

平成 27 年度

地層処分技術調査等事業

処分システム評価確証技術開発

報告書

平成 28 年 3 月

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

本報告書は、経済産業省資源エネルギー庁からの委託事業として、国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構が実施した平成 27 年度地層処分技術調査等事業「処分システム評価確証技術開発」の事業報告書である。

目次

第1章 緒言

1.1 本事業の背景と目的	1-1
1.2 確証性の高い地層処分システムとは	1-1
1.3 全体フレーム	1-4
1.4 本年度の実施内容	1-6
1.4.1 ニアフィールドのシステム変遷と核種移行を評価するための先端的技術の開発	1-6
1.4.2 多様な廃棄物の共処分におけるニアフィールドの影響評価技術開発	1-8
1.4.3 過酷事象の地層処分システムへの影響に関する評価確証技術開発	1-8
1.4.4 可逆性と回収可能性などを考慮した地層処分システム概念の提示	1-9
1.4.5 処分事業に資するための地層処分システム評価確証技術の統合化	1-11
参考文献	1-12

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

2.1 目的と5カ年の計画	2-1
2.1.1 目的	2-1
2.1.2 5カ年の計画	2-2
2.2 システムの過渡的变化評価技術開発	2-5
2.2.1 システムの過渡的状态評価技術の開発	2-5
2.2.2 過渡的状态における人工バリアの挙動評価技術の開発	2-40
2.3 人工バリア中の核種移行に係る不確実性要因分析とそれに基づく性能評価技術開発	2-65
2.3.1 人工バリア核種移行評価の不確実性要因と課題解決アプローチ	2-65
2.3.2 緩衝材中の核種移行に関する現象理解のための実験研究	2-67
2.3.3 圧縮ベントナイト中の核種移行に関する精緻化モデルの開発	2-87
2.3.4 システム変遷と核種移行評価のためのデータ・モデルの整備	2-112
2.4 天然バリア中の核種移行に係る不確実性要因分析とそれに基づく性能評価技術開発	2-120
2.4.1 天然バリア核種移行評価の不確実性要因と課題解決アプローチ	2-120
2.4.2 岩石マトリクス/割れ目中の核種移行評価技術の開発	2-121
2.4.3 有機物・微生物等の影響評価手法の構築	2-151
2.5 セメント系材料影響評価技術開発	2-180
2.5.1 セメント系材料の化学モデル開発	2-180
2.5.2 セメント系材料の力学挙動評価モデル開発	2-189
2.5.3 セメント系材料による影響下での核種移行挙動の把握	2-197
2.5.4 グラウト影響評価技術開発	2-203
2.6 ニアフィールド複合現象/核種移行の体系的評価に向けた技術開発	2-217
2.6.1 全体アプローチ	2-217
2.6.2 ニアフィールド総合評価システムの全体構想	2-218

2.6.3	個別現象の情報・知見の整理	2-220
2.6.4	ニアフィールドシステム変遷についての分野横断的・統合的な現象解析に向けた 共通モデル・シナリオの整備	2-226
2.6.5	ニアフィールド複合現象解析システムの開発	2-229
2.6.6	より汎用性の高い複合現象解析システムの開発	2-239
2.7	まとめ	2-253
	参考文献	2-257

第3章 多様な廃棄物の共処分におけるニアフィールドの影響評価技術開発

3.1	目的と5カ年の計画	3-1
3.1.1	目的	3-1
3.1.2	5カ年の計画	3-2
3.2	廃棄物の特性を踏まえた共処分への影響評価技術開発	3-5
3.2.1	種々の廃棄物の特性評価と廃棄物由来の影響因子の影響調査	3-6
3.2.2	廃棄物由来の影響因子の化学環境影響評価	3-19
3.2.3	廃棄物由来の影響因子のバリア候補材料への影響評価	3-30
3.2.4	廃棄物由来の影響因子の放射性核種への影響評価	3-38
3.3	多様な廃棄物の影響を考慮した共処分概念の構築	3-47
3.3.1	適切な共処分概念案の検討手法の調査	3-47
3.4	まとめ	3-52
3.4.1	廃棄物の特性を踏まえた共処分への影響評価技術開発	3-52
3.4.2	多様な廃棄物の影響を考慮した共処分概念の構築	3-53
	参考文献	3-54

第4章 過酷事象の地層処分システムへの影響に関する評価確証技術開発

4.1	目的と5カ年の計画	4-1
4.1.1	目的	4-1
4.1.2	5カ年の計画	4-1
4.2	地層処分システムにおける過酷事象の概念構築	4-3
4.2.1	過酷事象の評価手法の高度化	4-4
4.2.2	地層処分システムの頑健性の分析	4-16
4.3	巨大地震・断層活動を事例とした評価技術開発	4-19
4.3.1	巨大地震・断層活動によるシナリオの検討	4-19
4.3.2	巨大地震・断層活動による地質環境への影響に関するデータ	4-28
4.3.3	巨大地震・断層活動による処分場への影響評価手法の開発	4-39
4.4	まとめ	4-103
4.4.1	地層処分システムにおける過酷事象の概念構築	4-103
4.4.2	巨大地震・断層活動を事例とした評価技術開発	4-103

参考文献	4-106
------	-------

第5章 可逆性と回収可能性などを考慮した地層処分システム概念の提示

5.1 目的とこれまでの経緯	5-1
5.2 閉鎖後長期安全性に関するロバスト性の高い地層処分システム概念の構築	5-2
5.2.1 これまでの検討結果	5-2
5.2.2 ロバスト性の高い地層処分システム概念の具体化	5-3
5.2.3 従来の処分システムとの比較評価	5-10
5.3 受動的な安全系へ推移するまでの期間におけるレジリエンス的取り組みの具体化	5-21
5.3.1 回収可能性やモニタリングを含む制度的管理期間中のレジリエンス的取り組みの要件の明確化	5-21
5.3.2 モニタリング等の工学的対策の統合及びこれらの運用・管理方法の具体化	5-30
5.3.3 地表環境での物質移動に関するモニタリング情報と予測モデルについて	5-34
5.4 多様なステークホルダ間の合意形成に向けた協働の試行	5-36
5.4.1 多様なステークホルダ間の合意形成に向けたコミュニケーション等の事例調査	5-36
5.4.2 高レベル放射性廃棄物対策に関する意見・態度についての事前調査	5-49
5.4.3 地層処分及びその他の対策の背景知識に関するサイエンスコミュニケーション	5-53
5.4.4 高レベル放射性廃棄物対策に関するアコモデーションワークショップ	5-58
5.4.5 合意形成に向けた協働に関する結果の整理と今後の課題の抽出	5-62
5.5 まとめ	5-64
参考文献	5-66

第6章 地層処分事業に資するための地層処分システム評価確証技術の統合化

6.1 目的と5カ年の計画	6-1
6.1.1 目的	6-1
6.1.2 5カ年の計画	6-1
6.1.3 今年度の実施内容	6-2
6.2 処分システム評価確証技術の統合化に関する試行	6-2
6.2.1 知識共有の試行を通じた統合プラットフォームの改良	6-2
6.2.2 非専門家向けのポータルサイトの構築	6-11
6.3 処分システム評価確証技術の認知の拡大に関する試行	6-15
6.3.1 平成26年度作成の広報ツールの調査・評価	6-15
6.3.2 システム評価確証技術の要素技術のブランドデザインの試行	6-22
6.3.3 処分システム評価確証技術に対するサイエンスコミュニケーション	6-32
6.3.4 広義のデザインの検討	6-38
参考文献	6-46

第7章 結言

7.1 平成27年度における主な成果	7-1
7.2 おわりに	7-5

付録

付録1 化学物質輸送解析に用いるパラメータ	
付録2 2015年度 JAEA-LBNL 共同研究報告書	
付録3 地表環境での物質移動に関する予測モデル等の開発状況	
付録4 アコモデーションワークショップにおける議論の内容	
付録5 中間評価ワークショップの概要	

目次

第1章 緒言

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

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

図 2.1.1-1	ニアフィールドのシステム変遷と核種移行評価に係る課題例 (核種移行関連を中心とした課題例)	2-1
図 2.1.2-1	本課題の5つのサブタスクの関係	2-3
図 2.1.2-2	5ヵ年の年度展開	2-4
図 2.2.1-1	ニアフィールドの長期挙動評価の解析条件	2-15
図 2.2.1-2	熱-水-応力-化学 (THMC) 連成解析モデルによるニアフィールド 長期挙動解析結果	2-19
図 2.2.1-3	人工バリア性能確認試験の実施場所 (深度 350 m 調査坑道 試験坑道 4)	2-20
図 2.2.1-4	人工バリア性能確認試験のイメージ	2-20
図 2.2.1-5	模擬オーバーパック胴体部	2-21
図 2.2.1-6	ヒーター外観	2-22
図 2.2.1-7	緩衝材ブロック	2-22
図 2.2.1-8	埋め戻し材	2-23
図 2.2.1-9	コンクリートプラグ	2-23
図 2.2.1-10	計測状況 (試験坑道 4)	2-24
図 2.2.1-11	緩衝材膨出センサーの構成	2-25
図 2.2.1-12	緩衝材膨出センサー設置イメージ	2-25
図 2.2.1-13	緩衝材膨出センサー設置状況	2-26
図 2.2.1-14	緩衝材膨出センサーの固定位置	2-26
図 2.2.1-15	緩衝材膨潤センサーによるひずみ測定値	2-27
図 2.2.1-16	人工バリア性能確認試験の解析評価に用いた解析メッシュモデル	2-28
図 2.2.1-17	埋め戻し材の熱伝導率測定結果	2-29
図 2.2.1-18	埋め戻し材の水分特性曲線	2-29
図 2.2.1-19	人工バリア性能確認試験の連成解析結果	2-30
図 2.2.1-20	人工バリア性能確認試験の計測結果と解析値との比較	2-31
図 2.2.1-21	弾性係数、飽和度、乾燥密度の関係	2-34
図 2.2.1-22	傾きと乾燥密度の関係	2-34
図 2.2.1-23	飽和時弾性係数と乾燥密度の関係	2-34
図 2.2.1-24	膨潤圧試験結果	2-36
図 2.2.1-25	膨潤変形試験結果	2-37
図 2.2.1-26	28日後の乾燥密度	2-37

図 2.2.1-27	解析による膨潤変形量の経時変化	2-37
図 2.2.1-28	X線 CT スキャナ装置を用いた膨潤変位測定	2-38
図 2.2.1-29	ガラスビーズの配置	2-38
図 2.2.1-30	X線 CT スキャン画像	2-39
図 2.2.1-31	ガラスビーズの変位	2-39
図 2.2.2-1	腐食モニタリングセンサーの模式図	2-41
図 2.2.2-2	不飽和緩衝材中における腐食センサーの適用性確認試験の模式図	2-42
図 2.2.2-3	再冠水過程の緩衝材中における炭素鋼の自然電位の経時変化	2-43
図 2.2.2-4	交流インピーダンス測定結果の例	2-43
図 2.2.2-5	炭素鋼電極界面の等価回路	2-44
図 2.2.2-6	R_s 、 R_p の経時変化	2-44
図 2.2.2-7	T の経時変化	2-46
図 2.2.2-8	p の経時変化	2-47
図 2.2.2-9	幌延 URL におけるオーバーパック腐食試験の設置状況	2-48
図 2.2.2-10	交流インピーダンス測定結果の代表例 (Bode 線図)	2-49
図 2.2.2-11	液抵抗、分極抵抗の経時変化	2-49
図 2.2.2-12	CPE 定数の経時変化	2-51
図 2.2.2-13	CPE 指数の経時変化	2-51
図 2.2.2-14	試験カラムの模式図	2-52
図 2.2.2-15	腐食試験後の試験片の外観	2-55
図 2.2.2-16	緩衝材中における炭素鋼の腐食速度に及ぼす試験溶液 pH の影響	2-56
図 2.2.2-17	pH 感受性シリカゲル薄膜の呈色状況	2-58
図 2.2.2-18	pH 感受性薄膜を発色体とした光学式 pH 計プローブの構造	2-58
図 2.2.2-19	pH 感受性薄膜を発色体とした光学式 pH 計の検量線の取得	2-60
図 2.2.2-20	鉄製ヒーターとの接触界面のベントナイト試料の EPMA マッピング分析結果 (Fe, Ca, S) 及び反射電子像 (BEI) (10mm×10mm)	2-62
図 2.2.2-21	Package1 試料の EPMA 反射電子像と化学組成分析結果	2-63
図 2.2.2-22	Package1 試料の FESEM-EDS 分析結果	2-63
図 2.3.1-1	人工バリア中核種移行に関する現象理解とモデル精緻化のためのアプローチ	2-67
図 2.3.2-1	拡張型透過拡散/トレーサー減衰法の概要	2-68
図 2.3.2-2	密度 1.4g/cm ³ の条件での Cs 拡散データ (a, b) と拡散係数の塩濃度依存性 (c)	2-69
図 2.3.2-3	Na 型及び Ca 型モンモリロナイト中の Sr の透過拡散データ (Sr 濃度依存性 : a, b) と XRD による底面間隔分析結果 (c, d, e)	2-70
図 2.3.2-4	Na 型/Ca 型モンモリロナイト (0.8g/cm ³ , 0.01M NaCl) 中の Sr の透過拡散試験 結果 : (a)D _e , (b)K _d , (c)D _e と K _d の相関についての Na 型と Ca 型との比較	2-70
図 2.3.2-5	試験開始溶液の UV-Vis 測定結果	2-71
図 2.3.2-6	クニピア F に対する Se(-II) の分配係数の経時変化	2-72
図 2.3.2-7	クニピア F に対する Se(-II) の分配係数の pH 依存性	2-72

図 2.3.2-8	NaCl 濃度の異なる溶液中での PAMAM デンドリマーの粒径分布	2-74
図 2.3.2-9	PAMAM デンドリマーのゼータ電位の変化((a)pH 依存性、(b)NaCl 濃度依存性)	2-74
図 2.3.2-10	圧縮ベントナイトの間隙構造と層間/エッジの収着機構に関連する分析技術	2-75
図 2.3.2-11	塩濃度の異なる溶液で飽和させた乾燥密度 0.8 g/cm ³ の Ca 型 モンモリロナイトの T1 分布の温度依存性 (233 から 303K の範囲)	2-77
図 2.3.2-12	塩濃度の異なる溶液で飽和させた乾燥密度 1.4 g/cm ³ の Ca 型 モンモリロナイトの T1 分布の温度依存性 (233 から 303K の範囲)	2-77
図 2.3.2-13	密度及び塩濃度の異なる溶液で飽和させた圧密 Ca 型モンモリロナイトの 303K で測定した T1 分布	2-78
図 2.3.2-14	塩濃度の異なる溶液で飽和させた密度 0.8 及び 1.4 g/cm ³ の Ca 型モンモ リロナイト試料の NMR 信号強度の温度依存性	2-79
図 2.3.2-15	異なる Cs 置換率で調製した月布産モンモリロナイトの ¹³³ Cs MAS NMR スペクトル: (a)脱水状態及び(b)含水状態	2-81
図 2.3.2-16	第一原理計算によって構造最適化された含水モンモリロナイト	2-82
図 2.3.2-17	脱水状態の最適化構造から格子定数 c を 21.6 Å まで伸ばした構造で GIPAW 法 により得られた ¹³³ Cs のケミカルシフト値(ppm)	2-83
図 2.3.2-18	in situ flow-through ATR-FTIR 測定 の概念図	2-84
図 2.3.2-19	亜セレン酸イオンの対称性	2-85
図 2.3.2-20	2L-Fh への SeO ₃ ²⁻ の吸着に伴う赤外吸収スペクトルの時間変化. (a)pD 4, (b)6, (c)8. 100 μM SeO ₃ ²⁻ , 0.01 M NaCl 重水溶液	2-86
図 2.3.2-21	異なる pD における 2L-Fh に吸着した SeO ₃ ²⁻ の赤外吸収スペクトルの比較 (100 μM SeO ₃ ²⁻ , 0.01 M NaCl 重水溶液)	2-86
図 2.3.2-22	異なる液相濃度における 2L-Fh に吸着した SeO ₃ ²⁻ の赤外吸収スペクトル の比較. pD 4, 0.01 M NaCl 重水溶液.	2-87
図 2.3.3-1	統合収着・拡散モデル (ISD モデル) の基本概念	2-88
図 2.3.3-2	不均質間隙モデルの検討例: (a)多重間隙モデル、(b)二重間隙モデル	2-89
図 2.3.3-3	計算科学手法によって検証すべき課題とアプローチの概念図	2-90
図 2.3.3-4	Na 型モンモリロナイト層間の底面間隔と混合過剰エンタルピーの関係: (a) z=0, (b) z=0.2, (c) z=0.33, (d) z=0.5, (e) z=0.67, (f) z=0.75	2-92
図 2.3.3-5	層電荷 0.5 のモンモリロナイト層間の底面間隔と混合過剰エンタルピー: 1 価陽イオン型のケース (a)Cs 型, (b)K 型	2-93
図 2.3.3-6	層電荷 0.5 のモンモリロナイト層間の底面間隔と混合過剰エンタルピー: 2 価陽イオン型のケース (a)Ca 型, (b)Sr 型	2-93
図 2.3.3-7	層電荷 0.5 の Na 型モンモリロナイト層間における水分子と対イオン: (a)層間水和数に対する拡散係数、(b)空間分布のスナップショット	2-95
図 2.3.3-8	層電荷 0.5 の Cs 型モンモリロナイト層間における水分子と対イオン: (a)層間水和数に対する拡散係数、(b)空間分布のスナップショット	2-95

図 2.3.3-9	層電荷 0.5 の Ca 型モンモリロナイト層間における水分子と対イオン： (a)層間水和数に対する拡散係数、(b)空間分布のスナップショット	2-95
図 2.3.3-10	層電荷 0.5 の Na 型モンモリロナイト層間における水分子、対イオン、 及びトレーサーイオンの拡散係数：(a)Cs ⁺ 、(b)UO ₂ ²⁺	2-96
図 2.3.3-11	モンモリロナイト（層電荷 0.33）のエッジモデル	2-99
図 2.3.3-12	A Chain の Mg の同形置換（茶）の配置による区分（Case 1, 2, 3） と Na イオン（黄）の位置による表面エネルギー変化（a, b, c）	2-100
図 2.3.3-13	各 Chain における Case ごとの表面エネルギーの頻度分布	2-101
図 2.3.3-14	異なる電解質タイプの実効拡散係数の解析例： (a)2:1 型電解質モデル、(b)1:2 型電解質モデル	2-102
図 2.3.3-15	(a)静電ポテンシャルの分布、(b)対イオンの濃度分布（イオン強度=0.01M）	2-102
図 2.3.3-16	メソスケール拡散問題とマクロ拡散係数のイメージ	2-105
図 2.3.3-17	シミュレーションプログラムの全体構成	2-105
図 2.3.3-18	周期構造のユニットセルサイズを調整して粘土含水系を圧縮した 場合の計算例	2-106
図 2.3.3-19	堆積構造モデルのピクセル形状データへの変換結果とランダムウォーク による拡散解析結果の例	2-107
図 2.3.3-20	PHREEQC を用いた不確実性評価ツールシステムの概要	2-108
図 2.3.3-21	PHREEQC と ISDCalc を連携した不確実性評価ツールの処理流れ	2-109
図 2.3.3-22	イオン強度に対する実効拡散係数の散布図： (a)Sr を含む主要な化学種の散布図、(b)平均化された値の散布図	2-111
図 2.3.3-23	実効拡散係数に対する主要パラメータの感度解析：(a)Sr ²⁺ 、(b)SrSO ₄	2-111
図 2.3.3-24	CEC 比表面積に対する電氣的収れん度の依存性： (a)1 価・2 価陽イオン、(b)中性粒子	2-111
図 2.3.4-1	Na 型モンモリロナイトに対する Fe(II)の分配係数の pH 依存性	2-114
図 2.3.4-2	Fe(II)共存下での Ni 分配係数の pH 依存性	2-116
図 2.3.4-3	試験方法概略図	2-117
図 2.3.4-4	pH 及び規格化浸出量の経時変化	2-119
図 2.3.4-5	試験後ガラス表面の X 線回折分析結果	2-119
図 2.4.1-1	天然バリア中の核種移行評価における課題解決のアプローチ	2-121
図 2.4.2-1	室内から原位置へのアップスケーリングを含む岩石系の研究アプローチ	2-123
図 2.4.2-2	グリムゼル花崗岩のマトリクス試料の室内収着・拡散試験結果のまとめ	2-125
図 2.4.2-3	グリムゼル花崗岩の EPMA 画像の解析による鉱物比や間隙率の評価	2-126
図 2.4.2-4	グリムゼル花崗岩の (a)試料断面、(b)X 線 CT 画像、(c)反射電子像、 及び(d)輝度分布解析、(e)反射電子強度解析による黒雲母分布評価	2-127
図 2.4.2-5	花崗岩の不均質性を考慮したモデル解析体系と解析結果の例	2-128
図 2.4.2-6	花崗岩の不均質性を考慮したモデル解析結果：層状鉱物内の 陽イオン加速の効果	2-129

図 2.4.2-7	割れ目を含むグリムゼル花崗岩を対象とした室内試験の体系	2-130
図 2.4.2-8	通液試験に用いた割れ目を含むグリムゼル花崗岩試料の X 線 CT 分析結果	2-131
図 2.4.2-9	グリムゼル花崗岩 (割れ目、マトリクス部) の拡散試験結果 (Cs と Se の例)	2-132
図 2.4.2-10	グリムゼル花崗岩の割れ目部/マトリクス部の収着試験 (a) と脱離試験 (b) の結果	2-132
図 2.4.2-11	定流量通液試験で得られたトレーサー元素の破過曲線データ	2-133
図 2.4.2-12	通液試験後の割れ目状態とレーザー走査顕微鏡による割れ目表面形状 の測定結果	2-134
図 2.4.2-13	定流量通液試験終了の割れ目面のトレーサー分布状況の分析結果	2-134
図 2.4.2-14	グリムゼル岩割れ目中通液試験の解析のモデル概念 (a), 解析体系 (b), 解析結果 (c)	2-135
図 2.4.2-15	幌延泥岩中の収着・拡散試験で得られた収着・拡散パラメータの比較 (a) 及び拡散係数の既報データとの比較 (b)	2-138
図 2.4.2-16	定流量通液試験で得られた破過曲線と内部プロファイルデータ	2-139
図 2.4.2-17	単一割れ目の核種移行解析のモデル概念図: (a) 均質系、(b) 不均質系	2-140
図 2.4.2-18	単一割れ目の不均質な流れ場を考慮した解析結果と実測データとの比較	2-141
図 2.4.2-19	幌延深地層研究センターの 350m 調査坑道における原位置トレーサー試験 と連携した評価確証のアプローチ	2-142
図 2.4.2-20	健岩部の原位置トレーサー試験装置 (a) とトレーサー減衰データの例 (b)	2-143
図 2.4.2-21	健岩部 D05 孔のオーバーコア試料 (a), 研削状況 (b), Cs のプロファイルの例 (c)	2-143
図 2.4.2-22	健岩部 D05 孔のトレーサー試験の解析体系と解析結果	2-144
図 2.4.2-23	HDB-1 孔における地下水の $\text{Cl}^- \cdot \delta^{18}\text{O} \cdot \delta\text{D}$ の深度プロファイルの例	2-147
図 2.4.2-24	幌延地域を対象とした NT プロファイル解釈のための概念モデル	2-148
図 2.4.2-25	HDB-1 孔を対象とした Cl^- プロファイル解釈のための予察検討例	2-149
図 2.4.2-26	HDB-1~HDB-11 孔の地下水の $\text{Cl}^- \cdot \delta^{18}\text{O}$ 値 (実測値) とシリカ鉱物の 相変化に伴う海水からの $\text{Cl}^- \cdot \delta^{18}\text{O}$ 値の変化に関する計算結果	2-150
図 2.4.3-1	有機物・微生物等の影響評価研究の流れ	2-151
図 2.4.3-2	有機物影響評価ダイアグラム	2-152
図 2.4.3-3	Aldrich 社製フミン酸水溶液と有機溶媒間の Eu 分配比の対数値 ($\log D$) と フミン酸濃度との関係	2-153
図 2.4.3-4	HHA 水溶液と有機溶媒間の Eu 分配比の対数値 ($\log D$) と フミン酸濃度との関係	2-154
図 2.4.3-5	HHA に対する Zr^{4+} 結合量の pH 依存性	2-156
図 2.4.3-6	各試料のプロトン化エンタルピー比較	2-158
図 2.4.3-7	HHA250 の非水滴定結果およびモデル当てはめ結果	2-159
図 2.4.3-8	有機物・微生物影響評価ダイアグラム	2-160

図 2.4.3-9	微生物コロイドの核種移行影響評価手法フロー図	2-161
図 2.4.3-10	幌延深地層研究センター地下施設内ボーリング孔配置図	2-162
図 2.4.3-11	コロイドへの元素収着特性評価試験における試料採取フロー	2-163
図 2.4.3-12	試験溶液中の主要元素濃度の経時変化 地下水採取深度：140 m(07-V140-M03 孔)	2-165
図 2.4.3-13	試験溶液中の希土類元素濃度の経時変化 地下水採取深度：140 m(07-V140-M03 孔)	2-166
図 2.4.3-14	10 kDa フィルターに捕集された地下水中の粒子の SEM 像と EDS 分析結果	2-167
図 2.4.3-15	0.2 μ m フィルターに捕集された地下水中の粒子の SEM 像と EDS 分析結果 (元素添加なし)	2-167
図 2.4.3-16	0.2 μ m フィルターに捕集された地下水中の粒子の SEM 像と EDS 分析結果 (Se 及び希土類元素添加添加試料及び無添加試料)	2-168
図 2.4.3-17	反応溶液中の微生物群集組成の経時変化 (深度 140 m)	2-169
図 2.4.3-18	反応溶液中の微生物群集組成の経時変化 (深度 250 m)	2-169
図 2.4.3-19	微生物サイズのコロイドへの元素の分配係数	2-170
図 2.4.3-20	バイオフィルムの核種移行影響評価手法フロー図	2-171
図 2.4.3-21	バイオフィルム分析の対象とした採水チューブ	2-172
図 2.4.3-22	ボーリング孔地下水採水チューブ内壁の SEM 像 (広域)	2-173
図 2.4.3-23	ボーリング孔地下水採水チューブ内壁の SEM 像と EDS 分析結果	2-173
図 2.4.3-24	幌延深地層研究センター地下施設内坑道壁面に形成されたバイオフィルム (IGSW)及びボーリング孔地下水採水チューブ内に形成されたバイオフィルム の重金属収着特性	2-174
図 2.4.3-25	地下水中の微生物群集組成と微生物細胞の蛍光顕微鏡観察像	2-176
図 2.4.3-26	地下施設内ボーリング孔 (08-E140-C01) から採取した地下水中の 微生物群集組成の経時変化 (次世代シーケンサーを用いた解析)	2-178
図 2.4.3-27	ゲノムデータから推測した各微生物ゲノムの代謝機能	2-179
図 2.5.1-1	イオン交換水に対する浸漬実験での pH	2-181
図 2.5.1-2	人工海水に対する浸漬実験での pH	2-181
図 2.5.1-3	M-S-H 合成実験での固相の X 線回折図	2-182
図 2.5.1-4	M-S-H 合成実験での固相の示差熱分析 (DTA) 曲線	2-183
図 2.5.1-5	M-S-H の平衡定数と Mg/Si 比との関係	2-183
図 2.5.1-6	HFSC 硬化体 - 人工海水浸漬実験での液相	2-184
図 2.5.1-7	HFSC 硬化体におけるフライアッシュ (FA) 及びシリカフェーム (SF) の 反応率の経時変化	2-187
図 2.5.1-8	HFSC 硬化体における固相の鋳物量	2-188
図 2.5.1-9	HFSC 硬化体における間隙液相組成 (1)	2-188
図 2.5.1-10	HFSC 硬化体における間隙液相組成 (2)	2-188
図 2.5.2-1	DEM と MACBECE2014 のひび割れ進展状況の比較	2-190

図 2.5.2-2	解析メッシュ	2-191
図 2.5.2-3	純せん断試験シミュレーションの結果	2-192
図 2.5.2-4	TRU 廃棄物処分施設を対象とする長期力学解析の解析メッシュ	2-194
図 2.5.2-5	セメント系材料のひび割れ発生・進展	2-195
図 2.5.2-6	コンクリート埋め戻し材の厚さと坑道内径の変化	2-196
図 2.5.2-7	セメント系材料のひび割れの開口幅分布と透水係数の変化	2-196
図 2.5.3-1	緩衝材に対するジルコニウムの収着分配係数の報告値と既往の 安全評価報告書の設定値	2-198
図 2.5.3-2	緩衝材に対するニオブの収着分配係数の報告値と既往の安全評価 報告書の設定値	2-199
図 2.5.3-3	緩衝材に対するスズ及びプロトアクチニウムの収着分配係数の報告値と 既往の安全評価報告書の設定値	2-199
図 2.5.3-4	固相を含まないブランク試料 (0.02 mol/dm ³ 塩化ナトリウム水溶液) 中の 溶存スズ濃度の pH 及び時間変化	2-201
図 2.5.3-5	ナトリウム型及びカルシウム型ベントナイトに対するのスズの 収着分配係数の pH 及び塩濃度依存性	2-202
図 2.5.3-6	0.02 mol/dm ³ CaCl ₂ 水溶液 (ブランク試料) 中における溶存ジルコニウム 濃度の pH および時間依存性	2-203
図 2.5.3-7	0.02 mol/dm ³ CaCl ₂ 水溶液中におけるカルシウム型ベントナイトに 対するのジルコニウムの収着分配係数の pH 依存性	2-203
図 2.5.4-1	瑞浪超深地層研究所のレイアウト	2-205
図 2.5.4-2	深度 300m 研究アクセス坑道でのグラウト充填割れ目を含む 岩石試料採取場所	2-205
図 2.5.4-3	深度 200m 予備ステージでのグラウト施工領域 (上) と 水圧・水質モニタリング実施場所 (下)	2-206
図 2.5.4-4	割れ目面に連続的に認められる割れ目充填鉱物	2-206
図 2.5.4-5	本テーマの研究アプローチ	2-207
図 2.5.4-6	スライス片の作製 (深度 200m 予備ステージ供試体番号: 10-1 の例)	2-208
図 2.5.4-7	岩石コアの状況 (深度 300m アクセス坑道の B 孔 (左)、C 孔 (右))	2-208
図 2.5.4-8	グラウト材料内での明暗コントラスト	2-209
図 2.5.4-9	微細割れ目に存在する方解石	2-210
図 2.5.4-10	B 孔 (B3-①) の XRF 分析結果	2-211
図 2.5.4-11	高倍率 SEM と EDX 分析結果	2-212
図 2.5.4-12	非破壊 CT-XRD 連成観察分析機器構成図	2-213
図 2.5.4-13	C 孔縦供試体の各観察結果寸法及び C 孔縦供試体の縦断面	2-214
図 2.5.4-14	CT-XRD 分析結果 左: C 孔縦供試体の XRD 測定位置 (250 レイヤー)	

	右上：C 孔縦供試体の各測定点における X 線回折チャート	
	右下：C 孔縦供試体 Point1 における回折チャートと Calcite	
	データとの比較	2-215
図 2.5.4-15	移流場におけるコンクリート／岩盤共存系のロジックツリー	2-216
図 2.6.1-1	ニアフィールド総合評価の概念	2-217
図 2.6.2-1	ニアフィールド総合評価システムの全体構想	2-218
図 2.6.3-1	「知見整理マトリクス」(左)と「知見の整理票」(右)の概略図	2-221
図 2.6.3-2	ニアフィールドシステム変遷と核種移行挙動に関する インフルエンスタイヤグラム	2-226
図 2.6.4-1	シナリオ 1 (緩衝材変質部は境界近傍に限定される)	2-228
図 2.6.4-2	シナリオ 2 (変質部に微細な割れが生じ、鉄イオンの拡散が促進)	2-229
図 2.6.4-3	シナリオ 3 (腐食膨張による緩衝材変質部の割れと不均質な変質部の進展)	2-229
図 2.6.5-1	HLW 地層処分システムの人工バリアの概略図	2-230
図 2.6.5-2	HLW 地層処分システムに対する MACBECE2014 の解析体系	2-231
図 2.6.5-3	QPAC の解析体系 (1 次元モデル)	2-231
図 2.6.5-4	連成解析のフローチャート (解析オプションモデル 2, 3)	2-235
図 2.6.5-5	解析モデルオプション 0 の解析結果	2-236
図 2.6.5-6	解析モデルオプション 1~3 の連成解析結果 (最小主応力分布)	2-236
図 2.6.5-7	解析モデルオプション 1~3 の連成解析結果 (鉍物組成)	2-238
図 2.6.5-8	解析モデルオプション 1~3 の連成解析結果 (実効拡散係数)	2-238
図 2.6.6-1	GARFIELD-CHEM における有限要素と液相化学種および鉍物の配置 (a) およびグリッドリファインの様子を表した図 (b)	2-240
図 2.6.6-2	解析対象の模式図	2-241
図 2.6.6-3	対象としたセメントのひび割れシミュレーションの結果 (左) と GARFIELD-CHEM 上の可変グリッドで再現した様子 (右)	2-242
図 2.6.6-4	pH の変遷	2-245
図 2.6.6-5	各鉍物の濃度と間隙割合の変遷	2-246
図 2.6.6-6	鉄影響によるベントナイト緩衝材の変質・破壊現象の DEM モデルの概念	2-248
図 2.6.6-7	ベントナイト緩衝材の変質を考慮した力学挙動のシミュレーションモデル	2-249
図 2.6.6-8	CaseA におけるひび割れ形状および鉄イオン濃度分布の例	2-251
図 2.6.6-9	CaseB におけるひび割れ形状および鉄イオン濃度分布の例	2-251
図 2.6.6-10	CaseC におけるひび割れ形状および鉄イオン濃度分布の例	2-252

第 3 章 多様な廃棄物の共処分におけるニアフィールドの影響評価技術開発

図 3.1.1-1	HLW と TRU 廃棄物との共処分概念	3-1
図 3.1.2-1	適切な共処分概念の提示フローと実施項目	3-3
図 3.1.2-2	5 ヶ年の計画	3-4
図 3.2.1-1	TAM IV による模擬アスファルト固化体の熱量測定結果	3-7

図 3.2.1-2	熱収支解析体系(左:全体図、右上:処分坑道、右下:廃棄体パッケージ)……	3-9
図 3.2.1-3	アスファルト固化体のみ高温の場合(内部からの熱を想定) ……………	3-11
図 3.2.1-4	体系全てが温度一定の場合(外部からの熱を想定) ……………	3-11
図 3.2.1-5	アスファルト固化体表面での発熱を想定した場合の評価点(200L ドラム缶) の温度及び反応率の変化 ……………	3-16
図 3.2.1-6	アスファルト固化体内部での発熱を想定した場合の評価点(200L ドラム缶) の温度及び反応率の変化 ……………	3-16
図 3.2.1-7	高温流体(1400°C)の接近を想定した場合の温度及び反応率の変化 ……………	3-18
図 3.2.2-1	硝酸イオン化学的変遷挙動評価モデル(NEON)の概念 ……………	3-20
図 3.2.2-2	黄鉄鉱/硝酸ナトリウム溶液混合物から発生する熱変化 ……………	3-22
図 3.2.2-3	カラムの概要図及び外観 ……………	3-23
図 3.2.2-4	硝酸イオン変遷試験の実測値と NEON 解析結果の比較 (左図:カラム長さ 150mm, 右図:カラム長さ 300mm) ……………	3-25
図 3.2.2-5	地下水汚染調査地域 ……………	3-26
図 3.2.2-6	解析体系模式図 ……………	3-28
図 3.2.2-7	Boyne 川近郊における地下水中の硝酸性窒素濃度(mmol/dm^3)の解析結果 と実測値((a):微生物反応あり、(b):微生物反応なし) ……………	3-29
図 3.2.3-1	20 回の WD 処理後の XRD 回折パターン……………	3-31
図 3.2.3-2	各イオン型のスメクタイトモデル(水分子を付加する前) ……………	3-34
図 3.2.3-3	各イオン型のスメクタイト試料の相対湿度制御下での底面間隔測定値 ……………	3-37
図 3.2.4-1	イソサッカリン酸及びグルコン酸の構造式 ……………	3-38
図 3.2.4-2	GLU 共存下におけるジルコニウム溶解度 (16 週後、(a) 10 kDa、(b) $0.45 \mu\text{m}$ 通過成分) ……………	3-40
図 3.2.4-3	ジルコニウム溶解度の GLU 濃度依存性((a) 10 kDa、(b) $0.45 \mu\text{m}$ 通過成分) ……………	3-41
図 3.2.4-4	GLU 共存下におけるジルコニウム固相の熱分析結 果([GLU] _{ini} = (a) 10^{-3} M、(b) 10^{-1} M) ……………	3-42
図 3.2.4-5	GLU 共存下における Zr 溶解度の熱力学計算結果の例 ([GLU] _{ini} = (a) 3×10^{-3} M、(b) 10^{-1} M) ……………	3-42
図 3.2.4-6	合成した Ca(ISA) ₂ の XRD スペクトル……………	3-43
図 3.2.4-7	ISA 共存下におけるジルコニウム溶解度 (14 週後、(a) 10 kDa、(b) $0.45 \mu\text{m}$ 通過成分) ……………	3-45
図 3.2.4-8	ISA 共存下におけるジルコニウム固相の熱分析結果の例 ((a) イソサッカリン酸カルシウム、(b) [ISA] _{ini} = 10^{-1} M) ……………	3-45
図 3.2.4-9	ISA 共存下における Zr 溶解度の熱力学計算結果の例 ([ISA] _{ini} = (a) 3×10^{-3} M、(b) 10^{-1} M) ……………	3-46
図 3.3.1-1	硝酸イオン移流分散解析体系 ……………	3-48
図 3.3.1-2	処分坑道レイアウト(X-Y 平面) ……………	3-48
図 3.3.1-3	処分坑道断面の例(X-Z 平面) ……………	3-49

図 3.3.1-4	Z=0 における X-Y 平面における硝酸イオン濃度の経時変化 (左上図：1年、右上図：100年、左下図：10,000年、右下図：1,000,000年)	3-50
図 3.3.1-5	各位置における硝酸イオン濃度の経時変化	3-51
図 3.3.1-6	共処分のレイアウト (平面図)	3-51

第4章 過酷事象の地層処分システムへの影響に関する評価確証技術開発

図 4.1.2-1	本事業の5ヵ年計画	4-2
図 4.2.1-1	過酷事象検討の位置付け	4-5
図 4.2.1-2	地層処分システムにおける過酷事象の検討フロー (改良版)	4-5
図 4.2.1-3	トップダウン型の観点からシナリオを探索する模式図	4-8
図 4.2.1-4	トップダウン型に基づくシナリオ探索及び頻度の確認 (例)	4-15
図 4.2.2-1	外的擾乱要因による影響を分析するための考え方	4-18
図 4.3.1-1	地震・断層活動を対象としたシナリオ構築の手順及び今年度の実施範囲	4-20
図 4.3.1-2	解析ケース及び感度解析結果	4-22
図 4.3.1-3	個別現象研究のテーマと情報共有シートの作成例	4-23
図 4.3.1-4	個別現象研究等との連携を通じて発生条件等を確認するための枠組	4-25
図 4.3.1-5	4つのバリア性能と安全機能及びバリア性能の喪失の組み合わせ	4-26
図 4.3.1-6	バリア性能に着目した予備解析結果	4-26
図 4.3.1-7	安全機能に着目した予備解析結果	4-27
図 4.3.2-1	釜石鉱山 550m 坑道展開図及び岩盤ひずみ・弾性波計測位置図	4-29
図 4.3.2-2	釜石鉱山・岩盤ひずみ計の配置図	4-29
図 4.3.2-3	江刺地球潮汐観測施設岩盤ひずみ計の配置図	4-29
図 4.3.2-4	江刺岩盤ひずみの経時変化図	4-29
図 4.3.2-5	弾性波計測網及び間隙水圧計、水温計配置図	4-30
図 4.3.2-6	DTT (Differential Travel Time) 算定の概念図	4-30
図 4.3.2-7	DTT、間隙水圧及び水温の経時変化図	4-30
図 4.3.2-8	東北地方太平洋沖地震の発生前後1年間における地震発生数の 変化率と M>5.0 の内陸地震の分布	4-33
図 4.3.2-9	内陸地震の発生前後における地下水の各溶存成分及び水温の変化率	4-34
図 4.3.2-10	日本列島における地下水・温泉ガスのヘリウム同位体比分布	4-36
図 4.3.2-11	日本列島における地下水・温泉ガスのヘリウム同位体比及び 第四紀火山からの距離	4-36
図 4.3.2-12	日本列島における地下水・温泉ガスのヘリウム同位体比及び 活断層からの距離	4-36
図 4.3.2-13	(a)活断層のタイプ及び(b)活動度によるヘリウム同位体比分布特性の違い	4-37
図 4.3.2-14	(a)温泉水・遊離ガス試料採取地点分布と(b)水温、(c)pH、 (d)HCO ₃ ⁻ 濃度の累積頻度分布	4-39

図 4.3.3-1	飽和膨潤過程終了後の膨潤圧と膨潤圧試験結果との比較	4-42
図 4.3.3-2	飽和膨潤過程の膨潤圧の経時変化例 (Case4)	4-42
図 4.3.3-3	せん断過程における試験体挙動の概念図	4-43
図 4.3.3-4	取り出した試験体の撮影画像を用いた挙動確認例	4-45
図 4.3.3-5	X線 CT 画像を用いた挙動確認例	4-45
図 4.3.3-6	せん断荷重とせん断変位の関係の例 (Case2)	4-45
図 4.3.3-7	Case4: せん断荷重とせん断変位の関係と試験時に干渉したと判断される 模擬岩盤の擦過面	4-46
図 4.3.3-8	土圧とせん断変位の関係の例 (Case2)	4-46
図 4.3.3-9	せん断後の試験体の状況	4-47
図 4.3.3-10	試料ホルダー	4-47
図 4.3.3-11	試料押し治具と使用時のイメージ	4-47
図 4.3.3-12	せん断模型試験結果と解析結果における緩衝材上部の土圧変化の比較	4-48
図 4.3.3-13	3次元解析モデル (模擬オーバーパック、緩衝材、岩盤) の概要	4-51
図 4.3.3-14	ミーゼス相当応力コンタ (時刻 0.05 秒、せん断変位 77mm の場合)	4-53
図 4.3.3-15	相当塑性ひずみコンタ (時刻 0.05 秒、せん断変位 77mm の場合)	4-53
図 4.3.3-16	模擬オーバーパックのミーゼス相当応力コンタ、相当塑性ひずみコンタ (時刻 0.054 秒、せん断変位 97mm の場合)	4-55
図 4.3.3-17	人工バリア寸法図	4-57
図 4.3.3-18	解析モデルの一例	4-57
図 4.3.3-19	評価点位置図	4-60
図 4.3.3-20	ケース 1 ガス相圧力経時変化 (埋め戻し部、緩衝材)	4-60
図 4.3.3-21	ケース 1 ガス相圧力経時変化 (岩盤)	4-61
図 4.3.3-22	ケース 1 緩衝材の液相と気相の収支	4-61
図 4.3.3-23	ケース 1 緩衝材へのガス流入量	4-61
図 4.3.3-24	ケース 2 ガス相圧力経時変化 (埋め戻し部、緩衝材)	4-62
図 4.3.3-25	ケース 2 ガス相圧力経時変化 (岩盤)	4-62
図 4.3.3-26	ケース 2 緩衝材の液相と気相の収支	4-62
図 4.3.3-27	ケース 2 緩衝材へのガス流入量	4-63
図 4.3.3-28	ケース 3 ガス相圧力経時変化 (埋め戻し部、緩衝材)	4-63
図 4.3.3-29	ケース 3 ガス相圧力経時変化 (岩盤)	4-63
図 4.3.3-30	ケース 3 緩衝材の液相と気相の収支	4-64
図 4.3.3-31	ケース 3 緩衝材へのガス流入量	4-64
図 4.3.3-32	ケース 4 ガス相圧力経時変化 (埋め戻し部、緩衝材)	4-64
図 4.3.3-33	ケース 4 ガス相圧力経時変化 (岩盤)	4-65
図 4.3.3-34	ケース 4 緩衝材の液相と気相の収支	4-65
図 4.3.3-35	ケース 4 緩衝材へのガス流入量	4-65
図 4.3.3-36	地下施設の耐震評価検討フロー	4-66

図 4.3.3-37	検討対象地震の擬似速度応答スペクトル図	4-67
図 4.3.3-38	検討対象断層・地震 左：活断層 右：日本海東縁の地震	4-68
図 4.3.3-39	各断層モデルの応答スペクトル（最大例）	4-69
図 4.3.3-40	模擬地震波時刻歴波形 上：水平 下：上下	4-69
図 4.3.3-41	各不確かさケースでの最大応答スペクトル	4-70
図 4.3.3-42	応答スペクトルの比較 左：加速度応答スペクトル 右：擬似速度応答スペクトル	4-72
図 4.3.3-43	加速度・擬似速度応答スペクトルと一様ハザードスペクトルの比較	4-72
図 4.3.3-44	地震動ハザード曲線	4-73
図 4.3.3-45	フラクタイルハザード曲線	4-73
図 4.3.3-46	算術平均ハザード曲線	4-73
図 4.3.3-47	一様ハザードスペクトル	4-73
図 4.3.3-48	加速度応答スペクトル 左：EW 成分 右：NS 成分	4-74
図 4.3.3-49	加速度応答スペクトル 左：全体 右：抽出	4-74
図 4.3.3-50	等価震度分布図 左：Ss-1 中：Ss-6 右：Ss-4、IWTH24 (NS)	4-75
図 4.3.3-51	覆工コンクリート最大圧縮応力深度分布（常時+地震時、Ss-1）	4-75
図 4.3.3-52	覆工コンクリート最大圧縮応力深度分布（常時+地震時、Ss-6EW）	4-76
図 4.3.3-53	覆工コンクリート最大圧縮応力深度分布（常時+地震時、Ss-4NS）	4-76
図 4.3.3-54	年超過頻度と基準地震動の参照 左：Ss-4 右 Ss-6	4-77
図 4.3.3-55	土の繰返し非排水三軸試験結果	4-82
図 4.3.3-56	繰返し軸差応力と軸ひずみ・平均有効主応力との関係	4-83
図 4.3.3-57	軸ひずみ・過剰間隙水圧比と繰返し載荷回数との関係	4-84
図 4.3.3-58	処分坑道横置き定置方式（軟岩系岩盤）の処分坑道のイメージ図	4-85
図 4.3.3-59	処分坑道横置き定置方式（軟岩系岩盤）の人工バリアの仕様例	4-85
図 4.3.3-60	解析モデル	4-86
図 4.3.3-61	見直し前後の動的変形特性の比較	4-89
図 4.3.3-62	要素シミュレーションによるおわんモデルのフィッティング状況	4-90
図 4.3.3-63	解析で用いた入力地震動	4-91
図 4.3.3-64	初期応力解析における応力分布図(STEP1)	4-92
図 4.3.3-65	初期応力解析における応力分布図(STEP2)	4-93
図 4.3.3-66	初期応力解析における応力分布図(STEP3)	4-93
図 4.3.3-67	動的解析結果の最大分布図	4-94
図 4.3.3-68	オーバーパック周辺の水平変位（X軸方向）時刻歴図	4-95
図 4.3.3-69	オーバーパック端部と緩衝材端部との変位時刻歴図	4-96
図 4.3.3-70	オーバーパック前面部におけるオーバーパック端部と緩衝材端部との 変位時刻歴図	4-96
図 4.3.3-71	過剰間隙水圧比の時刻歴図	4-97
図 4.3.3-72	本解析で用いた個別要素法モデル概念図	4-98

図 4.3.3-73	オーバーバックの沈降挙動解析の概念図	4-98
図 4.3.3-74	GL-500mにおける速度時刻歴波形	4-98
図 4.3.3-75	個別要素法によるせん断影響解析結果例 (模擬オーバーバックと岩盤の接触時)	4-100

第5章 可逆性と回収可能性などを考慮した地層処分システム概念の提示

図 5.1-1	成果の取りまとめに向けたアプローチ	5-1
図 5.2.2-1	科学的知識の不確実性の社会的意味	5-4
図 5.2.2-2	新たな処分概念のオプション構築	5-10
図 5.2.3-1	基本シナリオにおける核種移行概念モデル	5-11
図 5.2.3-2	透水量係数分布	5-15
図 5.2.3-3	被ばく線量(第2次取りまとめリファレンスケース)	5-17
図 5.2.3-4	被ばく線量(透水量係数分布第2次取りまとめ、1000年で全数開口)	5-17
図 5.2.3-5	被ばく線量(透水量係数分布第2次取りまとめ、100万年で全数開口)	5-18
図 5.2.3-6	1000年後での開口割合 x と全核種合計の被ばく線量の関係 (透水量係数分布第2次取りまとめ、100万年までの開口割合を変化)	5-18
図 5.2.3-7	被ばく線量(透水量係数分布第2次取りまとめ+2桁、1000年で全数開口)	5-19
図 5.2.3-8	被ばく線量(透水量係数分布第2次取りまとめ+2桁、100万年で全数開口)	5-19
図 5.2.3-9	1000年後での開口割合 x と全核種合計の被ばく線量の関係 (透水量係数分布第2次取りまとめ+2桁、100万年までの開口割合を変化)	5-20
図 5.3.1-1	処分事業の諸段階及び対応する意思決定の例	5-22
図 5.3.1-2	「受動的な安全系へ推移するまでの取り組み(R&R)」が合意形成 に寄与し得る領域	5-23
図 5.3.1-3	意思決定におけるステークホルダ	5-25
図 5.3.1-4	意思決定において議論すべきポイント	5-26
図 5.3.1-5	相互に連携した多段階の議論の場の例	5-26
図 5.3.1-6	バスタブモデルに基づく閉鎖後モニタリング及び可逆性・回収可能性 の必要性と時間スケールの関係	5-28
図 5.3.2-1	モニタリング項目の抽出と実施方法の検討フロー	5-30
図 5.3.2-2	モニタリング情報の可視化の概念	5-33
図 5.3.2-3	Active モニタリングのための処分実証施設の概念例	5-34
図 5.4.1-1	使用済燃料最終処分地選定に関わる自治体内の組織図	5-46
図 5.4.2-1	「高レベル放射性廃棄物の地層処分」についての認知	5-49
図 5.4.2-2	「高レベル放射性廃棄物の地層処分」についての認知(属性別)	5-50
図 5.4.2-3	「高レベル放射性廃棄物の地層処分」についての認知(関心度等別)	5-51
図 5.4.2-4	「高レベル放射性廃棄物の地層処分」についての態度	5-52
図 5.4.2-5	「高レベル放射性廃棄物の地層処分」についての態度(属性別)	5-52
図 5.4.2-6	「高レベル放射性廃棄物の地層処分」についての態度(関心度等別)	5-53

図 5.4.3-1	合意形成の試行の流れ	5-55
図 5.4.4-1	相互理解に基づく多様なステークホルダ間の合意形成手法	5-58
図 5.4.5-1	マルチエージェントの実施例	5-63

第6章 地層処分事業に資するための地層処分システム評価確証技術の統合化

図 6.1.2-1	「地層処分事業に資するための地層処分システム評価確証技術の統合化」 の5カ年計画	6-1
図 6.1.3-1	処分システム評価確証技術の統合化	6-2
図 6.2.1-1	確証性の高い地層処分システムの構築に向けた多様なステークホルダ 及び地層処分以外の分野の専門家間の対話と協働による知識の融合と構造化	6-3
図 6.2.1-2	成果統合の手順	6-4
図 6.2.1-3	確証性の高い処分システム構築に求められる要件に応じた各技術 の研究成果マッピング (その1)	6-5
図 6.2.1-4	確証性の高い処分システム構築に求められる要件に応じた各技術 の研究成果のマッピング (その2)	6-6
図 6.2.1-5	確証性の高い処分システム構築に求められる要件に応じた各技術 の研究成果のマッピング (その3)	6-7
図 6.2.1-6	グループウェアを用いた協働	6-8
図 6.2.1-7	グループウェアを介した各ツールとの連携	6-9
図 6.2.1-8	FRAM 法構築ツールを組み込んだモデルベースシステム	6-10
図 6.2.1-9	討論型世論調査での活用例	6-10
図 6.2.2-1	Joomla! の基本構成のイメージ	6-11
図 6.2.2-2	Joomla! のカテゴリ編集画面のイメージ	6-12
図 6.2.2-3	Joomla! の記事編集画面のイメージ	6-13
図 6.2.2-4	Joomla! のメニュー編集画面のイメージ	6-13
図 6.2.2-5	ポータルサイトのフロントページのイメージ	6-14
図 6.2.2-6	過酷事象の影響評価の成果についてイラストを用いてストーリー形式 でわかりやすく説明	6-15
図 6.3.1-1	「想定外を想定する(SEE) (火山) の広告案の例	6-17
図 6.3.1-2	「10 万年の宿題」のポスター	6-19
図 6.3.1-3	科学者集団 SEE 設立と設立記念シンポジウムに関するニュースリリース	6-22
図 6.3.2-1	「地球はタイムカプセル」の広告案	6-25
図 6.3.2-2	「温故知球」の広告案	6-26
図 6.3.2-3	「100 万年の過去・未来」の広告案	6-27
図 6.3.2-4	「アナログに学べ。」「ナチュラルアナログってなんだ？」の広告案	6-27
図 6.3.2-5	「地球が先生」の広告案	6-28
図 6.3.2-6	ナチュラルアナログのタグライン例	6-30
図 6.3.3-1	サイエンスコミュニケーション参加者属性：性別	6-33

図 6.3.3-2	サイエンスコミュニケーション参加者属性：年齢	6-33
図 6.3.3-3	サイエンスコミュニケーション参加者属性：学歴	6-33
図 6.3.3-4	サイエンスコミュニケーション参加者属性：得意分野	6-33
図 6.3.3-5	「ナチュラルアナログ研究」の認知	6-34
図 6.3.3-6	「ナチュラルアナログ」の認知経路	6-34
図 6.3.3-7	「ナチュラルアナログ」のレクチャーに対する評価	6-34
図 6.3.3-8	「ナチュラルアナログ」に対する興味	6-35
図 6.3.3-9	「ナチュラルアナログ」に対する興味の内容	6-35
図 6.3.3-10	「ナチュラルアナログ」の有用性評価	6-35
図 6.3.3-11	「ナチュラルアナログ」の貢献分野	6-36
図 6.3.3-12	「ナチュラルアナログ」に対する興味	6-36
図 6.3.3-13	「ナチュラルアナログ」と地層処分の安全性や信頼性	6-38
図 6.3.4-1	有望地選定におけるコミュニケーションデザイン	6-39

表目次

第2章	ニアフィールドのシステム変遷と核種移行を評価するための先端的技術の開発	
表 2.2.1-1	過渡的变化を評価する上で考慮すべき事象の抽出方法	2-5
表 2.2.1-2	本事業での検討において新たに抽出した課題	2-8
表 2.2.1-3	建設（坑道掘削）・操業・埋め戻し期間における課題と対応状況	2-10
表 2.2.1-4	廃棄体の発熱が顕著な期間における課題と対応状況	2-11
表 2.2.1-5	環境条件が定常に至る期間における課題と対応状況	2-12
表 2.2.1-6	外部の環境変化による変遷における課題と対応状況	2-13
表 2.2.1-7	ニアフィールドの長期挙動解析に用いた解析物性値	2-17
表 2.2.1-8	ニアフィールドの長期挙動解析で設定した初期間隙水組成	2-18
表 2.2.1-9	人工バリア性能確認試験で設置したセンサー	2-24
表 2.2.1-10	一軸圧縮強度試験ケース	2-33
表 2.2.1-11	膨潤変形試験ケース	2-36
表 2.2.1-12	膨潤圧試験ケース	2-36
表 2.2.2-1	浸漬試験条件	2-53
表 2.2.2-2	腐食試験前後の試験片の重量減量から算出した腐食量及び腐食速度	2-56
表 2.2.2-3	試験溶液及び緩衝材の pH 濃度測定結果(90 日後)	2-57
表 2.3.1-1	人工バリア中の核種移行評価の不確実性に関わる課題	2-66
表 2.3.2-1	亜セレン酸イオン(SeO_3^{2-} , C_{3r})の基準振動とその波数	2-84
表 2.3.3-1	不確実性を考慮するモデルパラメータ	2-109
表 2.3.4-1	各サイトの選択定数	2-115
表 2.3.4-2	試験条件	2-117
表 2.4.2-1	結晶質岩と堆積岩系の核種移行に係る不確実性要因と課題の整理	2-122
表 2.4.2-2	グリムゼル花崗岩試料の割れ目部とマトリクス部の特性分析結果	2-130
表 2.4.2-3	諸外国における花崗岩を対象とした原位置トレーサー試験の調査結果	2-136
表 2.4.2-4	各ボーリング孔の地下水に認められる NT プロファイルの主な特徴の 整理結果	2-146
表 2.4.3-1	各深度における地下水中のコロイド密度の測定値	2-163
表 2.4.3-2	地下水中のコロイド密度（平均値）と微生物コロイド密度	2-163
表 2.4.3-3	各ボーリング孔における地下水中の全菌数と採水チューブ内壁の バイオフィルム密度	2-174
表 2.5.1-1	M-S-H の平衡定数	2-183
表 2.5.1-2	M-S-H の設定方法	2-184
表 2.5.1-3	初期状態として与えた HFSC の鉱物組成	2-186
表 2.5.1-4	フライアッシュ及びシリカフェームの反応速度に関する係数	2-186
表 2.5.2-1	純せん断試験シミュレーションの解析条件	2-191

表 2.5.2-2	長期力学解析におけるセメント系材料の物性値 a) 処分施設閉鎖前、b) 処分施設閉鎖後	2-193
表 2.5.2-3	長期力学解析における鉄（腐食膨張要素）の物性値	2-193
表 2.5.2-4	長期力学解析における岩盤の物性値	2-194
表 2.5.4-1	試料に用いた既存のボーリングコア	2-207
表 2.5.4-2	OPC の主な組成（品質例）	2-209
表 2.5.4-3	分析装置及び仕様・測定条件	2-210
表 2.5.4-4	分析装置および仕様	2-211
表 2.5.4-5	X線 CT における分析条件	2-213
表 2.5.4-6	X線回折における分析条件	2-213
表 2.6.3-1	ニアフィールドシステム変遷と核種移行に関する現象リスト	2-220
表 2.6.3-2	ガラス固化体/オーバーパックに関する知見	2-222
表 2.6.3-3	緩衝材/埋め戻し材に関連する知見	2-223
表 2.6.3-4	放射性核種の溶解度/実効拡散係数/分配係数に関する知見	2-224
表 2.6.5-1	QPAC-MACBECE2014 間で授受をする情報リスト	2-232
表 2.6.6-1	本例題で設定した鉱物	2-243
表 2.6.6-2	本例題で設定した初期間隙水組成および外部地下水組成	2-243
表 2.6.6-3	本例題で設定した液相化学種	2-243
表 2.6.6-4	鉱物の反応速度計算に用いられたパラメータ	2-244
表 2.6.6-5	「鉄影響によるベントナイト緩衝材変質シナリオ」から抽出された シミュレーションで対象とする現象と DEM モデルでの反映方法	2-248
表 2.6.6-6	鉄影響によるベントナイト緩衝材の変質・破壊現象のシミュレーションの 解析ケース	2-249

第3章 多様な廃棄物の共処分におけるニアフィールドの影響評価技術開発

表 3.2.1-1	熱量測定条件	3-7
表 3.2.1-2	熱収支解析における構成要素の物性値	3-10
表 3.2.1-3	境界及び温度条件	3-10
表 3.2.1-4	エネルギー供給要因及び熱反応暴走誘起の可能性の検討	3-12
表 3.2.1-5	微生物発熱を想定した熱収支解析条件	3-14
表 3.2.1-6	地殻変動データの特徴と推定される火山活動	3-17
表 3.2.2-1	アンプル試験条件一覧	3-21
表 3.2.2-2	予備試験条件	3-23
表 3.2.2-3	予備試験結果	3-24
表 3.2.2-4	硝酸イオン変遷試験条件	3-24
表 3.2.2-5	硝酸イオン変遷試験結果	3-25
表 3.2.2-6	解析体系・解析条件	3-28
表 3.2.3-1	底面間隔の比較	3-35

表 3.2.4-1	ジルコニウム-GLU 錯体および固相の熱力学データ ($I = 0$)	3-43
表 3.2.4-2	ジルコニウム-ISA 錯体および固相の熱力学データ ($I = 0$)	3-46
表 3.3.1-1	解析に用いた透水係数及び間隙率	3-49

第4章 過酷事象の地層処分システムへの影響に関する評価確証技術開発

表 4.2.1-1	包括的懸念事項リストの例	4-10
表 4.2.1-2	経口摂取による被ばく線量評価に用いたパラメータの一覧	4-12
表 4.2.1-3	100mSv の内部被ばく (経口摂取) をもたらす放射能濃度の算出結果	4-13
表 4.2.2-1	ガラス固化体の管理状況の特徴について整理した例	4-17
表 4.3.1-1	安全機能の喪失 (安全機能の OFF) の定義とその物理的意味	4-21
表 4.3.1-2	前提条件の抽出	4-23
表 4.3.1-3	抽出されたシナリオ分岐点	4-24
表 4.3.2-1	弾性波観測システムの適用性検討結果	4-31
表 4.3.3-1	せん断模型試験ケース一覧	4-40
表 4.3.3-2	緩衝材の仕様	4-41
表 4.3.3-3	試験結果概要	4-44
表 4.3.3-4	岩盤 (硬岩系) の物性値	4-51
表 4.3.3-5	緩衝材の物性値	4-52
表 4.3.3-6	模擬オーバーパックの物性値	4-52
表 4.3.3-7	材料パラメータ	4-57
表 4.3.3-8	解析ケース	4-58
表 4.3.3-9	基準地震動の策定に関する資料	4-67
表 4.3.3-10	検討対象断層・地震の一覧	4-67
表 4.3.3-11	応答スペクトル法により検討する断層パラメータ	4-68
表 4.3.3-12	不確かさの検討ケース	4-70
表 4.3.3-13	震源を特定して策定した基準地震動一覧	4-71
表 4.3.3-14	審査ガイドにおける検討対象となる内陸地殻内地震 (16 地震) の一覧	4-71
表 4.3.3-15	山岳トンネルの地震被害事例	4-79
表 4.3.3-16	土の繰返し非排水三軸試験ケース	4-81
表 4.3.3-17	処分坑道横置き定置方式 (軟岩系岩盤) の仕様	4-85
表 4.3.3-18	初期応力解析における物性値及び荷重	4-87
表 4.3.3-19	人工バリア自重解析に用いた物性値	4-87
表 4.3.3-20	動的解析に用いた物性値	4-88
表 4.3.3-21	地震動影響解析モデルで設定したパラメータ	4-99
表 4.3.3-22	個別要素法モデル形状及び計算条件	4-99

第5章 可逆性と回収可能性などを考慮した地層処分システム概念の提示

表 5.2.2-1	地層処分分野におけるロバスト性向上のためのレジリエンス的取り組み例	5-5
-----------	-----------------------------------	-----

表 5.2.2-2	他分野におけるロバスト性向上のためのレジリエンス的取り組み例	5-6
表 5.2.2-3	SWOT 分析用のマトリクス	5-7
表 5.2.2-4	「冗長性」に関する SWOT 分析結果	5-8
表 5.2.2-5	「多様性」に関する SWOT 分析結果	5-8
表 5.2.2-6	「環境適応性（適応・再生）」に関する SWOT 分析結果	5-8
表 5.2.2-7	「危機管理」に関する SWOT 分析結果	5-8
表 5.2.2-8	地層処分システムのロバスト性を向上するための 4 つのレジリエンス的 取り組みを組み合わせた総合的な戦略	5-9
表 5.2.3-1	ガラス溶解速度	5-12
表 5.2.3-2	ガラス固化体の放射性核種インベントリ (処分後 100 年時点・一体あたり)	5-12
表 5.2.3-3	人工バリアのパラメータ設定	5-12
表 5.2.3-4	溶解度および緩衝材中の分配係数、拡散係数	5-13
表 5.2.3-5	母岩に係る入力データ（分配係数を除く）	5-13
表 5.2.3-6	母岩での分配係数	5-14
表 5.2.3-7	河川水 GBI の線量換算係数（農作業従事者グループ）	5-14
表 5.2.3-8	解析ケース一覧	5-15
表 5.2.3-9	100 万年間に損傷を被るキャニスタの個数の計算結果	5-16
表 5.2.3-10	支配核種の新旧パラメータの比較	5-16
表 5.2.3-11	主な材料単価	5-21
表 5.3.1-1	「Tractable」なシステムと「Intractable」なシステムの比較	5-29
表 5.3.1-2	地層処分システムに含まれる複雑性とダイナミクス	5-30
表 5.3.2-1	モニタリングパラメータと方法の例	5-31
表 5.3.2-2	Active モニタリングに関する開発が必要な技術	5-34
表 5.4.1-1	使用済燃料最終処分計画	5-37
表 5.4.1-2	サイト選定プロセス	5-37
表 5.4.1-3	高レベル放射性廃棄物処分場受入に対する意見分布	5-39
表 5.4.1-4	使用済燃料処分場選定の経緯	5-41
表 5.4.1-5	政府による主な原子力施策	5-41
表 5.4.3-1	サイエンスコミュニケーションで共有した事実	5-56
表 5.4.3-2	サイエンスコミュニケーションで「共通した意見」と「意見の競合や 対立が見られた点」	5-57
表 5.4.3-3	サイエンスコミュニケーション（文科系グループ）：議論のポイント	5-57
第 6 章 地層処分事業に資するための地層処分システム評価確証技術の統合化		
表 6.2.1-1	グループウェアの機能	6-9
表 6.2.2-1	Joomla! の主な管理機能	6-11
表 6.3.1-1	平成 26 年度作成の広報ツールに対するグループインタビューの進行表	6-16

表 6.3.1-2	SEE のポスターのボディコピー	6-18
表 6.3.1-3	最もよいと思う「過酷事象評価(SEE)」の広告案と選定理由	6-20
表 6.3.1-4	最もよいと思うキャッチコピーと選定理由	6-21
表 6.3.1-5	最もよいキービジュアルと選定理由	6-21
表 6.3.2-1	ナチュラルアナログの広報ツールに対するグループインタビューの進行表	6-24
表 6.3.2-2	「ナチュラルアナログ」のボディコピー	6-26
表 6.3.2-3	最もよいと思う「ナチュラルアナログ」の広告案と選定理由	6-29
表 6.3.2-4	最もよいと思うタグラインと選定理由	6-30
表 6.3.2-5	最もよいと思うキャッチコピーと選定理由	6-31
表 6.3.2-6	最もよいキービジュアルと選定理由	6-31
表 6.3.3-1	「ナチュラルアナログ」に期待すること	6-37
表 6.3.4-1	ニーズ抽出およびインサイトの分析例 (1/3)	6-43
表 6.3.4-2	ニーズ抽出およびインサイトの分析例 (2/3)	6-44
表 6.3.4-3	ニーズ抽出およびインサイトの分析例 (3/3)	6-45

1. 緒言

1.1 本事業の背景と目的

本事業は、平成27年度地層処分技術調査等事業（処分システム評価確証技術開発）として、経済産業省資源エネルギー庁（以下、資源エネルギー庁）から国立研究開発法人日本原子力研究開発機構（以下、原子力機構）が受託したものである。本事業の背景と目的を以下に記す。

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

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

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

1.2 確証性の高い地層処分システムとは

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

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

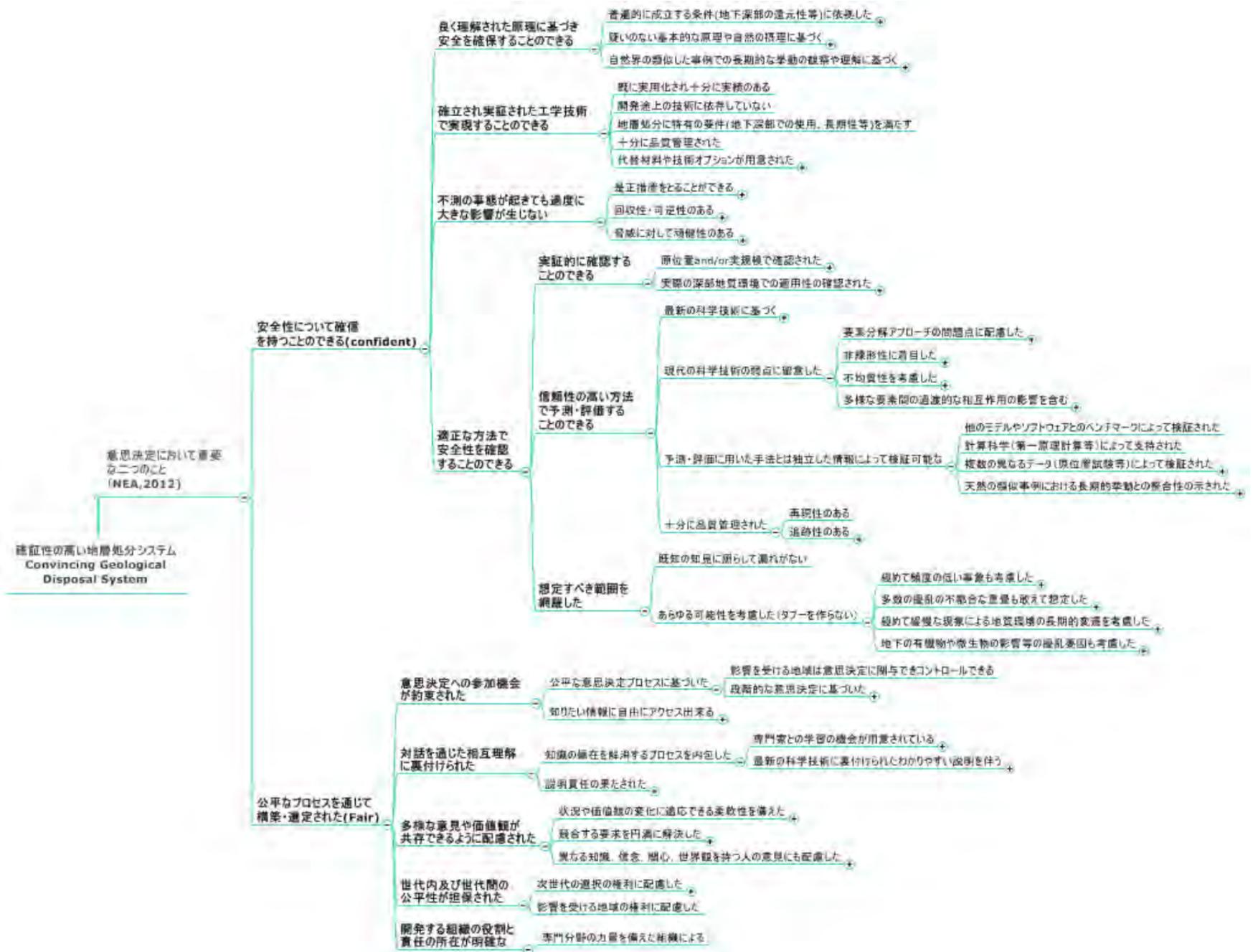


図1.2-1 確証性の高い地層処分システムが具備すべき属性とその構造

1.3 全体フレーム

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

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

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

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

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

の概念を構築する必要がある。

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

以上のことを実施していくために、図1. 3-1に示す全体構成に基づきプロジェクトを実施する。

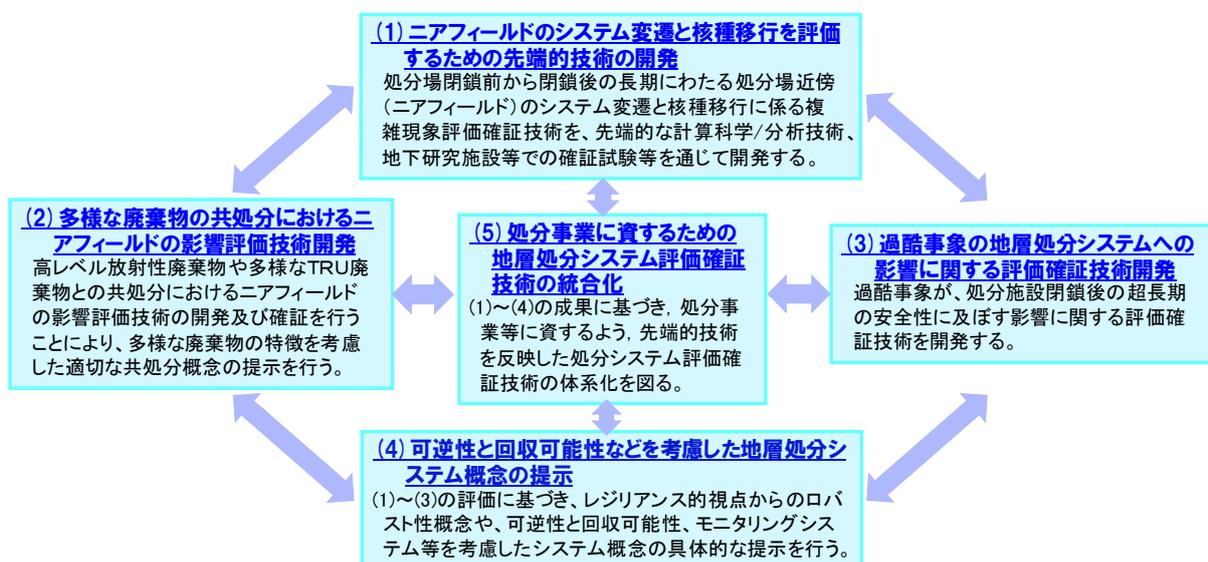


図1. 3-1 本プロジェクトの全体構成

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

- 最先端の計算科学的手法（マルチフィジックス、分子動力学等）や分析技術の適用による現象

理解の深化を図るとともに、これらを用いて開発する先端的モデルによるシミュレーションに必要なデータベースを構築する。

- 原子力機構の地層処分基盤研究施設/放射化学研究施設、深地層の研究施設等を活用して、各種現象に応じた確認試験あるいはナチュラルアナログ研究等を通じ、評価確認技術を提示する。
- H24年度までに原子力機構が実施した経済産業省資源エネルギー庁関連事業「処分システム化学影響評価高度化開発（日本原子力研究開発機構，2008a, 2009a, 2010a, 2011a, 2012a, 2013a, 2013b）（(1)ニアフィールドのシステム変遷と核種移行を評価するための先端的技術の開発に反映）、「先進的地層処分概念・性能評価技術高度化開発（日本原子力研究開発機構，2008b, 2009b, 2010b, 2011b, 2012b, 2013c, 2013d）（(1)ニアフィールドのシステム変遷と核種移行を評価するための先端的技術の開発、及び(3)過酷事象の地層処分システムへの影響に関する評価確認技術開発に反映）、「硝酸塩処理・処分技術高度化開発（日本原子力研究開発機構，2008c, 2009c, 2010c, 2011c, 2012c, 2013d, 2013e）（(2)多様な廃棄物の共処分におけるニアフィールドの影響評価技術開発に反映）の成果を活用する。
- 現在、実施されている経済産業省資源エネルギー庁関連事業、「使用済燃料直接処分技術開発」（日本原子力研究開発機構，2014a, 2015a）と「地質環境長期安定性評価確認技術開発」（日本原子力研究開発機構，2014b, 2015b）、「セメント材料影響評価技術高度化開発」（日本原子力研究開発機構，2012d, 2013e, 2014c, 2015c）における研究開発との連携を図る。

1.4 本年度の実施内容

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

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

(1) システムの過渡的変化評価技術開発

処分場閉鎖前の状態を反映して、ニアフィールド初期状態変遷を評価する熱-水-応力-化学連成解析コードを高度化するとともに、環境条件の変遷やその不確実性を考慮した評価のための人工バリア材の基礎データを拡充し、ニアフィールドシステムの過渡的変化に関する、より現象に忠実な評価手法の構築と確認を行う。平成26年度は、処分場閉鎖後の各時期および各領域でのニアフィールドシステムにおいて考慮すべき様々な現象の特徴及び現状での現象理解の状況を併せて整理した。また、平成25年度に策定した連成解析コードの開発計画に基づき、より複雑な解析に対応可能な数値解法プログラムの実装を行った。さらに、高温環境や酸性環境等における人工バリア材の挙動評価のための試験装置を整備し、データ取得に着手するとともに、測定技術に関しては、平成25年度に開発したセンサーによる室内試験や原位置での測定を実施し、データを取得しつつ改良を進めた。平成27年度は、連成解析コードの開発計画に基づいて、解析コードの改良を進めるとともに、事例解析により解析コードの性能を確認する。また、人工バリア材の挙動評価に必要なデータ取得を継続して行い、データを拡充する。測定技術については、緩衝材中のpH及び炭素鋼の電気化学的特性等を計測するためのセンサーについて、原位置試験での計測を継続するとともに、pHセンサーについては、室内試験を実施してデータを取得し、環境条件

に対応するセンサーの適用性の評価および課題の抽出を行う。

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

人工バリア中の核種移行評価技術として、最新の科学的知見に基づく現象理解を反映したより精緻な評価、システム変遷やそれに係る不確実性要因を考慮した評価を可能とするモデルとデータベースを開発する。平成26年度は、緩衝材中の間隙水化学及び収着・拡散現象、ガラス溶解現象等に着目した不確実性要因の抽出、その解決に向けたアプローチを提示した上で、基礎データの取得、メカニズムの理解、及びモデルの改良等を進めた。平成27年度は、緩衝材中の間隙構造や間隙水特性の不均質性、及びそれらの時空間変遷を考慮した評価を可能とするため、間隙水化学と収着・拡散について、先端的な分析技術の適用を含む各種室内試験によるデータの取得を行う。また、分子動力学計算等の結果を用いてメカニズムの理解を進め、この理解に基づくモデルの構築、その適用性の評価、及び課題の抽出を行う。さらに、システム変遷に係る不確実性要因のうち、オーバーパック腐食生成物がガラス溶解及び収着・拡散現象に及ぼす影響について、室内試験を継続して実施し、メカニズムの理解に基づくモデル構築と定量評価を行う。

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

ニアフィールド岩盤のシステム変遷やそれに係る不確実性要因を考慮し、割れ目等の不均質性や有機物・微生物等が地下水化学や核種移行に及ぼす影響評価手法を、室内試験および地下研究施設等での原位置試験を通じて構築・確証する。平成26年度は、割れ目等の不均質性を考慮した核種移行評価手法については、室内試験により収着・拡散に関わる基礎データを取得するとともに、岩石マトリックス中の核種移行に関する詳細モデルの検討や、割れ目を含む岩石を対象とした透過試験に着手した。有機物・微生物等の核種移行評価については、抽出された課題を整理し、室内試験と原位置試験を含む影響評価手法の開発アプローチを具体化するとともに、基礎データの取得に必要な技術の整備、試験及びモデル化手法調査等を実施した。平成27年度は、割れ目等の不均質性をより精緻に評価するための室内試験と解析手法の改良とともに、ナチュラルトレーサーに関する事例調査を行い、それらを踏まえた評価手法の構築と原位置試験データ等への適用評価を実施する。また、有機物・微生物の影響評価手法の構築・確証に向けて、原位置試験までの展開を念頭において室内および原位置にてデータの取得を継続し、核種移行プロセスへの影響モデルの構築とその適用性の評価を行う。

(4) セメント系材料影響評価技術開発

処分場建設時には、支保、グラウト、インバート等にセメント系材料が使用されることが想定される。このため、セメント系材料を利用することによるニアフィールドへの影響を把握・評価するための技術開発を行う。本課題については、平成26年度までに実施された、経済産業省資源エネルギー庁「地層処分技術調査等事業 セメント系材料影響評価技術高度化開発」の成果を踏まえ、平成27年度は、セメント系材料による周辺岩盤への影響研究として、地下研究所等におけるグラウト材料の充填状況や、グラウト材料接触部の岩盤の変質状況の観察・分析を行う。また、セメント系材料の利用によって生ずる地下水の化学的条件変化による核種移行挙動への影響調査として、四価金属元素を対象として、アルカリ性条件における核種の収着分配係数設定のための調査及びデータ取得を行う。さらに、セメント系材料の長期挙動評価モデルの開発として、化学的観点から、海水系地下水条件で主要なセメント水和物となるマグネシウムケイ酸塩水和物の

溶解沈殿反応に係るデータ取得及びモデル化を行う。力学的観点からは、現実的なセメントのひび割れ発生の挙動や境界条件等を考慮した長期力学解析を行うための手法の開発を行う。

(5) ニアフィールド複合現象／核種移行の体系的評価に向けた技術開発

(1)～(4)での検討結果や成果を統合することによって、ニアフィールドの環境変遷とその不確実性を考慮し、1.3.4で検討するレジリアンス的視点に基づく地層処分システムのロバスト性概念とも関連付けた核種移行評価の方法を構築することを目標とする。平成26年度までに、環境変遷に係る諸現象のマルチスケール性、マルチフィジックス性等を考慮して、地層処分システムの安全性への影響評価の観点から、それらを適切に取り扱う手法について調査・検討を進めるとともに、解析の試行を通じて課題の抽出を行い、異なる研究領域毎の現象の取り扱いの相違についての情報を整理した。平成27年度は、平成26年度までに実施された、経済産業省資源エネルギー庁「地層処分技術調査等事業 セメント系材料影響評価技術高度化開発」において現象解析モデル間の連成・統合手法等をセメント系材料の影響以外の事象の影響評価に試行的に適用する。

1.4.2 多様な廃棄物の共処分におけるニアフィールドの影響評価技術開発

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

(1) 廃棄物の特性を踏まえた共処分影響評価技術開発

平成26年度は、多様な廃棄物の中で、硝酸塩を含有する廃棄物の発熱反応に関わるデータを模擬固化体に対して取得するとともに、得られたデータに基づき、地層処分における安全性の評価に着手した。また、硝酸塩の化学変遷モデルの確証のためのデータ取得に着手し、アンモニウムイオンによるスメクタイトの変質について、実験的な調査等を行った。平成27年度は、模擬固化体の発熱反応に関わるデータの蓄積を行い、データの不確実性低減を図るとともに、様々なシナリオを想定し地層処分における安全性の評価等を行う。また、廃棄物由来の因子の化学環境への影響を評価するために硝酸塩の化学的変遷モデルの確証のための試験等を継続し、長期データの拡充を図る。バリア候補材料への影響については、スメクタイトへの硝酸塩に由来するアンモニア等の影響に加え、セメント固化体からのアルカリ成分の影響が重畳した場合について、実験的な調査を行う。放射性核種への影響については、硝酸塩の次に多量に存在する有機物（セルロースの分解生成物等）が放射性核種の溶解度に及ぼす影響について、実験的な調査を行う。

(2) 多様な廃棄物の影響を考慮した共処分概念の構築

平成26年度までに、諸外国の共処分概念の性能評価事例について調査を行い、共処分概念の構築に反映できる評価手法及び技術の抽出を行った。平成27年度は、抽出された評価手法や技術等を参考に、硝酸塩の影響を考慮した共処分概念の例示を行う。

1.4.3 過酷事象の地層処分システムへの影響に関する評価確証技術開発

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

(1) 地層処分システムにおける過酷事象の概念構築

平成26年度までに具体化した地層処分システムの過酷事象の概念やフローを踏まえ、過酷事象に至る可能性のある事象を拡充させるとともに、甚大な影響を及ぼし得る事象やそれらの組合せの抽出を継続する。また、抽出された事象や組合せの範囲を対象として、影響評価とその影響を防止あるいは緩和する可能性のある対策技術について検討する。さらに、地上での長期保管の場合との比較等も含めて、地層処分システムのロバスト性を理解・拡張するための技術開発を実施する。なお、上記概念に基づく過酷事象の具体化の試行を通じ、過酷事象の定義や概念構築フローの見直しを必要に応じて継続実施する。

(2) 巨大地震・断層活動の発端を事例とした評価技術開発

東北地方太平洋沖地震を踏まえ、閉鎖後の地層処分システムにおける過酷事象対策技術の具体例として、巨大地震・断層活動を事例とした検討を継続して行う。平成26年度までに、巨大地震・断層活動に着眼し、最大規模の地震・断層の特徴や地質環境条件への影響について、わが国で調査・観測されている情報に基づき整理した。また、巨大地震・断層活動に関わるシナリオ構築手法を具体化するため、代表的なシナリオを試作した。平成27年度は、巨大地震・断層活動に関連する人工バリアの挙動にも着眼して情報整理およびシナリオ構築を継続するとともに、影響評価のための解析条件の整理や大規模計算機の利用などの高度計算技術の活用などを行う。また、シナリオに、東北地方太平洋沖地震など、過去に発生した巨大地震の地質環境や地下坑道への影響事例を反映させるため、地下水や温泉ガス等の試料採取・分析及び岩盤ひずみデータや弾性波速度データの整理・蓄積を継続する。加えて、平成25年度に策定した試験計画に基づき、断層挙動を模擬した工学規模の破壊試験を継続して実施するとともに、試験データを用いた解析評価を実施する。また、人工バリアの振動影響評価のための物性値の取得及び地震応答解析や、ガス放出等に係る岩盤調査及びその評価を継続する。さらに、巨大地震・断層活動による地下施設への影響を評価する技術を開発するために、深地層の研究施設を利用して、地下施設の入力地震動・動的地盤物性を見直しを実施しつつ、地下施設の耐震安定性評価を継続して行う。

1.4.4 可逆性と回収可能性などを考慮した地層処分システム概念の提示

処分計画の意思決定に関与する多様なステークホルダーが地層処分の実施について確信を持つことができる地層処分システム概念を構築するためには、システム機能に関する従来のような科学・技術的根拠の提示以外に、概念構築過程での意思決定プロセスの公平性の確保が重要であり、公平性に根ざした合意形成型の処分概念構築技術が不可欠な要素となる。このような観点から、とくにレジリアンス的視点に基づく地層処分システムのロバスト性概念について検討を行い、それに応じた科学・技術的基盤を整備していくことが重要である。また、科学・技術的根拠に基づく評価と意思決定プロセスの公平性確保は独立したものではなく、相互に密接に関係づけることが重要である。特に、

- ・計画段階での科学・技術的予測や事前評価の妥当性を確認するためのモニタリング
- ・建設・操業段階での地層処分システムの状態が、所期の予測や事前評価から大きく逸脱した場合の、計画の可逆性や廃棄体等の回収
- ・想定外の事象に対するシステムの頑健性を示すためのストレステスト

といった技術や対策は、科学的・技術的根拠に基づく評価の限界を補い、合意形成に至るための鍵となる境界領域と考えられる。本件では、レジリエンス的視点に基づくロバスト性概念の検討に加え、この領域に焦点をあて、ステークホルダーの不安を掘り起こし、それに応えるため、可逆性や回収可能性などを考慮した適切な判断材料（ロバスト性概念、代替概念オプション、モニタリング情報など）を創出する「合意形成型処分概念構築支援システム」を開発し、併せて多様なステークホルダーが、地層処分の実施について確信を持つことができる地層処分システム概念を提示することを目的とする。

(1) 閉鎖後長期安全性に関するロバスト性の高い地層処分システムの概念構築

平成26年度までの成果を統合することにより、ロバスト性の高い地層処分システムの概念を具体化する。また、具体化したロバスト性の高い地層処分概念及び従来の地層処分概念に対して、長期安全性及び経済性のそれぞれの観点から評価を行い、結果を比較する。さらに、新たな概念における種々の方策によって低減されるリスク及び増大するリスクを抽出し、これらの間のリスクトレードオフについても検討を行う。

(2) 受動的な安全系へ推移するまでの期間におけるレジリエンス的取り組みの具体化

回収可能性やモニタリングを含む制度的管理期間中のレジリエンス的取り組みに対する、種々のステークホルダーからのニーズ及び技術的要件を抽出する。これらニーズや要件を満足するための方策として、平成26年度までに検討を加えたアクティブモニタリング技術、危険予知型モニタリング技術及びモニタリング情報の可視化技術の成果を統合し、具体化する。さらに、具体化された工学的対策を前提として、処分場の建設・操業・閉鎖とその後一定期間におけるモニタリングや不測の事態が生じた場合の対応及び廃棄体回収にまで至る一連の危機管理計画を立案する。また、利用可能なモニタリング技術とそれを支援する予測モデルとの課題を抽出し、改良に向けた解決策等の検討を行う。

(3) 多様なステークホルダー間の合意形成に向けた協働の試行

平成26年度までに実施したフォーカスグループインタビュー、オンラインディスカッション等により得られた成果を踏まえ、本年度の検討では、一連の活動に参加する可能性のある候補者を対象とし、地層処分及び他の技術的対策の原理や安全性に関する脅威となり得る現象等についてのサイエンスコミュニケーションを行う。また、(1)及び(2)における検討の成果である「ロバスト性の高い地層処分システム及び受動的な安全系へ推移するまでの期間におけるレジリエンス的取り組み」を具体的に提示して、フォーカスグループインタビュー、オンラインディスカッションを実施し、そのような新たな概念と従来の概念との比較に関する意見の抽出、新たな概念及び従来の概念それぞれの選好理由について分析を加える。さらに、高レベル放射性廃棄物対策に関するアコモデーションを目標としたワークショップを行う。以上の結果を取りまとめ、高レベル放射性廃棄物対策に関する異なる意見や態度の存在及びこれらが派生する原因について考察する。また、サイエンスコミュニケーションを通じた知識共有、種々のステークホルダーのニーズや懸念に配慮した新たな処分概念の提示、及び、多様なステークホルダー間の話し合いによるアコモデーションといった活動がそれぞれどのように合意形成に寄与し得るかについて整理し、この結果を踏まえて今後の課題を抽出する。

1.4.5 処分事業に資するための地層処分システム評価確証技術の統合化

本検討では、1.4.1～1.4.4で開発・整備するシステム変遷、多様な廃棄物の共処分、過酷事象の影響に関する評価確証および可逆性や回収可能性を考慮した処分システム概念開発等に係る要素技術の開発成果に基づき、それらの関連性を踏まえて有機的に統合することで、先端的技術を反映した処分システム評価確証技術体系を提示する。この目的のために、平成27年度は以下の項目を行う。

(1) 処分システム評価確証技術の統合化に関する試行

平成26年度までにプロトタイプを開発した統合プラットフォームの改良を行いつつ、これを用いて、処分システム評価確証技術の各実施項目の当該時点までの成果を統合したポータルサイトを構築する。また、統合した成果を関係者間で閲覧することによる知識共有や横断的なテーマについてのオンラインでの議論を試行し、本システムの適用性を評価するとともに課題等を抽出する。さらに、この結果を踏まえ、非専門家にわかりやすく各実施項目の主要な成果を伝えるためのポータルサイトを構築する。

(2) 処分システム評価確証技術の認知の拡大に関する試行

平成26年度に引き続き、本事業の他の技術例に対して、先行する類似技術ブランドの調査及びクリエイティブワークショップを行い、ブランド基本コンセプトの構築及びこれに基づく広報ツールの試作を継続して行う。また、この広報ツールを用いて非専門家を対象としたフォーカスグループインタビューやオンラインアンケート、あるいはメディア担当者へのヒアリング、サイエンスコミュニケーションを行い、その結果に基づき、技術ブランドの選好に関する評価と、改善すべき点や課題を抽出する。さらに、ブランドデザインによる認知上の価値の創出、サイエンスコミュニケーションを通じた知識共有といった活動によって得られる知見に関して、今後の技術開発への活用法を検討し、課題の抽出と整理を行う。

参考文献

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

処分関連 先進的地層処分概念・性能評価技術高度化開発 報告書

(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/docs/library/rprt4/20fy5.pdf).

日本原子力研究開発機構 (2009c) :平成20年度 地層処分技術調査等委託費 TRU廃棄物処分技術 硝酸塩処理・処分技術高度化開発 報告書

(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/docs/library/rprt4/20fy11.pdf).

日本原子力研究開発機構 (2010a) :平成21年度 地層処分技術調査等委託費 高レベル放射性廃棄物処分関連 処分システム化学影響評価高度化開発 報告書

(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/21-06/21fy6.pdf).

日本原子力研究開発機構 (2010b) :平成21年度 地層処分技術調査等委託費 高レベル放射性廃棄物処分関連 先進的地層処分概念・性能評価技術高度化開発 報告書

(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/21-05/21fy5.pdf).

日本原子力研究開発機構 (2010c) :平成21年度 地層処分技術調査等委託費 TRU廃棄物処分技術 硝酸塩処理・処分技術高度化開発 報告書

(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/21-11/21fy11.pdf).

日本原子力研究開発機構 (2011a) :平成22年度 地層処分技術調査等委託費 高レベル放射性廃棄物処分関連 処分システム化学影響評価高度化開発 報告書

(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/docs/library/rprt4/22-6-1.pdf,

http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/docs/library/rprt4/22-6-2.pdf).

日本原子力研究開発機構 (2011b) :平成22年度 地層処分技術調査等委託費 高レベル放射性廃棄物処分関連 先進的地層処分概念・性能評価技術高度化開発 報告書

(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/docs/library/rprt4/22-5.pdf).

日本原子力研究開発機構 (2011c) :平成22年度 地層処分技術調査等委託費 TRU廃棄物処分技術 硝酸塩処理・処分技術高度化開発 報告書

(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/docs/library/rprt4/22-11.pdf).

日本原子力研究開発機構 (2012a) :平成23年度 地層処分技術調査等委託費 高レベル放射性廃棄物処分関連 処分システム化学影響評価高度化開発 報告書

(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2011/23-7-1.pdf,

http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2011/2

3-7-2. pdf,

http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2011/23-7-3.pdf).

日本原子力研究開発機構 (2012b) :平成23年度 地層処分技術調査等委託費 高レベル放射性廃棄物処分関連 先進的地層処分概念・性能評価技術高度化開発 報告書

(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2011/23-6.pdf).

日本原子力研究開発機構 (2012c) :平成23年度 地層処分技術調査等委託費 TRU廃棄物処分技術 硝酸塩処理・処分技術高度化開発 報告書

(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2011/23-14.pdf).

日本原子力研究開発機構 (2012d) :平成23年度 地層処分技術調査等事業 TRU廃棄物処分技術 セメント材料影響評価技術高度化開発 報告書

(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2011/23-12.pdf).

日本原子力研究開発機構 (2013a) :平成24年度 地層処分技術調査等委託費 高レベル放射性廃棄物処分関連 処分システム化学影響評価高度化開発 報告書

(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2012/24-7-1.pdf).

日本原子力研究開発機構 (2013b) :平成24年度 地層処分技術調査等委託費 高レベル放射性廃棄物処分関連 処分システム化学影響評価高度化開発 —6ヶ年研究成果の取りまとめ—

(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2012/24-7-2.pdf).

日本原子力研究開発機構 (2013c) :平成24年度 地層処分技術調査等委託費 高レベル放射性廃棄物処分関連 先進的地層処分概念・性能評価技術高度化開発 報告書

(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2012/24-6-1.pdf).

日本原子力研究開発機構 (2013d) :平成24年度 地層処分技術調査等委託費 高レベル放射性廃棄物処分関連 先進的地層処分概念・性能評価技術高度化開発 6カ年とりまとめ報告書

(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2012/24-6-20.pdf).

日本原子力研究開発機構 (2013e) :平成24年度 地層処分技術調査等委託費 TRU廃棄物処分技術 硝酸塩処理・処分技術高度化開発 報告書

(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2012/24-14-1.pdf).

日本原子力研究開発機構 (2013f) :平成24年度 地層処分技術調査等委託費 TRU廃棄物処分技術 硝酸塩処理・処分技術高度化開発 -6カ年研究成果の取りまとめ- 報告書

(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2012

- /24-14-2. pdf).
- 日本原子力研究開発機構 (2013g) : 平成24年度 地層処分技術調査等事業 TRU廃棄物処分技術 セメント材料影響評価技術高度化開発 報告書
(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2012/24-12-1.pdf) .
- 日本原子力研究開発機構 (2014a) : 平成25年度 地層処分技術調査等委託費 使用済燃料直接処分技術開発 報告書
(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2013/25-11-1.pdf) .
- 日本原子力研究開発機構 (2014b) : 平成25年度 地層処分技術調査等委託費 地質環境長期安定性評価確認技術開発 報告書
(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2013/25-3-1.pdf) .
- 日本原子力研究開発機構 (2014c) : 平成25年度 地層処分技術調査等事業 セメント材料影響評価技術高度化開発 報告書
(http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2013/25-13-1.pdf) .
- 日本原子力研究開発機構 (2015a) : 平成25年度 地層処分技術調査等委託費 使用済燃料直接処分技術開発 報告書.
- 日本原子力研究開発機構 (2015b) : 平成25年度 地層処分技術調査等委託費 地質環境長期安定性評価確認技術開発 報告書.
- 日本原子力研究開発機構 (2015c) : 平成25年度 地層処分技術調査等事業 セメント材料影響評価技術高度化開発 報告書.
- OECA/NEA(2012): Geological Disposal of Radioactive Waste: National Commitment, Local and Regional Involvement, A Collective Statement of the OECD Nuclear Energy Agency Radioactive Waste Management Committee Adopted March 2012.
- 東京大学(2014):<http://rerc.t.u-tokyo.ac.jp>, 2014, 3, 24.
- Westrum, R. (2006), Section 5: A Typology of Resilience Situations., In E. Hollnagel, D. Woods and N. Leveson (eds), Resilience Engineering: Concepts and Precepts. Aldershot, UK: Ashgate Publishing.

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

2.1 目的と5ヵ年の計画

2.1.1 目的

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

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

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

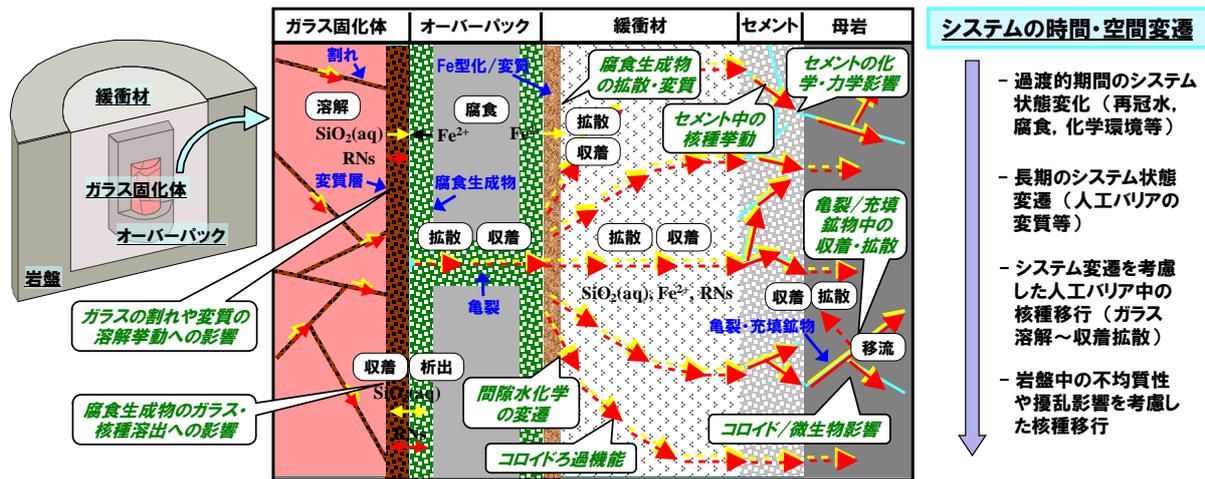


図 2.1.1-1 ニアフィールドのシステム変遷と核種移行評価に係る課題例
(核種移行関連を中心とした課題例)

2.1.2 5ヵ年の計画

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

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

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

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

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

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

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

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

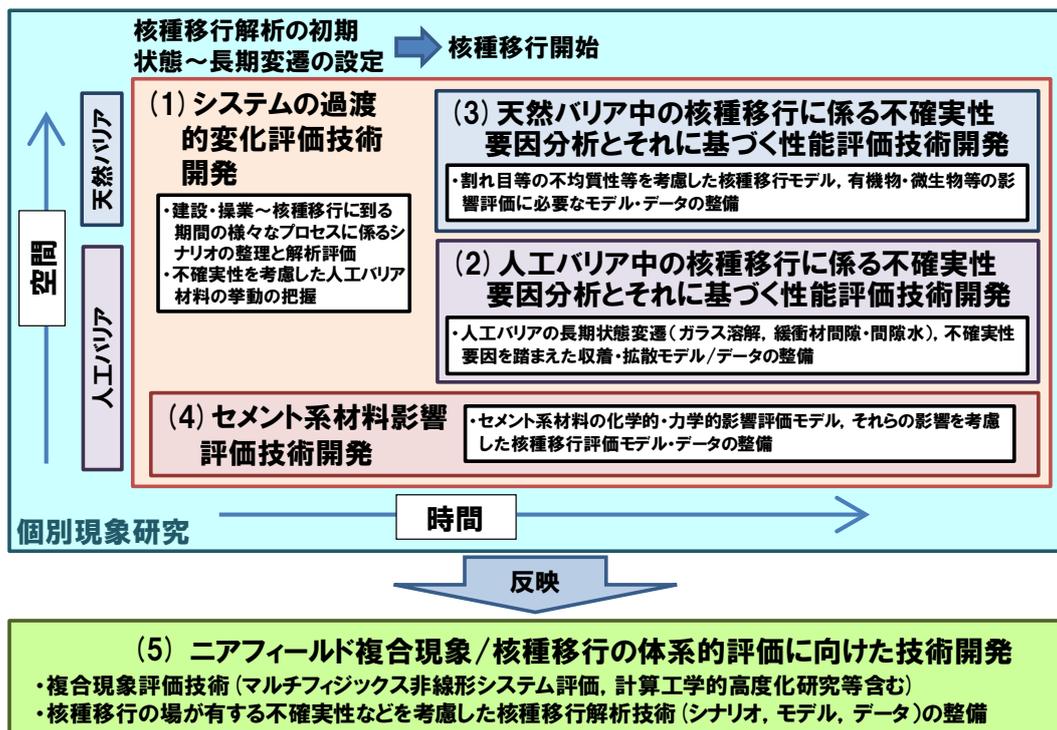


図 2.1.2-1 本課題の5つのサブタスクの関係

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

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

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

も対応付けて提示するとともに（1.3及び6.2.3参照）、それを踏まえて今後の残された課題を抽出し、課題へのアプローチを設定することを目標とする。また、サブタスク(5)において、サブタスク(1)～(4)の成果を反映しつつ、ニアフィールド複合現象/核種移行の体系的評価技術の開発を行う。なお、これらの中間成果と今後の課題については、中間評価ワークショップにおける国内有識者との議論も反映しつつ、次節以降の各サブタスクの成果報告において具体的に提示する。

チェック&レビュー
(サブプロジェクト毎のレビューワークショップ)

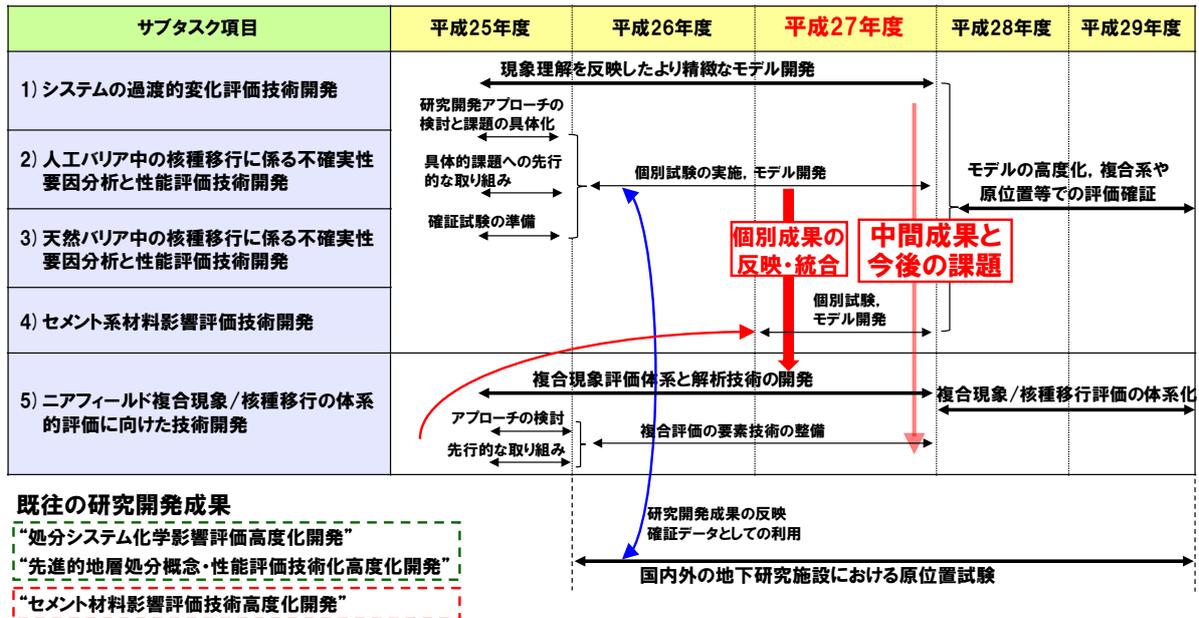


図 2.1.2-2 5 年間の年度展開

2.2 システムの過渡的変化評価技術開発

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

実施項目は、「2.2.1システムの過渡的状態評価技術の開発」及び「2.2.2過渡的状態における人工バリアの挙動評価技術の開発」である。2.2.1では、ニアフィールド環境の過渡的変化を適切に表現するために、その評価を行う上で考慮すべき重要な事象の洗い出しを行うとともに、連成現象を評価するための解析コードの高度化を行った。2.2.2では、過渡的状態における人工バリアの挙動を評価するために、平成25年度に開発した過渡的条件下での腐食モニタリングセンサーを用いたオーバーパックの腐食試験を継続した。また、平成25年度に策定した研究アプローチに従って、従来の想定範囲を超える条件下でのオーバーパックの腐食挙動に関するデータを蓄積した。さらに、pH計測センサーの開発を継続し、オーバーパックと緩衝材の相互作用に関するデータの拡充を行った。

2.2.1 システムの過渡的状態評価技術の開発

(1) 過渡的変化を評価する上で考慮すべき事象

核種移行が開始するまでの過渡的変化を評価する上で考慮すべき事象の抽出方法を表2.2.1-1に示す。ステップ1では、ニアフィールドにおける過渡的変化が長期安全性に及ぼす影響に関する国内外の情報整理を行った。処分場の建設・操業・閉鎖を経て、オーバーパックの破損により核種移行が開始するまでの期間における諸現象と、それらがその後の核種移行プロセスに及ぼす可能性のある影響について、国内外の性能評価プロジェクトにおいて、安全評価上、実際にどのように取り扱われているか（サイト選定や工学的対策で対処する、詳細な現象解析モデルによって影響が許容される程度であることを確認する、等）を調査・整理した（日本原子力研究開発機構，2014a：2015a）。調査・整理には、FMEA（Failure Mode and Effects Analysis）の手法（田中，2002）を適用した。

表2.2.1-1 過渡的変化を評価する上で考慮すべき事象の抽出方法

手 順	内 容
ステップ1	ニアフィールドにおける過渡的変化が長期安全性に影響を及ぼすと考えられている事象の中から課題と捉えられるものを抽出したストーリーボードの提示 着目点：核種移行解析上、その影響が大きいと考えられる因子 調査対象：国内外の研究動向（Nagra（スイス）、SKB（スウェーデン）、POSIVA（フィンランド）、ANDRA（フランス）、国内） 抽出の方法：構成要素（ガラス固化体、オーバーパック、緩衝材、母岩）と時間区分の枠組に対して、要素と時間区分の組合せごとに考えられる課題を抽出
ステップ2	解析評価に取り組むべき事象（課題）の抽出 ステップ1で抽出された課題に関して、下記の観点で分析・分類を実施 - 重要性や現状の知見の充足性について、国内外の専門家間のコンセンサス - 国内での研究プログラムの実施状況 - 従来の研究とは異なるアプローチや技術的なブレークスルーの要否
ステップ3	ステップ2での課題の分類・分析を踏まえて、課題の中から本事業で取り組むべきものを抽出

なお、他のサブタスクでの利用を念頭に、ここでは過渡的変化の期間を核種移行開始までに限定せず、閉鎖後数十万年までを対象とした。時間変遷は、「建設（坑道掘削）・操業・埋め戻し期間」、「廃棄体の発熱の顕著な期間（閉鎖後数百年程度）」、「環境条件が定常に至る期間（閉鎖後数万年程度）」、及び「外部の環境変化による変遷（閉鎖後数十万年程度）」の4つの時期に分け、それぞれについてストーリーボードを作成した（日本原子力研究開発機構、2015a）。

ストーリーボードには、それぞれの時期における閉鎖後安全機能（隔離・閉じ込め）、ニアフィールド環境条件（熱(T)、水理(H)、力学(M)、化学(C)、放射線(R))を記述するとともに、当該時期に対して各国で挙げられているニアフィールドで考慮すべき複雑な諸現象についての課題を、それらの現象の発生原因や、現象が有する特徴に基づいて、「不均質性」、「過渡的挙動」、「連成・非線形性」という観点から分類し、整理した（日本原子力研究開発機構、2015a）。

ステップ2では、ニアフィールド環境の不均質性や時間的変遷及びこれらに影響された核種移行に関連する多様なプロセスを対象として、

- ①従来の研究で見落とされていたもの、あるいは従来の研究における取り扱いが不十分なもの
- ②複数の研究領域間で、現象の取り扱いについての前提条件や仮定において、不整合や矛盾が存在するもの
- ③①及び②に分類されないが、ニアフィールドの課題として広く認識されているもの

を抽出した（日本原子力研究開発機構、2015a）。具体的には、①については、基本的には第2次取りまとめ（核燃料サイクル開発機構、1999a, 1999b）や原環機構の2010年レポート（原子力発電環境整備機構、2011）等において関連する検討が示されていないものや、これらの報告書で検討が示されているものの、その後の新知見等により重要性が指摘されている課題を挙げた。②については、同じ現象を対象としていながら、異なるバリア材料を対象とした研究間での取り扱いの違いや、異なる研究分野間（力学と化学、地下水流動と化学等）での考え方の違い等のある課題を挙げた。また、①及び②に分類されない課題は、ニアフィールドの課題として広く認識されているものとして③と分類した。

さらに、これらについて、以下のような観点で整理を行った（日本原子力研究開発機構、2015a）。

- 重要性や現状の知見の充足性についての国内外の専門家間のコンセンサスの有無
- 国内で実施中の研究プログラムの有無
- 従来の研究とは異なるアプローチや技術的なブレークスルーの要否

なお、本検討により新たに抽出された課題は、「本検討で新たに抽出した課題」とした。これらは、上記①～③の整理において、これまでは課題として明示はされていなかったものの、ニアフィールドのシステム変遷と核種移行を評価するための先端的技術の開発として、重要と考えられる項目を抽出した。ステップ2で抽出した「本検討で新たに抽出した課題」の整理結果を表2.2.1-2に示す。

平成27年度は、ステップ3を実施した。ステップ3では、ステップ2で抽出された課題に対して、その分類・分析に基づき、当該課題として取り組むべきものを抽出した。ステップ3の課題の整理結果を表2.2.1-3～2.2.1-6に示す。これらの表は、時間変遷の区切りで分けている。表2.2.1-3には建設（坑道掘削）・操業・埋め戻し期間における課題と対応状況、表2.2.1-4には廃棄体の発熱が顕著な期間における課題と対応状況、表2.2.1-5には環境条件が定常に至る期間における課題と対応状況、そして表2.2.1-6には外部の環境変化による変遷における課題と対応状況、をそれぞれまとめた。

これらの表中には、既に他の機関やプロジェクトにより研究開発に着手されている課題、及びブレ

ークスルー等が必要であり研究着手の環境が整っていない課題が含まれており、これに該当する課題は、本事業では取り扱わない。

当該課題として取り組むものは、表中の「課題の番号」に目次の節番号を示した。課題に対する具体的な取り組みについては、各節において記述する。

表 2. 2. 1-2 本事業での検討において新たに抽出した課題 (1/2)

時間 変遷	ニアフィールド 特性	分類*	ニアフィールドの複雑な諸現象に関する課題	重要性や現状の知見の充足性について国内外の専門家間のコンセンサスの有無	国内で実施中の研究プログラムの有無	従来の研究とは異なるアプローチや技術的なブレークスルーの要否
建設 (坑道掘削)・操業・埋め戻し期間	過渡的挙動	②	<p>廃棄体定置及び上部坑道埋め戻しの時系列やタイミングが処分場温度分布に及ぼし得る影響の予測 (硬岩系岩盤、軟岩系岩盤)</p> <p>【不整合や矛盾があるとした理由】 操業時の廃棄体の物流や閉鎖工程等に関する工学的検討ではパネル内の種々の工程が時間差を持つことを考慮していたのに対して、THM 連成解析においては初期状態で全ての廃棄体が定置され処分孔や上部坑道の閉鎖が瞬時に終了することを仮定していた</p>	課題として広く認知されていない。	特になし	定置手順まで含めるためには、マルチエージェントシミュレーション等の新たな手法が必要。
		①②	<p>温度勾配の存在する不飽和状態での高 pH 地下水と緩衝材の反応 (硬岩系岩盤、軟岩系岩盤)</p> <p>【不整合や矛盾があるとした理由】 THM 連成解析では温度勾配の存在する状態での緩衝材中不飽和地下水流動を考慮する一方でコンクリート支保と地下水の反応による pH 上昇は無視しており、他方、セメント影響による緩衝材変質解析ではコンクリート支保と地下水の反応による pH 上昇は考慮していたが、温度勾配の存在する状態での緩衝材中不飽和地下水流動は考慮せず初期状態から緩衝材が完全に飽和していることを仮定していた</p>	一般的な地下水に関する塩の濃縮については検討事例が多い (例えば SKB, 2011) が、セメント影響に着目した場合、課題として広く認知されていない。	幌延において原位置試験を実施中	THM 連成解析とセメントを含む複雑な化学反応系を両立するための解析システムの高度化とデータベースの拡充が必要。
	③	<p>グラウト施工による周辺岩盤の初期～長期の地球化学的変化と核種移行挙動への影響</p>	国内外においてセメント系材料と岩盤の接触に関する研究はされているが、モデル化の不確実性、割れ目の充填、岩石のアルカリ変質等の挙動評価の課題が指摘されている。	地下研での継続的なグラウト影響調査 (地下水モニタリングを中心として)	セメント系材料と岩盤相互作用のモデル化のための原位置データ取得を含む長期的な取り組みが必要。	

*: ①従来の研究で見落とされていたものあるいは従来の研究における取り扱いが不十分なもの
 ②複数の研究領域間で、現象の取り扱いについての前提条件や仮定において、不整合や矛盾が存在するもの
 ③①及び②に分類されないが、ニアフィールドの課題として広く認識されているもの

表 2. 2. 1-2 本事業での検討において新たに抽出した課題 (2/2)

時間 変遷	ニアフィールド 特性	分類*	ニアフィールドの複雑な諸現象に関する課題	重要性や現状の知見の充足性についての国内外の専門家間のコンセンサスの有無	国内で実施中の研究プログラムの有無	従来の研究とは異なるアプローチや技術的なブレークスルーの要否
環境条件が定常に至る期間	不均質性	①	岩石マトリクス中微視的不均質鉱物組成の核種移行挙動への影響	結晶粒界等の移行経路や黒雲母等の強収着性物質の重要性についてはコンセンサスがある。(専門家判断)	特になし	従来均質としていたマトリクス部の不均質性を統計的に表現したモデルの開発が必要。
		②	緩衝材間隙水の微視的不均質性(層間水等の区分)を考慮した統合的な水理・化学モデル 【不整合や矛盾があるとした理由】 緩衝材中の核種移行や初期の間隙水質形成に関する基礎的研究では緩衝材間隙水中の微視的区分を行い自由水のみが物質移動に関与すると仮定している例があるが、緩衝材の長期変質に関する地球化学解析(反応移動解析)では全間隙水が物質移動及び反応に寄与すると仮定していた	競合するモデル(multi porosity model と single porosity model)がある	特になし	両モデルの仮説検証を目的とした試験の実施が必要。
	②	鉄やガラスとの相互作用による緩衝材の長期化学変質、鉄腐食膨張による圧密及び水素ガス発生といった異種材料間のマルチフィジックス連成効果の予測解析 【不整合や矛盾があるとした理由】 ・緩衝材圧密やオーバーパック変形に関する力学解析では鉄の腐食によって生ずる Fe(II)は全てマグネタイトやシデライト等の腐食生成物となり腐食膨張に寄与すると仮定していたが、鉄影響による緩衝材変質に関する地球化学解析では鉄の腐食によって生ずる Fe(II)の全量が緩衝材に移動してベントナイトと反応すると仮定していた ・鉄腐食の評価ではオーバーパックの全表面が常に水分飽和していると仮定しているが、鉄腐食によって生成する水素ガスの影響評価ではオーバーパックと緩衝材の境界部での自由ガス層の形成(オーバーパック表面が不飽和となる)を仮定していた ・放射線分解による酸化還元フロントの解析ではオーバーパック内部は酸化性状態となっていることを仮定していたが、ガラス溶解の評価ではオーバーパック内部は還元環境であり腐食によって生じた鉄が Fe(II)の形で存在するためにシリカのシンクタームとしてガラス溶解を促進することを仮定していた	異種材料間の相互作用はこれまで個別に行われており、統一的なコンセンサスは未確立である。(専門家判断)	特になし	関連する各分野で共通した現象理解、モデル及びデータベース等の基盤の整備が必要。	

*: ①従来の研究で見落とされていたものあるいは従来の研究における取り扱いが不十分なもの
 ②複数の研究領域間で、現象の取り扱いについての前提条件や仮定において、不整合や矛盾が存在するもの
 ③①及び②に分類されないが、ニアフィールドの課題として広く認識されているもの

表 2.2.1-3 建設（坑道掘削）・操業・埋め戻し期間における課題と対応状況

ニアフィールド ^a 特性	分類*	ステップ2により抽出された課題	課題の取り扱い	課題の番号
不均質性	①	高透水亀裂に沿ったグラウト起源の高 pH 地下水の伝播の地球化学解析	ブレイクスルーとして、ナチュラルアナログでの溶解速度律速機構の特定のための研究（原位置に近い状態での室内試験等）が必要であり、本事業では取り扱わない。	
	②	岩盤熱特性と使用済み燃料発熱量の不均質性が処分場温度分布に及ぼし得る影響の予測	定置手順まで含めるためには、ブレイクスルーとしてマルチエージェントシミュレーション等の新たな手法が必要であり、本事業では取り扱わない。	
	③	緩衝材の押し出しによる密度低下の可能性	処分孔堅置き定置方式のように、緩衝材と埋め戻し材が共存する場合、緩衝材が埋め戻し材側に膨出する可能性があるため、緩衝材の膨出のような変形を表現できるように THM 連成解析コードの改良に取り組む。	2.2
過渡的挙動	①	坑道掘削時の応力開放及び熱応力による岩盤剥離、亀裂生成・開口についての力学（DEM）解析等	国内外において原位置での試験が実施されている。 幌延においては、掘削影響領域試験が実施されており、掘削影響領域の時間変遷に関するデータが蓄積されている。	
		初期の大きな地下水圧による緩衝材のバイピングに関する室内試験等	他の事業として本課題に着手している。 人工バリア品質評価技術の開発（（公財）原子力環境整備促進・資金管理センター，2013）	
		残置物の影響評価	残置物の範囲の明確化及び個々の材質の潜在的影響について体系的な取り組みが必要であり、本事業では取り扱わない。	
	②	廃棄体定置及び上部坑道埋め戻しの時系列やタイミングが処分場温度分布に及ぼし得る影響の予測	定置手順まで含めるためには、マルチエージェントシミュレーション等の新たな手法が必要であり、本事業では取り扱わない。	
	③	坑道の掘削等による坑道周辺の水理条件・化学条件の変化	重要課題であり、先行して行われた事業（処分システム化学影響評価高度化開発（日本原子力研究開発機構，2013c））に引き続き取り組む。 瑞浪、幌延の地下研において行われている掘削影響試験の成果を検証データとして活用する。	2.2
緩衝材冠水及び廃棄体発熱が天然バリアや人工バリアに与える影響の予測		重要課題であり、先行して行われた事業（処分システム化学影響評価高度化開発（日本原子力研究開発機構，2013c））に引き続き取り組む。	2.2 2.3	
連成・非線形性	①	温度勾配の存在する不飽和状態での高 pH 地下水と緩衝材の反応	緩衝材の間隙水の pH を直接的かつ連続的に計測するためのセンサーの開発に取り組む。幌延の地下研において行われている試験において適用性を評価する。	2.2
	②			
	③	グラウト施工による周辺岩盤の初期～長期の地球化学的变化と核種移行挙動への影響	セメント系材料と岩盤相互作用のモデル化のための長期的な取り組みとして、原位置データ取得を行う。	2.5

*：①従来の研究で見落とされていたものあるいは従来の研究における取り扱いが不十分なもの
 ②複数の研究領域間で、現象の取り扱いについての前提条件や仮定において、不整合や矛盾が存在するもの
 ③①及び②に分類されないが、ニアフィールドの課題として広く認識されているもの

表 2. 2. 1-4 廃棄体の発熱が顕著な期間における課題と対応状況

ニアフィールド特性	分類*	ステップ2により抽出された課題	課題の取り扱い	課題の番号
不均質性	①	間隙水の熱膨張の予測	廃棄体からの発熱による緩衝材中の間隙水の相変化（液状水、蒸気水）を考慮できるように THM 連成解析コードの改良に取り組む。	2. 2
	②	透水性亀裂からの局所的地下水供給による緩衝材偏膨潤及びキャニスタへの偏圧の影響についての力学解析	THM 連成解析では均一な境界条件が適用される場合がほとんどであり、THM 連成モデルの3次元化及び不均質メッシュ等、THM 解析における不均質性の考慮に着目して、本課題に取り組む。	2. 2
	③	オーバーパックの腐食膨張によりかかる緩衝材への圧力に関する解析	解析評価そのものは本事業では取り扱わないが、解析評価の前提条件となるオーバーパック材料の腐食挙動について地下水環境条件、温度条件、緩衝材を考慮した実環境条件を考慮したデータ整備に取り組む。	2. 2
過渡的挙動	①	坑道閉鎖後のゆるみ域及び開口亀裂の自己修復挙動についての長期試験	軟岩系での坑道閉鎖試験等の実施が必要であり、本事業では取り扱わない。	
連成・非線形性	③	THM あるいは THMC 連成解析及び原位置試験での検証	国内外において原位置での試験が実施されている。 幌延においては、連成現象に関する検証データを取得する原位置試験（実物大の堅置き定置方式の人工バリアを対象とした坑道の埋め戻しまでを再現した試験、飽和したニアフィールド環境条件下でのオーバーパック腐食試験等）を実施しており、そこで取得されるデータを検証データとして使用する。	2. 2 2. 3 2. 4

*: ①従来の研究で見落とされていたものあるいは従来の研究における取り扱いが不十分なもの
 ②複数の研究領域間で、現象の取り扱いについての前提条件や仮定において、不整合や矛盾が存在するもの
 ③①及び②に分類されないが、ニアフィールドの課題として広く認識されているもの

表 2. 2. 1-5 環境条件が定常に至る期間における課題と対応状況

ニアフィールド* 特性	分類*	ステップ2により抽出された課題	課題の取り扱い	課題の番号
不均質性	①	緩衝材等の不均質性に応じた離散的ガス通気経路の形成についての室内試験及び解析	他の事業として本課題に着手している。 平成 25 年度 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発のうち「ガス移行連成挙動評価手法の開発」((公財)原子力環境整備促進・資金管理センター, 2014)	
		亀裂ネットワーク中の物質移動挙動に関する原位置トレーサ試験	処分場における調査結果に基づき信頼性の高い核種移行評価モデルとパラメータを設定するうえで、原位置トレーサ試験と関連する室内試験を組み合わせた技術開発アプローチが必要である。本事業では、グリムゼルの海外の地下研及び幌延の地下研における原位置トレーサ試験研究との連携、関連する室内試験とモデル開発を通じて、これらの課題へ取り組む。	2. 4
		マトリクス近傍岩石中微視的不均質鉱物組成の核種移行挙動への影響	従来均質としていたマトリクス部の不均質性及びその核種移行への影響の把握、それらの定量的あるいは統計的な取り扱いを可能とするモデルの開発と検証が必要であり、本事業では、国際的にも課題になっている花崗岩のマトリクス及び割れ目の不均質性に着目して、これらの課題に取り組む。	2. 3 2. 4
		コロイドや微生物の性状の把握及び影響の評価	コロイドの核種移行への影響評価技術の整備は国際的にも課題とされ、原位置試験や室内試験による研究開発が進められている。例えばグリムゼルのコロイド形成・移行に関する原位置試験プロジェクトに日本原子力研究開発機構は参加してきている。本事業においても、有機物や微生物に関連したコロイドに着目して、幌延の原位置での分析評価と核種移行に及ぼす影響評価技術の開発に取り組む。	2. 4
	②	緩衝材間隙水の微視的不均質性(層間水等の区分)を考慮した整合的な水理・化学モデル	緩衝材の間隙構造・間隙水の不均質性の理解とそれを反映したモデル開発は、オーバーバックの腐食、ガラスや核種の溶解を支配する間隙水化学の特性、収着・拡散等の核種移行プロセスを決定づける重要な課題であり、本事業において、データ取得から先端分析・計算科学アプローチ、モデル開発まで体系的に取り組む。	2. 3
過渡的挙動	②	ガス通気後の緩衝材中開口部の自己閉塞挙動	他の事業として本課題に着手している。 平成 25 年度 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発のうち「ガス移行連成挙動評価手法の開発」((公財)原子力環境整備促進・資金管理センター, 2014)	ガス通気後の緩衝材中開口部の自己閉塞挙動
連成・非線形性	②	鉄やガラスとの相互作用による緩衝材の長期化学変質、鉄腐食膨張による圧密及び水素ガス発生といった異種材料間のマルチフィジックス連成効果の予測解析	関連する各分野で共通した現象理解、モデル及びデータベース等の基盤整備に取り組む。また、主要な相互作用について、不均質性、非線形性を表現することのできる解析手法開発に取り組む。	

*: ①従来の研究で見落とされていたものあるいは従来の研究における取り扱いが不十分なもの

②複数の研究領域間で、現象の取り扱いについての前提条件や仮定において、不整合や矛盾が存在するもの

③①及び②に分類されないが、ニアフィールドの課題として広く認識されているもの

表 2.2.1-6 外部の環境変化による変遷における課題と対応状況

ニアフィールド特性	分類*	ステップ2により抽出された課題	課題の取り扱い	課題の番号
不均質性	①	地震時の断層変位についての亀裂ネットワークモデルを用いた力学解析	わが国の条件に即したモデル化が必要であり、本事業では取り扱わない。	
		地震時の断層変位による容器破壊を避けるための廃棄体定置基準の設定	わが国の条件に即したモデル化が必要であり、本事業では取り扱わない。	
		地下水水質及び岩石の不均質性や長期変遷を考慮した Kd 等の核種移行特性の設定	個々のサイトの特徴に依存するが、想定される岩石、水質とその変遷、元素の組み合わせを網羅するためにはメカニスティックな収着モデルや SDB を併用した総合的方法論、さらにナチュラルアナログ的なアプローチが重要であり、本事業においてこれらの課題に取り組む。	2.3 2.4
過渡的挙動	①	処分孔にせん断変形が生じた場合の容器の変形・破壊挙動解析	断層が人工バリアを直撃した際の人工バリアの挙動を模型実験及び解析により評価するとともに、断層が直撃することで人工バリアが安全機能を喪失する、というシナリオに基づく影響評価を通して、本課題に取り組む。	サブプロジェクト 「過酷事象の地層処分システムへの影響に関する評価技術開発」

*: ①従来の研究で見落とされていたものあるいは従来の研究における取り扱いが不十分なもの

②複数の研究領域間で、現象の取り扱いについての前提条件や仮定において、不整合や矛盾が存在するもの

(2) 連成解析技術開発に関する調査

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

高レベル放射性廃棄物の地層処分において、廃棄体を定置し埋め戻した直後の処分の初期段階では、地下に坑道を掘削したことに伴う地下環境の擾乱（掘削影響領域の発現、空気の混入、周辺岩盤の間隙水圧の低下、支保工等の人工材料の残置等）や、人工バリア埋設後のガラス固化体からの発熱、坑道周辺岩盤や緩衝材への地下水の浸潤、再冠水及びそれに伴う緩衝材における膨潤圧の発生、緩衝材中の地下水化学の変化、オーバーパックの腐食等、人工バリアとその周囲の岩盤を含む領域（ニアフィールド）で生じる物理化学的な現象が相互に影響を及ぼし合った複雑な系となることが想定されている。このような複雑な系に対する現象理解には数値解析手法の活用が有効であり、熱的、水理学的、力学的、化学的な相互影響（THMC連成現象）を取り扱うことができるモデル（THMCモデル）によってニアフィールドで想定される現象を定量化することは、従来地層処分において想定してきたシナリオとの整合性を確認することとともに、岩盤や人工バリアの状態など核種移行評価における基盤情報を提供する上で有効である。

本事業では、核種移行評価におけるニアフィールド環境条件を設定することを目的の一つとし、複雑な3次元形状を有する大規模な領域を対象とした計算を実現するための熱-水-応力-化学 (THMC) 連成解析コードCouplys（伊藤ほか，2004）の整備を行ってきている。従来のCouplysにおける物質移行の評価は、要素内の質量を質量粒子に分割して配置し、実流速で移動させる方法を採用しているが、モデル内に形状がゆがんだ六面体要素が含まれた場合に、質量粒子の座標位置が判定不能となり計算が続行できなくなるといった潜在的な問題を内包していた。また、要素数が多くなる大規模モデルの場合には、現実的な時間内で解を得ることができず、計算の高速化が課題となっていた。このため、平成25年度においては、質量粒子の座標位置が判定不能となった場合でも質量保存を確保しつつ計算が可能となるようプログラムの修正を実施した（日本原子力研究開発機構，2014a）。平成26年度は、数値演算の高速化及び計算中に必要となるメモリを小さくするための数値解法として双共役勾配法（例えば、中田，2002）を選定しCouplysへ実装した。そして、簡易モデルを用いた比較計算により、従来のCouplysに比べて解析時間を約60%短縮できること、計算実行時に必要なメモリについては90%以上低減できることを確認した（日本原子力研究開発機構，2015a）。平成27年度は、平成26年度までに改良を行なったTHMC連成解析コードCouplysを用いて、ガラス固化体の放熱と人工バリア内への地下水の浸潤に伴うニアフィールドの化学的な環境の変化を定量的に示すことを目的とし、地層処分システムの長期挙動に関する事例解析を実施した。

① 解析条件

本事例解析における処分システムは、第2次取りまとめに示されている廃棄体の堅置き定置方式であり、軟岩系岩盤、設定深度を深度500mとした（核燃料サイクル開発機構，1999a）。解析領域は、処分深度の±50mをモデルに含め、ガラス固化体を中心として、ガラス固化体ピッチと坑道離間距離の1/2を水平方向に想定した1/4領域で形成する三次元モデルとし、6,448節点、5,221要素でモデル化した（図2.2.1-1）。ガラス固化体ピッチは、第2次取りまとめに示された処分孔径の3倍の6.66mとし、坑道離間距離については、処分坑道の空洞安定性から生じる制限より処分坑道径の2.6倍の13mとした（核燃料サイクル開発機構，1999a）。熱的境界条件として、モデル上下両端面は初期温度での固定境界、モ

デル四側面は断熱境界とした。水理的境界条件は、モデル上下両端面が初期の圧力水頭での固定境界、モデル四側面は不透水境界とした。物質移行に関する境界条件としては、モデル上下両端面が初期の地下水組成での濃度固定境界、モデル四側面は反射境界とした。

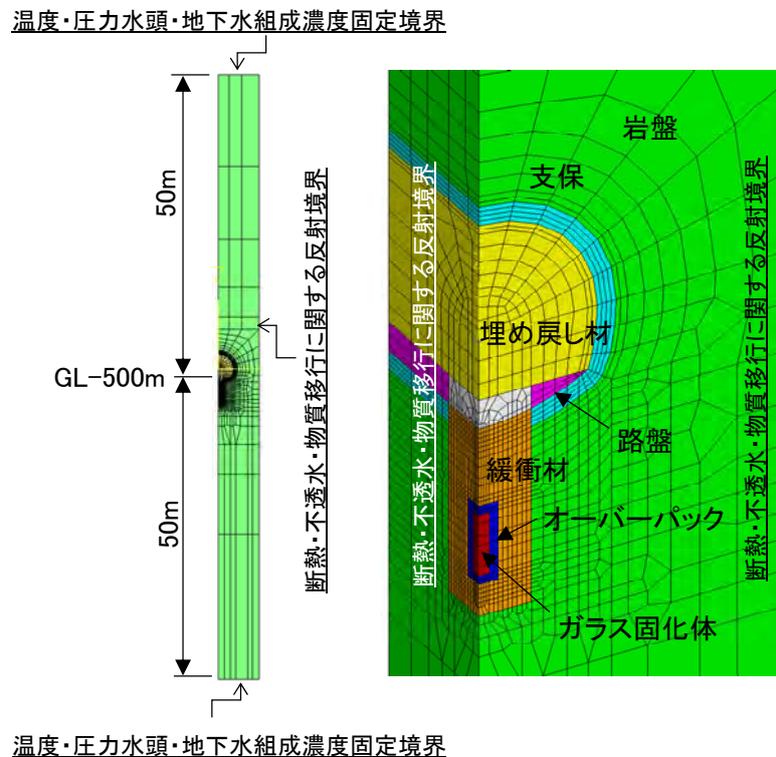


図2.2.1-1 ニアフィールドの長期挙動評価の解析条件

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

ガラス固化体については、第2次取りまとめにおける処分場の温度評価と同様に、再処理までの冷却期間を4年、中間貯蔵期間を50年とした発熱量の時間変化を考慮した（核燃料サイクル開発機構，1999a）。なお、ガラス固化体とオーバーパックについては、水理、物質移行及び地球化学反応からは対象外領域とした。

支保、路盤、埋め戻し材及び人工バリアの物性を、上で述べた岩盤の物性値と併せて表2.2.1-7に示す。支保コンクリートについては、第2次TRUレポートにおいて軟岩系岩盤に対する吹き付けコンクリートの仕様に準じて設定した（電気事業連合会、核燃料サイクル開発機構，2005）。間隙率、熱伝導率及び比熱は、コンクリート標準示方書に基づき設定した（土木学会，1996）。緩衝材、オーバーパック及びガラス固化体の物性については、第2次取りまとめに準じた設定とした（核燃料サイクル開発機構，1999a）。表2.2.1-7中の熱伝導率 λ_m （W/mK）及び比熱 C （kJ/kgK）の含水比依存性は次式に

よって設定した。

$$\lambda_m = p_1 + p_2\omega + p_3\omega^2 + p_4\omega^3 \quad (2.2.1-1)$$

$$C = \frac{p_6 + p_7\omega}{p_5 + \omega} \quad (2.2.1-2)$$

ここで、 ω は含水比(%)である。そして、岩盤の場合は、 $p_1 = 5.79 \times 10^{-1}$ 、 $p_2 = 1.97 \times 10^{-2}$ 、 $p_3 = 0.00$ 、 $p_4 = 0.00$ 、 $p_5 = 1.00 \times 10^2$ 、 $p_6 = 6.26 \times 10^1$ 、 $p_7 = 3.20$ (木村ほか, 2010)、緩衝材の場合は、 $p_1 = 4.44 \times 10^{-1}$ 、 $p_2 = 1.38 \times 10^{-2}$ 、 $p_3 = 6.14 \times 10^{-3}$ 、 $p_4 = -1.69 \times 10^{-4}$ 、 $p_5 = 1.00 \times 10^2$ 、 $p_6 = 3.41 \times 10^1$ 、 $p_7 = 4.18$ (核燃料サイクル開発機構, 1999a) である。また、不飽和水理特性は、次式に示すvan Genuchtenモデル (van Genuchten, 1980) により水分特性曲線及び比透水係数を設定した。

$$S_e = \frac{\theta - \theta_r}{\theta_s - \theta} = \left[1 + |\alpha\psi|^n \right]^{-m} \quad m = 1 - \frac{1}{n} \quad (2.2.1-3)$$

$$K_r = \frac{K}{K_s} = \sqrt{S_e} \left[1 - (1 - S_e^{1/n})^n \right]^2 \quad (2.2.1-4)$$

ここで、 S_e : 有効水分飽和度、 ψ : サクシヨン (mH₂O)、 θ : 体積含水率 (-)、 θ_s : 飽和体積含水率 (-)、 θ_r : 最小体積含水率 (-)、 α (m⁻¹) と n (-) はパラメータ、 K_r : 比透水係数 (-)、 K_s : 飽和透水係数 (m/s)、 K : 不飽和透水係数 (m/s) である。岩盤の場合は、 $\theta_r = 0.00$ 、 $\alpha = 0.003$ 、 $n = 1.08$ (下茂ほか, 1982)、支保及び路盤の場合は、 $\theta_r = 0.00$ 、 $\alpha = 0.380$ 、 $n = 1.11$ 、緩衝材の場合は、 $\theta_r = 0.00$ 、 $\alpha = 0.012$ 、 $n = 1.40$ である (藤崎ほか, 2008)。緩衝材及び埋め戻し材の比透水係数は次式で設定した。

$$K_r = S_r^n \quad (2.2.1-5)$$

ここで、 S_r : 水分飽和度 (-) であり、 $n = 1.30$ である。

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

地下水化学反応に関する設定は、以下とした。地下水組成は、幌延深地層研究計画の深層ボーリング調査におけるボーリング孔HDB-6で取得された地下水分析結果に基づきモデル化された深度450mの地下水組成を用いた。この地下水の塩分濃度は、現在の海水の1/2程度であり、起源が過去の海水と考えられる海水系地下水である (藤田ほか, 2007)。また、岩盤の固相は、この地下水組成を支配していると考えられる鉱物の石英及び黄鉄鉱を考慮することとし、ボーリングコアを対象とした半定量分析結果に基づき、それぞれ、2585mol/m³及び63mol/m³とした (平賀・石井, 2007)。支保・路盤コンクリートの固相は、第2次TRUレポートで示された軟岩系岩盤に対する吹き付けコンクリート (W/C=45%) のモデル固相に準じたカルシウムシリケート水和物 (CaO-SiO₂-H₂O系水和物、以下C-S-Hゲル) として、ポルトランドイト (3, 446mol/m³)、アモルファスシリカ (1, 318mol/m³)、ハイドロガーネット (164mol/m³)、ブルーサイト (180mol/m³)、エトリングイト (30mol/m³) を設定した (電気事業連合会、核燃料サイクル開発機構, 2005)。C-S-Hゲルの溶解・沈殿モデルには、杉山らのモデル (杉山ほか, 2001) を用いた。また、コンクリートに含まれるKOH、NaOH及びClは間隙水に瞬時溶解するものと仮定した。緩衝材の固相は、第2次取りまとめの仕様例として示されたNa型ベントナイト (クニゲルV1) 70wt%とケイ砂30wt%の混合材で初期含水比7%とし (核燃料サイクル開発機構, 1999a)、第2次取りまとめにおける間隙水組成のモデル計算の設定に基づき、スメクタイト (498mol/m³)、黄鉄鉱 (65mol/m³)、方解石

(291mol/m³) 及び玉髄 (7,083mol/m³) とした。また、スメクタイトのイオン交換反応 (交換性陽イオン組成ZNa : 51.4meq/100g、Z₂Ca : 7.4meq/100g、ZK : 0.6meq/100g、Z₂Mg : 0.7meq/100g、イオン交換反応選択係数2ZNa-Z₂Ca : 0.69、ZNa-ZK : 0.42、2ZNa-Z₂Mg : 0.67、ZNa-ZH : 1.88) 及び表面サイト酸・塩基反応 (酸・塩基解離定数 : logK(-)=-7.92、logK(+)= -5.67、スメクタイト単位重量当たりの表面サイト密度 : 6.5×10⁻⁵mol/g、表面サイト有効比表面積 : 29m²/g) を考慮した (核燃料サイクル開発機構, 1999b)。緩衝材に含まれる可溶性塩のCaSO₄、KCl及びNaClは、初期含水比7%の間隙水中に全量が瞬時溶解するものと仮定した。そして、岩塩 (Halite : NaCl)、硫酸塩 (Gypsum:CaSO₄) 及びFe(OH)₃アモルファスを沈殿対象の二次鉱物として考慮した。人工バリア設置時の緩衝材は不飽和であるため、不飽和間隙中には地上より持ち込まれると考えられる大気分圧の二酸化炭素及び酸素が存在するものと仮定した。そして、黄鉄鉱が酸素を消費する反応を、次式の数値モデルで考慮した (Williamson and Rimstidt, 1994)。

$$r = 10^{-8.19} \frac{m_{DO}^{0.5}}{m_{H^+}^{0.11}} A_{min} \quad (2.2.1-6)$$

ここで、 r : 反応速度 (mol/m²s)、 m_{DO} : 溶存酸素濃度 (mol/l)、 m_{H^+} : 溶液中の水素イオン濃度 (mol/l)、 A_{min} : 鉱物の反応表面積 (m²) である。

埋め戻し材については、リファレンスケースとしての仕様が設定されていないことから、ここでは緩衝材と同一の設定とした。

支保・路盤コンクリート、緩衝材及び埋め戻し材の初期間隙水組成は、設定した鉱物との平衡を仮定してPHREEQCによる解析により求めた (表2.2.1-8)。熱力学データには、解析的温度補正式の係数が整備された熱力学データベース990900c1.tdbを使用し (Arthur et al., 1999)、これに記述のないFe(OH)₃アモルファス及び支保コンクリートのモデル固相である hidrologerネットとエトリンサイトについては、高アルカリ環境に対応した熱力学データベース050700c0.tdb (Arthur et al., 2005) に基づき設定した。

表2.2.1-7 ニアフィールドの長期挙動解析に用いた解析物性値

パラメータ	単位	岩盤	支保・路盤	緩衝材 埋め戻し材	オーバーバック	ガラス固化体
真密度	kg/m ³	2481	2620	2680	7800	2800
乾燥密度	kg/m ³	1520	2280	1600	-	-
空隙率	-	0.386	0.130	0.403	-	-
初期飽和度	-	1.00	1.00	0.28	-	-
熱伝導率	W/mK	式2.2.1-1	2.56×10 ⁰	式2.2.1-1	5.30×10 ¹	1.20×10 ⁰
比熱	kJ/kgK	式2.2.1-2	1.05×10 ⁰	式2.2.1-2	4.60×10 ⁻¹	9.60×10 ⁻¹
透水係数*	m/s	5.00×10 ⁻⁹	1.00×10 ⁻¹⁰	4.50×10 ⁻¹³	-	-
温度勾配水分拡散係数	m ² /sK	-	-	7.00×10 ⁻¹²	-	-
不飽和水理特性	-	式2.2.1-3 式2.2.1-4	式2.2.1-3 式2.2.1-4	式2.2.1-3 式2.2.1-5	-	-
実効拡散係数	m ² /s	9.0×10 ^{-12**}		3.0×10 ^{-10***}	-	-
縦分散長	m	0.10		-	-	-
横分散長	m	0.01		-	-	-

* 透過媒体の温度が25°Cの時の値

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

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

表2.2.1-8 ニアフィールドの長期挙動解析で設定した初期間隙水組成

		岩盤 (地下水組成)	支保・路盤	緩衝材・埋め戻し材
温度 (°C)		25	25	25
pH		6.80	13.28	6.96
pe		-2.80	6.87	-2.67
mol/l_water	Al	3.70×10^{-07}	9.81×10^{-08}	1.00×10^{-10}
	C	4.10×10^{-02}	4.10×10^{-02}	2.00×10^{-03}
	Ca	2.10×10^{-03}	2.10×10^{-03}	3.12×10^{-02}
	Cl	2.20×10^{-01}	2.28×10^{-01}	1.23×10^{-02}
	Fe	1.50×10^{-05}	1.61×10^{-05}	6.30×10^{-05}
	K	2.10×10^{-03}	3.41×10^{-01}	1.66×10^{-03}
	Mg	5.80×10^{-03}	5.80×10^{-03}	5.90×10^{-04}
	Na	2.30×10^{-01}	4.43×10^{-01}	3.09×10^{-01}
	S	6.30×10^{-06}	2.08×10^{-06}	1.79×10^{-01}
	Si	1.10×10^{-03}	5.33×10^{-04}	2.59×10^{-04}
溶存酸素		1.00×10^{-10}	2.04×10^{-04}	1.00×10^{-10}

② 解析結果

ニアフィールドの長期挙動解析結果として、1,000年後までの温度、水分飽和度、間隙水pH、イオン交換サイトにおけるNaZ濃度及び硫酸塩 (Gypsum:CaSO₄) の濃度に関するコンターの時間変化を図2.2.1-2に示す。廃棄体の発熱にともない緩衝材内の温度は上昇し、約20年後に最高温度の66°Cに達する。その後は低下に転じて、1,000年後には初期の地温程度となっている。地下水の浸潤にともない緩衝材は約5年、埋め戻し材は約17年で飽和に至る結果となっている。ニアフィールドの化学環境は、支保コンクリートを中心に高いpHの領域が広がっており、1,000年後の間隙水pHは、埋め戻し材全体で約10、緩衝材は、オーバーパックの周辺で7~8程度となっている。支保コンクリートから溶脱したカルシウムの影響によって、1,000年後のスメクタイトのイオン交換サイトにおけるカルシウム濃度は、支保コンクリート近傍の埋め戻し材で、初期の12%から25%程度に上昇している。一方、緩衝材におけるカルシウム濃度の上昇は見られない。オーバーパックとの境界近傍における緩衝材中では、初期から約5年後にかけて二次鉱物の硫酸塩が最大で180mol/m³程度で析出している。これは、不飽和環境下での温度勾配による水分移動にともなう間隙水の濃縮と、温度の上昇にともなう溶解度の低下によるものと考えられる。しかし、析出した硫酸塩は、緩衝材が飽和した後は溶解傾向となり100年後には消滅している。

以上、これまでに開発したTHMC連成解析コードCouplysを用いて、地層処分システムの長期挙動に関する事例解析を実施し、ガラス固化体の放熱と人工バリア内への地下水の浸潤に伴うニアフィールドの化学的な環境の変化を定量的に示した。本手法によって、地層処分において想定してきたシナリオとの整合性の確認や、核種移行評価における初期状態などの設定に必要な情報の提供が可能になると考えられる。

③ 今後の課題

本解析作業において、間隙水濃度が異常値を示すケースが散見された。この原因として、要素形状のアスペクト比や物質移行計算における要素内質量粒子の配置及び六面体要素構成節点の指定順序の影響などが考えられる。物質移行計算では、拡散方程式の質量保存計算の関係から、単位要素に対する要素相互間の幾何的な接続関係が厳密に確保されている必要があり、六面体要素構成節点 J1, J2,

…, J8 の指定順序が、構造格子座標方向 $iX-iY-iZ$ との同一の局所座標系方向に対応して定義されていなければならない。しかしながら、処分孔縦置き定置方式のように処分坑道と処分孔が直交するようなモデルの場合、構成節点の指定順序の規則性を確保してメッシュモデルを作成することは困難である。このようなことから、THMC 連成解析コード Couplys においては、物質移行計算で求められる要素間の接続情報の厳密な管理と規則性を確保するための形状モデル化機能を追加する必要がある。

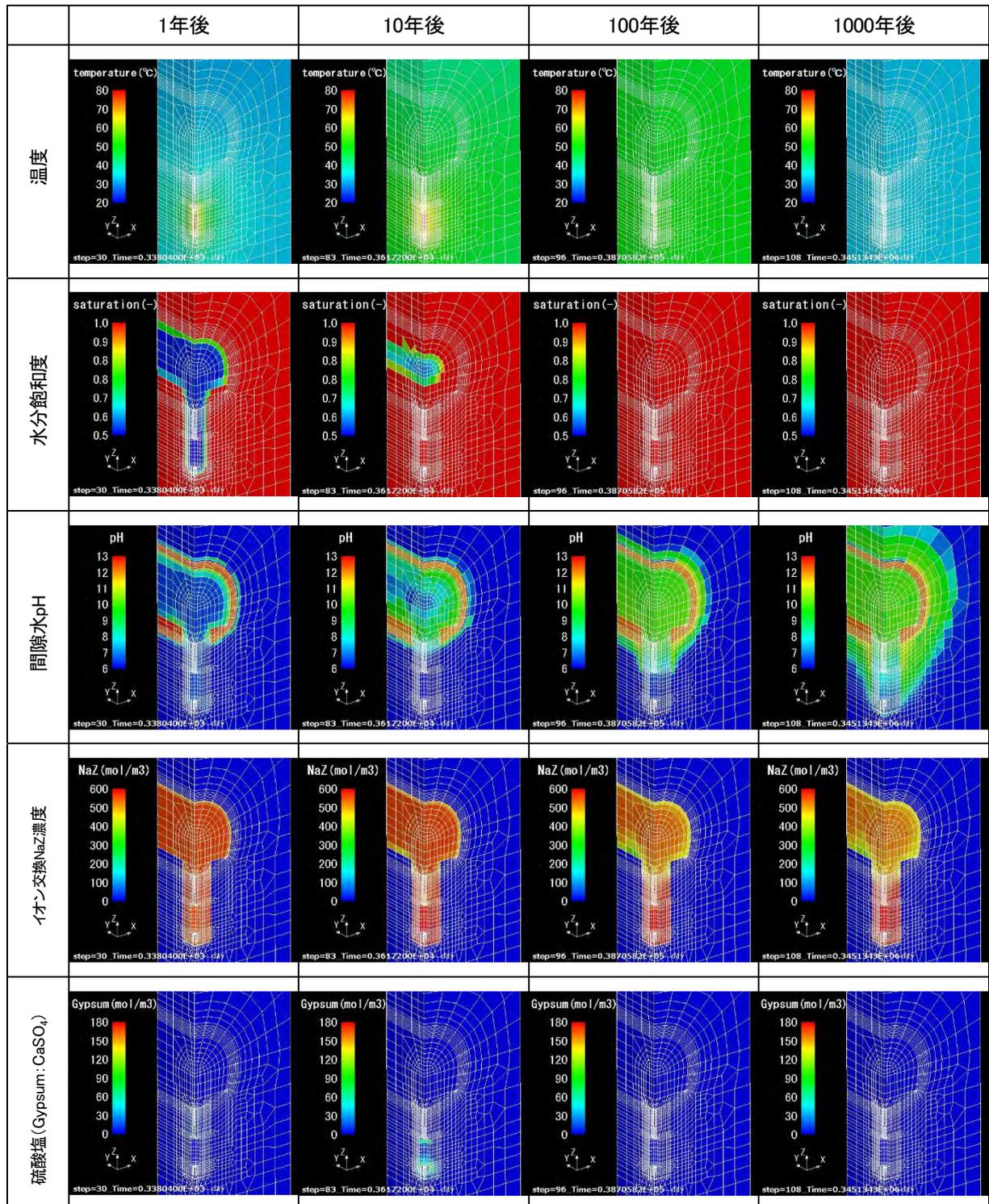


図2.2.1-2 熱-水-応力-化学 (THMC) 連成解析モデルによるニアフィールド長期挙動解析結果

2) 幌延 URL における人工バリア性能確認試験の解析

①人工バリア性能確認試験の概要

原子力機構では、北海道幌延町で実施している幌延深地層研究計画に沿って、地下施設（以下、幌延URL）の深度350 m調査坑道（試験坑道4）において、人工バリア性能確認試験を実施している（日本原子力研究開発機構, 2015e）。この試験では、幌延の地質環境を一つの事例に、処分孔縦置き定置方式を対象として実規模の人工バリアを設置し、実環境下において、人工バリア定置後の再冠水までの過渡期の現象を評価することを目的としている。具体的には、①第2次取りまとめ（核燃料サイクル開発機構, 1999a）で示した処分概念が実際の地下で構築できることの実証、②人工バリアや埋め戻し材の設計手法の適用性確認、及び③熱-水-応力-化学連成挙動に関わるデータの取得である。図2. 2. 1-3 に人工バリア性能確認試験の幌延URLにおける実施場所を、図2. 2. 1-4に試験のイメージ図を示す。

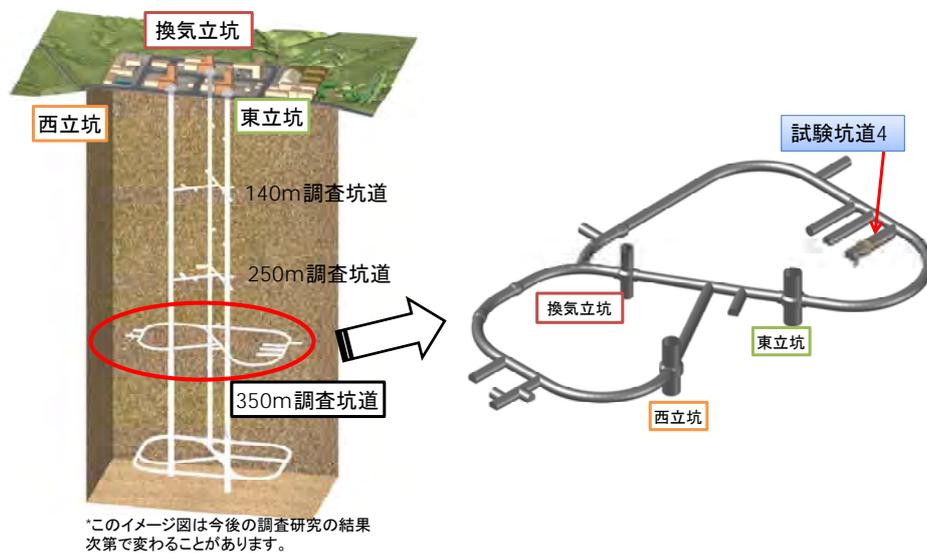


図2. 2. 1-3 人工バリア性能確認試験の実施場所
(深度350 m調査坑道 試験坑道4)

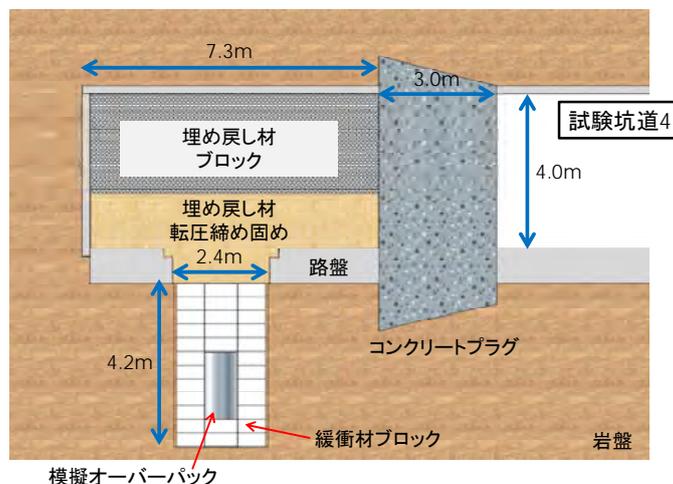


図2. 2. 1-4 人工バリア性能確認試験のイメージ

人工バリア性能確認試験では、第2次取りまとめ（核燃料サイクル開発機構，1999a）で示された、軟岩系岩盤を対象とした処分孔縦置き定置方式を標準とした。試験坑道4の底盤に直径2.4 m、深さ4.2 mの試験孔を掘削し、試験孔内に緩衝材及び模擬オーバーパックを設置し、試験坑道4の一部を埋め戻した。埋め戻し材は、幌延URLの掘削工事で発生した掘削土（ズリ）とベントナイトの混合土とし、坑道の下半部は転圧締め固め、上半分は埋め戻し材を圧密成型した埋め戻し材ブロックにて埋め戻した。埋め戻し材の膨出を押さえるため、コンクリートプラグを施工した。試験孔の底部及び坑道壁面から緩衝材及び埋め戻し材へ、外部から地下水の注水を行うことができるように、注水管及び注水装置を設置した。注水する地下水は、深度350 m調査坑道にボーリング孔を掘削し、外気に触れないように注水装置に導入する。また、注水圧は最大で深度350 mの静水圧相当である3.5 MPaまでかけることができる。

以下に、人工バリア性能確認試験における人工バリア、埋め戻し材及びコンクリートプラグの仕様を示す。

a. 模擬オーバーパック

- ・ 材質 炭素鋼 SFVC1（JIS G 3202）、表面仕上げ#600相当
- ・ 重量 約5.8t（胴体（図2.2.1-5）、底蓋、上蓋、おもり、オイル、ヒーター（図2.2.1-6）を含む）
- ・ ヒーター 3相200V 13kW、設定温度に対して自動管理が可能



図2.2.1-5 模擬オーバーパック胴体部

（上下の黒い部分は腐食評価の基準面とするために絶縁塗料を塗布してある）



図2.2.1-6 ヒーター外観

b. 緩衝材ブロック

- ・ 材料 ベントナイト（クニゲルV1）：ケイ砂=70:30(wt.%)、ケイ砂は3号と5号を重量比で等量混合
- ・ 質量 306 kg/個（1/8ブロック）、377 kg/個（円柱形ブロック）
- ・ 乾燥密度 1.8 Mg/m³
- ・ 計測センサーの設置 ブロック表面に加工された溝に設置、緩衝材と同組成の粉体で埋め戻し（図2.2.1-7）



溝加工の施された緩衝材ブロック



計測センサーの設置状況（光学式pH計の例）

図2.2.1-7 緩衝材ブロック

c. 埋め戻し材

- ・ 材料 ベントナイト（クニゲルV1）：掘削土（ズリ）=40:60(wt.%)
- ・ 乾燥密度 1.2 Mg/m³（転圧締め固め）、1.4 Mg/m³（埋め戻し材ブロック）
- ・ 埋め戻し材ブロック 30cm×30cm×10cm、16.25 kg/個



埋め戻し材



埋め戻し材ブロック

図2. 2. 1-8 埋め戻し材

d. コンクリートプラグ (図2. 2. 1-9)

- ・ 材料 低アルカリ性セメント (HFSC424、OPC:SF:FA=40:20:40(wt. %))
- ・ 呼び強度 50 N/mm²



図2. 2. 1-9 コンクリートプラグ

e. 計測項目

人工バリア性能確認試験では、緩衝材中及び埋め戻し材中に各種センサーを設置し、連続計測を実施している (中山ほか, 2015)。表2. 2. 1-9に設置したセンサーの一覧を、図2. 2. 1-10に試験坑道4における計測状況を示す。

表2.2.1-9 人工バリア性能確認試験で設置したセンサー

設置箇所	センサー	設置数	備考
緩衝材	土圧計	14個	無線センサー1個含む
	間隙水圧計	18個	無線センサー2個含む
	変位計	6区間	
	光学式pH計	9個	
	熱電対	12個	
	白金電極	9個	
	炭素鋼腐食センサー	12個	
	湿度計	6個	
	水分計	9個	
	FDR-V	6個	
	緩衝材膨出センサー	1式	
	比抵抗トモグラフィ	3測線	
模擬オーバーパック	熱電対	10個	
埋め戻し材	土圧計	33個	無線センサー2個含む
	FDR-V	15個	
	間隙水圧計（無線）	2個	無線センサー
コンクリートプラグ	ひずみ計	8個	
	土圧計	10個	



図2.2.1-10 計測状況（試験坑道4）

②緩衝材膨出センサー

第2次取りまとめ（核燃料サイクル開発機構，1999a）では、処分孔縦置き定置方式に対して、埋め戻し後に緩衝材が埋め戻し材側へ膨出する量を解析的に評価した。解析に用いた埋め戻し材の仕様はケイ砂に対してベントナイト混合率15 wt%、乾燥密度 1.8 Mg/m^3 であり、最終的な膨出量は 0.69 m^3 となった。一方、人工バリア性能確認試験における埋め戻し材は掘削土（ズリ）に対してベントナイト混合率40 wt%であり、乾燥密度は 1.2 Mg/m^3 である。幌延を事例とした場合の緩衝材の埋め戻し材への膨出量を把握することを目的に、緩衝材膨出センサーを導入した。

a. 緩衝材膨出センサーの仕様

緩衝材膨出センサーは、緩衝材と埋め戻し材の界面に位置し、緩衝材の膨出を妨げることなく、膨出に合わせて追従して変形することが要求される。また、第2次取りまとめでは、緩衝材は一体として解析が行われた（核燃料サイクル開発機構，1999a）のに対し、人工バリア性能確認試験では緩衝材ブ

ロックを使用しているため、個々の緩衝材ブロックが独立して膨潤することで、膨出の形が複雑化することも考えられる。

以上を考慮し、緩衝材膨出センサーは、薄板状の基板に光ファイバーひずみゲージを7個、光ファイバー温度計を1個取り付け、ひずみゲージの位置及びひずみの値からその点における膨出量を算出することとした。これを2枚組合せ、緩衝材の直径2,260mmをカバーする。図2.2.1-11に緩衝材膨出センサーの構成を、図2.2.1-12に設置イメージを示す。

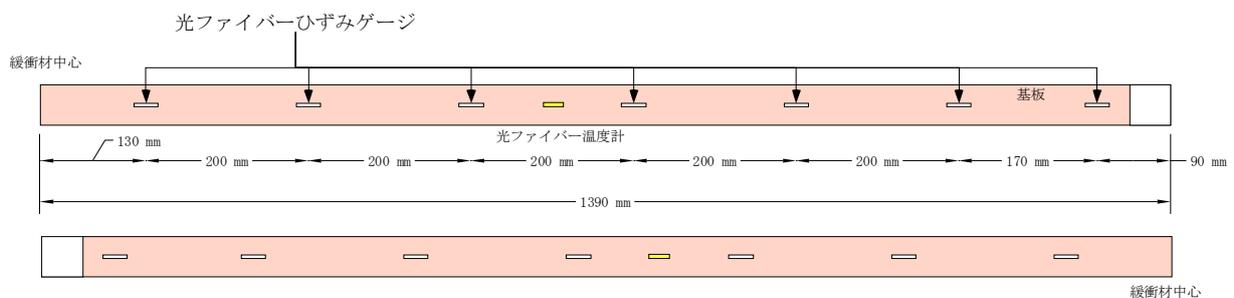


図2.2.1-11 緩衝材膨出センサーの構成

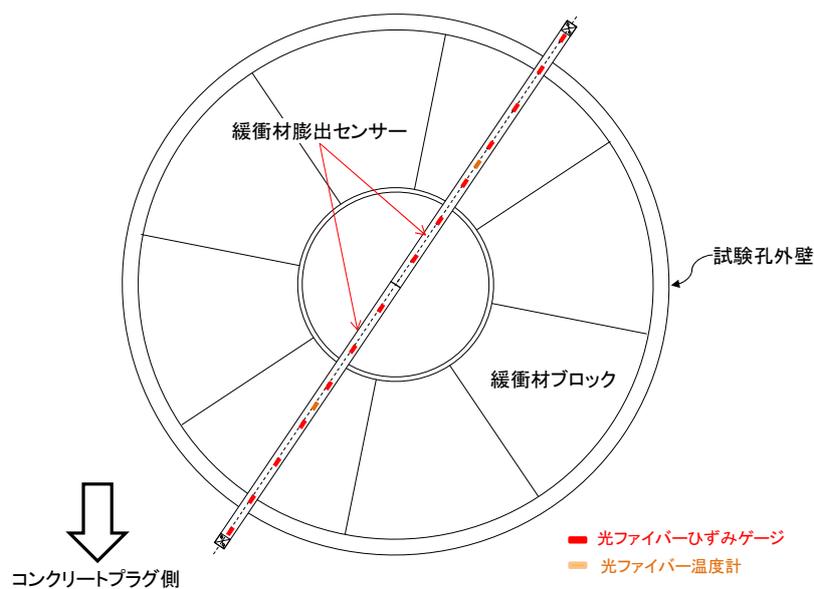


図2.2.1-12 緩衝材膨出センサー設置イメージ

緩衝材膨出センサーは人工バリア性能確認試験の工程に従い、緩衝材の12段目が設置された後に、緩衝材12段目の表面に設置した。設置状況を図2.2.1-13に示す。設計時点では、緩衝材膨出センサーの端部(図2.2.1-11の白い部分)を岩盤に固定し、固定点を基準にひずみを計測する計画であったが、現場の試験孔付近の岩盤がゆるんでおり、岩盤に固定することが不可能であったため、緩衝材上で固定することとし、図2.2.1-14に示した箇所を固定した。なお、緩衝材中心の端部は固定していない。

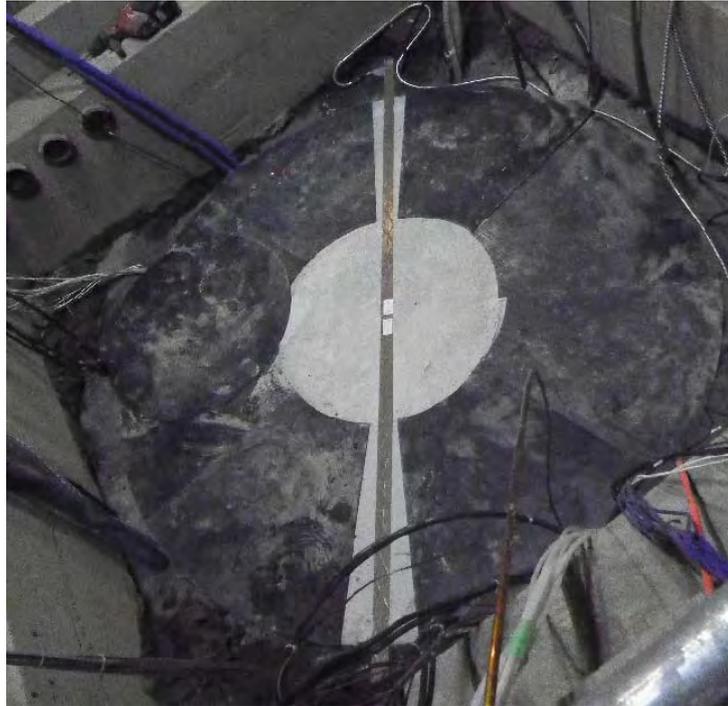


図2. 2. 1-13 緩衝材膨出センサー設置状況

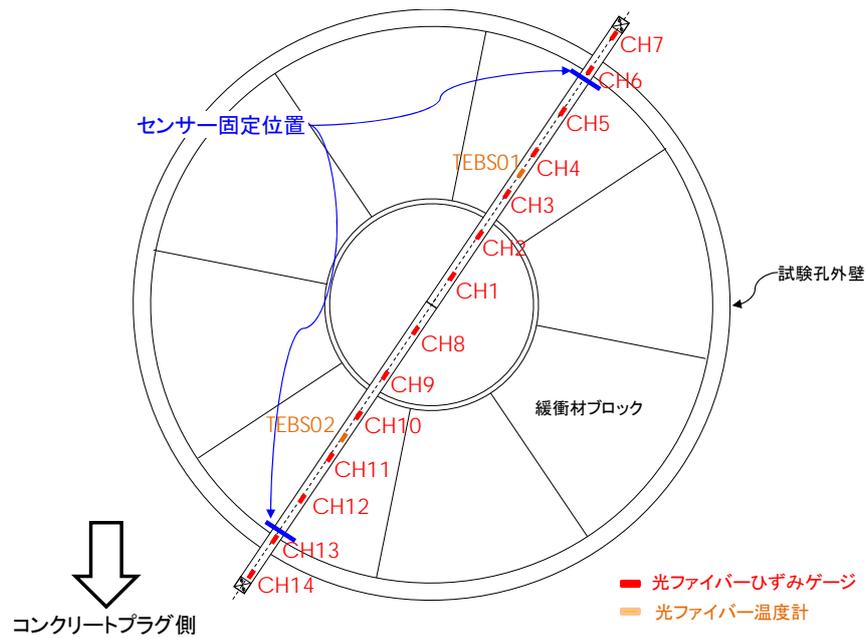


図2. 2. 1-14 緩衝材膨出センサーの固定位置

緩衝材膨出センサーによる測定結果を図2. 2. 1-15に示す。縦軸はひずみ (μ) であり、横軸は計測開始からの経過時間である。図2. 2. 1-14に示したように、固定点が緩衝材上にあるため、グラフでは固定点よりも外側にあるセンサーの結果は省略した。現在、ひずみから膨出量を算出するための解析を実施中である。

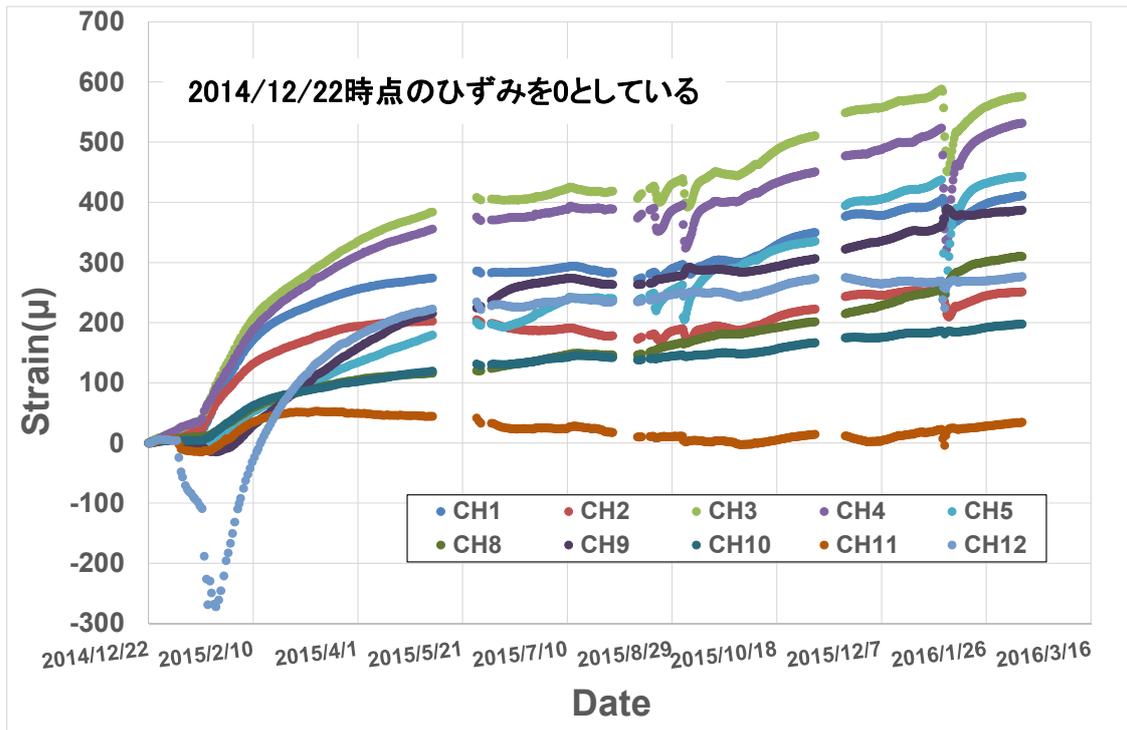


図2. 2. 1-15 緩衝材膨潤センサーによるひずみ測定値

③ 解析条件

人工バリア性能確認試験は、平成27年1月15日に廃棄体を模擬したヒーターの温度を上昇させた熱負荷試験が開始され、設置されている熱電対、緩衝材中の水分量を計測するためのFDR-V、サイクロメータ、湿度計、変位計、圧力計、緩衝材の膨潤変形を計測するための膨出センサーなどによって連成挙動に関わる様々なデータが取得されている（中山ほか，2015）。

ここでは、これまでに開発した連成解析モデルの適用性を確認することを目的に、幌延URLの人工バリア性能確認試験を対象とした解析を実施し、上記のセンサーによって得られている温度、緩衝材中の水分量、緩衝材中の応力分布や変形に関するデータとの比較を行った。前述したように、THMC連成解析コードCouplysでは、物質移行計算を行う上で構成節点の指定順序の規則性を確保する必要がある。しかしながら、処分孔縦置き定置方式を模擬した本試験のメッシュモデルを、この規則性を確保して作成することは困難であるため、ここでは、熱-水-応力連成解析モデルのTHAMES（Ohnishi et al., 1985）を用いた。そして、廃棄体を模擬したヒーター、オーバーパック、緩衝材、緩衝材と岩盤の隙間に充填した砂、支保コンクリート、路盤、コンクリートプラグ及び岩盤を、33,480節点、29,808要素でモデル化した（図2. 2. 1-16）。モデル化の範囲は、温度に対して境界の影響が生じないよう廃棄体を模擬したヒーターから25mを確保した。熱的な境界条件として、モデル上下両端面及び背面は、初期温度での固定境界、モデル前面及び左右両端面は断熱境界とした。水理的境界条件は、モデル上下両端面及び背面は、初期圧力水頭での固定境界、モデル前面及び左右両端面は不透水境界とした。力学的境界条件は、岩盤の節点変位を固定とし、それ以外の節点について、モデル前面はx及びz方向に対してスライド境界、モデル左右両端面は、y及びz方向に対してスライド境界とした。

解析に用いた岩盤、支保、路盤、緩衝材及びオーバーパックの諸物性は表2. 2. 1-7の通りである。路

盤及びコンクリートプラグの物性値は支保コンクリートと同一とした。廃棄体を模擬したヒーターのモデル化は行わず、オーバーパックの内部は、伝熱のために充填されているオイルの物性値を与えた。緩衝材と岩盤の隙間に充填した砂の物性は、真密度 2.51 Mg/m^3 、乾燥密度 1.4 Mg/m^3 、初期飽和度 1.00 、間隙率 0.442 、固有透過度 $1.00 \times 10^{-13} \text{ m}^2$ 、熱伝導率 2.04 W/mK 、比熱 $1,277 \text{ J/kgK}$ とし、力学的な物性値は岩盤と同一の設定とした。埋め戻し材は、下側半分が原位置での締め固めによる施工、上側半分がブロックを積み重ねる方法で施工されているが、ここでは、単純化のため、真密度 2.593 Mg/m^3 、乾燥密度 1.4 Mg/m^3 、初期飽和度 0.91 、間隙率 0.46 、弾性係数 3.0 MPa 、ポアソン比 0.4 、固有透過度 $1.76 \times 10^{-19} \text{ m}^2$ 、線膨張係数 $1.00 \times 10^{-6} / \text{K}$ とした。また、埋め戻し材上部のブロックの熱伝導率は、迅速熱伝導率計を用いて図2.2.1-17のような測定データが得られており、これを最小二乗法で線形近似し、(2.2.1-1)式により定式化し、 $p_1=3.39 \times 10^{-1}$ 、 $p_2=2.97 \times 10^{-2}$ 、 $p_3=0$ 、 $p_4=0$ とした。比熱については、熱拡散率 α が $5.05 \times 10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$ と測定されており、 $\alpha = \lambda / \rho C$ の関係から固相の比熱は 0.40 kJ/kgK となる。水の比熱を 4.18 kJ/kgK とし、(2.2.1-2)式で定式化し、 $p_5=1.0 \times 10^2$ 、 $p_6=4.00 \times 10^1$ 、 $p_7=4.18$ とした。また、埋め戻し材の不飽和水理特性の水分特性曲線及び比透水係数は、図2.2.1-18に示す水分ポテンシャルの測定結果に基づき(2.2.1-3)式及び(2.2.1-4)式に示すvan Genuchtenモデル(van Genuchten, 1980)を用いて、 $\theta_s=0.46$ 、 $\theta=0.00$ 、 $\alpha=3.80 \times 10^{-3}$ 、 $n=1.29$ とした。

地下水位は、原位置での計測結果に基づき全水頭 $22 \text{ mH}_2\text{O}$ とし、試験条件に合わせて緩衝材底面中央部分に $6 \text{ mH}_2\text{O}$ での加圧注水を考慮した。初期温度は全領域で 23°C とし、廃棄体を模擬したヒーターの温度は、一週間で 90°C になるよう段階的に上昇させた。

なお、解析評価期間は、ここでは10年後までとした。

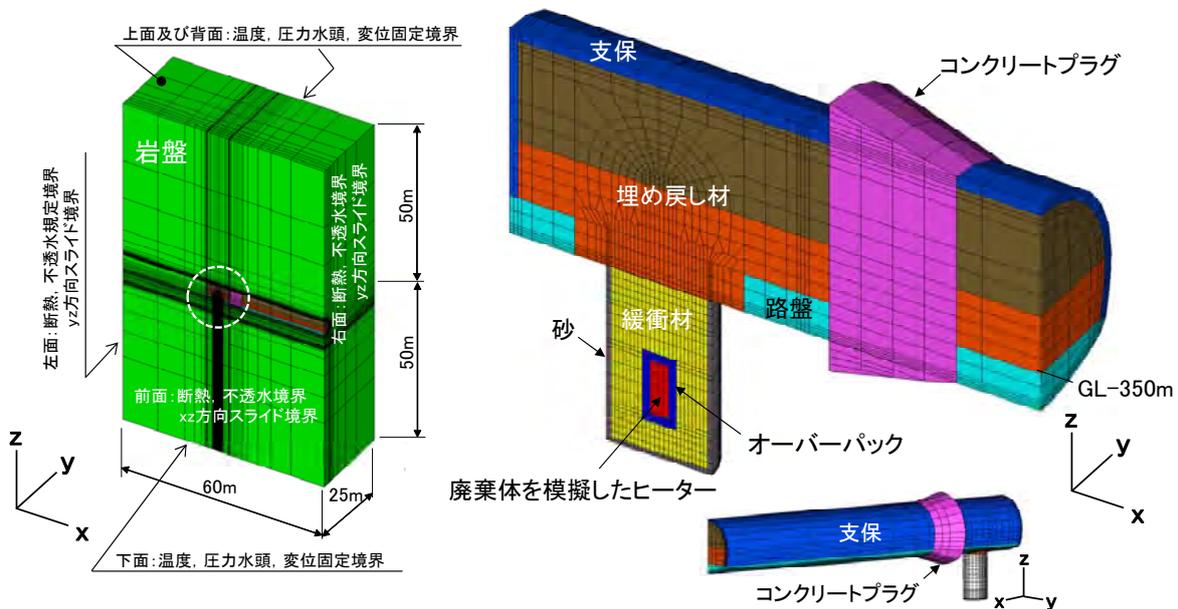


図2.2.1-16 人工バリア性能確認試験の解析評価に用いた解析メッシュモデル

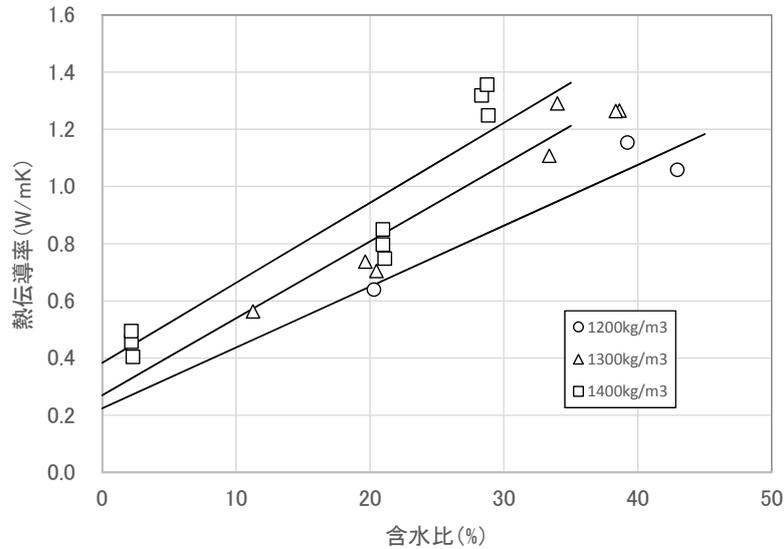


図2.2.1-17 埋め戻し材の熱伝導率測定結果

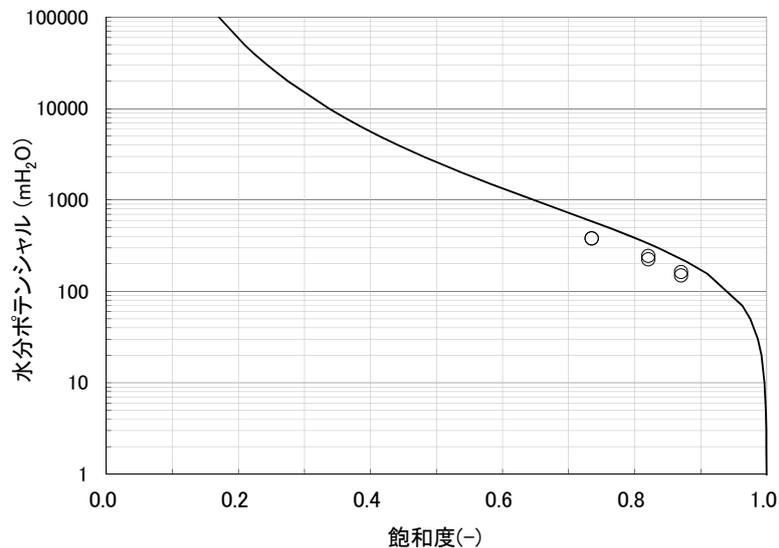


図2.2.1-18 埋め戻し材の水分特性曲線

④ 解析結果

人工バリア性能確認試験の連成挙動に関する解析結果として、人工バリア及びその周辺の間隙水圧、水分飽和度及び温度のコンターを図2.2.1-19に示す（岩盤は非表示）。これより、緩衝材及び埋め戻し材中に周辺岩盤から地下水が浸潤しているが、オーバーパック周辺の緩衝材は、廃棄体を模擬したヒーターの発熱による水分移動の影響によって試験開始から10年後においても不飽和な状態が続いていることがわかる。

廃棄体を模擬したヒーターの加熱を開始した2015年1月15日から73日後までの温度、サクション、応力及び変位に関する計測値と解析結果と比較して図2.2.1-20に示す。これより、温度及び緩衝材中の水分量の程度を表すサクションについては、解析値と計測結果は概ね整合しており連成解析モデルの適用性を確認することができた。一方、膨潤変形が生じていると考えられる緩衝材中の応力及び変位について、解析結果は計測結果と乖離しており、特に、変位に関する解析結果は計測値の1/100程度となっている。緩衝材の体積を拘束した条件下において拘束境界面に作用する膨潤応力については、本

解析コードを用いた水の浸潤と応力の発生を連成させた解析によって再現できることが示されている（千々松・谷口，1999）。一方、今回、評価の対象とした人工バリア性能確認試験は、緩衝材が膨潤し、埋め戻し材や岩盤との間に充填された砂層への膨出が生じていると考えられ、このような体積変化をとまなう場合の評価が適切に行えていないことが明らかとなった。このため、緩衝材の変形を許容した膨潤変形挙動を適切に表現できる力学モデルの導入が必要となる。

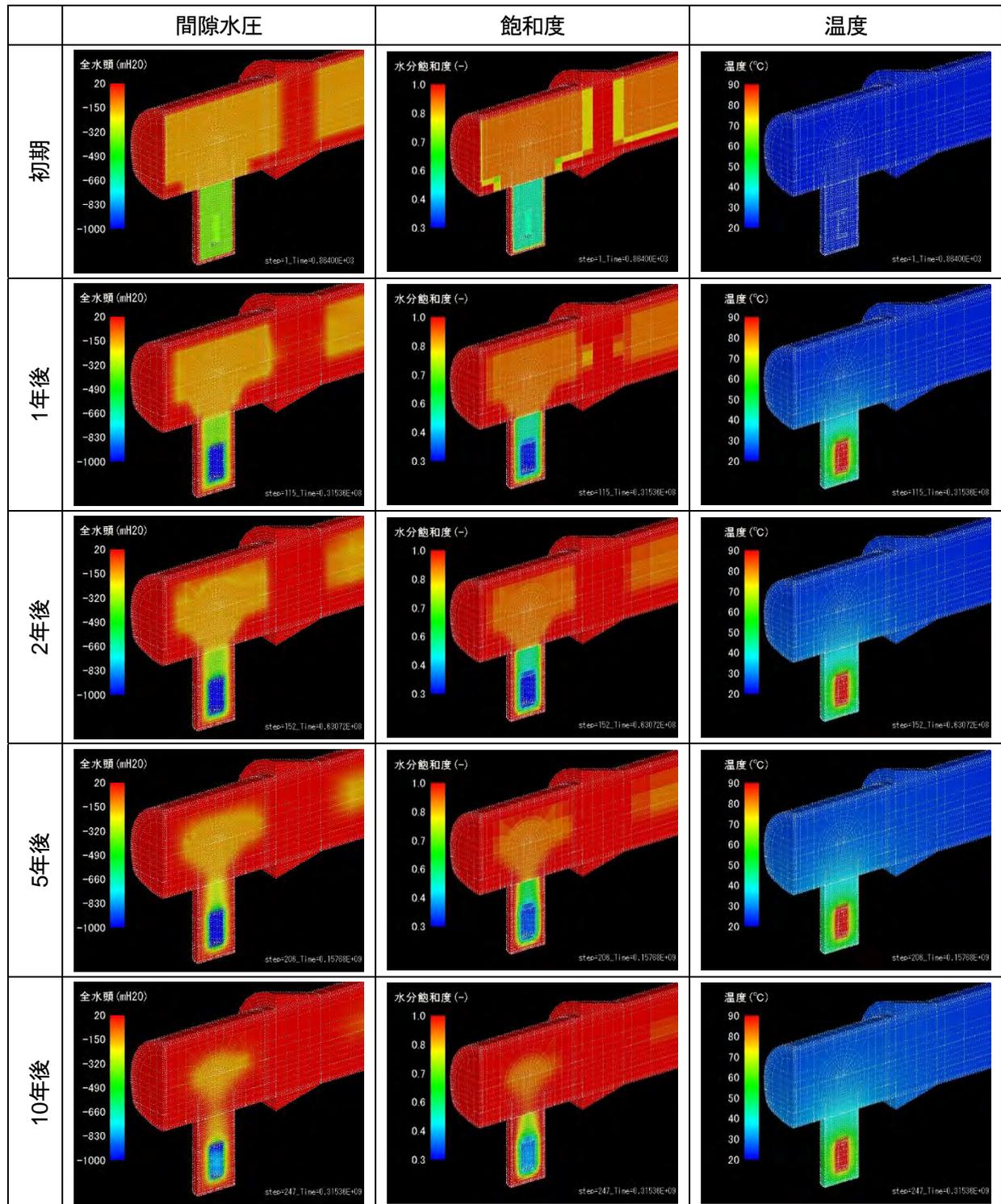
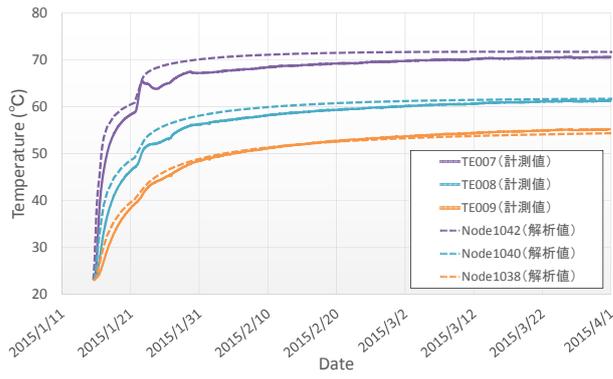
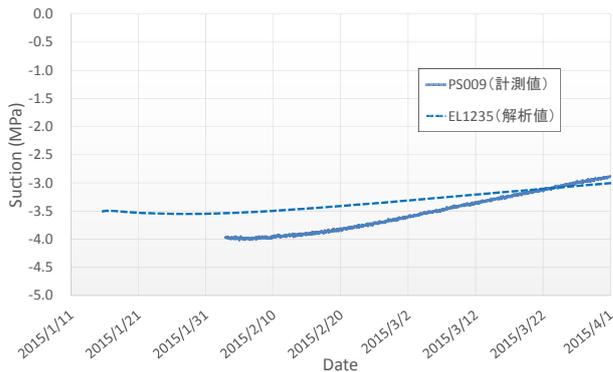
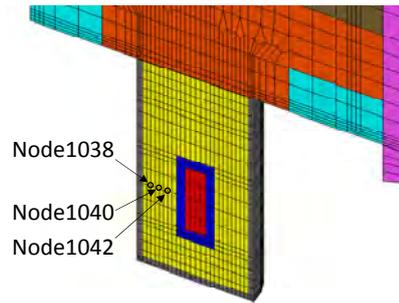


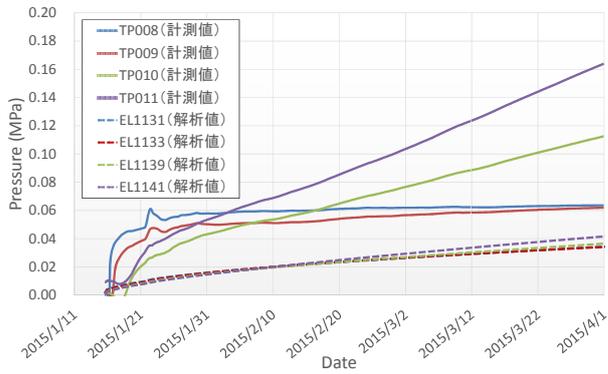
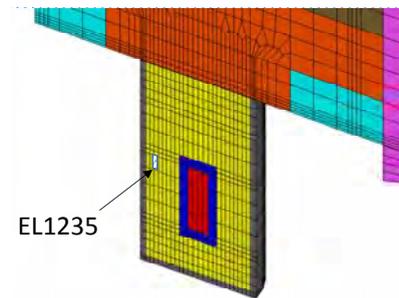
図2. 2. 1-19 人工バリア性能確認試験の連成解析結果



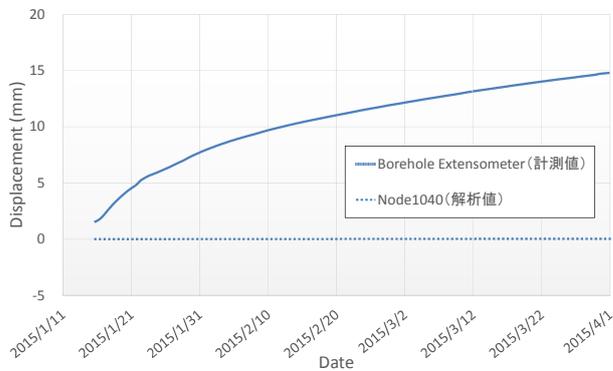
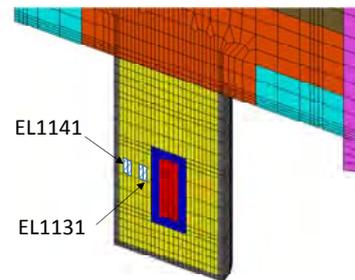
(a) 温度



(b) サクション



(c) 応力



(d) 変位

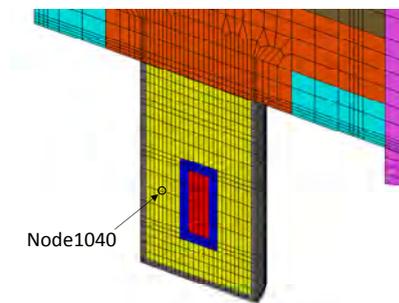


図2.2.1-20 人工バリア性能確認試験の計測結果と解析値との比較

3) 力学モデルの高度化

①モデル化の概要

ここまでの検討により、変形挙動については適切に表現できていないことが明らかとなった。そのため、ここでは熱-水-応力連成解析コードTHAMESに搭載されている力学モデルの高度化を実施する。THAMESに搭載されている力学モデルは、

$$\Delta\sigma_{ij} = \frac{1}{2}E_{ijkl}(u_{k,l} + u_{l,k}) - \Delta\sigma_{sw}\delta_{ij} - \beta\Delta T\delta_{ij} + \chi\Delta p\delta_{ij} \quad (2.2.1-7)$$

であり、

$$E_{ijkl} = \lambda\delta_{ij}\delta_{kl} + \mu(\delta_{ik}\delta_{jl} + \delta_{il}\delta_{jk}) \quad (2.2.1-8)$$

$$\lambda = \frac{\nu E}{(1+\nu)(1-2\nu)} \quad (2.2.1-9)$$

$$\mu = \frac{E}{2(1+\nu)} \quad (2.2.1-10)$$

$$\beta = (3\lambda + 2\mu)\alpha_s \quad (2.2.1-11)$$

である。ここで、 σ_{ij} :全応力テンソル、 E_{ijkl} :剛性テンソル、 $u_{i,l}$:変位ベクトルの方向微分(= $\partial u_k / \partial u_l$)、 σ_{sw} :膨潤応力、 δ_{ij} :クロネッカーのデルタ、 β :熱応力に関するパラメータ、 T :温度、 χ :スイッチ関数、 p :水圧、 λ 、 μ :Lameの定数、 E :弾性係数、 ν :ポアソン比、 α_s :線膨張係数である。

この力学モデルでは、緩衝材の膨潤挙動については飽和度増加に伴い膨潤応力を戴荷する方法で表現し、変形に関しては弾性体として表現している。これまで、膨潤圧試験のように変形がない場合に生じる応力については、室内試験結果を再現することができているが、変形挙動については適切に表現できていない。変形挙動が適切に表現できない要因として、乾燥密度変化に伴う剛性変化を考慮していないことが考えられる。そこで本検討では、弾性係数の密度及び飽和度依存性を考慮した非線形弾性構成モデルを構築し、その適用性について検討することとした。具体的には、飽和度と乾燥密度をパラメータとした一軸圧縮試験を実施し、弾性係数と飽和度と乾燥密度の関係を取得し、これらの関係をTHAMESに組み込んだ。さらに、膨潤変形試験を実施し、THAMESを用いて膨潤変形試験の再現解析を実施し、構築したモデルを検証した。また、解析コードのより詳細な検証データを取得するために、X線CTスキャンを用いて膨潤試験中の内部状況を把握するための手法の開発に着手した。

②弾性係数の測定

弾性係数と飽和度と乾燥密度との関係を取得することを目的に、飽和度と乾燥密度をパラメータとした一軸圧縮試験を実施した。ここでは、乾燥密度が1.6 Mg/m³、1.5 Mg/m³、1.4 Mg/m³及び1.3 Mg/m³のそれぞれの乾燥密度において、異なる4つの飽和度を設定し、合計16ケースの試験を実施し、ひずみと50%の一軸圧縮強度の傾きから弾性係数E50を求めた。表2.2.1-10に試験ケースを示す。供試体は直径5cm×高さ10cmとした。試験結果を図2.2.1-21に示す。図中には、最小二乗法による直線近似の結果も併記している。図から、飽和度低下及び密度増加に伴い剛性が増加していることが確認できる。図2.2.1-21中の近似曲線の傾きと、近似曲線に飽和度100%を代入した時の値を乾燥密度ごとに整理した

ものを図2. 2. 1-22及び図2. 2. 1-23に示す。図中には、最小二乗法で決定したフィッティング関数も併記している。これらのフィッティング関数をもとに、弾性係数 E_{50} (MPa) と飽和度 S_r (%) と乾燥密度 ρ_d (Mg/m^3) の関係式を以下のように設定した。

$$E_{50} = A(S_r - 100) + B \quad (2. 2. 1-12)$$

$$A = -0.00006e^{6.635\rho_d} \quad (2. 2. 1-13)$$

$$B = 7.576\rho_d - 6.8387 \quad (2. 2. 1-14)$$

表2. 2. 1-10 一軸圧縮強度試験ケース

試験ケース	乾燥密度 (Mg/m^3)	初期含水比 (%)	飽和度 (%)
QU-16-NWC	1. 6	7. 8 (自然含水比)	29. 9
QU-15-NWC	1. 5	7. 8 (自然含水比)	26. 2
QU-14-NWC	1. 4	7. 8 (自然含水比)	22. 2
QU-13-NWC	1. 3	7. 8 (自然含水比)	19. 3
QU-16-SR50	1. 6	12. 9	49. 7
QU-15-SR50	1. 5	15. 0	50. 4
QU-14-SR50	1. 4	17. 4	49. 0
QU-13-SR50	1. 3	20. 2	49. 4
QU-16-SR80	1. 6	20. 7	79. 9
QU-15-SR80	1. 5	24. 0	79. 3
QU-14-SR80	1. 4	27. 8	79. 8
QU-13-SR80	1. 3	32. 2	81. 5
QU-16-SR100	1. 6	25. 9	95. 1
QU-15-SR100	1. 5	30. 0	95. 6
QU-14-SR100	1. 4	34. 8	96. 5
QU-13-SR100	1. 3	40. 3	95. 5

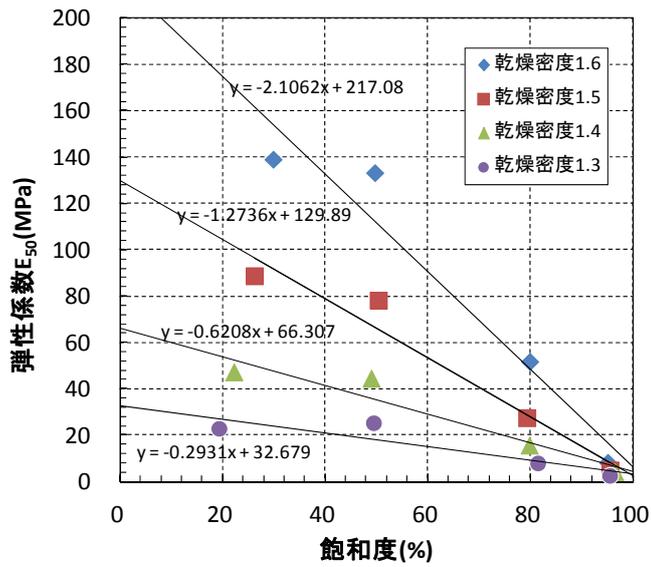


図2. 2. 1-21 弾性係数、飽和度、乾燥密度の関係

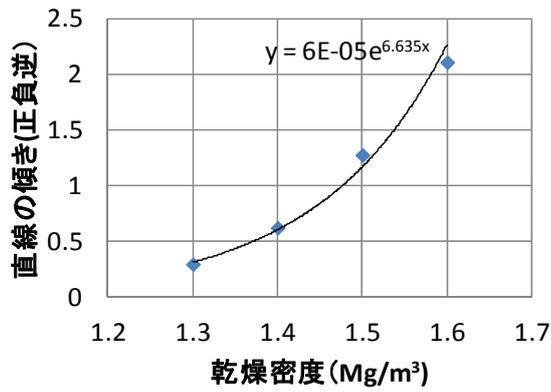


図2. 2. 1-22 傾きと乾燥密度の関係

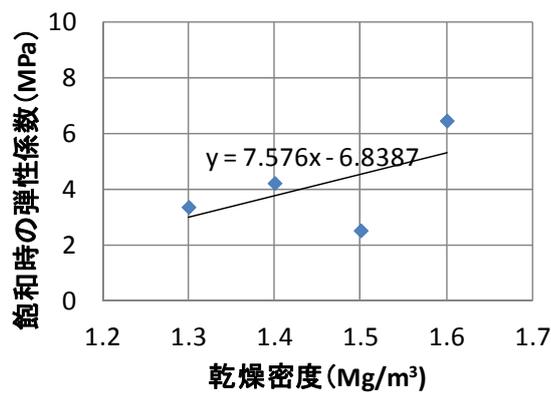


図2. 2. 1-23 飽和時弾性係数と乾燥密度の関係

③試験結果に基づく検証解析結果

以上の結果に基づき、設定した弾性係数・飽和度・乾燥密度の関係式を熱-水-応力連成解析コード

THAMESに組み込んだ。さらに、膨潤変形試験を実施し、その試験の再現解析を実施することで、構築したモデルの検証を行った。膨潤変形試験に用いた材料はクニゲルV1とケイ砂の混合材料（ケイ砂混合率は30wt%）とし、供試体は直径6cm×高さ2cm、乾燥密度は1.6 Mg/m³、飽和度は50%とした。試験では、供試体上端面に一定の荷重をかけた状態で供試体の下部より蒸留水を浸潤させ、生じる変形量を計測した。ここでは、表2.2.1-11に示す3ケースの荷重条件で試験を行った。表2.2.1-11中に示している供試体上端面にかける荷重については、表2.2.1-12に示す条件で膨潤圧試験を実施し、得られた飽和時膨潤圧（図2.2.1-24）から乾燥密度 ρ_d と飽和時膨潤圧 σ_{swmax} の関係式（式2.2.1-15）を最小二乗法により導出し、その関係式に乾燥密度1.5, 1.4, 1.3 Mg/m³を代入したときの圧力（それぞれ460、340、250kPa）を用いた。ここで、図2.2.1-24に示した膨潤圧試験結果は初期飽和度の影響をほとんど受けなかったことから、式2.2.1-15に示した関係式は乾燥密度のみの関数としている。

$$\sigma_{swmax} = 0.0042e^{3.1357\rho_d} \quad (2.2.1-15)$$

膨潤変形試験結果を図2.2.1-25に示す。上端面にかける荷重が小さいケースほど大きな膨潤変形が生じている。試験開始後28日の供試体の乾燥密度を図2.2.1-26に示す。いずれのケースにおいても膨潤により乾燥密度が低下しているが、膨潤圧と乾燥密度の関係式のところまでは達しておらず、膨潤圧試験と膨潤変形試験で得られる飽和時の応力と乾燥密度の関係は一致しない可能性が示唆された。

再現解析は、鉛直方向に要素分割した鉛直一次元系モデルとし、境界条件は、下端面を水頭固定境界（供試体下端面からの浸潤を考慮）、側面を鉛直ローラー（供試体側面の摩擦を無視）、上端面を試験の荷重条件に対応した荷重境界とした。なお、式（2.2.1-7）に示した力学モデルにおける膨潤応力 σ_{sw} の算出には、以下に示す飽和度変化に対して線形的に増加する式を用いている。

$$\sigma_{sw} = S_r\sigma_{swmax} \quad (2.2.1-16)$$

また、式（2.2.1-16）における σ_{swmax} には、式（2.2.1-15）に示した乾燥密度と飽和時膨潤圧の関係式を適用している。

解析結果を図2.2.1-27に示す。時間の経過に伴い膨潤変形が発生するのを表現できており、上端面にかける荷重が小さいほど膨潤量が大きく生じる傾向も表せているのがわかる。しかしながら、生じた変形量については解析値は実験値よりも小さい。これに関しては、以下に示すようないくつかの原因が考えられる。

- ・今回実験で取得した弾性係数は、第2次取りまとめ（核燃料サイクル開発機構，1999a）に使用されている値の3～5倍程度大きい値となっており、このような一軸圧縮試験の試験結果のばらつきを考慮していないことが解析結果に影響している可能性がある。
- ・本モデルでは膨潤挙動を表現するために膨潤応力を内部応力として戴荷する手法を適用し、今回の解析においては式（2.2.1-16）を用いて膨潤応力を算出した。しかしながら、この式は実験結果や理論から決定されたものではないため、他の表現式を用いれば膨潤挙動の再現性は向上する可能性がある。
- ・解析と実験の比較においては、水の浸潤速度などの水理挙動については検証できていない。水理挙動と膨潤挙動は連動して起こるため、解析と実験での水理挙動の違いが比較結果に影響を及ぼしている可能性がある。

- ・実施した膨潤圧試験と膨潤変形試験で得られた飽和時の応力と乾燥密度の関係は一致しなかった。これは、膨潤変形試験において供試体の締め固め過程や吸水膨潤過程において塑性変形が発生している可能性を示唆しており、緩衝材の変形挙動を適切に評価するためには、弾塑性論的観点からの実験解釈や、弾塑性論を用いたモデル化が必要となる可能性がある。

表2.2.1-11 膨潤変形試験ケース

試験ケース	荷重 (kPa)	備考
SD-16-15-SR50	460	乾燥密度1.5 Mg/m ³ 時の膨潤圧
SD-16-14-SR50	340	乾燥密度1.4 Mg/m ³ 時の膨潤圧
SD-16-13-SR50	250	乾燥密度1.3 Mg/m ³ 時の膨潤圧

表2.2.1-12 膨潤圧試験ケース

試験ケース	乾燥密度 (Mg/m ³)	初期含水比 (%)	初期飽和度 (%)
SP-16-NWC	1.6	7.2 (自然含水比)	27.7
SP-15-NWC	1.5	7.2 (自然含水比)	23.8
SP-14-NWC	1.4	7.2 (自然含水比)	20.6
SP-13-NWC	1.3	7.2 (自然含水比)	17.8
SP-16-SR50	1.6	12.9	49.9
SP-15-SR50	1.5	15.0	50.0
SP-14-SR50	1.4	17.4	50.1
SP-13-SR50	1.3	20.2	50.1
SP-16-SR80	1.6	20.7	80.0
SP-15-SR80	1.5	24.0	80.0
SP-14-SR80	1.4	27.8	80.0
SP-13-SR80	1.3	32.2	80.0

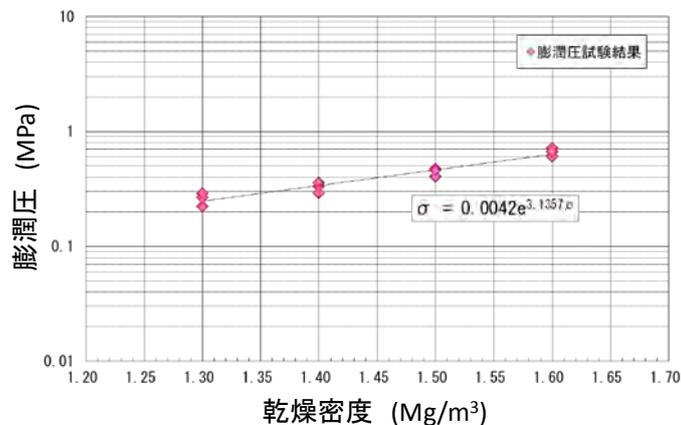


図2.2.1-24 膨潤圧試験結果

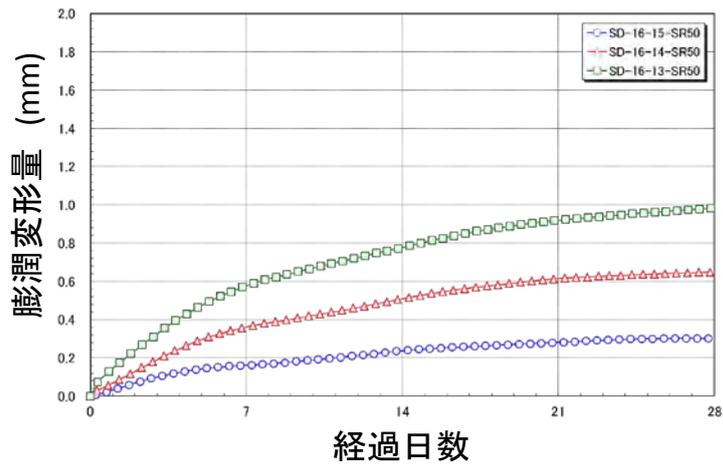


図2.2.1-25 膨潤変形試験結果

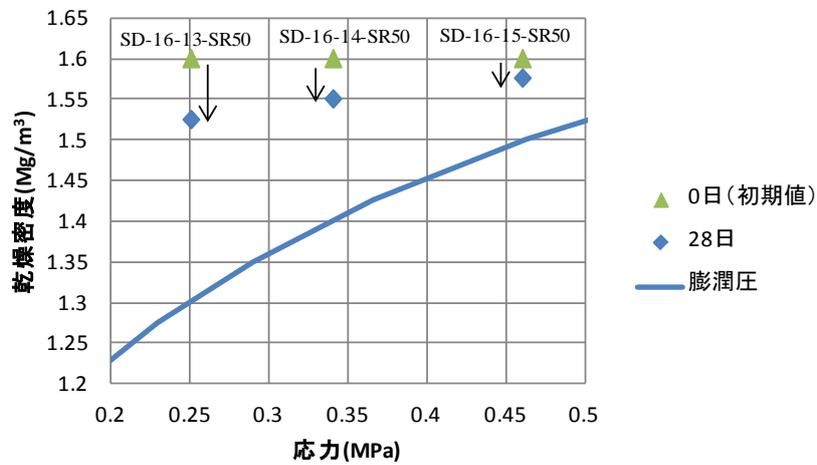


図2.2.1-26 28日後の乾燥密度

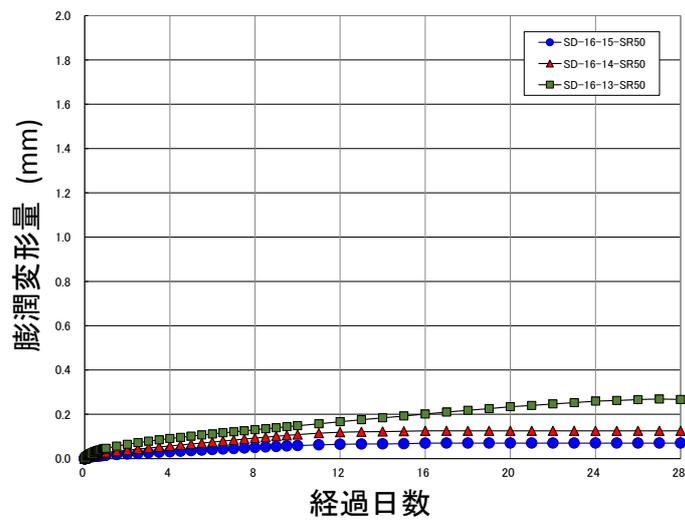


図2.2.1-27 解析による膨潤変形量の経時変化

④X線CTスキャンを用いた膨潤変位の測定

前述の膨潤変形試験では、供試体上端面の変位量を計測するが、試験中の供試体内部の状態までは把握することはできない。試験中の供試体は不均一な密度・飽和度分布を示すと考えられるため、供試体内部の状態が把握できれば、力学モデルのより詳細な検討や、高度化に資する情報となる。そこで、X線CTスキャンを用いて膨潤試験中の内部状況を把握するための手法を開発した。

本検討では、図2.2.1-28に示すように、ベントナイト供試体内部にガラスビーズを埋め込み、試験中のガラスビーズの移動挙動をX線CTスキャナ装置によって把握する方法を考案した。ガラスビーズは、図2.2.1-29に示すように、供試体の中心位置に、高さ方向に3つ設置した。試験条件は供試体上部に水を浸した自由膨潤状態とした。材料はクニゲルV1を用い、乾燥密度は $1.6\text{Mg}/\text{m}^3$ 、含水比は自然含水比(8.64%)とした。供試体のサイズは直径20mm、高さ20mmとし、ガラスビーズの直径は0.8~0.9mmのものを用いた。

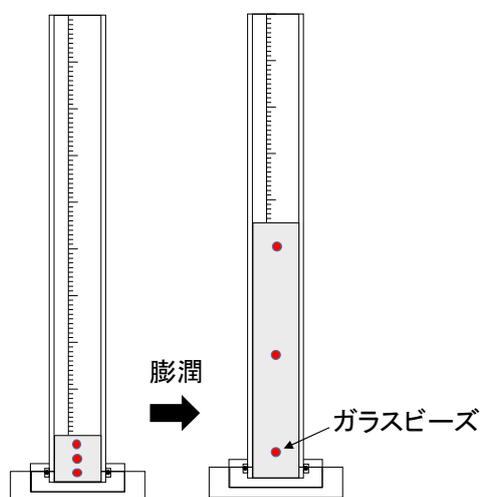


図2.2.1-28 X線CTスキャナ装置を用いた膨潤変位測定

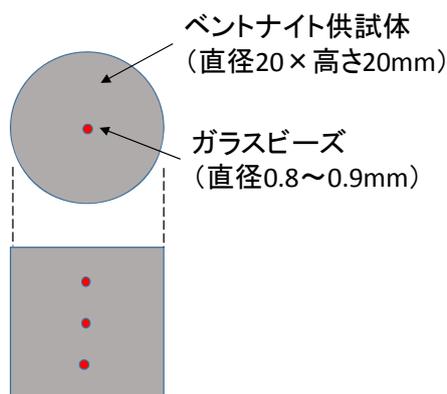


図2.2.1-29 ガラスビーズの配置

各時間におけるX線CTスキャン画像を図2.2.1-30に示す。図から、供試体内に設置したガラスビーズを捕らえることができているのがわかる。X線CTスキャンにより取得した各ガラスビーズ及びゲルフロ

ントの変位データを図2.2.1-31に示す。計測した期間では、変形はまだ収束にはいたっていないのが確認できる。また、計測した期間内においては、すべてのガラスビーズは時間変化に対して線形的に上方に移動しているのが確認できる。

以上のことから、X線CTスキャンを用いると、膨潤試験中の供試体内部の変位状況を測定できることが確認された。今後は、より長期間の計測を実施するとともに、さまざまな初期条件・境界条件下に対しても実施し、それらの再現解析を通じて、解析コードの高度化を実施していく。

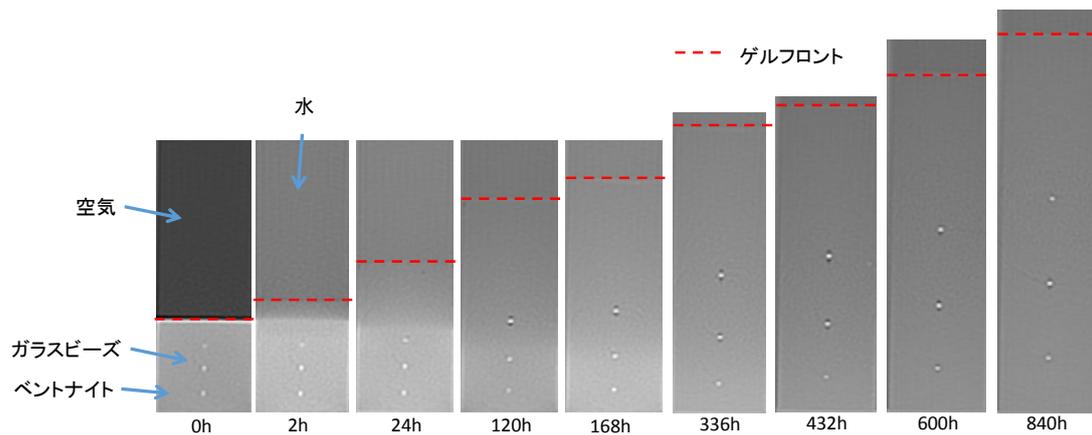


図2.2.1-30 X線CTスキャン画像

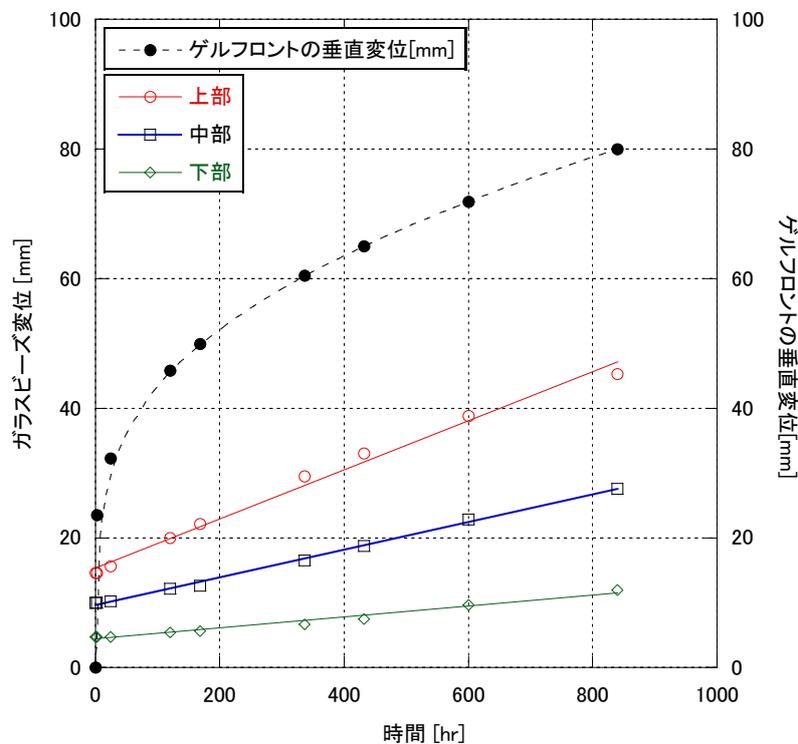


図2.2.1-31 ガラスビーズの変位

2.2.2 過渡的状態における人工バリアの挙動評価技術の開発

(1) オーバーパックの腐食挙動に関する調査

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

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

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

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

平成27年度は、不飽和緩衝材中における腐食モニタリングを溶液条件を変えて実施し、腐食センサーの適用性を確認するとともに、幌延URLでの原位置試験に適用されたセンサーについても計測を継続した。従来の想定範囲を超える地下水水質での腐食挙動についても、酸性環境での腐食挙動等のデータ取得を継続して実施した。

1) 不飽和緩衝材中における炭素鋼の腐食モニタリング

①モニタリング用センサーの構成

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

センサーには1個当たり2枚の炭素鋼電極が配置されており、一方を自然電位測定用、もう一方を交流インピーダンス測定用とすることによって両者の同時計測が可能である。この場合、交流インピーダンスは中央のカーボン電極を参照電極、チタン管を対極として3電極法にて実施する。また、本セン

サーでは2枚の炭素鋼電極を用いることによって、2電極法での測定も可能である。更に、一方の炭素鋼電極に不具合が生じ、測定不能となった場合でも、もう一方の電極で自然電位、交流インピーダンス両方を測定するなど、バックアップが可能となる。炭素鋼電極の材料として、不飽和緩衝材中での腐食モニタリングには、従来使用しているJIS G 3106 SM400B (C:0.14, Si: 0.22, Mn: 1.12, P: 0.016, S: 0.004 mass%) をセンサーの検討用の材料として用いた。幌延URLでの原位置試験に適用する際は、実際に試験に用いるオーバーパックと同一材質のJIS G 3202 SFVC 1 (C:0.25, Si: 0.23, Mn: 0.95, P: 0.014, S: 0.004 mass%) を用いている。

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

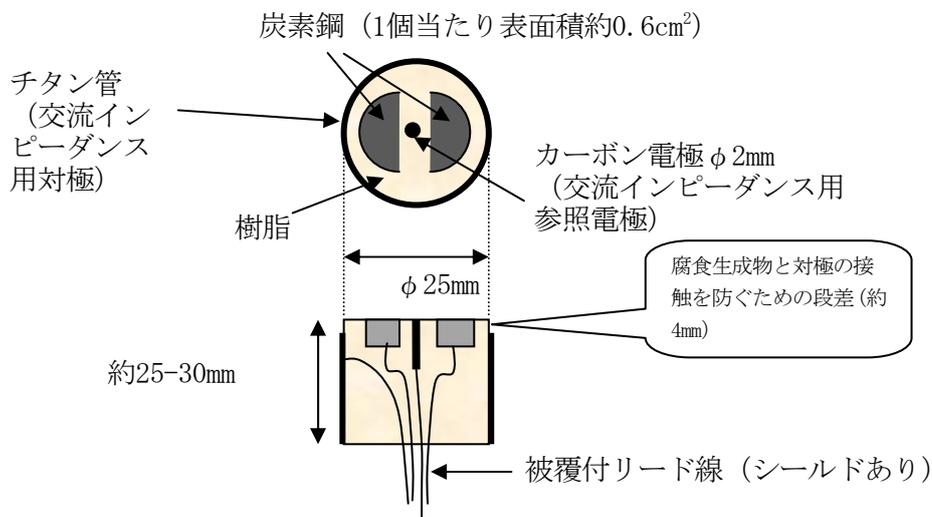


図2. 2. 2-1 腐食モニタリングセンサーの模式図

②不飽和緩衝材中における腐食モニタリング試験

a. 試験方法

上記の①の仕様にて製作したセンサーを緩衝材中に埋め込み、再冠水過程での緩衝材中における炭素鋼の腐食モニタリングを行った。試験装置の模式図を図2. 2. 2-2に示す。既報の不飽和緩衝材中での試験(谷口ほか, 2003b)と同様に、φ164x50mmの円柱状の緩衝材中にセンサーを埋め込み、緩衝材の上部から試験溶液を注水した。また、緩衝材の下部には炭素鋼板を設置し、ヒータにより90℃に加熱した。試験溶液には、幌延のボーリング孔から採取した実地下水に支保工などコンクリート製構造物との接触を模擬するためコンクリートを粉砕して混合(100g/l)した上澄み液を用いた。コンクリートには普通ポルトランドセメント及び低アルカリ性セメントを用いて作製したものをそれぞれ用いた。

腐食モニタリングでは、緩衝材中に埋め込んだ腐食センサーを用いて、炭素鋼の自然電位と交流インピーダンスの測定を行った。自然電位は、試験セルの外側に塩橋を介して設置された飽和カロメル電極に対する電位差として測定した。交流インピーダンス測定は、グラッシーカーボンを参照電極、チタン管を対極として3電極法により行った。自然電位から振幅10mV、周波数範囲100kHz~1mHzにて測

定した。

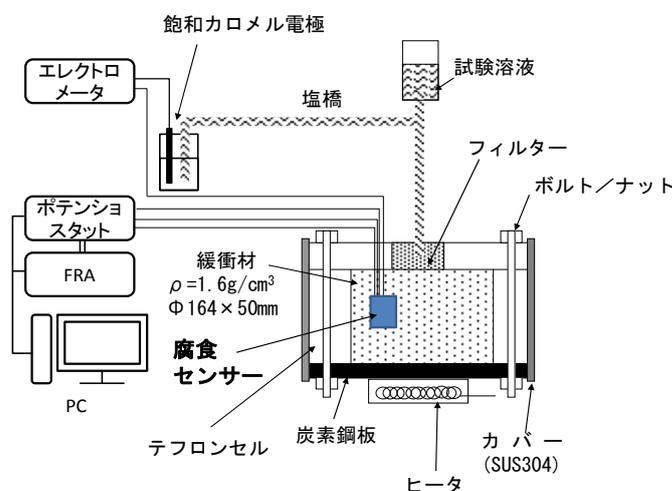


図2. 2. 2-2 不飽和緩衝材中における腐食センサーの適用性確認試験の模式図

b. 試験結果

自然電位 (E_{corr}) の測定結果例を、図2. 2. 2-3に示す。図中には、昨年度実施した幌延地下水系（セメント材料なし）での値も示した。測定は、腐食センサー内の2個の炭素鋼電極に対して行った。いずれの E_{corr} も、測定開始から約20日までは経時的に低下し、その後徐々に貴化する傾向を示したが、約100日以降は変化が小さく、ほぼ一定となった。約80日経過後は、昨年度得られたセメント非共存系での値とほぼ同等となった。その値は、浸潤したベントナイト中の自然電位（谷口ほか、1999）と同程度である。

次に、交流インピーダンス測定結果の例を、図2. 2. 2-4に示す。右図は位相のずれ (θ) と周波数 (f) の関係を、左図は全インピーダンス (Z) の絶対値と周波数の関係を示す。ここで、炭素鋼電極界面について分極抵抗 (R_p) と定相要素CPEの並列回路に溶液抵抗 R_s が直列に結合した図2. 2. 2-5に示す等価回路を仮定すると、全インピーダンス Z は以下の式で表される。

$$Z = R_s + \frac{R_p}{1+(j\omega R_p T)^p} \quad (2. 2. 2-1)$$

R_s : 溶液抵抗

R_p : 分極抵抗

T : CPE定数

ω : 角周波数

$$j^2 = -1$$

ここで、 p ($0 < p \leq 1$) は、CPE指数と呼ばれており、 $p=1$ の場合に、定相要素は理想的なコンデンサーと等価となる。 p は時定数分布の状態を表すパラメータに相当し、これが小さいほど分布の広がりが大

きくなる（西方，1993；興戸・沖，1993）。この式に基づいて実測データにフィッティングを行い、各パラメータを推定した。

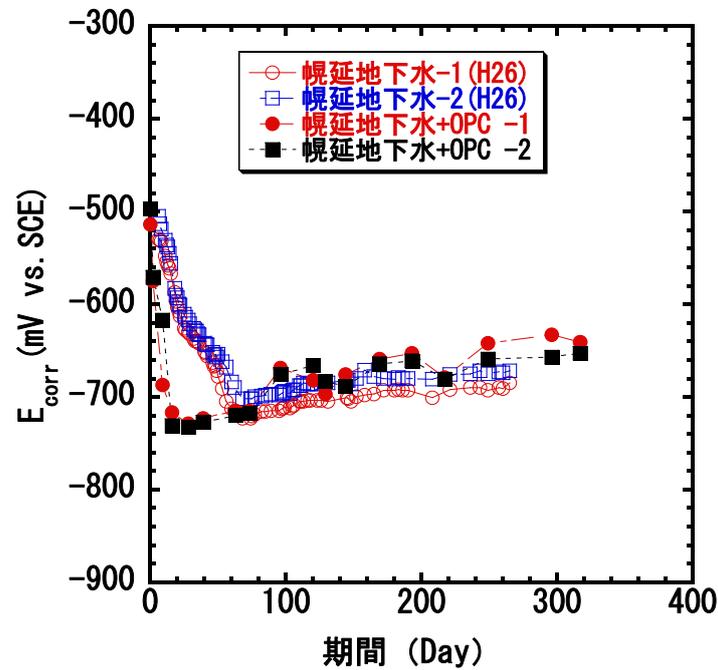


図2.2.2-3 再冠水過程の緩衝材中における炭素鋼の自然電位の経時変化
(OPC：普通ポルトランドセメントを用いたコンクリート)

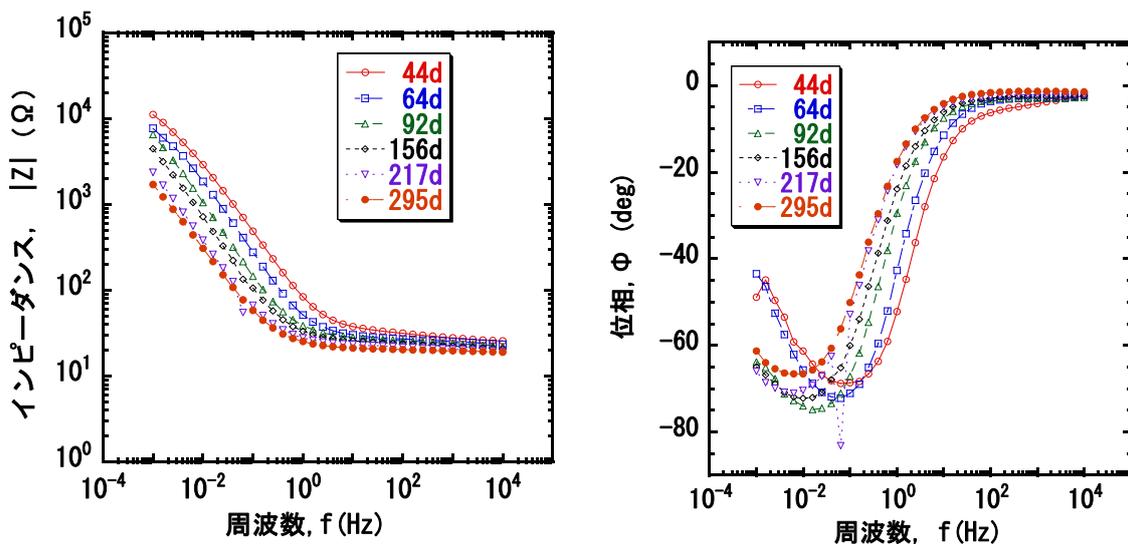
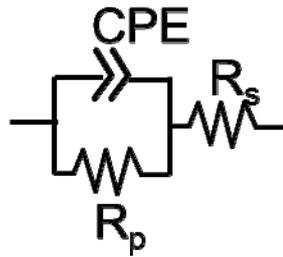
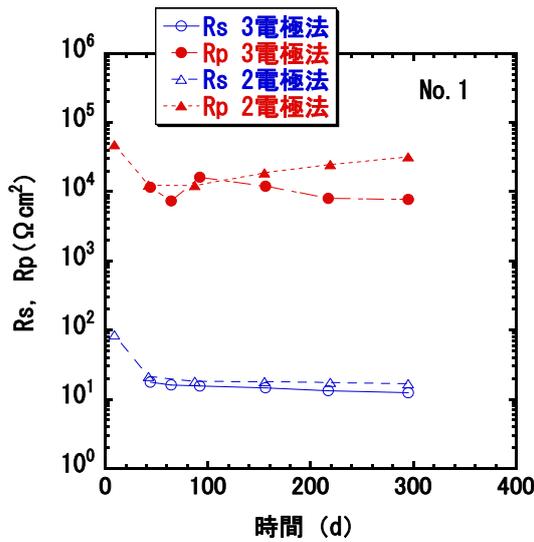


