

平成26年度

放射性廃棄物共通技術調査等事業

# 放射性廃棄物重要基礎技術研究調査

(国庫債務負担行為に係るもの)

報告書

(平成29年度分)

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

本報告書は、経済産業省からの委託事業として、公益財団法人 原子力環境整備促進・資金管理センターが実施した平成26年度「放射性廃棄物共通技術調査等事業（放射性廃棄物重要基礎技術研究調査）（国庫債務負担行為に係るもの）」※の、平成29年度及び4ヵ年の成果を取りまとめたものです。

（※本事業は平成29年度までの4ヵ年の事業である）

## 【目次】

1. はじめに.....	1
1.1 調査目的と調査内容 .....	1
1.1.1 調査目的 .....	1
1.1.2 調査内容 .....	1
1.2 調査の計画立案と実施方針 .....	1
1.2.1 選定した研究開発に関する進捗管理・取りまとめに関する作業計画.....	4
2. 研究開発に関する進捗管理・取りまとめ.....	5
2.1 進捗管理の実施.....	6
2.2 選定された研究テーマの平成 28 年度の成果概要 .....	6
2.2.1 実施研究 1 研究者：京都大学 柏谷公希.....	6
2.2.2 実施研究 2 研究者：京都大学 奈良禎太.....	9
2.2.3 実施研究 3 研究者：福島工業高等専門学校 金澤伸一 .....	11
2.2.4 実施研究 4 研究者：京都大学 小林大志.....	13
2.2.5 実施研究 5 研究者：東北大学 千田太詩.....	15
2.2.6 実施研究 6 研究者：東京大学 小松崎俊作.....	17
2.3 検討委員会による平成 28 年度の研究成果に対する評価 .....	20
2.4 地層処分基盤研究開発に関する進捗状況の中間評価とチェックアンドレビュー ....	27
別添資料 I 実施研究報告	
研究報告 1 断層周辺の地下水流動特性および物質移行特性に関する包括的研究	
研究報告 2 岩石き裂の治癒作用を利用した不連続面のバリア性能向上に関する研究	
研究報告 3 天然バリアと人工バリアの力学特性を考慮した放射性廃棄物処分施設の長期的な力学挙動予測システムの開発	
研究報告 4 硝酸塩影響評価のための高イオン強度下におけるアクチノイドの溶液化学的研究	
研究報告 5 地層処分の性能評価の精緻化を目指した薄片状雲母を用いた核種の収着メカニズムに関する基礎的研究	

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

別添資料 II 実施研究総括

## 1. はじめに

### 1.1 調査目的と調査内容

#### 1.1.1 調査目的

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

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

#### 1.1.2 調査内容

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

### 1.2 調査の計画立案と実施方針

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

表 1.2-1 本事業における平成 26 年度～29 年度の作業内容

<p>(1) 処分技術に関連する先進的な研究開発テーマの選定</p> <p>① 研究開発テーマの選定</p> <p>概ね平成 26 年 9 月までに、平成 25 年度放射性廃棄物共通技術調査等事業（放射性廃棄物重要基礎技術高度化調査）における海外における地層処分や代替処分技術等の最新の研究開発動向調査結果（平成 25 年度放射性廃棄物共通技術調査等事業放射性廃棄物重要基礎技</p>
--

## 術高度化調査報告書

[http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity\\_and\\_gas/nuclear/rw/library/library05.html](http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/library05.html)にて公開)を踏まえてテーマを公募し、処分に見識がある有識者(5名程度を想定)による選考を経て、同年10月までに5テーマ程度を選定する。有識者の選定や選考委員会の実施に当たっては、資源エネルギー庁と調整、相談の上、実施する。

### ② 選定基準

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

### ③ 研究実施者の公募

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

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

なお、公募に係る手続きなどは資源エネルギー庁の委託事業事務処理マニュアルに準拠

する。また、応募者がなかった研究テーマについては、選考委員会の有識者からの推薦により研究実施者を選定することも可とする。

(2) (1) の研究開発に関する進捗管理・取りまとめ

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

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

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

(1) 処分技術に関連する研究開発テーマの選定（平成26年度のみ実施）

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

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

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

次節で、平成29年度に実施する作業計画を整理する。

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

前述の計画立案と実施方針を踏まえて、平成 29 年度における研究開発テーマに関する進捗管理・取りまとめについては、以下を実施することを計画した。

- ・平成 26 年度に選定された研究開発に関する平成 29 年度における進捗管理・取りまとめ
  - ① 検討委員会において中間報告・最終報告を行うことにより進捗管理を行う
  - ② 電子メールや研究者の所属する大学等への訪問し意見交換を実施することにより進捗管理を行う
  - ③ 各研究者から提出された平成 29 年度の研究報告書の概要、及び 4 年間の研究成果として研究の総括資料を取りまとめる
  
- ・全体計画の中間評価
  - ④ 地層処分基盤研究開発調整会議（以下、基盤調整会議という）における全体計画の中間評価対応や全体計画改訂のための作業について、事務局として支援
  - ⑤ 中間評価を行う検討委員会の運営

①については、大学等の外部有識者からなる検討委員会を設置し、委員会において、研究開発内容・進捗状況に関する中間及び最終報告（それぞれ 9 月頃と年度末頃に開催）を研究実施者に行わせ、チェックアンドレビューを行う。

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

③については、各研究者から 1 月中旬頃に研究報告書のドラフト版を、3 月中旬に研究報告書の最終版を原環センターに提出することにより、研究の進捗管理を行う。また、研究報告書の概要をとりまとめる。さらに、平成 29 年度は本事業の最終年度となることから、各研究テーマについて 4 年間の研究成果の概要を総括資料として取りまとめる。

④⑤については、後述するように、新しい枠組みで設置された地層処分研究開発調整会議における次期全体計画策定のための支援対応を行うこととする。

## 2. 研究開発に関する進捗管理・取りまとめ

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

中間報告、及び最終報告における 6 件の研究テーマの進捗状況のチェックアンドレビューを実施するための検討委員会を設置した。

また、上記検討委員会によるチェックアンドレビューの他に、研究実施者との間で電子メールや各研究者が所属する大学等を訪問して意見交換を行うことにより、進捗管理を実施した。特に今年度は実施研究の最終年度であるため、各研究者には積極的な外部発表を行うように要請を行った。

以下の 2.1 節において、6 件の選定された研究テーマの平成 29 年度の成果概要について整理する。また、2.2 節において、設置した検討委員会による、各研究者から平成 29 年度の研究成果などの報告に対する評価について取りまとめる。また、4 年間の研究成果の概要を研究者と事務局で調整しながら総括資料として取りまとめた。総括資料は本報告書の別添資料集 II を参照されたい。

選定された 6 件の研究テーマの 4 ヶ年における論文、学会発表等の外部発表数は、平成 30 年 3 月時点で予定を含めて 62 にも上った。

## 2.1 進捗管理の実施

研究実施者との間で電子メールや各研究者が所属する大学等を訪問して意見交換による進捗管理については、電子メールによる各研究者からの種々の問い合わせへの対応を行うとともに、研究者が共同研究者等と会議を行う機会などを利用して、大学を訪問し意見交換を実施した。

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

さらに、以下の大学の訪問による意見交換を実施した。

日時	訪問場所	研究者名
平成 29 年 5 月 16 日 平成 30 年 2 月 5 日	福島高専	福島高専 金澤伸一
平成 29 年 5 月 18 日 ～5 月 19 日	京都大学	京都大学 奈良禎太、小林大志、柏谷公希

## 2.2 選定された研究テーマの平成 29 年度の成果概要

### 2.2.1 実施研究 1 研究者：京都大学 柏谷公希

研究テーマ：断層周辺の地下水流動特性および物質移行特性に関する包括的研究

(背景・目的)

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

下水シナリオの評価を高度化する上で貢献すると考えられる。

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

\*\*\*\*\*

(平成 29 年度の実施計画)

過去にプローブパーミアメータを用いて測定した浸透率と比較する目的で、浸透率を測定した深度 300m 坑道と深度 500m 坑道の坑道壁面を対象として、シュミットロックハンマーによる反発度測定を実施する。また、昨年度に引き続き、(国研)日本原子力研究開発機構の瑞浪超深地層研究所の研究坑道内のボーリング孔から地下水試料を採取し、地下水の流動状態を推定するのに役立つ複数の地化学トレーサーの分析を行う。さらに、これまでに得られているデータを用いて断層周辺の水理、地化学モデルを構築し、主立坑断層周辺の地下水流動及び物質移行状態を推定するため、地下水流動解析と反応輸送解析を実施する。

\*\*\*\*\*

(平成 29 年度の成果概要)

シュミットロックハンマーによる反発度測定の結果、測定値には大きなばらつきがみられたが、反発度の平均値とこれまでに測定された浸透率データには負の相関が認められた。これらの結果から、浸透率が高い区間では、断層の影響でマイクロクラックが増加し、そのため強度(反発度が小さい)も低下していることが考えられる。

地下水試料の分析については、分析の結果概ね昨年度を再現する結果が得られ、分析結果の妥当性を確認できた。また、本年度分析を実施した溶存ガスも主立坑断層の北側と南側では濃度が異なることが明らかとなり、断層が地下水流動や物質移行の境界として機能していることが再確認された。

地下水流動解析と反応輸送解析については、最初に広域モデルを用いた解析を行い、算出された水頭と実測値データを比較することによりモデルのキャリブレーションを行った。広域モデルによる解析結果は、断層周辺を細かいグリッドで表現した断層モデルを用いた

解析を行う際に境界条件として使用した。断層周辺モデルを用いた地下水流動解析では、坑道内の地下水湧出点に向けた地下水流動が示された。次に、上述の浸透率を岩石の空隙率に変換した上で、断層からの距離に応じて設定したモデルを用いて、塩化物イオンの物質移行解析を行った。さらに、スメクタイトによるイオン交換を考慮した反応輸送解析を実施した。地下水流動解析の結果、断層の南側で浅層地下水の流下と深層地下水の上昇が顕著であり、既存研究で考えられている立坑からの排水影響と整合的であった。塩化物イオンの物質移行解析の結果、解析で求めた塩化物イオン濃度の計算値と、既存研究の塩化物イオンのデータを比較したところ、解析値は実測値よりも濃度が高いものの、濃度の上昇と低下の時期が整合することが明らかとなった。反応輸送解析の結果は、イオン交換を考慮しない場合に比べて、イオン交換を考慮した場合に地下水の Na 濃度や Ca 濃度がどちらも断層周辺で上昇する傾向となった。

今後は本研究で提案された手法が、広く活用可能かどうかを確かめるために、他のサイトでも適用可能であることを確認することが課題である。

## 2.2.2 実施研究 2 研究者：京都大学 奈良禎太

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

(背景・目的)

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

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

\*\*\*\*\*

(平成 29 年度の実施計画)

粘土がき裂を充填する過程での岩石の透水係数測定を室内試験にて実施する。また、同様にき裂が充填されていく過程での透水係数の変化を評価することを目的として、(国研)日本原子力研究開発機構の瑞浪超深地層研究所の深度 300m 研究アクセス坑道において原位透水試験を行う。

\*\*\*\*\*

(平成 29 年度の成果概要)

瑞浪超深地層研究所の深度 200m の研究坑道でボーリングにより得られた、巨視き裂を含む黒雲母花崗岩、及び同じく深度 200m の研究坑道で採取された粘土を用いて、1L あたり 15.9g の粘土を懸濁させた水を岩石供試体に流すことにより透水試験を行った。その結果、巨視き裂を含む花崗岩に粘土懸濁水を流す過程での差圧が時間の経過とともに上昇した。試験終了後に供試体をデジタルマイクロスコープで観察したところ、き裂内部に粘土が充填されていることが確認できた。また、この試験により評価した透水係数も時間の経過とともに低下した。これらの結果は、時間経過とともにき裂開口幅が低下、すなわちき裂の閉塞が起こり、岩石の透水性が低下することにつながったと考えられる。

原位置試験による粘土がき裂を充填する過程での岩盤の透水試験については、瑞浪超深地層研究所の深度 300m の研究坑道内の主立坑断層から 60m 離れた場所にて試験を行った。坑道側壁に横向きにボーリング掘削をし、軸方向にき裂が認められた孔を試験孔として用い、水注入用装置を設置した。原位置岩盤パルス試験法により、定流量ポンプで粘土懸濁水を試験孔へ注入し、その際の注入圧力の経時変化を測定する透水試験を 5 回実施した。その結果、1 回目から 5 回目までの透水試験により、注入圧が低下する傾向となった。また得られた注入圧データから透水係数を評価したところ、試験回数が増加するにつれ、透水係数が低下する結果となった。透水試験後に試験装置を外して試験孔をデジタルカメラで観察したところ、ボーリングコアで認められた巨視き裂の箇所に粘土が充填した状態であることが確認された。これらの結果から、粘土がき裂を充填することにより、岩盤の透水係数の低下が起こったことが示唆された。今後は粘土の量、流速、き裂開口幅の条件についての検討が必要であると考えられる。

### 2.2.3 実施研究 3 研究者：福島工業高等専門学校 金澤伸一

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

#### (背景・目的)

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

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

\*\*\*\*\*

#### (平成 29 年度の実施計画)

廃棄体から発せられる温度や再冠水に伴う飽和度変化を考慮した、ベントナイトの一軸圧縮試験、及び温度変化を考慮した膨潤量試験を行う。また、熱移動に関するエネルギー方程式を連成させることで、熱の影響を評価できるように解析コードを拡張し、温度変化がベントナイト緩衝材に与える影響を検討する。

\*\*\*\*\*

#### (平成 29 年度の成果概要)

ベントナイト円柱供試体（乾燥密度  $\rho_d=1.6\text{Mg}/\text{m}^3$  一定）に温度・飽和度の各パラメータの組み合わせに変化を与えて、一軸圧縮試験を行った。温度は  $30^\circ\text{C}\sim 90^\circ\text{C}$  ( $10^\circ\text{C}$  刻み)、

飽和度は 30%~90%(10%刻み)で変化を与えた。実験の結果、飽和度を変化させた場合はベントナイトの初期飽和度が上昇するにつれ、最大圧縮強度が上昇し、飽和度 40%~50%でピーク強度を迎え、その後、飽和度の上昇に伴い徐々に強度が減少していく傾向となった。これは、供試体中の飽和度変化に伴うサクシオン応力の変化によるものであり、飽和度 40%~50%においてピーク強度が発現した原因としては、飽和度 40%~50%におけるサクシオン応力が最も大きかったためであると考えられた。温度を変化させた場合は、飽和度 60%までは、温度上昇に伴い、圧縮強度がほぼ一様な勾配で減少する傾向となった。しかしながら、飽和度 70%以上においては、温度の上昇に伴う強度の減少がみられなかった。これらのことから、飽和度 70%以上の高飽和度条件においては、そもそもベントナイト自身の粘性が高く、高温状態においても間隙水の粘性が低下し、変形を追随することでクラックの発生が抑制されたため、圧縮強度の減少が生じなかったと考えられた。

また、ベントナイト（クニゲル V1）と東北珪砂 5 号を 7:3 で混合したものをを用いて、30、40、70℃の条件で膨潤量試験をおこなった。その結果、温度ごとの膨潤過程は大きく異なり、温度が高い方が初期の膨潤量の変化の傾きが大きくなる傾向となった。これは、温度が高い環境下の方が、モンモリロナイトと水との反応が良くなることで膨潤性能が向上したこと、温度が上がるにつれ供試体内部の透水係数が大きくなったことなどが考えられた。

熱を考慮した膨潤量試験に対して、作成した解析コードにて再現解析を実施した。その結果、温度が上昇するに従い、膨潤量が大きくなることが確認でき、特に高温（70℃）に関して、膨潤傾向や最終的な膨潤量が実験結果を再現できた。

さらに、処分施設を対象とした再冠水解析を行い、再冠水中のベントナイト系材料の力学挙動を検討した。解析では、坑道周囲全面から地下水を侵入させ、水頭は 300m まで上昇させた。緩衝材、埋め戻し材は一樣な材料で構成し、初期飽和度は 50%とし、再冠水期間は 100 年とした。解析の結果、再冠水期間が 100 年の場合、約 50 年で廃棄体周囲の緩衝材が飽和し、約 60 年で全体が飽和することが確認できた。冠水完了前に飽和する理由としては、冠水が緩やかに進行すると、外部の緩衝材の飽和が進まないため、内部への浸透が進むためであると考えられた。また、廃棄体周辺は飽和の進行が遅い結果となり、この原因として、廃棄体の熱の影響であると考えられた。

#### 2.2.4 実施研究 4 研究者：京都大学 小林大志

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

(背景・目的)

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

\*\*\*\*\*

(平成 29 年度の実施計画)

高濃度硝酸イオン環境での炭酸イオン共存下におけるプルトニウム溶解度実験を行い、昨年度までに得られた実験データの確認とイオン強度補正モデルの再検討を行う。4 価金属水酸化物コロイド挙動に関する検討では、硝酸ナトリウム水溶液におけるジルコニウム水酸化物のゼータ電位の pH 及びイオン強度依存性を調べ、熱力学的検討を行う。硝酸イオンの核種酸化還元反応に及ぼす影響については、硝酸イオンまたは亜硝酸イオンが 4 価ウランの酸化反応に及ぼす影響について検討をする。また、これまで 4 年間実施してきた結果を基に、想定した硝酸塩環境下における 4 価アクチノイドの溶解度の予測、凝集分散傾向の考察を行い、4 価アクチノイドの見かけの溶解度に及ぼす硝酸塩の影響について総合的に評価をする。

\*\*\*\*\*

(平成 29 年度の成果概要)

異なる硝酸イオン濃度、pH 条件で、炭酸イオンと 4 価プルトニウム水酸化物懸濁液を加え、所定期間の後、上澄み液中のプルトニウム濃度を測定した。得られた溶解度の pH 及び

イオン強度依存性の結果を基に熱力学的な解析を行ったところ、炭酸錯体として  $\text{Pu}(\text{CO}_3)_5^{6-}$  と  $\text{Pu}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_2^{2-}$  のみの存在を仮定した場合に、求められたイオン相互作用係数の値がこれまで報告されてきた他の 4 価アクチノイドの値と近い値を示した。

4 価金属水酸化コロイド挙動に関しては、硝酸ナトリウムでイオン強度を調整した試料溶液にジルコニウム酸化物懸濁液を加えて、 $\text{pH}2\sim12$  の範囲でゼータ電位を測定した。測定したゼータ電位のイオン強度依存性と  $\text{pH}$  依存性を再現するために、酸化物表面のプロトン解離定数、表面の平均電荷、溶媒イオン効果、粒子大きさのパラメータを用いて解析を行った結果、ゼータ電位の実験値の  $\text{pH}$  依存性とイオン強度依存性を良好に再現できた。次に、得られた酸化物コロイド表面のプロトン解離反応の平衡定数を用いることにより、平成 28 年度までに得られたジルコニウム水酸化コロイドのゼータ電位の解析を行い、その結果、計算値のゼータ電位が実験値を概ね再現できるようになった。

硝酸イオンによる 4 価ウラン酸化反応に関しては、硝酸イオンまたは亜硝酸イオン水溶液にウラン水酸化コロイド懸濁液を加え、所定期間後に上澄み液中の亜硝酸イオンとウラン濃度を分析した。その結果、硝酸イオンを添加した場合と比較して、亜硝酸イオンを添加した場合にわずかにウランを酸化させる可能性が示唆された。

アクチノイドの溶解度に対する硝酸塩影響の総括として、処分場でのいくつかの硝酸塩環境下を想定して評価したところ、硝酸イオン濃度が比較的高い処分後の初期では、4 価アクチノイドの加水分解種が移行挙動を支配し、水酸化コロイドは生成したとしても凝集する可能性が高いこと、一方で、時間の経過とともに硝酸塩濃度（イオン強度）が低下すると、水酸化コロイドは分散し、移行挙動にコロイド影響が表れる可能性が考えられた。

## 2.2.5 実施研究 5 研究者：東北大学 千田太詩

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

### (背景・目的)

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

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

\*\*\*\*\*

### (平成 29 年度の実施計画)

実環境において収着挙動に影響を及ぼすと考えられる共存イオン(塩濃度)の効果を検討するために、様々な塩化ナトリウム濃度条件下において、平成 28 年度に課題として残されたトレーサー濃度設定の見直しを行った上で、黒雲母薄片への Cs、Sr、Eu の収着試験を行う。黒雲母薄片に加えて、緑泥石及び絹雲母についても同様に収着試験を行う。また、金雲母及び白雲母については、限定的なイオン強度、pH 条件のみで Eu の収着試験を行う。さらに、黒雲母薄片を用いた試験結果をもとに、数学モデルによって薄片内の見かけの拡

散係数を評価する。

\*\*\*\*\*

(平成 29 年度の成果概要)

黒雲母薄片に対する Cs、Sr、Eu の収着実験を NaCl 濃度 0~0.6 M、及び pH3~8 の条件で、バッチ式にて行った。また、収着実験後の黒雲母薄片に収着している収着元素の分布を飛行時間型二次イオン質量分析 (SIMS) にて、また収着した Eu の化学状態を蛍光分光にて分析した。

Cs や Sr では NaCl 濃度の上昇に伴い収着量が減少した一方で、Eu は NaCl 共存条件において収着量が増加した。また、SIMS 分析から、Eu が加水分解する pH 8 においても、Eu の薄片内部への浸入が顕著であること、蛍光分析からは  $\text{Eu}^{3+}$  として黒雲母と相互作用している可能性が示された。

得られた収着実験のデータを用いてモデル解析した結果、黒雲母薄片内への Eu の見かけの拡散係数は、NaCl 共存の条件において  $10^{-13} \sim 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$  と見積もられた。これは母岩の実効拡散係数とほぼ同様であり、局所平衡が仮定されているマトリクス内の核種収着に対して、本研究において明らかにした黒雲母薄片内への拡散過程を考慮する場合にも、従来評価と同様の核種収着が期待できる可能性を示唆する。緑泥石及び絹雲母への収着実験結果からは、いずれも変質前の花崗岩に含有する鉱物と比較しても同等、あるいはそれ以上の収着能を示すとともに、pH 及び塩濃度の影響は小さいことが確認された。黒雲母、金雲母、白雲母への Eu 収着挙動比較からは、四面体層の同型置換による層間の負電荷のみならず、八面体層の構造の違いも収着に影響を及ぼす可能性が示された。

## 2.2.6 実施研究 6 研究者：東京大学 小松崎俊作

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

（背景・目的）

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

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

\*\*\*\*\*

（平成 29 年度の実施計画）

「科学的特性マップ」の公表という施策がアジェンダ・セッティングならびに個人の態度形成にどのような影響を及ぼしたかについて、社会調査を行って前年度の公表前調査結果との比較分析を行う。また、東日本大震災や政権交代、科学的特性マップ公表などが、高レベル放射性廃棄物（HLW）処分に関わる人々の態度に対してそれぞれどのような影響を及ぼしたかを比較検討することを目的として、これまで継続して実施してきた社会心理学的調査を継続して実施・分析する。さらに、パネル調査の結果について、既往研究で得られている知見との整合性の確認、サンプルを複数の基準でクラスタリングすることによ

る分析を行う。また、4年間で実施してきた研究成果をとりまとめて、アジェンダ・セッティングと個人の態度形成との関係を包括的に整理し、政策提言につなげるための検討を行う。

\*\*\*\*\*

(平成 29 年度の成果概要)

科学的特性マップ公表後の 2017 年 8 月に、日本全国を対象にオンラインによる質問紙調査を行った。回答者のグループは自宅と居住自治体の分類で 5 つに区分し、以前実施したマップ公表前の結果と公表後のアンケート調査結果を比較したところ、いずれの 카테고리でも文献調査・処分施設立地の受容性が低下する結果となった。また、特性マップ公表による受容性への影響は距離に関連するわけではなく、「自宅が「輸送面でも好ましい地域」に入っているか否か」に大きく依存していることがわかった。これらの結果から、マップ公表が、「輸送面でも好ましい地域」のローカルなレベルでは精緻化見込みモデル<sup>1</sup>における「中心ルート」による態度形成を高めることに貢献したことを示唆する一方で、自宅が処分地に含まれる者以外は、多くが「周辺ルート」的情報処理にとどまってしまう可能性も示唆された。

これまで継続して実施してきた社会心理学的調査について、引き続き平成 29 年 12 月にインターネットを用いたアンケート調査を行った。科学的特性マップ公表を受けて、具体的に文献調査を進める上での決定方法選好にどのような影響が出ているかについても追加で調査した結果、住民投票によって自治体が自主的に文献調査に応募する方式、市区村長の意思決定で応募する方式が支持され、総理大臣・経産省・環境省・国民投票といった外部からの意思決定では 1 自治体を決め打ちするより、10 の候補自治体を選ぶ方が支持されることがわかった。これらの知見から、ローカルの民意をくみ取るプロセスや、事業に直接関与しない国民にとっての決定責任（薄いほど望ましい）に対する配慮が重要という示唆が得られた。一方で、「受け入れを承諾する他国で地層処分する」という選択肢がある中では、適切と考える人が最も多かったのは他国処分であった。この結果から、調査地選定が具体化すればするほど、意思決定を回避しようとする傾向が強まる可能性があることが示唆された。加えて、原子力関連施設が立地しているかどうか、リスク認知に影響を及ぼ

---

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

す他の要因があるかどうか、といった指標で回答者を類型化して、態度形成の違いを検証した。具体的には、原子力関連施設の有無と東日本大震災本震の震度を基準にとって分析を行い、原子力関連施設のある自治体の回答者で東日本大震災で地震を経験しなかった場合、受け入れ態度が顕著に否定的に変化したことがわかった。

4年間で実施してきた研究から、アジェンダ・セッティングと個人の態度形成との関係を包括的に整理した結果、国家レベルのアジェンダ・セッティングと個人の態度形成過程の関係を類型化することができた。各類型に含まれる事例などを検討して、(A) 国民が受け入れを検討する自治体レベルに具体的な検討を安心して委ねられるアジェンダ、(B) 受け入れを検討する自治体レベルで、合理的判断に基づく政治的意思決定が実現するようなアジェンダの両方につながるような、アジェンダ・セッティングを設計することの有用性が示唆された。このようなアジェンダ・セッティングにつながるフレーミングとして、「地方創生」が考えられた。また、沈黙のらせん理論に基づく検討から、そもそも処分制度の公正性を高めることが重要であることが示された。経済的便益を活用したまちづくりを行う上でも、公正性を担保するための施策を検討することが必要と考えられた。

### 2.3 検討委員会による平成 29 年度の研究成果に対する評価

本年度選定した 6 件の研究テーマについて、設置した検討委員会（委員長：朽山修（原子力安全研究協会））において平成 29 年度実施内容等のチェックアンドレビューを以下の中間報告と最終報告の日程で行った。

#### ● 中間報告

放射性廃棄物重要基礎技術研究調査 平成 29 年度 第 1 回検討委員会（公募研究評価）

日時：平成 29 年 9 月 1 日（金） 10：00～15：00

場所：原環センター第 1,2 会議室

中間報告では、各研究者から平成 29 年度の研究進捗状況について 20 分の発表を行い、その後委員からの質疑応答・評価記入を 15 分行った。

評価では、平成 29 年度の研究の進捗状況に対する意見、当該年度残りの期間における研究の進め方等に対する助言等を自由意見として記入する形式で行った。委員による意見については今後の研究に役立てられるように事務局でとりまとめて各研究者に通知した。

#### ● 最終報告

放射性廃棄物重要基礎技術研究調査 平成 29 年度 第 2 回検討委員会（公募研究評価）

日時：平成 30 年 2 月 14 日（水） 10：00～15：30

場所：原環センター第 1,2 会議室

最終報告では、各研究者から平成 29 年度の研究成果、及び 4 ヶ年で実施してきた研究概要の総括の内容について 25 分の発表を行い、その後委員からの質疑応答・評価記入を 15 分行った。評価では、以下の項目について評価点数を付け、また平成 29 年度の研究成果及び総括に対する意見、及び各研究者の今後の研究の方向性等に対するアドバイス等を自由意見として記入する形式で行った。

- ・実施研究は当初目的を達成したか。
- ・実施研究は新規性・独創性があるか
- ・地層処分事業へ寄与できる成果が上がっているか

以下に、各研究テーマに対する評価結果を整理する。

平成 29 年度第 2 回検討委員会（公募研究評価）評価結果（その 1）

研究テーマ	断層周辺の地下水流動特性および物質移行特性に関する包括的研究 柏谷 公希（京都大学）	
	評価項目	評価（平均）
	・実施研究は当初目的を達成したか。	3.3
	・実施研究は新規性・独創性があるか	4.0
	・地層処分事業へ寄与できる成果が上がっているか	3.8
自由意見	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ シュミットロックハンマーによる反発度と透水率との負の相関があまり明確ではない。</li> <li>・ 計算結果の検証が必要。</li> <li>・ シミュレーション結果の検証を進める必要があります。</li> <li>・ 火山岩の空隙率と浸透率との関係式（Lamur et al., 2017）の適用範囲を示す必要があると思います。</li> <li>・ 物質移行モデルの構築は評価できる。しかし検証がまだ行われておらず、今後の課題であり、できる限り早く結果を出して欲しい。（モデルの有効性はコードも）</li> <li>・ 全体の達成目標に対してはまだ道半ばかと思いますが、少し進めていくべき研究の方向が見えてきたかと思います。</li> <li>・ 広域および局所的な水理モデル構築はできているが、今後の検証と応用法について更なる検討が必要。</li> <li>・ 浸透率の精度はオーダーであると考えられ、浸透率と断層からの距離との関係は、浸透率是对数軸でプロットしております。反発度との関係も浸透率と対数により表示する必要はありませんでしょうか？ 負の相関があると言えるのか、示唆されているのか、言葉の使い分けが必要かもしれません。</li> <li>・ 広域地下水流動とニアフィールドでの地下水の流れの違いを明確に示して欲しい。</li> </ul>	

（注）評価点数は 5（高い）～1（低い）

平成 29 年度第 2 回検討委員会（公募研究評価）評価結果（その 2）

研究テーマ	岩石き裂の治癒作用を利用した不連続面のバリア性能向上に関する研究 奈良 禎太（京都大学）	
	評価項目	評価（平均）
	・実施研究は当初目的を達成したか。	3.5
	・実施研究は新規性・独創性があるか	3.5
	・地層処分事業へ寄与できる成果が上がっているか	3.0
自由意見	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 亀裂が閉塞されるであろうという着眼点は理解できるが、そのことを示すための実験としては少し短絡的と思われる。</li> <li>・ 現場の粘土スラリーで亀裂が閉じる様子を確認できている。</li> <li>・ テクニカルなことですが、き裂の透水係数とするのであれば、き裂の断面積で整理した方が、実フィールドでのデータとの比較にはいいのではないのでしょうか。</li> <li>・ 粘土で EDZ が埋まるというのは当たり前のような印象と受けるので、この研究の独創性や新規性がよくわからない。</li> <li>・ 粘土の充填過程についてより詳しい検討（とくに条件の多様性を考慮した）が必要と思われる。たまたまひとつの事例を説明したという感じがする。</li> <li>・ 当初の目的を追求するという観点から研究を進めるとすれば、どういう条件で何が亀裂を充填することになるかを考えていただきたい。</li> <li>・ 亀裂の閉じるシナリオ、条件について、区分してメカニズムを明らかにすると共に、処分の安全評価に適用するための方策を考える必要がある。</li> <li>・ 鉱物の析出についてカルサイトとすると炭酸が必要になります。還元、高 pH 環境（セメント影響域）では CSH など考えられます。粘土粒子の目づまりも検討されており、き裂内で何が生じるかを整理してまとめる必要があると感じます。</li> <li>・ EDZ に特化することなくき裂のへい塞について考えていく方が研究の成果が広がると思います。</li> <li>・ どのような物質がキレツを充填するのか、実際のフィールドにそくした研究をおこなっていただければと思います。</li> </ul>	

（注）評価点数は 5（高い）～1（低い）

平成 29 年度第 2 回検討委員会（公募研究評価）評価結果（その 3）

研究テーマ	天然バリアと人工バリアの力学特性を考慮した放射性廃棄物処分施設の 長期的な力学挙動予測システムの開発 金澤 伸一（福島高専）	
	評価項目	評価（平均）
	・実施研究は当初目的を達成したか。	3.8
	・実施研究は新規性・独創性があるか	3.3
	・地層処分事業へ寄与できる成果が上がっているか	3.5
自由意見	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 緩衝材の含水、強度、温度のシミュレーションを実施するための基礎データを集め、モデルを構築している。</li> <li>・ 有効飽和度を用いるとサクシオン応力が最大となることを示しておられますが、この有効性の説明を報告書に詳しく記載してほしいと思います。</li> <li>・ シミュレーションはモデルがシンプルすぎるので、実際の目的に適用できるのか疑問。</li> <li>・ 緩衝材の冠水挙動に関しては、埋め戻しの際、水の供給方法が大切だということを示す結果は得られた。</li> <li>・ ある程度力学挙動を予測できるモデルのひな型ができたと考えられるので、もう少し現実にあわせた議論ができるようになれば良いと思います。</li> <li>・ 気相を含む計算コードの開発において、研究目的にある「施設内部による気相の封入」についても埋め戻しの方法と関連付けて、考察を深めてほしいと思います。</li> <li>・ 今後評価に必要なパラメータを定めて、シミュレーションを実施することが求められる。</li> <li>・ 熱、力、水の強相関シミュレーションも考慮してほしい。</li> </ul>	

（注）評価点数は 5（高い）～1（低い）

平成 29 年度第 2 回検討委員会（公募研究評価）評価結果（その 4）

研究テーマ	<p style="text-align: center;">硝酸塩影響評価のための高イオン強度下における アクチノイドの溶液化学的研究 小林 大志（京都大学）</p>	
評価項目		評価（平均）
・実施研究は当初目的を達成したか。		4.3
・実施研究は新規性・独創性があるか		4.3
・地層処分事業へ寄与できる成果が上がっているか		4.3
自由意見	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 非常に難しい問題を緻密に研究されよくまとめられています。</li> <li>・ アクチノイド、特に Pu に対し、重要なデータが得られている。解釈については、まだ不明な部分もあるが、一応の説明をつけることに成功している。</li> <li>・ 水酸化コロイドのゼータ電位をより再現できる熱力学モデルを提案しており、大きな進展がみられる。</li> <li>・ モデル化を進めていることは評価できる（実験 → モデル化）。</li> <li>・ モデルの合理性を検証する方向も進めていただきたい。</li> <li>・ 定量化を旨としていることは高く評価。</li> <li>・ モデル（コード）の内容についても説明が欲しかった。（地下水流動/移行）</li> <li>・ 溶液化学のつきあたっている問題について今後の飛躍を期待します。</li> <li>・ 今後の研究の中に、分子動力学等の計算科学的アプローチを加えると良い。</li> <li>・ 硝酸塩環境での 4 価アクチノイドの化学的挙動、特に溶解度の評価に大きく寄与すると思われるが、総括において定量化への貢献を強調してほしい。</li> <li>・ 地層処分との関係をより具体的に示していただけると、有効性がもっとはつきりするのではないかと思います。</li> </ul>	

（注）評価点数は 5（高い）～1（低い）

平成 29 年度第 2 回検討委員会（公募研究評価）評価結果（その 5）

研究テーマ	地層処分の性能評価の精緻化を目指した薄片状雲母を用いた 核種の収着メカニズムに関する基礎的研究 千田 太詩（東北大学）	
	評価項目	評価（平均）
	・実施研究は当初目的を達成したか。	3.3
	・実施研究は新規性・独創性があるか	3.7
	・地層処分事業へ寄与できる成果が上がっているか	3.7
自由意見	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 黒雲母の層間への Cs、Sr、Eu の拡散侵入について有用なデータを得ている。</li> <li>・ 粉末状雲母から雲母鉱物（薄片）への実験対象の違いは新規性が認められる。</li> <li>・ しかし実際の岩石の中で、鉱物に対してどのように収着しているのか、良く分からなかった（質問への回答で、微細な割れ目に沿って水が浸透することが分かった）</li> <li>・ 収着機構が、化学反応のみではなく力学的機構にも依存することがわかりましたので、これをどう理解して、どう進めていけばよいのか考察してください。</li> <li>・ エッジからの侵入の深さに関するデータが得られれば、もっとモデル化に寄与できると考える。具体的には SIMS 分析のデータ点を増やして全体的な分布が得られると良い。</li> <li>・ 基礎的な研究であるから仕方がないが、実際の処分にどう反映すべきかを意識していただければ、非常によかったと思います。</li> </ul>	

（注）評価点数は 5（高い）～1（低い）

平成 29 年度第 2 回検討委員会（公募研究評価）評価結果（その 6）

研究テーマ	<p style="text-align: center;">高レベル放射性廃棄物処分に関わる アジェンダ・セッティング（政策課題設定）の基礎的研究 小松崎 俊作（東京大学）</p>	
評価項目		評価（平均）
・実施研究は当初目的を達成したか。		4.3
・実施研究は新規性・独創性があるか		4.3
・地層処分事業へ寄与できる成果が上がっているか		4.5
自由意見	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ ローカルのステイクホルダーを議論メンバーに入れないと進まない事、それらをうまく取り込むためのアジェンダセッティングが必要であることが示されている。</li> <li>・ 科学的特性マップがアジェンダセッティングになっているという仮説については否定されたが、本来的にローカル問題がよりローカルな問題であることが示されて新しい視点と思われる。</li> <li>・ 科学的特性マップに対する反発が多かった。つまり情動的な要素が多かったことにおどろきましたが、今後の処分事業を進めていく上で注意すべきことは何か分かり、非常に重要な研究を行っていただいたことが良く分かりました。今後、意思決定に向けて何をすべきか方向性が分かった気がします。地方創成は重要だと思います。</li> <li>・ 大変示唆に富む話でした。これからもよろしく。</li> <li>・ 事業を進めるためのサクセスストーリーを複数考慮し、アジェンダ設定を行う事が望ましい。</li> <li>・ 「国家的アジェンダセッティングの限界、形式的にはアジェンダセッティングは情動的反応を刺激するのみ」という理解より、ローカルに話を進めていくことが重要で、それも支持派を減らさないことが重要と理解しました。結果的に海外処分を支持する方も支持派に替わる可能性があるかと存じます。結果からの短絡的な結論はできませんが、次につながる総括をお願いできればと思います。</li> <li>・ 利益を示すことの重要性が良く分かりました。この点をもっと突き詰めていくべきだと思います。研究を更に発展させてほしいと思います。</li> </ul>	

（注）評価点数は 5（高い）～1（低い）

## 2.4 地層処分基盤研究開発に関する進捗状況の中間評価とチェックアンドレビュー

平成 17 年 7 月に設置された基盤調整会議の活動をとおして、我が国における地層処分に  
関する国の基盤研究開発に関する全体計画の初版が平成 18 年 12 月に公表された[1][2] (平  
成 21 年 7 月に改訂版公開)。また、平成 22 年には地層処分と TRU 廃棄物の地層処分に  
関する全体計画が統合された改訂版の全体計画が公表された[3]。その後、平成 24 年度に、  
平成 25～29 年度における地層処分に  
関する国の基盤研究開発の方針に関する全体計画[4]  
が策定され、さらに平成 25 年度において、その全体計画に沿って展開される詳細な研究開  
発計画（研究開発マップ）[5]が策定された。

本事業においては、全体計画（平成 25 年度～平成 29 年度）について、平成 27 年度に地  
質環境、工学技術、性能評価分野については中間評価を実施した[6]。一方で、平成 28 年度  
に原子力委員会放射性廃棄物専門部会により、最終処分関係行政機関等の活動状況に関す  
る評価が行われた。その評価報告書「最終処分関係行政機関等の活動状況に関する評価書」  
[7]において、基盤調整会議と全体計画に関して以下の評価結果が示されている。

- ・ 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構（JAEA）及びその他関連研究開発機関は、  
調整会議において、原子力発電環境整備機構（NUMO）が適切に示したニーズを把握  
しこれを反映した全体計画を策定している。また、これに基づき成果を出し合って  
PDCA サイクルを回し、次期全体計画の改訂に反映するという作業を共に行っている。  
これにより、研究開発主体間での連携が適切に図られているものと考えられる。
- ・ ただし、調整会議の最近の開催状況や全体計画の改訂内容をインターネットを通じて  
把握することは困難であることから、その運営の透明性の確保が望まれる。
- ・ 地層処分基盤研究開発に関する全体計画は、NUMO の実施する技術開発計画と一体化  
し、いわゆる「真の全体計画」となることが望まれる。
- ・ NUMO は、包括的技術報告書を有効に活用し、いわゆる「真の全体計画」の策定に向  
け、一層のリーダーシップを発揮することが望まれる。

上記の評価を受けて、基盤調整会議のスキームの拡充等の見直しが行われ、平成 29 年 5  
月に「地層処分研究開発調整会議」（以下、調整会議という。）に改編された。この新たに  
設置された調整会議では、次期計画として、平成 29 年度に NUMO の実施内容を含む平成

30年度～平成34年度の研究開発計画を策定する予定となっている。本調査の実施計画においては、従来の基盤調整会議における次期全体計画の策定の支援を行うこととしていたが、上記の背景を踏まえ、当該調査業務については、新たに改組された調整会議の運営支援を行うこととした。具体的な運営支援としては、[8]に従って、会議開催場所の整備・準備、資料の準備、議事要旨の作成等の支援活動を行った。また、関係機関や外部有識者の日程調整を資源エネルギー庁と調整の上、実施した。さらに、今後の研究開発計画の策定や見直しに資するための、関連する諸外国の研究開発計画等の海外文献について翻訳を行った。

## 参考資料

- [1] 資源エネルギー庁, (独) 日本原子力研究開発機構, 高レベル放射性廃棄物及びTRU廃棄物の地層処分基盤研究開発に関する全体計画, 2006 (2009改訂版)
- [2] 資源エネルギー庁, (独) 日本原子力研究開発機構, TRU 廃棄物の地層処分基盤研究開発に関する全体基本計画, 2006 (2009改訂版)
- [3] 資源エネルギー庁, (独) 日本原子力研究開発機構, 高レベル放射性廃棄物及び TRU 廃棄物の地層処分基盤研究開発に関する全体計画, 2010
- [4] 地層処分基盤研究開発調整会議, 地層処分基盤研究開発に関する全体計画 (平成 25 年度～29 年度) , 2013
- [5] 地層処分基盤研究開発調整会議, 地層処分基盤研究開発に関する全体計画【研究開発マップ】 (平成 25 年度～29 年度) , 2014
- [6] 原子力環境整備促進・資金管理センター, 平成 26 年度放射性廃棄物共通技術調査等事業 放射性廃棄物重要基礎技術研究調査 (国庫債務負担行為に係るもの) 報告書 (平成 27 年度分) , 2016
- [7] 原子力委員会放射性廃棄物専門部会, 最終処分関係行政機関等の活動状況に関する評価報告書, 2016
- [8] 「地層処分研究開発調整会議」について, 地層処分研究開発調整会議 (第 1 回会合) 参考資料 1 ,2017



# 別添資料 I

(各実施研究の平成 29 年度報告)



# 研究報告 1

断層周辺の地下水流動特性および  
物質移行特性に関する包括的研究

京都大学 大学院工学研究科

柏谷 公希



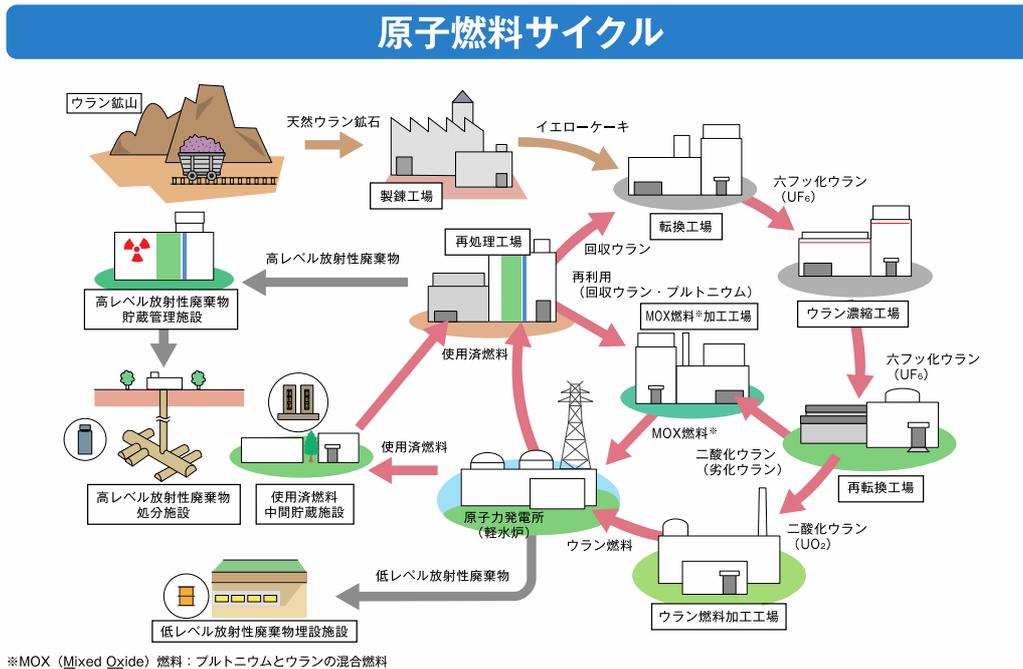
## 1. 研究の背景と目的

現在、日本では原子力発電所で発電に使用した原子燃料(使用済燃料)を再処理することで、使用済燃料に含まれるウランやプルトニウムを抽出し、再度ウラン燃料や MOX 燃料として発電に使用する原子燃料サイクル(図 1)の実現に向けた調査研究が進められている。ウラン燃料を発電に用いた場合、消費されるのは 3~5%程度で、再度発電に利用可能なウラン、プルトニウムが 95~97%程度含まれる(電気事業連合会, 2017, 図 2)。核燃料サイクルが実現すれば、使用済燃料に含まれるウラン、プルトニウムを再度発電に用いることが可能となり、限りある資源である原子燃料の利用効率が向上するとともに、使用済燃料の再処理で抽出されたウランやプルトニウムは準国産エネルギーであることから、ウラン資源の海外依存度が低下し、エネルギーの安定供給や安全保障にも寄与する(資源エネルギー庁, 2013)。また、使用済燃料には、原子燃料として使用できない核分裂生成物が 3~5%程度含まれる(電気事業連合会, 2017, 図 2)。使用済燃料の再処理過程で、ウラン、プルトニウムを抽出した後に残る廃液はガラスとともに溶融することでガラス固化体とし、高レベル放射性廃棄物として処分される(中山, 2011)。原子燃料サイクルで使用済燃料の再処理を行うことで、使用済燃料を直接処分した場合に比べて、高レベル放射性廃棄物の体積を 1/4~1/7 まで減らすことが可能となる(資源エネルギー庁, 2013)ことも、核燃料サイクルの利点である。

高レベル放射性廃棄物は、30~50 年間一時貯蔵することで冷却された後、地下 300m 以深に処分(地層処分)されることとなっている(中山, 2011)。また、MOX 燃料の加工や使用済燃料の再処理の過程で発生する TRU 廃棄物のうち、長寿命核種を含むものも地層処分されることとなっている(中山, 2011)。

放射性核種の崩壊により、埋設された高レベル放射性廃棄物の放射能は時間と共に減少するが、その放射能がウラン鉱石と同程度まで低下するには 1~10 万年程度の長い時間を要する(核燃料サイクル開発機構, 1999a, 図 3 および図 4)。このような長期間にわたり、放射性核種を地下に封じ込めるため、地層処分ではガラス固化体、オーバーパック、緩衝材などの人工バリアと、周囲の岩盤である天然バリアからなる多重バリアシステムが用いられる(電気事業連合会, 2016, 図 5)。地層処分の安全性を示すためには、このようなシステムの長期間にわたる封じ込め性能を評価する必要があり、将来起こる可能性があるシナリオを考慮し、安全評価が行われる(深堀, 2011)。日本における地層処分の技術的信頼性と、処分サイトを選定し、安全基準を策定する上での技術的根拠を示すために取りまとめられた「地層処分研究開発の第二次とりまとめ」(核燃料サイクル開発機構, 1999b)では、地下水シナリオと接近シナリオが検討された(図 6)。このうち、人間の廃棄サイトへの立ち入りや、火山活動や隕石の落下により廃棄体が露出することで廃棄体と人間の物理的な距離が接近する状況を考慮する接近

シナリオは、考慮する事象が発生する可能性が非常に低かったり、適切なサイト選択とサイト特性に応じた工学的対策の達成により発生可能性を低減することができるかとされている(核燃料サイクル開発機構, 1999b)。一方で、埋設された廃棄物から地下水の作用により核種が生物圏に移行するとする地下水シナリオは確実に起こると考えられており、安全評価において最も重要なシナリオであるとされている(新堀, 2011;中山, 2011)。



7-2-1

原子力・エネルギー図面集 2015

図1 原子燃料サイクルの概要(電気事業連合会, 2016)

●発電によるウラン燃料の変化(例)

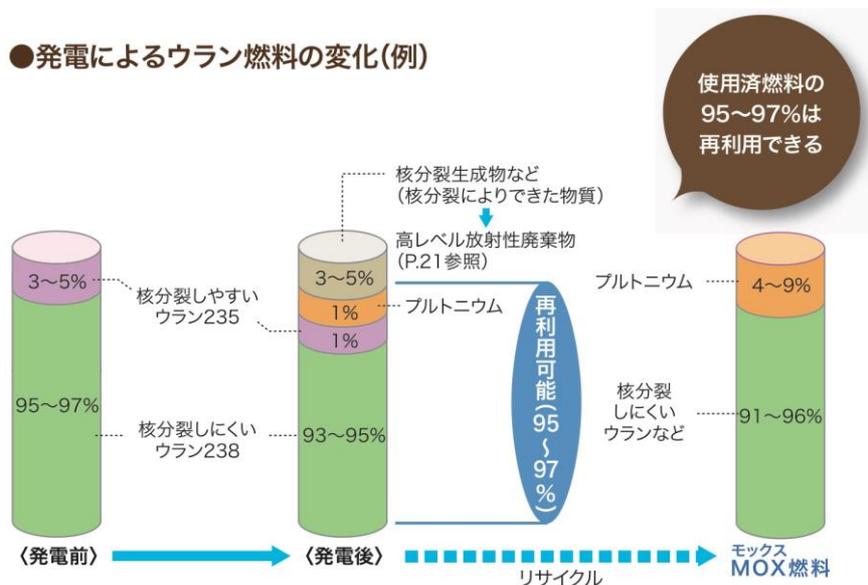


図 2 発電およびリサイクルによるウラン燃料の組成変化(電気事業連合会, 2017)

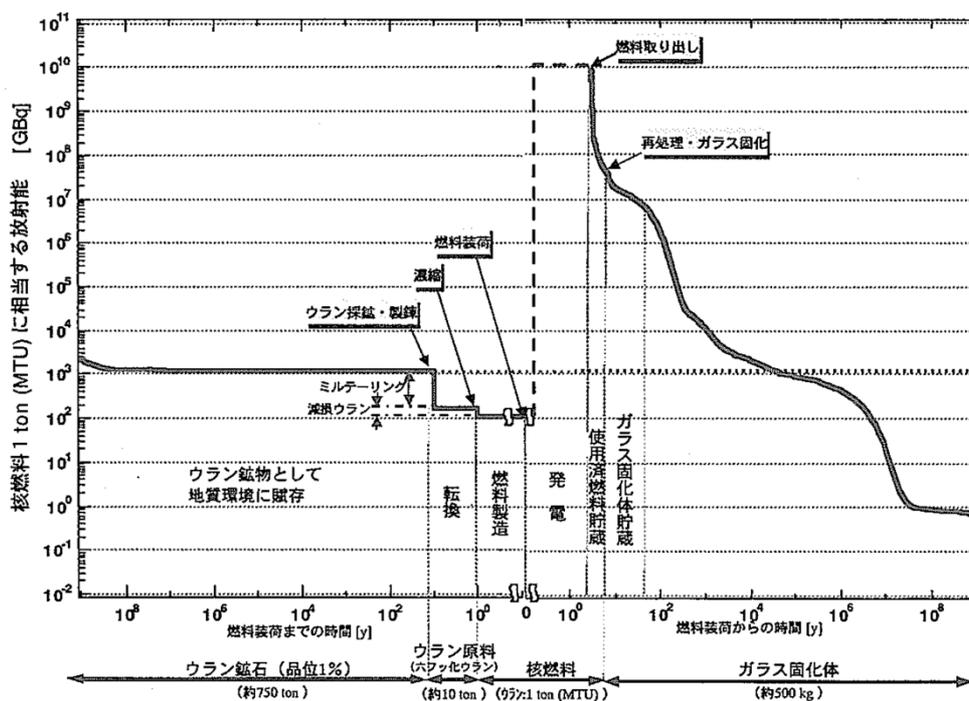


図 3 高レベル放射性廃棄物(ガラス固化体)の放射能の減衰  
(濃縮度 4.5%の核燃料 1MTU 相当, 核燃料サイクル開発機構, 1999a)

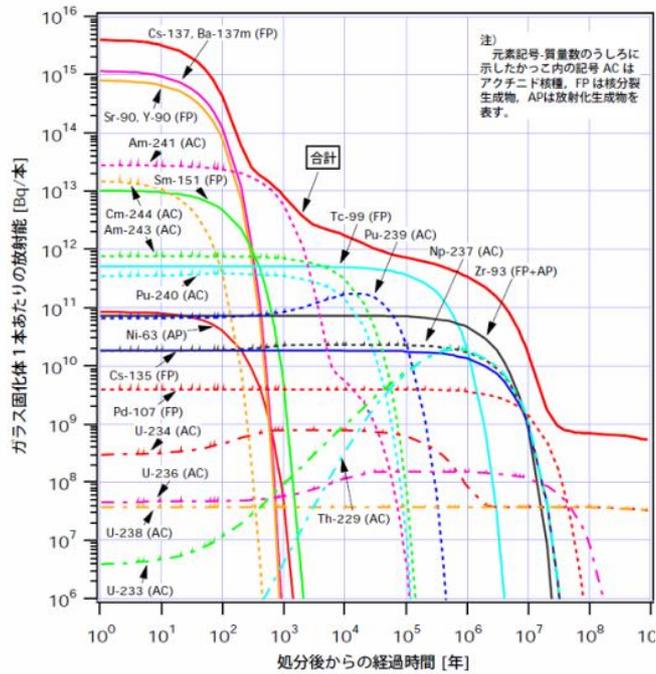


図4 ガラス固化体の放射能および各放射性核種の放射能の経時変化  
(核燃料サイクル開発機構, 1999a)

## 高レベル放射性廃棄物多重バリアシステム

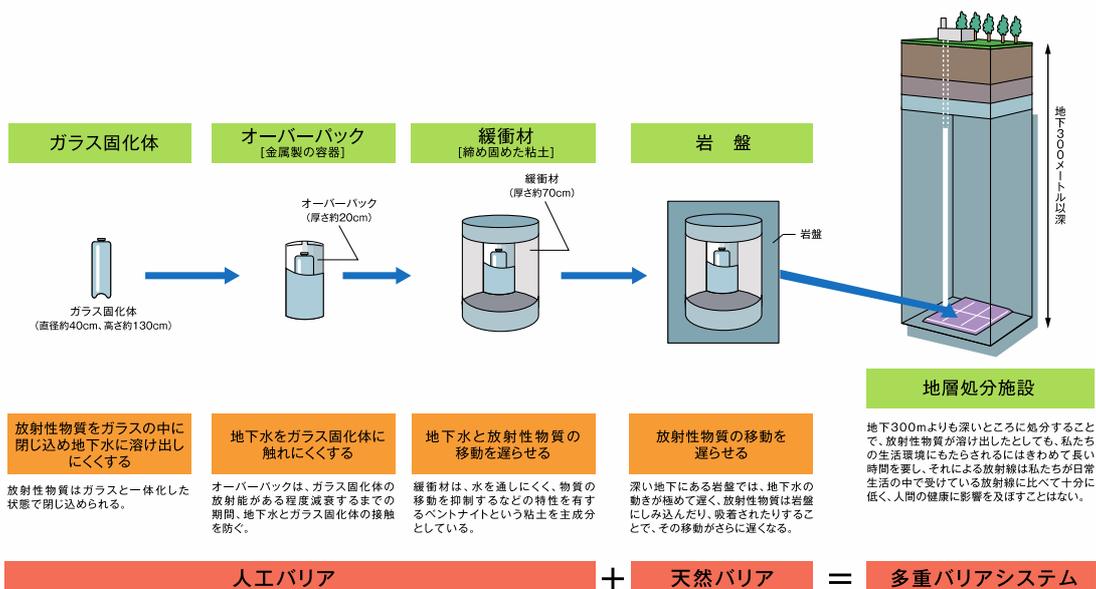


図5 高レベル放射性廃棄物の地層処分で行われる多重バリアシステム  
(電気事業連合会, 2016; 出典: 原子力発電環境整備機構資料)

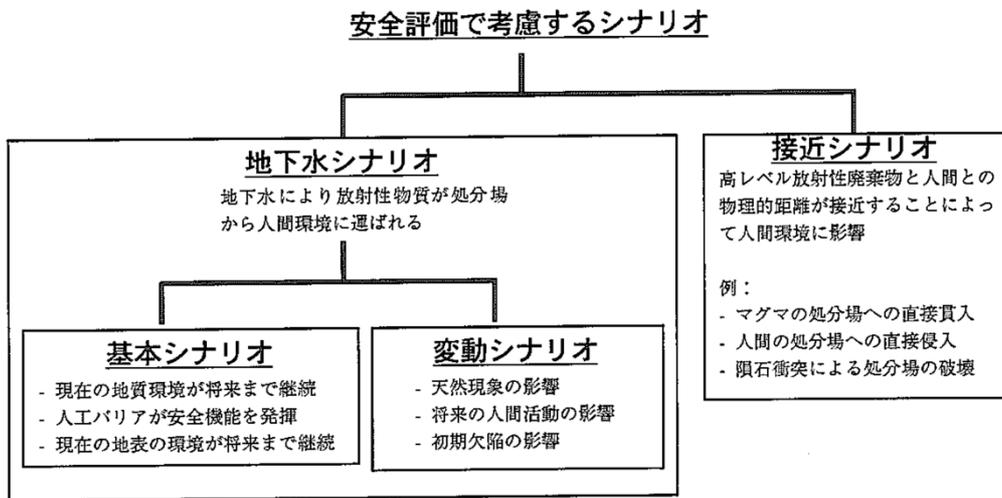


図 6 第二次とりまとめで検討された安全評価シナリオ  
(核燃料サイクル開発機構, 1999b)

地下水シナリオで考慮するのは、地下水流動に伴う放射性核種の物質移行現象であることから、地下水シナリオに基づく地層処分安全評価を行う上で処分サイト周辺の水理特性を把握することが求められる。地殻の水理特性は不均質であり、中でも断層はその内部構造や断層と地下水流動方向の位置関係に応じて、高透水性の構造としても低透水性の構造としても機能する複雑な水理特性を有し、特異的な構造であるといえる。断層が周辺の地下水流動や物質移行においてどのような役割を果たしているのか、その詳細は十分に理解されているとは言い難い。高レベル放射性廃棄物の地層処分の安全評価で必要となる、長期間の地下水流動状態とそれに伴う物質移行を評価する上で、周辺の地下水流動や物質移行における断層の機能を明らかにすることが重要である。また、放射性廃棄物処分の安全評価では、処分システムの挙動を数値モデルで表現し、コンピュータモデルによる解析を行う手法が用いられる(Ahn, 2011)。安全評価で用いるモデルにおける、断層の適切なモデル化手法を確立することが必要である。そこで本研究では、地殻中の地下水流動とそれに伴う物質移行において、断層の機能を明らかにするとともに、断層の水理特性を適切にモデル化する手法を構築することを目的とする。これらが実現すれば、地下水シナリオの安全評価の高精度化と信頼性の向上に貢献するものと期待される。

## 2. 全体研究計画（4 ヶ年における全体計画）

本研究では、地下水流動や物質移行における断層の機能を明らかにするとともに、高レベル放射性廃棄物の地層処分の安全評価で必要となる、地下水流動解析や物質移行解析に使用するモデルで断層を適切に表現する手法を確立することを最終的な目的とする。そのために、まずは断層に関する様々なデータ取得が可能な研究サイトを選定し、その周辺で岩石の透水性、岩石の鉱物組成および化学組成、地下水の化学的特性や物理化学特性などのデータを取得し、それらの空間分布を把握する。得られた結果に基づいて断層周辺における地下水流動状態や物質移行状態を解釈する。また、断層周辺地域を含む水理地質モデルを作成し、地下水流動解析と物質移行解析を行うことにより、周辺の地下水流動と物質移行における断層の機能を明らかにするとともに、適切な断層のモデル化法について検討する。地下水流動や物質移行に関する解析結果は、地下水試料の実測値との比較によりその妥当性を検証し、モデルのキャリブレーションを行うことで、解析に用いるモデルの高精度化を進める。本研究の研究期間は平成 26 年度から平成 29 年度の 4 年間であり、各年度の実施内容は以下の通りである。

平成 26 年度は、日本国内に存在する断層を中心に文献調査を行い、本研究で研究サイトとする断層を選定した。これまで集中的な調査・研究が行われ、多数の論文や報告書、データが公開されている主立坑断層、月吉断層、跡津川断層系、野島断層などについて検討し、本研究で断層周辺の地下水流動状態や物質移行状態を検討する上で不可欠となる断層周辺の地質、水文、水理、地球化学などの各種特性に関するデータが集積、公開されており、利用可能であること、本研究の期間中も調査やモニタリングが継続されており、自らデータ取得も可能なこと、各種モデル構築や地下水流動解析が実施され、本研究の解析結果との比較、検証も可能であること、さらには断層直近に日本原子力研究開発機構（以後 JAEA とする）超深地層研究所の研究坑道が分布しており、深度や断層からの距離を変化させて原位置でデータ取得が可能なため、地下水流動や物質移行に関わる特性の空間分布を把握しやすいことを重視し、岐阜県東濃地域に分布する主立坑断層の周辺地域を研究サイトとすることとした。この他、環境トレーサーの一種であり、比較的若い地下水の滞留時間推定や検出に広く用いられている六フッ化硫黄 ( $\text{SF}_6$ ) の分析システムを構築し、分析手順を確立した。

平成 27 年度は、JAEA 瑞浪超深地層研究所の研究坑道において、断層周辺の岩盤を対象に原位置でプローブパーミアメータを用いた浸透率測定を行い、断層からの距離に応じた岩盤の浸透率変化を明らかにした。また、浸透率と断層周辺岩盤の巨視的な割れ目密度との関係に関する検討や、地下水の水頭、岩石の化学組成や鉱物組成の空間分布に関する検討を行った。

平成 28 年度は、瑞浪超深地層研究所の研究坑道内のボーリング孔から地下水試料を採取し、物理化学特性の測定と、地下水流動状態を解釈する上で有用な環境トレーサーの濃度、同位体比を含む地球化学特性の分析を実施した。分析結果は JAEA により公開されている地下水の物理化学特性および地球化学特性のモニタリングデータと合わせて、これら特性の空間的、時間的な変化を検討し、断層周辺における地下水流動状態や物質移行状態を解釈するのに用いた。また、広域的な水理地質モデルと断層周辺の水理地質モデルを作成し、地下水流動解析と、塩化物イオン濃度、トリチウム濃度を対象とした予察的な物質移行解析を行った。平成 28 年度の成果の概要は 3 章で紹介する。

平成 29 年度は、前年度までに得られたデータに基づいて、断層周辺の水理地質モデルの高度化を進め、これを用いて地下水流動解析、物質移行解析、水-岩石反応も考慮した反応輸送解析を実施する。これにより断層周辺の地下水流動状態と物質移行状態を明らかにし、水理地質学的、地球化学的な場の高精度な把握を目指す。環境トレーサーの実測値と、解析結果の空間分布および時間変化を比較することで、その妥当性を評価、検証し、モデルのキャリブレーションを行う。加えて、平成 27 年度に測定した浸透率の空間変化と比較する目的で、浸透率測定箇所ではシュミットロックハンマーを用いた反発度測定を行う。また平成 28 年度から継続して坑道内のボーリング孔から地下水試料を採取し、物理化学パラメータと地化学特性の分析を行う。

### 3. 平成 28 年度の成果概要

平成 28 年度は、主立坑断層近傍に分布する研究坑道内のボーリング孔から地下水試料を採取し、物理化学パラメータの測定と、水の同位体や溶存成分濃度の分析を行った。また、研究地域の水理地質モデルを作成し、地下水流動解析を行うとともに、水-岩石反応を考慮する必要がない保存性トレーサーである塩化物イオンとトリチウムの物質移行解析を行った。得られた成果の概要を、昨年度報告書(原子力環境整備促進・資金管理センター, 2017)に基づいて以下にまとめる。

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

瑞浪超深地層研究所の研究坑道において，深度 200m, 300m, 400m, 500m の水平坑道から掘削された 5 本のボーリング孔で，12 の採水区間から地下水試料を採取した。研究坑道とボーリング孔の位置図を図 7 に，各ボーリング孔の概要を表 1 にまとめる。

採取した地下水試料の分析で得られた主要溶存イオン濃度を stiff ダイアグラムとして示したものを図 8 に示す。主要溶存イオンは，(1) 浅部で相対的に濃度が低く，深部で濃度が高いもの ( $\text{Na}^+$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{Br}^-$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ )，(2) 浅部で相対的に濃度が高く，深部で濃度が低いもの ( $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{F}^-$ ,  $\text{HCO}_3^-$ )，(3) ほぼ全ての採水区間で検出限界以下のもの ( $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{NO}_2^-$ ,  $\text{PO}_4^{3-}$ )，の 3 グループに分類可能であった。また，微量元素濃度についても，(1) 浅部で相対的に濃度が低く，深部で濃度が高いもの ( $\text{Li}$ ,  $\text{B}$ ,  $\text{Na}$ ,  $\text{Mg}$ ,  $\text{K}$ ,  $\text{Ca}$ ,  $\text{Cr}$ ,  $\text{Mn}$ ,  $\text{Fe}$ ,  $\text{Rb}$ ,  $\text{Sr}$ ,  $\text{Mo}$ ,  $\text{Cs}$ ,  $\text{Ba}$ ,  $\text{La}$ ,  $\text{Ce}$ ,  $\text{Nd}$ ,  $\text{Tm}$ )，(2) 浅部で相対的に濃度が高く，深部で濃度が低いもの ( $\text{Ga}$ ,  $\text{Ge}$ ,  $\text{Sn}$ )，(3) 深度依存性が明確でないもの ( $\text{Al}$ ,  $\text{Si}$ ,  $\text{Ti}$ ,  $\text{V}$ ,  $\text{As}$ ,  $\text{Y}$ ,  $\text{Zr}$ ,  $\text{Sb}$ ,  $\text{Gd}$ ,  $\text{Tb}$ ,  $\text{Ho}$ ,  $\text{Yb}$ ,  $\text{Lu}$ ,  $\text{W}$ ,  $\text{Pb}$ ,  $\text{U}$ ,  $\text{Zn}$ )，(4) ほぼ全ての採水区間で検出限界以下のもの ( $\text{P}$ ,  $\text{Sc}$ ,  $\text{Co}$ ,  $\text{Ni}$ ,  $\text{Cu}$ ,  $\text{Se}$ ,  $\text{Ag}$ ,  $\text{Cd}$ ,  $\text{Pr}$ ,  $\text{Sm}$ ,  $\text{Eu}$ ,  $\text{Dy}$ ,  $\text{Er}$ )，の 4 グループに分類可能であった。また，時間経過に伴う水質の変化を総合的に検討するため，採取した地下水試料の分析結果と JAEA によるモニタリングデータ (齋ほか，2010; 齋ほか，2011; 新宮ほか，2011; 新宮ほか，2012; 大森ほか，2014) を用いた主成分分析を行い，主成分得点の時間変化について検討した。各主成分の固有値と寄与率を表 2 に，各主成分の係数を表 3 に，第 1 主成分と第 2 主成分の相関を図 9 に，主成分の時間変化を図 10 に示す。これらの結果から，第 1 主成分は浅部と深部の水質の違いを反映しており，Iwatsuki et al. (2005) など指摘されているように，浅部と深部の地下水混合による水質形成を示唆しているものと考えられた。また，断層北側のボーリング孔 (09MI21 号孔および 12MI33 号孔) は南側のボーリング孔と比較した場合に第 2 主成分のスコアが小さいことから，断層を境界として水質が異なることが示された。断層の北側のボーリング孔では時間経過に伴う第 1 主成分スコアの変化が明確でないか，一貫した変化傾向を示さないのに対し，断層南側では第 1 主成分スコアの減少が認められ，主成分スコア，すなわち水質の時間変化の挙動も断層の北と南で異なることが明らかとなった。

水素酸素同位体比の  $\delta$  ダイアグラムを図 11 に示す。断層の北側に位置するボーリング孔から採取された深度 500m の試料は，断層の南側に位置するボーリング孔から採取された他の深度の試料と比較して軽い水素酸素同位体比を示す。 $\delta$  ダイアグラムにおいて，地下水試料の分析結果は世界天水線 (Craig, 1961) と日本の天水線 (Matsubaya et al., 1973) の間に分布することから，天水起源の地下水と考えられた。トリチウム濃度は，深度 200m~400m のボ

ーリング孔から採取した試料に比べ、深度 500m のボーリング孔から採取された試料で低い。また、SF<sub>6</sub>濃度は深度 300m から採取した試料で高く、200m～400m と 500m ではほぼ同程度であった。

本研究で得られた分析結果と、JAEA によるモニタリングデータから作成した各ボーリング孔の水素酸素同位体比と、トリチウム濃度のボックスプロットを図 12 に示す。水素酸素同位体比は地表から掘削されたボーリング孔 (MSB-2 および MSB-4) で幅広い値を示し、坑道内のボーリング孔では断層の北側で南側よりも軽い同位体比を示すことが明らかとなった。また、トリチウム濃度も断層の北側と南側では異なり、断層の北側で低い濃度を示すことが認められた。

以上から、断層の北側と南側では、水質や水素酸素同位体比、トリチウム濃度が異なり、これらの時間経過に伴う挙動も異なることが明らかとなった。深度 300m で実施された水理試験から、主立坑断層は直交方向の透水係数が低く、水理境界として機能していることや、変質状態に応じて主立坑断層周辺の透水係数が変化することなどが指摘されている(大丸ほか、2012)。本研究でも断層を境界とした水質や同位体特性の差異が認められ、主立坑断層は少なくともその直交方向に遮水性の構造として機能していることを確認できた。

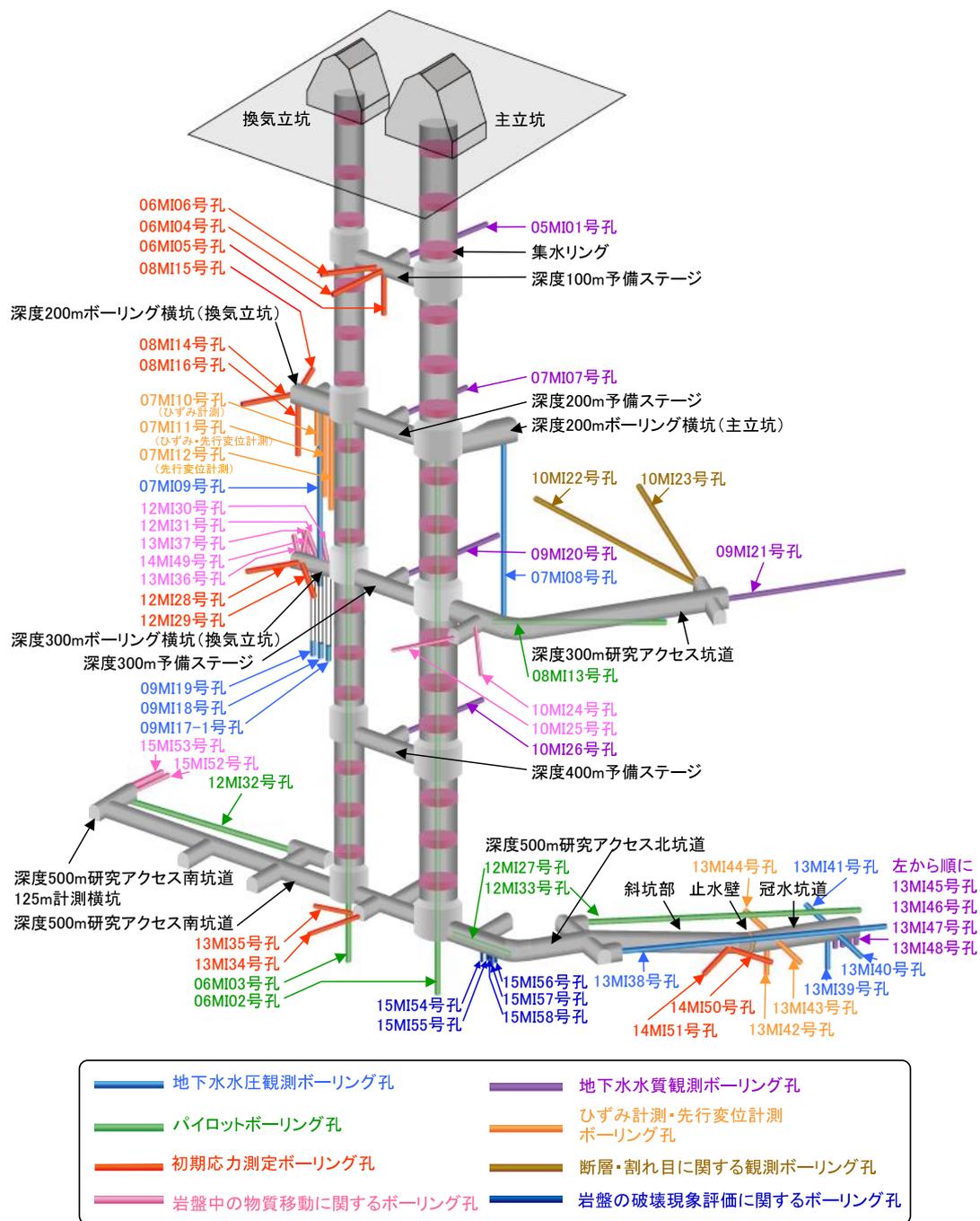


図 7 JAEA 瑞浪超深地層研究所の研究坑道とボーリング孔の配置 (濱ほか, 2016)

表 1 地下水試料を採取したボーリング孔の概要と採水区間

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

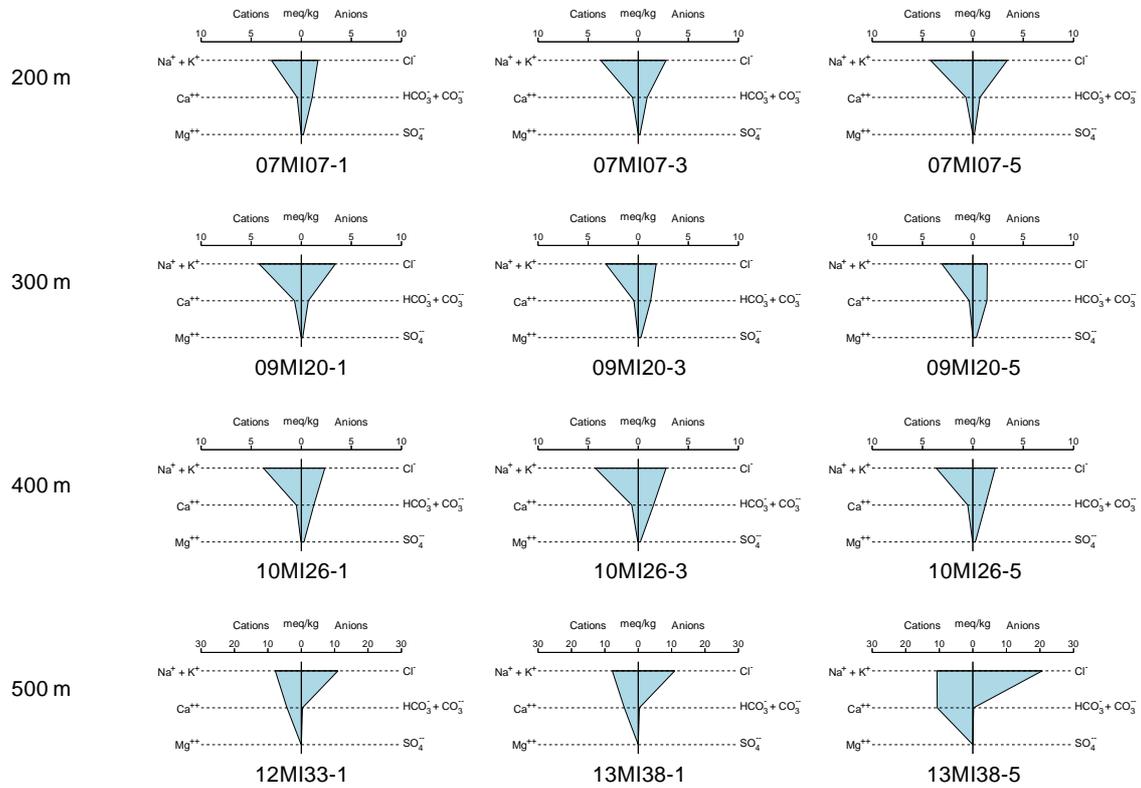


図 8 地下水の主要溶存イオンの Stiff ダイアグラム(孔名の後の数字は採水区間を示す)

表 2 主要溶存イオン濃度の主成分分析結果

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

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

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

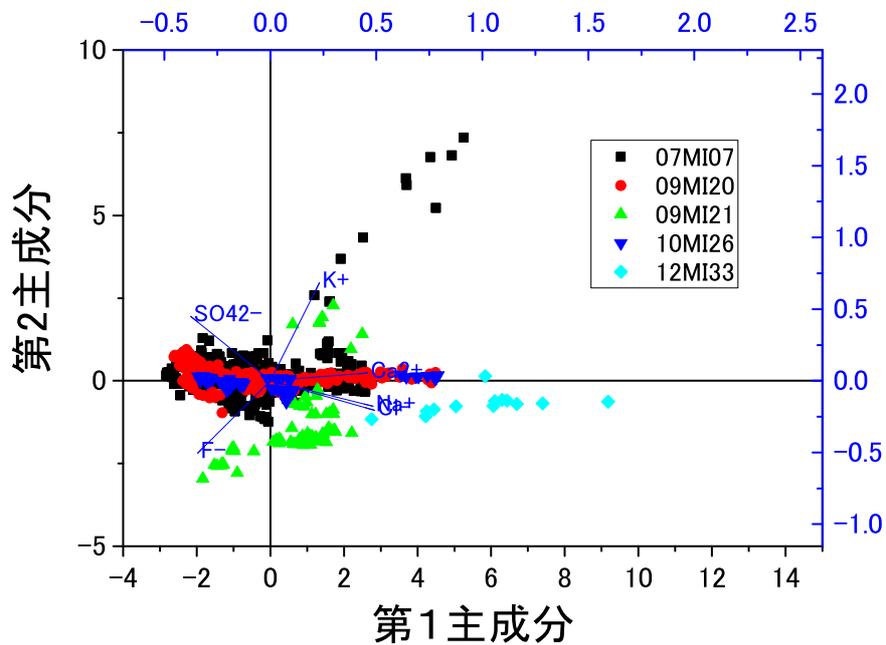


図 9 第 1 主成分スコアと第 2 主成分スコアの相関

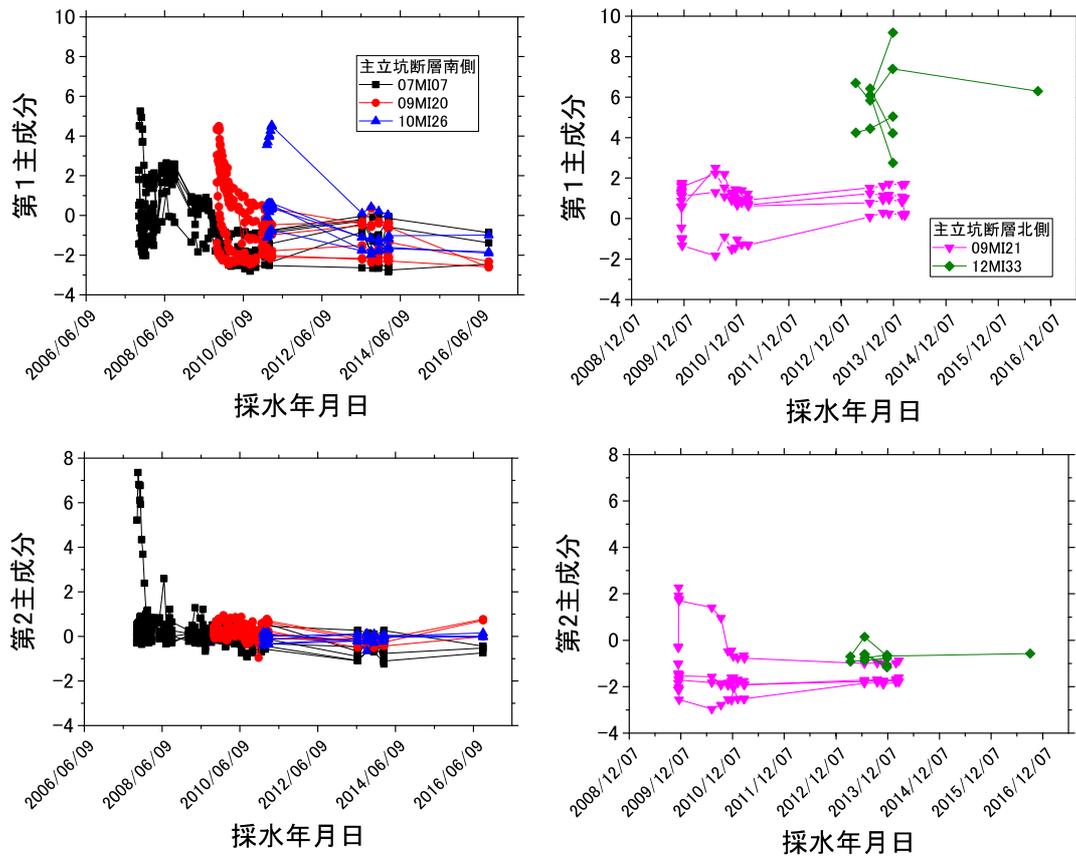


図 10 主成分スコアの時間変化

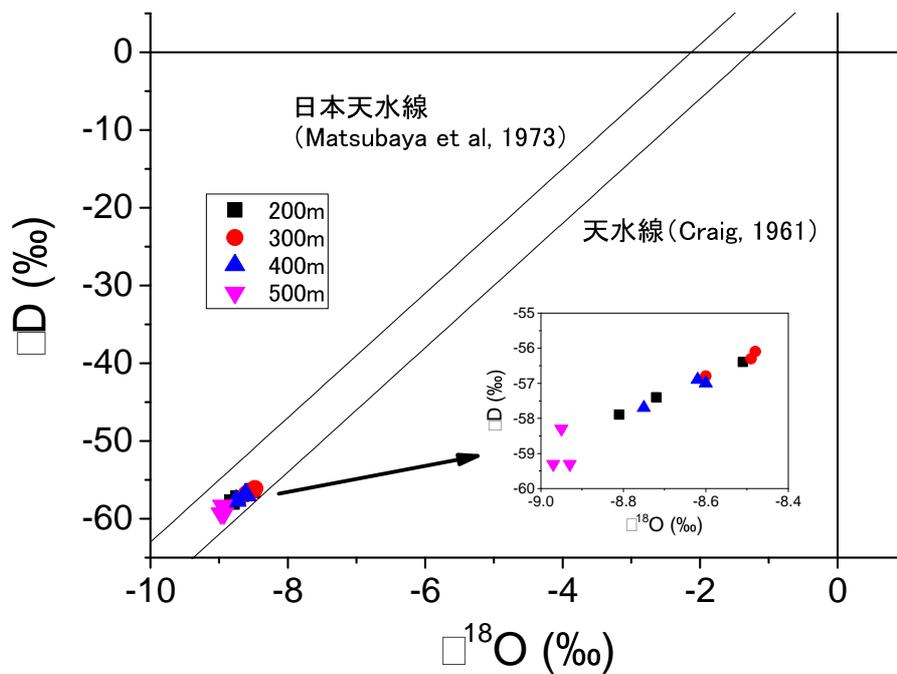


図 11 地下水試料の水素酸素同位体比の  $\delta$  ダイアグラム

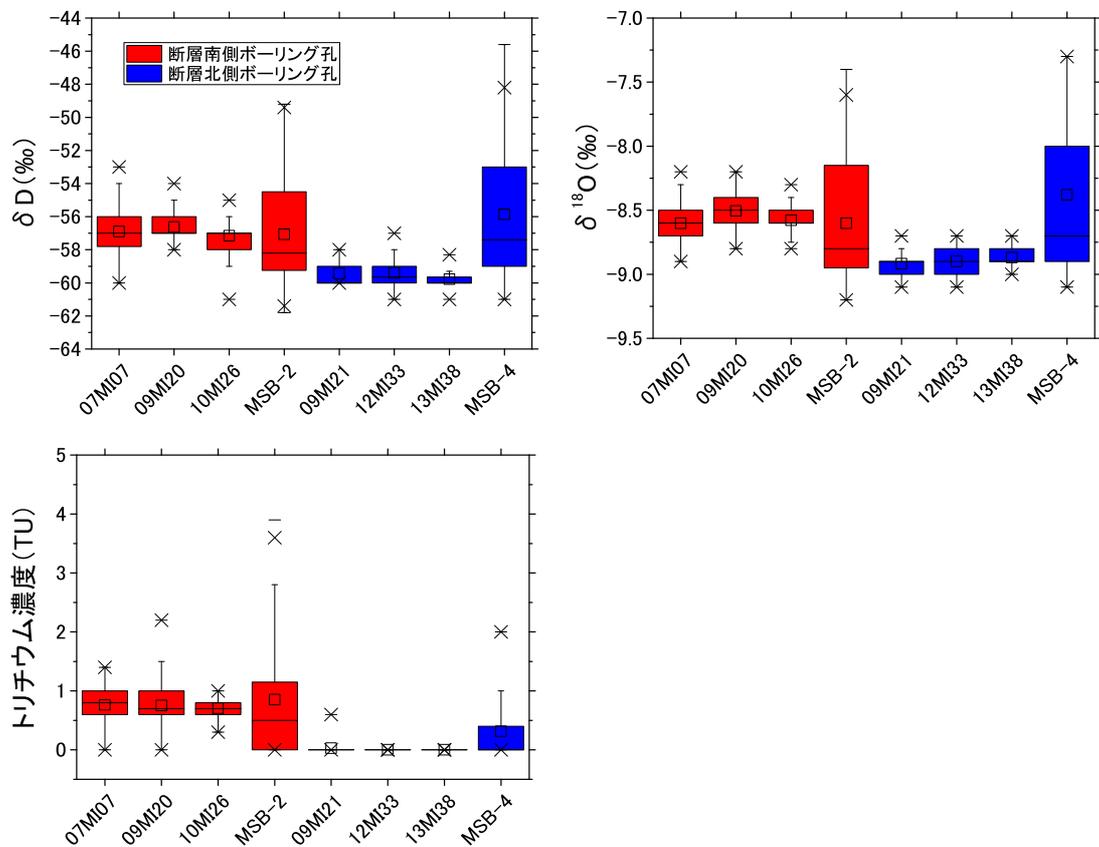


図 12 水素酸素同位体比およびトリチウム濃度のボックスプロット

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

### 3. 2. 水理地質モデルの構築および地下水流動解析化の把握

広域的な水理地質モデルと、断層周辺のモデルを作成し、地下水流動解析と物質移行解析を実施した。広域モデルを用いた解析は、断層周辺モデルのモデル化領域や境界条件を決定することを目的に実施している。また、断層周辺モデルは断層周辺の地下水流動状態と物質移行状態の詳細を把握する目的で実施している。

日吉川, 服洞川, 狭間川の集水域をモデル化領域とした広域モデルでは, 水平方向は分水界内部に相当する南北 8.7km×東西 6.6km の領域を, 深度方向は標高-1000m までを南北方向 46 グリッド×東西方向 44 グリッド×深度方向 3 グリッド(瀬戸層群, 瑞浪層群, 土岐花崗岩)に分割した。透水係数は, 小坂ほか(2012)を参考に, 瀬戸層群は  $10^{-5}$ m/s, 瑞浪層群は透水異方性を考慮し水平方向  $10^{-7}$ m/s, 鉛直方向  $10^{-9}$ m/s, 土岐花崗岩は  $10^{-7}$ m/s とした。広域モデルの地下水流動解析で算出された水頭と地下水流動方向を図 13 に示す。水頭は標高に依存し, 北部で高く南部で低い傾向が認められる。また, 地下水流動方向は北部から南部へ, 尾根から谷へ向かう流れを示す。解析で得られた水頭値は, 土岐花崗岩(第 3 層)の低標高域で過小評価され, バラツキが大きいものの, ボーリング孔において実測された地下水位と標高の関係(JNC, 2005)と一致する(図 14)。

断層モデルのモデル化領域は, 広域モデルの解析結果における水頭の等値線などに基づいて設定し, 東西 2.0km×南北 2.3km の領域を, 断層の走向方向に 100 グリッド, 断層の走向に直交する方向に 70 グリッドに分割し, 断層近傍では断層に直交する方向のグリッド間隔を小さく設定した。また, 深度方向には 31 グリッドに分割し, 1 層目を瀬戸層群, 2~11 層目を瑞浪層群, 12~21 層目を上部割れ目帯, 22~31 層目を下部の割れ目が少ない領域とした。透水係数は瀬戸層群, 瑞浪層群については広域モデルと同様, 土岐花崗岩は上部割れ目帯を  $10^{-7}$ m/s, 下部を  $10^{-8}$ m/s とした。さらに, 断層周辺は厚さ 10m の断層コアの両側に, 厚さ 22~23m のダメージゾーンが分布するように設定した。透水係数は断層コアで  $10^{-11}$ m/s, ダメージゾーンで  $10^{-5}$ m/s と設定した。断層モデルを用いた地下水流動結果を図 16~20 に示す。表層を除き, 主立坑断層の北と南で水頭差が認められ, 主立坑断層の北側で高く, 南側で低い。また, 排水箇所に向かう流れが認められる。

さらに, 保存性のトレーサーである塩化物イオンとトリチウムの物質移行解析を実施した。塩化物イオン濃度の初期濃度分布として, Iwatsuki et al.(2005)で推定されているように, 浅層で濃度が低く, 深部で濃度が上昇する成層分布を仮定し, モデル上面から浸透する降水の塩化物イオン濃度は 0 とした。トリチウムは 1950 年以前の降水のトリチウム濃度を 3TU と仮定し, 1000 年間降水が浸透した場合を考慮することでトリチウムの初期濃度分布を求めた。1950 年以降の大気中核実験による降水のトリチウム濃度の上昇を考慮し, 地下水のトリチウム濃度の空間分布を算出した。この他, 研究坑道からの排水の影響を考慮するため, 主立坑の深度 300m 地点と換気立坑の深度 180m 地点で全ての湧水が生じると仮定して計算を行った。物質移行解析で得られた塩化物イオン濃度の空間分布を図 21 に, トリチウム濃度の空間分布を図 22 に示す。塩化物イオン濃度の空間分布では, 断層の南側で浅部から深部に向けて濃度が低い領域が, 深部から浅部に向けて濃度が高い領域が伸びていることがわかる。断層の南側ではわずかに濃度が低い領域が深部に向けて広がっているのがわかるが, 断層の南側

ほど顕著ではない。トリチウム濃度についても、断層の南側では深部までトリチウム濃度の高い領域が伸びているのに対して、北側では南側ほど深部までトリチウム濃度の高い領域が広がっていないことがわかる。これらの結果は、地下水試料の分析で認められた傾向と整合的であった。

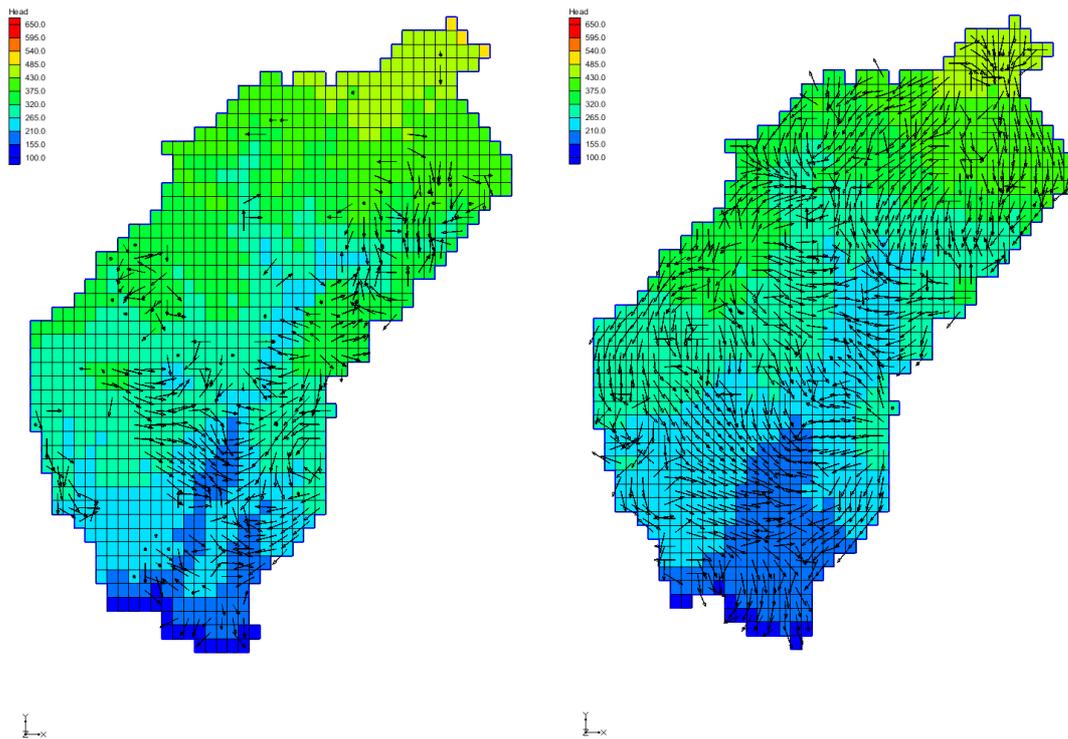


図 13 瀬戸層群(左)および土岐花崗岩(右)における水頭と地下水流動方向

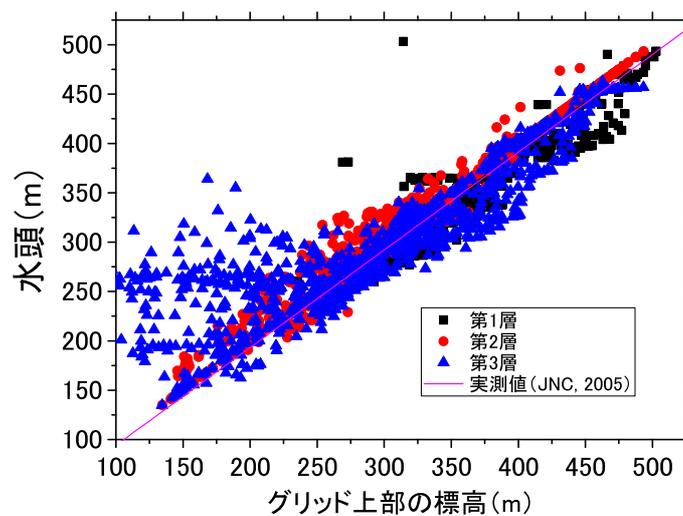


図 14 グリッド上部の標高と水頭の比較

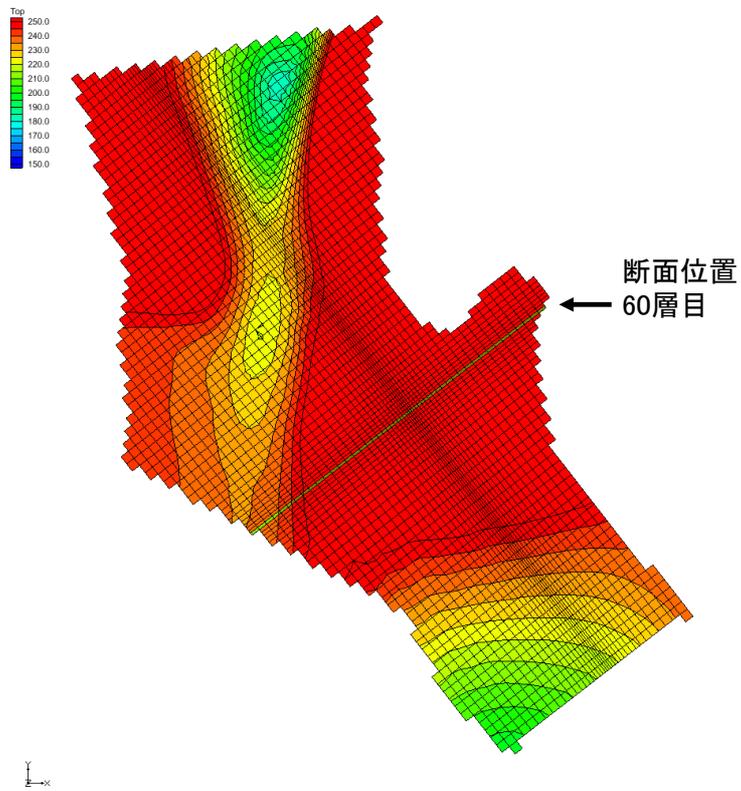


図 15 三次元水理地質モデルにおける図 17 の断面位置

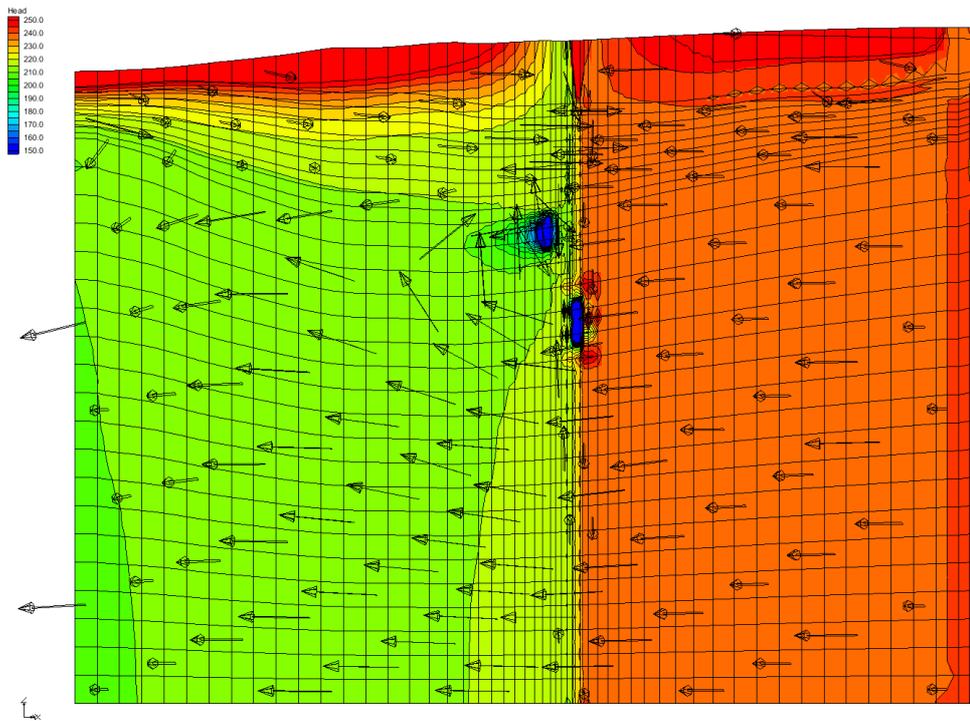


図 16 図 15 で示した断面における水頭分布と地下水流動方向

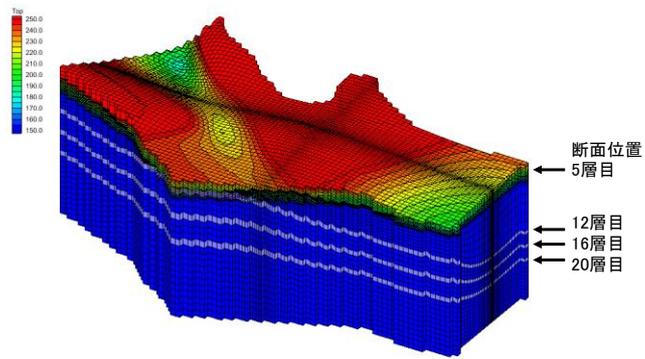


図 17 三次元水理地質モデルにおける図 19 の断面位置

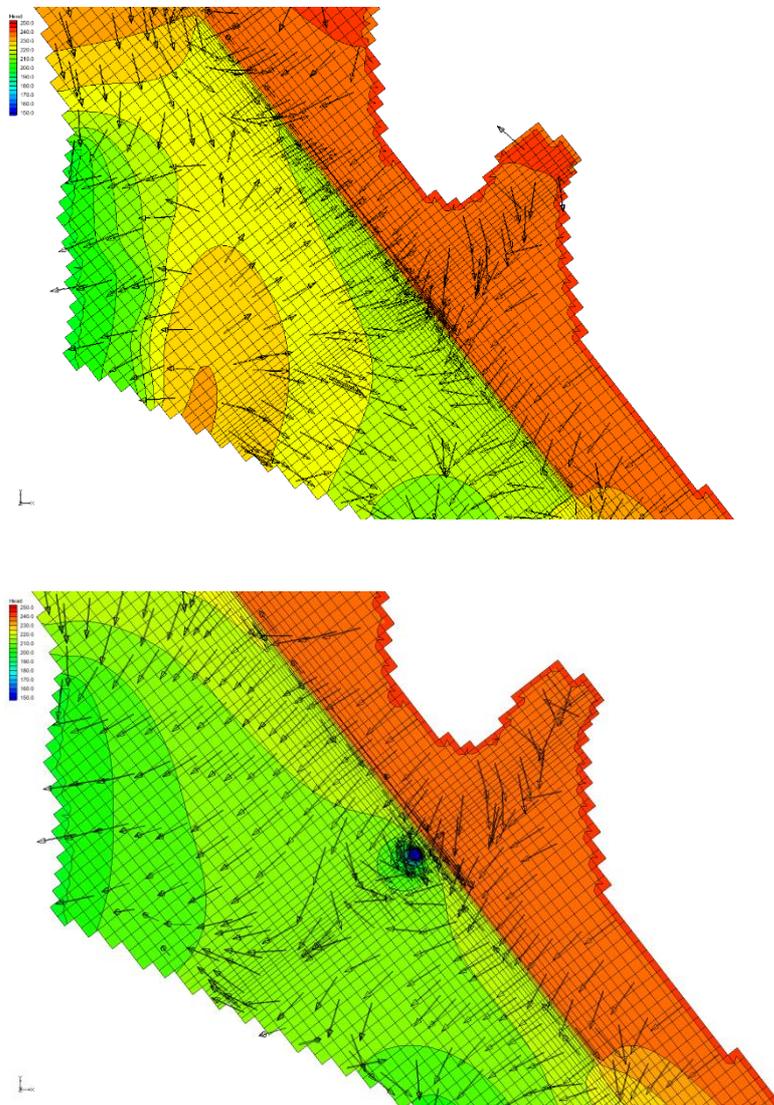


図 18 図 17 で示した断面における水頭分布と地下水流動方向(上:5 層目, 下:12 層目)

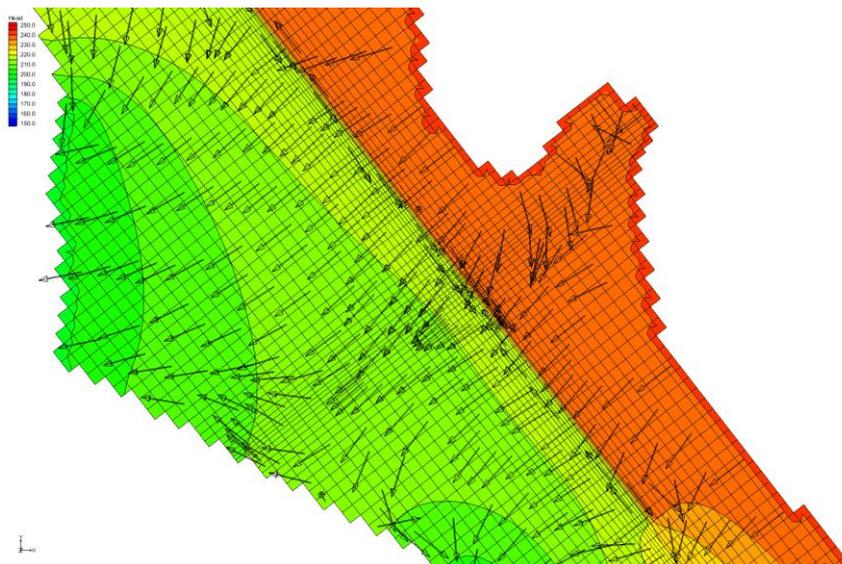
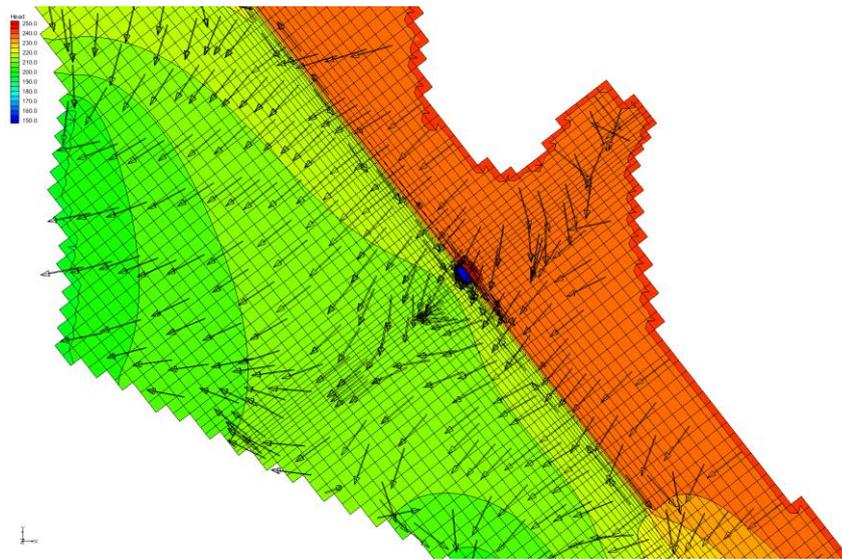


図 18(続き) 図 17 で示した水頭分布と地下水流動方向(上:16 層目, 下:20 層目)

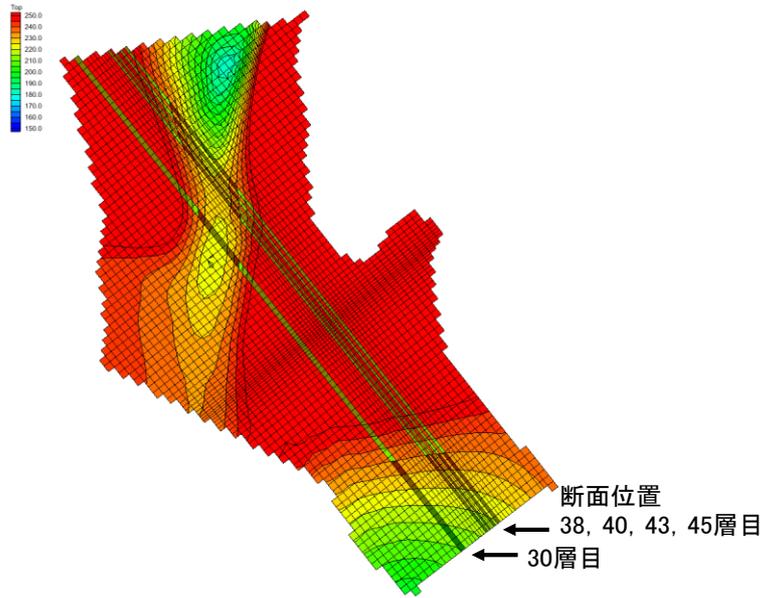


図 19 図 20 の断面位置

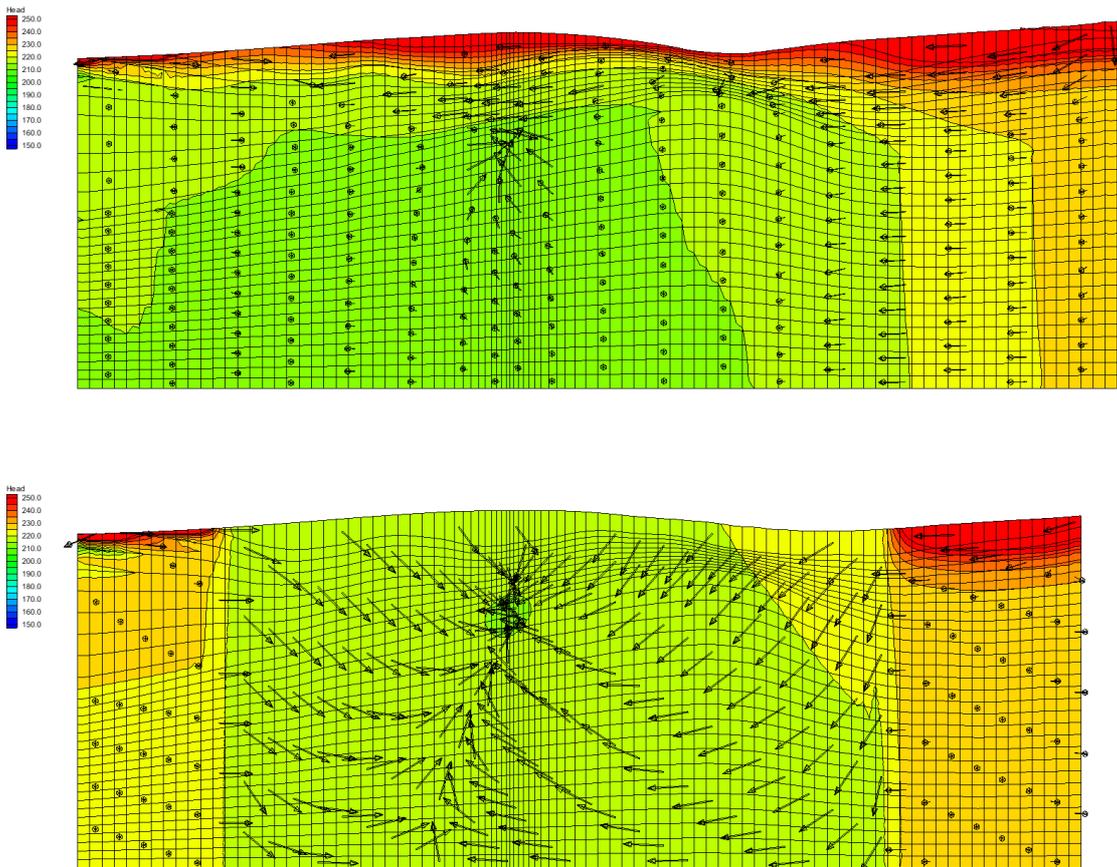


図 20 図 19 に示した断面における水頭分布と地下水流動方向(上:30 層目, 下:38 層目)

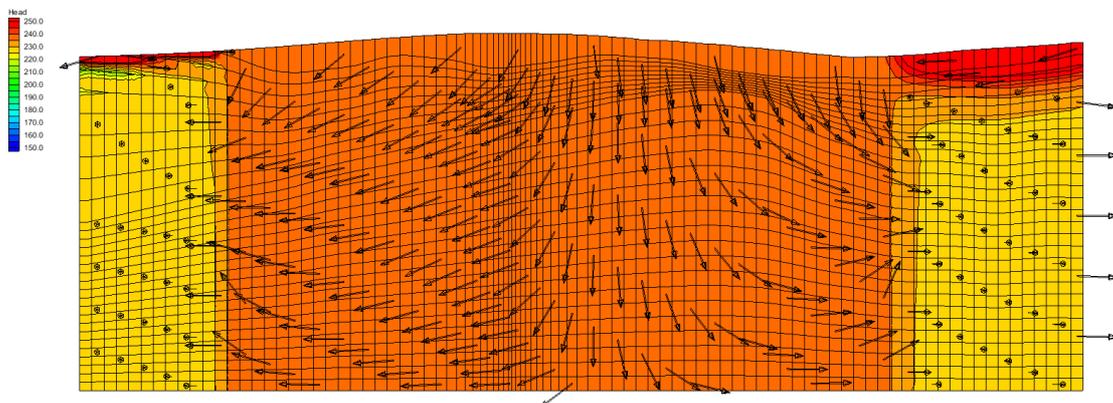
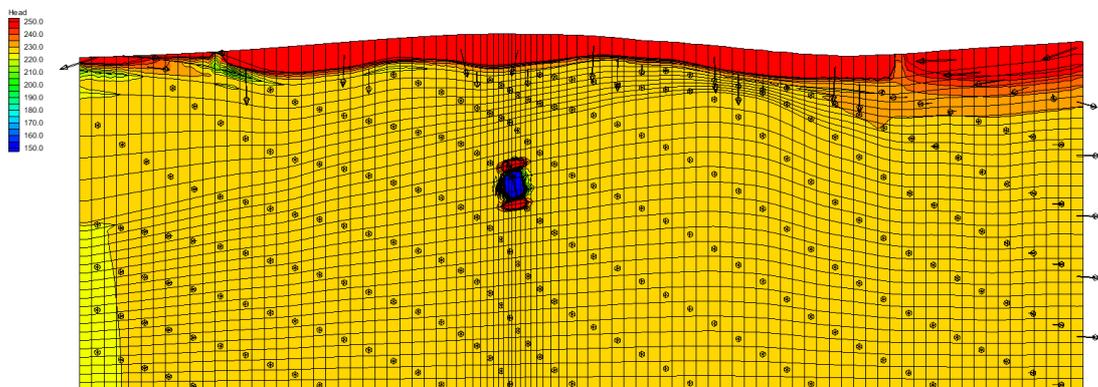
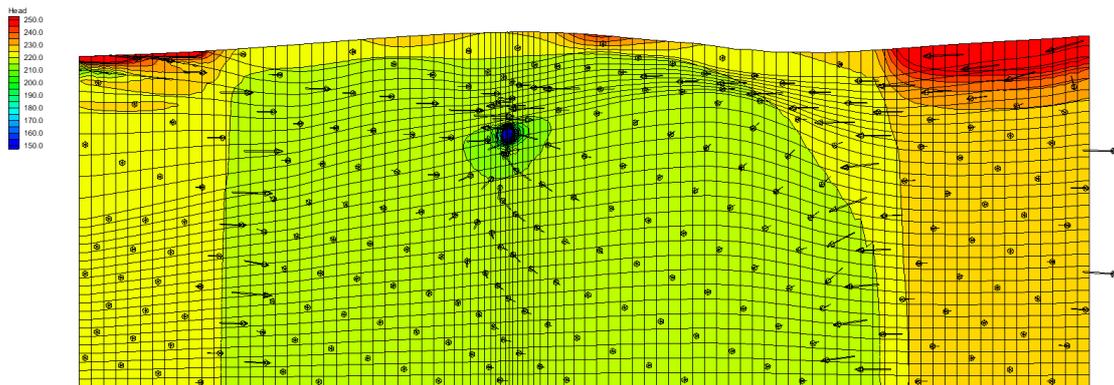


図 20(続き) 図 19 に示した断面における水頭分布と地下水流動方向(上:40 層目, 中:43 層目, 下:45 層目)

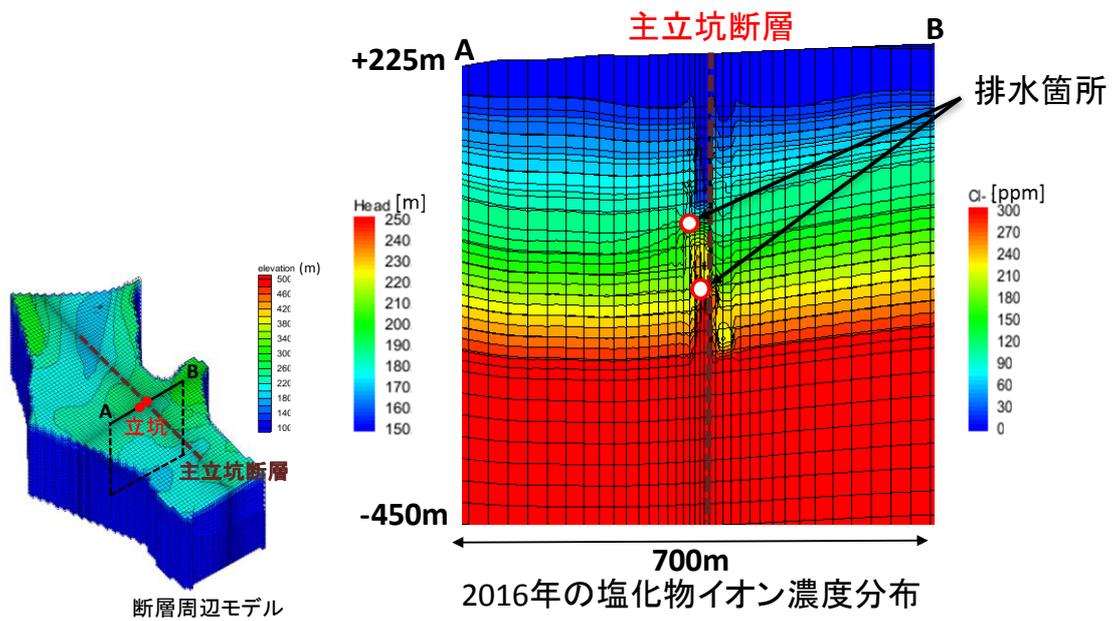


図 21 物質移行解析で得られた塩化物イオン濃度の空間分布

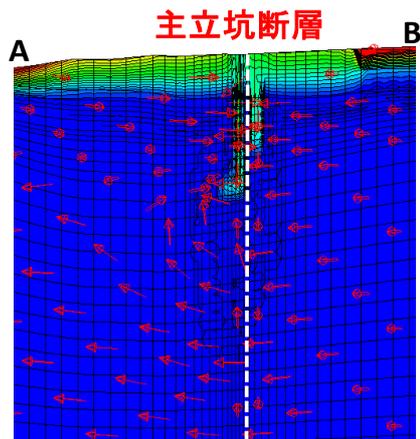
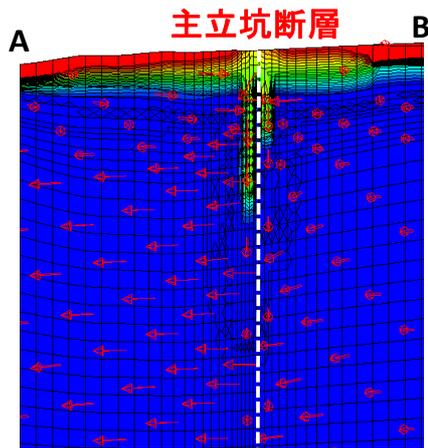
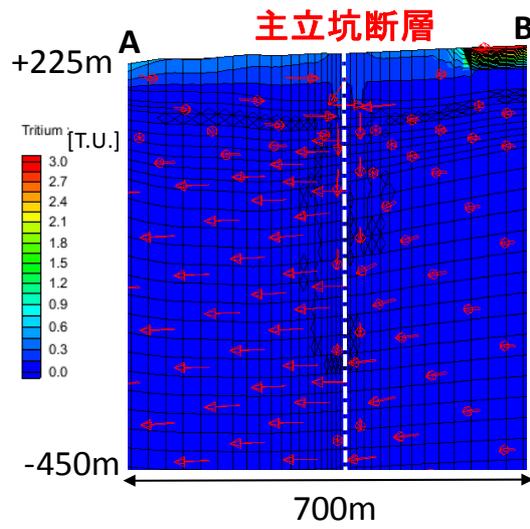


図 22 物質移行解析で得られたトリチウム濃度の空間分布  
 (上:1949 年, 中:2006 年, 下:2016 年の各時点のトリチウム濃度分布)

## 4. 平成 29 年度研究実施内容

### 4.1 平成 29 年度の計画、実施方法

本年度は、平成 27 年度にプローブパーミアメータを用いて測定した浸透率と比較し、測定値の信頼性を評価するとともに、断層からの距離に応じて浸透率が変化する原因を明らかにする目的で、浸透率を測定した深度 300m 坑道と深度 500m 坑道の坑道壁面を対象として、シュミットロックハンマーによる反発度測定を実施した。また、昨年度に引き続き研究坑道内のボーリング孔から地下水試料を採取し、地下水の流動状態を推定するのに役立つ複数の同位体比や溶存成分濃度の分析を行った。特に、地下水の SF<sub>6</sub> 分析結果と比較することを目的に、研究地域で大気試料を採取し、SF<sub>6</sub> の濃度を測定した。さらに、JAEA により作成されている地質モデルにおける地質要素の境界座標データに基づいて、広域的な水理地質モデルを修正し、地下水流動解析を行った。解析結果はボーリング孔における水頭の実測値と比較することでキャリブレーションし、得られた水頭値を境界条件として断層周辺モデルによる地下水流動解析を実施した。算出された地下水流動状態を用いて物質移行解析と水-岩石反応を考慮した反応輸送解析を実施した。物質移行解析では、断層周辺での浸透率測定結果を基質部の空隙率に換算し、Double porosity model として適用することで基質部への拡散も考慮した。

#### 4.1.1 シュミットロックハンマーを用いた反発度測定

反発度測定に用いたシュミットロックハンマーの構造図と外観写真を図 23 に示す。本手法は、シュミットロックハンマー先端のプランジヤーを岩盤壁面に押し付けることで、装置に内蔵されたハンマーで岩盤表面を打撃し、その反発の度合いから岩盤の力学的な性質を簡便に求めるものである。反発度は静弾性係数や一軸圧縮強度などへの換算が可能である。本研究では、2015 年度に研究坑道内でプローブパーミアメータを用いた浸透率の多点測定が行われており、これより断層周辺における岩石の浸透率の空間分布が明らかとなっている。浸透率と比較し、測定値の信頼性を評価すること、断層からの距離に応じて浸透率が変化する原因を明らかにすることを目的に、原位置で簡便に上述のような機械的特性の多点測定が可能なシュミットロックハンマー法を採用した。

測定箇所は瑞浪超深地層研究所の水平坑道で、深度 300m 主立坑側研究アクセス坑道および本坑道から分岐する 11m 計測坑道、深度 500m の研究アクセス北坑道の坑道壁面である。測定箇所を図 24 に示す。

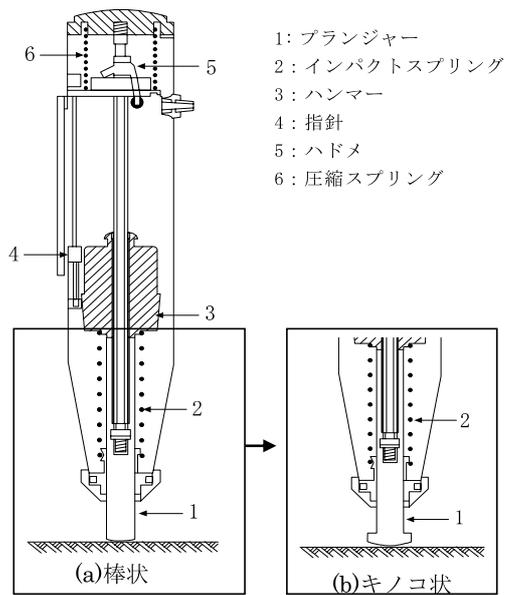


図 23 左)シュミットロックハンマーの構造図(地盤工学会, 2013), 右)測定に用いたシュミットロックハンマーの外観



図 24 左)研究坑道概要図(濱ほか, 2014)とシュミットロックハンマーによる反発度測定箇所, 右)測定時の状況

測定時、測定箇所の座標を記録するため、坑道壁面に沿って巻尺を設置し、基準点からの距離を測定した。また、測定箇所の坑道床面からの高さを標尺を用いて測定した。ほぼ同じ水平位置で、異なる高さで3箇所の反発度測定を行い、1箇所あたり約10回の反発度測定を行った。なお、前の打撃の影響を避けるため、10回の測定は少しずつ測定点をずらしながら行った。また、測定時ハンマーは測定面に対して垂直にあてる必要がある。反発度はハンマーの傾きに影響を受けるため、測定面はできるだけ鉛直な面を選択し、これにハンマーを垂直にあてることでハンマーが水平となるようにした。測定表面の凹凸、乾燥状態も反発度に影響を及ぼすが、測定面の研磨は行わず、乾燥状態に基づく測定値の補正も行っていない。反発度はシュミットロックハンマーの記録紙に記録され、これを読み取った。

#### 4.1.2 地下水試料の採取と環境トレーサー分析による地下水流動状態の推定

超深地層研究所の研究坑道内で掘削されたボーリング孔のうち、深度200m～500mに位置する07MI07号孔、09MI20号孔、09MI21号孔、10MI26号孔、12MI33号孔、13MI38号孔の6孔で地下水試料を採取した。09MI21号孔以外は昨年度地下水試料を採取した孔であり、昨年度と同じ採水区間から地下水試料を採取した。09MI21号孔は深度300mの主立坑断層の北側に位置するボーリング孔である。2016年度に採水したボーリング孔は、07MI07号孔(深度200m)、09MI20号孔(深度300m)、10MI26号孔(深度400m)が主立坑断層の南側にあり、12MI33号孔、13MI38号孔(深度500m)が断層の北側に位置する。同一深度で断層の北側と南側を比較し、地下水の地球化学的特性の違いを明確にするため、本年度は09MI21号孔を採水を行うボーリング孔として追加した。坑道内における各ボーリング孔の位置を図25に、各ボーリング孔の構造と採水区間の概要を表4に示す。

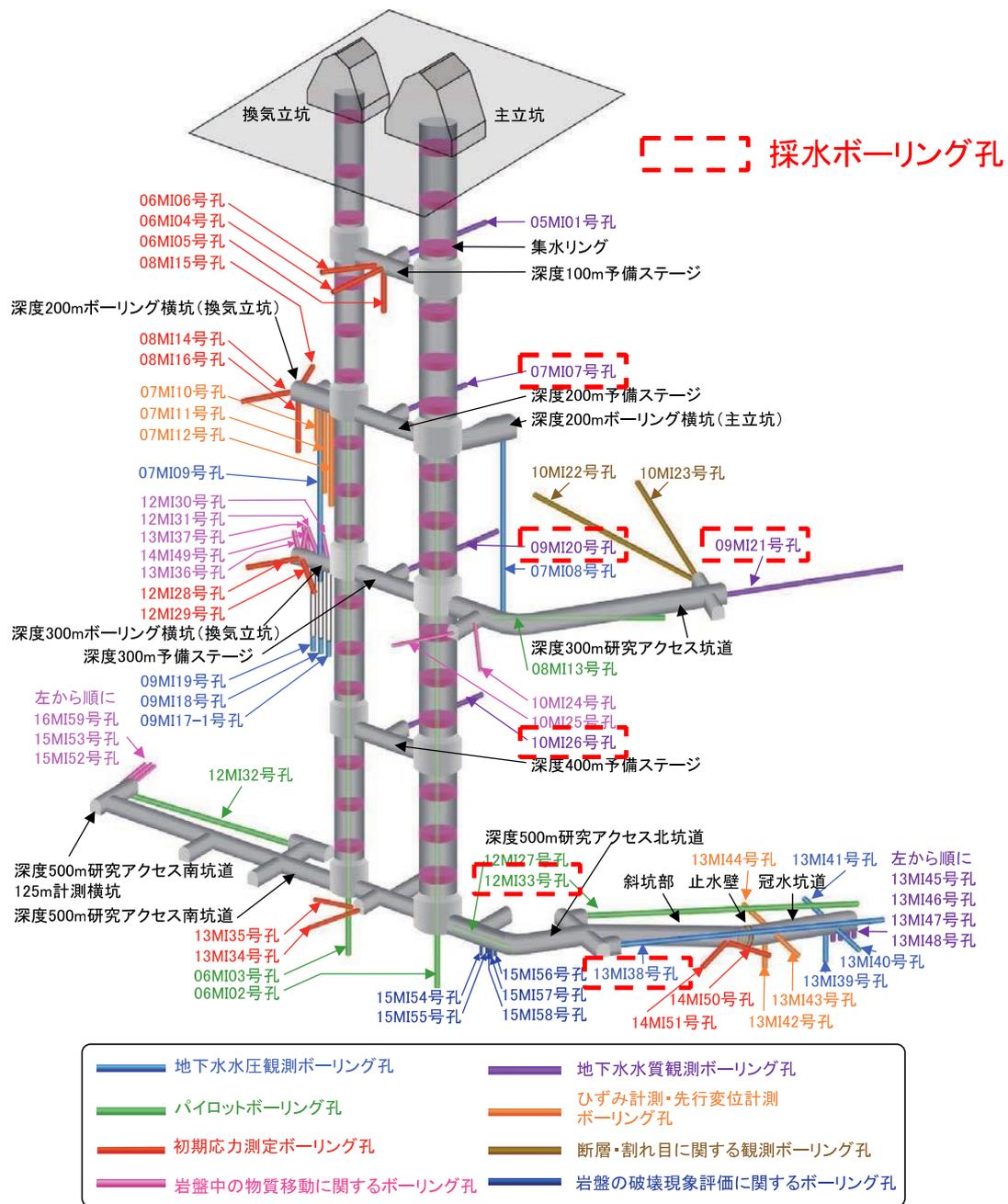


図 25 瑞浪超深地層研究所研究坑道の構造と地下水試料を採取したボーリング孔の位置図  
(石橋ほか, 2017 を改変)

表 4 地下水試料を採取したボーリング孔の構造

深度	ボーリング孔	掘削方位等	採水区間	出典
200m	07MI07	方位:N62.23° W 傾斜:-4.61° 掘削長:55.30 mabh	区間1:48.11~55.30 mabh 区間3:31.27~37.79 mabh 区間5:16.93~25.95 mabh	上野ほか, 2012 大森ほか, 2014
300m	09MI20	方位:N56.71° W 傾斜:-2.98° 掘削長:102.00 mabh	区間1:96.08~101.90 mabh 区間3:58.74~83.76 mabh 区間5:19.40~33.92 mabh	上野ほか, 2012 大森ほか, 2014
	09MI21	方位:N2.26° W 傾斜:-3° 掘削長:103.00 mabh	区間2:67.08~77.10 mabh 区間3:78.05~88.07 mabh	上野ほか, 2012 大森ほか, 2014
400m	10MI26	方位:N50° W 傾斜:+2° 掘削長:70.60 mabh	区間1:52.79~70.60 mabh 区間3:37.89~49.64 mabh 区間5:9.99~29.24 mabh	上野ほか, 2012 大森ほか, 2014
500m	12MI33	方位:N10.23° W 傾斜:-3.0° 掘削長:107.00 mabh	区間1:105.43~107.00 mabh	黒岩ほか, 2015 大森ほか, 2014
	13MI38	方位:N10.23° W 傾斜:-3.0° 掘削長:102.10 mabh	区間1:90.41~102.10 mabh 区間5:37.61~49.36 mabh	黒岩ほか, 2015 長谷川ほか, 2015

