の相違によるガス移行解析への影響評価
- ガス発生モデリング
- 最新のパラメータを反映したガス移行解析

これらの検討を通じて得られた成果は次のようにまとめられる。

2 次元鉛直断面モデルと 3 次元モデル（図 6.3.3-1）による次元性の検討では、3 次元で評価した際の主要なガス移行経路を 2 次元断面モデルで表現できない場合には、ガス移行解析結果（排水量等）が大きく異なることに留意する必要があるという結果が得られた（図 6.3.3-2）。

また、既に「6.3.1　ベントナイト系材料特性のモデル化」で示したように、人工バリアの 2 次元鉛直断面モデルを用いたガス移行解析を通じて、格子解像度（格子数）を大きく変えても結果に対する影響は大きくなく、パラメータの適用性を確認することができた（図 6.3.1-4）。

ガス発生モデリングでは、鉄の腐食による水素ガス発生のモデリング検討を実施し、pH 等の環境が異なる場合の検討を実施した。但し、金属腐食ガスの生成のみを考慮したモデリングであり、水の放射性分解等、その他のガス発生機構は考慮されていない。

最新のパラメータを反映したガス移行解析では、これまでに同定されたパラメータを全て反映したガス移行解析の結果、第 2 次 TRU レポートで示された最大ガス圧より低下し、累積排水量は増加することが示された。

今後の課題としては、最もガス移行解析に影響を及ぼすガス発生に関するモデリング手法の高度化と、施設内の力学影響や長期変遷（THM、THC 連成事象）を考慮したガス移行解析評価が挙げられる。

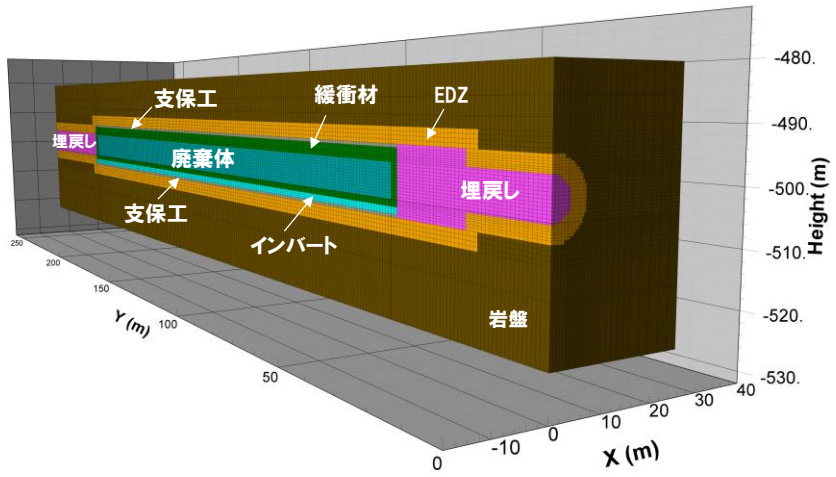


図 6.3.3-1　TRU 廃棄物処分システムを対象とした 3 次元モデル

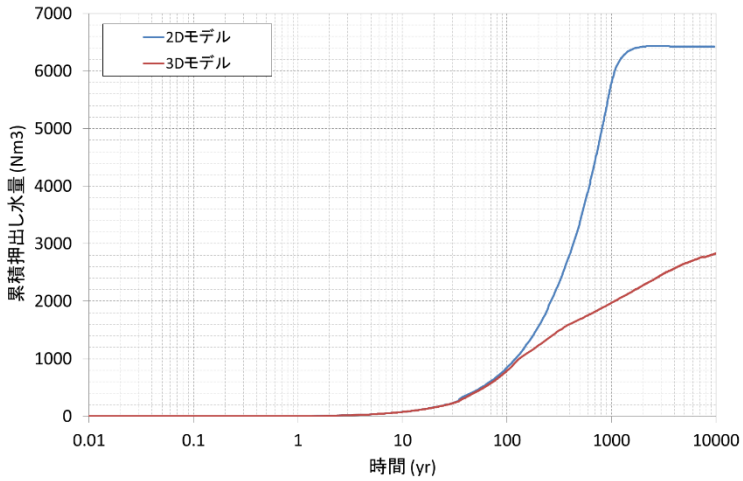


図 6.3.3-2　2 次元断面モデルと 3 次元モデルによるガス移行解析結果比較

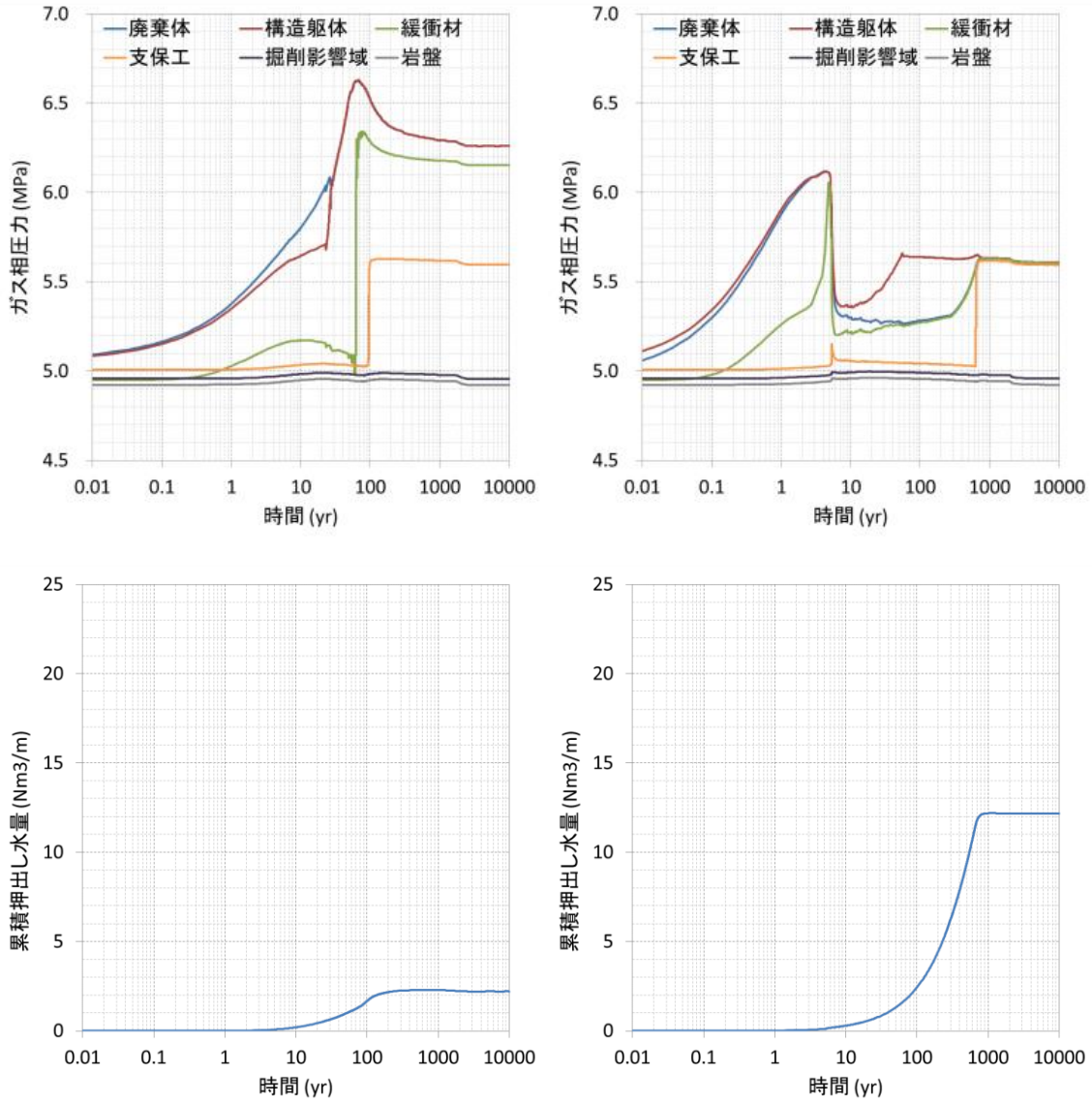


図 6.3.3-3　第 2 次 TRU レポート及び最新の同定パラメータによるガス移行解析結果の比較

6.3.4　まとめ

(1) ベントナイト系材料特性のモデル化

ベントナイト系材料特性のモデル化検討の当初の目的と実施内容、到達点、及び、残された課題を表 6.3.4-1 のように整理した。

(2) その他（ベントナイト系以外）の材料特性のモデル化

その他（ベントナイト系以外の）材料特性のモデル化検討の当初の目的と実施内容、到達点、及び、残された課題を表 6.3.4-2 のように整理した。

(3) 材料特性モデルを反映したガス移行解析と挙動評価

材料特性モデルを反映したガス移行解析と挙動評価について、当初の目的と実施内容、到達点、及び、残された課題を表 6.3.4-3 のように整理した。

表 6.3.4-1 ベントナイト系材料特性のモデル化検討まとめ

当初の目的	■ ベントナイト系材料のパラメータの蓄積 ■ 同定パラメータの評価（適用性、次元性、不均質性、ｱｯﾌﾟｯｽｹｰﾘﾝｸﾞ）
実施内容	■ 実測データに基づく確証計算と蓄積 ■ 同定パラメータを用いた異なる試験条件への適用性検証 ■ 解像度の相違によるガス移行解析への影響検討 ■ 材料界面を模擬した供試体による確証計算
到達点	■ これまでに開発、検証してきた流路拡幅モデルの適用性を改めて確認 ■ 湿潤過程 11 パターン、排水過程 5 パターン（図 6.3.4-1）のパラメータの組合せを蓄積[5][6][7][8][9] ■ 人工バリアの 2 次元鉛直断面モデルを用いたガス移行解析を通じて、格子解像度（格子数）を大きく変えても結果に対する影響は大きくなく（図 6.3.4-2）、パラメータの適用性を確認[5] ■ 確証計算を通じて、これまでに同定されたものと大きく異なるパラメータが得られることは無く、不確実性の幅が絞り込まれてきていることを確認[5][6][7][8][9] ■ 異なる試験条件（低圧入条件）下であっても、同定パラメータの範囲内で現象の説明が可能であることを確認（適用性を確認）（図 6.3.4-3）[6] ■ 材料界面を模擬した供試体であっても、ベントナイトの膨潤によって、材料界面が無い供試体と同等の挙動を示した[8][9]
残された課題	■ 実スケールにおける不均質性評価 ■ 実スケールへの適用性検証（アップスケーリング）

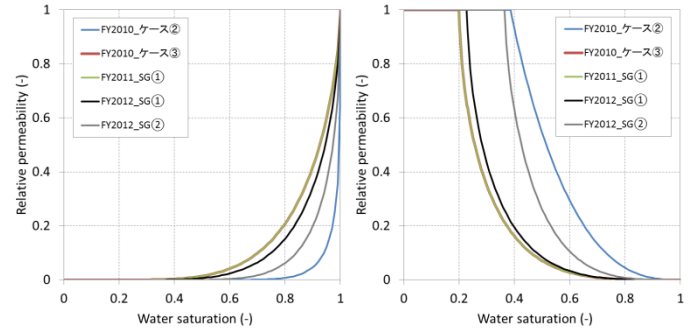


図 6.3.4-1 蓄積された相対浸透率曲線（排水過程）

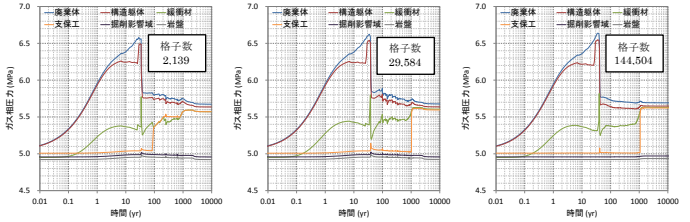


図 6.3.4-2 解像度（格子数）が異なるモデルによるガス移行解析結果

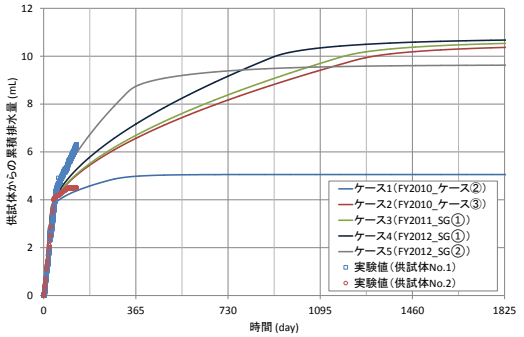
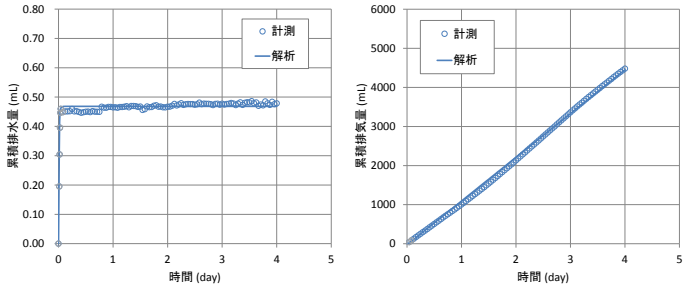


図 6.3.4-3 同定パラメータによる低圧入条件下ガス注入試験の再現結果

表 6.3.4-2　その他（ベントナイト系以外の）材料特性のモデル化検討まとめ

当初の目的	■ その他（ベントナイト系以外）の材料のパラメータの蓄積
実施内容	■ セメント系材料を用いた室内ガス移行試験の確証計算[5][6][7][8][9]
到達点	■ セメント系材料の室内ガス移行試験データを通常の水・ガス 2 相流モデルによって再現することが可能  （図 6.3.4-4）[5][6][7][8][9] ■ 排水過程のセメント系材料のパラメータの組合せ 13 パターンを同定（図 6.3.4-5）[8][9]
残された課題	■ セメント系材料に対してさらなるパラメータの蓄積 ■ 他材料（岩盤、埋戻し材）のモデル化方法整備とパラメータ蓄積

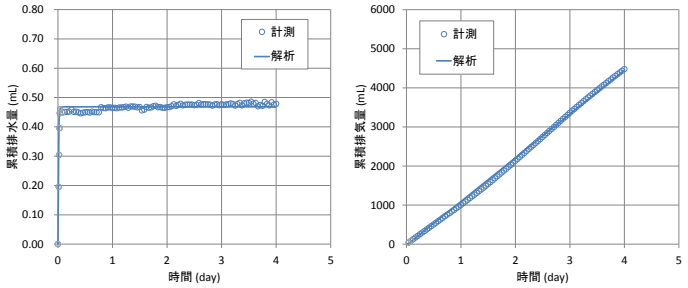


図 6.3.4-4　セメント系材料を用いたガス注入試験の再現結果

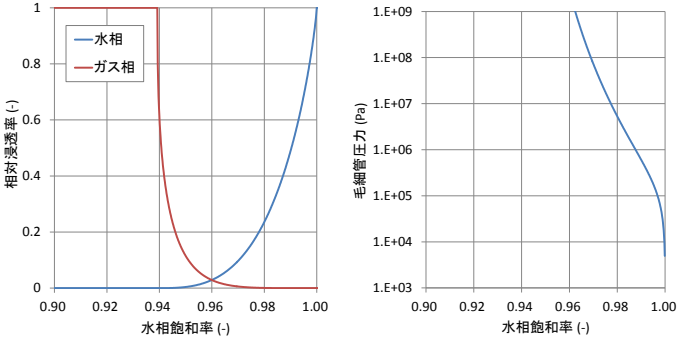


図 6.3.4-5　同定されたセメント系材料の相対浸透率と毛細管圧力曲線

表 6.3.4-3　材料特性モデルを反映したガス移行解析まとめ

当初の目的	■ データ・モデルの不確実性を考慮し、実スケールのガス移行挙動評価のモデル化方法整備
実施内容	■ 2 次元鉛直断面モデルと 3 次元モデルによる次元性の検討[6] ■ 解像度の相違によるガス移行解析への影響評価[5] ■ ガス発生モデリング[6][7] ■ 最新のパラメータを反映したガス移行解析
到達点	■ 3 次元で評価した際の主要なガス移行経路を 2 次元断面モデルで表現できない場合には、ガス移行解析結果（排水量等）が大きく異なることに留意する必要がある（図 6.3.4-6）[6] ■ 2 次元鉛直断面モデルを用いたガス移行解析を通じて、格子解像度を大きく変えても結果に対する影響は大きくなく（図 6.3.4-2）、パラメータの適用性を確認[5] ■ 鉄の腐食による水素ガス発生のモデリング検討を実施し、pH 等の環境が異なる場合の検討を実施[6][7] ■ これまでに同定されたパラメータを全て反映したガス移行解析の結果、第 2 次 TRU レポートで示された最大ガス圧より低下し、累積排水量は増加することが示された（図 6.3.4-7）[8][9]
残された課題	■ ガス発生モデリングの高度化 ■ 施設内の力学影響や長期変遷（THM、THC 事象）を考慮したガス移行解析

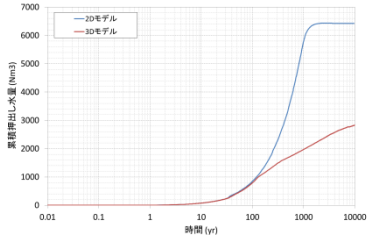


図 6.3.4-6　2 次元断面モデルと 3 次元モデルによるガス移行解析結果比較

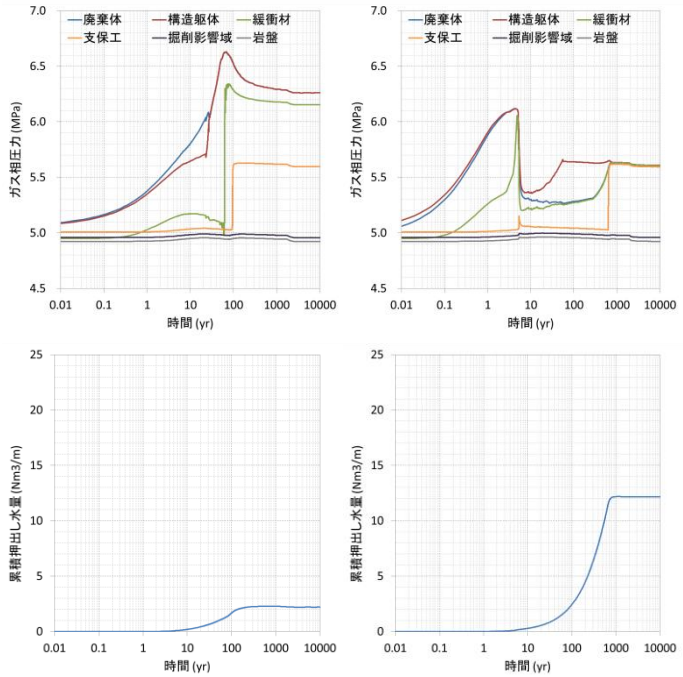


図 6.3.4-7　第 2 次 TRU レポート及び最新の同定パラメータによるガス移行解析結果の比較

6.4　ガス移行評価シナリオの拡充

本節は、平成 25 年度から平成 29 年度までに実施したガス移行評価シナリオの拡充[5][6][7][8][9]に関して、TRU 廃棄物処分の人工バリアシステム概念の成立性評価に資するための定量評価に用いるシナリオを以下の手順で検討し、その結果を取りまとめたものである。

6.4.1　ガス移行評価シナリオの拡張	平成 24 年度までの検討で、グループ 2 の廃棄物と人工バリア概念を対象に構築してきた状態変遷と場の理解に基づくハイブリッド・アプローチによるシナリオ設定手法について概説し、グループ 1,3,4 のシナリオを設定するとともに、関連する知見を根拠書として整理する。また、グループ 2 を含めて各シナリオの特徴を整理するとともに不確実性を抽出する。
6.4.2　評価体系の構築と重要 FEP の抽出	シナリオ設定手法に用いたシナリオ整理表を参照し、ガス挙動に着目した人工バリアシステムの成立性評価に係わる評価体系を構築したグループ 2 を対象に、評価体系を構成する作業における重要 FEP を設定し、それぞれに関連する不確実性を抽出するとともに、シナリオ設定での最も優先度の高い技術課題への対応策を検討する。
6.4.3　重要 FEP に基づく評価シナリオの再構築	シナリオ設定での重要課題としたガス発生に起因する複合プロセスに着目し、バリア機能の変遷とガス移行に係る重要 FEP を用いて人工バリアの成立性を定量的に評価するグループ 2 を対象とするシナリオを再構築する。再構築したシナリオを用いて、成立性評価作業の次段階となる評価ケースとモデル選定に展開するために着目する複合プロセスとモデルとの関係を検討する。
6.4.4　まとめ	6.4.1～6.4.3 の検討成果を取りまとめ、定量評価に向けてのシナリオ、評価ケース、不確実性への対応を整理する。

6.4.1　ガス移行評価シナリオの拡張

平成 24 年度までの検討では、TRU 廃棄物の地層処分を対象にガス発生が人工バリアシステムの安全機能に与える影響を評価するために必要となるガス移行評価シナリオの設定方法について、グループ 2 の人工バリア概念を対象に検討してきた。従来の安全評価のシナリオ設定では、安全性に係る構成要素の特性（Features）、関連するプロセス（Processes）や事象（Events）

（以下「FEP」という）を用いて、専門的な判断で設定してきたが、本検討で構築したハイブリッド・アプローチによるシナリオ設定方法では、図 6.4.1-1 に示すように、評価対象となる人工バリアシステムの状態変遷の理解から開始し、安全機能への影響の観点から重要と判断される FEP を統合 FEP として集約し、それらを用いて想定される状態変遷を、統合 FEP の時系列的な関連図として構築することでシナリオを作成する手法である[10]。この方法は、OECD/NEA の推奨するトップダウンでのシナリオ設定手法[19]や原環機構が検討を進める HLW 処分のシナリオ設定方法[20]とも整合している。

核種移行に関するガス発生の影響については、FORGE でも提唱されているが[21]、対象とする処分環境、人工バリアシステムを含む処分場概念の構成要素の時系列的な変遷に伴う媒体の変化の理解が重要な作業となる。

(1) ハイブリッド・アプローチによるシナリオ設定手法

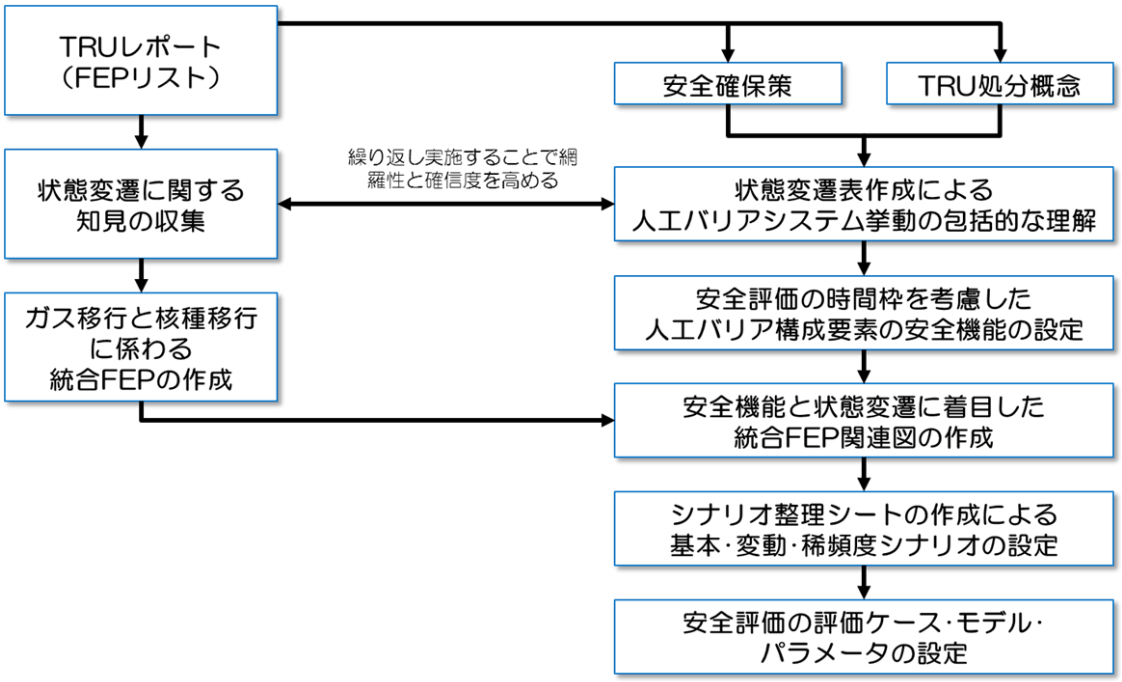


図 6.4.1-1 ハイブリッド・アプローチによるシナリオ設定手法[10]

平成 24 年度から 26 年度にわたって、ハイブリッド・アプローチによる設定手法に沿って、TRU 廃棄物の四つのグループを対象に状態変遷表を作成し、統合 FEP とその関連図に基づきシナリオを作成してきた。以下に手順に沿ったシナリオ構築例を示す。

① 時系列状態変遷表と根拠書整理シートの作成

時系列状態変遷表は、縦軸に評価対象とする人工バリアシステム構成要素（廃棄体、容器、充填材、ベントナイトバリアなど）、横軸に着目する評価の時間枠を専門的な判断で設定し、それぞれの枠を、温度（T）、水理（H）、力学（M）、化学（C）、放射線（R）、微生物（B）、ガス（G）に分け、現状の知見で状態変遷を記述するとともに、関連する知見の情報データとして「根

拠書整理シート」を整備している。状態変遷表の記述事項に対応して整備した根拠書整理シートは、シナリオの拡充検討の一環として対象廃棄物グループに係る知見の取得に従いデータベースとして追記してきた。

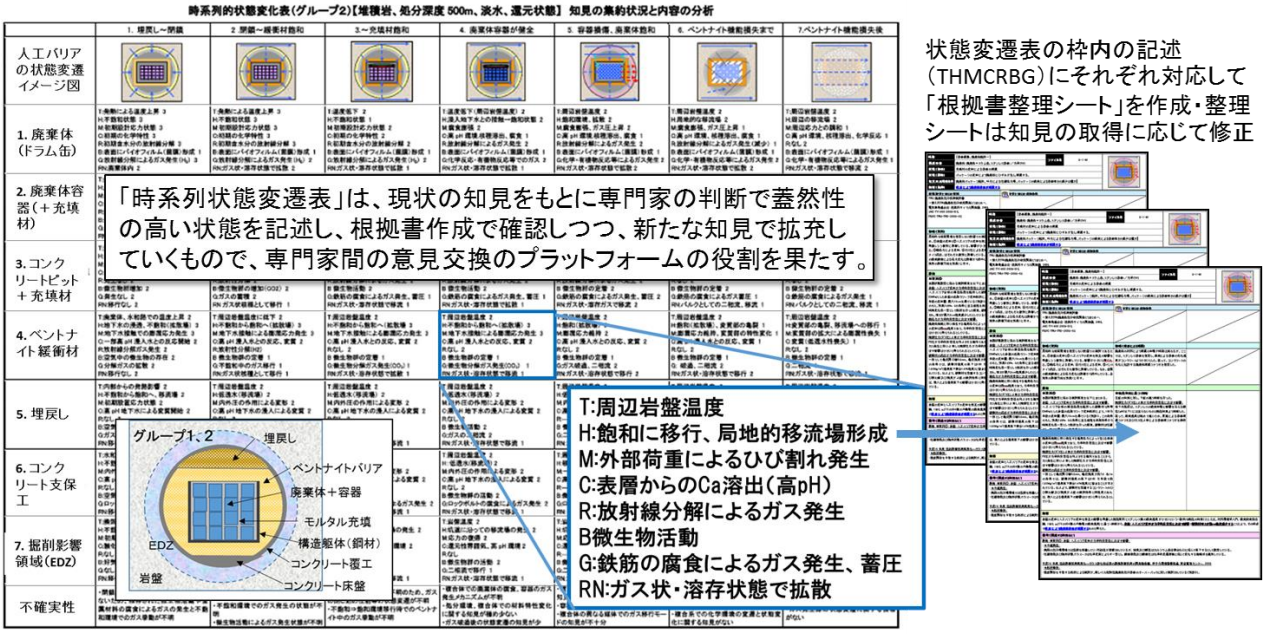


図 6.4.1-2 グループ 2 を対象とした状態変遷表と根拠書整理シート作成例[10]