図2.2.2-4 交流インピーダンス測定結果の例

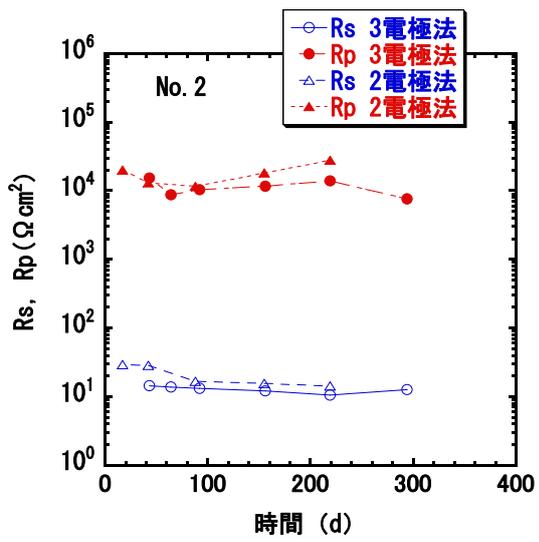


R_s :液抵抗
 R_p :分極抵抗
 CPE:定相要素

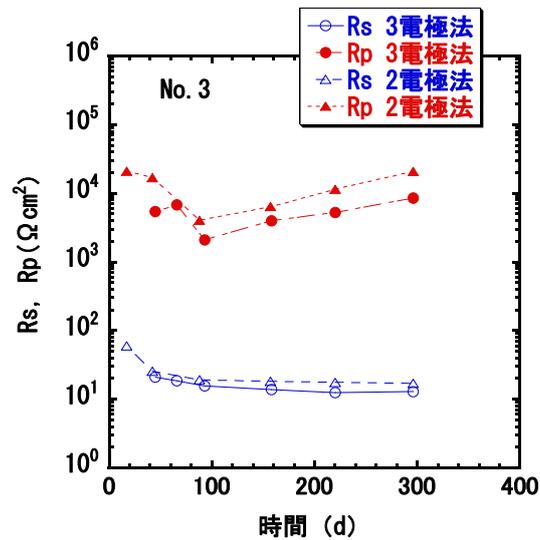
図2.2.2-5 炭素鋼電極界面の等価回路



(a) センサーNo. 1



(b) センサーNo. 2



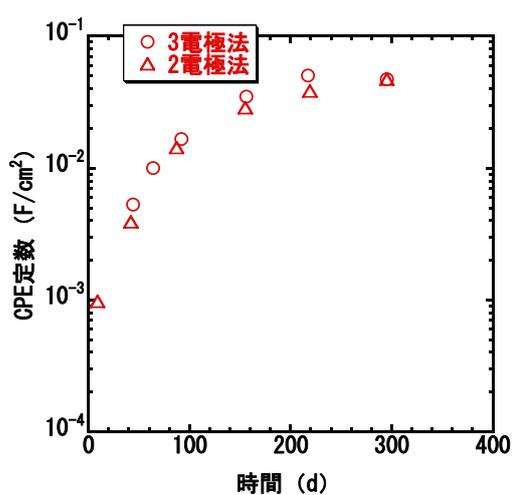
(c) センサーNo. 3

図2.2.2-6 R_s 、 R_p の経時変化

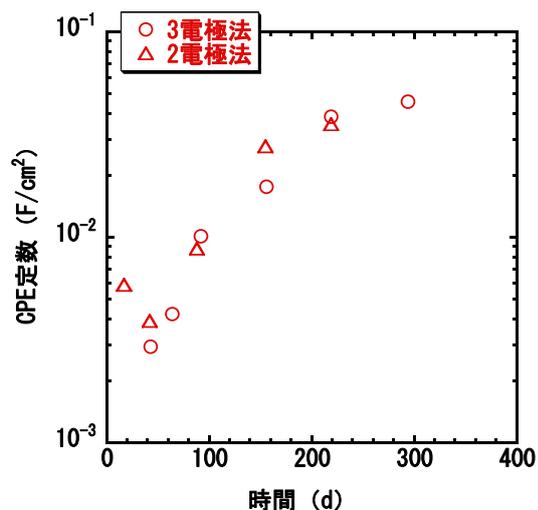
推定された R_s 、 R_p の経時変化を、図2.2.2-6に示す。計測は、3個のセンサー（No.1～No.3）に対して行った。また、2電極法と3電極法の比較を行った。 R_s はいずれも数10日～100日まで時間とともに低下し、その後、約 $10\ \Omega\ \text{cm}^2$ の値でほぼ一定の値となった。この傾向や値の大きさは、昨年度行ったセメント非共存系と概ね類似している。約70日までは、緩衝材への溶液の浸潤によってセンサー近傍の導電性が増加したものと考えられる。 R_s の変化の傾向は概ね E_{corr} の挙動と類似しており、いずれも約数10～100日後に一定になったことから、試験開始後約70日間で、センサー近傍が溶液で十分浸潤された状態になったと考えられる。 R_p はセンサーによってやや異なるものの、約80～100日までは低下傾向を示し、その後、徐々に増加傾向となった。 R_p は腐食速度の逆数に比例することから（福谷，1978）、約80～100日までは腐食速度が増加傾向にあることを意味している。これは、緩衝材が乾燥状態から浸潤状態に変化する過程で腐食が促進されていることに対応するものと考えられる。それ以降は時間とともに増加、あるいは一定となっており、溶液が十分浸潤した後は腐食速度が時間とともに低下することを示唆している。溶液が飽和した緩衝材中では、溶存酸素の炭素鋼へのフラックスが著しく小さくなるため（Honda et al., 1995）、カソード反応は酸素の還元反応から水の還元が支配的になると考えられる。また、緩衝材中における低酸素濃度下での腐食速度は、腐食生成物皮膜の形成により腐食速度が時間とともに低下することが確認されている（谷口ほか，2010）。 R_p の増加は、このような溶存酸素のフラックスの低下や皮膜形成による腐食速度の低下を反映していると考えられる。2電極法と3電極法では大きな違いはないことから、センサー内のいずれかの電極に不具合が生じた場合でも、複数の電極に不具合が生じないかぎり、いずれかの方法により計測の継続が可能と考えられる。

ここで、分極抵抗から腐食速度への換算係数を20mV（西方ほか，1994）と仮定すると、約300日後の R_p の値である約 $10\sim 20\ \text{k}\ \Omega\ \text{cm}^2$ は、約 $10\sim 20\ \mu\ \text{m}/\text{y}$ に相当する。これは、飽和した緩衝材中における長期的な腐食速度（谷口ほか，2010）よりは大きいものの、1年間の平均腐食速度と概ね整合しており、概ね妥当な腐食速度が計測されていると考えられる。

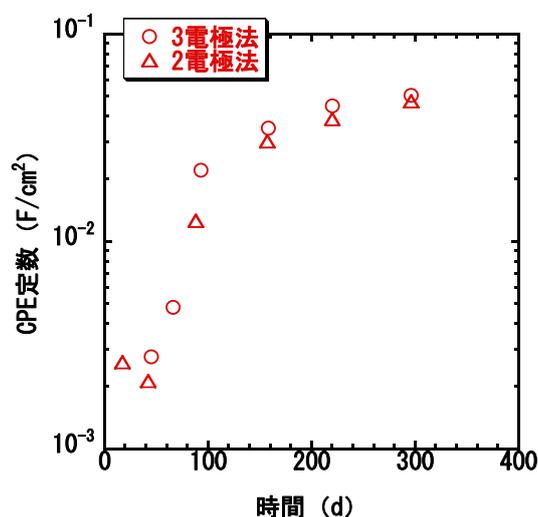
次に、 T の経時変化を、図2.2.2-7に示す。 T は前述のとおり $p=1$ のときに理想的なコンデンサーのふるまいとなり、単位面積当たりの静電容量として表される。 $p<1$ の場合は厳密には静電容量そのものではないが、便宜上、静電容量相当の値とみなして同様の単位にて記載した。 T はいずれも経時的に増加する傾向を示しており、2電極法と3電極法で、ほとんど違いは認められなかった。No.2及びNo.3では、開始後初期には低下する傾向が見られた。初期において一旦低下し、その後、徐々に増加する傾向は昨年度セメント材料非共存系での結果と同様である。また、得られた T の値は、溶液中での電気2重層容量（数 $10\ \mu\ \text{F}/\text{cm}^2$ ）（Nishikata et al., 1995）よりはるかに大きいことから、腐食生成物による擬似容量を反映し、値の増加は腐食生成物の成長に対応している可能性がある。



(a) センサーNo. 1



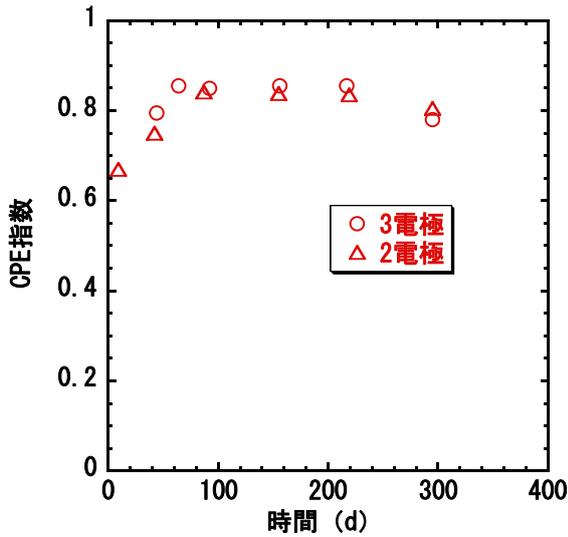
(b) センサーNo. 2



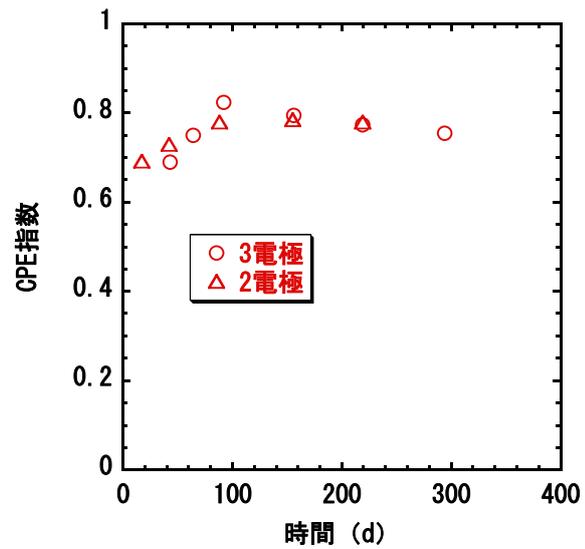
(c) センサーNo. 3

図2.2.2-7 Tの経時変化

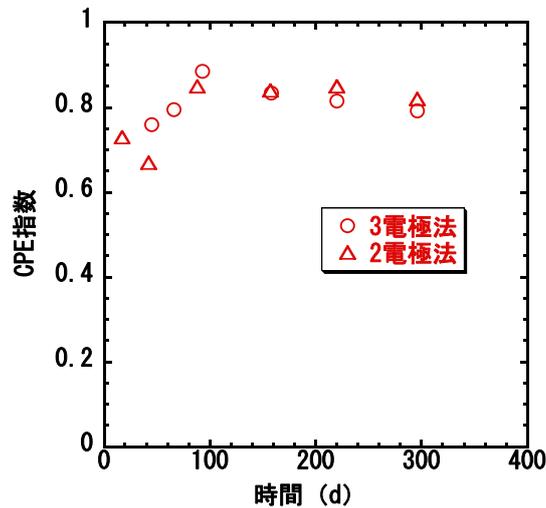
次に、 p の経時変化を図2.2.2-8に示す。試験開始から増加し、約50~100日以降は、ほぼ一定の0.8程度となった。 p ($0 < p \leq 1$)は前述のとおり、時定数分布の状態を表すパラメータであり、値が小さいほど分布の広がり大きい。この値の物理的意味は明確ではないが、時定数の分布状態は表面の不均一性に関連すると考えられている(西方、1993)。 p が増加したことは時定数の分布が小さくなったことを示しており、表面状態が均一化していったことが示唆される。 p が一定値に達するまでの期間(約50~100日)は、溶液抵抗(R_s)がほぼ一定となるまでの期間と整合しており、電極周囲が十分浸潤することにより電極表面の状態も均一化したものと推察される。



(a) センサーNo. 1



(b) センサーNo. 2



(c) センサーNo. 3

図2.2.2-8 pの経時変化

③ 幌延URLでの炭素鋼の腐食モニタリング

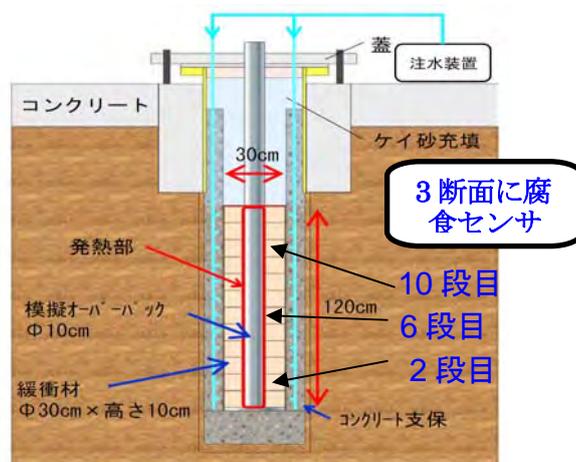
a. 試験方法

平成25年度に開発されたセンサーは、幌延URLにおける人工バリア性能確認試験とオーバーパック腐食試験に適用されている。このうち、オーバーパック腐食試験で設置された腐食センサーを用いて交流インピーダンス測定を行った。幌延URLにおけるオーバーパック腐食試験の設置状況を、図2.2.2-9aに示す。直径100mm、高さ1,200mmの模擬オーバーパック周囲に外径300mmのドーナツ状の緩衝材が設置されており、試験の行われる350m試験坑道から採取された地下水を、緩衝材外側から低アルカリ性コンクリート製支保工を通して注水する構造となっている。緩衝材にはあらかじめセンサーの形状寸法を考慮した切り欠き加工がなされており、この部分に腐食センサーが埋め込まれている。腐食センサーは図2.2.2-9bに示すように、緩衝材の上段、中段、下段にそれぞれ4個(真北の方角に対して45, 135,

225, 315°)、計12個 (No. 1~No. 12) 設置されている。センサー中の電極の構成、交流インピーダンス測定条件は②と同様である。ただし、炭素鋼電極については、オーバーパック腐食試験で用いられている模擬オーバーパックの製作過程で出る、余長部から切り出した試料を所定の形状・寸法に加工して用いた。材質はJIS G 3202 SFVC1 (C: 0.25, Si: 0.23, Mn: 0.95, P: 0.014, S: 0.004 mass%) である。



a. 緩衝材中への腐食センサー設置状況と試験孔への試験体の設置状況



b. オーバーパック腐食試験の概念図

図2.2.2-9 幌延URLにおけるオーバーパック腐食試験の設置状況

b. 試験結果

交流インピーダンス測定結果の代表例を、図2.2.2-10に示す。交流インピーダンスは、試験開始後約80日以降に計測が可能となった。②の室内試験結果と同様に、インピーダンス特性は容量成分と抵抗成分からなっており、2.2.2-1式に基づいて実測データにフィッティングを行い、各パラメータを推定した。

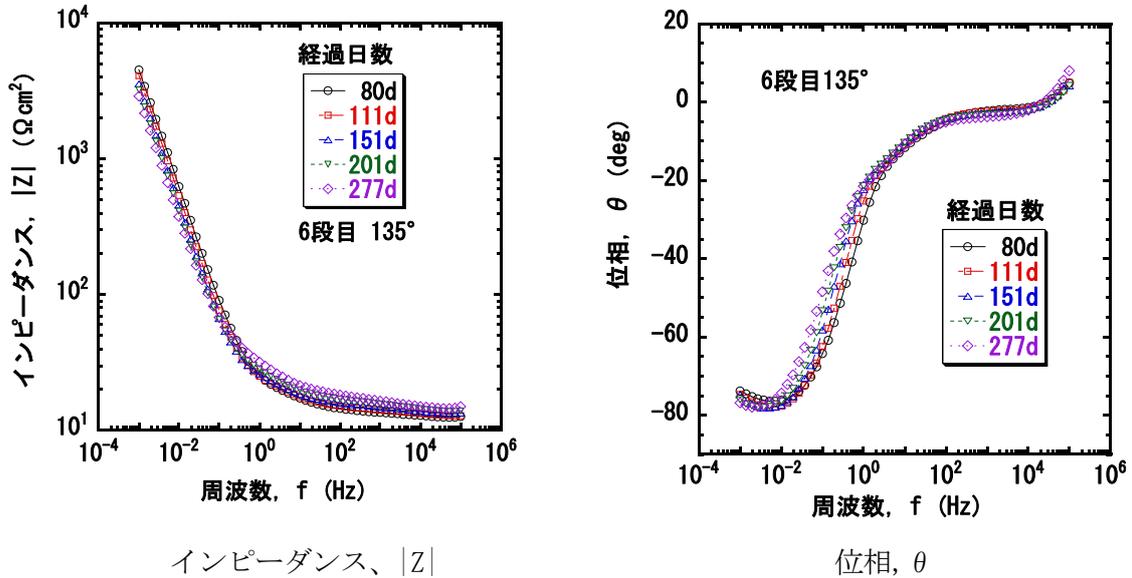


図2.2.2-10 交流インピーダンス測定結果の代表例 (Bode線図)

フィッティングにより得られた R_s と R_p の経時変化を、図2.2.2-11に示す。 R_s は $10 \sim 20 \Omega \text{ cm}^2$ の値を示しており、センサーの場所による違いや経時的な変化は小さいが、時間とともにわずかに上昇する傾向を示した。この理由は不明であるが、ヒータからの発熱による水分分布の変化や腐食生成物の堆積による影響等の可能性が考えられる。 R_p は、いずれのセンサーも、概ね時間とともに上昇する傾向を示した。 R_p の上昇は、腐食速度が経時的に低下する傾向となっていることを示唆している。

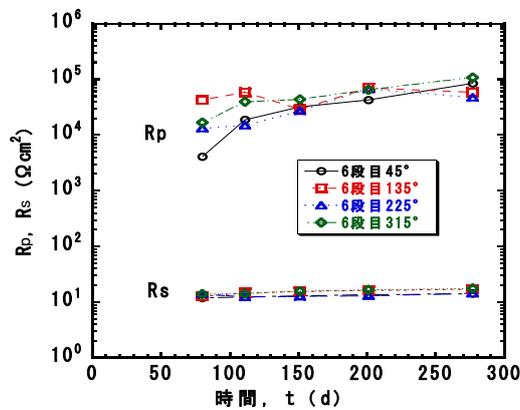


図2.2.2-11 液抵抗、分極抵抗の経時変化

ここで、分極抵抗から腐食速度への換算係数を20mVと仮定すると（西方ほか，1994）、80日後の値である約4～40k $\Omega \text{ cm}^2$ は約6～60 $\mu \text{ m/y}$ に相当し、約250日後の R_p の値である約50～110k $\Omega \text{ cm}^2$ は約2～5 $\mu \text{ m/y}$ に相当する。この腐食速度の大きさや経時的な低下の傾向は、既往の室内試験結果（日本原子力研究開発機構，2015a）と同様であり、センサー近傍の酸素濃度の低下や腐食生成物の皮膜形成によって腐食が抑制されている可能性がある。また、本センサーによって概ね妥当な腐食モニタリングがなされているものと考えられる。

次に、T と p の経時変化を図2.2.2-12、図2.2.2-13にそれぞれ示す。Tは前述のとおりpが1のときに理想的なコンデンサー容量と等価となり、pは表面の不均一状態に起因する時定数分布の状態を表すパラメータとされている（西方，1993）。図2.2.2-12より、Tは経時的に増加する傾向を示しており、その値も一般的な電気2重層容量（数10 $\mu \text{ F/cm}^2$ ）（Nishikata et al., 1995）よりもはるかに大きいことから、腐食生成物層による擬似容量を反映している可能性がある。pは図2.2.2-13よりほぼ一定となっており、表面の不均一状態の時間的な変化は小さいと解釈できる。

以上の結果より、本試験系において緩衝材中の炭素鋼表面は数ヶ月程度で水が浸潤して腐食環境や表面状態が一定になるとともに、腐食生成物層の成長とともに腐食進展が抑制される傾向になっていると推察される。

今後は、長期的なモニタリングを継続し、腐食挙動の経時変化を確認する。また、今回の測定条件では、最も周波数の低い1mHzにおいても大きな位相のずれが認められており、フィッティングによって分極抵抗 R_p を求める（位相のずれがほぼゼロになる周波数でのインピーダンスとして推定）ことが困難となっている。これは、前述の腐食生成物による擬似容量によって、低周波数においても位相差が生じていることに起因すると考えられる（西村ほか，2000）。したがって、より低周波数領域での計測を行うなど、より信頼性の高い分極抵抗の推定手法を検討することが必要である。また、重量法など他の手法で得られる腐食速度との比較などにより、本方法で得られる腐食速度の妥当性を確認する必要がある。

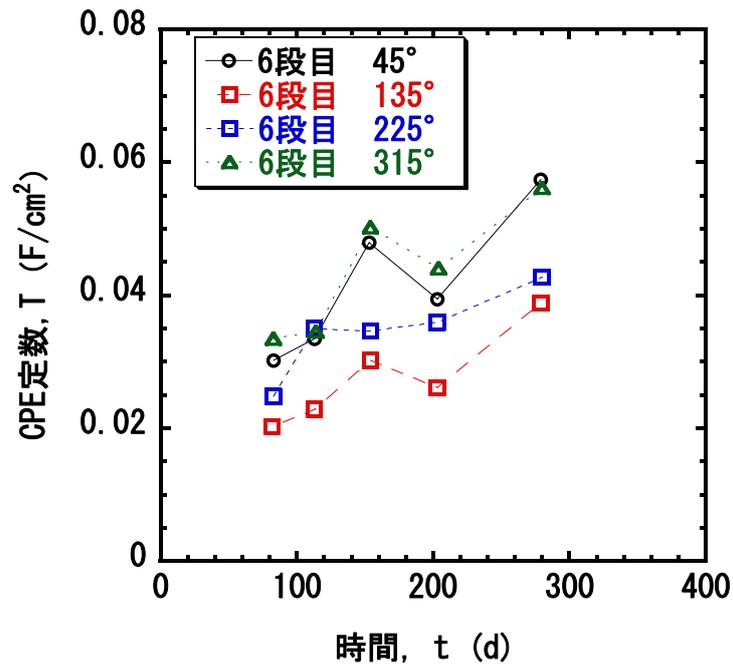


図2. 2. 2-12 CPE定数の経時変化

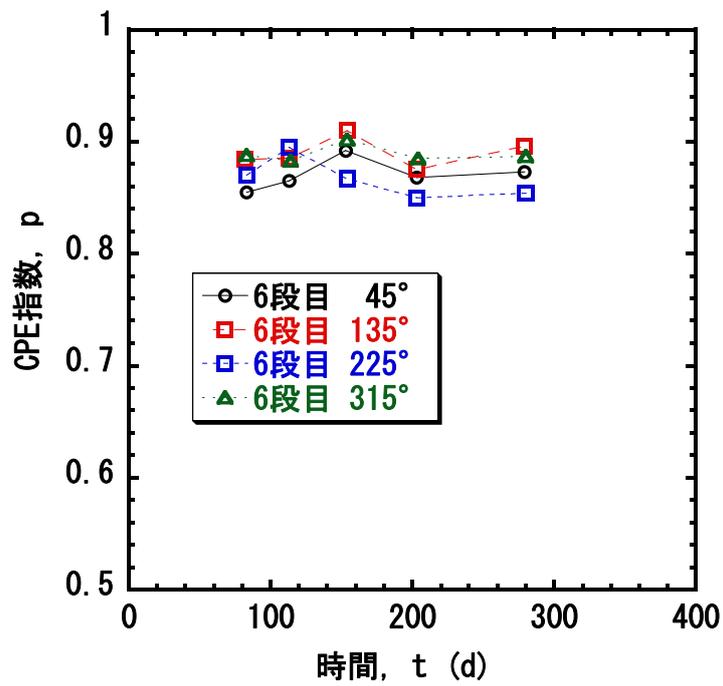


図2. 2. 2-13 CPE指数の経時変化

2) 従来の想定範囲を超える地下水水質での腐食挙動の検討

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

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

上記のうち、高塩化物環境、高硫酸塩環境及び高温水環境において低酸素濃度条件での腐食データが取得され、飽和濃度までの挙動が調べられた（日本原子力研究開発機構，2014a）。

また、平成 26 年度は、酸性水中での腐食挙動を把握するため、硫酸酸性溶液を用いて腐食試験を行い、緩衝材中では酸性溶液を用いても中性～弱アルカリ性で観察される腐食速度に比較して大きな違いは認められないことを確認した。平成 27 年度は、平成 26 年度に引き続き塩酸酸性中での腐食試験を行い、従来のデータとの比較を行った。

①試験方法の概要

図 2.2.2-14 に示すように、チタン製のカラム内に炭素鋼試験片と緩衝材（ケイ砂混合ベントナイト）を入れ、緩衝材が所定の密度になるように圧縮成形した。テフロン容器に各濃度に調整した溶液とチタンカラムを浸漬し、80℃における浸漬試験を実施した。

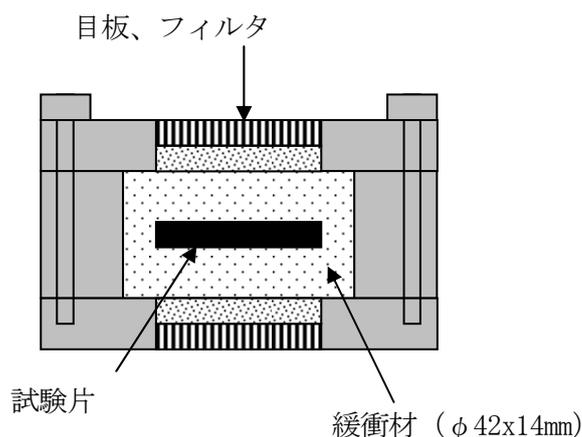


図 2.2.2-14 試験カラムの模式図

②試験片

試験片は、既往の条件に準じ、以下のとおりとした。

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

③試験条件

酸性環境での試験溶液には、塩酸酸性の地下水を想定し、0.56M NaCl溶液に塩酸を加えてpH濃度を調整した試験溶液(pH1, 2, 3)を用いた。試験条件を表2.2.2-1に示す。

④緩衝材

第2次取りまとめにおけるレファレンスの緩衝材（核燃料サイクル開発機構，1999a）に準じ、以下の仕様とした。

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

表2.2.2-1 浸漬試験条件

試験溶液	温度 (°C)	浸漬期間	評価項目
0.56M NaCl + HCl (pH1)	80	30日	腐食量
0.56M NaCl + HCl (pH1)	80	90日	腐食量
0.56M NaCl + HCl (pH2)	80	30日	腐食量
0.56M NaCl + HCl (pH2)	80	90日	腐食量
0.56M NaCl + HCl (pH3)	80	30日	腐食量
0.56M NaCl + HCl (pH3)	80	90日	腐食量

⑤試験手順

既報の方法に準じ、試験片を、緩衝材とともに図2.2.2-14に示すチタン製のカラムに充填し、これを脱気した試験溶液とともに気密容器に入れた。この容器を恒温槽に所定の期間静置した。試験期間は、30日間及び90日間とした。腐食量評価の試験では、浸漬試験後の試験片（3枚）を脱錆処理した後に重量測定し、重量減少量から平均腐食量及び平均腐食速度を算出した。

試験後の試験片1枚について、X線回折（XRD）及び顕微ラマン分光により腐食生成物を分析した。いずれの分析も、雰囲気制御セルを用いて窒素ガス雰囲気を維持した状態で行った。

⑥酸性環境での浸漬試験結果

a. 試験片の外観

腐食試験後の試験片の外観を、図2.2.2-15に示す。試験片表面には、灰色～黒色の皮膜が形成していた。外観で一部茶褐色状に見えるものは、取り出し～撮影時に一部大気中で酸化したものと考えられる。また、脱スケール後の外観から、表面はほぼ均一な全面腐食であり、孔食状の腐食や腐食の局在化は認められなかった。

b. 腐食量測定結果

腐食試験前後の試験片の重量減量から算出した平均腐食量と平均腐食速度を、表2.2.2-2に示す。平均腐食速度は、平均腐食量を試験期間で除した値である。pHと平均腐食速度の関係を、図2.2.2-16に示す。図中には、平成26年度得られた硫酸酸性環境での値と人工海水での値（谷口ほか，2012）、NaCl(0.56M)水溶液での値（日本原子力研究開発機構，2014a）も示した。硫酸酸性環境中での腐食速度に比較してやや小さな値となったが、pHに対する依存性はほぼ同様であり、浸漬30日ではpH1の条件でやや大きな値となったものの、概ねNaCl水溶液や人工海水で観察される値の範囲内であり、pHによる腐食速度への影響は顕著ではないことがわかる。酸性溶液において、炭素鋼は激しく腐食することが知られており、その腐食速度は数mm/y以上と（腐食防食協会，1993）、実用上の耐食性はほとんどない。一方、今回の試験で観察された腐食速度はこれよりもはるかに小さく、中性～弱アルカリ性溶液を用いた場合と概ね同程度である。この理由のひとつとして、緩衝材の共存が考えられる。緩衝材の化学的緩衝作用により、炭素鋼と接触する空隙水のpHは、中性側に緩衝されると考えられる（小田ほか，1999）。そこで、緩衝材空隙水のpHをpH試験紙により測定した。測定は、谷口ほか（2001）に準じて行った。その結果を表2.2.2-3に示す。pH1の条件については測定下限値の4.5以下であり、値を得ることが出来なかったが、pH2の条件では空隙水のpHが5.5-6.0へと明らかに上昇していた。pH3の条件では試験溶液のpHが試験後に大きく変化しており、試験期間中、酸性条件を維持できていない可能性があるものの、空隙水のpHは6.4と測定され、pH2の条件での結果と近い値となった。人工海水中における空隙水pHの実測値は約6～7の範囲であり（谷口ほか，2003a）、pH2及び3の条件と概ね近い。このように、緩衝材によるpH緩衝作用によって、希硫酸溶液中よりもはるかに小さな腐食速度が得られ、かつpH依存性も小さくなった可能性が考えられる。pH1の条件については、空隙水のpHは4.5以下と、他の条件に比較して低い値であるが、柴田ら（柴田ほか，2013）によると、pH>3.5以上であれば表面に保護性の皮膜が形成され、腐食速度は経時的に低下するとされている。pH1の条件でも試験片の外観観察では表面に灰色～黒色の密着した皮膜が形成されていたことから、初期には腐食速度が比較的大きいものの、皮膜の保護作用によって、90日後には他の条件や人工海水中と同等程度まで腐食が抑制された可能性がある。

以上より、一般的な地下水よりも低いpHの酸性地下水が到達した場合であっても、オーバーパックが緩衝材に覆われた状態で緩衝材の化学的緩衝作用が期待できる期間は、顕著な腐食促進は生じないと考えられる。

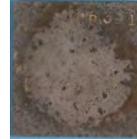
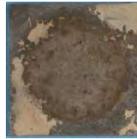
試験溶液	温度 (°C)	期日 (日)	試験片の外観(上段：取り出し後, 下段：脱スケール後)		
0.56M NaCl + HCl (pH1)	80	30			
					
0.56M NaCl + HCl (pH1)	80	90			
					
0.56M NaCl + HCl (pH2)	80	30			
					
0.56M NaCl + HCl (pH2)	80	90			
					
0.56M NaCl + HCl (pH3)	80	30			
					
0.56M NaCl + HCl (pH3)	80	90			
					

図2. 2. 2-15 腐食試験後の試験片の外観

表2.2.2-2 腐食試験前後の試験片の重量減量から算出した腐食量及び腐食速度

試験溶液	温度 (°C)	試験期間 (days)	腐食量 (mm)	腐食速度 (mm y ⁻¹)
0.56M NaCl + HCl (pH1)	80	30	5.09E-03	6.20E-02
	80	30	4.35E-03	5.29E-02
	80	30	5.95E-03	7.24E-02
	80	90	1.51E-02	6.13E-02
	80	90	8.98E-03	3.64E-02
	80	90	1.39E-02	5.62E-02
0.56M NaCl + HCl (pH2)	80	30	3.23E-03	3.93E-02
	80	30	3.57E-03	4.35E-02
	80	30	3.36E-03	4.08E-02
	80	90	6.22E-03	2.52E-02
	80	90	6.40E-03	2.59E-02
	80	90	6.02E-03	2.44E-02
0.56M NaCl + HCl (pH3)	80	30	2.76E-03	3.36E-02
	80	30	3.10E-03	3.77E-02
	80	30	2.86E-03	3.49E-02
	80	90	5.89E-03	2.39E-02
	80	90	5.63E-03	2.28E-02
	80	90	5.70E-03	2.31E-02

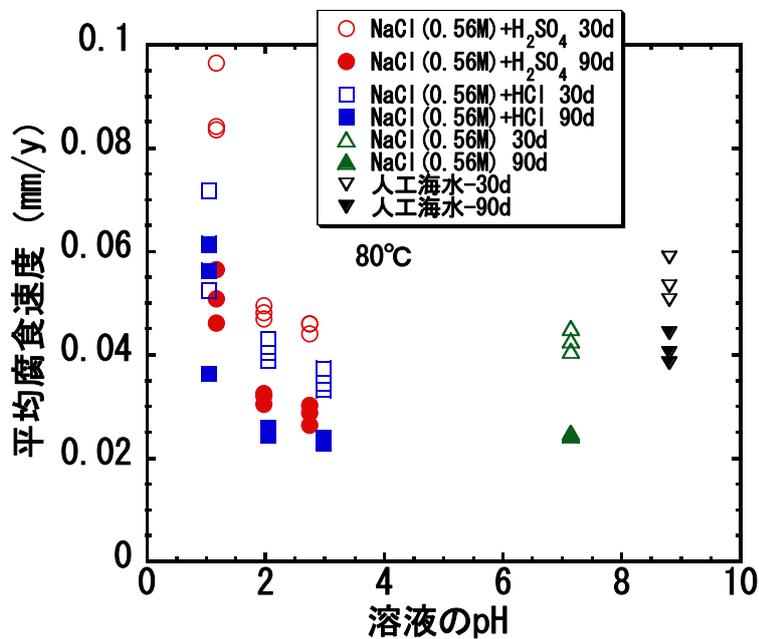


図 2.2.2-16 緩衝材中における炭素鋼の腐食速度に及ぼす試験溶液 pH の影響

表 2.2.2-3 試験溶液及び緩衝材の pH 濃度測定結果(90 日後)

試験溶液	試験前pH (試験溶液)	試験後pH (試験溶液)	試験後pH (緩衝材間隙水)
0.56M NaCl + HCl (pH1)	1.05 (22.4℃)	1.59-1.64 (21.9℃)	4.5以下
0.56M NaCl + HCl (pH2)	2.05 (22.4℃)	3.54-5.48 (24.5℃)	5.5-6.0
0.56M NaCl + HCl (pH3)	2.98 (22.4℃)	8.92-8.94 (24.2℃)	6.0-6.5

(2) 光学式 pH 計の開発

光学式pH計は、測定対象の溶液と接触したpH指示薬の吸光度から比色法に基づいて間接的にpHを測定する機器である。pH指示薬は、その酸解離平衡において、水素イオン(H⁺)が結びついた酸型(以下、HXと表す)と、乖離している塩基型(以下、Xと表す)の形態をとり、その割合はpHにより変化する。HXとXの最大吸収波長は異なり、どちらか一方は可視光域にあるため、pHによってHXとXの割合が変化すると、可視光の吸収スペクトルが変化して色の変化が生じる。最大吸収波長の吸光度を測定することにより、予め取得しておいた吸光度とpHとの関係に基づきpHを求めることができる。

pH指示薬を担持させた発色体としては、吸水性を有するシートにpH指示薬を含浸させたものが一般的に市販されているが、地層処分環境条件下における緩衝材の間隙水pHの長期計測に対応するためには、より耐久性の高い発色体の開発が必要となる。このため、平成25年度は、これまでに原子力機構が開発した合成吸着剤にpH指示薬を担持させた発色材(日本原子力研究開発機構, 2013b)を含めた候補材料の比較を通じて、pH感受性シリカゲル薄膜を選定した(日本原子力研究開発機構, 2014a)。平成26年度は、pH感受性シリカゲル薄膜を発色体とした光学式pH計を対象に、吸光度とpHの関係を表す検量線を取得した(日本原子力研究開発機構, 2015a)。平成27年度は、得られた検量線の温度依存性について理論的な背景に基づき、温度変化にともなう検量線の補正方法について検討した。

1) 光学式pH計の概要

pH感受性を持つ発色体は、ゾルゲル法により作製したpH指示薬を含有するシリカゲル薄膜である。ゾルゲル法とは、アルコキシド(アルコール化物)の加水分解と縮合を利用した薄膜の生成方法を指す。アルコキシドとして、2種類のアルコキシシラン(主要な原子団としてSi(OR)_nを含む化合物。Rはアルキル基を示す)を用いた。シリカゲル薄膜の作製手順は、Kowadaら(Kowada et al., 2005)に準じた。pH指示薬には、呈色性が良好なブロムクレゾールグリーン(酸乖離定数pK_a=4.7、変色域:pH=3.8~5.4)を用いた。この発色体を、pHが4、7及び9のpH緩衝液に浸漬させた場合の呈色状況を、図2.2.2-17に示す。その結果、各pHの緩衝液に応じて、黄色、黄緑色及び青色を呈することを確認した。

本事業で検討しているpH感受性シリカゲル薄膜を発色体とした光学式pHのプロープの構造を、図2.2.2-18に示す。測定対象の溶液は、メンブレンフィルターを介してpH指示薬を含有するシリカゲル薄膜と接触し呈色反応を示す。

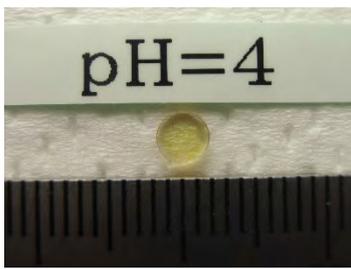
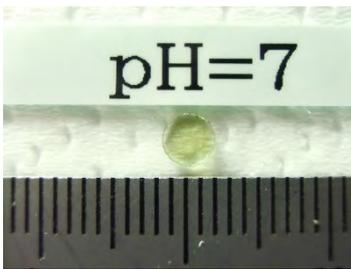
pH4の溶液に対して	pH7の溶液に対して	pH9の溶液に対して
		
やや赤みを帯びた黄を呈する	黄緑を呈する	青を呈する

図2.2.2-17 pH感受性シリカゲル薄膜の呈色状況

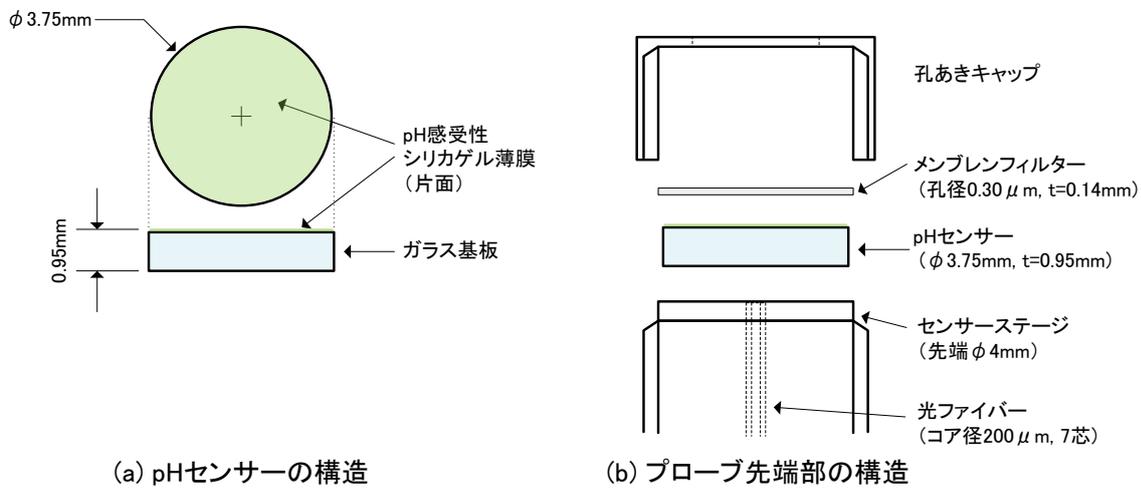


図2.2.2-18 pH感受性薄膜を発色体とした光学式pH計プローブの構造

2) 検量線の温度依存性

pH指示薬の酸塩基平衡を考える。pH指示薬の酸型をHX、塩基型をX⁻と表し、それぞれの濃度を[HX]、[X⁻]とすると、溶液のpHとの間に次のHenderson-Hasselbalch式が成り立つ。

$$\text{pH} = \text{pK}_a + \log \frac{[\text{X}^-]}{[\text{HX}]} \quad (2.2.2-3)$$

ここに、K_aはpH指示薬の酸解離定数で、pK_a = -log₁₀ K_aである。[HX] + [X⁻] = const = c₀とし、c = [X⁻]と置くと、次式のようなになる。

$$\text{pH} = \text{pK}_a + \log \frac{c}{c_0 - c} \quad (2.2.2-4)$$

次に、pH指示薬の塩基型による光の吸光について考える。物質による光の吸収は、Beer-Lambertの法則に従い、次式で表される。

$$A = \epsilon c L \quad (2.2.2-5)$$

ここに、Aは吸光度、εとcはそれぞれ物質のモル吸光係数と濃度、Lは光路長である。c → c₀のとき

$A \rightarrow A_{\max}$ が成り立つと仮定すると、測定値である吸光度 A と pH との関係は次式で表される。

$$\text{pH} = \text{pK}_a + \log\{A/(A_{\max} - A)\} \quad (2.2.2-6)$$

pK_a 、 A_{\max} は、実用的には校正により得られるパラメータである。式(2.2.2-6)は、媒体中に一様に分散した希薄濃度の pH 指示薬について成り立つ式であり、pH 指示薬の酸（プロトン）解離や塩基型による吸光に媒体が影響を及ぼさないことが前提となる。一方、シリカゲルは親水性のシラノール基を有するため、プロトンを吸脱着することにより、吸光度に影響を及ぼす可能性が考えられる。そこで、校正により得られる補正係数 n を導入した次式を用いることとする。

$$\text{pH} = \text{pK}_a + n \log\{A/(A_{\max} - A)\} \quad (2.2.2-7)$$

酸解離定数 K_a と絶対温度 T との間には、定圧下において次式の van' t Hoff 式の関係が成り立つ。

$$d \ln K_a / dT = \Delta_r H^\circ / RT^2 \quad (2.2.2-8)$$

ここに、 $\Delta_r H^\circ$ は pH 指示薬の酸解離反応の標準エンタルピー変化、 R は気体定数である。式(2.2.2-8)を積分することより、温度 T_1 と T_2 との間の pK_a の変化は、次式で求められる。

$$\Delta \text{pK}_a = \Delta_r H^\circ / 2.303R (1/T_2 - 1/T_1) \quad (2.2.2-9)$$

すなわち、 pK_a と $1/T$ は比例関係にあり、両者のプロット（van' t Hoff プロット）が得られれば、傾きである $\Delta_r H^\circ / 2.303R$ から式(2.2.2-9)を用いて任意の温度における pK_a の補正值が求められる。仮に、式(2.2.2-7)のパラメータである A_{\max} と n が温度の影響を受けなければ、 pK_a の補正のみで任意の温度における検量線の補正が可能である。

この成立性を確認するため、光学式 pH 計の吸光度と溶液の pH の関係について、室温（23℃）と 40℃ の 2 つの温度に対して取得した。そして、得られたプロットについて、式(2.2.2-7)を用いて pK_a 、 A_{\max} 及び n をパラメータとして最小二乗近似することにより、両温度における検量線を取得した。その結果、両温度では pK_a 、 A_{\max} 及び n の全てに差異があり、上述した pK_a のみによる補正が成立しない可能性が示唆された（図 2.2.2-19）。なお、温度の影響が pK_a のみに現れると仮定したときの、40℃ の検量線を図中の点線で示す。 ΔpK_a は校正に用いた各温度の緩衝液の pH と室温における検量線に基づく pH との差異の平均として求めている。

A_{\max} と n が温度の影響を受ける原因として、前者については薄膜中の pH 指示薬濃度の変化が、後者についてはシリカゲル薄膜へのプロトン吸脱着の変化が考えられる。室温から 40℃ への変化で、 A_{\max} は小さくなることから、温度上昇により pH 指示薬が溶脱した可能性が考えられる。また、 n も小さくなるが、これは薄膜へのプロトンの吸脱着速度が温度上昇により増加し、pH 指示薬のプロトン解離に影響を及ぼしにくくなったと考えれば、定性的には説明可能である。

A_{\max} と n に対する温度の影響の表れ方は、個々のシリカゲル薄膜の性状によって異なると考えられ、理論的な方法で定量化することは不可能と考えられる。このようなことから、温度依存性を考慮した精度の高い検量線を取得するためには、pH 計毎に温度をパラメータとした測定結果に基づいて設定することが望ましい。なお、室温で得られた検量線を 40℃ にも適用し、実際の pH に対する pH 測定値の誤差を取ってみると、pH が 6~7 の範囲では -0.1 程度、pH が 7 以上になると誤差が拡大するものの、pH=8.5 までであれば -0.5 程度である。

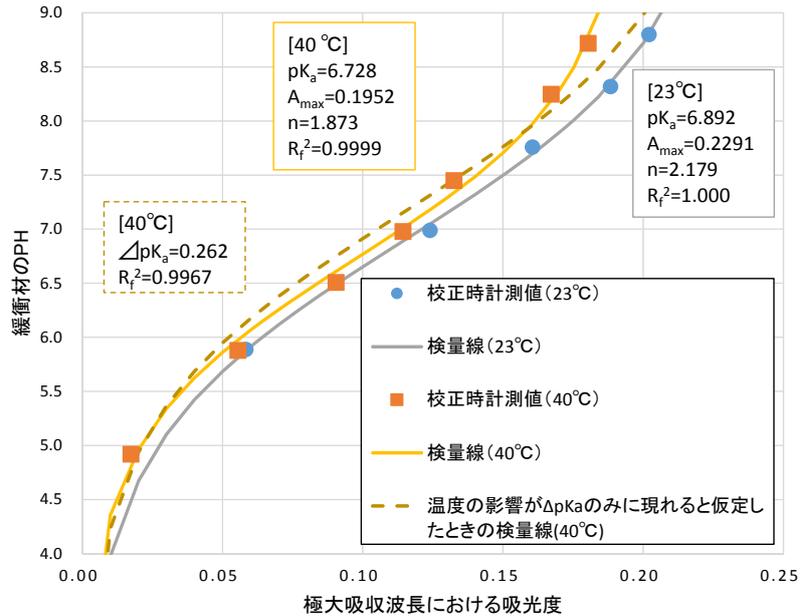


図2.2.2-19 pH感受性薄膜を発色体とした光学式pH計の検量線の取得

(3) 鉄-ベントナイトの相互作用評価に関する調査

ガラス固化体、オーバーパック、緩衝材からなる人工バリア構成においては、オーバーパック材として用いられる炭素鋼と緩衝材である圧縮ベントナイトが直接接触し、鉄との相互作用によりベントナイトが他の鉱物へ変質する可能性が指摘されている（例えば、Lantenois et al., 2005）。ベントナイトの変質は、放射性核種の収着拡散特性やベントナイトの持つ自己シール性等の安全機能を低下させる可能性がある重要な現象の一つである。また、人工バリアの定置性や品質保証の観点から、廃棄体とベントナイトを炭素鋼製のセルに収めた一体型モジュールタイプの人工バリア概念を用いた場合（例えば、NUMO, 2004）、より多くの炭素鋼が用いられることとなるため、鉄との相互作用によるベントナイトの変質挙動評価がより重要な課題となると考えられる。

鉄との相互作用によるベントナイトの変質挙動については、温度、酸化還元条件、pH、結晶構造中のFe(III)含有量など、ベントナイトの主要構成鉱物であるスメクタイトの変質が顕著となる条件が明らかにされてきている（例えば、日本原子力研究開発機構, 2008a）。鉄との相互作用により生成するモンモリロナイトの変質鉱物種についても同定が進んでおり、バーチェリンや緑泥石等の鉱物が生成することが確認されている（例えば、陶山ほか, 2006）。また、これらの実験的研究により得られた知見等に基づいて、圧縮ベントナイトの長期的な変質挙動の定量的評価に向けたモデルが提案されてきている（例えば、日本原子力研究開発機構, 2013b）。変質挙動評価モデルの信頼性向上のためには、特に圧縮状態におけるベントナイトの変質メカニズムの理解を深め、モデルにおいて考慮する変質プロセスをより精緻にするとともに、モデルに必要なパラメータやモデルに組み込む現象の不確実性評価等を行って、モデル解析結果の不確実性を評価しておくことが必要である。また、原位置試験等におけるベントナイト変質の調査結果とモデル解析結果を比較検討し、評価モデルの信頼性を検証していく必要がある。

このような状況を踏まえ、本調査では、変質挙動理解に必要な基礎的試験や文献調査による既往の

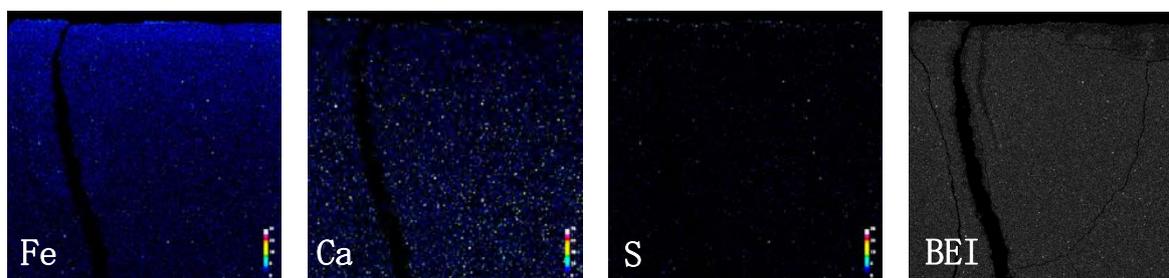
知見の整理により、評価モデルに取り込む必要のある現象の抽出や、モデル評価に必要なパラメータ値の整備を進めるとともに、原位置試験等の調査結果よりモデルの検証を実施し、信頼性の高い評価モデルを確立することを目的とする。平成26年度までに、原位置において行われた長期変質試験後試料の調査を実施し、鉄とベントナイトの接触界面近傍においてモンモリロナイトの変質鉱物であるサポナイト、緑泥石、バーチェリンが微量検出された。また、鉄製ヒーターによる加熱に起因する塩濃縮現象である接触界面での硫酸カルシウムの析出が確認された。さらに、ベントナイト中に炭素鋼試験片を埋め込んだカラム変質室内試験試料の分析により、ベントナイトに含まれるモンモリロナイト以外の鉱物の変質もベントナイト間隙水組成に影響を及ぼすことを示唆する結果が得られた（日本原子力研究開発機構，2015a）。これまでの分析では、原位置長期変質試験試料の界面の状態が不均質であったものの、生成している変質鉱物や接触界面での元素分布の詳細な分析を行ったために分析点数に限りがあり、試料の代表性に課題があった。このことから、平成27年度の調査では、長期変質試験試料からさらに複数の箇所を採取して変質鉱物の分析を行い、原位置試験の条件において生成している変質鉱物等について検討を行った。

1) 原位置での長期変質試験試料に対する調査

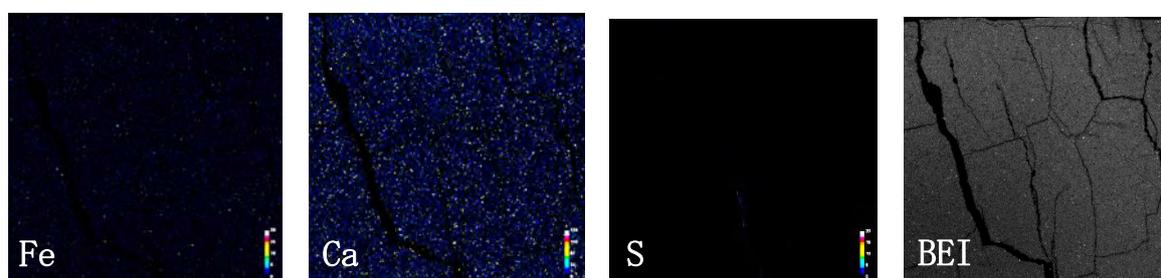
本調査の対象とした試料は、原子力機構が参画しているSKB（スウェーデン核燃料廃棄物管理会社）による国際共同研究ABM（Alternative Buffer Material）プロジェクト（Eng et al., 2007）を通じて得られた試料である。ABMプロジェクトにおいては、スウェーデンのÄspo HRL（Hard Rock Laboratory）の450m坑道において、原位置での鉄との相互作用によるベントナイト変質試験が行われている。本試験では、直径30cm、長さ約3mの鉛直下向きのボーリング孔へ乾燥密度1.7Mg/m³から2.2Mg/m³で円筒状に圧縮成型したベントナイトブロックを定置し、中心部に鉄製のヒーターを設置して130°C程度に加熱する。平成27年度の分析では、平成25、26年度と同様に、Package2と呼ばれる約5年加熱された試料と、Package1と呼ばれる約2年半加熱された試料を対象とした。Package1とPackage2の試料は、加熱開始時期についても違いがあり、Package2はベントナイトを含水飽和させた後に加熱が開始されているのに対し、Package1は含水開始と同時に加熱が開始されている。原位置試験試料は、鉄製ヒーターとベントナイトの界面の状態に不均質性がみられたため、これまでに分析を実施した箇所とは離れた位置から2試料ずつ採取し、鉄製ヒーターとの界面近傍で生成しているモンモリロナイト変質鉱物の同定、界面付近での塩濃縮挙動の観察等を行った。これらの結果に基づき、平成26年度までの分析結果を含めて変質鉱物の種類や塩濃縮挙動等を検討した。

図2.2.2-20に、平成27年度実施したPackage1及びPackage2試料のFe, Ca, SのEPMAマッピング分析結果及びマッピング領域の反射電子像（BEI）を示す。試料は、鉄製ヒーターとの接触界面付近の腐食生成物を含むベントナイト試料であり、視野は10mm×10mmである。これまでの分析を実施した試料と同様に、特にPackage1の試料においては、鉄製ヒーターとの接触面（マッピング画像上部）にCaの濃集が認められ、この部分にはSも濃集しており、硫酸カルシウムが生成していることが示唆される。また、鉄製ヒーターとの接触界面のCaが濃集している部分近傍のベントナイト内部では、Caの濃度の低下が認められる。ベントナイト中に点在するCa濃度が高い部分は、ベントナイト（クニミネ工業製クニゲル®V1）に随伴鉱物として含まれているカルサイト粒子であり、このカルサイト粒子が鉄製ヒーターとの接触界面近傍で溶解したことが示唆される。また、Feについては、接触界面近傍の1mm程度に濃度が

高い部分があり、ベントナイト内部に向かって濃度が減少していることがわかる。これに対し、Package2の試料においては、鉄製ヒーターとの接触界面においてCaの濃集がPackage1ほど顕著ではなく、Feの濃度上昇もそれほど見られていない。また、カルサイト粒子の溶解と見られるベントナイト内部でのCa濃度の低下も見られていない。この傾向は、平成26年度までの分析結果と一致しており、Package1及びPackage2それぞれの一般的な傾向であると考えられる。



(a) Package1試料のEPMAマッピング結果



(b) Package2試料のEPMAマッピング結果

図2.2.2-20 鉄製ヒーターとの接触界面のベントナイト試料のEPMAマッピング分析結果 (Fe, Ca, S) 及び反射電子像 (BEI) (10mm×10mm)

図2.2.2-21にPackage1試料のEPMA反射電子像に示す。平成27年度の調査においては、これまでに確認されていなかった現象として、Ca, Mgを含む炭酸塩であるドロマイト粒子の周囲に、Fe炭酸塩鉱物であるシデライトの化学組成を持つ鉱物が確認された。このようなシデライトと推定される鉱物の産状は、Package1試料において頻繁に観察された。この析出形態は、鉄製ヒーターの腐食により生成した Fe^{2+} が、鉄腐食生成物として析出する一形態を示しているものと考えられ、ベントナイト間隙水中の Fe^{2+} 濃度を制御する鉄腐食生成物の種類や、鉄腐食生成物の生成速度等に影響を及ぼす現象であると推測されることから、今後、詳細に検討を行う必要があると考えられる。また、Package1より採取した試料のFESEM-EDS分析結果を図2.2.2-22に示す。観察された鉱物は、Feが高濃度 (2 atoms per formula unit 程度) で含まれており、モンモリロナイトではなくサポナイトと推定される。平成26年度までの分析においては、Package2より採取した試料においてサポナイトと推定される鉱物が検出されていたものの、Package1においてはこれまでに確認されていなかった。平成27年度の分析により、Package1においてもサポナイトが生成していることが示唆された。

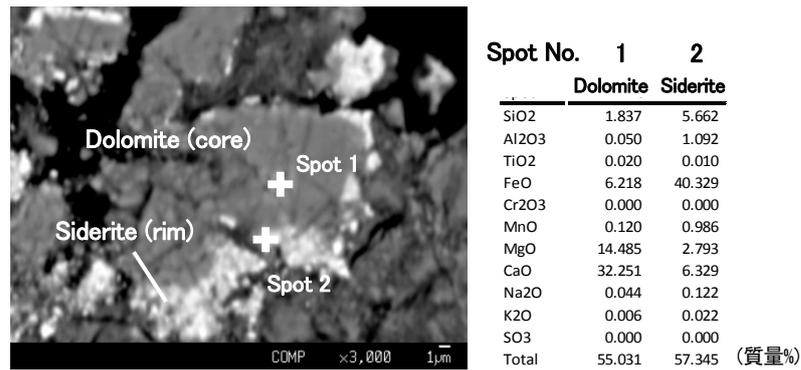


図2. 2. 2-21 Package1試料のEPMA反射電子像と化学組成分析結果

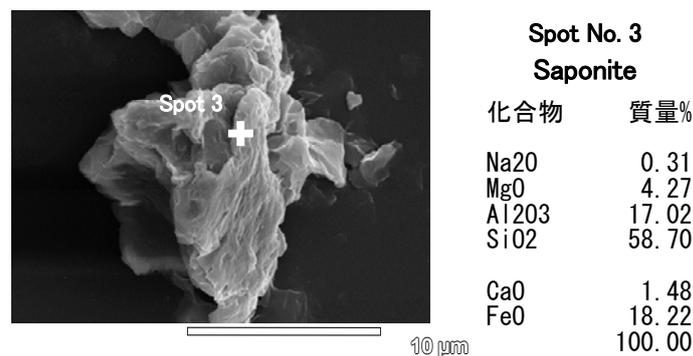


図2. 2. 2-22 Package1試料のFESEM-EDS分析結果

国際共同研究ABMプロジェクトにより得られた原位置での長期変質試験試料について、これまでの分析により得られたベントナイトの変質の性状についてまとめると、以下のようになる。

- ・鉄製ヒーターとの相互作用に伴うモンモリロナイトの変質により生成した鉱物は、サポナイト、緑泥石、バーチェリンと確認された。これらの鉱物の生成量はいずれも微量であり、Package1, Package2のどちらの試料においても検出された。
- ・鉄製ヒーターとの接触界面において、鉄製ヒーターの加熱に伴い発生した塩濃縮挙動が原因とみられる硫酸カルシウムの析出が確認された。また、接触面近傍のベントナイト中では、ベントナイトに随伴鉱物として存在しているカルサイトが溶解していることが確認された。これらの現象は、Package1においてより顕著であった。

検出されたモンモリロナイトの変質鉱物は、サポナイト、緑泥石、バーチェリンであった。これらの鉱物は、Fe共存下で生成しうる熱力学的に安定な鉱物種であるが、例えばFe-サポナイトが安定である条件は、間隙水中のFe及びSiの活量が高い場合であるのに対し、バーチェリンの生成はSiの活量が低い条件が好ましい（例えば、日本原子力研究開発機構, 2013b）。そのため、変質環境が同じであれば、これらの鉱物が同時に生成する可能性は低いと考えられる。このような結果は、鉄製ヒーターと圧縮ベントナイトの接触界面での変質環境に違いがあったことに起因するものと考えられる。目視による観察においても、鉄製ヒーターとの接触面において硫酸カルシウムの析出状況に違いがあり、鉄

製ヒーターとの接触状態が位置により異なっていたものと推測される。そのため、本調査において分析した原位置長期変質試験試料では、変質により生成する可能性のある鉱物が検出されたものの、それ以上の検討を行うことは難しいと考えられた。今後、試験系や試験溶液の条件等を調整することにより、間隙水組成等のベントナイトの変質環境をより制御した条件での室内試験等を実施し、熱力学的に予測される変質鉱物の生成挙動を検討していくことが必要である。

観察された塩濃縮挙動については、Package1とPackage2の試料間で大きな違いが見られた。Package1とPackage2の試料は、加熱開始時期について違いがあり、Package2はベントナイトを含水飽和させた後に加熱が開始されているのに対し、Package1は含水開始と同時に加熱が開始されている。これまでの塩濃縮挙動に関する研究においては、ヒーター近傍の含水比が低い場合には塩濃縮が発生するのに対し、ベントナイトの含水比が高い状態では、ほとんど塩濃縮が起らないことが報告されている（日本原子力研究開発機構, 2013c）。このことから、Package1の試料については、Package2に比べて含水比が低く、塩濃縮挙動が顕著であったことが示唆される。すなわち、Package2試料においては、常温でベントナイトが含水飽和した後に加熱が開始されているため、ベントナイトの含水比が高いまま維持されたのに対し、Package1試料については、含水飽和前にヒーター近傍の温度が130°Cに制御されているため、地下水の浸入による含水飽和が妨げられたことが原因であると考えられる。実際の処分環境においては、ガラス固化体の温度低下に伴い硫酸カルシウムの溶解度が上昇し、また、含水比が上昇して硫酸カルシウムがベントナイト中を拡散して散逸すると予想されることから、本調査において観察された塩濃縮挙動が緩衝材性能へ及ぼす影響は少ないと考えられる。また、ベントナイトに随伴鉱物として含まれているカルサイト粒子の溶解が観察されたが、カルサイトは安全評価においては可溶性塩として溶解することが元々想定されていることから、この現象についても緩衝材性能へ及ぼす影響は少ないと考えられる。

今後の課題として、モンモリロナイト変質挙動については、上で述べた熱力学的に予測される変質鉱物の生成挙動の検討に加えて、モンモリロナイト変質量の定量があげられる。本調査で確認されたモンモリロナイト変質鉱物は生成量が微量であり、このような微量のモンモリロナイト変質量を定量する手法を今後検討していく必要がある。また、炭素鋼の腐食速度やモンモリロナイトの変質挙動に影響を及ぼす溶存Fe濃度を決定する上では、鉄腐食生成物の種類及び生成速度の評価が課題である。平成27年度の調査では、シデライトのドロマイト粒子周辺への析出が観察されており、また、平成26年度に実施した室内試験においても、自生したと考えられる磁硫鉄鉱の結晶が確認されている。今後、圧縮ベントナイト中での鉄腐食生成物の析出メカニズムについても検討を行っていくことが必要である。

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

2.3.1 人工バリア中核種移行評価の不確実性要因と課題解決アプローチ

(1) 調査研究の背景と目的

人工バリア（圧縮ベントナイト）中の核種移行は、ベントナイト間隙水中での化学場の変化や、ガラス固化体からの放射性核種の浸出、間隙水中での核種の溶解・沈殿、収着・拡散といった現象に影響される。性能評価においては、これらの核種移行に影響を及ぼす現象のメカニズムの理解を踏まえた上で、これらの現象を簡略かつ保守的に評価することを重視したモデルとパラメータが採用されてきた。第2次取りまとめ（核燃料サイクル開発機構，1999b）において実施されたような、平衡論モデルに基づいて評価された、時間的・空間的に変化しない間隙水組成、溶解速度を一定とした保守的なガラス溶解の取り扱い、瞬時平衡・可逆反応を仮定した収着分配係数の採用などがその例である。地層処分の安全性の信頼性を高め、信頼に足るものとして社会に受け入れられるためには、最新の科学技術の成果を反映した現象理解の深化と評価手法の精緻化を進め、その安全評価技術としての有効性を確認していくことが重要である。

本タスクでは、人工バリア中の核種移行を対象として、上記のような個々の核種移行現象に加えて、バリア間の相互作用による核種移行への影響プロセスに係る現象理解を進め、それらを踏まえた核種移行をより精緻に評価するための技術を、先端的な計算科学/分析技術を適用して開発することを目的とする。この目的の達成に向けて、平成26年度までに、人工バリア中の核種移行評価に係る不確実性要因と課題を抽出し、その解決に向けたアプローチを提示した上で、データ取得やモデル改良等を進めてきた（日本原子力研究開発機構，2014a，2015a）。平成27年度は、緩衝材中の間隙構造や間隙水特性、収着・拡散メカニズムの理解のための各種室内試験によるデータ拡充を継続するとともに、モデルの精緻化や分子動力学計算の適用可能性の評価等を進めた。また、地層処分システムの変遷に係る不確実性要因については、オーバーパック腐食生成物がガラス溶解及び収着・拡散現象に及ぼす影響に着目し、室内試験を継続して定量的に影響を評価する手法の構築を行った。

(2) 不確実性要因と課題の抽出

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

表2.3.1-1 人工バリア中の核種移行評価の不確実性に関わる課題

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

(3) 課題解決のための研究アプローチ

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

1) 圧縮ベントナイト中の核種移行に関する現象理解と精緻化モデルの開発

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

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

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

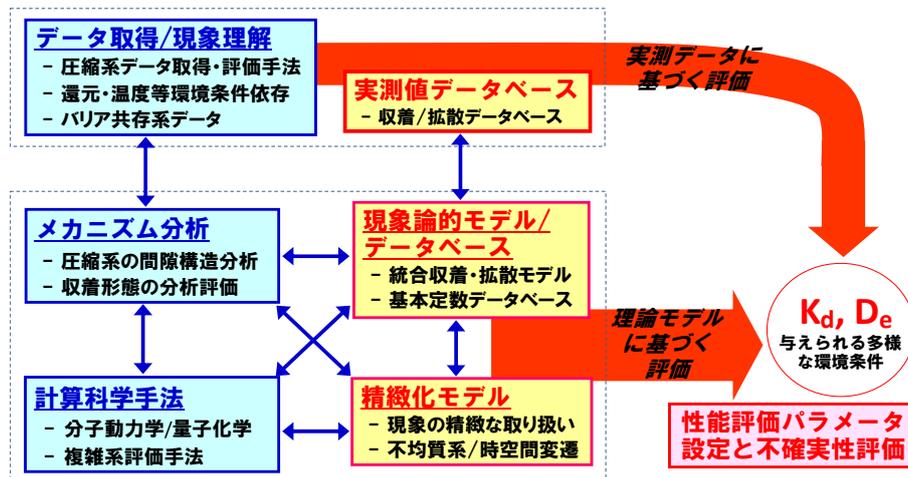


図2.3.1-1 人工バリア中核種移行に関する現象理解とモデル精緻化のためのアプローチ

2) システム変遷を考慮した核種移行評価技術の開発

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

2.3.2 緩衝材中の核種移行に関する現象理解のための実験研究

(1) ベントナイト中の核種移行メカニズム把握のためのデータ取得・評価

ベントナイト中の収着・拡散現象の理解とモデルの精緻化に資するため、本課題では、平成26年度までの成果を踏まえ、後述するメカニズムの分析研究とも連携しつつ、1)多様な環境条件とシステム変遷に着目したデータ拡充、2)酸化還元で鋭敏な重要核種であるSeのデータ取得、3)システム変遷影響も考慮したコロイドろ過機能に係るデータ取得に取り組んだ。

1) 多様な環境条件下における圧縮ベントナイト中の収着・拡散データの整備

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

発」において、「拡張型透過拡散(TD)／トレーサー減衰(RD)法」を提案し、多様な核種と環境条件への適用性を確認してきた(図2.3.2-1;日本原子力研究開発機構,2013c;Tachi and Yotsuji,2014)。本事業では、圧縮ベントナイト中の吸着・拡散メカニズムの理解とモデルの精緻化に資するため、本手法を適用して、より多様な環境条件(密度、塩濃度、温度等)を対象にデータ拡充を進めてきている。平成27年度は、①従来から進めてきたNa型ベントナイト中のCs等の吸着・拡散挙動の密度、塩濃度、温度依存性に関するデータ取得、②システム変遷影響に係る課題でもあるCa型ベントナイト中のSr等の吸着・拡散データの塩濃度依存性の取得を実施した。

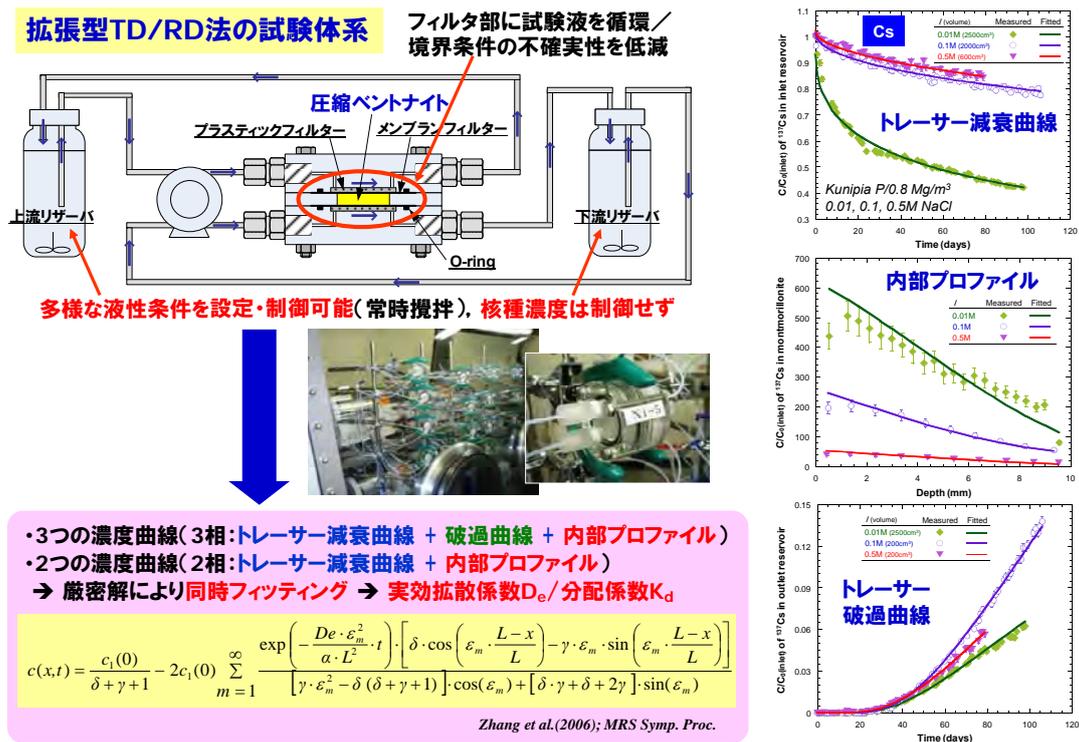


図2.3.2-1 拡張型透過拡散/トレーサー減衰法の概要

① Na型ベントナイト中のイオンの吸着・拡散データ取得

Na型ベントナイト中のイオンの吸着・拡散データについては、これまで多様なイオンを対象に、ベントナイトの乾燥密度、間隙水の塩濃度、温度条件などをパラメータにデータ取得を進めてきた。ここでは、高密度条件でのイオンの吸着・拡散データの塩濃度依存性のデータ拡充について報告する。これまでに取得してきたデータは、乾燥密度0.8g/cm³のNa型モンモリロナイト(クニミネ工業製のクニピアF[®])中での塩濃度依存性データ(例えば、Tachi and Yotsuji, 2014)が主であり、より多様な環境条件へのモデルの適用性を検討するため、密度1.4g/cm³の条件での塩濃度依存性データの取得を進めた。一例として、0.01MのNaCl系でのCsの拡張型透過拡散試験のデータを図2.3.2-2に示す。図中(a),(b)に示すトレーサー減衰曲線、破過曲線、内部プロファイルに対する拡散方程式の最小二乗法に基づく最適化によって得られた実効拡散係数(D_e)の塩濃度依存性を同図(c)に示す。塩濃度0.01Mの条件においては、陽イオン(Cs⁺)と陰イオン(I⁻)のいずれも、密度の増加に伴い実効拡散係数は減少する傾向を示した。引き続き、高塩濃度条件でのデータを拡充し、2.3.3で示すような均質系及び不均質系の間隙モデルの適用性を検討していく計画である。

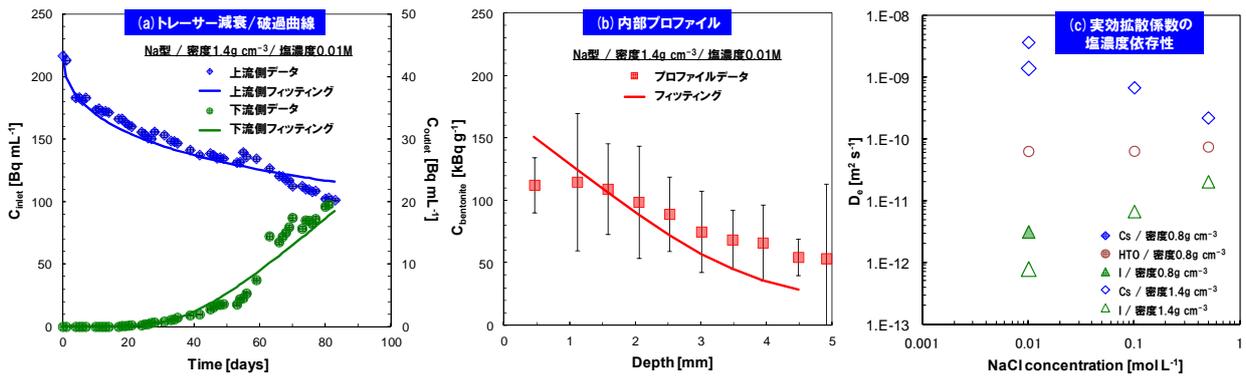


図2.3.2-2 密度1.4g/cm³の条件でのCs拡散データ (a, b) と拡散係数の塩濃度依存性 (c)

② Ca型ベントナイト中のイオンの収着・拡散データ取得

Ca型モンモリロナイト中の収着・拡散データの取得については、Na型とCa型のモンモリロナイト中の収着・拡散基本特性の違いを把握するとともに、平成26年度までの試験結果から確認されたNa型からCa型への間隙構造の変化とその拡散・収着挙動への影響を理解することを目指して検討を継続した。

平成26年度までの検討において、図2.3.2-3に示すように、Na型モンモリロナイトに対してSrを拡散させた試料において、層間イオンがNaからSrへ置換されることにより間隙構造が変化している可能性が確認された。層間陽イオン (Na, Ca) とSr初期濃度 (10^{-5}M , 10^{-7}M) が異なる各条件で得られたトレーサー減衰曲線、破過曲線 (図中a及びb) からは、Na型とCa型で収着・拡散挙動に明瞭な差異が認められ、また、Sr初期濃度の差異の影響については、Ca型では明瞭ではないが、Na型では顕著な差異が認められた。これは、層間陽イオンがNaからSrへ置換され、層間距離が変化したことによって、収着・拡散挙動に影響を受けたためと考えられた。このことは、Sr濃度が高いほどNa型とCa型の違いが顕著であることから確認できる。このような層間距離の変化をXRD分析で確認したところ、同図(c)～(e)に示すように、Na型モンモリロナイトでは、3層が支配的であるのに対し、Sr濃度が高い条件 (図d ; 10^{-5}M) では2層支配、Sr濃度が低い条件 (図e ; 10^{-7}M) では3層が支配的になっている。このような間隙構造の変化の影響を含めて、Ca型モンモリロナイト中の拡散メカニズムをさらに検討していくことが必要であると考えられた。

このような平成26年度までの検討結果に基づき、平成27年度は、Sr初期濃度 10^{-7}M の条件下で塩濃度依存性に関するデータ拡充を進めるものとし、Ca型モンモリロナイトを0.01M、0.1M、0.5MのNaCl溶液で飽和させた条件で、Srの拡張型透過拡散試験を行った。トレーサー減衰曲線、破過曲線、内部プロファイルに対する拡散方程式の最小二乗フィッティングによって得られたSrの実効拡散係数 (D_e) 及び収着分配係数 (K_d) を、Na型モンモリロナイトに対するSrの拡散・収着データ (Tachi et al., 2012) とともに、図2.3.2-4に示す。同図(a)に示す実効拡散係数、同図(b)に示す収着分配係数のいずれも、塩濃度の増加と共に減少する傾向が確認された。Na型とCa型とを比較した場合、収着分配係数は、Ca型の方が低い傾向であるのに対し、実効拡散係数については低塩濃度条件ではCa型の方が低いが、高塩濃度条件では両者の関係が逆転する傾向を示した。このような塩濃度依存性を示した原因として、収着分配係数の変化に伴い、拡散の駆動力となる濃度勾配が変化することと、間隙構造の変化による拡散への影響とが考えられる。前者について

は、同図(c)に示すように、収着分配係数と実効拡散係数の相関性から明瞭である。これらの関係より、低塩濃度条件ではNa型とCa型の差異は収着特性の差異が、高塩濃度条件では間隙構造の差異が、Na型とCa型モンモリロナイト中のSrの拡散挙動に影響していることが示唆された。これらのNa型とCa型との拡散挙動の差異については、後述する間隙構造分析の知見と分子動力学計算を含む精緻化モデルとも関連付けて、さらに検討していく計画である。

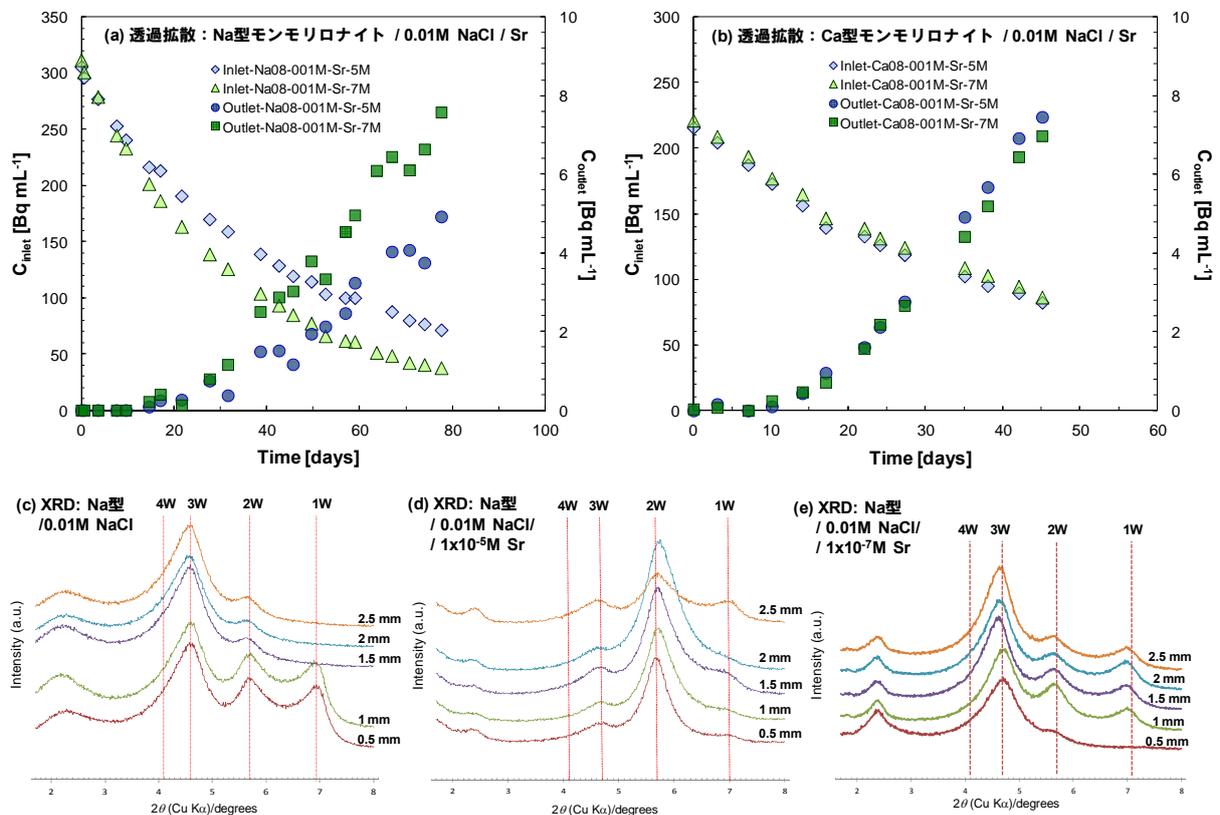


図2.3.2-3 Na型及びCa型モンモリロナイト中のSrの透過拡散データ (Sr濃度依存性: a, b) とXRDによる底面間隔分析結果(c, d, e) (日本原子力研究開発機構, 2015a)

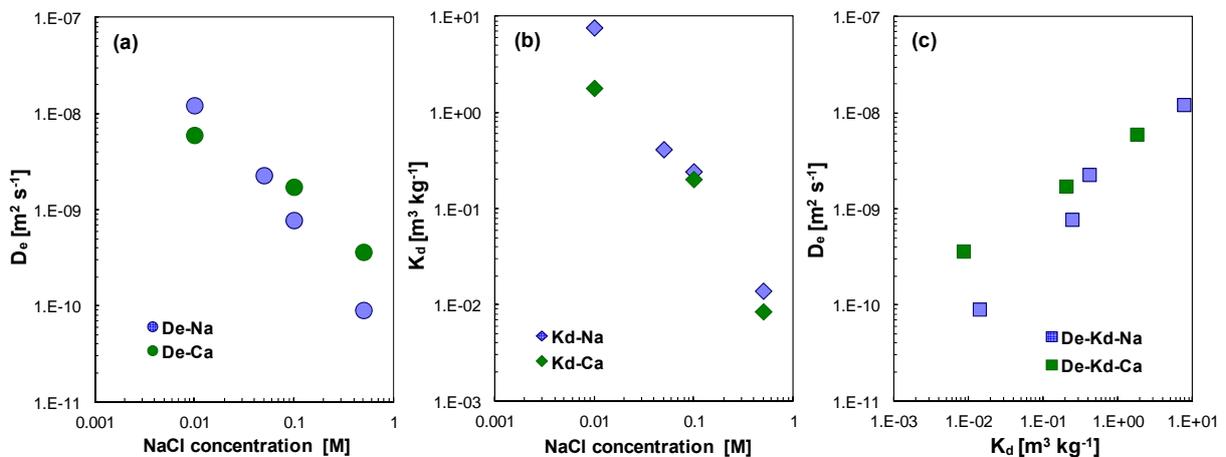


図2.3.2-4 Na型/Ca型モンモリロナイト (0.8g/cm³, 0.01M NaCl) 中のSrの透過拡散試験結果: (a) D_e , (b) K_d , (c) D_e と K_d の相関についてのNa型とCa型との比較

2) 還元環境下での収着・拡散データ取得法の適用性評価

Se-79は、半減期が 2.95×10^5 年と非常に長く、陰イオンとして圧縮ベントナイト中を移行するため収着遅延効果があり期待できないことから、安全評価上の重要核種となっている。処分環境で想定される還元環境においては、Seは HSe^- として溶存することから、溶存化学種を HSe^- に調整した条件で核種移行データを取得することが必要である。平成26年度の試験では、0.1M NaCl溶液下、pH8~12においてモンモリロナイト(クニピアF)に対する HSe^- の収着試験を行い、分配係数(K_d)を取得した。平成27年度は、 HSe^- の収着試験データを拡充するため、溶液中のNaCl濃度を0.05, 0.5Mに変えた試験を実施した。

試験試料に添加するSeのストック溶液は、低酸素雰囲気下で脱気水を使用し、ヒドラジン($\text{N}_2\text{H}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$)濃度0.01M中で Na_2Se 濃度を 10^{-6} Mオーダーに調製して、塩酸(HCl)を用いてpH5.8に調整することにより作製した。作製したストック溶液は、沈殿等を除去するため、収着試験を始める直前に孔径 $0.45 \mu\text{m}$ のフィルターによるろ過を行い、ろ液を各サンプルに所定量添加した。また、溶液中の溶存化学種を確認するために密閉状態でろ液を大気下に取り出し、紫外可視分光法(UV-Vis)により測定を行った。UV-Vis測定の結果(図2.3.2-5)、Se濃度によりピークの高さが異なるものの、いずれの条件においても、248nm付近のピークから HSe^- の存在が確認された(Lyons and Young, 1986; Lich and Forouzan, 1995)。また、 Se_4^{2-} (282, 377nm)や Se_3^{2-} (258, 328nm)のピークが確認されなかったことから、溶液中の化学種は、 HSe^- が支配的であると考えられた。

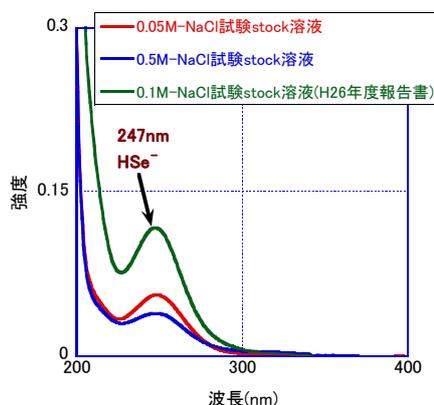


図2.3.2-5 試験開始溶液のUV-Vis測定結果

収着試験は、液固比 $0.1 \text{ m}^3/\text{kg}$ 、 $0.1 \text{ M N}_2\text{H}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$ 共存下で、0.05及び0.5M NaCl溶液を試験溶液とし、pH8~12の条件で行った。Seの初期濃度は $5.4 \times 10^{-7} \text{ M}$ (NaCl 0.05M)、 $1.1 \times 10^{-7} \text{ M}$ (NaCl 0.5M)とした。試験開始から1時間~18日の期間で溶液を採取し、分画分子量10,000のフィルターでろ過した後、ろ液中のSe濃度をICP-MSで測定して、溶液中のSe濃度の低下量より収着分配係数(K_d)を評価した。

図2.3.2-6にモンモリロナイトに対するSe(-II)収着試験の K_d の経時変化を示す。NaCl濃度0.05Mの各試料の K_d は、ほとんどの試料において1時間後~18日後でほぼ変わらず、早い時間で収着平衡に達することが確認された。ただし、NaCl濃度0.05Mの試料においては、8日目のpH8の試料や18日目のpH8, 9, 11の試料で K_d の緩やかな上昇が見られた。これに対し、NaCl濃度0.5Mの試料の K_d は、15日後まで上昇が見られ、収着平衡の到達に時間がかかることがわかった。今後、これらの試験

の K_d の上昇がSe化学種の変化によるものかどうか確認するため、長期間静置した試料のUV-Vis測定を行い、溶存化学種の安定性の確認を行う予定である。図2.3.2-7にSe(-II)収着試験の K_d のpH依存性について示す。平成27年度に行ったNaCl濃度0.05, 0.5Mの試験の K_d は、pH8~10.5までほとんど変わらず約 $0.3 \sim 0.9 \text{ m}^3/\text{kg}$ であり、pH12付近で減少し約 $0.1 \text{ m}^3/\text{kg}$ となった。この結果は、平成26年度に行ったNaCl濃度0.1Mの試験と大きく変わらない結果となった。

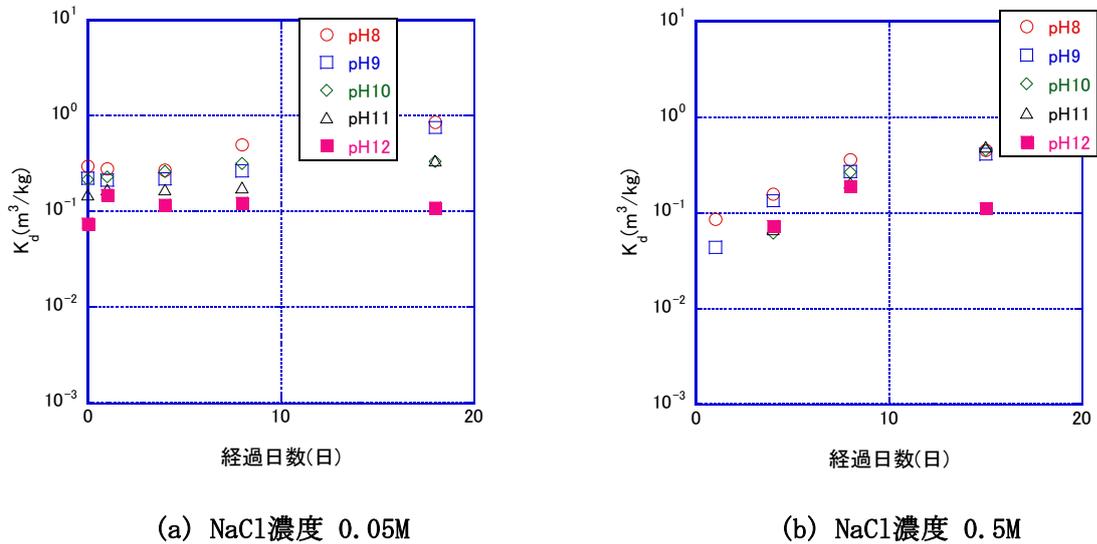


図2.3.2-6 クニピアFに対するSe(-II)の分配係数の経時変化

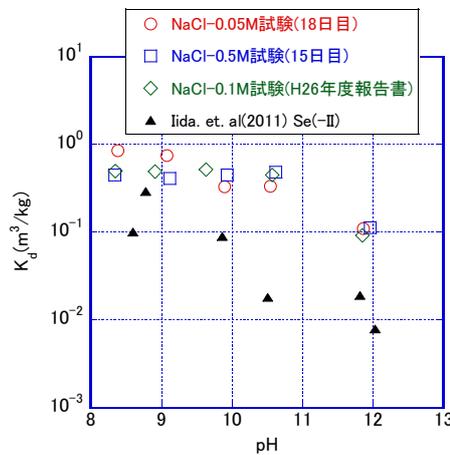


図2.3.2-7 クニピアFに対するSe(-II)の分配係数のpH依存性

モンモリロナイトに対する HSe^- の K_d は、pH8~11の間でpH依存性が見られず、また、NaCl濃度依存性もほとんど観察されなかった理由を次のように考察した。 HSe^- の収着挙動には、モンモリロナイト結晶端面に存在する表面水酸基が関与していると推測される。表面水酸基への陰イオンの収着は、水酸基と直接結合しない外圏錯体と、表面水酸基と配位子交換により結合する内圏錯体が存在し、内圏錯体については、異なる配位構造を有する複数種の内圏錯体の存在が考えられている(例えば、福士, 2008)。これらの収着形態は、溶液のpHや塩濃度に影響を受けることから、 K_d にpHやNaCl濃度の依存性が見られるものと推測される。本試験の結果は、単純な1種類だけの収着形態により HSe^- がモンモリロナイトに収着しているのではなく、上に示したような複数の収着

着形態が関与している可能性を示唆している。このような複雑な収着挙動を有する場合、収着試験のみによりメカニズムを検討することは難しいことから、今後、2.3.2(2)4)に示すような分光学的手法等を適用して収着機構の解明を試み、収着試験と組み合わせてHSe⁻の収着挙動の評価を行っていく予定である。

3) ベントナイトのコロイドろ過性能の確認試験

緩衝材として用いられる圧縮ベントナイトは、地下水の浸透に伴う膨潤により極めて微細な間隙構造を形成することから、コロイド粒子を物理的にろ過する機能（コロイドフィルトレーション機能）が期待されている。このフィルトレーション機能は、緩衝材内部へのコロイドの移行を抑制し、人工バリア内部での核種移行に及ぼすコロイドの影響を排除するために重要な役割を果たす（核燃料サイクル開発機構, 1999b）。そのため、多様な処分環境を想定して、これまでに様々な試験条件下でのコロイド透過試験が行われてきた。黒澤（2005）は、粒径が15～50 nmの金コロイドを用いて透過試験を行い、乾燥密度が0.8 Mg/m³以上の時、15 nmの金コロイドがろ過されることを指摘した。一方、Holmboe et al.（2010）は、2, 5, 15 nmの金コロイドを対象に、透水圧0 kgf cm⁻²、塩濃度0.001 Mにおける拡散試験を行い、全てのサイズの金コロイドが透過しないことを確認している。ただし、2 nmの金コロイドについては、乾燥密度0.6 Mg/m³の圧縮ベントナイト内部へ拡散することを見出している。しかしながら、これまでに検討されたコロイドのサイズや溶液組成は限定されるため、多様なベントナイト及び液性条件に対して、あるいはバリア共存影響を含むシステム変遷が生じることを考慮しても、圧縮ベントナイトがコロイドのろ過機能を発揮することを示すためには、更なるデータの拡充が求められる。

これらの先行研究を踏まえ、ここでは、ベントナイトのコロイドフィルトレーション機能が大きく低下する可能性のある条件でのコロイド移行試験を実施することとした。具体的には、コロイド粒径、溶液の塩濃度、ベントナイトの乾燥密度や層間イオン種など、コロイドフィルトレーション機能に影響を及ぼすと推測されるパラメータをより厳しい条件で設定し、拡散試験及び透水試験を実施することで、フィルトレーション機能が働く条件と透過する条件との境界を明らかにする。また、ベントナイトの微細構造とコロイドフィルトレーション機能の関係について調査し、フィルトレーションのメカニズムについて検討を行う。

平成26年度は、Holmboe et al.（2010）の条件を参考に金コロイド分散液を調製し、イオン強度の増加による安定性の変化を確認した。粒径測定の結果、金コロイドはイオン強度0.01mol/Lから0.1mol/Lの間で凝集すると推測された。しかしながら、多様な地下水条件を対象にコロイドの透過拡散試験を行うには、より高いイオン強度の溶液においても金コロイドを安定化させる分散剤の適用が不可欠と考えられた。この結果を踏まえ、平成27年度は、金コロイド分散剤として先行研究で用いられているメルカプトこはく酸以外のチオール化合物の効果を検証するとともに、拡散試験等に使用可能な金コロイド以外の物質についても調査を行った。

メルカプトこはく酸などのチオール化合物は、Au-S結合を介する粒子表面への化学吸着によって金コロイドを保護し、安定性を高めると予想される（Kimura et al., 2002; Zhu et al., 2003）。そこで、官能基や鎖の長さの異なるチオール化合物（3-メルカプト-1-プロパノール、3-メルカプトプロピオン酸、3-メルカプト-1-プロパンスルホン酸ナトリウム、6-メルカプト-1-ヘキサノール）を分散剤として加えた0.1mol/L NaCl溶液を作製し、金コロイド粒径測定を行った。その結果、

全てのチオール化合物において金コロイドが100nm以上に凝集していることが確認され、チオール化合物による表面保護を行った金コロイドは、高塩濃度下での移行試験には適用できないと考えられた。

これと並行して、高塩濃度下での拡散試験に適用できるコロイドについて調査を行い、人工高分子である dendrimer に着目した。Dendrimer は球状構造、既定の粒径、単一分子量であるという特徴を持ち、拡散試験のトレーサーに適していると考えられる。本試験では、アニオン性の官能基であるカルボン酸ナトリウムを表面に持つ PAMAM dendrimer Generation 4.5 (Sigma-Aldrich 製、分子量 26252、直径約 5.6 nm) を選択した。

PAMAM dendrimer の安定性を確認するため、高塩濃度下での粒径及びゼータ電位を測定した。図 2.3.2-8 に各 NaCl 濃度における粒径分布を、図 2.3.2-9 にゼータ電位の pH 及び NaCl 濃度依存性を示す。図 2.3.2-8 に示すように、NaCl 濃度 0 mol/L (図 (a)) と 0.5 mol/L (図 (b)) のいずれの条件においても、5~6 nm 付近に散乱強度のピークが見られ、粒径分布に大きな違いは見られなかった。また、図 2.3.2-9 (b) より 0.5 mol/L においてもゼータ電位は -25 mV 程度であり、PAMAM dendrimer が安定に分散した状態になっていると推測される。よって、PAMAM dendrimer は高塩濃度下でも安定であると考えられ、これを拡散試験のトレーサーとして選定した。

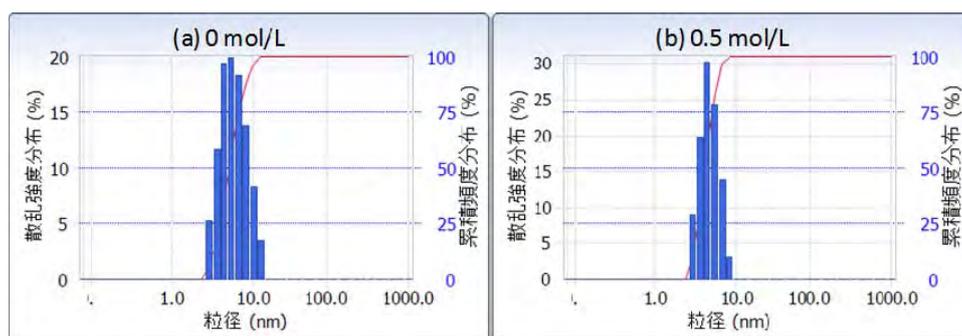


図 2.3.2-8 NaCl 濃度の異なる溶液中での PAMAM dendrimer の粒径分布

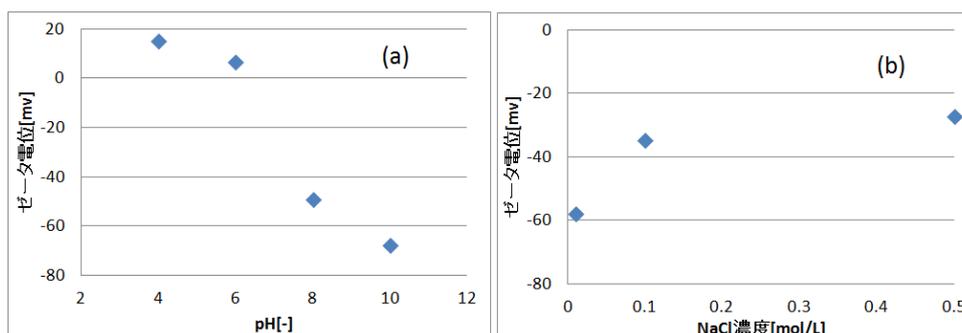


図 2.3.2-9 PAMAM dendrimer のゼータ電位の変化：(a) pH 依存性、(b) NaCl 濃度依存性

拡散試験は、図 2.3.2-1 に示す拡張型透過拡散法/トレーサー減衰法と同じ試験装置の構成とし、試験溶液は 0.5 mol/L の NaCl 溶液、ベントナイト (クニピア F) の乾燥密度は 0.8 g/cm³ とした。高濃度側溶液 (上流リザーバ) 中の PAMAM dendrimer 濃度は 1000 mg/L に設定した。試験は現在実施中であり、試験開始後、高濃度側溶液は 2 週に 1 回程度、低濃度側溶液 (下流リザーバ) は週に 1 回程度サンプリングを行い、PAMAM dendrimer 濃度を測定している。また、高濃度側溶液は週に 1 回程度粒径測定を行い、PAMAM dendrimer の安定性を確認している。PAMAM dendrimer の濃度は、

TOC計(島津製作所 TOC-Lcph)により測定を行っている。今後、本拡散試験を継続してPAMAM dendrimerの破過挙動を確認するとともに、平成28年度以降、ベントナイト乾燥密度、NaCl濃度を変えた条件で試験を実施し、コロイドのフィルトレーション機能が作用する条件について検討を行っていく予定である。

(2) 収着・拡散メカニズムの分析評価

1) ベントナイト中の収着・拡散メカニズムの分析評価の課題とアプローチ

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

圧縮ベントナイトの間隙構造に関わる分析技術(図2.3.2-10)としては、これまでにTEM、SEMによる粒子間隙と層間の共存状態の直接観察(Pusch et al., 1990; Holzer et al., 2010)、X線CT法による間隙構造の把握(日本原子力研究開発機構, 2013c)、X線回折法(XRD)によるナノスケールの層間距離の把握(Kozaki et al., 1998; Holmboe et al., 2012)等が実施されている。ここでは、特に核磁気共鳴法(NMR)に着目し、平成25年度に着手した評価手法(日本原子力研究開発機構, 2014a)を多様な条件へ適用するとともに、温度制御も組み合わせることで、間隙構造の不均質性を定量的に評価する手法として構築することを目標に分析試験を継続した。

一方、核種の収着メカニズムの理解とモデル開発に関し、代表的な分析手法としては、X線吸収微細構造分光法(XAFS)、時間分解型レーザー誘起蛍光分光法(TRLFS)、全反射赤外吸収分光法(ATR-FTIR)、核磁気共鳴法(NMR)などを挙げることができる。ここでは、平成25年度から着手したNMR法とATR-FTIR法による分析手法の適用性の評価を継続するとともに、更なる分析技術の適用に関する今後の課題について検討した。

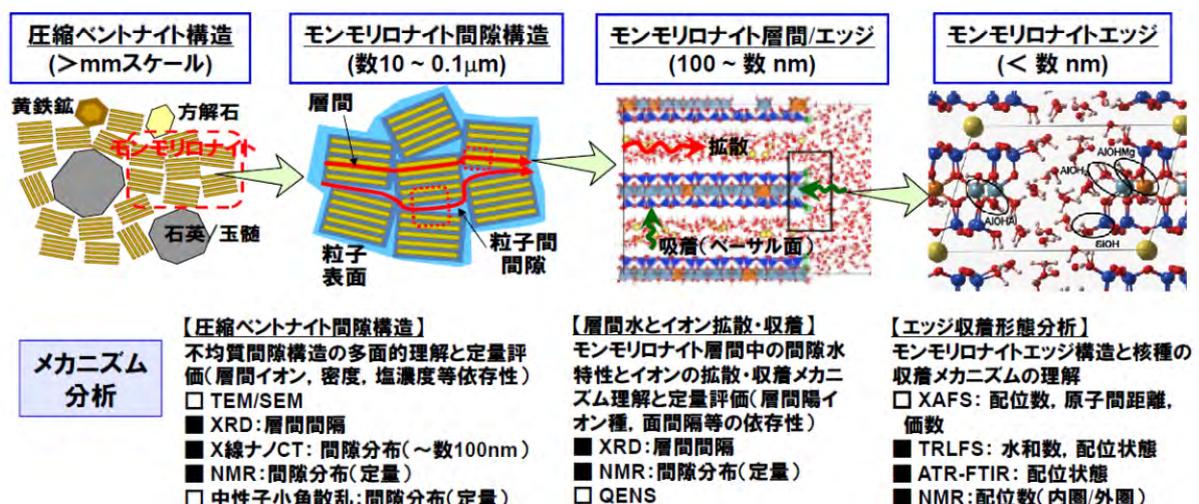


図2.3.2-10 圧縮ベントナイトの間隙構造と層間/エッジの収着機構に関連する分析技術
(■は本事業でこれまで検討してきた分析技術を示す)

2) NMR法による圧縮ベントナイトの間隙構造評価

圧縮ベントナイトの間隙構造を定量的に評価する手法として、従来のXRDプロファイルのシミュレーション（例えば、Warr and Berger, 2007）やX線小角散乱法との組み合わせによる評価（例えば、Muurinen et al., 2013）では、層間外間隙を定量的に評価することは難しいこと、また、ケイ砂等の粘土以外の鉱物を多量に含む系への適用が難しいことが課題であった。このような課題に対して、本タスクでは、圧縮ベントナイト間隙水のプロトン核磁気共鳴(^1H NMR)測定から得られる縦緩和時間(T_1)を利用した、間隙構造評価手法（Ohkubo et al., 2008）に着目した。平成26年度までに、塩濃度の異なる溶液で飽和したNa型モンモリロナイトを対象に ^1H NMR測定を行い、プロトン核磁気共鳴(^1H NMR)信号から得られる縦緩和時間(T_1)及び横緩和時間(T_2)の -40°C の低温から室温付近の温度でのデータを解析することによって、層間間隙及び層間外間隙の割合の塩濃度及び密度依存性の評価を行った（日本原子力研究開発機構, 2014a, 2015a）。平成27年度は、これまで検討してきた手法をCa型モンモリロナイトに適用して、間隙構造の密度や塩濃度依存性の評価を試みた。

Ca型モンモリロナイトとしては、Na型モンモリロナイト（クニピアF[®]）をCa型に100%置換した試料を用いた。乾燥密度0.8及び1.4 g/cm^3 となるように圧縮成型したCa型モンモリロナイトを、ダイフロン製の円筒状容器に充填し、容器の両端をメンブレンフィルター及びセラミックスフィルターで挟んだ状態で、イオン交換水、0.1 M NaCl水溶液及び1.0 M NaCl水溶液で飽和させた。飽和处理後、試料の気密を確保した状態で、23 MHzの磁場下、温度制御下で ^1H NMR測定を行った。温度可変測定は、室温から -40°C 以下に冷却した後、 -40 から 30°C までの範囲で 10°C ずつ温度を上昇させながら縦緩和時間(T_1)、横緩和時間(T_2)及び T_1 - T_2 相関測定を行った。

塩濃度の異なる溶液で飽和させた乾燥密度0.8及び1.4 g/cm^3 のCa型モンモリロナイトに対する縦緩和時間(T_1)分布について、 -40 (233K) から 30°C (303K) の範囲での温度依存性を図2.3.2-11及び図2.3.2-12にそれぞれ示す。乾燥密度0.8 g/cm^3 で調製した試料は、 0°C 以上の測定温度では、溶液組成に関わらず 10^{-2} から 10^{-1} sの長い緩和時間領域にピークを示す結果が得られた。平成26年度に実施した乾燥密度0.8 g/cm^3 のNa型モンモリロナイトに対する測定結果では、イオン交換水及び0.1 M NaCl水溶液で飽和させたいずれの場合においても、 30°C では、ブロードな1つのピークのみが観測されている（日本原子力研究開発機構, 2015a）。NaからCaに層間イオンを交換することによって、モンモリロナイトの膨潤特性が変化して空隙構造が変化したため、Na型とCa型で T_1 分布の形状が異なると考えられる。また、いずれの条件でも、 10^{-2} から 10^{-1} sの長い緩和時間のピークは、 0°C 以下の低温で消失している。この結果は、低温環境下で一部の液体水が凝固し、NMR信号として観測されなくなったためである。 0°C 以下の低温で消失するピークは、間隙中のような細孔に存在する水ではなく、バルクの水に近い状態で存在している水に帰属される。一方、乾燥密度1.4 g/cm^3 の T_1 分布は、 10^{-4} から 10^{-3} sの範囲にブロードな1つのピークのみを示し、乾燥密度0.8 g/cm^3 の試料で観測されたような室温状態でバルクの水に近い長い T_1 をもつ水が存在しない。乾燥密度が0.8から1.4 g/cm^3 に上昇することによって、間隙が粘土粒子により充填され、バルクに近い状態で水が存在する間隙が大幅に減少したためと考えられる。また、低温下での緩和時間分布で観測されたピーク位置は、温度の低下によって短い緩和時間にシフトしている。この傾向は、BPP (Bloembergen, Purcell, Pound)理論 (Bloembergen et al., 1948) で予測できるように水の運動性が低温で減少することによって ^1H の回転相関時間が減少するためと考えられる。

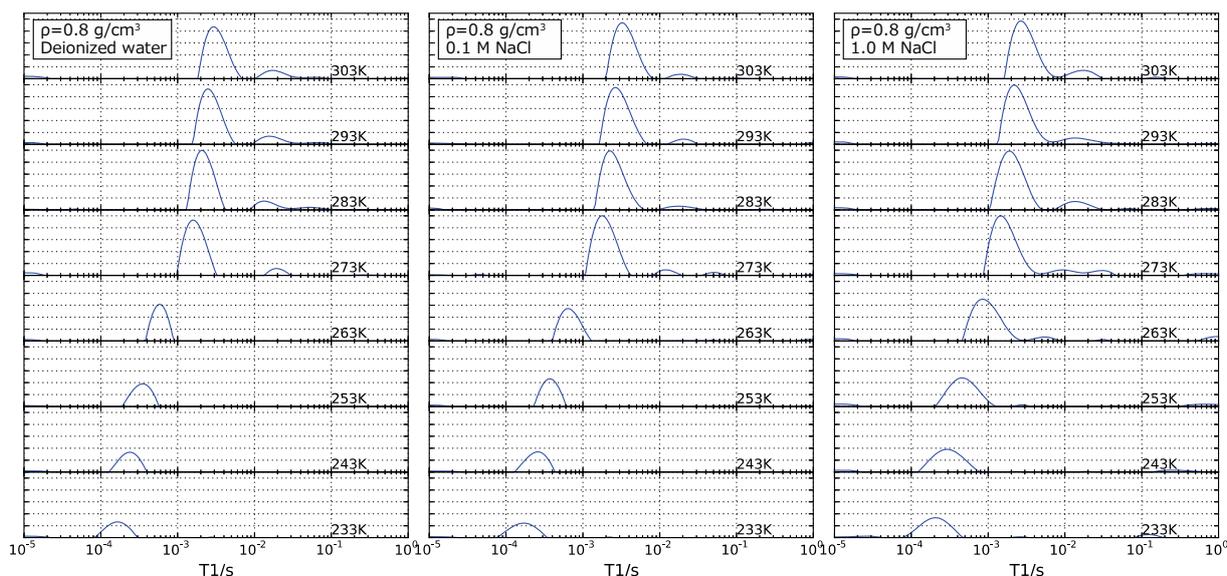


図 2.3.2-11 塩濃度の異なる溶液で飽和させた乾燥密度 0.8 g/cm^3 のCa型モンモリロナイトのT1分布の温度依存性 (233から303Kの範囲)

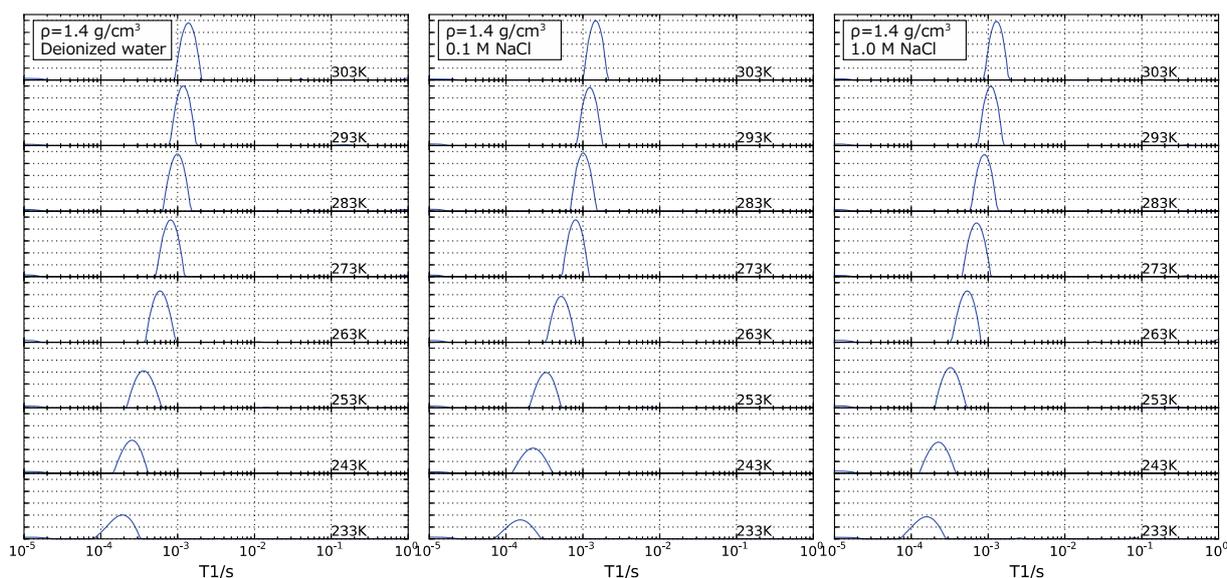


図 2.3.2-12 塩濃度の異なる溶液で飽和させた乾燥密度 1.4 g/cm^3 のCa型モンモリロナイトのT1分布の温度依存性 (233から303Kの範囲)

図2.3.2-13に、 30°C で測定した試料の緩和時間分布を積算してプロットした結果を示す。図中の赤点線は、Na型モンモリロナイトの解析で1層 (1-HL)、2層 (2-HL)、3層 (3-HL) 及び4層状態 (4-HL) を識別するために用いた閾値 (日本原子力研究開発機構, 2015a) を示す。Ca型モンモリロナイトは、明確な3層以上の水和状態を示さないことが相対湿度を制御した不飽和Ca型モンモリロナイトのXRD測定から報告されている (例えば, Morodome and Kawamura, 2011)。図中の3-HL以上の閾値で観測された緩和時間を持つ水は、層間よりもむしろ層間外水に帰属すると考えることが妥当である。今後、NMR測定を行った試料のXRD測定を行って、本研究で行った間隙水の帰属の妥当性を確認する予定である。

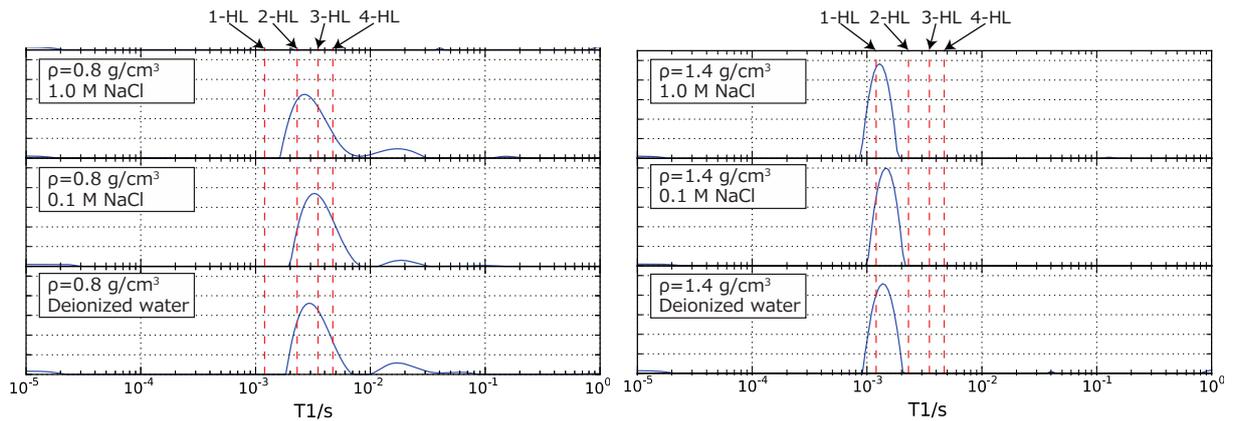


図2.3.2-13 密度及び塩濃度の異なる溶液で飽和させた圧密Ca型モンモリロナイトの303Kで測定したT1分布

次に、平成26年度のNa型モンモリロナイトに対する評価と同様に、上記の縦緩和時間(T1)分布の解析から得られたNMR信号強度を、温度で整理した結果を図2.3.2-14に示す。NMR信号強度は、キューリー則 (Mitchell et al., 2008) に従って温度補正を行った。乾燥密度0.8 g/cm³で調製した試料は、1.4 g/cm³で調製した試料と比較して、溶液組成に関わらず低温での信号強度の低下が大きい。この傾向は、低温で液体水として存在する水の割合が減少することを意味している。サイズの大きい空隙に存在する水は、Gibbs-Thomson効果 (Jackson and McKenna, 1990) によりサイズの小さい空隙に存在する水と比較して凝固点が降下しない。イオン交換水で飽和させた低密度の試料は、-10℃程度の低温で半分程度の水が凝固しており層間外に存在する水の量の割合が半分程度を占めると考えられる。既報の低温熱量測定 (Salles et al., 2008) より、層間外空隙のサイズとして4 nmを仮定し、Gibbs-Thomson式による凝固点降下を求めたところ-12.5℃であった(図中の赤点線)。-12.5℃で凝固する水を層間外水として評価したところ、イオン交換水で飽和した0.8 g/cm³の試料は、室温で47%程度の水が層間外水として存在することが示唆された。なお、0.1 M NaCl及び1.0 M NaCl水溶液で飽和させた試料は、溶液中のNa⁺及びCl⁻による凝固点降下を考慮する必要があるため、イオン交換水飽和試料で用いた閾値を用いて層間外水の評価できないことを付しておく。これらの結果を、平成26年度に報告したNa型モンモリロナイトの結果 (日本原子力研究開発機構, 2015a) と比較すると、今回測定したCa型の方が層間外水の割合が高く、上記したNa型とCa型の層間膨潤特性の差異と整合的な結果となった。

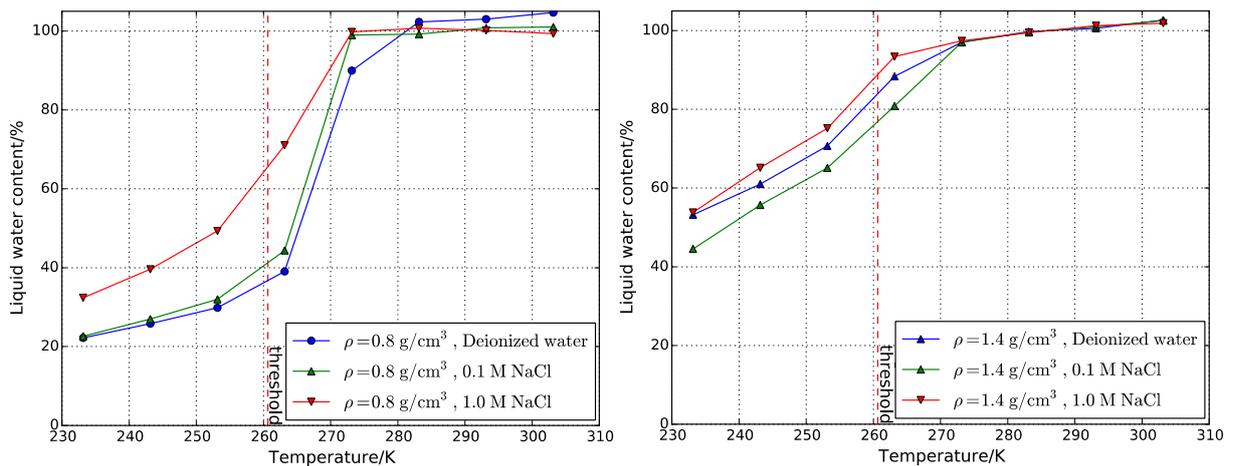


図2.3.2-14 塩濃度の異なる溶液で飽和させた密度0.8及び1.4 g/cm³のCa型モンモリロナイト試料のNMR信号強度の温度依存性

3) NMR法による粘土鉱物へのCsの吸着機構分析

粘土鉱物へのCsの吸着メカニズムの解明のため、平成26年度までにモンモリロナイトを含む多様な粘土鉱物へCsを吸着させた試料の¹³³Cs NMR分析と構造解析を実施してきた。平成27年度は、ベントナイトの主成分であるモンモリロナイトに着目して、Cs吸着量の異なるモンモリロナイトを調整し、¹³³Cs NMRによる構造解析を行った。また、観測した¹³³Cs NMRスペクトルの解釈を目的に、第一原理計算とGIPAW(Gauge-including projector augmented wave)法(Pickard and Mauri, 2001)による¹³³Cs NMRパラメータの理論計算を行った。

i) ¹³³Cs 固体NMR分析

① 実験方法

層間イオンを完全にCs型に置換したモンモリロナイトは、月布産のモンモリロナイトであるKunipiaF[®] (クニミネ工業製) を1.0 M CsCl水溶液と接触させて調製した。また、Cs置換率の異なる試料は、CsCl濃度を変化させることで一部の層間イオンのみをCsに置換することにより調製した。Cs置換率は、試料をフッ素樹脂容器内で塩酸と硝酸の混酸により完全に溶解し、原子吸光によりモンモリロナイトに含まれるCs濃度を決定して求めた。粘土鉱物やCsイオンの水和状態も含めた吸着メカニズムに関する分析情報を得るため、乾燥状態と含水状態の2種類の条件で分析を行うこととした。乾燥試料は、真空下150°Cで少なくとも10 時間加熱を行うことで完全に脱水することにより作製し、含水試料は、室温(相対湿度50%程度)で保管した試料とした。

¹³³Cs 固体NMR測定は、日本電子製ECA分光器を用いて800MHzの磁場下でMagic Angle Spinning (MAS)により行った。機密性の高い4mmジルコニア製サンプル管を用いて、16 kHzのスピニング速度で行った。脱水試料の含水を防ぐために、脱水試料のサンプル管へのパッキングは、露点80°Cのグローブボックス内で行った。脱水試料の¹³³Cs 固体スペクトルは広幅化しており、リングングの影響でスペクトルの歪みが生じるためoldfieldエコー測定により行い、一方、含水試料の測定は、single pulse法により行った。¹³³Csは、スピン7/2の四極子核でありMAS下で2次の四極子相互作用によるスペクトルの影響を考慮する必要があるが、別途実施した測定によりその影響は無視しうることが確認できた。そのため、¹³³Cs スペクトルの解析は、2次の四極子相互作用の影響を

考慮せずに行った。

② 実験結果

異なるCs置換率で調製した脱水状態及び含水状態のモンモリロナイトの ^{133}Cs 固体NMRスペクトルを図2.3.2-15に示す。同図(a)の脱水状態のスペクトルにおける350及び-280ppm近傍のピークは、スピニングサイドバンドである。置換率の低い試料(置換率17%及び39%)は、40 ppmに対称な形状をもつピークを示した。Cs置換率が59%以上に増加すると、-100 ppm近傍に複数のCsサイトに由来するピークの出現を確認することができた。一般にケミカルシフトは、電子密度の増加にしたがって遮蔽効果が大きくなり高磁場側にシフトする。既往の検討では、Cs型モンモリロナイトの層間のCs吸着サイトが底面酸素によって形成される六員環の空孔中心位置に存在することが知られている(例えば、Weiss et al., 1990)。層間の上下に六員環の空孔が存在することから、格子の積み重なり方によって、上下の層が規則正しく積み重なる場合に上下両方の六員環の空孔の中心に存在する12配位構造と、一方の層の六員環空孔中心で9配位する2つのCsサイトが示唆されている。しかし、本研究で得られた ^{133}Cs スペクトルは、このような既報の解釈では説明できない複数のCsサイトの存在を-50から-100ppmの範囲で示しており、既報の ^{133}Cs NMRスペクトル(例えば、Weiss et al., 1990; Kim et al., 1996, 1997)と比較して、より高磁場下の高い分解能でスペクトルを得ることで、多様なCsサイトの存在を明らかにすることができたと考えられる。

一方、同図(b)の含水状態では、脱水状態のスペクトルと異なり、-35 ppm付近にシャープなピークと25 ppm付近にブロードなピークが観察された。-35 ppm付近のシャープなピークの強度は、Cs置換率の増加にしたがって増加する。含水状態では、Csは水分子と水和して存在していると考えられ高い運動性を有すると考えられる。また、Csの高い運動性によって、NMRで観測するタイムスケール(μs)よりも速く複数のサイトと化学交換している場合、1つの平均化されたケミカルシフトとして観測される。-35 ppm付近のシャープなピークは、水和することによって高い運動性を持ち層間で高い自由度を持って存在しているCsに帰属される。一方、25ppm付近のピークは、幅広で脱水状態の試料で観測されたような線幅をもつ。ケミカルシフトは、電子密度が低く(遮蔽が小さく)低磁場側であることから、底面酸素に配位して高配位数をもつ化学サイトのCsに帰属される。これら2つのピークは、スペクトル上で別々に観測されることから、少なくともNMRのタイムスケールでは化学交換しないサイトと考えられる。これらの脱水及び含水状態でのスペクトルの帰属については、次項において、第一原理計算に基づいたGIPAW法によるNMRパラメータの理論計算との比較・検討を行う。

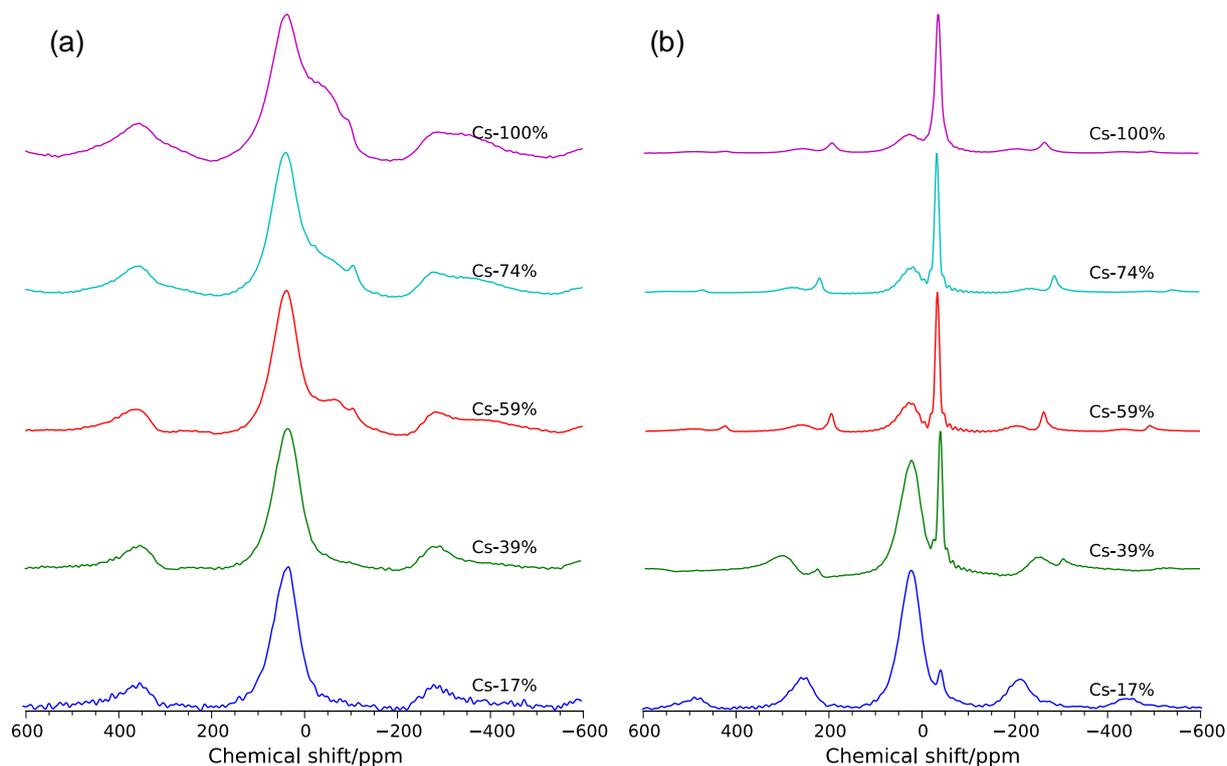


図2.3.2-15 異なるCs置換率で調製した月布産モンモリロナイトの ^{133}Cs MAS NMRスペクトル：(a)脱水状態及び(b)含水状態

ii) 第一原理計算によるNMRパラメータの推定

第一原理計算は、平面波基底で波動関数を展開するquantum espresso 5.02 (Giannozzi et al., 2009) を用いた。擬ポテンシャルとしてPAW法(projector augmented wave)を採用するPSlibrary 0.3.1を用いた。第一原理計算を行った初期構造は、構造式: $\text{Cs}_6(\text{Al}_{19}\text{Mg}_5)(\text{Si}_{47}\text{Al}_1)\text{O}_{120}(\text{OH})_{24} \cdot 16\text{H}_2\text{O}$ の含水モンモリロナイト(含水率14.5%相当)を結晶構造から作成し、ClayFF力場 (Cygan et al., 2004) を用いて古典MD計算を行って得た。初期構造から原子座標及びC軸方向の格子定数のみ自由度を与え、第一原理計算により構造最適化を行った。また、積層したモンモリロナイトの最外層(ベークセル面)に吸着したCsのNMRパラメータを推定するために、脱水状態で得た最適化構造から層間距離を広げた構造を作成し、第一原理計算及びNMRパラメータの計算を行った。

① 含水したCs型モンモリロナイトの ^{133}Cs NMRパラメータ

第一原理計算によって得られた含水状態の最適化構造及びGIPAW計算で求めた ^{133}Cs のケミカルシフト値を図2.3.2-16に示す。a図はab面方向(100)、b図は上側四面体層と層間のCs、c図は下側四面体層と層間のCsを示す。b図の数値は ^{133}Cs ケミカルシフト値、c図の数値はc軸方向の分率座標をそれぞれのCsに付して示している。構造最適化で得られた全てのCsのサイトは、脱水状態で得られたサイトと異なり必ずしも底面酸素で形成される六員環中心に位置しない。これは、水和したCsイオンは、水分子が配位することによってより安定な層間中央領域に位置するためと考えられる。図中のCs4及びCs6は、水分子が近傍に存在するにも関わらず底面酸素と近い距離で六員環中央に位置する。Cs4とCs6のケミカルシフト値はそれぞれ23.9と22.7 ppmで、底面酸素に近づくことによって電子密度が減少し、低磁場シフトしていると考えられる。脱水状態の最適化構造

で得られたような、四面体層のAl置換サイトを含む底面酸素六員環に選択的に存在する傾向は確認できなかった。また、Al近傍の六員環サイトに存在することでケミカルシフトが低磁場シフトする傾向も確認されず、含水状態では、層間での底面酸素との距離でケミカルシフトが決まることがわかった。これに対し、底面酸素に近いCs4やCs6と比較して、層間中央に位置するCs1, Cs2, Cs3及びCs5は、-8から-51 ppmの広い範囲のケミカルシフトを示す。このような傾向を整理するために、Csに配位した水分子の数をカウントした。3.5 ÅをCsと水分子Oの配位距離として水和数を求めたところ、Cs2とCs3の水和数は2であった。一方、Cs2とCs3と比較して低磁場シフトしているCs1とCs5の水和数は3であった。この結果より、水和した状態で層間中央に位置するCsのケミカルシフトがCsの水和数と対応づけられることがわかった。

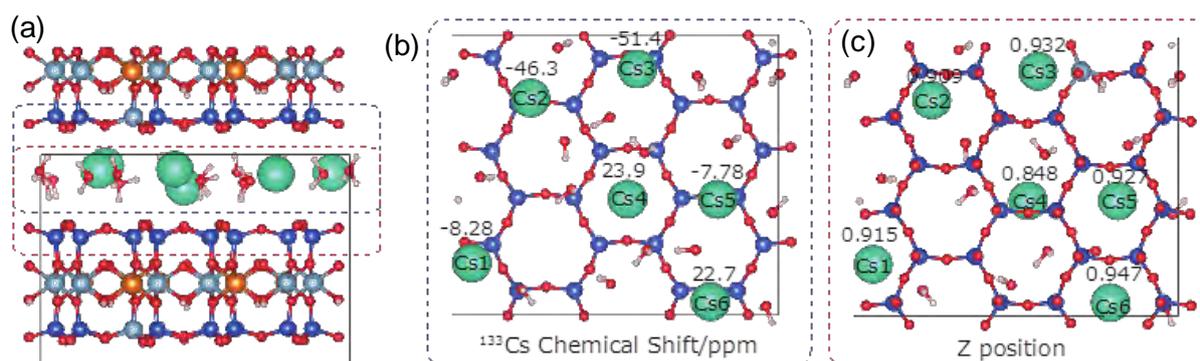


図2.3.2-16 第一原理計算によって構造最適化された含水モンモリロナイト(a)。青:Si, 赤:O, 緑:Cs, ピンク:H, 銀:Al, 黄土:Mg。(b)及び(c)図は、層間上側と下側の底面酸素とCsのみを図示。図中の数値はGIPAW法によって得られた ^{133}Cs のケミカルシフト値(ppm)及びc軸方向の位置を示す。

② 層間距離と ^{133}Cs NMRパラメータ

積層したモンモリロナイト層の外部表面に吸着したCsのNMRパラメータを評価するため、最安定な脱水状態から分率座標を固定して層間距離(格子定数c)を大きくしてGIPAW計算を行った。格子定数cを安定構造の11.2 Å から12.6, 16.6及び21.6 Åまで広げた構造とGIPAW計算から得られたCsのケミカルシフト値を、図2.3.2-17に示す。Csのケミカルシフト値は、層間距離が大きくなるにしたがって明らかに高磁場シフトしている。層間距離16.6と21.6 Åのケミカルシフト値は、ほぼ同程度で、16.6 Å以上の層間距離では層間距離に依存していない。脱水状態のCsは、上または下側どちらかの底面酸素に近接して存在するが、上下の底面酸素により電子吸引的な影響を受けていると考えられる。層間距離が大きくなるにしたがって一方の底面酸素の電子吸引が減少し、Csの電子密度が高くなることによって遮蔽効果が増大し高磁場シフトすると考えられる。層間距離16.6 Å以上のケミカルシフト値は、-123から-257 ppmまで広い範囲に分散している。本研究では、最適化を行っていない構造でGIPAW計算を行っているため、定量的に比較することは難しいが、外部表面に吸着したCsのケミカルシフト値は、層間に存在するCsと比較して明確に高磁場シフトすると考えられる。

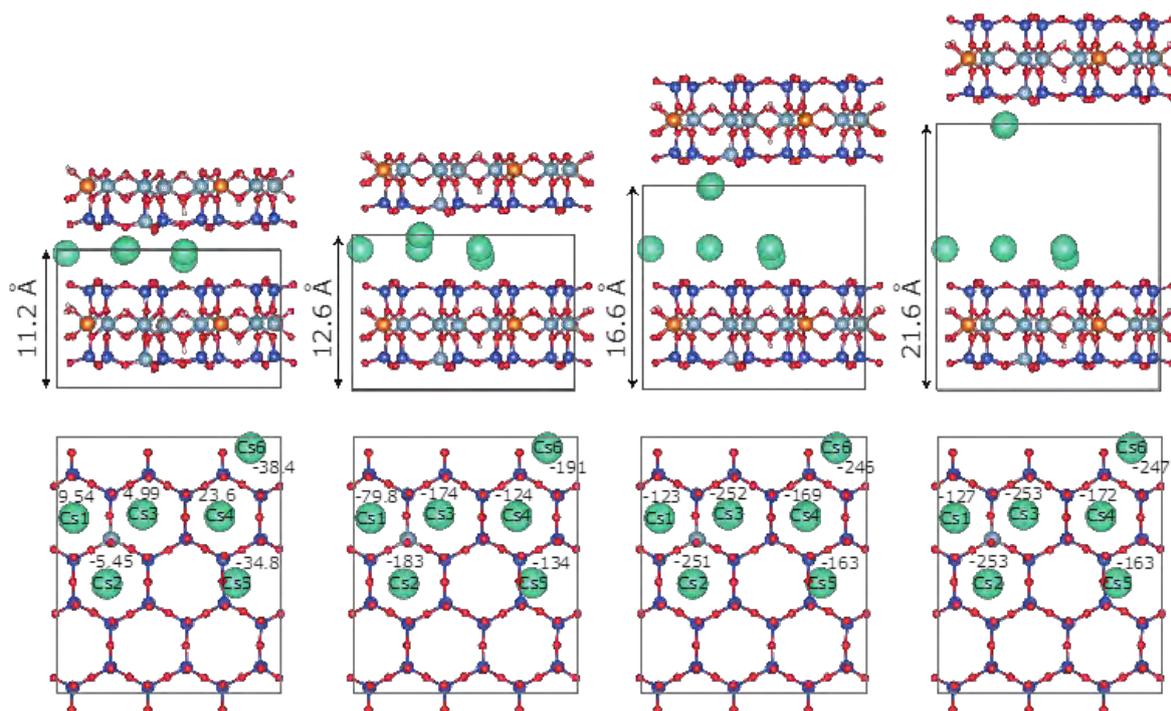


図2.3.2-17 脱水状態の最適化構造から格子定数 c を21.6 Åまで伸ばした構造でGIPAW法により得られた ^{133}Cs のケミカルシフト値(ppm)

③ ^{133}Cs 固体NMRスペクトルと理論計算の比較

図2.3.2-15に示した脱水状態で観測された40 ppm付近のブロードなピークは、既報との比較により、Siと置換したAlを含む底面酸素とSiによって形成される六員環中心に位置するCsによるものと考えられる(Weiss et al., 1990; Kim et al., 1996, 1997)。一方、Cs置換率の増加に従って観測された高磁場側のピークは、Al近傍の六員環中心に存在しないCs及び底面酸素から離れた位置に存在するCsによるものと考えられる。このような帰属は、層間距離とケミカルシフトの関係から予測される。Cs置換率を増加させることで出現する複数の高磁場側のピークは、最適化構造で得られた層間距離より広い空間に存在するCsに帰属されると考えられる。今後、エッジ面や底面の欠陥サイト等、脱水状態で吸着の可能性のあるサイトに吸着したCsのケミカルシフトを計算することにより、 ^{133}Cs NMR スペクトルの理解を深めていくことが必要である。また、このような多様な高磁場側ピークに由来するCsサイトは、低いCs置換率では観測されていないことから、低いCs置換率ではAlを含む六員環の吸着サイトへ優先的に吸着すると考えられる。一方、最も低いCs置換率の含水試料で強度が最大となった23 ppmのピークは、理論計算によって得られたケミカルシフトを参照すると、底面酸素の六員環中心に吸着したCsと考えられる。脱水状態の同等なサイトと比較して高磁場にシフトしている理由は、含水によって層間距離が長くなり底面酸素による電子吸引の効果が減少したためと考えられる。高磁場側のシャープなピークは、水和した状態で層間中心に存在するCsに帰属されると考えられる。理論計算により層間中心で水和したCsのケミカルシフトは、-8.28, -46.3, -51.4及び-7.78である。これら4つのケミカルシフト値の平均値は、-28.4 ppmであり実測した-30 ppm近傍のシャープなピークと良い一致を示す。このようなシャープなピーク形状から予測されるように、層間で水和した複数のCsは速い化学交換が起こっており、理論計算で予測されるような水和構造の違いに由来する個別のケミ

カルシフトを示さず、平均化されたピークとして観測されていると考えられる。また、Cs 置換率 100%で含水状態でのスペクトル上においては、底面酸素の六員環中心に帰属される Cs のピークは消えておらず、一部の Cs は水和せずに底面酸素に吸着したままの状態が存在していることがわかった。

4) ATR-FTIR法による鉱物へのSeの吸着機構分析

① 鉱物へのSeの吸着機構の分析手法

SeO_3^{2-} や SeO_4^{2-} 等のオキソ酸陰イオンの吸着構造の同定には、全反射法を用いたフーリエ変換型赤外分光(以下、ATR-FTIR)測定が広く用いられている。この方法は薄膜状の試料を入射赤外光に対して屈折率及び透過性の高い結晶に密着させ、入射角を大きくすることで全反射が起きるようにしたもので、全反射される赤外光の一部が結晶上の試料内部に数 μm しみ出し、吸収されることを利用した方法である。ATR-FTIR法は、比較的低濃度領域での分析が可能であり、また、フローセルを用いることによって溶液条件を変化させながら測定を行う *in situ*分析が可能である(図 2.3.2-18)。平成27年度は、地下環境に広く分布しており、吸着構造に関する研究例の多いフェリハイドライトを選定し、フェリハイドライトのうち比較的結晶性の低い2-line Fh(以下、2L-Fh)に対する SeO_3^{2-} の吸着についてATR-FTIR法を用いて評価した。

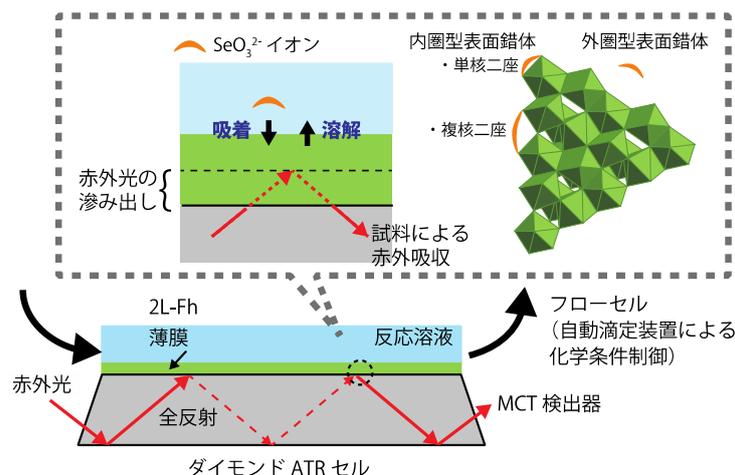


図2.3.2-18 *in situ* flow-through ATR-FTIR測定概念図

表2.3.2-1に、 SeO_3^{2-} の基準振動(軽水中)を示す(Nakamoto, 1986)。これらのピークはすべて赤外活性なバンドであるが、本実験で用いるダイヤモンド製のATR結晶は、 650 cm^{-1} 以下の赤外光に対する透過性が低いことから、 ν_1 及び ν_3 のみが測定可能である。これらの赤外吸収バンドの波数は、軽水の L_2 librationバンド(686.3 cm^{-1})と重なる可能性がある。したがって、 SeO_3^{2-} の赤外吸収スペクトル測定には重水を用いることが必須であり、本試験においても溶液作製に重水を使用した。

表2.3.2-1 亜セレン酸イオン(SeO_3^{2-} , C_{3v})の基準振動とその波数

ν_1	ν_2	ν_3	ν_4
A_1	A_1	E	E
807 cm^{-1}	432 cm^{-1}	737 cm^{-1}	374 cm^{-1}

測定はダイヤモンド結晶・9回反射型のフローセル型ATRユニット(DuraSamplIR II, S. T. JAPAN)及びMCT検出器を備えた赤外吸収分光装置(FT/IR-6100A, 日本分光)を用いて行った。測定条件は、分解能を 4 cm^{-1} 、積算回数を256回、アパーチャーを 1.8 mm とした。Cornell and Schwertmann (1989)の方法により調製した濃度 2.5 g L^{-1} の2L-Fh懸濁液 $10\text{ }\mu\text{L}$ をATR結晶上に滴下し、 N_2 ガスを流しながらゆっくりと乾燥させた。この操作を5回繰り返して、 0.99 mg cm^{-2} の2L-Fh薄膜を作製した。この薄膜上にpH(pD)を4、6、8に調製したSeを含まない 0.01 M NaCl 重水溶液を流速 0.2 mL min^{-1} で通液させ、赤外吸収スペクトルが変化しなくなった後にバックグラウンドのスペクトルを取得した。その後、 NaCl 重水溶液に $50\text{ mM Na}_2\text{SeO}_3$ 重水溶液をSe濃度が $100\text{ }\mu\text{M}$ あるいは $20\text{ }\mu\text{M}$ となるように添加した溶液を通水させて、一定の時間間隔で2L-Fh薄膜に吸着した SeO_3^{2-} の赤外吸収スペクトル測定を行い、時間変化を観察した。

② 測定結果

SeO_3^{2-} は3重回転対称軸を有し、 C_{3v} の対称群に属する。また、3つの酸素の内1つ、あるいは2つにプロトン(あるいは他の陽イオンや表面サイト)が結合することで、対称群が C_s に変化する(図2.3.2-19)。錯生成や吸着によって亜セレン酸の対称性が C_s に低下することで、6つの基準振動が生じる。図2.3.2-19に示した通り、単座及び二座配位された亜セレン酸は同じ対象群に属することから、吸収スペクトルのピーク数のみに基づく吸着構造の評価は困難である。一方、対称性の低下によって ν_3 の振動バンドの縮退が解け、2つのピークが観測されるが、そのピーク位置は亜セレン酸の配位モードに依存しており、単座の場合はピーク位置の差が小さなダブルット(波数差が小さな2つのピーク)が、二座配位の場合には明確に分離した2つのピークが生じることが報告されている(Fowless and Stranks, 1977)。したがって、吸着に伴う ν_3 バンド由来のピーク位置の変化から、以下のi~iiiの形成が示唆されることになる。

- i. 740 cm^{-1} 付近に単一のピークが存在する場合： SeO_3^{2-} としての外圏型表面錯体
- ii. ダブルットが存在する場合： HSeO_3^- としての外圏型表面錯体、あるいは、 SeO_3^{2-} の単座内圏型表面錯体
- iii. 明確に分離した2つのピークが存在する場合： SeO_3^{2-} の二座内圏型表面錯体

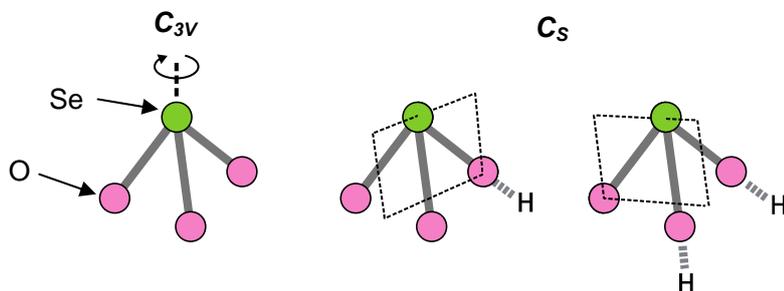


図2.3.2-19 亜セレン酸イオンの対称性

図2.3.2-20に2L-Fhに吸着した SeO_3^{2-} の赤外吸収スペクトルの時間変化を示す。時間の経過とともに赤外吸収スペクトルが増大しており、ATR結晶上の2L-Fh薄膜内に SeO_3^{2-} が拡散し、粒子表面に吸着していることがわかる。なお、薄膜が存在しない場合には、ATR-FTIR法において SeO_3^{2-} のピークを測定するために 0.01 M 程度の液相濃度が必要であり、本試験の条件では液相中の SeO_3^{2-}

の寄与は無視できる。

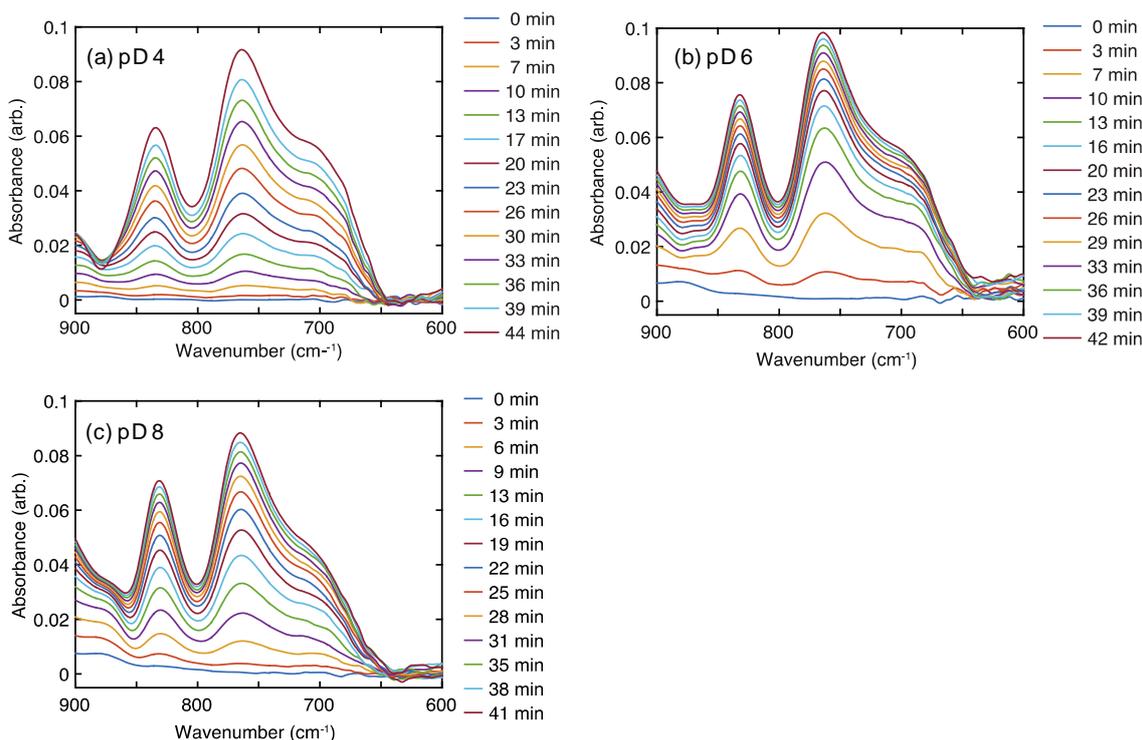


図2. 3. 2-20 2L-Fhへの SeO_3^{2-} の吸着に伴う赤外吸収スペクトルの時間変化.

(a) pD 4, (b) pD 6, (c) pD 8. $100 \mu\text{M SeO}_3^{2-}$, 0.01 M NaCl 重水溶液

異なる3つのpDにおける赤外吸収スペクトルを比較すると、いずれの条件においても835, 765, 700 cm^{-1} に吸収ピークを示している。これらのピークは ν_1 及び縮退が解けて分離した ν_3 振動バンドに由来するものと考えられる(表2. 3. 2-1)。また、pD 4, 6の結果では、 685 cm^{-1} 付近にショルダーの存在も確認できる。図2. 3. 2-21に各pD条件における最後の測定の赤外吸収スペクトルを比較した結果を示す。pD 4, 6の場合とくらべてpD 8におけるスペクトルでは 685 cm^{-1} 付近のショルダーの寄与が相対的に小さくなっていることがわかる。これらの結果は複数の表面化学種の存在を示しており、特に、低pD条件では外圏型表面錯体あるいは単座内圏型表面錯体に加え、二座内圏型表面錯体の存在の可能性が考えられる。

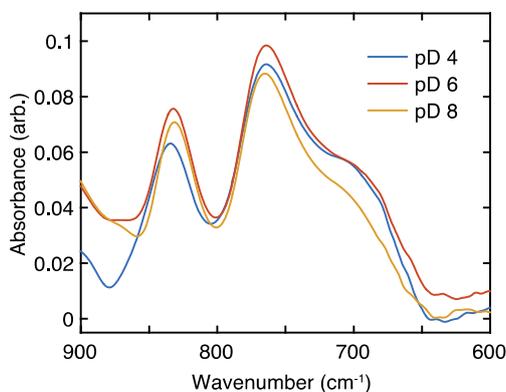


図2. 3. 2-21 異なるpDにおける2L-Fhに吸着した SeO_3^{2-} の赤外吸収スペクトルの比較

($100 \mu\text{M SeO}_3^{2-}$, 0.01 M NaCl 重水溶液)

図2.3.2-22に、pD4において異なる亜セレン酸濃度で測定された吸収スペクトルを比較した結果を示す。20 μM の場合のスペクトルでは700 cm^{-1} 付近の強度が相対的に小さく、765及び685 cm^{-1} の2つのピークによって構成されていることがわかる。つまり、低亜セレン酸濃度ではより安定な二座内圏型表面錯体の寄与が大きくなっていると考えられる。

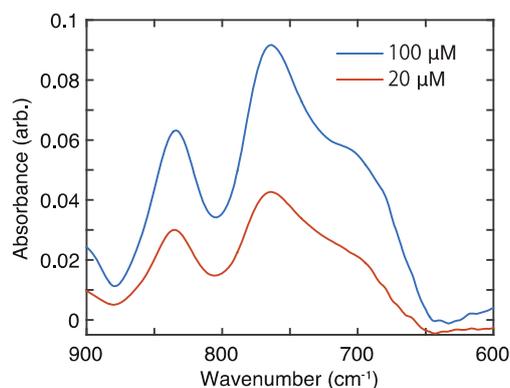


図2.3.2-22 異なる液相濃度における2L-Fhに吸着した SeO_3^{2-} の赤外吸収スペクトルの比較. pD 4, 0.01 M NaCl重水溶液. 共に吸着開始から40分以上経過後のスペクトル

③モンモリロナイトへのSe吸着機構分析手法の適用に向けた課題

2.3.2(1) 2)に記載したように、Seのモンモリロナイトへの吸着挙動を評価するためには、吸着試験による分配係数データの取得に加えて、分析的手法による吸着機構の解明が必要である。これまでに、モンモリロナイトへのSeの吸着形態に関しては、Peak et al. (2006)がEXAFS測定の結果から SeO_3^{2-} がアルミノール基との二座二核型の内圏型錯体を形成する可能性を報告している。しかしながら、XAFS測定では原子間距離から吸着構造を推定するため、複数の吸着種が存在する場合や吸着種間で動径分布関数が似ている場合には、吸着構造を一意的に決定することが難しい。これに対し、Se(IV, VI)のようなオキソ酸陰イオンの吸着構造の同定には、検出限界が低く、低濃度領域で溶液条件を変化させながら測定が可能な*in situ* ATR-FTIR法を適用することが有利である。ATR-FTIR法により SeO_3^{2-} のモンモリロナイトへの吸着構造を調べるためには、ATR結晶上への薄膜作製手法の確立と、 H_2O の L_2 librationバンドの影響を排除することが不可欠となる。モンモリロナイトへのATR-FTIR法の適用の確立に向けて、上記の鉄鉱物への測定手法を参考とし、今後、最適な測定手法の探索を行う。また、還元条件で安定である HSe^- のモンモリロナイトへの吸着構造の分析については、これまでに報告例がないことから、*in situ* ATR-FTIR測定やXAFS測定による吸着機構分析の適用可能性について、今後検討を行っていく予定である。

2.3.3 圧縮ベントナイト中の核種移行に関する精緻化モデルの開発

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

圧縮ベントナイト中の吸着・拡散現象については、これまでに経済産業省・資源エネルギー庁からの受託事業である「処分システム化学影響評価高度化開発」(日本原子力研究開発機構, 2013c)において、信頼性の高いデータ取得及びメカニズムの分析的理解を踏まえつつ、現象論的モデル/

データベースの開発を進めてきた。この統合収着拡散(ISD)モデル/データベースは、図2.3.3-1に示すように、核種の熱力学データや粘土鉱物特性等をベースに、圧縮ベントナイト中における地下水組成等の間隙水化学、収着分配係数や拡散係数を、整合性のある考え方のもとにモデル化するアプローチである。

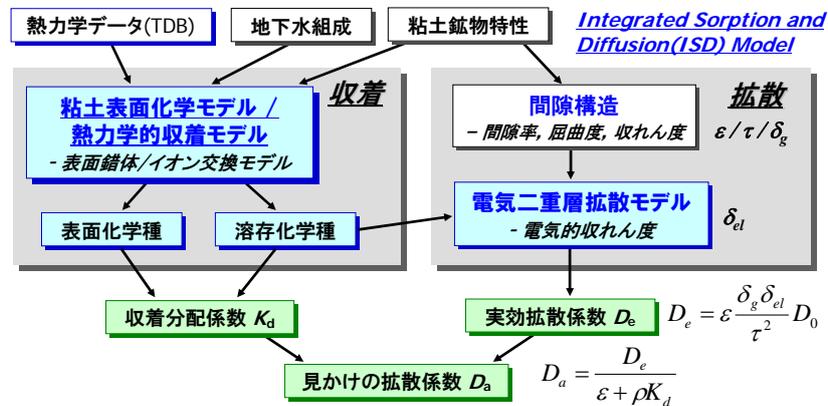


図2.3.3-1 統合収着・拡散モデル (ISDモデル) の基本概念

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

このようなISD拡散モデルの課題を改善する高度化アプローチとして、①均質間隙系での溶質/溶媒/鉱物固相の分子論的構造を考慮したモデル補正、②間隙の不均質構造/多重間隙の考慮の2つの方向性を検討してきた。特に前者については、上記の「処分システム化学影響評価高度化開発」(日本原子力研究開発機構, 2013c)において検討してきた。その結果、鉱物間隙中の分子論的な詳細情報は、モデルによる解析の結果に本質的な影響を与えず、鉱物表面とイオンとの静電的相互作用が、拡散係数等のマクロな核種移行パラメータに大きく影響を及ぼすことが確認された。また、溶質-溶媒間の相互作用を反映した「イオン有効電荷」の考慮が、特に多価陽イオンに有意な影響を及ぼすことが確認された。

一方、不均質構造/多重間隙構造のISDモデルへの適用性については、本受託事業において検討を進めてきた (日本原子力研究開発機構, 2014a, 2015a)。これまでの検討では、Bourg-Ohe2012モデル (日本原子力研究開発機構, 2014a) による多重間隙モデルに、NMR測定結果から、電解質濃度の変化に応じた水和状態の共存分布を考慮して拡散係数の評価を行った。実効拡散係数の電解質濃度依存性を図2.3.3-2(a)に示す。比較のため、二重間隙モデルの結果を図2.3.3-2(b)に示

した。多重間隙モデルにおける実効拡散係数の平均化手法は、①モンモリロナイトの各層間間隙およびベントナイト粒子間間隙それぞれに現状のISD拡散モデルを適用して実効拡散係数を計算し、②それぞれの実効拡散係数の対数をとったものに間隙全体に対する体積分率の重みを考慮して調和平均をとり算出した。多様な層間間隙を考慮して評価した多重間隙モデルの方が、より広い層間間隙の影響が大きくなり、その結果、特にアニオンに対する電解質濃度依存性のモデル評価結果が改善されたものと考えられる。

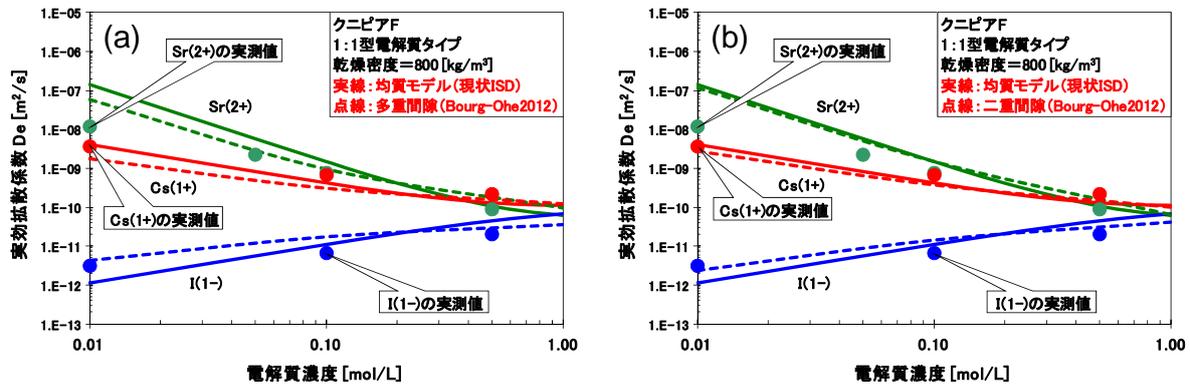


図2.3.3-2 不均質間隙モデルの検討例：(a)多重間隙モデル、(b)二重間隙モデル

このようなISDモデルの高度化開発の現状と課題を踏まえ、2.3.2(1)で検討している様々な条件下での核種移行に関する信頼性の高いデータ取得、2.3.2(2)に示した先端的な分析により得られる知見等も活用して、より精緻なモデル開発を引き続き進めることとした。特に多様な化学種への適用に関するモデル高度化では、二価陽イオンが支配する溶液など、溶液組成の変動による実効拡散係数への影響について検討することとした。また、Poisson-Boltzmann (P-B) 方程式の解析に基づいた平均場理論による評価に対し、この理論に基づく拡散モデルの妥当性検証とモデルの精緻化を含め、古典/第一原理分子動力学 (MD) シミュレーションや量子化学計算等の計算科学的手法を用いた解析を引き続き進める。さらに、これらモデル開発の最終的な目標は、信頼性の高い性能評価基盤の構築であることから、性能評価パラメータとその不確実性をISDモデルにより定量的に評価する手法についても調査を行う。

(2) 計算科学的手法による収着・拡散モデルの高度化検討

物質科学の研究においては、マクロなスケールで起こる物理現象や物性値を理解する際に、よりミクロなスケールでの構造・物性、現象やダイナミクスからスケールアップしていく要素還元的手法を用いるのが一般的である。多様な時間・空間スケールを取り扱う地層処分安全評価においても、現在の分析試験レベルで認識可能な電子/原子レベルから、第一原理的にマクロスケールの物性を評価して現象を理解することは、処分システムの評価検証において重要な課題であると考えられる。その際、実際には量子論的扱いが必要な原子・分子レベルの挙動においても、古典力学で十分近似可能な静的/動的過程に対しては、古典統計力学を用いてマクロ物性を評価することが、計算資源/負荷の上からも合理的である。そのような手法として、古典分子動力学法や古典モンテカルロ法などがある。地層処分研究においては、イオンの拡散挙動などの動的過程が重要な評価対象の一つであるため、この評価のために古典MD計算が主に用いられている。一

方で、鉱物表面へのイオンの吸着などの電子の授受を伴う化学反応を対象とする場合には、電子に対する量子力学的計算と、断熱近似に基づいた原子核に対する古典力学的計算を組み合わせた第一原理分子動力学法を用いる必要がある。また、系の静的に安定な状態を速やかに特定する際には、動力学を伴わない量子化学計算が実行されている。

このような計算科学的手法によって、実測により得られた物質間の相互作用や反応性を理論的に説明し、さらに実測が困難な現象についても予測し理解を深めることができると考えられる。またそれによって、計算機実験として実験事実を補完し、課題に対して理論的論証を与え得る可能性がある。こうしたnmオーダー（ナノスケール）の評価手法を用いて、より大きな時間・空間スケールでの現象論的モデルを機構論的に支持することができれば、地層処分分野において実施される種々の評価の信頼性を向上させ、その結果、セーフティケースの信頼性の向上に貢献することになる。近年、このような取り組みが、地層処分の安全評価の様々な技術要素、特に核種移行研究領域において精力的に進められてきている。

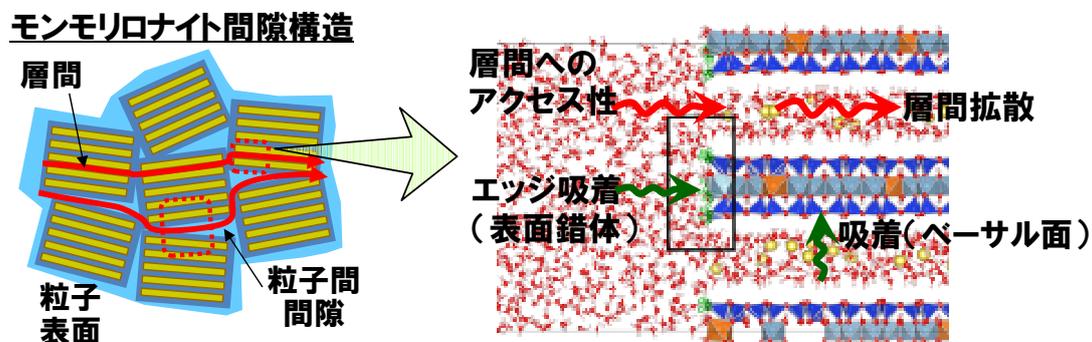


図2.3.3-3 計算科学手法によって検証すべき課題とアプローチの概念図

そこで本調査項目では、圧縮ベントナイト中の間隙水特性、溶存核種の存在形態、核種の収着・拡散メカニズム等に着目して、計算科学的手法（量子化学、分子動力学計算等）の適用事例の調査と、これらの手法を用いた予察的評価を実施した（図2.3.3-3参照）。古典分子動力学計算については、粘土鉱物の膨潤挙動、また、ベーサル表面／層間での水の特異性、 Na^+ 、 Ca^{2+} 等の交換性陽イオン及びアクチニド核種の収着・拡散メカニズムを理解するため、層電荷・間隙水塩濃度・層間間隙幅等をパラメータとして、収着・拡散挙動の変化を定量的に評価した。量子化学計算・第一原理MD計算については、粘土鉱物（モンモリロナイト）のエッジ表面における反応サイト状態や核種収着形態を理解するため、エッジモデルの構築と反応性の定量的評価を実施した。

1) 古典分子動力学（MD）計算による重要核種の収着／拡散挙動の評価

モンモリロナイト層間における交換性陽イオンの違いが、膨潤特性やイオンの拡散挙動に与える影響を調べるため、古典MD計算を用いて評価解析を行った。一般に、原子・分子間相互作用モデルを用いる古典分子シミュレーションでは、その相互作用モデルに依存して結果が大きく左右されるため、その選定は重要である。本報告の古典MD計算では、計算コードとしてMXDORTO/MXDTRICLシステム（平尾・河村，1994）を、また相互作用ポテンシャルとして全自由度

分子モデル (BMH-EX型 ; 河村, 2004) を採用した。

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

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

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

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

次に、粘土鉱物-水溶液系への古典MD計算の適用事例を示す。はじめに、放射性核種の移行経路として粘土鉱物の層間間隙が適度なサイズ・水和状態で安定かどうかを確認するため、モンモリロナイト層間を対象に底面間隔と混合過剰エンタルピーの関係を評価した。まず層電荷に対する膨潤挙動を見るため、Na型モンモリロナイトを対象に、層電荷を $z = 0, 0.2, 0.33, 0.5, 0.67, 0.75$ と変化させたものを、図2.3.3-4(a)~(f)に示す。ここで各図の横軸は、単位構造当たりの層間水分子の数 n を表す。なお、層電荷 z のNa型モンモリロナイトとして、次の組成式で表される分子モデルを用いた。



層電荷がゼロ($z=0$)のモデルは、パイロフィライトを表している。また計算は、基本的に標準状態(298.15 K, 10^5 Pa)で行った。図より、 $z = 0, 0.2$ のケースでは混合過剰エンタルピーが常に正であり、これは水とモンモリロナイトの混合によってエネルギー的に安定な状態が得られないこと、すなわち層間水和しないことを示している。一方、層電荷が0.33を超えるケースでは、混合過剰エンタルピーが負の値を示す状態が出現し、水和した状態が安定であると考えられる。特に $n = 2.5, 5, 7.5, 10$ の付近では、混合過剰エンタルピーが極小値を示し、それぞれ1層水和、2層水和、3層水和および4層水和状態として安定である可能性がある。また層電荷が0.5と0.67のケースでは、1層水和状態と2層水和状態の間に混合過剰エンタルピーが極大となる状態が存在するが何れもほとんど負の値であり、そのため1層水和状態から2層以上の水和状態へ容易に膨潤する可能性を示唆している。一方、層電荷が0.33と0.75のケースでは、1層水和状態と2層水和状態の間に正の極大値を有し、容易には膨潤しないと考えられる。

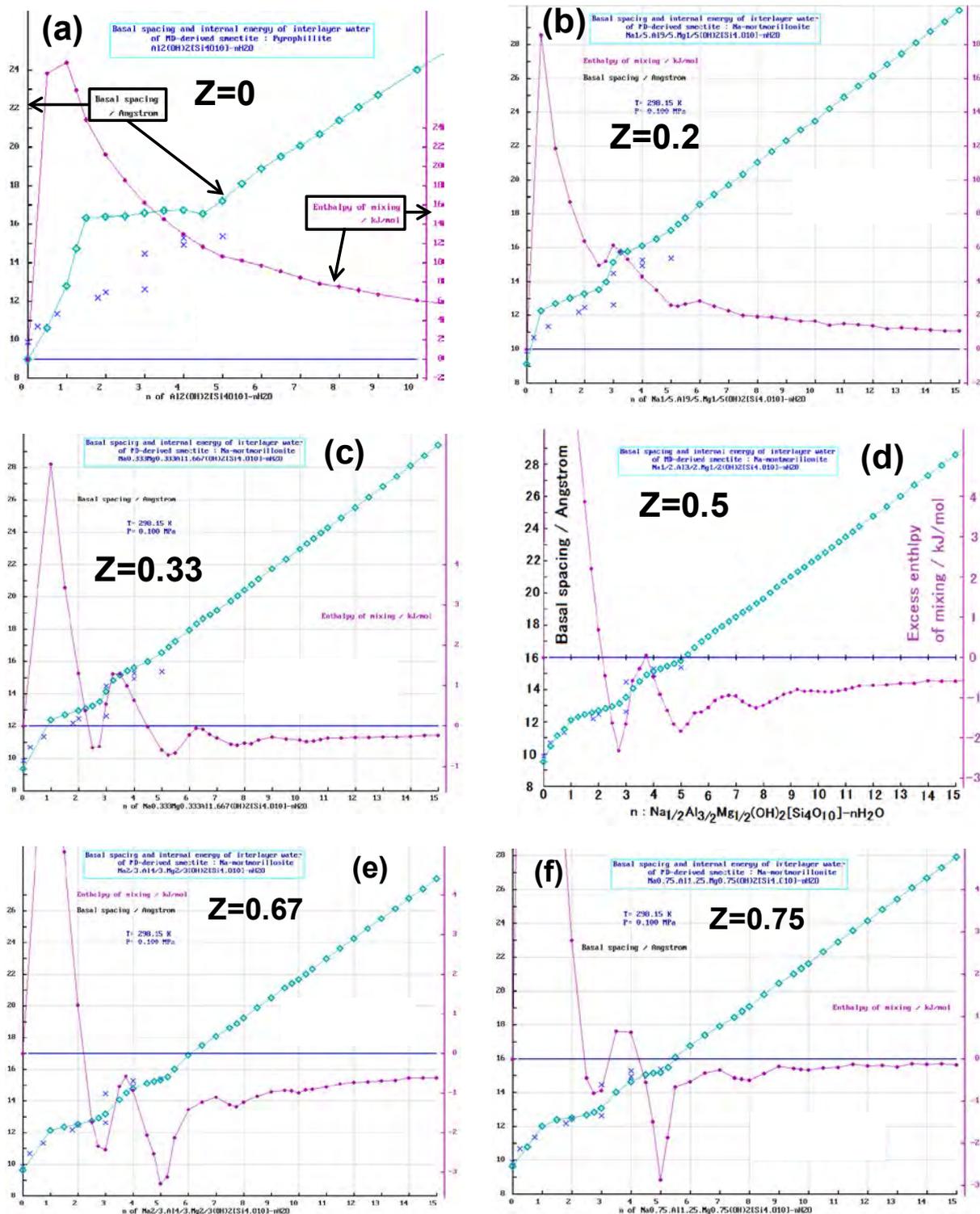


図2.3.3-4 Na型モンモリロナイト層間の底面間隔と混合過剰エンタルピーの関係：

(a) $Z=0$, (b) $Z=0.2$, (c) $Z=0.33$, (d) $Z=0.5$, (e) $Z=0.67$, (f) $Z=0.75$

(図中の水色のプロットは底面間隔を表し、左側の目盛り[Å]に対応する。一方紫色のプロットは混合過剰エンタルピーを表し、右側の目盛り[kJ/mol]に対応する)

次に、層間陽イオンの種類による影響を評価するため、層電荷を0.5に設定してNa⁺型、Cs⁺型、K⁺型、Ca²⁺型及びSr²⁺型の比較を行った。モンモリロナイト層間の底面間隔と混合過剰エンタルピー

の関係を、図2.3.3-4(d)、図2.3.3-5及び図2.3.3-6に示す。MD計算により得られた底面間隔の値をXRDによる分析データ (Morodome and Kawamura, 2011) と比較すると、どのイオン型に対しても底面間隔を定量的に良く再現している。ただしMorodome and Kawamura (2011) のデータは、相対湿度に対する依存性を評価していることに注意が必要である。またCs⁺型の混合過剰エンタルピーを見ると、安定な1層・2層水和状態が見られるが、これらの水和状態の間に混合過剰エンタルピーが正になる領域があるため、1層水和状態から2層水和状態への膨潤は自然には起こらないと考えられ、Na⁺型とは対照的である。このことは、分析データの結果とも整合的である。K⁺型の場合も同様に2層水和状態への膨潤が困難であり、この場合はほとんど水和すらしめない可能性があると考えられる。一方、2価陽イオンであるCa²⁺型及びSr²⁺型の場合は、1層・2層水和状態の間に明確なエンタルピーの壁がなく、分析データの結果を考慮すると、ただちに2層水和状態に落ち着くものと思われる。これは2価陽イオンの強い水和力の現れであると考えられる。なお、ここで比較したXRDによる分析データ (Morodome and Kawamura, 2011) は90°Cのものであるが、50°Cから150°Cまで温度を変えて分析した結果、温度による依存性はほとんどないことが確認されている (Morodome and Kawamura, 2009)。

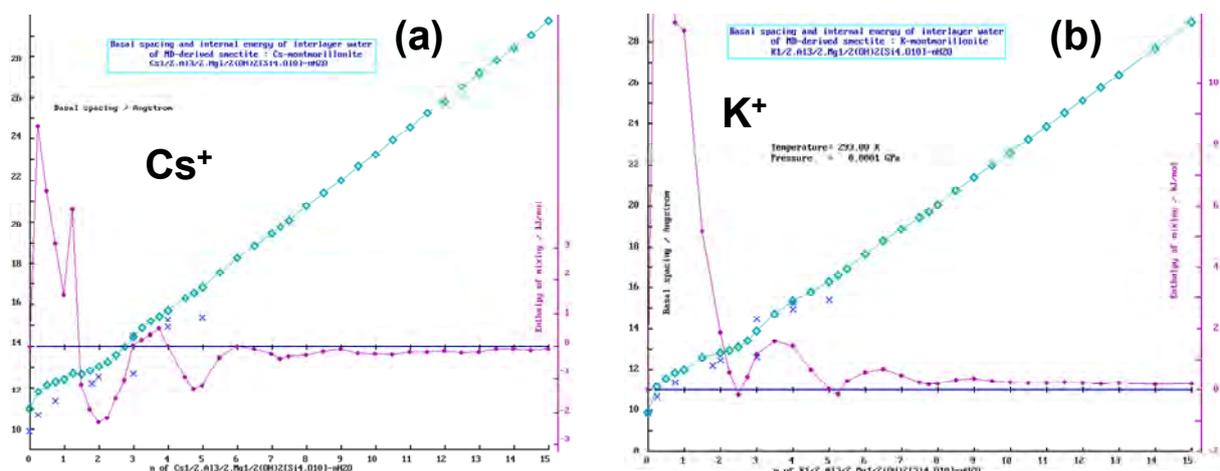


図2.3.3-5 層電荷0.5のモンモリロナイト層間の底面間隔と混合過剰エンタルピー：
1価陽イオン型のケース (a)Cs型, (b)K型

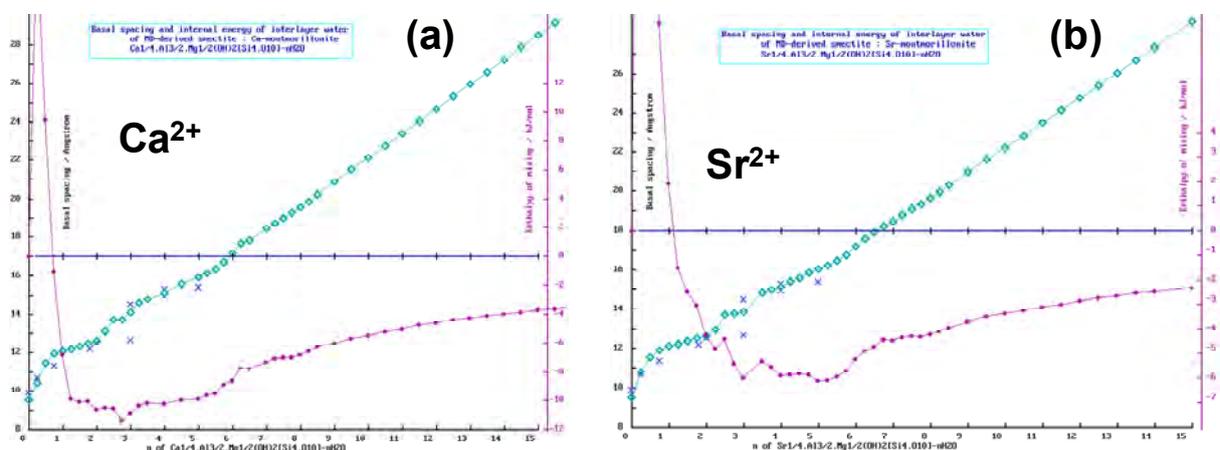


図2.3.3-6 層電荷0.5のモンモリロナイト層間の底面間隔と混合過剰エンタルピー：
2価陽イオン型のケース (a)Ca型, (b)Sr型

本報告では系のエンタルピーを計算して系の安定性を評価したが、実際には系の混合エントロピーも考慮したギブズ自由エネルギーを計算して評価すべきである。エントロピーを考慮すると、一般に自由エネルギーは減少するため、エンタルピーだけの評価に比べて安定な領域が増えるものと思われる。現状のMDシミュレーションが有効なスケールではエントロピーの評価は困難ではあるが、今後の課題として検討する必要がある。

次に、モンモリロナイト層間における放射性核種の拡散挙動を評価するため、MDシミュレーションにより粒子の平均二乗変位を計算し、層間における拡散係数を算出した。図2.3.3-7(a)に、層電荷0.5のNa型モンモリロナイト層間における水分子とNa⁺イオンの拡散係数 (D_H) を示す。横軸は層間の水和層の数であり、1層水和状態から4層水和状態まで変化させた。イオンごとのバルク溶液中における拡散係数の差異を取り除き、層間での影響を純粹に比較するため、同様にMD計算で算出したバルク溶液中での拡散係数 (D_0) で規格化した値を示す (以下、相対拡散係数と呼ぶ)。なお評価上は3次元拡散係数を算出しているが、ベーサル面に垂直な方向には閉じ込められているため、長時間極限ではこの方向の拡散係数はゼロになり、実質的にはベーサル面に平行な方向の2次元拡散係数を評価している。層間の閉じ込められた領域では、バルク溶液中に比べ拡散係数は小さくなることが予想され、層間幅が広がるとともにバルク溶液中での値に近づくと考えられるので、図2.3.3-7(a)は妥当な結果と言える。また電荷をもつNa⁺イオンは、水分子に比べてベーサル面との相互作用が強く、相対拡散係数が小さな値で推移している。図2.3.3-7(b)は、2層水和状態におけるNa⁺イオンと水分子の空間分布のスナップショットであり、Na⁺イオンは2つの水和層に挟まれて外圏錯体的に分布していることが分かる。同様にCs型モンモリロナイト層間における拡散挙動を、図2.3.3-8に示す。Na⁺イオンの場合に比べてCs⁺イオンの相対拡散係数が非常に小さいが、これはCs⁺イオンの空間分布から判るように内圏錯体的に分布し、ベーサル面との相互作用が強いためであると考えられる。Cs型と同様の傾向性を示すタイプとしてK型があり、上記の膨潤挙動も考慮すると、同じイオングループの特徴 (構造破壊的水和: 大瀧, 1990) が現れているものと思われる。一方、2価陽イオンであるCa型モンモリロナイトの場合は、図2.3.3-9に示したように、Na⁺イオンと同様の外圏錯体的分布を示すが、Na⁺イオンよりもさらに水和力が強いいため、水分子はCa²⁺イオンに追随した拡散挙動を示しているものと考えられる。Sr型の場合も、同様の傾向性が見られた。

拡散するイオンがベーサル面に対する「対イオン」として存在する場合と、「トレーサーイオン」として存在する場合とで、その拡散挙動を比較するため、層電荷0.5のNa型モンモリロナイト層間におけるCs⁺イオンの相対拡散係数を評価した (図2.3.3-10(a))。本解析では、Na⁺イオンに対するCs⁺イオンの相対濃度を1/60として計算している。平均二乗変位を計算する際の、Cs⁺イオンの統計量が少ないことを考慮する必要があるものの、対イオンとして存在するCs⁺イオンの場合と同様な傾向を示すことが判る (図2.3.3-8参照)。同様に、Na型モンモリロナイト層間にUO₂²⁺イオンがトレーサーとして存在するケースを検討した (図2.3.3-10(b))。ベーサル面との相互作用を考慮すると、UO₂²⁺イオンは2価陽イオンとして予想された拡散挙動を示していると言える。

相対拡散係数の評価では何れのケースでも、バルク溶液中における自己拡散係数の評価が重要である。しかしながら、特に無限希釈系での自己拡散係数の算出は統計誤差の観点から評価が困難であり、また計算負荷も非常に大きい。分子シミュレーションによるナノスケールでの拡散挙動

評価においては、こうした課題を整理し克服することが計算結果の信頼性を高める上で重要である。

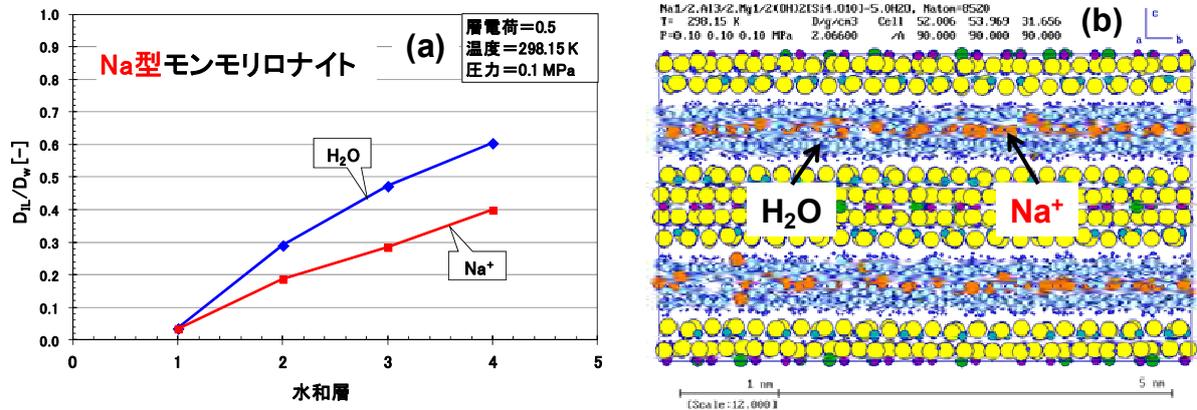


図2.3.3-7 層電荷0.5のNa型モンモリロナイト層間における水分子と対イオン：
 (a)層間水和数に対する拡散係数、(b)空間分布のスナップショット

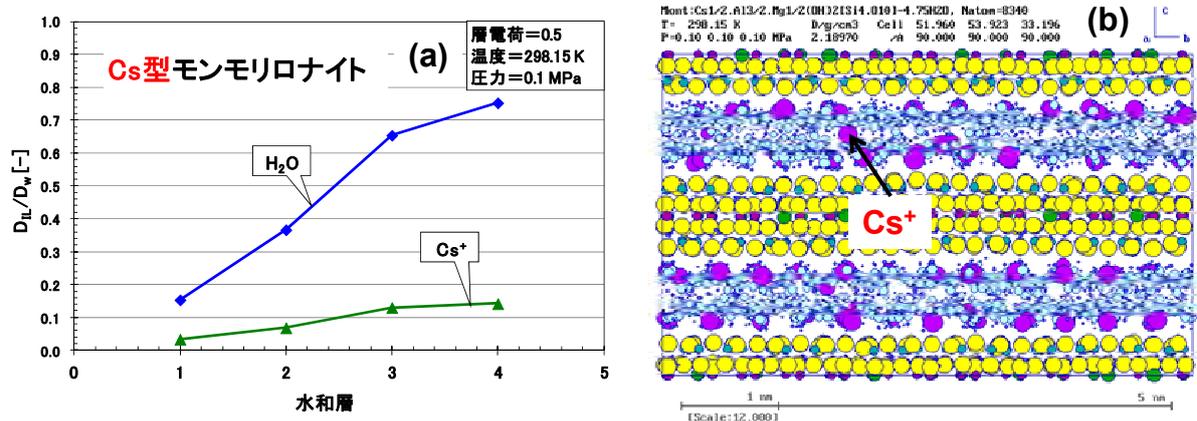


図2.3.3-8 層電荷0.5のCs型モンモリロナイト層間における水分子と対イオン：
 (a)層間水和数に対する拡散係数、(b)空間分布のスナップショット

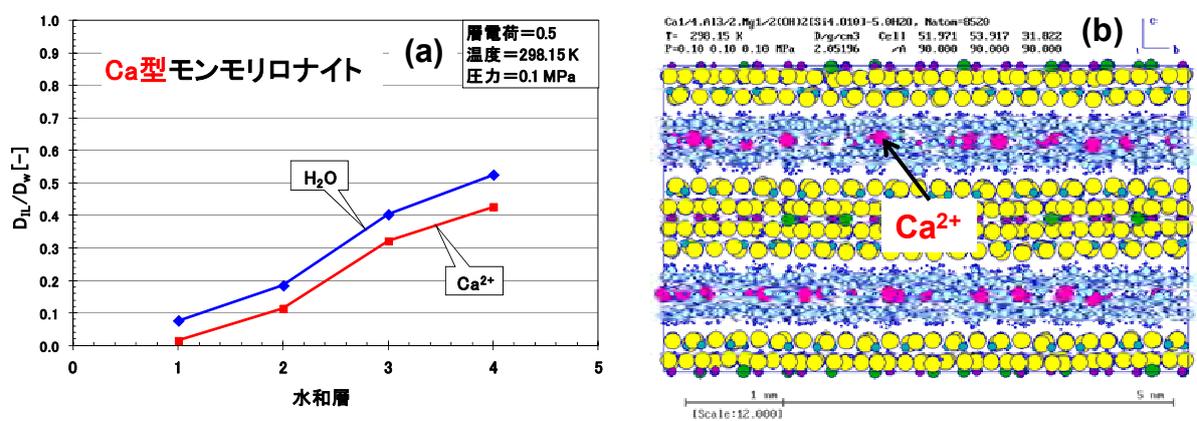


図2.3.3-9 層電荷0.5のCa型モンモリロナイト層間における水分子と対イオン：
 (a)層間水和数に対する拡散係数、(b)空間分布のスナップショット

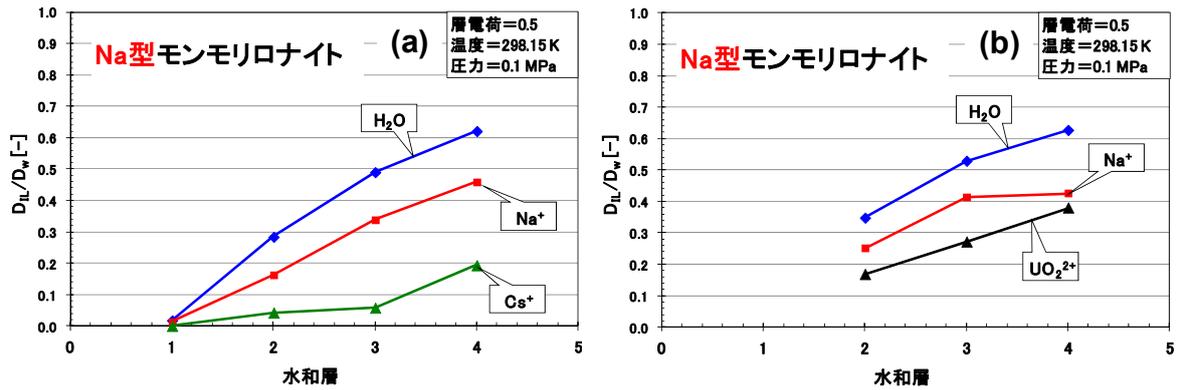


図2.3.3-10 層電荷0.5のNa型モンモリロナイト層間における水分子、対イオン、及びトレーサーイオンの拡散係数：(a)Cs⁺、(b)UO₂²⁺

2) 量子化学計算によるモンモリロナイト・エッジ表面の安定性と核種収着挙動の評価

粘土鉱物のエッジ表面構造と放射性核種の収着形態に関する知見を得るため、モンモリロナイトのエッジ表面を対象に表面構造のバリエーションと層電荷の影響を考慮してモデル化し、量子化学計算により評価を行った。また、粘土鉱物のエッジ表面に関するこれまでの研究について、文献調査を実施した。

① 粘土鉱物のエッジ表面に関する既往研究の調査

2:1型粘土鉱物のエッジ表面構造・吸着能を評価するため、これまでに実施されてきた理論計算のレビューを行った。このレビューによって、本研究の目的・検討課題を確認することができる。

・対象とすべき粘土鉱物のエッジ表面について

粘土鉱物のエッジの構造を直接計測することは難しく、理論的な考察が先行してきた。現在の第一原理計算や古典分子動力学計算で使われているモデル構造は、結晶成長理論に基づく安定エッジ構造の提案 (White and Zelazny, 1988) を基にしている。結晶成長理論では、すべての結晶面は強い結合の連続的なつながり (chain) に平行となると説明しており、これに従えば、雲母・粘土鉱物の場合、2つの安定構造{110}、{010}が考えられ、それらをA, B-chainと呼んでいる。その後、フロゴパイトの水熱合成実験から、{100}と{130}のエッジの存在が示唆され (Sun and Baronnet, 1989a, 1989b)、これら4つのエッジ{110}、{010}、{100}、{130}の構造を考えることが多い。

・エッジの安定性とプロトンの存在形態について

A, B-chainのエッジ構造のpHに依存した電荷状態は、八面体、四面体サイトおよびそれらをつなぐサイトの酸解離定数(p*K_a*)値として水中の単量体の値 (Jackson, 1964) を使って予測されている (White and Zelazny, 1988)。しかしこの酸解離定数の予測はあくまでも仮説であり、精密な理論計算による解析が必要であった。A, B-chainおよび{100}、{130}のエッジについて、クーロンエネルギーから安定性の評価が実施され、エッジ面を作るのに必要なエネルギーは{100}と{130}の方が{110}と{010}よりも高いことが示唆された (Bleam et al., 1993)。しかしながら、表面の構造緩和等を考慮したものではなく、またクーロンポテンシャル以外の寄与を無視したものであった。

・酸化物表面におけるプロトンの親和性に関する種々のモデルと第一原理計算からの予測

Multisite Complexation (MUSIC)モデルは、酸化物表面のプロトンの結合・解離を金属イオン (Me) ごとに評価する方法であり、特に結晶表面が複数のMe-O(H)基で構成されている場合に有効である。一般に化合物表面のMe-O(H)基のプロトンの結合・解離反応をMeごとに評価することは実験的に難しいので、初期のMUSICモデル (Hiemstra et al., 1989a, 1989b) ではPaulingのbond valenceを利用して各原子の有効電荷を導き、その電荷を用いたクーロンエネルギーに基づく自由エネルギー変化とプロトンの結合定数を関連付けた。その際に未知のパラメータは、水溶液中のMe-O(H)の単量体の実験結果から導出し、これらを結晶表面にも適用できるように調節した。ここでのクーロンエネルギーの導入は、そもそもbond valenceが有効電荷ではないことから批判がある (Bleam, 1993)。また初期のMUSICモデルは α -FeOOH(goethite)やシリカの pK_a を予測できないことがわかり、この原因を、Paulingのbond valenceが原子間距離を考慮せずに電荷を等分配していること、また水素結合の影響を無視したことにあると考え、新たに原子間距離の関数としてbond valenceを定義し、新しいMUSICモデルが提案された (Hiemstra et al., 1996)。このようなbond valenceを原子間距離で定義するという試みは、この時点ですでに多くの研究が公表されており (Brown and Shannon, 1973; Brown and Wu, 1976; Brown and Altermatt, 1985)、その結果 (Brown and Altermatt, 1985) をMUSICモデルに取り込んだことになる。この新しいMUSICモデルでは、 pK_a を酸素原子の形式電荷とbond valenceの総和の差 (unsaturated valence) と関連付けた。ただし、このMUSICモデルは表面での構造緩和を考慮しておらず、以下に述べるようにうまく表面構造緩和を取り入れることができないとの批判がある。

第一原理計算を用いた粘土鉱物エッジの構造・安定性の評価は、パイロフィライトのA, B chainに関して実施された (Bickmore et al., 2003)。この計算では、密度汎関数理論 (DFT) に基づく電子状態計算で構造最適化を行い、原子間結合距離およびプロトンの配置に伴うエネルギーの変化を導出した。構造緩和前のエッジについて、MUSICモデル (Hiemstra et al., 1996) に従ってエッジの酸解離定数 pK_a を推定できるが、第一原理計算で予測された構造緩和を取り入れると不自然な値を示すため、MUSICモデルでは粘土鉱物のエッジのプロトン親和性を説明できないと報告されている。このため、Brown (Brown, 1981; 2002) によって提唱されたbond-valenceモデルを応用することを推奨している。Brownのbond-valenceモデルは原子間距離に応じてbond valenceが変化し、 pK_a は結合に関与していないオービタルと関連付けられるので、物理的理論に基づく説明が比較的容易であり、応用性が高い。エッジの原子間距離は第一原理計算から導出し、このBrownのモデルを使うことで、パイロフィライトの{010}と{110}ではシラノールの pK_a が大きく異なる (それぞれ7.6と11.1) ことを示唆した。これはエッジの構造に起因する電子状態を反映していると考えられる。しかしながら、この結果はまだエッジが水と接していない真空中の結果である。その後、bond-valenceモデルと第一原理計算を組み合わせた手法の開発が進められている (Bickmore et al., 2004; 2006)。また、MUSICモデルの改良も進められている (Machesky et al., 2008)。

・第一原理計算のみによる構造と反応性の予測

Bond valence 理論と第一原理計算を組み合わせる方法は、第一原理計算の負荷を大幅に減らし、実用的であるものの、経験的なbond valence理論に大きく依存している。そこで第一原理計算からエッジの反応性を直接評価する試みがある。Churakov (2006) では、パイロフィライトのエッ

ジ{110}、{010}、{100}、{130}に関してDFT計算を実施し、各元素の有効電荷をpopulation analysisから導出し、その有効電荷と pK_a の関係を導こうとした。しかし、それらに関係付けるパラメータの導出までは行っていない。また、エッジ表面が水と接しておらず、真空中の結果であった。Churakov (2007) では、パイロフィライトの{110}、{010}、{100}に関して水と接した系を作り、初めて第一原理分子動力学 (MD) 計算を実施し、プロトンの吸脱着反応を可視化したが、エッジのMe-OH基の反応性は定性的な評価である。これまでの第一原理MD計算は、層電荷がゼロのパイロフィライトを対象としたものであったが、{110}、{010}のエッジ近傍のみの同形置換 (八面体のAlをMg、もしくは四面体のSiをAl) を考慮した第一原理MD計算がLiu et al. (2012) で実施されている。この研究では、エッジの八面体の周りの水分子の配位数を計算するために、熱力学的積分法を用いて自由エネルギーを計算した。しかしながら、同形置換に伴う電荷補償のため層間に Li^+ を配置しており、また層電荷が0.25であることから、この結果をNaやCaを層間イオンとする膨潤性の粘土鉱物に適用できるかは明らかでない。

粘土鉱物エッジの pK_a を直接計算することは、vertical energy gap法と第一原理MD計算を組み合わせた手法が提案され、2:1型の粘土鉱物に対して適用されている (Tazi et al., 2012; Liu et al., 2013; Liu et al., 2014)。Tazi et al. (2012) は、この手法をパイロフィライトの{010}エッジに適用し、SiOHの pK_a 値 (6.8 ± 0.4) が $AlOH_2$ (7.6 ± 1.3) よりも小さく、 $AlOH$ (22.1 ± 1.0) が最も大きい pK_a 値を示すとした。モンモリロナイトの局所構造を想定し、{010}エッジの八面体の同形置換 (AlからMg) をモデルとした計算から pK_a を見積ると、Mg近傍のSi-OHの pK_a が2~3増加することが分かった (Liu et al., 2013)。Liu et al. (2014) は、Liu et al. (2012) と同様の{110}、{010}を研究対象とし、エッジ最近傍の同形置換も行っている。これらの研究成果は、層状ケイ酸塩のエッジの反応性に関して重要であるが、層電荷が0.25で層間イオンが Li^+ であり、現実系とは異なる。また、層間に水が存在する場合の影響も無視されている。

Uranylイオン (UO_2^{2+}) のエッジへの吸着構造を第一原理計算から見積もる研究 (Kremleva et al., 2015) も着手されているが、まだ構造最適化のみの計算であり、層電荷も0.25と限られた条件での計算が始まったばかりである。

② 粘土鉱物のエッジ表面の構造安定性の評価

ここでは、上記文献調査を踏まえ、層電荷0.33のモンモリロナイト・エッジモデルとしてA, B, C, D, E chainと定義した構造の安定性を調べることを目的とする。これらの構造モデルを、図2.3.3-11に、左にTop view、右にSide viewとして示した。Mgの同形置換部分を茶色で示し、層間イオンである Na^+ を黄色で示した。このうち、モンモリロナイトの場合にはAとCが等価な構造となるため、実際にはA, B, D, E chain構造を評価すればよい。平成26年度はA chainに関して、同形置換・層間イオンを網羅的に配置し、エッジの表面エネルギーの計算結果を報告した。平成27年度は、A chainの結果に加えて残りのB, D, E chainsの結果について報告する。

エッジの表面エネルギーは、次式で計算する。

$$E_{\text{surf}} = \frac{E_{\text{surf}}^{\text{MM}} - (E_{\text{bulk}}^{\text{MM}} + nE_{\text{gas}}^{\text{H}_2\text{O}})}{A} \quad (2.3.3-3)$$

ここで $E_{\text{surf}}^{\text{MM}}$ はエッジを含むスーパーセルの量子計算から得られる全エネルギー、 $E_{\text{bulk}}^{\text{MM}}$ はバルク

状態のモンモリロナイト結晶の量子計算から得られる全エネルギー、 n は吸着させた水分子の数、 $E_{\text{gas}}^{\text{H}_2\text{O}}$ は孤立水分子の量子計算から得られる全エネルギー、 A はエッジ表面の面積(スーパーセル内に2つのエッジがあるのでそれらの和)を示す。エッジの面積の定義は、原子スケールで考えると厳密には難しいが、本研究では、スーパーセルを直交系で作成し、 $[001]$ を b 軸、エッジが出ている方向を c 軸、モンモリロナイトの厚みを 10 \AA としたときに、 $A = 10.0 \times a \times 2$ として計算した。本研究では、 $8\text{H}_2\text{O}$ が解離も含めてエッジに吸着した構造となっており、ダングリンボンドは存在しない。式 (2.3.3-3) で必要なエネルギーの導出には、密度汎関数理論に基づく第一原理電子状態計算を用いた。

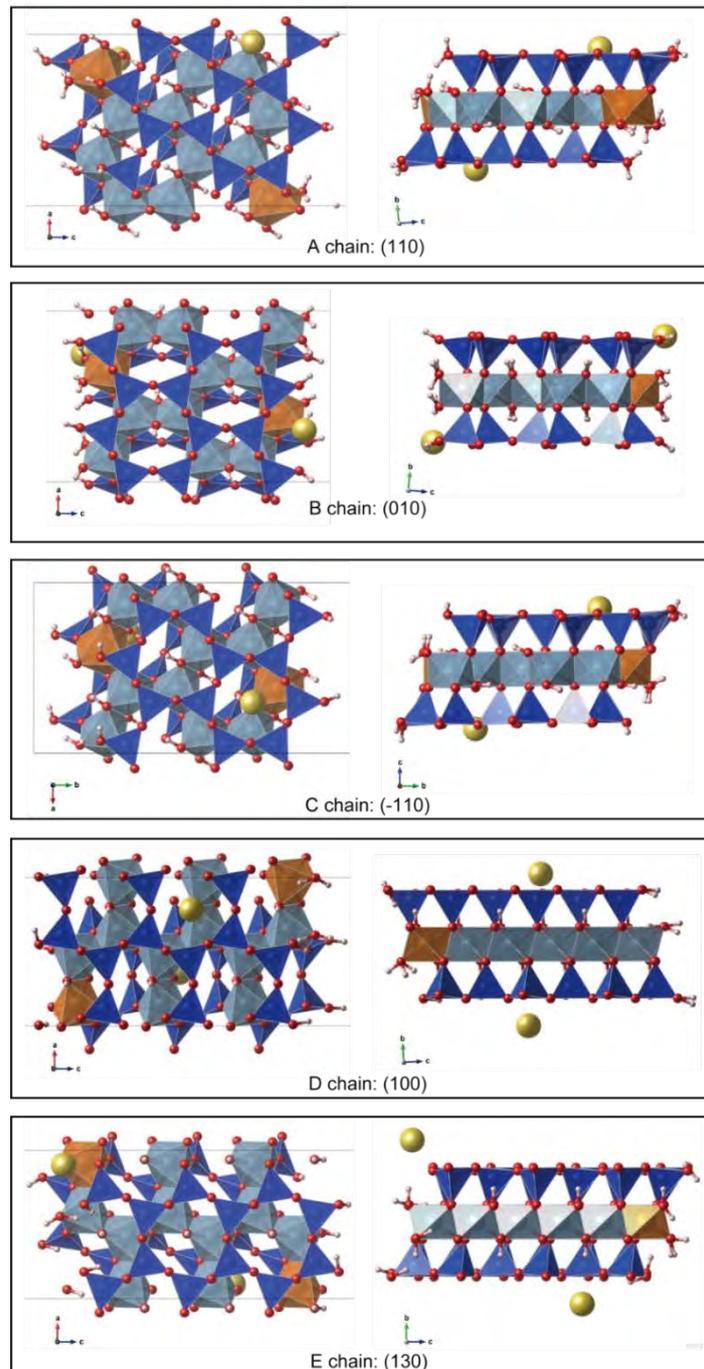


図2.3.3-11 モンモリロナイト (層電荷0.33) のエッジモデル
(左側にTop view、右側にSide viewとして示す。Mgの同形置換部分を茶色で示した)

図2.3.3-12に、A chainを例にして、表面エネルギーと各同形置換（Case 1, 2, 3）のNaイオンの配置による表面エネルギーのヒストグラムを示す。また図2.3.3-13には、各chainにおけるCaseごとの表面エネルギーの頻度分布を示す。A chainの場合、ヒストグラムからわかるように全体的にCase 1の表面エネルギーが高く、Case 3が低い表面エネルギーを示す。このことからA chainの場合は、Mgがエッジ近傍に存在するとより不安定であることがわかる。一方、B chainの場合には、同形置換の配置による表面エネルギーの明確な違いはみられない。また、D chainの場合には、同形置換の配置による表面エネルギーの明確な違いがわかる。Case 1の表面エネルギーが高く、Case 2, 3は有意な違いがなく、Case 4が最もエネルギーが低い。このことは、A chain同様にMgがエッジ近傍に存在するとエネルギー的に不安定であることを意味している。同様にE chainの場合にも同形置換の配置による表面エネルギーの違いがわかる。Case 1の表面エネルギーが高く、Case 2, 3は有意な違いがなく、Case 1よりは低い。Case 4はそれらの間にエネルギーのピークがある。このことは、A, D chain同様にMgがエッジ近傍に存在するとエネルギー的に不安定であることを意味している。ただし、Case 4が最もエネルギーが低くなっていない原因として、同形置換のMg間の距離が近いために不安定化している可能性が考えられる。

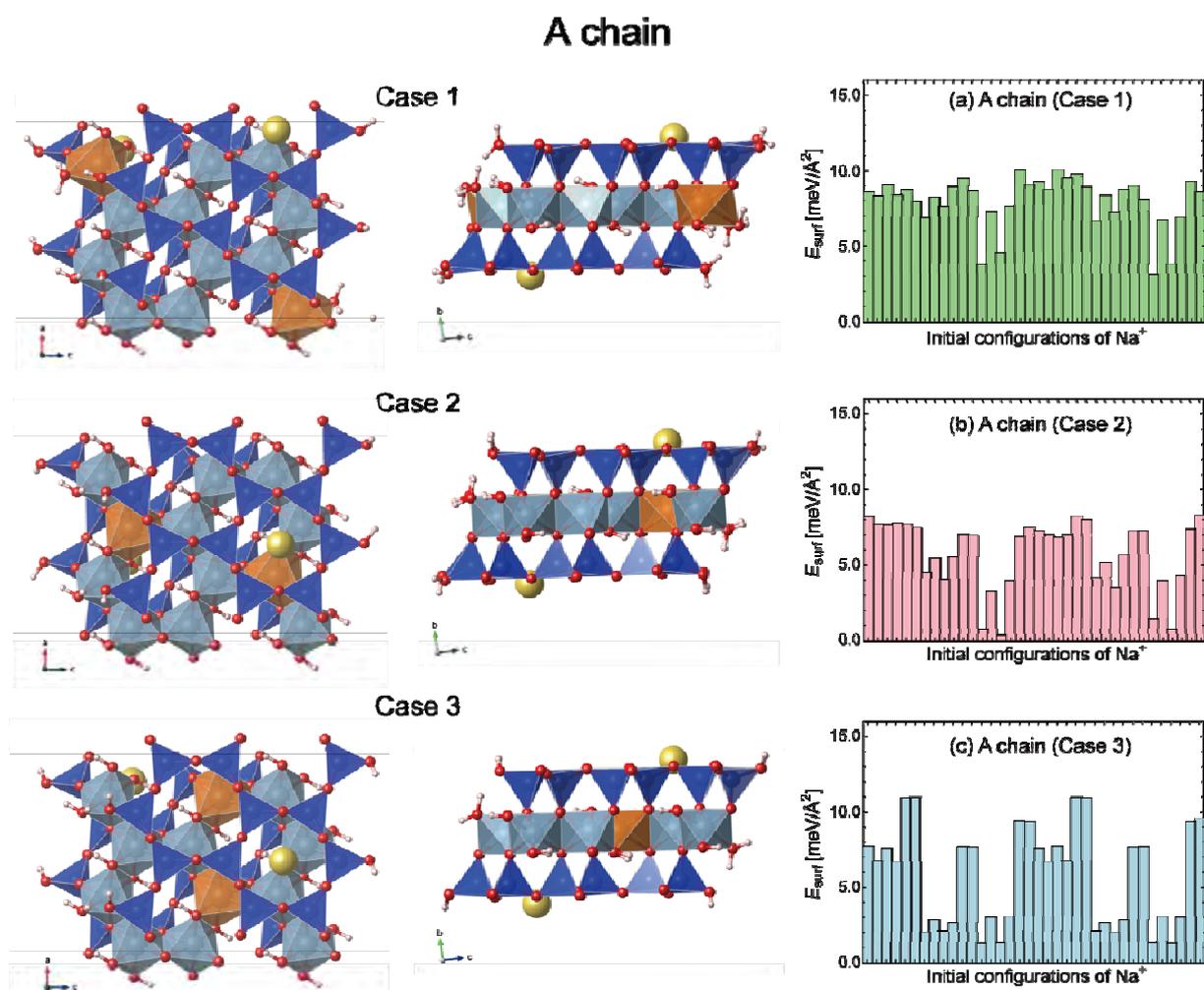


図2.3.3-12 A ChainのMgの同形置換（茶）の配置による区分（Case 1, 2, 3）とNaイオン（黄）の位置による表面エネルギー変化（a, b, c）

以上の解析結果より、B chainを除いて、Mgはエッジよりも結晶内部に存在する方が安定であること、またA, D chainでMgが結晶内部にある場合、表面エネルギーがB, E chainに比べて低下しやすいことなどが判る。B chainの場合に、Mgの同形置換の配置がエッジの安定性に影響していないことに関しては明確な原因はわからないが、層間イオンであるNa⁺がエッジにあるMgO₆八面体に、より近づくことのできるエッジであることが一つの原因である可能性がある。

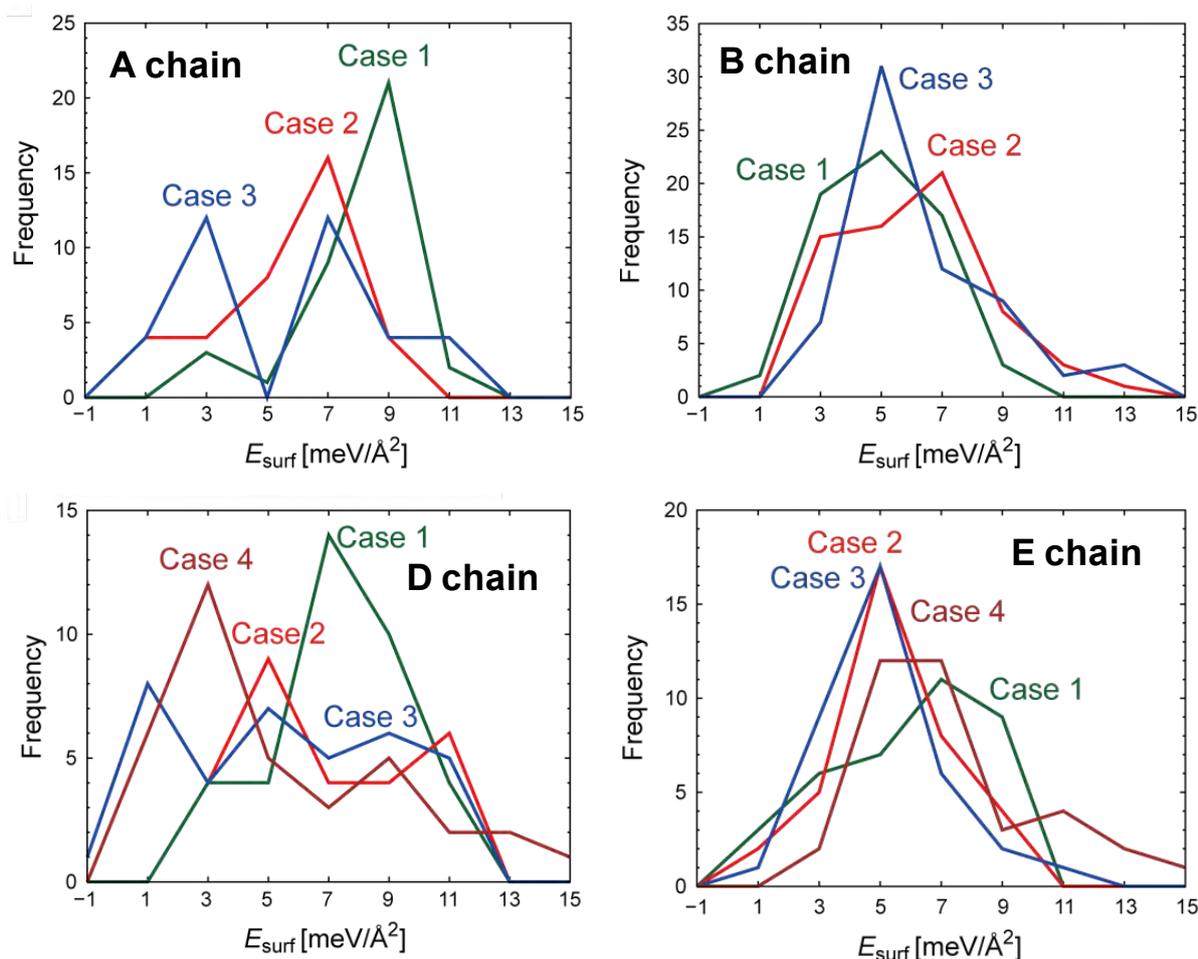


図2.3.3-13 各ChainにおけるCaseごとの表面エネルギーの頻度分布

(3) 多様な溶液系へのISD拡散モデルの適用評価

地層処分施設の人工バリアシステムにおいては、セメント系材料や鉄製オーバーパックの共存に伴い、ベントナイト緩衝材中のモンモリロナイトがCa型化やFe型化することなどによる、緩衝材のバリア機能の低下が懸念されている（核燃料サイクル開発機構，1999b）。これまでISDモデルによる解析では、おもにベントナイト密度依存性や塩濃度依存性に関する影響評価を実施してきており、モンモリロナイトの層間陽イオンとしてNa⁺のみを考慮していた。また、液性については1:1型のNaClが支配的な溶液を想定しており、電解質のタイプによる評価・比較が十分ではなかった。そこで平成27年度は、層間陽イオンが2価陽イオンであるCa型化することを想定して、ISD拡散モデルの2:1型電解質溶液への適用評価を実施し、併せて1:2型電解質の場合も比較することにより、多様な層間陽イオン及び溶液系へのモデルの適用性について評価した。

解析に用いたモデルは従来の最もシンプルなPoisson-Boltzmann方程式に基づくモデルであり、バルク溶液の電解質タイプのみを変化させた。乾燥密度=800 [kg m⁻³]のクニピアF[®]（モンモリロナイト含有率99%、真密度=2880 [kg m⁻³]) に対して計算した。また、ベントナイトの陽イオン交換容量=1.042×10⁵ [C kg⁻¹]、モンモリロナイト比表面積=8.1×10⁵ [m² kg⁻¹]、水の電気粘性係数は1.02×10⁻¹⁵ [V² m⁻²]を用いた。幾何学因子の計算には、トリチウム水 (HTO) の実効拡散係数の実測データに基づき、電粘性を考慮して評価した。

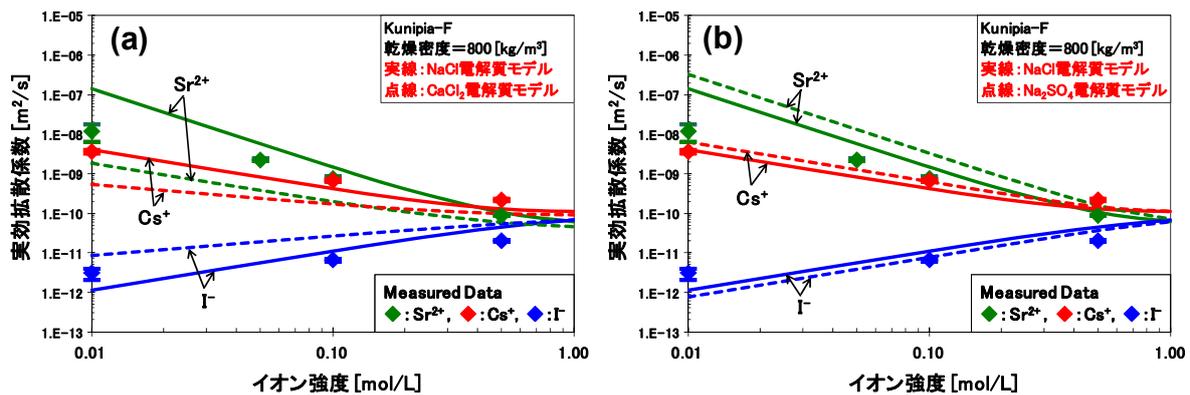


図2.3.3-14 異なる電解質タイプの実効拡散係数の解析例：
(a)2:1型電解質モデル、(b)1:2型電解質モデル

2:1型電解質モデルの例としてCaCl₂を想定したケースと1:2型電解質モデルの例としてNa₂SO₄を想定したケースの解析結果を、それぞれ図2.3.3-14(a)及び図2.3.3-14(b)に示す。何れもSr²⁺, Cs⁺, I⁻を対象に実効拡散係数のイオン強度依存性を示しており、イオン強度を揃えるためNaClのモル濃度に対してCaCl₂とNa₂SO₄は1/3倍のモル濃度で計算している。CaCl₂型モデルを見ると、NaCl型に比べて何れの核種も電氣的収れん度が低く抑えられており (δ_{e1} が1に近づく)、実効拡散係数のイオン強度依存性が小さくなる傾向にある。一方、Na₂SO₄型モデルを見ると、NaCl型に比べて電氣的収れん度が逆に大きくなるのが判るが、2:1型ほど極端ではない。2:1型タイプと1:2型タイプのこの非対称性を理解するために、イオン強度が0.01 [mol dm⁻³]の条件で、静電ポテンシャルの分布 (図2.3.3-15(a)) と対イオンの濃度分布 (図2.3.3-15(b)) を比較した。

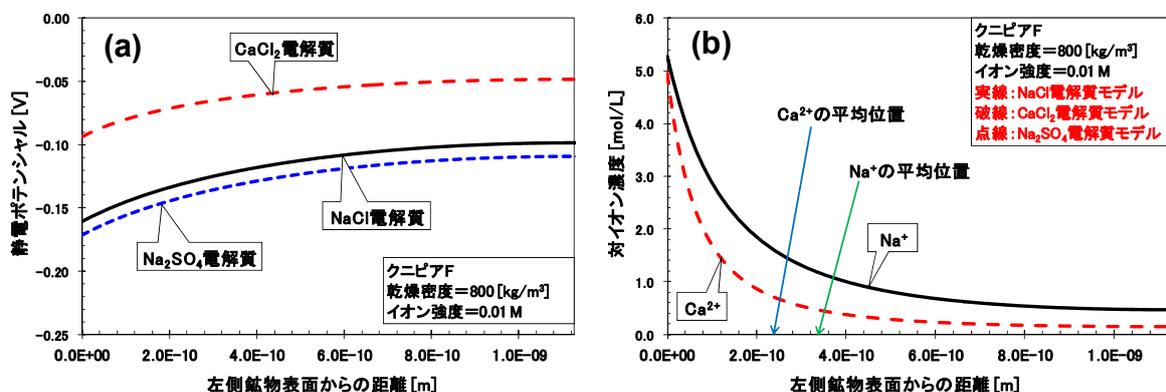


図2.3.3-15 (a) 静電ポテンシャルの分布、(b) 対イオンの濃度分布 (イオン強度=0.01M)

静電ポテンシャル分布の比較（図2.3.3-15(a)参照）から判るように、電氣的収れん度の非対称性が静電ポテンシャル分布の非対称性に起因していることは明らかである。そこで、この非対称性の原因を調べるため、対イオンの濃度分布（図2.3.3-15(b)参照）を見る。NaCl型の対イオンとNa₂SO₄型の対イオンは何れもNa⁺イオンであるが、分布はほとんど重なっており、図では区別がつかない。このことは、電解質陰イオンの種類・価数に関係なく、電解質陽イオンが同じならば鉱物表面との相互作用はほとんど同じであることを示している。一方、CaCl₂型の対イオンであるCa²⁺イオンは鉱物表面との相互作用が強いため、より表面に近いところに分布していることが判る。従って、この対イオンの分布の差が静電ポテンシャルの非対称性として顕在化していると言える。CaCl₂型の場合は、Ca²⁺イオンが鉱物表面近傍に強く凝集することによって電場の広がりや遮蔽され、静電ポテンシャルの絶対値がNaCl型やNa₂SO₄型に比べ小さくなったと考えられる。ちなみに、Na⁺イオンの鉱物表面からの平均位置は 3.35×10^{-10} [m]であるのに対し、Ca²⁺イオンのそれは 2.45×10^{-10} [m]である。仮にこれらの平均位置に、絶対値が鉱物表面の電荷密度と同じで、プラスの電荷を帯びた平板が存在すると仮定すると、平行平板コンデンサーとみなすことができ、「NaCl型コンデンサー」の平板間電位差は-62.1 [mV]になり、また「CaCl₂型コンデンサー」の平板間電位差は-45.4 [mV]になる。一方、静電ポテンシャルの分布図（図2.3.3-15(a)参照）から、鉱物表面（図の左端）と層間の中点（図の右端）との電位差を計算すると、NaCl型では-62.2 [mV]、CaCl₂型-45.6 [mV]となり、整合的であることが確認できる。

以上まとめると、圧縮ベントナイト間隙水が完全に2:1型のCaCl₂電解質溶液に変化した場合、1:1型のNaCl電解質溶液の場合に比べて、2価の対イオンによる強い遮蔽効果によってトレーサーイオンと鉱物表面との電氣的相互作用が抑制され、実効拡散係数はバルク溶液中での値に近づく。それに対し1:2型のNa₂SO₄電解質溶液の場合、対イオンがNaClの場合と同じ1価陽イオンであるため、差はほとんど現れなかった。

(4) アップスケールリング手法の検討

1) はじめに

本研究では、ミクروسケール、メソスケールおよびマクروسケール（実測値等）のマルチスケールでの連携を具体化するため、その基盤技術となる多孔質媒体の間隙構造のメソスケールに着目したモデル化手法と、モデルによる実測値と比較可能なマクロ拡散係数等の算出方法の整備を目的とする。また、本研究では、計算効率の向上に向けたGPGPU（General Purpose computing on Graphics Processing Unit）の活用についても検討する。

本研究では、平成25年度までに、ランダムウォークによる3次元非定常拡散解析を、GPGPU上で並列計算することで、複雑形状領域における拡散問題に対しても著しい計算効率の向上が達成できることを示した。また、平成26年度には、粘土シートの堆積に着目したメソスケール分子シミュレーション（個別要素法DEM）により作成する堆積構造モデルにより、粘土含水系の多孔質媒体の幾何形状や間隙構造を表現する研究に着手し、基本プログラムの作成を行った。このプログラムでは、粘土シートは大きく弾性変形しうると仮定し、水和した粘土シートを重力場のもとで堆積させることで、2次元的な積層構造を持つ多孔質体媒体を作成することが可能となった。しかしながら、結果として生じる堆積構造が非現実的なものであったため、より柔軟な粘土シートの堆

積条件を設定できる機能を導入することが主たる課題として残った。

以上を踏まえ、本年度は以下を目的とした研究を進めた。

- ・より現実的な粘土シートの堆積のシミュレーションを行うために、メソスケール分子シミュレーションプログラムの改良を行う。具体的には、粘土含水系に体積拘束をかけることで、系を圧縮し所定の間隙比や飽和度の多孔質体モデルを作成できるようにする。
- ・上記プログラムで作成した堆積構造モデルを用いた拡散解析を行うための、粒子系拡散解析（ランダムウォーク）および連続体拡散解析（有限要素法や差分法）のためのシミュレーションプログラムを開発する。
- ・拡散解析の結果を用いてマクロ拡散係数（見かけの拡散係数）・密度・間隙率・飽和度といったマクロパラメータの算出をできるようにする。
- ・プログラム間のデータ受け渡しインターフェイスを整備し、一連の解析・処理を逐次一括実行できるようにする。

以上に取り組むことで、顕微鏡等による直接観測が非常に困難な粘土含水系の堆積構造のモデルを作成し、それに基づきナノスケールレベルの微視的な間隙構造（拡散経路として見たときの間隙の屈曲状況等）の特性と観測可能なマクロ物性値とを計算科学の手法により結びつけることができる。このようなアプローチはこれまでほとんど行われておらず、性能評価解析技術の高度化という工学的意義のみならず、粘土含水系の物理化学的性質を解明するための科学的に有用なツールとしての意義も有すると期待される。

2) 問題設定

厚さ1nm程度、幅10~100nmの水和した粘土鉱物が堆積し、間隙の全てあるいは一部が水で満たされた状態を考える。ここでは、間隙水中を物質が移動する様子をシミュレーションするために、

- ・水和粘土シートの堆積構造モデル生成
- ・間隙水中の物質の拡散解析
- ・粘土含水系全体としての拡散係数（マクロ拡散係数）の算出

を行うための数値シミュレーションを考える（図2.3.3-16参照）。

このようにして求められた微視的構造（堆積構造、間隙構造）を考慮したマクロ拡散係数を用いれば、拡散媒体の微視的な構造を反映しつつ、より大きな時間・空間スケールでの拡散解析を、微視構造を直接モデル化することなく実施することができる。この意味で、堆積構造のモデルの作成からマクロ拡散係数の算出までを行うことは、マルチスケール解析の一プロセスを完結させることに相当する。なお、現実のベントナイト緩衝材における拡散に対応した時間・空間スケールに至るには、このようなアップスケーリングを複数回繰り返すことが必要になる。従って、ここで考える拡散問題は、微視スケールと最終的なターゲットとなるマクロスケールの中間ということができる。この点を考慮し、本件で扱う拡散問題を、以下、“メソスケール拡散問題”と呼ぶ。

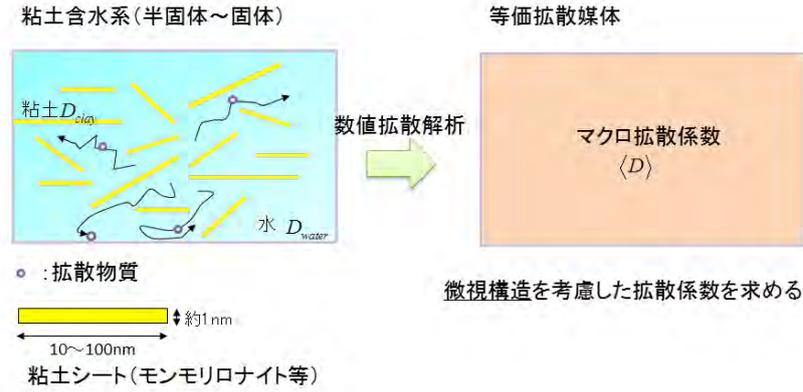


図2.3.3-16 メソスケール拡散問題とマクロ拡散係数のイメージ

3) シミュレーションプログラムの全体構成

一連のシミュレーションは以下の2つの主要プログラムといくつかの補助プログラムで構成される(図2.3.3-17参照)。

・メソスケール分子シミュレーション

分子動力学シミュレーション(MD)によって与えられたシート間相互作用力と、シート剛性を用いて、粘土分子の堆積シミュレーションを行う。

・拡散解析ソルバー

拡散解析には、拡散粒子個々の挙動を追跡するランダムウォーク、連続体に対する数値解析法である有限要素法、有限体積法、有限差分法を利用する。

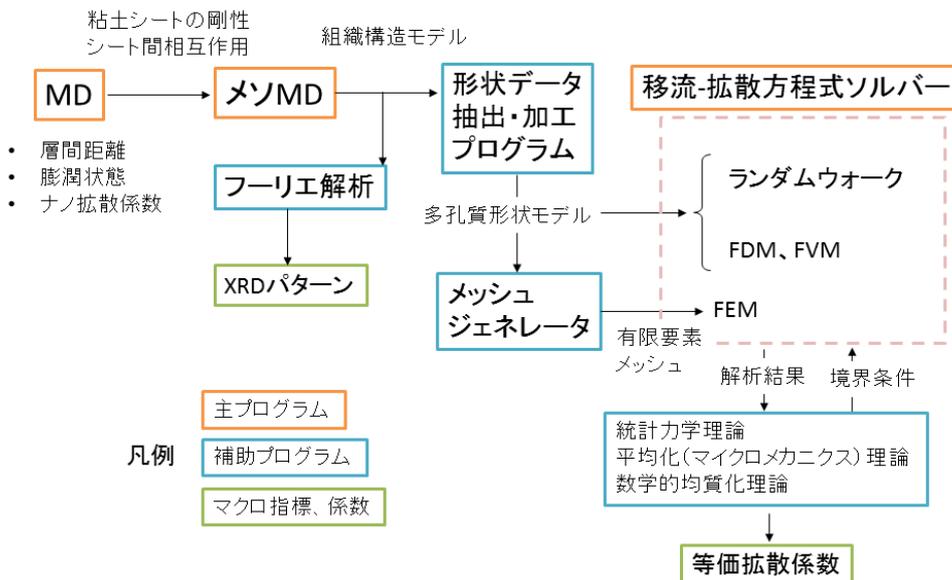


図2.3.3-17 シミュレーションプログラムの全体構成

4) メソスケール分子シミュレーションによる堆積構造のモデル化

本年度は、メソスケール分子シミュレーションによる粘土シート堆積シミュレーションについて、平成26年度の課題への対応として、柔軟な粘土シートの堆積条件を設定できる機能を導入した。これにより以下のような計算が可能となった。