#### 地下水試料の採取方法および分析方法

地下水試料の採取と分析は昨年度と同様に実施した。昨年度報告書(原子力環境整備促進・資金管理センター, 2017)に基づき, その概要を以下にまとめる。

井戸口元に接続されている採水装置のポートに採水用チューブを接続してステンレスビーカーに導き, ポータブルメータで pH, 酸化還元電位 (ORP), 電気伝導度 (EC), 溶存酸素濃度 (DO), 水温を測定しながら孔内の地下水を排水した。各パラメータが安定したことを確認した上で値を記録し, 室内分析に供する地下水試料を採取した。採取した地下水試料は, 主要溶存イオン, アルカリ度, 微量元素, 水素酸素同位体, 溶存ガス, トリチウム, SF<sub>6</sub>の分析に用いた。各試料の採取容器, 共洗いの有無, ろ過の有無などを表 5 にまとめる。

表 5 分析用地下水試料の採取方法の概要

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

採取した地下水試料の分析は以下の通り実施した。

### 主要溶存イオン

主要溶存イオン濃度はイオンクロマトグラフにより分析した。濃度既知の標準溶液を調製して未知試料と同じ条件で分析を行い、クロマトグラムで認められる各イオンのピーク面積と標準溶液の濃度の関係から検量線を作成した。未知試料の分析も行い、クロマトグラムにおける各イオンのピーク面積を求め、検量線を用いて濃度に変換した。未知試料のクロマトグラムにおいて、ピーク面積が検量線の範囲から外れる場合は、希釈して再分析した。分析したイオンは  $\text{Na}^+$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{F}^-$ ,  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{Br}^-$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{NO}_2^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{PO}_4^{3-}$  である。

### アルカリ度

アルカリ度(酸消費量)は硫酸水溶液を用いた滴定により決定した。50mL の地下水試料をビーカーに分取し、pH を測定しながらデジタルビュレットを用いて 0.01M の硫酸水溶液を滴下した。試料水の pH を 4.8 とするのに必要な硫酸水溶液の体積を求め、pH4.8 アルカリ度(酸消費量)を算出した。アルカリ度は全て試料に含まれる重炭酸イオンに起因するものと仮定し、重炭酸イオン濃度を算出した。

### 微量元素

微量元素濃度は誘導結合プラズマ質量分析装置(ICP-MS)を用いて測定した。濃度既知の標準溶液を調製して分析を行い、得られた各元素のカウント数と標準溶液に含まれる濃度の関係から検量線を作成した。未知試料は適宜希釈して標準溶液と同じ条件で分析し、各元素のカウント数から検量線を用いて元素濃度に変換した。分析対象とした元素は Li, B, Na, Mg, Al, Si, P, K, Ca, Sc, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, Ga, Ge, As, Se, Rb, Sr, Y, Zr, Mo, Ag, Cd, Sn, Sb, Cs, Ba, La, Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu, W, Pb, U である。

### 水素酸素同位体比

水の水素酸素同位体比はキャビティリングダウン分光法による水同位体アナライザーを用いて分析した。採取した地下水試料を 2mL のバイアルに分取し、分析装置のオートサンプラーにセットした。水素酸素同位体比が既知の標準水の分析を行い、表示値と標準水の水素酸素同位体比の関係から補正直線を作成した。同様に未知試料の分析も行い、補正直線を用いて未知試料の表示値から水素酸素同位体比(V-SMOW からの偏差, 単位‰)へと変換した。

## 溶存ガス

水の溶存ガス濃度は熱伝導度検出器と水素炎イオン化検出器を備えたガスクロマトグラフ (GC-TCD/FID) を用いてヘッドスペース法で分析した。ガラスバイアルのセプタムに注射針とキャリアガスであるヘリウムガスの導入ラインを挿入し、キャリアガスを流すことでヘッドスペースを確保した。ガラスバイアルを振盪し、水相に含まれる溶存ガスをヘッドスペースに脱ガスさせた。GC-TCD/FID のガス導入ラインをバイアルに挿入し、ヘッドスペースを作る際にバイアルから排出された水をシリンジで注入することでヘッドスペースガスを GC-TCD/FID のループに分取した。これを GC に導入し、クロマトグラムにおける各ガス成分のピーク面積を求めた。濃度既知の標準ガスも同様にループに分取して分析し、クロマトグラムにおけるピーク面積と濃度の関係から検量線を作成した。検量線を用いて未知試料のピーク面積を濃度に換算した。ヘッドスペースガスに含まれるガスはその一部が水相に溶存している。そのため、ヘンリーの法則を考慮することで、ガス相の濃度から水相の濃度を求め、ガス、水それぞれの体積を踏まえてガス、水に含まれる各成分のモル数を求めた。最終的に、全てのガスが採取された水試料に含まれていたとして濃度を算出した。分析対象とした成分は  $N_2$ 、 $O_2$ 、 $CO_2$ 、Ar、 $CH_4$  などである。

## トリチウム

トリチウム濃度の分析は文部科学省の方法(2002)に従い、液体シンチレーション法で行った。ロータリーエバポレータによる蒸留で地下水試料から塩などの不純物を除いた後、トリチウムを固体高分子電解質膜を備えた電解濃縮装置により濃縮した。電気伝導度が高い試料については再度ロータリーエバポレータによる蒸留を行い、濃縮水約 40g と液体シンチレータ約 80g を混合した。低バックグラウンド型の液体シンチレーションカウンターを用いて、トリチウムの崩壊で生じる  $\beta$  線を、各試料 50 分間の測定 10 回を 2 セット、合計 1000 分間計数した。バックグラウンドの確認のために、未知試料と同時に無トリチウム水(京都盆地内の深度 1000m 程度から採取された温泉水)の分析も行い、未知試料のカウント数から無トリチウム水のカウント数を差し引いた上で測定時間で除し、計数率(単位 cpm)を算出した。トリチウム濃度既知の水試料の測定を行うことで外部標準チャンネル比(ESCR)と計数効率の関係であるクエンチング補正曲線を求めておき、未知試料測定時に記録された ESCR からクエンチング補正曲線を用いて各試料測定時の計数効率を求め、測定結果を補正した。さらに、トリチウム濃度既知の標準水の電解濃縮と同条件での液シン測定により求めた電解濃縮時の濃縮率で、未知試料の液シン測定結果を除することで電解濃縮前のトリチウム濃度を算出した。最終的に、試料採取から分析までに生じた崩壊による濃度低下を補正し、試料採取時点での地下水試料のトリチウム濃度を得た。

## 六フッ化硫黄

地下水試料の六フッ化硫黄(SF<sub>6</sub>)濃度は、平成 26 年度に作製したパーミアンドトラップ GC-ECD 法による分析システムで求めた。分析の流れは、濃縮部のベースライン確認、標準ガスの分析による検量線の作成、抽出部も含めた分析システム全体のベースライン確認、水試料の分析となる。まず濃縮部のベースライン確認のため、エタノールにドライアイスを加えた冷媒(温度約-70℃)でトラップ A を冷却し、キャリアガスである純窒素ガスを通じた。トラップを閉鎖系とした上で 50℃のホットバスで加熱し、得られたガスを GC-ECD に導入してクロマトグラムに SF<sub>6</sub>ピークが生じないことを確認した。次に、容積既知のループに濃度既知の SF<sub>6</sub>標準ガスを分取し、ベースライン確認の際と同様に冷却したトラップ A で捕集し、GC-ECD で検出した。クロマトグラムにおける SF<sub>6</sub>のピーク面積と、ループ内の標準ガスに含まれる SF<sub>6</sub>のモル数の関係から検量線を作成した。

抽出部も含む分析システム全体が SF<sub>6</sub>に関して清浄であることを確認するため、脱気瓶内のガスを真空ポンプにより真空引きした上でキャリアガスを導入し、冷却したトラップ B で捕集した。トラップを 50℃で加熱することで脱着したガスを再度冷却したトラップ A で捕集した。トラップ A を加熱し、脱着したガスを GC-ECD に導入して SF<sub>6</sub>のピークが生じないことを確認した。水試料の分析では、脱気瓶内を真空引きし、陰圧とすることで水試料を脱気瓶内に導入した。脱気瓶に窒素ガスを通じ、バブリングすることで水試料に含まれる SF<sub>6</sub>をキャリアガスに移行させた。抽出部を含むベースライン確認と同様に、トラップ B による捕集・加熱とトラップ A による捕集・加熱を行い、得られたガス GC-ECD に導入することで含まれる SF<sub>6</sub>を検出した。クロマトグラムにおける SF<sub>6</sub>ピークの面積から、検量線を用いて脱気瓶に導入された水試料に含まれる SF<sub>6</sub>のモル数を算出した。さらに、バブリング終了後、脱気瓶から水試料を排出し、質量を測定した。算出された SF<sub>6</sub>のモル数を、脱気瓶に導入された水試料の質量で除することで、水試料の SF<sub>6</sub>濃度(単位 fmol/kg)を得た。

分析時、試料容器内に気泡が観察される場合には、気泡の直径を測定し、あらかじめ求めておいた気泡の直径と体積の関係から気泡の体積へと換算した。水試料の SF<sub>6</sub>濃度分析結果とヘンリー定数(Bullister et al., 2002)から気泡ガスの SF<sub>6</sub>濃度を算出し、これと気泡の体積から気泡に含まれる SF<sub>6</sub>のモル数を算出した。瓶内の水量と水の SF<sub>6</sub>濃度から水に含まれる SF<sub>6</sub>のモル数を算出し、これに気泡に含まれる SF<sub>6</sub>のモル数を足し合わせた上で水の質量で除することにより、気泡が遊離する前の地下水試料の SF<sub>6</sub>濃度を算出した。

得られた水試料の SF<sub>6</sub>濃度は、SF<sub>6</sub>のヘンリー定数(Bullister et al., 2002)を用いて涵養時平衡状態にあった大気中の SF<sub>6</sub>分圧に換算した。さらに、涵養標高から List(1949)に従い大気圧を求め、涵養温度での水蒸気圧(Weiss and Price, 1980)を差し引くことで得られた乾燥大

気の圧力で除することで、涵養時に平衡状態にあった乾燥大気中の SF<sub>6</sub> 存在比(単位 pptv)を算出した。

#### 4.1.3 大気中の SF<sub>6</sub> 濃度分析

地下水試料の SF<sub>6</sub> 濃度と比較する目的で、研究対象地域で大気試料を採取し、SF<sub>6</sub> の濃度を分析した。SF<sub>6</sub> 濃度分析用大気試料の採取は、浅井ほか(2017)の方法を参考に行った。試料採取に用いた容器を図 26 に示す。まず、本容器を真空ポンプで真空引きした上で試料採取地点に持参し、2 つのバルブを開いた。片側のチューブにガラスシリンジを接続し、5 回程度シリンジのピストンを抜き差しすることで容器内を原位置大気で置換した。シリンジが接続されていない側のチューブのバルブを閉じ、シリンジを押し込んで容器内を加圧した状態でもう一つのバルブを閉じた。分析では、容器を SF<sub>6</sub> 分析装置の大気試料導入用ポートに接続し、バルブを開いて容積 16.2 mL のループに分取した。この時、ループへの導入にはポンプ等は使用せず、容器の内圧によってガスをループに流し、30 秒間待つことで分取した。分取後は標準ガスなどと同様にエタノールドライアイスによって冷却したトラップ A で試料中の SF<sub>6</sub> を捕集し、GC-ECD で検出することにより定量した。最終的に、ループ内のガスを理想気体と仮定してモル数を求め、SF<sub>6</sub> のモル数との比を求めることで大気中の SF<sub>6</sub> 濃度を算出した。



図 26 試料採取時に接続した容器とガラスシリンジ

#### 4.1.4 水理地質モデルの構築および地下水流動解析，物質移行解析

昨年度に引き続き，断層周辺における地下水流動状態と物質移行状態をモデル化する手法について検討した。本研究における地下水流動解析，物質移行解析，反応輸送解析の流れを図 27 に示す。本研究ではまず，断層周辺のモデル(断層モデルと称する)を用いた解析における境界条件を決定するため，広域モデルを作成して地下水流動解析を行った。なお，本研究の地下水流動解析にはアメリカ地質調査所による三次元有限差分法地下水流動モデルである MODFLOW を使用した。モデル化領域はデジタル標高モデルである Aster GDEM データ(NASA and METI, 2011)と GIS ソフトである ArcGIS を用いた集水域解析で抽出された分水界(図 28)から設定した。また，地層境界は JAEA により作成された地質モデル(尾上ほか, 2015)の，地質要素境界の座標データに基づいて設定した。解析領域は南北 8.7 km×東西 7.0 km×地表～標高-1000m の範囲であり，これを南北 50×東西 50×深度方向 50 グリッドに分割した。広域モデルにおける境界条件と透水係数は表 6 と表 7 の通りである。広域モデルを用いて地下水流動解析を行い，解析領域内に位置するボーリング孔で観測された立坑掘削前の水位データ(尾上ほか, 2015)を参照値としてキャリブレーションを実施した。キャリブレーションでは，自動的にパラメータ推定が可能な PEST(Doherty, 2015)を用いて涵養量を変化させた。

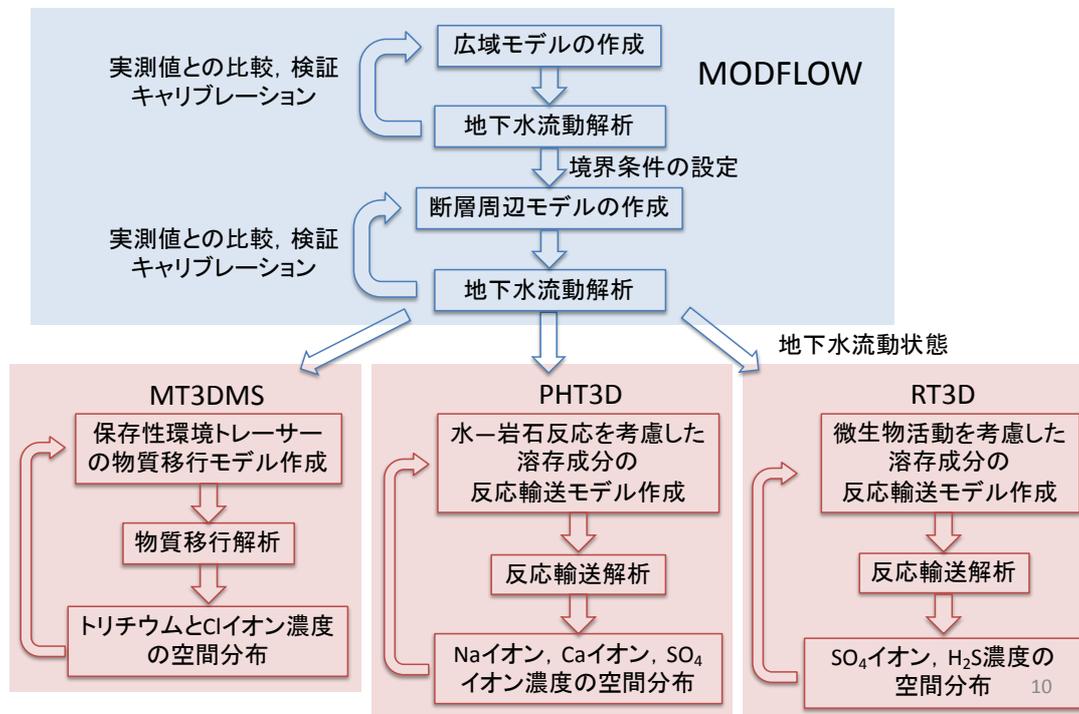


図 27 本研究における地下水流動解析，物質移行解析，反応輸送解析の流れ

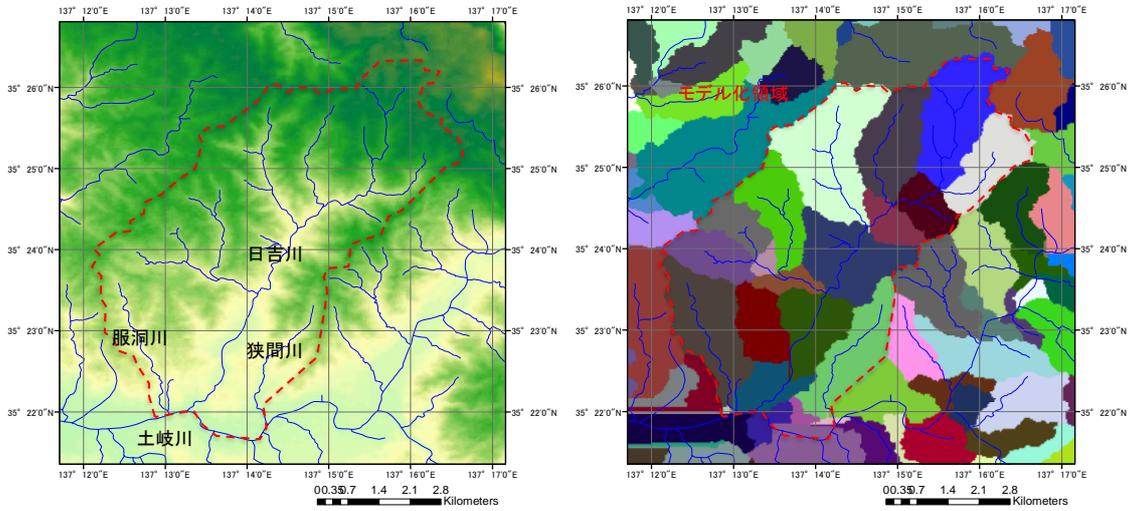


図 28 (左)集水域解析に用いたデジタル標高モデル, (右)抽出された集水域とモデル化領域(原子力環境整備促進・資金管理センター, 2017)

表 6 広域モデルを用いた地下水流動解析における境界条件

側方境界(北, 東, 西側)	不透水境界
側方境界(南側)	固定水頭境界(標高依存)
底部境界	不透水境界
上部境界	自由水面境界

表 7 広域モデルにおける透水係数(尾上ほか(2015)を参考に設定)

地質区分	透水係数 (m/s)
瀬戸層群	$1.0 \times 10^{-6}$
瑞浪層群	水平方向 $1.0 \times 10^{-6.8}$ 鉛直方向 $1.0 \times 10^{-8.8}$
土岐花崗岩 (上部割れ目帯)	水平方向 $1.0 \times 10^{-7.5}$ 鉛直方向 $1.0 \times 10^{-6.8}$
土岐花崗岩 (下部割れ目低密度帯)	水平方向 $1.0 \times 10^{-7.7}$ 鉛直方向 $1.0 \times 10^{-7}$

断層モデルは広域モデルの一部(主立坑断層を含む研究所周辺の領域)で断層近傍を細かくグリッド化したものである。この領域を 66 グリッド(断層面に平行な方向)×69 グリッド(断層面に直交する方向)×50 グリッド(深度方向)に分割した。断層モデルにおける境界条件を表 8 に示す。透水係数は尾上ほか(2015)を参考に、表 9 のように設定した。

表 8 断層モデルを用いた地下水流動解析における境界条件

側方境界(東, 西側)	不透水境界
側方境界(北側)	広域モデルの計算結果から算出(固定水頭)
側方境界(南側)	固定水頭境界(標高依存)
底部境界	不透水境界
上部境界	自由水面境界

表 9 断層モデルを用いた地下水流動解析における境界条件

地質区分	透水係数 (m/s)
断層コア(堆積岩部)	$1.0 \times 10^{-7.3}$
断層コア(花崗岩部)	$1.0 \times 10^{-10.5}$
母岩の変質を伴う割れ目帯 (堆積岩部)	$1.0 \times 10^{-7}$
母岩の変質を伴う割れ目帯 (花崗岩部)	$1.0 \times 10^{-9}$

地下水流動解析で算出される地下水流動状態を踏まえ、塩化物イオンやトリチウムなどのような水-岩石反応を考慮する必要がない環境トレーサーの移行を推定するために、複数成分を取り扱うことができる 3 次元物質移行モデルである MT3DMS (Zheng and Wang, 1999) を用いた物質移行解析を行った。物質移行解析では、亀裂を経路とする巨視的な地下水流動・物質移行に加えて、亀裂から岩石基質部への拡散を考慮できる Double porosity model を適用した。後述のように、解析領域である断層周辺部では断層からの距離に応じて岩石の空隙率も変化することが予想されたことから、火山岩における空隙率と有効応力、浸透率の関係式 (Lamur et al., 2017) に基づいて、2015 年度にプローブパーミアータを用いて測定された浸透率を空隙率に換算し、断層からの距離に応じて変化する空隙率として与えた。Lamur et al. (2017) による関係式を以下に示す。

$$k=(2.93 \times 10^{-12} P_{eff}^{-1.07}) \phi^{1.64 P_{eff}^{0.06}}$$

ここで、 $k$ は浸透率( $m^2$ )、 $P_{eff}$ は有効応力(MPa)、 $\phi$ は空隙率(%)である。計算において、坑道壁面は大気と接していることから、間隙水圧は無視でき、 $P_{eff}$ は岩載圧に等しいとして、深度300 mで7.5 MPa、深度500 mで12.5 MPaと設定した(岩石の密度は2500  $kg/m^3$ と仮定)。空隙率の換算には、断層からの距離として10 m 区間ごとの浸透率の平均値(図 29)を用いた。また、これらの浸透率から換算された空隙率と断層からの距離の関係を図 30 に示す。

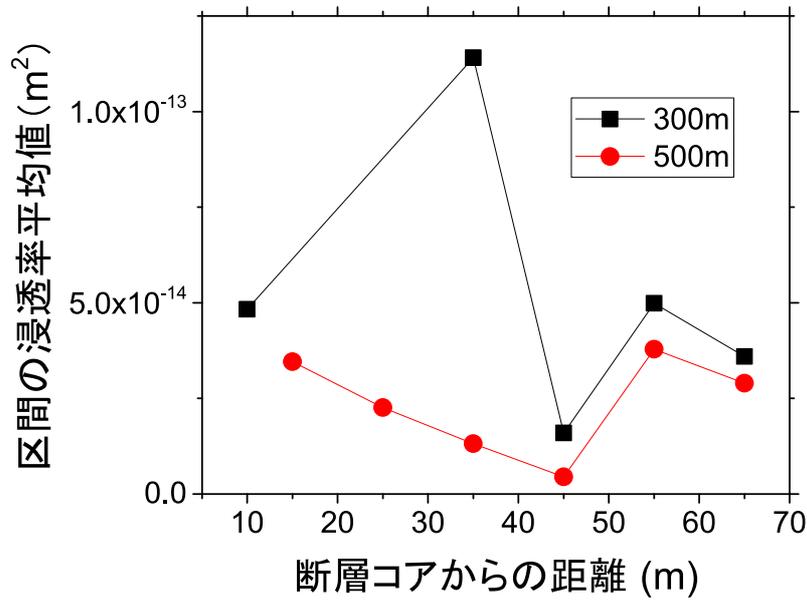


図 29 断層からの距離に応じた 10 m 区間ごとの浸透率平均値の変化

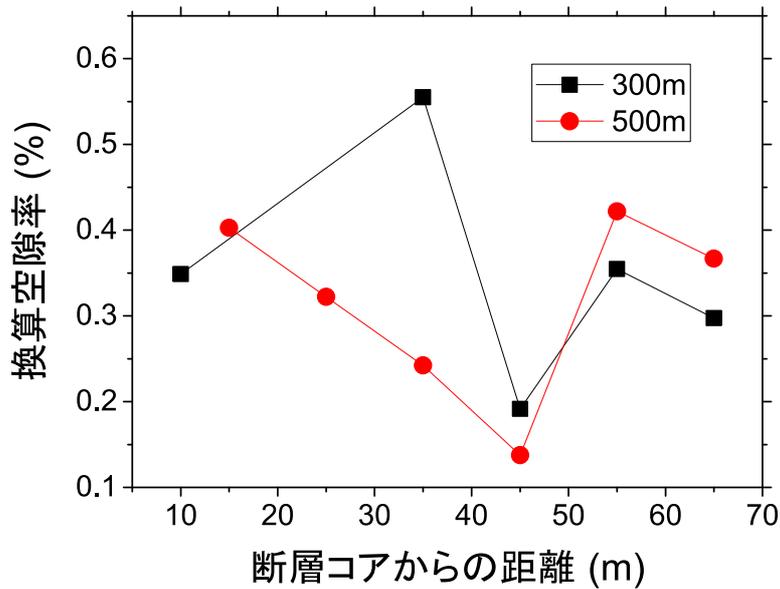
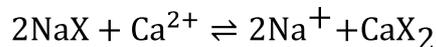


図 30 断層からの距離に応じた 10 m 区間ごとの空隙率変化(浸透率から換算)

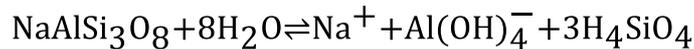
塩化物イオンの物質移行解析における初期濃度は、尾上ほか(2014)を参考に深部で高く、浅部で低くなる成層分布を仮定した。また、モデル上面から浸透する降水の濃度は 0 とした。解析期間は 2005 年 4 月 1 日から 2018 年 4 月 1 日の 13 年間とし、この期間の非定常解析を行うことで対象成分の断層周辺での物質移行特性を推定した。

研究所周辺の地下水は、浅部地下水と深部地下水の混合、イオン交換など水—岩石反応、微生物活動、硫黄化学種の無機的酸化還元反応、溶存ガスの付加などにより水質が形成されていることが知られている(阿島ほか, 2006)。これらの反応は、以下のような反応式で表される(阿島ほか, 2006)。

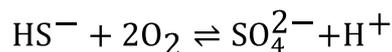
#### 粘土鉱物によるイオン交換



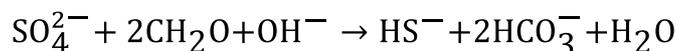
#### 曹長石の溶解, 沈殿



#### 硫黄化学種の無機的酸化還元反応



#### 微生物活動による硫酸還元反応



これらの反応に寄与し、物質移行過程における水—岩石反応を考慮する必要がある水質項目については、MT3DMS と代表的な地球化学モデリングコードである PHREEQC-2

(Parkhurst and Appelo, 1999)を統合することで物質移行過程での水—岩石反応を考慮できる PHT3D (Prommer et al., 2003)を用いた反応輸送解析を実施した。PHT3D による熱力学計算には Lawrence Livermore National Laboratory (LLNL)による熱力学データベースを用いた。PHT3D による反応輸送解析の概要を図 31 に示す。今回の解析では、粘土鉱物によるイオン交換のみを考慮し、地下水流動に伴う水質変化を算定している。解析条件における降水の水質は瑞浪地域で採取された降水の分析結果 (Furue et al., 2003)を、深層地下水の水質は MIZ-1 号孔の地下水分析結果 (齋ほか, 2010)を参考に設定した。イオン交換に寄与する Na イオンと Ca イオンに加え、イオンバランスを保持するために Cl イオン濃度を考慮した。初期濃度として、堆積岩中の地下水は降水に等しく、花崗岩中の地下水は深層地下水に等しいという条件で計算を行った。また、スメクタイトの熱力学データとしては、上述の熱力学データベースの Smectite-low-Fe-Mg を用いた。

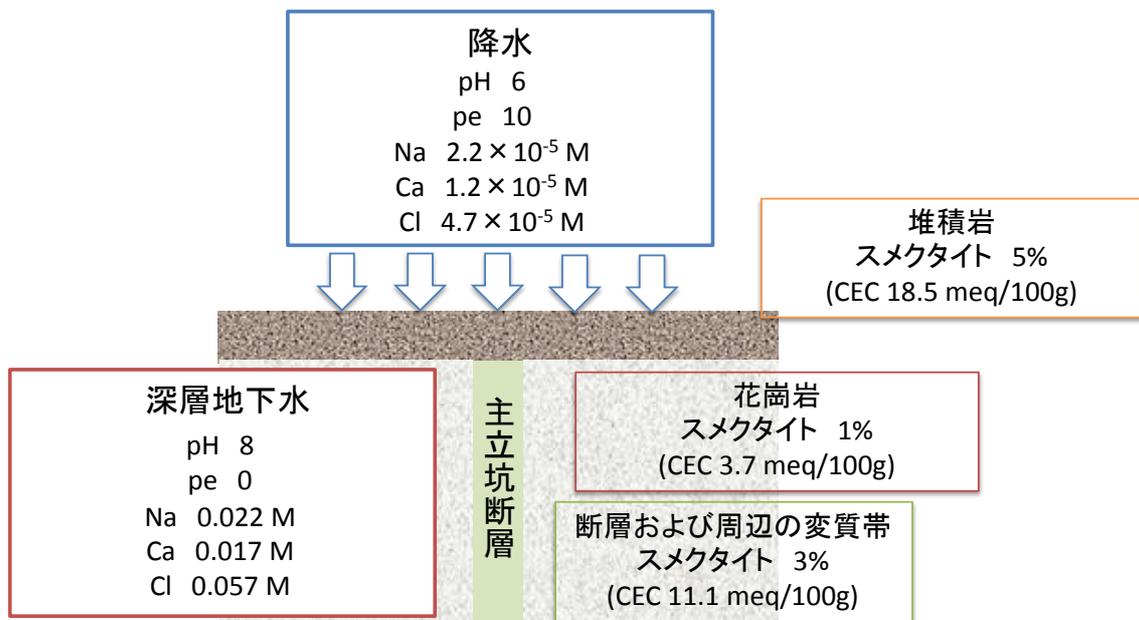


図 31 PHT3D を用いた反応輸送解析の解析条件

## 4.2 平成 29 年度の成果内容

### 4.2.1 シュミットロックハンマーを用いた反発度測定結果

シュミットロックハンマーを用いて測定された反発度を図 32 に示す。測定データ数は深度 300m で 726, 深度 500m で 900 であった。反発度の平均値は深度 300m で 51, 深度 500m で 52 となり, 深度による違いは認められなかった。測定値には大きなバラツキが見られ, 立坑からの距離の関数として測定値をプロットしても明確な距離依存性は認められない。しかしながら, ボックスプロットでは主立坑断層の近くでやや四分位範囲が大きいことがわかり, 断層からの距離に応じて値が増減する。ボックスプロットの区間ごとに反発度の平均値を求め, 同様の区間で測定された浸透率の平均値と比較したものを図 33 に示す。反発度と浸透率には明瞭な負の相関が認められる。これは, 反発度が小さい(すなわち強度が低い)箇所では浸透率が高くなることを示している。本研究で得られた浸透率を坑道壁面やボーリング孔で観察された割れ目頻度 (Ishibashi et al., 2016) と比較すると, 割れ目密度が高い区間では浸透率も高い。浸透率が高い区間では断層の影響でマイクロクラックなどが増加しており, 強度も低いと考えることができる。以上から, 今回の反発度測定の結果は浸透率の測定結果と整合的であった。

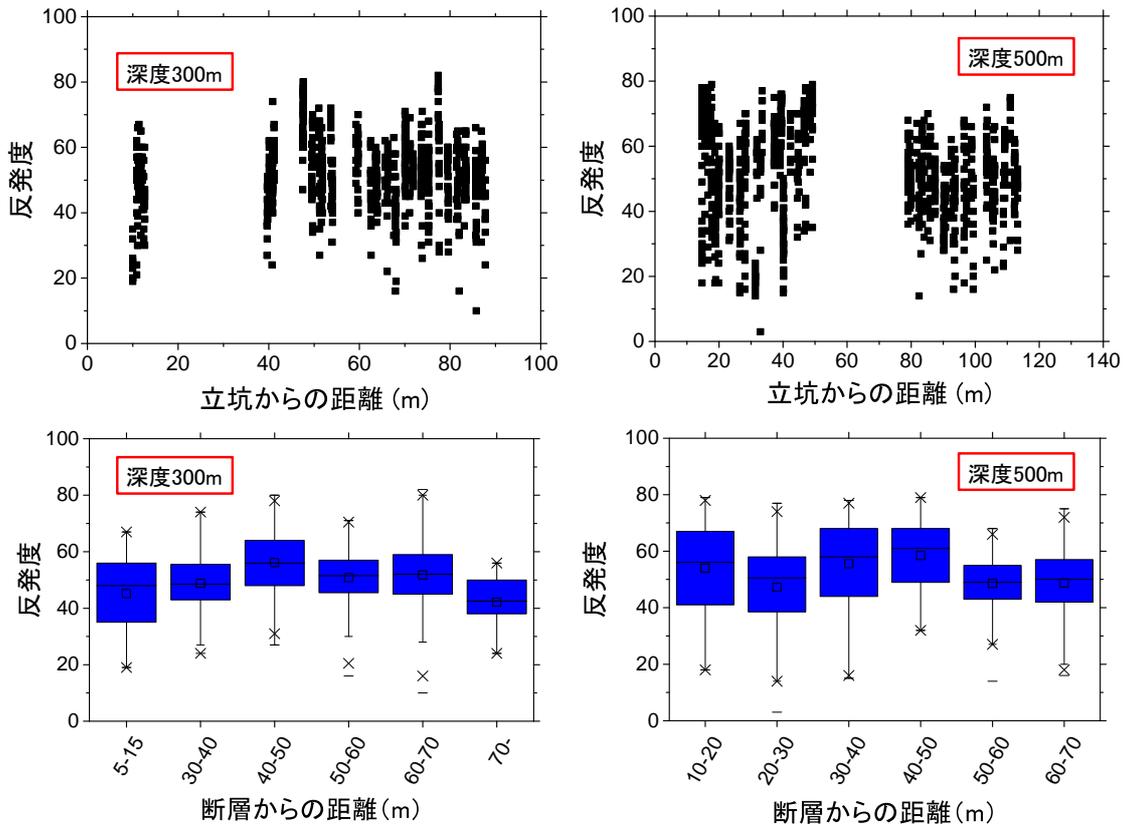


図 32 シュミットロックハンマー測定による反発度(上), 反発度のボックスプロット(下)

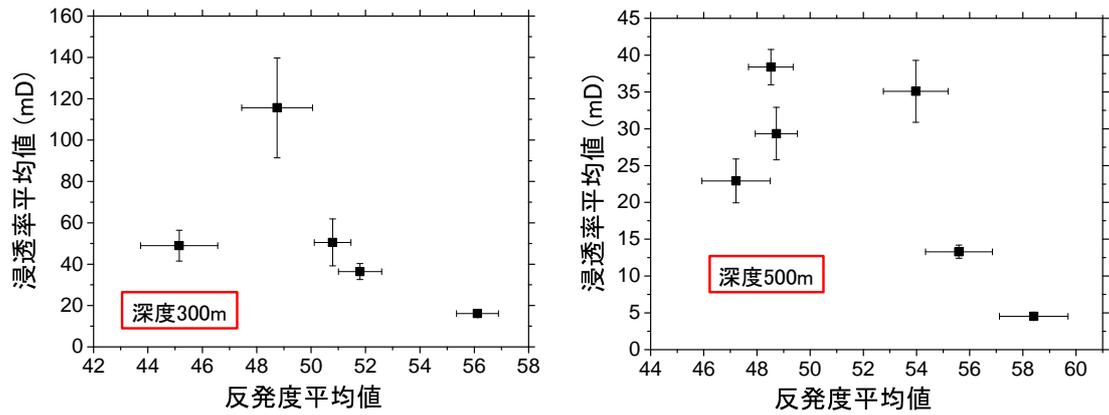


図 33 図で示した区間ごとの反発度平均値と浸透率平均値の関係  
(エラーバーは標準誤差を表す)

#### 4.2.2 地下水の物理化学パラメータの測定結果および環境トレーサーの分析結果

採水時に原位置で測定された物理化学パラメータを表 10 に、採取した地下水試料の主要溶存イオン濃度の分析結果を表 11 に示す。pH は深度や断層との位置関係に依存せず、同程度の値を示す。EC は後述するイオン濃度に依存し、浅部よりも深部で高い。また、断層の南側と比較して、北側で高い値を示す。水温は深部ほど高く、地温勾配の影響によるものと推測される。断層の北と南で顕著な水温の差は認められない。ORP と DO に明確な深度依存性は認められない。予備排水時、pH や EC、水温は比較的速やかに値が安定するのに対して、ORP や DO が完全に安定するまでには長い時間を要する。採水時、作業の都合上 ORP と DO が完全に安定するまで予備排水を続けることは困難であったため、表示値がほぼ安定した状態で値を記録していることから、ORP と DO の測定値は予備排水の時間が十分でない影響を受けている可能性がある。

$\text{Na}^+$ 、 $\text{K}^+$ 、 $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{Cl}^-$ 、 $\text{Br}^-$ の各イオンは深部ほど濃度が高く、断層南側に比べて北側で濃度が高い傾向を示す一方で、 $\text{SO}_4^{2-}$ イオンは逆に浅部で濃度が高い傾向を示した。 $\text{Mg}^{2+}$ は 10MI26 号孔(深度 400m)でやや濃度が高く、F は濃度に明確な深度依存性が認められない。JAEA による水質モニタリング結果(齋ほか, 2010; 齋ほか, 2011; 新宮ほか, 2011; 新宮ほか, 2012; 大森ほか, 2014)および昨年度の分析結果とあわせ、相対的に高い濃度を示す  $\text{Na}^+$ 、 $\text{Cl}^-$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$ の各イオン濃度の時間変化について検討した(図 34)。断層の南側では、2011 年頃までイオン濃度の変化が生じ、 $\text{Na}^+$ 、 $\text{Cl}^-$ イオンについては時間とともに濃度が減少するのに対して、 $\text{SO}_4^{2-}$ イオンについては濃度が増加する傾向が認められる。2011 年以降はほぼ濃度変化がみられなくなるものの、 $\text{Na}^+$ 、 $\text{Cl}^-$ イオンについては減少傾向が、 $\text{SO}_4^{2-}$ イオンについては増加傾向であることがわかる。このような時間変化は、例えば水野ほか(2013)や Iwatsuki et al.(2015)で指摘されているように坑道掘削に伴う排水による浅層地下水の流入と深層地下水の上昇(アップコーニング)により生じているものと考えられる。対して断層の北側では、南側ほどデータ数が多くないが、同じ深度でも南側と比較して  $\text{Na}^+$ 、 $\text{Cl}^-$ は高い濃度を示し、 $\text{SO}_4^{2-}$ は濃度が低い。断層をはさむ両側で水質が異なることは、主立坑断層が遮水性の構造であることを示すと考えられていることや、昨年度の分析結果と整合的である。本年度得られた地下水試料の分析結果は、昨年度の分析結果を再現するものであったことから、適切な分析が行えていることを示しているといえる。

表 10 地下水試料の物理化学パラメータ測定結果

ボーリング孔	採水区間	採水日	pH	EC	temp	ORP	DO
			-	mS/m	°C	mV	mg/L
07MI07	1	2017/9/7	8.67	36.5	22.3	-296	0.28
07MI07	3	2017/9/8	8.79	46.6	22.2	-317	0.09
07MI07	5	2017/9/8	8.85	56.1	22.1	-308	0.15
09MI20	1	2017/9/7	8.71	39.0	23.8	-262	0.16
09MI20	3	2017/9/7	8.57	40.9	23.8	-280	0.18
09MI20	5	2017/9/7	8.68	42.2	23.3	-275	0.20
09MI21	2	2017/9/8	8.38	78.7	23.2	-333	0.09
09MI21	3	2017/9/8	8.61	78.3	23.1	-118	0.18
10MI26	1	2017/9/7	8.58	52.6	25.6	-248	0.25
10MI26	3	2017/9/7	8.47	53.8	25.3	-262	0.29
10MI26	5	2017/9/7	8.58	44.3	24.5	-276	0.13
12MI33	1	2017/8/23	8.52	134.2	28.1	-333	0.11
13MI38	1	2017/8/23	8.48	135.7	28.4	-327	0.11
13MI38	5	2017/8/23	8.36	233	28.2	-335	0.15

表 11 主要溶存イオン濃度, アルカリ度, 水素酸素同位体比の分析結果 (ND は検出限界以下を示す)

Sample ID	区間	採水日	Na <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	アルカリ度	HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	F <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	NO <sub>2</sub> <sup>-</sup>	Br <sup>-</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	PO <sub>4</sub> <sup>3-</sup>	イオン バランス
			mg/L	mg/L	mg/L	mg/L	meq/L	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L
07MI07	1	2017/9/7	67.03	0.46	10.22	0.07	1.06	64.44	10.82	11.17	53.43	ND	ND	0.13	ND	ND	0.96
07MI07	3	2017/9/8	80.19	0.53	14.19	0.09	0.92	55.89	9.06	10.66	81.14	ND	ND	0.19	ND	ND	3.21
07MI07	5	2017/9/8	95.97	0.62	12.27	0.08	0.73	44.67	8.51	10.65	115.24	ND	ND	0.26	ND	ND	0.92
09MI20	1	2017/9/7	70.53	0.50	10.62	0.11	1.36	82.74	16.05	9.81	46.51	ND	ND	ND	ND	ND	1.42
09MI20	3	2017/9/7	74.48	0.54	10.71	0.21	1.22	74.20	12.86	10.84	59.77	ND	ND	0.15	ND	ND	0.85
09MI20	5	2017/9/7	73.85	0.55	12.74	0.16	1.03	62.73	14.64	10.05	56.23	ND	ND	0.14	ND	ND	5.81
09MI21	2	2017/9/8	124.64	0.73	20.55	0.07	0.42	25.87	0.66	10.54	188.11	ND	ND	0.40	ND	ND	1.35
09MI21	3	2017/9/8	118.80	0.70	26.14	0.09	0.52	31.73	ND	9.97	186.44	ND	ND	0.38	ND	ND	1.51
10MI26	1	2017/9/7	91.61	0.58	14.80	0.46	1.28	78.10	11.98	10.54	87.14	ND	ND	0.20	ND	ND	2.50
10MI26	3	2017/9/7	95.20	0.87	14.42	0.53	1.49	90.79	11.08	10.79	87.40	ND	ND	0.20	ND	ND	1.79
10MI26	5	2017/9/7	80.86	0.73	13.77	0.29	1.30	79.08	13.14	10.47	68.57	ND	ND	0.16	ND	ND	2.29
12MI33	1	2017/8/23	179.95	1.38	83.98	0.16	0.32	19.77	ND	8.79	379.11	ND	ND	0.77	ND	ND	2.49
13MI38	1	2017/8/23	179.04	1.37	83.06	0.18	0.33	20.01	ND	8.20	384.37	ND	ND	0.76	ND	ND	1.61
13MI38	5	2017/8/23	246.86	1.24	217.69	0.26	0.24	14.64	ND	6.97	730.60	ND	ND	1.34	ND	ND	1.03

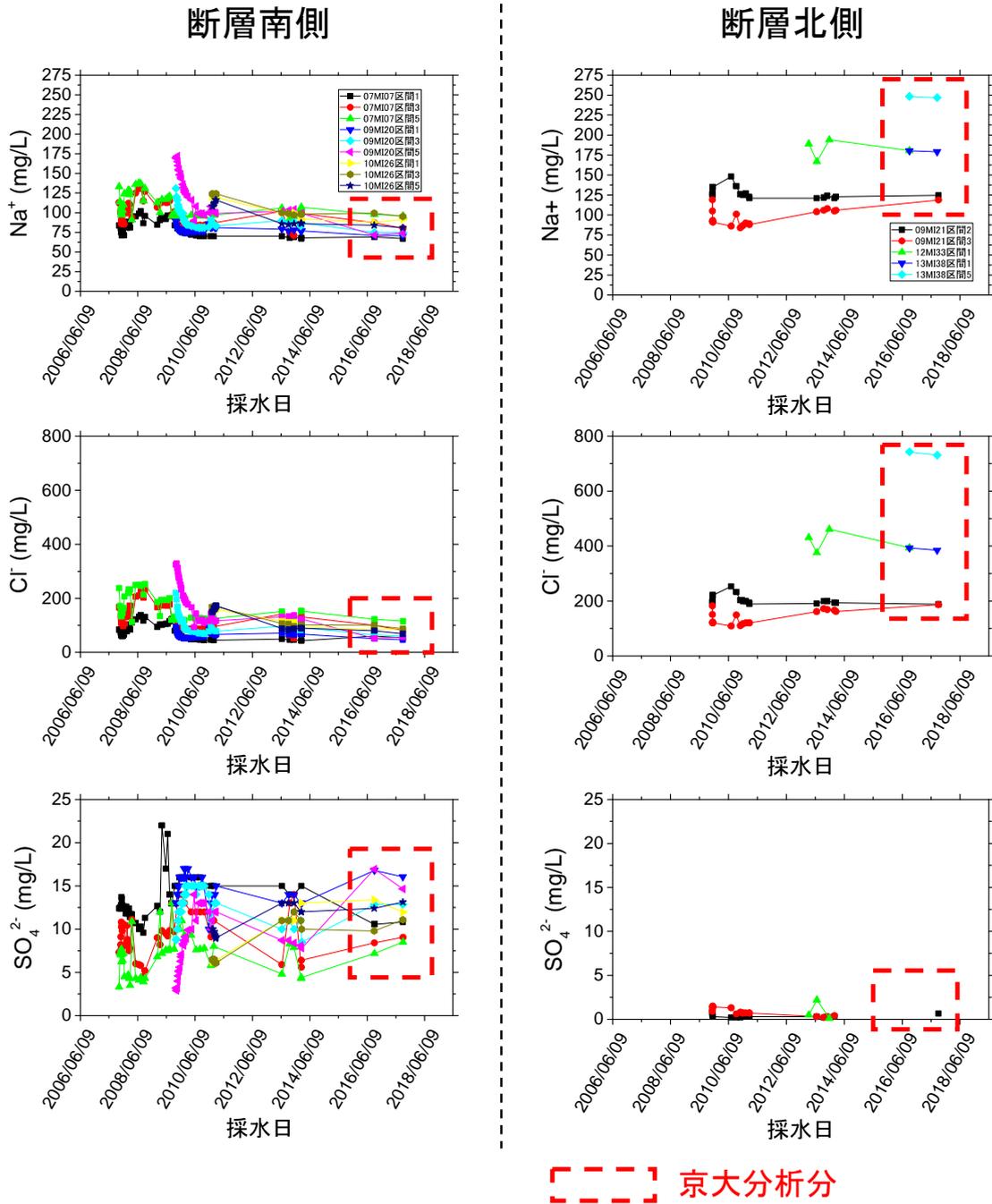


図 34 Na, Cl, SO<sub>4</sub> イオンの時間変化

(2014 年までのデータは齋ほか, 2010; 齋ほか, 2011; 新宮ほか, 2011; 新宮ほか, 2012; 大森ほか, 2013a; 大森ほか, 2013b を引用)

水素酸素同位体比の分析結果を表 12 に、水素酸素同位体比の  $\delta$  ダイアグラムを図 35 に示す。全ての試料は天水線の近傍に分布することから、天水起源の地下水であると考えられる。地下水試料の水素酸素同位体比は世界天水線 (Craig, 1961,  $\delta D = 8 \times \delta^{18}O + 10$ ) よりも大きな d-excess (=  $\delta D - 8 \times \delta^{18}O$ ) を示し、特に深度 500m の 13MI38 号孔の試料は他の試料よりも大きな d-excess を示す。

表 12 水素酸素同位体比分析結果

ボーリング孔	採水区間	採水日	$\delta^{18}O$	$\delta D$
			‰	‰
07MI07	1	2017/9/7	-8.51	-56.23
07MI07	3	2017/9/8	-8.57	-56.65
07MI07	5	2017/9/8	-8.67	-57.53
09MI20	1	2017/9/7	-8.28	-55.54
09MI20	3	2017/9/7	-8.49	-56.30
09MI20	5	2017/9/7	-8.48	-56.15
09MI21	2	2017/9/8	-8.99	-59.67
09MI21	3	2017/9/8	-8.92	-59.35
10MI26	1	2017/9/7	-8.57	-56.83
10MI26	3	2017/9/7	-8.63	-57.26
10MI26	5	2017/9/7	-8.55	-56.64
12MI33	1	2017/8/23	-8.88	-59.17
13MI38	1	2017/8/23	-8.99	-59.25
13MI38	5	2017/8/23	-8.91	-58.23

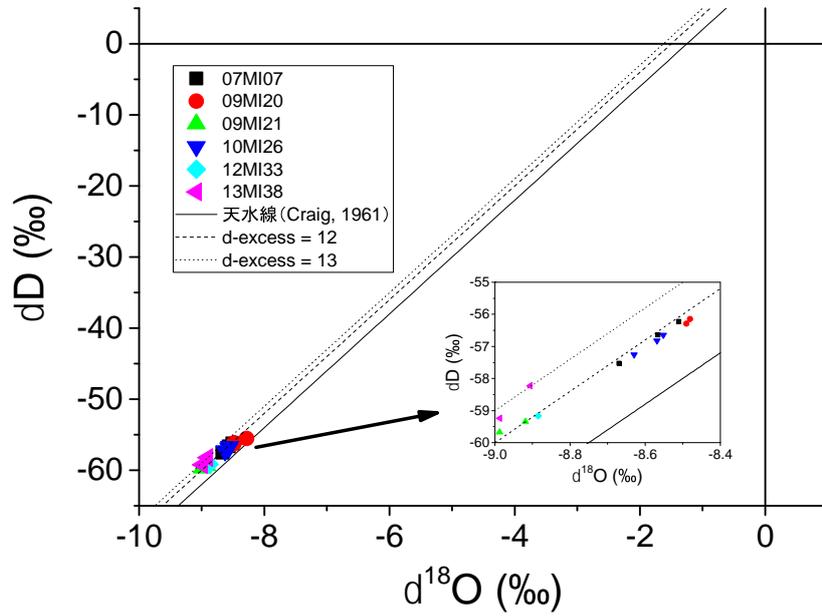


図 35 水素酸素同位体比の  $\delta$  ダイアグラム

本研究で得られた分析値と JAEA により取得されている分析値をあわせて酸素同位体比の時間変化を図 36 に示す。時間経過に伴う同位体比の変化は明確ではない。また、断層の南側に比べて断層の北側で明確に軽い同位体比を示すことがわかる。

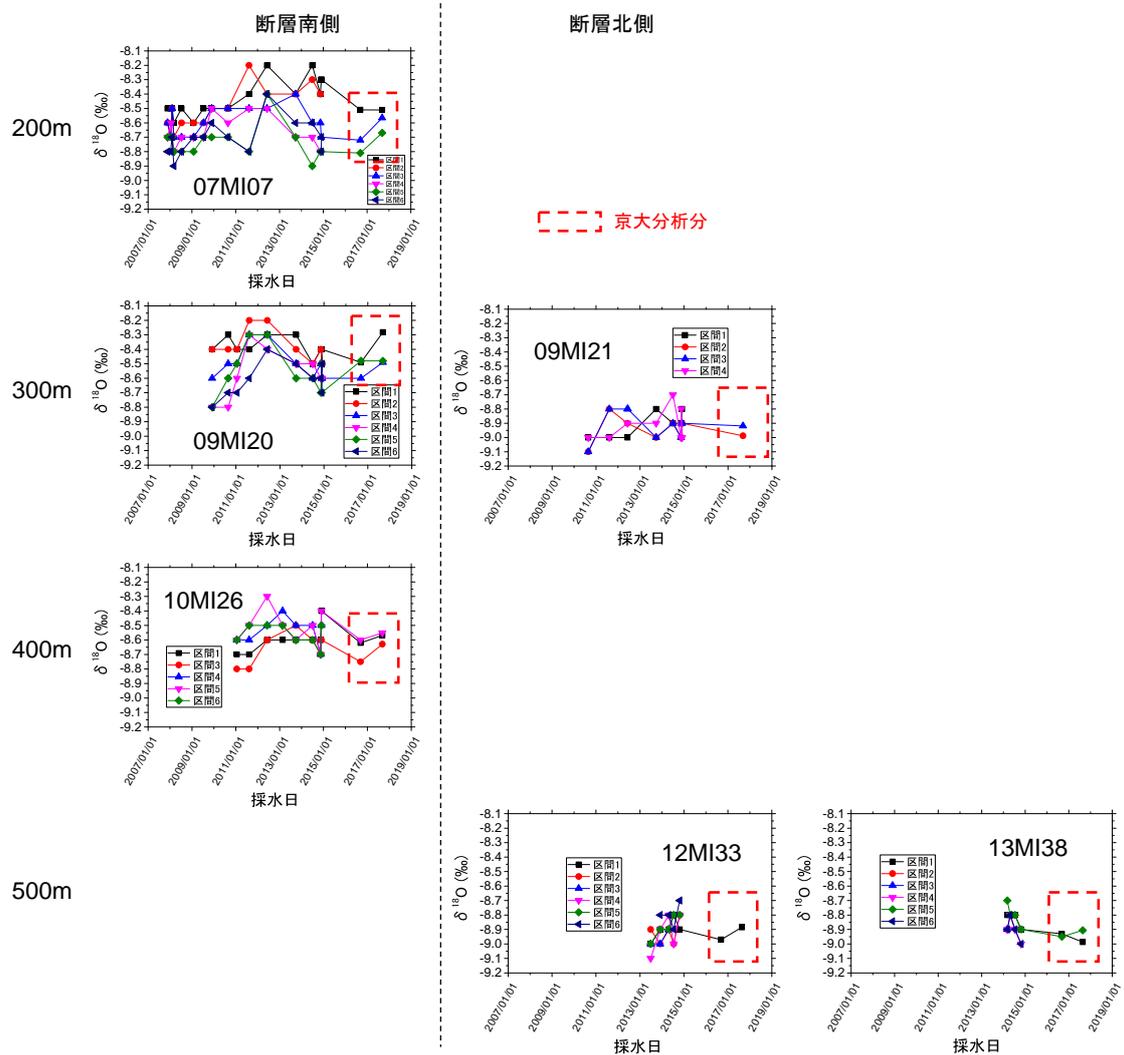


図 36 地下水の水素酸素同位体比の時間変化

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

微量元素濃度の分析結果を表 13 に示す。昨年度の分析において、微量元素は濃度が相対的に浅部で低く深部で高いもの、濃度が相対的に浅部で高く深部で低いもの、深度依存性が明確でないもの、ほぼ全ての採水区間で検出限界以下のものの 4 グループに分類可能であることが知られている。本年度の分析結果から、Al や V など、同一深度でも断層の北と南で濃度差がある元素があることが明らかとなった。

表 13 微量元素分析結果(黄色塗りで示されているデータは検量線の範囲外のため、定量精度が低いことに留意)

Sample ID	Li ppb	B ppb	Na ppb	Mg ppb	Al ppb	Si ppb	P ppb	K ppb	Ca ppb	Sc ppb	Ti ppb	V ppb	Cr ppb	Mn ppb	Fe ppb	Co ppb	Ni ppb
07MI07-1	43	1.4.E+03	5.99.E+04	43.67	8.5	6.50.E+03	6.6	363.6	7466	0.054	0.95	0.0066	0.040	2.0	0.74	0.014	0.13
07MI07-3	46	1.4.E+03	7.39.E+04	74.09	6.6	6.56.E+03	8.6	433.9	1.014.E+04	0.067	1.0	0.0085	0.049	2.1	0.90	0.016	0.038
07MI07-5	49	1.3.E+03	8.53.E+04	61.03	7.1	6.39.E+03	8.0	486.2	1.284.E+04	0.062	0.96	0.0059	0.056	2.0	1.4	0.013	0.036
09MI20-1	42	1.2.E+03	6.56.E+04	88.99	6.9	7.06.E+03	<5.1	372.1	7521	0.062	1.0	0.0095	0.029	2.6	0.21	0.0075	<0.017
09MI20-3	44	1.4.E+03	6.52.E+04	188.5	8.4	6.75.E+03	<5.1	472.2	8566	0.060	0.96	0.010	0.039	3.3	2.2	0.013	<0.017
09MI20-5	45	1.3.E+03	6.73.E+04	141.2	7.8	6.92.E+03	7.5	450.1	8543	0.069	1.0	0.0062	0.042	3.3	3.3	0.011	<0.017
09MI21-2	93	1.5.E+03	1.10.E+05	51.77	10	6.08.E+03	<5.1	492.2	2.247.E+04	0.059	0.86	0.031	0.097	2.7	4.6	0.017	0.049
09MI21-3	1.0.E+02	1.5.E+03	1.07.E+05	65.91	23	6.53.E+03	<5.1	557.8	2.692.E+04	0.061	1.1	0.018	0.070	5.6	25	0.011	0.20
10MI26-1	57	1.6.E+03	8.38.E+04	448.3	7.9	7.00.E+03	6.4	667.8	1.111.E+04	0.060	1.0	0.0059	0.042	6.8	2.4	0.011	<0.017
10MI26-3	57	1.4.E+03	8.52.E+04	519.5	9.9	6.89.E+03	6.0	766.1	1.154.E+04	0.060	1.0	0.0064	0.055	12	5.6	0.022	0.030
10MI26-5	50	1.4.E+03	7.54.E+04	271.6	8.2	6.84.E+03	<5.1	575.7	9408	0.058	1.0	0.0065	0.042	5.9	1.6	0.011	0.025
12MI33-1	1.7.E+02	1.8.E+03	1.57.E+05	152.6	10	6.80.E+03	<5.1	1037	8.283.E+04	0.069	0.95	0.020	0.13	12	3.4	0.081	0.14
13MI38-1	1.7.E+02	1.9.E+03	1.60.E+05	159.1	14	6.83.E+03	5.3	1080	8.579.E+04	0.075	1.1	0.021	0.12	12	4.7	0.016	0.14
13MI38-5	2.7.E+02	2.2.E+03	2.20.E+05	304.6	7.9	6.86.E+03	7.4	1637	2.141.E+05	0.11	1.7	0.036	0.19	27	5.4	0.031	0.20
Sample ID	Cu ppb	Zn ppb	Ga ppb	Ge ppb	As ppb	Se ppb	Rb ppb	Sr ppb	Y ppb	Zr ppb	Mo ppb	Ag ppb	Cd ppb	Sn ppb	Sb ppb	Cs ppb	Ba ppb
07MI07-1	0.057	0.24	0.49	19	0.030	0.18	2.1	85	0.062	0.13	1.7	0.011	<0.00075	0.013	0.0022	0.46	0.33
07MI07-3	0.042	0.17	0.47	15	0.020	0.24	2.4	1.1.E+02	0.041	0.073	1.7	0.0095	<0.00075	0.010	0.0020	0.54	0.47
07MI07-5	0.050	0.13	0.52	13	0.021	0.24	2.8	1.5.E+02	0.031	0.063	2.2	0.012	<0.00075	0.0085	0.0020	0.63	0.60
09MI20-1	0.017	0.13	0.47	11	0.020	0.077	2.1	84	0.076	0.028	1.1	0.0081	<0.00075	0.0036	0.0016	0.45	0.34
09MI20-3	0.018	0.12	0.40	15	0.023	0.054	2.2	99	0.089	0.045	1.3	0.054	<0.00075	0.0061	0.0013	0.46	0.49
09MI20-5	0.026	0.14	0.40	14	0.023	0.046	2.2	96	0.086	0.039	1.2	0.046	<0.00075	0.0072	0.0014	0.47	0.44
09MI21-2	0.041	0.43	0.48	10	0.13	0.091	3.2	2.4.E+02	0.044	0.036	3.4	0.056	<0.00075	0.012	0.0062	1.6	0.64
09MI21-3	0.071	0.27	0.43	8.1	0.11	0.074	3.7	2.9.E+02	0.44	0.21	3.5	0.049	0.0011	0.023	0.0036	1.6	0.84
10MI26-1	0.021	0.12	0.27	14	0.029	0.033	2.7	1.5.E+02	0.16	0.036	1.2	0.047	<0.00075	0.0050	0.0011	0.58	1.1
10MI26-3	0.047	0.07	0.17	15	0.026	0.029	3.0	1.7.E+02	0.29	0.040	1.1	0.19	<0.00075	0.0066	0.0017	0.59	1.4
10MI26-5	0.019	0.19	0.25	14	0.023	0.028	2.3	1.3.E+02	0.16	0.030	1.2	0.045	<0.00075	0.0054	0.0011	0.43	0.86
12MI33-1	0.13	1.5.E+02	0.32	8.2	0.060	0.071	7.9	9.4.E+02	0.071	0.034	2.6	0.041	0.0020	0.0093	0.020	2.2	2.9
13MI38-1	0.11	0.61	0.31	8.3	0.045	0.066	8.0	9.6.E+02	0.092	0.029	2.6	0.019	0.0024	0.0072	0.012	2.2	2.9
13MI38-5	0.16	0.75	0.24	9.7	0.034	0.090	12	2.4.E+03	0.089	0.031	2.0	0.019	0.0036	0.0091	0.0094	3.0	8.0
Sample ID	La ppb	Ce ppb	Pr ppb	Nd ppb	Sm ppb	Eu ppb	Gd ppb	Tb ppb	Dy ppb	Ho ppb	Er ppb	Tm ppb	Yb ppb	Lu ppb	W ppb	Pb ppb	U ppb
07MI07-1	0.0083	0.018	0.0025	0.011	0.0028	0.00029	0.0042	0.00078	0.0053	0.0015	0.0051	0.00066	0.0039	0.00069	2.1.E+02	0.033	0.0077
07MI07-3	0.0038	0.0076	0.0012	0.0044	0.0014	0.00030	0.0028	0.00045	0.0032	0.0010	0.0037	0.00056	0.0030	0.00054	1.7.E+02	0.037	0.0062
07MI07-5	0.0016	0.0046	0.00061	0.0032	0.00078	0.00029	0.0018	0.00029	0.0023	0.00063	0.0026	0.00046	0.0025	0.00055	1.4.E+02	0.045	0.0031
09MI20-1	0.0012	0.0027	0.00071	0.0027	0.0014	0.00029	0.0024	0.00058	0.0063	0.0019	0.0073	0.0011	0.0072	0.0014	1.3.E+02	0.039	0.0077
09MI20-3	0.0051	0.012	0.0018	0.0093	0.0038	0.00031	0.0039	0.00085	0.0072	0.0022	0.0076	0.0012	0.0068	0.0012	1.7.E+02	0.037	0.0091
09MI20-5	0.0038	0.0085	0.0012	0.0064	0.0018	0.00036	0.0034	0.00070	0.0070	0.0021	0.0074	0.0011	0.0064	0.0014	1.6.E+02	0.036	0.0086
09MI21-2	0.0083	0.016	0.0020	0.0089	0.0026	0.00032	0.0030	0.00053	0.0043	0.0011	0.0031	0.00045	0.0018	0.00031	1.6.E+02	0.069	0.0044
09MI21-3	0.061	0.13	0.016	0.066	0.018	0.00098	0.027	0.0056	0.046	0.012	0.040	0.0058	0.038	0.0056	1.5.E+02	0.092	0.17
10MI26-1	0.010	0.023	0.0032	0.018	0.0049	0.00071	0.0079	0.0017	0.014	0.0041	0.013	0.0019	0.011	0.0019	2.1.E+02	0.045	0.013
10MI26-3	0.021	0.048	0.0072	0.031	0.011	0.0016	0.016	0.0034	0.027	0.0072	0.025	0.0038	0.021	0.0032	1.9.E+02	0.039	0.013
10MI26-5	0.010	0.024	0.0034	0.017	0.0046	0.00065	0.0066	0.0017	0.012	0.0039	0.014	0.0020	0.012	0.0021	1.7.E+02	0.043	0.0087
12MI33-1	0.0055	0.011	0.0016	0.0075	0.0027	0.00066	0.0038	0.00074	0.0048	0.0013	0.0038	0.00050	0.0021	0.00028	1.3.E+02	0.091	0.0012
13MI38-1	0.019	0.026	0.0035	0.014	0.0031	0.00084	0.0043	0.00066	0.0058	0.0013	0.0044	0.00056	0.0026	0.00044	1.3.E+02	0.083	0.0021
13MI38-5	0.0095	0.013	0.0019	0.0091	0.0029	0.0015	0.0038	0.00063	0.0045	0.0012	0.0032	0.00053	0.0021	0.00044	1.3.E+02	0.093	0.0020

溶存ガス濃度の分析結果を表 14 に示す。CH<sub>4</sub>は深部ほど濃度が高く、断層の南側に比べて北側で高い傾向がある。CO<sub>2</sub>も断層の南側では深部ほど濃度が高いが、北側ではほぼ一定である。Ar は断層南側でほぼ濃度が一定で、北側で深部ほど濃度が低い。酸素はほぼ同程度であるが、部分的にやや高い区間が認められる。窒素は断層南側に比べて北側で高い傾向を示す。主要溶存イオンと同様に、溶存ガスでも断層の北側と南側で濃度分布が異なることが明らかとなった。

表 14 溶存ガス濃度分析結果

Sample ID	区間	採水日	CH <sub>4</sub> mg/L	CO <sub>2</sub> mg/L	Ar mg/L	O <sub>2</sub> mg/L	N <sub>2</sub> mg/L
07MI07	1	2017/9/7	1.71	0.10	0.91	0.16	23.96
07MI07	3	2017/9/8	2.36	0.09	0.85	0.18	25.32
07MI07	5	2017/9/8	3.14	0.07	0.86	0.15	28.68
09MI20	1	2017/9/7	1.12	0.15	0.94	0.15	22.29
09MI20	3	2017/9/7	1.68	0.14	0.93	0.15	23.76
09MI20	5	2017/9/7	1.58	0.15	0.90	0.25	24.87
09MI21	2	2017/9/8	5.67	0.03	0.89	0.15	32.50
09MI21	3	2017/9/8	5.96	0.04	0.87	0.13	31.77
10MI26	1	2017/9/7	2.79	0.19	0.90	0.13	26.79
10MI26	3	2017/9/7	2.81	0.28	0.89	0.18	26.66
10MI26	5	2017/9/7	2.01	0.17	0.93	0.14	25.53
12MI33	1	2017/8/23	9.21	0.05	0.71	0.25	35.83
13MI38	1	2017/8/23	8.97	0.05	0.72	0.29	35.11
13MI38	5	2017/8/23	8.07	0.04	0.35	0.17	18.91

SF<sub>6</sub>濃度とトリチウム濃度の分析結果を表 15 に示す。コンタミの影響と考えられる 07MI07 号孔の区間 3 と 09MI20 号孔の区間 5 を除いても、SF<sub>6</sub>濃度は昨年度の測定値と比較して高い値となった。SF<sub>6</sub>は通常実際に SF<sub>6</sub>濃度が増加傾向にあるのかを確認するため、今後も分析を継続する必要がある。一方で、トリチウム濃度は断層北側の全区間と南側の多くの区間で検出限界以下となった。時間的、空間的な濃度変化を把握することで、浅層地下水の流入状態の把握に役立つものと考えられる。

表 15 地下水の SF<sub>6</sub> 濃度とトリチウム濃度分析結果

深度	断層南側			断層北側		
	Sample ID	SF <sub>6</sub> 濃度	トリチウム濃度	Sample ID	SF <sub>6</sub> 濃度	トリチウム濃度
		fmol/kg	TU		fmol/kg	TU
200m	07MI07-1	0.99	ND ± 0.1			
	07MI07-3	23.73	ND ± 0.1			
	07MI07-5	0.59	ND ± 0.1			
300m	09MI20-1	1.02	0.7 ± 0.2	09MI21-2	1.14	ND ± 0.1
	09MI20-3	0.98	ND ± 0.1	09MI21-3	0.67	ND ± 0.1
	09MI20-5	3.29	0.4 ± 0.1			
400m	10MI26-1	0.59	0.5 ± 0.2			
	10MI26-3	1.21	ND ± 0.2			
	10MI26-5	1.17	0.5 ± 0.1			
500m				12MI33-1	1.08	ND ± 0.1
				13MI38-1	1.42	ND ± 0.1
				13MI38-5	1.01	ND ± 0.1

#### 4.2.3 大気試料の SF<sub>6</sub> 濃度分析結果

大気試料の採取地点と採取した大気試料の分析で得られた SF<sub>6</sub> 濃度の関係を示す。大気試料は研究対象領域周辺で、相対的に標高が高い地点、低い地点、中間の 3 箇所採取した。なお、標高が低い地点は瑞浪超深地層研究所の敷地内である。得られた SF<sub>6</sub> 濃度と標高に明確な関係性は認められない。NOAA によれば、2018 年 1 月の北半球大気中の SF<sub>6</sub> 濃度は 9.547 pptv である (NOAA, 2018)。また、比較のために測定した京大桂キャンパスの実験室大気中の SF<sub>6</sub> 濃度は 9.45 pptv であった。今回採取された瑞浪の大気試料は、これらよりもやや低い SF<sub>6</sub> 濃度を示し、都市域で報告されているような高い濃度 (浅井ほか, 2017) ではないことが明らかとなった。

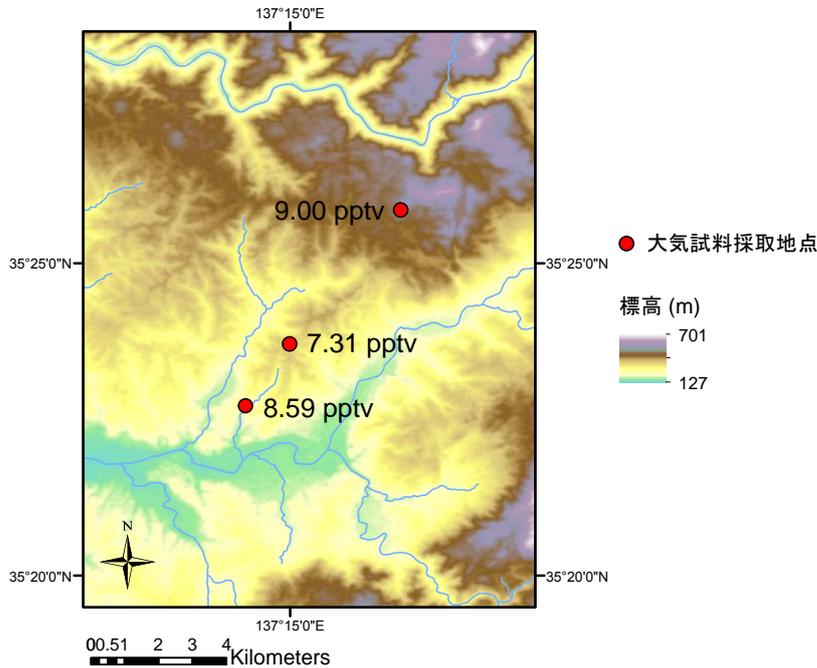


図 37 大気試料の採取地点と SF<sub>6</sub> 濃度分析結果

#### 4.2.4 水理地質モデルの構築と地下水流動解析，物質移行解析

広域モデル(図 38)を用いて、涵養量を 0.01 m/年として計算した場合の水頭と、地下水流動方向を図 39 に示す。また、ボーリング孔における水圧モニタリング結果に基づいて涵養量をキャリブレーションし、0.0017 m/年として計算した場合の水頭と地下水流動方向を図 40 に示す。涵養量の設定に関わらず、これらのモデルを用いて算出された水頭値は、北部で高く南部で低い。標高と水頭分布に依存して北部から南部に向けた地下水流動が示されている。また、算出された水頭と実測値との比較結果を図 41 に示す。涵養量を 0.01 m/年とした場合、水頭が中程度のボーリング孔では実測値と計算値が整合するが、水頭が高い箇所と低い箇所で過大評価される結果となっている。涵養量を 0.0017 m/年とすることで、算出される水頭は全体的に小さくスライドしている。図 39 では、ボーリング孔の水頭との比較結果が黄色で表示されている箇所が多く、これは計算値と実測値の誤差が 30~60m の範囲にあることを示す。一方で、キャリブレーション後の計算結果では主立坑断層周辺で計算値と実測値の誤差が小さいことを示す緑色のインジケータ(誤差が 30m 以下)が多く認められる。そのため、この計算で得られた水頭値を境界条件として使用し、断層モデルによる地下水流動解析を行った。

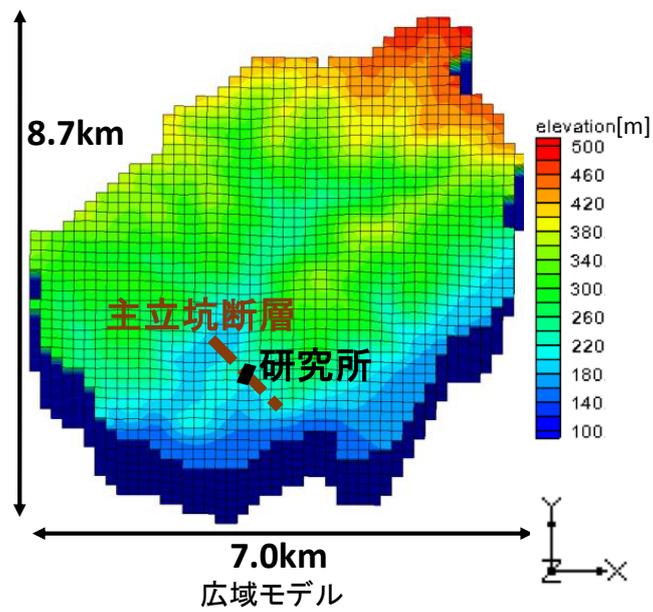


図 38 解析に用いた広域水理地質モデル

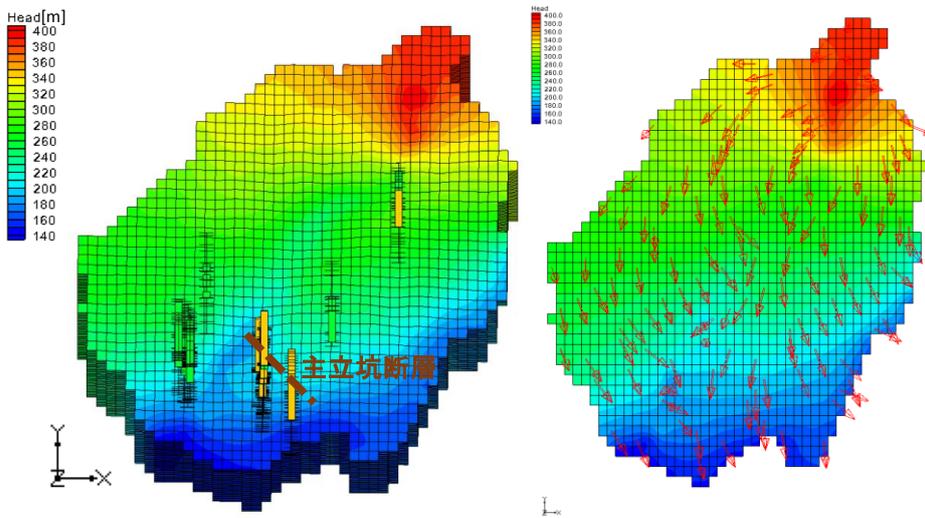


図 39 涵養量を 0.01 m/年とした場合の水頭(左)と地下水流動方向(右)の計算結果

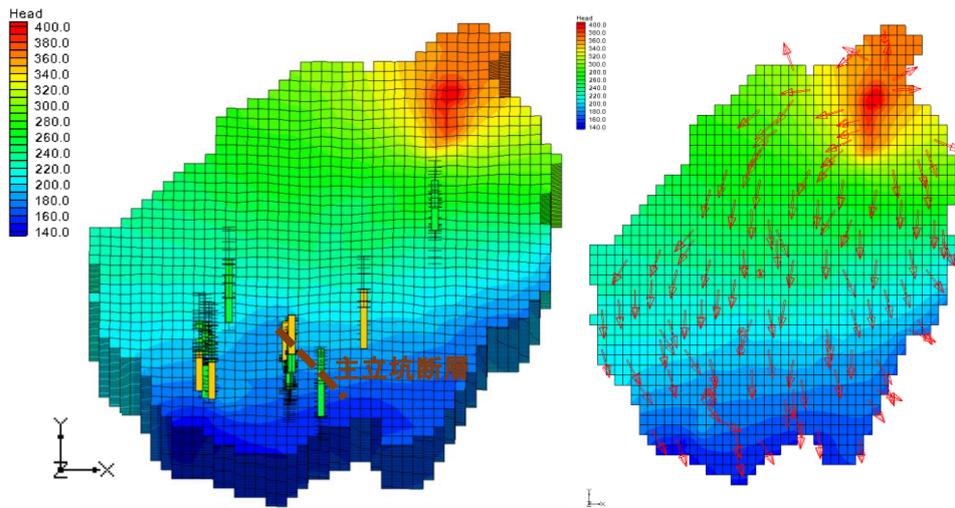


図 40 涵養量を 0.0017 m/年とした場合の水頭(左)と地下水流動方向(右)の計算結果

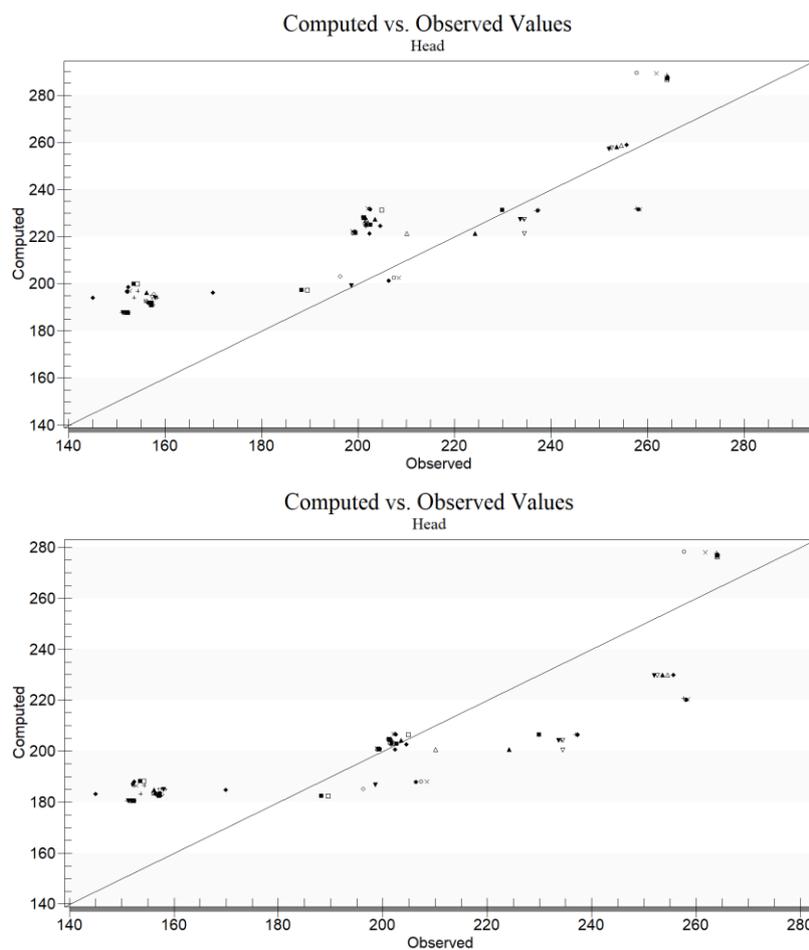


図 41 水頭計算値と実測値の比較(上:涵養量 0.01 m/年, 下:涵養量 0.0017 m/年)

断層モデル(図 42)による地下水流動解析結果を図 43 に示す。立坑からの排水の影響が小さい 2006 年 4 月 1 日の時点の計算結果では、断層に沿った奥から手前に向けた地下水流動が推定されている。一方で、立坑の建設が進み、排水の影響が大きい 2017 年 3 月 31 日時点の計算結果では、立坑の地下水湧出点に向けた地下水流動が顕著である。

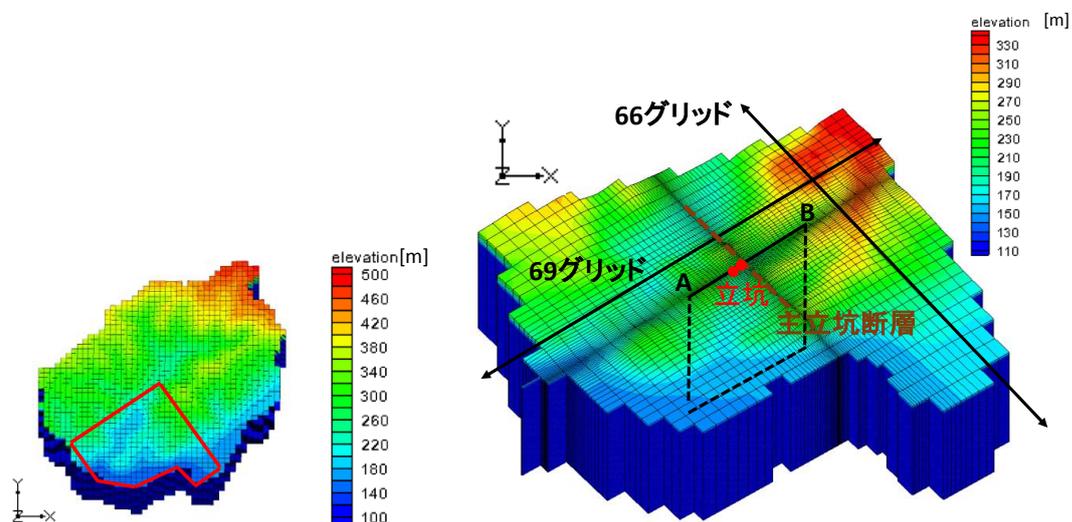


図 42 広域モデルにおける断層モデルのモデル化領域(左)と断層モデルにおけるグリッド分割(右)

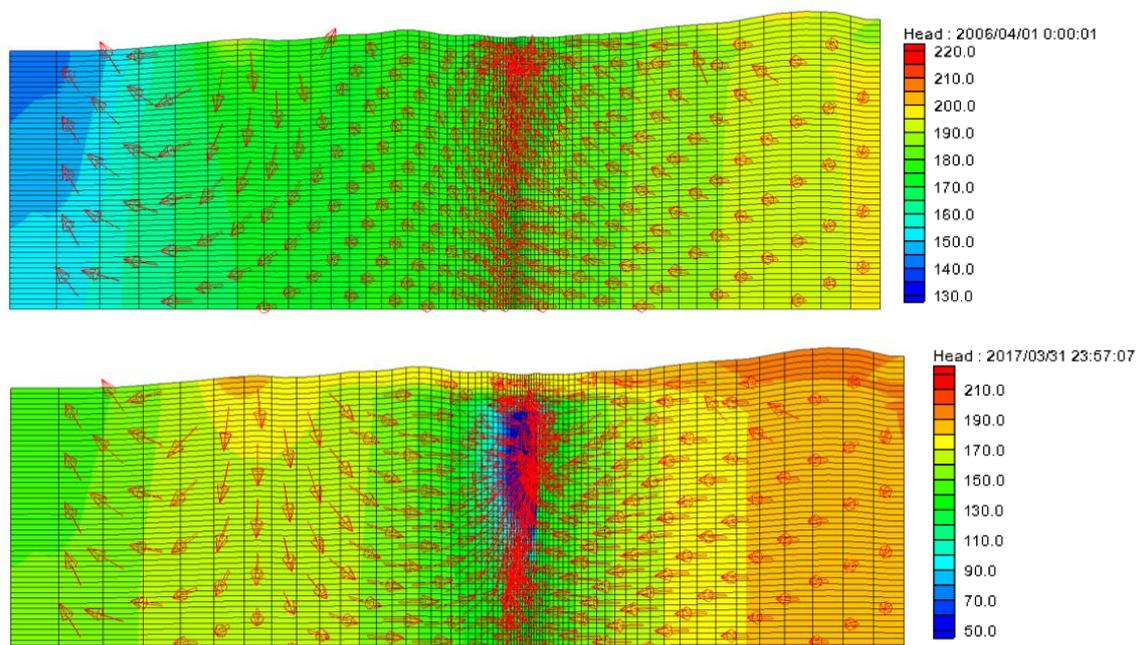


図 43 断層モデル(図 42)を用いた 2006 年 4 月 1 日時点(上)と 2017 年 3 月 31 日(下)の地下水流動解析結果

断層モデルで、浸透率の測定結果から換算された空隙率の空間分布(図 30)を考慮し、Double porosity model を適用して実施した塩化物イオンの物質移行解析結果を図 44 に示す。2017 年 3 月 31 日時点の塩化物イオン濃度の空間分布において、断層の北と南で濃度の空間分布が大きく異なり、北側では浅部から深度 500m 程度までの領域において断層近傍で上昇流が生じているのに対し、南側では浅部から濃度の低い地下水が流下するとともに、深部から濃度の高い地下水が上昇していることがわかる。このような現象は、地下水試料の地球化学的特性に基づいて水野ほか(2013)や Iwatsuki et al.(2015)によって指摘されており、整合的な解析結果となった。また、深度 300m で断層南側に位置する 09MI20 号孔と断層北側に位置する 09MI121 号孔における、塩化物イオン濃度の時間変化の実測値と計算値を図 45 に示す。濃度は大きく異なるものの、09MI20 号孔では同時期に濃度の増減が見られ、09MI21 号孔では 2011 年以降緩やかに濃度が上昇傾向にあるなど、時間変化の特徴には類似点が認められる。

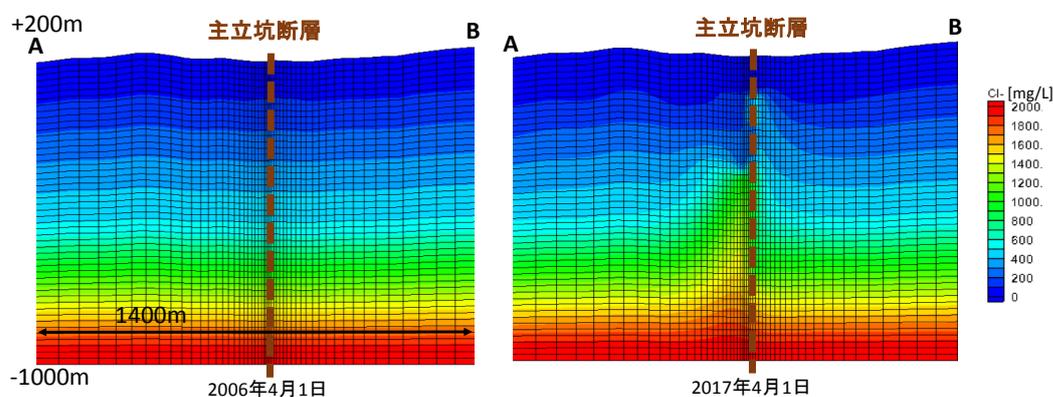


図 44 塩化物イオンの物質移行解析結果(2006 年 4 月 1 日時点(左)と 2017 年 4 月 1 日時点(右)の塩化物イオン濃度の空間分布)

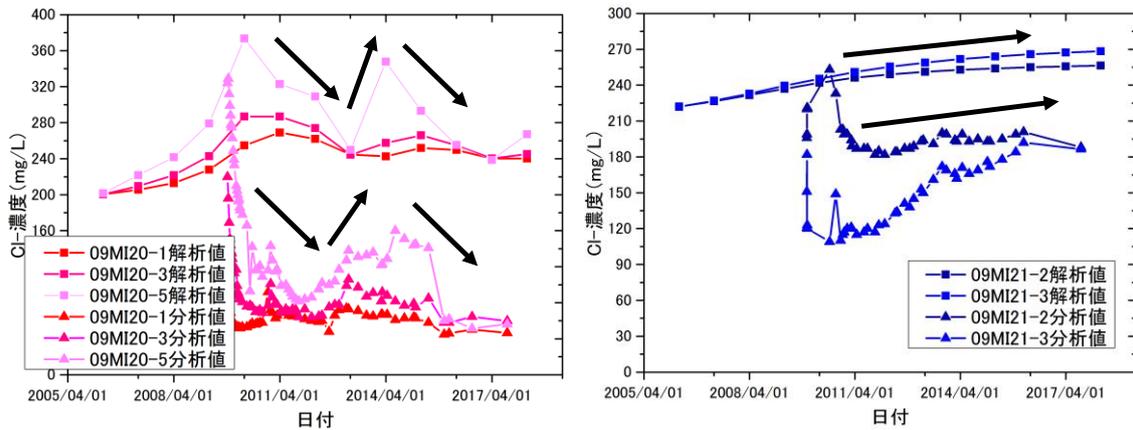
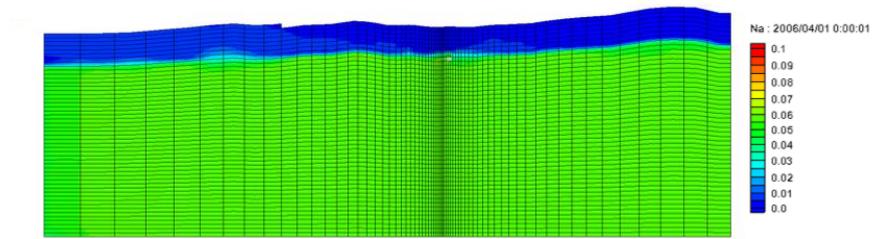
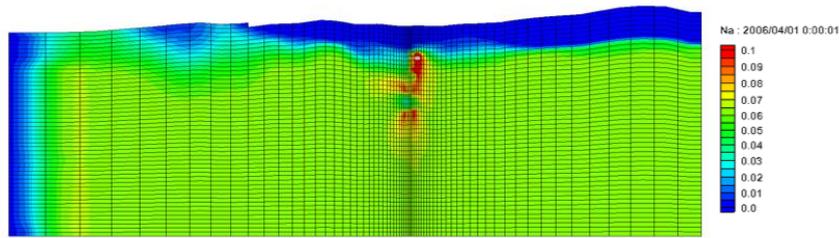


図 45 解析結果と実測値の比較(実測値は、本研究で得られた分析結果に加えて、齋ほか(2010)、齋ほか(2011)、新宮ほか(2011)、新宮ほか(2012)、大森ほか(2013a)、大森ほか(2013b)、大森ほか(2014)、林田ほか(2016)を使用して作成)

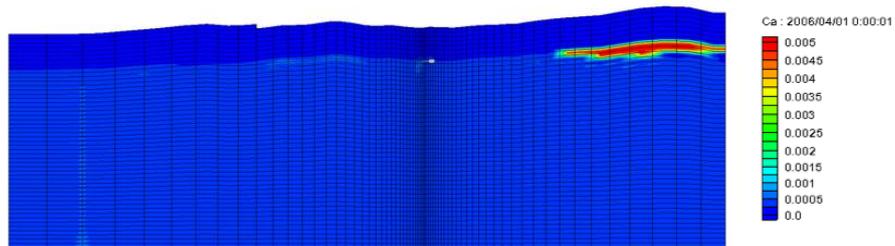
断層モデルで、スメクタイトによるイオン交換を考慮した反応輸送解析の結果を図 46 に示す。比較のため、地下水流動に伴う移行のみを考慮し、イオン交換の影響を考慮しない場合の濃度分布も図 47 に示す。イオン交換を考慮しない物質移行解析の結果(図 47)では、断層の南側(図の左側)で浅層地下水の流入によると思われる濃度低下が認められる他、断層周辺でわずかに濃度上昇が認められるが、濃度変化は小さく 10%以下である。濃度が上昇している箇所も認められるが、解析条件として Na, Ca イオンの供給源を考慮していないことから、計算過程で生じた誤差によるものと考えられる。これに対して、イオン交換を考慮したモデルでは大きな濃度変化が認められ、Na イオン濃度、Ca イオン濃度どちらも断層周辺で上昇していることがわかる。今回は暫定的な極端な解析条件による結果のため、実測値との比較は困難であるが、地下水流動に伴う水-岩石反応を考慮した移行解析が可能であることを確認できた。



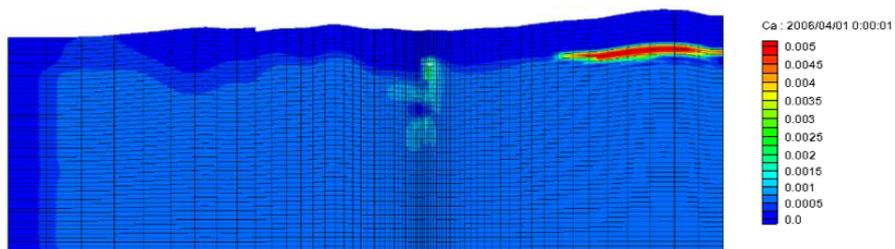
2006年4月1日



2017年4月1日

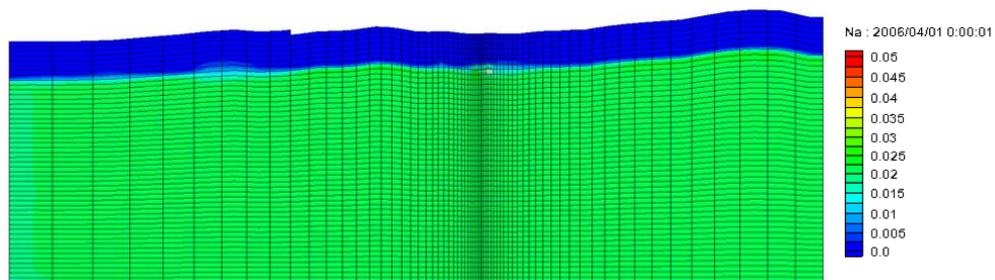


2006年4月1日

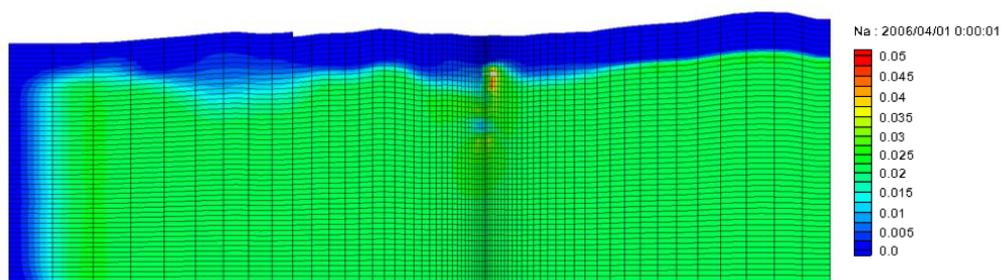


2017年4月1日

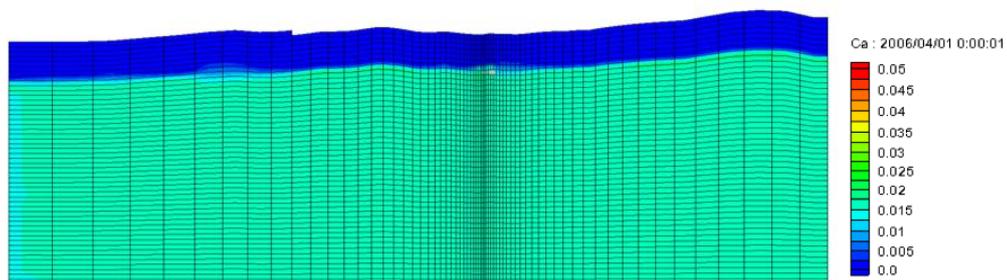
図 46 水—岩石反応(スメクタイトによるイオン交換)を考慮した反応輸送解析で得られた Na および Ca 各イオンの濃度分布(図 43 における AB を通る鉛直断面)



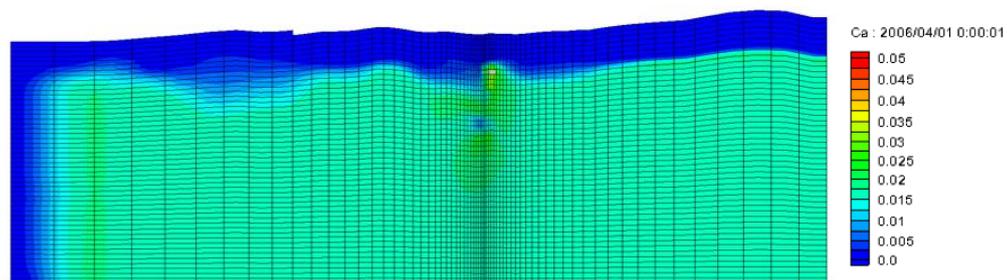
2006年4月1日



2017年3月31日



2006年4月1日



2017年3月31日

図 47 水—岩石反応(スメクタイトによるイオン交換)を考慮した反応輸送解析で得られた Na および Ca 各イオンの濃度分布(図 43 における AB を通る鉛直断面)

### 4.3 残された課題と今後の計画

広域モデルを用いた地下水流動解析で算出される水頭値は断層周辺では実測値と整合的であるものの、モデル全体で十分に一致しているとは言い難い。物質移行解析の結果では、空間的な濃度分布や時間的な濃度の増減について、実測値と整合する傾向が認められたが、濃度そのものにはまだ差がある。水-岩石反応を考慮した反応輸送解析についても、解析の初期条件や反応に関わるパラメータをより適切に設定する必要がある。また、瑞浪では水素、メタンなどを電子供与体、硫酸を電子受容体とする微生物活動が報告されている (Suzuki et al., 2014; Ino et al., 2018)。水質形成における微生物活動の影響を考慮するため、微生物活動による硫酸還元に関する反応輸送解析も、断層モデルと RT3D (Clement, 1997) を用いて検討を進めているところである。

今後は、広域モデルに加えて、断層モデルでも水頭の実測値や時間変化と解析値を比較することでキャリブレーションを行い、断層の透水係数やその空間分布を最適化する。また、物質移行解析や反応輸送解析では解析条件について検討を続けるとともに、必要なデータを試料分析や原位置測定などで取得し、モデルに反映することでこれら解析の高精度化を図る予定である。

## 5. まとめ

本年度は、2015 年度に得られた浸透率測定結果の信頼性を評価し、断層周辺の岩盤で浸透率が変化する理由を把握することを目的として、浸透率測定箇所での反発度測定を行った。また、昨年度に引き続いて超深地層研究所の研究坑道内でボーリング孔から地下水試料を採取し、地下水流動状態の把握に役立つ地球化学特性の濃度や同位体比を分析した。さらに、地下水流動状態に加え、水-岩石反応や微生物活動も考慮可能な地下水流動・物質移行解析の手順について検討し、これまで取得されたデータを踏まえ、地下水流動解析、物質移行解析、スメクタイトによるイオン交換を考慮した反応輸送解析を実施した。

反発度の測定結果において、断層からの距離で 10m 区間ごとに平均値を求め、同じ区間で測定された浸透率の平均値と比較したところ、負の相関が認められた。この結果は、岩石の機械的強度が低い箇所では浸透率が高いことを意味する。マイクロクラックなど、微視的なダメージにより浸透率や反発度に空間変化が生じており、巨視的な亀裂頻度との関連も認められることから、断層活動もこのような浸透率の空間分布が生じた一因であると考えられた。地下水試料の分析では、概ね昨年度を再現する結果が得られており、分析結果の妥当性を確認できた。また、本年度分析を実施した溶存ガスも主立坑断層の北側と南側では濃度が異なることが明らかとなり、断層が地下水流動や物質移行の境界として機能していることが再確認された。地下水流動解析では、まず広域モデルを用いて解析を行い、算出された水頭を実測値と比較

することによりモデルをキャリブレーションした。広域モデルによる解析結果は、断層周辺を細かいグリッドで表現した断層モデルを用いた解析を行う際に境界条件として使用した。断層周辺モデルを用いた地下水流動解析では、坑道内の地下水湧出点に向けた地下水流動が示された。さらに、上述の浸透率を岩石の空隙率に変換した上で、断層からの距離に応じて設定したモデルを用いて、塩化物イオンの物質移行解析を行った。断層の南側で浅層地下水の流下と深層地下水の上昇が顕著であり、既存研究で考えられている立坑からの排水影響と整合的であった。塩化物イオン濃度の実測値と計算値を比較したところ、解析値は実測値よりも濃度が高いものの、濃度の上昇と低下の時期が整合することが明らかとなった。また、スメクタイトによるイオン交換を考慮した反応輸送解析では、考慮しない場合に比べて地下水の Na 濃度や Ca 濃度が大きく変化することが示された。

本研究を通して、浸透率を初めとして、断層周辺での地下水流動や物質移行に関わる様々なデータを取得、活用し、地下水流動解析、物質移行解析、反応輸送解析を行う手順を提案することができた。これまでに得られているモデルのキャリブレーションや解析条件の検討を継続し、より高精度に地下水流動状態や物質移行状態を把握することで、地下水流動およびそれに伴う物質移行現象における断層の役割についてより深い理解を目指す。妥当性の高い地下水流動・物質移行モデルを構築することができれば、それを用いて長期的な物質移行現象の予測が可能となり、放射性廃棄物の地層処分の安全評価において、様々な将来予測を行う上で役立つことが期待される。

## 謝辞

本研究の実施にあたり、笹尾英嗣氏、岩月輝希氏、石橋正祐紀氏、尾崎裕介氏をはじめとして日本原子力研究開発機構の諸氏には、坑内での反発度測定や採水作業、各種データ提供など研究全体を通して多大なるご協力をいただきました。大阪産業大学裕隆太先生、東京工業大学佐久間洋一先生にはトリチウムの液シン測定でご協力をいただきました。検討委員会において、委員の先生方には多くの有益なコメントをいただきました。ここに記して、関係各位に心より感謝申し上げます。

## 参考文献

- 浅井和由・辻村真貴・茂木勝郎, 2017, 日本の都市域周辺における大気 SF<sub>6</sub>濃度の分布 — SF<sub>6</sub>地下水年代推定への影響—, 地下水学会誌, 59, 345-354.
- 阿島秀司, 戸高法文, 岩月輝希, 古江良治, 2006, 多変量解析による瑞浪超深地層研究所周辺の地下水化学モデルの構築, 応用地質, 47, 120-130.
- 石橋正祐紀, 濱克宏, 岩月輝希, 松井裕哉, 竹内竜史, 池田幸喜, 見掛信一郎, 弥富洋介, 笹尾英嗣, 小出馨, 2017, 超深地層研究所計画年度計画書(2017年度), JAEA-Review 2017-019.
- 上野孝志, 徳安真吾, 川本康司, 窪島光志, 石橋正祐紀, 鶴田忠彦, 笹尾英嗣, 池田幸喜, 見掛信一郎, 原郁夫, 山本勝, 2012, 超深地層研究所計画瑞浪超深地層研究所研究坑道におけるボーリングデータ集, JAEA-Data/Code 2012-008.
- 大森一秋, 新宮信也, 萩原大樹, 増田薫, 飯塚正俊, 乾道春, 岩月輝希, 2013a, 超深地層研究所計画における地下水の地球化学に関する調査研究—瑞浪層群・土岐花崗岩の地下水の地球化学特性データ集—(2011年度), JAEA-Data/Code 2013-001.
- 大森一秋, 新宮信也, 増田薫, 青才大介, 乾道春, 岩月輝希, 2013b, 超深地層研究所計画における地下水の地球化学に関する調査研究—瑞浪層群・土岐花崗岩の地下水の地球化学特性データ集—(2012年度), JAEA-Data/Code 2013-024.
- 大森一秋, 長谷川隆, 宗本隆志, 増田薫, 青才大介, 乾道春, 岩月輝希, 2014, 超深地層研究所計画における地下水の地球化学に関する調査研究 —瑞浪層群・土岐花崗岩の地下水の地球化学特性データ集—(2013年度), JAEA-Data/Code 2014-019.
- 尾上博則, 前村庸之, 木村仁, 菱谷智幸, 水野崇, 竹内竜史, 岩月輝希, 2014, 超深地層研究所計画(岩盤の水理に関する調査研究) 研究坑道掘削に伴う地下水流動場及び地下

- 水水質の変化を考慮した地下水流動のモデル化・解析(2011年度), JAEA-Research 2014-010.
- 尾上博則, 小坂寛, 竹内竜史, 三枝博光, 2015, 超深地層研究所計画(岩盤の水理に関する調査研究)第2段階におけるサイトスケールの水理地質構造モデルの構築, JAEA-Research 2015-008.
- 核燃料サイクル開発機構, 1999a, わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性-地層処分研究開発第2次取りまとめ-, 総論レポート, JNC TN1400 99-020.
- 核燃料サイクル開発機構, 1999b, わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性-地層処分研究開発第2次取りまとめ-分冊3 地層処分システムの安全評価, JNC TN1400 99-023.
- 核燃料サイクル開発機構, 2005, 高レベル放射性廃棄物の地層処分技術に関する知識基盤の構築-平成17年取りまとめ- 分冊1 深地層の科学的研究-, JNC TN1400 2005-014.
- 原子力環境整備促進・資金管理センター, 2017, 平成26年度放射性廃棄物共通技術調査等事業放射性廃棄物重要基礎技術研究調査(国庫債務負担行為に係るもの)報告書(平成28年度分), 研究報告 1-1-65.
- 小坂寛, 三枝博光, 栗原新, 尾上博則, 2012, 超深地層研究所計画(岩盤の水理に関する調査研究)サイトスケールの地下水流動解析及び粒子追跡解析, JAEA-Research 2012-012, 2012.
- 齋正貴, 萩原大樹, 松島博之, 野田正利, 納多勝, 安藤賢一, 田中達也, 上田正, 本田ゆう子, 水野崇, 2010, 超深地層研究所計画における地下水の地球化学に関する調査研究-瑞浪層群・土岐花崗岩の地下水の地球化学特性データ集-(2004年4月~2008年3月), JAEA-Data/Code 2010-010.
- 齋正貴, 新宮信也, 萩原大樹, 水野崇, 2011, 超深地層研究所計画における地下水の地球化学に関する調査研究-瑞浪層群・土岐花崗岩の地下水の地球化学特性データ集-(2008年度), JAEA-Data/Code 2011-003.
- 資源エネルギー庁, 2013, 総合資源エネルギー調査会電気事業分科会原子力部会放射性廃棄物小委員会(平成25年度第1回)配布資料,  
[http://www.meti.go.jp/committee/sougouenergy/denkijigyou/houshasei\\_haikibutsu/25\\_01\\_haifu.html](http://www.meti.go.jp/committee/sougouenergy/denkijigyou/houshasei_haikibutsu/25_01_haifu.html), 2018年1月15日閲覧.
- 地盤工学会, 2013, 地盤調査の方法と解説, 地盤工学会.
- 新宮信也, 齋正貴, 萩原大樹, 水野崇, 2011, 超深地層研究所計画における地下水の地球化学に関する調査研究-瑞浪層群・土岐花崗岩の地下水の地球化学特性データ集-(2009年度), JAEA-Data/Code 2011-004.

- 新宮信也, 萩原大樹, 増田薫, 飯塚正俊, 乾道春, 水野崇, 2012, 超深地層研究所計画における地下水の地球化学に関する調査研究—瑞浪層群・土岐花崗岩の地下水の地球化学特性データ集—(2010年度), JAEA-Data/Code 2012-003.
- 大丸修二, 尾上博則, 竹内竜史, 2012, 超深地層研究所計画(岩盤の水理に関する調査研究)主立坑断層を対象とした水理学的調査, JAEA-Research 2012-008.
- 電気事業連合会, 2016, 原子力・エネルギー図面集,  
<http://www.fepc.or.jp/library/pamphlet/zumenshu/>, 2016年1月14日閲覧.
- 電気事業連合会, 2017, 原子力コンセンサス.
- 中山真一, 2011, 放射性廃棄物の管理, 長崎晋也・中山真一(編), 2011, 放射性廃棄物の工学, オーム社, 東京, 1-13.
- 中山真一, 2011, 放射性廃棄物処分システムの性能評価, 性能評価モデル, 長崎晋也・中山真一(編), 2011, 放射性廃棄物の工学, オーム社, 東京, 147-163.
- 新堀雄一, 2011, 放射性廃棄物の処分, 長崎晋也・中山真一(編), 2011, 放射性廃棄物の工学, オーム社, 東京, 121-138.
- 濱克宏, 竹内竜史, 岩月輝希, 笹尾英嗣, 見掛信一郎, 池田幸喜, 松井裕哉, 大澤英昭, 超深地層研究所計画年度計画書(2016年度), 2016, JAEA-Review 2016-015.
- 濱克宏, 見掛信一郎, 西尾和久, 笹尾英嗣, 三枝博光, 岩月輝希, 池田幸喜, 佐藤稔紀, 大澤英昭, 小出馨, 2014, 超深地層研究所計画年度計画書(2014年度), JAEA-Review 2014-035.
- 林田一貴, 宗本隆志, 青才大介, 乾道春, 岩月輝希, 2016, 超深地層研究所計画における地下水の地球化学に関する調査研究—瑞浪層群・土岐花崗岩の地下水の地球化学特性データ集—(2014年度), JAEA-Data/Code 2016-001.
- 水野崇, 青才大介, 新宮信也, 萩原大樹, 山本祐平, 福田朱里, 2013, 瑞浪超深地層研究所の建設に伴う地下水水質の変化, 日本原子力学会和文論文誌, 12, 89-102.
- 文部科学省, 2002, トリチウム分析法(2訂), 127p.
- 湯口貴史, 鶴田忠彦, 西山忠男, 2010, 中部日本土岐花崗岩体の岩相と化学組成の累帯変化, 岩石鉱物科学, 39, 50-70.
- Ahn, J., 2011, 放射性廃棄物処分システムの性能評価, 処分システムの性能評価, 長崎晋也・中山真一(編), 2011, 放射性廃棄物の工学, オーム社, 東京, 139-147.
- Bullister, J.L., Wisegarver, D.P., Menzia, F.A., 2002. The solubility of sulfur hexafluoride in water and seawater. Deep-Sea Research I. 49, 175-187.
- Clement, T. P., 1997. A modular computer model for simulating reactive multi-species transport in three-dimensional ground water systems. Draft Report, PNNL-SA-28967, Richland, Washington: Pacific Northwest National Laboratory.
- Craig, H., 1961. Isotopic variations in meteoric waters. Science. 133, 1702-1703.

- Doherty, J., 2015. Calibration and uncertainty analysis for complex environmental models. Watermark Numerical Computing, Brisbane, Australia.
- Furue, R., Iwatsuki, T., Mizuno, T., Mie, H., 2003. Data book on groundwater chemistry in the Tono area. JNC TN 7450 2003-001.
- Ino, K., Hensdorf, A. W., Konno, U., Kouduka, M., Yanagawa, K., Kato, S., Sunamura, M., Hirota, A., Togo, Y. S., Ito, K., Fukuda, A., Iwatsuki, T., Mizuno, T., Komatsu, D. D., Tsunogai, U., Ishimura, T., Amano, Y., Thomas, B. C., Banfield, J. F., Suzuki, Y., 2018. Ecological and genomic profiling of anaerobic methane-oxidizing archaea in a deep granitic environment. *The ISME Journal*, 12, 31-47.
- Ishibashi, M., Yoshida, H., Sasao, E., Yuguchi, T., 2016. Long term behavior of hydrogeological structures associated with faulting: An example from the deep crystalline rock in the Mizunami URL, Central Japan. *Engineering Geology*, 208, 114-127.
- Iwatsuki, T., Furue, R., Mie, H., Ioka, S., Mizuno, T., 2005. Hydrochemical baseline condition of groundwater at the Mizunami underground research laboratory (MIU), *Applied Geochemistry*, 20, 2283-2302.
- Iwatsuki, T., Hagiwara, H., Ohmori, K., Munemoto, T., Onoe, H., 2015. Hydrochemical disturbances measured in groundwater during the construction and operation of a large-scale underground facility in deep crystalline rock in Japan, *Environmental Earth Sciences*, 74, 3041-3057.
- Lamur, A., Kendrick, J. E., Eggertsson, G. H., Wall, R. J., Ashworth, J. D., Lavallée, Y., 2017. The permeability of fractured rocks in pressurised volcanic and geothermal systems. *Scientific Reports*, 7, 6173.
- Matsubaya, O., Sakai, H., Kusachi, I., Satake, H., 1973. Hydrogen and oxygen isotopic ratios and major element chemistry of Japanese thermal water system. *Geochemical Journal*. 7, 123-151.
- NASA and METI (2011): ASTE GDEM version 2. <https://reverb.echo.nasa.gov/>.
- Parkhurst, D. L., and Appelo, C. A. J., 1999. 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, Reston, Virginia: USGS.
- Prommer, H., Barry, D. A., Zheng, C., 2003. MODFLOW/MT3DMS based reactive multi-component transport modeling. *Ground Water*, 41, 247-257.
- Suzuki, Y., Konno, U., Fukuda, A., Komatsu, D. D., Hirota, A., Watanabe, K., Togo, Y., Morikawa, N., Hagiwara, H., Aosai, D., Iwatsuki, T., Tsunogai, U., Nagao, S., Ito, K., Mizuno, T., 2014. Biogeochemical signals from deep microbial life in terrestrial crust. *PLoS ONE*, 9, e113063, doi:10.1371/journal.pone. 0113063.

Weiss, R. F., Price, B. A., 1980. Nitrous oxide solubility in water and seawater. *Mar. Chem.* 8, 347-359.

## 外部発表リスト

### 【学術論文】

論文 2 編を準備中

### 【口頭発表】

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

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

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

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

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

Okajima, J., Kashiwaya, K., Tada, Y., Hazama, R., Sakuma, Y., Koike, K., 2017. Groundwater flow and mass transport regimes around a fault from numerical simulation and environmental tracer analyses, 44th Annual Congress of the International Association of Hydrogeologists, Book of abstracts, T3.4.11. (2017 年 9 月 25 日発表)

岡嶋純也, 柏谷公希, 多田洋平, 碓隆太, 佐久間洋一, 小池克明, 2018, 環境トレーサー分析と二重間隙モデルを用いた断層周辺の地下水流動特性および物質移行特性の把握, 日本地球惑星科学連合 2018 年大会. (発表予定)



## 研究報告 2

# 岩石き裂の治癒作用を利用した不連続面の バリア性能向上に関する研究

京都大学 大学院工学研究科

奈良 禎太



## 1. 背景・目的

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

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

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

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

また、放射性廃棄物処分施設を地下岩盤に設ける場合、大量のセメント系材料が使用されることとなる。ゆえに、周辺の地下水は、カルシウムイオン濃度が高い状態となると予想される。地下水中のカルシウムイオン濃度が高い場合、岩盤表面にはカルシウム化合物が析出し、き裂が充填される可能性がある。この現象は室内試験でも認められている。例えば、Nakao et al.<sup>19)</sup>による、岩石とコンクリートを水中に一緒に保存する試験や、Nara et al.<sup>20)</sup>による、岩石を水酸化カルシウム水溶液中に保存する試験では、岩石表面にカルシウム化合物が沈殿すること

が示されている。さらに、水酸化カルシウム水溶液中でのサブクリティカルき裂進展測定を行うことにより、カルシウムイオン濃度の高い環境下では、き裂進展速度が低下し、き裂進展が抑制されることが示されている<sup>21)</sup>。さらにこのき裂進展の抑制は、カルシウム化合物のき裂面上での析出によるものであることが示されている。

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

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

なお本研究では、結晶質岩石を対象として研究を進めることとし、花崗岩を岩石試料として用いる。

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

## 2. 全体研究計画（4 カ年における全体計画）

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

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

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

### (2) 岩石を用いた透水試験の予備実験・データ取得環境整備

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

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

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

### (1) 長期破壊力学試験によるき裂進展・閉塞同時検出試験の実施

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

### (2) 岩石内部の観察

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

### (3) 節理を含む岩石での透水試験の実施

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

### (4) 粘土層を含む岩石での透水試験の実施

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

平成 28 年度は，前年度と異なる条件下での破壊力学試験および透水試験を

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

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

(1) 長期破壊力学試験によるき裂進展・閉塞同時検出試験の実施

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

(2) 顕微鏡観察および X 線回折分析による岩石内部の観察

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

(3) 閉塞した節理を含む岩石での透水試験の実施

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

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

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

(1) 室内試験による粘土がき裂を充填する過程での透水係数の変化の調査

破壊した岩石を用い、粘土を懸濁した水を流すことによって、透水係数がどのように変化するかを室内透水試験により調査する。

(2) 原位置試験による粘土がき裂を充填する過程での透水係数の変化の調査

原位置岩盤に粘土を懸濁した水を流すことによって、岩盤の透水性がどのように変化するかを調査する。

### 3. 平成 28 年度の成果概要

平成 28 年度の研究では、粘土および破壊した岩石の遮蔽性を、透水試験を用いて調べた。特に、粘土の透水係数を求め、さらに粘土がき裂を充填する場合に透水係数がどのように変化するかを、粘土を含む水を花崗岩に流し続けることによって調べた。その結果、粘土（主成分はイライト）の透水係数は、インタクテナ花崗岩より 1 オーダー程度高く、巨視き裂を含む花崗岩よりは 3～4 オーダー低い値となり、粘土層を含む花崗岩と同程度の値となった。このことより、巨視き裂を充填する物質の性質が、巨視き裂を含む結晶質岩石の透水係数を決定すると考えられる。また、粘土を含む水を流し続けると、時間の経過とともに、岩石の透水係数が低下する様子が示された。これは、粘土の沈殿によりき裂が充填されていることを示すものである。

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

## 4. 平成 29 年度研究実施内容

### 4.1 平成 29 年度の計画, 実施方法

平成 29 年度では, 前年度と異なる条件下で透水試験を行うこととした. 特に, 粘土が岩石内のき裂を充填していることが認められることから, 粘土によってき裂が充填される過程での透水係数の変化を, 室内試験および原位置試験によって調べることにした. これにより, 粘土によるき裂充填が岩盤の透水係数にどのように影響を及ぼすかを調べることにした.

## 4.2 室内試験による粘土がき裂を充填する過程での岩石の透水係数測定

### 4.2.1 序論

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

Nara et al.<sup>15)</sup>や Wang et al.<sup>16)</sup>, Perez-Flores et al.<sup>22)</sup>は、様々な静水圧環境下において、巨視き裂を含む岩石の透水係数の測定を行っており、圧力の上昇に伴ってき裂が閉塞することにより、岩石の透水係数が低下することを報告している。これは、力学的な影響によるき裂の閉塞が地下環境下で起こりうることを示したものである。

また、力学的影響と化学的影響の相互作用によってき裂・空隙の閉塞が起こる現象としては、圧力溶解が挙げられる<sup>23-28)</sup>。この現象は、水中環境下において、鉱物粒子が接触し、かつ周辺から圧力を受けることによって、水中への鉱物粒子の溶解が促進されるとともに、鉱物粒子表面への沈殿が起こることによって、接触している2つの鉱物粒子が接合し、き裂・空隙が閉塞する、という現象である。安原ら<sup>29)</sup>および Yasuhara et al.<sup>30, 31)</sup>は、圧力溶解の促進によって、岩石の透水係数が低下することを示している。

力学的な影響を受けないき裂・空隙の閉塞についても報告されている。Nara et al.<sup>20)</sup>は、カルシウムイオン濃度の高い水中環境下にある岩石では、岩石表面にカルシウム化合物が析出し、き裂が閉塞するというを示している。Ishibashi et al.<sup>18)</sup>は、地下水中の微細な粘土鉱物が沈殿することによって、き裂の閉塞が生じるということを報告している。Nara et al.<sup>32)</sup>は、巨視き裂が自然環境下で粘土のような微細な鉱物で充填されている花崗岩を用いて透水試験を行い、き裂が充填された場合に透水係数が低下することを示している。この結果は、き裂の水理学的開口幅が鉱物の集積により低下する<sup>33-38)</sup>ことが透水性の低下の主要な原因であることを示すものといえる。ただし、物質が集積してき裂が充填されていく過程での透水係数への影響についてはまだ調べられておらず、不明である。

そこで本研究では、微細な粘土粒子を含む水を、破壊した岩石（花崗岩）に流し続けることによって、水の流れやすさ、すなわち透水係数がどのように変化するかを調べることにした。特に、まず室内試験で鉱物によるき裂の充填が透水係数の変化に影響するかどうかを調べた後、より大きなスケールとなる原位置岩盤で調査をすることとした。

#### 4.2.2 試料

岐阜県瑞浪市の日本原子力開発機構の瑞浪超深地層研究所の研究坑道（深度200m）において、ボーリングにより得られた中粒～粗粒の黒雲母花崗岩（土岐花崗岩）を用いた。特に本章では、巨視き裂を含む花崗岩を用いることとした。この巨視き裂は、岩石試料を採取した時に既に含まれていたものである。図1に、巨視き裂を含む花崗岩試料の写真を、図2に偏光顕微鏡で撮影された画像を示す。この図において、花崗岩試料の直径は50mm、厚さは25mmである。



図1 巨視き裂を含む土岐花崗岩（直径50mm、厚さ25mm）



図2 土岐花崗岩の偏光顕微鏡写真（直交ニコル下）（幅1.95mm、高さ1.25mm）

また、花崗岩と同じく、岐阜県瑞浪市の日本原子力開発機構の地下研究施設（瑞浪超深地層研究所）内で採取された粘土を蒸留水に懸濁して、岩石に流すこととした。ここで用いた粘土は、研究坑道（深度 200m）の壁面から採取されたものである。この粘土の間隙比は約 2.6，間隙率は約 72 %である。図 3 に原位置岩盤中に存在している粘土の写真，図 4 に走査型電子顕微鏡で撮影された粘土の画像を示す。



図 3 瑞浪超深地層研究所の地下岩盤中に存在する粘土

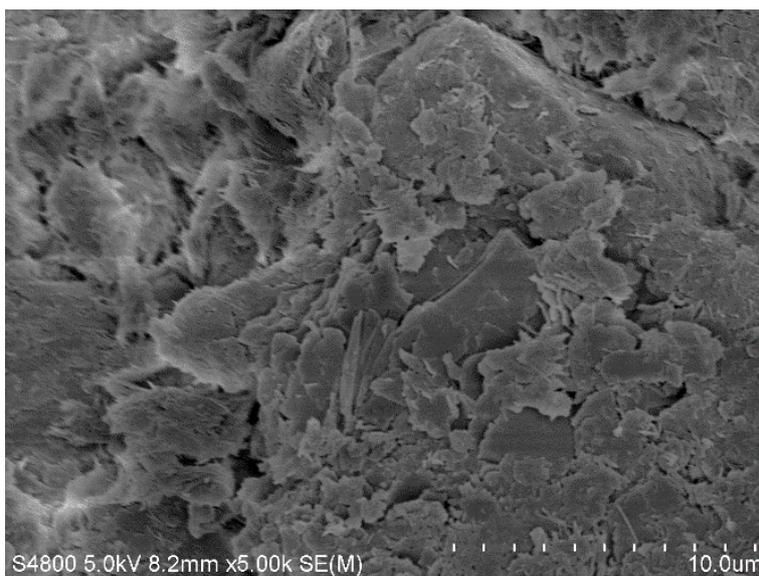


図 4 粘土試料の電子顕微鏡写真

粘土試料を用いて行われた X 線回折分析の結果を図 5 に示す。この図より、雲母の明瞭なピークが認められていることがわかる。また、石英や長石等の明瞭なピークの外、方解石や緑泥石のピークも認められている。図 6 に粘土試料の粒径分布を示す。

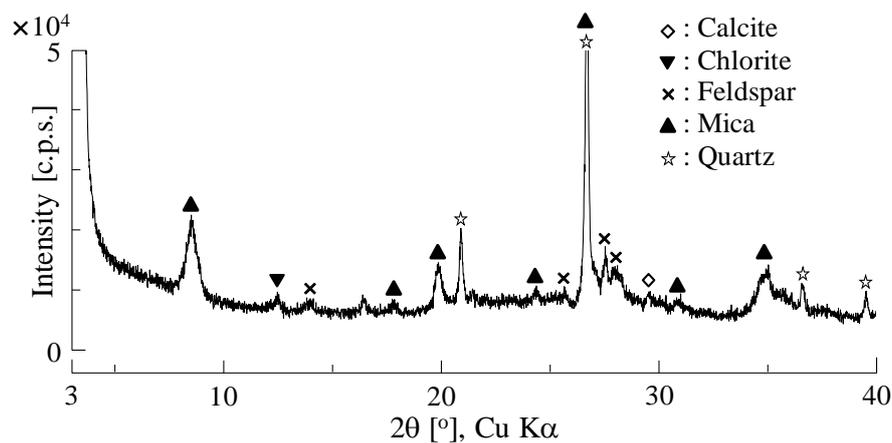


図 5 粘土試料の X 線回折分析結果

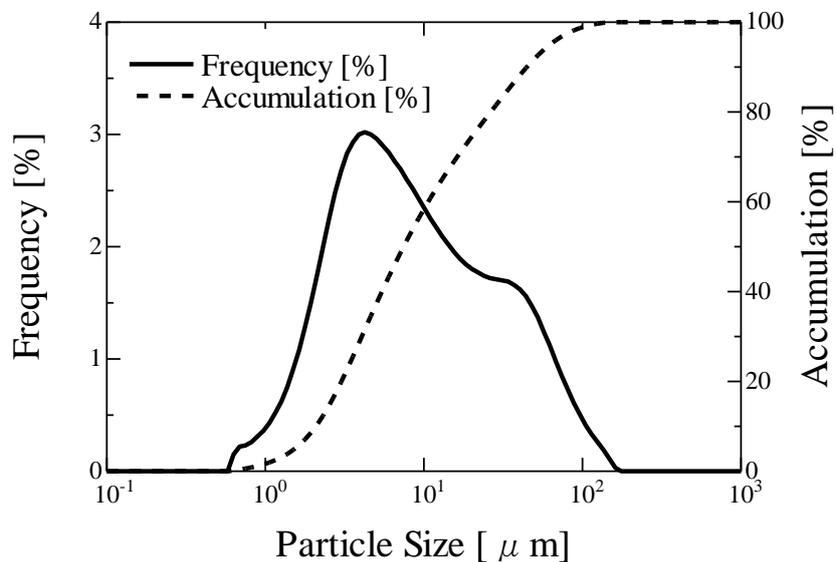


図 6 粘土試料の粒径分布

### 4.2.3 試験方法

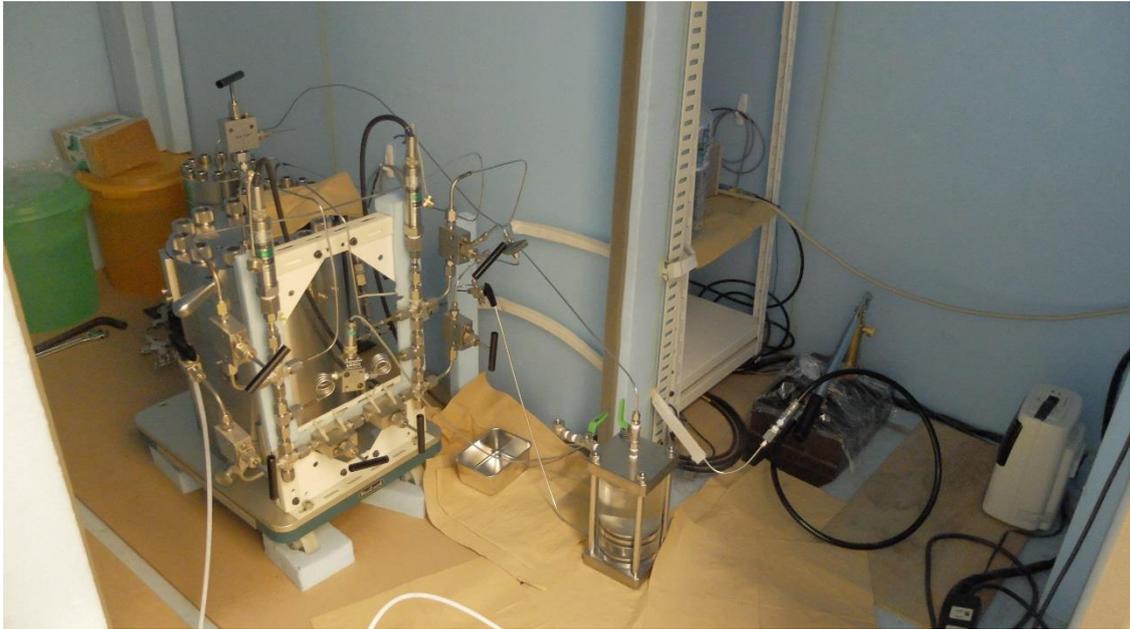
前にも述べたように、岩石（花崗岩）に水を流し続けながら、流れやすさの変化を調べることを目的としているため、ここではフローポンプ法<sup>39, 40)</sup>を試験方法として採用した。フローポンプ法は、上流側貯留槽に流れる単位時間当たりの流量を一定にして水頭差を測定することで透水係数を評価する方法である。

フローポンプ透水試験法は、供試体の一端から一定流量の流体を注入した時の供試体間の水頭差を測定するものである。定常状態に達して水頭差が一定になった時に次式で透水係数を評価できる。

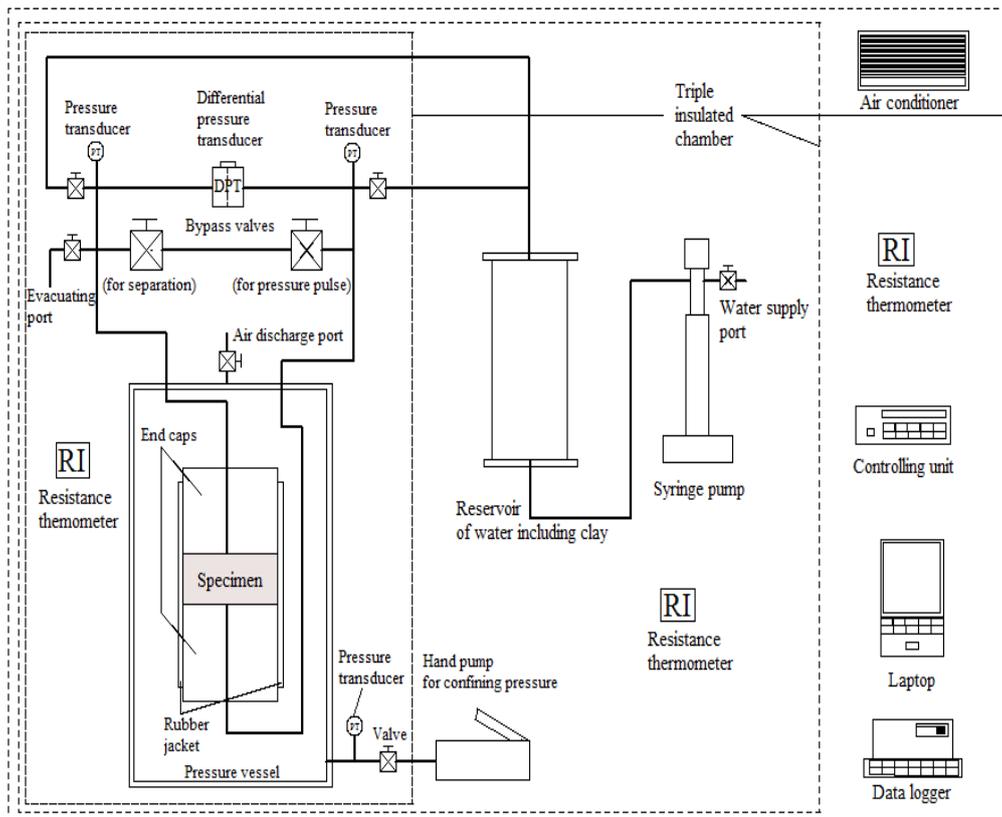
$$K = \frac{QL}{A(h_1 - h_2)} \quad (1)$$

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

この方法は、供試体や試験装置の貯留性によって定常状態に至るまでに、長い時間を要することがある。しかし、現在一般的に用いられる定水位法<sup>15, 16, 22)</sup>や変水位法<sup>41-44)</sup>、および難透水性岩石に適用されるトランジェントパルス法<sup>44-49)</sup>に比べ、試験初期に供試体端面に発生する動水勾配を小さくできるという利点がある。また、一定圧力に制御して排水量を測定する定水位法に比べ、フローポンプ法は流量を一定にして圧力を測定することから、制御精度および測定精度ともに優れている。図7に、本研究で使用したフローポンプ試験装置を示す。



(a)



(b)

図7 フローポンプ試験装置. (a): 装置の写真, (b): 装置の概要図

#### 4.2.4 試験手順

初めに、図1に示した直径50mm、厚さ25mmの巨視き裂を含む花崗岩供試体をデシケータ内で蒸留水に浸し、真空ポンプを用いてデシケータ内を真空状態にし、その状態で一か月以上保存することによって、円柱試験片を蒸留水で飽和させた。次に、供試体上端と下端をステンレス製のエンドピース(図8)で挟み、封圧媒体である水の浸入を防ぐために、熱収縮チューブを使用して供試体を被覆した(図9)。これを圧力容器のふたにセットした後(図10)、圧力容器に設置し(図11)、配管を接続することにより、供試体に封圧を加え、水を流し続けられる状態とした(図12)。供試体に流す水は、シリンジポンプを用いて流すこととし、供試体へ加える封圧は、手動ポンプで加えることとした。

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

本研究では、蒸留水10に15.9gの粘土を懸濁して、岩石供試体に流すこととした。これは、前年度で行った試験で用いた粘土の量(5.3g、土岐花崗岩内の巨視き裂を充填している粘土層の幅が1mm未満であったことから、岩石供試体の断面積(50mm×25mm)に厚さ1mmを加えることによって算出した体積に相当する量)の3倍である。この水を図13に示す容器に入れ、マグネチックスターラーで外部から攪拌しながら(図14)、岩石供試体に流すこととした。



図 8 飽和後の花崗岩とエンドピース



図 9 供試体を被覆している様子



図 10 圧力容器のふたにセットした供試体



図 11 圧力容器に供試体を入れる様子



図 12 圧力容器に配管をつないだ写真



図 13 粘土懸濁水貯留タンク  
(粘土を攪拌した蒸留水を入れる容器)

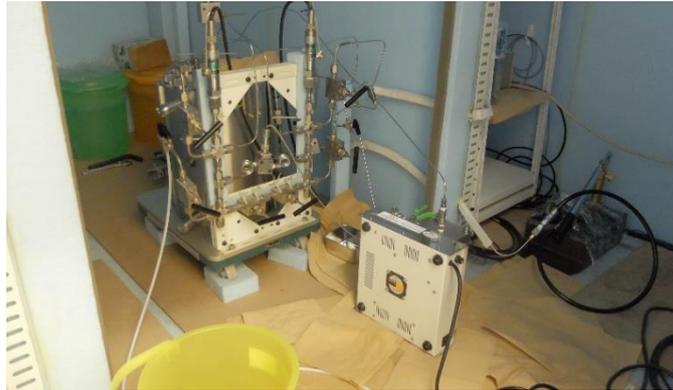


図 1 4 粘土懸濁水貯留タンクをマグネットスターラーで攪拌している様子

#### 4.2.5 試験結果

巨視き裂を含む花崗岩に粘土懸濁水を流す過程での差圧変化と恒温室内の温度変化の様子を図 1 5 に示す. この図より, 時間の経過とともに差圧が上昇していることがわかる. また, 粘土を懸濁した水を流す過程で評価された透水係数の値を図 1 6 にまとめる. この図より, 透水係数が時間の経過とともに低下していることが明確に示されている.