② 人工バリアシステムに期待する安全機能の設定

評価シナリオ構築のベースとなる TRU 処分人工バリアの安全機能の展開を以下に設定した。ガス発生とその移行は、核種移行に対する安全機能を有する媒体で発生し、場合によっては機能に影響を与える可能性がある。

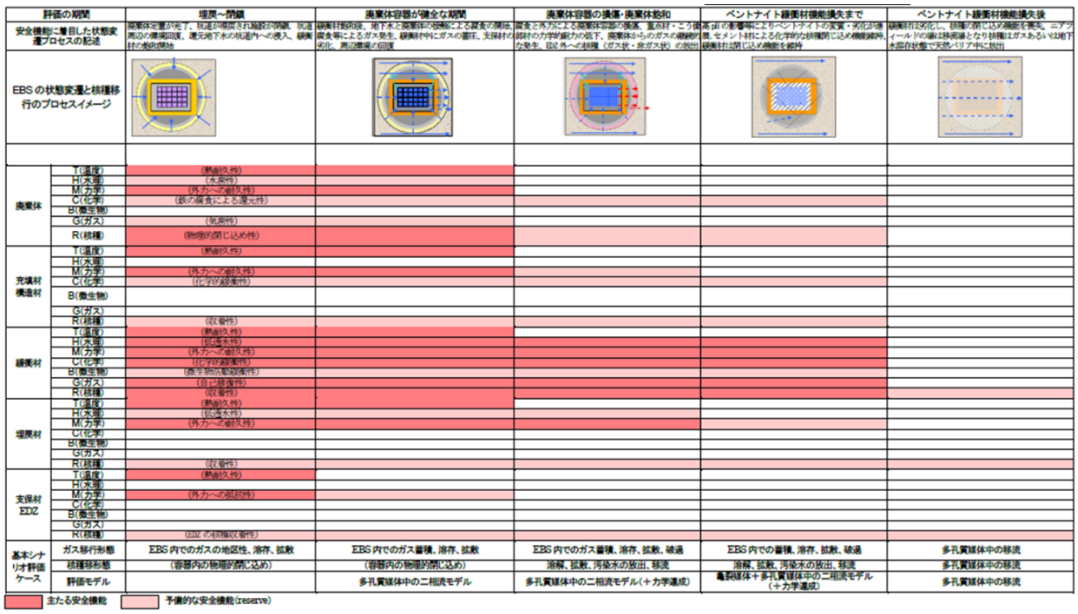


図 6.4.1-3 人工バリアシステムの安全機能とその展開例[10]

③ 統合 FEP 作成と関連図の作成

統合 FEP は状態変遷表から人工バリアの安全機能への影響評価を考慮して抽出した重要 FEP の集合体から構成される。ガス移行に関しては a.～f. の統合 FEP が設定でき、それぞれの関係を状態変遷に従ってガス移行と放射性核種移行の関連図として構築していくことになる。

a. **ガス発生**：ガス発生のソースタームとしては、様々な種類の廃棄物（金属、有機物など）、鋼製容器、鉄筋コンクリート、ロックボルトとなどが考えられ、様々な発生メカニズムが存在する。

b. **廃棄体容器内ガス挙動**：容器内でのガス挙動を支配するのは、充填材の種類と密度、間隙の大きさ、飽和度、容器の劣化変質プロセスとなる。

c. **コンクリートピットと充填材内ガス挙動**：コンクリートピットと内部のモルタル充填材の密度、時間とともに変化する亀裂状態と間隙の大きさがガス挙動に影響を及ぼすと考えられる。

d. **ベントナイト内ガス挙動**：ベントナイトの有効密度、厚さ、形状によりガス挙動のモードが変化する。ベントナイトの変質によりガス挙動の支配的なモードも変化する。

e. **掘削影響領域（EDZ）内ガス挙動**：亀裂の分布、間隙分布、飽和度によりガス挙動は影響を受ける。

f. **人工バリア亀裂内ガス挙動**：亀裂の密度、連続性、飽和度によりガス挙動は影響を受ける。

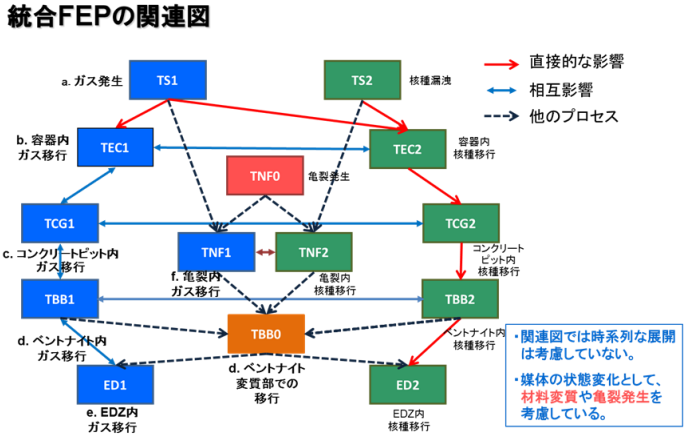


図 6.4.1-4 統合 FEP と関連図の作成例[10]

④ 状態変遷表に基づく統合 FEP 関連図とシナリオ整理表の作成

状態変遷表をベースに、着目するバリア等の時系列的な特性変化を、統合 FEP 関連図を用いて整理することで、図 6.4.1-5 に示すシナリオを作成することができる。ガス挙動に係るシナリオの特徴としては、環境やバリアの特性変化に従い、評価シナリオも変化していく点である。この変化の時期や程度については、場の理解やモデルを用いた予測となる。

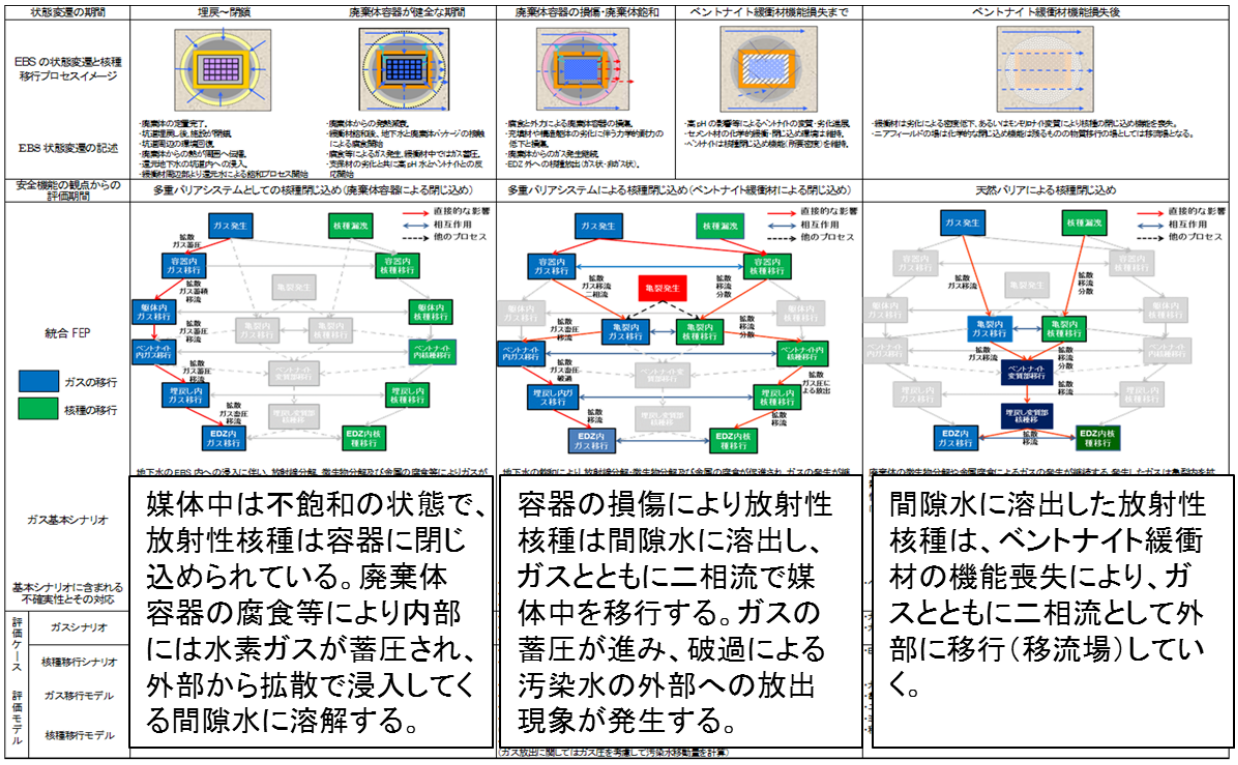


図 6.4.1-5 グループ 1 と 2 を対象とした統合 FEP 関連図の展開とシナリオ設定例[10]

各廃棄物グループで設定されたシナリオをベースに、ガス発生の特性、媒体の変化を可視的に示し、評価ケースやモデル設定への展開を記述するシナリオ整理シートを作成した。このシートにより、ガス移行と核種移行に係る状態変遷を容易に把握することができる。

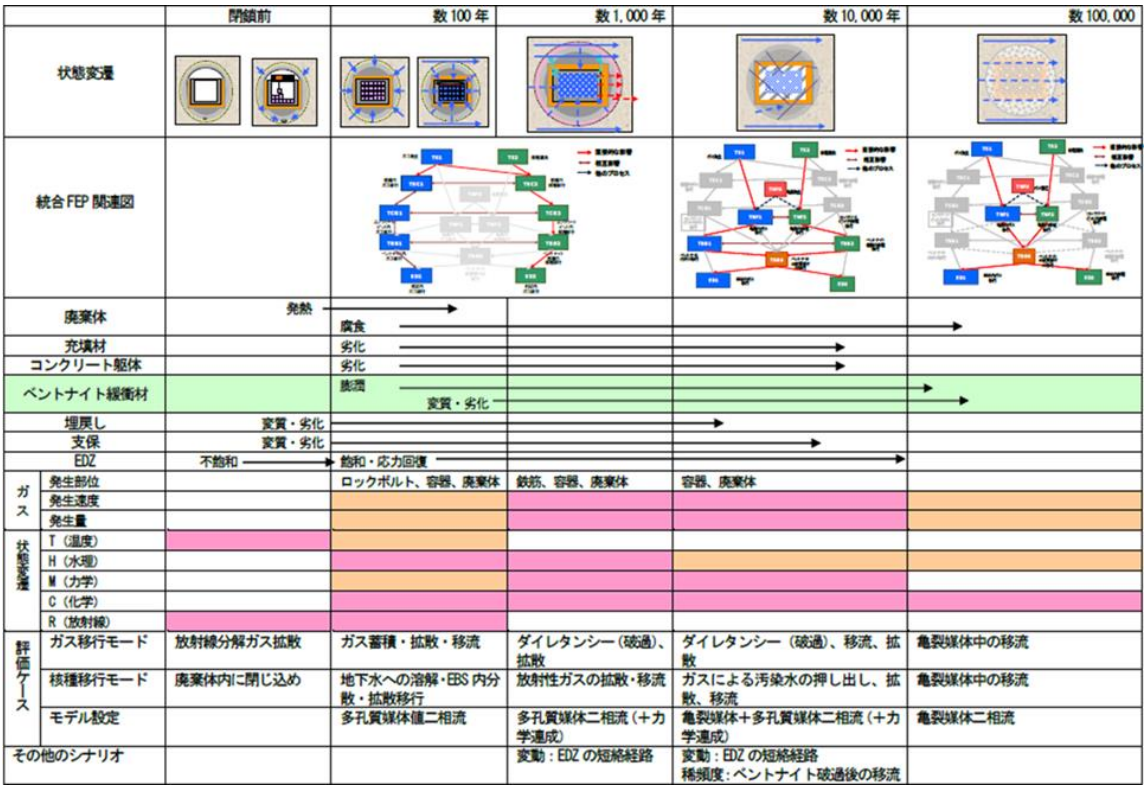


図 6.4.1-6 グループ 1 と 2 のシナリオ整理表作成例[10]

(2) 廃棄物グループの評価シナリオの特徴と不確実性の整理

TRU 廃棄物は図 6.4.1-7 に示す 4 種類のグループに分類され、グループ 1 と 2 はベントナイトバリアを設置する概念である。ハイブリッド・アプローチ設定手法により設定した廃棄物グループ 1～4 のシナリオを、基本シナリオと変動シナリオに分け、代表的な不確実性とともに表 6.4.1-1 に整理した。

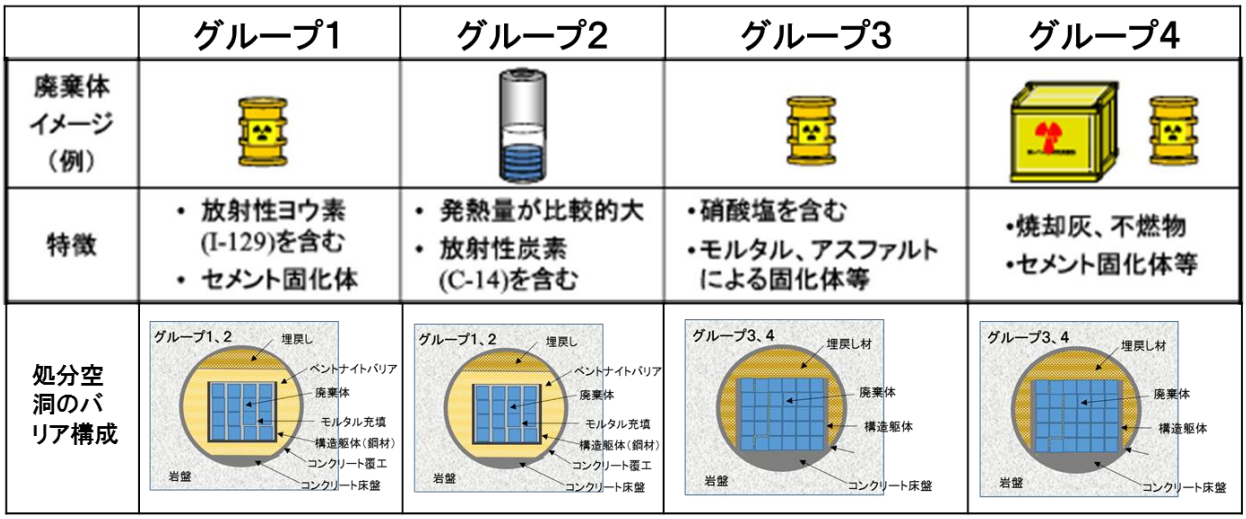
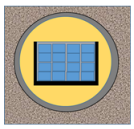
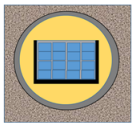
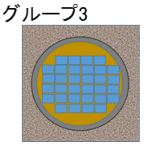


図 6.4.1-7 TRU 廃棄物の分類[22]に一部加筆）

表 6.4.1-1 廃棄物グループ別のシナリオと関連する不確実性の整理

グループ	基本シナリオ	変動シナリオ	不確実性
グループ1 	• 放射線分解と金属腐食により発生するガス量は少ないと予測されるため、間隙水に溶出した核種は、気液二相流としてバリア内を移行し、バリア内側に蓄積するが、ベントナイトバリア内では破過に至らず、二相流で移行し、ベントナイトは健全性を維持	• ガスの発生量が増加することで蓄圧によりベントナイトバリア中で破過が発生、汚染水が外部に放出 • ベントナイト緩衝材が破過や高pH間隙水の影響で自己修復性等の機能を喪失し、局部的にバリアとしての機能を喪失し、放射性核種が早期の段階からEBS外部に放出	• 廃棄物の量が少ないこともあり、ガス発生量に関する不確実性は小 • バントナイトバリアの機能喪失の時期・程度とメカニズム
グループ2 	• 放射線分解と金属腐食で発生する非放射性/放射性ガスは、EBS内の間隙水に溶解し、放射性核種とともに気液二相流で移行し、ベントナイトと充填材の界面での蓄圧、二相流あるいは破過で外部に放出。ベントナイトバリアは自己修復し機能を維持するため、繰り返し放出	• ベントナイト緩衝材が破過や高pH間隙水の影響で自己修復性等の機能を喪失し、局部的にバリアとしての機能を喪失し、放射性核種が早期の段階からEBS外部に放出	• ガスの発生速度 • 形状効果や境界条件の違いによるガス移行モード • 媒体の変質・劣化による移行モード • ベントナイトバリアの機能喪失の時期・程度とメカニズム
グループ3  グループ4 	• 金属腐食、放射線分解、有機物の微生物分解等で発生した非放射性/放射性ガスは、媒体内間隙や境界面上を気液二相流で移行。蓄圧等で連続した経路を形成し、放射性核種を溶存した間隙水が放出	• ガス発生量が増加することで、ガス状での移行モードが卓越し、亀裂媒体内に存在する空隙に蓄圧され、ガス突出とともに放射性核種を含む間隙水が脈動的に外部に繰り返し放出 • その結果、ガス圧による間隙水の放出速度が移流場での核種放出量を上回る可能性大	• 廃棄物が多種多様であるため、ガスの発生量予測が困難 • 微生物による発生ガスの消費の可能性 • ガス移行と核種コロイド移行との複合プロセス • 腐食生成物、Ca成分の溶出・沈殿により亀裂媒体中にガスが蓄圧し、幾何学的な複雑な移行経路を形成する可能性

この整理表における「基本シナリオ」としたのは、状態変遷表作成時の知見をもとに蓋然性が高いと推定されるものをいい、「変動シナリオ」とのは、基本シナリオを構成する重要統合 FEP で起こることか否定できないゆれ幅として発生が推定されるものとして記述した。

6.4.2　評価体系の整備と重要 FEP の抽出

(1) ガス挙動を考慮した評価体系の整備

ガス移行に係るシナリオ整理表をベースに、ガス挙動の人工バリアシステムの成立性評価に資する定量評価に向けての評価体系を図 6.4.2-1 に示すように構築した。「評価体系」とは、ガス挙動の処分システムへの影響を定量的に評価するために、関連する作業の内容、評価方法、評価手順などを理論的な整合性をとりつつ系統的にとりまとめたものと定義している。

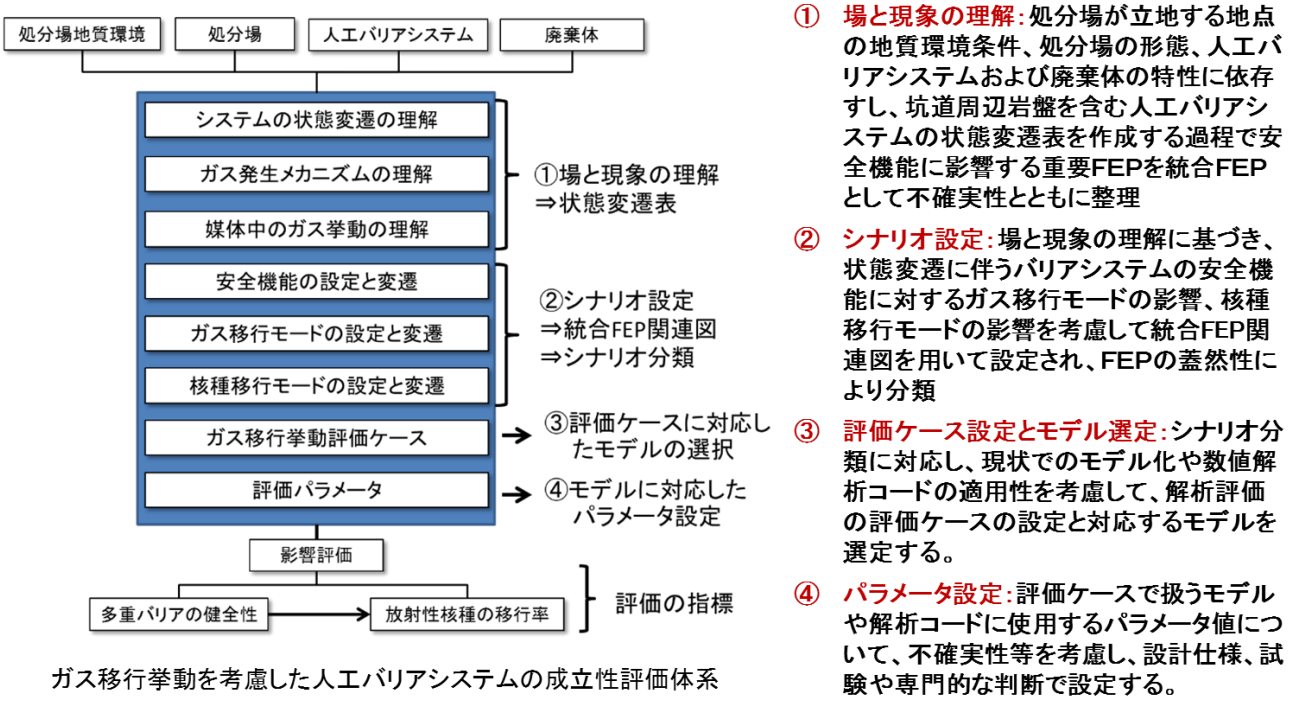


図 6.4.2-1 ガス挙動を考慮した評価体系[23]

評価体系は、図に記述したように、①場と現象の理解から開始され、②シナリオの設定、③評価ケース設定とモデルの選定、④パラメータ設定と展開される。この流れの基本は、①の作業での状態変遷表作成時での理解がベースとなる。評価体系の特徴としては、シナリオ構築手法で記述したように、統合 FEP 関連図を用いて、ガス移行と核種移行挙動を対象とする媒体の状態変遷の時間の流れの中で取り扱うことを目指している点である。

人工バリアシステムの成立性は、最終的に放射性核種の移行量で判断されるが、その前提としてバリア機能の健全性についても評価することになる。

(2) 統合 FEP と不確実性の抽出と分析

ガス移行評価に係わると推定される重要 FEP は、前述した状態変遷に関連する知見に基づき抽出され、統合 FPE として表 6.4.2-1 に示す 6 種類に集約される。この表には、状態変遷の知見の整理（根拠書作成）の段階で明らかとなった不確実性も整理している。

重要となる統合 FEP の中にはガス挙動と放射性核種挙動両方の FEP がまとめられているが、放射性核種挙動については、拡散場として評価されていることもあり、バリア内部での核種の分

配係数等として扱われ、ソースからの移行プロセスについては、これまでの言及されたことはない。

例えば、第 2 次 TRU レポート[1]には、ベントナイトバリア内部での媒体の幾何形状を考慮した核種移行挙動についての知見は記述されず、高 pH の間隙水中での沈殿・凝縮や分配係数が設定されている。

表 6.4.2-1 グループ 2 の状態変遷表から抽出した重要統合 FEP と不確実性の整理

重要統合FEP	統合FEPを構成するFEP	不確実性
a. ガス発生	・ガス発生源の形態、量、表面積、インベントリ ・ガス発生・消失メカニズムとモデル ・周辺環境・境界条件	・廃棄体の性状に不明点が多い ・実際の処分環境とガス発生メカニズムの関連が明確でない
b. 廃棄体容器内のガス挙動	・廃棄体容器の仕様と安全機能 ・容器内の充填材の特性	・廃棄体容器の仕様が決まっていないため特性が規定できない ・充填材の仕様が決まっていない
c. コンクリートピットと充填材中のガス挙動	・コンクリートの初期性能（強度、密度、変形能）と性能維持期間 ・充填材の初期性能（密度）と性能維持期間	・コンクリートピットの早期劣化の可能性 ・充填材の早期劣化の可能性
d. ベントナイト中のガス挙動	・ベントナイトの密度、厚さ、形状 ・ベントナイトの機能維持期間 ・ベントナイトの変質・劣化プロセス ・ガスの侵入圧と侵入速度	・ベントナイトの変質・劣化プロセスと速度 ・変質・劣化したベントナイト中でのガス移行と核種移行挙動
e. EDZ内のガス挙動	・岩盤の特性（均質性、亀裂、付加帯） ・ガス破過による汚染水の放出量	・母岩が決定されていないこと
f. 人工バリア内亀裂中のガス挙動	・貫通亀裂発生（人工バリアの閉じ込め性の喪失）	・人工バリア内状態と貫通亀裂の発生可能性

(3) 評価体系における重要要素と不確実性

状態変遷の理解に基づくシナリオ設定、評価ケース設定とモデル選定およびパラメータ設定作業内容を詳細に分析した結果、以下に示す事項（ここでは FEP ではなく、各作業で対応すべき事項）が重要要素として抽出された。

- 処分環境でのガス発生予測⇒ガスの種類、発生量、速度
- 媒体の状態変遷とガス挙動⇒異方性の高い媒体中でのガス移行量
- 境界条件と界面の変化⇒局部的な間隙等でのガスの蓄圧メカニズム
- ガス移行と放射性核種移行の複合プロセス⇒ガス挙動による核種挙動の促進

上記の重要要素に関する現状の知見やその影響の程度について考察し、それぞれの不確実性要因となる事項を分析した評価結果を表 6.4.2-2 に整理して示す。

境界条件と界面の変化に関する事不確実性には、TRU 処分サイトの地質環境条件と人工バリアシステムの仕様が決定されていないことによる不確実性が含まれる。

表 6.4.2-2 評価体系の各作業から抽出された重要要素に関する評価

重要要素	現状の知見	評価
処分環境でのガス発生予測	・金属腐食、放射性分解、微生物分解が取り上げられ、室内試験での発生プロセスの理解が進んでいる。 ・処分環境における複合体での試験情報はない。	⇒処分環境、複合体でのガス発生メカニズムに関する知見は集約されていない。また、ガス発生源の時系列変化に係わる情報がない。
媒体の状態変遷とガス挙動	・媒体（廃棄体、容器、充填材、コンクリート躯体、ベントナイト、EDZ）の個々の材料についての状態変遷に関する変質・劣化の要素スケールでの試験結果は存在する。	⇒劣化・変質により変化した媒体でのガス移行の知見はない。 ⇒複合体としての化学環境の変化の知見はない。 ⇒ミクロでのガス挙動に関するエビデンスは集約されていない。
境界条件・界面の変化	・処分環境に係る知見やバリア仕様についてはレファレンスとして設定されている（TRU2次レポートなど）。 ・界面でのガス挙動の試験は実施されている。	⇒ガス挙動は媒体の異方性や間隙の状態に大きく影響受けると推定されるが、関連する情報はほとんどない。
ガス移行と放射性核種移行の複合プロセス	・ガス移行挙動については、室内試験をもとに現象理解が進んでいる。 ・核種移行については極めて単純化された状態設定が用いられている。	⇒バリア内でのガス移行と核種移行との複合プロセスに関連する知見はほとんどなく、それぞれおモデル間での精度や関係についての知見はない。

(4) 評価体系の重要要素に係る不確実性の対応

重要要素の評価から抽出された不確実性については、評価体系を構成する①～④の作業を通じ、図 6.4.2-2 に示すような対応が考えられる。特に場の現象と理解の程度による不確実性は、シナリオ設定における統合 FEP 関連図作成と密接に関係する。