- ・有限なボックス内で粘土含水系を圧縮（ボックス内に分布した粘土シート群に対してボックスサイズを縮小することで圧縮）
- ・周期構造のユニットセルサイズを調整して粘土含水系を圧縮（水平、鉛直方向ともに周期境界条件を課すことで、壁面の影響を受けずに系の体積の調整が可能：図2. 3. 3-18参照）

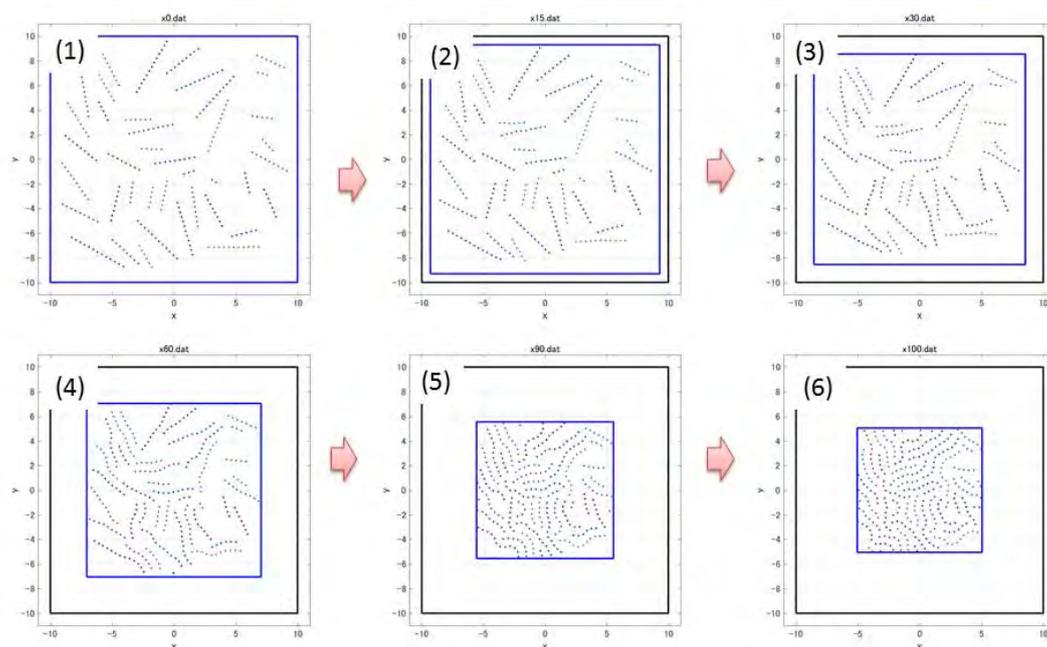


図2. 3. 3-18 周期構造のユニットセルサイズを調整して粘土含水系を圧縮した場合の計算例

5) 堆積構造モデルを用いた拡散解析とマクロ拡散係数の算出

本年度は、堆積構造モデルを用いた拡散解析として、ランダムウォークと有限要素法による拡散解析を試行した。以下ではランダムウォークによる拡散解析を例として示す。

まず、4)で得られた粘土含水系の堆積構造モデルを拡散解析に利用するために、ピクセル形状データに変換する。図2. 3. 3-18に示したモデルの変換結果を図2. 3. 3-19(a)に示す。その後、ユニットセルの中心近傍に5,000個の拡散粒子をランダムに配置し、ランダムウォークによる拡散解析を行う。拡散解析結果の例として、拡散粒子群の平均位置と平均2乗変位の時間変化をグラフ化した結果を図2. 3. 3-19(b)に示す。平均2乗変位の傾きが拡散係数に比例するため、図2. 3. 3-19(b)の下段のグラフの傾きの大小から拡散係数を算出することができる。

6) まとめ

本年度は、メソスケール分子シミュレーションによる堆積構造のモデル化について、特に体積拘束により粘土含水系を圧縮する機能を導入することで、より多様かつ現実的な堆積構造モデルの作成が可能となった。また、その結果を加工し拡散解析ソルバーに引き渡すことで、微視的な間隙構造の特性を反映した拡散解析とマクロ拡散係数の算出までを実行することが可能となった。

今後は、堆積構造のモデルの作成からマクロ拡散係数の算出までを一括実行し、計算のボトルネックとなる処理プロセスを特定すること、それを踏まえてGPGPUによる並列計算が計算効率の向

上に貢献する方法や条件、その効果の程度を定量的に評価することが課題となる。また、いくつかのシナリオに基づき粘土組織構造をシミュレートし、その結果をマクロ物性と併せて評価することで、粘土組織構造の生成メカニズム解明に本手法が利用できる可能性があり、粘土科学分野への貢献も期待できる。

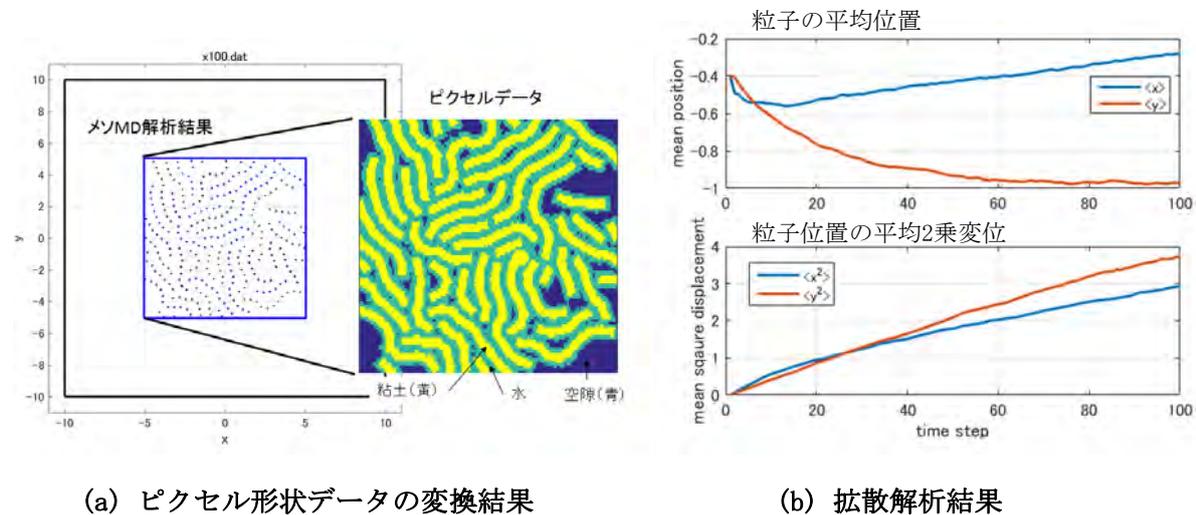


図2.3.3-19 堆積構造モデルのピクセル形状データへの変換結果とランダムウォークによる拡散解析結果の例

(5) 核種移行評価に係る不確実性課題と評価手法に関する調査

圧縮ベントナイト中の間隙水化学は、核種の溶解度と支配化学種、収着や拡散パラメータの設定のための重要な前提条件である。圧縮ベントナイト中の間隙水化学は、従来より、ベントナイトの主成分であるNa型モンモリロナイトの層間でのイオン交換、エッジでの酸塩基解離反応、随伴鉱物の溶解・沈殿等を考慮した平衡論モデルによって評価されてきている（例えば、核燃料サイクル開発機構，1999b）。統合収着拡散（ISD）モデル開発において、収着と拡散のモデル及びパラメータについては不確実性に関する検討を行ってきた（日本原子力研究開発機構，2013c）。このようなモデルによる核種移行パラメータやその不確実性の評価については、特に重要なパラメータである収着分配係数及び実効拡散係数を中心として、国内外で多くの検討がなされてきている。本研究では、圧縮ベントナイトの間隙水化学及び核種の収着を地球化学計算コードPHREEQC（Parkhurst et al., 1995）によって評価し、電気二重層理論に基づく実効拡散係数評価コードISDCalcとを組み合わせ、間隙水化学・収着・拡散を統合的に評価する手法（統合収着・拡散評価手法）を構築している（日本原子力研究開発機構，2013b）。さらに、PHREEQCによる間隙水化学の評価とISDCalcコードを連携した不確実性評価コードUPhreeqcISDCalcの開発を進めている（日本原子力研究開発機構，2015a）。従来のUPhreeqcISDCalcコードでは、拡散係数評価において、同元素化学種の共存するような複雑な系は考慮されていなかった。そこで本報告は、PHREEQCによる間隙水化学の解析において間隙水に共存する同元素化学種に対し、ISDCalcコードによりそれぞれの実効拡散係数を評価するとともに、それら化学種の存在割合を考慮して平均化処理することにより元素としての拡散係数を算出する機能を拡充した。

1) 不確実性評価コードシステム開発の概要

原子力機構では、これまで開発してきたモデル評価手法との整合性も考慮しつつ、地球化学計算コードPHREEQCを用いた不確実性評価ツールの開発／評価解析を進めてきた。図2.3.3-1に示した概念に基づき、ISDモデルを用いて最終的に見かけの拡散係数を評価するまでには、設定条件となる種々のパラメータに対して不確定要素が存在する。理想的には、これらの入力パラメータの変動特性を与えることによって、それらのパラメータと収着分配係数 K_d 及び実効拡散係数 D_e との相関特性が、さらには見かけの拡散係数 D_a との相関特性を定量的に評価することが望ましい。これらの情報が得られることにより、核種移行評価に係る重要パラメータを選定するうえで、不確定要素を効率的に低減することが期待できる。

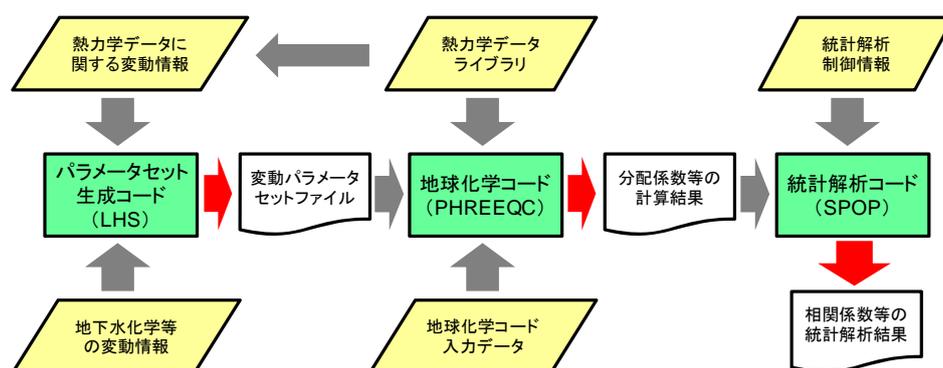


図2.3.3-20 PHREEQCを用いた不確実性評価ツールシステムの概要

開発を進めている不確実性評価ツールシステムの概念図を、図2.3.3-20に示す。本コードシステムでは、パラメータセット生成コードにおいて、変動パラメータの確率密度関数の情報を入力することにより、LHS（ラテン超方格サンプリング）法に基づいて必要なサンプル数のデータセットを生成することが可能である。地球化学計算コードとしては、これまでの間隙水化学や収着モデル計算に用いてきたPHREEQCを採用する。統計解析コードとしてSPOP（統計ポストプロセッサ）コードを使用し、PHREEQCにより算出された分配係数等の出力値のヒストグラムや累積分布関数を作成するとともに、確率密度関数を設定した変動パラメータの重要度に関する情報（変動パラメータ値と分配係数等の出力値との偏順位相関係数など）を得ることができる。

次に、PHREEQCによる間隙水化学の評価とISDCalcコードを連携した不確実性評価コードUPhreeqcISDCalcコードの処理流れを、図2.3.3-21に示す。コードの主要計算部分は2つのパート、すなわちPHREEQCコードを用いて間隙水化学特性／収着分配係数を計算するパートと、ISDCalcコードを用いて実効拡散係数を計算するパートから成る。ISDCalcコードで実効拡散係数を計算する際、必要となる入力パラメータのうち陽イオン交換容量は、間隙水化学特性を計算する際の入力パラメータと整合的にサンプリングし、また、イオン強度はPHREEQCコードによる計算結果を入力パラメータとして用いる。

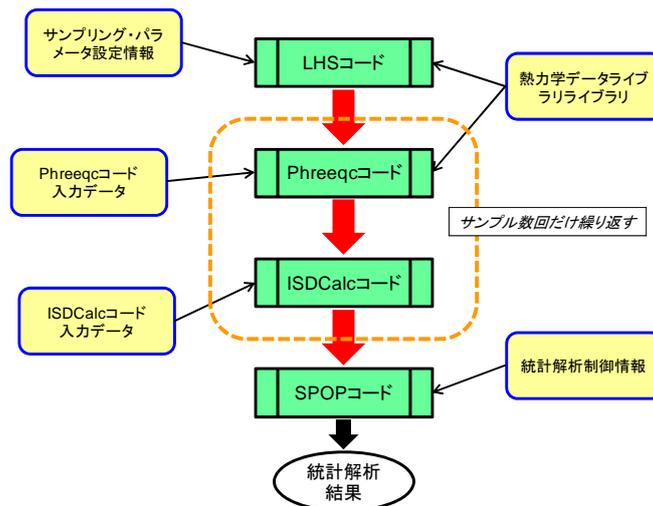


図2. 3. 3-21 PHREEQCとISDCalcを連携した不確実性評価ツールの処理流れ

表2. 3. 3-1 不確実性を考慮するモデルパラメータ

イオン交換の反応定数 (log ₁₀ k)	分布形状	最小値	最大値
$X^- + K^+ = XK$	一様分布	19.92	20.92
$2X^- + Mg^{2+} = X_2Mg$	一様分布	40.17	41.17
$2X^- + Ca^{2+} = X_2Ca$	一様分布	40.19	41.19
$X^- + H^+ = XH$	一様分布	19.6	20.6
$2X^- + Sr^{2+} = X_2Sr$	一様分布	40.19	41.19
陽イオン交換容量 [meq/100g]			
CEC	一様分布	30.05	90.15
GECに対する比表面積 [m²/kg]			
S	一様分布	4.050E+05	1.215E+06
エッジ表面の酸・塩基解離定数 (log₁₀k)			
$sOH + H^+ = sOH_2^+$	一様分布	5.25	6.25
$sOH - H^+ = sO^-$	一様分布	-8.804	-7.804
初期の交換性陽イオン組成 [mol/L]			
XNa	一様分布	7.480E-01	2.244E+00
XK	一様分布	8.345E-03	2.504E-02
X ₂ Mg	一様分布	4.828E-03	1.448E-02
X ₂ Ca	一様分布	5.390E-02	1.617E-01
エッジ表面サイト密度 [mol/L]			
sOH	一様分布	3.008E-02	9.023E-02
可溶性塩含有量 [mol/L]			
CaSO ₄	対数一様分布	5.205E-03	5.205E-01
CaCl ₂	対数一様分布	1.785E-04	1.785E-02
炭酸ガス分圧 (log)			
CO ₂ (g)	一様分布	-4.5	-2.5

拡張されたUPhreeqcISDCalcコードの動作確認をおもな目的として、乾燥密度1400[kg/m³]の純粋なKunigel-V1 (真密度=2700[kg/m³])を対象に、初期間隙水を純水とした場合の解析を実施した。対象元素はSrとする。不確実性を考慮するパラメータの一覧を、表2. 3. 3-1に示す。本解析では、パラメータの分布幅に対する感度解析機能を評価するため、分布形状はすべて「一様分布」を仮定し、また、これまでに整備してきた間隙水化学および収着モデルのパラメータ値(Tachi et al., 2014a)を基準として一桁の変動幅を設定した。なお、パラメータセットのサンプリング数は1000とした。間隙水化学計算の結果、Srを含む主要な溶存化学種としてSr²⁺、SrOH⁺及びSrSO₄が得られた。間隙水のイオン強度と、これらの化学種の実効拡散係数との散布図を図2. 3. 3-22に示す。

図(a)は、それぞれの化学種に対する散布図であり、各化学種の価数を考慮すると、イオン強度依存性がよく再現されており、妥当な結果であると言える。図(b)は、上記3種類の化学種に対する実効拡散係数を平均化処理して、Sr元素に対する実効拡散係数の散布図を表示したものである。本解析では、それぞれの化学種の濃度で加重して対数調和平均をとったものと、対数をとらずに加重調和平均したものを示した。各化学種の濃度は、一般にパラメータセットのサンプリングごとに変動するが、本解析では各変動パラメータの中央値を用いて計算された間隙水組成の結果を一貫して採用した。その結果は、 Sr^{2+} が 9.5×10^{-9} [mol dm⁻³]、 SrOH^+ が 3.6×10^{-14} [mol dm⁻³]、 SrSO_4 が 3.1×10^{-9} [mol dm⁻³]である。したがって存在比としては、 Sr^{2+} と SrSO_4 がおおむね3対1の割合で存在し、 SrOH^+ は無視できる。 Sr^{2+} と SrSO_4 の存在比から考えると、加重対数調和平均の方が妥当であるように思われる。このことは、以下の考察からも理解できる。

ISD拡散モデルでは、自由水中拡散係数、幾何学的因子および電気的収れん度の3つがマクロな実効拡散係数を特徴づける因子であるが(図2.3.3-1参照)、特にイオン強度が低い系では電気的収れん度が支配的になる。簡単のために電粘性を無視すると、電気的収れん度は次式で評価される。

$$\delta_{\text{el},i} = \frac{1}{d} \int_0^d \exp\{-ez_i\psi(x)/k_B T\} dx \quad (2.3.3-4)$$

ここで d は層間の間隙幅、 e は電気素量、 z_i は化学種 i の電荷、 ψ は静電ポテンシャル、 k_B はBoltzmann定数、 T は温度である。間隙内での静電ポテンシャルを平均値で代表させておくと、電気的収れん度の対数をとることは結局、電荷 z_i が担う電気的エネルギーを評価していることであり、その平均をとることは個々のイオンが担う電気的エネルギーの平均値を評価していることになる。すなわち、Srの拡散に寄与する化学種の電気的エネルギーの平均値を評価することに相当する。本解析の結果から、ここでは対数平均することが妥当と考えられたが、ISDモデルにおける主要因子に対する平均化処理の観点から、今後さらに検討を進める。

次に、各化学種の実効拡散係数に対するパラメータの感度解析を行った。実効拡散係数に対して感度が高いパラメータの偏順位相関係数を図2.3.3-23に示す。 SrOH^+ については、 Sr^{2+} とほぼ同じ傾向を示した。電荷を有する Sr^{2+} に対して「イオン強度」の感度が高く、中性粒子である SrSO_4 に対して感度が低いことは、妥当な結果であると言える。また「CECに対する比表面積」の感度は、何れの化学種についても高い結果が得られた。比表面積の変動が直接影響するパラメータは、鉱物表面の電荷密度と層間の間隙幅である。もし表面電荷密度を経由して実効拡散係数に感度があるならば、表面電荷密度に直接影響を与える「陽イオン交換容量」も感度が高いはずである。しかし、そのような結果は得られていないので、おもに層間の間隙幅を経由して高い感度を示していると考えられる。図2.3.3-24に、CEC比表面積の変動幅に対する電気的収れん度の変化を示した。1価・2価陽イオンに見られる明らかな正の相関に対し(図(a)参照)、中性粒子では単調な相関を示さない(図(b)参照)。このため Sr^{2+} に比べて SrSO_4 では、CECに対する比表面積の相関係数が0.5程度に留まったと考えられる。以上の結果から、本コードシステムは有効に機能していることが確認された。

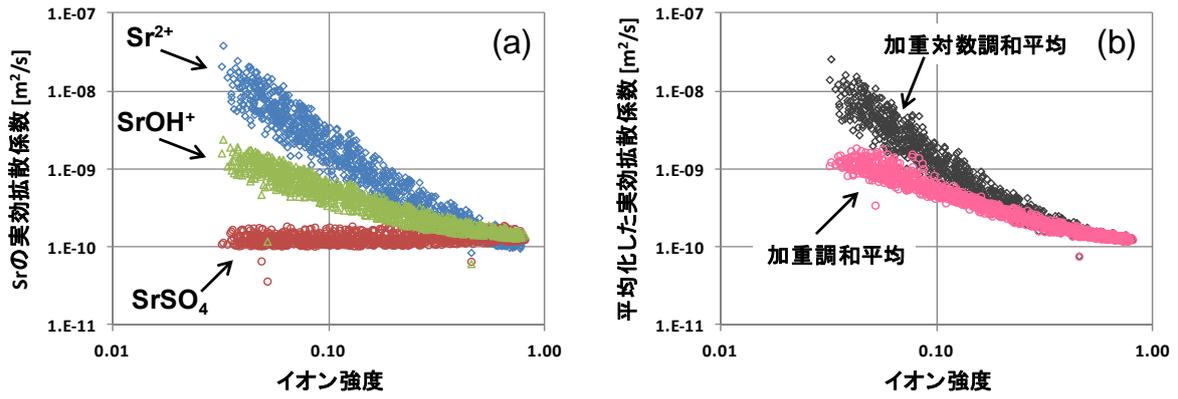


図2.3.3-22 イオン強度に対する実効拡散係数の散布図：
 (a) Srを含む主要な化学種の散布図、(b) 平均化された値の散布図

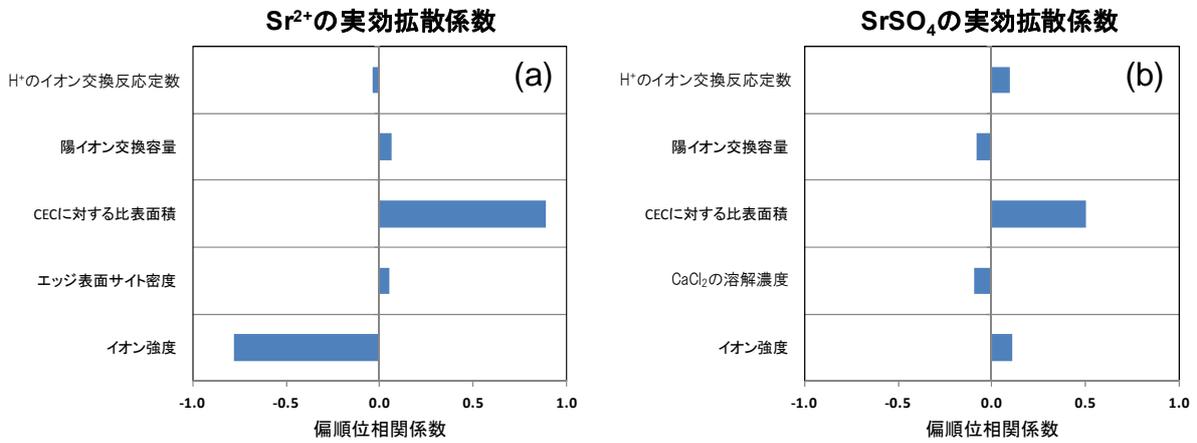


図2.3.3-23 実効拡散係数に対する主要パラメータの感度解析：(a) Sr^{2+} 、(b) SrSO_4

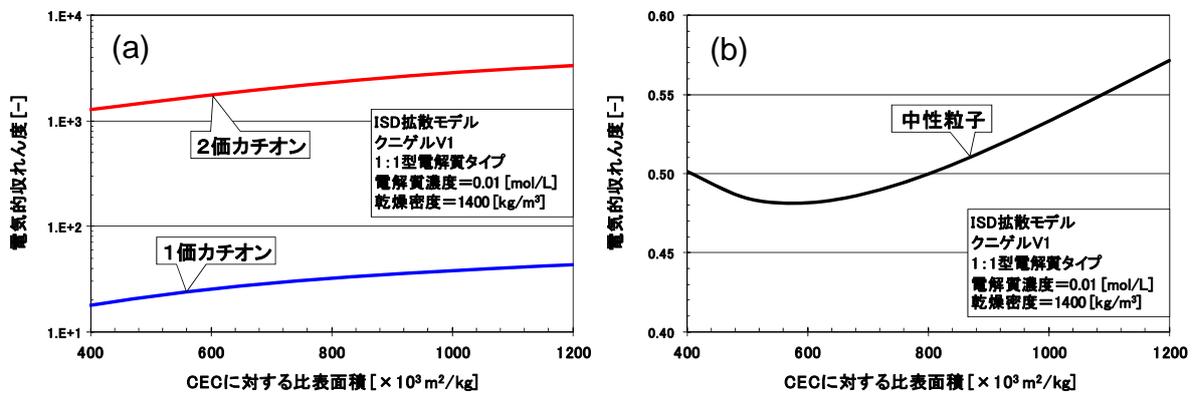


図2.3.3-24 CEC比表面積に対する電氣的収れん度の依存性：
 (a) 1価・2価陽イオン、(b) 中性粒子

2.3.4 システム変遷と核種移行評価のためのデータ・モデルの整備

(1) 鉄共存下での核種移行評価

1) 鉄共存下での核種移行研究の現状・課題とアプローチ

わが国の高レベル放射性廃棄物地層処分においては、ガラス固化体、炭素鋼製オーバーパック、緩衝材として設置される圧縮ベントナイトで構成される人工バリア概念を対象として、安全評価が行われている。このような人工バリア概念においては、炭素鋼製オーバーパックの腐食により生成した鉄腐食生成物が共存する環境下で、放射性核種が圧縮ベントナイト中を拡散移行する。圧縮ベントナイト中に鉄腐食生成物が存在すると、その溶解により鉄イオン濃度が上昇してベントナイトに収着する鉄イオンが増加し、放射性核種と鉄イオンの収着が競合することにより、放射性核種の収着量が低下する可能性が考えられる。

圧縮ベントナイト中において、放射性核種は主にベントナイトの主成分であるモンモリロナイト中に存在するイオン交換サイト及び表面錯体サイトに収着される(例えば、Bradbury and Baeyens, 2005)。鉄腐食生成物の溶解により生成するFe(II)イオンも、モンモリロナイト中に存在するこれらのサイトへ収着されると考えられることから、高濃度のFe(II)イオンが存在すると、収着サイトがFe(II)により飽和し、放射性核種と収着競合を引き起こすことが想定される。これまでに、Fe(II)イオンと放射性核種の競合的収着現象については、Fe(II)の存在によりNi(II)の圧縮ベントナイトからの破過時間が早くなるという解析結果や(Pfingsten et al, 2011)、Fe(II)とZn(II)が競合収着を起こすことを実験的に研究した報告(Soltermann et al., 2013)等がなされている。しかしながら、現状では、Fe(II)共存下での核種の競合的収着現象に関して詳細に検討された事例は限られている。

このような背景を踏まえ、本調査では、鉄イオンと核種の競合的収着挙動を実験的に明らかにし、鉄イオンが収着したベントナイトに対して核種の選択定数を整備して、競合収着の影響を定量的に評価することが可能なモデルを確立することを目的とする。平成26年度までの調査において、Na型モンモリロナイトに対するFe(II)収着試験、共存Fe(II)濃度を調整して表面錯体サイトのみがFe(II)により飽和させた条件でのNa型モンモリロナイトに対するCs, Niの収着試験、イオン交換サイトを含む全ての収着サイトをFe(II)に交換したFe型モンモリロナイトに対するCs, Niの収着試験を実施し、Fe(II)共存下での競合収着現象について総合的に検討を行った。その結果、Fe(II)のモンモリロナイトへの収着は、Fe(II)濃度が 2.2×10^{-4} mol/Lにおいては、表面錯体サイトへの収着量が飽和していることが確認され、このような表面錯体サイトのみがFe(II)により飽和している条件においては、NiはFe(II)との競合収着により分配係数が低下し、イオン交換サイトへの収着が支配的なCsはFe(II)との競合的収着挙動を示さないことを実験的に確認した。また、Fe型モンモリロナイトに対するCs, Ni収着試験においては、どちらも収着量が低下する傾向が見られ、イオン交換サイトがFe(II)により飽和した場合には、イオン交換サイトに収着したFe(II)との競合収着により、Cs, Niとも分配係数が低下する可能性が示唆された。この結果を元に、平成27年度の調査においては、平成26年度までに信頼性の高いデータを取得できなかった試験条件において試験を実施し、収着データを整備した。また、これらの競合収着挙動を定量的に評価するため、平成27年度に取得したデータを含め、これまでに得られているデータについて詳細に検討し、競合収着メカニズムの検討と、各収着サイトに対する選択定数の算出を行った。

2) 鉄共存による核種移行への影響評価

① 収着メカニズムの評価に向けたデータの整備

本調査においては、平成26年度までにpH6付近とpH9付近の2つのpH条件を基本としてデータ整備を行った。その際、Fe(II)共存下でのNi収着試験において、還元剤として用いたアスコルビン酸と錯生成しているNiの割合がpH9付近で95%程度まで上昇し、精度良く分配係数を算出することが難しくなる問題があった。しかしながら、共存しているFeを2価に維持するためには、還元剤を添加することが不可欠である。そのため平成27年度は、Niとアスコルビン酸との錯生成量を低減させるため、pHを8付近に設定してデータ取得を行った。データ取得は、表面錯体サイトがFe(II)により飽和した条件 (Fe(II)濃度 1.0×10^{-4} mol/L) と、Fe(II)が共存しない条件で実施した。試験には、Na型モンモリロナイトとしてクニミネ工業製クニピアFを使用した。試験溶液は0.05 mol/L 及び0.5mol/LのNaCl溶液とした。サンプリング時の固液分離は、分画分子量10000の限外ろ過フィルターにより行った。試験の結果は、③において、平成26年度までの試験結果と合わせて示す。

② モンモリロナイトに対するFe(II)収着メカニズムの検討

平成26年度までに取得したNa型モンモリロナイトに対するFe(II)の分配係数のpH依存性を図2.3.4-1に示す。これまでに、各Fe濃度及びNaCl濃度の条件において、pH6付近とpH8付近で試験を行った。その結果、Fe(II)濃度が 1×10^{-10} (図中○または●) 及び 2.2×10^{-6} mol/L (図中□) の条件では、pH6付近及びpH8付近の同じpH条件で比較すると、どちらの濃度でもほぼ同じ分配係数が得られたのに対し、Fe(II)濃度が 2.2×10^{-4} mol/Lの条件 (図中△または▲) では、pHにかかわらず分配係数が低下する傾向が見られた。この結果は、Fe(II)濃度の上昇に伴って、少なくとも一つの収着サイトがFe(II)により飽和したことを示している。また、 1×10^{-10} mol/Lの条件では、Fe(II)の分配係数にNaCl濃度依存性が見られないことから、イオン交換サイトの収着への寄与がほとんどなく、表面錯体サイトへの収着により支配されていることがわかる。このことから、Fe(II)濃度の上昇に伴い、表面錯体サイトがまず飽和すると考えられる。

表面錯体サイトが飽和したFe(II)濃度が 2.2×10^{-4} mol/Lの条件の分配係数を比較すると、pH6付近で取得した分配係数にNaCl濃度依存性が見られ、NaCl濃度が上昇すると分配係数が低下する傾向が見られた。このことは、Fe(II)の分配係数にイオン交換サイトへの収着の寄与が存在していることを示している。また、分配係数のイオン交換サイトへの寄与が少ないNaCl濃度が0.5mol/Lの条件では、分配係数にpH依存性が見られ、pH6付近で得られた分配係数に比べ、pH8付近で得られた分配係数の方が高い値を示している。この傾向は、飽和している表面錯体サイトとは異なる別の表面錯体サイトが存在し、そのサイトへFe(II)が収着していることを示している。これらのことから、Fe(II)のモンモリロナイトへの収着挙動を評価するためには、イオン交換サイトと少なくとも2種類の表面錯体サイトへの収着を考慮する必要があることがわかる。

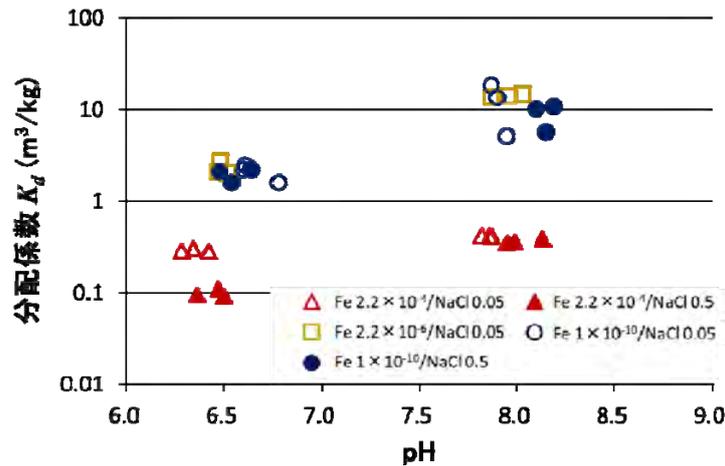
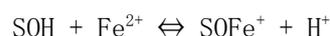


図2.3.4-1 Na型モンモリロナイトに対するFe(II)の分配係数のpH依存性
(凡例中の数字は濃度 (mol/L) を示す)

これらの収着に寄与すると同定されたサイトに対するFe(II)の収着量を、異なるFe(II)濃度及びNa濃度条件においても定量的に評価するため、試験結果より各サイトに対する選択定数を算出した。収着に寄与する各サイトは、それぞれ表面錯体サイト1、表面錯体サイト2、イオン交換サイトとした。選択定数の算出は、以下の仮定に基づいて行った。

- 表面錯体サイト1が飽和しているFe(II)濃度が 2.2×10^{-4} mol/Lの条件で得られた分配係数のうち、NaCl濃度が0.5 mol/Lの条件においては、イオン交換サイトへの収着が無視できると仮定して、表面錯体サイト2の選択定数を算出した
- 全収着サイトが不飽和であるFe(II)濃度が 1×10^{-10} mol/Lの条件において、NaCl濃度が0.5 mol/Lではイオン交換サイトへの収着が無視できると仮定し、上記で算出した選択定数より表面錯体サイト2のFe(II)の収着量を算出して全収着量から差し引くことにより表面錯体サイト1への収着量を算出し、表面錯体サイト1に対する選択定数を算出した
- Fe(II)濃度が 2.2×10^{-4} mol/L、NaCl濃度が0.05 mol/Lの条件において、表面錯体サイト1が飽和しているとし、選択定数より表面錯体サイト2への収着量を算出して、全収着量から両サイトへの収着量を差し引くことによりイオン交換サイトへの収着量を算出し、選択定数を算出した

上記の手順により算出した各サイトの選択定数を表2.3.4-1に示す。表面錯体サイトへのFe(II)の収着は、以下の反応を仮定した。



表面錯体サイト1及び2のサイト密度は、Bradbury and Baeyens (2005)を参考に、それぞれ 2×10^{-6} 、 8×10^{-5} mol/gとし、両サイトの酸解離定数は以下とした。



表2.3.4-1 各サイトの選択定数

	$\log \frac{Fe}{H} K$	$\log \frac{Fe}{Na} K$	$\log \frac{Cs}{Fe} K$
表面錯体サイト1	-0.84		
表面錯体サイト2	-3.7		
イオン交換サイト	-	-0.26	3.0

③ Fe(II)共存下及びFe(II)型モンモリロナイトに対するCs, Ni収着挙動の解析

平成26年度までの試験において、Fe(II)共存下でのCsの収着挙動は、Fe(II)の影響を受けないことが確認されている。これに対し、イオン交換サイトもFe(II)により飽和したFe(II)型モンモリロナイトに対しては、Csの分配係数が低下することが示唆される結果が得られている。このことから、Fe(II)濃度0.01mol/L、NaCl濃度0.005mol/Lの条件で実施したFe型モンモリロナイトに対するCs収着試験の結果より、Fe(II)が収着したイオン交換サイトへのCsの選択定数を算出した。その結果を表2.3.4-1に示す。

Fe(II)共存下でのNiの分配係数のpH依存性を、平成27年度に取得したデータを含め図2.3.4-2に示す。平成26年度に示したように、pH6付近においては、表面錯体サイト1がFe(II)で飽和した濃度 1×10^{-4} mol/LのFe(II)共存下でのNiの分配係数（図中△及び▲）と、サイト1が飽和していないFe(II)濃度 1×10^{-6} mol/L（図中□）及び共存Fe(II)なし（図中○及び●）の条件で取得された分配係数には、同じNaCl濃度条件であれば大きな差は見られず、共存Fe(II)の影響を受けないことがわかる。また、pH6付近のNiの分配係数は、NaCl濃度の上昇に伴って低下することから、イオン交換サイトがNiの分配係数を支配する収着サイトであると推測される。そのため、イオン交換サイトがFe型化しない限り、pH6付近においては、共存Fe(II)との競合収着の影響はないものと考えられた。これに対し、pH8付近においては、Fe(II)濃度が 1×10^{-4} mol/Lの条件における分配係数が、Fe(II)が共存しない条件に比べて低下していることがわかる。このことから、pH8付近においては、分配係数に対する表面錯体サイト1へのNiの収着の寄与が大きくなり、Fe(II)との競合収着によって分配係数が低下することが示唆される。

本試験において取得したFe(II)非共存下でのNiの分配係数は、pH8付近で0.3-0.8程度であった。この値は、これまでにpH8.5で取得したモンモリロナイトに対するNiの分配係数である $50 \text{ m}^3/\text{kg}$ 程度と比較して二桁程度も低い値となっている（日本原子力研究開発機構, 2012a）。また、モンモリロナイト中の表面錯体サイトへのNiの選択定数 $\log \frac{Ni}{H} K$ は-0.77と報告されており（Bradbury and Baeyens, 1997）、この値から算出されるpH8での分配係数は約 $15 \text{ m}^3/\text{kg}$ である。本試験において得られた分配係数は、これらの値と比較して大きく低下している。この原因として、本試験においてFeを2価に維持するために添加したアスコルビン酸の影響が疑われる。本試験での分配係数の算出には、アスコルビン酸とNiの錯体を考慮したものの、錯生成以外にもアスコルビン酸にNiの分配係数を大幅に低下させる効果があったことが推測される。そのため、Niについては、平成27年度の研究では、Fe(II)の共存により分配係数が下がる可能性は定性的に示唆されたものの、定量的に評価するために必要な選択係数の算出は行わなかった。

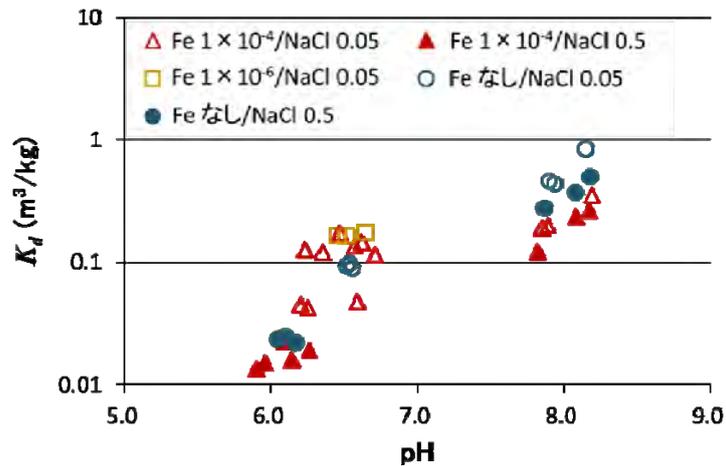


図2.3.4-2 Fe(II)共存下でのNi分配係数のpH依存性
(凡例中の数字は濃度 (mol/L) を示す)

④ まとめと課題

平成27年度までの調査により、モンモリロナイトに対するFe(II)の収着は、イオン交換サイトと少なくとも2種類の表面錯体サイトを仮定して評価することが必要であることが実験的に明確となった。また、各収着サイトへの選択定数を表2.3.4-1に示すように整備し、異なるFe(II)濃度及びNa濃度条件でのモンモリロナイトへのFe(II)収着量の定量的な評価を可能とし、競合収着の影響が無視できなくなる各サイトに対するFe(II)の収着量が飽和する条件を明確にすることが可能となった。また、イオン交換サイトにおけるFeとCsの選択定数を整備し、Fe(II)によりイオン交換サイトが飽和したFe型モンモリロナイトに対するCsの収着量の評価が可能となった。

今後の課題として、Fe(II)と競合収着すると推測されるNi等の2価の陽イオンに対して、錯生成等の影響を及ぼさずに還元環境を実現できる還元手法を検討していくことが必要である。また、収着形態が異なる可能性のある3価の陽イオン等について、Fe(II)との競合収着について検討していくとともに、複数の収着サイトに一つのイオンが収着する多座配位等の現象について検討し、選択定数による定量化の妥当性についても検討していく必要がある。さらに、これらの検討によりFe(II)イオンと核種が競合収着を起こす条件を明確にし、また、鉄腐食生成物の存在を考慮した圧縮ベントナイト間隙水中のFe(II)イオン濃度の評価等を行って、競合収着の可能性について明確にしていく必要がある。

3) 鉄共存下でのガラス溶解評価

オーバーパックは、少なくとも放射能や発熱が高い期間、地下水がガラス固化体に接することを防ぐという安全機能が期待されており、この機能が発揮されるよう設計される。この期間を超える長期的な腐食の進展に伴い、やがてはオーバーパックの厚さが減少し、構造的な強度が周囲からの応力を支持しえなくなった段階で、オーバーパックは機械的に破損する。その後、オーバーパック内部に浸入した地下水とガラス固化体が接触することでガラスの溶解及び変質が開始する。それと並行して、オーバーパックを構成する鉄の腐食は継続する。このような環境において、ガラス固化体の溶解・変質がどのように進行するのかを評価する必要がある。

平成25年度は、鉄共存下でのガラス溶解評価に係る課題として、現象理解とモデル整備に向け

たパラメータ設定の必要性を示した。平成26年度には、 Fe^{2+} イオンと溶存ケイ酸の反応による鉄ケイ酸塩鉱物の析出についての現象理解に向けて、 Fe^{2+} イオンと近いイオン半径を持つ Mg^{2+} イオンを含む人工海水中で変質させた既存の模擬廃棄物ガラス試料の表面分析を行うとともに、 MgCl_2 溶液条件で、7日間及び28日間の模擬廃棄物ガラスの浸出試験を実施した。平成27年度は、 MgCl_2 溶液条件で90日間の模擬廃棄物ガラスの浸出試験を実施し、より長期間のガラス浸出量に関するデータを取得するとともに、変質させた模擬廃棄物ガラス試料の表面分析等を行った。

① MgCl_2 溶液条件での模擬廃棄物ガラスの浸出試験

a. 試験方法

試料は、10 mm×10 mm×1 mmに成型して表面を鏡面研磨したクーボン状模擬廃棄物ガラス試料(P0797)である。試験方法概略図を図2.3.4-3、試験条件を表2.3.4-2に示す。

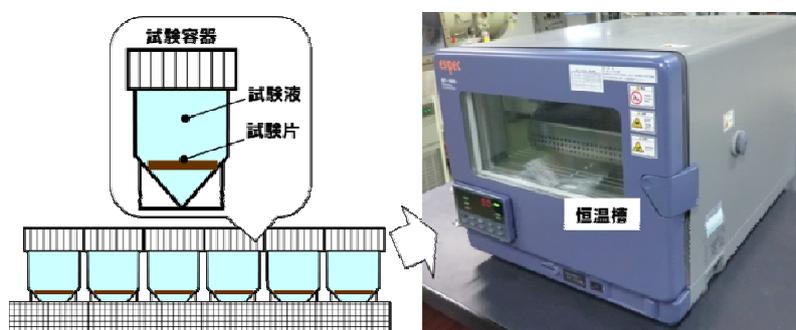


図2.3.4-3 試験方法概略図

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

表2.3.4-2 試験条件

試験片	P0797		
試験液：5種、各4.8(mL)	脱イオン水		
	MgCl_2 溶液：	0.055	M
		0.0055	
		0.00055	
	人工海水 (Mg^{2+} 濃度：0.055M)		
試験容器	5mLテフロン容器		
試験温度	試料調製時は室温 静置期間中は恒温槽内90° C		
試験期間(日)	7, 28, 90		
表面積/体積(SA/V) (m^{-1})	50		
N数	3		
固相分析	X線回折分析		

b. 分析方法

試験後の試験溶液はICP-AESおよびICP-MSにて元素分析に供した。試験後の試験片は、X線回折分析に供した。

c. 分析結果・考察

図2.3.4-4に、試験後溶液のpHとSi、BおよびLiの元素濃度から求めた規格化浸出量 (NL_p) の経時変化を示す。0.00055Mの $MgCl_2$ 溶液については、浸出量が脱イオン水と同様な傾向が認められる。0.00055Mの $MgCl_2$ 溶液中のMgイオンは28日間までに消費されており、その結果、Mgイオンの影響を受けない条件でガラスの溶解・変質が進行したものと考えられる。0.0055Mおよび0.055Mの $MgCl_2$ 溶液と人工海水の試験試料のpHについては、時間とともに低下する傾向が認められる。既往研究 (Grambow and Muller, 1990; Zimmer et al., 2002) においてもpHの低下は観察されており、含水Mgケイ酸塩鉱物の析出に伴うヒドロニウムイオンの生成によるものと解釈されている。規格化浸出量については、0.0055Mおよび0.055Mの $MgCl_2$ 溶液と人工海水のいずれについても脱イオン水における規格化浸出量よりも低い傾向を示し、ガラスの溶解・変質は抑制されていると考えることができる。粉末状のガラス試料を用いた高SA/V条件における $MgCl_2$ 溶液を用いた既往研究 (Maeda et al., 2011; Jollivet et al., 2012) では、Mgケイ酸塩鉱物析出に伴う溶存ケイ酸の消費とゲル層 (ガラス表面変質層) の保護性の低下により、ガラスの溶解・変質が促進されると報告されており、今回の結果と異なっている。

図2.3.4-5は、変質したガラス表面のX線回折分析結果である。ピークが小さいため現時点で帰属を確定することはできないが、いずれの試料についてもサポナイト、セピオライト、タルクに対応するピークが認められる (サポナイトについてはエチレングリコール処理後の001面のピークシフトを確認することで判定)。また、0.055Mの $MgCl_2$ 溶液および人工海水中で変質したガラスについてはハイドロタルサイトに対応するピークが認められる。このように、高SA/Vの条件で観察されているMgケイ酸塩鉱物が今回の試験でも観察されており、SA/Vの違いによるMgイオンの影響の違いについて、長期の試験等による更なる検討が必要である。

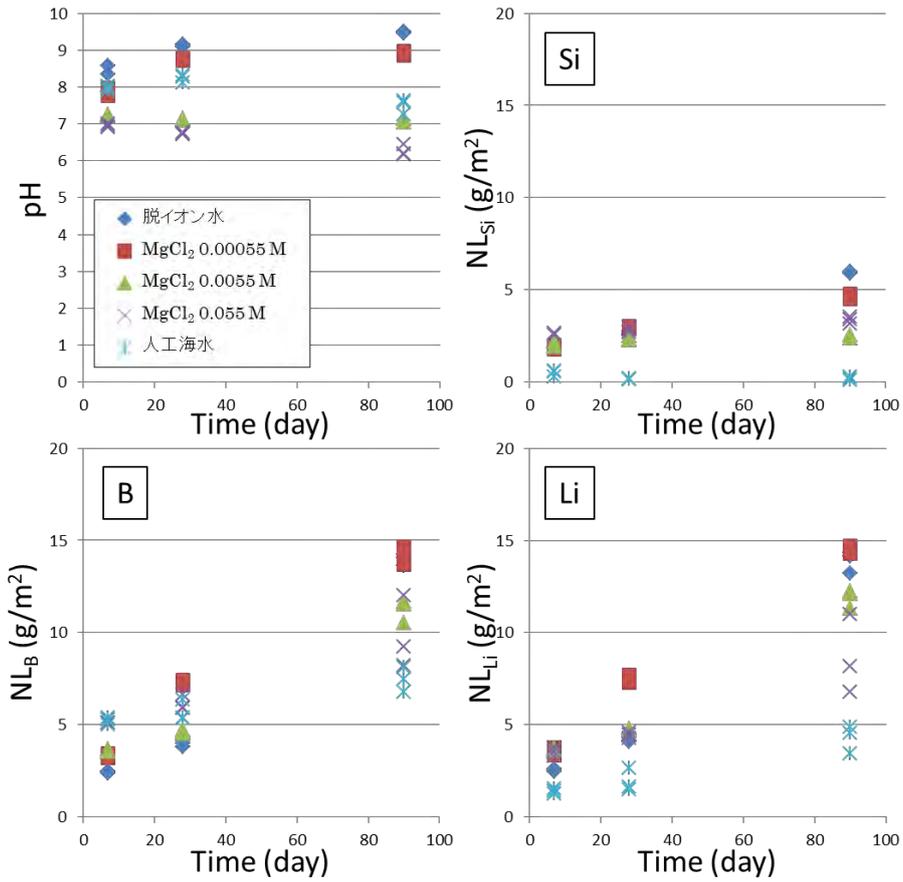


図2. 3. 4-4 pH及び規格化浸出量の経時変化

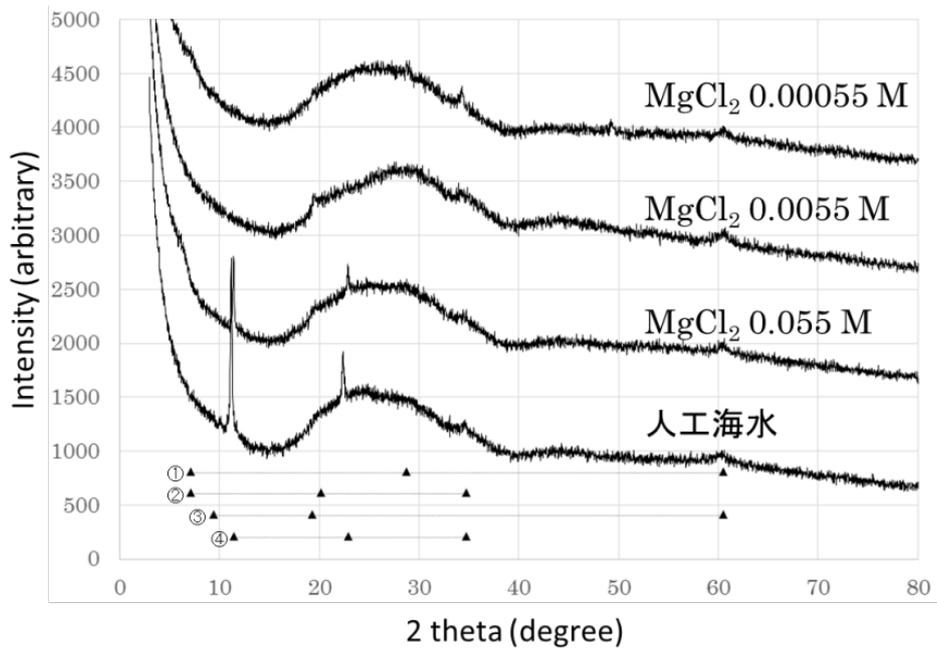


図2. 3. 4-5 試験後ガラス表面のX線回折分析結果

(参考として①サポナイト、②セピオライト、③タルク、④ハイドロタルサイトの三強線のピーク位置を示した。)

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

2.4.1 天然バリア核種移行評価の不確実性要因と課題解決アプローチ

(1) 調査研究の背景と目的

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

本テーマでは、天然バリア中の核種移行に係る課題のうち、割れ目等の不均質性や長期変遷等を考慮した核種移行評価手法、及び有機物・微生物等による核種移行への影響評価手法を対象として、室内試験及び地下研究施設等での原位置試験を通じた高度化や確証を行うことを目的とする。平成26年度までに、重要な不確実性要因とその解決に向けたアプローチを提示し、割れ目等の不均質性を考慮した核種移行評価手法については、岩石マトリクスや割れ目中の室内試験による収着・拡散データの取得や評価モデルの高度化を進めてきた。一方、有機物・微生物等の影響評価手法については、シナリオ及び核種移行評価に基づき課題を抽出するとともに、室内試験と原位置試験を含む影響評価手法の開発アプローチを具体化し、基礎データ取得及びモデル高度化等を進めてきた（日本原子力研究開発機構，2014a，2015a）。これらを踏まえ、平成27年度は、割れ目等の不均質性をより精緻に評価するための室内試験と解析手法の改良を継続するとともに、原位置への適用評価及びナチュラルトレーサーに関する事例調査に本格的に着手した。また、有機物・微生物の影響評価手法の構築・確証に向けて、室内及び原位置でのデータ取得を継続し、核種移行プロセスへの影響評価モデルの構築とその適用性の評価を行う。

(2) 不確実性要因と課題解決のアプローチ

天然バリア中の割れ目等の不均質性や長期変遷等を考慮した核種移行評価手法、有機物・微生物等が核種移行に及ぼす影響評価手法を構築するための具体的なアプローチは、それぞれ次節以降で詳述するが、ここでは、これらに共通する研究アプローチについて、図2.4.1-1にその全体像を概観する。

最初のステップとして、海外の性能評価プロジェクトや原位置試験等の最新情報の調査をもとに、不確実性要因と課題の抽出を行う。この課題の抽出にあたっては、現状の評価モデルやパラメータの整備状況を踏まえたシナリオ検討や核種移行解析等を通じて、その性能評価上の重要性に応じた課題の絞り込みに反映する。抽出された課題に対しては、最新の分析技術や解析技術を用いて、

適用しつつ、また、地下研究施設での原位置情報を活用しつつ、室内試験による現象理解とそれを反映した評価モデルの高度化に取り組む。さらに、地下研究施設での原位置試験との連携を通じ、実際の地質環境条件への評価手法の適用を通じて、それらを確認することを目指す。また、地質環境条件の長期変遷の影響を含めて、地層処分の時間スケールの長期性に対するデータやモデルの確認も重要な課題であり、天然事例調査についても検討を進めることとする。

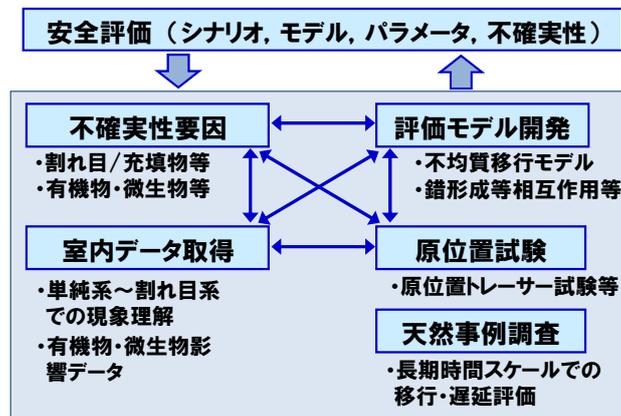


図 2.4.1-1 天然バリア中の核種移行評価における課題解決のアプローチ

2.4.2 岩石マトリクス/割れ目中の核種移行評価技術の開発

(1) 岩石マトリクス/割れ目中の核種移行評価に係る課題とアプローチの設定

1) 岩石中の核種移行評価に係る不確実性要因と課題の調査

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

結晶質岩では、スウェーデンÄspö、フィンランドONKALO、スイスGrimselなどが代表的な研究例であり、亀裂とマトリクスから成る二重間隙モデル体系に関連して、割れ目の特性（充填鉱物、flow-wetted-surface area）、マトリクス拡散深さ等の評価が重要となっている。堆積岩では、スイスMont Terri、フランスBure、ベルギーMolなどにおいて粘土質岩に焦点が当てられており、このような粘土質岩の場合には、透水性が極めて低いために物質移動は拡散によって支配され、原位置試験を含めてマトリクスの拡散・収着メカニズムの理解とモデル化、間隙水の抽出・評価、天然同位体プロファイルによる長期拡散特性の立証などが中心的な課題となっている。

表 2.4.2-1 結晶質岩と堆積岩系の核種移行に係る不確実性要因と課題の整理

(日本原子力研究開発機構, 2015a)

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

2) 課題解決のための研究アプローチ

本プロジェクトでは、これらの結晶質岩と堆積岩のそれぞれの特徴と課題を踏まえつつ、これまで受託事業「処分システム化学影響評価高度化開発」で進めてきたアプローチ (日本原子力研究開発機構, 2013c) を発展させる形で、グリムゼルの花崗岩 (結晶質岩) 及び幌延の泥岩 (堆積岩) を主たる対象に研究を展開している。上記受託事業において、いずれの岩石についても、主にマトリクスを対象として室内試験による多様な核種の拡散・収着データの取得や現象論的モデルの構築を進めるとともに、グリムゼル岩においては原位置への適用性評価までを検討してきた。本プロジェクトでは、これらの岩石マトリクス中の核種移行メカニズムの理解をさらに深めつつ、より複雑な割れ目系までを対象とし、図2.4.2-1に示すように、室内試験データの系統的取得とモデル評価、原位置試験との連携による原位置条件への適用性評価、室内から原位置へのアップスケーリング手法の構築などに力点をおいて進める。また、地質環境条件の長期変遷の影響を含めて、時間スケールの長期性に対するデータやモデルの確証も重要な課題であり、ナチュラルアナログ的なアプローチの適用可能性についても調査・検討を進めることとする。

結晶質岩については、上記のように、割れ目とマトリクスから成る二重間隙モデル体系に関連した割れ目特性やマトリクス拡散深さ等の重要性に加え、鉱物・間隙分布の不均質性や試料粉碎時の表面積の増大等の影響が大きいことが、近年の諸外国の検討においても課題として認識されている。このような課題への対応も念頭に、従来より国際共同研究として進めてきたスイスグリムゼル (Grimsel) 地下研究所における原位置長期拡散 (LTD) プロジェクトとの連携により、花崗岩のマトリクス及び割れ目を対象として、室内から原位置までを含めた体系的な研究を進める。さらに、平成27年度からは、他の海外の原位置試験との連携も視野に、より多様な花崗岩の特性や原位置試験への適用性評価についても検討に着手する。一方で、堆積岩系 (粘土質岩) においては、マトリクスの拡散・収着メカニズムの理解とモデル化が中心的な課題となるが、堆積岩においても卓越した核種移行経路となるような割れ目が存在する場合にはその評価が重要となる。このため、幌延の泥岩 (以下、幌延泥岩) を対象として、幌延深地層研究センターで実施中のマトリクス及び割れ目を対象とした原位置トレーサー試験との連携を通じ、原位置試験をサポートする室内データを取得するとともに、これまでに蓄積してきたデータやモデルの適用性を確認しつつ評価技術としての確証を行う。わが国においては、原位置試験において放射性トレーサーを利用できない状況下で、いかに信頼性の高いデータを取得し、性能評価に適用可能なモデルを確証していくかという視点が重要な課題であり、この点にも焦点をあてて取り組んでいく。さらに、粘土質岩系で国際的にも精力的に進められているナチュラルトレーサーを活用した長期時間スケールでの物質移行モデルの確証評価についても、特に幌延の既存の知見に基づく検討を進める。

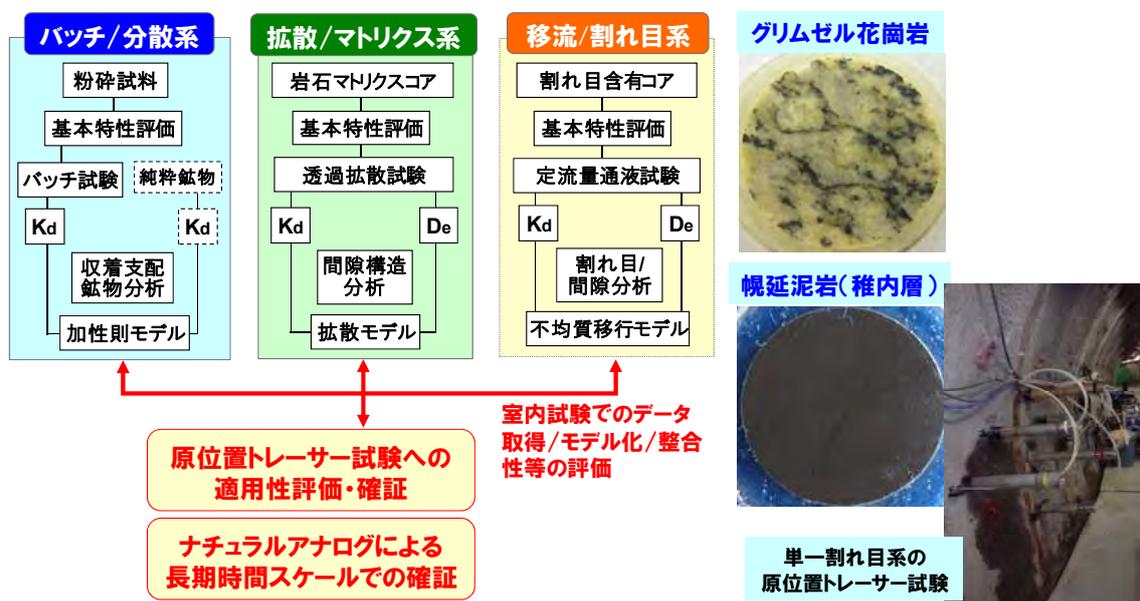


図 2.4.2-1 室内から原位置へのアップスケーリングを含む岩石系の研究アプローチ

(2) 結晶質岩系の評価技術の開発

1) グリムゼル花崗岩を中心とした結晶質岩系のアプローチと実施概要

上述したように、グリムゼル花崗岩のマトリクスを対象とした研究については、先行する事業「処分システム化学影響評価高度化開発」(日本原子力研究開発機構, 2013c; Tachi et al., 2015)において、室内試験による信頼性の高い収着・拡散データの取得、間隙構造や収着支配鉱物の分

析評価等を進めてきた。その結果、花崗岩系においても粘土質岩と同様の陽イオン加速と陰イオン排除の影響を考慮した拡散評価が必要であること、バッチ試験における粉碎影響のみではなく、拡散試験においても試料表面付近の擾乱の影響を考慮する必要があることなどを確認してきた。さらには、原位置長期拡散試験（LTD）プロジェクトで得られた原位置拡散のデータ解釈を通じ、室内データから擾乱影響等を補正して原位置へとアップスケールする手法を提示してきた（日本原子力研究開発機構, 2013b）。これらの成果を踏まえつつ、本プロジェクトにおいて実施している3つの研究課題について、次節以降に成果を詳述していく。

① 花崗岩マトリクスの室内収着・拡散データ取得と不均質性を考慮したモデル化

グリムゼルのLTDプロジェクトにおいて、現在実施中の2回目の原位置試験の実施場所の試料を対象に、高収着性を含む多様な核種の拡散・収着データの拡充とその傾向性の分析、マトリクスの鉱物や間隙の不均質性の分析とそれを反映したモデル化の検討を進めた。

② 花崗岩割れ目系を対象とした室内データ取得とモデル化

結晶質岩系で特に重要となる割れ目中の核種移行評価技術の高度化のため、平成26年度に着手した室内試験による割れ目中の核種移行特性の評価アプローチについて、試験の継続と各種分析データの取得により、一連のデータの総合的な評価と予察的な解析までを実施した。

③ 原位置試験への適用性評価に関する調査・解析

上記の①のマトリクスと②の割れ目中の核種移行評価手法の確証に関する最新の知見を把握するため、スイスのグリムゼルに加え、スウェーデンのエスポ、フィンランドのオンカロの原位置試験を中心に、関連するナチュラルアナログ的なアプローチや性能評価への反映に関する情報について調査を行った。

2) 花崗岩マトリクス中の収着・拡散データ取得と不均質性を考慮したモデル化

i) これまでのマトリクス中の収着・拡散試験のまとめ

グリムゼルのLTDプロジェクトと関連付けたグリムゼル岩マトリクスを対象とした室内試験については、先行事業「処分システム化学影響評価高度化開発」（日本原子力研究開発機構, 2013c）における研究成果を継承しつつ進めてきた。具体的には、LTDプロジェクトのフェーズIIの原位置試験の場所から採取した岩石試料及び実際の原位置試験で用いているトレーサー（Na, Cs, Cl, HT0, Se, Ba）を対象として、拡散及び収着データの取得を進めてきた。これまでに取得した一連の試験結果を図2.4.2-2に要約するが、LTDプロジェクトのフェーズIで得られた成果(Tachi et al., 2015)と同様、花崗岩試料の鉱物と間隙の不均質性、室内試験の試料の擾乱影響の重要性を示唆する結果が得られた。例えば、同図(e)に示した実効拡散係数からは、ベントナイトや粘土質岩と同様の狭隘間隙中での静電的相互作用に起因した陽イオン加速と陰イオン排除の傾向が確認された。間隙の形状因子 ($\epsilon\delta_g/\tau^2$) のみを考慮した拡散モデル (Van Brakel and Heertjes, 1974) で評価される拡散係数との比較を行ったところ、その傾向性は陽イオンの加速の方が顕著であり、これは花崗岩の鉱物や間隙の不均質性に起因するものと推定された。一方で、拡散試験終了後に取得した岩石中の核種の濃度プロファイル (同図d) は、典型的な二重プロファイルを示し、同図(b), (c)に示す表面分析からは、表面付近の擾乱を受けた黒雲母中の高い間隙率と収着性が、表面近傍の急峻なプロファイルの原因として考えられた。同図(f)に、このプロファイルの表面近傍 (Near) とマトリクス (Far) 部分から評価した分配係数、及び粒径サイズの異なる粉碎試料を用

いたバッチ収着試験により得られた分配係数を比較する。拡散プロファイルから得られた表面部分の分配係数 (K_d) が試料内部よりも1~2桁高くなること、一方で、粉碎試料を用いたバッチ法での分配係数も粉碎の影響によって、粒径が小さいほど K_d が1~2桁上昇する傾向が確認された。試料表面の擾乱と粉碎による擾乱の影響は、定性的には整合するものであるが、それらの定量的な関連付けやイオン間の分配係数の差異については、今後更なる検討が必要である。このような花崗岩マトリクス中の核種移行メカニズムの理解をより深めるため、次項で、花崗岩試料の鉱物と間隙の不均質性の定量化と、不均質性を考慮した解析手法の検討を進めた。

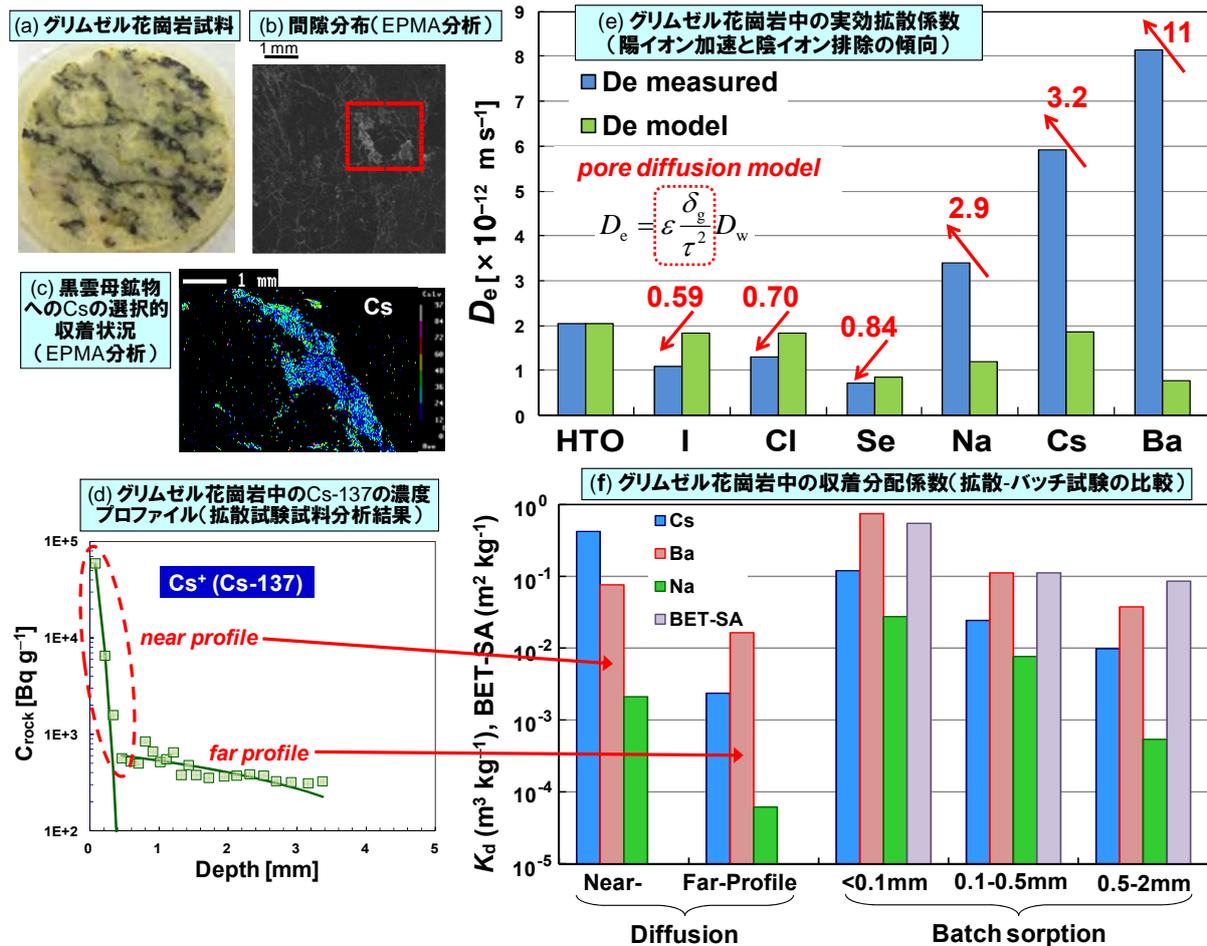


図 2.4.2-2 グリムゼル花崗岩のマトリクス試料の室内収着・拡散試験結果のまとめ

ii) グリムゼル花崗岩マトリクス中の鉱物・間隙の不均質性の評価

上記i)で示したように花崗岩マトリクス中の核種の拡散・収着メカニズムを理解するためには、花崗岩マトリクス中の鉱物の分布、間隙の分布や連続性等の理解、及びそれらの定量化が重要となる。このために、花崗岩マトリクス試料に対して、X線CT並びに電子線マイクロアナライザー(EPMA)を適用することにより、鉱物や間隙分布の定量評価を検討した。

EPMAによる分析については、先行事業「処分システム化学影響評価高度化開発」で取得した分析データ(日本原子力研究開発機構, 2013b)を用いて、平成26年度から画像解析ツールを活用した評価に着手しており(日本原子力研究開発機構, 2015a)、平成27年度は解析評価手法や条件について比較評価を行いつつ、複数の試料断面のEPMAデータに基づく鉱物・間隙の定量評価を検討

した。グリムゼル花崗岩のマトリクス試料の間隙中にタングステン(W)を圧入した試料を対象に、EPMA分析により得られた主要元素マッピング結果、及びその評価事例を図2.4.2-3に示す。主要元素マップ(同図a)と、主要鉱物の元素組成をもとに、各鉱物が占める領域を区分し(同図b)、その面積から鉱物組成を定量化することを試みた。さらに、タングステンのマップ(同図c)と各鉱物の領域を重ねることによって、鉱物毎の間隙率、さらに、鉱物粒界の間隙率を評価した。

同図a及びbから評価された鉱物組成は、石英32.3%、斜長石50.4%、カリ長石/白雲母15.4%、黒雲母/緑泥石10.7%と評価された。同図b及びcの重ね合わせから評価された間隙率の評価結果は、黒雲母/緑泥石で2.6%、粒界が0.71%で、それ以外の鉱物は0.1%前後の低い値を示した。黒雲母の間隙が卓越していること、粒界分布からは各鉱物の粒径サイズは概ね1mm程度であると推定された。

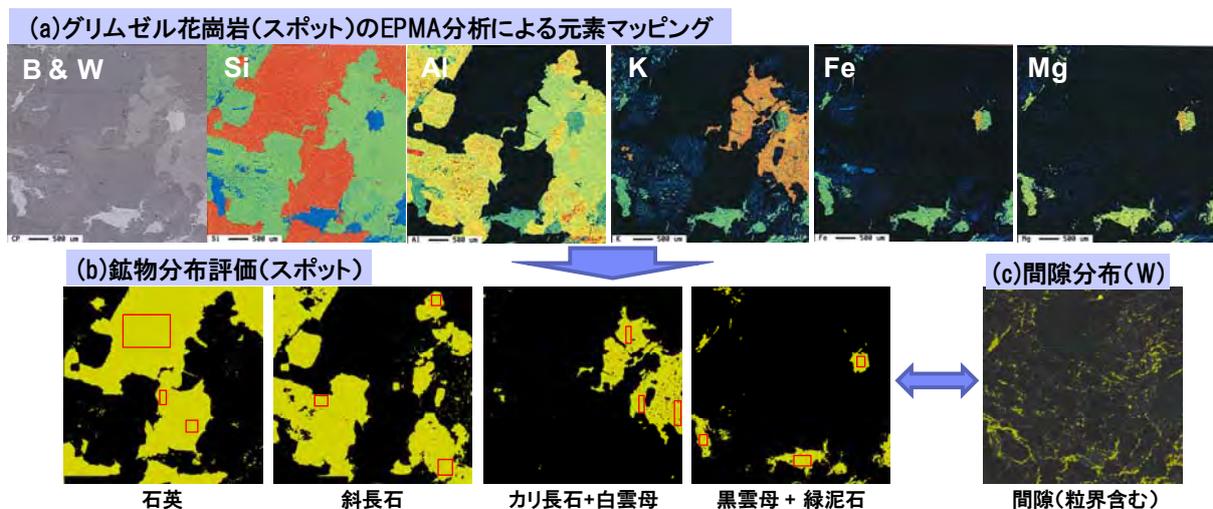


図 2.4.2-3 グリムゼル花崗岩の EPMA 画像の解析による鉱物比や間隙率の評価

一方、X線CTについては、鉱物組成に加えて、その3次元的な分布や形状を評価できる可能性を念頭においた分析評価を試みた。図2.4.2-4のa図に示すグリムゼル花崗岩のマトリクス試料を対象に、ナノフォーカスX線CT装置(UNi-HiTE System, XVA-160a)により、加速電圧90kV、電流値70mAで測定を行った。同図bにX線CTの断面画像を、同図cには対応するEPMAによる反射電子像を示すが、CTの輝度分布とEPMAの反射電子像が対応することが確認できる。X線CTの輝度分布については、同図dに示すような輝度解析から鉱物割合の評価を行った。EPMAの反射電子強度分布から同図eに示すように、同様に鉱物割合の導出を試みた。X線CTの輝度分布解析では石英と斜長石の分離は困難なもの、カリ長石及び黒雲母についてはX線CTの輝度分布解析とEPMAの反射電子強度解析から、概ね整合的な鉱物割合を評価することができた。これらのことから、X線CTの輝度分布から黒雲母の3次元的な分布を評価できる見通しが得られた。

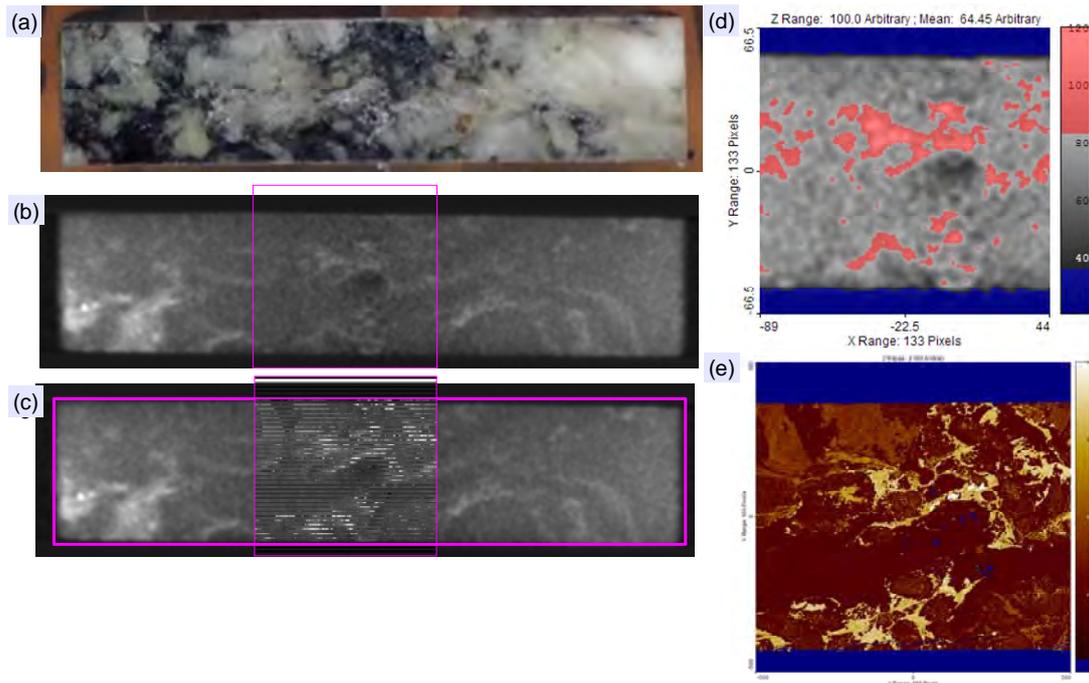


図 2. 4. 2-4 グリムゼル花崗岩の(a)試料断面、(b)X線CT画像、(c)反射電子像、及び(d)輝度分布解析、(e)反射電子強度解析による黒雲母分布評価

iii) 花崗岩マトリクスの不均質性を考慮した核種移行評価手法の開発

上記i)に示したように、グリムゼル花崗岩で実測された実効拡散係数の陽イオン加速と陰イオン排除の傾向性からは不均質性の影響が確認され、上記ii)の鉱物・間隙分布からは、黒雲母の高間隙率や不均質分布が拡散に影響を及ぼす可能性が示唆された。花崗岩中の拡散メカニズムを理解するうえで、鉱物・間隙の不均質性、特に黒雲母の形状や分布が、イオンの拡散係数やその異方性に及ぼす影響の評価が重要と考えられる。ここでは黒雲母における粒子の拡散挙動の表現方法を検討するため、黒雲母の層状構造を考慮した仮想的な解析体系を対象に、ランダムウォーク法を用いて粒子の拡散挙動を表現することのできるPARTRIDGEコード(野口ほか, 2008)を用いた解析を行った。

黒雲母に入り込んだ粒子の拡散挙動に関する考慮事項として、黒雲母の層構造に由来すると考えられる拡散の異方性、及びイオン形態による拡散の差異が挙げられる。ここでは、層状の鉱物がその他の鉱物と混在して存在する場合における拡散挙動への影響を確認するための解析を実施した。解析体系としては図2. 4. 2-5(a)に示すような50x50x50個の要素からなる構造格子を用い、その中に、同図(b)に示すような5x5x5個の構造格子をユニットとしてブロック鉱物と層状鉱物の2種の鉱物を配置する。ここでは簡略化したモデルとしてブロック鉱物は黒雲母以外の低間隙率の鉱物を想定して、内部の3x3x3個の構造格子が拡散しない間隙率0のブロックとし、その外側の1格子分の表面層で粒界における拡散を表現した。一方、黒雲母を想定した層状鉱物は両端と中央の3層が全く拡散しない層であり、その間の2層で層状間隙中の拡散を表現した。初期条件として同図(a)右図に示す赤色の端面に粒子を配置し、反対側の端面から体系外に移行する(x方向とする)際の移行率を算出した。層状鉱物の割合については10%, 30%, 50%の割合で層状鉱物をランダ

ムに配置する3条件を考慮した。また層状鉱物の層方向については解析体系のx方向に対して垂直、あるいは平行の2パターンを考慮し、平行か垂直かを完全にランダムに決定する場合、全てがx方向に対して平行な場合、全てがx方向に対して垂直な場合の3条件を考慮するため、配置の設定として計9パターンを考慮した。

これらのうち、層状鉱物が平行と垂直の計算結果を同図(c)及び(d)に示す。層状鉱物の層方向がx方向に平行な場合(c図)は、層状鉱物の割合を変化させても拡散によるフラックスの時間変化には殆ど影響が無い。これは、層状鉱物がx方向への拡散を促進することも阻害することもしないのでx方向への移行挙動に差が現れなかったものと考えられる。その一方で、層状鉱物の層方向がx方向に垂直な場合(d図)は、層状鉱物の割合が増加するにつれて粒子の移行がより遅延される結果となっている。これは、層状鉱物の層方向がx方向に平行な場合は拡散しない層によってx方向への移行が阻害されやすくなるためと考えられる。今回想定したようなブロック鉱物の粒界と層状鉱物の層間の実効拡散係数が等しい場合は、層の方向によって粒子の拡散による移行を阻害する効果はあっても、促進させる効果は生じえない。なお、層状鉱物の全くランダムな配置の場合は、層状鉱物の割合が10%程度では、その不均質性が粒子の拡散挙動に及ぼす影響は顕著ではないことが確認された。

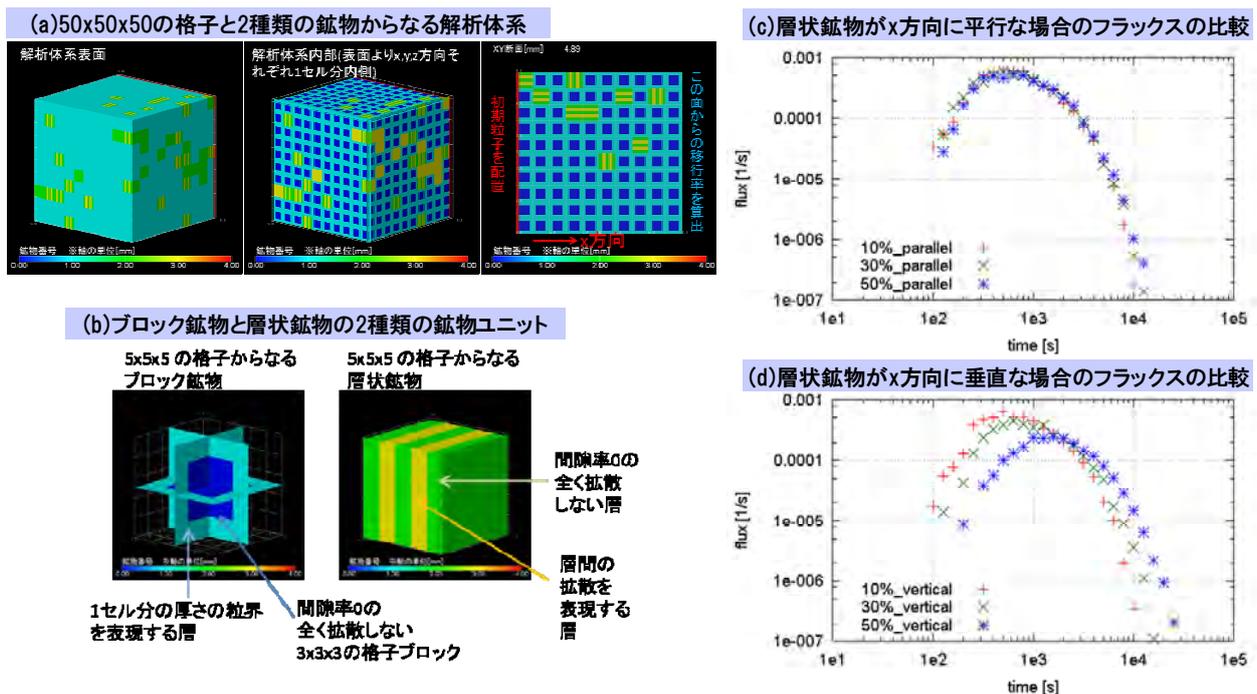


図 2.4.2-5 花崗岩の不均質性を考慮したモデル解析体系と解析結果の例

上記i)に示したように、実際の黒雲母を含んだ鉱物中ではイオン形態によって拡散による移行が促進される場合もある。このため、イオン形態を考慮して層状鉱物の層間の実効拡散係数を変えたケースとして、陽イオンを想定した場合は実効拡散係数を増加させ、陰イオンを想定した場合は実効拡散係数を減少させた場合の効果を確認するための解析を行った。図2.4.2-6に陽イオンを想定して、層状鉱物の層間の実効拡散係数を1桁増加させた条件での解析結果を示す。層状鉱物の層方向がx方向に平行な場合(同図a)、垂直な場合(同図b)に比較して、顕著な加速傾向が認

められた。今後、これらの加速、減速の効果を含め、実効拡散係数の定量的な評価を行うとともに、次の段階としてより実際の鉱物分布に近い鉱物配置パターンを考慮した解析を検討していく。例えばグリムゼル岩では鉱物中の黒雲母の割合は10%程度であるにも関わらず、核種移行に黒雲母の構造が影響を与えている。これは、鉱物配置が完全にランダムではなく、黒雲母の層がある程度の長さで同じ方向に進展しているなどの一定のパターンをもった構造を持つために生じているものと考えられる。したがって、実際の測定により求めた鉱物配置を反映させたり、地球統計学的手法を用いて、鉱物の存在分布にパターンを持たせるなどの試行を行うことが今後の検討課題として挙げられる。

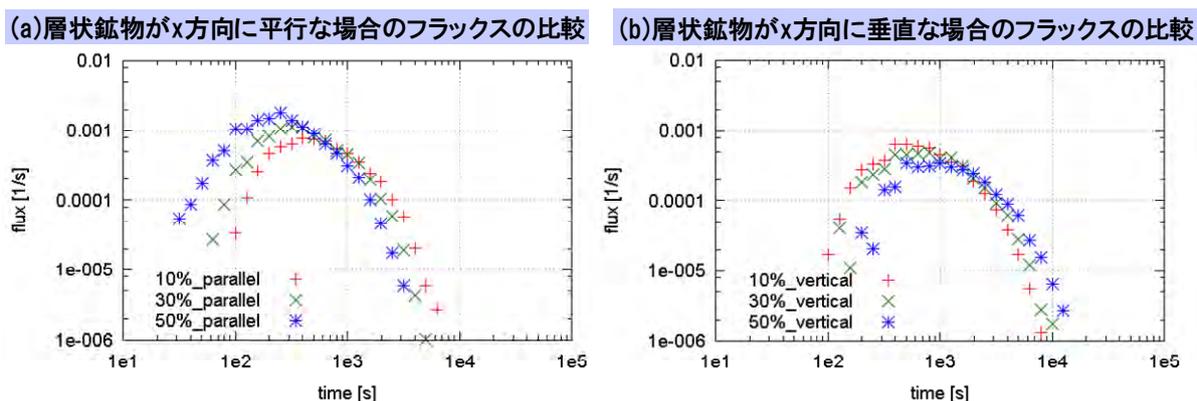


図 2.4.2-6 花崗岩の不均質性を考慮したモデル解析結果：層状鉱物内の陽イオン加速の効果

3) グリムゼル花崗岩の割れ目を対象とした室内核種移行試験と評価

グリムゼル花崗岩の単一割れ目からマトリクスを含む鉱物・間隙特性並びに収着・拡散特性を含む核種移行特性を総合的に把握することを目的に、(3)に示す幌延泥岩を対象として先行的に実施している試験研究アプローチを踏襲して、割れ目を有するグリムゼル岩試料を対象に、一連の分析・試験及び解析評価を実施した。

i) 割れ目を対象とした室内核種移行試験の概要と岩石基本特性評価

割れ目を含む花崗岩試料として、グリムゼル原位置試験場の長期セメント挙動試験 (LCS) プロジェクトの評価対象割れ目近傍から、天然の単一割れ目を中心部に含むコア試料を採取した。このコア試料を対象に、割れ目部とマトリクス部の鉱物・間隙分布、収着・拡散特性を評価するための試験と、割れ目を含むコア状の試料を用いた定流量通水試験を行うこととし、図2.4.2-7に示すような体系で一連の試験と分析を行った。定流量通液試験に用いるコア試料は、樹脂で保護・固定した状態で、直径50mm、高さ80mmの円筒形状に加工した試料を、X線CT分析を行ったうえで、図中に示すように、両面の割れ目部以外をシーリングし、デッドボリュームを最小化しつつアクリル製試験セルに設置した。拡散試料は、同じ割れ目面を含む試料を割れ目面から開き、割れ目面に対して垂直にコアピッカーを用いてφ20mmのコアを採取し、割れ目面の凹凸をそのままの状態に厚さを5mm程度に調整したものを割れ目部試料とし、割れ目から離れた部分をマトリクス部試料とした。バッチ試験試料は、割れ目表面部とマトリクス部のそれぞれの試料を粉碎し60mesh (250μm) アンダーに篩分したものを試料とした。

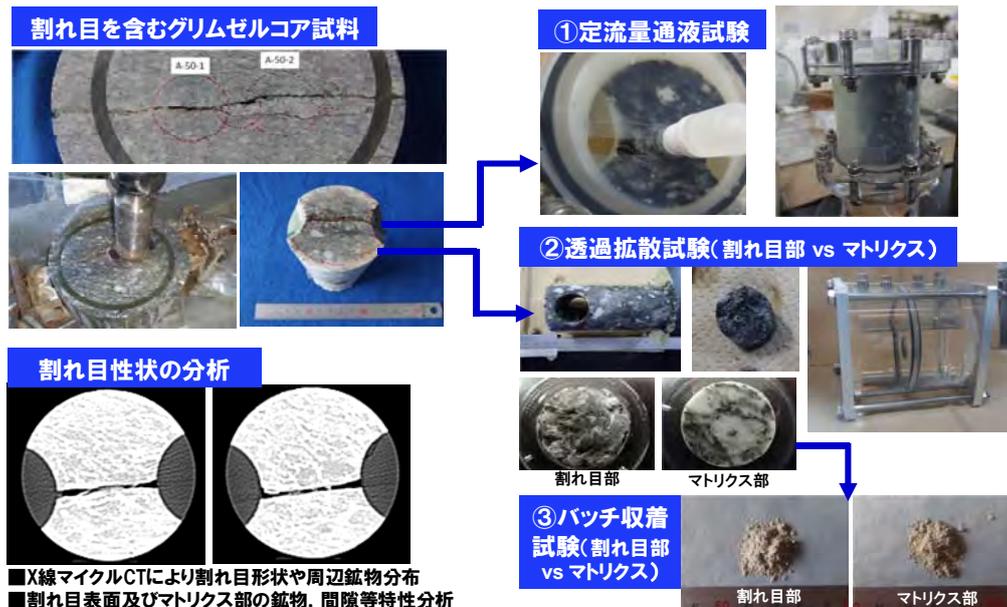


図 2.4.2-7 割れ目を含むグリムゼル花崗岩を対象とした室内試験の体系

① 岩石基本特性分析

割れ目部とマトリクス部の基本特性の把握のため、鉱物組成(X線回折)、陽イオン交換容量(CEC)、比表面積(BET)、間隙率・間隙径分布(水銀圧入)、粒径分布を分析した。粉末試料を用いた分析については、3種類の粒径サイズ(0.1mm未満, 0.1~0.5mm, 0.5~2mm)に調整した試料を対象に、それぞれ分析を行った。分析結果の一部を表2.4.2-2にまとめる。鉱物分析結果は、石英、長石、雲母等のピークが確認された。また、比表面積や粒径分布は、粉砕した粒径サイズに対応する傾向を示した。間隙径については、割れ目部、マトリクス部ともに、数100~0.1 μ mの範囲に分布する結果であった。

表 2.4.2-2 グリムゼル花崗岩試料の割れ目部とマトリクス部の特性分析結果

試料	粒径サイズ	CEC [meq/100g]	比表面積[m ² /g]	間隙率[%]
割れ目部	0.1mm未満	9.7	3.54	1.2-1.7
	0.1~0.5mm	0.6	0.26	
	0.5~2mm	0.7	0.18	
マトリクス部	0.1mm未満	5.0	0.57	1.5-2.2
	0.1~0.5mm	0.1	0.21	
	0.5~2mm	1.7	0.08	

② X線CTによる割れ目分析

グリムゼル花崗岩の割れ目試料を対象に2種類のX線CT分析を実施した。最初に、定流量通液試験で用いるコア状試料を対象に、X線CT装置(東芝製, Asteion VI)によって、管電圧120kV、管電流200mA、スキャン速度0.75秒、スキャン幅1mmの条件でCT画像を取得した。CT断面図の一部を図2.4.2-8(a)に示すように、約10cmのコア試料全体にわたって単一割れ目が連続していることが確認できた。また、画像解析手法によって、割れ目表面部の二面を結像し、それらの差分から開口幅分布の評価を行った。その結果、同図(b)に示すように、開口幅が狭いところ(図中濃色部)

が不均質に分布していること、平均開口幅は約2mmであることが確認された。さらに、ナノフォーカスX線CT装置 (UNi-HiTE System, XVA-160a) により、加速電圧90kV、電流値70mAで測定を行い、詳細な輝度分析を行った結果を同図(c)に示す。この分析の結果、グリムゼル花崗岩の割れ目面の特徴としては、輝度が内部のマトリクス部に比べて高く、輝度の高い黒雲母が濃集していることが確認された。その黒雲母と共存している微細な鉱物としては石英やカリ長石が考えられるが、X線CT観察における輝度とこれらの鉱物の対応付けは困難であり、さらに詳細な分析が必要となる。同図(c)に輝度解析による鉱物組成の定量分析を試みた例を示すが、黒雲母等が16.84%、斜長石と石英が77.51%という定量的な評価結果を得た。この結果の妥当性を確認するため、上記2) ii) でマトリクスを対象に検討したようなEPMA等の観察との比較についても今後検討していく計画である。

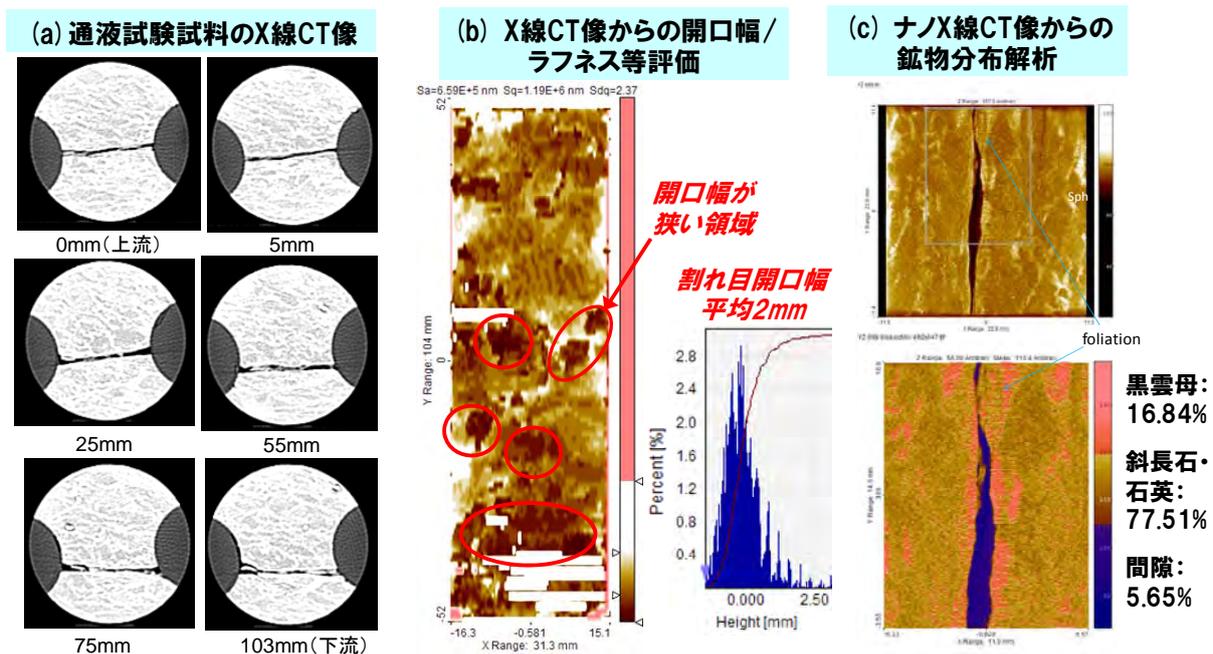


図 2.4.2-8 通液試験に用いた割れ目を含むグリムゼル花崗岩試料の X 線 CT 分析結果

ii) 拡散試験及びバッチ収着試験結果

① 拡散試験

拡散試験は、割れ目表面を含む試料、マトリクス部試料を用いて、透過拡散法（拡張型）によって、Ar雰囲気、室温条件で行った。試験液はグリムゼル原位置試験場の模擬地下水をベースに、重水 (HD₂O ; 10%), I (10⁻⁵ mol/dm³), Cs (10⁻⁵ mol/dm³), Se (10⁻⁴ mol/dm³), Ni (10⁻⁵ mol/dm³), Eu (10⁻⁶ mol/dm³) を含むカクテルトレーサーとした。上流側のトレーサー減衰曲線、下流側の破過曲線を取得するとともに、試験終了時には試料の研削・分析によって収着性トレーサーの岩石内部の濃度プロファイルを取得した。得られた複数の濃度曲線に対して、拡散方程式を同時フィッティングすることによって、実効拡散係数と分配係数を取得した。CsとSeの減衰曲線及び破過曲線データと解析結果を、図2.4.2-9に例示する。マトリクス部の実効拡散係数は、CsとSeのいずれも図2.4.2-2に示した原位置長期拡散試験のマトリクス試料に対して得られた値と同程度の値であり、一方、割れ目を含む試料の実効拡散係数はCsとSeのいずれもマトリクスに対して1/2前後の値を示した。今後、これらの試験を継続し、他のトレーサーのデータ及び内部プロファイルを取得する

とともに、割れ目部とマトリクス部の鉱物・間隙構造の差異との関係も含めて検討していく計画である。

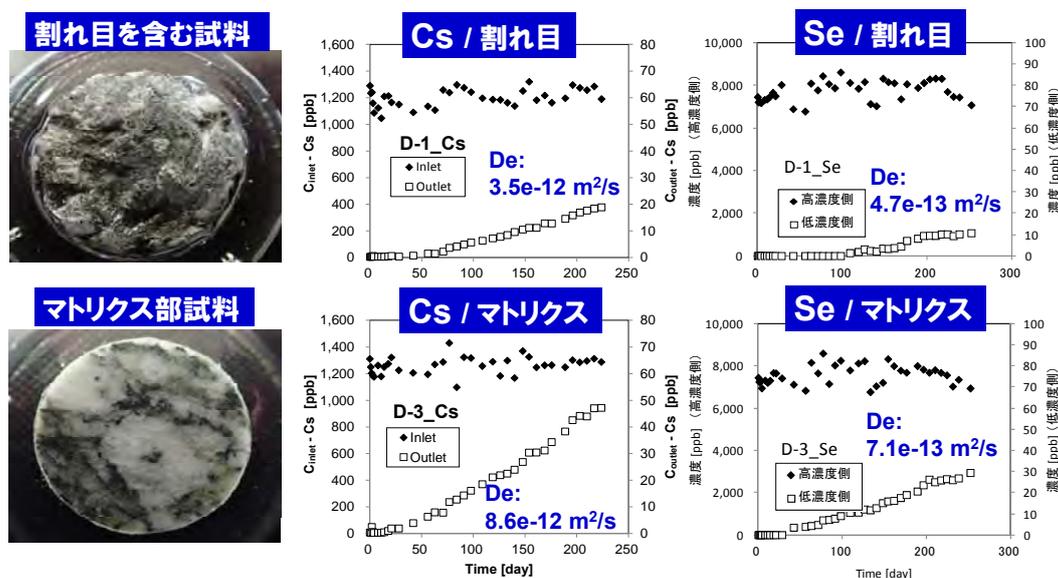


図 2.4.2-9 グリムゼル花崗岩（割れ目、マトリクス部）の拡散試験結果（Cs と Se の例）

② バッチ収着試験

バッチ収着試験は、割れ目部近傍（表面から2~3mm程度）とマトリクス部の粉末試料を用いて、液固比100ml/g、Ar雰囲気、室温条件で行った。試験液は拡散試験と同じ模擬地下水をベースとして、拡散試験と同じ濃度のCs, Se, Ni, Euを含むカクテルトレーサーとした。収着の時間依存性については、CsやNiの一部の粒径条件で短期的に分配比が変化したものの、20日程度でいずれの試料でも安定したことから、28日後に0.45 μmメンブランろ過後の濃度分析データをもとに分配係数を評価した。粒径0.5-2mmの試料に対して得られた分配係数（図2.4.2-10a）は、Cs, Ni, Euで0.1 m³/kg前後、Seで0.001 m³/kgのオーダーであり、割れ目部とマトリクス部の分配係数には顕著な差異は認められなかった。さらに、収着試験後に、実験水（模擬地下水）、1M KCl, 1M HClを脱離液として脱離データを取得した（図2.4.2-10b）。収着性の高いCs, Ni, Euの試料では、いずれの脱離試薬でもほとんど脱離が生じず80-90%以上が脱離しない残渣成分として評価された。

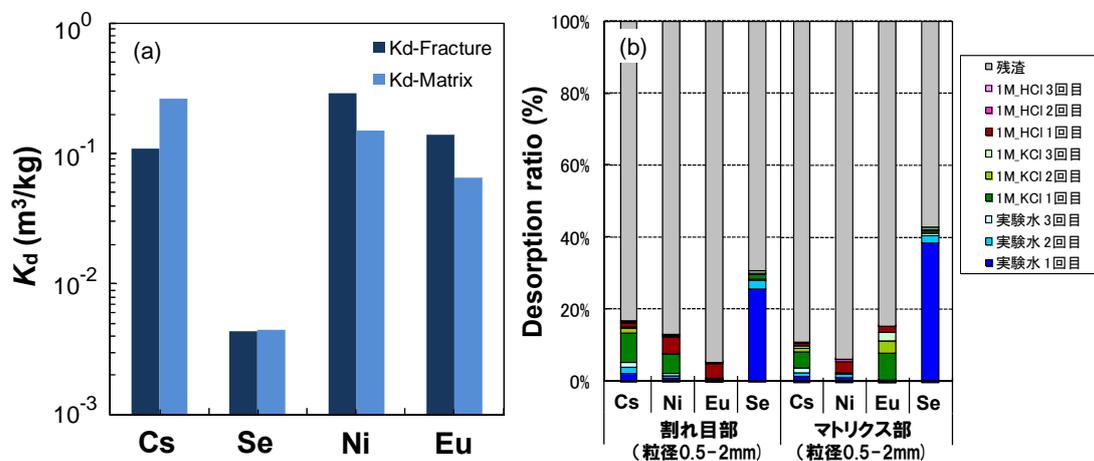


図 2.4.2-10 グリムゼル花崗岩の割れ目部／マトリクス部の収着試験(a)と脱離試験(b)の結果

iii) 定流量通液試験結果

① 定流量通液試験の概要と破過データ

通液試験に用いた試料は、中央付近に単一割れ目面を含む直径 50mm、長さ 80mm のコア状試料である。図 2.4.2-7 に示したように、試験溶液が亀裂内のみを通水させるため、亀裂部以外のコアの端面は樹脂によってシールするとともに、デッドボリュームが最小になるように調整した。模擬地下水を循環させたのち、拡散試験と同様の元素を含有するカクテルトレーサーを、定流量ポンプを用いて 1mL/h の一定流量で通液させた。通液試験については、大気下、室温で行った。下流側から排出される溶液を定期的にサンプリングし、トレーサー元素濃度を分析することによって、破過曲線を取得した。

各トレーサー元素の破過曲線を図 2.4.2-11 に示す。非収着及び低収着性の HDO, I, Se については、数日のうちに破過し、それらの破過時間の差異は顕著ではなかった。一方で、収着性の Cs については、数日～20 日程度かけて破過が認められた。40 日以降、Ni 及び Eu の破過が確認されたものの、その後また減衰した理由は不明である。これらのトレーサー元素間の遅延の傾向性 (Eu>Ni>Cs>Se≈HDO≈I) は、上記に示した収着・拡散試験から得られた各元素間の収着・拡散特性の関係と整合する結果となった。

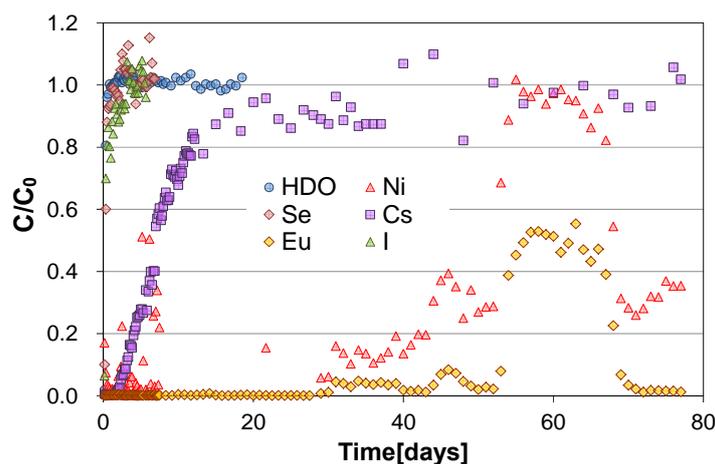


図 2.4.2-11 定流量通液試験で得られたトレーサー元素の破過曲線データ

② 定流量通液試験後の試料分析結果

約90日間の通液試験終了後に、割れ目表面観察、割れ目からマトリクス部への拡散挙動を確認するために、試験セルを解体して試料の分析を実施した。アクリル製の試験セルを解体したところ、コア試料は割れ目面で分割することができた(図2.4.2-12左)。割れ目を開いた状態で、レーザー走査顕微鏡による割れ目面の形状測定を行った。図2.4.2-12右に示すように、割れ目表面の凹凸状況を定量的に把握することができ、今後、上記のX線CTの評価結果と合わせて、割れ目の開口状態等の不均質性を定量化する方法を検討していく。

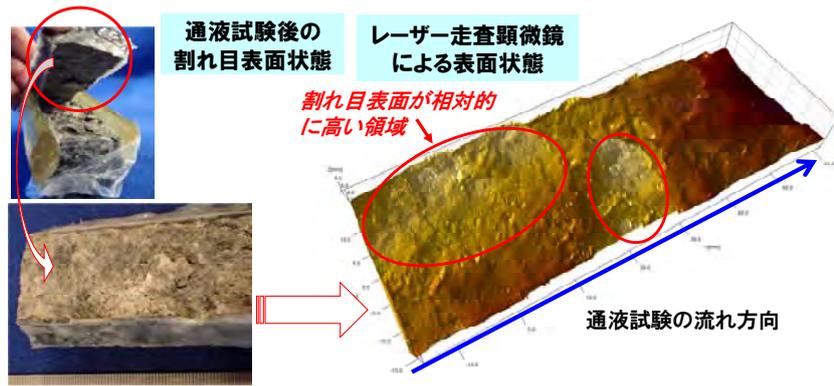


図2. 4. 2-12 通液試験後の割れ目状態とレーザー走査顕微鏡による割れ目表面形状の測定結果

割れ目面からマトリクスにかけてのトレーサー元素の分布状況の分析については、①割れ目表面部に存在する充填鉱物粒子の位置情報とトレーサー濃度との関係の把握、②上流から下流にかけてエリアごとの微細充填物のトレーサー濃度分析、③割れ目面からマトリクス内部への研削によるトレーサー深度分布の取得の3つのステップで進めた。ここでは、最初の2つのステップの分析結果を例示する。図2. 4. 2-13(a)に、ステップ①の粒子状充填物のトレーサー濃度分析結果例を示すが、上流（図左側）から下流にかけてCs濃度は同程度であるのに対し、Niについては濃度が減少する傾向が認められた。また、平面的に網羅的な測定ではないものの、流れの不均質性を示唆する元素分布の不均質性が確認された。一方、同図(b)に示すステップ②の粉末状充填物の分析結果からは、上流から下流にかけてのトレーサー濃度の面的な平均値が得られ、同図(a)に示したCsとNiの結果については、2つの分析結果が概ね整合する結果となった。

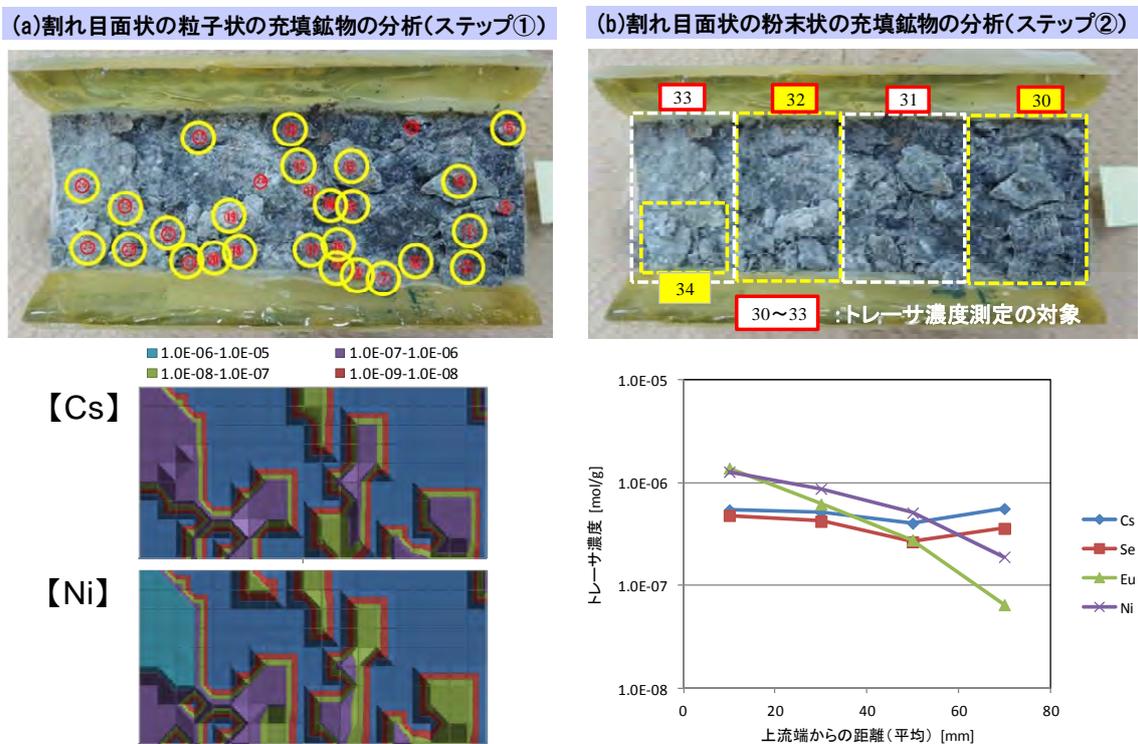


図 2. 4. 2-13 定流量通液試験終了の割れ目面のトレーサー分布状況の分析結果

③ 定流量通液試験の解析評価

上記 ii) で示した収着・拡散試験の結果からは、割れ目部とマトリクス部で異なる収着・拡散特性が得られ、一方で iii) ②の定流量通液試験後の割れ目表面の分析結果からは、割れ目の開口状態や流れの不均質性を示唆する結果が得られた。これらを踏まえれば、割れ目からマトリクスへの2層構造の考慮と、割れ目中の流れの不均質性が、モデル化を検討する上での考慮事項として挙げられる。ここでは、最初のステップとして、平行平板モデルとマトリクス拡散領域を2層構造としたモデル化を検討した。なお、割れ目中の流れの不均質性を考慮したモデル化手法は、後述する幌延泥岩の割れ目を対象とした定流量通液試験において検討を行っており、この不均質場のモデル化手法を反映したモデル化についても、今後検討することとする。

解析は汎用的なシミュレーションソフトウェアである GoldSim(ver. 10.1; GoldSim Technology Group, 2010)を用いて行った。図 2.4.2-14(a)にモデル概念を示すように、試料形状をもとに割れ目形状やマトリクス拡散深さを設定するとともに、X線CTの解析結果から割れ目の開口幅を2mm、割れ目近傍部の厚さは1mmと仮定した。割れ目中の流速は、割れ目形状と試験の流量から設定した。割れ目部とマトリクス部の間隙率、収着・拡散特性については、上記の特性分析、収着・拡散試験データをもとに設定し、一部実測データが得られていない拡散データについては、グリムゼル岩マトリクス部の既往の拡散データに基づく推定値を用いた。同図(b)に示す解析体系とこれらパラメータを用いた解析により得られた通液試験の破過曲線を、実測データとともに同図(c)に示す。HDO, I, Se といった非収着性の元素は、概ね実測の破過曲線を再現できているが、高収着性の元素については解析結果の破過曲線の立ち上がりが実測に比べて遅く、遅延を過大に評価している結果となった。これらの傾向は、先行して試験と解析を進めてきた幌延泥岩の傾向と同様であり、上記の割れ目開口状態や割れ目表面の元素分布状況などの情報を反映しつつ、割れ目内の流れの不均質性を考慮した解析を後述する幌延泥岩の解析アプローチも反映して進めていく必要がある。

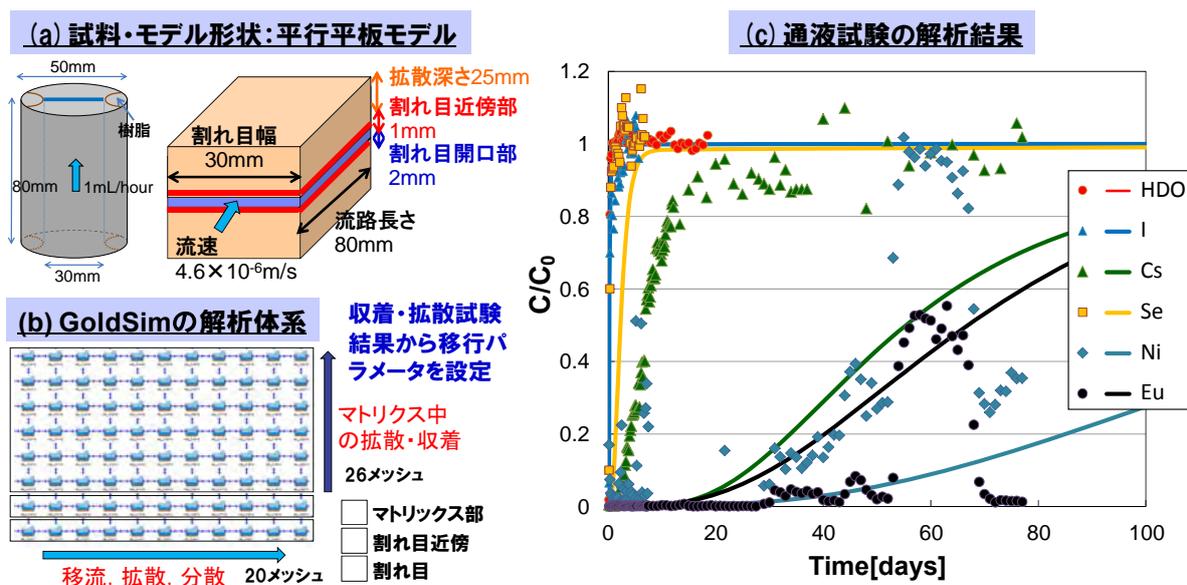


図2.4.2-14 グリムゼル岩割れ目中通液試験の解析のモデル概念(a), 解析体系(b), 解析結果(c)

4) 原位置試験への適用性評価に関する調査・解析

結晶質岩については、上記のように、マトリクスと割れ目を対象に、鉱物や間隙の不均質性の影響なども含めて、室内試験に基づき構築した評価モデルを、最終的に原位置条件において適用し、その適用性を確認することが重要である。このような課題に対応するため、諸外国でも様々な視点での原位置トレーサー試験が、室内試験とも関連付けながら進められている。花崗岩マトリクスと割れ目の核種移行評価手法の確証に資するため、本プロジェクトで主たる対象としてきたスイスのグリムゼルに加え、スウェーデンのエスポ、フィンランドのオンカロの原位置トレーサー試験を中心に、ナチュラルアナログ的なアプローチや性能評価への反映に関する情報について調査を行った。ここでは、これら3つの地下研究施設における代表的な原位置トレーサー試験の特徴を、岩石等の特徴や評価確証の視点とともに、表2.4.2-3にまとめる。

表 2.4.2-3 諸外国における花崗岩を対象とした原位置トレーサー試験の調査結果

プロジェクト	原位置トレーサー試験の特徴や評価確証の視点
グリムゼル (スイス) 原位置長期拡散 試験 (LTD) プロ ジェクト 【Soler et al., 2015; Tachi et al., 2015】	<p>試験概要: 花崗岩マトリクス中の原位置での長期拡散試験によって、原位置条件での信頼性の高い拡散係数及びマトリクス拡散深さなどのデータ取得を目的とする。LTD-1では単孔の拡散試験として実施され、現在LTD-2として孔間試験で対象核種も拡充して実施中である。</p> <p>岩石の特徴: グリムゼル花崗閃緑岩を対象としており、黒雲母の含有率が10~20%程度、また、フォリエーション(葉理構造)をもつことを特徴としている。</p> <p>評価確証の視点と課題: 原位置条件での多様な核種(LTD-2では、HTO, Cl, Se, Na, Cs, Baを対象)のマトリクス拡散係数や拡散深さに関する信頼性の高いデータ取得に加え、室内データに基づく間隙構造や拡散・収着メカニズムの理解、不均質性を考慮したモデル化手法の検討、室内データと原位置の関連付けとアップスケール法の検討などを進めている。</p> <p>関連プロジェクト: これまでに割れ目及び破碎帯に着目した原位置トレーサー試験も進められており、より複雑な系での移行モデルの確証に資する情報として有益である。これら試験で得られたマトリクス拡散に係る情報は、LTD成果の妥当性を確認する上でも重要である。</p>
オンカロ (フィンランド) REPROプロジェ クト 【Voutilainen et al., 2014】	<p>試験概要: ONKALO試験場の岩石マトリクスを対象とした移流拡散試験(WPDE)と長期透過拡散試験(TDE)の2つの原位置試験を実施中。WPDE試験は、試錐孔の円筒形状の外周部に低流量でトレーサー溶液(HTO, Na, Cl, Sr, Ba)を通液し、破過曲線を取得するものであり、既に試験を終了している。TDE試験は、離間距離10cm程度の試錐孔3つのうちの1つにトレーサー溶液を循環・拡散させ、残りの2つの試錐孔中のトレーサー濃度変化を計測することにより、異方性を有する岩石の拡散特性を把握するものである。TDE試験については試錐掘削などの準備が完了し、今後トレーサーを循環させる計画である。</p> <p>岩石の特徴: REPRO試験サイトの岩石の特徴としては片麻岩(veined gneiss)が約9割、花崗岩(pegmatitic granite)が約1割で構成され、特に片麻岩の黒雲母の含有率が30%程度と高く、また、強いフォリエーション(葉理構造)をもつことを特徴としている。</p> <p>評価確証の視点と課題: 岩石マトリクスを対象としており、使用しているトレーサー元素も含めて、グリムゼルのLTDに類似した試験コンセプトであるが、黒雲母の高含有率、強い葉理構造、その不均質性といった岩石の特徴が大きく異なり、LTDで構築したモデル化手法やアップスケール法の多様な岩石への適用性を確認することが可能である。</p>
エスポ (スウェーデン) 原位置長期拡 散・収着プロジェ クト (LTDE-SD) 【Widstrand et al., 2010】	<p>試験概要: Aspo試験場のマトリクス部と亀裂部の双方を対象とした原位置長期拡散・収着試験(LTDE-SD: Long Term Diffusion Experiment – Sorption-Diffusion)プロジェクトである。約200日間にわたって亀裂表面及びマトリクス中の試錐孔内に20種を超える放射性核種を含むトレーサー溶液を循環させ、さらにオーバーコア試料中の核種濃度分布が詳細に取得された。LTDE-SD試験については、2006年から約2年をかけて実施されたもので、その結果の詳細は複数のSKBレポートに取りまとめられている。</p> <p>岩石の特徴: マトリクスはエスポ花崗閃緑岩で均質未変質岩であり、一方、割れ目については、方解石や緑泥石などの割れ目充填鉱物を不均質に被覆した複雑な特徴を有する。</p> <p>評価確証の視点と課題: 岩石マトリクスの特徴の違いに加えて、割れ目からマトリクスにかけての多様な核種のデータを取得している点が特徴であり、グリムゼル岩の割れ目を対象に構築したモデルの適用性、多様な核種のモデルの適用性などを評価することが可能である。</p> <p>関連プロジェクト: Aspo試験場では、特に割れ目の複雑さやスケールの違いに着目した原位置トレーサー試験(TRUEプロジェクト)を実施してきており、これらの試験や解析結果との比較評価も有効である。</p>

今後、これらの原位置トレーサー試験の詳細調査を継続するとともに、室内から原位置へのアップスケール法や多様な核種のモデル化手法などについて、岩石マトリクスや割れ目の特徴の多様性への対応の視点も念頭に、解析的検討と適用評価を進めていく計画である。また、長期時間スケールの観点での確証評価の観点から、花崗岩を対象としたナチュラルアナログ研究についても国内外の事例調査を進めてきており、これについても有益な事例を対象に詳細調査と評価を検討していくこととする。

(3) 堆積岩系の評価技術の開発

1) 幌延の泥岩を対象とした課題と開発アプローチ

幌延深地層研究センターの泥岩（以下、幌延泥岩）についても、先行事業「処分システム化学影響評価高度化開発」において、多様な核種の収着・拡散データの取得及び収着・拡散モデルの検討を進めてきた（日本原子力研究開発機構，2013c）。これらの先行研究で、主に対象としたのは幌延深地層研究計画のHDB-6孔の深度500-600 mの稚内層から採取した珪質泥岩の健岩部（マトリクス部）である。トリチウム水 (HTO), I, Cs, Ni, Am等の多様な核種の収着・拡散データとその環境条件依存性をもとに、幌延泥岩中のイオンの収着・拡散が、粘土成分（イライトとスメクタイト）及びそれらによって構成されるナノスケール間隙によって主に支配されていること、また、ベントナイト系のモデルの拡張によって、これらの収着・拡散データの傾向性を概ね解釈可能であることを示してきた（Tachi et al., 2011; 日本原子力研究開発機構，2013c）。

本プロジェクトでは、幌延深地層研究センターで実施中の原位置トレーサー試験と連携することによって、幌延泥岩のマトリクス部から割れ目部までの核種移行メカニズム理解とモデル化、原位置トレーサー試験の解釈、それらに基づく室内から原位置へのアップスケール法を構築することを目指して取り組みを進める。幌延深地層研究センターでは、深度350mの調査坑道において、健岩部、単一割れ目、割れ目帯を対象とした3種類の原位置トレーサー試験を実施中である（日本原子力研究開発機構，2015e）。これらの原位置試験との連携によって、これらの課題に対するアプローチを具体化しつつ研究を展開していくこととした。上記の通り、先行事業において泥岩マトリクスを対象に、多様な核種の収着・拡散データ取得とモデル化を検討してきたことを踏まえ、本プロジェクトでは、特に割れ目を含む系を対象とした室内試験とメカニズム理解に焦点をあてることとし、平成26年度までに割れ目を対象とした室内試験とモデル解釈を進めてきた。平成27年度は、割れ目を対象とした室内試験結果のモデル化を継続するとともに、原位置トレーサー試験が実施段階を迎えた状況を踏まえて、原位置試験と連携した研究アプローチの具体化と、室内補完試験、原位置試験終了後の試料分析、原位置トレーサー試験の予察解析等を進めた。また、地質環境条件の長期変遷の影響を含めて、長期時間スケールでの物質移行に係るモデルとデータの確証に資するため、ナチュラルトレーサーに基づく物質移行評価に関して、これまでの幌延の既往研究成果を活用した評価アプローチの検討と予察的な解析を実施した。

2) 幌延泥岩の割れ目系試料の核種移行特性の取得評価

i) 割れ目を対象とした室内核種移行試験の結果概要

単一割れ目を対象とした原位置トレーサー試験に先駆けて、幌延泥岩の割れ目中の核種移行特性を室内試験により評価することを目的に、平成26年度までに花崗岩を対象に示した体系と同様

のアプローチ(図2.4.2-7)で一連の分析・試験を実施してきた(日本原子力研究開発機構, 2015a)。幌延深地層研究計画において掘削された既存のボーリングコアから、天然の単一割れ目を含む保存状態の良好な試料として、SAB-2孔の深度288-289mの稚内層(珪質泥岩)コアを採取し、割れ目部とマトリクス部の鉱物、間隙、収着・拡散等の一連の特性分析、割れ目を含む円柱状の試料を用いた定流量通水試験を実施した。

① 収着・拡散試験の結果

一連の分析・試験の結果は平成26年度の報告書に記載しており、ここでは、モデル化についての詳細検討を進めるうえで前提となる主要な結果を以下に概観する。まず、岩石特性分析では、鉱物組成(X線回折)、化学組成(蛍光X線)、比表面積(BET)、陽イオン交換容量(CEC)、間隙孔径分布(水銀圧入)について、割れ目部とマトリクス部で顕著な差は認められず、稚内層の標準的な特性であることが確認された。割れ目部とマトリクス部を対象としたバッチ試験と拡散試験で得られた収着分配係数(K_d)及び実効拡散係数(D_e)を図2.4.2-15(a)にまとめる。拡散試験から得られた実効拡散係数については、明瞭な陽イオン加速と陰イオン排除の効果が確認され、また、割れ目部とマトリクス部を比較した場合、顕著な差異ではないものの割れ目部の方が若干低めの値を示した。一方、拡散試験から得られた分配係数についても、割れ目部とマトリクス部で顕著な差異は認められず、バッチ系のデータとも概ね整合する結果となった。今回取得されたSAB-2孔試料の実効拡散係数を、これまでに取得された同じ稚内層泥岩であるHDB-6孔の値(Tachi et al., 2011, 2016)と比較したものを同図(b)に示す。試料の間隙率や塩濃度条件の差異を反映して、今回のデータの方が高めの値ではあるものの、陽イオン加速と陰イオン排除の傾向については整合的な結果となった。

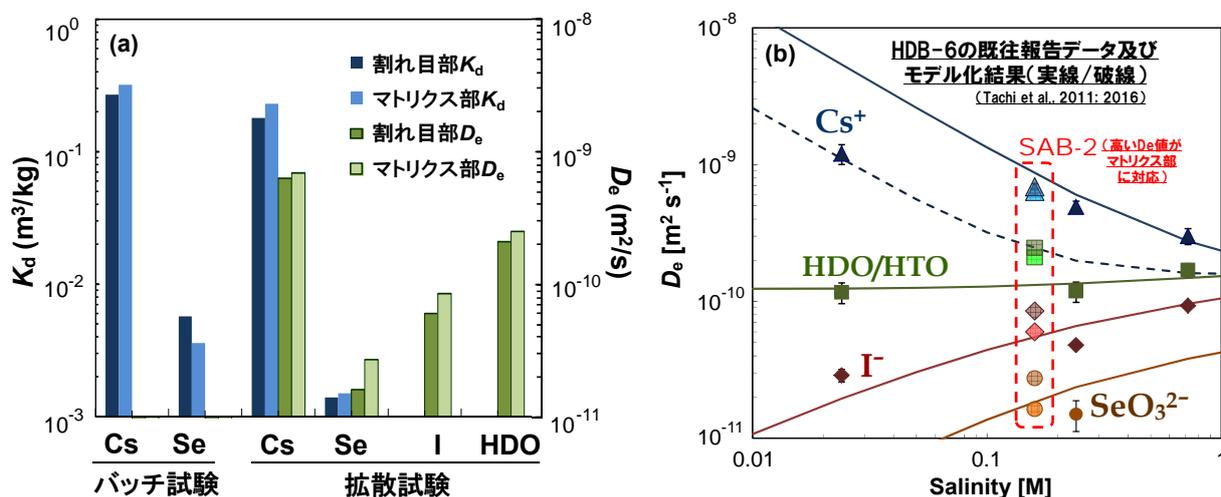


図 2.4.2-15 幌延泥岩中の収着・拡散試験で得られた収着・拡散パラメータの比較(a)及び拡散係数の既報データとの比較(b)

② 定流量通液試験の結果

定流量通液試験に用いた試料は、中央付近に単一割れ目を含む $\phi 90mm$ 、長さ100mmのコア状試料であり、図2.4.2-16(a)に示すように、試験溶液が割れ目部分のみを通水するよう、割れ目部

以外のコアの端面は樹脂によってシールした状態で、1mL/h の一定流量でトレーサー溶液を通過させた。下流側から排出される溶液を定期的にサンプリングし、トレーサー元素濃度を分析することによって、同図(b)に示すような破過曲線を取得した。割れ目中通液試験から得られた破過曲線は、Cs>Se>HDO>Iの順に遅延される傾向を示し、上記収着・拡散試験で得られた各トレーサーの収着・拡散特性と整合する結果となった。

約90日間の通液試験終了後に、割れ目からマトリクス部への拡散状況を確認するために、試験セルを解体し、割れ目表面の状態を確認したところ、図2.4.2-16(c)に示すように、上流から下流にかけて、白色及び赤褐色の析出物が分布していることが確認できた。その分布は不均一であり、割れ目表面の凹凸（せん断割れ目特有の表面形状）の影響を含め、選択的な流れが生じていた可能性が示唆された。割れ目面から分割された試料の割れ目表面からマトリクスへの元素濃度プロファイルを取得した。図2.4.2-16(d)及び(e)に上流側のCsとSeのプロファイルの例を示すが、少なくとも20mmを超える深さでマトリクス拡散が生じていることが確認されたほか、上流側の方が下流側に比べて割れ目面付近の濃度が1~2桁高く、また、プロファイルの進展も深い結果が得られた。

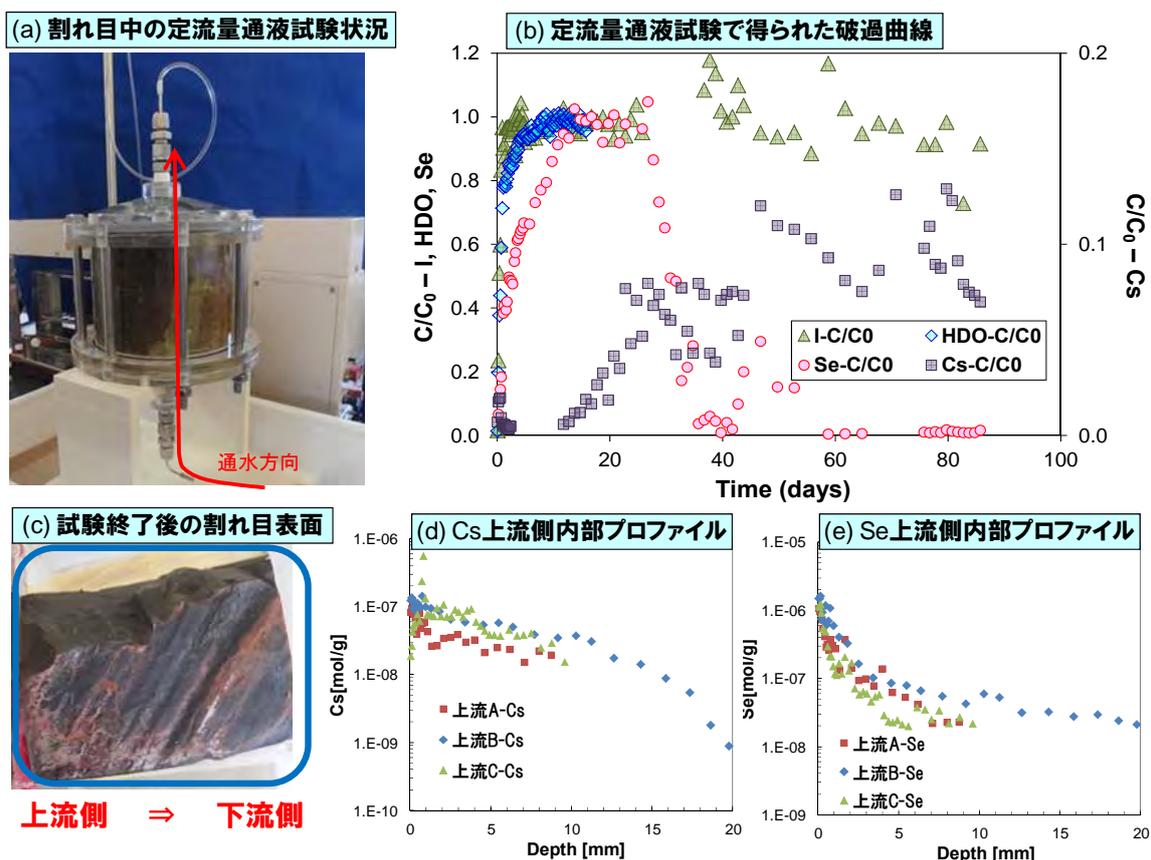


図 2.4.2-16 定流量通液試験で得られた破過曲線と内部プロファイルデータ

ii) 割れ目を対象とした定流量通液試験結果のモデル化

上記図 2.4.2-16 に示した割れ目試料の定流量通液試験において得られた破過曲線及び内部プロファイルに対して、割れ目からマトリクスまでの岩石特性、収着・拡散特性などの取得データ等に基づく解析的評価を検討した。平成 26 年度には、図 2.4.2-17(a)に示すような均質系の平行

平板モデルによる解析、更に選択的な流れの影響について単純に割れ目形状を半分にすることで表現することを試みたが、これらのモデルでは破過曲線及び内部プロファイルの実測値を説明することができなかった。このため、平成 27 年度は割れ目の不均質性をより現実的に考慮したモデルによる解釈を試みた。解析は汎用的なシミュレーションソフトウェアである GoldSim(ver. 10.1; GoldSim Technology Group, 2010)を用いて行った。

上図 2.4.2-16(c)に示した割れ目表面の観察結果からは、せん断割れ目の凹凸に沿った選択的な流れが生じていた可能性が示唆されたため、図 2.4.2-17(b)に示すようなモデル形状を流れの向きに対して 8 分割することで流れる領域を選択できるようにモデル化を行い、今回は①全面を流れるモデル、②1/2 を流れるモデル、③1/4 を流れるモデル、④1/8 を流れるモデルを作成し、選択的な流れの影響を考慮した解析を行った。試料形状や X 線 CT による割れ目開口幅の評価結果を踏まえ、割れ目形状は 90mm×100mm×1mm と設定し、マトリクス拡散深さは 40mm と設定した。

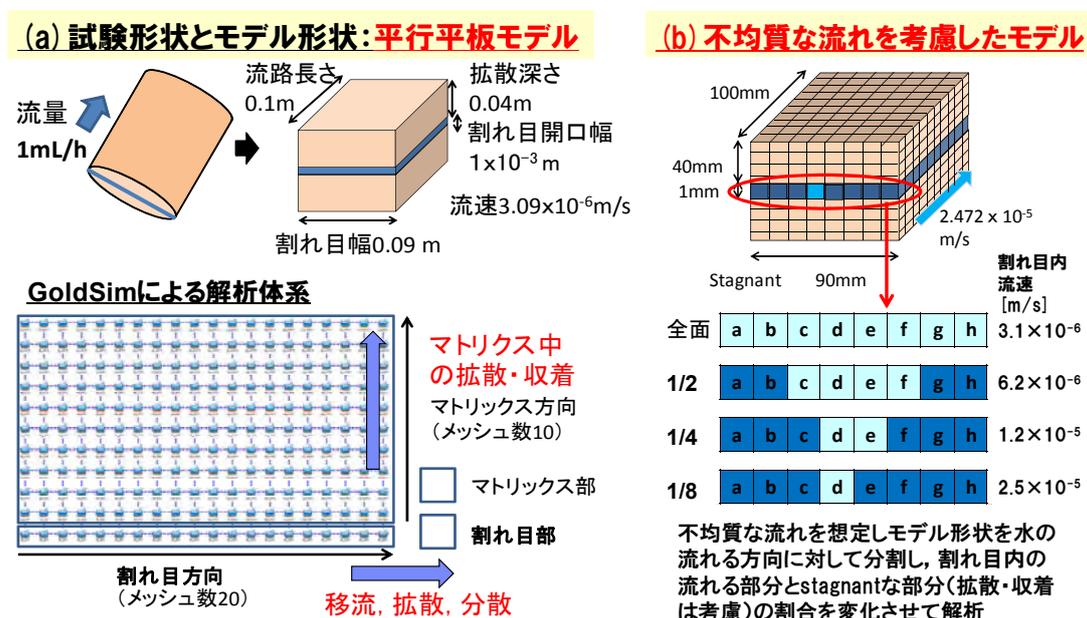


図2.4.2-17 単一割れ目の核種移行解析のモデル概念図：(a)均質系、(b)不均質系

解析に用いたパラメータは基本的に実測値に基づいて設定し、マトリクス中の実効拡散係数と収着分配係数は割れ目近傍の拡散試験から得られたパラメータを、自由水中の拡散係数は文献値をもとに設定した。流れのない領域に関しては自由水中の拡散及びマトリクスへの拡散・収着を設定した。亀裂内の流速は試験の流量 1mL/hを亀裂開口面積90mm²で除することにより、 3.09×10^{-6} m/sと設定した。また、選択的な流れを考慮した不均質なモデルではそれぞれの流れる領域の面積45mm²、22.5mm²、11.25mm²より計算することで流速を設定した。

今回実施した各ケースのそれぞれの元素 (HD0, I, Cs, Se) の破過曲線を実測データと比較する形で図 2.4.2-18(a)に示す。流路を 1/8 と設定することで、HD0, I, Cs の破過曲線については実測値に近づく傾向を示した。

破過曲線において流路を 1/8 と設定したケースの解析結果が実測値と近い傾向を示したことから、そのケースの内部プロファイルの計算結果を図 2.4.2-18(b)において実測値と比較した。Cs 内部プロファイルは上流側で流れのない領域 (図中の c 層) の解析結果が実測値と近い傾向、下

流側で流れのない領域 (b 層) と近い傾向を示した。これらのモデル計算結果と実測データの総合的な比較の結果から、流れの不均質性を考慮したモデルによって、全体を統合的にとらえることができる可能性が示された。

今後、このような不均質な流れ場を定量的に評価するための根拠データの取得を含めて、不均質系モデルの改良や妥当性の確認を進めるとともに、単一割れ目を対象とした原位置トレーサー試験の結果のモデル化においても、その適用性を確認していく。

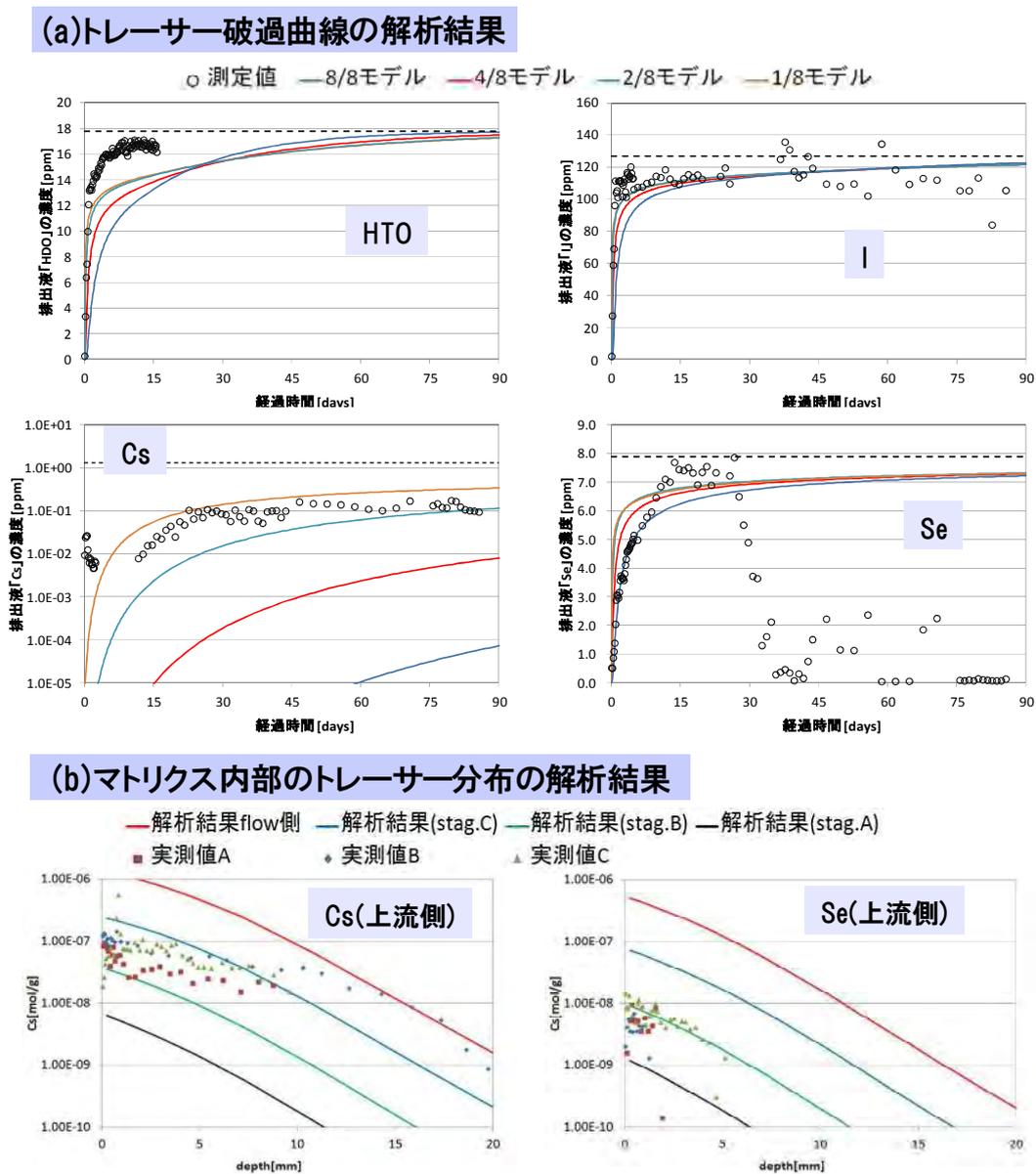


図 2.4.2-18 単一割れ目の不均質な流れ場を考慮した解析結果と実測データとの比較

3) 幌延の原位置トレーサー試験と連携した原位置への適用性評価

i) 原位置トレーサー試験と連携した室内試験と適用性評価のアプローチ

現在、幌延深地層研究センターの350m調査坑道において、マトリクス（健岩部）及び割れ目をそれぞれ対象とした原位置トレーサー試験が進められている（日本原子力研究開発機構，2015e）。

これらとの連携により、原位置試験をサポートする室内データを取得しつつ、これまでに整備してきたデータやモデルの適用性評価を通じて評価技術としての確証を図る。わが国においては、原位置試験において放射性トレーサーを利用できない状況も考慮して、原位置条件でいかに信頼性の高いデータを取得し、処分条件に適用可能な核種移行モデルとして確証していくかといった視点が重要な課題であり、これらの視点にも考慮して取り組みを進めた。それぞれの試験において、本事業で取り組む室内サポート試験や評価確証の視点を図2.4.2-19にまとめる。

- ・ 割れ目系の試験については、平成27年度は、実際の割れ目試料の割れ目性状の分析手法検討や濃度プロファイル分析手法などの検討を進めており、今後、上記した不均質性を考慮したモデル化や室内から原位置へのアップスケール法を検討していく。
- ・ 一方、健岩部については、特に異方性（層理面との関係）に着目した室内試験、原位置試料分析を行い、異方性や岩圧影響を含めた原位置と室内試験データの関係を把握するとともに、これまでに開発してきた多様な核種の収着・拡散モデルの適用性評価を進めていく。

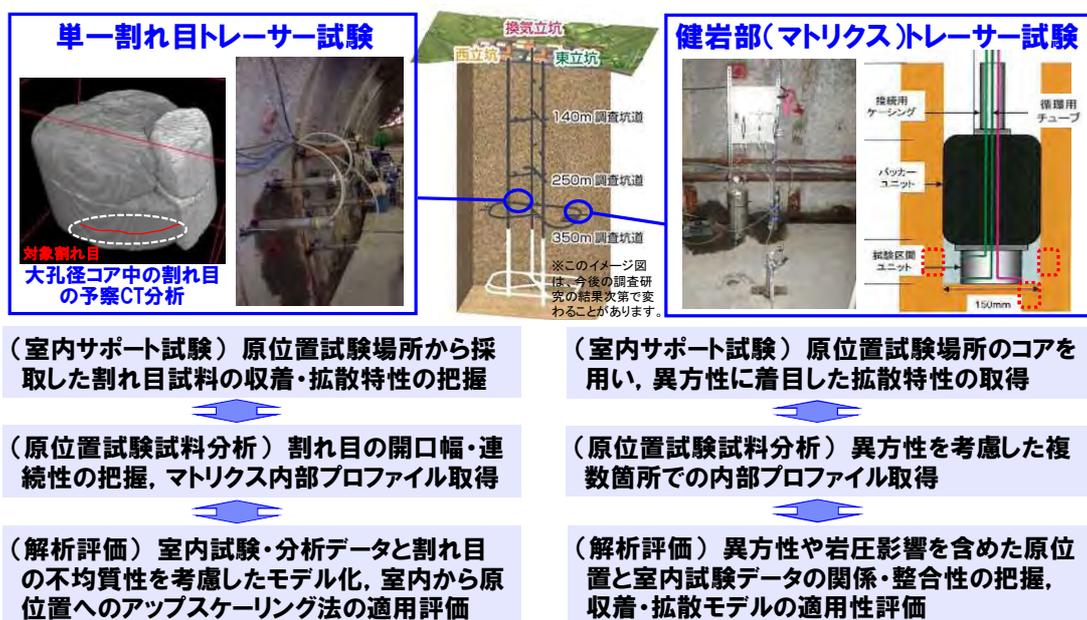


図 2.4.2-19 幌延深地層研究センターの350m調査坑道における原位置トレーサー試験と連携した評価確証のアプローチ

ii) 健岩部を対象とした原位置試験の室内サポート試験と解析評価

健岩部/マトリクスを対象としたトレーサー試験では、上図2.4.2-19及び図2.4.2-20(a)に示すように、350m調査坑道の底部に開削したボーリング孔内(D05-孔径76mm緩衝材無、D03-孔径150mm緩衝材無、D02-孔径76mm緩衝材有)にトレーサーを添加した模擬地下水を循環させ、孔内のトレーサー濃度の減衰挙動を、約11カ月間モニタリングするとともに、試験期間終了後に、オーバーコアリングにより岩石中のトレーサー分布を取得する方法を進めてきた。ここでは、D05試験(孔径76mm緩衝材無)を対象に、原位置試験の結果を示す。D05孔内のトレーサー減衰データは、図2.4.2-20(b)にCsとMoの例を示すように、収着特性に対応した減衰傾向が確認された。なお、原位置試験そのものは、本事業外の成果であり、オーバーコア試料の分析、原位置試験試料を用いた室内試験、及びこれらのデータに基づく解析評価を本事業の一環として実施している。

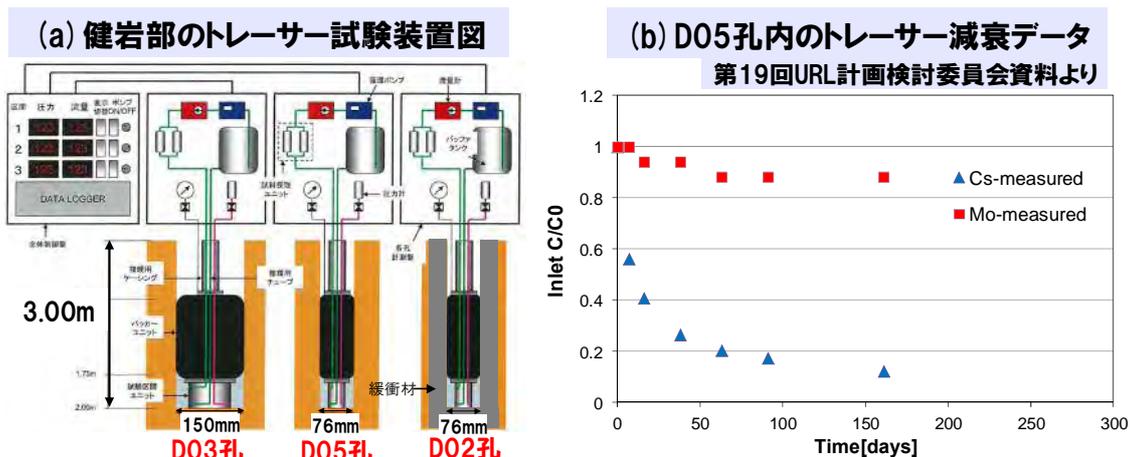


図 2. 4. 2-20 健岩部の原位置トレーサー試験装置 (a) とトレーサー減衰データの例 (b)

D05孔のトレーサー試験終了後に取得されたオーバーコア試料を図2. 4. 2-21(a)に示す。拡散の異方性を確認する観点から、複数の方向に研削を行い(同図b)、岩石マトリクス中のトレーサー元素の濃度プロファイルを取得した。同図aに示す試料①の層理面走向方向で得られたCsの濃度プロファイルを同図cに示す。2箇所研削・測定した結果、十分な精度のプロファイルを取得することができ、拡散源から深さ30mm程度までのCsの明瞭なプロファイルが取得できた。

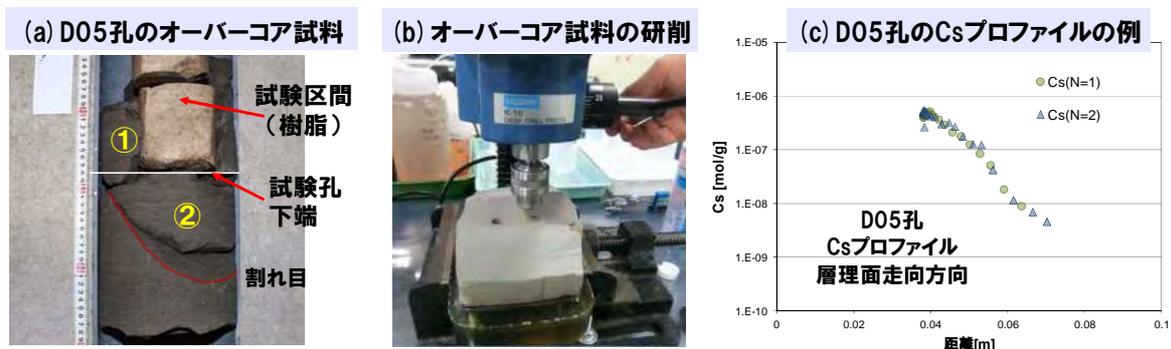


図 2. 4. 2-21 健岩部 D05 孔のオーバーコア試料 (a), 研削状況 (b), Cs のプロファイルの例 (c)

上記で取得されたD05孔のデータを対象とした解析を実施した。解析コードはGoldSim (ver. 10.1; GoldSim Technology Group, 2010) とPHREEQC (Parkhurst et al., 2013) を使い、図 2. 4. 2-22(a)に示すような円筒形1次元モデルで計算を行った。この際、GoldSimでは、収着分配係数と実効拡散係数を、実測値に基づき入力したのに対して、PHREEQCの場合、これまで幌延の稚内層岩石に対する実測データに基づき開発してきた粘土を主体とした収着モデルを用いた評価を採用した。ここで、原位置試験場所の稚内層岩石の収着・拡散データを取得するための室内試験を実施中であるため、既往の同岩石の収着・拡散データとして、HDB-6孔の深度500m付近の試料に対するCsの実測データ (Tachi et al., 2011) を適用した。収着モデルパラメータについても、同文献で検討されたモデルの考え方とパラメータを採用した。なお、Moについては、ヨウ素の拡散係数を適用し、収着分配係数はゼロとした。同図bのトレーサー減衰曲線及び同図cの岩石内部プロファイルから、解析結果がMoとCsのデータの傾向性については概ね説明できることが確認され

た。また、同図bに示すMoの減衰曲線からは、収着モデル等の差異が影響しないため、GoldSimとPHREEQCとで解析結果が一致することが確認された。今後、原位置試験場所の試料を用いた室内収着・拡散試験結果も踏まえ、原位置トレーサー試験の詳細な解析評価、拡散の異方性の評価、多様な元素の収着・拡散モデルの適用性評価などについて検討を進めていくこととする。

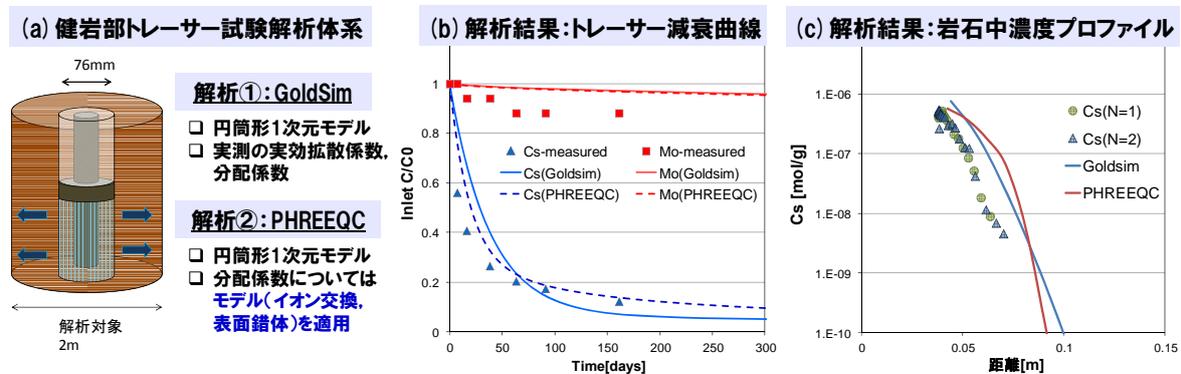


図 2.4.2-22 健岩部 D05 孔のトレーサー試験の解析体系と解析結果

4) 幌延のナチュラルトレーサー評価に関する検討

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

① NTプロファイル解釈のためのアプローチ

幌延を対象としたNTプロファイル解釈のためのアプローチの検討にあたっては、平成26年度に整理した知見やデータをもとに、先行して検討が行われた諸外国における類似事例（CLAYTRACプロジェクト；Mazurek et al., 2009）を参照しつつ行った。

堆積岩中での主な物質移行メカニズムとして拡散を想定した場合、初期／境界条件の時空間変化の不確実性は、NTプロファイル解釈のためのモデル解析における影響が大きいことがCLAYTRACプロジェクトで示されている（Mazurek et al., 2009）。そこで、まず、幌延地下施設周辺を対象にNTプロファイル解釈を行うにあたり、初期／境界条件の変化に影響を与え得ると考えられる天然事象（隆起・侵食）に関わる既往の情報や、幌延周辺を対象とした古水理地質学的な変遷に関わる情報を整理する。次に、幌延の地下施設周辺における複数のボーリング孔を対象に、深度

方向でNTデータを整理し、各ボーリング孔におけるNTプロファイルを明確にする。さらに、上述したようなNTプロファイルの解釈にあたり重要となる関連情報やNTデータをもとに、NTプロファイル解釈のためのモデル解析を念頭においた概念モデルを構築し、それに基づいた拡散または移流・拡散解析を行い、解析結果と実測値（NTプロファイル）を比較することで、パラメータ設定やモデルの妥当性を検討する。上述したアプローチに基づき、平成27年度に実施した具体例について、以下にまとめる。

② 幌延地域における隆起・侵食に関わる情報の例

幌延地域における隆起・侵食に関わる主な情報については、幌延深地層研究計画における地上からの調査研究段階（第1段階）に係る報告書（太田ほか、2007）や、幌延の沿岸域を対象とした地質環境の長期的変遷の評価を試みた事例（Amano et al., 2013）にまとめられている。ここでは、これらの情報をもとに、幌延地域における隆起・侵食に関わる情報を整理した。幌延地域は、広域的に見ると、いまから2.5Ma前頃から、東西圧縮の応力場にあるものの、より狭い領域で見ると、沿岸域と内陸部では、隆起・侵食の履歴が異なる。NTプロファイル解釈の対象としている幌延深地層研究センター周辺では、1.5Ma頃から隆起に転じ、現在まで、隆起・侵食が継続しているような場があると推定される。

③ 幌延地域における古地質学的情報の例

幌延地域における古地質学的情報に関わる主な情報としては、新里ほか（2007）による後期鮮新世以降の古地理と地質構造発達史に関わる情報や、岩月ほか（2009）による地下深部における水理地質学的変化や地球化学環境の変遷に関わる情報として報じられている。ここでは、これらの情報をもとに、幌延地域における地質・水理・地球化学条件の長期的な変遷過程を古地質学的情報として整理した。

地質学的な変遷として、2Ma～1Ma前頃まで、幌延の地下施設付近は、海底に位置していたと推定されており、幌延深地層研究計画で主な対象としている声間層や稚内層の層境界は、1Ma前頃に最大埋没深度に達し、その後は、隆起に転じたと推定されている。また、水理学的な変遷としては、声間層や稚内層が海底下に存在した頃に、圧密続成作用等の影響により低透水性の環境が形成されたと推定されている。その後、隆起に転じた以降は、浅部の相対的に透水性の高い部分では、過去の天水の浸透等の影響を受け、深部の相対的に透水性の低い部分（概ね400m以深程度）では、ほとんど、天水の影響等を受けていないと推定されている。さらに、地下水の地球化学的な変遷としては、過去から現在まで、非常に長期にわたり、pHや酸化還元電位（Eh）が緩衝され、pHで6～8程度、Ehで-300～-100mV程度の範囲で推移してきたと推定されている。

④ NTプロファイルの例：地上から掘削されたボーリング孔のデータ

幌延地域におけるNTプロファイル解釈にあたっての事例としては、幌延深地層研究計画の地上からの調査研究段階（第1段階）で掘削された11孔のボーリング孔（HDB-1～HDB-11孔；太田ほか、2007）を対象とする。これらのボーリング孔を用いて得られた地下水としては、ポンプにより地下水を揚水して得られたpump waterと岩石コアから圧縮抽出された間隙水であるpore waterがある。平成26年度の検討により、これらの地下水を対象に、幌延地域におけるNTプロファイル解釈

を進める上で適当なトレーサーとして、 $Cl^- \cdot \delta^{18}O \cdot \delta D$ が選定された（日本原子力研究開発機構、2015a）。そこで、平成27年度は、HDB-1～HDB-11孔の各地下水を対象に、NT ($Cl^- \cdot \delta^{18}O \cdot \delta D$)の深度プロファイルを整理し、各ボーリング孔で認められるNTプロファイルの主な特徴や幌延地域における主な水理地質構造との関連性について整理した（表2.4.2-4）。

表 2.4.2-4 各ボーリング孔の地下水に認められる NT プロファイルの主な特徴の整理結果

ボーリング孔	NTプロファイルの主な特徴	水理地質構造との関連性
HDB-1・3孔	<ul style="list-style-type: none"> ・NTプロファイルの変化が比較的浅部から認められる(GL-100m以浅) ・両孔を比較すると、プロファイル変化の幅に違いあり(HDB-1孔:500m程度, HDB-3孔:200m程度) 	<ul style="list-style-type: none"> ・大曲断層や褶曲軸からも比較的離れた場所に位置
HDB-4・5孔	<ul style="list-style-type: none"> ・NTプロファイルの変化が比較的深部から認められる(GL-200m以深) ・両孔を比較すると、プロファイルの変化の幅に違いあり(HDB-4孔:200m程度, HDB-5孔:300m程度) 	<ul style="list-style-type: none"> ・大曲断層や褶曲軸に比較的隣接した場所に位置
HDB-8・9・11孔	<ul style="list-style-type: none"> ・NTプロファイルがやや不明瞭 ・HDB-8孔:HDB-4・5孔のタイプに比較的類似 ・HDB-9・11孔:HDB-1・3孔のタイプに比較的類似 	<ul style="list-style-type: none"> ・大曲断層や褶曲軸からも比較的離れた場所に位置: HDB-11孔 ・大曲断層や褶曲軸に比較的隣接した場所に位置: HDB-8・9孔
HDB-6・10孔	<ul style="list-style-type: none"> ・NTプロファイルが不明瞭 	<ul style="list-style-type: none"> ・透水性の割れ目等の影響あり?(例:HDB-6のGL-300～-400m付近)

HDB-2孔: 地下研究施設から離れた場所に位置するため、対象外とした。HDB-7孔: プロファイルのデータが少なく、主な対象層が湧知層のため対象外とした。

NTプロファイルの解釈を進める上で、まず、プロファイルが明瞭なボーリング孔や、今回対象とする条件（地下施設周辺のボーリング孔を対象、声間層・稚内層を対象）に該当しないボーリング孔のスクリーニングを行った。その結果、表2.4.2-4に示すように、現状で得られているNTデータをもとに、NTプロファイルの解釈を進めるにあたり対象となり得るボーリング孔として、HDB-1・3・4・5・8・9・11孔の7孔が選定された。このうち、HDB-8・9・11孔については、NTプロファイルがやや不明瞭であるため、解釈を進める上では、HDB-1・3・4・5孔を優先して行うこととした。なお、HDB-4・5孔のNTプロファイル変化はHDB-1・3孔に比べると比較的深部に位置する箇所から認めれ、相対的に浅層水が深部まで浸透した影響が示唆された。また、HDB-4・5孔の掘削位置は大曲断層や褶曲軸に比較的隣接しており、これらボーリング孔でのNTプロファイルの解釈においては、水理地質構造との関連性も考慮する必要があると予想される。このため、平成27年度は、まず相対的に単純なケースを選定し、NTプロファイルの解釈を試行すると共に、解析手法の具体化や解釈にあたっての課題等を抽出することにした。ここでは、一例として、HDB-1孔における地下水の $Cl^- \cdot \delta^{18}O \cdot \delta D$ の深度方向でのプロファイルを整理したものを示す（図2.4.2-23）。

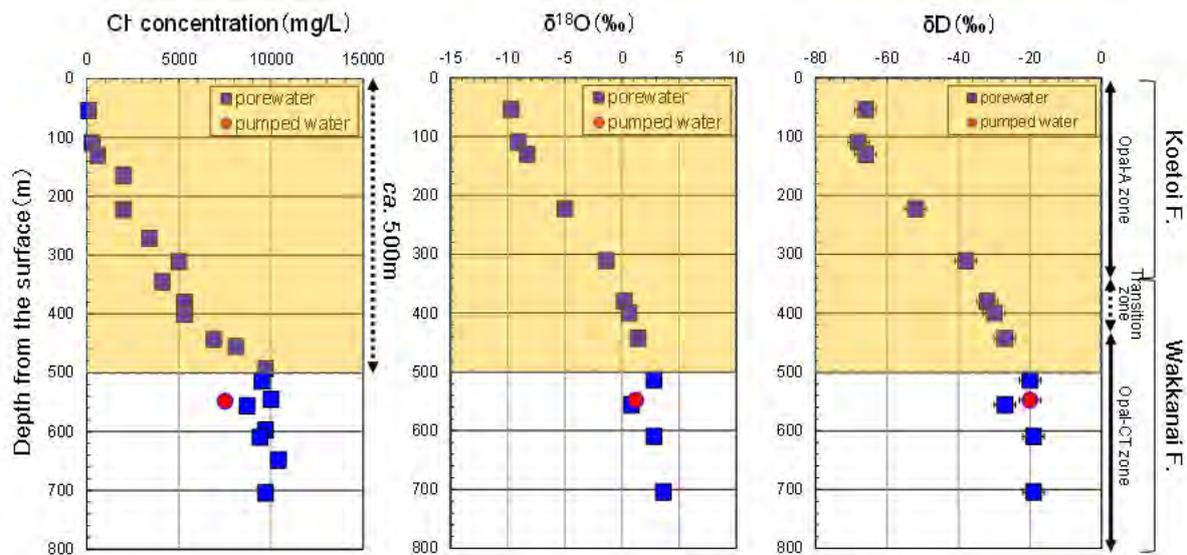


図 2. 4. 2-23 HDB-1 孔における地下水の $\text{Cl}^- \cdot \delta^{18}\text{O} \cdot \delta\text{D}$ の深度プロファイルの例

図2. 4. 2-23において、網掛けのついた部分は、深度方向でNTプロファイルに明瞭な変化が認められる領域である。この領域内では、 $\text{Cl}^- \cdot \delta^{18}\text{O} \cdot \delta\text{D}$ のいずれのトレーサーも深度の増加に伴い、値が大きくなる傾向が認められる。一方、地表から500m程度以深では、いずれのトレーサーも、ほぼ一定の値となり、明瞭な変化が認められない。そこで、HDB-1孔の場合、概ね500m程度の距離においてトレーサーの移行が生じたと仮定した。

⑤ NT プロファイル解釈のための概念モデル

図2. 4. 2-23に一例として示したようなNTプロファイルの解釈にあたり、平成26年度には、非常に簡易な方法として、浅部の境界条件として氷期に涵養された天水を仮定し、深部の境界条件として化石海水を仮定し、拡散により、どの程度の混合が生じ得るかを試算する方法を提案した（日本原子力研究開発機構、2015a）。平成27年度は、平成26年度に提案した方法をベースに、NTプロファイルの解釈をモデル計算により行うための概念モデルを構築した（図2. 4. 2-24）。概念モデルの構築にあたっては、②や③で述べた幌延地域における地史的な変遷に伴う古水理地質学的な変化（例えば、いつ頃から隆起に転じ、環境が海底から地上へと変化し、水質がどのように変化したか）や、それに伴う天水の涵養・混合を考慮した。これらを踏まえ、地下水のNT ($\text{Cl}^- \cdot \delta^{18}\text{O} \cdot \delta\text{D}$) プロファイルがどのように変化する可能性があるかを模式的に示した。また、 $\delta^{18}\text{O} \cdot \delta\text{D}$ のプロファイルを解釈する上では、浅部の境界条件として気候変動による天水の同位体変化（過去の氷期の時期に涵養した天水の同位体の推定結果）の不確実性に関わる情報も必要になると考えられるため、それらの情報も整理した。さらに、深部の境界条件に関わる不確実性として、埋没・続成作用の過程におけるシリカ鉱物の相変化と脱水による Cl^- 濃度の希釈を考慮した化石海水（現在の海水よりも Cl^- 濃度が1/2~1/3程度まで減少、 $\delta^{18}\text{O}$ が正の値にシフト）のケースと、埋没・続成作用の影響を考慮しない埋没時の海水を初期条件としたケースを想定した。

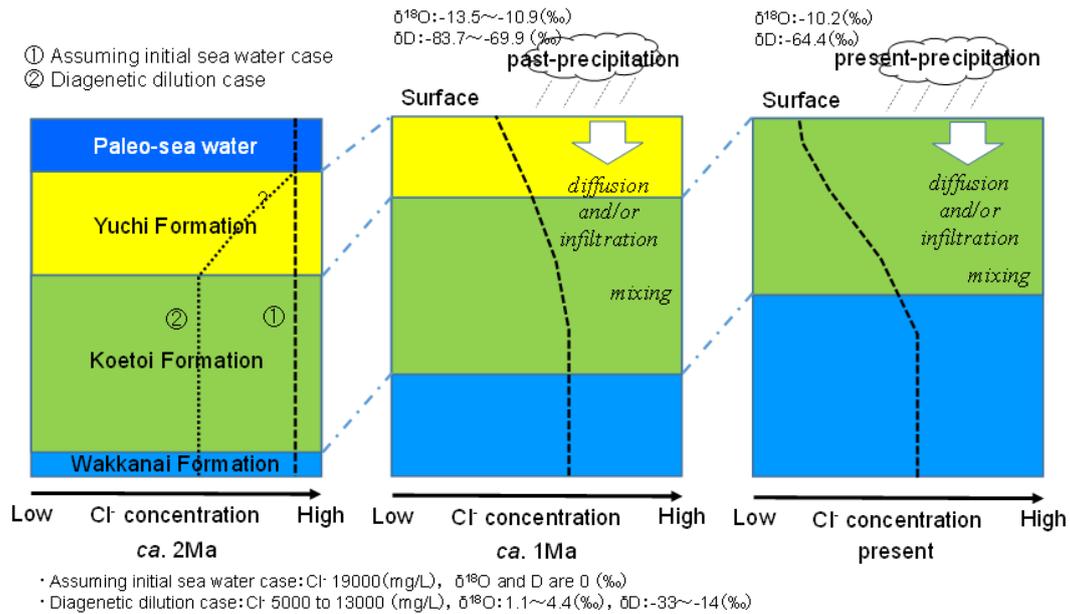


図 2. 4. 2-24 幌延地域を対象とした NT プロファイル解釈のための概念モデル

⑥ NT プロファイル解釈に向けた予察的検討

図2. 4. 2-24に示した概念モデルに基づき、平成27年度は、図2. 4. 2-23に一例として示したHDB-1孔における地下水のNTプロファイルのうち、Cl⁻の深度方向におけるプロファイルの解釈を予察的に試みた。Cl⁻プロファイル解釈のためのモデル解析にあたっては、解析コードとして Geochemist's Workbench (Bethke, 2008) のX1tモジュールを用いた。地層中でのCl⁻の移行解析に関しては、CLAYTRACプロジェクトにおける解析事例を参考に、物質移行プロセスとして拡散のみを考慮した場合及び移流・拡散を考慮した場合の2ケースを想定した。解析条件としては、今回は便宜的に次のような条件を仮定した：地層の空隙率=0.4、浅部側（上側）境界条件としてのCl⁻濃度=1.0 mg/L、深部側（下側）境界条件としてのCl⁻濃度=10,000 mg/Lでおおの固定。Cl⁻の実効拡散係数=5×10⁻¹⁰ m²/s、浅部から深部に向けての下方への移流速度=3×10⁻¹² m/s。なお、これらの設定値は、HDB-1孔を対象とした解析条件として、必ずしも適切な根拠のある値では無いが、物質移行解析による変化の傾向や主となる物質移行プロセスを予察的に把握する上では十分であると考えられる。図2. 4. 2-25にHDB-1孔を対象としたCl⁻プロファイル解釈のための予察検討例を示す。

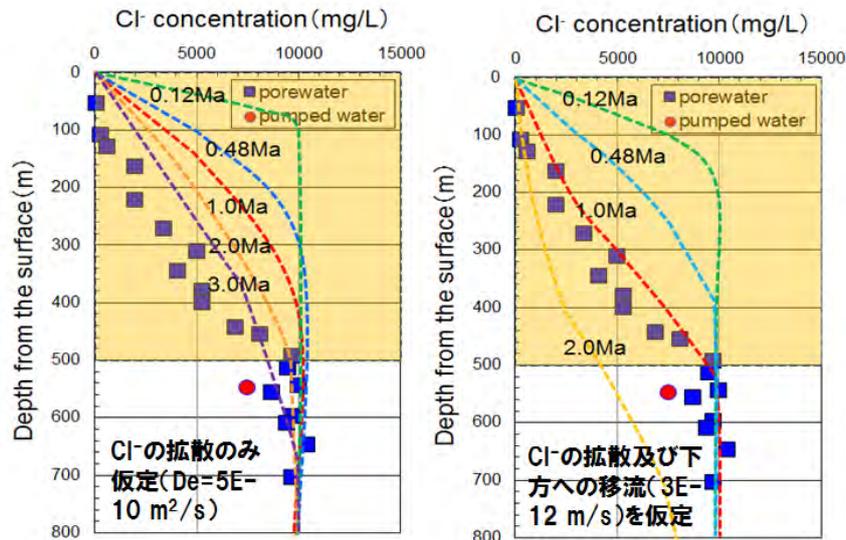


図 2. 4. 2-25 HDB-1 孔を対象とした Cl⁻プロファイル解釈のための予察検討例
(左図：拡散のみを考慮、右図：移流・拡散を考慮)

図2. 4. 2-25の左図は物質移行プロセスとして拡散のみを考慮したケース、右図は移流・拡散を考慮したケースである。拡散のみを考慮したケースでは、拡散期間が3Ma程度の場合に、実測されたCl⁻プロファイルに近づくように見える。但し、浅層側では解析結果と実測値の整合はあまり良くない。一方、移流・拡散を考慮したケースでは、移流・拡散期間が1Ma程度の場合に、浅層側も含めて実測されたCl⁻プロファイルに近づくように見える。③の古水理地質学的変遷に関わる情報の部分で述べたように、NTプロファイルの変化が生じたと推定される期間としては、隆起に転じた後の約1Ma程度であると想定される。ここで、物質移行が生じた期間を隆起に転じた後の約1Ma程度と仮定すると、今回の予察検討結果に基づけば、Cl⁻プロファイル解釈にあたり、より適当と考えられる物質移行プロセスは移流・拡散である。なお、今回行った予察検討における試解析は、②で述べた隆起・侵食に伴う地層の層厚変化の影響は考慮できておらず、幌延地域を対象としたNTプロファイル解釈としては適切ではないと考えられるため、今後、解析方法の見直しが必要である。

また、今回の予察検討では、深部の境界条件として埋没・続成作用の影響によるCl⁻濃度の希釈を考慮した化石海水を初期条件として仮定した。埋没・続成作用の過程におけるシリカ鉱物の相変化と脱水によるCl⁻濃度の希釈の影響については、甲斐・前川 (2009) により考察がなされている。今回、甲斐・前川 (2009) と同様な手法に基づき、化石海水の初期条件を海水 (現在の海水組成と同様と仮定) とし、シリカ鉱物の相変化 (オパールA→オパールCT、オパールCT→玉髄) により、Cl⁻・δ¹⁸Oの値がどの程度変化するかを解析により見積もった。解析コードはGeochemist's Workbench (Bethke, 2008) のReactモジュールを用いた。解析結果を図2. 4. 2-26に示す。

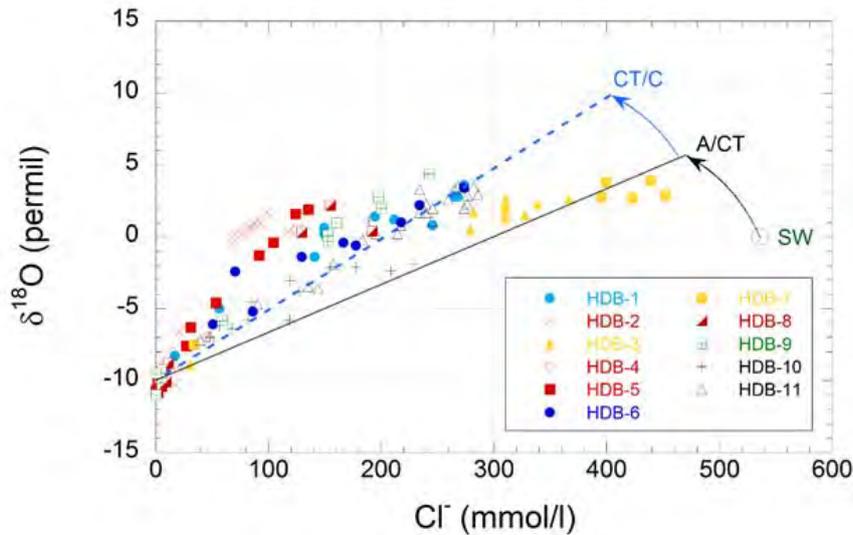


図 2.4.2-26 HDB-1～HDB-11 孔の地下水の $\text{Cl}^- \cdot \delta^{18}\text{O}$ 値（実測値）とシリカ鉱物の相変化に伴う海水からの $\text{Cl}^- \cdot \delta^{18}\text{O}$ 値の変化に関する計算結果

海水の初期組成を Cl^- : 536 mmol/L 及び $\delta^{18}\text{O}$: 0‰ とした場合、オパールA→オパールCTの相変化により、 Cl^- : 471 mmol/L 及び $\delta^{18}\text{O}$: 5.6‰ に変化し、さらにオパールCT→玉髄の相変化が生じると、 Cl^- : 405 mmol/L 及び $\delta^{18}\text{O}$: 9.8‰ に変化すると推定された。これらの推定結果とHDB-1～HDB-11孔の地下水の $\text{Cl}^- \cdot \delta^{18}\text{O}$ 値を比較すると、HDB-3・7孔の地下水は、オパールA→オパールCTの相変化のライン沿いにプロットされ、HDB-1・6・10・11孔の地下水は、オパールCT→玉髄の相変化のライン沿いにプロットされるように見える。このことは、これらの地下水の $\text{Cl}^- \cdot \delta^{18}\text{O}$ 値の変化は、埋没・続成作用の過程におけるシリカ鉱物の相変化と脱水により、概ね解釈が可能であることを示唆する。一方、HDB-2・4・5・8孔の地下水は、これらシリカ鉱物の相変化のライン沿いとはやや離れており、シリカ鉱物の相変化と脱水だけでは $\text{Cl}^- \cdot \delta^{18}\text{O}$ 値の変化を十分に解釈はできない。この点については、甲斐・前川（2009）らも指摘しており、今後、シリカ鉱物以外の鉱物の脱水反応（例えば、粘土鉱物）の影響や他の要因についても考察が必要である。なお、NTプロファイル解釈の観点では、深部側（下側）境界条件の不確実性についても検討が必要になる。例えば、今回一例として検討したHDB-1孔の Cl^- プロファイルの解釈において、実測値の深度プロファイルを見る限りでは、地表から500m程度以深では、 Cl^- 濃度にほとんど変化が認められないことから、 Cl^- の移行距離を500mと仮定した評価を試みた。しかしながら、HDB-1孔のデータは、図2.4.2-26においてCT/C（オパールCT→玉髄）のライン沿いにプロットされることから、より深部では、より Cl^- が高く・ $\delta^{18}\text{O}$ が大きい地下水が分布している可能性が示唆される。その場合、今回の検討で設定した条件と比べて、 Cl^- の移行距離をより長く仮定することや深部側の境界条件の見直し（より高い Cl^- 濃度の仮定）についても、評価における不確実性の範囲として検討する必要がある。

2.4.3 有機物・微生物等の影響評価手法の構築

天然バリア中の核種移行評価においては、地下環境中に広く分布する有機物や微生物等の影響と地質環境条件に起因するそれらの挙動に関する不確実性要因の影響を考慮する必要がある。本研究は、性能評価における不確実性低減化の観点から、天然バリア中の核種移行に対する有機物・微生物等の影響評価手法を構築することを目標とする。影響評価手法の構築を効果的に進めるために、本研究では、第一に、最新の知見や技術を踏まえた「有機物や微生物等の影響を考慮した性能評価」を実施し、i) 性能評価における課題（不確実性）の抽出、ii) 不確実性低減化に直結する研究開発の実施、iii) その成果の性能評価へのフィードバックという一連の影響評価研究の枠組みを構築する（図2.4.3-1）。また、抽出された課題やこれまでに指摘されている課題について、室内試験と原位置試験の双方の試験研究に取り組むことで、より信頼性の高い有機物や微生物等の影響評価手法の構築を図る。

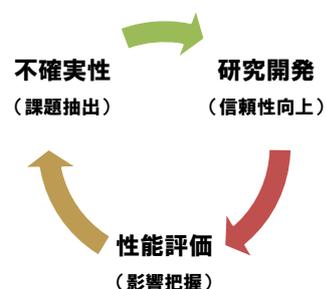


図 2.4.3-1 有機物・微生物等の影響評価研究の流れ

(1) 有機物影響評価技術の開発

高レベル放射性廃棄物の地層処分の安全性に影響を及ぼす可能性のある有機物には、セメント混和剤等の人工有機物と地下水中などに存在する天然有機物がある。人工有機物については、3.2.4項で取り扱っており、本項では天然有機物を検討の対象とする。地下水に溶存する天然有機物の主要成分は、腐植物質と呼ばれる不定形の高分子弱酸であることが知られている（Thurman, 1985）。これらの腐植物質は、多くの金属元素と錯体を形成することから、地層処分後の廃棄体から漏出する核種の移行に影響を及ぼす可能性がある。腐植物質は、数百から数十万におよぶ分子量分布を有し、そのサイズは数nm～数十nmに分布する。従って、腐植物質は、機能とサイズの点から、コロイドと捉えることができ、腐植物質による核種移行促進への影響は、コロイド影響と同様に取り扱うことが可能である。平成26年度までは、代表的なコロイド影響評価手法として用いられてきたMiller et al. (2000) のダイアグラム（図2.4.3-2）に従い、これまでの知見を基に評価対象核種の腐植物質への分配係数を整備し、この値を用いることで有機物影響を考慮した性能評価を試みた。また、これまでに指摘されている課題への対応として、錯形成モデルの信頼性や地下水中の有機配位子としての腐植物質の代表性について、不確実性の低減化の観点から試験データを取得した。その結果、天然環境中の有機物は、第2次取りまとめにおいて扱われたコロイド影響以上に処分システムのバリア性能に大きく影響する可能性が示されるとともに、核種と有機物との錯形成評価に対する既存モデル・データベースの信頼性の確認の必要性が指摘された。これまでの成果から抽出された課題を、以下に示す。

- a. 信頼性の高い核種－有機物錯形成モデル／モデルパラメータデータベースの構築
 - ・ III・IV価核種に対する腐植物質の錯形成モデルパラメータの信頼性確認
 - ・ 錯形成モデルパラメータの拡充（Zr(IV), Nb(V), Pd(II), Sn(IV)等）
 - ・ 錯形成における非線形性を考慮した有機物による移行影響評価方法の開発

- ・核種－有機物錯形成における瞬時/可逆性の把握（速度論的観点からの研究）
- ・腐植物質の代表性の確認

b. 核種－有機物－母岩三元系における収着・拡散モデルの開発

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

平成27年度は、上記課題のうち、信頼性の高い核種－有機物錯形成モデル／モデルパラメータデータベースの構築を目指したデータ取得を行うための室内試験を実施した。これまでの研究では、多様な地下水条件における核種と有機物との錯形成を定量評価可能なNICA-Donnanモデルを用いて、第2次取りまとめで設定されたレファレンスケースの地下水条件におけるIII価核種の有機物への分配係数を評価してきた。しかし、NICA-Donnanモデル・データベースの適用性と有機配位子としての地下水中の腐植物質の代表性の確認は不十分であり、算出した分配係数の信頼性は十分には確認できていない。本調査では、 10^{-6} M以下の低濃度の核種と地下水中の腐植物質との錯形成データへのNICA-Donnanモデルの適用性評価に資するための錯形成データ取得を実施するとともに、透析法、熱量滴定法及び非水滴定法を用いた天然有機物の錯形成評価をおこなった。

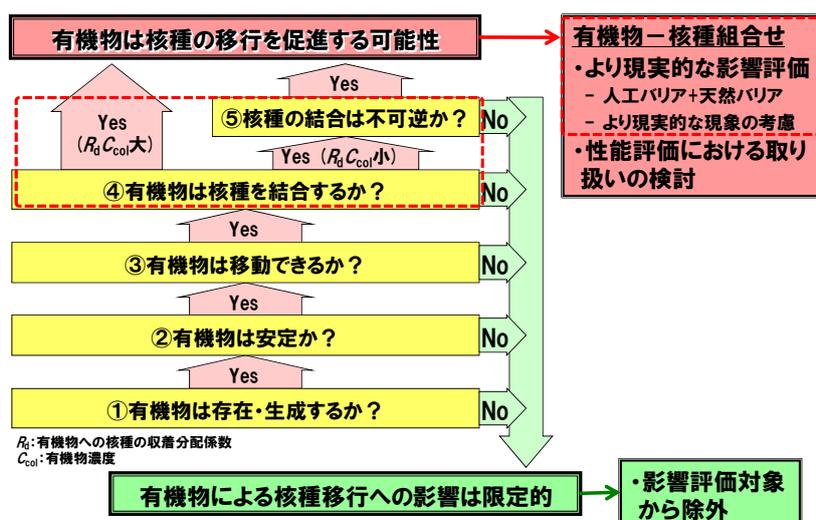


図 2. 4. 3-2 有機物影響評価ダイアグラム

1) 核種と腐植物質との錯形成評価におけるNICA-Donnanモデルの適用性

NICA-Donnanモデルは、腐植物質に存在する二つの金属イオン結合サイト群（カルボキシル基と水酸基）を考慮し、各サイト群に対して正規分布様の結合エネルギー分布を仮定する（Kinniburgh et al., 1996; Koopal et al., 2005）。また、腐植物質の高分子電解質としての性質をDonnanモデルとして取り込み、金属イオンとの静電相互作用を表現している（Benedetti et al., 1996）。従って、NICA-Donnanモデルでは、腐植物質への金属イオンの結合様式が溶液条件により異なる。例えば、低イオン強度、酸性条件下におけるEu(III)の腐植物質への結合は静電相互作用に支配され、弱酸性から弱アルカリではカルボキシル基サイト、そしてアルカリ条件下では水酸基サイトへの結合が支配的となる（日本原子力研究開発機構, 2011, 2012a, 2013b）。同様に、金属イオ

ン濃度も結合様式に影響する重要な要因の一つであり、ローディングレベル（金属イオン濃度と腐植物質の結合サイト濃度との比）の低下にともない、結合様式がカルボキシル基サイト（弱い結合サイト）から水酸基サイト（強い結合サイト）へ変化する（Stern et al., 2007; Pourret and Martinez, 2009）。また、溶液条件と結合様式との関係は、腐植物質の構造特性の違いに大きく依存する可能性がある。しかし、広いローディングレベルに対して取得した錯形成データへのNICA-Donnanモデルの適用性を調査した事例は限られており、NICA-Donnanモデルによる解析・評価の妥当性は十分に確認されていない。本調査では、広範囲のローディングレベルにおけるNICA-Donnanモデルの評価の妥当性確認に必要な天然有機物に対する核種の錯形成データの拡充を目的として、 10^{-6} M以下の低濃度のEu(III)とフミン酸との錯形成データを取得するための試験を実施した。本研究では、幌延深地層研究センター地下施設内の深度250 m調査坑道から掘削されたボーリング孔から地下水を採取し、その地下水から分離・精製したフミン酸（Horonobe Humic Acid; 以下、HHA）を用いて試験を行った。また、比較対象としてAldrich社製フミン酸による試験も実施した。

フミン酸水溶液と有機溶媒間のEu分配比の対数值($\log D$)とフミン酸の濃度との関係について、Aldrich社製フミン酸に対して得られたものを図2.4.3-3に、HHAに対するものを図2.4.3-4に示す。いずれのフミン酸においても、Eu(III)の濃度の錯形成への影響が明確に示される結果となり、Eu濃度が低下するにつれて $\log D$ は低くなるが、 10^{-9} M \sim 10^{-10} Mでは 10^{-6} Mあるいは 10^{-8} Mと比較して大きな差は見られなかった。HHAとAldrich社製フミン酸の結果と比較すると、HHAの方が $\log D$ の値が大きく錯形成の程度が低いことが明らかになった。今後は本試験で得られた結果とNICA-Donnanモデルから算出したパラメータの計算値を比較し、NICA-Donnanモデルによる解析及び評価の妥当性を継続して確認していく。

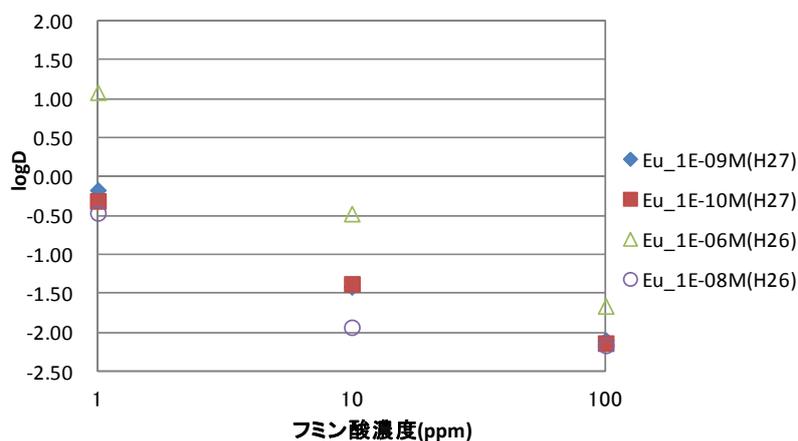


図2.4.3-3 Aldrich社製フミン酸水溶液と有機溶媒間のEu分配比の対数值 ($\log D$) とフミン酸濃度との関係.

溶液条件 : pH5.3 \sim 5.5、 $0.1 \text{ mol dm}^{-3} \text{ NaClO}_4$.

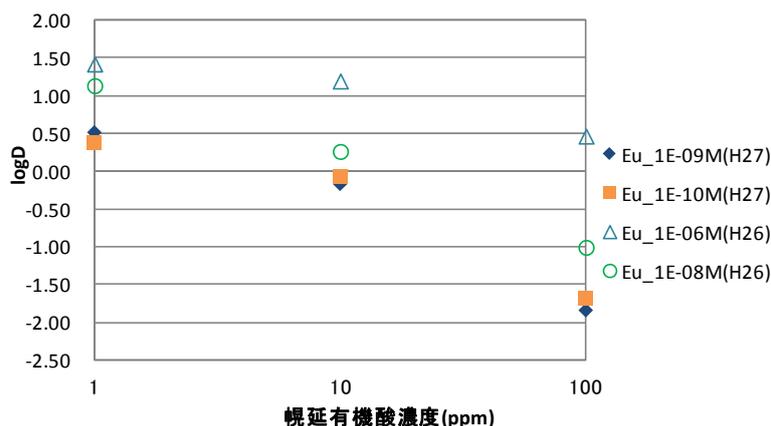


図 2.4.3-4 HHA 水溶液と有機溶媒間の Eu 分配比の対数值 (logD) とフミン酸濃度との関係。

溶液条件 : pH5.3~5.5, 0.1 mol dm⁻³ NaClO₄.

2) 電位差滴定法による天然有機物とIV価核種の錯形成データの取得

腐植物質 (humic substances: HS) に代表される天然有機物 (NOM) は、天然水や土壤中に一般的に含まれ、放射性核種を始めとする金属イオンや有機汚染物質と結合することで、それらの反応性や利用能、毒性、移行挙動に大きな影響を与える (Mccarthy and Zachara, 1989; Tipping, 2002)。HSへの金属イオンの結合に関しては幅広い環境条件下で結合反応を再現可能なモデルも提案されており (Tipping, 1998; Kinniburgh et al., 1999)、特に、表層水 (河川水、湖水) や土壌から抽出・精製されたHSに対しては、複数の異なる金属イオンに対するモデルパラメータセットが報告されている (Milne et al., 2001; Milne et al., 2003)。一方、地層処分において対象となる深部地下水中のHSに関しては、抽出・精製の困難さから、その物理化学的性質や金属イオンとの反応性など、未だ解明されていない点が多い。表層のHSと比べて、深部地下水におけるHSは、起源や生成メカニズム、その物理化学的性質や反応性の点で異なることが想定される。地層処分において重要となる核種輸送キャリアとしてのHSの役割を明確にするためにも、深部地下水中のHSを用いた研究を行う必要がある。

本研究では、HHAを用いて、Zr⁴⁺の結合挙動を評価した。Zr⁴⁺は、それ自体が地層処分の性能評価上重要な核分裂生成物であり、また、IV価アクチノイド元素 (Th⁴⁺やU⁴⁺) の化学アナログともなることから、評価上重要な元素である。これまでの研究で、電位差滴定や時間分解型レーザー蛍光法 (TRLFS)、X線吸収分光を用いて、HHAに対するH⁺、Cu²⁺、Cd²⁺、Eu³⁺の結合挙動に関する試験を実施しており、不均質な高分子電解質の集合体である腐植物質へのイオンの結合を表すためのモデルであるNICA-Donnanモデル (Kinniburgh et al., 1999; Koopal et al., 2005) のパラメータも取得している。今回、深部地下水中の腐植物質に対する幅広い金属イオンの結合データの拡充を目的として、低溶解性の金属イオンの結合を調べるために用いられる競合配位子存在下での透析法 (equilibrium dialysis ligand exchange, 以下、EDLE法) を用いて、IV価の結合に関するデータを取得した。

試料の調整には、別に断らないかぎり、和光純薬工業社の特級の試薬、及びミリQ水相当のイオン交換水 (比抵抗 18.2 MΩ) を用いた。実験は全て、0.1 M NaNO₃、10 mM MES (2-(N-morpholino)ethanesulfonic acid, pK_a = 6.2)、0.25 μM EDTA (ethylene diamine tetra

acetate disodium salt, Sigma-Aldrich), 19.8 mg/L HHA, 0.110 μM Zr^{4+} 存在下で行った。HHAストック溶液は、49.6 mgの粉末状のHHAを50 mlの5 mM NaOH溶液に溶解させて作製した。また、 Zr^{4+} ストック溶液として、1000 ppmのジルコニウム標準液を濃度110 μM となるよう希釈した溶液を用いた。pHの測定には、内部液を1 M NaCl溶液に置換したガラス複合電極 (Orion ROSS電極、Thermo Fisher Scientific) を使用した。

50 mL PP製遠沈管に、MESストック溶液 (0.1 M), NaNO_3 ストック溶液 (1 M), EDTAストック溶液 (50 μM), イオン交換水を所定量加え、全量が38.8 mLとなるようにした。この外部溶液のpHを、少量の1 M HNO_3 及びNaOHを用いて、pH 4, 5, 6, 7, 8となるように調整した試料を各pH条件に対して、3連で作製した。これらの溶液2 mLを予め洗浄することによりグリセリンを除去した分画分子量100~500 Daの透析ユニット (Float-A-Lyzer G2, Spectra/Por) に分取した。その後、残った遠沈管中の外部溶液に、HHAストック溶液及び Zr^{4+} ストック溶液を添加し、外部溶液及び透析ユニット中の溶液の量の合計が40 mLとなるようにした。外部液のpHを所定の値に再調整した後、透析ユニットを浮かべ、25 $^{\circ}\text{C}$ で1ヶ月間振とうさせた。1ヶ月経過後、内部液及び外部液を分取し、紫外可視吸収分光光度計 (UV-3100, Shimadzu) 及びICP-MS (7500 cx, Agilent) を用いて、HHA濃度及びZr濃度を測定した。また、HHAを含まないブランク試料も同様の手順で作成し、同様の振とう期間後、ICP-MSで、内部液、外部液中のZr濃度を測定し、透析平衡の到達の程度を評価した。HHAのサイズが表層由来のHAと比較して小さく (Saito et al., 2015)、分子量の平均値が1 kDa (約1 nm程度に相当) 以下であることが想定されるため、透析膜として、分画分子量100 ~ 500 Daのものを使用した。この透析膜を介した内部溶液と外部溶液の間の透析平衡反応はゆっくりと進むことから、1ヶ月経過後も、内部液中の Zr^{4+} 濃度は外部液中濃度の30%程度であり、 Zr^{4+} -EDTA錯体の透過速度が非常に小さい可能性が示唆された。そこで、実試料に対して、ブランク試料の測定の結果から得られた透析平衡到達度 (平衡時の濃度と濃度測定値の比) を掛け、補正を施した。

その結果、UV/Vis測定より得られた内部液中のHHA濃度は0.7 mg/L以下であり、透析膜を介したHHA分子の移動が限定的であることが分かった。ICP-MS及びUV/Vis測定から得られたHHAに対する Zr^{4+} 結合量のpH依存性について図2.4.3-5に示す。前述のように、pHの異なる5種類の試料を各3連で用意したが、pHの緩衝が強く、初期pH 4, 5, 6の試料のpHは1ヶ月の振とう後、それぞれ 2.78 ± 0.03 , 3.13 ± 0.04 , 5.61 ± 0.01 まで低下した。これは、粉末状態からNaOH溶液に溶解させたHHAの水和と H^+ 解離平衡がゆっくりとしたものであることを示唆している。このような低pH条件下における試験では、HHAへの Zr^{4+} 結合量が小さ過ぎることから、有意な結果が得られなかった。図2.4.3-5に示したHHAへの Zr^{4+} の結合量はpHと共に増加しており、HSへの金属イオンの結合が官能基への H^+ 競合の低下 (pHの増加) と共に増加するという、HSに一般的な傾向を示した。 Zr^{4+} の結合量はpH 6.78 ± 0.02 で、 1.9 ± 0.3 mmol/Kg HHAである。この値自体は競合配位子として添加したEDTA共存下における値であるが、HHAの低親和性サイト (カルボキシル基型サイト) 及び高親和性サイト (フェノール基型サイト) の密度は、それぞれ4.38, 4.44 eq/kg HHAであることから (Saito et al., 2015), この結合量のレベルは比較的小さいものと言える。このことは、 Zr^{4+} のHHAに対する親和性がEDTAに対するものよりも小さく、HHAに対する Zr^{4+} の結合反応があまり進行しなかった可能性を示唆する。

このようにHHAの遅い溶解反応と Zr^{4+} に対する低い親和性のため、限られたpH条件における Zr^{4+} 結合量しか得られず、NICA-Donnanモデルの適用によるモデルパラメータの最適化までは検討でき

なかった。また、上述したように、本実験で用いた透析膜を介した物質輸送の平衡到達は遅く、平衡到達後の内部液中の Zr^{4+} 濃度 (Zr^{4+} -EDTA錯体濃度) をブランク試料の測定結果から求められる平衡到達度を用いて補正したため、得られた結果自体の不確実性も比較的大きいものと考えられる。本実験を通して、EDLE法により、幌延由来のHSに対する4価金属イオンの結合量評価が可能であることが示されたことから、今後は、最適な透析膜の再選定、完全に溶解したHHAストック溶液の使用、EDTAよりも Zr^{4+} に対する錯生成の安定度定数の小さな配位子の利用などの最適化などの課題について検討を継続する必要がある。

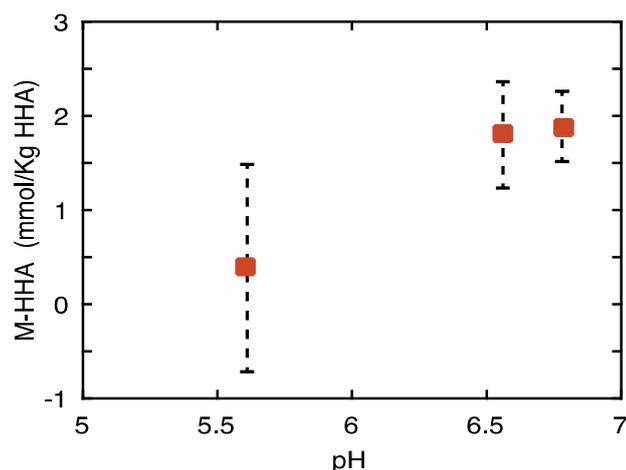


図 2.4.3-5 HHA に対する Zr^{4+} 結合量の pH 依存性. MES: 0.01 M, $NaNO_3$: 0.1 M, EDTA: 0.25 μ M, HHA: 20.9 mg/L.

3) 熱量滴定法及び非水滴定法を用いた天然有機物の錯形成能に関する特性評価

本研究では、幌延深地層研究センター地下施設内の深度250 m及び350 mのボーリング孔から採取・分離・精製した地下水中に溶存している腐植物質の特性や酸解離反応機構について、熱量滴定法及び非水滴定法を用いて調査を行った。また、幌延地域の地下環境から採取した腐植物質のほかに、国際腐植物質学会 (IHSS) より購入したフミン酸を対象とした試験を実施した。各フミン酸の試料名について、幌延深度250m地下水から抽出したフミン酸(HHA250)、深度350m地下水から抽出したフミン酸(HHA350)・フルボ酸(HFA350)、IHSS; Waskish Peat参照フミン酸(PHA)、Elliot Soil標準フミン酸(SHA)と記述することとする。

腐植物質と陽イオンの相互作用の熱力学研究においては、既往研究で報告されている値はギブス自由エネルギー (G) に相当する平衡定数に限られていることが多く、反応の熱力学量を議論する際に必要不可欠となる反応エンタルピー及び反応エントロピーを直接測定から導出した例は僅かである。化学熱力学の原則から、反応に伴う熱の出入りの観測が化学反応機構の評価方法として非常に優れた手法であることは古くから知られていたが、実際には反応に伴う微小な熱量を精度よく測定することが困難であったため、溶液内の反応にはあまり用いられてこなかった。近年、生体高分子の相互作用の研究用に高性能な等温熱量計が開発され、同分野で積極的に利用され始めた。そこで、この等温型熱量計による熱量滴定と、従来の電位差滴定を組み合わせることでフミン酸のプロトン化反応における反応熱力学量を導出し、その反応機構について考察を行った。

その結果、HHAのプロトン化反応においてIHSSフミン酸と異なる特徴的な点がいくつか観測された。一つ目は、見かけのプロトン化定数のパラメータにおいてイオン強度依存項 (b_p) がほぼ0とな

ることである。プロトン化熱力学量の自由エネルギーの変化 (ΔG) は見かけのプロトン化定数から決定するため、 ΔG にイオン強度依存性がないことの要因ともなっている。 b_p は高イオン強度条件下でフミン酸のプロトン化が抑制される度合いを記述するパラメータである。すなわち、 $b_p > 0$ であればイオン強度が高いほどプロトン化が抑制され、 $b_p < 0$ であればイオン強度が高いほどプロトン化が促進される。IHSSフミン酸は $b_p > 0$ となるため、高イオン強度でプロトン化が抑制される。これは、高分子電解質の持つ官能基の解離と共に生じる負の電荷密集が、高イオン強度条件下では豊富な Na^+ イオンによって打ち消されるためである。そのため、高分子ではない混合弱酸(安息香酸とフェノールの混合物)では、 $b_p < 0$ となる。これは前述した電荷密集が起こらないのに加え、高イオン強度条件下ではプロトンや解離官能基からの脱水和に必要なエネルギーが減少するため、結果的にプロトン化で得られるエネルギーが大きくなるためである。後者の効果は溶液系内の反応では一般的なものであり、イオン強度の増加に伴う、活量係数の増加として表現されている。IHSSフミン酸のプロトン化反応においてもこの効果は働いているが、それを打ち消すだけの高分子電解質効果を持っているため、 $b_p > 0$ となっていると考えられる。これを踏まえると、 $b_p = 0$ となるHHAは高分子電解質効果と解離官能基安定効果がちょうど釣り合っていると考えられる。すなわち、HHAも高分子電解質効果を持つが、その分子量がIHSSフミン酸よりも小さいため、結果的にイオン強度依存項が0になっていることが予想される。この予想を踏まえると、HFA350の結果もうまく説明できる。アルカリに可溶で酸に不溶な腐植酸をフミン酸、アルカリにも酸にも可溶な腐植酸をフルボ酸と定義するため、フルボ酸はフミン酸と比べ水溶性が高いと言える。その要因としては主に以下の3つが考えられる。

- ・フルボ酸はフミン酸より分子量が小さい。
- ・フルボ酸はフミン酸より解離官能基当量が大きい。
- ・フルボ酸はフミン酸より疎水性の芳香族の割合が小さい。

HFAの解離官能基当量(カルボキシル基とフェノール性水酸基の合計)はHHAを上回り、フェノール性水酸基の割合も低い。また、プロトン化におけるイオン強度依存項 b_p についてもHHA $>$ HFAとなる。以上より、HFAはHHAよりも分子量が小さいため高分子電解質効果も小さく、より混合弱酸に近いプロトン化反応機構を持つと考えられる。

HHAのプロトン化において特徴的な点の2つ目は、低pCH (pCH; 滴加量と試料溶液中の水素イオン濃度の対数值) 領域で $-\Delta H$ (ΔH : エンタルピー変化に起因するエネルギー成分)がpCH増加に伴い減少する点である。HFAと混合弱酸のプロトン化エンタルピーは非常に似通った値と傾向を持っており、これはHFAが、一般的にフミン酸やフルボ酸の特徴といわれる高分子電解質性や組成不均質性が小さく、単純な有機弱酸で近似できるような特徴的なフルボ酸であるということを示している。一方HHAのプロトン化エンタルピーは、pCH $>$ 5の領域ではHFAや混合弱酸とほとんど同じ値を示すが、pCH 4~5の領域では明確に異なる傾向を示している。異なるpH条件下においては、HHAにはpH 5未満で明確な沈澱が確認されたことから、HHAのpCH 4~5における特徴的なプロトン化エンタルピーは、フミン酸が凝集・沈澱する際に発生する熱量を、プロトンと官能基が結合する際発生する熱量に含めてしまったことによるオーバーシュート信号に起因すると考えられる。 ΔG の比較やpCH $>$ 5以降の ΔH から、HHAの正味のプロトン化エンタルピーはHFAとほぼ同等になり、一般的なフミン酸よりも単純な有機酸に近い反応機構を有することが予想される。

I = 0.1におけるIHSSフミン酸とHHA・HFA、混合弱酸のプロトン化エンタルピーの比較を図

2.4.3-6に示す。前述したHHAの凝集・沈澱熱を考慮すると、大まかに2種類の傾向があることがわかる。すなわち、組成不均質性と高分子電解質性によって特徴づけられる反応機構を持つ2種のIHSSフミン酸、単純な有機弱酸の混合物に近い反応機構を持つHHA・HFAである。IHSSフミン酸はアメリカの地表から採取されたフミン酸であり、HHA・HFAは北海道幌延地域の地下水から抽出したものであるが、この違いがフミン酸の深度によるものと一概にいうことはできない。しかしながらこの結果は、非常に単純なプロトン化反応でさえ、IHSSの標準フミン酸と地下環境中に存在するフミン酸の間で反応機構に大きな違いが生じうることを示唆している。

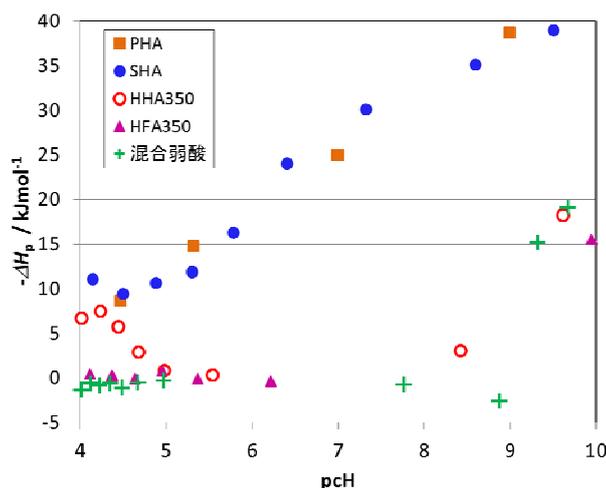


図 2.4.3-6 各試料のプロトン化エンタルピー比較

次に、非水滴定法による官能基量の評価結果を記す。腐植物質の有する主な官能基は、フェノール性水酸基とカルボキシル基であり、腐植物質と金属イオンの相互作用を考える際には、これらの量を正確に求める必要がある。現在、腐植物質の酸解離挙動を調べるために、水溶液中における電位差滴定が用いられることが多いが、自己解離定数 $pK_w = 14$ で制限される電位窓(pH窓)を持つ水溶液中で、フェノール性水酸基($pK_a = 9.82$ at $I = 1.0M$)がある程度解離するような領域では、解離種と非解離種の濃度変化に対応するpHの変化は小さくなり、フェノール性水酸基の量を正確に知ることは困難である(水溶液中の電位差滴定にて、信頼性を持って解離官能基濃度を定量できる領域はpH4~10である)。先行研究では、pHの窓が塩基側に広い非水溶媒中にて腐植物質を滴定することで、その終点までの滴加量からIHSSやAldrich社の腐植物質のフェノール性水酸基を定量できることが報告されている(Kirishima et al., 2009)。そこで本調査では、この非水滴定法を幌延深部地下水から抽出したフミン酸に適用し、フェノール性水酸基を定量することを目指した。事前検討の上決定した実験系において、濃度既知のフェノールの滴定及び幌延の深部地下水から抽出したフミン酸に対して滴定を行った。各滴定においては、試薬滴加後1分経過した後から30秒間連続的に電位変動をモニターし、その振幅が $\pm 0.25mV$ 以内であれば次の滴加に移行させた。ただし、滴加後11分後には強制的に次の滴加に移る。すなわち、連続的な観測は最大で20回(10分間)までしか行わない。1回の滴定でpHがおよそ0.17変動するように滴加量を調整した。また、ビュレット先端からの滴加液の拡散の影響が著しいという特徴があったため、ビュレットの先端としてポリエチレン製の細管を自作し、ビュレットを被滴加液に入れずに上部より滴下し

た。また、大気中の二酸化炭素による影響を防ぐため、ビュレット、スターラー、滴定セルなどをグローブバッグ中に入れ、窒素ガスを供給することで系内が窒素雰囲気となるように制御した。

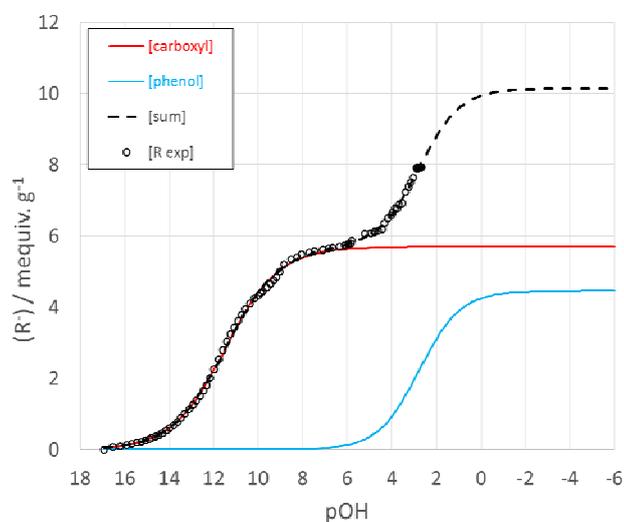


図 2.4.3-7 HHA250 の非水滴定結果およびモデル当てはめ結果

その結果、HHA250に通常の電位差滴定を適用した際には、フミン酸中のフェノールの解離を記述することが出来なかったが、非水溶媒を用いた非水滴定法により、図2.4.3-7で示したようにフミン酸の解離をうまく記述することが出来た。今後は安息香酸やフェノールに非水滴定を適用して解離官能基当量の定量精度を見積もり、正確な官能基当量を計算した後に見かけのプロトン化定数を決定する。HHA250の見かけのプロトン化定数を決定できれば、熱量滴定によりプロトン化反応熱力学量を導出し、地下水深度による酸解離反応機構の違いを明らかにすることが期待される。解決すべき課題として、炭酸の影響の排除や1回の滴定で使用するサンプル量の低減が挙げられる。また、電位差滴定で官能基当量を決定したIHSSフミン酸やHHA350, HFA350にも非水滴定を適用し、各滴定法により推定した官能基当量の比較を行う予定である。

本研究結果から、幌延深地層研究センター地下施設の深度250m調査坑道及び深度350m調査坑道にて採取した深部地下水より分離精製した腐植物質に対して、電位差滴定によりプロトン化反応を記述するモデルパラメータを決定した。また、同じ試料、同じ反応に対し、熱量滴定を実施する事によりプロトン化反応のエンタルピーを実測した。両者の結果を合わせる事により、プロトン化反応の熱力学量(ΔG , ΔH , ΔS)を決定し、これを比較しところ、幌延腐植物質のプロトン化反応の熱力学諸量の変化は、酢酸とフェノールをモル比で約2:1となるよう混合した混合弱酸の熱力学量変化と非常に似通った値と傾向を持つことがわかった。これは幌延腐植物質が、これまで研究されてきたIHSS標準フミン酸やアルドリッチ社製フミン酸の特徴といわれる高分子電解質性や組成不均質性が小さく、単純な有機弱酸で近似できるような特徴的な腐植物質であるということを示唆している。また、HHAについて、腐植物質の有する主な官能基の一つであるフェノール性水酸基の容量を正確に決定するために非水滴定を実施した。これにより、HHAのフェノール性水酸基の官能基当量を 4.5 ± 0.9 mequiv./g と従来よりも精度良く決定することができた。

(2) 微生物影響評価技術の開発

地層処分システムにおいて、人工バリアやその周辺母岩で構成されるニアフィールド及び天然バリアには、放射性核種の移行を抑制する安全機能が期待される。しかしながら、地下環境には膨大な数の微生物が存在することが明らかにされており（例えば、Fredrickson and Fletcher, 2001）、処分システムの安全機能にこれらの微生物が影響を及ぼす可能性が指摘されている（Pedersen, 1999; West et al., 2002; Pedersen, 2005）。平成26年度までは、これまで国内外で集積された最新の知見について網羅的に調査するとともに、安全機能への不確実性要因である微生物影響について、微生物が関与する事象を考慮した評価シナリオを構築し、処分システムの安全機能に影響を及ぼしうる微生物反応の中で重点的に評価が必要な事象を抽出し、それらの不確実性を低減させるための評価手法について検討した（図2.4.3-8）。検討結果から、ニアフィールド岩盤を含む天然バリア環境において核種移行に影響を及ぼす微生物関連事象として、「安全機能への影響評価が必要であるが結論が得られていないと見なせる項目」は下記のとおりである（日本原子力研究開発機構, 2015a）。

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

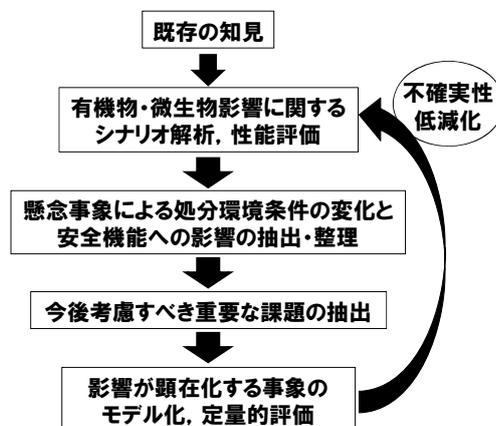


図 2.4.3-8 有機物・微生物影響評価ダイアグラム

平成27年度は、平成26年度に抽出した評価が必要な微生物関連事象のうち、下記の項目について評価を実施した。

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

1) 微生物の核種移行挙動に関する現象モデル開発

地下環境における微生物の存在形態は、浮遊性と付着性に分けられる。浮遊性微生物は、その形態的特徴から、処分システムにおいては「コロイド」として取り扱うことが可能と考える。一

方、付着性微生物は、固体表面に付着して「バイオフィーム」と呼ばれる高次構造体を形成する。本研究では、コロイド状の微生物（以下、微生物コロイド）とバイオフィームに着目して評価を行った。

① 地下環境における微生物コロイドの元素収着特性評価

地下環境中に分布する地下水には、無機・有機の形態で様々な化学種のコロイドが存在することが知られており、これらのコロイドは地層処分システムにおいて放射性核種の移行挙動に影響を及ぼす可能性が懸念されている。微生物細胞も浮遊する場合はコロイドと形態が近似していることから、微生物コロイドに核種が収着あるいは取り込まれた場合は、核種移行の促進が顕在化されることが危惧される。平成26年度までに実施したGoldSim (ver. 10.1; GoldSim Technology Group, 2010)及びColfrac (Ibaraki and Sudicky, 1995)を用いた核種移行解析結果やコロイド影響を考慮した既存の核種移行解析結果からは、コロイドが核種移行を顕在化する条件は、地下水中的コロイド密度、コロイドへの元素の分配係数、不可逆性に大きく関係することが示されている。そこで本研究では、平成26年度までに提案した微生物コロイドの核種移行影響評価手法（図2.4.3-9）に基づいて、地下水中に存在するコロイドの密度及びコロイドへの元素の分配係数について、データの拡充を目指して試験を実施した。なお、地下環境中に存在する微生物に起因するコロイドには、微生物細胞自体がコロイドとしての挙動を示すものと、微生物の代謝活性により細胞外へ排出されたナノコロイドがあると考えられるが、本研究では微生物細胞を対象とした評価を実施した。

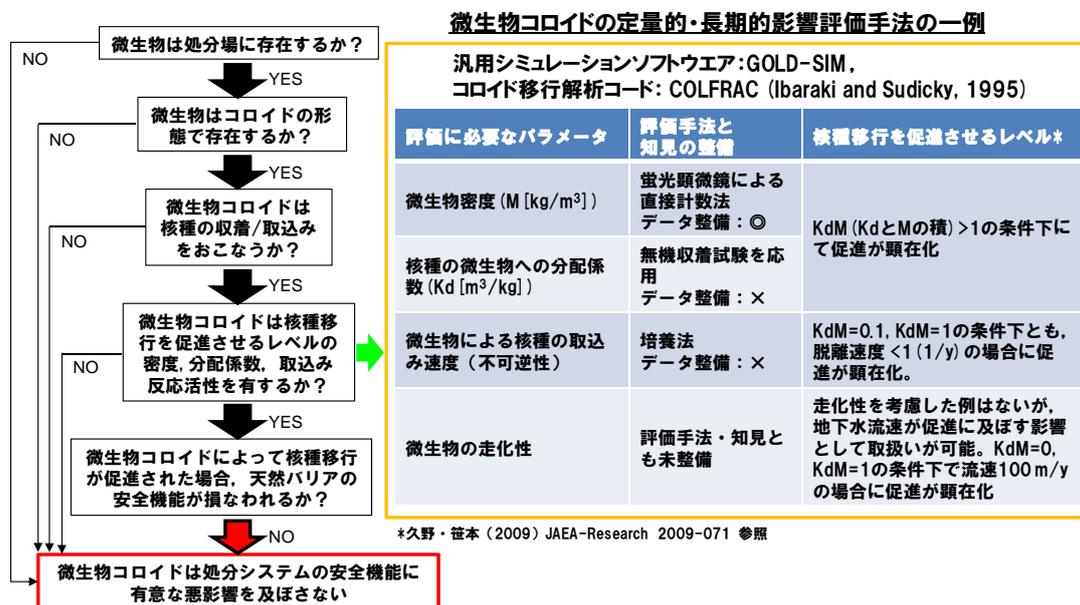


図 2.4.3-9 微生物コロイドの核種移行影響評価手法フロー図

評価対象には、幌延深地層研究センター地下施設内に掘削されたボーリング孔（07-V140-M03孔, 09-V250-M02孔）から採取した地下水を用いた（図2.4.3-10）。地下水中的コロイド密度を計測するために、0.2 μm及び10 kDaサイズのフィルターを用いて地下水を濾過し、コロイド捕集後のフィルター重量を測定することにより、捕集物重量とろ過量から地下水中的の各分画における全

コロイド密度（無機/有機・微生物コロイドの総量）を算出した。地下水中のコロイドを対象とした元素の収着特性評価試験では、微生物コロイドと無機/有機コロイドを区別せず、原位置環境条件下（pH、還元条件、水質条件等）にて硝酸洗浄済み・オートクレーブ滅菌済み耐圧タンクを99.999%アルゴンガス置換したものに地下水を採取し、タンク内に嫌氣的に元素を添加した（図2.4.3-11）。元素には、長寿命放射性核種（半減期： 2.95×10^5 年）として放射性廃棄物中に含まれ、性能評価上重要核種とされているSe、及びアクチノイドと元素の挙動が類似しており天然環境中でアクチノイドのアナログ元素とされている希土類元素を用いた。一定期間元素と反応させた溶液中のコロイドをサイズ分画して固相を捕集したフィルターと液相のろ液を採取した。サイズ分画には、微生物サイズとして孔径0.2 μm のメンブレンフィルター及び10 kDa（MWC0）サイズの限外ろ過膜を用いた。反応試験に用いた未ろ過原液及び各ろ過液は、コロイドの収着特性評価に資するため、Na, K, Ca, Mg, Cl, HCO_3^- , TOC, TIC, Total Fe, Fe^{2+} , S^{2-} 等の一般水質分析を行った。微量元素については、ICP-MS（パーキンエルマー社製、NexION300X型）を用いて測定した。また、各サイズ分画フィルター上の捕集物について、走査型電子顕微鏡を用いた観察・分析を実施した。さらに、試験過程における微生物群集組成の変化を明らかにするために、16S rRNA遺伝子を対象とした解析を実施した。採取した試験試料中の微生物細胞を0.2 μm フィルター上に捕集し、捕集物からExtrap Soil DNA Kit Plus ver.2（日鉄住金環境株式会社製）を用いて直接DNAを抽出し、微生物の16S rDNAをターゲットとしたPCR増幅産物について、次世代シーケンス解析（MiSeq, Illumina社製）を実施した。得られた配列解析データについて、複数の解析ツールが統合されたQIIMEパイプラインを用いて、塩基配列のチェック、OTU（Operation Taxonomic Unit）の選定、代表配列の決定を行うとともに、各OTUの代表配列について16S rRNA遺伝子データベースに対する相同性検索を行い、系統分類を推定するとともに菌種構成比を算出した。

上述の室内試験と並行して、幌延深地層研究センター地下施設の深度350 m周回坑道において実施されている原位置物質移行試験と連携し、収着性トレーサーを原位置地下環境に注入した際の地下水中的コロイド影響について、試験期間中の地下水を採取し、無機・有機・微生物コロイドへのトレーサーの収着挙動を評価するための化学分析及び微生物分析に着手した。

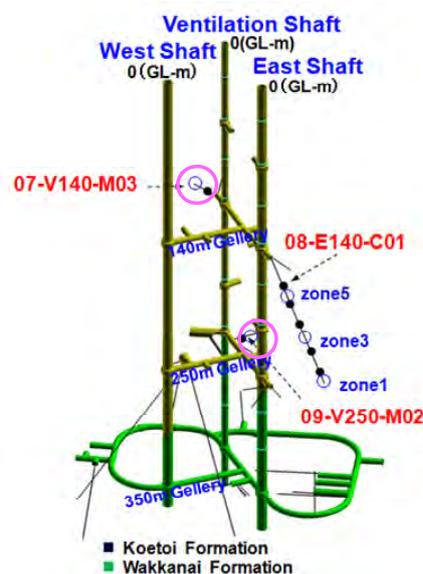


図 2.4.3-10 幌延深地層研究センター地下施設内ボーリング孔配置図

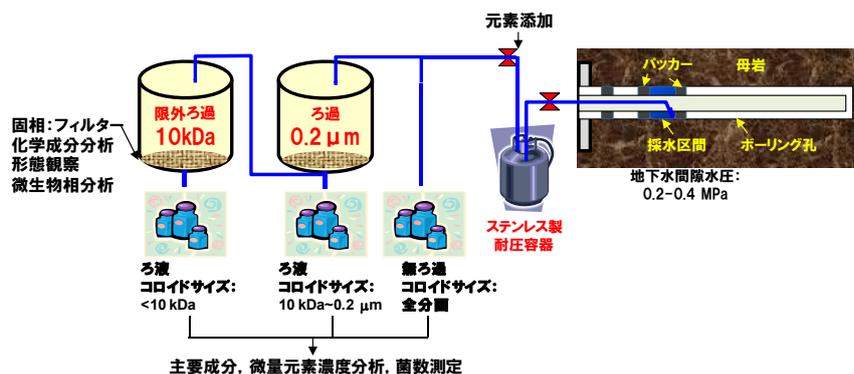


表 2. 4. 3-1 各深度における地下水中のコロイド密度の測定値

ボーリング孔	採取深度 (GL-m)	地層区分	コロイド重量: 0.2 µmサイズ (mg)	コロイド重量: 10 kDaサイズ (mg)	地下水 ろ過量 (L)	コロイド 重量 (mg/L)
07-V140-M03	140	声問層	7.40	u.m.*	12.3	0.600
			5.00	u.m.	8.9	0.562
			5.10	u.m.	7.7	0.662
09-V250-M02	250	声問層/稚内層	3.20	u.m.	30.0	0.107
			8.57	u.m.	46.5	0.184
			1.70	u.m.	49.0	0.035
			1.93	u.m.	16.0	0.121
			1.80	u.m.	46.5	0.039
			1.60	u.m.	71.0	0.023
*unmeasurable						

表2. 4. 3-2 地下水中的コロイド密度（平均値）と微生物コロイド密度

ボーリング孔	採取深度 (GL-m)	コロイド重量: 0.2 µmサイズ (mg/L)	微生物コロイド 密度 (cells/L)	微生物コロイド 密度 (mg/L)	全コロイド重量 に対する微生物 コロイドの割合 (%)
07-V140-M03	140	0.608 (±0.05)	1.67×10^8 (±0.1)	0.05	8.2
09-V250-M02	250	0.085 (±0.06)	0.69×10^8 (±0.7)	0.02	23.5

地下水中的コロイド密度を表2. 4. 3-1に、また各深度のコロイド密度（平均値）と微生物コロイド密度を表2. 4. 3-2に示す。各ボーリング孔地下水中的コロイド密度を比較すると、0.2 µmサイズ以上のコロイド密度は、深度140 mの地下水の方が深度250 mの地下水よりも一桁高い値が得られた。深度140mは声問層群の中層に位置しているのに対し、250mは声問層と稚内層の境界に位置し、透水性も高い。また、塩分濃度も深度250mの地下水は140mの地下水の2/3程度であるなど地質学的・地球化学的特性が異なっており、地質環境条件によってコロイド密度が異なる空間分布を示すことが考えられる。0.2 µm～10 kDaサイズのコロイド重量に関しては、低密度のために計測ができなかった。微生物コロイドの密度は、両深度を比較するとわずかに深度250mの地下水の方が低い、全コロイド重量で認められたような密度の差はなかった。本試験で取得された微生物コロイド密度から、既存の知見に基づく大腸菌1細胞あたりの重さ (1.0×10^{-13} g/cell; Madigan

et al., 2009) を参考にして重量換算した場合、全コロイドに対する微生物コロイドの割合は、深度140mの地下水で8.2%、深度250mの地下水で23.5%との値が得られた。したがって、地下水中的コロイドは、そのほとんどが無機コロイドか微生物細胞以外の有機コロイドであると推定された。

地下水中的コロイドと各元素の反応試験過程における主要成分の分析結果から、Na, K, Mg, Cl, TOC, TICについては、ほぼ変動していないことが明らかになったが、Caについては、経時的に濃度が減少する傾向が確認された(図2.4.3-12)。また、FeについてはTotal Fe及びFe²⁺の濃度が時間の経過とともに減少傾向を示した。元素を添加していない試験溶液中の各元素濃度も経時的に減少していることから、希土類元素等の添加により、添加元素とともに共沈した可能性は低く、試験過程での試験溶液中の酸化還元状態の変化や、定期的なサンプリングに伴う地下水中の溶存炭酸ガス濃度の変化等によるpHの変化が起因している可能性がある。試験溶液中の硫化物イオンの濃度については、元素を添加していない試験溶液と比較して、元素を添加した試験溶液において硫化物イオン濃度の増加が確認されていることから、元素添加に伴う微生物の硫酸還元反応に起因するものと考えられる。添加した希土類元素の経時変化を図2.4.3-13に示す。各元素とも、時間の経過とともに濃度が減少する傾向が確認された。これらの元素濃度の減少挙動については、①コロイドへの収着、②試験溶液中に存在していた鉄との共沈、③試験に用いた容器内壁への吸着、という反応が考えられる。このうち、②については、フィルター上に捕集されたコロイドの電子顕微鏡観察結果(図2.4.3-14, 15, 16)より、鉄コロイドが検出されていることから、鉄コロイドとして共沈した可能性は否定できないが、溶液中の鉄濃度の減少は希土類元素を添加していない試験系においても確認されているため、鉄コロイド表面への希土類の収着等の詳細な挙動については今後確認が必要である。ステンレス容器内壁への添加元素の収着が生じているか否かについては、今後確認作業を行っていく予定である。

また、各元素と微生物の相互作用について評価を行うために、反応過程における微生物群集組成の経時変化を分析した結果、本試験条件においては元素の添加に伴う劇的な微生物群集組成の変化は確認できなかったことから、本試験では各元素を添加したことによって、微生物の代謝活性は高められていないことが示唆された(図2.4.3-17, 18)。このことは、実際の処分環境において、放射性核種が徐々に天然バリアに到達してきた際、核種の濃度が本試験で実施した程度の濃度であれば、地下水中への核種の溶解による微生物の代謝活性は急激には変化しないことを示唆しており、天然バリアにおける微生物と核種との相互作用を考慮する上で重要な知見であると考えられる。一方で、深度250mの地下水(09V250M02孔)を用いた試験結果からは、元素添加後28日目で*Rhodocyclaceae*属に属する鉄還元反応を行う菌の増殖がわずかに確認されたことから、核種との相互作用は非常にゆっくりとした速度で起こる可能性があるとともに、地下環境に土着の微生物相によって、核種との相互作用が異なる可能性が示唆された。実際に、地下水中的コロイド粒子のSEM観察結果からは、鉄を多く含有する微生物細胞様の形態をした粒子が数多く観察されており(図2.4.3-14, 15, 16)、このような形態を有する細胞は、元素を添加していない地下水でも多数観察されたことから、これらは細胞表面(あるいは細胞内)に鉄を収着あるいは取り込むことにより、地下環境で代謝活性を有していた種だと推察できる。本試験で実施したSEM/EDS観察によって検出された金属元素は鉄のみであり、その他の金属元素は検出できていないが、これはコロイド表面の元素濃度に起因するところが大きいと考えられる。したがって、鉄以外の重

元素についても、微生物との相互作用が起こる可能性は十分に考えられる。本試験で得られた結果から、天然バリアにおいて微生物コロイドが核種移行に及ぼす影響については、反応試験の長期的な評価や原位置環境で生じている事象の詳細な観察が必要であると考えられる。

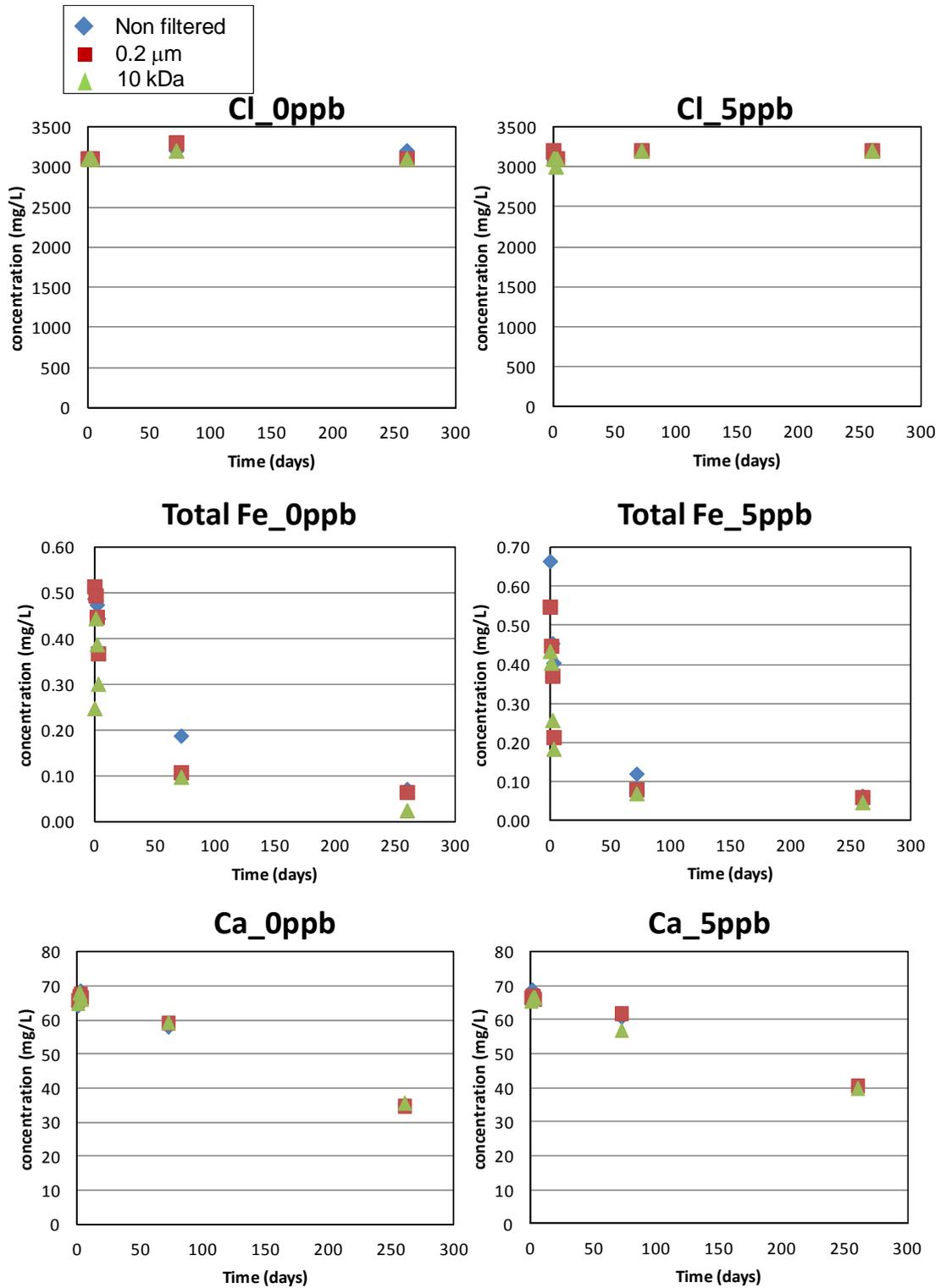


図 2.4.3-12 試験溶液中の主要元素濃度の経時変化
地下水採取深度：140 m(07-V140-M03 孔)その1

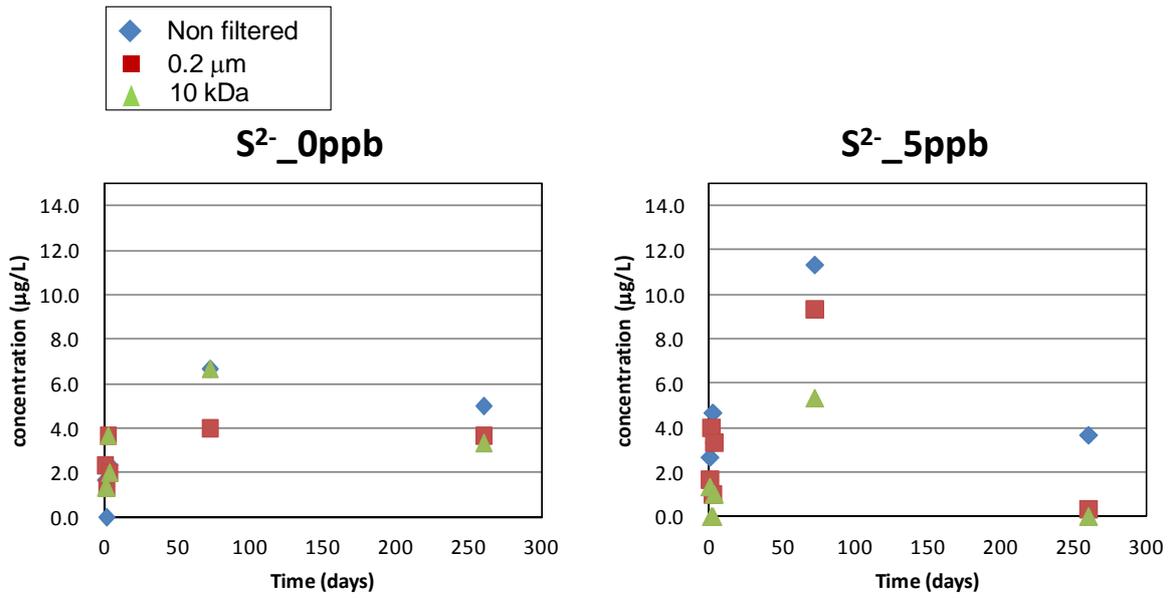


図2.4.3-12 試験溶液中の主要元素濃度の経時変化
地下水採取深度：140 m(07-V140-M03孔)その2

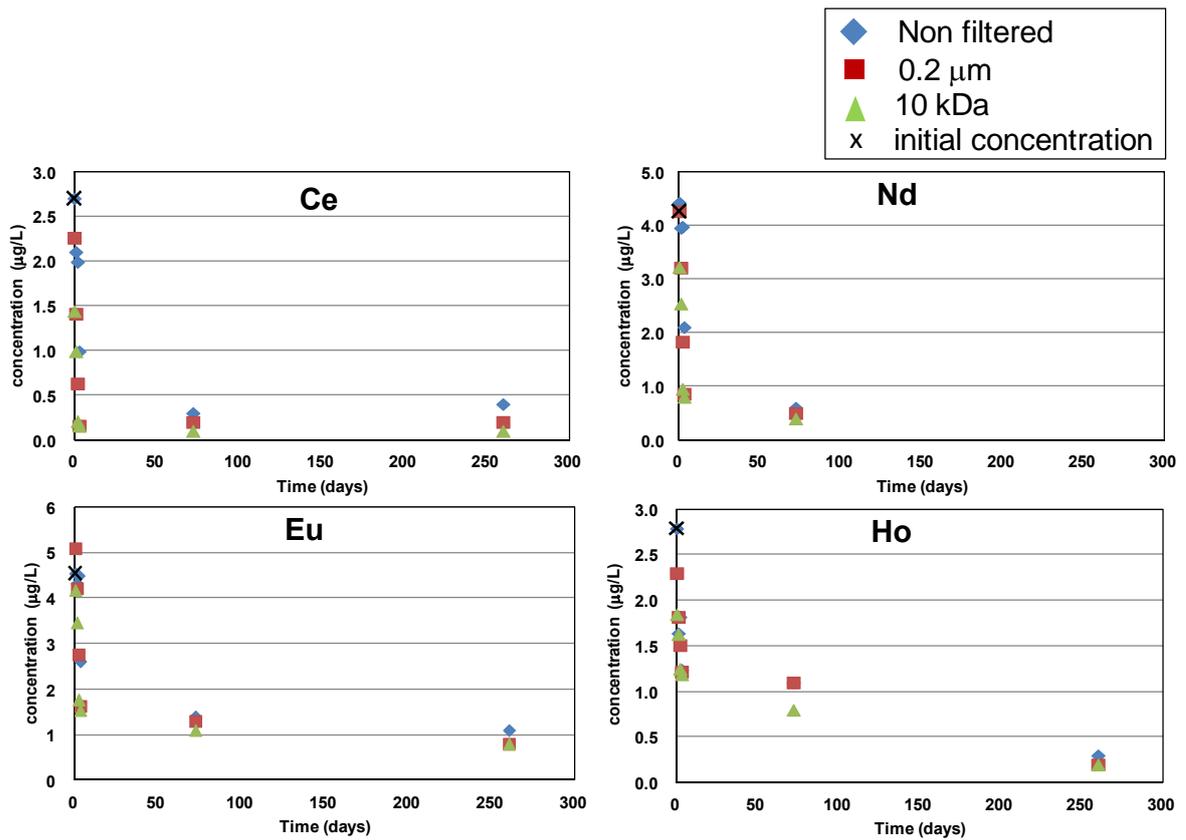


図2.4.3-13 試験溶液中の希土類元素濃度の経時変化
地下水採取深度：140 m(07-V140-M03孔)

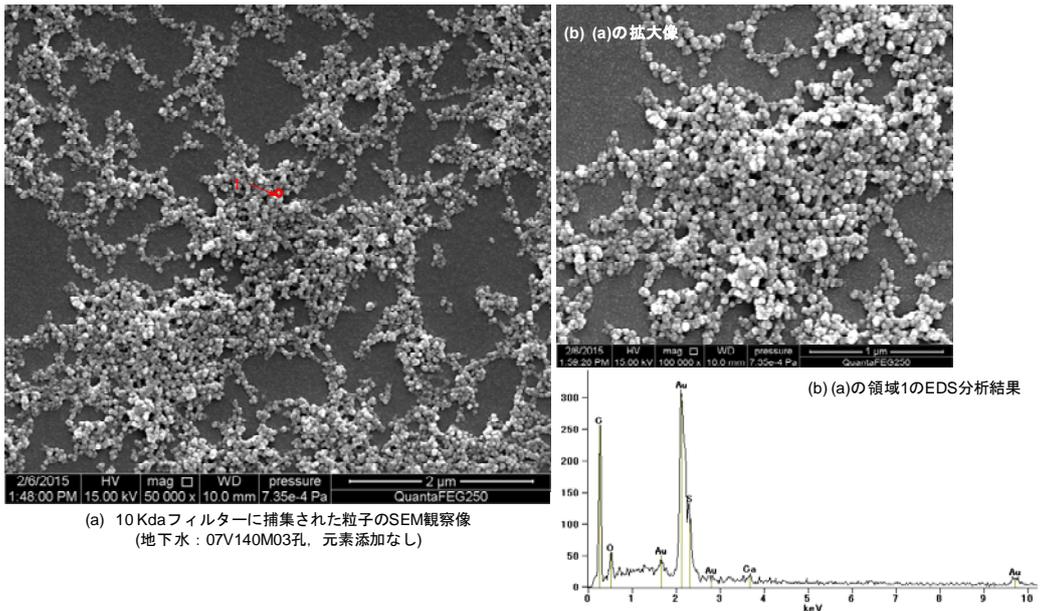


図 2.4.3-14 10 kDa フィルターに捕集された地下水中の粒子の SEM 像と EDS 分析結果

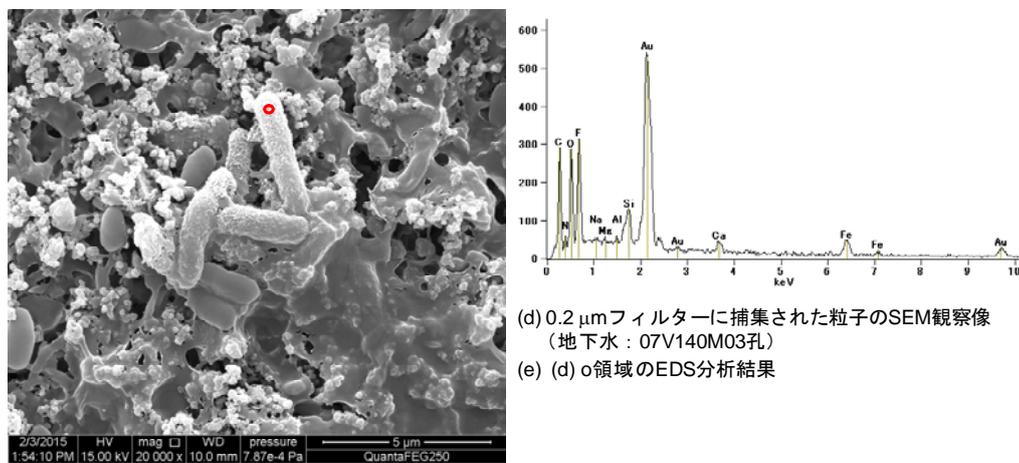
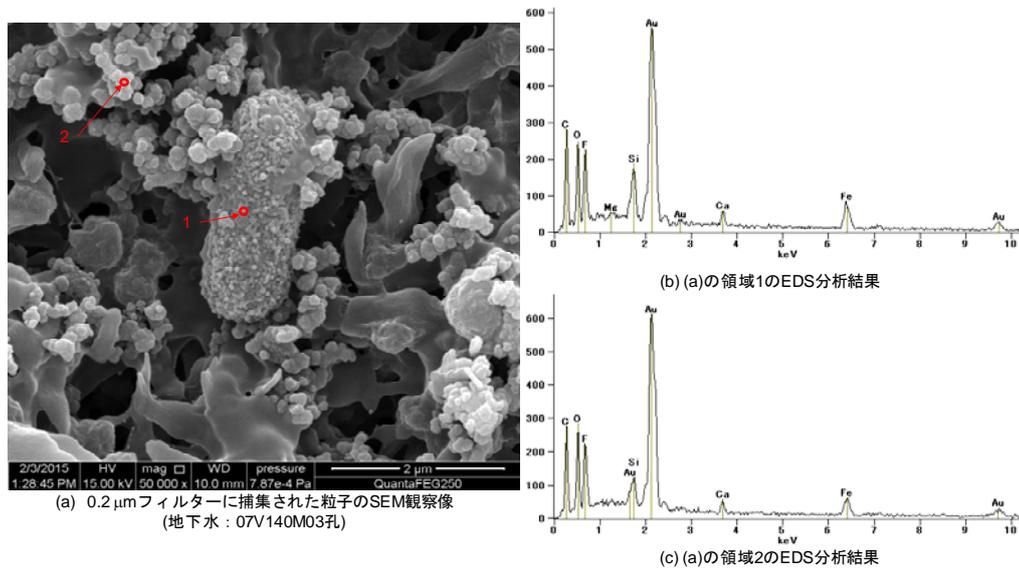
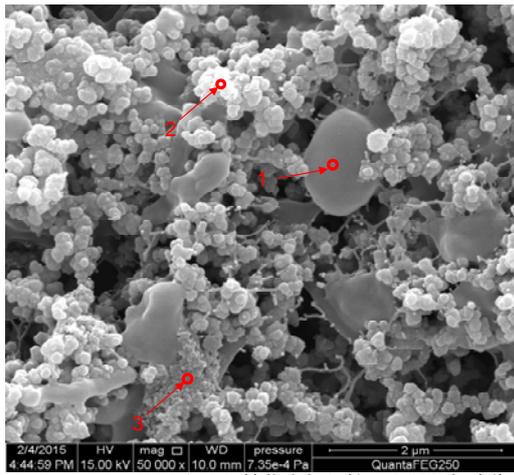
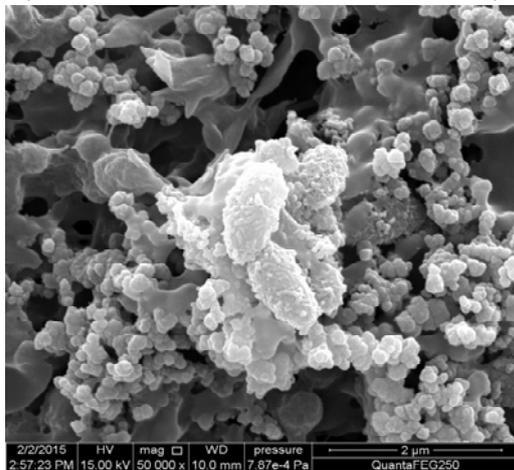


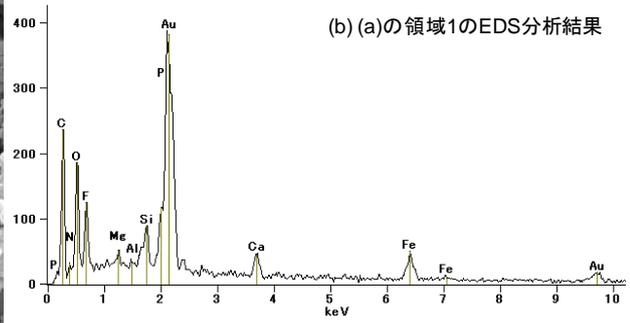
図 2.4.3-15 0.2 μm フィルターに捕集された地下水中の粒子の SEM 像と EDS 分析結果
(元素添加なし)



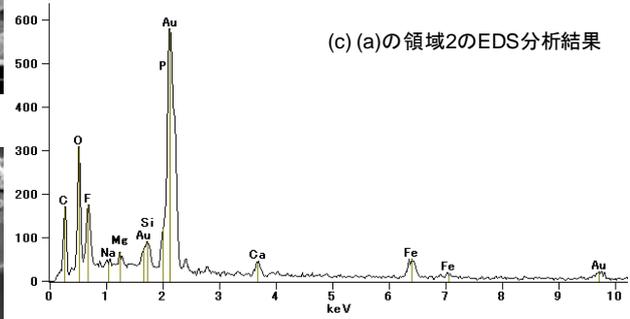
(a) 0.2 μmフィルターに捕集された粒子のSEM観察像
(地下水：07V140M03孔，希土類元素およびSe添加)



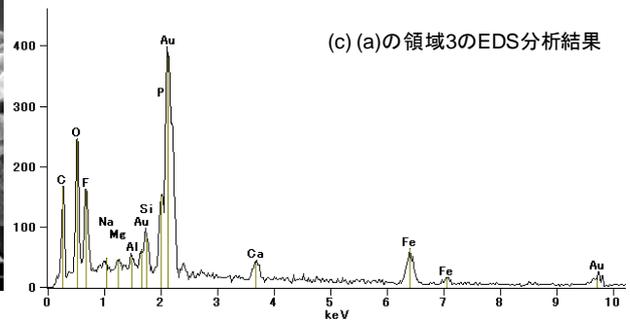
(d) 0.2 μmフィルターに捕集された粒子のSEM観察像
(地下水：07V140M03孔，元素添加なし)



(b) (a)の領域1のEDS分析結果



(c) (a)の領域2のEDS分析結果



(c) (a)の領域3のEDS分析結果

図 2.4.3-16 0.2 μm フィルターに捕集された地下水中の粒子のSEM像とEDS分析結果 (Se 及び希土類元素添加試料及び無添加試料)

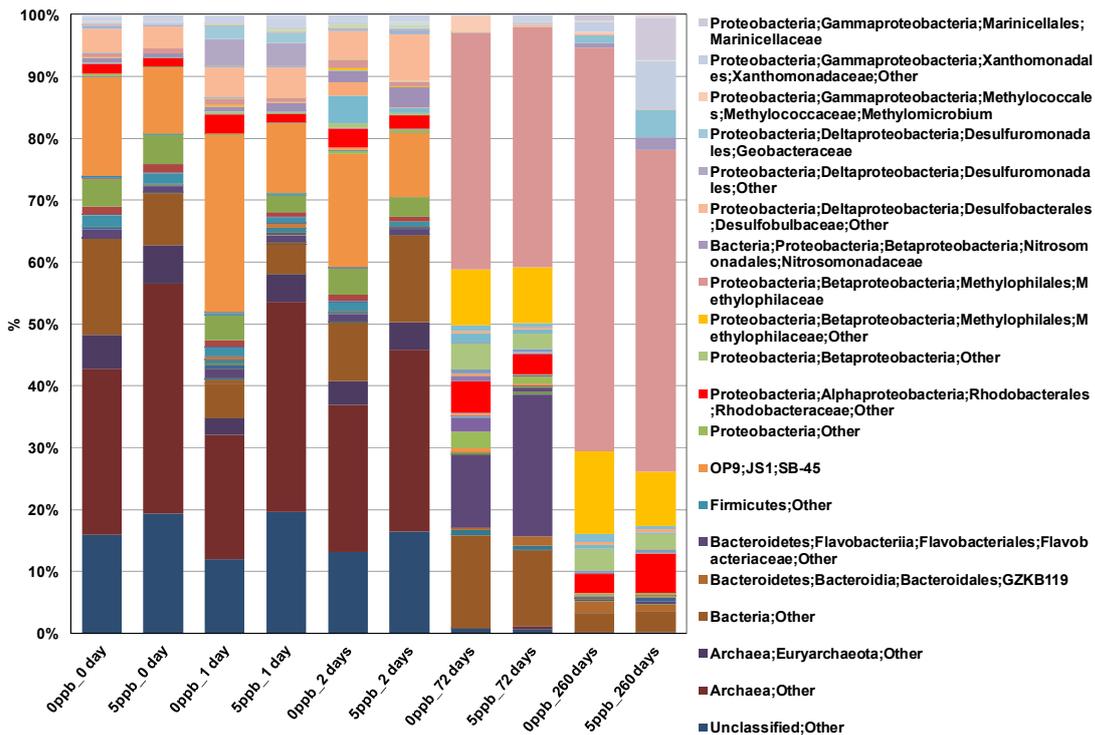


図 2. 4. 3-17 反応溶液中の微生物群集組成の経時変化 (深度 140 m)

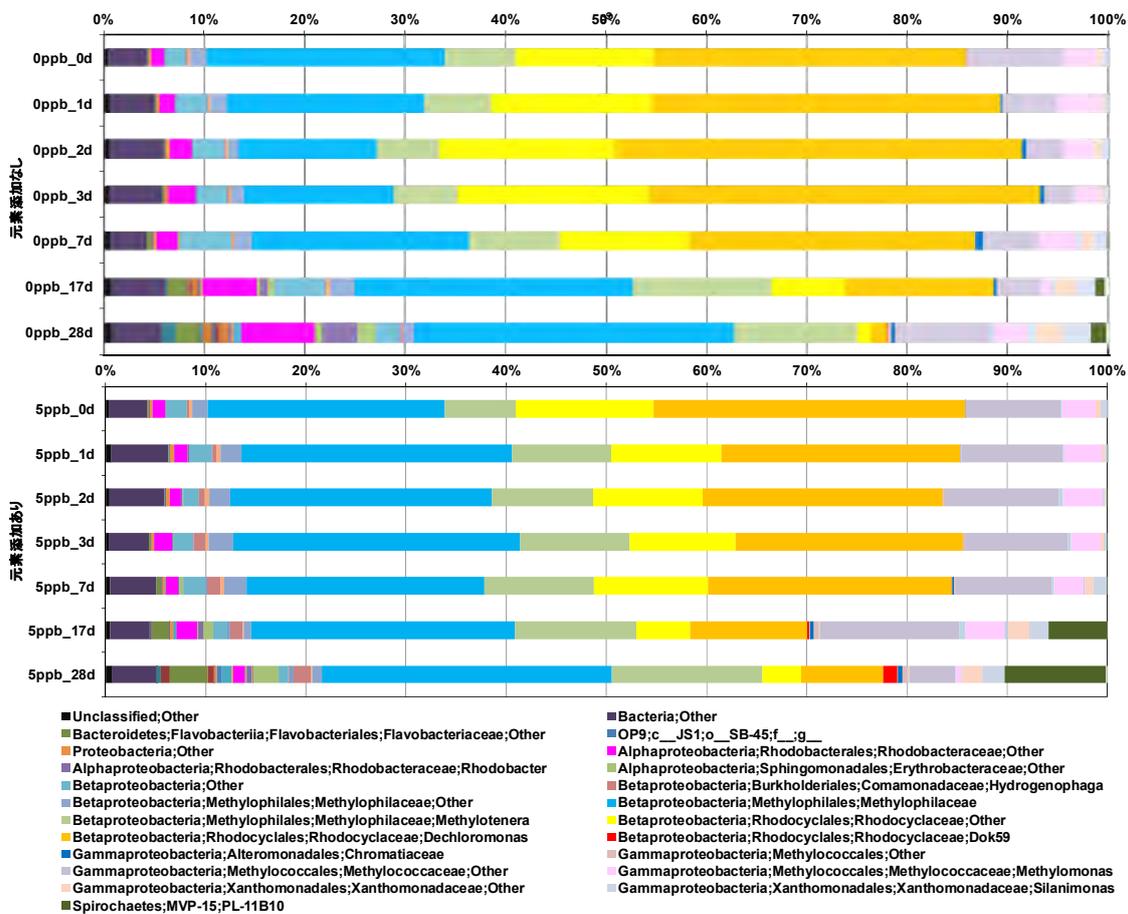


図 2. 4. 3-18 反応溶液中の微生物群集組成の経時変化 (深度 250 m)

添加した各元素の溶液中の濃度分析結果から、全ての添加元素は溶液中に溶存状態であるか、コロイドに収着したと仮定して、コロイドに対する各元素の分配係数を算出した。本試験によって求められたコロイドへの各元素の分配係数のうち、代表的な元素の分配係数を図2.4.3-19に示す。分配係数は、 $\log K_d$ (m^3/kg)として2.1-4.4 (深度140m地下水) 及び3.8-5.5 (深度250m地下水) の範囲で示されており、時間の経過とともに分配係数が高くなり、1週間ほどで安定する傾向が認められた。岩盤亀裂中でのコロイドの核種移行評価を目的として、コロイド移行解析コードCOLFRACを用いて行われた感度解析検討結果 (久野・笹本, 2009) によると、核種のコロイドへの分配係数 K_{dm} (m^3/kg)とコロイドの濃度 M (kg/m^3)が重要なパラメータであり、これらの積 ($K_{dm}M$) が >1 の条件の時に、コロイドによる核種移行の助長が顕在化している。また、コロイドからの核種の脱離が遅い場合においても、核種移行の助長が顕在化することも感度解析的に示されている。本試験結果から幌延地域の堆積岩における地下水中のコロイド密度と K_d の積が1を超えるケースが多く確認されたことから、地下水中のコロイドが核種移行を顕在化する可能性が示唆された。一方で、本試験過程において溶液の酸化還元状態が変化している可能性等、試験手法の再検討の必要性が課題として挙げられたことから、本試験で得られた分配係数値に関して、今後データの信頼性を高めていく必要がある。コロイドに対する核種の収着反応の不可逆性に関しては、微生物と核種との相互作用特性を考慮した場合、核種は微生物細胞表面に電気化学的に収着するケースに加えて、細胞内に取り込むことにより細胞内での核種の濃集、形態変換、鉱物化が起こることが想定される。その場合、核種のコロイドへの収着は不可逆的な反応となり、微生物特有の反応により核種移行の助長が顕在化する可能性がある。地下水中の微生物密度については、上述のように様々な環境条件下においてデータが集積されているが、核種の微生物への分配係数や取込み速度(不可逆性)については、データ整備がなされていないのが現状である。また、微生物特有の現象の一つである「走化性」についても、地下環境においてどの程度微生物が移動するのかに関する情報は皆無である。したがって、微生物コロイドが核種移行に及ぼす影響を性能評価の信頼性を担保して定量的に評価するためには、図2.4.3-8に示した一連の評価に必要な情報を収集する必要がある。

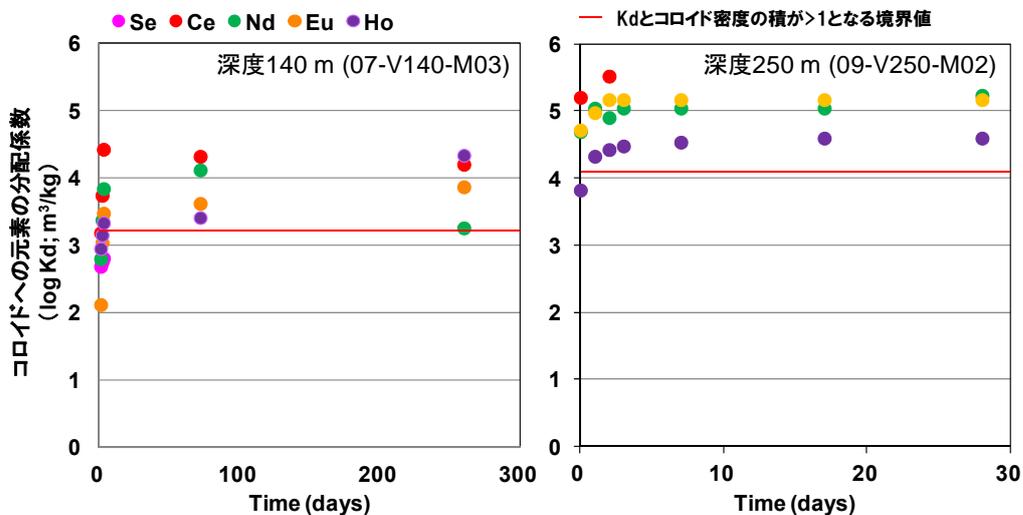


図 2.4.3-19 微生物サイズのコロイドへの元素の分配係数.