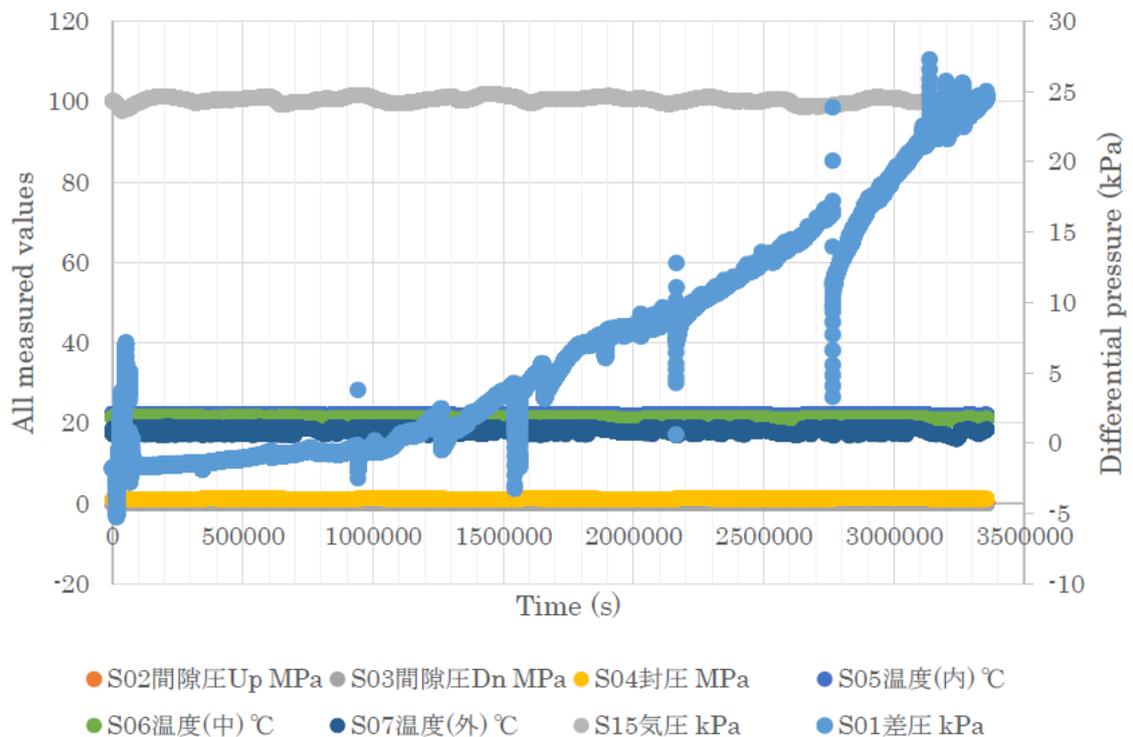


図 1 5 き裂を含む花崗岩に粘土懸濁水を流す過程での差圧と恒温室内の温度の変化

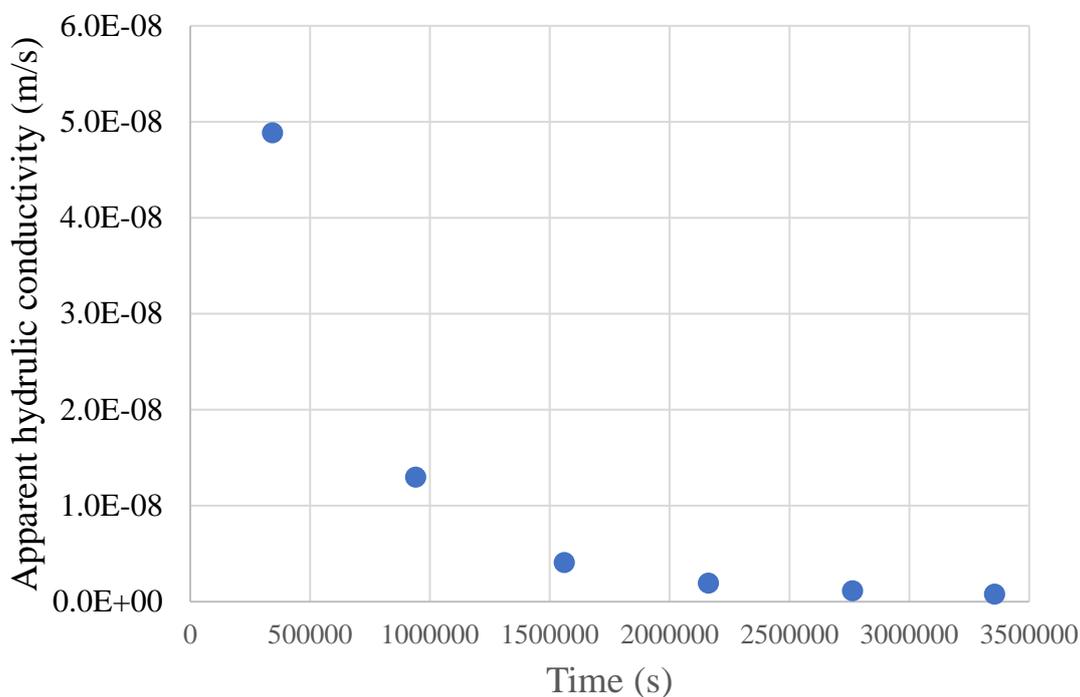


図 1 6 巨視き裂を含む花崗岩に粘土を懸濁した水を流す過程で評価された透水係数

#### 4.2.6 考察

本研究で得られた結果より、透水係数が時間の経過とともに徐々に低下している。このことから、き裂内部で粘土が集積し、その量が時間経過とともに増加することによって、き裂開口幅が低下して透水係数の低下が生じていることが示唆される。つまり、粘土を含む地下水の緩やかな流入により、き裂の閉塞が起こり、岩石の透水性が低下し、岩盤の遮蔽性向上につながるものと考えられることができる。

昨年度行われた試験（水 1 リットル当たり粘土を 5.3g 懸濁した条件での透水試験）では、1 週間（約 60,000 秒）経過後から 5 週間（約 3,000,000 秒）経過後の透水係数の低下は 50%程度だったのに対し、今回の試験（水 1 リットル当たり粘土を 15.9g 懸濁した条件での透水試験）では、1 週間（約 60,000 秒）経過後から 5 週間（約 3,000,000 秒）経過後では透水係数は 95%程度低下している。これは、流した粘土の量が今回の方が多きことに起因していると考えられる。つまり、粘土の流入量の多さが透水係数の大幅な低下につながっていると考えられる。

図17に、試験終了後にデジタルマイクロスコープを用いて、岩石供試体表面で観察されたき裂の写真を示す。この図より、き裂内部に粘土が充填されていることが明確に確認できる。したがって、粘土がき裂内に集積することによって、破壊した花崗岩の透水係数が低下すると結論づけることができる。



図17 花崗岩内の巨視き裂に集積した粘土

#### 4.2.7 結論

巨視き裂を含む土岐花崗岩を試料として用いて、粘土を懸濁した水を流す透水試験を行った。その結果、時間の経過とともに、透水係数が低下することが示された。さらに、粘土が集積し、巨視き裂を充填している様子が確認できた。ゆえに、き裂内部に粘土が集積することによってき裂の修復が生じ、花崗岩の透水係数が低下すると結論づけられる。

## 4.3 原位置試験による粘土がき裂を充填する過程での岩盤の透水係数測定

### 4.3.1 緒言

天然バリアとなる岩盤では、き裂や空隙のネットワークが流体の水みちとなるため、遮蔽性向上にはき裂の進展を防ぐと共に、き裂や空隙を閉塞させることが効果的である。

室内試験において、き裂が充填されることによって岩石の透水係数が低下することが明らかになっている。さらに、前述した通り、き裂が充填される過程において、透水係数が徐々に低下していくことが明らかになっている。

原位置岩盤においても、き裂が充填されている箇所が認められている。このことから、この効果を原位置岩盤において検証することは極めて重要であると言える。しかしながら、原位置岩盤において、粘土のき裂充填が透水性に及ぼす影響を調べた例はない。

そこで本章では、原位置においてき裂が充填されていく過程での透水係数の変化を評価することを目的とし、瑞浪超深地層研究所深度 300m 研究アクセス坑道にて行った測定結果について報告する。

### 4.3.2 測定方法

#### 4.3.2.1 測定サイト

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構は、花崗岩を対象として、放射性廃棄物地層処分の安全性を評価する際に重要な地下深部の岩盤構造や地下水の状態などの地層環境に関する研究を、岐阜県瑞浪市に位置する瑞浪超深地層研究所において進めている。本研究では、瑞浪超深地層研究所深度 300m 研究アクセス坑道内の主立坑から 60m 付近にて実験を行った。図 1 8 に超深地層研究所のレイアウトと実験の実施箇所を、図 1 9 に実験箇所付近の写真を示す。

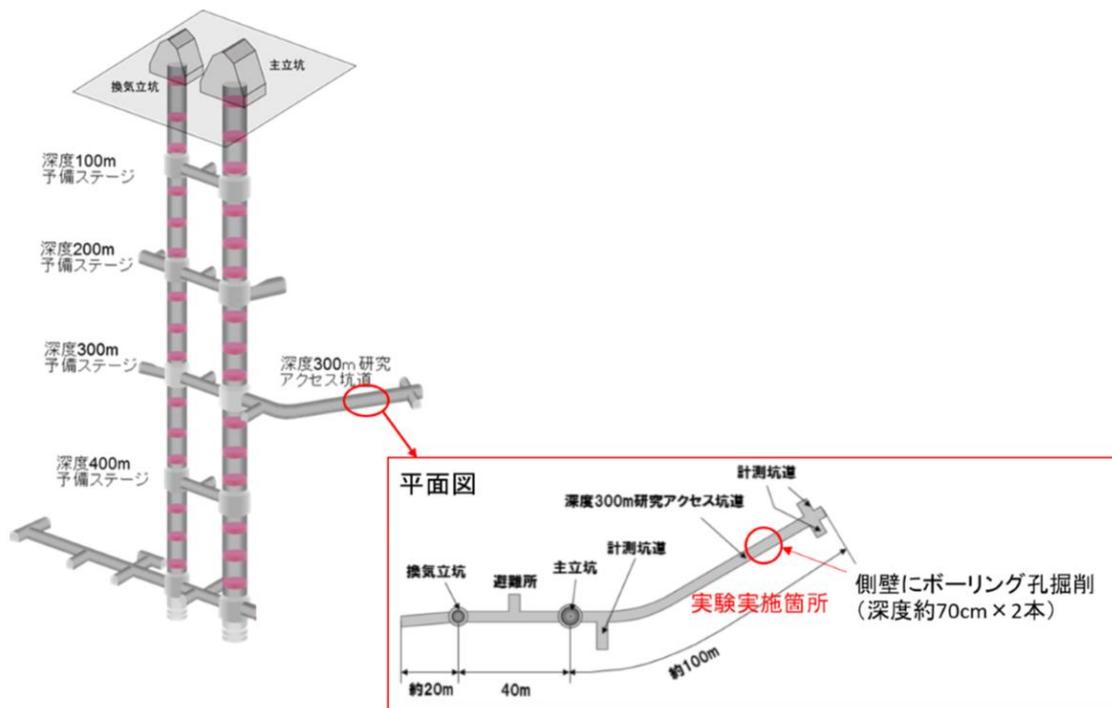


図 1 8 瑞浪超深地層研究所のレイアウトと実験実施箇所



図 1 9 実験実施箇所周辺

#### 4.3.2.2 測定器具の設置

コアドリルを用いて、坑道側壁に横向きのボーリング孔を掘削した。図20にボーリング孔の掘削のレイアウトを示す。また、図21にボーリング孔掘削時の様子、図22にボーリング孔掘削後の様子を示す。なお、ボーリング孔の直径は65mm、深さは700mmとし、上向きに2°程度の若干の傾斜をつけた。

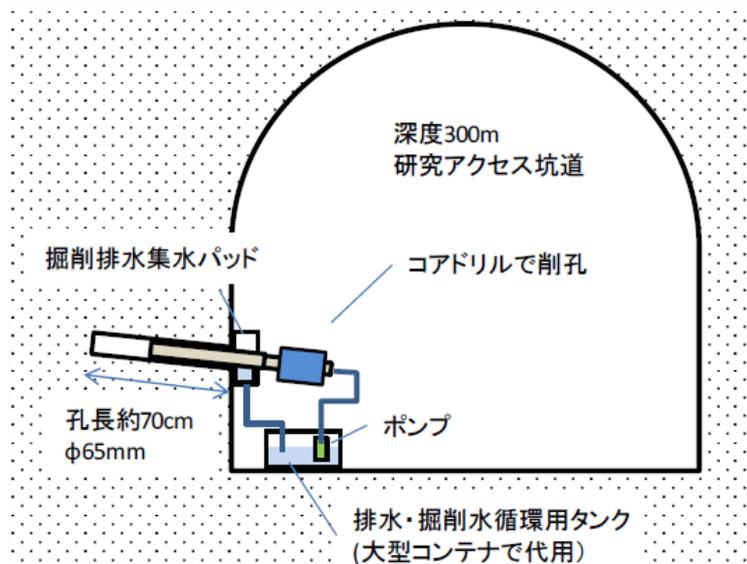


図20 ボーリング孔掘削のレイアウト



図21 ボーリング孔掘削時の様子



図22 掘削されたボーリング孔（試験前）

なお、本研究では、粘土がき裂を充填する場合の岩盤の透水性への影響を調べることを目的としているため、よりき裂が多いと思われる箇所で測定を行うことが望ましい。そこで、2か所で掘削を行い、き裂がより目立つ箇所で測定を行うこととした。2本のボーリング孔から得られたコア試料の写真を図23に示す。この図において、左側が孔壁付近、右側がボーリング孔の奥側を示す。この図の上側のコアにおいて、軸方向のき裂が認められた(図24参照)。そこで本研究では、上記のコアが得られたボーリング孔を試験孔として用い、透水試験による計測を行うこととした。



図23 ボーリング孔の掘削後に得られた岩石コアサンプル(直径60mm)



図24 岩石コアサンプルで認められた軸方向の巨視き裂(直径60mm)

ボーリング孔掘削後、注入・リターンラインを備えた水注入用装置を設置した。図25に設置した装置の写真を示す。き裂が浅い位置で認められたため、き裂が

ラバー製のパッカー（図25の黒色の部分）に閉鎖されないように、ラバー全長20cmに対して、実験孔に挿入したラバー長は15cmとした。パッカー拡張のための水圧は1MPa程度とした。この装置を試験孔に設置した時の様子を図26に示す。



図25 孔内に水を注入するための装置



図26 孔内に水を注入するための装置を設置した時の様子

試験では、定流量ポンプにて粘土懸濁水を実験孔へ注入し、その際の注入圧力の経時変化を記録する。計測機器の設置の様子を図27に示す。

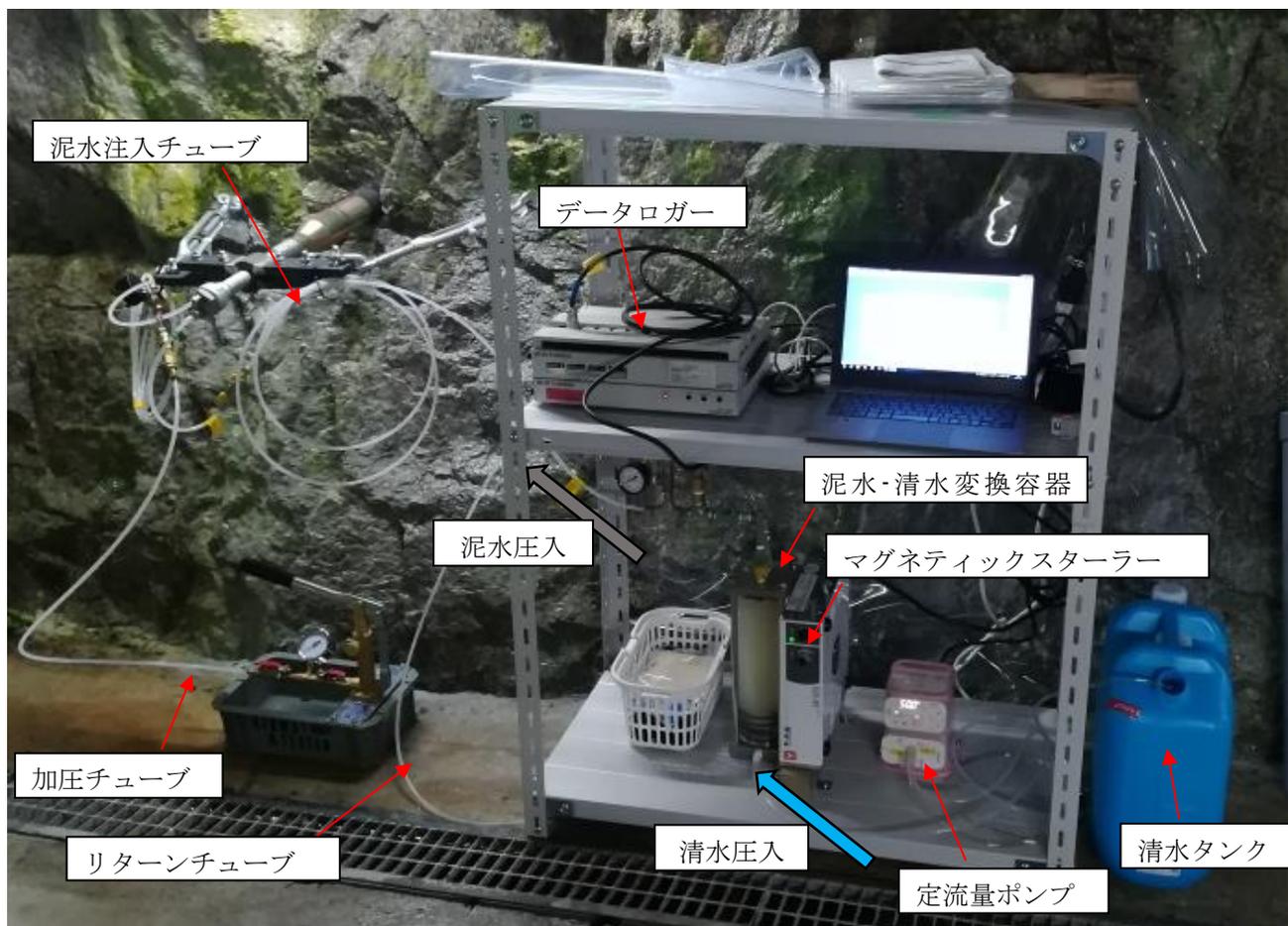


図27 計測機器を設置した時の様子

#### 4.3.3 試験結果

粘土を懸濁した水を用いて、原位置岩盤パルス試験法<sup>50, 51)</sup>による透水試験を5回行うことにより、原位置岩盤の透水係数の変化が得られるかどうかを調査する。なお、本研究では、蒸留水1リットルに、図3にある箇所採取した粘土を約5g懸濁させた。また、透水試験を行う前に、一定流量(0.1 ml/s)で2日間、粘土を懸濁した水を試験孔内に流し続けることにより、試験孔周辺を飽和させた。

図28に、複数回の原位置パルス透水試験で得られた粘土懸濁水の注入圧の経時変化を示す。この図では、1回目から5回目までの透水試験での水の注入圧

の変化が示されている。特に、注入圧の低下がどの程度早く生じるか（または緩やかに生じるか）が透水係数に対応する。この曲線を、Cooper et al.<sup>50</sup>が示している圧力減衰曲線と比較することによって、岩盤の透水係数を評価した。

また、図 2 9 に、注入圧を初期値で正規化した場合の結果を示す。この図より、試験を繰り返すごとに、時間経過に伴う注入圧の低下が緩やかになっていることがわかる。これは、透水係数の低下を示唆するものである。

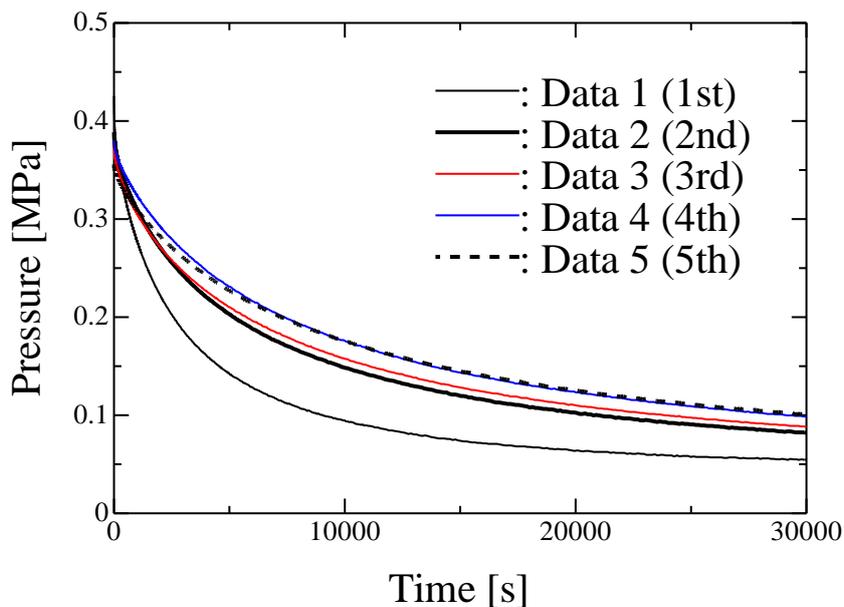


図 2 8 水注入圧の経時変化

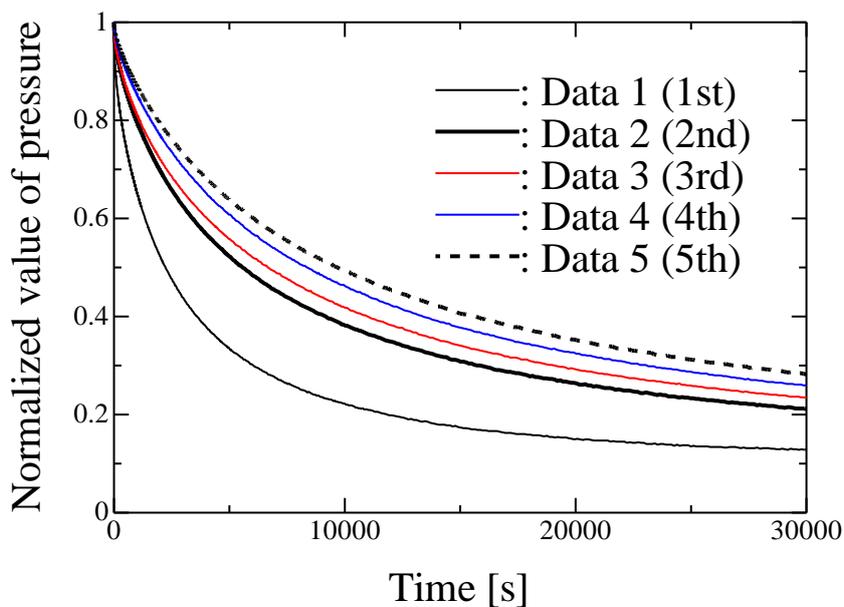


図 2 9 正規化した水注入圧の経時変化

図30に、原位置岩盤透水試験で得られた透水係数を、試験回数ごとに示す。この図より、試験回数が増加すると、透水係数が低下していることがわかる。これは、粘土が岩盤内のき裂を充填して、透水係数の低下をもたらしていることを示すものである。

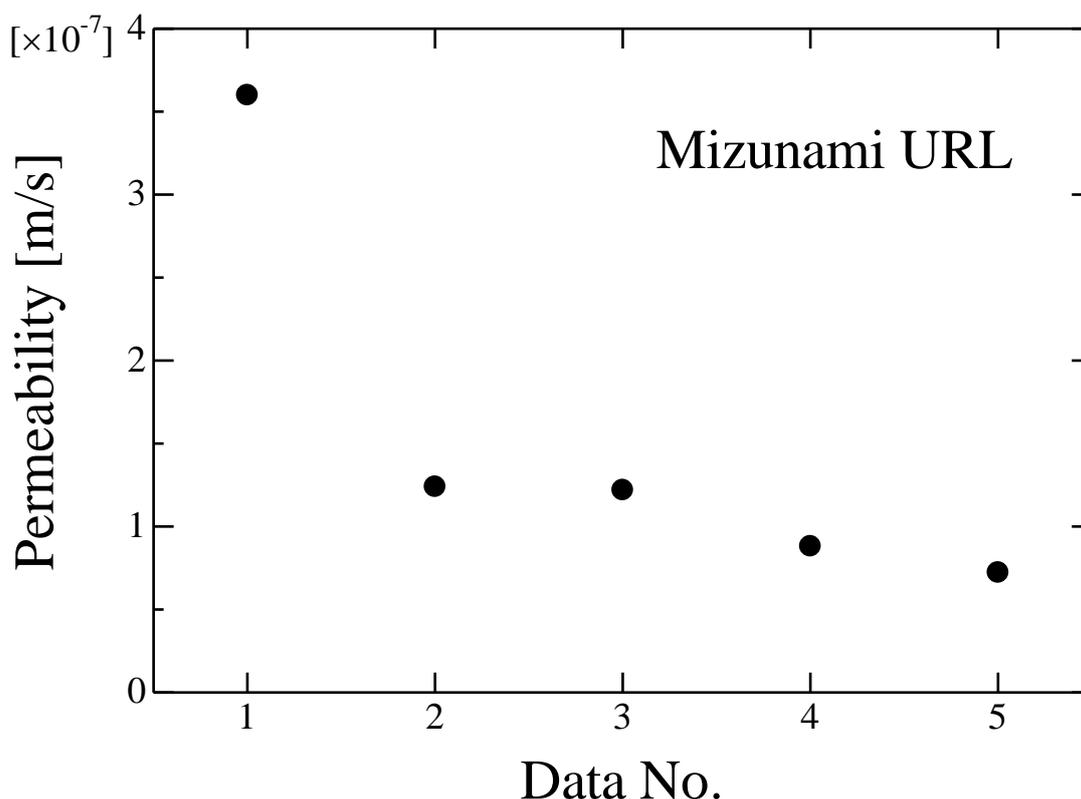


図30 瑞浪超深地層研究所での原位置透水試験で評価された透水係数

#### 4.3.4 考察

本研究の結果より、花崗岩質の原位置岩盤において粘土を懸濁した水を用いて複数回透水試験を行うと、試験を繰り返すごとに透水係数が低下するということが示された。岩盤では、き裂・空隙のネットワークが流路となる。そのため、き裂や空隙の閉塞が起これば透水性が低下することになる。

本研究の結果は、き裂や空隙の閉塞が生じていることを示唆するものである。そのため、試験孔の孔壁部を調べ、き裂や空隙が粘土で充填されている箇所があるかどうかを調べるのが重要であるといえる。そこで、試験装置を試験孔から

取り外した後（図3-1）、デジタルカメラで孔内の写真を撮影した。その写真を図3-2に示す。この図より、壁面に複数個所の白い筋が認められる。これらは本試験で水とともに流した粘土である。特に、赤の矢印で示している線状の箇所は、図2-3にあるボーリングコアで認められた巨視き裂と一致する部分である。つまり、この巨視き裂が流路となって粘土懸濁水が流れ、そこに粘土が集積してき裂を充填したということが考えられる。これにより、透水係数の低下が認められたと考えられる。



図3-1 原位置岩盤透水試験終了後の試験孔



図 3 2 粘土を懸濁した水を用いた原位置透水試験後の孔内の様子. 赤矢印の部分において粘土が巨視き裂を充填している様子が示されている.

#### 4.3.5 結論

瑞浪超深地層研究所の深度 300m 研究アクセス坑道にて、粘土を懸濁した水を用いて透水試験を行った。特に、原位置パルス透水試験を複数回行うことによって、粘土を懸濁した水が流れる場合に、花崗岩質岩盤の透水係数が変化するかどうかについて調査を行った。その結果、試験を重ねるごとに透水係数が低下していく様子が示された。また、試験後の試験孔内の写真撮影をした結果、巨視き裂に粘土が充填されている様子が確認できた。ゆえに、粘土がき裂を充填することによって、岩盤の透水係数の低下が生じると結論づけられる。

#### 4.4 今後の課題

本研究では、透水試験を行うことによって、粘土のような微細な鉱物の沈殿が結晶質岩（花崗岩）の透水係数にどのように影響するかを実験的に調べた。

透水特性に関しては、岩石・岩盤中に流す粘土の量についてより深い検討が必要であると考えている。特に、水に含まれる粘土の量をより少なくすることによって、粘土の沈殿がき裂閉塞を引き起こし、透水係数に変化が出るか否かを調べる必要があると考えている。さらに、原位置岩盤においてカルシウム化合物の析出によるき裂閉塞が認められていることから、これによる透水係数の変化を調べる必要があると考えている。また、鉱物の沈殿が生じる流速やき裂の開口幅についても検討が必要と考えている。

## 5. まとめ

本研究では、結晶質岩を用いて、粘土のような微細な鉱物を含む水が流れるときの遮蔽性の変化を、透水試験を用いて調べた。その結果、微細な鉱物粒子が沈殿しき裂が修復されることによって、岩盤の透水係数が低下し、遮蔽性能が保持・向上できることが示された。

従来の安全評価シナリオでは、き裂の修復による岩盤の透水性の変化（低下）に関することは考慮されていない。本研究の成果は、掘削影響領域での透水性が将来的に低下することを示唆するものであり、岩盤の透水性のより正確な将来予測のための情報を提供できるものであると考えられる。

## 参考文献

- 1) Y. Gueguen and J. Dienes, 1989. Transport properties of rocks from statistics and percolation. *Math. Geol.*, Vol. 21, pp. 1-13.
- 2) K. Masuda, 2001. Effects of water on rock strength in a brittle regime. *J. Struct. Geol.*, Vol. 23, pp. 1653-1657.
- 3) P. Baud, W. Zhu and T.-F. Wong, 2000. Failure mode and weakening effect of water on sandstone. *J. Geophys. Res.*, Vol. 105, pp. 16371-16389.
- 4) D. Li, L.N.Y. Wong, G. Liu and X. Zhang, 2012. Influence of water content and anisotropy on the strength and deformability of low porosity meta-sedimentary rocks under triaxial compression. *Eng. Geol.*, Vol. 126, pp. 46-66.
- 5) Y. Nara, H. Yamanaka, Y. Oe and K. Kaneko, 2013. Influence of temperature and water on subcritical crack growth parameters and long-term strength for igneous rocks. *Geophys. J. Int.*, Vol. 193, pp. 47-60.
- 6) Y. Nara, M. Tanaka and T. Harui, 2017. Evaluating long-term strength of rock under changing environments from air to water. *Eng. Fract. Mech.*, Vol. 178, pp. 201-211.
- 7) Y. Nara, K. Morimoto, N. Hiroyoshi, T. Yoneda, K. Kaneko and P.M. Benson, 2012. Influence of relative humidity on fracture toughness of rock: implications for subcritical crack growth. *Int. J. Solids Struct.*, Vol. 49, pp. 2471-2481.
- 8) M. Kataoka, Y. Obara and M. Kuruppu, 2015. Estimation of fracture toughness of anisotropic rocks by Semi-Circular Bend (SCB) tests under water vapor pressure. *Rock Mech. Rock Eng.*, Vol. 48, pp. 1353-1367.
- 9) J.B. Walsh, 1980. Effect of pore pressure and confining pressure on fracture permeability. *Int. J. Rock Mech. Min. Si. & Geomech. Abstr.*, Vol. 18, pp. 429-435.
- 10) P.A. Witherspoon, J.S.Y. Wang, K. Iwai and J.E. Gale, 1980. Validity of Cubic Law for fluid flow in a deformable rock fracture. *Water Resour. Res.*, Vol. 16, pp. 1016-1024.
- 11) K.G. Raven and J.E. Gale, 1985. Water flow in a natural rock fracture as a function of stress and sample size. *Int. J. Rock Mech. Min. Sci. & Geomech. Abstr.*, Vol. 22, pp. 251-261.
- 12) A.J.A. Unger and C.W. Mase, 1993. Numerical study of the hydrochemical behavior of two rough fracture surfaces in contact. *Water Resour. Res.*, Vol. 29, pp. 2101-2114.
- 13) B. Amadei and T. Illangasekare, 1994. A mathematical model for flow and solute transport in non-homogeneous rock fractures. *Int. J. Rock Mech. Min. Sci. & Geomech. Abstr.*, Vol. 31, pp. 719-731.
- 14) C. David, 1993. Geometry of flow paths for fluid transport in rocks. *J. Geophys. Res.*,

Vol. 98, pp. 12267-12278.

- 15) Y. Nara, P.G. Meredith, T. Yoneda and K. Kaneko, 2011. Influence of macro-fractures and micro-fractures on permeability and elastic wave velocities in basalt at elevated pressure. *Tectonophysics*, Vol. 503, pp. 52-59.
- 16) G. Wang, T.M. Mitchell, P. Meredith, Y. Nara and Z. Wu, 2016. Influence of gouge thickness on permeability of macro-fractured basalt. *J. Geophys. Res. Solid Earth*, Vol. 121, pp. 8472-8487.
- 17) 吉田英一, 2012. 地層処分—脱原発後に残される科学課題—. 近未来社.
- 18) M. Ishibashi, H. Yoshida, E. Sasao and T. Yaguchi, 2016. Long term behavior of hydrogeological structures associated with faulting: An example from the deep crystalline rock in the Mizunami URL, Central Japan. *Eng. Geol.*, Vol. 208, pp. 114-127.
- 19) A. Nakao, Y. Nara, K. Kashiwaya, T. Ishida and H. Ogawa, 2014. Observation of mineral precipitation on rock surface. *Proc. 8th Asian Rock Mechanics Symposium*, pp. 303-309, Sapporo, Japan, Oct. 14-16, 2014.
- 20) Y. Nara, R. Kuwatani, M. Kohno, Y. Hamada, M. Kato, Tsutomu Sato and Toshinori Sato, 2016. Precipitation of calcium compound on silicate rock surfaces. *Proc. 2016 Korea-Japan Joint Symposium on Rock Engineering*, pp. 34-37, Daejeon, Korea, May 19-20, 2016.
- 21) Y. Nara, T. Harui and K. Kashiwaya, 2018. Influence of calcium ions on subcritical crack growth in granite in water. *Int. J. Rock Mech. Min. Sci.*, Vol. 102, pp. 71-77.
- 22) P. Perez-Flores, G. Wang, T. M. Mitchell, P. G. Meredith, Y. Nara, V. Sakar and J. Cembrano, 2017. The effect of offset on fracture permeability of rocks from the Andean Southern Volcanic Zone, Chile, *J. Struct. Geol.*, Vol. 104, pp. 142-158.
- 23) E.S. Sprunt and A. Nur, 1976. Reduction of porosity by pressure solution: Experimental verification. *Geology*, Vol. 4, pp. 463-466.
- 24) E.S. Sprunt and A. Nur, 1977. Experimental study of the effects of stress on solution rate. *J. Geophys. Res.*, Vol. 82, pp. 3013-3022.
- 25) A. Polak, D. Elsworth, H. Yasuhara, A.S. Grader and P.M. Halleck, 2003. Permeability reduction of a natural fracture under net dissolution by hydrothermal fluids. *Geophys. Res. Lett.*, Vol. 30, No. 20, 2003, doi: 10.1029/2003GL017575.
- 26) A. Polak, D. Elsworth, J. Liu and A.S. Grader, 2004. Spontaneous switching of permeability changes in a limestone fracture with net dissolution. *Water Resour. Res.*, Vol. 40, W03502, doi: 10.1029/2003WR002717.
- 27) H. Yasuhara, D. Elsworth and A. Polak, 2003. A mechanistic model for compaction of granular aggregates moderated by pressure solution. *J. Geophys. Res.*, Vol. 108,

- No. B11, 2530, doi: 10.1029/2003JB002536.
- 28) H. Yasuhara and d. Elsworth, 2004. Evolution of permeability in a natural fracture: Significant role of pressure solution. *J. Geophys. Res.*, Vol. 109, B03204, doi: 10.1029/2003JB002663.
- 29) 安原英明, 緒方奨, 木下尚樹, 岸田潔, 2015. 圧力溶解現象を考慮した数値解析モデルによる岩盤の長期透水特性評価. *土木学会論文集 C*, Vol. 71, pp. 292-300.
- 30) H. Yasuhara, N. Kinoshita, H. Ohfuji, M. Takahashi, K. Ito and K. Kishida, 2015. Long-term observation of permeability in sedimentary rocks under high-temperature and stress conditions and its interpretation mediated by microstructural investigations. *Water Resour. Res.*, Vol. 51, pp. 5425-5449.
- 31) H. Yasuhara, N. Kinoshita, S. Ogata, D.S. Cheon and K. Kishida, 2016. Coupled thermo-hydro-mechanical-chemical modeling by incorporating pressure solution for estimating the evolution of rock permeability. *Int. J. Rock Mech. Min. Sci.*, Vol. 86, pp. 104-114.
- 32) Y. Nara, M. Kato, R. Niri, M. Kohno, T. Sato, D. Fukuda, T. Sato and M. Takahashi, 2018. Permeability of granite including macro-fracture naturally filled with fine-grained minerals. *Pure Appl. Geophys.*, Vol. 175, pp. 917-927.
- 33) J.B. Walsh, 1980. Effect of pore pressure and confining pressure on fracture permeability. *Int. J. Rock Mech. Min. Sci. & Geomech. Abstr.*, Vol. 18, pp. 429-435.
- 34) P.A. Witherspoon, J.S.Y. Wang, K. Iwai and J.E. Gale, 1980. Validity of Cubic Law for fluid flow in a deformable rock fracture. *Water Resour. Res.*, Vol. 16, pp. 1016-1024.
- 35) K.G. Raven and J.E. Gale, 1985. Water flow in a natural rock fracture as a function of stress and sample size. *Int. J. Rock Mech. Min. Sci.*, Vol. 22, pp. 251-261.
- 36) A.J.A. Unger and C.W. Mase, 1993. Numerical study of the hydrochemical behavior of two rough fracture surfaces in contact. *Water Resour. Res.*, Vol. 29, pp. 2101-2114.
- 37) B. Amadei and T. Illangasekare, 1994. A mathematical model for flow and solute transport in non-homogeneous rock fractures. *Int. J. Rock Mech. Min. Si. & Geomech. Abstr.*, Vol. 31, pp. 719-731.
- 38) C. David, 1993. Geometry of flow paths for fluid transport in rocks. *J. Geophys. Res.*, Vol. 98, pp. 12267-12278.
- 39) H.W. Olsen, 1966. Darcy's law in saturated kaolinite. *Water Resour. Res.*, Vol. 2, pp. 287-295.
- 40) R.H. Morin and H.W. Olsen, 1987. Theoretical analysis of the transient pressure response from a constant flow rate hydraulic conductivity test. *Water Resour. Res.*,

Vol. 23, pp. 1461-1470.

- 41) K. Terzaghi, 1925. *Erdbaumechanik auf bodenphysikalischer Grundlage*, (Franz Deuticke, Leipzig und Wien, 1925), 399p.
- 42) K. Terzaghi, 1930. Sickerverluste aus kanalen. *Die Wasserwirtschaft*, Vol.23, No.18/19, pp.318-330.
- 43) G. Gilboy, 1931. Soil mechanics research. *Proceedings of the American Society of Civil Engineers*, Vol. 57, No. 8, pp. 1165-1188.
- 44) 加藤昌治, 奈良禎太, 岡崎勇樹, 河野勝宣, 佐藤稔紀, 佐藤努, 高橋学, 2018. 粘土の透水係数測定へのトランジェントパルス法の適用. *材料*, Vol. 67, pp. 318-323.
- 45) W.F. Brace, J.B. Walsh and W.T. Frangos, 1968. Permeability of granite under high pressure. *J. Geophys. Res.*, Vol. 73, pp. 2225-2236.
- 46) P.A. Hsieh, J.V. Tracy, C.E. Neuzil, J.D. Bredehoeft and S.E. Sillman, 1981. A transient laboratory method for determining the hydraulic properties of 'tight' rocks - I. theory. *Int. J. Rock Mech. Min. Sci. & Geomech. Abstr.*, Vol. 18, pp. 245-252.
- 47) 加藤昌治, 高橋学, 金子勝比古, 2013. トランジェントパルス法を用いた低透水性岩石の水理定数の高精度評価. *Journal of MMIJ*, Vol. 129, pp. 472-478.
- 48) 加藤昌治, 高橋学, 金子勝比古, 2013. 多孔質材料の水理定数評価のための室内透水試験法の理論. *Journal of MMIJ*, Vol. 129, pp. 409-417.
- 49) 加藤昌治, 奈良禎太, 福田大祐, 河野勝宣, 佐藤稔紀, 佐藤努, 高橋学, 2016. 岩石の透水試験における環境温度の制御の重要性. *材料*, Vol. 65, pp. 489-495.
- 50) H.H. Cooper, J.D. Bredehoeft and I.S. Papadopoulos, 1967. Response of a finite-diameter well to an instantaneous charge of water. *Water Resour. Res.*, Vol. 3, pp. 263-269.
- 51) S.S. Papadopoulos, J.D. Bredehoeft and H.H. Cooper, 1973. On the analysis of 'Slug Test' Data. *Water Resour. Res.*, Vol. 9, pp. 1087-1089.

## 平成 29 年度 外部発表

### 【学術論文】

1. Y. Nara, T. Harui and K. Kashiwaya (2018): Influence of calcium ions on subcritical crack growth in granite in water, *Int. J. Rock Mech. Min. Sci.*, Vol.102, pp.71-77.
2. Y. Nara, M. Kato, R. Niri, M. Kohno, T. Sato, D. Fukuda, T. Sato and M. Takahashi (2018): Permeability of granite including macro-fracture naturally filled with fine-grained minerals, *Pure Appl. Geophys.*, Vol.175, pp.917-927.
3. 加藤昌治, 奈良禎太, 岡崎勇樹, 河野勝宣, 佐藤稔紀, 佐藤努, 高橋学 (2018): 粘土の透水係数測定へのトランジェントパルス法の適用, *材料*, Vol.67, pp.318-323.
4. 奈良禎太, 桑谷隆太, 河野勝宣, 佐藤稔紀 (2018): カルシウムイオン濃度が異なる水中に保存した岩石での鉱物析出, *材料*, 掲載決定.

### 【口頭発表】

1. 奈良禎太, 春井友貴 (2017): 花崗岩のサブクリティカルき裂進展に及ぼすカルシウムイオン濃度の影響, 日本材料学会第 66 期学術講演会, 2017 年 5 月 27 日.
2. 加藤昌治, 奈良禎太, 岡崎勇樹, 河野勝宣, 佐藤稔紀, 佐藤努, 福田大祐, 高橋学 (2017): 充填鉱物を有する花崗岩のき裂の水理開口幅の評価, 日本材料学会第 66 期学術講演会, 2017 年 5 月 27 日.
3. 奈良禎太, 加藤昌治, 岡崎勇樹, 河野勝宣, 福田大祐, 佐藤努, 佐藤稔紀, 高橋学 (2017): 粘土を含む水が流れる環境下での破壊した花崗岩における透水性の変化, *資源・素材&Earth 2017* (札幌), 2017 年 9 月 28 日.

## 研究報告 3

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

(処分施設の建設～操業～閉鎖～)

福島工業高等専門学校 建設環境工学科

金澤 伸一



## 1. 背景<sup>1)2)</sup>

これまで我が国では、他国に依存しないエネルギー保有の観点から原子力発電が重要視されてきた。原子力発電では放射性廃棄物の生成が避けられず、その放射性廃棄物の処分方法として地中に埋設して処分する放射性廃棄物地層処分が検討されていたが、2011年3月11日の東日本大震災を受けて、放射性廃棄物の処分方法の安全性の確立が急務となっている。

現在、地層処分施設の長期予測解析において、人工バリア（以下、ベントナイト緩衝材）の再冠水時の不飽和状態での膨潤挙動と、その後の飽和時の圧密などの挙動は別々に検討され、連続的に解いたものは著者の知る限り見当たらない。さらに、天然バリア（以下、岩盤）とベントナイト緩衝材の相互関係の力学挙動を解いたものも見当たらない。しかしながら近年では、個々の事象の予測技術が開発・高度化され、岩盤を含めた処分施設の建設から超長期にわたる挙動を連続的に解析できるところまできている。しかし、いかなる手法をもってしても、10数万年に及ぶ超長期の予測に絶対的な信頼は置けない。

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

## 2. 目的

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

から、ベントナイト緩衝材もそれに準ずる高温下に晒されることとなる。しかしながら、温度の影響を考慮したベントナイトの力学特性に関する実験はこれまであまり行われていないのが現状である。

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

### 3. 全体研究計画（4 ヶ年における全体計画）

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

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

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

#### (2) 解析シミュレータの開発・高度化

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

#### (3) 地層処分施設の長期挙動の解析条件の整備

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

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

#### (1) 圧密試験機、一軸試験機を用いた室内実験の実施

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

#### (2) 解析シミュレータの開発・高度化

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

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

#### (1) 解析シミュレータの開発・高度化

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

#### (2) 地層処分施設の長期挙動解析の実施

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

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

#### (1) 処分施設の建設～操業～閉鎖～までの解析

TRU 処分施設と高レベル放射性廃棄物処分施設における再冠水における廃棄体から発せられる温度、および再冠水に伴う飽和度変化を考慮したベントナイトの一軸圧縮試験、温度変化を考慮した膨潤量試験、沿岸部よりの地下水である幌延地下水を用いた膨潤量試験を行うことで、ベントナイト緩衝材の基本特性の把握を行う。その後、長期挙動解析を行うことでベントナイト緩衝材に対し、力学的相互作用に与える影響を検討する。また、本研究で整備した解析手法の適用性、実用性を評価・検討し最終年度の締めくくりとする。

## 4 平成 28 年度研究実施内容

### 4.1 平成 28 年度の計画、実施方法

本年度は、昨年度の実験結果を踏まえ、熱の影響によって高温にさらされる可能性のある処分ピット内では、ベントナイトの膨潤が期待され安全側に向かう可能性があると考えられる。しかしながら一方で、温度が上昇するとベントナイトの強度低下、さらには弾性係数の低下が懸念される。つまり施工の初期条件設定が非常に重要であると示唆される結果となったことから、高レベル放射性廃棄物の地層処分における人工バリアとその周辺岩盤を含むニアフィールド環境では、ガラス固化体に含まれる核種の崩壊熱やベントナイト緩衝材内への地下水侵入などの現象が相互に影響し合う熱-水-応力の連成プロセスが進行すると考えられる。そこで、温度変化によるベントナイトの力学を精緻かつ、より詳細に把握する必要がある。

(1) 一軸試験機を用いた室内実験の実施

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

(2) 解析シミュレータの開発・高度化

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

## 4.2 平成 28 年度の成果内容

### 4.2.1 温度変化を考慮した強度試験の実施

#### (1) 温度と飽和度の変化によるベントナイトの強度変化

昨年度の実験結果に引き続き、温度の影響による強度試験を行った。

図 - 1～図 - 5 までは、温度と飽和度の変化によるベントナイトの強度変化を示した図である。この結果より、温度が上昇するにしたがって徐々に強度が低下する傾向がみてとれる。また、飽和度が上がるにしたがって、強度分布が山なりを示すような結果となった。つまり、ベントナイトも土の締固め曲線のような力学挙動を示す結果となった。しかしながら一方で、実際の処分施設内にて、高温にさらされるベントナイトの強度低下を示す結果ともなった。

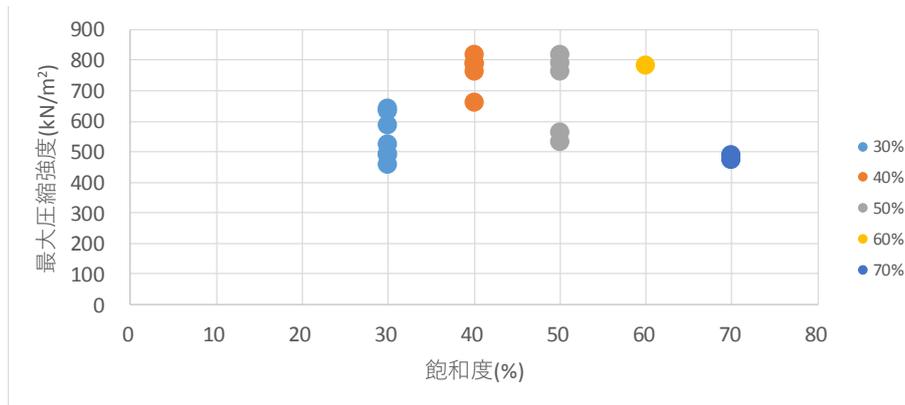


図 -1 温度・飽和度変化による強度分布(30 度)

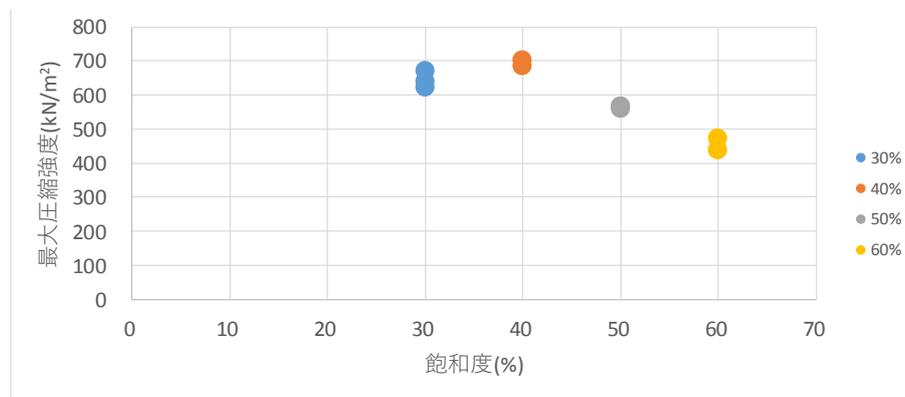


図 -2 温度・飽和度変化による強度分布(40 度)

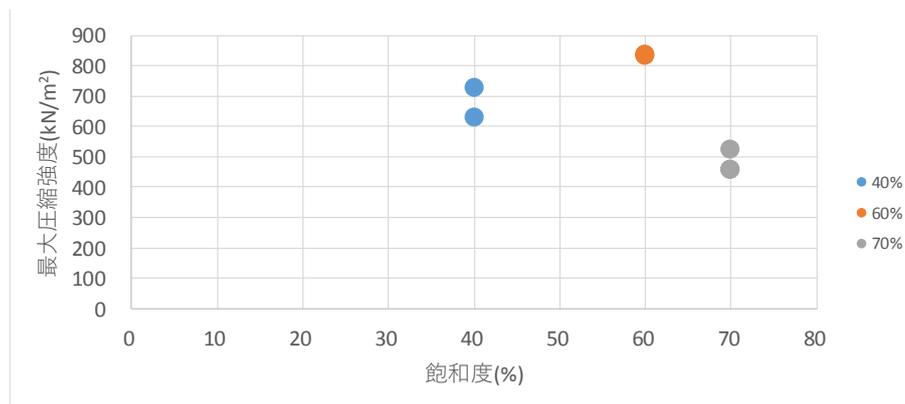


図 -3 温度・飽和度変化による強度分布(50 度)

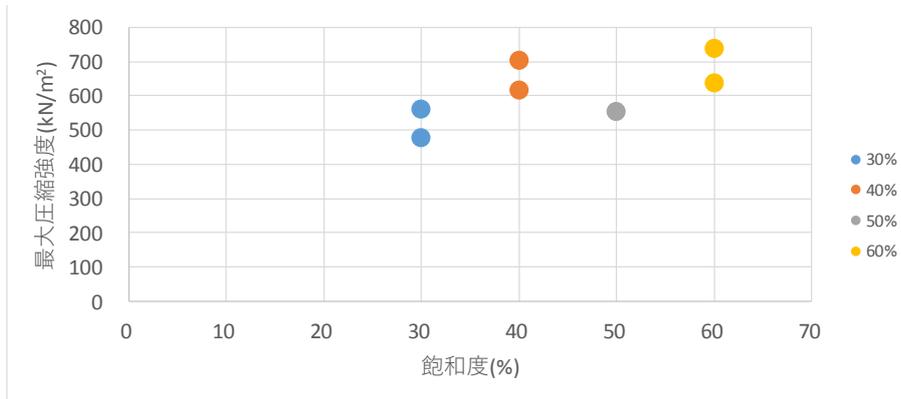


図 -4 温度・飽和度変化による強度分布(60 度)

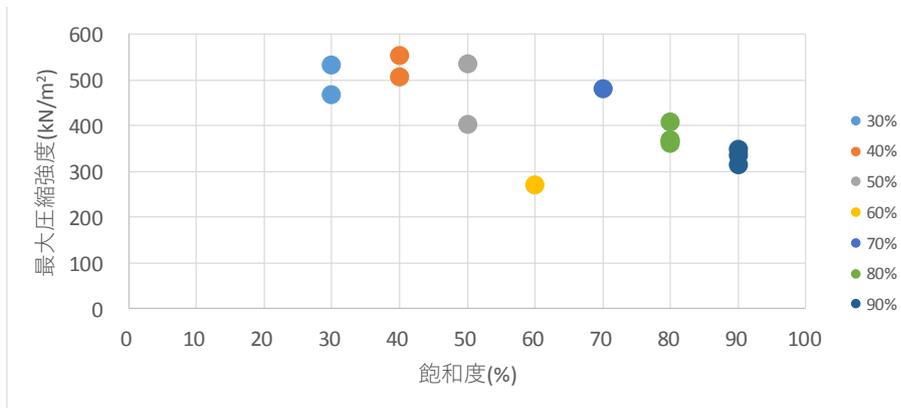


図 -5 温度・飽和度変化による強度分布(70 度)

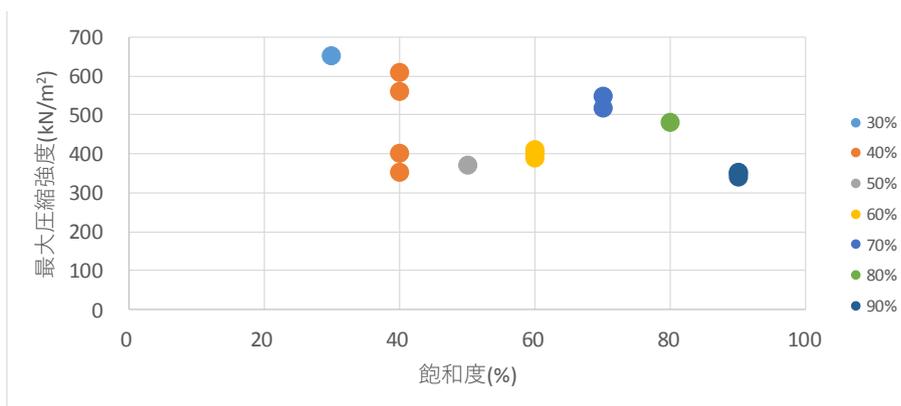


図 -6 温度・飽和度変化による強度分布(80 度)

## (2) 温度変化による飽和度と変形係数の関係

図 - 7～図 - 12 までは、温度変化による飽和度と変形係数の関係を示した図である。この結果より、温度が上昇するにしたがって徐々に変形係数が低下する傾向がみてとれる。また、飽和度が上がるにしたがって、変形係数が山なりを示すような結果となった。この結果からも、ベントナイトは飽和度によってピークを

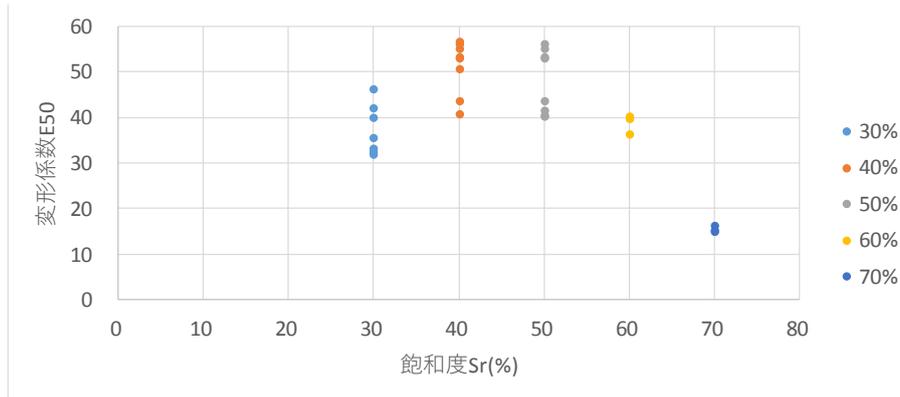


図 - 7 飽和度・変形係数の関係(30 度)

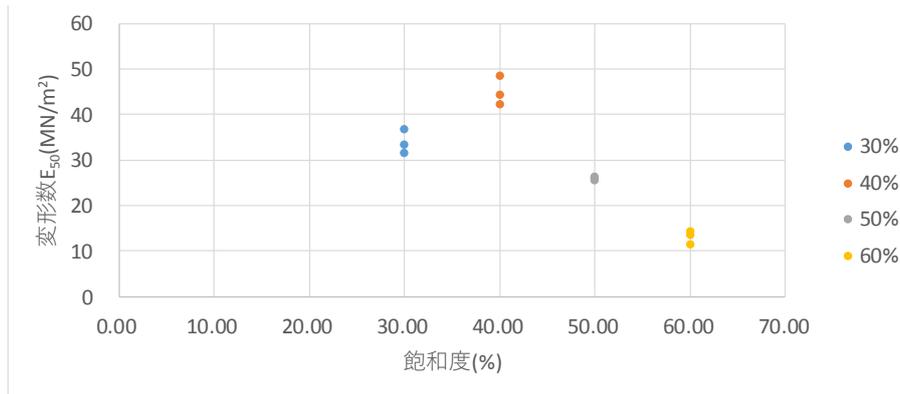


図 - 8 飽和度・変形係数の関係(40 度)

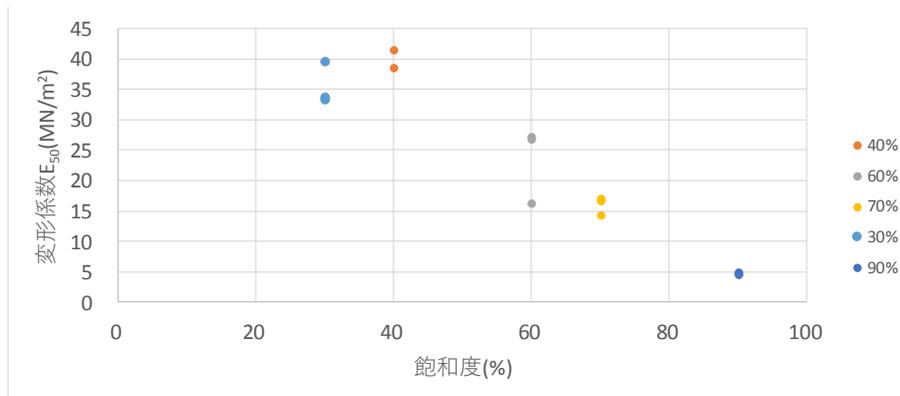


図 - 9 飽和度・変形係数の関係(50 度)

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

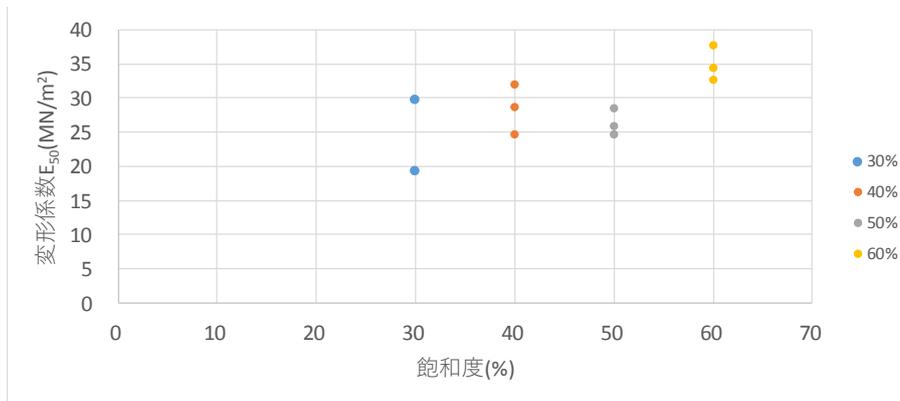


図 - 10 飽和度・変形係数の関係(60 度)

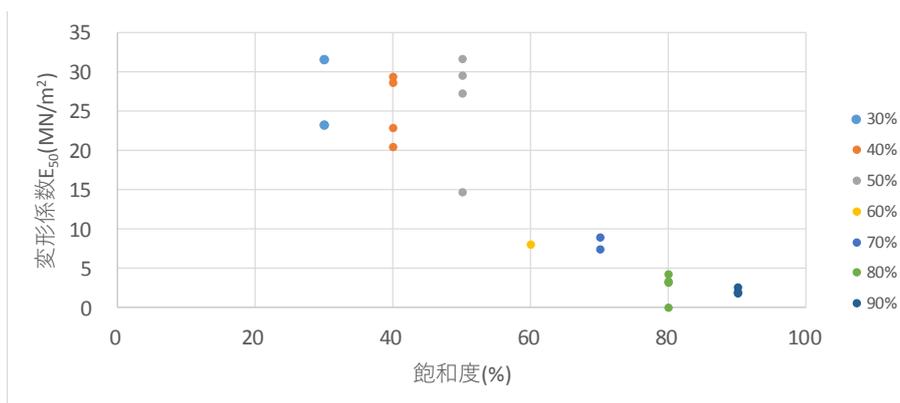


図 - 11 飽和度・変形係数の関係(70 度)

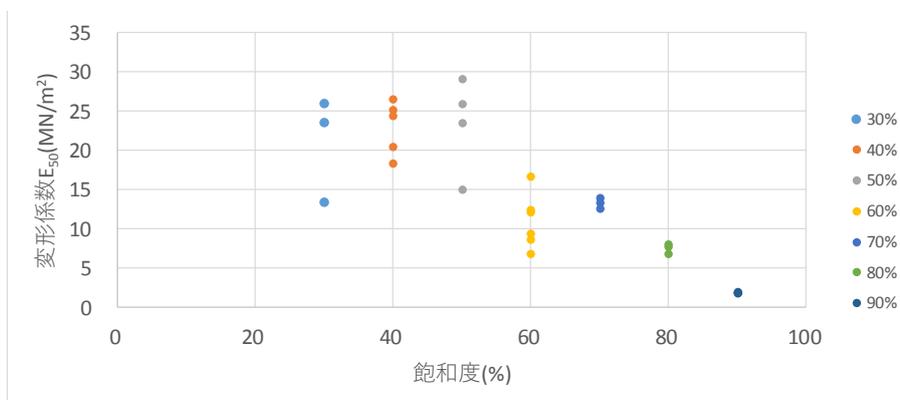


図 - 12 飽和度・変形係数の関係(80 度)

#### 4.2.2 解析シミュレータの開発・高度化

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

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

##### (1) 解析条件

検討に用いた解析プログラムは、土／水／空気連成有限解析コード DACSAR-MP<sup>21)</sup> である。また緩衝材と埋戻し材を不飽和土として捉え、緩衝材を構成するベントナイトの膨潤性を表現できる高山ら<sup>22)</sup> が提案した構成モデルをもとに空気溶存を考慮したものを使用した。図-13 に示すような解析モデルは第二次取りまとめの処分孔縦置き方式軟岩系岩盤の断面とする。解析は処分坑道を閉塞した時を初期状態とし、坑道および処分孔周囲からの地下水浸入は徐々に水頭が上昇して一定期間で最終的に水頭が300m になるように設定した。再冠水完了までの期間をパラメータとして1年から100年で設定し、解析の対象期間は1000年とした。解析に用いた主な物性値を表-1<sup>19)</sup> に示す。

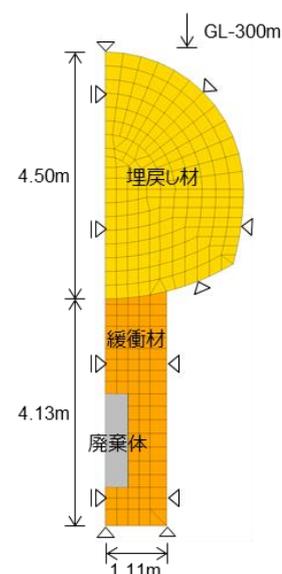


図-13 メッシュ図・境界条件

表-1 材料パラメータ

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

##### (2) 解析結果

飽和度分布の経時変化を図-14,15, 着目点の飽和度の経時変化を図-16 に示す。

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

再冠水時、地下水の浸潤が最も遅い廃棄体上部の緩衝材について、再冠水完了期間による挙動の違いを図-17 に示す。着目点の緩衝材の飽和度はすべて 0.95 以上となっているが、再冠水期間が 50 年より短いものは完全飽和に至らないまま一定になっている。これは外周部の緩衝材が難透水層となり水の供給が減少した影響と考える。早期に再冠水しても廃棄体周りの緩衝材が飽和するまでには 10 年程度かかることが分かる。

廃棄体近傍の最も飽和が遅い緩衝材について透水係数の違いによる飽和度の変化の比較を図-18 に示す。透水係数が  $1.0 \times 10^{-12} \text{m/s}$ 、 $1.0 \times 10^{-11} \text{m/s}$  では再冠水期間完了を待たずに飽和しているが、透水係数が  $1.0 \times 10^{-13} \text{m/s}$  では再冠水完了期間を過ぎても飽和に至っていない。

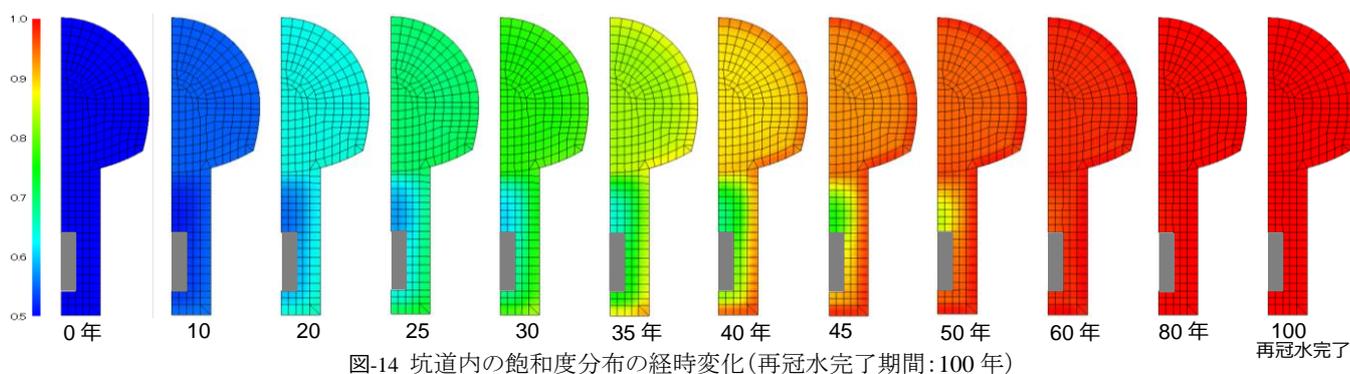


図-14 坑道内の飽和度分布の経時変化(再冠水完了期間:100年)

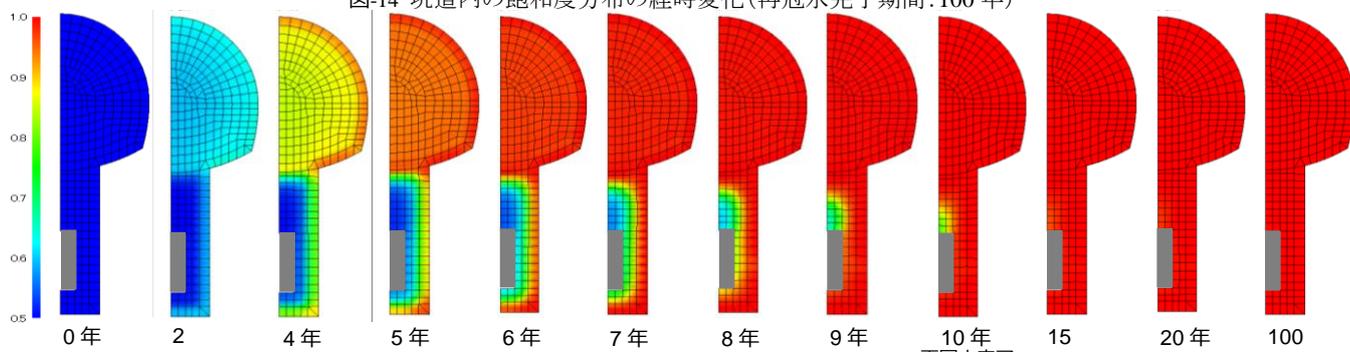


図-15 坑道内の飽和度分布の経時変化(再冠水完了期間:10)

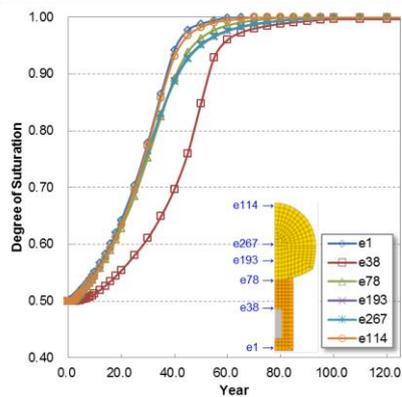


図-16 着目点における飽和度の経時変化 (再冠水完了期間:100年)

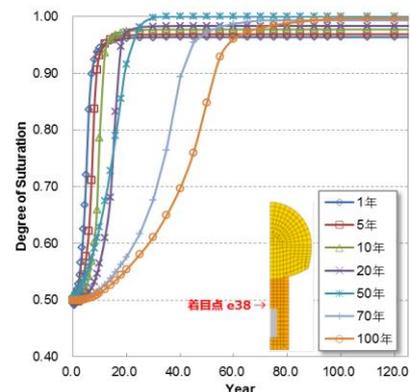


図-17 再冠水完了期間による飽和度の経時変化の比較

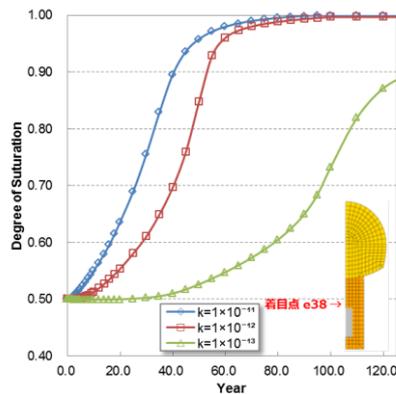


図-18 緩衝材の透水係数による飽和度の経時変化の比較(再冠水完了期間:100)

## 5 平成 29 年度研究実施内容

### 5.1 平成 29 年度の計画, 実施方法

本年度は、廃棄体から発せられる温度、および再冠水に伴う飽和度変化を考慮したベントナイトの一軸圧縮試験、温度変化を考慮した膨潤量試験を行うことで、地下水の水質、不飽和から飽和に移行する過程で生じる緩衝材内部の応力状態の変化など、熱、応力、水、化学、力学的特性の影響を考慮することが可能となると考える。

#### (1) 一軸試験機を用いた室内実験の実施

さまざまな温度、飽和度、密度変化による吸水過程でのベントナイト膨潤特性および、一軸強度を計測する。

#### (2) 解析シミュレータの開発・高度化

熱移動に関するエネルギー方程式を連成させることで、熱の影響を評価できるように拡張するため、解析コードに組み込み、温度変化がベントナイト緩衝材に与える影響を検討する。

### 5.1.1 温度・飽和度・密度変化を考慮した一軸圧縮試験

本試験では、ベントナイト緩衝材の温度・飽和度変化を考慮した力学特性を把握するため、円柱供試体の温度・飽和度の各パラメータの組み合わせに変化を与えて一軸圧縮試験を行った。温度は 30°C~90°C(10°C刻み)、飽和度は 30%~90%(10%刻み)で変化を与えた。温度、飽和度を変化させた一軸圧縮試験(乾燥密度  $\rho_d=1.6\text{Mg}/\text{m}^3$  一定)の試験結果を以下に示す。

### 5.1.2 飽和度を変化させた試験結果 ( $\rho_d=1.6\text{Mg}/\text{m}^3$ 一定)

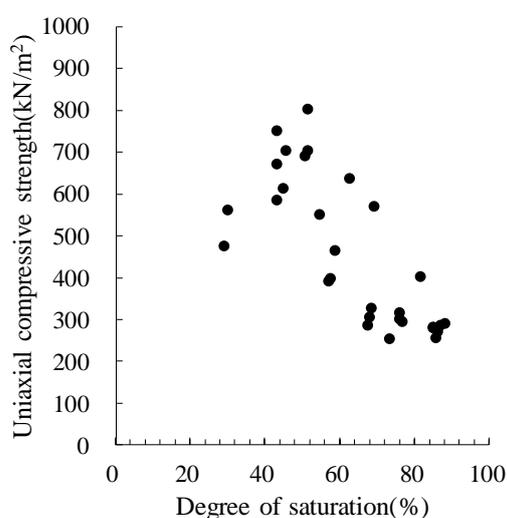


図-19 飽和度－強度関係(60°C)

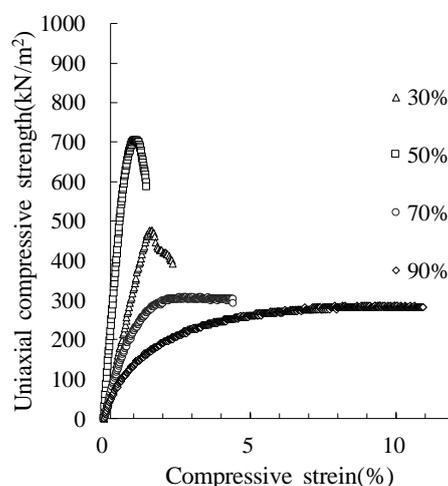


図-20 各飽和度における破壊形態

図-19 より、初期飽和度が上昇するにつれ、最大圧縮強度が上昇し、飽和度 40%~50%でピーク強度を迎え、その後、飽和度の上昇に伴い徐々に強度が減少していく傾向があることがわかる。温度を 10°C刻みで 90°Cまで変化させて行った他の試験においても、同様の傾向がみられた。これは、供試体中の飽和度変化に伴うサクシオン応力の変化によるものだと考えられる。つまり、飽和度 40%~50%においてピーク強度が発現した原因として、飽和度 40%~50%におけるサクシオン応力が最も大きかったためであると考えられる。また、加藤ら<sup>1)</sup>が行ったシルト質供試体を用いたサクシオン及び供試体体積変化を測定した一軸圧縮試験では、サクシオン増加に伴う粘着力増分(せん断強度の増加)を一軸圧縮試験に基づき推定する方法が検討されている。これによると、破壊時におけるサクシオンの増加に対して一軸圧縮強度が増加する傾向があることが示されている。一軸圧縮試験のように拘束圧がない場合には、サクシオン応力が拘束圧として作用している可能性が考えられるため、一軸圧縮強度には破壊時のサクシオン、

飽和度が影響を与えていると示唆される。

これらのことから、ベントナイト緩衝材の力学特性における飽和度とサクシオンには密接な関係があり、ピーク強度後の飽和度の上昇に伴う圧縮強度の減少は、飽和度の上昇に伴うサクシオン減少に起因すると考えられる。さらに、図-20より、ベントナイト供試体の破壊形態は、飽和度50%以下においては、圧縮ひずみが小さく、急激に破壊する脆性破壊を呈し、飽和度70%以上では、圧縮ひずみが大きくなり、破壊までに大きな塑性変形を伴う延性破壊を呈していることがみて取れる。また、飽和度が高くなるにつれて、ピーク強度後の強度減少が小さくなっていることがわかる。飽和度の上昇に伴い、破壊形態が脆性破壊から延性破壊に移行したことは、飽和度の上昇に伴い、ベントナイトの粘性が向上したことに起因すると考えられる。高治ら<sup>23)</sup>が行った含水比を変化させて行った一軸圧縮試験においても、含水比が高くなるにつれて脆性破壊から延性破壊へと遷移し、破壊時のひずみが大きくなり、ピーク強度が低下する結果が得られている。

### 5.1.3 温度を変化させた試験結果 ( $\rho_d = 1.6 \text{Mg/m}^3$ 一定)

図-21より、 $S_r=30\%$ の条件において、温度の上昇に伴い、圧縮強度がほぼ一般的な勾配で減少する傾向がみて取れる。飽和度を10%刻みで90%まで変化させて行った他の実験においては、飽和度60%までは同様の傾向がみられた。しかしながら、図-22より、飽和度70%以上においては、温度の上昇に伴う強度の減少がみられなかった。温度の上昇による圧縮強度の低下の原因として、供試体の熱膨張と収縮により生じるクラックの影響が挙げられる。ベントナイトの透気性は非常に低いため、供試体養生時に生じる内部の間隙空気の熱膨張や間隙水の蒸発、養生後の表面の温度低下による収縮によって、表面あるいは内部にマイクロクラックが発生している可能性が示唆される。マイクロクラックが入ることによって、剛性が低下し、圧縮時にクラックが入りやすくなるために、圧縮強度が低下したと考えられる。また、養生後の供試体表面を観察したところ、特に温度が高い供試体について、クラックが確認できた。今回の実験では、供試体内部のクラックの確認には至らなかったが、特に表面では養生後の収縮が顕著であるためにクラックが発生していることが確認できた。そのため、温度が高いほどこの影響は大きくなるため、温度の上昇に伴い圧縮強度が低下したと考えられる。また、温度が不飽和土の水分保持特性に及ぼす影響についての実験的検討はこれまでに幾つか行われている。含水比一定条件で温度を変化させた保水性試験<sup>22)</sup>において、温度上昇に伴って水分特性曲線が移動し、土の保水性が低下すると指摘されており、温度上昇に伴うサクシオンの減少が確認されている。また、前述したように、一軸圧縮試験においては、サクシオンが拘束圧として作用して

おり、サクシヨンの減少に伴い圧縮強度が減少する可能性が示唆されている。これらのことから、ベントナイト供試体の温度上昇に伴う強度減少は、温度上昇に伴い、サクシヨンが減少していることに起因すると考えられる。飽和度 70%以上において、温度上昇による圧縮強度の低下が生じなかった原因として、前述したように飽和度の上昇に伴うベントナイトの粘性の向上が挙げられる。また、水の粘性は温度の上昇に伴い低下することが知られている。これらのことから、飽和度 70%以上の高飽和度条件においては、そもそもベントナイト自身の粘性が高く、高温状態においても間隙水の粘性が低下し、変形を追随することでクラックの発生が抑制されたため、圧縮強度の減少が生じなかったと考えられる。

また、小高ら<sup>24)</sup>によると、不飽和圧縮ベントナイトのサクシヨンは、飽和度の上昇に伴いサクシヨンが減少し、飽和度 70%以上においてはサクシヨンがほぼ消失している。温度上昇に伴う強度減少が温度上昇に伴うサクシヨンの減少に起因しているとする、飽和度 70%以上の条件ではサクシヨンが消失し、温度上昇に伴うサクシヨンの減少が生じなかったため、温度の上昇に伴い圧縮強度が減少しなかったと考えられる。

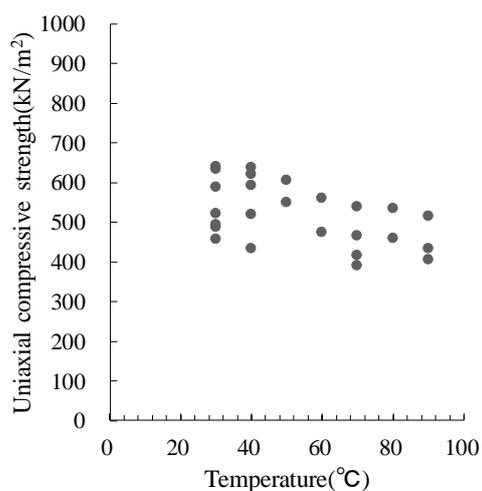


図-21 温度－強度関係( $S_r=30\%$ )

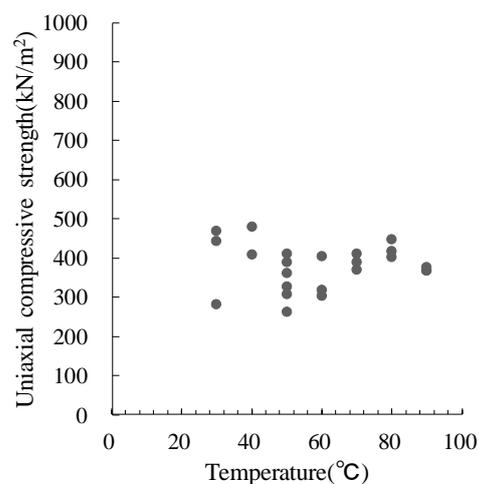


図-22 温度－強度関係( $S_r=80\%$ )

#### 5.1.4 温度変化を考慮した膨潤量試験

##### (1) 試験条件

図-23 に膨潤試験機の模式図、表-2 に実験の初期条件を示す。試料は、ベントナイト（クニゲル V1）と東北珪砂 5 号を 7:3 で混合したものをを用いた。供試体の大きさは直径 60mm、高さ 20mm である。水温は熱電対で計測し、 $\pm 1^\circ\text{C}$  の範囲で維持されるようにヒーターによる温度制御を行った。

給水は供試体下部からのみ行った。なお、本試験では膨潤量の収束を促進させるため、試験機の上部に 3.2kg の錘を載荷した。

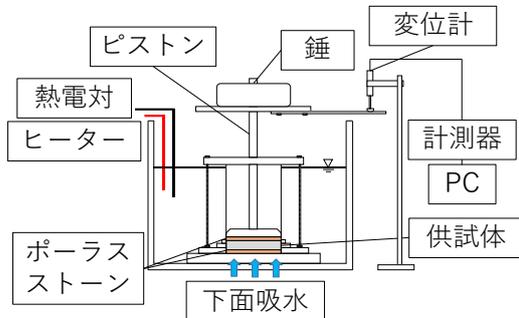


図-23 膨潤量試験装置模式図

表-2 初期条件

試験水	イオン交換水
温度	30℃, 60℃, 70℃
上載荷重	3.2kg
間隙比 e	0.744
含水比 w	6.6 (%)
乾燥密度 $\rho_d$	1.6 (Mg/m <sup>3</sup> )

## (2) 試験結果

図-24 に温度ごとの膨潤過程を示す。図-24 によると温度ごとの膨潤過程は大きく異なり、温度が高い方が初期の膨潤量の変化の傾きが大きくなる傾向が確認できる。これは、温度が高い環境下の方が、モンモリロナイトと水との反応が良くなることで膨潤性能が向上したこと、温度が上がるにつれ供試体内部の透水係数が大きくなったことなどが考えられる。

次に個々の膨潤過程について、70℃の膨潤過程をみると、40日目までの傾きに乱れがあることが確認できる。この理由としては、まず試験中の水槽内の水頭差による影響が考えられる。70℃の水槽は高温のため、水面からの蒸発量が大きく、短時間で水位差が生じやすい。これによって、試験機下部での水頭が時間ごとに大きく変化し、供試体にかかる水圧が変化し、吸水の割合も変化してしまったと考えられる。さらに急な膨潤によって、供試体内部の構造が変化している可能性が考えられる。本試験機上部には 3.2kg の錘を載荷しており、給水は供試体下側からのみ行っている。この条件で著しく膨潤し始めた初期のモンモリロナイトは土粒子形状を変化させ、周囲の間隙の構造を変化させる。この時形成された構造が、供試体に掛かる垂直圧に耐えられなくなった時に構造が崩れ、一時的にコーラス的沈下を起こしている可能性も考えられる。また 60℃でも、50日から100日の間で傾きが不安定であるため、膨潤と沈下を繰り返していた可能性がある。30℃は温度が低いため、膨潤性能がそれほど大きくならなかった。よって、間隙中をモンモリロナイトが充填し、安定した構造を形成しながら膨潤したため、沈下を起こさなかったと考えられる。

図-25 に試験後の 60°C 供試体の下部から 3mm ごとの含水比分布を示す。ここでは、膨潤は水との反応によって起こることから、供試体内部の高さごとの含水比の分布から、その地点がどのくらい膨潤性能を発揮していたかを示す一つの指標となる。0mm~15mm の範囲で含水比は 90%~100% の値を示し、この範囲で膨潤性能は大きく発揮されていた可能性がある。また 15mm~27mm の範囲では高さごとにそれほど含水比に差はなく、30mm からは含水比が下がるため、これ以降は給水側の膨潤したモンモリロナイトの低透水性により、水の浸入が妨げられていたと考えられる。

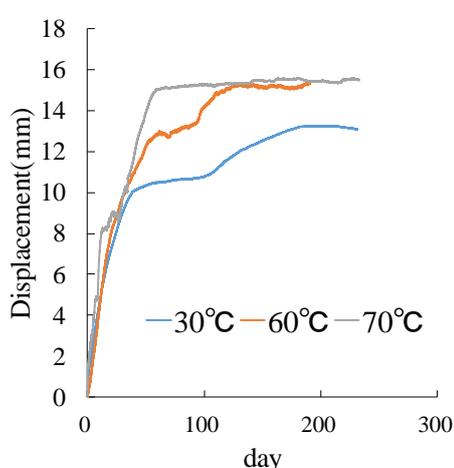


図-24 温度ごとの膨潤過程

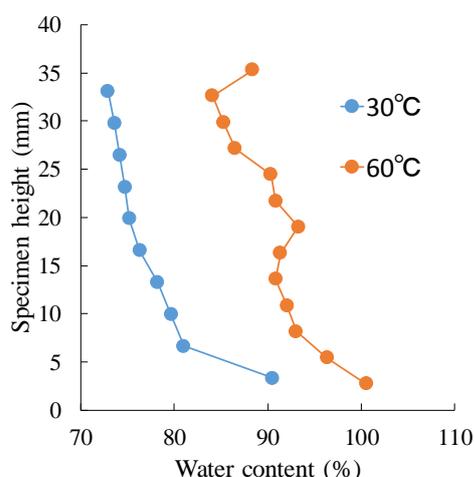


図-25 供試体の含水比分布

### 5.1.5 熱/固/液/気連成有限要素解析の開発

前節までの、温度変化による各種の実験を踏まえ、新たに温度変化を考慮できる熱/固/液/気連成解析コードを開発する。

#### 1) 組み込む熱理論について

##### (1) 熱の支配方程式

$$\overline{(\rho C)} \dot{T} + (\rho C)_w \mathbf{u} \cdot \nabla T + \nabla \cdot \mathbf{J} = 0 \quad (5.1)$$

$$\overline{(\rho C)} \dot{T} + (\rho C)_w u_i T_{,i} + J_{i,i} = 0 \quad (5.2)$$

##### (2) ダルシー流速

$$\mathbf{u} = -K \nabla h \quad (5.3)$$

$$u_i = -K_{ij} h_{,j} \quad (5.4)$$

(3) 熱流束

$$\mathbf{J} = -\bar{\lambda}\nabla T \quad (5.5)$$

$$J_i = -\bar{\lambda}_{ij}T_{,j} \quad (5.6)$$

なお、密度に関しては、

$$\overline{(\rho C)} = (1-n)\rho_s C_s + nS_r\rho_w C_w + n(1-S_r)\rho_a C_a \quad (5.7)$$

比熱に関しては、

$$(\rho C)_w = \rho_w C_w \quad (5.8)$$

熱伝導率に関しては、

$$\bar{\lambda} = (1-n)\lambda_s + nS_r\lambda_w + n(1-S_r)\lambda_a \quad (5.9)$$

これらを相について合成する。

2) 弱形式化について

$$\int_V \delta T \overline{(\rho C)} \dot{T} dV + \int_V \delta T (\rho C)_w u_i T_{,i} dV + \int_V \delta T J_{i,i} dV = 0 \quad (5.10)$$

ここで、第2項について、土/水連成解析によりダルシー流速は既知として取り扱うとする。

第3項について、ガウスの発散定理を適用すると、

$$\begin{aligned} \int_V \delta T J_{i,i} dV &= \int_V (\delta T J_i)_{,i} dV - \int_V \delta T_{,i} J_i dV \\ &= \int_S \delta T J_i n_i dS - \int_V \delta T_{,i} J_i dV \\ &= \int_{S_T} \delta T J_i n_i dS + \int_{S_Q} \delta T J_i n_i dS - \int_V \delta T_{,i} J_i dV \\ &= \int_{S_Q} \delta T J_i n_i dS - \int_V \delta T_{,i} J_i dV \end{aligned} \quad (5.11)$$

よって、

$$\int_V \delta T \overline{(\rho C)} \dot{T} dV + \int_V \delta T (\rho C)_w u_i T_{,i} dV + \int_{S_Q} \delta T J_i n_i dS - \int_V \delta T_{,i} J_i dV = 0 \quad (5.12)$$

3) 空間離散化について

$$\begin{aligned} \{T\} &= [N_T]\{T^N\} \\ \{\delta T\} &= [N_T]\{\delta T^N\} \\ [B_T] &= \nabla[N_T] \\ \{\nabla T\} &= [B_T]\{T^N\} \end{aligned}$$

$$\int_V \{\delta T^N\}^T [N_T]^T \overline{(\rho C)} [N_T] \{\dot{T}^N\} dV + \int_V \{\delta T^N\}^T [N_T]^T (\rho C)_w [u] [B_T] \{T^N\} dV + \int_{S_Q} \{\delta T^N\}^T [N_T]^T J_i n_i dS - \int_V \{\delta T^N\}^T [B_T]^T (-[\bar{\lambda}][B_T] \{T^N\}) dV = 0 \quad (5.13)$$

ここで、 $\{\delta T\}$ の任意性より除すると、

$$\int_V [N_T]^T \overline{(\rho C)} [N_T] \{\dot{T}^N\} dV + \int_V [N_T]^T (\rho C)_w [u] [B_T] \{T^N\} dV + \int_{S_Q} [N_T]^T J_i n_i dS + \int_V [B_T]^T [\bar{\lambda}][B_T] \{T^N\} dV = 0 \quad (5.14)$$

5) 時間離散化について

$$\int_V [N_T]^T \overline{(\rho C)} [N_T] \{\dot{T}^N\} dV + \int_V [N_T]^T (\rho C)_w [u] [B_T] \{T^N\} dV + \int_{S_Q} [N_T]^T J_i n_i dS + \int_V [B_T]^T [\bar{\lambda}][B_T] \{T^N\} dV = 0 \quad (5.15)$$

$t = t$ から $t = t + \Delta t$ の範囲で時間について離散化する

$$\begin{aligned} \{\dot{T}^N\} &= \frac{1}{\Delta t} (\{T^N\}_{t+\Delta t} - \{T^N\}_t) \\ \{T^N\} &= (1 - \theta)\{T^N\}_t + \theta\{T^N\}_{t+\Delta t} \\ [u] &= [u]_{t+\theta\Delta t} \end{aligned}$$

とし、

$$\begin{aligned} [A] &= \int_V [N_T]^T \frac{\overline{(\rho C)}}{\Delta t} [N_T] dV \\ [B] &= \int_V [N_T]^T (\rho C)_w [u] [B_T] dV \\ [C] &= \int_V [B_T]^T [\bar{\lambda}][B_T] dV \\ \{f\} &= - \int_{S_Q} [N_T]^T J_i n_i dS \end{aligned}$$

とおくと

$$\begin{aligned} [A](\{T^N\}_{t+\Delta t} - \{T^N\}_t) + ([B] + [C])((1 - \theta)\{T^N\}_t + \theta\{T^N\}_{t+\Delta t}) &= \{f\} \\ ([A] + \theta([B] + [C]))\{T^N\}_{t+\Delta t} &= ([A] - (1 - \theta)([B] + [C]))\{T^N\}_t + \{f\} \end{aligned} \quad (5.1)$$

整理して

$$[K]\{T^N\}_{t+\Delta t} = \{b\} \quad (5.16)$$

ただし、

$$[K] = [A] + \theta([B] + [C])$$

$$\{b\} = ([A] - (1 - \theta)([B] + [C]))\{T^N\}_t + \{f\}$$

ところで,

$$\{f\} = - \int_{S_Q} [N_T]^T J_i n_i dS$$

は熱流束境界であるため, 指定がなければ0である.

以上の熱理論を, 固/液/気連成有限要素解析コード<sup>23)</sup>と連成させることで温度変化を考慮したベントナイト緩衝材の力学特性を解く.

### 5.1.6 熱/固/液/気連成有限要素解析を用いた膨潤量の再現解析

開発した熱/固/液/気連成有限要素解析コード DACSAR-MP を用いて解析を行う.

#### (1) 解析条件

膨潤量試験を想定し, 拘束圧一定・等方応力条件下で飽和度を上昇させる計算を行う. 解析領域を図-26 に, 材料パラメータを表-3 に示す. 設定温度は 30°C, 50°C, 70°Cの3ケースで解析を行う.

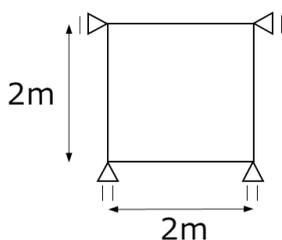


図-26 解析領域

表-3 材料パラメータ

$\lambda$	$\kappa_0$	$l$	$n$	$a$	$\alpha_{mon}$
0.14	0.01	10	1	20	40%
$S_{r0}$	$A_w$	$B_w$	$A_D$	$B_D$	
0.1	-11	1.6	-37	4.2	

## (2) 解析結果

熱を考慮した膨潤量試験に対して，作成した解析コードにて再現解析実施した。解析条件は，実験と同様のパラメータ設定と境界条件を与えて行う。なお膨潤量試験は，拘束圧一定条件下で吸水し，その時の体積変化を計測する試験である。膨潤量試験中のベントナイト供試体は，不均一な密度・飽和度分布を示すためこれらの試験は要素試験でなく境界値問題として扱うのが妥当である。

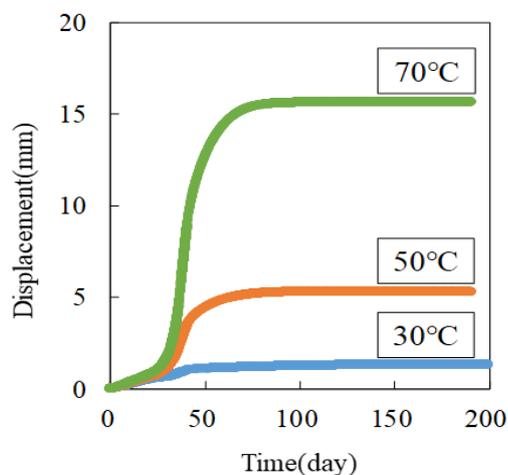


図-27 膨潤量試験の再現解析

図-27 に温度変化 (30°C, 50°C, 70°C) による各膨潤量の再現解析の結果を示す。結果より，温度が上昇するに従い，膨潤量が大きくなることを確認できる。特に高温 (70°C) に関して，膨潤傾向や，最終的な膨潤量が実験結果を再現できている。

### 5.1.7 熱/固/液/気連成有限要素解析を用いた再冠水シミュレーション

高レベル放射性廃棄物は，地層処分が検討され処分施設における緩衝材や埋め戻し材にはベントナイト材料の利用が検討されている。そこで処分施設を対象とした再冠水解析を行い，再冠水中のベントナイト系材料の力学挙動を検討する。坑道周囲全面から地下水を侵入させ，水頭は 300m まで上昇させる。緩衝材，埋め戻し材は一様な材料で構成し，初期飽和度は 50%とする。また，再冠水期間は 10年，100年の2ケースで解析を行う。材料パラメータを表-4，解析領域，境界条件は図-28 のように設定した。

表-4 材料パラメータ

$\lambda$	$\kappa_0$	$l$	$n$	$a$	$\alpha_{\text{mon}}$
0.14	0.01	10	1	20	40%
$S_{r0}$	$A_W$	$B_W$	$A_D$	$B_D$	
0.1	-11	1.6	-37	4.2	

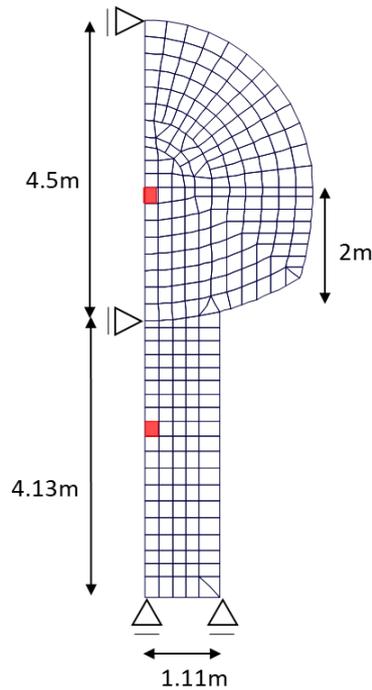


図-28 解析領域，境界条件

(1) 解析結果

図-29 に再冠水期間 100 年の場合の温度の経時変化を示す．再冠水期間の違いによる変化はあまり見られず，廃棄体の熱が徐々に伝導していくことが見て取れる．しかしながら，100 年経過しても高温に晒されるのは下部だけであった．

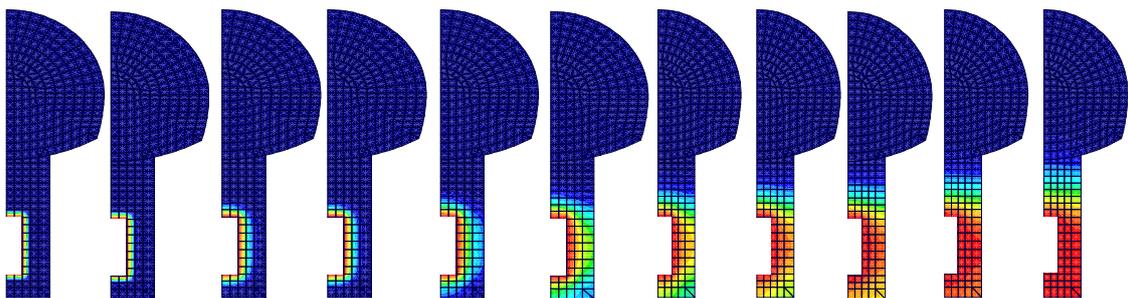


図-29 温度の経時変化(100 年)

ここで，再冠水期間 100 年の場合の飽和度の経時変化を 0 年から 100 年までそれぞれ図-30 に示す．

飽和度に関しては，再冠水期間が 100 年の場合，約 50 年で廃棄体周囲の緩衝材が飽和し，約 60 年で全体が飽和することが確認できる．後者が冠水完了前に

飽和する理由としては、冠水が緩やかに進行すると、外部の緩衝材の飽和が進まないため、内部への浸透が進むためであると考えられる。また、廃棄体周辺は飽和の進行が遅いことが分かる。これは、廃棄体の熱の影響であると考えられる。

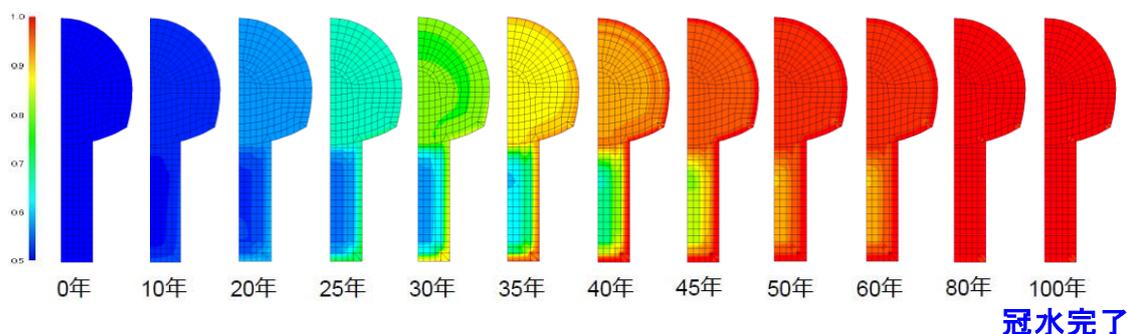


図-30 飽和度の経時変化(100年)

## 6. まとめ

本研究では温度変化の違いがベントナイトに与える影響について実験的、解析的把握を行った。その結果以下の知見を得た。

- (1) 約 60 年で廃棄体周囲の緩衝材が飽和する。
- (2) 約 100 年で全体が飽和する。
- (3) 冠水が緩やかに進むと、外部の緩衝材の飽和が急激に進まないため、内部への浸潤が進むことにより、冠水が完了する前に飽和化する。
- (4) 廃棄体の熱の影響により、廃棄体周辺は飽和の進行が遅い。

実際の処分期間は数万年から数十万年もの超長期間に及ぶため、実際の処分期間中のベントナイト緩衝材の安全性の評価を実験からのみ得ることは不可能である。本研究では、処分施設の長期的力学挙動の予測解析手法を開発することで、いくつかのシナリオを準備することが可能であることが示された。

今後は、設計時における照査技術として整備していくことが必要となる。

## 参考文献

- [1] 通商産業省，特定放射性廃棄物の地層処分に関する基本方針を定めた件，通商産業省告示第 591 号。
- [2] 経済産業省資源エネルギー庁放射性廃棄物等対策室，放射性廃棄物のホームページ，<http://www.enecho.meti.go.jp/rw/hlw/hlw03.html>。
- [3] 笹倉剛，畔柳幹雄，小林一三，岡本道考(2003)．ベントナイト変遷挙動のモデル化のためのデータ取得 II．核燃料サイクル機構契約業務報告書．JNC TJ8400 2003-048。
- [4] Ladd,C.C.,Foott,R.,Ishihara.K.,Schlosser.F. & Poulos.H.G.(1997).Stress-Deformation and Strength Characteristics. 9th international conference on soil mechanics and foundation

- engineering,Japan,421-494.
- [5] 笹倉剛, 畔柳幹雄, 岡本道考(2002). ベントナイト変遷挙動のモデル化のためのデータ取得 II. 核燃料サイクル機構契約業務報告書. JNC TJ8400-2002-025.
  - [6] Kobayashi,I.,Owada,H. & Ishii,T.(2011).Hydraulic / Mechanical modeling of smectitic materials for HMC analytical evaluation of the long-term performance of TRU geological repository.Proceedings of the 14th International Conference on Environmental Remediation and Radioactive Waste Management,ICEM2011-59090,France.
  - [7] 石川博久, 石黒勝彦, 並河努, 菅野毅(1997). 緩衝材の圧密特性. PNC TN8410 97-051.
  - [8] 石橋直樹, 小峯秀雄, 安原一哉, 村上哲, 森拓雄, 伊藤弘志(2011). ベントナイトの圧密特性に及ぼすモンモリロナイト含有率の影響, 第46回地盤工学会研究発表会.
  - [9] 高治一彦, 鈴木英明(1999). 緩衝材の静的力学特性. PNC TN8400 99-041.
  - [10] 崔紅斌, 孫徳安, 松岡元. (2006). 等方および異方応力状態でのベントナイトと砂の混合材の浸水変形特性. 土木学会論文集, 62, No.3, 657-666.
  - [11] 鈴木英明, 藤田朝雄(1999). 緩衝材の膨潤特性. JNC TN8400 99-038.
  - [12] 小林一三, 戸井田克, 笹倉剛, 太田秀樹(2007). 等含水比線と等飽和度線を用いた締固めベントナイトの圧縮・膨潤挙動の解釈. 土木学会論文集, 63, No.4, 1065-1078.
  - [13] Kobayashi,I.,Owada,H & Ishii,T.(2011).Hydraulic / Mechanical modeling of smectitic materials for HMC analytical evaluation of the long-term performance of TRU geological repository.Proceedings of the 14th International Conference on Environmental Remediation and Radioactive Waste Management,ICEM2011-59090,France.
  - [14] Sato,H.(2008)"Thermodynamic Model on Swelling of Bentonite Buffer and Backfill Materials",Physics and Chemistry of the Earth33,S538-S543.
  - [15] 鈴木英明, 千々松正和, 藤田朝雄, 中野政詩(2002). 不飽和圧縮ベントナイト中の水分移動パラメータに関する考察. 土木学会論文集, 58, No.701, 107-120(in Japanese)
  - [16] Wan,A.W.L.(1996).The use of thermocouple psychrometers to measure in situ suctions and water contents in compacted clays.Doctoral Thesis of University of Manitoba.
  - [17] Agus,S.S.,Schanz,T. & Fredlund,D.G.(2010).Measurements of suction versus water content for bentonite-sand mixtures.Canadian Geotechnical Journal 47,583-594.
  - [18] 西村友良, 古関潤一(2012). 加圧板法を用いた圧縮ベントナイトの水分特性曲線の測定. 土木学会第67回年次学術講演会.
  - [19] TRU 廃棄物処分施設技術検討書 第二次 TRU 廃棄物処分研究開発取りまとめ.
  - [20] TRU 廃棄物処分施設技術検討書 第二次 TRU 廃棄物処分研究開発取りまとめ.根拠資料集 分冊 1~3
  - [21] 金澤伸一, 豊島拓馬, 河井克之, 橘伸也, 飯塚敦(2012). 土/水/空気連成有限要素法を用いた締固め土の力学挙動の解析. 土木学会論文集, 15, 291-298.

- [22] Takayama, Y., Tsurumi, S., Iizuka, A., Kawai, K. & Ohno, S. (2012). An Interpretation of Mechanical Properties of Bentonite as a Non-linear Elastic Material. International Journal of GEOMATE 3, 357-362.
- [23] 高治一彦, 鈴木英明 (1999). 緩衝材の静的力学特性. PNC TN8400 99-041.
- [24] 小高猛司, 元山泰久, 平手寿大 (2011). 不飽和珪砂・ベントナイト混合体の飽和度上昇に伴うせん断抵抗角の低下. 土木学会第 66 回年次学術講演会.

## ・外部発表リスト

### 【学術論文】

- 1) 市川希, 金澤伸一, 林久資, 石山宏二, 飯塚敦: 地層処分施設内における温度・密度・飽和度変化を考慮したベントナイト緩衝材の力学特性, 第 12 回環境地盤工学シンポジウム論文集, 地盤工学会, pp.557-560, 2017.
- 2) 武藤尚樹, 金澤伸一, 林久資, 市川希, 石山宏二, 飯塚敦: 地層処分施設内における温度, 飽和度変化を考慮したベントナイト緩衝材の力学挙動に関する研究, 第 12 回環境地盤工学シンポジウム論文集, 地盤工学会, pp.567-570, 2017.
- 3) 林久資, 西内瑞生, 金澤伸一, 石山宏二: 直接処分施設の建設・運用時における力学的影響予測, トンネル工学報告集 27(1-32) 1-5 2017 年 11 月.

### 【口頭発表】

- 1) 市川希, 金澤伸一, 林久資, 石山宏二: 地層処分施設における温度変化を考慮したベントナイト緩衝材の膨潤特性の把握, 第 23 回高専シンポジウム 2018 年 1 月 27 日.
- 2) 武藤尚樹, 金澤伸一, 林久資, 石山宏二: 地層処分施設における温度・密度・飽和度変化を考慮したベントナイト緩衝材の力学挙動に関する研究, 第 23 回高専シンポジウム 2018 年 1 月 27 日.
- 3) 市川希, 金澤伸一, 林久資, 石山宏二: 地層処分施設内における温度, 飽和度変化を考慮したベントナイト緩衝材の力学挙動に関する研究, 第 52 回地盤工学研究発表会講演集, pp.109-110, 2017.
- 4) 武藤尚樹, 金澤伸一, 林久資, 石山宏二, 飯塚敦: 地層処分施設内における温度・密度変化を考慮したベントナイト緩衝材の力学特性, 平成 29 年度土木学会全国大会, 第 71 回年次学術講演会, pp.107-108, 2017.
- 5) 西内瑞生, 林久資, 金澤伸一, 石山宏二, 数値解析を用いた直接処分施設の掘削・廃棄体運搬時における影響予測: 平成 29 年度土木学会全国大会, 第 71 回年次学術講演会, pp.805-806, 2017.
- 6) 市川希, 金澤伸一, 林久資, 石山宏二: 地層処分施設内における温度, 飽和度変化を考慮したベントナイト緩衝材の力学挙動に関する研究: 第 52 回地盤工学研究発表会講演集, pp.2047-2048, 2017.
- 7) 山本龍一, 林久資, 金澤伸一, 高荒智子, 石山宏二: 水質の違いによるベントナイトの

膨潤性能について：第 52 回地盤工学研究発表会講演集, pp.2051-2052, 2017.



## 研究報告 4

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

京都大学大学院 工学研究科

小林 大志



## 1 背景・目的

### 1.1 はじめに

核燃料サイクルにおける再処理施設や MOX 燃料加工施設の操業に伴い発生する様々な性状の放射性廃棄物は長半減期低発熱放射性廃棄物（以下、TRU 廃棄物）と総称され、平成 17 年に取りまとめられた TRU 廃棄物処分技術検討書（第 2 次 TRU レポート）（電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構、2005）では、TRU 廃棄物は放射性物質の濃度に応じて適切な処分方法を取ることが述べられている。処分方法は、深度や放射性物質の漏出を抑制するバリアの違いによりトレンチ処分、ピット処分、中深度処分および地層処分に分類され、全  $\alpha$  核種濃度に対して 1 GBq/ton という区分目安値より高い  $\alpha$  核種の放射能濃度を持つと考えられるハル・エンドピースや濃縮廃液固化体などの廃棄物は地層処分対象の廃棄物とされている。

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

表 1-1 TRU 廃棄物のグルーピング（第 2 次 TRU レポート）

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

また、廃棄物処分事業の経済性および合理性の観点から、TRU 廃棄物と HLW と同一サイトで処分する（併置処分）の概念が第 2 次 TRU レポートにおいて示され（図 1-1）、その技術的成立性の評価が進められている（原子力委員長半減期低発熱放射性廃棄物処分技術検討会、2006）。併置処分の概念を社会に受容可能なものとするためには、それぞれの処分施設の安全評価に加え、両施設間で相互に影響を及ぼし得る因子（相互影響因子）の評価が不可欠であり、第 2 次 TRU レポートでは、熱、有機物、硝酸塩および高 pH プルームなどが相互影響因子として取り上げられている。

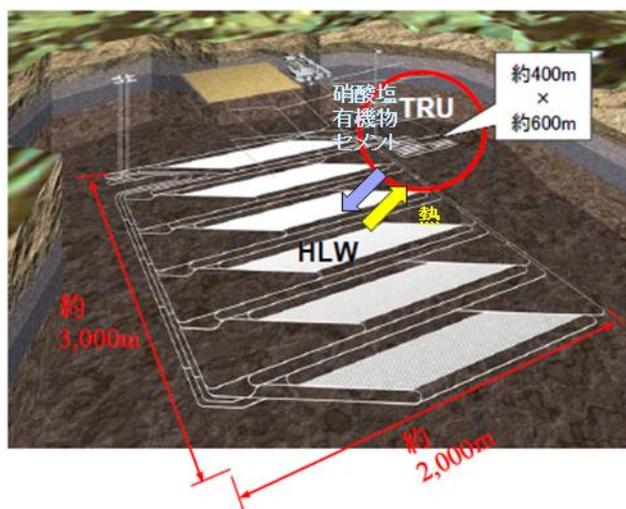


図 1-1 TRU 廃棄物と高レベル放射性廃棄物の併置処分の概念（第 2 次 TRU レポート）

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

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

○高 pH 影響：高 pH 影響は、TRU 廃棄物処分施設で多量のセメント系材料が使用されることに由来する。セメント系材料の溶出により間隙水の初期 pH は 12.5 以上となり、Na や K が天然バリアへと散逸した後は、水酸化カルシウム ( $\text{Ca}(\text{OH})_2$ ) の溶解平衡により pH は 12.5 程度になると指摘されている。セメント系材料に起因する高 pH プルームにより、ベントナイト系材料や天然バリア中の母岩の変質やそれによる移行挙動の変化が起こる可能性が挙げられている。

○硝酸塩影響：硝酸塩影響は、有機物影響や高 pH 影響と同様、TRU 廃棄物に由来する相互影響因子であり、特に、再処理工程の過程で発生する硝酸ナトリウム ( $\text{NaNO}_3$ ) がグループ 3 に分類される濃縮廃液固化体に多量に含まれることに由来する。硝酸塩は可溶性であることから、処分施設内に侵入した地下水に容易に溶解し、閉鎖後の処分施設近傍において高濃度の硝酸塩環境を形成する。廃棄体物量と硝酸塩量から施設内間隙水の硝酸ナトリウム濃度を計算した場合、その濃度はほぼ飽和濃度に達することが指摘されている。硝酸塩影響が処分システムのバリア性能に与える影響としては、ベントナイト系材料や岩盤の鉱物学的な変質、核種の収着挙動への影響、オーバーパックなどの腐食に対する影響および硝酸イオンによる核種の酸化還元状態への影響などが挙げられる。

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

## 1.2 研究の背景

### 1.2.1 廃棄体近傍および処分場に形成される硝酸塩環境

第 2 次 TRU レポートでは、処分場内の間隙水中の硝酸ナトリウム濃度は最大で飽和濃度に達することが指摘されており、ここでは、グループ 3 の廃棄体に含まれる硝酸塩が地下水によって溶出した際に廃棄体近傍および処分場内に形成される硝酸塩環境について整理する。

まず、硝酸塩を含むグループ 3 の廃棄体近傍に着目する。グループ 3 の廃棄物は 200L ドラム缶または角型容器、BNGS500L ドラム缶に収納され、地下施設における搬送及び定置を効率化するため、200L ドラム缶や BNGS500L ドラム缶については、何本かを合わせたパッケージとして取り扱うことが検討されている（図 1-2）。このとき、パッケージの空隙部はセメントモルタルで充填するとされており、地下水によりグループ 3 に含まれる硝酸塩が溶出した場合、形成される硝酸塩環境は、周辺のセメント影響（高 pH および高 Ca 濃度）を受けると考えられる。また、グループ 3 の廃棄体に対しては止水性の高い緩衝材を設置することが想定されていないため、高濃度の硝酸塩環境はグループ 3 の廃棄体を中心とし、地下水流動に伴って処分場内外に形成されると考えられる。

このとき、硝酸塩溶液中の硝酸イオン ( $\text{NO}_3^-$ ) は、処分施設内に存在する還元性物質（金属製容器や有機物）により亜硝酸イオン ( $\text{NO}_2^-$ ) やアンモニアイオン ( $\text{NH}_4^+$ ) に還元されると考えられている。既往研究では、金属 (Fe) 腐食に伴う  $\text{NO}_3^-$  の化学的変遷の他、脱窒菌による  $\text{NO}_3^-$  の還元作用も組み込んだ  $\text{NO}_3^-$  の化学的変遷の評価モデルの構築が進められており（日本原子力研究開発機構、2011、日本原子力研究開発機構、2013）、

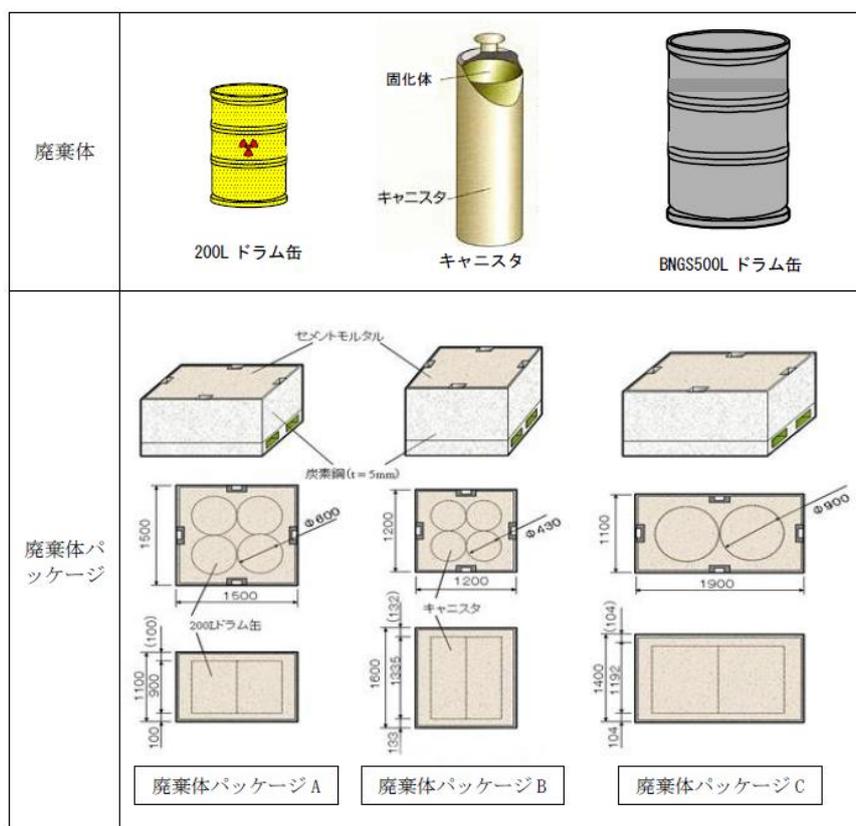


図 1-2 廃棄体および廃棄体パッケージ（第 2 次 TRU レポート）

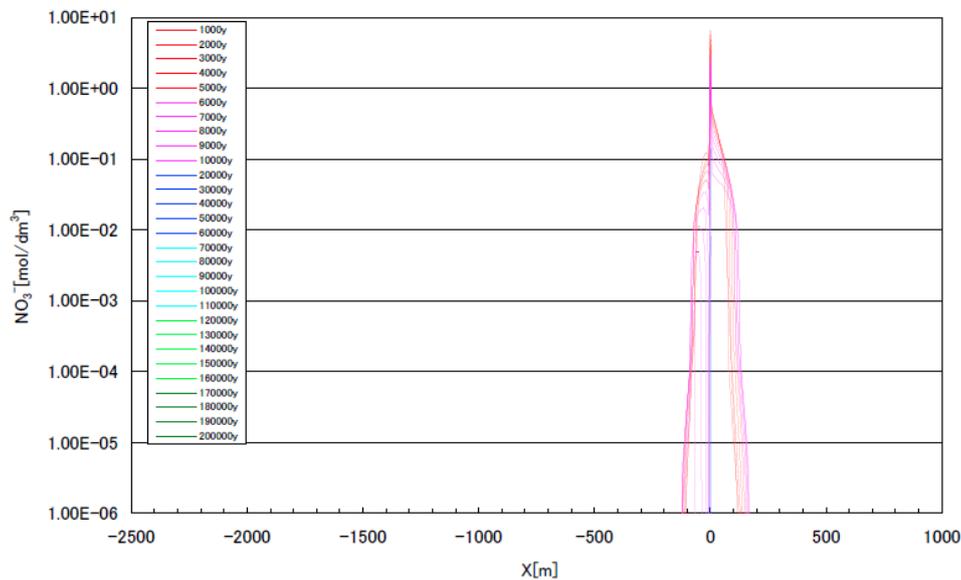


図 1-3 解析体系 X 軸上の硝酸イオン濃度分布（日本原子力研究開発機構、2013）

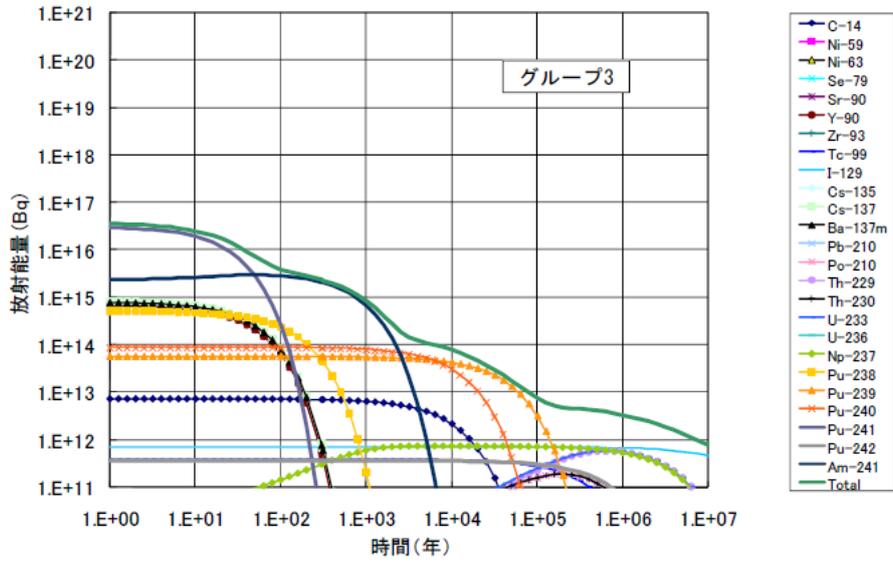
現在の解析ケースでは、硝酸塩濃度は処分開始時点の発生源（グループ 3 の廃棄体）、において最大濃度となった後、数 100m 程度範囲の高濃度の硝酸塩環境を形成しつつ、その濃度は  $\text{NO}_3^-$  の還元反応の進行とともに減少し、およそ 40,000 年後には消失すると想定されている（図 1-3）。現在の評価モデルでは、 $\text{NO}_3^-$  は主に微生物や黄鉄鉱（FeS）により還元されるとされているが、硝酸ナトリウム水溶液に黄鉄鉱を浸漬させた試験では、323 K（50℃）、365 日後においても黄鉄鉱による  $\text{NO}_3^-$  の還元反応は確認されなかったことから（日本原子力研究開発機構、2011）、処分環境における  $\text{NO}_3^-$  の還元反応は非常に遅い反応であると考えられる。この場合、初期にグループ 3 の廃棄体近傍で形成された飽和濃度付近の  $\text{NaNO}_3$  溶液条件が長期にわたって維持されるとともに、高濃度の  $\text{NaNO}_3$  溶液がグループ 3 の廃棄体近傍や処分施設内からより広範な領域に拡がる可能性も考えられる。第 2 次 TRU レポートで示された軟岩系岩盤レファレンスケースの処分場レイアウトでは、グループ 3 の廃棄体は処分場の最深部に置かれ、上部の隣接するグループ 4 の廃棄体や最深部の処分場境界までは数 10m の離間距離が設定されている。また、処分場の横方向の大きさは数 100 m 程度とされている。このため、硝酸塩影響の評価では、特に、硝酸塩の発生源であるグループ 3 や隣接するグループ 4 に含まれる核種が低濃度から高濃度までの硝酸塩溶液下でどのような挙動をするのかを明らかにする必要がある。

### 1.2.2 4価アクチノイドの移行挙動

硝酸塩を含むグループ3に含まれる主要な核種の放射エネルギーの時間変化を図1-4に示す(原子力発電環境整備機構、2011)。処分直後からPu-241、Am-241、Pu-240、Pu-239、Np-237などのアクチノイド核種が順次放射エネルギーを支配するとされている。一方、図1-5にグループ4に含まれる主要核種の放射エネルギーの時間変化を示す。処分後100年程度まではBa-137mやSr-90など核分裂生成物核種の寄与が大きい、その後はグループ3と同様に長半減期のアクチノイド核種が放射エネルギーを支配することが示唆されている。特に、プルトニウムは放射エネルギーの総量を長期に亘って支配する重要核種の一つと位置付けられる。図1-4および図1-5に表れるアクチノイド核種のうち、プルトニウムやネプツニウムは還元的な地下水では、4価金属イオンとして振る舞い、処分場内で想定される中性pHからアルカリ性pH領域では、難溶性の水酸化物沈殿固相を形成するため、その移行挙動は、4価の水酸化物沈殿固相の溶解度により支配される。一般に、4価金属イオンの水酸化物沈殿の溶解度は非常に低いが、4価金属イオンと可溶性錯体を形成するような配位子が共存する場合や、擬似あるいは真性コロイドを形成する場合は、見かけの溶解度が上昇することで核種の移行が促進される可能性がある。

表1-2は地層処分第2次取りまとめにおいて設定されたレファレンスケースにおける地下水と間隙水の組成を示したものである(核燃料サイクル開発機構、1999)。例えば、炭酸イオンは、無機炭素として地下水中に $1 \times 10^{-3}$  M程度存在するとされており、地下水の他、処分場内の緩衝材に含まれるカルサイト( $\text{CaCO}_3$ )も炭酸イオンの供給源となり得ることから、処分環境において比較的豊富に存在し得る配位子と言える。この炭酸イオンは、4価金属イオンと安定な可溶性錯体を形成するため、4価金属イオンの見かけの溶解度の上昇を引き起こす要因の一つである。また、TRU廃棄物にはセルロースなどの有機物が含まれており、これらが分解することによって生じる有機酸も4価金属イオンと安定な錯体を形成することによって見かけの溶解度を上昇させ得ることが指摘されている(有機物影響)。

また、4価金属イオンは、加水分解反応により水酸化物コロイドを形成することが知られている。既往研究では、弱酸性pHから中性pH領域にかけて数nmから数 $\mu\text{m}$ の粒径分布を持つ4価ジルコニウムやトリウム水酸化物コロイドが報告されている(Sasaki et al., 2006, Altmaier et al., 2004, Kobayashi et al., 2009他)。これらのコロイドは $10^{-8}$ ~ $10^{-6}$  M程度の濃度で数ヶ月から年単位で溶液中に安定に存在するとされている。水酸化物コロイドの存在は見かけの溶解度の上昇に寄与するとともに、その移行特性も溶存種とは異なる。即ち、コロイドの粒径が大きい場合は緩衝材あるいは周辺岩盤によるろ過効果により移行が遅延される一方、粒径が小さい場合は緩衝材や岩盤と相互作用せず移行が促進される可能性が考えられる。このため、コロイドの移行特性評価にあたっては、見かけの溶解度へのコロイドの寄与を定量するとともにコロイドの粒径を把握することが重要である。



(c) グループ3の主要な核種の放射エネルギーの時間変化

図 1-4 グループ3に含まれる主要な核種の放射エネルギーの時間変化（原子力発電環境整備機構、2011）

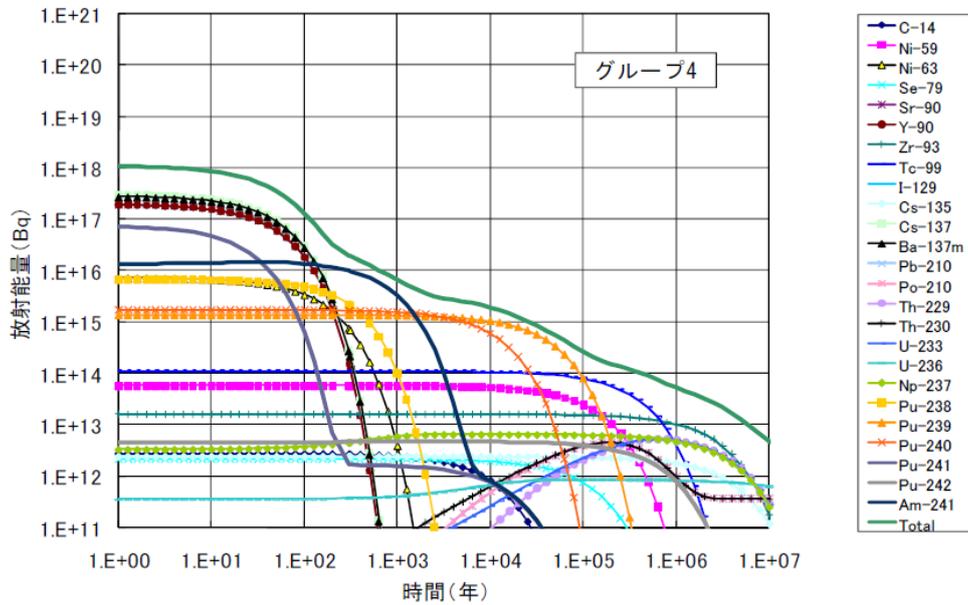


図 1-5 グループ4に含まれる主要な核種の放射エネルギーの時間変化（原子力発電環境整備機構、2011）

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

表 5.3.1-3 レファレンスケースにおける地下水と間隙水の組成

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

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

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

\*3 実測地下水の平均値より設定

\*4 電荷バランスをとるために調整

\*5 次項 (5.3.1.2.3) 参照

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

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

#### 1.2.3 4価アクチノイドの移行挙動に及ぼす硝酸塩影響

4価アクチノイドの処分環境における移行挙動は、上述のように水酸化物沈殿固相の溶解度により支配され、種々の配位子との錯生成反応やコロイドの生成が見かけの溶解度に影響を及ぼす。本研究では、4価アクチノイドの移行挙動に硝酸塩環境が与え得る影響について以下の項目に分けて考えることとした。

##### ・硝酸イオンと4価アクチノイドの錯生成反応

硝酸イオン濃度が高い場合、4価アクチノイドは硝酸イオンと錯生成することが既往研究において指摘され、その錯生成定数が報告されている (Guillaumont et al., 2005)。そこで、予め4価アクチノイドの加水分解定数および硝酸錯体の錯生成定数の報告値を用いて熱力学計算を行い、水酸化物の溶解度への硝酸錯体の寄与を調べた。中性～アル

カリ性 pH 領域における硝酸錯体の溶解度への寄与は、飽和濃度 (6 M) の硝酸ナトリウム水溶液においても非常に小さく、加水分解種と比較するとほぼ無視できることが示唆された。