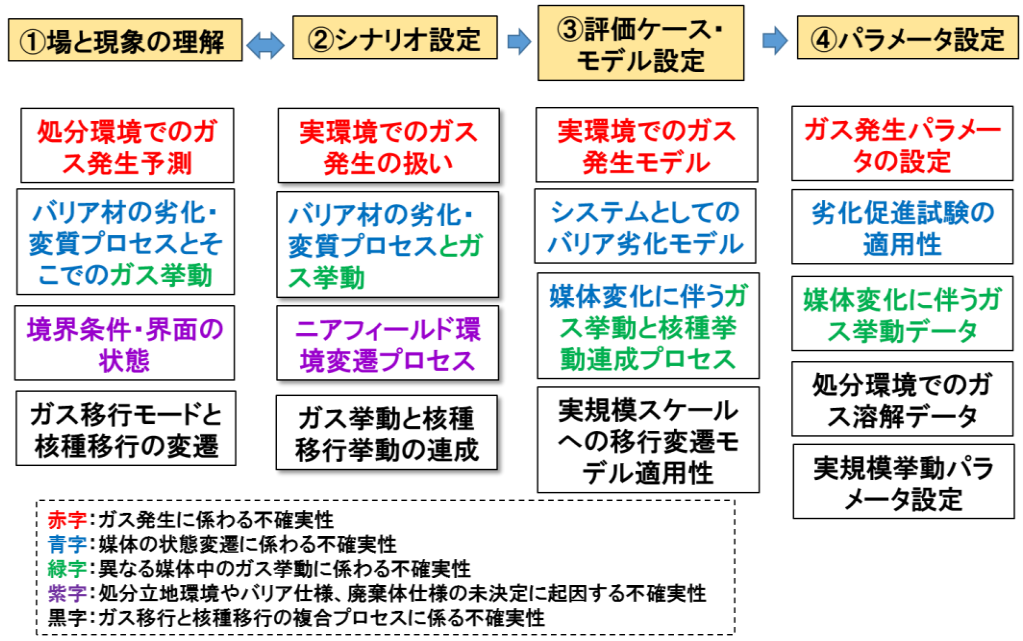


図 6.4.2-2 評価体系の重要要素に係る不確実性の対応[23]

評価体系を構成する作業それぞれの不確実性に係る技術課題を対象に、重要度と現状技術での対応性の観点で考察した結果、人工バリアの成立性評価において、最も優先度の高い技術課題は、人工バリアシステムの状態変遷と統合 FEP 関連図を用いた「ガス移行と核種移行の複合プロセス」となった。シナリオ設定で考慮すべき優先度の高い技術課題への検討方針と他の作業との関係を図 6.4.2-3 に示す。

検討の方向としては、シナリオ設定作業を中核として、シナリオを構成する重要 FEP とその不確実性に係る知見の取得、シナリオで記述される不確実性の幅に対応した評価ケースの設定、現状で適用可能な解析評価でのモデルの組合せ、関連するパラメータの設定での不確実性への対応が考えられる。これらの具体的な取組みについては次節で記述する。

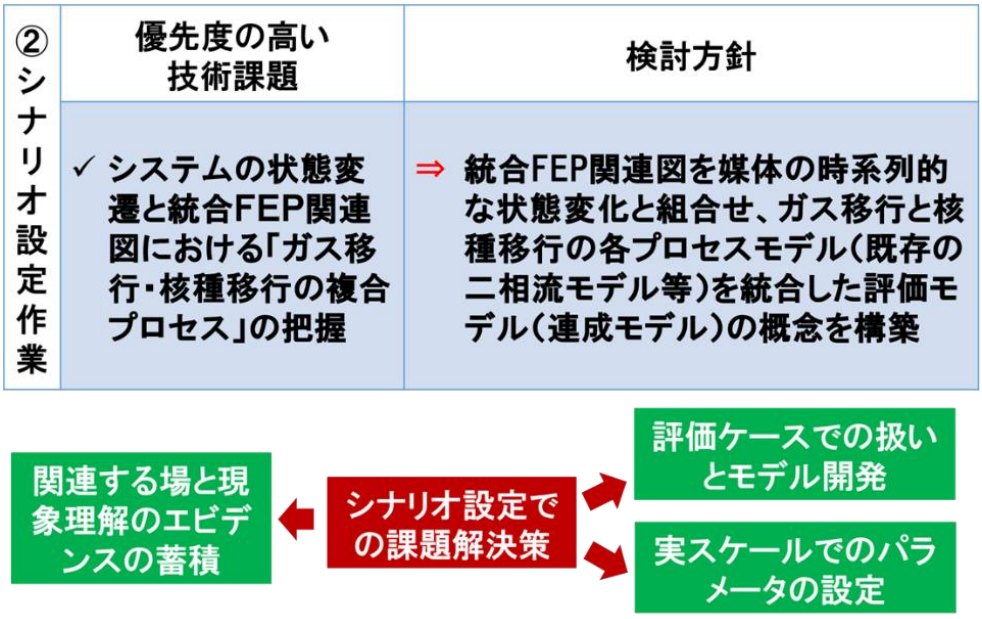


図 6.4.2-3 シナリオ設定で対応する最も優先度の高い技術課題と検討方針[23]

6.4.3 重要 FEP に基づくガス移行評価シナリオの再構築

人工バリアの成立性評価に向け、最も重要な技術課題として特定されたガス移行と核種移行の複合プロセスに着目したシナリオは、これまでの検討から以下に示す 3 種類に分類できる[8]。大きくは、ベントナイトバリアの健全性が維持されている場合と喪失する場合となる。

i. ガス挙動が支配的となるシナリオ⇒ベントナイトバリアは健全性を維持していることを前提にガス発生の影響を評価

人工バリア内でのガス発生により、放射性核種を溶存した間隙水が二相流でバリア外部に放出されるシナリオで、ガスの蓄圧によりバリア内での破過現象が発生してもベントナイトバリアは自己修復性から閉じ込め機能を維持し、低透水となることから蓄圧・放出が繰り返し発生する。

ii. ガス挙動が引き起こす可能性が否定できないシナリオ⇒ベントナイトバリアが健全性を喪失した場合のガス発生の影響を評価

ガス発生によりバリア内部の高 pH 間隙水が二相流としてバリアに浸透することで、ベントナイトが変質し、本来有していた自己修復性を喪失し核種を閉じ込める機能を失い、間隙水が二相流の移流場でバリア外部に放出される。この場合の喪失モードは、ガス破過の経路に沿って変質が発生する場合と全体的に内部から変質が進展する場合が推定される。

iii. ガス挙動以外の要因でバリア機能が喪失するシナリオ⇒機能喪失後のガス影響を評価

ガス以外の要因でベントナイトバリアの健全性（自己修復性、形状・道度維持や損傷を受け、核種閉じ込め機能を喪失することで、放射性核種を溶存した間隙水が二相流として加速的にバリア外に放出される。

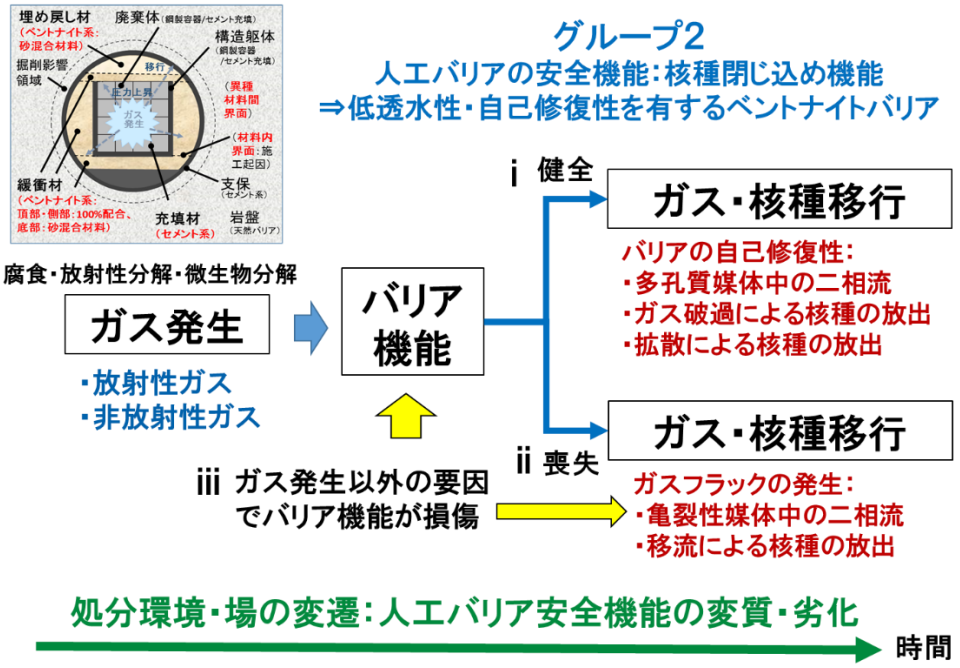


図 6.4.3-1 状態変遷の中でのガス移行と核種移行の複合プロセスのシナリオ模式図[24]

(1) ガス挙動が支配的となるシナリオ：ベントナイトバリアは健全性を維持

ガス挙動が放射性核種移行との複合プロセスを支配するシナリオは、図 6.4.3-2 に示すように赤字の重要 FEP を用いて記述することができる。ベントナイトバリアが健全性（自己修復性やバリア形状、初期密度など）を維持し、ガスが継続的に発生する限りにおいて、この複合プロセスは繰り返し発生し、放射性核種を溶存する間隙水が脈流としてバリア外に放出される。但し、ガスの発生量が多い場合、バリア内は不飽和状態となり、核種移行は放射性ガスのみになる可能性がある。この場合、バリア内に残存する放射性核種が多くなり、隆起・侵食での露頭や他の自然現象でのベントナイトバリアの損傷による影響が卓越する。

【複合プロセス】**継続したガス発生**（放射線分解と腐食等）により、廃棄体パッケージと充填材中の間隙にガスが蓄圧、間隙水にガスが溶解、**廃棄パッケージの損傷**による放射性物質の間隙水への溶出（**間隙水の化学特性による溶解・沈殿**）

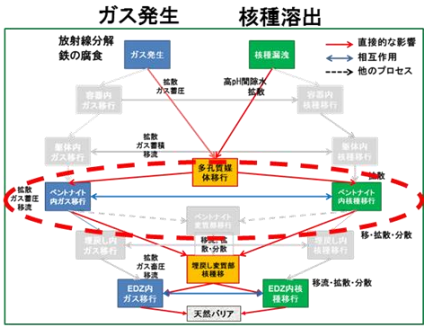
⇒**二相流**としてベントナイト緩衝材の境界面に移行

⇒ベントナイト境界面でガスの蓄圧、ベントナイト中にフィンガー現象で侵透

⇒ベントナイト中を二相流で移行、ガス圧の増加による**破過（ダイレタンシー）発生**

⇒ベントナイトの外側に**核種を溶存した間隙水と一緒にガスが放出**

⇒破過によるガス・間隙水の通過経路はベントナイトの**自己修復機能**により修復され、二相流が支配する移行媒体に回復する。



飽和後から数万年間のガス・核種の移行
統合FEP関連図

重要FEP：ガス発生、廃棄体パッケージの損傷、間隙水の化学特性、二相流、破過発生、間隙水の放出、自己修復性

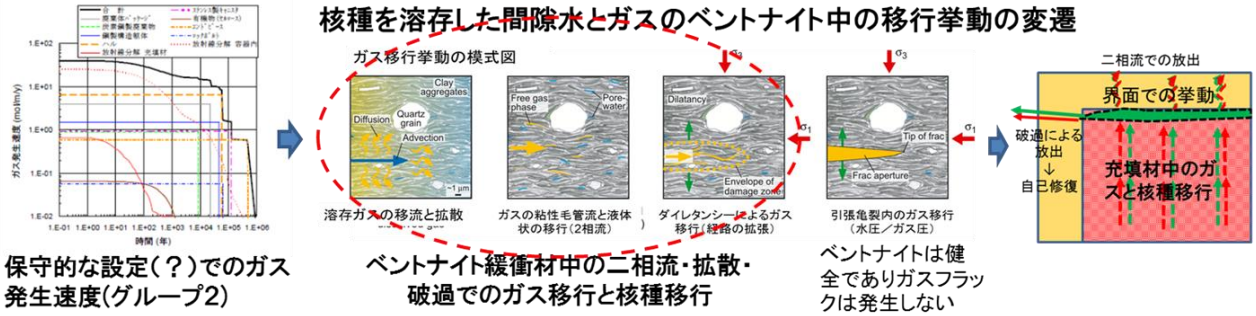


図 6.4.3-2 ガス挙動が支配的な複合プロセスのシナリオ設定例[24]

(2) ガス挙動が引き起こす可能性を否定できないシナリオ：ベントナイトバリアが健全性を喪失

ガス挙動が原因でベントナイトバリアの健全性を喪失させることで放射性核種の人工バリ外への放出量に影響を及ぼす可能性を評価するシナリオである。

例えば、廃棄物グループ 2 の人工バリア内は、容器内の充填材をはじめ相当量のセメント材料の使用が検討されており、間隙に存在する間隙水は、高 pH 環境となると推定される。この間隙水がガスとの気液二相流としてベントナイトバリア内にフィンガー現象で浸透していくことでバリア内部から変質が進展し、膨潤性を喪失する、あるいは破過の経路に沿ってこの間隙水が通過することで経路が残存してしまい、拡散場としての安全機能を喪失する現象を対象とする。この影響を考慮した複合プロセスのシナリオを図 6.4.3-3 に示す。

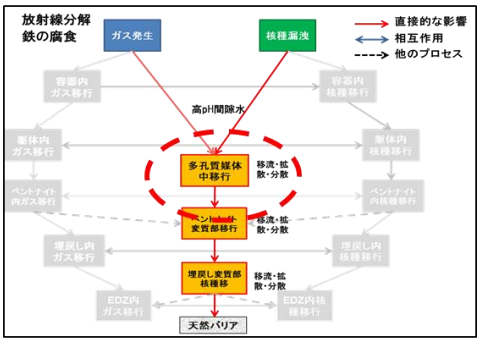
【複合プロセス】ガスは継続して発生する中で放射性核種は間隙水に溶解度律速で溶出

⇒二相流でベントナイトバリア中を移行、破過が繰り返し発生

⇒高pH間隙水が二相流や破過でベントナイト中を移動することで、ベントナイトに局地的な変質領域が発生し、自己修復性を喪失

⇒ガスの蓄圧により自己修復性を喪失したベントナイトバリア中にガスフラックが発生し、連続した移行経路が形成

⇒連続した移行経路を放射性物質を溶存した間隙水が二相流でベントナイト外部に放出（ガスは媒体の間隙が大きな部位を優先的に移動するため）



重要FEPの絞り込み：ガス発生、間隙水の化学特性、二相流、破過発生、高pH間隙水、自己修復性喪失、ガスフラック、バリア内連続した移行経路

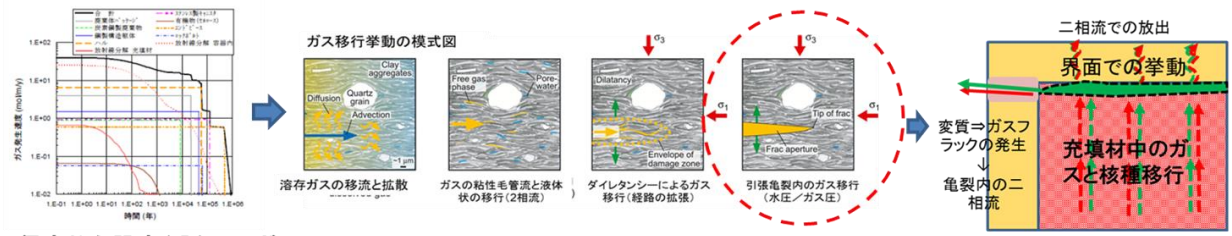


図 6.4.3-3 ガス挙動によりベントナイトバリア健全性が喪失するシナリオ設定例[24]

(3) ガス挙動以外の要因でバリアが健全性を喪失するシナリオ

ガス挙動以外の要因でベントナイトバリアが形状や密度等を維持できなくなった場合、内部で発生するガスの圧力により、放射性核種の放出が加速される可能性を評価するシナリオである。

図 6.4.3-4 には、想定されるベントナイト損傷のイメージを示している。これらについてはこれまでの TRU に係る報告書（例えば[1],[25]）にも言及されておらず、人工バリアシステムの長期健全性評価の観点から、残された技術課題となる。

特に、ベントナイトバリアの形状と密度を長期に保持するには、ベントナイトの変質・劣化プロセスの研究のほかに、周辺の要素、例えば、内部のコンクリート構造物や廃棄体容器および充填材の変質・劣化による強度や剛性低下は十分予測できる現象で、内部変形に追随するベントナイトの形状変化が引き起こす破断および内部空隙の増加による密度減少は人工バリアシステムの成立性の観点から重要な課題となる。

本検討では、これらの現象に係る知見が現状で十分ではないことから、解析的評価のシナリオとしては設定するが、次段階での評価ケースの設定作業では取り扱わないこととする。

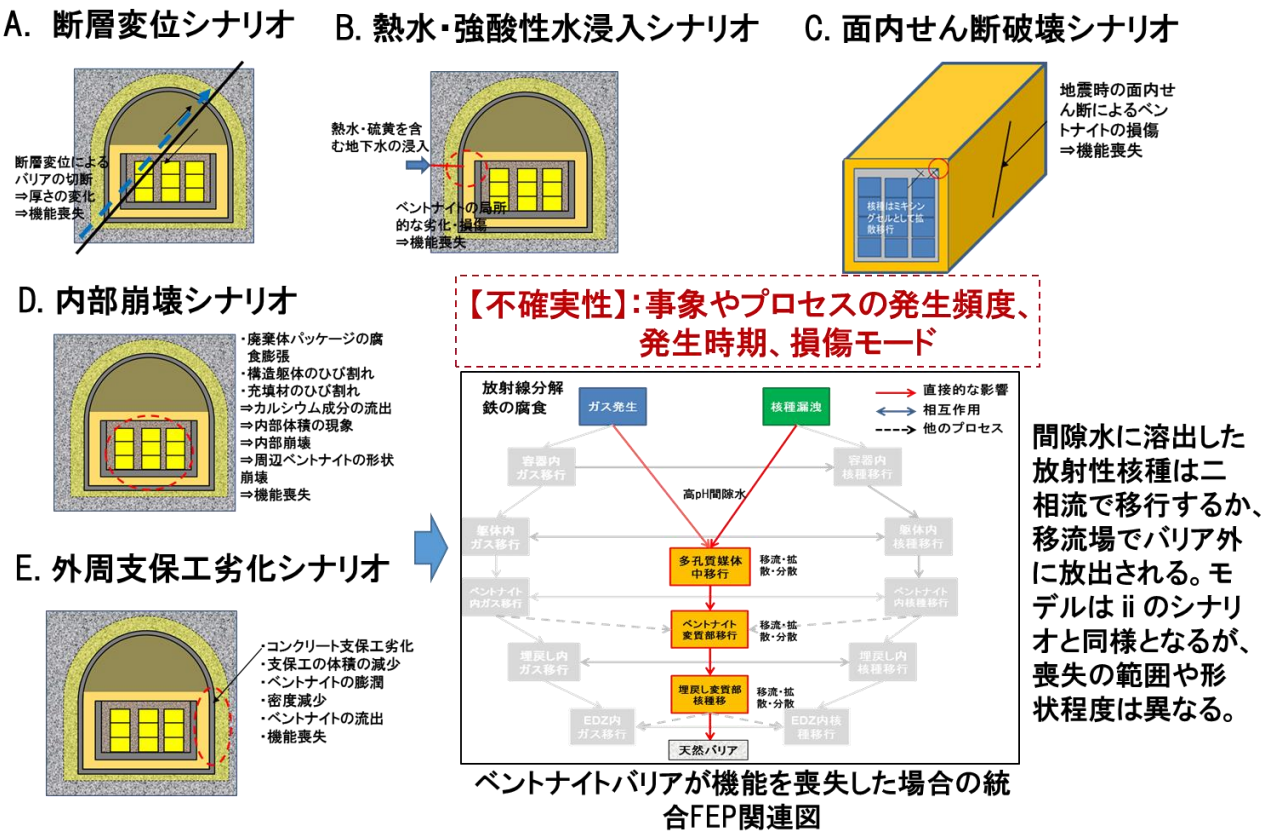


図 6.4.3-4 ガス挙動以外の要因でベントナイトバリアの健全性喪失シナリオ例[24]

(4) 複合プロセスに着目したシナリオとモデル化への展開

ガス挙動に着目した人工バリアの成立性評価体系において、シナリオ設定の後の作業となる評価ケース設定と現状適用できるモデル選定への展開を考慮し、ガス移行と核種移行の複合プロセスにおけるシナリオ相互の関係を分析した。

複合プロセスとして設定した前述の 3 種類のシナリオは、基本的にガス挙動が引き起こす可能性がある現象として、人工バリアシステムの状態変遷の中でベントナイトバリアの健全性（ここでは、ベントナイトに期待する低透水性、自己修復性、形状・密度をいう）が維持されているケースと健全性が喪失する 2 ケースに代表できる。ガス以外の要因で発生するベントナイトバリアの健全性喪失の現象については、ガス影響評価でなく内外事象によるバリアの健全性評価として実施される予定であるため、本検討からは除外する。

ベントナイトバリアが 10 万年にわたり健全性を維持するかどうかの判断については、まだ、十分な知見が揃っていないこともあり、どの時期に健全性を喪失するかについては、評価期間を含めパラメータ的に対応することになる。

ガス発生から異なる媒体中での移行挙動およびベントナイトバリア中で移行挙動と放射性核種のバリア外への移行との複合プロセスを模式的に整理した例を図 6.4.3-5 に示す。

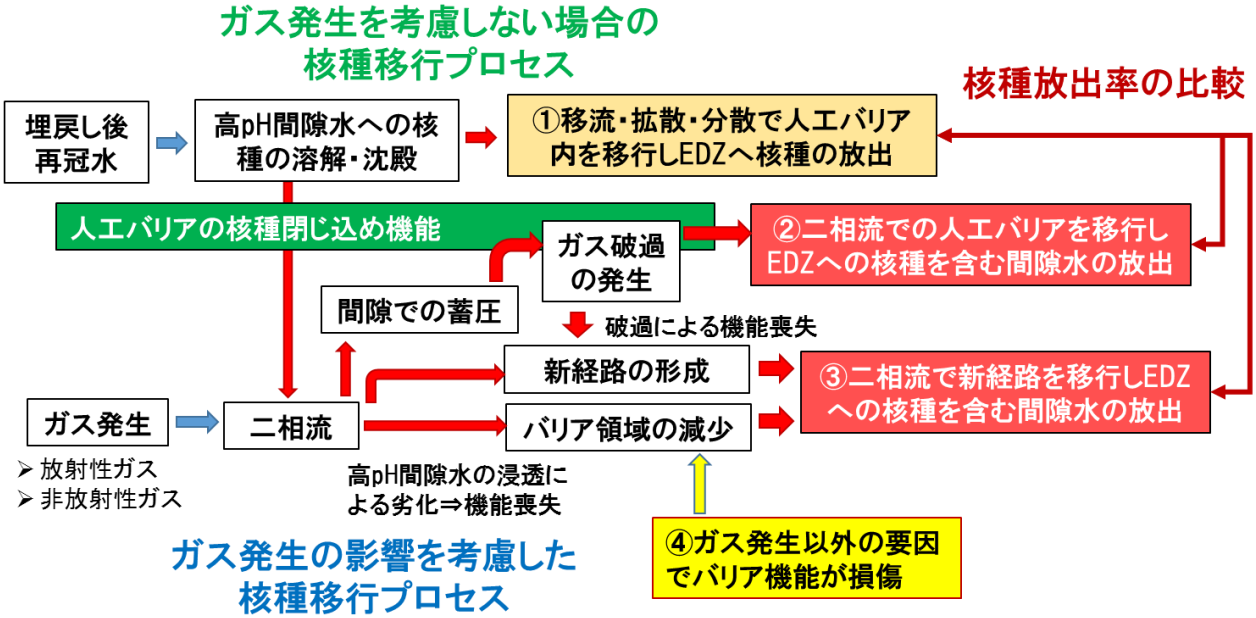


図 6.4.3-5 ガス発生を考慮した複合プロセスモデルの模式図

ガス影響を考慮するシナリオで示された二つの複合プロセスは、放射性核種の移行モードとガス移行モードを組合せて以下の 4 種類の核種移行シナリオとして記述することができる。

① ガスの影響を考慮しない場合、バリア内の間隙水に溶存した放射性核種は、健全性を維持するベントナイトバリア内を移流・拡散・分散でバリア外に移行（低透水のバリア内では拡散が支配）する。
② 発生したガスはガス状あるいは放射性核種を溶存する間隙水に溶解し、蓄圧により気液二相流でベントナイト中に浸入する。ガスの蓄圧状況とベントナイトバリアの密度に対応して二相流、脈流あるいは破過（この場合、修復性が確保されるダイレイタンシーでの移行）で間隙水をバリア外に放出される。バリアは自己修復性を維持し、破過後はもとの低透水性を回復することで、再度蓄圧が繰り返され、脈流的に間隙水を放出する。
③ 破過経路に沿って自己修復性を喪失したベントナイト中を、放射性核種を溶存した間隙水が気液二相流でバリア外に放出される。移行モードは亀裂性媒体と同様となる。
④ ガス発生以外の要因でバリア機能が損傷する場合、損傷か所から気液二相流あるいは移流で放射性核種が溶存した間隙水が放出される。移行モードは亀裂性媒体と同様になる。

上記の複合プロセスの内、人工バリアシステムの成立性に、ガス挙動が影響を及ぼす可能性のある現象として、グループ 2 では、ガス影響を考慮しない①でのシナリオを基準とし、②と③を解析的評価の評価ケースとしてモデル化することとする。④の状態は、ベントナイトバリアが全面的に機能を喪失した場合、あるいはベントナイトバリアを考慮しないグループ 3 と 4 が対象となる。

(5) 複合プロセスの評価ケースと不確実性への対応策

安全評価上重要な事象を対象として設定した複合プロセスのシナリオを対象に、解析的評価に用いる評価ケースについて検討した結果、シナリオ上の不確実性要因をパラメータとして扱える評価ケースとして設定した（表 6.4.3-1 参照）。この場合、ガス発生に係る安全評価上重要な事象としては、ガス影響により人工バリアから放出される放射性核種量が増加する場合を対象とし、二相流として扱える手法を選択した。解析的評価では、不確実性に着目したパラメータの組合せによりガス発生が核種移行量に影響を与える許容幅（しきい値）を推定することになる。

表 6.4.3-1 解析的評価での評価シナリオおよび評価ケース、パラメータ設定例

評価上重要な事象	評価シナリオ	評価ケース	考慮する不確実性（パラメータとしての扱い）	評価手法
ガス発生による人工バリアからの放射性核種放出の加速	ガス発生⇒人工バリア内に蓄圧⇒放射性核種が溶出した間隙水が二相流でバリア内を移行しバリア外に放出、蓄圧による破過現象発生	1. ガス発生量（発生速度）と蓄圧メカニズム等を考慮し、二相流での放射性核種を含む間隙水の放出量を求め、拡散量と比較	・ガス発生量（発生速度） ・人工バリア内の不均質性（間隙率、境界） ・人工バリア外の作用圧力の異方性 ・溶存放射性核種量	・不確実性をモデルとパラメータで考慮した二相流解析 ・放射性核種の拡散移行解析
ガス移行挙動による人工バリアの機能喪失が加速され、放射性核種放出量が増加	ガス発生⇒人工バリア内で蓄積⇒セメント系材料からの高pH特性の間隙水が二相流でベントナイトバリア内に浸透⇒局部的な劣化・変質の加速⇒自己修復性を喪失⇒移流場での放射性核種を含む間隙水の放出	2. ガス発生量（発生速度）と蓄圧メカニズムを考慮し、二相流での高pH間隙水のベントナイト中への浸透量を求め、ベントナイトの変質量（低透水性の喪失）を推定し、核種の放出量を二相流で求め、拡散量と比較	・ガス発生量（発生速度） ・人工バリア内の不均質性（間隙率、境界） ・ベントナイトの変質域 ・人工バリア外の作用圧力の異方性 ・溶存放射性核種量 ・間隙水のpH	・不確実性をモデルとパラメータで考慮した二相流解析 ・ベントナイトバリアの変質解析 ・変質後の二相流解析