② 地下環境におけるバイオフィルムの元素収着特性評価

核種移行へのバイオフィルム影響については、花崗岩を対象として、バイオフィルムが母岩に被覆することにより、母岩の核種収着・拡散能力が低下する現象が報告されている (Vandergraaf et al., 1997; Anderson et al., 2006 ; 2007) 。しかしながら、天然の地下環境において、岩石亀裂表面にバイオフィルムが形成されているか否か、また形成されていたとして、どの程度の密度で存在しうるのかに関しては、全く知見がないのが現状である。地下環境を模擬した条件下にて、あるいはボーリング孔の孔壁において形成されたバイオフィルムに関する調査結果は報告されているが (Ekendahl et al., 1994; Anderson and Pedersen, 2003; Anderson et al., 2006; 2007; Jägevall et al., 2011; Krawczyk-Bärsch et al., 2012) 、それらはいずれも地下水流速やエネルギー源供給速度の観点において、バイオフィルムの形成にとって好条件である。それに対して、地下本来の岩盤亀裂表面における環境条件は地下水の流れが非常に遅く、微生物増殖のエネルギー物質の供給は非常に限定されていることから、既報のバイオフィルム密度は実際の岩盤亀裂表面におけるそれと比較すると過大評価されていると言える。微生物影響に起因する不確実性を低減させるためには、原位置環境におけるバイオフィルム形成とその特性に関する知見を蓄積するとともに、バイオフィルムの元素収着特性について評価を行う必要がある。平成26年度までに、核種移行へのバイオフィルム影響の評価手法フローを作成した (図2.4.3-20) 。本評価手法フローに基づき、平成27年度は、平成26年度に引き続き、地下環境に形成されたバイオフィルムが核種移行に及ぼす影響を評価することを目的として、地下環境中において形成されているバイオフィルムの密度レベルとそれらの地球化学的・微生物学的特性調査を実施した。幌延深地層研究センター地下施設の坑道壁面及びボーリング孔に設置されている地下水採取チューブ内部に形成されているバイオフィルム (図2.4.3-21) を対象として、平成26年度は微量元素分析及び微生物群集解析を行った。平成27年度は同試料及びそれに関連する地下水を対象として、これまで取得した結果の詳細な解析を実施するとともに、バイオフィルム密度や形態観察等の調査を行った。また、岩石表面に形成されたバイオフィルムと核種の相互作用に関する影響評価に資するため、地下施設のボーリング孔を利用して、原位置の水圧、還元条件を保持した条件下におけるバイオフィルム形成試験を継続し、岩石の微生物分析を実施した。

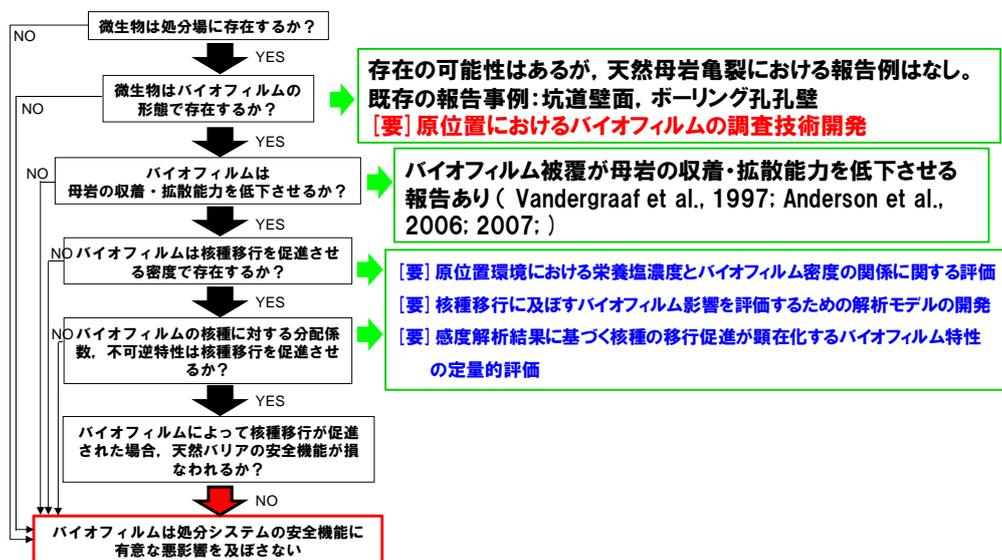
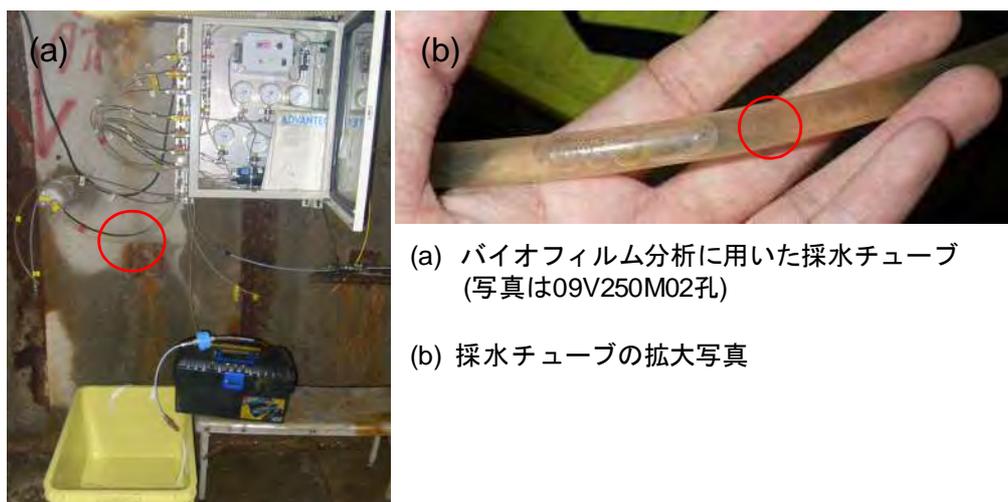


図 2.4.3-20 バイオフィルムの核種移行影響評価手法フロー図



(a) バイオフィーム分析に用いた採水チューブ
(写真は09V250M02孔)

(b) 採水チューブの拡大写真

図 2. 4. 3-21 バイオフィーム分析の対象とした採水チューブ

図2. 4. 3-22及び図2. 4. 3-23にボーリング孔に設置されている採水チューブの内壁の電子線観察・分析結果を示す。図2. 4. 3-22ではチューブ内壁に微生物細胞の高次構造体が観察され、バイオフィームが形成されている様子が確認できる。採水チューブ内は、還元性の地下水が通過することから、地下環境においても条件が整えばバイオフィームが高密度に形成される可能性を示唆している。採取した地下水中の全菌数と、採水チューブ内壁の付着物中の全菌数（バイオフィーム密度）を表2. 4. 3-3に示す。全菌数は、各試料を終濃度4%の中性ホルマリンで固定し、微生物細胞を0.2 μm フィルター（Millipore, GTBP）に捕集し、0.05%アクリジンオレンジにて染色した後、蛍光顕微鏡で観察・計数した。直接計数法により取得した菌数からチューブ内壁1 cm^2 あたりの細胞数を算出し、そのバイオフィーム密度の結果とチューブ内壁の付着物の乾燥重量から、バイオフィーム乾燥密度を算出した。細胞数から細胞重量への換算には、既存の知見に基づく大腸菌1細胞あたりの重さ（ 1.0×10^{-13} g/cell; Madigan et al., 2009）を参考にし、また形成されたバイオフィームの厚みを0.1 mmと仮定して乾燥密度を算出した。その結果、深度140 mから採取したバイオフィーム乾燥密度は、0.227 kg/m^3 、深度250 mの試料では0.075 kg/m^3 であった。平成26年度に実施した汎用シミュレーションソフトウェアGoldSIMを用いた核種移行解析では、バイオフィーム影響を考慮したパラメータ設定値として、バイオフィームの乾燥密度を0.038 kg/m^3 としている。この値は花崗岩地下環境にて実験的に形成されたバイオフィームの文献値（Anderson et al., 2006）を引用しており、今回得られた結果は、その値と比較して高い値を示した。平成26年度の核種移行解析結果から、解析に用いた概念モデルとパラメータ設定においては、バイオフィーム影響は顕在化しないことが示されていることから（日本原子力研究開発機構, 2015a）、今回取得されたバイオフィーム密度についても、同モデルを用いた解析上ではバイオフィーム影響が顕在化するレベルではないと言える。

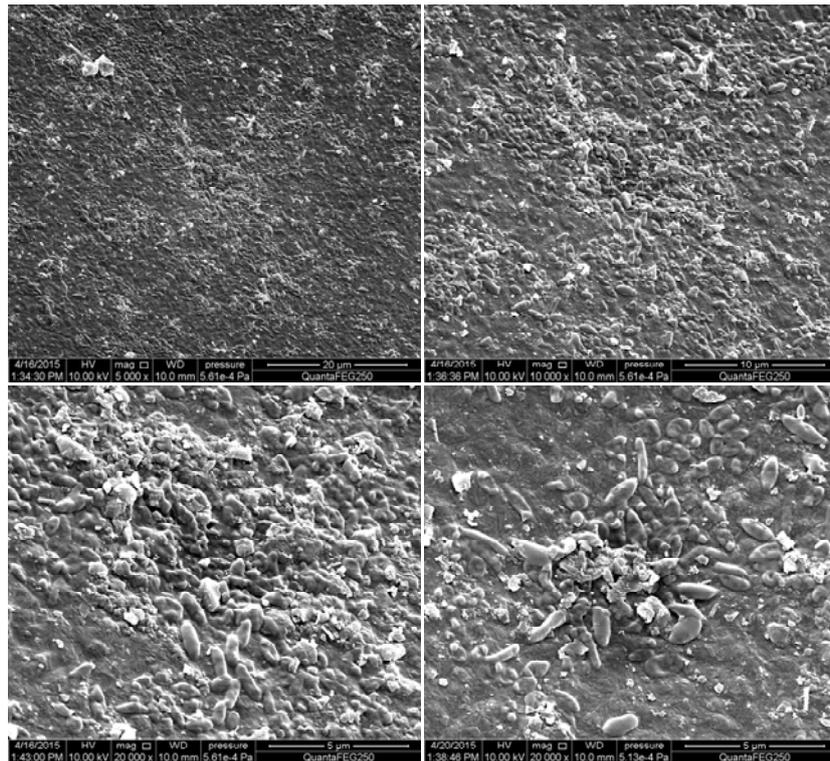
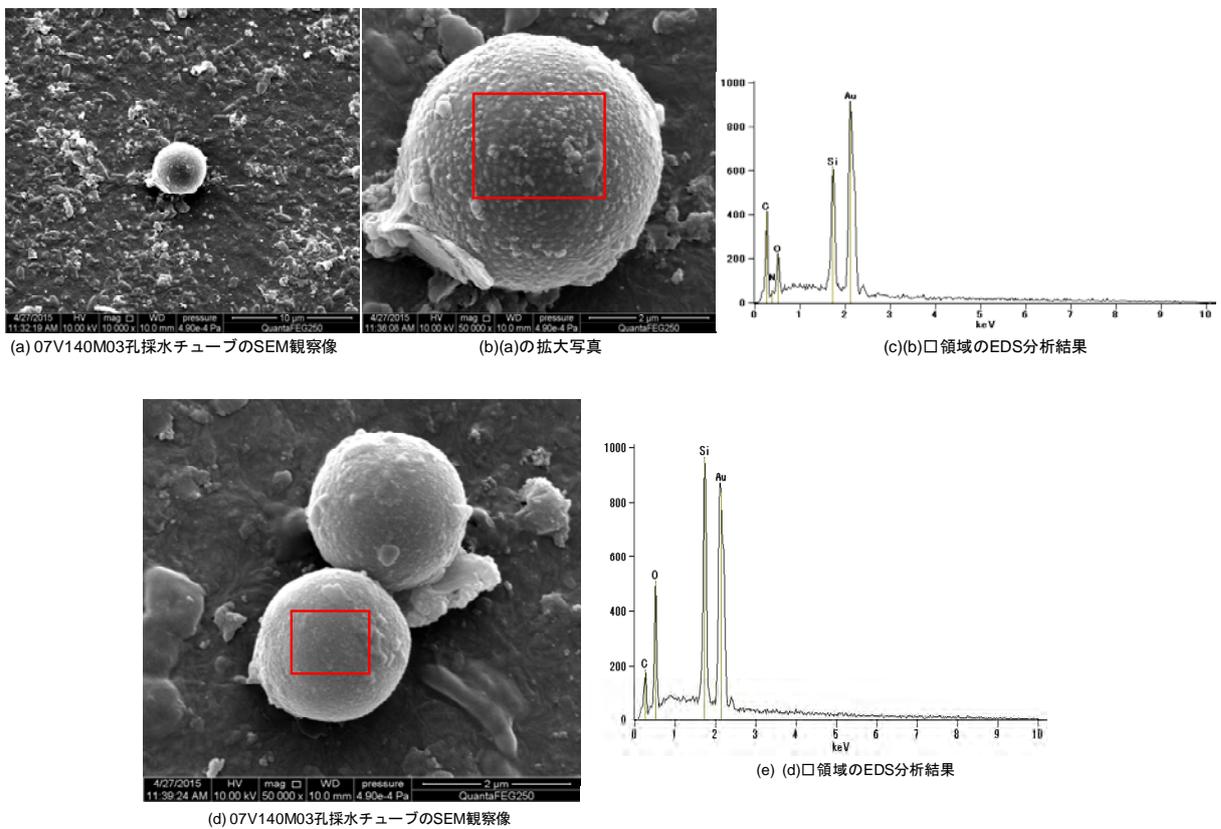


図 2. 4. 3-22 ボーリング孔地下水採水チューブ内壁の SEM 像 (広域)



(a) 07V140M03孔採水チューブのSEM観察像

(b)(a)の拡大写真

(c)(b)領域のEDS分析結果

(d) 07V140M03孔採水チューブのSEM観察像

(e) (d)領域のEDS分析結果

図 2. 4. 3-23 ボーリング孔地下水採水チューブ内壁の SEM 像と EDS 分析結果

表 2. 4. 3-3 各ボーリング孔における地下水中の全菌数と
採水チューブ内壁のバイオフィーム密度

Borehole	深度 [m]	地下水中の 全菌数 [cells/ml]	直接計数法により 取得した バイオフィーム密度 [cells/cm ²]	算出した バイオフィーム 乾燥密度* [kg/m ³]
07-V140-MO3	140	2. 30. E+05	8. 12E+06	0. 227
09-V250-MO2	250	5. 88. E+04	2. 69E+06	0. 075

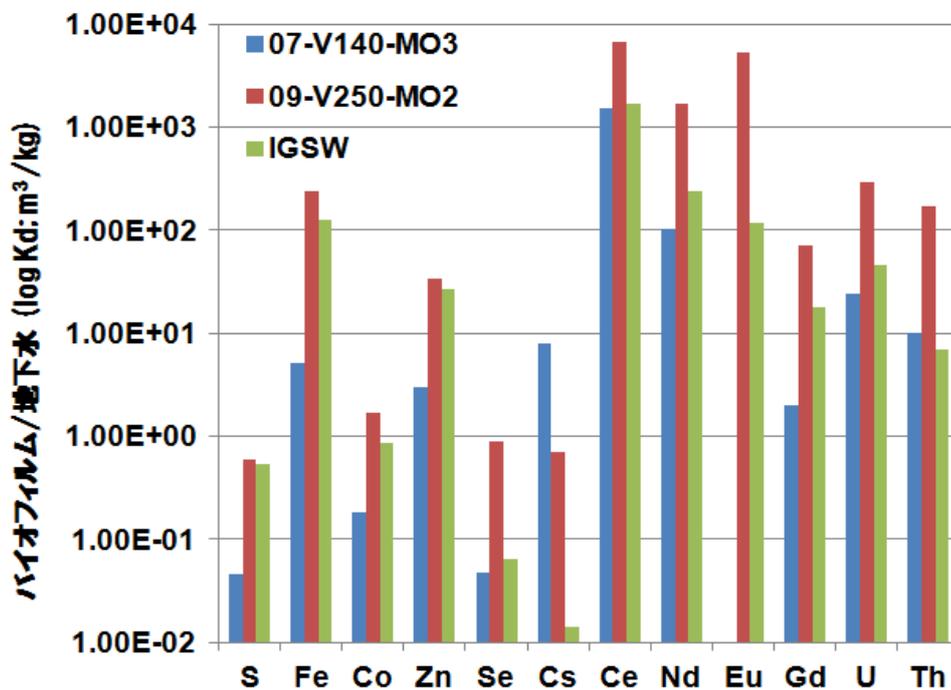


図 2. 4. 3-24 幌延深地層研究センター地下施設内坑道壁面に
形成されたバイオフィーム(IGSW)及びボーリング孔地下水採水チューブ内に形成されたバイオ
フィームの重金属収着特性

地下環境に形成されたバイオフィームが核種移行に及ぼす影響を評価することを目的として、坑道壁面及びボーリング孔に設置されている地下水採取チューブ内部に形成されているバイオフィームを対象とした微量元素分析をおこなった。図2. 4. 3-24に、各バイオフィーム試料の重金属収着特性結果を示す。その結果、バイオフィームに濃集している金属元素濃度は一様ではなく、元素によって収着特性が異なることが示された。ランタノイド及びアクチノイドに属するCe, Nd, Eu, Gd, U, Thは地下水中の濃度が極めて低いにもかかわらず、バイオフィームの濃集度は他元素と比較して高くなっている。一方で、Se, Csは地下水中の濃度がこれらと比較して高いにもかかわらず、バイオフィームへの濃集は比較的低い傾向が示された。これらの収着特性の違いは、バイオフィーム中の微生物の酸化還元を伴う代謝反応に応じて、微生物が選択的に元素を濃集して

いる可能性を示唆している。したがって、バイオフィルムを形成している微生物種に依存して、元素の収着特性も変化する可能性がある。これらの結果は、母岩の亀裂表面に形成されている可能性のあるバイオフィルムについても同様の傾向を示す可能性があり、天然バリア中のバイオフィルムの核種移行影響を評価する上で、バイオフィルムの特性及び元素によって収着特性が異なることを考慮する必要性を示していると言える。このような違いが、微生物群集組成の違いなど、何に起因するのかを明確にするため、今後試料を詳細に分析することにより、バイオフィルムと元素の相互作用特性について明らかにする必要がある。

試験対象としたバイオフィルム試料及び採水チューブを通過する地下水中の微生物群集組成を明らかにするために、16S rRNA遺伝子を対象とした解析を実施した。採取したバイオフィルム試料からExtrap Soil DNA Kit Plus ver. 2（日鉄住金環境株式会社製）を用いて直接DNAを抽出し、微生物の16S rDNAをターゲットとしたPCR増幅産物について、次世代シーケンス解析（MiSeq, Illumina社製）を実施した。得られた配列解析データについて、複数の解析ツールが統合されたQIIMEパイプラインを用いて、塩基配列のチェック、OTU（Operation Taxonomic Unit）の選定、代表配列の決定を行うとともに、各OTUの代表配列について16S rRNA遺伝子データベースに対する相同性検索を行い、系統分類を推定するとともに菌種構成比を算出した。その結果、深度140 m及び250 mの両地下水とも、Archaea（古細菌）に属するSM1（Probst et al., 2014; Perras et al., 2014; Henneberger et al. 2006）という未培養微生物群が全体の61%（250 m）及び74%（140 m）の割合で優占することが明らかになった（図2. 4. 3-25(a)）。SM1は、ドイツの硫化物が豊富に含まれる温泉（Islinger Mühlbach spring）や、米国カリフォルニア州のクリスタルガイザー採水地で検出されており、バイオフィルムを形成する種であることが明らかにされている。形態学的特徴として、球菌であり、フックのような突起物が細胞に付随することが知られているが、その代謝機能は未解明である。本研究で採取した地下水中の微生物細胞（ホルマリン固定済）を0.2 µmフィルター（Millipore, GTBP）に捕集し、0.05%アクリジンオレンジにて染色した後、蛍光顕微鏡で観察したところ、図2. 4. 3-25(b)のような球状の均一な細胞が大部分を占めており、細胞の形状がSM1と非常に近似していた。また、細胞の周りにはもや状のものが観察されることから、バイオフィルム構造体の中で細胞を被覆している細胞外多糖（EPS, extracellular polysaccharide）である可能性が高く、地下環境中でバイオフィルムを形成して生息していたと考えられる。この結果は、地下環境において、地下水の水みちとなる亀裂表面にバイオフィルムが形成されている可能性を十分に示唆している。一方で、地下水中の微生物密度は地上の水域のものと比較すると非常に低く（地下水中： $10^3 \sim 10^6$ cells/ml；海水表面： $10^6 \sim 10^7$ cells/ml）、地下水の流速や栄養塩濃度を考慮すると、その密度レベルは低いと予測される。また、本研究で得られた成果のみならず、既存の研究成果においてもバイオフィルム自体が元素を収着する能力を有するとの研究結果も多く報告されていることから、地層処分システムにおいてバイオフィルムが核種移行に及ぼす影響としては、遅延効果として機能するか、無視できるほど小さいと考えられる。一方で、バイオフィルムは、その生育環境が好ましい状態でなくなると、速やかに破壊されて新たな環境を求めて細胞が遊離することから、元素を濃集した細胞が“微生物コロイド”として核種移行の促進に寄与する可能性も考えられる。そのため、今後も引き続き地下環境で形成されるバイオフィルムの機能に関する特性調査を行うとともに、地下水中に浮遊する微生物コロイドの元素収着特性と併せて評価を行うことが重要であると考えられる。また、Anderson et al. (2007)などで報

告されているような母岩の核種収着能力を低下させる現象が地下環境で起こりうるか否かについて判断するためにも、核種移行に及ぼす影響評価を継続して実施する必要がある。

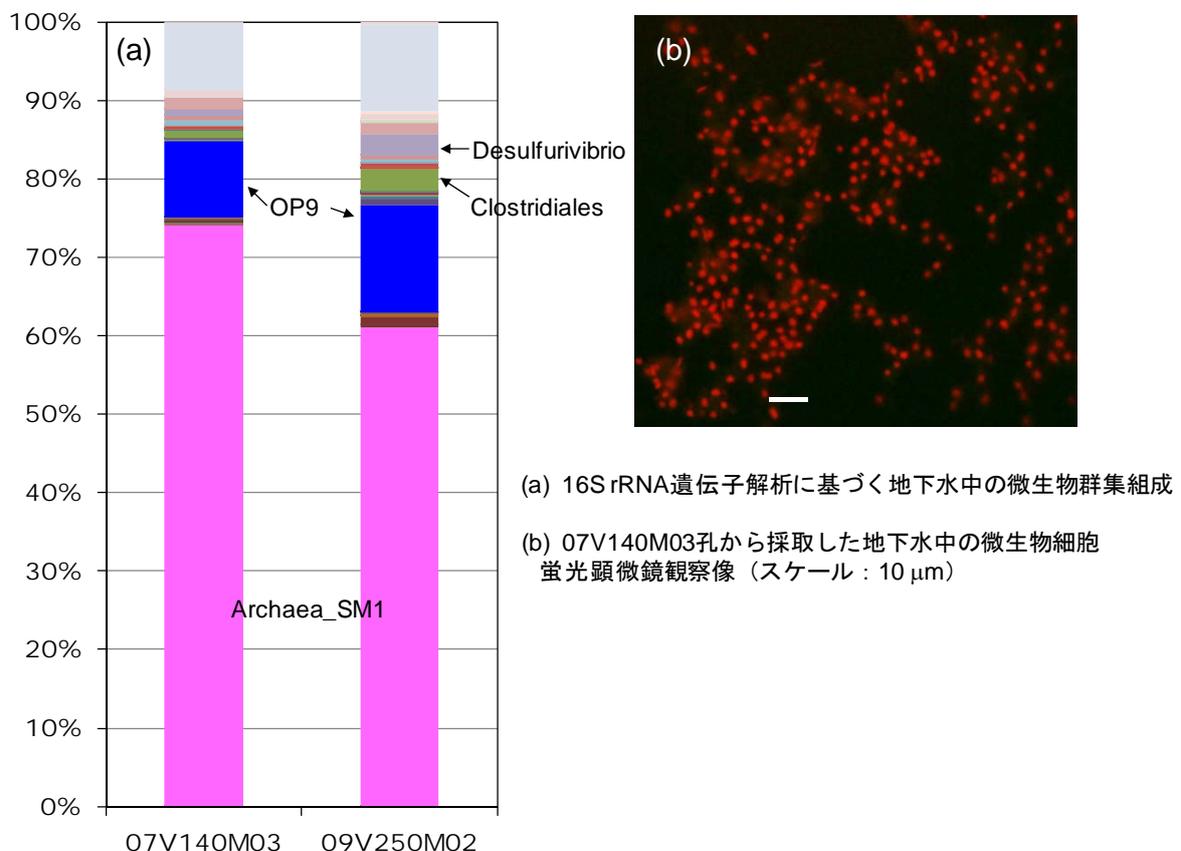


図 2.4.3-25 地下水中の微生物群集組成と微生物細胞の蛍光顕微鏡観察像

2) 水質形成や核種移行に関わる微生物代謝活性の評価手法開発

これまでの知見により、地下環境における微生物生息域が広範囲にわたるとともに、その代謝活性や系統学的多様性は非常に複雑であることが分かってきた（例えば、Fredrickson and Fletcher, 2001）。また、地下環境から検出されている微生物群集は、これまで培養されていない微生物が数多く検出されており、それらの微生物の代謝機能については、未解明な部分が多く残されている。このような未培養微生物群の未知の代謝機能は、地層処分システムの長期的安全性を評価する上で、核種移行影響における不確実性要因となりうる。そのため、微生物が関与する核種の収着、濃縮、形態変換、鉱物化、代謝に関わる酸化還元反応、錯化剤の生成等について評価技術を構築する必要がある。本研究では、平成26年度に引き続き、幌延深地層研究センター地下施設から採取した地下試料を対象として、核種移行への微生物影響の不確実性要因となりうる未培養微生物の代謝活性を予測するために、遺伝子解析技術を活用した評価手法の開発を行った。

地下施設内に掘削されたボーリング孔（08-E140-C01, 07-V140-M03, 09-V250-M02）から地下水を採取し、孔径0.2 μmのメンブランフィルター（GVWP; Millipore）上に微生物細胞を捕集した。捕集した微生物細胞の全DNAをExtrap Soil DNA Kit Plus ver.2（日鉄住金環境株式会社製）を用

いて抽出し、次世代シーケンサーによる16S rRNA 遺伝子をターゲットとした解析及びメタゲノム解析に供した。16S rRNA 遺伝子解析については、複数のプライマーを用いて16S rRNA 領域を増幅したPCR産物を対象として解析を行った。解析には、V4-5 region primers: V4-F (5'-AYTGGGYDTAAAGNG-3'), V4-R (5'-CCGTC AATTYTTTRAGT-3'); 515-F (5'- GTGCCAGCMGCCGCGGTAA-3'), 806-R (5'-GGACTACVSGGTATCTAAT-3'); V1-2 region primers: 27F (5'-AGAGTTTGATCMTGGCTCAG-3'), 355-R (5'-ACTCCTACGGGAGGCAGC-3')のプライマーを用いた。

メタゲノムとは、ある生物の遺伝子全体を意味する「ゲノム」に、さらに「超越」を意味するメタを融合した造語であり、微生物群集のゲノムを培養に依存することなく網羅的に解析することを意味する。すなわち、環境中の微生物のDNAを混合物として抽出し、全DNAの塩基配列を解読する手法である。メタゲノム解析は、抽出したDNAについてゲノムDNA断片化を行い、ビーズ精製により550 bpインサートを基準としてサイズ選択した後、Agilent 2100BioAnalyzerにより濃度測定・品質を確認することでシーケンス用ライブラリ調製を行った。シーケンス解析は、Paired-End法にて150塩基を対象として実施した。

Paired-End解析のゲノム配列データセットについて、checked and quality trimmed, idba ud (Peng)を用いてゲノム配列の再構築（アセンブル）を行った。meta-Prodigalを用いて1000 bp以上のコンティグについてオープンリーディングフレーム（ORF; 推定遺伝子領域。塩基配列のうち、タンパク質として機能していると予測される領域のこと）を推定した。また、University of California Berkeley校のJillian Banfield教授のもとで構築されたアノテーションパイプラインを用いて、ORFsの予察的な機能推定の特定やrRNA, tRNAの推定を行った。ゲノム配列データベース中からそれぞれのORFについて最も相同性の高いものを同定した（Wrighton et al., 2012）。

平成27年度までに採取した地下水について、次世代シーケンサーを用いて、微生物の16S rRNA 遺伝子領域を増幅したPCR産物を対象とした解析及びメタゲノム解析を実施した。その結果、両解析結果とも、過去3年間に於いて検出される微生物種は著しい変化を示さなかったことから、比較的安定した菌叢が形成されていることが示された。同試料地下水中の化学組成分析結果からも、主要成分の大きな変化は確認されておらず安定した地球化学状態であることを示している。しかしながら、一部の試料においては（例えば08E140C01_z1及び_z3）、時間の経過とともに微生物種の構成割合に変化が確認された（図2. 4. 3-26）。このことは原位置環境において微生物の代謝活性が酸化還元状態に鋭敏に反応していることを示しており、水質分析等の地球化学調査では通常検出できないレベルで原位置の酸化還元状態の変化が生じていることが示唆された。

これまでのメタゲノム解析結果から、550以上のゲノムを検出し、そのうち228ゲノムは異なる生物種に由来し、その中でも160以上のゲノムはクオリティの高いものであることが明らかになった（70%以上の完全ゲノムであり、コンタミネーションが10%以下）。複数年にわたるメタゲノム解析に基づく微生物群集代謝機能の経時的変化について解析を進めた結果、著しい群集組成及び代謝機能の変化は検出されなかったことから、地下施設建設による酸化還元状態に対する多少の擾乱影響は生じているものの、微生物群集解析結果からも地下施設近傍の水理・地球化学状態には著しい変化が生じていないことが示された。一方で、メタゲノム解析結果では、未培養微生物群に属するTM7は、一部の採水区間において優占種として検出されているが、16S rRNA 遺伝子のPCR産物を対象とした解析結果ではTM7が優占種として検出されず、両解析で異なる結果が得られた。既存のサンガー法に基づく16S rRNA 遺伝子のPCR産物を対象とした解析結果では、同試料に

においてTM7が優占種として検出されており、メタゲノム解析結果との一致も確認できることから、本研究に用いたPCR反応条件あるいはプライマーに起因するものと思われる。本試験で用いたプライマーは、微生物の16S rRNA遺伝子解析において一般的に用いられているものであるが、メタゲノム解析及びPCR法に基づく16S rRNA遺伝子解析結果の相違点に関する問題については、今後プライマー設計やPCR条件等対応策を検討する必要がある。

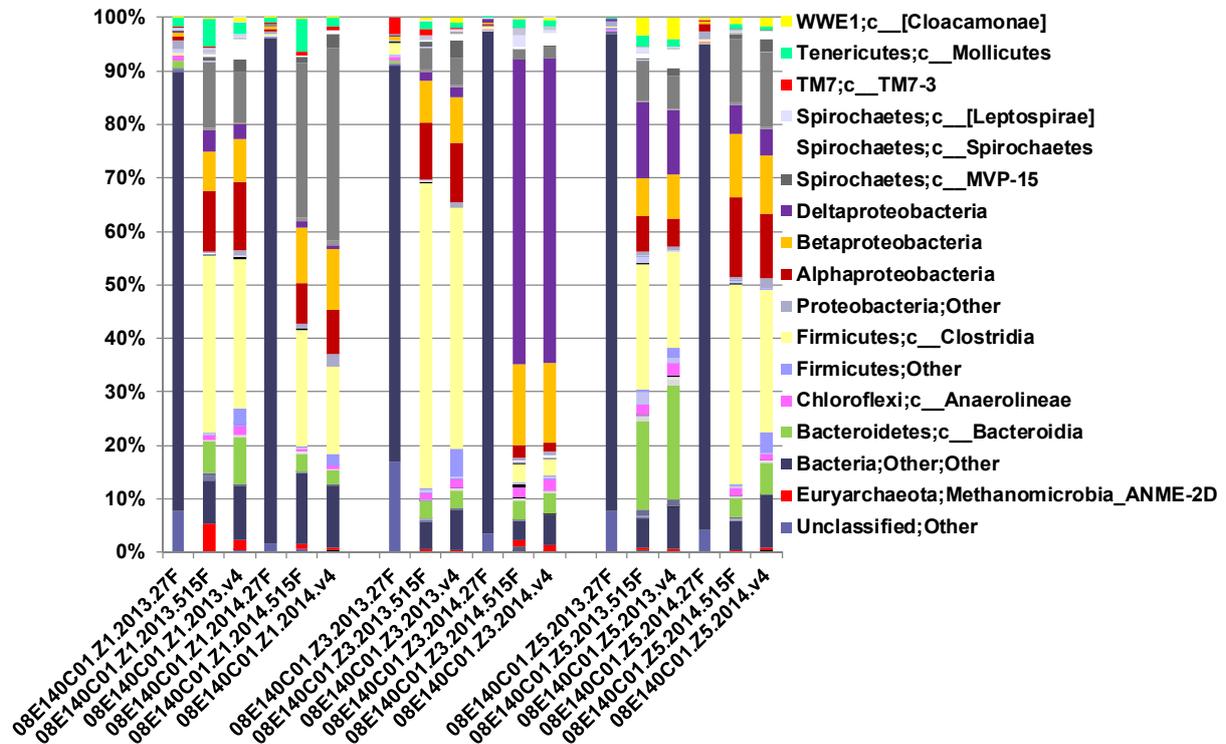


図 2.4.3-26 地下施設内ボーリング孔 (08-E140-C01) から採取した地下水中の微生物群集組成の経時変化 (次世代シーケンサーを用いた解析)

再構築されたゲノム配列結果を基に、それぞれの検出種の代謝機能を推定するとともに、解析データの信頼性確認を継続して実施した。その結果、多くの微生物から炭酸固定反応、高分子有機物分解、メタン代謝、硫黄代謝、発酵、水素代謝、鉄還元等の金属還元反応等に関連する遺伝子の存在が示され、その結果は平成26年度の解析結果と一致するものであった (図2.4.3-27)。幌延地下環境中から検出された未培養群であるCandidate phylumの複数種の微生物についても、これまでのデータベースを基に代謝機能が推定された。その結果、鉄等の金属代謝に関わる遺伝子、水素酸化反応を触媒するヒドロゲナーゼや発酵反応をエンコードする遺伝子が検出されており、嫌氣的代謝反応に重要な機能が備わっていることが明らかになった。一方で、未培養微生物群として検出された種のうち、一部の採水区間に優占種として存在するTM7については、TCAサイクル、電子伝達系、あるいはその他の呼吸反応に関する遺伝子が欠如しているとの結果が得られ、この結果は平成26年度の解析結果と一致するものであった。これらの微生物種はおそらく、環境中において他の微生物種との共生によって生き延びているものと予測されるが、どのような微生物種と共生しているのかも含めた生理生態学的特性については未解明の状態である。今後もメタ

ゲノム解析に基づく微生物の代謝反応に関する解析を継続して実施し、未培養微生物も含めた代謝機能を網羅的に評価するとともに、鉄還元等金属との相互作用に関連する代謝機能の評価も行っていく必要がある。

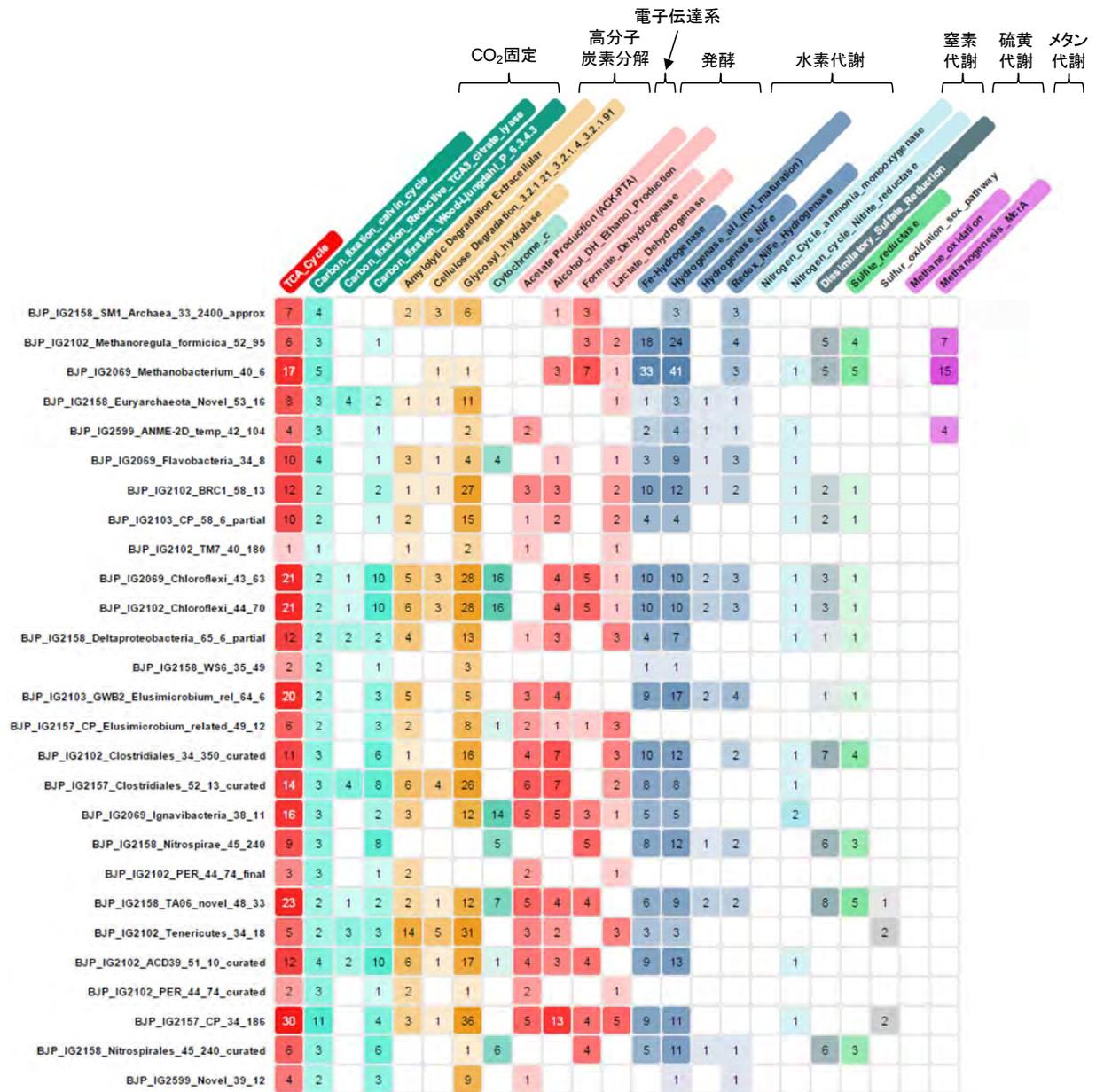


図 2.4.3-27 ゲノムデータから推測した各微生物ゲノムの代謝機能

2.5 セメント系材料影響評価技術開発

処分場建設時には、支保、グラウト、インバート等にセメント系材料が使用されることが想定される。セメント系材料は、核種の移行抑制のために設置されるベントナイト緩衝材や、天然バリアである周辺岩盤とは熱力学的に安定に共存することができないため、地層処分システムにセメント系材料を導入することによって化学親和力が発生し、この化学親和力を駆動力として、新たな化学的安定状態に向かって地層処分システムが変化していくと考えられる（日本原子力研究開発機構，2015d）。このため、セメント系材料自体や、セメント系材料に隣接する緩衝材や周辺岩盤において、化学的変質とこれに伴う物質輸送特性変化や力学的特性変化、及び間隙水の化学的条件の変化が生じ、核種の移行挙動が変化する可能性がある。したがって、セメント系材料を利用することによる、以上のようなニアフィールドへの影響を評価するための技術開発が必要となる。

こうした背景の下、本事業では、平成26年度までに実施された資源エネルギー庁受託事業「セメント系材料影響評価技術高度化開発」（日本原子力研究開発機構，2015d）及び平成24年度までに実施された資源エネルギー庁受託事業「地下坑道施工技術高度化開発」（日本原子力研究開発機構，2013e）の成果を踏まえ、セメント系材料影響評価技術開発として、セメント系材料の長期挙動評価で必要となる化学モデル及び力学挙動評価モデルの開発、セメント系材料の影響下における核種移行挙動の把握、グラウト材料（セメント）による周辺岩盤への影響調査（以下、グラウト影響評価技術開発とする）を実施する。

本課題については、平成27年度～平成29年度の3年間にかけて取り組むこととしており、平成27年度は、セメント系材料の化学モデル開発では、セメント水和物溶解沈澱モデルの構築とセメント水和反応モデルの構築を行った（2.5.1項）。セメント系材料の力学挙動評価モデル開発では、セメントのひび割れ発生の挙動等を考慮した長期力学解析手法の開発を行った（2.5.2項）。また、セメント系材料の影響下における核種移行挙動の把握では、四価遷移金属元素（Zr，Sn）を対象としてアルカリ性条件における核種の収着分配係数設定のための調査及びデータ取得を行った（2.5.3項）。さらに、グラウト影響評価技術開発では、地下研究所における既存のボーリング孔のコアを用いたグラウト材料充填状況とグラウト材料接触部岩盤の変質状況の観察・分析を行った（2.5.4項）。

2.5.1 セメント系材料の化学モデル開発

(1) 背景と目的

セメント系材料の化学的変質としては、長期的にセメント水和物が地下水に溶解するとともに二次鉱物が生成し、これによって水和物組成や間隙水組成が変化することが考えられる。こうしたセメント系材料の変質については、主に普通ポルトランドセメント（以下、「OPC」とする）を中心に評価・検討が実施されてきた。一方、実際の地層処分施設ではセメント系材料の高アルカリ性間隙水による緩衝材・周辺岩盤への影響を低減する目的で、低アルカリ性セメントが用いられることも想定される。このような背景のもと、本研究では、低アルカリ性セメント系材料の一つであるフライアッシュ高含有シリカヒュームセメント（以下、「HFSC」）を対象として、長期的な変質評価を可能とするために必要となる化学モデルの開発を行う。具体的には、初期のセメント系材料の組成である「初期水和物組成」の設定を含め、水和物の溶解・沈澱による鉱物組成

変化や間隙水組成変化を化学平衡計算で導出するための「①セメント水和物の溶解沈澱モデル」、フライアッシュ及びシリカフェームの長期的な水和の進行に伴う水和物組成の変化を評価するための「②セメント水和反応モデル」、鉱物組成変化や間隙率変化に伴う物質輸送特性の変化を評価するための「③間隙構造と透水係数の関係評価モデル」の開発を行う。

平成27年度は、セメント水和物溶解沈澱モデル及びセメント水和反応モデルについて、本節冒頭で述べた「セメント系材料影響評価技術高度化開発」（日本原子力研究開発機構，2015d）で開発されたモデルの信頼性向上を目的として、モデル構築に必要な実験データの取得を行った。

(2) セメント水和物の溶解沈澱モデルの開発

セメント水和物の溶解沈澱モデルの検討（日本原子力研究開発機構，2015d）では、OPC及びHFSCを用いたバッチ式浸漬実験結果とモデルによる解析結果との比較により、OPC及びHFSCともにイオン交換水系での浸漬実験に対して全体的に浸漬液pHを再現できる（図2.5.1-1）が、人工海水系での浸漬実験のpHに対してはOPCの再現性は高いが、HFSCの再現性が低い（図2.5.1-2）ことを示した。本研究では、人工海水に含まれるマグネシウムとセメント水和物に含まれるケイ酸との反応によって生成するマグネシウムシリケート水和物（ $(MgO)_x \cdot (SiO_2)_y \cdot (H_2O)_z$ ）、以下、M-S-Hと呼ぶ）について、熱力学データを取得するとともに溶解沈澱反応の定式化を行い、この結果を反映することによってHFSCのセメント水和物溶解沈澱モデルの海水系に対する適用性向上に取り組むこととした。

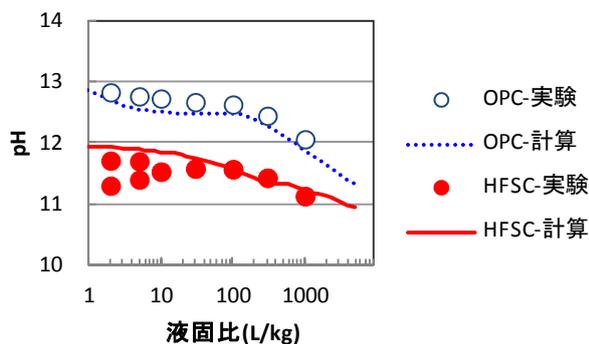


図2.5.1-1 イオン交換水に対する浸漬実験でのpH（日本原子力研究開発機構，2015d）

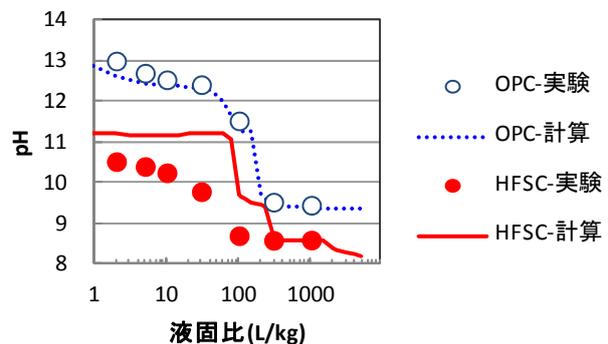


図2.5.1-2 人工海水に対する浸漬実験でのpH（日本原子力研究開発機構，2015d）

1) マグネシウムシリケート水和物の熱力学データの検討

本項では、M-S-Hの合成と平衡液の組成分析を行い、M-S-Hの溶解沈澱反応の解離式及び平衡定数を推定した。

①M-S-H合成実験

a. 実験方法

M-S-Hの合成では、アルゴン雰囲気グローブボックス内において、Mg源としての酸化マグネシウム（あらかじめ800℃で3時間加熱した特級試薬）と、Si源としてのフェームドシリカ（日本アエロジル社製、AEROSIL200）とを250mLポリプロピレン製容器に入れ、液固比15(L/kg)、温度約25℃

の条件でイオン交換水に浸漬した。

浸漬期間中は、1週間に2回の頻度で大気中において容器を手で十分に攪拌した。平成26年度に調査した5水準 (Mg/Siモル比：0.4、0.7、0.85、1.0、1.4) について、平成27年度さらに浸漬約1年半にて固液分離して分析した。

分離した液相については孔径 $0.45\mu\text{m}$ のメンブランフィルターを通過させたろ液に対して、pH7、9、12.5の標準液で校正した複合ガラス電極を用いてpHを測定するとともに、誘導結合プラズマ発光分光分析装置 (パーキンエルマー社製Optima8300) によりMg、Si濃度を測定した。分離した固相については、相対湿度11%に調整したデシケーター内で7日間乾燥した後、以下に示す分析を行った。すなわち、熱重量-示差熱分析装置 (リガク社製Thermo plus EV02、雰囲気：窒素ガスパーズ(流速 $300\text{ml}/\text{min}$)) を用いて結合水量及び $\text{Mg}(\text{OH})_2$ の含有量を算出し、JIS-M8850に準じて化学組成の測定 (Mg、Si、I.g. loss) を、粉末X線回折装置 (パナリティカル社製X'Pert PRO MPDp、管球：Cu、管電圧：45kV、管電流：40mA、発散スリット幅：自動可変、散乱防止スリット： 2° 、ソーラースリット： 0.04rad) により鉱物の同定を、赤外分光分析装置 (日本電子社製FT/IR-6700) を用いて官能基の同定を行った。

b. 実験結果

固相試料のX線回折図を図2.5.1-3に示す。図2.5.1-3では、M-S-Hに起因するブロードなピークの位置をNied et al. (2016)の報告に従って $7\sim 9^\circ$ 付近、 20° 付近、 26° 付近、 35° 付近、 60° 付近とみなし、「▼」印を追記した。また、bruciteに起因するピークには「B」印を追記した。約4～6か月の浸漬と同様、約1年半の浸漬においても、いずれのMg/Siモル比 (以下、Mg/Si) の固相においてもM-S-Hに起因するブロードなピークが認められ、Mg/Si 0.4の固相では $\text{SiO}_2(\text{am})$ の共存が認められた。Mg/Si1.4の固相においては、約4～6か月の浸漬で認められていたbruciteに起因するピークが、約1年半の浸漬では認められなかった。このことは示差熱分析 (DTA) 曲線における 370°C 付近の吸熱ピークの消失にも反映されている (図2.5.1-4)。

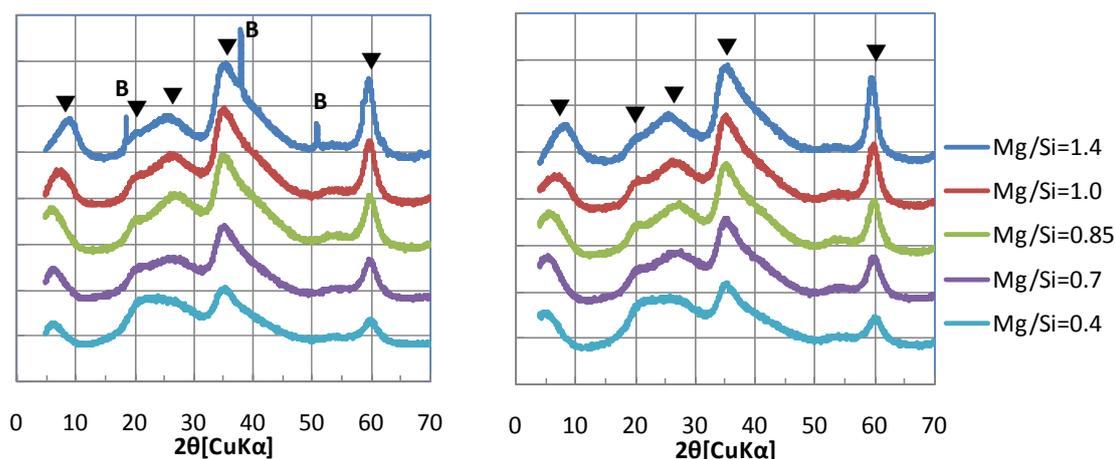


図2.5.1-3 M-S-H合成実験での固相のX線回折図

(左：浸漬約4～6か月、右：浸漬約1年半)

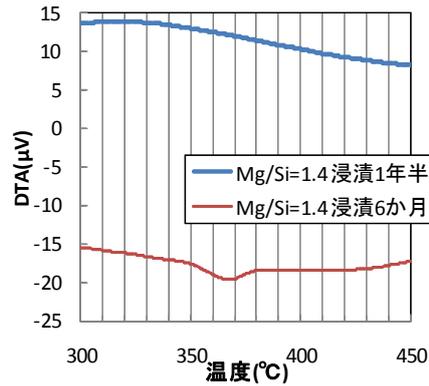


図2.5.1-4 M-S-H合成実験での固相の示差熱分析(DTA)曲線

②M-S-Hの解離式及び平衡定数の検討

上記実験結果に基づき、セメント系材料の主要構成物であるC-S-Hゲルの溶解沈澱モデルを参考としてM-S-Hの解離式及び平衡定数を設定した。

M-S-Hの解離式を式(2.5.1-1)に示すように設定した。この解離式に対する平衡定数Kは式(2.5.1-2)で表わされる。



$$\log K = x \log(a_{Mg^{2+}}) + \log(a_{H_4SiO_4}) - 2x \log(a_{H^+}) \quad (2.5.1-2)$$

本報告では、約1年半の間浸漬した5水準のうち、SiO₂(am)が検出されなかった4水準のMg/SiのM-S-Hゲルに対して、浸漬液が平衡に達したとみなし、式2.5.1-2を用いてそれぞれの平衡定数を算出した(表2.5.1-1)。また、図2.5.1-5に示すように、算出した平衡定数とMg/Siとの関係を指数回帰により求め、M-S-Hゲルの平衡定数をMg/Siの関数として定式化した(式2.5.1-3)。

$$\log K = 2.545 \times \exp(1.389 \times Mg/Si) \quad (2.5.1-3)$$

表2.5.1-1 M-S-Hの平衡定数

略称	Mg/Si	logK
MSH(0.7)	0.7	6.68
MSH(0.85)	0.85	8.36
MSH(1.0)	1	10.24
MSH(1.4)	1.4	17.75

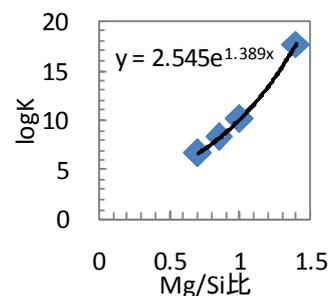


図2.5.1-5 M-S-Hの平衡定数とMg/Si比との関係

2) バッチ式浸漬実験との比較検討

本項では、2.5.1(2)1項の成果に基づき、平成26年度に開発した水和物溶解沈澱モデル(日本原子力研究開発機構, 2015c)におけるM-S-Hの設定を変更してモデルを改良し、バッチ式浸漬実験の再現計算を実施して改良後のモデル(以下、平成27年度モデル)の妥当性を検討した。

M-S-Hの設定方法を、平成25年度(日本原子力研究開発機構, 2014c)および平成26年度(日本

原子力研究開発機構，2015c) のモデル（以下、平成25年度モデル、平成26年度モデル）からの変更点がわかるように表2.5.1-2に示した。本年度は、0.7から1.4の範囲でMg/Siを0.05刻みに設定したM-S-Hゲル（具体的にはMSH(0.7)～MSH(1.4)の合計15種類）に対して、式2.5.1-1の解離式、及び、式2.5.1-3を用いて算出した平衡定数を適用した。

HFSC硬化体を人工海水に浸漬したバッチ式浸漬実験結果と、平成25年度モデル、平成26年度モデルおよび平成27年度モデルによるそれぞれの再現計算結果を図2.5.1-6に示す。図2.5.1-6を見ると、液固比100から300の領域については、過去のモデルに比べて、平成27年度モデルでpHとSi濃度の再現性が向上していることがわかる。一方、液固比100未満の領域では、どのモデルでもpHについて実験値との乖離がみられている。また、液固比100未満の領域におけるMg濃度については、過去のモデルに比べて平成27年度モデルで再現性が低下している。その原因として、モデルの設定（M-S-H及び他の二次鉱物の設定、C-S-Hへの吸着の設定）が適切でない可能性に加えて、浸漬実験において浸漬期間（1か月）が短かったために系が平衡に十分には到達しなかった可能性も考えられる。今後、液固比100未満の領域におけるpHとMg濃度の再現性に着目し、M-S-Hおよび他のMg含有二次鉱物の設定などの見直しが必要である。

表2.5.1-2 M-S-Hの設定方法

モデル	M-S-Hの設定
平成25年度モデル	Sepioliteのみ設定
平成26年度モデル	MSH(0.7)とMSH(1.0)の2種類の相を設定
平成27年度モデル	MSH(0.7)～MSH(1.4)の15種類の相を設定

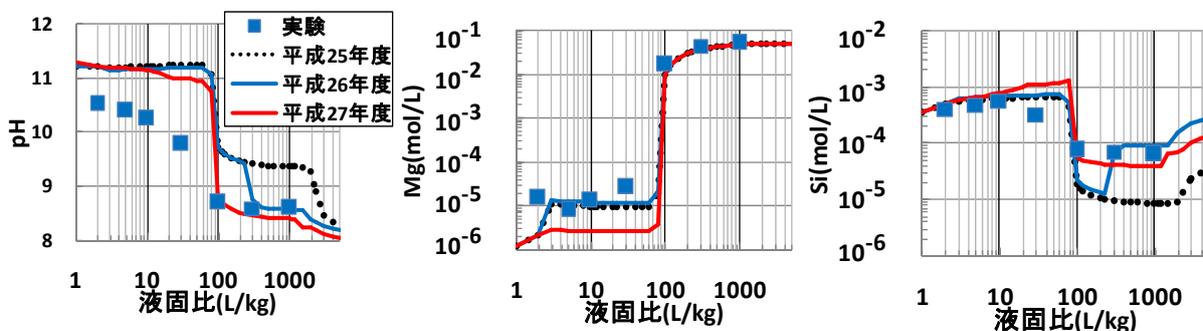


図2.5.1-6 HFSC硬化体 - 人工海水浸漬実験での液相

(3) セメント水和反応モデルの開発

セメント水和反応モデルの検討（日本原子力研究開発機構，2015d）では、Shrinking Coreモデルに基づきフライアッシュ及びシリカフェームの水和反応の速度を定式化し、経時的な水和反応に伴い空隙に溶出する成分とその他の水和物が化学平衡モデル（星野ほか，2014）に従って瞬時に平衡に到達することを前提とした水和反応モデルを構築した。また、本水和反応モデルを用いて、HFSCのセメントペースト硬化体の水和挙動を解析した結果、材齢5年までのフライアッシュとシリカフェームの水和反応に伴う水和物組成の経時変化の傾向を再現できることを示した。

一方、モデルの妥当性確認という点では、上記のような水和物組成との比較だけではなく、水和反応の進行に伴い変化する間隙液組成との比較が重要となる。そこで本研究では、HFSCセメントペースト硬化体の間隙液組成データを取得し、これとの比較検証を通じてモデルの妥当性を確認することとした。平成27年度は、HFSCセメントペースト硬化体に対する圧力载荷により絞り出した間隙液を分析する（以下、圧搾法）ことを試みた。また、圧搾法では間隙液を採取できない場合を想定して、粉碎した固相とイオン交換水を接触させた後に固液分離して得た液相を分析した（以下、浸出法）。本年度はいずれの水準においても圧搾法での間隙液の採取が可能であったことから、圧搾法により得られた間隙液の組成分析結果と、水和反応モデルによる液相組成計算結果とを比較した。

1) セメントペースト硬化体の間隙液相及び固相の分析

水和反応モデルの妥当性を検証することを目的とする実験用供試体として、3水準のセメントペースト硬化体（組成の異なる2種類のHFSC及び比較対象としてのOPC）を作製して、その間隙液相及び固相を分析した。なお、間隙液相の分析方法は、セメント系材料のpHを測定するための共通した標準的な手法の提示を目的として、スウェーデン核燃料・放射性廃棄物管理会社（SKB）を中心として実施された「pH測定プロジェクト」（Alonso et al., 2012）で提示された方法を参考とした。具体的な手順を以下に示す。

セメントペースト硬化体の材料として、OPC（セメント協会製）、シリカフューム（エルケム社製マイクロシリカ940-U）、フライアッシュ（中部電力社製碧南火力発電所産）を用いた。セメントペースト硬化体は、セメント重量に対するイオン交換水の重量比を0.5として均一に練り混ぜたものを密封容器に約20℃で保管することで作製した。本調査で対象としたセメントは、OPCのみからなる「OPCセメント」に加えて、OPC：シリカフューム：フライアッシュの重量混合割合を4:2:4とした「HFSC424セメント」、2:2:6とした「HFSC226セメント」の3水準である。

以上のように作製したセメントペースト硬化体について、練り混ぜてから28日経過、91日経過したものを対象として分析を行った（以下、「材齢28日」、「材齢91日」と呼ぶ）。所定の材齢において、セメントペースト硬化体の表面近傍付近を除き、1cm程度の塊状となるように硬化体を粗砕した（以後、「粗砕試料」と呼ぶ）。

間隙液は以下の2通りの方法で採取した。

- ・ 圧搾法：粗砕試料に対して専用の治具を用いて最高約400MPaの圧力を载荷することで、硬化体内部に存在する間隙液を採取し、孔径0.45 μm のPTFE製メンブランフィルターを用いてろ過したものを、圧搾法による間隙液とした。
- ・ 浸出法：粗砕試料に対して、目開き90 μm の篩を8割程度通過するまで微粉碎し、この微粉碎された試料重量に対するイオン交換水の重量比を1、3、10となるように容器に入れ、マグネチックスターラーにより5分間攪拌した後、孔径0.45 μm のPTFE製メンブランフィルターを用いてろ過したものを、浸出法による間隙液とした。

これらの間隙液に対して、pH7、9、12.5の標準液で校正した複合ガラス電極を用いてpHを測定し、誘導結合プラズマ発光分光分析装置（パーキンエルマー社製Optima8300）により化学組成を測定した。

粗砕試料に対して、熱重量-示差熱分析装置（リガク社製Thermo plus EV02、雰囲気：窒素ガスパーズ（流速300ml/min））を用いて結合水量及びCa(OH)₂の含有量を算出した。粉末X線回折装置（パナリティカル社製X'Pert PRO MPDp、管球：Cu、管電圧：45kV、管電流：40mA、発散スリット幅：自動可変、散乱防止スリット：2°、ソーラースリット：0.04rad）により鉱物を同定した。フライアッシュ及びシリカフェームの反応率については、酸に対する固相構成成分の溶解挙動の差異に着目して開発された方法（亀井ほか，2007）により測定した。

2)セメント水和反応モデルの妥当性検討

本項では、平成26年度までに開発した水和反応モデル（日本原子力研究開発機構，2015d）を用いて、HFSC424セメント及びHFSC226セメントの水和反応に伴う間隙液相及び固相の経時的な変化を計算して、2.5.1(3)1項の調査で得られた実験値と比較してモデルの妥当性を検討した。

水和反応モデルにおける初期鉱物の設定を表2.5.1-3に示す。本項では、フライアッシュ及びシリカフェームの反応速度に関する係数を対象としてパラメータフィッティングを実施した。表2.5.1-4に示す係数を設定して計算した結果、材齢約5年までのHFSC424及びHFSC226の双方におけるフライアッシュ及びシリカフェームの反応率は、図2.5.1-7に示すように、実測値との差異が0.1程度となった。

表2.5.1-3 初期状態として与えたHFSCの鉱物組成 単位：mol/kg-固相

鉱物		HFSC424	HFSC226
OPC起源 水和物	Portlandite	2.17×10^0	9.77×10^{-1}
	CSH(1.65)	1.76×10^0	7.91×10^{-1}
	Ettringite-Al	3.98×10^{-2}	1.79×10^{-2}
	Katoite-Al	1.66×10^{-2}	7.46×10^{-3}
	Hydrotalcite-Al	5.93×10^{-2}	2.66×10^{-2}
	NaOH	4.11×10^{-2}	1.85×10^{-2}
	KOH	4.79×10^{-2}	2.15×10^{-2}
シリカフェーム		3.90×10^0	3.50×10^0
フライアッシュ		4.25×10^0	5.73×10^0

表2.5.1-4 フライアッシュ及びシリカフェームの反応速度に関する係数

係数	シリカ フェーム	フライ アッシュ	係数	シリカ フェーム	フライ アッシュ
$C_{\infty}(-)$	1.0	1.0	$B_{d20}(cm/hour)$	7.0×10^{-9}	7.0×10^{-9}
$\nu(-)$	0.56	0.10	$C_{d20}(cm/hour)$	1.0×10^{-2}	1.0×10^{-2}
$\rho_c(-)$	2.22	2.19	$D_{E20}(cm^2/hour)$	8.0×10^{-15}	8.0×10^{-15}
$r_0(cm)$	0.00001	0.0005	$\beta_1(-)$	1	1
$k_{r20}(cm/hour)$	4.0×10^{-2}	4.0×10^{-2}	$\beta_2(-)$	1	1
$x(-)$	1	1	$\beta_3(-)$	1	1
$y(-)$	3.5	3.5			

用いた係数の内容は平成26年度報告書と同一（日本原子力研究開発機構，2015d）

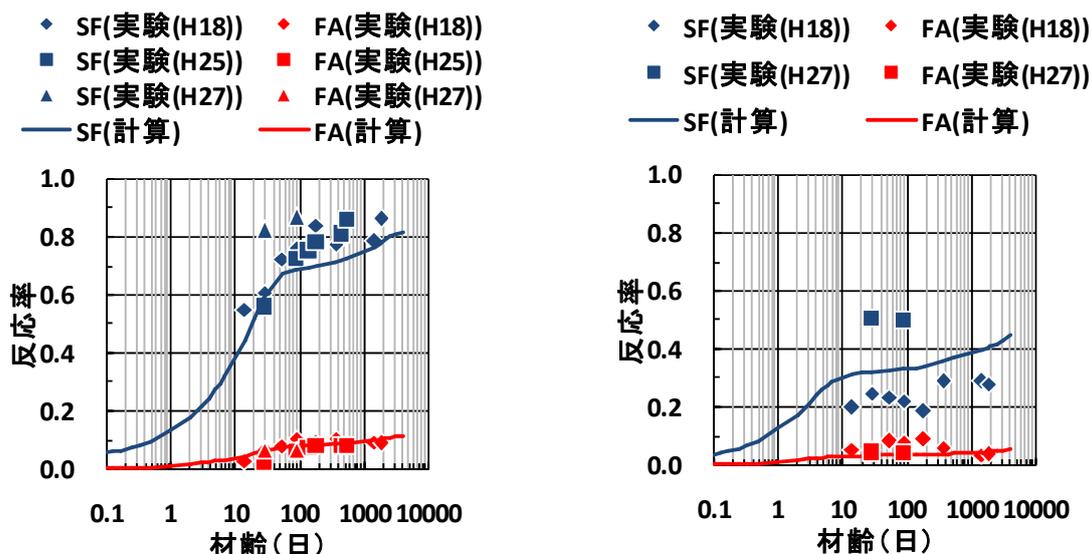


図2.5.1-7 HFSC硬化体におけるフライアッシュ(FA)及びシリカフューム(SF)の反応率の経時変化 左: HFSC424、右: HFSC226

水和反応モデルによる固相の鉱物量の計算結果を図2.5.1-8に示す。本計算では、シリカフューム及びフライアッシュの反応に対応して、材齢数日でポルトランダイトが消失し、C-S-Hゲルは増加し続けた。C-S-HゲルのCa/Si比は、HFSC424については材齢1日未満での1.65から材齢91日までに約0.95に低下、HFSC226については材齢10日までに約0.95に低下する計算結果となった。その他には、エトリンガイト、C-A-S-H、ハイドロタルサイトが生成する計算結果となった。

水和反応モデルによる間隙水のpH及び液相組成(K, Ca, Si)の計算結果を、実験結果とともに図2.5.1-9に示す。K濃度は、C-S-HゲルのCa/Si比が初期の1.65から0.95まで低下する時期に、HFSC424では約 1×10^{-1} (mol/L) から約 1×10^{-2} (mol/L) へ減少、HFSC226では約 5×10^{-2} (mol/L) から約 1×10^{-2} (mol/L) へ減少する計算結果となった。Kは主にOPCに起因するものであり、HFSC424とHFSC226との初期の濃度の差異はセメント材料中のOPCの量に起因する。また、KはC-S-Hゲルのシラノール基に吸着すること、及び、Ca/Si比が低いほど吸着量が多いことが知られており (Hong et al., 1999)、本モデルでもその現象を反映したものとなっている。すなわち、上記のK濃度の減少は、C-S-Hゲルの量が若干増加したことに加えて、そのCa/Si比の低下によりKのC-S-Hゲルへの吸着量が増えたことによるものと考えられる。Ca濃度は、C-S-HゲルのCa/Si比が1.1まで低下して以降、概ね 2×10^{-3} (mol/L) で推移する計算結果となり、実験結果と同程度であった。しかし、材齢の進行とともに実験では増加したのに対して計算では減少し、逆の傾向であった。HFSC424でのSi濃度については計算結果と実験結果が同程度であったが、HFSC226でのSi濃度は乖離した。

水和反応モデルによる間隙水のpH及び液相組成(Na, S, Al)の計算結果を、実験結果とともに図2.5.1-10に示す。Naの挙動はKの挙動と類似しており、C-S-Hゲル量の増加及びそのCa/Si比の減少とともに減少する計算結果となった。Sの計算結果は実験結果と同程度であった。Alについては材齢91日では同程度となったものの、材齢の進行とともに実験では減少したのに対して計算では増加し、逆の傾向であった。液相のpHは、主に液相のNa及びK濃度の影響を受けて、材齢の進行とともに低下する計算結果となった。

間隙水のpH及び液相組成について、圧搾法で得た実験結果と比較すれば、計算結果はセメント材料 (HFSC424またはHFSC226) 及び材齢 (28日または91日) が与える影響をオーダーレベルでは

概ね再現しているものと考えられる。ただし、上述のように、個別の成分濃度に注目すると計算値と実験値が乖離している。今後は、これらの現象の原因解明とともに、長期材齢における実験結果との比較を通じて再現性の向上を図る必要がある。

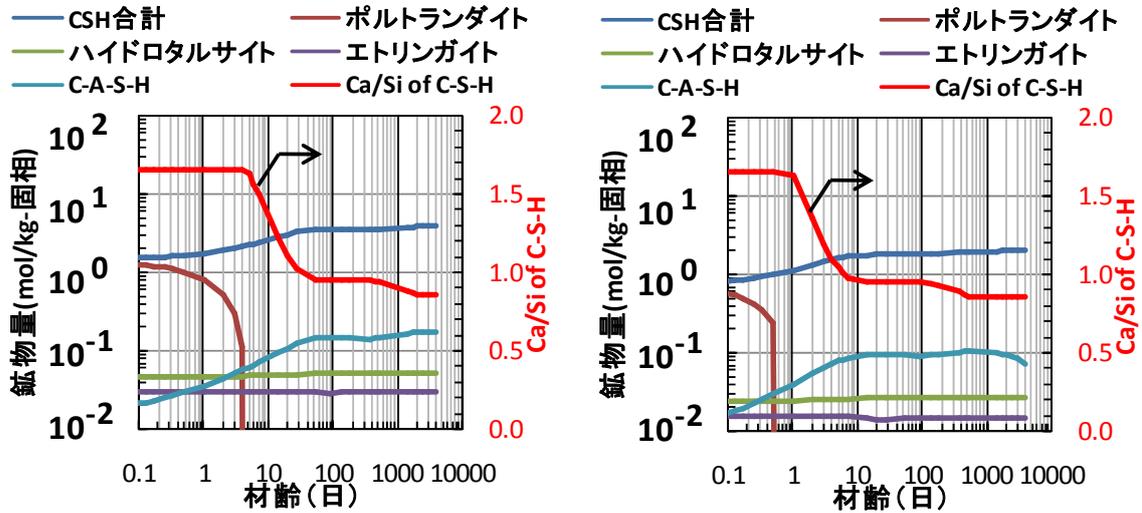


図2.5.1-8 HFSC硬化体における固相の鋳物量 左：HFSC424、右：HFSC226

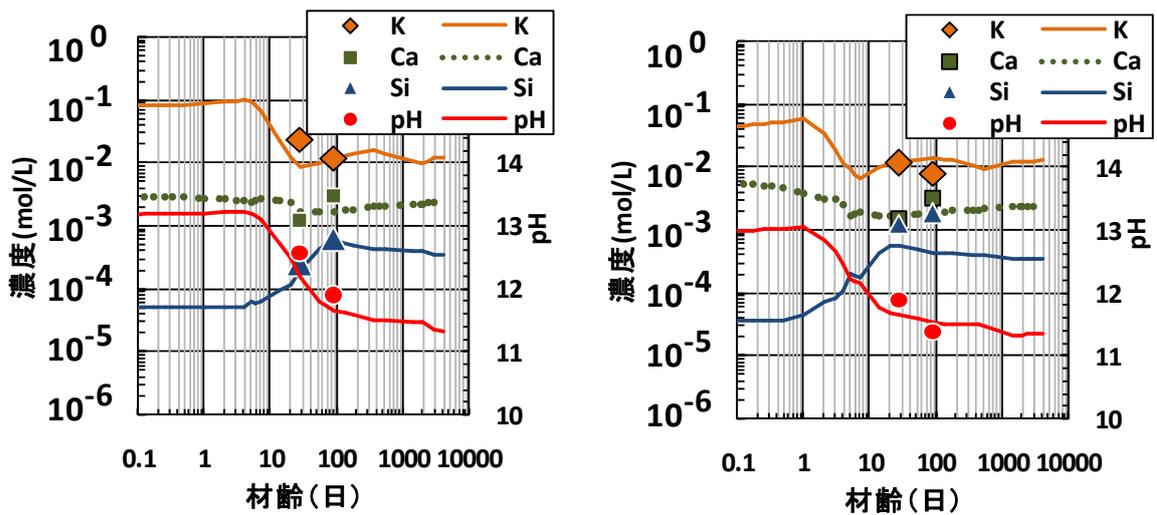


図2.5.1-9 HFSC硬化体における間隙液相組成(1) 左：HFSC424、右：HFSC226

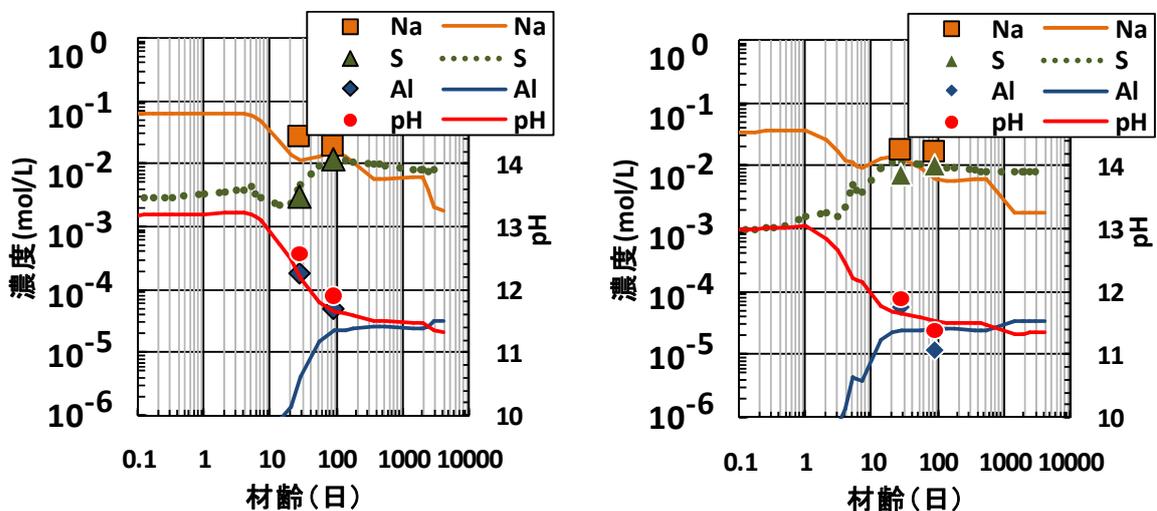


図2.5.1-10 HFSC硬化体における間隙液相組成(2) 左：HFSC424、右：HFSC226

2.5.2 セメント系材料の力学挙動評価モデル開発

(1) 背景と目的

本節の冒頭で述べたように、処分施設にセメント系材料を用いることでセメント系材料を含むバリア材料に化学的変質が生じると、これに伴い剛性や強度などの力学的特性も変化し、処分施設の長期力学挙動に影響を与える可能性がある。このような課題について、第2次TRUレポート（電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構，2005）では、セメント系材料からのCa溶脱による剛性・強度の低下、及びベントナイト緩衝材のCa型化による膨潤性能の変化等、バリア材料の化学的変質挙動を考慮に入れてニアフィールドの長期力学挙動評価を行った。この評価では、化学的変質解析結果のスナップショットが一方通行的に力学解析に反映されており、化学的現象、物質輸送現象及び力学的現象に跨るフィードバックループを含む非線形挙動は考慮されていない。このようなバリア材料の非線形的な変質・変形挙動を示す現象の一つとして、廃棄体パッケージの容器や構造躯体等に使用される金属材料の腐食膨張によって、周囲のセメント系材料において引張応力が作用することにより、ひび割れが発生する現象が挙げられる。個々のひび割れが連結して施設全体を貫通すると、ひび割れを流路として地下水が流れることによってひび割れ面からのCaの溶出が起これると考えられる。これにより、剛性と強度が低下して新たなひび割れが発生することによって、流入する地下水の量が増加し、Ca溶出が促進される可能性がある。

こうした観点から、処分施設の長期力学挙動とそれに伴う物質輸送特性の変化を評価する技術開発の一環として、セメント系材料におけるCa溶出による剛性・強度の低下と、金属の腐食膨張等によりセメント系材料に割れが発生する現象を考慮できる力学挙動解析技術の開発を行った（日本原子力研究開発機構，2012b；2013d；2014c；2015c；2015d）。TRU廃棄物処分施設を対象とする長期力学解析を行うために開発された有限要素解析コードであるMACBECE2014(Mechanical Analysis considering Chemical transition of BEntonite and CEment materials (2014))は、Ca溶脱によるコンクリートの剛性・強度の低下を考慮できる非線形弾性体モデルが組み込まれた公開コードであるMACBECE（三原ほか，2010）をベースとして開発されており、Ca溶脱による剛性・強度の低下と、せん断・圧縮破壊後の応力再配分及び引張りひび割れによる剛性低減を考慮した力学解析が可能である（平野ほか，2016）。

他方、上記の連続体モデルを不連続体モデルによる解析と組み合わせることにより、力学的変形によるひび割れなどの局所的な不連続体化現象を対象とする力学解析手法が検討されている（日本原子力研究開発機構，2014c；2015c；2015d）。この評価手法では、不連続体モデルとして、粒状体個別要素法（Distinct Element Method:DEM (Cundall and Strack, 1979)）を採用し、MACBECE2014により求められる、セメント系材料周辺の材料の力学挙動による変位情報を境界条件として反映することにより、TRU廃棄物処分施設を対象とする解析を実施している。TRU廃棄物処分坑道断面を対象とした長期力学解析について、MACBECE2014の単独の解析結果と、MACBECE2014の解析結果から鉄腐食膨張と岩盤クリープの変位情報を境界条件として反映し、セメント系材料の部分のみをDEMを用いて解析を行った結果を図2.5.2-1に示す。いずれの解析手法でも、処分後1,688年後において、坑道中央の廃棄体領域の角から坑道外側に向かって割れが生じており、割れの発生する範囲や、初期に発生した割れの進展方向については、MACBECE2014による解析結果とDEMの解析結果は整合的である。しかしながら、MACBECE2014の解析では、割れの発生範囲の全要素が割れるという評価結果となっており、現実のひび割れ発生挙動（割れ発生による応力解放とそれ

による空間的局在化等)との乖離が見られる(日本原子力研究開発機構, 2015c)。一方、MACBECE2014の解析結果をDEMの解析モデルに反映させる解析手法では、ひび割れが生じた場合の応力が解放されることにより、割れの分布が局所的になる現実的な破壊挙動を表すことができているものの、DEMによる解析は一般的に計算負荷が大きく(清水ほか, 2014; Potyondy et al., 2004)、このような手法に限定して処分施設断面の大領域を対象とする計算を行うことは合理的ではないと考えられる。

本検討では、上記の検討で抽出された課題を踏まえて、セメント系材料の化学的変質の影響を考慮して力学的挙動を評価するための解析技術(モデル、解析コード等)の開発の一環として、特に物質移行特性への影響が大きいとみられる、処分施設内金属部材の腐食膨張等に伴うセメント系材料のひび割れ現象に着目して、局所的に割れが発生・進展していく現実的な挙動を表現するためのモデル開発を実施するものとした。このうち、平成27年度においては、処分施設全体の性能評価解析の場の状態を設定するための基本となる解析手法である連続体モデルによる力学解析ツールを用いて、セメント系材料における局在化した割れの発生を表現するための技術開発を行った。本項では、この検討の成果を示す。

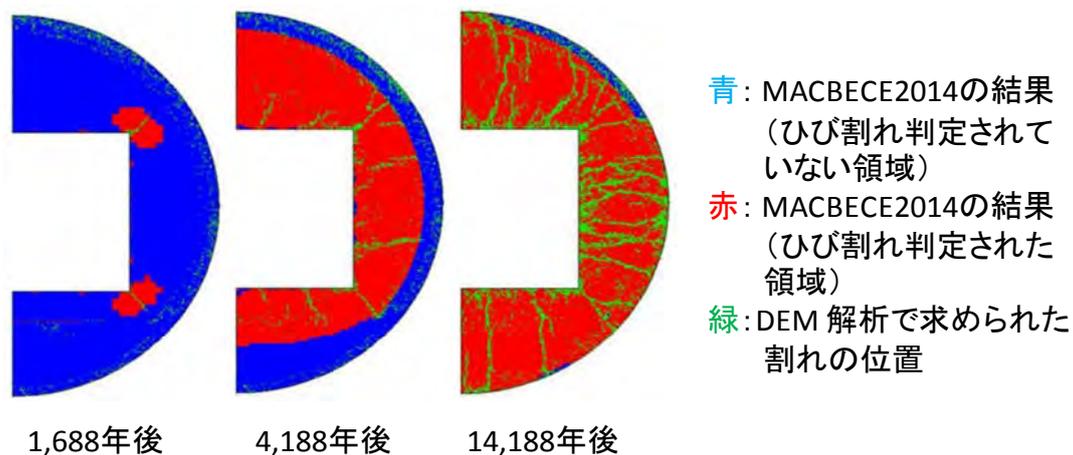


図 2.5.2-1 DEMとMACBECE2014のひび割れ進展状況の比較

(日本原子力研究開発機構(2015c)を一部加工。緩衝材を用いない処分施設を対象とした解析結果の例を示す)

(2) セメント系材料におけるひび割れの発生を考慮できる評価手法の開発

(1)で示した力学解析コードであるMACBECE2014では、セメント系材料で引張応力が加わることによりひび割れが発生する現象を考慮できる構成モデルとして回転ひび割れモデルを採用している(平野ほか, 2016)。セメント系材料に対して回転ひび割れモデルによる解析を行う場合に、処分後10万年後までを想定して、ひび割れ判定された要素に解放力を与える解析が可能となるようにMACBECE2014の改良を行い、コンクリート要素の純せん断試験(吉武ほか, 2006)を対象とする検証解析を行った。

吉武ほか(2006)によって実施されたコンクリート要素の純せん断試験を対象として実施したシミュレーションの解析メッシュと解析条件を図2.5.2-2と表2.5.2-1にそれぞれ示す。図2.5.2-2

の解析メッシュに対して、4つの辺に4.0MPaのせん断応力を10,000ステップで載荷することにより、シミュレーションを実施した。シミュレーションの結果を図2.5.2-3に示す。比較のために、解放力を載荷する改良を行う前のMACBECE2014による解析結果（日本原子力研究開発機構，2015c）も併せて示す。割れが発生した要素に解放力を載荷する改良を行う以前の解析では、2.5MPaのせん断応力が載荷された段階では、初期ひび割れがモデル上部及び下部の一部において局所的に発生しているものの、モデル全体を貫通するまで割れが進展することはなく、3.06MPaまで応力を載荷した時点で割れが貫通した。また、割れが広範囲に分布する結果となった（日本原子力研究開発機構，2015c）。これに対して、解放力を載荷する改良を行った今回の解析結果では、2.5MPaの応力を載荷した時点で、モデル全体を貫通するまで割れが進展した。また、改良前と比較して極めて狭い領域で割れの発生が認められた。吉武ほか（2006）のコンクリートの破壊試験では、2.2MPaの応力を載荷した時点で、供試体全体を貫通する一本の割れが発生しており、今回のMACBECE2014の改良により、局所的に割れが発生・進展していく、より現実に近い挙動を示すことが出来たと考えられる。

表2.5.2-1 純せん断試験シミュレーションの解析条件

物性	値
ヤング率 (MPa)	6.792×10^4
ポアソン比	0.2
圧縮強度 (MPa)	21.0
引張強度 (MPa)	3.0
引張破壊後の剛性低下率	10^{-6}

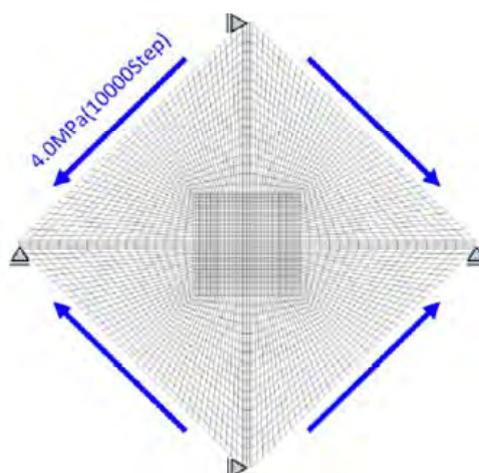


図2.5.2-2 解析メッシュ

(青印は境界条件として載荷した応力を示す)

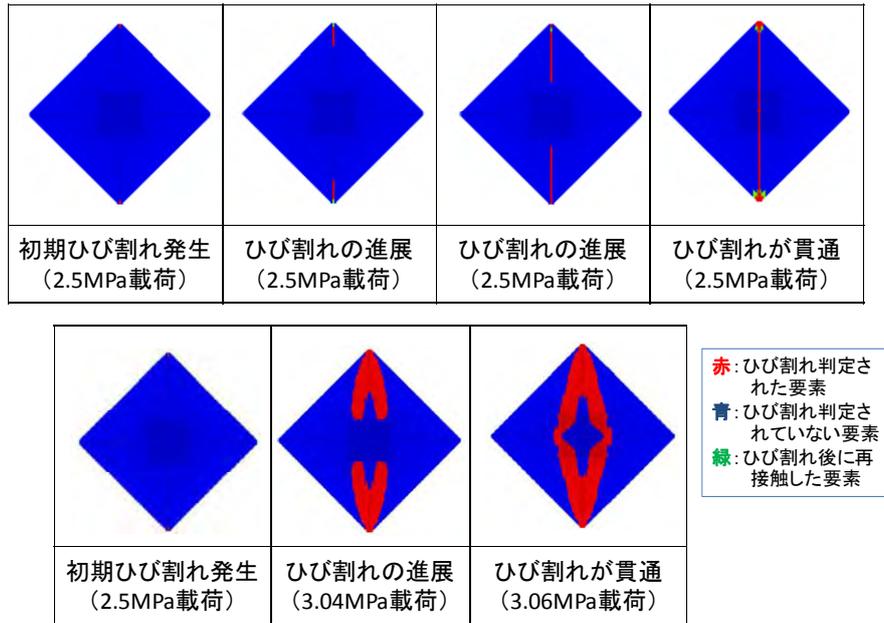


図2.5.2-3 純せん断試験シミュレーションの結果

(上段: 本検討による解析結果、下段: 改良前のMACBECE2014による解析結果(日本原子力研究開発機構, 2015c))

(3) 地層処分対象となる廃棄物の処分施設の長期力学解析

(2)で示した解析コードMACBECE2014により、地層処分対象となる廃棄物の処分施設を対象とする長期力学解析を実施した。解析は、TRU廃棄物処分施設の緩衝材を用いない処分概念を対象とした。なお、セメント系材料については、既往の検討(平野ほか, 2016)と同様に、Ca溶脱に伴う剛性・強度の低下と、それによってひずみが増加する挙動を考慮すると共に、割れの発生とCa溶脱・間隙率の変化による透水係数の変化についても評価を行った。

1) 解析モデルおよび解析条件の設定

第2次TRUレポートにおける坑道の設計を基本として解析メッシュを構築した。解析メッシュを図2.5.2-4に示す。坑道の中央に廃棄体パッケージを25個積み重ね、その周囲をコンクリートで埋め戻す体系とし、対称性を考慮して半断面でモデル化した。廃棄体充填材をセメントモルタル(W/C=55%と想定)とし、支保工、覆工、坑道埋戻し材およびインバートをコンクリート(W/C=45%と想定)として、(2)で示した、ひび割れ後に解放応力を载荷する手法で計算を行うものとした。コンクリートおよびモルタルの仕様については、第2次TRUレポートと同様とした。セメント系材料のCa溶脱率・間隙率の設定値については、既往の検討(三原ほか, 2010)から引用し、処分後10万年後まで時間に対して線形に変化すると仮定した。ひび割れが生じていない部分については、Ca溶脱率と共に剛性・強度が低下してひずみが増加する挙動を評価するものとした。さらに、セメント系材料の透水係数については、既往の検討(平野ほか, 2016)と同様に、ひび割れが発生した要素のひずみ量と、ひび割れが発生していない要素の間隙率から透水係数テンソルを求めて評価を行うものとした。

廃棄体パッケージの鉄の容器とドラム缶については、厚さをそれぞれ5mmと1.6mmとし、鉄腐食

膨張を既往の検討（平野ほか，2016）と同様に弾性体でモデル化した。周辺岩盤としては堆積岩（SR-C）を想定し、既往の検討と同様に大久保モデルで岩盤クリープを考慮するものとした（平野ほか，2016）。なお、処分施設閉鎖後の応力状態は、処分施設の建設・操業段階での、坑道掘削時の地山からの解放応力、人工バリア材料の自重載荷等の影響を受けて定まることから、ここでは、既往の検討（平野ほか，2016）を参考に、処分施設の建設操業に伴う応力場の変化を考慮に入れて長期力学解析の初期状態を設定した。

セメント系材料と腐食膨張要素および岩盤に対する物性値については、既往の文献（平野ほか（2016））と同様とした。これらの物性値を表2.5.2-2、表2.5.2-3および表2.5.2-4にそれぞれ示す。

表2.5.2-2a) 長期力学解析におけるセメント系材料の物性値（処分施設閉鎖前）

	支保工	覆工 / インバート	埋戻し材	廃棄体充填材
単位体積重量(kN/m ³)	24.1	24.1	24.1	38.5
ヤング率 (MPa)	4.80×10 ³ : 若材齢値 3.04×10 ⁴ : 通常値	3.04×10 ⁴	3.04×10 ⁴	1.75×10 ⁴
ポアソン比	0.2	0.2	0.2	0.2
引張強度 (MPa)	4.3	4.3	—	—
ひび割れ後の剛性低下率	1/100	1/100	—	—

表2.5.2-2b) 長期力学解析におけるセメント系材料の物性値（処分施設閉鎖後）

	支保工 / 覆工 / インバート / 埋戻し材	廃棄体充填材
初期ヤング率(MPa)	3.04×10 ⁴	1.75×10 ⁴
ポアソン比 [降伏前]	0.20	0.20
[降伏後]	0.45	0.45
初期粘着力(MPa)	21.5	17.5
初期内部摩擦角 (deg.)	0	0
初期圧縮強度(MPa)	43	35
最小圧縮強度(MPa)	4.3	3.5
骨材容積割合 (%)	67	54
気乾単位容積重量(kN/m ³)	22.8	20.9
引張強度(MPa)	4.3	3.5
ひび割れ後の剛性低下率	1/100	1/100
水の動粘性係数 (m ² /s)	1.0×10 ⁻⁶	1.0×10 ⁻⁶
ひび割れ本数 (1要素当り)	1.0	1.0

表2.5.2-3 長期力学解析における鉄（腐食膨張要素）の物性値

	廃棄体パッケージ容器 / ドラム缶
腐食速度 (μm/y)	0.02
腐食要素の弾性係数 (MPa)	2.5×10 ²
腐食要素のポアソン比	0.333
最大体積ひずみ (%)	157.8

表2.5.2-4 長期力学解析における岩盤の物性値

	軟岩 (SR-C)
単位体積重量 (kN/m ³)	22.0
一軸圧縮強度 (MPa)	15.0
引張強度 (MPa)	2.1
初期ヤング率 (MPa)	3.50×10^3
初期ポアソン比	0.30
延性のパラメータ	5.0
時間依存性のパラメータ	20.0
ピーク強度到達時間 (sec.)	120.0
初期上載圧 (MPa)	11.0
側圧係数	1.066

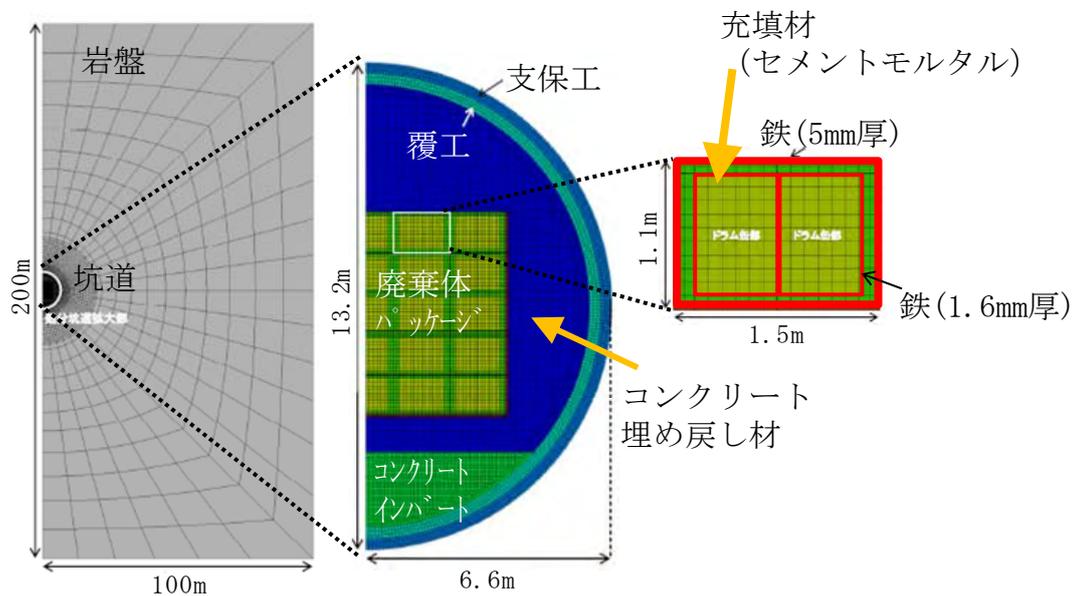


図2.5.2-4 TRU廃棄物処分施設を対象とする長期力学解析の解析メッシュ

2) 解析結果

セメント系材料における10万年後までのひび割れ発生・進展の評価結果を図2.5.2-5に示す。解放力を載荷しない従来の解析手法による評価結果も比較のために併せて示す。解放力を載荷しない手法では、2.5万年後以降では、コンクリート材料のほぼ全域の有限要素においてひび割れ発生と判定される結果となった。解放力を載荷する手法では、ひび割れが局所的な分布をもって進展していく結果となり、(1)で示したDEMによる割れの発生・進展挙動の解析結果と近い挙動を示す結果が得られた。

コンクリート埋め戻し材の厚さと坑道の内径の変化を図2.5.2-6に示す。解放力を載荷しない従来の手法と比較して、解放力を載荷する手法では、埋め戻し材の厚さが時間と共により緩やかに減少する挙動が観察された。この理由として、解放力を載荷しない手法では、ほぼ全域で割れと判定され剛性が低下するが、解放力を載荷する手法では、割れと判定されずに高い剛性が維持される部分の割合が大きかったためと考えられる。また、坑道の内径については、廃棄体容器の鉄の腐食膨張の進展により膨張する挙動と、埋め戻し材において割れが発生し、剛性が低下してい

くことによって岩盤クリープが優勢となり、減少していく挙動が確認できた。解放力を載荷する手法の方が、従来の手法より大きく膨張した理由としては、コンクリート埋め戻し材の剛性が比較的高い状態で維持されたため、埋め戻し材の変形による変位の緩和が小さく、廃棄体容器の鉄腐食膨張による変形がより顕著に表れたことが考えられる。

セメント系材料のひび割れの開口幅分布と透水係数の変化を図2.5.2-7に示す。ひび割れ幅の分布と対応して、局所的に透水係数が上昇する挙動と、Ca溶脱により、セメント系材料全体で透水係数が時間の経過と共に徐々に上昇していく挙動が確認できた。

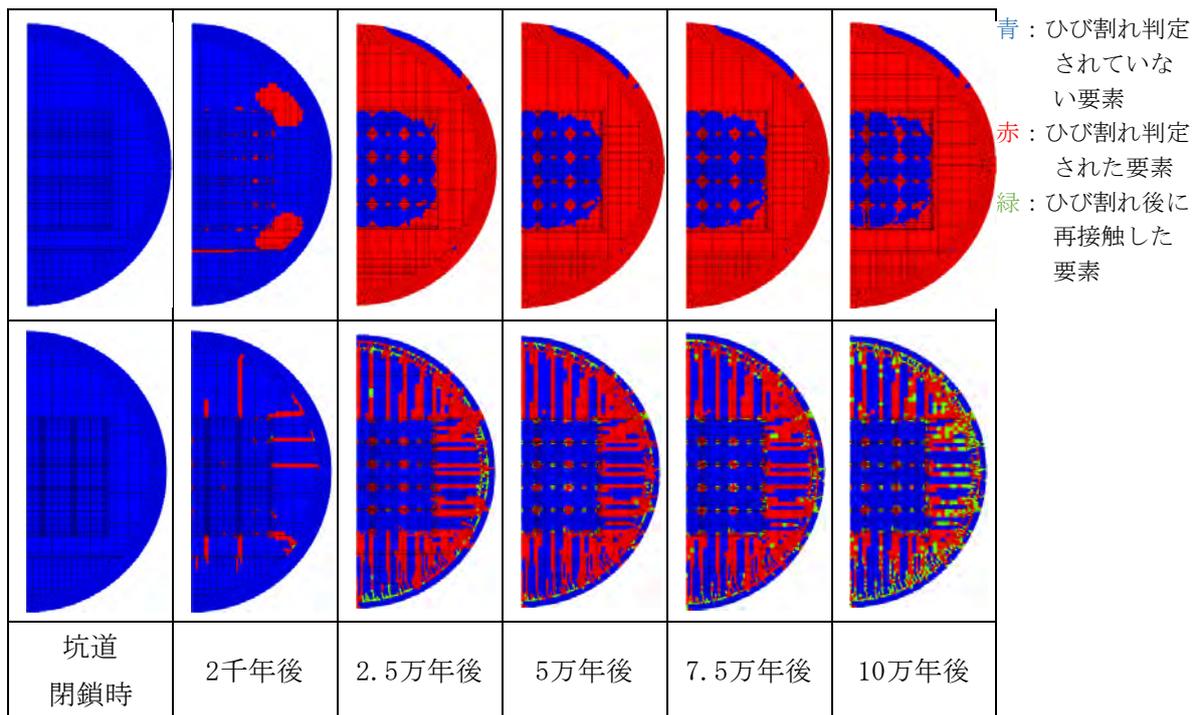


図2.5.2-5 セメント系材料のひび割れ発生・進展
(上段：解放力を載荷しないケース、下段：解放力を載荷するケース)

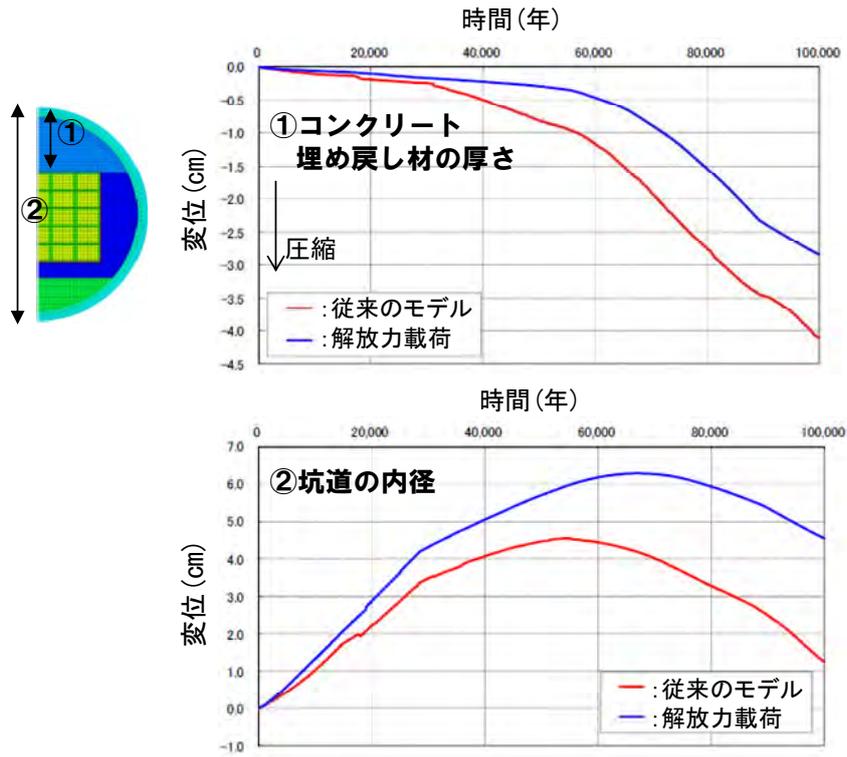


図2.5.2-6 コンクリート埋め戻し材の厚さと坑道内径の変化

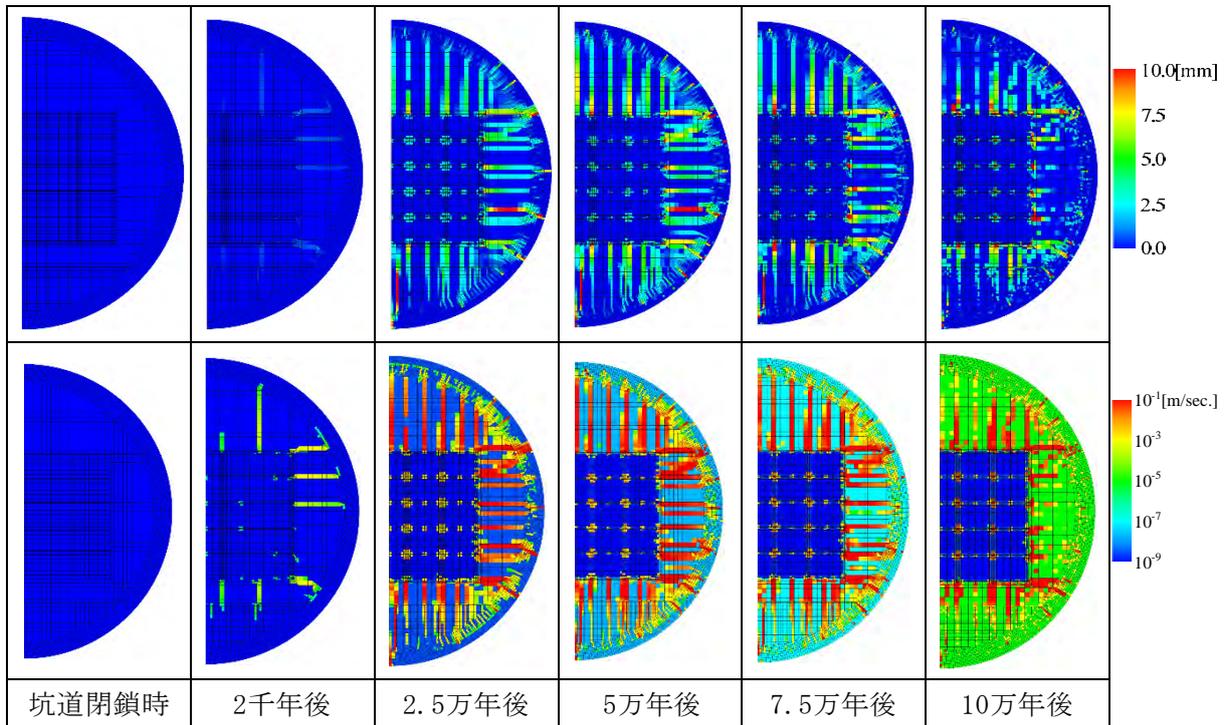


図2.5.2-7 セメント系材料のひび割れの開口幅分布と透水係数の変化
(上段：開口幅の変化、下段：透水係数の変化)

2.5.3 セメント系材料による影響下での核種移行挙動の把握

(1) 背景と目的

セメントが放射性核種の移行挙動に与える影響因子として、水酸化カルシウムが存在することによる高 pH 条件 (11以上) や高カルシウム濃度 (最大で 0.04 mol/dm^3 程度) が考えられる。これらの影響因子は、元素によっては放射性核種の溶解度及び溶存化学種の変化をもたらす可能性があり、セメントによる影響を考慮しない場合に比べて安全評価上の影響が大きくなる可能性が生じる。したがって、既往の文献を基に、安全評価上の重要元素の溶解度や吸着分配係数に及ぼすセメント影響の調査の現状を把握するとともに、調査結果から抽出された課題の一部について実験データの取得を行うこととした。さらに、取得した実験データなどを基に、セメント影響を考慮した核種移行パラメータ、特に溶解度及び吸着分配係数を提案することとしている。

後述する文献調査の結果、最優先で充実させるべきデータは、高pH条件における、またカルシウム型ベントナイトに対する遷移金属元素の吸着分配係数であると結論づけた。対象とする遷移金属元素としては、ジルコニウム、ニオブ、モリブデン、スズなどが考えられる (図2.5.3-1~3; ベントナイトに対するモリブデンの吸着分配係数はJAEA-SDBに収録なし)。このうち、平成27年度はジルコニウムとスズのデータを、平成28年度にニオブとモリブデンのデータを取得することを計画した。

(2) セメント環境中での吸着挙動に関する核種移行パラメータ評価の現状

第2次TRUレポートでは、高pH条件における核種移行パラメータ (溶解度、吸着分配係数及び実効拡散係数) を設定している (三原, 2006)。この設定値の信頼性を検証しつつ最新の文献情報を調査した結果、高pH条件における4価金属イオンとカルシウムの錯生成挙動を調べることが重要と判断し、ジルコニウム及びトリウムを用いた実験研究を実施した (日本原子力研究開発機構, 2014c; 2015c)。これらの結果より、セメント材料の影響を考慮した核種移行パラメータの設定値を提案した (日本原子力研究開発機構, 2015c)。その概略は以下のとおりである。

- ・ 溶解度については、日本原子力研究開発機構熱力学データベース (JAEA-TDB) (Kitamura et al., 2014) を用いた熱力学計算で評価した。JAEA-TDBでは、高pH及び高カルシウム濃度条件下での溶解度も評価可能となっている。三原 (2006) の評価手法やジルコニウム及びトリウムを用いた実験研究 (日本原子力研究開発機構, 2014c; 2015c) の成果などを踏まえ、ジルコニウムの熱力学データを再検討しつつ、各元素の溶解度評価値を提案した。
- ・ バリア材 (ベントナイト、花崗岩及びセメント系材料) に対する吸着分配係数については、日本原子力研究開発機構吸着データベース (JAEA-SDB) (陶山・館, 2012) を用いて既往の報告値を収集し、pH及び塩濃度依存性の傾向を把握するとともに、第2次TRUレポートを含め既往の安全評価報告書の設定値を参考にしながら、専門家判断により設定することを提案した。高pH条件下での吸着分配係数の報告値の充実度は元素によって異なっており、ジルコニウム、ニオブ、スズといった核分裂生成物として生成する遷移金属元素の情報が不足していることが明らかになった (図2.5.3-1~3)。JAEA-SDBに収録されているベントナイトに対するジルコニウム、ニオブ及びスズの吸着分配係数を、既往の安全評価報告書の設定値とともに図2.5.3-1~3に示す。凡例はJAEA-SDBデータを塩濃度でグループ化したものであり、それぞれの値はMIN = 0 mol/dm^3 , A = 0.02 mol/dm^3 , B = 0.1 mol/dm^3 , C = 0.7

mol/dm³, D = 1.0 mol/dm³, MAX = 7 mol/dm³である。また、図中の安全評価報告書等の略号の説明及び文献情報は以下のとおりである。

- H12：地層処分研究開発第2次取りまとめ（核燃料サイクル開発機構，1999b）
 - TRU-2：第2次TRUレポート（三原，2006）
 - SF-1：直接処分第1次取りまとめ（日本原子力研究開発機構，2015b）
 - EN2002：Project Opalinus Clay (Entsorgungsnachweis) (Bradbury and Baeyens, 2003a; 2003b)
 - SR-Site: Long-term Safety for the Final Repository for Spent Nuclear Fuel at Forsmark (SKB, 2010)
 - TURVA2012: Safety Case for the Disposal of Spent Nuclear Fuel at Olkiluoto (Posiva Oy, 2012)
- ・ ベントナイトが高pH条件下ではカルシウム型となっている可能性が考えられる一方で、カルシウム型ベントナイトに対する収着分配係数が不足していることも明らかになった。したがって、カルシウム型ベントナイトに対する収着分配係数のデータ拡充が必要である。
 - ・ バリア材中の実効拡散係数については、第2次TRUレポートの設定値（三原，2006）が現在でも最も信頼できるものであることを確認し、第2次TRUレポートの設定値（三原，2006）をそのまま選定することを提案した。

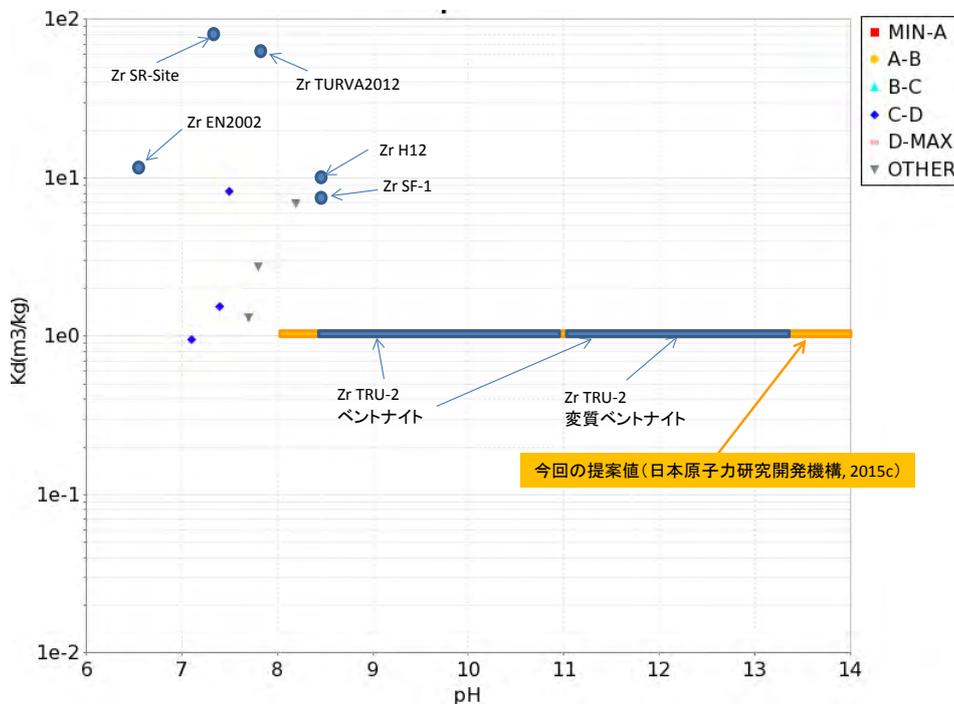


図2.5.3-1 緩衝材に対するジルコニウムの収着分配係数の報告値と既往の安全評価報告書の設定値（日本原子力研究開発機構，2015c）

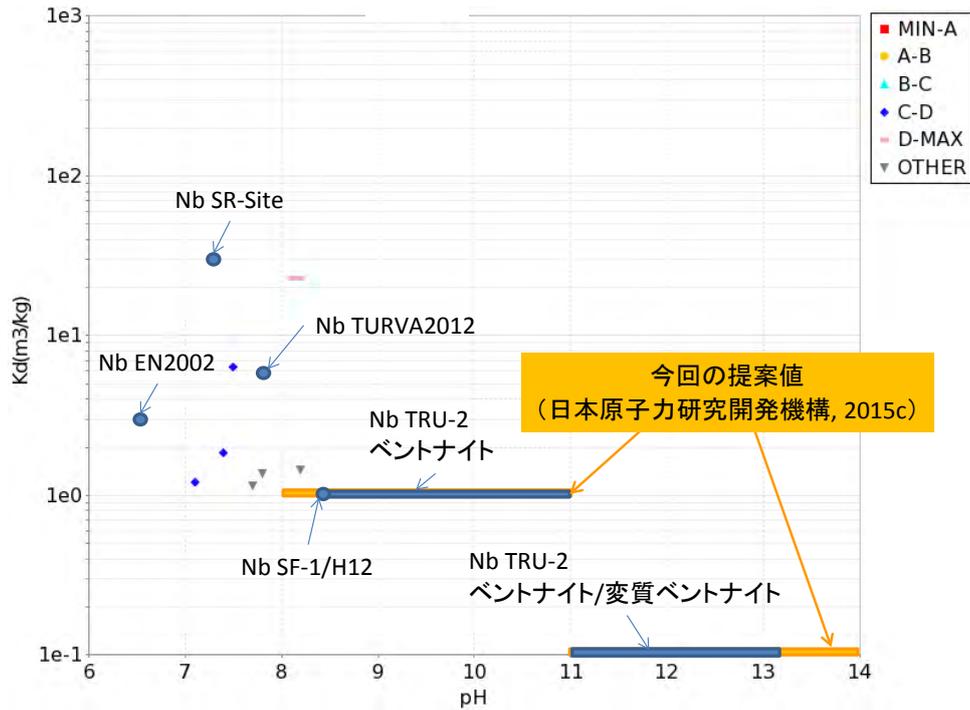


図2. 5. 3-2 緩衝材に対するニオブの吸着分配係数の報告値と既往の安全評価報告書の設定値 (日本原子力研究開発機構, 2015c)

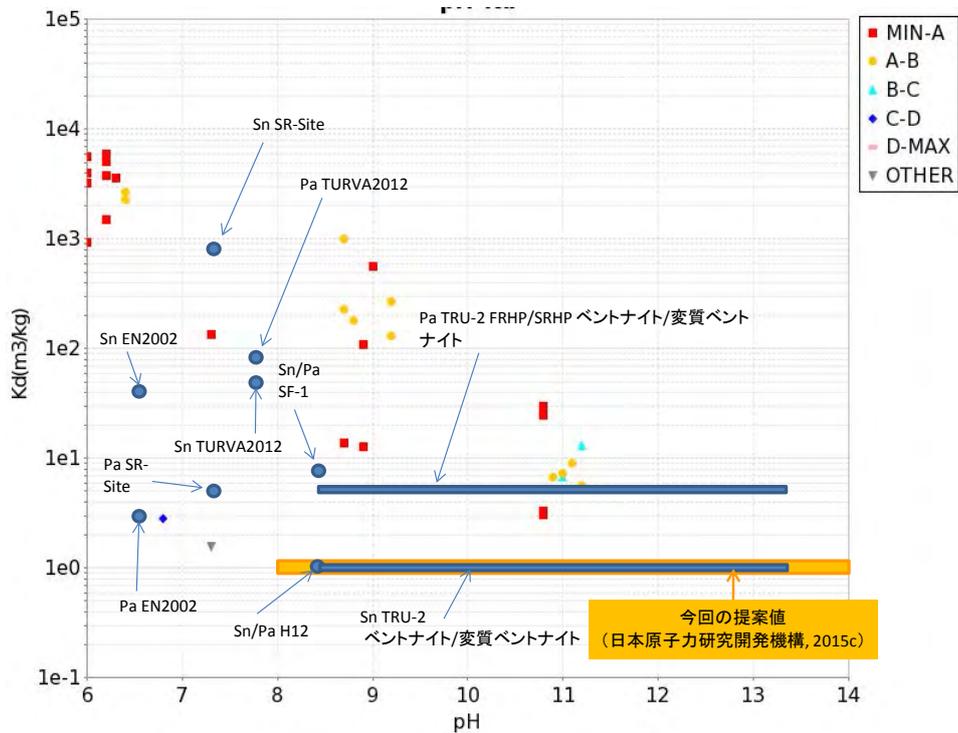


図2. 5. 3-3 緩衝材に対するスズ及びプロトアクチニウム吸着分配係数の報告値と既往の安全評価報告書の設定値 (日本原子力研究開発機構, 2015c)

(3) セメント環境中での収着挙動に関する実験的調査

1) はじめに

前述のとおり、最優先で充実させるべきデータは、 $\text{pH} \geq 11$ における、またカルシウム型ベントナイトに対する遷移金属元素の収着分配係数である。平成27年度はジルコニウムとスズについて、アルカリ性水溶液中におけるベントナイトに対する収着分配係数を取得することとした。ナトリウム型及びカルシウム型に対する収着分配係数の比較検討を目的として、 $\text{pH} \leq 10$ ではナトリウム型及びカルシウム型の両方で収着分配係数を取得するとともに、 $\text{pH} \geq 11$ ではカルシウム型に対する収着分配係数を取得することとした。

2) 実験手順

収着分配係数はバッチ法で取得した。固相には、クニミネ工業（株）製の高純度ナトリウム型モンモリロナイトであるクニピアF及び、クニピアFから調製したカルシウム型ベントナイトを使用した。カルシウム型ベントナイトの調製は、三原ら（1999）の手法に基づいて実施した。収着分配係数評価対象元素はジルコニウム及びスズとし、いずれも難溶性元素であることから放射性トレーサーのZr-95及びSn-113をそれぞれ用いた。水溶液のpHは8.4, 10.0, 11.4, 12.5とし、ガラス複合電極を用いて測定及び調整した。水溶液はカルシウム系とし、水酸化カルシウムでpHを調整した上で、塩化カルシウムを添加することにより、カルシウム濃度を 0.002 mol/dm^3 及び 0.02 mol/dm^3 （ $\text{pH} = 12.5$ の場合は 0.02 mol/dm^3 のみ）とした。

比較のために、 $\text{pH} = 8.4$ 及び 10.0 の条件については、固相としてナトリウム型であるクニピアFそのものでも収着実験を行った。この場合の水溶液は塩化ナトリウム水溶液とし、水酸化ナトリウムを添加することでpHを調整した上で、塩化ナトリウムを添加することにより、ナトリウム濃度を 0.02 mol/dm^3 に調整した。水溶液のpHが所定の値より変動する場合は、塩酸もしくは水酸化ナトリウム・水酸化カルシウムを用いて適宜pHを調整した。液固比は原則として $100 \text{ cm}^3/\text{g}$ とし、スズの $\text{pH} 8.4$ の試料のみ $1667 \text{ cm}^3/\text{g}$ とした。初期元素濃度は、ジルコニウムでは $3.5 \times 10^{-8} \text{ mol/dm}^3$ 、スズでは $1.8 \times 10^{-8} \text{ mol/dm}^3$ であった。さらに、上記すべての条件に対して、固相を含まないブランク試料を用意し、収着実験と同様の作業を行った。実験結果の再現性を確認するため、すべての条件において3つずつ収着実験試料を作製した。また、後述するケイ素及びカルシウム濃度定量を行うため、放射性同位元素のスズに替えて安定同位体のスズを用いて収着実験を上記と同一条件で実施した。実験期間は最長で約2ヶ月とした。実験温度は室温とし、すべての作業はアルゴンもしくは窒素雰囲気グローブボックス中で実施した。溶存スズおよびジルコニウム濃度は、液体シンチレーション検出器を用いてSn-113およびZr-95の放射能を測定することで定量した。

3) 結果と考察

① スズ

固相を含まないブランク試料（ 0.02 mol/dm^3 塩化ナトリウム水溶液）中のスズの濃度の時間変化を図2.5.3-4に示す。スズの濃度は1週間経過後には安定な状態に到達していることが確認される。その一方で、 $\text{pH} = 8.4$ の試料については、安定状態到達時の濃度が初期濃度より1桁以上低くなっていることがわかる。 $\text{pH} = 8.4$ 付近ではスズの溶解度が $10^{-8} \sim 10^{-7} \text{ mol/dm}^3$ 程度と低いため、溶解度を超えて沈殿が生成した可能性が考えられる。収着分配係数を過大評価することを避ける

ために、全スズ濃度としてブランク試料中のスズ濃度を採用することとした。

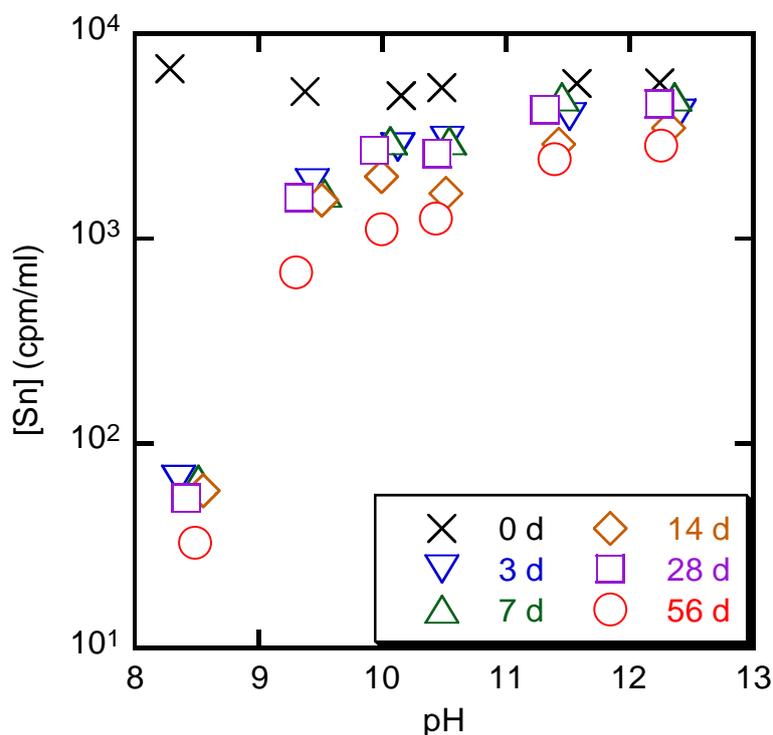


図2.5.3-4 固相を含まないブランク試料 (0.02 mol/dm³塩化ナトリウム水溶液) 中の溶存スズ濃度のpH及び時間変化

試験開始から8週間経過後時点でのナトリウム型及びカルシウム型ベントナイトに対するスズの収着分配係数のpH及び塩濃度依存性を図2.5.3-5に示す。水溶液が塩化ナトリウム及び塩化カルシウムとなっている試料が、それぞれナトリウム型及びカルシウム型ベントナイトに対する値である。水溶液のpHが8.4の0.02 mol/dm³塩化ナトリウム水溶液試料については、溶存スズ濃度がブランク試料中の濃度を上回ったため、収着分配係数の検出下限値を導出した。また、pH = 8.4ではスズの沈殿が生成している可能性があり、収着時にスズの沈殿が再溶解することで、収着分配係数が過小に評価されている可能性がある。塩化カルシウム水溶液中では収着分配係数を導出できたものの、溶存スズ濃度が低いため結果にばらつきが見られる。収着分配係数が導出できたpH \geq 10では、全体的にカルシウム型ベントナイトに対する収着分配係数がナトリウム型に対する値よりやや高くなっていることがわかる。また、収着分配係数の顕著な塩濃度依存性は見られていない。アルカリ性水溶液中では、スズは加水分解種(Sn(OH)_n⁽ⁿ⁻⁴⁾⁻, n \geq 4)であり(Rai et al., 2011)、ナトリウムやカルシウムと直接的にイオン交換反応を起こさないと考えられる。このことから、スズの加水分解種は表面錯体を形成して収着していることが考えられる。

なお、溶存ケイ素および溶存カルシウム濃度については、特徴的な結果は得られなかった。

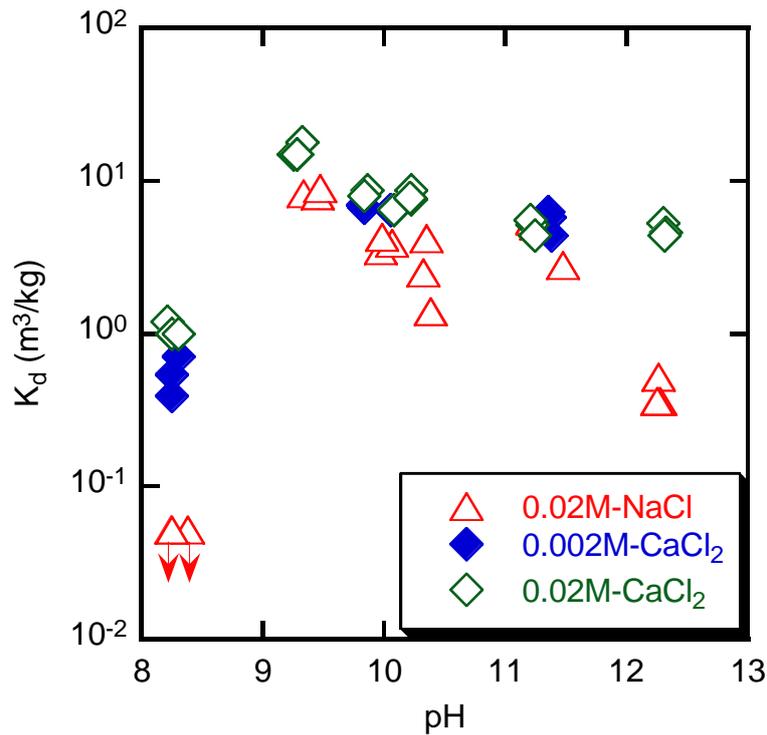


図2.5.3-5 ナトリウム型及びカルシウム型ベントナイトに対するのスズの収着分配係数のpH及び塩濃度依存性

② ジルコニウム

0.02 mol/dm³塩化カルシウム水溶液（ブランク試料）中における溶存ジルコニウム濃度のpHおよび時間依存性を図2.5.3-6に示す。ジルコニウムについては、放射性同位元素を用いた場合でも溶存ジルコニウム濃度の検出下限値を10⁻⁸ mol/dm³程度にしか下げることができなかつた。したがって、0.02 mol/dm³CaCl₂水溶液以外の試験条件では、ブランク試料中の溶存ジルコニウム濃度が検出下限値未満となり、収着分配係数が導出不能であった。この理由としては、NaCl水溶液中ではジルコニウムのキャリア濃度が溶解度を上回ったこと、Zr-95がシュウ酸溶液として販売されており、CaCl₂水溶液ではカルシウムを添加した際にシュウ酸カルシウムの沈殿が生成し、Zr-95が共沈してしまったことが考えられる。

ブランク試料中の溶存ジルコニウム濃度が定量できた0.02 mol/dm³CaCl₂水溶液中におけるカルシウム型ベントナイトに対するのジルコニウムの収着分配係数のpH依存性を図2.5.3-7に示す。大半の試料について溶存ジルコニウム濃度が検出下限値未満となったため、収着分配係数の導出ができたのはpH≧ 11の一部のデータだけであった。安定元素を用いて誘導結合プラズマ質量分析（ICP-MS）で分析する場合でも、溶存ジルコニウム濃度の検出下限値は1×10⁻⁸ mol/dm³程度と報告されている（日本原子力研究開発機構, 2015c）ことから、ジルコニウムの収着分配係数の導出は実験的には困難であり、他元素との化学的類似性を利用せざるを得ないと考えられる。

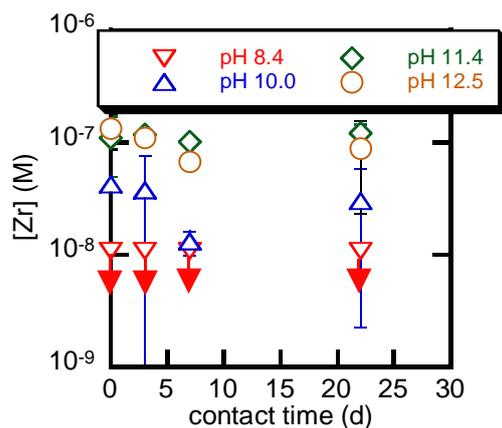


図2.5.3-6 0.02 mol/dm³CaCl₂水溶液（ブランク試料）中における溶存ジルコニウム濃度のpHおよび時間依存性

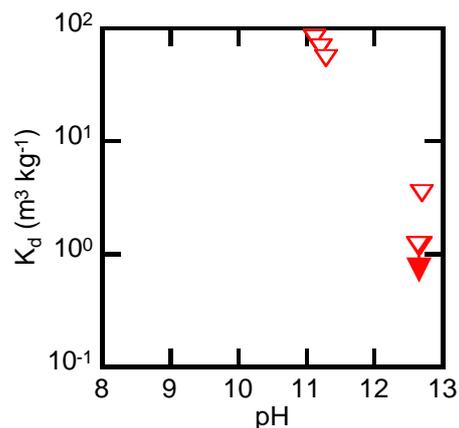


図2.5.3-7 0.02 mol/dm³CaCl₂水溶液中におけるカルシウム型ベントナイトに対するのジルコニウムの収着分配係数のpH依存性

2.5.4 グラウト影響評価技術開発

(1) 既往の研究事例と本研究の目的

処分場建設時には、空洞を支えるための支保にコンクリートが使われる他、湧水抑制対策としてセメント系材料を用いたグラウトが施工されるなど、大量のセメント系材料の使用が想定される。本節の冒頭で述べたように、処分場でセメント系材料を用いることで、人工バリア材のみならず、周辺岩盤の化学的状態や物質輸送特性に変化が生じ、天然バリアとしての性能に影響を与える可能性がある。これまで、セメント系材料による周辺岩盤への影響に関する研究が国内外で行われているが、現状の知見は十分ではなく、現象理解やモデル構築を含めた影響評価技術の開発が課題となっている。例えば、亀裂性結晶質岩や粘土岩、岩塩を対象としてセメント系材料と岩盤の接触に関する原位置及び室内試験が行われているが、コロイド形成や二次鉱物の安定性、接触岩盤の鉱物学的変化のモデル化等に不確実性があるとの報告がある(OECD/NEA, 2012)。また、国内では、新第三紀堆積岩を対象として地下空洞の坑道の裸坑部とコンクリート吹付箇所から試料を採取して分析した結果、コンクリートのアルカリ成分が火山ガラスの表層部と反応して、カルシウムシリケート化合物が二次鉱物として空隙を充填したことが分かった。また、地下水流動によるアルカリ成分の希釈と二次生成物による、コンクリートと岩盤の界面近傍でのpHの低減効果や、生成した二次鉱物の安定性に関するデータの蓄積が重要としている(山本ほか, 2015)。

以上の背景の下、瑞浪超深地層研究所では、結晶質岩における地質環境の評価のための体系的な調査・解析・評価技術の基盤の整備と、深地層における工学技術の基盤の整備を進めてきた。これまでに、深度500mまでの2本の立坑（主立坑、換気立坑）と深度100mごとに2本の立坑を連結する水平坑道（予備ステージ）を掘削し、さらに、深度300mと500mにおいては、坑道を利用した研究をするための水平坑道（研究アクセス坑道）を掘削した(図2.5.4-1)。なお、本坑道において、深度200mの水平坑道、深度300mの研究アクセス坑道、換気立坑の深度400～500m及び深度500mの研究アクセス南坑道においてプレグラウチングを実施している。

このうち、深度200m予備ステージにおいて、平成19年度から24年度に坑道掘削時のプレグラウチングにおけるセメント系材料（グラウト材としてOPCを使用）が地下水へ与える影響を把握する長期モニタリングを行っており（図2.5.4-3）、地下での地震動の観測や地下水の水圧やpHの測定結果から、震度3程度までの地震ではプレグラウト施工領域には変状が生じた可能性はほとんどなく、グラウト材が地下水質に及ぼす影響は空洞が存在する場合約2年程度で解消されたことを明らかにされている（日本原子力研究開発機構，2013eほか）。

また、深度200m予備ステージのプレグラウト施工領域から岩石試料を採取して、グラウト実施から4年半経過後のグラウト充填状況や岩石の変質（ここでは、グラウト材による岩盤への化学的影響を“変質”と呼ぶ）を検討したところ、岩盤の変質によるものと推察される針状の結晶が認められた（鵜山ほか，2015）。

さらに、深度300m研究アクセス坑道におけるグラウト材（OPC）で充填された岩盤中割れ目（グラウト充填割れ目）の顕微鏡観察の結果（採取場所は図2.5.4-2）、割れ目中のチャンネル構造の存在やグラウト充填割れ目中に高い割合で天然の方解石が存在することが確認された（湯口ほか，2013；石橋ほか，2014，図2.5.4-4）。これらの方解石の産状は、天然の湧水割れ目で認められる方解石の産状と類似していること、グラウト充填割れ目にはグラウトが充填されるだけの空隙が存在していたことから、グラウト充填割れ目はグラウト充填前の選択的な物質移動経路であったと考えられ、割れ目中の方解石の有無が、天然環境における現在の物質移動経路を識別する上で有効であることが示された（石橋ほか，2014）。

本研究では、これらの既存の研究成果を踏まえつつ、地層処分の安全確保のために必要なセーフティーケースの信頼性向上の観点から、“実際の地質環境下で生じるセメント系材料による岩盤への影響の把握とそのプロセスの理解”を3ヶ年の研究目標として設定した。研究のアプローチ方法としては、平成29年度までの3ヶ年間の研究期間を考慮し、既往の研究事例で有意な成果が得られていると考えられる、原位置で岩盤とセメント系材料が接触している箇所でのサンプリングとその試料の詳細分析を主体とする研究のアプローチを採用することとした。また、プロセスの理解のためには、実際の地質環境及びセメント系材料の物性とその経時変化の把握が不可欠であることから、それが可能な原子力機構の地下研究施設をフィールドとすることとした。本テーマの研究アプローチを図2.5.4-5に示す。具体的には、瑞浪超深地層研究所の深度200m予備ステージや深度300m研究アクセス坑道でのプレグラウト施工領域において、既に採取したボーリングコアや今後新たに採取するコアについて割れ目の充填状況等の分析を行い、地下水等周辺地質環境の情報も考慮して岩盤への影響の経時変化を把握する。

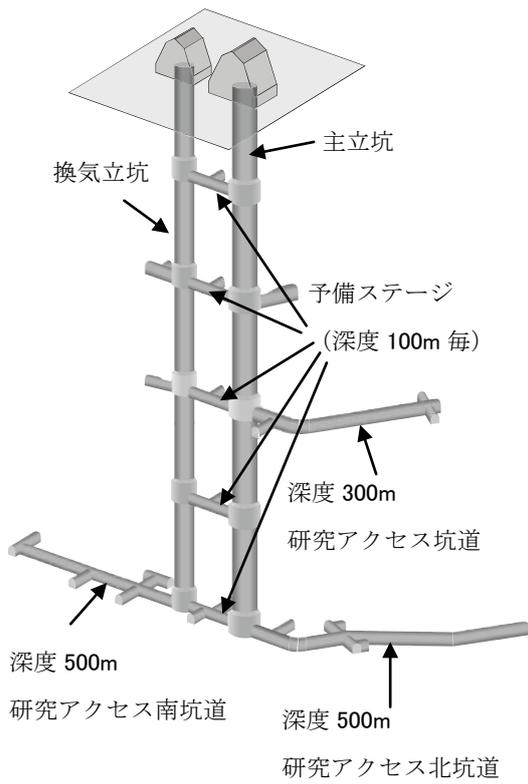


図 2.5.4-1 瑞浪超深地層研究所のレイアウト (このうち、深度 200m 予備ステージ及び深度 300m において既往の研究を実施)

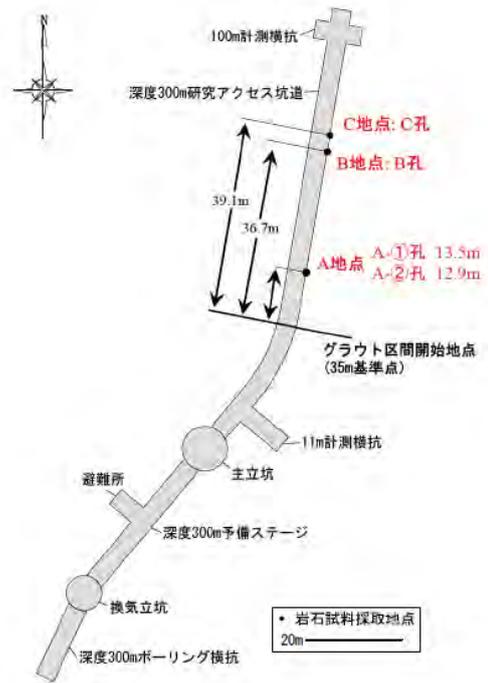


図 2.5.4-2 深度 300m 研究アクセス坑道でのグラウト充填割れ目を含む岩石試料採取場所 (湯口ほか, 2013)

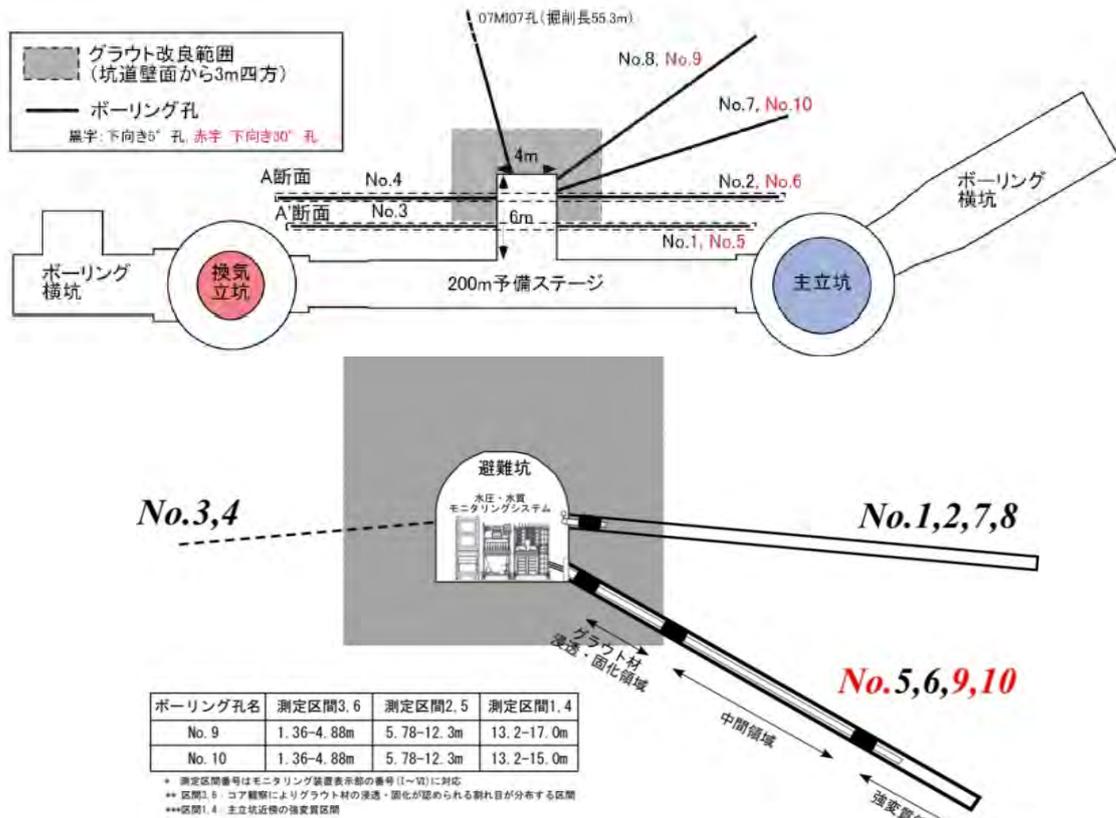


図2.5.4-3 深度200m予備ステージでのグラウト施工領域（上）と水圧・水質モニタリング実施場所（下）

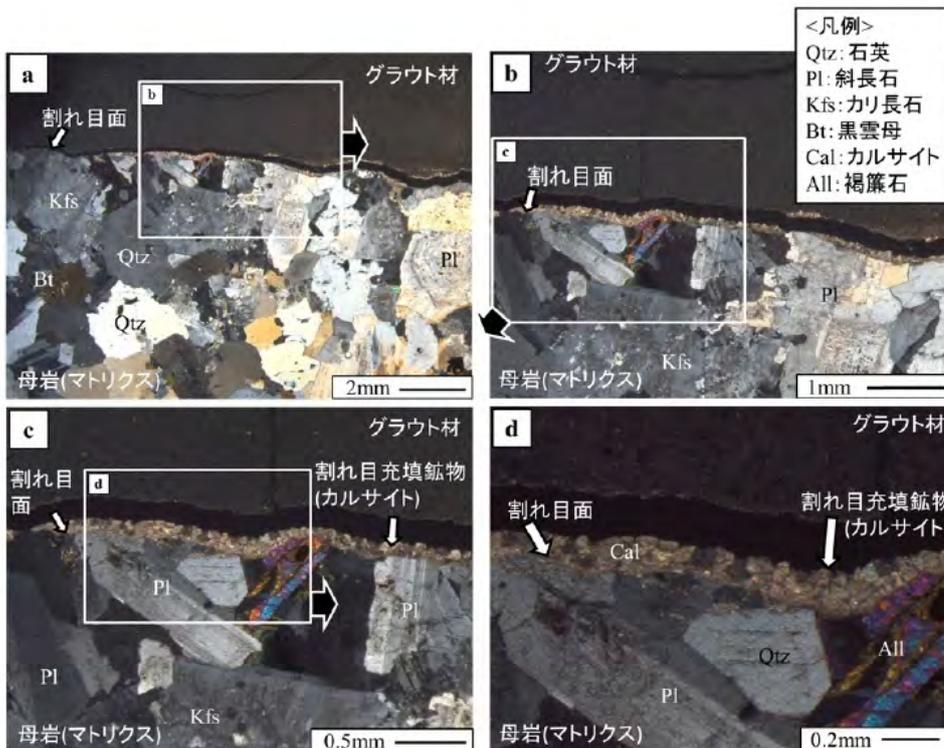


図2.5.4-4 割れ目面に連続的に認められる割れ目充填鉱物（湯口ほか，2013）

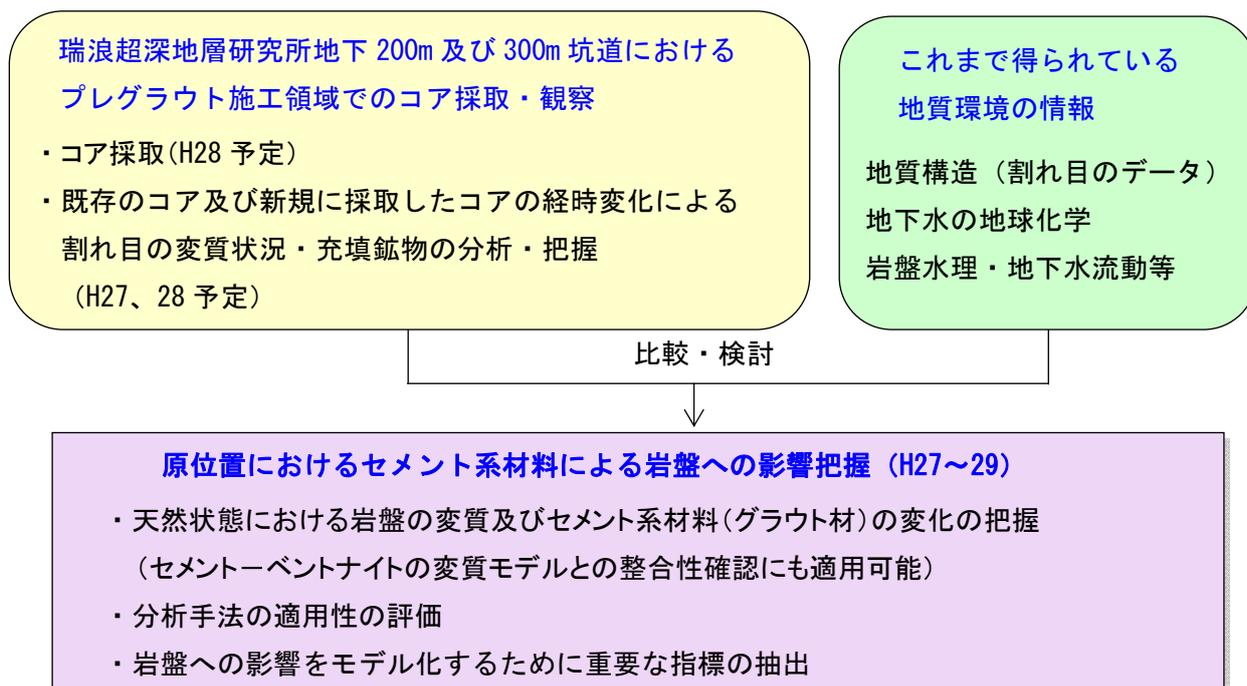


図2.5.4-5 本テーマの研究アプローチ

(2) 既存のボーリングコアを用いた室内分析

平成27年度は、瑞浪超深地層研究所の深度200m予備ステージ及び深度300m研究アクセス坑道のプレグラウト施工領域において既に採取したボーリングコアを用いて、グラウト材の岩盤への影響の経時変化を把握するため、グラウト材及びグラウト材と岩盤の接触部分の分析に必要な試料の作製、蛍光X線分析装置（XRF、堀場製作所XGT7200V）を用いた分析、走査型電子顕微鏡（SEM、日本電子JSM-7000F）を用いた観察、エネルギー分散型X線分光法（EDX）による元素マッピング、非破壊X線CTとX線回折観察（非破壊CT-XRD連成観察）を実施した。CT-XRDは、大規模放射光施設（SPring-8）のX線源を用い、非破壊で供試体の内部構造をX線CTで把握し、注目する微小領域のX線回折を行う分析方法とした（梶原ほか，2013；人見ほか，2014）。

試料に用いたボーリングコアの採取場所を表2.5.4-1に示す。

表2.5.4-1 試料に用いた既存のボーリングコア

採取場所	供試体番号	ボーリング孔	深度
深度200m予備 ステージ	10-1	No. 10	1.05-1.16m
	10-2	No. 10	1.16-1.23m
深度300m研究 アクセス坑道	-	B孔	0.00-0.90m
	-	C孔	0.00-0.36m

（試料採取場所は図2.5.4-2及び3を参照）

分析に必要な試料は、グラウト材と母岩間の剥離を避けるため、ボーリングコアの該当部分を

樹脂等で固めた後、岩石薄片を作成した。分析対象領域は顕微鏡観察によって選定した(図2.5.4-6, 7)。この分析対象領域に対してXRFを用いて元素マッピングを実施し、得られた分析結果については各元素の組み合わせをRGBカラーで表示した。また、この測定結果と過去に実施した同種の結果を比較し、特にグラウト充填部の各元素の量を半定量的に評価した。さらに、XRF分析に供したスライス片に対して、グラウト材と岩盤割れ目の接触面を含む箇所を対象とした低倍率SEM, 高倍率SEMでの観察及びEDXマッピング(分解能: 数百nm~数 μ m程度)を行い、二次鉱物の生成の有無や組成等を把握した。さらに、CT-XRDによる観察(分解能は20 μ m程度)を行い、観察された二次鉱物の構造等を詳細に調査した。

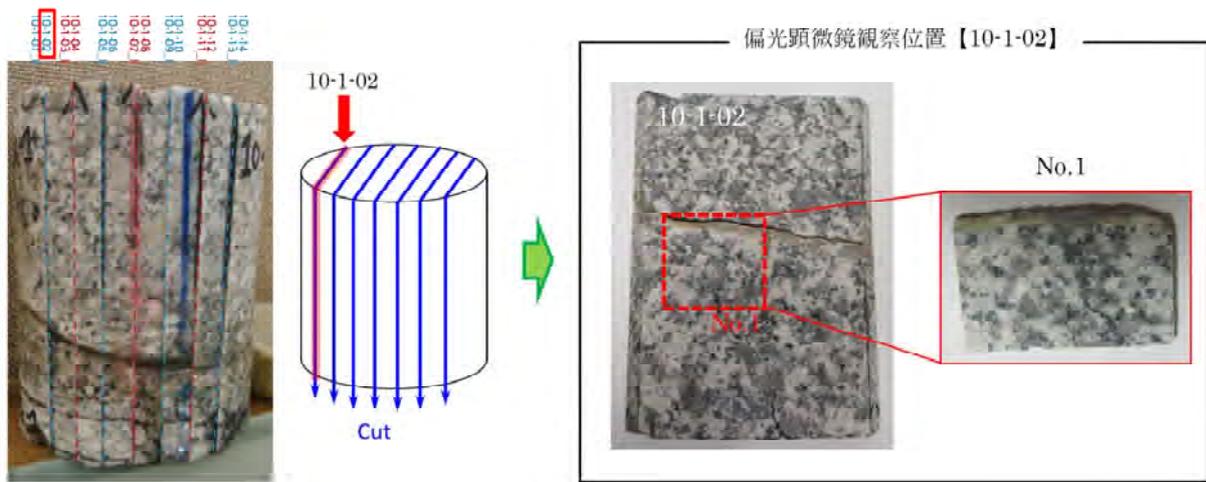


図2.5.4-6 スライス片の作製(深度200m予備ステージ供試体番号: 10-1の例)

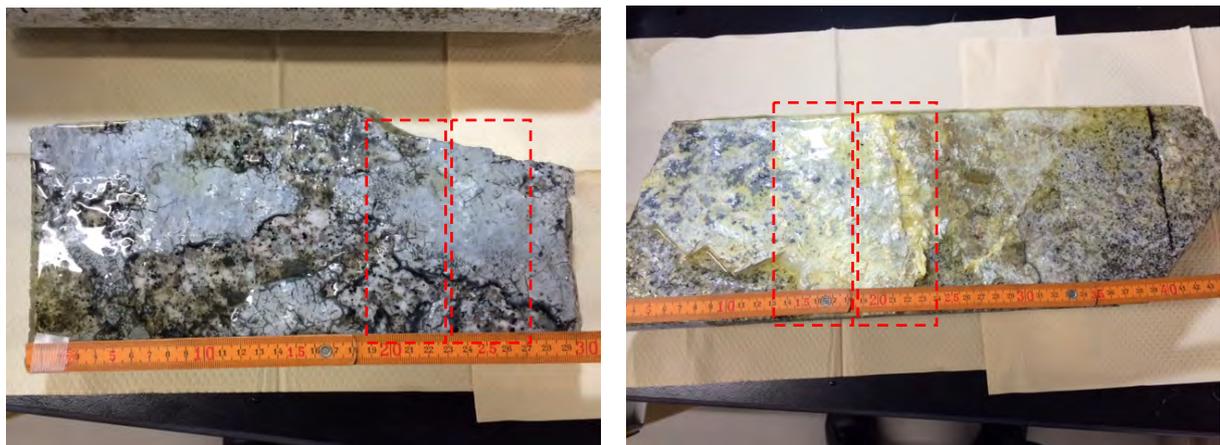


図2.5.4-7 岩石コアの状況(深度300mアクセス坑道のB孔(左)、C孔(右))

表面にグレーや黄色に着色されているものはグラウト材。

シリカレジンで固化した状況の写真で、赤枠点線部分を切断して分析を行う。

なお、深度200m及び300mの研究坑道におけるプレグラウトに使用したグラウト材は、いずれも

OPCであるが、使用したOPCの主な組成（品質例）を表2.5.4-2に示す。

表2.5.4-2 OPCの主な組成（品質例）

けい酸三カルシウム 3CaO・SiO ₂ (%)	けい酸二カルシウム 2CaO・SiO ₂ (%)	アルミン酸三カルシウム 3CaO・Al ₂ O ₃ (%)	鉄アルミン酸四カルシウム 4CaO・Al ₂ O ₃ ・Fe ₂ O ₃ (%)
56	18	9	9

1) 偏光顕微鏡観察結果

深度300m研究アクセス坑道の試料（B孔、C孔）については、石英とカリ長石が主成分の母岩であり、B孔のグラウト材は厚く充填された割れ目が主体で（図2.5.4-8）、C孔は複数のグラウト材が含まれる割れ目が主体であった。またC孔においては、黄色部分が視野的にも確認できた。深度200m予備ステージの試料（10-1、2）は比較的新鮮な細粒～中粒の黒雲母花崗岩であり、グラウト材の浸透・固着する割れ目は、孔口から深度4m程度まで認められ、低角割れ目にグラウト材の充填が比較的多く認められた。

母岩とグラウト材の接触面及びグラウト材接触面から内部に広がる微細な岩盤割れ目には方解石（炭酸カルシウム）が認められる（図2.5.4-8、9）。母岩とグラウト材の接触面で認められる方解石の厚さは1～5mm程度である。接触面で認められる方解石の産状（形状）は湧水割れ目で認められている方解石の産状（石橋ほか，2014）と類似していることから、この方解石が認められる割れ目は天然環境で湧水割れ目（選択的な水みち）として機能していたと考えられる。そして、水みちとなっていた連続的な空隙にグラウト材が充填したものを観察していると考えられる。また、グラウト内には微細な方解石が散在している例もある。これは、グラウトが流入する際には天然の方解石を破砕した結果またはグラウト材からの析出などの理由が考えられるが、現段階では由来を決定することは困難であり、地下水水質や施工条件などの確認も含めて検討が必要である。

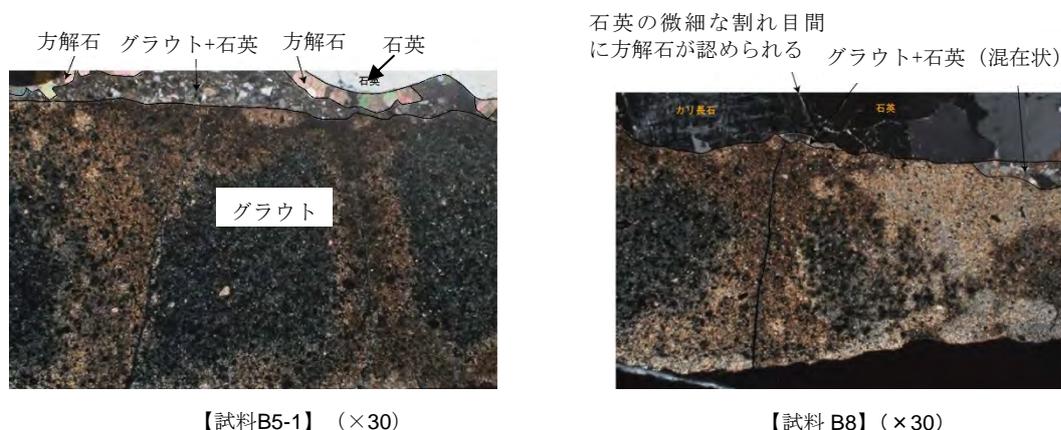


図2.5.4-8 グラウト材料内での明暗コントラスト
（グラウト内割れ目と境界部付近が明褐色）

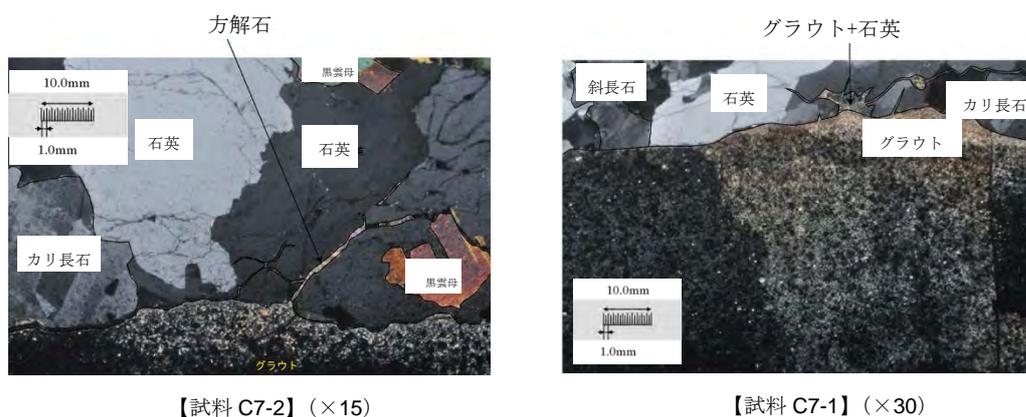


図2.5.4-9 微細な割れ目に存在する方解石

2) XRF分析結果

XRF分析における使用機器と測定条件は、下記のとおりである。

表 2.5.4-3 分析装置及び仕様・測定条件

装置名	堀場製作所製 XGT7200V	
仕様 ・ 測定条件	分解能	1.2nm
	分光法	エネルギー分散型X線分光法 (ED-XRF)
	X線管	Rh
	X線検出器	シリコンドリフト検出器 (SDD)
	面分析	
	管電圧	50kV
	管電流	1.0mA
	測定面積	約20mm×20mm
	測定幅	約78 μmピッチ
	ビーム径	約10 μmφ
	測定時間	1800秒 (1点当たりの測定時間0.027秒)
	解像度	256×256
	1次X線フィルター	無し
	測定環境	大気
	検出可能元素	Na~U

B孔試料の一部で、岩盤割れ目中にCa成分の偏析が見られた。グラウト側にはほぼ同じ濃度でCaの存在が確認された。画像からは表面から岩側へのCaの移動は生じていないか、ごくわずかと考えられるものの、Caの偏析がグラウト由来かは判断できない。岩側では、島状のFeの濃集部分が

見られた。目視の観察を合わせて考えると、岩に含まれる黒雲母に対応すると推定された（図2.5.4-10）。

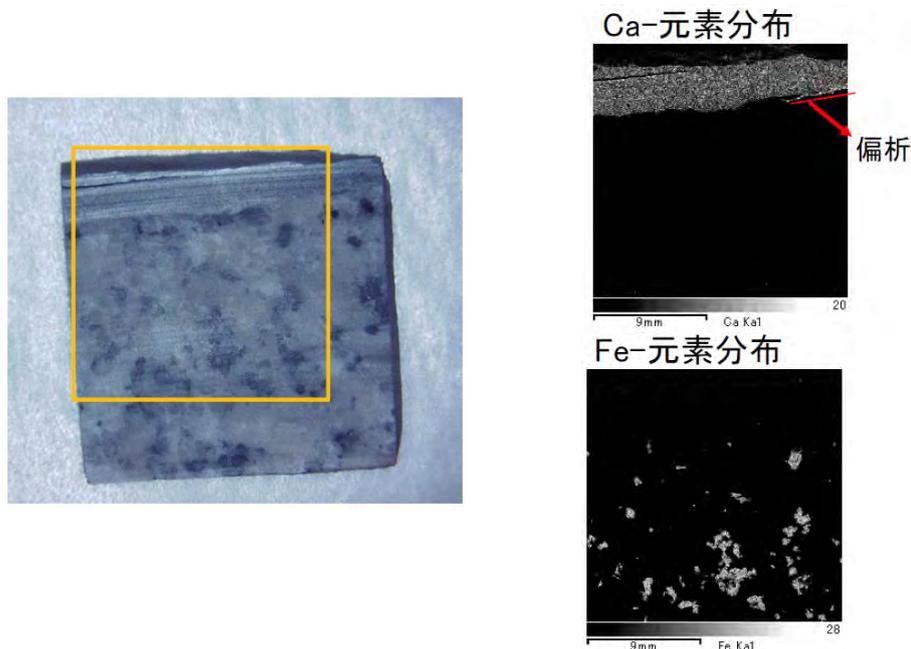


図2.5.4-10 B孔 (B3-①) のXRF分析結果

3) SEM-EDX分析結果

SEM分析における使用機器、測定条件は以下のとおりである。

表 2.5.4-4 分析装置および仕様

装置名	日本電子製 JSM-7000F	
仕様	分解能	1.2nm
	加速電圧	0.5~30kV
	倍率	×10~500,000
	試料寸法	150nm φ
	試料移動	X方向：70mm Y方向：50mm (モータ駆動/手動可能) Z方向：3~41mm, 傾斜：-5° ~70° 回転：360° エンドレス (モータ駆動)

SEM-EDX分析では、グラウト接触面から母岩における産状および元素分布を確認した。その結果、グラウト接触面から母岩側への元素の拡散を明瞭に捉えることは困難であった（図2.5.4-11）。Caの分布は、グラウト側で高い分布を示し、母岩側でまばらに分布する。この母岩側でCaが認められる範囲では、Si、Al、Na、K成分がやや低い傾向が認められ、Ca成分の多い斜長石とは異なる可能性がある。亀裂面から母岩への拡散を考える場合、拡散経路としては主に微小な割れ目や鉍

物粒界等が考えられるが、母岩側のCaの分布はまばらで一連の傾向は認められない。また、図2.5.4-11の母岩側は元素分布から主に長石類が分布していると判断できるが、長石類の分布領域における方解石の分布は天然の花崗岩中に一般的に認められる。このことから、母岩側のCa成分認められる領域は天然環境で形成された方解石であると考えられる（図2.5.4-11）。

以上のように、母岩である花崗岩中にはCaは微量にしか存在しないと考えていたが、採取した岩盤中にはグラウト前から方解石が形成されていた可能性が高く、グラウト材から供給されたCaの影響を分離し評価することが本手法のみでは難しい可能性が考えられる。

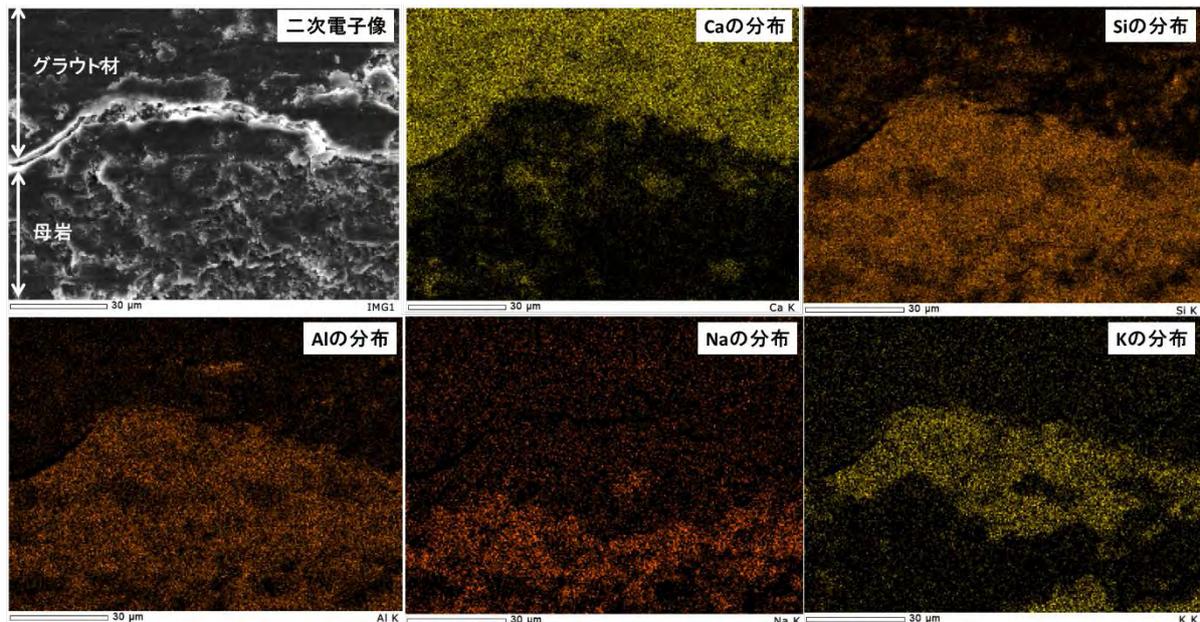


図2.5.4-11 高倍率SEMとEDX分析結果（B孔（B3-①）；スケールバーは30 μm）

4) CT-XRD分析結果

非破壊連成CT-XRD観察は、X線CTを用いて内部の非破壊形状観察を行い、変質発生などの関心領域を定める。さまざまなエネルギーを含む白色X線を用いているため、本測定では、回折角ではなくエネルギーをパラメータとするエネルギー分散型のX線回折チャートを得る。このため、X線回折用の検出器を回転させる必要がない（図2.5.4-12）。観察に用いた供試体は縦横3.5mm、高さ10mm程度の直方体形状に整形した。測定条件は、表2.5.4-5及び6のとおりである。

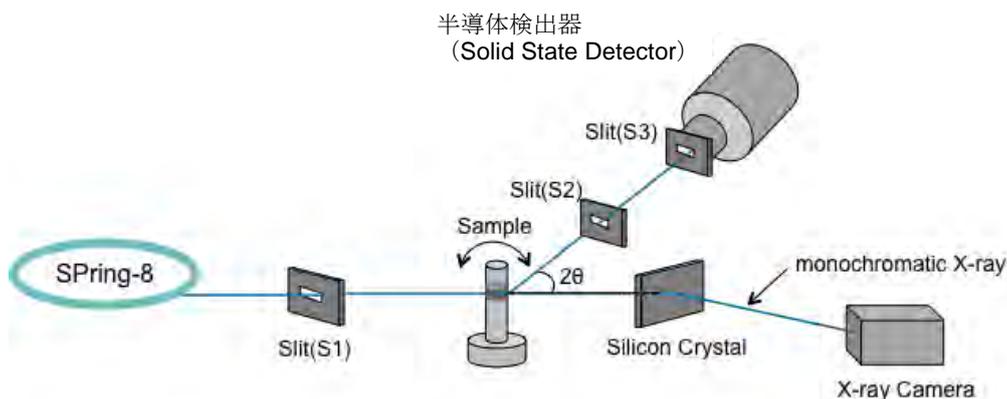


図 2.5.4-12 非破壊 CT-XRD 連成観察分析機器構成図

表 2.5.4-5 X線CTにおける分析条件

項目	条件	値	備考
供試体形状	水平方向長さ	3.5mm	CTの視野に収める
	高さ	10mm程度	CTの視野に収める
CT撮影条件	投影数	1500枚	水平画素数の2倍程度
	露光時間	150ms	光量確保
	照射エネルギー	25keV	供試体を透過可能
画像の仕様	水平方向画素長	7.14 μm ^(a)	CCDの仕様
	垂直方向画素長	5.08 μm ^(b)	CCDの仕様
	水平方向画素数	768 ^(c)	CCDの仕様
	垂直方向画素数	768 ^(d)	CCDの仕様
	水平方向視野	5.48mm	(a)* ^(c)
	鉛直方向視野	3.90mm	(b)* ^(d)

表 2.5.4-6 X線回折における分析条件

項目	条件	値	備考
照射ビーム	幅	0.15mm	スリット調整で作製
	高さ	0.05mm	スリット調整で作製
回折条件	X線	白色光	0~100keV程度
	回折角	10°	透過X線量を確保
	照射時間	5分	透過X線量を確保

B孔の結果では、グラウト材と岩の接合部に0.05mm程度の空隙が見られた。また岩側のグラウト材接触部に内部の色調と異なる領域が観察された。その色調の異なる領域の幅は、0.12mm程度であり、方解石が層状になって0.1mm程度堆積していた偏光顕微鏡の観察結果と同様であった。XRDの結果では岩側においても方解石を主成分とする層が観察されているが、グラウト側においても方解石の存在を示唆する結果を得た。

C孔の結果では、グラウト材と岩の接合部の多くの部分で密着した状態が観察され、グラウト材部分の内部にひび割れが見られ、一部輝度の高い（密度が大きい）領域（図2.5.4-13のひび割れ部の白色部分）が観察された。岩側のグラウト接触部に内部の色調と異なる領域は見られなかった。

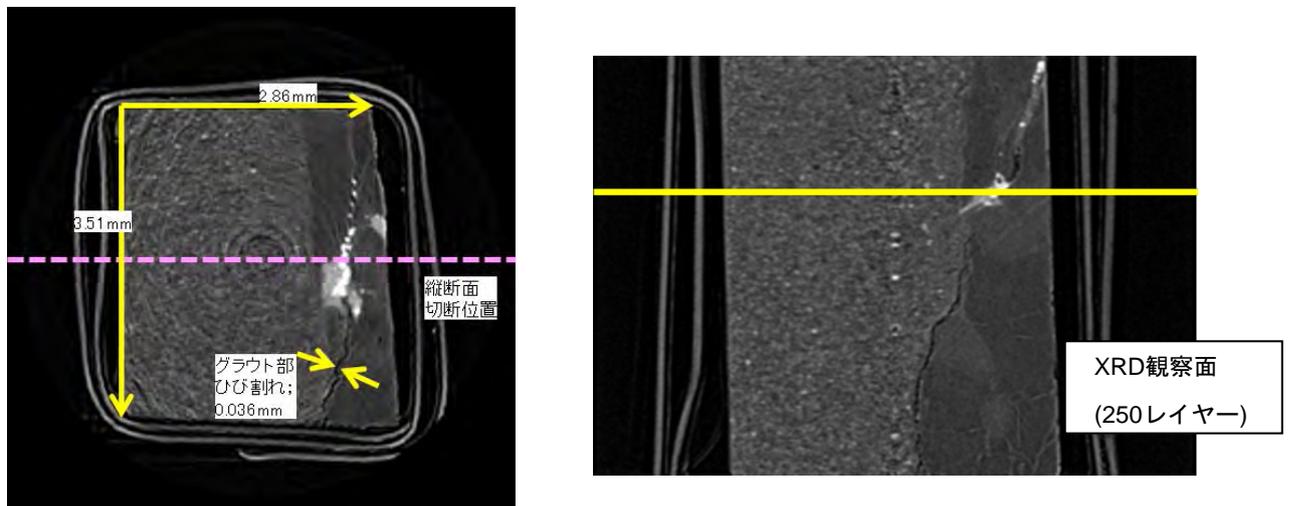


図2.5.4-13 C孔縦供試体の各観察結果寸法及びC孔縦供試体の縦断面

XRDの結果では、図2.5.4-14の右下に示すPoint1の回折チャートと方解石（calciteと表示）の回折データとの比較について、測定対象以外の領域におけるX線吸収が低エネルギー領域で発生していることから低エネルギー領域でのピークの検討は困難であるが、高エネルギー領域に着目すると測定領域のピーク位置は方解石と整合している。そのため、本領域は方解石であると類推できる。

本分析法はXRD等他の分析手法を用いた結果と同様な結果を得られているとともに、一定の層状ごとに非破壊で鉱物の同定が可能であることから、三次元的な鉱物の分布の把握に適用可能であることが確認できた。

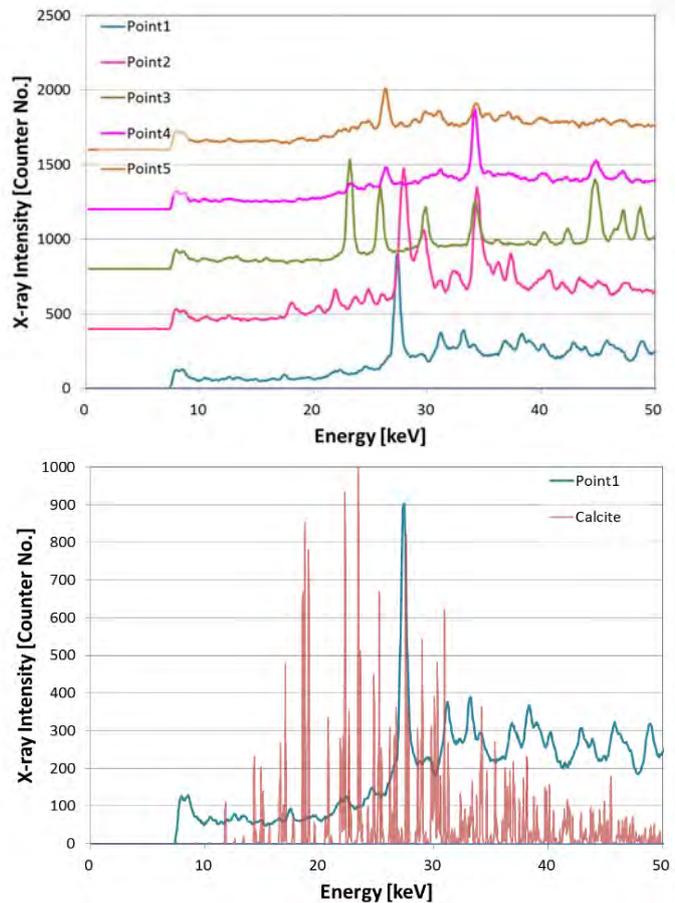
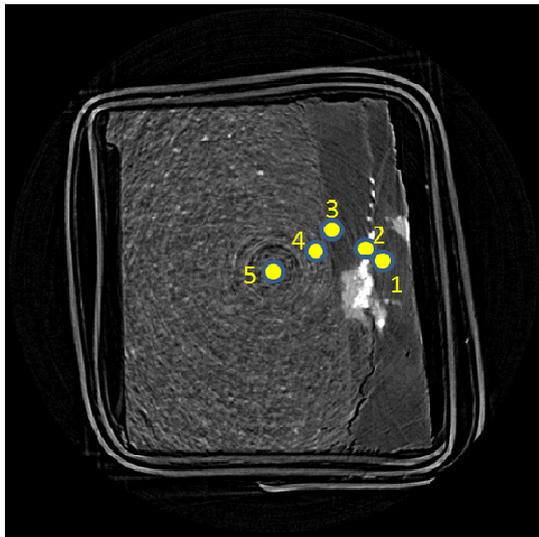


図2.5.4-14 CT-XRD分析結果

左：C孔縦供試体のXRD測定位置（250レイヤー）

右上：C孔縦供試体の各測定点におけるX線回折チャート

右下：C孔縦供試体Point1における回折チャートとCalciteデータとの比較

(3) グラウト材が岩盤に与える影響と評価手法の考察

坑道掘削により空洞近傍のグラウト領域に流れ込む地下水の状態は、セメント材料影響評価技術高度化開発（日本原子力研究開発機構，2015c）で検討されたシナリオの移流場（図2.5.4-15）に近いと考えられる。瑞浪の研究坑道を掘削している母岩である花崗岩中には Ca^{2+} が微量にしか存在しないと考えていたため、主に Ca^{2+} に着目した分析等により、図中のセメント影響の5つのモードのうち、3～5についてはボーリングコアの分析や水質の観測結果から類推できる可能性があると考えていた。このため、原位置から採取したグラウトを含む岩石コアの分析を実施してきた。

今年度の室内分析を行った結果、岩盤側には方解石の薄い層状の領域が確認されるとともに、グラウトに接する岩盤側の割れ目において、主にCaの偏在が見られた。また、グラウト材すなわちセメント硬化部分は、炭酸カルシウムを主成分とした硬化物であること、CT-XRDが非破壊で三次元的な鉱物の分布を推定できる分析手法の一つとして有用であることが確認できた。

一方、これまで得られている瑞浪超深地層研究所の地質環境の情報として、母岩である花崗岩

中には微量にしか存在しないと考えていたCa²⁺が、深度300m研究アクセス坑道の壁面湧水には約40mg/Lの濃度で含まれていることが明らかになっている（大森ほか，2014）。地下水中に豊富に含まれているCaイオンがソースとなり、透水性亀裂の空隙部分に方解石の沈殿が選択的に生じる可能性があるとの指摘（吉田，2012）もあり、採取した岩盤中の亀裂にはグラウト前から方解石が沈殿していた可能性が高く、結果としてグラウト材から供給されたCa²⁺の影響を分離して評価することが現時点で難しいことが分かってきた。この特徴は、瑞浪超深地層研究所が掘削されている花崗岩体に広くみられ、そのような方解石の沈殿がみられる割れ目が坑道スケールでは主要な水みちになっていることも地質学的調査から明らかになりつつある。このため、今回の分析で把握できたCaの偏在やその由来は現時点では不明であるが、方解石の沈殿がみられる割れ目が選択的な水みちになっているメカニズムを特定した上で、分析試料の採取と分析および地質環境の情報との比較・評価を行うことが、セメントによる岩盤変質のメカニズムの検討における今後の課題と考えられる。

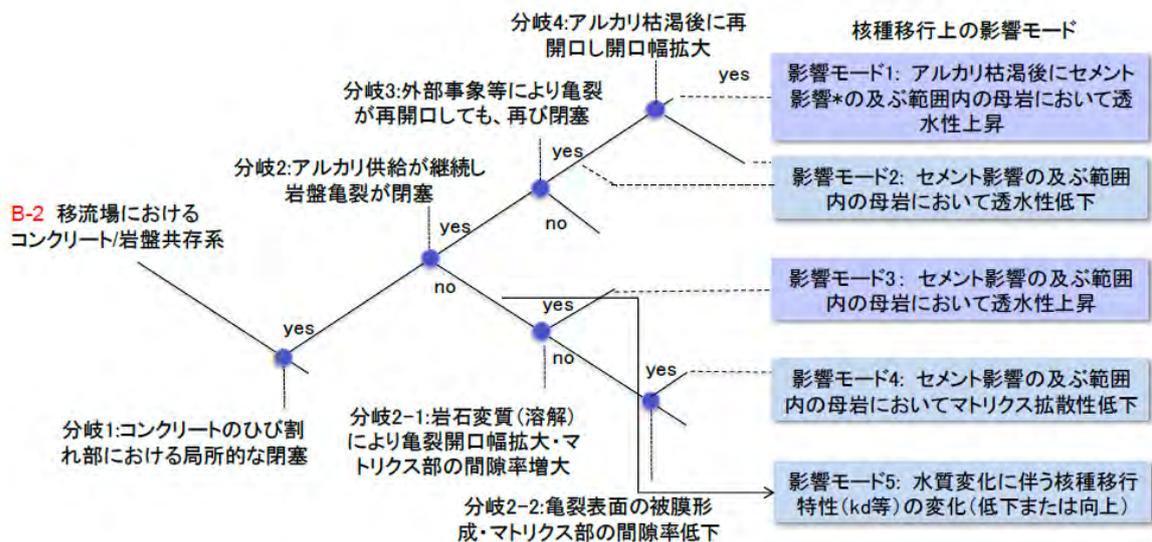


図2.5.4-15 移流場におけるコンクリート／岩盤共存系のロジックツリー
（日本原子力研究開発機構，2015c）

2.6 ニアフィールド複合現象／核種移行の体系的評価に向けた技術開発

本節では、2.2節から2.5節に示した4つのサブタスクの成果を集約し、ニアフィールドの環境変遷とバリアシステムの状態変遷（以降、「ニアフィールドシステム変遷」という）、及びニアフィールドシステム変遷とその不確実性を考慮して核種移行を評価できる技術（以降、「ニアフィールド総合評価技術」と呼称する）の開発について述べる。

2.6.1 全体アプローチ

平成25年度に検討したニアフィールド総合評価の概念を図2.6.1-1に示す。すなわち、処分システムの長期性能に影響を及ぼす可能性がある要因に対し、個々の現象に忠実なモデル開発を行い、現象の相関関係を考慮しながら個別現象モデルを適切に組み合わせて複合現象評価を行う。これによりシステム全体としての環境や状態の変遷についての知見を拡充し、この知見を核種移行の場の設定に反映させて核種移行解析を行うという構造である。

以上の評価を体系的に実施するために、平成26年度～平成29年度の検討では、

- 必要となる個別現象の情報・知見の集約
- ニアフィールドシステム変遷についての分野横断的・整合的な現象解析に向けた共通モデル・シナリオの整備
- 複合現象評価解析システムの開発
- ニアフィールドシステム変遷の理解に基づき核種移行解析を行う手法の開発

を行い、これをニアフィールド総合評価システムとしてまとめる。

平成27年度は、まず、今後3年間で開発するニアフィールド総合評価システムの全体構想（2.6.2項）を示した。また、ニアフィールドシステム変遷に係る現象理解や個別モデル開発の情報・知見の調査を継続し、これらを集約（2.6.3項）するとともに、ニアフィールドシステム変遷についての分野横断的・整合的な現象解析に向けた共通モデル・シナリオの整備（2.6.4項）を進めた。さらに、ニアフィールド複合現象解析システム（2.6.5項及び2.6.6項）の開発に着手した。なお、総合評価システムの具体的なフレームワーク構築、設計などについては、ニアフィールドシステム変遷の理解に基づき核種移行解析を行う手法の開発を進めてから着手することとし、これらについては平成28年度以降に取り組むこととした。

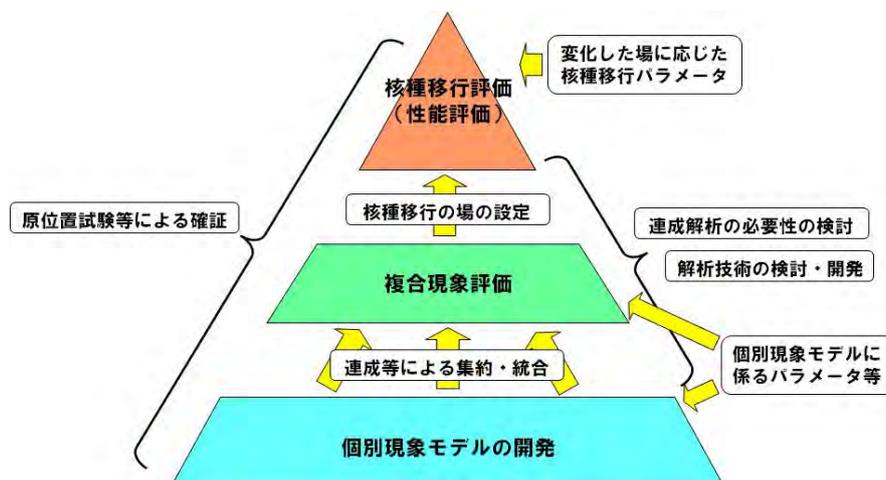


図 2.6.1-1 ニアフィールド総合評価の概念（日本原子力研究開発機構，2014a）

2.6.2 ニアフィールド総合評価システムの全体構想

ニアフィールドシステム変遷とそこでの核種移行挙動を体系的に評価するためのニアフィールド総合評価システムを開発する。その全体構想を図2.6.2-1に示す。ニアフィールド総合評価システムは、ニアフィールドシステム変遷を評価するためのニアフィールド複合現象解析システム、ニアフィールドシステム変遷を考慮して核種移行解析を行うニアフィールド性能評価システム、各評価段階で必要となる共通モデル・シナリオ・データベース、成果の体系化やユーザー支援に関するツール・システムと、これらのシステムやツール、データベースの動作基盤としての役割を果たす総合評価プラットフォームで構成される。以下に、性能評価、現象理解、モデル・計算科学、知識マネジメントという4つの視点から定めたシステムの開発目標（開発のゴール）を記す。

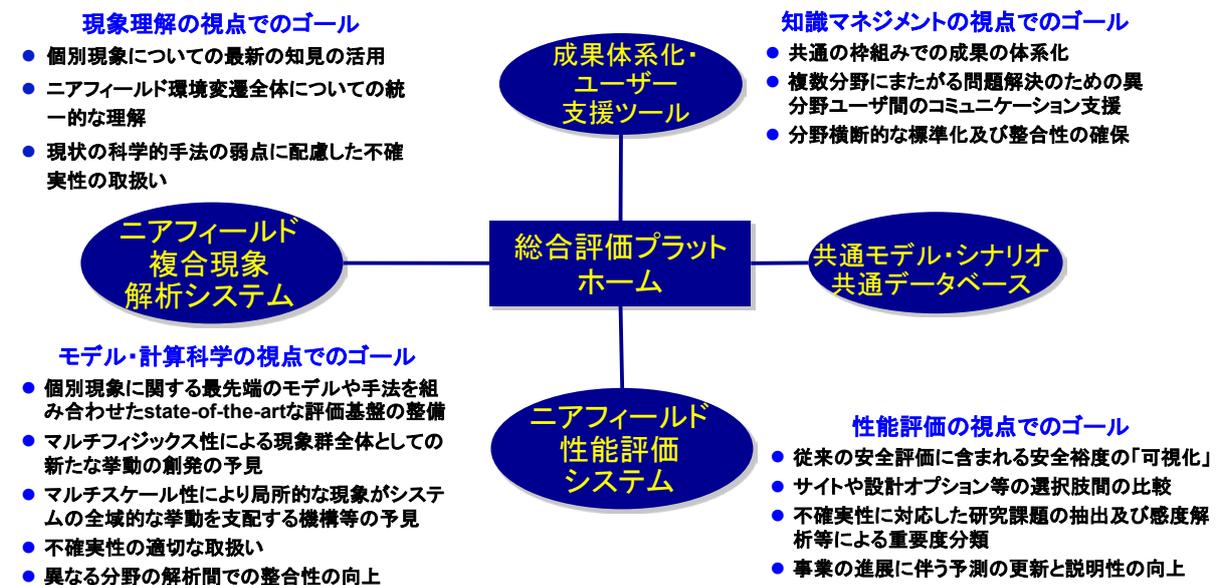


図 2.6.2-1 ニアフィールド総合評価システムの全体構想

まず、ニアフィールド性能評価システム（図2.6.2-1）については、性能評価の観点から、長期安全性についての説明性の向上、及び地層処分事業の各段階における多様なステークホルダーの合意に基づく意思決定の根拠となる信頼性の高い情報の提供に資するシステムを目指して、以下を可能とするシステム開発を目標とする。

- 従来の性能評価に含まれる安全裕度の「可視化」： 現象理解に含まれる不確実性等に配慮した地層処分システムの性能の保守的な仮定に代わって、最新の知見に基づく予測に照らして最尤と考えられる状態での地層処分システムの性能を定量化し、その差分としての保守性の程度を定量化すること、また不確実性に起因する地層処分システム性能の変動幅と上記の保守性の程度を比較することにより、十分な安全裕度の存在を確認すること
- サイトや設計オプション等の選択肢間の比較
- 不確実性に対応した研究課題の抽出及び感度解析等による重要度分類
- 事業の進展に伴う予測の更新と説明性の向上

また、ニアフィールド複合現象解析システム（図2.6.2-1）は、性能評価を支える基盤として、ニアフィールドシステム変遷に関連する多様な現象及びこれらの相互関係についての理解を深め、これに基づく長期予測の確信性の向上を図るためのものであり、現象理解の視点から、以下の要件を満たすことを目標とする。

- 個別現象についての最新の知見の活用
- ニアフィールドシステム変遷についての分野横断的・整合的な理解
- 現状の科学的手法の弱点に配慮した不確実性の取扱い

上記の分野横断的・整合的な理解のために、共通する現象に対する研究領域間での整合しない取り扱いや、仮定・モデルについての競合・矛盾などを解消するために、共通モデル・シナリオ及び共通データベース（図2.6.2-1）を整備する。

さらに、ニアフィールド複合現象解析システムの開発を行うにあたり、数学モデリング・計算科学の視点からは、以下のような点に留意して開発を進めることにより、関連する多様な現象及びこれらの相互関係の重要な特徴を失うことなく、現実的な計算時間の中でこれらの総体について十分な精度でのシミュレーション実施を可能とする。

- 個別現象に関する最先端のモデルや手法を組み合わせたstate-of-the-artな評価基盤の整備
- マルチフィジックス性の現象群全体としての新たな挙動の創発（部分の性質の単純な総和にとどまらない性質が、全体としてあらわれること）の予見
- マルチスケール性により、異種材料間の境界等における局所的な現象がシステムの全域的な挙動を支配する機構等の予見
- 知識ギャップ（複数の分野間の境界等のように従来の研究で得られた知見が不足している領域）での複数の競合する仮説等も含めた不確実性の影響の把握とそれに基づく不確実性の適切な取扱い
- 異なる分野の解析間での整合性の向上：異分野のデータベース統合やインタフェイス等の分野についての知見収集及びそれを踏まえたインタフェイス開発

最後に、ニアフィールド総合評価システム全体の開発にあたってはニアフィールドシステム変遷に関連する多様なデータやツール群の連携のみではなく、これらの開発や利用に携わるユーザーがそれぞれ所有している知識やノウハウの効率的な共有及び分野横断的な協働による新たな知識の創出を支援するという知識マネジメントの視点も含める。具体的には以下のような項目を要件とした、成果体系化・ユーザー支援ツール（図2.6.2-1）を開発する。

- 共通の枠組みでの成果の体系化：シミュレーションやストーリーボード等の共通の枠組みの作成によってシステム全体の挙動についての理解を統一的に表現する
- 複数分野にまたがる問題解決のための異分野ユーザー間のコミュニケーション支援
- 分野横断的な標準化及び整合性の確保
- 異分野間の知識共有の促進

2.6.3 個別現象の情報・知見の整理

ニアフィールド総合評価で必要となる基盤情報整備として、平成26年度までにガラス固化体、オーバーパック、緩衝材で構成される人工バリアシステムを対象とし、ニアフィールドシステム変遷に係る現象について、現象理解とモデル開発の現状について調査・検討を進めた。

平成27年度は、対象をコンクリート支保にまで拡張して調査・検討を継続するとともに、これらの成果を集約して、ニアフィールドシステム変遷に係る現象及びこれらの相互関係、ならびにシステム性能（核種移行挙動）に及ぼす影響について情報・知見の整理を行った。また、この結果に基づき、システム性能への影響という観点から重要となる現象/プロセスの抽出を行い、ニアフィールドシステム変遷に係る現象解析に向けての課題を整理した。

(1) 情報・知見の整理方法

表2.6.3-1に、本研究で調査対象としたニアフィールドシステム変遷と核種移行挙動に関連する主な現象のリストを示す。表2.6.3-1では、各現象を核種移行挙動、人工バリア等の状態変遷、主要な影響因子という3つのカテゴリーに分類している。

表 2.6.3-1 ニアフィールドシステム変遷と核種移行に関する現象リスト

現象名	カテゴリー
ガラスからの核種溶出	核種移行挙動
緩衝材中の核種移行	
NF 母岩中の核種移行	
ガラス溶解	人工バリア等の状態変遷
オーバーパック腐食挙動（Fe イオン供給・腐食生成物層の形成・膨張・開口）	
緩衝材の再冠水挙動（温度上昇、膨潤、熱変質等）	
鉄腐食影響による緩衝材変質	
セメント影響による緩衝材変質	
コンクリート支保の変質・劣化	
セメント影響による母岩変質	主要な影響因子
放射線影響	
ガス発生・移動	
有機物の反応	
微生物活動	

これらの現象に対して、各研究領域における最新の知見・モデル・評価事例、研究領域間での現象の取り扱いに関する関係性や矛盾・競合、現象解析上の課題（例えば、個別現象間での連成の必要性）等に着目して調査を行い、図2.6.3-1に示すような「知見整理マトリクス」及び「知見整理票」という形式でまとめた。「知見整理マトリクス」では、表2.6.3-1に示した各現象を対角線上に配し、これらの現象についての理解やモデル開発の現状を中心に「知見整理票」に記述した。また、マトリクスの非対角要素の位置には、主として現象解析の観点から、現象間の相互作用や物質収支などを考えてニアフィールド全体（ないしは注目しているマトリクス対角要素の近傍）で配慮することが重要となるような現象/プロセスを中心として記載し、これらについて対角要素と同様に「知見整理票」を作成した。

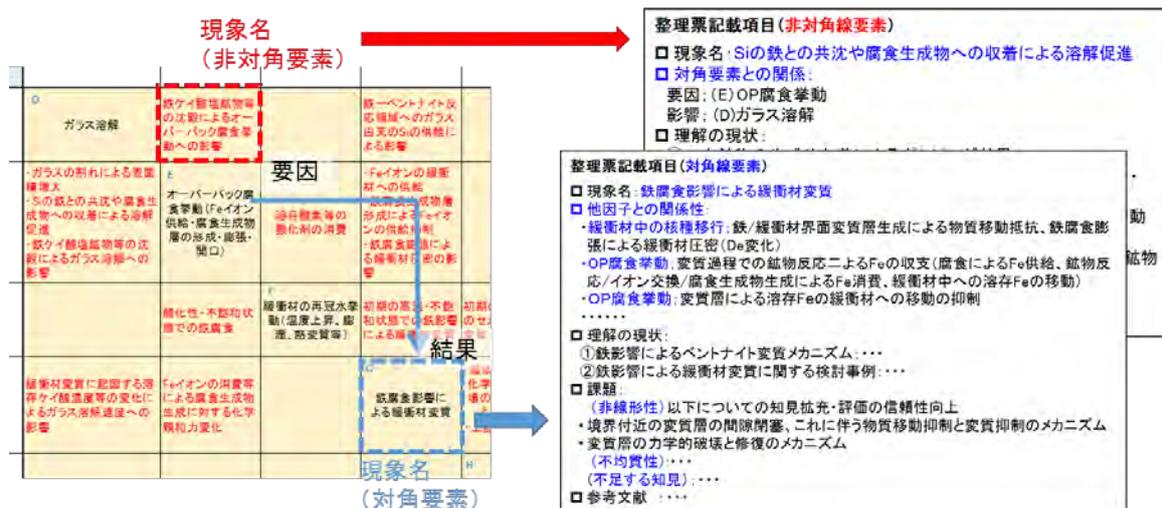


図 2.6.3-1 「知見整理マトリクス」(左) と「知見の整理票」(右) の概略図

(2) 重要な現象/プロセスの抽出

上記の整理結果に基づき、性能評価 (核種移行) への影響という観点から重要となる現象/プロセスを抽出した。その抽出結果と各現象の概要を①ガラス固化体/オーバーパック、②緩衝材/埋め戻し材、及び③放射性核種の溶解度/実効拡散係数/分配係数に関連した現象に分け、それぞれ表2.6.3-2、表2.6.3-3、及び表2.6.3-4に記載する。

表 2.6.3-2 ガラス固化体/オーバーパックに関する知見

<p>オーバーパックの早期破損</p>	<p>オーバーパックは、腐食の進行にともないその強度が周囲からの応力を下回った段階で機械的に破損する可能性がある。処分環境下での腐食形態としては全面腐食の可能性が高く、局部腐食によるオーバーパックの早期破損を考慮する必要はないと考えられる。ただし、セメント影響などにより緩衝材間隙水のpHが、局部腐食防止の観点から緩衝材環境下での暫定的設計目標であるpH10.5を上回るようになる可能性も否定できず、ニアフィールド環境変遷に関する知見拡充が課題である。</p>
<p>炭素鋼の保護的被膜による腐食抑制</p>	<p>Johnsonら（2003）による既往の腐食試験結果の整理によれば、還元環境での長期の全面腐食速度は0.1～10$\mu\text{m}/\text{y}$の範囲にあり、環境条件や保護的表面被膜の安定性にも依存しているものと考えられている（King, 2007）。Smartら（2001；2002）は、腐食速度が時間経過により低下していることを示した。また、ベントナイト共存下において、温度80$^{\circ}\text{C}$、炭酸塩濃度0.1 mol/dm³ の条件では、保護被膜の成長により鉄の嫌気腐食速度が0.1$\mu\text{m}/\text{y}$以下となり、一方、温度50$^{\circ}\text{C}$、人工海水（炭酸塩濃度2.4 mmol/dm³）の条件では明瞭な表面皮膜の成長が認められず、腐食速度は2$\mu\text{m}/\text{y}$程度である（谷口ほか, 2010）。</p>
<p>移流によるガラス溶解促進</p>	<p>緩衝材の安全機能である止水性が発揮されていればガラス固化体近傍で水の流れが生じる可能性は低いが、緩衝材の止水性の喪失を想定する場合には地下水組成や流速がガラス溶解速度に対する不確実性要因となる。動力炉・核燃料開発事業団によって、浸出速度への流速の影響を測定した試験として、ガラス固化体を水の流れがある環境に置き、その浸出速度を測定した実験が実施されている（動力炉・核燃料開発事業団, 1990）。この実験では200$^{\circ}\text{C}$の蒸留水中において流速を0～50 ml/hの範囲で変化させ、流速の増加に伴い比例的に浸出速度が増加していることが観察されている。なお、上述の流速条件ではまだ浸出速度の飽和値には達していないものと考えられている。SiO₂の濃度増加がほとんど起こらないような高流速系では、流速によらず固化体と水との反応速度で決まる、ある一定の浸出速度を示すことが知られている（Mendel, 1984）。</p>
<p>高pH水によるガラス溶解促進</p>	<p>ガラス固化体の溶解速度は一般に非晶質シリカ溶解に関する一次溶解反応式を基礎として表されており（核燃料サイクル開発機構, 2003）、接触する間隙水のpHがガラス固化体の溶解速度に影響することが知られている。このため、セメント溶脱の影響による間隙水のpH上昇の影響がガラス固化体近傍まで及ぶことでガラス溶解が促進される可能性がある。</p>
<p>腐食膨張によるガラスの割れ</p>	<p>オーバーパックが腐食膨張を起こすと、ガラス固化体に応力が加わる可能性がある。ガラス固化体中で製造時のひび割れに加えて新たにひび割れが生じ、破壊靱性より大きい応力が加わった部位は即座にひび割れが伸展して破砕する可能性がある。このような応力が加わった部位では破砕・亀裂表面積増大によってガラス固化体の有効表面積が増加するため、ガラスの溶解速度の増大に寄与する可能性がある。また、園部・石黒(1990)によれば、ガラス固化体製造時に生じたひび割れも破砕プロセスに関する重要な初期条件であると考えられる。ただし、初期割れ目によってガラスが既にブロック状に分割されている場合にはその後のガラスの破砕は軽減される（日本原子力研究開発機構, 2008b）。</p>
<p>沈殿、吸着、拡散による溶存ケイ酸消費</p>	<p>ガラスの溶解が進展するにともなって溶存ケイ酸濃度が飽和状態に近づいた後、再び溶解速度が増加する可能性が示唆されている。この時点で溶解速度が加速するメカニズムとして、二次鉱物生成や腐食生成物への収着による溶存ケイ酸の消費に起因する化学的親和力の増大が考えられている（ポンピング効果）（核燃料サイクル開発機構, 2003）。二次鉱物の組成は液相の組成に依存し、ゼオライトやスメクタイト、Feケイ酸塩、Mgケイ酸塩などが考えられている（Jollivet et al., 2012；Maeda et al., 2011；McVay and Buckwalter, 1983；McGrail, 1986；Michelin et al., 2012）。この現象を理解するには、pH や Eh、温度といった周囲の環境条件の理解とその場合の鉄ケイ酸塩鉱物の沈殿速度を理解することが必要となる。また、オーバーパックが開口している場合は緩衝材領域への拡散による溶存ケイ酸の濃度低下等も影響する。</p>