- ・高濃度の硝酸イオンによる活量低下が錯生成反応に及ぼす影響

処分場内あるいは処分場近傍の高濃度の硝酸塩環境下では、水溶液中の各イオンの活量は低下する。このため、高濃度の硝酸イオン共存下での 4 価アクチノイドの溶解度を正確に評価するためには、沈殿溶解反応や錯生成反応などの平衡反応において活量補正を行う必要がある。比較的高いイオン強度まで適用可能な活量補正モデルとして、SIT (Specific Ion interaction Theory) や Pitzer モデルが確立されているが、いずれもモデルパラメータを設定する必要がある。モデルパラメータの決定には、4 価アクチノイドの錯生成反応に関する高イオン強度 (高硝酸イオン濃度) 下での実験データが必要であるが、これまで十分なデータが得られておらず、信頼性の高い活量補正が行えるとは言い難いのが現状である。

- ・水酸化物コロイドの凝集分散挙動に及ぼす硝酸イオン濃度の影響

4 価アクチノイドと可溶性錯体を形成する炭酸イオンやその他の配位子が高濃度で存在するような条件下では、4 価アクチノイドの溶解度はこれら配位子との錯生成反応によって支配されるが、加水分解反応が優勢となるような条件下 (低い配位子濃度や高 pH など) では、4 価アクチノイドの水酸化物コロイドが支配的な化学種となる。コロイドの移行特性を評価するためには、先に述べたようにコロイド粒径の把握が重要であるが、その値はコロイドの凝集分散によって変化する。このコロイドの凝集分散挙動の指標の一つが、コロイドのすべり面の電位であるゼータ電位であり、コロイドが存在する溶液の電解質やその濃度に大きな影響を受けるとされる。DLVO 理論などコロイドに関する既往の理論では、電解質濃度、即ち、硝酸イオンや共存するカチオンの濃度に応じて 4 価アクチノイドの水酸化物コロイドのゼータ電位が変化すると考えられるが、実験的な検証は十分でなく、またその変化傾向を定量的に予測できるようなモデルは確立されていない。

- ・硝酸イオンによる核種の酸化反応

ウラン、プルトニウム、ネプツニウムなどのアクチノイド核種は水溶液中で 4 価のみならず、5 価や 6 価など複数の酸化状態を取り得る。硝酸塩によって酸化的な雰囲気的形成されれば、これら核種が 4 価の酸化状態から酸化される可能性が考えられる。難溶性の 4 価水酸化物沈殿固相による溶解度制限が無くなれば、核種の溶解度は大幅に増加するとともに、支配的な溶存化学種が変化することにより移行挙動が大きく変化することが懸念される。図 1-6 はプルトニウムおよびネプツニウムの電位-pH 図 (プールベダイ

アグラム) と硝酸イオンのプルベダイアグラムを重ねたものである。硝酸イオンから亜硝酸イオンへの還元反応が酸化剤として働けば、ネプツニウムは4価から5価に酸化される可能性が示されている。一方、プルトニウムの4価と5価の酸化還元電位は硝酸イオン、亜硝酸イオンの酸化還元電位より高く、硝酸塩環境下でもプルトニウムは4価が安定と考えられる。これまで、4価ネプツニウムを含めた幾つかの核種の硝酸イオンによる酸化反応に関する研究が行われてきたが、中性 pH～アルカリ性 pH 領域における酸化剤としての硝酸イオンの働きは明確になっていないのが現状である。

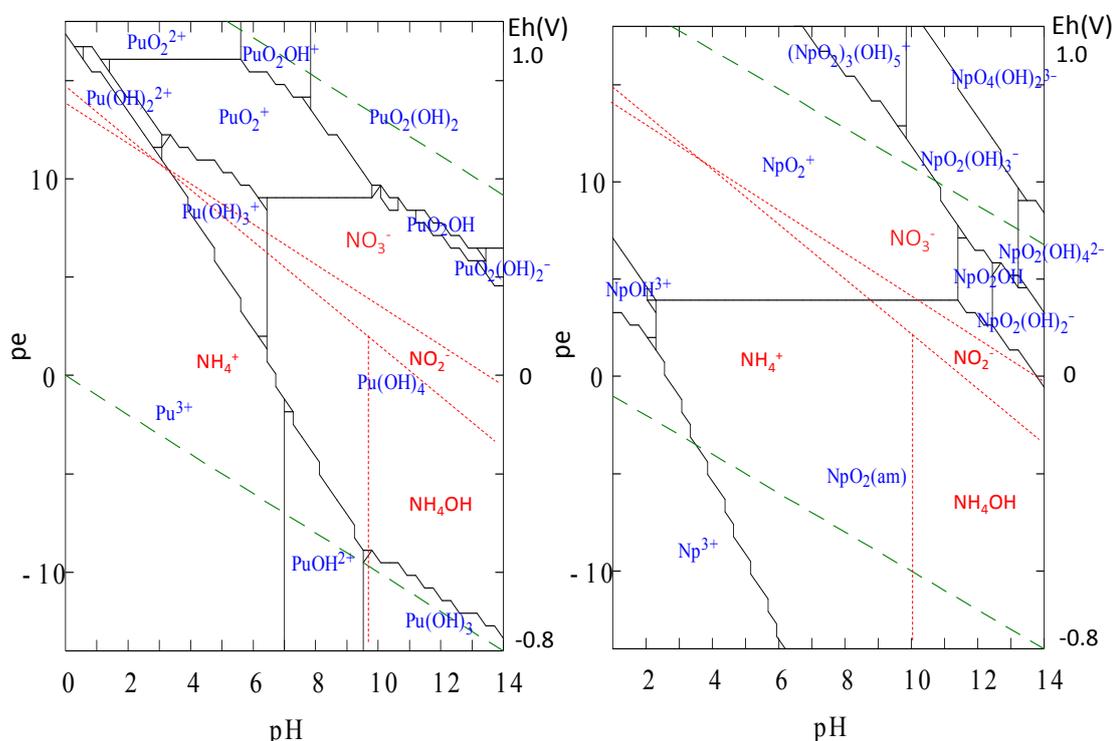


図 1-6 プルトニウムおよびネプツニウムのプルベダイアグラム  
 ( $[Pu]_{tot}, [Np]_{tot}=10^{-5} M, I = 0$ )

・他の相互影響因子の影響

1.1 節で述べたように TRU 廃棄物および HLW の地層処分施設間の相互影響因子のうち、有機物影響と高 pH 影響は、硝酸塩影響と同じく TRU 廃棄物に由来する影響因子である。特に、グループ 3 およびグループ 4 の廃棄体の充填材であるセメントは、地下水との接触により、可溶性成分が溶脱し、地下水の組成や pH を変化させる。セメントと地下水が接触した初期では、pH 13 以上の高アルカリ pH 環境が形成され、その後は水酸化カルシウム ( $Ca(OH)_2$ ) との溶解平衡、C-S-H ゲルからの Ca の選択的溶出により、

pHは連続的に低下すると想定されている(図 1-7)。また、溶液中に豊富に存在するカルシウムイオンは、水酸化カルシウムの他、地下水中の炭酸イオンとの反応によるカルサイト( $\text{CaCO}_3$ )の沈殿、 $\text{SO}_4^{2-}$ との反応によるエトリンガイト及び石膏の沈殿、 $\text{Cl}^-$ との反応によるフリーデル氏塩の沈殿を生成する可能性が指摘されている。セメント系材料の種類や接触する地下水の化学的條件、廃棄体から溶出する化学成分の影響により、セメント系材料間隙水の組成は変化する。上述の硝酸塩環境下での影響に加えて、セメント系材料による高 pH および高いカルシウムイオン濃度も考慮することが重要と考えられる。

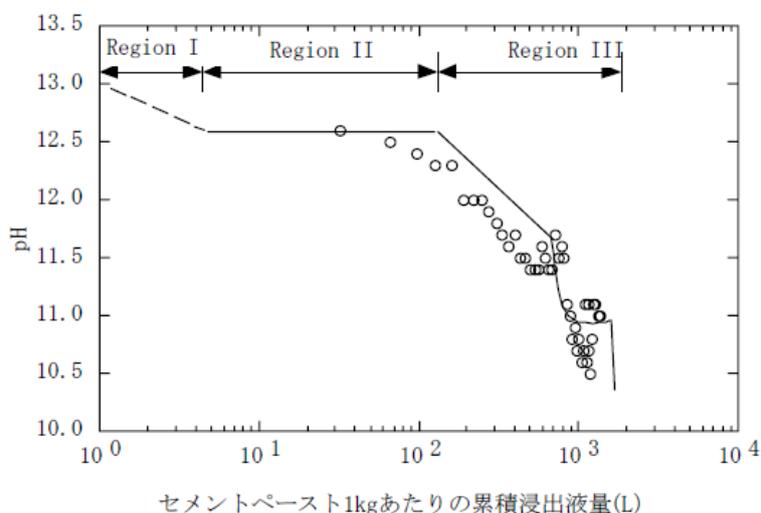


図 1-7 セメントと接触する溶液組成の変遷 (第2次 TRU レポート)

### 1.3 本研究の目的

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

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

「高濃度の硝酸イオンによる活量低下が錯生成反応に及ぼす影響」では、4価アクチノイドである4価プルトニウム(Pu(IV))と処分場内の間隙水あるいは処分場近傍の地下水に広範に存在する炭酸イオン( $\text{CO}_3^{2-}$ )の錯生成反応を対象とすることとした。4価プルトニウムと炭酸イオンの錯生成反応に関する研究は、Yamaguchi ら(Yamaguchi et al.,

1994) や Rai ら (Rai et al., 1999) によって行われ、 $\text{Pu}(\text{CO}_3)_5^{6-}$  や  $\text{Pu}(\text{CO}_3)_4^{4-}$ 、 $\text{Pu}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_2^{2-}$  が支配的溶存種として報告されている。しかし、いずれの実験も試料溶液のイオン強度 ( $I$ ) は低く ( $I < 0.3$ )、高イオン強度下での支配的溶存種や活量補正パラメータは十分明らかになっていない。高イオン強度下 (高濃度の硝酸ナトリウム溶液下) での実験データを取得し、SIT や Pitzer モデルなど既存の活量補正モデルの適用を試みる。イオン相互作用係数など活量補正に必要なモデルパラメータを求め、錯生成反応におけるイオン強度の影響を定量的に評価することを目指す。平成 28 年度までの研究では、4 価プルトニウムのアナログ元素である 4 価ジルコニウムを用いて、低イオン強度から高イオン強度までの炭酸イオン共存下での溶解度を測定し、ジルコニウム-炭酸錯生成反応に及ぼすイオン強度の影響について SIT を用いて解釈した。また、炭酸イオン共存下での 4 価プルトニウムの溶解度測定を行い、プルトニウム-炭酸錯生成反応に及ぼすイオン強度影響についても検討を行った。本年度は、炭酸イオン共存下での 4 価プルトニウムの溶解度実験を継続し、プルトニウム-炭酸錯生成反応のイオン強度影響の解釈を行う。

「水酸化物コロイドの凝集分散挙動に及ぼす硝酸イオン濃度の影響」では、コロイドの凝集分散を表す指標であるコロイドのゼータ電位に着目してきた。ジルコニウム水酸化物コロイドのゼータ電位の実測値は、これまで報告例がほとんどなく、平成 28 年度までの実験ではまず様々なイオン強度 (硝酸ナトリウム濃度) 下でのジルコニウム水酸化物コロイドのゼータ電位を測定した。一方、水酸化物コロイドの生成機構については、既往研究 (Sasaki et al., 2006, Kobayashi et al., 2009) において、加水分解種がランダムな方向に成長することによるものとの仮説が述べられ、粒径分布の再現が試みられている。そこで、本研究では、加水分解種から成る水酸化物コロイドの平均電荷とゼータ電位の実測値との相関について調べ、そのモデル化を目指すこととした。コロイドの凝集分散の指標であるゼータ電位の把握および予測を行うことで、コロイドの粒径評価、さらに移行特性評価に資することを目的とする。本年度は、平成 28 年度までに取得したジルコニウム水酸化物コロイドのゼータ電位の解釈およびそのモデル化を進めるため、ジルコニウム酸化物 ( $\text{ZrO}_2(\text{cr})$ ) のゼータ電位を測定し、モデルパラメータのより詳細な検討を実施した。

「硝酸イオンによる核種の酸化反応」では、中性～アルカリ性 pH 領域における硝酸イオンの酸化性について調べるため、まず、様々な濃度の硝酸ナトリウム溶液の pH および酸化還元電位 (Eh) を調べた。また、硝酸イオンと酸化還元対を形成し得る幾つかの還元剤を添加し、pH および Eh の値の変化を調べるとともに、平成 28 年度は硝酸イオンの還元生成物である亜硝酸イオンの濃度を測定することで、硝酸イオンの酸化性について検討を行ってきた。本年度は、硝酸塩溶液に 4 価ウランの水酸化物固相を添加し、ウランおよび亜硝酸イオン濃度の変化を測定することで、4 価ウランに対する硝酸イオンの酸化性について調べ、核種の酸化反応に及ぼす硝酸イオンの影響について考察した。

以上の項目について得られた知見を基に、4 価アクチノイドの見かけの溶解度に及ぼす硝酸塩の影響について総合的かつ定量的に評価する。図 1-3 に示すような硝酸イオンの時間および距離に応じた分布および炭酸イオン濃度や pH、Eh、カルシウム濃度の設定値を参考に幾つかの硝酸塩環境を設定し、錯生成定数や活量補正パラメータ、酸化還元電位など熱力学データから 4 価アクチノイドの見かけの溶解度を予測する。また、水酸化物コロイドが支配的の化学種となるような条件下では、コロイドのゼータ電位から予想される凝集分散の傾向について考察する。硝酸塩影響下での 4 価アクチノイドの見かけの溶解度やコロイド状態に関する成果は、溶解度のみならず、吸着や移流分散など硝酸塩影響を考慮した核種移行パラメータの設定およびその信頼性向上に資すると期待できる。

## 2 全体研究計画（4 ヶ年における全体計画）

4 価アクチノイドの硝酸塩環境下において想定される化学的挙動を図 2-1 に模式的に示す。TRU 廃棄物から溶出した 4 価アクチノイドは、廃棄体近傍において難溶性の水酸化物沈殿 ( $\text{An(IV)(OH)}_4(\text{am})$ ) を形成し、液相中の 4 価アクチノイドイオン ( $\text{An(IV)}^{4+}$ ) の濃度は、水酸化物沈殿との沈殿溶解反応により制限される。廃棄体近傍のセメント環境下ではカルシウムイオンが豊富に存在するため（数 mM の Ca 濃度が想定）、炭酸イオン濃度は炭酸カルシウム ( $\text{CaCO}_3$ ) 固相の生成により制限され、4 価アクチノイドの加水分解反応が支配的と考えられる。

水酸化物コロイドの凝集分散挙動に及ぼす硝酸イオン濃度の影響として、4 価アクチノイドのアナログである 4 価ジルコニウムの水酸化物コロイドを調製し、凝集分散挙動の指標となるゼータ電位を測定する。さらに、既往の熱力学データを用いてゼータ電位の pH や硝酸塩濃度に対する変化傾向の解釈を行い、熱力学データに基づくモデルを構築する。また、廃棄体近傍の高濃度の硝酸塩環境下では、硝酸イオンによる酸化的雰囲気形成されると考えられる。酸化還元に鋭敏な幾つかの核種は、硝酸イオンによって酸化される可能性が指摘されている。例えば、テクネチウムの場合、硝酸溶液中では 4 価テクネチウム固相 ( $\text{TcO}_2 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ ) は 7 価テクネチウムイオン ( $\text{TcO}_4^-$ ) に酸化されることが報告されている（日本原子力研究開発機構、2015）。しかし、硝酸イオンによる直接の影響は明確ではなく、4 価ネプツニウムや金属セレンなどでは硝酸塩による酸化状態への有意な影響は確認されなかったと報告されている（第 2 次 TRU レポート）。そこで、本研究では、様々な濃度の硝酸ナトリウム溶液の pH および酸化還元電位 (Eh) を調べるとともに硝酸イオンの還元生成物である亜硝酸イオンの濃度を測定することで、核種に対する硝酸イオンの酸化性について検討する。平成 27 年度は pH および Eh 測定実験、平成 28 年度は亜硝酸イオン濃度の測定実験を行い、平成 29 年度は 4 価ウランに

対する硝酸イオンの酸化性について検討する。

一方、セメント系材料に由来するカルシウム濃度がある程度低い条件下では、炭酸イオンが4価アクチノイドと安定な炭酸錯体を形成すると考えられる。本研究では、4価プルトニウムおよびそのアナログ元素であるジルコニウムと炭酸イオンの錯生成反応について、特に高イオン強度下での活量の低下が及ぼす影響に着目して調べる。希薄濃度から高濃度までの硝酸ナトリウム溶液に炭酸イオンを共存させ、4価プルトニウム水酸化物およびジルコニウム水酸化物の溶解度実験を実施する。溶解度のpH依存性や炭酸イオン濃度依存性から支配的な炭酸錯体を推定するとともに、溶解度の熱力学解析から錯生成定数や活量補正パラメータを求める。平成27年度にジルコニウムの溶解度実験、平成28年度および平成29年度はプルトニウムの溶解度実験および解析を実施し、炭酸錯体を含む溶解度に及ぼすイオン強度（活量）の影響について考察する。

最終年度である平成29年度は、前年度まで得られた結果を整理するとともに、いくつかの硝酸塩環境場を想定し、pH、硝酸塩濃度、Ca濃度などから4価アクチノイドの見かけの溶解度に及ぼす硝酸塩の影響について総合的に評価する。

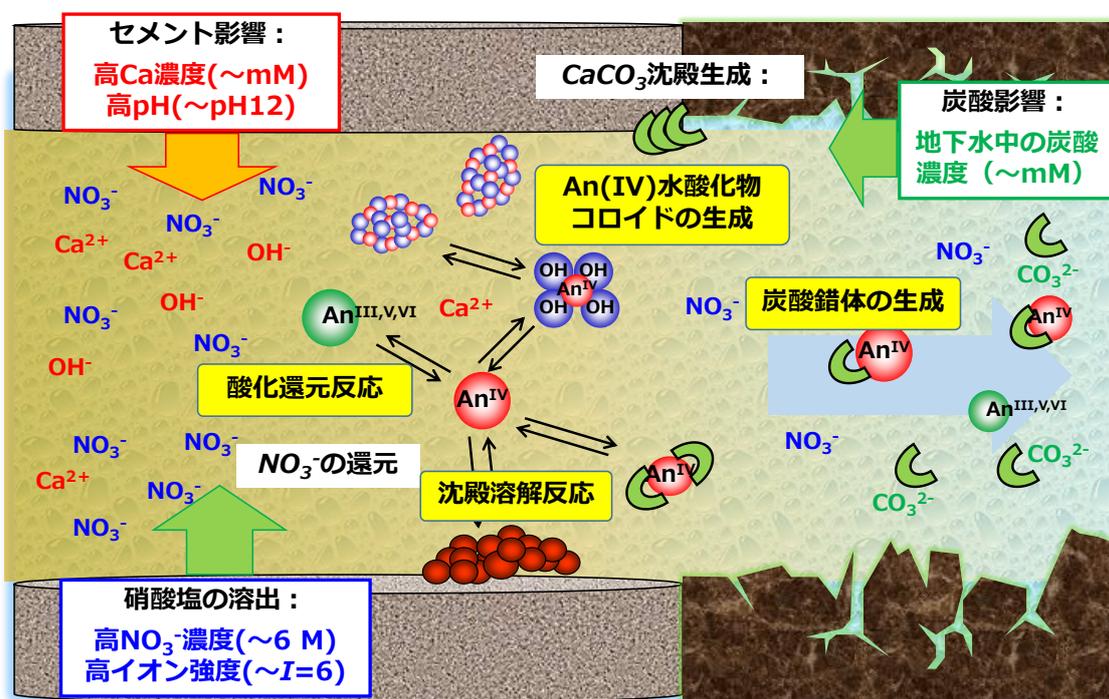


図 2-1 硝酸塩環境下での4価アクチノイドの溶液化学反応

### 3 平成 28 年度の成果概要

硝酸イオンによる活量低下が錯生成反応に及ぼす影響では、4 価プルトニウムの炭酸錯体を対象とした。0.1~5.0 M の硝酸ナトリウム ( $\text{NaNO}_3$ ) 溶液中において、様々な炭酸イオン濃度条件下でのプルトニウム水酸化物の溶解度を測定した。支配的なプルトニウム炭酸錯体について検討するとともに、溶解度のイオン強度依存性を、SIT を用いて解析することにより、錯生成反応に及ぼす硝酸ナトリウム濃度 (イオン強度) の影響を考察した。また、水酸化物コロイドの凝集分散挙動に及ぼす硝酸イオン濃度の影響については、平成 27 年度に引き続き、4 価ジルコニウム水酸化物コロイドのゼータ電位に着目し、ゼータ電位の値の pH や硝酸ナトリウム濃度 (イオン強度) の依存性について、加水分解定数などの熱力学データに基づくモデル化を試み、モデルパラメータの検討を進めた。さらに、硝酸イオンによる核種の酸化反応の検討では、硝酸イオン自身の還元反応に着目し、種々の還元剤を含む硝酸ナトリウム水溶液中の亜硝酸イオン濃度を測定し、pH および Eh との関連について考察した。以下にそれぞれの概略を示す。

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

0.1~5.0 M の硝酸ナトリウム溶液において様々な濃度の炭酸イオンを共存させ、プルトニウムのアモルファス水酸化物固相 ( $\text{Pu}(\text{OH})_4(\text{am})$ ) の見かけの溶解度を測定した。0.16 M 炭酸イオン共存下の pH 8~11 における溶解度は、炭酸イオンを含まないプルトニウム水酸化物の溶解度 (Rai et al., 1999) より高い値を示し (図 3-1)、pH 8.9 では炭酸イオン濃度の上昇とともにプルトニウム溶解度はおよそ傾き 3~4 で増加することが確認された (図 3-2)。図 3-1 および図 3-2 に示すように、pH 10 以下では、炭酸イオン濃度が同じ場合、イオン強度が高いほどプルトニウム溶解度も高くなる結果が見られた。一方、pH 10 以上では、イオン強度の違いによる溶解度の違いはほとんど表れなかった。

得られたプルトニウム溶解度の pH 依存性および炭酸イオン濃度依存性から、熱力学データに基づく溶解度の解析を行った。平成 28 年度の研究では、プルトニウム炭酸錯体に関する既往知見および 4 価プルトニウムと類似した化学的挙動を示す 4 価ジルコニウムの炭酸錯体を参考に、 $\text{Pu}(\text{CO}_3)_4^{4-}$ 、 $\text{Pu}(\text{CO}_3)_5^{6-}$  および  $\text{Pu}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_2^{2-}$  を支配的なプルトニウム炭酸錯体と仮定した。イオン強度補正モデルとして SIT を用い、溶解度データを解析することにより SIT におけるイオン相互作用係数  $\epsilon$  を求めた。正電荷を持つ錯体では、一般に電荷の値が大きくなるほど、イオン相互作用係数の値も大きくなるような傾向がこれまでに見られている (Guillaumont et al., 2005, Hummel et al., 2005)。一方、負電荷を持つ錯体では、負の値を持つイオン相互作用係数がこれまで報告されているが、熱力学解析によって求められたプルトニウムの炭酸錯体 ( $\text{Pu}(\text{CO}_3)_5^{6-}$ ) のイオン相互作用係数は、既報値とは異なり正の値を示す結果となった。

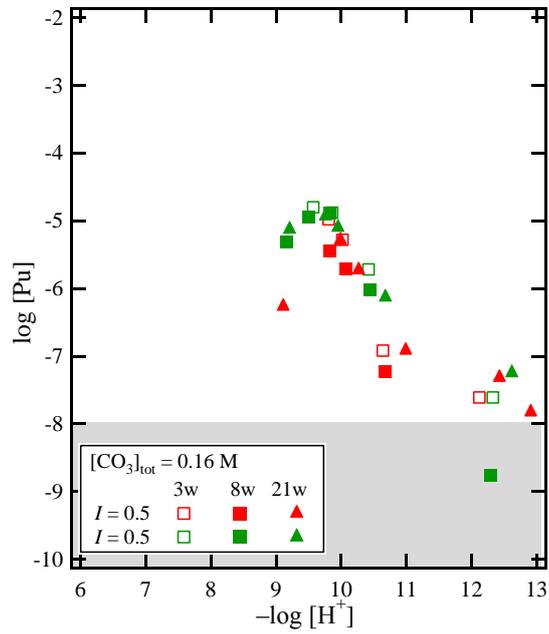


図 3-1 炭酸イオン (0.16 M) 共存下における 4 価プルトニウム溶解度 (平成 28 年度報告書より引用)

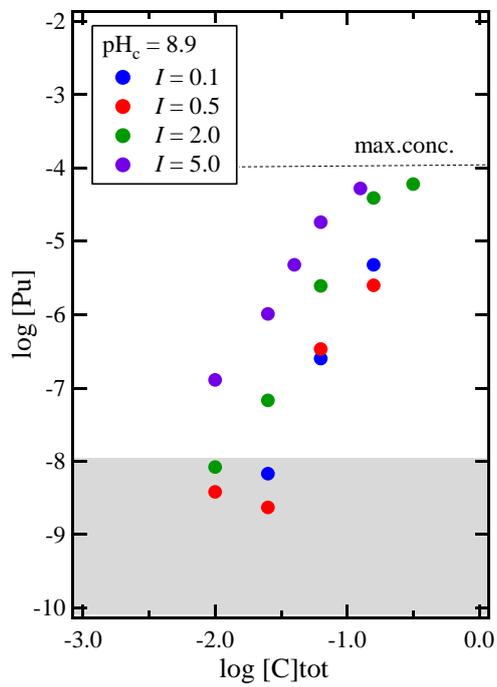


図 3-2 炭酸イオン共存下におけるプルトニウム溶解度 ( $pH_c = 8.9$ ) (平成 28 年度報告書より引用)

### 3.2 ジルコニウム水酸化物コロイド挙動の熱力学的検討

平成 28 年度の実験では、硝酸ナトリウムによりイオン強度を  $I = 0.03$  および  $0.1$  に調整した水溶液中でジルコニウム水酸化物コロイドを調製した。試料溶液をおよそ 1 カ月静置した後、試料溶液の pH を測定し、ゼータサイザーナノ ZS (Malvern) を用いて懸濁液の  $25^{\circ}\text{C}$  における電気泳動移動度 ( $u = V/E$  ( $\mu\text{m} \cdot \text{s}^{-1}/\text{V} \cdot \text{cm}^{-1}$ ))、 $V$ : 電気泳動速度、 $E$ : 外部電場の大きさ) を測定した。さらに、Smoluchowski の近似式を用いて電気泳動移動度からゼータ電位を算出した。

図 3-3 に  $I = 0.03$  および  $0.1$  におけるゼータ電位の値を、平成 27 年度に測定した  $I = 0.5$  および  $2.0$  における値とともに示す。各イオン強度におけるゼータ電位の値は、pH の上昇とともに低下しており、イオン強度が低いほどゼータ電位の絶対値は大きくなるような傾向が表れた。ゼータ電位の実験値に大きなイオン強度依存性が見られたことから、平成 27 年度までのモデルに新たに電気二重層を仮定し、ゼータ電位  $\Phi_{\zeta}$  を下式で表した。

$$\Phi_{\zeta} = \frac{e(Z + \Delta z)}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r r_0 f} \exp(\kappa x_{\zeta}) \quad (3-1)$$

$$\kappa = \sqrt{\frac{2nz^2 e^2}{\epsilon_0\epsilon_r kT}} \quad (3-2)$$

$e$  は素電荷、 $\epsilon_0$  は真空中の誘電率、 $\epsilon_r$  は水の比誘電率とし、水酸化物コロイド内部に取り込まれた溶媒イオンの効果を  $\Delta z$ 、水酸化物コロイドを形成する単核加水分解種間の平均距離の  $r_0$  に対する比を  $f$  で表した。また、 $x_{\zeta}$  を電気二重層中のすべり面までの厚さとした。

$I = 0.03 \sim 2.0$  のゼータ電位の実験値に対して、 $\Delta z$ 、 $f$  および  $x_{\zeta}$  をフリーパラメータとする最小二乗法による解析を試みたが、 $f$  と  $x_{\zeta}$  を同時に決定することは困難であったため、 $f=1$  とし、 $\Delta z$  および  $x_{\zeta}$  のみをフリーパラメータとする解析を行い、それぞれの値を求めた。すべり面までの距離  $x_{\zeta}$  は、イオン強度が高くなるほど小さくなっており、高イオン強度ほど電解質によってすべり面が圧縮される効果が表れていると考えられた。ただし、 $I = 0.03$  および  $2.0$  での電気二重層厚さ ( $1/\kappa$ ) を (3-2) 式を用いて計算すると、それぞれ  $1.7 \text{ nm}$ 、 $0.2 \text{ nm}$  となり、特に高イオン強度では  $x_{\zeta}$  の値が電気二重層厚さよりも厚いという  $x_{\zeta}$  が過大評価されるような結果となった。また、コロイド内部に取り込まれたイオンの効果とした  $\Delta z$  はイオン強度が高くなるほど小さくな

る傾向を示しており、これらパラメータ値の解釈が今後の課題と考えられた。

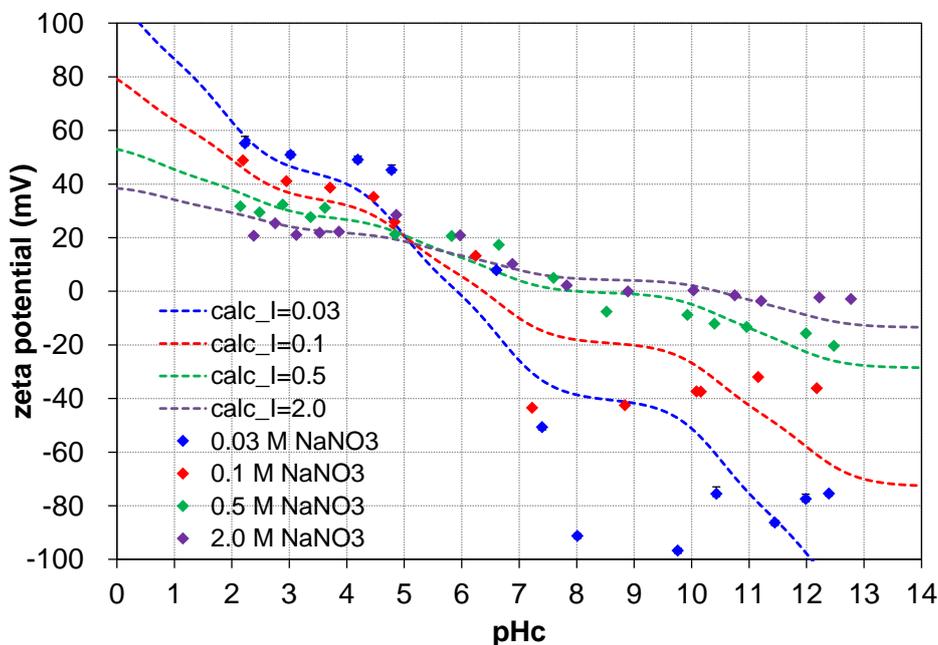


図 3-3 ジルコニウム水酸化コロイドのゼータ電位の実験値と計算値 ( $I = 0.03 \sim 2.0$ ) (平成 28 年度報告書より引用)

### 3.3 $\text{NaNO}_3$ による酸化還元反応の検討

平成 27 年度までの検討では、硝酸イオンを含む試料溶液の pH および Eh 値を測定したが、その値に硝酸イオンによる影響は見られなかった。そこで、平成 28 年度は、pH および Eh 値を測定するとともに、硝酸イオンの濃度変化を直接調べることによって硝酸イオンの酸化剤としての働きについて検討した。還元剤として、ヒドロキノン ( $\text{C}_6\text{H}_4(\text{OH})_2$ )、亜ジチオン酸ナトリウム ( $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ )、塩化スズ(II) ( $\text{Sn}(\text{II})\text{Cl}_2$ ) および鉄粉 ( $\text{Fe}(0)$ ) を用い、これらを共存させた硝酸ナトリウム水溶液および亜硝酸ナトリウム水溶液中の亜硝酸イオンの濃度を測定した。

まず、還元剤による硝酸ナトリウム溶液の還元実験の結果について述べる。HQ、 $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ 、 $\text{Sn}(\text{II})$  および  $\text{Fe}(0)$  を 3 カ月間、共存させた硝酸ナトリウム溶液の Eh 値は、硝酸イオン ( $\text{NO}_3^-$ ) と亜硝酸イオン ( $\text{NO}_2^-$ ) または亜硝酸イオン ( $\text{NO}_2^-$ ) とアンモニウム ( $\text{NH}_3$ ) の酸化還元電位より低く、硝酸イオンは還元されると考えられた。このとき、各試料溶液の上澄み液 1 ml を採取し、試料溶液中に含まれる亜硝酸イオン濃度を測定したところ、 $\text{Fe}(0)$  共存下では、 $10^{-3}$  M 程度の亜硝酸イオンが測定され、硝酸イオンの還元反応が進

行していると考えられた。一方、HQ、 $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ 、および Sn(II) を共存させた系では、亜硝酸イオン濃度は検出限界以下 ( $< 10^{-5} \text{ M}$ ) となり、硝酸イオンの亜硝酸イオンへの還元反応はほとんど進行していないことが示唆された。Sn(II) は中性およびアルカリ性 pH では、水酸化物沈殿 ( $\text{Sn}(\text{OH})_2(\text{s})$ ) を形成するが、還元性の固相共存下でも硝酸イオンの還元反応は起こりにくいと考えられた。

次に、還元剤による亜硝酸ナトリウム溶液の還元実験の結果について述べる。還元剤を共存させた亜硝酸ナトリウム溶液の Eh 値はいずれの系においても硝酸ナトリウム溶液の値とほぼ同じ値を示した。測定された Eh 値は、亜硝酸イオン ( $\text{NO}_2^-$ ) とアンモニウム ( $\text{NH}_3$ ) の酸化還元電位より低く、亜硝酸イオンは還元されると考えられた。このとき、亜硝酸ナトリウム溶液中の亜硝酸イオン濃度の変化を測定した結果を図 3-4 に示す。還元反応の進行は、還元剤によって異なっており、Fe(0) 固相では初期の亜硝酸イオン濃度が 1/10 程度に低下したのに対し、HQ や  $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$  では初期の亜硝酸イオン濃度はわずかに低下するに留まった。

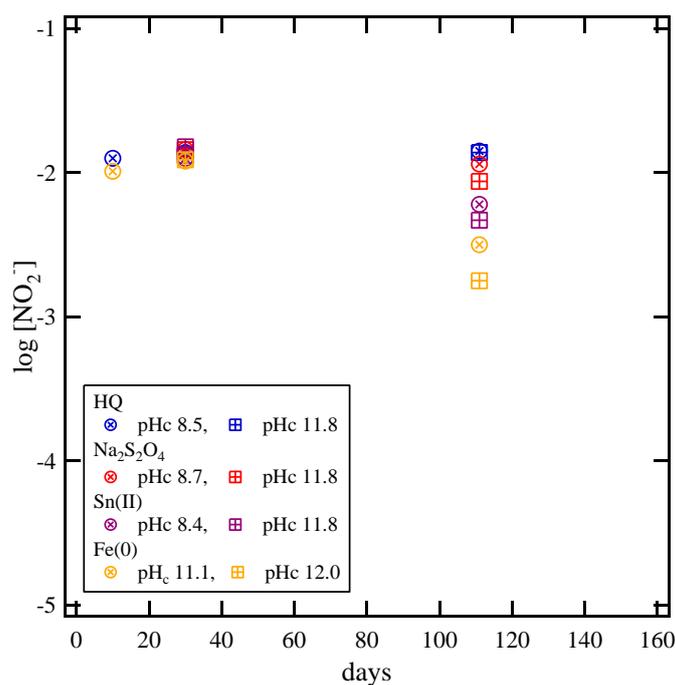


図 3-4 還元剤共存下での亜硝酸ナトリウム試料溶液中の亜硝酸イオン濃度 (平成 28 年度報告書より引用)

## 4 平成 29 年度研究実施内容

### 4.1 平成 29 年度の計画、実施方法

平成 28 年度は、炭酸イオン共存下での 4 価プルトニウム溶解度実験を行い、溶解度の pH 依存性、炭酸イオン濃度依存性およびイオン強度依存性を調べ、SIT を用いた溶解度の解析から  $\text{Pu}(\text{CO}_3)_5^{6-}$  および  $\text{Pu}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_2^{2-}$  のイオン相互作用係数  $\epsilon$  をそれぞれ  $0.45 \pm 0.37$  および  $-0.07 \pm 0.10$  と求めた。3.1 節で述べたように、得られた  $\epsilon$  の値は、既報値の傾向 (Guillaumont et al., 2005) と大きく異なることから、平成 29 年度は、実験データの確認およびイオン強度補正モデルの再検討を行うこととする。特に、高イオン強度のプルトニウムの溶解度測定では、フィルター限外ろ過した試料溶液を蒸発乾固させる際、高濃度の塩が析出することで  $\alpha$  線スペクトロメトリにおいて自己遮蔽が起これ、プルトニウム濃度を過少評価する可能性がある。そこで、ろ液の希釈率を変えた試料を測定することで自己遮蔽の効果について確認することとした。また、支配的な溶存化学種を見直すとともに、イオン強度補正モデルとして、SIT とともにより高イオン強度での適用性が示されている Pitzer 法を用いた解析も併せて行い、4 価プルトニウムの炭酸錯生成反応におけるイオン強度影響について定量的に評価する。

4 価金属水酸化物のコロイド挙動については、0.03~2.0 M の硝酸ナトリウム水溶液中におけるジルコニウム水酸化物コロイドのゼータ電位の pH およびイオン強度依存性を調べ、その変化傾向を再現できる熱力学モデルの構築を進めてきた。平成 29 年度は、新たにジルコニウム酸化物のゼータ電位の pH およびイオン強度依存性を調べることにより、熱力学モデルにおけるパラメータに関する検討を深める。特に、0.01~0.5 M の硝酸ナトリウムおよび塩化ナトリウム水溶液中におけるジルコニウム酸化物のゼータ電位の pH およびイオン強度依存性を調べ、ジルコニウム酸化物表面におけるプロトン解離反応をモデル化、水酸化物コロイドの熱力学モデルに取り入れることを目指す。また、硝酸ナトリウムや塩化ナトリウムなど 1 価イオンの電解質溶液に加えて、塩化カルシウム溶液中におけるジルコニウム酸化物のゼータ電位も測定し、電解質の電荷の影響についても考察し、モデルの高度化を進めることとする。

硝酸イオンが核種の酸化還元反応に及ぼす影響では、平成 28 年度は還元剤であるヒドロキノン、亜ジチオン酸ナトリウム、塩化スズ (II) および鉄粉 (Fe(0)) をそれぞれ硝酸ナトリウム水溶液または亜硝酸ナトリウム水溶液に添加した。試料溶液中の亜硝酸イオン濃度を定量することで、硝酸イオンまたは亜硝酸イオンの還元反応について調べ、鉄粉 (Fe(0)) 以外の還元剤では、亜硝酸および硝酸イオンの還元反応が非常に遅いことを確認した。平成 29 年度は、還元剤として 4 価ウランの水酸化物 ( $\text{UO}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}(\text{am})$ ) を硝酸ナトリウム水溶液または亜硝酸ナトリウム水溶液に添加し、亜硝酸イオン濃度およびウラン濃度の変化を調べた。硝酸イオンまたは亜硝酸イオンが 4 価ウランの酸化反応に及ぼす影響について考察する。

また、平成 29 年度までの 4 年間で得られた知見を基に、硝酸イオン濃度、炭酸イオ

ン濃度、pH、Eh およびカルシウム濃度などを設定した幾つかの硝酸塩環境場を想定し、錯生成定数や活量補正パラメータ、酸化還元電位など熱力学データから 4 価アクチノイドの見かけの溶解度を予測する。さらに、水酸化コロイドが支配的化学種となるような条件下では、コロイドのゼータ電位から予想される凝集分散の傾向について考察する。これらの結果をもとに 4 価アクチノイドの見かけの溶解度に及ぼす硝酸塩の影響について総合的に検討する。

## 4.2 平成 29 年度の成果内容

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

#### 4.2.1.1 炭酸イオン共存下におけるプルトニウム溶解度試料の調製

平成 29 年度は新たに追加試料を調製し、その溶解度を測定するとともに、上述のように  $\alpha$  線測定の際の希釈率を変えた測定も併せて行った。プルトニウムは、平成 27 年度に精製した Pu-239 (100%) の母溶液を用い、実験は京都大学原子炉実験所ホットラボのジュニアケープ室のグローブボックス内で行った。精製したプルトニウムの母溶液 ( $[\text{Pu}] = \text{約 } 3 \text{ mM}, 8.8 \text{ mL}$ ) に 50 mM 塩酸ヒドロキシルアミン ( $\text{H}_3\text{NO}\cdot\text{HCl}$ , 和光純薬工業, 99%) 1 mL および 100 mM 亜硝酸ナトリウム ( $\text{NaNO}_2$ , 和光純薬工業, 98.5%) 1 mL を添加し、プルトニウムの酸化状態を 4 価に調整した。このときのプルトニウム母溶液の UV-Vis スペクトルを測定し、酸化状態を確認した。次に、試料溶液を不飽和法により調製するため、4 価プルトニウムの母溶液に水酸化ナトリウム水溶液 ( $\text{NaOH}$ , 和光純薬工業, 99%) を加え、プルトニウム水酸化物 ( $\text{Pu}(\text{OH})_4(\text{am})$ ) を沈殿させた懸濁母溶液を作成した。プルトニウム水酸化物の懸濁母溶液を PP 製試験管チューブに分取し、予め、硝酸 ( $\text{HNO}_3$ , 和光純薬工業, 99%) または水酸化ナトリウム水溶液により pH、炭酸水素ナトリウム ( $\text{NaHCO}_3$ , 和光純薬工業, 99%) により炭酸イオン濃度 ( $[\text{CO}_3]_{\text{tot}}$ ) および硝酸ナトリウム ( $\text{NaNO}_3$ , 和光純薬工業, 99%) によりイオン強度 ( $I$ ) を調整した試料溶液を添加した。このとき、分取したプルトニウム水酸化物の量は、固相が全溶解した場合の濃度が  $1 \times 10^{-4} \text{ M}$  となるようにした。また、還元雰囲気を維持するため、亜ジチオン酸ナトリウムを濃度が 1 mM となるように添加した。平成 29 年度に新たに調製した試料溶液の一覧を表 4-1 に示す。なお、プルトニウム固相および試料溶液の調製は全て Ar 雰囲気グローブボックス内にて行った。

所定の期間後、グローブボックス内にて各試料溶液の水素イオン濃度 (pHc) および酸化還元電位 (Eh 値) を測定した。pHc は堀場製作所社製の pH メータ (D-50) および温度補償型 pH 複合電極 (9615-10D, 堀場製作所社製) を用いて測定した。pH 電極は、pH 電極校正液 (pH4, 7: 堀場製作所社製) を用いて校正を行った。各イオン強度における校正曲線は、 $\text{NaNO}_3$  によりイオン強度を調整した  $\text{HNO}_3$  および  $\text{NaOH}$  標準液 (和光純薬工業) の pH を予め測定し、測定 pH から水素イオン濃度への補正を行った。Eh 測定には、堀場製作所社製の ORP 電極 (9300-10D, 堀場製作所社製) を用いた。測定値は、 $p_e =$

(Eh (mV) + 208) / 1000 / 0.059 により標準水素電極電位 (N. H. E.) による pe 値に換算した。

表 4-1 平成 29 年度のプルトニウム-炭酸試料溶液一覧

Sample No.	目標 pHc	<i>I</i>	log [CO <sub>3</sub> ] <sub>tot</sub>	[NaNO <sub>3</sub> ] M	Volume (mL)
PCN-31	8	0.5	-0.8	0.5	6
PCN-32	8.5	0.5	-0.8	0.5	6
PCN-33	9	0.5	-0.8	0.5	6
PCN-34	9.5	0.5	-0.8	0.5	6
PCN-35	10	0.5	-0.8	0.5	6
PCN-36	10.5	0.5	-0.8	0.5	6
PCN-37	11	0.5	-0.8	0.5	6
PCN-38	8	2	-0.8	2	6
PCN-39	8.5	2	-0.8	2	6
PCN-40	9	2	-0.8	2	6
PCN-41	9.5	2	-0.8	2	6
PCN-42	10	2	-0.8	2	6
PCN-43	10.5	2	-0.8	2	6
PCN-44	11	2	-0.8	2	6

試料溶液の pHc および Eh 測定を行った後、上澄み液 300 μl を採取、限外ろ過フィルター (10 kDa, 孔径約 3 nm, マイクロコン、ミリポア) を用いて限外ろ過した。回収したろ液から 30 μl を分取し、ステンレス製パンの上で赤外線ランプにより乾固させ、α線スペクトロメトリ用の試料とした。このとき、いくつかの試料溶液については、ろ液を純水により 5、25、125 倍希釈した後、30 μl を分取し、α線スペクトロメトリ用の試料を作成した。α線測定にはキャンベラジャパン社製のアルファスペクトロメータ (7401 型) およびアルファ PIPS 検出器 (A1200-32AM) を用いた。アルファ線測定におけるエネルギー校正および検出効率補正は、<sup>241</sup>Am (α線 5.486MeV, 85.1%) の標準線源により行った。プルトニウム試料の α線 (Pu-239 ; 5.244MeV, 100%) を測定し、検出効率からろ液に含まれるプルトニウム濃度を決定した。このとき、プルトニウム濃度の検出限界はおよそ 1×10<sup>-8</sup> M であった。

#### 4.2.1.2 炭酸イオン共存下における4価プルトニウム溶解度

図 4-1 に 0.16 M 炭酸イオン ( $\log [\text{CO}_3]_{\text{tot}} = -0.8$ ) 共存下における試料溶液の pH および Eh 値を示す。昨平成 28 年度と同様、試料溶液の pH および Eh 値は 4 価プルトニウムが安定な領域に維持されていることが確認できた。試料溶液には還元雰囲気を維持するために亜ジチオン酸ナトリウム 1 mM を添加したが、Eh の測定値は、硝酸ナトリウム溶液または塩化ナトリウム溶液中の亜ジチオン酸ナトリウムの Eh 測定値 (平成 27 年度において測定) と比較して 0.5 V 以上高い値を示す結果となった。試料溶液調製直後は低い Eh 値であったため、4 価プルトニウム水酸化物固相を添加することによって、Eh 値が上昇したと考えられた。

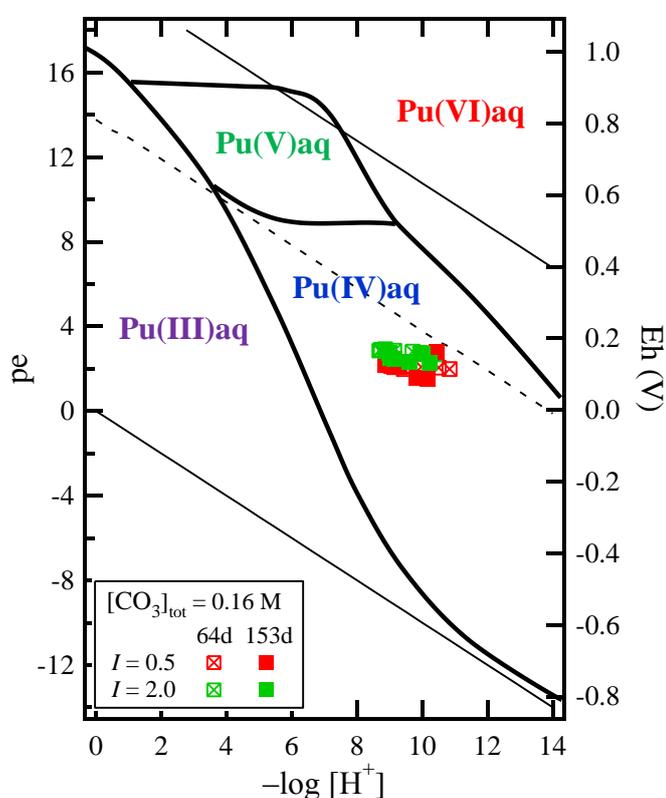


図 4-1 炭酸イオン (0.16 M) 共存下における試料溶液の pH および Eh 値

図 4-2 に平成 29 年度に得られた 0.16 M 炭酸イオン共存下における試料溶液のプルトニウム溶解度 (10kDa フィルターろ過) を示す。また、平成 28 年度に得られた値も併せて図 4-2 に示した。I = 2.0 では平成 28 年度の値を概ね再現するような結果が得られ、pH 9~10 の領域におけるプルトニウム溶解度はおよそ  $10^{-5}$  M、pH 10 以上では pH とともに溶解度は減少するような傾向が見られた。一方、I = 0.5 では、プルトニウム

溶解度は pH 8.5~9.0 付近にかけて少し増加した後、pH 9 以上では pH とともに溶解度が低下する傾向が見られた。平成 28 年度の結果と比較すると、平成 29 年度は 0.5~1 桁程度低い値を示す結果となり、特に 153 日後の溶解度は低い値を示した。

そこで、いくつかの試料溶液について 10kDa フィルターで限外ろ過した後、ろ液を 5、25 および 125 倍希釈して  $\alpha$  線測定用の試料を作成した。pH 8.7、 $[\text{CO}_3]_{\text{tot}} = 0.16 \text{ M}$  および  $I = 2.0 \text{ M}$  における試料の  $\alpha$  線スペクトロメトリを図 4-3 に示す。 $^{239}\text{Pu}$  の 5.15 MeV の  $\alpha$  線に相当するピークが表れているが、希釈倍率が高く、即ち、塩濃度が低くなるにつれてピークのテイルが小さくなる傾向が見られた。各希釈濃度の測定結果から Pu 溶解度を算出すると、希釈倍率の違いにより  $\log [\text{Pu}] = 0.4$  程度の誤差が存在することが分かった。一方、 $I = 0.5 \text{ M}$  の試料 (pH 8.9 および 9.3、 $[\text{CO}_3]_{\text{tot}} = 0.16 \text{ M}$ ) では希釈倍率の違いにより  $\log [\text{Pu}] = 0.2$  程度の誤差が存在すると考えられた。図 4-2 に見られるように、本研究では溶解度プロットのばらつきが大きいいため、塩濃度による溶解度の補正は行わないこととした。

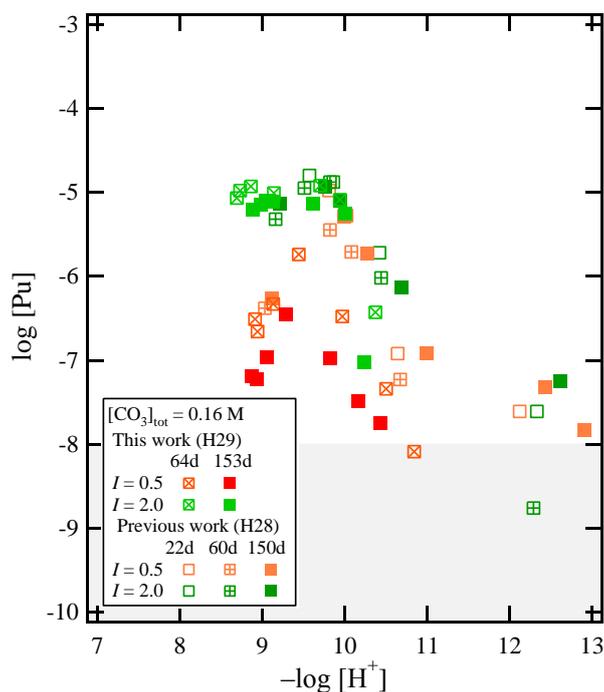


図 4-2 炭酸イオン (0.16 M) 共存下における試料溶液の Pu 溶解度 (10kDa ろ過)

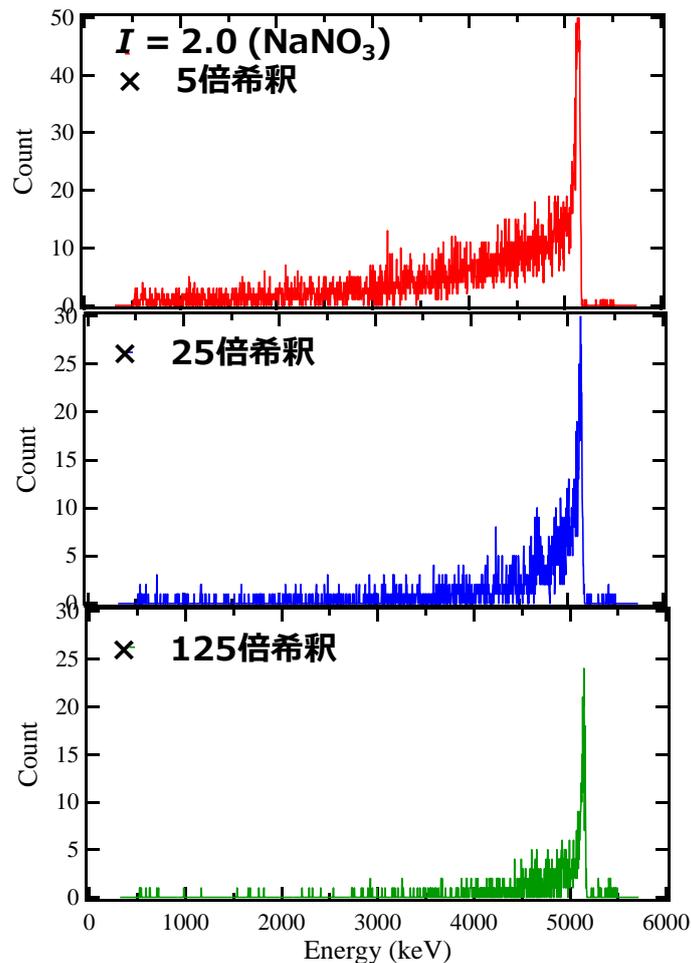


図 4-3 試料 (pH 8.7,  $[\text{CO}_3]_{\text{tot}} = 0.16 \text{ M}$ ,  $I = 2.0 \text{ M}$ ) の  $\alpha$  線スペクトロメトリ

#### 4. 2. 1. 3 4 価プルトニウム溶解度の熱力学解析

次に、平成 28 年度および平成 29 年度に得られたプルトニウム溶解度の pH 依存性、炭酸イオン濃度依存性およびイオン強度依存性に対して、熱力学データに基づく解析を行い、活量補正を含む溶解度の熱力学モデルを構築する。平成 28 年度の解析では、4 価プルトニウムと類似した化学的挙動を示すアナログ元素である 4 価ジルコニウムの炭酸錯体 ( $\text{Zr}(\text{CO}_3)_4^{4-}$ ,  $\text{Zr}(\text{CO}_3)_5^{6-}$  および  $\text{Zr}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_2^{2-}$ ) を参考に、同種の 4 価プルトニウム炭酸錯体 ( $\text{Pu}(\text{CO}_3)_4^{4-}$ ,  $\text{Pu}(\text{CO}_3)_5^{6-}$  および  $\text{Pu}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_2^{2-}$ ) を支配的な錯体種として仮定した。しかし、 $\text{Pu}(\text{CO}_3)_4^{4-}$  を解析に含めることはできず、得られた  $\text{Pu}(\text{CO}_3)_5^{6-}$  の SIT におけるイオン相互作用係数の値は、負の電荷を持つ化学種のイオン相互作用係数の値としては非常に大きな値となった ( $\epsilon(\text{Pu}(\text{CO}_3)_5^{6-}, \text{Na}^+) = 0.45 \pm 0.37$ )。また、ジルコニウムは、プルトニウムのアナログ元素とされ、加水分解定数や溶解度積などいくつかの熱力学定数では、両者は非常に近い値を示すことが知られている (Brown et al., 2005)。

しかし、ジルコニウムおよびプルトニウムの炭酸錯体の錯生成定数の値を比較すると、 $\log \beta (\text{Zr}(\text{CO}_3)_4^{4-})=42.4$  (Kobayashi et al., 2017) に対して  $\log \beta (\text{Pu}(\text{CO}_3)_4^{4-})=37$  (Guillaumont et al., 2005) と、プルトニウムの方が5桁以上小さい値を示す。このため、平成28年度の解析では、プルトニウム炭酸錯体 ( $\text{Pu}(\text{CO}_3)_4^{4-}$ 、 $\text{Pu}(\text{CO}_3)_5^{6-}$ および  $\text{Pu}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_2^{2-}$ ) の寄与によって溶解度の実験値を再現するため、固相である  $\text{Pu}(\text{OH})_4(\text{am})$  の溶解度積の値を高く設定する必要があった。そこで、今年度の解析では、 $\text{Pu}(\text{OH})_4(\text{am})$  の溶解度積に既報値 (Guillaumont et al., 2005) を用い、支配的な溶存種について、再検討を行うこととした。

まず、溶解度制限固相を  $\text{Pu}(\text{OH})_4(\text{am})$  とし、プルトニウムイオン ( $\text{Pu}^{4+}$ ) の濃度を溶解度積 ( $\log K_{\text{sp}4} = -58.33$ , Guillaumont et al., 2005) により下式で表す。



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

また、プルトニウム溶解度に対して、炭酸イオン濃度が十分高いことから、炭酸イオン濃度 ( $[\text{CO}_3^{2-}]$ ) は、全炭酸濃度 ( $[\text{CO}_3]_{\text{tot}}$ ) を用いて下式で表される。

$$[\text{C}]_{\text{tot}} = [\text{H}_2\text{CO}_3] + [\text{HCO}_3^-] + [\text{CO}_3^{2-}] \quad (4-3)$$

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

ここで、 $\text{pKa}_1$  および  $\text{pKa}_2$  は炭酸イオンの解離定数 ( $\text{pKa}_1=6.35$ 、 $\text{pKa}_2=10.33$ 、 $I=0$ ) を表す。

4価プルトニウムの炭酸錯体の錯生成定数については、既報文献において以下の式で表される  $\text{Pu}(\text{CO}_3)_4^{4-}$  および  $\text{Pu}(\text{CO}_3)_5^{6-}$  の錯生成定数が報告されている ( $\log \beta_{104} = 37$ 、 $\log \beta_{105} = 35.65$ , Guillaumont et al., 2005)。



$$\log \beta_{104} = \log [\text{Pu}(\text{CO}_3)_4^{4-}] - \log [\text{Pu}^{4+}] - 4 \log [\text{CO}_3^{2-}] \quad (4-6)$$



$$\log \beta_{105} = \log[\text{Pu}(\text{CO}_3)_5^{6-}] - \log[\text{Pu}^{4+}] - 5\log[\text{CO}_3^{2-}] \quad (4-8)$$

まず、これらの溶解度積 ( $\log K_{sp4}$ ) および 2 元の炭酸錯体の錯生成定数を用いて、0.16 M の全炭酸イオン濃度下におけるプルトニウムの溶解度を熱力学計算によって求めた。一例として、SIT により  $I = 2.0$  に計算された炭酸イオン共存下におけるプルトニウム溶解度曲線を実験値と比較して図 4-4 に示す。実験値に対して、計算される  $\text{Pu}(\text{CO}_3)_4^{4-}$  および  $\text{Pu}(\text{CO}_3)_5^{6-}$  の濃度はおよそ 3 桁程度低く、 $\text{Pu}(\text{CO}_3)_4^{4-}$  および  $\text{Pu}(\text{CO}_3)_5^{6-}$  では、実験値を再現できないことが示唆された。

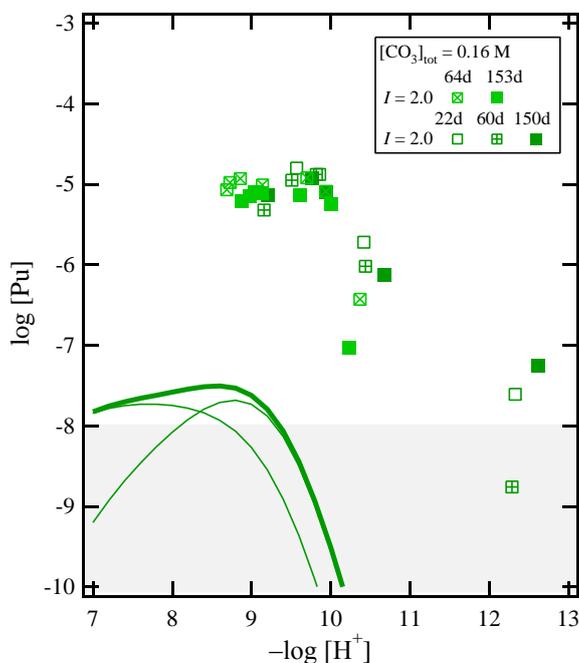


図 4-4 炭酸イオン (0.16 M) 共存下における試料溶液の Pu 溶解度 ( $I = 2.0$ ) の熱力学計算結果 ( $\text{Pu}(\text{CO}_3)_4^{4-}$  および  $\text{Pu}(\text{CO}_3)_5^{6-}$ )

そこで、プルトニウム溶解度の pH 依存性および炭酸濃度依存性を再現可能な錯体として、下式で示される  $\text{Pu}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$  の存在を仮定し、溶解度 ( $[\text{Pu}]_{\text{tot}}$ ) を表した。



$$\log \beta_{123} = \log[\text{Pu}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_3^{4-}] - \log[\text{Pu}^{4+}] - 2\log[\text{OH}^-] - 3\log[\text{CO}_3^{2-}] \quad (4-10)$$

$$\begin{aligned} [\text{Pu}]_{\text{tot}} &= [\text{Pu}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_3^{4-}] \\ &= \frac{K_{\text{sp4}}}{[\text{OH}^-]^4} \beta_{123} [\text{OH}^-]^2 [\text{CO}_3^{2-}]^3 = \frac{K_{\text{sp4}} \beta_{123}}{K_w^2} [\text{CO}_3^{2-}]^3 [\text{H}^+]^2 \end{aligned} \quad (4-11)$$

なお、pH 7～12 における炭酸イオン共存下でのプルトニウム溶解度に対して、加水分解種 ( $\text{Pu}(\text{OH})_m^{(4-m)+}$  ( $m = 1-4$ )) の寄与は十分小さいことから、式(4-11)ではその存在を無視することとした。

#### ・SIT によるイオン強度補正

式(4-11)に基づいた溶解度の解析を行うためには、溶解度積 ( $K_{\text{sp4}}$ ) および水のイオン積 ( $K_w$ ) の値を各イオン強度に補正するとともに、イオン強度毎に得られた錯生成定数の値から  $I = 0$  における値を求める必要がある。ここでは、平成 28 年度と同様、SIT 法を適用した結果を示す。SIT 法では、任意のイオン強度  $I$  における溶解度積および錯生成定数 ( $\log K_{\text{sp4}}$ ,  $\log \beta_{123}$ ) は、イオン強度 0 における値 ( $\log K_{\text{sp4}}^\circ$ ,  $\log \beta_{123}^\circ$ ) を用いて下式のように表される。

$$\begin{aligned} \log K_{\text{sp4}} &= \log K_{\text{sp4}}^\circ + \log \gamma_{\text{Pu}^{4+}} + 4\log \gamma_{\text{OH}^-} \\ &= \log K_{\text{sp4}}^\circ + 20D - \left\{ \varepsilon(\text{Pu}^{4+}, \text{NO}_3^-) + 4\varepsilon(\text{OH}^-, \text{Na}^+) \right\} \cdot I_m \end{aligned} \quad (4-12)$$

$$\begin{aligned} \log \beta_{123} &= \log \beta_{123}^\circ + \log \gamma_{\text{Pu}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_3^{4-}} - (\log \gamma_{\text{Pu}^{4+}} + 2\log \gamma_{\text{OH}^-} + 3\log \gamma_{\text{CO}_3^{2-}}) \\ &= \log \beta_{123}^\circ + 14D - \left\{ \varepsilon(\text{Pu}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_3^{4-}, \text{Na}^+) - \varepsilon(\text{Pu}^{4+}, \text{NO}_3^-) \right. \\ &\quad \left. - 2\varepsilon(\text{OH}^-, \text{Na}^+) - 3\varepsilon(\text{CO}_3^{2-}, \text{Na}^+) \right\} \cdot I_m \end{aligned} \quad (4-13)$$

ここで、 $D$  はデバイヒュッケル項、 $\varepsilon$  はそれぞれの化学種のイオン相互作用係数を表す。解析では、溶解度積および錯生成定数を式(4-12)および(4-13)を用いて、溶解度実験における各イオン強度での値に補正し、式(4-11)において  $\log \beta_{123}$  をフィッティングパラメータとする最小二乗法による解析を行い、各イオン強度における  $\log \beta_{123}$  の値を求めた。 $\log \beta_{123}$  から下式で定義される  $\log K_{123}$  を求め、イオン強度依存性を示した結果を図 4-5 に示す。



$$\log K_{123} = \log[\text{Pu}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_3^{4-}] + 2\log[\text{OH}^-] - 3\log[\text{CO}_3^{2-}] \quad (4-15)$$

$$\begin{aligned} \log K_{123} &= \log K_{123}^\circ + \log \gamma_{\text{Pu}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_3^{4-}} + 2\log \gamma_{\text{OH}^-} - 3\log \gamma_{\text{CO}_3^{2-}} \\ &= \log K_{123}^\circ - 6D - \left\{ \varepsilon(\text{Pu}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_3^{4-}, \text{Na}^+) \right. \\ &\quad \left. + 2\varepsilon(\text{OH}^-, \text{Na}^+) - 3\varepsilon(\text{CO}_3^{2-}, \text{Na}^+) \right\} \cdot I_m \end{aligned} \quad (4-16)$$

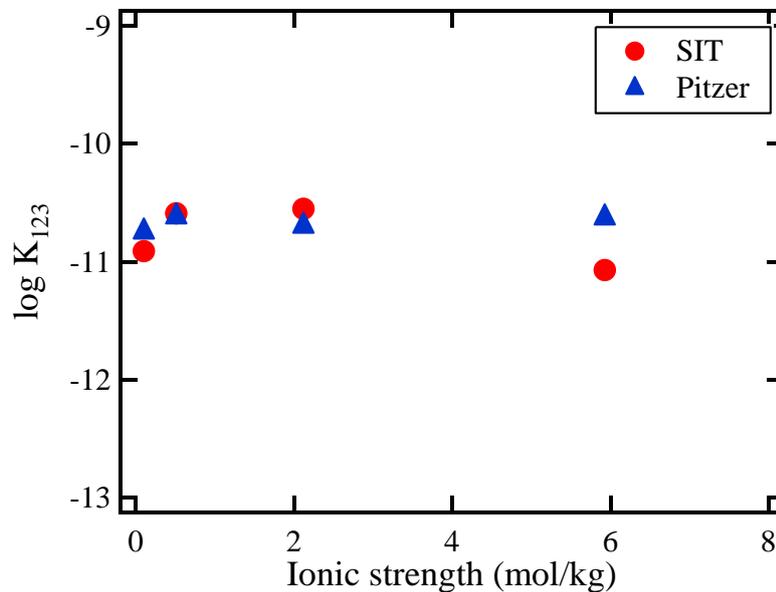


図 4-5  $\text{Pu}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$  の錯生成定数  $\log K_{123}$  のイオン強度依存性

“ $\log K_{123} + 6D$ ” に対する  $I$  の傾きから  $\varepsilon(\text{Pu}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_3^{4-}, \text{Na}^+) = -0.13 \pm 0.06$ 、切片から  $\log K_{123}^\circ = -11.5 \pm 0.2$ 、 $\log \beta_{123}^\circ = -46.8 \pm 0.2$  と求めた。得られた錯生成定数およびイオン相互作用係数を表 4-2 および表 4-3 にまとめるとともに、SIT による解析結果から計算される溶解度曲線を図 4-6 に示す。0.16 M の炭酸イオン共存下におけるプルトニウム溶解度の  $\text{pH}_c$  依存性および  $\text{pH} 8.9$  におけるプルトニウム溶解度の炭酸濃度依存性のいずれの実験値も  $\text{Pu}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$  の存在を仮定することにより、概ね再現できることが分かった。また、得られた  $\varepsilon(\text{Pu}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_3^{4-}, \text{Na}^+)$  は、負の値となり、これまで報告されている 4 価アクチノイドの炭酸錯体のイオン相互作用係数 (Guillaumont et al., 2005) とも近い値を取る結果となった。

表 4-2 プルトニウム加水分解種および炭酸錯体の錯生成定数  
( $I = 0$ , SITにより補正)

Reaction	$\log K^0$	Reference
$\text{Pu}(\text{OH})_4(\text{am}) \rightleftharpoons \text{Pu}^{4+} + 4\text{OH}^-$	-58.33	Guillaumont et al., 2005
$\text{Pu}^{4+} + 2\text{OH}^- + 2\text{CO}_3^{2-} \rightleftharpoons \text{Pu}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_2^{2-}$	$46.78 \pm 0.16$	Present study
$\text{Pu}^{4+} + \text{OH}^- \rightleftharpoons \text{PuOH}^{3+}$	$14.6^{*)}$	
$\text{Pu}^{4+} + 2\text{OH}^- \rightleftharpoons \text{Pu}(\text{OH})_2^{2+}$	$28.6^{*)}$	
$\text{Pu}^{4+} + 3\text{OH}^- \rightleftharpoons \text{Pu}(\text{OH})_3^+$	$39.7^{*)}$	
$\text{Pu}^{4+} + 4\text{OH}^- \rightleftharpoons \text{Pu}(\text{OH})_4(\text{aq})$	$47.8^{*)}$	Guillaumont et al., 2005
$\text{Pu}^{4+} + 4\text{CO}_3^{2-} \rightleftharpoons \text{Pu}(\text{CO}_3)_4^{4-}$	$37^{*)}$	
$\text{Pu}^{4+} + 5\text{CO}_3^{2-} \rightleftharpoons \text{Pu}(\text{CO}_3)_5^{6-}$	$35.65^{*)}$	
$\text{Pu}^{4+} + 2\text{OH}^- + 2\text{CO}_3^{2-} \rightleftharpoons \text{Pu}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_2^{2-}$	$44.76^{*)}$	

\*) 既往文献における報告値。今回の解析では用いず。

表 4-3 プルトニウム加水分解種および炭酸錯体のイオン相互作用係数

Species	Values	Reference
$\varepsilon(\text{Pu}^{4+}, \text{NO}_3^-)$	0.82	Guillaumont et al., 2005
$\varepsilon(\text{CO}_3^{2-}, \text{Na}^+)$	-0.08	Guillaumont et al., 2005
$\varepsilon(\text{OH}^-, \text{Na}^+)$	-0.04	Guillaumont et al., 2005
$\varepsilon(\text{Pu}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_3^{4-}, \text{Na}^+)$	$-0.13 \pm 0.06$	Present study
$\varepsilon(\text{PuOH}^{3+}, \text{NO}_3^-)$	$0.50^{*)}$	Guillaumont et al., 2005
$\varepsilon(\text{Pu}(\text{OH})_2^{2+}, \text{NO}_3^-)$	$0.52^{*)}$	Fujiwara et al., 2005
$\varepsilon(\text{Pu}(\text{OH})_3^+, \text{NO}_3^-)$	$0.23^{*)}$	Fujiwara et al., 2005

\*) 既往文献における報告値。今回の解析では用いず。

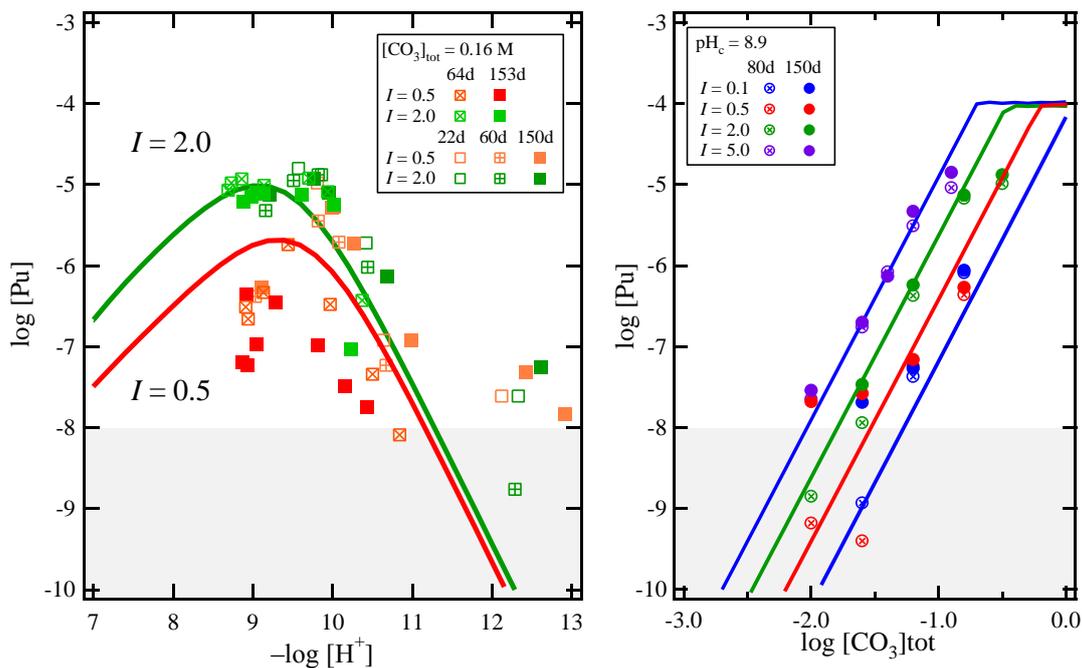


図 4-6 炭酸イオン共存下における Pu 溶解度の熱力学解析結果

#### ・Pitzer 法によるイオン強度補正

Pitzer 法は、異符号のイオンに加え、同符号のイオン、中性化学種の寄与および水の活量の寄与を考慮したモデルであり、SIT と比較してより高イオン強度下での活量補正に適用可能とされる。そこで、今年度の解析では、SIT に加えて Pitzer 法の適用を試みた。Pitzer 法では、カチオン  $c$  およびアニオン  $a$  の間の相互作用を表す 2 元パラメータとして  $\beta_{ca}^{(0)}$ 、 $\beta_{ca}^{(1)}$  および  $C_{ca}^{\phi}$ 、混合パラメータとして  $\theta_{cc'}$ 、 $\theta_{aa'}$ 、 $\Psi_{cc'a}$  および  $\Psi_{aa'c}$  を用いて、各化学種の活量係数  $\gamma$  を表す。式(4-14)および(4-15)に基づいて解析を行うため、まず、水のイオン積  $K_w$  の各イオン強度での値を Pitzer 法により求め、各イオン強度での  $\text{Pu}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$  の錯生成定数  $\log K_{123}$  を求めた。得られた  $\log K_{123}$  のイオン強度依存性に対して、Pitzer 法を適用し、 $\beta^{(0)}$  および  $\beta^{(1)}$  をそれぞれ以下のように求めた。

$$\beta^{(0)} = 0.24$$

$$\beta^{(1)} = 19.78$$

このとき、 $I = 0$  における錯生成定数  $\log K^{\circ}_{123}$  は、SIT を用いた解析で得られた値 ( $\log K^{\circ}_{123} = -11.5$ ) を使い、 $C_{ca}^{\phi}$  は 0 とした。また、Pitzer 法におけるその他の既知パラメ

一タは文献 (Harvie et al., 1984) より引用した。Pitzer 法による解析から計算される  $\log K_{123}$  のイオン強度依存性を図 4-5 に SIT における結果と比較して示す。  $I = 2.0$  以下では、SIT および Pitzer 法による解析結果はほぼ一致することが分かった。一方、  $I = 5.0$  (5.9 mol/kg) では、SIT による解析値は Pitzer 法による値に比べてわずかに低い値を示した。これは、SIT と Pitzer 法の  $I = 5.0$  での水のイオン積の違いに依るところが大きい ( $\log K_w = -14.21$  (SIT),  $-14.65$  (Pitzer 法))。

平成 29 年度のプルトニウム炭酸錯体生成に及ぼす  $\text{NaNO}_3$  濃度影響に関する研究では、炭酸イオン共存下でのプルトニウム溶解度を追加で測定するとともに、熱力学モデルの見直しを行った。  $\text{Pu}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$  を支配的溶存種とし、SIT および Pitzer 法による活量補正を含む熱力学モデルを適用することで、pH 7-12,  $[\text{CO}_3]_{\text{tot}} = 0.01 \sim 0.16 \text{ M}$ ,  $I = 0.1 \sim 5.0$  における溶解度の実験値を定量的に解釈できることを明らかにした。一方、4 価プルトニウムのアナログ元素とされるジルコニウムでは、上述のような 3 元錯体ではなく、  $\text{Zr}(\text{CO}_3)_4^{4-}$  や  $\text{Zr}(\text{CO}_3)_5^{6-}$  のような 2 元錯体が支配種と考えられ、その活量補正パラメータは、既往文献における傾向 (Guillaumont et al., 2005) からは外れたままであった。高次の炭酸錯体のような高い電荷を持つイオンの活量補正については、実験的アプローチのみならず、分子動力学等の計算科学的アプローチに基づく検討が今後の課題であると考えられた。

#### 4.2.2 4 価金属水酸化物コロイド挙動の熱力学的検討

##### 4.2.2.1 ジルコニウム酸化物のゼータ電位測定実験

ジルコニウム酸化物のゼータ電位測定実験では、ジルコニウム酸化物 ( $\text{ZrO}_2$ , 和光純薬工業, 98%) を pH およびイオン強度を調整した硝酸ナトリウム ( $\text{NaNO}_3$ )、塩化ナトリウム ( $\text{NaCl}$ ) および塩化カルシウム ( $\text{CaCl}_2$ ) 溶液に懸濁させた試料溶液を不飽和法により調製した。

硝酸ナトリウムの試料溶液は、硝酸 ( $\text{HNO}_3$ , 和光純薬工業, 99%) および水酸化ナトリウム ( $\text{NaOH}$ , 和光純薬工業, 99%) 水溶液により pH、硝酸ナトリウム ( $\text{NaNO}_3$ , 和光純薬工業, 99%) によりイオン強度を調整した溶液にジルコニウム酸化物を添加した。このとき、pH 範囲は pH 2~12、イオン強度は 0.01~0.5 M とし、ジルコニウム酸化物の添加量は、添加した固相が全て溶解した場合、0.01 M となるようにした。塩化ナトリウムおよび塩化カルシウムの試料溶液は、塩酸 ( $\text{HCl}$ , 和光純薬工業, 99%) および水酸化ナトリウム水溶液により pH、塩化ナトリウム ( $\text{NaCl}$ , 和光純薬工業, 99%) または塩化カルシウム ( $\text{CaCl}_2$ , 和光純薬工業, 99%) によりイオン強度を調整した後、硝酸ナトリウムの試料溶液と同様、ジルコニウム酸化物を添加した。酸性 pH 条件下での試料溶液は大気雰囲気下、中性 pH~アルカリ pH 条件下での試料溶液はアルゴン雰囲気のグローブボックス内で調製し、所定期間、静置した後、pH を測定、懸濁液 1 mL を分取し、そ

のゼータ電位を測定した。ゼータ電位は、ゼータサイザーナノ ZS (Malvern) を用いて試料溶液の電気泳動移動度 ( $u=V/E$  ( $\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}/\text{V}\cdot\text{cm}^{-1}$ ),  $V$ : 電気泳動速度、 $E$ : 外部電場の大きさ) を測定し、Smoluchowski の近似式を用いてゼータ電位を求めた。なお、測定は一つの試料に対して 3 回繰り返し、その平均値を測定値とした。

#### 4.2.2.2 ジルコニウム酸化物のゼータ電位と熱力学モデル

図 4-7 に  $I = 0.1$  および  $0.5$  M の硝酸ナトリウムおよび  $I = 0.01, 0.1$  および  $0.5$  M の塩化ナトリウム水溶液中におけるジルコニウム酸化物のゼータ電位の測定結果を示す。各イオン強度とも、ゼータ電位の値は、pH の増加とともに正の値から負の値に減少し、イオン強度が高いほどゼータ電位の絶対値は小さくなる傾向が見出された。特に、 $I = 0.01$  のアルカリ性 pH 領域では、 $-90$  mV 近くの非常に負に大きな値が得られた。また、pH 8 以上のアルカリ性 pH 領域では、塩化ナトリウム水溶液中のゼータ電位の方が、硝酸ナトリウム水溶液中のそれより、わずかに低くなる傾向が見られたが、両者のゼータ電位の値の傾向に、大きな違いはないと考えられた。

一方、図 4-8 に  $I = 0.01\sim 0.5$  M の塩化ナトリウムおよび塩化カルシウム水溶液中におけるジルコニウム酸化物のゼータ電位の測定結果を示す。塩化カルシウム水溶液中におけるゼータ電位の値は、塩化ナトリウム中のそれと同様、pH とともに単調に減少し、イオン強度が高いほど小さい値が得られた。しかし、同じイオン強度の塩化ナトリウム水溶液中における値と比較すると、特に pH 6 以降の中性およびアルカリ性 pH 領域で大きな違いが表れた。塩化ナトリウム水溶液中のゼータ電位は、アルカリ性 pH 領域で大きな負の値を示したのに対して、塩化カルシウム水溶液中の値は、 $0$  mV に近い値となった。中性およびアルカリ性 pH 領域では、カルシウムイオンが、負に帯電したジルコニウム酸化物表面に吸着することにより、ゼータ電位の絶対値の低下を妨げている可能性が考えられた。

平成 28 年度までの研究では、ジルコニウム水酸化物コロイドを加水分解種から構成されると仮定し、加水分解種の形式電荷の平均値を水酸化物コロイドの平均電荷に置き換えた。一方、酸化物の場合、バルク構造内では安定な結晶構造を有することから、酸化物の平均電荷は、酸化物表面におけるプロトン解離や電解質イオンの吸脱着にのみ起因していると考えられる。また、図 4-7 や図 4-8 に示すように、イオン強度が小さいほど酸化物のゼータ電位の絶対値は大きくなる傾向が見られた。同様の傾向は、ジルコニウム水酸化物コロイドでも表れており、酸化物表面における拡散電気二重層の効果を考慮に入れることとした。

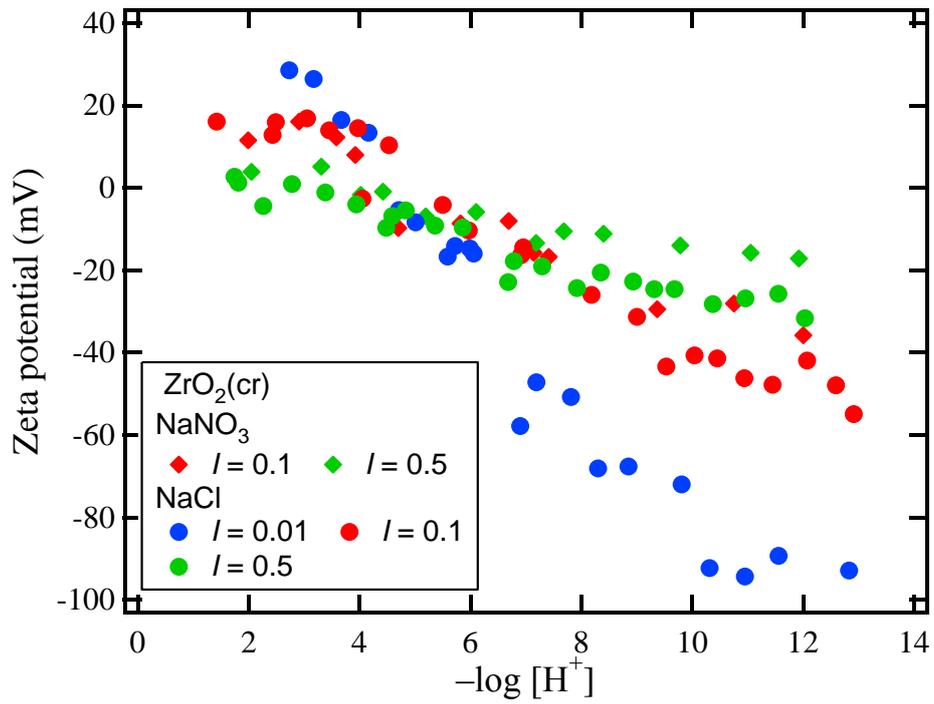


図 4-7 ジルコニウム酸化物のゼータ電位 ( $I=0.01\sim 0.5$ , NaNO<sub>3</sub> および NaCl)

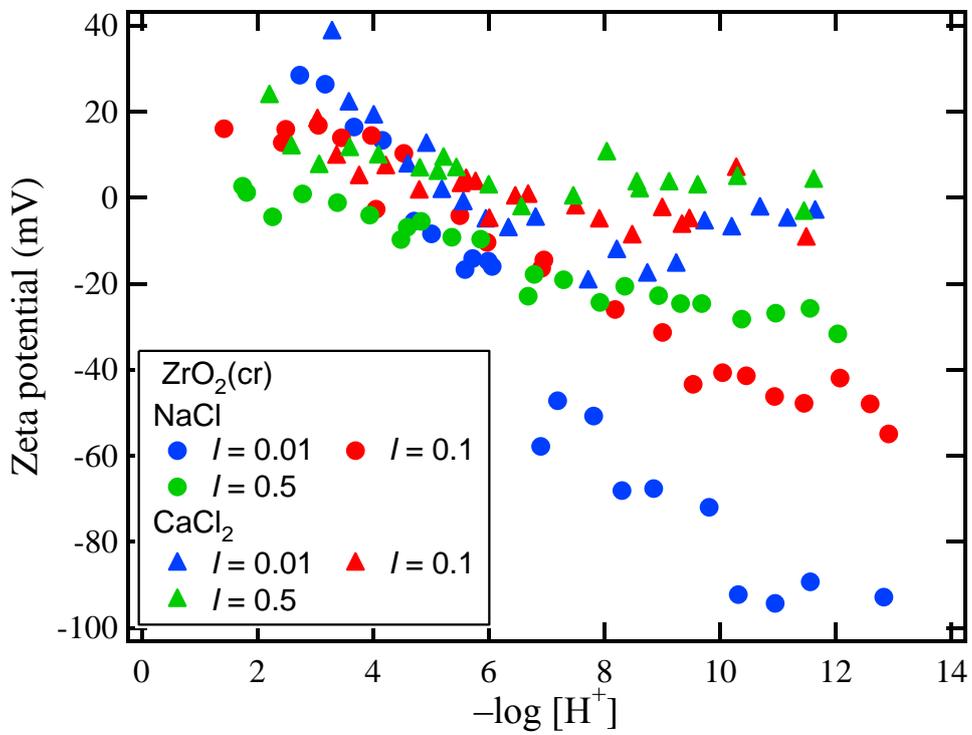
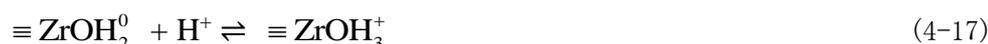


図 4-8 ジルコニウム酸化物のゼータ電位 ( $I=0.01\sim 0.5$ , NaCl および CaCl<sub>2</sub>)

まず、ジルコニウム酸化物のゼータ電位の pH およびイオン強度依存性を再現するため、酸化物表面におけるプロトン解離反応を考慮する。金属酸化物表面におけるプロトン解離反応については、これまで多くの文献で報告されており (Hiemstra et al, 1989 他)、本研究では、簡単のため、以下に示すような反応を仮定し、それぞれの平衡定数を  $K_{a1}$ 、 $K_{a2}$  および  $K_{a3}$  とした。また、酸化物表面における平均電荷  $r_s$  を各表面化学種の濃度と電荷の積の和として下式のように表した。



$$K_{a1} = \frac{[\equiv \text{ZrOH}_3^+]}{[\equiv \text{ZrOH}_2^0][\text{H}^+]}$$



$$K_{a2} = \frac{[\equiv \text{ZrOH}_2^0]}{[\equiv \text{ZrOH}^-][\text{H}^+]}$$



$$K_{a3} = \frac{[\equiv \text{ZrOH}^-]}{[\equiv \text{ZrO}^{2-}][\text{H}^+]}$$

$$\begin{aligned} r_s &= 1 \times [\equiv \text{ZrOH}_3^+] + 0 \times [\equiv \text{ZrOH}_2^0] + (-1) \times [\equiv \text{ZrOH}^-] + (-2) \times [\equiv \text{ZrO}^{2-}] \\ &= \left( [\text{H}^+]^3 \times 10^{Ka1+Ka2+Ka3} - [\text{H}^+] \times 10^{Ka3} - 2 \right) [\equiv \text{ZrO}^{2-}] \end{aligned} \quad (4-20)$$

ここで、各サイトの割合を百分率で計算するため、 $\equiv \text{ZrO}^{2-}$  を以下のように表した。

$$[\equiv \text{ZrO}^{2-}] = \frac{100}{\left( 1 + [\text{H}^+] \times 10^{Ka3} + [\text{H}^+]^2 \times 10^{Ka2+Ka3} + [\text{H}^+]^3 \times 10^{Ka1+Ka2+Ka3} \right)} \quad (4-21)$$

水酸化物コロイドの熱力学モデルでは、コロイドの平均電荷  $Z$  を単核加水分解種の存在割合から求めたが、上述のように酸化物の場合は表面における電荷  $r_s$  のみを考慮した。酸化物表面における溶媒イオンの効果 ( $\Delta z$ ) および拡散電気二重層を仮定し、酸化物のゼータ電位 ( $\Phi_\zeta$ ) を以下の式で表した。

$$\Phi_{\zeta} = \frac{e(Z - \Delta Z)f^3}{2\varepsilon_0\varepsilon_r} \exp(\kappa x_{\zeta}) \quad (4-22)$$

$$\kappa = \sqrt{\frac{2nz^2e^2}{\varepsilon_0\varepsilon_r kT}} \quad (4-23)$$

e は素電荷、 $\varepsilon_0$  は真空中の誘電率、 $\varepsilon_r$  は水の比誘電率とし、粒子の大きさに関するパラメータを  $f$  で表した。また、 $\kappa$  は電気二重層厚さ、 $x_{\zeta}$  はすべり面までの厚さとした。

図 4-7 および図 4-8 に示す各電解質溶液中でのジルコニウム酸化物のゼータ電位に対して、 $K_{a1}$ 、 $K_{a2}$ 、 $K_{a3}$ 、 $\Delta z$  および  $f$  をパラメータとした最小 2 乗法による解析を行った。すべり面までの厚さ  $x_{\zeta}$  は、電気二重層厚さ  $1/\kappa$  の値を固定値として用いた。得られたパラメータ値を表 4-4 にまとめる。硝酸ナトリウムおよび塩化ナトリウム溶液の解析から求められたパラメータ値は概ね一致し、pH 6.7 付近からジルコニウム酸化物の表面は負に帯電し、pH 10 付近からは表面のプロトンは完全に解離していると考えられた。また、酸化物表面における溶媒イオンの効果を表す  $\Delta z$  の値は、イオン強度の値が高いほど大きくなり、イオン強度が高いほど表面電荷とは逆符号の対イオンが吸着している可能性が示唆された。さらに、粒子の大きさに関するパラメータ  $f$  (1/m) は、イオン強度が高くなるほど、低下する傾向が見られ、イオン強度の増加とともに粒子の大きさが増加している可能性が考えられた。一方、塩化カルシウム溶液中でのパラメータ値は、硝酸ナトリウムおよび塩化ナトリウムとは大きく異なる傾向が見られた。特に、 $\Delta z$  は負の値となり、カルシウムイオンが表面に吸着することによる効果と考えられた。

表 4-4 に示すパラメータ値を用いて各電解質溶液中の  $I = 0.01 \sim 0.5$  におけるジルコニウム酸化物のゼータ電位の実験値を再現した結果を図 4-9～図 4-11 に示す。いずれの電解質溶液中のゼータ電位についても、実験値の pH 依存性およびイオン強度依存性を計算値が概ね再現する結果となった。ただし、塩化ナトリウム水溶液および塩化カルシウム水溶液の中性からアルカリ性 pH 領域では、実験値と計算値がやや乖離する傾向が表れている。特に、塩化カルシウム水溶液中でのゼータ電位は、塩化ナトリウム水溶液中での値に比べて、数 10mV 近く高い値を示しており、酸化物表面へのカルシウムイオンの吸着による効果と考えられる。モデルでは、酸化物表面における溶媒イオンの効果を表すパラメータとして、 $\Delta z$  を用いているが、 $\Delta z$  は pH に依らず一定のパラメータであり、pH によって変化するカルシウムイオンの吸着の効果再現するためには、モデルの更なる改良が必要と考えられる。

表 4-4 酸化物のゼータ電位の解析により得られたパラメータ値

電解質	$I$	$pK_{a1}$	$pK_{a2}$	$pK_{a3}$	$\Delta z$	$f$	$x_{\zeta}$ (nm)
NaNO <sub>3</sub>	0.1	4.08±	6.70±	9.25±	0.37±0.07	813±18	0.95 <sup>1)</sup>
	0.5	0.44	0.44	0.59	0.54±0.15	619±29	0.43 <sup>1)</sup>
NaCl	0.01				0.34±0.06	983±11	3.01 <sup>1)</sup>
	0.1	4.42±	6.64±	9.61±	0.20±0.07	789±12	0.95 <sup>1)</sup>
	0.5	0.18	0.16	0.19	1.03±0.18	610±20	0.43 <sup>1)</sup>
CaCl <sub>2</sub>	0.01				-0.69±0.14	671±30	3.01 <sup>1)</sup>
	0.1	4.42 <sup>2)</sup>	6.64 <sup>2)</sup>	9.61 <sup>2)</sup>	-0.59±0.34	505±63	0.95 <sup>1)</sup>
	0.5				-1.93±0.80	451±68	0.43 <sup>1)</sup>

1)  $1/\kappa$ を固定値として用いた。

2) NaCl の解析において得られた値を固定値として用いた。

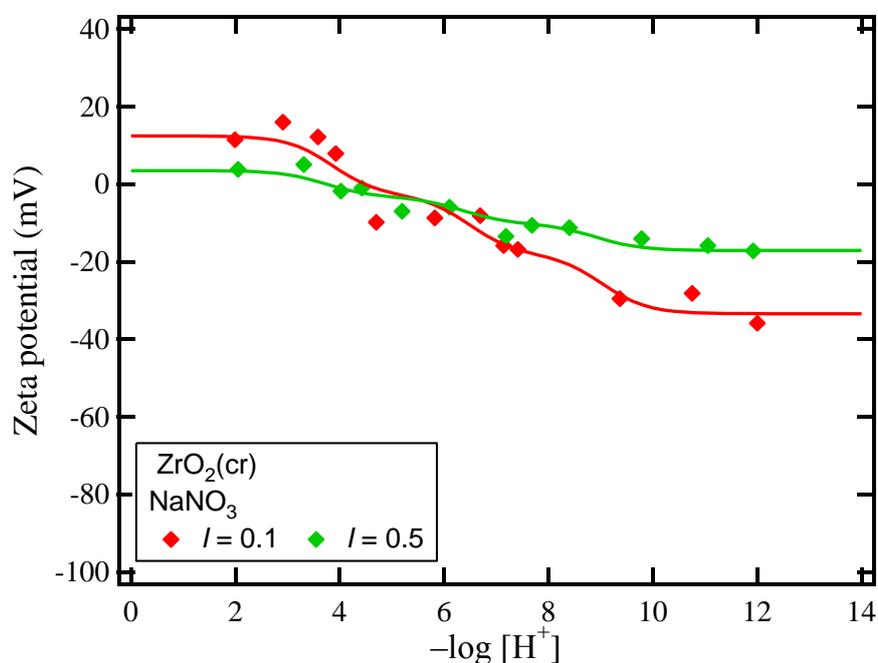


図 4-9 ジルコニウム酸化物のゼータ電位および熱力学モデルによる計算結果 ( $I=0.1\sim0.5$ , NaNO<sub>3</sub>)

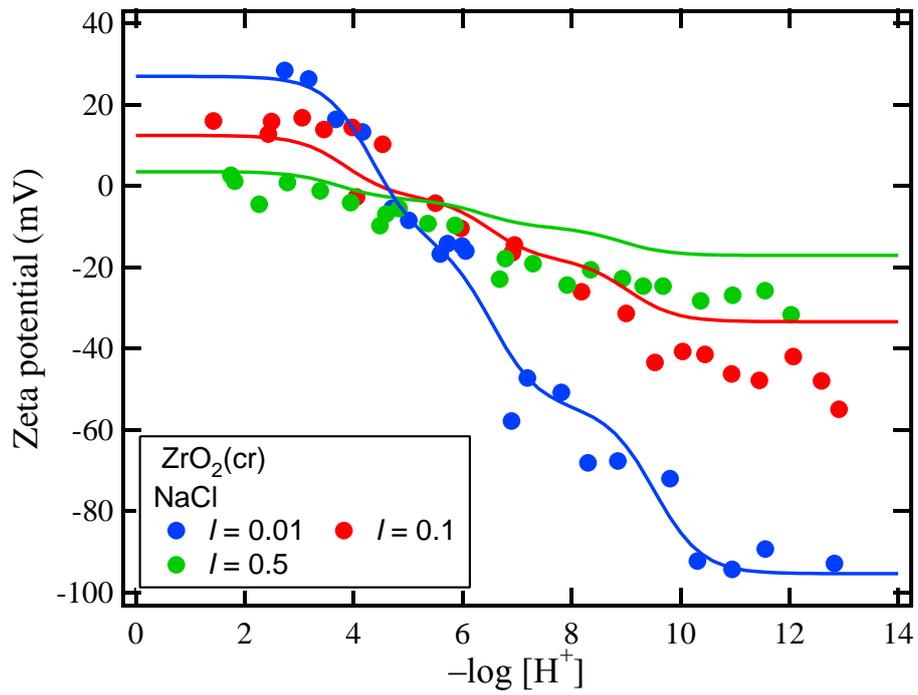


図 4-10 ジルコニウム酸化物のゼータ電位および熱力学モデルによる計算結果  
( $I=0.01\sim0.5$ , NaCl)

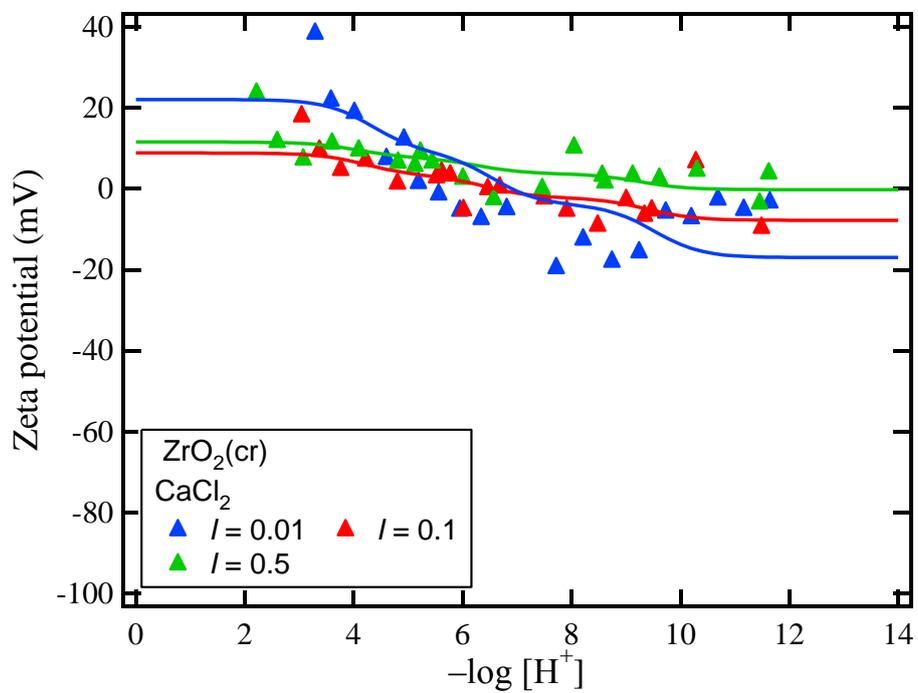


図 4-11 ジルコニウム酸化物のゼータ電位および熱力学モデルによる計算結果  
( $I=0.01\sim0.5$ , CaCl<sub>2</sub>)

#### 4.2.2.3 ジルコニウム水酸化物コロイドのゼータ電位と熱力学モデル

次に、ジルコニウム水酸化物コロイドのゼータ電位の熱力学モデルの改良を行った。モデルの概念図を図 4-12 に示す。水酸化物コロイド表面におけるプロトン解離反応として、酸化物表面におけるプロトン解離反応と同等の反応を仮定し、酸化物のゼータ電位の解析で得られたプロトン解離定数を水酸化物コロイドのモデルで用いることとした。平成 28 年度までのモデルにプロトン解離反応による電荷  $r_s$  を加えて、コロイドの平均電荷  $Z$  を以下に示すような式を用いて計算した。

$$Z = 4r_{Zr^{4+}} + 3r_{ZrOH^{3+}} + 2r_{Zr(OH)_2^{2+}} + r_{Zr(OH)_3^+} - r_{Zr(OH)_5^-} - 2r_{Zr(OH)_6^{2-}} + r_s \quad (4-24)$$

ここで、 $r_{Zr(OH)_n(4-n)^+}$  は加水分解定数から計算される単核加水分解種の存在割合を表す。

水酸化物コロイド内部あるいは表面における溶媒イオンの効果 ( $\Delta Z$ )、すべり面までの厚さ  $x_\zeta$  を仮定し、水酸化物コロイドのゼータ電位 ( $\Phi_\zeta$ ) を以下の式で表した。

$$\Phi_\zeta = \frac{e(Z - \Delta Z)f^3}{2\epsilon_0\epsilon_r} \exp(\kappa x_\zeta) \quad (4-25)$$

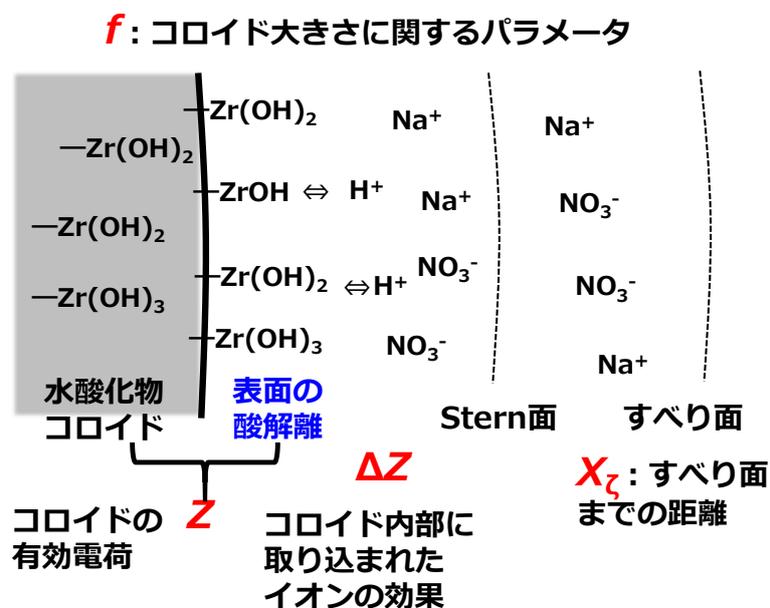


図 4-12 水酸化物コロイドのゼータ電位モデルの概念図

平成 28 年度までに得られた  $I = 0.03 \sim 2.0$  における水酸化物コロイドのゼータ電位の実験値を、上式を用いて再解析した。なお、すべり面までの距離  $x_\zeta$  は、酸化物と同様、それぞれのイオン強度における電気二重層厚さの値を固定値として用いた。得られたモデルパラメータの値を表 4-5、ゼータ電位の結果を図 4-13 に示す。水酸化物コロイド表面における溶媒の効果を表すパラメータである  $\Delta z$  は、イオン強度が大きくなるとともに正の値から負の値に減少する結果となった。このことは、イオン強度が高いほどカチオンが吸着する傾向を表している。ジルコニウム酸化物のモデルと同様、 $\Delta z$  は pH に対して一定のパラメータであり、より詳細な熱力学モデルへの改良には、プロトン以外のアニオンおよびカチオンの pH に依存するコロイド表面への吸着・脱離反応を考慮する必要があると考えられる。一方、コロイドの大きさを表すパラメータである  $f$  は、酸化物と同様、イオン強度の増加とともに低下しており、コロイド粒径の増加を反映したものだと思われる。

図 4-13 に示すように、モデルによる計算値は、水酸化物コロイドのゼータ電位の pH 依存性およびイオン強度依存性を概ね再現することができたが、特に低イオン強度の中性 pH からアルカリ性 pH 領域では、実験値と計算値との間にやや乖離が見られる。同 pH 領域において、pH の増加に伴いゼータ電位を大きく低下させるためには、水酸化物コロイドのゼータ電位を構成する要素のうち、表面のプロトン解離反応による電荷  $r_s$  の効果をより大きく取る必要がある。本モデルでは、加水分解定数から計算される電荷と  $r_s$  を単純に足し合わせており、また、水酸化物コロイド表面におけるプロトン解離反応を酸化物表面におけるそれと同じと仮定している。実験値のより高い再現性のためには、水酸化物コロイド表面における反応について、より詳細なモデル化が必要と考えられる。

表 4-5 水酸化物コロイドのゼータ電位の解析により得られたパラメータ値

電解質	$I$	$pK_{a1}$	$pK_{a2}$	$pK_{a3}$	$\Delta z$	$f$	$x_\zeta$ (nm)
NaNO <sub>3</sub>	0.03				$0.72 \pm 0.19$	$821 \pm 19$	$1.74^{2)}$
	0.1				$0.15 \pm 0.28$	$695 \pm 27$	$0.95^{2)}$
	0.5	$4.08^{1)}$	$6.70^{1)}$	$9.25^{1)}$	$-1.21 \pm 0.55$	$556 \pm 35$	$0.43^{2)}$
	2.0				$-2.68 \pm 1.22$	$455 \pm 49$	$0.21^{2)}$

1) ZrO<sub>2</sub> の解析において得られた値を固定値として用いた。

2)  $1/\kappa$  を固定値として用いた。

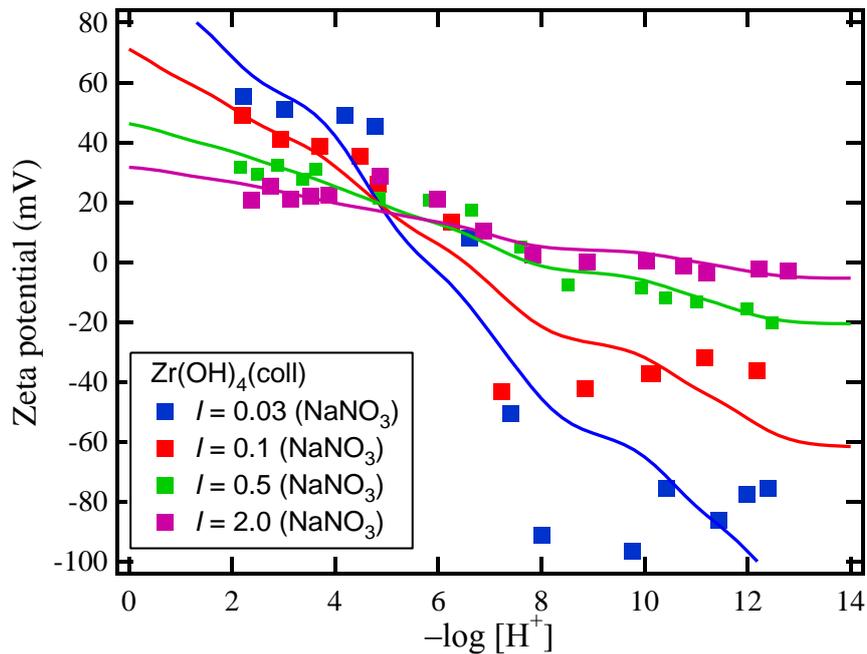


図 4-13 ジルコニウム水酸化物コロイドのゼータ電位の実験値と計算値 ( $I=0.03\sim 2.0$ )

#### 4.2.2.4 ジルコニウム酸化物のゼータ電位モデルの既往文献との比較

既往文献におけるジルコニウム水酸化物コロイドのゼータ電位の測定例は非常に少ないが、ジルコニウム酸化物のゼータ電位あるいは表面におけるプロトン解離についてはこれまで幾つかの文献において調べられている (Ahmed 1965, Prica et al., 1996, Batrakov et al., 2000, Fengqiu et al., 2000)。

図 4-14 にジルコニウム酸化物のゼータ電位の文献報告値 (Prica et al., 1996, Fengqiu et al., 2000) と本モデルによる計算結果を比較した結果を示す。Prica らはジルコニウム溶液からジルコニウム (水和) 酸化物を沈殿させ、 $450^{\circ}\text{C}\sim 850^{\circ}\text{C}$  までの異なる温度で 5 時間加熱することにより、酸化ジルコニウムを得ている。図に示すのは、 $450^{\circ}\text{C}$  で焼成した酸化ジルコニウムを  $1\times 10^{-4}\text{ M}\sim 1\times 10^{-2}\text{ M}$  までの硝酸カリウム ( $\text{KNO}_3$ ) 溶液に懸濁させた試料溶液を測定することによって得られたゼータ電位である。 $I = 0.01$  の結果を比較すると、本モデルによる計算値に対して Prica らの実験値は 20 mV 程度高い値を示す結果となった。Prica らは、酸化ジルコニウムを焼成する際の温度の違いによりゼータ電位の値が変化することを報告しており、 $650^{\circ}\text{C}$  で焼成した場合は、ゼータ電位の値が低 pH 側にシフトし、より本モデルに近い値が得られている。しかし、 $850^{\circ}\text{C}$  で焼成した場合は、ゼータ電位の値が  $450^{\circ}\text{C}$  のそれより高 pH 側へシフトするなど、ゼータ電位の焼成温度に対する系統的な変化傾向は明らかにされていない。一方、Fengqiu らの実験では、粒径およそ 30 nm の正方晶の酸化ジルコニウムを  $1\times 10^{-4}\text{ M}$  の

塩化ナトリウム水溶液に懸濁させ、ゼータ電位を測定しており、本モデルに  $I = 0.01$  の計算値と比較的近い値が得られている。塩酸または水酸化ナトリウムにより pH 調整を行っており、pH調整の際にイオン強度が  $I = 0.01$  付近まで上昇した可能性があるが、正確なイオン強度の値の記述がなく、詳細な検討は困難であった。

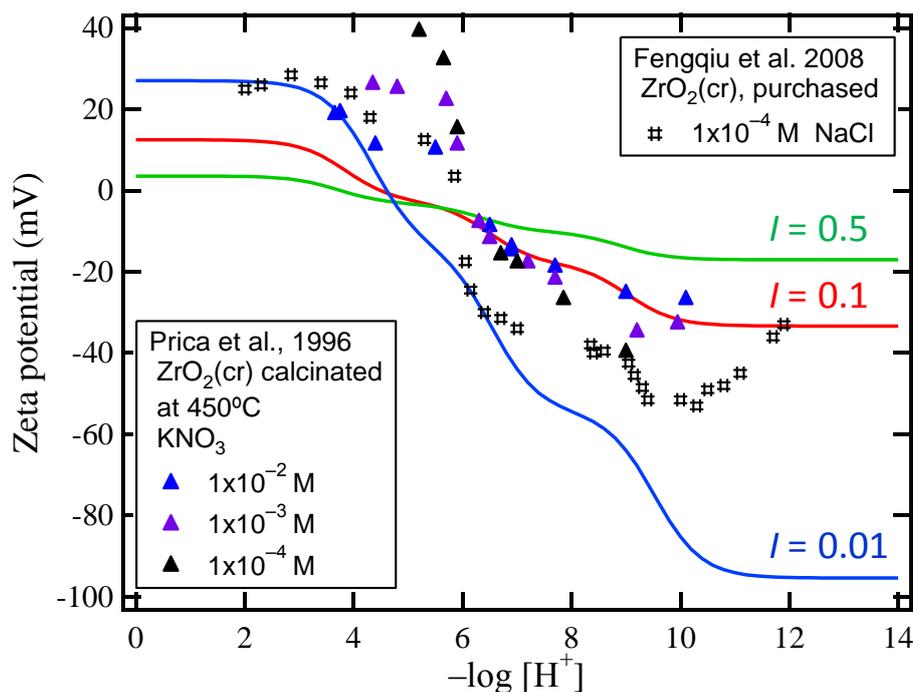


図 4-14 ジルコニウム酸化物のゼータ電位モデルによる計算結果と文献値の比較

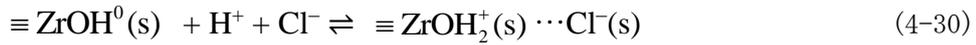
一方、Batrakov らはジルコニウム酸化物表面におけるプロトン解離反応、塩化物イオンの酸化物表面への吸着反応およびプロトンとカリウムイオンの交換反応を仮定し、ジルコニウム酸化物を含む塩化カリウム溶液の酸塩基滴定実験から、以下のようなそれぞれの反応の平衡定数を決定した (Batrakov et al., 2000)。



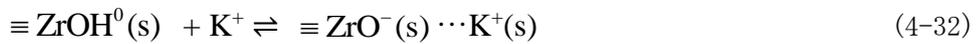
$$K_1 = K_1^0 \exp \left[ \frac{E_0 F}{RT} \right] = \frac{[\equiv \text{ZrOH}^0(\text{s})][\text{H}^+]}{[\equiv \text{ZrOH}_2^+(\text{s})]} \quad (4-27)$$



$$K_2 = K_2^0 \exp\left[\frac{E_0 F}{RT}\right] = \frac{[\equiv \text{ZrO}^-(\text{s})][\text{H}^+]}{[\equiv \text{ZrOH}^0(\text{s})]} \quad (4-29)$$



$$K_3 = K_3^0 \exp\left[\frac{q_0 F}{RTK_{01}}\right] = \frac{[\equiv \text{ZrOH}_2^+(\text{s}) \cdots \text{Cl}^-(\text{s})]}{[\equiv \text{ZrOH}^0(\text{s})][\text{H}^+][\text{Cl}^-]} \quad (4-31)$$



$$K_4 = K_4^0 \exp\left[\frac{q_0 F}{RTK_{01}}\right] = \frac{[\equiv \text{ZrOH}_2^+(\text{s}) \cdots \text{Cl}^-(\text{s})]}{[\equiv \text{ZrOH}^0(\text{s})][\text{H}^+][\text{Cl}^-]} \quad (4-33)$$

ここで、 $E_0$  と  $q_0$  はそれぞれ酸化物表面におけるポテンシャルエネルギーと電荷、 $K_{01}$  は電気二重層の電荷容量としている。得られた値は、それぞれ  $\text{p}K_1^0 = 4.0$ ,  $\text{p}K_2^0 = 9.2$ ,  $\text{p}K_3^0 = 6.2$ , および  $\text{p}K_4^0 = 6.7$  であり、特に、プロトンの解離定数として得られた値  $\text{p}K_1^0$  は本モデルにおけるパラメータの  $\text{p}K_{a1} = 4.08$  と非常に良く一致する結果となった。想定している表面化学種の形は異なるが、いずれも+1 価の電荷を持った表面化学種からのプロトンの解離反応であり、モデルパラメータ値の妥当性を表すものと考えられる。一方、Batrakov らが求めた  $\text{p}K_2^0$  の値は、本モデルにおいて同様に 0 価の電荷を持つ  $\equiv \text{ZrOH}_2^0$  からのプロトン解離定数 ( $\text{p}K_{a2}$ ) ではなく、 $\equiv \text{ZrOH}^-$  からの解離定数 ( $\text{p}K_{a3} = 9.25$ ) と非常に良く一致する結果となり、本モデルの  $\text{p}K_{a2}$  ( $\text{p}K_{a2} = 6.70$ ) は、Batrakov らのカリウムイオンの収着を表す定数 ( $\text{p}K_4^0$ ) と良く一致する結果となった。モデルの解析から得られる  $\text{p}K_a$  の値は、ゼータ電位の変化傾向の変曲点であり、ゼータ電位の pH に対する変化傾向は、本実験と Batrakov らの結果で同じと考えられるものの、その解釈に違いがあることを反映している。本研究では、ゼータ電位の実験値を定量的に再現できる熱力学モデルを提案することができたが、酸化物あるいは水酸化物コロイド表面に対するイオンの吸着反応を考慮に入れることで、より正確な反応メカニズムの記述に基づきモデルの改良につながると考えられる。

#### 4.2.3 硝酸イオンによるウラン(IV)酸化反応の影響

##### 4.2.3.1 ウラン、 $\text{NaNO}_3$ および $\text{NaNO}_2$ 濃度測定

平成 28 年度は、硝酸ナトリウム水溶液および亜硝酸ナトリウム水溶液に、還元剤として、ヒドロキノン ( $\text{C}_6\text{H}_4(\text{OH})_2$ )、亜ジチオン酸ナトリウム ( $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ )、塩化スズ(II) ( $\text{Sn}(\text{II})\text{Cl}_2$ ) または鉄粉 ( $\text{Fe}(0)$ ) を添加し、pH および Eh 値とともに亜硝酸イオン濃度を測定することで硝酸イオンまたは亜硝酸イオンの還元反応の進行について調べた。本年度は、還元剤として 4 価ウランの水酸化物沈殿 ( $\text{U}(\text{OH})_4(\text{am})$ ) を添加し、pH および Eh 値、亜硝酸イオン濃度とともにウラン濃度を測定する。中性およびアルカリ性 pH 条件における  $\text{U}(\text{OH})_4(\text{am})$  の溶解度は極めて低いが、4 価ウランの酸化反応が進行すればウラン溶解度は上昇するものと考えられる。硝酸イオンまたは亜硝酸イオンの還元反応とともに 4 価ウランの酸化反応の進行を調べ、核種に対する硝酸イオンの酸化性について考察することとした。なお、図 4-15 にウランおよび硝酸イオンのプルベダイアグラムを示す。

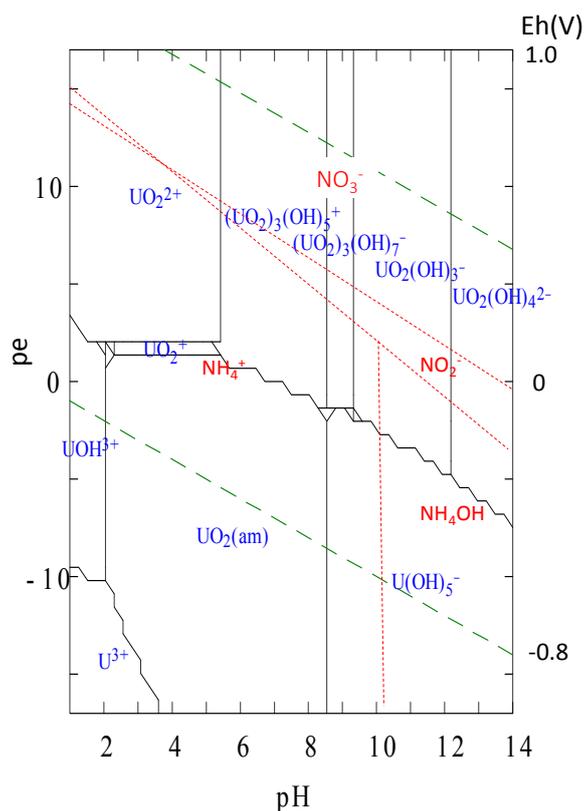


図 4-15 ウランおよび硝酸イオンのプルベダイアグラム ( $[\text{U}]_{\text{tot}}=10^{-5} \text{ M}$ ,  $I = 0$ )

試料溶液の調製は Ar 雰囲気グローブボックス内 ( $\text{O}_2 < 0.1 \text{ ppm}$ ) にて行った。硝酸ナトリウム ( $\text{NaNO}_3$ , 和光純薬工業, 99%) または亜硝酸ナトリウム ( $\text{NaNO}_2$ , 和光純薬工業, 99%) を用いてそれぞれの濃度が 0.1 M となる試料溶液を調製した。試料溶液の pH

は 8 および 12 になるように水酸化ナトリウム溶液を用いて調整した。なお、pH 8 の試料溶液の pH 調整には 1 mM の pH 緩衝剤 (PIPES, 同仁化学, 99%) を用いた。4 価ウランの水酸化物沈殿の調製では、まず、バルク電気分解法により酸性 pH (1M 硝酸溶液) の 6 価ウラン溶液 (0.045 M、20 ml) を還元し、4 価ウラン溶液を得た。このとき、作用電極には多孔性カーボン電極、カウンター電極には Pt 電極、参照電極には Ag/AgCl 電極を用いた。実験では、420 nm 付近の 6 価ウランに起因するピークが完全に消滅するまで -1.0V で 2 時間、電解還元を行い、4 価ウランの硝酸溶液を得た。次に、4 価ウラン硝酸溶液に水酸化ナトリウム水溶液を加えることにより、4 価ウランの水酸化物物 ( $U(OH)_4(am)$ ) を沈殿させた。得られた沈殿を純水により数回洗浄した後、懸濁母溶液とした。試料溶液条件を表 4-6 に示す。

表 4-6 硝酸ナトリウムおよび亜硝酸ナトリウム還元実験の試料溶液条件

項目	条件
硝酸イオン/亜硝酸イオン 初期濃度	0.1 M ( $NaNO_3$ ) または 0.1 M ( $NaNO_2$ )
還元剤	$U(OH)_4(am)$ : $1 \times 10^{-3}$ M (全溶解時)
目標 pHc	8.0 および 12.0

試料溶液は、Ar 雰囲気グローブボックス内にて所定の期間、静置した後、水素イオン濃度 (pHc) および標準酸化還元電位 (Eh 値) を測定した。pHc は堀場製作所社製の pH メータ (D-50) および温度補償型 pH 複合電極 (9615-10D, 堀場製作所社製) を用いて測定した。pH 電極は、pH 電極校正液 (pH4, 7: 堀場製作所社製) を用いて校正を行った。各イオン強度における校正曲線は、 $NaNO_3$  によりイオン強度を調整した  $HNO_3$  および  $NaOH$  標準液 (和光純薬工業) の pH を予め測定し、測定 pH から水素イオン濃度への補正を行った。Eh 測定では、メトローム社製の pH メータ 826 型および複合白金リング電極を用い、キンヒドロン標準液 (+256 mV, 25°C, 堀場製作所社製) により校正した。測定 Eh の値は、 $pe = (Eh + 208) / 1000 / 0.059$  により標準水素電極電位 (N. H. E.) による pe 値に換算した。

試料溶液の pH および Eh の値を測定した後、上澄み液 1mL を分取し、上澄み液に含まれる亜硝酸イオンの濃度をナフチルエチレンジアミン吸光光度法 (NEDA 法) により定量

した。塩酸酸性スルファニルアミド塩酸溶液 (5 g/L) ( $C_6H_8N_2O_2S$ , 和光純薬工業, 99%) 500  $\mu$ L および N-1-ナフチルエチレンジアミン二塩酸塩溶液 (1 g/L) ( $C_{10}H_7NHCH_2CH_2NH_2 \cdot 2H$ , 和光純薬工業, 95.0%) 250  $\mu$ L および超純水 3750  $\mu$ L を加えた溶液に試料溶液 500  $\mu$ L を添加し、1 時間程度放置した後、光路長 1m のセルを用いて、紫外可視分光光度計 (SEC2000-UV/VIS スペクトロメーターシステム, ビー・エー・エス) により 540nm に表れる吸光ピークを観察した。また、ウラン濃度は上澄み液 0.5 mL を分取し、10kDa フィルターによりろ過した後、ろ液を硝酸で希釈、ICP 質量分析器 (ICP-MS) によりウラン濃度を定量した。このとき、ウラン濃度の検出限界はおよそ  $1 \times 10^{-8.5}$  M であった。

#### 4.2.3.2 結果と考察

図 4-16 に  $U(OH)_4(am)$  を含む硝酸ナトリウムおよび亜硝酸ナトリウム試料溶液の pH および pe 値とプルベダイアグラムの比較 ((左)  $NO_3$ , (右) U) を示す。1、29 および 52 日の静置期間中に pH の変化はほとんど見られなかった。一方、Eh 値は 29 日後に硝酸ナトリウムおよび亜硝酸ナトリウム溶液のいずれもやや低い値となったが、1 および 52 日後の結果との間に系統性は見いだせず、Eh 値のばらつきと考えられた。pH および Eh の測定値を硝酸イオンのプルベダイアグラムと比較すると、いずれの値もアンモニア ( $NH_3$  または  $NH_4OH$ ) が支配的な領域に存在することが分かった。一方、ウランに対しては、4 価ウランと 6 価ウランの境界線上あるいは 6 価ウランが安定な領域に Eh 値は存在することが分かった。

図 4-17 に  $U(OH)_4(am)$  を含む硝酸ナトリウムおよび亜硝酸ナトリウム試料溶液のウラン溶解度を示す。4 価ウラン水酸化物および水和酸化物溶解度の既報値および 4 価、6 価ウラン溶解度の熱力学計算結果 (Guillaumont et al., 2005) を併せて図中に示す。図 4-16 に示すように Eh 値からは 6 価ウランが安定であることが示唆されたが、硝酸ナトリウム溶液中のウラン溶解度は、52 日後の値においても 4 価ウランの溶解度として十分説明できる値であることが分かった。一方、亜硝酸ナトリウム溶液中における 52 日後のウラン溶解度は、4 価ウランの溶解度曲線より高い値を示しており、6 価ウランに酸化された可能性がある。平成 28 年度の実験においても Sn(II) および  $Na_2S_2O_4$  を含む系では、硝酸ナトリウムの還元はほとんど進まなかった一方、亜硝酸イオンの還元はわずかに進行することが示唆された。硝酸イオンに対して亜硝酸イオンの方が核種に対する酸化性を有する可能性が考えられた。

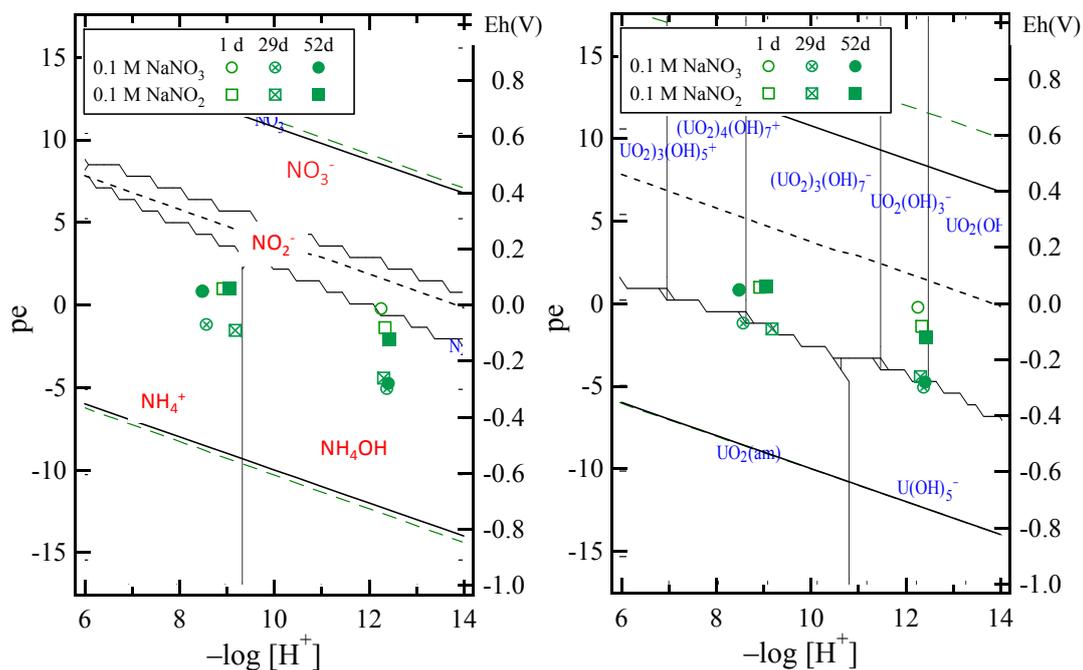


図 4-16 U(OH)<sub>4</sub>(am)を含む硝酸ナトリウムおよび亜硝酸ナトリウム試料溶液の pH および pe 値とプールベダイアグラムの比較 ((左)NO<sub>3</sub>, (右)U)

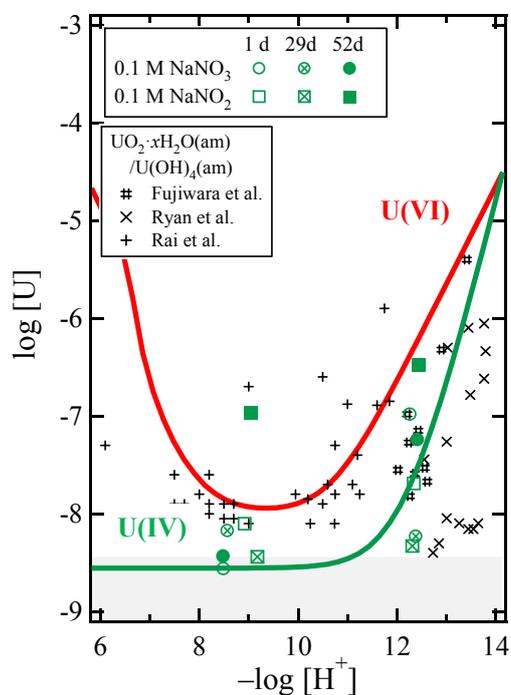


図 4-17 U(OH)<sub>4</sub>(am)を含む硝酸ナトリウムおよび亜硝酸ナトリウム試料溶液のウラン溶解度および U(VI), U(VI) 溶解度の熱力学計算値

### 4.3 アクチノイドの溶解度に対する硝酸塩影響の評価

本節では、平成 26 年度からの 4 ケ年の研究において得られた知見に基づき、アクチノイドの溶解度に対する硝酸塩影響の評価を行う。第 1 章で述べたように、TRU 廃棄物のグループ 3 に含まれる硝酸イオンの経過時間および廃棄体からの距離に対する濃度分布シミュレーション（日本原子力研究開発機構、2013）やセメント影響による地下水組成の予測（核燃料サイクル機構、1999）が進められている。そこで、本研究では、pH、硝酸イオン濃度、イオン強度、カルシウム濃度などを具体的に設定した幾つかの硝酸塩環境場を想定し、プルトニウムの溶解度を熱力学計算によって予測するとともに、支配的な化学状態の推定を行うことで硝酸塩影響の評価を試みる。