(6) 人工バリアシステムの成立性評価に係わる解析的評価での判断尺度例

ガス発生が人工バリアシステムの成立性に影響を及ぼす可能性については、評価ケースに従い解析的に評価する場合の判断指標と尺度について、例えば、図 6.4.3-6 に示す複合プロセスを評価するシナリオの発生確率と複合プロセスに着目した評価での影響の程度（ここでは放射性核種の放出による被ばく線量値）を用いて判断する方法がある[24]。

現状では、(5)で設定した評価シナリオが発生する可能性については、知見が十分ないことから設定することはできておらず、これまでの要素レベルでの試験によってガスの発生量に依存することだけが把握されている。また、複合プロセスを設定することで放射性核種の移行量がどの程度変化するかについても簡略化された解析で予測されただけで、その影響の程度に関する知見は少ない。

この背景には、TRU に分類される放射性核種の移行に関しては、人工バリアの寄与率は低く、多くは天然バリアの性能に依存していることによる。人工バリアから放出されるガスの天然バリアへの影響については、多くの国で検討されている（例えば[26], [27]など）が、わが国はサイトが決定されていないこともあり、今後の課題とされている。

例えば、候補地のオプションとして考えられている「沿岸海底下処分」では、地下水の動きは

ほとんどなく物質は拡散支配であると推定されている（例えば）。このような環境では、ガス移行による放射性核種の移行が支配的となる可能性がある。

図 6.4.3-6 には、TRU 処分概念全体を対象としたセーフティケース（安全性が確保されていることの論拠やエビデンスの集合）の設定例を示している。この図では、特にガスの影響だけを考慮しておらず、全ての評価シナリオとそれに従い設定された評価ケースでの解析的評価結果（影響の程度）をベースに、成立性を判断し、必要に応じて対応策を講じる仕組みを示している。

ガス影響が放射性核種の移行挙動を支配する場合（図中の黄色の枠組みに相当）、ガスの発生量を抑える、ガスの蓄圧メカニズムを緩和する（バリア内に空隙を多くする）、複合プロセスを評価する現実的なモデルの開発、ガスを透過し、核種を吸着するバリア材を開発するなどの対策が考えられる。これらは、いずれも今後の技術課題となる。

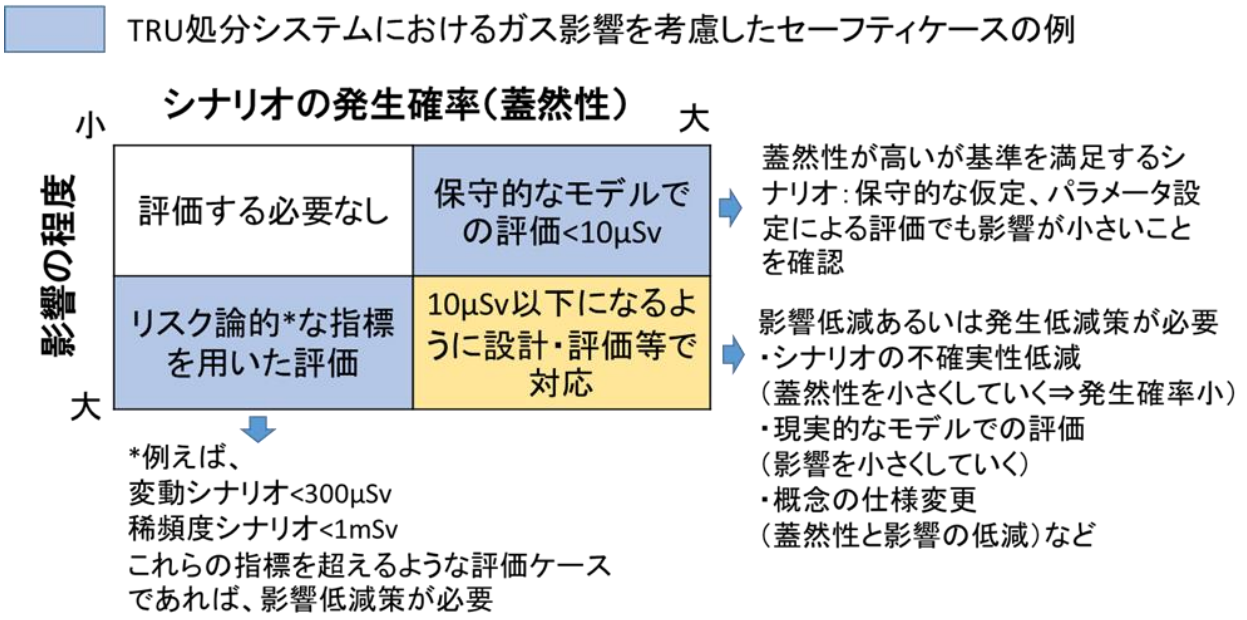


図 6.4.3-6 ガス影響を考慮した複合プロセスの解析的評価結果の判断指標と尺度例

6.4.4 まとめ

(1) ガス移行評価シナリオの拡張

- ガス挙動に着目した人工バリアシステムの成立性評価に係わるシナリオ設定の内、グループ 2 を対象に人工バリアシステムの状態変遷の理解に基づくハイブリッド・アプローチによるシナリオ設定方法の概要を記述した。
- シナリオ設定手法に従い、グループ 1, 3, 4 に関するシナリオを設定し、グループ 2 を含めてそれぞれのシナリオの特徴とともに関連する不確実性を整理した。

(2) 評価体系の整備と重要 FEP の抽出

- シナリオ設定に用いたシナリオ整理表をベースに、ガス挙動に着目した人工バリアシステム

の成立性評価に係わる評価体系を構築した。評価体系は、①場と現象の理解、②シナリオ設定、③評価ケースとモデルの設定、④パラメータの設定、の 4 種類の主要な作業から構成される。

・ グループ 2 を対象に評価体系を構成する 4 種類の作業における重要要素を設定し、それぞれに関連する不確実性を抽出するとともに、シナリオ設定で対応すべき技術課題を検討した。最も優先度の高い課題は、ガス発生に起因すると考えられる放射性核種移行とガス移行の複合プロセスとなり、人工バリアの成立性評価のシナリオを中心とした対応方針を作成した。

(3) 重要 FEP に基づくガス移行評価シナリオの再構築

・ ガス発生に起因する複合プロセスに着目し、バリア機能の変遷とガス移行に係る重要 FEP を用いて人工バリアの成立性を定量的に評価するためも、グループ 2 を対象とする評価シナリオを再構築した。

・ 再構築したシナリオは、ガス挙動が複合プロセスを支配するがバリア機能は健全性を維持するシナリオ、ガス挙動の影響によりバリア機能が喪失する可能性が否定できないシナリオ及びガス以外の要因でバリアが機能を喪失するシナリオの 3 種類である。大きくは、ベントナイトバリアの健全性が維持される場合と喪失する場合に分類できる。

・ 人工バリアの成立性評価作業の次段階となる評価ケースとモデル選定に展開するために、設定したシナリオの関係をプロセスモデルとして模式化、評価の対象とするプロセスとの関係を整理した。

・ TRU 廃棄物処分におけるガス影響に関わるセーフティケースの判断について、シナリオの蓋然性と核種移行への影響を尺度としたマトリクスでの評価指標を提示した。

6.5　ガス移行に係る TRU 廃棄物処分施設の成立性評価

本節は、TRU 廃棄物グループ 2 の処分概念（人工バリア）を対象に、ガス／核種移行等の連成挙動評価に資する評価手法の確立を目的とした検討成果を取り纏めたものである。

具体的には、先ず既存のガス移行評価シナリオで想定する、重要核種が反映されたガス移行挙動（「6.3.2　」で実施した気液二相流解析結果等）や、絞り込んだ重要 FEP の不確実性を考慮した核種移行解析手法の検討を行い、気液二相流等に伴う排水挙動と核種移行の相互影響等を考慮して得られた解析結果を、既往の安全評価等で提示されている目安値（TRU 廃棄物処分施設の人工バリアとして成立するために下回るべき核種移行率の最大値等 ）を指標として、ガス移行の影響の大きさを評価する手法を既往の安全評価手法等（例えば第 2 次 TRU レポート[1]）を基に提示することとした。

さらに、同評価手法により、重要事象に影響を与える影響因子の特定や定量的な許容幅等を把握することで、人工バリアの成立性を評価した[9]。

次項以降に、その成果の概要について述べる。

6.5.1　核種移行解析と挙動評価

(1) 解析コードの選定

本検討における核種移行解析では、米国 Yucca Mountain プロジェクトの総合安全評価において使用実績があり、その後、我が国における地層処分の安全評価における de facto standard ともなっている汎用的シミュレーションソフトウェア GoldSim（Golder Associates, 2001[30]）を用いるものとした。

(2) パラメータの設定

核種移行解析の実施に必要となるパラメータの種類とその定量的な設定値については、次章「核種移行解析の実施等」において、解析モデルの説明を行った後に、詳述するものとする。

大まかな方向性としては、核種移行解析の前提となるインベントリ、処分坑道設計、人工バリア条件、天然バリア条件等は、第 2 次 TRU レポート[1]に準拠する一方、ガスシナリオを特徴づけるガス発生に伴う汚染水の排水に係るパラメータ（排水量、排水期間等）は、別途実施されるガス移行解析結果に基づくこととなる。

(3) 核種移行解析の実施等

1) 解析ケースの設定

「6.3.2　」で実施したガス移行解析におけるケース設定を表 6.5.1-1 に示す。核種移行解析への主要な引き渡し条件となる汚染水の排水への影響が大きいと考えられる以下の不確実性に着目し、それぞれを代表するパラメータあるいは現象を以下のように設定している。

① ガス発生量に係る不確実性→G：ガス発生量
② 間隙水の量に係る不確実性→W：廃棄体間隙率
③ 媒体内のガス挙動に係る不確実性→B：緩衝材の水理物性
④ ベントナイトバリアの健全性に係る不確実性→P：流路拡幅現象

各不確実性における設定概要を以下に記述する。

ガス発生量 G については、G1（TRU-2 相当）、G2（TRU-2 より発生量大）、G3（TRU-2 より発生量小）と設定した。

廃棄体間隙率 W については、W1（TRU-2 相当、ϕ=0.19）、W2（人工バリア変質影響ケース相当、ϕ=0.5）と設定した。

緩衝材の水理特性 B については、B1（排水量最少ケース）となる水理物性、および B2（排水量最大ケース）となる水理物性を設定した。

流路拡幅現象 P は、ガスの透気現象を記述するフラッグであるが、ガス影響による核種移行におけるバリアの状態を記述する、最も重要な因子のひとつである。

P0 はガス移行では流路拡幅を考慮しないケース（TRU-2 相当）であり、核種移行ではガス透気による破過が発生せず、ガス影響によって汚染水が等方的に排水されるシナリオとなる。

P1 はガス移行では緩衝材の流路拡幅は考慮するが自己修復性は考慮しないケースである。これは核種移行では、ガス透気による破過が生じ透気経路（＝核種移行経路）が形成されるが、緩衝材の自己シール性は機能せずに同経路は閉塞せず、同経路が評価期間中存在し続けるシナリオとなる。

P2 はガス移行では緩衝材の流路拡幅を考慮するが、同時に自己修復性も考慮するケースである。これは核種移行では、ガス透気による破過が生じ透気経路（＝核種移行経路）が形成されるが、緩衝材の自己シール性が機能して、一定期間後には同経路は閉塞するシナリオとなる。

以上を踏まえた核種移行解析におけるケース設定を表 6.5.1-1 に示す。核種移行解析では、ガス影響を考慮したガス移行解析ケースから抜粋した代表的な解析ケースに加え、核種移行解析の標準となるレファレンスケース（第 2 次 TRU レポート相当）を実施した。

表 6.5.1-1 ガス影響を考慮した核種移行解析のケース設定

ケース名	ガス発生量(G)	廃棄体間隙率(W)	緩衝材水理物性(B)	緩衝材の流路拡幅(P)	
				破過	自己修復性
レファレンス	—	標準設定（ϕ = 0.19）	標準設定（TRU-2 相当）	なし	（ガス透気とは無関係に自己シール性あり）
G1W1B1P0	TRU-2 相当	ϕ = 0.19	TRU-2 相当	なし（等方的な排水）	（ガス透気とは無関係に自己シール性あり）
G1W2B2P1	TRU-2 相当	ϕ = 0.5	排水量最大	あり	透気後、経路は閉塞しない

G1W2B2P2	TRU-2 相当	$\phi = 0.5$	排水量最大	あり	透気後、経路は閉塞する
G3W1B2P1	10 倍 （全評価期間）	$\phi = 0.19$	排水量最大	あり	透気後、経路は閉塞しない
G3W1B2P2	10 倍 （全評価期間）	$\phi = 0.19$	排水量最大	あり	透気後、経路は閉塞する

2）ガス移行解析結果の解釈と核種移行解析への取込み

本項では、前項に示したガス移行解析結果を核種移行解析に反映するための近似方法について記述する。

ガス移行解析の設定のうち、流路拡縮状態の設定（P0/P1/P2）によって核種移行解析における移行媒体のモデル化が変更となる。モデル化の変更の模式図を図 6.5.1-1 に示す。

P0 のように流路拡幅を考慮せず、破過が生じないケースでは、評価期間中、移行媒体の構成には変更はない。ただし排水期間中は、排水挙動に応じて緩衝材の水理特性が変化するものとして汚染水が等方的に排水される挙動を模擬する1。

P1 のように流路拡幅を考慮し、しかも自己修復性を考慮しないケースでは、透気期間中に緩衝材領域に透気経路＝移行経路が緩衝材領域に新たに形成され、しかもそれが評価期間中残存するようなモデル構成となる。

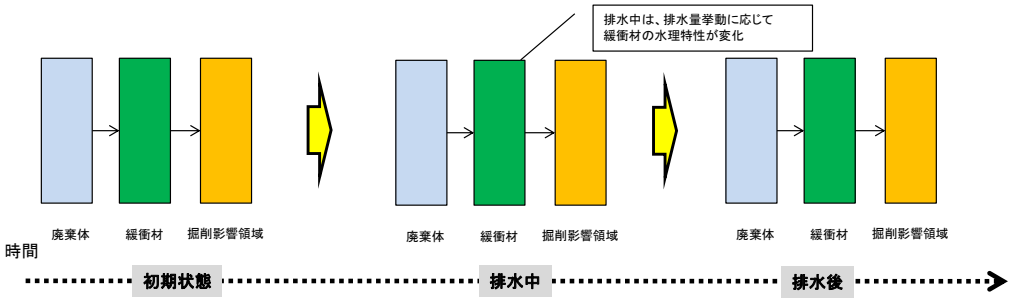
P2 のように流路拡幅を考慮し、同時に自己修復性を考慮するケースでは、透気期間中に緩衝材領域に透気経路＝移行経路が緩衝材領域に新たに形成されるが、透気後は同経路は消失し、緩衝材だけを移行媒体とする初期の状態に復帰するモデル構成となる。

汚染水の排水現象については、ガス移行解析における排水速度と累積排水量を勘案して核種移行解析上のパラメータ設定を行うが、排水速度／累積排水量の観測点については廃棄体外側境界および緩衝材外側境界とした場合の 2 つのガス移行解析結果をにらんで、核種移行上の設定を行うものとする（図 6.5.1-1 参照）。廃棄体外側境界を観測点とした場合、汚染水の移動という観点でほぼ正しく反映できているという長所がある一方、緩衝材側に汚染水を排水しているのみであり、人工バリア外に出る汚染水を表していないという短所がある。緩衝材外側境界を観測点とした場合、緩衝材の止水性能を阻害するという観点でガス影響を直接的に表しているという長所がある一方、特に排水現象が早期に生じる場合には汚染水の排水を表現していない（緩衝材外側近傍まで、拡散支配の場をまだ核種が移行していない）可能性があるという短所がある。核種移行解析上の近似を行う場合には、廃棄体外側／緩衝材外側を観測点とした評価結果をみて、排水速度および累積排水量の観点でより大きな結果となった方を保存するように設定することで、保守的な評価を行うものとした。

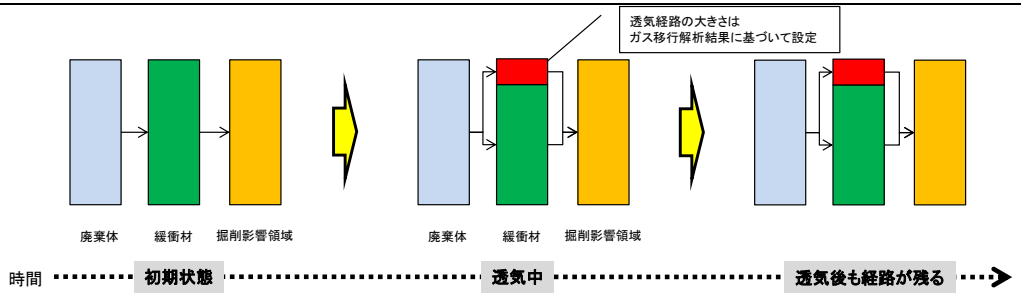
透気経路＝移行経路が形成される場合の当該経路の大きさについては、排水速度が最大となる時点での流路拡幅状況から設定するものとした。

---

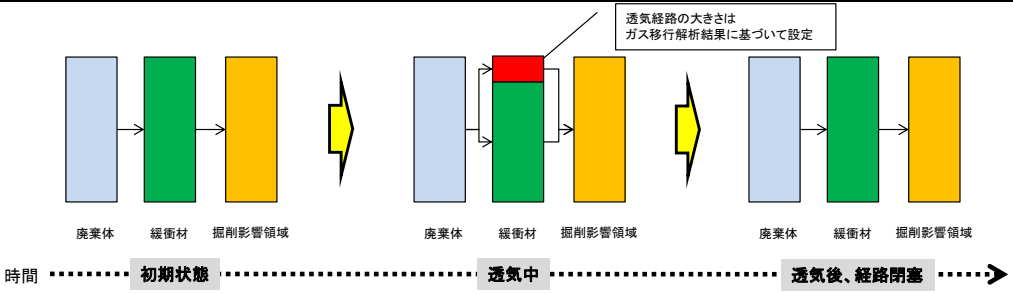
1 現実的には、動水勾配だけの driving force が動水勾配＋ガス圧の driving force となることで排水量の増大が生じるが、核種移行解析上は、該当時間における緩衝材の透水係数の上昇として表現する。



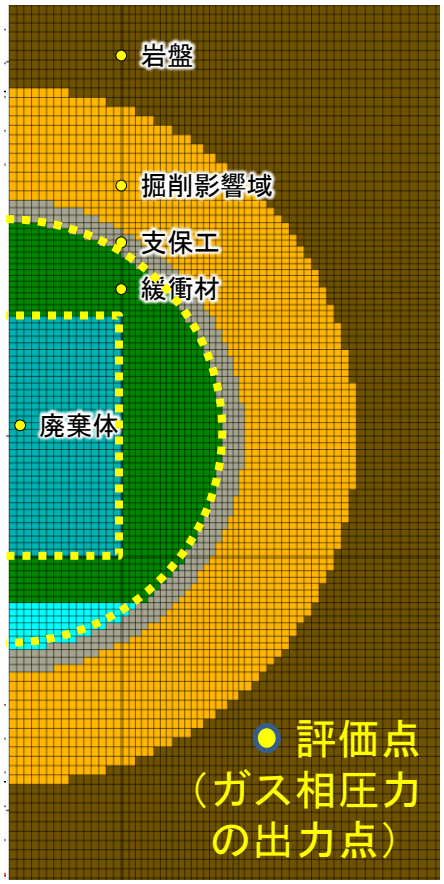
(1) P0：破過が生じない（等方的な排水）



(2) P1：透気経路＝核種移行経路生成（閉塞しない）



(3) P2：透気経路＝核種移行経路生成（透気後、閉塞する）



ガス移行解析の観測点

（黄色破線：廃棄体外側境界と緩衝材外側境界）

図 6.5.1-1　流路拡幅状態の設定に応じた核種移行モデルの考え方(1)～(3)、およびガス移行解析の観測点（廃棄体外側境界と緩衝材外側境界）

d.　ケース G1W1B1P0

ケース G1W1B1P0 におけるガス移行解析結果の核種移行解析への近似を図 6.5.1-2 に示す。主な条件は次の通りである。

●破過なし（等方的排水）
●最大排水速度：廃棄体外側より選択（0.027 $Nm^3/m/y$）
●累積排水量：緩衝材外側より選択（2.3 $Nm^3/m/$）
●核種移行解析のための近似：0.03 $Nm^3/m/y$ で、0.01～100 年排水（累積　約 3Nm^3/m）。
●透気経路＝移行経路の大きさ：－（破過なし）

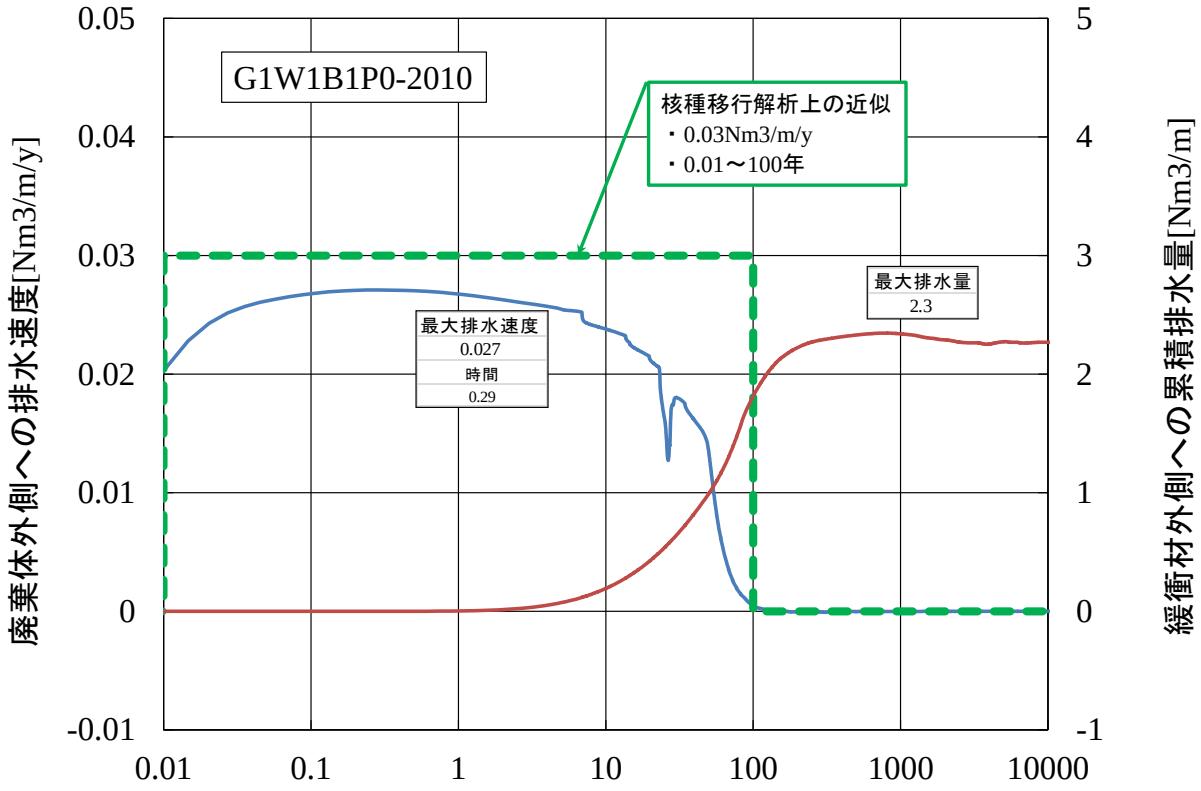


図 6.5.1-2　核種移行解析上のガス移行解析結果の近似（G1W1B1P0）

e.　ケース G1W2B2P1

ケース G1W2B2P1 におけるガス移行解析結果の核種移行解析への近似を図 6.5.1-3 に示す。主な条件は次の通りである。

●破過あり、透気経路＝移行経路の閉塞なし
●最大排水速度：緩衝材外側より選択（0.22 $Nm^3/m/y$、82.1 年）
●累積排水量：緩衝材外側より選択（13.5　$Nm^3/m/y$）
●核種移行解析のための近似：閉鎖後 80 年より、0.23 $Nm^3/m/y$（その後継続）
●透気経路＝移行経路の大きさ：0.156 m^2

新たに形成された透気経路＝移行経路は閉塞しないため、累積排水量は核種移行解析の方が過大となっている。また移行経路の大きさは、流路拡幅状況の観察結果より、0.156m（2 次元断面上の透気経路幅幅）×1m（ガス移行解析の 2 次元断面は単位坑道長さで実施）＝0.156m^2 とした。

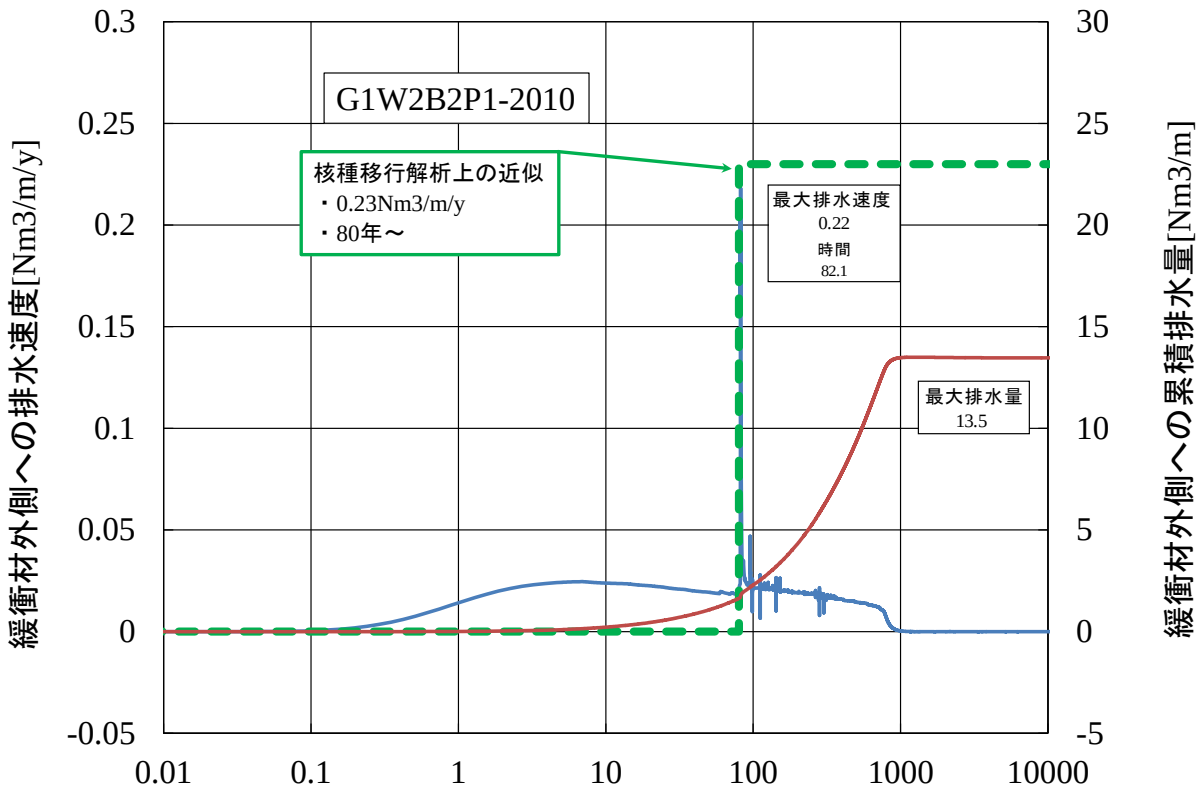


図 6.5.1-3　核種移行解析上のガス移行解析結果の近似（G1W2B2P1）

f.　ケース G1W2B2P2

ケース G1W2B2P2 におけるガス移行解析結果の核種移行解析への近似を図 6.5.1-4 に示す。主な条件は次の通りである。

●破過あり、透気経路＝移行経路の閉塞あり
●最大排水速度：廃棄体外側より選択（0.556 $Nm^3/m/y$、111.5 年）
●累積排水量：緩衝材外側より選択（13.5　Nm^3/m）
●核種移行解析のための近似：閉鎖後 110～140 年、0.56 $Nm^3/m/y$、累積排水量 16.8　Nm^3/m
●透気経路＝移行経路の大きさ：0.156 m^2