表 2.6.3-3 緩衝材/埋め戻し材に関連する知見

鉄腐食生成物と鉄ケイ酸塩鉱物の生成割合	<p>オーバーパック腐食に伴い生じ、緩衝材中を拡散で移行する鉄(II)イオンは、鉄ケイ酸塩鉱物をはじめとした二次鉱物の析出や鉄腐食生成鉱物（マグネタイト、シデライト、水酸化鉄等）を生成することで消費され（例えば笹本ほか，2012）、鉄腐食生成物と鉄ケイ酸塩鉱物の生成割合はこれらの鉱物の沈殿速度や液相の組成からの影響を受けると考えられる。</p> <p>鉄影響による緩衝材変質の実験的な知見としてNF-PROにおける圧密ベントナイト中の鉄製ワイヤの腐食試験(Mildowski et al. , 2009a : 2009b)等の事例があるものの、上記の鉄腐食生成物や鉄ケイ酸塩鉱物の生成割合についてのコンセンサスは得られていない状況である。</p>
オーバーパック腐食膨張による緩衝材圧密	<p>オーバーパックと地下水の接触による鉄腐食膨張により、緩衝材の密度や厚さが変化する可能性が考えられる。オーバーパックの腐食膨張とは、腐食生成物の比重が炭素鋼に比べて小さいために体積の膨張が生じることである。腐食膨張により緩衝材は外側方向に圧縮されるため、緩衝材の半径方向の厚さを低減させるとともに、緩衝材が圧密されて間隙率が減少する。</p> <p>緩衝材が圧密されることにより、厚さ、空隙率、拡散係数等への影響を生ずる。</p>
鉄-ベントナイト境界面での二次鉱物沈殿による間隙閉塞	<p>鉄影響によるベントナイト変質部が二次鉱物によって間隙の閉塞した緻密な変質層を形成すると、これにより拡散が抑制され、長期間にわたってベントナイト変質部は境界近傍に限定される。しかしながら、変質層が実際に緻密な間隙構造を持ち保護的に働くか否かについての実験的知見は未だ得られておらず、また、未変質のベントナイト領域の膨潤圧との力の平衡等についても考慮されていないため、鉄腐食の影響については合理的に説明可能な上限は与えられてない。また、後述するように鉄腐食膨張等による応力の影響で間隙閉塞そのものが破られる可能性も考えられる。</p>
セメント-ベントナイト境界面での二次鉱物沈殿による間隙閉塞	<p>鉄-ベントナイトと同様に、緻密な変質層の形成による物質移動抑制を示唆する事例が報告されている。</p>
鉄影響による変質部のひび割れ	<p>ベントナイト変質部は二次鉱物が非膨潤性であるために微細な割れが多く生じる可能性がある。非膨潤性の変質部の微細な割れのために鉄イオンの拡散が促進されると、外周の未変質のベントナイトに鉄イオンが供給され続ける。このようなプロセスが生じるとベントナイトの変質は時間とともに拡大する。</p> <p>ニアフィールド現象全般に関する欧州の国際共同研究プロジェクトNF-PROにおける圧密ベントナイト中の鉄製ワイヤの腐食試験では、鉄表面付近の鉄ケイ酸塩を含む変質領域から放射状に広がった微小亀裂に沿った鉄の移動が観測されている(Milodowski et al., 2009a ; 2009b)。微小亀裂は、鉄表面近傍の鉄ケイ酸塩鉱物の生成した領域における膨潤性・可塑性の低下(喪失)に加えて、二次鉱物による体積増加が生じていることが原因とも考えられる。この観察事実は、ベントナイトの変質部が周囲の未変質(あるいは低変質)のベントナイトに微小亀裂を生じ、その割れ目に沿ってFe(II)イオンが拡散するというメカニズムで変質領域が拡大する可能性を示唆するものと考えられる。</p>
地下水による緩衝材浸食	<p>地下水による緩衝材の浸食は、粘土粒子に働く地下水流からの牽引力が、粒子と粘土構造間の摩擦及び吸引力の合計よりも高い場合に生じ、パイピングの結果として発生する他、地下水流のある岩盤割れ目と緩衝材が長期に渡って接触することによっても発生する(Pusch, 1983)。また、浸食において、ベントナイトはコロイド粒子あるいはそれより大きな粒子として流出する可能性がある。</p>

表 2.6.3-4 放射性核種の溶解度／実効拡散係数／分配係数に関する知見 (1/2)

<p>有機物、微生物の影響</p>	<p>地下水中の有機化合物としては、溶存カルボン酸やアミノ酸、糖類及び炭化水素が挙げられる。特にカルボン酸とアミノ酸は、金属元素に対する錯形成サイト（配位子）となるカルボキシル基やアミノ基を持ち、金属元素との安定度定数（錯体の安定度を示す平衡定数）が高い(Hogfeldt, 1979)。これらの低分子有機化合物が、地層環境中で金属元素の移行挙動に影響を与えることは、多くの研究者により指摘されている(Schwab et al., 2008)。</p> <p>また、微生物反応は環境中において放射性核種の移行性を著しく変化させる(Pedersen, 2005)。例えば、微生物細胞への核種の取着、濃集、酵素等による化学形態変化、鉱物化（不溶化）、酸化還元反応、錯体生成などが挙げられる。これらの反応により、核種の移行が促進される場合もあれば、沈澱や取着により核種移行が遅延される場合もある。微生物反応によって、直接的あるいは間接的に移行挙動が変化するが、直接的な移行影響としては取着や鉱物化（不溶化）等による核種の化学形態の変化が挙げられる。間接的な影響としては、微生物代謝活性によって酸化還元状態やpH条件等の環境が変化することにより、核種の化学形態や溶解度が変化することが考えられる。</p>
<p>酸化還元フロント</p>	<p>廃棄体からの放射線による地下水の分解で生成する過酸化水素や酸素などの酸化性化学種は、人工バリア中へと拡散し、緩衝材中でパイライトや2価の鉄イオンなどの還元剤を消費しながら拡散する。還元剤が消費された酸化性雰囲気領域と、還元剤が残っている領域の間に酸化還元フロントが形成され、これが次第に外側へと広がっていくと考えられる(Neretnieks, 1982)。このような酸化還元フロントの形成と移行という概念は、1982年にスウェーデンのNeretnieks(1982)により提案された。</p> <p>放射性核種には酸化還元により異なる酸化状態を取り得るものがあるが、これらは多くの場合に酸化数が高い状態でオキシ酸型となり、これに伴い溶解度や分配係数が変化する。例えば、ウランは酸化還元電位に鋭敏であるが、自然界においてはU(IV)及びU(VI)として存在する可能性が最も高い。U(VI)は酸化数VIで最も安定しており、U(IV)は還元条件下でのみ存在することができる。嫌氣的条件下では、高い濃度の炭酸イオンが溶液中に存在する（水溶性ウラン炭酸錯体の形成が溶液中のU(VI)を安定化させる傾向にある）場合には、U(VI)は引き続き重要であると考えられる。しかし、還元剤が存在する場合には、U(IV)が優勢となる（日本原子力研究開発機構, 2014b）。</p>
<p>緩衝材のコロイドろ過性</p>	<p>緩衝材の主成分であるスメクタイトは狭隘な層構造を有しており、その層間距離は数オングストロームである。また、粒子間隙もスメクタイトで埋められるため、連続した大きな間隙は存在しないと考えられている(Pusch, 1998)。コロイドのサイズによっては、緩衝材中の微小な間隙を透過出来ないことや、流速場の流線から外れて緩衝材に接触し、そこでとどまる可能性がある。このように緩衝材の内側で生成したコロイドについては、コロイドろ過効果により移行が抑制され、核種移行挙動への影響は無視できるものと考えられている（油井ほか, 2004：核燃料サイクル開発機構, 1999b）。しかしながら、鉄影響やセメント影響によって緩衝材が溶解して有効粘土密度が減少したり、鉱物組成の変化によって結晶構造が変化し、コロイドろ過性が喪失する可能性がある。</p>
<p>オーバーパック沈下による緩衝材短絡</p>	<p>緩衝材が設計どおりの機能を発揮すれば、オーバーパックをその中心位置に保持し、核種移行を遅延し、コロイドの移動を抑制することが期待される。飽和した緩衝材に比較し、炭素鋼製オーバーパックの比重は約3倍大きいいため、緩衝材の物理・化学的な変質や劣化が生じた場合、オーバーパックが沈下する可能性がある。オーバーパックの沈下が進行すれば、設計で期待する緩衝材の機能に影響を及ぼすことになる。SR-Siteでは、緩衝材の膨潤圧が0.2MPa以上あればオーバーパックの沈下は生じないと報告されている(SKB, 2011)。</p>
<p>緩衝材の止水性の影響</p>	<p>緩衝材では、飽和にともなう膨潤と、施工において生じた隙間や周辺岩盤の亀裂への自己シールにより、低透水性の場が想定される。したがって、緩衝材領域はほぼ拡散支配となることが推定され、物質移動は拡散と取着に支配されることになる。ただし、緩衝材の劣化により透水係数が大きくなる場合には、緩衝材中でも移流・分散による物質移動が支配的になることが考えられる。また、動水勾配が極端に大きい場合も同様に移流支配になることが考えられるが、このような地質環境はサイト選定の段階で避けることが出来るため、考慮する必要は無い。</p>

表 2.6.3-4 放射性核種の溶解度／実効拡散係数／分配係数に関する知見 (2/2)

<p>放射性核種の緩衝材への収着</p>	<p>緩衝材への放射性核種の収着挙動に関しては、化学種によってイオン形態や水酸基への収着性が異なることにより差異が生じる。緩衝材の主成分鉱物であるモンモリロナイトはアルミノケイ酸塩によるシート状の構造中に負の電荷を持ち、層間に交換性陽イオンを有することから、間隙水中の陽イオンはイオン交換によりモンモリロナイトに収着される可能性がある。また、モンモリロナイトの結晶端には、pH に依存して、酸・塩基の両性を示す水酸基（シラノール基及びアルミノール基）が存在し、収着サイトとなる可能性がある（核燃料サイクル開発機構，1999b）。中性の場合、陽イオンは水酸基のうち電気陰性度の高い酸素に、陰イオンは水素に収着する可能性がある。酸性の場合は水酸基に水素イオンが付加され、陰イオンが収着しやすくなる。そしてアルカリ性の場合には水酸基から水素イオンが脱離し、陽イオンが収着しやすくなる（Zachara and McKinley, 1993；Morris et al.，1994）。これらのイオン交換や水酸基への収着はいずれも可逆で、速い収着反応と考えられているため、収着する溶質の濃度が十分に希薄で収着サイトが飽和しないのであれば、線形収着となり元素の固液への分配は分配係数により記述できる（核燃料サイクル開発機構，1999b）。また、セメントや鉄の影響によって緩衝材や間隙水が変質すると、イオン交換や表面錯体生成といった核種の収着メカニズムが変化し、分配係数の値も変動する。</p>
----------------------	--

(3) ニアフィールドシステム変遷に関する現象解析に向けての課題

ニアフィールドシステム変遷の評価で必要となる現象解析では、2.6.3(2)で抽出したニアフィールドシステム変遷と核種移行挙動に関する重要な現象／プロセスについて、それらの相互関係を考慮して適切に取り扱うことが重要となる。こうした現象／プロセスの相互関係の全体像をインフルエンスダイアグラムにまとめた（図2.6.3-2）。例えば、表2.6.3-3に示した「鉄影響による（緩衝材）変質部のひび割れ」についての現象解析では、「鉄影響における緩衝材変質」に係る化学-物質輸送プロセスとオーバーパックの「腐食膨張」という力学的プロセスという異なる現象を連成させる必要がある。このように、ニアフィールドシステム変遷に関する現象解析では、図2.6.3-2に示す複数の異なる現象/領域間のマルチフィジックス性のフィードバックループを適切に考慮することが必要である。また、異種材料間の境界やひび割れ部などの局所的現象がシステム全体の挙動に影響する可能性があることから、上記のマルチフィジックス性に対処すると同時にマルチスケール性に留意することも重要である。例えば、「鉄影響における緩衝材変質」の現象解析では、「鉄-ベントナイト境界面での二次鉱物沈殿による間隙閉塞」（表2.6.3-3）という局所スケールでの化学-物質輸送プロセスの特徴とその影響を適切な解像度で捉えて、システム全体に反映することが必要となる。さらに、知見不足により排除しきれない不確実性を取り扱うための手段として、競合する知見に対して複数のモデルオプションを準備し、これを取り込んだ現象解析を行うことにより不確実性の影響を幅として捉えることも重要となる。

後述する2.6.4項以降の検討では、以上のような現象解析の課題に対処することに主眼をおき、本項で調査・整理した内容のうち、マルチフィジックス性、マルチスケール性の特徴が重要となると考えられる炭素鋼オーバーパック-ベントナイト緩衝材の相互作用に関連する現象を中心に取り組むこととした。

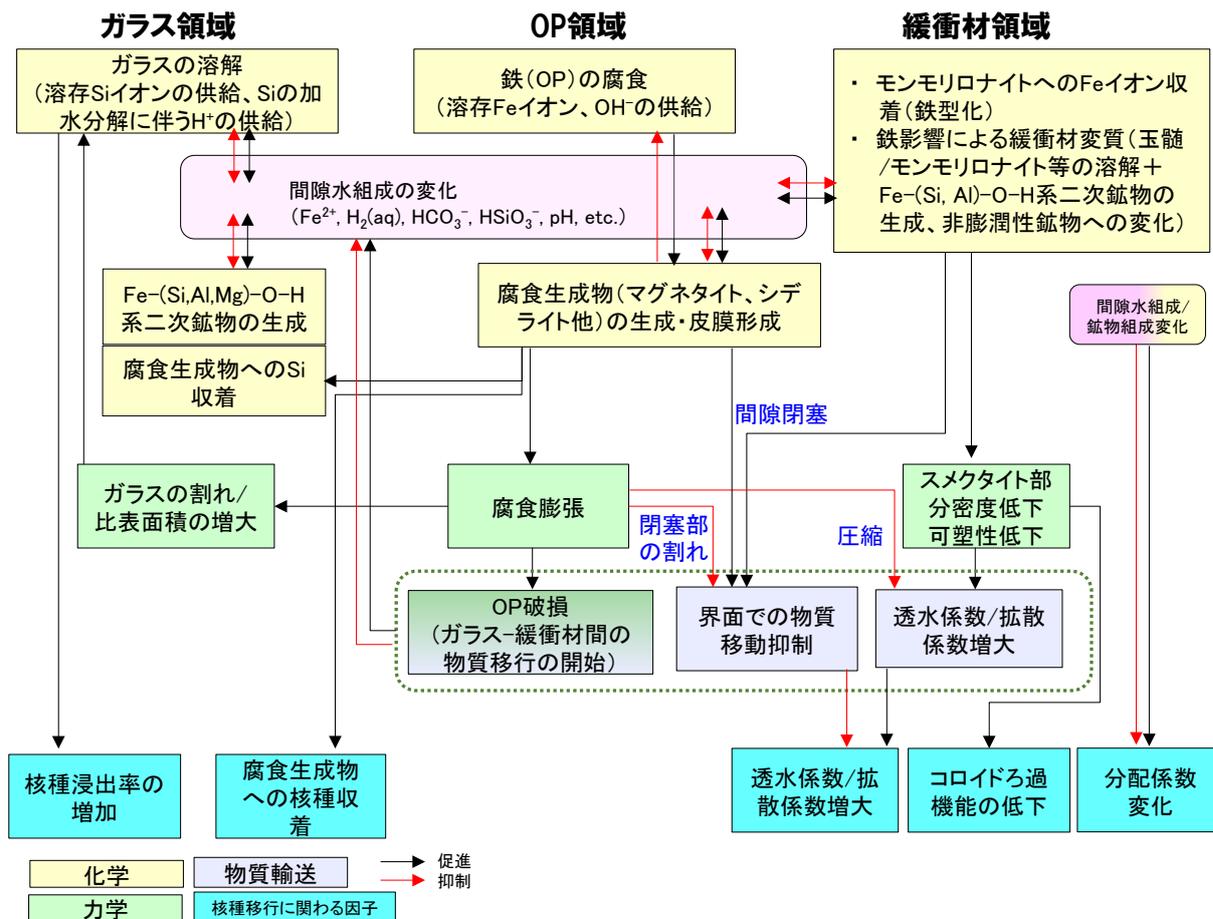


図 2.6.3-2 ニアフィールドシステム変遷と核種移行挙動に関するインフルエンスタイプダイアグラム (補足) 本図の作成では、表2.6.3-1に示した「人工バリア等の状態変遷」と「核種移行挙動」のカテゴリに分類された現象(本図では、簡略化のためコンクリートとNF母岩に関する現象を除いている)を対象とした。また、表2.6.3-1に示した「主要な影響因子」については、現段階では知見の不足などにより現象解析で取り扱うことが困難であり、今後の検討課題とした。

2.6.4 ニアフィールドシステム変遷についての分野横断的・統合的な現象解析に向けた共通モデル・シナリオの整備

ニアフィールドシステム変遷の評価では、関係する多様な個別現象やそれらの相互関係についての取り扱いがシステム全体として矛盾のないものとするのが重要であり、このためには分野横断的な共通の現象理解に基づいた、統合的なモデル・シナリオ構築を進めていく必要がある。本項では、炭素鋼オーバーパック - ベントナイト緩衝材の相互作用に関連する現象を対象として、分野横断的・統合的に現象解析を実施するための共通モデル及びシナリオの整備について述べる。

(1) 共通モデルの整備

本整備では、図2.6.3-2に示した「ニアフィールドシステム変遷と核種移行挙動」のうちの、炭素鋼オーバーパック - ベントナイト緩衝材の相互作用に関する現象/プロセスを対象として、2.6.3項で整理した各研究領域における最新の知見・モデルに基づき、以下の観点に留意して、共

通モデルでの取り扱いをまとめた。

- I. 知見・モデルの不確実性が大きい、あるいは共通の現象に対して競合・矛盾する仮説やモデルに対して現状ではコンセンサスが得られていないため、排他的なモデルオプションを用意してこれらを切り替えて用いるなどケーススタディ的に不確実性を取り扱う必要がある項目
- II. フィードバックループによる相互影響、ひびわれの発生などの不連続性を考慮してマルチフィジックス性・マルチスケール性の連成が必要となる項目
- III. 物質収支の点から全体を視野に入れて複合的に取り扱うことが必要な項目
- IV. 様々な系の状態や条件に対応可能で、共通的に利用できる項目

(2) シナリオの構築

現象解析では、上記 I に分類されるモデルを含む場合のように、一義的な解析だけで評価することが困難であり、可能性のある複数のシナリオを構築し、シナリオに沿って適切なモデルオプションを選択して解析する必要がある。例えば、「鉄影響による緩衝材変質」については、「鉄腐食生成物と鉄ケイ酸塩鉱物の生成割合」（表 2.6.3-3）に記したように、現状の知見では、鉄腐食に伴い放出される鉄(II)イオンが主に腐食生成物として沈殿し、消費される可能性、オーバーパックと緩衝材の界面近傍で鉄ケイ酸塩鉱物等として沈殿・消費される可能性、及びある程度緩衝材領域へ拡散してから鉄ケイ酸塩鉱物として沈殿・消費される可能性があり、これらの分岐の条件については明らかにされていない。このような分岐を解析的に評価するには、腐食生成物の皮膜形成に伴って変化する鉄イオンの供給速度、鉄腐食生成物と鉄ケイ酸塩鉱物の沈殿速度、これら鉱物の沈殿に伴う物質輸送特性変化を考慮したモデル等が必要であり、これらモデルの信頼性を高めて定量的な解析が実施できるようにすることは将来的な課題である。ここでは、図 2.6.3-2 に示した現象／プロセスについて、それらの時系列と分岐の条件を整理し、以下に記す「鉄影響による緩衝材変質」に対するシナリオを構築した。

(i) シナリオ 1 (図 2.6.4-1)

シナリオ1では、鉄腐食に伴い溶出した鉄(II)イオンは鉄腐食生成物として、あるいは鉄ケイ酸塩鉱物としてオーバーパックと緩衝材の境界面近傍で沈殿することとする。また、こうした二次的な沈殿物によりオーバーパック表面は保護的皮膜で覆われ、あるいは境界面近傍で緻密な変質層が形成され、これらにより鉄(II)イオンの緩衝材領域への拡散が抑制されるものとする。さらに、オーバーパックの腐食膨張などによって緻密な変質層が破壊されることがあっても、二次鉱物の沈殿によって自己修復される（「鉄-ベントナイト境界面での二次鉱物沈殿による間隙閉塞」（表 2.6.3-3））とする。このようなプロセスによって、長期間にわたって緩衝材変質部は境界近傍に限定される可能性があるとする。

(ii) シナリオ 2 (図 2.6.4-2)

温度条件や化学的条件等によっては鉄腐食生成物の皮膜生成が抑制される場合がある（表 2.6.3-2 の「炭素鋼の保護的被膜による腐食抑制」の欄に記載）。そこで、シナリオ2では、鉄腐食に伴い放出される鉄(II)イオンは主として緩衝材領域へ拡散し、非膨潤性の鉄ケイ酸塩鉱物として沈殿することを想定する。この場合、緩衝材強変質部は二次鉱物が非膨潤性であるために収

縮して微細な割れが多く生じる可能性があり、こうした変質部の微細な割れを通じて鉄イオンの拡散が促進されることにより緩衝材の変質部が時間とともに拡大する可能性があるものとする。

(iii) シナリオ3 (図 2.6.4-3)

シナリオ1で想定した鉄腐食生成物の保護的な皮膜や、鉄影響による緩衝材変質部が生じるものの、それによる鉄イオンの拡散抑制は機能せず、緩衝材変質部が拡大することを想定する。また、緩衝材強変質部では非膨潤性鉱物への変質や二次鉱物沈殿によるセメンテーションなどが生じ、脆性材料の挙動を示すようになることに加えて、オーバークックの腐食膨張やガス圧力上昇等の力学的な作用により皮膜や変質層のひび割れが生じる（「鉄影響による変質部のひび割れ」（表 2.6.3-3））とする。このような割れを通じて鉄イオンの拡散が促進されることにより、結果的に長期間にわたり緩衝材変質部が拡大する可能性があるとする。さらに、坑道外側のコンクリート支保等の劣化によって拘束力が低下し、緩衝材強変質部外周部に引張応力が発生する場合には、変質部の不均質性などに起因して割れが放射状に発生することとなり、この放射状の割れに沿って変質が局部的に拡大する可能性があるとする。

以上のように設定したシナリオは、いずれの可能性も現状の知見では否定できないものの、相互に矛盾した仮定を含んでおり、また、物質収支（この場合は鉄イオン）の点から考えても、少なくとも同時には成立しないことが明らかである。このようなシナリオに対して、本項で整備した共通モデルを用いて、現象解析を実施することで、それぞれのシナリオの生起可能性やその条件を評価することができる。

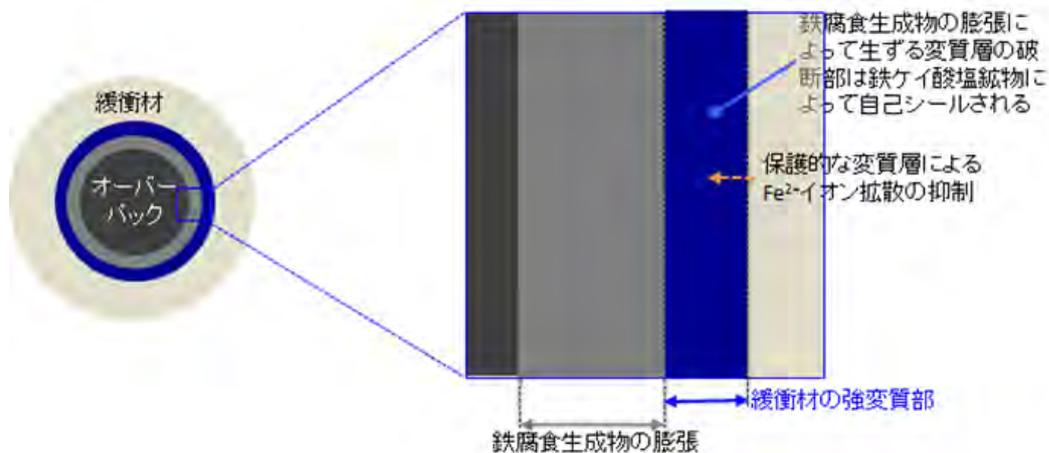


図 2.6.4-1 シナリオ1 (緩衝材変質部は境界近傍に限定される)

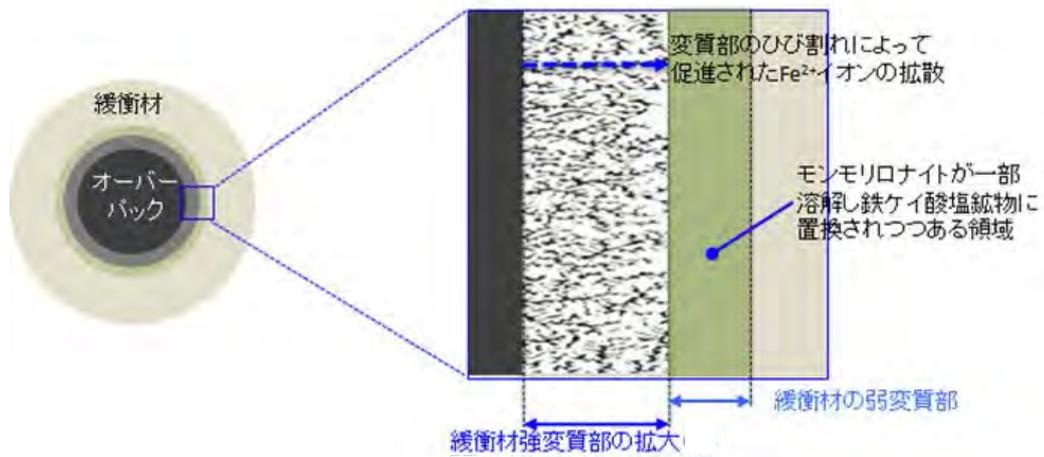


図 2.6.4-2 シナリオ 2 (変質部に微細な割れが生じ、鉄イオンの拡散が促進)

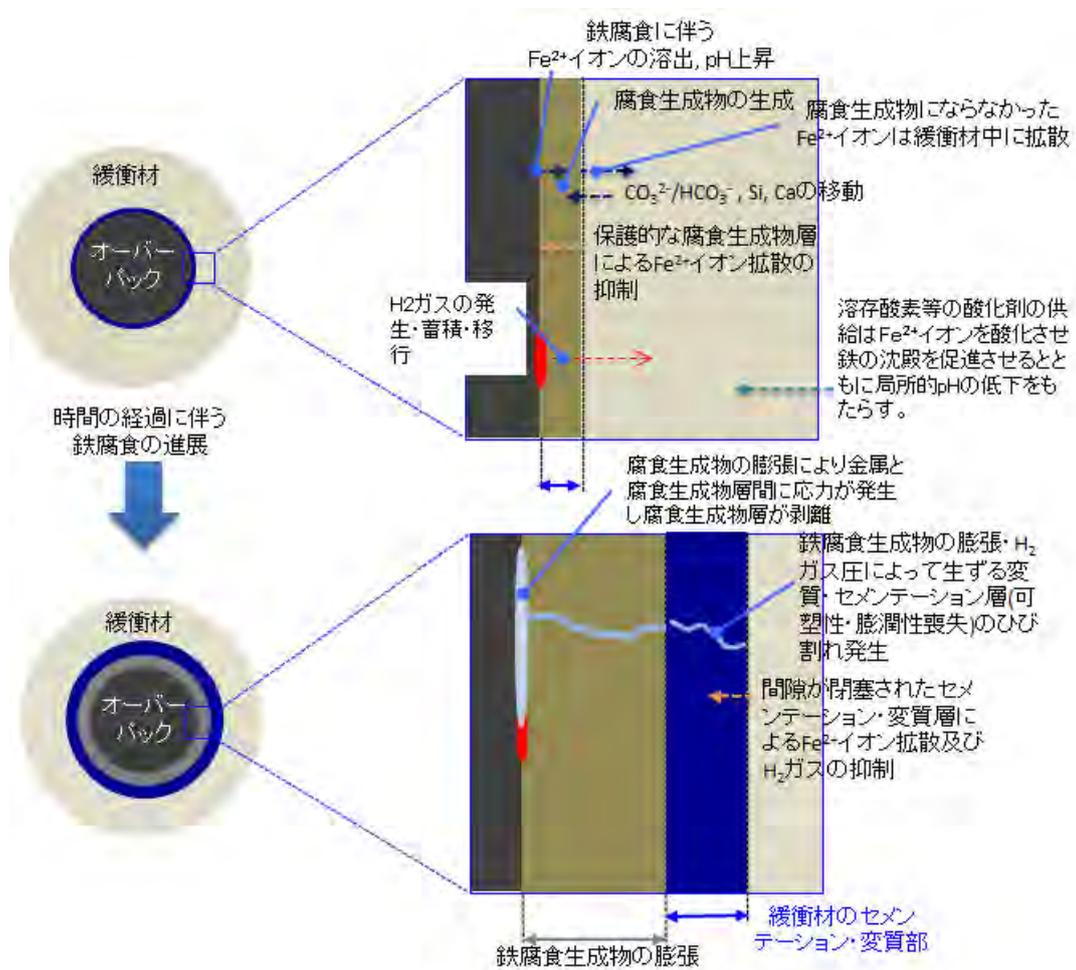


図 2.6.4-3 シナリオ 3 (腐食膨張による緩衝材変質部の割れと不均質な変質部の進展)

2.6.5 ニアフィールド複合現象解析システムの開発

本項では、ニアフィールド総合評価システム (図2.6.2-1) の構成要素となるニアフィールド複合現象解析システムの開発について述べる。平成27年度は、2.6.4項で構築した「鉄影響による緩

衝材変質」に対するシナリオに沿った複合現象の解析を実施するための手法を開発する。

(1) ニアフィールド複合現象解析システムプロトタイプの概要

2.6.4項で記したように、鉄影響による緩衝材変質の評価では、ベントナイト変質部の収縮によるひび割れや、鉄腐食膨張に起因するひび割れなどが生じ、その割れを通じてさらに鉄イオンが緩衝材未変質部へ拡散し、変質部が拡大するといった正のフィードバック機構が存在する可能性を考慮する必要がある。また、不均質性等に起因してこのような現象が局部的に進むことにより、卓越した変質フロントの移動といった可能性もある。このような可能性を評価するための現象解析では、鉄腐食膨張による緩衝材圧密などの影響を取り込んで化学-物質輸送解析と力学解析を連成させる技術に加えて、既往の研究で扱われたことのないベントナイト変質部の力学特性変化や「割れ」の進展を扱う解析技術が必要となる。

以上の背景の下、本システム開発では、化学-物質輸送解析と力学解析を連成させる技術として、TRU 地層処分的人工バリアシステムを対象に開発された、有限要素法による力学解析コードMACBECE2014（平野ほか，2016）と有限体積法を用いた化学物質輸送解析コードQPAC（Quintessa，2013）を用いた連成解析手法（日本原子力研究開発機構，2015c）を、図2.6.5-1に示すガラス固化体、炭素鋼製オーバーパック、ベントナイト緩衝材、コンクリート支保及び岩盤からなるHLW地層処分システムの体系（坑道横置き鉛直二次元断面）で利用可能なように拡張して適用することとする。なお、ここで使用するMACBECE2014には、2.5.2項に記した解放力载荷による改良は反映していない。また、「割れ」の進展については、粒状体個別要素法（Distinct Element Method：以下DEMという）による予察的解析を行い、それによって割れのパターンや局所性などに関する定性的情報を得て、連成解析に反映させる手法を開発する。

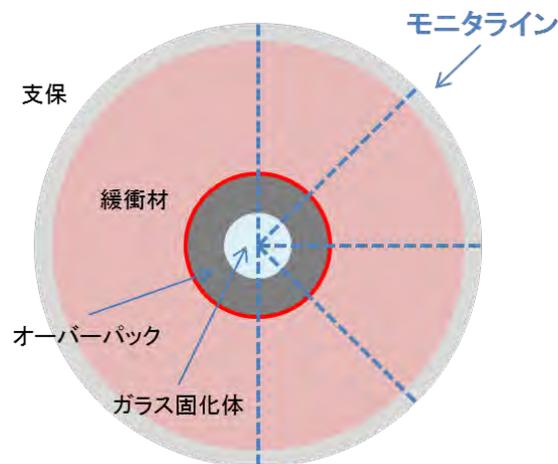
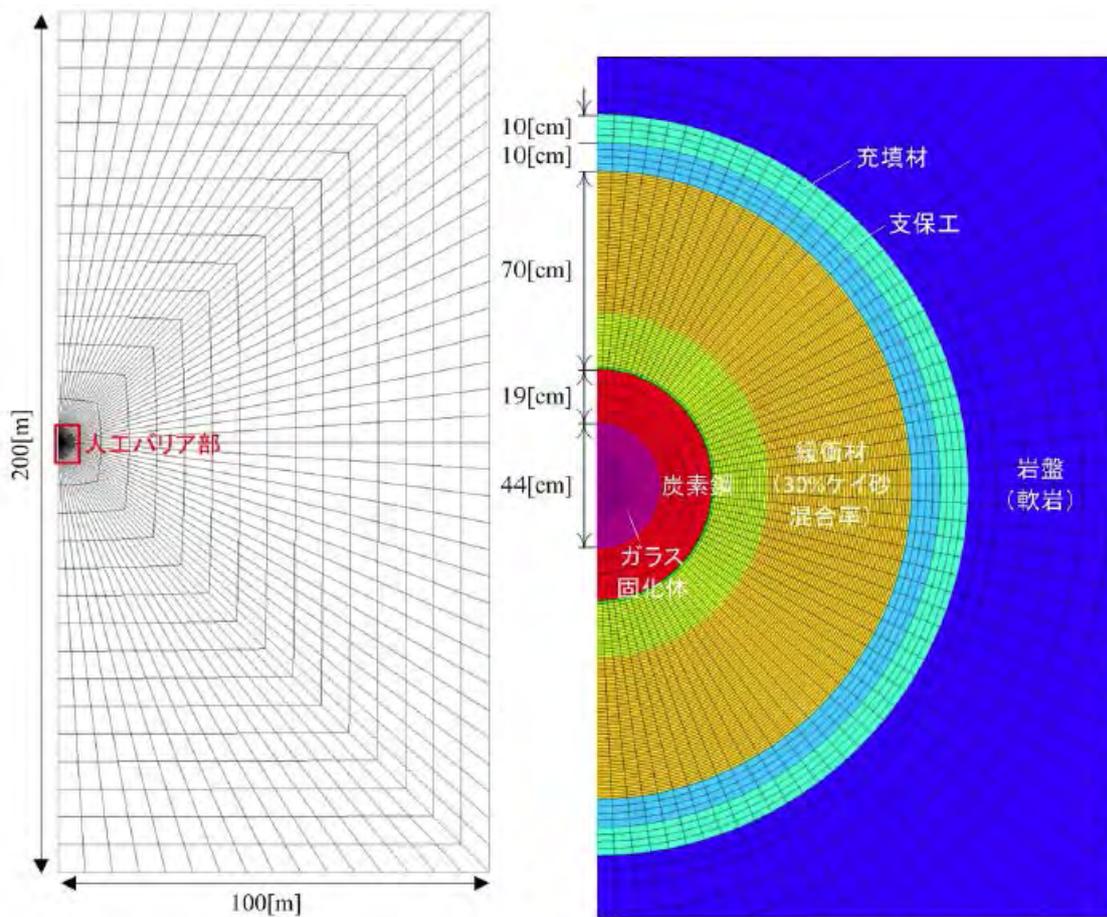


図 2.6.5-1 HLW 地層処分システム的人工バリアの概略図

(2) 化学-物質輸送解析と力学解析の解析体系

HLW地層処分システム（図2.6.5-1）に対応させたMACBECE2014の解析体系を図2.6.5-2に、QPACの解析体系を図2.6.5-3にそれぞれ示す。連成解析では、図2.6.5-3に示したようなガラス-炭素鋼-ベントナイト-コンクリートで構成される一次元の解析体系を、図2.6.5-1に示した複数の放射状モニタラインに対応させて設定し、これら一次元の系に対してQPACの解析を行う。図2.6.5-3では

炭素鋼とベントナイトの間に鉄腐食セルという仮想的な領域を設定している。



(左図が全体、右図が人工バリア部の詳細。この例では緩衝材の内側 30%が変質することを想定し、緩衝材部のメッシュを内側と外側で2種類に分けている)

図 2.6.5-2 HLW 地層処分システムに対する MACBECE2014 の解析体系



図 2.6.5-3 QPAC の解析体系 (1次元モデル)

(3) 連成解析の手順

1) 連成解析における情報の授受

ここでは、QPACによる化学-物質輸送解析 (1次元モニタライン上) とMACBECE2014による2次元

連続体モデルでの変形挙動解析の連成解析における情報授受の手順について述べる。

まず、QPACによる化学-物質輸送解析において考慮する現象のうち、特に連成解析に関連する現象は以下のようなものが挙げられる。

- 鉄腐食
- 鉄腐食生成物沈殿
- 鉄イオン等の緩衝材中への拡散
- 緩衝材変質（溶解及び鉄ケイ酸塩鉱物の沈殿）

同様に、MACBECE2014による変形挙動解析において考慮する現象のうち、特に連成解析に関連する現象は以下のようなものが挙げられる。

- 鉄腐食膨張
- 緩衝材変質部の力学特性変化
- 緩衝材（変質部及び未変質部）の変形

以上を考慮し、QPAC-MACBECE2014のモデル間でやりとりをする情報を表2.6.5-1にまとめた。

表 2.6.5-1 QPAC-MACBECE2014 間で授受をする情報リスト

QPACからMACBECE2014へ渡す情報		MACBECE2014からQPACへ渡す情報	
パラメータ	備考	パラメータ	備考
間隙率	化学的な反応を考慮した固相の体積変化を反映	体積ひずみ	体積ひずみから割れ幅を仮定し、実効拡散係数に反映
交換性Na型率	イオン交換反応を考慮して計算された値	最小主応力	要素の割れの判定に使用： 一軸圧縮強度として4.86MPa、 引張強度として0.486MPaを設定（本文参照）
スメクタイト部分密度	セル毎に計算		
イオン当量濃度	セル毎に計算		
鉄腐食膨張率	緩衝材による鉄イオンの消費を考慮して計算された腐食生成物の沈殿量に応じて計算		
要素の状態	ベントナイト（弾粘塑性体）として扱うか、岩石相当の変質ベントナイト（弾性体）として扱うかを、モンモリロナイト残存量から決定（本文参照）		

連成解析では、QPACの解析結果からモンモリロナイト残存量などを指標に緩衝材の変質度合いを判断し、強変質部と判断された要素に対して、MACBECE2014では岩石相当の硬い脆性材料（MACBECE2014では弾性体として扱う）の特性を与えて解析を行う（未変質部についてMACBECE2014では弾粘塑性体として扱う）こととする。このため、QPACからMACBECE2014へ渡す情報は、緩衝材の各要素における間隙率、交換性Na型率、スメクタイト部分密度、イオン当量濃度、及び要素の状態（変質度合いの判断結果）である。また、MACBECE2014では要素変形に伴い要素自体の大きさ

や固相密度が変化するため、QPACの解析においてもこの要素変形に伴い、体系の大きさや固相密度を変化させることが本来望ましいが、体系や固相密度を変化させることは計算負荷の点から困難であった。このため、本研究ではその代替手段として、MACBECE2014の解析結果から要素の力学的変形に伴って変化する物質輸送パラメータを、体積ひずみや割れの判定を指標として計算し、これをQPACへ渡すこととした。

2) 連成解析の流れと解析モデルオプションの設定

本解析においては、2.6.4項で整理した「鉄影響による緩衝材変質」に対するシナリオに基づき、以下の4つの解析モデルオプションを設定することとした。なお、「鉄影響による緩衝材変質」のシナリオ2については、鉄腐食によって放出された鉄イオンが腐食生成物として沈殿することなく緩衝材領域へ拡散する場合を想定しているため、現象解析では鉄腐食の進行に伴うオーバーパックの減肉をモデル化する必要があるが、MACBECE2014上ではこうしたモデルを構築することが困難であるため、本年度はシナリオ2を対象とした解析は実施しなかった。解析モデルオプション0では、個別研究分野のそれぞれにおける保守的設定をあえて取り入れた、過度に保守的な仮定に基づく解析を行った。この解析結果と比較することで、本研究で目標としている分野横断的な現象解析の効果を確認することとした。これに対して、解析モデルオプション1～3では、シナリオ1及び3を対象として、鉄腐食による溶解、腐食生成物や鉄ケイ酸塩鉱物の沈殿、領域間の拡散による物質輸送にかかわる鉄(II)イオン等の物質収支のとれた解析を行うこととした。

- 解析モデルオプション0（比較対象として）：化学-物質輸送連成解析において溶解した鉄の全量が緩衝材変質に使われると仮定し、鉄イオンとの反応による緩衝材変質という化学的影響を最大限見込むこととする。また、このように化学-物質輸送解析結果を反映しつつ、さらに溶解した鉄の全量が腐食膨張に使われると仮定して鉄腐食膨張による力学的影響を最大限見込んだ力学挙動解析を行うこととする。
- 解析モデルオプション1（シナリオ1に対応）：鉄イオンは主に腐食生成物の沈殿によって消費され、緩衝材変質部は界面近傍に限定されるとする解析を行う。比較的沈殿速度が大きいと考えられる水酸化第一鉄を腐食生成物として仮定し、水酸化第一鉄が速やかに沈殿することで緩衝材側への鉄イオンのフラックスが抑制される効果を確認する。
- 解析モデルオプション2（シナリオ3に対応）：解析モデルオプション2の手順を、オプション3と併せて図2.6.5-4に示す。ここでは、シナリオ3に記載したように、緩衝材変質部に微細な割れが一様に発生すると仮定する。具体的には、緩衝材変質部のうち引張応力が強度を上回る要素について、体積歪みを間隙率増分に置き換えて、この間隙率増分に応じ実効拡散係数を上昇させてQPAC解析を行う。
- 解析モデルオプション3（シナリオ3に対応）：解析モデルオプション3では、シナリオ3に記載したように、放射状の割れが生じ局部的に拡大すると仮定した解析を行う（図2.6.5-4）。具体的には、DEMによる予察解析のCaseB（図2.6.6-9）に基づき、局在化した割れ目の本数、位置を仮定し、割れ目の開口幅はMACBECE2014によって計算された同一半径上の各要素の歪みの総量を、これら局在化した割れ目に按分して与える。QPACではこれらの割れ目を明示的に考慮した体系と、割れ目の入っていない体系を設定し、これらを各モニタラインに対応させた連成解析を行う。なお、割れ目は動径方向にかつ直線状に入るも

のと仮定する。

上記の解析モデルオプションでは、いずれについてもモンモリロナイト含有量が初期の7割未満となった時点で緩衝材を強変質部とみなすこととした。また、この強変質部の力学特性としては、凝灰岩（グリーンタフ）相当の強度を想定することとし、凝灰岩の物性に関する既往の報告例（野城ら，2008；澤崎ら，1994）等を参考にしつつ、一軸圧縮強度として4.86MPa、引張強度として0.486MPaを与えた。また、QPACの解析では、オーバーパックからの鉄(II)イオンの溶出速度として、腐食速度1.0 $\mu\text{m}/\text{y}$ に相当する一定値を与えた。ただし、このような設定では、腐食生成物の保護的皮膜の効果による腐食速度の減少や、これに伴う緩衝材領域へ鉄(II)イオンの拡散フラックスの減少等が表現できておらず、この点については今後の課題である。さらに、本要素における腐食生成物の析出量に基づき、腐食膨張による体積増加量を計算し、これを腐食膨張速度に変換してMACBECE2014に渡すこととした。この他、QPACの解析で用いる化学-物質輸送に関わるパラメータについては付録1にまとめた。

なお、DEMによる予察解析の詳細については2.6.6項で述べる。

(4) ニアフィールド複合現象解析システムプロトタイプを用いた例題の解析

解析モデルオプション0～3を実装させたニアフィールド複合現象解析システムプロトタイプを用いた解析結果を以下に記す。

1) 解析モデルオプション0

解析モデルオプション0の結果を図2.6.5-5に示す。図2.6.5-5(a)は化学-物質輸送連成解析により計算された10万年経過時の鉱物組成（体積分率）を表している。これより、溶解した鉄の全量が緩衝材変質に使われるという仮定の下では、強変質部が鉄側境界から50～60cmの範囲まで進展していることがわかる。強変質部では、モンモリロナイトなどの初生鉱物の溶解とともに、二次鉱物である鉄-珪酸塩鉱物（グリーンライトやバーチェリン）の生成がみられた。また、支保工側境界近傍においてもモンモリロナイトの溶解や二次鉱物としての沸石類の生成により変質が進行していた。支保工などのセメント系材料もセメント水和物が溶脱し、地下水と接する外側境界条件近傍ではカルサイトの生成がみられた。図2.6.5-5(b)は力学挙動解析により計算された最小主応力の分布である。本図では圧縮方向を正としている。力学挙動解析では、10万年までに鉄側境界から60cmの範囲が強変質部になると仮定して解析を行った。これより、強変質部において強い引張応力が生じていることがわかる。この時の引張応力は強変質部の引張強度として与えた0.486MPaを超えていた。以上より、過度に保守的な仮定の下では、緩衝材の殆どの領域で変質が進展し、腐食膨張によってひび割れが発生すると計算された。

2) 解析モデルオプション1～3

解析モデルオプション1～3における化学-物質輸送-力学連成解析の結果を、図2.6.5-6～図2.6.5-8にまとめて示す。図2.6.5-6は力学挙動解析により計算された最小主応力の分布(4万年後)を表している。モデルオプション1では、緩衝材が殆ど変質しないため、腐食膨張による応力の働く方向は緩衝材全領域において圧縮方向のみであった。モデルオプション2では、後述するように

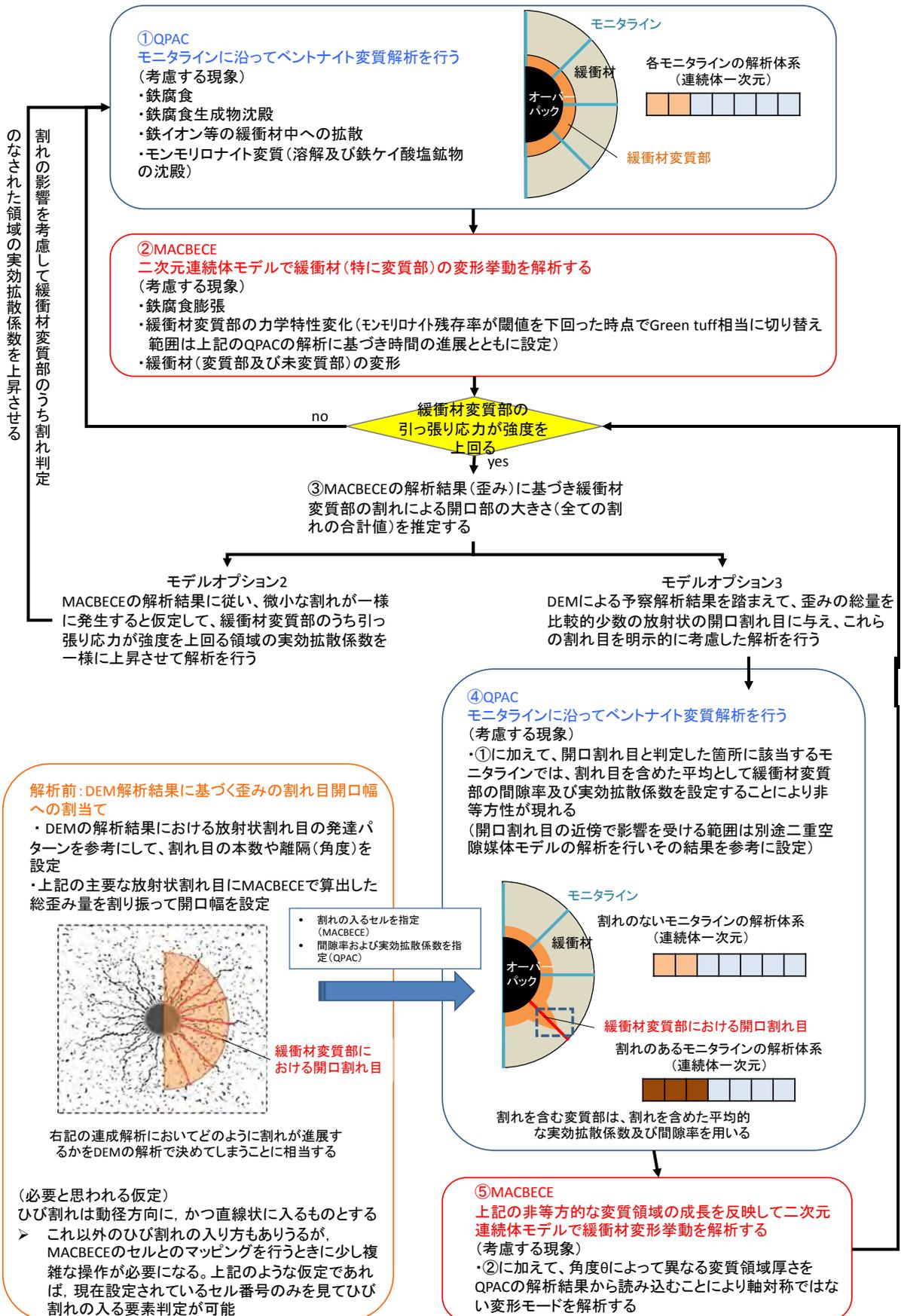


図 2.6.5-4 連成解析のフローチャート (解析オプションモデル 2,3)

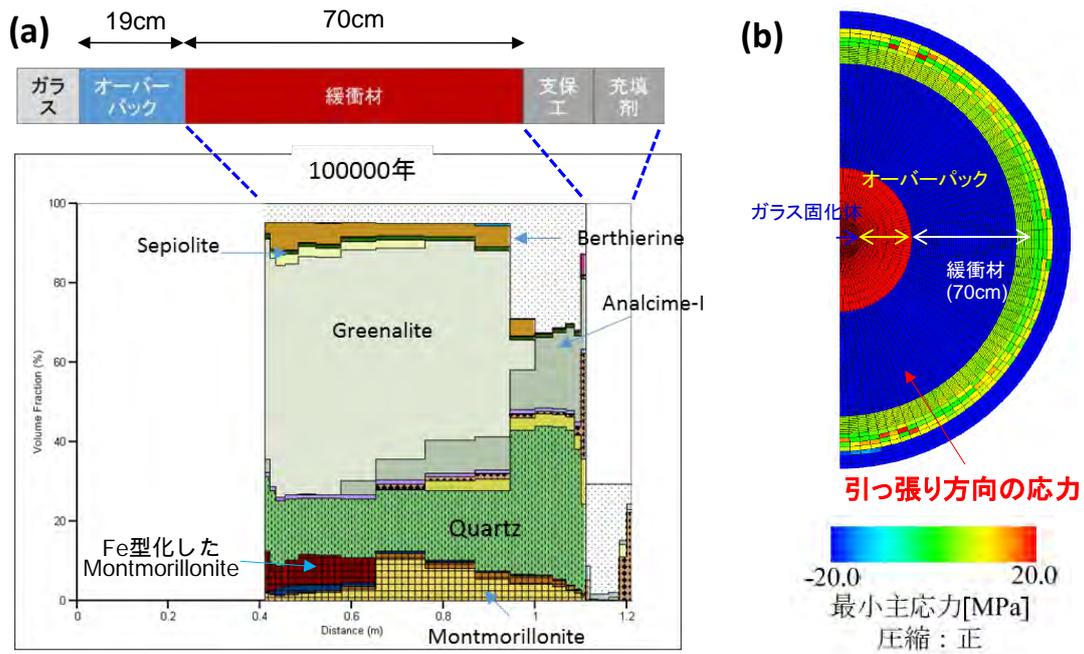


図 2.6.5-5 解析モデルオプション0の解析結果

(a) 10万年経過時の鉱物組成 (b) 10万年経過時の最小主応力の分布

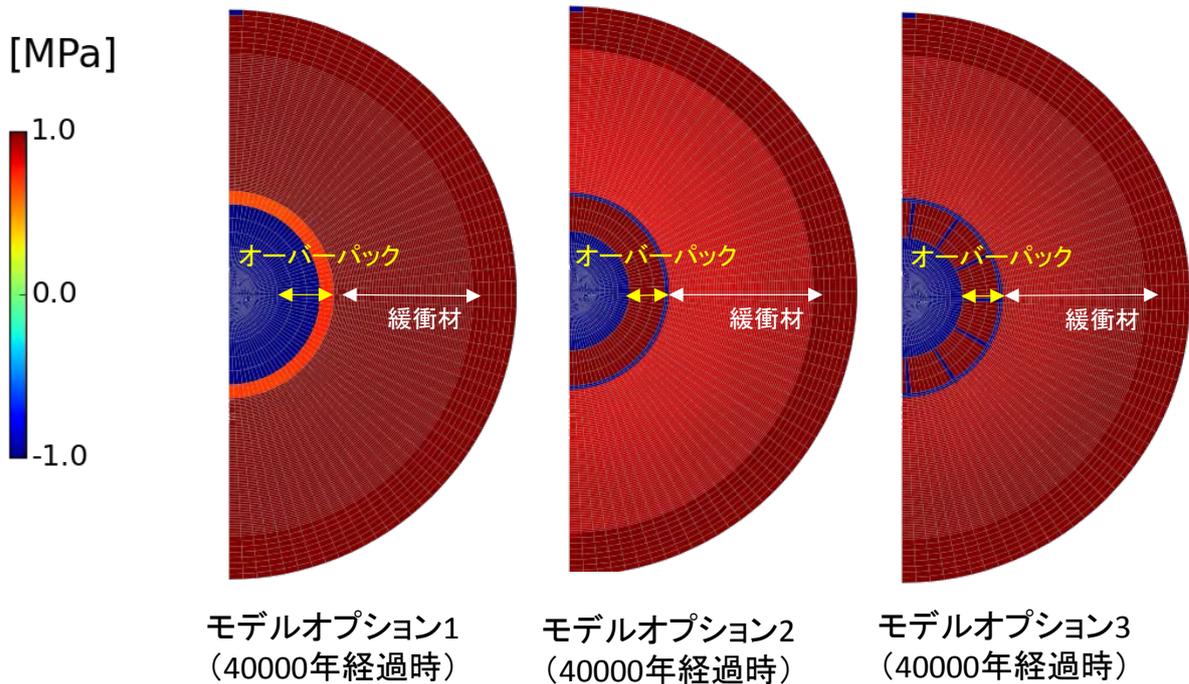


図 2.6.5-6 解析モデルオプション1～3の連成解析結果（最小主応力分布）

オーバーパック近傍2.4cm程度の領域で局所的に緩衝材が変質し、当該領域でのみ腐食膨張の影響により引張強度（表2.6.5-1）を超える引張応力が働くこととなった。それ以外の緩衝材領域における応力分布は圧縮方向のみであった。モデルオプション3では、割れが発生したとするモニタライン上では、モデルオプション1と同様にオーバーパック近傍2.4cmの領域で引張強度を超える引

張応力が働くが、それ以外の領域では圧縮応力が働いていた。

なお、本検討では、物質収支を考慮した化学-物質輸送解析で計算される腐食生成物の量に応じて、力学挙動解析における腐食膨張率を決定している。この結果、第2次取りまとめなどで設定されている約3倍に対して、モデルオプション2及び3では1.4~1.6倍程度と軽減されていた。

図2.6.5-7は化学-物質輸送連成解析により計算された鉱物組成の分布（4万年後）であり、オーバーパック・緩衝材境界部を中心に表している。また、図2.6.5-8は、オーバーパック境界側の緩衝材第1セル（1.0cm）、第2セル（1.4cm）、第3セル（2.0cm）における実効拡散係数の時間変化を表している。モデルオプション1では、鉄(II)イオンが主として腐食生成物である水酸化第一鉄の沈殿に使われるため、緩衝材領域では、4万年までに顕著な鉱物組成変化は見られず、緩衝材第1セルにおいて鉄影響による二次鉱物として設定されたバーチェリンなどが数%（体積分率）生成するだけであり、実効拡散係数にも変化が見られない。モデルオプション2では、鉄影響による二次鉱物として設定されたバーチェリンやグリーンライトの沈殿によって閉塞に近づいていることがわかる。この場合、力学影響を考慮しなければ、閉塞に伴い実効拡散係数が低下すると考えられる。例えば、間隙率が2%にまで低下すると実効拡散係数は初期の 10^{-10} m²/sから 10^{-13} m²/s未満に低下すると計算される。本検討では力学影響を考慮するために、モンモリロナイトの含有量が初期の70%を下回った時点で強変質部とみなし、可塑性が失われるとして力学挙動解析を行っている（表2.6.5-1）。この結果、第1セルでは1000年までに引張応力により割れが生ずると計算されることとなり、体積歪みを間隙率増分として実効拡散係数に反映させているため、4万年までの解析において 5×10^{-11} m²/sを下回ることにはなかった。こうして、鉄(II)イオンが緩衝材領域へ継続して供給されるため、解析モデルオプション1とは異なり、第2セルにおいても緩衝材の変質が進行することとなり、1万年経過後にはモンモリロナイト含有量が初期の70%を下回り、第1セルと同様に引張応力による割れが生ずると計算された。しかし、第3セル以降においては4万年経過時までにモンモリトナイト含有量が初期の70%を下回ることにはなかった。このように、モデルオプション2でも、緩衝材の変質は第1、第2セルの局部にとどまっており、モデルオプション0で見られたように緩衝材の殆どの領域で変質が進行するという傾向は認められなかった。これは、マグネタイトが腐食生成物として沈殿することにより、緩衝材変質に使われる鉄の量が限定されたためと考えられる。

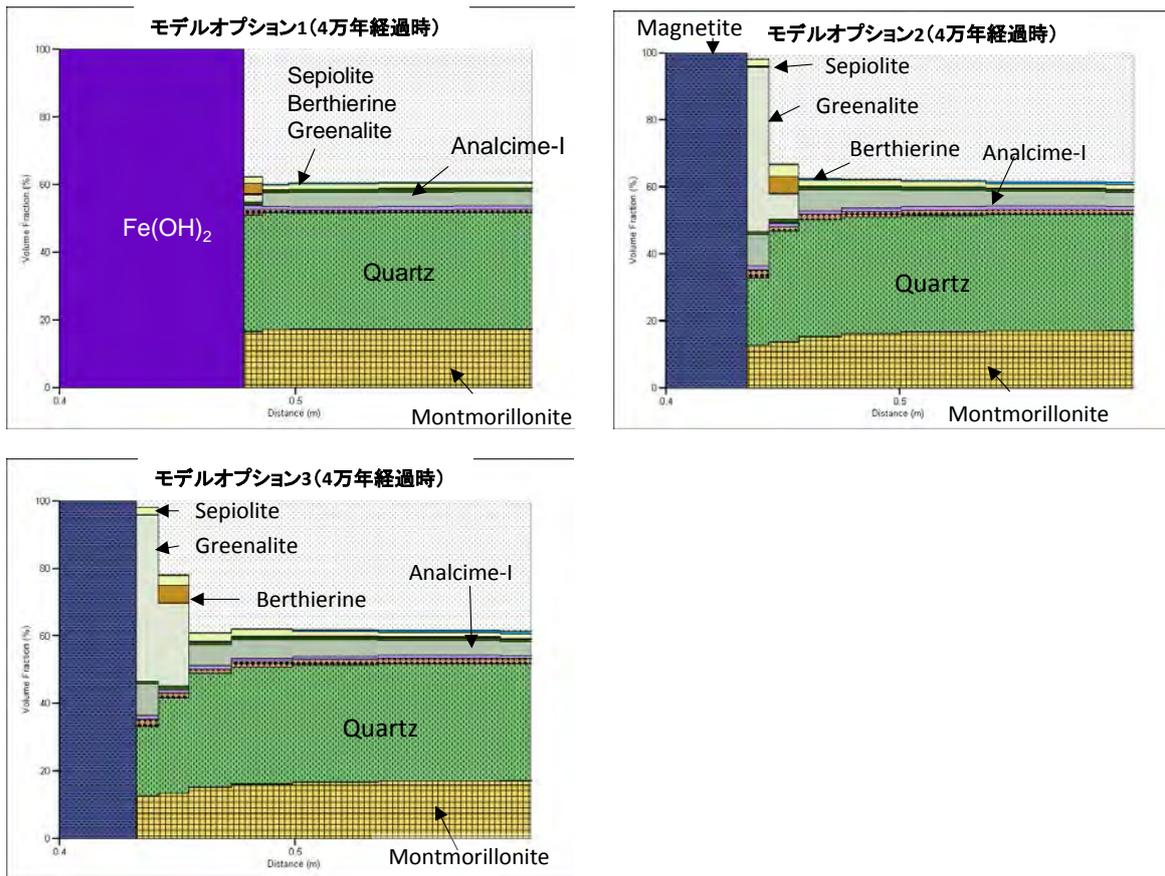


図 2.6.5-7 解析モデルオプション1~3の連成解析結果（鉱物組成）

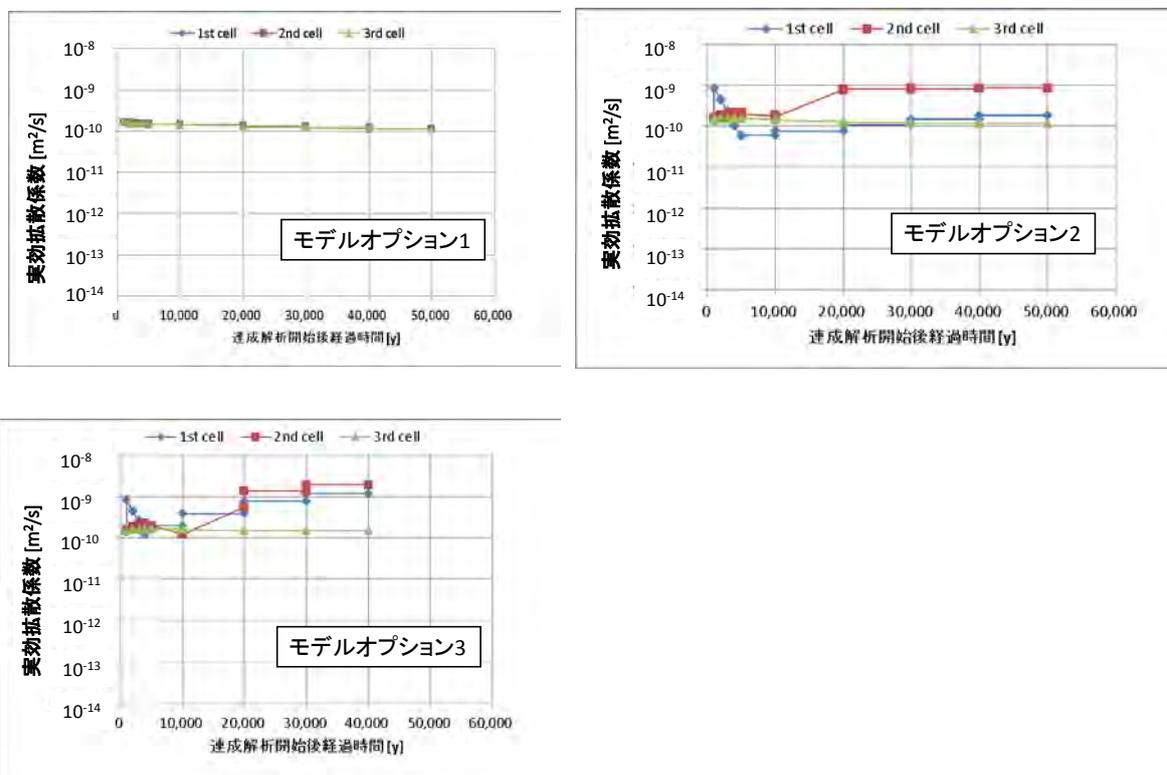


図 2.6.5-8 解析モデルオプション1~3の連成解析結果（実効拡散係数）

モデルオプション3の割れが生じたとするモニタライン上でも、モンモリロナイト残存量が初期の70%を下回るのはモデルオプション2と同様に第1セルと第2セルのみであった。割れのモニタライン上では、強変質部の引張りによる歪みの総量を、局在化した割れ目の開口幅に割り当て、これらの割れ目を含む要素における実効拡散係数に反映させているため、モデルオプション2よりも実効拡散係数が大きく計算されている。このように物質輸送を促進させたものの、これによって著しく変質が促進され、変質部が拡大するといったような効果は見られなかった。

以上のように、本検討で整備した共通モデル・シナリオと複合現象解析システムプロトタイプを用いて、「鉄影響による緩衝材変質」に対する現象解析を実施した。この結果、緩衝材変質領域の大きさは解析対象としたいずれのシナリオに対しても4万年までに2.4cm程度と計算された。また、腐食膨張によるひび割れの発生やこれに伴う反応物質（ここでは鉄(II)イオンなど）の拡散促進といった効果が2.4cm程度の範囲内で見られた。このように、適切に物質収支を考慮して連成解析を行うことにより、過度に保守的な仮定に基づくモデルオプション0の解析結果に比べて、緩衝材変質は局部的であり、力学的な割れが生ずる箇所も限定されるという可能性を示すことができた。

2.6.6 より汎用性の高い複合現象解析システムの開発

(1) 先進的な手法を取り入れた化学-物質輸送連成解析モジュールの開発

2.6.5項で開発したニアフィールド複合現象解析システムは、ユーザーの判断に基づき、代表的とみなせる複数の部分領域に詳細な解像度を適用した局所スケールの問題と、処分施設全体スケールの粗い解像度の問題とを並行して計算し、内挿・補間を適宜行うことによってマルチフィジックス・マルチスケールの複合現象の全体像を予測するものである。しかし、このような手法は、ユーザーの知識や経験に強く依存するとともに、個別の問題に対して都度モデル構築及び情報の授受を特定する必要があるという意味で汎用性の高いものではない。このような課題を踏まえ、既往の研究開発（日本原子力研究開発機構，2015c）では、より汎用性の高い次世代型化学-物質輸送連成解析モジュールGARFIELD-CHEM（Grid Adaptive Refinement FInite ELEMent Discretisation-Chemistry）の開発を行った。GARFIELD-CHEMは、可変グリッド（Adaptive gridding）の手法によって化学勾配の大きい部分領域をソルバーが自動的に細かくメッシュ分割するスキームを取り入れることにより、局所スケールのモデル（加水分解反応・錯体形成反応や鉱物溶解・沈殿反応など）を全体スケールのモデル（移流-拡散問題）に組み込んで連成させたマルチスケールシミュレーションを行うものである。そこで、本研究においても、上記のGARFIELD-CHEMの性能向上のための技術開発を実施し、ニアフィールド複合現象解析システムの構成要素として利用することを旨とする。

1) GARFIELD-CHEMの概要

GARFIELD-CHEMは、ユーザーの判断によらず、各時点の計算結果に応じて詳細な解像度を適用すべき部分とむしろ粗いメッシュの使用が許容される領域とを区分する可変グリッド機能を有することを特徴とし、具体的には、dealii.orgの提供するDeal.IIという有限要素法ライブラリ（<https://www.dealii.org/>）をベースとしている。この可変グリッドの機能を活用してマルチス

ケールシミュレーションを可能とするためには、化学-物質輸送連成問題に対する大規模な微分-代数方程式系を解く必要がある。本年度は、このような負荷の高い計算を行うためのソルバーを高度化し、GARFIELD-CHEMの計算効率を向上させることとした。

図2.6.6-1(a)はメッシュリファイン（可変グリッド機能により有限要素メッシュの大きさを変化させること）を行っていない状態のGARFIELD-CHEMにおける有限要素と液相中の化学種および鉱物の配置を模式的に表した図である。液相中の化学種に対応するノードは節点上に配置され、これにより、例えばセメントとベントナイトの境界部においても連続性の扱いがしやすくなる。他方、鉱物は各要素上に配置されており、これにより境界をまたいだときの鉱物濃度の不連続性を許すことになる。また、グリッドリファインを行った後の模式図を図2.6.6-1(b)に示す。この例では1つのセルを4つのセルに等分割している。グリッドリファインを行うと、図2.6.6-1(b)に示すように、「ハンギングノード」（図中の赤色で示したノード）と呼ばれる点が生じる。ハンギングノードにおいては、近接したノードとの連続式の扱いが複雑となるため、代替手段として、ハンギングノードにおける解が直近の非ハンギングノードの平均値となるような制約条件を与えて解くこととした。ただし、解が非線形になるような場合には正しい制約条件とはならないため、グリッドリファイン時には上記のような制約条件を与えつつ、繰り返し計算を行っていく中で鉱物の溶解や沈殿に相当する補正を行い、最終的に物質収支を担保することとした。

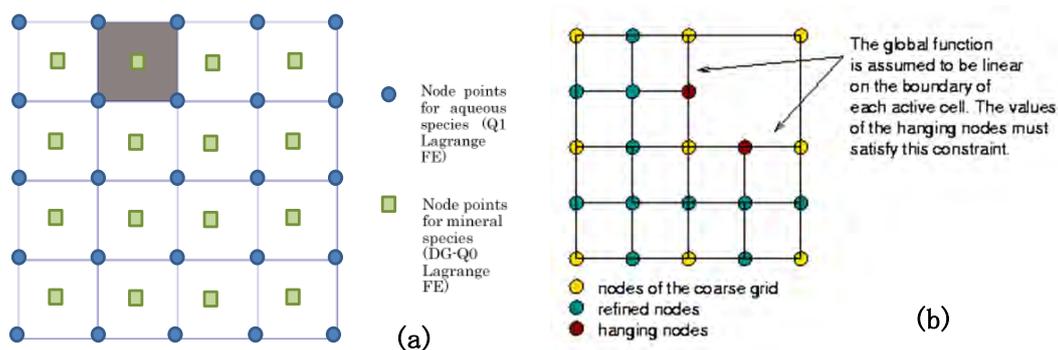


図 2.6.6-1 GARFIELD-CHEM における有限要素と液相化学種および鉱物の配置 (a) およびグリッドリファインの様子を表した図 (b)

2) 計算速度

GARFIELD-CHEMの解析時に計算速度を律速する要因は、グリッドリファイン時の初期化にある。これはグリッドリファイン時には節点の数が増えるため、新たに初期条件を設定する必要があるためである。例えば、ハンギングノードについては、近隣の節点上の情報を用いた線形補間によって初期値を定めることができるが、本検討で解く非線形の微分代数方程式問題にあってはこの手法で適切な初期値を与えることが難しい。また、このような手法により暫定的に初期値を与え、繰り返し計算を行っていく中で鉱物の溶解や沈殿に相当する補正を行うことで最終的に物質収支等を補正することも可能であるが、この補正を行うためにはタイムステップを非常に短くして計算する必要があり、非常に多くの時間が割かれてしまう。

上記のような問題に対し、本研究においては、計算負荷の主な要因となっていた微分代数方程式を解く際のヤコビアン計算の回数の減少や並列計算の導入などにより改善した。この結果、64

×48グリッドの問題の時に計算効率をおよそ10倍向上させることができた。

3) 試解析

上記の改良後のGARFIELD-CHEMを用いて、単純化したセメント変質とひび割れに関する例題を対象に、試解析を実施した。ひび割れ挙動については、DEM法によるコンクリートのひび割れシミュレーションの結果を反映させることとした。

① 解析対象

解析対象の模式図を図2.6.6-2に示す。解析対象は10cm四方の2次元領域であり、ひび割れの生じている特定の領域に対して、系外から流体が鉛直方向に流れるとし、境界条件を与えた。これにより、ひび割れ部での局所的な変質の進展を解析することができる。

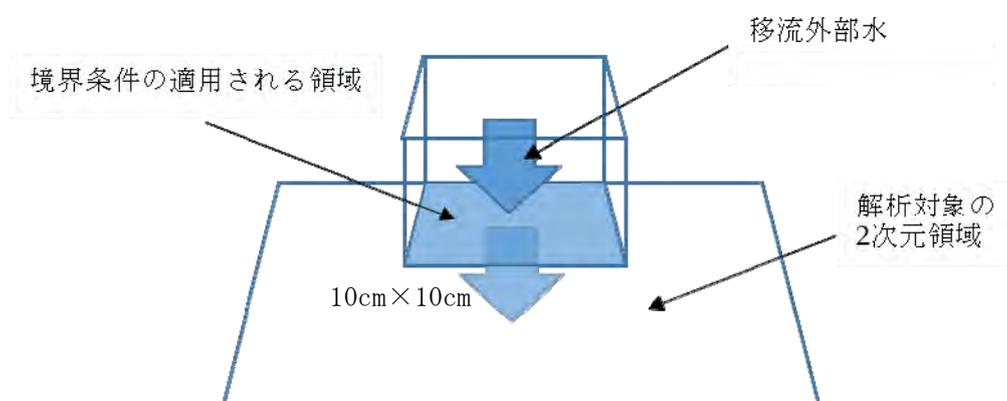


図 2.6.6-2 解析対象の模式図

② DEMの解析結果に基づくひび割れの設定

図2.6.6-3 (左) は、MACBECEによるTRU廃棄物処分施設の力学挙動解析結果 (日本原子力研究開発機構, 2014c) を基に、支保工の10cm四方の一部要素に対してDEM法でひび割れ挙動をシミュレーションした結果である。このひび割れ情報 (位置及び開口幅) を数値化し、GARFIELD-CHEM上のグリッドに割り当てた (図2.6.6-3 (右))。ひび割れの入るタイミングについては、暫定的に解析開始から1000年と1100年の2段階で与えることとした。

③ 物質輸送パラメータの設定

移流はひび割れ部でのみ生じることとし、ひび割れを含む当該セルのダルシー流速 q (m/s) を2.6.6-1式により求めた。

$$q = -\frac{d_{cell}}{w_{crack}} K(\theta) \nabla h \quad 2.6.6-1式$$

ここで ∇h (m/m) は動水勾配、 d_{cell} (m) はセルサイズ、 w_{crack} (m) はひび割れの開口幅、 $K(\theta)$ (m/s) は当該セル内の間隙割合 θ (-) のセメントマトリクス部の透水係数である。セメントマトリクス部の透水係数はKozeny-Carman則に従うものとして与えた。動水勾配は1[m/m]とした。

また、ひび割れ部以外では濃度勾配による拡散が生じることとし、実効拡散係数 D_{eff} (m²/s) は Archie 則によって 2.6.6-2 式のように定めた。

$$D_{eff}(\theta) = D_{eff,0} \left(\frac{\theta}{\theta_0} \right) \quad 2.6.6-2 \text{式}$$

ここに $D_{eff,0}$ (m²/s) は初期の実効拡散係数である。

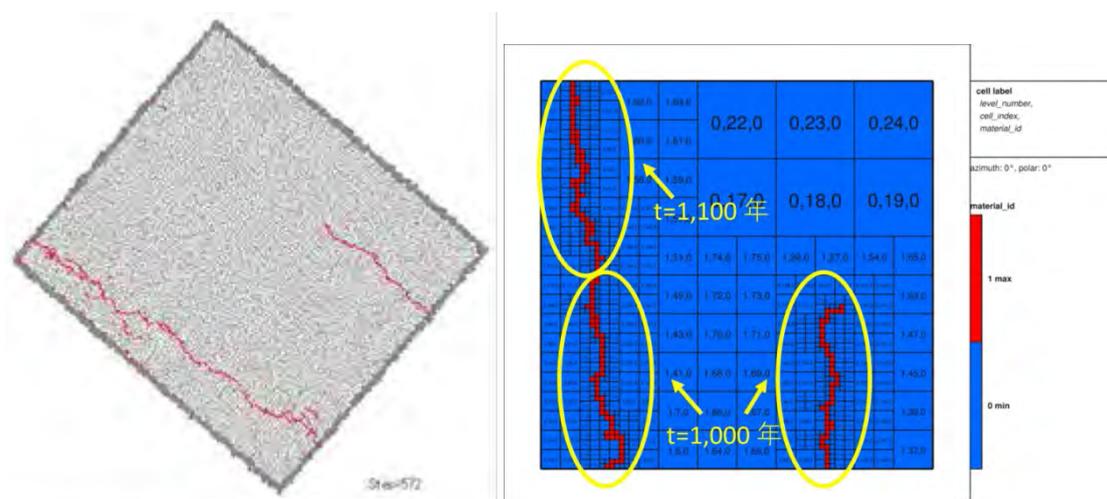


図 2.6.6-3 対象としたセメントのひび割れシミュレーションの結果 (左) と GARFIELD-CHEM 上の可変グリッドで再現した様子 (右)

④ 化学反応の設定

本例題におけるセメントはポルトランドライト、ジェナイト、トバモライト、カルサイトで構成されることとした(表2.6.6-1)。セメントの初期間隙水および外部地下水の組成は、第2次取りまとめで設定されたモデル地下水FRHP (Yui et al., 1999) に基づき、表2.6.6-2のように設定した。外部地下水組成は反応の進行を促すように意図的にCa濃度を低めに設定している。

表 2.6.6-1 本例題で設定した鉱物

鉱物	反応	K_{25c}	モル体積 (cc/mol)	初期濃度 (mol/m ³)	初期体積分率 (m ³ /m ³)
Portlandite	$\text{Ca(OH)}_2 + 2\text{H}^+ = \text{Ca}^{2+} + 2\text{H}_2\text{O}$	22.790	33.056	4189.35	0.138483
Jennite(gel)	$\text{Ca}_{1.66}\text{SiO}_{3.66}(\text{H}_2\text{O})_{2.1} + 3.33\text{H}^+$ $= 1.66\text{Ca}^{2+} + \text{H}_4\text{SiO}_4(\text{aq}) + 1.76\text{H}_2\text{O}$	29.042	78.4	1326.53	0.104
Tobermorite-14A	$\text{Ca}_5\text{Si}_6\text{O}_{16}(\text{OH})_2(\text{H}_2\text{O})_{9.5} + 10\text{H}^+$ $= 5\text{Ca}^{2+} + 6\text{H}_4\text{SiO}_4(\text{aq}) + 3.5\text{H}_2\text{O}$	63.845	372.555	187.39	0.069813
Calcite	$\text{CaCO}_3 + \text{H}^+ = \text{Ca}^{2+} + \text{HCO}_3^-$	1.849	36.934	5320.30	0.1965
Inert (not modelled)	-	-	-	-	0.291
Porosity	-	-	-	-	0.2

表 2.6.6-2 本例題で設定した初期間隙水組成および外部地下水組成

	初期間隙水 [mol/kg]	地下水 [mol/kg]
Ca	1.09×10^{-4}	1.00×10^{-6}
C	3.54×10^{-3}	3.54×10^{-3}
Si	3.39×10^{-4}	3.39×10^{-4}
Cl (tracer)	1.00×10^{-6}	1.00×10^{-2}
pH	12	8.5

化学平衡計算では地球化学熱力学データベースJAEA-TDB_2014- β （日本原子力研究開発機構, 2015c）に基づき、表2.6.6-3に示した液相化学種とそれらの加水分解反応を考慮した。

表 2.6.6-3 本例題で設定した液相化学種

Complex Species	Reaction	K_{25c}
OH^-	$\text{OH}^- + \text{H}^+ = \text{H}_2\text{O}$	13.995
$\text{CO}_2(\text{aq})$	$\text{CO}_2(\text{aq}) + \text{H}_2\text{O} = \text{H}^+ + \text{HCO}_3^-$	-6.3447
CO_3^{2-}	$\text{CO}_3^{2-} + \text{H}^+ = \text{HCO}_3^-$	10.3288
$\text{CaCO}_3(\text{aq})$	$\text{CaCO}_3(\text{aq}) + \text{H}^+ = \text{Ca}^{2+} + \text{HCO}_3^-$	7.0017
CaHCO_3^+	$\text{CaHCO}_3^+ = \text{Ca}^{2+} + \text{HCO}_3^-$	-1.0467
CaOH^+	$\text{CaOH}^+ + \text{H}^+ = \text{Ca}^{2+} + \text{H}_2\text{O}$	12.8333

表2.6.6-1に示した鉱物の溶解・沈殿反応速度は、遷移状態理論に基づく速度式（2.6.6-3式）で表すこととした。

$$R = k_0 A (Q/K - 1) \quad 2.6.6-3\text{式}$$

ここで、 R (mol m⁻³ s⁻¹) は速度定数、 k_0 (mol m⁻² s⁻¹) は速度定数、 Q は関連するイオンの活量積、 K は平衡定数、 A (m²/m³) は単位間隙水体積当たりの鉱物の表面積であり、2.6.6-4式で与えられる。

$$A = c A_s W \quad 2.6.6-4\text{式}$$

ここで、 c (mol/m³) は鉱物の濃度、 A_s (m²/g) は鉱物の比表面積、 W (g/mol) は鉱物のモ

ル質量である。各鉱物に対するこれらのパラメータは暫定的に表2. 6. 6-4のように設定した。

表 2. 6. 6-4 鉱物の反応速度計算に用いられたパラメータ

Mineral	k_0 (mol/m ² /s)	A_s (m ² /g)	W (g/mol)
Portlandite	1.0×10^{-6}	0.22	74.0927
Jennite(gel)	$1.0 \times 10^{-7.5}$	0.22	191.3806
Tobermorite- 14A	$1.0 \times 10^{-7.5}$	0.22	739.9768
Calcite	3.3×10^{-3}	0.22	100.0872

⑤ 解析結果

図2. 6. 6-4にpHの変遷を示した。今回の解析では1000年および1100年の直後に割れ目が入るようにしているので、ここではその前後の図を示している。本図より、割れ目近傍と比較的濃度勾配の顕著な領域でグリッドサイズが小さくなっており、逆にグリッドから遠い部分ではグリッドサイズが大きくなっていることがみてとれる。1000年後では、セメントの反応によって全領域でおよそ12.41となっている。割れ目が入った後の1050年では割れ目中およびその近傍において外部地下水の影響によりpHが若干低下するが、1100年までに12.40まで回復していることがわかる。これは、割れの中で後述するカルサイトの沈殿が生じることによって閉塞に近づき、地下水の流入速度が低下することにより再びセメント水和物との平衡状態に近づくためと考えられる。

図2. 6. 6-5に1200年後のカルサイト、ポルトランドイト及びジェナイトの濃度、並びに間隙割合を示した。カルサイトの濃度を見ると、カルサイトの沈殿は殆ど割れ目を含むセルに限られていることがわかる。これは、解析対象とする2次元領域への外部地下水組成に含まれる炭酸成分の供給が割れ目部分に限られるとともに、カルサイトの沈殿速度が、2次元領域での拡散による水平方向の物質輸送速度に比べて速いために、割れ目のセル内で炭酸成分が殆ど消費されてしまうことによると考えられる。この時の間隙割合のプロファイルを見ると、基本的に割れ目近傍で間隙割合が上昇しており、一方、割れ目部では低下している。これは、割れ目部を中心としてポルトランドイトやジェナイトの溶脱が進んで間隙割合が上昇することに加えて、割れ目部ではカルサイトの沈殿が卓越するために間隙割合がむしろ低下したと考えられる。また、割れ目部以外のグリッドには移流による物質移動を許容していないため、割れ目部近傍のセルでは移流による炭酸供給とそれによるカルサイト沈殿が生じない結果となり、割れ目部のみが強く閉塞したと考えられる。DEMの複雑な割れの形状を取り入れた化学反応-物質輸送連成解析を行ったことにより、割れの形状に応じて鉱物の溶解・沈殿反応がわずかではあるが不均質に進展する様子が見られた。

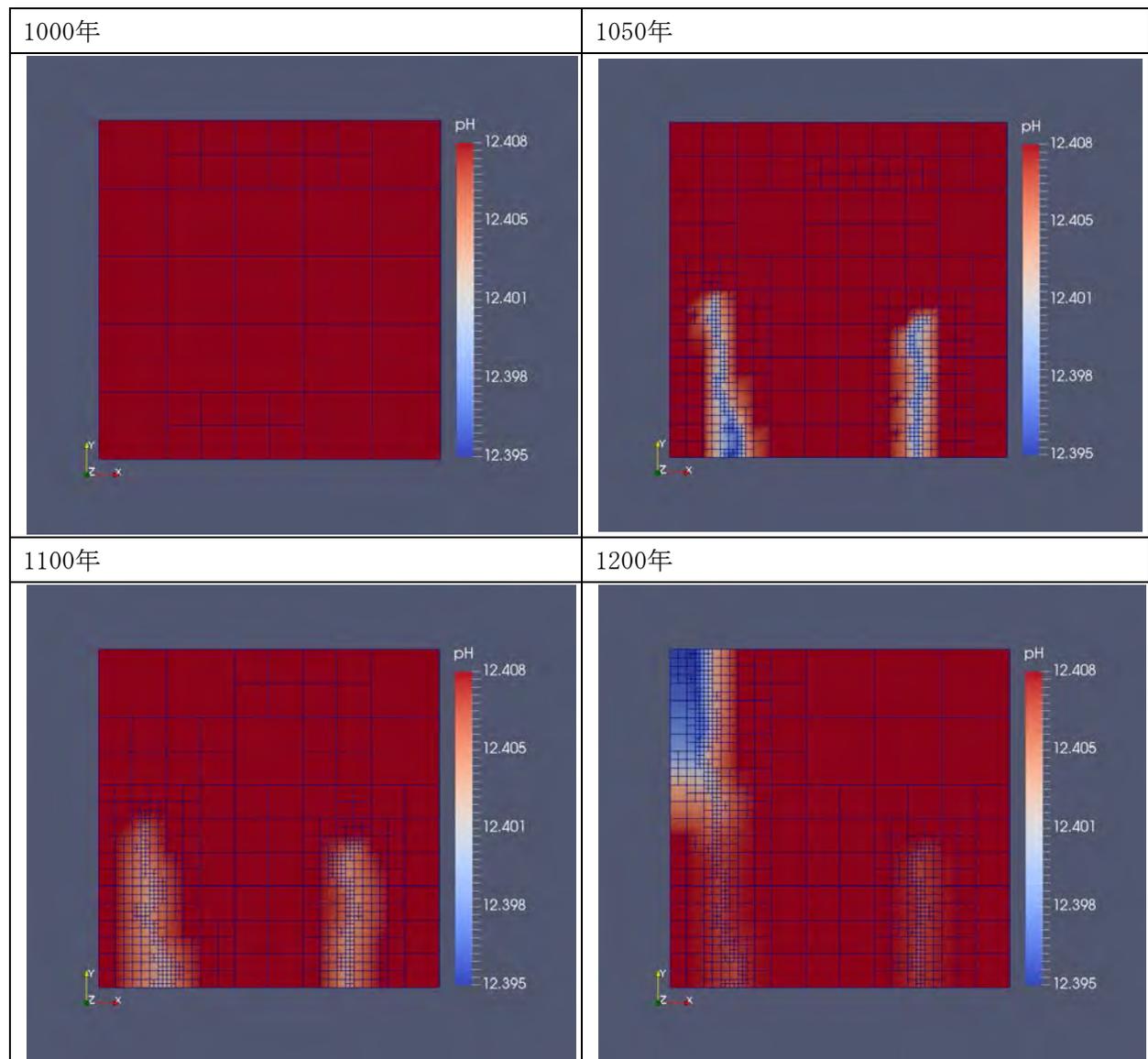


図 2. 6. 6-4 pH の変遷

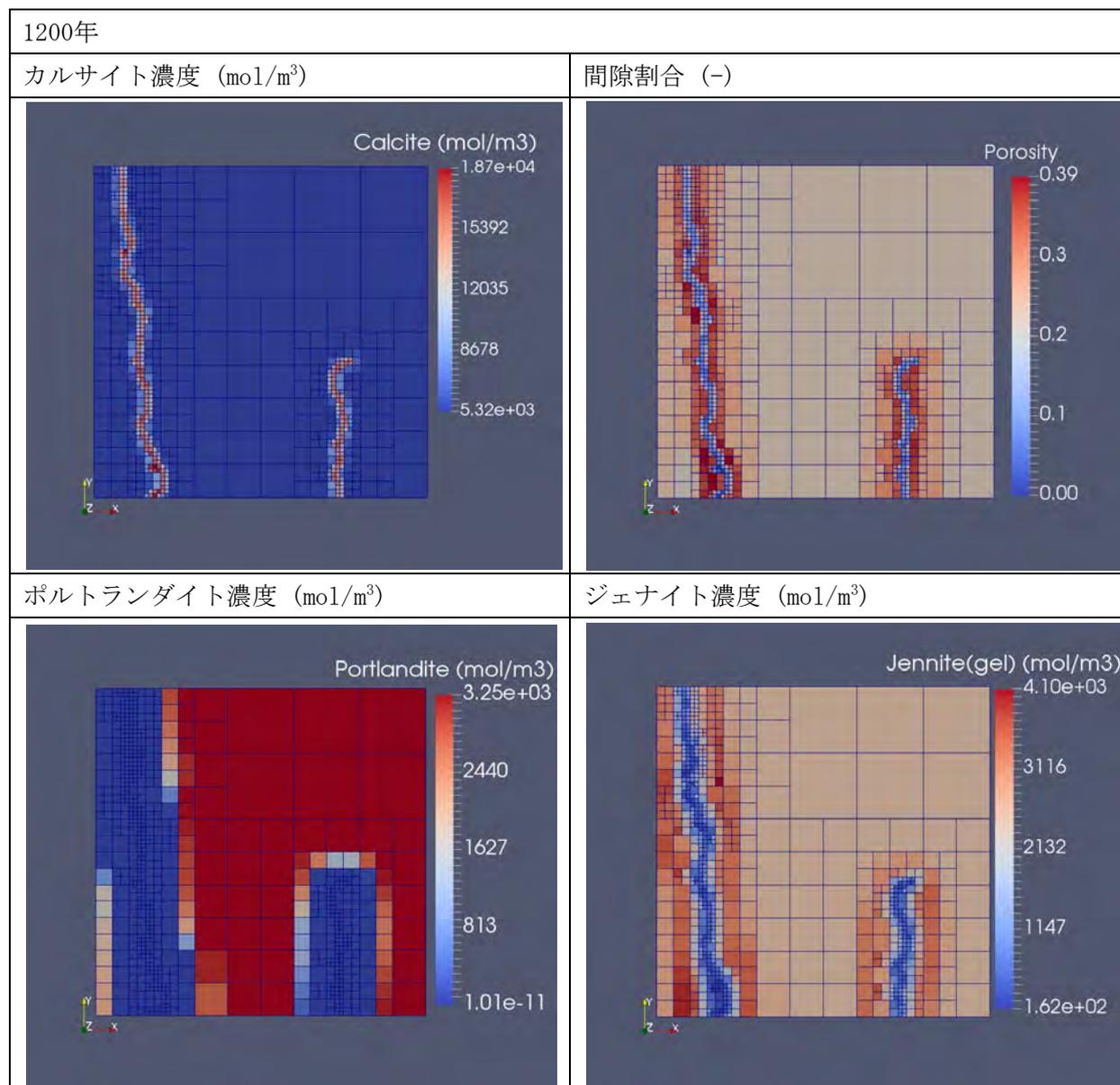


図 2.6.6-5 各鉱物の濃度と間隙割合の変遷

(2) DEMを用いた力学挙動評価手法の開発

表2.6.3-3で示した通り、鉄イオンとの反応によってベントナイト緩衝材の一部が可塑性・膨潤性を失い、脆性的な挙動を示す材料に変質した場合に、ひび割れが発生し、割れに沿って変質領域が拡大する可能性が考えられる。ここでは、不連続体解析手法の一つであるDEMを用いて、2.6.4項で示した「鉄影響によるベントナイト緩衝材変質」に関するシナリオに基づき、このような局所的な割れの進展を扱う解析技術を構築するとともに、こうした現象が起こり得る条件を把握するための予察的解析を行った。本項ではこの取り組みの成果を示す。

1) 解析手法の概要

DEMは、P. A. Cundall により提唱された解析手法である (Cundall and Strack, 1979)。DEMでは、

各要素を剛体粒子として、接触状態にある粒子間の相互作用をVoigtモデル（ばね・ダッシュポット）で表現する。多数の粒子の運動を追跡しつつ、接触状態にある粒子を検索して、フックの法則とニュートンの第2法則を細かい時間刻み（タイムステップ）で適用することで、モデル化されたすべての粒子の運動軌跡を計算により求めることが可能である。DEMは、もともと土や砂のような粒状体の集合体を対象とする解析手法であるが、要素間に引張力（結合力）を導入することにより、連続体解析にも適用することが可能である。このような解析手法を処分施設のニアフィールドの現象解析モデルに適用する取り組みとして、TRU廃棄物処分施設におけるセメント材料のひび割れの発生・進展挙動を解析する手法を構築した成果が報告されている（日本原子力研究開発機構，2013d；2014c；2015c；2015d）。

2.6.4項で示した、鉄影響によるベントナイト緩衝材の変質に関するシナリオに基づく、力学的な破壊現象のシミュレーションでは、材料の割れの発生・進展に加えて、鉄イオンとの反応によるベントナイト緩衝材の収縮や可塑性・膨潤性の喪失、および、鉄が腐食膨張する現象などの化学反応を伴う現象もモデルに取り入れることが必要である。鉄影響によるベントナイト緩衝材の変質・破壊現象のDEMモデルの概念を図2.6.6-6に、シナリオから抽出された化学反応を伴う現象と、DEMモデルへの反映方法との対応を表2.6.6-5にそれぞれ示す。解析においては、ベントナイト緩衝材を構成する粒子の中心を頂点とする多角形要素を単位要素とした。なお、割れの発生については、上記のセメント系材料の場合と同様に、粒子間の結合の破断により表現されるものとした。

鉄イオンとの反応によりベントナイト緩衝材が変質し、収縮する現象については、①ベントナイト緩衝材を構成する粒子間の空隙中に鉄イオンの濃度を設定して、濃度差に応じた拡散により鉄イオンが移行する現象をモデル化するとともに、②空隙中の鉄イオン濃度に比例した反応速度で粒子が変質すると、粒子半径が減少するようにモデル化して表現するものとした。

鉄イオンとの反応がさらに進行した結果、ベントナイト緩衝材の可塑性・膨潤性が喪失する現象については、変質後のベントナイトが岩石的な破壊挙動を示すものと仮定し、鉄イオンとの変質の割合がある閾値を超えた時に粒子間の結合方式を初期状態である粘土型から岩石型に変更することで表現するものとした。ここで、粘土型結合とは、接触している二粒子間には反発力と摩擦力が作用し、結合の破断後に再び粒子が接触すると再結合する方式（Shimizu et al., 2014）である。また、岩石型結合とは、鉄筋コンクリートや岩石等の脆性材料の変形と割れを考慮できるモデルで用いられる結合方式である（日本原子力研究開発機構，2013d）。

二次鉱物生成等による割れの自己修復現象については、粒子再接触による粘土型結合の再生により表現するものとした。また、二次鉱物生成・割れの開口幅低下による鉄イオンの移動速度の低下については、粒子間空隙幅を減少させることで表現するものとし、逆に、新たな割れの発生による鉄イオンの移動速度の増加については、粒子間空隙幅の増加で表現するものとした。また、鉄を構成する粒子の粒子半径を増加させることにより、鉄腐食膨張を表現するものとした。

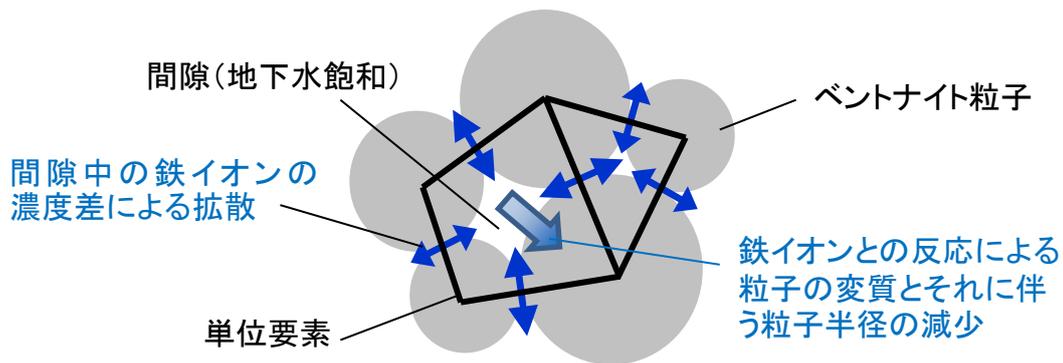


図2.6.6-6 鉄影響によるベントナイト緩衝材の変質・破壊現象のDEMモデルの概念

表2.6.6-5 「鉄影響によるベントナイト緩衝材変質シナリオ」から抽出されたシミュレーションで対象とする現象とDEMモデルでの反映方法

シナリオから抽出された項目	DEMモデルでの反映方法
鉄イオンとの反応によるベントナイト緩衝材の収縮	粒子半径の減少
鉄イオンとの反応によるベントナイト緩衝材の可塑性・膨潤性の喪失	反応率に応じた粒子間結合方法の変更
二次鉱物生成等による割れの自己修復	ベントナイト粒子間結合の再生
二次鉱物生成等による鉄イオンの移動速度の低下	粒子間間隙幅の減少
割れの発生による鉄イオンの移動速度の増加	粒子間間隙幅の増加
鉄の腐食膨張	鉄を想定する粒子の粒子半径の増加
粒子間隙における鉄イオンの移行	間隙中の鉄イオンの濃度差による拡散

2) 解析モデル及び解析条件

ベントナイト緩衝材の変質を考慮した力学挙動のシミュレーションに用いたDEMモデルを図2.6.6-7に示す。解析モデルは直径20mmの円形であり、モデル外周は円形の剛体壁により拘束されている。モデル中央部には、国際共同研究プロジェクトNF-PROにおける圧密ベントナイト中の鉄製ワイヤの腐食試験 (Milodowski et al., 2009a ; 2009b) の体系を想定し、直径2mmの鉄を模擬した粒子を配置した。この粒子は反応物質である鉄イオンの供給源とすることから、隣接する間隙中の鉄イオンの濃度を常に1で一定とした（間隙中の鉄イオンの濃度 (c) は、0から1までの値をとる）。また、鉄の腐食膨張を模擬するため、この粒子は時間の経過に伴い膨張するものとした。モデル内部のその他の部分は初期状態において未変質ベントナイトを模擬した粒子の集合体で表現した。設定した区間 [最小粒子半径、最大粒子半径] の一様乱数により半径を決定した粒子を、すでに配置されている粒子と重なり合わず接触できる位置を探索して配置し、モデル内の空間がなくなり、あらかじめ設定した最小の半径を有する新しい粒子が配置できなくなるまでこの手順を繰り返すことによりモデルを作成した。粒子数は13,792であり、最小粒子半径は0.05mm、最大粒子半径は0.1mmである。

変質したベントナイトにおいて割れが発生する要因としては、2.6.4項のシナリオに基づき、ベントナイト緩衝材が鉄イオンとの反応で変質して可塑性を喪失することにより、①材料が収縮す

ること（化学的要因）と、②鉄腐食膨張に伴い引張応力が載荷されること（力学的要因）の二つが考えられたため、ここでは、両者の影響を考慮した解析を行うものとした。解析ケースを表2.6.6-6に示す。CaseA、CaseB、CaseCをそれぞれ収縮による影響、鉄腐食膨張による影響、及び、これらの影響を同時に考慮する解析ケースとした。

粘土型粒子間結合及び岩石型粒子間結合における粒子間の結合強度に係るパラメータである粒子間ばね定数等の力学パラメータについては、以下のように圧縮試験や引張試験に対するシミュレーションを行い、解析結果が試験結果と一致するように入力パラメータの微調整を行うことにより決定した。この操作をキャリブレーションと呼ぶ。

- ・ 変質前のベントナイトに対しては、Na型ベントナイト供試体（クニゲルV1、乾燥密度1.6 Mg/m³）に対する三軸非排水せん断試験結果（笹倉ら，2002）を対象としてキャリブレーションを行った。
- ・ 変質後のベントナイトについては、2.6.5項で述べたように凝灰岩相当の強度を想定することとし、既往の文献（例えば、澤崎ほか，1994）を参考に、グリーンタフの物性値を対象として一軸圧縮試験と一軸引張試験のシミュレーションを繰り返すことで、変質後の固結したベントナイトに対する入力パラメータを決定した。

鉄イオンの移動やベントナイト粒子の変質は長期の時間スケールで進行するものであるため、粒子の運動を扱うDEMのシミュレーションにおいて、これらの現象に関するパラメータとして処分環境を想定した現実的な値を与えると、計算に時間がかかり過ぎるため、ここでは、鉄イオンの拡散速度等やベントナイト粒子の反応速度等、物質移動や変質反応に関するパラメータについては、仮想的な値を与えるものとし、ひび割れの発生と伸展に係る現象を定性的に把握することを試みた。

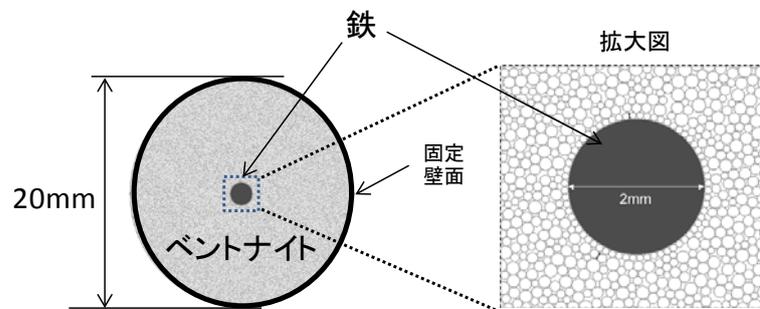


図2.6.6-7 ベントナイト緩衝材の変質を考慮した力学挙動のシミュレーションモデル

表2.6.6-6 鉄影響によるベントナイト緩衝材の変質・破壊現象のシミュレーションの解析ケース

解析ケース名	鉄イオンとの反応による粒子の収縮	鉄の腐食膨張
CaseA	考慮する	考慮しない
CaseB	考慮しない	考慮する
CaseC	考慮する	考慮する

3) 解析結果と考察

CaseA, CaseB, CaseCの解析結果を図2.6.6-8、図2.6.6-9、図2.6.6-10にそれぞれ示す。ひび割れ形状を示す図は、個々の粒子間結合の破断により表現される微小な亀裂（以降、微小亀裂と呼ぶ）が連続している部分をひび割れとして強調した図であり、図中の黒い部分がひび割れの存在する部分を示している。図2.6.6-9と図2.6.6-10では、モデル中央の鉄粒子の初期状態での大きさを濃い灰色で、膨張後の大きさを薄い灰色で表現している。なお、ここでは、粒子間の個別の結合破壊の連続性を明確に示すために実際のひび割れ開口幅よりも太く表示している。鉄イオンの濃度分布図はそれぞれの単位要素における濃度をコンター図として表示している。赤い部分は鉄イオンが飽和状態にあり、青い部分は鉄イオンが存在しないことを示している。また、濃度コンター図における黒い線分は微小亀裂を示している。

鉄イオンとの反応によるベントナイト粒子の収縮のみをひび割れの要因として考慮するCaseAでは、鉄粒子周辺において細かい分岐を多数繰り返しながら伸展するツリー状のひび割れと、周方向の大きなひび割れの発生が確認できた。前者については、ベントナイト粒子の収縮により周方向に引張応力が加わることにより径方向に割れが生じるとともに、割れ内部を鉄イオンが移行し、割れの表面において反応収縮と引張応力が加わることにより、割れの表面から新たなひび割れが分岐する現象を繰り返した結果、割れがツリー状に形成されたものと考えられた。後者については、反応が十分に進んだモデル中央部（コンター図の赤色部）と、反応が進展しない外周部分（コンター図の青色部）では収縮状態に差が生じたことにより、これらの領域の境界部分で引張応力が加わったことによって生じたものであると考えられた。

鉄腐食膨張のみをひび割れの要因として考慮するCaseBでは、モデル中央から外周部へ直線的にひび割れが伸展する現象が確認できた。また、モデル外周の未変質ベントナイトにおいても微小亀裂の発生が観察された。前者については、鉄粒子の膨張によって周辺のベントナイト粒子が押し広げられることにより発生した径方向の割れの先端が弱部となり、引張応力が集中することによって、割れが直線的に発達したことにより生じたものと考えられた。後者については、鉄粒子の膨張によりモデル外周の壁面で圧縮応力が発生し、これにより粒子間にせん断すべりが発生したことによるものと考えられた。なお、鉄イオンの濃度分布に示されるように、放射状の割れを主な移行経路として鉄イオンが移行した様子が観察された。

上記のひび割れの要因を同時に考慮するCaseCでは、CaseAに近い傾向が観察された。これは、腐食膨張による放射状ひび割れが伸展する前に、そこから分岐が発生してツリー状ひび割れを形成したことによると考えられた。また、CaseBで観察されたモデル外周での未変質ベントナイトにおける微小亀裂の発生は観察されなかった。これは、壁面近傍で圧縮応力が加わるものの、反応収縮が起こることにより、効果が相殺されたことによると考えられた。

2.6.6(2)2項で示したように、本検討では、鉄イオンの拡散速度やベントナイト粒子の反応速度等、物質移動や変質反応に関するパラメータとして仮想的な値を設定し、ひび割れの発生と伸展に係る現象を定性的に把握するための検討を行ったが、今後は、処分後の長期の時間スケールを想定した定量的な評価を行うための手法を検討することが必要である。

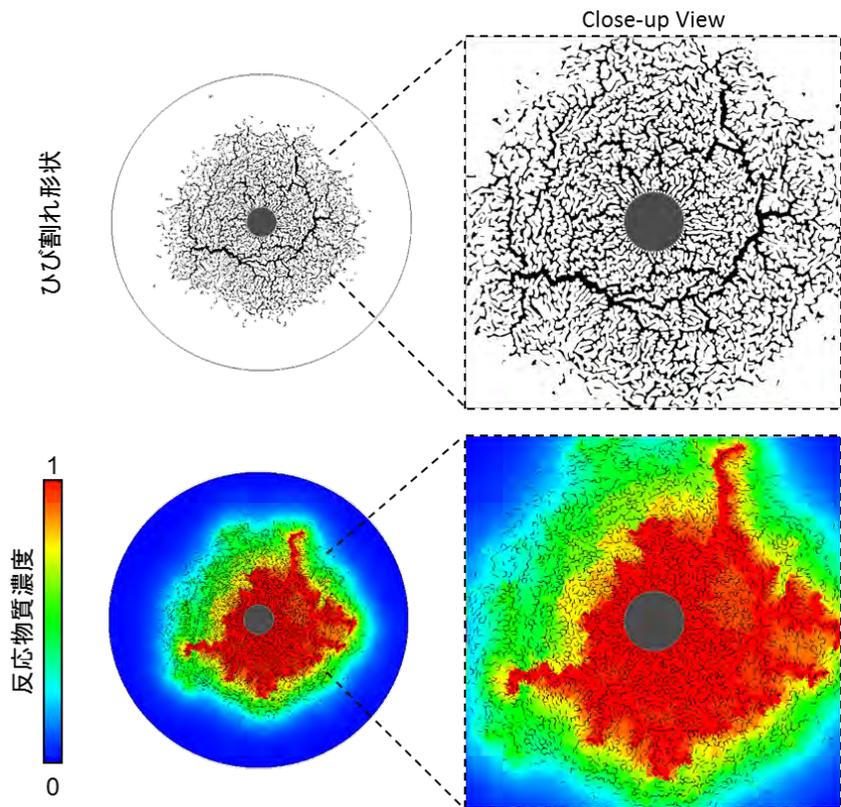


図2. 6. 6-8 CaseAにおけるひび割れ形状および鉄イオン濃度分布の例

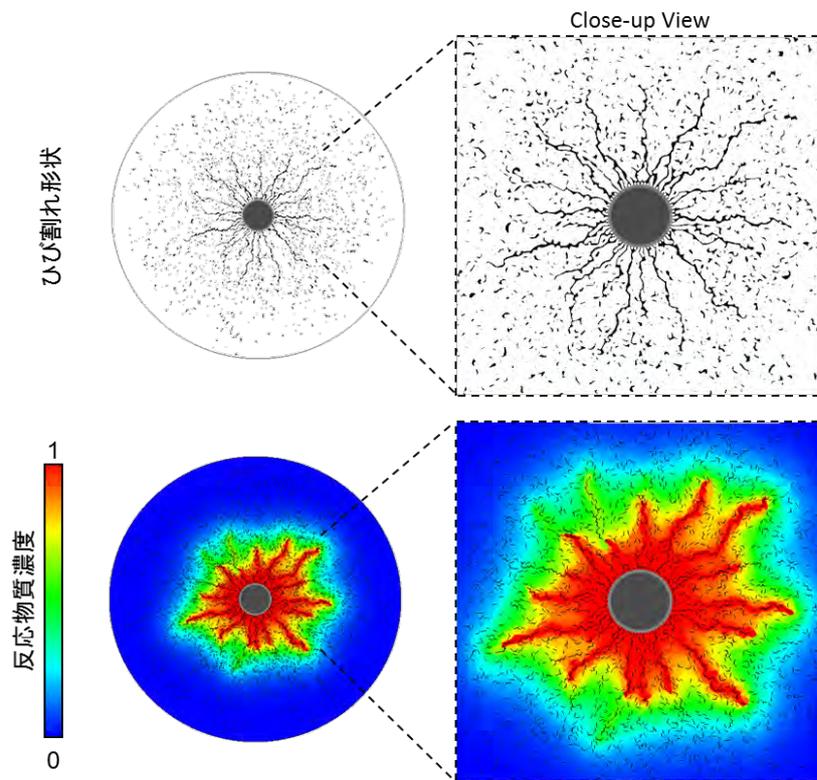


図2. 6. 6-9 CaseBにおけるひび割れ形状および鉄イオン濃度分布の例

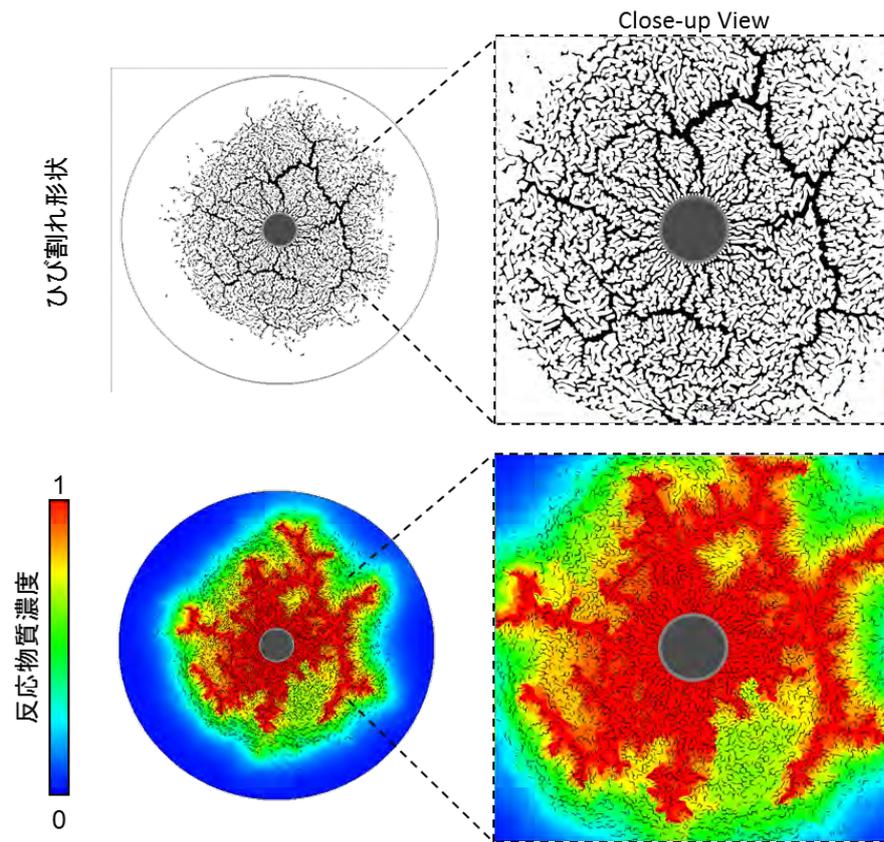


図2.6.6-10 CaseCにおけるひび割れ形状および鉄イオン濃度分布の例

2.7 まとめ

本章では、ニアフィールドのシステム変遷と核種移行を評価するための先端的技術の開発として、5つのサブタスクごとの目標・課題設定に沿った技術開発をさらに進めたうえで、それぞれの目標や反映先とも対応付けて成果をまとめつつ、今後の残された課題を抽出した。以下に、サブタスクごとの平成27年度の成果と今後の課題をまとめる。

(1) システムの過渡的变化評価技術開発

1) システムの過渡的状態評価技術の開発

ニアフィールド環境の過渡的变化を適切に表現するために、その評価を行う上で考慮すべき重要な事象の洗い出しを行うとともに、連成現象を評価するための解析コードの高度化を行った。平成26年度までに整理した情報に基づき、本事業において取り組むべき課題について、その課題への取り組み方針を整理した。

連成解析技術開発に関しては、幌延URLで実施している人工バリア性能確認試験を対象とした解析を行い、緩衝材の変形挙動の評価において課題があることが見出されたことにより、緩衝材の変形挙動をより適切に表現できるように解析コードの改良を行った。また、より詳細な緩衝材内部の変形挙動を観察するため、X線CTスキャンによる観察を行い、データを蓄積した。

今後は、緩衝材の変形挙動に関する実験及び原位置試験で得られたデータを活用して、解析コードの検証を行う必要がある。

2) 過渡的状態における人工バリアの挙動評価技術の開発

オーバーパックの腐食挙動に関する調査については、緩衝材の再冠水過程における炭素鋼オーバーパックの腐食挙動を把握することを目的として、平成25年度に試作し、幌延URLでの原位置試験に適用されている腐食センサーを用いて炭素鋼の腐食モニタリングを平成26年度に引き続き行い、再冠水過程における液抵抗、分極抵抗等の経時変化を確認した。また、従来の想定範囲を超える地下水水質での腐食挙動の実験的検討を行い、酸性環境での腐食挙動に関するデータを拡充した。

緩衝材中の微量な間隙水のpHを連続的に把握するための計測技術として、光学式pH計の開発を進め、検量線の温度依存性を把握した。

鉄-ベントナイトの相互作用評価に関しては、原位置での長期変質試験により得られたベントナイト試料について、ベントナイトの主要構成鉱物であるモンモリロナイトの変質鉱物や、炭素鋼との接触界面近傍におけるベントナイト中での鉱物分布の変化等に関する知見を拡充した。

今後は、オーバーパックの腐食挙動に関するデータ、緩衝材の特性データの拡充を図るとともに、計測技術の確立に向けてセンサーの検証を進める必要がある。また、鉄-ベントナイトの相互作用評価については、室内試験データを拡充し、評価技術の検証を行う必要がある。

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

1) 人工バリア中の核種移行に係るメカニズム分析と精緻化モデルの開発

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

データベースを開発することを目的に、圧縮ベントナイト中の核種移行に係る現象理解に資するデータ取得、分析技術の適用、それらを反映したモデルの高度化開発を進めた。

圧縮ベントナイト中の収着・拡散現象に係るデータ取得と現象理解については、多様な環境条件での圧縮ベントナイト中の収着・拡散データを拡充したほか、Na型とCa型のモンモリロナイトの間隙構造の変化と関連付けたSrの収着・拡散メカニズムに関する知見を得た。また、Se(-II)のモンモリロナイトへの収着及び圧縮ベントナイト中のコロイドろ過機能の確証に関する基礎データを取得した。さらに、先端的な分析技術として、圧縮ベントナイト中の間隙構造のNMRによる定量評価手法をCa型モンモリロナイトへの適用したほか、NMRと量子化学計算を組み合わせたCsのモンモリロナイトへの収着機構及びATR-FTIRによるSe(IV)の鉄鉱物への収着機構の解明に資する知見を得た。これらデータやメカニズムに関する知見を反映しつつ、従来から開発してきた統合収着・拡散モデルに対し、間隙の不均質性や層間陽イオン（Ca型）の影響を考慮したモデル改良を行うとともに、分子動力学計算及び量子化学計算技術の適用評価によるモデルの裏付けとなる知見の拡充を図った。

今後は、多様な環境条件（密度、温度等）やシステム変遷（Ca型）と関連付けた収着・拡散データの拡充、先端的な分析技術の更なる適用によるメカニズム解明を進めるとともに、これら一連のデータとメカニズム理解を反映した収着・拡散モデルの精緻化とその安全評価への反映を図る。

2) システム変遷を考慮した核種移行評価技術の開発

炭素鋼製オーバーパックの腐食に由来する鉄共存の影響について、Fe(II)と放射性核種のモンモリロナイトへの競合収着について定量的に評価するため、Fe(II)のモンモリロナイトへの収着メカニズムの知見を取得し、Fe(II)とCsの選択定数を整備した。また、ガラス溶解に及ぼす影響について、Fe²⁺イオンの共存を模擬したMgCl₂溶液条件でのガラス浸出試験により、影響メカニズムの理解を進めた。

今後、モンモリロナイトへFe(II)と競合収着するNi等の2価の陽イオンに対する選択定数の整備や、3価の陽イオン等のFe(II)との競合収着の可能性についての検討を進める。また、MgCl₂溶液条件での長期ガラス浸出試験やFeCl₃溶液を用いたガラス浸出試験について検討を進め、これら成果を影響評価モデルへ反映していく。

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

1) 岩石マトリクス/割れ目中の核種移行評価技術の開発

天然バリア中の核種移行に係る課題のうち、割れ目等の不均質性や長期変遷等を考慮した核種移行評価手法の高度化と確証を目指し、割れ目等の不均質性をより精緻に評価するための室内試験と解析手法の改良、ナチュラルトレーサーに関する事例調査、原位置への適用評価に向けた調査と検討を進めた。

本プロジェクトでは、結晶質岩と堆積岩のそれぞれの特徴と課題を踏まえつつ、これまで関連受託事業の成果も踏まえつつ、スイスグリムゼルの花崗岩及び幌延の泥岩を主たる対象に研究を展開している。グリムゼル花崗岩については、花崗岩マトリクス中の不均質性影響を含む核種移行メカニズム理解の深化のために、鉱物・間隙の不均質性の定量化と、不均質性を考慮した解析

手法の具体化を進めた。さらに、割れ目試料を対象とした体系的な室内試験によって、割れ目の不均質構造と拡散・収着特性を把握するとともに、割れ目内の通液試験データの取得と予察的なモデル化までを検討した。一方、幌延泥岩については、割れ目を対象とした一連の室内試験データを整合的に解釈可能な不均質性等を考慮したモデル化手法を提案した。また、原位置試験と連携した研究アプローチを具体化と、室内補完試験、原位置試験のオーバーコア試料の分析、原位置トレーサー試験の予察解析等を進めた。さらに、長期時間スケールでのモデルとデータの確証に資するため、幌延の既往の調査データを活用したナチュラルトレーサー評価に関する予察的な解析を実施した。

今後は、いずれの岩石においても、特にマトリクスと割れ目の不均質性とその核種移行への影響に関する現象理解の深化とモデル化手法の構築、原位置トレーサー試験との連携による室内から原位置へのアップスケールも含めた評価手法の高度化と適用性評価を進める。さらに、ナチュラルトレーサーの調査と解析評価を拡充し、室内・原位置試験による成果とあわせて、性能評価への反映を図っていくこととする。

2) 有機物・微生物による核種移行への影響評価手法の開発

有機物影響評価手法については、低濃度の核種と地下水中の腐植物質との錯形成データへのNICA-Donnanモデルの適用性評価に資するための錯形成データ取得を実施するとともに、透析法、熱量滴定法及び非水滴定法を用いた天然有機物の錯形成評価を行った。その結果、地下環境から分離・精製した腐植物質を対象とした錯形成データを拡充することができた。今後は、有機物影響によりThやNpの移行が顕在化する可能性を確認するために、IV価核種と有機物との錯形成評価に対する既存モデル・データベースの信頼性について確認する必要がある。また、腐植物質の代表性に係わる調査では、RO膜による濃縮後に脱塩処理を適用する、あるいはアニオン交換樹脂（例えば、DAEAセルロース法など）を用いた回収法を適用するなどの代替手法の開発を継続して進めていく予定である。

また、微生物コロイドやバイオフィームが核種移行に及ぼす影響を評価するために、核種のアナログ元素として希土類元素との相互作用やバイオフィーム中に濃集する重元素に関するデータ取得を行うとともに、微生物群集組成や菌密度の測定により、微生物特性評価を実施した。その結果、希土類元素は地下水中のコロイドに分配しやすく、各コロイドの密度が高い環境下では核種移行が顕在化する可能性が示唆された。一方で、バイオフィーム影響については、地下環境中のバイオフィームの密度が非常に小さいことやバイオフィーム自体が金属濃集能力を有することから、現時点での知見からは、地層処分システムにおいてバイオフィームの核種移行への影響は無視できるほど小さいか遅延効果をもたらすと考えられる。今後は、地下水中のコロイドへの核種の分配係数に関するデータの信頼性を向上させるとともに、原位置環境に生息する微生物特性の知見を引き続き拡充しながら、微生物による核種の取込反応等も考慮した核種移行評価を行っていく必要がある。

(4) セメント系材料影響評価技術開発

セメント系材料の化学モデルの開発では、低アルカリ性セメント（HFSC）を中心に、セメント水和物溶解沈殿モデルとして、マグネシウムシリケート水和物の熱力学データを取得した。また、

セメント水和反応モデル開発として、セメントペースト硬化体の間隙液相組成分析を実施した。今後、こうした基盤的データを拡充し、これらを反映させてセメント水和物溶解沈殿モデル及び水和反応モデルの構築を進める。以上の成果を踏まえ、化学的な観点からのより信頼性の高いセメントの長期挙動評価を目指す。

セメント系材料の力学挙動評価モデル開発では、処分施設全体の性能評価解析の場の状態を設定するための基本となる解析手法である、連続体モデルによる力学解析ツールとしてMACBECE2014を使用して、セメント系材料における割れの発生を考慮した力学解析を行うための技術開発を行った。今後は、離散的モデルによる詳細解析を限定した領域で行い、その結果を近似的に処分場スケールの解析に反映させる等、離散モデルによる解析手法と連携させることも含めて、セメント系材料における割れの発生による影響を考慮できる解析手法を検討していく。

核種移行挙動への影響評価では、セメント環境中での収着挙動に関する実験的調査として、アルカリ性水溶液中におけるナトリウム型及びカルシウム型ベントナイトに対するジルコニウム及びスズの収着分配係数を測定した。今後、ニオブ、モリブデン等の収着分配係数を測定しつつ、遷移金属元素の収着挙動の理解を深める一方、ナトリウム型ベントナイトとカルシウム型ベントナイトに対する収着分配係数との相互補完の可能性を調査する。以上の成果を踏まえ、より信頼性の高いセメント影響下での収着挙動評価を目指す。

グラウト影響評価技術開発では、セメント系材料によるニアフィールド岩盤への影響の把握とそのプロセスの理解を目的とし、原位置でのセメント系材料と周辺岩盤との接触事例として瑞浪超深地層研究所で採取された既存のボーリングコアを用いた分析を進めた。今後、新たにボーリングコアを採取し、割れ目の充填状況や岩石の鉱物的変化に関する分析を行い、地下水等周辺地質環境の情報も考慮して岩盤への影響の経時変化を調査する。以上の成果を踏まえ、岩盤へのセメント影響のモデル化に必要な重要な指標の抽出を目指す。

(5) ニアフィールド複合現象／核種移行の体系的評価に向けた技術開発

ニアフィールド総合評価技術の開発として、ニアフィールド総合評価システムの全体構想を示すとともに、総合評価で必要となる基盤情報整備を行った。また、鉄影響による緩衝材変質を例題とし、ニアフィールドシステム変遷についての分野横断的・整合的な現象解析に向けた共通モデル・シナリオの整備を行い、化学-物質輸送-力学現象に跨るフィードバックループを考慮して現象解析を実施できるニアフィールド複合現象解析システムの開発に着手した。さらに、先端的な手法を取り入れたニアフィールド複合現象解析システムの開発として、より汎用性の高い次世代型化学-物質輸送解析モジュールの開発や、変質部のひび割れ現象に対するDEMを用いた力学解析手法開発を進めた。

今後、上記の先端的な手法を取り入れた技術開発を継続して複合現象解析技術へ反映させる。また、ニアフィールドシステム変遷に関する複合現象評価で得られた知見を、地層処分システムの安全機能という面から整理して核種移行評価に反映させる手法を開発する。さらに、上記の共通モデル・シナリオ、複合現象解析技術及び核種移行解析手法等をニアフィールド総合評価システムとしてとりまとめるとともに、一連の試行によって得られた知見を含め、成果の体系的な取りまとめを行う。

2章参考文献

- Alonso, M. C. et al., (2012): Development of an accurate pH measurement methodology for the pure fluids of low pH cementitious materials, SKB, R-12-02.
- Amano, K., Lanyon, B., and Alexander, W. R. (2013): Palaeohydrogeology in coastal systems: Sea of Japan project: A case study. Presented at the 13th NAWG Workshop, Nagoya University.
- Anderson, C. and Pedersen, K. (2003): In situ growth of Gallionella biofilms and partitioning of lanthanides and actinides between biological material and ferric oxyhydroxides. *Geobiology*, 1, pp.169-178.
- Anderson, C., Pedersen, K. and Jakobsson, A.-M. (2006): Autoradiographic comparisons of radionuclide adsorption between subsurface anaerobic biofilms and granitic host rocks. *Geomicrobiology Journal*, 23, pp.15-29.
- Anderson, C., Jakobsson, A.-M. and Pedersen, K. (2007): Influence of in situ biofilm coverage on the radionuclide adsorption Capacity of subsurface granite. *Environmental Science & Technology*, 41, pp.830-836.
- Arthur, R. C., Sasamoto, H., Shibata, M., Yui, M. and Neyama, A. (1999): Development of Thermodynamic Databases for Geochemical Calculations, JNC TN8400 99-079.
- Arthur, R. C., Sasamoto, H., Oda, C., Honda, A., Shibata, M., Yoshida, Y. and Yui, M. (2005): Development of Thermodynamic Database for Hyperalkaline, Argillaceous Systems (Research Document), JNC TN8400 2005-010.
- Benedetti, M. F., Van Riemensdijk, W. H. and Koopal, L. K. (1996): Humic substances considered as a heterogeneous donnan gel phase, *Environ. Sci. Technol.* 30, pp.1805-1813.
- Bethke, C. M. (2008): *Geochemical and biogeochemical reaction modeling*. Cambridge University Press, New York, NY.
- Bickmore, B. R., Rosso, K. M., Nagy, K. L., Cygan, R. T. and Tadanier, C. J. (2003): Ab Initio Determination of Edge Surface Structures for Dioctahedral 2: 1 Phyllosilicates: Implications for Acid-base Reactivity, *Clays Clay Minerals* 51, pp.359-371.
- Bickmore, B. R., Rosso, K. M., Tadanier, C. J., Bylaska, E. J. and Doud, D. (2006): Bond-valence Methods for pKa Prediction. II. Bond-valence, Electrostatic, Molecular Geometry, and Solvation Effects, *Geochim. Cosmochim. Acta*, 70, pp.4057-4071.
- Bickmore, B. R., Tadanier, C. J., Rosso, K. M., Monn, W. D. and Eggett, D. (2004): Bond-valence Methods for pKa Prediction: Critical Reanalysis and A New Approach, *Geochim. Cosmochim. Acta*, 68, pp.2025-2042.
- Bleam, W. F. (1993): On Modeling Proton Affinity at the Oxide/Water Interface, *J. Colloid Interface Sci.* 159, pp.312-318.
- Bleam, W. F., Welhouse, G. J. and Janowiak, M. A. (1993): The Surface Coulomb Energy and Proton Coulomb Potentials of Pyrophyllite {010}, {110}, {100}, and {130} Edges, *Clays Clay Minerals* 41, pp.305-316.
- Bloembergen, N., Purcell, E. M. and Pound, R. V. (1948): Relaxation effects in nuclear magnetic

- resonance absorption. *Phys. Rev.* 73, pp.679-712.
- Bradbury M. H. and Baeyens B. (1997) A mechanistic description of Ni and Zn sorption on Na-montmorillonite. Part II: Modelling, *J. Cont. Hydrol.* 27, pp.223-248.
- Bradbury, M. H. and Baeyens, B. (2003a): Near-Field Sorption Data Bases for Compacted MX-80 Bentonite for Performance Assessment of a High-Level Radioactive Waste Repository in Opalinus Clay Host Rock, Nagra NTB 02-18.
- Bradbury, M. H. and Baeyens, B. (2003b): Far-Field Sorption Data Bases for Performance Assessment of a High-Level Radioactive Waste Repository in an Undisturbed Opalinus Clay Host Rock, Nagra NTB 02-19.
- Bradbury, M.H. and Baeyens, B. (2005): Modelling the sorption of Mn(II), Co(II), Ni(II), Zn(II), Cd(II), Eu(III), Am(III), Sn(IV), Th(IV), Np(V) and U(VI) on montmorillonite: Linear free energy relationships and estimates of surface binding constants for some selected heavy metals and actinides, *Geochim. Cosmochim. Acta*, 69, pp.875-892.
- Brown, I.D. (1981): The bond valence method. An empirical approach to chemical structure and bonding, in *Structure and Bonding in Crystals*, Vol. 2., M. O'Keefe and A. Navrotsky (eds), New York: Academic Press, pp.1-52.
- Brown, I.D. (2002): *The Chemical Bond in Inorganic Chemistry*, Oxford University Press.
- Brown, I.D. and Altermatt, D. (1985): Bond-valence Parameters Obtained from a Systematic Analysis of the Inorganic Crystal Structure Database, *Acta Cryst.* B41, pp.244-247.
- Brown, I.D. and Shannon, R.D. (1973): Empirical Bond-strength-bond-length Curves for Oxides, *Acta Cryst.* A29, pp.266-282.
- Brown, I.D. and Wu, K.K. (1976): Empirical Parameters for Calculating Cation-oxygen Bond Valences, *Acta Cryst.* B32, pp.1957-1959.
- 千々松正和, 谷口航(1999): 熱-水-応力連成モデルを用いたニアフィールド解析評価, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN8400 99-014.
- Churakov, S. V. (2006): Ab initio study of sorption on pyrophyllite: Structure and acidity of the edge sites, *J. Phys. Chem. B*, 110, pp.4135-4146.
- Churakov, S.V. (2007): Structure and dynamics of the water films confined between edges of pyrophyllite: A first principle study, *Geochim. Cosmochim. Acta*, 71, pp.1130-1144.
- Cundall, P.A. and Strack, O.D.L. (1979): A discrete numerical model for granular assemblies, *Geotechnique*, 29, 1, pp.47-65.
- Cornell, R.M. and Schwertmann, U. (1989): Iron Oxides in: J.B. Dixon, S.B. Weed (Eds.) *Minerals in Soil Environment*. Soil Society of America, Madison. pp. 379.
- Cygan, R.T., Liang, J.-J. and Kalinichev, A.G. (2004): Molecular models of hydroxide, oxyhydroxide, and clay phases and the development of a general force field. *J. Phys. Chem. B* 108, pp.1255-1266.
- 電気事業連合会, 核燃料サイクル開発機構(2005): TRU廃棄物処分技術検討書, 一第2次TRU廃棄物処分研究開発取りまとめ一, JNC TY1400 2005-013, FEPC TRU-TR2-2005-02.
- 土木学会(1996): コンクリート標準示方書「設計編」(平成8年制定)

- 動力炉・核燃料開発事業団(1990): 地層処分条件下におけるガラス固化体の長期的性能に関する検討, PNC TN4410 90-006.
- Ekendahl, S., Arlinger, J., Ståhl, F. and Pedersen, K. (1994): Characterization of attached bacterial populations in deep granitic groundwater from the Stripa research mine with 16S-rRNA gene sequencing technique and scanning electron microscopy. *Microbiology*, 140, pp.1575-1583.
- Eng, A., Nilsson, U. and Svensson, D. (2007): Alternative buffer material installation report, IPR-07-15.
- Fowless, A.D. and Stranks, D.R. (1977): Selenitometal Complex. 1. Synthesis and Characterization of Selenito Complex of Cobalt(III) and Their Equilibrium Properties in Solution. *Inorganic Chemistry*. 16 (6): 127-1276.
- Fredrickson, J.K. and Fletcher, M. (eds.) (2001): *Subsurface microbiology and biogeochemistry*. Wiley-Liss, Inc., New York.
- 藤崎淳, 鈴木英明, 藤田朝雄(2008): 熱-水-応力連成試験設備(COUPLE)を用いた室内試験結果に基づく熱-水連成モデルの信頼性確認, JAEA-Research 2008-020.
- 藤田朝雄, 谷口直樹, 松井裕哉, 棚井憲治, 西村繭果, 小林保之, 平本正行, 前川恵輔, 澤田淳, 牧野仁史, 笹本広, 吉川英樹, 柴田雅博, 若杉圭一郎, 濱克宏, 操上広志, 國丸貴紀, 石井英一, 竹内竜史, 中野勝志, 太田久仁雄, 瀬尾俊弘, 宮原要, 内藤守正, 油井三和(2007): 幌延深地層研究計画における地上からの調査研究段階(第1段階)研究成果報告書 分冊「地層処分研究開発」, JAEA-Research 2007-045.
- 福士圭介(2008): 酸化物による無機陰イオンの吸着-吸着実験による巨視的吸着挙動とその場分光分析による微視的表面錯体構造-, *粘土科学*, 47, 3, pp.121-158.
- 福谷英二(1978): 金属の電気化学的腐食速度計測法, *防食技術*, 27, 7, pp.348-355.
- 腐食防食協会編(1993): *環境材料学入門*, 丸善
- 原子力発電環境整備機構(2011): 地層処分事業の安全確保(2010年度版)-確かな技術による安全な地層処分の実現のために-, NUMO-TR-11-01.
- (公財)原子力環境整備促進・資金管理センター(2013): 平成24年度 地層処分技術調査等事業, 高レベル放射性廃棄物処分関連, 処分システム工学要素技術高度化開発報告書(第二分冊), 人工バリア品質評価技術の開発-(2/2), 平成25年3月.
- (公財)原子力環境整備促進・資金管理センター(2014): 平成25年度 地層処分技術調査等事業TRU廃棄物処理・処分技術高度化開発報告書(第5分冊)-ガス移行連成挙動評価手法の開発-, 平成26年3月.
- Giannozzi, P. et al. (2009): QUANTUM ESPRESSO: a modular and open-source software project for quantum simulations of materials. *J. Phys.: Cond. Matter* 21: 395502-395521.
- GoldSim Technology Group, 2010. GoldSim Version 10.1.
- Grambow, B., Müller, R. (1990): Chemistry of glass corrosion in high saline brines. *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.* 176, 229.
- Henneberger, R., Moissl, C., Amann, T., Rudolph, C., and Huber, R. (2006): New insights into the lifestyle of the cold-loving SM1 Euryarchaeon: natural growth as a monospecies

- biofilm in the subsurface, *Appl. Environ. Microbiol.*, 72, pp.192-199.
- Hiemstra, T., De Wit, J.C.M. and van Riemsdijk, W.H. (1989a): Multisite Proton Adsorption Modeling at the Solid/Solution Interface of (Hydr)oxides: A New Approach, II. Application to Various Important (Hydr)oxides, *J. Colloid Interface Sci.* 133, pp.105-117.
- Hiemstra, T., van Riemsdijk, W.H. and Bolt, G.H. (1989b): Multisite Proton Adsorption Modeling at the Solid/Solution Interface of (Hydr)oxides: A New Approach, I. Model Description and Evaluation of Intrinsic Reaction Constants, *J. Colloid Interface Sci.* 133, pp.91-104.
- Hiemstra, T., Venema, P. and van Riemsdijk, W.H. (1996): Intrinsic Proton Affinity of Reactive Surface Groups of Metal (Hydr)oxides: The Bond Valence Principle, *J. Colloid Interface Sci.* 184, pp.680-692.
- 平賀正人, 石井英一 (2007) : 幌延深地層研究計画 (第一段階) において採取されたボーリングコアの鉱物組成・全岩化学組成および地表ガスの化学組成, *JAEA - Data/Code* 2007-022.
- 平野史生, 大谷芳輝, 京川裕之, 三原守弘, 清水浩之, 本田明 (2016) : TRU廃棄物処分システムの性能評価の観点からの人工バリアの透水性に対するセメント系材料のひび割れの影響に関する検討, *日本原子力学会和文論文誌*, 15, No.2 (掲載予定).
- 平尾一之, 河村雄行 (1994) : パソコンによる材料設計, 裳華房, 東京.
- 人見尚, 梶原堅太郎, 杉山隆文, 佐藤稔紀 (2014) : 非破壊CT-XRD連成法による花崗岩亀裂に注入したグラウトの観察, 第68回セメント技術大会講演要旨.
- Hogfeldt, E. (1979): *Stability constants of metal-ion complexes Part B: Organic ligand.* Oxford, New York.
- Holmboe, M., Wold, S. and Jonsson, M. (2010): Colloid diffusion in compacted bentonite: microstructural constraints: *Clays and Clay Minerals*, Vol. 58, No. 4, 532-541.
- Holmboe, M., Wold, S. and Jonsson, M. (2012): Porosity investigation of compacted bentonite using XRD profile modeling, *Journal of Contaminant Hydrology*, 128, pp.19-32.
- Holzer, L., Münch, M., Rizzi, M., Wepf, R., Marschall, T. and Graule, T. (2010): 3D-microstructure analysis of hydrated bentonite with cryo-stabilized pore water. *Applied Clay Science*, Volume47, Issues3-4, pp.330-342.
- Honda, A., Taniguchi, N., Ishikawa, H., Hoch, A.R., Porter, F.M. and Sharland, S.M. (1995): A modelling Study for Long-term Life Prediction of Carbon Steel Overpack for Geological Isolation of High-Level Radioactive Waste, *Proceedings of International Symposium on Plant Aging and Life Prediction of Corrodible Structures*, pp.217-227.
- Hong, S. Y., Glasser, F. P. (1999) : Alkali binding in cement pastes Part I. The C-S-H phase, *Cement and Concrete Research*, 29, pp.1893-1903.
- 星野清一, 根岸久美, 本田明 (2014) : フライアッシュ高含有シリカフェームセメントの低アルカリ性発現機構と化学平衡モデル, *コンクリート工学論文集*, 第25巻, pp.97-107
- Ibaraki, M. and Sudicky, E.A. (1995) : Colloid-facilitated contaminant transport in discretely fractured porous media: 1. Numerical formulation and sensitivity analysis.

- Water Resources Research, 31(12), pp.2945-2960.
- Iida, Y., Tanaka, T., Yamaguchi, T. and Nakayama, S. (2011): Sorption Behavior of Selenium(-II) on Rocks under Reducing Conditions. Journal of Nuclear Science and Technology, Vol. 48, No. 2, pp.279-291.
- 石橋正祐紀, 安藤友美, 笹尾英嗣, 湯口貴史, 西本昌司, 吉田英一(2014): 深部結晶質岩における割れ目の形成・充填過程と透水性割れ目の地質学的特徴—土岐花崗岩を例として—, 応用地質学会誌第55巻第4号, pp156-165.
- 石川博久, 本田明, 鶴留浩二, 井上邦博, 小畑政道, 佐々木憲明(1992): オーバーパック候補材料選定と炭素鋼オーバーパックの寿命評価, PNC TN8410 92-139.
- 伊藤彰, 川上進, 油井三和(2004): 高レベル放射性廃棄物処分におけるニアフィールドの熱—水—応力—化学連成モデル／解析コードの開発, JNC TN8400 2003-032.
- 岩月輝希, 石井英一, 新里忠史(2009): 北海道幌延地域における深部地球化学環境の長期変遷シナリオの構築, 地学雑誌, 118(4), pp. 700-716.
- Jackson, C.L. and McKenna, G.B. (1990): The melting behavior of organic materials confined in porous solids. J. Chem. Phys. 93, pp.9002-9011.
- Jackson, M.L. (1964): Chemical composition of soils, in Chemistry of the Soil, F.E. Bear ed., pp.71-141.
- Jägevall, S., Rabe, L. and Pedersen, K. (2011): Abundance and diversity of biofilms in natural and artificial aquifers of the Äspö Hard Rock Laboratory, Sweden. Microb. Ecol., 61, pp. 410-422.
- Johnson, L.H., King, F., (2003): Canister options for the direct disposal of spent fuel. Nagra Technical Report NTB 02-11, Nagra, Wettingen, Switzerland.
- Jollivet, P., Frugier, P., Parisot, G., Mestre, J. P., Brackx, E., Gin, S. and Schumacher, S. (2012): Effect of clayey groundwater on the dissolution rate of the simulated nuclear waste glass SON68, Journal of Nuclear Materials, 420, pp.508-518.
- 甲斐邦男, 前川恵輔(2009): 北海道幌延地域の新第三系珪藻質泥岩中の地下水の酸素・水素同位体比と塩化物イオン濃度, 石油技術協会誌, 第74巻, 第1号, pp. 96-106.
- 核燃料サイクル開発機構(1999a): わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性, 地層処分研究開発第2次取りまとめ, 分冊2, JNC TN1400 99-022.
- 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 99-23.
- 核燃料サイクル開発機構(2003): 高レベル放射性廃棄物ガラス固化体—性能評価の現状と課題— (研究報告), JNC TN8400 2003-36.
- 亀井玄人, 本田明, 三原守弘, 小田治恵, 村上裕, 増田賢太, 山口耕平, 中西博, 佐々木良一, 市毛悟, 高橋邦明, 目黒義弘, 山口大美, 青山佳男, 小華和治 (2007): TRU廃棄物の処理・処分技術に関する研究開発—平成18年度報告—, JAEA-Research 2007-067.
- 梶原堅太郎, 人見尚, 杉山隆文(2013): 非破壊CT-XRD連成測定によるコンクリート内部の鉍物分布評価技術の開発, 第67回セメント技術大会講演要旨, pp. 82-83.

- 河村雄行(2004): ベントナイト中の物質移行モデルの高度化研究(Ⅲ), JNC TJ8400 2004-028.
- 河村雄行(2008): 鉱物-水系の分子シミュレーション, 地球化学, 42, pp.115-132.
- Kim, Y., Kirkpatrick, R. J. and Cygan, R. T. (1996): ^{133}Cs NMR study of cesium on the surfaces of kaolinite and illite, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 60, pp.4059-4074.
- Kim, Y. and Kirkpatrick, R. J. (1997): ^{23}Na and ^{133}Cs NMR study of cation adsorption on mineral surfaces: Local environments, dynamics, and effects of mixed cations, *Geochimica et cosmochimica acta*, 61, pp.5199-5208.
- Kimura, K. and Takashima, S. (2002): Molecular Approach to the Surface Potential Estimate of Thiolate-Modified Gold Nanoparticles: *J. Phys. Chem. B* 2002, 106, 7260-7266.
- 木村誠, 九石正美, 藤田朝雄, 中間茂雄, 鈴木英明(2010): 緩衝材中の化学影響評価に向けた熱-水-応力-化学連成解析モデルの開発, JAEA-Research 2010-034
- King, F., (2007): Overview of a carbon steel corrosion model for a deep geological repository in sedimentary rock. NWMO Report NWMO TR-2007-01, Nuclear Waste Management Organisation of Canada, Toronto, Canada.
- Kinniburgh, D.G., Milne, C.J., Pinheiro, J.P., Filius, J., Koopal, L.K. and Van Riemsdijk, W.H. (1996): Metal ion binding by humic acid: application of the NICA-Donnan model, *Environ. Sci. Technol.* 30, pp.1687-1698.
- Kinniburgh, D.G., van Riemsdijk, W.H., Koopal, L.K., Borkovec, M., Benedetti, M.F., Avena, M.J. (1999): Ion binding to natural organic matter: competition, heterogeneity, stoichiometry and thermodynamic consistency, *Colloids Surf. A*, 151, pp.147-166.
- Kirishima, A., Ohnishi, T., Sato, N., Tochiyama, O. (2009): Determination of the phenolic-group capacities of humic substances by non-aqueous titration technique. *Talanta*, 79, pp.446-453.
- Kitamura, A., Doi, R. and Yoshida, Y. (2014): Update of JAEA-TDB: Update of Thermodynamic Data for Palladium and Tin, Refinement of Thermodynamic Data for Protactinium, and Preparation of PHREEQC Database for Use of the Brønsted-Guggenheim-Scatchard Model, JAEA-Data/Code 2014-009.
- Koopal, L.K., Saito, T., Pinheiro, J.P. and van Riemsdijk, W.H. (2005): Ion binding to natural organic matter: general considerations and the NICA-Donnan model, *Colloids Surf. A* 265, pp.40-54.
- 興戸正純, 沖猛雄(1993): 界面インピーダンス法の基礎と金属材料への応用, 日本金属学界報, Vol. 32, No. 4, pp.199-207.
- Kowada, Y., Ozaki, T. and Minami, T. (2005): Preparation of Silica-Gel Film with pH Indicators by the Sol-Gel Method. *Journal of Sol-Gel Science and Technology*, Vol 33, Issue 2, pp.175-185.
- Kozaki, T., Fujishima, A., Sato, S. and Ohashi, H. (1998): Self-diffusion of sodium ions in compacted montmorillonite, *Nuclear Technology*, 121, pp.63-69.
- Krawczyk-Bärsch, E., Lünsdorf, H., Pedersen, K., Arnold, T., Bok, F., Steudtner, R., Lehtinen, A. and Brendler, V. (2012): Immobilization of uranium in biofilm

- microorganisms exposed to groundwater seeps over granitic rock tunnel walls in Olkiluoto, Finland. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 96, pp.94-104.
- Kremleva, A., Krüger, S. and Rösch, N. (2015): Uranyl Adsorption at Solvated Edge Surfaces of 2: 1 Smectites. A Density Functional Study, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 17, pp.13757-13768.
- 久野義夫, 笹本広(2009): 岩盤亀裂中でのコロイドに助長された核種移行に関する解析検討. 日本原子力研究開発機構 技術報告書. JAEA-Research 2009-071.
- 黒澤進(2005): 高レベル放射性廃棄物地層処分システムにおける核種移行評価に及ぼすコロイド影響に関する研究 - 第2次とりまとめ以降の検討 -, JNC TN8400 2005-007
- Lantenois, S., Lanson, B., Muller, F., Bauer, A., Jullien, M. and Plancon, A. (2005): Experimental study of smectite interaction with metal Fe at low temperature: 1. smectite destabilization, *Clays and Clay Minerals*, 53, pp.597-612.
- Licht, S. and Forouzan, F. (1995): Speciation analysis of aqueous polyselenide solutions, *J. Electrochem. Soc.*, 142[5], pp.1546-1551.
- Liu, X., Cheng, J., Sprik, M., Lu, X. and Wang, R. (2014): Surface Acidity of 2: 1-type Dioctahedral Clay Minerals from First Principles Molecular Dynamics Simulations, *Geochim. Cosmochim. Acta*, 140, pp.410-417.
- Liu, X., Lu, X., Meijer, E.J., Wang, R. and Zhou, H. (2012): Atomic-scale Structures of Interfaces between Phyllosilicate Edges and Water, *Geochim. Cosmochim. Acta*, 81, pp.56-68.
- Liu, X., Lu, X., Sprik, M., Cheng, J., Meijer, E.J. and Wang, R. (2013): Acidity of Edge Surface Sites of Montmorillonite and Kaolinite, *Geochim. Cosmochim. Acta*, 117, pp.180-190.
- Lyons, L. and Young, T. (1986): Alkaline selenide, polyselenide electrolytes: Concentrations, absorption-spectra and formal potentials, *Aust. J. Chem.*, 39[3], 511-527.
- Machesky, M.L., Předota, M., Wesolowski, D.J., Vlcek, L., Cummings, P.T., Rosenqvist, J., Ridley, M.K., Kubicki, J.D., Bandura, A.V., Kumar, N. and Sofo, J.O. (2008): Surface Protonation at the Rutile (110) Interface: Explicit Incorporation of Solvation Structure within the Redefined MUSIC Model Framework, *Langmuir*, 24, pp.12331-12339.
- Madigan, M.T., Martinko, J.M. and Dunlap, P.V., Clark, D.P. (eds.) (2009) *Brock Biology of Microorganisms*. Prentice hall International, Inc. New Jersey. p 54.
- Maeda, T., Ohmori, H., Mitsui, S. and Banba, T. (2011): Corrosion Behavior of Simulated HLW Glass in the Presence of Magnesium Ion, *International Journal of Corrosion*, vol. 2011, Article ID 796457.
- Mazurek, M., Alt-Epping, P., Bath, A., Gimmi, T. and Waber, H.N. (2009): Natural tracer profiles across argillaceous formations: The CLAYTRAC project. OECD/NEA Report 6253, OECD Nuclear Energy Agency, Paris, France.
- Mccarthy, J.F., Zachara, J.M. (1989): *Subsurface Transport of Contaminants - Mobile Colloids*

- in the Subsurface Environment May Alter the Transport of Contaminants, *Environ. Sci. Technol.*, 23, pp.496-502.
- McGrail, B.P. (1986): Waste Package Component Interactions with Savannah River Defense Waste Glass in a Low-magnesium Salt Brine, *Nuclear Technology*, 75, pp.168-186.
- McVay, G.L. and Buckwalter, C.Q. (1983): Effect of Iron on Waste-Glass Leaching, *Journal of the American Ceramic Society*, 66, pp.170-174.
- Mendel, J.E. (1984): Defense High-Level Waste Leaching Mechanisms Program. Final Report, PNL-5157.
- Michelin, A. Burger, E., Rebiscoul, D. Neff, D., Bruguier, F., Drouet, E., Dillmann, P. and Gin, S. (2012): Silicate Glass Alteration Enhanced by Iron: Origin and Long-Term Implications, *Environmental Science & Technology* 2013, 47, pp.750-756.
- 三原守弘, 佐藤信之, 大野進太郎, 森川誠司(2010): TRU 廃棄物地層処分施設の力学挙動解析コード(MACBECE)の開発, JAEA-Data/Code 2009-026.
- 三原守弘(2006): TRU廃棄物処分システムの安全評価における核種移行データセット- RAMDA: Radio-nuclide Migration Datasets-, JAEA-Review 2006-011.
- 三原守弘, 伊藤勝, 加藤博康, 上田真三 (1999): カルシウム型ベントナイトのトリチウム, セシウム, ヨウ素及び炭素の実効拡散係数の取得, JNC TN8430 99-011.
- Miller, W.M., Alexander, W.R., Chapman, N.A., McKinley, I.G. and Smellie, J.A.T. (2000): Geological Disposal of Radioactive wastes and Natural Analogues. Waste Management Series, 2, Pergamon, Amsterdam.
- Milne, C.J., Kinniburgh, D.G. and Tipping, E. (2001): Generic NICA-Donnan model parameters for proton binding by humic substances, *Environ. Sci. Technol.* 35, pp.2049-2059.
- Milne, C.J., Kinniburgh, D.G., Van Riemsdijk, W.H. and Tipping, E. (2003): Generic NICA-Donnan model parameters for metal-ion binding by humic substances, *Environ. Sci. Technol.* 37, pp.958-978.
- Milodowski, A.E., Cave, M.R., Kemp, S.J., Taylor, H., Vickers, B.P., Green, K.A., Williams, C.L., Shaw, R.A. (2009a): Mineralogical investigations of the interaction between iron corrosion products and bentonite from the NF-PRO experiments (Phase 1), SKB TR-09-02.
- Milodowski, A.E., Cave, M.R., Kemp, S.J., Taylor, H., Green, K., Williams, C.L., Shaw, R.A., Gowing, C.J.B., Eatherington, N.D. (2009b): Mineralogical investigations of the interaction between iron corrosion products and bentonite from the NF-PRO experiments (Phase 2), SKB TR-09-03.
- Mitchell, J., Webber, J.B.W. and Strange, J.H. (2008): Nuclear magnetic resonance cryoporometry. *Phys. Rep.* 461, pp.1-36.
- Mitsui, H., Takahashi, R., Asano, H., Taniguchi, N. and Yui, M. (2008): Susceptibility to Stress Corrosion Cracking for Low-Carbon Steel Welds in Carbonate-Bicarbonate Solution, *Corrosion*, 64, 12, pp.939-948.
- Morodome, S. and Kawamura, K. (2009): Swelling behavior of Na- and Ca-montmorillonite up to 150°C by in situ X-ray diffraction experiments, *Clays and Clay Minerals*, 57(2),

- pp. 150-160.
- Morodome, S. and Kawamura, K. (2011): In situ X-ray diffraction study of the swelling of montmorillonite as affected by exchangeable cations and temperature. *Clays and Clay Minerals*, 59(2), pp.165-175.
- Morris, D.E., Chisholm-Brause, C.J., Barr, M.E., Conradson, S.D. and Eller, P.G. (1994): Optical Spectroscopic Studies of the Sorption of UO_2^{2+} Species on a Reference Smectite, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 58, pp.3613-3623.
- Muurinen, A., Carlsson, T. and Root, A. (2013): Bentonite pore distribution based on SAXS, chloride exclusion and NMR studies, *Clay Minerals*, 48, pp.251-266.
- Nakamoto, K. (1986): Infrared and Raman spectra of inorganic and coordination compounds. , 4th ed., John Wiley & Sons, New York.
- 中田和秀(2002): 大規模線型方程式を解くためのクリロフ部分空間法の前処理, 数理解析研究所講究録, 1288巻, pp. 52-63.
- 中山雅, 大野宏和, 中山真理子、小林正人(2015): 幌延深地層研究計画における人工バリア性能確認試験計測データ集(平成26年度), JAEA-Data/Code 2015-013.
- Neretnieks, I. (1982): The movement of a redox front downstream from a repository for nuclear waste, SKBF/KBS Teknisk rapport 82-16.
- Nied, D., Rasmussen, K. E., L'Hopital, E., Skibsted, J., Lothenbach, B. (2016) : Properties of magnesium silicate hydrates (M-S-H), *Cement and Concrete Research*, 79, pp. 323-332.
- 日本原子力研究開発機構(2008a): 平成19年度 地層処分技術調査等委託費 高レベル放射性廃棄物処分関連 処分システム化学影響評価高度化開発報告書 平成20年3月
- 日本原子力研究開発機構(2008b): 平成19年度 地層処分技術調査等事業 高レベル放射性廃棄物処分関連 先進的地層処分概念・性能評価技術高度化開発報告書.
- 日本原子力研究開発機構(2011): 平成22年度 地層処分技術調査等委託費 高レベル放射性廃棄物処分関連 処分システム化学影響評価高度化開発報告書 平成23年3月
- 日本原子力研究開発機構(2012a): 平成23年度 地層処分技術調査等事業 高レベル放射性廃棄物処分関連 処分システム化学影響評価高度化報告書 平成24年3月
- 日本原子力研究開発機構(2012b): 平成23年度地層処分技術調査等事業 T R U廃棄物処分技術セメント材料影響評価技術高度化開発報告書 平成24年3月
- 日本原子力研究開発機構(2013a): 平成24年度 地層処分技術調査等事業 高レベル放射性廃棄物処分関連 先進的地層処分概念・性能評価技術 高度化開発 - 巨大地震・津波を含む想定外事象への対応 - 報告書 平成25年3月
- 日本原子力研究開発機構(2013b): 平成24年度 地層処分技術調査等事業 高レベル放射性廃棄物処分関連 処分システム化学影響評価高度化開発報告書 平成25年3月
- 日本原子力研究開発機構(2013c): 地層処分技術調査等委託費 高レベル放射性廃棄物処分関連 処分システム化学影響評価高度化開発総括報告書—6 か年研究成果の取りまとめ—.
- 日本原子力研究開発機構(2013d): 平成24年度地層処分技術調査等事業 T R U廃棄物処分技術セメント材料影響評価技術高度化開発報告書 平成25年3月.
- 日本原子力研究開発機構(2013e): 平成24年度 地層処分技術調査等委託費 高レベル放射性廃

- 棄物処分関連 地下坑道施工技術高度化開発 6ヵ年報告書 平成25年3月.
- 日本原子力研究開発機構(2014a): 平成25年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発報告書 平成26年3月
- 日本原子力研究開発機構(2014b): 概要調査段階における設計・性能評価手法の高度化(その3)― NUMO-JAEA 共同研究報告書(2013年度)― (共同研究).
- 日本原子力研究開発機構 (2014c): 平成25年度地層処分技術調査等事業 セメント材料影響評価技術高度化開発報告書 平成26年3月.
- 日本原子力研究開発機構(2015a): 平成26年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発報告書 平成27年3月
- 日本原子力研究開発機構(2015b): 平成26年度 地層処分技術調査等事業 使用済燃料直接処分技術開発報告書 平成27年3月.
- 日本原子力研究開発機構 (2015c): 平成26年度地層処分技術調査等事業 セメント材料影響評価技術高度化開発報告書 平成27年3月.
- 日本原子力研究開発機構 (2015d): 平成26年度地層処分技術調査等事業 セメント材料影響評価技術高度化開発 - 4ヵ年研究成果の取りまとめ- 報告書.
- 日本原子力研究開発機構 (2015e): 幌延深地層研究計画 平成26年度調査研究成果報告.
- Nishikata, A., Ichihara, Y. and Tsuru, T. (1995): An Application of Electrochemical Impedance Spectroscopy to Atmospheric Corrosion Study, *Corrosion Science*, 37, No. 6, pp. 897-911.
- 西方篤(1993): インピーダンス測定法V 応用(1)腐食系への適用, *電気化学*, Vol. 62, No. 7, pp. 582-587.
- 西方篤, 高橋岳彦, 侯保栄, 水流徹(1994): 乾湿繰り返し環境における炭素鋼の腐食速度のモニタリングとその腐食機構, *材料と環境*, 43, No. 4, pp. 188-193.
- 西村俊弥, 片山英樹, 野田和彦, 小玉俊明(2000): 乾湿繰り返し環境における炭素鋼の腐食挙動に与えるNaCl-MgCl₂系塩化物の影響, *材料と環境*, 49, No. 1, pp. 45-51.
- 新里忠史, 舟木泰智, 安江健一(2007): 北海道北部, 幌延地域における後期鮮新世以降の古地理と地質構造発達史, *地質学雑誌*, 第113巻 補遺, pp. 119-135.
- 野口俊英, 高瀬博康 (2008) : 処分場の設計オプションの違いを考慮した性能評価手法の開発(1)―ランダムウォーク法を用いた3次元核種移行解析コードPARTRIDGEの開発―, 日本原子力学会2008 春の大会.
- 野城一栄, 嶋本敬介, 小島芳之, 朝倉俊弘(2008): 時間依存型地山劣化モデルによるトンネル変状予測法の開発, *鉄道総研報告*, 22, 10, pp. 53-58
- NUMO(2004): Development of repository concepts for volunteer siting environments, NUMO-TR-04-03.
- 小田治恵, 柴田雅博, 油井三和(1999): 地層処分研究開発第2次とりまとめにおける緩衝材間隙水化学の評価, JNC-TN8400 99-078.
- OECD/NEA (2012): Cementitious Materials in Safety Cases for Geological Repositories for Radioactive Waste: Role, Evolution and Interactions (A workshop organised by the OECD/NEA Integration Group in the Safety Case and hosted by ONDRAF/NIRAS, 2012) .

- Ohkubo, T., Kikuchi, H. and Yamaguchi, M. (2008): An approach of NMR relaxometry for understanding water in saturated compacted bentonite, *Physics and Chemistry of the Earth*, 33, pp.S169-S176.
- Ohnishi, Y., Shibata, H. and Kobayashi, A. (1985): Development of finite element code for the analysis of coupled Thermo-Hydro-Mechanical behaviors of a saturated-Unsaturated medium, *Proc. of Int. Symp. on coupled process affecting the performance of a nuclear waste repository*, Berkeley, pp.263-268.
- 大瀧仁志(1990): イオンの水和, 共立出版, 東京.
- 太田久仁雄, 阿部寛信, 山口雄大, 国丸貴紀, 石井英一, 操上広志, 戸村豪治, 柴野一則, 濱克宏, 松井祐哉, 新里忠史, 高橋一晴, 丹生屋純夫, 大原英史, 浅森浩一, 森岡宏之, 舟木泰智, 茂田直孝, 福島龍郎(2007): 幌延深地層研究計画における地上からの調査研究段階(第1段階)研究成果報告書 分冊「深地層の科学的研究」, JAEA-Research 2007-044.
- 大森一秋、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—、JAEA-Data/Code 2014-019.
- Parkhurst, D.L. (1995): User's Guide to PHREEQC-A Computer Program for Speciation, Reaction-Path, Advective-Transport, and Inverse Geochemical Calculations, U.S. Geological Survey, Water-Resources Investigations Report 95-4227.
- Peak, D., Saha, U.K. and Huang, P.M. (2006): Selenite Adsorption Mechanism on Pure and Coated Montmorillonite: An EXAFS and XANES Spectroscopy Study. *Soil Science Society of America*. 70: 192-203.
- Pedersen, K. (1999): Subterranean microorganisms and radioactive waste disposal in Sweden. *Engineering Geology*, 52, 163-176.
- Pedersen, K. (2005): Microorganisms and their influence on radionuclide migration in igneous rock environments. *Journal of Nuclear and Radiochemical Sciences*, 6, 11-15.
- Perras, A.K., Wanner, G., Klingl, A., Mora, M., Auerbach, K., Heinz, V., Probst, A.J., Huber, H., Rachel, R., Meck, S., and Moissl-Eichinger, C. (2014): Grappling archaea: ultrastructural analyses of an uncultivated, cold-loving archaeon, and its biofilm. *Front Microbiol.*, 5, 397. doi: 10.3389/fmicb.2014.00397
- Pfingsten, W., Bradbury, M. and Baeyens, B., (2011): The influence of Fe(II) competition on the sorption and migration of Ni(II) in MX-80 bentonite., *Appl. Geochem.*, 26, pp.1414-1422.
- Pickard, C.J. and Mauri, F. (2001): All-electron magnetic response with pseudopotentials: NMR chemical shifts. *Physical Review B*, 63 (24), 245101.
- Posiva Oy (2012): Safety Case for the Disposal of Spent Nuclear Fuel at Olkiluoto - Assessment of Radionuclide Release Scenarios for the Repository System 2012, POSIVA 2012-09.
- Potyondy, D.O., Cundall, P.A. (2004): A bonded-particle model for rock, *International Journal of Rock Mechanics & Mining Sciences*, 41, pp.1329-1364.

- Pourret, O. and Martinez, R.E. (2009): Modelling lanthanide series binding on humic acid, *J. Colloid Interface Sci.* 330, pp.45-50.
- Probst, A.J., Weinmaier, T., Raymann, K., Perras, A., Emerson, J.B., Rattei, T., *et al.* (2014): Biology of a widespread uncultivated archaeon that contributes to carbon fixation in the subsurface. *Nat Commun.* 5, pp.1-13.
- Pusch, R. (1983): Stability of Deep-sited Smectite Minerals in Crystalline Rock-Chemical Aspects-, SKBF/KBS Teknisk Rapport 83-16.
- Pusch, R. (1998): Transport Phenomena in Smectite Clay Explained by Considering Microstructural Features, *Materials Research Society Symposium Proceedings*, Vol.506, Materials Research Society, pp.439-448.
- Pusch, R., Karnland, O. and Hökmark, H. (1990): GMM – a general microstructural model for qualitative and quantitative studies of smectite clays. SKB technical report 90-43.
- Quintessa (2013): QPAC: Quintessa's General-Purpose Modelling Software, QRS-QPAC-11, (<http://www.quintessa.org/qpac-overview-report.pdf>).
- Rai, D., Yui, M., Schaef, T. and Kitamura, A. (2011): Thermodynamic model for SnO₂(cr) and SnO₂(am) solubility in the aqueous Na⁺-K⁺-OH⁻-Cl⁻-H₂O system, *J. Solution Chem.*, 40, 1155-1172.
- Saito, T., Terashima, M., Aoyagi, N., Nagao, S., Fujitake, N., Ohnuki, T. (2015): Physicochemical and ion-binding properties of highly aliphatic humic substances extracted from deep sedimentary groundwater, *Environ Sci-Proc Imp*, 17, pp.1386-1395.
- Salles, F., Beurroies, I., Bildstein, O., Jullien, M., Raynal, J., Denoyel, R., and Van Damme, H. (2008): A calorimetric study of mesoscopic swelling and hydration sequence in solid Na-montmorillonite. *Appl. Clay Sci.* 39(3), 186-201.
- 笹倉剛、畔柳幹雄、岡本道孝 (2002) : ベントナイト変遷挙動のモデル化のデータ取得及び調査, JNC-TJ8400 2002-025.
- 笹本広, James Wilson, 佐藤努 (2012) : 鉄との相互作用による緩衝材への変質影響評価 : 影響要因に関する解析的検討, 原子力バックエンド研究, Vol.20 No.2.
- 澤崎雅之, 鶴田憲明, 日下部吉彦 (1994) : グリーンタフ地域の凝灰岩の物性と力学的性質に関する研究, 福井工業大学研究紀要 第一部24, pp.157-163.
- Schwab, A.P., Zhu, D.S., Banks, M.K. (2008): Influence of organic acids on the transport of heavy metals in soil. *Chemosphere* 72, 986-994.
- 柴田俊夫, 渡邊正敏, 谷口直樹, 清水亮彦 (2013) : 酸素欠乏地下環境における炭素鋼腐食モデリング, 材料と環境, Vol.62, No.2, pp.70-77.
- 清水 浩之, 平野史生, 大野進太郎, 高瀬博康, 本田明 (2014) : 粒状体個別要素法による鉄筋コンクリートモデルの構築, 資源・素材学会平成26年度 (2014年度) 春季大会.
- Shimizu H., Shazree M., Ito T. and Narita H. (2014): Flow-coupled DEM modeling for hydraulic fracturing in unconsolidated sands, In: *Proc. of the 14th International Conference of the International Association for Computer Methods and Advances in Geomechanics (14th ICIACMAG)*, pp.370.

- 下茂道人, 西垣誠, 鍵富淳(1982): 瞬時水分計測法の適用限界と泥岩の保水特性について, 第17回土質工学研究発表会E-7, pp. 2385-2388.
- SKB (2010): Data report for the safety assessment SR-Site, SKB TR-10-52.
- SKB (2011). Long-term safety for the final repository for spent nuclear fuel at Forsmark: Main report of the SR-Site project Volume I, Technical Report TR-11-01.
- Smart, N. R., Blackwood, D. J., Werme, L. (2001): The anaerobic corrosion of carbon steel and cast iron in artificial groundwaters, SKB Technical Report TR-01-22.
- Smart, N. R., Blackwood, D. J., Werme, L. (2002): Anaerobic Corrosion of Carbon Steel and Cast Iron in Artificial Groundwaters: Part 1—Electrochemical Aspects, Corrosion, Vol. 58, No. 7, pp. 547-559
- Soler, J. M., Landa, J., Havlova, V., Tachi, Y., Ebina, T., Sardini, P., Siitari-Kauppi, M., Martin, A. (2015): Comparative modeling of an in situ diffusion experiment in granite at the Grimsel Test Site, J. Contam. Hydrol. 179, pp. 89-101.
- Soltermann, D., Fernandes, M. M., Baeyens, B., Dähn, R., Miehé-Brendlé, J., Wehrli, B. and Bradbury, M. H. (2013): Fe(II) Sorption on a Synthetic Montmorillonite. A Combined Macroscopic and Spectroscopic Study., Environ. Sci. Technol., 47, pp. 6978-6986.
- 園部一志・石黒勝彦(1990): 実規模ガラス固化体の浸出試験, 動力炉・核燃料開発事業団, PNC-TN8410 90-068.
- Stern, J. C., Sonke, J. E. and Salters, V. J. M. (2007): A capillary electrophoresis-ICP-MS study of rare earth elements complexation by humic acid, Chem. Geol. 246, pp. 170-180.
- 杉山大輔, 藤田智成, 中西潔(2001): TRU廃棄物処分環境におけるセメント系材料の化学的変質評価(その1)ーカルシウムシリケート水和物の熱力学的溶解沈殿モデルの提案ー, 電力中央研究所報告, T01007.
- Sun, B. N. and Baronnet, A. (1989a): Hydrothermal Growth of OH-Phlogopite Single Crystals, I. Undoped Growth Medium, J. Crsytal Growth 96, pp. 265-276.
- Sun, B. N. and Baronnet, A. (1989b): Hydrothermal Growth of OH-Phlogopite Single Crystals. II. Role of Cr and Ti Adsorption on Crystal Growth Rates, Chem. Geol. 78, pp. 301-314.
- 陶山忠宏, 柴田雅博, 笹本 広(2006): 鉄型化ベントナイト水熱試験ー低酸素雰囲気での高温条件下における鉄型化ベントナイトの変化の同定ー, 原子力機構研究開発報告書, JAEA-Research 2006-064.
- 陶山忠宏, 舘幸男(2012): 収着データベース(JAEA-SDB)の開発: 土壌系及びセメント系を含む収着データの拡充, JAEA-Data/Code 2011-022.
- 舘幸男, 栃木善克, 陶山忠宏, 齋藤好彦, Ochs, M., 油井三和(2009): 地層処分安全評価のための核種の収着・拡散データベースシステムの開発, JAEA-Data/Code 2008-034.
- Tachi, Y., Yotsuji, K., Seida, Y. and Yui, M. (2011): Diffusion and sorption of Cs⁺, I⁻ and HTO in samples of the argillaceous Wakkanai Formation from the Horonobe URL, Japan: Clay-based modeling. Geochim. Cosmochim. Acta 75, pp. 6742-6759.
- Tachi, Y. and Yotsuji, K. (2012) : Diffusion and sorption of Sr²⁺ in compacted sodium montmorillonite as a function of porewater salinity. Clays in Natural and Engineered

- Barriers for Radioactive Waste Confinement. 5th International meeting. P/MT/DP/20.
- Tachi, Y. and Yotsuji, K. (2014): Diffusion and sorption of Cs⁺, Na⁺, I⁻ and HTO in compacted sodium montmorillonite as a function of porewater salinity : Integrated sorption and diffusion model. *Geochim. Cosmochim. Acta* 132, pp.75-93.
- Tachi, Y., Ochs, M. and Suyama, T. (2014a): Integrated sorption and diffusion model for bentonite. Part 1: clay-water interaction and sorption modeling in dispersed systems. *Journal of Nuclear Science and Technology* 51(10), pp.1177-1190.
- Tachi, Y. , Suyama, T., Yotsuji, K. , Ishii, Y., and Takahashi, H. (2016): Clay-based Modelling Approach for Diffusion and Sorption in the Argillaceous rock from the Horonobe URL: Application for Ni(II), Am(III) and Se(IV)., CMS workshop lecture series book "Filling the gaps - from microscopic pore structures to transport properties in shales". (in press)
- Tachi, Y., Yotsuji, K., Suyama, T. and Ochs, M. (2014b): Integrated sorption and diffusion model for bentonite. Part 2: porewater chemistry, sorption and diffusion modeling in compacted systems. *Journal of Nuclear Science and Technology* 51(10), p.1191-1204.
- Tachi, Y., Ebina, T., Takeda, C., Saito, T., Takahashi, H., Ohuchi, Y., Martin, A. J. (2015): Matrix diffusion and sorption of Cs⁺, Na⁺, I⁻ and HTO in granodiorite: laboratory-scale results and their extrapolation to the in situ condition. *J. Contam. Hydrol.* 179, pp.10-24.
- 田中健次(2002): トラブルの未然防止に有効な手法: FMEAとは, *J. Natl. Inst. Public Health*, 51(3), pp.150-153.
- 谷口直樹, 本田明, 川崎学, 水流徹(1999): 圧縮ベントナイト中における炭素鋼の腐食形態と腐食速度の評価, *JNC TN8400* 99-003.
- Taniguchi, N., Suzuki, H., Kawasaki, M., Naito, M., Kobayashi, M., Takahashi, R. and Asano, H. (2011): Propagation behavior of general and localized corrosion of carbon steel in simulated groundwater under aerobic conditions, *Corrosion Science and Technology*, 46, 2, pp.117-123.
- 谷口直樹, 川上 進, 森田光男(2001): ベントナイト/ケイ砂混合体における炭素鋼の不動態化条件 *JNC-TN8400* 2001-025.
- 谷口直樹, 川崎学, 川上進, 久保田満(2003a): 還元性雰囲気における緩衝材中での炭素鋼の腐食挙動, *JNC TN8400* 2003-040.
- 谷口直樹, 川崎学, 川上進, 鈴木治雄(2003b): 弱アルカリ性およびアルカリ性環境における炭素鋼オーバーパックの局部腐食進展挙動, *JNC TN8400* 2003-016.
- 谷口直樹, 川崎学, 内藤守正(2010): 低酸素濃度下での模擬地下水の飽和した圧縮ベントナイト中における炭素鋼の腐食挙動, *材料と環境* Vol. 59, pp.418-429.
- 谷口直樹, 鈴木宏幸, 川崎学, 九石正美, 渡邊正敏, 建石剛(2012): 低酸素濃度下のベントナイト中における炭素鋼の腐食におよぼす温度の影響, 第59回材料と環境討論会講演集, A-103.
- Tazi, S., Rotenberg, B., Salanne, M., Sprik, M. and Sulpizi, M. (2012): Absolute Acidity of Clay Edge Sites from Ab-initio Simulations, *Geochim. Cosmochim. Acta*, 94, pp.1-11.

- Thurman, E. M. (1985): Organic geochemistry of natural waters, Martinus Nijhoff/Dr W. Junk Publishers, a member of the Academic publishers group, DORDRECHT / BOSTON / LANCASTER.
- Tipping, E. (1998): Humic ion-binding model VI: An improved description of the interactions of protons and metal ions with humic substances, *Aquat. Geochem.*, 4, pp.3-48.
- Tipping, E. (2002): Cation binding by humic substances, Cambridge University Press, Cambridge.
- 鵜山雅夫, 人見尚, 中嶋悟, 佐藤稔紀, 真田祐幸, 青柳芳明 (2015): 瑞浪超深地層研究所でのブ
レグラウト領域の岩石の採取と室内分析, *JAEA-Research* 2015-010.
- Van Brakel, J. and Heertjes, P.M. (1974) : Analysis of diffusion in macroporous media in terms of a porosity, a tortuosity, and a constrictivity factor. *Int. J. Heat Mass Transfer* 17, pp. 1093-1103.
- Vandergraaf, T.T., Miller, H.G., Jain, D.K., Hamon, C.J. and Stoes-Gascoyne, S. (1997): The effect of biofilms on radionuclide transport in the geosphere: Results from an initial investigation. Atomic Energy of Canada LTD. Technical Report, TR-774, COG-96-635-I.
- van Genuchten, M. Th. (1980): A Closed-Form Equation for Predicting the Hydraulic Conductivity of Unsaturated Soils, *Soil Sci. Soc.*, Vol. 44, pp.892-898.
- Voutilainen, M., Poteri, A., Helariutta, K., Siitari-Kauppi, M., Nilsson, K., Andersson, P., Byegård, J., Skålberg, M., Kekäläinen, P., Timonen, J., Lindberg, A., Pitkänen, P., Kemppainen, K., Liimatainen, J., Hautojärvi, A. and Koskinen, L. (2014): In-situ experiments for investigating the retention properties of rock matrix in ONKALO, Olkiluoto, Finland. *WM 2014 Conference Proceedings* 40, 14258.
- Warr, L. and Berger, J. (2007): Hydration of bentonite in natural waters: application of confined volume wet-cell X-ray diffractometry, *Physics and Chemistry of the Earth*, 32, pp.247-258.
- Weiss, C.A., Kirkpatrick, R.J. and Altaner, S.P. (1990): The structural environments of cations adsorbed onto clays: ¹³³Cs variable-temperature MAS NMR spectroscopic study of hectorite, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 54, pp.1655-1669.
- West J.M., McKinley, I.G. and Stoes-Gascoyne, S. (2002): Microbial effects on waste repository materials. In Keith-Roach, M.J. and Livens, (ed.) *Interactions of Microorganisms with Radionuclides*, Elsevier, pp.255-277.
- White, G.N. and Zelazny, L.W. (1988): Analysis and Implications of the Edge Structure of Dioctahedral Phyllosilicates, *Clays Clay Minerals* 36, pp.141-146.
- Widestrand, H., Byegård, J., Nilsson, K., Höglund, S., Gustafsson, E. and Kronberg, M. (2010): Long Term Sorption Diffusion Experiment (LTDE-SD). Performance of main in situ experiment and results from water phase measurements. *SKB-R-10-67*.
- Williamson, M.A. and Rimstidt, J.D. (1994): The kinetics and electrochemical rate-determining step of aqueous pyrite oxidation, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, Vol. 58, No. 24, pp.5443-5454.
- Wrighton, K.C., Thomas, B.C., Sharon, I., Miller, C.S., Castelle, C.J., VerBerkmoes, N.C.,

- Wilkins, M. J., Hettich, R. L., Lipton, M. S., Williams, K. H., Long, P. E. and Banfield, J. E. (2012): Fermentation, hydrogen, and sulfur metabolism in multiple uncultivated bacterial phyla. *Science*, 337, pp.1661-1665.
- 山本武志, 大山隆弘, 猪原芳樹(2015): 地下岩盤の地化学環境調査・評価技術の開発(その4) - 孔壁岩盤の風化とコンクリート影響-, 電力中央研究所 研究報告: N14010.
- 山本卓也, 下茂道人, 藤原靖, 服部弘道, 各合牧人, 田所照夫, 中垣真一(2005): 幌延深地層研究計画における試錐調査(HDB-6, 7, 8)のうちHDB-6孔, JNC TJ5400 2005-004.
- 吉武 勇, 本庄 一貴, 久部 修弘, 田中 浩, 浜田 純夫(2006): 純せん断力を受けるコンクリート要素の破壊挙動に関する実験的研究, 土木学会論文集E, 62, 1, pp.29-37.
- 吉田英一 (2012) : 岩盤中の透水性亀裂とその長期的挙動— 現状と今後の課題—, *Journal of Geography* 121 (1) 68-95.
- 湯口貴史, 石橋正祐紀, 森川佳太, 國丸貴紀(2013): 瑞浪超深地層研究所の深度300m研究アクセス坑道で実施したグラウト充填割れ目を含む岩石試料の採取と薄片作成・観察, JAEA-Data/Code 2013-004.
- 油井三和, 黒澤進, 飯島和毅(2004): 処分システム性能へのコロイドの影響評価 -室内試験, 原位試験とモデル解析を踏まえて-, 原子力バックエンド研究 vol.11, p.45.
- Yui, M., Sasamoto, H. and Arthur, R. C. (1999): Groundwater evolution modeling for the 2nd progress performance assessment (PA) report, JNC TN8400 99-030.
- Zachara, J. M. and McKinley, J. P. (1993): The Influence of Hydrolysis on the Sorption of Metal Cations by Smectite: Importance of Edge Coordination Reactions, *Aquatic Chemistry*, 55, pp.250-261.
- Zhu, M., Vasilev, K., Kreiter, M., Mittler, S. and Knoll, W. (2003): Surface Modification of Citrate-Reduced Colloidal Gold Nanoparticles with 2-Mercaptosuccinic Acid: *Langmuir* 2003, 19, 9518-9525.
- Zimmer, P., Bohnert, E., Bosbach, D., Kim, J. I. and Althaus E. (2002): Formation of secondary phases after long-term corrosion of simulated HLW glass in brine solutions at 190 at *Radiochim. Acta* 90, 529 5292

3. 多様な廃棄物の共処分におけるニアフィールドの影響評価技術開発

3.1 目的と5ヵ年の計画

3.1.1 目的

地層処分対象となる廃棄物は、高レベル放射性廃棄物(ガラス固化体、以下、「HLW」)以外にも再処理施設やMOX燃料の加工施設等から発生する。これらの廃棄物はTRU廃棄物と呼ばれ、HLWと同一サイトでの処分(共処分(あるいは、併置処分とも言う))の概念が、平成17年に取りまとめられたTRU廃棄物処分技術検討書(電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構, 2005)(以下、「第2次TRUレポート」)において示され、内閣府原子力委員会の検討会にて技術的成立性の評価が実施された(原子力委員長半減期低発熱放射性廃棄物処分技術検討会, 2006)。

平成19年には、特定放射性廃棄物の最終処分に関する法律が改正され、地層処分対象低レベル放射性廃棄物(TRU廃棄物)の最終処分が制度化された。処分実施主体が選択可能な事業オプションとして、共処分概念が位置づけられており、最終処分計画に基づく廃棄物量にて、TRU廃棄物の処分施設設計例が示されている(原子力発電環境整備機構, 2011)。共処分を行う場合には、HLWの地層処分事業と一部事業が共通化することから、両処分事業あわせて3,000億円程度の節減効果があると試算されている(総合資源エネルギー調査会, 2006)。この共処分概念をより社会に受け入れられるものとしていくためには、共処分評価技術の確証性の検討を十分に行い、適切な共処分概念を提示する必要がある。

第2次TRUレポートでは、HLW及びTRU廃棄物処分施設の相互影響因子を定量的に検討し、図3.1.1-1に示すような共処分概念が提示された。HLWの処分施設からの熱の影響や、TRU廃棄物処分施設からの、廃棄物に含まれる有機物、硝酸塩及びセメント系材料の影響が評価された。第2次TRUレポートでの評価に基づき、硝酸塩の影響が共処分におけるHLWとTRU廃棄物処分施設の離間距離を検討する際に重要との認識から、平成19年度から平成24年度にかけて、経済産業省資源エネルギー庁の委託事業【硝酸塩処理・処分技術高度化開発(H19からH24)】にて、地層処分において硝酸塩の影響評価システム(以下、硝酸塩影響評価システム)のプロトタイプが開発された(日本原子力研究開発機構, 2008, 2009, 2010, 2011, 2012, 2013a, 2013b)。

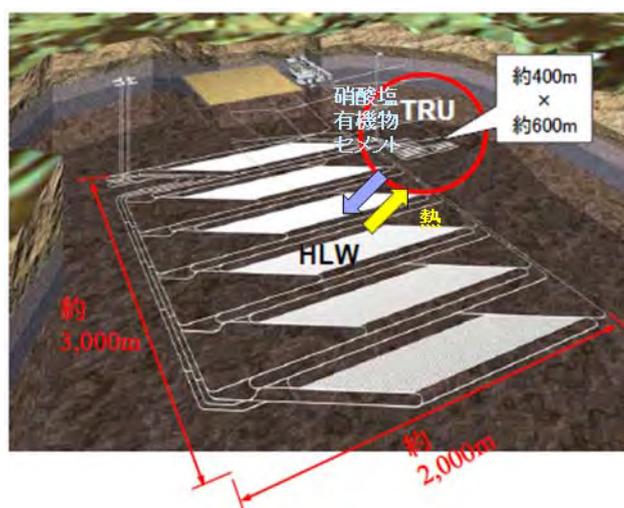


図3.1.1-1 HLWとTRU廃棄物との共処分概念
(電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構, 2005)

本事業では、HLWと多様なTRU廃棄物との共処分におけるニアフィールドの影響評価技術の開発及び確証を行うことにより、多様な廃棄物の特徴を考慮した適切な共処分概念を提示していくものとする。

平成25年度には、ニアフィールドの影響評価技術として、硝酸塩の影響評価技術について、確証技術開発に着手し、地層処分対象となる廃棄物の最新の情報に基づき、廃棄物の特性調査及び廃棄物由来の処分システム性能への影響因子を抽出し、予備的な試験を実施した。さらに、諸外国における共処分概念の調査を行った（日本原子力研究開発機構，2014）。

平成26年度には、平成25年度に検討された分析方法や研究方策に基づき、有機物と硝酸塩との発熱反応や硝酸塩の化学的変遷に関わるデータ取得を行うとともに、硝酸イオン変遷物質の人工バリア候補材料への影響について調査を行った。また、硝酸塩以外の影響因子については、硝酸塩の次に多量に存在する有機物の放射性核種の溶解度に及ぼす影響についても文献調査や予備実験を行った。さらに、平成25年度に調査した諸外国における共処分概念例については、性能評価事例の調査を行い、共処分概念の構築に反映できる評価手法及び技術を抽出した（日本原子力研究開発機構，2015）。

3.1.2 5ヵ年の計画

共処分概念検討フローと実施項目を図3.1.2-1に示す。本事業の技術開発課題については、大きく3つの実施項目に分けて実施する。最初に、第2次TRUレポート以降に見直された最新の廃棄物情報に基づき、①廃棄物の特性を踏まえた共処分への影響評価技術の開発を行う。次に、これらの影響評価技術の結果を踏まえ、②多様な廃棄物の影響を考慮した共処分概念を構築する。最後に、構築した共処分概念について、放射性核種の地下水への漏えいを想定(地下水シナリオ)した核種移行評価により③処分システムの安全性の評価(線量評価)を実施し、適切な共処分概念を提示する。また、これらの実施項目については、必要に応じて図3.1.2-1に示すようにフィードバックを行うものとする。

3つの実施項目の5ヵ年計画を、図3.1.2-2に示す。廃棄物の特性を踏まえた共処分への影響評価技術開発については、種々の廃棄物の特性評価と廃棄物由来の影響因子の影響調査を行い、これに基づき、処分施設における化学環境影響評価、放射性核種への影響評価、バリア候補材料への影響評価を行っていく。廃棄物の影響因子として、硝酸塩について、平成25年度から影響評価技術の確証を行っていく。硝酸塩以外の影響因子については、平成25年度の種々の廃棄物特性評価を踏まえて、平成26年度から影響評価技術の開発及び確証を行う。共処分の概念構築については、検討手法の調査・手法開発を2年程度で実施し、3年目以降において具体的な共処分概念を提示する。平成28年度からは、提示された共処分概念に基づき安全性の評価を行う。これらの実施項目については、各年度の成果に基づき、適宜計画を見直すものとするが、本事業の3年目にあたる平成27年度において各技術開発項目成果のチェックアンドレビューを行い、目標設定や計画の妥当性を確認しながら、本技術開発を実施していく。

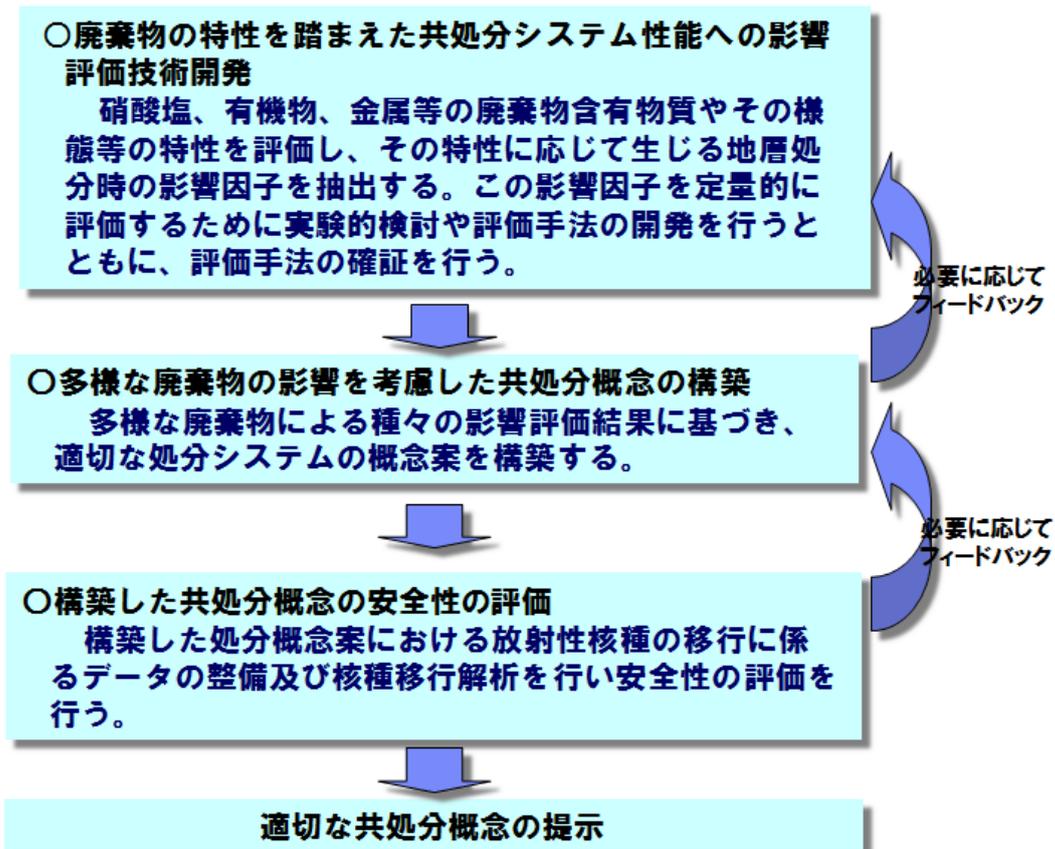


図3.1.2-1 適切な共処分概念の提示フローと実施項目

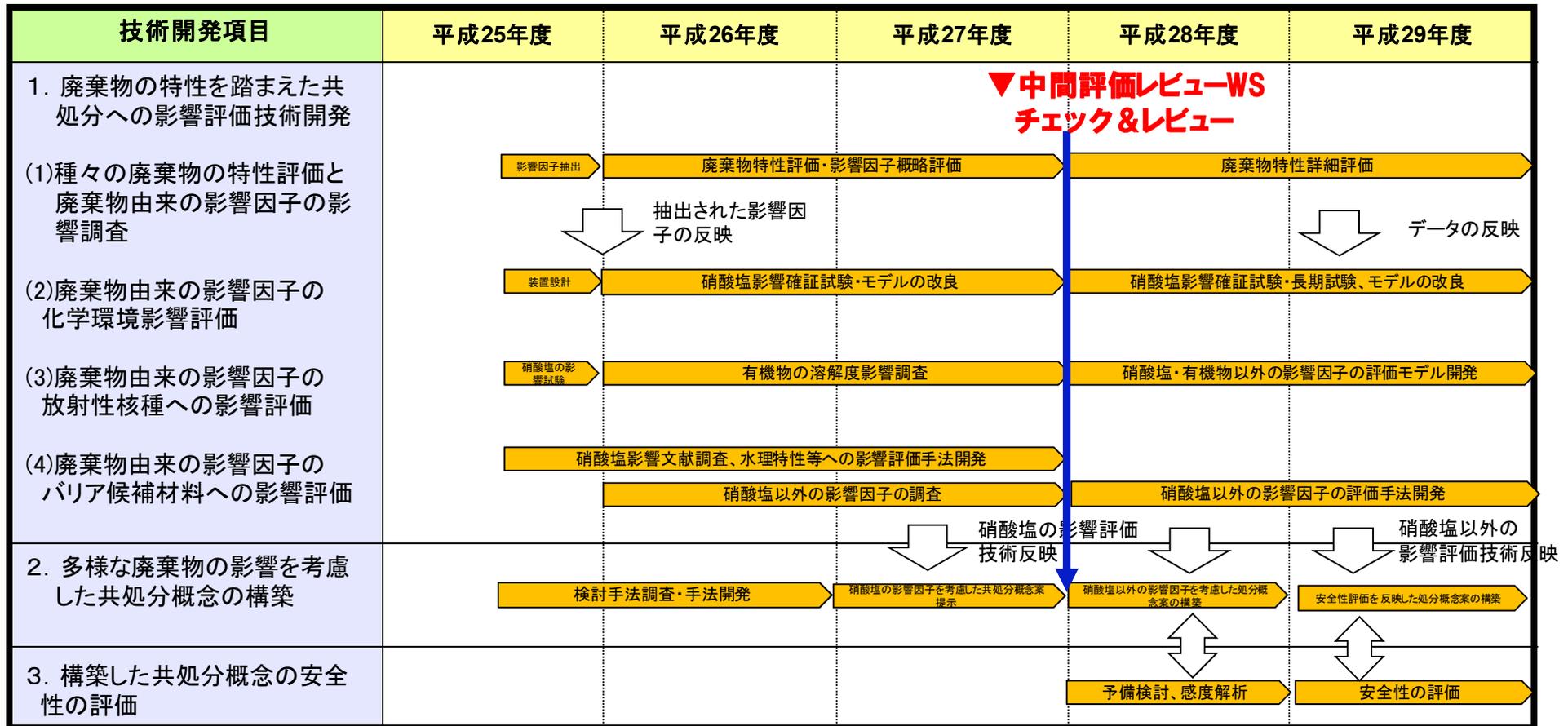


図3.1.2-2 5ヵ年の計画

3.2 廃棄物の特性を踏まえた共処分への影響評価技術開発

平成25年度より、多様な廃棄物の特徴を考慮した適切な共処分概念に反映させることを目的に、HLWと再処理施設等から発生する多様なTRU廃棄物との共処分におけるニアフィールドの影響評価技術の開発及び確証を実施してきている。

平成25年度は、第2次TRUレポート以降に見直された廃棄物の情報に基づき、TRU廃棄物の特性と廃棄物由来の処分システム性能への影響因子の調査を行った。多様な廃棄物の中で、硝酸塩及び有機物を含有する廃棄物の特性である、有機物と硝酸塩との発熱反応を評価する分析手法の提案を行い、予備的な熱分析を行うことにより、その分析手法の適用性を示した。また、化学環境への影響については、硝酸イオンの化学的変遷挙動評価モデルの信頼性を向上させるための試験方法について検討を行い、その進め方を示した。放射性核種に対する影響については、既往の研究で課題となっている酸化還元電位に酸化状態が鋭敏であるテクネチウムの溶解度に及ぼす硝酸イオンの影響について、酸化還元条件を制御した条件において、実験的な検討を行い、硝酸ナトリウム濃度が 0.1 mol/dm^3 以下では、酸化還元がみられず、テクネチウムの濃度は系の酸化還元電位(実測値)の変化で説明できることが示された。バリア候補材料(ベントナイト)への影響について硝酸イオンの変遷物質(アンモニア/アンモニウムイオン)の文献調査を行い、研究方策を示した。

平成26年度は、前年度に検討された分析方法や研究方策に基づき、有機物と硝酸塩との発熱反応に関して模擬硝酸塩含有廃棄物のデータ取得を行い、得られたデータをもとに、地層処分の安全性の評価に着手した。また、廃棄物由来の化学物質の周辺環境への影響を評価するために開発された硝酸塩の化学的変遷モデルの確証のために試験装置を製作し、試験を行った。さらに、硝酸塩及びその変遷物による種々のバリア材の変質促進の可能性として、スメクタイトへのアンモニアの吸着・固定化とそれに伴う鉱物学的変質挙動等について、実験的な検討に着手した。硝酸塩以外の影響因子については、硝酸塩の次に多量に存在する有機物の放射性核種の溶解度に及ぼす影響についても文献調査や予備実験を行った。

平成27年度は、模擬固化体の発熱反応に関わるデータの蓄積を行い、データの不確実性低減を図るとともに、様々なシナリオを想定し地層処分における安全性の評価等を行った。また、廃棄物由来の因子の化学環境への影響を評価するために硝酸塩の化学的変遷モデルの確証のための試験等を継続し、長期データの拡充を図った。バリア候補材料への影響については、スメクタイトへの硝酸塩に由来するアンモニア等の影響に加え、セメント固化体からのアルカリ成分の影響が重畳した場合について、実験的な調査を行った。放射性核種への影響については、硝酸塩の次に多量に存在する有機物(セルロースの分解生成物等)が放射性核種の溶解度に及ぼす影響について、実験的な検討を行った。

本節以降において、種々の廃棄物の特性評価と廃棄物の影響因子の調査(3.2.1)、続いて化学環境影響評価(3.2.2)、バリア候補材料への影響評価(3.3.3)及び放射性核種への影響評価(3.3.4)について記述する。

3.2.1 種々の廃棄物の特性評価と廃棄物由来の影響因子の影響調査

先に述べたように、平成25年度は原子力発電環境整備機構が公表している資料(原子力発電環境整備機構, 2011)を参考に約70種類のTRU廃棄物について物量及び含有化学物質等の特性、並びにニアフィールド性能に及ぼす廃棄物由来の影響因子について整理した。これらTRU廃棄物の中から、最も廃棄物由来の影響因子が多い硝酸塩含有廃棄物であるアスファルト固化体をモデル廃棄物として設定した。地層処分における有機物と硝酸塩との発熱反応についての知見が不十分であることから、その検討が重要であることを示し、発熱反応の分析・試験手法として示差走査熱量計による発熱量測定の実用性を確認した。平成26年度は分析装置の精度や試験条件を検討し新たに得られた測定データから発熱特性の定式化(発熱速度式)の検討及び熱収支解析から地層処分環境における熱反応暴走についての予備的な評価を行い、アスファルト固化体が熱反応暴走に至る最低温度の目安(ROT(後記))を185°Cと評価した。

今年度は熱測定データの蓄積及びこれまでの測定データを参考に、発熱速度式のパラメータの見直しを行った。熱収支解析においては体系の改良を行い、見直されたパラメータを反映した新たなROTを算定した。また、新たに算定されたROTを参考に、地層処分環境においてアスファルト固化体の熱反応暴走を誘発する可能性のある要因を抽出し、抽出された要因について試行的評価を実施した。

(1) アスファルト固化体の発熱特性の評価

平成26年度においては、平成25年度に示された課題(示差走査熱量計による測定データ取得が発熱特性の把握に有効であるものの、定量的な評価を行うためには分析装置の精度、測定条件を検討する必要がある)への対応として、異なる分析装置の精度及び測定条件から模擬アスファルト固化体の測定データを取得し、得られた測定データと過去に実施されたアスファルト固化体の発熱特性に関する研究を参考に発熱速度式の検討を行った。

今年度は模擬アスファルト固化体の熱測定データの蓄積を行い、これまで得られた測定データを活用してアスファルト固化体の発熱特性(発熱速度式パラメータ)の見直しを行った。

1) 測定データの取得

今年度新たに導入したマルチチャンネル微小熱量測定装置(以下、TAM IV(TAインストルメント社製))を用いて、模擬アスファルト固化体の熱量測定を実施した。TAM IVは平成26年度の報告書で示したTAM IIIの後継機であり測定可能温度に制限(~150°C)があるものの、非常に高感度の熱量測定が可能で、通常の地層処分における温度条件(深度500m: 30°C程度、深度1000m: 45°C程度)における熱量測定に優れているという特徴がある。実施した測定条件を表3.2.1-1に示す。測定に用いた試料は平成26年度と同様であるが、試料の不均一性による熱測定データのバラツキを低減するために、凍結粉碎を行い、粒子状に前処理したものである。

得られた測定結果を図3.2.1-1に示す。なお、試料(1)~(5)及びブランクの発熱量の値は各試料の発熱特性の傾向を観察しやすいうように補正(測定値に数mW/g程度を図中で重ならないように調整)している。測定された全ての模擬アスファルト固化体で、85~95°Cの吸熱ピークと135°C付近からの発熱ピークが観察された。アスファルト自体の軟化点は85±5°Cであり、観察された吸熱ピークはアスファルトの軟化や試料内に含まれる水分の蒸発によるものと推定される。135°C付近からは、細かい発熱や吸熱が見られるものの、全体としては発熱量が上昇していることが観察され、平成26年度に得られた測定

データと同様の傾向であることが示された。

表3. 2. 1-1 熱量測定条件

試料	模擬アスファルト固化体 前処理：凍結粉碎(−15℃以下で凍結粉碎し、粒径1mm以下に調整) 供試量：約0.5g (n=5)
測定装置	TAM IV (TAインストルメント社製)
昇温速度、測定温度	2℃/h、 ~150℃

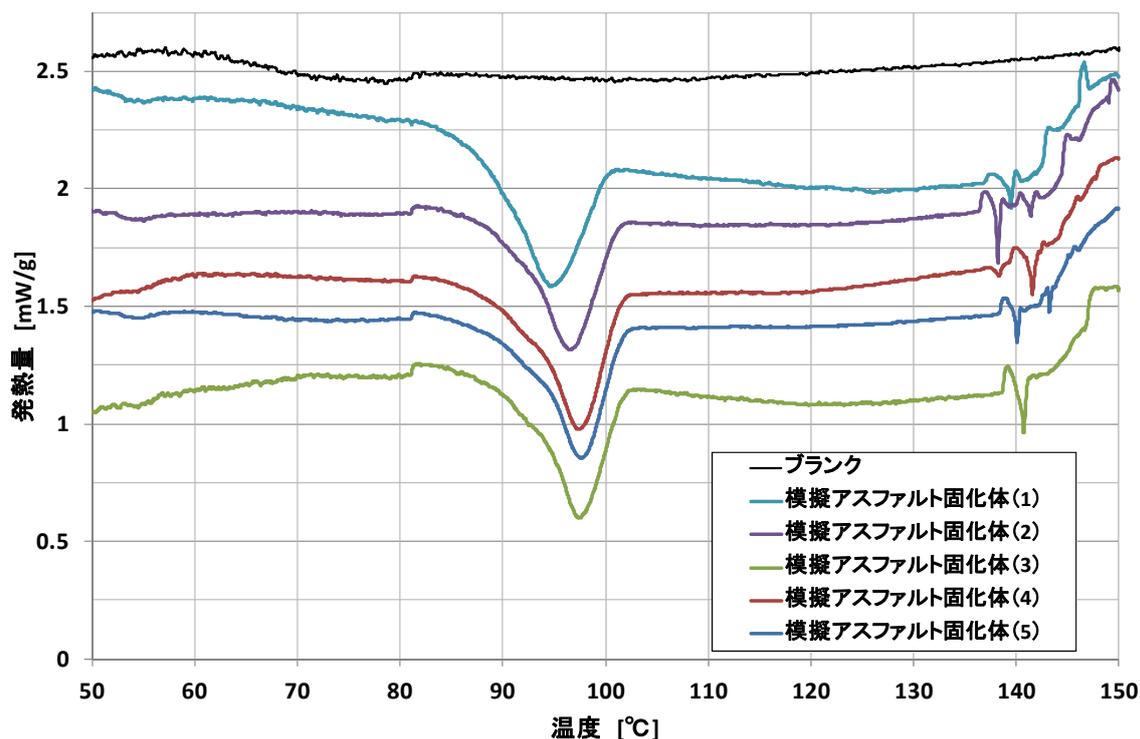


図 3. 2. 1-1 TAM IV による模擬アスファルト固化体の熱量測定結果

2) アスファルト固化体の発熱特性の定式化

平成26年度と同様に、アスファルトと硝酸塩との反応は擬ゼロ次反応とし、式3. 2. 1-1に示す発熱特性(発熱速度)を仮定した。

$$S = \rho_{aw} \cdot (1-X) \cdot \Delta H \cdot A \cdot \exp(-E/(RT))$$

$$X = Q/Q_{all} \quad (Q_{all} = \rho_{aw} \cdot \Delta H \quad Q = \int S dt \quad (Q \geq Q_{all} \text{ のとき } S = 0)) \quad (3. 2. 1-1)$$

ここで、 S (W/m³)：アスファルト固化体の単位体積あたりの発熱速度、 ρ_{aw} (kg/m³)：アスファルト固化体の密度、 X (-)：反応率、 ΔH (J/kg)：初期反応物質の単位重量あたりの反応熱、 A (1/s)：反応速度定数、 E (J/mol)：活性化エネルギー、 R (J/K/mol)：気体定数、 T (K)：温度である。反応率(X)とは、アスファルトと硝酸塩との反応の進捗を意味しており、 Q_{all} (J/m³)：初期反応物が完全に反応した場合に

発する単位体積あたりの熱量(= $\rho_{aw} \cdot \Delta H$)、 Q (J/m³) : 経過時間までの累積発熱量から算出する。

平成26年度の熱収支解析より、地層処分環境を想定したアスファルト固化体の熱反応暴走の評価においては、熱量測定の実験範囲の中で比較的低温領域(~180°C程度)における発熱速度が重要であるとの知見が得られている。現段階では、アスファルト固化体の熱反応速度機構の解析が十分では無いことから、既往の研究(Hasegawa and Li, 2000)を参考に平成26年度の発熱速度式のパラメータセットよりも保守的となる(200°C付近までの発熱速度がより大きく計算される)値を熱収支解析に用いた。 ΔH 、 A 及び E の値にはそれぞれ 1.280×10^3 J/kg、 1.079×10^{13} 1/s及び 1.779×10^5 J/molを採用した(Hasegawa and Li, 2000)。

(2) 地層処分環境におけるアスファルト固化体のROTの算定

発熱速度式(式3.2.1-1)を用いて、アスファルト固化体を地層処分した場合のROT^{*1}の算定を行う。平成26年度と同様に式3.2.1-2に示す非定常の熱伝導方程式を解くことにより、処分施設及びアスファルト固化体の温度変化を計算した。

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho CT) = \nabla(k \nabla T) + S \quad (3.2.1-2)$$

ここで、 ρ (kg/m³) : 媒体の密度、 C (J/kg/K) : 媒体の比熱容量、 k (W/m/K) : 媒体の熱伝導率、 S (W/m³) : 媒体内の熱源(式3.2.1-1)、 T (K) : 媒体の温度である。解の算出についても平成26年度と同様に数値解析法の一つである有限要素法の汎用解析コードCOMSOL Multiphysics®(<http://www.quesco.co.jp/comsol/>)を用いて計算を行った。

1) 熱収支解析条件

① 解析体系

平成26年度の検討においては、第2次TRUレポートを参考に深度1000m、結晶質岩、円形断面を想定し、廃棄体定置領域がアスファルト固化体で満たされていると仮定した2次元体系を用いたが、今年度は最新の処分坑道設計例(原子力発電環境整備機構, 2014) (以下、TR-1403)を参考に作成した3次元体系を用いる。

図3.2.1-2に作成した熱収支解析体系を示す。アスファルト固化体は200Lドラム缶($\phi 0.6 \times 0.9$ m)に充填され、処分時にはモルタルを充填材として4本ごとにパッケージングされることが想定されている。TR-1403の深度1000m、結晶質岩、円形断面においては、この廃棄体パッケージを直径12mの処分坑道断面あたり25個定置することが示されている。解析体系の作成においても、200Lドラム缶が中心部に4本充填されている廃棄体パッケージが坑道断面あたり25個定置されていることを想定した。ただし、処分坑道の長さは無限(処分坑道の形状を無限円筒)、処分坑道の本数(地下施設レイアウト)も、水平方向に無限に連続して並んでいること(連続坑道)を想定した。処分坑道を無限円筒、地下施設レイアウトを連続坑道と想定したため、実際には12.5個(25/2)の廃棄体パッケージが定置されている半円の処分坑道を作成した。また、処分坑道長さを廃棄体パッケージの幅である1.8m、水平方向はTR-1403に記

^{*1} ROTは熱反応暴走開始温度(Runaway Onset Temperature)の略として「地層処分環境を想定した場合における熱反応暴走に至る最低温度の目安」の意味で用いる。平成26年度の報告書においては蓄熱発火温度(SIT: Self-heating Ignition Temperature)を用いたが、SITという用語は燃焼爆発工学の分野において異なる意味がその定義として定着しており、混乱を生じる可能性があることから今後は「ROT」と称する。

載されている坑道中心間距離の半分(36/2=18m)とした。垂直下方向は境界の影響が出ない十分な距離として処分坑道の中心から1000mを設定した。なお、TR-1403では2種の廃棄体パッケージ材料の諸元と定置時のクリアランス(廃棄体パッケージ間の定置間隔)について示されているが、ここでは廃棄体パッケージの材質を鉄筋コンクリートとし、定置時のクリアランスは考慮していない。

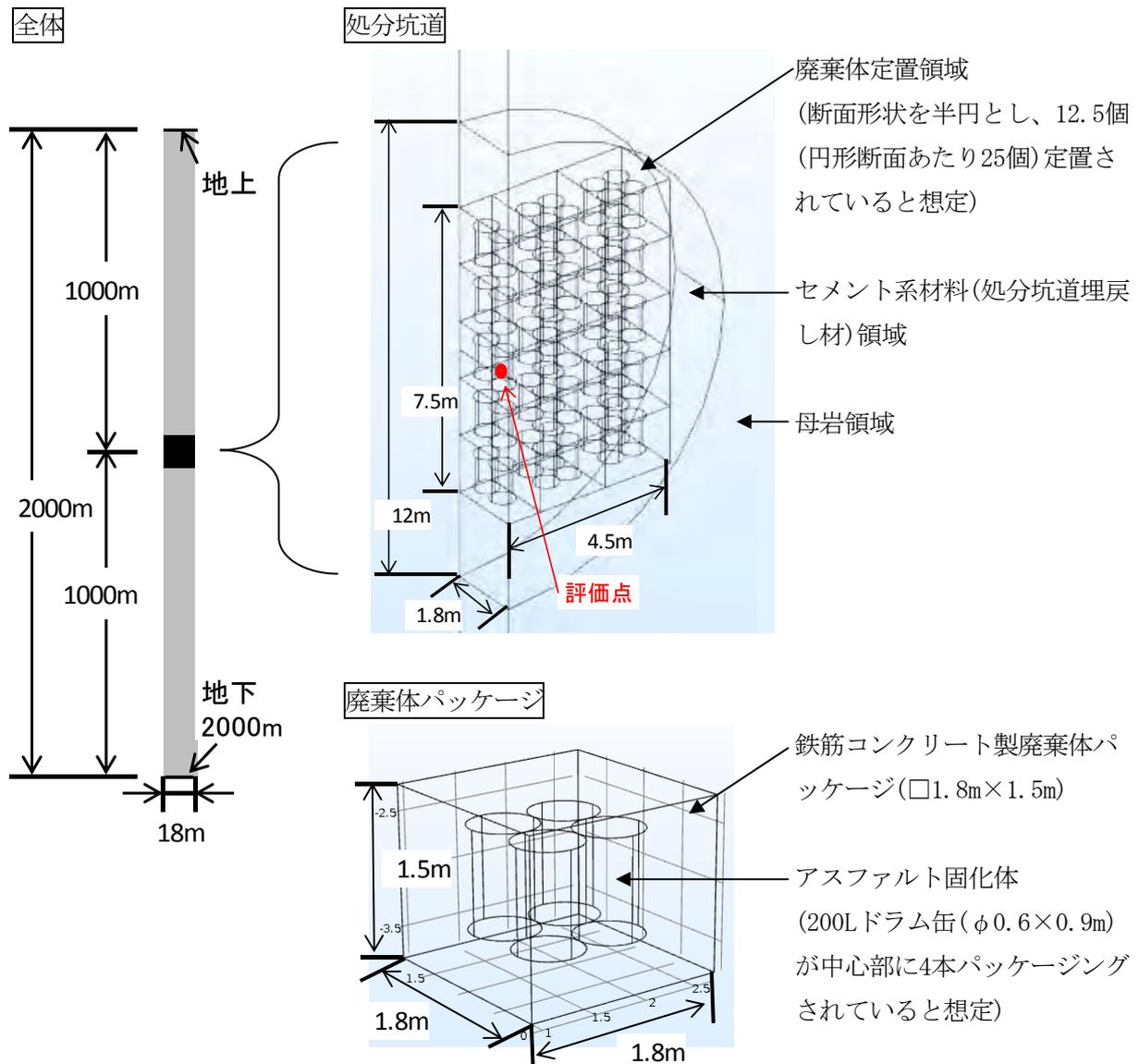


図3.2.1-2 熱収支解析体系(左：全体図、右上：処分坑道、右下：廃棄体パッケージ)

② 発熱条件

発熱速度式(式3.2.1-1)に従い、アスファルト固化体が充填されている200Lドラム缶が発熱すると仮定する。

③ 体系を構成する材料の物性値

TR-1403に示されている体系を構成する要素は、アスファルト固化体、200Lドラム缶材質(炭素鋼)、廃棄体パッケージの充填材(モルタル)、廃棄体パッケージ材質(鉄筋コンクリート)、処分坑道埋戻し

材(セメント系材料)、母岩(結晶質岩)であり、それぞれの密度、比熱容量及び熱伝導率が必要となるが、ここでは200Lドラム缶材質を省略し、モルタル及び鉄筋コンクリートの物性値はセメント系材料と共通の値を用いた。それぞれの物性値を表3. 2. 1-2に示す。

表3. 2. 1-2 熱収支解析における構成要素の物性値

熱特性		設定値	出典
アスファルト 固化体	密度[kg/m ³]	1300	藤根ほか(1999)
	比熱容量[J/kg/K]	732+2.37T (T[K])	藤根, 今本(1999)
	熱伝導率[W/m/K]	0.35	
セメント系材料	密度[kg/m ³]	2350	第2次TRUレポート
	比熱容量[J/kg/K]	1050	
	熱伝導率[W/m/K]	2.56	
母岩	密度[kg/m ³]	2670	
	比熱容量[J/kg/K]	1000	
	熱伝導率[W/m/K]	2.8	

④境界条件及び初期温度分布

境界条件及び初期温度分布を表3. 2. 1-3に示す。境界条件は、地上及び地下2000m(図3. 2. 1-2参照)をそれぞれ15℃及び75℃の温度固定境界とし、それ以外を断熱境界とした。地層処分環境において、熱反応暴走を誘発するような熱源の発生位置はアスファルト固化体自身である内部、または外部の2つが想定されるため、初期温度分布として「アスファルト固化体のみが高温の場合」と「体系全てを温度一定にした場合」の2つの条件を与えた。

表3. 2. 1-3 境界及び温度条件

境界 条件	温度固定境界	地上：15℃(地上平均温度15℃を想定) 地下2000m：75℃(地上から3℃/100mの温度勾配より算出)
	断熱境界	温度固定境界以外全て
初期温 度分布	アスファルト固化体のみ高温 (内部からの熱)	アスファルト固化体：温度一定(45、80、120℃～) その他：地上を15℃とし、深さ方向に3℃/100mの温度分布
	体系全てを温度一定 (外部からの熱)	体系全て：温度一定(45、80、120℃～)

2) 解析結果

図3. 2. 1-3及び図3. 2. 1-4に評価点(最も熱損失が起これにくいと考えられる、坑道中心付近の200Lドラム缶中心(図3. 2. 1-2参照))の温度変化を示す。アスファルト固化体のみ高温にした場合(内部からの熱を想定)では204℃、体系全てを温度一定にした場合(外部からの熱を想定)では160℃で急激な温度上昇が確認された。図3. 2. 1-3及び図3. 2. 1-4が示すように、熱収支解析から導かれるROTは解析条件により異なるが、ここでは保守的に図3. 2. 1-4(体系全てが温度一定の条件)より得られた結果を参考にして、

ROT (熱反応暴走に至る最低温度の目安) を160℃と評価した。

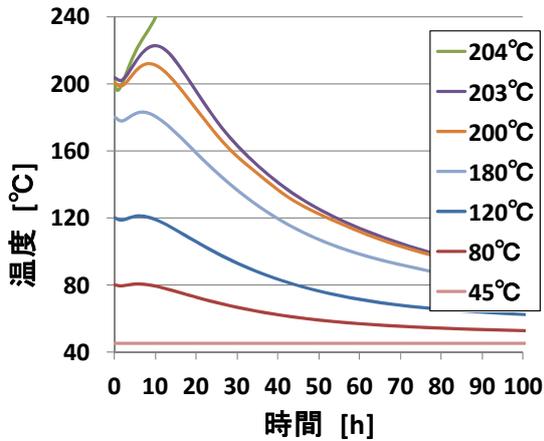


図3.2.1-3 アスファルト固化体のみ高温の場合
(内部からの熱を想定)

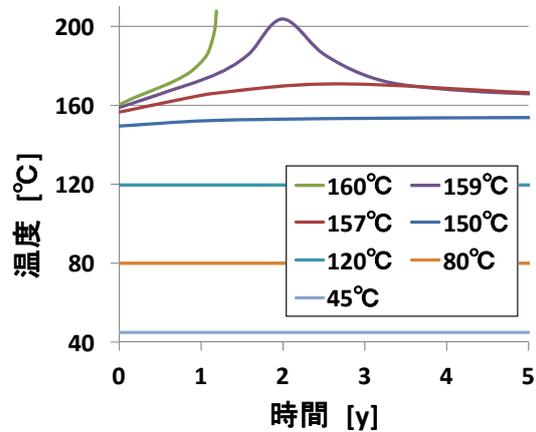


図3.2.1-4 体系全てが温度一定の場合
(外部からの熱を想定)

(3) 熱反応暴走を誘発する可能性のあるシナリオを想定した安全性の試行的評価

(2)において ROT(熱反応暴走に至る最低温度の目安) を160℃と評価したが、実際の地層処分環境における安全性を評価するためには、エネルギー(熱)を供給するようなシナリオを検討し、想定される温度分布やその時間変化等を反映した熱収支解析が必要である。したがって、地層処分環境においてエネルギー供給源として働く要因について整理し、ROT160℃を参考にアスファルト固化体の熱反応暴走を誘発する可能性のあるシナリオを抽出した。また抽出されたシナリオから、微生物発熱と高温流体について試行的な評価を行った。

1) エネルギー供給要因及び熱反応暴走誘起の可能性の検討

表 3.2.1-4 に地層処分環境でエネルギー供給要因として想定されるものについてまとめたものを示す。左欄の「分類」では、対象のエネルギー供給要因が通常の処分環境において想定されるものを「通常」、起こるとは考えにくい、仮に対象のエネルギー供給要因の発生を想定したものを「仮想的天然事象」「仮想的人為事象」と便宜的に分類した。熱反応暴走を誘発する可能性がある要因は、現段階でその判断が難しい要因も含めて「微生物発熱」「鉍物酸化反応」「高温流体」「断層活動」「ボーリングロット貫入」が抽出された。なお、本検討で用いた「仮想的」という用語は、地層処分に関する既往の検討(たとえば、第2次 TRU レポート)で用いられている仮想的シナリオ(諸外国の研究事例における what-if シナリオ)に対応するものではなく、天然事象あるいは人為的行為によるエネルギー供給要因の発生を想定及び検討することによって、処分環境が変動しうることを許容する、又は適切な共処分概念の検討に資することを目的としたものである。

表 3.2.1-4 に示した熱反応暴走を誘発する可能性のあるエネルギー供給要因(特に仮想的天然事象及び仮想的人為事象に分類されるもの)については、今後情報収集を継続し、更新していくことが重要である。

表3.2.1-4(1/2) エネルギー供給要因及び熱反応暴走誘起の可能性の検討

分類	エネルギー供給要因	想定した影響(シナリオ)	検討(想定した影響の根拠) 【熱反応暴走を誘発する可能性(ROT160℃を超える可能性) (×:可能性は低い、△:熱影響の程度を把握するためにはさらに情報収集を行う必要がある、○:ROT以上の熱源となり得る可能性がある)】
通常	設計上限温度(崩壊熱等)	処分坑道内が80℃(設計上限温度)に保持される	処分坑道は人工バリア性能の熱による変質抑制の観点から設計上限温度を考慮した坑道仕様が検討されている(たとえば、第2次TRUレポート)。ここでは保守的に、セメント系材料(グループ3廃棄物の処分坑道埋戻し材)の上限温度として想定されている80℃が保たれると想定した。【×】
	含有塩の溶解	廃棄体含有塩と地下水の反応(溶解)により温度変化が生じる	アスファルト固化体中には、 Na_2CO_3 等の溶解する際に熱を発生する塩も含まれているが、その存在量は NaNO_3 等の溶解する際に吸熱を示す塩に対して少なく、全体としては吸熱であると考えられる。【×】
	地圧	埋設後の岩盤クリープにより、40MPa程度の地圧を想定する	(機械的エネルギーに対する感受性について) アスファルト固化体は昭和63年の消防法一部改正に伴う明確な危険物等級の分類のため、落球式打撃感度試験等が行われた経緯があり、試験の結果アスファルト固化体は衝撃に対して非常に鈍感なことが報告されている(落合ほか、1997a-d)。地圧(概ね40MPa(長ほか、2009))、ガス発生による圧力
	ガス発生による圧力	ドラム缶の腐食による H_2 ガス、微生物活動による CO_2 ガスが発生し、0.7MPa程度の圧力を想定する	(0.7MPa(グループ3廃棄物(第2次TRUレポート))による圧力が想定されているが、これらは非常に緩慢な作用であり、通常地層処分環境において想定される機械的エネルギーが熱反応暴走を誘起させる可能性は低いと考えられる。【×】
	微生物発熱	微生物活動による発熱により、周辺岩盤も含めて温度が上昇する(現在の知見では120℃程度)	地下数百mにおいては多種多様な微生物の存在が知られている(笹本ほか、1996、村上ほか、2003)。微生物の成長限界温度は122℃(Takai et al., 2008)と報告されており、これ以上の温度で活性を持つ微生物が存在しなければ、微生物影響による熱反応暴走誘発の可能性は低いと判断できる。しかし、地下の微生物分布は環境の変遷により変化すると考えられ、特性が知られていない微生物も存在する。また、微生物分布は処分サイトに依存するため現在の知見からシナリオ(微生物活動による発熱の程度)を想定することは困難である。【△】
	鉱物酸化反応	溶け出した硝酸イオンと鉱物(FeS_2 を想定)との反応熱により周辺岩盤も含めて温度が上昇する	廃棄物から浸出した硝酸イオンについては、ニアフィールドの化学的変遷挙動評価の立場から金属(人工バリア材質)、鉱物及び微生物との相互作用について研究が行われ、その評価モデルが検討された経緯がある。硝酸イオンと化学反応する鉱物としては黄鉄鉱(FeS_2)が想定され、硝酸イオンの黄鉄鉱による還元反応式が上記モデルに組み込まれている。この還元反応式は80℃以上の試験条件から得られたデータより検討されたものであり、現在80℃未満の条件における適用性について検討が進められている(後記3.2.2参照)。想定される影響(シナリオ)はその成果を活用するものとし、今後情報収集を継続する。【△】

表3.2.1-4(2/2) エネルギー供給要因及び熱反応暴走誘起の可能性の検討

分類	エネルギー供給要因	想定した影響 (シナリオ)	検討(想定した影響の根拠) 【熱反応暴走を誘発する可能性(ROT160℃を超える可能性) (×:可能性は低い、△:熱影響の程度を把握するためにはさらに情報収集を行う必要がある、○:ROT以上の熱源となり得る可能性がある)】
仮想的 天然 事象	高温流体	高温流体(マグマ1400℃)が接近することを想定する	高温流体としてはマグマ等、火成活動に起因するものが考えられる。ここでは最も高温のものとしてマグマについて検討する。日本列島における火成活動は大局的にはプレートの配置やその運動等に関連し数十万年～数百万年という地質学的な時間の中で、ある一定方向を保ちつつ進行することが知られており、10万年程度であれば予測可能であると考えられている(原子力委員会原子力バックエンド対策専門部会, 1997、土木学会原子力土木委員会地下環境部会編, 2001)。また、マグマの活動範囲については火山の寿命等に依存するものの分布範囲は最大30km程度と報告されており(中田、田中, 2001)、将来数万年にわたるマグマの活動範囲の広がりの可能性を考慮して、概要調査地区選定時には火山から半径15kmの地域を含めない方針である(原子力発電環境整備機構, 2004)。火山・火成活動の影響については、サイト選定により回避することが基本と考えられており、マグマの直撃については考慮する必要はないものと考えられるが、念のための評価として仮想的にマグマが処分坑道近傍に接近することを想定する。マグマについては、島弧(我が国)に特徴的な初生マグマがマントル物質と平衡共存できる温度は1320～1360℃と報告されており(高橋, 2000)、1400℃と仮定する。【○】
	断層活動	断層活動による摩擦熱で周辺の母岩も含めて温度上昇する	断層活動に関しても火成活動と同様に、10万年程度であれば予測可能であると考えられており、サイト選定により回避することが基本とされている。したがってマグマと同様に、その直撃については考慮する必要はないものと考えられるが、念のための評価として仮想的に断層活動が処分坑道近傍で起こることを想定する。断層活動による摩擦熱については、断層ガウジの鉱物組成や鉱物の帯磁率測定等により推定されており、一般に300℃以上と言われているが、1450℃(Lin, 1994(中国Fuyun断層))、1300℃(大槻ほか, 2001(野島断層))等、高温の推定摩擦温度も報告されている。しかし、マグマ(1400℃)に設定した温度よりも著しく高い温度の報告が確認できなかったことから、断層活動による摩擦熱の試行的な評価については、マグマの接近を想定した評価をもってその評価に代える。【○】
仮想的 人為 事象	ボーリングロット貫入	ボーリングロット(高温の金属)が廃棄体に貫入することを想定する	アスファルト固化体は外部着火源に対する着火の容易性を評価するため、赤熱鉄棒を用いたBAM着火性試験(800℃に熱した鉄棒を10秒接触)が行われた経緯があり、試験の結果アスファルト固化体の着火は観察されなかった(落合ほか, 1989)。また、通常のボーリング操作はロット先端を泥水で冷却しながら行われるため、ボーリングロットの貫入が高温金属との接触を意味しているものではないが、仮想的に先端が冷却されなかったボーリングロット(高温の金属)の貫入を想定した。ただし、現時点では、具体的な温度設定に至る情報に乏しいため、今後情報収集を継続する。【△】
	廃棄体誤配置	発熱性を有する廃棄物の処分坑道への定置を想定する	TRU廃棄物の中には発熱性を有する廃棄物の発生が想定されているが、発熱性を有する廃棄物についても、設計上限温度が考慮された処分坑道仕様が検討されている。現在、ベントナイト系材料の100℃が最高であることから、誤配置により熱反応暴走が誘発される可能性は低いと考えられる。また、発熱性を有する廃棄物の形状の多くが200Lドラム缶とは異なり、廃棄体パッケージの形状も異なるものが想定されているため、誤配置される可能性も低いと考えられる。【×】

b. 結果及び考察

坑道中心付近のドラム缶中心を評価点(図 3. 2. 1-2 参照)とし、温度及び反応率(X) (式 3. 2. 1-1 参照)の時間変化を図 3. 2. 1-5 及び図 3. 2. 1-6 に示す。熱反応暴走誘発の可能性については、「評価点の最高温度が 160°C(算定された ROT の値)以上を観察した場合、熱反応暴走を誘発する可能性がある」と判断した。なお、(2)において行った ROT の算定とは異なり、熱を発生する要因がアスファルトと硝酸塩との反応による発熱以外にも存在し、温度変化のみではアスファルトと硝酸塩との反応が顕著となる時間及び進捗を観察しにくいため反応率(X)を併せて示した。

(a) 表面での微生物活動

図 3. 2. 1-5 から、160°C(ROT)以上の最高温度が観察されたのは 8 W/m²及び 5W/m²の発熱速度を想定した場合であり、したがってアスファルト固化体表面において 5W/m²程度の発熱が継続する場合、熱反応暴走が誘発される可能性が示された。反応率(X)からもアスファルトと硝酸塩との反応が継続し最終的に 100%反応することが観察された。一方、アスファルト固化体表面において 3W/m²以下の発熱速度を想定した場合は、微生物発熱による継続的な温度の上昇が観察されたが、いずれの最高温度も 160°C以上には至いたらず、3W/m²を除き反応率(X)の増加も観察されなかった。3W/m²の場合は 20~40 年において、0.1 程度まで反応率(X)の増加が観察されたが、微生物発熱の終了による温度の低下以降、顕著な増加は観察されなかった。

アスファルトの微生物分解に関する既往の研究では、好気性条件及び pH コントロール下において、微生物によるアスファルト分解速度は最大で 160g/m²/y、嫌気性条件における分解速度は好気性条件と比較すると約 16 分の 1 と報告されている(九石ほか, 1997)。一方、嶺ほか(2000)による検討では、アスファルト固化体に多量の硝酸塩が含まれること、また地層処分の際には多量のセメント系材料の使用が想定されることから、硝酸塩の存在又は高アルカリ性条件において微生物によるアスファルトの分解試験を行い、分解速度を算出している。硝酸塩の存在に関しては、硝酸塩によりアスファルトの分解が促進される傾向が確認されたが、嫌気性条件では硝酸塩の存在下においても、好気性条件(硝酸塩無し)と比較すると分解速度は 10 分の 1 程度であり、18.86 g/m²/y と報告されている。高アルカリ性条件に関しては、好気性条件下における pH=11 と pH=9 の分解速度を比較すると、pH=11 の場合は pH=9 の 30 分の 1 程度であり、3.55 g/m²/y と報告されている。以上のことから、微生物によるアスファルトの分解は硝酸塩の存在により促進される傾向があるものの、嫌気性(通常の処分環境)及び高アルカリ性(セメント系材料の寄与)条件により強く抑制されると考えられ、通常想定される処分環境では、好気性条件における分解速度以上でアスファルト固化体が分解されるとは考えにくい。ここでは保守的に、嫌気性及び高アルカリ性による微生物活動の抑制を考慮せず、160g/m²/y を処分環境における微生物によるアスファルト固化体の分解速度と仮定する。加えて、微生物がアスファルト固化体を完全に分解可能で、放出されるエネルギーは全て周辺の温度上昇に寄与すると仮定すると、分解速度 160g/m²/y はアスファルト固化体が持つ熱量(燃焼熱量)(7864cal/g≒3.29×10⁴J/g)から、発熱速度約 0.16W/m²に相当すると算出される。