#### 4.3.1 グループ 3 廃棄体近傍における溶解度および化学状態

硝酸イオンの濃度分布シミュレーションによると、廃棄体近傍（距離 0 m）における硝酸塩濃度は、1000 年後までは 6 M、1 万年後まででは  $10^{-2}$  M 以上と設定されている。まず、処分後 1000 年までの比較的初期の状態における条件として、高硝酸塩濃度環境（ $[\text{NO}_3^-]=6 \text{ M}$ ,  $I = 6 \text{ M}$ ）を想定した。pH およびカルシウム濃度は、セメント浸出初期における地下水組成を想定して pH 12.5 およびカルシウム濃度 19 mM と設定した。また、セメント影響下では、炭酸イオン濃度は豊富なカルシウムイオンによって炭酸カルシウム ( $\text{CaCO}_3(\text{s})$ ) の溶解度制限を受けると考えられる。そこで、カルシウム濃度 19 mM を一定とし、 $\text{CaCO}_3(\text{s})$  の溶解度積 ( $\log K_{\text{sp}}(\text{CaCO}_3)=-5.29$ ) から炭酸イオン濃度 ( $[\text{CO}_3]_{\text{tot}}$ ) を  $[\text{CO}_3]_{\text{tot}} = 2.7 \times 10^{-4} \text{ M}$  とした。さらに、酸化還元電位は、プルトニウム水酸化物を含み、亜ジチオン酸ナトリウムによる還元環境下の硝酸ナトリウム水溶液中で得られた本研究の実測値である 0 mV (v. s. S. H. E.) とした。図 4-18 に  $[\text{CO}_3]_{\text{tot}} = 2.7 \times 10^{-4} \text{ M}$ 、 $I = 6.0$  の条件下におけるプルトニウム溶解度の熱力学計算を行った結果を示す。プルトニウムは 4 価が安定であり、pH 8~10 の範囲では 4 価プルトニウムの炭酸錯体 ( $\text{Pu}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$ ) が支配的溶存種となるものの、pH 12.5 では 4 価プルトニウムの加水分解種が支配的の化学種であることが示唆された。図 4-18 のように、アルカリ性 pH 条件下で生成するとされる 1:5 および 1:6 加水分解種の錯生成定数 (Moriyama et al., 2005) を考慮に入れた場合は、 $\text{Pu}(\text{OH})_5^-$  が支配的な化学種であると考えられ、その濃度はおよそ  $1 \times 10^{-13} \text{ M}$  と計算された。一方、水酸化物コロイドのゼータ電位の熱力学モデルからは、 $I = 6.0$ 、pH 12.5 における水酸化物コロイドのゼータ電位はほぼ 0 mV であると予測された。以上から高濃度の硝酸塩環境が維持されている廃棄体近傍という条件下では、セメント影響によって炭酸イオンの錯生成による影響が抑えられ、加水分解種が移行挙動を支配する可能性が示唆された。また、このとき、水酸化物コロイドのゼータ電位の値は 0 mV に近く、水酸化物コロイドが生成した場合も凝集しやすいと予想された。

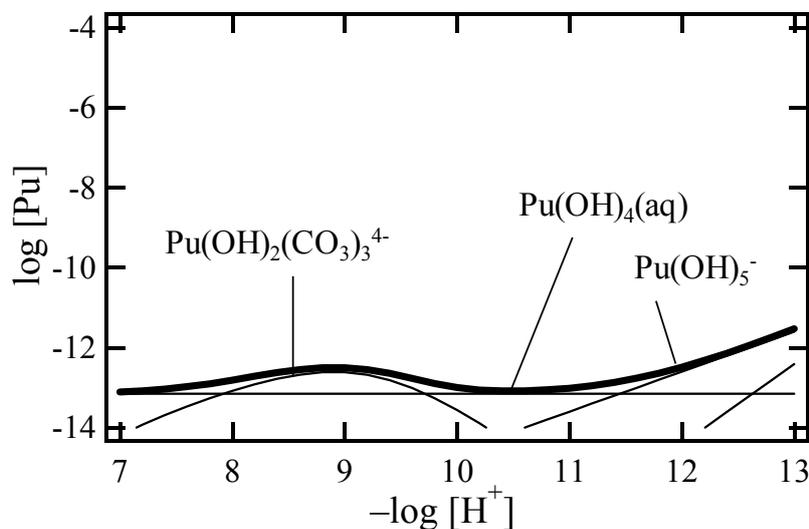


図 4-18 Pu(IV)溶解度の熱力学計算結果 ( $[\text{CO}_3]_{\text{tot}} = 2.7 \times 10^{-4} \text{ M}$ ,  $I = 6.0$ )

一方、処分後一万年以上経過した比較的長期の条件では、pH およびカルシウム濃度は低下し、周辺地下水の化学的条件に近い環境が形成されると予想される。そこで、処分後長期経過した地下水の条件として、低硝酸塩濃度 ( $[\text{NO}_3^-] = 0.01 \text{ M}$ ,  $I = 0.1 \text{ M}$  ( $[\text{Na}^+] + [\text{K}^+]$ )) を想定した。また、カルシウム濃度が低下し、地下水に含まれる炭酸イオンは豊富にあることから、炭酸イオン濃度は炭酸カルシウム ( $\text{CaCO}_3(\text{s})$ ) による溶解度制限を受けず一定になるものと仮定した。ここでは、降水系地下水のリファレンスケース (核燃料サイクル機構, 1999) である  $[\text{CO}_3]_{\text{tot}} = 3.5 \times 10^{-3} \text{ M}$  を用いた。さらに、酸化還元電位は、硝酸塩濃度が低下し、地下の還元的雰囲気が増え、と予想されることから 4 価プルトニウムが安定な領域に維持されるものとした。図 4-19 に  $[\text{CO}_3]_{\text{tot}} = 3.5 \times 10^{-4} \text{ M}$ 、 $I = 0.1$  の条件におけるプルトニウム溶解度の熱力学計算を行った結果を示す。pH 7~11 にかけて 4 価プルトニウムの炭酸錯体 ( $\text{Pu}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$ ) が支配的溶解種になると推定され、降水系地下水のリファレンスケースである pH 8.5 では  $1 \times 10^{-12} \text{ M}$ 、pH 9.5 付近において最大  $1 \times 10^{-11.5} \text{ M}$  と計算された。一方、水酸化コロイドのゼータ電位のモデルから、pH 8.5~9.5 付近における水酸化コロイドのゼータ電位の値はおよそ -100 mV となった。水酸化コロイドが生成する場合、コロイドは凝集せず、分散することを示唆しているが、より正確な評価には共存するイオン (炭酸イオンなど) を考慮に入れたモデルの改良が必要と考えられる。

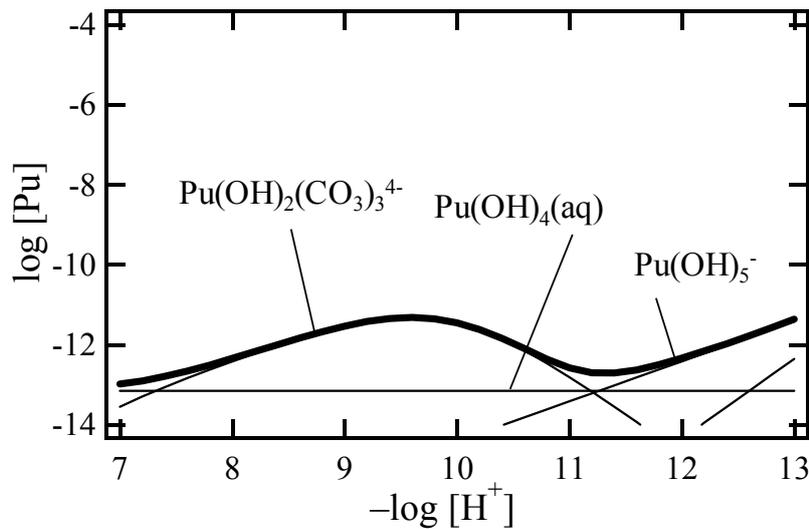


図 4-19 Pu(IV)溶解度の熱力学計算結果 ( $[\text{CO}_3]_{\text{tot}} = 3.5 \times 10^{-3} \text{ M}$ ,  $I = 0.1$ )

#### 4.3.2 処分場遠方域における溶解度および化学状態

想定される硝酸塩の拡がり外の処分場遠方域におけるプルトニウムの溶解度および化学状態について検討する。硝酸イオン濃度およびカルシウム濃度は十分低く、周辺の地下水条件として、ここでは、炭酸イオン濃度が比較的高い海水系地下水のレファレンスケース ( $[\text{CO}_3]_{\text{tot}} = 3.5 \times 10^{-2} \text{ M}$ ,  $I = 0.5$ , pH 8.0) (核燃料サイクル機構, 1999) を想定した。酸化還元電位の値 ( $E_h = -303 \text{ mV}$ ) から、4価プルトニウムが支配的であると考えられた。図 4-20 に溶解度の熱力学計算結果を示す。炭酸イオン濃度が比較的高いため、中性 pH からアルカリ性 pH 領域にかけてのほぼ全域で炭酸錯体 ( $\text{Pu}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$ ) が支配的溶存種となり、その濃度は pH 9.5 付近で最大およそ  $1 \times 10^{-8} \text{ M}$ 、pH 8.0 では  $1 \times 10^{-8.5} \text{ M}$  と計算された。また、 $I = 0.5$ 、pH 8.0 における水酸化物コロイドのゼータ電位の値は、およそ  $-11 \text{ mV}$  と予想され、水酸化物コロイドが生成する場合、コロイドは比較的凝集しやすい傾向にあると考えられた。ただし、前節で述べたように、本モデルでは共存する炭酸イオンの影響は含まれておらず、種々のイオンが共存する系へのモデルの拡張が今後の課題と考えられる。

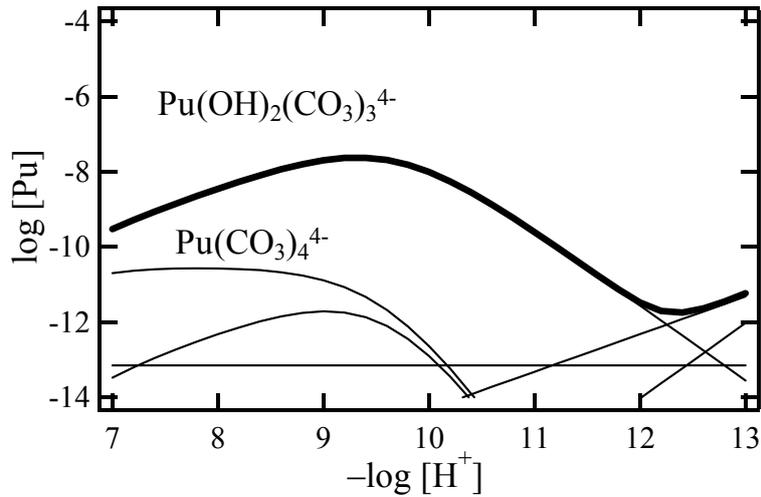


図 4-20 Pu(IV)溶解度の熱力学計算結果 ( $[\text{CO}_3]_{\text{tot}} = 3.5 \times 10^{-2} \text{ M}$ ,  $I = 0.5$ )

以上のように、本研究において提案した熱力学モデルに基づき、いくつかの想定される処分環境においてプルトニウムの溶解度および化学状態に関する定量的な予測を行うことが出来た。廃棄体近傍かつ処分後比較的初期のような硝酸塩濃度が高い条件下では、廃棄体由来のセメント影響および高イオン強度により、加水分解種がプルトニウムの溶解度および化学状態を支配すると考えられた。時間の経過あるいは距離が離れることにより、硝酸塩濃度が低下すると、合わせてセメント影響も低下し、炭酸錯体がプルトニウムの移行挙動を支配するようになると考えられた。また、イオン強度の低下に伴って水酸化コロイドのゼータ電位が負に大きな値を取るようになるため、このような環境下ではコロイドの移行挙動への影響にも留意する必要性が示唆された。

## 5 まとめ

TRU 廃棄物処分の安全評価における硝酸塩影響評価の信頼性向上に資するため、平成 29 年度は、平成 28 年度に引き続き、高イオン強度のプルトニウムの溶解度実験を実施した。 $\alpha$ 線スペクトロメトリ測定における測定誤差の確認を行うとともに、4 価プルトニウムの炭酸錯生成反応におけるイオン強度影響について、SIT および Pitzer 法による活量補正を含む熱力学モデルによる解釈を行った。 $\text{Pu}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$ を支配的溶存種とし、SIT および Pitzer 法におけるパラメータ値を決定し、pH 7-12,  $[\text{CO}_3]_{\text{tot}} = 0.01 \sim 0.16 \text{ M}$ ,  $I = 0.1 \sim 5.0$ におけるプルトニウム溶解度の実験値を定量的に再現できることを明らかにした。

また、4 価金属水酸化物のコロイド挙動では、平成 28 年度までの水酸化物コロイドのゼータ電位測定に加えて、ジルコニウム酸化物のゼータ電位を測定した。酸化物表面におけるプロトン解離および拡散電気二重層を考慮した熱力学モデルにより、硝酸ナトリウム、塩化ナトリウムおよび塩化カルシウム水溶液中のジルコニウム酸化物のゼータ電位を概ね再現できることを示し、酸化物表面のプロトン解離定数などをモデルパラメータとして求めた。さらに、得られたパラメータを用いて、水酸化物コロイドのゼータ電位の解釈を進め、 $I = 0.03 \sim 2.0$ , pH 2~12 における水酸化物コロイドのゼータ電位を概ね再現できるような熱力学モデルを提案した。

硝酸イオンが核種の酸化還元反応に及ぼす影響では、還元剤として 4 価ウランの水酸化物( $\text{UO}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}(\text{am})$ )を硝酸ナトリウム水溶液または亜硝酸ナトリウム水溶液に添加し、硝酸イオンまたは亜硝酸イオンが 4 価ウランの酸化反応に及ぼす影響を調べた。亜硝酸イオンによる 4 価ウランの酸化は、わずかに進行する可能性が示唆されたものの、硝酸イオンによる 4 価酸化の影響は本実験期間内 (~52 日間) では確認できなかった。

研究の総括として、平成 29 年度までに得られた知見を基に、硝酸イオン濃度、炭酸イオン濃度、pH、Eh およびカルシウム濃度を設定した幾つかの硝酸塩環境場を想定し、錯生成定数や活量補正パラメータ、酸化還元電位など熱力学データから 4 価アクチノイドの見かけの溶解度を予測するとともに、水酸化物コロイドが支配的化学種となるような条件下では、コロイドのゼータ電位から予想される凝集分散の傾向について考察した。予想される化学種や溶解度、水酸化物コロイドのゼータ電位のゼータ電位は、設定する pH や炭酸イオン濃度などのパラメータによって大きく変化し、アクチノイドの移行挙動に及ぼす硝酸塩影響を定量化するためのモデル構築を行うことができた。一方、高電荷を持つ炭酸錯体の活量補正パラメータや水酸化物コロイドのゼータ電位モデルにおけるパラメータの検証には、実験的手法のみならず計算科学的手法を取り入れた多角的なアプローチが有効であると考えられた。また、本研究で想定した炭酸錯体や水酸化物コロイドのみならず、処分場あるいは環境中に存在する種々の有機物や擬似コロイドなど、より幅広い条件へとモデルの適用性を拡張していくことが今後の課題と考えられた。

## 参考文献

- Ahmed, SM.: Studies of the dissociation of oxide surfaces at the liquid-solid interface. *Canadian J. Chem.*, **44**, 1663-1670 (1965).
- Altmaier, M., Neck, V., Fanghänel, Th.: Solubility and colloid formation of Th(IV) in concentrated NaCl and MgCl<sub>2</sub> solution. *Radiochim. Acta* **92**, 537-543 (2004).
- Batrakov, VV., Yu Khlupov, A., Gorichev, IG., Kostrikin, AV., Izotov, Ad: Constants of Acid-Base Equilibria at the ZrO<sub>2</sub>/Electrolyte Interface. *Russ. J. Physical Chem.* **74**, Suppl. **3**, 5553-5558 (2000).
- Brown, P., Curti, E., Grambow, B., Ekberg, C.: *Chemical Thermodynamics of Zirconium*, In: *Chemical Thermodynamics* (Eds.: F. J. Mompean et al.) *Vol. 8*. Elsevier, North-Holland, Amsterdam (2005).
- 電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構: TRU 廃棄物処分技術検討書—第2次 TRU 廃棄物処分研究開発取りまとめ—, JNC TY1400 2005-013, FEPC TRU-TR2-2005-02 (2005) .
- Fengqiu, T., Xiaoxian, H., Yufeng, Z., Jinkun, G. Effect of dispersants on surface chemical properties of nano-zirconia suspensions. *Ceramics International*, **26**, 93-97 (2000).
- Fujiwara, K., Yamana, H., Fujii, T., Kawamoto, K., Takayuki, S., Moriyama, H.: Solubility of uranium(IV) hydrous oxide in high pH solution under reducing condition. *Radiochim. Acta* **93**, 347-350 (2005).
- Guillaumont, R., Fanghänel, Th., Fuger, J., Grenthe, I., Neck, V., Palmer, D., Rand, M.: *Update on the Chemical Thermodynamics of Uranium, Neptunium, Plutonium, Americium and Technetium*, In: *Chemical Thermodynamics* (Eds.: F. J. Mompean et al.) *Vol. 5*. Elsevier, North-Holland, Amsterdam (2003).
- 原子力委員会長半減期低発熱放射性廃棄物処分技術検討会: 長半減期低発熱放射性廃棄物の地層処分の基本的考え方—高レベル放射性廃棄物との併置処分等の技術的成立性— (2006).  
(<http://www.aec.go.jp/jicst/NC/senmon/tyohan/bosyu/060228/05.pdf>) .
- 原子力発電環境整備機構: 地層処分低レベル放射性廃棄物に関わる処分の技術と安全性—付録資料—, NUMO-TR-10-04 (2011).
- Harvie, C. F., Møller, N., Weare, J. H.: The prediction of mineral solubilities in natural waters: The Na-K-Mg-Ca-H-Cl-SO<sub>4</sub>-OH-HCO<sub>3</sub>-CO<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O system to high ionic strengths at 25 °C. *Geochim. Cosmochim. Acta* **48**, 723-751 (1984).
- Hiemstra, T., Yan Piemsdijk, WH., Bolt, GH: Multisite Proton Adsorption

- Modeling at the Solid/Solution Interface of (Hydr)oxides: A New Approach. J. Colloid Interface Sci., **133**, 91-104 (1989).
- Hummel, W., Anderegg, G., Rao, L., Puigdomènech, I., Tochiyama, O., “*Chemical Thermodynamics of Compounds and complexes of U, Np, Pu, Am, Tc, Se, Ni and Zr with selected organic ligands,*” In: *Chemical Thermodynamics* (Eds.: F. J. Mompean et al.) Vol. 9, Elsevier, North-Holland, Amsterdam (2005).
- 核燃料サイクル機構:我が国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性—地層処分研究開発第2次取りまとめ—, JNC TN1400 99-020 (1999) .
- Kobayashi, T., Sasaki, T., Takagi, I., Moriyama, H. Solubility of Thorium(IV) in the Presence of Oxalic and Malonic Acids. J. Sci. Nucl. Technol., **46**, 1085-1090 (2009).
- Kobayashi, T., Sasaki, T. Solubility of Zr(OH)<sub>4</sub>(am) and the formation of Zr(IV) carbonate complexes in carbonate solutions containing 0.1–5.0 mol·dm<sup>-3</sup> NaNO<sub>3</sub>. J. Solution Chem. **46**, 1741-1759 (2017).
- Moriyama, H., Sasaki, T., Kobayashi, T., Takagi, I.: Systematics of Hydrolysis Constants of Tetravalent Actinide Ions. J. Nucl. Sci. Technol., **42**, 626-635 (2005).
- 日本原子力研究開発機構:平成22年度地層処分技術調査等委託費(TRU廃棄物処分技術 硝酸塩処理・処分技術高度化開発), pp. 2-87 - 2-156 (2011) .
- 日本原子力研究開発機構:平成24年度地層処分技術調査等事業(TRU廃棄物処分技術 硝酸塩処理・処分技術高度化開発), pp. 2-1 - 2-81 (2013) .
- 日本原子力研究開発機構:平成26年度経済産業省委託事業「地層処分技術調査等事業(処分システム評価確証技術開発)」報告書(2015) .
- Prica, M., Biggs, S., Grieser, F., Healy, TW: Effect of calcination temperature on the electrokinetic properties of colloidal zirconia. Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects, **119**, 205-213 (1996).
- Rai, D., Hess, N. J., Felmy, A. R., Moore, D. A., Yui, M., Vitorge, P.: A thermodynamic model for the solubility of PuO<sub>2</sub>(am) in the aqueous K<sup>+</sup>-HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>-CO<sub>3</sub><sup>2-</sup>-OH<sup>-</sup>-H<sub>2</sub>O system, Radiochim. Acta, **86**, 89-99 (1999).
- Sasaki, T., Kobayashi, T., Takagi, I., Moriyama, H.: Solubility measurement of zirconium(IV) hydrous oxide. Radiochim. Acta **94**, 489-494 (2006).
- Yamaguchi, T., Sakamoto, Y., Ohnuki T.: Effect of the Complexation on Solubility of Pu(IV) in Aqueous Carbonate System. Radiochim. Acta **66/67**, 9-14 (1994).

平成 29 年度 外部発表

【査読付論文】

1. T. Kobayashi, T. Sasaki, “Solubility of  $\text{Zr}(\text{OH})_4(\text{am})$  and the formation of Zr(IV) carbonate complexes in carbonate solutions containing 0.1–5.0 mol·dm<sup>-3</sup>  $\text{NaNO}_3$ ,” *Journal of Solution Chemistry*, 46, 1741–1759 (2017).

【口頭発表】

1. 小林大志, 佐々木隆之 「プルトニウム溶解度に及ぼす炭酸影響の熱力学的考察」, 第 61 回放射化学討論会, 3B01, つくば大学 (2017 年 9 月).



## 研究報告 5

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

東北大学 大学院工学研究科

千田 太詩



## 1. 背景と目的

### 1.1 本研究の背景

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

表 1 花崗岩に含有する主な鉱物[2].

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

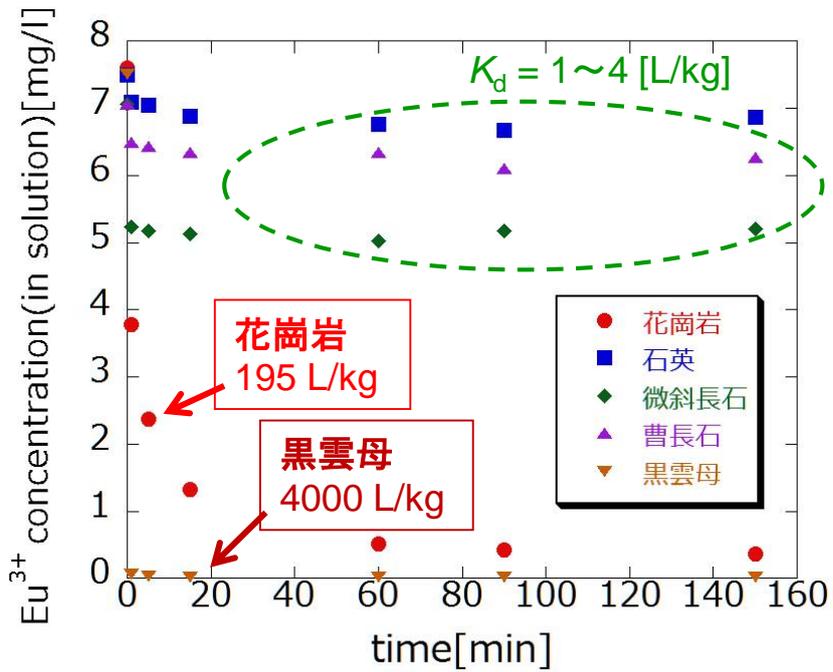


図 1 花崗岩及び主要構成鉱物へのユウロピウムの収着挙動(粒径 75-150  $\mu\text{m}$ )[3].

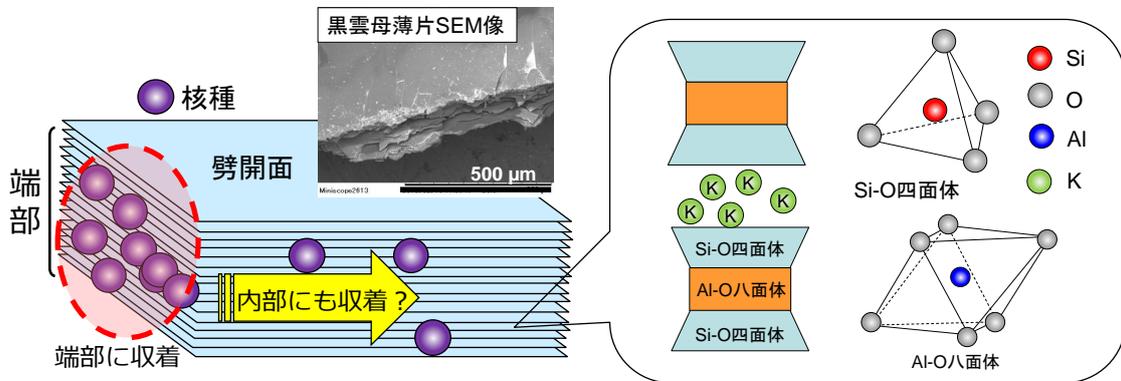


図 2 黒雲母薄片への核種収着.

一方、第2次取りまとめにおける岩盤中の核種移行解析モデルには、図3に示すように亀裂内における移流・分散による核種移行と、亀裂から岩石基質内へ拡散するマトリクス拡散が考慮されている[1]。さらに、マトリクス拡散に伴い、岩石基質内において構成鉱物へ収着する効果が含まれている(そのため亀裂表面における収着は考慮されていない)。ここで核種収着効果として適用される分配係数  $K_d$  は、前述のようにその多くが一定粒径に調整した粉末試料を用いた収着試験によって取得されており、固相質量と収着に寄与する界面面積が一定に保たれると仮定している。そして、遅延効果の設定には、マトリクス拡散を想定して分配係数  $K_d$  に岩石の密度および間隙率が加味される。このとき、マトリクス内の拡散場において、核種収着には局所平衡が仮定されている。しかし、黒雲母の異方性を考慮する場合、黒雲母薄片端部への収着に加えて、端部から層構造内部への拡散過程が付加される。この黒雲母内の核種拡散がマトリクス拡散と比較して十分に速い場合には、従来通りマトリクス内における核種収着に局所平衡を仮定できる。一方、黒雲母内の拡散がマトリクス拡散よりも遅い場合には、黒雲母への核種収着が薄片内の拡散に律速されるため従来想定される局所平衡が仮定できず、薄片内の拡散過程を反映した見かけの収着速度を考慮する必要がある。すなわち、マトリクス内の核種収着を支配する黒雲母について局所平衡を仮定している場合と比べて、収着速度が考慮されることにより黒雲母、ひいてはマトリクス全体の核種収着能が小さく見積られることになる。

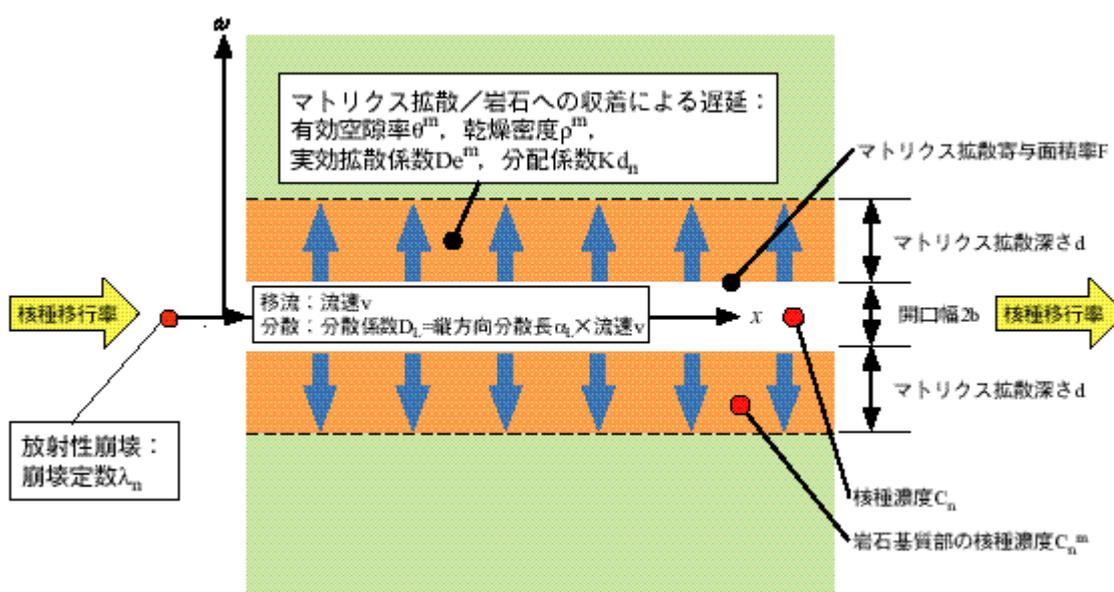


図3 第2次取りまとめにおける一次元平行平板モデル概念図[1]

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

また、これまで花崗岩および黒雲母について述べてきたが、実際の地下環境においては、地下水と接触している花崗岩表面が熱水などにより変質を受ける場合も想定される。亀裂(水みち)が形成された後に熱水変質を受けた花崗岩亀裂表面では、本研究で注目する黒雲母は層状ケイ酸塩鉱物の一種である緑泥石(Chlorite,  $(Mg_5Al)(Si_3Al)O_{10}(OH)_8$  (Clinochlore))へ変質することが知られている。加えて、花崗岩に豊富に含有する長石類の変質により、雲母鉱物の一種である絹雲母(Sericite,  $KAl_2(Si_3Al)O_{10}(OH)_2$ )が生成して花崗岩表面を覆うことも報告されている[5-7]。このような熱水に起因した鉱物変質は、花崗岩がマグマから固結した後に熱水が花崗岩の亀裂表面や鉱物粒界に接することにより生じると予想され、比較的新しい亀裂以外の地下水接触面では広く分布している可能性がある。そのため、亀裂表面近傍におけるマトリクス拡散および核種収着には、これらの変質鉱物の寄与も考慮する必要がある。本研究では、核種収着挙動の異方性に注目する黒雲母とともに、熱水変質によって生成する緑泥石や絹雲母についても核種収着挙動を調べ、比較検討する。

## 1.2 研究の目的および概要

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

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

いても液相中の濃度変化を測定することにより収着とイオン交換の関連について知見を得る。

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

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

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

## 2. 全体研究計画

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

表 2 研究工程表.

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

(1)H26 年度実施内容

黒雲母薄片を用いた Eu の収着試験に着手する。Eu が  $\text{Eu}^{3+}$  として存在する pH 3 程度の酸性領域における黒雲母への Eu 収着挙動を調べる。また、収着試験後の黒雲母薄片を用いた蛍光分光分析および SIMS 分析に関して、各々について本研究の収着試験条件における黒雲母薄片内の Eu 拡散挙動観察に適した分析条件の設定を目指す。蛍光分光分析では、Eu の蛍光スペクトルや蛍光減衰の測定条件を確認する必要がある。SIMS 分析では、イオンビーム選択や測定対象元素の質量干渉の有無を確認した上で分析を実施する。また、黒雲母が変質した緑泥石についても併せて収着試験に着手する。

(2) H27 年度実施内容

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

(3) H28 年度実施内容

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

#### (4) H29 年度実施内容

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

### 3. 平成 28 年度の成果概要

平成 28 年度は、前述した研究計画の通り、Eu に加え Cs および Sr の収着挙動検討を行った[8]。黒雲母薄片への Cs 収着挙動としては、図 4 に示すように、pH が 5 から 8 に上昇し

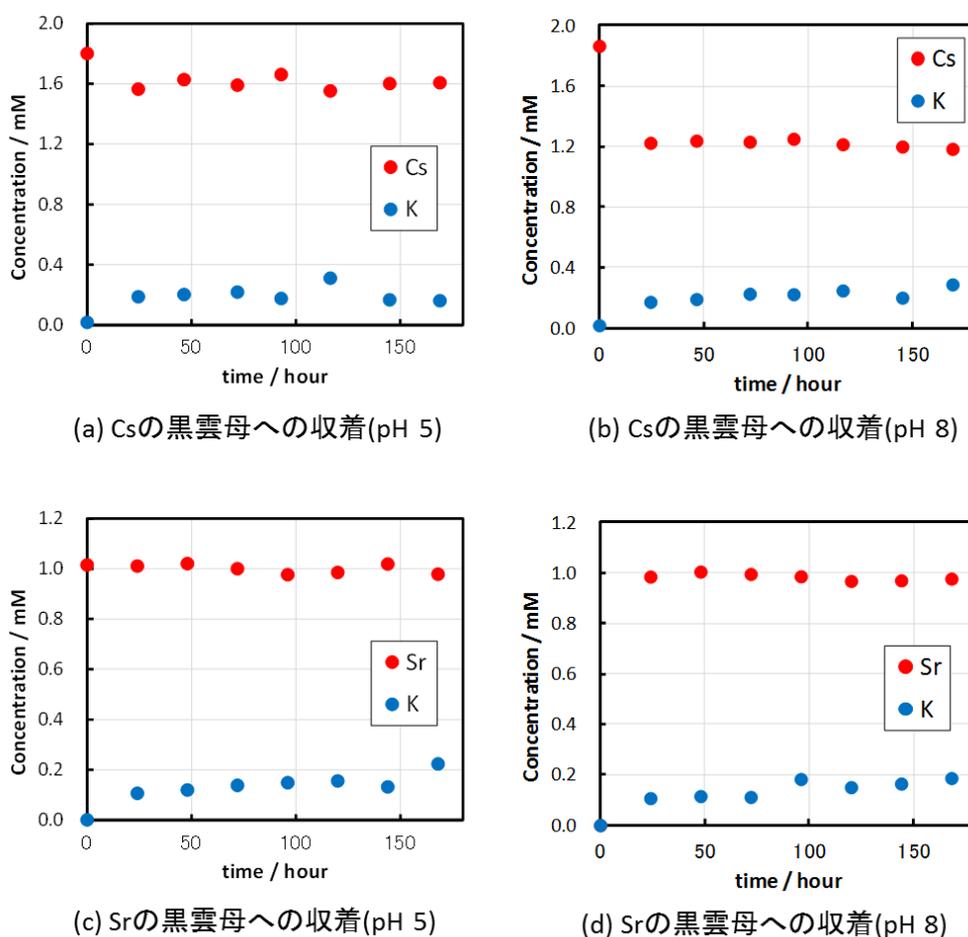
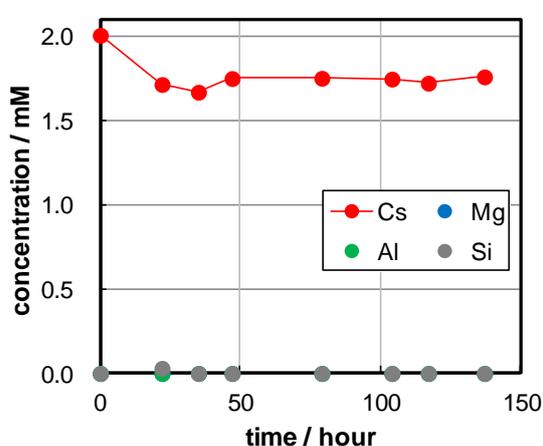


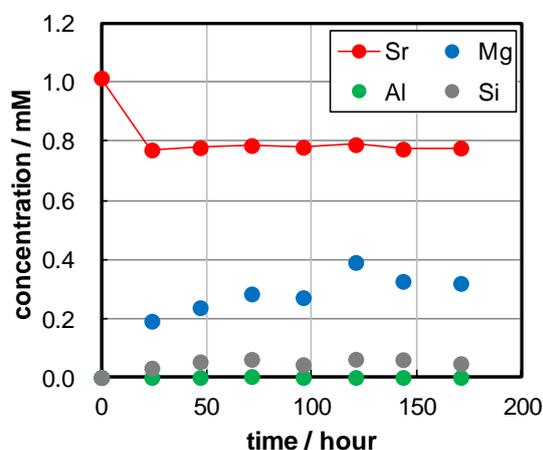
図 4 黒雲母薄片に対する Cs および Sr の収着挙動[8].

た際に Cs 収着量の増加が確認される一方で, Eu とは異なり薄片内への拡散浸入を示唆する経時的な濃度低下は見られなかった. これについて, 薄片端部における Cs 収着によって層構造変化が生じる可能性を指摘している. なお, Sr については有意な濃度変化が観察できなかった. SIMS による黒雲母薄片内の元素分析においては Cs および Sr ともに薄片内への浸入が確認されており, Eu も含めてトレーサー濃度設定を見直して平成 29 年度に改めて検討することとした.

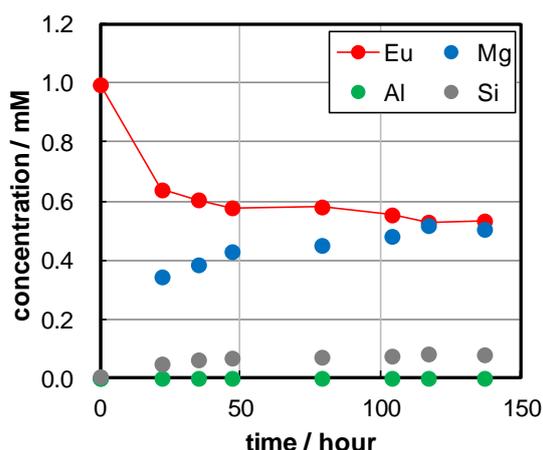
また, 緑泥石および絹雲母に対しても Cs, Sr の収着試験を実施しており, 価数の大きいトレーサーほどより収着する傾向が見られた. 緑泥石および絹雲母は粉末試料を用いているためトレーサーと接触する端部の割合が大きく, 端部に露出する負の層電荷に応じて収着したと考えられる.



(a) Csの緑泥石への収着(pH 5)



(b) Srの緑泥石への収着(pH 5)



(c) Euの緑泥石への収着(pH 5)

図 5 緑泥石への Cs, Sr, Eu の収着挙動に関する pH 依存性[8].

## 4. 平成 29 年度の研究実施内容

### 4.1 平成 29 年度の実施計画

平成 29 年度は、研究計画策定時には 2 章に述べたように黒雲母以外の雲母鉱物を用いた収着試験を実施する予定であったが、実環境において収着挙動に寄与が大きいと考えられる共存イオン(塩濃度)の影響の方がより重要度が高いと考え、計画を変更してこれについて取り組むこととした。これは、固相への収着における共存イオンとトレーサーの競合や、トレーサーの化学形態の変化、さらには黒雲母薄片の層間変化などといった影響を想定したことによる。塩濃度としては NaCl を用いて 0~0.6 M に設定し、平成 28 年度において課題として残されたトレーサー濃度設定の見直しを行った上で、黒雲母薄片への Cs, Sr, Eu の収着試験を実施した。黒雲母薄片に加えて、緑泥石および絹雲母についても同様に収着試験を行った。当初予定であった金雲母および白雲母については、Eu を用いて pH 3 および NaCl 濃度 0 M の条件についてのみ試行した。黒雲母薄片を用いた試験結果をもとに、数学モデルによって薄片内の見かけの拡散係数を評価した。

### 4.2 研究実施内容

以下に収着試験および分析について示す。

#### 4.2.1 鉱物試料への Cs および Sr, Eu の収着試験

本研究では、平成 26 年度~H28 年度に確認した収着試験系[8-10]によって、黒雲母薄片および緑泥石、絹雲母への Cs および Sr, Eu の収着についてバッチ式の収着試験を行った。図 6 に収着試験の概要を示す。鉱物試料はいずれも株式会社ニチカより購入し、黒雲母は Nellore, Andhra, Pradesh, India 産の約 5 mm × 6 mm 程度(目視観察により大きさを選り分け)の薄片試料を、緑泥石は長崎県西彼杵群三和町蚊焼産の粉末試料(粒径 75~150 μm, 取扱が

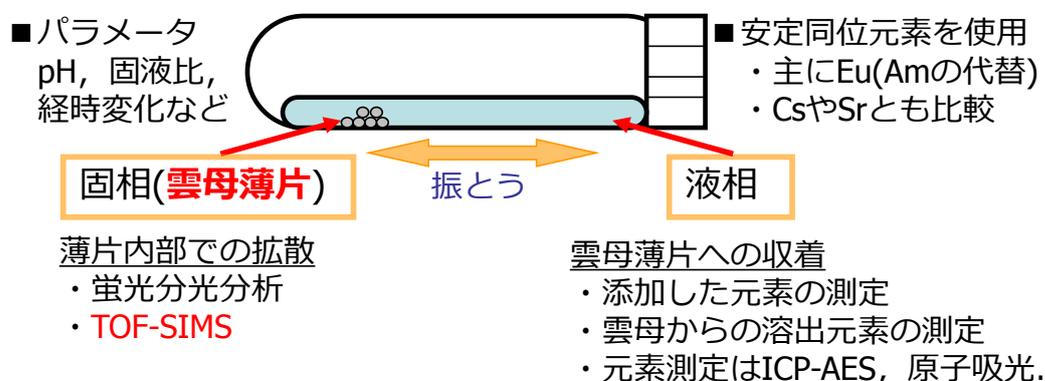


図 6 収着試験概要[8-10].

粉末試料のみであったため)を、絹雲母は岡山県備前市三石産の粉末試料(粒径 75  $\mu\text{m}$  以下, 取扱が粉末試料のみであったため)を使用した. BET( $\text{N}_2$ )比表面積は緑泥石が 2  $\text{m}^2/\text{g}$ , 絹雲母が 10  $\text{m}^2/\text{g}$  だった. 金雲母( $\text{KMg}_3(\text{Si}_3\text{Al})\text{O}_{10}(\text{OH})_2$ )は, Huddersfield Township, Quebec, Canada 産を, 白雲母( $\text{KAl}_2(\text{Si}_3\text{Al})\text{O}_{10}(\text{OH})_2$ )は Kiodarma District, Bihar, India 産を, 黒雲母薄片と同様に約 5 mm  $\times$  6 mm 程度のものを選び分けて使用した. Cs 溶液は硝酸セシウム, Sr 溶液は硝酸ストロンチウム六水和物, Eu 溶液は硝酸ユウロピウム(III)六水和物から調整した. これらを含め, 本研究において使用した試薬類は和光純薬工業製の特級試薬をとくに精製せずに使用した. 溶液調整に使用する超純水は Merck KGaA 社製 Auto Pure WD501UV により精製した. 収着試験時のトレーサー濃度は Cs および Sr, Eu のいずれも 0.1 mM とした. H28 年度まではトレーサー濃度を 1 mM に設定していたが, 有意なトレーサー濃度変化(収着)を観察できないケースが頻発したため, 今年度はトレーサー濃度を 0.1 mM に下げた. これにより, 試験期間中にトレーサー濃度の経時変化を観察できるようにした. PPCO(ポリエチレン共重合)製の 10 mL ネジ蓋付遠沈管(シーリングキャップ仕様)に Cs, Sr あるいは Eu 溶液を 4.0 mL, および液固比( $\text{mL}/\text{g}$ )が 10 になるように秤量した黒雲母薄片 0.4 g を加えて密封した後, 恒温振とう機(EYELA 社製 MMS-1)により 25 $^\circ\text{C}$ に保ち一週間に亘って振とうさせた. 遠沈管への添加から密封までは, 窒素雰囲気下のグローブバッグ内で行った. また, pH 依存性を調べるため, 収着試験時の溶液の pH を 3 および 5, 8 の 3 通りに調整した. 塩濃度調整として, 黒雲母薄片浸漬時の NaCl 濃度が 0 M, 0.006 M, 0.06 M, 0.6 M になるように調整した. そして, 試験中の溶液の pH 変動を防ぐため, pH 緩衝剤として MES (2-morpholinoethanesulfonic acid, monohydrate)と THAM (Tris (hydroxymethyl) aminometane)を適宜混合, 添加した. これら緩衝剤の試料溶液中の濃度は 0.01 M であり, 緩衝剤の添加によってトレーサーの収着挙動が変化しないことを確認した. 所定時間振とう後, メンブレンフィルター(ADVANTEC 社製, 孔径 0.45  $\mu\text{m}$ )で固液分離した. 収着試験期間は 6~7 日とし, 一日ごとにサンプリングした. 液相分析は, Cs 濃度については原子吸光分析装置(AAS, Thermo Fisher Scientific 社製, iCE330)を, その他の元素濃度については誘導結合プラズマ発光分析装置(ICP-AES, Seiko Instrument 社製, SPS7800)を用いて定量した. 測定元素は, 添加した Cs や Sr, Eu に加え, 交換性陽イオンとして黒雲母に含有する K を対象とした.

Eu は図 7 (Chemical Equilibrium Diagram “MEDUSA”により作成[11])に示すように, pH 6 程度より高い pH 領域において加水分解することが知られている. よって, 実際の地下環境を想定した pH 8 の溶液条件では,  $\text{Eu}(\text{OH})_3$  の形態で沈殿することが予想される. 本試験では, 鉍物試料に添加する直前に Eu 溶液の pH 調整を行ったが, pH 8 の場合においても液相は無色透明であり調整直後の沈殿生成も目視では確認できなかったことから,  $\text{Eu}(\text{OH})_3$  はコロイドとして液相中に分散している状態と考えられる. このようにして調整した pH 8 の Eu 溶液は, フィルター濾過等を行わずに ICP-AES にて濃度を測定したところ, 概ね設定通りの濃度であることが確認された.

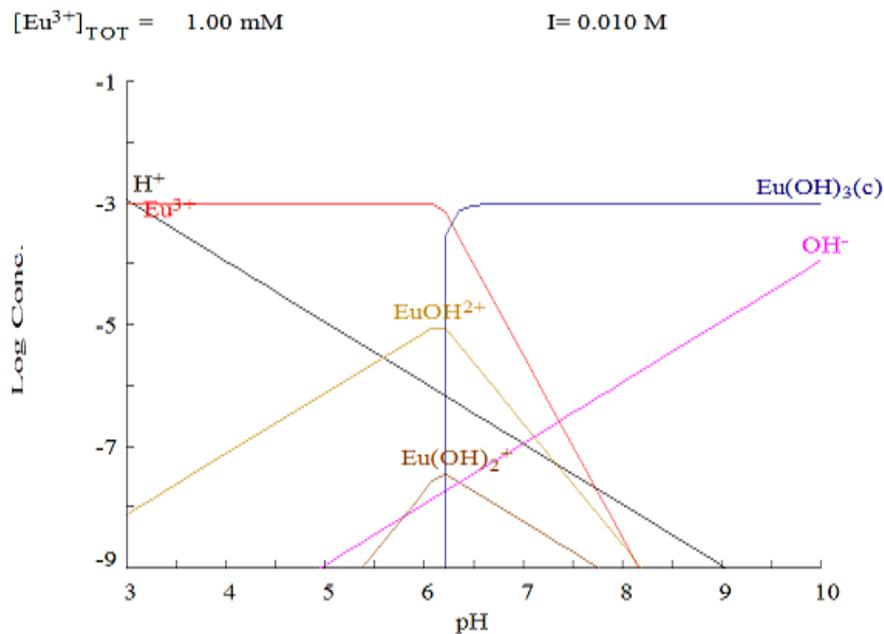


図7 Eu 化学種の pH 依存性[11]

#### 4.2.2 蛍光分光分析

蛍光分光分析では、高速蛍光寿命測定装置 FluoroCube(堀場製作所製 3000U, 波長 390 nm の LED で励起)を使用して蛍光の減衰挙動を測定した。FluoroCube は、パルス幅の短い LED を光源としており、測定物質を励起してから蛍光測定を開始するまでの時間を指定して蛍光の減衰挙動を測定することができる。蛍光分光分析は Eu について行うこととし、Eu 溶液のみ、あるいは収着試験後の鉱物試料を試料溶液とともに測定用石英セルに入れて蛍光減衰挙動を分析した。測定においては、平成 27 年度までの測定条件検討に基づき[9, 10], Eu の蛍光スペクトルに観察されるピークの中から  $^5\text{D}_0 \rightarrow ^7\text{F}_1$  遷移に相当する 592 nm のピークを選択した。

#### 4.2.3 SIMS 分析

前述したように、黒雲母薄片の端部に収着したトレーサーは、層間内部へ拡散することが予想される。この挙動を直接分析するために、二次イオン質量分析装置(SIMS, 日立ハイテク社製 TOF-SIMS5 (ION-TOF))を使用した。SIMS は、一次イオンビームの照射によって固体試料の最表面部をイオン化することで発生する二次イオンを質量分析することにより、固体試料に含有する元素量や構造を直接的に測定する分析法である[12]。本研究の分析においては、一次イオンとして質量数が大きくクラスターの発生量が多いビスマス(Bi)を用いるとともに、スパッターイオン(酸素,  $\text{O}_2$ )を併用したデュアルビーム分析を行った。使用した装置の質量分析方法には、一定の加速電圧を印加された二次イオンが検出器までの一定距

離を飛行する時間を計測して質量分離する飛行時間型(TOF)が採用されている。SIMS 分析に用いた黒雲母薄片試料は、収着試験後に固液分離し真空デシケーター内で十分乾燥させて用いた。本研究では、黒雲母薄片内部へのトレーサーの拡散を議論するため、図 8 に示すように edge 1, edge 2 および center の三点で測定を行うこととした。

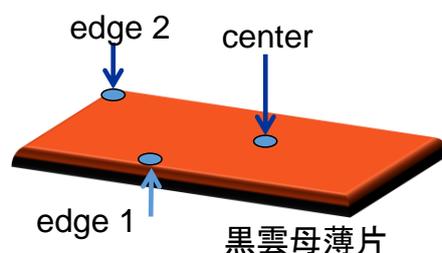


図 8 SIMS 分析時の測定ポイント

#### 4.3 平成 29 年度の研究成果内容

平成 29 年度の成果について、黒雲母薄片を用いた収着挙動検討と、緑泥石および絹雲母、金雲母および白雲母を用いた検討に大別して示す。

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

黒雲母薄片への Cs および Sr, Eu の収着挙動について、pH と塩濃度をパラメータとした収着試験を行った。液相のトレーサー濃度の経時変化、SIMS による黒雲母薄片内のトレーサー分布、蛍光寿命分析を通じて、収着挙動を検討する。また、収着試験結果に基づき、数値解析による黒雲母薄片内の拡散係数評価を試みる。

##### 黒雲母薄片への Cs および Sr, Eu の収着試験結果

図 9～図 12, 図 14～図 17, 図 19～図 22 は、黒雲母薄片への Cs および Sr, Eu 収着と、それに伴う K 溶出の経時変化である。これらの図では、第 1 縦軸にトレーサー濃度を、第 2 縦軸に K 濃度を取っており、K 濃度の軸は大半が最大値 1 mM であるものの一部のグラフで最大値 2.5 mM としてあることに注意されたい。さらに、これらのデータを塩濃度比較のためトレーサーごとに集約したグラフが図 13, 図 18, 図 23 となる。

図 9 および図 14, 図 19 は NaCl 濃度 0 M における各トレーサーの収着試験結果であるが、いずれもトレーサーの収着に伴う K の溶出が確認されており、イオン交換による収着が示唆される。しかし、図 14(b)(c)のように収着したトレーサーと溶出した K が価数のバランスに概ね適合するものもあれば、図 9 のように明らかに過剰な K 溶出が認められる場合もあ

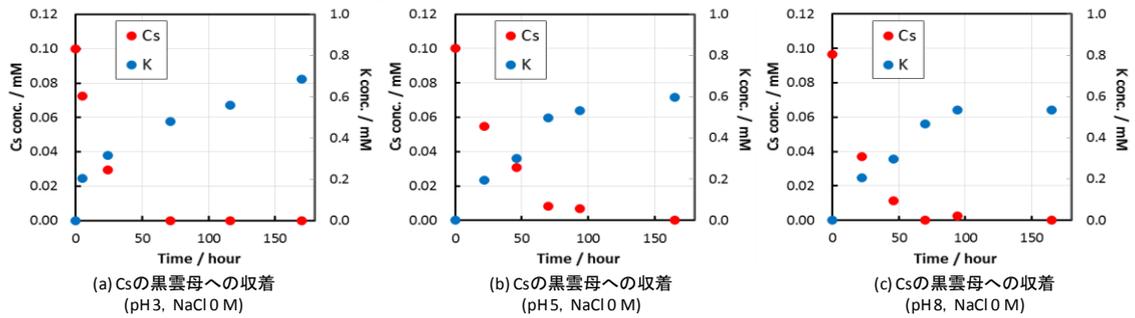


図9 黒雲母薄片へのCs収着とK溶出のpH依存性(NaCl濃度0 M).

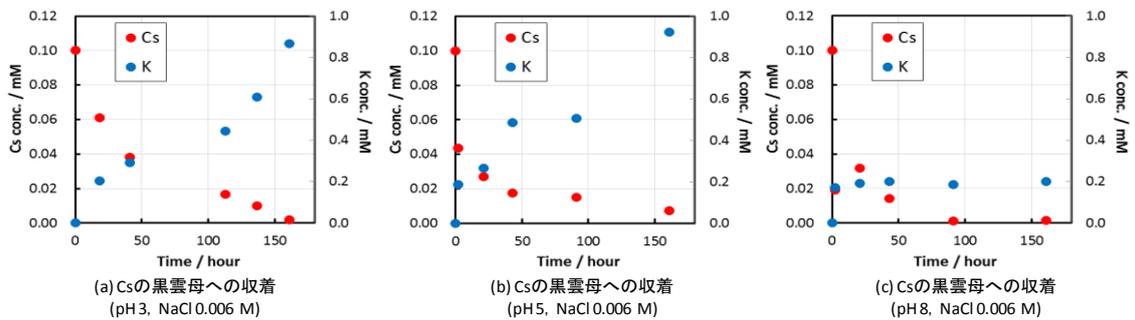


図10 黒雲母薄片へのCs収着とK溶出のpH依存性(NaCl濃度0.006 M).

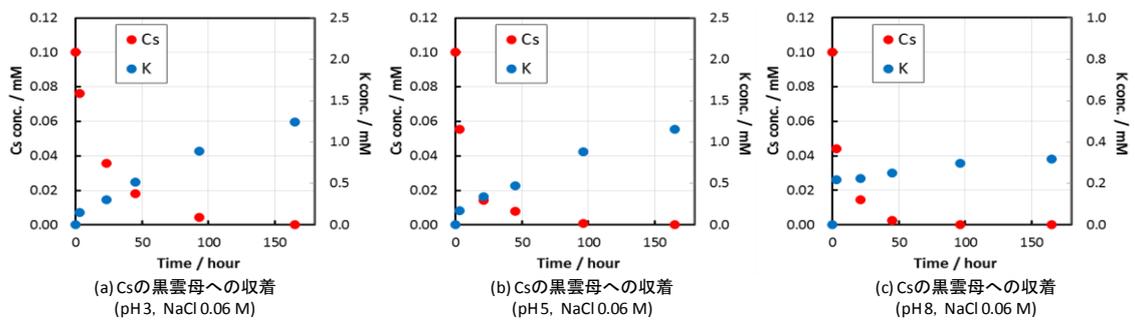


図11 黒雲母薄片へのCs収着とK溶出のpH依存性(NaCl濃度0.06 M).

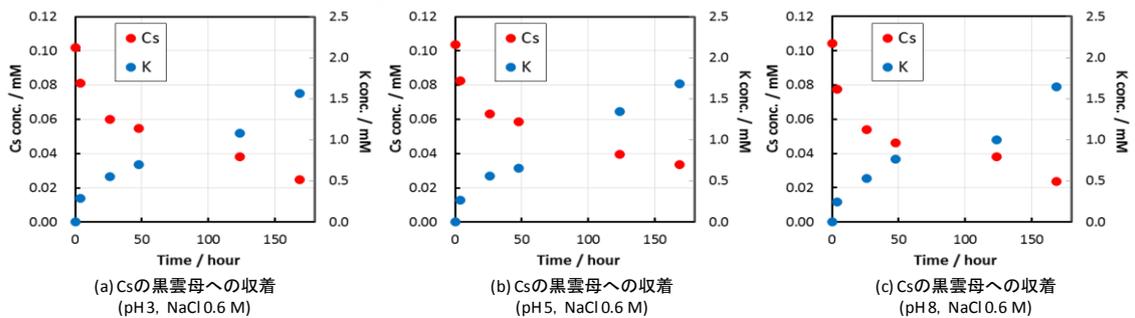
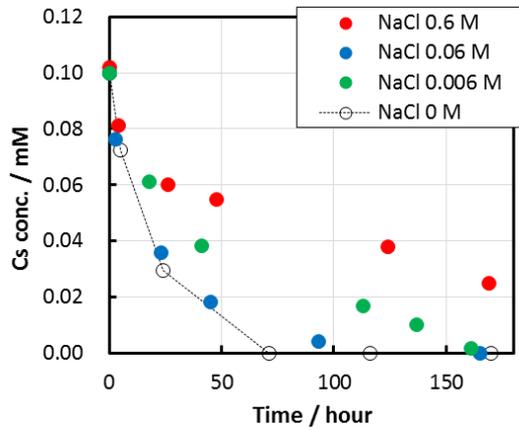
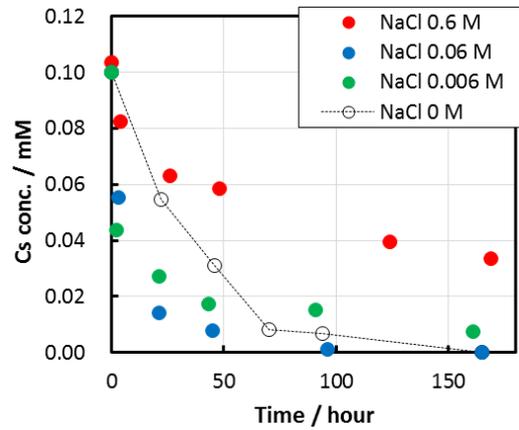


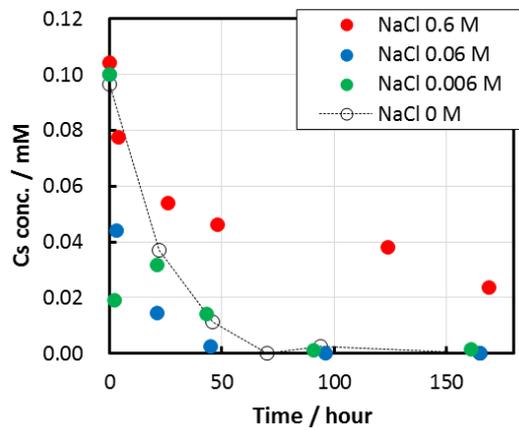
図12 黒雲母薄片へのCs収着とK溶出のpH依存性(NaCl濃度0.6 M).



(a) Csの黒雲母への収着(pH 3)



(b) Csの黒雲母への収着(pH 5)



(c) Csの黒雲母への収着(pH 8)

図 13 黒雲母薄片への Cs 収着に関する NaCl 濃度依存性.

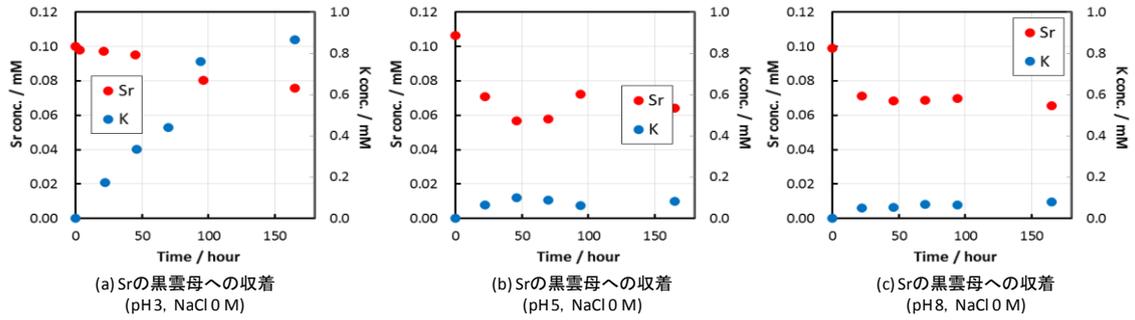


図 14 黒雲母薄片への Sr 収着と K 溶出の pH 依存性(NaCl 濃度 0 M).

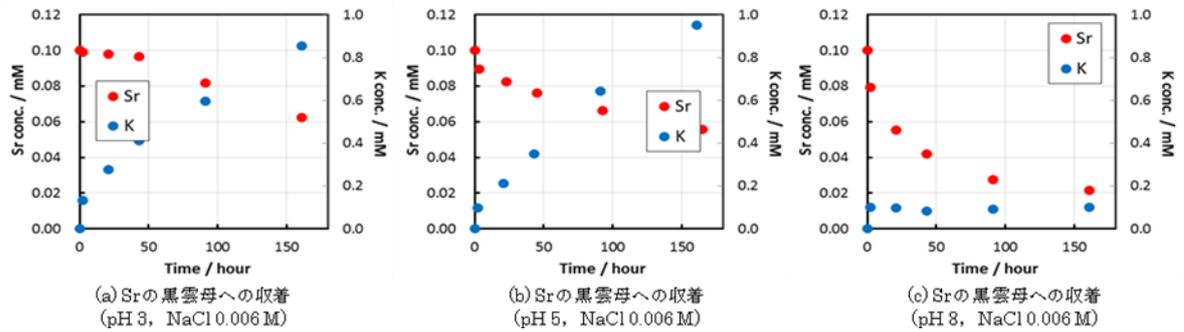


図 15 黒雲母薄片への Sr 収着と K 溶出の pH 依存性(NaCl 濃度 0.006 M).

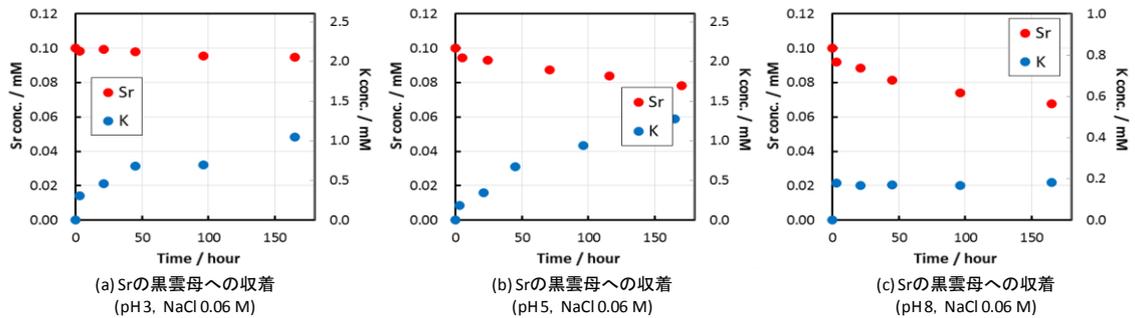


図 16 黒雲母薄片への Sr 収着と K 溶出の pH 依存性(NaCl 濃度 0.06 M).

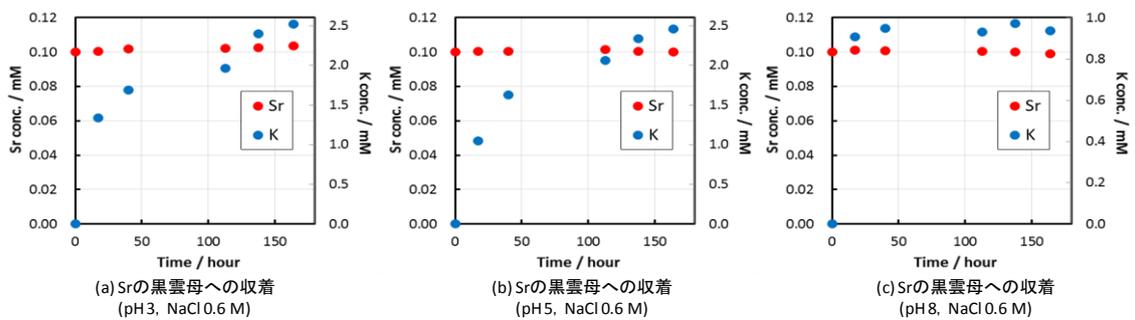
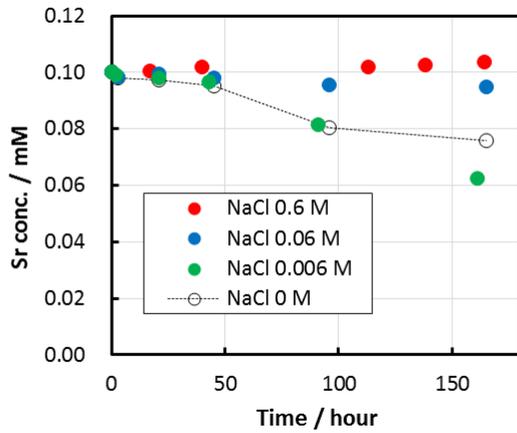
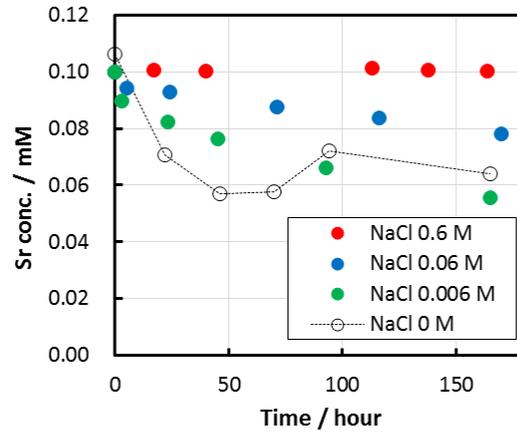


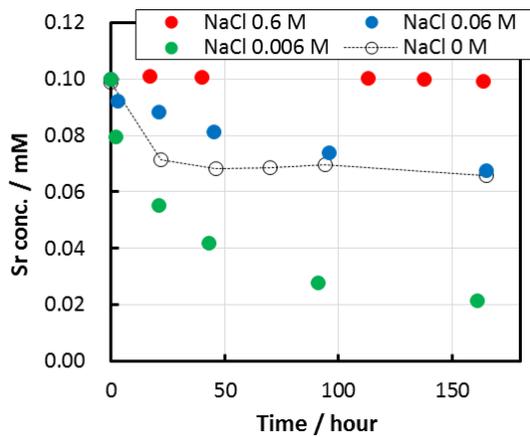
図 17 黒雲母薄片への Sr 収着と K 溶出の pH 依存性(NaCl 濃度 0.6 M).



(a) Srの黒雲母への収着(pH 3)



(b) Srの黒雲母への収着(pH 5)



(c) Srの黒雲母への収着(pH 8)

図 18 黒雲母薄片への Sr 収着に関する NaCl 濃度依存性.

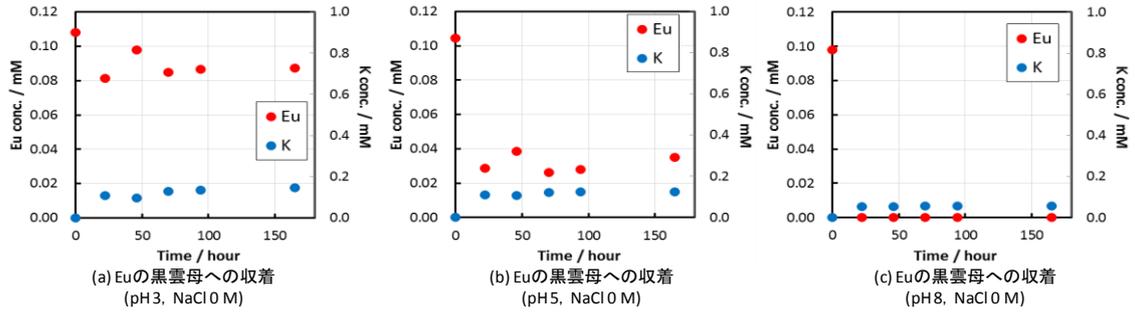


図 19 黒雲母薄片への Eu 収着と K 溶出の pH 依存性(NaCl 濃度 0 M).

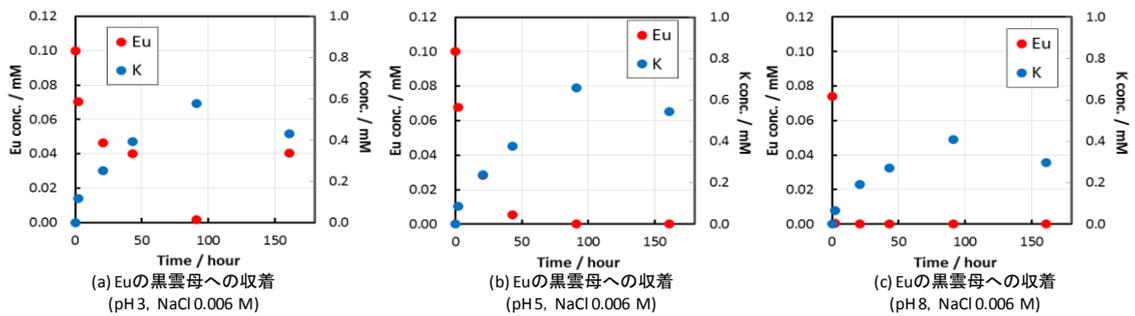


図 20 黒雲母薄片への Eu 収着と K 溶出の pH 依存性(NaCl 濃度 0.006 M).

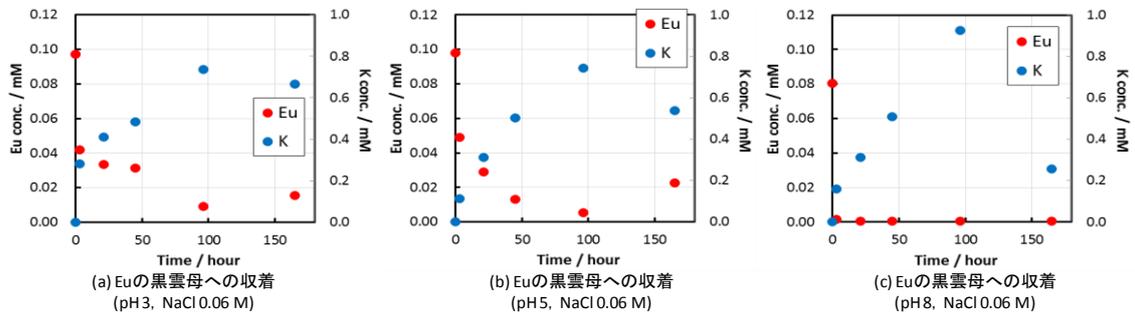


図 21 黒雲母薄片への Eu 収着と K 溶出の pH 依存性(NaCl 濃度 0.06 M).

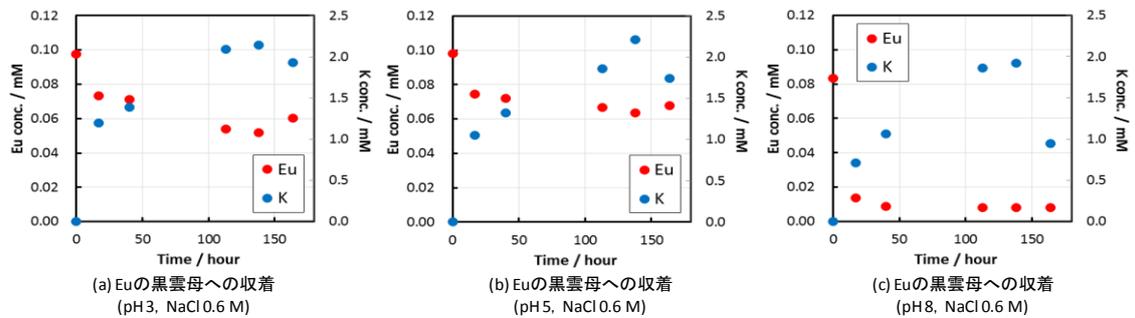
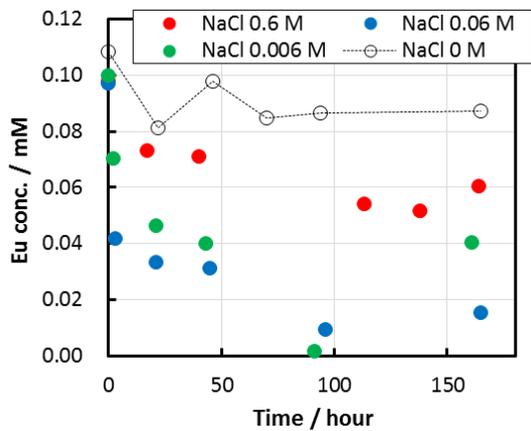
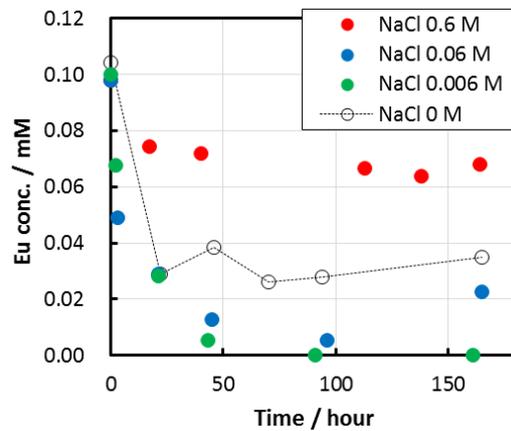


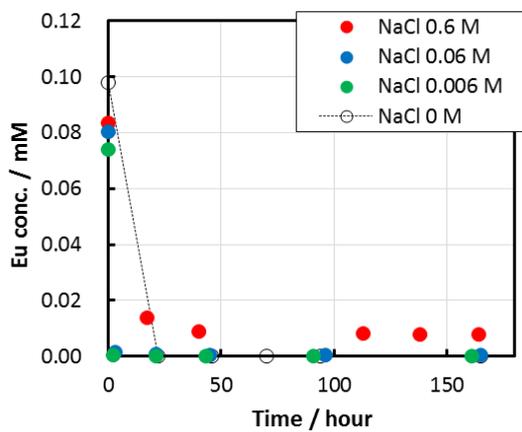
図 22 黒雲母薄片への Eu 収着と K 溶出の pH 依存性(NaCl 濃度 0.6 M).



(a) Euの黒雲母への収着(pH 3)



(b) Euの黒雲母への収着(pH 5)



(c) Euの黒雲母への収着(pH 8)

図 23 黒雲母薄片への Eu 収着に関する NaCl 濃度依存性.

る。黒雲母薄片への陽イオン収着としては、層間の陽イオン交換、および表面錯体による収着が考えられ、陽イオン交換にのみ依存するならば K 溶出はトレーサー収着に係る価数のバランスを超えないはずである。とくに低 pH 条件において K 溶出が多くなっており、H<sup>+</sup>と交換している可能性がある。また、図 19(c)に示すように、pH 8 において Eu はほぼ溶存成分が検出されず、K 溶出も極微量に留まったことから、加水分解により Eu(OH)<sub>3</sub>が生成し沈殿したと考えられる。なお、K 溶出に関しては、例えば図 19(a)、図 20(a)、図 21(a)、図 22(a)の比較から分かるように、NaCl 濃度が増加するにつれて K 溶出は増加しており、Na イオンとの交換が進んでいるものと考えられる。

図 13 および図 18、図 23 に集約した各トレーサーの収着挙動について、まず NaCl 濃度 0 M の場合のトレーサー間の比較を考える。黒雲母薄片に最も多く、かつ速やかに収着したのは Cs であり、続いて Eu、最も収着量が少なかったのは Sr という順になった。一般的に、層状ケイ酸塩鉱物に対して予想されるイオン交換や表面錯体のような吸着反応は、価数が大きいイオンの方がより多く吸着するが、これらの収着試験結果に見られる Cs の収着挙動は異なる。これは、層状ケイ酸塩鉱物に対する Cs の選択的な収着挙動に起因する[13]。黒雲母において交換性陽イオンは図 2 のように四面体層に挟まれている。陽イオンと接する四面体層面には Si 四面体 6 個からなる六員環リング(6 個の酸素イオンに囲まれた直径 0.26 nm 程度のくぼみ)が存在し、K イオンよりやや大きい Cs イオンの直径が 0.33 nm と、この六員環リングに収まりやすいサイズであることから、K イオンを押しよけて Cs がほぼ不可逆的に収着するとされている。本検討で観察された黒雲母薄片への Cs 収着挙動においても、このように選択的な Cs 収着が顕著に生じたと考えられる。pH 依存性としては、選択的な収着を示す Cs、および pH 8 において加水分解する Eu よりは、Sr の収着挙動においてその傾向を確認しやすい。図 18 に示すように、pH 3 から 8 の範囲においては Sr の収着が pH に従って増加した。これは、黒雲母の等電点が 8 程度[14]であることに起因しており、pH が 3 から 8 へと高くなる際には黒雲母表面の負電荷が増加するために表面錯体による収着量が増加したと考えられる。

塩濃度依存性としては、とくに Eu 収着において興味深い挙動が見られた。一般的に、塩濃度が高くなると固相への収着が共存イオンと競合するため、トレーサーの収着量は塩濃度増加に伴い減少する。しかし、図 23 に示すように、NaCl 濃度の増加に伴って、必ずしもトレーサー収着が減少しない傾向が観察された。NaCl を添加しない場合と比べて、NaCl を添加した場合に Eu の黒雲母薄片への収着が大きくなった。ただし、NaCl 濃度 0.006~0.6 M の三条件について比較すると、Eu 収着は NaCl 濃度上昇に伴って低下しており、この点は従来の知見にも整合する。黒雲母粉末を用いた Eu 収着に関する既往研究においても、イオン強度の増加に伴う Eu 収着の低減が報告されている[15]。本検討において確認されたような NaCl の添加に伴う Eu 収着の増加は粉末試料では生じておらず、薄片状の黒雲母を使用したことに起因する可能性がある。

これについて、二つの要因が考えられる。一つは、Na イオンの増加に伴う黒雲母の層間

隔の拡大である。層間に Na イオンが入ることによって水和水量が増加し層間隔が大きくなるという現象が、スメクタイトなどの粘土鉱物において知られている。Na イオン濃度の増加に伴って黒雲母の層間も広がるとしたら、トレーサーの拡散浸入および収着がある程度までは大きくなり得る。そして、NaCl 濃度の増加に伴って前述した収着競合の効果が大きくなるため、これらの相反する効果が図 23 に現れている可能性がある。ただし、黒雲母はスメクタイトなどと比べて骨格が強固であり、これら粘土鉱物よりも層間隔の増減は容易ではないかもしれない。また、本検討においては X 線回折分析により Na イオンによる層間隔変化を調べたが確認できなかった。しかしながら、指摘したような Na イオンによる層間隔拡大が溶液内、および薄片の端部近傍にて生じていることも考えられる。

図 23 に示すような収着挙動となった要因としてもう一つ考えられることは、Eu の塩化物の生成である。これは、Eu 以外を見ると、図 18 の Sr 収着挙動においては NaCl 濃度上昇に伴う Sr 収着増加の効果がほぼ見られず、Eu に特徴的な現象である可能性を考慮したものである。図 24 に示す NaCl 共存下の Eu 化学種の pH 依存性から分かるように、Cl イオンが共存する条件においては Eu の一部が塩化物となる[11]。本検討の条件における Eu の塩化物としては  $\text{EuCl}^{2+}$  や  $\text{EuCl}_2^+$  のイオン形態、および  $\text{EuCl}_3$  の沈殿が想定される。これら塩化物錯体の生成が、Eu 収着に影響を及ぼす可能性がある。多孔質媒体中の拡散移行においては、媒体への吸着性が小さく価数も小さいイオンの方が、拡散速度が大きくなる傾向がある。三価の陽イオンであった Eu イオンが Cl イオンと一価や二価の塩化物錯体を生成することにより、黒雲母への吸着能は小さくなるものの、電荷の減少に伴い層間へ拡散浸入しやすくなったことが、液相の Eu 濃度低下に反映された可能性がある。ただし、黒雲母の層間において Eu イオンは、Cl イオンと錯生成するよりも層間の負電荷と強く相互作用すると推測され、黒雲母薄片への Eu 収着に関する塩化物錯体生成の影響については今後も検討を要する。

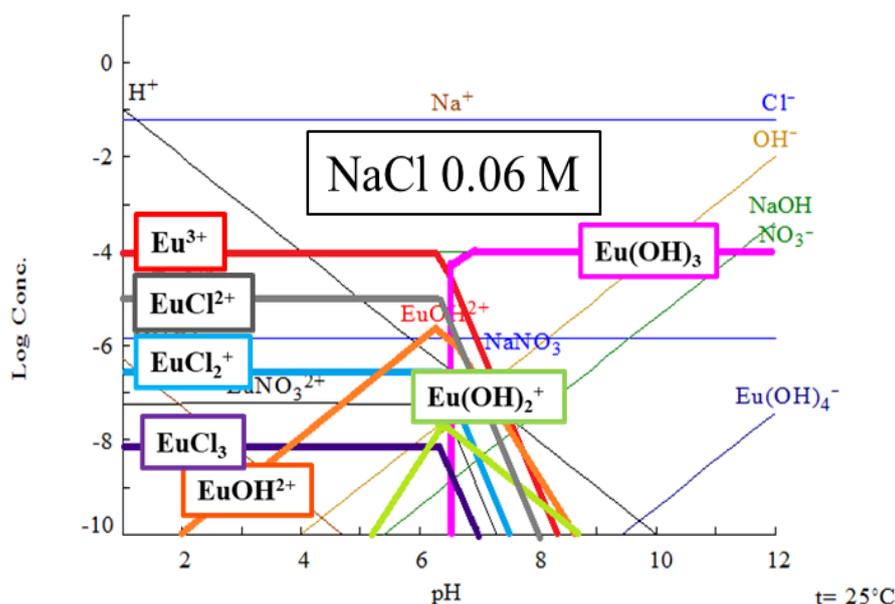


図 24 NaCl 共存下における Eu 化学種の pH 依存性[11]

### SIMS 分析による黒雲母薄片内部への拡散浸入検討

図 25～図 28 は, TOF-SIMS により得られた収着試験後の黒雲母薄片内の Eu 分布である。これらの分析には, 収着試験開始から 7 日後の黒雲母薄片試料を使用した。測定より得られた Eu の強度データは, 黒雲母薄片内部に均一に存在すると考えられる Si の分析強度を 1 として規格化されている。これら TOF-SIMS の測定結果は, 黒雲母薄片の劈開面(薄片の上面)に対して一次イオンを照射して連続的にスパッタすることにより, 劈開面からの深さ方向の元素分布を取得している。そのため, 黒雲母薄片の端部から劈開方向への元素浸入の度合いを比較するには, 薄片表面に残存した元素の影響が小さいと判断しうる程度のスパッタ深さ(例えば図 25～図 28 の SIMS 分析結果の横軸 Sputter depth が 1.0  $\mu\text{m}$  付近) で各測定結果を比較することになる。

図 25～図 27 から, 図 8 に示す測定箇所においては center, edge 1, edge 2 の順に Eu の黒雲母薄片への浸入量が大きくなることが分かる。これらの SIMS 測定結果のうち, Eu の浸入が顕著であった edge 2 について集約したグラフが図 28 である。まず, Eu の加水分解が生じていない pH 3 および pH 5 の Eu 分布を見ると, 図 28(a)(b)の SIMS 分析結果の比較から分かるように pH 5 の場合に Eu が薄片内へ多く浸入しており, 図 23 に示した液相の Eu 濃度減少とも整合する。また, NaCl 濃度 0 M と比べて NaCl を添加した場合には Eu がより薄片内へ浸入していることが分かる。これは前述したように, Na イオンによる黒雲母の層間隔の拡大や, Eu の塩化物錯体の生成などの要因によって, NaCl 共存下においてより薄片内へ Eu が浸入しやすい状態になったことに起因すると考えられる。NaCl 共存下において Eu 収着が増加する現象については要因がまだ特定しきれていないが, SIMS 分析結果より明らかになった, 層間への浸入量の増加が寄与している可能性が高い。

図 28(c)に示す pH 8 の場合については, NaCl 濃度 0.6 M の条件のみ Eu 浸入量が大きくなったが, その他は NaCl を加えない条件とほぼ違いが生じなかった。また, pH 8 において, Eu が水酸化物としてコロイドや沈殿を生成する条件であるにも関わらず, 薄片内に有意に浸入することが確認された。これは, 加水分解した  $\text{Eu}(\text{OH})_3$  のコロイドが固相に近づいた際に OH を外して固相へ収着することや,  $\text{Eu}(\text{OH})_2^+$ ,  $\text{Eu}(\text{OH})_2^{2+}$  の錯体が三価の  $\text{Eu}^{3+}$  よりも拡散浸入しやすくなった等の要因が考えられる。NaCl 濃度 0.6 M において Eu 浸入量が増加したのは, 高濃度の Na イオンによる黒雲母の層間隔の拡大が顕著になり, これらの加水分解種が入りやすくなるほど広がった可能性が考えられる。このような, 地下水条件に近い pH 8 および塩濃度条件における Eu の黒雲母薄片内への拡散浸入については, 本検討でもいくつか要因を考察したがエビデンスに乏しいことは否めないため, 今後も検証を重ねる必要がある。

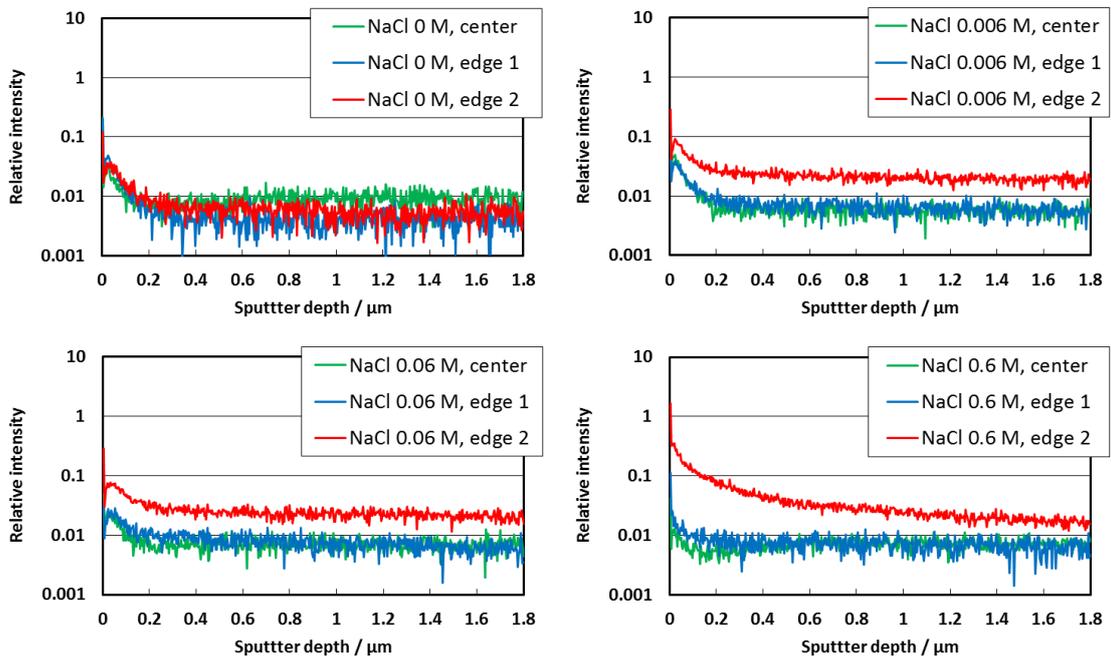


図 25 Eu 収着試験後の黒雲母薄片における各部位の Eu 分布(pH 3).

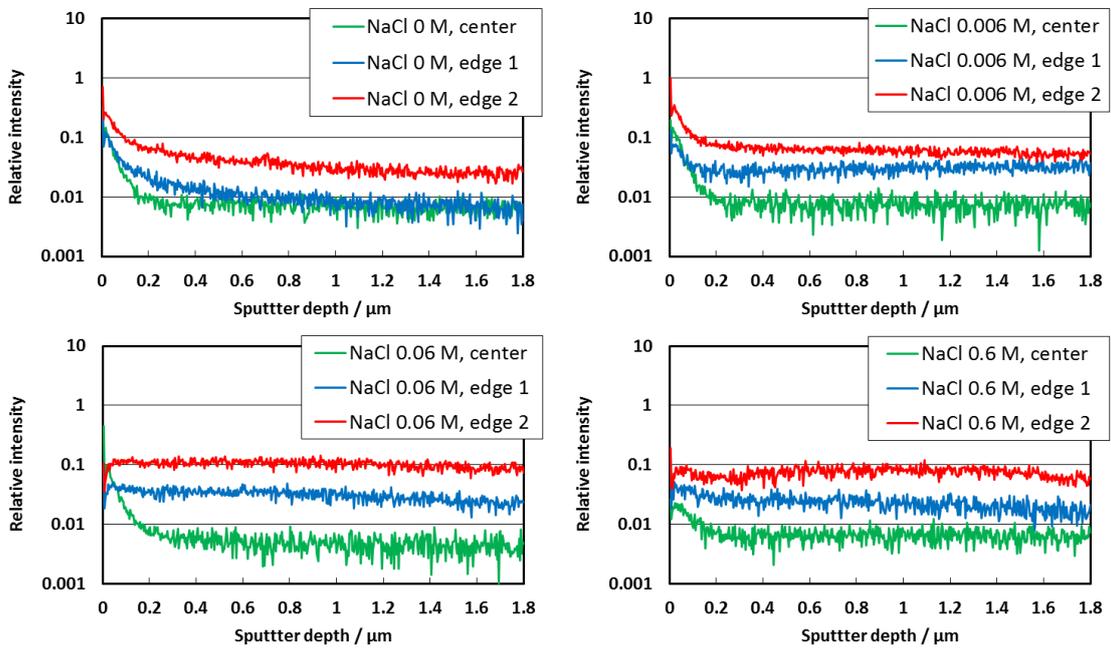


図 26 Eu 収着試験後の黒雲母薄片における各部位の Eu 分布(pH 5).

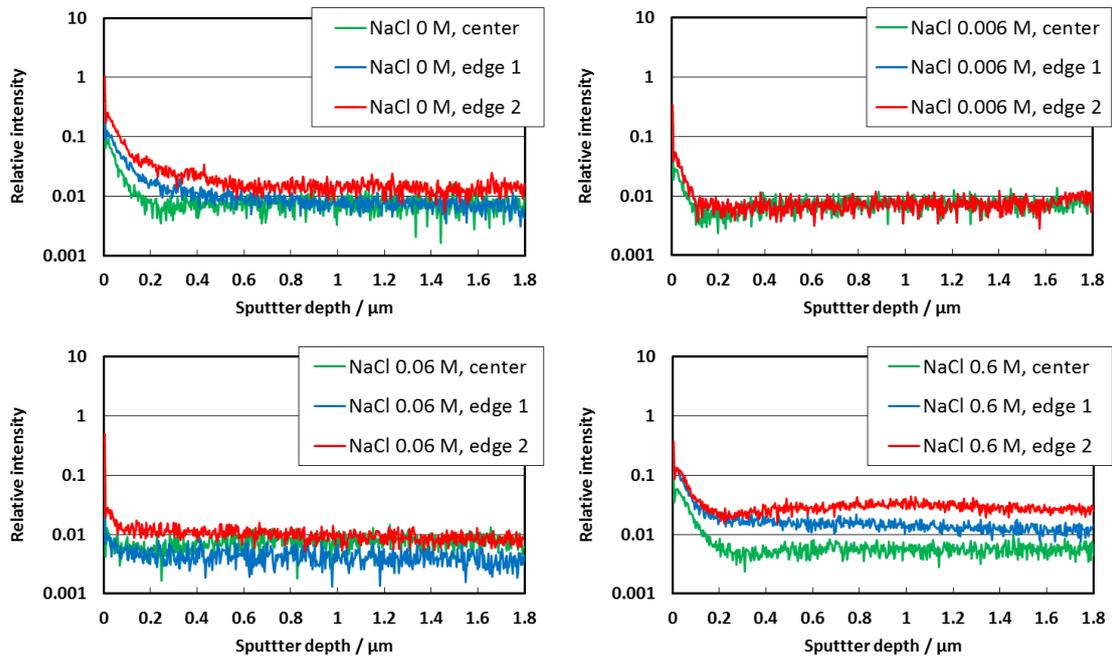


図 27 Eu 吸着試験後の黒雲母薄片における各部位の Eu 分布(pH 8).

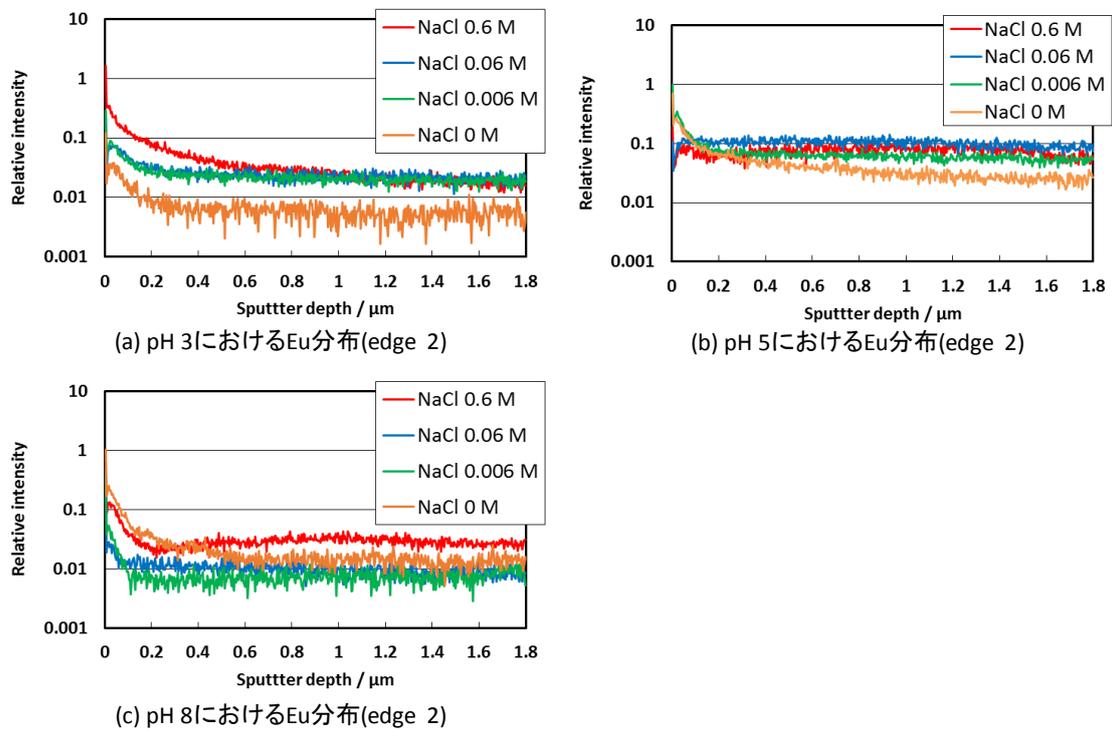


図 28 Eu 吸着試験後の黒雲母薄片内における Eu 分布の NaCl 濃度依存性(edge 2).

### 収着試験後の Eu の蛍光寿命評価

黒雲母薄片への Eu の収着挙動検討の一環として、各条件の Eu 溶液、および収着試験後の黒雲母と Eu 溶液の混合試料を対象に、Eu の蛍光寿命測定を行った。ただし、蛍光寿命測定においては Eu 濃度 1 mM の収着試験後の試料を用いた。これは、今回見直した Eu 濃度 0.1 mM では蛍光強度が小さすぎたことによる。

図 29 は、pH 5 における各 NaCl 濃度条件の Eu 溶液の蛍光寿命である。比較として、pH 8 の Eu 溶液、および NaCl 濃度 0 M の収着試験後の試料(Eu with biotite)を併せて掲載した。図 29 から分かるように、Eu 溶液の蛍光減衰は NaCl 濃度の依存性がほぼ見られなかった。これらの溶液条件においては図 24 に示すように Eu の塩化物が共存するが、蛍光減衰の傾きを変化させるものではないことが確認された。さらに、黒雲母が共存する収着試験後の試料においても、蛍光減衰の傾きは他の pH 5 のものと同様である。ただし、既報の通り、Eu 濃度 1 mM における黒雲母への収着割合は小さく [9]、液相の Eu の特性が蛍光減衰挙動に強く反映された結果とも言える。また、pH 8 の Eu 溶液については、蛍光寿命が pH 5 のものと比較して長く、傾きも緩やかになった。これは、液相中の Eu は蛍光エネルギーを内圏の水分子の OH 振動に奪われるが、pH 8 において加水分解した Eu は  $\text{Eu}(\text{OH})_3$  として凝集するため、Eu 一つあたりに影響する水分子の数が  $\text{Eu}^{3+}$  の場合も少ないことによるものと考えられる。

図 30～図 32 は、各 NaCl 濃度および pH における収着試験後の Eu の蛍光寿命である。NaCl 濃度 0.006 M 以上の収着試験後の試料においては、いずれもごく短時間のうちに急激に蛍光が減衰した後、Eu 溶液のみの蛍光減衰と同様の傾きとなる蛍光寿命が取得された。10  $\mu\text{s}$  以下に見られる急激な蛍光減衰は、黒雲母と相互作用している Eu によるものと考えられる。今回、Eu 濃度 1 mM としたこれらの試料については試料量の都合により液相中の Eu 濃度変化を取得できなかったが、NaCl 濃度 0 M と 0.006 M 以上における収着試験後の試料の比較から、NaCl 添加条件では Eu がより多く黒雲母に収着したと言える。pH 8 においても同様に 10  $\mu\text{s}$  以下における急激な蛍光減衰が見られ、 $\text{Eu}(\text{OH})_3$  として凝集、沈殿するのみならず、pH 3 や pH 5 と同様に  $\text{Eu}^{3+}$  として黒雲母へ有意に収着している可能性を示唆する。このことは、SIMS 分析結果において言及した、Eu の加水分解種が OH を外して  $\text{Eu}^{3+}$  として黒雲母と相互作用する根拠の一つと考えられる。

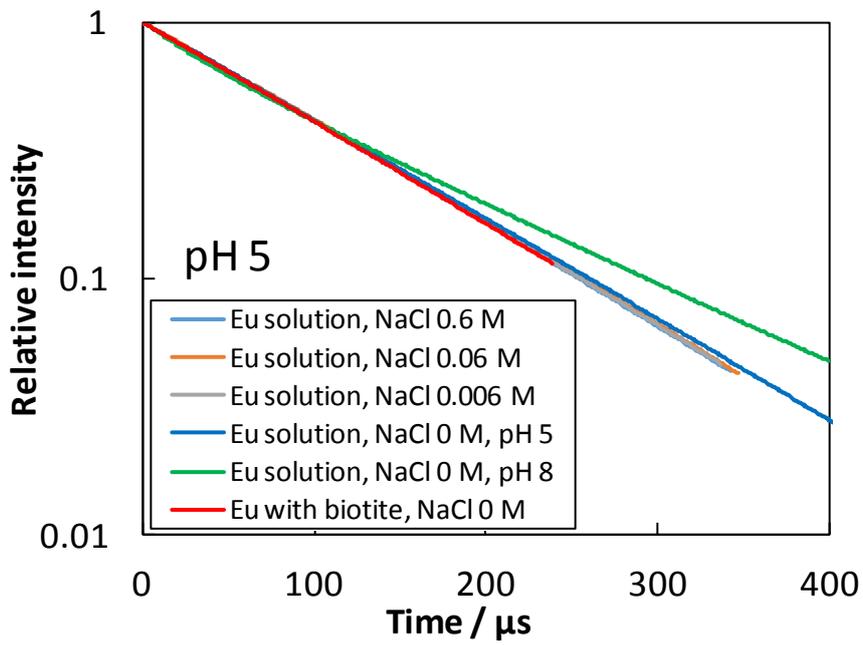


図 29 pH 5 における Eu 溶液の蛍光減衰挙動の NaCl 濃度依存性.

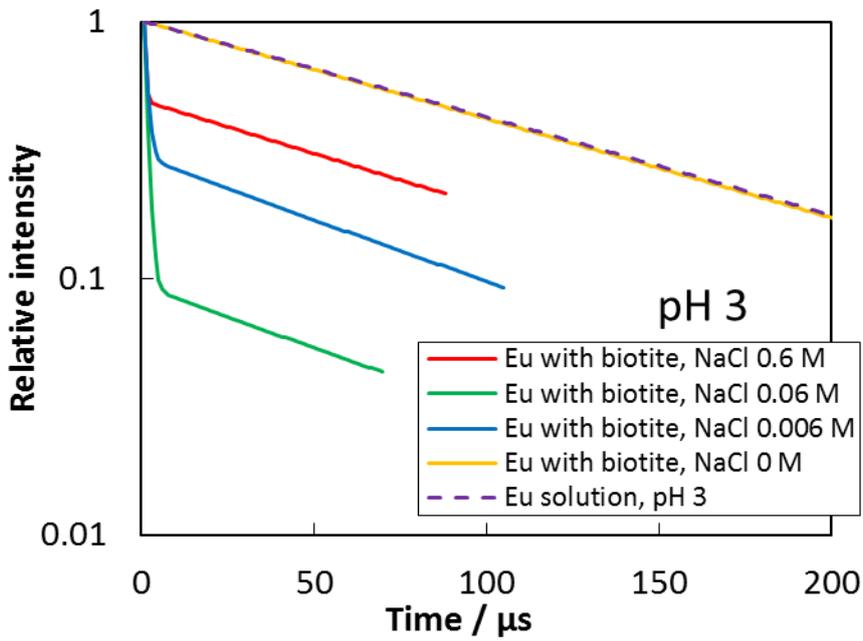


図 30 収着試験後における Eu の蛍光減衰挙動の NaCl 濃度依存性. (pH 3)

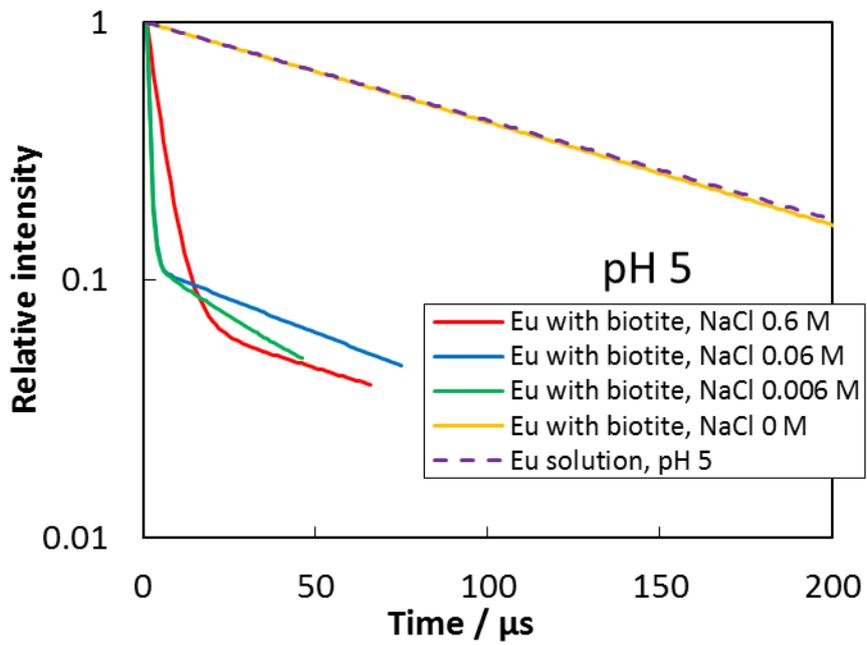


図 31 収着試験後における Eu の蛍光減衰挙動の NaCl 濃度依存性. (pH 5)

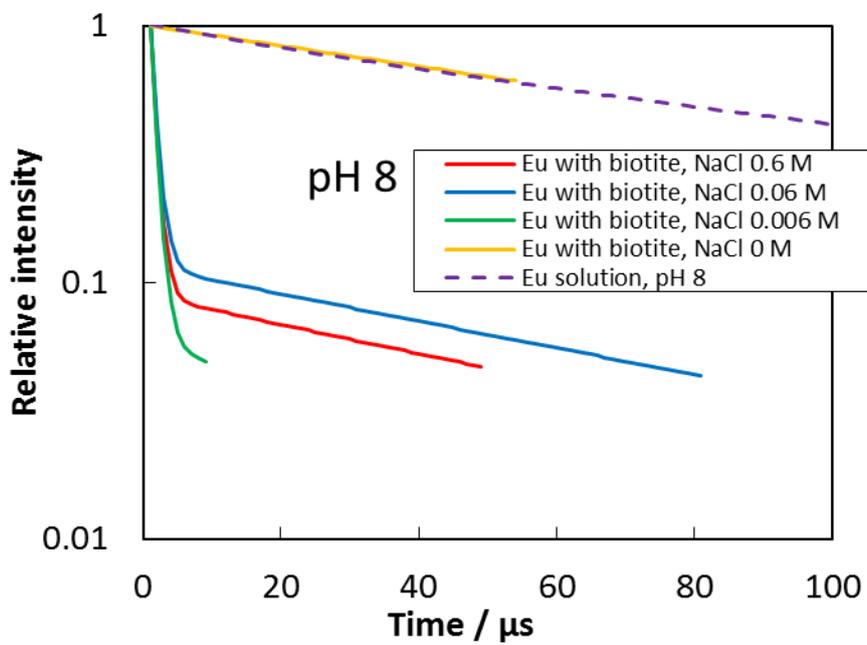


図 32 収着試験後における Eu の蛍光減衰挙動の NaCl 濃度依存性. (pH 8)

## 数学モデルによる黒雲母薄片内の拡散係数評価

本研究では、黒雲母薄片内の層間における核種の移行挙動を二次元の拡散方程式により評価する。前述の収着試験結果を基に、液相におけるトレーサー濃度の変化と黒雲母薄片内のトレーサーの拡散移行を関連づけた数学モデル解析を行い、黒雲母薄片内における見かけの拡散係数の評価を試みる。導出の詳細は既報を参照されたい[9]。

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

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

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

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

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

ここで、 $D$ は黒雲母薄片内における見かけの拡散係数[m<sup>2</sup>/s]、 $x_1$ は代表長さ(移行距離)[m]、 $X$ および $Y$ は無次元長さ(= $x/x_1$ , および $y/x_1$ )、 $t^*$ は代表時間[s](= $D/x_1^2$ )、 $T$ は無次元時間(= $t/t^*$ )、 $C$ は無次元濃度(= $c/c_B^*$ )、 $c_B^*$ は溶液中における溶質の初期濃度[mol/m<sup>3</sup>]、 $C_B$ は液相中における溶質の無次元濃度、 $C_{edge}$ は黒雲母薄片の端部における無次元濃度、 $V$ は溶液体積[m<sup>3</sup>]、 $\omega$ は黒雲母層厚さ[m]、 $S$ は薄片の辺の無次元長さ(= $s/x_1$ )、 $s$ は薄片の辺[m]、 $L$ は黒雲母の代表長さ[m](= $x_1$ )、 $k$ は物質移動係数[m/s]である。これらのパラメータは、シャーウッド数 $S_h$ を除いて収着試験条件から与えられる。式(2)の $S_h(C_B - C_{edge})$ の値は、黒雲母薄片のedge部における固相側の濃度勾配に等しいことから、それらを数値解の二次近似により逐次求める形となっている。

以上のような解析体系を準備したが、実際の収着試験結果に対して良好な適用結果が得られない場合がしばしば生じた。その一因として、例えば図19(b)に見られるような、試験開始直後に薄片端部への収着が顕著に進み、その後薄片内の濃度勾配により拡散浸入が進むという二段階の収着挙動を連続的に整理するのが困難だったことが挙げられる。本検討においては黒雲母薄片内の拡散係数評価を目的としているため、拡散浸入によってトレーサー濃度が低下していると推測される範囲に対して上述の数学モデルを適用し、拡散係数を評価することとした。すなわち、図33に示す収着試験結果への数学モデルの適用例のように、 $t=0$ における $C_B$ を無理に1としない形で解析を行った。また、 $C_s$ のように収着試験期間内にトレーサーがほぼ全て収着するような場合や、 $S_r$ の一部の収着試験結果のように

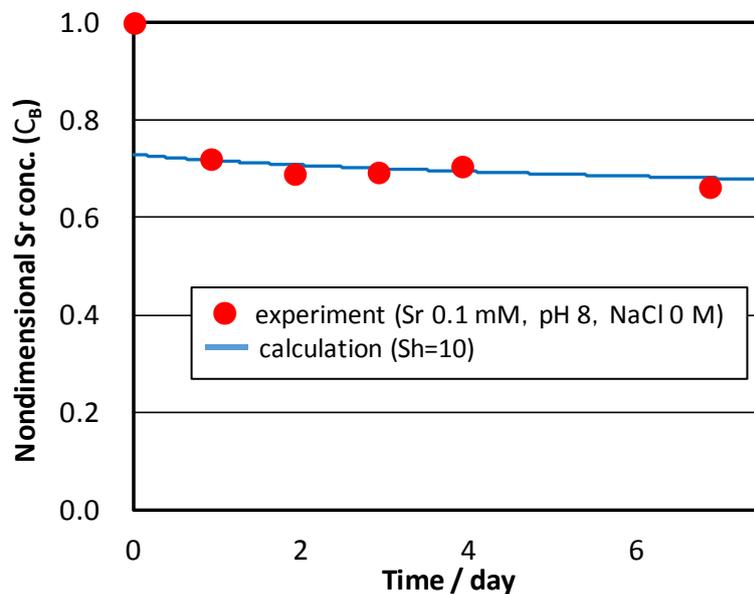


図 33 収着試験結果(液相側)への数学モデルの適用例(図 14(c)の収着試験結果).

ほぼ濃度減少が見られない場合、pH 8 において加水分解により沈殿する Eu の収着試験結果などについては、解析対象外とした。加えて、図 15 の収着試験結果のように、端部への収着と拡散過程が明確に区分されない収着挙動については、本解析体系では計算が収束しなかったため拡散係数取得には至らなかった。

解析より得られた黒雲母薄片内の見かけの拡散係数を表 3 および表 4 に示す。表 3 は NaCl 濃度 0 M における Eu および Sr の黒雲母薄片内の見かけの拡散係数[m<sup>2</sup>/s]である。Sr よりも Eu の方が見かけの拡散係数は小さくなっており、黒雲母薄片への収着挙動が反映されたと考えられる。pH 依存性については、Eu にはほぼ見られないものの、Sr については pH の増加とともに見かけの拡散係数が大きくなる傾向が見られた。表 4 に示す、NaCl 濃度 0.006 ~ 0.6 M の場合の Eu の見かけの拡散係数は、表 3 の NaCl 濃度 0 の場合と比べて 1~2 桁大きくなった。ベントナイト中の Sr<sup>2+</sup>および I の拡散が NaCl 濃度の上昇に伴って大きくなったとの報告もあり[16]、本検討において塩濃度依存性は見られなかったものの、NaCl の有無といった比較からは同様の傾向になったと言える。これは、黒雲母への Eu 収着が Na イオンとの競合により減少したために、見かけの拡散係数が大きくなったと考えられる。

表 3 および表 4 の見かけの拡散係数を、第 2 次レポート[1]にてレファレンスケースとして設定されている母岩中の実効拡散係数  $3 \times 10^{-12}$  m<sup>2</sup>/s と比較する。表 3 に示した NaCl 濃度 0 M における Eu および Sr の見かけの拡散係数は、母岩の実効拡散係数と比べると同程度か、1~2 桁小さくなる。これらの見かけの拡散係数は、母岩中のマトリクス拡散に対して黒雲母薄片内の拡散が小さいために、黒雲母への収着が薄片内の拡散に律速されることを意味

する。つまり、マトリクス内の拡散場における核種収着の局所平衡が仮定できず、黒雲母内の拡散過程を含む見かけの拡散速度(収着速度)を考慮する必要がある。一方、表4に示したNaCl共存条件におけるユウロピウムの見かけの拡散係数は母岩中の実効拡散係数と概ね同じ桁になり、従来通りマトリクス内において黒雲母への核種収着に局所平衡を仮定できると言える。これらについては、地下水の塩濃度(イオン強度)が $10^{-3}$  M(淡水系)~ $10^{-1}$  M(海水系)程度であることを考慮すると、表4の見かけの拡散係数を参照するのが妥当であると考えられる。

本検討の解析においては、塩濃度(イオン強度)やpHの依存性は見かけの拡散係数や物質移行係数に包含される。今回の拡散係数評価では、NaCl濃度の依存性が見かけの拡散係数には表れなかったが、拡散係数自体はイオン強度の上昇に伴う活量変化等を考慮する必要もあると考えられる。一方、前述したように、溶液条件の変化によってトレーサーの化学種や、黒雲母の層間の状態なども変化する可能性があり、収着挙動に影響が大きいと考えられる因子を試験や解析を通じて特定しながら、解析モデルをより実効的なものに改善していく必要があるだろう。

表3 黒雲母薄片内における見かけの拡散係数[m<sup>2</sup>/s]のpH依存性。(NaCl濃度0 M)

	pH 3	pH 5	pH 8
ユウロピウム	$7.8 \times 10^{-14}$	$6.0 \times 10^{-14}$	
ストロンチウム	$2.4 \times 10^{-12}$	$1.7 \times 10^{-13}$	$9.1 \times 10^{-13}$

表4 黒雲母薄片内のユウロピウムの見かけの拡散係数[m<sup>2</sup>/s]の塩濃度依存性。(pH 5)

	NaCl 0.006 M	NaCl 0.06 M	NaCl 0.6 M
ユウロピウム	$4.5 \times 10^{-12}$	$6.0 \times 10^{-13}$	$2.4 \times 10^{-12}$

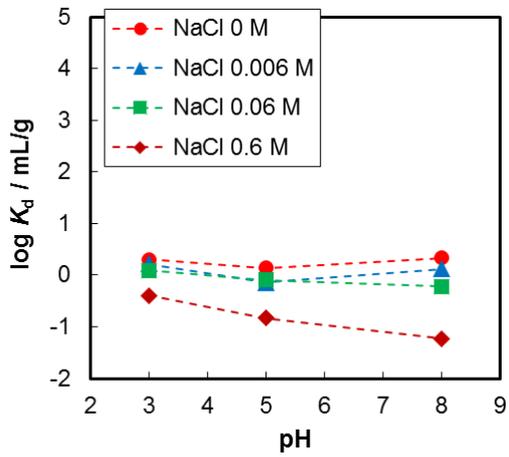
#### 4.3.2 緑泥石および絹雲母への Cs, Sr および Eu の収着挙動検討

黒雲母薄片と同様に、緑泥石および絹雲母に対する Cs, Sr および Eu の収着挙動について、pH および塩濃度の依存性を調べた。緑泥石および絹雲母は粉末試料を用いた。収着期間は、H28 年度報告書に示した緑泥石および絹雲母に対するトレーサー収着の経時変化から、収着平衡が確認された 2 日間とした[8]。図 34 は緑泥石に対する各トレーサーの分配係数、図 35 は絹雲母を用いた場合の分配係数である。分配係数  $K_d$  は、次式により求めた。

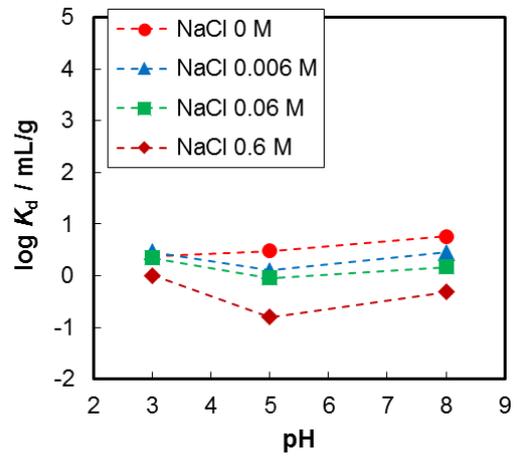
$$K_d \text{ [mL/g]} = \frac{\frac{\text{Amount of tracer ions in the solid phase [mol]}}{\text{Weight of the solid phase [g]}}}{\frac{\text{Amount of tracer ions in the liquid phase [mol]}}{\text{Volume of the liquid phase [mL]}}} \quad (5)$$

図 34 および図 35 に示すように、いずれの条件においても Cs および Sr, Eu は各鉱物に有意に収着しており、緑泥石と比較して絹雲母は桁大きい分配係数が得られた。この分配係数の違いは、BET(N<sub>2</sub>)比表面積を比較すると緑泥石が 2 m<sup>2</sup>/g、絹雲母が 10 m<sup>2</sup>/g であるため、表面積の差も反映されているものの、他の要因も寄与していると考えられる。これは、H28 年度報告書でも指摘したように、緑泥石と絹雲母の構造に起因すると推測される[8]。緑泥石(Chlorite, (Mg<sub>5</sub>Al)(Si<sub>3</sub>Al)O<sub>10</sub>(OH)<sub>8</sub> (Clinochlore))は 2:1:1 型層状ケイ酸塩であり、2:1 型の同型置換による負電荷と水酸化アルミニウム層の OH<sup>-</sup>欠損による正電荷が層構造内に存在するため、静電的に結合した状態にある。また、絹雲母(Sericite, KAl<sub>2</sub>(Si<sub>3</sub>Al)O<sub>10</sub>(OH)<sub>2</sub>)はイライトと同様の構造と考えた場合、2:1 型の同型置換が他鉱物より多く、負電荷を中和する K が隙間なく層間に挟み込まれる構造となるため、この K は黒雲母と異なりイオン交換し難い。このように、緑泥石、絹雲母ともにイオン交換による陽イオン収着が期待されない。しかし、層状ケイ酸塩鉱物の端部においては同型置換に起因した負電荷が陽イオンの収着に寄与しやすいことから、これら粉末試料では重量あたりの端部の割合が大きいいため陽イオンを顕著に収着したと考えられる。そして、絹雲母が緑泥石よりも多くの陽イオンを収着することについては、絹雲母(イライト)が 2:1 型層状ケイ酸塩の中では同型置換の量が多いとされるため、端部に露出する負電荷も大きくなったと予想される。

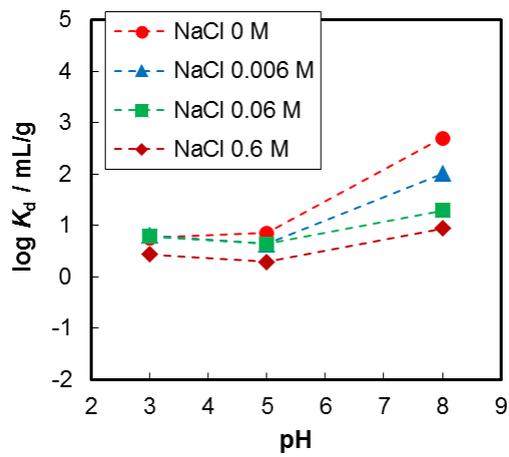
図 34 および図 35 においては、分配係数の pH 依存性は明確には見られない。pH 依存性はケイ酸塩鉱物の末端の OH 基との相互作用に関連し、pH 3~8 の範囲においては表面錯体によるトレーサー収着は大きくは変化しなかったと言える。これは、緑泥石の等電点が 2.5、および絹雲母が 3.0 であり[17]、pH 3 以上の本検討の pH 範囲においては表面電荷がほぼ変わらなかったことによると考えられる。なお、前述の通り Eu は pH 8 において加水分解により沈殿するため、例えば図 34 中の pH 8 における分配係数の増加は沈殿も加味されていると考えられる。



(a) Csの緑泥石への収着

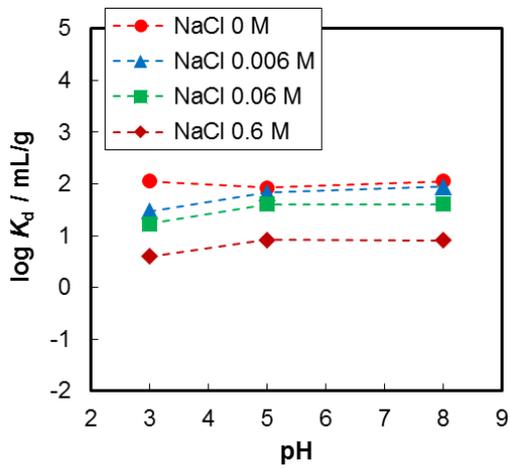


(b) Srの緑泥石への収着

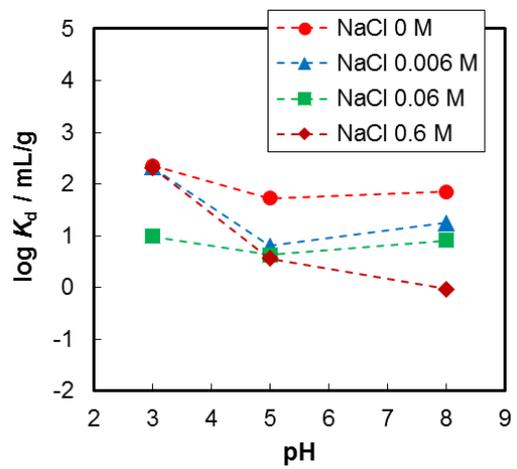


(c) Euの緑泥石への収着

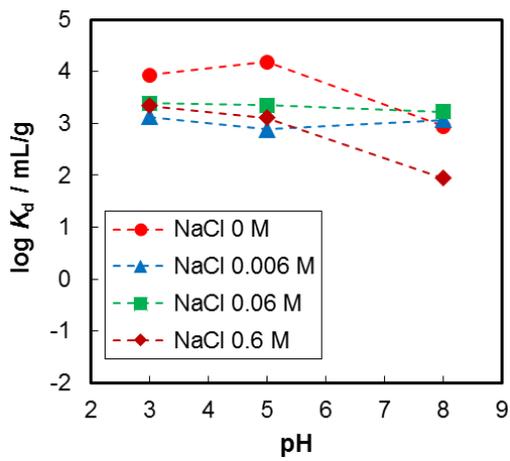
図 34 緑泥石に対する各トレーサーの分配係数の pH および NaCl 濃度依存性.



(a) Csの絹雲母への収着



(b) Srの絹雲母への収着



(c) Euの絹雲母への収着

図 35 絹雲母に対する各トレーサーの分配係数の pH および NaCl 濃度依存性.

塩濃度依存性としては、図 34 および図 35 に示すように、塩濃度が増加するにつれて分配係数は低下した。これは、トレーサーの収着が Na イオンと競合した結果と言える。ただし、分配係数の低下は NaCl 濃度 0.6 M において顕著であるものの、その他の NaCl 濃度条件においては大きくないと言える。

図 36 は、Eu 溶液と緑泥石を混合した収着試験後試料と、Eu 溶液のみについて、蛍光寿命を測定した結果である。これらは、有意な蛍光強度が測定できた範囲について強度の規格化を行い整理した。なお、絹雲母の収着試験後試料の測定においては有意な蛍光強度が得られなかった。図 36 に示す、pH 8 の Eu 溶液について得られた蛍光減衰の傾きは、pH 5 の場合より緩やかである。これは Eu 化学種の違いに起因するものと考えられ、pH 8 において加水分解により生じる  $\text{Eu}(\text{OH})_3$  は、pH 5 における  $\text{Eu}^{3+}$  よりも蛍光エネルギーを奪う内圏の水分子が少ないことを示唆する。緑泥石を混合した場合には、pH 5 および pH 8 のいずれも有意な蛍光強度を得られる時間は Eu 溶液のみと比べて小さくなっており、Eu の蛍光エネルギーが緑泥石との相互作用により奪われていると考えられる。また、緑泥石を混合した pH 8 の試料は、pH 5 および pH 8 の Eu 溶液と比較すると、pH 5 の Eu 溶液の蛍光減衰の傾きに近いことが分かる。このことは、pH 8 において水酸化物となっている Eu が、OH を外して  $\text{Eu}^{3+}$  となって緑泥石と相互作用している可能性を示唆する。

本研究における緑泥石および絹雲母への収着挙動検討から、地下環境に遍在するこれらの熱変質鉱物が、陽イオン核種の遅延に大きく寄与する可能性が示された。例えば、pH 5 における分配係数は緑泥石が 2~7 mL/g、絹雲母が  $10^3\sim 10^4$  mL/g と見積もられた。図 1 に示した既往研究においては[3]、黒雲母粉末(粒径 75~150  $\mu\text{m}$ )に対する Eu 収着について 4000 mL/g と得られており、黒雲母の熱変質により生成する緑泥石はこれと比較するとかなり小さいものの、絹雲母は同じオーダーにある。また、同じく図 1 中に示されている、花崗岩の主要成分である長石については 2~4 mL/g であり、長石の熱変質によって生成する絹雲母は陽イオン収着能が非常に大きくなると言える。実環境において緑泥石や絹雲母は、岩盤亀裂内を充填することに加え、母岩の変質部として地下水に接触すると考えられる。すなわち、地下水に含有する核種は、充填物→母岩変質部→未変質母岩の順に移行する。よって、未変質の母岩のみを想定している現行評価に、充填物や母岩変質部における核種収着能を加味することにより、さらに高い核種移行抑制効果を見込める。一般に、緑泥石や絹雲母からなる充填物および母岩変質部は空隙率が高いが、その分固液の接触面積は大きくなると考えられる。吉田らは、充填物および変質母岩、新鮮母岩の拡散係数を取得しており、大きい空隙率を有する充填物および変質母岩の見かけの拡散係数が、空隙率が小さい新鮮母岩よりも小さくなることを実験より示している[18]。これは、充填物および変質母岩は浸透拡散が速くなる場である一方で、固相との接触面積や接触頻度が大きいために核種収着が増加し、移行が抑制されることを意味する。本検討では緑泥石および絹雲母を粉末状で用いたが、空隙率が高く表面積が大きい充填物のような多孔質媒体をある程度模擬していると考えられる。

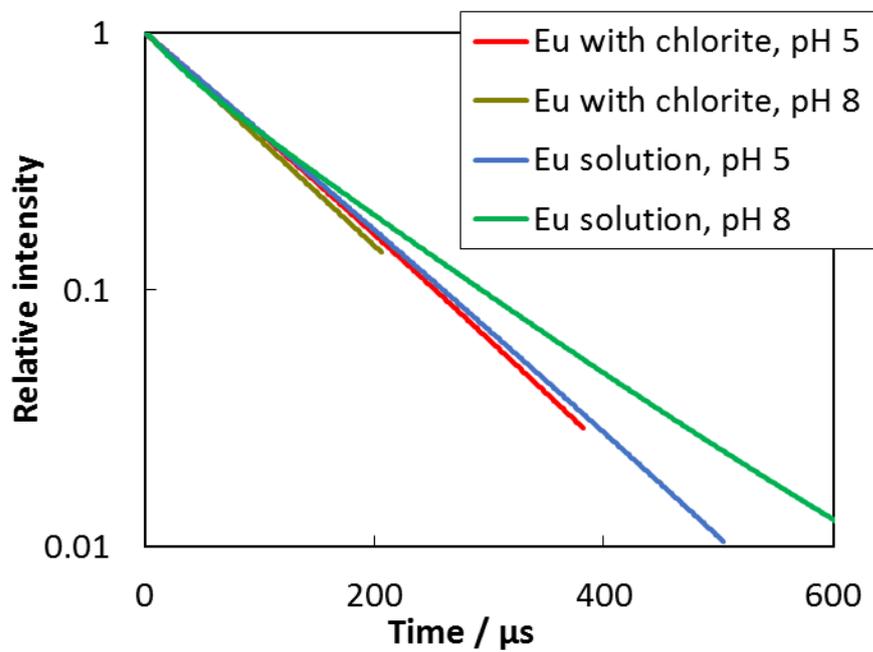


図 36 緑泥石に対する収着試験後における Eu の蛍光減衰挙動.

#### 4.3.3 金雲母および白雲母への Eu の収着挙動検討

黒雲母薄片との比較検討を目的として、金雲母および白雲母への Eu 収着試験を行った。白雲母( $\text{KAl}_2(\text{Si}_3\text{Al})\text{O}_{10}(\text{OH})_2$ )は花崗岩に含有する場合があると同時に、前項にて述べた絹雲母と類似する組成を有している。また、金雲母( $\text{KMg}_3(\text{Si}_3\text{Al})\text{O}_{10}(\text{OH})_2$ )は黒雲母( $\text{K}(\text{Mg}, \text{Fe}, \text{Al})_3(\text{Si}, \text{Al})_4\text{Si}_3\text{O}_{10}(\text{OH}, \text{F})_2$ )の八面体部分から同型置換の Al と Fe が抜けた組成であり八面体部分に起因した負電荷の有無による収着挙動を比較できると考える。加えて、2 八面体の白雲母と 3 八面体の金雲母といった構造の違いが収着にも影響を及ぼす可能性がある。

図 37 は、薄片状の黒雲母および金雲母、白雲母への Eu 収着の経時変化であり、実験条件は初期 Eu 濃度 1 mM, pH 3, NaCl 濃度 0 M とした。図 37 に示すように、金雲母については黒雲母よりは小さいものの Eu の収着が観察されたのに対し、白雲母はほとんど Eu を収着しなかった。また、図 38 は、金雲母を用いた収着試験における Eu 濃度の減少と K 濃度の増加の関係を示したものであり、Eu と K の比が 1:3 に近くなった。このことから、金雲母に対する Eu の収着には、層間の K とのイオン交換が関与していると考えられる。

金雲母および白雲母への Eu 収着挙動について、各々の構造から考えてみる。白雲母( $\text{KAl}_2(\text{Si}_3\text{Al})\text{O}_{10}(\text{OH})_2$ )は 2 八面体の層構造をとり、八面体は Al のみで構成されているが、四面体の一部は Al に同型置換されている。この四面体の同型置換に起因した負の層電荷は層間に陽イオン(K)が入ることによりバランスされる。一方、金雲母( $\text{KMg}_3(\text{Si}_3\text{Al})\text{O}_{10}(\text{OH})_2$ )は、3 八面体構造であり、八面体は Mg のみで構成され、同型置換は四面体においてのみとなっている。つまり、同型置換に起因した層間の負電荷は同様であるにも関わらず Eu 収着に違いが生じたということになる。図 39 は八面体の陽イオンが Al からなる 3 八面体層と、Mg からなる 2 八面体層である。白雲母を構成する 2 八面体層と比べて、金雲母を構成する 3 八面体層では空席が存在しており、この八面体層の違いが層間の陽イオン交換に影響を及ぼした可能性がある。また、購入したこれらの鉱物試料は天然のものであり、八面体層に全く同型置換が無いとは限らない。例えば、金雲母の八面体層を構成する Mg の一部が Fe に置換すると黒雲母に近くなるが、天然においてこのような変化は連続的に生じるため、Eu 収着についても金雲母と黒雲母が類似する場合があると考えられる。白雲母についても同様のことが考えられるが、八面体層の Al が同型置換することにより前出の絹雲母、イライトにより近くなる。イライトのグループは層状ケイ酸塩鉱物の中でも同型置換量が多く、強く拘束される層間の陽イオン(K)の大部分は交換性ではないとされる。そのため、白雲母がイライトに近い場合、絹雲母と同様に Eu 収着は端部に限られ、薄片試料ではほぼ収着が確認されないことが予想される。

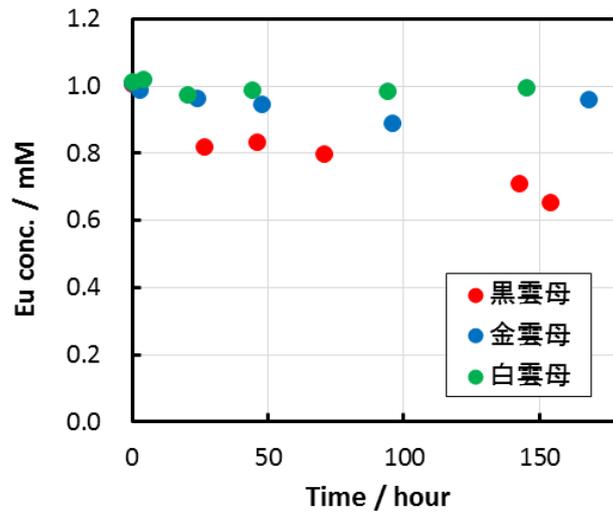


図 37 雲母薄片への Eu の収着挙動. (Eu 濃度 1 mM, pH 3, NaCl 濃度 0 M)

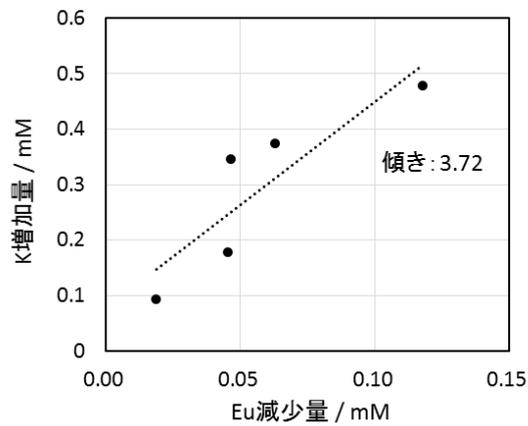


図 38 金雲母への Eu 収着と K 溶出の関係.