新たに形成された透気経路＝移行経路は自己修復して閉塞するため、ガス移行結果に合わせて排水速度は peaky になるとともに、累積排水量もガス解析結果に比較的よく近似できている。

移行経路の大きさについては、流路拡幅状況の観察結果より保守的な透気経路幅として 0.156m を選定し、透気経路面積は、0.156 m（2 次元断面上の透気経路幅幅）×1m（ガス移行解析の 2 次元断面は単位坑道長さで実施）＝0.156m^2 とした。

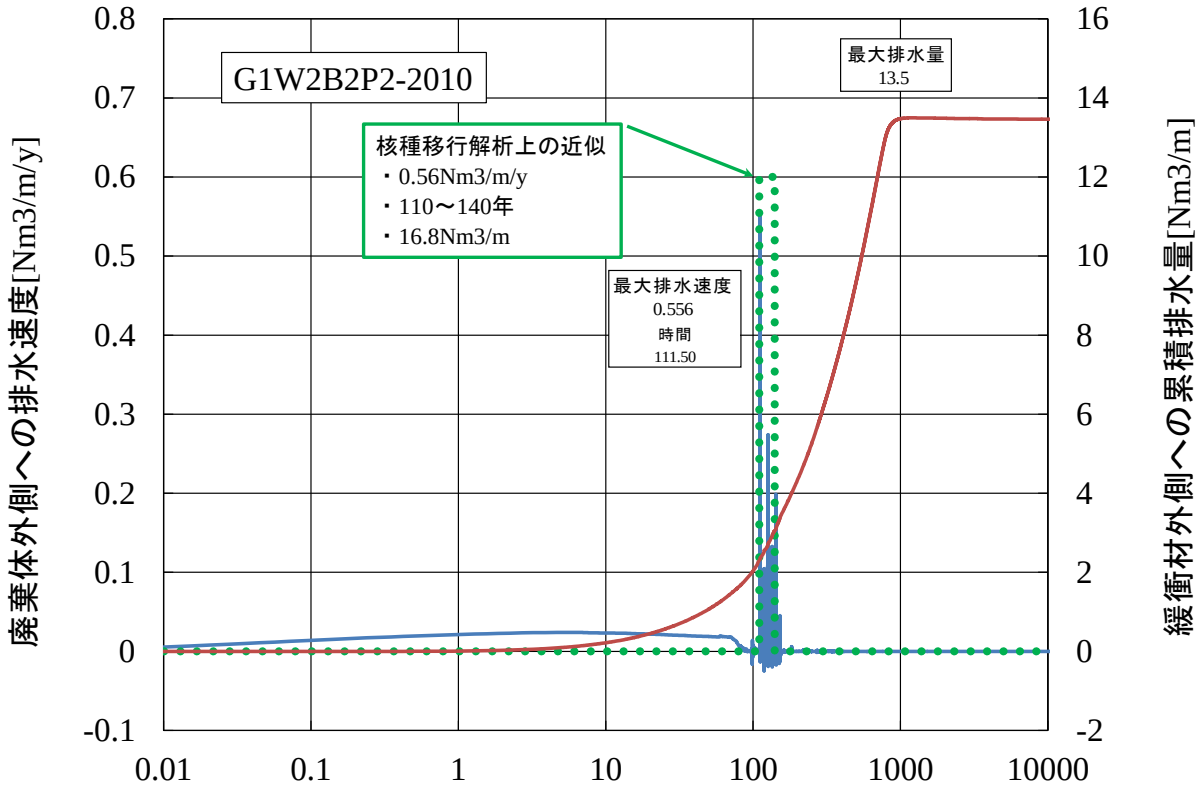


図 6.5.1-4　核種移行解析上のガス移行解析結果の近似（G1W2B2P2）

g.　ケース G3W1B2P1

ケース G3W1B2P1 におけるガス移行解析結果の核種移行解析への近似を図 6.5.1-5 に示す。主な条件は次の通りである。

●破過あり、透気経路＝移行経路の閉塞なし
●最大排水速度：緩衝材外側より選択（1.62 $Nm^3/m/y$、5.4 年）
●累積排水量：緩衝材外側より選択（13.2 Nm^3/m）
●核種移行解析のための近似：閉鎖後 5 年より、1.7 $Nm^3/m/y$（その後継続）
●透気経路＝移行経路の大きさ：1.0 m^2 (破過時のメッシュ増分から決定)、または、
2.2 m^2 (破過時のメッシュ増分から決定)

新たに形成された透気経路＝移行経路は閉塞しないため、累積排水量は核種移行解析の方が過大となっている。また、同ケースでは底部ベントナイトにてガス透気の破過が生じることが示唆されているが、移行経路幅の同定が難しいため、次の 2 つのケースで核種移行解析を行うこととした。

◆移行経路幅（破過時近傍時点でのメッシュ幅の増分）：1.0m
◆移行経路幅（破過時点でのメッシュ幅全体）：2.2m

したがって、同ケースでは、透気経路面積は、1.0 m（2 次元断面上の透気経路幅幅）×1m（ガス移行解析の 2 次元断面は単位坑道長さで実施）＝1.0m^2 とした場合と、2.2 m（2 次元断面上の透気経路幅幅）×1m（ガス移行解析の 2 次元断面は単位坑道長さで実施）＝2.2m^2 とした場合について、併せて解析を行うこととする。

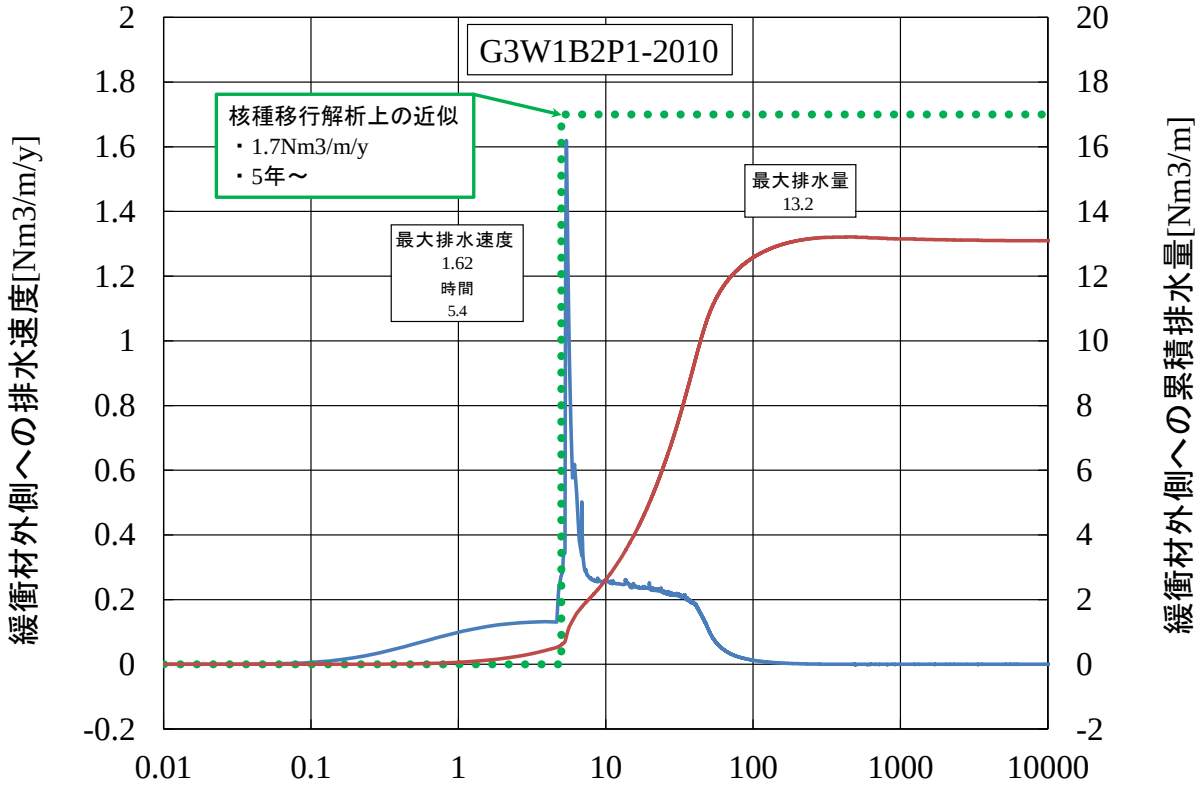


図 6.5.1-5　核種移行解析上のガス移行解析結果の近似（G3W1B2P1）

h.　ケース G3W1B2P1

ケース G3W1B2P2 におけるガス移行解析結果の核種移行解析への近似を図 6.5.1-6 に示す。主な条件は次の通りである。

●破過あり、透気経路＝移行経路の閉塞あり
●最大排水速度：緩衝材外側より選択（2.19 $Nm^3/m/y$、6.9 年）
●累積排水量：緩衝材外側より選択（13.2 Nm^3/m）
●核種移行解析のための近似：閉鎖後 6～13 年、2.2 $Nm^3/m/y$、累積排水量 15.4　Nm^3/m
●透気経路＝移行経路の大きさ：0.166 m^2

新たに形成された透気経路＝移行経路は自己修復して閉塞するため、ガス移行結果に合わせて排水速度は peaky になるとともに、累積排水量もガス解析結果に比較的よく近似できている。

移行経路の大きさについては、流路拡幅状況の観察結果より保守的な透気経路幅として 0.166m を選定し、透気経路面積は、0.166 m（2 次元断面上の透気経路幅幅）×1m（ガス移行解析の 2 次元断面は単位坑道長さで実施）＝0.166m^2 とした。

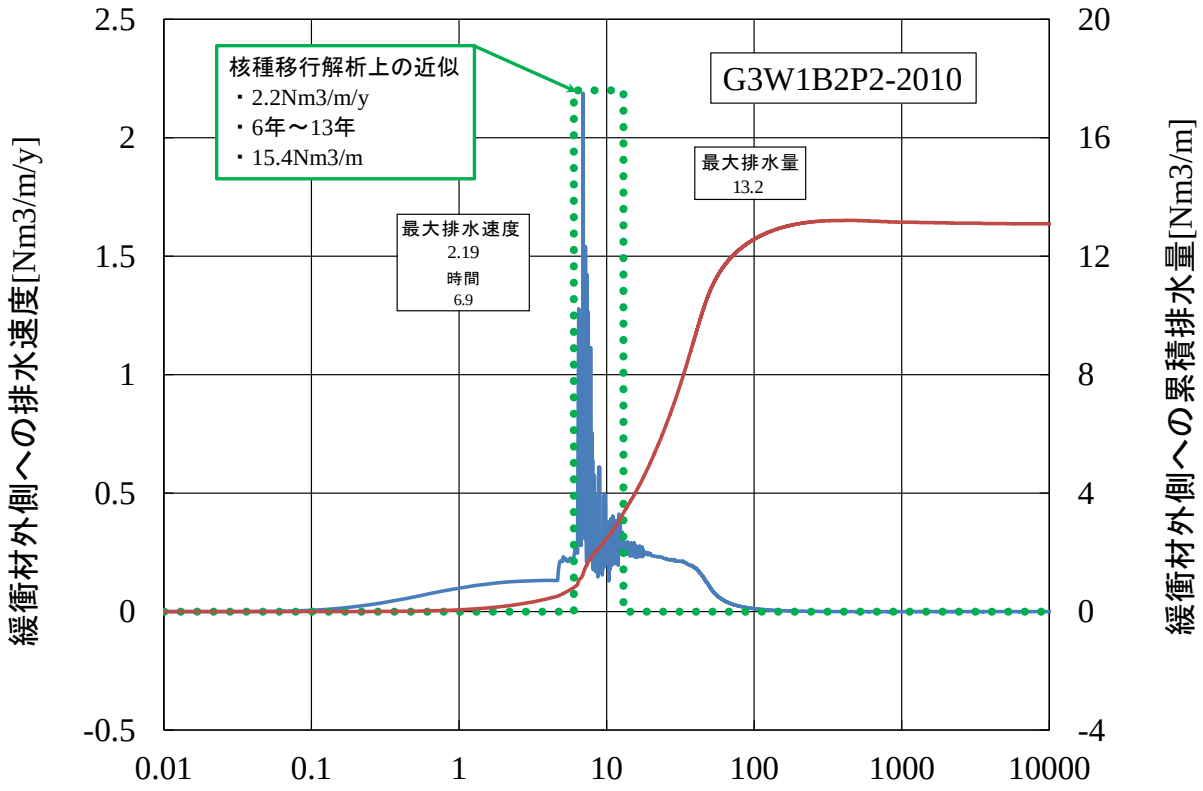


図 6.5.1-6　核種移行解析上のガス移行解析結果の近似（G3W1B2P2）

(4) 解析モデルの構築

1) 全体像

核種移行解析における解析モデルは、第 2 次 TRU レポート[1]における解析モデルに準拠する。同レポートでは、廃棄体からの核種漏洩に始まり、生物圏に至るまでの核種の移行経路について、図 6.5.1-7 のような概念を想定している。

核種の移行経路は次のようになる。

廃棄体→人工バリア（充填材、緩衝材等）→母岩→断層破砕帯→生物圏

安全評価においては生物圏に流入した核種と線量換算係数から算出される線量当量率が評価の指標となるが、本業務においては、人工バリアの成立性を議論すべく、影響因子の特定することや許容幅を見定めることが目的であるので、核種移行解析における評価点（人工バリア出口、断層入口、等）や指標（核種フラックス、流入量、等）は、議論の目的に応じて適宜判断するものとする。

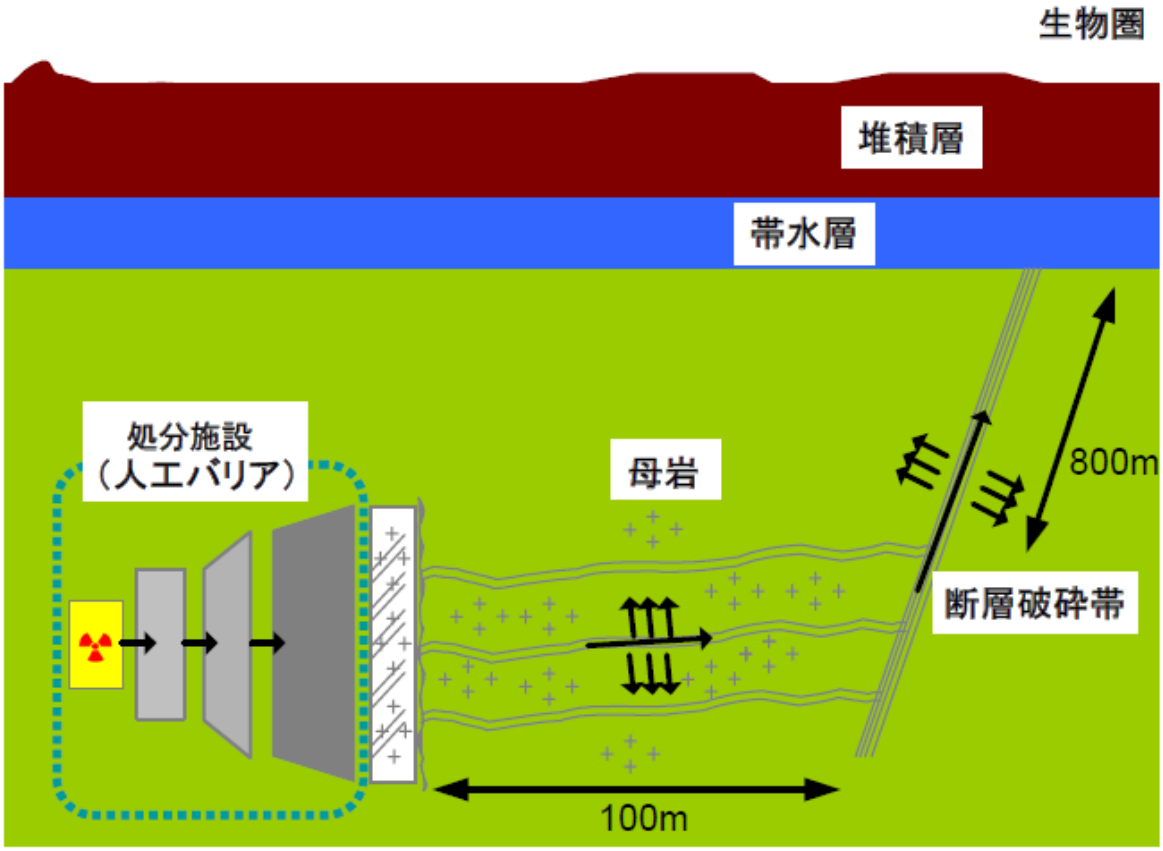


図 6.5.1-7　核種移行経路の概念図

2) 人工バリア中核種移行解析モデル

人工バリアは 1 次元の多孔質媒体としてモデル化する。評価対象となる廃棄体はグループ 2 であるので、廃棄体からの核種漏洩にあたっては、ハル・エンドピースの金属腐食に伴う腐食率モデル（band release ）を想定する。

人工バリア中の移行媒体としては、セメントからなる充填材領域とベントナイトからなる緩衝材領域を想定する。レファレンスとなる状態では緩衝材は止水バリアとして機能し、水理場を拡散場に維持するが、ガスによる透気現象が生じる場合には、局所的かつ一時的に水理場が乱れる状況を想定する。

人工バリアを通過した核種は掘削影響領域に流入し、そこで空間分布のない核種濃度になっていると仮定する（mixing cell model）2。核種移行における概念モデルとしては、掘削影響領域は人工バリア中の核種移行と天然バリア中の核種移行とを接続する領域として機能する。掘削影響領域内での核種濃度が、天然バリア中核種移行解析における内側境界条件となる。

なお、人工バリア中の核種移行の数学モデルは第 2 次 TRU レポート[1]と同等であり、ここでは詳述を割愛する。

3) 天然バリア中核種移行解析モデル

天然バリアでの移行経路は、母岩と断層破砕帯から構成される。

母岩での概念モデルは、1 次元平行平板モデルの重ね合わせで表現する。核種は 1 次元平行平板でモデル化された亀裂内を移行するのと同時に、亀裂に隣接する母岩マトリクス内部へ拡散する。

母岩を通過した核種は断層破砕帯に流入する。断層破砕帯は単一の 1 次元平行平板モデルで表現する。

ガスの透気現象による影響は人工バリア内に限定されるものと想定する。したがって、ガス透気現象に伴う天然バリア中核種移行モデルあるいはそのパラメータの設定見直しは生じない。

なお、天然バリア中の核種移行の数学モデルは第 2 次 TRU レポートと同等であり、ここでは詳述を割愛する。

(5) パラメータ設定

1) 廃棄体

a. 評価対象廃棄物

廃棄体グループ 2 のうち、収納容器としてキャニスタが適用される「Gr2-C」を核種移行評価の対象とした[1]。3

2 掘削影響領域内の核種濃度は空間分布を持たないが、そこでの経時変化は考慮する。

3 廃棄体グループ 2 としてはこれら以外に BNGS 容器に収納されたセメント固化体もあるが、ガス発生評価の対象となっていないので、核種移行解析においても評価対象から除外する。

b. インベントリ

核種移行評価用いるモデルインベントリは、廃棄体グループ２／キャニスタ（Gr2-C）のモデルインベントリー表[1]に準拠した。25 年間の中間貯蔵を考慮した設定となっている。

c. 廃棄体パッケージ

評価対象となる廃棄体グループ２／キャニスタの外形寸法は、φ430mm×H1,355mm となっている。キャニスタ 4 本単位で取り扱う廃棄体パッケージ B とした[1]。廃棄体パッケージ B の外形寸法は、□1,200mm×H1,600mm となっている。廃棄体パッケージ B は厚さ 5mm の炭素鋼で構成され、キャニスタ 4 本を収納した後の間隙はセメントモルタルで充填される設定となっている。

2) 処分坑道設計

処分坑道の設計は、定置する廃棄物の種類と母岩の力学的特性によって決まる。核種移行解析では、廃棄物は廃棄体グループ２のキャニスタ（Gr2-C)、母岩は軟岩系岩盤（SR-C）を想定した場合の処分坑道設計を対象とした[1]。

3) 廃棄物からの核種漏えい

ハル・エンドピースからの核種漏えいについては、核種の存在状況に応じて、①地下水との接触時に瞬時に水側に放出されるモデル（瞬時放出モデル）と、②金属母材中に存在する核種が母材の腐食に応じてより緩慢に放出されるモデル（金属腐食モデル）を組み合わせた。廃棄物表面およびジルカロイ酸化被膜に存在する成分は瞬時放出、ジルカロイ母材に存在する成分は地下水接触後 11,400 年の期間での band release、ステンレス鋼・インコネルに存在する成分は地下水接触後 8,500 年の期間での band release によって、最大３種類のモードによって放出されるとした[1]。C-14 を例にとると、初期インベントリの 13%が瞬時放出、53%が 11,400 年の band release、34%が 8,500 年の band release となる。

4) 溶解度・分配係数

廃棄体グループ２／キャニスタには有意な量の有機物が含有 s とおり、その分解生成物である ISA の影響により、人工バリア内では溶解度の上昇あるいは収着分配係数の低下が生じる、という考え方に準拠して溶解度・収着分配係数を設定した[1]。

5) 媒体物性諸元

人工バリアおよび天然バリアの各移行媒体の物性に関する諸元は第 2 次 TRU レポート[1]に準拠して設定した。

6) 天然バリアに関する近似と条件設定

天然バリアとしては、母岩および断層破砕帯からなるものと想定し、断層破砕帯の末端となる GBI (Geosphere Biosphere Interface) までの核種移行率を核種移行解析ツールによって評価す

る。母岩も断層破砕帯も亀裂性媒体を想定するが、母岩は水理特性の異なる複数の 1 次元平行平板亀裂の集合体としてモデル化する一方、断層破砕帯は単一の水理特性を有する 1 次元平行平板亀裂としてモデル化した[1]。

(6) 核種移行解析の実施

1) レファレンスケース

レファレンスケースにおける、人工バリア出口／母岩出口／断層出口での核種フラックスおよび線量率を図 6.5.1-8 に示す。

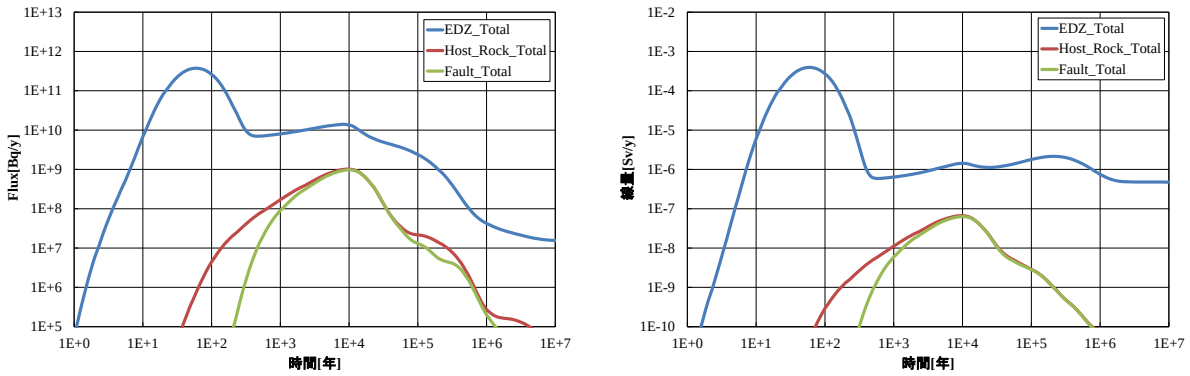


図 6.5.1-8 各観測点でのフラックスと線量率（レファレンスケース）

2) ガス影響ケース

a. ケース G1W1B1P0

ケース G1W1B1P0 における、人工バリア出口／母岩出口／断層出口での核種フラックスおよび線量率を図 6.5.1-9 に示す。

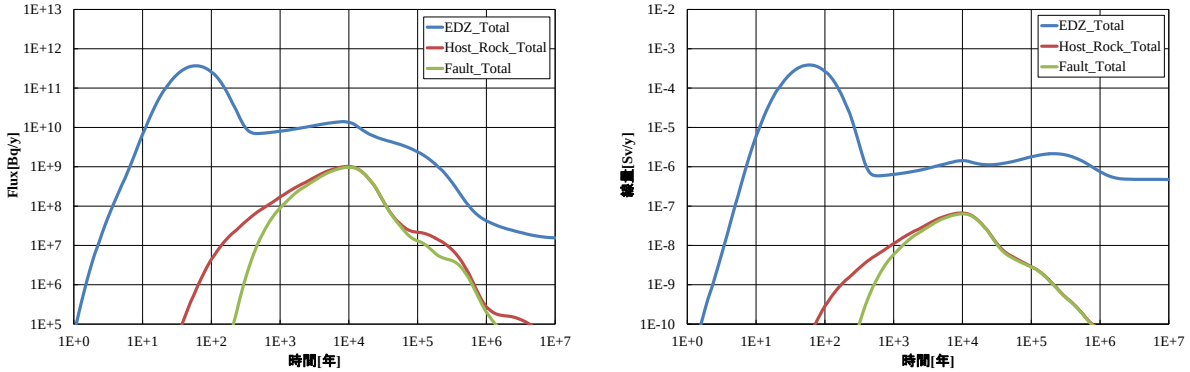


図 6.5.1-9 各観測点でのフラックスと線量率（G1W1B1P0）

b. ケース G1W2B2P1

ケース G1W2B2P1 における、人工バリア出口／母岩出口／断層出口での核種フラックスおよび線量率を図 6.5.1-10 に示す。

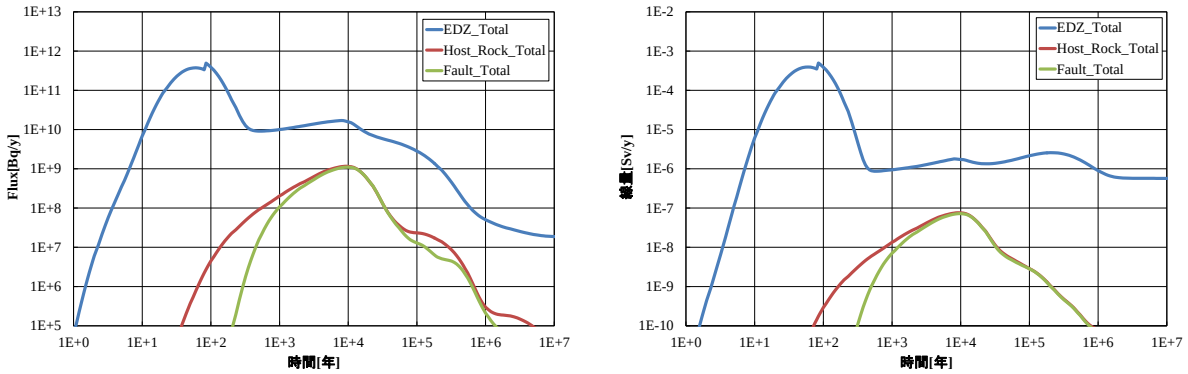


図 6.5.1-10　各観測点でのフラックスと線量率（G1W2B2P1）

c.　ケース G1W2B2P2

ケース G1W2B2P2 における、人工バリア出口／母岩出口／断層出口での核種フラックスおよび線量率を図 6.5.1-10 に示す。

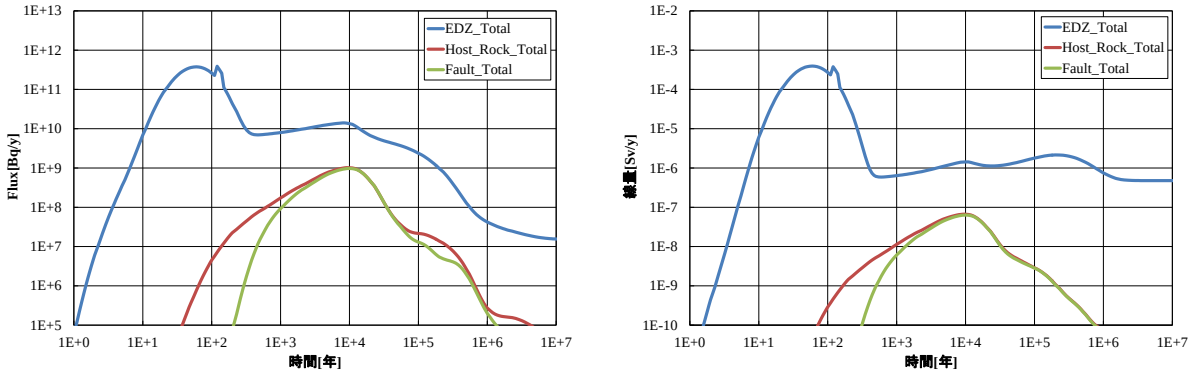


図 6.5.1-11　各観測点でのフラックスと線量率（G1W2B2P2）

d.　ケース G3W1B2P1

ケース G3W1B2P1 では、破過時のガス透気経路＝核種移行経路の大きさを一意に決めることが困難であったため、開口幅 1.0 m（断面積としては 1.0 m²）の場合と開口幅 2.2 m（断面積としては 2.2 m²）の場合の核種移行解析を行った。