以上の検討を踏まえ図 3. 2. 1-5 を確認すると、発熱速度 0.16W/m²よりも厳しい条件である 0.3W/m²での最高温度は 160°Cを十分下回っており、アスファルト固化体表面における微生物分解により熱反応暴走が誘発される可能性は低いと考えられる。仮に、微生物活動により熱反応暴走は誘発されるとしても、図 3. 2. 1-5 から 20 年程度でアスファルト固化体が完全分解される必要がある(5W/m²に相当)。この分解速度は、報告されている好気性条件の分解速度(160g/m²/y)の約 30 倍に相当し、通常の処分

環境においては非現実的であることから、アスファルト固化体表面における微生物分解により熱反応暴走が誘発される可能性は低いと考えられる。

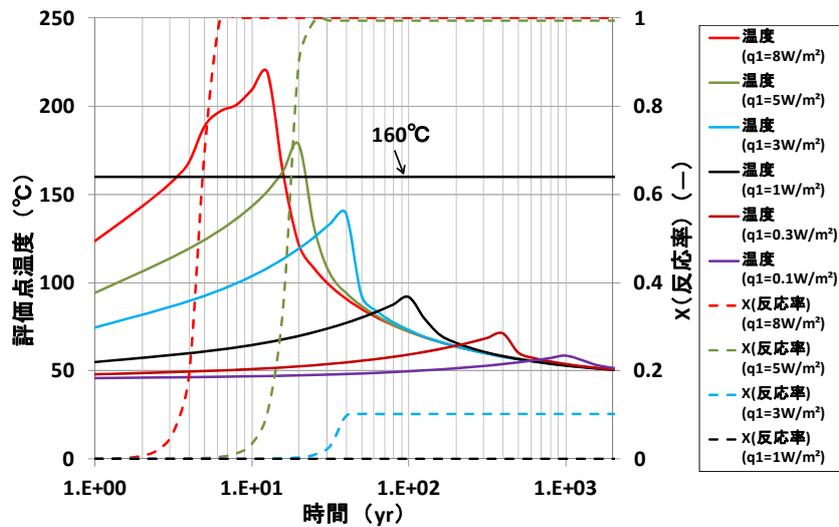


図 3. 2. 1-5 アスファルト固化体表面での発熱を想定した場合の
評価点(200L ドラム缶)の温度及び反応率の変化

(b) 内部での微生物活動

内部での微生物発熱を想定し、単位体積あたり一定発熱をアスファルト固化体に与えた場合の熱収支解析結果を図 3. 2. 1-6 に示す。160°C以上の最高温度が観察された条件は 40W/m³であり、30W/m³以下の条件では最高温度は 160°C未満であった。熱反応暴走誘発の可能性については、160°C以上の最高温度を観察したことをその判断基準としているが、30W/m³の最高温度は 160°Cに非常に近いことから、30W/m³程度の発熱が継続した場合、熱反応暴走を誘発する可能性があると判断した。

今後、アスファルト固化体内部における微生物活動に関する情報を収集し、発熱速度が 30W/m³以上に達する可能性について検討を進める。

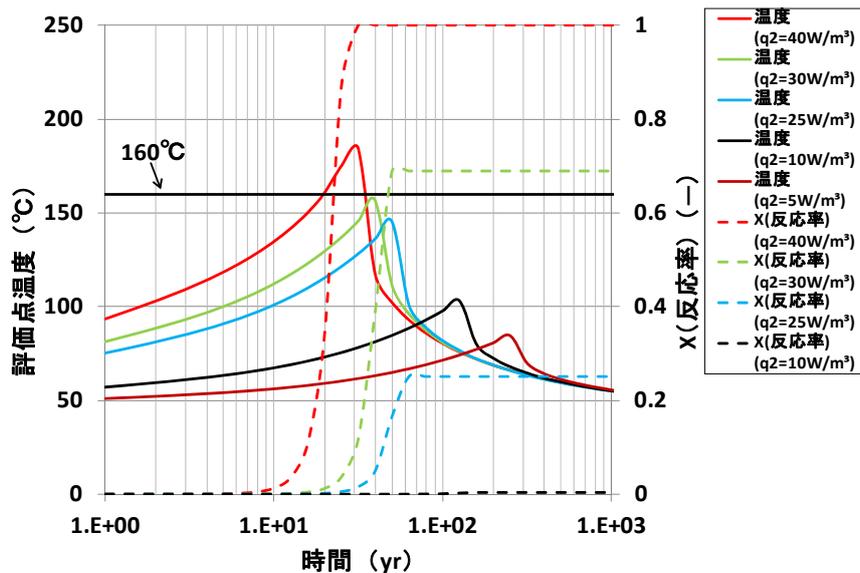


図 3. 2. 1-6 アスファルト固化体内部での発熱を想定した場合の
評価点(200L ドラム缶)の温度及び反応率の変化

②高温流体の接近

表 3. 2. 1-4 で検討したように火山・火成活動の影響については、サイト選定により回避することが基本であり、マグマの直撃については考慮する必要はないものと考えられるが、念のための評価として仮想的にマグマが処分坑道近傍に接近することを想定した試行的評価を実施する。

a. 熱収支解析における条件

地殻変動の観測に基づく火山活動の評価においては、地殻を弾性体と仮定して地盤の変形を最もよく説明できる圧力源の形状や変形量を推定することがしばしば行われており、茂木モデルと呼ばれる等方的(Sphere(球状))な圧力源、又は岡田モデルあるいはダイクモデルと呼ばれる板状(Dike(岩脈))の圧力源、若しくはその両方を組み合わせたモデルが多く利用されている。気象研究所(2013)の検討では火山活動評価手法を開発する観点で、近年測定された地殻変動データから検討された圧力源モデル並びに深度と膨張率(m^3/d)の関係から、その特徴を4種類に分類し、さらに考えられる火山活動との関係を示している(表3. 2. 1-6)。地層処分環境にマグマが接近する状況は、表3. 2. 1-6で示したタイプの中では(b)に近く、地殻変動データを用いた検討の多くはダイクモデルが用いられていることから、本検討においても板状のマグマが処分坑道に接近することを想定する。

表3. 2. 1-6 地殻変動データの特徴と推定される火山活動

地殻変動データから検討された 圧力源の深度と膨張率の特徴	検討に用いられた圧 力源の主なモデル	推定される火山活動		
		タイプ	火山活動	特徴(深さのみ抜粋)
深部のゆっくりとした膨張	茂木モデル	(a)	マグマ蓄積	2~10km
浅部の急激な膨張	ダイクモデル	(b)	マグマ貫入	0~5km
浅部のゆっくりとした膨張	茂木モデル	(c)	熱水膨張	0~1km
微小な地殻変動	茂木モデル	(d)	噴火直前過程	0~4km

(気象研究所(2013)を一部加筆・修正)

熱収支解析では、①微生物発熱の試行的評価に用いたものから一定発熱(q_1 または q_2)を除き、処分坑道下側、数m~数10mの位置に高さ5mの高温部を作成した(図3. 2. 1-7参照)。この高温部をマグマとし、物性値は母岩と同じ、初期温度は1400°C(表3. 2. 1-4(2/2)高温流体の欄参照)と設定した。これら条件から、坑道壁面と高温部の離間距離(L)を変数とした熱収支解析を行い、アスファルト固化体の熱反応暴走を誘発する高温流体の接近距離を解析的に求めた。

b. 結果及び考察

評価点を処分坑道下段に定置された200Lドラム缶の底面中心(図3. 2. 1-7参照)として、温度及び反応率(X)の変化を図3. 2. 1-7に示す。本検討においても微生物発熱と同様に「評価点の最高温度が160°C(算定されたROTの値)以上を観察した場合、熱反応暴走を誘発する可能性がある」と判断する。

実施した熱収支解析の条件においては、処分坑道と高温部の離間距離(L)が10m以下の場合、最高温度が160°Cを上回り、11m以上の場合には最高温度が160°Cを下回ることが観察された。したがって、高

温流体(本検討では1400°C、厚さ5m、物性は母岩と同じことを想定)が10m程度の距離まで接近することで熱反応暴走する可能性が示された。

本検討では、埋設直後に高温流体の接近が起こることを想定したが、表3.2.1-4でも述べたように地質事象(火成活動等)は10万年程度であれば将来の影響範囲を予測可能であると考えられている。仮に10万年後に高温流体の接近が起こることを仮定すると、アスファルト固化体の状態も埋設直後から変遷していると考えられる。今後は事象の発生時におけるアスファルト固化体の状態を想定し、高温流体の接近による熱反応暴走誘発の可能性についてより詳細に検討を進める予定である。

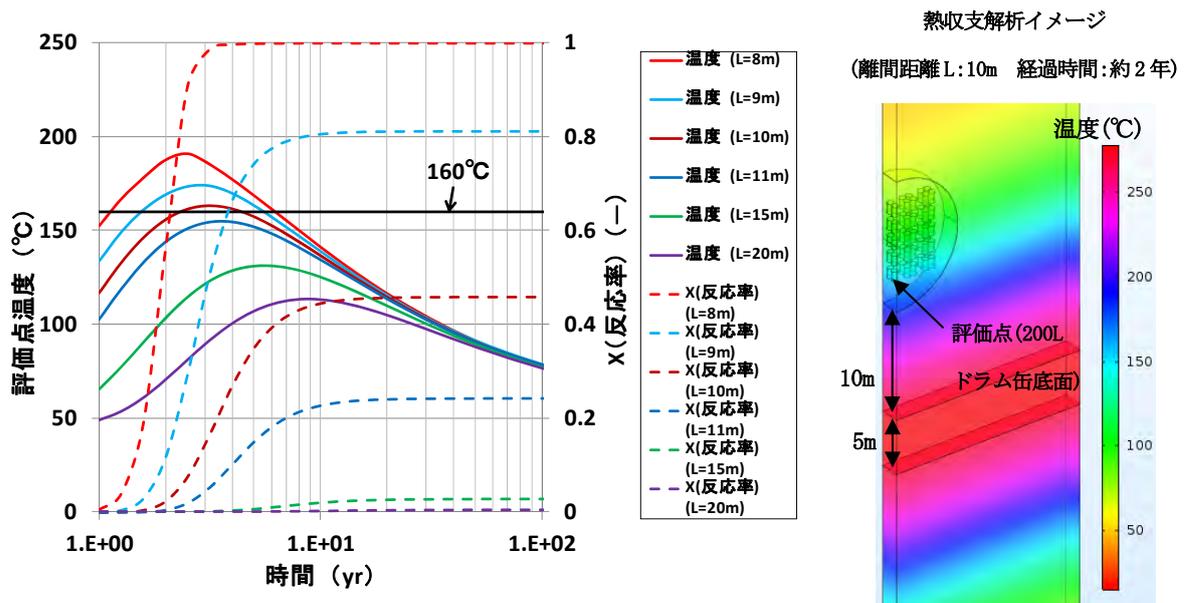


図 3.2.1-7 高温流体(1400°C)の接近を想定した場合の温度及び反応率の変化

3.2.2 廃棄物由来の影響因子の化学環境影響評価

3.1節で述べたとおり、廃棄物由来の影響因子のうち硝酸塩について、平成19年度から平成24年度にかけて経済産業省の委託事業「硝酸塩処理・処分技術高度化開発」（日本原子力研究開発機構，2008～2013b）が実施され、ニアフィールド環境への硝酸塩の影響評価技術開発が進められた。ニアフィールドの化学環境において、廃棄物から溶出した硝酸イオン(NO_3^-)は、処分施設内の金属との反応、岩石中の鉱物との反応及び微生物との反応により、亜硝酸イオン(NO_2^-)、アンモニア(NH_3)及び窒素ガス(N_2)に変遷しながらニアフィールド中に広がっていくことが想定されるため、これらの反応モデルを考慮した硝酸イオン化学的変遷挙動評価モデル(NEON: Model for Nitrate Evolution due to mineral reaction, microbial activity and metal corrosion)が構築されている(日本原子力研究開発機構，2013b)。本節では、この構築された硝酸イオン化学的変遷挙動評価モデルの信頼性向上を目的とする室内試験の成果、及び室内試験を補完するための天然事例(ナチュラルアナログ)の活用について記載する。

(1) 硝酸イオン化学的変遷挙動評価モデル(NEON)の概要

硝酸イオン化学的変遷挙動評価モデル(以下、NEON)の概念図を図3.2.2-1に示す。NEONは金属、鉱物及び微生物の作用による硝酸イオンの化学的変遷挙動に基づき、化学反応とその反応速度がモデル化されている。

硝酸イオンと金属との反応はアルカリ条件における炭素鋼の腐食に関する研究成果(本田ほか，2006, 2009, 2011)、鉱物との反応は密封されたアンプル内の硝酸と黄鉄鉱の反応試験(日本原子力研究開発機構，2012)、微生物との反応は密封されたアンプル内の硝酸と微生物の反応試験及びスウェーデンÄspö地下研究所での原位置試験(Masuda et al., 2013)に基づいている。これらの反応モデルを米国地質調査所が開発、公開しているPHREEQCコード(Appelo, 2013)に実装している。さらに、PHREEQCと3次元の物質輸送計算コードを連成させたPHASTコード(Parkhurst et al., 2010)を用いることにより、2次元もしくは3次元体系における硝酸イオンの変遷挙動を計算できる。それぞれの反応モデルについては個別の現象ごとに実験結果や天然事例(農肥料の硝酸塩による地下水汚染の事例)と比較され、解析結果が実験結果と概ね一致することが確認されている(日本原子力研究開発機構，2013b)。ただし、鉱物反応モデルの80℃以下の反応速度に関しては、80℃以上の試験結果から外挿して算出されている。TRU廃棄物処分施設の環境が80℃以下であることから、この反応速度式が実際の地層処分環境においても適用可能であるか確認が必要である。また、長期的な硝酸塩挙動に対するNEONの信頼性向上を図るためにはナチュラルアナログを活用していくことが有効と考えられる。

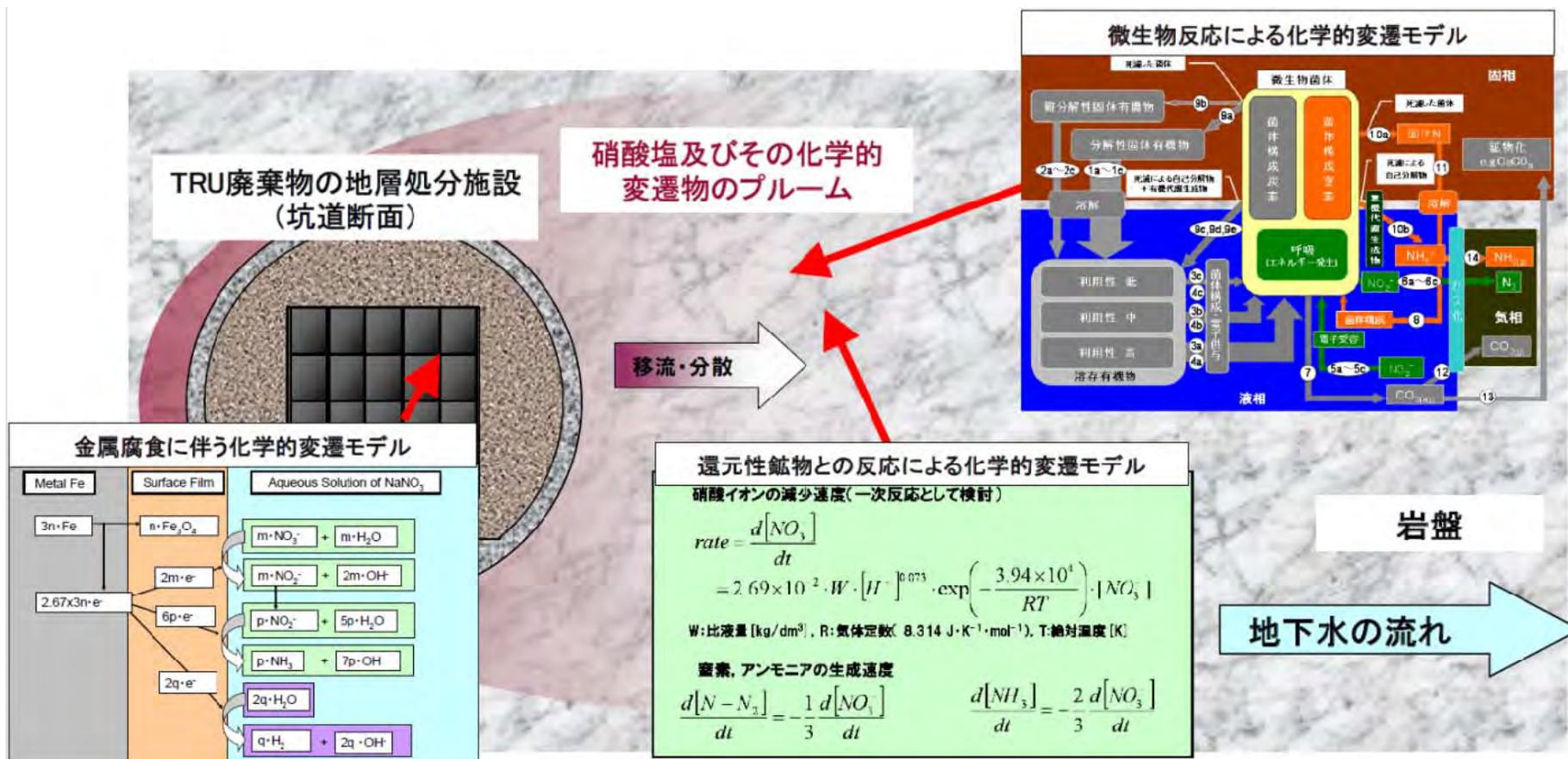


図3. 2. 2-1 硝酸イオン化学的変遷挙動評価モデル(NEON)の概念(日本原子力研究開発機構, 2013b)

(2) 信頼性向上のための確認試験

NEONの信頼性向上のため、確認試験として、1)アンプル試験及び2)カラム試験を実施するとともに、3)ナチュラルアナログによる確認として硝酸塩汚染地域のフィールドデータの再現解析を実施した。

1) アンプル試験

鉍物反応モデルの80°C以下の条件における信頼性向上のため、「硝酸塩処理・処分高度化開発」(日本原子力研究開発機構, 2012)に準じた手法でアンプル試験を実施した。平成26年度では試験期間90日間と短かったため、70°C以下の環境下において溶液中の硝酸イオンの変遷を明確に確認することができなかった。このため、本年度はより長期の試験を行うためのアンプル試験体を作製した。また、アンプル試験における液相の分析を行う以外に、高感度の熱量測定装置を用いた熱分析を通じて反応速度を評価する手法についても検討した。

①長期試験用アンプル試験体の作製

試験に使用する溶液組成やアンプル作製手順は硝酸塩処理・処分高度化開発(日本原子力研究開発機構, 2012)と同様とした。試料にはスペインのナバフン産黄鉄鉍を使用し、粒径0.032~0.063mmに粉碎・分級した。表面酸化膜及び不純物除去のため、高純度アルゴンガスグローブボックス(酸素濃度1ppm以下、窒素濃度100ppm以下)内にて0.01mol/dm³塩酸中で5分間超音波洗浄した後、イオン交換水で水洗した。その後、さらに上記グローブボックス内にてエタノール置換し粗乾燥して、7日間静置して風乾することで表面吸着した酸素と窒素を脱着処理した。

pH2、4及び5の緩衝溶液は以下の通り調製した。なお、溶液調製には高純度アルゴンガスグローブボックス内で脱酸素処理をしたイオン交換水を用いた。

pH2 : 0.01mol/dm³塩化カリウム溶液に塩酸を添加し、pHを2に調整

pH4, 5 : 0.04mol/dm³酢酸、リン酸、ホウ酸混合溶液に水酸化ナトリウムを添加し、pHを4又は5に調整

高純度アルゴンガスグローブボックス内にて表3.2.2-1に示す試験条件となるよう、アンプルに硝酸ナトリウム、緩衝溶液、黄鉄鉍を封入した。作製したアンプルは恒温槽にて所定の温度下で保持し、試験期間(1年前後)経過後、アンプルを開封して気相及び液相について以下の項目について分析を実施する予定である。

気相：窒素濃度、亜酸化窒素濃度、アンモニア濃度

液相：pH、硝酸イオン濃度、亜硝酸イオン濃度、アンモニウムイオン濃度、硫酸イオン濃度、酢酸イオン濃度

表 3.2.2-1 アンプル試験条件一覧

NO ₃ ⁻ 濃度	黄鉄鉍と溶液の比	pH	温度
0.04mol/dm ³	0.5g/cm ³	4	50°C
			60°C
			70°C
		2	60°C
		5	60°C
0.1mol/dm ³	0.5g/cm ³	4	60°C
0.01mol/dm ³		4	60°C
0mol/dm ³		4	60°C
0.04mol/dm ³		4	60°C
0.04mol/dm ³	0g/cm ³	4	60°C

②熱量分析による検討

反応速度の温度依存性を推定する手法として、熱量測定装置を用いた熱分析を通じて反応の活性化エネルギーを算出する手法がある。そこで、微小熱量測定装置を用いた熱量測定により硝酸塩と黄鉄鉱の反応の熱量測定が可能であるかを検討した。

測定にはTAインストルメント社製微小熱量測定装置(製品名TAM III)を用いた。測定試料は測定用アンプル(容量3.5cm³)に黄鉄鉱1gを秤量し、0.1mol/dm³硝酸ナトリウム溶液2cm³を採取し密栓したものとした。試験溶液の採取及びアンプルの密栓は窒素ガスを充填したグローブバッグ内にて行った。熱量測定は50℃にて約1週間実施し、熱流量及び積算熱量の経時変化を測定した。

熱流量の経時変化を図3.2.2-2(a)、積算熱量の経時変化を図3.2.2-2(b)に示す。継続的な熱の発生が確認できることから、黄鉄鉱と硝酸ナトリウム溶液を混ぜた際に生じる反応熱による熱量変化を測定することができたと考えられる。これにより、熱分析を通じて反応速度を評価できる可能性があり、液相を分析するアンプル試験と併せて今後検討が必要である。

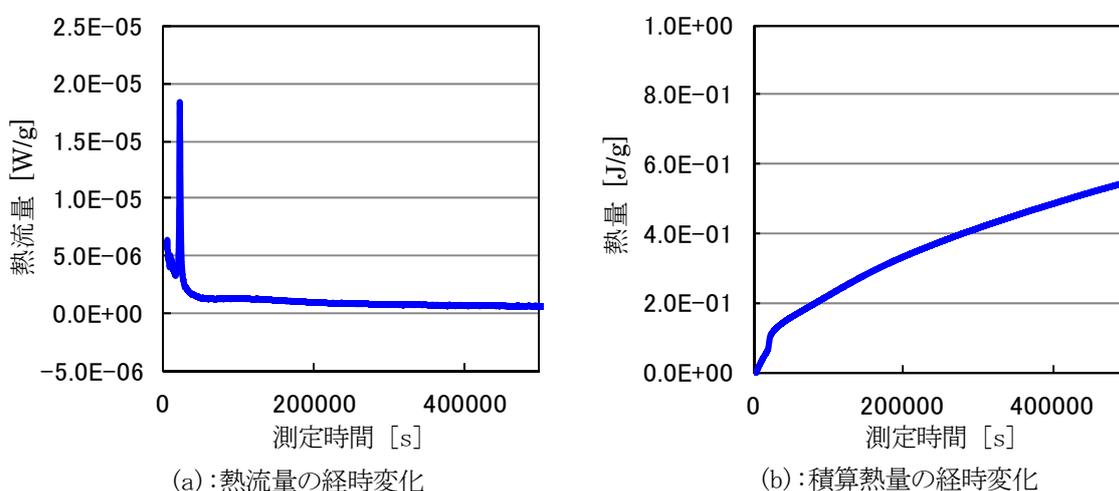


図3.2.2-2 黄鉄鉱/硝酸ナトリウム溶液混合物から発生する熱変化

2) カラム試験

地層処分環境を模擬したカラムにより硝酸イオンの移行・変遷を実験的に確認するためにカラム試験を実施した。平成26年度の試験ではカラムへの黄鉄鉱の充填率が低く拡散場が保てなかったため、本年度は拡散条件を担保できる試験手順を確立するための予備試験を実施し、その結果を反映して硝酸イオンの変遷試験を実施した。また、試験結果についてはNEONによる解析結果と比較した。

①カラムの仕様

カラムの外観及び概要図を図3.2.2-3に示す。内径23mmφ、長さ150mmのカラムを連結することにより、合計長さ150、300、450mmのカラムを用意し、端部には長さ20mmのカラムエンドを取り付けた。カラムは内部をテフロンコートしたSUS316L配管を使用した。カラム及びカラムエンドの連結部はバイトンゴム製Oリング及びテフロンメッシュ(目開き0.2mm)を間に挟み、ブチルゴムテープを連結部の上から巻き、クランプにより固定した。Oリングとゴムテープによってガスや試験液のリークを防ぎ、テフロンメッシュにより黄鉄鉱の流出を防ぐ仕組みとした。

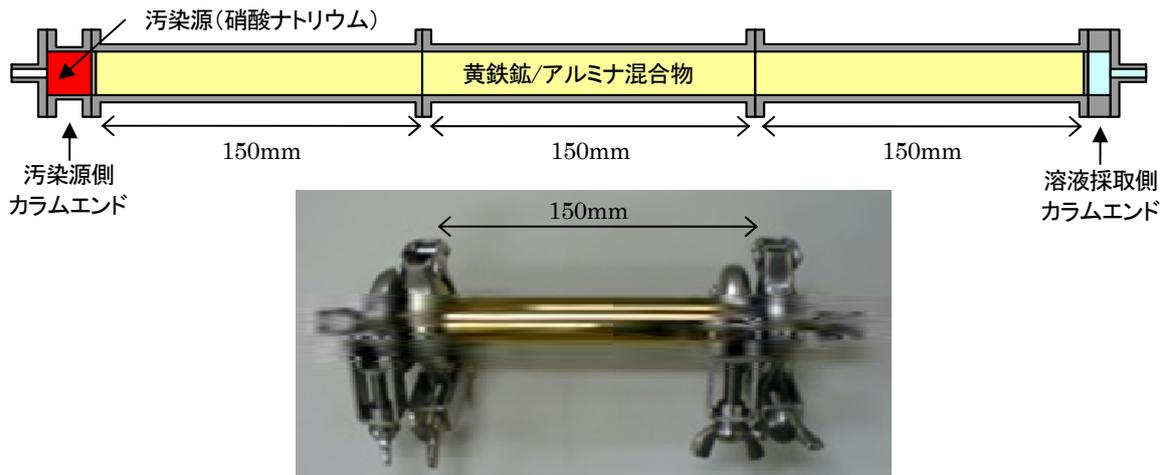


図3.2.2-3 カラムの概要図及び外観

②予備試験

拡散条件が担保できる試験手順として、カラムの充填物及び充填手順の見直しを実施した。カラムへの充填物は黄鉄鉱粉末とアルミナ粉末(粒径:5 μ m)の混合物(黄鉄鉱:10wt%)とし、黄鉄鉱より微細なアルミナ粉末を加えることにより充填密度の向上を試みた。充填方法は油圧プレス法とした。充填物をカラム容積の1/10程度ずつ小分けにして充填し、押し棒を介して油圧を1、2又は5MPaかけて充填した。カラムの間隙率は1MPaでは34%、2MPaでは28%となった。一方、5MPaの場合は充填剤が押し棒に固着して割れが生じる結果となった。また、150mmのカラムを用いて透水試験を実施し、透水係数を算出した結果、1MPaでは 2.0×10^{-6} m/s、2MPaでは 8.5×10^{-7} m/sであった。この結果から、油圧プレス法により拡散試験に十分な透水係数を持つ充填状態で試験ができる見通しが得られた。

また、実際に拡散評価が可能かどうか予備試験を実施した。試験条件を表3.2.2-2に示す。使用する溶液や試薬等はアンプル試験と同一とした。カラムに黄鉄鉱混合物を油圧プレス(油圧:2MPa)にて充填し、カラム及び溶液採取側カラムエンドを連結させ、試験溶液(pH4緩衝溶液)を通水してカラム内部を飽和させた。その後、汚染源側カラムエンドに汚染源として試験溶液で湿潤させた硝酸ナトリウムを充填し、カラムと連結させて密閉した。この状態で所定の期間、マントルヒータを用いて80 $^{\circ}$ Cに維持した。

所定の期間経過後、カラムエンドより試験溶液を採取し、pH、硝酸イオン及びナトリウムイオン濃度について分析した。pHについては半導体電極を用いて測定し、各成分はイオンクロマトグラフを用いて測定した。

表3.2.2-2 予備試験条件

汚染源	pH	温度
NaNO ₃	4	80 $^{\circ}$ C

カラム長さ	期間			
	1日	5日	10日	30日
150mm	○	○	○	○
300mm	○	○	○	○
450mm	—	—	○	○

測定結果を表3.2.2-3に示す。pHは全試験条件でほとんど変化は認められなかった。ナトリウムイオンはpH4緩衝溶液調製に用いた水酸化ナトリウムの影響で、有意な変化は認められなかった。硝酸イオンは150mmのカラム長条件では5日目、300mmのカラム長条件では30日後に濃度上昇が認められ、450mmのカラム長条件では有意な変化は認められなかった。試験期間の増加に伴う硝酸イオン濃度の増加が確認できたため、カラム内を硝酸イオンが拡散している様子を捉えることができたと考えられる。

表3.2.2-3 予備試験結果

試験条件		溶液分析結果		
カラム長[mm]	試験期間[日]	pH	Na ⁺ [mol/dm ³]	NO ₃ ⁻ [mmol/dm ³]
150	1	4.0	0.06	3.0
	5	4.0	0.05	10
	10	3.9	0.10	26
	30	3.9	0.11	83
300	1	4.0	0.09	1.8
	5	4.0	0.08	3.2
	10	4.1	0.09	2.4
	30	4.0	0.08	4.2
450	10	3.9	0.06	2.3
	30	3.8	0.09	2.7

③硝酸イオン変遷試験

予備試験で得られた知見を基に低酸素雰囲気下で試験を実施した。試験条件を表3.2.2-4に示す。カラム長は150mm及び300mmとし、試験期間は10日及び30日とした。充填物は予備試験の際は2MPa(間隙率:28%)にてカラムに充填したが、300mm、30日の試験でも僅かな濃度上昇しか見られていないため、拡散挙動や硝酸イオンの変遷を確認しやすくするため1MPa(間隙率:34%)にてカラムに充填した。充填後のカラムを雰囲気制御グローブボックス内で0.01mol/dm³塩酸、イオン交換水及び試験溶液を通水することで黄鉄鉱の酸化被膜等の不純物を除去した後、カラムエンドに汚染源として試験溶液で湿潤させた硝酸ナトリウムを充填し、カラムと連結させて密閉した。この状態で所定の期間、雰囲気制御グローブボックス内でマントルヒータを用いて80℃に維持した。所定の期間経過後、カラムエンドより試験溶液を採取し、pH、硝酸イオン、アンモニウムイオン、ナトリウムイオン、硫酸イオン、酢酸イオン濃度について分析した。pHについては半導体電極を用いて測定し、水相中の各成分はイオンクロマトグラフを用いて測定した。

表3.2.2-4 硝酸イオン変遷試験条件

汚染源	pH	温度	カラム長	期間
NaNO ₃	4	80℃	150, 300mm	10, 30日
なし	4	80℃	150, 300mm	30日

測定結果を表3.2.2-5に示す。汚染源の無いケースでは硝酸イオンは検出されなかったため、黄鉄鉱やアルミナ由来の硝酸イオンは含まれていないと考えられる。汚染源のあるケースではいずれの条件でもアンモニウムイオンが検出され、試験期間の経過と共に濃度上昇が見られた。そのため、カラ

ム端部の硝酸イオンがアンモニウムイオンへと変遷しながら拡散している様子を捉える事が出来ていると考えられる。

表 3.2.2-5 硝酸イオン変遷試験結果

試験条件			溶液分析結果					
汚染源	カラム長 [mm]	試験 期間 [日]	pH	Na ⁺ [mol/dm ³]	NO ₃ ⁻ [mmol/dm ³]	NH ₄ ⁺ [mmol/dm ³]	SO ₄ ²⁻ [mmol/dm ³]	酢酸イオン [mmol/dm ³]
NaNO ₃	150	10	4.1	0.10	33	0.05	0.05	41
		30	3.9	0.17	190	3.3	7.1	42
	300	10	4.0	0.09	5.5	0.03	0.06	44
		30	4.0	0.11	7.2	0.06	0.05	41
なし	150	30	4.0	0.11	<0.001	<0.01	0.02	43
	300	30	4.0	0.11	<0.001	<0.01	0.04	42

④NEON による解析との比較

③の結果について、NEON を用いた解析結果と比較した。NEON を用いた解析は、PHREEQC に NEON を実装して実施した。熱力学データベースは日本原子力研究開発機構の熱力学データベースのうち、050700c0.tdb(Arthur et al., 2005)を用いた。酢酸の熱力学データに関しては、英国の熱力学データベース HATCHES(Heath et al., 2011)より追加した。なお、硝酸イオンの酸化還元反応は速度論的な計算を行うため、硝酸イオン及びその変遷物(NO₃⁻, NO₂⁻, NH₃等)は別途定義し、化学平衡計算スキームからは除いた。また、本条件ではNEONの金属反応及び微生物反応は起きないものとした。拡散係数は文献(佐藤ほか, 1992)を参考に、自由水中における水分子の拡散係数 $2.27 \times 10^{-9} \text{m}^2/\text{s}$ (25°C)の温度依存性を考慮して80°Cにおける値に補正するとともに間隙率を乗じて実効拡散係数とし、 $1.99 \times 10^{-9} \text{m}^2/\text{s}$ とした。

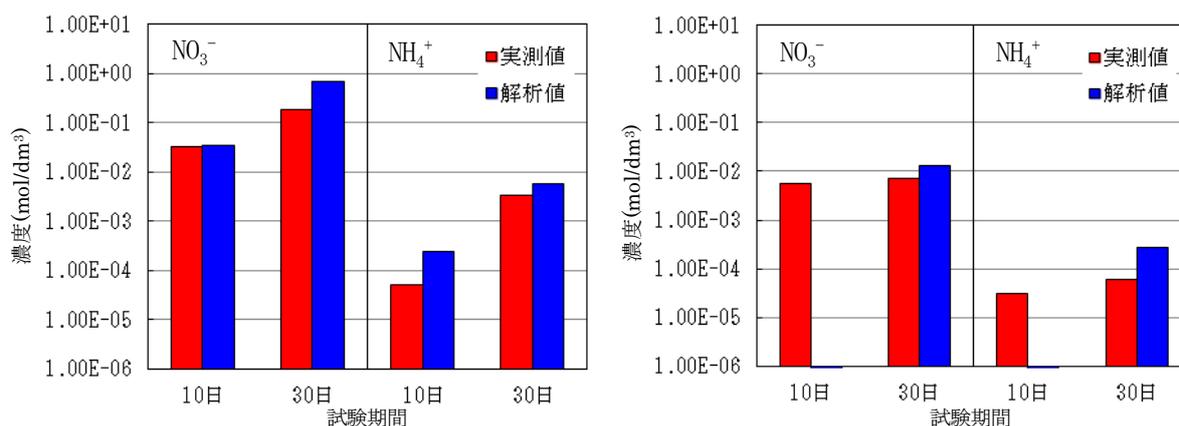


図 3.2.2-4 硝酸イオン変遷試験の実測値と NEON 解析結果の比較
(左図：カラム長さ 150mm, 右図：カラム長さ 300mm)

解析結果と実測値の比較を図 3.2.2-4 に示す。カラム長さ 150mm の試験では、硝酸イオン濃度、アンモニウムイオン濃度共に解析値は、実測値と概ね一致しており、拡散条件におけるカラム内の硝酸イオンの化学変遷が NEON を用いた解析と概ね整合的であることが確認された。一方、カラム長さ 300mm

の試験では、10日後の解析値は、実測値より硝酸イオン及びアンモニウムイオン共に低く評価された。これについては、解析条件の見直しやカラム試験の手順の再確認等の検討が今後必要である。

(3) ナチュラルアナログ事例の活用

長期的な硝酸塩の移行・化学的変遷挙動に対する NEON の信頼性向上を図るためにはナチュラルアナログを活用していく必要がある。硝酸イオンの変遷に関するナチュラルアナログ事例として、農業用肥料や硝酸含有廃液による地下水汚染が考えられる (Appelo and Postma, 2005, Nützmann et al., 2005, Stumm and Morgan, 1996)。昨年度は広島県生口島における地下水硝酸性窒素汚染事例について NEON による解析を実施し、現地の硝酸性窒素分布を概ね再現することができたが、実測データのない一部のパラメータに推定値が用いられた。本年度はより詳細な現地調査が実施されているカナダのオンタリオ州にある Boyne 川近傍の硝酸性窒素汚染事例に着目し、NEON の確証に用いることが可能か検討すると共に、NEON を用いた解析を実施した。

1) カナダのオンタリオ州の事例

地下水汚染の調査地域を図 3.2.2-5 に示す。カナダのオンタリオ州の都市であるトロントの約 70km 北方にある Boyne 川近傍における地下水の硝酸性窒素汚染の調査結果が文献で報告されている (Devito et al., 2000, Hill et al., 2000)。地層は粘土層を基盤に、その上部の砂層が数 m 程度の厚みの帯水層となっており、地下水は谷底にある Boyne 川へ向かう方向へ流れている。地下水の上流側は農業地帯であり、農業活動に伴う長期にわたる施肥により高濃度の硝酸性窒素と塩化物イオンが地下水の上流側に浸透し地下水が汚染されている。オンタリオ州の水利用の約 30% が地下水であることから地下水の汚染は問題視されており、最も古い記録では 1950 年代に実施された井戸水の大規模調査において硝酸性窒素汚染が確認され、1990 年代まで汚染の傾向は変化していない (Goss et al., 1998)。Boyne 川近傍では硝酸性窒素濃度の急激な減衰が確認されており、その濃度減衰は微生物の脱窒反応によるものと報告されている (Devito et al., 2000)。よって、NEON の微生物反応を用いた硝酸性窒素の解析値と比較が可能であると推定されたため、NEON を用いた解析を実施し、解析値と実測値の比較を行った。また、溶存有機物濃度や溶存酸素濃度などの実測データがあるため、昨年度に実施した広島県生口島の解析と比較してより一層現地の環境に即した解析が可能であると考えられる。

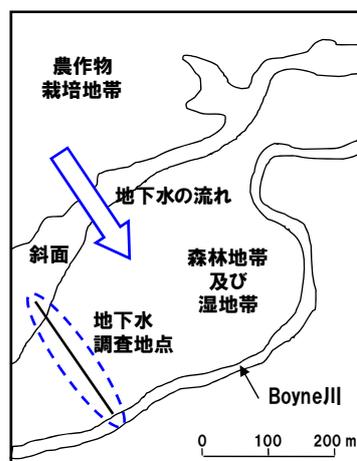


図 3.2.2-5 地下水汚染調査地域 (Hill et al., 2000 を基に作図)

①NEONによる解析条件

解析には、化学平衡-物質移行計算コードである PHAST に NEON を実装して用いた。熱力学データベースは日本原子力研究開発機構の熱力学データベースのうち、050700c0.tdb (Arthur et al., 2005) を用いた。なお、硝酸イオンの酸化還元反応は速度論的な計算を行うため、硝酸イオン及びその変遷物 (NO_3^- , NO_2^- , NH_3 等) は別途定義し、化学平衡計算スキームからは除いた。また、本条件では NEON の金属反応及び鉱物反応は起きないものとした。

解析体系及び解析条件を表 3.2.2-6 に示す。また、解析体系を図示したものを図 3.2.2-6 に示す。地質構造、透水係数、水頭の分布、各境界条件は文献 (Devito et al., 2000, Hill et al., 2000) を参考に設定した。間隙率は文献中に報告されていないため、堆積岩を想定して第 2 次 TRU レポートを参考に設定した。微生物反応が起きる領域について、文献中で硝酸性窒素濃度と溶存酸素濃度の関係が報告されており、溶存酸素濃度が $2\sim 3\text{mg}/\text{dm}^3$ 以下の地点で微生物活動が活発となり硝酸性窒素濃度が減衰することが示されている (Hill et al., 2000)。本解析では文献中に示されている溶存酸素濃度の実測値 (Hill et al., 2000) を参考に、溶存酸素濃度が $2.5\text{mg}/\text{dm}^3$ 以下の地点において微生物による反応が起きるとし、NEON の微生物反応モデルを設定した。この仮定は、脱窒菌の多くは通性嫌気性菌として知られており、一定以上の溶存酸素がある場合は酸素を利用して有機物を分解し、溶存酸素が一定以下の場合硝酸イオンを利用して有機物を分解することでエネルギーを得ていること (Korom, 1992)、及び微生物による硝酸性窒素濃度の減衰と溶存酸素濃度の関係は多くの研究で報告されており、溶存酸素濃度が概ね $1\sim 4\text{mg}/\text{dm}^3$ 以下の場合に反応が起きるとされている (江口, 2008) ことに基づいている。解析時間設定に関しては、解析結果における硝酸性窒素濃度分布がほぼ一定となる時間として、50 年に設定した。時間ステップに関しては、クーラン数 (1 時間ステップに水が進む距離 ÷ セルサイズ) を指標とし、これが 1 より十分小さくなるよう設定した。微生物の利用する有機物の量は、溶存有機物の実測値が報告されているため、地下水の上流側及び上側より実測値を基に設定した有機物濃度の水が流入する設定とした。また、泥炭層及び泥層に関しては多量の固体有機物があることが報告されているため (Hill et al., 2000)、溶存有機物の実測値と同等の量の有機物が固体有機物を消費して供給され、各層の溶存有機物濃度が常に一定となる設定とした。有機物の種類に関しては、帯水層が地表面に近く、動植物の死骸由来の利用性の高い有機物の浸透が想定されることや、泥層などの有機物に富んだ地層には木屑や枝等が含まれていることが報告されているため (Hill et al., 2000)、微生物利用性の比較的高い有機物が地下水に混入することを想定した。微生物量に関しては、解析中に地下水中の硝酸イオン濃度と有機物濃度に従い変動することになるが、初期の微生物量を暫定的に $1.0 \times 10^{-4}\text{mol}/\text{dm}^3$ に設定した。地下水の成分に関しては全成分を測定したデータが無いため、地下水や降雨水は pH7 の硝酸ナトリウム、塩化ナトリウム及び有機物が溶解している水溶液とし、それぞれの濃度について初期地下水は実測値全体の平均値、各境界に流入する地下水はそれぞれの実測値と同等になるようにした。

実測値と解析値との比較については、硝酸イオン濃度の実測データは複数の地点・深度のデータがあるため、解析結果から等高線図を作成し実測値と比較した。また、微生物反応が起きない設定とした解析結果と実測値との比較も実施した。

表 3.2.2-6 解析体系・解析条件

設定項目	設定値				
解析領域	180 m × 6 m				
メッシュ	5 m × 0.2 m				
分散長	18 m				
地層の種類 及び 透水係数	砂層	3.66×10^{-6} m/s			
	礫層	4.48×10^{-5} m/s			
	泥炭層	1.16×10^{-7} m/s			
	泥層	5.72×10^{-7} m/s			
	基盤岩盤	透水なし			
間隙率	0.3				
解析時間	50 年				
時間ステップ	0.01 年				
有機物の種類	高利用性有機物				
初期微生物濃度	1.00×10^{-4} mol/dm ³				
初期地下水組成	NO ₃ 濃度	7.40×10^{-4} mol/dm ³			
	溶存有機物濃度	6.00×10^{-4} mol/dm ³			
	Cl ⁻ 濃度	1.50×10^{-3} mol/dm ³			
固体有機物	泥炭層	溶存有機物濃度が 1.17×10^{-3} mol/dm ³ になるよう有機物を供給			
	泥層	溶存有機物濃度が 1.42×10^{-3} mol/dm ³ になるよう有機物を供給			
水頭	地下水 上流側	9.50 m			
	地下水 下流側	7.00 m			
境界条件	地下水 上流側境界		フラックス境界(水頭勾配に従い硝酸塩汚染水が流入)		
	地下水 下流側境界		フラックス境界(水頭勾配に従い地下水が流出)		
	上側境界	上流からの距離			
		10~40m		フラックス境界(水頭勾配に従い地下水が流出)	
		65~90m		フラックス境界(水頭勾配に従い降水水が流入)	
		110~180m		フラックス境界(100 mm/y の速度で降水水が流入)	
上記以外		反射境界			
下側境界			反射境界		
境界外から 流入する 地下水組成	地下水 上流側 境界	標高	NO ₃ 濃度 (mol/dm ³)	溶存有機物濃度 (mol/dm ³)	Cl ⁻ 濃度 (mol/dm ³)
		4.0~7.0m	1.50×10^{-3}	3.50×10^{-4}	1.00×10^{-3}
		7.0~7.6m	3.29×10^{-3}	2.10×10^{-4}	2.20×10^{-3}
		7.6~9.0m	7.14×10^{-4}	2.10×10^{-4}	2.20×10^{-3}
	9.0~9.6m	7.14×10^{-4}	2.10×10^{-4}	7.00×10^{-4}	
	上側境界	上流からの距離			
		10~40m	0	6.21×10^{-4}	1.60×10^{-3}
		65~90m	0	1.42×10^{-3}	1.60×10^{-3}
110~180m		0	1.42×10^{-3}	1.12×10^{-3}	

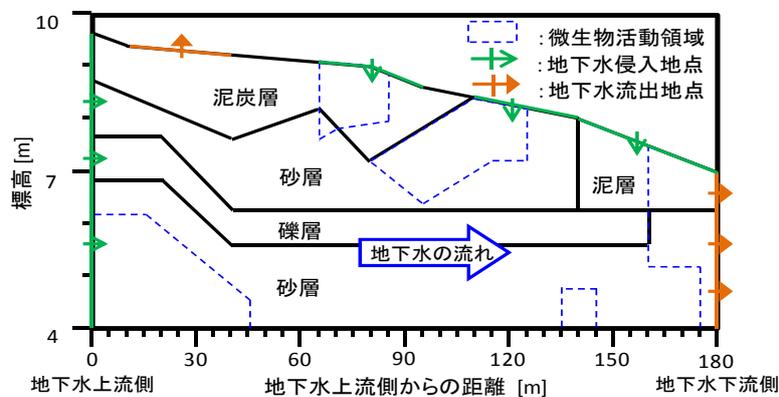


図 3.2.2-6 解析体系模式図

②解析結果及び考察

地下水中の硝酸性窒素濃度の解析結果と実測値の比較を図 3.2.2-7(a)に示す。プロットが実測値、等高線が解析結果をそれぞれ示している。硝酸性窒素の実測値の傾向と解析結果は概ね一致した。また、微生物反応を設定しない場合の解析結果と実測値の比較図を図 3.2.2-7(b)に示す。図 3.2.2-7(a)と比較して硝酸性窒素の分布が変化しており、全体的に硝酸性窒素が実測値と比較して高濃度となった。このことから、図 3.2.2-7(a)の解析結果の硝酸性窒素の減衰傾向は、降雨水等による硝酸性窒素の希釈ではなく、微生物反応による硝酸性窒素の消費によるものであることが示された。よって、間隙率については仮の設定ではあるが、Boyne 川近傍における地下水の硝酸性窒素汚染状況を NEON の微生物反応モデルにより概ね再現できたため、NEON の微生物反応モデルのうち、利用性の高い有機物を用いた微生物反応についてモデルが概ね妥当であることが示された。

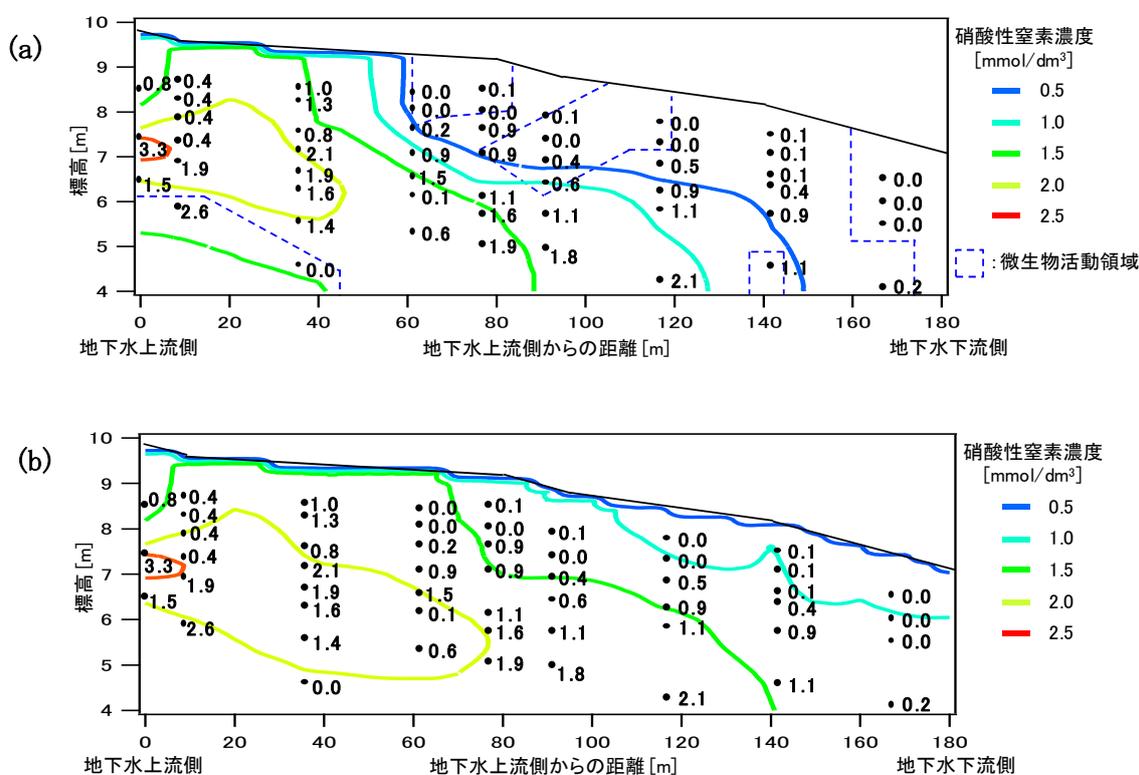


図 3.2.2-7 Boyne 川近傍における地下水中の硝酸性窒素濃度 (mmol/dm³) の解析結果と実測値
((a):微生物反応あり、(b):微生物反応なし) (Hill et al., 2000 を基に作図)

以上の結果より、この事例は NEON の微生物反応モデルの信頼性を示す 1 つの事例と見なすことができる。今後もナチュラルアナログ事例を探索し、とくに地下深部の硝酸性窒素汚染事例や、フミン酸等の微生物の利用性が低い有機物による硝酸性窒素の減衰に関するデータがある事例を調査し、NEON の信頼性を示す根拠とする考えである。

3.2.3 廃棄物由来の影響因子のバリア候補材料への影響評価

地層処分システムでは、ベントナイトを用いた人工バリア材料に地下水移動抑制や応力緩衝等の機能が期待される。これは、ベントナイトが低透水性・膨潤性等を有するためであるが、このような特性はベントナイトが主に膨潤性粘土鉱物であるスメクタイトによって構成されていることによる。一方、これまでに述べたように、廃棄物から溶出した硝酸イオンは、地下深部の処分環境においてアンモニアやアンモニウムイオンに変化すると考えられる。アンモニウムイオンは、スメクタイトに吸着する性質がある。アンモニウムイオンの吸着によるスメクタイトの特性や長期安定性への影響については不明な点が多く、これを明らかにする必要がある。本項では、ベントナイトを用いた人工バリア材料への硝酸イオン変遷物質の影響評価として、スメクタイトの特性や長期安定性に及ぼすアンモニウムイオンの影響について調査を行った。

(1) アンモニウムイオンによるスメクタイトの鉱物学的変化に関する検討

1) 実験的検討によるアンモニウム型スメクタイトの特性評価

平成25年度に実施した文献調査により、アンモニウムイオンが吸着したアンモニウム型スメクタイトは、湿潤乾燥処理(WD処理)条件や高温高压条件では、アンモニウムイオンの固定、脱水、混合層(アンモニウム-イライト成分)の生成、及び非膨張性鉱物(アンモニウム雲母)への変質等の可能性が示されている(Cicel and Machajdik, 1991; Sucha and Siranova, 1991; Miklos and Cicel, 1993; 大原ほか, 2003)。そこで、スメクタイトの非膨張性粘土鉱物へ変化を念頭に、WD処理によるアンモニウム型スメクタイトの底面間隔変化を相対湿度制御下XRDにより測定し、層間アンモニウムイオンの固定及び混合層生成の生起可能性を調べた。なお、アンモニウムイオンと同様に固定、混合層生成、非膨潤性鉱物化の可能性のあるカリウム型のスメクタイト試料についても、同様の実験に供し、アンモニウム型との比較を行った。

① 実験方法

1. 平成26年度と同じ手順(日本原子力研究開発機構、2015)で調整したアンモニウム型スメクタイト試料およびカリウム型スメクタイト試料の定方位試料を用意する。定方位試料の作製では、粉体状の試料10 mgを、200 mm³の脱イオン水中に懸濁させ、20分間超音波分散を行い分散させた後、スライドガラス上に1.8×2.8 cmとなるように均一に塗布して室温で24時間乾燥させる。
2. それぞれの定方位試料を、70℃の恒温槽の中で12時間乾燥させる。
3. 乾燥させた定方位試料を、蒸留水で湿らせた脱脂綿を敷き詰めた容器内に入れ、70℃の恒温槽の中で12時間ほど静置する。試料を十分に湿潤させた後、容器から取り出してXRD分析を行う。XRD測定はCu管球を用い、相対湿度80%とした相対湿度制御下で行った。XRD測定条件は管電圧30 kV、管電流20mA、走査速度1°/min、DSスリット1/2°、SSスリット1/2°、RSスリット0.15mmとした。
4. 規定の回数まで2, 3の手順を繰り返す。平成27年度は20回とした。

② 結果と考察

20回のWD処理後のXRD回折パターンを図3.2.3-1に示す。本図では底面間隔を表す(001)回折ピークの位置を縦線で表している。カリウム型試料では、WD処理の回数に伴わずかではあるが $2\theta = 7.2^\circ$ 付近の(001)回折ピークが高角側へのシフトしていることがわかる。これは、カリウム型の層間では、

初期には1-水分子層の状態が支配的であるものの、WD処理によって0-水分子層の割合が増加するために底面間隔が小さくなったためと考えられる。一方、アンモニウム型試料ではそのような変化は認められない。すなわち、カリウム型スメクタイトでは膨張性が低下する傾向が見られるが、NH₄型スメクタイトではその傾向は見られないということがわかった。今後、WD処理の回数を増やし、アンモニウム型スメクタイトが相対的に膨張性を失いにくいことを確かめる必要がある。

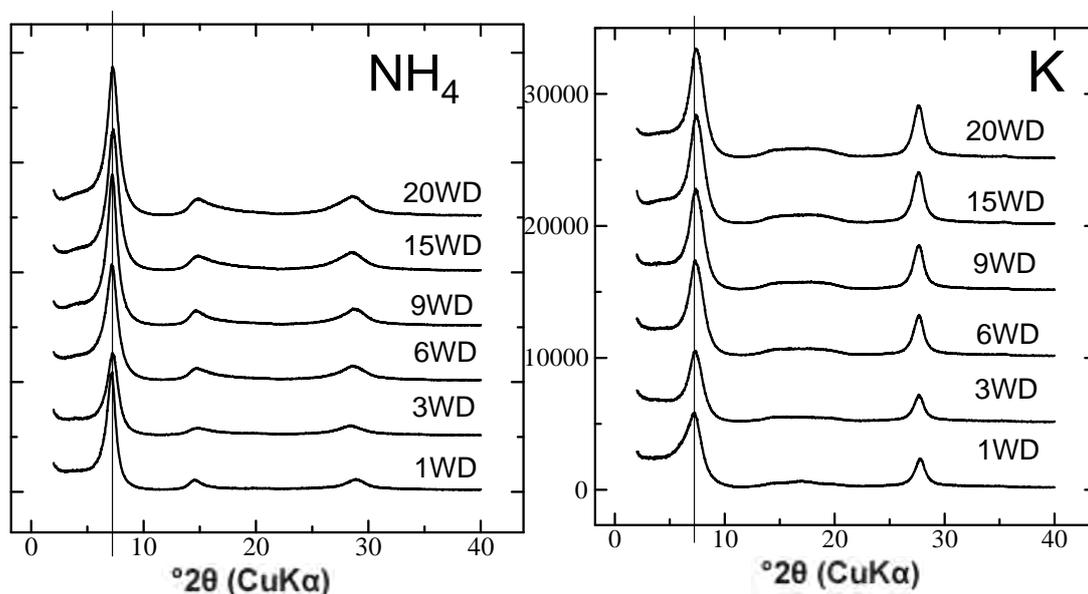


図3. 2. 3-1 20回のWD処理後のXRD回折パターン

2) 計算科学的手法によるアンモニウム型スメクタイトの特性評価

平成26年度の実験的検討から、アンモニウム型スメクタイトの層間は、低い相対湿度条件で1-水分子層の状態に膨張することができ、また、1-水分子層の状態にある底面間隔は他のイオン型に比べてわずかに小さいことが示された。こうした膨張挙動はアンモニウム型に特有であり、アンモニウムイオンとイオン半径が近く、スメクタイトに吸着して膨潤性を低下させるという点で類似するカリウムイオンを含んだカリウム型でも見られなかった。そこで、以上の特徴をスメクタイト、層間のアンモニウムイオン及び水分子間の相互作用によるものとして捉え、分子シミュレーションによって調べることにした。平成26年度には、経験的分子動力学法（古典MD法）により、アンモニウム型、カリウム型、ナトリウム型のスメクタイトの分子モデルを作成し、層間の水分子数を変化させた場合の混合エンタルピーと底面間隔の変化を調べた。層間の水分子数を変化させたのは、相対湿度制御下における層間の水分子数の変化を模擬するためである。この結果、アンモニウム型スメクタイトの混合エンタルピーは、ナトリウム型やカリウム型に比べて少ない水分子数で負の値をとり始めるとともに、少ない水分子数で極小を示すことがわかった。このことは、アンモニウム型スメクタイトが、他のイオン型に比べて少ない水分子数で1-水分子層の状態に膨張できることを示唆している。このことが、実験で示された、アンモニウム型でのみ低い相対湿度条件において1-水分子層に膨張した理由であると考えられた。平成27年度は、アンモニウム型が少ない水分子数で膨張できるメカニズムや、より水分子数が増大した場合の挙動を調べていくために、より定量的な評価を可能とするよう分子シミュレーションの精度向上に取り組むこととした。

① 計算の概要

分子シミュレーションでは、古典MD法により、アンモニウム型、カリウム型、ナトリウム型のスメクタイトの分子モデルを作成した。平成26年度の検討と同様に、スメクタイトのモデルはNakano and Kawamura (2006)から、水分子のモデルは河村 (2008)から、ナトリウムイオンとカリウムイオンのモデルはSakuma and Ichiki (2015)よりそれぞれ引用した。アンモニウムイオンについても、平成26年度の検討と同じく、基本となるアンモニウムイオンを作成した後、それを用いて塩化アンモニウム結晶のモデルを作成し、構造安定性やその物性値の実験値との整合性の点から適切なモデルとなるように相互作用モデルの諸パラメータ等を調整するという手順をとりつつ、より精度の高いモデル作成を試みた。

a. 計算ツール

分子シミュレーションで用いた計算ツールは平成26年度と同じく汎用分子動力学法計算のためのMXDORTO/MXDTRICL システム (平尾・河村, 1994; Frenkeland and Smit, 2002) である。

b. 計算に用いたモデル

計算に用いたモデルも平成26年度と同じである。以下に概要を記す。

(a) 相互作用モデル

原子・分子間相互作用を用いる分子動力学計算では、その計算結果は使用した相互作用モデルに大きく依存する。SiO₂結晶中の Si-O 結合のようにイオン結合と共有結合からなる場合などは、中間的な結合様式も包括した実際的なモデルが必要となる。本計算で用いたモデル(Sakuma and Kawamura, 2011)を以下に示す。

集団系の相互作用を二原子間に働く相互作用の足し合わせで表現するための二体中心力型関数は3.2.3-1式で表される。

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

3.2.3-1

3.2.3-1式において、第一項は静電相互作用、第二項は近接反発、第三項は分子間力、第四項以降は共有結合の動系部分をそれぞれに含むものである。ここで、 ϵ_0 は真空中の誘電率、 z_i は原子iの部分電荷、 e は電気素量、 r_{ij} は原子i, j 間の距離、 f_0 は定数 (41.865 kJ/nm/mol)、 a は反発半径、 b は反発係数、 c は分子間力係数、 D と β は原子対のパラメータである。

共有結合の角度部分を表現するために必要となる三体中心力型関数には3.2.3-2式を用いた。

$$U_{ijk}(\theta_{ijk}, r_{ij}, r_{jk}) = -f_0 \{ \cos[2(\theta_{ijk} - \theta_0)] - 1 \} (k_1 k_2)^{0.5}$$
$$k_1 = \frac{1}{\exp[g_r(r_{ij} - r_m)] + 1}$$

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

3. 2. 3-2

ここで、 θ は粒子間角度、 k は三体相互作用の到達範囲を規程する関数、 g_r と r_m は角度パラメータである。3. 2. 3-2式は、 H_2O や NH_3 等の対称性の低い分子には必須となる。

(b) アンモニウムイオンの作成

基本となるアンモニウムイオンの作成では、N原子周囲にH原子を4つ配位させ、計算されるN-H結合距離が、実験値の1.012 Å (改訂4版化学便覧基礎編2, 1993) を参考としておおよそ1 Åとなるように反発係数及び分子間力係数等 (2-1式の a、b、c、D、 β パラメータ) を調整する。

(c) 塩化アンモニウム結晶の作成

作成したアンモニウムイオンのモデルを用いて、塩化ナトリウム結晶のモデル (Sakuma and Ichiki, 2015) のナトリウムイオンをアンモニウムイオンに置き換える。塩化アンモニウム結晶の格子定数実験値は a 軸で 3.8756 Å (Pilbrow and Spaet, 1967) であるので、格子定数が 3.8756 Å となるように NVT アンサンブル (分子数 N、体積 V、温度 T を制御して圧力の変化を観察する方法) を構成する。扱う原子分子の数は、平成 26 年度の検討と同じく 125 個の単位胞を基本セルとした。ここで、N-H 結合が解離しないように二体間ポテンシャルエネルギーを操作し、さらに、安定化した構造を得るためにアンモニウムイオンの向きをランダムとした上で、各元素並びに二体間ポテンシャルエネルギー及び三体間ポテンシャルエネルギーに関する諸パラメータを調整する。

(d) 作成されたモデルによる物性値評価

以上により作成された塩化アンモニウム結晶のモデルを用いて NPT アンサンブル (分子数、圧力、温度を制御して体積の変化を観察する方法) を構成し、系のエネルギーが安定したときの密度と格子定数を確認する。また、赤外吸収スペクトルにおける代表的な N-H 結合のピークについて、Nyquist and Kage1 (1971) で報告されている実験値との一致を確認する。さらに、作成したアンモニウムイオンモデルの水溶液中への適用性を確認するため、水和エンタルピーの検証を行う。

(e) 各イオン型のスメクタイトの作成

作成したアンモニウムイオンをスメクタイトの層間に組み込み、さらに層間に水分子を付加していく。本モデルでは、スメクタイトの構造式を $(NH_4)_{0.50}Mg_{0.50}Al_{1.50}(OH)_2(Si_4O_{10})$ としており、96 のスメクタイト単位胞を含む。同様にナトリウム型スメクタイトとカリウム型スメクタイトのモデルを作成し、各イオン型のスメクタイトについてスメクタイト結晶層の底面間隔を計算し、XRD 分析結果との一致を確認する。

② 結果と考察

作成したスメクタイトモデルを図 3. 2. 3-2 に示す。本図は、層間に水分子を付加する前の状態でのカリウム型とアンモニウム型を示している。アンモニウムイオンとカリウムイオンはイオン半径が同等

で、どちらもスメクタイト結晶層面の表面酸素六員環の大きさに近いこと、この六員環に入り込むことができると考えられている（中尾・山口，2011）。本モデルにおいても、図3.2.3-2に示すように、どちらの陽イオンもスメクタイト結晶層面の表面酸素六員環の中心部（陽イオンが集中しているスポットに該当）に収まっている。しかし、それぞれの陽イオンの軌跡（図3.2.3-2中の赤い線）を追うと、カリウムイオンに比べてアンモニウムイオンの動きが大きかった。また、このときの底面間隔は、カリウム型に比べてアンモニウム型の方が明らかに広がっていた。これは、カリウムイオンは六員環の中心部に安定して収まって、結晶層と強く静電的に引き合うことができるのに対して、アンモニウムイオンは何かしらの理由によって六員環の中心部周りを振動し、結晶層と静電的に引き合う力が阻害されていると推測される。この理由については明らかにすることはできていないが、アンモニウムイオンのH原子とその立体配置により、アンモニウムイオンと結晶層面の底面酸素との間に相互作用が生じた可能性等が考えられる。

各イオン型のスメクタイト結晶層の底面間隔(d001値)のMD計算結果と、平成26年度に実施したXRD分析結果を表3.2.3-1にまとめた。XRD分析結果では、相対湿度0%の条件では、アンモニウム型はナトリウム型やカリウム型に比べて大きな底面間隔を示す一方で、相対湿度を上昇させて1-水分子層が支配的となる状態で底面間隔を比べると、アンモニウム型はナトリウムやカリウム型に比べて小さい値を示している。これに対して、MD計算でも同じ傾向が得られているが、アンモニウム型の場合、層間の水分子数を0としたときのMD計算値のほうが、相対湿度0%の条件で測定されたXRD分析値より1.3Å程度大きな値を示すこととなった。カリウム型やナトリウム型の場合には、モデル計算値のほうが分析値よりも若干小さいものの、アンモニウム型に比べてよく一致していたことからすると、アンモニウムイオンのモデルや、スメクタイト層間におけるアンモニウムイオンの初期位置の設定などに問題があると考えられる。今後、アンモニウムイオンを構成する原子の部分電荷などについて調査を行い、より適切なパラメータを設定する手法や、モンテカルロ法などを用いて層間イオンの最安定位置を決定する手法を検討する必要がある。

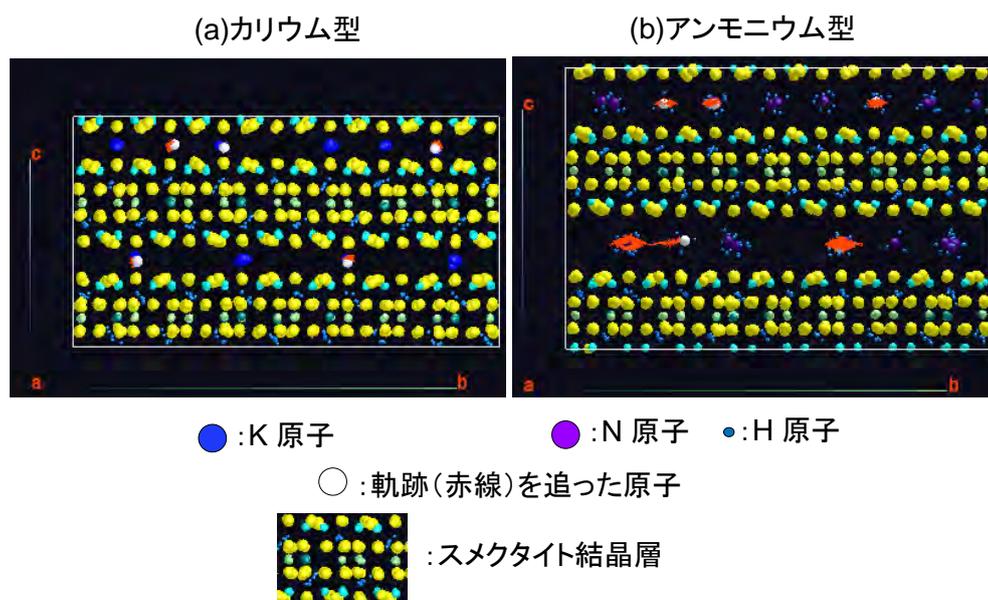


図3.2.3-2 各イオン型のスメクタイトモデル（水分子を付加する前）

表3.2.3-1 底面間隔の比較 (単位はすべてÅ)

イオン型	d001値 (分析結果)		d001値 (計算結果)	
	0-水分子層 (RH0%)	1-水分子層	0-水分子層	1-水分子層
NH ₄ 型	10.63	12.24	11.94	13.12
K型	10.24	12.66	9.77	13.12
Na型	9.91	12.47	9.45	13.27

(2) TRU廃棄物に含まれるアルカリ成分の影響を考慮した硝酸塩化学変遷物の影響評価に関する実験的検討

処分環境におけるアンモニアとアンモニウムイオンの存在割合はpH条件に依存し、そのpH等の化学条件は、廃棄物や処分施設を構成する人工材料等と地下水との反応による影響を受けると考えられる。例えば、HLWやTRU廃棄物の地層処分の研究（核燃料サイクル開発機構，1999；電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構，2005）において設定された地下水のpH条件は弱アルカリ性（pH8.5）であり、このような条件ではアンモニウムイオンが支配的化学種となる。一方、廃棄体の充填材や支保工などとして用いられるセメント系材料からのアルカリ性成分の溶出により形成される高アルカリ性条件では、アンモニアが支配化学種となる。陽イオンであるアンモニウムイオンはスメクタイトに吸着するが、中性化学種であるアンモニアは電荷をもたないため吸着しないと考えられる。平成25年度には、弱アルカリ性条件においてアンモニウムイオンがスメクタイトに吸着する場合を想定し、アンモニウム型スメクタイトの特性について文献調査と実験的検討を行った（日本原子力研究開発機構，2014a）。また、平成26年度には、処分環境が高アルカリ性条件に変化する場合を想定し、高アルカリ性の水溶液に浸漬させた後、回収（以下、この操作を「アルカリ浸漬」とする）したアンモニウム型スメクタイト試料の膨張特性を調べ、浸漬前のアンモニウム型スメクタイトや他のイオン型との比較を行った（日本原子力研究開発機構，2015）。この結果、アルカリ浸漬後のアンモニウム型スメクタイトの膨張特性が浸漬前と同様であったことから、平成26年度のアルカリ浸漬条件では、熱力学的にはアンモニウムイオンの大半はアンモニアに変化すると考えられるにもかかわらず、スメクタイト層間の陽イオンはアンモニウムイオンから変化していないと考えられた。ただし、平成27年度のアルカリ浸漬条件では、高アルカリ性水溶液として1 mol/dm³-水酸化アンモニウム水溶液（pH 12.04）を用いていたため、水酸化物イオンのカウンターとなる陽イオンがアンモニウムイオンのみであり、他の陽イオン（低濃度のプロトンを除く）が存在しない条件であった。上記のセメント系材料によって形成される高アルカリ性条件ではナトリウム、カリウム、カルシウムなどがカウンターイオンとして存在することを考慮すると、処分環境でのアンモニウム型スメクタイトの安定性等の特性を評価するためにはこれら陽イオンの影響を調べる必要がある。そこで、平成27年度の実験的検討では、化学条件が変化した場合として、平成27年度と同じく高アルカリ性であり、かつアルカリ成分であるナトリウムイオンが共存する条件と、ナトリウムイオンが共存するが高アルカリ性ではない条件の下で、アンモニウム型スメクタイトの挙動を調べることにした。

1) 実験の概要

①浸漬実験

浸漬実験は、水酸化ナトリウム水溶液を用いたアルカリ浸漬条件と、塩化ナトリウム水溶液を用いた浸漬条件の二通りとし、以下の手順で行った。

- ・ 平成26年度と同じ手順（日本原子力研究開発機構、2015）で調整したアンモニウム型スメクタイト試料20 mg を、20 cm³の0.01mol/dm³-水酸化ナトリウム水溶液（pH 12.1）、0.01mol/dm³-塩化ナトリウム水溶液（pH 8.9）を入れた遠沈管のそれぞれに投入し、振とう機を用いて200rpmで12時間振とうする。
- ・ 遠心分離機を用いて固液分離を行い、回収した固相をそれぞれ水酸化ナトリウム浸漬試料、塩化ナトリウム浸漬試料とする。

②XRD分析

スメクタイトの底面間隔をX線回折（以下、XRDという）により分析した。XRD分析は定方位法とし、相対湿度を0%から10%刻みで100%まで変化させた相対湿度制御下で行った。定方位試料の作製では、①で得られた浸漬試料10 mgを粉体状にし、200 mm³の脱イオン水中に懸濁させ、20分間超音波分散を行い分散させた後、スライドガラス上に1.8×2.8 cmとなるように均一に塗布して室温で24時間乾燥させた。その他の測定条件は3.2.3(1)項に示したとおりである。

2) 結果と考察

図3.2.3-4に、水酸化ナトリウム浸漬試料、塩化ナトリウム浸漬試料の相対湿度制御下での底面間隔変化を示した。同図には、比較のために、平成26年度に得られたナトリウム型、カリウム型、アンモニウム型のスメクタイト試料及び水酸化アンモニウム水溶液によるアルカリ浸漬試料（以下、水酸化アンモニウム浸漬試料とする）の底面間隔変化をあわせて示している。

平成26年度に考察したように、ナトリウム型、カリウム型、アンモニウム型を比較してみると、ナトリウム型試料の底面間隔は相対湿度とともに階段状に増加し、低い相対湿度条件では1.0 nm前後、相対湿度30～50%の領域で1.25 nm前後、80%では1.55 nm 前後となった。カリウム型は相対湿度とともにS字型に増加し、低い相対湿度条件ではナトリウム型と同様に1.0 nm前後、相対湿度40%以上の条件では1.25 nm前後であった。底面間隔は層間の水分子層の数によって、およそ1.0 nm(0-水分子層)、1.25 nm(1-水分子層)、1.55 nm(2-水分子層)、1.88 nm(3-水分子層)と変化する(結晶性膨潤)ことからすると、ナトリウム型の層間は20～30%を境に0-水分子層から1-水分子層が支配的な状態に、60～70%を境に1-水分子層から2-水分子層が支配的な状態に変化し、カリウム型では相対湿度40%程度を境として0-水分子層から1-水分子層が支配的な状態に変化したと考えられる。一方、アンモニウム型試料と水酸化アンモニウム浸漬試料の底面間隔は、どちらにも低い相対湿度条件で底面間隔の増加がみられ、10～20%で1.1～1.2 nm程度に達した。それ以上の相対湿度条件では僅かに増加する傾向が見られ、どちらも相対湿度80%の条件では1.2 nm前後となっていた。これより、アンモニウム型の層間は、低い相対湿度条件で0-水分子層から1-水分子層に変化し、広い相対湿度条件（20～80%）において1-水分子層が支配的となること、また、1-水分子層が支配的であるときの底面間隔はナトリウムやカリウム型に比べてわずかに小さい値を示すことがわかった。水酸化アンモニウム浸漬試料の膨張挙動は上記のアンモニウム型と同様であり、高アルカリ性条件下においてもスメクタイト層間の陽イオンはアン

モニウムイオンから変化していないと考えられる。

これらに対して、平成27年度測定された塩化ナトリウム浸漬試料の底面間隔変化は、相対湿度0～50%の条件ではアンモニウム型や水酸化アンモニウム浸漬試料と同様であるが、60%以上の条件では相対湿度が上昇するに伴いナトリウム型に近づく傾向が見られ、また、水酸化ナトリウム浸漬試料の場合は全条件においてナトリウム型とほぼ同様であった。このように、同じナトリウム濃度の水溶液に浸漬されたスメクタイト試料で底面間隔変化に相違が見られた理由としては、塩化ナトリウム浸漬試料の層間ではもともとあったアンモニウムイオンと浸漬によって取り込まれたナトリウムイオンが混在しているが、水酸化ナトリウム浸漬試料の層間ではアンモニウムイオンの大半がナトリウムイオンに置換されていたためと考えられる。また、浸漬に用いた水溶液のナトリウム濃度が等しいにもかかわらず、層間のイオン交換挙動に上記のような違いが生ずる理由としては、pH条件の相違により水溶液中のアンモニウムイオン／アンモニアの分配が異なるため、層間と水溶液間でのナトリウムイオンとアンモニウムイオンとのイオン交換反応における化学的親和度が異なるためと考えられる。つまり、塩化アンモニウム水溶液のような中性条件では、イオン交換が進むと水溶液中のアンモニウムイオン濃度が上昇し、速やかにイオン交換反応の平衡状態に近づくことにより反応が停止する方向に向かうこととなる。一方、水酸化ナトリウム水溶液のような高アルカリ性条件では、層間にあったアンモニウムイオンがイオン交換によって水溶液中に放出されるとともにアンモニアに変化するため、水溶液中のアンモニウムイオン濃度が上昇することがなく、イオン交換平衡状態に近づかないことにより反応が進み続けると考えられる。今後、このような可能性について、浸漬後の層間のアンモニウムイオンを直接測定する手法などを検討する必要がある。

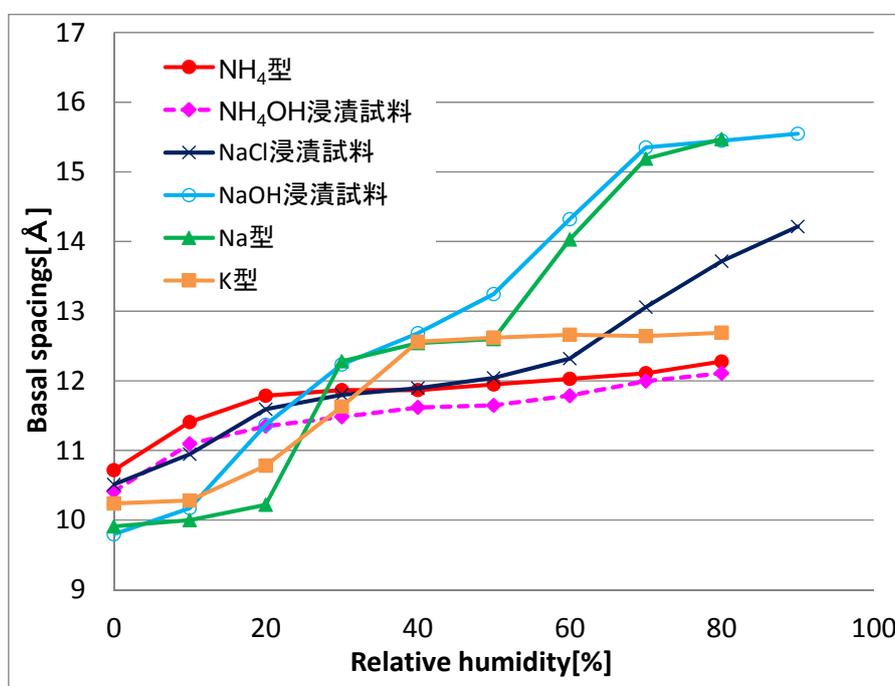


図3. 2. 3-3 各イオン型のスメクタイト試料の相対湿度制御下での底面間隔測定値

3.2.4 廃棄物由来の影響因子の放射性核種への影響評価

3.1節で述べたとおり、TRU廃棄物に含まれており、HLWとの共処分において核種移行挙動に影響を及ぼすと考えられる因子として、TRU廃棄物に含まれる硝酸塩や有機物、そして処分施設のセメントなどが考えられる。このうち、核種移行に及ぼす硝酸塩の影響評価については、平成19年度から平成24年度にかけて、経済産業省資源エネルギー庁の委託事業「硝酸塩処理・処分技術高度化開発(H19～H24)」(日本原子力研究開発機構、2013)及び平成25年度の本事業(日本原子力研究開発機構、2014)において実施してきた。その結果、テクネチウムは窒素の酸化還元に鋭敏であるものの、系の酸化還元電位を用いた熱力学計算結果が実測値とよく一致すること、パラジウムなど一部の元素では硝酸が還元されて生成すると考えられるアンモニアと強く錯生成して溶解度が著しく増大することなどを確認した。平成26年度は、影響因子としてTRU廃棄物に含まれる有機物を対象とし、核種移行に及ぼす影響の評価に着手した。候補となる有機物を抽出し、核種移行に及ぼす影響を概括的に調査した上で、実験的な調査を開始した(日本原子力研究開発機構、2015)。今年度は、平成26年度に引き続き核種移行に及ぼす有機物の影響を実験的に調査した。

(1) グルコン酸共存下におけるジルコニウム(IV)溶解度実験

1) はじめに

平成26年度の調査(日本原子力研究開発機構、2015)において、TRU廃棄物に含まれる有機物として最も処分の核種移行挙動評価に関する基盤データの充実が必要と判断されたものがイソサッカリン酸(ISA)であった。したがって、金属イオンのISAとの錯生成について、熱力学データの導出を試みるとともに、錯生成のメカニズムについて考察を行うことを最終目標とした。TRU廃棄物処分の性能評価の優先度を考慮して、対象とする金属イオンは酸化数が4(以下、4価)のものとし、酸化還元の影響を受けず、非放射性核種が使用可能で、かつISA錯体の熱力学データの報告値がないジルコニウムを用いることとした。しかしISAは新たに合成する必要があることから、予備的な検討として、市販されていて入手しやすく、ISAの類似化合物として知られている(Gaona et al., 2008)グルコン酸(GLU)を用い、GLU共存下におけるジルコニウムの溶解度を測定するとともに、コロイド生成に関する調査を実施した。ISA及びグルコン酸の構造を図3.2.4-1に示す。平成26年度は酸性～弱アルカリ性水溶液(pH 4～9)におけるジルコニウムの溶解度に及ぼすGLUの影響を実験的に調査した(日本原子力研究開発機構、2015)。今年度は、よりpHの高い水溶液(pH 10～12)において、ジルコニウムの溶解度に及ぼすGLUの影響を調査し、平成26年度の結果と併せてより詳細な考察を行った。

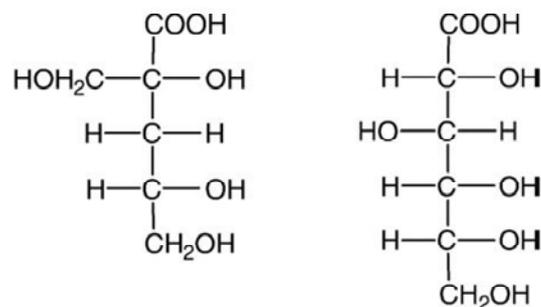


図 3.2.4-1 イソサッカリン酸及びグルコン酸の構造式

2) 溶解度測定実験

溶解度測定実験は、平成26年度と同様、不飽和法により実施した。グルコン酸を含む試料溶液に4価ジルコニウムの非晶質水酸化物 ($Zr(OH)_4(am)$) を添加した。ポリプロピレン製試験管に $Zr(OH)_4(am)$ と所定量のグルコン酸母溶液、塩酸または水酸化ナトリウム水溶液、塩化ナトリウム及び超純水を加えて試料溶液とした。このとき、試料溶液のグルコン酸濃度は $10^{-3} \sim 10^{-1} M$ ($\equiv mol/dm^3$)、水素イオン濃度指数 ($pH_c = -\log [H^+]$) は10~12、塩化ナトリウム濃度は0.5 Mとし、試料溶液のイオン強度 (I) を $I \approx 0.5$ と考えた。なお、実験を通して、超純水は予めアルゴンガスで脱気したものを用いた。

溶解度測定実験は室温で実施し、試料溶液は3~4日に1回程度の間隔で攪拌した。所定の期間後、各試料溶液の pH_c を測定した。その後、上澄み液を孔径0.45 μm のシリンジフィルター及び分画分子量10⁴ (10 kDa, 孔径約3 nm) の限外ろ過フィルターを用いてろ過を行い、誘導結合プラズマ質量分析計 (ICP-MS ; ELAN DRC II, PerkinElmer) を用いて、ジルコニウム濃度を定量した。このとき、ジルコニウムの検出限界はおよそ $1 \times 10^{-8.5} M$ であった。

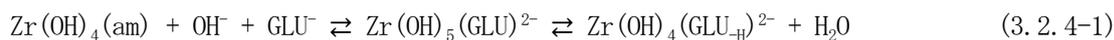
固相分析用の試料溶液はそれぞれ100 mlとし、上述の溶解度測定用の試料溶液と同様、不飽和法により調製した。Ar雰囲気グローブボックス内で所定の期間、静置および攪拌した後、遠心沈降により固相を分離した。常温において固相を乾燥させた後、熱重量および示差熱分析装置 (DTG-60/60H, 島津製作所社製) を用いて固相の熱分析を行った。熱分析は大気雰囲気にて25 $^{\circ}C$ から600 $^{\circ}C$ の温度領域にて行い、昇温速度は10 $^{\circ}C/min$ または5 $^{\circ}C/min$ とした。また、試料溶液の上澄み液のゼータ電位を、ゼータサイザーナノZS (Malvern) を用いて測定した。

ICP-MS、熱分析及びゼータ電位測定以外の作業は、すべてアルゴン雰囲気グローブボックス内 ($O_2 < 0.1 ppm$) にて行った。

3) 結果と考察

① 溶解度測定結果

試料溶液をグローブボックス内で16週間静置、攪拌した後の溶存ジルコニウム濃度の測定結果 (10 kDa通過成分) を図3.2.4-2(a)に示す。酸性~弱アルカリ性 (pH 4~9) の結果は、平成26年度に取得した値 (日本原子力研究開発機構、2015) である。酸性~弱アルカリ性領域では、ジルコニウム溶解度の pH 依存性はほとんど見られなかったが、 pH 10以上のアルカリ性 pH 領域では、 pH とともにジルコニウム溶解度が増加する傾向が見られている。グルコン酸の初期濃度が $10^{-3} \sim 10^{-2} M$ の領域では、溶解度の pH に対する傾きはおよそ1となった。酸性~弱アルカリ性領域では、支配的な溶存種として $Zr(OH)_4(GLU)_2^{2-}$ が考えられた (日本原子力研究開発機構、2015) が、アルカリ性 pH 領域では、溶解度が pH とともに上昇したため、さらに水酸化物イオンが配位した錯体種である $Zr(OH)_5(GLU)_n^{(n+1)-}$ またはジルコニウムと配位しているグルコン酸のヒドロキシル基のプロトンが解離した錯体種である $Zr(OH)_4(GLU_{-H})_n^{2n-}$ が支配的な化学種として考えられる。ただし、溶解度実験の結果から両者の区別を判断することは困難であり、本研究では4価トリウムなど既往研究 (例えば、Colas et al., 2011) で指摘されている後者の化学種の存在を仮定した。また、ジルコニウム溶解度のグルコン酸濃度依存性を図3.2.4-3(a)に示す。弱酸性から中性 pH 領域では、ジルコニウム溶解度のグルコン酸濃度に対する傾きはおよそ2であったが、アルカリ性 pH 領域、特に、 pH 12.1ではその傾きは緩やかになる傾向が表れた。グルコン酸の初期濃度が0.003 ~0.1 Mの範囲では、傾き1であることから、上式と合わせてアルカリ性 pH 領域における支配的なジルコニウム-グルコン酸錯体の錯生成反応は下式と考えられる。



一方、16週後のグルコン酸共存下におけるジルコニウム溶解度の0.45 μm フィルターろ過後の値を図3.2.4-2(b)に示す。0.45 μm フィルター通過成分は、10 kDaフィルター通過成分より概ね多く、また、酸性～弱アルカリ性領域の10 kDaフィルター通過成分では見られなかった溶解度のpH依存性がpH 5付近から現れた。アルカリ性pH領域においてもその影響は顕著であり、グルコン酸初期濃度が 10^{-3} Mの場合、10 kDa通過成分と比較して2桁程度高い値を示す結果となった。一方、グルコン酸初期濃度が 10^{-2} M以上では、0.45 μm 通過成分は飽和するような傾向が見られた。

10 kDa通過成分より0.45 μm 通過成分が明らかに多くなったことから、10 kDa (孔径約3 nm) から0.45 μm の範囲においてジルコニウム-グルコン酸のコロイド種が存在していることが示唆された。各pHにおける0.45 μm 通過成分のグルコン酸濃度依存性を表した結果を図3.2.4-3(b)に示す。図中プロットの傾きは、10 kDa通過成分と比較してより緩やかであり、コロイド種は $\text{Zr}(\text{OH})_4(\text{GLU})_2^{2-}$ や $\text{Zr}(\text{OH})_4(\text{GLU}_{\text{H}})^{2-}$ とは異なる化学量論比であると考えられた。

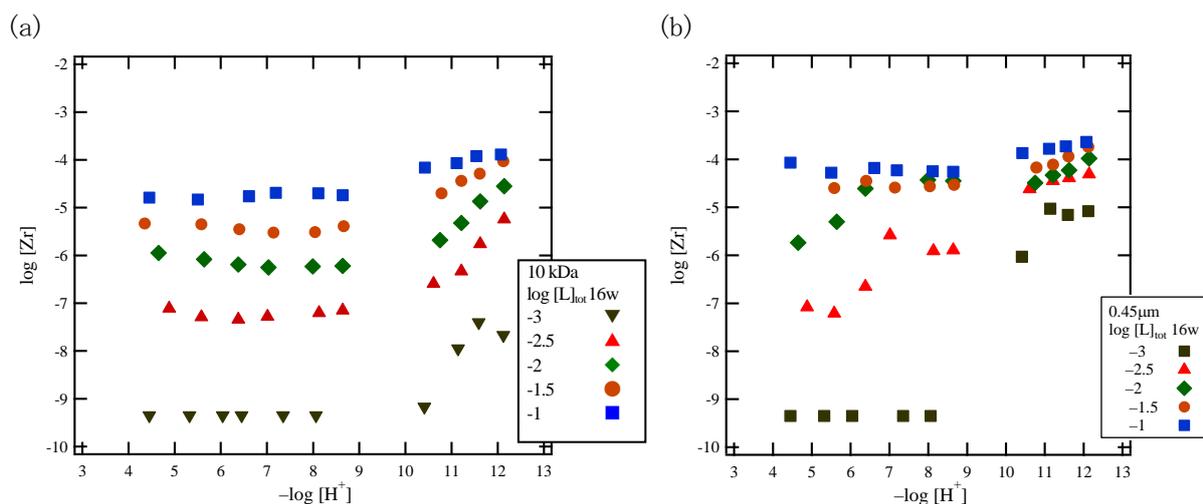


図 3.2.4-2 GLU 共存下におけるジルコニウム溶解度 (16 週後、(a) 10 kDa、(b) 0.45 μm 通過成分)

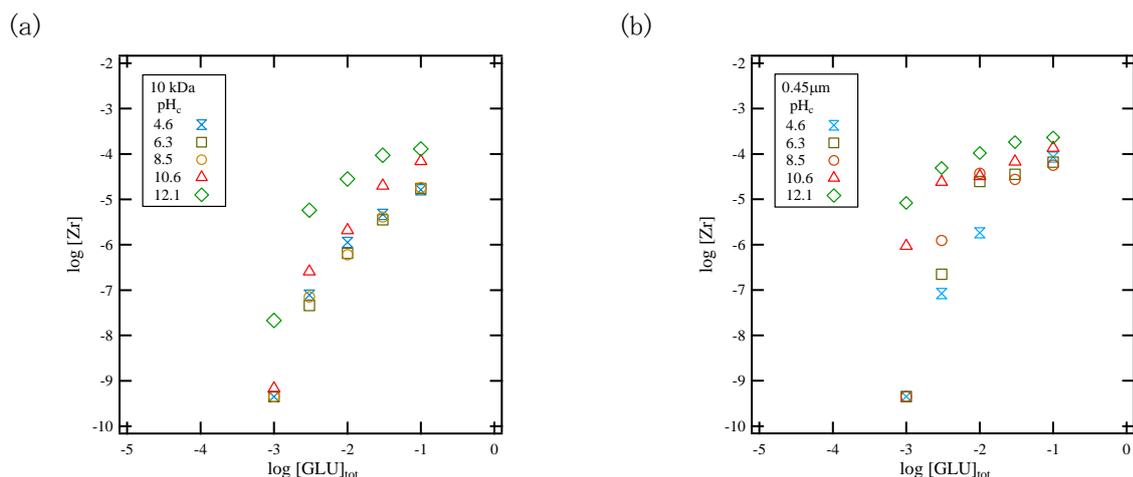


図 3. 2. 4-3 ジルコニウム溶解度の GLU 濃度依存性 ((a) 10 kDa、(b) 0.45 μm 通過成分)

② グルコン酸共存下での固相分析

図3. 2. 4-2(b)に示すとおり、GLUの初期濃度が0.1 M付近では、ジルコニウム溶解度のGLU濃度に対する傾きは小さくなる傾向が見られており、特にpH 12.1ではその傾向が顕著に表れている。同様の傾向は、4価トリウムとGLUの溶解度でも見られているが (Colas et al., 2013)、詳細な検討には至っていない。そこで、本研究では、後述の固相の熱分析を行い、溶解度を支配する固相の化学状態について検討を行うこととした。

ジルコニウム水酸化物 ($Zr(OH)_4(s)$) およびグルコン酸ナトリウム ($Na(GLU)$; $C_6H_{11}O_7Na$) の熱重量および示差熱分析を行った結果からは、以下の反応のものと思われるピークが確認された。

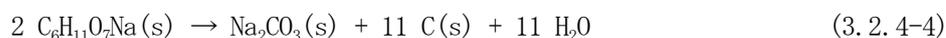
- ・ ジルコニウム水酸化物における100~250 $^{\circ}C$ 付近にかけての緩やかな重量減少と吸熱のピーク： $Zr(OH)_4(s)$ の脱水反応



- ・ ジルコニウム水酸化物における450 $^{\circ}C$ における重量変化を伴わない発熱のピーク：酸化ジルコニウムの結晶化反応



- ・ グルコン酸ナトリウムにおける200 $^{\circ}C$ 付近での急激な重量減少および吸熱のピーク：グルコン酸ナトリウムの分解反応



GLU初期濃度 10^{-6} 、 10^{-3} および 10^{-1} Mにおいて、異なるpH条件下で調製、静置した固相を取り出し、乾燥させた後、熱重量および示差熱分析を行った。GLU初期濃度が 10^{-3} および 10^{-1} Mの結果を図3. 2. 4-4に示す。GLU初期濃度が 10^{-6} および 10^{-3} Mの場合は、図3. 2. 4-4(a)に示すとおり、グルコン酸ナトリウムにおける200 $^{\circ}C$ 付近での急激な重量減少および吸熱のピークが見られなかったことから、固相はジルコニウム水酸化物であると考えられる。一方、GLU初期濃度が 10^{-1} Mの場合は、図3. 2. 4-4(b)に示すとおり、200 $^{\circ}C$ 付近における重量減少と吸熱ピークが見られたこと、酸化ジルコニウムの結晶化反応やジルコニウム水酸化物の脱水反応と思われるピークも確認されたことから、固相にはからグルコン酸塩もジルコニウム水酸化物も含まれている、すなわち $[Na^+ \cdot Zr(OH)_4(GLU)](s)$ で表されるようなGLUを含

んだ化合物である可能性が考えられた。

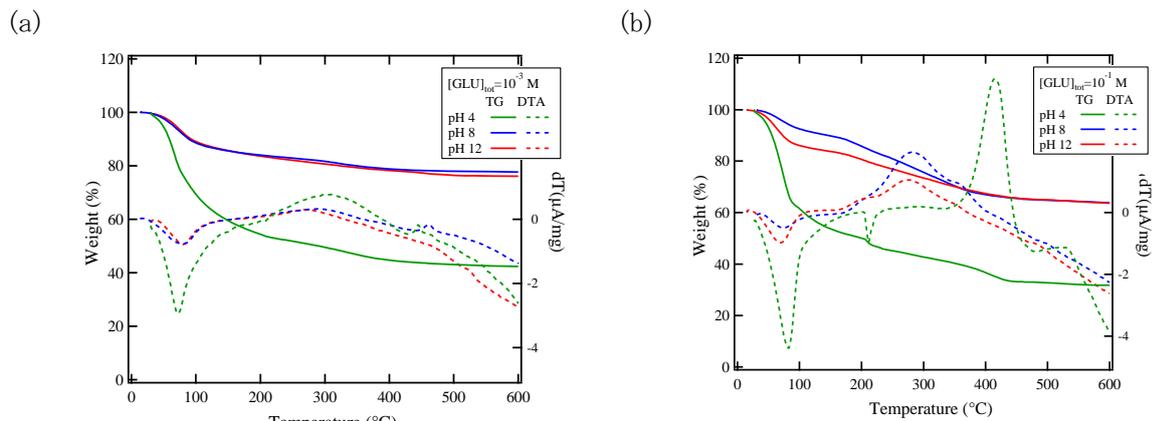


図 3. 2. 4-4 GLU 共存下におけるジルコニウム固相の熱分析結果
 ([GLU]_{ini} = (a) 10⁻³ M、(b) 10⁻¹ M)

③ 熱力学データの導出

前節で述べた溶存種および固相分析の結果から、10 kDa フィルターろ過後の GLU 共存下におけるジルコニウム溶解度に対して熱力学データに基づく解析を行った。溶解度の pH および GLU 濃度に対する傾きから、支配的なジルコニウム-GLU 錯体として $Zr(OH)_4(GLU)_2^{2-}$ および $Zr(OH)_4(GLU_{-H})^{2-}$ を仮定した。また、他の溶存化学種としてジルコニウム加水分解種 ($Zr(OH)_n^{(4-n)}$, $n = 1 - 6$)、溶解度制限固相として非晶質ジルコニウム水酸化物 ($Zr(OH)_4(am)$) 及び $[Na^+ \cdot Zr(OH)_4(GLU)^-](s)$ を仮定した。

図 3. 2. 4-2 に示したジルコニウム溶解度に対して、 $Zr(OH)_4(GLU)_2^{2-}$ および $Zr(OH)_4(GLU_{-H})^{2-}$ の錯生成定数をパラメータとし最小二乗法による回帰分析を行った。回帰分析の結果の例を図 3. 2. 4-5 に、得られた熱力学データを表 3. 2. 4-1 に示す。上式に示すジルコニウム-GLU 錯体および固相を仮定することにより、実験値を概ね再現できることが分かった。

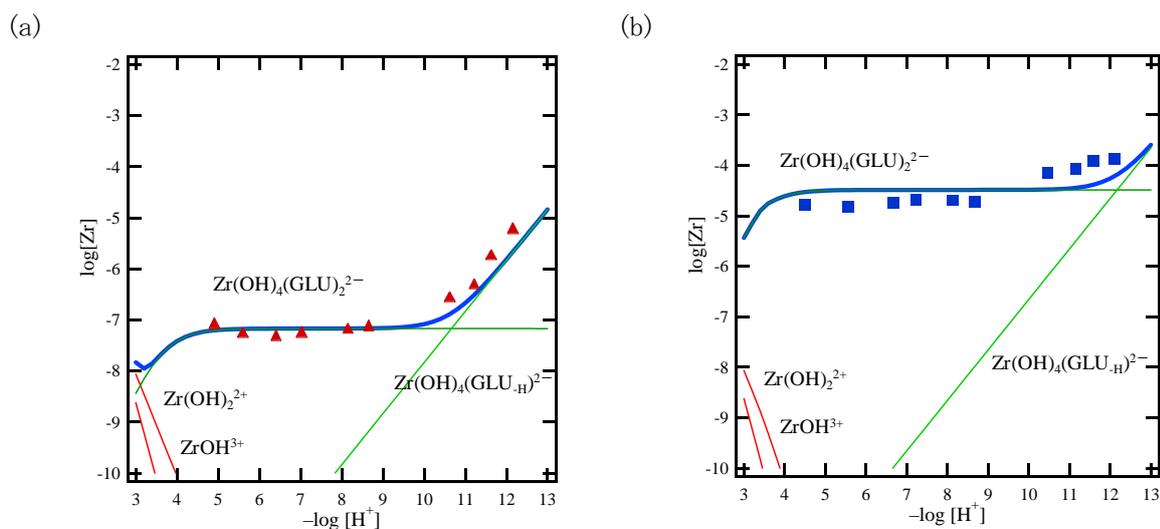


図 3. 2. 4-5 GLU 共存下における Zr 溶解度の熱力学計算結果の例
 ([GLU]_{ini} = (a) 3 × 10⁻³ M、(b) 10⁻¹ M)

表 3. 2. 4-1 ジルコニウム-GLU 錯体および固相の熱力学データ ($I = 0$)

Reaction	$\log K^{\theta}$	Reference
$\text{Zr(OH)}_4(\text{am}) \rightleftharpoons \text{Zr}^{4+} + 4 \text{OH}^-$	-56.9	Sasaki et al., 2006
$[\text{Na}^+ \cdot \text{Zr(OH)}_4(\text{GLU})^-] (\text{s})$ $\rightleftharpoons \text{Na}^+ + \text{Zr}^{4+} + 4 \text{OH}^- + \text{GLU}^-$	-58.4 ± 0.2	This study
$\text{Zr(OH)}_4(\text{am}) \rightleftharpoons \text{ZrOH}^{3+} + 3 \text{OH}^-$	-42.6	Sasaki et al., 2008
$\text{Zr(OH)}_4(\text{am}) \rightleftharpoons \text{Zr(OH)}_2^{2+} + 2 \text{OH}^-$	-30.2	Sasaki et al., 2008
$\text{Zr(OH)}_4(\text{am}) \rightleftharpoons \text{Zr(OH)}_3^+ + \text{OH}^-$	-21.1	Sasaki et al., 2008
$\text{Zr(OH)}_4(\text{am}) \rightleftharpoons \text{Zr(OH)}_4(\text{aq})$	-13.8	Sasaki et al., 2008
$\text{Zr(OH)}_4(\text{am}) + \text{OH}^- \rightleftharpoons \text{Zr(OH)}_5^-$	-10.4	Sasaki et al., 2008
$\text{Zr(OH)}_4(\text{am}) + 2 \text{OH}^- \rightleftharpoons \text{Zr(OH)}_6^{2-}$	-8.9	Sasaki et al., 2008
$\text{Zr(OH)}_4(\text{am}) + 2 \text{GLU}^- \rightleftharpoons \text{Zr(OH)}_4(\text{GLU})_2^{2-}$	-2.8 ± 0.1	This study
$\text{Zr(OH)}_4(\text{am}) + \text{OH}^- + \text{GLU}^- \rightleftharpoons \text{Zr(OH)}_5(\text{GLU})^{2-}$ $\rightleftharpoons \text{Zr(OH)}_4(\text{GLU-H})^{2-} + \text{H}_2\text{O}$	-0.4 ± 0.2	This study

(2) イソサッカリン酸共存下におけるジルコニウム(IV)溶解度実験

1) イソサッカリン酸の合成

平成26年度の調査結果（日本原子力研究開発機構、2015）を基に、4価金属イオンの溶解度に及ぼすISAの影響を調査することとした。

ISAの合成は、既報文献（Whistler and BeMiller, 1963）の合成方法に従って行った。超純水に α ラクトース1水和物（ $\text{C}_{12}\text{H}_{22}\text{O}_{11} \cdot \text{H}_2\text{O}$ 、和光純薬工業）を溶解し、攪拌しながら加熱した。さらに、水酸化カルシウム（ Ca(OH)_2 、和光純薬工業）を添加し、窒素ガスによるバブリングを行った。25℃において3日間、自然冷却させた後、再び10時間加熱し、吸引ろ過により沈殿をろ別した。ろ液を冷蔵庫内で1日間冷却し、得られた結晶沈殿を超純水で数回洗浄し、乾燥させた。さらに、高温と低温の超純水を用いた再結晶化により沈殿物の精製を行い、白色粉末を得た。

得られた白色粉末のXRDスペクトルを図3. 2. 4-6に示す。XRDのピークは既往文献（Rai et al., 2004）において報告されているイソサッカリン酸カルシウム（ Ca(ISA)_2 ）のピーク位置と良く一致し、 Ca(ISA)_2 が合成されたことが示された。

イソサッカリン酸カルシウム粉末を0.35 M炭酸ナトリウム溶液（ Na_2CO_3 、和光純薬工業）に添加し、水酸化ナトリウム水溶液を用いてpHを12に調整した。溶液をよく攪拌し、1日間静置した後、遠心沈降によって沈殿を取り除いた。カルシウムは炭酸カルシウムとして沈殿するため、上記の操作によりイソサッカリン酸ナトリウム母溶液（0.5 M）を得た。

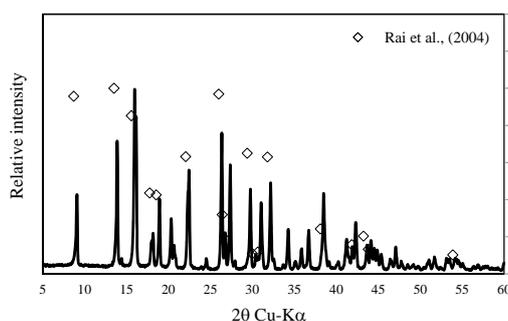


図 3. 2. 4-6 合成した Ca(ISA)_2 の XRD スペクトル

2) 溶解度実験

ISA共存下におけるジルコニウム溶解度試料溶液の調製は、GLUと場合と同様、不飽和法により行った。酸性から中性pH領域における試料溶液の調製は大気雰囲気下で行い、中性からアルカリ性pH領域における試料溶液の調製はアルゴン雰囲気グローブボックス内 ($O_2 < 0.1 \text{ ppm}$) にて行った。ジルコニウムのアモルファス水酸化物固相は、塩化ジルコニウムを超純水に溶解し、水酸化ナトリウム水溶液を加えて沈殿させることにより得た。得られた沈殿は超純水により数回洗浄した後、少量の超純水で懸濁させポリプロピレン製試験管に分配した。この試験管に所定量のISA母溶液、塩酸または水酸化ナトリウム水溶液、塩化ナトリウムおよび超純水を加えて全量10mlの試料溶液とした。このとき、試料溶液のISA濃度は $10^{-3} \sim 10^{-1} \text{ M}$ 、pHcは2~12.5、イオン強度は0.5となるように調整した。所定の期間攪拌した後、各試料溶液のpHcを測定し、上澄み液を限外ろ過フィルター (10 kDa, 孔径約3nm) でろ過した。さらに、試料溶液内に生成し得るコロイド種の影響を調べるため、各試料溶液の上澄み液を0.5 ml採取し、 $0.45 \mu\text{m}$ シリンジフィルターによりろ過した。ろ液中のジルコニウム濃度は、ICP-MSを用いて定量した。また、遠心沈降により固相を分離し、常温において乾燥させた後、熱重量および示差熱分析装置を用いて固相の熱分析を行った。熱分析は大気雰囲気にて25~600 °Cの温度範囲で行い、昇温速度は10 °C/minとした。

3) 結果と考察

実験開始から14週後のISA共存下における溶解度の10 kDa通過成分の値を図3. 2. 4-7(a)に示す。溶解度のpH依存性は、ISAの初期濃度によって異なる結果となった。この結果を考察し、ジルコニウムの場合も4価アクチノドのISA錯体に関する既往研究で指摘されているように、ISAだけでなく水酸化物イオンも配位した3元系の錯体種が支配的な溶存種である可能性が示唆された。

弱酸性から中性pH領域での溶解度のpH依存性は、前節で示したGLUのそれとは大きく異なっている。溶解度のpH依存性から、ジルコニウム-OH-GLUの3元系錯体では4つと考えられた水酸化物イオンの数は、ジルコニウム-OH-ISAの3元系錯体では、1つ少ない3つである可能性が考えられた。一方、アルカリ性pH領域では、GLUの場合と同様、溶解度はpHに対しておよそ傾き1で増加しており、水酸化物イオンが配位した錯体種またはジルコニウムと配位しているISAのヒドロキシル基のプロトンが解離した可能性が考えられた。溶解度実験の結果から両者の区別を判断することは困難であり、本研究ではGLUの場合と同様、支配的な溶存種として、ISAのヒドロキシル基からプロトンが解離した化学種の存在を仮定した。以上より、ISA錯体として $Zr(OH)_3(ISA)_2^{(n-1)-}$ ($n = 2 - 4$) (酸性水溶液)、 $Zr(OH)_4(ISA)_2^{2-}$ (中性付近) 及び $Zr(OH)_4(ISA)(ISA_H)^{3-}$ (アルカリ性水溶液) を仮定した。

また、pH 5および7で熟成した固相の熱重量分析および示差熱分析の結果からは、特にISAの初期濃度が 10^{-1} M など高い場合において、図3. 2. 4-8に示すとおり $Ca(ISA)_2(s)$ と類似のピークが検出されたことから、 $[Na^+ \cdot Zr(OH)_4(ISA)](s)$ で表されるようなISAを含んだような化合物が固相として存在している可能性を示唆していると考えられた。

前述のとおり仮定したISA錯体の熱力学データを、前項で述べたGLUの場合と同様に導出した。回帰分析の結果の例を図3. 2. 4-9に、得られた熱力学データを表3. 2. 4-2に示す。 $Zr(OH)_3(ISA)_4^{3-}$ の錯生成定数については、最小二乗計算が収束しなかったため、寄与が小さく支配的な溶存化学種ではないと判断した。これにより、計算値は概ね実験値を再現したものの、特に酸性水溶液中では実験値と計算値の不一致が目立った。

また、表3.2.4-2で得られた熱力学データを、表3.2.4-1に示すGLU錯体と比較すると、中性pH領域で支配的な $Zr(OH)_4(ISA)_2^{2-}$ と $Zr(OH)_4(GLU)_2^{2-}$ の錯生成定数の値は、いずれも $\log K^0 = -2.8 \pm 0.1$ でよい一致を示した。ISAを含む固相 ($[Na^+ \cdot Zr(OH)_4(ISA)](s)$) の溶解度積として求められた値もGLUのそれとほぼ同じ値を示した。このため、ジルコニウムに対するISAおよびGLUの錯生成能は同程度であると考えられた。ただし、ジルコニウム-GLU錯体では、ISAの場合に見られたようなOHの数の4より少ない錯体種は確認できなかった。

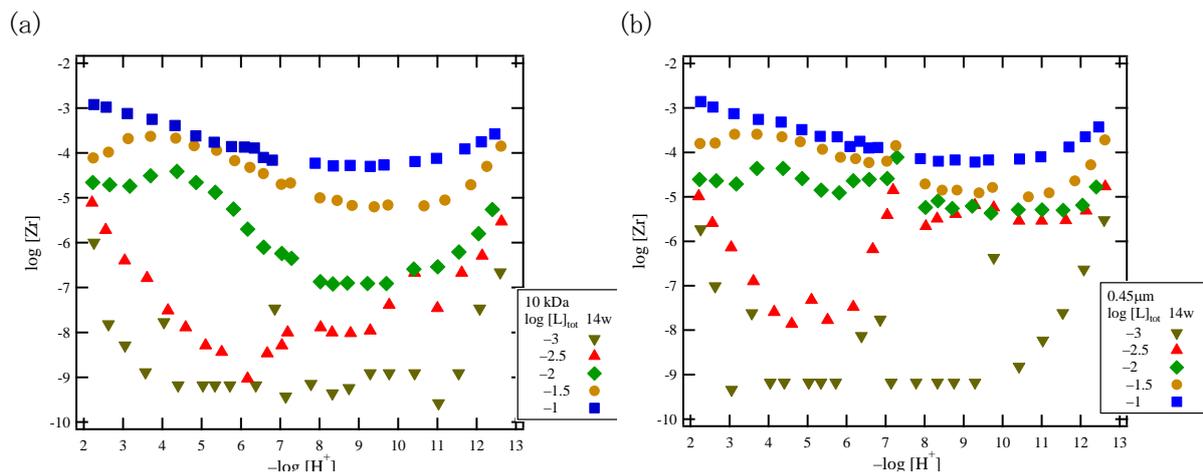


図 3.2.4-7 ISA 共存下におけるジルコニウム溶解度
(14 週後、(a) 10 kDa、(b) 0.45 μm 通過成分)

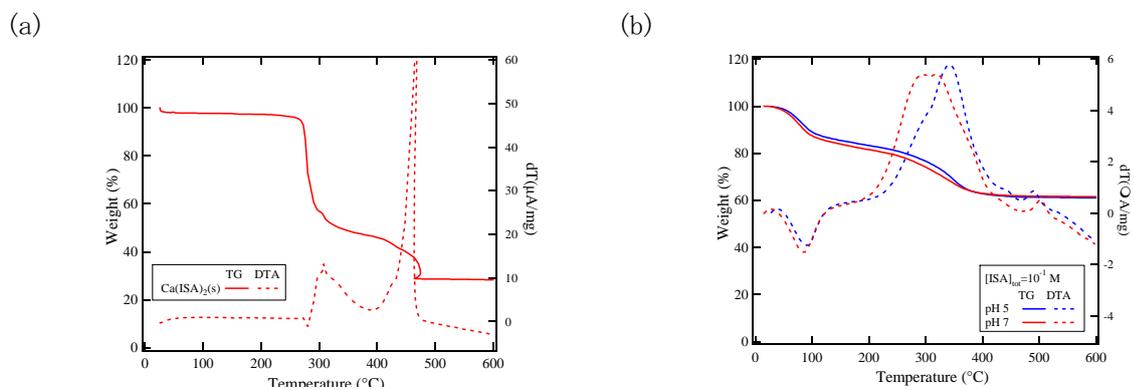


図 3.2.4-8 ISA 共存下におけるジルコニウム固相の熱分析結果の例
(a) イソサッカリン酸カルシウム、(b) $[ISA]_{ini} = 10^{-1} M$)

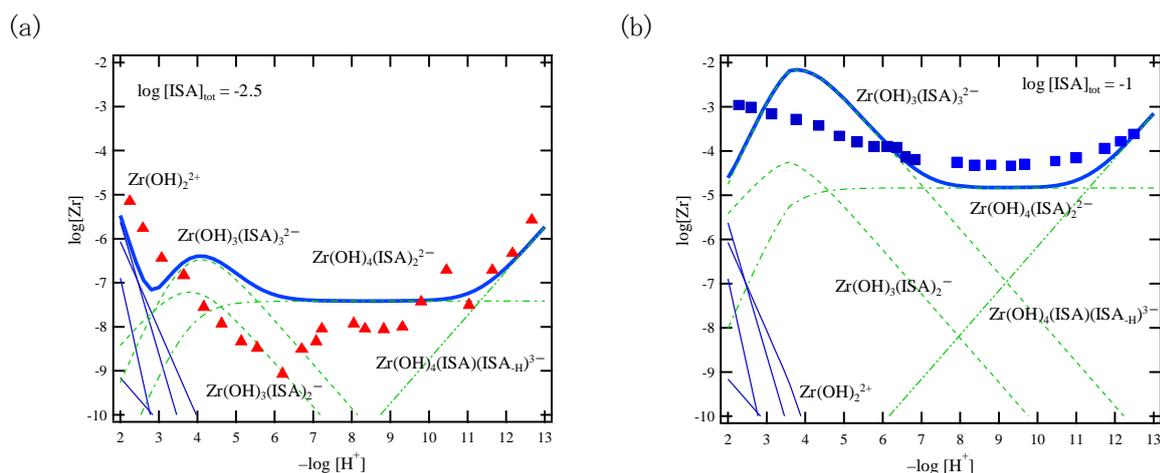


図 3.2.4-9 ISA 共存下における Zr 溶解度の熱力学計算結果の例
 ([ISA]_{ini} = (a) 3×10⁻³ M、(b) 10⁻¹ M)

表 3.2.4-2 ジルコニウム-ISA 錯体および固相の熱力学データ (I = 0)

Reaction	log <i>K</i> ⁰	Reference
Zr(OH) ₄ (am) ⇌ Zr ⁴⁺ + 4 OH ⁻	-56.9	Sasaki et al., 2006
[Na ⁺ ·Zr(OH) ₄ (ISA) ⁻](s) ⇌ Na ⁺ + Zr ⁴⁺ + 4 OH ⁻ + ISA ⁻	-58.5±0.2	This study
Zr(OH) ₄ (am) ⇌ ZrOH ³⁺ + 3 OH ⁻	-42.6	Sasaki et al., 2008
Zr(OH) ₄ (am) ⇌ Zr(OH) ₂ ²⁺ + 2 OH ⁻	-30.2	Sasaki et al., 2008
Zr(OH) ₄ (am) ⇌ Zr(OH) ₃ ⁺ + OH ⁻	-21.1	Sasaki et al., 2008
Zr(OH) ₄ (am) ⇌ Zr(OH) ₄ (aq)	-13.8	Sasaki et al., 2008
Zr(OH) ₄ (am) + OH ⁻ ⇌ Zr(OH) ₅ ⁻	-10.4	Sasaki et al., 2008
Zr(OH) ₄ (am) + 2 OH ⁻ ⇌ Zr(OH) ₆ ²⁻	-8.9	Sasaki et al., 2008
Zr(OH) ₄ (am) + 2 ISA ⁻ ⇌ Zr(OH) ₃ (ISA) ₂ ²⁻ + OH ⁻	-11.6±0.9	This study
Zr(OH) ₄ (am) + 3 ISA ⁻ ⇌ Zr(OH) ₃ (ISA) ₃ ²⁻ + OH ⁻	-8.5±0.2	This study
Zr(OH) ₄ (am) + 2 ISA ⁻ ⇌ Zr(OH) ₄ (ISA) ₂ ²⁻	-2.8±0.1	This study
Zr(OH) ₄ (am) + OH ⁻ + 2 ISA ⁻ ⇌ Zr(OH) ₅ (ISA) ₂ ³⁻ ⇌ Zr(OH) ₄ (ISA)(ISA _H) ₃ ³⁻ + H ₂ O	-1.2±0.2	This study

3.3 多様な廃棄物の影響を考慮した共処分概念案の構築

諸外国においてもわが国のTRU廃棄物に相当する廃棄物とHLWとの共処分概念を具体的に提示している国がある。多様な廃棄物影響を考慮した共処分概念を構築するにあたり、諸外国の検討例の調査結果を基に共処分概念の構築への適用方策を提示する。

平成25年度は、わが国のTRU廃棄物に相当する廃棄物とHLWとの共処分概念を具体的に提示している国を対象に、共処分概念の検討例について調査を行った。調査の対象とした国は、スイス、フランス、ベルギー及び英国であった。各国ともにHLWとTRU廃棄物の処分施設の熱、水理、力学、化学の観点からの相互作用を低減させるために、処分トンネルを分け、数百メートルの離間距離をとる概念が示されていた。具体的には、TRU廃棄物処分施設からの高pHプルームの影響、HLWの発熱の影響について検討が実施されていた。

平成26年度は、平成25年度に調査した処分概念について、性能評価事例の調査を行い、共処分概念の構築に反映できる評価手法及び技術を抽出した。多様な廃棄物の影響を考慮した共処分概念案の構築においては、適切な共処分概念の検討手法の調査を行うとともに、汎用のマルチフィジックス解析コードであるCOMSOL Multiphysics®(以下、「COMSOL」, <http://www.kesco.co.jp/comsol/>)の熱解析への適用性を検討した。諸外国での共処分概念構築における評価事例として、スイスにおける粘土質岩における高アルカリプルームの拡がりの評価においては、物質収支に基づく単純な評価が実施されており、高アルカリプルームによる岩盤の反応領域は、4m程度に限定されること、高アルカリ性地下水の拡がりは100万年間で10mを超えないことが示されていた。また、フランスでは、発熱性廃棄物の熱の影響を考慮した処分施設レイアウトの検討例も報告されており、熱の影響を受けやすいアスファルト固化体の核種の閉じ込め性能が損なわれないように、非定常の熱伝導解析を行うことにより、処分坑道の離間距離を設定していた。第2次TRUレポートの処分坑道レイアウトにおいて、上述したCOMSOLを用いて、発熱性のグループ2廃棄物の影響について、3次元の処分施設レイアウトを構築し、非定常の熱伝導解析を行った。100m程度離れるとグループ2の発熱による温度上昇は、1°C程度であることが示された。

平成27年度は、これまで抽出された評価手法や技術等を参考に、硝酸塩の影響を考慮した共処分概念の例示を行った。

3.3.1 適切な共処分概念の検討手法の調査

第2次TRUレポートで示されたように硝酸塩の影響に着目して、硝酸塩の処分施設からの移行解析を実施し、その結果に基づき共処分概念の例示を行う。第2次TRUレポートにおいては、2次元体系での解析を行ったが、本検討では、3次元体系での硝酸塩移行解析を行い、その結果に基づき共処分概念(レイアウト配置)等を例示する。

(1) 処分施設からの硝酸塩移行解析

第2次TRUレポートの検討結果より、結晶質岩に比べ、堆積岩について硝酸塩の拡がりが大きいことから、堆積岩を解析対象として解析を実施した。解析体系及び処分坑道のレイアウトを、それぞれ図3.3.1-1及び図3.3.1-2に示す。解析体系は、図3.3.1-1に示すように原子力発電環境整備機構で検討された処分レイアウト(原子力発電環境整備機構, 2014)が収まる大きさとした。図3.3.1-2に示す処分坑道のレイアウトでは、廃棄体グループ1は①、廃棄体グループ2は②から⑦、廃棄体グループ4は

⑧から⑭、硝酸ナトリウムを含む廃棄体グループ3は⑮から⑰の処分坑道に埋設されるものとした。地下水の流向きについては、処分坑道①から⑰とし、処分坑道⑰の下流100mの距離が取れるように、解析体系内に処分レイアウトを配置した。

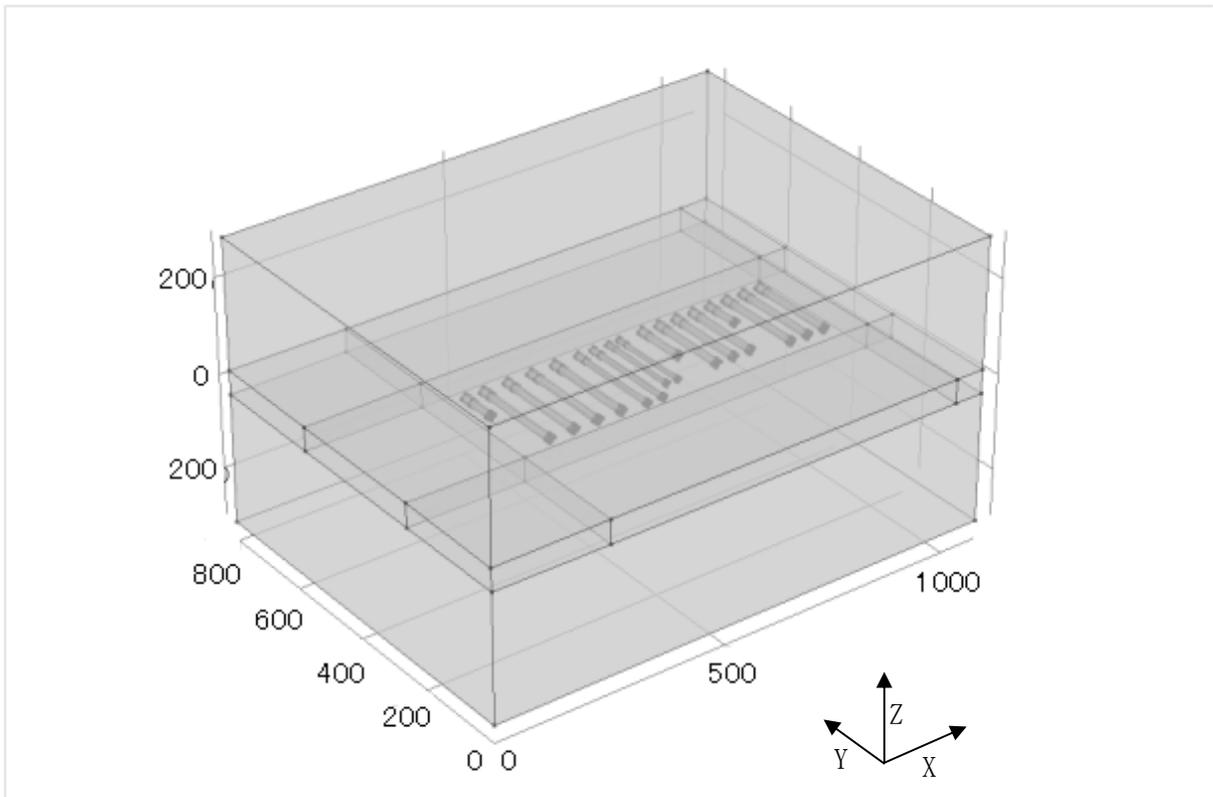


図3.3.1-1 硝酸イオン移流分散解析体系

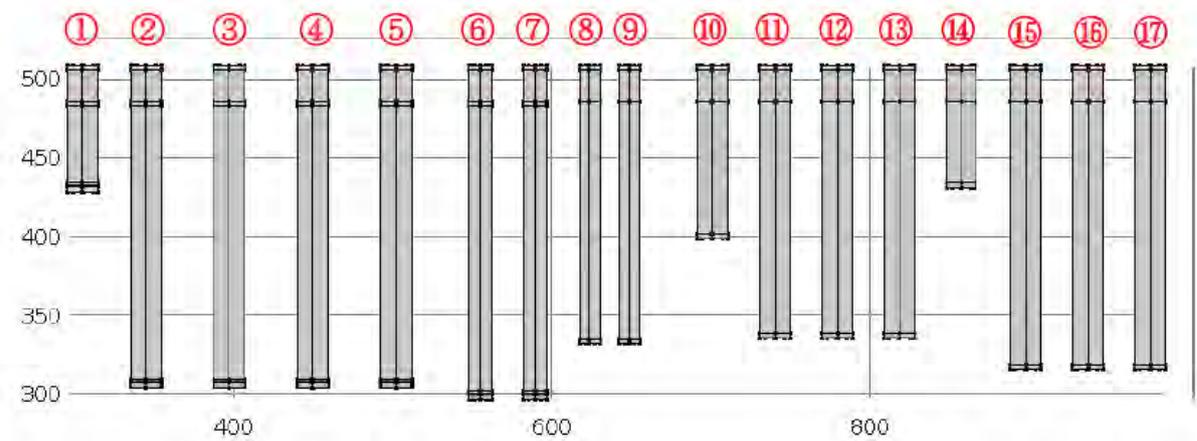


図3.3.1-2 処分坑道レイアウト(X-Y平面)

(廃棄体グループ1：①、廃棄体グループ2：②～⑦、廃棄体グループ3：⑮～⑰、
廃棄体グループ4：⑧～⑭)

処分坑道の断面形状についても原子力発電環境整備機構（2014）に基づき設定した。緩衝材を用いた処分坑道断面形状（埋め戻し材としてベントナイト系材料を使用）として処分坑道①を、緩衝材を用いない処分坑道断面断面（埋め戻し材としてセメント系材料を使用）として処分坑道⑮の断面形状を例として図3.3.1-3に示す。処分坑道中心がZ=0mとなるように坑道を配置し、処分坑道周囲には、第2

次TRUレポートと同様に、幅3mの掘削影響領域を設定した。

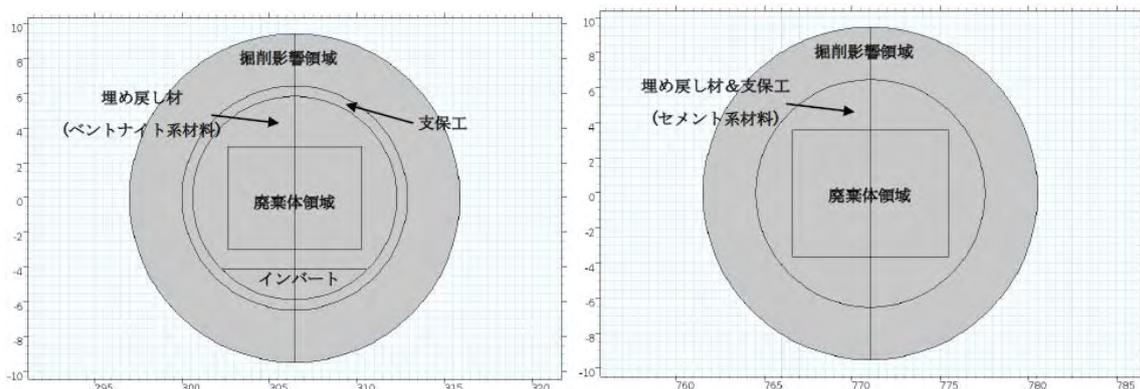


図3.3.1-3 処分坑道断面の例 (X-Z平面)

(左図：処分坑道①、右図：処分坑道⑫)

解析には、地下水流動解析及び溶存物質の移流分散解析を実施することができる有限要素法の汎用解析コードCOMSOLを使用した。硝酸イオンの移行解析は、媒体への線型収着を考慮した移流分散モデル (3.1-1式) であり、地下水流動はダルシー則に基づくモデル (3.1-2式) である。

$$R \frac{\partial C}{\partial t} = \nabla \cdot (De + \alpha v) \nabla C - v \nabla C \quad 3.1-1$$

$$v = -K \nabla p \quad 3.1-2$$

ここで、Cは硝酸イオンの濃度、Rは収着容量 ($=\phi + \rho Kd$)、Deは実効拡散係数、 α は分散長、vは地下水のダルシー流速、 ϕ は媒体の間隙率、 ρ は媒体のかさ密度、Kdは収着分配係数、Kは媒体の透水係数、pは圧力水頭である。解析に用いた各物性パラメータを第2次TRUレポートを参考に設定し、廃棄体領域、インバート領域及び支保工領域については、セメント系材料のパラメータを使用した。表3.3.1-1に解析に用いた透水係数及び間隙率の設定値を示す。

表3.3.1-1 解析に用いた透水係数及び間隙率

領域	透水係数(m/s)	間隙率	備考
廃棄体領域	4×10^{-6}	0.13	ひび割れがあるコンクリートを想定
ベントナイト系材料	2×10^{-11}	0.40	ベントナイトのCa型化を想定
セメント系材料	4×10^{-6}	0.13	ひび割れがあるコンクリートを想定
インバート			
掘削影響領域	1×10^{-7}		母岩の100倍を想定
母岩	1×10^{-9}	0.30	

地下水の流速方向の分散長 (縦分散長) については、処分坑道 (坑道⑫) 下流の硝酸イオンの移行距離100mの10分の1である10mに設定し、地下水の流速方向に対して垂直方向の分散長 (横分散長) はさらに縦分散長の10分の1である1mとした。地下水流動に関わる境界条件として、解析体系における x 軸方向の動水勾配が0.01となるように、上流側及び下流側において一定の水頭圧を設定した。硝酸イオンの移流分散解析については解析体系の全ての面で0濃度境界とした。解析における硝酸ナトリウムの初期濃度は、硝酸ナトリウムの全量を坑道⑫から坑道⑫処分坑道の廃棄体領域体積で除した値 $1,256 \text{ mol/m}^3$ として設定

した。第2次TRUレポートと同様に、セメント系材料に対する硝酸イオンの収着分配係数を $0.0001 \text{ m}^3/\text{kg}$ とすると廃棄体領域の間隙水中における硝酸イオンの濃度は $3.5 \text{ mol}/\text{dm}^3$ となる。⑮から⑰処分坑道の廃棄体領域以外の硝酸イオン濃度は $0 \text{ mol}/\text{dm}^3$ として、1,000,000年までの解析を実施した。

解析により得られた図3.3.1-4に示す $Z=0 \text{ m}$ におけるX-Y平面の硝酸イオン濃度分布の経時変化(1年、100年、10,000年及び1,000,000年)を図3.3.1-4に示す。硝酸ナトリウムを含む⑮から⑰の3本の処分坑道から硝酸イオンが上流側の処分坑道にも広がっていく様子を確認することができる。硝酸イオン濃度も時間とともに変化し、⑮から⑰の処分坑道では100年で $10^{-1} \text{ mol}/\text{dm}^3$ オーダー、10,000年で $10^{-2} \text{ mol}/\text{dm}^3$ オーダー、1,000,000年では $10^{-7} \text{ mol}/\text{dm}^3$ オーダーと低下した。

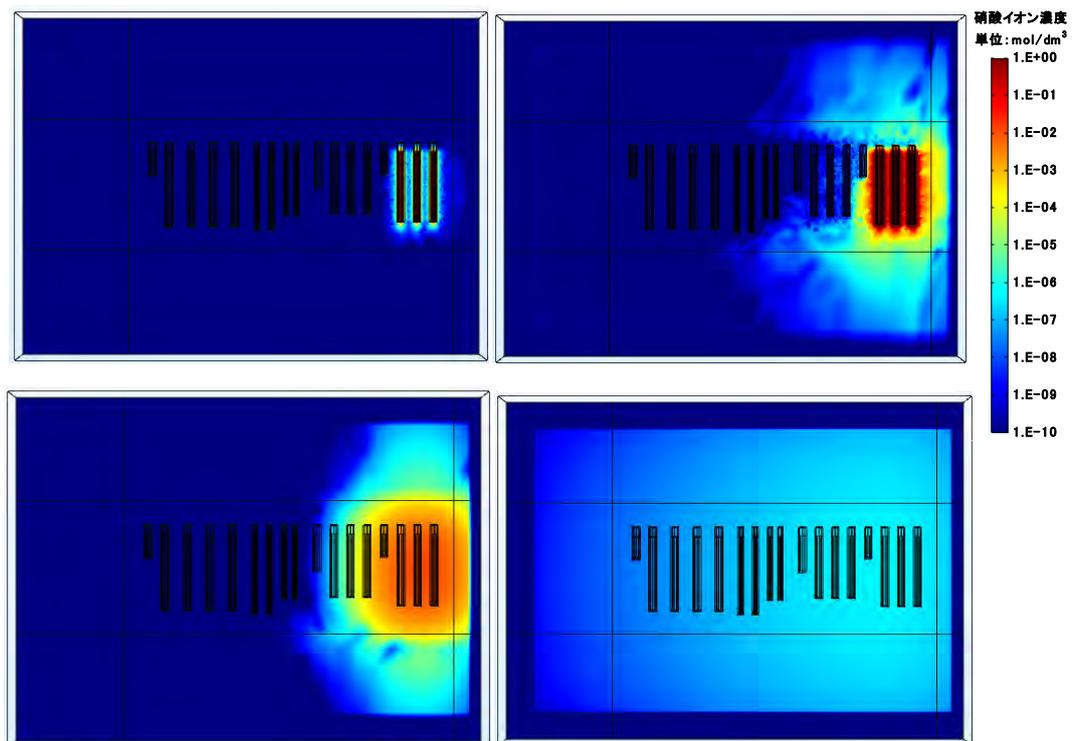


図3.3.1-4 $Z=0$ におけるX-Y平面における硝酸イオン濃度の経時変化
(左上図：1年、右上図：100年、左下図：10,000年、右下図：1,000,000年)

(2) 硝酸塩の影響を考慮した共処分概念の例示

廃棄体グループ3の上流における硝酸イオンの影響範囲を検討するため、処分坑道から100m毎離れた位置における硝酸イオンの経時変化を調べた。第2次TRUレポートにおける共処分の検討では、a. ベントナイト系材料と岩盤の変質への影響、b. ベントナイト系材料の透水性に対する影響、c. 放射性核種の人工バリア・天然バリアへの収着性への影響、d. 炭素鋼等の金属腐食に対する影響について検討し、硝酸イオン濃度が $10^{-4} \text{ mol}/\text{dm}^3$ 程度以下であれば、a. からd. に対して硝酸塩は有意な影響を生じることはないと判断している。また、地下水にも窒素は存在し、HLW第2次取りまとめや第2次TRUレポートの評価で用いたモデル地下水である降水系高pH型地下水では $2.3 \times 10^{-5} \text{ mol}/\text{dm}^3$ 、海水系高pH型地下水では $5.2 \times 10^{-3} \text{ mol}/\text{dm}^3$ の全窒素濃度が設定されている。

本検討では、モデル地下水における全窒素濃度を大きく超える範囲を硝酸イオンの影響範囲として仮設定し検討した。廃棄体グループ3の処分坑道上流側の各位置(0m, 100m, 200m, 300m, 400m, 500m,

600m, 700m及び800m)における硝酸イオン濃度の経時変化を図3.3.1-5に示す。この図には、参考として降水系高pH型地下水及び海水系高pH型地下水の全窒素濃度の設定値も示した。この図から、廃棄体グループ3から200m程度離れることにより、硝酸イオン濃度の最大値は、降水系高pH型地下水で設定されている全窒素濃度と同オーダーの値となることが分かる。硝酸イオン濃度の最大値は、約10万年後であった。

高レベル放射性廃棄物やTRU廃棄物のグループ1、2及び4への影響を低減させるためには廃棄体グループ3の処分坑道をこれらの処分坑道の下流300m程度（硝酸イオンの濃度が高くなる範囲200m+核種移行距離100m）に離して設置する必要がある。共処分のレイアウト（平面図）を図3.3.1-6に示す。TRU廃棄物の処分レイアウトの大きさは、原子力発電環境整備機構で検討された堆積岩における検討例（深度500mの場合（原子力発電環境整備機構，2014））の概算値である。

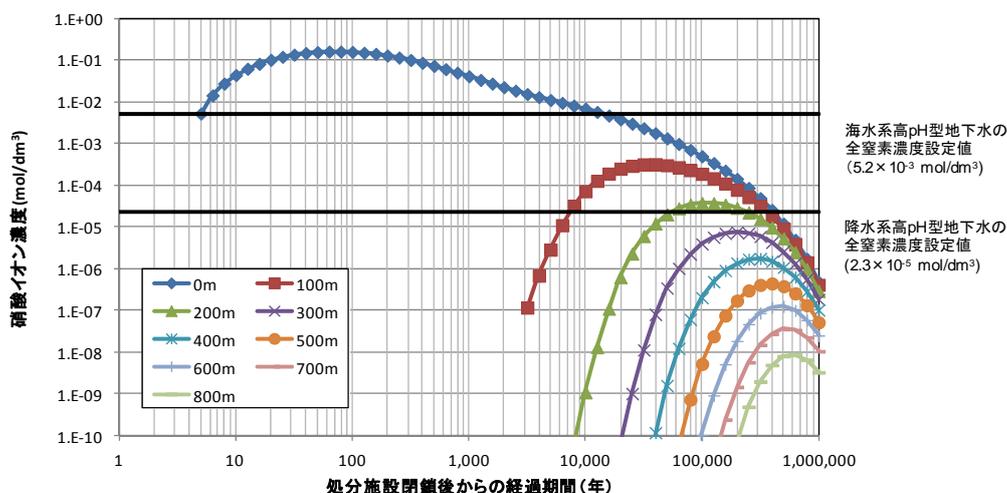


図3.3.1-5 各位置における硝酸イオン濃度の経時変化

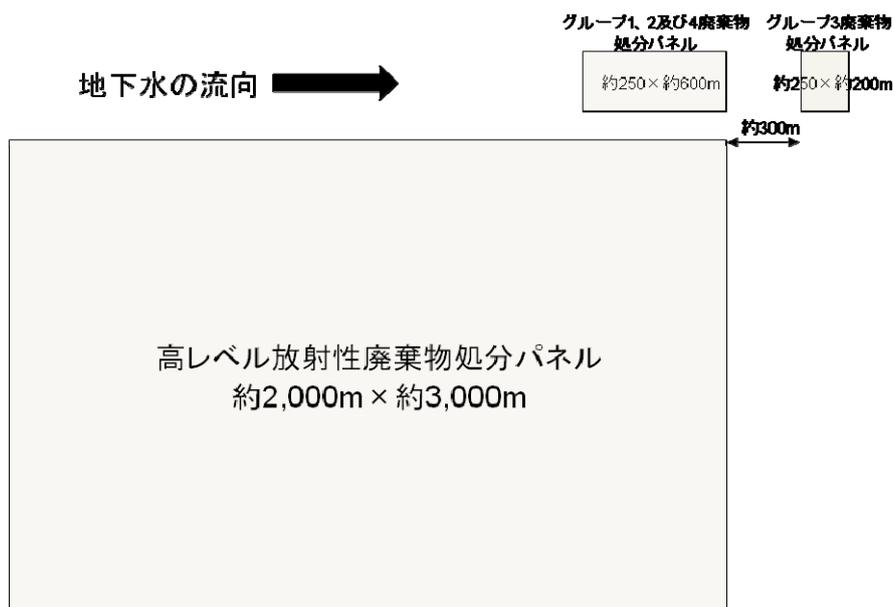


図3.3.1-6 共処分のレイアウト（平面図）

3.4 まとめ

本章で得られた成果について、以下にまとめる。

3.4.1 廃棄物の特性を踏まえた共処分への影響評価技術開発

(1) 種々の廃棄物の特性評価と廃棄物由来の影響因子の影響調査

模擬アスファルト固化体を用いた熱測定データの蓄積及び発熱特性に関するパラメータの見直しを行った。ROT(地層処分環境におけるアスファルト固化体の熱反応暴走に至る最低温度の目安)の算定においては、処分坑道内の定置仕様等を考慮した3次元体系を用いるとともに、見直した発熱特性パラメータを反映した熱収支解析を実施し、160℃と評価した。シナリオを想定した安全性の試行的評価では、地層処分環境におけるエネルギー供給要因を検討し、算定されたROT(160℃)を参考にアスファルト固化体の熱反応暴走を誘発する可能性がある要因を抽出した。抽出された中から微生物発熱及び高温流体の接近について熱収支解析による試行的評価を実施した。

(2) 廃棄物由来の影響因子の化学環境影響評価

硝酸イオン化学的変遷挙動評価モデル(NEON)の信頼性向上を目的とする確証試験及び天然事例との比較解析を実施した。確証試験では、70℃以下の環境におけるNEONの鉱物反応の信頼性向上のための長期試験用サンプルを作製し、試験を進めた。また、処分環境を模擬したカラムを用い、拡散条件における硝酸イオンの変遷試験とNEONによる解析とを比較し、試験結果とモデル解析が概ね整合的であることを確認した。天然事例との比較解析では、カナダでの地下水硝酸塩汚染事例について、NEONを用いた解析により概ね再現することができ、部分的ではあるがNEONの微生物反応モデルの妥当性を示すことができた。

(3) 廃棄物由来の影響因子のバリア候補材料への影響評価

ベントナイトを用いた人工バリア材料への硝酸イオン変遷物質の影響評価として、スメクタイトの特性や長期安定性に及ぼすアンモニウムイオンの影響について調査を行った。実験的検討によるアンモニウム型スメクタイトの特性評価では、湿潤乾燥処理によりアンモニア型スメクタイトは、カリウム型に比べ膨張性を失いにくいことが分かった。さらに、処分環境が高アルカリ性条件に変化する場合を想定して、高アルカリでナトリウムイオンが存在する場合(NaOH溶液)とナトリウムイオンが存在するが高アルカリ性ではない場合(NaCl溶液)におけるアンモニア型スメクタイトの挙動を調べた結果、NaCl溶液に比べNaOH溶液条件においてナトリウム型になり易いことが示された。

(4) 廃棄物由来の影響因子の放射性核種への影響評価

廃棄体由来化学物質のひとつであるISAおよびISAと類似した化学構造を持つGLUについて、ジルコニウムの見かけの溶解度に及ぼす影響を調査した。ジルコニウム溶解度のpH依存性やISAおよびGLU濃度依存性から、支配的な溶存化学種を推定した。これら溶存化学種の存在を仮定し、溶解度の熱力学解析を行うことによりそれぞれの錯生成定数を決定した。ISAおよびGLU共存下における分画分子量 10^4 (10 kDa)通過後のジルコニウム溶解度は、熱力学計算により概ね再現できることが示された。一方、中性pHからアルカリ性pH領域において、 $0.45 \mu\text{m}$ 通過成分の濃度は10 kDa通過成分の濃度より顕著に高い値を示したことから、ISA、GLU共存下では、大きなサイズのコロイド種が存在することが分かった。同

程度の鎖長を持つジカルボン酸では、このようなコロイド種の生成は見られなかったことから、ISAやGLU共存下で観察されたコロイド種は、ポリヒドロキシカルボン酸に特有のものであり、その影響評価は今後の課題と考えられる。

3.4.2 多様な廃棄物の影響を考慮した共処分概念案の構築

硝酸塩の処分施設からの移行解析を3次元体系で実施し、その結果に基づき共処分におけるレイアウトを検討した。硝酸ナトリウムを含む廃棄体グループ3の処分坑道を、地下水の流向き下流側に配置し、上流側への硝酸イオンの拡がりを移流分散モデルにより解析した。廃棄体グループ3の処分坑道から200m程度離れると硝酸イオン濃度の最大値は 10^{-5} mol/dm³オーダーと降水系高pH型地下水の全窒素濃度と同程度の値となる。このことから、廃棄体グループ3の処分坑道を高レベル放射性廃棄物や廃棄体グループ1、2及び4の処分坑道の下流300m程度（全窒素濃度が地下水の濃度に対して高くなる範囲200m+核種移行距離100m）に離して設置するレイアウトを例示した。

参考文献

- Appelo, C. A. J. (2013): PHREEQC version 3, (<http://www.hydrochemistry.eu/downl.html>).
- Appelo, C. A. J. and Postma, D. (2005): *Geochemistry, groundwater and pollution - second edition*, CRC Press, p. 649.
- Arthur, R. C., Sasamoto, H., Oda, C., Honda, A., Shibata, M., Yoshida, Y. and Yui, M. (2005): Development of thermodynamic database for hyperalkaline, argillaceous systems, JNC-TN8400 2005-010.
- 長秋雄, 国松直, 金川忠, 藤井真希, 横山幸也, 小川浩司, 田仲正弘 (2009): 我が国における地下岩盤内の初期地圧状態-応力解放法による実測データに基づく-, 地質調査研究報告, 第60巻, 第7/8号, p. 413-447.
- Cicel and Machajdik (1991): Potassium- and ammonium-treated montmorillonite. I Interstratified structures with ethylene glycol and water. *Clays and Clay Miner.*, 39, 40-46.
- Colas, E., Grive, M., Rojo, I., Duro L. (2011): Solubility of $\text{ThO}_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}(\text{am})$ in the Presence of Gluconate, *Radiochim. Acta*, 99, 269-273.
- Colas, E., Grive, M., Rojo, I., Duro L. (2013): The Effect of Gluconate and EDTA on Thorium Solubility under Simulated Cement Porewater Conditions, *J. Solution Chem.*, 42, 1680-1690.
- 電気事業連合会, 核燃料サイクル開発機構 (2005): TRU廃棄物処分技術検討書 - 第2次TRU廃棄物処分研究開発取りまとめ-, JNC TY1400 2005-013 FEPC TRU-TR2-2005-02.
- 電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構 (2005): TRU廃棄物処分技術検討書-第2次TRU廃棄物処分研究開発取りまとめ-, JNC TY1400 2005-013, FEPC TRU-TR2-2005-02.
- Devito, K. J., Fitzgerald, D., Hill, A. R. and Aravena, R. (2000), Nitrate dynamics in relation to lithology and hydrologic flow path in a river riparian zone, *J. Environ. Qual.* 29, p. 1075-1084.
- 土木学会原子力土木委員会地下環境部会編 (2001): 概要調査地区選定時に考慮すべき地質環境に関する基本的考え方, 土木学会.
- 江口定夫 (2008): モデルによる土壌, 農耕地, 流域における窒素動態の理解 3. 地形連鎖系スケールの窒素動態-調査技法とモデル化手法-, *日本土壌肥科学雑誌*, 79, p. 213-227.
- Frenkel, D. and Smit, B. (2002): *Understanding Molecular Simulation from Algorithms 2nd ed. to Applications*, Academic Press, pp. 638.
- 藤根幸男, 村田幹生, 阿部仁, 高田準一, 塚本導雄, 宮田定次郎, 井田正明, 渡辺眞樹男, 内山軍蔵, 朝倉俊英, 杉川進, 岡崎修二, 宮内正勝, 富樫喜博, 茅野政道, 永井晴康, 加藤正平, 中山真一, 梅田幹, 前田充, 井澤直樹, 西尾軍治, 鴻坂厚夫 (1999): アスファルト固化処理施設火災・爆発事故の原因究明試験と環境影響評価, *JAERI-Research* 99-056.
- 藤根昭彦, 今本信雄 (1999): アスファルト固化処理施設火災爆発事故の中期的課題の対応~ドラマの熱解析(I)~(研究報告), JNC TN8410 99-044.
- Gaona, X., Montoya, V., Colas, E., Grive, M., Duro L. (2008): Review of the Complexation of Tetravalent Actinides by ISA and Gluconate under Alkaline to Hyperalkaline Conditions, *J. Contaminant Hydrol.* 102, 217-227.

- Gaona, X., Rojo, H., Rabung, T., García-Gutiérrez, M., Missana, T., Altmaier, M. (2015): Thermodynamic Description of An(III/IV) Interaction with Gluconate in NaCl and CaCl₂ Systems, presented 15th International Conference on the Chemistry and Migration Behaviour of Actinides and Fission Products in the Geosphere (MIGRATION 2015), Santa Fe, USA.
- Goss, M. J., Barry, D. A. J. and Rudolph, D. L. (1998): Contamination in Ontario farmstead domestic wells and its association with agriculture : 1. Results from drinking water wells, Journal of Contaminant Hydrology, 32, p. 267-293.
- Hasegawa, K., Li, Y. (2000): Explosion investigation of asphalt-salt mixtures in a reprocessing plant, Journal of Hazardous Materials A79(2000) 241-267
- Hill, A. R., Devito, K. J., Campagnolo, S. and Sanmugas, K. (2000): Subsurface denitrification in a forest riparian zone : Interactions between hydrology and supplies of nitrate and organic carbon, Biogeochemistry, 51, p. 193-223.
- 平尾一之, 河村雄行(1994) : パソコンによる材料設計, 裳華房, pp. 217.
- 本田明, 加藤卓, 建石剛, 今北毅, 増田薫, 加藤修, 西村務 (2006): アルカリ性条件における炭素鋼の腐食に伴う硝酸イオンの化学的変遷挙動, 材料と環境, 第55巻, p. 458-465.
- 本田明, 増田薫, 今北毅, 加藤修, 西村務 (2009): アルカリ性条件における炭素鋼の腐食に伴う硝酸イオンの化学的変遷挙動のモデル化, 材料と環境, 第58巻, p. 182-189.
- 本田明, 増田薫, 建石剛, 加藤修, 井上博之 (2011): 高アルカリ性・高硝酸ナトリウム濃度条件における炭素鋼の腐食に伴う硝酸イオンの化学的変遷挙動とそのモデル化, 材料と環境, 第60巻, p. 541-552.
- 化学便覧 (1993): 日本化学会編, 改訂4版 化学便覧 基礎編, 丸善, II-654.
- 河村 雄行 (2008) : 鉱物-水系の分子シミュレーション, 地球化学 42, 115-132.
- 核燃料サイクル開発機構 (1999) : わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性 - 地層処分研究開発第2次取りまとめ - 分冊3 地層処分システムの安全評価. JNC TN1400 99-023.
- 気象研究所 (2013) : マグマ活動の定量的把握技術の開発とそれに基づく火山活動度判定の高度化に関する研究, 気象研究所技術報告第69号
- 原子力委員会原子力バックエンド対策専門部会 (1997) : 高レベル放射性廃棄物の地層処分研究開発等の今後の進め方について.
- 原子力委員長半減期低発熱放射性廃棄物処分技術検討会 (2006) : 長半減期低発熱放射性廃棄物の地層処分の基本的考え方 - 高レベル放射性廃棄物との併置処分等の技術的成立性 - (<http://www.aec.go.jp/jicst/NC/senmon/tyohan/bosyu/060228/05.pdf>).
- 原子力発電環境整備機構 (2004) : 概要調査地区選定上の考慮事項の背景と技術的根拠 - 「概要調査地区選定上の考慮事項」の説明資料, NUMO-TR-04-02.
- 原子力発電環境整備機構 (2011) : 地層処分低レベル放射性廃棄物に関わる処分の技術と安全性 「処分場の概要」の説明資料, NUMO-TR-10-03
- 原子力発電環境整備機構 (2014) : 地層処分低レベル放射性廃棄物の安全性向上に関する検討 - 多様な地質環境においても地層処分低レベル放射性廃棄物の処分の安全性と評価の信頼性をよ

り一層高めることができる処分概念の検討一, NUMO-TR-14-03.

- Korom, S.F. (1992): Natural Denitrification in the Saturated Zone : A Review, *Water Resources Research*, 28(6), p.1657-1668.
- Lin, A. (1994a), Glassy pseudotachylite veins from the Fuyun fault zone, northwest China. *Jour. Struct. Geol.*, 16, 71-83.
- Masuda, K., Murakami, H., Kurimoto, Y., Kato, O., Kato, K. and Honda, A. (2013) : Use of in-vitro experimental results to model in-situ experiments: bio-denitrification under geological disposal conditions, *SpringerPlus*, 2, 339.
- Miklos and Cicel (1993) Development of interstratification in K- and NH₄-smectite from Jelsovy Potok (Slovakia) treated by wetting and drying. *Clay Miner.*, 28, 435-443.
- 嶺達也, 三原守弘, 大井貴夫, 林孔華, 川上泰 (2000) : 微生物によるアスファルト劣化に関する実験的研究(試験報告), JMC TN8430 2000-003
- Morodome, S. and Kawamura, K. (2011): In situ X-ray diffraction study of the swelling of montmorillonite as affected by exchangeable cations and temperature. *Clays and Clay Minerals*, Vol. 59, No. 2, 165-175.
- 村上由記, 岩月輝希, 長沼毅 (2003) : 東濃地域における地下水化学と地下微生物の相互作用, *Journal of Geography*, Vol. 112(2), p. 277-287.
- Nakano and Kawamura (2006) : Adsorption Sites of Cs on Smectite by EXAFS Analyses Molecular Dynamics Simulations, *Clay Science 12 Supplement 2*, 76-81.
- 中尾淳, 山口紀子 (2011) : 放射性物質の土壌中での動き, 放射性物質による汚染とその対策, 最新農業技術 土壌施肥, Vol. 4, 農文協刊.
- 中田英二, 田中和広 (2001) : マグマの貫入が岩盤に与える影響—活火山周辺に分布するマグマ噴出跡の分布—, 日本応用地質学会研究発表会講演論文集, p. 55-58.
- 日本原子力研究開発機構 (2008) : 平成19年度地層処分技術調査等委託費TRU廃棄物処分技術硝酸塩処理・処分技術高度化開発 (http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/docs/library/rprt4/19fy11.pdf).
- 日本原子力研究開発機構 (2009) : 平成20年度地層処分技術調査等委託費TRU廃棄物処分技術硝酸塩処理・処分技術高度化開発 (http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/docs/library/rprt4/20fy11.pdf).
- 日本原子力研究開発機構 (2010) : 平成21年度地層処分技術調査等委託費TRU廃棄物処分技術硝酸塩処理・処分技術高度化開発 (http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/21-11/21fy11.pdf).
- 日本原子力研究開発機構 (2011) : 平成22年度地層処分技術調査等委託費TRU廃棄物処分技術硝酸塩処理・処分技術高度化開発 (http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/docs/library/rprt4/22-11.pdf).
- 日本原子力研究開発機構 (2012) : 平成23年度地層処分技術調査等委託費TRU廃棄物処分技術硝酸塩処理・処分技術高度化開発 (http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2011/23-14.pdf).
- 日本原子力研究開発機構 (2013a) : 平成24年度地層処分技術調査等委託費TRU廃棄物処分技術硝酸

- 塩処理・処分技術高度化開発 (http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2012/24-14-1.pdf).
- 日本原子力研究開発機構 (2013b): 平成24年度地層処分技術調査等委託費TRU廃棄物処分技術硝酸塩処理・処分技術高度化開発—6カ年研究成果のとりまとめ— (http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2012/24-14-2.pdf).
- 日本原子力研究開発機構 (2014): 平成25年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発報告書 平成26年3月
- 日本原子力研究開発機構 (2015): 平成25年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発報告書 平成27年3月
- 日本原子力研究開発機構(2014a): 平成25年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発報告書 平成26年3月
- Nyquist, R. A. and Kagel, R. O. (1971): *Infrared Spectra of Inorganic Compounds (3800–45cm⁻¹)*. Academic Press, 406–407.
- Nützmann, G., Viotti, P. and Aagaard, P. (2005): *Reactive Transport in Soil and Groundwater*, Springer, p.295.
- 落合健一, 藤田秀人, 村山保美, 堀川欽一, 村永浩太郎, 原民男 (1989) : アスファルト固化体の難燃化に関する試験研究, PNC TN8410 89-082
- 落合健一, 村山保美, 藤田秀人, 武田啓二, 村永浩太郎, 原民男 (1997a) : アスファルト固化体の危険物判定試験(1989年12月), PNC TN8410 97-115.
- 落合健一, 村山保美, 藤田秀人, 武田啓二, 村永浩太郎, 原民男 (1997b) : アスファルト固化体の危険物判定試験(II)(1990年4月), PNC TN8410 97-116.
- 落合健一, 村山保美, 藤田秀人, 村永浩太郎, 原民男 (1997c) : アスファルト固化体の危険物判定試験(III)(1990年7月), PNC TN8410 97-117
- 落合健一, 村山保美, 藤田秀人, 村永浩太郎, 原民男 (1997d) : アスファルト固化体の危険物判定試験(IV)(1991年1月), PNC TN8410 97-118
- 大原祥平, 掛川武, 赤石寛, 中沢弘基 (2003) ; トベライト (アンモニウムマイカ) の高温高压化での安定性. 粘土科学, 42(3), p.177.
- 大槻憲四郎, 門澤伸昭, 長瀬敏郎 (2001) : 野島地震断層産のシュードタキライトとガウジから解読できる地震性摩擦滑り過程. 地質調査所月報, 52, 1, 57-70.
- Parkhurst, D. L., Kipp, K. L. and Charlton, S. R. (2010): *PHAST Version 2-A Program for Simulating Groundwater Flow, Solute Transport, and Multicomponent Geochemical Reactions* (<http://pubs.usgs.gov/tm/06A35/pdf/TM6-A35.pdf>).
- Pilbrow, J. R. and Spaet, J. M. (1967): ESR Studies of Cu²⁺ in NH₄Cl Single Crystals between 4.2 and 453 ° K. I. Spin-Hamiltonian Parameters and Lattice Constant for NH₄Cl. *Phys. Stat. Sol.*, Vol. 20, 225-235.
- Rai, D., Rao, L., Moore, R. C., Bontchev, R., Holt, K. (2004): *Development of biodegradable isosaccharinate-containing foams for decontamination of actinides: thermodynamic and kinetic reactions between isosaccharinate and actinides on metal and concrete surfaces.* USDOE Technical Report, EMSP-82715-2004, USA.

- Sakuma and Ichiki (2015): Density and Isothermal Compressibility of Supercritical H₂O-NaCl Fluid: Molecular Dynamics Study from 673 to 2000 K, 0.2 to 2 GPa, and 0 to 22 wt% NaCl Concentrations.
- Sakuma and Kawamura (2011): Structure and dynamics of water on Li⁺, Na⁺, K⁺, Cs⁺, H₃O⁺ exchanged muscovite surfaces: A molecular dynamics study. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, Vol. 75, 63-81.
- Sasaki, T., Kobayashi, T., Takagi, I., Moriyama, H. (2006): Solubility Measurement of Zirconium(IV) Hydrated Oxide, *Radiochim. Acta* 94, 489-494.
- Sasaki, T., Kobayashi, T., Takagi, I., Moriyama, H. (2008): Hydrolysis Constant and Coordination Geometry of Zirconium(IV), *J. Nucl. Sci. Technol.*, 45, 735-739.
- 笹本広, 瀬尾俊弘, 油井三和, 佐々木康雄 (1996): 釜石鉱山における地下水の化学的研究 (I), PNC TN8410 96-203 (<http://jolissrch-inter.tokai-sc.jaea.go.jp/pdfdata/PNC-TN8410-96-203.pdf>)
- 佐藤治夫, 芦田敬, 小原幸利, 油井三和, 梅木博之, 石黒勝彦 (1992): ベントナイト及び岩石中での核種の実効拡散係数, PNC TN 8410 92-164.
- 佐藤努, 渡辺隆 (1987): 相対湿度制御下における膨潤性粘土鉱物の層間水分子層について (I), 粘土科学討論会講演要旨集 Vol. 31, 69.
- 佐藤明 (2004): HOW TO 分子シミュレーション, 共立出版, pp. 4.
- 九石正美, 長谷川裕, 池田泰久, 熊谷幹郎, 林孔華, 川上泰 (1997): 易溶性核種の挙動及びアスファルトの微生物分解挙動に関する研究 (II), PNC ZJ 1564 97-001
- 白水晴雄 (1988): 粘土鉱物学, 朝倉書店
- 総合資源エネルギー調査会電気事業分科会原子力部会放射性廃棄物小委員会 (2006): 放射性廃棄物小委員会報告書 (<http://www.enecho.meti.go.jp/rw/docs/library/rprt/060616.pdf>).
- Stumm, W. and Morgan, J. J. (1996): AQUATIC CHEMISTRY - Chemical Equilibria and Rates in Natural Waters - Third Edition, John Wiley & Sons, Inc., p1022.
- Sucha and Siranova (1991): Ammonium and potassium fixation in smectite by wetting and drying. *Clays Clay Miner.*, 39, 556-559.
- 鈴木弘, 三浦昭彦 (1999): アスファルト固化処理施設火災爆発事故の中期的課題の対応～小型2軸エクストルーダ試験～, JNC TN8410 99-041 (<http://jolissrch-inter.tokai-sc.jaea.go.jp/pdfdata/JNC-TN8410-99-041.pdf>)
- 高橋正樹 (2000): 島弧・マグマ・テクトニクス, 東京大学出版会
- Takai, K., Nakamura, K., Toki, T., Tsunogai, U., Miyazaki, M., Miyazaki, J., Hirayama, H., Nakagawa, S., Nunoura, T. and Horikoshi, K. (2008): Cell proliferation at 122°C and isotopically heavy CH₄ production by a hyperthermophilic methanogen under high-pressure cultivation, *Proc. Natl. Acad. Sci.* Vol. 105 (31).
- Whistler, R. and BeMiller, J. (1963): α-D-Isosaccharin-1,4-lactone: Action of Lime Water on Lactose, *Methods in Carbohydrate Chemistry Vol. 2: Reactions of Carbohydrates*, Academic Press, pp. 477-479.

4. 過酷事象の地層処分システムへの影響に関する評価確証技術開発

4.1 目的と5ヵ年の計画

4.1.1 目的

地層処分が安全で信頼に足るものとして社会に受け入れられるものとするためには、システムとしての評価に関する技術の確証が十分に行われる必要がある。特に、2011年3月に発生した東北地方太平洋沖地震及びそれに伴う東京電力福島第一原子力発電所の事故を受け、地層処分が安全で信頼に足るものとして社会に受け入れられるためには、常に地球科学や社会科学分野の最新の知見を反映して、これまで想定外とされていたあるいは未知の事象を探り出し、地層処分の安全性について示していくことが必要である。この地層処分の安全性を示すことの一環として、東北地方太平洋沖地震を踏まえた過酷事象対策も念頭に置いたシステム概念と評価技術の開発を行うことを目的とする。

4.1.2 5ヵ年の計画

本事業は、地層処分システムにおける過酷事象の概念構築を行った上で抽出された事象に係る評価技術の開発を行う。地層処分システムにおける過酷事象の概念構築では、原子力施設等における過酷事象の考え方を整理したうえで、地層処分システムにおける過酷事象の概念構築(定義)をはかるとともに、地層処分システムにおける過酷事象として考慮すべき事象を抽出し、地層処分システムにおける過酷事象対策技術のあり方を取りまとめる。評価技術の開発では、過酷事象の概念構築に基づいて抽出された事象に対して、過酷事象を評価するためのシナリオ構築手法の開発、過酷事象に繋がり得る発端事象の地質環境及び人工バリアへの影響調査、過酷事象の生起可能性を評価する技術の開発を行う。特に、本章では、2011年3月に発生した東北地方太平洋沖地震及びそれに伴う東京電力福島第一原子力発電所の事故により、一般公衆が抱く漠然とした不安や疑問を持っていると考えられる巨大地震・断層活動を事例としてとりあげ、過酷事象となる可能性の検討を通して評価確証技術の開発を行う。具体的には、巨大地震・断層活動に起因する過酷事象を考慮したシナリオ構築手法を開発するとともに、巨大地震・断層活動の地下水の流動・水質や地下坑道などの地質環境への影響調査や模型試験に基づく人工バリアへの影響調査、さらに、地下施設の耐震安定性評価や人工バリアせん断影響評価を実施し、シナリオに基づく定量的な影響評価技術の開発を行っていく。

上記の全体フレームにしたがい、平成25年度から5ヵ年の期間をスコープにおき、最初の3ヵ年までに基本技術を示し、残り2年で開発された技術の改良・高度化を行っていくこととした(図4.1.2-1)。

平成27年度は、前年度までに具体化した地層処分システムの過酷事象の概念構築フローを改良するとともに、人へ甚大な影響を及ぼし得るという観点から過酷事象に至る可能性のある事象を抽出するための方法論の具体化ならびに包括的懸念事項リストの構造に関する改良を実施した。さらに、閉鎖後の地層処分システム以外の高レベル放射性廃棄物の管理状況との比較を通じて、地層処分システムの頑健性を分析するための考え方を整理した。

平成27年度の巨大地震・断層活動の事例検討では、これまでに考案したシナリオ構築の方法論(日本原子力研究開発機構, 2014)を具体化することを目的として、巨大地震・断層活動に関連

する人工バリアの挙動にも着目して情報整理を継続するとともに、処分システムの安全機能の喪失に着目した感度解析を通じて高い被ばく線量を生じる安全機能喪失の組み合わせを抽出した上で、シナリオ分岐点の抽出及び分岐点の発生条件の確認を試行した。また、シナリオに過去に発生した巨大地震の地質環境や地下坑道への影響事例を反映させるため、地下水や温泉ガス等の試料採取・分析及び岩盤ひずみデータや弾性波速度データの整理・蓄積を実施した。加えて、平成25年度に策定した試験計画に基づき、断層挙動を模擬した工学規模の破壊試験を継続して実施するとともに、試験データを用いた解析評価を実施し、また、人工バリアの振動影響評価のための物性値の取得及び地震応答解析や、ガス放出等に係る岩盤調査及びその評価を実施した。さらに、巨大地震・断層活動による地下施設への影響を評価する技術を開発するために、深地層の研究施設を利用して、地下施設の入力地震動・動的地盤物性の見直しを実施しつつ、地下施設の耐震安定性評価を行った。

なお、平成27年度に実施したレビューワークショップの結果を受け、巨大地震・断層活動を事例とした評価技術の検討の平成28-29年度の計画について大幅に見直すこととした。

実施内容	平成25年度	平成26年度	平成27年度	平成28年度	平成29年度
	基本技術			改良・高度化	
1. 地層処分システムにおける過酷事象の概念構築			▼サブプロジェクト毎のレビューWS チェック&レビュー		
①原子力施設等における過酷事象の考え方	事例収集				
②地層処分システムにおける過酷事象の概念	基本 概念構築	見直し			
③地層処分システムにおける過酷事象の具体化	事象抽出の考え方	事象抽出の方法論および影響	評価手法の開発	必要に応じて見直し	
④地層処分システムにおける過酷事象対策技術のあり方		対策技術の抽出・対策	の有効性の定量評価	必要に応じて見直し	
⑤セーフティケースの構築における過酷事象検討		セーフティケース構築に	おける課題の整理	必要に応じて見直し	
⑥過酷事象に対する評価技術の開発				評価技術の開発	
2. 巨大地震・断層活動を事例とした評価技術開発					
① 巨大地震・断層活動による地質環境への影響に関するデータ ・岩盤ひずみの変化に伴う地下水流動の変化 ・透水性の増加に伴う地下水の温度・水質の変化 ・深部流体の温度・化学的性状に関するモデル		事例調査(岩盤ひずみ、地下水流動の変化)、まとめ 事例調査(地下水の温度・水質) まとめ		深部流体の温度・化学的性状に関するモデル、まとめ	
② 巨大地震・断層活動による処分場への影響評価手法の開発 ・断層ずれが人工バリアに与える影響 ・断層起源ガスによる処分場への影響 ・地震動が地下施設(支保工)に与える影響 ・地震動が人工バリアに与える影響	試験計画の策定 岩石試験・溶存ガス調査 耐震性評価 事例調査	試験・解析 岩石の透気特性データ取得、 耐震性評価(地震観測・余震) 繰返し	実施 ガス放出等影響試験、まとめ 地震動の推定手法、まとめ 非排水三軸試験、解析実施	試験・解析実施 H27の課題の対応 H27の課題対応解析実施	まとめ
③ 巨大地震・断層活動による処分場の性能評価手法の開発 ・巨大地震・断層活動による過酷事象シナリオの検討		評価手順の明確化・プロセス整理	シナリオ具体化・ 概念モデル構築	解析実施・ 評価手順の見直し	まとめ

図 4.1.2-1 本事業の5ヵ年計画

4.2 地層処分システムにおける過酷事象の概念構築

4.1節で既に述べたように、2011年3月に発生した東北地方太平洋沖地震及びそれに伴う東京電力福島第一原子力発電所の事故を受け、地層処分が安全で信頼に足るものとして社会に受け入れられるためには、常に地球科学や社会科学分野の最新の知見を反映して、これまで想定外とされていたあるいは未知の事象を探索し、地層処分の安全性について示していくことが必要である。このため、本節では、地層処分システムにおける過酷事象の概念を構築し、その影響評価と対策技術を検討することを目的としている。

原子炉安全の分野においては、東北地方太平洋沖地震及びそれに伴う東京電力福島第一原子力発電所事故を契機として、これまでの想定を超える事象が起り得ると認識することの重要性がより一層高まってきている。すなわち、設計基準事象を大幅に超える過酷事故を考慮して対策を検討することで、より一層の安全性を追求していくことが重要と認識されている。たとえば、経済産業省・総合資源エネルギー調査会では、原子力の自主的安全性向上に関するワーキンググループが設置され、「わが国は、規制水準を満たせばリスクがないとする「安全神話」から決別し、産業界の自主的かつ継続的な安全性向上により、世界最高水準の安全性を不断に迫及していくという新たな高みを目指すことが重要」という認識の下、産業界が自主的に安全性を向上していく取組みの在り方について議論が進められた（経済産業省 総合資源エネルギー調査会 電力・ガス事業分科会 原子力小委員会 原子力の自主的安全性向上に関するワーキンググループ, 2013）。その結果、このワーキンググループでは、網羅的なリスク評価や残余のリスクの低減、レジリエンスの向上等の観点から、原子力の自主的・継続的な安全性向上に向けた提言が取りまとめられている（経済産業省 総合資源エネルギー調査会 電力・ガス事業分科会 原子力小委員会 原子力の自主的安全性向上に関するワーキンググループ, 2014）。

一方、地層処分システムの分野においては、これまで、第2次取りまとめや第2次取りまとめ以降の継続的な研究開発（例えば、経済産業省の委託事業報告書、原子力発電環境整備機構の技術開発報告書、日本原子力研究開発機構のCoolRep等）において、地層処分システムの長期安全性に係る知識基盤を積み上げてきた。これらのレポートでは、原子力施設における過酷事故に相当すると考えられる稀頻度事象シナリオやwhat-ifシナリオを設定し、地層処分システムをより危険な状況にさらした評価が実施されている。

今後、地層処分システムの頑健性をさらに向上させるため、また、その結果として社会からの受容性を高めるためには、上述の原子炉分野の潮流を踏まえ、原子力施設における過酷事故の考え方を参考として、地層処分における過酷事象の概念を構築することが必要となる。すなわち、地層処分システムの分野においても、現時点において認識できていない事象はあり得るという前提に立ち（未知の未知）、これまでの設計・性能評価で想定してきた範囲を超える事象を洗い出すとともに、それらが生じた場合の影響把握を通じて対策の要否や可能性を検討することが重要である。これにより、セーフティケースの信頼性をより強固なものとするとともに、未知の未知の低減ならびに残余のリスクの低減に資することとなる。

平成26年度までには、まず、国内外における原子力施設（地層処分を除く）の過酷事故に関する文献調査を行った上で、専門家を集めたワークショップの開催を通じて、地層処分システムにおける過酷事象を定義した。さらには、ワークショップで得られた意見も踏まえて概略的な検討

フローの構築を試みるとともに、検討フローのうち、過酷事象となる可能性のある事象の抽出、影響評価、対策技術の検討に対して部分的な試行を行った。

平成27度は、平成26年度の試行を通じて認識された以下の課題に着目して過酷事象の評価手法の高度化を進めた。その結果を4.2.1項に示す。

- ・検討フローの改良
- ・包括的懸念事項リストに関する構造の具体化
- ・トップダウン型に着目したシナリオ探索の試行

さらには、地層処分システムの頑健性を分析するための方策のひとつとして、ガラス固化体が地上にある場合と地下にある場合のそれぞれの特徴を外的擾乱要因の観点から比較する考え方を整理した。その結果を4.2.2項に示す。

4.2.1 過酷事象の評価手法の高度化

平成26年度は、地層処分及び社会学の分野の専門家によるワークショップにおいて、原子力施設における過酷事故の考え方や諸外国の地層処分分野における極端な事象の取扱い状況等を共有した上で、閉鎖後の地層処分システムにおける過酷事象を、「人へ甚大な影響を及ぼしうる程度に、安全機能を著しく低下・喪失させる事象」と定義した。地層処分システムにおける過酷事象を検討していく上では、この定義に基づき、システムの状態を大幅に変化させる過酷事象を想定し、これらを組合せることによりシステムの挙動を描いたシナリオを記述する必要がある。

わが国では、不確実性を考慮して放射性廃棄物の安全評価を行う際、ICRP が1998年に推奨した線量/確率分解アプローチ（ICRP, 1998）に基づき、シナリオの発生の可能性とその影響を組み合わせたりリスク論的考え方の適用が有効であることが示されている（原子力安全委員会, 2004）。ここでは、本研究で対象とする過酷事象検討の位置付けを明確にするため、起こりやすさ及び影響の大きさの観点から、過酷事象検討における着目領域及び探索結果の反映先を示すこととした。結果を図4.2.1-1に示す。

起こりやすさについては、本研究の意義に照らし、まず、現在の安全評価の範囲内であるか否かで大別した。ここで、現在の安全評価の範囲内とは、現在の安全評価で具体的に評価されたシナリオに包含され、定量的あるいは定性的に評価された事象やその影響の程度等を指す。一方、現在の安全評価の範囲外とは、既往の安全評価で具体的に評価されたシナリオに包含されない事象や影響の程度等を指す。

図4.2.1-1に示したように、過酷事象検討は、現在の安全評価の範囲外であり、かつ既往のシナリオよりも影響が大きい領域に着目して、既知の既知を拡げるとともに未知の未知を低減するものと位置付けられる。なお、過酷事象検討は極めて大きな被ばく線量を与えうる可能性のある事象の探索を意味する。さらに、仮にシナリオとして考慮すべき事象が見つかった場合には、サイト選定や工学的対策等の対策を提示した上で、その事象を安全評価の範囲内（稀頻度事象シナリオ等）に含めることとなる。一方、シナリオとして考慮すべき事象でない場合には、安全評価の範囲外のままとなる。このような取り組みを通じて、現在の安全評価に重大な抜け落ちがないこ

との確認及び一般公衆の漠然とした不安の解消に資する。

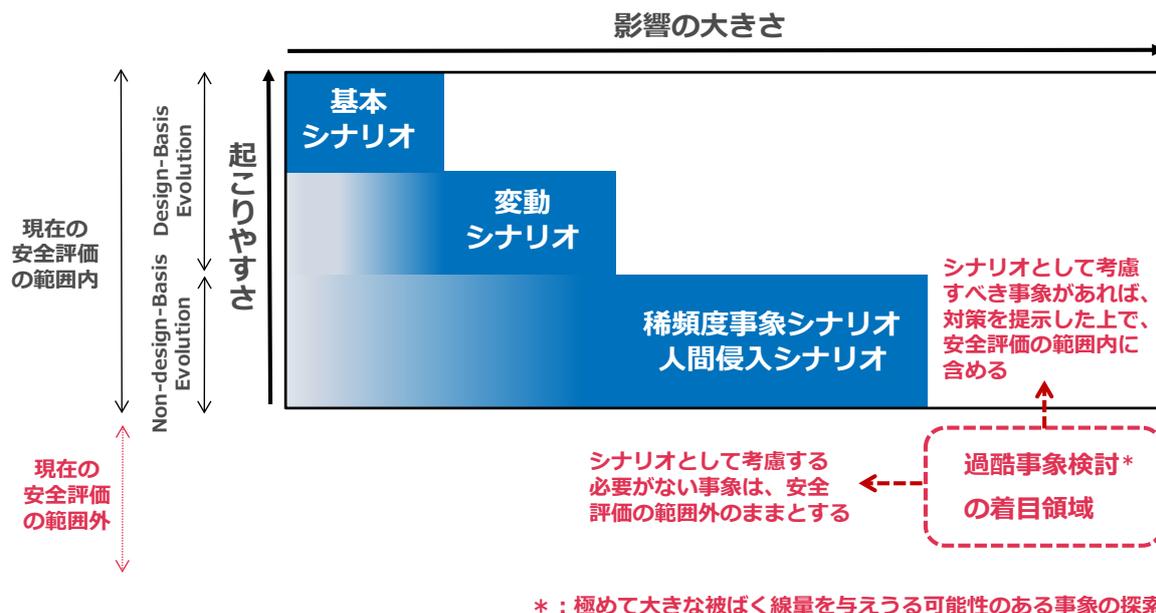


図4.2.1-1 過酷事象検討の位置付け

(1) 検討フローの改良

ここでは、過酷事象評価を具体的に進めるための手順として、平成26年度に示した概略的なフローを以下の点から改良した（図4.2.1-2）。

- ・ボトムアップ型の手順の具体化
- ・トップダウン型の手順の追加と具体化

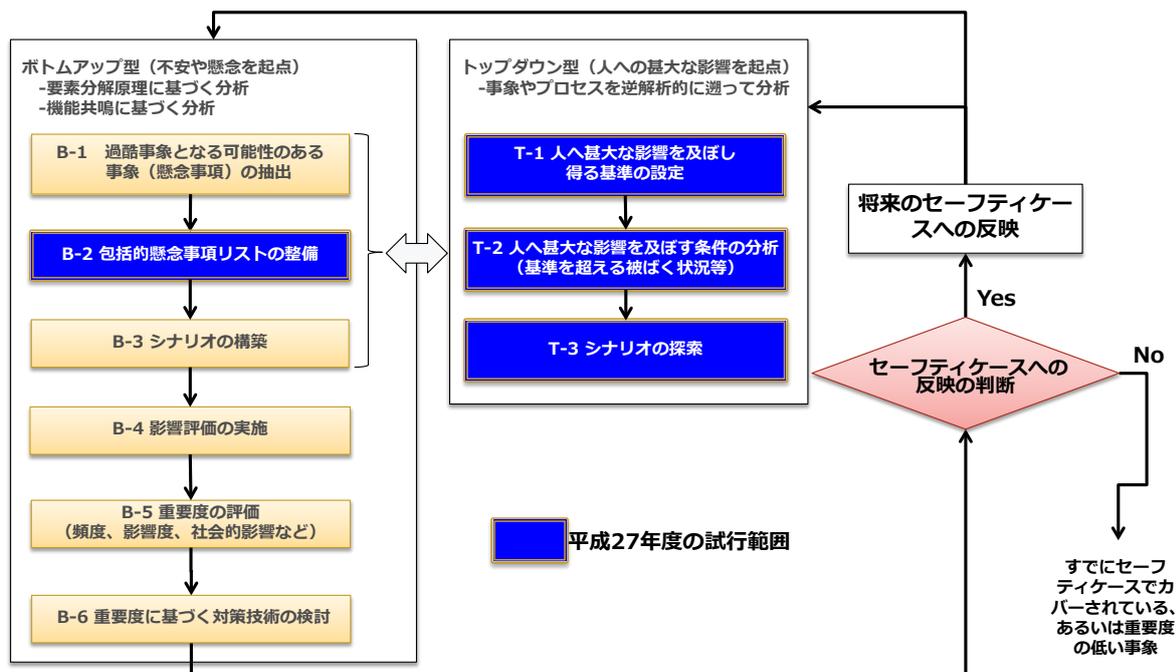


図4.2.1-2 地層処分システムにおける過酷事象の検討フロー（改良版）

以下では、改良点の概要について記述する。

① ボトムアップ型の手順の具体化

平成26年度は、地層処分及び社会学の分野の専門家によるワークショップで得られた意見も踏まえ、トップダウン、ボトムアップ、ミドルアップダウンの視点を採用することにより、過酷事象となる可能性のある事象（以下、「懸念事項」という）を抽出することとしていた（日本原子力研究開発機構，2015）。また、重大な抜け落ちを回避するために、頻度等の観点で過酷事象か否かを事前に取り捨選択することは避け、過酷事象の候補として懸念事項を列挙することとしていた。このうち、ボトムアップ型は、専門家や一般公衆が抱く「〇〇が起これたらどうなるのか？」といった不安や懸念を起点として、懸念事項を抽出するものである。

閉鎖後の地層処分システムは、隔離機能と閉じ込め機能が相互補完関係にあり、それら機能が発揮される状況では人へ甚大な影響を及ぼし得るほどの被ばくが生じる可能性は考えにくい。従って、従来のヒューリスティックな（経験的な）発想を前提として、人への甚大な影響という観点からシステムの大規模な変遷を探索する際には、要素分解原理に基づく従来のアプローチに加え、「関係が事前に把握できていない複数の変動要因が共起的に生じ、その影響が機能共鳴により拡大していく状況を考慮すること」が必要になる。なお、要素分解原理は「システムはいくつかの要素に分解することによって理解可能とする考え方」を意味する。

そこで、レジリエンス工学における機能共鳴の考え方（Hollnagel, 2012: 日本原子力研究開発機構，2014）を導入することで、懸念事項を網羅的に抽出することが有効と考えた。なお、機能共鳴は「システムの特性や挙動を全て理解することはできないという前提にたち、システムを構成する機能同士がどのように連鎖し、共鳴して大規模な変遷が起こるのかを表現する考え方」を意味する。

このように、要素分解原理及び機能共鳴に基づき抽出する考え方をボトムアップ型と定義する。具体的には、専門家がこれまでの経験に基づき発想することや不安や懸念について一般公衆と対話することを通じて抽出することが考えられる。この際、既往の安全評価結果（たとえば、核燃料サイクル開発機構，1999c）、地層処分に関する国際FEPリスト（OECD/NEA，2002；2006a）、原子炉分野などの他分野のリスト（たとえば、日本原子力学会，2014）等を参照しつつ、以下の事象やそれらの複合的な事象を抽出し、リスト化していくことが考えられる。

- 既往の安全評価でFEPリストに含まれていない事象
- 既往の安全評価でFEPリストに含まれつつもサイト選定・工学的対策・頻度・システムへの影響の観点から評価対象外とした事象
- 既往の安全評価でFEPリストに含まれつつも頻度の観点から評価対象外とした事象を著しく変動させた場合
- 既往の安全評価で具体的に評価されたシナリオであるが、その影響の程度を大きく変動させた場合

さらには、レジリエンス工学におけるFRAM法（Hollnagel，2012）等を用いて機能共鳴パターンを抽出し、リスト化していくことが考えられる。

なお、平成26年度に設定したミドルアップダウン型については、安全機能の著しい低下・喪失を起点とするものであるが、この考え方はボトムアップ型とは別のものとするより、ボトムアップ型に含まれる後段の手順（包括的懸念事項リストの整備及びシナリオの構築）において考慮すべき観点と捉えることが妥当と考えられる。

② トップダウン型の手順の具体化

トップダウン型は、「人への甚大な影響（たとえば、100mSv）が発生する様な状況はどの様にして引き起こされ得るのか」という観点で懸念事項を抽出する考え方である。

平成27年度は、特に、トップダウン型の観点から懸念事項を探索する手順を追加的に具体化するため、平成26年度と同様に地層処分及び社会学の分野の専門家によるワークショップを開催し、そこで得られた意見を反映して手順を具体化することとした。

ワークショップでは、100mSvを起点としてツリー形式で過酷な状況を分析していく手順ならびに100mSvになり得る被ばく経路や放射能濃度を探索するための試解析結果等を共有した上で議論を進めた。

平成27年度のワークショップで得られた意見を以下に記す。

- ・ 人へ甚大な影響を及ぼし得るとの判断の基準については、100 mSvはICRPにおける緊急時被ばくの上限值（ICRP, 2007）であり、まずは、100 mSvを設定しておくことは同意できる。ただし、100 mSvは確定的な値ではなく、仮に100 mSvを達成するような合理的なシナリオが無ければ基準を下げた検討を行ってもよい。
- ・ 過酷事象は新概念であり、人へ甚大な影響を及ぼし得る基準（例えば100mSv）を起点として最も過酷な状況を抽出するトップダウン型のアプローチを新たに検討することが重要であり、意義がある。過酷事象を探索する目的は、安全評価シナリオの見落としの確認と一般公衆の漠然とした不安の解消である。このような探索は、「科学的常識では見つからないブラックスワンや未知の未知に対して、どのように対処しているのか」という問い掛けに対する回答となりうる。
- ・ トップダウン型のアプローチにより100 mSvとなるシナリオが抽出された際には、自然現象に関する科学的な知見を踏まえて、シナリオの蓋然性を確認することが重要である。
- ・ トップダウン型のアプローチでは、シナリオとの関連付けを可能な限り後段の手順で行うべきであるとともに、100 mSvとなるパラメータの数値だけでなく、そのようなパラメータの値を引き起こし得る発端事象があり得るのかまでを考えるべきである。
- ・ 原子力以外の専門家への問いかけを行う等、シナリオの網羅性を担保する努力が必要になる。
- ・ 閉鎖後だけではなく操業中の過酷事象の検討も重要であるため、今後検討していく必要がある。

上述の意見を踏まえ、次に示す考え方をトップダウン型とし、その考え方にに基づきシナリオを探索する手順を具体化した。

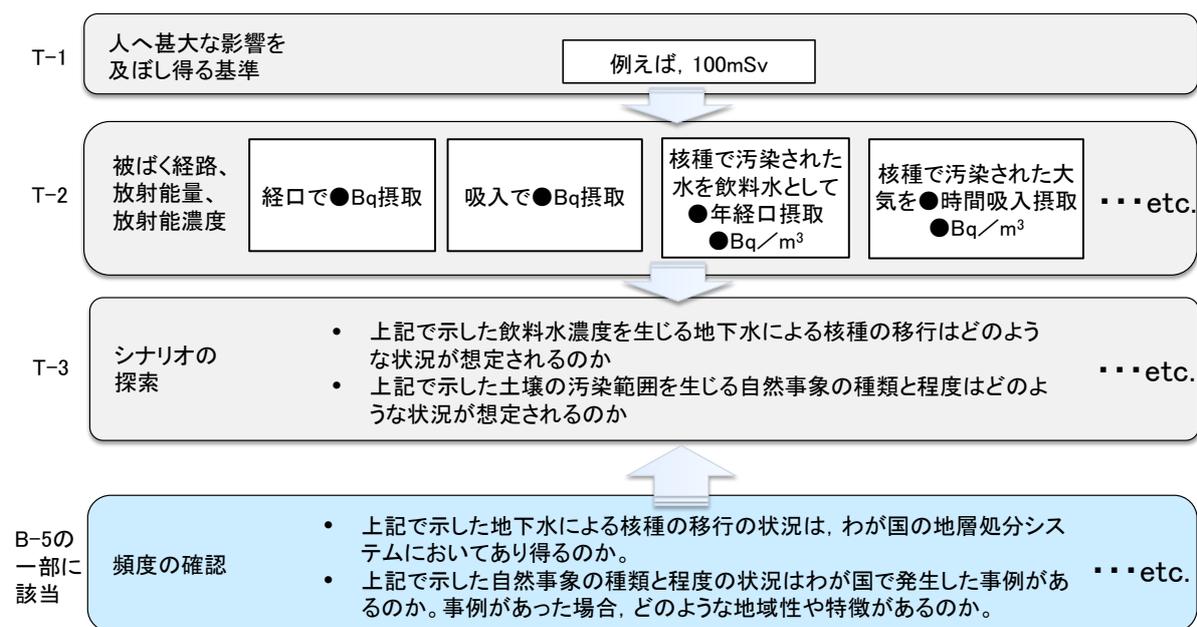
前述のように、閉鎖後の地層処分システムは、隔離機能と閉じ込め機能が相互補完関係にあり、それら機能が発揮される状況では人へ甚大な影響を及ぼし得るほどの被ばくが生じる可能性は考えにくい。従って、人への甚大な影響という観点からシステムの大規模な変遷を探索する際には、

従来とは異なる以下の視点を考慮することが有効と考えられる。

- ・従来の方法のように、ある前提条件のもとで起こり得る不具合を探そうとするのではなく、あらかじめ重大な不具合や影響をリストアップした上で、その不具合や影響を起こす潜在的な要因を考える (Kaplan, 1999)。

ここでは、この視点への対応として人への甚大な影響を及ぼし得ること (例えば、100mSv) を起点として事象やプロセスを遡って分析することをトップダウン型と定義し、その考え方を導入した手順を具体化することとした。探索方法の模式図を図4.2.1-3に示す。

具体的には、まず、人への甚大な影響を及ぼし得る基準 (例えば、100mSv) を起点として、それをもたらす放射エネルギーや放射能濃度を被ばく経路 (経口摂取、吸入摂取等) 別に分析する。なお、この段階では、具体的な事象や地層処分システム上の仮定を極力想定せず、100mSvとなり得る状況を探ることにより主眼を置くこととする。さらに、算出した放射エネルギーや放射能濃度をもちいた事象 (event) やプロセス (process) をボトムアップ型の視点 (要素分解原理、機能共鳴等) も加えて列挙し、その上で、列挙した事象やプロセスに対する頻度を、科学的な知見に基づき確認するというものである。



T-1～T-3およびB-5は検討フロー中の手順を示す。

図4.2.1-3 トップダウン型の観点からシナリオを探索する模式図

(2) 包括的懸念事項リストに関する構造の具体化

平成26年度は、抽出された懸念事項を一般化して表現し、安全機能と関連付けた上で懸念事項リストとして取りまとめる方法を示した (日本原子力研究開発機構, 2015)。

過酷事象の検討フローのB-1手順 (図4.2.1-2) では、専門家や一般公衆が考える懸念や不安を抽出することとなる。このため、抽出される懸念事項には、発端となる事象に加え、安全機能の

劣化・喪失や被ばく経路等が含まれる場合がある。従って、ここでは、包括的懸念事項リストを以下のように区分して懸念事項を記録することとした。

- ・シナリオに含まれる要素という観点から、発端事象、事前シーケンス（プロセス）、安全機能の低下・喪失に大別し、抽出された懸念事項を分類して整理する。
- ・発端事象については、抽出された懸念事項のうち、発端となる事象を、単一事象と複合事象、ならびに自然過程と人為過程に分類して記述する。なお、機能共鳴に基づき抽出した懸念事項については、従来とは異なる観点が含まれたものであることから、機能共鳴パターン毎にリストに記述する。
- ・事前シーケンスについては、安全機能の低下・劣化につながる著しいプロセスを熱-水-力学-化学（THMC）等の観点でパターン化して記述する。
- ・安全機能の劣化・喪失については、対象とする地層処分システムの特徴を踏まえ、安全機能を設定した上で、事前シーケンスによる低下・劣化のパターンを記述する。

上記を踏まえ、既往の安全評価事例及び平成26年度の試行結果に基づき、包括的懸念事項リストの整備を試行した（表4.2.1-1）。このような記録方法を採用することにより、リストにある要素を組み合わせることでシナリオを構築することが期待できる。さらには、シナリオ上の包絡性（種々のシナリオのうち、安全機能が劣化するあるいは喪失する状況を想定したシナリオを選ぶことにより、その他のシナリオを代表できること）を勘案しやすくなるものと考えられる。

なお、後の手順であるシナリオ構築においては、被ばく源として、被ばく経路、被ばくを受ける集団の大きさ、影響の継続時間等も考慮して記述する必要がある。

表4. 2. 1-1 包括的懸念事項リストの例

発端事象		事前シークエンス	安全機能の劣化・喪失					
単一事象	自然過程		B-1 温度の著しい上昇	C-1 オーバーパックによる核種閉じ込めの劣化・喪失				
	A1-1	巨大カルデラの生成	B-2 地下水流動の著しい変化	C-2 人間環境からの物理的障壁の存在の劣化・喪失				
	A1-2	マグマの処分場への流入	B-3 岩盤の大規模破壊	C-3 ガラス固化体による地下水への放射性核種の溶出抑制の劣化・喪失				
	A1-3	火砕流	B-4 地下水組成の著しい変化	C-4 人工バリア中での低い溶解度(溶解度制限)の劣化・喪失				
	A1-4	土石流	B-5 鉱物組成の著しい変化	C-5 緩衝材中での小さな物質移行速度(拡散)の劣化・喪失				
	A1-5	洪水	B-6 廃棄体と人間の接近	C-6 緩衝材中での核種移行遅延(収着)の劣化・喪失				
	A1-6	竜巻		C-7 コロイドの移動の抑制の劣化・喪失				
	A1-7	巨大地震・断層活動		C-8 人工バリアの化学的緩衝性の劣化・喪失				
	A1-8	急激な気候変動		C-9 緩衝材の膨潤性と可塑性の劣化・喪失				
	A1-9	臨界発生		C-10 母岩中での核種の移行抑制の劣化・喪失				
	A1-10	隕石の衝突		C-11 母岩中での核種の希釈・分散の劣化・喪失				
	A1-11	著しい隆起・侵食						
A1-12	大規模な深部流体							
人為過程		機能共鳴**						
A2-1	資源探査	緩衝材外側での核種の沈殿・濃集	急激な環境変化による核種の溶解・移行	ニアフィールド過渡期でのオーバーパックの早期開口	緩衝材の止水性喪失	ニアフィールド過渡期でのオーバーパックの早期開口		
A2-2	強酸・強アルカリの大量排水	×	×	×	×	×		
A2-3	地下居住の一般化							
A2-4	テロリズム							
A2-5	温泉の見落とし							
A2-6	戦争							
A2-7	社会制度の崩壊							
A2-8	知識・情報継承の失敗							
A2-9	バリア構成要素の初期欠陥							
A2-10	大型飛来物(航空機等)							
A2-11	閉鎖前の管理が不十分なまま放置							
複合事象*	A3-1						隆起・侵食/地震・断層活動	・酸化還元フロントの移動 ・pH勾配 ・二次鉱物との共沈・収着 ・核種沈殿及び沈殿物による放射線分解を通じた自己励起的移動と濃集
	A3-2	地震・断層活動/深部流体						
	A3-3	隆起・侵食/隕石衝突						
	A3-4	社会制度の崩壊および不十分な埋戻し						
	A3-5	地下居住の一般化および記録喪失						

*複合事象については、平成26年度までの研究で挙げられた組合せを記述した。複合事象を考慮する際には、その組合せが膨大な数になるため、その取扱い方法は今後の課題である。

**機能共鳴については、FRAM法を地層処分システムに適用した事例(日本原子力研究開発機構, 2014)に基づき記述した。

(3) トップダウン型に着目したシナリオ探索の試行

トップダウン型の観点からシナリオ探索を試行した結果について述べる。ここで、T-1、T-2及びT-3は、図4.2.1-3に示したシナリオ探索のステップである。

①基準の設定 (T-1)

ここでは、人へ甚大な影響を及ぼし得るかどうかの基準値として、ICRPの緊急時被ばくの参考レベルの上限値（ICRP, 2007）である100mSvを設定した。なお、この基準値は、本試行で暫定的に設定したものであり、ステークホルダーとのコミュニケーションや国内外の動向等により、他の数値を設定することが適切となる場合には基準値を見直すべきものである。

②過酷事象となる条件の分析 (T-2)

次に、以下の想定に基づき、100mSvの被ばくをもたらす放射能濃度を算出した。

- ・被ばく経路としては、内部被ばくのうち経口摂取を想定し、放射性核種を含む飲料水を継続的に1年間摂取することを想定する。なお、本想定は任意に設定したものであり、異なる摂取期間や被ばく経路等を想定した場合についても取り扱っていく必要がある。
- ・飲料水中の放射性核種*i*の濃度を*C(i)*と定義する。
- ・浅地中ピット処分の原子力学会学会標準における内部被ばくモデル（日本原子力学会、2013）を参考に設定した以下の評価式を用いる。

$$D_{ing}(i) = C(i) \cdot W \cdot DF_{ing,i} \quad (1)$$

算出に用いたパラメータの一覧を表4.2.1-2に示す。経口摂取した場合の線量換算係数は、文部科学省告示第五十九号（文部科学省、2012）に基づき、成人が1年間に摂取する飲料水量は、ICRP Pub. 89（ICRP, 2002）に基づきそれぞれ設定した。

表 4. 2. 1-2 経口摂取による被ばく線量評価に用いたパラメータの一覧

パラメータ[単位]		設定値	設定根拠
$D_{ing}(i)$ [mSv]	核種iの経口摂取による被ばく線量	100	ICRPにおける緊急時被ばくの上限值
W [m ³]	飲料水の摂取量	0.61	ICRP Pub. 89 (ICRP, 2002) に基づき成人が1年間に摂取する飲料水量を設定
$DF_{ing,i}$ [mSv/Bq]	核種iの経口内部被ばく線量換算係数	表4. 2. 1-3 参照	文部科学省告示第五十九号別表第2 (文部科学省, 2012) に基づき設定

表4.2.1-3 100mSvの内部被ばく（経口摂取）をもたらす放射能濃度の算出結果

核種	経口摂取した場合の 実効線量係数[mSv/Bq]	各核種において100mSvに 相当する放射能濃度(Bq/m ³)
Se-79	3.90×10^{-7}	4.20×10^8
Zr-93	2.80×10^{-7}	5.85×10^8
Nb-93M	1.20×10^{-7}	1.37×10^9
Nb-94	1.70×10^{-6}	9.64×10^7
Tc-99	7.80×10^{-7}	2.10×10^8
Pd-107	3.70×10^{-8}	4.43×10^9
Sn-126	4.70×10^{-6}	3.49×10^7
Cs-135	2.00×10^{-6}	8.20×10^7
Sm-151	9.80×10^{-8}	1.67×10^9
Pb-210	6.80×10^{-4}	2.41×10^5
Ra-226	2.80×10^{-4}	5.85×10^5
Ac-227	1.10×10^{-3}	1.49×10^5
Th-229	2.00×10^{-4}	8.20×10^5
Th-230	8.70×10^{-5}	1.88×10^6
Th-232	9.20×10^{-5}	1.78×10^6
Pa-231	7.10×10^{-4}	2.31×10^5
U-233	8.50×10^{-6}	1.93×10^7
U-234	8.30×10^{-6}	1.98×10^7
U-235	8.30×10^{-6}	1.98×10^7
U-236	7.90×10^{-6}	2.08×10^7
U-238	7.60×10^{-6}	2.16×10^7
Np-237	1.10×10^{-4}	1.49×10^6
Pu-238	8.80×10^{-6}	1.86×10^7
Pu-239	9.00×10^{-6}	1.86×10^7
Pu-240	9.00×10^{-6}	1.82×10^7
Pu-241	1.10×10^{-7}	1.49×10^9
Pu-242	8.60×10^{-6}	1.91×10^7
Am-241	2.00×10^{-4}	8.20×10^5
Am-242M	1.90×10^{-4}	8.63×10^5
Am-243	2.00×10^{-4}	8.20×10^5
Cm-245	2.10×10^{-4}	7.81×10^5
Cm-246	2.10×10^{-4}	7.81×10^5

③シナリオの探索 (T-3)

次に、地下水による核種移行評価結果のひとつである総線量への寄与が大きいSe-79を任意に選択し、100mSvに相当する放射能濃度に基づくシナリオ探索を試行した。表4.2.1-3より、Se-79が含まれる飲料水を1年間飲用し続ける場合の経口被ばく線量が100mSvを超える条件は、Se-79の水中濃度が $4.20 \times 10^8 \text{Bq/m}^3$ 以上となる。この条件をもたらずシナリオとして、以下のものを探索した。

- A) 地震・断層活動により短絡経路が発生し、ガラス固化体中に含まれるあるいはその近傍に沈殿していたSe-79が、その短絡経路により地表の水源まで到達する。その後、人間がその水源の水を採水・摂取する（1年間）。
- B) 地震・断層活動により短絡経路が発生し、ガラス固化体中に含まれるあるいはその近傍に沈殿していたSe-79がその短絡経路により帯水層に移行する。その後、新規の井戸が掘られ、帯水層中の地下水を採水・摂取する（1年間）。
- C) 想定よりも著しく早い隆起・侵食により、ニアフィールドで遅延されていたSe-79が地表付近の風化帯土壌へ到達する。その後、風化帯土壌中の地下水移行により水源（湖沼等）にSe-79が流入し、その水を採水・摂取する（1年間）。

さらには、上述におけるB)のシナリオに対して、頻度の確認を試行した。試行に際しては、討論モデルにおける論証と反証の考え方（例えば、Osawa et al., 2009）を採用し、シナリオとして除外するための根拠を反復的に蓄積することとした。試行結果を図4.2.1-4に示す。

なお、図4.2.1-4は、トップダウン型の観点からのシナリオ探索上の課題を抽出するため、Se-79を対象として試行したものである。今後の課題としては、評価期間の考え方、他の核種への展開、ボトムアップ型の手順と連携したシナリオ探索手順の具体化、論証と反証を蓄積する際の観点の具体化が考えられる。

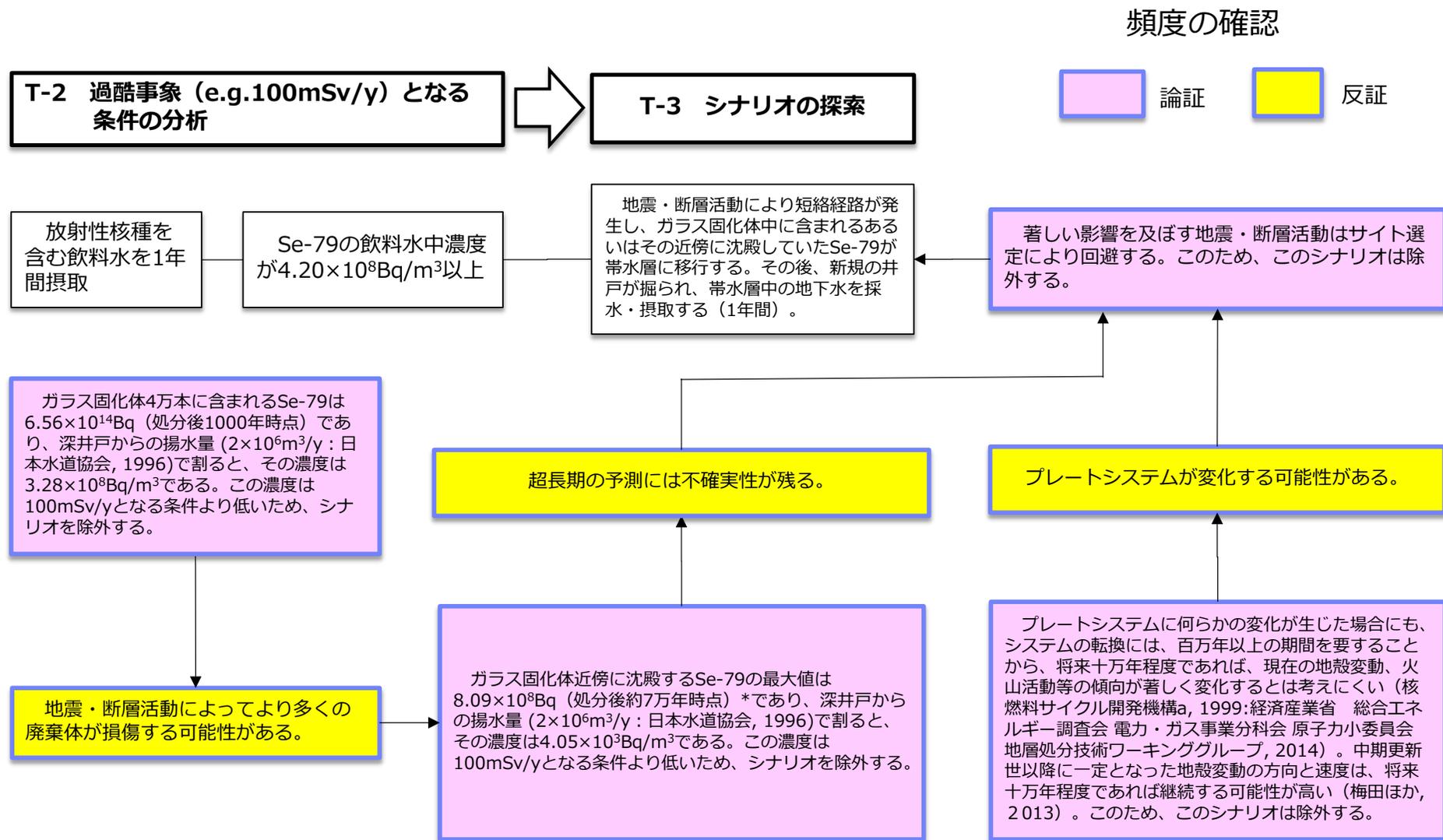


図4.2.1-4 トップダウン型に基づくシナリオ探索及び頻度の確認 (例)

4.2.2 地層処分システムの頑健性の分析

(1) 検討の位置付け

地層処分システムにおけるセーフティケースの信頼性をより強固なものとするためには、地質環境の理解・システム工学設計・安全評価というプロセスについての検証機会を設け、基盤となる現在の科学知識をあえて脅威にさらすことが必要である。これにより、可能性のある誤謬や過誤あるいは洩れを積極的に検知し、その原因や影響を理解するとともに適切な対応策をとることが可能となる。このような観点での検討は、4.2.1項の検討が該当する。

一方、閉鎖後の地層処分システムのみに着目して頑健性を論じる以外に、他の高レベル放射性廃棄物（ガラス固化体）の管理状況（地上にある状況や閉鎖前の地下にある状況等）との比較を通じて、地層処分システムの利害得失を分析してみることは、地層処分の特徴である地下環境の頑健性を浮き彫りにすることが期待される。また、地層処分の特徴を相対的な視点で分析することで、受動的安全の頑健性を論じるための論点の妥当性の確認、あるいは新たな論点の抽出に資する可能性がある。

そこで、本項では、ガラス固化体の管理状況として、ガラス固化体が地上にある状況とガラス固化体が地下ある状況を対象として、以下の項目について検討した内容について記述する。

- ・相対的な比較の考え方
- ・相対的な比較の方法

(2) 検討結果

①相対的な比較の考え方

まず、ガラス固化体が地上にある状況とガラス固化体が地下ある状況に対する比較の考え方の整理として、着目点及び留意点を整理した。この検討の一環として、地層処分及び社会学の分野の専門家を交えたワークショップを開催し、処分と貯蔵（地上保管等）に係る過去の国際的な議論や学術会議における議論の状況、ならびに原子力発電所で挙げられている外的擾乱要因の一覧（日本原子力学会，2014）等を共有した上でフリーディスカッションを行った。その議論を通じて、比較の考え方の整理につながる以下の意見が得られた。

- ・貯蔵と地層処分は二者択一の対立する概念ではない⇒留意点に関係
- ・貯蔵と地層処分は、技術的な観点に加え、社会親和性と技術倫理性も含めた移行のタイミングの問題ととらえることができる（例えば、地上保管→地下保管（地層処分の操業や閉鎖までの埋め戻し期間が該当）→地層処分（地層処分場の閉鎖後））⇒着目点に関係
- ・地上保管での人間による制度的管理に安心を感じるという人々もいることに注意が必要⇒留意点に関係
- ・外的擾乱に着目して安全性の比較整理を実施する場合には、廃棄体が地上にある場合の影響と地下にある場合の影響との違いが明確になるようにする⇒着目点に関係

上記の意見も踏まえ、地層処分と地上保管の比較は以下の考え方で行うこととした：

- ・ ガラス固化体が地上にある状況（地上保管）とガラス固化体が地下にある状況（処分場地

下施設での作業中やアクセス坑道の埋め戻しなど閉鎖前までの状態が該当) を比較の対象とする

- ・ 以下の視点から比較する
 - 技術的な観点及び社会的な観点（制度的管理を含む）での比較
 - 外的擾乱による影響の比較
 - 時間の経過による信頼度の観点からの比較

②相対的な比較の方法

上記の考え方にに基づき整理した比較方法と検討例を以下に記す。

まず、「技術的な観点及び社会的な観点（制度的管理を含む）での比較」については、ガラス固化体が地上にある状況及びガラス固化体が地下にある状況に対して、社会的な観点及び技術的な観点から、以下の文献及びワークショップで得られた意見に基づきそれぞれの特徴を整理した。整理結果を表4.2.2-1に示す。

- ・ OECD/NEAのレポート（OECD/NEA, 1982: 1985: 2006b: 2008: 2011）
- ・ 全米科学アカデミーのレポート（NAS, 2001）
- ・ 第2次取りまとめの別冊（核燃料サイクル開発機構, 1999d）

表4.2.2-1 ガラス固化体の管理状況の特徴について整理した例

		能動的管理から受動的安全性へ徐々に移行 / 回収の容易性が徐々に低下	
	ガラス固化体が地上にある状況	ガラス固化体が地下にある状況	
		閉鎖前(地下にあるが回収可能)	閉鎖後
社会的な 観点	<ul style="list-style-type: none"> ・ 人間による管理が容易であり、目に見えるところにあるため、安心感が高まることもある。 ・ 長期化する場合には、受益者ではなく将来世代へ負担をかけるとともに、管理コストが増大する。一方、説明性を高めたり新規技術を取り入れること等により、社会受容性を高めることができる。 ・ 必要な決定を先延ばしする場合、多くの不確かさを伴う。 	<ul style="list-style-type: none"> ・ 閉鎖するまでには時間を要するため、説明性を高めたり新規技術を取り入れること等により、社会受容性を高めることができる。 ・ 閉鎖後に比べて回収可能性等の柔軟性があり、安心感がある。 ・ 回収する場合には、地上にある場合よりもコストがかかる。 	<ul style="list-style-type: none"> ・ 管理コストが大幅に低減する。 ・ 人間による管理が加えられない状態が受容されにくい場合がある。 ・ 長期間の経過後、処分場の存在が忘れ去られる可能性がある。
		(共通) <ul style="list-style-type: none"> ・ 地上より地下にあった方が安心感が高まることもある。 ・ 今の社会が受容した現在の状況よりも悪くない状況を将来世代に残していくよう努める姿勢は理解される。 	
技術的な 観点	<ul style="list-style-type: none"> ・ 人間による管理および廃棄物の回収が比較的容易である。 ・ 地表で起こる自然現象やテロ行為等の影響を受けやすい。 	<ul style="list-style-type: none"> ・ 閉鎖前であれば、人間による管理および廃棄物の回収が可能である。 ・ 長期化する場合、閉鎖後の安全性に影響を与える可能性がある。 	<ul style="list-style-type: none"> ・ 人間による管理を必要としない受動的な安全性を期待できる。 ・ 廃棄物の回収が難しくなる。
		(共通) <ul style="list-style-type: none"> ・ 地表で起こる自然現象やテロ行為等の影響を受けにくい。 	

次に、「外的擾乱による影響の比較」については、自然現象を含む外的擾乱要因に着目し、それらの要因が、ガラス固化体が地上にある状況及びガラス固化体が地下にある状況（閉鎖前）に与える影響を把握し、それぞれの特徴を分析するための考え方を提示した。考え方の概要及びその模式図（図4.2.2-1）を以下に示す。

- ・ガラス固化体が地上にある場合の状況と地下に存在する場合の状況を明確化する。
- ・評価で対象とする外的擾乱要因の候補を整理する。
- ・各外的擾乱要因に対しては、まず、地上・地下に無関係かどうかを判断し（例えば、わが国における岩塩のダイアピル作用及び溶解は無関係）、関係がある要因は地下のみに影響を及ぼすものか、あるいは地上のみに影響を及ぼすものかを分類する。
- ・両方の関係する外的擾乱要因については、定性的あるいは定量的な影響評価を行う。
- ・以上を通じて、ガラス固化体が地上にある状況及びガラス固化体が地下にある状況での外的擾乱による影響を分析し、影響及び共通点・相違点等を抽出・分類する。

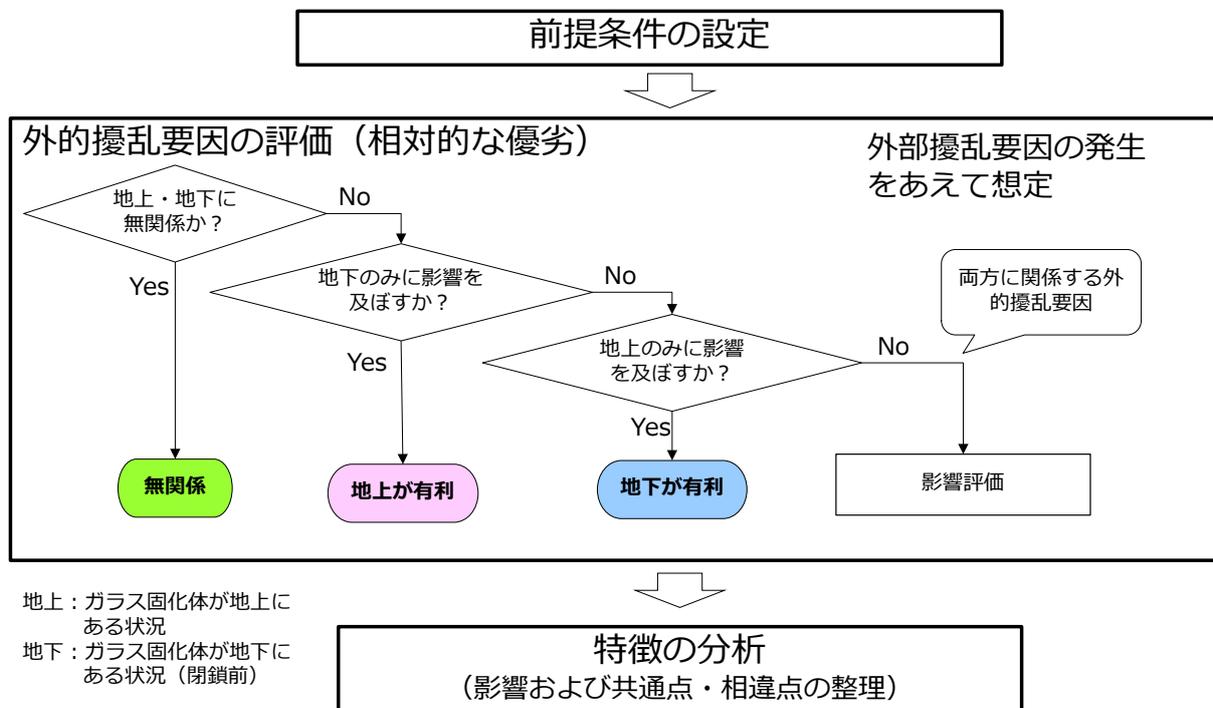


図4.2.2-1 外的擾乱要因による影響を分析するための考え方

このような外的擾乱による影響を分析するための考え方は、4.2.2(1)に示した目的での比較に加えて、比較の対象とする評価期間に応じた外的擾乱要因の影響度の変化等の把握を試みることで、能動的管理から受動的安全性へ移行するタイミングの検討に資する情報を提供することも期待される。

4.3 巨大地震・断層活動を事例とした評価技術開発

4.3.1 巨大地震・断層活動によるシナリオの検討

(1)はじめに

地震・断層活動による処分システムへの直接的影響については、地層処分事業の基本的考え方（原子力発電環境整備機構，2010）等にも示されているように、適切なサイト選定によって基本的に回避される。したがって、こうした事象が少なくとも閉鎖直後に発生する可能性は極めて低いと考えられる。そのため、Miyahara et al. (2008)では、What ifシナリオとして処分場の閉鎖直後に断層が直撃することによってさまざまな安全機能が喪失するケースが仮想的に検討された。一方、原子力発電環境整備機構（2011）では、断層活動の発生時期や頻度に関する予測の不確実性を考慮して、閉鎖後10万年を超える遠い将来において、処分場を横切る断層が新生されることによる水理学的・地球化学的影響を仮想的に想定したシナリオが検討された。こうしたシナリオは、いずれも仮想的なシナリオに対してシステムの頑健性を示すことが主目的であり、各シナリオが想定し得ないシナリオなのか、あるいは発生の可能性は低いながらも想定し得るシナリオなのかについては必ずしも明確にされていない。そこで、地震・断層活動を発端とする事象を事例として、影響の大きなシナリオの候補を抽出した上で、それらの発生可能性を確認するためのシナリオ構築手順を整備することを目的として検討を行っている。

平成25年度の検討では、地震・断層活動による処分システムへの直接的影響を事例に、生起確率が極めて低いながらも影響の大きなシナリオを構築するための手順を整備した（日本原子力研究開発機構，2014）。この手順は、処分システムの安全機能の劣化・喪失や、わが国で観測されている最大規模の地震・断層活動等の、大きな影響を生じる可能性のあるプロセスに絞って情報収集を行うことで、影響の大きなシナリオを効果的に構築することをねらったものである。

平成26年度は、平成25年度に整備したシナリオ構築の手順のうち、安全機能の劣化・喪失や、わが国で観測されている最大規模の地震や断層活動による地質環境条件への熱的（T）、水理学的（H）、力学的（M）、化学的（C）影響について、文献調査を通じて情報収集を進めた。具体的には、プロセスの因果関係を、プロセス・インフルエンスダイアグラム（以下、「PID」という）にまとめるとともに、文献調査を通じて収集し、情報をデータシートにまとめた。（日本原子力研究開発機構，2015）。

平成27年度は、平成26年度に実施した情報収集の結果を用いて、シナリオを構築するための手順を詳細化した。具体的には、安全機能の定量的な分析（Step1）や、平成26年度に実施した情報収集の結果を用いて、影響の大きなシナリオ（たとえば被ばく線量が100mSvを超える）に至り得る道筋とそこに至る可能性の有無を判断するために着目すべき安全機能の劣化・喪失（あるいはその原因となるプロセス）（以下、「シナリオ分岐点」という）を抽出（Step2）した上で、それらの発生条件を確認（Step3）するアプローチをとることとした（図4.3.1-1）。また、Step1については、4.2で検討したトップダウン型のアプローチを参考にして、より効率的に安全機能の劣化・喪失の組み合わせを抽出する方法を合わせて検討した。以下では、これらの試行結果について示す。

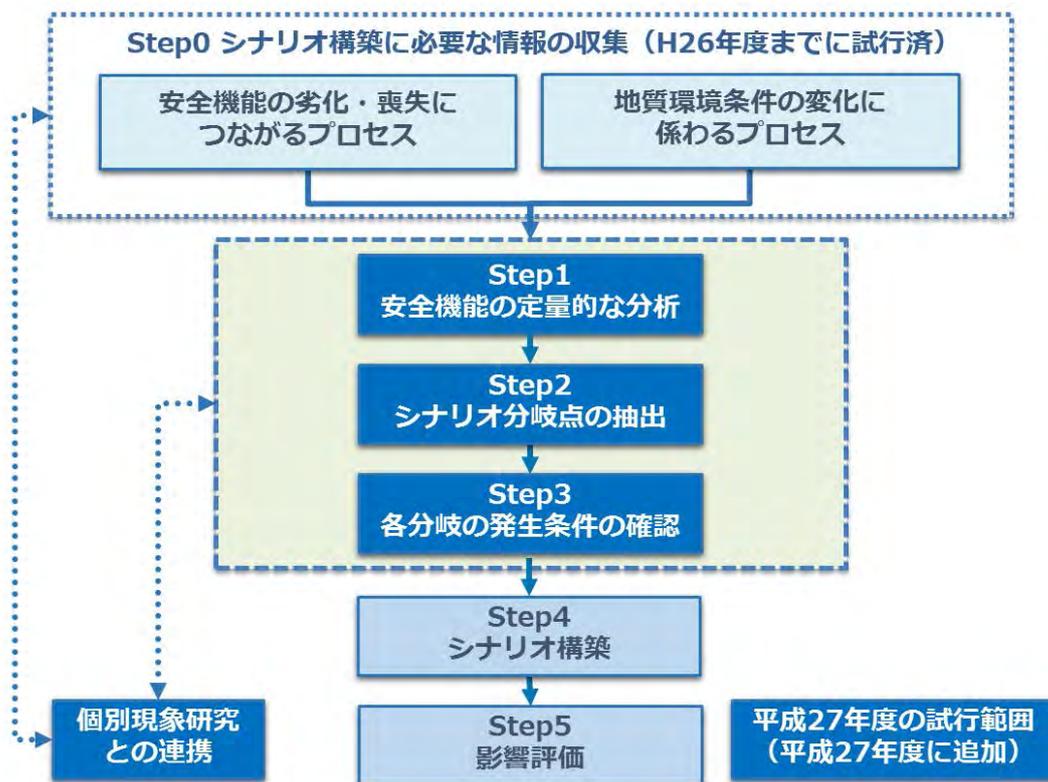


図4.3.1-1 地震・断層活動を対象としたシナリオ構築の手順及び今年度の実施範囲

(2)安全機能の定量的な分析 (Step1)

ここでは、後述のStep2におけるシナリオ分岐点の抽出を、被ばく線量に与える影響が大きい(ここでは被ばく線量が100mSvを超える状況を想定;4.2節参照)シナリオ分岐点を明らかにするために、地層処分システムに期待される個々の安全機能のON/OFF解析を実施する。具体的には、すべての安全機能をOFFとした状態に、一部の安全機能が発揮することを想定した解析を実施することで、被ばく線量の低減効果が高い、安全機能を把握することとした。

1)安全機能の取り扱い

本検討では、表4.3.1-1に示す10の安全機能のうち、人工バリア及び天然バリアによる移行遅延に係わる5つの安全機能を対象として、各安全機能が機能を喪失する状態(安全機能OFF)を起点にした感度解析を実施した(モデル、パラメータ、対象核種についてはH12レファレンスケースに準拠)。表4.3.1-1には、感度解析における個々の安全機能が喪失した状態(安全機能OFF)の設定、及び地震・断層活動に起因するシナリオを抽出するための各設定のもつ物理的意味についても併せて示した。このうち、人工バリアの安全機能(表4.3.1-1中のE-1、E-2、E-3、E-4)の取り扱いについては、若杉ほか(2011)の安全機能のON/OFFに基づく感度解析における取り扱いに準拠した。一方、天然バリアの安全機能については、「母岩中での核種移行抑制」(表4.3.1-1中のG-1)について着目することとし、この機能が喪失する状態(安全機能OFF)として、母岩の透水量係数とEDZ流量が6桁増加するケースと、母岩の分配係数が全核種において0となるケースの2種類を設定した。

表4.3.1-1 安全機能の喪失（安全機能のOFF）の定義とその物理的意味

安全機能	機能の喪失（OFF）※	
	定義	物理的意味
C-1. オーバーパックによる閉じ込め	本解析では検討の対象外（OP開口後を対象とした評価のため）	
E-1. ガラス固化体が地下水への放射性核種の溶出を抑制	ガラス溶解速度 = 2.42×10^4 (1年で全重量溶解)	ガラス表面積の増加、温度上昇、pHの低下等によってガラスの溶解速度が著しく上昇すること
E-2. 人工バリア中での低い溶解度（溶解度制限）	全核種が可溶性	緩衝材中に低pHの水が流入すること等によって溶解度が著しく増加すること
E-3. 緩衝材中での小さな物質移行速度（拡散）	拡散係数 = 10^{10} (瞬時に核種が緩衝材外側へ移行)	緩衝材の変形等によって、緩衝材を短絡するパスが形成され、移行経路上に緩衝材が存在しない状態となること
E-4. 緩衝材中での核種移行遅延（収着）	分配係数 = 0 (全核種収着なし)	緩衝材中に低pHの水が流入すること等によって核種の収着がほとんど生じない状態となること
E-5. コロイドの移動の抑制	本解析では検討の対象外	
E-6. 人工バリアの化学的緩衝性		
E-7. 緩衝材の膨潤性と可塑性		
G-1. 母岩中での核種の移行抑制	透水量係数 = $H12RC \times 10^6$ (数時間で全核種が母岩外側に到達)	母岩を短絡するパスの形成等によって移行経路上に母岩が存在しない状態となること。
	EDZ流量 = $H12RC \times 10^6$ (透水量係数と同じ値を設定)	
	分配係数 = 0 (全核種収着なし)	母岩に低pHの水が流入すること等によって核種の収着がほとんど生じない状態となること
G-2. 母岩中での核種の希釈・分散	本解析では検討の対象外	

H12RC: 第2次取りまとめレファレンスケースにおける設定値 ※機能の低下（一部ON）については今後検討

2) 解析ケース及びデータの設定

ここでは1)に示した各安全機能の取り扱いを踏まえて、すべての安全機能をOFFとしたケースを基本に、各安全機能を1つずつ追加したケースと、全ての安全機能をONにしたケース（第2次取りまとめレファレンスケースの設定）の計8ケースを解析ケースとして設定した（図4.3.1-2）。核種移行パラメータや線量換算係数等のデータ設定については、表4.3.1-1に記載のあるもの以外は第2次取りまとめのレファレンスケースにおける設定に準拠した。解析は、GoldSimによる第2次取りまとめレファレンスケースの安全評価モデル（仲島ほか，2009）を用いて、本検討での解析ケース及びパラメータの設定を反映して実施した。なお、地質環境や生活圏の変遷については考慮していない。

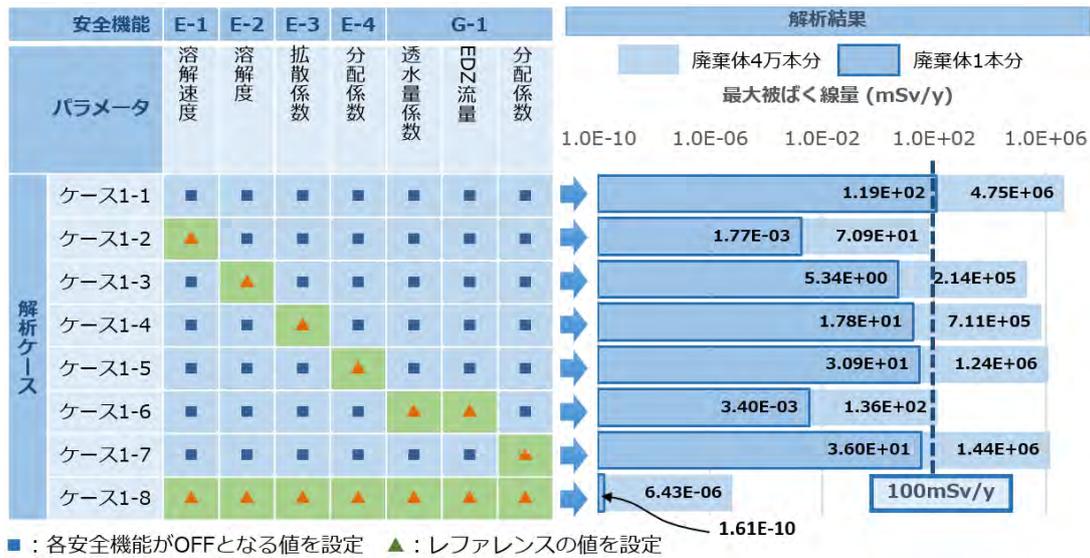


図4. 3. 1-2 解析ケース及び感度解析結果

3) 解析結果

図4. 3. 1-2には、設定した解析ケースに対する解析結果を示す。本図の結果は、単一のガラス固化体に対する核種移行率に線量換算係数を乗じることで被ばく線量を算出し、その最大値を示したものである。さらに、その結果を40,000倍して廃棄体4万本分の最大被ばく線量を計算したのも併せて表示した。