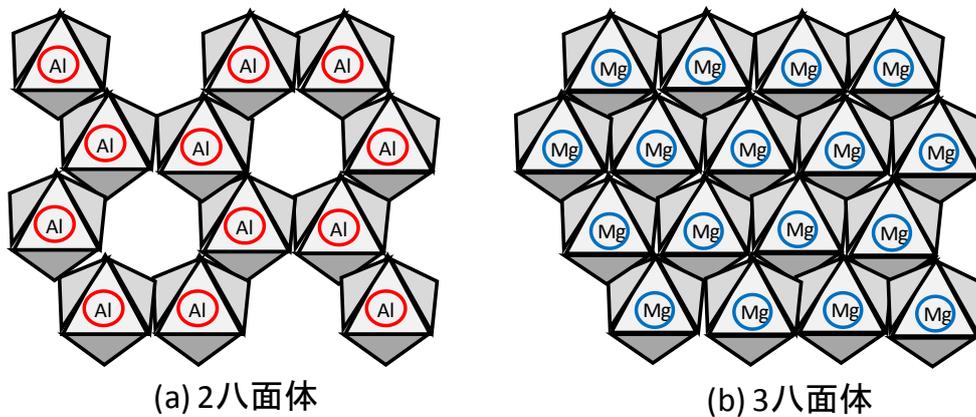


図 39 層状ケイ酸塩鉱物の八面体層

## 5. 平成 29 年度のまとめ

平成 29 年度は、前年度までに引き続き、黒雲母薄片および変質鉱物を用いた収着試験を実施した。トレーサーとして Cs および Sr, Eu を用い、pH および塩濃度をパラメータとして収着挙動を調べた。黒雲母薄片に対する収着検討においては、NaCl を添加しない場合に比べて NaCl 共存の場合に Eu 収着が増加し、薄片内部への浸入も多くなることが示された。また、Eu が加水分解する pH 8 においても薄片内部への浸入が顕著であり、蛍光分析からは Eu<sup>3+</sup>として黒雲母と相互作用していると推測された。黒雲母薄片を用いた収着試験結果を基に取得した Eu の見かけの拡散係数は、NaCl 共存の条件において  $10^{-13} \sim 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$  と見積もられた。これは母岩の実効拡散係数とほぼ同様であり、局所平衡が仮定されているマトリクス内の核種収着に対して、本研究において明らかにした黒雲母薄片内への拡散過程を考慮する場合にも、従来評価と同様の核種収着が期待できる可能性を示唆する。緑泥石および絹雲母については、いずれも変質前の花崗岩に含有する鉱物と比較しても同等、あるいはそれ以上の収着能を示すとともに、pH および塩濃度の影響は小さいことが確認された。黒雲母、金雲母、白雲母への Eu 収着挙動比較からは、四面体層の同型置換による層間の負電荷のみならず、八面体層の構造の違いも収着に影響を及ぼす可能性が示された。

## 6. 本研究の総括

本研究では、地層処分システムの天然バリアにおける核種移行評価の精緻化を目指し、黒雲母薄片内への拡散を伴う核種収着挙動について、収着試験および数学モデル解析により検討した。

高レベル放射性廃棄物の地層処分システムにおける天然バリアとして想定される花崗岩の核種収着能は、含有する黒雲母に支配される。この黒雲母の核種収着能については、これまで粉末試料を用いた評価がなされているため、黒雲母の端部において速やかに平衡に達する収着のみが考慮されている。このようにして得られた分配係数が花崗岩内の核種移行評価に適用されるとともに、粉末試料に見られるように核種収着が瞬時に平衡に達すると仮定されている。しかしながら、地下環境中の花崗岩内においては、黒雲母が粉末状で一様に分布していることはなく、数 mm～数 cm 程度の大きさを持った薄片として不均一に含有する。そのため、現実的な核種収着評価には、薄片端部への収着に加えて層構造内への拡散過程を考える必要がある。この黒雲母薄片内の拡散が花崗岩マトリクス内の拡散と比べて遅い場合には、粉末試料に想定されるような局所平衡を仮定できず、拡散過程に基づく収着速度を考慮する必要性が生じる。このことは、マトリクスの収着能が従来評価より小さく見積もられる可能性があることを意味する。そこで本研究では、黒雲母薄片内への拡散を伴う核種収着メカニズムを明らかにし、花崗岩内における核種移行評価の精緻化に資することを目的とした。

本研究においては、黒雲母薄片を用いた陽イオンの収着試験を軸に、核種収着メカニズ

ム検討、および薄片内の拡散係数評価を実施した。パラメータとして、トレーサーとする陽イオン(Eu, Sr, Cs), pH, 共存イオン(NaCl 濃度)などを設定し、トレーサー濃度変化、および SIMS (secondary ion mass spectrometry)による黒雲母薄片内の元素分布分析、蛍光分光分析から、収着挙動を検討した。これらの試験結果に基づき、薄片内への拡散浸入と液相のトレーサー濃度変化を関連づけた数学モデルにより、黒雲母薄片内の見かけの拡散係数を評価した。また、花崗岩の熱変質により生成する緑泥石および絹雲母の核種収着能についても検討した。

黒雲母薄片への陽イオンの収着挙動としては、液相のトレーサー濃度の経時変化、および SIMS による薄片内のトレーサー分布から、トレーサーが薄片端部に収着した後に、層間の陽イオンと交換しながら緩やかに薄片内部へ拡散浸入することが確認された。また、トレーサー間の比較としては、層状ケイ酸塩鉱物に選択的な収着を示すセシウムが最も速やかに黒雲母薄片へ収着し、三価のユウロピウム、二価のストロンチウムの順に収着量および収着速度が小さくなった。pH の依存性は主に表面錯体による収着への影響として現れ、pH 3 から 8 の範囲においてはトレーサーの収着量が増加した。pH 6 以上において加水分解により沈殿する Eu についても、SIMS および蛍光分光分析から、水酸化物イオンを外しながら黒雲母と相互作用し、薄片内部に拡散浸入する可能性が示唆された。塩濃度依存性については、Cs や Sr では NaCl 濃度の上昇に伴い収着量が減少した一方で、Eu は NaCl 共存条件において収着量、および薄片内への浸入量が増加した。これは、Na イオンとの競合による収着量減少と、Na イオンの浸入に伴う黒雲母の層間拡大による収着量増加といった、相反する効果が複合している可能性がある。これらの収着試験結果に基づく数学モデル解析から、黒雲母薄片内におけるユウロピウムの見かけの拡散係数は NaCl 共存の条件において  $10^{-13} \sim 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$  と見積もられた。これは母岩の実効拡散係数とほぼ同様であり、局所平衡が仮定されているマトリクス内の核種収着に対して、本研究において明らかにした黒雲母薄片内への拡散過程を考慮する場合にも、従来評価と同様の核種収着が期待できる可能性を示唆する。

緑泥石および絹雲母へのトレーサー収着試験から、pH 5 における分配係数は緑泥石が 2 ~ 7 mL/g, 絹雲母が  $10^3 \sim 10^4 \text{ mL/g}$  と見積もられた。これらの値は、未変質の花崗岩に含有する長石類よりも大きく、絹雲母に至っては黒雲母の収着能に匹敵することが明らかになった。これらの変質鉱物は母岩亀裂に充填物として存在するとともに、流路表面を覆っている場合が多い。一般に充填物や変質部位の実効拡散係数は未変質母岩と比べて小さいが、高い核種収着能によって核種移行を抑制することが期待される。

本研究においては、黒雲母薄片に対して拡散過程を含む核種収着メカニズムについて基礎的知見を整理するとともに薄片内の拡散係数を評価し、従来想定されているマトリクス内の核種収着効果の妥当性を示した。一方で、地下環境には黒雲母以外にも多種多様な層状ケイ酸塩鉱物が存在しており、これらの構造に着目した拡散過程を含む核種収着挙動を明らかにすることは、天然バリアの核種閉じ込め性能をより具体化するとともに、黒雲母

の核種収着機構のさらなる理解に役立つと考えている。

また、本研究は、核種移行に対して不均質な特性が混在するマトリクスを扱う際の考え方に資するものである。例えば花崗岩には複数の鉱物が含有するが、この中からマトリクス内の核種収着を支配する因子として本研究では黒雲母に着目し、実環境における現実的な核種収着能を明らかにすることにより、マトリクス内の核種移行を見直す一助となり得る知見を提示した。このように、不均質かつ複雑なマトリクスにおける支配的な因子について現実的な評価を行い、マトリクス全体の性能にフィードバックする考え方は、多種多様な核種閉じ込め効果が複合的に組み合わせられる処分システムの性能評価において有効と考えられる。

## 引用文献

- [1] 核燃料サイクル開発機構：わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性—地層処分研究開発第2次取りまとめ—分冊3 地層処分システムの安全評価, JNC TN1400 99-023 (1999).
- [2] Y. Niibori, H. Futamata and H. Mimura: Evaluation of Radionuclide Transport in Rock Matrix with Heterogeneous Distribution of Retardation Coefficient. *Proc. of 16th Pacific Basin Nuclear Conference (16PBNC)*, P16P1074, 1-6 (2008).
- [3] 式又裕文, 新堀雄一, 三村均：マイクロモックアップ法による遅延効果の空間分布の評価手法の検討, *日本原子力学会東北支部第31回研究交流会講演要旨集*, 9-10 (2007).
- [4] 枋山修, 高須亜紀, 池田孝夫, 木村英雄, 佐藤正知, 長崎晋也, 中山真一, 新堀雄一, 古屋廣高, 三頭聰明, 山口徹治：核種移行モデルにおける収着分配係数の概念とその適用性, *原子力バックエンド研究*, **5**(1), 3-19 (1998).
- [5] 吉田英一, 西本昌司, 長秋雄, 山本鋼志, 勝田長貴：地下花崗岩体の変質とその形態—産総研岡山応力測定用深部花崗岩コア試料の変質を例に—, *応用地質*, **49**(5), 256-265 (2008).
- [6] S. Nishimoto, H. Yoshida: Hydrothermal alteration of deep fractured granite: Effects of dissolution and precipitation, *Lithos*, **115**, 153-162 (2010).
- [7] S. Nishimoto, H. Yoshida, Y. Asahara, T. Tsuruta, M. Ishibashi, N. Katsuta: Episyenite formation in the Toki granite, central Japan, *Contrib Mineral Petrol*, 1-12 (2014).
- [8] 原環センター：平成 26 年度放射性廃棄物共通技術調査等事業 放射性廃棄物重要基礎技術研究調査(国庫債務負担行為に係るもの) 報告書(H28年度分), 研究報告 5. (2017).
- [9] 原環センター：平成 26 年度放射性廃棄物共通技術調査等事業 放射性廃棄物重要基礎技術研究調査(国庫債務負担行為に係るもの) 報告書(H27年度分), 研究報告 5. (2016).
- [10] 原環センター：平成 26 年度放射性廃棄物共通技術調査等事業 放射性廃棄物重要基礎

- 技術研究調査(国庫債務負担行為に係るもの) 報告書(H26年度分), 研究報告 5. (2015).
- [11] I, Puigdomenech: MEDUSA (Make Equilibrium Diagrams Using Sophisticated Algorithms), 32 bit Ver., [<https://www.kth.se/en/che/medusa/>]
- [12] 南條光章: 分析化学実技シリーズ応用分析編1 巻 表面分析, 共立出版 (2011).
- [13] 山口紀子: 土壌への放射性 Cs の吸着メカニズム, *土壌の物理性*, **126**, 11-21 (2014).
- [14] 澁谷朝紀, 西川義朗, 乾真一, 内館信幸, 油井三和: Se の岩石および鉱物に対する吸着挙動に関する研究, PNC-TN8410 94-395, 動力炉・核燃料開発事業団 東海事業所 (1994).
- [15] K. Fukushi, Y. Hasegawa, K. Maeda, Y. Aoi, A. Tamura, S. Arai, Y. Yamamoto, D. Aosai, T. Mizuno: Sorption of Eu(III) on Granite: EPMA, LA-ICP-MS, Batch and Modeling Studies, *Environ. Sci. Technol.*, **47**(22), 12811-12818 (2013).
- [16] 鈴木覚, 佐藤治夫: 圧縮ベントナイト中のストロンチウムイオン, ヨウ化物イオン, 重水の実効拡散係数の塩濃度依存性, JNC TN8400 2002-002, 核燃料サイクル開発機構 東海事業所 (2002).
- [17] S. A. Hussain, S. Demirci, G. Özbayoğlu: Zeta Potential Measurements on Three Clays from Turkey and Effects of Clays on Coal Flotation, *J. Colloid Interface Sci.*, **184**, 535-541 (1996).
- [18] 吉田英一, 佐藤治夫, 仙波毅: マトリクス拡散による物質移動の遅延効果の評価手法とその検討, *応用地質*, **43**(1), 23-34 (2002).

## 平成 29 年度 外部発表

<外部発表>

- [1] 石島雅也, 豊田丈通, 千田太詩, 新堀雄一: 層状ケイ酸塩鉱物へのユウロピウムの収着挙動, 第 13 会量子エネルギー工学フォーラム (2017). 【ポスター発表】
- [2] 豊田丈通, 千田太詩, 新堀雄一: 塩水環境における薄片状黒雲母へのユウロピウムの収着挙動, 日本原子力学会「2017 年秋の大会」要旨集, 2H11 (2017). 【口頭発表】
- [3] 石島雅也, 豊田丈通, 千田太詩, 新堀雄一: 深地下環境を考慮した薄片状雲母鉱物へのユウロピウムの収着挙動, 日本原子力学会東北支部第 41 回研究交流会講演要旨集, 46-47 (2017). 【ポスター発表】
- [4] Taiji Chida, Tomoyuki Toyota, Yuichi Niibori: Sorption of Cationic Radionuclides on Chlorite and Sericite formed by the Hydrothermal Alteration, *Proceedings of WM2018 Conference*, Phoenix, USA, March 18-27, Paper No. 18180, 1-9 (2018). 【査読有り論文, ポスター発表 (accepted)】

## 研究報告 6

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

東京大学 大学院工学系研究科

小松崎 俊作



## I. 研究題目

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

## II. 研究の背景・目的・概要

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

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

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

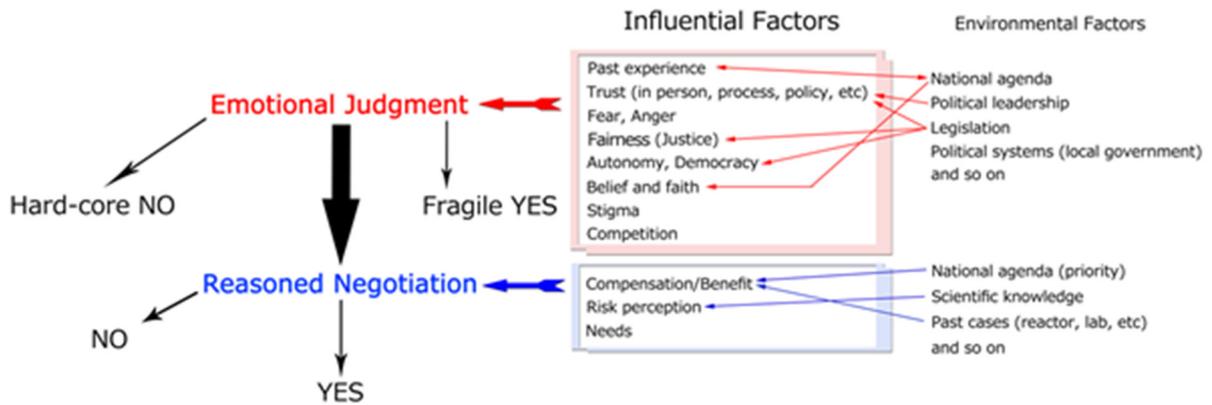


図 1：放射性廃棄物処分施設/政策受け入れに関わるステークホルダーの態度形成モデル

本研究では、それ以前の研究も含めて多くの事例研究を実施して、アジェンダ・セッティングのプロセスについては一定の定性的理解を得た。放射性廃棄物処分事業が進展している国には限りがあり、過去の研究対象となった事例の多くは海外事例であった。我が国の文脈を踏まえてアジェンダ・セッティングを設計するためには、国内事例・環境の研究も必要であるが、やはり対象となり得る事例には制約がある。また、現実の行政・政策実施の観点から、地元住民などへのインタビュー調査を含めた研究を遂行することが、必ずしも受け入れられない可能性もある。

一方で、処分地選定に向けた第一歩として、いわゆる「科学的有望地」の公表など、具体的政策が実施される見通しがあり、処分施設立地という目標を達成するため、具体的な方策（特にアジェンダ・セッティングの観点で）がより強く求められるという状況もある。HLW 処分とは必ずしも一致しない政策領域だが、近年設定された「地方創生」というアジェンダ・セッティングは、地方自治体が原子力あるいは放射性廃棄物処分事業をまちづくりの観点で見直すきっかけとなるかもしれない。

平成 29 年度は前年度に続き、これまで数年にわたって行ってきた社会調査データを活用して、定量データの分析を通じた、具体的施策、ないしその影響プロセスの検討に注力することとした。また、「科学的特性マップ」の公表後、公表の前後での態度変容を観察・分析するための社会調査（前年度、平成 29 年 1 月の調査との比較のために、H29 年 8 月に調査実施）と、パネルデータを用いた中長期的な態度の変遷を分析するための社会調査を H29 年 12 月に実施した。加えて、過去の研究成果を対外発表することにも積極的に取り組んだ（英文論文投稿 1 件+1 件準備中、国際学会発表 3 件）。

第一に、「科学的特性マップ」の公表という施策が、アジェンダ・セッティングならびに個人の態度にどのような影響を及ぼしたか、社会調査を行って前年度の公表前調査結果との比較分析を行った。「科学的特性マップ」は、高レベル放射性廃棄物処分は現世代で解決すべき課題であり、そのために国が前面に立って取り組むこと、特定の自治体ではなく全国の自治体に関わる国家的課題であることについて、国民から広く理解を得て、各地での対話活動を積み重ねるきっかけとする、すなわちアジェンダ・セッティングのための施策である。前年度（H29 年 1 月）の調査結果を分析して、文献調査への立候補については、距離が近いほど支持的態度と不支持的態度の両方が増え、態度が明確化する、つまり二過程の態度形成モデルにおける「中心ルート」的情報処

理となる傾向を推定していた。ところが、公表後のデータとの比較分析によると、特性マップ公表の影響は距離に関連するわけではなく、「自宅が「輸送面でも好ましい地域」に入っているか否か」に大きく依存していることがわかった。たとえ、居住自治体の自宅近くに「輸送面でも好ましい地域」が設定されていても、自宅さえその範囲に入っていなければ、「周辺ルート」的情報処理のままである可能性がある。できるだけ広く全国の国民に当事者意識を持ってもらうための起点としては、マップによって「好ましくない特性があると推定される地域」が限定的であると示されたことは有意義であったかもしれないが、最終的に自治体内のローカルな立地場所検討の際には、大半の住民が「周辺ルート」的情報処理となって、熟議が成立しない可能性も示唆している（住民投票を実施する場合も反対多数となってしまう可能性がある）。また、全体としては文献調査・処分施設受け入れについては否定的態度を強化した傾向があること、「好ましい地域」の方が限定的と想定していた大半の調査対象者にとって望ましくない結果だったためか）行政・科学/技術者・専門家集団への信頼が大きく損なわれたと推定されること、そもそも（マップを見える工夫をした調査にあってさえ）マップをよく見る人は多くない可能性があること（調査対象者でマップを正しく把握している回答者は半分程度）から、対話活動を支援する効果が発揮されていたかどうかは不透明である。

第二に、これまで継続して実施してきた、HLW 処分に関わる人々の態度についての社会心理学的調査を継続した。長期間に渡る継続調査期間の中で、東日本大震災や政権交代、今年度の科学的特性マップ公表などが、それぞれどのような影響を及ぼしたか、比較検討することが大きな目的である。また、科学的特性マップ公表を受けて、具体的に文献調査を進める上での決定方法選好にどのような影響が出ているかについても、質問項目を追加して調査した。その結果、住民投票によって自治体が自主的に文献調査に応募する方式、市区村長の意思決定で応募する方式が支持されること、総理大臣・経産省・環境省・国民投票といった外部からの意思決定では1自治体を決め打ちするより、10の候補自治体を選ぶ方が支持されることがわかった。これらの知見から、ローカルの民意をくみ取るプロセスや、事業に直接関与しない国民にとっての決定責任（薄いほど望ましい）に対する配慮が重要という示唆が得られた。一方、住民投票（上位10自治体、1自治体）や市区町村の立候補、外部主体による選定（10自治体、1自治体）といった選択肢と並べて、「受け入れを承諾する他国で地層処分する」という選択肢がある中では、適切と考える人が最も多かったのは他国処分であった。これは、これまでの調査で一貫して国内・現世代処分を支持していたというデータとは異なる傾向である。「誰か（どこかの自治体）に責任を負わせる」ことを忌避するといった仮説は考えられるが、いずれにせよ調査地選定が具体化すればするほど、意思決定を回避しようとする傾向が強まる可能性がある。

第三に、上記のパネル調査について、既往研究で得られている知見との整合性を確認したり、サンプルを複数の基準でクラスタリングして違いを分析したりといった、追加の分析を行った。信頼とリスク認知、ベネフィット認知という3つの要素と受け入れ態度の構造については、当研究によって得られたデータで、既往研究と整合する結果が導かれることがわかった。また、学歴や性別といった、既往研究から影響が示唆される特性についても、改めて態度形成過程における影響の分析を試みた。その結果、想定と異なって学歴は態度形成過程に明確な違いを生み出していないことがわかった。一方で、男性は女性に比べると「中心ルート」的情報処理をしている可

能性が高く、リスク認知は低いことがわかり、これらは既往研究と一定程度整合する知見であった。加えて、原子力関連施設が立地しているかどうか、リスク認知に影響を及ぼす他の要因があるかどうか、といった指標で回答者を類型化して、態度形成の違いを検証した。具体的には、原子力関連施設の有無と東日本大震災本震の震度を基準にとって分析を行い、原子力関連施設のある自治体の回答者が震度 0 の地震を経験した場合（東日本大震災で地震を経験しなかった場合）で、受け入れ態度が顕著に否定的に変化したことがわかった。

第四に、過去 4 年間で実施してきた研究成果をとりまとめて、アジェンダ・セッティングと個人の態度形成との関係を包括的に整理し、政策提言につなげるための検討を行った。この成果については、別途最終成果概要にも記載する。

### III. 研究成果

#### 1. 「科学的特性マップ」がアジェンダ・セッティングと個人の態度形成に与えた影響の分析

##### 1.1. 平成 29 年度パネル調査における検討

過去 2 年と同様、長期間の変動を比較検討するためのパネル調査として、平成 29 年 2 月にインターネットを用いたアンケート調査を実施した。調査票は、本報告書別添の参考資料に示す通りである。この調査では、質問票の操作を行わないパネル群（500 人、過去の調査に回答したパネル回答者）に加え、パネル回答者 400 人と新規回答者 400 人を、それぞれ 100 人ずつ 4 つのシナリオ（シナリオ A1 群、A2 群、B 群、C 群）にランダムに割り振った。合計サンプル数は 1300 人となった（表 1）。なお、地域区分の名称は、「科学的特性マップ」公表前、計画公表段階での名称に準じている。

表 1 H29 年度パネル調査のサンプリング

シナリオ	サンプル数	科学的特性マップに関する情報の影響	マップの内容が想定内/想定外であることの影響
A1	パネル回答者 500+100 新規回答者 100	HLW 処分に関する質問の後、科学的特性マップに関する情報を提示	操作なし
A2	パネル回答者 100 新規回答者 100	科学的特性マップに関する情報を提示した後、HLW 処分に関する質問を行う	操作なし
B	パネル回答者 100 新規回答者 100	科学的特性マップに関する情報を提示した後、HLW 処分に関する質問を行う	「適性のある／高い地域は全国に多くない」という（正しくない）情報を提供
C	パネル回答者 100 新規回答者 100	科学的特性マップに関する情報を提示した後、HLW 処分に関する質問を行う	「適性のある／高い地域は全国に分布する」という（正しい）情報を提供

H29 年 1 月の科学的特性マップに関する調査の結果と整合するが（H28 年度報告書参照）、マップ作成の方針に記載されている条件から推定される結果と異なり、多くの回答者は適性の低い地域が相当の割合で存在すると想定していた（図 2）。また、自宅が「より適性の高い地域」に入る可能性も、実際より低く見積もる傾向が見られた（図 3）。

## 全国分布に関する認識

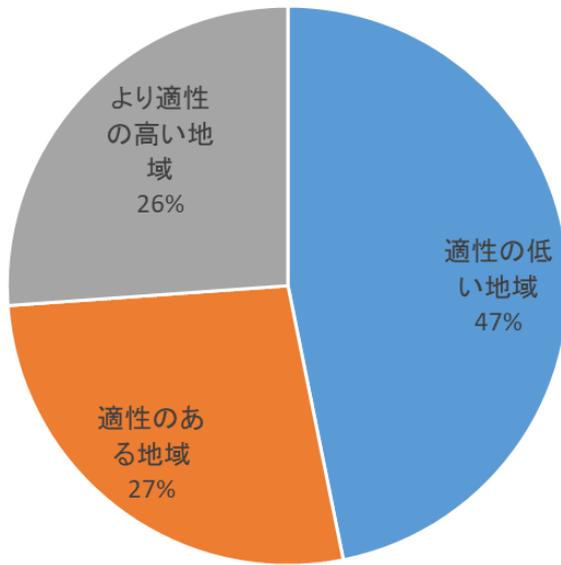


図 2 科学的特性マップにおける適性区分の全国分布に関する認識

## 住まいが「より適性の高い地域」に入る可能性の認識 (2017.02調査)

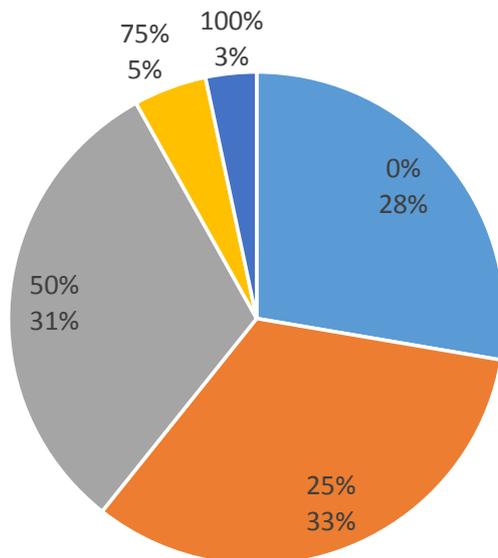


図 3 自宅が含まれる適性区分に関する認識

また、科学的特性マップの情報や、課題の当事者意識（適性区分の分布に関する情報操作で変化）によって、文献調査への応募プロセスについての態度が変化していた。具体的には、広範な地域に適性がある場合（シナリオ C）、より地域レベルの単位を議論の主体とすべきとの意見が増加した（図 4）。逆に、限られた地域に適性がある場合（シナリオ B）、現行の応募制度を不適切と考える回答者の割合が増えた（図 5）。すなわち、マップ公表によって多くの地域が潜在的対象であることが認知されることは、現行の手続きに対する適切性認知を改善する可能性を示唆している。ただし、図 4 においてシナリオ C の新規回答者とパネル回答者とで傾向が異なることについては、さらなる検討が必要である。

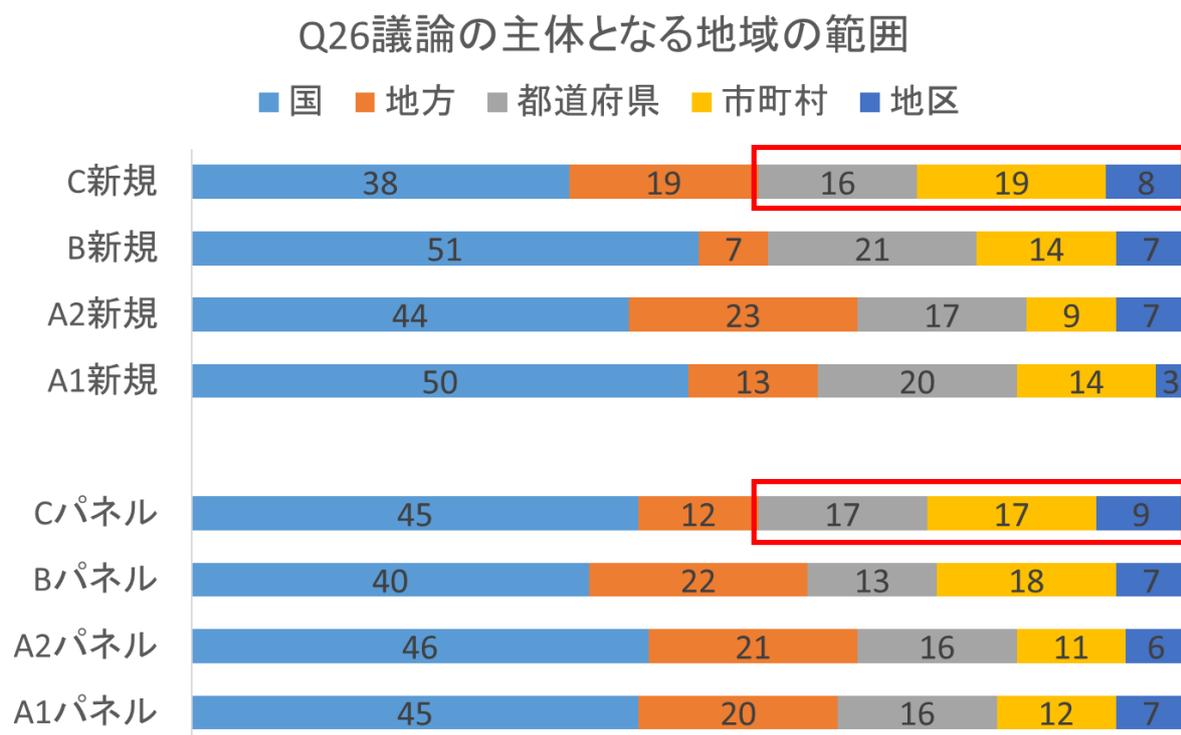


図 4 適性分布と意思決定主体に関する認識との関係

## Q27文献調査への応募手続きの適切性の認識

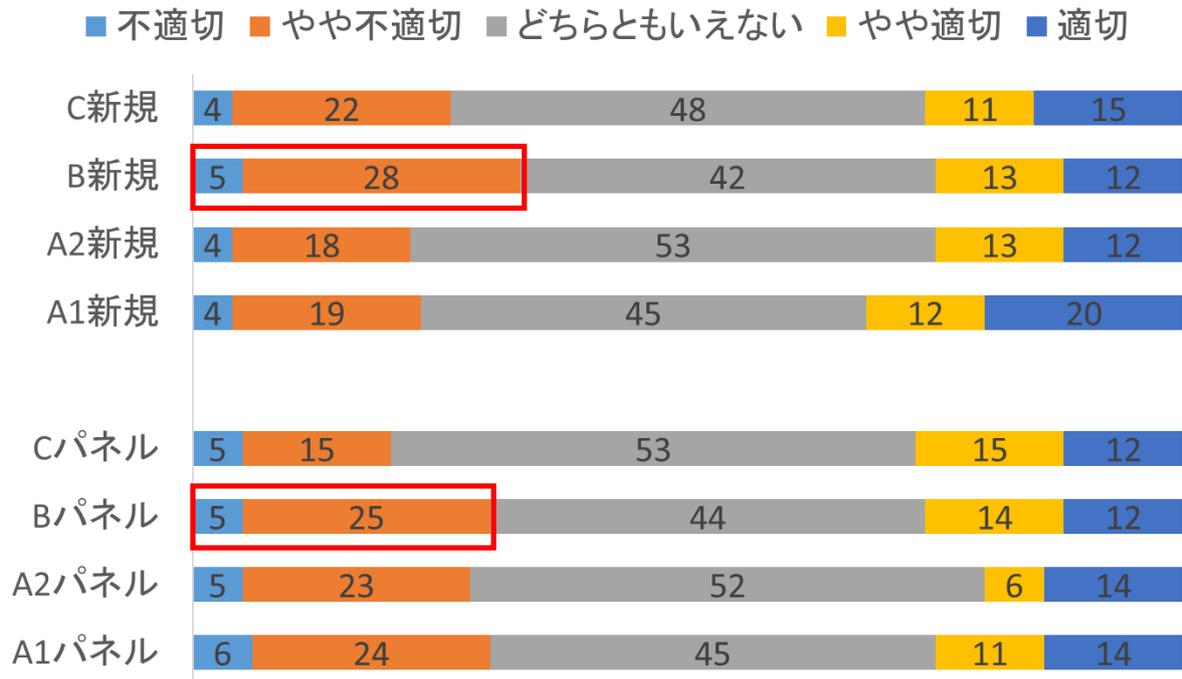


図 5 適性分布と意思決定制度の適切性認知との関係

## 1.2. 「科学的特性マップ」公表による影響の分析

### 1.2.1. 調査概要

「科学的特性マップ」は、高レベル放射性廃棄物処分は現世代で解決すべき課題であり、そのために国が前面に立って取り組むこと、特定の自治体ではなく全国の自治体に関わる国家的課題であることについて、国民から広く理解を得て、各地での対話活動を積み重ねるきっかけとする、すなわちアジェンダ・セッティングのための施策である。そこで、「科学的特性マップ」の公表という施策が、アジェンダ・セッティングならびに個人の態度にどのような影響を及ぼしたか、社会調査を行って前年度の公表前調査結果との比較分析を行った。

2017年8月に日本全国を対象に、オンラインによる質問紙調査を行った。本調査では、2017年1月の調査（マップ公表前）に回答した1700名の内、1041名から回答を得た（サンプル構成は図6の通り）。

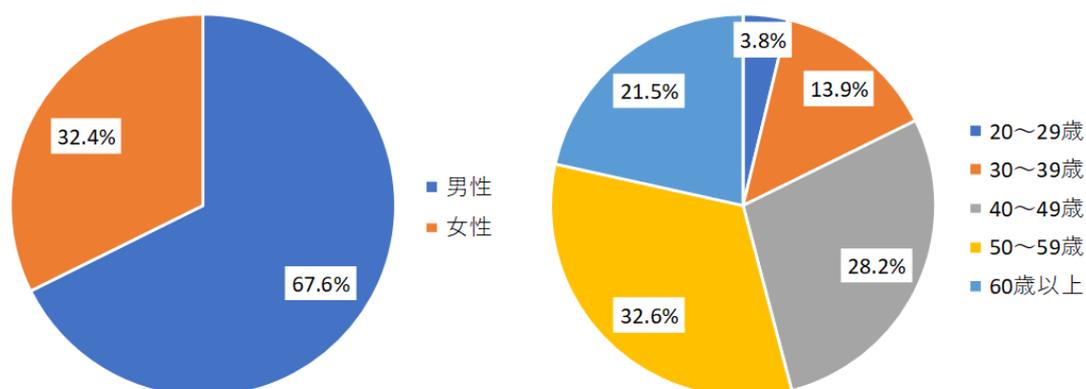


図6 2017年8月調査におけるサンプルの性別・年齢構成

### 1.2.2. 適性区分への近接性に注目した分析

また、回答者には「科学的特性マップ」の説明文と公表されたマップの両方を提示し、マップを確認した上で自宅および居住自治体の特性区分によって、5つのカテゴリーに回答者を区分した。つまり、カテゴリー1＝自宅が「輸送面でも好ましい地域」に含まれる、カテゴリー2＝自宅は「輸送面でも好ましい地域」に含まれないが、同じ自治体内のすぐ近くが含まれている、カテゴリー3＝自宅は「輸送面でも好ましい地域」に含まれないが、同じ自治体内の遠い地域が含まれている、カテゴリー4＝「輸送面でも好ましい地域」が居住自治体に存在しないが、隣接自治体にある、カテゴリー5＝「輸送面でも好ましい地域」は居住自治体とその隣接自治体には存在しない、という5つのカテゴリーである（各カテゴリーのサンプル数は図7の通り）。

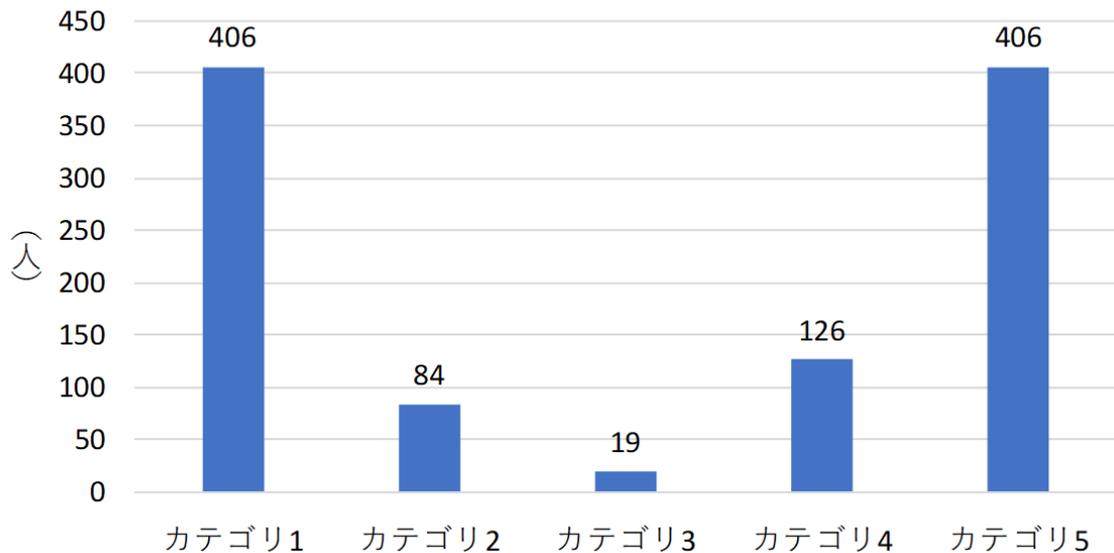


図 7 自宅および居住自治体と特性区分の関係に基づくカテゴリーとサンプル数分布

「科学的特性マップ」の公表前後では、いずれのカテゴリーでも文献調査・処分施設立地の受容性が低下していた(図 8、図 9)。この結果について、変化の統計的有意性に着目して分析した。この際、受容度は質問票の仕様上、工夫して比較する必要があった。まず、知識入手の前後の対応表づくりを行った。有望地の公表前ほどの範囲が有望地となるか分かっていなかったため、有望地と被験者の家の位置関係に応じて、最も適切な公表前の仮定を対応させなければならない。例えば、自宅が有望地の中にある人は、自宅が有望地に含まれると仮定した場合の受容度を訊いた設問に対応されなければならない。そのようにして公表前の仮定と自宅一有望地の位置関係とを紐づける。そして、その位置関係に対応する公表後の受容度を対応させると以下の表 2 のようになる。

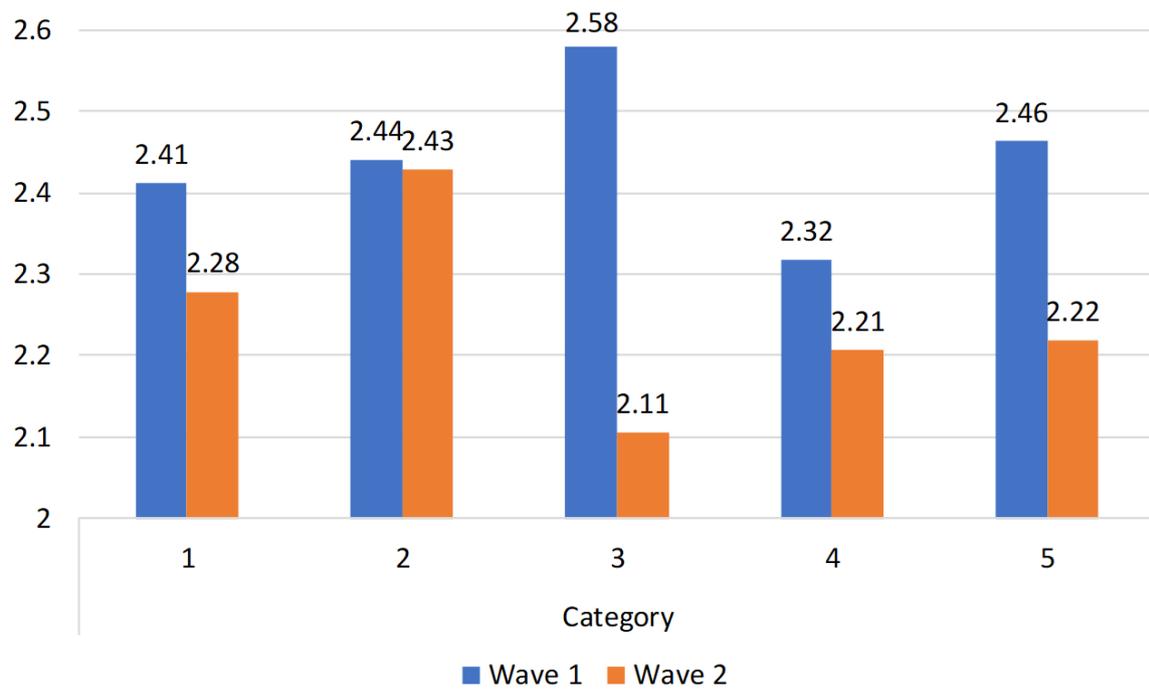


図 8 「科学的特性マップ」公表前後における文献調査への支持態度の変化

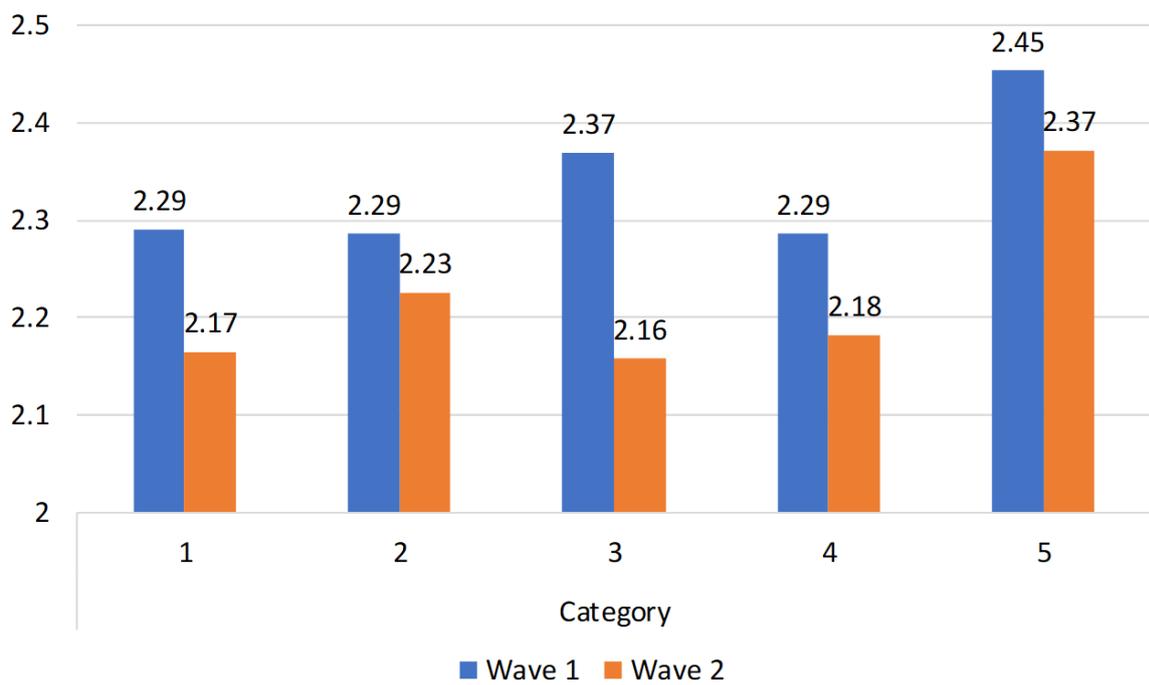


図 9 「科学的特性マップ」公表前後における処分場立地受容態度の変化

表 2 2017年1月調査と8月調査の比較対象整理 (q、sq は質問票の項目に対応)

	q (前)	(クラスタリング)	sq (後)
HomeInY	q13	sq6==1	sq8_1
HomeNearY	q14	sq6==2	sq8_1
HomeFarY	q15	sq6==3	sq8_1
NearCity	q16	sq7==1	sq8_2
NotNearCity	(q17)	sq7==2	(sq8_3)

(NotNearCity、すなわちカテゴリ5 は厳密には公表前後の質問内容が対応していない)

前年度 (H29年1月) の調査結果を分析して、文献調査への立候補については、距離が近いほど支持的態度と不支持的態度の両方が増え、態度が明確化する、つまり二過程の態度形成モデルにおける「中心ルート」的信息処理となる傾向を推定していた。ところが、公表後のデータとの比較分析によると、特性マップ公表の影響は距離に関連するわけではなく、「自宅が「輸送面でも好ましい地域」に入っているか否か」に依存していることがわかった。たとえ、居住自治体の自宅近くに「輸送面でも好ましい地域」が設定されていても、自宅さえその範囲に入っていなければ、「周辺ルート」的信息処理のままである可能性がある。できるだけ広く全国の国民に当事者意識を持ってもらうための起点としては、マップによって「好ましくない特性があると推定される地域」が限定的であると示されたことは有意義であったかもしれないが、最終的に自治体内のローカルな立地場所検討の際には、大半の住民が「周辺ルート」的信息処理となって、熟議が成立しない可能性も示唆している (住民投票を実施する場合も反対多数となってしまう可能性がある)。

なお、統計的に有意ではないため、追加調査によって深掘りする必要があるが、カテゴリ2 (自宅は「輸送面でも好ましい地域」に入っていないが、同じ自治体の自宅近くに同地域が存在する) はマップ公表前後で比較的態度変容が小さかった (図 10)。

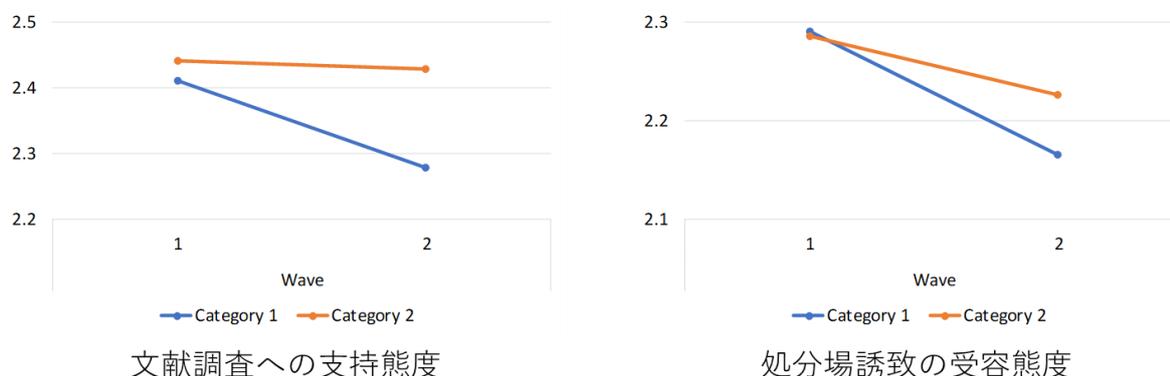


図 10 マップ公表前後におけるカテゴリ1 と 2 の態度変容度合いの比較

文献調査支持および処分場誘致受容の態度に加えて、特性マップ公表によって各カテゴリーの人々でどのような変数に変化が生じたかを分析した。具体的には、これまでの分析で文献調査・

処分場誘致と関連することが見出されている原子力発電の経済性、環境性、安全性の評価、および行政への信頼を被説明変数として、各カテゴリーの人々の回答がウェーブ1からウェーブ2にかけてどの程度変化したか、そして、その変化量にカテゴリー間で差があったかを **Difference in Difference** 分析（差の差分析）により検討した。

このようにカテゴリーごとの影響の違いを測るために、単にカテゴリーごとに集計した変数の値の差を考えるのではなく、変化量の差をとることのメリットは、グループ間の事前的な違いを考えなくて済むことにある。例えば、科学的特性マップの閲覧をする前の段階で、適性区分内と適性区分外で態度に差があったとしても、差の差をとることでその「元々の差」を取り除くことができ、適性区分内であることと適性区分外であることの違いによる効果を適切に測ることが出来る。

上記のような「差の差をとる」方法で、厳密に適性区分内であることと適性区分外であることの違いによる効果を測るためには、長期間のパネルデータを取り、グループ間でその態度の変動の仕方に大きな差がないこと（平行トレンドの仮定）が必要であるが、本調査においては、2回のパネル調査をもとに分析している。この制約を念頭に置いて、以下の分析ではウェーブ間の変化の「予測値」を得たものとする。

加えて、世代間公正、処分場誘致にかかる便益の評価（「自治体が発展する」「住民の生活が向上する」）を被説明変数とした分析も行った。ここでの仮説は、ウェーブ1において仮想的に「自宅が「輸送面でも好ましい地域」に含まれている」と想定して回答した回答者が、ウェーブ2において実際に自宅がその地域に含まれるという事実と直面することによって「中心ルート」で回答に臨むようになり（「本音」で回答するようになり）、その結果評価をネガティブなものに変えるのに対して、自宅と「輸送面でも望ましい地域」の距離が遠くなるにつれ、ネガティブな変化は減少するというものであった。

また、特に、自分が住む自治体が「輸送面でも好ましい地域」に入るが、自宅は入らないというカテゴリー2の回答者は、カテゴリー1の回答者よりもリスクは少なく、便益は同程度に受けられるという特徴を持つため、カテゴリー1の回答者とは弁別的な変化を示すと考えた。もしこの仮説が正しければ、特性マップ公表後の人々の態度は、同じ自治体内でも異なる態度形成過程を持つ、すなわち、人々の自宅の位置に応じて情報提供の在り方を変化させる必要があるということを示唆する。

まず、原発の評価についての分析結果を表3に示す。また、この分析結果から得られた各カテゴリーのウェーブ間の態度の変化の予測値を図11~に示す。なお、説明変数として投入したカテゴリー1~5は、カテゴリー1を **reference** カテゴリーとして分析を行っている。

表 3 原発についての評価（経済性、環境性、安全性）の、カテゴリごとの変化量の比較  
 (Difference in Difference 分析)

説明変数：	被説明変数： 原発の経済性		原発の環境性		原発の安全性	
	回帰係数	95% 信頼区間	回帰係数	95% 信頼区間	回帰係数	95% 信頼区間
切片	2.928 *	(2.649, 3.208)	2.351 *	(2.107, 2.594)	1.982 *	(1.768, 2.195)
性別						
男性	0.028	(-0.097, 0.153)	0.244 *	(0.135, 0.353)	0.167 *	(0.071, 0.262)
女性	Reference		Reference		Reference	
年齢	-0.012 *	(-0.017, -0.006)	-0.012 *	(-0.017, -0.007)	-0.009 *	(-0.013, -0.005)
カテゴリ						
1	Reference		Reference		Reference	
2	-0.040	(-0.278, 0.199)	0.043	(-0.166, 0.252)	0.188 *	(0.005, 0.371)
3	0.216	(-0.251, 0.683)	0.187	(-0.222, 0.597)	0.300	(-0.058, 0.658)
4	-0.091	(-0.294, 0.112)	-0.140	(-0.318, 0.038)	-0.091	(-0.247, 0.064)
5	-0.088	(-0.228, 0.052)	-0.035	(-0.158, 0.087)	-0.022	(-0.130, 0.085)
調査ウェーブ						
wave 1	Reference		Reference		Reference	
wave 2	0.034	(-0.050, 0.119)	0.037	(-0.039, 0.113)	0.037	(-0.029, 0.102)
カテゴリ×調査ウェーブ						
カテゴリ1×ウェーブ2	Reference		Reference		Reference	
カテゴリ2×ウェーブ2	-0.011	(-0.214, 0.193)	0.070	(-0.114, 0.254)	0.011	(-0.148, 0.169)
カテゴリ3×ウェーブ2	-0.140	(-0.538, 0.259)	-0.247	(-0.608, 0.113)	-0.353 *	(-0.663, -0.043)
カテゴリ4×ウェーブ2	0.021	(-0.152, 0.194)	0.050	(-0.106, 0.207)	0.050	(-0.084, 0.185)
カテゴリ5×ウェーブ2	-0.047	(-0.166, 0.072)	-0.032	(-0.140, 0.076)	0.042	(-0.051, 0.135)

† $p < .10$ , \* $p < .05$

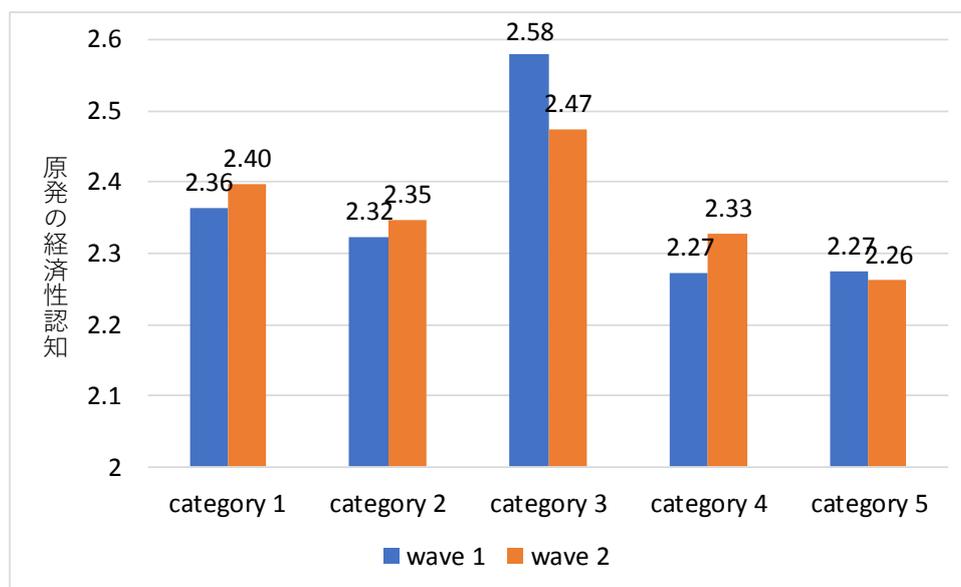


図 11 カテゴリごとの、原発の経済性認知のウェーブ間変化（予測値）

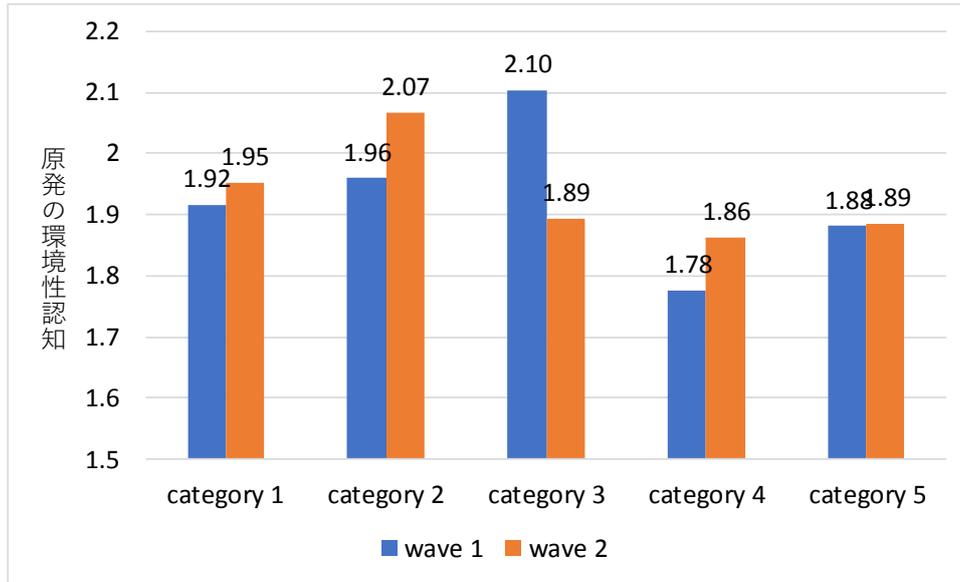


図 12 カテゴリーごとの、原発の環境性認知のウェーブ間変化（予測値）

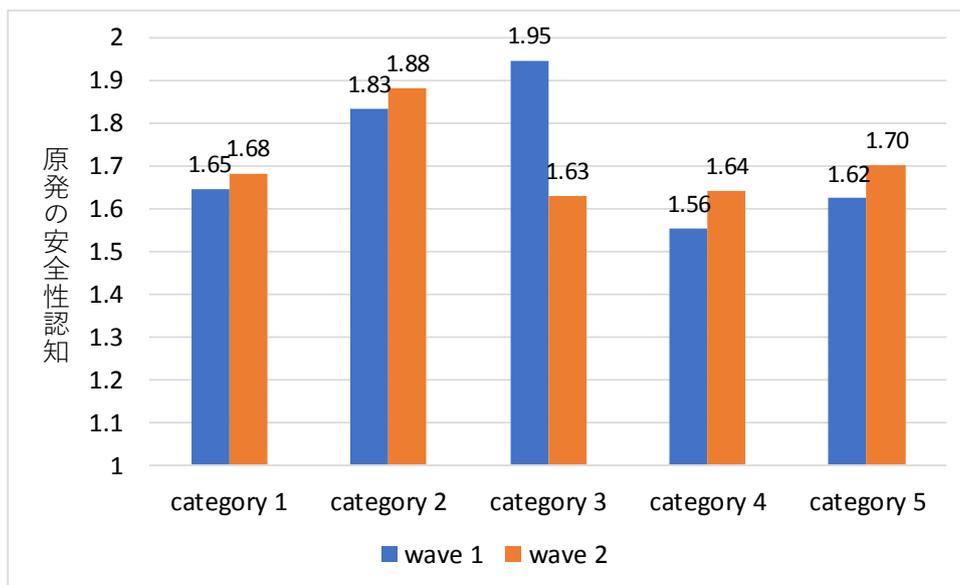


図 13 カテゴリーごとの、原発の安全性認知のウェーブ間変化（予測値）

表 3 から、原発の安全性についてカテゴリー2 の人々は高く評価するという主効果が統計学的に有意であることが確認されたが、カテゴリーとウェーブの交互作用が統計学的に有意ではなかったため、これは科学特性マップ提示の効果ではないと考えられる。一方、カテゴリー3 は交互作用項が統計学的に有意であり、原発の安全性の評価がウェーブ 1 からウェーブ 2 にかけて、他のカテゴリーと比較して減少しているということが示された。しかしながら、カテゴリー3 については該当者数が少なく（19 人）誤差が大きいため、積極的な解釈は避けるべきであろう。

次に、世代間公正、行政への信頼、処分場受け入れの便益（「自治体が発展する」と「住民ひとりひとりの生活が向上する」の 2 つ）を被説明変数とした分析結果を表 4 に示す。加えて、この

分析結果から得られた各カテゴリーのウェーブ間の態度の変化の予測値を図 14～図 17 に示す。

表 4 世代間公正、行政への信頼、処分場受け入れの便益（「自治体が発展する」「住民ひとりひとりの生活が向上する」）の、カテゴリーごとの変化量の比較（Difference in Difference 分析）

説明変数：	世代間公正		行政への信頼		便益「自治体が発展する」		便益「住民の生活が向上する」	
	回帰係数	95% 信頼区間	回帰係数	95% 信頼区間	回帰係数	95% 信頼区間	回帰係数	95% 信頼区間
切片	3.248 *	(2.983, 3.513)	2.812 *	(2.547, 3.076)	2.734 *	(2.498, 2.969)	2.415 *	(2.190, 2.640)
性別								
男性	0.101 †	(-0.016, 0.218)	0.261 *	(0.143, 0.378)	0.216 *	(0.111, 0.321)	0.176 *	(0.076, 0.277)
女性	Reference		Reference		Reference		Reference	
年齢	0.012 *	(0.007, 0.017)	-0.001 *	(-0.006, 0.004)	-0.010 *	(-0.015, -0.005)	-0.009 *	(-0.013, -0.004)
カテゴリー								
1	Reference		Reference		Reference		Reference	
2	-0.272 *	(-0.520, -0.025)	0.104	(-0.133, 0.340)	-0.066	(-0.274, 0.143)	0.118	(-0.080, 0.317)
3	-0.545 *	(-1.030, -0.060)	0.028	(-0.436, 0.492)	0.040	(-0.369, 0.448)	0.112	(-0.277, 0.500)
4	-0.088	(-0.299, 0.123)	0.014	(-0.187, 0.216)	-0.057	(-0.234, 0.121)	-0.067	(-0.236, 0.102)
5	-0.247 *	(-0.392, -0.102)	-0.032	(-0.171, 0.107)	-0.189 *	(-0.312, -0.067)	-0.082	(-0.198, 0.035)
調査ウェーブ								
wave 1	Reference		Reference		Reference		Reference	
wave 2	0.017	(-0.102, 0.136)	-0.495 *	(-0.597, -0.393)	-0.108 *	(-0.194, -0.023)	-0.052	(-0.132, 0.029)
カテゴリー×調査ウェーブ								
カテゴリー1×ウェーブ2	Reference		Reference		Reference		Reference	
カテゴリー2×ウェーブ2	-0.112	(-0.400, 0.175)	0.043	(-0.203, 0.288)	0.192 †	(-0.015, 0.399)	0.028	(-0.166, 0.222)
カテゴリー3×ウェーブ2	0.562 †	(-0.001, 1.124)	0.074	(-0.407, 0.555)	-0.102	(-0.508, 0.304)	-0.106	(-0.486, 0.274)
カテゴリー4×ウェーブ2	-0.025	(-0.270, 0.219)	0.027	(-0.182, 0.236)	0.093	(-0.084, 0.269)	0.091	(-0.074, 0.257)
カテゴリー5×ウェーブ2	-0.064	(-0.232, 0.104)	0.005	(-0.139, 0.149)	0.054	(-0.067, 0.175)	-0.017	(-0.131, 0.096)

† $p < .10$ , \* $p < .05$

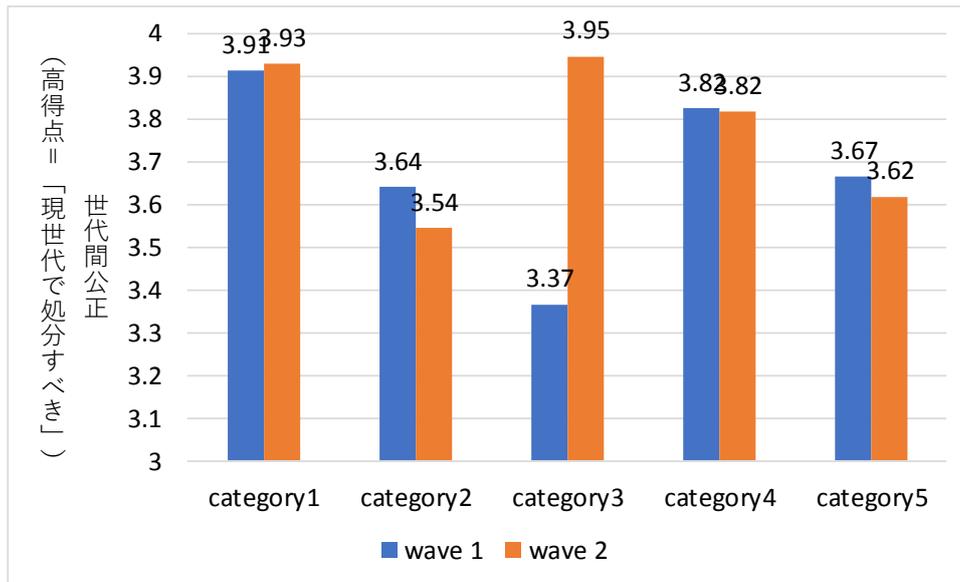


図 14 カテゴリーごとの、世代間公正についての認知のウェーブ間変化（予測値）

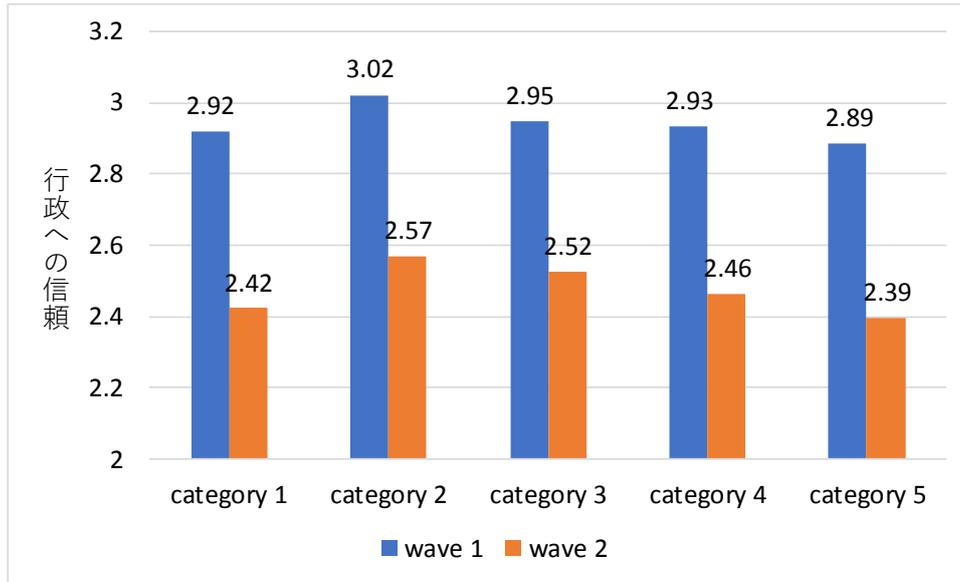


図 15 カテゴリーごとの、行政への信頼のウェーブ間変化（予測値）

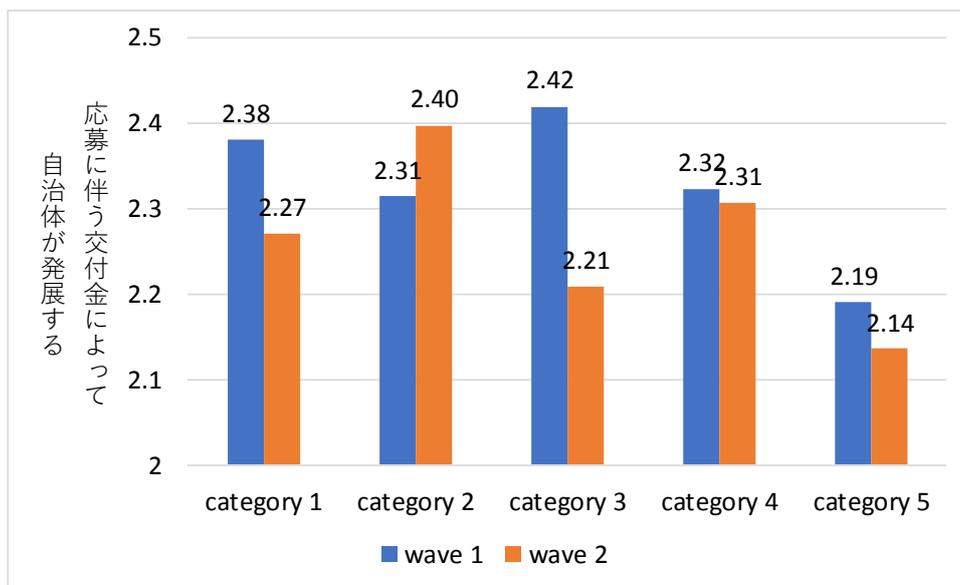


図 16 カテゴリーごとの、処分場受け入れの便益（「自治体が発展する」）のウェーブ間変化（予測値）

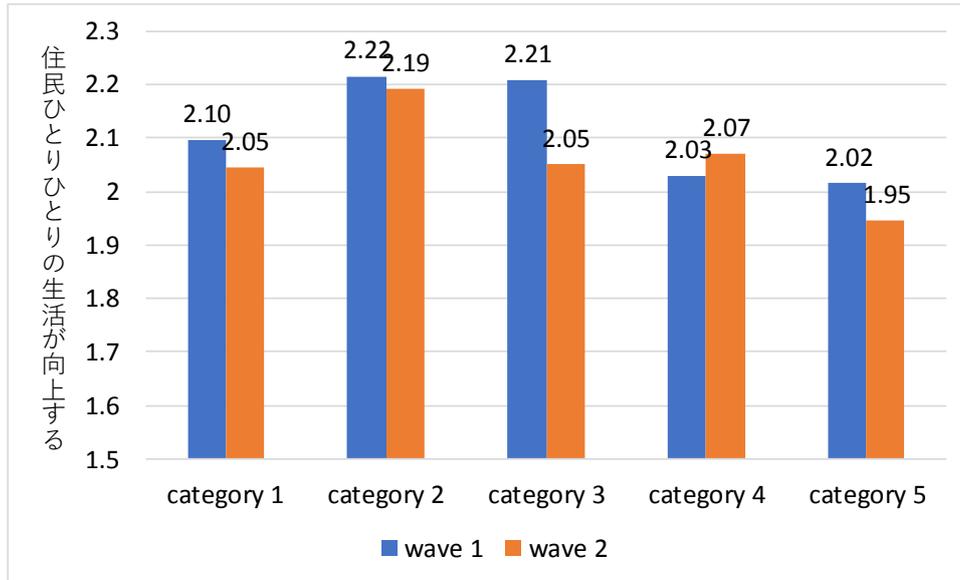


図 17 カテゴリーごとの、処分場受け入れの便益（「住民ひとりひとりの生活が向上する」）のウェーブ間変化（予測値）

まず、特筆すべき点は、行政への信頼に関しては調査ウェーブの主効果のみが統計学的に有意であり、ウェーブとカテゴリーの交互作用は有意ではなかったということである。これは、どのカテゴリーに属するかに関わらず、マップ公表が行政への信頼を一貫して減少させたということの意味する。もう一点は、「処分場受け入れによって自治体が発展する」という便益認知に関して、ウェーブとカテゴリー2の交互作用が統計学的に有意（10%水準）であった。すなわち、カテゴリー2の人々は、この便益認知に関して、他のカテゴリーとは異なる変化をウェーブ間で示した。この被説明変数に関して、ウェーブの主効果が統計学的に有意であったこととあわせて考えると、全体的にはマップ公表によって便益認知が減少しているにもかかわらず、カテゴリー2の人々のみ、便益認知が微増していることを意味している（図 16）。すなわち、カテゴリー2は処分場との地理的距離はカテゴリー1に次いで近いものの、便益を高く評価することにより、受け入れに対して比較的肯定的な態度が形成されやすい人々なのかもしれない。そのため、カテゴリー1とカテゴリー2の人々が、同じような態度形成過程を有するという前提で選定作業を進めることは、政策上好ましい方略ではないといえよう。

### 1.2.3. 最も近接している地域と最も近接していない地域との差に注目した分析

次に自宅が適性区分内にあるカテゴリ 1 と最も適性区分から離れているカテゴリ 5 のマップ公表前後において、文献調査の支持度や受け入れ態度だけでなく、信頼やリスク認知といった態度形成要因がどのように変化したかを広範に整理した。

まず、表 5 で、今回の調査でマップ閲覧前後でデータをとった項目を整理した。

表 5 グラフの記号の対応表

グラフ内の記号	Contents	指示内容
TA	Trust in Administration	行政への信頼
TS	Trust in Scientists	科学者への信頼
TE	Trust in Engineers	技術者への信頼
TSp	Trust in Specialists	専門家集団への信頼
L	Extent of support of Literature review	仮に自治体が文献調査に立候補した場合支持するか
A	Acceptance to final disposal	最終処分施設が仮に建設される場合に受容するか
DS	Dicision making scope	意思決定者はどの範囲か
BM	Benefit to Municipality	便益認知－交付金で自治体が発展するか
BP	Benefit to a Person	便益認知－交付金で一人ひとりの生活が豊かになるか
CS	Compensation scope	補償主体はどの範囲か
RN	Risk on damaged Number	リスク認知－何人が被災するか
RP	Risk on Probability	リスク認知－事故が起こる可能性はどのくらいか
NI	National or International	国内処分か国外処分か
Ge	Current generation	現世代で処分すべきか
Nsu	Support to Newclear generation	原子力発電を支持するか
Nen	Economy of Newclear generation	原子力発電の経済性を認めるか
Nel	Ecology of Newclear generation	原子力発電の環境性を認めるか
Nsa	Safty of Newclear generation	原子力発電の安全性を認めるか

次にマップ閲覧前後の各項目の差について、2 グループ間の平均値を棒グラフで、また差の検定における 95 パーセント信頼区間をエラーバーで図示化した。(図 18) そして、各群間の変化量の差を横倒しの棒グラフで、そしてその変化量の差の 95 パーセント信頼区間をエラーバーで図示化した。(図 19) ここでもし、ゼロのラインを超えていなければ、95 パーセント以上の確率で有意に差があると判断できる。

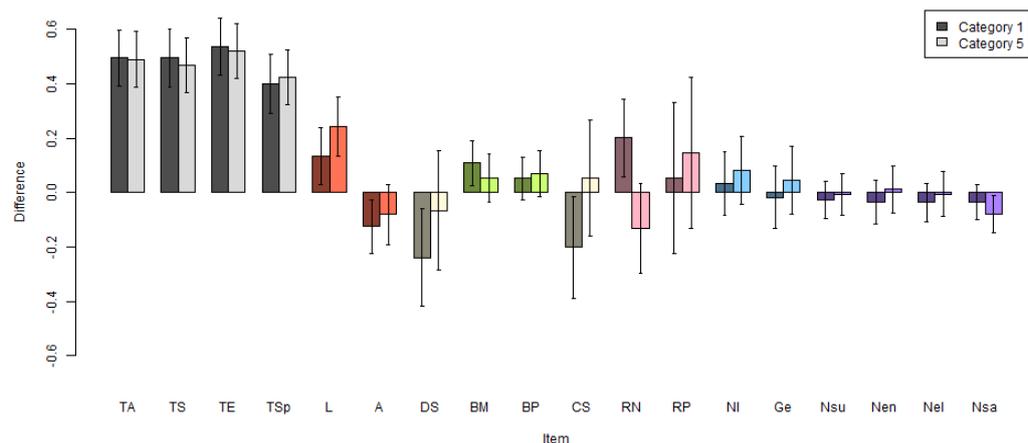


図 18 カテゴリー1 と カテゴリー5 の各指標の変化量

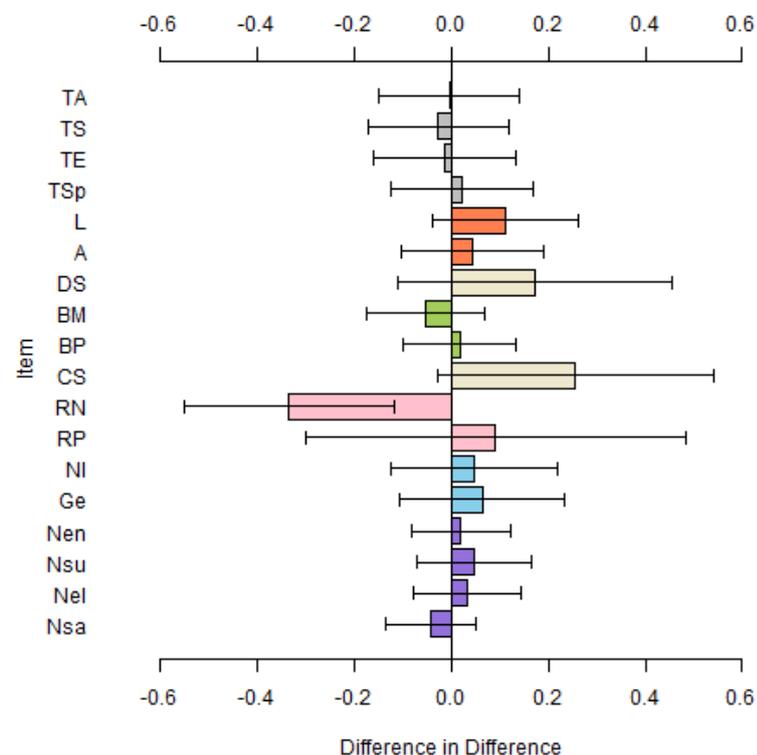


図 19 カテゴリー1 と カテゴリー5 の各指標の変化量の差

まず、適性区分内・外それぞれのマップ閲覧前後において、どのような態度変化が見られたかを整理した。適性区分内（カテゴリー1）の回答者において、マップ閲覧前後で統計的に有意な差が見られた項目（対応あり t 検定、有意水準 5%）は以下の項目であった。

- ・ 信頼 4 項目（行政、科学者、技術者、専門家集団）
- ・ 意思決定者はどの範囲か
- ・ 補償主体はどの範囲か
- ・ 仮に自治体が文献調査に立候補した場合支持するか
- ・ 最終処分施設が仮に建設される場合に受容するか
- ・ 便益認知－交付金で自治体が発展するか
- ・ リスク認知－何人が被災するか

適性区分外（カテゴリー5）の回答者において、マップ公表前後で統計的に有意な差が見られた項目（対応あり t 検定、有意水準 5%）は以下の項目であった。

- ・ 信頼 4 項目（行政、科学者、技術者、専門家集団）
- ・ 仮に自治体が文献調査に立候補した場合支持するか
- ・ 原子力発電の安全性を認めるか

「変化量の差」を考えた際に、統計的に有意な差が見られた項目（対応なし t 検定、有意水準 5%）は以下の項目であった。

- ・ リスク認知－何人が被災するか（カテゴリー1 がより大きな被害を受けると変化した量が大きかった。）

以上の結果より、2 点考察する。

1 点目は、意思決定主体並びに補償主体の範囲に関してである。まず、適性区分内（カテゴリー1）において、意思決定・補償受け取りの主体が狭い範囲になるような結果が出た。これは、自宅が適性区分内にあるカテゴリー1にとって、意思決定並びに補償受け取りの一人当たりの権利を大きくしようと志向していることが原因だと推測できる。このように、科学的特性マップを見るという刺激に対して、自宅が適性区分内にあるカテゴリー1の人は、より意思決定権と補償の権利の一人当たりの権利が大きくなるように志向する傾向があることが分かった。

特に補償に関しては、「変化量の差」も有意差が検出されたため、カテゴリー1とカテゴリー5の間で、その変化量の傾向に差があることが示せる。

この結果のさらなる分析として、カテゴリー2や3のはっきりと自宅が有望地内に入っていないサンプルがどのような傾向を志向するかを分析することが考えられる。そうすることで、補償や意思決定における権利の範囲を決定する上で生じることが予想される住民間の意見の対立を緩和・解決するのに役立つ示唆を得ることが出来る。

2 点目はマップを閲覧したことにより、適性区分内・外に問わず、文献調査の支持度や受容態度が低下したことについてである。このとき「変化量の差」に有意な差がなかったことを考えると区分内・外によって程度の差があるかは分からないが、アンケート調査を行ったこと自体が文

献調査の支持度や受容態度の低下につながっていると考えられる。

#### 1.2.4. 客観的な適性区分内/外であることの影響分析

これまで、適性区分内であるカテゴリ1と適性区分外であるカテゴリ5を比較してきたが、住居と適性区分の距離関係によって定義される5つのカテゴリは、被験者が自ら地図を確認して答えるという方法であったため、その客観性が担保されていない。そこで、被験者の主観性を排除し、客観的な適性区分内/外を判別するために、特性マップと被験者の市区町村データをもとに客観的な適正区部内/外を定義した。

まず、客観的な適性区分内/外の識別を以下の手順で検証した。

1. 科学的特性マップと国土地理院の市町村地図を照らし合わせ、本調査で対象となった339の市を以下の4カテゴリに分類した。(図20は4カテゴリ分類の一例であり、アンケート回答者1041名が居住する全国の339市で同様の分類を行っている。)
2. その4カテゴリと距離関係の5カテゴリとの関係性を表6に整理した。
3. イとログループを適性区分内、ハとニグループを適性区分外であるとした。

<4つのカテゴリ>

- イ) 市の領域全体が「輸送でも適切な地域」。
- ロ) 市の領域の一部が「輸送でも適切な地域」。
- ハ) 市の領域に輸送でも適切な地域は含まれないが、隣接する市町村に「輸送でも適切な地域」が含まれる地域。
- ニ) 市の領域、隣接する市町村ともに「輸送でも適切な地域」に含まれていない地域。

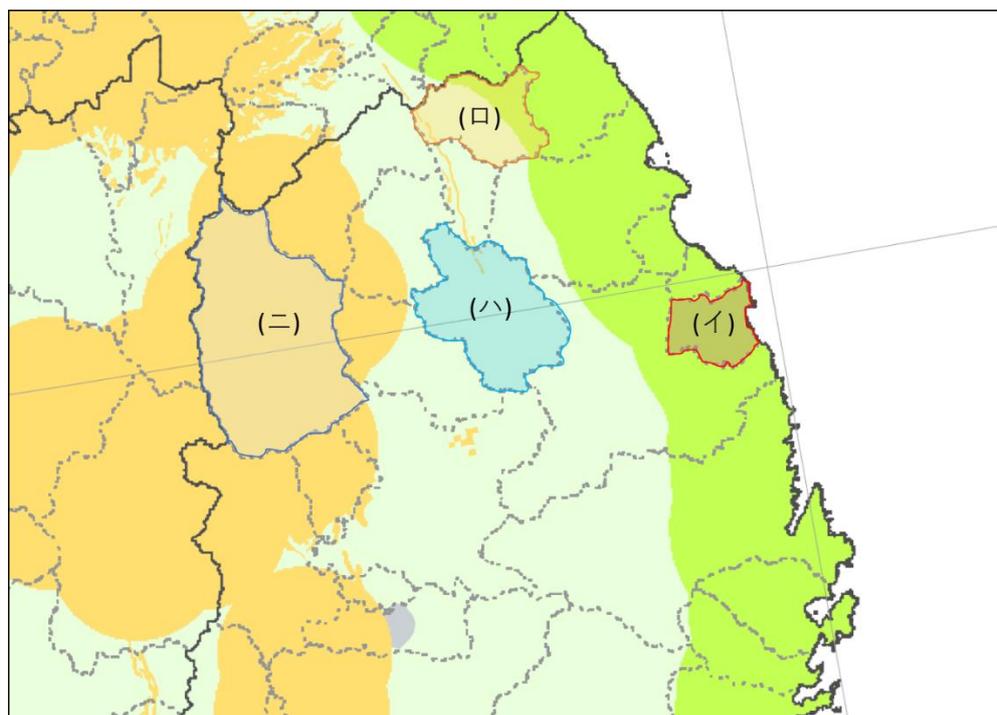


図20 4カテゴリの例（濃い黄緑色の部分が「輸送でも適切な地域」）

結果のグラフについて、マップ閲覧前後の各質問項目の差について、2 グループ間の平均値を棒グラフで、また差の検定における 95 パーセント信頼区間をエラーバーで図示化した。(図 21)そして、各群間の変化量の差を横倒しの棒グラフで、そしてその変化量の差の 95 パーセント信頼区間をエラーバーで図示化した。(図 22) ここでもし、ゼロのラインを超えていなければ、95 パーセント以上の確率で有意に差があると判断できる。

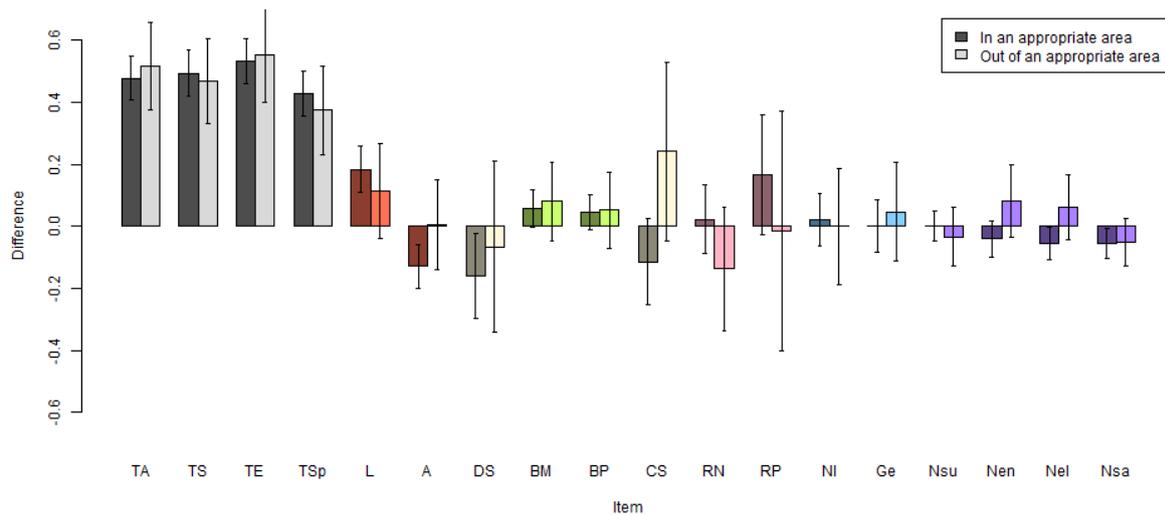


図 21 客観的な適性区分内/外の各指標の変化量

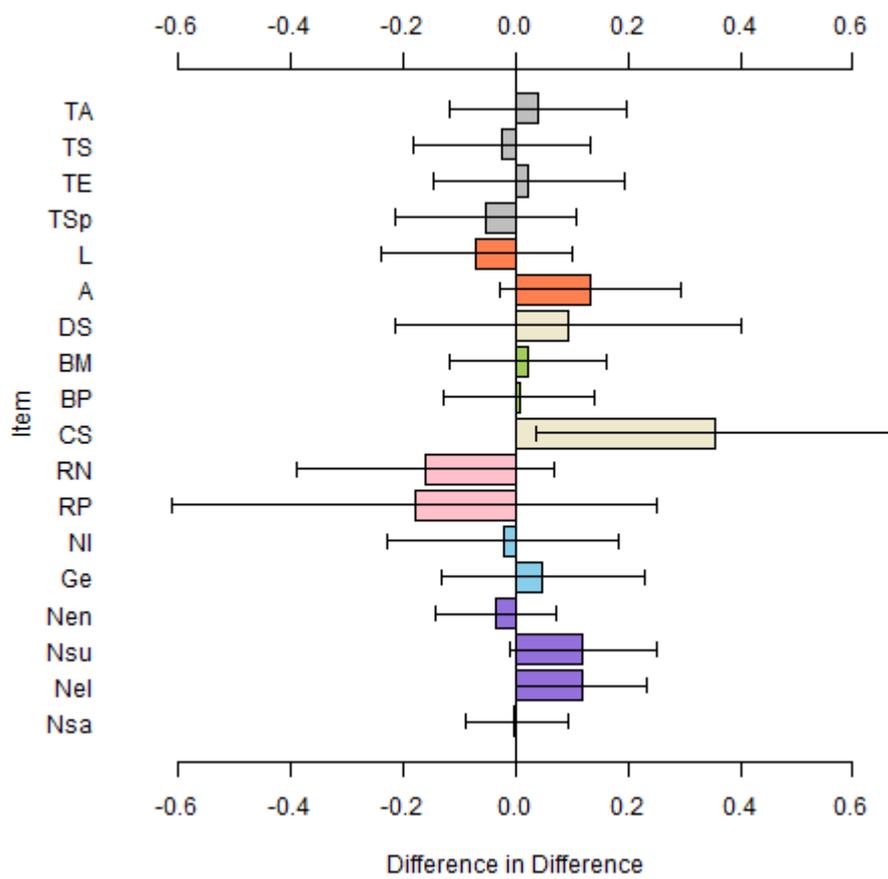


図 22 客観的な適性区分内/外の各指標の変化量の差

まず、客観的に判断した適性区分内・外それぞれのマップ閲覧前後において、どのような態度変化が見られたかを整理した。適性区分内の回答者において、マップ閲覧前後で統計的に有意な差が見られた項目（対応あり t 検定、有意水準 5%）は以下の項目であった。

- ・ 信頼 4 項目（行政、科学者、技術者、専門家集団）
- ・ 意思決定者はどの範囲か
- ・ 仮に自治体が文献調査に立候補した場合支持するか
- ・ 最終処分施設が仮に建設される場合に受容するか
- ・ 原子力発電の環境性を認めるか
- ・ 原子力発電の安全性を認めるか

適性区分外の回答者において、マップ公表前後で統計的に有意な差が見られた項目（対応あり t 検定、有意水準 5%）は以下の項目であった。

- ・ 信頼 4 項目（行政、科学者、技術者、専門家集団）
- ・ 仮に自治体が文献調査に立候補した場合支持するか

「変化量の差」を考えた際に、統計的に有意な差が見られた項目（対応なし t 検定、有意水準

5%) は以下の項目であった。

- ・ 補償主体はどの範囲か

ここで、適性区分内で、意思決定主体の範囲が小さくなったことや、適性区分内/外における補償主体の範囲の変化量の差が有意であったことから客観的な適性区分内/外でも、主観的な適性区分内/外と同様に適性区分内に住む人の方が意思決定主体や補償主体の範囲が小さくなるように志向する傾向があることが分かった。

その他、原子力発電に対する態度やリスクの認知で若干の違いがみられたが、サンプルの内訳が違っても関わらず分析結果が主観的な適性区分内/外の分析とおおむね整合的な結果となった。

### 1.2.5. 回答の正確性に注目した分析

この分析で注目したことは、どのくらい被験者の適性区分内/外のカテゴリ分けに関する回答を信用しているかということである。そこで、被験者の中で正しくカテゴリを選択した人としていない人をチェックして、そのグループ間に差があるかを分析した。

回答の正確性は回答者が自ら判断した5つのカテゴリと前節で定義した客観的なイ、ロ、ハ、ニの4つのカテゴリとの整合性を考えた。イ、ロ、ハ、ニの各カテゴリについて以下に示されるような対応関係があるはずである。(表 6)

イ) 市の領域全体が「輸送でも適切な地域」。この市に住む被験者はカテゴリ1：輸送面でも適切な地域（科学的有望地）の中に家が含まれていると答えるはずである。

ロ) 市の領域の一部が「輸送でも適切な地域」。この市に住む被験者はカテゴリ1・2・3のどれかを答えるはずである。

ハ) 市の領域に「輸送でも適切な地域」は含まれないが隣接する市町村に「輸送でも適切な地域」が含まれる地域。この市に住む被験者はカテゴリ4と答えるはずである。

ニ) 市の領域、隣接する市町村ともに「輸送でも適切な地域」に含まれていない地域。この市に住む被験者はカテゴリ5と答えるはずである。

表 6 居住地とマップの照合に関する正解判定（色のついたセルが正しく対応）

カテゴリ	1	2	3	4	5	合計	正答率
イ	130	8	3	9	46	196	66%
ロ	247	69	9	93	207	625	52%
ハ	15	4	1	14	58	92	15%
ニ	11	3	6	9	90	119	76%
合計	403	84	19	125	401	1032	54%

正答率は全体で54%にとどまっており、ロのカテゴリに属する回答者は、居住自治体内に「輸送面でも好ましい地域」が存在しない（カテゴリ4、5）と判断したものが多い傾向にある。ア

ンケート調査中に科学的特性マップを掲載し、確認するよう誘導した状況でも正しく答えられない回答者が半数近く存在する理由としては、地図をそもそも見ていない（見る気がない）、科学的特性マップを正しく読めていない（居住地を探せないなど）などが考えられる。

ここで、表 6 から読み取れるとおり、正確な回答のグループは適性区分内の割合が高く、不正確な回答のグループは適性区分外の割合が高いため、正確/不正確という属性は、少なからず、適性区分内/外という属性を反映してしまうことに注意したい。

回答が正確であるか不正確であるかの影響を測るために、回答が正確か不正確かの 2 グループに分けて、2 グループごとにマップ閲覧前後の差を算出し、その変化量の差を考える。まず、マップ閲覧前後の各質問項目の差について、2 グループ間の平均値を棒グラフで、また差の検定における 95 パーセント信頼区間をエラーバーで図示化した。(図 23) そして、各群間の変化量の差を横倒しの棒グラフで、そしてその変化量の差の 95 パーセント信頼区間をエラーバーで図示化した。(図 24) ここでもし、ゼロのラインを超えていなければ、95 パーセント以上の確率で有意に差があると判断できる。

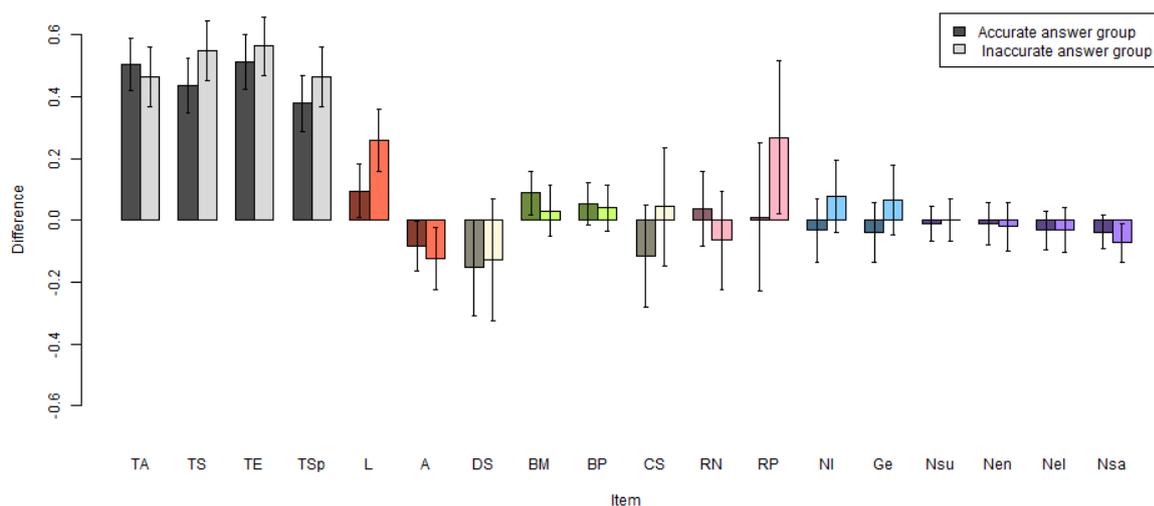


図 23 正確な回答をしたグループと不正確な回答をしたグループとの各指標の変化量

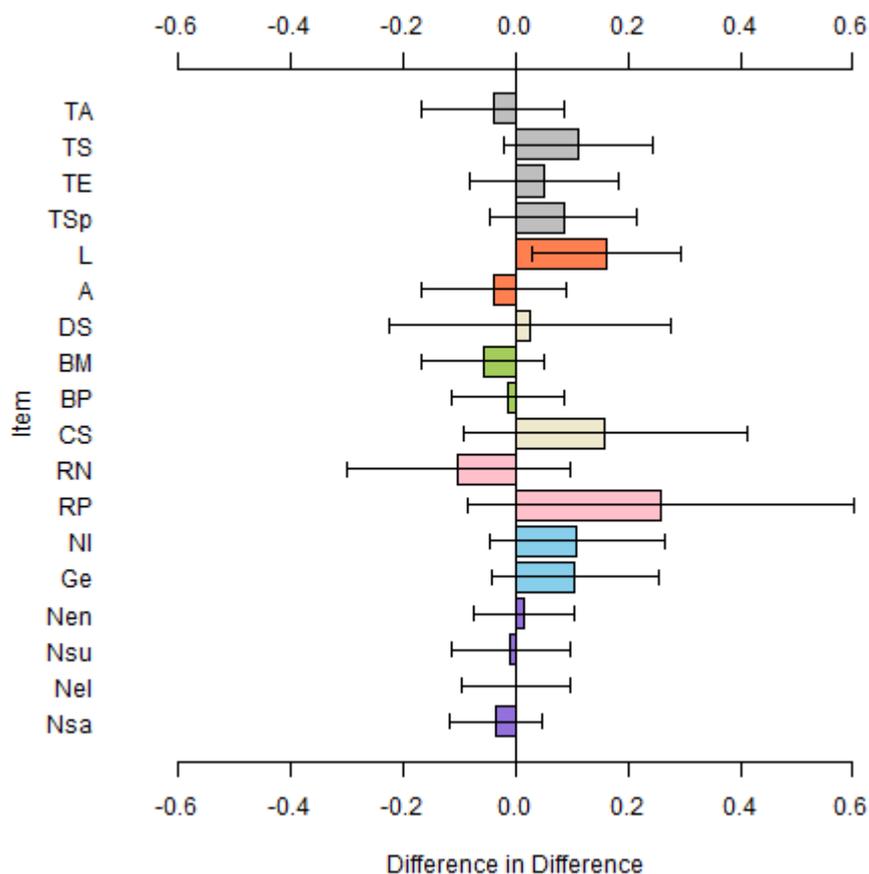


図 24 正確な回答をしたグループと不正確な回答をしたグループとの各指標の変化量の差

まず、回答の正確性によって分割した 2 グループごとのマップ閲覧前後において、どのような態度変化が見られたかを整理した。回答が正確だったグループの回答者において、マップ閲覧前後で統計的に有意な差が見られた項目（対応あり t 検定、有意水準 5%）は以下の項目であった。

- ・ 信頼 4 項目（行政、科学者、技術者、専門家集団）
- ・ 意思決定者はどの範囲か
- ・ 仮に自治体が文献調査に立候補した場合支持するか
- ・ 最終処分施設が仮に建設される場合に受容するか

回答が不正確だったグループの回答者において、マップ公表前後で統計的に有意な差が見られた項目（対応あり t 検定、有意水準 5%）は以下の項目であった。

- ・ 信頼 4 項目（行政、科学者、技術者、専門家集団）
- ・ 仮に自治体が文献調査に立候補した場合支持するか
- ・ 最終処分施設が仮に建設される場合に受容するか
- ・ リスク認知—事故が起こる可能性はどのくらいか
- ・ 原子力発電の安全性を認めるか

「変化量の差」を考えた際に、統計的に有意な差が見られた項目（対応なし t 検定、有意水準 5%）は以下の項目であった。

- ・ 仮に自治体が文献調査に立候補した場合支持するか

以上より、一点考察する。

アンケート調査で正確な回答をしているグループは、文献調査の支持度や最終処分施設の受容態度が閲覧前後で有意に変化しなかった一方で、不正確な回答をしているグループでは、有意に支持度や受容態度が低下した。そして、その変化量の差が有意であった。このことから、アンケート調査に対して正確な回答をする傾向のある人はマップ閲覧をしても、相対的に文献調査の支持度や受容態度への影響を受けづらいことが分かる。

これは、過年度の報告書でとりあげた中心的ルートと周辺のルートが本分析における回答が正確であることと不正確であることに対応していると解釈することが出来る。回答が正確なグループは、文献調査への支持度を吟味する上でより合理的な判断基準を持っている。そのため科学的特性マップを見るということが支持度の低下に寄与しづらい。一方で、回答が不正確なグループは、より感情的な基準で判断している。今回の文脈では、回答が不正確なグループは、そもそも特性マップを正確に見ていると言い難く、放射性廃棄物の処分事業が進展していることへの忌避感や、その影響を測るためにアンケートが取られていることへの不快感が文献調査の支持度や最終処分施設の受容態度を低下させた原因であると推測される。

以上のことから、情報の提示の仕方に十分注意を払う必要性が示唆される。なぜなら、全体の 46%の人が、十分に特性マップを確認せず、なおかつ行政への信頼や文献調査の支持度や受容態度を減少させているためである。また回答が正確であるグループも信頼が低下していることのメカニズムは、感情的な判断によるところが大きいと考えられる。本来合理的な議論を進展させるための客観的な情報提示である科学的特性マップの公表が逆効果とならないために、情報の提示の方法に工夫が必要であると言えるだろう。

#### 1.2.6. 態度認識の変化に注目した分析

信頼の低下などの態度変化を説明する他の要因として、適性区分内に入るかどうかに関する主観的認識の変化を考えた。図 25 は分析の大まかな枠組みを表している。まず、科学的特性マップを見る前段階での人々の適性区分内に入るかどうかに関する態度について、『あなたのお住まいが「輸送面でも好ましい地域」に入る可能性はどの程度だと思いますか。あてはまるものひとつをお選びください。（選択肢は 1~5 でそれぞれ 0%、25%、50%、75%、100%）』という質問に対して 0%、25%と回答したグループ (N=609) と 50%、75%、100%と回答したグループ (N=432) に分割した。便宜上、前段階における out グループと in グループと呼ぶことにする。そして、科学的特性マップの閲覧後に『「輸送面でも好ましい地域」は、あなたのお住まいの市に存在していますか。あてはまるものひとつをお選びください。（選択肢ははい、いいえの 2 択）』の質問に対して、はい、と回答したグループ (N=509) と、いいえ、と回答したグループ (N=532) に分割した。それぞれ閲覧後の out グループと in グループと呼ぶことにする。

この2組の2グループについて、図25のように4つの経路(①~④)が考えられる。例えば、②は科学的特性マップを見る前は自分が適性区分に入っていたが、地図を見た結果、入っていなかった人である。このような4つの経路(便宜上、タイプ1~タイプ4とする)それぞれについて、これまでの分析と同様に人々の態度変容の程度の差があるかどうかを考える。

ここで、人々の適性区分内/外の認識の変化を適切に測るためには、もし地図を確認していなければ、人々の認識の変化がそもそも生じないため、前述した分析で用いた正確な回答をしたグループの中から4つのグループに分割した。

図26は①~④グループの標本数である。標本数に偏りがあるのは、表6で整理した通り、閲覧グループ群(①~④)が閲覧後inグループが大きくなるように偏っているためである。

## Accurate answer group

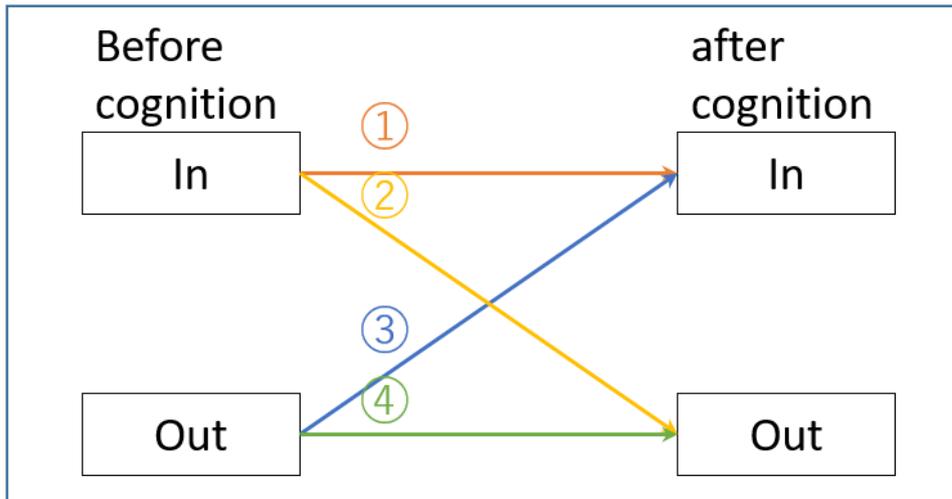


図 25 認識の変化の影響に関する分析の概要図

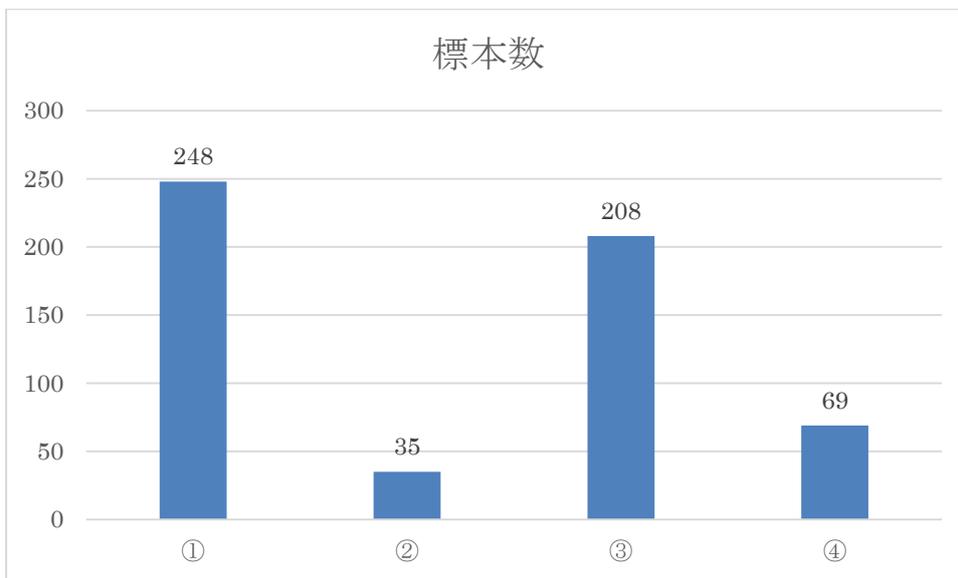


図 26 各グループの標本数

以上のデータを分析した。それぞれのグループの閲覧前後の態度変容への影響を算出した後、その差をグループ間で比較した（図 27～図 34）。ただし、グループ①とグループ④の組み合わせとグループ②とグループ③の組み合わせはたとえ有意差が出たとしても解釈が難しく、多重比較の観点からも不要な有意性検定は避けた方がいいので、分析の対象外とした。

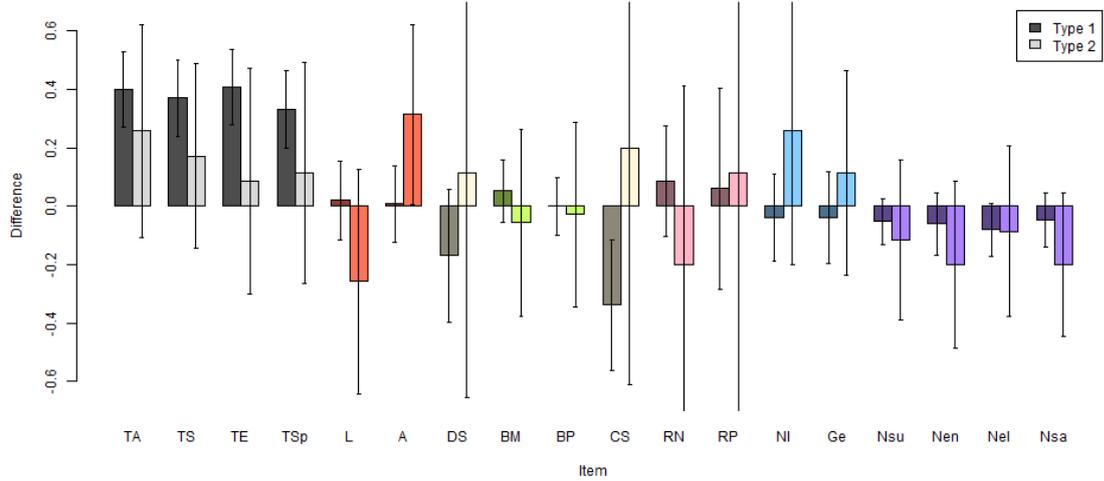


図 27 タイプ1とタイプ2の各指標の変化量

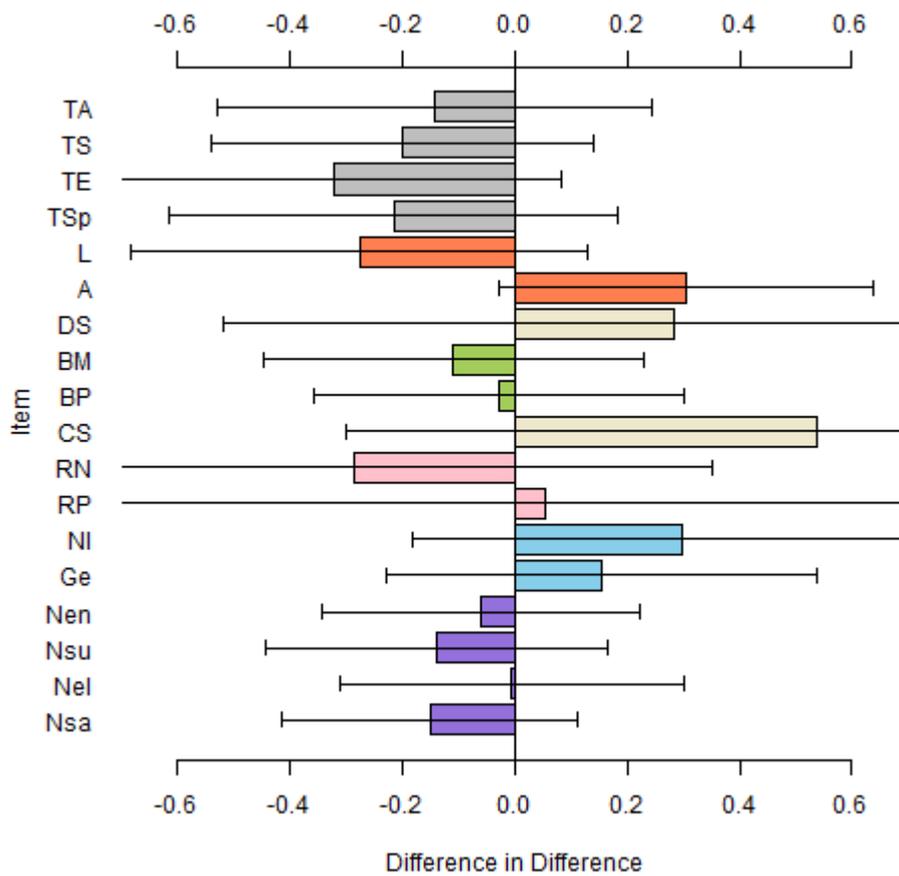


図 28 タイプ1とタイプ2の各指標の変化量の差

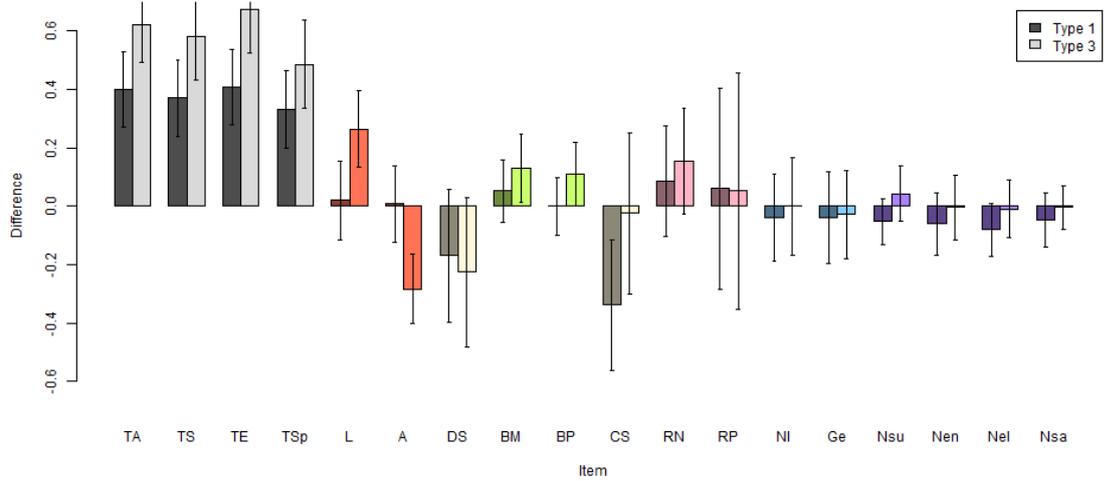


図 29 タイプ 3 とタイプ 4 の各指標の変化量の差

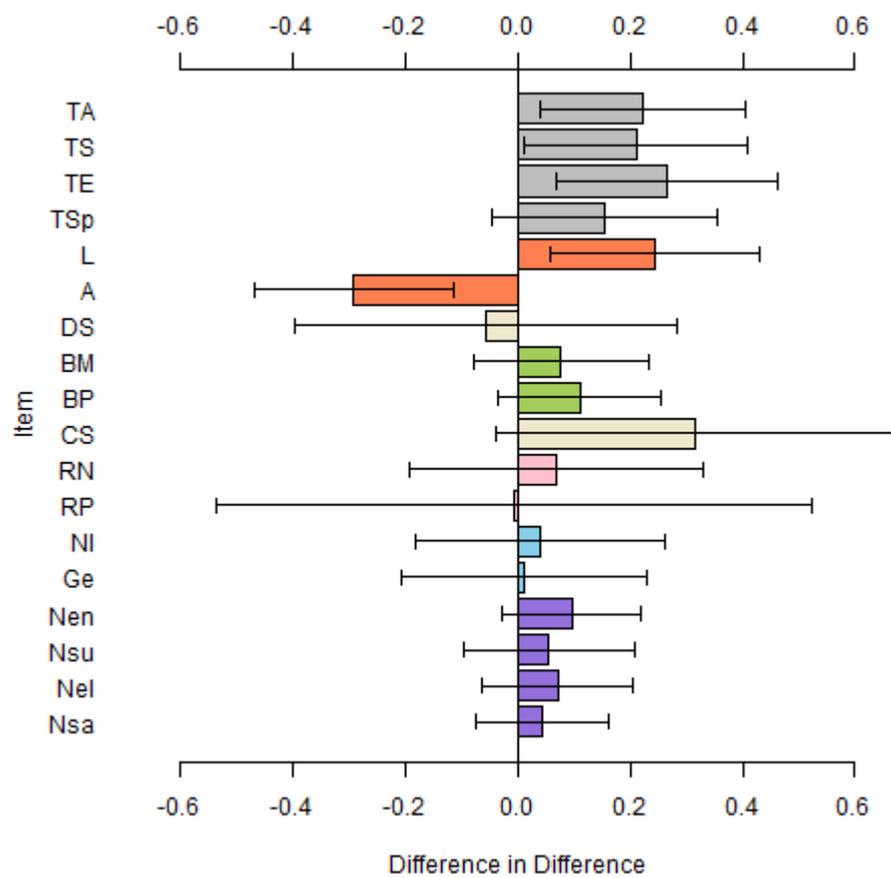


図 30 タイプ 1 とタイプ 3 の各指標の変化量の差

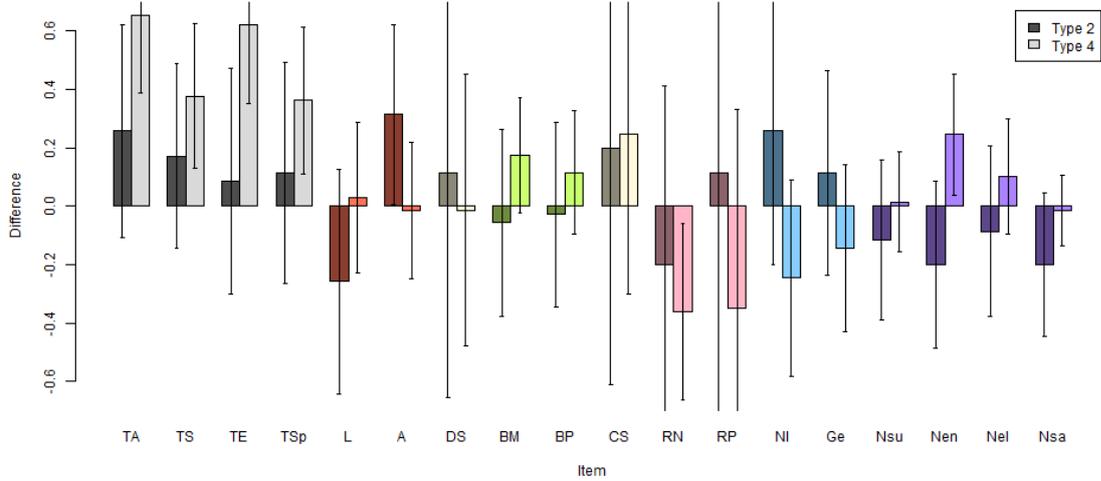


図 31 タイプ 2 とタイプ 4 の各指標の変化量

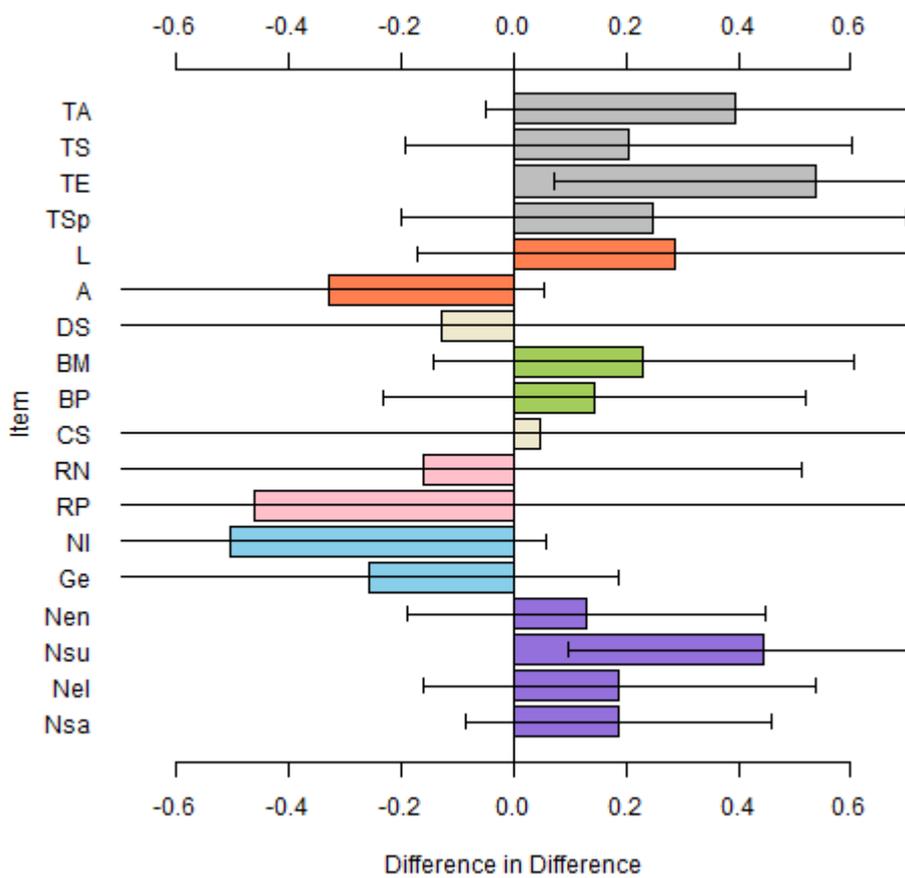


図 32 タイプ 2 とタイプ 4 の各指標の変化量の差

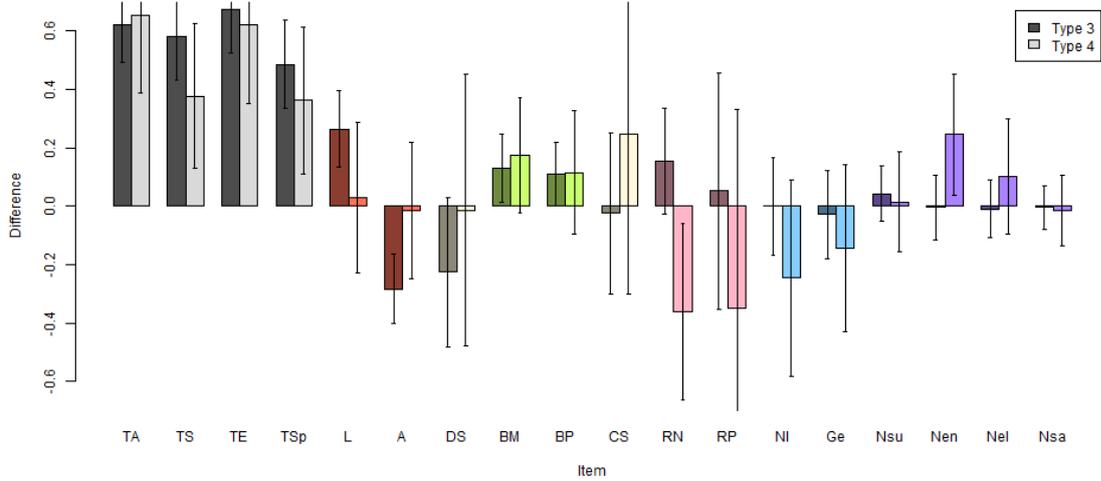


図 33 タイプ 3 とタイプ 4 の各指標の変化量

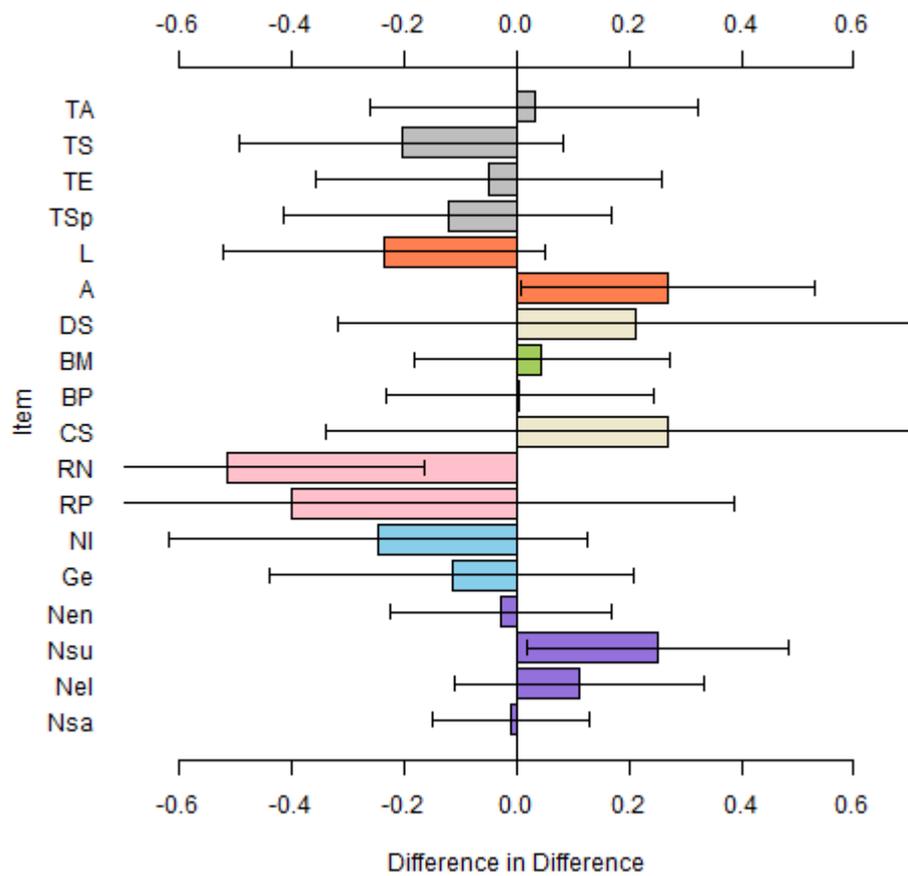


図 34 タイプ 3 とタイプ 4 の各指標の変化量の差

まず、4つのタイプごとのマップ閲覧前後において、どのような態度変化が見られたかを整理した。タイプ1のグループの回答者において、マップ閲覧前後で統計的に有意な差が見られた項目（対応あり t 検定、有意水準 5%）は以下の項目であった。

- ・ 信頼 4 項目（行政、科学者、技術者、専門家集団）
- ・ 補償主体はどの範囲か

タイプ2のグループの回答者において、マップ公表前後で統計的に有意な差が見られた項目（対応あり t 検定、有意水準 5%）は以下の項目であった。

- ・ 最終処分施設が仮に建設される場合に受容するか

タイプ3のグループの回答者において、マップ公表前後で統計的に有意な差が見られた項目（対応あり t 検定、有意水準 5%）は以下の項目であった。

- ・ 信頼 4 項目（行政、科学者、技術者、専門家集団）
- ・ 仮に自治体が文献調査に立候補した場合支持するか
- ・ 最終処分施設が仮に建設される場合に受容するか
- ・ 便益認知 2 項目（自治体の発展、一人ひとりの生活向上）

タイプ4のグループの回答者において、マップ公表前後で統計的に有意な差が見られた項目（対応あり t 検定、有意水準 5%）は以下の項目であった。

- ・ 信頼 4 項目（行政、科学者、技術者、専門家集団）
- ・ リスク認知—何人が被災するか
- ・ 原子力発電の経済性を認めるか

「変化量の差」を考えた際に、タイプ1とタイプ2の間で統計的に有意な差が見られた項目は存在しなかった。

タイプ1とタイプ3の間で統計的に有意な差が見られた項目（対応なし t 検定、有意水準 5%）は以下の項目であった

- ・ 信頼 3 項目（行政、科学者、技術者）
- ・ 仮に自治体が文献調査に立候補した場合支持するか
- ・ 最終処分施設が仮に建設される場合に受容するか

タイプ2とタイプ4の間で統計的に有意な差が見られた項目（対応なし t 検定、有意水準 5%）は以下の項目であった

- ・ 技術者への信頼
- ・ 原子力発電の経済性を認めるか

タイプ3とタイプ4の間で統計的に有意な差が見られた項目（対応なしt検定、有意水準5%）は以下の項目であった

- ・ 最終処分施設が仮に建設される場合に受容するか
- ・ リスク認知－何人が被災するか
- ・ 原子力発電の経済性を認めるか

以上の結果から2点考察する。

まず、タイプ1とタイプ3のグループ間の比較の解釈についてである。信頼や文献調査の支持度、最終処分施設への受容態度がタイプ3でより減少している。これは、予想に反して適性区分内に入った人の方が、最初から入ると思っていた人と比較して、より信頼が低下するし、文献調査への支持度や受容度もより低下するということである。このように予想と現実の間にギャップが存在する場合、適性区分内であるという条件が同じであっても、文献調査への支持度や受容態度が異なることが分かった。

そのメカニズムとして、予想が裏切られたことによって生じる感情が信頼や受容態度を低下させたことが考えられる。また、予想で適性区分内と考えていた人は十分設問の意味を解釈した傾向があった一方で、適性区分外と答えた人は十分設問の意図を解釈せずに、自分の自治体に処分場が来てほしくないという感情のもとで選択肢を検討した傾向があると考えられる。これは、予想段階における適性区分内/外の回答の傾向と精緻化見込みモデルの中心的/周辺のルートが対応していると解釈することもできる。

2点目は、タイプ2とタイプ4の比較である。技術者の信頼がタイプ4でより低下している。統計的に有意でないものの、技術者以外の信頼3項目や、文献調査への支持度や受容態度もタイプ4でより減少している。これは、予想通り適性区分外だった人は、予想に反して適性区分外であった人と比較して信頼がより低下し、文献調査の支持度や受容態度もより低下するだろうことが予想できるということである。

このメカニズムも前述のように、アンケートを通して生まれた感情と回答者の性質によって説明することが出来る。まず、アンケートを通して生まれた感情については、適性区分内に入っていると予想していたにも関わらず、実際は入っていなかったことによって生じる感情が信頼などの変化量を減少させたと推測される。また前述したとおり、回答者の性質は、予想段階における適性区分内/外が中心的/周辺のルートに対応していると考えることができ、周辺のルートの人々の信頼が低下しやすい傾向がこのような結果を導いたと考えられる。

以上より、予想段階で適性区分外であると答えた回答者は半数近くおり、かつ感情的な判断をしている可能性が示唆された。また、適性区分内/外の予想と現実で場合分けをして、傾向の違いを調べると、さまざまな差異があるので、実際に政策を進める上で、留意しなければならない。

### 1.2.7. 分析のまとめ

行った分析を概観する。まず、適性区分への近接性に注目した分析では、適性区分への近接性

ごとに5つのカテゴリーに分けて、文献調査への支持度、最終処分場建設への受容態度やその他の指標との関係性を分析した。そこで、近接性と各指標への明確な相関は見いだせなかったが、近接性に依らず調査の前後で、信頼が低下したことが分かった。また自宅は適性区分に含まれていないが、自宅のある自治体が適性区分に含まれている人々は、自宅も適性区分に含まれている人々と比較して便益認知が高く、受け入れに対して比較的肯定的な態度が形成されやすい人々である可能性が示唆された。

第二に、5つのカテゴリーの中でも、カテゴリー1（自宅が適性区分に含まれる場合）とカテゴリー5（隣接する市町村も適性区分に含まれない場合）を重点的に比較した。その結果、適性区分内（カテゴリー1）において、意思決定・補償受け取りの主体が狭い範囲になるような傾向が判明し、自宅が適性区分内にあるカテゴリー1の人は、より意思決定と補償の一人当たりの権利が大きくなるように志向する可能性が示唆された。

第三に、これまでの被験者が自ら地図を確認して答えたアンケート項目を参考にするという主観的な近接性・適性区分内/外ではなく、被験者の市区町村のデータを用いた客観的な近接性・適性区分内/外ごとに被験者を分けて分析した。その結果、主観的な適性区分内/外と概ね整合的な結果が得られた。

第四に、客観的な近接性と主観的な近接性との整合性に注目することで、回答の正確性を考慮し、それが各質問項目にどのような影響を与えたかを分析した。その結果、正確な回答をしたグループよりも不正確な回答をしたグループの方が文献調査の支持度や受容態度が低下したことが分かった。そしてその理由として、正確な回答をした人びとは中心的ルートの態度形成をする傾向があり、また不正確な回答をする人びとは周辺のルートの態度形成をする傾向があり、周辺のルートの人々は感情的理由で、情報提供そのものが文献調査への支持度や最終処分施設の受容度の低下の原因となることが推測された。

第五に、被験者の主観的な認識の変化の各指標への影響を分析した。この分析では、科学的特性マップを観る前の段階で、適性区分に入る可能性が高いと考えていた人と低いと考えていた人に分け、さらにその人が実際に適性区分に入ったかどうかで分けることで、計4グループに分けて、その4グループごとの各指標の差を比較した。その結果、いくつかのグループ間で変化量の違いが観察された。そして、その傾向の原因として、予想と実際に差があった場合に生じる感情（予想：適性区分内→実際：適性区分外ならばプラスの感情で予想：適性区分外→実際：適性区分内ならばマイナスの感情）や予想段階における適性区分内/外の回答がその人の特性（適性区分内を回答する人は中心的ルートの傾向があり、適性区分外であると回答する人は周辺のルートの傾向がある）を強く反映していることが推測された。

表 7 1.2 「科学的特性マップ」公表による影響の分析のまとめ

分析タイトル	グループ分けの基準	グループ	時間変化	グループ間の差の差	結果と考察（重複したものは省略する。）
適性区分への近接性に注目した分析	自宅と適性区分地域との近接性	1(最近) 2 3 4 5(最遠)	・グループに依らず、信頼が減少	・カテゴリー2で便益認知の減少の度合いが小さい	・信頼の低下は、近接性に依るかは分からないが、とにかく前後で低下してしまった。 ・同じ自治体の中でも、カテゴリー2の人は、相対的に肯定的な態度をとる可能性
最も近接している地域と最も近接していない地域との差に注目した分析	自宅が適性区分内に含まれるかどうか	内	・信頼の減少 ・意思決定、補償主体範囲の縮小 ・文献調査の支持度、受容度の減少	・適性区分内で、リスク認知一人数の値の変化が大きく、より多くの人被災するという認知	・適性区分内の人は、特性マップの公表によって、意思決定や補償主体の範囲が狭くなることを志向するようになった。またその程度が、適性区分外の人と比較しても大きい。
		外	・信頼の減少 ・文献調査の支持度  ・原子力の安全性認知の向上		
客観的な適性区分内/外であることの影響分析	自宅が客観的に適性区分内に含まれるかどうか	内	・信頼の減少 ・意思決定主体範囲の縮小 ・文献調査の支持度、受容度の減少 ・原発の安全性認知、環境性の価値評価の向上	・適性区分内で、補償主体の範囲がより小さくなるよう変化 ・原発の環境性への評価が適性区分内がより高くなるよう変化	（・主観的な適性区分内/外と概ね同様の結果となった）
		外	・信頼の減少		