開口幅 1.0 m の場合における、人工バリア出口／母岩出口／断層出口での核種フラックスおよび線量率を図 6.5.1-12 に示す。開口幅 2.2 m の場合における、人工バリア出口／母岩出口／断層出口での核種フラックスおよび線量率を図 6.5.1-13 に示す。

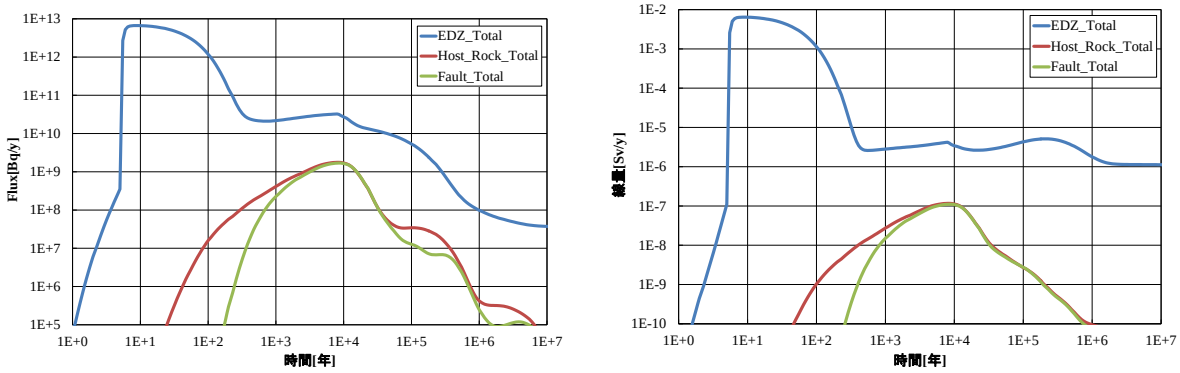


図 6.5.1-12　各観測点でのフラックスと線量率（G3W1B2P1、開口幅 1.0 m）

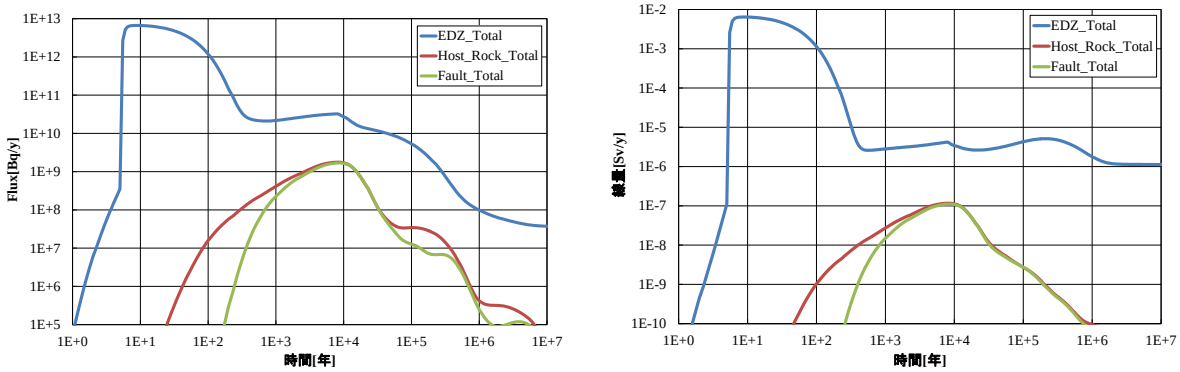


図 6.5.1-13　各観測点でのフラックスと線量率（G3W1B2P1、開口幅 2.2 m）

e.　ケース G3W1B2P2

ケース G3W1B2P2 における、人工バリア出口／母岩出口／断層出口での核種フラックスおよび線量率を図 6.5.1-14 に示す。

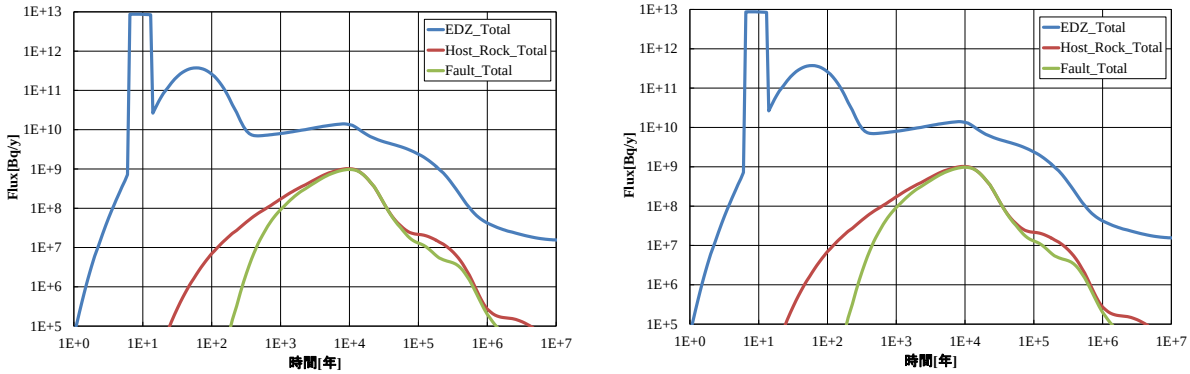


図 6.5.1-14　各観測点でのフラックスと線量率（G3W1B2P2）

6.5.2　核種移行解析結果に基づく施設（人工バリア）成立性の評価

(1) 主要核種への影響

1) 人工バリア出口でのフラックス整理による評価

主要元素として C-14, Ni-63, Sr-90, Cs-137 および Am-241 に注目した場合に、各核種の人工バリア出口でのフラックスを解析ケース毎に比較したものを図 6.5.2-1～図 6.5.2-3 に示す。

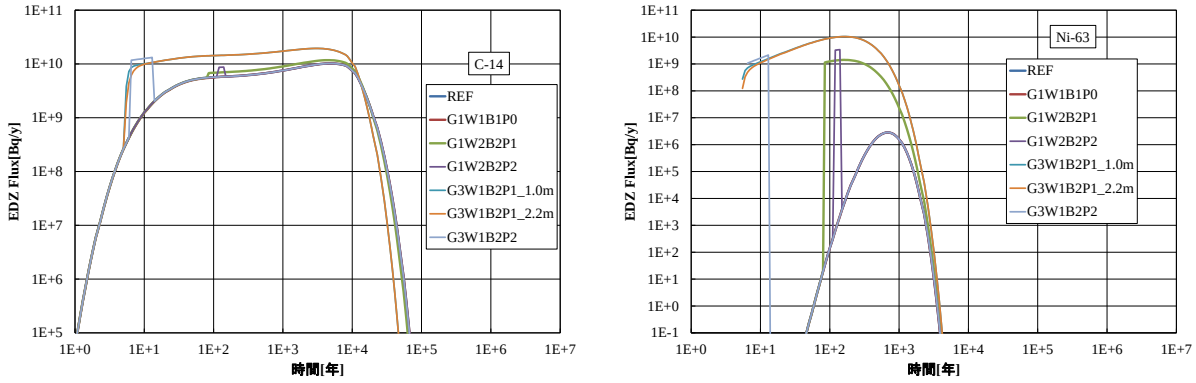


図 6.5.2-1　解析ケース毎の人工バリア出口フラックスの比較（C-14 および Ni-63）

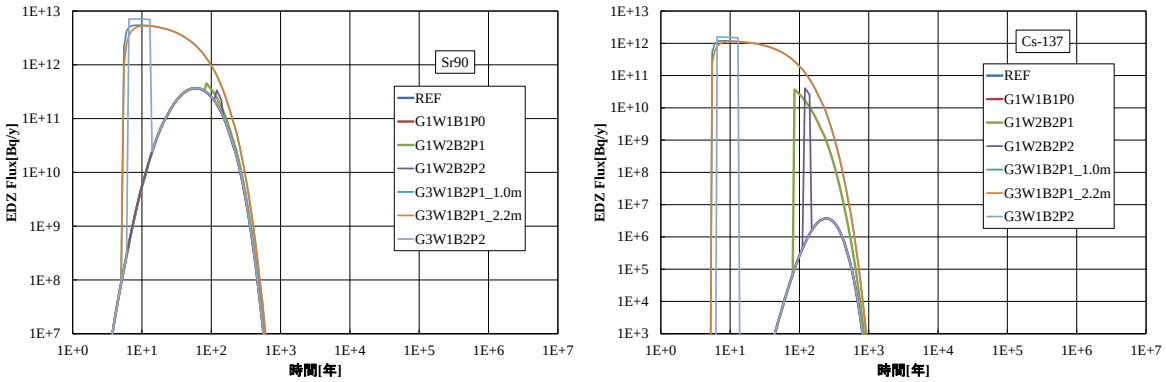


図 6.5.2-2　解析ケース毎の人工バリア出口フラックスの比較（Sr-90 および C-137）

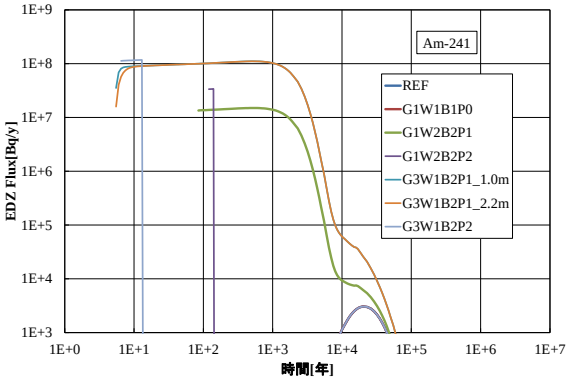


図 6.5.2-3　解析ケース毎の人工バリア出口フラックスの比較（Am-241）

2) 多重バリアシステム内での核種存在割合の整理による評価

核種移行解析における媒体として、人工バリア（EBS)、天然バリア（NBS：母岩＋断層破砕帯）および生物圏（GBI 通過後）の各領域における核種の存在割合は、各検討ケースにおける各バリアの保持能力を表す一つの指標となりうる。主要元素として、前項の C-14, Ni-63, Sr-90, Cs-137 及び Am-241 に、比較対照のために Cl-36 及び I-129 を追加して、各バリア内での存在割合を解析ケース毎に比較したものを図 6.5.2-4～図 6.5.2-10 に示す。

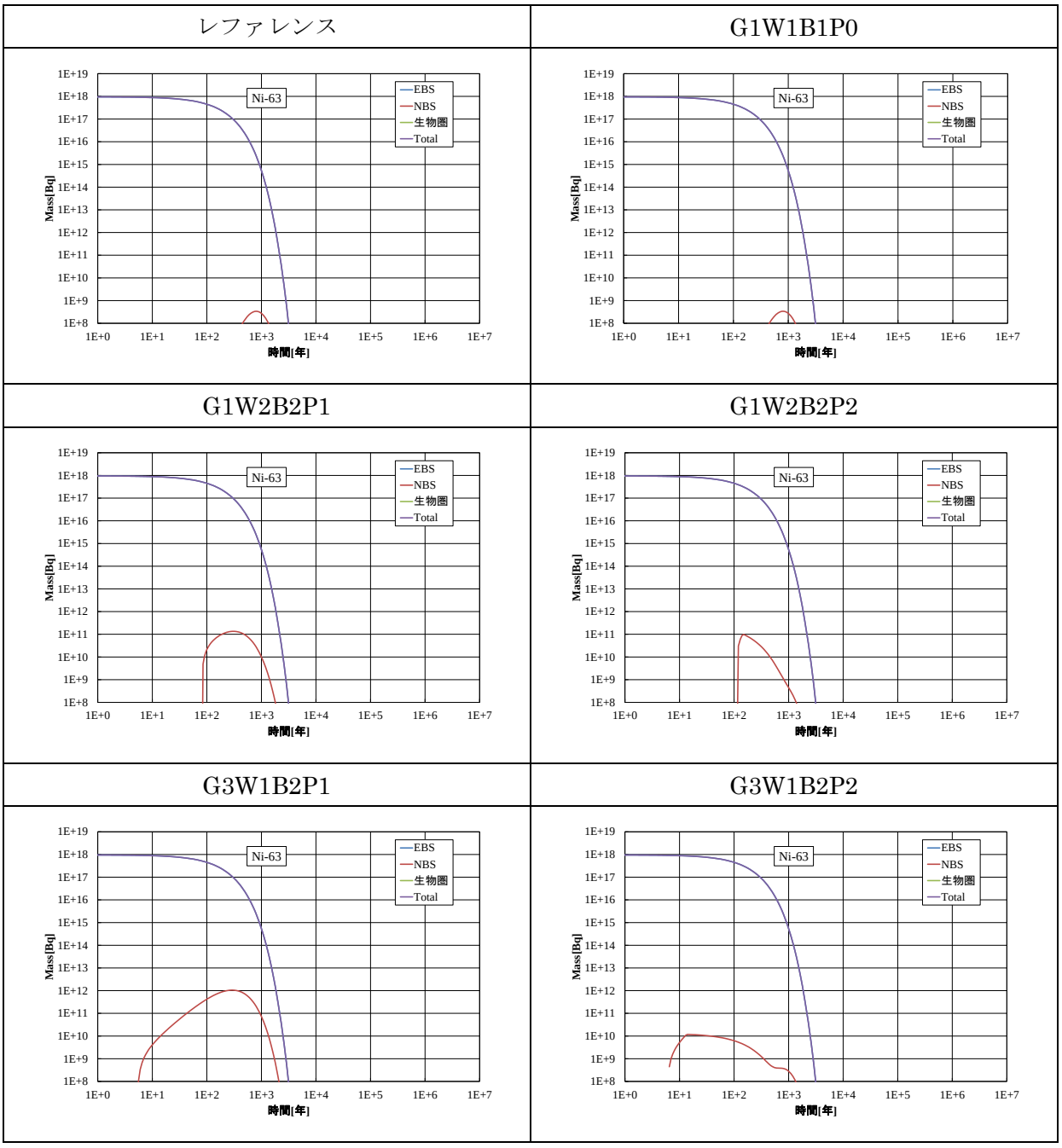
各図の下部の表は、初期インベントリとその減衰から定まる存在量を 100%としたときの、人工バリア EBS、天然バリア NBS 及び生物圏の各領域での存在割合を示している（経時変化プロファイルの積分値)。

Ni-63、Sr-90、Cs-137、Am-241 では、いずれの解析ケースの場合でも、生物圏にまで到達することはなく、減衰し終わるまでのその生涯に渡り、ほとんどが人工バリア内にとどまっていることがわかる。その理由は、半減期が比較的短いこと、及び収着性等人工バリアでの閉じ込め性能が良好なことによる。一方、比較対照のために追加した Cl-36 及び I-129 では、上述の核種とは対照的に、半減期が長いため、及び人工バリアでの収着性に乏しいために、いずれの解析ケースでも、最終的にはそのほとんどが生物圏にまで到達してしまうことがわかる（Cl-36 では 58%～59%、I-129 では 95%)。

廃棄体グループ 2（キャニスタ）において、被ばく評価上、最も重要な核種となる C-14 については、生物圏にまで到達する割合は 3.0%～4.7%となっている。生物圏にまで到達する割合は決して大きくはないが、それが生物圏での線量当量率を支配していることがわかる。また、透気経路＝移行経路が閉塞するケース[4]ではいずれも生物圏にまで到達する割合は 3.0%であるのに対して、透気経路＝移行経路が閉塞しないケースでは、3.3％（G1W2B2P1 ケース)、4.7%（G3W1B2P1 ケース）とわずかながら上昇しており、それが線量当量率の上昇を招いている。

[4] 実際には透気経路が形成されないレファレンスケース及び等方的な排水のケース（G1W1B1P0 ケース）を含む。

Ni-63

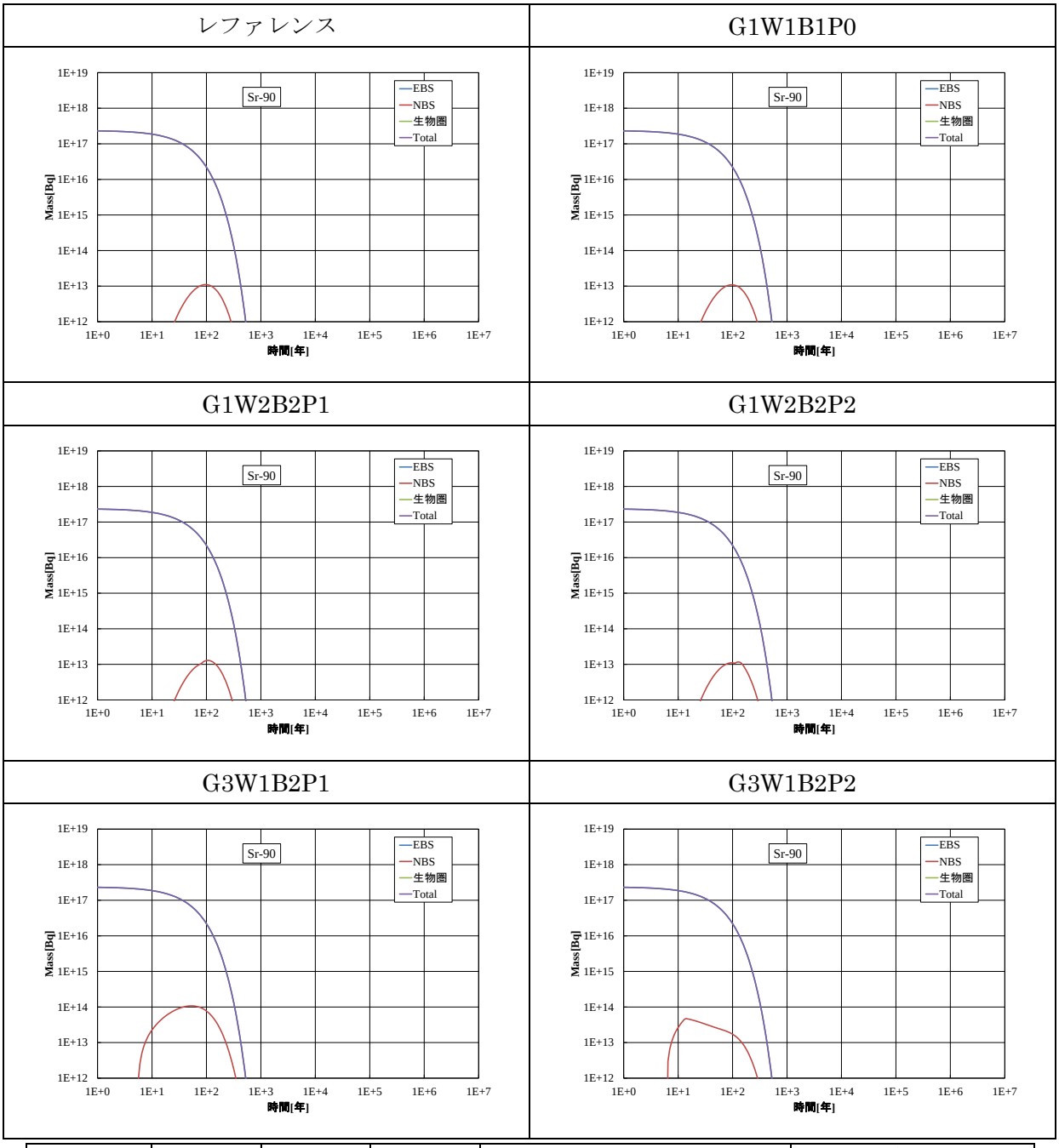


Ni-63 ケース名	ガス 発生量(G)	廃棄体 間隙率(W)	緩衝材 水理物性(B)	緩衝材の流路拡幅(P) 破過	 自己修復性	存在量[%] EBS	 NBS	 生物圏
リファレンス	ー	標準設定 (φ= 0.19)	標準設定 (TRU-2相当)	なし	(ガス透気とは無関係に 自己シール性あり)	100.00	0.00	0.00
G1W1B1P0	TRU-2相当	φ= 0.19	TRU-2相当	なし (等方的な排水)	(ガス透気とは無関係に 自己シール性あり)	100.00	0.00	0.00
G1W2B2P1	TRU-2相当	φ= 0.5	排水量最大	あり	透気後、経路は閉塞しない	100.00	0.00	0.00
G1W2B2P2	TRU-2相当	φ= 0.5	排水量最大	あり	透気後、経路は閉塞する	100.00	0.00	0.00
G3W1B2P1	10倍 (全評価期間)	φ= 0.19	排水量最大	あり	透気後、経路は閉塞しない	100.00	0.00	0.00
G3W1B2P2	10倍 (全評価期間)	φ= 0.19	排水量最大	あり	透気後、経路は閉塞する	100.00	0.00	0.00

※：透気経路=移行経路が閉塞しないケースを網掛け表示した。

図 6.5.2-4　多重バリア内での核種の存在割合（Ni-63）

Sr-90

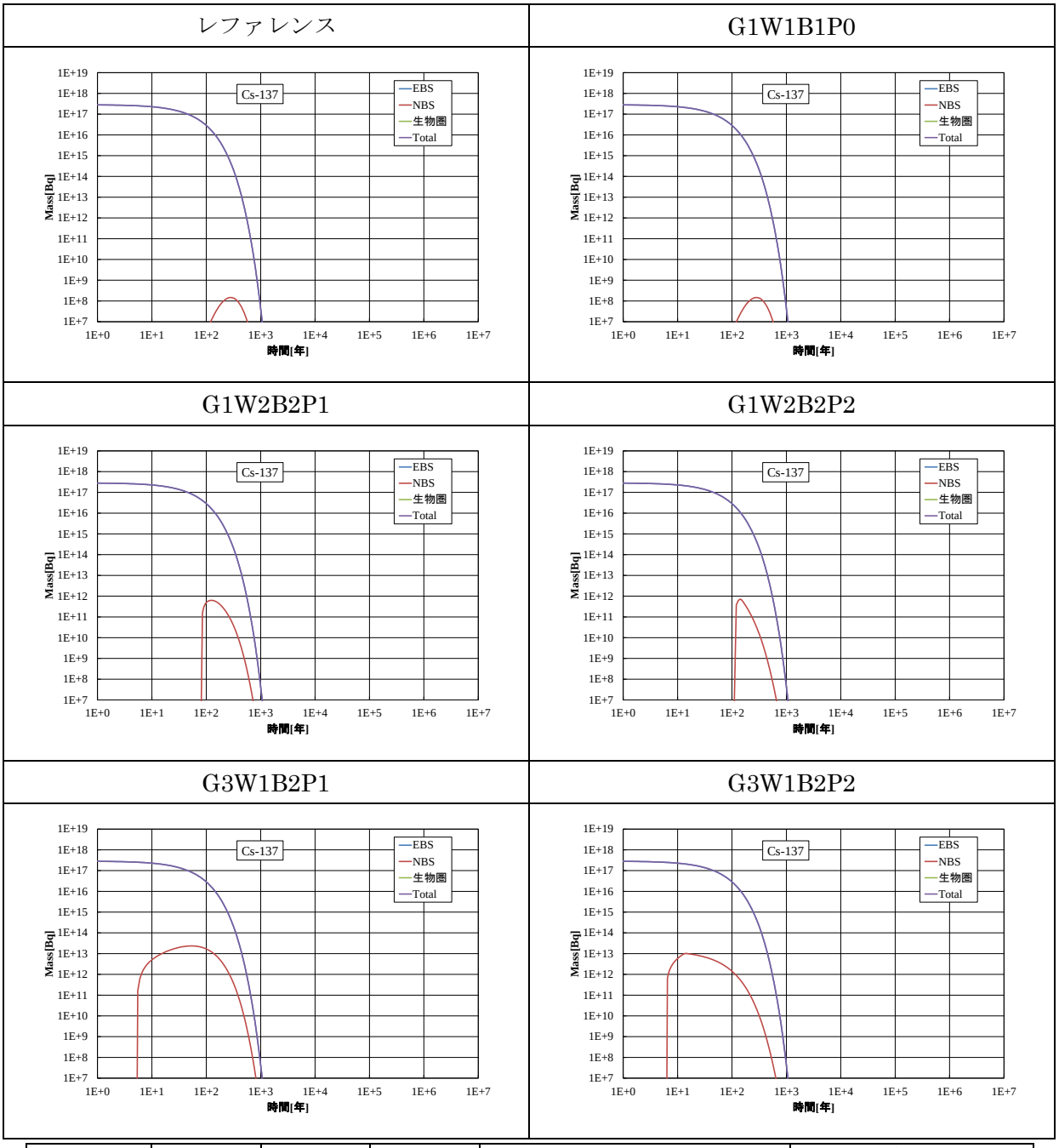


Sr-90 ケース名	ガス 発生量(G)	廃棄体 間隙率(W)	緩衝材 水理物性(B)	緩衝材の流路拡幅(P) 破過	 自己修復性	存在量[%] EBS	 NBS	 生物圏
リファレンス	—	標準設定 (φ= 0.19)	標準設定 (TRU-2相当)	なし	(ガス透気とは無関係に 自己シール性あり)	99.98	0.02	0.00
G1W1B1P0	TRU-2相当	φ= 0.19	TRU-2相当	なし (等方的な排水)	(ガス透気とは無関係に 自己シール性あり)	99.98	0.02	0.00
G1W2B2P1	TRU-2相当	φ= 0.5	排水量最大	あり	透気後、経路は閉塞しない	99.98	0.02	0.00
G1W2B2P2	TRU-2相当	φ= 0.5	排水量最大	あり	透気後、経路は閉塞する	99.98	0.02	0.00
G3W1B2P1	10倍 (全評価期間)	φ= 0.19	排水量最大	あり	透気後、経路は閉塞しない	99.87	0.13	0.00
G3W1B2P2	10倍 (全評価期間)	φ= 0.19	排水量最大	あり	透気後、経路は閉塞する	99.96	0.04	0.00