これらの結果は、安全機能「ガラス固化体が地下水への放射性核種の溶出を抑制」（表4. 3. 1-1中のE-1）の喪失（安全機能OFF）を想定したすべてのケースでは、他の安全機能の単独でのON/OFFには関係なく、廃棄体4万本分の最大被ばく線量が100mSv/yを超過することを示している。一方、ケース1-2の結果からは、安全機能「ガラス固化体が地下水への放射性核種の溶出を抑制」（表4. 3. 1-1中のE-1）が健全であれば、他の全ての安全機能が喪失しても100mSv/yを下回ることを示している。さらに、ケース1-6の結果からは、安全機能「母岩中での核種の移行抑制」（表4. 3. 1-1中のG-1）のうち母岩の低透性のみが発揮される場合、廃棄体4万本分の被ばく線量が100mSv/yはわずかに超えるものの、母岩の低透水性がガラスによる核種の溶出抑制の次に被ばく線量に対する高い低減効果を有していることがわかる。

(3) シナリオ分岐点の抽出 (Step2)

地震・断層活動が地層処分システムに与える影響を幅広く考えていくために、本検討ではシナリオ分岐点を抽出した。ここでは、シナリオ分岐点を「影響の大きなシナリオ（たとえば被ばく線量が100mSvを超える）に至り得る道筋とそこに至る可能性の有無を判断するために着目すべき安全機能の劣化・喪失（あるいはその原因となるプロセス）」と定義した上で、「断層の新生・伸長・既存断層の再活動」を起因事象としてシナリオ分岐点を抽出した。なお、考え得るシナリオ分岐点は、発生時期、岩種、断層の入り方、定置方式等の前提条件によっても異なることから、まずこれらの前提条件の抽出を行い、考え得る16通りの組み合わせの中から、考えにくい組み合

わせを除外することで、着目する6種類の前提条件を絞り込んだ（表4.3.1-2）。本検討では、このうち、硬岩を対象とした2ケース（表中の1と9）を前提条件として選択した。

表4.3.1-2 前提条件の抽出

	発生時期	岩種	断層の入り方	定置方式	取り扱い	考え方	
1	処分後 1000年以内 (オーバーバック 破損前)	硬岩 (花崗岩)	高角	縦置き	1★	対角線上の約280本に影響	
横置き				×	高角断層では定置方式による違いは限定的		
水平			縦置き	×	花崗岩体での水平な断層（層面すべり断層）は考えにくい		
			横置き	×			
軟岩 (堆積岩)		高角	縦置き	×	軟岩のヤング係数がオーバーバックに比べて概ね1/100と小さいため、軟岩ではオーバーバックの破損に至らないと考えられる		
			横置き	×			
		水平	縦置き	×			
			横置き	×			
9	処分後 1000年以降 (オーバーバック 破損後)	硬岩 (花崗岩)	高角	縦置き		2★	対角線上の約280本に影響
横置き				×		高角断層では定置方式による違いは限定的	
水平			縦置き	×		花崗岩体での水平な断層（層面すべり断層）は考えにくい	
			横置き	×			
軟岩 (堆積岩)		高角	縦置き	3★	対角線上の約280本に影響		
			横置き	4★	対角線上の約280本に影響+セメントの影響		
		水平	縦置き	5★	水平坑道が力学的な弱部になり、処分孔の緩衝材は破断しない可能性がある（0本）		
			横置き	6★	水平坑道が力学的な弱部になり水平坑道の緩衝材が破断する可能性がある（40000本）		

< : 除外できる前提条件 ★ : 除外できない前提条件
 ★★ : 除外できない前提条件のうち、とくに過酷な条件

考慮する前提条件

次に、これらの前提条件を踏まえ、シナリオ分岐点を抽出した。シナリオ分岐点の抽出にあたっては、別途進めている個別現象研究の知見をシナリオ構築に反映するために、各現象が安全機能に与える可能性のあるプロセスをまとめた情報共有シート（図4.3.1-3）を作成した。その上で、平成26年度に作成したプロセス・インフルエンスダイアグラム（PID）（日本原子力研究開発機構，2014；2015）に記載されている情報と、情報共有シートに記載されている情報を用いてシナリオ分岐点を抽出した。

安全評価と現象研究による協同作業に基づき情報共有シートを作成し、各現象が処分システムの安全機能に与える影響を整理

情報共有シートの項目：①タイトル、②安全機能への影響、③想定される過酷事象シナリオ（移行経路を含む）、④既往の知見、⑤関連するプロセスと安全機能の関係、⑥不確実性、⑦過酷に関する事例研究、⑧参考文献

情報共有シートの一覧（作成例）

- 断層による直接的影響
 - 断層のずれが人工バリアに与える影響
 - 地殻歪の変化に伴う地下水流動の変化
 - 透水性の増加に伴う地下水の温度・水質の変化（深部流体の流入）
 - 断層起源ガスが地下水流動場や地層処分システムに与える影響
- 地震動による影響
 - 地震動による地下施設(支保工)の破壊
 - 地震動が人工バリアに与える影響

情報共有シートの作成例

図4.3.1-3 個別現象研究のテーマと情報共有シートの作成例

表4.3.1-3は、抽出されたシナリオ分岐点の一覧を示している。表では、(2)の安全機能の分析結果から、とくに被ばく線量に与える影響が大きいことが示された、ガラスによる核種の溶出抑制や母岩の低透水性に係わる分岐点を着色して示した。

表4.3.1-3 抽出されたシナリオ分岐点

シナリオ分岐点	概要
A 断層の新生・伸長・地質断層の再活動	・未知の断層の活動や既知の断層の伸展、または地質断層の再活動によって処分場領域内に断層が新生される。
B 母岩のせん断変形・破碎	・断層の変位 (A) によって、断層近傍の母岩がせん断変形または破碎される ・新生された断層が繰り返し活動することにより、角礫帯 (破碎帯) が拡大する
C 地震動によるオーバーバック/ガラス固化体の移動	・地震動によって、膨潤前の緩衝材が不安定化し、オーバーバックが移動する【処分後 1000 年以前】 ・地震動によって、膨潤後の緩衝材が液状化し、オーバーバックまたはガラス固化体が移動する
D 母岩とオーバーバックの衝突	・母岩のせん断変形・破碎 (B) による緩衝材の変形や、地震動によるオーバーバックの移動 (C) によってオーバーバックが母岩に衝突する【処分後 1000 年以前】
E ガラスと母岩の接触	・母岩とオーバーバックの衝突 (D) によってオーバーバックが著しく破壊され、母岩とガラス固化体が直接接触または衝突する【処分後 1000 年以前】 ・母岩のせん断変形・破碎 (B) による緩衝材の変形や、地震動による廃棄体の移動 (C) によって母岩とガラス固化体が直接接触または衝突する【1000 年以降】
F ガラス固化体の破壊・表面積の増加	・ガラス固化耐と母岩の接触または衝突 (E) によってガラス固化体が損傷をうけることで、ガラス固化体の表面積が増加し、ガラスの溶解量が増加する。
G 摩擦熱の発生による緩衝材の変質	・母岩のせん断変形 (B) によって摩擦熱が発生し、緩衝材が変質 (イライト化) する
H 地震動による坑道支保の破壊	・地震動によって坑道支保が破壊され、顕著な水みちが形成される。
I クリティカルパスの発生	・新生された断層 (A) または損傷された支保 (H) から地表に向かう顕著な地下水流動が発生し、廃棄体から流出した核種が母岩を介さずに直接地表に到達する。
J ガスの発生・透気による移行の促進	・新生された断層のせん断変形 (B) によって大量のガスが発生し、発生したガスによって、緩衝材、母岩、または断層等のクリティカルパス中の核種が一気に押し出され、移行を促進する。
K 断層を通じた地表水 (酸化性) の流入	・新生された断層を通じて酸化性の地表水が地下深部に流入し、緩衝材または母岩が酸化性雰囲気となることで、緩衝材または母岩中の移行が促進される。
L 深部流体の上昇による pH の低下	・新生された断層または亀裂を介して地下深部の低 pH の地下水が処分場深度付近まで上昇し、人工バリアまたは母岩が低 pH の雰囲気となる。これにより、緩衝材または母岩中の移行が促進される。 ・またはガラス固化体が低 pH の地下水に晒されることで、ガラスの溶解速度が増加する。
M 地殻歪の変化・母岩透水性の増加	・地殻歪の変化により、母岩の透水性が増加し、母岩中の移行を促進する。

※ガラスによる核種の溶出抑制及び母岩の低透水性に係わる分岐点を着色

(4) 各分岐点の発生条件の確認 (Step3)

抽出した分岐点の状態を設定し発生の有無を判断する上では、不確実性を考慮した上で、定量的なデータだけではなく、定性的な複数の知見も参考として総合的に判断することが必要となる場合が多い。この場合には、特に、判断に至った過程を透明性と追跡性をもって示すことが求められる。ここでは、別途進めている個別現象研究等との連携を通じて発生条件等を確認するための枠組みを検討するとともに、(2)の分析の結果得られた、100mSvを超える安全機能の劣化・喪失の組み合わせに対して、原因となり得る事象・プロセスの抽出を実施した (図4.3.1-4)。今後は、討論モデル (たとえば、大澤, 2010) やロジックツリー (たとえば、高尾ほか, 2014) 等を併用して判断過程を明らかにしつつ、発生条件の確認を進める予定である。

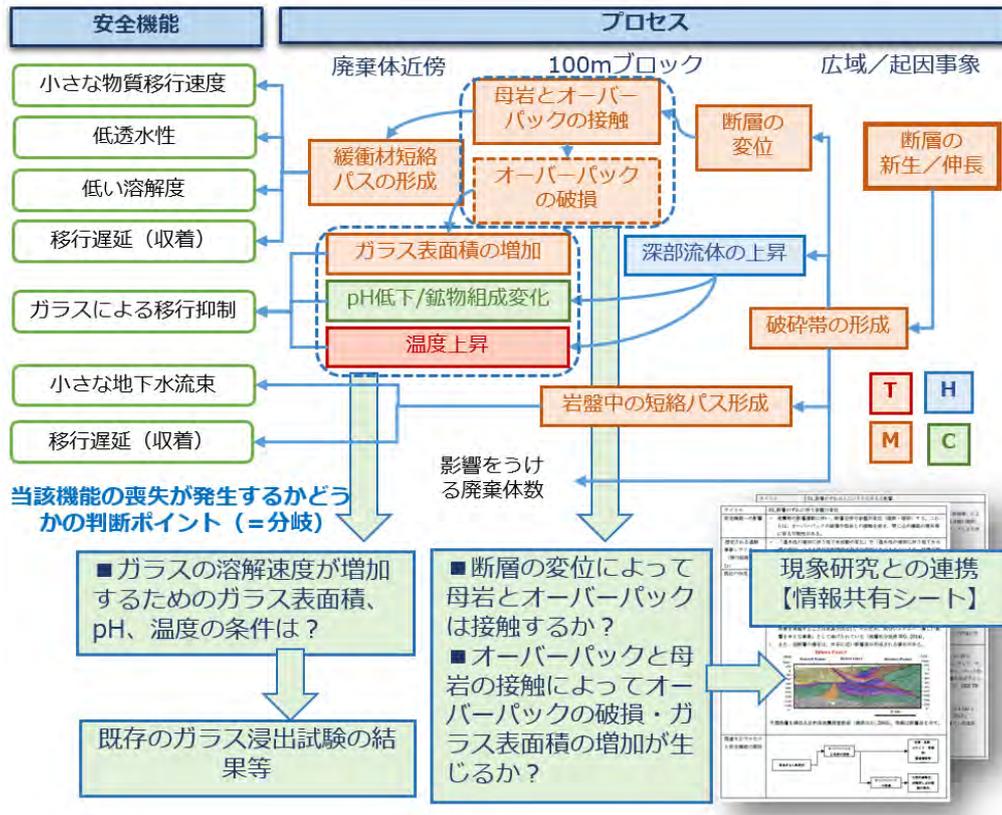


図4.3.1-4 個別現象研究等との連携を通じて発生条件等を確認するための枠組

(5) 安全機能の劣化・喪失の組み合わせを効果的に抽出するための手法の検討

(2)で分析したように、安全機能の劣化・喪失には多数の組み合わせが存在する。ここでは、4.2で検討したトップダウン型のアプローチを参考に、多数の安全機能の劣化・喪失の組み合わせの中から、100mSvを超えるか超えないかに係わる安全機能の劣化・喪失の組み合わせを効率的に絞り込むために、同時に扱える安全機能の組み合わせをグループ化することとした。

1) バリア性能に着目した予備解析

ここでは(1)に示した安全機能のうち、100mSvを超えるかどうかを議論する際に着目すべき安全機能の喪失・劣化のパターンの効率的に抽出するために、安全機能を、人工バリアと天然バリアのそれぞれについて、バリアの低拡散場または小さな移流場が実現するかどうか、バリア中での核種移行遅延が機能するかどうかの4項目の組み合わせでケースを分類・設定した(図4.3.1-5)。この4項目のうち、どのバリア性能が喪失するかについては、16通りの組み合わせが考えられるが、このうち、人工バリアのみが影響を受けるパターンを除外することで、考え得るバリア性能喪失の組み合わせを9パターンに絞り込むことができる(図4.3.1-5)。なおこの条件は、外部事象からの影響は、まず天然バリアの性能の劣化・喪失に先立ち生じることを想定したものである。

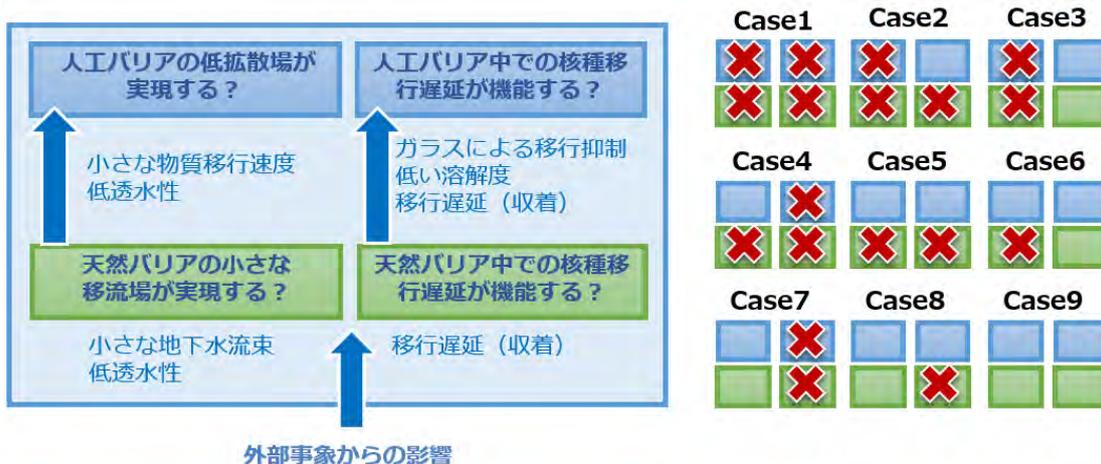


図4. 3. 1-5 4つのバリア性能と安全機能及びバリア性能の喪失の組み合わせ

ここでは、全廃棄体を対象にバリア性能のON/OFFを想定した上記の9パターン（Case1～9）を対象に予備解析を実施し、最大被ばく線量が100mSvを超える状況はどのようなものかを分析した。たとえば、各バリア性能が機能しない（図4. 3. 1-5中に赤色の「×」で表示）場合は、当該バリア性能に関する安全機能はすべてOFFと設定した。逆に各バリア性能が機能する場合は、当該バリア性能に関する安全機能はすべてON（第2次取りまとめレファレンスケースの設定）となるように設定した。個別の安全機能の取り扱いや、核種移行パラメータや線量換算係数等のデータ設定、及び解析コードについては、前述のStep1に準拠した。

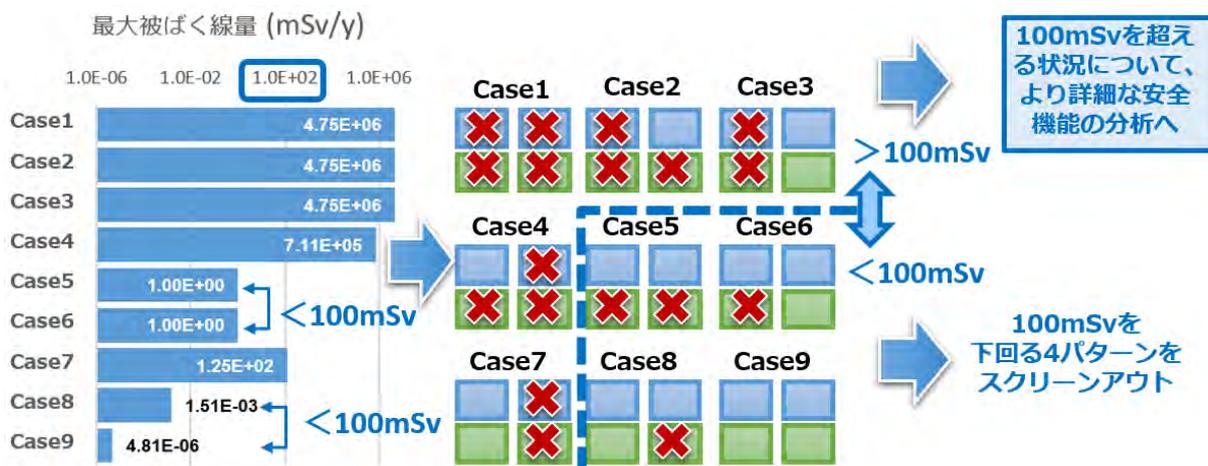


図4. 3. 1-6 バリア性能に着目した予備解析結果

上記の9パターン（Case1～9）について解析した結果を図4. 3. 1-6に示す。本図の結果は、前述のStep1と同様に、単一のガラス固化体に対する核種移行率に線量換算係数を乗じることで被ばく線量を算出したものであり、本図にはその結果を40,000倍して廃棄体4万本分の最大被ばく線量を計算したもののみを表示した。これらの結果から、人工バリアのいずれかのバリア性能の喪失を想定した5パターン（Case1, 2, 3, 4, 7）では最大被ばく線量が100mSvを超える一方、人工バリアの性能が健全な4パターン（Case5, 6, 8, 9）では、最大被ばく線量が100mSvを下回ることが示された。

2) 安全機能に着目した予備解析

次に、最大被ばく線量が100mSvを超える5ケースを対象に、安全機能の劣化の程度、影響を受ける廃棄体数等の条件を徐々に緩和しながら、100mSvを超えるかどうかに係わる条件をより詳しく分析する。ここでは、すべてのバリア機能の喪失を想定したCase1に対して、ガラスの溶解速度を $2.42 \times 10^4 \text{g/m}^2/\text{y}$ から第2次取りまとめレファレンスケースとりまとめの設定値である $3.65 \times 10^{-1} \text{g/m}^2/\text{y}$ まで1桁ずつ緩和するとともに、廃棄体数を4万本から、2,000本、200本、20本、1本に緩和した解析を実施した。図4.3.1-7には、この解析結果をもとに、最大被ばく線量が100mSvを超えるかどうかに係わるガラスの溶解速度及び廃棄体数の条件を示した。この図をみると、たとえば、廃棄体数が200本するとき、ガラスの溶解速度の閾値は $100 \text{g/m}^2/\text{y}$ となる。

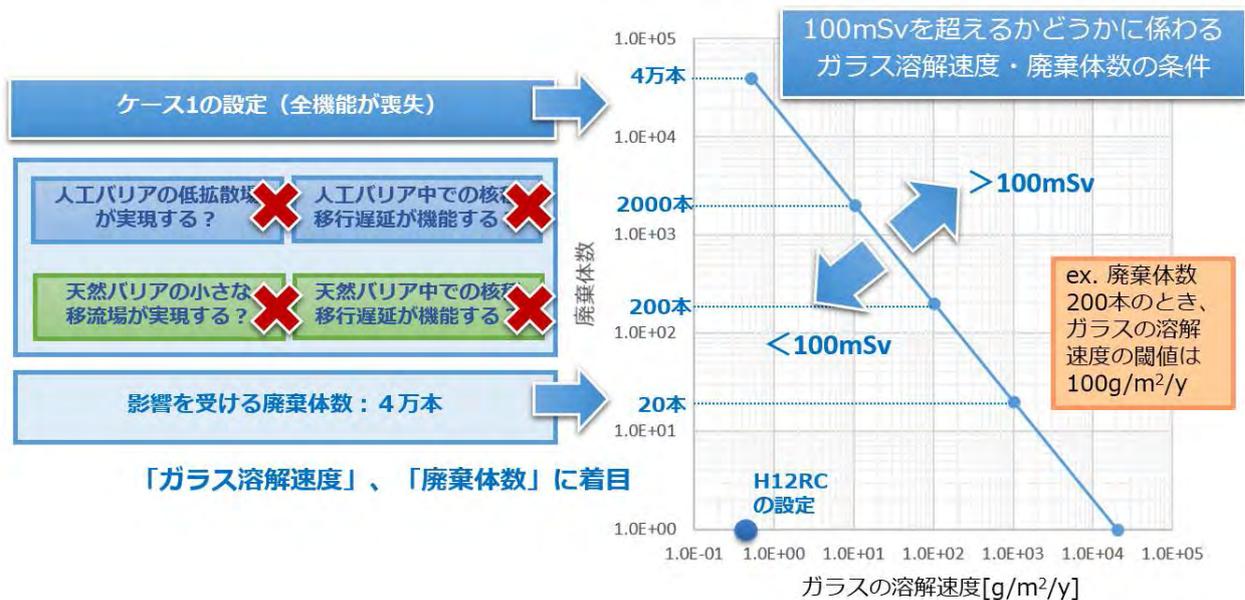


図4.3.1-7 安全機能に着目した予備解析結果

(6) シナリオ構築手順の適用性

(2)～(4)で述べたシナリオ構築手順 (Step1～3) により、影響の大きなシナリオを詳しく検討できる可能性がある一方、検討すべき安全機能の劣化・喪失の組み合わせや、関連するプロセスが多数に上る点が課題として挙げられる。これに対して、より大きなくくりでバリア性能に着目することで、影響の大きなシナリオ (たとえば100mSvを超えるシナリオ) に至る可能性を判断するために着目すべき重要な安全機能の劣化・喪失の組み合わせを効果的に絞り込むことができる見通しが得られた。今後は、これらの取り組みを組み合わせたStep1～3の実施と、それによるStep4のシナリオ構築の試行を拡充し、本手法の実用性を高めていく予定である。

4.3.2 巨大地震・断層活動による地質環境への影響に関するデータ

(1) 岩盤ひずみの変化に伴う地下水流動の変化

1) はじめに

4.3.1節に示したように、巨大地震・断層活動による地層処分システムの安全機能の劣化・喪失の組み合わせから過酷事象に至るシナリオ構築が行われており、シナリオ分岐点として「安全機能の劣化・喪失を左右する因子」と定義し、安全機能に影響を与える可能性のあるプロセスの整理が行われている。本節以降の検討では、そのシナリオ分岐が発生する条件等に関連した調査及び評価手法の開発を行っており、本項は巨大地震・断層活動による地質環境への影響に関するデータの収集を目的として、既設の坑道内の原位置観測データに着目し、これらのデータから抽出した地震時の岩盤ひずみ、弾性波速度及び間隙水圧の変化等の収集を行ってきた。具体的には、わが国で最大規模となった東北地方太平洋沖地震の震源に近い岩手県の釜石鉱山坑道（図4.3.2-1、図4.3.2-2）、及び国立天文台水沢VLBI観測所附属江刺地球潮汐観測施設（図4.3.2-3）の原位置観測データに着目した（日本原子力研究開発機構，2014；日本原子力研究開発機構，2015）。

地震時の岩盤状態の変化を把握するために、岩盤ひずみ、弾性波観測の原位置観測データを収集した。これらのデータは岩盤中の含水状態の影響を受けるとされており、間隙水圧の原位置観測データと合わせて地震による地下水流動の変化について分析し、地層処分システムの安全機能の劣化・喪失に及ぶ可能性について考察を行った。一方で、地震によって断層が新たに発生した場合には地下水流動状況が明らかに変化すると判断され、万が一地層処分施設近辺で断層が発生した場合の非破壊的な影響評価手法として、弾性波観測システムの適用性について検討を実施した。

2) 東北地方太平洋沖地震前後の原位置観測データの挙動

① 江刺地球潮汐観測施設・岩盤ひずみ観測事例

平成26年度までに調査した期間（2010年～2013年）に2008年の計測データを追加した。岩盤ひずみ計は図4.3.2-3に示すように直角三角形に掘削された坑道に設置された3本の石英管伸縮計で構成されており、NS（南北成分：長さ35.77m）、EW（東西成分：35.69m）、NE（斜辺成分：50.69m）の3方向の精緻な岩盤変位観測を実施している（国立天文台水沢，1989；NAOJ，1989；田村ほか，2013）。変位センサーには作動トランスを使用し、1分間隔でサンプリングを行っている。

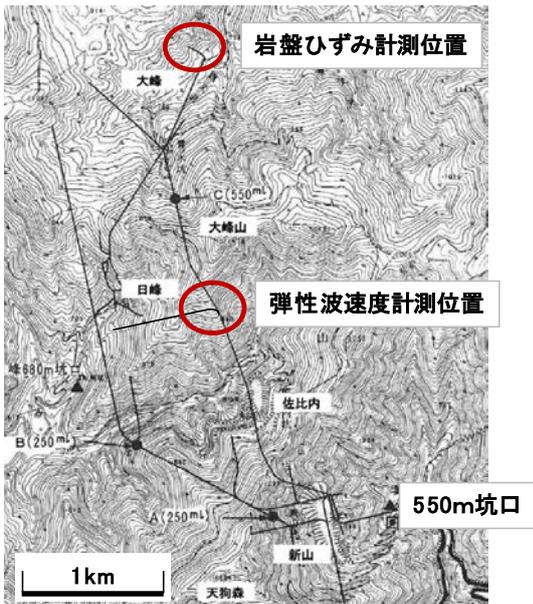


図4.3.2-1 釜石鉱山550m坑道展開図及び岩盤ひずみ・弾性波計測位置図



図4.3.2-2 釜石鉱山・岩盤ひずみ計の配置図

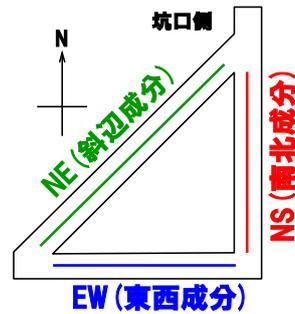


図4.3.2-3 江刺地球潮汐観測施設岩盤ひずみ計の配置図

調査対象全期間における岩盤ひずみの経時変化を図4.3.2-4に示す。同図は東北地方太平洋沖地震発生前の期間1と発生後の期間2について、それぞれ2007年1月1日、2011年4月1日を基準とした岩盤ひずみをプロットしている。また、奥州市江刺区の震度観測点での有感地震の規模（気象庁，2015）をマゼンタの実線で表している。図から明らかなように東北地方太平洋沖地震前後で岩盤ひずみの変化に大きな違いがある。地震発生後、EW、NE方向は伸張傾向、NS方向は収縮傾向が見られ2013年時点でもこの傾向が継続している。ただし、2013年では、地震発生後1年目、2年目と比較して、変化の割合の減少が確認された。

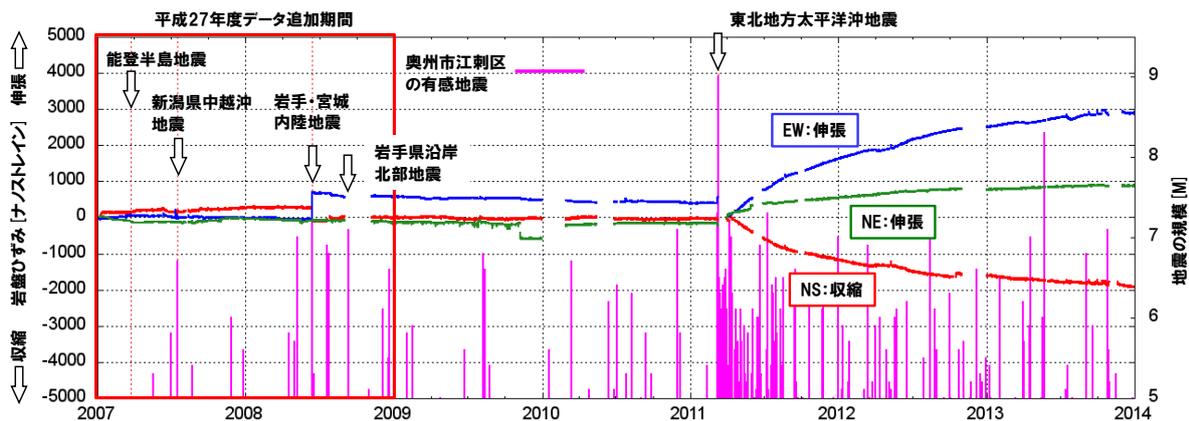


図4.3.2-4 江刺岩盤ひずみの経時変化図

②釜石鉱山弾性波観測事例

弾性波計測は図4.3.2-5に示すように、釜石鉱山550mレベル坑道の枝部使用し4方向の計測が行

われており、弾性波の初動到達時間の変化 (Differential Travel Time 以下、DTT、図4.3.2-6) から、岩盤の弾性的性質の変化を評価するものである (Sano et al., 1997 ; 田中ほか, 1995 ; 田中ほか, 1997)。また、弾性波計測位置より100mほど坑口側に離れた位置にあるボーリング孔で間隙水圧及び水温が計測されている。図4.3.2-7に2009年4月～2014年12月の期間のDTT、間隙水圧及び水温の経時変化を示す。

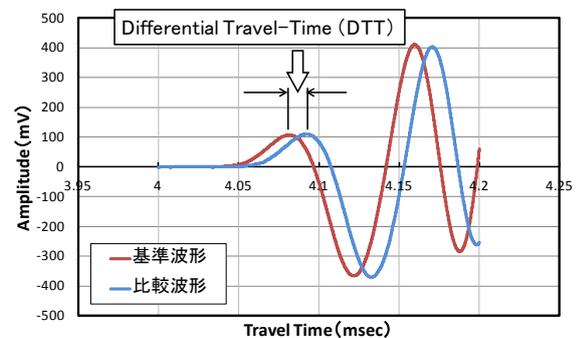
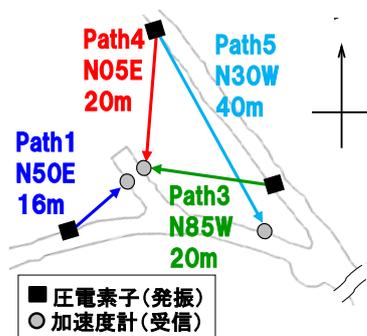


図4.3.2-5 弾性波計測網及び間隙水圧計、水温計配置図

図4.3.2-6 DTT (Differential Travel Time) 算定の概念図

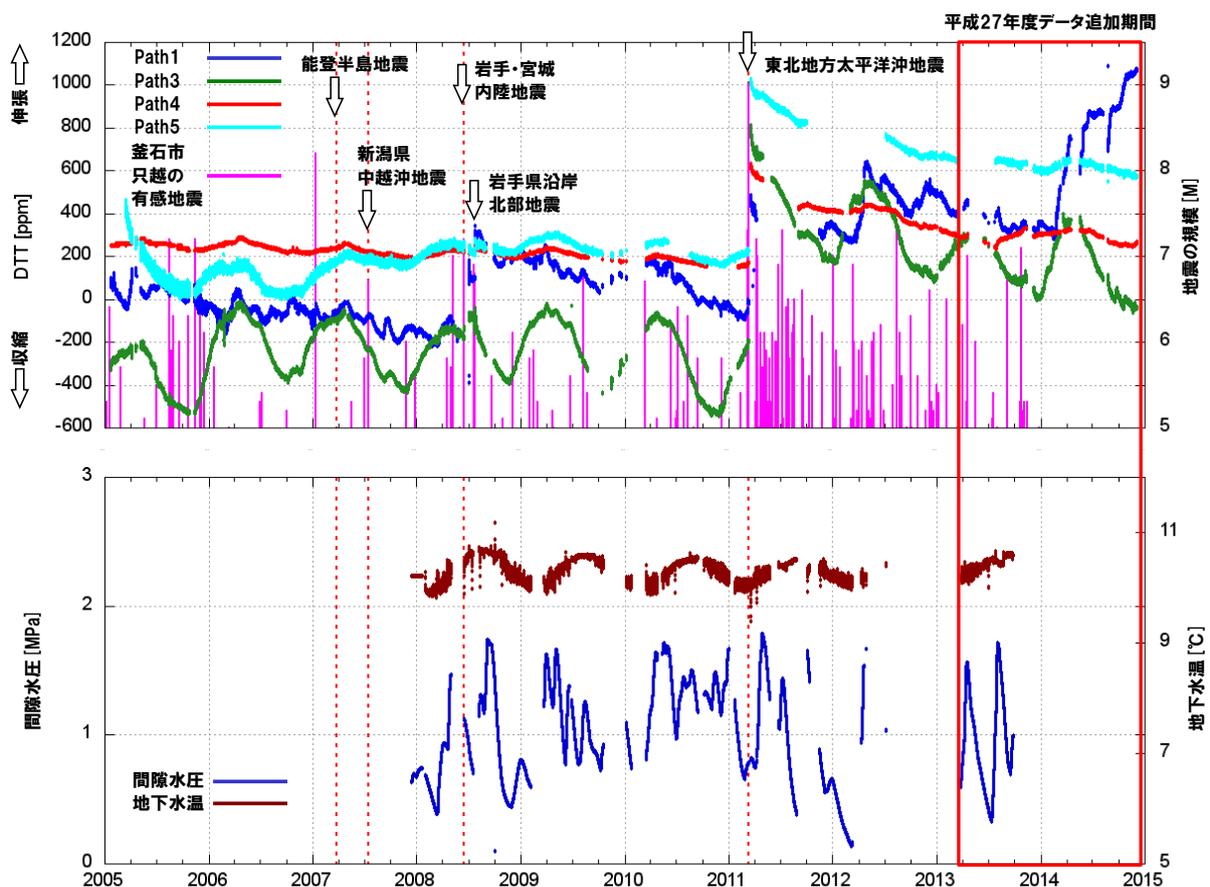


図4.3.2-7 DTT、間隙水圧及び水温の経時変化図

東北地方太平洋沖地震前に確認されたDTTの傾向は、Path5を除くPath1、Path3、及びPath4で漸次減少（収縮）する傾向がみられ、中でもPath1でその傾向が顕著である。Path3、Path4、及びPath5では5月をピークとする季節変動がみられ、特にPath3でその変動幅が大きい。

東北地方太平洋沖地震後に確認されたDTTの傾向は、地震時に急激に伸張した後、収縮方向へ変化した。その後徐々に変化が緩やかになっている。Path4は2014年には、2005年時点のレベルまで回復している。

③間隙水圧観測事例

間隙水圧観測データは地震時の反応が明瞭ではなく、東北地方太平洋沖地震時のDTTにみられるような観測値の不連続性は確認できていない（季節変動と思われる水圧変化に吸収）。一方、釜石鉱山よりも震源から離れている瑞浪の観測性では間隙水圧の変化が確認されている（Niwa et al., 2012）。また、Niwaら（2012）は地震による水圧変動の影響は長期的なものではなく、時間の経過とともに元の状態に戻るとしている。

3) 弾性波観測システムを活用した巨大地震の影響評価手法の検討

閉鎖後の地層処分施設近傍で巨大地震・断層活動が発生し、万が一施設周辺状況の調査が必要となった場合を想定し、非破壊的に計測が可能な弾性波観測システムを活用した影響評価手法について検討を実施した。

弾性波観測は、岩盤・地盤内を伝播する弾性波を計測することで、その速度やエネルギーの損失から岩盤・地盤の弾性率、密度、Q値といった物性値を評価することができる。弾性波の速度、エネルギー損失を精密かつ連続的に計測することで、上記物性値の微小な変化や、変化の原因となる諸条件（岩盤・地盤内部の応力変化、含水量の変化）を理論的に推定可能であり、2)②釜石鉱山弾性波観測事例で示した弾性波観測システムはこれを利用した観測技術である。そこでこの弾性波観測システムの影響評価手法としての適用性について検討を行った。閉鎖後の地層処分システムを対象とした影響評価手法が有すべき要件を整理し、それぞれの要件に対する適用性評価結果を表4.3.2-1にまとめた。その結果、調査可能範囲の拡大という課題はあるが適用性の見通しが得られた。

表4.3.2-1 弾性波観測システムの適用性検討結果

閉鎖後の地層処分施設を対象とした影響評価手法の要件	弾性波観測システムの適用性評価結果
・非破壊調査法であること	・発震源と岩盤のカップリング点近傍の応力振幅が岩盤の疲労限界よりはるかに小さな値であり、長期間の使用でもカップリング及び岩盤物性に影響しない
・硬岩、軟岩ともに調査可能であること	・硬岩での観測実績（釜石鉱山：最大側線長120m） ・軟岩での観測実績（瑞浪層群：最大側線長120m）
・地層処分場の敷地面積（約3km×2km [※] ）及び処分パネル設置深度（1km）をカバーできる調査可能範囲を有すること	・圧電素子による数km区間を対象とした観測実績がない ・別の発振機構を使用することで調査可能範囲の拡大が可能たとえば、アクロス（熊澤ほか，2000）による観測は数10km～100kmの領域を調査対象とできる

※原子力発電環境整備機構（2009）に示されている地層処分地下施設の敷地面積を参考とした。

(2) 深部流体の流入に伴う地下水の温度・水質の変化

1) はじめに

地層処分システムが長期的に安全機能を発揮するためには、地層処分の場となる地質環境に期待される閉じ込め機能の観点から好ましい地質環境特性が長期にわたって維持されることが重要となる。変動帯に位置するわが国においては、好ましい地質環境特性に影響を及ぼす可能性がある自然現象の一つとして地震・断層活動が挙げられている。経済産業省の総合エネルギー調査会に設置された地層処分技術ワーキンググループが取りまとめた「最新の科学的知見に基づく地層処分技術の再評価」（総合エネルギー調査会電力・ガス事業分科会原子力小委員会地層処分技術ワーキンググループ，2014）では、最新の科学的知見を踏まえて、好ましい地質環境特性に著しい影響を与えるシナリオが整理された。これによれば、地層処分システムにおける閉じ込め機能の喪失につながる事象の一つとして、「断層のずれに伴う透水性の増加」による水理場や化学場の変動が指摘されている。また、化学場や温度場の変動要因の一つとして深部流体の流入が挙げられており、このような事象の発生や、他の事象も同時に生じる複合的な現象の発生を加味した安全評価の必要性が示されている。

これに関して、本事業で実施するシナリオの検討（4.3.1項）においても、閉じ込め機能の劣化・喪失につながるプロセスとして、緩衝材や母岩中の透水性の増加による酸化性地下水の流入や地下水流速の増加を抽出している。しかしながら、ここでシナリオに取り込むべき地震・断層活動に伴う様々な影響（例えば、地下水の水質変化や水温上昇など）の程度は、地質構造などの場の特徴に依存して時空間的に変化し、観測事例も限られる。また、それらを定量的に説明するモデルも少ないことから、限られた既存文献から収集した観測事例等をもとに、特に顕著な変化を示す事例に着目してシナリオ構築を行っているのが現状である。このため、平成25年度及び平成26年度においては、2011年東北地方太平洋沖地震によりわが国の広い範囲で誘発された内陸地震震源域等での観測事例を収集した。平成27年度は、これらの事例に関して、地震発生前後の地下水性状変化について整理するとともに、断層を通じた深部流体の流入の可能性について検討した。また、シナリオに基づく地層処分システムへの影響評価解析に資する情報として、深部流体の化学的性状に関するデータの取得を行った。

2) 内陸地震に伴う地下水性状の変化

一般に、地下水の化学組成は、天水に含まれている成分と地中で水に溶け込む成分によって決まるが、天水に含まれている主要溶存成分はわずかである。また、地殻内に存在する間隙や割れ目帯は、それぞれの場所により異なる化学組成を有する地下水等の流体で満たされている。地震に伴う地殻の変形が起こった場合は、割れ目の開口等により透水性が増加（Bernard, 2001）することによって、新たに流入した地下水との混合や水-岩石反応が生じ、地下水の水質変化が引き起こされると考えられている（King et al., 2006）。

国内の地震活動に伴い、地下深部から上昇した流体の混入によって、その化学組成が変化した顕著な事例として、1965年から始まった松代群発地震の活動域での水質変化が挙げられる（例えば、大竹，1976；奥澤・塚原，2001）。これらの研究によると、松代群発地震の発生に伴って湧出した地下水は、約1千万t/4ヵ月に達する（中村，1971）。また、その湧水は、地表付近の通常

の循環水とは異なり、極めて高濃度のCl⁻を主要溶存成分とする塩水であり (Kitano et al., 1967; Yoshioka et al., 1970)、その濃度は地震発生前の2~3倍に増加したと報告されている (奥澤・塚原, 2001)。流入した地下水の起源については諸説あるが、断層から採取した土壌ガス中のヘリウム同位体比 (³He/⁴He比) から、マントル起源の流体 (深部流体) であるとも指摘されている (Wakita et al., 1978)。

本研究では、内陸地震の発生前後における地下水性状に関するデータとして、これまでに69件の事例を収集した。事例の対象とした内陸地震は、長野県中部地震 (2011年6月30日発生:M5.4)、長野県北部地震 (2011年3月12日発生:M6.7)、福島県浜通り地震 (2011年4月11日発生:M7.0) に加えて、平成25年度及び平成26年度に実施した、関東・中部地方の各地で東北地方太平洋沖地震後に活発化した地震活動域 (図4.3.2-8) であり、収集したデータは温泉井で採取された地下水の水温及び主要溶存成分のイオン濃度である。なお、地震発生前と発生後それぞれの測定日の間隔は各地点で異なる。図4.3.2-9に、水温及びイオン濃度の変化率についての頻度分布を示す。これによれば、地震発生後に水温がわずかに低下している温泉が多数を占める。また、それぞれの主要溶存成分の濃度は、ほとんど変化していないものが多い。これらの変化が生じた原因としては、天水やごく浅部の地下水の混入が考えられる。一方で、地震後に濃度が数十%上昇した事例も見られるが、これらの地下水の濃度は地震前において低いために、変化率としては大きな値であるものの、変化量としては大きくない。これらのことから、本研究により収集された地震前後の水質変化は、深部の地下水の混入 (例えば、Wakita et al., 1978) というよりも、むしろ溶存成分に乏しい天水やごく浅部の地下水が混入したことによる変化であると推定される。

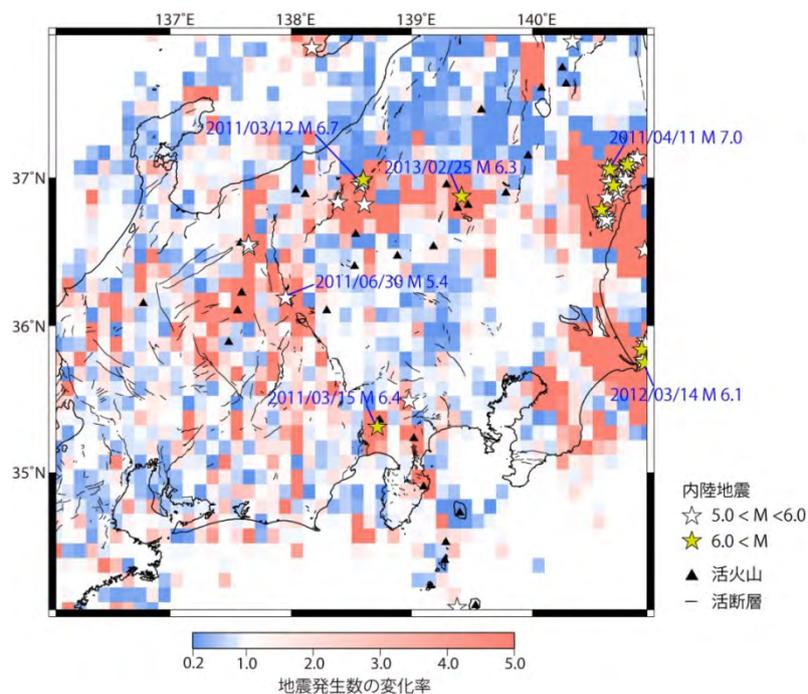


図 4.3.2-8 東北地方太平洋沖地震の発生前後1年間における地震発生数の変化率とM>5.0の内陸地震の分布

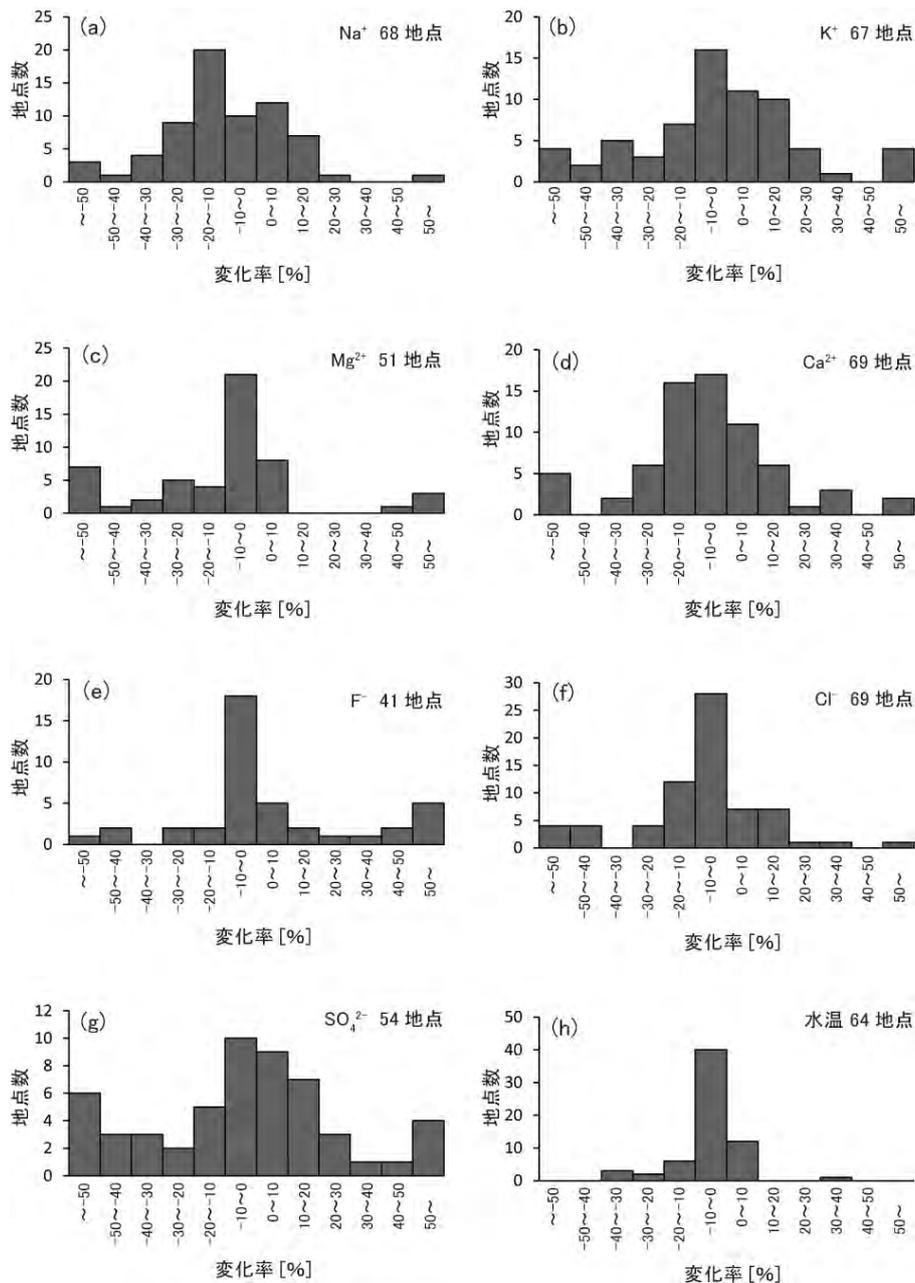


図 4.3.2-9 内陸地震の発生前後における地下水の各溶存成分及び水温の変化率

3) ヘリウム同位体比を指標とした断層を通じた深部流体の流入に関する検討

既に述べたように、地震活動に伴った深部流体の流入に関する事例は極めて少ないのが現状である。そのため、松代群発地震における深部流体の流入に関する議論 (Wakita et al., 1978) でも用いられたヘリウム同位体比 ($R=^3\text{He}/^4\text{He}$) に着目し、断層を通じた深部流体流入の可能性について検討した。

ヘリウムの同位体のうち³Heには、地球形成時に地球がトラップした始原的なものと、天水に含まれるトリチウムの崩壊によって生成されるものがある。一方、⁴Heはウランやトリウム放射性崩壊の過程で生成されるものがほとんどである。大気中のヘリウム同位体比 (R_A) は約 1×10^{-6} であり、マントル中ではその十数倍から数十倍、逆にウラン等の放射性元素が多く存在する大陸

地殻では、ヘリウム同位体比は大気値の1/10以下となる。ヘリウムは他の物質と化学反応せず移動が速いため、この同位体比はマグマの生成や固化などの過程における化学的分別作用の影響を受けない。したがってヘリウム同位体比は、マントルから地殻、地殻から大気への物質移動の有力なトレーサーとなる。2000年に発生した鳥取県西部地震（M7.3）の震源域におけるヘリウム同位体比の測定事例（Umeda and Ninomiya, 2009）においては、地震を引き起こした震源断層から遠ざかるにつれてヘリウム同位体比が低下する傾向が認められることから、マントル起源のヘリウムが断層を通じて地表付近に供給されていると指摘されている。また、国内の温泉井や地下水井などで採取された地下水や遊離ガスのヘリウム同位体比は、これまで多くの学術論文などを通じて報告されている。ここでは、これらの文献により報告されたデータを取りまとめた「ヘリウム同位体比データベース」（草野ほか, 2012）に最近の観測データ（例えば、Umeda et al., 2014）を加えた2316件のデータを用いて、ヘリウム同位体比と活断層分布との関連性について日本列島全域を対象として検討した。

「ヘリウム同位体比データベース」は、国内の地下水井及び温泉井で採取された遊離ガスまたは溶存ガスのヘリウム同位体比について記載のある文献（108編）から収集した希ガス同位体組成及び化学組成のデータベースであり、採取試料や試料採取位置（試料採取地点名などに基づく参考値を含む）に関する情報を収録している（草野ほか, 2012）。本研究で用いたデータセットの空間分布は一様ではなく、地域的な偏在性があるものの、活断層の近傍以外にも広く分布する（図4.3.2-10）。ただし、大気値よりも高いヘリウム同位体比が観測された地点の多くは、第四紀火山の周辺に位置する（図4.3.2-11）。これらは、マグマの上昇に伴ったマントル起源ヘリウムの地表への供給がその支配的な要因であると推定されるが、ヘリウム同位体比と活断層との関連性を議論するためには、これらの影響を除く必要がある。このため、以下では、第四紀火山から30 km以上離れた地点におけるヘリウム同位体比と活断層（産業技術総合研究所, 2012a）からの距離をもとに、両者の関連性について議論する。

まず、国内に分布するすべての活断層を対象として、試料採取地点から最も近い活断層までの距離を計算した結果を図4.3.2-12に示す。これによると、高いヘリウム同位体比を示すデータの多くは活断層の近傍に位置するとともに、大局的には、活断層から遠ざかるにつれてヘリウム同位体比が低下する傾向が認められる。この傾向は、2000年鳥取県西部地震の震源域で認められた特徴（Umeda and Ninomiya, 2009）と調和的であることから、他の活断層においても、マントル起源のヘリウムが断層を通じて地表に供給されていることを示唆する。また、図4.3.2-13に活断層のタイプ（正断層、逆断層、横ずれ断層）及び活動度（A級：1-10m/1000yr, B級：0.1-1m/1000yr, C級：0.1/1000yr未満）毎に分けて表示した結果を示す。それぞれの解析に用いたデータ数（N）には違いがあるものの、いずれの結果においても活断層から遠ざかるにつれてヘリウム同位体比が低下する傾向がみられ、活断層のタイプや活動度の違いによる明瞭な差異は認められない。以上の結果は、マントル起源のヘリウムが断層を通じて地表に供給されていることを示す。このことは、地殻内に形成された断層が、深部流体などのマントル起源物質を地表付近に流入させる通路となる可能性を示唆すると考えられる。

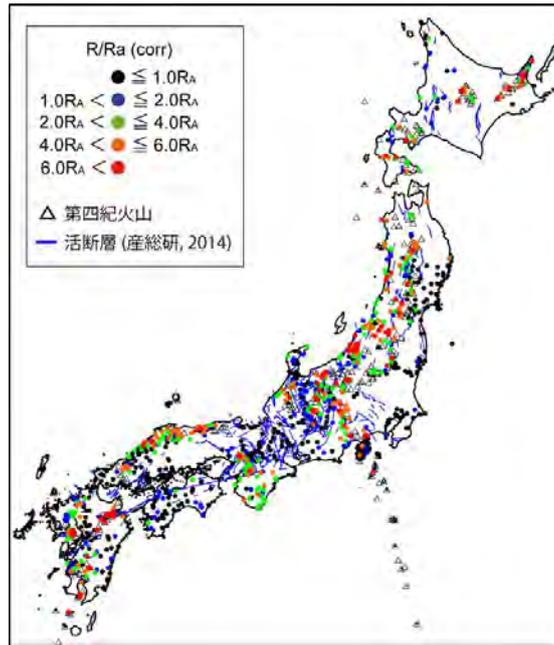


図 4.3.2-10 日本列島における地下水・温泉ガスのヘリウム同位体比分布

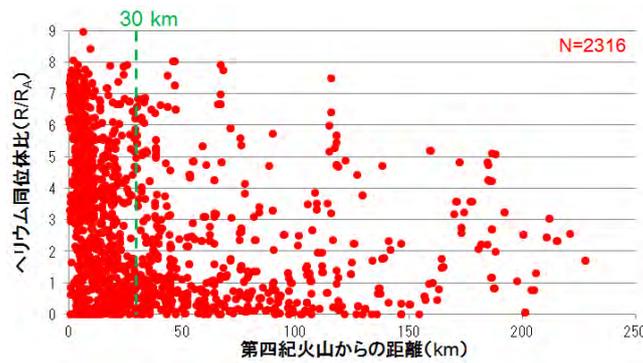


図 4.3.2-11 日本列島における地下水・温泉ガスのヘリウム同位体比及び第四紀火山からの距離

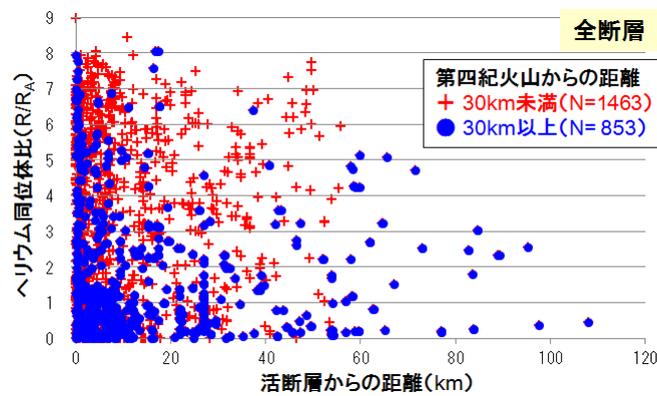


図 4.3.2-12 日本列島における地下水・温泉ガスのヘリウム同位体比及び活断層からの距離

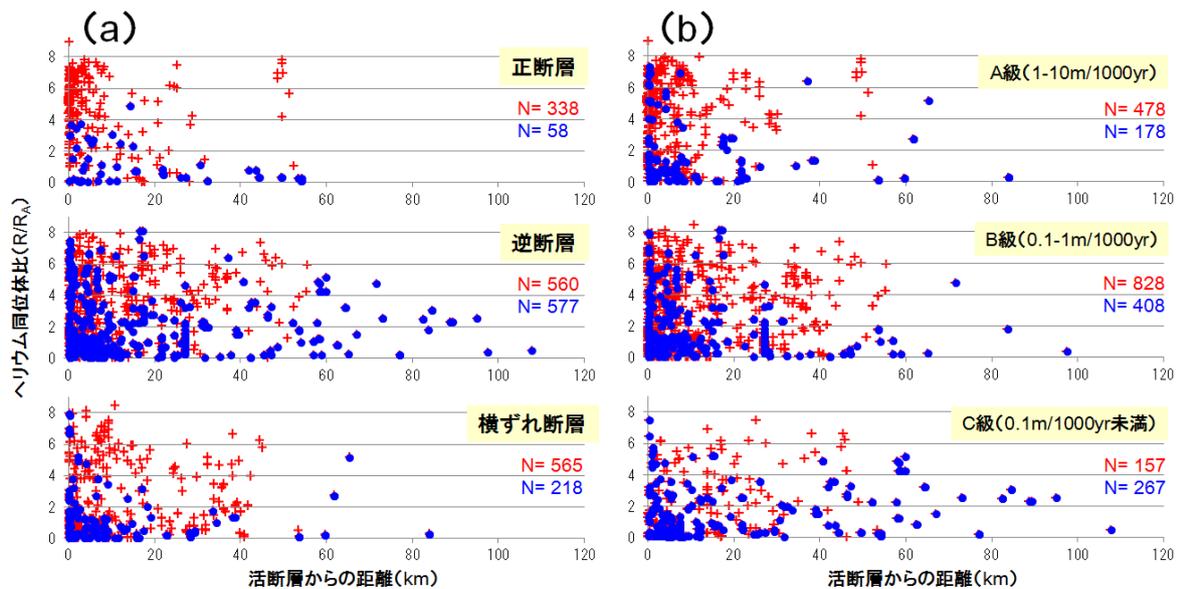


図 4.3.2-13 (a)活断層のタイプ及び(b)活動度によるヘリウム同位体比分布特性の違い

4) 深部流体の閉じ込め機能への影響に関する検討

日本列島の下には太平洋プレートとフィリピン海プレートが沈み込んでいる。沈み込みに伴ってプレート（スラブ）は高温・高圧状態になり、そこに含まれる間隙水や含水鉱物の脱水反応によって生じた流体（水）がマントル内に放出される。この流体はスラブそのもの、またはその上のマントルの融点を低下させるため、ケイ酸塩メルトが生成されるが、これが地殻中を上昇していくと火成活動が生じる。また、脱水反応により生じた流体の一部は、そのまま熱水として地殻浅所まで上昇し、非火山地帯の温泉の熱源となることもある。これらの流体は、深部流体と呼ばれ（産業技術総合研究所，2012b）、日本列島の地震活動や地殻変動に極めて重要な役割を果たしていると考えられている。このうち、内陸地震については、沈み込むスラブと陸域地殻に挟まれた領域であるマントルウエッジから上昇してきた流体が下部地殻の強度を低下させ、その上の地殻に応力が集中して破壊が生じるといったモデルが提唱されている（例えば、Iio et al., 2002）。さらに、これらの流体は下部地殻のみならず上部地殻でも局所的に非弾性変形を生じさせるため、隆起山地の形成やその周辺の地震活動にも関与していると考えられている。そのため、地殻流体の存在状況や性質などを通じて広域的（～数十km）な地殻構造の不均質性を理解することが、長期的な安定性を評価するためにも重要な情報となる。

一方で深部流体は、物理的隔離機能への影響のみならず、その化学的性状からも放射性物質の閉じ込め、その移行の抑制に影響を及ぼす可能性が示唆されている（総合エネルギー調査会電力・ガス事業分科会原子力小委員会地層処分技術ワーキンググループ，2014）。深部流体のpHは酸性で炭酸化学種を多く含み、また一部は高温流体であることが知られているが（尾山ほか，2011；風早ほか，2014；網田ほか，2014）、これらは限られた地点で取得された観測データに基づくものであり、今後の研究事例の蓄積によって深部流体の化学的性状を明らかにすることが重要となる。ここでは、シナリオに基づく地層処分システムへの影響評価解析の研究事例の一環として、深部流体の存在が示唆されている（例えば、Umeda et al., 2006）紀伊半島西部の温泉井において地

下水と遊離ガスを採取し、その化学的性状に関するデータの取得を行った。さらに、これらと「ヘリウム同位体比データベース」（草野ほか，2012）に掲載される地下水化学組成等のデータから非火山性の深部流体に係るデータを抽出した上で、その化学的性状について検討した。

紀伊半島は、第四紀火山が分布しない非火山地帯に位置するが、地磁気・地電流観測や地震波トモグラフィ等を用いた地球物理学的研究によって、この地域に沈み込むフィリピン海スラブを起源とする深部流体が、地殻深部やマントルウェッジに分布することが明らかにされている（例えば、Umeda et al., 2006; Salah and Zhao, 2003）。そのため本研究では、紀伊半島西部に分布する7地点の温泉井において温泉水及び遊離ガスを採取し、化学組成及び同位体組成の分析を実施した。また、ここで得られた分析値を「ヘリウム同位体比データベース」に掲載されるデータと統合した上で、以下の条件を満たす地下水データを非火山性の深部流体として抽出した。

- ①大気の1.5倍以上のヘリウム同位体比を有するもの
- ②リチウム・塩素濃度比（Li/Cl比）が0.001以上であるもの
- ③第四紀火山から30 km以上離れた地点で採取されたもの

ここで、②の条件は、風早ほか（2014）により提案された深部流体の化学的指標であるが、マントル起源ヘリウムの混入を意味する①の条件と合わせて用いることで、より信頼性の高いデータの抽出が可能と考えられる。これにより抽出された深部流体を示唆するデータは27件であり、今回紀伊半島で取得したデータが3件含まれる。また、これらの地下水が採取された温泉・地下水井は、紀伊半島及び九州地方東部のほか、「有馬型熱水」として知られる近畿地方の有馬温泉及びその周辺地域に分布する（図4.3.2-14a）。

図4.3.2-14b-dには、ここで抽出された非火山性の深部流体及びそれ以外の地下水に関する化学的性状のうち、地層処分システムへの影響が指摘されている水温、pH、炭酸化学種（ HCO_3^- ）濃度についての累積度数分布を示す。これによれば、pH及び HCO_3^- 濃度については、深部流体とそれ以外の地下水に明瞭な差は認められず、同様の分布傾向を示す。その一方で、水温については両者に差が認められ、深部流体はそれ以外の地下水に比べて高温である傾向を示す。また、水温の平均値は38.3℃（深部流体）及び32.1℃（それ以外の地下水）、pHについては7.3（深部流体）及び7.9（それ以外の地下水）である。紀伊半島において湧出し、非火山性の深部流体と考えられる地下水の水温については、当該地域に貫入する熊野酸性岩の周辺深度（1500m以深）で約210℃であり、熱水の上昇に伴って深さ1000～1500mで100～180℃に低下し、地表付近では65.5～92.0℃の温泉として湧出していると報告されている（新エネルギー・産業技術総合開発機構，1996；西村，2001）。他方、非火山性の深部流体として抽出された地下水の HCO_3^- 濃度は26～8097 mg/lの範囲であり、その平均値（1576mg/l）は、深部流体以外の地下水の平均値（803mg/l）や付加コンプレックスにおける地下水の平均値（799mg/l，尾山ほか，2011）に対して有意に高く、深部流体の特徴的な化学的性状を示している可能性を示唆する。

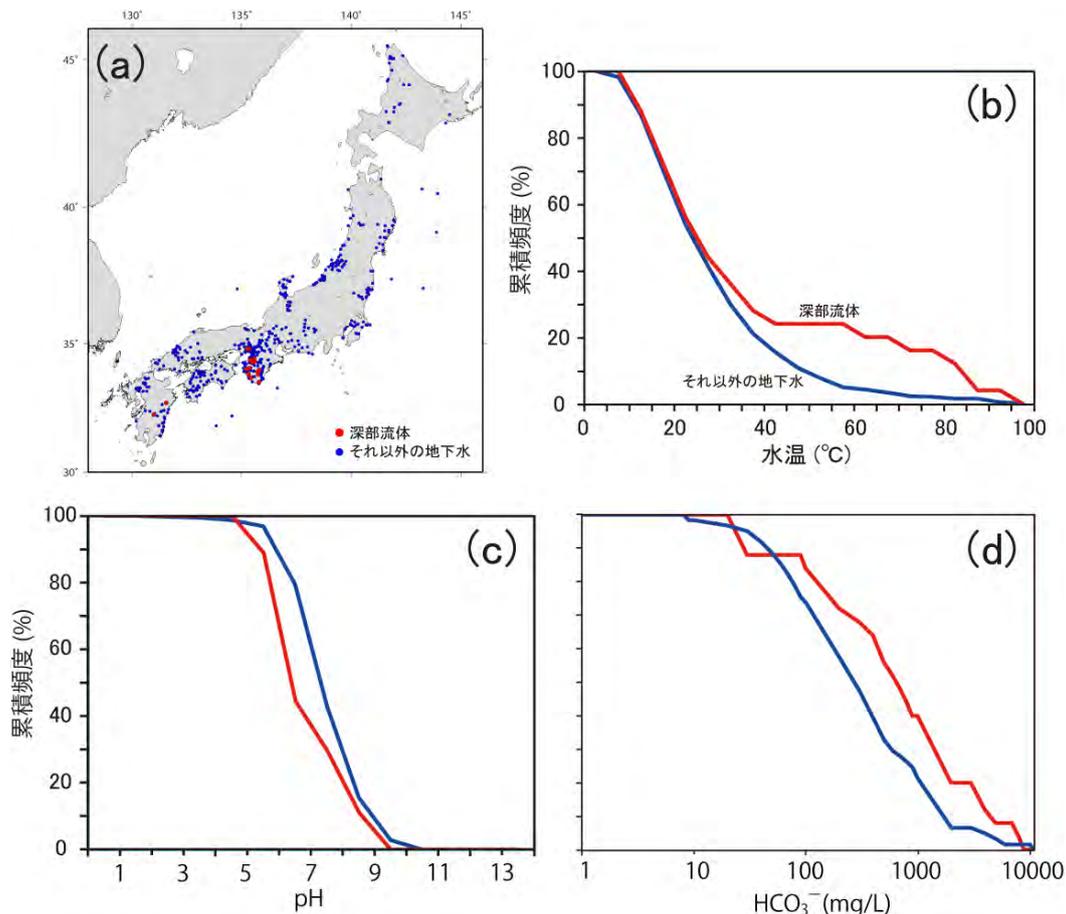


図 4.3.2-14 (a)温泉水・遊離ガス試料採取地点分布と(b)水温、(c)pH、(d)HCO₃⁻濃度の累積頻度分布

4.3.3 巨大地震・断層活動による処分場への影響評価手法の開発

(1)断層のずれが人工バリアに与える影響

1)はじめに

4.3.1項で述べたように、巨大地震・断層活動を事例とした過酷事象に至るシナリオとして、断層の直撃によりオーバーパックが破損し、露出したガラス固化体が母岩に直接接触するという、オーバーパックと緩衝材が同時に安全機能を喪失する可能性を評価するため、断層のずれが人工バリアに与える影響を評価する解析手法を整備し、断層シナリオの性能評価における状況設定に必要な知見を得ることを目的とする。

2)人工バリアせん断模型試験による現象理解

①目的と実施内容

本検討は、「4.3.1巨大地震・断層活動によるシナリオ検討」に示されている地層処分場を断層が横断するシナリオより、断層が人工バリアを横切る場合を想定し、断層のずれによって人工バリアに生じる現象の把握及び理解することを目的とし、断層挙動を模擬したせん断模型試験（以下、「せん断試験」という）を実施するものであり、最終的にオーバーパックと岩盤が接触、衝突する場合の現象把握を目指している。これまで、断層模擬試験設備を使用し、横置き定置式の

人工バリア中央に鉛直に断層ずれが発生した場合を想定した縮尺1/20の試験が実施されており、せん断時の模擬オーバーパックの挙動や緩衝材の土圧の計測等から緩衝材の応力緩衝性が確認されている（平井ほか，2003；齋藤ほか，2008）。これらの成果を踏まえ、上記の目的に向けた検討を実施している。

平成25年度は、後述する断層模擬試験設備の载荷装置の最大せん断変位量、設備を損傷させない条件などを踏まえ、同設備を使用してオーバーパックと岩盤の衝突を模擬する、模擬岩盤、緩衝材、模擬オーバーパックより構成される試験体を設計（日本原子力研究開発機構，2014）した。その縮尺は第2次取りまとめ（核燃料サイクル開発機構，1999）で設定した人工バリアの1/40となった。また、試験計画の策定、及び緩衝材の飽和・膨潤、せん断時の緩衝材挙動を確認するため土圧計の配置等の整備を行った。

平成25年度に策定した試験計画をもとに、表4.3.3-1に示すせん断試験ケースを設定し、最終的に模擬岩盤と模擬オーバーパックが衝突するせん断試験を計画した。せん断変位量は設備への影響を考慮し、20mm、25mm、26mm、30mmと段階的に実施していくこととした。

平成26年度は、Case1の試験を実施し、緩衝材の膨潤過程及びせん断過程における土圧の変化、模擬オーバーパックの回転を確認し、既往の試験結果（平井ほか，2003；齋藤ほか，2008）と同様の傾向が得られることがわかった。

平成27度は、模擬岩盤と模擬オーバーパックの衝突試験を見据え、表4.3.3-1のせん断変位20mmのCase2、せん断変位25mmのCase3、Case4と段階的にせん断変位を大きくして試験を実施した。

表4.3.3-1 せん断模型試験ケース一覧

試験ケース		平成26年度	平成27年度				平成28年度以降		
		Case1	Case2	Case3	Case4	Case5	Case6	Case7	
試験の想定		非衝突	非衝突	非衝突	非衝突	接触	衝突	衝突	
試験条件	せん断変位 (mm)	20	20	25	25	26	30	30	
	せん断速度 (mm/sec)	100	100	100	100	100	100	100	
人工バリアの仕様	緩衝材※	タイプ1	タイプ2	タイプ2	タイプ1	タイプ1	タイプ1	タイプ2	
	模擬岩盤	樹脂製 (POM) φ150×350mm							
	模擬オーバーパック	アルミ充実型 φ18×39mm							

※緩衝材のタイプは表4.3.3-2参照。

表4.3.3-2 緩衝材の仕様

緩衝材の仕様	タイプ1	タイプ2
ベントナイト系材料	Na型クニゲルV1	
ケイ砂混合率	30wt%	0%
乾燥密度	1.67Mg/m ³	1.37Mg/m ³
有効粘土密度	1.37Mg/m ³	1.37Mg/m ³
含水比	約17%	約26%
試験溶液	蒸留水	
注水圧	0.2MPa	
寸法	φ150×350mm	

②試験の概要

試験設備は、処分坑道横置き方式で人工バリアの中央に鉛直方向の断層ずれが発生した場合を想定した。平成27年度は、模擬岩盤と模擬オーバーパックが接触しないせん断変位量である20mm、25mmを与えた。緩衝材の仕様は、表4.3.3-2に示す2タイプを設定し、Case2～Case4を実施した。タイプ1は、第2次取りまとめにおけるレファレンスケースの緩衝材の仕様である。タイプ2は、ベントナイトのみを使用し、タイプ1と同じ膨潤圧を発生させるために有効粘土密度を1.37Mg/m³とした。後述するように、せん断試験後の試験体の内部状況をX線CT測定により観察した。タイプ1のようにケイ砂を含む場合には、X線CT値が乱れることがわかっているため、ケイ砂を含まないタイプ2を設定し、せん断後の試験体の内部状況を確認することとした。なお、せん断変位速度は、設備の最大せん断変位速度である100mm/secとした。

③飽和膨潤過程

試験設備のせん断容器に試験体（樹脂製の模擬岩盤、圧縮ベントナイトを用いた緩衝材及びアルミ製の模擬オーバーパックより構成）を設置した。模擬岩盤に設けた注水孔からメンブレンフィルターを介して、試験に用いた緩衝材の膨潤圧相当の水圧で注水し、緩衝材を飽和させた（飽和膨潤過程）。飽和膨潤過程では、試験溶液注水後の緩衝材中の膨潤圧を模擬岩盤に設置した土圧センサーで測定した。せん断容器に設置した試験体は、せん断試験が終了するまで内部の状況を確認できないため、図4.3.3-1に示す緩衝材基本特性データベース（日本原子力研究開発機構、2013）に登録されている既往の膨潤圧と当試験の膨潤圧を比較し、安定した膨潤圧がこれと同程度であれば飽和に近い状態にあると推定した。

表4.3.3-3に、試験結果の概要を示す。この表に示した350時間の膨潤圧は、図4.3.3-1の対応する条件での膨潤圧相当であることがわかる。また、表4.3.3-3にせん断試験後の緩衝材の状態として飽和度を示しており、各ケースともにせん断試験時に飽和状態にあったことが確認された。このことから、膨潤圧による飽和判断の妥当性が確認できた。また、図4.3.3-2に飽和膨潤過程の膨潤圧の経時変化結果例を示す。

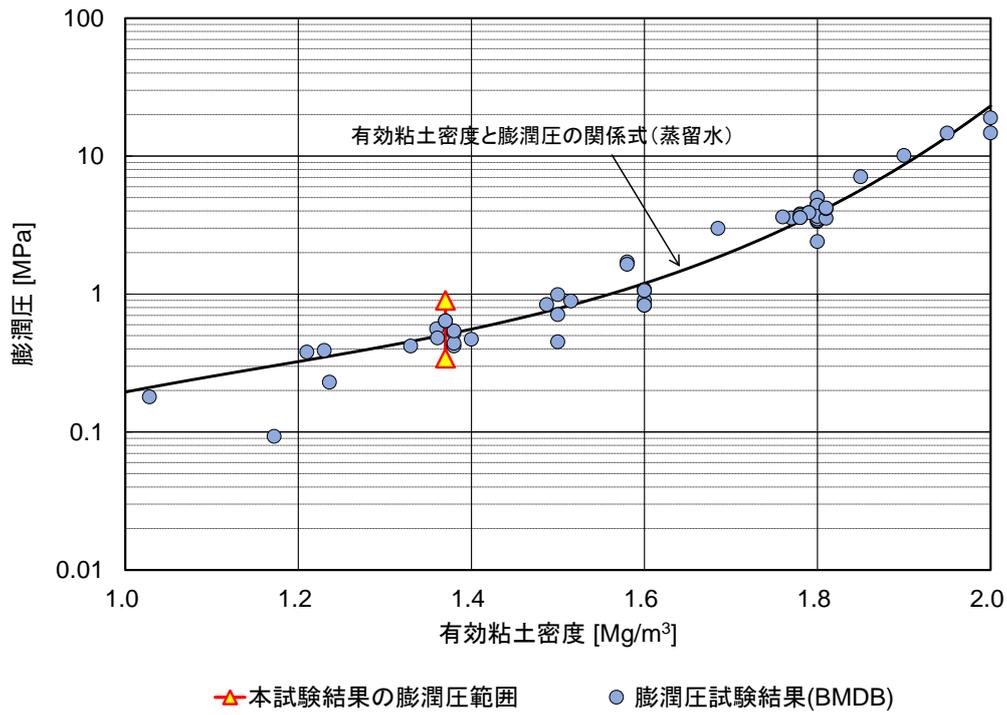


図4.3.3-1 飽和膨潤過程終了後の膨潤圧と膨潤圧試験結果との比較

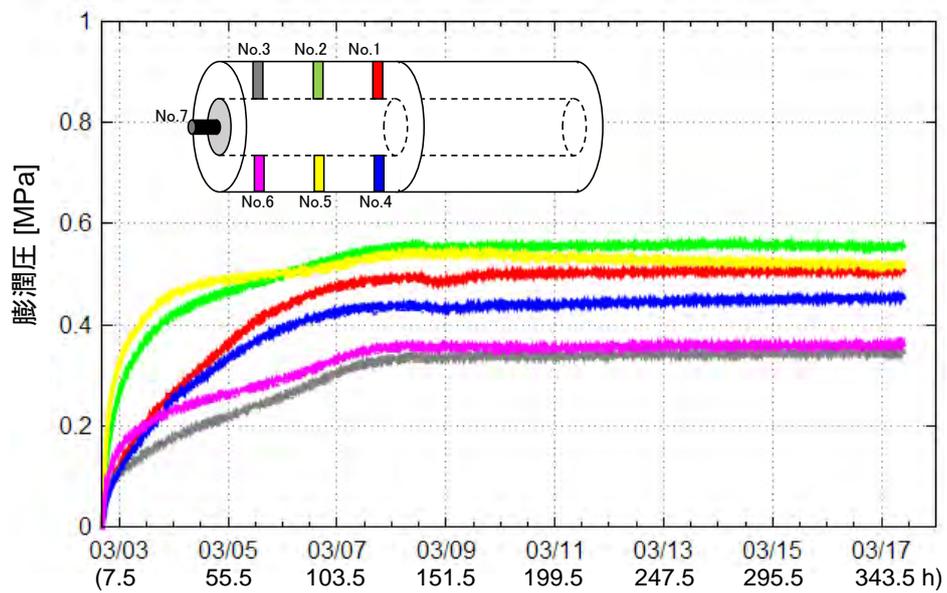


図4.3.3-2 飽和膨潤過程の膨潤圧の経時変化例 (Case4)

④人工バリアせん断試験結果

図4.3.3-3に、せん断過程における試験体挙動の概念図を示す。以下、試験体中心のせん断ずれが生じる面をせん断面、せん断に伴い模擬オーバーパックが模擬岩盤に接近する側を圧縮領域、模擬オーバーパックが離れる側を引張領域と定義した。図4.3.3-4は、取り出した試験体（せん断面より片側）を撮影した画像、及び図4.3.3-5は、X線CT画像から、それぞれ回転角、離間を算定した例である。なお、図4.3.3-4、図4.3.3-5は、いずれもCase4の結果を示している。

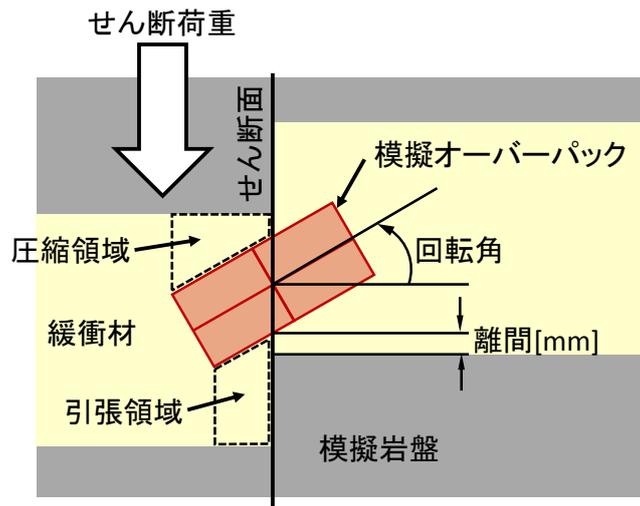


図4.3.3-3 せん断過程における試験体挙動の概念図

表4.3.3-3 試験結果概要

ケース名	緩衝材仕様	飽和膨潤過程		せん断試験							
		膨潤期間 (h)	膨潤圧 ^{※1} (MPa)	試験条件		試験結果					
				せん断速度 (mm/s)	せん断変位量 (mm)	実せん断変位量 (mm)	最大せん断荷重 ^{※2} (kN)	模擬オーバーパックの挙動 ^{※3}		試験後の緩衝材の状態	
回転角 (°)	離間 (mm)	飽和度 (%)	乾燥密度 (Mg/m ³)								
Case1	タイプ1	360	0.39 ～ 0.90	100	20	20.2	3.1 (1.69mm)	31.9 ^{※4} (30.9)	-	102.5	1.595
Case2	タイプ2	648	0.41 ～ 0.77	100	20	19.3	3.5 (0.44mm)	33.0 (30.9)	5.1 (4.5)	98.8	1.365
Case3	タイプ2	576	0.34 ～ 0.62	100	25	24.2	3.6 (1.93mm)	41.5 (39.9)	4.3 (1.5)	102.0	1.370
Case4	タイプ1	353	0.35 ～ 0.56	100	25	23.6	18.3 (14.41mm)	42.1 (39.9)	2.5 (1.5)	95.7	1.64

※1：膨潤開始から350時間経過時の膨潤圧（No. 1～No. 7の最小値と最大値）。

※2：下段の数値は最大せん断荷重が生じたせん断変位を示している。

※3：回転角と離間は図4.3.3-3参照。下段の数値は回転角と離間の想定値を示している。

※4：回転角及び離間の算出について、Case1は実測により、それ以外はX線CT画像により算出した結果。

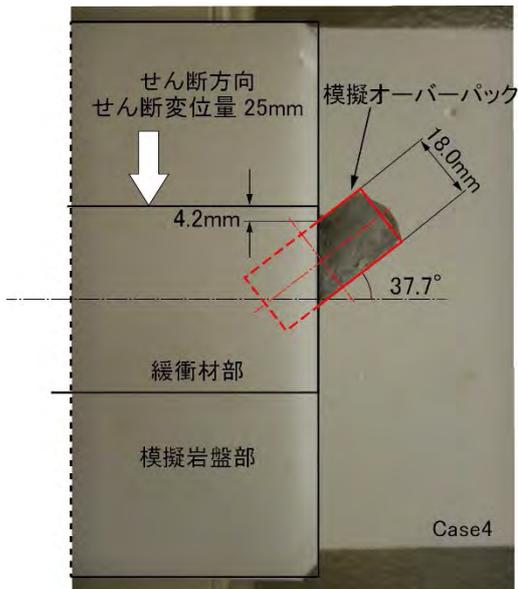


図4.3.3-4 取り出した試験体の撮影画像を用いた挙動確認例

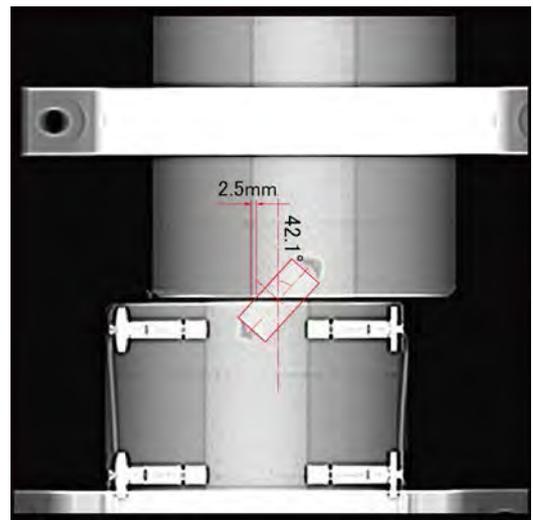


図4.3.3-5 X線CT画像を用いた挙動確認例

表4.3.3-4に示すように、試験装置で設定したせん断変位量に対して、実せん断変位量に誤差が生じている。また、模擬オーバーパックの想定回転角より実際の回転角が大きくなっている。一方、模擬岩盤と模擬オーバーパックの離間は想定よりも大きくなっている。

図4.3.3-6は、Case2のせん断荷重とせん断変位の関係を示したものである。この図から、せん断初期の段階で最大せん断荷重が生じ、その後、最大せん断荷重の50%程度の値でせん断が進行することがわかる。これは、せん断開始直後に瞬間的にせん断面で緩衝材が塑性化し、それ以降のせん断抵抗が低下した状態でずれが進行したためであると推察される。

ただし、Case4はこの傾向とは異なる挙動を呈しており、これは、せん断面において模擬岩盤とせん断容器が干渉したためと判断している（図4.3.3-7参照）。

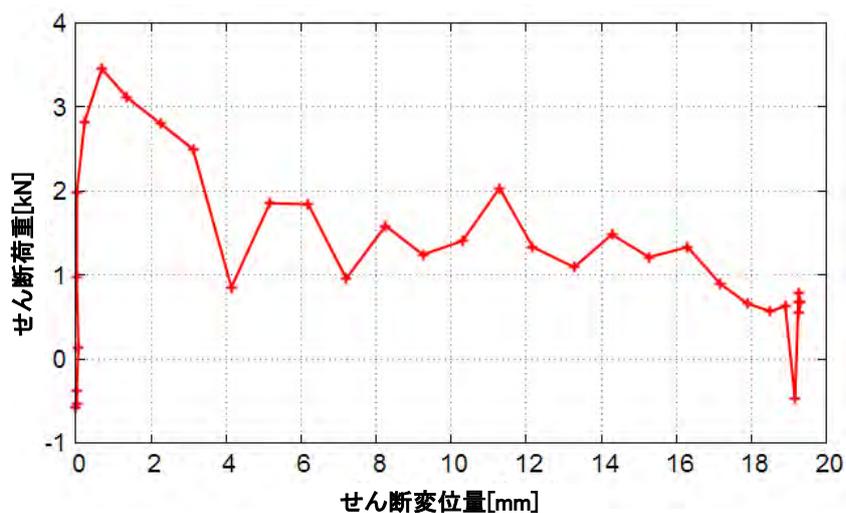
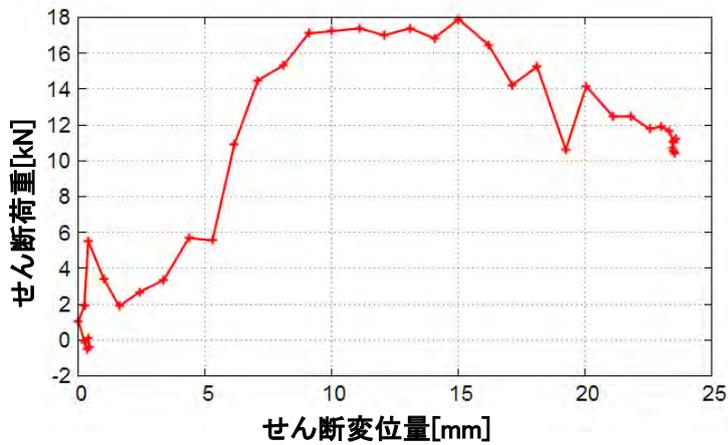


図4.3.3-6 せん断荷重とせん断変位の関係の例 (Case2)



模擬岩盤とせん断容器の干渉により生じた擦過面（破線部分）

図4. 3. 3-7 Case4 : せん断荷重とせん断変位の関係と試験時に干渉したと判断される模擬岩盤の擦過面

図4. 3. 3-8は、Case2のせん断過程における土圧とせん断変位の関係を示した図である。せん断に伴う土圧の変化は、既往の試験結果と同様に、圧縮領域のNo. 1では、せん断開始から土圧が上昇し、せん断終了後に低下に転じることが確認された。一方、No. 2～No. 7の土圧はせん断開始より減少し、その後上昇に転じることが確認された。この傾向は他のケースでも同様である。

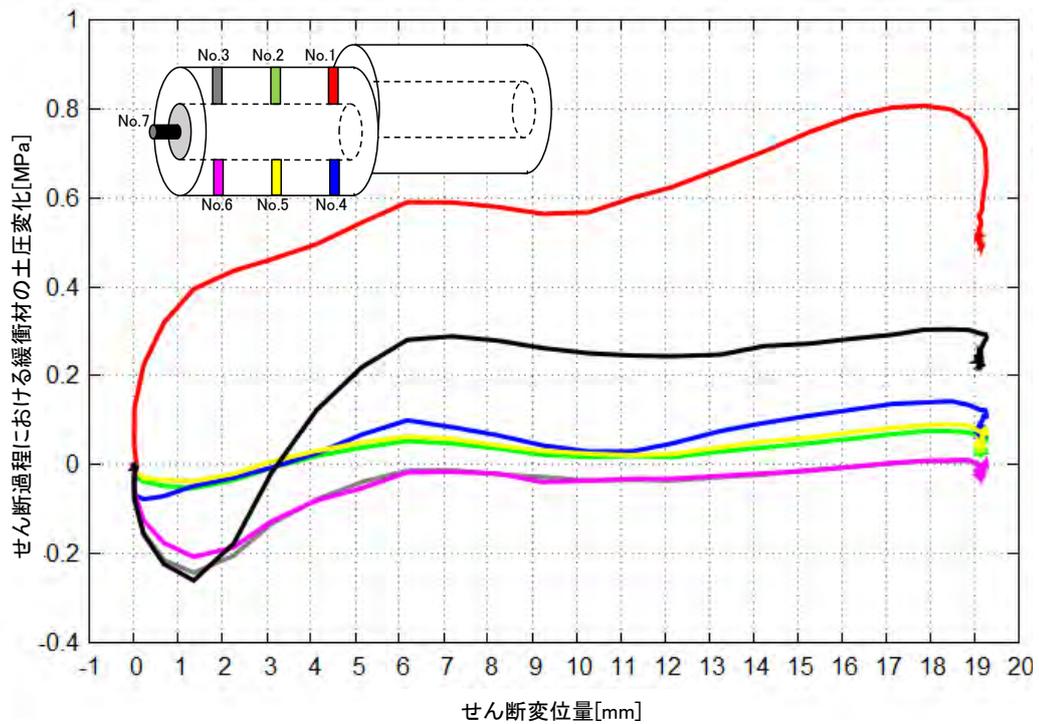


図4. 3. 3-8 土圧とせん断変位の関係の例 (Case2)

⑤ 試料押し治具・試料ホルダーの製作

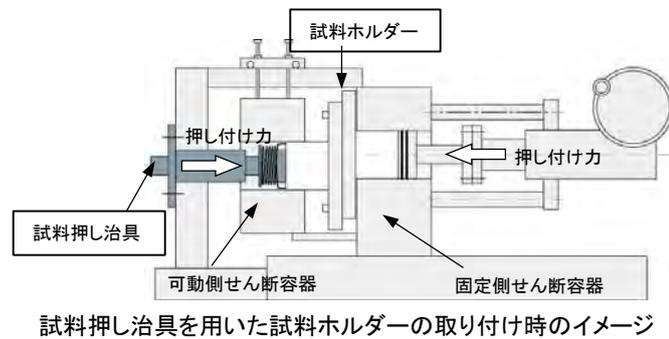
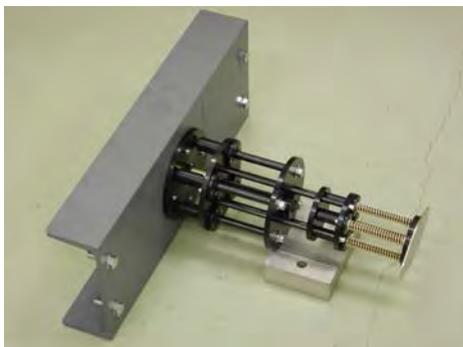
図4.3.3-9は、せん断試験後にせん断容器から取り出した試験体の様子である。このように、せん断部分にせん断による変位が生じ、せん断変位量が増加するとより不安定になることが予想される。そこで、試験体をせん断容器から取り出す際にせん断部分を固定する方法を検討し、図4.3.3-10、図4.3.3-11に示す「試料ホルダー」及び「試料押し治具」を製作した。実際にCase4の試験時に使用し、せん断部分を極力乱さずに移動することが可能となり、X線CT測定等が容易になった。



図4.3.3-9 せん断後の試験体の状況



図4.3.3-10 試料ホルダー



試料押し治具を用いた試料ホルダーの取り付け時のイメージ

図4.3.3-11 試料押し治具と使用時のイメージ

3) 模擬オーバーパックと岩盤との接触を取り扱える解析手法の開発

①はじめに

4.3.1項で述べたように、巨大地震・断層活動による過酷事象に至るシナリオとして、断層の直撃によりオーバーパックが破損し、露出したガラス固化体が母岩に直接接触するという、オーバーパックと緩衝材が同時に安全機能を喪失する可能性を評価するために、断層直撃により模擬オーバーパックに発生する応力値及びひずみ値と、炭素鋼の引張強さ及び伸び（破断ひずみ）との比較検討から、模擬オーバーパックの破損の有無を判断するための解析を実施した。

平成25年度は、断層模擬試験設備（BORE-SHEAR）を用いて過去に実施された人工バリアのせん断影響を模擬した模型試験の再現解析を行った。図4.3.3-12のせん断模型試験結果と解析結果における緩衝材上部の土圧変化の比較に示すように、試験結果Case-1（黒丸線）と解析結果（青線）の緩衝材上部の土圧変化曲線はほぼ同等になり、本解析手法の妥当性を概ね確認した。この解析手法を用いて非線形大変形せん断解析を実施することとした。

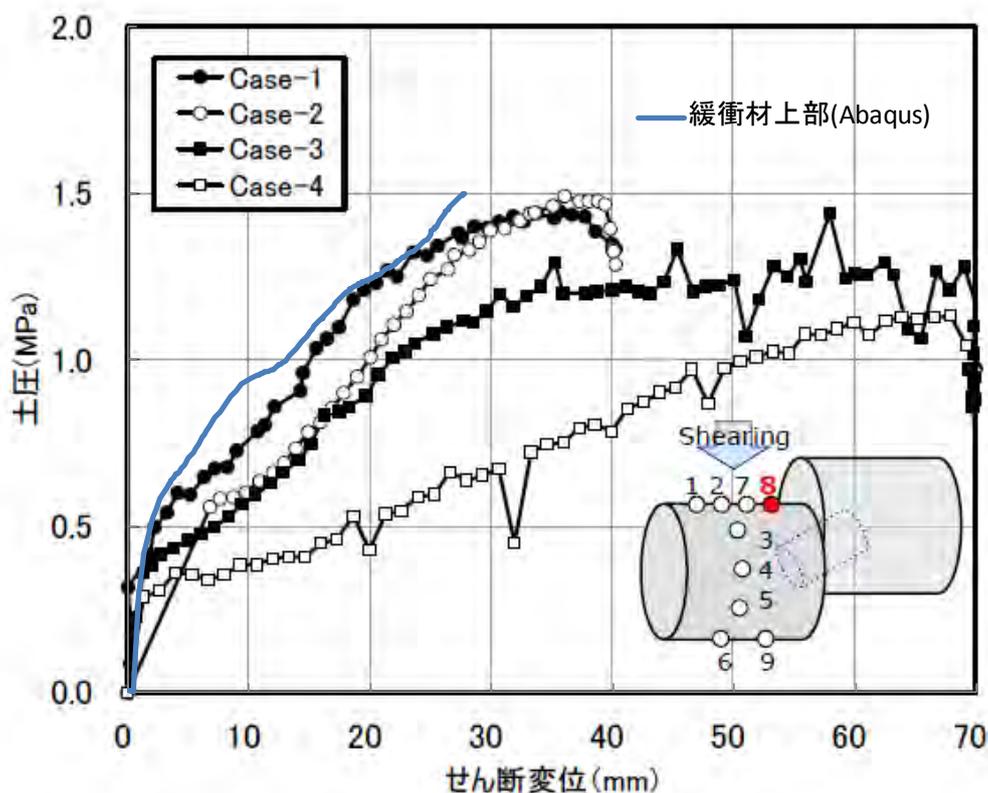


図4.3.3-12 せん断模型試験結果と解析結果における緩衝材上部の土圧変化の比較
(日本原子力研究開発機構, 2015)

平成25年度の課題として、陰解法を用いた有限要素法による解析では、断層のせん断変位の増加に伴い緩衝材と模擬オーバーパック間の変形量が増大することにより、計算が発散し、岩盤と模擬オーバーパックが衝突するまでの計算ができないことが挙げられた。

そこで、平成26年度は、断層直撃によって岩盤と模擬オーバーパックが衝突するまでの計算ができるように解析手法の見直しを行い、陽解法を用いた2次元モデルによる非線形大変形せん断衝

突解析により、断層直撃によって岩盤と模擬オーバーパックが衝突する場合の応力状態を把握した。平成27年度は、模擬オーバーパック等のモデル化の方法を2次元モデルではなく3次元モデルに変更して、陽解法を用いた3次元モデルによる非線形大変形せん断衝突解析を実施した。ただし、本解析は、実規模のオーバーパック（寸法、中空円筒容器）を用いた3次元モデルによる非線形大変形せん断衝突解析手法を開発するための解析であり、上記2)に示す人工バリアせん断模型試験の再現解析を行ったものではない。

本解析の単位系は、N、mm、MPa、Mg、secである。以下に、本年度の解析条件及び解析結果を示す。

②解析条件

a. 解析モデル

3次元モデルによる実規模のオーバーパック等をモデル化した場合、解析モデルの総要素数等が膨大になるため、平成27年度は3次元のスケールモデルによる解析を実施することとした。解析モデルの寸法は、実際の横置きタイプのオーバーパック：φ820×1730mm、緩衝材：φ2220mm、OPと岩盤の間隔：700mm、OPとOPの間隔：1400mm、横置きOPの間隔：3130mmを基に、約1/15スケールでモデル化した。なお、解析モデルの対称性を考慮して、3次元1/2モデルとした。3次元解析モデル（模擬オーバーパック、緩衝材、岩盤）の概要を図4.3.3-13に示す。本解析モデルの寸法は、岩盤：600×200×300mm、緩衝材：φ150×200mm、模擬オーバーパック：φ50×100mmである。解析モデルの規模は、総節点数：19232、総要素数：15974である。

b. 物性値

本解析に使用する物性値は、各種室内試験等で得られた第2次取りまとめ（核燃料サイクル開発機構, 1999）に示すものを使用した。硬岩のヤング係数は、軟岩に比べて約10倍大きく、岩盤と模擬オーバーパックが衝突した場合、硬岩の方が模擬オーバーパックに生じる応力及びひずみが大きくなり、より危険側になるため、本解析では第2次取りまとめに示す硬岩系の岩盤とした。岩盤の物性値を表4.3.3-4に示す。岩盤の構成モデルは、モール・クーロンモデルを適用した。

緩衝材の材質は、ベントナイト70wt%/ケイ砂30wt%、乾燥密度 $\rho_d=1.60\text{Mg/m}^3$ とした。緩衝材の物性値を表4.3.3-5に示す。緩衝材の構成モデルは、修正Cam-Clayモデルを適用した。ただし、下記に示す解析コードのAbaqusを用いた陽解法による解析では、緩衝材の変形の弾性部分を線形弾性材料モデルで定義する必要があるため、本解析では、表4.3.3-5に示す緩衝材のヤング係数を使用した。

模擬オーバーパックの材質は圧力容器用炭素鋼とし、模擬オーバーパックの物性値を表4.3.3-6に示す。模擬オーバーパックの構成モデルは、降伏応力及び引張強さを用いた多直線近似の非線形モデルを適用した。

c. 境界条件

本解析における境界条件は、図4.3.3-13の解析モデルの左右岩盤側面を水平X方向又はZ方向変位拘束（鉛直ローラー境界）、左側岩盤上下面を鉛直Y方向変位拘束（水平ローラー境界）、モデル中央面を対称境界とした。また、不連続の2つの物体が互いに接触した時に、接触面に対して垂直方向の力がそれらの物体間に作用する。物体間の接触相互作用（接触、はく離、滑り）を考慮

して物体間の力を伝達させるために、各材料間には、自己接触を含む接触条件（左右の岩盤間の接触、岩盤と緩衝材間の接触、左右の緩衝材間の接触、緩衝材の自己接触、緩衝材と模擬オーバーパック間の接触、岩盤と模擬オーバーパック間の接触）を考慮した。

d. 荷重条件

検討対象とする断層としては、サイト選定において地質環境に大きな影響を与える可能性のある活断層を避けるものとするれば、主断層から派生する副次的な断層を考えるのが妥当である。これらの断層は、C 級断層に分類されると考えられるが、C 級断層はその変位速度が日本の平均的浸食速度より小さいため、条件の良好な箇所以外では、浸食作用により断層変位地形が残されないことなどから、未確認のものが多数存在している可能性が指摘されている（池田ほか, 2000）。そこで、検討対象としては、未確認の断層が多数存在している可能性が高いものの中で最大級の断層すべり速度 1m/sec（平井ほか, 2003）を考え、平成 25 年度及び平成 26 年度の解析での荷重条件の断層せん断すべり速度には $V=1\text{m/sec}$ を使用した。また、平成 27 年度では、より過酷な状態を想定して、断層せん断すべり速度の値を見直した。断層せん断すべり速度の値は、1999 年の台湾集集地震チェルンプ断層の事例（M7.6）より内陸型地震で最大級の断層せん断すべり速度 $V=4.5\text{m/sec}$ （廣野ほか, 2003）を使用した。荷重条件として、図 4.3.3-13 に示す赤線で囲まれた右側の岩盤に、鉛直下向きに初速度 $V=4.5\text{m/sec}$ を载荷した。

③解析コード及び解析手法

解析には、汎用有限要素法解析ソフトウェアAbaqus 6.14-1（Abaqus, 2014）を使用した。本研究では、断層直撃による過酷事象に関連した場合を想定し、岩盤と模擬オーバーパックが衝突する場合の計算ができる陽解法による非線形大変形せん断衝突解析を実施した。陽解法は、連立方程式の解法を行わない代わりに、物体の運動方程式を陽的中央差分法により計算する数値計算法である。陽解法の長所として、連立方程式の解法を行わないため計算時間を短縮でき、高速な動的現象、大規模で複雑な接触問題、大変形及び大回転問題、破壊現象などを非常に効率良く計算できる長所がある。

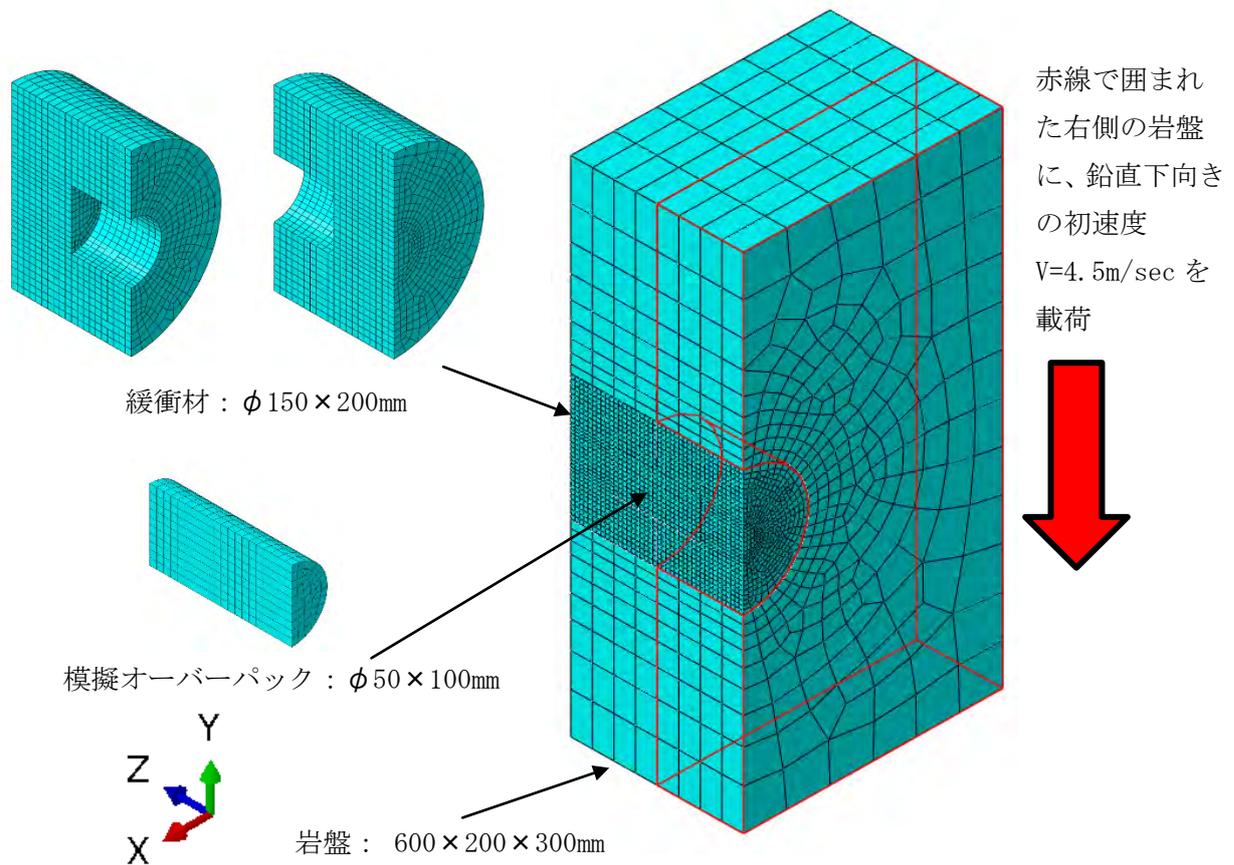


図4.3.3-13 3次元解析モデル（模擬オーバーパック、緩衝材、岩盤）の概要

表 4.3.3-4 岩盤（硬岩系）の物性値（核燃料サイクル開発機構，1999）

対象岩盤		硬岩系岩盤
物理特性	飽和密度 ρ [Mg/m^3]	2.67
	真密度 ρ_R [Mg/m^3]	2.7
	有効間隙率 n_e [%]	2
力学特性	一軸圧縮強度 q_u [MPa]	115
	弾性係数 E [MPa]	37000
	ポアソン比 ν [—]	0.25
	粘着力 c [MPa]	15
	内部摩擦角 ϕ [$^\circ$]	45
	引張強度 σ_t [MPa]	8

表 4. 3. 3-5 緩衝材の物性値 (核燃料サイクル開発機構, 1999)

	項目	記号	単位	値	備考
乾燥密度 1.6Mg/m ³ (ケイ砂 30%配合)	乾燥密度	ρ_d	Mg/m ³	1.600	
	間隙比	e	—	0.656	$\rho_s=2.65\text{Mg/m}^3$
	圧縮指数(対数体積塑性率)	λ	—	0.117	
	膨潤指数(対数体積弾性率)	κ	—	0.070	
	ヤング係数	E	MPa	116.0	(高治, 谷口, 1999)
	ポアソン比	ν	—	0.42	Jakyの式より($\phi=16.6^\circ$)
	限界状態応力比	M	—	0.630	
	先行圧密降伏応力	P_0^*	MPa	0.900	
	膨潤圧(初期応力)	P_{sw}	MPa	0.5	

表4. 3. 3-6 模擬オーバーパックの物性値 (核燃料サイクル開発機構, 1999)

項目	記号	単位	値	備考
密度	ρ	Mg/m ³	7.85	
弾性係数	E	MPa	200000	
ポアソン比	ν	—	0.30	
降伏応力	σ_y	MPa	205	SFVC1 (圧力容器用炭素鋼)
引張強さ	σ_t	MPa	410	SFVC1 (圧力容器用炭素鋼)
伸び	—	—	0.21	SFVC1 (圧力容器用炭素鋼)

④解析結果

3次元モデルによる非線形大変形せん断衝突解析結果として、ミーゼス相当応力コンタ(時刻0.05秒、せん断変位77mmの場合)を図4.3.3-14に示す。ミーゼス相当応力は、実際の構造物内で発生している3軸の応力場における降伏を判断する指標であり、金属材料の降伏を判断するのによく用いられている。図の左側は3次元表示でのミーゼス相当応力コンタであり、右側はモデル中央面の模擬オーバーパック付近を拡大表示したものである。岩盤のせん断変位の増加に伴い緩衝材中の模擬オーバーパックがX軸回りに回転し、せん断変位77mmで岩盤と模擬オーバーパックが衝突した。断層すべり速度が4.5m/secと大きいため、模擬オーバーパックの回転に伴い、模擬オーバーパック軸方向の両端部付近の緩衝材に空隙部が生じており、岩盤との衝突により模擬オーバーパックには最大315.5MPaのミーゼス相当応力が発生している。

相当塑性ひずみコンタ(せん断変位77mmの場合)を図4.3.3-15に示す。相当塑性ひずみは、材料の非弾性変形を表現するために使用されるスカラー変数である。図の右側の模擬オーバーパック付近を拡大表示した相当塑性ひずみコンタ図に示すように、模擬オーバーパック軸方向の両端部付近の緩衝材は引張り領域により空隙部が生じているのに対して、模擬オーバーパック半径方向の両側面付近の緩衝材は圧縮領域になり、最大1.35の相当塑性ひずみが発生している。

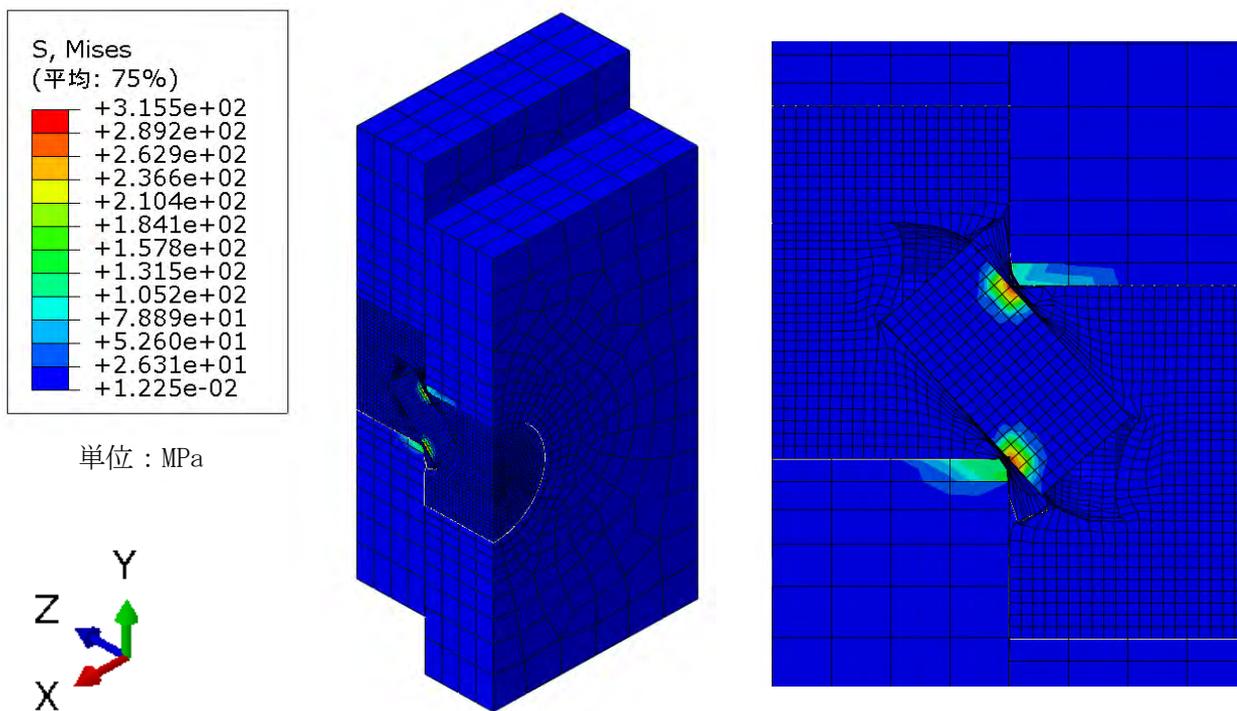


図4.3.3-14 ミーゼス相当応力コンタ (時刻0.05秒、せん断変位77mmの場合)

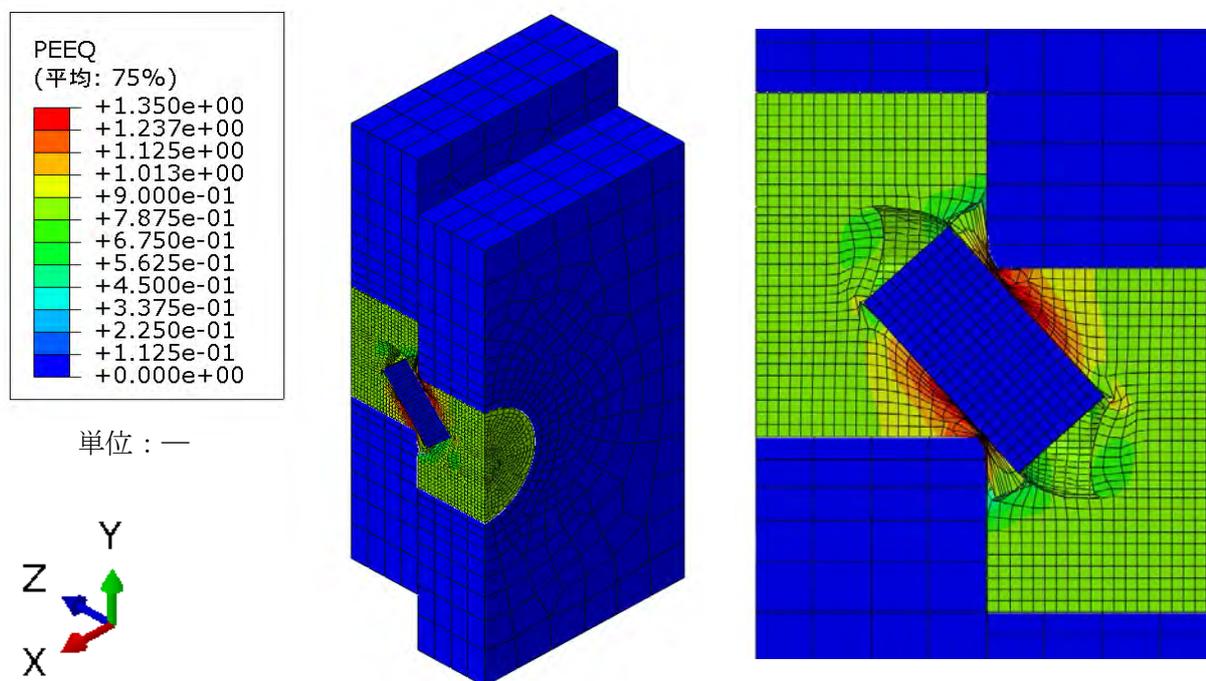


図4.3.3-15 相当塑性ひずみコンタ (時刻0.05秒、せん断変位77mmの場合)

4) 断層シナリオ分岐の判断に関する知見

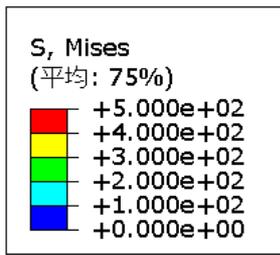
オーバーパックの構造健全性に関する研究では、オーバーパックの構造健全性上重要と考えられる荷重は、地圧による静的な外圧であるとしており、断層活動により人工バリアにせん断力が発生した場合の評価の定量化は難しく、また、処分サイト選定において断層活動による事象が生起する可能性が小さい地域を選定するため、断層活動による事象を考慮する必要性は少ないとしている。さらに、合理的な構造設計基準を検討するため、規格計算によって設計されたオーバーパックの構造解析を行い、オーバーパックの崩壊荷重を以下の3種類の方法で求めており、結果として胴一般部の膜応力が降伏応力を超えないようにオーバーパックの板厚を確保している（前田ほか、1999）。

- ①荷重とそれによる変形量の関係直線を求めて、その直線部の荷重軸に対する2倍の勾配の直線が、荷重と変位量との関係直線と交わる点に相当する荷重（非線形の荷重変位曲線と、その初期勾配の2倍勾配直線との交点に相当する荷重）
- ②評価断面の各部位のミーゼス相当応力が降伏応力を超えた荷重
- ③局所で発生する相当塑性ひずみが5%を超える荷重

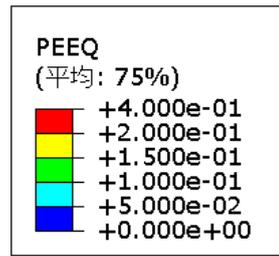
しかし、断層の直撃によりオーバーパックが破損し、露出したガラス固化体が母岩に直接接触した場合は、過酷事象の断層シナリオ分岐の判断において重要である。

本解析による模擬オーバーパックのミーゼス相当応力コンタ、相当塑性ひずみコンタ（時刻0.054秒、せん断変位97mmの場合）を図4.3.3-16に示す。これらのコンタ図では、概ね降伏応力及び相当塑性ひずみ5%の領域がわかるようなコンタレンジとして表示した。ミーゼス相当応力コンタに示すように、岩盤と模擬オーバーパックが衝突することにより模擬オーバーパックには炭素鋼の降伏応力205MPaを上回る領域（緑色～赤色のコンタ領域）が生じており、炭素鋼の引張強さ410MPaを上回る領域（赤色のコンタ領域）も生じている。また、相当塑性ひずみコンタに示すように、相当塑性ひずみが5%を超える領域（水色～赤色のコンタ領域）が生じており、特に、炭素鋼の伸び（破断ひずみ）0.21（赤色のコンタ領域）を超える領域も生じている。このように、今回設定した条件下では、岩盤と模擬オーバーパックが衝突することにより模擬オーバーパックの一部は損傷する可能性があることが示唆された。また、実際のオーバーパックは中空円筒容器であり、内容物のガラス固化体等は構造部材ではないため、せん断応力の他に大きな曲げ応力が加わることが考えられる。

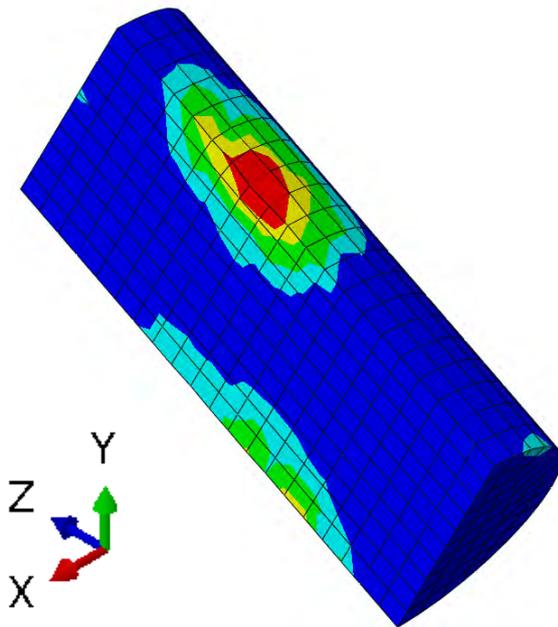
今後の課題として、実規模のオーバーパック（実寸法、中空円筒容器）を用いた3次元モデルによる非線形大変形せん断衝突解析手法の開発と、断層シナリオ分岐の判断に関する知見について整備する。



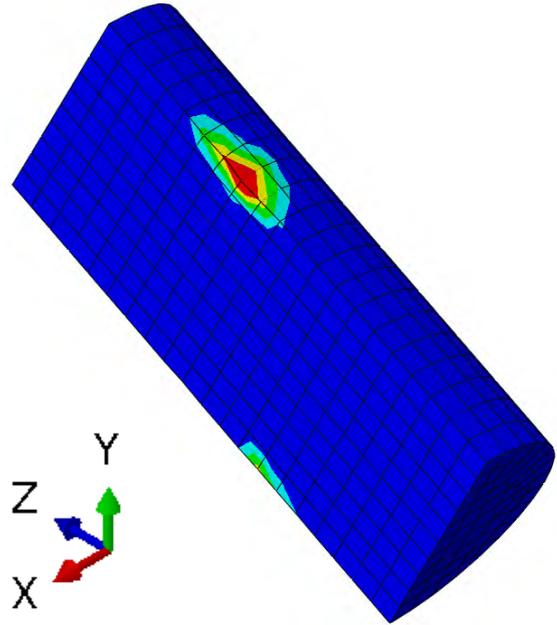
単位：MPa



単位：—



a) ミーゼス相当応力コンタ



b) 相当塑性ひずみコンタ

図4.3.3-16 模擬オーバーパックのミーゼス相当応力コンタ、相当塑性ひずみコンタ
(時刻0.054秒、せん断変位97mmの場合)

(2) 断層起源ガスが地下水流動場や地層処分システムに与える影響

1) はじめに

本研究では、従来対象としていない巨大地震・断層活動に伴う地下に賦存するガスの放出、高速すべり断層運動に伴って発生する断層起源ガス (Hirose et al., 2011) 等の大規模なガスの放出や移行に焦点をあて、これらが生じた場合の人工バリア性能に与える影響を評価することを目的としている。そのため、断層運動に伴って発生するガスが地下水流動場や処分システムに与える影響をまず把握するとともに、原位置試験などにより評価手法の改良検討を行い、断層起源ガス発生に伴う影響評価手法としての知見の整備を行う。

これまでの研究では、ガス移行解析に必要なパラメータを整備する観点から、幌延深地層研究計画で採取された岩石試料を対象に透気特性データの取得や幌延を一例に深度350m調査坑道での

溶存ガスの状態調査を行った。また、深度350m調査坑道でのガス移行挙動に関する原位置試験計画ならびに影響評価手法の改良・高度化に向けた全体計画の検討を実施した。

本年度は、これまでに整備を進めてきたガス移行解析パラメータ等をベースに、断層起源ガスの地層処分システムへの影響を把握し、断層シナリオの性能評価に用いるパラメータ（緩衝材からの押し出し流量など）を明確化するための解析を行った。

2) 断層起源ガスの影響解析

① 概要

緩衝材及び岩盤のガス相圧力からガスフラクチャリングが生じる可能性を評価するとともに、緩衝材からの押し出し流量から汚染水の押し出し流量の推測を行うため、圧力依存透過性モデルによるガス移行影響解析を実施した。本検討で使用する解析コードは、多相多成分流動系を取り扱える積分型有限要素法の汎用三次元地圏流体シミュレータ（GETFLOWS）（Tosaka et al., 2010）を用いた。

水平方向のモデル化範囲は、鏡面对称性を仮定し、ガラス固化体の中心から坑道縦断方向に6.66m、横断方向に13mとした（図4.3.3-17参照）。鉛直方向は、坑道埋戻し部底面（緩衝材上面）から上下に50mの範囲をモデル化した。断層については、ガラス固化体の中心を通り、45度の傾斜を持つように配置した。この時、図4.3.3-18に示した人工バリア断面図の右上部分の断層のモデル化、いわゆる排出側については、解析パラメータとし、排出側を考慮するケースのみモデル化した。

解析に用いる材料パラメータは、表4.3.3-7に示すとおりである。

解析モデルにおける初期状態は、完全飽和状態を仮定し、地表面に水位があるとした静水圧状態とした。境界条件については、モデル上面、下面を定圧境界にし、側面は鏡面对称性を仮定し不浸透境界とした。地温については、地表面温度を15℃、地温勾配を0.03℃/mとしている。

本検討で実施する解析ケースを表4.3.3-8に示す。断層が人工バリアに到達し、その際にガスが侵入するケースを基本ケースとし、その比較ケースとして、①放出側に断層が存在する場合、②断層で発生したガスの発生量を変化させた場合の合計4ケースの解析を実施した。

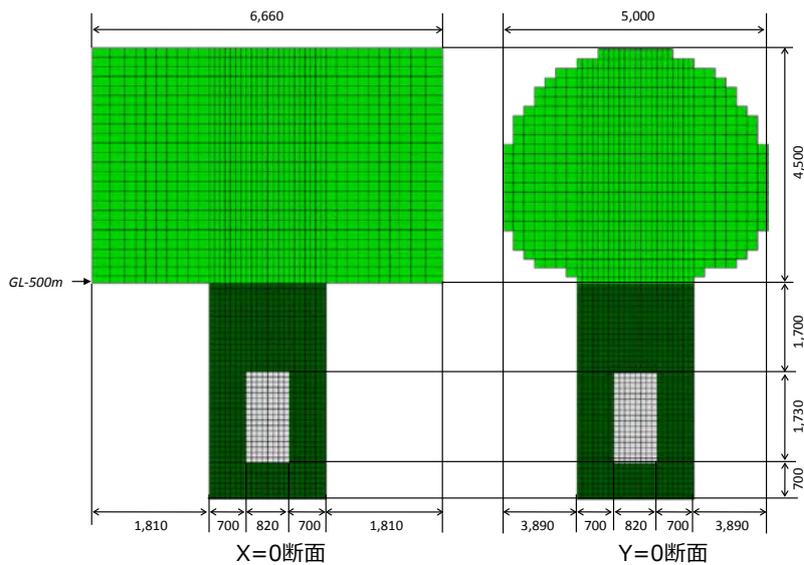


図 4.3.3-17 人工バリア寸法図

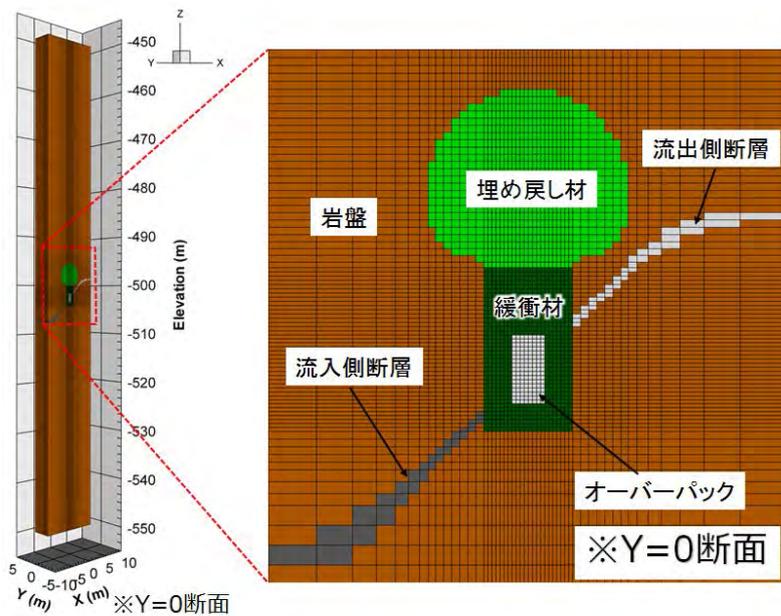


図 4.3.3-18 解析モデルの一例

表 4.3.3-7 材料パラメータ

	水相浸透率 (m ²)	ガス相浸透率 (m ²)	間隙率 (-)	固相圧縮率 (1/Pa)
緩衝材	4.00×10^{-20}	5.10×10^{-19}	0.40	2.750×10^{-8}
埋め戻し部	6.00×10^{-19}	9.50×10^{-16}	0.33	2.750×10^{-8}
岩盤	1.00×10^{-16}	9.50×10^{-16}	0.30	9.000×10^{-11}
断層	1.00×10^{-13}	9.50×10^{-13}	0.30	9.000×10^{-11}

表 4.3.3-8 解析ケース

ケース名	ガス流量	溶存メタンガスの考慮	断層の状態	備考
ケース1	528.8 Nm ³	考慮しない	流出側なし	基本ケース
ケース2	528.8 Nm ³	〃	流出側あり	放出側の断層影響ケース
ケース3	52.88 Nm ³	〃	流出側なし	ガス流量の影響把握
ケース4	5.288 Nm ³	〃	流出側なし	ガス流量の影響把握

②断層起源ガスの発生量の設定

Wakita et al. (1980) は、地下深部で断層運動によって破碎された岩石の表面と地下水とが反応して、水素ガスが発生するというメカニズムを考え、室内実験で実際にそのような条件で水素が発生することを確認した。また、Hirose et al. (2011) は、回転式高速摩擦試験を用いて地震断層運動を実験室で再現し、地震時に発生する水素ガスの量と地震のマグニチュードの規模との間に強い相関関係があることを見出した。なお、Hirose et al. (2011) の実験結果は、実際の断層活動エネルギーに比して非常に小さいエネルギーでの試験結果を、グーテンベルグ・リヒター則が巨大地震でも成立することを前提として整理している。

Hirose et al. (2011) の実験結果を用いて水素ガスの発生量を推定するため、本検討でのマグニチュードの規模をMw=7.9とした。その根拠は以下に示すとおりである。

- ・ 日本とその付近に起きた浅い地震（深さ60km以浅）のマグニチュード別地震発生頻度（宇津、1984）は、マグニチュード8より大きくなると、グーテンベルグ・リヒター則の直線関係から徐々に下側にずれてくる。
- ・ グーテンベルグ・リヒター則におけるb値については、通常1に近い値となるが、マグニチュード9またはそれを超える巨大地震である、2011年の東北地方太平洋沖地震と2004年のスマトラ島沖地震について、b値の変化を調査したNanjo et. al. (2012)などの研究例では、b値が低下するという結果が得られている。
- ・ Well and Coppersmith(1994)におけるモーメントマグニチュードと地震パラメータ（変位量、破碎面積など）の相関が整理可能な最大のMwは7.9である。

以上から、Mw=7.9として水素ガス発生量を算出すると $5.9 \times 10^8 \text{mol}$ となる。

なお、ここで推定した水素ガス発生量の妥当性を確認するため、ガス発生量に必要な水の存在可能性について検討した。設定した水素ガス発生量に必要な水の量は、 $2.1 \times 10^4 \text{m}^3$ となるが、Mw=7.9の場合の断層帯の間隙体積は、Well and Coppersmith(1994)における相関式から、 $2.2 \times 10^7 \text{m}^3$ （断層の間隙比を仮に0.1として計算）となり、水素ガス発生に必要な水は十分存在可能であることが確認された。

③解析結果

解析結果の経時変化を算出する際の評価点位置を図4. 3. 3-19に示す。

ケース1の埋め戻し部ではガス流入から4日後にガス相圧力が8MPaまで上昇し、緩衝材では断層との界面近傍のガス相圧力が0. 4日で約18MPaまで上昇する（図4. 3. 3-20）。Pusch et al. (1985)、Tanai et al. (1997) は背圧と膨潤圧の和以上のガス相圧力に達した際にベントナイト系材料はガスフラクチャリングが生じると指摘していることから、緩衝材や埋戻し部の膨潤圧及び地下水圧などを踏まえて、緩衝材及び埋戻し部は概ね全域でガスによって破壊する結果となった。岩盤については評価点位置の最大で25MPaまでガス相圧力が上昇する結果となった（図4. 3. 3-21）。棚井ら(2013)の検討によれば、幌延深地層研究センターの深度350mの地下環境で岩盤中のガス移行試験を実施した場合、岩盤をガスフラクチャリングさせるために必要なガス相圧力は地下水との差圧で2. 5MPaとしている。よって、岩盤についても破壊することが示唆される結果となった。一方、緩衝材からの押し出し流量はガス注入開始3日後から変化が生じて、 $5. 5 \times 10^{-5} \text{m}^3$ となることとなった（図4. 3. 3-22）。これは、始めはガス溶解が先行している影響である。さらに、緩衝材へのガス流入量は約0. 5Nm³であるが、緩衝材からのガス透気量は約0Nm³である（図4. 3. 3-22、図4. 3. 3-23）。よって、緩衝材内に流入したガスは緩衝材中の液相へ大部分が溶解していることが考えられる。ただし、緩衝材内の飽和度は低下していることから、このまま解析を続ければガス透気が生じる可能性もある。

ケース2の埋め戻し部については、4日後のガス相圧力がケース1に比べ大きくなっているのが分かる（図4. 3. 3-24）。これは排出側のガス相圧力が上昇することによって、排出側から埋め戻し部にガスが流入してくることを示唆している。一方で、緩衝材については、ガス流入側に近い評価点緩衝材3におけるガス相圧力は約14MPaから約11MPaまで低下している（図4. 3. 3-24）。これは緩衝材に到達したガスが断層を回って排出側へ移行したため、流入側の緩衝材のガス相圧力が低下してものと考えられる。ただし、その他の部位におけるガス相圧力はケース1と同様の結果となっている。岩盤については、一時的にケース1よりも高いガス相圧力になった（図4. 3. 3-25）。これは、断層に注入されたガス相圧力が緩衝材周辺の断層を回り込むことによって、評価点付近のガス相圧力も一時的に上昇した影響と考えられる。ケース1と比較すると、緩衝材、埋戻し部及び岩盤中のガス相圧力は流出側の断層の影響によって変化するものの、ガス相圧力の上昇が大きいため、ケース1と同様にガスフラクチャリングが生じることが示唆される。ケース1ではガス注入開始から3日後に押し出し流量がみられたが、本ケースでは押し出し流量はみられなかった（図4. 3. 3-26）。また、緩衝材からのガス透気量もみられなかった（図4. 3. 3-26）。本ケースでは緩衝材を取り巻く形で断層がモデル化されており、低透水の緩衝材にガスが侵入する前に透過性の高い断層を経由して排出側へ移行した結果である。そのため、緩衝材へのガス注入量もケース1よりも少なく、ケース1が0. 52Nm³であったのに対して、ケース2では0. 27Nm³であった（図4. 3. 3-27）。なお、排出側の断層を移行するガスの流速を算出すると、最大でも0. 15m/sである。

ケース3のガス相圧力は、埋め戻し部でガス注入開始から0. 6MPa増加の5. 6MPa（図4. 3. 3-28）、断層付近の評価点である緩衝材3の位置で約7MPa（図4. 3. 3-28）、岩盤で約5. 6MPa（図4. 3. 3-29）であった。ただし、各評価点におけるガス相圧力は低下しているものの、膨潤圧と背圧の和や岩盤の強度等から判断すると、ガス発生量が1/10になったとしてもガスフラクチャリングが発生することが示唆される。ケース3の緩衝材からの押し出し流量は、ガス注入開始から4日後に $8. 0 \times 10^{-6} \text{m}^3$

でありケース1ののに比べ15%に低下した（図4.3.3-30）。緩衝材からのガス透気量は同様みられなかった（図4.3.3-30）。ケース3の緩衝材へのガス流入量は、ガス注入開始から1.86日後に $3.4 \times 10^{-4} \text{Nm}^3$ となり、その後は低下した（図4.3.3-31）。緩衝材へのガス流入量が低下するのは、周辺へのガス相圧力の消散の影響を受けたためであると考えられる。

ケース4のガス相圧力は、埋め戻し部で4日後に約5MPa（図4.3.3-32）、緩衝材で約5.3MPa（図4.3.3-32）、岩盤部の評価点位置岩盤2で約6.1MPa（図4.3.3-33）となった。これらの結果から、緩衝材については、海水系であればガスフラクチャリングが生じる可能性もあるが、その他の部分については、ガスの上昇量が少ないため、ガスフラクチャリングは発生しないことが示唆された。緩衝材からの押し出し流量とガス透気量は、何れにおいてもみられなかった（図4.3.3-34、図4.3.3-35）。よって、本ケースにおいては、境界部に流入したガスは主に溶解し、ガス相圧力としてはわずかな上昇量となったと考えられる。

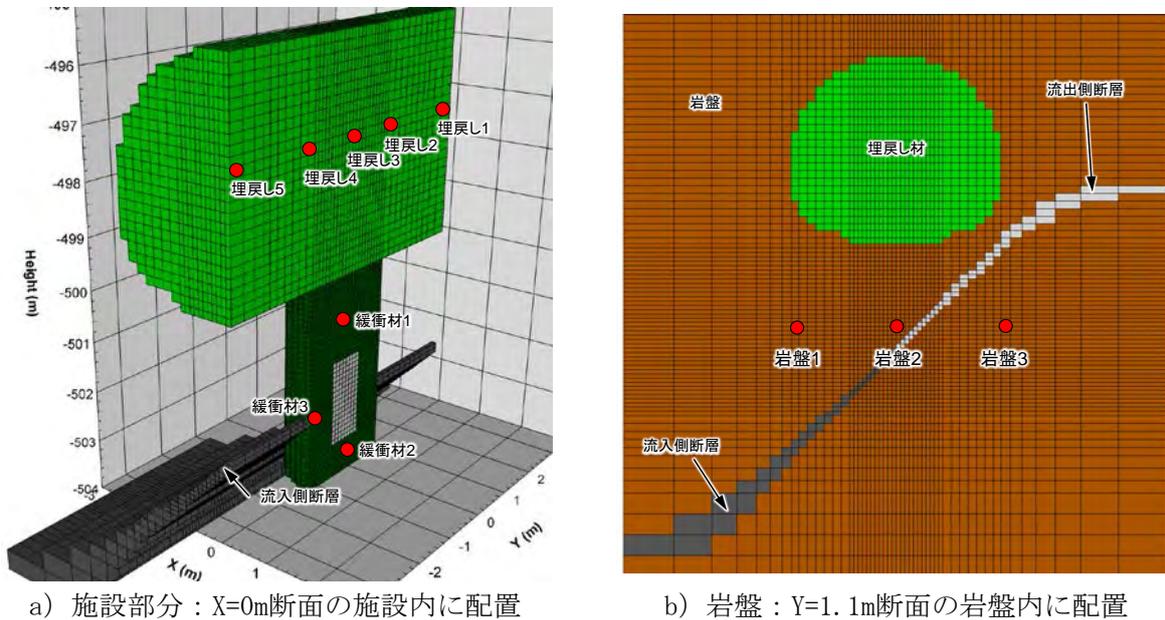


図 4.3.3-19 評価点位置図

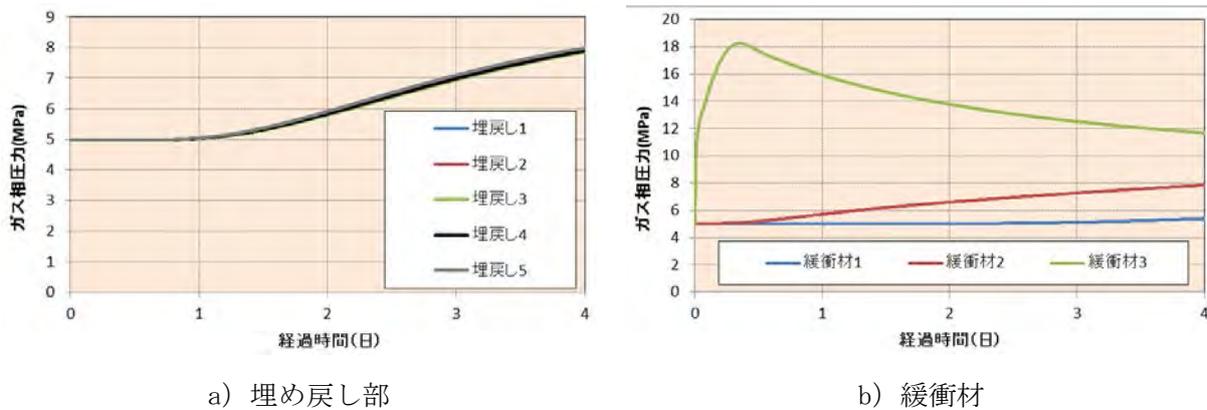
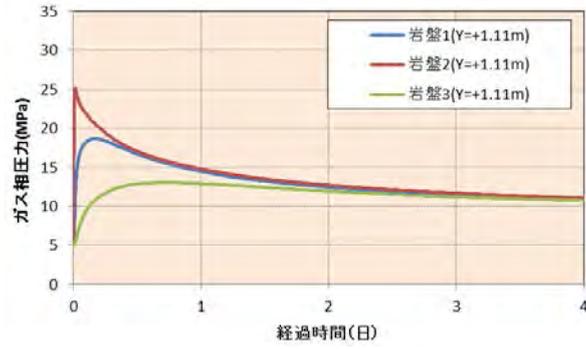
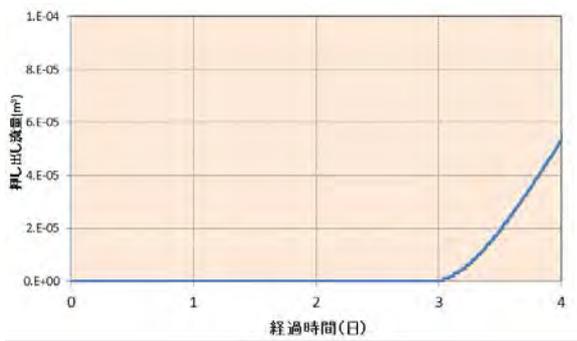


図 4.3.3-20 ケース 1 ガス相圧力経時変化（埋め戻し部、緩衝材）

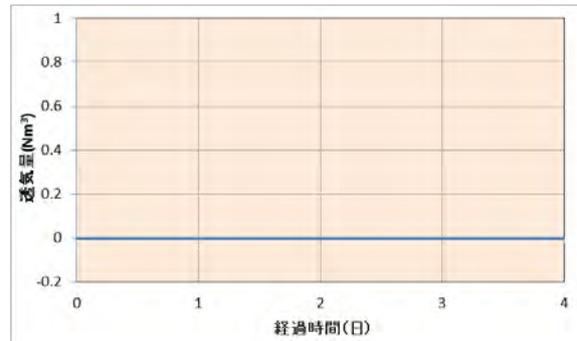


c) 岩盤

図 4.3.3-21 ケース 1 ガス相圧力経時変化 (岩盤)



a) 緩衝材からの押し出し流量



b) 緩衝材からのガス透気量

図 4.3.3-22 ケース 1 緩衝材の液相と気相の収支

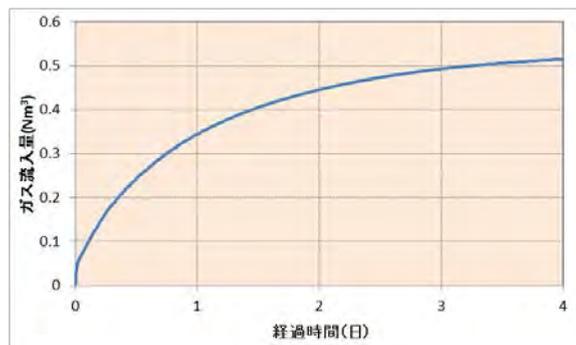
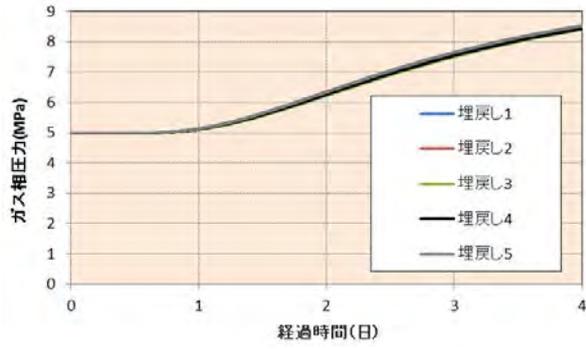
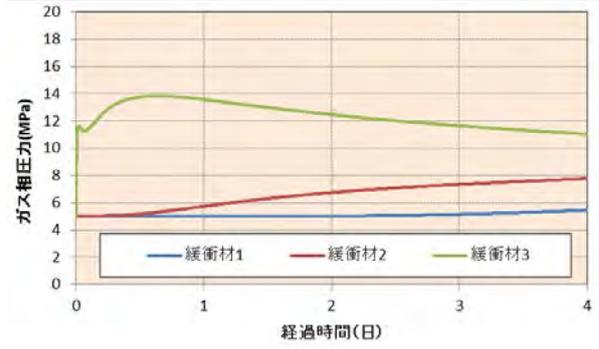


図 4.3.3-23 ケース 1 緩衝材へのガス流入量

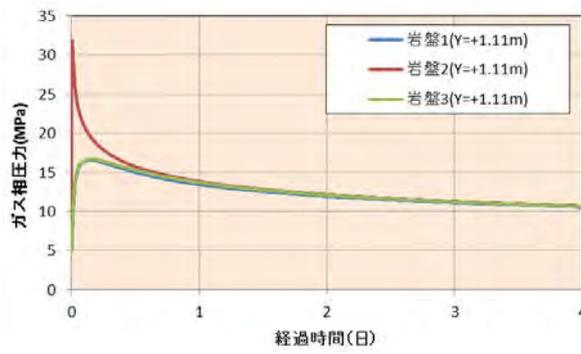


a) 埋め戻し部



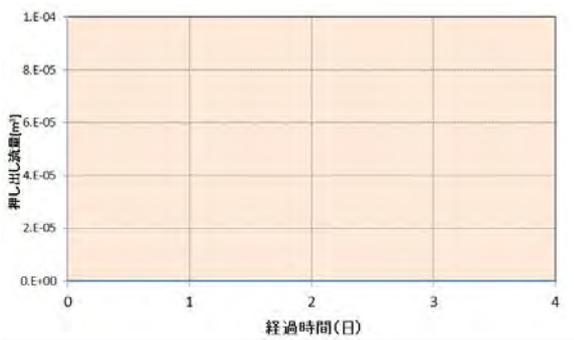
b) 緩衝材

図 4.3.3-24 ケース 2 ガス相圧力経時変化 (埋め戻し部、緩衝材)

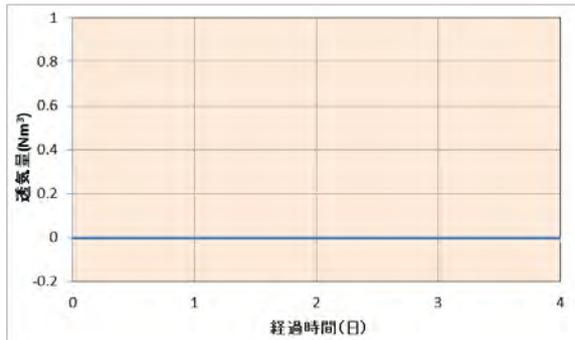


c) 岩盤

図 4.3.3-25 ケース 2 ガス相圧力経時変化 (岩盤)



a) 緩衝材からの押し出し流量



b) 緩衝材からのガス透気量

図 4.3.3-26 ケース 2 緩衝材の液相と気相の収支

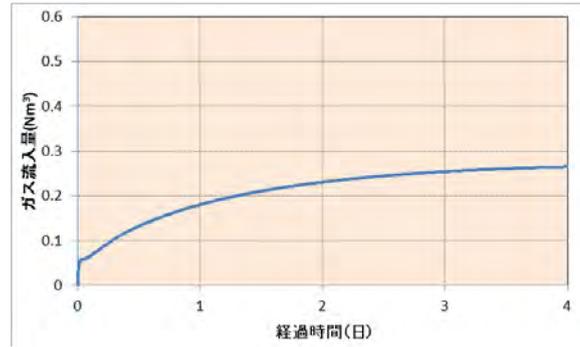
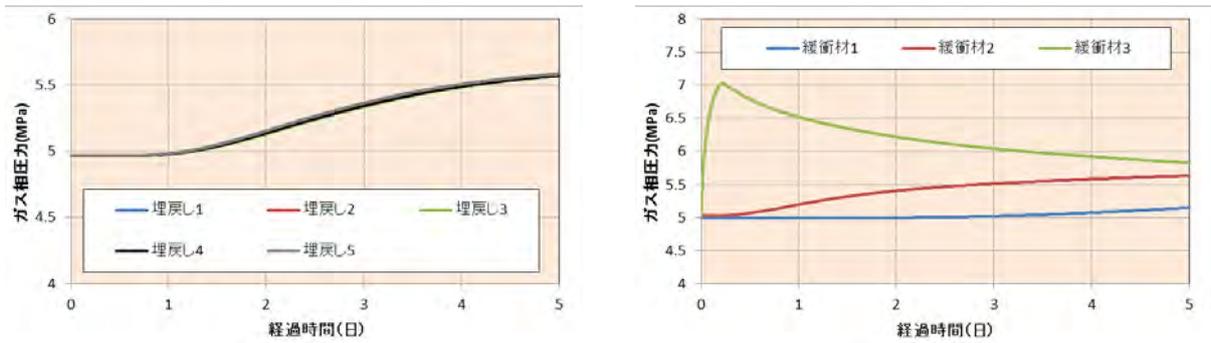


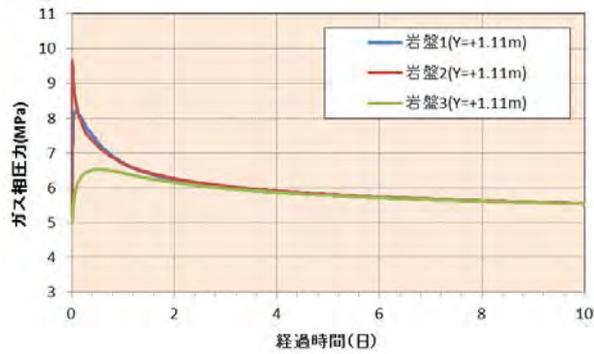
図 4.3.3-27 ケース 2 緩衝材へのガス流入量



a) 埋め戻し部

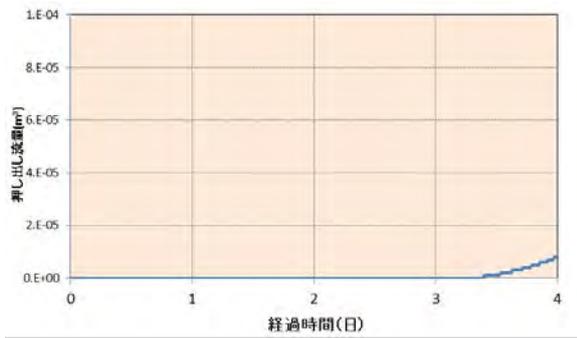
b) 緩衝材

図 4.3.3-28 ケース 3 ガス相圧力経時変化 (埋め戻し部、緩衝材)

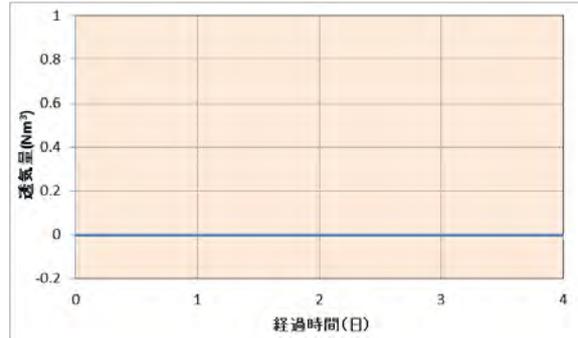


c) 岩盤

図 4.3.3-29 ケース 3 ガス相圧力経時変化 (岩盤)



a) 緩衝材からの押し出し流量



b) 緩衝材からのガス透気量

図 4.3.3-30 ケース 3 緩衝材の液相と気相の収支

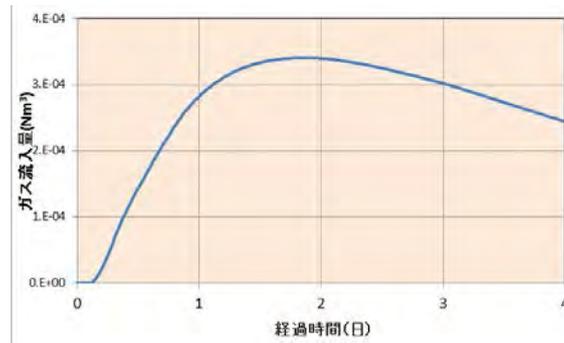
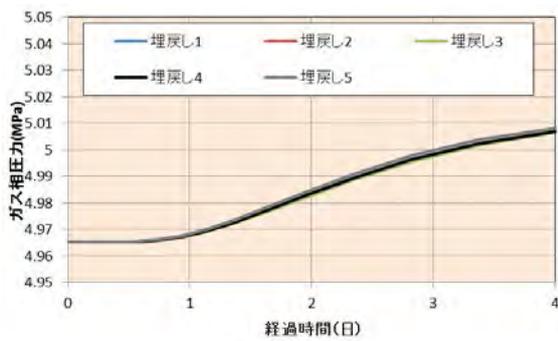
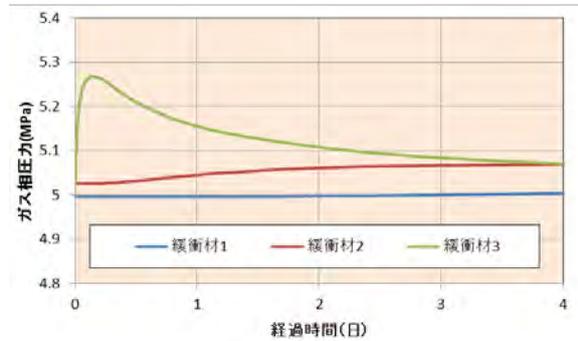


図 4.3.3-31 ケース 3 緩衝材へのガス流入量

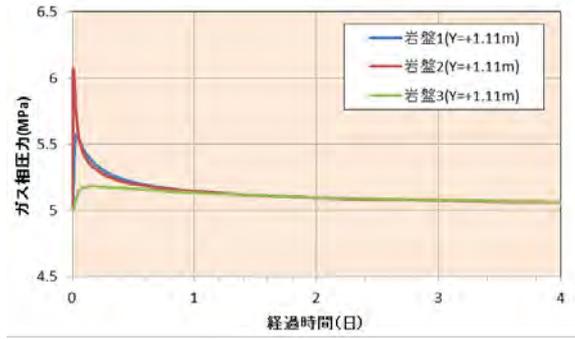


a) 埋め戻し部



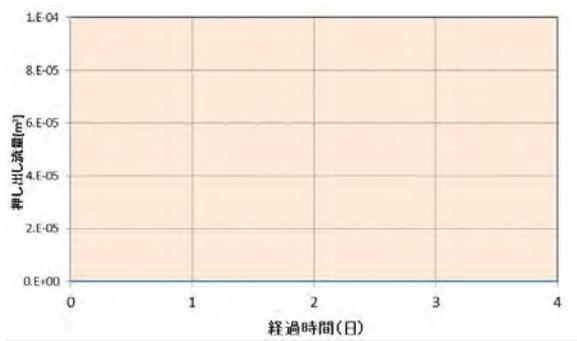
b) 緩衝材

図 4.3.3-32 ケース 4 ガス相圧力経時変化 (埋め戻し部、緩衝材)

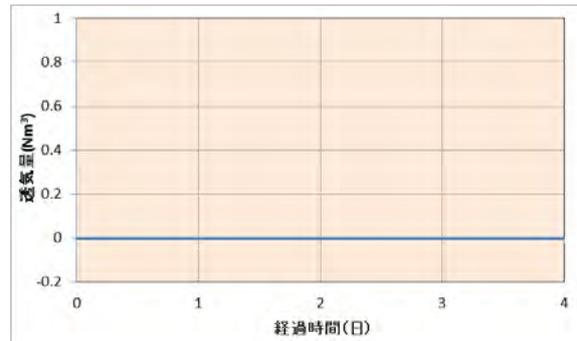


c) 岩盤

図 4.3.3-33 ケース 4 ガス相圧力経時変化 (岩盤)



a) 緩衝材からの押し出し流量



b) 緩衝材からのガス透気量

図 4.3.3-34 ケース 4 緩衝材の液相と気相の収支

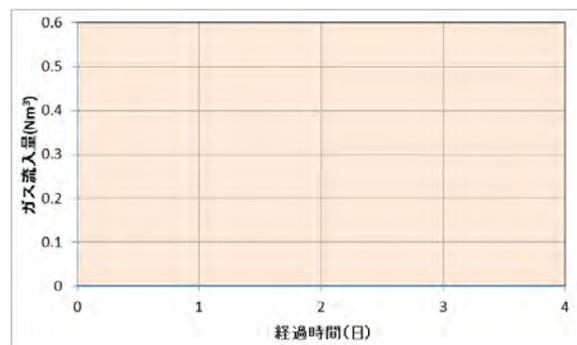


図 4.3.3-35 ケース 4 緩衝材へのガス流入量

(3) 地震動による地下施設（支保工）の破壊

1) はじめに

長期的な処分場の安全性を検討するには、ニアフィールドのバリア機能の評価が重要となる。日本列島ではスラブの沈み込みにより数十年から数百年間隔で逆断層が海溝型地震を、内陸部では、数千年から1万年程度の間隔で活断層が内陸地殻内地震を繰り返し発生させており、閉鎖後の処分場でこれらの影響を考えた場合には、掘削影響領域や支保部材が損傷を受け透水性が高くなることが懸念される。したがって、それらの影響を詳細に評価するためには、地震活動や岩盤、支保部材、人工バリア等の振動特性を考慮した耐震安定性を評価する技術を開発しておく必要がある。

地下施設（支保工）の破壊による透水性の増加によりクリティカルパスを形成する可能性を評価するため、想定すべき地震動の策定手法を開発し、過酷事象となりうる地震動の条件を把握するとともに地下水流動への影響程度を確認する手法を開発する。

2) 検討内容

東北地方太平洋沖地震を踏まえた新規基準に基づいた地下施設の基準地震動策定方法と断層シナリオの性能評価に用いるため、幌延深地層研究センターの地下施設（以下、「幌延地下施設」という）を例として地震ハザード曲線の取得と地下施設の耐震評価を行った。地下施設の耐震評価検討フローを図4.3.3-36に示す。また地下施設の地震動による影響の事例として山岳トンネルにおける地震による被害事例の検討を行った。

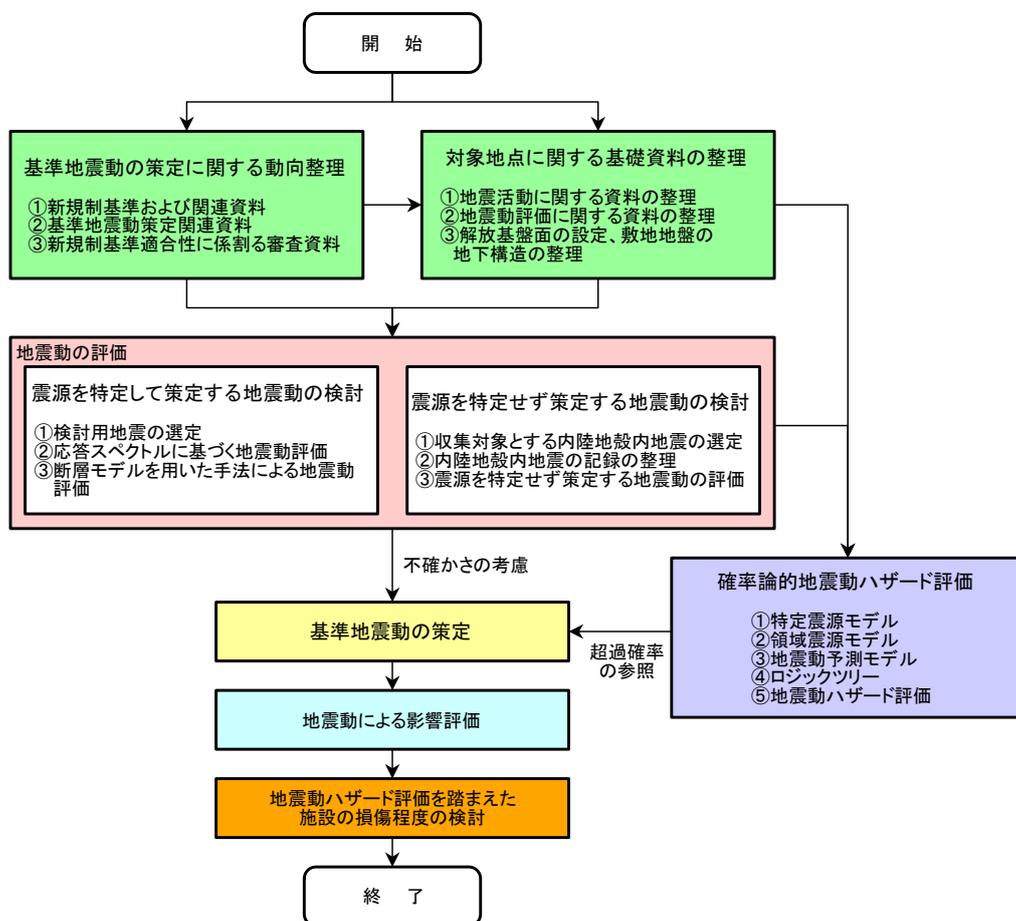


図4.3.3-36 地下施設の耐震評価検討フロー

①基準地震動の策定に関する動向整理

原子力発電所の新規制基準適合性に係る審査会合の審議資料等に基づき最新の基準地震動策定に関する情報を整理した(表4.3.3-9)。審議資料は、現在までに適合性申請に対する許可が出されている九州電力川内原子力発電所、関西電力高浜発電所、四国電力伊方発電所を中心とした。

表 4.3.3-9 基準地震動の策定に関する資料

	資料名	著者
①新規制基準および関連資料	・実用発電用原子炉及びその附属施設の位置、構造及び設備の基準に関する規則(平成二十五年六月二十八日原子力規制委員会規則第五号)	原子力規制委員会(2013a)
	・実用発電用原子炉及びその附属施設の位置、構造及び設備の基準に関する規則の解釈	原子力規制委員会(2013b)
	・基準地震動及び耐震設計方針に係わる審査ガイド	原子力規制委員会(2013c)
②基準地震動策定関連資料	・基準地震動策定のための地震動評価手引き:震源極近傍の地震動評価	原子力安全基盤機構(2014a)
	・震源を特定せず策定する地震動に係わる手引き	原子力安全基盤機構(2014b)
	・福島第一事故を踏まえた震源極近傍の地震動評価の高度化	原子力規制委員会(2015a)
③新規性基準適合性に係わる審査資料	・川内発電所 ・高浜発電所 ・伊方発電所	原子力規制委員会(2015b) 九州電力株式会社 関西電力株式会社 四国電力株式会社

②対象地点に関する基礎資料の整理

基準地震動策定と耐震評価の例として幌延地下施設を対象とし、地震調査研究推進本部(2014)の確率論的地震動予測地図、震源断層を特定した地震動予測地図において用いられているモデルが公開されている防災科学研究所のJ-SHIS(2015)(Japan Seismic Hazard Information Station:地震ハザードステーション)による資料を中心に地震活動に関する資料を整理した。

③地震動の評価

a. 震源を特定して策定する地震動の検討

(a) 検討用地震の選定

幌延地下施設における検討対象候補として表4.3.3-10、図4.3.3-38に示す断層、地震による応答スペクトル(図4.3.3-37)が最大となるサロベツ断層帯(地震調査研究推進本部, 2007)を検討用地震として選定した。

表 4.3.3-10 検討対象断層・地震の一覧

	断層または地震の名称	長さ(km)	Mj	等価震源距離(km)
活断層	①サロベツ断層帯	44	7.6	15.4
	②間寒別断層帯	20.4	7	15.9
	③抜海沖断層帯	49.2	7.7	49.2
日本海東縁部の地震	④北海道北西沖地震(1)	140	7.8	81.4
	⑤北海道北西沖地震(2)	140	7.8	80.9
	⑥北海道北西沖地震(3)	140	7.8	75.2
	⑦北海道北西沖地震(4)	140	7.8	74.6
	⑧北海道北西沖地震(5)	140	7.8	76.4
	⑨北海道北西沖地震(6)	140	7.8	76.6
	⑩F01断層	162	7.9	28.3
	⑪F02断層	117.6	7.7	93.1
	⑫F03断層	44.6	7.2	87.7

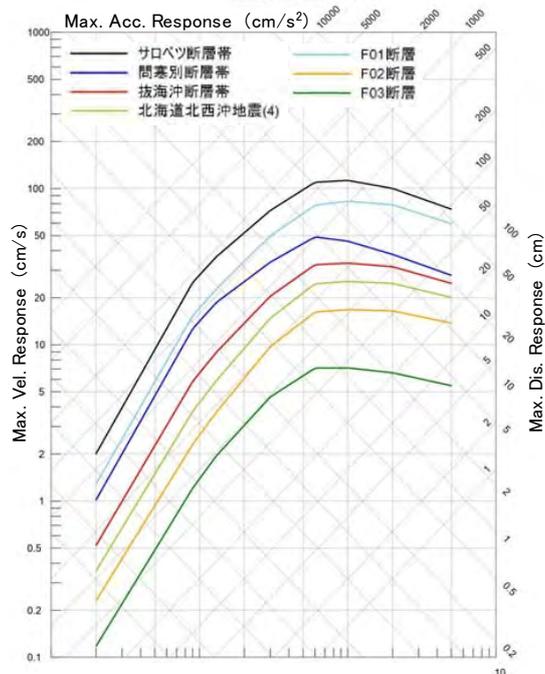
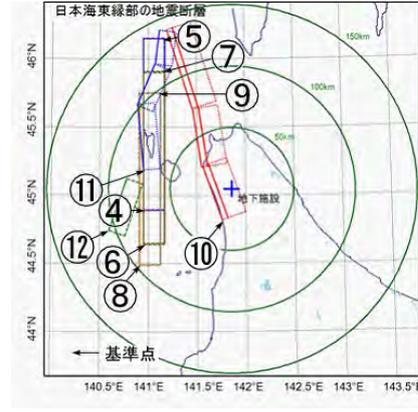
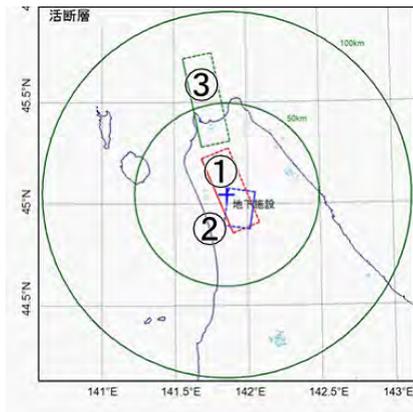


図4.3.3-37 検討対象地震の擬似速度応答スペクトル図



①～⑫ は表
4.3.3-17参照

図 4.3.3-38 検討対象断層・地震 左：活断層 右：日本海東縁の地震

(b) 応答スペクトルによる地震動の検討

サロベツ断層帯を対象として、断層諸元の不確かさを考慮した上で、地下施設地点における地震動を耐専スペクトル式により評価した。不確かさについては表4.3.3-11に示すように断層の傾斜角と断層長さについて検討を実施した。

表4.3.3-11 応答スペクトル法により検討する断層パラメータ

パラメータ	基本ケース	傾斜角野を不確かさを考慮したケース	断層長さの不確かさを考慮したケース
断層長さ (km)	44	44	53
断層幅 (km)	18	18	18
基準点深さ (km)	7	7	7
走向 (°)	337	337	337
傾斜角 (°)	30	15	30
Mj *	7.6	7.6	7.7
等価震源距離 (km)	15.4	14.1	16.4

*気象庁マグニチュード

不確かさを検討した各断層モデルの応答スペクトルの最大となるものを選び出したものを図4.3.3-39に示す。この中で最大となる「傾斜角不確かさケース：Case5(断層すべり量の不均質性

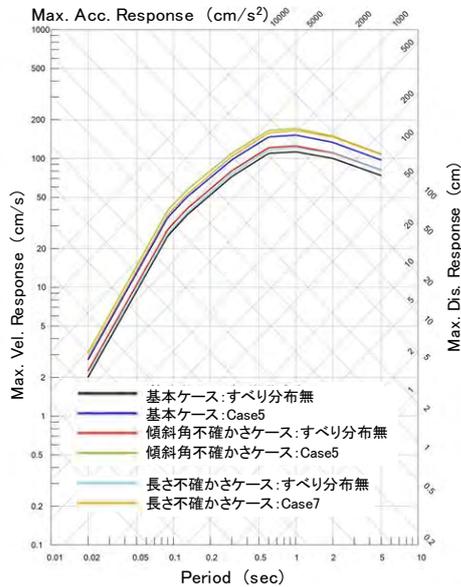


図4. 3. 3-39 各断層モデルの
応答スペクトル（最大例）

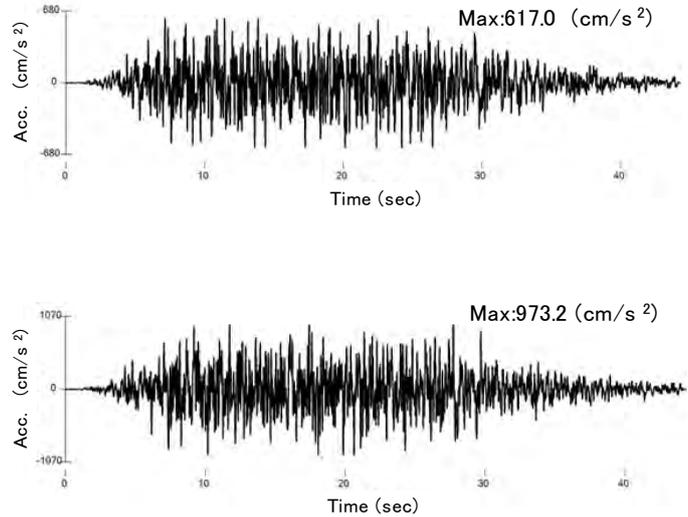


図4. 3. 3-40 模擬地震波時刻歴波形
上：水平 下：上下

を考慮）」の結果を応答スペクトルに基づく地震動評価における包括応答スペクトル（ S_{s-1} ）として選定した。包括応答スペクトルより作成された模擬地震波の時刻歴波形を図4. 3. 3-40に示す。基準地震動 S_{s-1} の水平動の最大加速度は 973.2cm/s^2 、上下動の最大加速度は 617.0cm/s^2 である。

(c) 断層モデルを用いた手法による地震動の検討

検討用地震として選定したサロベツ断層帯を対象として、断層諸元の不確かさを考慮した上で、断層モデルを用いた手法で地震動の評価を行った。本検討では表 4. 3. 3-12 に示す基本ケースのほか、傾斜角の不確かさ、断層長さの不確かさ、アスペリティ（強震動生成域）の応力降下量の不確かさの4種類を検討した。各ケースでは、更にアスペリティの位置に関して不確かさを考慮して、サイトに対して保守的となるような配置を複数検討した。

表 4. 3. 3-12 不確かさの検討ケース

検討ケース	内容	アスペリティの位置
基本ケース	平均的な断層モデル (J-SHISモデル)	ケース1 ケース2 ケース3 ケース4 アスペリティ2か所
	J-SHISモデルに2種類追加 (アスペリティ1か所)	ケース5 アスペリティ上端が断層上縁に接する ケース6 アスペリティ上端が地下施設直下
傾斜角の不確かさを考慮したケース	傾斜角を基本モデルの30° から半分の15° に設定	ケース1 ケース2 ケース3 ケース4 アスペリティ2か所
	上記モデルに2種類追加 (アスペリティ1か所)	ケース5 アスペリティ上端が断層上縁に接する ケース6 アスペリティ上端が地下施設直下
断層長さの不確かさを考慮したケース	断層長を基本モデルの44kmから53kmに9km増加 (アスペリティ1か所 Mj7.6から7.7に増加)	ケース7 アスペリティ上端が断層上縁に接する ケース8 アスペリティ上端が地下施設直下
アスペリティの応力降下量の不確かさを考慮したケース	基本モデルの応力降下量 (実効応力) 14.5MPaを1.5倍の21.7MPaに設定 (アスペリティ1か所)	ケース9 アスペリティ上端が断層上縁に接する ケース10 アスペリティ上端が地下施設直下

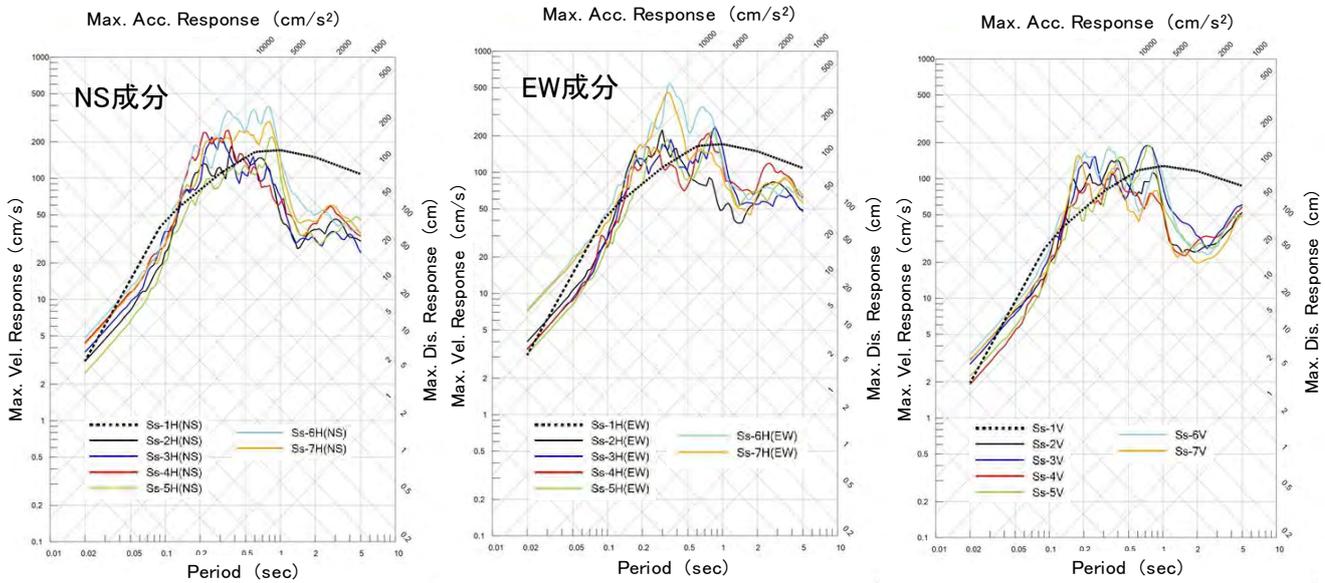


図 4. 3. 3-41 各不確かさケースでの最大応答スペクトル

検討結果より、断層モデルの不確かさを考慮した各ケース内で応答スペクトルの包絡線が最大となった結果の比較を図 4. 3. 3-41 に示す。同図では、応答スペクトルに基づく地震動評価で、基準地震動として選定した耐専式による包絡応答スペクトル (Ss-1) も示している。図の各周期で応答スペクトル間の大小関係を比較し、耐専式スペクトル (包絡) を上回る結果の中で最大となるケースの結果を、断層モデルを用いた地震動評価における基準地震動として選定した。最終的に選定した基準地震動の一覧を表 4. 3. 3-13 に示す。アスペリティの応力降下を 1.5 倍とした Ss-6 (EW) が最も大きな加速度を示している。

表 4. 3. 3-13 震源を特定して策定した基準地震動一覧

基準地震動	最大加速度 (cm/s ²)		
	H(NS)	H(EW)	V
Ss-1 応答スペクトルによる	973.2		617.0
Ss-2 基本ケース Case 6	970.8	1256.5	956.6
Ss-3 傾斜角不確かさ Case5	1154.8	1094.4	884.2
Ss-4 傾斜角不確かさ Case6	1380.2	1084.0	599.3
Ss-5 断層長不確かさ Case7	778.1	990.4	701.7
Ss-6 アスベリティの応力降下量不確かさ (Δσ不確かさ) Case9	1519.6	2321.0	1071.7
Ss-7 アスベリティの応力降下量不確かさ (Δσ不確かさ) Case10	1342.5	2242.5	951.4

b. 震源を特定せず策定する地震動の検討

震源を特定せず策定する地震動は、震源と活断層を関連づけることが困難な過去の内陸地殻内の地震について得られた震源近傍における観測記録を収集し、これらを基に各種の不確かさを考慮して敷地の地盤物性に応じた応答スペクトルを設定して策定されている必要があるとされている(「基準地震動及び耐震設計方針に係る審査ガイド」(平成25年6月)原子力規制委員会(2013c))。最近の動向の検討結果に基づき、震源を特定せず策定する地震動として2008年岩手・宮城内陸地震と2004年留萌支庁南部地震(防災科学技術研究所(2015))について検討した(表4. 3. 3-14)。

これらについて、震源を特定して策定する地震動のSs-1の応答スペクトルを、後述する確率論的地震動ハザード解析による一様ハザードスペクトルと比較した。比較結果を図4. 3. 3-42と図4. 3. 3-43に示す。震源を特定して策定する地震動のSs-1を短周期側で2008年岩手・宮城内陸地震のIWTH25 (KiK-net ; 一ノ関西地点 防災科学技術研究所(2015))と荒砥沢ダム (JCOLD, 2014))が少しこえている。一様ハザード応答スペクトルとの比較では、最も大きいところで10⁻⁵レベルである。

表 4. 3. 3-14 審査ガイドにおける検討対象となる内陸地殻内地震 (16 地震) の一覧

No.	地震名	日時	規模	No.	地震名	日時	規模
1	2008年岩手・宮城内陸地震	2008/06/14,08:43	Mw6.9	9	2011年静岡県東部地震	2011/03/15,22:31	Mw5.9
2	2000年鳥取県西部地震	2000/10/06,13:30	Mw6.6	10	1997年山口県北部地震	1997/06/25,18:50	Mw5.8
3	2011年長野県北部地震	2011/03/12,03:59	Mw6.2	11	2011年茨城県北部地震	2011/03/19,18:56	Mw5.8
4	1997年3月鹿児島県北西部地震	1997/03/26,17:21	Mw6.1	12	2013年栃木県北部地震	2013/02/25,16:23	Mw5.8
5	2003年宮城県北部地震	2003/07/26,07:13	Mw6.1	13	2004年北海道留萌支庁南部地震	2004/12/14,14:56	Mw5.7
6	1996年宮城県北部(鬼首)地震	1996/08/11,03:12	Mw6.0	14	2005年福岡県西方沖地震の最大余震	2005/04/20,06:11	Mw5.4
7	1997年5月鹿児島県北西部地震	1997/05/13,14:38	Mw6.0	15	2012年茨城県北部地震	2012/03/10,02:25	Mw5.2
8	1998年岩手県内陸北部地震	1998/09/23,16:58	Mw5.9	16	2011年和歌山県北部地震	2011/07/05,19:18	Mw5.0

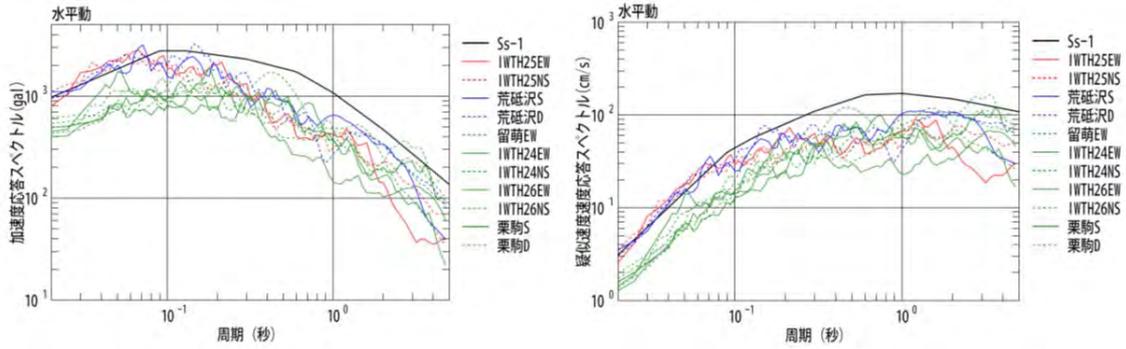


図 4.3.3-42 応答スペクトルの比較 左：加速度応答スペクトル 右：擬似速度応答スペクトル

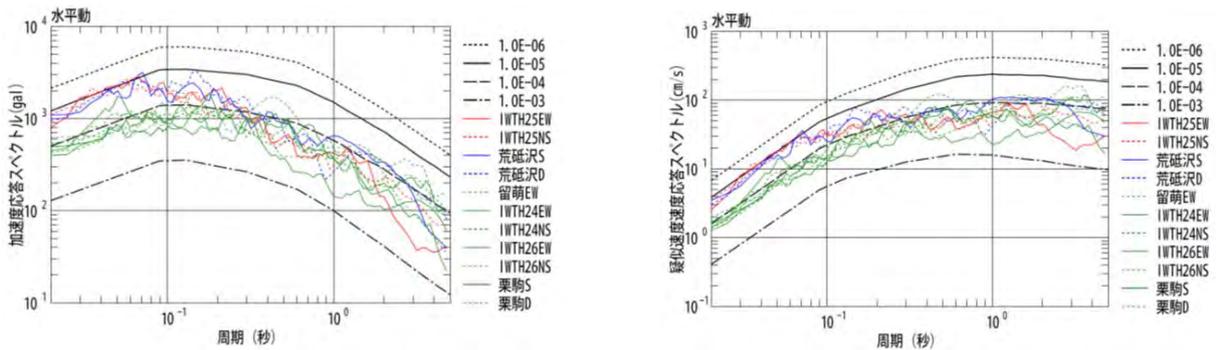


図 4.3.3-43 加速度・擬似速度応答スペクトルと一様ハザードスペクトルの比較

④確率論的地震動ハザード評価

原子力発電所における安全審査では敷地ごとに震源を特定して策定する地震動及び震源を特定せず策定する地震動について、それぞれ策定された地震動の応答スペクトルがどの程度の超過確率に相当するかを確率論的地震動ハザード解析に基づき確認することが要求されている。地震調査研究推進本部が確率論的地震動予測地図の作成に用いているデータをベースとして、震源モデルと地震動評価モデルについてロジックツリー手法を適用し、認識論的不確実さ（断層セグメントの活動時期、b 値、マグニチュード、距離減衰式の内陸補正の有無とそのばらつき）をロジックツリーの分岐として表現し、2916 本の地震動ハザード曲線を求めた。周期 0.02 秒に対する地震動ハザード曲線の分布を図 4.3.3-44 に示す。得られた結果を統計処理し、フラクタイルハザード曲線（図 4.3.3-45）、代表的な周期の算術平均ハザード曲線（図 4.3.3-46）を算定した。算術平均ハザード曲線に基づき、策定された地震動の超過確率 10^{-3} から 10^{-7} の範囲を一様ハザードスペクトル（図 4.3.3-47）として評価した。

なお、図 4.3.3-47 には基準地震動 Ss-1 も示す、その年超過頻度は 10^{-4} ～ 10^{-5} の範囲にある。

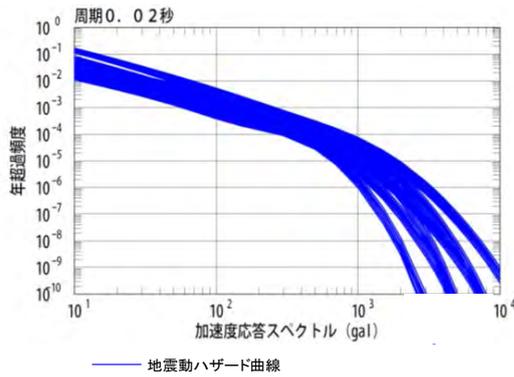


図 4.3.3-44 地震動ハザード曲線

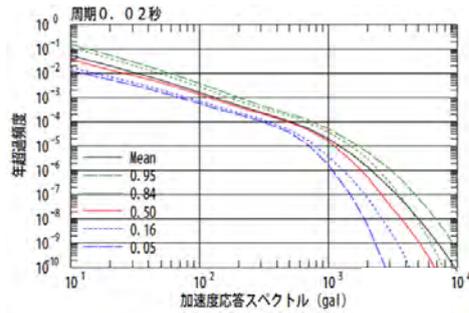


図 4.3.3-45 フラクタルハザード曲線

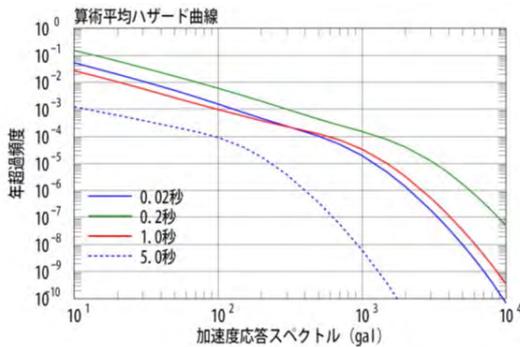


図 4.3.3-46 算術平均ハザード曲線

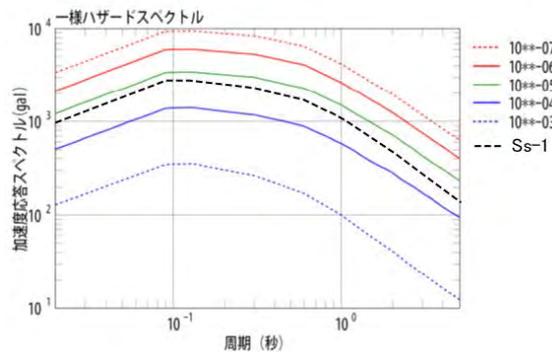


図 4.3.3-47 一様ハザードスペクトル

⑤地震動による影響評価

得られた基準地震動及びそれを超える地震動に基づき、次元応答解析を実施し、地震動による地下施設への影響を評価した。解析コードは、次元応答解析実績のある DYNEQ (Yoshida et al., 2002) を用いた。

物性値は実施設計 ((株)日建設計, 2005) で用いた HDB-6 における PS 検層結果より設定された値である。地盤の非線形についても同様に、表層のシルト部分は非線形、その他は弾性とし、弾性部分の減衰は 1% とする。シルト部分の動的変形特性についても実施設計と同様に、「建設省土研資料 No1778 号(昭和 57 年)」(建設省土木研究所, 1982) により設定する。

a. 対象地震動の選定

地震動の選定を行うために、平成 26 年度報告で検討した地震動を用いて地盤の固有周期を評価した。固有周期特性の把握には、基盤面である $V_s=900\text{m/s}$ と地表面の加速度応答倍率で評価することとした。これより、1 次固有周波数: 0.415Hz (2.410 秒)、2 次固有周波数: 1.367Hz (0.732 秒)、3 次固有周波数: 2.271Hz (0.440 秒) となる。

(a) 震源を特定して策定する地震動

地盤 1 次固有周期で最も大きい加速度応答となる Ss-1 と地盤 2、3 次固有周期で最も大きい加速度応答となる Ss-6 (EW, NS) を対象として、立坑の地震影響評価を行った (図 4.3.3-48)。なお、Ss-1~Ss-5 を対象とした場合、地盤 2、3 次固有周期で最も大きい加速度応答は、Ss-4EW 及び Ss-4NS となる。

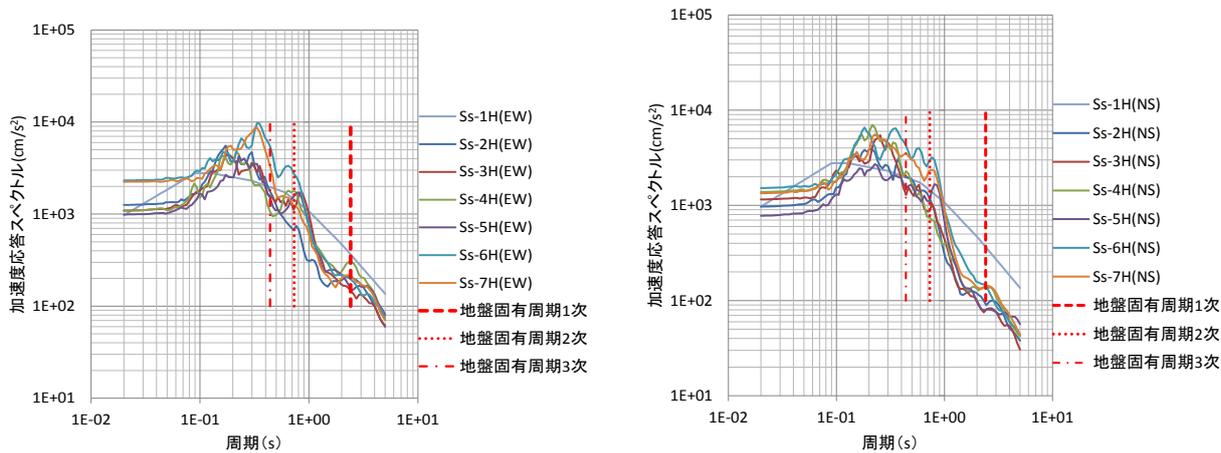


図 4. 3. 3-48 加速度応答スペクトル 左：EW成分 右：NS成分

(b) 震源を特定せず策定する地震動

震源を特定せず策定する地震動の場合には IWTH24NS (KiK-net 観測点金ヶ崎) が、地盤 2 次固有周期で最も大きい加速度応答となるため、IWTH24NS (KiK-net 観測点金ヶ崎) を対象として、立坑の地震影響評価を行った (図 4. 3. 3-49)。

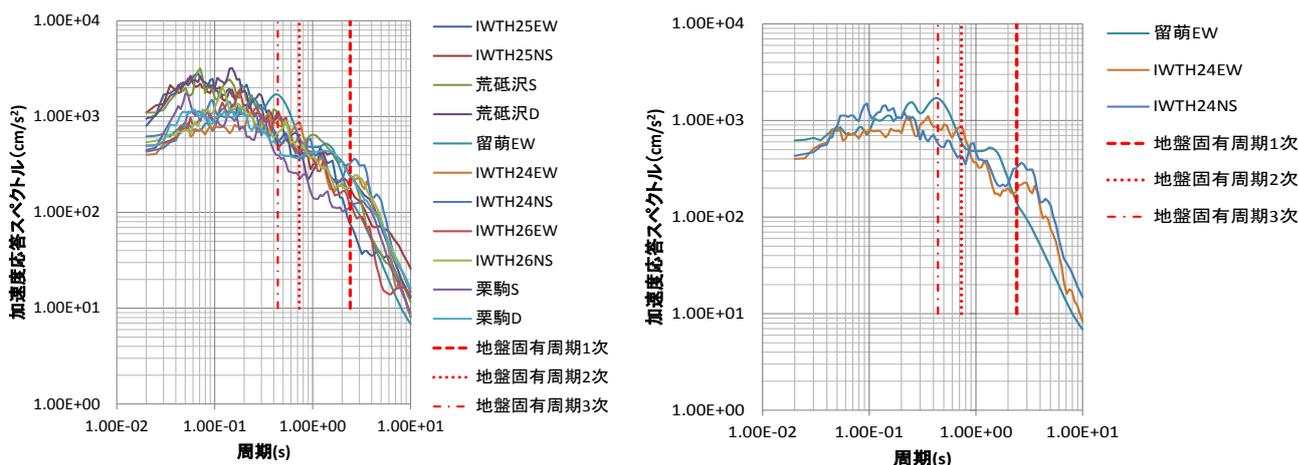


図 4. 3. 3-49 加速度応答スペクトル 左：全体 右：抽出

b. 解析結果

Ss-1 の等価震度分布を図 4. 3. 3-50 に示す。Ss-6 の等価震度は GL-28. 5m で Ss-6_EW が最大となるため、以降の評価では Ss-6_EW を用いる。Ss-4、IWTH24 (KiK-net 観測点金ヶ崎) の等価震度は GL-28. 5m で Ss-4_NS が最大となるため、以降の評価では Ss-4_NS を用いる。

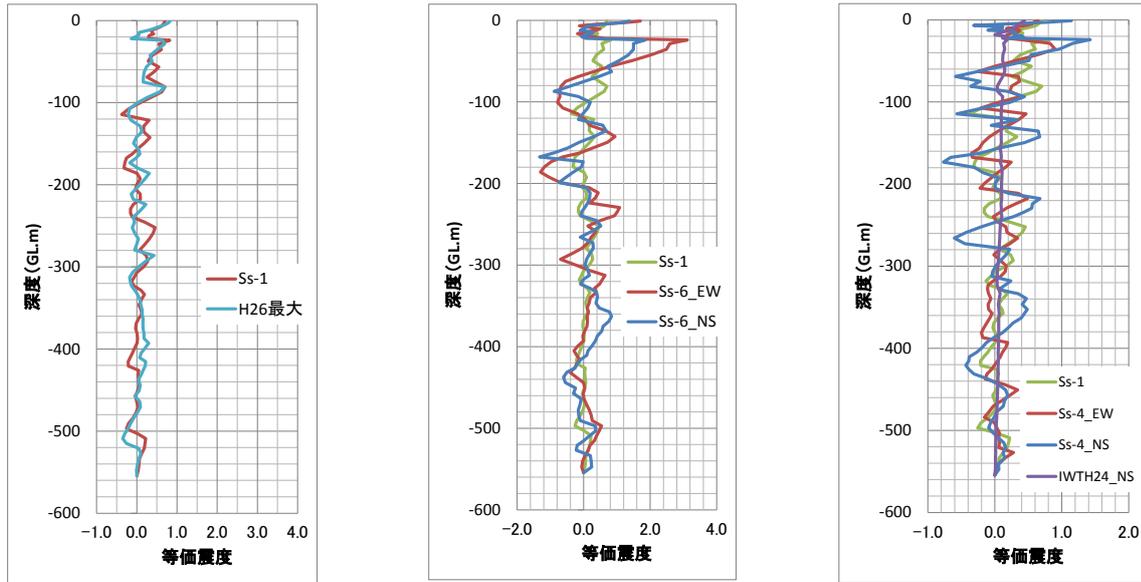


図 4.3.3-50 等価震度分布図 左：Ss-1 中：Ss-6 右：Ss-4、IWTH24 (NS)

c. 発生応力の推定 (簡易評価)

立坑の覆工コンクリートに発生する圧縮応力を簡易的に評価するため、前述 6.3.5 で算定した等価震度と平成 26 年度報告で算定した等価震度の比を、平成 26 年度報告で算定した地震時増分発生応力に乗じて算定することとした。

平成 27 年度発生応力 = 平成 26 年度発生応力 × (平成 27 年度等価震度 / 平成 26 年度等価震度)

ただし、等価震度比は、算定上、数十倍以上の値になってしまうため、最大等価震度が発生した位置における等価震度比を上限として補正した。

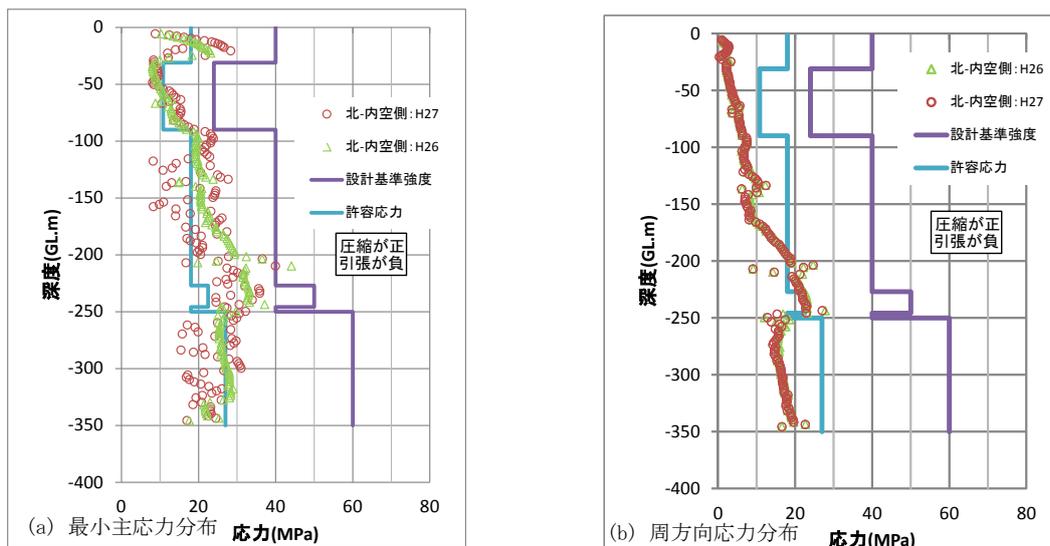


図 4.3.3-51 覆工コンクリート最大圧縮応力深度分布 (常時+地震時、Ss-1)

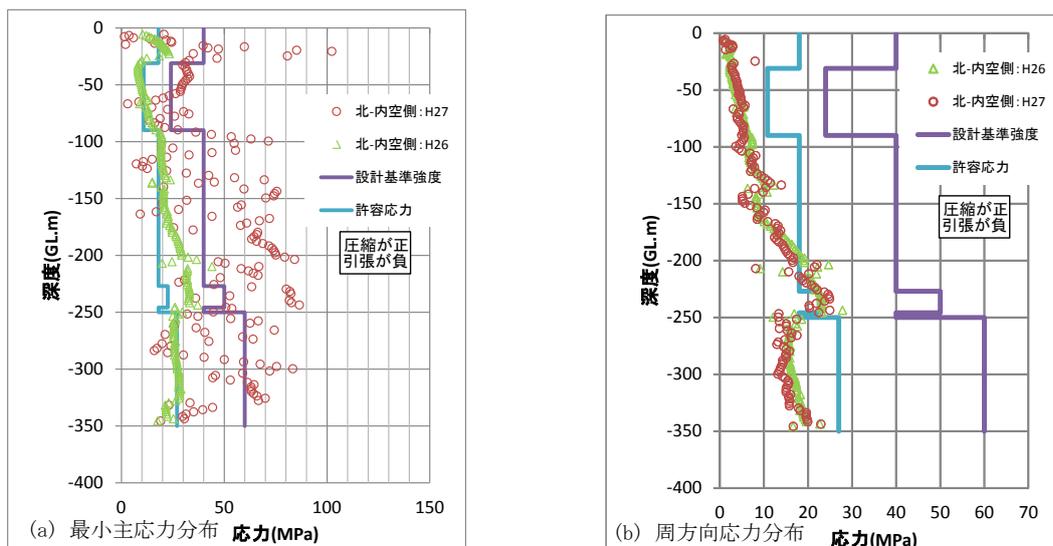


図 4. 3. 3-52 覆工コンクリート最大圧縮応力深度分布（常時+地震時、Ss-6EW）

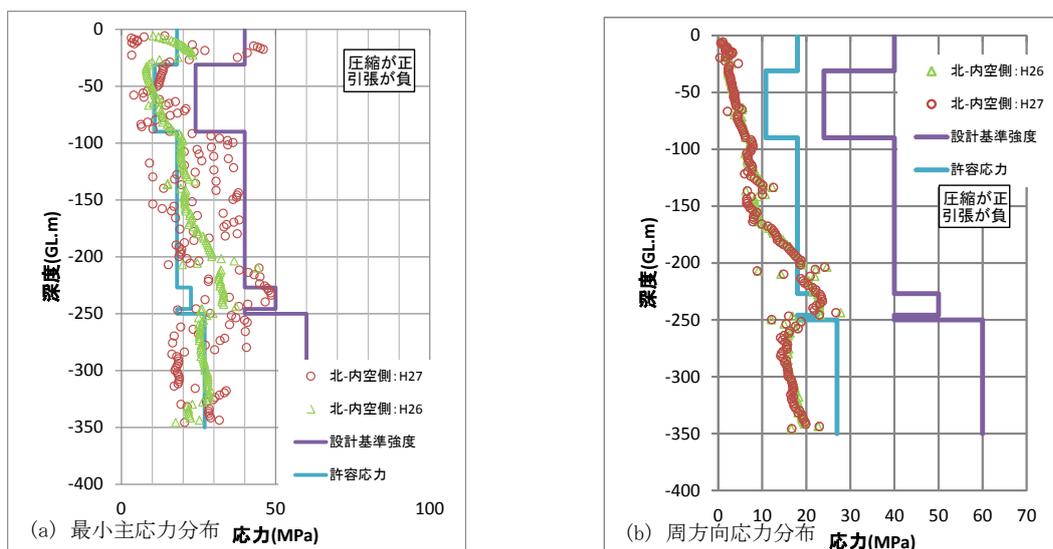


図 4. 3. 3-53 覆工コンクリート最大圧縮応力深度分布（常時+地震時、Ss-4NS）

覆工コンクリート最大圧縮応力震度分布（常時+地震時）を示す。Ss-1の最大圧縮応力値は40MPaと、一部の接続部がある箇所において応力が增大する結果となっており、設計基準強度と同等である結果となった（図4.3.3-51）。Ss-6(EW)の最大圧縮応力値は102MPaと応力が增大する結果となっており、設計基準強度を大きく超過する結果となった。地震動により周方向応力は25MPaと、地震による影響はない結果となっているが、せん断応力が大きく増加するため、立坑の内空断面形状維持することは困難であると推測される（図4.3.3-52）。Ss-4(NS)の最大圧縮応力値は49MPaと一部において設計基準強度を超過する結果となった。ただし、地震動により周方向応力は27MPaと、地震による影響がない結果となっているため、立坑の内空断面形状は維持されると推測される（図4.3.3-53）。しかし、これらは等価震度比による簡易評価結果に基づいて

おり、詳細には解析を実施して確認する必要がある。また、非線形部の動的変形特性は文献値であり、現地地盤特性では無いことにも注意が必要である。

⑥地震動ハザード評価を踏まえた施設の損傷程度の検討

Ss-4 (NS) の年超過頻度はおよそ 10^{-4} から 10^{-5} の範囲にあり、Ss-6 (EW) の年超過頻度は 10^{-5} から 10^{-6} の範囲にある (図 4.3.3-54)。最大加速度を比較すると Ss-1 は、 973.2 cm/s^2 、Ss-4 (NS) は 1380.2 cm/s^2 、Ss-6 は 2321 cm/s^2 で Ss-4 から設計基準強度を超える圧縮応力が発生しているが、詳細な検討には空間の形状も考慮した 3 次元による解析が必要である。Ss-6 の年超過頻度は操業期間を考慮すればかなり低い頻度と評価される。

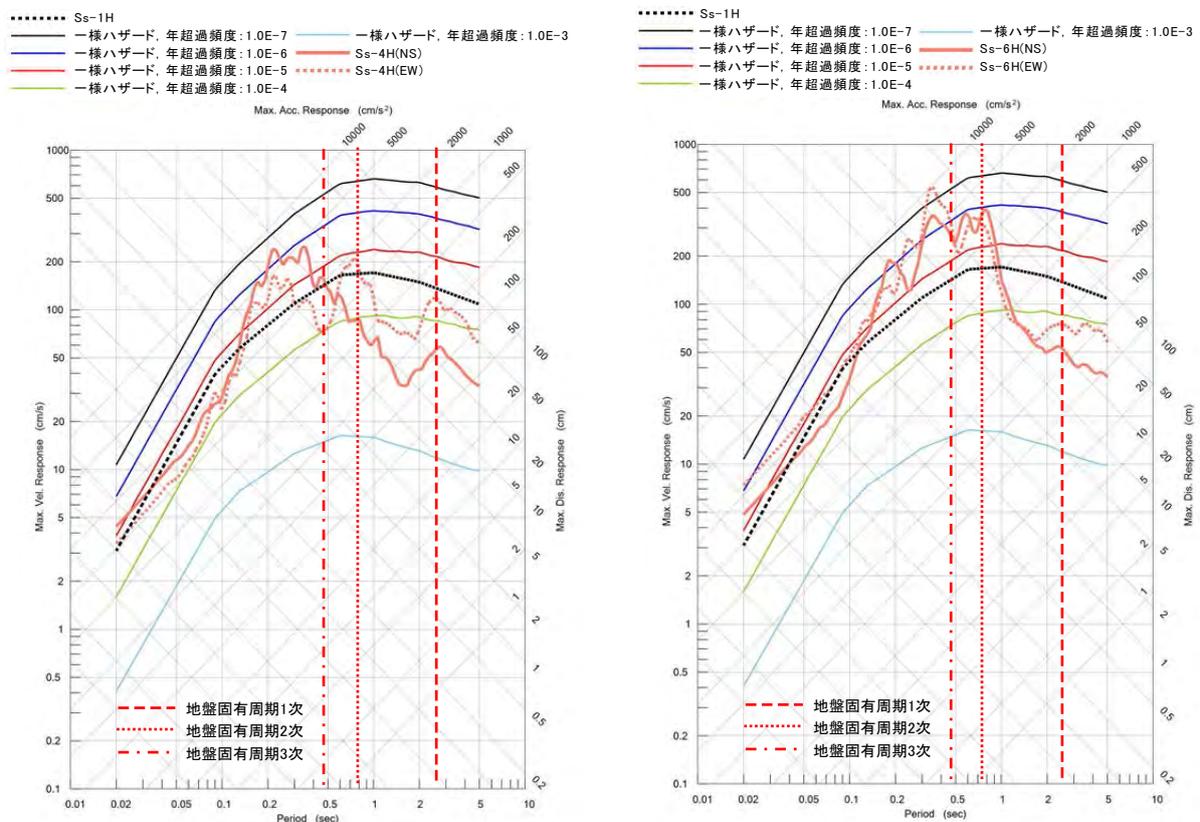


図 4.3.3-54 年超過頻度と基準地震動の参照 左 : Ss-4 右 Ss-6

⑦山岳トンネルの地震による被害事例

高レベル放射性廃棄物処分場における地震動の影響評価の資料として、大正関東地震以降の山岳トンネルにおける地震被害の事例を収集整理した。トンネルの被害報告があった地震は、大正関東地震 (1923 年) から東北地方太平洋沖地震 (2011 年) までの 24 地震となった。震源が相模湾内と推定される大正関東地震をのぞくと、海溝で生じるプレート間地震による被害は軽微であり、震源が近く、地震断層が発生する場合もある内陸地殻内地震や、日本海東縁変動帯の地震で被害が大きくなっている。

地震被害事例調査によれば山岳トンネルは一般的には地震に強い構造物となっている。朝倉ほか（2000）、野城ほか（2009）の研究では①小土被り区間（坑門、坑口部を含む）での被害、②地質不良区間での被害、③断層のずれによる被害の3パターンに分類される。表4.3.3-15に山岳トンネルにおける地震被害の事例を示す。

a. 小土被り区間（坑門、坑口部を含む）

地震被害はこのタイプの被害数が最も多い。小土被り区間は岩盤が軟らかく、地震によるせん断変形が大きく。ひび割れ（曲げ引張）、圧ざ（曲げ圧縮）による変状、崩壊が多い。

b. 地質不良区間

地震によるトンネル変状、崩落などは断層に伴う破碎帯による弱部、変質帯など地質の不良個所で生じている。被害が大きくなった例として、地質断層にともなう破碎帯などの弱部やもとの断層変位によって異なる地質が接していて隣り合う岩盤物性が大きく異なっている場合に地震動による岩盤の変位に差を生じて、破壊を生じる場合がある。兵庫県南部地震（1995年）の盤滝トンネル（断層破碎帯と良好岩盤の境界部）（櫻井ほか，1995）の崩壊事例がある。

山岳トンネルに対しての耐震設計法は確立されていないものの、耐震評価を行い、地震時の応力増分を考慮した設計を行うことで地震時の破壊は避けることができると考えられる。

c. 断層のずれ

地震断層による断層変位で被害を受けた例は、北伊豆地震（1927年）による丹那トンネル（櫻井，1999、鉄道省熱海建設事務所，1936）、1978年伊豆大島近海地震（1978年）による稲取トンネル（村井ほか，1978）、長野県西部地震（1984年）による王滝川ダム導水路トンネル（山科ほか，1985）、塩屋川放水路トンネル（神戸層群と六甲花崗岩の断層境界）平成12年鳥取県西部地震（2000年）による黒坂発電所導水路トンネルの例（上田ほか，2002）がある。断層の変位量は地震動による変位とはけた違いに大きくなる場合があり、設計での対応は困難であり、サイト選定において避ける必要がある。

以上の被害事例の3パターンを処分場の地下施設で考えた場合、「小土被り区間」による被害は、坑口部に限定されており、地下深部では問題とはならない。「地質不良区間」による被害は、岩盤の状況によって応力や変位量が異なるため、3)①～⑥で実施したような手法により、具体的に対象となる断層モデルや岩盤物性等の情報に基づく耐震評価が可能であると考えられる。

「断層のずれ」による被害では、断層の変位量や変位速度のデータが得られており、これらを参考に、今後、4.3.3.3(1)で実施したようなBORE-SHEARでの模擬実験やシミュレーションにおいて確認していく必要がある。

表 4.3.3-15 山岳トンネルの地震被害事例

被害パターン	地震名	トンネル事例	被害状況・断層変位量	備考	出典
a.: 坑門・坑口部の被害 小土被り ¹⁾ 部の被害	大正関東地震	熱海線、御殿場線、横須賀線などの100本以上のトンネル被害	坑門壁の破壊及び覆工の坑門に近い部分に横断亀裂の発生。		土木学会(1926, 1927)
	1978年伊豆大島近海の地震	道路トンネルの被害	坑口崩壊、坑口に近いアーチ部圧壊。		村井ほか(1978)
		今井浜トンネル(伊豆急行)	坑門の目違い亀裂と打継目部からの欠落。		野城(2014)
	兵庫県南部地震	東山トンネル(神戸電鉄)	坑口部に横断クラック、ほぼトンネル全長に天端部と南側肩部にクラック。		地盤工学会阪神大震災調査委員会(1996)
a': 地すべり、地形による偏圧			上部二ヶ所が崩壊したためトンネル中央部約800フィート(約244m)が土砂に埋まり、かつトンネル全長にわたって大小無数の亀裂や変形。		土木学会(1926, 1927)
	新潟県中越地震	木沢トンネル(小千谷川口大和線)	約50mの区間に側壁に押し出し変形、側壁・アーチ肩部に水平に圧ぎ、トンネル軸方向に伸び、覆工・目地に開き。		土木学会(2005)
b.: 不良地質区間の被害	兵庫県南部地震	六甲トンネル(山陽新幹線)	断層破砕帯2か所でアーチクラウン部のせん断ひび割れとその先端部の剥落。断層破砕帯の10か所でアーチ・側壁の打ち継目部での圧縮正のひび割れに伴う剥落。トンネル横断方向のリング状打ち継目部の剥落。		地盤工学会阪神大震災調査委員会(1996)
		盤滝トンネル(県道路公社)	トンネル中央部断層破砕帯で、鉄筋コンクリート2次覆工コンクリートが一部剥離、鉄筋露出。周辺にトンネル横断方向の微小クラックが発生。路面1か所15cm程度の盛り上げ。	五助橋断層では地震時の活動は確認されていない。	櫻井ほか(1995)
	鳥取県西部地震	明地トンネル(国道180号)	天端部斜め横断亀裂(3箇所)、き裂が所より漏水。覆工上下半打ち継目部のモルタル落下。既存亀裂周辺の新たな亀裂の多数発生。	地震断層であるかは不明。	建設コンサルタント協会中国支部(2000)
	新潟県中越地震	魚沼トンネル(上越新幹線)	195km080m付近:アーチ部崩落(約10m)、側壁部破壊、路盤コンクリート浮き上がり(約100m)、中央通路側壁コンクリート傾斜、ひび割れ(約20m)。195km500m付近:軌道隆起(約100m)、198km700m付近:軌道隆起(約50m)。	鮮新世西山層のシルト岩層、中新世稚谷層の泥岩・砂岩五層部。覆工厚70cm。	土木学会(2005)
	新潟県中越沖地震	米山トンネル(北陸自動車道)	上り線では、延長45m程度の範囲(KP381.8付近)に集中し天端部覆工コンクリート表面の剥落。横断方向幅最大で1m程度、最大厚さ15~20cmのコンクリートの打ち継目部。下り線は、延長200mの区間で天端部コンクリートに最大厚さ5cm程度の表面剥落が数箇所発生。壁部コンクリートは延長10m区間でアーチコンクリートの打ち継目付近から高さ0.7m、厚さ10cmの剥落。	覆工背面に空洞あり。	土木学会(2008)
		第一米山トンネル(信越線)	24K569m~24K686m(延長117m)天端部に連続的に圧ぎが発生し、覆工コンクリートの一部(落下片:幅約30~60cm×厚さ約20cm程度)が剥落。25K316m~25K327m(延長11m)下り線側天端部で圧ぎが発生し、覆工コンクリートの一部が剥落。	推定震源断層から約5km。覆工背面の空洞、インバートなし、既変状箇所。	
	c.: 断層のずれによる被害	北伊豆地震	丹那トンネル(東海道本線)	水抜き坑の切羽2.1mのずれ。断層破砕帯幅約40m、西口側中心線延長2.7m南側、東口側中心線延長1.9m北側に変位。東口約2700m既往断層箇所の覆工に亀裂(幅最大5cm)、西口約3210~3270m既往断層箇所のアーチ部未覆工(後光式支保工)区間の崩落、西口約2985m既往断層箇所本線東側約21cm沈下。	断層面が現れたのは南側第三水抜坑奥端、鋼製支保と松矢板からなる。
1978年伊豆大島近海の地震		稲取トンネル(伊豆急行)	3区間計210mでトンネル断面が横圧力により卵型から長楕円形に変形、断層箇所右横ずれ70cm、天盤の崩落。	変形区間は既往の熱水変質帯に相当。	村田ほか(1978)
長野県西部地震		王滝川ダム導水路トンネル(関西電力)	壁や天井を横断する亀裂が約4kmの区間で発生。開口量は数mmから1~2cm程度。2~3cmの右ずれ成分持つ亀裂。	地震断層の上端部、右ずれ量は全体で10数cm以下。	山科ほか(1985)
兵庫県南部地震		塩屋谷川トンネル(市土木局)	約5mの区間で覆工に亀裂が発生。東側側壁が東へ10mm、西側側壁が東へ80mm変位、路盤北側が50mm上昇。	地表面で横尾川断層の変位を確認。	地盤工学会阪神大震災調査委員会(1996)
鳥取県西部地震		黒坂発電所導水路トンネル	約7mの区間でクラック発生。横断方向のクラック部で2cmの左横ずれ。トンネル軸線で約20cmのずれ。	震源断層上方末端部の可能性。覆工厚15~40cm。	上田ほか(2002)

1)小土被り:宮村ほか(2011)では土被り2D以下程度と定義

(4)地震動が人工バリアに与える影響

1)はじめに

わが国で検討されている高レベル放射性廃棄物の地層処分概念における廃棄体と緩衝材とは大きく密度が異なるため、地震により人工バリアが振動した場合においても、人工バリアがシステムとして健全であり、人工バリアに期待される安全機能が確保できることを示すことが重要である。東北地方太平洋沖地震では、その規模だけでなく揺れの長さが特徴的であった。また、このような地震が地層処分における安全機能を期待する期間において繰返し発生することも考えられる。このため、地震の規模、地震動の継続時間、これらの繰返し等を考慮した人工バリアの健全性評価が必要となる。

第2次取りまとめ（核燃料サイクル開発機構，1999）における人工バリアの地震による振動に対する影響の検討では、模型試験と地震応答解析を実施している。模型試験としては、中型緩衝材振動試験を実施しており、緩衝材の破壊、液状化の発生等は確認されなかった（志水ほか，1995；谷口，御子柴ほか，1999）。また、地震応答解析コードの開発、振動試験の概要とモデルの適用性の確認、人工バリアの耐震安定性解析評価を実施しており、緩衝材のせん断ひずみは微小でありせん断破壊することはない、という結果が示されている（谷口，杉野ほか，1999；谷口，御子柴ほか，1999）。

そこで、本調査では、東北地方太平洋沖地震を踏まえた過酷事象の評価手法開発に関する技術的な検討に資することを目的として、性能評価で考慮する地震動シナリオの一つである廃棄体が母岩と接触する可能性について評価を行った。具体的には、処分場閉鎖後の人工バリアを対象とした振動影響解析を行い、地震動による緩衝材内での廃棄体の移動の可能性を評価した。

廃棄体を定置した直後の段階では、緩衝材は飽和していないため、人工バリアが成立するための緩衝材の設計要件である自己シール性、応力緩衝性及びオーバーパック支持性を有していない力学的に脆い状態であり、オーバーパックが破砕した緩衝材内を移動する可能性がある。オーバーパックが岩盤と接触した場合、緩衝材の機能の一つである地下水環境の変動の緩和が失われ、オーバーパックの腐食速度が大きくなる。また、地下水の浸透により緩衝材が飽和した後、超長期にわたる期間に発生する可能性がある複数回の地震動による緩衝材の残留変位の累積により、オーバーパックが移動して岩盤と接触する可能性があることから、検討の対象とする振動影響解析は、廃棄体を定置した直後と緩衝材が飽和した後の2通りとした。

平成27年度は、廃棄体を定置した直後の検討として、緩衝材の破壊後のオーバーパックの岩盤接触に至るまでの挙動・現象理解を検討するため、粒状体個別要素法モデルで評価する手法の開発を行った。粒状体個別要素法（Distinct Element Method：DEM）は、解析対象を粒子の集合体（不連続体）としてモデル化する手法であり、亀裂の発生過程のモデル化が可能であり、破壊に伴う大変形も容易に取り扱うことができる。また、緩衝材が飽和した後の検討としては、有限要素法モデルによる有効応力地震応答解析により、地震動の繰返し挙動と残留変位による影響評価手法の開発を行った。

緩衝材の仕様は、振動による影響が明確に出るように、ベントナイト単体、乾燥密度 0.8 Mg/m^3 、含水状態は飽和とした。乾燥密度 0.8 Mg/m^3 とは、緩衝材の間隙構造によって、コロイドをろ過可能な最低の密度である（黒澤，2005）。

また、繰返し振動影響を評価するためには、動的強度の把握が不可欠である。動的強度とは、載荷速度が大きく、かつ繰返し載荷があるときの強度を対象としている。破壊タイプの検討も含め解析的に地震動による振動影響を検討することは非常に重要であることから、繰返し載荷による動的強度を把握するために、同じ緩衝材の仕様で土の繰返し非排水繰返し三軸試験を実施し、振動影響評価に必要な動的強度特性のパラメータを取得した。

平成27年度に行う地震応答解析が、地震動の継続時間が長いことや複数回の地震動を与える検討であるため、今後より詳細な検討を行うためには、より大きな変位を考慮できる大変形解析の対応必要となる。そのため、振動影響を評価するための地震応答解析に必要な解析コードに関する現状及び技術的課題、大変形理論、大規模モデル、逐次非線形の収束性、液状化をキーワードとして、市販のコードや広く公開されているコードの最新の動向や技術的知見について調査、整理を行った。

2) 振動影響評価に必要なパラメータの設定

① 土の繰返し非排水三軸試験

緩衝材の動的強度特性を求めめるため、飽和円筒供試体による繰返し非排水三軸試験（地盤工学会基準JGS0541-2009）を実施した。試験ケースを表4.3.3-16に示す。供試体数は、4供試体とした。本試験では、所定の等方応力状態で圧密した供試体に対し、大きさの異なる繰返し軸荷重振幅（4種類）を与えて、両振幅軸ひずみが5%に達するまで繰返し載荷を行い、繰返し応力振幅比と繰返し載荷回数との関係性を求めた。

表4.3.3-16 土の繰返し非排水三軸試験ケース

供試体仕様	ベントナイト材料	ベントナイト（クニゲルV1）
	混合材料	なし
	乾燥密度（Mg/m ³ ）	0.8
	含水状態	飽和
	寸法	直径5.0cm、高さ10.0cm
圧密条件	有効拘束圧 σ'_c （MPa）	0.1
載荷条件	排水条件	非排水
	制御方式	荷重制御
	載荷波形	正弦波
	載荷周波数 f（Hz）	0.1
	繰返し応力振幅比	両振幅軸ひずみDA=5%時の繰返し載荷回数が、50回程度～5,000回程度となるように設定。
供試体数	4供試体	
試験水	蒸留水	

図4.3.3-55に、土の繰返し非排水三軸試験結果（繰返し応力振幅比と繰返し載荷回数との関係）を示す。繰返し応力振幅比と繰返し載荷回数との関係は、軸ひずみの両振幅が5%の場合繰返し載荷回数が50回～5,000回程度となる結果が得られた。また、繰返し応力振幅比の増加とともに繰返し

し載荷回数は、片対数上で一意的に低下する傾向が認められた。

繰返し軸差応力 σ_a kN/m ²			31.33	36.55	27.09	32.74
繰返し応力振幅比 $\sigma_a/2\sigma'_v$			0.157	0.183	0.135	0.164
繰返し載荷回数	軸ひずみの両振幅	$DA = 1\%$ ○	1.0	0.6	1.0	0.8
		2% △	75	3.0	166	16
		5% □	1522	60	5874	407
		10% ◇		93	7196	485
過剰間隙水圧比 95% N_{crit} ●						

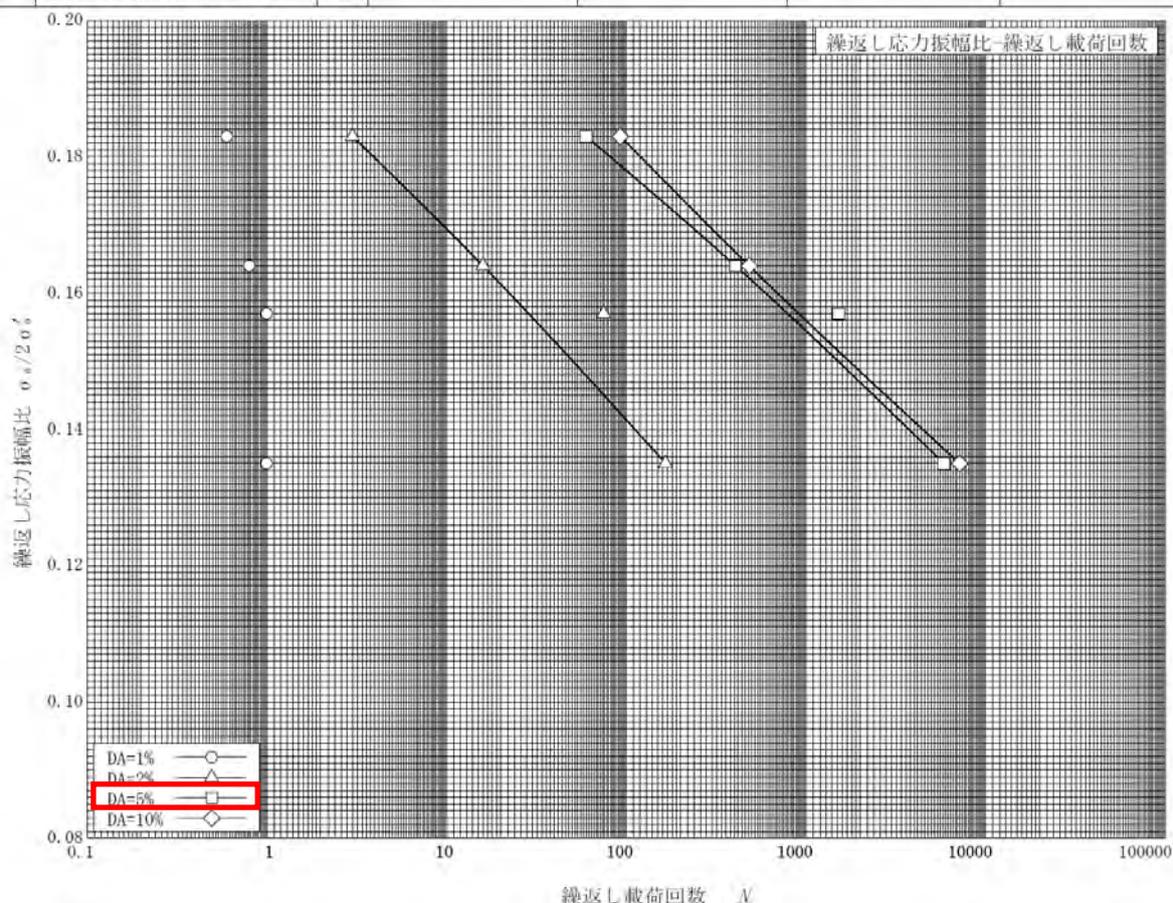
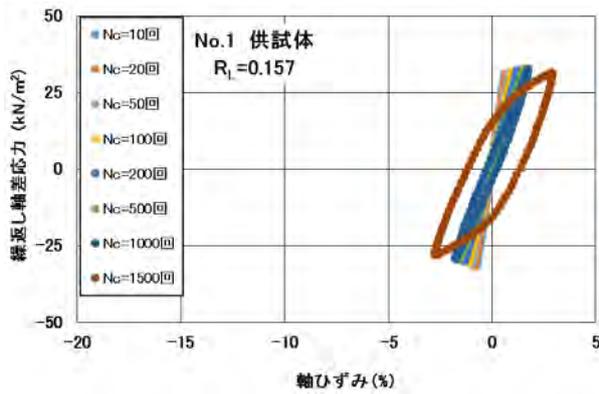
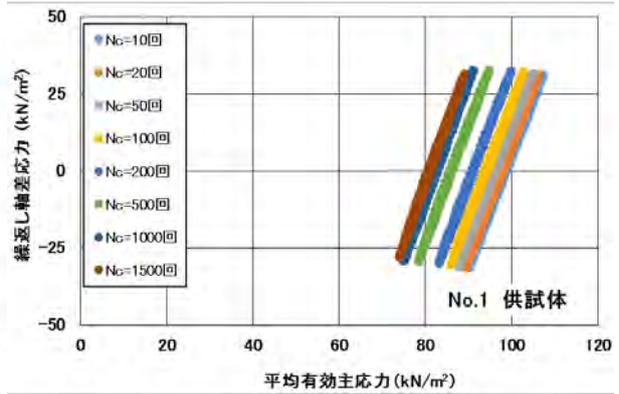


図4.3.3-55 土の繰返し非排水三軸試験結果

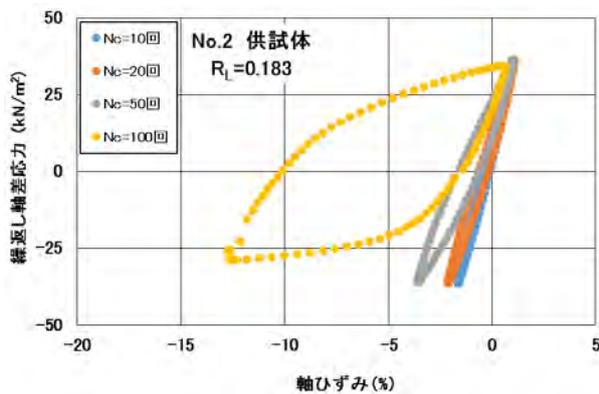
図4.3.3-56に、繰返し軸差応力と軸ひずみとの関係、及び繰返し軸差応力と平均有効主応力との関係を示す。繰返し軸差応力と軸ひずみとの関係は、繰返し載荷回数の増加に伴い軸ひずみが伸張側に急激に増加していく傾向が認められる。しかしながら、繰返し載荷回数の増加に伴う平均有効主応力の低下は、認められていない。



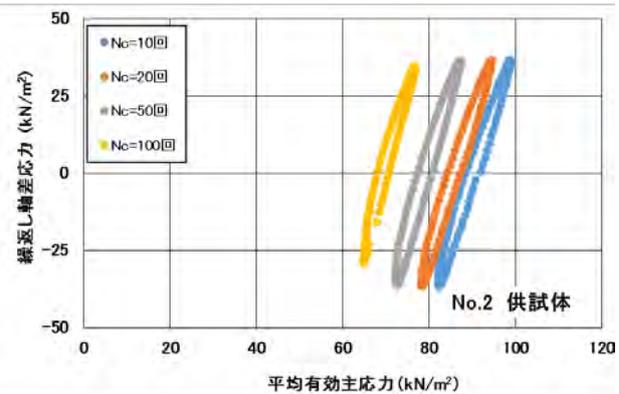
a) 繰返し軸差応力と軸ひずみとの関係



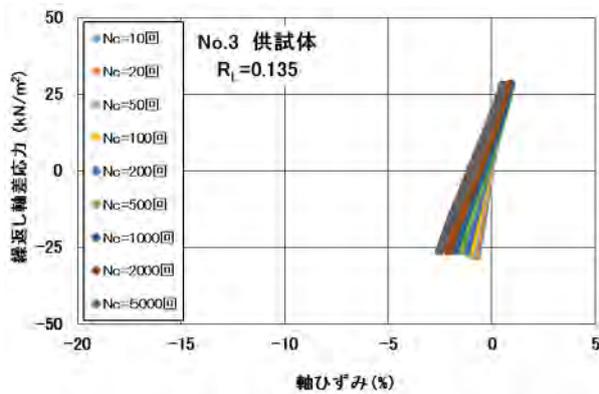
b) 繰返し軸差応力と平均有効主応力との関係



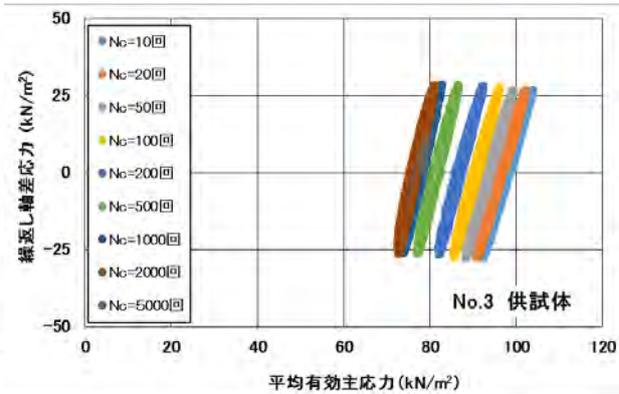
c) 繰返し軸差応力と軸ひずみとの関係



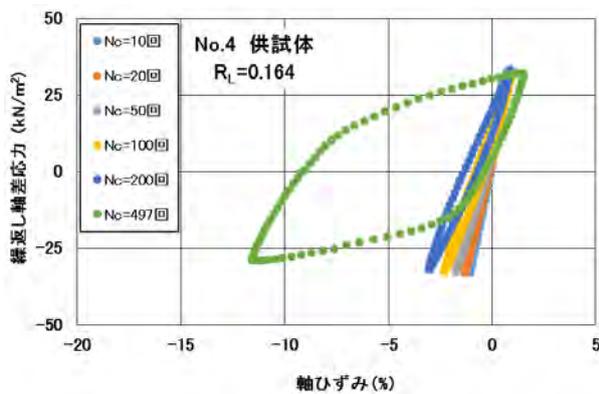
d) 繰返し軸差応力と平均有効主応力との関係



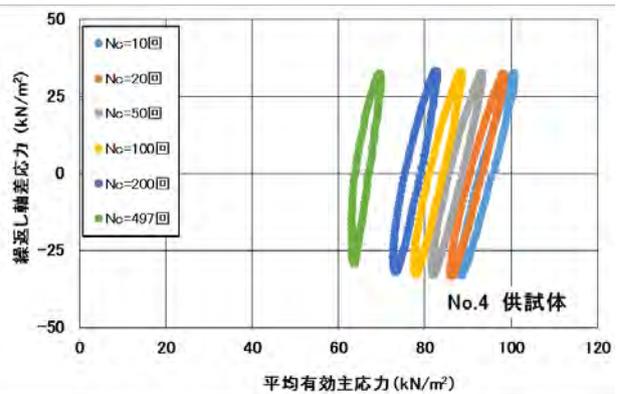
e) 繰返し軸差応力と軸ひずみとの関係



f) 繰返し軸差応力と平均有効主応力との関係



g) 繰返し軸差応力と軸ひずみとの関係



h) 繰返し軸差応力と平均有効主応力との関係

図4. 3. 3-56 繰返し軸差応力と軸ひずみ・平均有効主応力との関係

②緩衝材の動的強度特性

軸ひずみ(両振幅)と繰返し载荷回数との関係及び過剰間隙水圧比($\Delta u/\sigma'_c$)と繰返し载荷回数との関係を、図4.3.3-57に示す。

軸ひずみの両振幅及び過剰間隙水圧比と繰返し载荷回数との関係は、繰返し载荷回数の増加に伴い増加する傾向が認められる。過剰間隙水圧比と繰返し载荷回数との関係においては、過剰間隙水圧比は繰返し载荷回数の増加とともに累乗指数的に増加するものの、過剰間隙水圧比の指標となる $\Delta u/\sigma'_c=0.95$ を超えることはなかった。