回答の正確性に注目した分析	適性区分内に含まれるかどうかという質問への回答が正確かどうか	正確	<ul style="list-style-type: none"> <li>・信頼の減少</li> <li>・文献調査の支持度、受容度の減少</li> <li>・意思決定主体の範囲の縮小</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・正確な回答をしたグループの方が文献調査の支持度の減少の度合いが小さい。</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・アンケート調査に対して正確な回答をする傾向のある人はマップ閲覧を通して相対的に文献調査の支持度や受容態度への影響を受けづらい</li> </ul>
		不正確	<ul style="list-style-type: none"> <li>・信頼の減少</li> <li>・文献調査の支持度、受容度の減少</li> <li>・リスクー可能性の増加</li> <li>・原発の安全性の価値評価の向上</li> </ul>		
態度認識の変化に注目した分析	態度認識がどのように遷移したか	In → in	<ul style="list-style-type: none"> <li>・信頼の減少</li> <li>・補償主体範囲の縮小</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・In→in より Out→in の方が信頼文献調査の支持度、受容度の減少幅が大きい。</li> <li>・In→out よりも、Out→out の方が技術者への信頼と経済性認知がより低下</li> <li>・Out→In よりも Out→out の方が受容度の減少の程度が小さく、被害を受ける人数の認知が上昇し、原子力発電所の経済性への認知が減少した。</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・予想に反して適性区分内に入った人の方が、最初から入ると思っていた人と比較して、より信頼が低下するし、文献調査への支持度や受容度もより低下する</li> <li>・予想通り適性区分外だった人は、予想に反して適性区分外であった人と比較して信頼がより低下する</li> <li>・予想段階において適性区分に入る可能性が低いと考えていた人々は高いと考えていた人々と比べて、より文献調査への支持度や最終処分施設の受容度が低下しやすい特性をもつ</li> </ul>
		In→out	<ul style="list-style-type: none"> <li>・受容度の増加</li> </ul>		
		Out →in	<ul style="list-style-type: none"> <li>・信頼の減少</li> <li>・文献調査の支持度、受容度の減少</li> <li>・便益認知の増加</li> </ul>		
		Out →out	<ul style="list-style-type: none"> <li>・信頼の減少</li> <li>・原発の経済性認知の低下</li> <li>・リスクー人数の減少</li> </ul>		

## 2. HLW 処分に関わる人々の態度についての社会心理学的分析①：パネルデータによる中長期的な態度の変遷に関する社会調査（平成 29 年度分）

本研究では、平成 22 年 2 月と平成 23 年 2 月、平成 24 年 2 月、平成 27 年 2 月、平成 28 年 2 月、平成 29 年 2 月に、一般の回答者に対してインターネットを用いたアンケート調査を実施してきた。これは、文献調査応募や地層処分施設受け入れに関する態度形成過程に影響を与える要因、信頼の規定因、平成 23 年 3 月の東日本大震災・福島第一原子力発電所事故の影響分析（平成 24 年の調査以降）、科学的特性マップ公表の影響分析（平成 28 年度以降）などについて、社会心理学的な分析を行うための調査である。

今年度も同様に、平成 29 年 12 月にインターネットを用いたアンケート調査を実施した。調査票は、本報告書別添の参考資料に示す通りである。この調査では、パネル回答者（平成 23 年 2 月以降、一度でも回答したサンプル）と新規回答者で合計サンプル数は 1066 人となった。

### 2.1. 単純集計の結果

以下、平成 29 年度に行った社会調査の単純集計結果を示す。

#### 【調査項目・単純集計結果】

以下に、調査で測定した項目とその単純集計を示す。行政機関（国・都道府県・市区町村）ごとに尋ねている場合は、条件ごとで差がみられるかどうか検討している。

#### ○回答者の属性

##### 性別

「あなたの性別をお選びください」

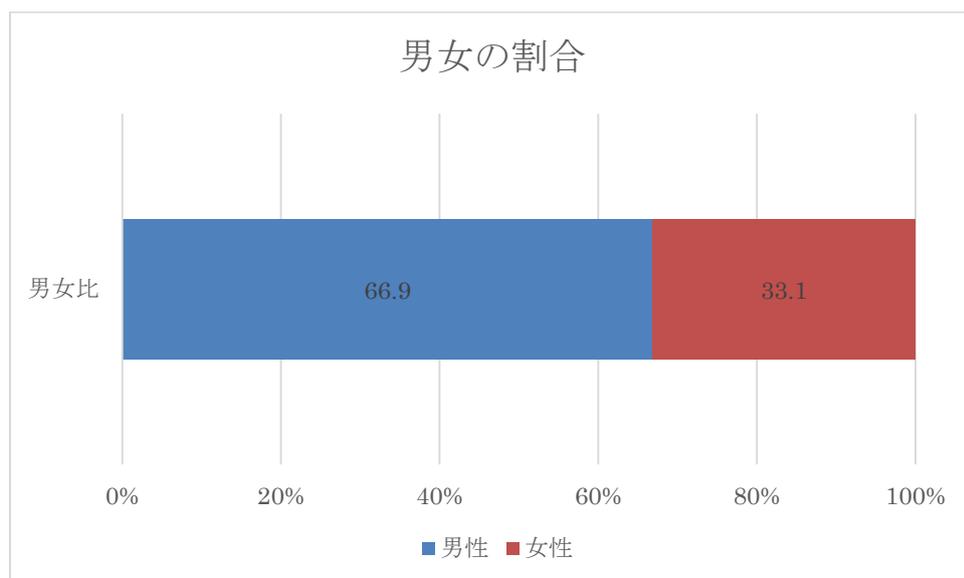


図 35 男女の割合の分布

## 年齢

「あなたの年齢をお知らせください」

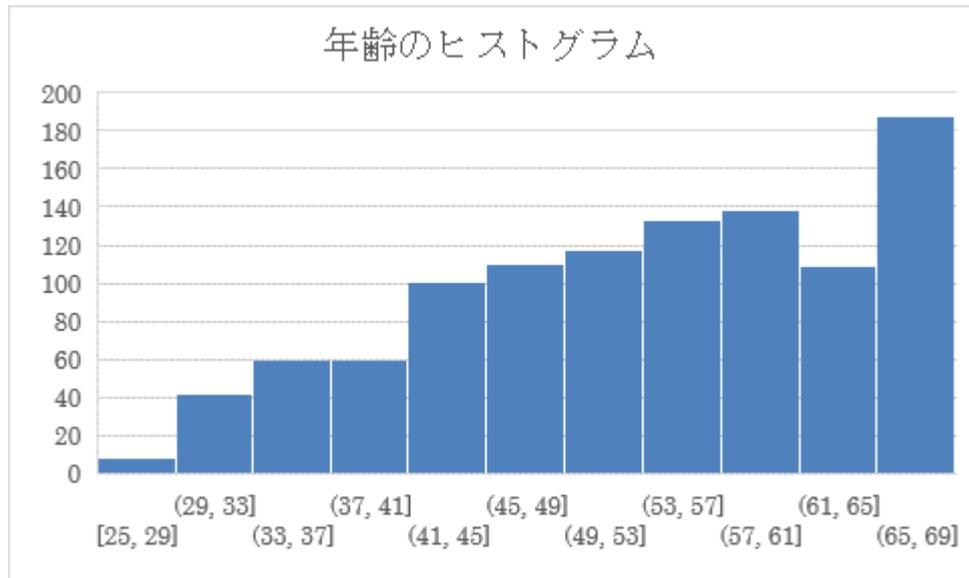


図 36 年齢のヒストグラム

## 居住年数

「あなたは現在の自治体（市区町村）に合計で何年お住まいですか。」

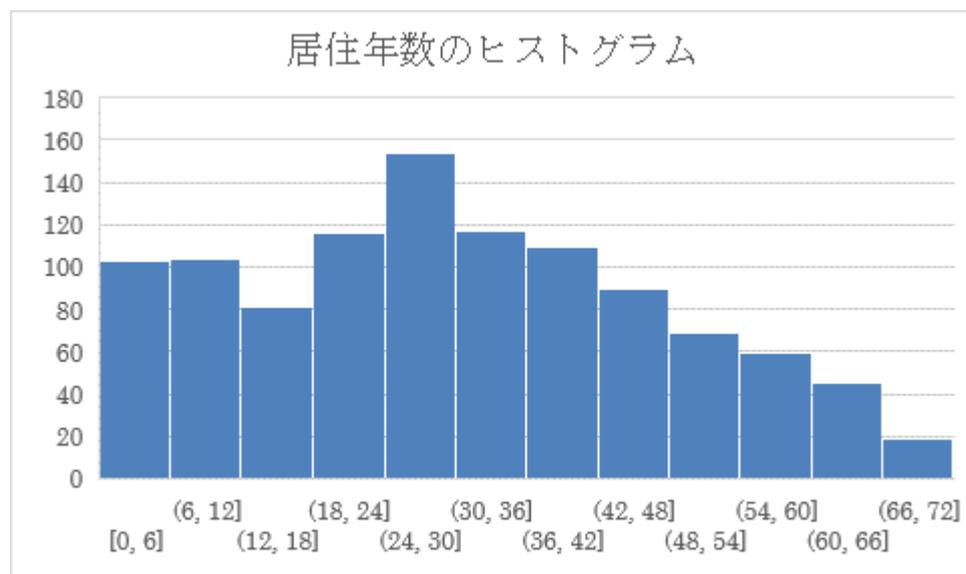


図 37 居住年数のヒストグラム

## 最終学歴

「あなたが最後に在籍した、または現在在学中の学校は次のどれですか。」

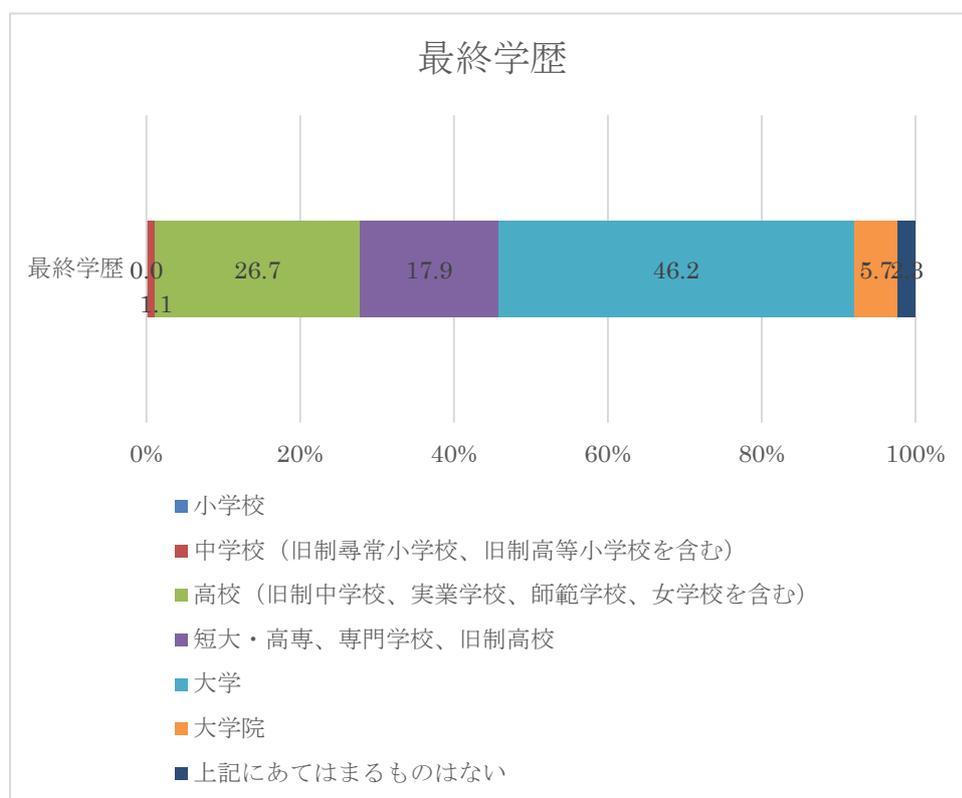


図 38 最終学歴の分布

## 結婚状態

「あなたは結婚されていますか」

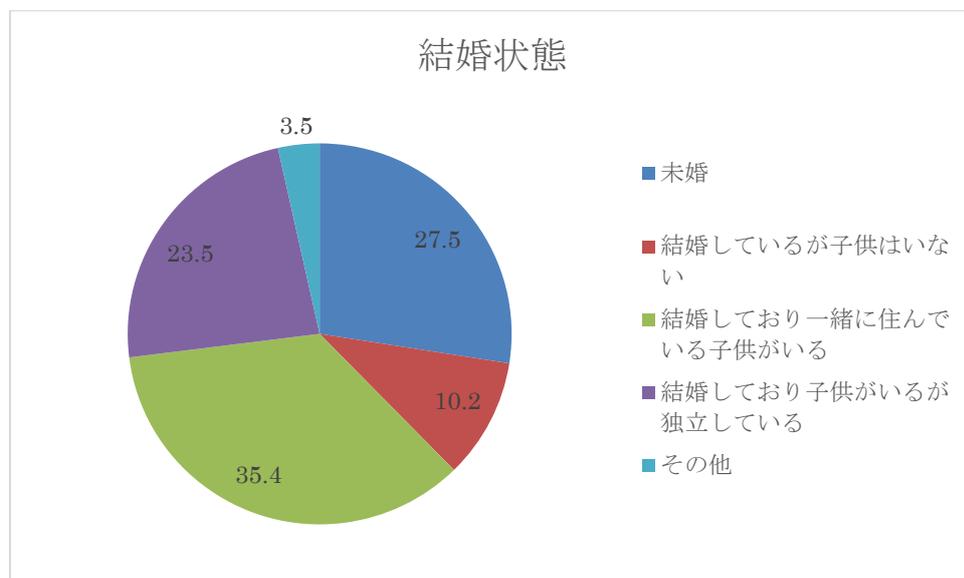


図 39 結婚状態の分布

## 年収

「去年（平成28年1月～12月）1年間のお宅の収入はご家族全部あわせると、およそどのくらいになりますか。ボーナスや臨時収入を含め、税込みでお答えください。」

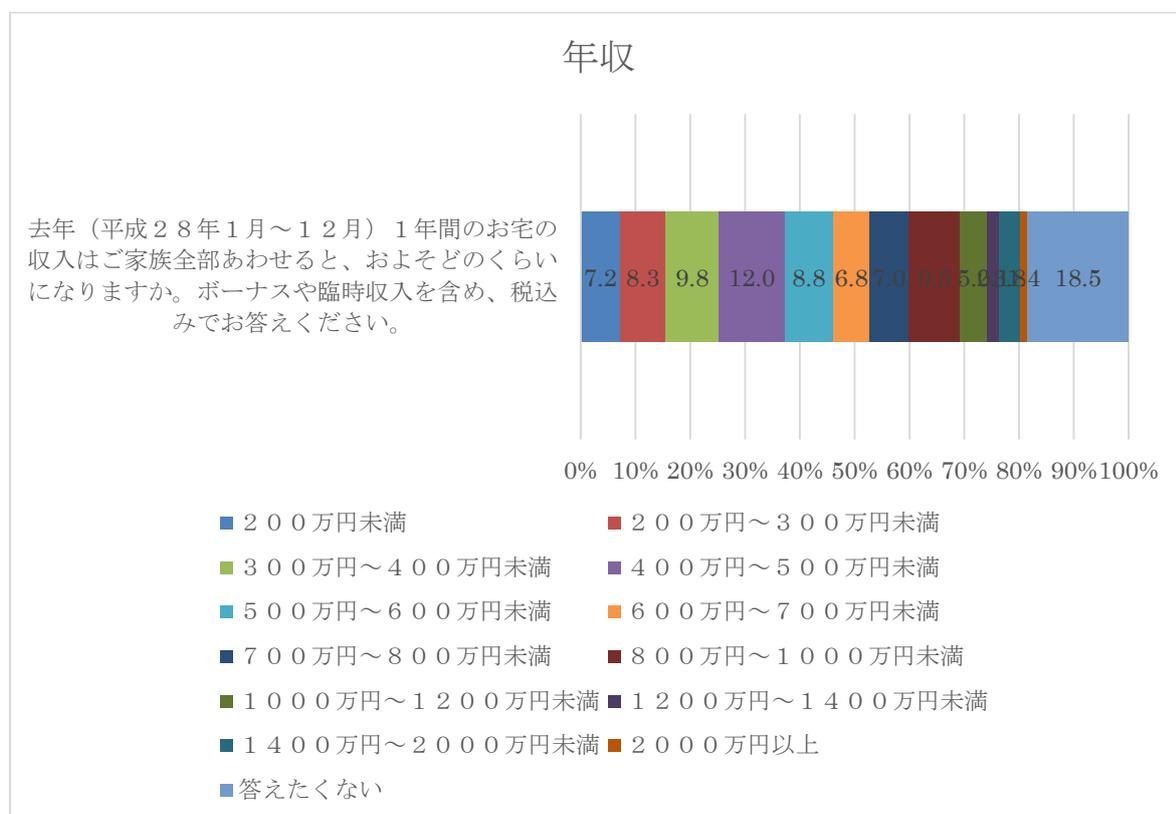


図 40 年収の分布

## 職業形態

「あなたの現在のお仕事についておうかがいたします。あなたはふだんどのような仕事をなさっていますか。あてはまるものをひとつお選び下さい。」

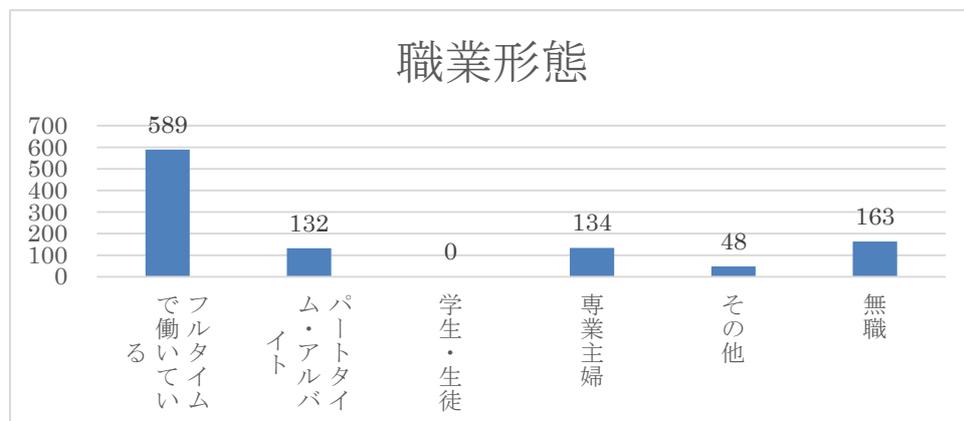


図 41 職業形態の分布

## 職種

「それでは、あなたの現在のお仕事について、最もその内容に近いものひとつをお選びください。」

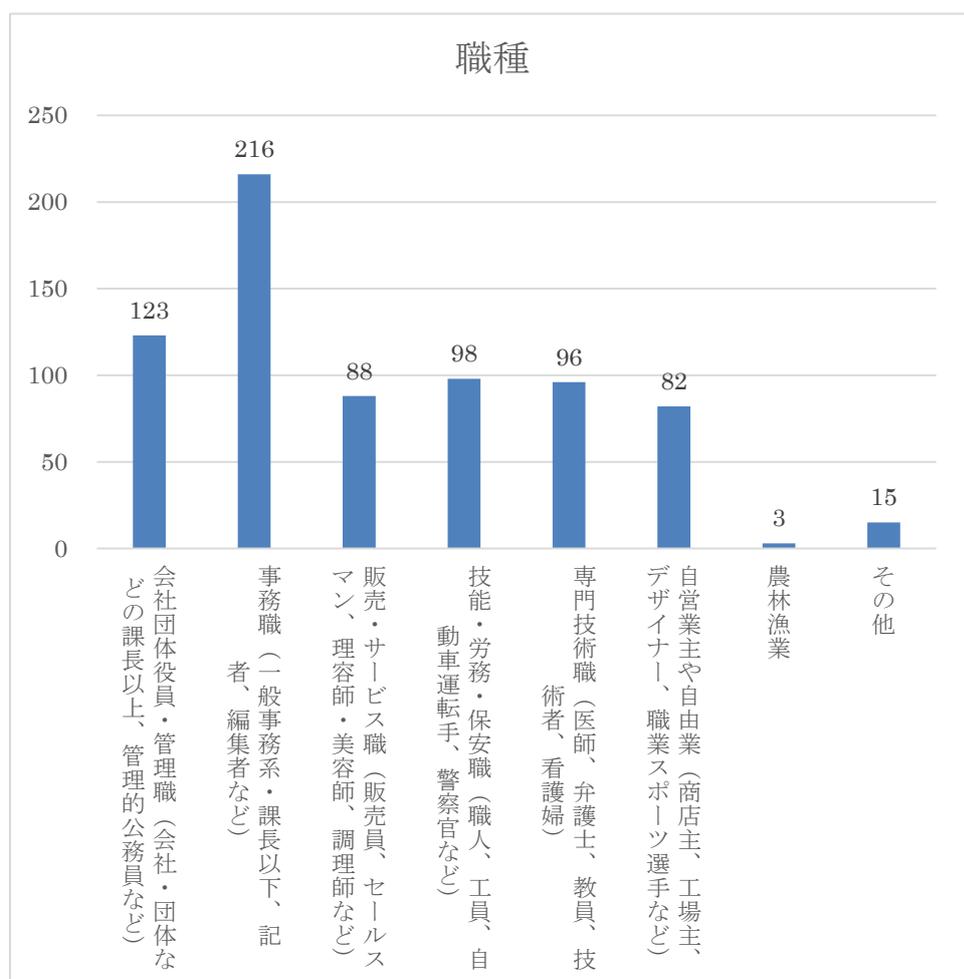


図 42 職種の分布

## ○行政への信頼

### 行政への信頼

「あなたは、国の行政機関はどの程度信頼できると思いますか。あてはまるものをひとつお選び下さい。」(1「信頼できる」～4「全く信頼できない」)

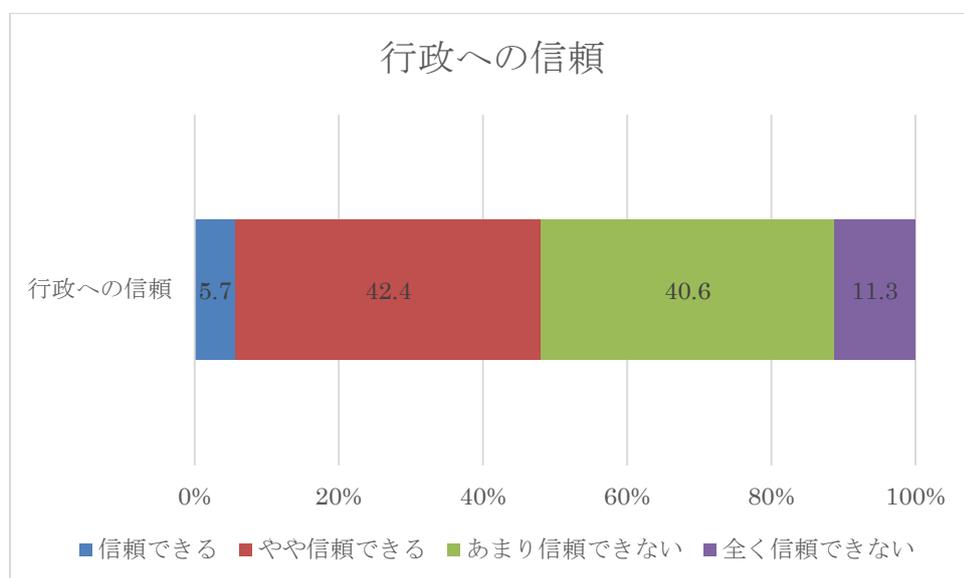


図 43 行政への信頼の分布

### 行政の職業倫理

「公務員としての誇りを持っている」「職員として安心できる人が働いている」の2項目によって測定した。(1「そう思う」～4「そう思わない」)

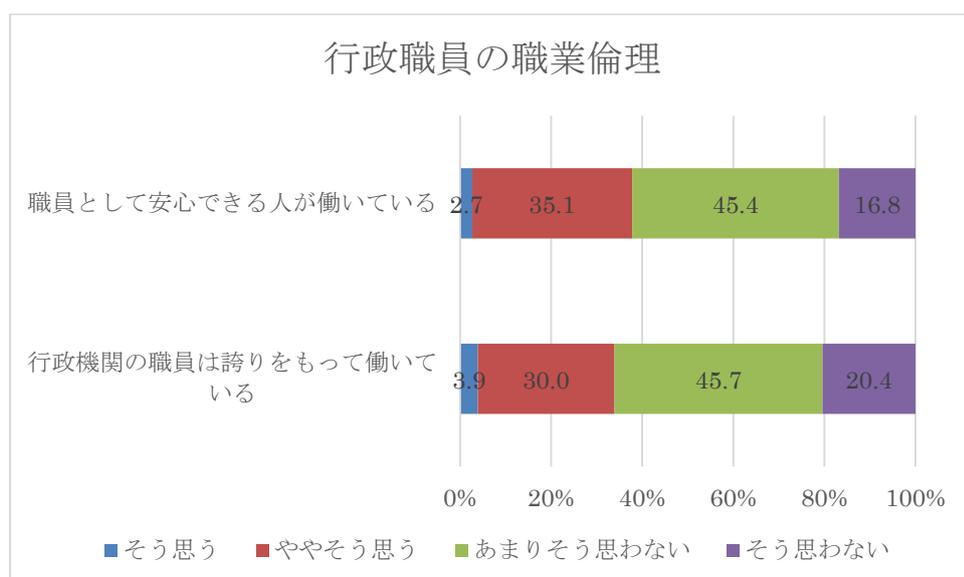


図 44 行政職員の職業倫理の分布

## 行政の公平性

「行政はあなたの地域の人たちを公平に扱っている」「行政はあなたのことを公平に扱っている」  
(1「そう思う」～4「そう思わない」)

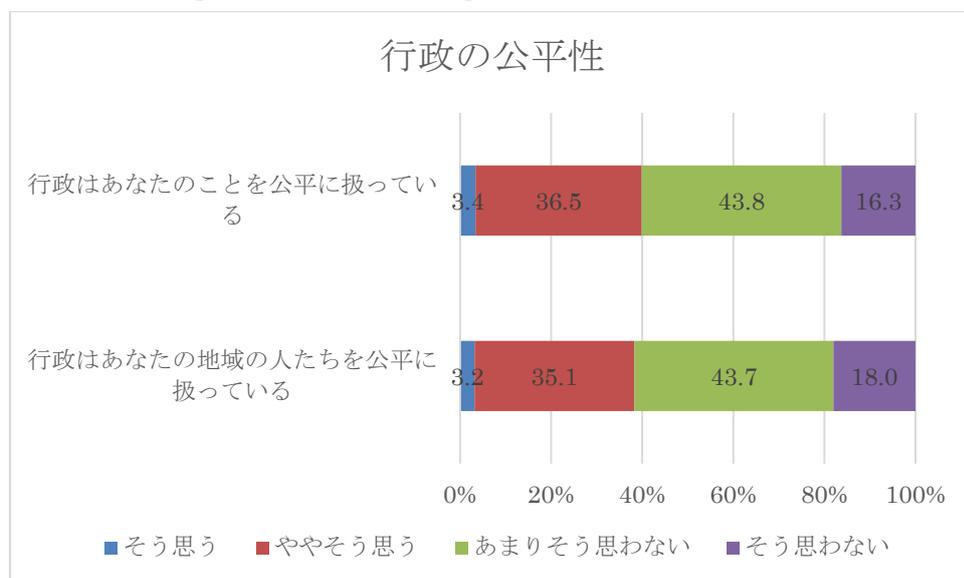


図 45 行政の公平性の分布

## 担当大臣・行政職員の能力

「行政の首長は、職務に関する十分な専門知識を持っている」「国の行政の職員は、職務に関する十分な専門知識を持っている」(1「そう思う」～4「そう思わない」)

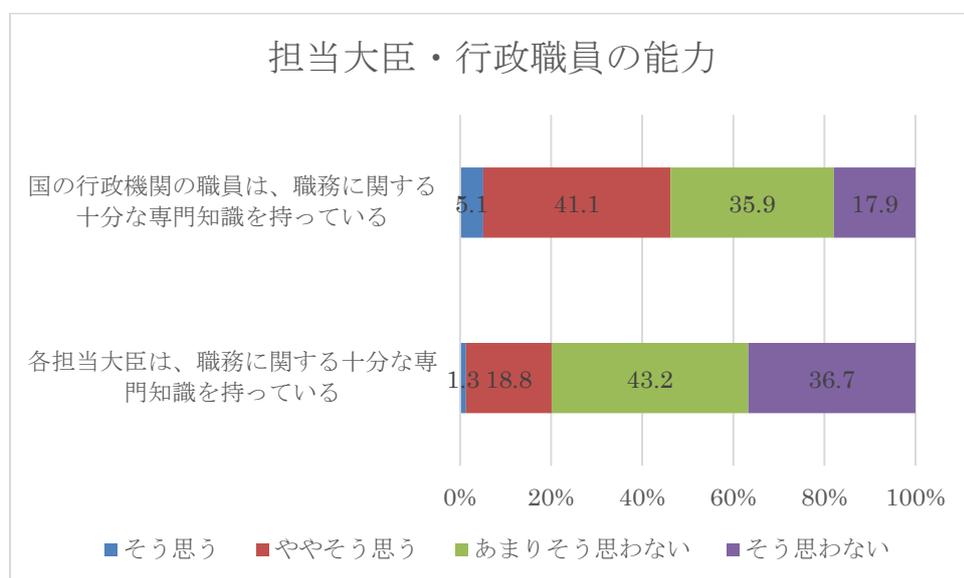


図 46 担当大臣・行政職員の能力の分布

## 行政の監視性

「行政に対する監視の目の届かないところが、たくさんある」「行政が問題を起こしても、市民の側にはそれを見抜く情報が入手できない」（1「そう思う」～4「そう思わない」）

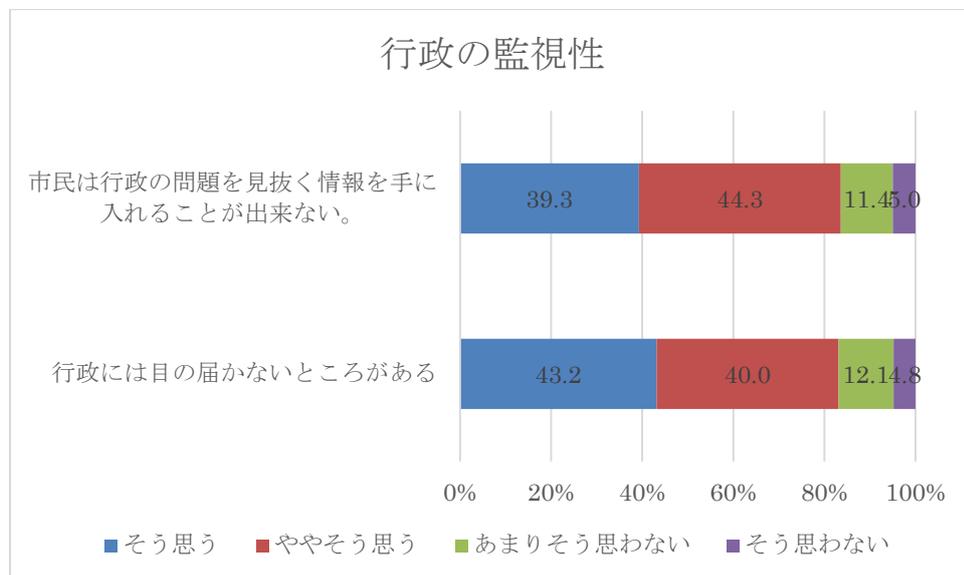


図 47 行政の監視性の分布

## 行政機関の透明性

「行政に対する苦情処理の情報を適切に公開している」、「行政の社会的責任の自己点検を適切に公表している」（1「そう思う」～4「そう思わない」）

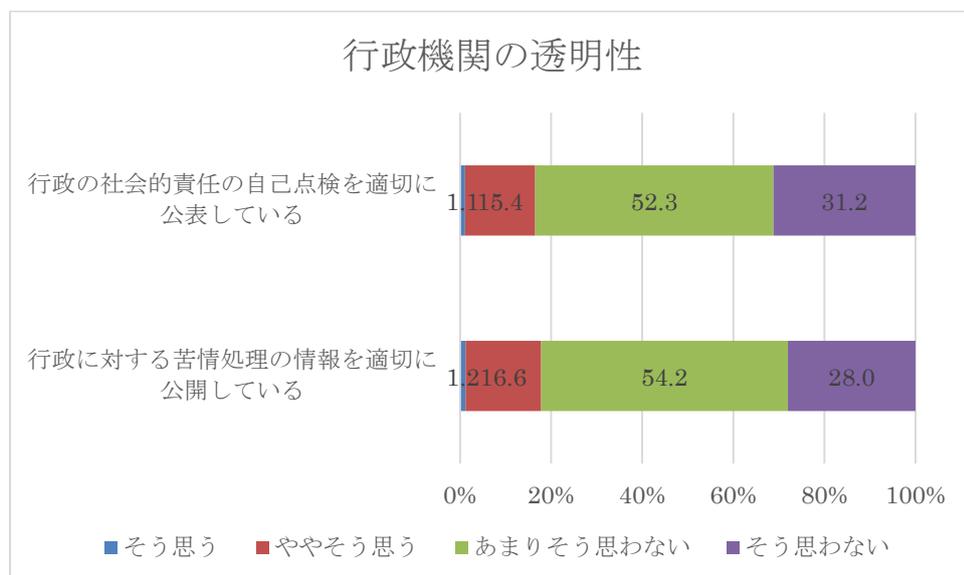


図 48 行政機関の透明性の分布

○住民の行政への関与能力認知

「行政機関での手続きは、あまりに複雑なので、自分にはよく理解できないことがある」、「自分には行政のすることに対して、それを左右する力はない」、「問題や苦情があるときでも、行政に言っても無駄だと思う」(1「そう思う」～4「そう思わない」)

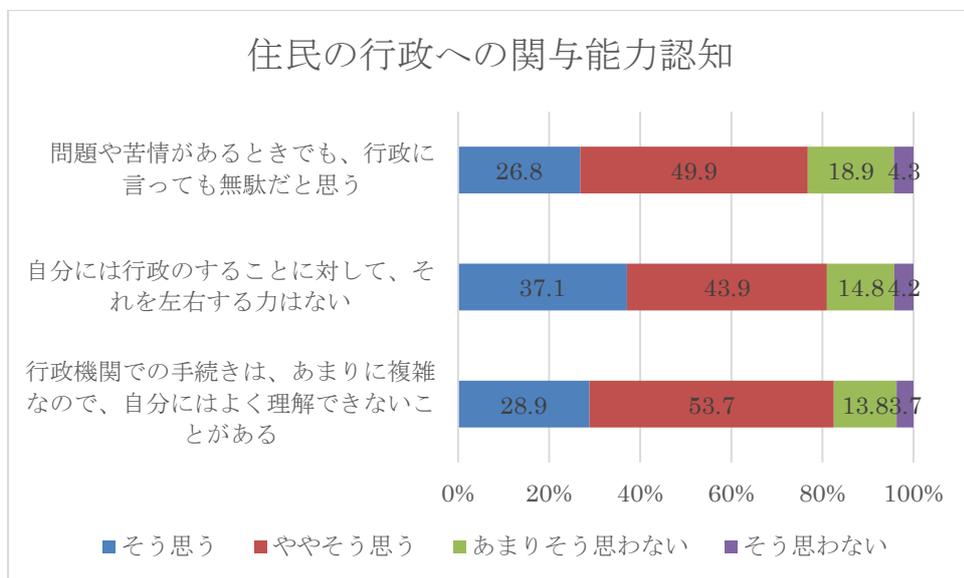


図 49 住民の行政への関与能力認知の分布

○科学者・技術者・専門化集団への信頼

「あなたは、科学者の話は信頼できると思いますか」、「あなたは、技術者の話は信頼できると思いますか」、「あなたは、学会などの専門家集団の話は信頼できると思いますか」(1「そう思う」～4「そう思わない」)

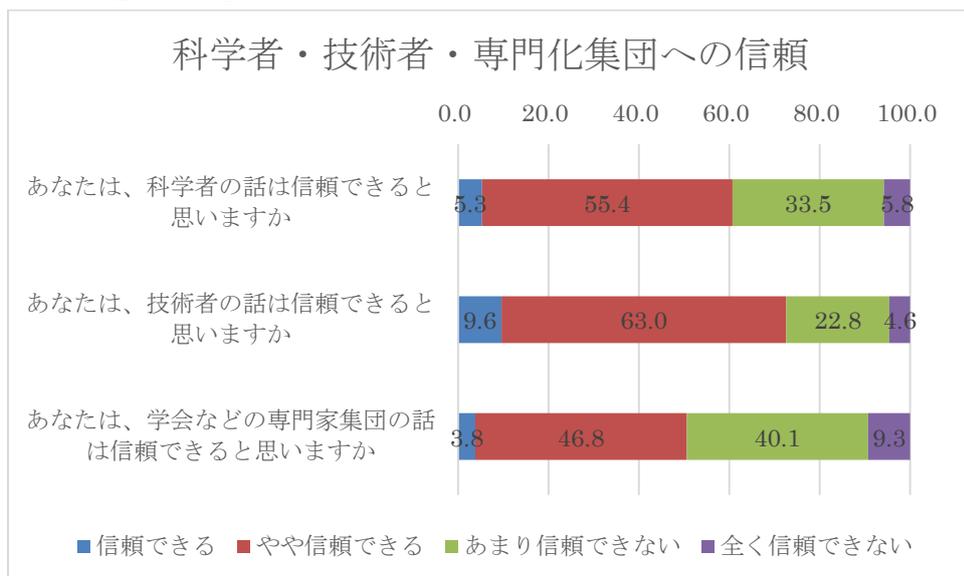


図 50 科学者・技術者・専門化集団への信頼の分布

○支持政党

「ふだんあなたは何党を支持していますか」

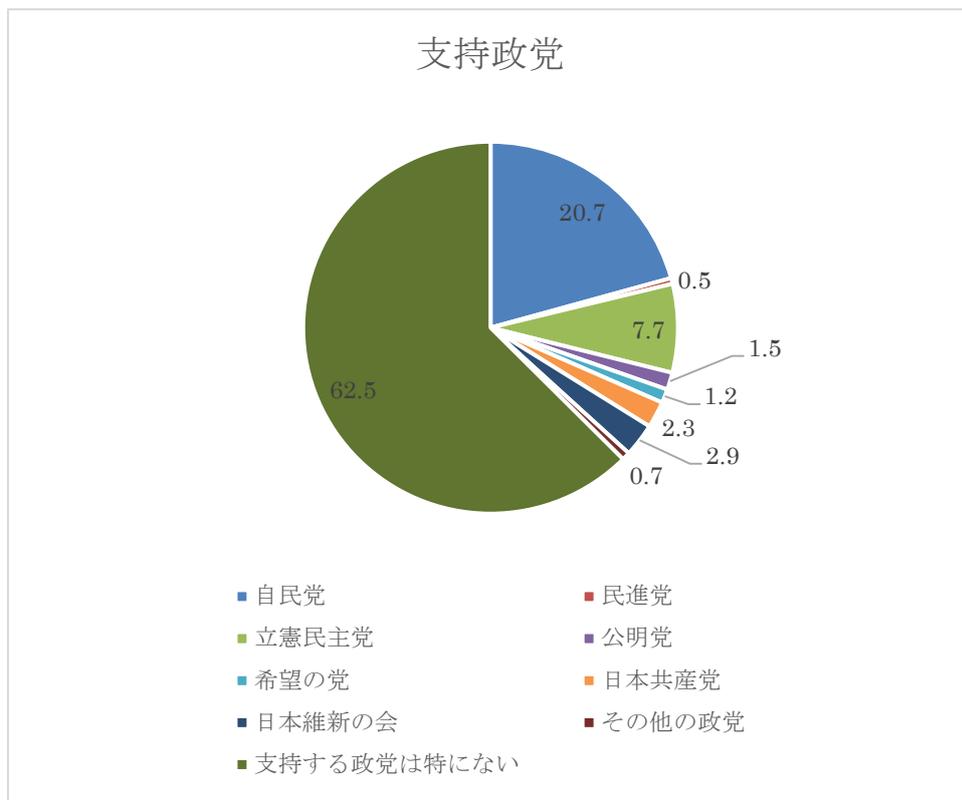


図 51 支持政党の分布

○高レベル放射性廃棄物処分施設誘致の文献調査への態度

「もしあなたのお住いの自治体が、高レベル放射性廃棄物処分施設誘致の文献調査に立候補した場合、あなた自身はそれを支持しますか」(1「支持する」～4「支持しない」の4件法)

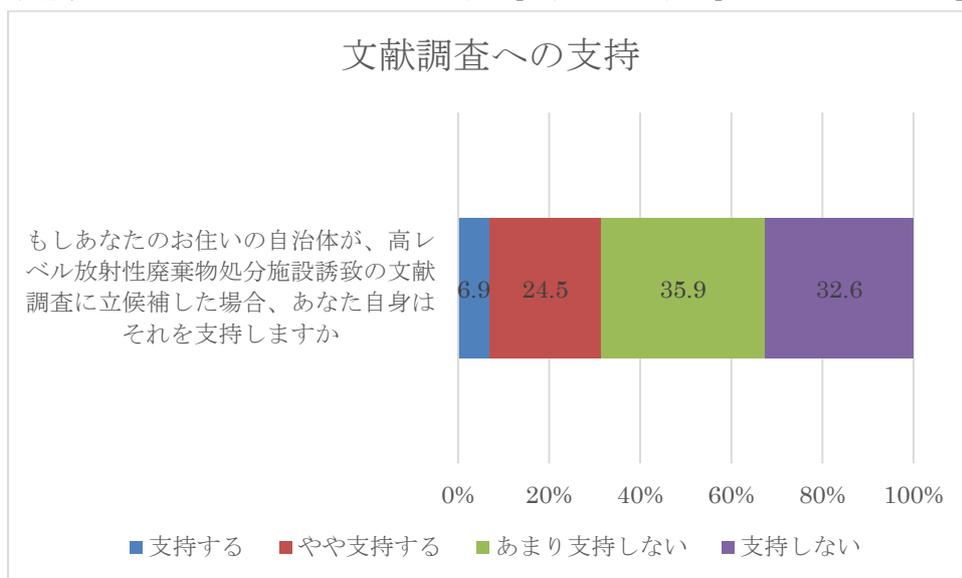


図 52 文献調査への支持の分布

○処分施設受け入れを意思決定する主体の範囲に関する認知

「高レベル放射性廃棄物の地層処分施設の建設について、最終的に受け入れの意思決定を行う主体の範囲は、次のうちどれが適切だと思いますか。もっともあてはまる数字ひとつに○をつけてください。」

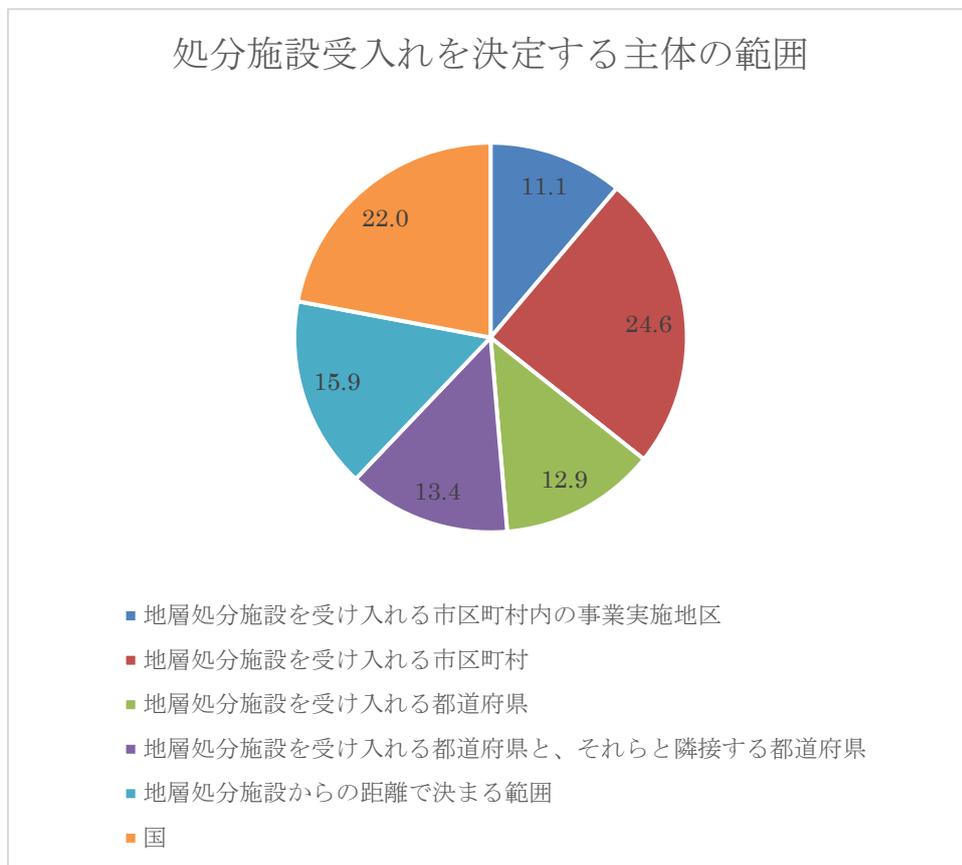


図 53 処分施設受け入れを決定する主体の範囲の分布

○応募に伴う交付金への態度

「応募に伴う交付金によって、自治体が発展する」「応募に伴う交付金によって、住民一人一人の生活が向上する」(1「全くそう思わない」～4「そう思う」の4件法)

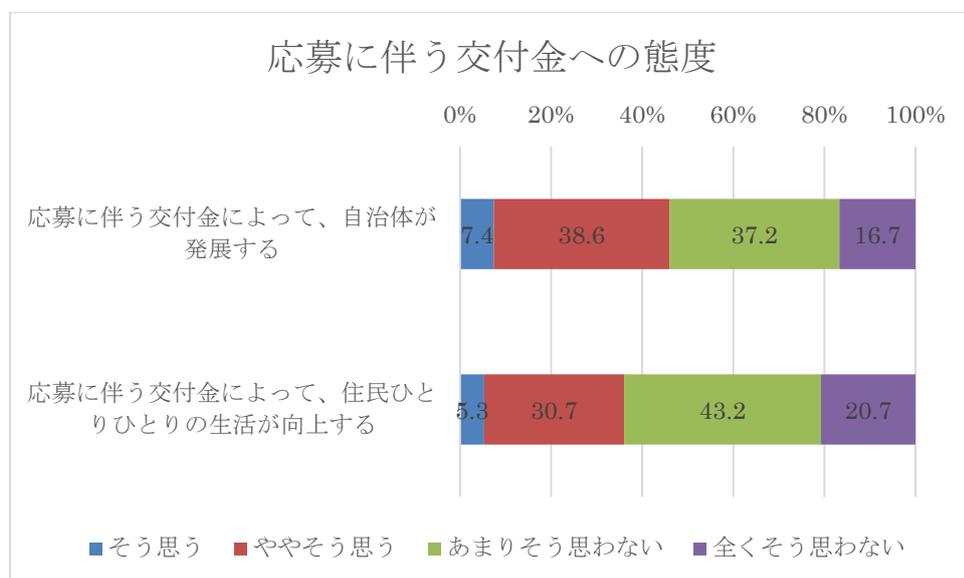


図 54 応募に伴う交付金への態度の分布

○補償方法に関する認知

「文献調査の実施に伴って交付される経済的支援として、自治体への交付金を含めて、以下の5つのオプションがあるとします。補償として最も望ましいと感じるものをひとつお選びください。」

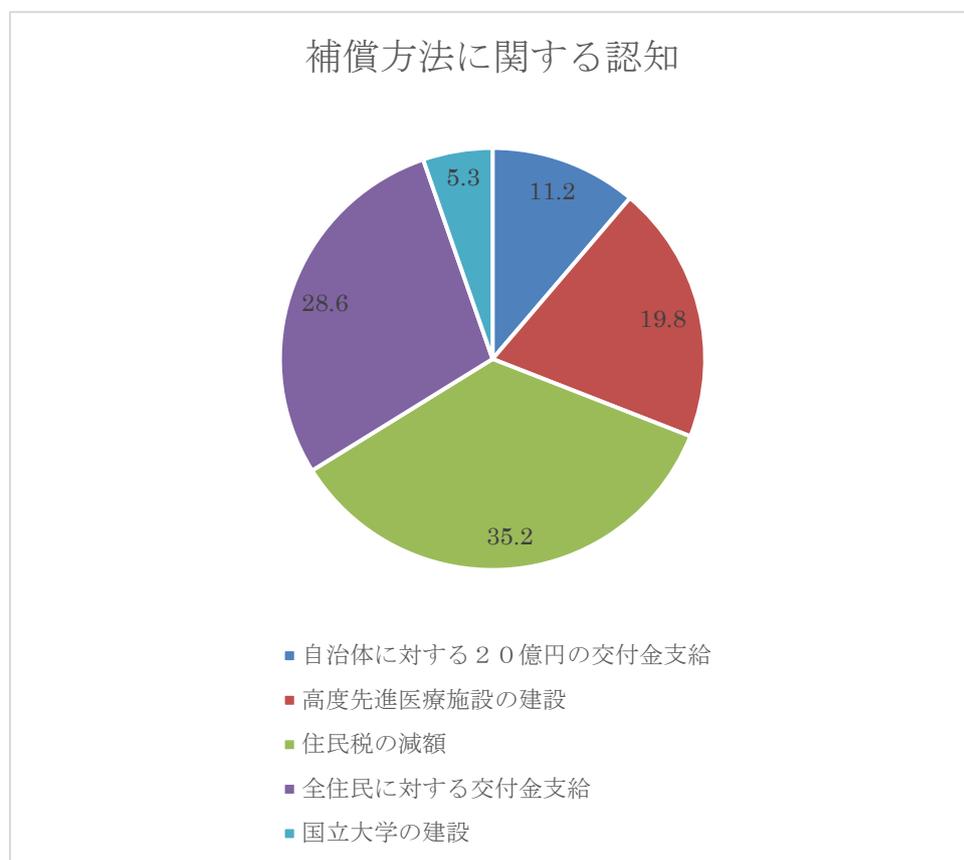


図 55 補償方法に関する認知の分布

○補償受け入れの範囲に関する認知

「高レベル放射性廃棄物の地層処分施設の建設について、最終的に補償を受けるべき主体の範囲は、次のうちどれが適切だと思いますか。もっともあてはまる数字ひとつに○をつけてください。」

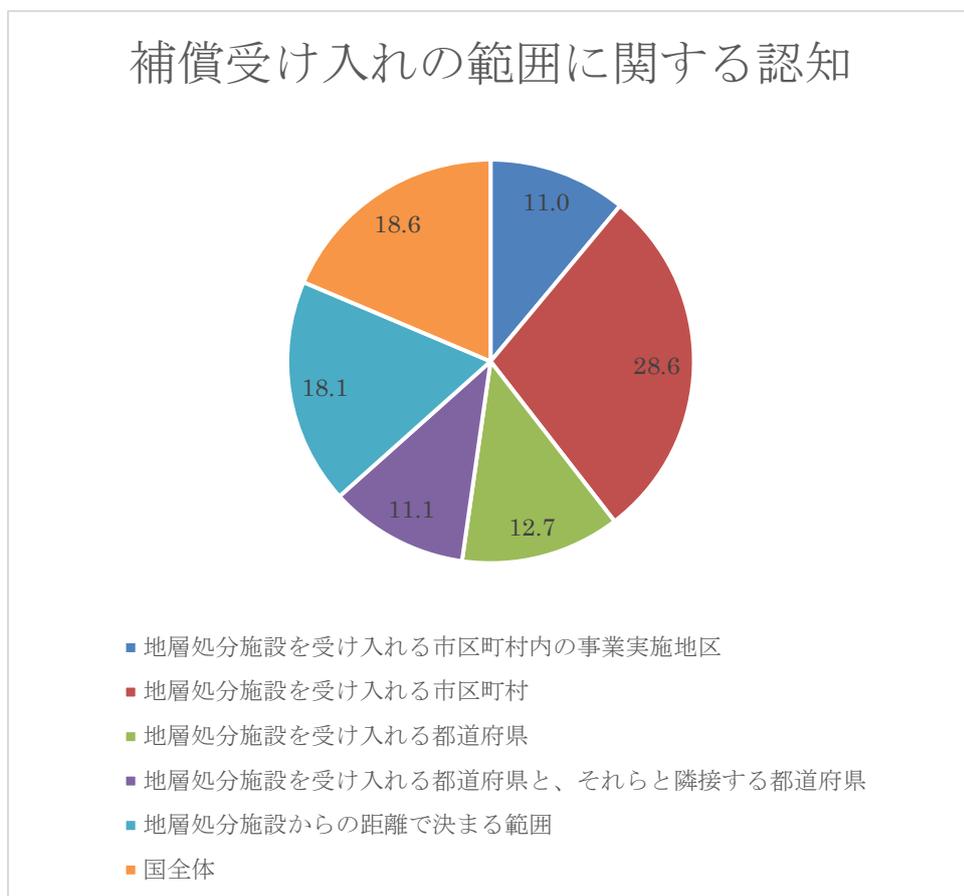


図 56 補償受け入れの範囲に関する認知の分布

○被害の大きさの見積もり

「高レベル放射性廃棄物の地層処分において事故が発生したとしたら、その際に直接的・間接的に被害を受ける人は何人いると思いますか」(1「0人」、2「1～9人」、3「10～99人」、4「100～1000人未満」、5「1000～1万人未満」、6「1万～10万人未満」、7「10万人以上」)

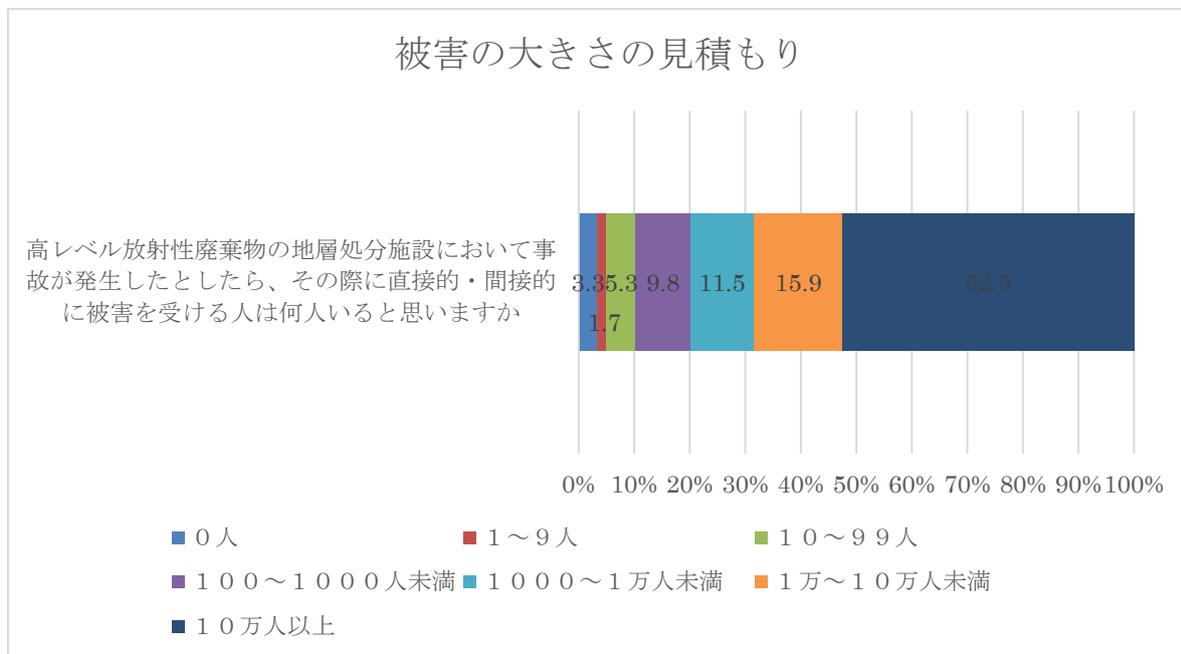


図 57 被害の大きさの見積もりの分布

○被害の生起確率の見積もり

「高レベル放射性廃棄物の地層処分施設の建設から20年以内に、放射能漏れなどの事故が起きる確率は何%ぐらいあると思いますか」(1「0%」～11「100%」までの10%刻みで測定)

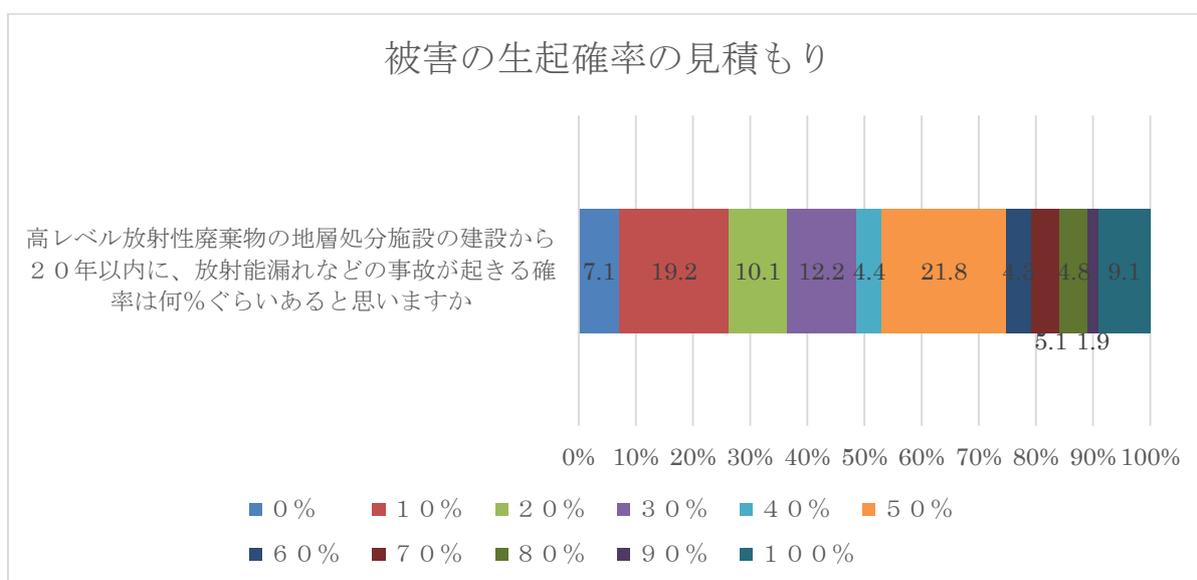


図 58 被害の生起確率の見積もりの分布

○高レベル放射性廃棄物の地層処分施設の受け入れ態度

「仮に、あなたのお住いの自治体に高レベル放射性廃棄物の地層処分施設が建設されると想定した場合、そのことについてどう思いますか」（1「絶対に受け入れたくない」～5「受け入れてもよい」の5件法）

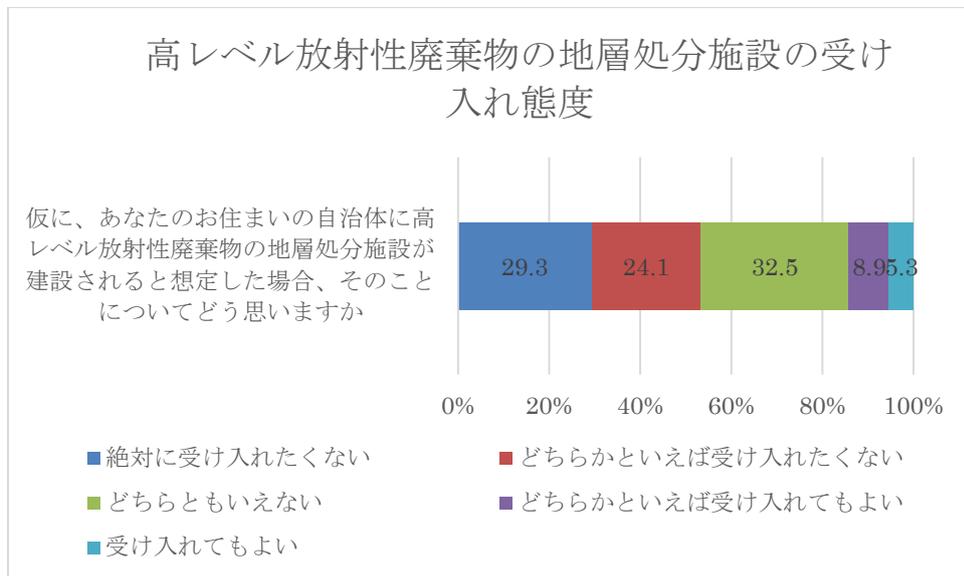


図 59 高レベル放射性廃棄物の地層処分施設の受け入れ態度の分布

○処分の場所

「あなたは、日本で生じた高レベル放射性廃棄物を国内で処分すべきだと思いますか」（1「国内で処分すべき」～5「国外で処分すべき」の5件法）

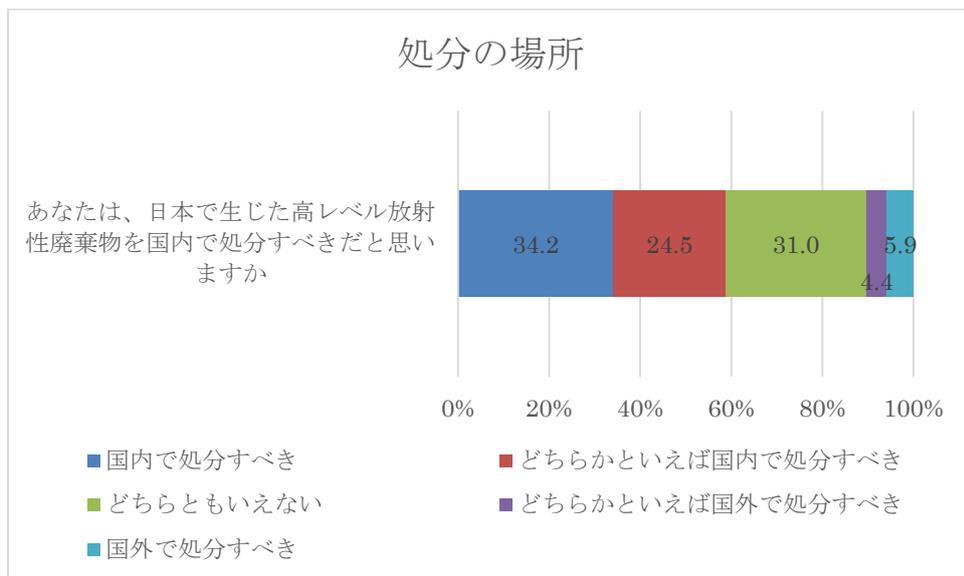


図 60 処分の場所の分布

### ○現世代での処分

「あなたは、すでに存在する高レベル放射性廃棄物の処分を、現世代が実施すべきだと思いますか」(1「実施すべきでない」～5「全くその通りだ」の5件法)

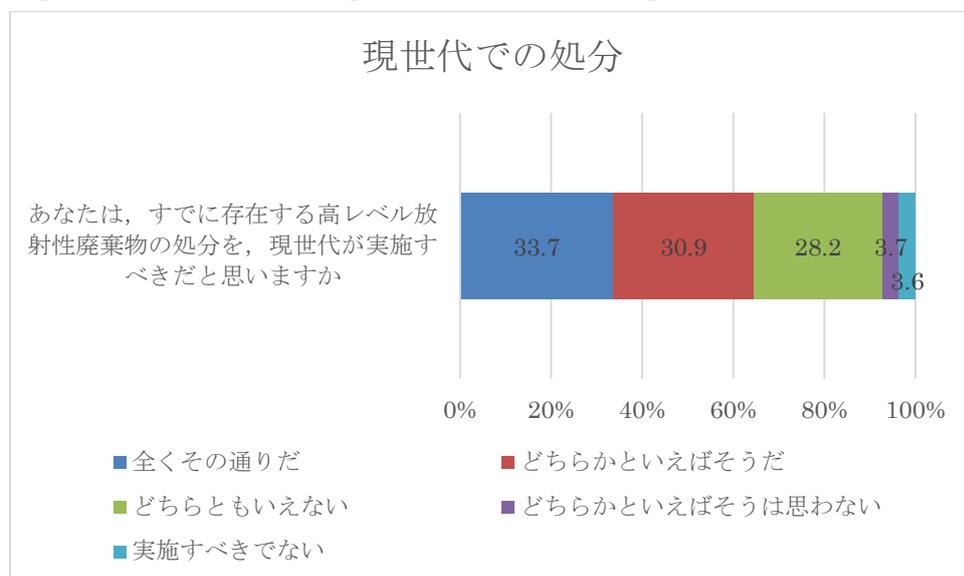


図 61 現世代での処分

○高レベル放射性廃棄物の処分が必要な理由

「高レベル放射性廃棄物の処分が必要な理由として、あなたが考えるものは以下のどれですか。あてはまるものをすべてお選び下さい。」

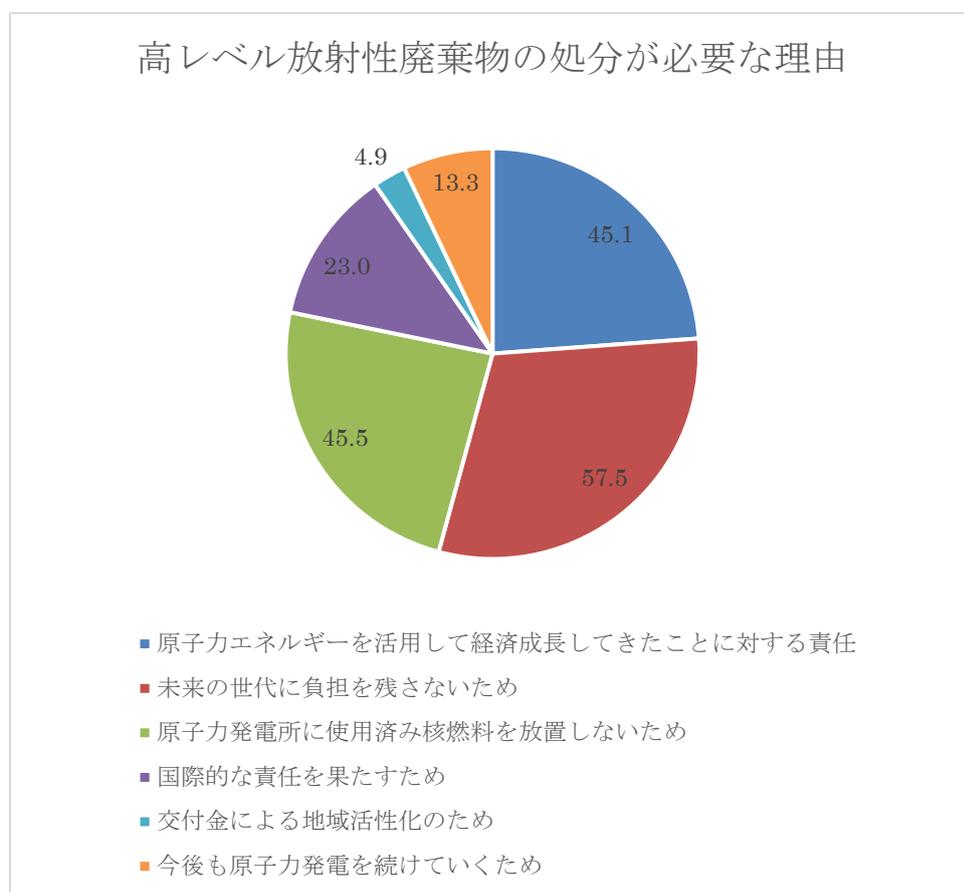


図 62 高レベル放射性廃棄物の処分が必要な理由の分布

### ○処分費用の負担方法

「次世代に高レベル放射性廃棄物処分に係る負担を残さないため、原子力発電の発電量に応じた金額を電力会社が積み立てており、私たちは電気料金の一部を通じて処分費用を負担しています。これによって昨年度までに積み立てられた資金は約1兆円です。この費用に関する以下の文章について、あなたはどのように思われますか。あてはまるものをひとつお選びください。／処分費用の負担方法は公平である」（1「全くそう思わない」～4「そう思う」の4件法）

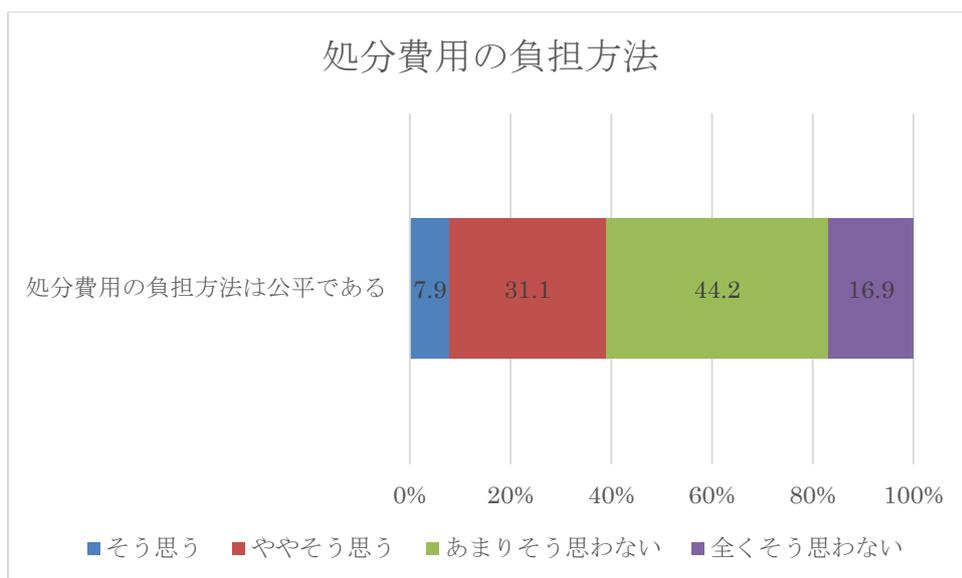


図 63 処分費用の負担方法の分布

### ○居住自治体での最終処分場建設可能性

「あなたがお住まいの市区町村に最終処分施設が建設される可能性はあると思いますか。あてはまるものをひとつお選び下さい。」（1、「はい」・2、「いいえ」）

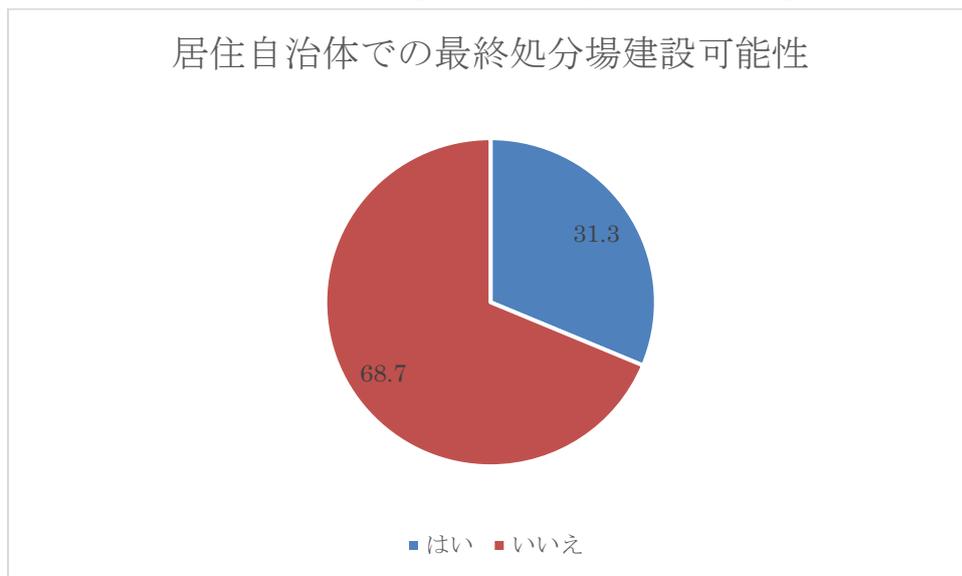


図 64 居住自治体での最終処分場建設可能性の分布

○文献調査を実施する市区町村を決めるための方法

「マップに示された科学的な区分を踏まえて、文献調査を実施する市区町村を決めるための方法を記述した以下の文章について、あなたはどのように思われますか。あてはまるものをひとつお選び下さい。」以下、12の設問に1、「賛成」～2、「反対」の4件法で質問されている。その後、挙げた12個の方法の中で、もっとも適切だと考える方法を一つ選択する。その際、前の12の設問で、3、「どちらかといえば反対」並びに4、「反対」を選んだ選択肢は表示されない仕様となっている。

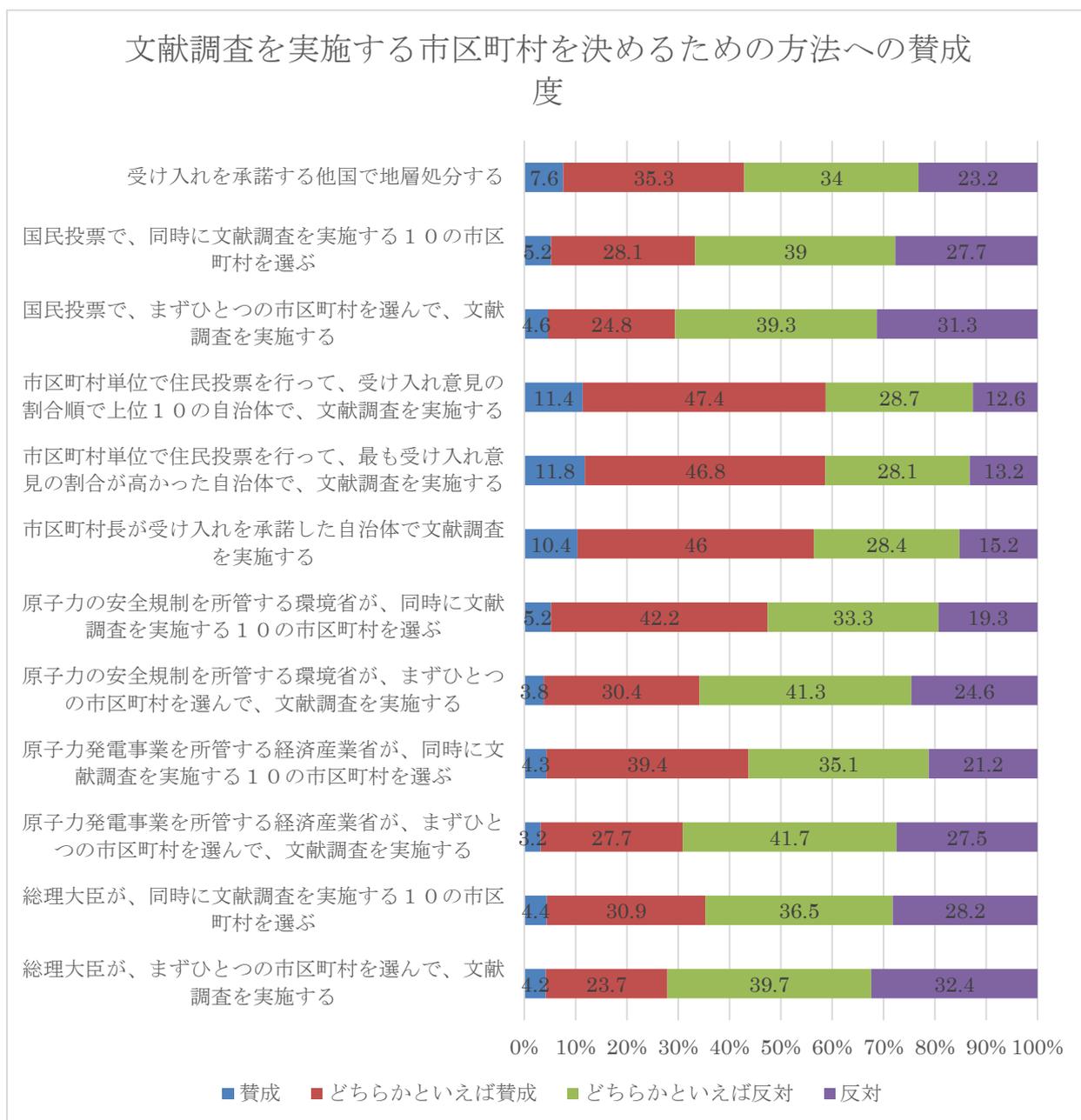
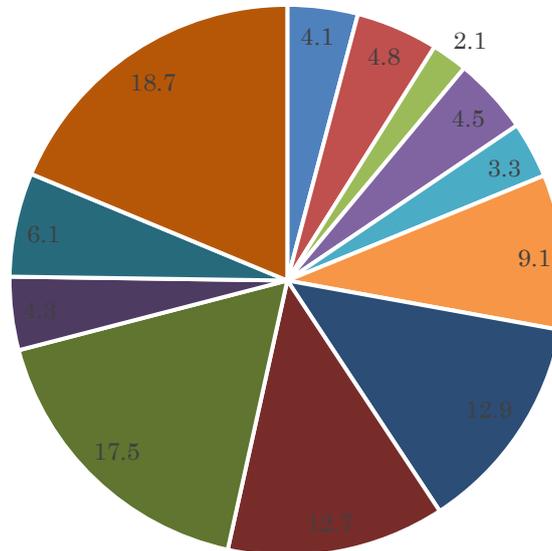


図 65 文献調査を実施する市区町村を決めるための方法の分布

## 文献調査を実施する市区町村を決めるための最適な方法



- 総理大臣が、まずひとつの市区町村を選んで、文献調査を実施する
- 総理大臣が、同時に文献調査を実施する10の市区町村を選ぶ
- 原子力発電事業を所管する経済産業省が、まずひとつの市区町村を選んで、文献調査を実施する
- 原子力発電事業を所管する経済産業省が、同時に文献調査を実施する10の市区町村を選ぶ
- 原子力の安全規制を所管する環境省が、まずひとつの市区町村を選んで、文献調査を実施する
- 原子力の安全規制を所管する環境省が、同時に文献調査を実施する10の市区町村を選ぶ
- 市区町村長が受け入れを承諾した自治体で文献調査を実施する
- 市区町村単位で住民投票を行って、最も受け入れ意見の割合が高かった自治体で、文献調査を実施する
- 市区町村単位で住民投票を行って、受け入れ意見の割合順で上位10の自治体で、文献調査を実施する
- 国民投票で、まずひとつの市区町村を選んで、文献調査を実施する
- 国民投票で、同時に文献調査を実施する10の市区町村を選ぶ

図 66 文献調査を実施する市区町村を決めるための方法の分布

○原子力発電の増設への賛否

「ある人々は日本のエネルギー問題を解決するために原子力発電を増やすべきだと言っています。あなたはこれに賛成ですか反対ですか」（1「反対」～4「賛成」の4件法）

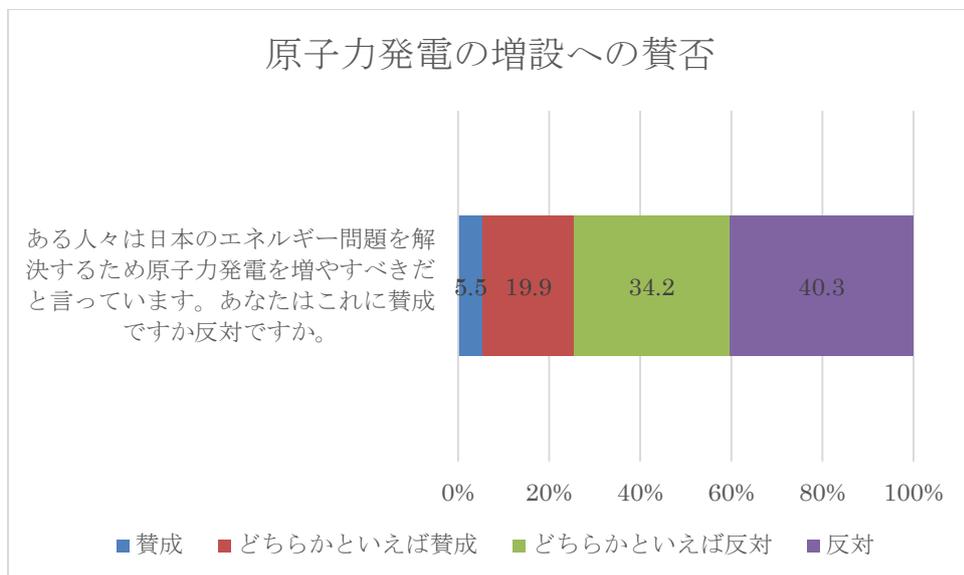


図 67 原子力発電の増設への賛否の分布

○原子力発電のメリットについての認知

「原子力発電は、他のエネルギーに比べて経済性に優れている」「原子力発電は、他のエネルギーに比べて環境に優しい」「原子力発電は、他のエネルギーに比べて安全性に優れている」（1「全くそう思わない」～4「そう思う」の4件法）

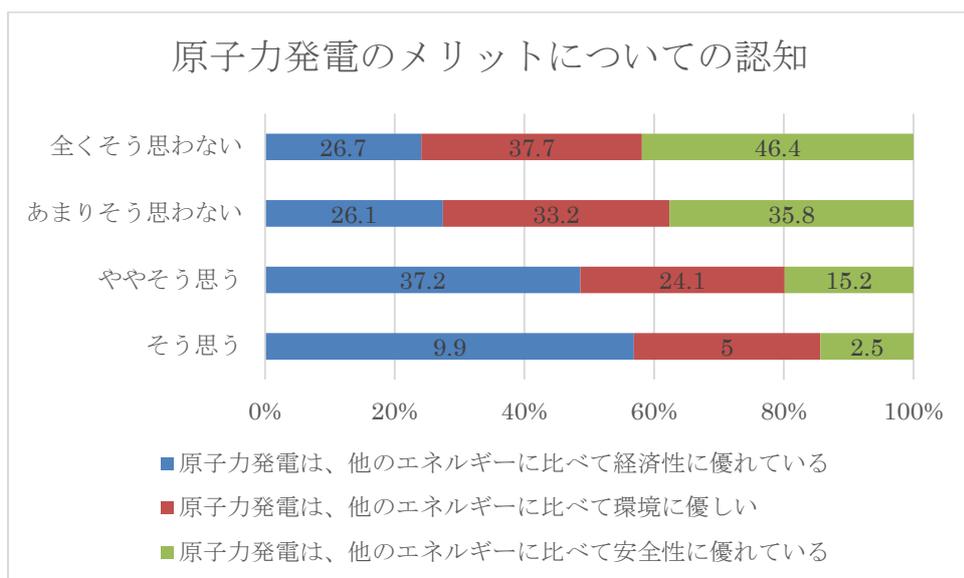


図 68 原子力発電のメリットについての認知の分布

○期待しているエネルギーの認知

「この先20年くらいを考えた場合、あなたが一番期待しているエネルギーを次の中から二つ選んでください。」

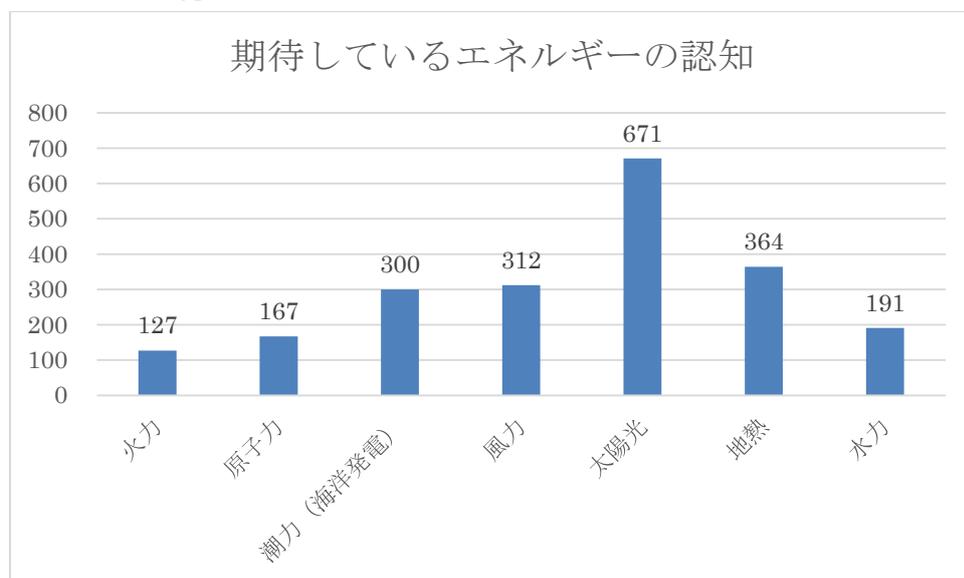


図 69 期待しているエネルギーの認知の分布

○原発事故・大地震の生起確率やそれによる被災の確率に関する認知

「今後、国内の原子力発電所で、再び大規模な事故が起きる可能性はどの程度あると思いますか。あてはまるものをひとつお選び下さい」、「今後、国内の原子力発電所で再び大規模な事故が起きたとしたら、あなたやあなたのご家族が、大規模・広範囲・長期の避難を強いられる可能性はどの程度あると思いますか。あてはまるものをひとつお選び下さい。」、「あなたのお住まいの地域で、今後数年内に震度6を越えるような大きな地震が起きる可能性はどの程度あると思いますか。あてはまるものをひとつお選び下さい。」

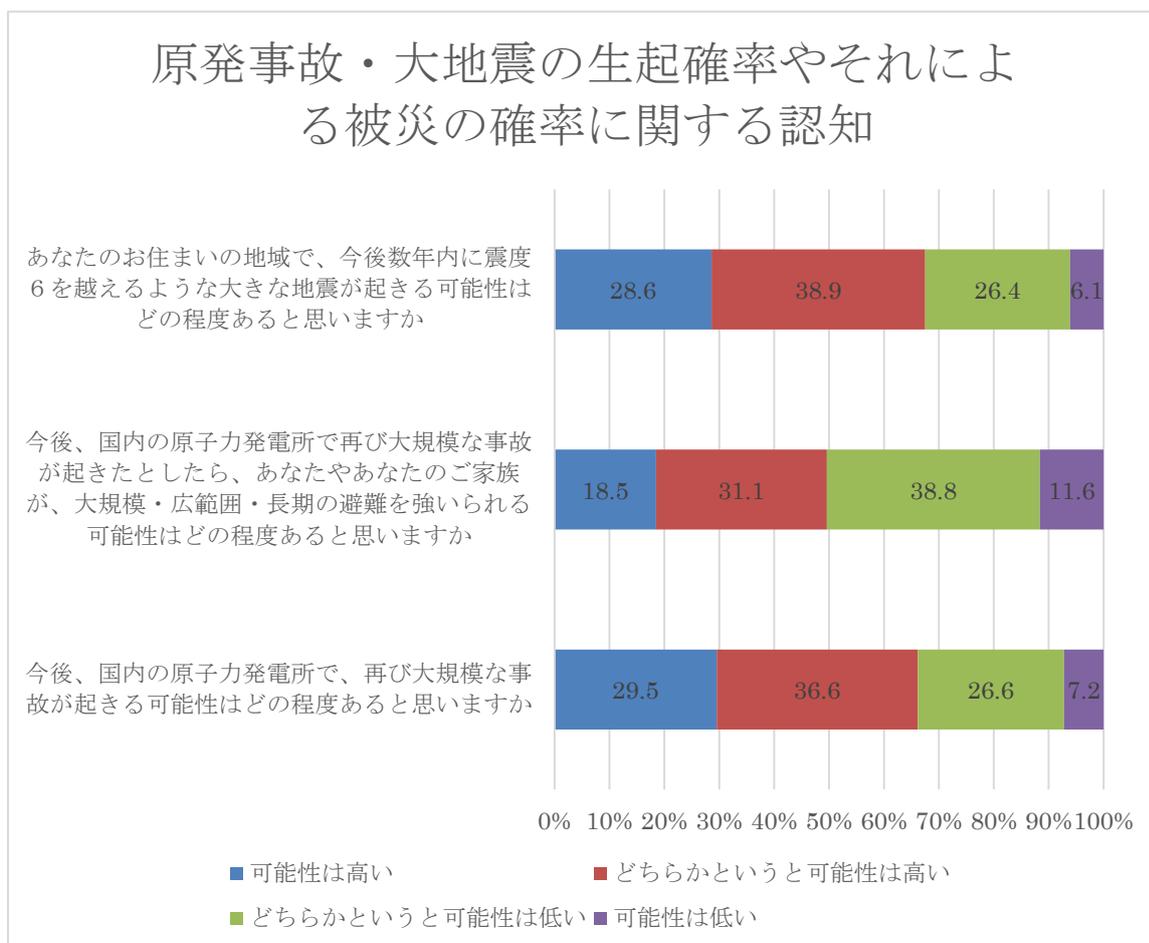


図 70 原発事故・大地震の生起確率やそれによる被災の確率に関する認知の分布

## 2.2.分析

本調査では、Q12～Q19について、グループをランダムに2つに分けて、科学的特性マップの閲覧を含む質問の前後に配置した。これによって、全サンプルは科学的特性マップを閲覧したこと、あるいは少なくとも科学的特性マップについての話題が提示されたことの影響を受けたグループとそうでなかったグループに分割された。ここでは、簡便のため、閲覧グループと非閲覧グループと呼ぶことにする。この2グループ間の各値を比較する。

比較された質問は以下の表8にまとめられた9項目で、比較の結果のグラフが図71である。グラフのエラーバーは95パーセント信頼区間を表している。

表8 2グループの差を分析した質問項目

グラフ内の記号	Contents	指示内容
L	Extent of support of Literature review	仮に自治体が文献調査に立候補した場合支持するか
A	Acceptance to final disposal	最終処分施設が仮に建設される場合に受容するか
DS	Dicision making scope	意思決定者はどの範囲か
BM	Benefit to Municipality	便益認知－交付金で自治体が発展するか
BP	Benefit to a Person	便益認知－交付金で一人ひとりの生活が豊かになるか
CM	Compensation Method	補償の方法
CS	Compensation scope	補償主体はどの範囲か
RN	Risk on damaged Number	リスク認知－何人が被災するか
RP	Risk on Probability	リスク認知－事故が起こる可能性はどのくらいか

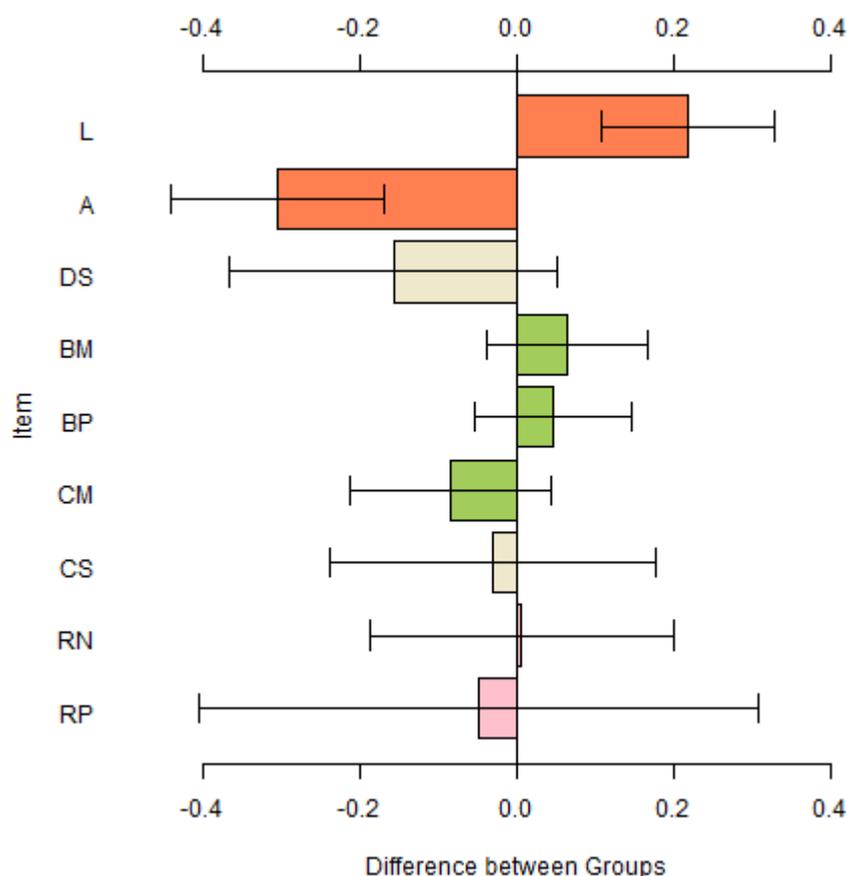


図 71 グループ間の各指標の差

比較したところ、閲覧グループの方が文献調査への支持度と最終処分施設への受け入れ態度が高いことが分かった。これは前章の分析とも整合的である。

なぜなら、前章の回答の正確性に注目した分析では、特性マップの閲覧/非閲覧という属性をある程度反映している回答が正確/不正確という属性でグループを分割した時、回答が不正確～非閲覧グループの方が、文献調査の支持度や最終処分場の受け入れ態度がより低下するという同様の結果となったからだ。

ただし、注意しておかなければならないのは、前章の分析では、グループの変化量とその差を比較していたのに対して、本章の分析では、グループの変化量をとらずに差をそのまま比較しており、一概に特性マップ公表によって、文献調査への支持度や最終処分施設への受け入れ態度が向上したとはいえないことである。つまり、特性マップの公表によって閲覧グループと非閲覧グループの支持度や受容度がともに低下するのだが、その程度がしっかりと地図を閲覧したグループの方が小さいということがあり得るのである。これは、前章の分析で、サンプル全体の傾向として、文献調査への支持度や最終処分施設の受け入れ態度が低下したことからも蓋然性が高い仮説であると言える。

以上より、科学的特性マップの公表によって、閲覧者が非閲覧者と比較して、文献調査への支持度や最終処分施設の受け入れ態度が高い一方で、公表前後で比較すると支持度や受容度は全体

としては低下する可能性が示唆された。これは、科学的特性マップの公表はマイナスの効果である一方で、閲覧がプラスの効果を持つと解釈することができ、情報提示の過程で地図の確認という過程が重要な役割を持つと言える。

科学的特性マップ公表を受けて、具体的に文献調査<sup>1</sup>を進める上での決定方法選好にどのような影響が出ているかについても、質問項目を追加して調査した。文献調査を実施する市区町村を決める方法の選択肢は表 9 の通りである。

表 9 平成 29 年度パネル調査における文献調査実施自治体の決定方法に関する選択肢

No	決定主体や方法	候補自治体数
1	総理大臣が決定	1
2	総理大臣が決定	10
3	経産省（原子力発電事業を管轄）が決定	1
4	経産省（原子力発電事業を管轄）が決定	10
5	環境省（原子力の安全規制を管轄）が決定	1
6	環境省（原子力の安全規制を管轄）が決定	10
7	市区町村が自ら受け入れを承諾	—
8	市区町村ごとの住民投票で決定	1
9	市区町村ごとの住民投票で決定	10
10	国民投票で決定	1
11	国民投票で決定	10
12	他国で処分する	—

この結果、図 72 に示すとおり、住民投票によって賛成率の高い順に 10 の自治体を選ぶ方式、住民投票で最も賛成率の高い自治体を選ぶ方式、市区町村長の意思決定で立候補する方式、環境省が 10 の自治体を選ぶ方式、受け入れを承諾する他国で処分する方式、という順に反対が少なかった。逆に、総理大臣・国民投票・経済産業省によって 1 つの自治体を選ぶ方式は反対が多かった。さらに、選ばれる自治体の数が 1 つの場合と 10 の場合がある選択肢について、その差の有意性を統計的に検証したところ（表 10）、統計的有意性がなかった住民投票の場合を除いて、ひとつより 10 の自治体を候補として選ぶ方法において受け入れにより肯定的態度を形成することがわかった。

このように、住民投票によって自治体が自主的に文献調査に応募する方式、市区町村長の意思決定で応募する方式が支持されること、総理大臣・経産省・環境省・国民投票といった外部からの意思決定では 1 自治体を決め打ちするより、10 の候補自治体を選ぶ方が支持されることがわかった。これらの知見から、ローカルの民意をくみ取るプロセスや、事業に直接関与しない国民にとっての決定責任（薄いほど望ましい）に対する配慮が重要という示唆が得られた。一方、住民投票（上位 10 自治体、1 自治体）や市区町村の立候補、外部主体による選定（10 自治体、1 自

<sup>1</sup> 現行制度では、文献調査地域の選び方は、自治体からの応募や複数地域に対する国からの申入れによる。

治体)といった選択肢と並べて、「受け入れを承諾する他国で地層処分する」という選択肢がある中では、適切と考える人が最も多かったのは他国処分であった(図 73)。これは、これまでの調査で一貫して国内・現世代処分を支持していたというデータとは異なる傾向である。「誰か(どこかの自治体)に責任を負わせる」ことを忌避するといった仮説は考えられるが、いずれにせよ調査地選定が具体化すればするほど、意思決定を回避しようとする傾向が強まる可能性がある。

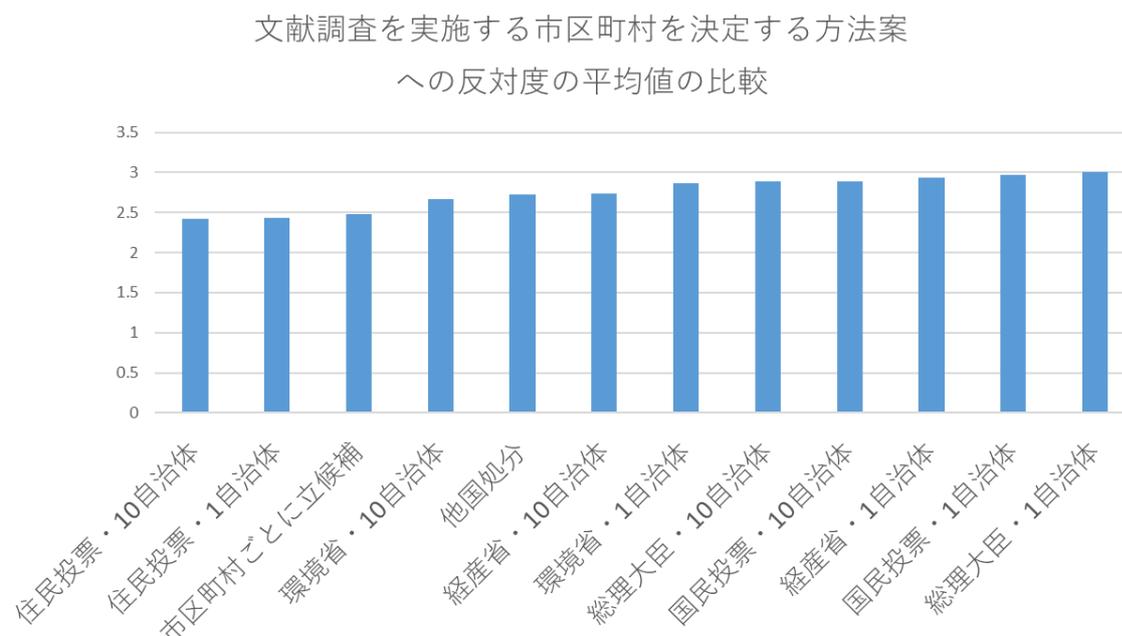


図 72 文献調査実施自治体の決定方法に関する態度分布

表 10 選ぶ自治体数(1と10)による態度の違いと統計的有意性

方法	態度差	P値
総理大臣	0.12	<0.0001***
経産省	0.20	<0.0001***
環境省	0.20	<0.0001***
住民投票	0.0028	0.8646
国民投票	0.082	<0.0001***

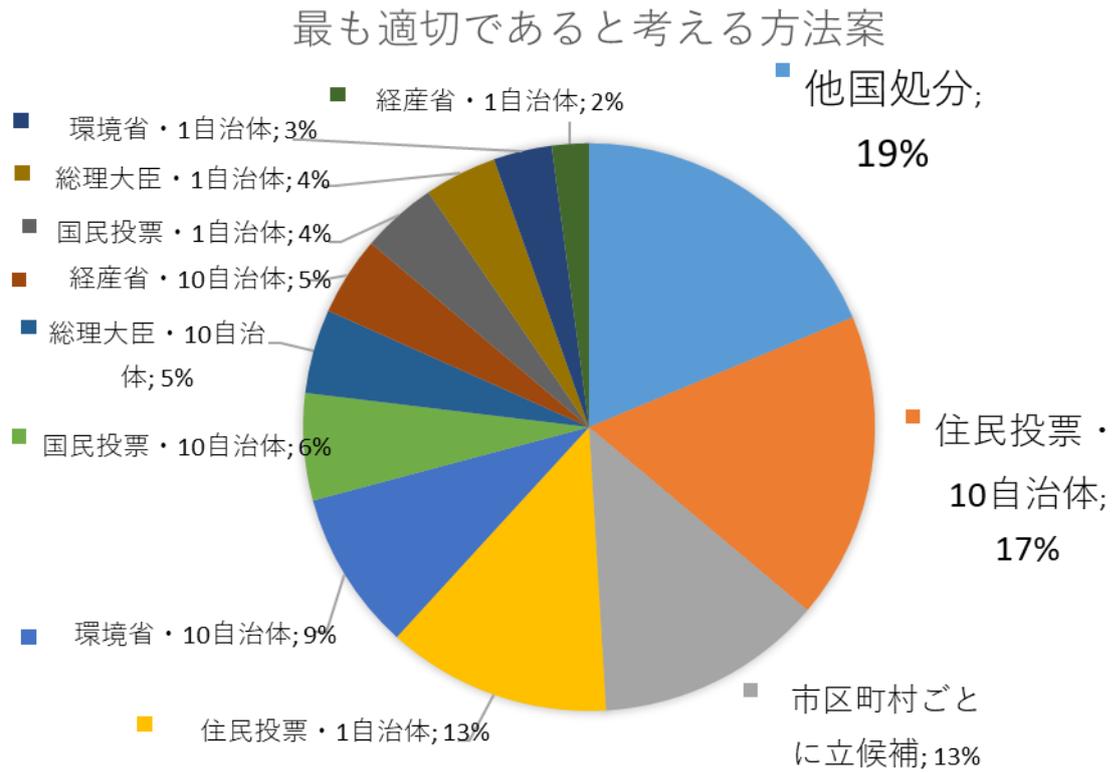


図 73 文献調査実施自治体を選択する方法として選択肢中最も適切な方法についての回答分布

### 3. HLW 処分に関わる人々の態度についての社会心理学的分析②：過去パネルデータの再分析

#### 3.1. 住民の受容態度の構造

既往研究では、HLW 処分施設に関する個人の受容態度は、信頼、リスク認知、ベネフィット（便益）認知という 3 つの要素との関係に基づいて、共分散構造分析では図 74 のような構造で説明されることが示されている。

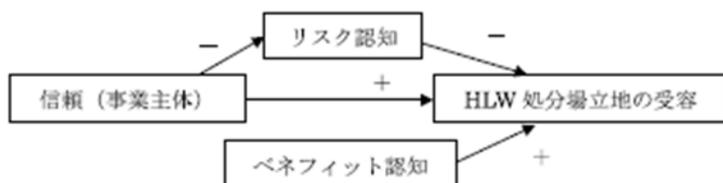


図 74 既往研究における HLW 処分施設の社会的受容のモデル

たとえば高浦ら（2013）は、以下の 4 つの仮説を検証するため、東日本大震災直前に実施された平成 23 年 2～3 月の調査データ（オンラインによる質問紙調査、560 名ずつ原子力関連施設立地地域と非立地地域から採用、合計 1120 名のサンプル）を分析した。

ここで、原子力関連施設立地地域と非立地地域について、多母集団同時分析を行った結果が図 75 と図 76 であった。このうち、被害の大きさ認知が HLW 処分施設に対する受容態度に与える影響においてのみ、2 種類の地域間で統計的に有意な差が見られた。

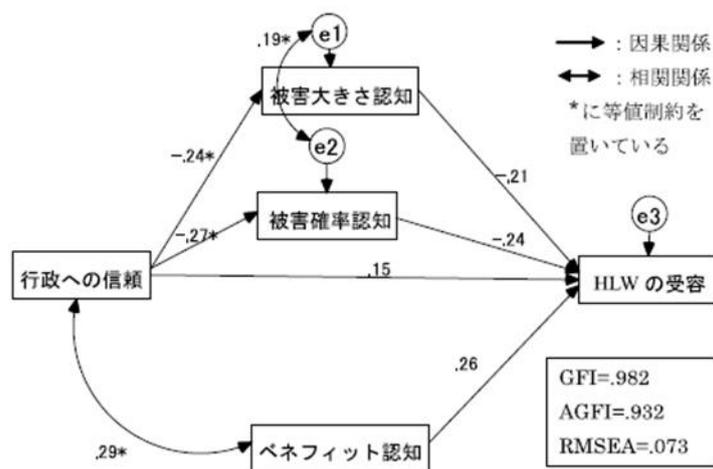


図 75 原子力関連施設立地地域における多母集団同時分析の結果

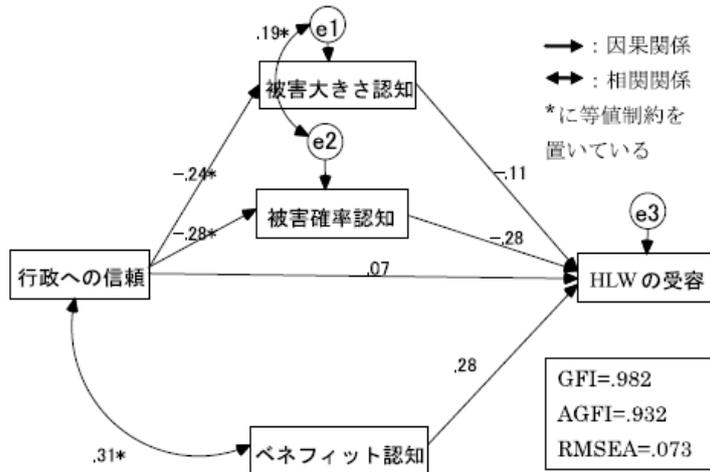


図 76 原子力関連施設非立地地域における多母集団同時分析の結果

Tsujikawa, et al. (2016)においては、東日本大震災の前後、震災後の福島とその他の県における原子力発電所の受容態度構造を比較している。受容態度の要因として、リスク認知、事業主体への信頼、ベネフィット認知、環境保護志向という4つを仮定した上で共分散構造解析を行った。震災前後を比較した結果は図 77 の通りであり、環境保護志向と信頼が与える影響が大きくなり、ベネフィット認知が与える影響が小さくなっている。一方、福島と宮城・青森を比較した結果は図 78 の通りであり、福島でリスク認知が与える影響が大きくなり、信頼が与える影響が小さくなっている。

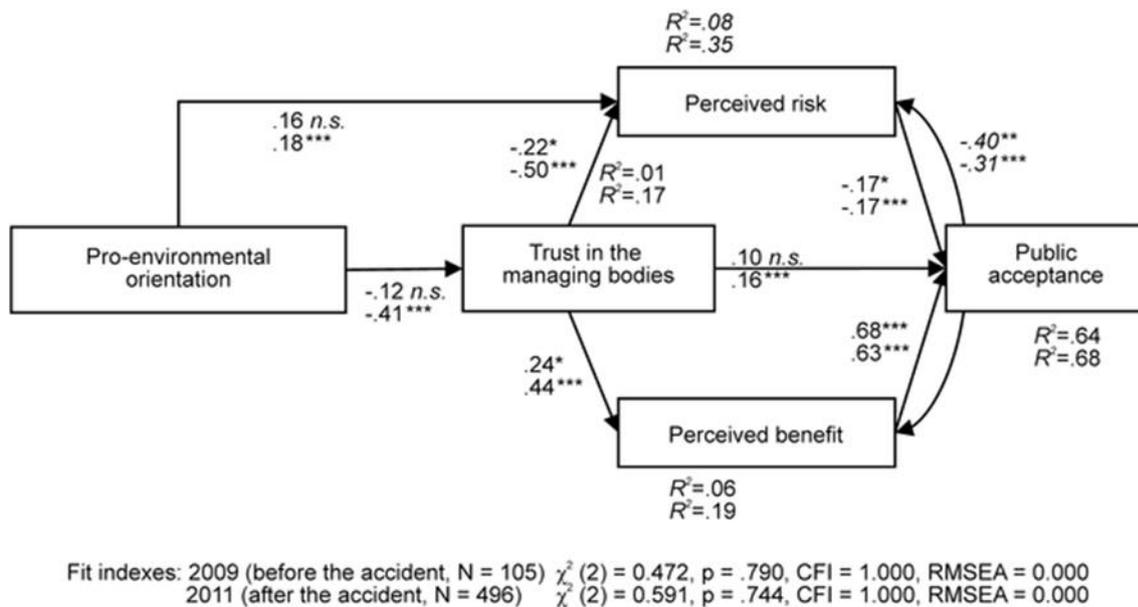
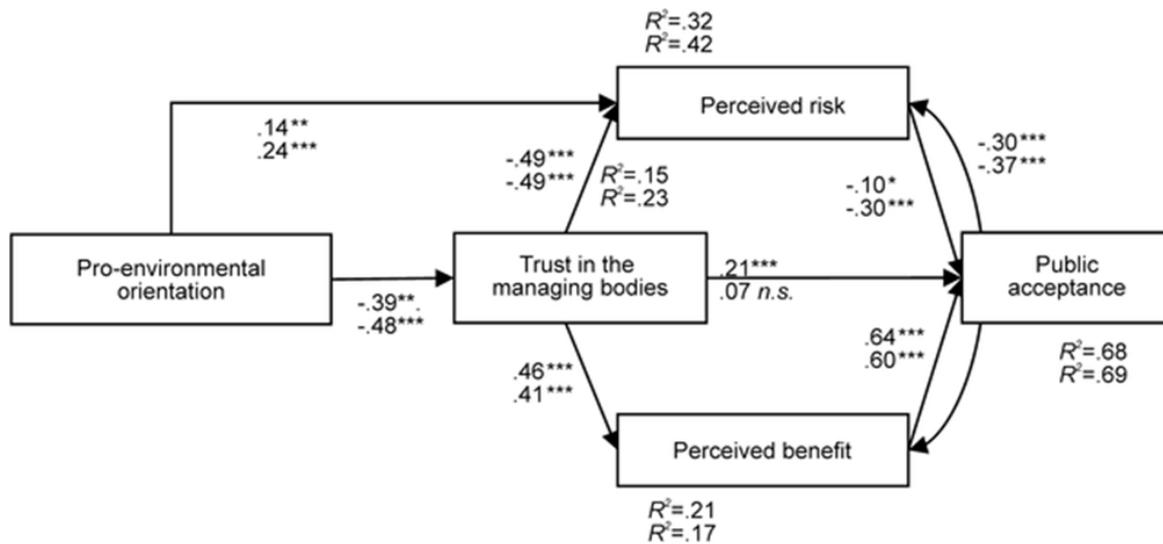


図 77 東日本大震災前後の原子力発電所受容態度の構造比較



Fit indexes: Aomori-Miyagi (N=323)  $\chi^2(2) = 0.929$ ,  $p = .628$ , CFI=1.000, RMSEA=0.000  
 Fukushima (N=173)  $\chi^2(2) = 1.587$ ,  $p = .452$ , CFI=1.000, RMSEA=0.000

図 78 東日本大震災後の福島と宮城・青森における原子力発電所受容態度の構造比較

このように、既往研究では図 74 のような態度形成モデルが確認されてきた。そこで、本研究において実施したパネル調査においても、ベネフィット認知を観測変数として測定できる 2015 年 3 月、2016 年 2 月、2017 年 2 月のデータでそれぞれ HLW 処分施設受け入れ態度の構造を共分散構造分析を用いて分析した。その結果、2015 年 3 月のデータでは図 79、2016 年 2 月のデータでは図 80、2017 年 2 月のデータでは図 81 の結果となり、おおむね既往研究の知見と整合する結果が得られていることがわかった。

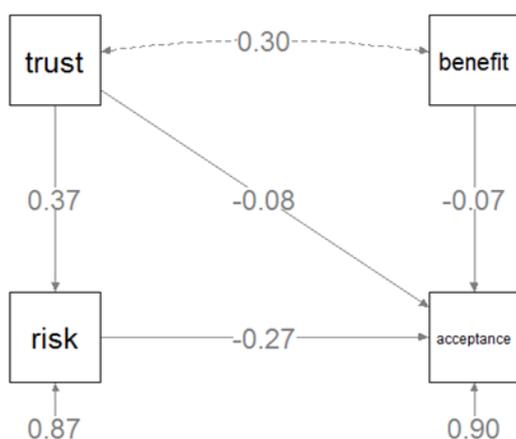


図 79 2015 年 3 月調査における HLW 処分施設受け入れ態度の構造

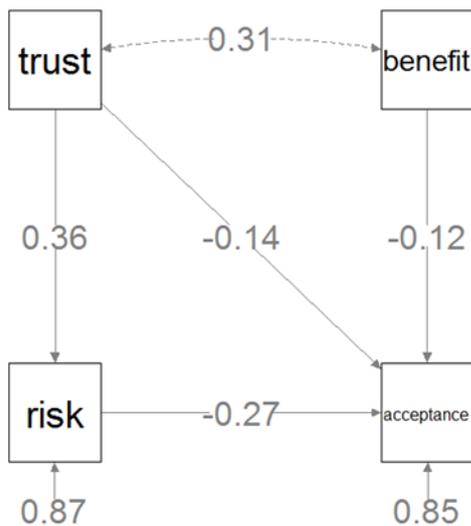


図 80 2016年2月調査におけるHLW処分施設受け入れ態度の構造

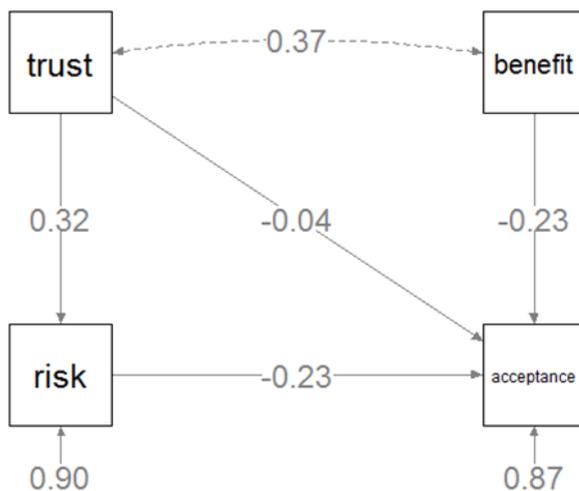


図 81 2017年2月調査におけるHLW処分施設受け入れ態度の構造

また、学歴や性別といった、既往研究から影響が示唆される特性についても、改めて態度形成過程における影響の分析を試みた。

まず、①学歴の差と代表値、②学歴の差と構造方程式、③行政への信頼と学歴の差についてデータ分析を行った。一般的に、学歴差は大卒・大学院卒＝中心的ルート、それ以外＝周辺的ルートという関係が成立する。なぜなら、精緻化見込みモデルにおいて、人々が意思決定の際に中心ルートを選択するか周辺ルートを選択するかは、対象への能力（例えば知識等）と関心によって決定し、大卒・大学院卒の人ほど放射性廃棄物の問題に対して、知識と関心を有していると考えられるためである。

性別についても同様の分析をおこなった。

① 学歴の差と代表値

学歴の差と共分散構造分析で用いた4因子（行政への信頼、リスク認知、便益認知、受容）の平均値について、学歴を2層に分けて整理した。なお、この2層とは最終学歴が小・中学校並びに高校のグループと大学・大学院のグループである。短大・専門学生は、学歴差を明確にするためにどちらのグループにも算入しなかった。以上のことを整理したものが表11である。

表11 学歴と4要素の関係と差の検定

カッコ内は標準偏差	信頼	リスク認知	便益認知	受容	標本数
小中高卒	2.61 (0.682)	5.14 (2.96)	2.63 (0.819)	2.21 (1.09)	433
大卒・大学院卒	2.51 (0.759)	4.66 (2.93)	2.68 (0.855)	2.25 (1.12)	730
差の検定結果 (p 値)	0.024	0.007	0.395	0.600	

大卒・大学院卒層で有意に行政への信頼が低く、またリスク認知が低いことが分かる。

② 学歴の差と構造方程式

小中高卒層と大卒・大学院卒層の間の意思決定モデルに差があるかどうかを調べるため共分散構造分析を行った。それぞれのパス図は以下の様になる。(図82、図83) この分析によっては、仮説に反して、学歴の差による態度形成モデルの違いは見いだせなかった。

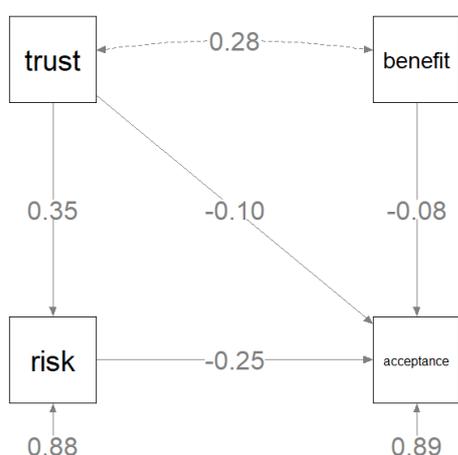


図82 小中高卒層の態度形成モデル

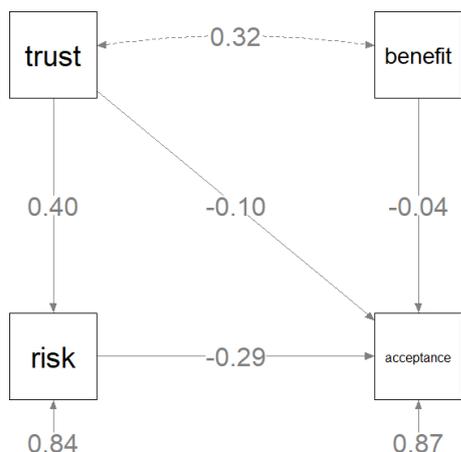


図 83 大卒・大学院卒層の態度形成モデル

③ 学歴別の高信頼グループと低信頼グループの差

平成 28 年度報告書において、震災前後で人々の態度形成モデルが変化したことを明らかにするため、行政への信頼が最大・最小で母集団を 2 つに分割し各々の受容態度の平均を比較するという手法をとっていた。今回はそれに倣い、平成 27 年度のデータセットを用いて、学歴による行政への信頼と受容態度の関係の学歴差を整理した。便宜上最も行政を信頼しているグループを「信頼最大」、最も信頼していないグループを「信頼最小」と呼ぶこととする。

共分散構造分析と同様に、行政への信頼が受容に影響を与えないほど中心的ルートとなるので、表 12 の差が大卒・大学院卒ほど小さい場合に仮説が支持されるが、大卒・大学院卒の方が小さくなっている。ただし、標本数が少ない（特に小中高卒かつ信頼最大の標本数が 7 つと極めて少ない）こともあり、差の有意性を検出することはできなかった。

表 12 学歴層と行政への信頼のクロスデータにおける受容態度の平均と標準偏差

上段は受容態度の平均、カッコ内は標準偏差、下段は標本数	信頼最大	信頼最小	(差)
小中高卒	2.571(0.976) (N=7)	1.738 (1.01) (N=42)	0.833
大卒・大学院卒	3.10 (1.28) (N=50)	2.05(1.28) (N=69)	1.04

次に性別の差についても検証を行った。

① 性別の差と代表値

性別の差も人々の意思決定に大きな影響を及ぼしていると考えられる。本分析では代表値と構

造方程式の整理を中心に行い示唆を得る。

表 13 性別と 4 要素の関係と差の検定

カッコ内は 標準偏差	信頼	リスク認知	便益認知	受容	標本数
男性	2.49 (0.743)	4.64 (3.028)	2.70 (0.854)	2.35 (1.148)	889
女性	2.62 (0.676)	5.45 (2.75)	2.59 (0.805)	2.03 (0.999)	561
差の検定結 果 (p 値)	0.002	0.000	0.018	0.000	

表 13 の結果は、岸川ら（2012）などの既往研究と整合し、女性が男性と比較して行政への信頼が高い、リスク認知がかなり高い、便益認知が低い、受容がかなり低いという傾向が見られる。たとえば坂田（2014）によれば、様々な心理的特性や行動における男女差に関する既往研究で、一貫して中程度以上の男女差が示されている特性は、リスクテイキング、刺激希求、及び共同性のみである。ここで、女性の特性はリスク回避、安定志向、共同性の重視とされているので、本研究で見られた女性のリスク認知の高さや受容度の低さはリスク回避傾向によって説明できる。

また、標準偏差に注目すると女性の方が 4 項目すべてにおいて小さく、男性より解答の散らばりが小さいことが分かる。これは、女性の方が平均付近に集中して回答をしていることを表しており、特に 5 件法のようなアンケート方式では、内情を統計的にうまく抽出できない可能性が高い。

## ② 性別の差と構造方程式

男女差によって意思決定モデルに差があるかどうかを調べるため、共分散構造分析を行った。パス図は図 84、図 85 の様になる。

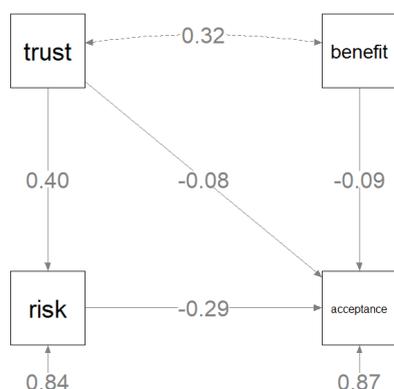


図 84 男性の態度形成モデル

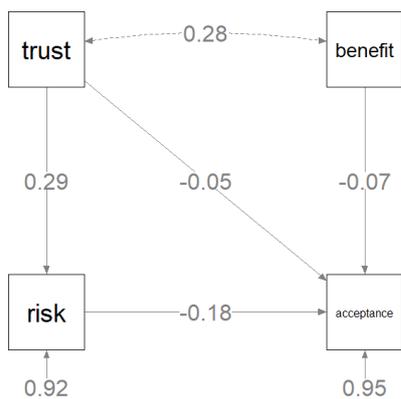


図 85 女性の態度形成モデル

学歴と違い、構造方程式に明確な違いが生じている。男性の方が信頼→リスク認知のパス係数が 0.11 ポイント高く、リスク認知→受容が 0.11 ポイント高い。また分散説明率も男性が女性より高くなり、男性の方が女性よりも信頼、リスク認知、便益認知の 3 要素で受容度をよく説明できているといえる。このことに注目すると、男性の方がより合理的な思考のもとで受容度を決定する中心的ルートの人割合が大きい可能性がある。

### ③ 性別の高信頼グループと低信頼グループの差

学歴と同様に行政への信頼に基づいてサンプルを分割した。表 14 を見ると、男性の方が信頼の大小によって受容度が大きく変化しており、態度形成モデルの比較に基づく推定（男性の方が中心ルートの人の割合が大きい）と整合しない。

表 14 性別と行政への信頼のクロスデータにおける受容態度の平均

上段は受容態度の平均、カッコ内は標準偏差、下段は標本数	信頼最大	信頼最小	(差)
男性	3.09 (1.34) (N=52)	2.012(1.2) (N=82)	1.08
女性	2.53 (0.519) (N=13)	1.83 (1.12) (N=49)	0.702

以上の学歴・性別という 2 特性に関する検討の結果、想定と異なって学歴は態度形成過程に明確な違いを生み出していないことがわかった。一方で、男性は女性に比べると「中心ルート」的信息処理をしている可能性が高く（ただし③の結果もあるため要追加検証）、リスク認知は低いことがわかり、これらは既往研究と一定程度整合する知見であった。

### 3.2.回答者の地域特性による影響の検討

過年度において、原子力関連施設の有無や東日本大震災での被害の大きさが、処分場受け入れ態度の経年変化に与える影響について、大まかな分析を実施した。本研究で取得したデータは、震災前の2011年3月調査において、原子力関連施設のある自治体について、一定数以上のサンプルから回答を得ており、原子力関連施設があること、およびその後の震災での被害が、処分場の受け入れ態度に与える影響を計測することができる可能性がある。

そこで今年度は、特に東日本大震災での被害の大きさについて、回答者の居住市区町村の震度情報を変数として整備することにより、より詳細な分析を実施した。分析の対象は、2011年3月（震災前）、2012年2月（震災後）、2013年2月（震災後）の3波のいずれもの調査に回答した1057名のデータである。また、ここで従属変数として分析するのは放射性廃棄物最終処分場の受け入れ態度：「仮に、あなたのお住まいの自治体に処分施設が建設されると想定した場合、そのことについてどう思いますか。あてはまるものをひとつお選びください。」への回答（1.絶対に受け入れたくない 2.どちらかといえば受け入れたくない 3.どちらともいえない 4.どちらかといえば受け入れてもよい 5.受け入れてもよい）である。

震度別の処分場受け入れ態度の分布を示した箱ひげ図が図86である（左から2011年3月調査（震災前）、2012年2月調査（震災後）、2013年2月調査調査（震災後）のデータ）。上段は原子力関連施設が立地していない市町村の回答者、下段は原子力関連施設が立地している市町村の回答者についての分布である。震災1年後に一旦処分場受け入れ態度の高まりがみられるものの、2年後には一貫して否定的な態度に転じていることがわかるが、震度別の差は明らかでない。

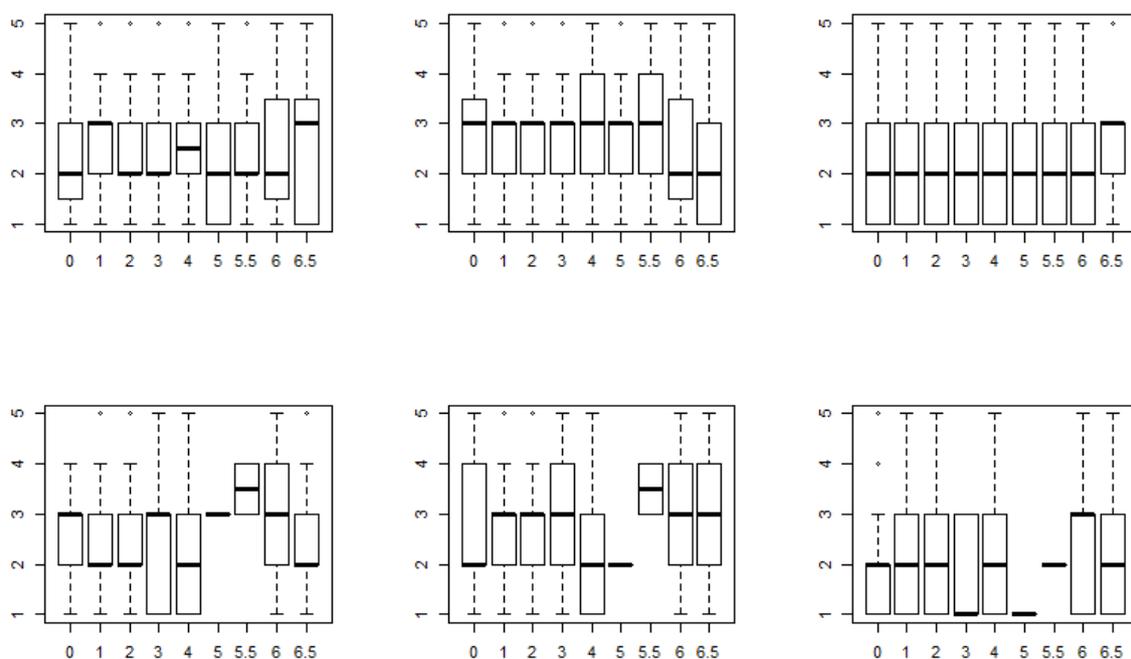


図 86 震度別の処分場受け入れ態度の分布（左から2011年3月調査（震災前）、2012年2月調査（震災後）、2013年2月調査調査（震災後）のデータ）

ここで注意が必要なのは、群間（原子力関連施設の有無）での比較からは、原子力関連施設の有無が（震度ともに）放射性廃棄物処分場や原子力発電に対して与える影響を厳密には計測できない点である。なぜなら、原子力関連施設の受け入れの有無はランダムな現象ではなく、受け入れ態度に関連する共変量が明らかに存在するからである。さらに、ここで注目するもう一つの変数である震度も、受け入れ態度と独立に発生する自然現象であり、その地理的な差異を利用して受け入れ態度への効果を推定する戦略が考えられそうだが、ここでは、観測震度に有意な差があると認められる地理的スケールでは、他の共変量も異なると考えられるため、有効ではない。表 15 は、原子力関連施設の有無・震度別の標本分布を示したものであるが、震度 5～5.5 における原子力関連施設無しの自治体からのサンプルは東京都周辺からのものがほとんどである一方、震度 6 強の自治体のサンプルは石巻市から、震度 6 の自治体のサンプルは東海村からのものがほとんどを占める。

表 15 原子力関連施設の有無・震度別の標本分布

	0	1	2	3	4	5	5.5	6	6.5
原子力関連施設:無	35	57	91	123	88	144	146	12	11
原子力関連施設:有	33	106	59	14	48	1	2	26	61

この結果、実際に、原子力関連施設のある自治体のサンプルについては、各震度が観測された自治体ごとの特徴が強く表れてしまっている。一方、原子力関連施設のない自治体のサンプルにおける結果は、先に見た結果と類似しているが、この場合についても、震度 5 を観測した地域の中に東京都周辺の自治体が多く含まれており、他震度を観測した地域との比較の上では、観測震度とは別の共変量が存在しており、観測震度間で受け入れ態度の分布を比較することは適切でない。

このことを考慮したうえで、原子力関連施設の立地の有無が震災後の放射性廃棄物処分場の受け入れ態度に与える影響を、震災の影響別に分析するため、我々は基本的な分析として、(i)震度 4 以上を観測した自治体からのサンプルを対象とし、かつ(ii)原子力関連施設の有無に関して傾向スコアによるマッチングを用い、サンプルを絞って分析を行った。後者は、原子力関連施設のある自治体のサンプルと、それらと類似した性質を持つサンプルのみを原子力関連施設のない自治体から選んだものと比較することで、すでに原子力関連施設のある自治体と同様の性質を持つ地域において、施設の有無が、震災の影響別に最終処分場の受け入れ態度にどのように影響するかを明らかにする手法である。

傾向スコアの算出には、割り当て変数を原子力関連施設の有無、共変量として条件分岐のために欠損値が発生しないすべての変数を投入したロジットモデルから、ステップワイズ法により AIC が最も小さくなる変数の組み合わせを特定して用いた。ここで算出された傾向スコアを用いたマッチング（キャリパーは 0.1）の結果、原子力関連施設のある自治体からの回答者 260 名のうち、126 名に対するマッチングが行われ、合計 252 のサンプルが抽出された。このマッチングの手続きを経ることにより、マッチング前のサンプルに見られる原子力関連施設のある自治体からの回答者と原子力関連施設のない自治体からの回答者の差が補正される点が重要である。