※：透気経路=移行経路が閉塞しないケースを網掛け表示した。

図 6.5.2-5　多重バリア内での核種の存在割合（Sr-90）

Cs-137

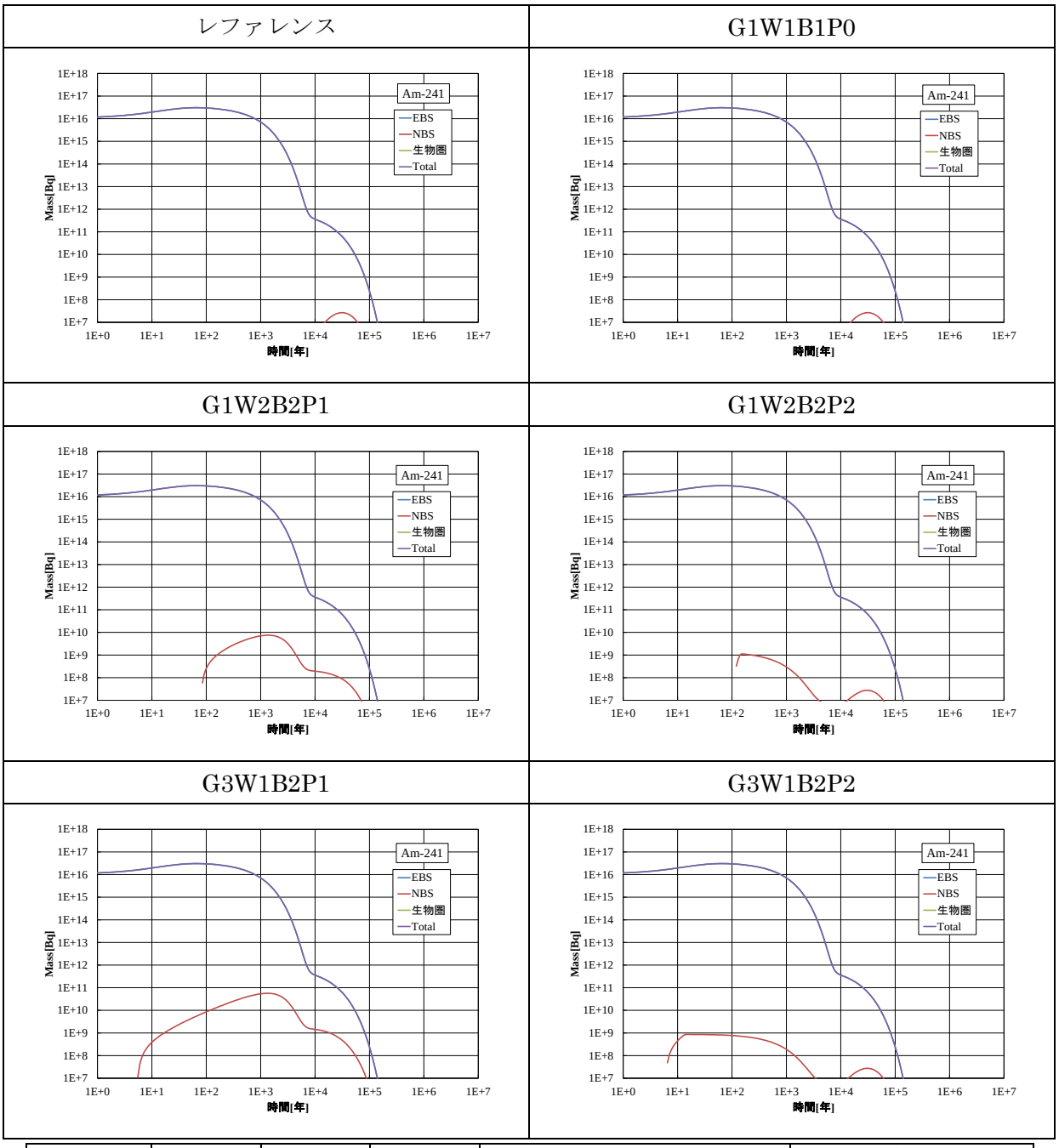


Cs-137 ケース名	ガス 発生量(G)	廃棄体 間隙率(W)	緩衝材 水理物性(B)	緩衝材の流路拡幅(P) 破過	 自己修復性	存在量[%] EBS	 NBS	 生物圏
リファレンス	—	標準設定 (φ= 0.19)	標準設定 (TRU-2相当)	なし	(ガス透気とは無関係に 自己シール性あり)	100.00	0.00	0.00
G1W1B1P0	TRU-2相当	φ= 0.19	TRU-2相当	なし (等方的な排水)	(ガス透気とは無関係に 自己シール性あり)	100.00	0.00	0.00
G1W2B2P1	TRU-2相当	φ= 0.5	排水量最大	あり	透気後、経路は閉塞しない	100.00	0.00	0.00
G1W2B2P2	TRU-2相当	φ= 0.5	排水量最大	あり	透気後、経路は閉塞する	100.00	0.00	0.00
G3W1B2P1	10倍 (全評価期間)	φ= 0.19	排水量最大	あり	透気後、経路は閉塞しない	99.98	0.02	0.00
G3W1B2P2	10倍 (全評価期間)	φ= 0.19	排水量最大	あり	透気後、経路は閉塞する	100.00	0.00	0.00

※：透気経路=移行経路が閉塞しないケースを網掛け表示した。

図 6.5.2-6　多重バリア内での核種の存在割合（Cs-137）

Am-241



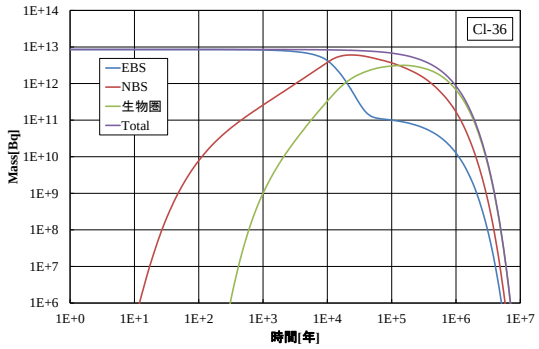
Am-241 ケース名	ガス 発生量(G)	廃棄体 間隙率(W)	緩衝材 水理物性(B)	緩衝材の流路拡幅(P) 破過	 自己修復性	存在量[%] EBS	 NBS	 生物圏
リファレンス	—	標準設定 (φ= 0.19)	標準設定 (TRU-2相当)	なし	(ガス透気とは無関係に 自己シール性あり)	100.00	0.00	0.00
G1W1B1P0	TRU-2相当	φ= 0.19	TRU-2相当	なし (等方的な排水)	(ガス透気とは無関係に 自己シール性あり)	100.00	0.00	0.00
G1W2B2P1	TRU-2相当	φ= 0.5	排水量最大	あり	透気後、経路は閉塞しない	100.00	0.00	0.00
G1W2B2P2	TRU-2相当	φ= 0.5	排水量最大	あり	透気後、経路は閉塞する	100.00	0.00	0.00
G3W1B2P1	10倍 (全評価期間)	φ= 0.19	排水量最大	あり	透気後、経路は閉塞しない	100.00	0.00	0.00
G3W1B2P2	10倍 (全評価期間)	φ= 0.19	排水量最大	あり	透気後、経路は閉塞する	100.00	0.00	0.00

※：透気経路=移行経路が閉塞しないケースを網掛け表示した。

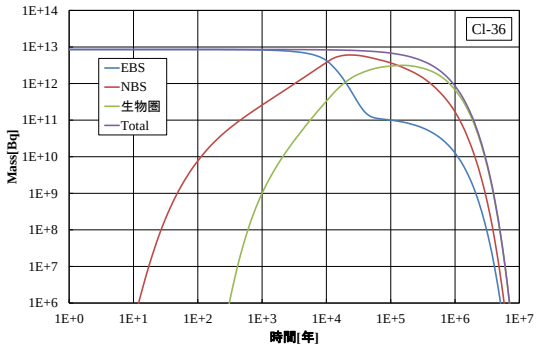
図 6.5.2-7　多重バリア内での核種の存在割合（Am-241）

Cl-36

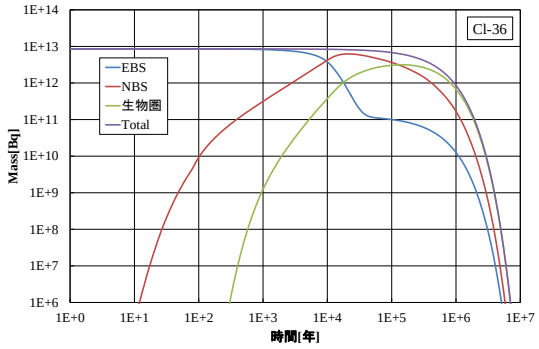
レファレンス



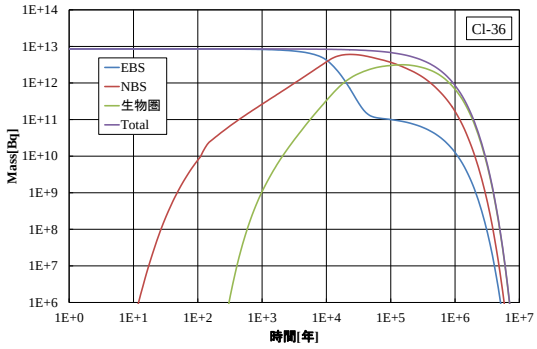
G1W1B1P0



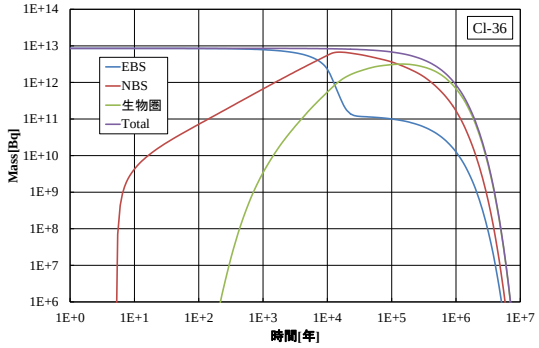
G1W2B2P1



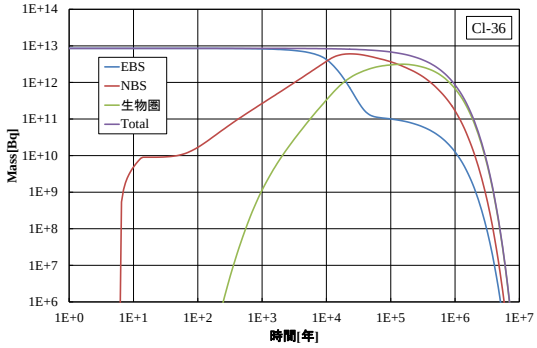
G1W2B2P2



G3W1B2P1



G3W1B2P2

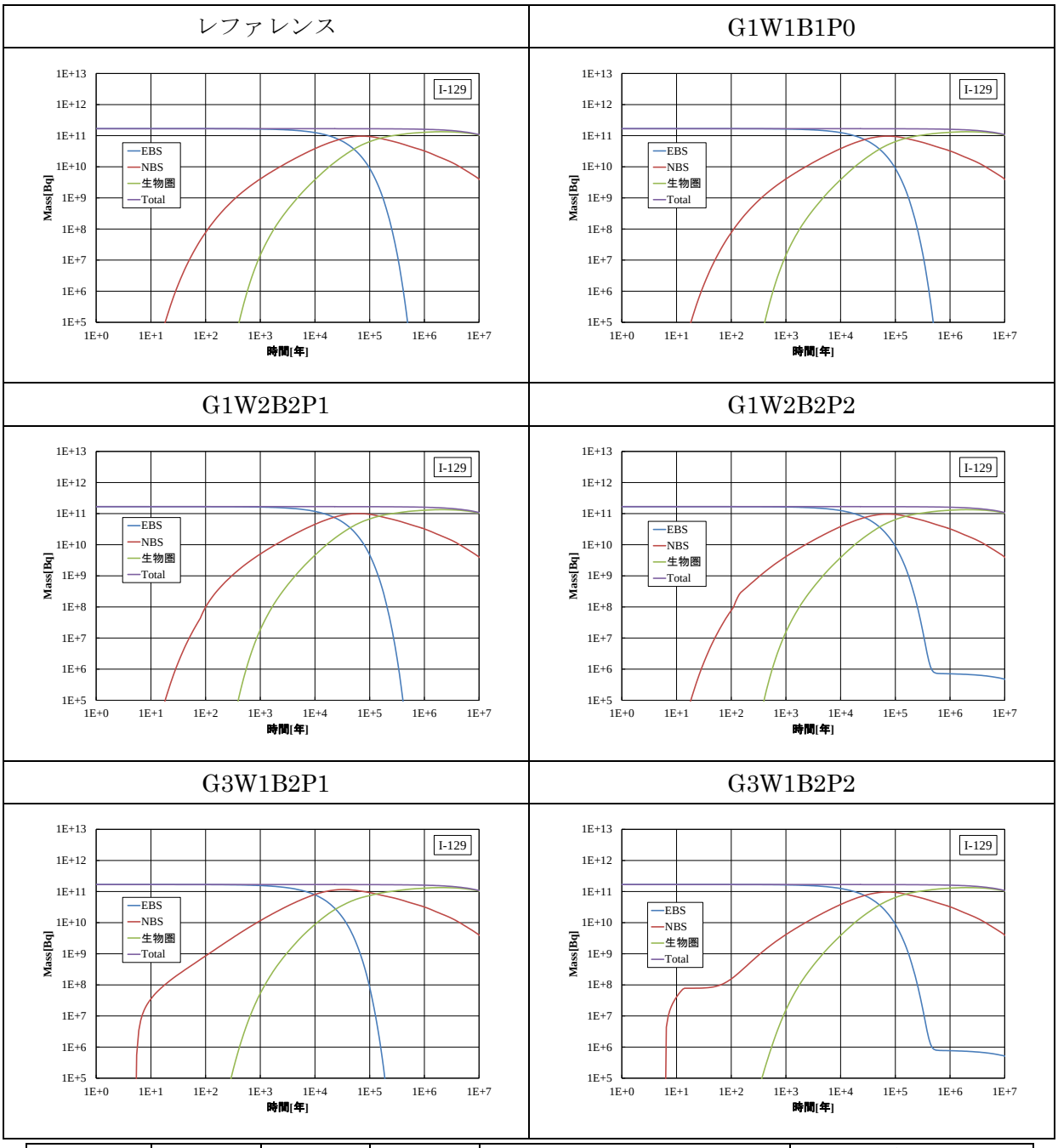


Cl-36	ガス	廃棄体	緩衝材	緩衝材の流路拡幅(P)		存在量[%]		
ケース名	発生量(G)	間隙率(W)	水理物性(B)	破過	自己修復性	EBS	NBS	生物圏
リファレンス	—	標準設定 (φ= 0.19)	標準設定 (TRU-2相当)	なし	(ガス透気とは無関係に 自己シール性あり)	3.97	37.54	58.48
G1W1B1P0	TRU-2相当	φ= 0.19	TRU-2相当	なし (等方的な排水)	(ガス透気とは無関係に 自己シール性あり)	3.97	37.54	58.48
G1W2B2P1	TRU-2相当	φ= 0.5	排水量最大	あり	透気後、経路は閉塞しない	3.71	37.65	58.65
G1W2B2P2	TRU-2相当	φ= 0.5	排水量最大	あり	透気後、経路は閉塞する	3.97	37.54	58.48
G3W1B2P1	10倍 (全評価期間)	φ= 0.19	排水量最大	あり	透気後、経路は閉塞しない	3.04	37.91	59.05
G3W1B2P2	10倍 (全評価期間)	φ= 0.19	排水量最大	あり	透気後、経路は閉塞する	3.97	37.54	58.48

※：透気経路=移行経路が閉塞しないケースを網掛け表示した。

図 6.5.2-8　多重バリア内での核種の存在割合（Cl-36）

I-129

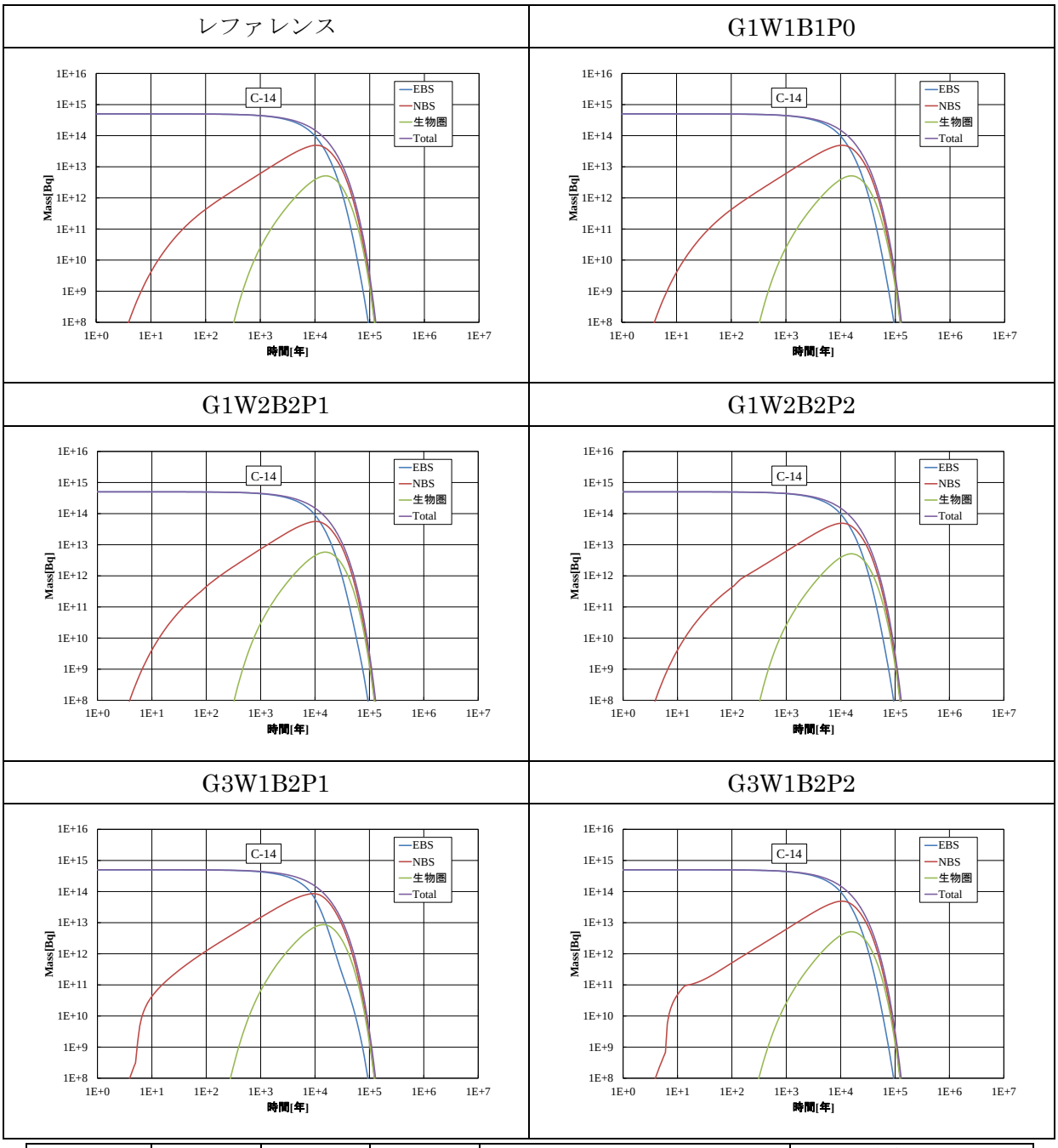


I-129 ケース名	ガス 発生量(G)	廃棄体 間隙率(W)	緩衝材 水理物性(B)	緩衝材の流路拡幅(P) 破過	 自己修復性	存在量[%] EBS	 NBS	 生物圏
リファレンス	—	標準設定 (φ= 0.19)	標準設定 (TRU-2相当)	なし	(ガス透気とは無関係に 自己シール性あり)	0.15	4.96	94.89
G1W1B1P0	TRU-2相当	φ= 0.19	TRU-2相当	なし (等方的な排水)	(ガス透気とは無関係に 自己シール性あり)	0.15	4.96	94.89
G1W2B2P1	TRU-2相当	φ= 0.5	排水量最大	あり	透気後、経路は閉塞しない	0.13	4.96	94.91
G1W2B2P2	TRU-2相当	φ= 0.5	排水量最大	あり	透気後、経路は閉塞する	0.15	4.96	94.89
G3W1B2P1	10倍 (全評価期間)	φ= 0.19	排水量最大	あり	透気後、経路は閉塞しない	0.06	4.96	94.98
G3W1B2P2	10倍 (全評価期間)	φ= 0.19	排水量最大	あり	透気後、経路は閉塞する	0.15	4.96	94.89

※：透気経路=移行経路が閉塞しないケースを網掛け表示した。

図 6.5.2-9　多重バリア内での核種の存在割合（I-129）

C-14



C-14 ケース名	ガス 発生量(G)	廃棄体 間隙率(W)	緩衝材 水理物性(B)	緩衝材の流路拡幅(P) 破過	 自己修復性	存在量[%] EBS	 NBS	 生物圏
リファレンス	—	標準設定 (φ= 0.19)	標準設定 (TRU-2相当)	なし	(ガス透気とは無関係に 自己シール性あり)	74.14	22.86	3.00
G1W1B1P0	TRU-2相当	φ= 0.19	TRU-2相当	なし (等方的な排水)	(ガス透気とは無関係に 自己シール性あり)	74.14	22.86	3.00
G1W2B2P1	TRU-2相当	φ= 0.5	排水量最大	あり	透気後、経路は閉塞しない	71.26	25.41	3.33
G1W2B2P2	TRU-2相当	φ= 0.5	排水量最大	あり	透気後、経路は閉塞する	74.13	22.87	3.00
G3W1B2P1	10倍 (全評価期間)	φ= 0.19	排水量最大	あり	透気後、経路は閉塞しない	59.91	35.44	4.65
G3W1B2P2	10倍 (全評価期間)	φ= 0.19	排水量最大	あり	透気後、経路は閉塞する	74.13	22.87	3.00

※：透気経路=移行経路が閉塞しないケースを網掛け表示した。

図 6.5.2-10　多重バリア内での核種の存在割合（C-14）

(2) ガス発生／ガス移行挙動が主要核種の移行挙動へ与える影響を考慮した評価

1) ガス発生（ガス発生速度とタイミング）

図 6.5.2-11（左図）に各解析ケースにおけるガス移行解析結果を近似した排水速度と、レファレンスケースの場合の人工バリア出口における核種フラックス（EDZ フラックス）とを、時間軸を同期させた図として示す。

透気経路＝排水経路の形成されない G1W1B1P0 ケース（等方的な排水のみ）では、近似モデルにおいて排水速度のピークは生じない。

一方、透気経路＝排水経路の形成されるケース（P1 または P2）では、近似モデルのプロファイルは、ガス発生量に関する設定（G1 または G3）によって大きく 2 つに傾向が分かれた。TRU-2 レポート相当のガス発生量を想定した G1W2B2P1/G1W2B2P2 のケースでは、排水速度のピークは、レファレンスケースにおける核種フラックスピーク（処分後 60 年）以降に立ち上がっており（G1W2B2P1 では 80 年、G1W2B2P2 では 110 年）、排水速度の大きさもそれほど大きくない。これに対して、仮想的に TRU-2 レポートの 10 倍のガス発生量を想定した G3W1B2P1/G3W1B2P2 のケースでは、排水速度のピークは、レファレンスケースにおける核種フラックスピーク（処分後 60 年）以前に立ち上がっており（G3W1B2P1 では 5 年、G3W1B2P2 では 6 年）、排水速度も比較的大きい。

レファレンスケースにおいて EDZ フラックスのピークを与える Sr-90 に着目して、各解析ケースにおける EDZ フラックスの経時変化を比較したものを、図 6.5.2-11（右図）に示す。TRU-2 レポート相当のガス発生量を想定した G1W1B1P0/G1W2B2P1/G1W2B2P2 のケースでは、Sr-90 の EDZ フラックスにはほとんど変化がないか（G1W1B1P0）、変化がある場合でも、その相違はごくわずか（G1W2B2P1/G1W2B2P2）であった。一方、TRU-2 レポートの 10 倍のガス発生量を想定した G3W1B2P1/G3W1B2P2 のケースでは、Sr-90 の EDZ フラックスが 2 オーダー程度まで上昇する結果となった。これは、近似モデルにおける排水速度が大きい効果ばかりでなく、非常に早期に排水現象が生じることによって、レファレンスケースで期待される核種の減衰効果が発揮されていない効果が大きい。

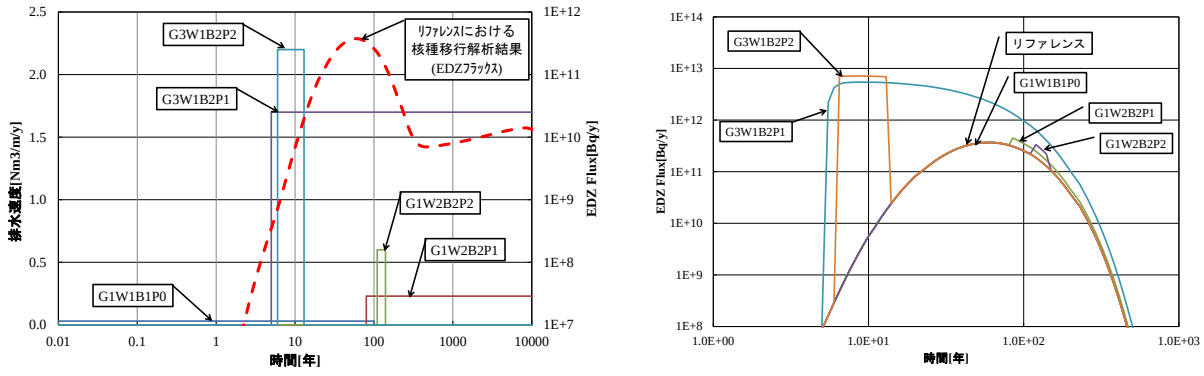


図 6.5.2-11　ガス移行解析結果の近似と EDZ フラックス（左図）および
EDZ フラックス（Sr-90）における解析ケースの比較（右図）

以上より、ガス影響シナリオについて、核種移行の観点からは次のように結論することができる。

● ガス発生量が大きいことは、人工バリア出口でのフラックスを増大させる可能性がある。
● 特に排水現象が早期に生じる場合、比較的、半減期の短い核種の減衰効果を阻害することで、より大きな影響を及ぼす可能性がある。

すなわち、ガス影響シナリオを正しく評価する上ではガス発生量の評価が重要であり、処分後のごく早期に排水が生じる場合にその影響が大きくなる。従って、容器の健全性に関する設定や、閉鎖後初期の過渡的な現象（再冠水等）を踏まえたガス発生／ガス移行／核種移行評価が今後の課題となる。