表 16 マッチング後のサンプルに対する順序ロジットモデルの推定結果

	モデル(a) 全サンプル	モデル(b) 施設なし	モデル(c) 施設あり	モデル(c2) 施設あり
施設有無	-0.887 (0.455)			
震度	-0.033 (0.123)	-0.032 (0.123)	0.204 (0.123)	4.059 (1.787)
施設有無×震度	0.253 (0.175)			
N	252	126	126	126
自治体ダミー	No	No	No	Yes

マッチングされた 252 のサンプルに対して、応答変数を 2013 年の受け入れ態度とした順序ロジット分析を行った結果を示したのが表 16 である。(a)は処置群（原子力関連施設なし）と統制群（原子力関連施設あり）、それぞれのデータをプールした場合であり、(b)(c)はそれぞれを個別に分析した場合の結果である。また、統制群（原子力関連施設あり）に含まれるサンプルは、限られた自治体からのものであることから、(c2)ではそれぞれの自治体のダミーを投入した結果を示している。t 値（推定値／標準誤差）はいずれも大きくないが、(a)の交差項の係数の推定値や、(b)で見られない震度の効果が(c)(c2)ではみられることから、処置群（原子力関連施設なし）において地震の大きさは有意な効果は持たないが、統制群（原子力関連施設あり）において有意な効果を持つことが示唆される。

表 16 のモデル(a)の結果をもとに、マッチングの対象となったサンプルの平均的な属性を持つ回答者が、原子力関連施設のない自治体と原子力関連施設のある自治体それぞれにおいて、地震を経験しなかった場合（震度 0）と、震度 4 の地震を経験した場合について、「1.絶対に受け入れたくない」から「5.受け入れてもよい」までの選択肢それぞれを選択する確率を予測したうえで、各年において受け入れ態度に関する回答の平均の推移を予測したものが図 87 である。原子力関連施設のない自治体の回答者については震度の大きさにかかわらず、また、原子力関連施設のある自治体の回答者が震度 4 の地震を経験した場合、2011 年（震災前）から 2013 年（震災後）にかけて受け入れ態度の低下がみられるが、受け入れ態度の低下は、原子力関連施設のある自治体の回答者が震度 0 の地震を経験した場合で顕著である。原子力関連施設のある自治体の回答者についての差は、東日本大震災本震である程度の揺れを経験した自治体である方が、処分場受け入れに対して安定的であることを示している。

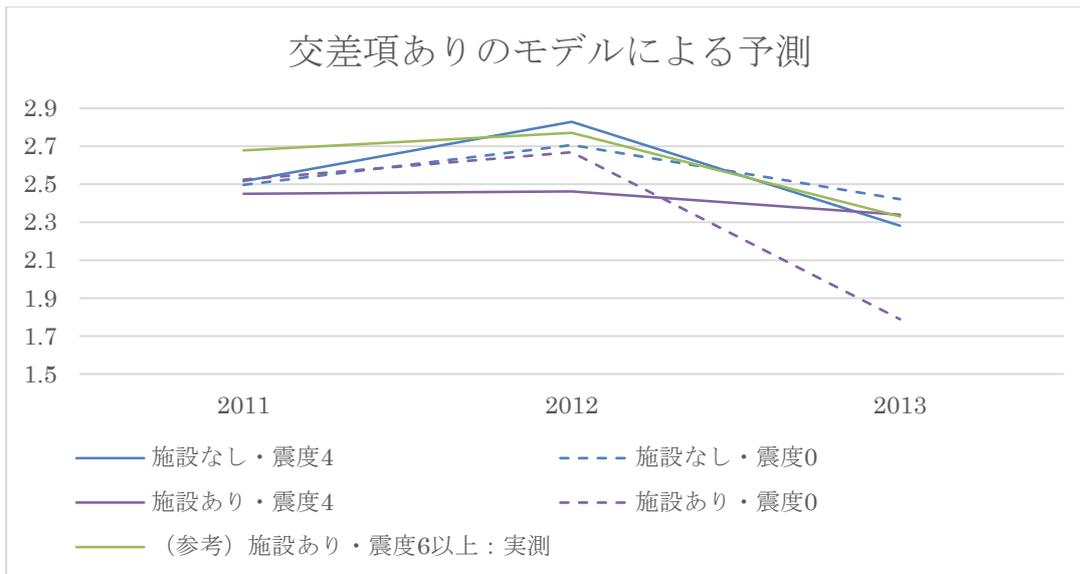


図 87 モデル(a)に基づく受け入れ態度に関する回答の平均の推移の予測

以上の分析は、原子力関連施設が立地している自治体の特性に大きく依存している可能性があり、さらなる考察が必要である。東日本大震災の本震だけでなく、余震も含めた考察や、実際の被害の大きさにかかわる変数での分析、また、東日本大震災以外も含んだ過去の地震の経験がどのように影響しているかを検討する必要がある。さらに、受け入れ態度を規定する要因が、東日本大震災の前後で変化している可能性があることは過年度の報告にて指摘しているところであるが、そうした要因の変化も、この分析と同じように原子力関連施設の有無と震災の影響の大きさ別に検討し、受け入れ態度との関連を精査する必要がある。

## 4. 政策的示唆の導出

### 4.1. アジェンダ・セッティングと個人の態度形成

平成 26 年度に、政策目標の転換の有無、アジェンダ・セッティングを主導するアクターという 2 つの要素に着目して、アジェンダ・セッティングを類型化した。これは、アジェンダ・セッティングがなされないために解決されない課題（高レベル放射性廃棄物処分施設の立地はその代表例）を念頭に置いて、国の政策形成、社会全体というレベルを対象に、特定の効果を持つアジェンダ・セッティングをデザインするための知見として類型化を行ったものである。しかし、平成 27 年度に実施した、英国における放射性廃棄物処分事業の政治過程分析からは、社会全体レベルでのアジェンダ・セッティングでは不十分であることが示唆された。

英国は 1997 年に放射性廃棄物処分施設立地選定の試みが失敗に終わった後、放射性廃棄物管理方法のレビュープロセスを監督し、望ましい政策の提言を行う独立組織、放射性廃棄物管理委員会（Committee of Radioactive Waste Management; CoRWM）を設立し、公衆討議（Public Deliberation）を活用した選定プロセスを採用した。CoRWM は放射性廃棄物処分を技術的な問題ではなく社会受容の問題だと捉え直し、公衆討議を通じて情報公開も積極的に行うことで、政府や実施機関への信頼を取り戻すとともに、放射性廃棄物処分問題を国家的なアジェンダとして設定することを一定程度達成した。

ところが、2013 年には候補自治体議会の反対に遭い事業が再び頓挫した。選定プロセスの中断という結果に影響を及ぼした要因として、公衆討議の取り組みに最終的な意思決定者がほとんど参加していなかったことや、事業に関連する政策が道義的な一貫性を欠いていたことなどが抽出された。つまり、国レベルで熟議民主主義を実践し、アジェンダ・セッティングが実現しているも、結局受け入れを検討するローカルレベルで政治的に意思決定権限を有するステークホルダーが熟議に参加しなければ、事業は進展しないということである。

このことから、アジェンダ・セッティングを国家のレベルとローカルなレベルに分けて考えること、個人の態度形成と特にローカルなレベルでのアジェンダ・セッティングとの関係を整理することの必要性を認識するに至った。過去に調査を行った事例でも、たとえば韓国では必ずしもローカルなレベルで住民らが熟議を行ったりしたわけではなく、国家的アジェンダの下、競争心をあおるプロセスによって感情的に処分施設受け入れを決定したため、後に不満を覚えるようになってしまっている。一方で、スウェーデンの事例では、国家レベル、ローカルレベルの両方で、重要な役割を果たした地方自治体の首長が存在しており、特に住民個人が事業に対する信頼・理解を高め、ローカルなレベルで合理的判断を実現することに貢献している。我が国においても、英国と同様に国家レベルでのアジェンダ・セッティングを行って、たとえば処分政策や方法について公衆討議を行ったからといって、受け入れ自治体が決定されることには直結しないと推定される。

個人の態度形成はアジェンダ・セッティングによって影響を受けるが（冒頭、図 1）、常に合理的判断につながるわけではない。たとえば平成 27 年度に事例研究対象とした、我が国における郵政民営化の政治過程では、「自民党をぶっ壊す」などといったフレーミングによって、大半の国民は情動的な態度形成を行ったことが明らかとなった（?）。しかし、同じフレーミングによって

も、特に農村部に居住する人々にとっては生活上重要な簡易郵便局の存続に関わる問題として、合理的判断を行っていた可能性がある。

高レベル放射性廃棄物処分に関する人々の意識について、継続的にオンライン質問紙調査を実施した。このデータを分析した結果、東日本大震災とそれに続く福島第一原子力発電所事故ほどの出来事でも、人々の態度形成に与えた影響は 4～5 年で消失したことが推定された。アジェンダ・セッティングの事例研究においても、一定の意図を持ってアジェンダが設定されたと見られる事例そのものが限定的であった。これらの結果は、国家的アジェンダ・セッティングには限界があり、設計も極めて難しいということを示唆している。

一方で、アジェンダ・セッティングは、ローカルなレベルでの態度形成に与える影響も大きく、また施策をデザインできる可能性が十分あると考えられる。たとえば、平成 28～29 年度に分析対象とした「科学的特性マップ」は、必ずしも国家レベルでのアジェンダ・セッティングに貢献したとは言えないが、調査結果からローカルなレベルでの意思決定が重視されるようになったこと、自宅が好ましい特性のある地域に入った個人の人々の態度形成過程が変容したことが推定される。

スウェーデンと韓国の対照的事例は、国家的アジェンダがローカルレベルでも同じ課題認識につながり、合理的判断につながる場合と、そうでない場合とがあることを示している。一方で、郵政民営化では、国家的アジェンダが国民の情動的態度形成につながる一方、地元生活に密着した特定郵便局の存亡というローカルなアジェンダについて、むしろ地域の未来も含めた合理的判断を行う地域住民も存在したとされる。これらの検討から、国家レベルの課題認識に基づく個人の態度形成と、ローカルなレベルの課題認識に基づくそれとの関係という観点で、アジェンダ・セッティングを改めて類型化することを試みた（表 17）。なおここでは、社会心理学における二段階態度形成過程モデルに即して、態度形成過程を中心ルート（図 1 でいう合理的ステップ）と周辺ルート（図 1 でいう情動的ステップ）に分類する。<sup>2</sup>

表 17 態度形成過程と国家・地域のレベルに着目したアジェンダ・セッティングの類型化

		ローカルレベル	
		中心ルート	周辺ルート
国家レベル	中心ルート 態度形成	東日本大震災 医師不足	移民問題
	周辺ルート 態度形成	郵政民営化 沖縄米軍基地移設	ゆとり教育

高レベル放射性廃棄物処分という政策課題は、理想的には国家的アジェンダの下、全国の国民と受け入れ検討自治体の住民とが中心ルートの態度形成を行うことが望ましい。しかしながら、本研究では東日本大震災のような国家的危機であっても、態度形成に与える影響は 4～5 年という短期間で消失してしまうことが推定されている。加えて、英国の事例に見られるように、たとえ国家レベルで中心ルートの態度形成が実現されていても、実際に受け入れを検討する自治体レベルで、政治的意思決定に関わる住民らが合理的判断に至っていなければ、事業を実施すること

<sup>2</sup> 人間の態度形成に、対象イシューの内容を詳細に検討して態度を形成する中心ルートと、詳細に立ち入らず周辺の情報によって判断するルート（周辺ルート）があると考えるモデル

は難しい。

国家レベルでの中心ルートの態度形成の限界を踏まえると、国家レベルでは周辺ルートの態度形成を導きつつ、ローカルレベルでは中心ルートでの熟議を行うようなアジェンダ・セッティングが現実的といえる。つまり、(A) 国民が受け入れを検討する自治体レベルに具体的な検討を安心して委ねられるアジェンダ、(B) 受け入れを検討する自治体レベルで、合理的判断に基づく政治的意思決定が実現するようなアジェンダという、2つの条件を満たすアジェンダ・セッティングを検討することが有力と示唆される。

#### 4.2.政策的示唆：特に地方創生・まちづくりというフレーミングに着目して

4年間の研究を通じて、国家レベルのアジェンダ・セッティングと、個人の態度形成過程の関係を類型化することができた。各類型に含まれる事例などを検討して、(A) 国民が受け入れを検討する自治体レベルに具体的な検討を安心して委ねられるアジェンダ、(B) 受け入れを検討する自治体レベルで、合理的判断に基づく政治的意思決定が実現するようなアジェンダの両方につながるような、アジェンダ・セッティングを設計することの有用性が示唆されている。

このようなアジェンダ・セッティングにつながるフレーミングとして、「地方創生」が考えられる。地域の再生・発展を目指す自治体が、放射性廃棄物処分施設受け入れによって得られる便益を活用して、革新的なまちづくりを行うことは、国民から自治体に対して意思決定を付託し、自治体は合理的判断を行う状況につながる目標たり得る。

一方、沈黙のらせん理論に基づく検討では、そもそも処分制度の公正性を高めることが重要であることが示された。経済的便益を活用したまちづくりを行う上でも、公正性を担保するための施策を検討する必要がある。たとえばフランスでは、廃棄物処分関連施設に関する地域への助成金を管理するために、地方自治体や処分事業実施主体とは独立にGIP（公共事業共同体）を設立している。GIPによる事業そのものの評価は賛否あるが、少なくとも地域のステークホルダーが熟議を行い、透明性も確保して、地域のイノベーションを民主的に実現していこうとする制度は、一定の公正性を有する。

このように公正性に配慮した経済的便益の設計がなされたフランスでも、東洋町で見られたように（西郷ら 2010）、経済的便益は「良心を買収」するものであるとする批判があった（大澤ら 2014）。スウェーデンでは、「リスクを負担してもらうために補償を支出するのではなく、長期間に及ぶ処分事業をより安全に実施していくために必要な、「よく機能する」（well-functioning）地域コミュニティを作るための「補償」（The Swedish National Council for Nuclear Waste 2016）という考え方で、基本的には実施主体 SKB 本社の移転などの付加価値事業によるまちづくりを目指している。

本研究によって、国家レベルのアジェンダ・セッティングと個人の態度形成過程との関係が明らかとなり、具体的なアジェンダ・セッティングの設計方針として、地方創生やまちづくりといった、経済的便益のデザインが有力であると示唆された。今後は、地域のまちづくりを目標としてローカルなレベルで熟議が成立するような、公正な制度を検討するため、既往研究の調査、ならびに先駆的な事例の研究を実施していくことが期待される。

まちづくりという観点での便益のあり方として、既存の例から特区制度や規制緩和といった政策が考えられる。特に規制緩和は、単に補助金を出してハコモノを造るという施策ではなく、住民や自治体からの自発的まちづくり、地域イノベーションを引き出していることが事例から示唆される。たとえば、近年の日本では河川空間における規制が緩和され、民間事業者などによる商業活動が可能となった。これをきっかけとして、河川空間を積極的に活用した、にぎわいのあるまちづくりが全国で見られるようになった。この規制緩和の発端となり、自治体職員と民間事業者の創意工夫によって新たなまちづくりが行われているのが、広島市京橋川における水辺のオープンカフェ事業である。

本研究では、高レベル放射性廃棄物処分施設（ないし、文献調査）の受け入れと引き替えに交付金を受け取ることに對して、市民が必ずしも肯定的でない可能性をパネル調査で示してきた。また、その背景には交付金によって自治体等が発展するイメージを持っていないこと、「カネで町を売った」という批判から後ろめたさを感じることなどを示唆した。こうした事情を考慮すれば、金銭ではなく、住民・自治体の自助努力による発展を促す規制緩和という「補償」は、まちづくり・地方創生というフレーミングでアジェンダ・セッティングを設計する上でも、考慮する意義のあるものとする。

そこで、政策的示唆を得るべく、広島市京橋川におけるまちづくり事業について、文献調査と現地有識者インタビュー調査を実施した。調査によって明らかとなった政治過程（図 88）から、本事例では、自治体職員が自律的にイノベーションの元となるアイデアを発想した後、地元の組合・事業者を巻き込みながら、ごく小規模な社会実験から徐々に規模を拡大したことがわかった。政府主導の「都市再生」というアジェンダとうまく適合して、全国に広がる規制緩和政策（2004年の河川敷地占用許可準則の特例措置）へと発展した背景には、そもそも自治体職員や市民・地元事業者などが自発的にイノベーションのアイデアを創出・実験していたことがあった。この点からも、一種の補償として規制緩和を検討する際、トップダウンで規制緩和の内容を決めるのではなく、ローカルレベルでどのようなニーズがあるか、地元の発展につながりそうなアイデア・取り組みがあるか、といった調査情報に基づくボトムアップのプロセスが重要であることがわかる。これは、フランスの GIP、スウェーデンの補償政策など、民主的な補償の考え方に通じるものがある。

今後、高レベル放射性廃棄物処分施設やその建設に向けた調査を行う上で、地方創生・まちづくりといったフレーミングのもとでの「補償」のあり方は重要な論点となる。その具体的議論のためには、上記広島市京橋川のようなグッドプラクティスに関する事例分析が必要であろう。国内外の参考事例についての、さらなる調査が期待される。

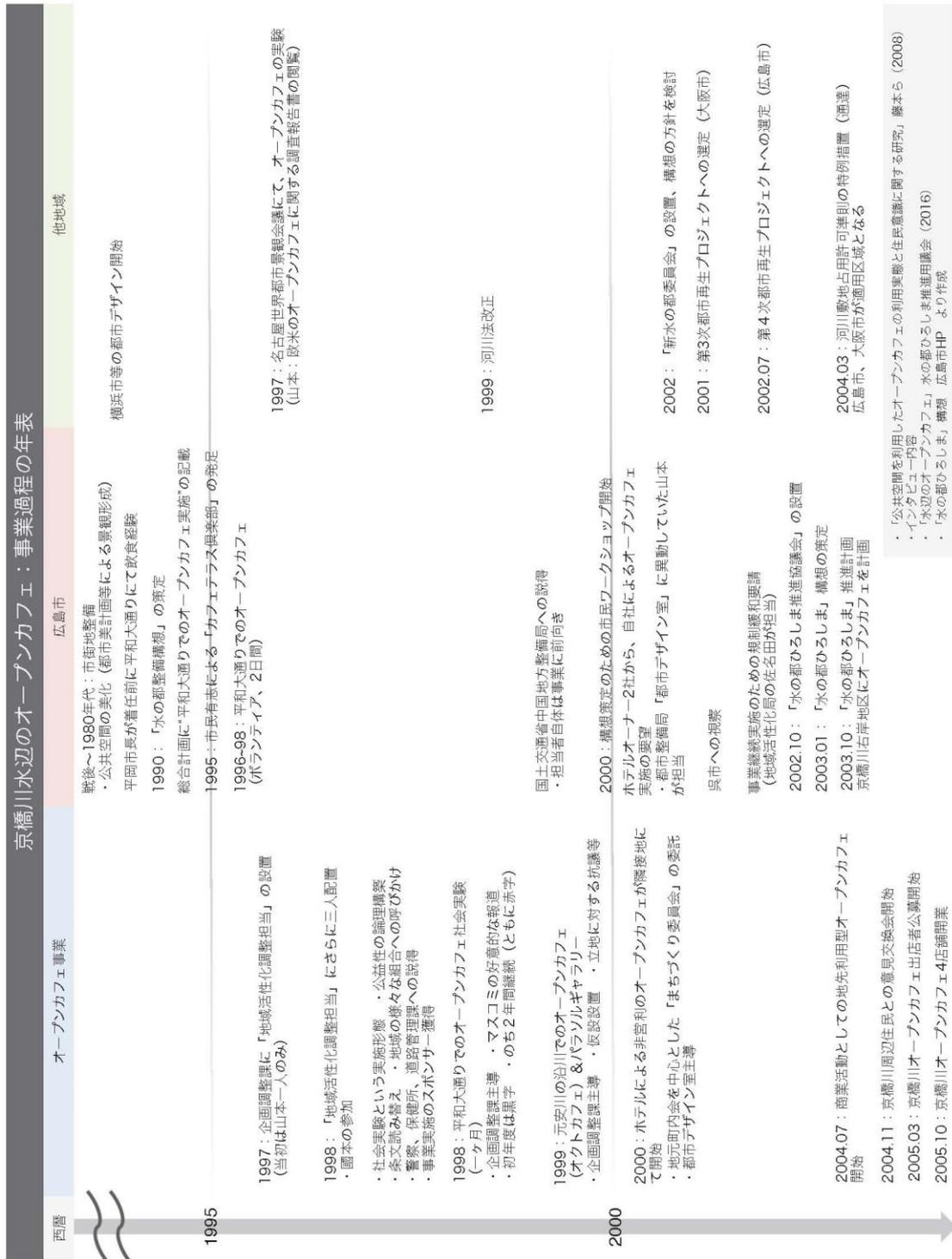


図 88 広島市京橋川におけるまちづくり事業に関わる政治過程

【参考文献】

- Komatsuzaki, S., 2014. "Undesirable facility siting and democracy: A comparative analysis of radioactive waste repository siting in Japan, South Korea, and France," Ueta K. and Y. Adachi ed., *Transition Management for Sustainable Development*, Tokyo: United Nations Press, 293-316.
- Tsujikawa, N., Tsuchida, S., and Shiotani, T. (2016). Changes in the factors influencing public acceptance of nuclear power generation in Japan since the 2011 Fukushima Daiichi nuclear disaster. *Risk analysis*, 36(1), 98-113.
- 岸川洋紀・村山留美子・中畝菜穂子・内山巖雄. 2012. 「日本人のリスク認知と個人の属性情報との関連」 『日本リスク研究学会誌』 22(2): 111-116.
- 西郷貴洋・小松崎俊作・堀井秀之. 2010. 「高知県東洋町における高レベル放射性廃棄物処分地決定に係る紛争の対立要因と解決策」 『社会技術研究論文集』 7: 87-98.
- 坂田桐子. 2014. 「選好や行動の男女差はどのように生じるか—性別職域分離を説明する社会心理学の視点」 『日本労働研究雑誌』 648: 94-104.
- 高浦佑介・高木大資・池田謙一. 2013. 「高レベル放射性廃棄物処分場立地の受容に関する心理的要因の検討—福島第一原子力発電所事故前データの分析と考察—」 『環境科学会誌』 26(5): 413-20.
- 和田隆太郎・田中知・長崎晋也. 2009. 「高レベル放射性廃棄物処分場の立地確保に向けた社会受容プロセスモデル」 『日本原子力学会和文論文誌』 8(1): 19-33.
- 山口陽央・小松崎俊作・堀井秀之. 2011. 「韓国における放射性廃棄物処分場立地過程の政治過程分析」 『社会技術研究論文集』 8: 60-73.

## 別添資料 II 総括

(各実施研究の4年間の成果概要)



## 断層周辺の地下水流動特性および物質移行特性に関する包括的研究

京都大学 柏谷 公希

### 要約

周辺の地下水流動や物質移行における断層の役割を明らかにすること、地下水流動解析や物質移行解析での断層の適切なモデル化手法を確立することを目的とした研究を行った。本研究では、岐阜県東濃地域に分布する主立坑断層を研究サイトとして、断層周辺岩盤の浸透率測定を実施し、水理地質モデルの構築と地下水流動解析、物質移行解析、反応輸送解析を実施した。地下水試料の地球化学特性の分析から断層周辺の地下水流動状態やそれに伴う溶存成分の物質移行状態を推定し、断層の水理特性を解釈した。さらに、地下水の地球化学特性の空間分布と物質移行解析結果を比較することで、解析結果の妥当性を検証した。以上を通して、断層周辺では断層からの距離に応じて岩盤基質部の浸透率が変化することを明らかにし、測定された浸透率を基質部の空隙率に換算した上で Double porosity model として物質移行モデルに反映する手法を確立した。また、塩化物イオンの物質移行解析では、濃度では差異が見られるものの、濃度の空間分布や時間変化に関して解析値と実測値で整合的な結果が得られた。本研究の成果は、放射性廃棄物の地層処分安全評価において、断層周辺の地下水流動状態や物質移行状態の把握と、高精度な将来予測の実現に寄与する。

### ○研究の背景・目的

高レベル放射性廃棄物の地層処分の安全評価で検討されるシナリオとして、地下水の作用により埋設された廃棄体に含まれる放射性核種が生物圏に移行するとする「地下水シナリオ」の評価が最も重要であるとされている。そのため、処分サイト周辺の水理特性や地下水流動状態を把握することが求められる。地殻の水理特性は不均質であり、中でも断層は内部構造や地下水流動方向との位置関係に応じて、地下水流動や物質移行の優先的な経路としても、遅延させる障壁としても機能する場合もある。地下水流動や物質移行における断層の機能については十分に理解されているとは言い難い。また、安全評価の地下水流動解析や物質移行解析で使用される水理地質モデルや地球化学モデルにおいて、断層の適切なモデル化手法を構築する必要がある。そこで本研究では、周辺の地下水流動状態や物質移行状態における断層の役割を明らかにすることを目的とし、断層周辺を対象とした浸透率測定や地下水試料の分析、水理地質モデル構築と地下水流動解析、物質移行解析などの解析手法を組み合わせた検討を行った。

### ○実施内容

日本原子力研究開発機構瑞浪超深地層研究所の研究坑道近傍に分布する、主立坑断層を

対象に研究を実施した。断層周辺の研究坑道で浸透率を実測し、断層周辺の浸透率の空間変化を明らかにした。断層周辺の水理地質モデルを構築し、地下水流動解析と物質移行解析を実施した。また、坑道内のボーリング孔から地下水試料を採取し、断層周辺における地下水の地化学特性の空間分布を明らかにすることで、地下水の流動状態や断層の水理特性を考察した。地下水試料の分析で明らかとなった地化学特性の空間分布は、物質移行解析の結果と比較することで、解析結果の妥当性検証にも用いた。以上を通して、主立坑断層周辺の地下水流動状態と物質移行状態の詳細を明らかにするとともに、断層周辺の地下水流動状態および物質移行状態のモデル化法について検討した。

### ○得られた成果

地下研究坑道における浸透率の測定結果を図 1 に示す。浸透率は断層からの距離に応じて変化し、概ね断層の近傍で高い結果となった。深度 500m では、断層近傍に加えて 50～60m 区間も高い浸透率を示すが、この区間付近には主立坑断層の二次断層が分布している。巨視的な割れ目密度が高い区間では浸透率も高く、このような区間では微視的な割れ目も増加しているものと考えられた。そこで、シュミットロックハンマーによる反発度測定を行ったところ、浸透率と反発度間に負の相関がある可能性が示唆された（図 2）。機械的強度が低い箇所では浸透率が高いことから、断層による岩盤の微視的なダメージにより、断層周辺の浸透率の空間分布が生じているものと考えられる。

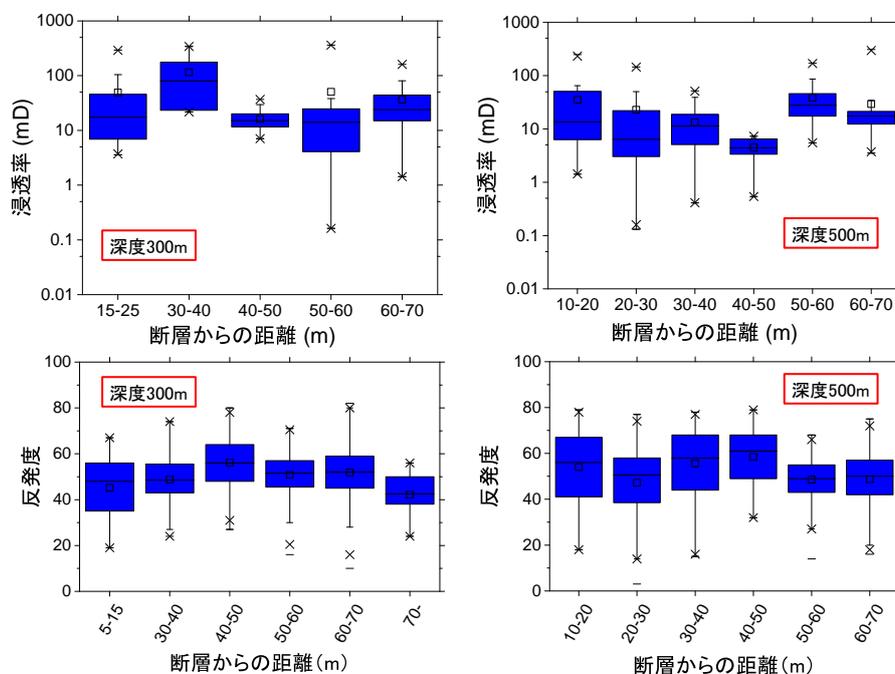


図 1 断層からの距離に応じた浸透率と反発度の変化

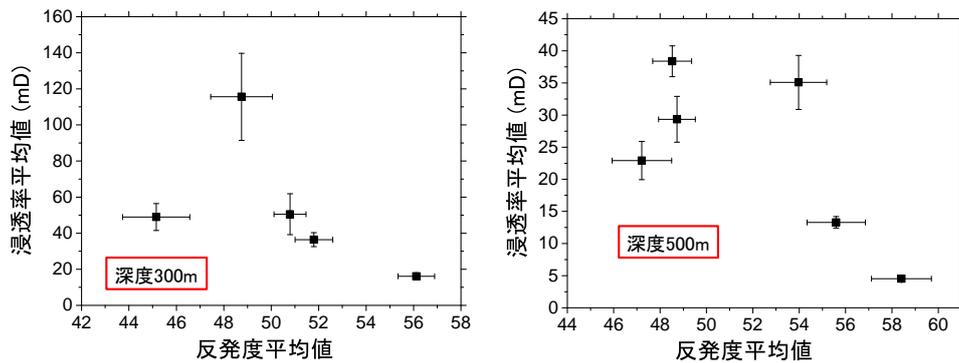


図2 図1に示した10m区間ごとの反発度平均値と浸透率平均値の関係(エラーバーは標準誤差を表す)

深度200m, 300m, 400m, 500mの研究坑道に位置するボーリング孔で採取された地下水試料の分析から、断層の両側で各種イオン濃度や水の水素酸素同位体比、トリチウム濃度などの分布が異なることが明らかとなった。また、断層周辺の水理地質モデルを作成し地下水流動解析を行ったところ、立坑における地下水の湧出部に向けた地下水流動が認められた。さらに、浸透率(図1)を空隙率に換算し、Double porosity modelとして断層周辺に設定したモデルを用いて塩化物イオンの物質移行解析を行った。断層の南側で浅部から塩化物イオン濃度の低い地下水の流下と深部から濃度の高い地下水の上昇が認められたのに対して、北側での影響は小さく、このような濃度の空間分布の特徴は水野ほか(2013)やIwatsuki et al. (2015)などで指摘されている主立坑断層周辺の地下水流動状態と整合的であった。また、解析で得られた濃度は実測値と異なるが、濃度の時間変化の傾向は解析値と実測値と同様であった。本研究を通して、断層周辺岩盤における浸透率の空間分布に関する知見が得られた。また、このような原位置で取得された岩盤の浸透率をモデルに反映し、地下水流動解析、物質移行解析、反応輸送解析を行う手順を構築できた。

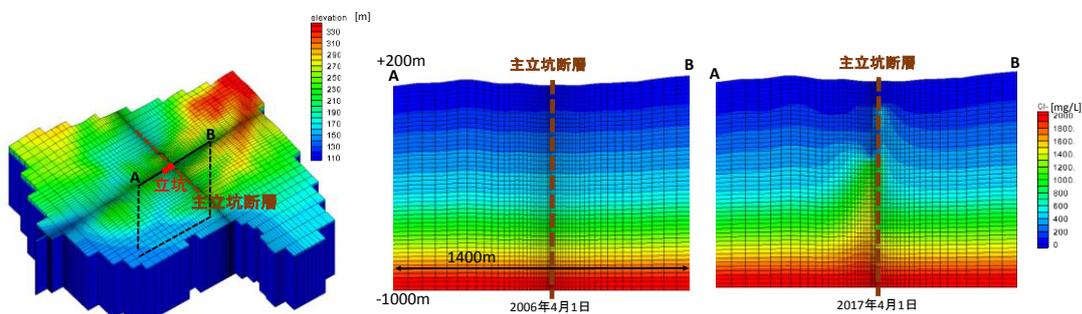


図3 断層周辺モデルを用いた物質移行解析による塩化物イオン濃度の時空間変化推定  
立坑からの排水の影響により、断層南側で浅部から塩化物イオン濃度の低い地下水の浸透と深部から濃度の高い地下水の上昇が認められる。

## ○今後の展開

本研究で提案された断層周辺の地下水流動特性や物質移行特性の調査手法、モデル化手法は、放射性廃棄物の地層処分の安全評価において、地下水流動や物質移行における断層の機能をより適切に評価する上で役立つ。今後はこれらの調査手法を他のサイトに適用し、広く活用可能であることを確認する。

## 引用文献

水野崇, 青才大介, 新宮信也, 萩原大樹, 山本祐平, 福田朱里, 2013, 瑞浪超深地層研究所の建設に伴う地下水水質の変化, 日本原子力学会和文論文誌, 12, 89-102.

Iwatsuki, T., Hagiwara, H., Ohmori, K., Munemoto, T., Onoe, H., 2015. Hydrochemical disturbances measured in groundwater during the construction and operation of a large-scale underground facility in deep crystalline rock in Japan, *Environmental Earth Sciences*, 74, 3041-3057.

## ○外部発表リスト

- [1] 柏谷公希, 久保大樹, 佐藤開, 松田典大, 小池克明, 2016, 原位置パーミアメータ測定で明らかとなった断層周辺岩盤の浸透率の空間分布特性, 日本地球惑星科学連合 2016 年大会. (2016 年 5 月 24 日発表)
- [2] Kashiwaya, K., Kubo, T., Sato, K., Matsuda, N., Koike, K., 2016. Development of hydrogeological model and groundwater flow analysis considering permeability distribution around faults, 43rd International IAH Congress. (2016 年 9 月 27 日発表)
- [3] Kashiwaya, K., Kubo, T., Sato, K., Matsuda, N., Koike, K., 2016. Spatial variation of permeability around faults in Toki granite, Workshop on properties of active fault damage zones and fault dating. (2016 年 7 月 5 日発表)
- [4] 柏谷公希, 多田洋平, 堀太至, 裕隆太, 佐久間洋一, 小池克明, 2017, 複数の地化学指標に基づく京都盆地地下水の滞留時間推定, 資源・素材学会平成 29 年度春季大会. (2017 年 3 月 27 日発表)
- [5] 岡嶋純也, 柏谷公希, 多田洋平, 小池克明, 2017, 地下水の地球化学分析と物質移行解析による断層の水理特性の把握, JpGU-AGU Joint Meeting 2017. (2017 年 5 月 23 日発表)
- [6] Okajima, J., Kashiwaya, K., Tada, Y., Hazama, R., Sakuma, Y., Koike, K., 2017. Groundwater flow and mass transport regimes around a fault from numerical simulation and environmental tracer analyses, 44th Annual Congress of the International Association

of Hydrogeologists, Book of abstracts, T3.4.11.(2017年9月25日発表)

- [7] 岡嶋純也, 柏谷公希, 多田洋平, 裕隆太, 佐久間洋一, 小池克明, 2018, 環境トレーサー分析と二重間隙モデルを用いた断層周辺の地下水流動特性および物質移行特性の把握, 日本地球惑星科学連合 2018 年大会. (発表予定)

ほか論文 2 編準備中



## 岩石き裂の治癒作用を利用した不連続面のバリア性能向上に関する研究

京都大学 奈良 禎太

### 要約

本研究では、花崗岩におけるき裂進展特性と透水特性に及ぼすき裂修復の影響を調べた。その結果、カルシウムイオン濃度が高い環境下では、アルカリ性環境下であるにも関わらず、き裂進展速度が低下することが示された。また、透水係数は、粘土のような微細鉱物の沈殿により低下することが示された。ゆえに、セメント系材料由来のカルシウム化合物や地下水由来の微細な鉱物の沈殿により岩石内のき裂は修復されることから、カルシウム化合物の沈殿により岩石の強度劣化が抑制され、微細な鉱物粒子の沈殿により遮蔽性能が回復する可能性があるということが、本研究で得られた成果である。

### ○研究の背景・目的

放射性廃棄物地層処分では、岩盤を天然バリアとして使用する。天然バリアとなる岩盤には、高い長期強度および、放射性物質の移行を抑制する機能が期待される。岩盤内では、き裂や空隙のネットワークが流体の流路となるため、遮蔽性向上には、き裂の進展を防ぐことおよび、き裂や空隙を閉塞させることが効果的であると考えられる。放射性廃棄物処分施設を地下岩盤に設ける場合、大量のセメント系材料が使用されることとなる。ゆえに、周辺の地下水は、カルシウムイオン濃度が高い状態となると予想される。また、地下水には微細な鉱物粒子が含まれている。しかしながら、このような条件下でのき裂進展特性および透水特性が調べられた例はない。

そこで本研究では、花崗岩を試料として、カルシウムイオン濃度が異なる水中環境下での岩石の時間依存性のき裂進展（サブクリティカルき裂進展）を調べることに、微細な鉱物でき裂が充填される条件下での透水特性を調べることを目的とした。

### ○実施内容

破壊力学試験法の一つであるダブルトーション試験法を用い、花崗岩におけるサブクリティカルき裂進展測定を行った。特に、大気中、蒸留水中、水酸化カルシウム水溶液中での測定を行い、水およびカルシウムイオンがき裂進展にどのように影響するかを調べた。

また、透水試験を行い、微細な鉱物粒子がき裂を充填している花崗岩における透水係数を調べた。特に、周辺環境の温度変化を抑えた室内透水試験により、自然環境下で充填された巨視き裂を含む花崗岩での透水係数を評価した。

さらに、粘土を懸濁させた水を流す透水試験を行い、微細な鉱物粒子がき裂を充填していく過程における透水係数の変化を調べた。

## ○得られた成果

図 1 に花崗岩のき裂進展速度と応力拡大係数の関係を示す。この図より、水中環境下においては、大気中よりもき裂進展速度が高くなっていることが示されている。また、水中環境下での結果のみに着目すると、カルシウムイオン濃度が高い水酸化カルシウム水溶液環境下においてき裂進展速度が低くなっていることがわかる。この結果は、アルカリ性環境下においてき裂進展速度が高くなるという過去の研究報告とは異なる傾向を示している。

図 2 に水酸化カルシウム水溶液中で用いた試験片において走査型電子顕微鏡で観察されたき裂経路の二次電子像 (図 2(a)) と元素マッピングの結果 (図 2(b)) を示す。この図より、き裂経路にカルシウム化合物が析出していることがわかる。この岩石表面での鉱物析出が、水酸化カルシウム水溶液中でのき裂進展の抑制につながったものと考えられる。

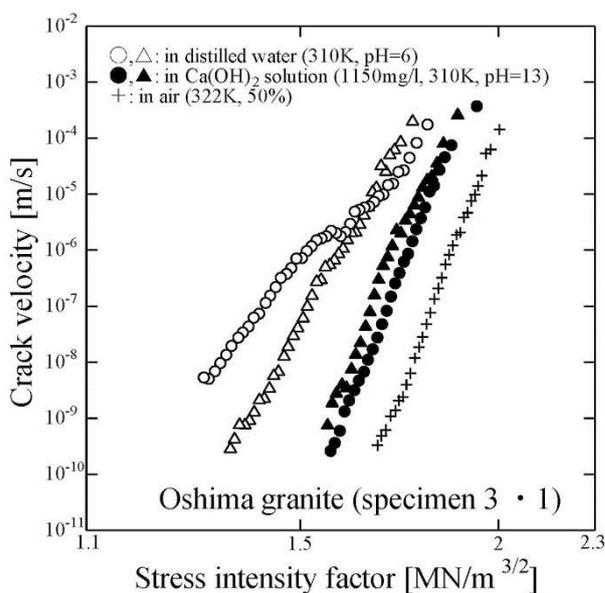


図 1 き裂進展速度と応力拡大係数の関係

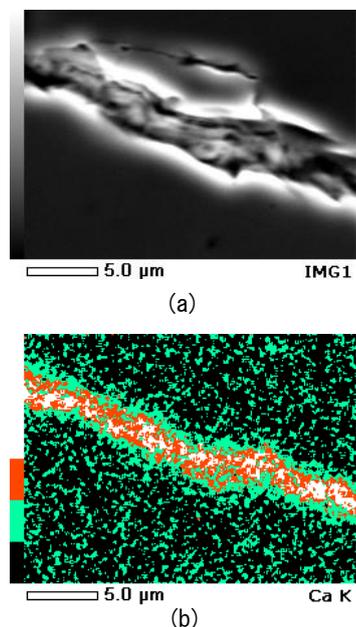


図 2 花崗岩におけるき裂経路の画像  
(a): 二次電子像, (b): 元素マッピング

図 3 に透水試験片の写真を示す。図 3(a)はインタクトな試験片、図 3(b)は巨視き裂を含む試験片、図 3(c)は鉱物の脈が含まれる試験片、図 3(d)は巨視き裂が粘土鉱物の層で充填された試験片の写真である。試験片の形状は円柱形で、直径は 50mm、長さは 25mm である。

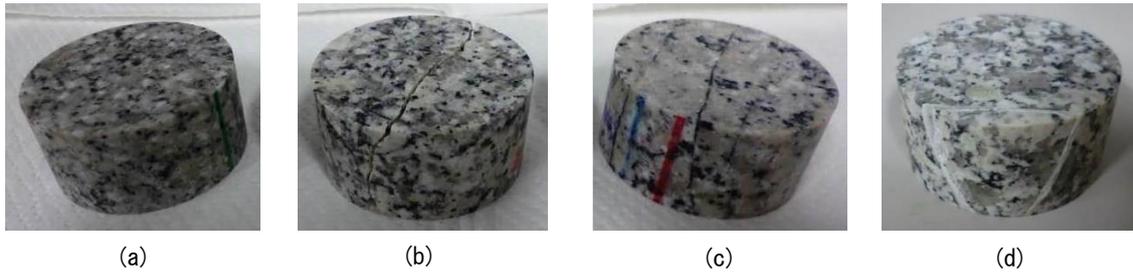


図3 土岐花崗岩の透水試験片（直径 50mm，高さ 25mm）. (a)： intactな試験片， (b)： 巨視き裂を含む試験片， (c)： 鉱物の脈を含む試験片， (d)： 粘土層を含む試験片，

図3に示した試験片での透水係数の測定結果を図4に示す. この図より， intactな試験片および鉱物脈を含む試験片では透水係数が低く， 互いによく一致していることがわかる. また， これらの試験片では， 透水係数の圧力依存性もほとんど認められない. 一方， 巨視き裂を含む試験片の透水係数は， intactな試験片よりもはるかに高く， 圧力の増大に伴い， 透水係数が低下していることもわかる. 粘土で充填された層を含む試験片では， 巨視き裂を含む試験片よりも3オーダー程度透水係数が低く， intactな試験片との透水係数の差は1オーダー程度であった. また， 圧力の増大に伴い， 透水係数が低下していることがわかる. 図5に， 水理的開口幅の評価結果を示す. この図より， 巨視き裂が充填されることによって流路の開口幅が低下し， 透水係数の低下につながっていることがわかる.

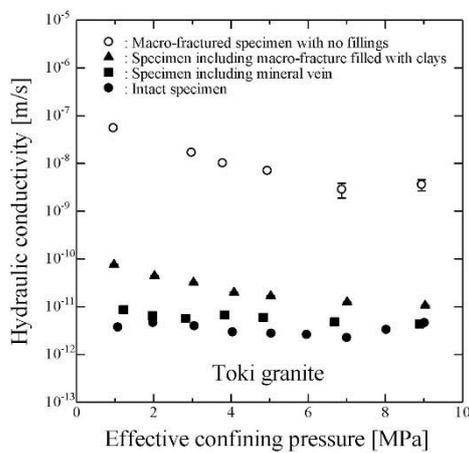


図4 花崗岩における透水係数.

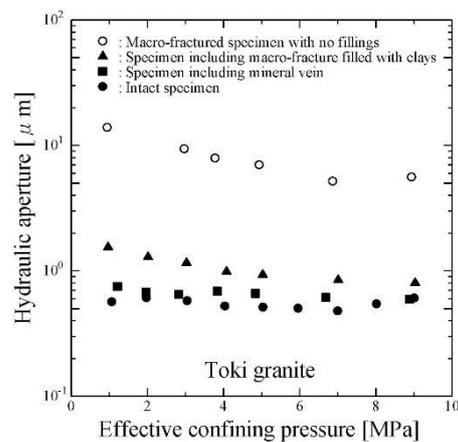


図5 花崗岩における水理的開口幅.

図6に， フローポンプ法による室内透水試験で得られた， 花崗岩に粘土懸濁水（蒸留水1ℓに5.3gの粘土を懸濁）を流す過程での間隙水圧， 差圧， 実験室内の温度の経時変化を示す. この図より， 差圧が時間の変化とともに上昇していることから， 透水係数が低下していることが示唆される. 図7に透水係数および水理開口幅の変化を示す. この図より， 時間の経過とともに透水係数が低下し， 流路の開口幅も低下していることがわかる.

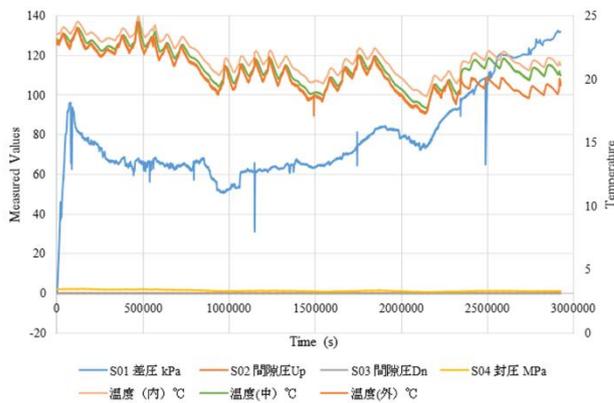


図6 フローポンプ透水試験での温度・圧力変化.

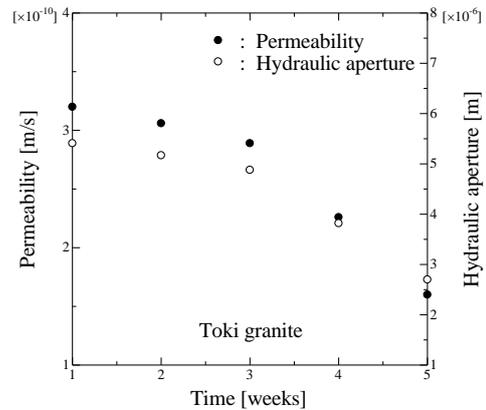


図7 フローポンプ透水試験での透水係数・水理的開口幅の変化.

図8に、複数回の原位置岩盤パルス透水試験で得られた、粘土懸濁水の注入圧の経時変化を示す。この図では、1回目から5回目までの透水試験での水の注入圧の変化が示されている。特に、注入圧の低下がどの程度早く生じるか（または緩やかに生じるか）が透水係数に対応する。図9に、原位置岩盤透水試験で得られた透水係数を、試験回数ごとに示す。この図より、試験回数が増加すると、透水係数が低下していることがわかる。これは、粘土が岩盤内のき裂を充填して、透水係数の低下をもたらしたと考えられる。

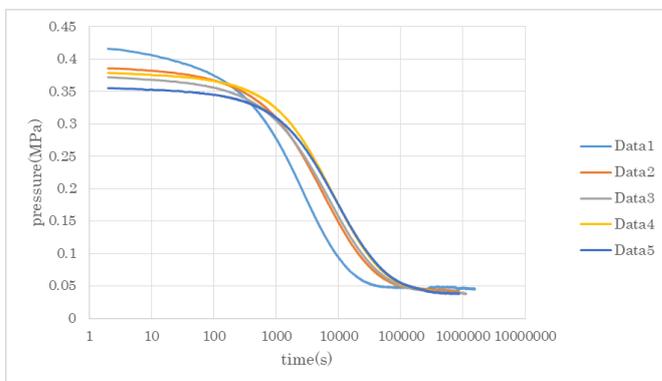


図8 原位置透水試験での水の注入圧変化.

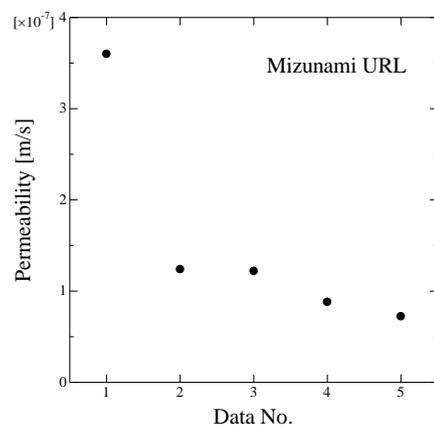


図9 原位置岩盤での透水係数.

### ○今後の展開

本研究での結果から、カルシウム化合物が析出する環境下では、き裂進展が抑制され、岩盤内の流路の形成を抑えることができるとともに、岩盤強度の劣化が抑制される可能性があることが示された。また、粘土のような微細な鉱物粒子が沈殿しき裂が修復されることに

よって、岩盤の透水係数が低下し、遮蔽性能が保持・向上する可能性があることが示された。これらの成果は、岩盤空洞周辺の掘削影響領域での強度劣化の抑制や遮蔽性能保持・向上に役立てられると考えられる。特に、廃棄体の埋設後数百年間で地下水が浸透する過程で掘削影響領域のき裂が修復されれば、その後オーバーパックが劣化しき裂が生じた場合でも、岩盤内での放射性物質の移動を抑えられる効果が期待できる。

従来の安全評価シナリオでは、き裂の修復による岩盤の透水性の変化（低下）に関することは考慮されていない。本研究の成果は、掘削影響領域での透水性が将来的に低下することを示唆するものであり、岩盤の透水性のより正確な将来予測のための情報を提供できるものであると考えられる。

本研究では、カルシウム化合物の析出がき裂進展抑制に効果があることを示すことができたが、岩盤の透水性にどの程度影響するかを示すことはできていない。また、鉱物の沈殿が起こる条件をより明確にする必要があると思われる。特に、流速が及ぼす影響や、水に含まれる微細鉱物の量の影響、き裂の開口幅が及ぼす影響については、詳細な検討が必要であると考えられる。さらに、放射性廃棄物処分の状況により近い条件下にある原位置岩盤での計測をより重点的に行うことも重要と考えられる。これらについては今後の課題としたい。

## ○外部発表リスト

### ・ 学術論文発表

1. 加藤昌治, 奈良禎太, 福田大祐, 河野勝宣, 佐藤稔紀, 佐藤努, 高橋学 (2016): 岩石の透水試験における環境温度の制御の重要性, *材料*, Vol.65, No.7, pp.489-495.
2. Yoshitaka Nara, Tomoki Harui and Koki Kashiwaya (2018): Influence of calcium ions on subcritical crack growth in granite in water, *Int. J. Rock Mech. Min. Sci.*, Vol.102, pp.71-77.
3. Yoshitaka Nara, Masaji Kato, Ryuhei Niri, Masanori Kohno, Toshinori Sato, Daisuke Fukuda, Tsutomu Sato and Manabu Takahashi (2018): Permeability of granite including macro-fracture naturally filled with fine-grained minerals, *Pure Appl. Geophys.*, Vol.175, pp.917-927.
4. 加藤昌治, 奈良禎太, 岡崎勇樹, 河野勝宣, 佐藤稔紀, 佐藤努, 高橋学 (2018): 粘土の透水係数測定へのトランジェントパルス法の適用, *材料*, Vol.67, pp.318-323.
5. 奈良禎太, 桑谷隆太, 河野勝宣, 佐藤稔紀, 柏谷公希 (2018): カルシウムイオン濃度が異なる水中に保存した岩石での鉱物析出, *材料*, 掲載決定.

### ・ 国際会議口頭発表

1. **Yoshitaka Nara**, Ryuhei Kuwatani, Masanori Kohno, Yusaku Hamada, Masaji Kato, Tsutomu Sato and Toshinori Sato (2016): Precipitation of calcium compound on silicate rock surfaces, Proc. 2016 Korea-Japan Joint Symposium on Rock Engineering, pp.34-37, Daejeon, Korea, May 19-20, 2016.
2. Masaji Kato, **Yoshitaka Nara**, Daisuke Fukuda, Masanori Kohno, Tsutomu Sato, Toshinori Sato and Manabu Takahashi (2016): Importance of temperature control during permeability test for

measuring hydraulic constants rock, Proc. EUROCK2016, pp.259-263, Cappadocia, Turkey, Aug. 29-31, 2016.

3. Yoshitaka Nara and Tomoki Harui (2016): Long-term measurement of subcritical crack growth in rock, Prof. World Multidisciplinary Earth Sciences Symposium 2016, p.22, Prague, Czech Rep., Sep. 5-9, 2016.

・国内会議口頭発表

1. 奈良禎太, 春井友貴, 河野勝宣, 加藤昌治, 福田大祐, 佐藤努 (2015): 大島花崗岩における長期サブクリティカルき裂進展計測, 資源・素材 2015 (松山), 2015年9月10日.
2. 加藤昌治, 奈良禎太, 河野勝宣, 福田大祐, 佐藤稔紀, 佐藤努, 高橋学 (2015): 岩石の透水試験における温度制御の重要性, 資源・素材 2015 (松山), 2015年9月10日.
3. 加藤昌治, 奈良禎太, 二里竜平, 河野勝宣, 佐藤稔紀, 佐藤努, 福田大祐, 高橋学 (2016): 岩石の透水性に及ぼすき裂修復の影響, 日本材料学会第65期学術講演会, 2016年5月28日.
4. 加藤昌治, 奈良禎太, 岡崎勇樹, 河野勝宣, 佐藤稔紀, 佐藤努, 福田大祐, 高橋学 (2016): 岩石と粘土におけるトランジェントパルス法を用いた透水係数測定, 資源・素材 2016 (盛岡), 2016年9月15日.
5. 加藤昌治, 奈良禎太, 河野勝宣, 佐藤稔紀, 佐藤努, 福田大祐, 高橋学 (2017): 花崗岩のき裂の透水性に及ぼす充填鉱物の影響, 第14回岩の力学国内シンポジウム, 論文番号68, 2017年1月9日.
6. 奈良禎太, 桑谷隆太, 河野勝宣, 佐藤稔紀 (2017): ケイ酸塩岩石へのカルシウム化合物の析出に関する基礎研究, 平成29年度資源・素材学会春季大会, 2017年3月29日.
7. 奈良禎太, 春井友貴 (2017): 花崗岩のサブクリティカルき裂進展に及ぼすカルシウムイオン濃度の影響, 日本材料学会第66期学術講演会, 2017年5月27日.
8. 加藤昌治, 奈良禎太, 岡崎勇樹, 河野勝宣, 佐藤稔紀, 佐藤努, 福田大祐, 高橋学 (2017): 充填鉱物を有する花崗岩のき裂の水理開口幅の評価, 日本材料学会第66期学術講演会, 2017年5月27日.
9. 奈良禎太, 加藤昌治, 岡崎勇樹, 河野勝宣, 福田大祐, 佐藤努, 佐藤稔紀, 高橋学 (2017): 粘土を含む水が流れる環境下での破壊した花崗岩における透水性の変化, 資源・素材&Earth 2017 (札幌), 2017年9月28日.

・国内会議ポスター発表

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

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

福島工業高等専門学校 金澤 伸一

## 要約

本研究では、地層処分施設における廃棄体から発せられる温度、および再冠水に伴う飽和度変化を考慮したベントナイト緩衝材の一軸圧縮試験、温度変化を考慮した膨潤量試験を行うことで、ベントナイト緩衝材の力学的基本特性の把握を行った。その結果、温度変化によってベントナイト緩衝材の強度、膨潤特性が大きく変化することが確認された。また熱/固/液/気連成解析を行い、熱の影響を考慮した処分施設の再冠水シミュレーションを行った。

## ○研究の背景・目的

高レベル放射性廃棄物の処分は、地下深くの岩盤中に処分する地層処分を行うことが国際的にも検討されており、処分地が決定している国も存在する。日本においては、廃棄体の周囲を鋼鉄製のオーバーパックで覆い、さらにその周囲をベントナイトと呼ばれる粘土の緩衝材で覆い（人工バリア）、それらを地下 300m 以深の天然の岩盤中（天然バリア）に埋設することで、約数万年から数十万年の間、放射性物質を地下に閉じ込め、人間の生活環境から隔離することが考えられている。このうち、ベントナイトに含まれるモンモリロナイトには、吸水すると自身の体積を著しく膨張させる高い膨潤性や難透水性を有することにより、施工後岩盤と廃棄体の間に生じた隙間を充填する機能、廃棄体と地下水の接触を遅らせる機能などが期待されている。しかしながら、ベントナイト緩衝材の力学挙動には未解明な部分が多い。施工後、ベントナイト緩衝材に作用する影響として、廃棄体の崩壊熱による 100°C 近い高温状態に晒されることが予測される。また、選定地により異なる地下水の水質、不飽和から飽和に移行する過程で生じる緩衝材内部の応力状態の変化など、熱、水理、化学、力学的特性の影響が相互に作用する。そのため、処分施設の長期的な力学的安定性の予測のためには、これらを考慮したベントナイト緩衝材の力学的性能を把握することが重要となる。本研究では、廃棄体から発せられる温度、および再冠水に伴う飽和度変化を考慮したベントナイトの一軸圧縮試験、温度変化を考慮した膨潤量試験を行うことで、ベントナイト緩衝材の基本特性の把握を実行した。また、熱/固/液/気連成有限要素解析を用いて、再現解析を実施したのち、熱の影響を考慮した再冠水シミュレーションを行った。

## ○実施内容

- 実験 -

### 1. 熱を考慮したベントナイトの一軸圧縮試験

本実験では、熱を考慮した一軸圧縮試験を行った。設定した温度は 30°C~90°C (10°C刻み) である。

図-1 より、温度上昇に伴い、圧縮強度がほぼ一様な勾配で減少する傾向がみて取れる。飽和度を 10%刻みで 90%まで変化させて行った他の実験においては、飽和度 60%までは同様の傾向がみられた。しかしながら、図-2 より、飽和度 70%以上においては、温度の上昇に伴う強度の減少がみられなかった。今回の実験では、温度が高いほどこの影響は大きくなるため、温度の上昇に伴い圧縮強度が低下したと考えられる。一軸圧縮試験においては、サクション (負の間隙水圧) が拘束圧として作用しており、温度上昇に伴う強度減少は、温度上昇に伴うサクションの減少が起因していると考えられる。

また、ベントナイトの透気性は非常に低いいため、供試体養生時に生じる内部の間隙空気の内熱膨張や間隙水の蒸発、養生後の表面の温度低下による収縮によって、表面あるいは内部にマイクロクラックが発生している可能性が示唆される。つまり、マイクロクラックが入ることによって、剛性が低下し、圧縮時にクラックが入りやすくなるために、圧縮強度が低下したと考えられる。実際に養生後の供試体表面を観察したところ、特に温度が高い供試体についてクラックが確認できた。しかしながら、飽和度 70%以上の高飽和度条件においては、ベントナイト自身の粘性が高く、高温状態においても間隙水の粘性が低下し、変形を追随することでクラックの発生が抑制されたため、圧縮強度の減少が生じなかったと考えられる。

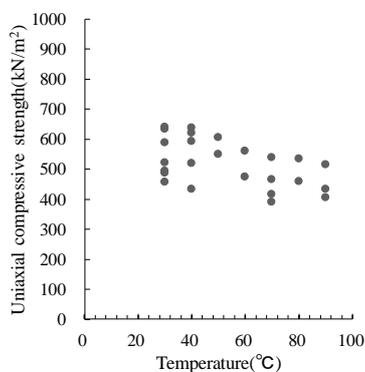


図-1 温度-強度関係(飽和度=30%)

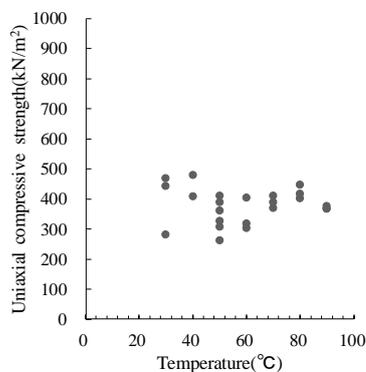


図-2 温度-強度関係(飽和度=70%)

## 2. 熱を考慮した膨潤量試験

### (1) 実験条件

図-3 に膨潤試験機の模式図を示す。実験の初期条件は成果報告書を参考にされたい。試料は、ベントナイト (クニゲル V1) と東北珪砂 5 号を 7:3 で混合したものをを用いた。供試体の大きさは直径 60mm, 高さ 20mm である。水温は熱電対で計測し、±1°Cの範囲で維持されるようにヒーターによる温度制御を行った。給水は供試体下部からのみ行った。なお、本実験では膨潤量の収束を促進させるため、試験機の上部に 3.2 kg の錘を載荷した。

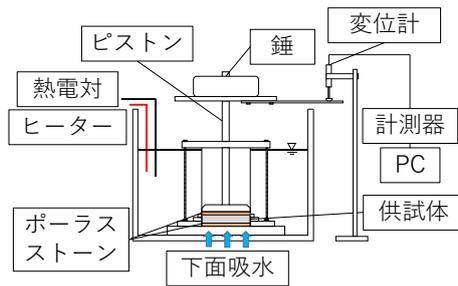


図-3 膨潤量試験装置模式図

## (2) 実験結果

図-4 に温度ごとの膨潤過程を示す。温度ごとの膨潤過程は大きく異なり、温度が高い方が初期の膨潤量の変化の傾きが大きくなる傾向が確認できる。これは、温度が高い環境下の方が、モンモリロナイトと水との反応が良くなることで膨潤性能が向上したこと、温度が上がるにつれ供試体内部の透水係数が大きくなったことなどが考えられる。

図-5 に実験後の 60°C 供試体の下部から 3mm ごとの含水比分布を示す。ここでは、膨潤は水との反応によって起こることから、供試体内部の高さごとの含水比の分布から、その地点がどのくらい膨潤性能を発揮していたかを示す一つの指標となる。0mm~15mm の範囲で含水比は 90%~100% の値を示し、この範囲で膨潤性能は大きく発揮されていた可能性がある。また 15mm~27mm の範囲では高さごとにそれほど含水比に差はなく、30mm からは含水比が下がるため、これ以降は給水側の膨潤したモンモリロナイトの低透水性により、水の浸入が妨げられていたと考えられる。

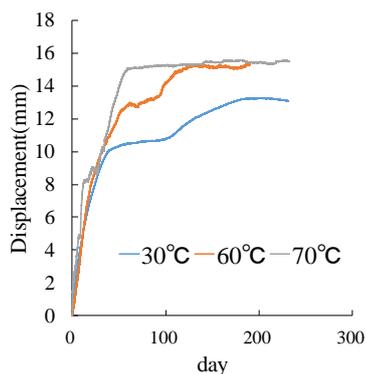


図-4 温度ごとの膨潤過程

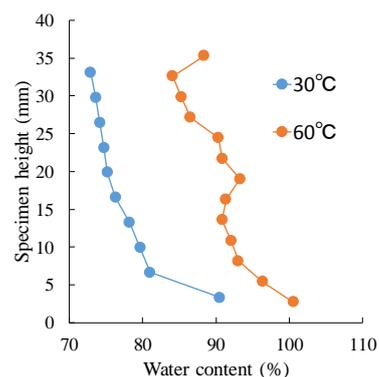


図-5 供試体の含水比分布

- 解析 -

### 1. シミュレータの高度化（熱連成の構築）

本研究では、熱/固/液/気連成有限要素解析を行うため、シミュレータの高度化を実施し

た。高度化に関する詳細は、最終報告書を参照されたい。

## 2. 実験結果による再現解析

熱を考慮した膨潤量試験に対して、作成した解析コードにて再現解析実施した。解析条件は、実験と同様のパラメータ設定と境界条件を与えて行う。なお膨潤量試験は、拘束圧一定条件下で吸水し、その時の体積変化を計測する試験である。膨潤量試験中のベントナイト供試体は、不均一な密度・飽和度分布を示すためこれらの試験は要素試験でなく境界値問題として扱うのが妥当である。

図-6 に温度変化 (30°C, 50°C, 70°C) による各膨潤量の再現解析の結果を示す。結果より、温度が上昇するに従い、膨潤量が大きくなることが確認できる。特に高温 (70°C) に関して、膨潤傾向や、最終的な膨潤量が実験結果を再現できている。

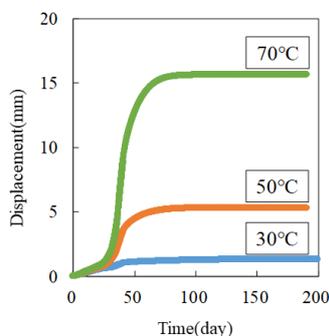


図-6 膨潤量試験の再現解析

## 3. 緩衝材の冠水挙動に関する解析

高レベル放射性廃棄物は、地層処分が検討され処分施設における緩衝材や埋め戻し材にはベントナイト材料の利用が検討されている。そこで、処分施設を対象とした再冠水解析を行い、再冠水中のベントナイト系材料の力学挙動を検討する。坑道周囲全面から地下水を侵入させ、水頭は 300m まで上昇させる。緩衝材、埋め戻し材は一様な材料で構成し、初期飽和度は 50% とする。また、再冠水期間は 100 年とする。

### (1) 解析結果 (温度変化)

図-7 に再冠水期間 100 年の場合の温度の経時変化を示す。廃棄体の熱が徐々に伝導していくことが見て取れる。しかしながら、300 日経過しても高温に晒されるのは下部だけであった。

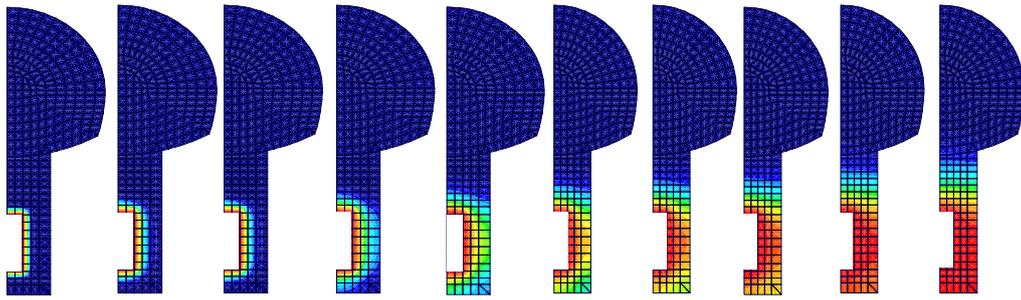


図-7 温度の経時変化(100年)

## (2) 解析結果（飽和度変化）

図-8は、再冠水期間100年の飽和度の経時変化を0年から100年までそれぞれに示している。再冠水期間が100年の場合、約50年で廃棄体周囲の緩衝材が飽和し、約60年で全体が飽和することが確認できる。冠水完了前に飽和する理由としては、冠水が緩やかに進行すると、外部の緩衝材の飽和が進まないため、内部への浸透が進むためであると考えられる。また、廃棄体周辺は飽和の進行が遅いことが分かる。これは、廃棄体の熱の影響であると考えられる。しかしながら、本研究で行った解析結果を踏まえると、廃棄体の熱の影響はあるにせよ再冠水の手法によっては施設内の冠水が完了し、期待する結果となることが示唆される。

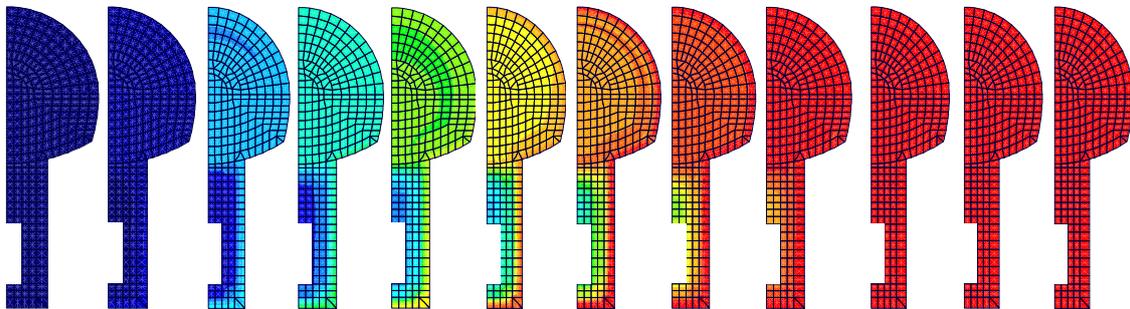


図-8 飽和度の経時変化(100年)

## ○得られた成果

本研究では温度変化の違いがベントナイトに与える影響について実験的、解析的把握を行った。その結果以下の知見を得た。

- (1) 約60年で廃棄体周囲の緩衝材が飽和する。
- (2) 約100年で全体が飽和する。
- (3) 冠水が緩やかに進むと、外部の緩衝材の飽和が急激に進まないため、内部への浸潤が進むことにより、冠水が完了する前に飽和化する。
- (4) 廃棄体の熱の影響により、廃棄体周辺は飽和の進行が遅い

## ○今後の展開

実際の処分期間は数万年から数十万年もの超長期間に及ぶため、実際の処分期間中のベントナイト緩衝材の安全性の評価を実験からのみ得ることは不可能である。本研究では、処分施設の長期的力学挙動の予測解析手法を開発することで、いくつかのシナリオを準備することが可能であることが示された。

今後は、設計時における照査技術として整備していくことが必要となる。

## ○外部発表リスト

### 【学術論文】

- 1) 市川希, 金澤伸一, 林久資, 石山宏二, 飯塚敦: 地層処分施設内における温度・密度・飽和度変化を考慮したベントナイト緩衝材の力学特性, 第12回環境地盤工学シンポジウム論文集, 地盤工学会, pp.557-560, 2017.
- 2) 武藤尚樹, 金澤伸一, 林久資, 市川希, 石山宏二, 飯塚敦: 地層処分施設内における温度, 飽和度変化を考慮したベントナイト緩衝材の力学挙動に関する研究, 第12回環境地盤工学シンポジウム論文集, 地盤工学会, pp.567-570, 2017.
- 3) 林久資, 西内瑞生, 金澤伸一, 石山宏二: 直接処分施設の建設・運用時における力学的影響予測, トンネル工学報告集 27(1-32) 1-5 2017年11月.

### 【口頭発表】

- 1) 市川希, 金澤伸一, 林久資, 石山宏二: 地層処分施設における温度変化を考慮したベントナイト緩衝材の膨潤特性の把握, 第23回高専シンポジウム 2018年1月27日.
- 2) 武藤尚樹, 金澤伸一, 林久資, 石山宏二: 地層処分施設における温度・密度・飽和度変化を考慮したベントナイト緩衝材の力学挙動に関する研究, 第23回高専シンポジウム 2018年1月27日.
- 3) 武藤尚樹, 金澤伸一, 市川希, 石山宏二: 地層処分施設内における温度・密度・飽和度変化を考慮したベントナイト緩衝材の力学挙動に関する研究, 第23回高専シンポジウム, 2018.
- 4) 市川希, 金澤伸一, 林久資, 石山宏二: 地層処分施設内における温度変化を考慮したベントナイト緩衝材の膨潤特性の把握, 第23回高専シンポジウム, 2018.
- 5) 西内瑞生, 林久資, 金澤伸一, 石山宏二: 数値解析を用いた直接処分施設の掘削・廃棄体運搬時における影響予測: 平成29年度土木学会全国大会, 第71回年次学術講演会, pp.805-806, 2017.
- 6) 市川希, 金澤伸一, 林久資, 石山宏二: 地層処分施設内における温度, 飽和度変化を考慮したベントナイト緩衝材の力学挙動に関する研究, 平成29年度土木学会全国大会, 第71回年次学術講演会, pp.109-110, 2017.
- 7) 武藤尚樹, 金澤伸一, 林久資, 石山宏二, 飯塚敦: 地層処分施設内における温度・密度変化を考慮したベントナイト緩衝材の力学特性, 平成29年度土木学会全国大会, 第71回年次学術講演会, pp.107-108, 2017.
- 8) 市川希, 金澤伸一, 林久資, 石山宏二: 地層処分施設内における温度, 飽和度変化を考慮したベントナイト緩衝材の力学挙動に関する研究: 第52回地盤工学研究発表会講演集, pp.2047-2048, 2017.
- 9) 山本龍一, 林久資, 金澤伸一, 高荒智子, 石山宏二: 水質の違いによるベントナイトの膨潤性能について: 第52回地盤工学研究発表会講演集, pp.2051-2052, 2017.
- 10) 宮脇公平, 金澤伸一, 林久資, 石山宏二: 温度変化を考慮したベントナイトの圧縮特性, 第51回地盤工学研究発表会講演集, pp.735-736, 2016.
- 11) 真田昌慶, 石山宏二, 金澤伸一, 福井勝則: 連設坑道における岩盤の長期力学挙動評価手法の検討, 平成28年度土木学会全国大会, 第70回年次学術講演会, CS12-045, pp. 89-90, 2016.
- 12) 吉野修, 石山宏二, 金澤伸一, 飯塚敦: 高レベル放射性廃棄物の地層処分における緩衝材の再冠水挙動に関する解析的検討, 平成28年度土木学会全国大会, 第70回年次学術講演会

- 演会, CS13-039, pp. 77-78, 2016.
- 13) 渡部滉大, 林久資, 金澤伸一, 石山宏二, 温度変化を考慮したベントナイト一軸圧縮試験機の開発および基礎実験, 平成 28 年度土木学会全国大会, 第 70 回年次学術講演会, CS13-032, pp. 63-64, 2016.
  - 14) 佐藤文啓, 金澤伸一, 林久資, 高山裕介, 石山宏二: 温度変化を考慮したベントナイト緩衝材の膨潤量の計測について 平成 28 年度土木学会全国大会, 第 70 回年次学術講演会, CS13-031, pp. 61-62, 2016.



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

京都大学 小林 大志

### 要約

TRU 廃棄物処分の安全評価における硝酸塩影響評価の信頼性向上に資するため、幅広い硝酸塩濃度環境下における 4 価アクチノイドの見かけの溶解度に着目した。4 価アクチノイドの炭酸錯生成反応に及ぼすイオン強度影響、水酸化コロイドの表面電位および酸化状態に及ぼす硝酸イオンの影響を実験的に調べるとともに、熱力学的考察に基づき、処分環境下におけるアクチノイドの化学状態について検討した。セメント環境下にある廃棄体近傍では水酸化コロイドの凝集分散、海水系地下水など炭酸イオン濃度が高い地下水中では陰イオンの炭酸錯体が見かけの溶解度を支配すると考えられた。

### ○研究の背景・目的

核燃料サイクルに伴い発生する様々な性状の放射性廃棄物は長半減期低発熱放射性廃棄物（以下、TRU 廃棄物）と総称され、放射能濃度の高い一部の TRU 廃棄物は地層処分対象とされている。TRU 廃棄物の物理的・化学的性状および含まれる核種の種類や濃度は多様であり、幾つかのグループに分類された廃棄物の特性に応じた人工バリアを構成することが提案されている。再処理工程の過程で発生する濃縮廃液固化体はグループ 3 に分類され、多量の硝酸塩を含むため、処分施設内に浸入した地下水と接触することで施設閉鎖後の廃棄体近傍において高濃度の硝酸塩環境を形成する。硝酸塩は、オーバーパックの腐食、ベントナイト系材料や岩盤の鉱物学的な変質、核種の酸化還元状態および核種の取着挙動に影響を与える可能性が指摘されており、処分の安全性評価には、TRU 廃棄物に起因する硝酸塩影響を明らかにすることが重要である。

本研究では、特にグループ 3 および隣接するグループ 4 の廃棄物の放射エネルギーを長期に亘って支配するアクチノイドの移行挙動に及ぼす硝酸塩影響に着目し、その移行量を評価する上で重要なアクチノイドの見かけの溶解度に関わる 3 つの項目(i) 高濃度の硝酸イオンによる活量低下が錯生成反応に及ぼす影響、(ii) 水酸化コロイドの凝集分散挙動に及ぼす硝酸イオン濃度の影響、および(iii) 硝酸イオンによる核種の酸化反応について検討した。各項目において熱力学パラメータを用いたモデルによる現象理解を進めるとともに、得られた結果からアクチノイドの移行挙動における硝酸塩影響の総合的な評価を行った。

### ○実施内容

本研究の実施内容は、上記の項目に従って以下に大別される。

#### ① 4 価アクチノイド炭酸錯体生成に及ぼす $\text{NaNO}_3$ 濃度影響

地下の還元的な雰囲気では、プルトニウムなどのアクチノイドは 4 価イオンとして振る舞

い、その溶解度は難溶性の水酸化物沈殿固相により支配される。一方、地下環境中に普遍的に存在する炭酸イオンは 4 価イオンと安定な炭酸錯体を形成するため、炭酸イオン共存下では見かけの溶解度が上昇する可能性がある。希薄溶液中における 4 価アクチノイドの炭酸錯体生成に関する既往研究は存在するが、高濃度の硝酸塩環境下における支配的な溶存化学種や活量補正に関する知見は十分得られていない。そこで、4 価プルトニウムおよびそのアナログ元素であるジルコニウムを用いて、炭酸イオン共存下での溶解度実験を行い、プルトニウムおよびジルコニウムの炭酸錯生成反応におけるイオン強度の影響を調べた。

#### ②4 価金属水酸化物コロイドのゼータ電位の熱力学モデル

4 価アクチノイドと可溶性錯体を生成する炭酸イオンなどの配位子濃度が低い場合、加水分解反応が優勢となり、4 価アクチノイドの水酸化物コロイドが支配的な化学種となる。コロイドの移行特性の評価には、コロイド粒径の把握が重要であるが、その値はコロイドの凝集分散によって変化する。コロイドの凝集分散挙動の指標の一つが、コロイドのすべり面の電位であるゼータ電位であり、コロイドが存在する溶液の電解質やその濃度に大きな影響を受けるとされる。硝酸イオンや共存するカチオンの濃度に応じて 4 価アクチノイドの水酸化物コロイドのゼータ電位は変化すると考えられるが、実験的な検証は十分でなく、またその変化傾向を定量的に予測できるようなモデルは確立されていない。そこで、4 価アクチノイドのアナログであるジルコニウムの水酸化物コロイドのゼータ電位を様々なイオン強度、pH 条件下で測定し、その変化傾向の熱力学パラメータによるモデル化を行った。

#### ③硝酸イオンによる核種の酸化反応への影響

ウラン、プルトニウム、ネプツニウムなどのアクチノイドは水溶液中で 4 価のみならず、5 価や 6 価など複数の酸化状態を取り得る。硝酸塩によって酸化的な雰囲気形成されれば、これら核種が 4 価の酸化状態から酸化される可能性がある。難溶性の 4 価水酸化物沈殿固相による溶解度制限が無くなれば、核種の溶解度は大幅に増加するとともに、支配的な溶存化学種が変化することにより移行挙動が大きく変化することが懸念される。そこで、硝酸イオンのアクチノイドに対する酸化性について、電位-pH 図（プルベダイアグラム）に基づく解釈を行った。さらに、硝酸ナトリウム溶液と種々の還元剤や 4 価ウランを混合させた試料溶液を作成し、硝酸イオンの還元種である亜硝酸イオンやウランの濃度測定を行うことで、中性 pH～アルカリ性 pH 領域における硝酸イオンの酸化性について考察した。

#### ④TRU 廃棄物処分環境におけるアクチノイドの溶解度および化学状態の総合評価

TRU 廃棄物処分場において形成される幾つかの硝酸塩環境場を想定し、①～③で得られた知見および熱力学モデルに基づき、pH、硝酸塩濃度、Ca 濃度および炭酸イオン濃度などからアクチノイドの支配的な化学状態を予測し、見かけの溶解度に対する硝酸塩影響の総合的な評価を行った。

## ○得られた成果

### ①4価アクチノイド炭酸錯体生成に及ぼす NaNO<sub>3</sub> 濃度影響

硝酸ナトリウム濃度 0.1~5.0 mol/dm<sup>3</sup>(M)の試料溶液に様々な濃度の炭酸イオンを共存させ、4価ジルコニウムおよび4価プルトニウムのアモルファス水酸化物固相 (Zr(OH)<sub>4</sub>(am), Pu(OH)<sub>4</sub>(am)) の見かけの溶解度を測定した。図1は0.16 M炭酸イオン共存下のpH 7~13における4価プルトニウムの溶解度を示す。炭酸イオンを含まないプルトニウム水酸化物の溶解度はおよそ 10<sup>-9</sup>~10<sup>-8</sup> M であり、炭酸錯体を形成することにより見かけの溶解度が上昇した。pH 10以下では、イオン強度 (I) が高いほどプルトニウム溶解度も高くなる傾向が見られた一方、pH 10以上では、イオン強度の違いによる溶解度の違いはほとんど表れなかった。また、pH 8.9では炭酸イオン濃度の上昇とともにプルトニウム溶解度はおよそ傾き3~4で増加することが確認された。また、炭酸イオン共存下のジルコニウム溶解度についても同様の傾向が見られた。得られたプルトニウムおよびジルコニウム溶解度のpH依存性および炭酸イオン濃度依存性から、熱力学データに基づく溶解度の解析を行った。プルトニウムの場合、Pu(OH)<sub>2</sub>(CO<sub>3</sub>)<sub>3</sub><sup>4-</sup>が支配的な炭酸錯体と考えられ、Specific Ion Interaction Theory(SIT)およびPitzer法によるイオン強度補正に基づき、溶解度データを解析することにより錯生成定数やイオン強度補正パラメータを求めた。図1に解析から得られた溶解度曲線および各化学種の濃度を示す。I = 0.5では実験値のばらつきが大きい、I = 2.0では実験値を概ね再現することが出来た。さらに、得られた錯生成定数およびイオン強度補正パラメータに基づき、後述の硝酸塩環境下におけるアクチノイドの化学状態の総合評価を行った。

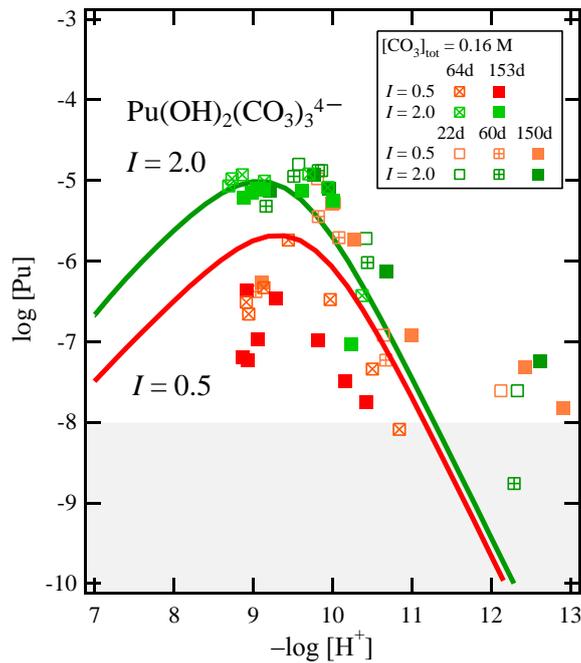


図1 炭酸イオン (0.16 M) 共存下における試料溶液の Pu 溶解度 (10kDa ろ過)

#### ②4 価金属水酸化物コロイドのゼータ電位の熱力学モデル

実験では、硝酸ナトリウム濃度を 0.03~2.0 M に調整した水溶液中でのジルコニウム酸化物および水酸化物コロイドのゼータ電位の pH およびイオン強度依存性を調べた。図 2 に各イオン強度における水酸化物コロイドのゼータ電位を pH の関数として示す。いずれのイオン強度においてもゼータ電位の値は、pH の上昇とともに低下しており、イオン強度が低いほどゼータ電位の絶対値が大きくなるような傾向が表れた。水酸化物コロイドの生成機構については、既往研究において、加水分解種がランダムな方向に成長することによるものとの仮説が述べられ、粒径分布の再現が試みられている。そこで、ジルコニウムの加水分解定数から計算される加水分解種の存在割合および水酸化物表面におけるプロトン解離反応を考慮し、水酸化物コロイドの平均電荷を計算した。水酸化物コロイド内部あるいは表面における溶媒イオンの効果 ( $\Delta z$ ) やコロイドの大きさに関するパラメータ ( $f$ )、すべり面までの距離 ( $x\zeta$ ) を設定し、水酸化物コロイドのゼータ電位 ( $\Phi\zeta$ ) を表す式を提案した。

水酸化物コロイドのゼータ電位の解析に先立ち、まず、ジルコニウム酸化物のゼータ電位を測定し、酸化物表面におけるプロトン解離反応の平衡定数を求めた。水酸化物コロイド表面におけるプロトン解離反応の平衡定数に酸化物の解析で得られた値を用いるとともに、 $\Delta z$  および  $f$  をパラメータとした最小 2 乗法による解析を水酸化物コロイドのゼータ電位の実験値に対して行った。図 2 に示すように、得られたパラメータによるゼータ電位の計算値は実験値を概ね再現できることが分かった。

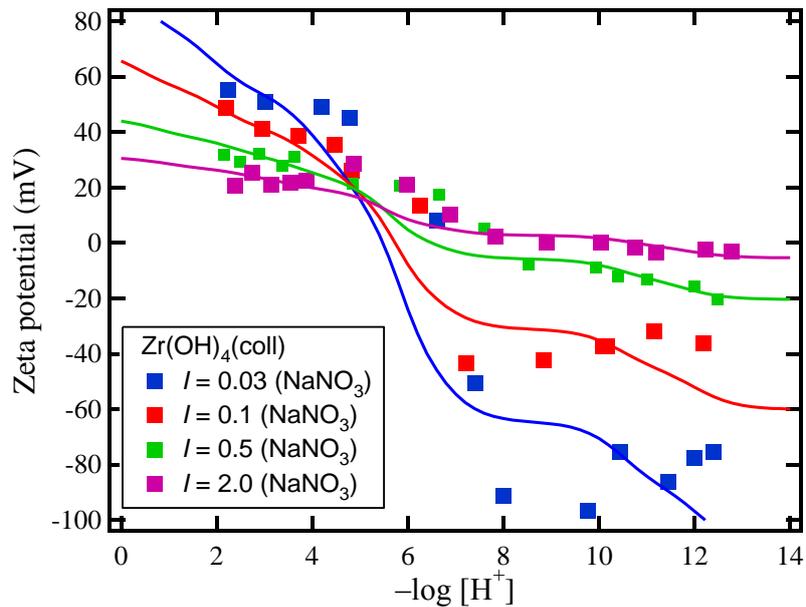


図2 ジルコニウム水酸化物コロイドのゼータ電位の実験値と計算値 ( $I=0.03\sim 2.0$ )

### ③硝酸イオンによる核種の酸化反応への影響

実験では、硝酸ナトリウム水溶液および硝酸イオンの還元種である亜硝酸ナトリウム水溶液に、ヒドロキノン ( $C_6H_4(OH)_2$ )、亜ジチオン酸ナトリウム ( $Na_2S_2O_4$ )、塩化スズ(II) ( $Sn(II)$ )、鉄粉 ( $Fe(0)$ ) または 4 価ウラン水酸化物 ( $U(OH)_4(am)$ ) を添加し、pH および Eh 値とともに亜硝酸イオン濃度を測定することで硝酸イオンまたは亜硝酸イオンの還元反応の進行について調べた。硝酸ナトリウム水溶液では、 $Fe(0)$  を添加した場合は、 $10^{-3} M$  程度の亜硝酸イオンが測定され、硝酸イオンの還元反応が進行していると考えられた一方、その他の系では酸化還元反応はほとんど進行しなかった。一方、亜硝酸ナトリウム水溶液では、 $Fe(0)$  の他、少量ながらも  $Sn(II)$  や  $U(OH)_4(am)$  を添加した系において酸化還元反応が進行すると考えられた。図 3 は  $U(OH)_4(am)$  を含む硝酸ナトリウムおよび亜硝酸ナトリウム試料溶液のウラン溶解度および  $U(VI)$ ,  $U(VI)$  溶解度の熱力学計算値を表す。亜硝酸ナトリウム溶液の 52 日後のウラン溶解度の値は、 $U(IV)$  の溶解度熱力学計算値より高く、 $U(VI)$  への酸化の可能性を示唆する結果となった。一方、硝酸ナトリウム溶液では、 $U(VI)$  への酸化は確認できなかった。

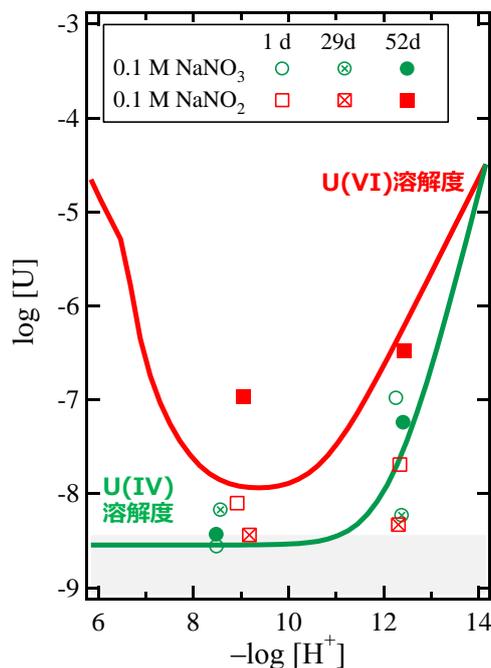


図3 U(OH)<sub>4</sub>(am)を含む硝酸ナトリウムおよび亜硝酸ナトリウム試料溶液のウラン溶解度およびU(IV), U(VI)溶解度の熱力学計算値

#### ④TRU 廃棄物処分環境におけるアクチノイドの溶解度および化学状態の総合評価

TRU 廃棄物のグループ3に由来する硝酸塩環境について、既往研究では処分後の経過時間および廃棄体からの距離に対する硝酸イオンの濃度分布シミュレーションが行われている。また、グループ3の廃棄体であるセメントの溶出に由来する高pHおよび高Ca濃度の地下水組成の予測も進められている。そこで、①～③で得られた熱力学データおよびモデル式に基づき、推定されるpHや硝酸イオン濃度、Ca濃度、炭酸イオン濃度から、想定される幾つかの処分環境におけるアクチノイドの溶解度および化学状態について総合的な評価を行った。グループ3の廃棄体近傍において、硝酸イオン濃度が高い処分後比較的初期の条件では、4価アクチノイドの加水分解種(An(OH)<sub>5</sub><sup>-</sup>)が移行挙動を支配し、高いイオン強度により水酸化コロイドは凝集する可能性が高いと考えられた。一方、時間の経過とともに硝酸塩濃度(イオン強度)が低下すると、水酸化コロイドは分散し、移行挙動にコロイド影響が表れる可能性が示唆された。また、炭酸イオン濃度が比較的高い海水系地下水などの条件下では、炭酸錯体(An(OH)<sub>2</sub>(CO<sub>3</sub>)<sub>3</sub><sup>4-</sup>)が移行挙動を支配するものと考えられた。

#### ○今後の展開

本研究は、TRU 廃棄物に由来する硝酸塩環境におけるアクチノイドの炭酸錯体生成、水酸化コロイド挙動および硝酸イオンによる酸化反応からアクチノイドの見かけの溶解度を

評価し、TRU 廃棄物処分の安全評価に資するものである。高イオン強度までの活量補正を含む溶解度熱力学モデルの整備や水酸化物コロイドのゼータ電位予測モデルの提案を新規に行い、想定される pH や硝酸塩濃度などに基づき、アクチノイドの溶解度および化学状態を予測することで硝酸塩影響の定量化に貢献することができた。一方、高電荷を持つ炭酸錯体の活量補正パラメータや水酸化物コロイドのゼータ電位モデルパラメータの検証には、実験的手法のみならず、分子動力学による計算科学など多角的なアプローチが有効であると思われた。また、本研究で想定した炭酸錯体や水酸化物コロイドのみならず、処分場あるいは環境中に存在する種々の有機物や擬似コロイドなど、より幅広い条件へとモデルの適用性を拡張していくことが今後の課題と考えられた。

## ○外部発表リスト

### 【査読付論文】

T. Kobayashi, T. Sasaki, "Solubility of  $Zr(OH)_4(am)$  and the formation of Zr(IV) carbonate complexes in carbonate solutions containing  $0.1 - 5.0 \text{ mol}\cdot\text{dm}^{-3} \text{ NaNO}_3$ ," *Journal of Solution Chemistry*, 46, 1741-1759 (2017).

### 【発表】

小林大志, 水越寛文, 佐々木隆之 「Zr 水酸化物溶解度に及ぼすコロイド種の影響」, 日本原子力学会 「2016 年春の年会」 1E15, 東北大学 (2016 年 3 月)

小林大志, 佐々木隆之 「プルトニウム溶解度に及ぼす炭酸影響の熱力学的考察」, 第 61 回放射化学討論会, 3B01, つくば大学 (2017 年 9 月).

Kobayashi et al., Thermodynamic model of  $Zr-OH-CO_3$  in dilute to concentrated  $NaNO_3$  solutions, ISSP 17, Geneva (2016 年 7 月).



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

東北大学 千田 太詩

## 要約

本研究では、地層処分システムの天然バリアにおける核種移行評価の精緻化を目指し、黒雲母薄片内への拡散を伴う核種収着挙動について、収着試験および数学モデル解析により検討した。その結果、黒雲母薄片に対する核種収着は層構造内への拡散過程を伴うことを明らかにするとともに、この収着機構を考慮した現実的な評価においても、花崗岩マトリクスに従来期待されている核種収着能が発揮される可能性が示唆された。

## ○研究の背景・目的

高レベル放射性廃棄物の地層処分システムにおける天然バリアとして想定される花崗岩の核種収着能は、含有する黒雲母によって支配される。図1に示すように、地下環境において黒雲母は薄片状で存在し、薄片端部への収着に加え、層構造内への拡散過程を考える必要がある。しかし、従来の収着評価においては粉末試料が用いられてきたため、黒雲母の端部において速やかに平衡に達する核種収着のみが収着能として反映されている。このようにして得られた分配係数が花崗岩内の核種移行評価に適用されるとともに、核種収着が瞬時に平衡に達すると仮定されている。しかし、地下環境中の花崗岩内においては、黒雲母が粉末状で一様に分布していることはなく、数 mm～数 cm 程度の大きさを持った薄片として不均一に含有する。この黒雲母薄片内の拡散が花崗岩マトリクス内の拡散と比べて遅い場合には、粉末試料に想定されるような瞬時平衡を仮定できず、拡散過程に基づく収着速度を考慮する必要があるために、マトリクス全体の収着能を従来評価より小さく見積もらなければならない可能性がある。そこで本研究では、黒雲母薄片内への拡散を伴う核種収着メカニズムを明らかにし、花崗岩内における核種移行評価の精緻化に資する。

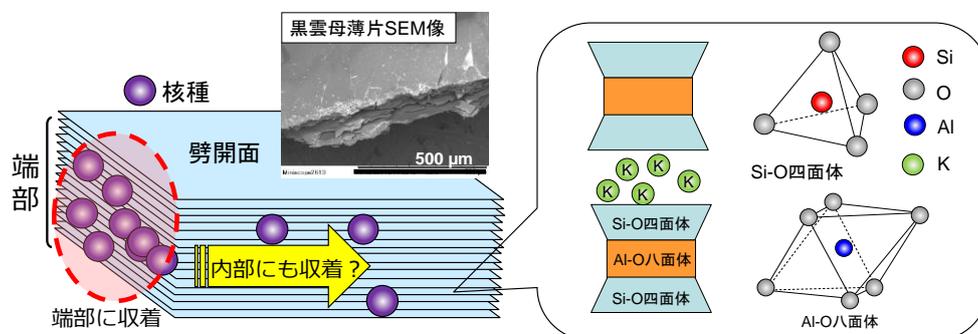


図1 黒雲母の構造と核種収着の概念図。

## ○実施内容

本研究においては、黒雲母薄片を用いた陽イオンの収着試験を軸に、核種収着メカニズム検討、および薄片内の拡散係数評価を実施した。パラメータとして、トレーサーとする陽イオン(ユウロピウム、ストロンチウム、セシウム)、pH、共存イオン(NaCl 濃度)などを設定し、トレーサー濃度変化、および SIMS (secondary ion mass spectrometry) による黒雲母薄片内の元素分布分析、蛍光分光分析から、収着挙動を検討した。これらの試験結果に基づき、薄片内への拡散浸入と液相のトレーサー濃度変化を関連づけた数学モデルにより、黒雲母薄片内の見かけの拡散係数を評価した。

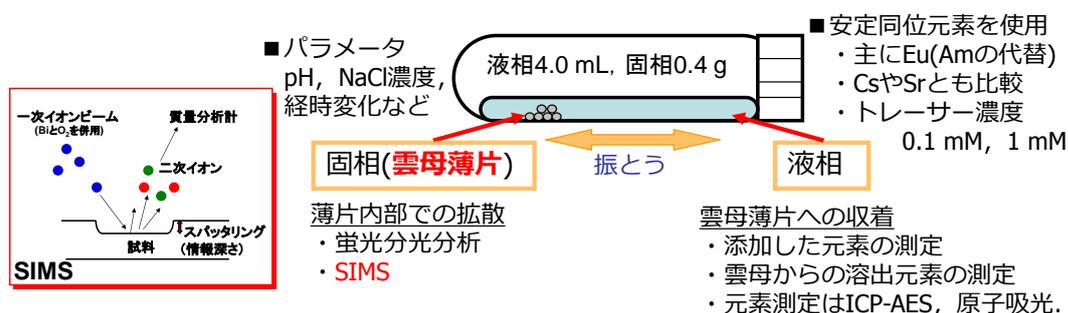


図2 黒雲母薄片を用いた収着試験と SIMS 分析の概要。

## ○得られた成果

図3は、黒雲母薄片へのユウロピウムの収着挙動に関する pH 依存性である。ユウロピウムは pH の上昇、および時間経過とともに収着量が増加した。この緩やかな収着量増加は、薄片内への拡散浸入を伴う収着であることを意味する。また、ユウロピウムは pH 6 以上において水酸化物沈殿を生成することが知られているが、図3(b)の薄片内のユウロピウム分布から、pH 8 においても薄片内へユウロピウムが顕著に浸入することが明らかになった。このときの黒雲母薄片に収着したユウロピウムの蛍光分析から、ユウロピウムは水酸化物イオンを外して  $\text{Eu}^{3+}$  の形態で収着する可能性が示された。なお、トレーサー間の比較としては、層状ケイ酸塩鉱物に選択的な収着を示すセシウムが最も速やかに黒雲母薄片へ収着し、三価のユウロピウム、二価のストロンチウムの順に収着量および収着速度が小さくなった。

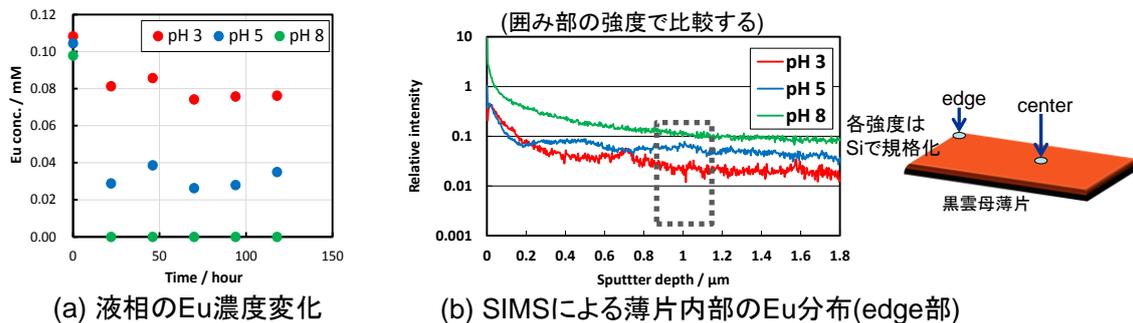


図3 黒雲母薄片へのユウロピウムの収着挙動に関する pH 依存性. (NaCl 濃度 0 M)

図4に黒雲母薄片へのユウロピウムの収着挙動に関する NaCl 濃度依存性を示す. 一般的に, トレーサの収着は競合するイオンが共存する際には減少する. しかし, 図4(a)に示すようにユウロピウムの収着は NaCl が共存する場合においても増加し, 図4(b)の薄片内のユウロピウム分布でも同様に浸入量の増加が認められた. これは, ナトリウムイオンとの競合による収着量減少と, ナトリウムイオンの浸入に伴う黒雲母端部近傍の層間拡大による収着量増加といった効果の複合が可能性として考えられるが, 今後検証を要する.

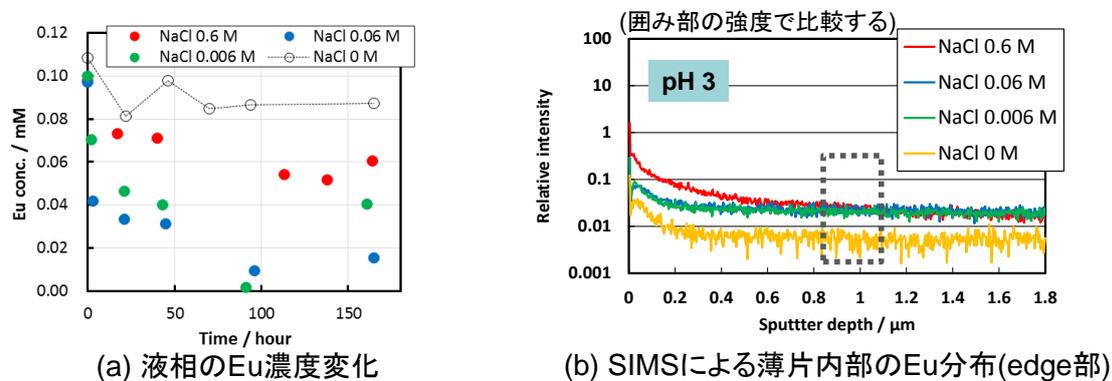


図4 黒雲母薄片へのユウロピウムの収着挙動に関する NaCl 濃度依存性. (pH 3)

収着試験結果に基づく数学モデル解析から, 黒雲母薄片内におけるユウロピウムの見かけの拡散係数は NaCl 共存の条件において  $10^{-13} \sim 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$  と見積もられた. これは母岩の実効拡散係数とほぼ同様であり, 瞬時平衡が仮定されているマトリクス内の核種収着に対して, 本研究において明らかにした黒雲母薄片内への拡散過程を考慮する場合にも, 従来評価と同様の核種収着が期待できる可能性を示唆する.

### ○今後の展開

本研究においては, 黒雲母薄片に対して拡散過程を含む核種収着メカニズムについて基

礎的知見を整理するとともに薄片内の拡散係数を評価し、従来想定されているマトリクス内の核種収着効果の妥当性を示した。一方で、地下環境には黒雲母以外にも多種多様な層状ケイ酸塩鉱物が存在しており、これらの構造に着目した拡散過程を含む核種収着挙動を明らかにすることは、天然バリアの核種閉じ込め性能をより具体化するとともに、黒雲母の核種収着機構の更なる理解に役立つと考えている。

また、本研究は、核種移行に対して不均質な特性が混在するマトリクスを扱う際の考え方に資するものである。例えば花崗岩には複数の鉱物が含有するが、この中からマトリクス内の核種収着を支配する因子として本研究では黒雲母に着目し、実環境における現実的な核種収着能を明らかにすることにより、マトリクス内の核種移行を見直す一助となり得る知見を提示した。このように、不均質かつ複雑なマトリクスにおける支配的な因子について現実的な評価を行い、マトリクス全体の性能にフィードバックする考え方は、多種多様な核種閉じ込め効果が複合的に組み合わされる処分システムの性能評価において有効と考えられる。

#### ○外部発表リスト

- [1] 千田太詩, 豊田丈通, 新堀雄一: 緑泥石および絹雲母への陽イオン核種収着挙動, 第 32 回バックエンド夏期セミナー要旨集 (2016). 【ポスター発表, ポスター賞受賞】
- [2] 豊田丈通, 千田太詩, 新堀雄一: 薄片状黒雲母へのユウロピウムの収着における pH 依存性, 日本原子力学会「2016 年秋の大会」要旨集, 1D21 (2016). 【口頭発表】
- [3] Taiji Chida, Tomoyuki Toyota, Yuichi Niibori: Sorption Behavior of Cationic Radionuclides on Biotite Flakes at pH 5, *Proceedings of WM2017 Conference, Phoenix, USA, March 5-9*, Paper No. 17326 (2017). 【査読有り論文, ポスター発表】
- [4] 石島雅也, 豊田丈通, 千田太詩, 新堀雄一: 層状ケイ酸塩鉱物へのユウロピウムの収着挙動, 第 13 会量子エネルギー工学フォーラム (2017). 【ポスター発表】
- [5] 豊田丈通, 千田太詩, 新堀雄一: 塩水環境における薄片状黒雲母へのユウロピウムの収着挙動, 日本原子力学会「2017 年秋の大会」要旨集, 2H11 (2017). 【口頭発表】
- [6] 石島雅也, 豊田丈通, 千田太詩, 新堀雄一: 深地下環境を考慮した薄片状雲母鉱物へのユウロピウムの収着挙動, 日本原子力学会東北支部第 41 回研究交流会講演要旨集, 46-47 (2017). 【ポスター発表】
- [7] Taiji Chida, Tomoyuki Toyota, Yuichi Niibori: Sorption of Cationic Radionuclides on Chlorite and Sericite formed by the Hydrothermal Alteration, *Proceedings of WM2018 Conference, Phoenix, USA, March 18-27*, Paper No. 18180, 1-9 (2018).【査読有り論文, ポスター発表】 (accepted)

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

東京大学 小松崎 俊作

### 要約

高レベル放射性廃棄物処分を実現するためには、社会全体が処分を「今意思決定・実施すべき政策である」という意識を共有すること、すなわちアジェンダ・セッティング（政策課題設定）が不可欠である。そこで、本研究は高レベル放射性廃棄物処分のためのアジェンダが設定されるための要因を抽出し、我が国における高レベル放射性廃棄物処分のために有効なアジェンダ・セッティングのあり方を提示することを目的とする。アジェンダ・セッティングの事例に関する政治過程分析と、放射性廃棄物処分に対する市民の態度に関する社会心理学的調査・分析を通じて、国家レベルのアジェンダ・セッティングと、個人の態度形成過程の関係を類型化することができた。さらに、受け入れを検討する自治体レベルで合理的意思決定を行い、それに対して国民が信頼を抱くようなアジェンダ・セッティングを設計することの有用性が示唆された。

### ○研究の背景・目的

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

筆者らはこれまでに日本・スイス・フランス・韓国における放射性廃棄物処分施設立地に関わる紛争事例を調査・研究し（Komatsuzaki, 2014）、その結果、下図1に示すようなステークホルダーの態度形成モデルを構築するに至った。すなわち、個人の態度形成は情動的ステップと合理的ステップの二段階で構成され、それぞれに影響する要因が異なる。高レベル

放射性廃棄物処分を実現するためには、まず福島第一原子力発電所事故で大きく損なわれた専門家や政府に対する信頼を回復し、人々が納得する政策を提示する必要がある（社会的意思決定を行う「素地」が醸成される必要がある）。そのためには、社会全体が処分を「今意思決定・実施すべき政策である」という意識を共有すること、すなわちアジェンダ・セッティング（政策課題設定）が不可欠である。ただし、アジェンダ・セッティングのあり方は国の制度・文化等のコンテクストを踏まえて検討すべきである。

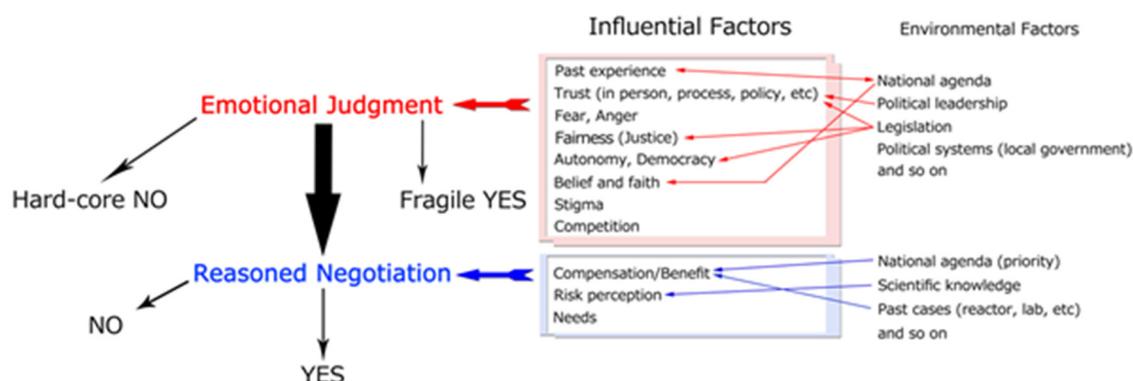


図1：放射性廃棄物処分施設/政策受け入れに関わるステークホルダーの態度形成モデル

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

### ○実施内容

研究目的を達成するため、4年間で以下の研究を実施した。この過程で、文献やインタビュー調査に基づく事例研究、質問紙を用いたオンライン調査などの方法を用いた。

- アジェンダ・セッティングの類型化
- 4類型のうちの一つ「フレーミング」に着目したケーススタディ
- 原子力分野におけるアジェンダ・セッティング事例分析（英国の CoRWM 等を通じた公衆討議政策）
- 平成22年度から過去6度実施してきたアンケート調査のデータについての社会心理学的分析（特に東日本大震災の影響について）
- 市民の態度形成に影響を与える「サイレント・マジョリティ」、「軽蔑」、「ためらい」、「罪悪感」、「多数/少数認識」（沈黙のらせん）などといった要因に特に着目したアンケート調査

- 科学的特性マップがアジェンダ・セッティングや態度に与える影響についてのアンケート調査と解析

## ○得られた成果

### 3.1. アジェンダ・セッティングと個人の態度形成

平成 26 年度に、政策目標の転換の有無，アジェンダ・セッティングを主導するアクターという 2 つの要素に着目して，アジェンダ・セッティングを類型化した（表 1）。

表 1：アジェンダ・セッティングの類型化

		主導するアクター			
		政治家		官僚・専門家	
政策目標の転換	あり	<i>Political Reframing</i> 郵政民営化 メルケル政権下の脱原発 利害調整の問題 根本的な価値の対立		<i>Triggering Policy</i> 医師不足 定住外国人との共生 社会的認知の欠如 根本的な価値の対立	
	なし	<i>政治交渉</i> 異次元の金融緩和政策 シュレーダー政権下の脱原発 利害調整の問題		<i>政策交渉</i> ゆとり教育 入管法の1990年改正 利害調整の問題	
		フレーミング	政策の波及効果	利益交換	政策調整

これは、アジェンダ・セッティングがなされないために解決されない課題（高レベル放射性廃棄物処分施設の立地はその代表例）を念頭に置いて、国の政策形成，社会全体というレベルを対象に，特定の効果を持つアジェンダ・セッティングをデザインするための知見として類型化を行ったものである。しかし，平成 27 年度に実施した，英国における放射性廃棄物処分事業の政治過程分析からは，社会全体レベルでのアジェンダ・セッティングでは不十分であることが示唆された。

英国は 1997 年に放射性廃棄物処分施設立地選定の試みが失敗に終わった後，放射性廃棄物管理方法のレビュープロセスを監督し，望ましい政策の提言を行う独立組織，放射性廃棄物管理委員会（Committee of Radioactive Waste Management; CoRWM）を設立し，公衆討議（Public Deliberation）を活用した選定プロセスを採用した。CoRWM は放射性廃棄物処分を技術的な問題ではなく社会受容の問題だと捉え直し，公衆討議を通じて情報公開も積極的に行うことで，政府や実施機関への信頼を取り戻すとともに，放射性廃棄物処分問題を国家的なアジェンダとして設定することを一定程度達成した。

ところが、2013年には候補自治体議会の反対に遭い事業が再び頓挫した。選定プロセスの中断という結果に影響を及ぼした要因として、公衆討議の取り組みに最終的な意思決定者がほとんど参加していなかったことや、事業に関連する政策が道義的な一貫性を欠いていたことなどが抽出された。つまり、国レベルで熟議民主主義を実践し、アジェンダ・セッティングが実現していても、結局受け入れを検討するローカルレベルで政治的に意思決定権限を有するステークホルダーが熟議に参加しなければ、事業は進展しないということである。

このことから、アジェンダ・セッティングを国家のレベルとローカルなレベルに分けて考えること、個人の態度形成と特にローカルなレベルでのアジェンダ・セッティングとの関係を整理することの必要性を認識するに至った。過去に調査を行った事例でも、たとえば韓国では必ずしもローカルなレベルで住民らが熟議を行ったりしたわけではなく、国家的アジェンダの下、競争心をあおるプロセスによって感情的に処分施設受け入れを決定したため、後に不満を覚えるようになってしまっている。一方で、スウェーデンの事例では、国家レベル、ローカルレベルの両方で、重要な役割を果たした地方自治体の首長が存在しており、特に住民個々人が事業に対する信頼・理解を高め、ローカルなレベルで合理的判断を実現することに貢献している。我が国においても、英国と同様に国家レベルでのアジェンダ・セッティングを行って、たとえば処分政策や方法について公衆討議を行ったからといって、受け入れ自治体が決定されることには直結しないと推定される。

個人の態度形成はアジェンダ・セッティングによって影響を受けるが（図 1）、常に合理的判断につながるわけではない。たとえば平成 27 年度に事例研究対象とした、我が国における郵政民営化の政治過程では、「自民党をぶっ壊す」などといったフレーミングによって、大半の国民は情動的な態度形成を行ったことが明らかとなった（?）。しかし、同じフレーミングによっても、特に農村部に居住する人々にとっては生活上重要な簡易郵便局の存続に関わる問題として、合理的判断を行っていた可能性がある。

高レベル放射性廃棄物処分に関する人々の意識について、継続的にオンライン質問紙調査を実施した。このデータを分析した結果、東日本大震災とそれに続く福島第一原子力発電所事故ほどの出来事でも、人々の態度形成に与えた影響は 4～5 年で消失したことが推定された。アジェンダ・セッティングの事例研究においても、一定の意図を持ってアジェンダが設定されたと見られる事例そのものが限定的であった。これらの結果は、国家的アジェンダ・セッティングには限界があり、設計も極めて難しいということを示唆している。

一方で、アジェンダ・セッティングは、ローカルなレベルでの態度形成に与える影響も大きく、また施策をデザインできる可能性が十分あると考えられる。たとえば、平成 28～29 年度に分析対象とした「科学的特性マップ」は、必ずしも国家レベルでのアジェンダ・セッティングに貢献したとは言えないが、調査結果からローカルなレベルでの意思決定が重視されるようになったこと、自宅が好ましい特性のある地域に入った個々人の態度形成過程が変容したことが推定される。

スウェーデンと韓国の対照的事例は、国家的アジェンダがローカルレベルでも同じ課題認識につながり、合理的判断につながる場合と、そうでない場合とがあることを示している。一方で、郵政民営化では、国家的アジェンダが国民の情動的態度形成につながる一方、地元生活に密着した特定郵便局の存亡というローカルなアジェンダについて、むしろ地域の未来も含めた合理的判断を行う地域住民も存在したとされる。これらの検討から、国家レベルの課題認識に基づく個人の態度形成と、ローカルなレベルの課題認識に基づくそれとの関係という観点で、アジェンダ・セッティングを改めて類型化することを試みた（表 2）。なおここでは、社会心理学における二段階態度形成過程モデルに即して、態度形成過程を中心ルート（図 1 でいう合理的ステップ）と周辺ルート（図 1 でいう情動的ステップ）に分類する。<sup>1</sup>

表 2：態度形成過程と国家・地域のレベルに着目したアジェンダ・セッティングの類型化

		ローカルレベル	
		中心ルート	周辺ルート
国家レベル	中心ルート 態度形成	東日本大震災 医師不足	移民問題
	周辺ルート 態度形成	郵政民営化 沖縄米軍基地移設	ゆとり教育

高レベル放射性廃棄物処分という政策課題は、理想的には国家的アジェンダの下、全国の国民と受け入れ検討自治体の住民とが中心ルートの態度形成を行うことが望ましい。しかしながら、本研究では東日本大震災のような国家的危機であっても、態度形成に与える影響は4～5年という短期間で消失してしまうことが推定されている。加えて、英国の事例に見られるように、たとえ国家レベルで中心ルートの態度形成が実現されていても、実際に受け入れを検討する自治体レベルで、政治的意思決定に関わる住民らが合理的判断に至っていないければ、事業を実施することは難しい。

国家レベルでの中心ルートの態度形成の限界を踏まえると、国家レベルでは周辺ルートの態度形成を導きつつ、ローカルレベルでは中心ルートでの熟議を行うようなアジェンダ・セッティングが現実的といえる。つまり、(A) 国民が受け入れを検討する自治体レベルに具体的な検討を安心して委ねられるアジェンダ、(B) 受け入れを検討する自治体レベルで、合理的判断に基づく政治的意思決定が実現するようなアジェンダという、2つの条件を満たすアジェンダ・セッティングを検討することが有力と示唆される。

<sup>1</sup> 人間の態度形成に、対象イシューの内容を詳細に検討して態度を形成する中心ルートと、詳細に立ち入らず周辺的情報によって判断するルート（周辺ルート）があると考えるモデル

### 3.2. 個人の態度形成過程に影響を与える要因

平成 26 年度以降、中心ルートと周辺ルートのいずれの態度形成過程をとるかに影響する政策・事象について検討を行ってきた。この中では、特に国家レベルにおける周辺ルートでの態度形成に関わる沈黙のらせんについて、さらに詳しい分析を行った。

### 3.3. 沈黙のらせん

「周囲の意見」とそれに関する認知が態度形成に与える影響について、平成 28 年度に過去の社会調査データを用いた定量的分析を行った。これまでに行った定性的事例研究では、特に受け入れを検討する自治体において、社会一般で観察されるほどには HLW 処分施設受け入れに対して強硬に反対する市民ばかりではなかった。一方で、2011 年の福島第一原子力発電所事故後には、当研究における社会調査で、HLW 処分施設を受け入れてもよいとする回答者の割合が増加していたが、たとえばそうした回答者の居住する自治体が実際に文献調査に応募するとなった場合、必ずしもその態度を維持するとは言い切れないという疑問もあった。つまり、個人レベルでは処分施設受け入れを合理的に検討しようとする態度形成過程にあっても、周囲や国民全体の雰囲気（総じて反対であることは各種調査でも明らか）を考慮して、自説を主張しなくなる可能性がある。韓国の事例では逆に、個人レベルで合理的に事業を検討して反対の態度を持っていた地域住民も、加熱した地域間競争の中で、事業に対する疑問を主張しにくくなった可能性がある。

こうした「周囲の意見」とそれに対する認知が態度形成に与える影響を考慮すれば、合意形成、公衆討議において、効果的な「範囲」（有権者・参加者等）の設定ができるようになることが期待される。たとえば、自分の意見が多数派であると認識した人物は自説を主張しやすくなり、逆に少数派である認識すると沈黙しがちになる。たとえ元々の差が小さくても、少数派が沈黙すると、多数派の声がより聞こえやすくなり、結果として多数派形成が進行していく。これを「沈黙のらせん」と呼ぶ。沈黙のらせんを考慮して、少数の意見を黙殺してしまう状況を避け、冷静な熟議ができるような公衆討議を設計する必要がある。（また、そのために有効なアジェンダ・セッティングも存在すると考えられる。）

本研究では、平成 27 年度の世界調査で得たデータを用いて、沈黙のらせんが態度形成に及ぼす影響を分析した。特に、周辺ルートの態度形成なら沈黙のらせんの影響を受けやすく、中心ルートの態度形成なら影響が小さいという仮説の検証を目指した。その結果、仮説は概して妥当であると確認されたが、中心ルートの態度形成と推定されるグループにおいて、一部予想と異なる結果が見られた。具体的には、中心ルートの態度形成と推定されるグループの中で、処分事業に対して支持的態度を有する人々が、「特定の関係者の利益のために行われている」、「安全性が確保されていない」、「雇用の促進に役立つ」といった項目において、支持派多数の時にデメリットや不満を主張する結果が見られた（図 2）。図 2 中で、支持派・中心ルートのうち、反対派が多数という情報を与えられた群（自分の意見は少数）と、支持派が多数という情報を与えられた群を比較したものが赤色の線である。「処分事業が特定の

関係者の利益のために行われていると思うか」という質問（1=そうは思わない，2=あまりそう思わない，3=ややそう思う，4=そう思う）に対して，予想と逆に，支持派多数と認知した群の方が「特定の関係者の利益のために行われている」と思う傾向が見られた。

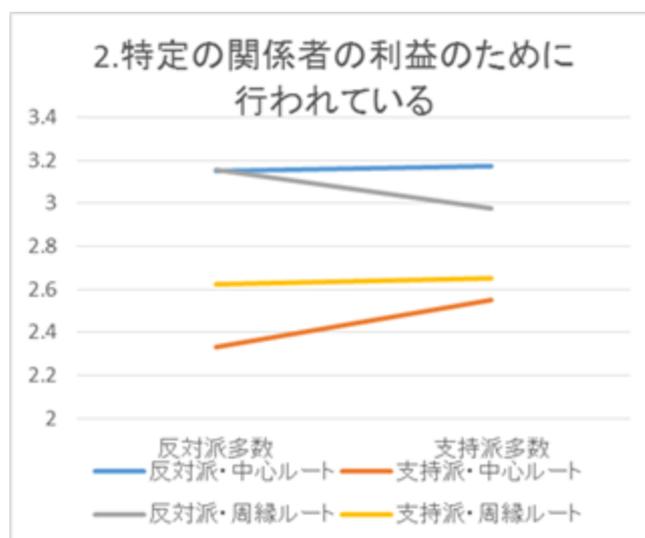


図2: 支持派の中心ルートで沈黙のらせんが予想と逆に影響している場合（図中では周辺ルートを周縁ルートと記載）

周辺ルートの態度形成と推定されるグループの内，処分事業に反対の態度を有する人々は，沈黙のらせんで予想されるとおり，支持派多数となると主張を抑えている。ところが，多数派如何に関わらず態度をあまり変えないはずの中心ルートで，処分事業に支持の態度を有する人々が，多数派であると認知した際に，事業の問題点を主張するようになっている。中心ルートの支持派は，処分事業推進の核ともいべきグループだが，推進が現実的になる（多数派になる）と，それまで黙認していたデメリットや不満を述べるようになることが示唆されている。

これらの結果から，熟議の設計は慎重であるべきであること，たとえいずれかが多数派を占める場合でも，少数の意見をくみ取って冷静な議論ができるようなプロセスを設計すべきであること，支持派・中心ルートの人々にとって多数か少数かより重要な，処分制度の公正性を担保すべきであること，の3つの知見が得られた。

### ○今後の展開

4年間の研究を通じて，国家レベルのアジェンダ・セッティングと，個人の態度形成過程の関係を類型化することができた。各類型に含まれる事例などを検討して，(A) 国民が受け入れを検討する自治体レベルに具体的な検討を安心して委ねられるアジェンダ，(B) 受け入れを検討する自治体レベルで，合理的判断に基づく政治的意思決定が実現するような

アジェンダの両方につながるような、アジェンダ・セッティングを設計することの有用性が示唆されている。

このようなアジェンダ・セッティングにつながるフレーミングとして、「地方創生」が考えられる。地域の再生・発展を目指す自治体が、放射性廃棄物処分施設受け入れによって得られる便益を活用して、革新的なまちづくりを行うことは、国民から自治体に対して意思決定を付託し、自治体は合理的判断を行う状況につながる目標たり得る。

一方、沈黙のらせん理論に基づく検討では、そもそも処分制度の公正性を高めることが重要であることが示された。経済的便益を活用したまちづくりを行う上でも、公正性を担保するための施策を検討する必要がある。たとえばフランスの GIP（公共事業共同体）や、スウェーデンの「よく機能する」(well-functioning) 地域コミュニティを作るための「補償」(The Swedish National Council for Nuclear Waste 2016) という事例は、有益な示唆を与えうるかもしれない。

本研究によって、国家レベルのアジェンダ・セッティングと個人の態度形成過程との関係が明らかとなり、具体的なアジェンダ・セッティングの設計方針として、地方創生やまちづくりといった、経済的便益のデザインが有力であると示唆された。今後は、地域のまちづくりを目標としてローカルなレベルで熟議が成立するような、公正な制度を検討するため、既往研究の調査、ならびに先駆的な事例の研究を実施していくことが期待される。

#### (参考文献)

- 1) Komatsuzaki, S., 2014. "Undesirable facility siting and democracy: A comparative analysis of radioactive waste repository siting in Japan, South Korea, and France," Ueta K. and Y. Adachi ed., Transition Management for Sustainable Development, Tokyo: United Nations Press, 293-316.
- 2) The Swedish National Council for Nuclear Waste. (2016). Nuclear waste state-of-the-art report 2016: Risks, uncertainties and future challenges. [http://www.government.se/49bbd2/contentassets/ecdecd2ee26c498c95aaea073d6bc095/sou-2016\\_16\\_eng\\_webb.pdf](http://www.government.se/49bbd2/contentassets/ecdecd2ee26c498c95aaea073d6bc095/sou-2016_16_eng_webb.pdf)

#### (謝辞)

本研究の過程で、インタビュー調査を受け入れてくださった専門家・有識者・地元住民の方々、ならびにオンライン調査にご協力くださった回答者の皆様に、厚く御礼申し上げます。また、本研究の成果について多くのご助言をくださった検討委員の皆様にも、ご指導に深謝申し上げます。

## ○外部発表リスト

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

学術論文：2、口頭発表：7 合計9

### 【学術論文】

1. 熊越祐介, 小松崎俊作. (2017). 「英国における放射性廃棄物処分事業の政治過程分析—公衆討議に注目して—」『社会技術研究論文集』, 14, 46-57.
2. Morikawa, S., Takagi, D., and Komatsuzaki, S. (2017). Attitude toward the construct of radioactive waste disposal facilities and spiral of silence: Results from online survey experiment. *International journal of management and applied science*, 3(5-part6), 74-82.

### 【口頭発表】

1. So Morikawa, “Radioactive Waste Management and Nuclear Accident: Change in Acceptance of Waste Disposal Sites after Fukushima”, *2015 Midwest Public Affairs Conference “Restructuring Governance: Emerging Solutions for Advancing the Public Interest”*, Milwaukee, July 9-11, 2015.
2. Shunsaku Komatsuzaki, “Trust, Deliberation and Emotional Attitude Formation: A Comparative Analysis of Radioactive Waste Repository Siting Cases in Europe and Asia”, *HKU-USC-IPPA Conference on Public Policy*, Hong Kong, June 10-11, 2016.
3. 小松崎俊作, 「放射性廃棄物処分の社会的側面に関する研究」『日本地質学会第123年学術大会』, 日本大学文理学部キャンパス, 2016年9月11日.
4. Shunsaku Komatsuzaki, “Emotion and Attitude Formation in Radioactive Waste Management Post-Fukushima”, *Fall 2016 Research Seminar at Department of Public Policy and Public Affairs, University of Massachusetts Boston*, Boston, October 18, 2016.
5. So Morikawa, Daisuke Takagi, and Shunsaku Komatsuzaki, “Attitude toward the construct of radioactive waste disposal facilities and spiral of silence: Results from online survey experiment”, *ISERD 74th international conference*, Seoul, June 18, 2017.
6. Morikawa, S., Takagi, D., and Komatsuzaki, S., “When do people feel radioactive waste disposal in their ‘backyard’? Results from online survey in Japan”, *3rd international conference on public policy (ICPP3)*, Singapore, June 28-30, 2017.
7. Kumakoshi, Y. and Komatsuzaki, S., “An analysis of the political process of the radioactive waste management in UK: Focusing on the public deliberation”, *3rd international conference on public policy (ICPP3)*, Singapore, June 28-30, 2017.

## 二次利用未承諾リスト

平成26年度 放射性廃棄物共通技術調査等事業放射性廃棄物重要基礎技術研究調査(国庫債務負担行為に係るもの)報告書(平成29年度分)

平成26年度 放射性廃棄物共通技術調査等事業放射性廃棄物重要基礎技術研究調査(国庫債務負担行為に係るもの)

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
研究報告6-14	図10	マップ公表前後におけるカテゴリ1と2の態度変容度合いの比較
研究報告6-16	表3	原発についての評価(経済性、環境性、安全性)の、カテゴリごとの変化量の比較(Difference in Difference分析)
研究報告6-16	図11	カテゴリごとの、原発の経済性認知のウェーブ間変化(予測値)
研究報告6-17	図12	カテゴリごとの、原発の環境性認知のウェーブ間変化(予測値)
研究報告6-17	図13	カテゴリごとの、原発の安全性認知のウェーブ間変化(予測値)
研究報告6-18	表4	世代間公正、行政への信頼、処分場受け入れの便益(「自治体が発展する」「住民ひとりひとりの生活が向上する」)の、カテゴリごとの変化量の比較(Difference in Difference分析)
研究報告6-18	図14	カテゴリごとの、世代間公正についての認知のウェーブ間変化(予測値)
研究報告6-19	図15	カテゴリごとの、行政への信頼のウェーブ間変化(予測値)
研究報告6-19	図16	カテゴリごとの、処分場受け入れの便益(「自治体が発展する」)のウェーブ間変化(予測値)
研究報告6-20	図17	カテゴリごとの、処分場受け入れの便益(「住民ひとりひとりの生活が向上する」)のウェーブ間変化(予測値)
研究報告6-22	図18	カテゴリ1とカテゴリ5の各指標の変化量
研究報告6-22	図19	カテゴリ1とカテゴリ5の各指標の変化量の差
研究報告6-25	図21	客観的な適正区分内/外の各指標の変化量
研究報告6-26	図22	客観的な適正区分内/外の各指標の変化量の差
研究報告6-27	表6	居住地とマップの照合に関する正解判定(色のついたセルが正しく対応)
研究報告6-28	図23	正確な回答をしたグループと不正確な回答をしたグループとの各指標の変化量
研究報告6-29	図24	正確な回答をしたグループと不正確な回答をしたグループとの各指標の変化量の差
研究報告6-33	図27	タイプ1とタイプ2の各指標の変化量
研究報告6-33	図28	タイプ1とタイプ2の各指標の変化量の差
研究報告6-34	図29	タイプ3とタイプ4の各指標の変化量の差
研究報告6-34	図30	タイプ1とタイプ3の各指標の変化量の差
研究報告6-35	図31	タイプ2とタイプ4の各指標の変化量
研究報告6-35	図32	タイプ2とタイプ4の各指標の変化量の差
研究報告6-36	図33	タイプ3とタイプ4の各指標の変化量
研究報告6-36	図34	タイプ3とタイプ4の各指標の変化量の差
研究報告6-40	表7	1.2「科学的特性マップ」公表による影響の分析のまとめ
研究報告6-67	図71	グループ間の各指標の差
研究報告6-71	図75	原子力関連施設立地地域における多母集団同時分析の結果
研究報告6-72	図76	原子力関連施設非立地地域における多母集団同時分析の結果
研究報告6-72	図77	東日本大震災前後の原子力発電所受容態度の構造比較
研究報告6-73	図78	東日本大震災後の福島と宮城・青森における原子力発電所受容態度の構造比較
研究報告6-73	図79	2015年3月調査におけるHLW処分施設受け入れ態度の構造
研究報告6-74	図80	2016年2月調査におけるHLW処分施設受け入れ態度の構造
研究報告6-74	図81	2017年2月調査におけるHLW処分施設受け入れ態度の構造
研究報告6-75	表11	学歴と4要素の関係と差の検定
研究報告6-75	図82	小中高卒層の態度形成モデル
研究報告6-76	図83	大卒・大学院卒層の態度形成モデル