2）ガス移行（緩衝材における透気経路の自己修復性）

リファレンスケースにおいて生物圏での線量率への寄与が最も大きい C-14 に着目して、各解析ケースにおける C-14 の線量率の経時変化を比較したものを、図 6.5.2-12 に示す。EDZ フラックスを視座とした場合には各解析ケースにおける相違が認められたものの、生物圏における線量率を視座とした場合には、総じて、各解析ケースにおける相違は小さくなっている。これは母岩における核種移行遅延効果によるものである。しかしながら、それでも、緩衝材の自己修復性を考慮せず、透気に生じた透気経路が閉塞するに残存すると仮定した G1W2B2P1/G3W1B2P1 ケースでは、線量率の上昇が認められた。リファレンスケースでは最大線量率 0.058μSv/y だったのに対し、G1W2B2P1 ケースでは最大線量率 0.066μSv/y、G3W1B2P1 ケースでは最大線量率 0.10μSv/y となった。

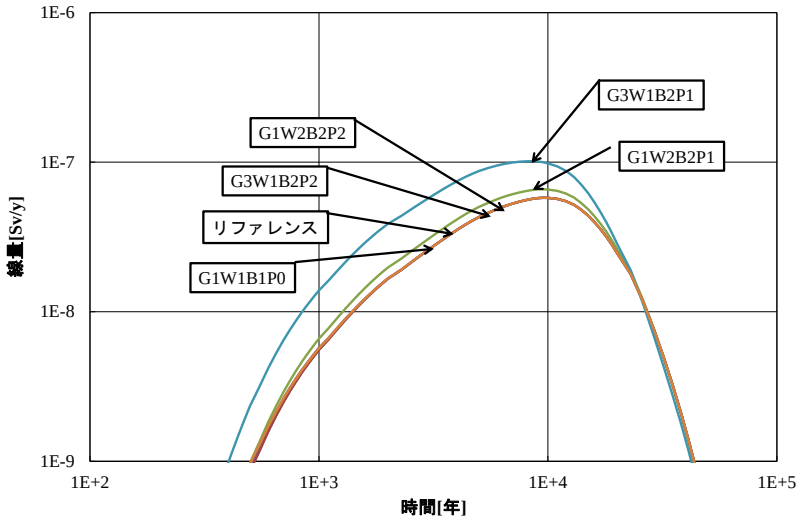


図 6.5.2-12　生物圏での線量率における解析ケースの比較（C-14）

このことから、ガス影響シナリオについて、核種移行の観点からは次のように結論することができる。

● 緩衝材の自己修復性が期待できす、透気後も透気経路が残存する状況では、線量率が増大する可能性がある。

6.5.3　まとめ

(1) 核種移行解析と挙動評価

- 第 2 次 TRU レポートに準拠し、TRU 廃棄物処分概念（グループ 2）を対象とした人工バリアから天然バリアまでの核種移行経路を 1 次元でモデル化した。
- 「6.3.2　」におけるガス移行解析に準拠した核種移行解析ケースを設定することで、汚染水の排水量の想定幅を基に実施した核種移行解析を実施し，そのアウトプットを人工バリアからの核種移行率や線量率で整理することで、グループ 2 全体での核種移行挙動を評価した。

(2) 核種移行解析結果に基づく施設成立性の評価

- グループ 2 全体での核種移行挙動評価結果を元に、主要核種に絞った移行挙動を評価することで、人工バリアからの核種移行率の最大値や発生時刻を支配する核種（Sr-90）と因子（ガス発生速度／ガス移行に伴う人工バリアからの排水速度ピーク値の相関性）を見出した。
- さらに生物圏における C-14 の線量率に影響を与える因子（ガス破過後における緩衝材の自己修復性の有無）を見出したことで、人工バリアの成立性（核種の閉じ込め性能）が担保される条件（ガス発生速度が TRU-2 相当かつ緩衝材の自己修復性が確実に発揮されること）を提示した。

参考文献

[1] 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－、 2005

[2] 地層処分基盤研究開発調整会議、地層処分基盤研究に関する全体計画【研究開発マップ】（平成 25 年度～平成 29 年度)、2014

[3] 原子力発電環境整備機構、地層処分を行う低レベル放射性廃棄物（TRU 廃棄物）について、2008

[4] 公益財団法人原子力環境整備促進・資金管理センター、平成 24 年度 地層処分技術調査等事業 TRU 廃棄物処分技術 人工バリア長期性能評価技術開発 平成 19 年度～24 年度取りまとめ報告書、2013

[5] 公益財団法人原子力環境整備促進・資金管理センター、平成 25 年度 地層処分技術調査等事業 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発 報告書(第 5 分冊)－ガス移行連成挙動評価手法の開発－、2014

[6] 公益財団法人原子力環境整備促進・資金管理センター、平成 26 年度 地層処分技術調査等事業 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発 報告書(第 5 分冊)－ガス移行連成挙動評価手法の開発－、2015

[7] 公益財団法人原子力環境整備促進・資金管理センター、平成 27 年度 地層処分技術調査等事業 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発 報告書(第 5 分冊)－ガス移行連成挙動評価手法の開発－、2016

[8] 公益財団法人原子力環境整備促進・資金管理センター、平成 28 年度 地層処分技術調査等事業 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発 報告書(第 5 分冊)－ガス移行連成挙動評価手法の開発－、2017

[9] 公益財団法人原子力環境整備促進・資金管理センター、平成 29 年度 地層処分技術調査等事業 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発 報告書(第 5 分冊)－ガス移行連成挙動評価手法の開発－、2018（※作成中）

[10] 並木他、ガス移行挙動の評価（ガス移行シナリオ設定設定手法の検討)、土木学会第 69 回年次学術講演会、2014

[11] van Genuchten, M.Th. : A closed-form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils. Soil Sci. Soc. Am. J., 44:892-898, 1980

[12] Narasimhan, T. N., Witherspoon, P. A. and Edwards, A. L. : Numerical model for Saturated-Unsaturated Flow in Deformable Porous Media”, Part 2: The algorithm. Water Resources Research, vol.14(2), pp255-261, 1978

[13] 杉山秋博，飯坂武男，吉田弥智(1988)：高温養生下におけるモルタルの強度と水セメント比の関係について，土木学会第 43 回年次学術講演会，V-231，pp.510-511.

[14] E. Alonso, A. Gens, A. Josa (1990)：A constitutive model for partially saturated soils, Géotechnique, 40, No.3

[15] 山本，佐藤、西村(2014)：サクション制御変形試験に基づく圧縮ベントナイトの膨潤・収縮

モデル，土木学会第 69 回年次学術講演会, CS9-19, pp.37-38
[16] Jaky, J. (1944): Talajmechanika (Soil mechanics in Hungarian), J.Hungarian Arch. & Eng., Budapest, pp. 355-358
[17] 核燃料サイクル開発機構（1999）：わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性；地層処分研究開発第 2 次取りまとめ，分冊 2，地層処分の工学技術 pp.IV-98
[18] 高治，鈴木：緩衝材の静的力学特性（研究報告），核燃料サイクル開発機構，JNC TN8400 99-041, 1991
[19] OECD/NEA、Methods for Safety Assessment of Geological Disposal Facilities for Radioactive Waste、2012
[20] NUMO、地層処分事業のための安全評価技術の開発（Ⅰ）シナリオ構築技術の高度化、NUMO-TR-10-09、2010
[21] NEA、FORGE Project, Gas Generation and Migration, International Symposium and Workshop, Luxembourg, Feb. 2013
[22] 古賀他、ガス移行シナリオの拡張に関する検討（ガス影響評価体系の構築)、土木学会第 70 回年次学術会議講演会、2015
[23] 古賀他、ガス移行シナリオ設定における根拠の拡充（不確実性の抽出と対応)、土木学会第 71 回年次学術講演会、2016
[24] 古賀他、ガス移行評価シナリオの拡張に関する検討（ガス影響に係るシナリオの整理)、土木学会第 72 回年次学術講演会、2017
[25] NUMO、地層処分低レベル放射性廃棄物に関わる処分と安全性、NUMO-TR-10-03、2010
[26] Nagra 、Effects of Post-disposal Gas Generation in a Repository for low and Intermediate –level Waste Sited in the Opalinus Clay of Northern Switzerland, Nagra Technical Report 08-07、2008
[27] ANDRA、Dossier 2005 Argillite、2005
[28] 経済産業省、沿岸海底下等における地層処分の技術的課題に関する研究会とりまとめ、2016
[29] 安藤賢一，納多勝，山本幹彦，三原守弘、TRU 廃棄物処分におけるガス発生・移行解析，JNC TN8400 2005-026.、2005
[30] Golder Associates、GoldSim Contaminant Transport Module, User's Guide, Golder Associates Inc.、2001
[31] 三原守弘，大井貴夫、パラメータの時間的変化を考慮した核種移行解析コード（TIGER）の開発，サイクル機構技報，No.22, pp.27-28.、2004
[32] NUMO、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－、「処分場の概要」の説明資料、NUMO-TR-10-04.、2011

第7章　まとめ

ＴＲＵ廃棄物処理・処分技術高度化開発で実施した５つの研究開発（テーマ）の５か年の成果について以下にまとめる。

これらの５か年の知見から、処分環境での被ばく線量の高いヨウ素１２９および炭素１４の低減対策が可能であることが示すとともに、それら重要核種の移行挙動を抑制するために重要な人工バリアについて、セメント材料やガス発生等の複合的な事象に対応可能な、バリア性能や長期挙動を評価するための技術基盤を確立した。

これらのＴＲＵ廃棄物の処理・処分技術に係る課題において得られた知見は、安全評価の信頼性を向上させ、処分事業への国民の信頼感の向上に資するものである。

7.1　ヨウ素 129 対策技術の信頼性向上

本技術開発は、TRU 廃棄物の地層処分において最も高い被ばく影響を与えるヨウ素 129 を長期にわたり閉じこめる代替固化体（アルミナ固化体、BPI ガラス固 化体、セメント固化体）を開発し、その影響を低減することを目的として実施した。これまでの試験や解析等において、ヨウ素固化体の溶出試験や固化方法の改良等を行い、アルミナ固化体の空隙率の低減、BPI ガラス固化体のヨウ素浸出への地下水中の溶存イオン種の影響、セメント固化体中のヨウ素固定鉱物相を確認するなどの成果を得ることで、ヨウ素 129 の放出を抑制できることを確認した。

具体的には、アルミナ固化技術では、アルミナマトリクスによる閉じ込め性の向上として、アルミナ添加剤の選定・調製や固化処理プロセスの最適化により、当初想定されていた 10%超の空隙率に対し、数%程度（1-2%、最大でも 5%以内）まで低減できることを確認できた。また、アルミナ粒界腐食によりマトリクスの劣化や含有するヨウ素の溶解・浸出が進展する基本的な特性を明らかにできた。特に、地下水に存在する硫黄種で還元的な環境で支配的となる硫化水素イオンによってヨウ素溶解が促進しヨウ素閉じ込め性に対する影響が懸念されるが、一般的な硫化水素イオン濃度では十分な閉じ込め性を有することが示されるなど、環境適応性の範囲等を明らかにすることができた。

BPI ガラス固化技術では、ガラスの基本的な化学構造を明らかにするとともに、化学構造から出発した基本的なガラスの溶解モデルを構築できた。また、炭酸イオンなど広く一般的に地下水に存在するイオン種や、リン酸など比較的低濃度と考えられるイオン種など幅広い地下水組成に対する試験データおよび熱力学的な考察に基づいて、ガラス変質の主要な要因である鉛化合物の溶解・析出の諸条件を明らかにすることで、ガラス溶解やヨウ素浸出特性の影響や環境適応性の範囲等を明らかにすることができた。

セメント固化技術では、エトリンガイトにヨウ素（ヨウ素酸イオン）を固定化させるコンセプトのもと、セメント鉱物の溶解平衡に基づくヨウ素放出モデルを構築し、実験室スケールで試験データに対して一定の説明性が得られてきた。しかし、実用化を見据えたスケールアップによっ

て発熱影響が顕著となり、閉じ込めコンセプトや評価モデル、環境適応性、さらに処理プロセスを含めた開発課題が整理された。一方で、セメント水和物とヨウ素の相互作用について重要な知見が多く得られ、固化体によるソースターム評価だけではなく、ニアフィールド・ファーフィールド含めた総合的なヨウ素 129 対策として、今後、期待・発展性のある成果が得られた。

以上のように、各代替技術の特性の応じた評価技術や環境適応性について進展が得られ、今後は再処理事業や処分立地選定など事業の進展に応じて、スケールアップやサイトスペシフィックな環境適性など、実用化へ向けた継続的な技術開発が期待される。一方で、セメント固化技術でも記載したように、固化体開発によるソースターム低減だけという単一のバリア機能に依存するのではなく、安全確保の多重性の観点からも、移行挙動や生活圏まで含めた総合的なヨウ素 129 対策技術への取組が必要であり、TRU 廃棄物の課題の解決や処分事業への国民の信頼感の向上に継続的に資することが望まれる。

7.2　炭素 14 長期放出挙動評価

TRU 廃棄物の地層処分において、放射化金属廃棄物の腐食によって放出される炭素 14 は長期安全上の重要核種である。そのため本技術開発は、燃料被覆管の材料であるジルカロイを中心に腐食挙動等の評価を行い、これまでの安全評価パラメータと比較し、影響度合いを確認することを目的として実施した。特に、10 年間の長期試験計画に基いたデータ取得・評価を行った。

燃料被覆管の材料であるジルカロイの長期腐食試験では、地下水組成を考慮した複数の条件下での長期の腐食データを取得し、酸化膜の成長により腐食速度が次第に遅くなることを明らかにし、長期安全評価のための現実的な腐食速度を提示することができた。また、その酸化膜は原子炉の運転時に生成する酸化膜と同様の結晶構造が確認され、腐食機構は炉内腐食と一定の類似性が確認された。さらに、放射化した燃料被覆管から放出した炭素 14 は腐食速度から推定される炭素 14 量より少なかったことから、これまで仮定されてきた腐食との調和放出モデルの保守性が認められたが、一方で、核種毎にそれらの特性に応じて放出率が異なることから調和放出モデルの限界が示された。

エンドピースの材料である未照射のステンレス鋼についても、ジルカロイと同様の腐食試験を行い、これまでの仮定された腐食速度の保守性を確認することができた。一方で、酸化膜の特性データや多様な条件での腐食データが不足しており、さらに、照射材を用いた特性評価によるエンドピースの影響確認が求められる。

金属廃棄物から放出された炭素 14 は易動性核種として扱われており、化学形態によっては評価シナリオや移行特性が大きく影響される。そのため、有機炭素化合物の安定性を含め、炭素 14 の化学形態の情報が不可欠であるが、極低濃度の炭素 14 化学種の同定・定量は極めて困難な課題であった。本技術開発では、燃料被覆管から放出された炭素 14 の形態（ガス、溶存有機・無機）を長期的に確認するとともに、国際プロジェクト（CAST プロジェクト）に参画することで、国際的にも最新の知見・情報を入手した。また、ガス移行シナリオの影響等含め、炭素 14 に関する課題を共有することができた。

以上のように、安全評価に必要な評価技術が進展し、影響低減に見通しが得られつつあること

から、今後も継続的に TRU 廃棄物の処理・処分技術に係る課題の解決や安全評価の信頼性を向上など、処分事業への国民の信頼感の向上に資する必要がある。そのためには、廃棄体の特性評価などのソースタームだけではなく、浸出後の移行特性や生活圏まで含めた総合的な炭素 14 対策の必要性が国際的にも認識されており、特に、炭素 14 の放出時の化学形態やその後の安定性の評価が重要となる。一方で、放射化金属廃棄物は廃棄体化のための最適な処理プロセスを行わないため、実廃棄物（使用済み燃料）そのものの特性を保持しており、不均質で複雑な組成・特性を有している。例えば、ハルにおける瞬時放出割合やジルカロイ腐食における水素吸収の影響などが、上記の国際プロジェクトでも課題として指摘されている。放射化金属廃棄物には解決すべき課題が多いのが現状であり、国際的な協力関係も活用し、処分の実施に向けて着実に技術開発を継続・進展させていくことが望まれる。

7.3 ナチュラルアナログ調査

TRU 廃棄物処分における人工バリアの処分場の性能の低下の原因として考えられる、セメント系材料からのアルカリ影響による緩衝材の変質について、天然環境でのアルカリ－緩衝材反応による緩衝材の長期変遷に関する直接的な根拠となるデータを取得し、それらフィールドデータと解析モデルを活用したアルカリ変質現象の解釈に基づき、アルカリ影響による緩衝材の性能の変化の範囲を示し、長期挙動評価の信頼性向上を図ることを目的として、セメント浸出水のアナログとなる地下水が生成されるオフィオライトの蛇紋岩体が多く分布するフィリピンにおいてナチュラルアナログ調査を実施した。

ルソン島及びパラワン島におけるナチュラルアナログサイトの探査・選定のための調査を実施し、パラワン島中部の Narra 地区において、pH11 を超える高アルカリ地下水がスメクタイトを含む粘土質の砕屑性堆積物に浸出している露頭を確認し、ベントナイトの変質の理解に資するナチュラルアナログサイトを特定した。このサイトでの地質調査や試錐孔やトレンチで採取した岩石（粘土）試料の鉱物・化学分析から、Narra 地区の調査サイトは、オフィオライト基盤岩の上位にスメクタイトを含む砕屑性堆積物と上部層の炭酸塩沈殿物層の層序断面であり、広範囲の砕屑性堆積物に高アルカリ地下水が現在も浸出している。アルカリ環境下の砕屑性堆積物は超苦鉄質岩類起源のものと Al 成分の多い斑れい岩起源や火山灰起源のものがあり、それぞれ、風化過程とアルカリ相互用によってスメクタイト化していることが明らかになった。

アルカリ環境下での変質プロセスについては、アルカリ溶液による溶解・沈殿反応による Fe と Mg 成分に富むスメクタイト（サポナイトやノントロナイト等）の形成が主要な反応であり、風化過程よりもアルカリ相互用によるスメクタイト化の方が卓越する。また、このスメクタイト化は 2,400 年後もまだ続く長期の反応である。Al 成分を多く含む降下火山灰堆積物では、緻密で固結化が進み、アルカリ環境下でのスメクタイト化の程度は小さいが、Al-rich なところではバイデライト、Fe-rich なところでは超苦鉄質岩起源の砕屑性堆積物と同様にサポナイト等が生成する。また、堆積過程でできたモンモリロナイトにはアルカリ環境下でも残存するものがある。

アルカリ環境条件において、Fe, Mg がある環境ではスメクタイトの溶解よりも生成が勝り、生成したスメクタイトは長期にわたり安定である。このような Fe, Mg に富むアルカリ環境下では、

Si は、アルカリに取り込まれてゼオライトが生成するのではなく、Fe, Mg と結びついて前駆体となる M-S-H や F-S-H 等で沈殿し、それらからスメクタイトが生成する、という観察結果は地球化学モデルによる解析でも確認された。そのようなアルカリとの相互作用により沈殿した M-S-H や F-S-H は、時間をそれほど経ずにスメクタイト質に変化するが、堆積年代の異なるトレンチの砕屑性堆積物のスメクタイトのピーク強度の差から、アルカリとの相互作用が始まって 2,400 年～4,500 年程度の長期の時間を経て、より Si-rich な結晶質のスメクタイトに成長・進展する。

Narra 地区のナチュラルアナログでのアルカリ溶液から鉄を含むスメクタイトが生成するプロセスは、Saile 鉱山のナチュラルアナログのアルカリ変質プロセスと類似しており、アルカリによって Fe を含むスメクタイトが生成するプロセスは、苦鉄質のパラワン島 Narra 地区の地質環境に限らず、ベントナイトーアルカリ相互作用でも生じる可能性が高いと考えられる。その場合は、Saile 鉱山のナチュラルアナログが示すように、アルカリ変質反応に伴い生成した鉄を含むスメクタイトのクロッギング（空隙閉塞）が物質移行を抑制し、それによって変質反応が抑制されることが期待できる。

TRU 廃棄物処分場のアナログとしてみると、施工時には様々な鉄部材が処分場に持ち込まれたり、海水からの Fe, Mg イオンの流入、コロイドによる Fe イオンの流入等が生じたりすることで、処分場のベントナイト緩衝材においても生じる可能性は十分ある。そのような処分場環境は、スメクタイトを生成する環境でもあるため、高アルカリ浸出水によりモンモリロナイトの溶解・変質が生じても、スメクタイトが生成することで、緩衝材中のスメクタイト含有量の大幅な低下は見込まれず、緩衝材の膨潤性や収着性といった機能の低下・喪失が引き起こされるほどのベントナイトの変質が生じる可能性は低いことが、本ナチュラルアナログの知見からいえる。

7.4　人工バリア材料長期挙動評価・人工バリア評価の初期条件の設定

TRU 廃棄物の地層処分における人工バリアのベントナイト系材料は、低透水性や膨潤性等による人工バリアの核種移行抑制、自己修復性に寄与するものであるが、セメント成分が溶解して高 pH となった地下水が接触することにより化学的な変質が起こることが予想される。人工バリア材料の化学的な変質は、力学的な人工バリアの状態に影響を及ぼし、これらは相互に影響を及ぼし合う。そのため、これらの材料の地下環境での長期的変化が及ぼす人工バリア性能への影響を評価し、人工バリアの成立性の説明、閉鎖後長期の安全評価へ反映することが必要である。また、人工バリアの長期挙動評価の解析の起点は処分場が建設、操業を経て閉鎖された時点である。この解析の起点における材料特性値等の初期条件は長期の解析結果に影響を及ぼすため、より正確な設定が必要であり、建設や閉鎖までの影響を考慮する必要がある。

平成 25 年度から平成 29 年度までの 5 年間の検討では、人工バリア閉鎖後長期の変遷過程・性能維持の評価手法の提案及び人工バリアの閉鎖後長期にわたる成立性を示す事を目標とした。それを踏まえ、「人工バリア材料長期挙動評価」では、主に緩衝材を対象に、水理力学化学（HMC）連成挙動の評価及び解析による長期挙動評価の信頼性を高めることを目的に、確証試験とその成果の解析への反映を検討した。一方、「人工バリア評価の初期条件の設定」では、セメント系材料を主として、長期挙動評価の初期条件の設定及び初期条件の違いが評価結果に及ぼす影響に着目

し、解析精度の向上のために操業中の熱及び施工による初期設定への影響等を検討した。

「人工バリア材料長期挙動評価」では、化学解析の 2 次元化により人工バリア内の詳細な評価が可能となった。また、本フェーズ検討した化学変質に関する現象モデルを化学解析に反映し、緩衝材の変質が従来の解析結果よりも少なくなる事を確認した。更に、この現象モデルを反映した化学解析結果を力学解析に反映すると共に、今フェーズ検討した透水係数モデルを組み合わせた解析手法を提案した。この手法による解析結果、及び、核種移行解析結果より、現状の人工バリアの設定であれば基本シナリオにおいて種々の変質を考慮した場合にも、拡散場が担保され性能を保つと考えられる。ただし、現実的と考えられる挙動とは異なる解析結果を示す点等があり、今後、今回抽出された課題を検討することにより、人工バリア閉鎖後長期の挙動のより信頼性の高い評価が可能となると考えられる。

「人工バリア評価の初期条件の設定」では、主に、熱によるセメント系材料の C-S-H のトバモライト化（結晶化）ついて検討し、50℃以上の環境条件で 100 年まで経過しない期間に結晶化する可能性がある事、また、これまでの試験から結晶化は環境温度が高いほど促進される事とセメント系材料を構成する材料特性（混和材、骨材等）にも影響される事が確認された。この事から、廃棄物の温度に応じて、結晶化の長期解析の初期条件への反映が必要となる可能性がある。一方で、結晶化が物性値に及ぼす影響に関する試験は、未だ結晶化過程にあるため、今後、試験を継続して、結晶化に及ぼす様々な要因を整理するとともに、結晶化したセメント系材料の特性を明らかにし、長期解析の初期条件への反映の要否を検討していく必要がある。

7.5　ガス移行連成挙動評価手法の開発

本技術開発は、TRU 廃棄物の地層処分で想定されるような、廃棄物に含まれる金属の還元腐食その他による水素などのガス発生による処分施設（人工バリアシステム）への様々な影響（人工バリア内でのガス圧上昇により破過が生じた場合、その時に緩衝材中等に生じた破過経路が核種の移行経路となったり、ガス圧によって力学的な安定性が損なわれる等）を評価するために必要な「ガス移行連成挙動評価手法の開発」を構築するべく、これまで（平成 19-24 年度）の検討成果を踏まえて取り組み、さらに「開発（整備）した“ガス移行連成挙動評価手法”による施設成立性（ガス影響によって人工バリアの核種閉じ込め性能が確保されるか否か）の評価」を本事業の最終目標成果として、平成 29 年度までに目標達成すべく検討を進めたものである。

具体的には、前フェーズ（平成 19-24 年度）の調査研究成果より抽出され顕在化した重要度の高い課題に対し、まず、この課題解決のために策定された今フェーズ（平成 25-29 年度）の実施計画を基軸として（かつ平成 26 年度までの成果を踏まえ）、①『ベントナイト系材料のガス移行挙動に係るデータの拡充およびセメント系材料のガス移行データ取得』によって、前フェーズで解明できなかったガス移行連成現象メカニズム（素過程）のうち、その一部解明を達成した。一方で、②『ガス移行評価シナリオの拡充』によって既存のガス移行シナリオの拡張や根拠拡充を図り、③『ガス移行連成挙動解析ツールの高度化』によって、これまでに確認できている連成現象メカニズムのモデル化と高度化を達成した。

上記『①』では、飽和した圧縮ベントナイトが破過に至るまでの過渡期（気液二相流過程）の

ガス移行メカニズム（ガス浸入圧および水相有効浸透率の経時変化等）、並びに人工バリア材料界面（ベントナイト系およびセメント系材料）のガス破過メカニズム（破過圧、ガス相有効浸透率の経時変化等）の詳細を明らかとし、その一部をモデル化に反映できた。

上記『②』では、既存のシナリオをベースに、人工バリアシステムで想定されるガス影響事象のうち、特に影響の大きな事象（緩衝材中で生じる得る破過現象等）に着目して、「どの時期に」・「影響の大きな現象が生じて」・「EBS 全体の挙動にどのような影響をもたらすか」を網羅的に把握する観点から、その根拠を拡充しながらシナリオを再構築した。

上記『③』では、高度化したモデルを用い、上記『②』で再構築したシナリオに基づくガス移行解析と連成挙動評価、並びにガス移行連成挙動を考慮した核種移行解析によって人工バリアから押し出される汚染水の排水量と核種移行率等を評価することで、人工バリアの成立性（核種の閉じ込め性能）が担保される条件（ガス発生量の許容幅等）を見出した。

今後の展望としては、Safety Case の構築に必要な「閉鎖後長期の安定性の評価」のうち、シナリオ構築（地層処分システムの状態設定のための現象モデルの高度化）に資する「放射性廃棄物由来の発生ガスに関する現象モデルの妥当性検討」に対して本技術開発の成果（ガス移行連成挙動の現象モデル）を更に高度化・検証しながら反映していくことが課題であるが、検証した現象モデルによるガス影響に係る施設（人工バリア）の成立性評価結果（提示された施設成立条件）は、ガス対策を考慮した処分施設設計等への反映・貢献が期待できる。

（様式２）

二次利用未承諾リスト

報告書の題名：平成２９年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業　ＴＲＵ廃棄物処理・処分技術高度化開発　平成２５年度～２９年度取りまとめ報告書

委託事業名：平成２９年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業　ＴＲＵ廃棄物処理・処分技術高度化開発

受注事業者名：公益財団法人原子力環境整備促進・資金管理センター

頁	図表番号	タイトル
6-1	図 6.1.1-1	本事業において対象とするTRU 廃棄物処分施設の人工バリア概念図（廃棄物グループ2の例）と人工バリア材料（赤字で追記）
6-73	図 6.5.1-7	核種移行経路の概念図