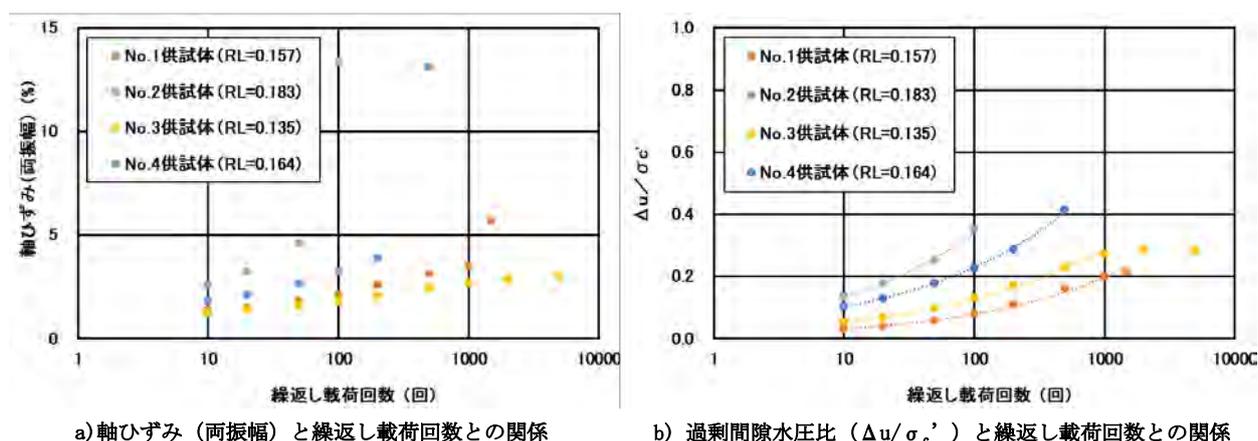


図4.3.3-57 軸ひずみ・過剰間隙水圧比と繰返し载荷回数との関係

3)ニアフィールドの有効応力地震応答解析

緩衝材飽和後の超長期における繰返し地震動による影響を評価するため、人工バリアと周辺岩盤の3次元非線形地震応答解析(有効応力)を実施した。

本検討のモデルでは、処分坑道横置き定置方式(軟岩系岩盤)の人工バリアとした。また、閉鎖後超長期の人工バリアの状態を考慮し、廃棄体定置後、周辺岩盤からの地下水の浸潤に伴う緩衝材の飽和・膨潤により、処分坑道壁と緩衝材は密着している状態を基本ケースと考えた。

①初期応力解析

a. 初期応力解析の解析条件

(a) 解析モデル

本解析では、第2次取りまとめで示された処分坑道横置き定置方式(軟岩系岩盤)の人工バリアと周辺岩盤を対象とした(核燃料サイクル開発機構、1999)。処分坑道のイメージ図を、図4.3.3-58に、人工バリアの仕様例を図4.3.3-59に示す。また、処分坑道横置き定置方式(軟岩系岩盤)の仕様を、表4.3.3-17に示す。

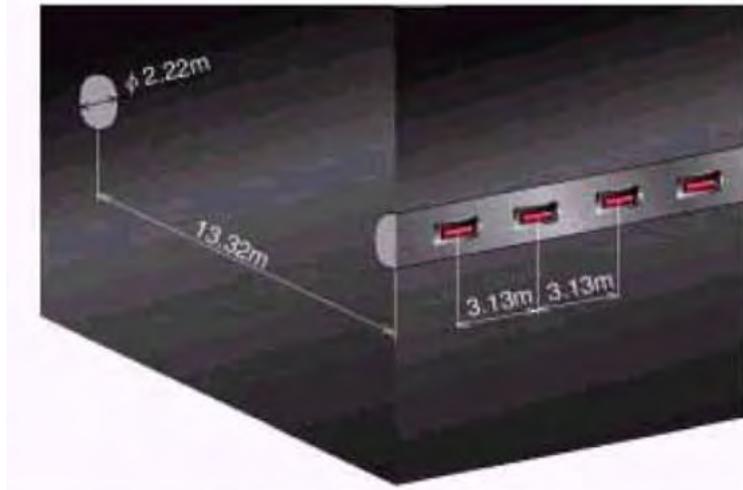


図4.3.3-58 処分坑道横置き定置方式（軟岩系岩盤）の処分坑道のイメージ図
（核燃料サイクル開発機構、1999）

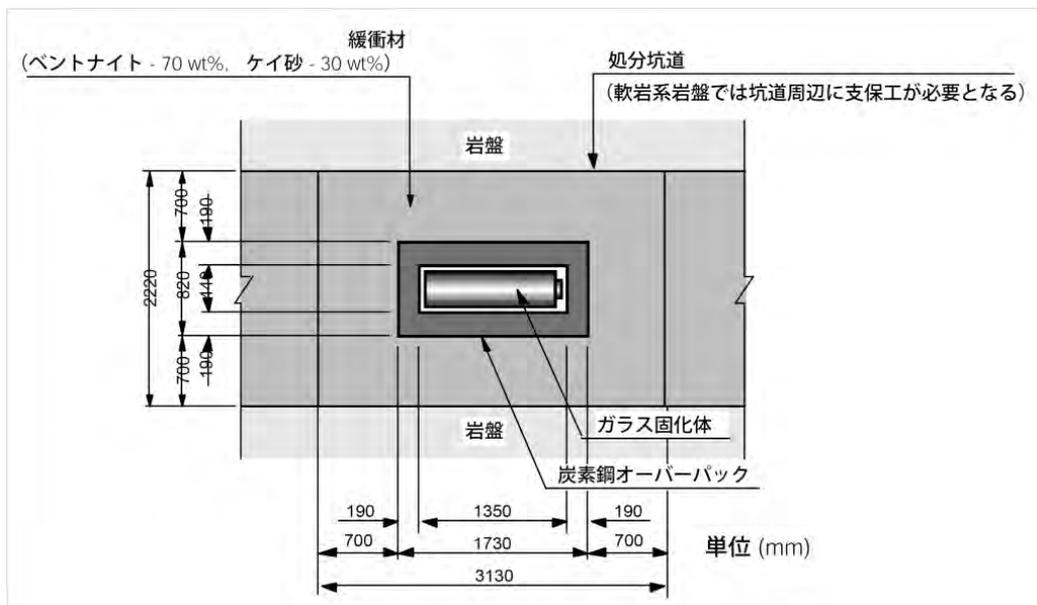


図4.3.3-59 処分坑道横置き定置方式（軟岩系岩盤）の人工バリアの仕様例
（核燃料サイクル開発機構、1999）

表4.3.3-17 処分坑道横置き定置方式（軟岩系岩盤）の仕様
（核燃料サイクル開発機構、1999）

地質条件		軟岩系材料
処分深度		500m
処分坑道内径		2.22m
廃棄体ピッチ		3.13m
処分坑道離間距離		9.99m
覆工コンクリートの厚さ		0.1m
人工バリア	ガラス固化体の外寸	直径440mm、長さ1,350mm
	オーバーバックの外寸	直径820mm、長さ1,730mm
	ガラス固化体1個に対する緩衝材の外寸	直径2,220mm(処分坑道内径) 長さ3,130mm(廃棄体ピッチ)

図4.3.3-60に、解析モデルを示す。解析対象は、岩盤・オーバーパック・緩衝材の3材料で構成した。処分深度は、第2次取りまとめの軟岩系岩盤モデル（核燃料サイクル開発機構，1999）で地表から深さ500mとし、地中の一部分をモデル化した3次元モデルについて検討を行った。

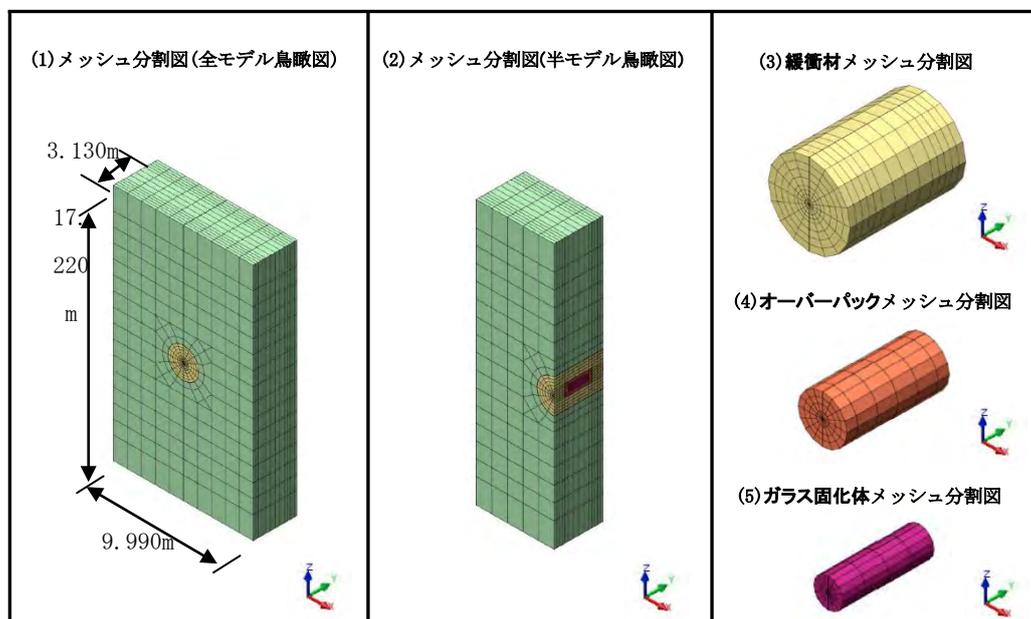


図4.3.3-60 解析モデル

(b) 境界条件

底面は四隅を固定し、それ以外は水平ローラーとした。側方は、鉛直固定とした。

(c) 荷重条件

解析モデルの上面に、処分深度（軟岩系岩盤500m）相当の土被り圧及び側圧を面荷重として作用させた。側圧は、岩盤の土圧係数 K_0 を1.0に設定することで作用させた。なお、地表面まで達する地下水位を考慮するため、土被り圧は浮力を考慮した。

(d) 物性値

ガラス固化体、オーバーパック及び岩盤は、第2次取りまとめ（核燃料サイクル開発機構、1999）と同じ仕様、物性値とした。初期応力解析における物性値を、表4.3.3-18と表4.3.3-19に示す。緩衝材は第2次取りまとめと仕様が異なるため、平成26年度報告書及び土の繰返し非排水三軸圧縮試験結果結果に基づいて設定した。単位体積重量については、水圧を考慮した。緩衝材のヤング率 E は、拘束圧依存性を考慮し、緩衝材が吸水膨張したときの有効応力0.1MPaにおける換算値を用いた。

表4.3.3-18 初期応力解析における物性値及び荷重

(カッコ内は水中密度を示す)

材料	特性	物性値
物性値	単位体積重量	2.20 (1.20) Mg/m ³
	弾性係数E	3500 MPa
	ポアソン比	0.30 ¹⁾
荷重	鉛直方向	1.08×10 MPa
	側方向	1.08×10 MPa

1) 側圧により $\nu=0.5$ になる。

表4.3.3-19 人工バリア自重解析に用いた物性値

(カッコ内は水中密度を示す)

材料	モデル化	特性	物性値	備考
ガラス 固化体	線形弾性	ヤング率E	8.04×10 ⁴ MPa	谷口ら 1999
		ポアソン比	0.25	
		密度 ρ	2.10 (1.10) Mg/m ³	
オーバー パック	線形弾性	ヤング率E	2.06×10 ⁴ MPa	谷口ら 1999
		ポアソン比	0.3	
		密度 ρ	7.77 (6.77) Mg/m ³	
緩衝材 (飽和)	線形弾性	ヤング率E	7.24 ¹⁾ MPa	土の繰返し非 排水三軸圧縮 試験結果
		ポアソン比	0.49	
		密度 ρ	1.504 ²⁾ (0.504) Mg/m ³	

1) R-0モデルのGmaxに拘束圧0.1MPa時の拘束圧依存性を考慮した換算値からポアソン比を介して算定。

2) 繰返し三軸圧縮試験結果より。

b. 初期応力解析の解析過程

解析ステップは以下のように設定した。

STEP1：モデル上部に浮力を考慮した軟岩系岩盤500m相当の上載圧を載荷

STEP2：処分坑道を掘削（掘削解放率0%：掘削による応力解放を考慮しない）

STEP3：浮力を考慮したガラス固化体、オーバーパック、緩衝材を挿入

② 3次元非線形地震応答解析（有効応力）

初期応力解析で算定された岩盤、ガラス固化体、オーバーパックの応力状態を初期値として3次元非線形地震応答解析（有効応力）（以下、「動的解析」という）を実施した。有効応力を考慮する緩衝材は飽和状態とし、有効応力を0.1MPaに設定した。

a. 動的解析の解析条件

(a) 解析モデル

解析モデルは、境界条件を除いて初期応力解析時のモデル（図4.3.3-60）と同一である。

(b) 境界条件

底面は深度方向における波動伝播の連続性を考慮して粘性境界とし、側方は地震時波動伝播過程において不均質な材料境界で生じる反射・透過現象を考慮して多点拘束（繰返し境界）とした。また、上面は水平ローラーとした。

(c) 荷重条件

初期応力解析で得られた岩盤、ガラス固化体及びオーバーパックの応力状態を初期値とした。緩衝材は飽和状態とし、有効応力を0.1MPaに設定した。

(d) 物性値

表4.3.3-20に、動的解析に用いた物性値を示す。有効応力を考慮する緩衝材の構成則は修正R-0モデルとし、ダイレイタンスー特性をBow1モデル（以下、「おわんモデル」という）とした。修正R-0モデルによるひずみ依存性特性は、平成26年度検討結果の物性を参考にパラメータ値を見直した値を用い、おわんモデルのパラメータ値は要素シミュレーションによる試行結果を用いた。

表4.3.3-20 動的解析に用いた物性値

材料	モデル化	特性	物性値	備考
ガラス 固化体	線形 弾性	ヤング率E (MPa)	8.04×10^4	谷口ら 1999
		ポアソン比 ν	0.25	
		密度 ρ (Mg/m ³)	2.1	
		減衰定数h	—	
オーバー パック	線形 弾性	ヤング率E (MPa)	2.06×10^4	谷口ら 1999
		ポアソン比 ν	0.3	
		密度 ρ (Mg/m ³)	7.77	
		減衰定数h	0.005	
緩衝材 (飽和)	非線形 R-0 モデル	最大せん断剛性 G_{max} (MPa)	2.43	繰返しねじりせん 断試験結果を修正 (平成26年度試験 結果)
		ポアソン比 ν	0.49	
		密度 ρ (Mg/m ³)	1.504	
		せん断強度 τ_f (MPa)	0.029	
		実験定数： α	3.663	
		実験定数： β	2.014	
		減衰定数 h_{max} (%)	2.14×10^1	
	おわん モデル	A	1.0×10^{-9}	要素シミュレーシ ョンによる試験結 果へのフィッティ ング
		B	1.4	
		C	450	
		D	65	
		$Cs/(1+e_0)$	0.06	
X1	0.10			
軟岩系 岩盤	線形 弾性	ヤング率E (MPa)	7.60×10^3	谷口ら 1999
		ポアソン比 ν	0.369	
		密度 ρ (Mg/m ³)	2.2	
		減衰定数h	0.02	

b. 動的解析の解析過程

(a) R-0モデル見直し

平成26年度の検討では、緩衝材の変形特性を繰返しねじりせん断試験結果により評価している。その結果を用いてR-0モデルによるフィッティングにより解析モデルに反映している。その設定の概要は次の通り。

- ・試験結果の中で、最も G_0 （初期せん断剛性率）が小さい供試体No.1の結果を採用した。
- ・せん断強度（ τ_f ）は、ベントナイトの一軸圧縮試験を参考に21(kN/m²)とした。

本検討では、平成26年に実施した緩衝材（飽和ベントナイト）の一軸圧縮試験結果の反映と $G_0 = G_{max}$ としてR-0モデルの見直しを行った。R-0モデルにおけるせん断応力とせん断ひずみの関係式を式(4.3.3-1)と式(4.3.3-2)に示す。

$$\gamma = \frac{\tau}{G_0} \left\{ 1 + \alpha \left(\frac{\tau}{\tau_f} \right)^{\beta-1} \right\} \quad \text{-----式(4.3.3-1)}$$

$$\beta = \frac{2 + \pi h_{\max}}{2 - \pi h_{\max}} \quad \text{-----式(4.3.3-2)}$$

式(4.3.3-1)におけるせん断強度 (τ_f) については、緩衝材 (飽和ベントナイト) の一軸圧縮試験結果の平均値となる57.8 (kN/m²) を用いて次式によりせん断強度 (τ_f) を見直した。

$$\tau_f = qu/2 = 57.8/2 = 28.9 \text{ (kN/m}^2\text{)} = 0.029 \text{ (MN/m}^2\text{)} \quad \text{-----式(4.3.3-3)}$$

平成26年度とのR-0モデルのパラメータ設定値の比較を、図4.3.3-61に示す。見直した結果となる動的変形特性の比較から、見直し後のせん断弾性係数が若干大きくなる程度で大きな違いは無いことが分かる。

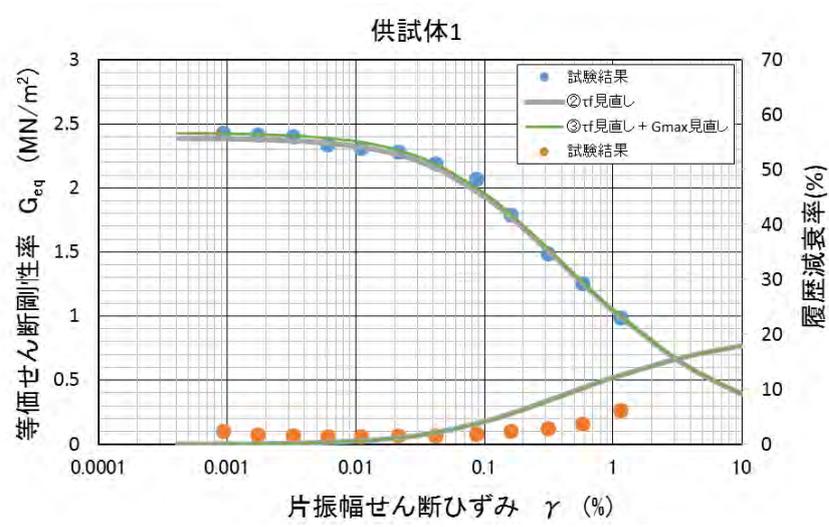


図4.3.3-61 見直し前後の動的変形特性の比較

(b) 緩衝材のダイレイタンスー特性の考慮

有効応力を考慮する緩衝材のダイレイタンスー特性は、おわんモデルとした。

おわんモデルの設定では、パラメータA、B、C、D、Cs/(1+e₀)、X1を設定する。パラメータ値は、動的強度特性が前述の土の繰返し非排水三軸圧縮試験で得られた繰返し応力振幅比と繰返し回数との関係 (以下、「動的強度曲線」という) を模擬するような値に設定する。繰返し载荷試験を模擬した1要素からなるシミュレーションモデルを作成し、所定のせん断ひずみに達するまでの繰返し载荷回数を抽出する。繰返しおわんモデルのパラメータの修正と要素シミュレーションを行い、土の繰返し非排水三軸圧縮試験で得られた動的強度曲線にフィッティングするようにパラメータ値を設定した。フィッティング状況結果を、図4.3.3-62に示す。

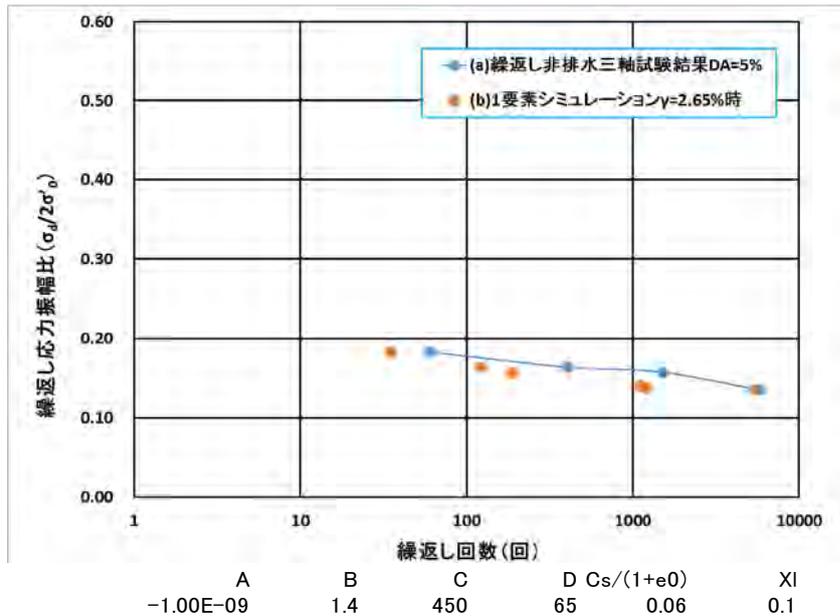


図4.3.3-62 要素シミュレーションによるおわんモデルのフィッティング状況

(c) 入力地震動

a) 入力地震波の選定

東北地方太平洋沖地震の軟岩上の記録（防災科学技術研究所が公開しているKIK-NET）から抽出した田尻EW波（平成26年度選定結果）とした。

b) 入力地震波の引き戻し

地表面で観測した地震波は、地中の対象深度まで、一次元波動論による地震応答解析（SHAKE）を用いて引き戻し計算を実施しなければならない。本解析でも、地表面での最大加速度値を1,000galに基準化した入力地震波の引き戻し計算を実施（平成26年度検討結果）した。引き戻し計算に用いる一次元地盤モデルは、軟岩系岩盤モデルとした。

引き戻し計算を実施（平成26年度検討結果）した露頭基盤波（2E）（ $\Delta t=0.01$ 秒、継続時間300秒、GL-500m位置で最大加速度1,869gal）を用い（以下、「平成26年度モデル地震波」という）、過酷事象の検討として、巨大地震の頻度を1回/年として1,000年で1,000回の発生を想定した（オーバーパックに期待する閉じ込め機能は、設計上1,000年）。この複数回の巨大地震の発生により、オーバーパックが移動して岩盤に接触する可能性について検討する。よって、本検討では、地震波（300秒）を繰返し10回入力した。解析で用いた入力地震動を、図4.3.3-63に示す。

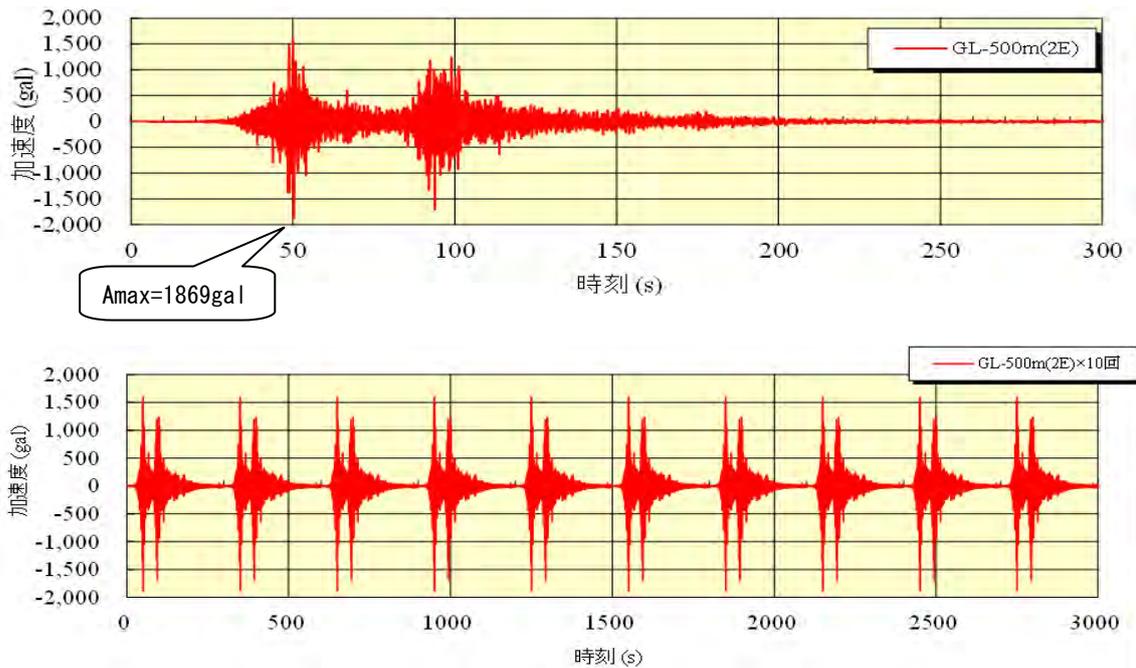


図4. 3. 3-63 解析で用いた入力地震動

(d) Rayleigh減衰の設定入力地震動

固有値解析結果より、加振方向（X軸）に関する有効質量比が大きい3次モードと9次モードから剛性マトリックスの係数 $\alpha = 0.0001513$ 、質量マトリックスの係数 $\beta = 2.486$ に設定した。

$$C = \alpha K + \beta M$$

$$\alpha : 0.0001513$$

$$\beta : 2.486$$

c. 解析方法の決定

逐次非線形解析における直接積分法における時間刻みは、解析時のひずみレベルや、計算時間を考慮して0.005秒と設定した。なお、入力地震動の継続時間を短く設定した試算において、0.001秒の計算結果と傾向に大きな違いが見られないことを確認した。

地震動方向 : X軸方向（人工バリア軸直角方向）

解析手法 : 直接積分法（逐次時刻歴解析）

積分時間間隔 : 0.005秒

解析時間 : 300.0秒×10回

③解析結果

図4. 3. 3-64～図4. 3. 3-66に、初期応力解析における応力分布図を示す。鉛直応力分布 σ_z の分布をみると、浮力を考慮した上載荷重と岩盤の単位体積重量に応じた応力分布が深度方向に一様増加している。水平応力分布 σ_x 、 σ_y も鉛直応力分布 σ_z 相当の応力状態となっており、土圧係数 $K_0=1.0$ の状況が確認できる。

せん断応力分布 τ_{xy} 、 τ_{yz} 、 τ_{xz} の応力分布をみると、 σ_x 、 σ_y 、 σ_z に比べ小さな値となっており、岩盤が等方圧縮状態になっている。

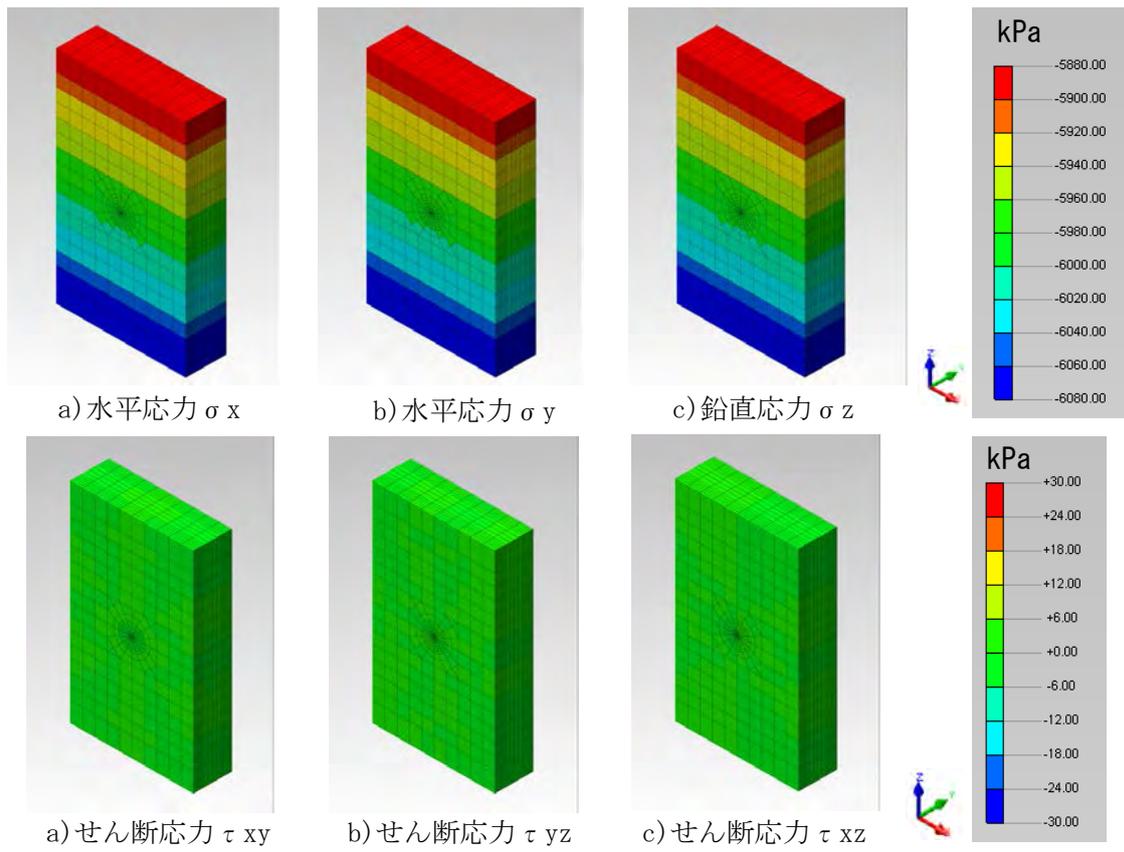


図4. 3. 3-64 初期応力解析における応力分布図 (STEP1)

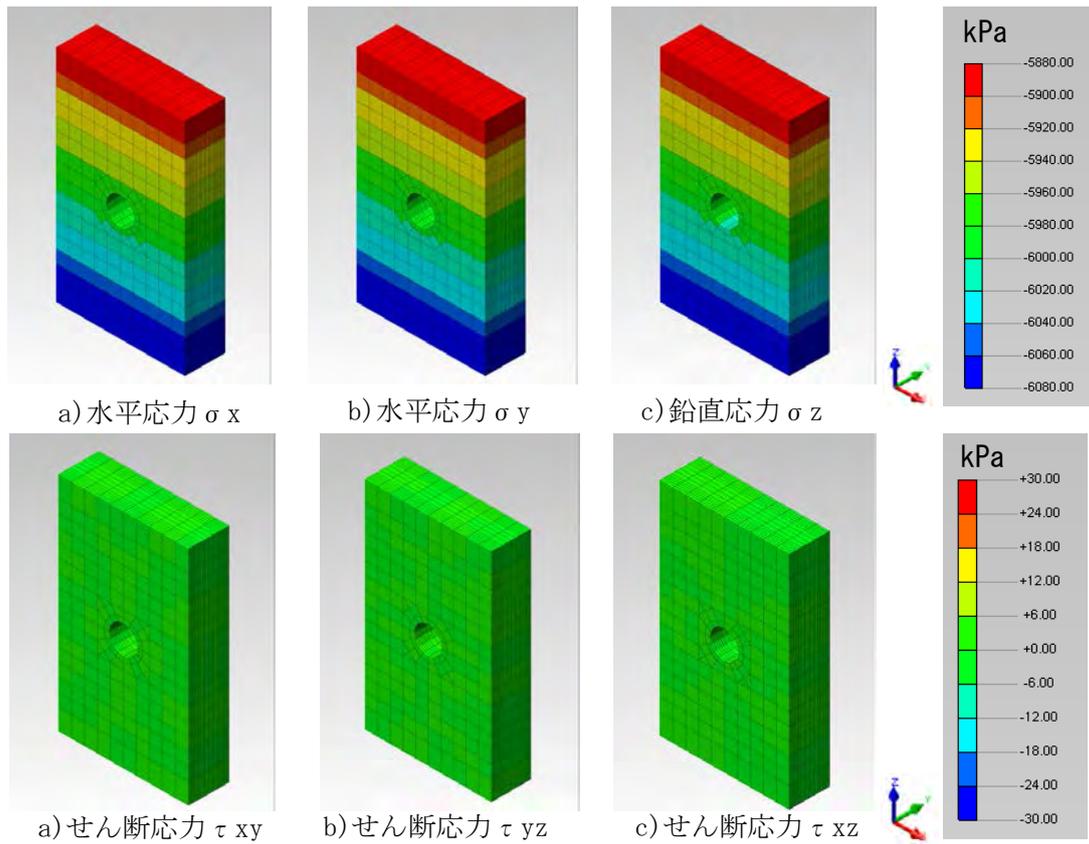


図4.3.3-65 初期応力解析における応力分布図(STEP2)

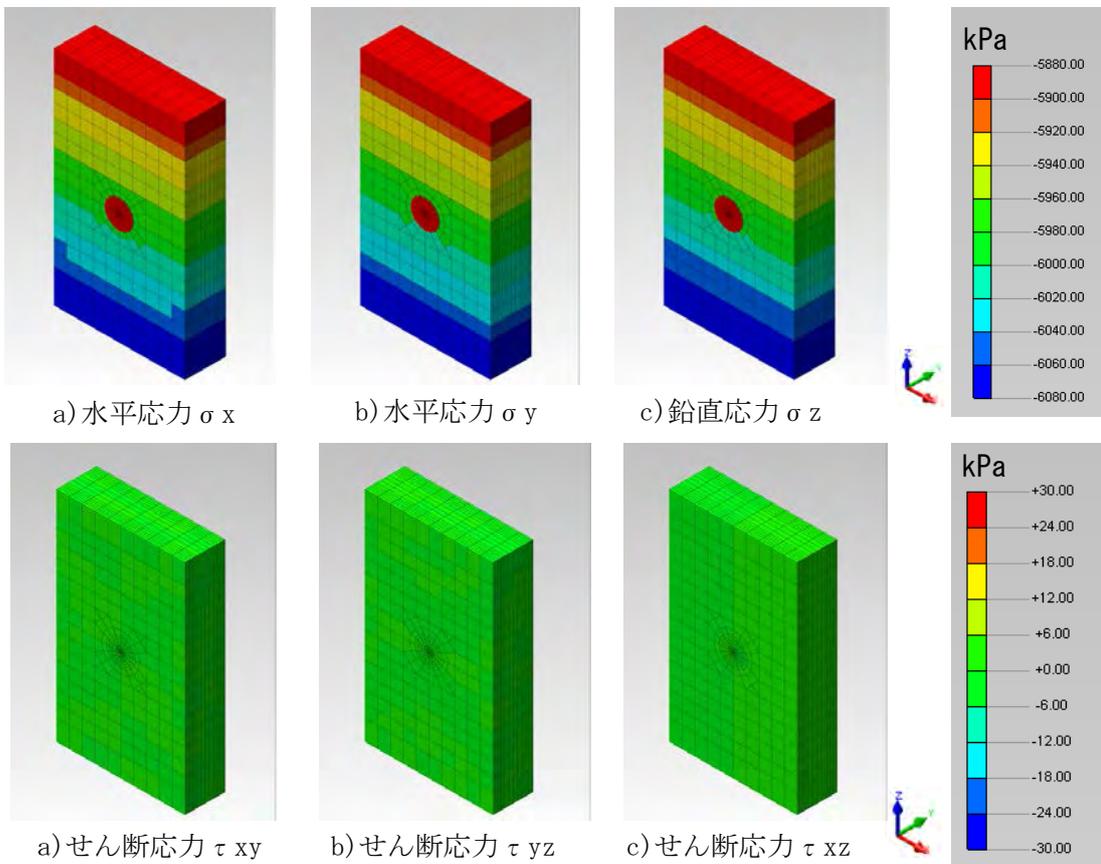


図4.3.3-66 初期応力解析における応力分布図(STEP3)

図4.3.3-67に、動的解析結果の最大分布図を示す。なお、最大水平変位分布は、基盤中心部の節点番号83からの相対変位の絶対値表示で示している（粘性境界に接するモデル底面の節点も動いているため）。

最大水平加速度、最大せん断ひずみ及び最大水平変位のいずれも、加振するモデル下端からモデル上端にかけて応答値が大きくなる傾向にある。

最大加速度の分布をみると、モデル底部で1,500gal程度、モデル上端部で1,900gal程度となっている。オーバーパック端部では軟岩の加速度より大きく、2,000gal以上となっている。

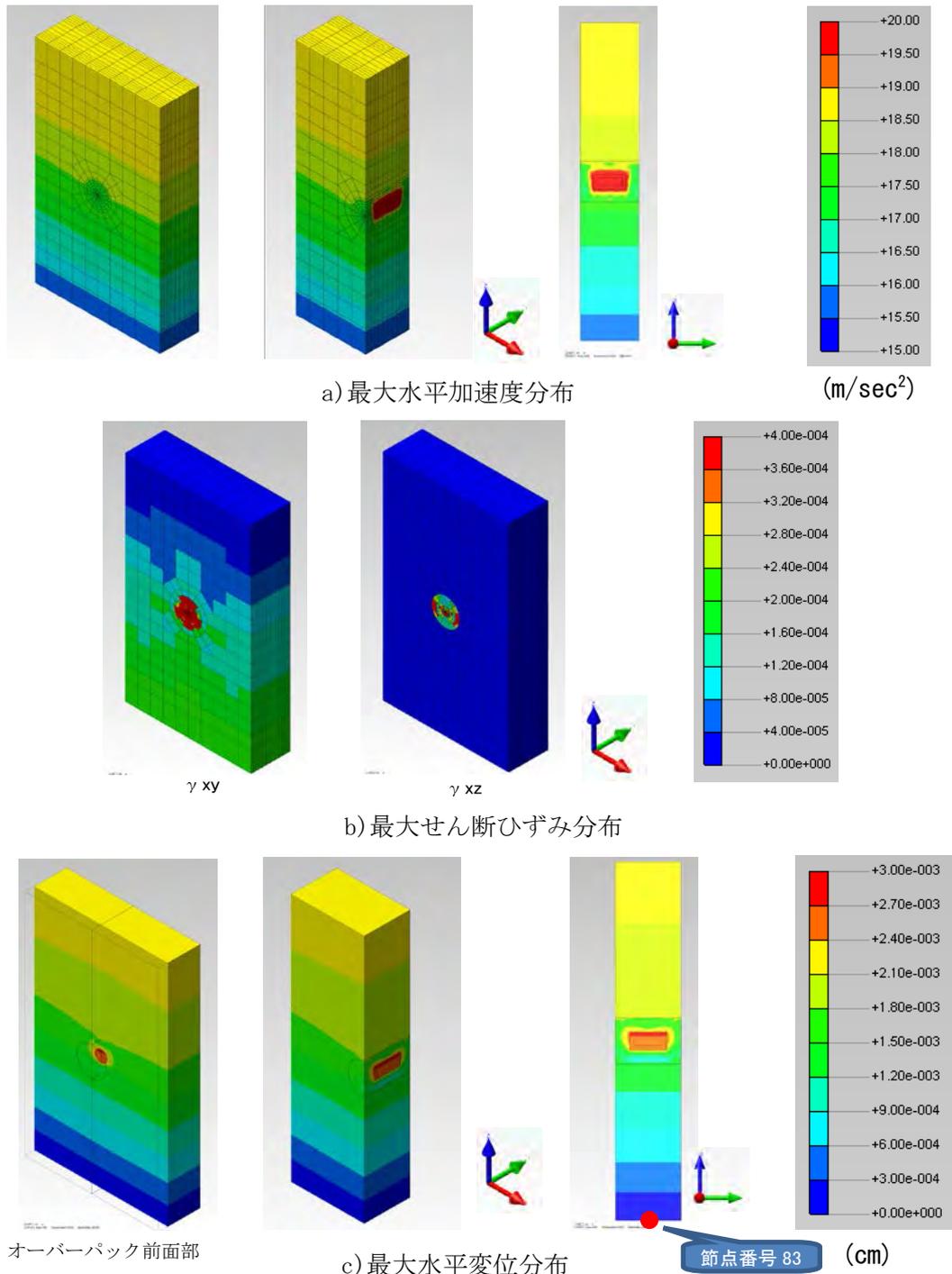


図4.3.3-67 動的解析結果の最大分布図

図4.3.3-68に、人工バリア周辺の水平変位（X軸方向）の時刻歴図を示す。なお、とくに断りが無い限り、変位量は基盤中心部の節点番号83からの相対変位量を示す。各節点の水平変位量を見ると、入力地震波の位相・振幅の大きさに応じて水平変位量も対応した挙動を示している。最大変位量を見ると、軟岩と緩衝材との境界部で1.8mm、緩衝材とオーバーパックとの境界部で2.5mm、オーバーパック下の緩衝材で1.4mmとなっている。

図4.3.3-69に、軟岩と緩衝材の境界箇所と、緩衝材とオーバーパックの境界箇所との変位時刻歴図を示す。変位量の最大値を見ると、モデルに向かって左側のオーバーパックと軟岩掘削面との離隔は最大0.95mm広がり、同右側の離隔は最大0.95mm縮まっている。このことから、オーバーパックは最大0.95mm右側に変位挙動したものと推察される。

図4.3.3-70に、軟岩と緩衝材の境界箇所と、緩衝材とオーバーパックの境界箇所の変位時刻歴図を示す。時刻歴は2,745秒～2,755秒についてプロットしている。それぞれの変位量を見ると、境界箇所変位はほぼ同様な挙動を示しているが、軟岩と緩衝材の境界箇所の変位量に比べ、緩衝材とオーバーパックの境界箇所の変位量がやや大きくなっている。このことから、緩衝材の中でオーバーパックは、やや大きく変位していることが推察される。

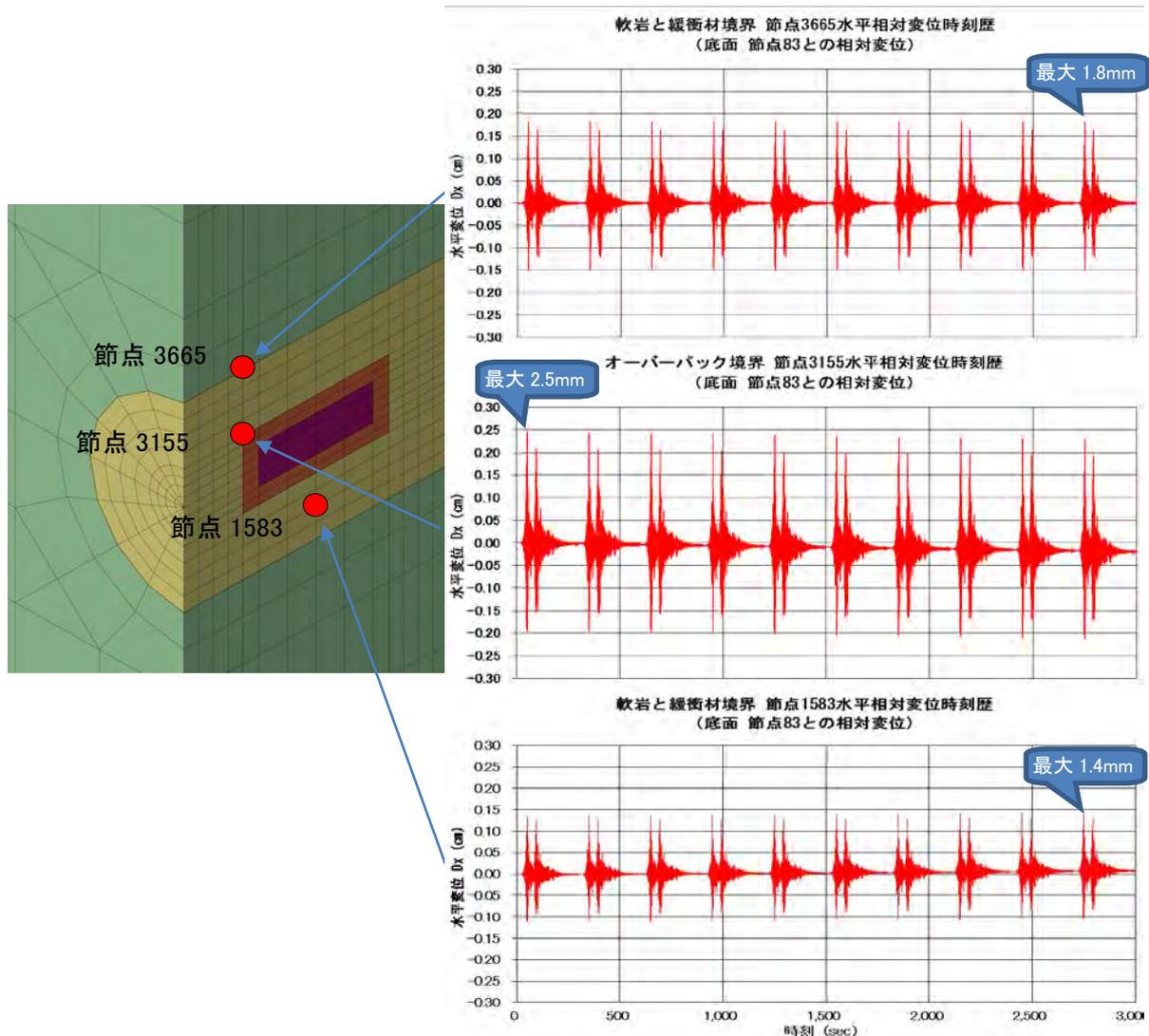


図4.3.3-68 オーバーパック周辺の水平変位（X軸方向）時刻歴図

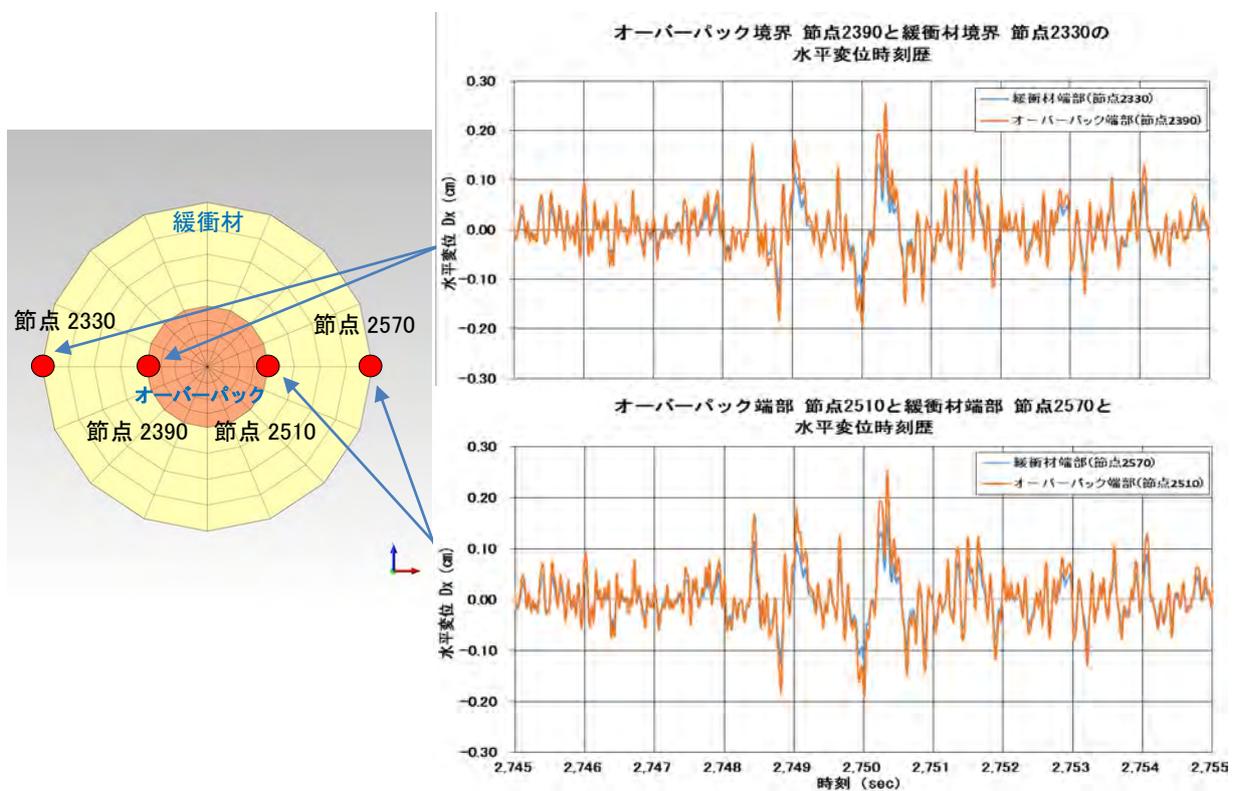
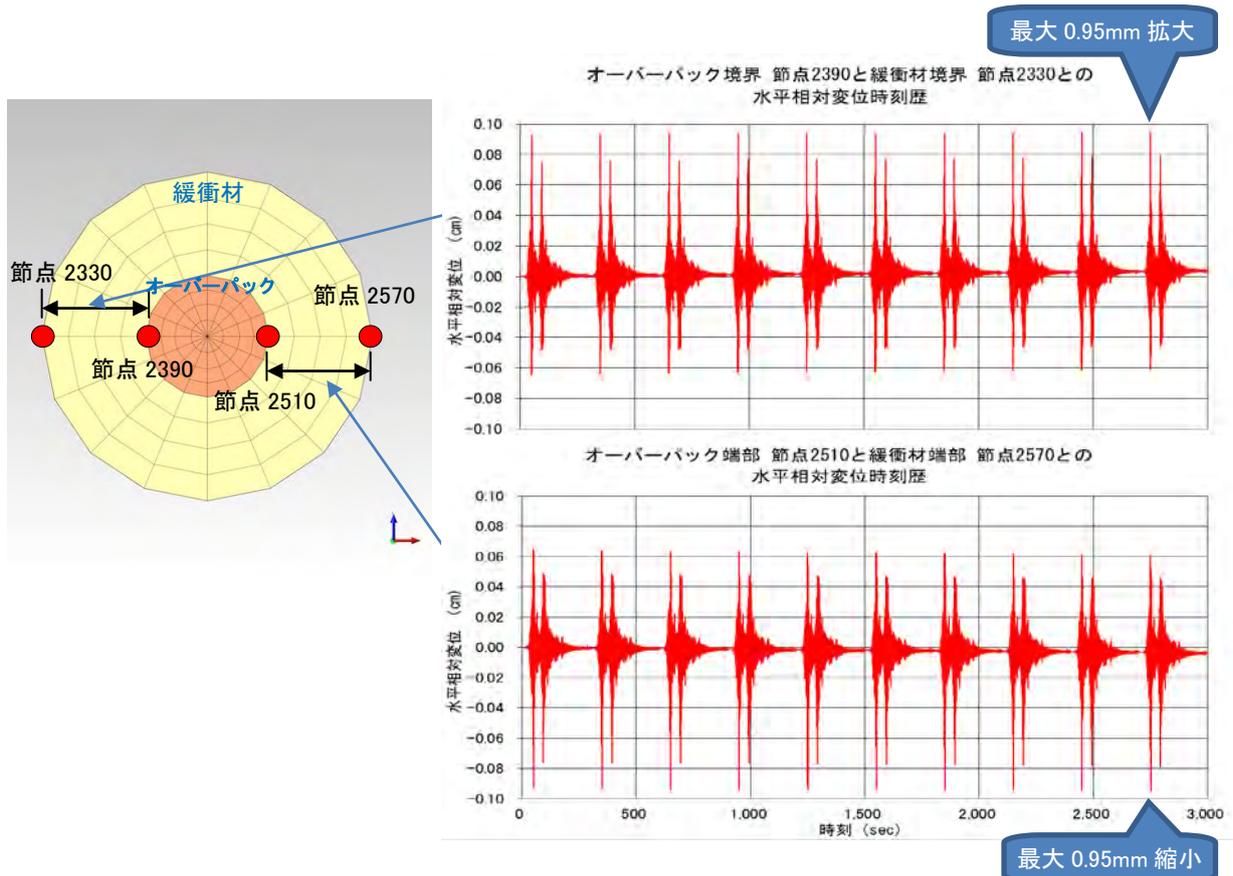


図4.3.3-71に、緩衝材付近の過剰間隙水圧比の分布を示し、相対的にやや大きな過剰間隙水圧比が算定された箇所の過剰間隙水圧比の時刻歴図を示す。過剰間隙水圧比の分布をみると緩衝材全体にわたり0.1%以下であり、過剰間隙水圧がほぼ発生していないと判断される。

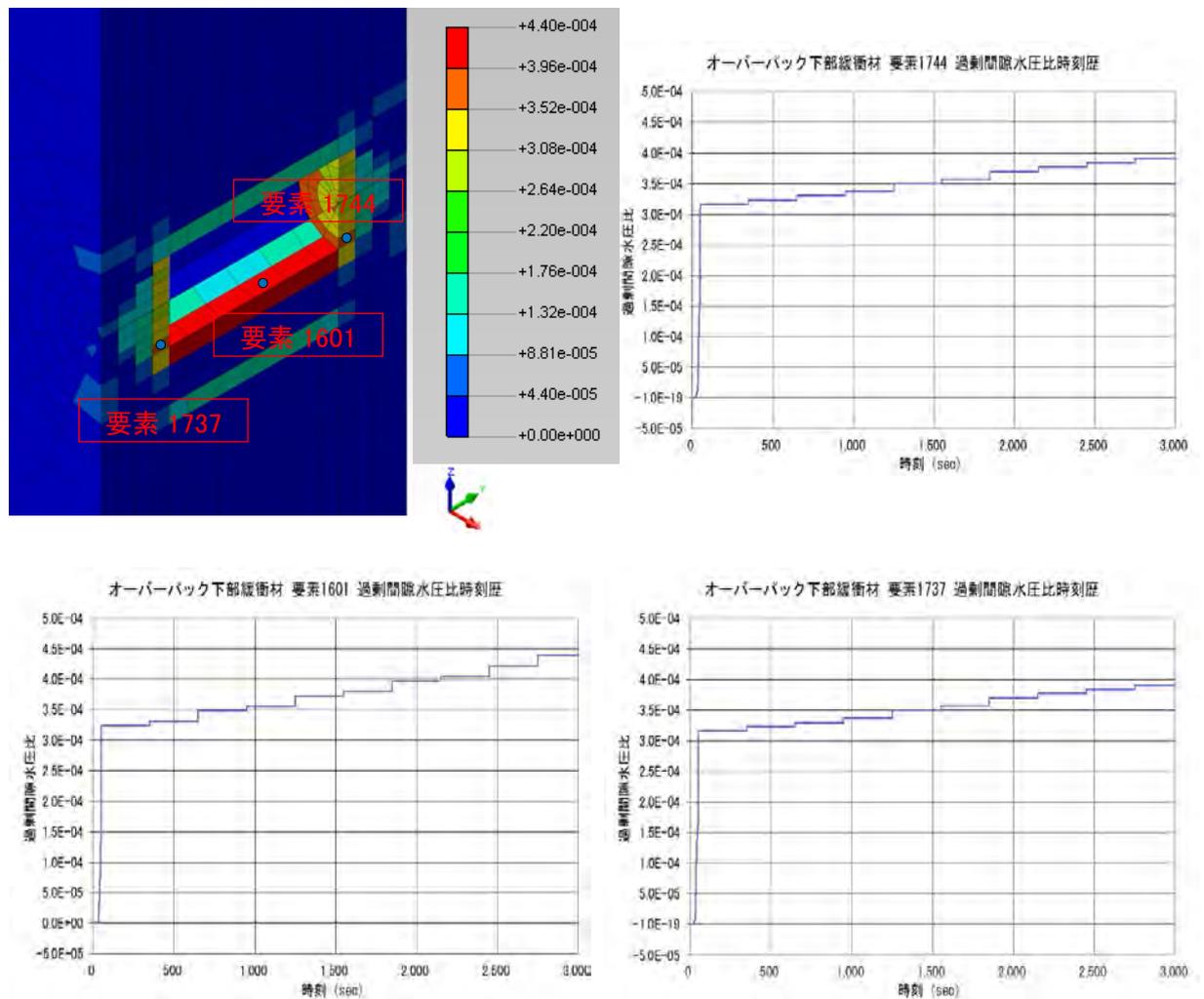


図4.3.3-71 過剰間隙水圧比の時刻歴図

4) 個別要素法モデルを用いた地震動による人工バリア影響解析

①はじめに

廃棄体を定置した直後、緩衝材は乾燥した脆い状態であり、巨大地震による振動でオーバーバックは緩衝材を破砕し、緩衝材内を沈降することにより岩盤と接触し早期にオーバーバックの腐食速度が大きくなる可能性がある。そのような挙動を評価するため、物質の移動を流動的に扱うことができる個別要素法 (Distinct Element Method, Cundall, 1979; Potyondy, 2004) を用いた人工バリアの振動影響解析を試行した。個別要素法は粒子の集合体によりモデルを表現し、粒子間に作用する力をバネで表現している。図4.3.3-72に本解析で用いた個別要素法モデルの概念図を示す。この図は粒子が上下に二つ並んだ状態の接触箇所を拡大したものである。

個別要素法は、もともと土や砂、粉体のような粒状体の変形等の挙動に対する解析手法であっ

たが、要素間に引張力を導入するなど粒子間の結合方法を変更することにより様々な性状のモデルを表現することができるようになっている (Shimizu, 2010)。

②解析条件

本解析では、図4.3.3-73に示すように、振動を与えた際の人工バリアにおけるオーバーパックの挙動について評価を行った。ここでは、緩衝材は全て粒状体であると仮定した。緩衝材は約2,000個の粒子で、オーバーパックは単体の粒子で表現した。解析には2次元個別要素法解析ソフトウェアPFC2D (Itasca Consulting Group Inc., 2014) を使用した。

粒子に与えたバネ定数 k は以下の式で求めた。

$$k = E \cdot A / L \quad \text{-----式 (4.3.3-4)}$$

ここで E はヤング率、 A は粒子結合断面積、 L は結合している2つの粒子の中心間距離である。表4.3.3-21に解析で用いたパラメータ値を、表4.3.3-22に粒状体の形状及び計算条件をそれぞれ示す。

岩盤を緩衝材の周囲を取り巻く円で表現し、その円全体を図4.3.3-74 (速度時刻歴波形) に示す振動のうち、特に振れの激しい95秒間のデータを用いて左右に動かした。

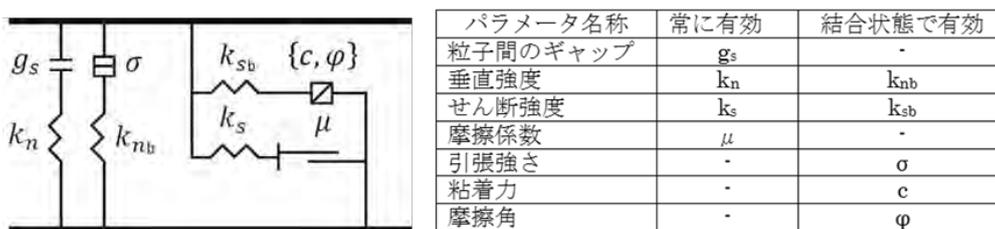


図4.3.3-72 本解析で用いた個別要素法モデル概念図

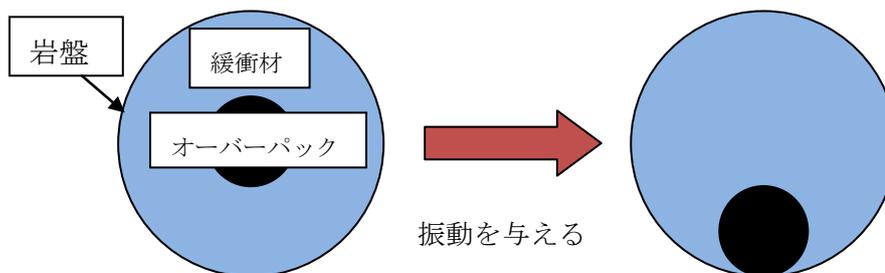


図4.3.3-73 オーバーパックの沈降挙動解析の概念図

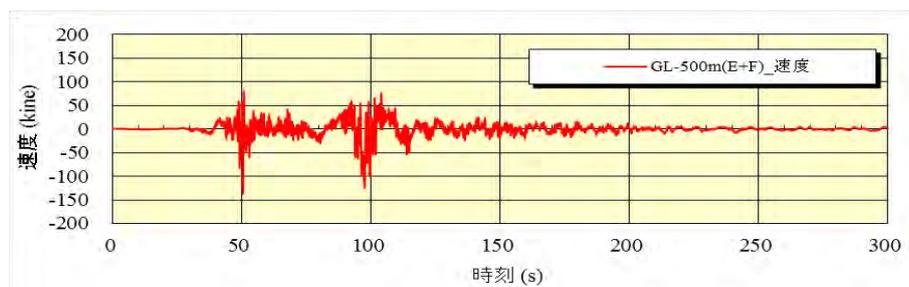


図4.3.3-74 GL-500mにおける速度時刻歴波形

表4.3.3-21 地震動影響解析モデルで設定したパラメータ

項目		値
岩盤粒子	ヤング率 (法線方向)	3.7×10^{10} N/m
	ヤング率 (接線方向)	2.59×10^{10} N/m
緩衝材粒子	乾燥密度	0.80 Mg/m ³
	ヤング率 (法線方向)	4.0×10^6 N/m
	ヤング率 (接線方向)	2.8×10^6 N/m
オーバーパック	密度	7.80 Mg/m ³
	ヤング率 (法線方向)	2.0×10^{11} N/m
	ヤング率 (接線方向)	2.0×10^{11} N/m

表4.3.3-22 個別要素法モデル形状及び計算条件

寸法	岩盤	半径1.1mの円
	緩衝材	半径1.1mの円の内部
	模擬オーバーパック	半径0.41mの円
	緩衝材粒子数	2,000~2,400
	緩衝材粒子半径	18~22mm
	摩擦係数	0

岩盤及びオーバーパックのパラメータの値は、平成26年度の個別要素法の解析で使用したものである。緩衝材の値は、過去の緩衝材振動挙動解析（谷口，1999）の文献から引用した。

計算に用いるパラメータを変化させて計算した結果、オーバーパックの沈降に関しては粒子間の摩擦を考慮しない場合、緩衝材粒子周りの空隙の占める割合が0.1ではほとんど沈降せず、0.2では早期に岩盤と接触することから、空隙の占める割合の影響が大きいことが分かったため、空隙の占める割合を変化させ、オーバーパックが岩盤に接触する条件を探した。

③解析結果

図4.3.3-75に、緩衝材領域における空隙の占める割合を0.1から0.2の間で変化させた場合のオーバーパックの挙動を示す。なお、図に示す軸については、各空隙の占める割合に応じて、振動挙動が大きく異なるため、オーバーパックの中心位置と計算ステップ数を最適なスケール表示とした。赤いグラフの縦軸はオーバーパックの中心位置(m)であり、-0.69mで岩盤と接触することとなる。横軸は計算ステップ数で、100万ステップが10秒に相当する。どのケースも初期の数秒間である程度沈降する。空隙の占める割合が0.1の場合は初期に5cm程度沈降しその後は変わらないため、これが安定した状態でこれ以上振動させても沈降しないと思われる。空隙の占める割合を大きくしていくと沈降する距離も大きくなり、0.14では岩盤まであと緩衝材粒子1層分まで沈降するが、この状態で安定になり、緩衝材粒子をかき分けて沈降することはできない。0.15ではオーバーパックに押し出された緩衝材粒子が移動する先の空隙を作りやすくなり、15秒程で岩盤に接触する。0.2では7秒程で岩盤に接触し、上部には比較的大きな空隙も現れている。

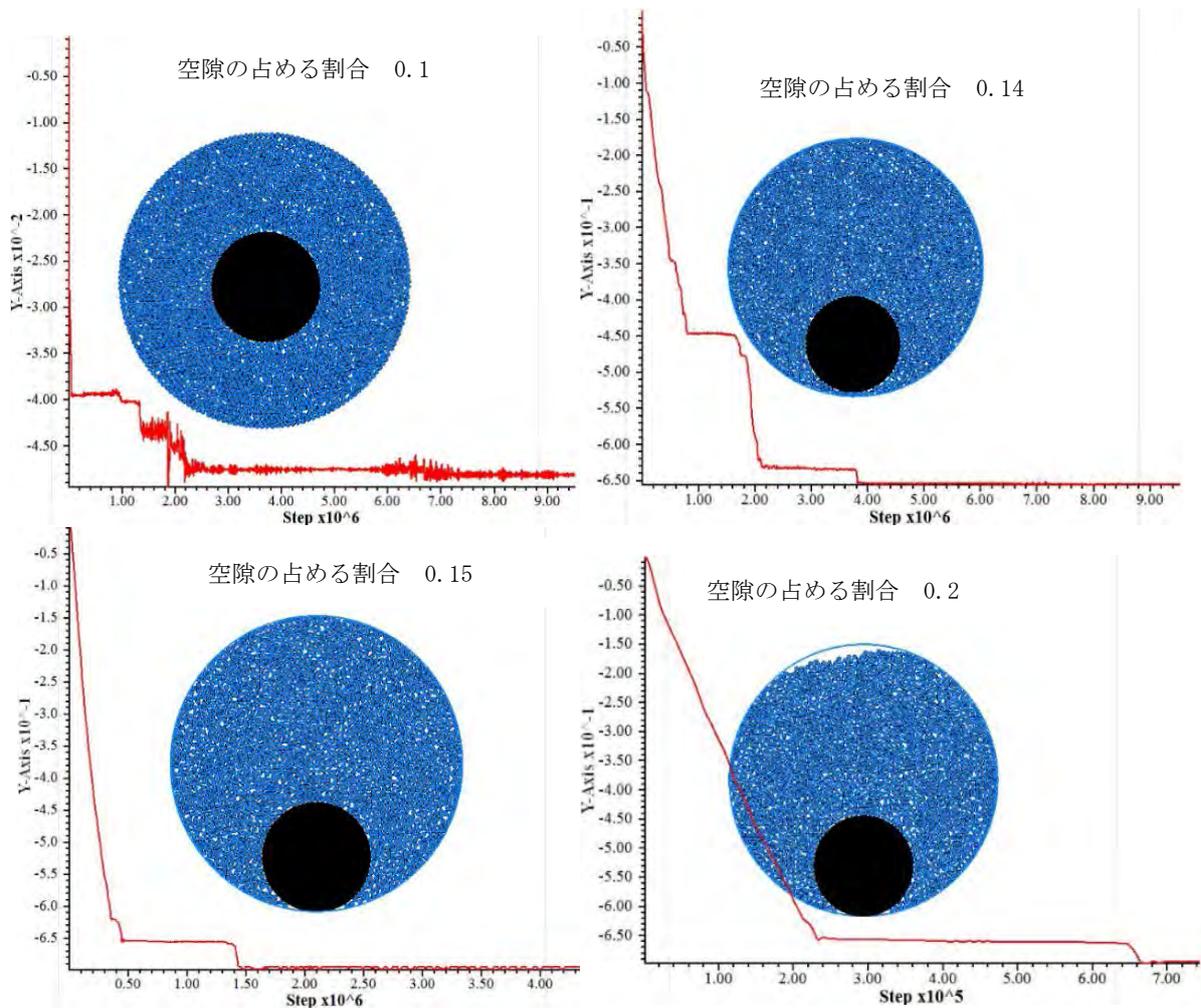


図4. 3. 3-75 個別要素法によるせん断影響解析結果例
(模擬オーバーパックと岩盤の接触時)

5) 地震応答解析の最新動向の調査

人工バリアに対する振動影響を評価するため、市販ソフトウェア等に関する現状及び技術的課題、最新の動向や技術的知見について調査、関連する資料の収集と整理を行った。

地震応答解析として特に液状化解析が実施可能な市販ソフトウェア（市販の解析コード）を中心として調査した。関連する資料一式は巻末資料にまとめた。その中から幾つかの解析コードについてその概要や特徴を整理した。この整理では、解析コードの概要をまとめると共に、次の点について比較した。

① 解析次元

解析可能な空間の次元。

② 商用の有無

商用コードとして一般的に入手可能であるか。

③ 解析手法

離散化の解析手法として、どのような手法が使われているか。

④ 大変形問題

解析コードが大変形問題を扱うことが可能な解析コードであるか。

① 大変形問題の扱い

構造物の問題は、線形問題と非線形問題に大別できる。線形問題は、支配方程式となる線形方程式の解を求めるため、比較的容易な計算となる。一方で非線形問題は、支配方程式が非線形となることから、ニュートン法や増分法等の非線形問題用の解法を適用して解くため、比較的計算に時間を要する。

非線形問題で扱う非線形性は「構造体の材質に起因するもの」と「構造体の幾何学的形状変化に起因するもの」とに分けられ、前者を「材料非線形」、後者を「幾何学的非線形」と呼ぶ。

材料非線形としては、塑性問題や粘性問題等が挙げられる。構造物の形状や負荷する荷重が複雑であれば、構造体は非線形な変形を呈する。したがって、材料非線形が一般的な解釈となるが、材料線形問題による近似でも十分に役立つとして材料線形問題として扱われる場合も多い。荷重と変位の応答関係において、扱う材料の構成則が応力 - ひずみ関係を規定する一方で、荷重 - 応力、ひずみ - 変位の関係は、構造物の変形量に依存する。

ここでは、幾何学的非線形の考え方を基に、解析コードにおける大変形問題の扱いについて解説する。

a. 幾何学的非線形

幾何学的非線形については、構造物の変形（変位）の規模が微小で、荷重 - 応力、ひずみ - 変位の関係を線形問題として近似できるか否かで決まる。前者の場合を「微小変形問題」、後者の場合を「大変形問題」と呼ぶ。大変形問題はさらに、ひずみが微小であるか否かで、「微小ひずみ問題」及び「大ひずみ問題」に分けられる。

大変形で微小ひずみとなる場合とは、ひずみは微小であっても、その累積で生ずる変位が大きくなる場合が挙げられる。

大変形で大ひずみとなる場合とは、ひずみが微小ひずみでは近似し得ないほど大きい場合となる。

b. 解析コードにおけるひずみの扱い

多くの解析コードにおけるひずみの扱いとしては、「微小変形問題」を前提としている。この前提により、変形による影響を釣り合い式に導入しないことから、計算がより簡略化できるという大きな利点がある。

一方で、「大変形問題」を前提としている解析コードもある。大変形問題の解法として用いられている手法としては「Total Lagrange法」と「Updated Lagrange法」がある。

これらの手法では、微小変形問題とは異なり、変形による影響を釣り合い式に考慮している。微小変形問題を前提としている解析手法では、座標系が空間に固定されていて物体が変形しても要素が変形しない「Euler座標」が使用されている。それに対して大変形問題を前提としている解析手法では、要素が変形する前または要素が変形した後に占める座標位置を規準として要素が移動・変形することで物体の変形を表す「Lagrange座標」が使用されている。

変形前の座標系（基準配置）に基づいて定式化を行うのが「Total Lagrange法」となり、変形後の座標系（現配置）に基づいて定式化を行うのが「Updated Lagrange法」となる。両手法は理論的には等価で、一方から他方を導出することも可能となっている。

大変形の弾塑性問題では、Cauchy応力（荷重変化による断面積の変化を考慮した断面積で割った応力で真応力とも言う）で弾性変形を規定する構成則を用いる場合が多く、この場合の応力は応力速度の積分値として評価されるので、Updated Lagrange法で直接内力を計算するほうがプログラム上は効率的となる。

両手法を使った解析結果の比較の一例では、岸壁や盛土構造物といった種々の断面に対して両手法を適用して変形量や過剰間隙水圧比等を比較した結果、数値解析的にも両手法が等価であることが確認されている。

以上の観点を基に、解析コードを整理した。多くのプログラムでFEMが使われていて、その前提条件は「微小変形問題」となっている。「大変形問題」を扱えるのは、「FLIP TULIP」（一般社団法人FLIPコンソーシアム, 2015）と「FLAC」（中川ほか, 2008）で、現時点で3次元問題まで扱えるのは「FLAC」となっている。「FLIP TULIP」はFEMで、「Total Lagrange法」と「Updated Lagrange法」の2種類の定式化法を使用している。一方、「FLAC」はFDMで、「Updated Lagrange法」のみを使用している。

②大規模解析について

現在、地震応答解析を含む統合地震シミュレーション(Integrated Earthquake Simulation: IES)（市村ほか, 2006）により、地震発生・構造物応答・災害対応の3過程をシームレスに計算するシステムが構築されつつある。IESは、次の4つから構成される。

- ・ GIS/CAD データ等の都市デジタルデータから構築された仮想現実都市
- ・ 断層から地表までの地震動の生成過程を解析する高分解能地震動シミュレータ
- ・ 鋼構造・コンクリート構造・土構造・建築構造物などの構造物応答をシミュレーションする解析ツール
- ・ 人の動きなどを踏まえた災害シミュレータ

IESでは、地震断層の震源域から構造物の形状を詳細にモデル化した都市領域までを対象に計算を行うことから、ハイパフォーマンスな数値計算が必要となる。そのため、スーパーコンピュータを用いてMPIを使った並列計算を行っている。

このシステムにおける地震応答解析では、地震断層から地震が発生する状況を計算することから始まって、構造物の地震応答の計算をシームレスで実行することが大きな特徴となる。地震応答解析自体は、3次元非線形FEMを用いて計算する（堀ほか, 2014）。

現在までにIESのプロトタイプが完成しており、地震時の断層の破壊から各構造物の特性を反映

させた応答解析や被害状況推定などの震災シミュレーションの開発が行われている。また、洪水や火山噴火のシミュレーションを組み込むことで、自然災害一般の防災にIESの応用が検討されている。

4.4 まとめ

4.4.1 地層処分システムにおける過酷事象の概念構築

地層処分システムにおける過酷事象の評価手法を高度化することを目的として、地層処分及び社会学の分野の専門家によるワークショップで得られた意見を踏まえ、トップダウン型のアプローチの位置付けを明確にしたうえで、平成26年度までに具体化した地層処分システムの過酷事象の検討フローを改良した。また、包括的懸念事項リストについては、試行を通じて単一/複合/機能共鳴といった複数の観点から記録できるように構造を具体化した。さらに、トップダウン型のアプローチに着目し、基準の設定、過酷事象となる条件の分析及びシナリオ探索の試行結果を提示した。また、地層処分の特徴である地下環境の頑健性を分析するため、ガラス固化体が地上にある状況とガラス固化体が地下ある状況を対象として、相対的な比較の考え方を整理した。

以上の検討を踏まえ、地層処分システムにおける過酷事象概念に関わる評価フローを実用的なものとするためには、今後、包括的懸念事項リストに掲載した発端事象に対するFEPカタログの構築、包括的懸念事項リストに掲載すべき単一事象の拡充や複合事象の取扱い方法の具体化、ボトムアップ型のアプローチの観点から具体化した方法論に対する一連の試行（上流から下流までの一連の手順を試行すること）及びトップダウン型のアプローチに着目した方法論に対する事例の拡充に取り組む必要がある。

4.4.2 巨大地震・断層活動を事例とした評価技術開発

(1) 巨大地震・断層活動によるシナリオの検討

平成26年度までに開発した地震・断層活動を対象としたシナリオ構築の手順に、安全機能の定量的な分析、影響の大きなシナリオ（たとえば被ばく線量が100mSvを超える）が発生するかどうかを判断するために着目すべき安全機能の劣化・喪失（あるいはその原因となるプロセス）（以下、「シナリオ分岐」という）の抽出、及び各分岐の発生条件の確認を追加するとともに、この手順を試行した。今後も、構築した手順に従った試行例の拡張を行い、本手法の実用性を高めていく予定である。

(2) 巨大地震・断層活動による地質環境への影響に関するデータ

1) 岩盤ひずみの変化に伴う地下水流動の変化

巨大地震・断層活動に伴う地質環境への影響に関するデータとして、東北地方太平洋沖地震を事例に原位置で観測されている岩盤ひずみ、弾性波、間隙水圧データへの影響について検討した。岩盤ひずみは、東北地方太平洋沖地震発生後に伸縮方向が反転し、以降その傾向が継続していることが確認された。弾性波の初動到達時間変化(DTT)は、地震時に伸張側に変化した後、収縮傾向にあることが確認された。間隙水圧は、地震時の変化よりも季節変動が大きいことが確認された。また、理論値から推定した観測点における地震時の応力は、観測点周辺岩盤の岩片の引張強度を

下回っていることが分かった。これらの知見は、巨大地震・断層活動に伴う岩盤ひずみの変化が地下水流動への影響の可能性が低いことを示唆し、シナリオに基づく地層処分システムへの影響評価解析に資すると考えられる。また、非破壊的に岩盤状態の計測が可能な弾性波観測システムを活用した巨大地震の影響評価手法について検討を行い、適用性の見通しが得られた。

2) 深部流体の流入に伴う地下水の温度・水質の変化

巨大地震・断層活動に伴う地質環境への影響に関するデータとして、各地の温泉等で観測された地下水の化学組成及び水温データをもとに、内陸地震の発生前後における化学場と温度場の変化や、断層を通じた深部流体流入の可能性について検討した。また、シナリオに基づく地層処分システムへの影響評価解析に資する情報として、深部流体の化学的性状に関するデータの取得を行った。その結果、東北地方太平洋沖地震後に発生した内陸地震に関する事例では、それらの活動に伴って明らかに深部流体が流入したことを示すデータは認められなかった。一方で、日本列島全域における活断層と地下水・遊離ガスのヘリウム同位体には関連性がみられ、地殻内に形成された断層が深部流体などのマントル起源物質を地表付近に流入させる通路となる可能性が示唆された。さらに、非火山性の深部流体は、それ以外の地下水に比べて HCO_3^- 濃度が非常に高く高温である傾向を示した。これらの知見は、断層のずれに伴う透水性の増加が生じた場合に高温で炭酸化学種に富む深部流体が流入する可能性を示唆し、シナリオに基づく地層処分システムへの影響評価解析に資すると考えられる。

(3) 巨大地震・断層活動による処分場への影響評価手法の開発

1) 断層のずれが人工バリアに与える影響

断層のずれが人工バリアに与える影響評価手法の開発として、断層のずれによるオーバーパックと岩盤の衝突を想定した人工バリアせん断模型試験に向けた予備試験を実施した。その結果、せん断後の試験体の状態を保持したままX線CT測定を行えるような試料押し治具及び試料ホルダーを使用することで、せん断後の試験体の内部状況が観察できることを確認した。今後、せん断変位量の設定値と実せん断変位量の関係を把握するとともに、せん断過程で模擬オーバーパックに生じる応力の計測方法の開発を行う。

また、断層のずれが人工バリアに与える影響評価手法の開発として、3次元モデルによる非線形大変形衝突解析手法を開発した。今後、過去の最大級のせん断すべり速度の評価を行い、断層シナリオ分岐の判断に関する知見について整備を行う。

2) 断層起源ガスが地下水流動場や地層処分システムに与える影響

巨大地震・断層活動に伴う地下に賦存するガスの放出、高速すべり断層運動に伴って発生する断層起源ガス等の大規模なガスの放出や移行により、地層処分システムに与える影響を評価することを目的とし、断層シナリオの性能評価に用いるパラメータ（緩衝材からの押し出し流量など）を明確化するための解析を行った。解析の結果、断層起源ガスの流入によるガス相圧力の上昇がみられ、全てのケースにおいて埋め戻し部、緩衝材及び岩盤において、ガスフラクチャリングを起こすことが示唆された。また、流出側に断層が存在する場合は、緩衝材に到達したガスは、周辺の断層を伝って移動するため、緩衝材からの押し出し流量はみられなかった。今回の影響評価解析では、Hirose et al. (2011)の実験結果から断層運動に伴う水素ガスの発生量を推定したが、

断層起源ガス発生については、未だ不確実な面もあることから、今後の更なる研究の進展に期待すべき点が多い。

3) 地震動による地下施設（支保工）の破壊

地震動による地下施設（支保工）の破壊に伴う透水性の増加によりクリティカルパスを形成する可能性を評価するため、2011年東北地方太平洋沖地震後に制定された新規制基準や、新規制基準に基づく適合性審査資料等に基づいて、基準地震動の策定方法を検討し、その結果に基づいて幌延深地層研究センターの地下施設を例として基準地震動を策定し、影響評価を実施した。その結果、耐専式による包絡応答スペクトルを基準地震動とした場合、内空断面形状は維持されるが、アスペリティの応力降下を1.5倍とした基準地震動の場合、設計基準強度を超える応力が発生し支保工が破壊されることが確認された。今後、本手法を用いて基準地震動の策定し、坑道の埋め戻した後の人工バリアへの影響を評価する必要がある。

4) 地震動が人工バリアに与える影響

地震動により廃棄体が母岩と接触し緩衝材の安全機能が機能しない可能性を評価するため、処分場閉鎖後の人工バリアを対象として、緩衝材の繰返し非排水三軸試験により動的強度特性パラメータを設定し、人工バリアと周辺岩盤の3次元非線形地震応答解析（有効応力）を実施した。入力地震波は、2011年東北地方太平洋沖地震波より振幅を補正しGL-500mに引戻した平成26年度モデル地震波を10回繰返したものを設定した（300秒×10回）。解析の結果、過剰間隙水圧比は緩衝材全体にわたり0.1%以下であり、地震時におけるオーバーパックと軟岩系岩盤掘削面との離隔の変化量は最大で1mm以下であった。このことから、想定地震における緩衝材への影響は微少であり、緩衝材の健全性は保たれるものと推察された。今後、3) で開発した手法を用いて基準地震動の策定し、坑道の埋め戻した後の人工バリアへの影響を評価する必要がある。

参考文献

- Abaqus(2014) : Abaqus finite element system, Dassault Systèmes Simulia Corp., Providence, RI, USA.
- 朝倉俊弘, 志波由紀夫, 松岡茂, 大矢敏雄, 野城一栄 (2000) : 山岳トンネルの地震被害とそのメカニズム, 土木学会論文集, No. 659/Ⅲ-52, 27-38.
- Bernard, P. (2001) : From the search of ‘precursors’ to the research on ‘crustal transients’, Tectonophysics, Vol. 338, pp. 225-232.
- 防災科学技術研究所(2015) : K-Net, KiK-Netデータ.
<http://www.kyoshin.bosai.go.jp/kyoshin/quake/>
- Cundall, P. A. and Strack, O. D. L. (1979) : A discrete numerical model for granular assemblies, Geotechnique, 29, 1, pp. 47-65.
- 土木学会 (1926, 1927) : 大正 12 年関東大地震震害調査報告.
- 土木学会 (2005) : 土木学会 トンネル工学委員会 新潟県中越地震特別小委員会 報告書.
- 土木学会(2008) : 土木学会トンネル工学委員会 新潟県中越沖地震調査特別小委員会 報告書.
- 土木学会・原子力土木委員会・地下環境部会 (2001) : 概要調査地区選定時に考慮すべき地質環境に関する基本的考え方、2001年8月.
- FLIP TULIP(2015) : 一般社団法人FLIPコンソーシアム.
- 原子力発電環境整備機構(2009) : 放射性廃棄物の地層処分事業について～公募のご案内～,
<https://www.numo.or.jp/government/document/guide.html>
- 原子力安全基盤機構(2014a) : 基準地震動策定のための地震動評価手引き : 震源極近傍の地震動評価, 2014.
- 原子力安全基盤機構(2014b) : 震源を特定せず策定する地震動に係わる手引き, 2014.
- 原子力規制委員会(2013a) : 実用発電用原子炉及びその附属施設の位置, 構造及び設備の基準に関する規則 (平成二十五年六月二十八日原子力規制委員会規則第五号) , 2013.
- 原子力規制委員会(2013b) : 実用発電用原子炉及びその附属施設の位置, 構造及び設備の基準に関する規則の解釈.
- 原子力規制委員会(2013c) : 基準地震動及び耐震設計方針に係わる審査ガイド, 2013.
- 原子力規制委員会(2015a) : 福島第一事故を踏まえた震源極近傍の地震動評価の高度化, 平成26年度 事後評価調査票, 2015.
- 原子力規制委員会(2015b) : 新規制基準適合性に係る審査会合
https://www.nsr.go.jp/disclosure/committee/youshikisya/tekigousei/power_plants/html
- 原子力安全委員会 (2004) : 放射性廃棄物処分の安全規制における共通的な重要事項について (平成16年6月10日) .
- 平井卓, 棚井憲治, 菊池広人, 鈴木英明, 高治一彦, 大沼敏 (2003) : 断層ずれに伴う人工バリアの力学的挙動評価, JNC TN8400 2003-009.
- 廣野哲朗, 小村健太郎, 藤本光一郎, 伊藤久男, ジェームズモリジロウ, 佐藤比呂志 (2013) : 断層掘削研究によって明らかになった地震時の断層滑り挙動とその物理化学的側面, 地学

- 雑誌, Vol122, No.2, pp. 323-342.
- Hirose, T., Kawaguchi, S. and Suzuki, K. (2011): Mechanoradical H₂ generation during simulated faulting : implications for an earthquake-driven subsurface biosphere, Geophysical Research Letters, VOL. 38, L17303, doi:10.1029/2011GL048850, 2011.
- Hollnagel, Erik(2012): FRAM: The Functional Resonance Analysis Method: Modelling ComplexSocio-technical Systems, Ashgate.
- 堀, 浅井 : (2014)都市全域の地震等都市災害シミュレーションに関する研究—都市の地震・津波応答シミュレーション—、JAMSTEC戦略プログラム分野3成果報告会.
- 市村, 堀, 篠竹: (2006):総合地震シミュレーションと地域防災への応用, 第1回防災計画研究発表.
- ICRP (1998): Radiation Protection Recommendations as Applied to the Disposal of Long-lived Solid Radioactive Waste, ICRP Publication 81, Annals of ICRP, vol. 28, no. 4, 25p., ISBN 008-043-8598.
- ICRP (2002): Basic Anatomical and Physiological Data for Use in Radiological Protection Reference Values, ICRP Publication 89, Annals of the ICRP, 32, (3-4).
- ICRP (2007): The 2007 Recommendations of the International Commission on Raiological Protection, ICRP Publication 103, Annals of the ICRP, 37, (2-4).
- ICRP (2013): Radiological protection in geological disposal of long-lived solid radioactivewaste, ICRP Publication 122, Annals of the ICRP, vol.42, no.3, 57p., ISBN 978-0-7020-5505-8.
- Iio, Y., Sagiya, T., Kobayashi, Y. and Shiozaki, I. (2002) : Water-weakened lower crust and its role in the concentrated deformation in the Japanese islands, Earth Planet. Sci. Lett., Vol.203, pp.245-253.
- 池田俊雄, 岡田勝也, 池田研一, 長谷川達也 (2000):活断層調査から耐震設計まで, 鹿島出版会, pp.56~57.
- Inagaki, Y., Makigaki, H., Idemitsu, K., Arima, T., Mitsui, S., and Noshita, K. (2012): Initial dissolution rate of a Japanese simulated high-level waste glass P0798 as a function of pH and temperature measured by using micro-channel flow-through test method, Journal of Nuclear Science and Technology, 49, 438-449.
- Itasca Consulting Group Inc. (2014): PFC 5.0 Online Manual.
- JCOLD(2014) : Acceralation records on dams and foudations No.3, Japan Comission on Large Dams, 2014.
- 地盤工学会阪神大震災調査委員会(1996) : 阪神・淡路大震災調査報告書(解説編) .
- 地震調査研究推進本部(2014) : 全国地震動予測地図 2 0 1 4 年版~全国の地震動ハザードを概観して~.
- 地震調査推進本部(2007) : サロベツ断層帯の長期評価.
- J-SHIS(2015) : <http://www.j-shis.bosai.go.jp/>
- (株)日建設計(2005) : 幌延深地層研究計画 地下施設実施設計 - 設計報告書 -, JNC TJ5410 2005-002, 2005.

- 科学技術庁(2000) : 平成十二年科学技術庁告示第五号.
- 核燃料サイクル開発機構(1999a) : わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性—地層処分研究開発第2次取りまとめ—分冊1 わが国の地質環境, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN1400 99-021.
- 核燃料サイクル開発機構(1999b) : わが国における高レベル放射性廃棄物 地層処分の技術的信頼性—地層処分研究開発第2次取りまとめ— 分冊2 地層処分の工学技術, サイクル機構技術資料, JNC TN1400 99-022.
- 核燃料サイクル開発機構(1999c) : わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性—地層処分研究開発第2次取りまとめ—分冊3.
- 核燃料サイクル開発機構(1999d) : わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性 —地層処分研究開発第2次取りまとめ— 別冊 地層処分の背景.
- 原子力発電環境整備機構概要調査地区選定上の考慮事項の背景と技術的根拠—「概要調査地区選定上の考慮事項」の説明資料—, NUMO-TR-04-02 (2004).
- 川上博人(2010) : 余裕深度処分・浅地中処分に関する安全研究の展望について, 「安全研究フォーラム2010」—放射性廃棄物処分に係る安全規制及び安全研究の展望—, 内閣府原子力安全委員会・文部科学省・経済産業省原子力安全保安院.
- 風早康平, 高橋正明, 安原正也, 西尾嘉朗, 稲村明彦, 森川徳敏, 佐藤 努, 高橋 浩, 北岡豪一, 大沢信二, 尾山洋一, 大和田道子, 塚本 斉, 堀口桂香, 戸崎裕貴, 切田 司(2014) : 西南日本におけるスラブ起源深部流体の分布と特徴, 日本水文科学会誌, Vol. 44, pp. 3-16.
- 経済産業省 総合資源エネルギー調査会 電力・ガス事業分科会 原子力小委員会 原子力の自主的安全性向上に関するワーキンググループ(2013) : 総合資源エネルギー調査会基本政策分科会 第1回会合 資料1 平成25年7月.
- 経済産業省 総合資源エネルギー調査会 電力・ガス事業分科会 原子力小委員会 原子力の自主的安全性向上に関するワーキンググループ(2014) : 原子力の自主的・継続的な安全性向上に向けた提言、平成26年5月.
- 経済産業省 総合エネルギー調査会 電力・ガス事業分科会 原子力小委員会 地層処分技術ワーキンググループ(2014) : 最新の科学的知見に基づく地層処分技術の再評価—地質環境特性および地質環境の長期安定性について—.
- 建設コンサルタント協会中国支部(2000) : 鳥取県西部地震被災調査報告書.
- 建設省土木研究所(1982) : 地盤の地震時応答特性の数値解析法 —SHAKE : DESRA—, 土研資料 No1778号, 1982.
- Kaplan, M., Visnepolschi, S., Zlotin, B., and Zusman, A. (1999) : New Tools for Failure and Risk Analysis Anticipatory Failure Determination (AFD) and the Theory of Scenario Structuring, Ideation International Inc.
- King, C. L., Zhang, W. and Zhang, Z. (2006) : Earthquake induced groundwater and gas changes, Pure Appl. Geophys., Vol. 163, pp. 633-646.
- 気象庁(2015) : 震度データベース検索,

<http://www.data.jma.go.jp/svd/eqdb/data/shindo/index.php>

- Kitano, Y., Yoshioka, R., Okuda, F. and Kazuo, K. (1967) : Geochemical study of ground waters in the Matsushiro area. Part 1: Chemical composition of ground waters, Bull. Disas. Prev. Res. Inst., Vol.17, pp.47-71.
- 国立天文台水沢 (1989) : 江刺地球潮汐観測施設における地殻変動連続観測, 地震予知連絡会会報第42巻PP. 66-69.
- 熊澤峰夫, 國友孝洋, 横山由紀子, 中島崇裕, 鶴我佳代子(2000) : アクロス・理論と技術開発および将来展望, サイクル機構技報, No. 9, pp.115-129.
- 黒澤進 (2005) : 高レベル放射性廃棄物地層処分システムにおける核種移行評価に及ぼすコロイド影響に関する研究 -第2次取りまとめ以降の検討-, サイクル開発機構技術資料, JNC TN8400 2005-007.
- 草野友宏, 浅森浩一, 梅田浩司 (2012) : 日本列島における地下水・温泉ガスのヘリウム同位体比データベースの作成, 日本原子力研究開発機構, JAEA-Data/Code 2012-017.
- 前田一人, 内川高志, 河原憲一, 鴨 和彦, 重 隆司, 中村和博, 瀬戸口貞幸 (1999) : オーバーパックの構造健全性に関する研究, JNC TJ8400 99-050.
- 宮林ほか (2011) : 小土被り山岳トンネル覆工の耐震性能と耐震設計手法に関する基礎的研究, 土木学会論文集F1(トンネル工学) , Vol167, No. 2, 126-143.
- 文部科学省(2012):放射線を放出する同位元素の数量等を定める件(平成十二年科学技術庁告示第五号) , 文部科学省告示第五十九号, 最終改正 平成二十四年三月二十八日.
- 村井勇, 角田信子, 辻村芳子 (1978) : 1978年伊豆大島近海地震の被害・震度と地震断層, 地震研究所彙報, Vol. 53, pp. 1025-1068.
- 中川光雄, 山田正雄(2008) : 有限差分法・大変位解析による地すべりシミュレーションの適用性, 日本地すべり学会誌, Vol. 44, No. 6 (2008) , pp. 377-384.
- 仲島邦彦, 小尾繁, 蛭名貴憲, 江橋健, 稲垣学 (2009) : GoldSimによる第2次取りまとめレファレンスケースの安全評価モデルの構築, JAEA-Data-Code-2009-009.
- 中村一明 (1971) : 松代地震から学んだこと一手に入れた地震制御へのデーター, Vol. 10, pp. 127-133.
- Nanjo, K. Z., Hirata, N., Obara, K. and Kasahara, K. (2012): Decade-scale decrease in b value prior to the M9-class 2011 Tohoku and 2004 Sumatra quakes, Geophys, Res, Lett., doi:10.1029/2012GL052997, 2012.
- NAS (2001) : Disposition of High-Level Waste and Spent Nuclear Fuel - The Continuing Social and Technical Challenge.
- National Astronomical Observatory of Japan (1989): Annual Report of Geophysical Observations made at the National Astronomical Observatory, March 1.
- 日本原子力学会 (2013) : 日本原子力学会標準 浅地中ピット処分の安全評価手法 : 2012, AESJ-SC-F023:2012.
- 日本原子力学会 (2014) : 日本原子力学会標準 外部ハザードに対するリスク評価方法の選定に関する実施基準 : 2014, AESJ-SC-RK008:2014.

- 日本原子力研究開発機構 (2014) : 平成25年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証
技術開発 報告書.
- 日本原子力研究開発機構 (2015) : 平成26年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証
技術開発 報告書.
- 日本原子力研究開発機構 (2013) : 緩衝材基本特性データベース,
<https://bufferdb.jaea.go.jp/bmdb/>
- 日本水道協会 (1996) : 水道統計、平成6年度.
- OECD/NEA (1982): Disposal of Radioactive Waste, An Overview of Principles Involved 1982.
- OECD/NEA (1985): The Environmental and Ethical Basis of Geological Disposal, A Collective
Option of the NEA RWMC.
- OECD/NEA (2002) : Features, Events and Processes (FEPs) for Geologic Disposal of Radioactive
Waste: An International Database.
- OECD/NEA (2006a): The NEA International FEP Database, Version2.1 (electronic version).
- OECD/NEA (2006b): The Roles of Storage in the Management of Long-lived Radioactive Waste.
- OECD/NEA (2008): Moving Forward with Geological Disposal of Radioactive Waste.
- OECD/NEA (2012): Reversibility of Decisions and Retrievability of Radioactive Waste,
Considerations for National Geological Disposal Programmes, Radioactive Waste
Management.
- 奥澤 保, 塚原弘昭 (2001) : 松代群発地震地域に湧出する深層地下水, 地震 第2輯, Vol. 53,
pp. 241-253.
- 大竹政和 (1976) : 松代地震から10年, 科学, Vol. 46, pp. 306-313.
- Osawa, H., Hioki, K., Umeki, H., Takase, H. and McKinley, I. (2009) : Use of the safety
case to focus KMS applications, Proceedings of the 12th International Conference
on Environmental Remediation and Radioactive Management ICEM' 09, 2009.
- 尾山洋一, 高橋正明, 塚本 斉, 風早康平, 安原正也, 高橋 浩, 森川徳敏, 大和田道子, 芝原暁
彦, 稲村明彦 (2011) : 日本列島の非火山地域における深層地下水水質と地質との関係
について, 原子力バックエンド研究, Vol. 18, pp. 25-34.
- Potyondy, D. O. and Cundall, P. A. (2004) : A bonded- particle model for rock, International
Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences, Vol. 41, pp. 1329-1364.
- Pusch, R., Ranhagen, L., Nilden, K. (1985): Gas migration through Mx-80 bentonite, Nagra
Tech. Rep., NTB-85-36, 1985.
- 斎藤雄也, 棚井憲治, 菊池広人, 平井卓, 西村繭果 (2008) : 断層ずれに伴う人工バリアの力学
的挙動評価 (II) , JAEA - Research 2008-010.
- 櫻井春輔, 北村泰寿, 芥川真一, 中山昭彦 (1995) : トンネル・地下構造物, 阪神・淡路大震災 -
新生神戸の復興を目指して-
- 櫻井孝 (1999) : 北伊豆地震(1930年)による丹那トンネル内地震断層出現状況記録, 応用地質,
第39巻, 第6号, 540-544頁.
- Salah, M. K. and Zhao, D. (2003) : 3-D seismic structure of Kii Peninsula in southwest Japan:

- evidence for slab dehydration in the forearc, *Tectonophysics*, Vol. 364, pp. 191-213.
- 産業技術総合研究所 (2012a) : 活断層データベース2012年2月28日版. 産業技術総合研究所研究情報公開データベースDB095, 産業技術総合研究所.
https://gbank.gsj.jp/activefault/index_gmap.html
- 産業技術総合研究所 (2012b) : 概要調査の調査・評価項目に関する技術資料－立地要件への適合性とその根拠となる調査結果の妥当性, 産業技術総合研究所地質調査総合センター研究資料集, No. 560.
- Sano, O., Mizuta, Y., Murakami, T., Tanaka, Y. (1997) : Sound Velocity as a Measure of Small Stress Change, *Rock Stress*, Balkema Publ., pp. 241-246.
- Shimizu, H. (2010) : Distinct element modeling for fundamental rock fracturing and application to hydraulic fracturing, PhD thesis, Kyoto University.
- 志水伸二, 谷口航 (1995) : 深部地下空洞および内部構造物の振動挙動に関する研究 (1), 動燃技術資料, PNC TN8410 95-099.
- 高治一彦, 谷口航 (1999) : 緩衝材の動的力学特性, サイクル機構技術資料, JNC TN8400 99-042.
- 田村良明, 三浦 哲, 太田雄策, 出町知嗣, 河野俊夫, 佐藤忠弘, 坪川恒也 (2013) : 江刺地球潮汐観測施設で観測された東北地方太平洋沖地震前後でのひずみ速度変化, 日本測地学会第120回講演会要旨.
- Tanai, K., Kanno, T., Galle, D. (1997) : Experimental study of gas permeability and breakthrough pressure in clays, *Symposium on the Scientific Basis for Nuclear Waste Management XX*, Boston. Materials Research Society, 1997.
- 棚井憲治, 藤田朝雄, 納多勝, 山本修一, 志村友行, 佐藤伸 (2013) : 岩盤中のガス移行挙動試験計画の立案 (その1), ガス移行挙動試験に用いる載荷ガス圧の設定, 第13回岩の力学国内シンポジウム, 2013.
- 田中義晴, 平田篤夫, 石田一成, 佐野修 (1995) : “釜石鉱山における弾性波速度の高精度測定手法の開発とその応用”, 第26回岩盤力学に関するシンポジウム講演集, pp. 539-543.
- 田中義晴, 稲葉力, 平田篤夫, 石田一成, 佐野修 (1997) : 原位置における高精度弾性波測定システムを用いた岩盤モニタリング技術の開発, *土木学会論文集*, Vol. III-38, No. 561, pp. 185-192.
- 谷口航, 高治一彦, 森康二, 御子柴正 (1999) : 深部地下空洞および内部構造物の振動挙動に関する研究 (2), サイクル機構技術資料, JNC TN8400 99-055.
- 谷口航, 高治一彦, 杉野弘幸, 森康二 (1999) : ニアフィールドの耐震安定性能評価, サイクル機構技術資料, JNC TN8400 99-054.
- 鉄道省熱海建設事務所 (1936) : 丹那隧道工事誌.
- Tosaka, H., Mori, K., Tada, K., Tawara, Y., and YAMASHITA, K. (2010) : A General - propose terrestrial fluids/heat flow simulator for watershed system management, *IAHR International Groundwater Symposium 2010*.
- 網田和宏, 風早康平, 森川徳敏, 大沢信二, 西村光史, 山田 誠, 三島壮智, 平島崇男 (2014) : 中央構造線沿いに湧出する高塩分泉の起源－プレート脱水流体起源の可能性についての

- 水文化学的検討一, 日本水文科学会誌, Vol. 44, pp. 17-38.
- 上田恵一, 宮腰勝義, 井上大榮 (2002) : 2000年鳥取県西部地震に伴う導水路トンネルの左横ずれ変位, 地震第2輯, 第54巻, 547-556.
- Umeda, K. and Ninomiya, A. (2009) : Helium isotopes as a tool for detecting concealed active faults, *Geochemistry Geophysics Geosystems*, Vol. 10, Q08010, doi:10.1029/2009GC002501.
- Umeda, K., Asamori, K., Makuuchi, A. and Kobori, K. (2014) : Earthquake doublet in an active shear zone, southwest Japan: Constraints from geophysical and geochemical findings, *Tectonophysics*, Vol. 634, pp. 116-126.
- Umeda, K., Ogawa, Y., Asamori, K. and Oikawa, T. (2006) : Aqueous fluids derived from a subducting slab: Observed high ^3He emanation and conductive anomaly in a non-volcanic region, Kii Peninsula southwest Japan, *J. Volcan. Geotherm. Res.*, Vol. 149, pp. 47-61.
- 梅田浩司, 谷川晋一, 安江健一 (2013) : 地殻変動の一様継続性と将来予測—地層処分—の安全評価の視点から—, 地学雑誌, 122, pp. 385-397.
- 宇津徳治 (1984) : 震度-震央距離-マグニチュードの関係その1, 東日本太平洋岸沖合を除く日本の浅発地震, 地震研究所彙報, 59, 219-233, 1984.
- 若杉圭一郎, 小尾繁, 柴田雅博 (2011) : 人工バリアシステムの安全機能の多重性に関する考察, JAEA-Research-2011-006.
- Wakita, H., Fujii, N., Matsuo, S., Notsu, K. and Takaoka, N. (1978) : “Helium Spots” : Caused by a Diapiric Magma from the Upper Mantle, *Science*, Vol. 200, pp. 430-432.
- Wakita, H., Nakamura, Y., Kita, I., Fujii, N. and Notsu, K. (1980) : Hydrogen release: new indicator of fault activity, *Science*, 210, 188-190, doi:10.1126/science.210.4466.188., 1980.
- Wells, D.L. and Coppersmith, K.J. (1994) : New empirical relationships among magnitude, rupture length, rupture width, rupture area, and surface displacement, *Bulletin of the Seismological Society of America*, Vol. 94, No. 4, pp. 974-1002, August 1994.
- 山科健一郎, 松田時彦, 有山智雄 (1985) : 1984年長野県西部地震による地変, 地震研究所彙報, Vol. 60, 249-279.
- 野城一栄 (2014) : 山岳トンネルの地盤変形による被害, 原子力土木委員会 断層変位評価小委員会講演会 講演資料.
- 野城一栄, 小島芳之, 新井泰, 岡野法之, 竹林次郎 (2009) : 圧縮破壊後の軟化を考慮した無筋コンクリート山岳トンネル覆工の数値解析手法に関する研究, 土木学会論文集C, Vol. 65, No. 4, 1024-1038.
- Yoshida, N., Kobayashi, S., Suetomi, I. and Miura, K. (2002) : Equivalent linear method considering frequency dependent characteristics of stiffness and damping, *Soil Dynamics and Earthquake Engineering*, Elsevier, Vol. 22, No. 3, pp. 205-222.
- Yoshioka, R., Okuda, S. and Kitano, Y. (1970) : Calcium chloride type water discharged from

the Matsushiro area in connection with swarm earthquakes, *Geochem. J.*, Vol. 4, pp. 61-74.

5. 可逆性と回収可能性などを考慮した地層処分システム概念の提示

5.1 目的とこれまでの経緯

「可逆性と回収可能性などを考慮した地層処分システム概念」とは、処分計画の意思決定に関与する多様なステークホルダが地層処分の実施について確信を持つことができるものを指す。このような「確証性の高い（信頼性の高い／腑に落ちる）地層処分システム概念」を構築するためには、従来から行ってきた科学・技術的根拠の提示以外に、概念構築過程での意思決定プロセスの公正性の確保が不可欠な要素となる。このような観点から、本サブプロジェクト「可逆性と回収可能性などを考慮した地層処分システム概念の提示」は、確証性の高い処分システム概念を構築するうえで有効な方法論や支援技術の開発および必要な知見を整備することを目的として開始した。このうち、前者の「科学・技術的根拠の提示」については、特に「①レジリエンス的視点に基づく地層処分システムのロバスト性概念」に焦点をあてて検討を行い、それに応じた科学・技術的基盤を整備していくこと、また後者の「概念構築過程での公正性確保」については「②公平性に根ざした合意形成型の処分概念構築手法の開発」として取り組んできた。なお、前者の「科学・技術的根拠の提示」と後者の「概念構築過程での意思決定プロセスの公正性確保」はそれぞれ独立したものではなく、相互に密接に連携させていくことが重要であり、特に、

- 計画段階での科学・技術的予測や（許認可等の）事前評価の妥当性を確認するためのモニタリング
- 建設・操業段階での地層処分システムの状態が所期の計画段階での予測や事前評価から大きく逸脱した場合の計画の可逆性や廃棄体等の回収
- 想定外の事象に対するシステムの頑健性を示すためのストレステスト

といった技術や対策は、前者の科学的・技術的根拠に基づく評価の限界を補い、後者の合意形成に至るための鍵となる境界領域と考えられる。このような観点から、この境界領域について、本サブプロジェクトでは、上記①②に加え「③合意形成の促進に資するモニタリング技術等の開発」として検討を進めてきた。

上記①から③の検討について、平成25年度よりそれぞれのテーマごとに進めてきたが、今年度はそれぞれのこれまでの成果を基に、成果全体の取りまとめに向け、図5.1-1に示す枠組みで検討を進めることとした。

平成25年度～26年度	平成27年度～	
①レジリエンス的視点に基づく地層処分システムのロバスト性概念の検討	(1) 閉鎖後長期安全性に関するロバスト性の高い地層処分システム概念構築 (5.2項)	(3) 多様なステークホルダ間の合意形成に向けた協働の試行 (5.4項)
③合意形成の促進に資するモニタリング技術等の検討・開発	(2) 受動的な安全系へ推移するまでの期間におけるレジリエンス的取り組みの具体化 (5.3項)	
②公正性に根ざした合意形成型の処分概念の構築手法の開発		

図 5.1-1 成果の取りまとめに向けたアプローチ

まず、5.2項では、これまでの「①レジリエンス的視点に基づく地層処分システムのロバスト性概念の

検討」の成果を踏まえ、システムのレジリエンス性を高める個々の方策を駆使し相乗的な効果を発揮できるように「(1) 閉鎖後長期安全性に関するロバスト性の高い地層処分システムの概念構築」として取りまとめの検討を行う。

次に、5.3項では、上記「①レジリエンス的視点に基づく地層処分システムのロバスト性概念の検討」に加え、これまでの「③合意形成の促進に資するモニタリング技術等の検討・開発」の成果を基に、計画の可逆性や廃棄物の回収可能性、モニタリングなどを活用しシステムの安全性をより向上させることを目的とした「(2) 受動的な安全系へ推移するまでの期間におけるレジリエンス的取り組みの具体化」として取りまとめの検討を行う。

そして5.4項では、さらに、これまでの「②公正性に根ざした合意形成型の処分概念の構築手法の開発」の成果も加え、上記5.2と5.3で提案される複数の処分システムのオプションを基に、仮想的なステークホルダを対象に、合意形成の試みを「(3) 多様なステークホルダ間の合意形成に向けた協働」として行い、各手法等の特徴や効果等を見出す。

最後に、5.5項では、以上の成果を基に、課題と今後進めていくべき方向性等の提言を行う。

5.2 閉鎖後長期安全性に関するロバスト性の高い地層処分システムの概念構築

5.2.1 これまでの検討結果

平成25年度は、「①レジリエンス的視点に基づく地層処分システムのロバスト性概念の検討」として、壊滅的な災害を生き残った生物システムや、故障間隔を大きくし回復時間を短縮化したコンピュータシステムなどレジリエンス的なシステムの例を取り上げ、レジリエンス性の概念を紹介した。ここで、レジリエンス的なシステムとは、ある擾乱などが発生または作用することにより、個別のシステム要素が機能を失ったり、消滅したり別の要素に置き換わるなどが生じたとしても、それでもシステムとしての同一性を維持し、機能を何らかの形で回復あるいはより望ましい状況に移行させていくような性質を有するものを指す。レジリエンス性については様々な分野で検討が行われているが、その中でシステムのレジリエンス性を高める方策として各分野でほぼ共通していると考えられる4つの方策（冗長性、多様性、環境適応性（適応・再生）、危機管理）が挙げられている（丸山ほか、2012）。これら方策の考え方を基に、地層処分の多重バリアシステムを対象に、地層処分におけるレジリエンス的考え方を示すとともに、処分システムが有するロバスト性（予測に含まれる不確実性及び予測とは異なる事象の影響に抗してシステムが所定の機能を保ち続けるという特徴）について整理を行った。なお、4つの方策の考え方と地層処分システムでの適用例を以下に示す。

- 「冗長性」は、システムの構成機能を多重に施すことによって、一部の機能が失われても全体としてのシステムの機能を維持できることを意図している。
 - 例：超長寿命容器による放射性物質の完全閉じ込めと核種移行に対する安全機能の組み合わせ等
- 「多様性」は、多様な要素のどれかが生き残ることにより、システムの再回復を可能にするもので、多様性をシステムに施すことにより、ある共通の要因でシステム全体の機能が失われることを回避することを意図している。
 - 例：不均質母岩中の廃棄体レイアウトの分散、パネルの多段化、異なる仕様/寸法の人工バリアの混在等
- 「環境適応性（適応・再生）」は、最初はシステムを構成する材料が有する本来の機能が作用することを期待し、その後時間の経過とともに腐食や変質など材料特性が変化（劣化）し所期の機能に支障を来すことになるが、その変化後の状態での新たな機能も予め見越してシステムを設

計しておくことにより、長期にわたって全体としてのシステム機能を有効に活用することを意図している。

▶ 例：鉄とセメントを隣接させることによる安定な不動態被膜の生成や、緩衝材外側境界にベントナイト／セメント混合物を使用する等による二次鉱物生成／間隙閉塞の加速など

- 「危機管理（変更や修正に関する柔軟性）」は、想定外の事象がシステムに起きた場合に、その状況を正確に把握し、適切な対応をとることで回復を早めようということを意図している。なお、この危機管理のみ人間が関与する方策である一方、上記3つの方策は受動系として発揮するもので、システム設計で考慮すべきことが特徴的である。地層処分の観点から、「危機管理」は処分場閉鎖後の制度的管理の時点まで、それ以外の3つの方策については、制度的管理終了後の受動的な安全系として組み入れるべきものである。

▶ 例：坑道掘削時の情報化施工、廃棄物の回収、処分場での残置物の影響に対する対策等

平成26年度は、引き続き、地層処分の分野及び類似した他の分野における「システムのロバスト性を向上するためのレジリエンス的取り組み」に関する文献調査とこれに基づく事例ベースの作成を行い、また、地層処分システムのロバスト性を向上するためのレジリエンス的取り組みに関する上記4つの方策事例の抽出、各方策が有する長所や短所あるいは制約条件等に関する分析および個別の方策候補を組み合わせた計画の立案を行った。

これらを踏まえ、今年度は、ロバスト性の高い地層処分システム概念の具体化および従来の地層処分システムとの比較評価を行った。

5.2.2 ロバスト性の高い地層処分システム概念の具体化

平成25年度および平成26年度の成果（経済産業省平成25年；平成26年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」）（日本原子力研究開発機構，2014；2015a）を踏まえ、地層処分システムのロバスト性を向上するためのレジリエンス的取り組みの課題及び具体的な方策の候補の提案を行った。課題の抽出及び方策の候補の提案にあたっては、以下の手順で検討を進めた。

- 地層処分手分野及び類似した他の分野における「システムのロバスト性を向上するためのレジリエンス的取り組み」に関する文献調査及び専門家へのヒアリングとこれに基づく事例ベースの作成
- 地層処分システムのロバスト性を向上するためのレジリエンス的取り組みに関する候補の抽出及び各候補の長所や短所あるいは制約条件等に関する分析
- 上記の分析結果に基づく、個別の方策候補を組み合わせた相互補完的な戦略の提案及び導入に向けた計画の立案

(1) 地層処分手分野及び類似した他の分野における「システムのロバスト性を向上するためのレジリエンス的取り組み」に関する文献調査及び専門家へのヒアリングとこれに基づく事例ベースの作成

1) 合意形成しやすい地層処分システム

異なる価値観や信条をもつステークホルダは、不確実性に由来する「科学的主張の幅」の中で都合の良いものを選んで論陣を張ると考えられる。図5.2.2-1は、不確実性から生じる科学的主張の幅のどの位置の意見をとるかで、それが原子力エネルギーの継続利用あるいは核種分離・変換等の新技術の導入を遅延させるための論拠となりうること、反対に、それにより未来に対する負の遺産を残す可能性があるという主張を展開することができることを表している。

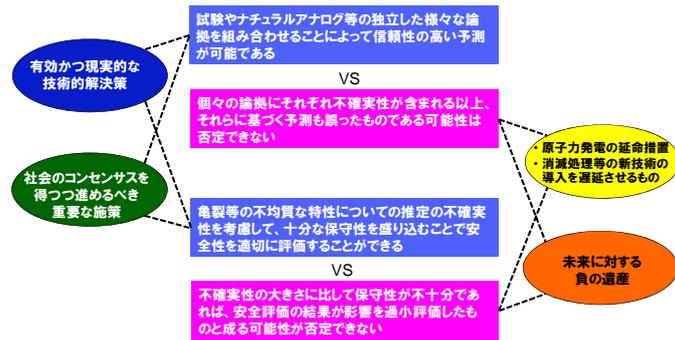


図 5. 2. 2-1 科学的知識の不確実性の社会的意味

これを踏まえると、認識の多様性は、

- 多様な認識のいずれを採るかによって、地層処分という選択肢の良否やどのような処分方法がより良いものであるかという判断は異なる
- 「特定の人々の価値観に照らして良い地層処分システム」を目指すことは適切ではなく、また、「誰にとっても良い地層処分システム」が存在するとは考え難い

また、不確実性については、

- 不確実性に由来する「科学的主張の幅」の存在を前提とすれば、地層処分システムに対する異なる認識に基づき、その中から適切なものを選んで論陣を張ることが可能
- 上記のような状況では、科学的討議によって黑白をつけることは困難であり、また、「科学的主張の幅」の原因となる不確実性自体の低減を図る努力は必須であるが、それ（及び対応する主張の幅）を完全に排除することは極めて難しい

といえる。したがって「より良い地層処分システムを提示して合意を得る」という手順ではなく、「合意することのできるものが良い地層処分システムである」という発想の転換が必要となる。

2) 「システムのロバスト性を向上するためのレジリエンス的取り組み」に関する専門家へのヒアリングおよび事例ベースの作成

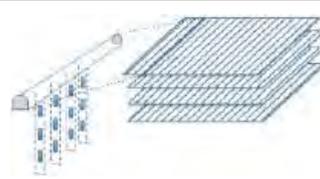
地層処分システムのロバスト性を向上させるためのレジリエンス的な取り組みについて、良好事例の情報収集を目的として、以下に掲げる種々の専門家に対してヒアリングを行った。

- 地層処分の分野における国内外の専門家
 - これまで、英国 (BNFL、UKAEA)、スイス (Nagra)、スウェーデン (SKB) の担当者として処分概念構築や安全確保戦略の立案に携わった専門家及び国内で同様の知見を有する専門家
- 二酸化炭素の回収・貯蔵 (CCS: Carbon dioxide Capture and Storage) 分野の専門家
 - CO₂の多重のトラッピング機能の活用に関して基本的な概念構築に参加した専門家
- 他の分野の専門家
 - 超寿命材料の開発、情報セキュリティ、防災、免疫、原子力発電所等

上記ヒアリングを実施した延べ人数は8名であり、対面又はメールによりヒアリングを実施した。ヒアリングでは、システムのロバスト性向上のための4つのレジリエンス的取り組み（「冗長性」、「多様性」、「環境適応性(適応・再生)」及び「危機管理(変更や修正に関する柔軟性)」）について説明を行い、各専門分野で行われている取り組みに関連する情報を提供していただいた。地層処分分野の専門家へのヒアリングの結果に基づき作成した事例ベースの一例を表 5. 2. 2-1 に示す。表の最

左列はレジリエンス的取り組み方策（「冗長性」、「多様性」、「適応／成長」及び「危機管理」）を示し、その列から右に順に、オプションの種類、具体的なオプション例を示している。

表 5. 2. 2-1 地層処分分野におけるロバスト性向上のためのレジリエンス的取り組み例

レジリエンス的取り組み方策	オプションの種類	具体的なオプション例
冗長性	評価期間を通じて閉じ込め性を保つ長寿命キャニスタ（銅製等）とその他のバリア要素	スウェーデンの KBS-3V 概念 (SKB, 2013) <ul style="list-style-type: none"> ● 評価期間 (100 万年間) を通じて使用済み燃料と地下水の接触を避け得る銅製の長寿命容器 (キャニスタ) ● 万一の容器の開口に対し、還元性の深部地下環境における UO₂ マトリクスの溶解制限等による核種の溶出抑制 ● 廃棄体から漏えいした核種は緩衝材および母岩の低透水性および収着性により遅延・減衰する
多様性	処分パネルの多段化 (隆起侵食による地表露出影響の時間的分散)	 <ul style="list-style-type: none"> ● 複数の処分パネル間に深度差をつける、あるいはさらにパネルを傾斜させて個々の坑道間に深度差をつけることにより隆起・侵食による酸化性環境、風化帯あるいは地表到達といった環境変遷の時期を時間的に分散させ、全ての廃棄体の影響が重畳することを避ける
環境適応性 (適応・再生)	軟岩の掘削影響領域閉塞	<ul style="list-style-type: none"> ● 坑道掘削の影響により、坑道周辺の損傷領域 (EDZ) の透水性が上昇する可能性があるが、軟岩の場合には、膨潤性により坑道が飽和する過程で微細な割れ目は閉塞され、透水性は初期値と同程度まで低下する ● 例えば Nagra では、ベントナイトを設置後、部分的に飽和度が低下していた EDZ が次第に再飽和することが示されている。掘削時には割れ目が発生し、また再飽和により強度が低下するが、オパリナス粘土の有する約 1 ~7%の膨潤力により、EDZ の均質化や自己シール化、及び坑道の段階的収斂が効果的に起こると予測されている
危機管理 (変更や修正に関する柔軟性)	情報化施工	<ul style="list-style-type: none"> ● 坑道の掘削段階において深部地下のより詳細な情報が得られることから、この情報に基づき施設設計の最適化を図るとともに必要に応じてアノマリ等を避ける柔軟な対応が有用 ● 例えばフィンランドの ONKALO では、建設と並行して行われる調査 (地質マッピング、プローブ・ホールとパイロット・ホールから掘削される岩盤や地下水に関する情報収集等) で適宜得られる情報に基づき、当初のレイアウトや設計を変更する情報化施工 (岩盤補強方法の変更やグラウティング箇所の特特定あるいは地質構造モデルの更新に従うレイアウトや廃棄体定置位置の最適化等) が行われている
	回収可能性の維持	<ul style="list-style-type: none"> ● 不測の事態の発生に備えて、前段階への回帰や一旦定置した廃棄体の回収を行う可能性を保持できるような施設設計及び操作手順をとる ● 例えば ANDRA では、廃棄体及び処分セルは、廃棄体設置後、数百年間にわたり健全性を維持し、廃棄体を取り出せる仕様としている。また、処分セルの健全性についても数百年間は維持されることとなっており、そのために必要なメンテナンスを行うこととしている

また、二酸化炭素の回収・貯蔵など地層処分以外の他分野におけるレジリエンス的な取り組みについても事例を抽出した。対象とした分野は、情報セキュリティ、防災、免疫、原子力、CCS 及び地熱発電分野等である。整理した事例ベースの例を表 5. 2. 2-2 に示す。表の最左列は、表 5. 2. 2-1 と同様にレジリエンス的取り組み方策（「冗長性」、「多様性」、「適応／成長」及び「危機管理」）を示し、その列から右に順に、オプションの種類、具体的なオプション例を示している。

表 5.2.2-2 他分野におけるロバスト性向上のためのレジリエンス的取り組み例

レジリエンス的 取り組み方策	レジリエンス的取 り組みの内容	レジリエンス的取り組みに関する具体例
冗長性	情報セキュリティ分野における多層防御 (情報セキュリティ分野の専門家からのヒアリング情報)	<p>近年、セキュリティ対策では「多層防御」がキーワードになっている。「多層防御」とは、考えられるさまざまな階層において必要な防御を施すことである。</p>  <p>こうした階層ごとの防御は、明らかな冗長性であり、レジリエンス的取り組みであると言える。</p>
	防災におけるフォールトトレラント設計 (防災分野の専門家からのヒアリング情報)	<p>フォールトトレラント設計 (Fault tolerant design) は、システム設計の手法であり、システムの一部に問題が生じても全体が機能停止するということなく (たとえ機能を縮小しても) 動作し続けるようなシステムを設計するものである。例えば単動ラムシリンダ油圧配管の場合、2系統化することによって事故や災害で1系統の配管が破損しても、残る1本が健全であれば設備の機能停止に至らず、事故や災害発生時に於ける危険状況下の期間を最小限に抑えられる。このように、明らかな余剰を含んだ設計は、システムに冗長性を持たせたレジリエンス的取り組みである。</p>
多様性	<p>免疫系における抗体の多様性 (免疫分野の専門家からのヒアリング情報)</p> <p>原子炉における安全系の多様性 (原子力発電分野の専門家からのヒアリング情報)</p>	<p>抗体は可変部と定常部から成るタンパク質である。 可変部は複数の遺伝子断片から成るが、それらの遺伝子断片の組み合わせを様々に変化させることにより、多くの抗原に対応することができる。 こうした機構は、非常に多様性があり、免疫システムのロバスト性を向上させている。</p> <p>実用発電用原子炉及びその附属施設の位置、構造及び設備の基準に関する規則 (平成25年原子力規制委員会規則第5号。以下「設置許可基準」という。) 第12条第2項は、信頼性に係る要求として、重要度が特に高い安全機能を有する系統について、多重性又は多様性及び独立性を要求している (原子力規制庁, 2014) 設置許可基準の解釈は、これを踏まえた多重性又は多様性が要求される安全機能の重要度が特に高い安全機能を有する系統として、以下の機能を有するものを規定している。 【その機能を有する系統の多重性又は多様性を要求する安全機能】 ・格納容器内の放射性物質の濃度低減機能 ・格納容器の冷却機能 ・格納容器内の可燃性ガス制御機能 【その機能を有する複数の系統があり、それぞれの系統について多重性又は多様性を要求する安全機能】 ・原子炉格納容器バウンダリを構成する配管の隔離機能 以上のように、原子炉の安全系に対しては、多様性を持たせ、システムのロバスト性を向上させるレジリエンス的取り組みが行われている。</p>
適応/成長	二酸化炭素地中貯留におけるトラッピング機構の時間的強化	<p>二酸化炭素 (CO₂) の地中貯留する際、CO₂は地下の貯留層に圧入され、時間経過とともにその形態が変化し、より安定に貯留される。 トラッピング機構の時間的変遷は以下のようになる。(IPCC, 2005) ①浮力によるCO₂の移動を遮蔽層で抑制 ②貯留層中のCO₂が細孔内に浸透し毛管圧によって固定 ③CO₂が徐々に地下水に溶解し重くなった地下水が沈降 ④CO₂長石等から溶出した成分と炭酸塩鉱物を形成し沈殿</p>
危機管理	地熱発電所における地震レベルに対応した注水制御	<p>地熱発電等では、誘発地震の発生が懸念されており、地震が想定しているレベルを超える場合、実施されている注水を停止させるが、圧力を急低下させると予期しない事象が発生する可能性があるため、traffic light systemを用いる。これが赤の場合、地震により建物が破壊されるレベルであり、注水は直ちに中断される。黄色の場合、地震でダメージを受ける可能性は低く、注水は注意深く継続されるが流速を低下させる。緑の場合、地震レベルが許容範囲内であり、注水は予定通り継続される。(Majer, 2012)</p>

(2) 地層処分システムのロバスト性を向上するためのレジリエンス的取り組みに関する各候補の長所や短所あるいは制約条件等に関する分析

前節で整理した「地層処分システムのロバスト性を向上するためのレジリエンス的取り組み」で検討に取り入れた4つの取り組み方策（「冗長性」、「多様性」、「環境適応性（適応・再生）」、「危機管理」）を区分し、それぞれの領域について下記に示す「SWOT分析」を行うことにより、個々の取り組みの長所を生かし短所を補うことができるよう、これら相互補完的な組み合わせの戦略を立案した。

1) SWOT分析

SWOT分析とは、目標を達成するために意思決定を必要とする組織やプロジェクトにおいて、外部環境や内部環境を強み (Strengths)、弱み (Weaknesses)、機会 (Opportunities)、脅威 (Threats) の4つのカテゴリで要因分析し、周囲の環境変化に対応したリソース活用の最適化を図る戦略策定方法の一つである（例えば、板倉，2010）。ここで、SWOTは、

- Strength：目標達成に貢献する内在的特質
- Weakness：目標達成の障害となる内在的特質
- Opportunity：目標達成を支援する外的要因
- Threat：目標達成を阻害する外的要因

の頭文字をとったものであり、SWOT分析では、これらの4つの要因に着目し、表5.2.2-3に示すマトリクスを用いて、

- どのように強みを活かすか？
- どのように弱みを克服するか？
- どのように機会を利用するか？
- どのように脅威を取り除く、または脅威から身を守るか？

を検討することによって戦略立案を支援するものである。

表 5.2.2-3 SWOT 分析用のマトリクス

	Opportunity	Threat
Strength	どうやって強みを活かして機会（チャンス）をつかむか？	どうやって強みを活かして脅威（ピンチ）を回避するか？
Weakness	どうやって弱みを克服して機会（チャンス）をつかむか？	どうやって弱みと脅威（ピンチ）の因果関係を断ち切るか？

2) それぞれの取り組みについてのSWOT分析

冗長性、多様性、環境適応性（適応/再生）、危機管理について、それぞれのSWOT分析の結果を表5.2.2-4～表5.2.2-7に示す。なお、斜体で示したコメントは、その取り組みのみでは解決することが困難であり、他の取り組みと組み合わせて対処することが必要と考えられるものを意味する。

表 5.2.2-4 「冗長性」に関する SWOT 分析結果

	Opportunity	Threat
Strength	<ul style="list-style-type: none"> データのばらつきのような不確実性を考慮して保守的上限に対応することで十分な安全裕度を確保する シナリオや解析モデルに関する知識の不足に起因する不確実性を考慮して、安全機能を担う構成要素を多重化することによりロバスト性を向上する 	<ul style="list-style-type: none"> 現状では認識あるいは把握されていない不確実性に対応するために、限界解析や仮想的評価を行い、最悪の状況が生じた場合の影響の上限を把握しておく
Weakness	<ul style="list-style-type: none"> 安全裕度を増すことや多重性によるリスクの低減効果とこれによって生ずる対抗リスクとを比較すること（相対的リスク評価）により合理的な設計とする 	<ul style="list-style-type: none"> コストとそれによって得られるロバスト性の向上というベネフィットを比較することで合理的な設計とする 未知の不確実性によって複数のバリアが同時に機能を失うような故障については別途の取り組みが必要

表 5.2.2-5 「多様性」に関する SWOT 分析結果

	Opportunity	Threat
Strength	<ul style="list-style-type: none"> 放射性核種による影響が特定の時間及び位置に集中する場合に、多様性により影響を時間的あるいは空間的に分散させるピーク値を低減させる 仕様や環境条件に特有の脆弱性が未知の不確実性によって顕在化することを避ける場合、多様性により複数のバリアが同時に機能低下する可能性を低減 	<ul style="list-style-type: none"> 多様性による効果が一部の影響に対するのみである場合、他の影響については別途の取り組みが必要
Weakness	<ul style="list-style-type: none"> 多様性による品質管理の複雑さが過誤につながることを避けるためには別の取り組みが必要 異種の材料間での相互影響や干渉等が長期にわたって双方の安全機能を阻害するものではないことを示すために別の取り組みが必要 	<ul style="list-style-type: none"> 多様性によるリスク低減のベネフィットとスケール効果低減によるコスト増加の比較（費用-便益分析）による合理的な設計の採用

表 5.2.2-6 「環境適応性（適応・再生）」に関する SWOT 分析結果

	Opportunity	Threat
Strength	<ul style="list-style-type: none"> 速度論的な知見や経験が不足しており、平衡や定常の原則に基づく説明が求められる場合に、置かれた環境との親和性が増すことにより長期的な安定性が向上することを論拠として説明する 地層処分の安全性を確保すべき時間スケールが長大となる場合に、適応/成長によって時間の経過とともに安全性能の向上が期待できることを論拠として説明する 	<ul style="list-style-type: none"> 実験や左下に示す現象評価システムによって適応/成長の期待できる環境条件の幅を明らかにし、将来予測の不確実性を考慮してもこのような環境条件の幅に含まれることを示す 適応/成長による安定性や時間的な性能向上を阻害する外部からの擾乱が生じて、適応/成長による自己修復がなされることを実験や左下に示す現象評価システムによって示す
Weakness	<ul style="list-style-type: none"> 長期的な現象と密接に関連していることや、バリアが置かれた環境の条件に強く依存することを考慮し、複合的な体系における多様な現象を包括的に説明するためのシステム（現象評価システム）を構築する 	<ul style="list-style-type: none"> 適応/成長の効果を必須のものとはせず、リザーブ機能として扱うことにより不確実性がシステムの脆弱性となることを避ける 予想した環境条件と実際が異なる場合や天然事象等による外部からの擾乱への積極的な対策としては別途の取り組みも必要

表 5.2.2-7 「危機管理」に関する SWOT 分析結果

	Opportunity	Threat
Strength	<ul style="list-style-type: none"> 将来予測に含まれる不確実性への対処として、万一の状況に備えることが規制当局からの要求や社会的受容性のための要件として求められる場合、適宜対策（前段階への復旧や廃棄体の回収等）をとることによって、重大な影響が生ずる事態の予防あるいは影響の緩和（修復措置等）を行うことができる 	<ul style="list-style-type: none"> 危機管理を段階的に軽減することによって、比較的軽易なモニタリングと万が一の場合の廃棄体回収可能性（高いコストであったとしても）については極力長期にわたって継続できるようなシステムとする
Weakness	<ul style="list-style-type: none"> 特に放射能レベルが高く、かつ、初期異常や処分場閉鎖直後の過渡的現象といった不確実性の大きい初期に危機管理を行うことで信頼性を高める 	<ul style="list-style-type: none"> 長期的な不確実性への対策としては、別途の取り組みと組み合わせることが必要

(3) 相互補完的な戦略の提案及び導入に向けた計画の立案

ここでは、(1)、(2)の分析結果に基づき、地層処分システムのロバスト性を向上させるために、個別の方策候補を組み合わせた相互補完的な総合的戦略を立案した。より具体的には、4つの取り組みそれぞれについてのSWOT分析表において斜体で指摘した、他の取り組みとの連携の必要な箇所に着目して、複数の取り組みを相互に補完することのできるような全体的な戦略を立案し表5.2.2-8に示すように整理した。

表5.2.2-8 地層処分システムのロバスト性を向上するための4つのレジリエンス的取り組みを組み合わせた総合的な戦略

冗長性	「冗長性」による「多様性」の補完 多様性による効果が一部の影響(使用済み燃料のIRF(瞬時放出割合)に含まれるC-14やI-129の放出等)に対するもののみである場合、他の影響(より長期に及ぶアクチド等の移行による影響等)については、特に長期わたって期待できるバリア(緩衝材や母岩(深部)等)に十分な安全裕度を見込めるとともに、銅製オーバーパック等による容器寿命の長期化あるいは緩衝材内側での低拡散素材の併置等組み合わせる		「冗長性」による「危機管理」の補完 危機管理を継続することの困難な長期的な不確実性への対策として、①各バリアの性能等に関するデータのばらつきのような不確実性を考慮して保守的上限に対応することのできる設計仕様を採用することによって十分な安全裕度を確保する ②処分システムの長期変遷等に関するシナリオや各バリアの挙動等に関する解析モデルに関する知識の不足に起因する不確実性を考慮して、該当する安全機能を担う構成要素を多様化することによりロバスト性を向上する
「多様性」による「冗長性」の補完 未知の不確実性(Open uncertainty)によって複数のバリアが同時に機能を失うような共通要因による故障を避けるために、想定される影響因子等が全く異なる多様な材料を用いる	多様性		「多様性」による「危機管理」の補完 危機管理を継続することの困難な長期的な不確実性への対策として、共通の要因によって複数のバリアが同時に機能低下あるいは機能喪失するような可能性を低減する
	「適応/成長」による「多様性」の補完 異種の材料間での相互影響や干渉等が長期にわたって双方の安全機能を阻害するものではないことを示すために、材料境界での二次鉱物による間隙閉塞等の「適応/成長」によって相互影響がバリア材の安定性や時間的性能向上といったむしろ好ましい方向に働くような材料を選択する	適応/成長	「適応/成長」による「危機管理」の補完 危機管理を継続することの困難な長期的な不確実性への対策として、①変質や劣化についての速度論的な取り扱いのための知見や経験が不足しており、平衡や定常といった原則に基づく説明が求められる場合に、各バリアとそれが置かれた環境との親和性が増すことにより長期的な安定性が向上することを論拠として説明性を高める ②地層処分の安全性を確保すべき時間スケールの長大への対策が必要となる場合に、適応/成長によって時間の経過とともに安全性性能の向上が期待できることを論拠として説明性を高める
「危機管理」による「多様性」の補完 多様性による品質管理の複雑さが過誤につながることを避けるために、モニタリング等によって状態変遷を監視するとともに可逆性や回収可能性を保持する		「危機管理」による「適応/成長」の補完 予想した環境条件と実際が異なる場合や天然事象等による外部からの擾乱への積極的な対策として、モニタリング等によって状態変遷を監視するとともに可逆性や回収可能性を保持する	危機管理

(4) 確証性の高い(合意しやすい)地層処分システム概念の構築の試行

前項までに述べた検討を踏まえ、システムのレジリエンス性を向上させる4つの方策(冗長性、多様性、環境適応性(適応・再生)、危機管理(変更や修正に関する柔軟性)の観点から、以下のように検討を行い、「確証性の高い地層処分システム」のオプション構築を試行した。その事例オプションを図5.2.2-2に示す。

- 冗長性
 - 炭素鋼製構造材の外周を高耐食性材料(銅、チタン、セラミック等)によって被覆した長寿命オーバーパックにより評価期間(100万年間)以上にわたって放射性物質を容器内に完全に閉じ込める
 - 評価期間内にオーバーパックが破損する状況でも通常の多重バリアシステムによって被ばく線量は十分低く抑制される
- 環境適応性(適応・再生)
 - ベントナイト系緩衝材とコンクリート系材料(坑道支保)の反応によって生ずる二次鉱物によって間隙が閉塞し、安全機能(止水性及び低拡散性)が時間とともに向上する(閉塞を促進するような材料の選定を含む)
- 多様性(/公平性)

- 下図に示すように、全国の有望地の中から一カ所を選定するのではなく全地点に分散して小規模の処分場を設置することで地質環境条件に応じた共通要因のリスクが低減される。ここでの多様性の方策は、立地の観点から地域間の公平性ももたらす。
- 危機管理（変更や修正に関する柔軟性）
 - 撤去の容易な材料で埋め戻す斜坑から掘削した短い水平孔内に廃棄体を定置することによって回収可能性を高める

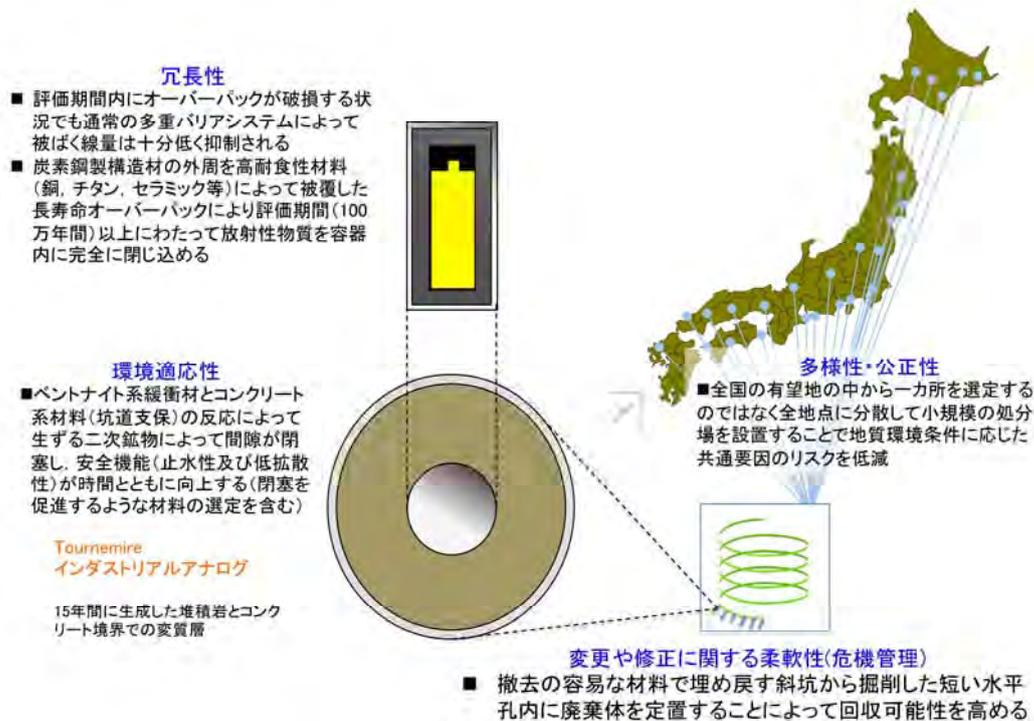


図 5.2.2-2 新たな処分概念のオプション構築

5.2.3 従来の地層処分システムとの比較評価

5.2.2で構築した処分概念のうち、冗長性の事例として示したチタン製の長寿命容器を対象に、以下の多面的な視点から簡易な評価を行い、従来型の概念との比較を行った。

- ✓ 安全評価（システム性能）
 - 基本シナリオにおけるチタン製外殻の超長期の閉じ込め（ゼロリリース）、変動シナリオの場合の被ばく線量の低下の程度を概略的に評価
 - 上記の安全性向上が担保できることについてセーフティケースの観点から論拠を整理
- ✓ 経済性評価
 - チタン製外殻の長寿命容器のコストについて概略的に検討
- ✓ 社会的受容性評価
 - 長寿命容器によるゼロリリースに向けた被ばく線量の低減やそれに伴うコスト増加についてのステークホルダの意見聴取

(1) 安全評価（システム性能）：概念モデルと入力パラメータ

ここでは、上記で挙げた視点のうち、安全評価の視点からの検討を行った。具体的には、チタン製外殻等の長寿命容器を適用した場合のシステムについて核種移行解析を行った。

核種移行の概念モデルを図5.2.3-1に示す。基本シナリオとしてガラス固化体を格納したオーバーパックは腐食により処分後1000年で破損し、核種の溶出が開始する。緩衝材内側においては核種の溶解・沈殿を考慮する。緩衝材中での核種移行プロセスでは拡散および収着（瞬時・可逆・線形）を考慮する。緩衝材の外側に到達した核種は、掘削影響領域（EDZ）中を移流によって通過し、亀裂性母岩で想定するマルチチャンネルの平行平板亀裂に流入する。亀裂性母岩では、亀裂中での移流・分散および岩石マトリクス中での拡散・収着を考慮する。母岩亀裂では100mの移行距離を想定し、母岩から流出した核種は生物圏に瞬時に到達すると仮定している。断層中の核種移行については、隆起・侵食の進行に伴い移行距離が短くなるとともに、これに応じた断層上部と風化帯の境界における移行プロセスを設定する必要があるが、これらの設定に必要な現象理解に関する情報は乏しいため、ここでは、保守的に断層中の核種移行プロセスを考慮しないこととした。

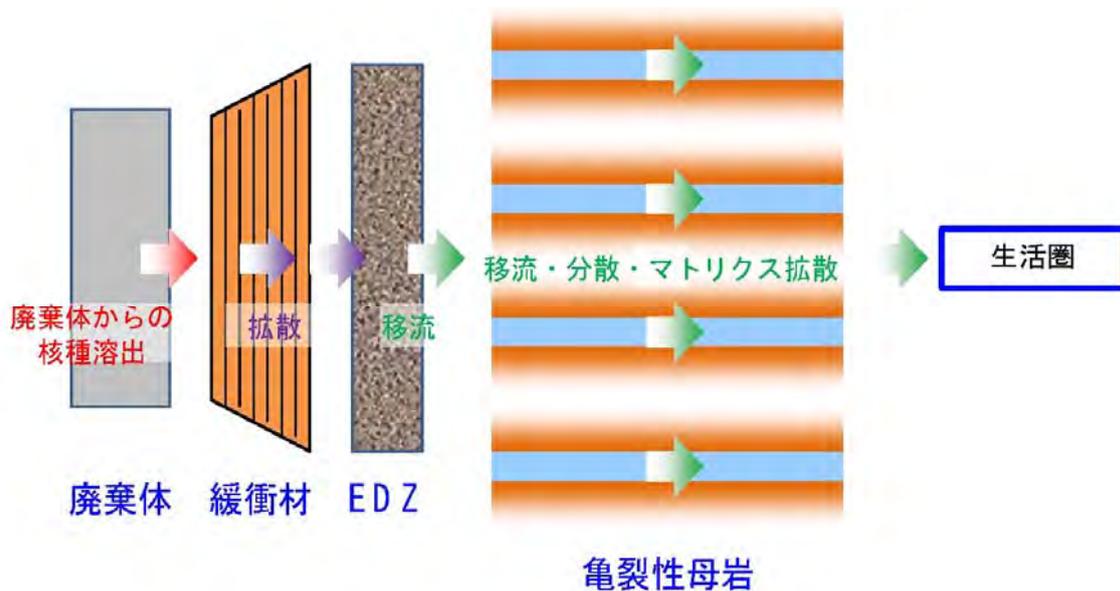


図5.2.3-1 基本シナリオにおける核種移行概念モデル
 (図中の緩衝材や母岩には「収着」を含む)

解析に使用したパラメータのうち、ガラス溶解速度（表5.2.3-1）とインベントリ（表5.2.3-2）はそれぞれ第2次取りまとめリファレンス（核燃料サイクル開発機構，1999）の値を用いた。また、その他のパラメータについては、最新の知見を踏まえ「直接処分第1次取りまとめ」（日本原子力研究開発機構，2015b）（以下，SF1）の設定値を用いている。また、人工バリアに関するパラメータ設定を表5.2.3-3に、溶解度および緩衝材中の分配係数及び拡散係数を表5.2.3-4に、母岩に係る入力データ（分配係数を除く）を表5.2.3-5に、母岩の分配係数（Kd値）を表5.2.3-6、並びに線量換算係数（河川水GBIのケース）を表5.2.3-7にそれぞれ示す。

表 5. 2. 3-1 ガラス溶解速度

パラメータ	設定値	備考
ガラス溶解時間 [y]	65, 269	第2次取りまとめリファレンス

表 5. 2. 3-2 ガラス固化体の放射性核種インベントリ (処分後 100 年時点・一体あたり)

核種	インベントリ [g]	核種	インベントリ [g]
Se79	6. 4. E+00	Ra226	5. 4 E-06
Se0 ^{*)}	5. 4. E+01	Ac227	3. 2 E-07
Sr90	1. 5. E+01	Th229	1. 2 E-05
Sr0 ^{*)}	4. 0. E+02	Th230	4. 4 E-03
Zr93	7. 9. E+02	Th232	9. 1 E-04
Zr0 ^{*)}	4. 4. E+03	Pa231	5. 0 E-04
Nb93m	6. 7. E-03	U233	3. 5 E-02
Nb94	2. 7. E-02	U234	2. 1 E+00
Nb0 ^{*)}	2. 2. E+00	U235	3. 3 E+01
Tc99	8. 2. E+02	U236	2. 1 E+01
Pd107	2. 2. E+02	U238	3. 1 E+03
Pd0 ^{*)}	1. 3. E+03	Np237	7. 4 E+02
Sn126	2. 9. E+01	Pu239	3. 1 E+01
Sn0 ^{*)}	8. 6. E+01	Pu240	4. 7 E+01
Cs135	4. 3. E+02	Pu241	7. 0 E-03
Cs137	3. 7. E+01	Pu242	2. 5 E+00
Cs0 ^{*)}	1. 2. E+03	Am241	1. 9 E+02
Sm151	5. 0. E+00	Am243	1. 1 E+02
Sm0 ^{*)}	5. 0. E+02	Cm245	1. 9 E+00
Pb210	5. 5. E-08	Cm246	2. 3 E-01
Pb0 ^{*)}	8. 0. E-01	Cm246	2. 3 E-01

*) 安定同位体

表 5. 2. 3-3 人工バリアのパラメータ設定

パラメータ	設定値	単位	備考
緩衝材内側半径	0. 41	m	第2次取りまとめ
緩衝材厚さ	0. 7	m	第2次取りまとめ
解析上の緩衝材長さ	2. 14	m	第2次取りまとめ
緩衝材間隙率	0. 41	-	第2次取りまとめ
緩衝材乾燥密度	1600	kg/m ³	第2次取りまとめ
緩衝材通過流量	0. 0	m ³ /y	第2次取りまとめ
EDZ通過流量	0. 001	m ³ /y	第2次取りまとめ

表 5.2.3-4 溶解度および緩衝材中の分配係数、拡散係数

元素	溶解度 (還元性) [mol/l]	緩衝材分配係数 [m ³ /kg]	緩衝材実効拡散係数 [m ² /s]
Ac	4.40E-06	1.8	2.2E-11
Am	2.80E-08	1.8	2.2E-11
C (無機)	1.69E-02	0	2.2E-11
Cl	可溶性	0	2.2E-11
Cm	2.80E-08	1.8	2.2E-11
Co	1.69E-04	7.4	3.8E-09
C (有機)	可溶性	0	2.8E-10
Cs	可溶性	0.19	3.8E-09
I	可溶性	0	2.2E-11
Mo	1.76E-04	0	2.2E-11
Nb	1.09E-06	1	2.2E-11
Ni	7.71E-06	7.4	3.8E-09
Np	7.69E-08	2.9	2.2E-11
Pa	9.75E-10	7.3	2.8E-10
Pb	1.44E-06	7.4	2.8E-10
Pd	8.54E-08	0.12	2.8E-10
Pu	6.29E-08	3.3	2.2E-11
Ra	1.00E-12	0.21	6.8E-09
Se	9.87E-09	0.00055	2.2E-11
Sm	2.80E-08	1.8	2.2E-11
Sn	1.07E-07	7.3	2.8E-10
Sr	5.88E-06	0.14	6.8E-09
Tc	4.30E-09	11.5	2.8E-10
Th	1.60E-07	1.6	2.2E-11
U	8.84E-09	5.7	2.2E-11
Zr	1.11E-04	7.3	2.8E-10

備考：直接処分第1次取りまとめ（日本原子力研究開発機構，2015より引用）

表 5.2.3-5 母岩に係る入力データ（分配係数を除く）

パラメータ	設定値	単位	備考
評価距離	100	m	第2次取りまとめ
分散長	10	m	第2次取りまとめ
マトリクス拡散寄与面積率	0.5	-	第2次取りまとめ
マトリクス拡散深さ	0.1	m	第2次取りまとめ
岩盤中の間隙率	0.02	-	第2次取りまとめ
岩盤中の乾燥密度	2640	kg/m ³	第2次取りまとめ
岩盤中の実効拡散係数	3E-12	m ² /s	第2次取りまとめ
動水勾配	0.01	-	第2次取りまとめ
亀裂の透水量係数	対数正規分布（対数平均-9.99、対数標準偏差1.07）の13分割区間の各中央値	m ² /s	第2次取りまとめ
経験則の係数c	2	-	第2次取りまとめ

表 5. 2. 3-6 母岩での分配係数

元素	分配係数[m ³ /kg]	元素	分配係数[m ³ /kg]
Ac	0. 63	Pa	0. 12
Am	0. 63	Pb	0. 0024
C(無機)	0	Pd	0. 42
Cl	0	Pu	0. 1
Cm	0. 63	Ra	0. 0009
Co	0. 0024	Se	0. 00019
C(有機)	0	Sm	0. 63
Cs	0. 0091	Sn	0. 12
I	0	Sr	0. 0009
Mo	0	Tc	2. 4
Nb	0. 041	Th	0. 1
Ni	0. 0024	U	0. 1
Np	0. 1	Zr	0. 036

備考：直接処分第1次取りまとめ（日本原子力研究開発機構，2015bより引用）

表 5. 2. 3-7 河川水 GBI*の線量換算係数（農作業従事者グループ）

核種名	線量への換算係数 (Sv/y)/(Bq/y)	核種名	線量への換算係数 (Sv/y)/(Bq/y)
Cm244	2. 70E-16	Pa231	1. 20E-14
Pu240	5. 30E-16	Ac227	3. 00E-15
U236	1. 00E-16	Cor14	9. 40E-18
Th232	1. 10E-14	Cin14	9. 40E-18
Ra228	1. 40E-15	Cl36	6. 40E-18
Th228	2. 90E-16	Co60	1. 90E-17
Cm245	1. 10E-15	Ni59	5. 30E-19
Pu241	1. 10E-17	Ni63	5. 70E-19
Am241	3. 90E-16	Se79	5. 40E-16
Np237	1. 30E-16	Sr90	1. 60E-16
U233	1. 20E-16	Zr93	1. 30E-18
Th229	2. 50E-15	Nb93m	2. 50E-19
Cm246	8. 30E-16	Nb94	2. 00E-16
Pu242	5. 30E-16	Mo93	7. 10E-18
U238	1. 00E-16	Tc99	3. 60E-18
U234	1. 10E-16	Pd107	2. 30E-19
Th230	2. 20E-15	Sn126	2. 40E-16
Ra226	3. 80E-15	I129	3. 70E-16
Pb210	2. 20E-15	Cs135	1. 70E-17
Am243	6. 60E-16	Cs137	6. 50E-17
Pu239	5. 40E-16	Sm151	1. 80E-19
U235	1. 30E-16		

備考：直接処分第1次取りまとめ（日本原子力研究開発機構，2015bより引用）

(2) 安全評価：解析ケース

解析にあたっては、表5. 2. 3-8のようにケース設定を行った。地質条件として第2次取りまとめリファ

* GBI: 地質環境と生活圏とのインターフェイス(Geosohere-Biosphere Interface)

レンスと同様の透水量係数分布に加え、地質環境の不確実性を考慮するためその透水量係数対数平均を2桁大きくした場合の2種類(図5.2.3-2)を選んだ。また、100万年後までの期間にわたって処分後1000年で開口するオーバーパック(OP)破損(開口)割合として0、0.2、3、10、50、100%をそれぞれと設定して解析を行った。なお、0.2%、及び3%の開口割合は(SKB, 2010)における検討(表5.2.3-9)に基づき設定している。また、表5.2.3-9は処分孔に対して様々な選択基準を条件として用い、緩衝材中に移流領域が生じた場合に100万年の間に損傷を被るキャニスタの数をシミュレーションしたSKBの結果(SKB, 2006)である。処分孔の棄却を行わない場合、FPC^{*)}のみを基準値として適用した場合、FPCと透水量係数(T)を併せて適用した場合の破損容器数を比較した結果である。この結果は、FPCの適用により破損するキャニスタの数が減少し、処分孔の選択基準としてFPCの採用が有効であることが示されている。

表 5.2.3-8 解析ケース一覧

地質条件 (透水量係数分布)	100万年までの期間にわたり処分後 1000年で開口するOPの割合x[%]	備考
第2次取りまとめ リファレンス	100	1000年後に全数開口(基本シナリオ)
	50	
	10	
	3	Forsmarkの場合の計算結果(17/6824)
	0.2	Laxemarの場合の計算結果(236/7483)
	0	100万年後に全数開口
第2次取りまとめ リファレンス +2桁	100	1000年後に全数開口
	50	
	10	
	3	Forsmarkの場合の計算結果(17/6824)
	0.2	Laxemarの場合の計算結果(236/7483)
	0	100万年後に全数開口

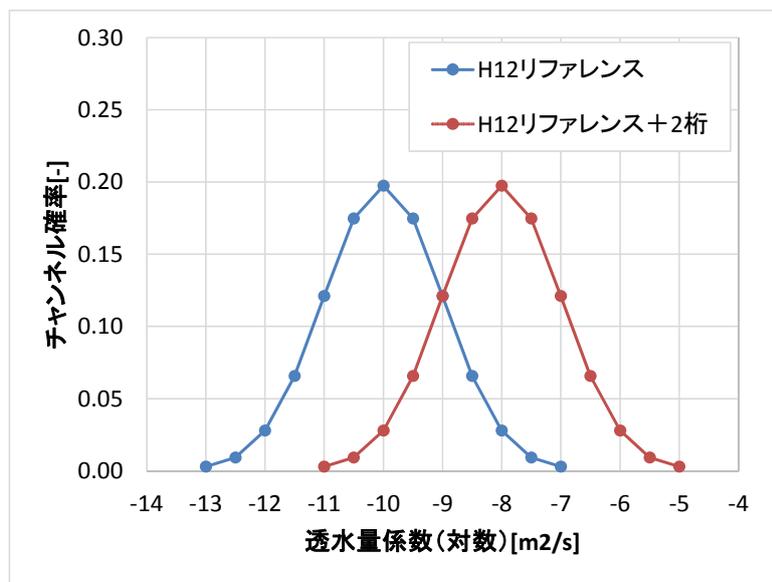


図 5.2.3-2 透水量係数分布

^{*)} FPC (Full Perimeter Criterion): 処分坑道周囲に亀裂がある場合、その亀裂と交差するように定置孔を配置するべきではないとする判定基準

表5. 2. 3-9 100万年間に損傷を被るキャニスタの個数の計算結果 (SKB, 2006)

Case	No rejection (excluding only deposition holes intersected by low confidence zones)	FPC	T > 10 ⁻⁶ m ² /s	T > 10 ⁻⁷ m ² /s	T > 10 ⁻⁸ m ² /s	FPC and T > 10 ⁻⁶ m ² /s	FPC and T > 10 ⁻⁷ m ² /s	FPC and T > 10 ⁻⁸ m ² /s
Fm based DFN	17 (0)	0	17 (0)	1 (0)	0	0	0	0
Fm semi-correlated DFN	40 (3)	10 (0)	16 (0)	1 (0)	0	7 (0)	1 (0)	0
Fm CPM	0	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
Lx base case	236 (9)	50 (0)	99 (1)	9 (0)	0	26 (0)	1 (0)	0

(左端列のFmはForsmarkを、LxはLaxemarを指し、それぞれにおいてモデル化された処分孔の数は6,824および7,483である。()内の数字は10万年以内に崩壊したキャニスタの数である。)

FPC: Full Perimeter Criterion : 処分坑道周囲に亀裂がある場合、その亀裂と交差するように定置孔を配置するべきではないとする判定基準

(3) 安全評価：解析結果・考察

図5. 2. 3-3に第2次取りまとめリファレンスケースの解析結果を、図5. 2. 3-4に(第2次取りまとめと同じ地質条件でSF1(日本原子力研究開発機構, 2015b)のパラメータセットを用いた)今回のリファレンスケースの結果をそれぞれ示す。双方の結果を比較すると、今回のリファレンスケース(図5. 2. 3-4)では被ばく線量ピーク値は10⁻³μSv/yrと、第2次取りまとめの結果よりも一桁程度小さい値となった。また100万年以内での支配核種はCs135、100万年以降ではTh229となっている。これは、表5. 2. 3-10に示すように、第2次取りまとめと比較してSF1(日本原子力研究開発機構, 2015b)では、Cs135およびTh229の親核種であるNp237母岩のKdは小さくなっているものの、線量換算係数が第2次取りまとめより一桁小さく、また、CsおよびNpの緩衝材中Kdが大きくなっていることが原因と考えられる。

表 5. 2. 3-10 支配核種の新旧パラメータの比較

パラメータ	単位	核種	第2次取りまとめ	SF1
線量換算係数	(Sv/yr)/(Bq/yr)	Cs135	1. 1E-16	1. 7E-17
		Th229	7. 9E-14	2. 5E-15
緩衝材分配係数	m ³ /kg	Cs	0. 01	0. 19
		Np	1	2. 9
緩衝材実効拡散係数	m ² /s	Cs	6. 0E-10	3. 8E-09
		Np	3. 0E-10	2. 2E-11
母岩分配係数	m ³ /kg	Cs	0. 05	0. 0091
		Np	1	0. 1

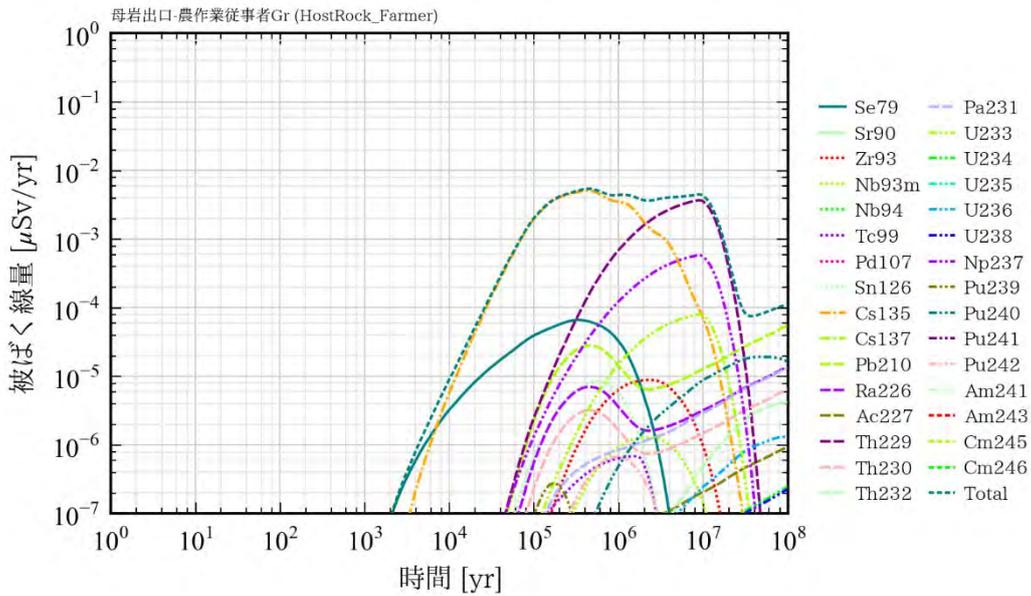


図 5. 2. 3-3 被ばく線量 (第 2 次取りまとめリファレンスケース)

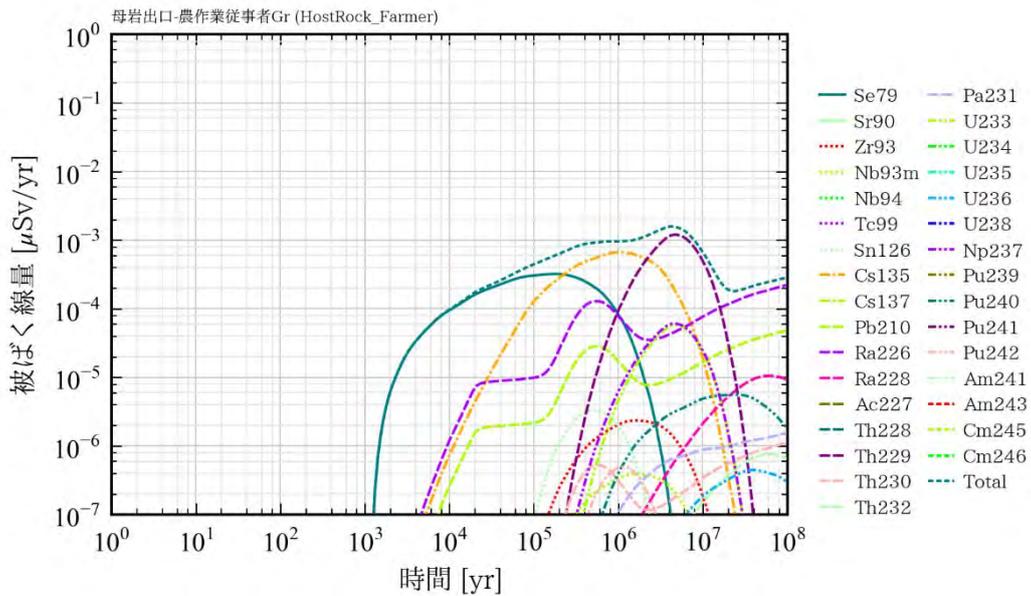


図 5. 2. 3-4 被ばく線量 (透水量係数分布第 2 次取りまとめ、1000 年で全数開口)

また、地質環境条件(母岩透水量係数分布)が第 2 次取りまとめと同じ場合において、上記の図 5. 2. 3-4 は、1000 年で廃棄体全数が開口するケースであるが、このケースとの比較を行うために、100 万年で開口する場合の結果を図 5. 2. 3-5 に、また 100 万年までの開口割合を段階的に変化させた場合の結果を図 5. 2. 3-6 にそれぞれ示す。さらに不確実性を考慮して、これら 3 つのケース (図 5. 2. 3-4 ~ 図 5. 2. 3-6) について、地質環境条件(透水量係数)を対数平均で 2 桁大きくした場合の結果をそれぞれ図 5. 2. 3-7 ~ 図 5. 2. 3-9 に示す。図 5. 2. 3-6 と図 5. 2. 3-9 より、評価期間を 100 万年とした場合、被ばく線量は容器の開口割合に比例し、その割合を SR-Site (SKB, 2011) での値 0.2% あるいは 3% と仮定した場合は、1000 年で全

数が開口する場合よりも2~3桁低い線量に抑えられることになる。

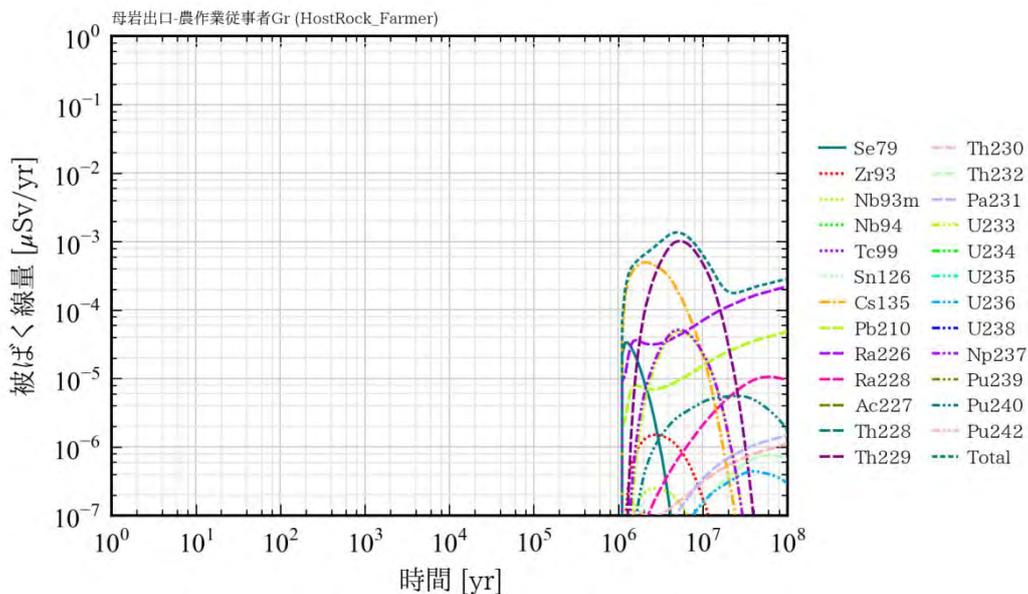


図 5. 2. 3-5 被ばく線量 (透水量係数分布第2次取りまとめ、100 万年で全数開口)

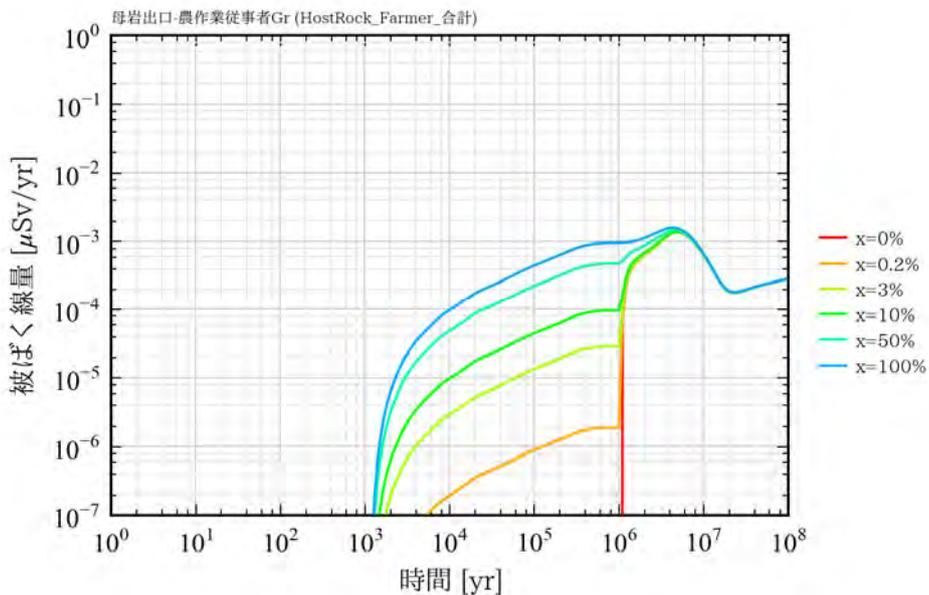


図 5. 2. 3-6 1000 年後での開口割合 x と全核種合計の被ばく線量の関係 (透水量係数分布第2次取りまとめ、100 万年までの開口割合を変化)

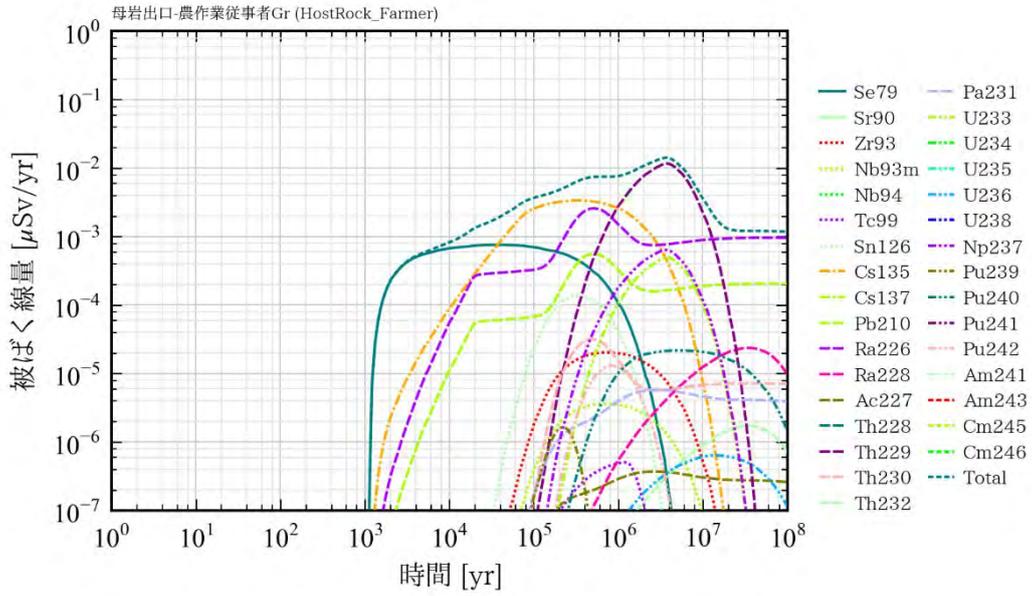


図 5.2.3-7 被ばく線量 (透水量係数分布第2次取りまとめ+2桁、1000年で全数開口)

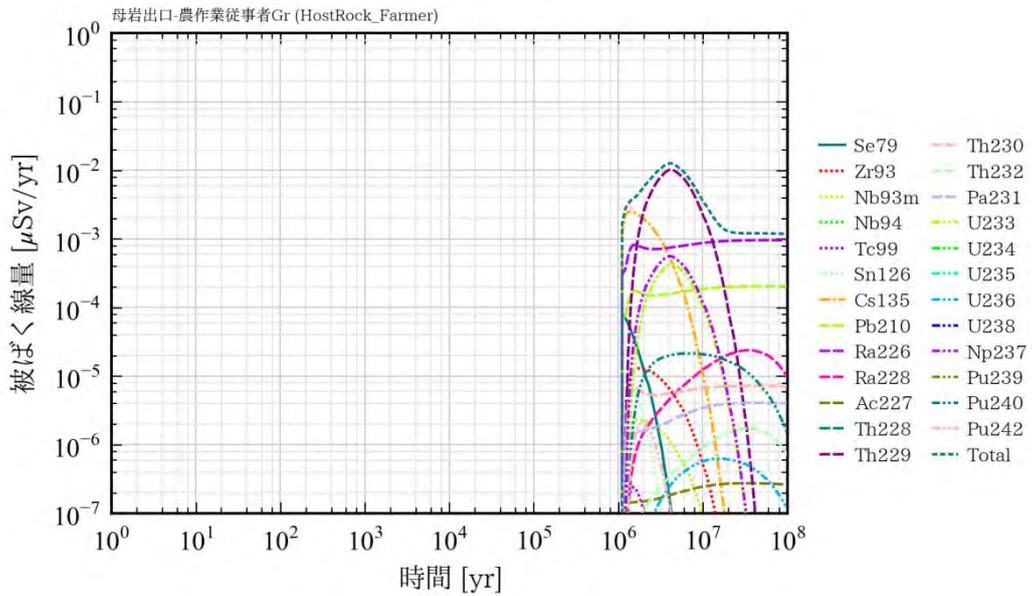


図 5.2.3-8 被ばく線量 (透水量係数分布第2次取りまとめ+2桁、100万年で全数開口)

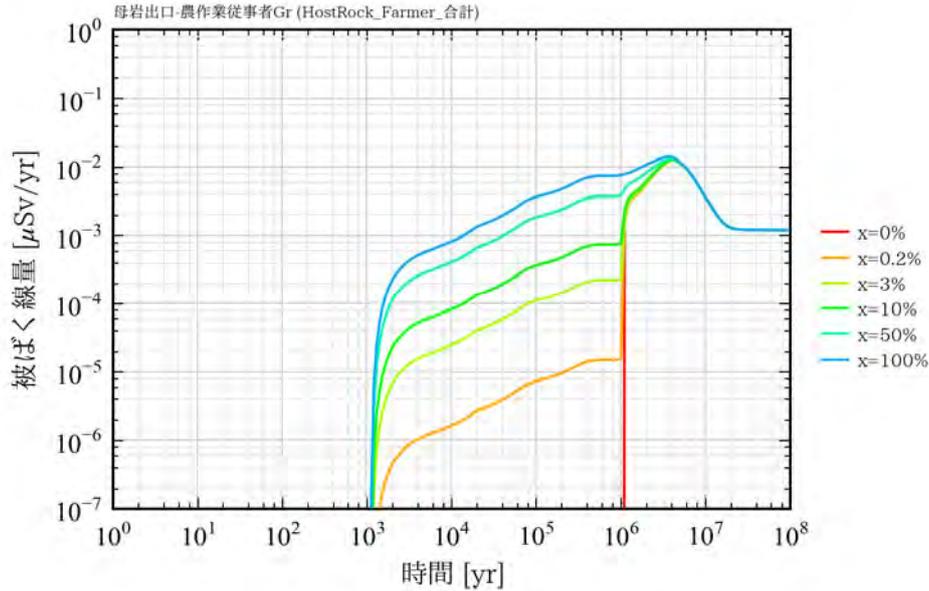


図 5.2.3-9 1000 年後での開口割合 x と全核種合計の被ばく線量の関係 (透水量係数分布第 2 次取りまとめ+2 桁、100 万年までの開口割合を変化)

(4) チタン製長寿命容器を用いることによるメリットとデメリット

チタン製長寿命容器を用いることによるメリットは、評価期間として想定する100万年間の生活圏への核種移行をゼロに近いレベルに下げることができることであり、デメリットは主としてコストの上昇である。

安全性については、前項の安全評価解析の結果、第2次取りまとめリファレンスの場合も、また天然バリア効果が小さくなるサイトを想定した場合 (岩盤透水性を上昇させたケース) においても、SR-Site (SKB, 2011) で想定されている容器の破損割合 (0.2%) を考慮した場合、100万年間の最大被ばく線量は2.5桁程度低下する。

一方、デメリットについては、炭素鋼からチタンに材料を変更することによる4万本分のコスト上昇を表5.2.3-11から、以下のとおり見積もることができる。

- 炭素鋼製オーバーパック (6000kg) をチタン製に変更^{*)}した場合 (同じ寸法仕様) のコスト上昇 $3.0 \times (6 \times 10^3) \times (4.5/7.9) \times (4 \times 10^4) - 0.1 \times (6 \times 10^3) \times (4 \times 10^4) = 38.6 \times 10^7$ (千円)

この費用上昇分を電力料金に換算すると、4万本のガラス固化体が発生する際の電力使用量^{**)} :

$300 \text{ (kWh/月/世帯)} \times 10 \text{ 万 (世帯)} \times 12 \text{ (月)} \times (4 \times 10^4) \text{ (本)} = 144 \times 10^{11} \text{ (kWh)}$ で除することにより、
 $38.6 \times 10^7 / (144 \times 10^{11}) = 0.268 \times 10^{-4}$ (千円/kWh) 程度となり、普通の家庭 (平均の年間消費電力 : 3600kWh) における年あたりの値上げは、96円程度となる。

なお、チタンを耐食層として使用する場合には、チタン-炭素鋼の複合オーバーパックとすることが現実的であるが、ここでは簡略的に、元々の炭素鋼製オーバーパックと同じ重量のチタン製オーバーパックとして材料変更 (炭素鋼に比べ比重^{*)} が小さくなることを考慮) したと仮定した場合のコスト上昇は、

$$(3.0 - 0.1) \times (6 \times 10^3) \times (4 \times 10^4) = 69.6 \times 10^7 \text{ (千円)}$$

^{*)} 炭素鋼の比重は7.9g/cm³程度、チタンの比重は4.5g/cm³程度。このため同じ重量の仕様の場合、チタンの方が厚みが増す。

^{**)} 約10万世帯が1年間に消費する電力のすべてを原子力発電でまかなった場合、およそ1本のガラス固化体が発生すると仮定。

であり、年あたりの値上げは、 $69.6 \times 10^7 / (144 \times 10^{11}) = 0.48 \times 10^{-4}$ (千円/kWh) 程度となる。同様に普通の家庭の年あたりの値上げは、174円程度となる。

表5.2.3-11 主な材料単価

材 質	単価 (千円/kg)
軟鋼	0.1
チタン	3.0

このように、システム性能としての被ばく線量の低減効果はあるものの、もともと通常の鋼製オーバーパックの場合の被ばく線量も無視できるほど低いレベルであることが、これまでに諸外国で提案されているガイドラインや世界各地の自然放射性核種による平均線量 (UNSCEAR, 1993) との比較から明白である。このため、システム性能をさらに向上 (線量の低下) させることについて、社会的受容性の観点から、上記のコスト上昇 (平均的な一世帯あたり年間電気使用量3600kWhをかけて、普通の家庭で年あたり96~174円程度の値上げ) は正当化されないといった意見 (コストについての批判には、藤村ほか, 2001等がある。) もあるが、このような判断は種々のステークホルダの持つ多様な価値観に依存するため、5.4項にて後述する合意形成に向けた対話の中で取り上げ議論すべき事項となる。

5.3 受動的安全系へ推移するまでの期間におけるレジリエンス的取り組みの具体化

5.3.1 回収可能性やモニタリングを含む制度的管理期間中のレジリエンス的取組みの要件の明確化

(1) 意思決定の可逆性と後退

1) 定義

可逆性と後退に関わる定義は以下のとおりである (たとえばOECD/NAE, 2012)。

- 意思決定の可逆性 (reversibility) : 処分事業の段階的な進展において、一旦下した意思決定を差し戻すことのできる可能性を原則として保持すること
- 後退 (reversal) : 実際に意思決定を覆し、事業の計画を変更したり、以前の状態に復旧する行為を実践すること

2) 基本概念

意思決定者が認識するか否かに拘らず、あらゆる意思決定は必ず「不測の事態」の生ずる可能性を伴う。この可能性を排除してしまうか計画に明示的に取り込むかは政策あるいはプロジェクト管理上の選択肢である。前者の場合、不測の事態が実際に生じた場合のその場しのぎの対応は計画全体についての確信の低下や責任主体に対する不信を招く可能性がある。可逆性は、先行する意思決定を進んで再評価し常に疑問を持ち続けるような態度に根ざすものであり、必要に応じて、意思決定の見直しや計画変更を過度な負担を伴わずに実施できるように処分事業の柔軟性を最大限に確保することである。

3) 可逆性を満足するための最善の手段 : 段階的な意思決定プロセスの採用

処分事業の諸段階において、決定された計画の執行を猶予する期間 (hold points) を設け、幅広い人々の熟慮を促すとともに、予め定められた基準に照らして決定を差し戻すか否かの判断が為され、その結果が記録される必要がある。(図参照)

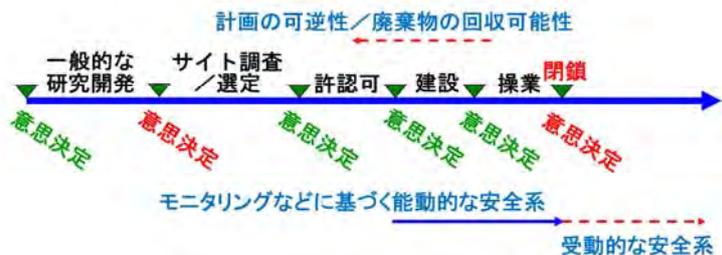


図5.3.1-1 処分事業の諸段階及び対応する意思決定の例

(2) 廃棄物の回収可能性と回収

1) 定義

- 回収可能性 (retrievability) : 処分場に定置した廃棄物あるいは廃棄物パッケージ全体 (廃棄体) を回収することのできる可能性を原則として保持すること (必要であれば廃棄物を回収できるような準備をしておくこと)
- 回収 (retrieval) : 処分場内の廃棄物もしくは廃棄体を実際に回収する行為

2) 基本概念

閉鎖後長期の安全性は、モニタリングを含む制度的管理に依存するものであってはならず、回収可能性は、安全性の立証が不十分な処分事業をとりあえず進める際の言い訳に使われてはならない。回収可能性について検討を進めている各国で共通の考え方は下記の通り。

- 動機 : ①将来の様々な可能性に対する謙虚で開かれた姿勢を保つ、②安全性に対する付加的な保証の準備、③公衆の持つ「後戻りできない状況への恐怖」への配慮
- 技術的要件 : 将来の廃棄物の回収を容易にするための特段の技術を求めるものではなく、将来世代による廃棄物の可能性が原理的に可能であること、そして、回収を妨げるような不必要な障害が排除されていることを求めるものである

3) 回収に要するリソースおよびリスク

すべての地層処分システムの特質である、放射性物質の閉じ込めと限られた領域内での保持は、廃棄物の回収可能性の観点から好ましいものである。このため、処分場閉鎖後に制度的管理が終了した後でも容器が健全な期間内の廃棄物の回収は技術的に可能であり、また、それよりもさらに遠い将来においてすら廃棄物の回収は不可能ではない。回収可能性はon/offの属性ではなく、程度問題であり、そのために必要なリソースや付随するリスクは処分事業の進展とともに増大する (OECD/NEA, 2012) という認識を広く共有する必要がある。

(3) 意思決定の可逆性や廃棄物の回収可能性 (R&R) についての基本的な考え方

1) 社会的要請の本質

意思決定の可逆性や廃棄物の回収可能性 (R&R: reversibility and retrievability) に対する社会的な要請は、実際の廃棄物回収を技術的に容易なものとするのではなく、むしろ、処分事業の進展において後戻りできないような決定を避け、幅広いステークホルダが参加することのできるような持続的な意思決定プロセスを保持することにあると考えられる。

2) R&Rの位置づけ

R&Rは、今後の意思決定や処分場概念構築プロセスが安全かつ社会的に受け入れられるような地層処分の達成に向けて我々が歩むべき道筋となるために、これらのプロセスに求められる重要な特質である。また、処分場概念構築において、多様なステークホルダの協働と熟慮を通じて長期的安全性の目標を達成するための責任ある取り組みの一環として有用な手段でもあり、可逆性や回収可能性（R&R）は以下の観点から寄与することが期待される。

- 工学技術のレベル：安全性を確保するための最善の方法を詳細化するための取り組み
- プロジェクトレベル：特定の技術オプションに拘り他の有用なオプションを排除してしまう可能性の抑制
- 政策レベル：段階的な意思決定のそれぞれの時点において、多様なステークホルダが協働し、熟慮してその妥当性を検証する機会を設けることによる合意形成の促進

3) 今後取り組むべき課題

今後の取り組むべき課題として以下が挙げられる。

- 公衆参加の制度設計：
 - 幅広いステークホルダの参加方法の検討：規制当局、政策決定者、興味を持つ一般市民
- Confidence buildingと信頼醸成の機会としての活用：
 - R&Rを地層処分システムやその時間的変遷についてのconfidence building及び事業や責任主体に対する信頼醸成の機会として活用することについての検討
- R&Rとセーフガードや核物質防護との関係の整理

受動的な安全系へ推移するまでの取り組みが、1.2で述べた「確証性の高い地層処分システムの概念構築」に向けた合意形成に寄与し得る領域を図5.3.1-2に示す。この図の意味するところは、今後の意思決定や処分場概念構築プロセスに求められる特質であり、これは、技術に対する確信（Confidence building）と社会からの信頼獲得の機会としてのR&Rの活用と、意思決定プロセス及びステークホルダ参加の制度設計とに大別される。



図5.3.1-2 「受動的な安全系へ推移するまでの取り組み（R&R）」が合意形成に寄与し得る領域

4) R&Rのための技術的準備の状況

R&Rに必要な技術的取り組みについて、現在進行中のフランス、スウェーデンおよびわが国の状況を以下に示す。

①フランス

フランスでは、2006年の「放射性物質及び放射性廃棄物の管理計画に関する法律」において「可逆性のある地層処分」を行うことを決定しており、眼目は処分事業の各段階で、設計変更や廃棄物回収の可能性を保持することにより、将来世代の選択肢を残すことにある。処分システム概念として、水平処分孔中に鋼製スリーブを設置し、その中にセラミック製パッドを装着して可動性を高めた処分容器（ガラス固化体を封入した）を挿入することとしており、この定置作業は、伸縮機構を有した遠隔操作による定置ロボットによって行い、回収は搬送／定置の逆操作を行うことにより可能としている（ANDRA, 2005）。

②スウェーデン

スウェーデンでは、R&Rに関して法令上の規定はないが、必要に応じ、作業中あるいは坑道閉鎖後に、長期的安全性に有意な影響を与えることなく廃棄物を回収することを容易にする措置を講ずることが規制当局により勧告されている。このためSKBでは、処分孔中堅置きKBS-3V概念について、定置後の緩衝材に対してリング状のフレームから塩水（CaCl₂溶液）を撒くことによりベントナイトをスラリー化させ吸引することにより、実規模キャニスタに損傷を与えることなく廃棄物の回収が可能であることの実証試験（CRT: Canister Retrieval Test）を行っている（SKB, 2013）。

③日本

わが国の高レベル放射性廃棄物の廃棄物の回収可能性については、平成18年9月に取りまとめられた「放射性廃棄物の地層処分に係わる安全規制制度のあり方について」（総合資源エネルギー調査会廃棄物安全小委員会, 2006）において、

「基本的に廃棄物を回収するような事態が生ずることはないと考えられる。一方、処分場閉鎖までの間は、不測の事態への適切な対応、定期安全レビュー結果を踏まえた対応手段の確保等のために、廃棄物の回収可能性を維持することが必要」

と記されている。また、平成24年12月に原子力委員会が公表した「今後の原子力研究開発の在り方について（見解）（原子力委員会, 2012）では、

「回収可能性の合理的な担保のあり方に関する研究開発を継続的に進めることが重要である」と記されている。

これらを背景として、地下環境における高レベル放射性廃棄物の回収技術を整備し、国民の地層処分技術に関する安心感の醸成に資することを目的として、処分施設を埋め戻さずに一定期間維持することが処分施設の安全性に及ぼす影響について周辺岩盤の力学的、水理的、化学的な観点からの調査・整理・評価とともに、必要となる回収技術の開発が2008年より実施されている（原子力環境整備促進・資金管理センター, 2009a; 2009b）。

(4) 意思決定プロセス及びステークホルダ参加の制度設計に関する検討

1) 意思決定におけるステークホルダの参加

従来の意思決定プロセスでは、図5.3.1-3に示すように、計画に関係する代表者（地域の直接的利害関

係者、専門家、政策決定者）との間の調整・交渉が主であったが、これを改善し、より幅広いステークホルダとの情報共有を図るとともに彼らが望めば意思決定に参加することのできるような枠組み（PI: Public Involvement）を新たに作る事が重要である。

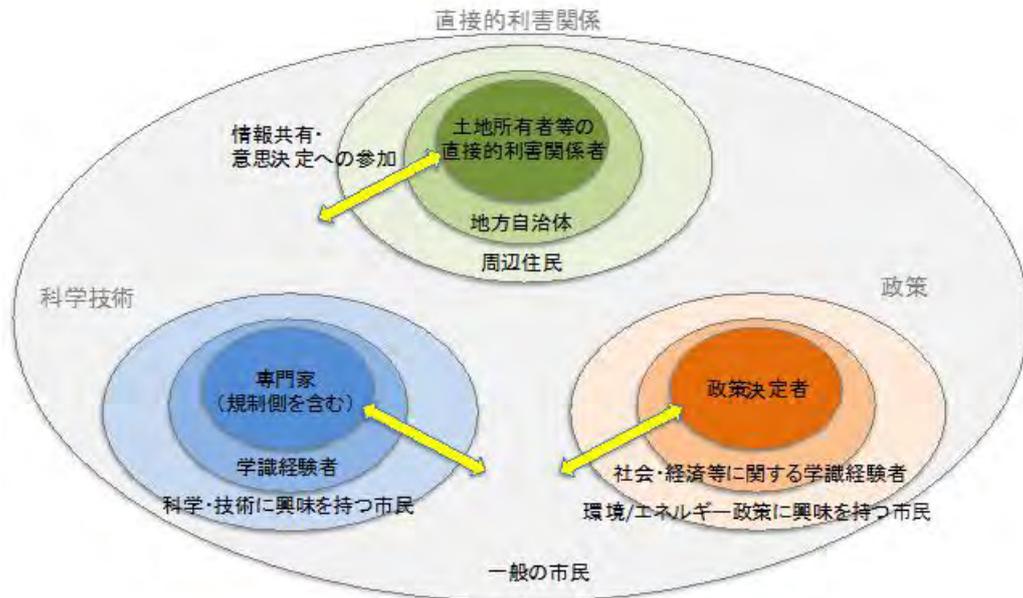


図5.3.1-3 意思決定におけるステークホルダ
 (図中の黄色の矢は、一般市民との情報共有と意思決定への参加を意味する)

2) 何について議論し判断すべきか？

意思決定においては、現状の科学技術知識に基づき安全確保のための最善の努力が尽くされているというような、地層処分分野の専門家による従来の科学技術的な議論のほかに、以下のような、他分野の有識者や幅広いステークホルダによる議論や判断が必要なことについても議論することが重要となる。

- 現在の知識に対する慎重な検証が行われ、誤りがあった場合の対策が示されていること
- 将来の予期せぬ事象や状況（知らないことに気づいていないこと）に備えて十分な対策が講じられていること
- 地層処分の有効性と安全性に関してアコモデーション（異なる意見がありながらも全体として受容されている）が成立していること

上述したそれぞれのポイントをさらに分解して議論のポイントを図5.3.1-4に整理した。

地層処分分野の専門家に
よる従来の科学技術的議論

他分野の有識者や幅広いステークホルダーに
よる議論及び判断の必要な領域



図5. 3. 1-4 意思決定において議論すべきポイント

3) どのような話し合いの場を設けるべきか

話し合いの場として、地層処分の問題の特徴となる専門的知識を必要とする「（原子力発電の恩恵を受けた）みんなの問題」については、どのような枠組みで議論すべきかを検討する必要がある。この議論の大きな特徴は、適切な判断のために必要となる専門的な知識や情報を関係者全員が普く共有し理解することは難しく、また、専門的知識を持つ一部の集団による判断には代表性が欠けていることがあげられる。このような観点から、専門性の高い限られた参加者のコミュニティから「幅広い参加者を募った公共の枠組み」までの多段階の議論の場を設け、これらを相互に連携するようなフレームワークが必要であり、ここでは、その相互に連携した多段階の議論の場の一例を図5. 3. 1-5に示す。

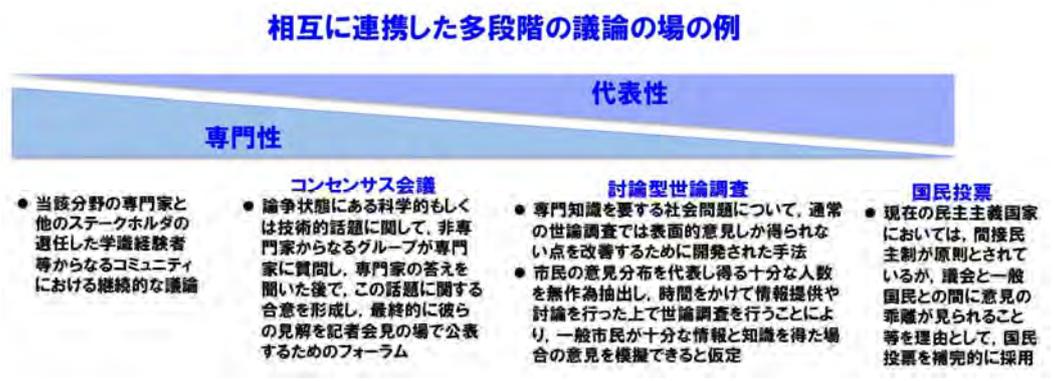


図 5. 3. 1-5 相互に連携した多段階の議論の場の例

図5. 3. 1-5は、専門的なことを民主的に扱う上でどうしたらいいかという観点で作成している。例えば専門性の観点から議論を詳しく行おうとすると、これまでのように当該分野の専門家と他分野の学識経験者等からなるコミュニティなど少数で徹底的に行うことになり代表性が失われる。一方、広く行おうとすると人気投票のようになるため、代表性の高い議論としては、市民の意見分布を代表しうる十分

な人数を無作為抽出した「討論型世論調査」があげられる。また、双方の中間として、非専門家からなるグループが専門家に質問し、答えを聞いたうえで合意を形成する「コンセンサス会議」があげられる。これらの場では、なるべく代表性を高めつつも、専門性もある程度保つことが重要となる。このように、図の左側に示す技術専門家から提案を行うというこれまでのやり方が図の横軸に沿って変わり、議論の内容もまた多様化していくことを示している。

上述したように、地層処分意思決定においては様々な段階があり、ステークホルダの属性も多様であることから、各意思決定の段階で、実施すべきコンセンサスづくり (Consensus Building) の内容を以下のように抽出した。

- ① ステークホルダの抽出：関連するステークホルダを抽出し、彼らの興味、知識、コンセンサスに基づく合意形成の受け入れやすさを評価
- ② 合意形成プロセスの開始：合意形成に向けたプロセスを行うか否かについての意思統一を図り、この決定に基づき目標、話し合いのルール及びスケジュールを明確にする
- ③ ファクトファインディング：各ステークホルダの協働により、疑問や問題点に関連する事実やデータを収集し、実現可能なオプションを具体化する
- ④ 技術的に有用であり社会／政策的に受け入れることのできるような合意案に到る可能性を向上するように、十分な時間をとって候補となるオプションや関連する問題点等について参加者が熟慮するプロセスを行う
- ⑤ 可能な限り全員あるいは大多数のコンセンサスとしての合意案を目指す。また、完全な合意が困難な場合にはそれに近い妥協案をまとめるとともに、当該案に反対する意見をできるだけ共存させるような付帯事項を具体化する
- ⑥ 次段階において、合意した対策や計画変更案が適正に実施されるか否かを確認するとともにその効果を評価し意思決定を再考するためのフォローアップの方法を設定する

これらの手順に基づく具体的な制度設計は、それ自体、多様なステークホルダ間の開かれた議論に委ねられるべきであり、これについては5.4項の「多様なステークホルダ間の合意形成に向けた協働」において後述する。

4) 技術への確信と社会の信頼獲得 (Confidence building) の機会としてのR&Rの活用に関する検討

地層処分による安全確保技術への確信と社会の信頼獲得は、各ステークホルダ自身の理解と知識に基づく主体的な判断において、その確信の度合いを高めるための自力による直接的な取り組みであるのに対し、社会の信頼獲得は技術や制度等に対する信頼に加え（あるいはそれ以上に）、それに携わる人たちに委ねても良いという意味での信頼も含み、Confidence Buildingよりは間接的なニュアンスを含む。

可逆性や回収可能性と処分場の各開発段階との関係を示したものとして、例えば「Rスケール」(OECD/NEA, 2012)がある。これは、処分場の開発段階の進展に応じて、回収の容易さ、受動的安全性 (passive safety)、能動的管理がどのように変化するかを段階的に図示したものである。しかし、地層処分の受動的安全性については直接的な実証が困難であることから、システムの長期安全性についての保証 (safety assurance) の度合いは、多様なステークホルダによる技術への確信と社会からの信頼獲得の度合いによって示されると考えられる。

上記の長期的安全確保に関する保証 (safety assurance) の向上を図る概念の一例として、図5.3.1-6に示すバスタブモデルに基づく閉鎖後モニタリングがあげられる。

閉鎖後のモニタリングは技術的には不要だが、一般の人々の不安を払拭するために念のため実施する

というロジックで導入した場合には、目標が明確にならないがために、意義が不明瞭なまま始まり、意義が不明であるが故に完了期間を設定できないという状況に至る可能性がある。そこで、このような状況を避けるためには、むしろ「閉鎖後モニタリングの意義を明確にするとともに、一定期間経過後にはそれが不要になることも併せて説明する」ことが必要と考えられる。

この説明の一つの方向性は、下図に示すものであり、ここでは処分システムの挙動を、

- ① 初期不良や過渡的变化に伴う故障の生じ得る期間（数百年間）
 - ② 地層処分システムが定常的な状態にある期間（数十万年間）
 - ③ 人工材料の変質や地質環境条件の変遷によってバリア機能が低下する期間（数十万年後以降）
- という三つの期間に区分し、①の期間においては、複数のプロセスのVariabilityやUncertaintyが相互に影響を及ぼしながら機能共鳴によって処分システムが予想しなかった極端な状況に到る可能性を指摘しつつ、そのような可能性を種々のモニタリング手法によって注意深く監視し、システムが②の定常的な挙動へと推移することを確認するという積極的な技術的位置づけを与える。また、このことによって、②の状況では処分システムが安定な状態となり、その状態での核種移行率や想定し得る擾乱の影響が十分に小さいことを安全評価で立証可能であることを説明した上で、モニタリングや可逆性・回収可能性が不要となることを明確に主張するという戦略を採る。

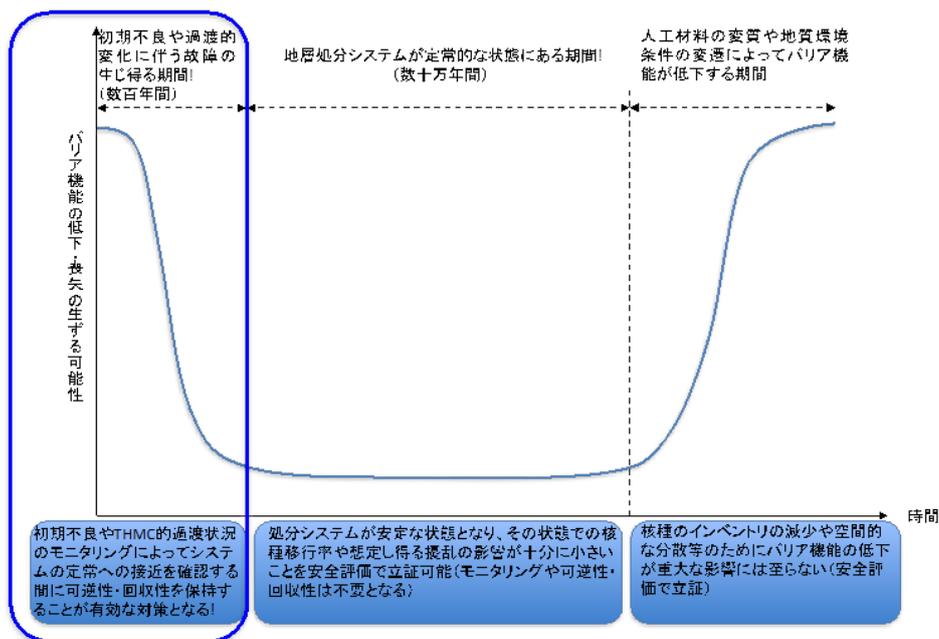


図 5.3.1-6 バスタブモデルに基づく閉鎖後モニタリング及び可逆性・回収可能性の必要性和時間スケールの関係

5) 「Intractable」なシステムの理解

ここでは、地層処分による安全確保の技術への確信 (Confidence Building) に関わる制度設計を行ううえで、Hollnagel (2012) による「Intractable」なシステムの概念を導入する。Hollnagel (2012) は、以下の要件をすべて満足するシステムを「tractable」であるとし、一つでも満足しないようなものを「intractable」なシステムと呼んでいる。

- システムは意味のある要素（部品、あるいは機器）に分解できる。同様に、事象は独立したステッ

プや活動に分解できる（分解原理）

- 各要素は正常であるか故障している（異常）かのどちらかである
- 事象の時系列や順番は、選択した表現による記述によって事前に定義し確定することができる。事象の別の時系列を考慮することが必要となれば、新たに定義することができる
- 事象の組み合わせは、順序があり線形である。また、それに伴うシステムの挙動は標準的な論理記号で記述することができ、出力は入力に対して調和的である（複数の要素の組み合わせによってはじめて生ずる「創発（Emergence）」は生じない）

一方、「Intractable」なシステムの挙動を完全に理解し予測することは不可能であり、「相対的な無知」が常に残されることを前提とした取り組みが必要である。これら「Tractable」なシステムと「Intractable」なシステムを比較したものを表5.3.1-1に示す。

表 5.3.1-1 「Tractable」なシステムと「Intractable」なシステムの比較 (Hollnagel, 2012)

	Tractable なシステム	Intractable なシステム
細部の個数 (Number of details)	少数の細部のみが含まれており記述は容易	多数の細部が含まれているために記述は困難
変化の速さ (Rate of change)	遅い：システムを理解・記述している間に変化しない	速い：システムを理解・記述している間に変化する
理解し易さ (Comprehensibility)	機能原理は完全に理解されている	機能原理は完全には理解されていない
プロセスの特性 (Characteristic of processes)	一様であり規則的	一様ではなく不規則

地層処分システムは良く知られた科学的原理に基づくものであり、確立された技術の組み合わせによって実現可能なものであるが、“intractable”な特性が全く含まれないものではないことを認識したうえで、これらの特性についての理解を事業段階の進展に従って深化させていくことが重要である。

6) 地層処分システムの“intractable”な性質に着目したConfidence Building

受動的な安全系としての地層処分システムのロバスト性を実現するためには、地層処分事業の各段階において、入手可能な情報や知識に基づき、最終的に構築すべきシステムの姿を具体化し評価を行うという手順を繰り返すことが重要である。

この反復的な試行において、前段階における地質環境やシステムの振る舞いについての理解に基づき次段階で遭遇するであろう状況を予測し、現実と予測の差異を監視しながら必要に応じて対応策をとるとともに、その過程を通じて学習したものを最終的に構築すべきシステムの姿に反映していく、という努力が求められる（Hollnagelの言う現実的問題についての「相対的無知」の低減に相当する）。

“Intractable”なシステムの予測の困難さに関連して着目すべきシステムの特徴には、複雑性とダイナミクス（Dörner and Wearing, 1995）があり、それらを地層処分システムに適用させた試行例を表5.3.1-2に示す。

表 5.3.1-2 地層処分システムに含まれる複雑性とダイナミクス

地層処分システムに含まれる複雑性	地層処分システムに含まれるダイナミクス
<ul style="list-style-type: none"> ■ 多数の (多様な) 要素 <ul style="list-style-type: none"> ● 特性の異なる多数の廃棄体 ● 多様な人工バリア材料 ■ 様々な関係性 <ul style="list-style-type: none"> ● 階層関係 (マルチスケール性など) 処分孔スケール/坑道スケール/パネルスケール/処分場スケール ナノスケール/ミクロスケール/メゾスケール/マクロスケール等 ● 相互作用や交流 複数廃棄体・材料間の干渉 複数のプロセス・現象間の相互作用 (連成効果) 建設・操業・閉鎖における各工程間の取り合い (時間的推移や隣接領域での異種の作業の進行など) ● 配分・配置 ■ 特性の異なる廃棄体の不均質な母岩中での配置 ■ 不均質性 <ul style="list-style-type: none"> ● 母岩特性の不均質性 (透水性亀裂の分布等) 	<ul style="list-style-type: none"> ■ タイミングの感度 <ul style="list-style-type: none"> ● 複数の廃棄体や人工バリアの定置あるいは坑道閉鎖の手順やタイミングによるその後のニアフィールド環境変遷挙動の変化 ■ フェーズの効果 <ul style="list-style-type: none"> ● 建設以前、建設、操業、閉鎖、閉鎖後の地質環境特性の変化 ● 廃棄体発熱期間とそれ以後の熱的プロセス及び温度依存性のある現象の変化 ● 核種移行開始 (オーバーパック開口) 前後で考慮すべき環境条件の変化 ● 人工バリア材料変質 (セメント溶脱、緩衝材変質、鉄腐食、ガラス溶解等) の進行フェーズに応じた現象の変化 ■ 予測不能性 <ul style="list-style-type: none"> ● 将来の人間活動及びその影響 (人間侵入等) ● 将来のテクトニクス的環境の変化あるいはそれによって引き起こされる天然事象の影響等

5.3.2 モニタリング等の工学的対策の統合及びこれらの運用・管理方法の具体化

上述したR&Rを前提とした地層処分による安全確保技術に対する確信と社会からの信頼獲得 (Confidence building) の具体的方策の例として、本項ではモニタリング方法やモニタリング情報の可視化方法及び擾乱に関する実証実験を取り上げた。その調査結果を以下に示す。

(1) モニタリングや可逆性・回収可能性の要件

原子力発電環境整備機構では、閉鎖後長期にわたるモニタリング項目とモニタリング方法の設定について、図5.3.2-1に示す検討フローを作成している (原子力発電環境整備機構, 2010)。

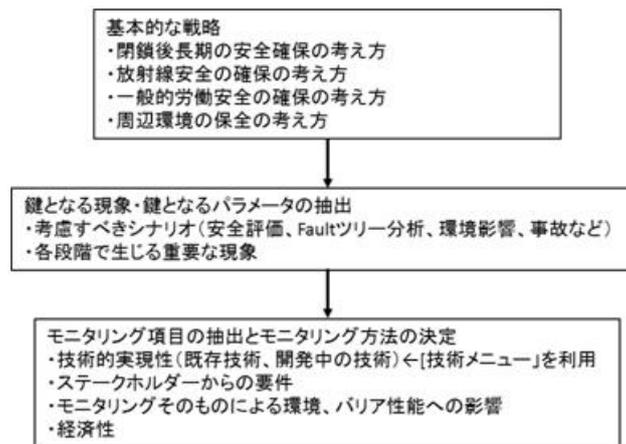


図5.3.2-1 モニタリング項目の抽出と実施方法の検討フロー

ここでは、まず、モニタリング項目抽出のための基本的な方針として、閉鎖後長期の安全確保の考え方、放射線安全の確保の考え方、一般労働安全の確保の考え方、周辺環境の保全の考え方を基礎としている。この方針に基づいて、鍵となる現象・鍵となるパラメータが導出される。その際、安全評価や環

境影響評価、事故時のシナリオなど、基本的な考え方を具体化したシナリオを考慮するとともに、モニタリングが将来の意思決定に柔軟性を与えるための多面的論拠（OECD/NEA, 2004）のひとつとなるよう、現時点で想定されるシナリオに限定せず各段階で生じる重要な現象を網羅的に考慮することが重要であるとしている。例えば、IAEA（2001）は、処分場の構成物、廃棄体パッケージ、緩衝材などに対して、掘削に伴う力学的な擾乱、掘削や排水に伴う水理的・化学的擾乱、発熱廃棄体の定置に伴う熱-力学影響、処分場建設および操業に伴う地球化学的擾乱など想定される連成挙動を考慮して、モニタリングすべき項目（表5.3.2-1参照）を導出している。ここで重要なことは、閉鎖後の長期的な安全性は、原則としてモニタリングによって直接的に確認することはできないということである。そのため、代替的な指標によって安全評価シナリオの基礎となる地質環境モデルの妥当性確認などを通して間接的に安全性を確認することが現実的である。

表5.3.2-1 モニタリングパラメータと方法の例（IAEA, 2001）

カテゴリ/モニタリングの目的	典型的なパラメータ	評価手法	典型的な計測方法
処分場の構成物の劣化 処分場の構成物/隙間の安定性のモニタリング	岩盤の温度	処分場におけるモニタリング（処分場から掘削したボーリング孔を利用したモニタリングを含む）。無線や地電流を使った原位置に設置された機器の利用を含む。	熱電対など
	隙間の変形（方向、開口幅、伝播速度）		変位計
	処分場近傍の岩盤応力の変化		ひずみ/荷重センサー
	湧水量		体積の計測
	支保の状態		ひずみ/荷重の計測
	処分場の温度、湿度		様々な技術
	埋め戻し材の再冠水		埋め戻された隙間の原位置/遠隔操作モニタリング
廃棄体パッケージと緩衝材の挙動	ひずみ、腐食速度	廃棄体パッケージの原位置/遠隔操作モニタリング	ひずみゲージ、速度メータ
定置された廃棄体パッケージの状態/緩衝材の状態のモニタリング	パッケージ温度、パッケージ近傍の湿度	パッケージ近傍の環境の原位置/遠隔操作モニタリング	多くの技術が存在
	排水の放射能	処分場からの流出水の放射線モニタリング	ガンマ検出など様々な技術
	廃棄体から発生するガス	放射性・非放射性ガスのモニタリング	ガス分析器
	緩衝材の再冠水/膨潤圧	パッケージ金部の環境の原位置/遠隔操作モニタリング	圧力計、水分計
	ニアフィールドの化学的な相互作用 埋め戻し材の化学的な状態/人工バリアの挙動/コンクリート構造物の状態/ニアフィールド環境の変化/行動壁面のプロパティ/処分場の再冠水挙動	処分場の温度、湿度	処分場におけるモニタリング
坑道壁面の鉱物、化学、生物学的変化		定期的なサンプリング	様々な分析技術が存在
湧水が終了した時点のニアフィールドの含水比、圧力、化学特性の変化		定期的なサンプリングまたは連続的な観測	様々な技術が存在
地圏の変化 周辺の地圏における変化/人工バリアと岩盤、地下水の相互作用/アルカリブルームの影響	地下水の水圧と経路の変化	新規または既存のボーリング孔を利用	ピエゾメータなど飽和領域に対する圧力モニタリング機器、テンシオメータなど飽和領域に対する機器
	地下水の化学特性の変化（例えば、pH、Eh、溶質、放射能、微生物活動）	同上	サンプリングやガンマ線検出など様々な技術が存在
	重要構造物の力学的変化	同上	電気-力学ゲージ、AE モニタ
	鉱物の変化	同上	サンプリング
	温度場	同上	ボーリング検層
	応力場	同上および遠隔操作（微小地震）	ひずみ/荷重センサーおよび微小地震観測技術
	地震とその応答	処分場内、地表、ボーリング孔	地震波検出
	環境データベースの蓄積	気象、水文など	
保障措置	人工バリアの擾乱		サイト調査 航空写真 衛星サーベイランス

以下に本検討で調査中の新たなモニタリング技術の例を示す。

1) 緩衝材間隙水質の測定

緩衝材の主成分であるベントナイト中の間隙水のほとんどは、ベントナイト中の粘土鉱物のTOTユニット間に位置する層間水で拘束状態にあり、外部間隙中の自由水は極めて少量であることから、従来は、圧密状態のまま（原位置）での水質測定は困難であるとされてきた。従来検討されてきた手法では、水質測定の可能な低固液比の系における間隙水質は圧密状態とは全く異なるという指摘があり、また、間隙水を抽出した溶液の水質も種々の影響を受けている可能性があると考えられている。そこで、Muurinen & Carlsson (2010) は、固液比の高いベントナイト中の間隙水質の直接測定を試みている。ここでは、圧密されたMX-80ベントナイト中に電極（IrO_x電極：pH測定用、Au及びPt電極：酸化還元電位測定用）を挿入することで、外部間隙中の自由水の水質を測定し、また、一方で、ピストンによって絞り出した間隙水についても同様の電極を用いて測定を行い、比較・検証している。この適用は、これまでのところ室内の試験に限られていることから、これらを工学規模の緩衝材に埋め込み、長期にわたって測定を継続することを可能とする応用研究が今後の課題になるものと考えられる。

2) コンクリート構造物の遠隔腐食モニタリング法(下澤ほか, 1999)

(財)日本建築総合試験所が開発したシステムで、コンクリート構造物の鉄筋近傍にミニセンサを埋設して、鉄筋の腐食状態を長期間かつ高精度で連続的に遠隔モニタリングするものである。設置したミニセンサによって電気化学的特性値（自然電位、分極抵抗、液抵抗）を測定し、鉄筋腐食の有無、腐食速度および鉄筋近傍の環境状態（塩化物や水分の存在の有無）を評価する。

3) 原位置地球化学測定

平成25～26年度で検討したActiveモニタリングの施設では、緩衝材の外部を流れる地下水の水質やベントナイトのゾル化によって生ずる可能性のあるコロイド粒子等の測定は、地下水サンプルを採取して実験室内で種々の分析を行うことによって可能である。ただし同様のモニタリングを実際の施設で行うためには、岩盤内の亀裂や（模擬）断層における原位置の地下水化学測定を行うall-in-oneタイプの化学測定プローブの開発が好ましい。最近では、コンパクトで軽量のCTD計（Conductivity Temperature Depth profiler）センサーが流通しており、これをベースにコロイド粒子測定の機能も追加されることが期待される。また、実績のある一体型の原位置試験化学プローブの例としては、SKBによるChemlab（Jansson & Eriksen, 2001）があるが、原位置環境での核種移行試験をプローブ内で行うことを目的としており、新たな装置の開発が必要と考えられる。

4) 地中無線通信による測定

スイスのグリムゼル試験サイトでは、ベントナイト、セメント及び岩盤中にセンサーを設置して、高周波地中無線通信（High Frequency Wireless (HFW)）の試験を開始している（Breen et al., 2008）。送信装置には、全圧計、水圧計、水分計（相対湿度計）のセンサーとリチウム電池が組み込まれており、計測パラメータは全圧、水圧、水分量（及び温度）である。また、フランスのトゥルヌミール試験場でも試験が行われている。送信装置の大きさは190 x 075 mmである。グリムゼル試験サイトでは、ベントナイト中に2つ、コンクリート中に2つ、岩盤中に1つの計5つのセンサーが設置された。

(2) モニタリング情報の可視化

地層処分システムに含まれる“intractable”な特性に特に注目しつつ、多様なモニタリング情報を統

合・可視化して、ソーシャルウェア等を通じて幅広いステークホルダがリアルタイムで共有することは、実際に何が起きているのかどうかを直に把握できるという観点から重要であり、そのための可能なプラットフォームを構築しておく必要がある。ここでは、各意思決定の段階で行うべきConsensus Buildingにおいて、前段階における地質環境やシステムの振る舞いについての理解に基づき次段階で遭遇するであろう状況の予測と実際のシステムの状態との差異を監視し、対応策や計画変更に関する議論に逐次反映していくことが考えられる。

図5.3.2-2は、多様なモニタリングによって得られる処分システムあるいは模擬廃棄体とその周囲の環境の変化についての情報をリアルタイムで統合・可視化する概念を示している。今後の課題として、形状のみならず、水理、熱、応力及び化学についての多様なパラメータの可視化やバーチャルリアリティとしての表現方法を開発するとともに、測定データから効率的にデータ処理を行ってグラフィカルモデルを構築（更新）するシステムを開発することが挙げられる。また、このような画像情報を迅速に幅広いステークホルダと共有するためのソーシャルウェアの整備も必要となる。このような可視化のニーズは、測定データを対象としたものに限定したのではなく、たとえばマルチフィジックスモデルによるシミュレーション結果に対しても適用されるものである。さらに、数値予測シミュレーションに実測データを埋め込み、モデルと結果の関係を馴染ませることにより、実際の観測データをうまく説明する、より尤もらしい推定を探し出す「データ同化」（data assimilation）という手法（Brasseur and Nihoul, 1994）がある。この手法を用いることによって、結果を可視化し共有するといったことも危険予知という観点からの情報共有という意味で重要な課題になる。



図5.3.2-2 モニタリング情報の可視化の概念

(3) 擾乱に関する実証試験

昨年度まで検討してきたActiveモニタリングの対象を明確にするうえでは、機能共鳴等の予期せぬモードで生ずる可能性のある事故・故障シーケンスに関して、FRAM (Functional Resonance Analysis Method) (Hollnagel, 2012)等の手法を用いることにより、リスク分析手法の適用を継続し、着目すべき事故・故障シーケンスの具体例を拡充していくことが重要と考えられる。また、このような分析はワンスルーではなく、「FRAM法等を用いたリスク分析による潜在的な機能共鳴と事故・故障シーケンスの抽出（予期）」、「処分実証施設におけるActiveモニタリングによる当該シーケンスの生起可能性の評価（監視）」、「事故・故障の生起可能性が否定できない場合の設計変更等（対応）」、「これらの経験に基づく処分システム挙動についての理解の深化（学習）」というステップを反復的に繰り返すレジリエンス的取り組みが必要と考えられる。

図5.3.2-3に示すActiveモニタリングのための模擬廃棄体を定置した処分実証施設の概念では、種々の擾乱を所定の空間的配置及び時間的順序で組み合わせることにより、上述の機能共鳴に至るシーケンスを人為的に模擬することが可能である。

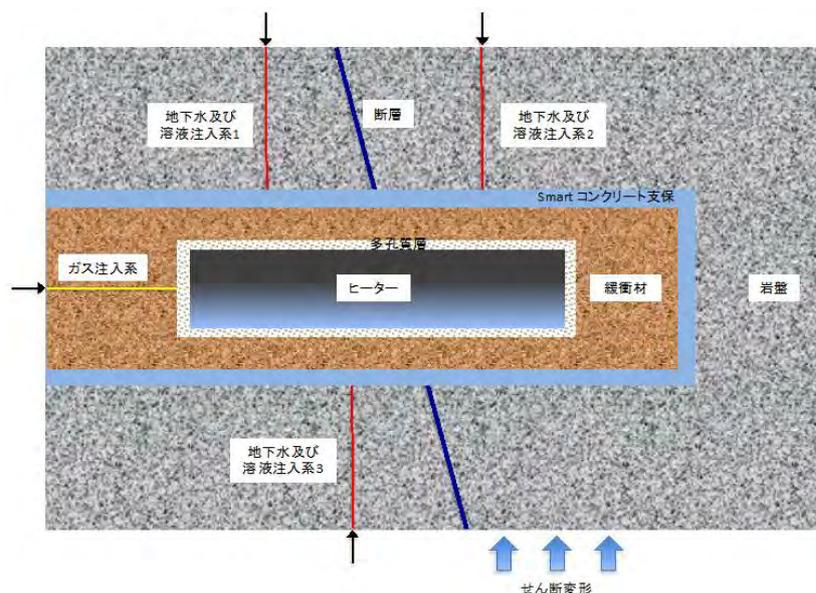


図 5.3.2-3 Active モニタリングのための処分実証施設の概念例

このような施設におけるActiveモニタリングに関連する技術は、個別には開発済みのものがほとんどと考えられるが、表5.3.2-2に示すように、いくつかの要素について新たな開発が必要となる。また施設全体として、多数のモードを同時に進行させるような柔軟な運用を可能とするシステムの設計が課題になるものと考えられる。さらに、試験作業員の安全を確保するとともに、使用する種々の溶液や大規模変形等の影響を施設内の一定の領域内に制限し実際の処分施設等への影響を回避する安全対策の具体化も開発上の課題となる。

表5.3.2-2 Activeモニタリングに関する開発が必要な技術

技術開発要素	主な開発項目
個別の技術要素の開発	<ul style="list-style-type: none"> 断層に沿ったせん断変形の模擬手法 Smart コンクリート^{*)}による緩衝材と岩盤境界の変形や応力の測定・診断 その他各種の測定技術
全体システムの設計	<ul style="list-style-type: none"> 多数のモードを同時に進行させるような柔軟な運用を可能とするシステムの設計
安全対策	<ul style="list-style-type: none"> 試験作業員の安全を確保するとともに、使用する種々の溶液や大規模変形等の影響を施設内の一定の領域内に制限し実際の処分施設等への影響を回避する安全対策の具体化

5.3.3 地表環境での物質移動に関するモニタリング情報と予測モデルについて

処分場の閉鎖後、受動的な安全系へ推移するまでの期間における安全確保向上の観点からの取り組みとして、環境モニタリングは処分システムに異常が起きたかどうかを直に確認することができるという点

^{*)} ピエゾケーブルなどを構造体に埋め込むことにより、力やひずみに比例した物理量（自己診断的にひび割れの発生など）が検知できるコンクリート

で、ステークホルダの重要な関心対象の一つとなり得る。このような閉鎖後の環境モニタリングは、一般にモデルを用いた予測と対応が図られ、予測モデルにより、仮に放射性核種が処分場から人間の生活圏（地表環境）に到達するような状態が生じた場合、どのように地表の環境中を移行し分布していくかが示される。

モデルの妥当性については、これまでの事例が大きな役割を果たすことになり、適用する予測モデルの追従性や分解能などがモニタリング観測結果と整合するかどうかが鍵となる。このため、予測モデルとモニタリングをセットとして取扱うことが重要であることから、利用可能なモニタリング技術/データと地表環境中の物質移動予測モデルとの関係について検討を行った。この分布の予測情報と環境モニタリング結果の比較が行われ予測モデルの妥当性が評価される。したがって、地表環境での物質移動については、事故も含め原子力施設から環境中に放出された放射性核種の挙動に関わるデータを活用することが有益である。IAEAでは、実環境での核種動態の特徴を踏まえた生活圏評価モデル開発のための国際プログラムとして、MODARIA (Modelling and Data for Radiological Impact Assessments) プロジェクトが進行中であり、原子力施設の通常運転や廃棄物処分に伴う地表環境での核種移行及び事故時の海洋放出に関する評価モデルについて、実環境での測定データを活用しながら詳細な検討が実施されている (Proehl, 2015)。同プロジェクトでは、4つのテーマ (汚染エリアの環境回復、不確実性と変動性、生物相の被ばくと影響、海洋モデリング) を対象に、10個のワーキンググループに分かれて議論が行われている。また、MODARIAの前身であるEMRAS (Environmental Modelling for Radiation Safety) プロジェクトでは、放射生態学 (Radioecology) 分野に関する3つのテーマ (放射性核種の放出に伴う環境影響評価、放射性核種で汚染した地域の環境修復、ヒト以外の生物に対する環境放射線防護) の下に、7つのワーキンググループを設置して検討を行った (IAEA, 2010)。そのうちの「放射性核種の放出に伴う環境影響評価」の分野に関する3つのテーマ (放射性核種の放出に伴う環境影響評価、放射性核種で汚染した地域の環境修復、トリチウム及び炭素-14の生物相並びに人間への移行のモデル化) を検討した。同ワーキンググループでは、実測値 (実験データ/現地調査) に基づくテストシナリオを通じて、モデルの予測結果と実験室や現地調査 (モニタリング) で得られた観測結果を比較し、モデルの検証を行った。中でも、炭素-14のコメへの移行シナリオに関しては、茨城県東海村の再処理工場周辺で10年間にわたって収集したモニタリングデータ (大気やコメ中の炭素-14濃度、気象データ等) を用いてイネ中の炭素-14濃度の予測を行い、複数のモデル間での比較計算を実施することにより、モデルによる予測精度の向上のための検討が実施された。

一方、処分事業の進展に応じたデータ取得のための継続的な環境モニタリングプログラムも有益な情報となりうる。例えば、フランスのANDRAでは、地表環境でのモニタリング情報を長期間にわたって管理するためのプロジェクトが進められ、定常的にモニタリングを実施する施設 (OPE: Observatoire pérenne de l'environnement) が建設・運営されている (OPE, 2016)。OPEでは、調査対象領域において、大気・水・土壌、及びそこに生存する動物・植物種の観測・実験設備が設けられ、定常的なモニタリングが行われている。

さらに、モニタリング結果は、予測モデルにおける地表環境の状態設定 (モデル化すべき場の特徴についての定性的/半定量的な理解) や、物質移動プロセスの数学的な表現・記述 (数学モデルやパラメータ設定) に有用となる。これまで諸外国の地層処分を対象とする人間の生活圏モデルにおいては、地表環境での物質移行プロセスのうち、地下水・表流水による物質移行や土壌中での核種収着、食物への核種の移行などが重要プロセスとして挙げられている (IAEA, 2003)。重要プロセスのうち、地下水・表

流水による物質移行に関する研究として、集水域単位での地下水・表流水の水収支に関するモデリング技術の開発が行われている（例えば、Kollet and Maxwell, 2006）。そこで、原子力機構では、LBNL/UCBとの共同研究を通じて、異なる環境コンパートメント（農地、森林、河川・湖沼・貯水池等の水域、土壌、地下水）中あるいはそれらの間のセシウムや他の放射性核種の移行を記述するための先進的なメカニスティックモデルを開発した。モデル化にあたっては、異なる複数のスケール（マルチスケール）の水文環境を取り扱うことが可能なシミュレーションプラットフォームParFlowを用いた。これらの成果の詳細については付録2「2015年度 JAEA-LBNL共同研究報告書」に示す。

また、土壌中での核種収着メカニズムに関しては、粘土鉱物の分子モデリングが精力的に研究されており、特にエッジを含んだ、より現実的な核種収着シミュレーションに向けた研究開発が進められている（例えば、Okumura et al., 2013）。とくに粘土鉱物は、土壌中での核種の移行遅延に重要な役割を果たすと考えられていることから、本件では、粘土鉱物と放射性核種との相互作用について分子動力学法を用いたモデリング評価を行っている。その結果、雲母類粘土鉱物のエッジは、セシウムイオンを選択的に収着できることを見出した。この成果は雲母類粘土鉱物の放射性セシウムに対する移行バリアとしての性能を知るうえで、重要な知見と位置づけられる。また、地上に拡散し存在する放射性核種による空間線量評価手法の研究開発については、様々な地形において、雨水と共に移流・拡散する放射性核種の動態モデルを基に、その動態を3次元的に可視化するコードを開発した。また、それにより得られる地上での3次元核種分布から空間線量を評価可能とするモンテカルロ放射線輸送コードを基にした種々のツールの開発を行った。これにより、自然構造物である樹木や人工構造物である住居や公共建物の等の存在下にて放射性核種が3次元的に分布した場合でも、任意の地点で空間線量を評価可能とした。これら成果の詳細については付録2「2015年度 JAEA-LBNL共同研究報告書」及び付録3「地表環境での物質移動に関する予測モデル等の開発状況」に示すとおりである。

5.4 多様なステークホルダ間の合意形成に向けた協働の試行

5.4.1 多様なステークホルダ間の合意形成に向けたコミュニケーション等の事例調査

地層処分の実施に向けての取り組みには先行する良好事例があり、それらについて、ステークホルダの活動やその役割、合意に至った経緯などを調査し、重要と思われる点を抽出し検討を行った。以下に、主な事例として、フィンランドとスウェーデンの事例を示す。

(1) フィンランド

1) 概要

小資源国であるフィンランドでは、1970年代に原子力発電所の稼働を開始した。1980年代には政府による放射性廃棄物の処分計画が策定され、計画はほぼ当初の予定通りに進められた。オルキオト原子力発電所の立地自治体であるエウラヨキ自治体は、2000年1月に高レベル放射性廃棄物（使用済燃料）の最終処分場の受入を決議した。これを受けて政府は原則決定（DiP）の手続きを行い、2001年5月、国会の承認を経たのち、世界で初めてとなる高レベル放射性廃棄物処分場のサイトがエウラヨキ自治体のオルキオトに決定した。この後、建設許可申請等の各種手続きとともに、地下調査施設（ONKALO）の建設とサイトの特性調査が進み、2015年11月には政府より処分場建設の許可が得られ、2020年の操業開始に向けた新たな段階に進んだところである。

政府が策定した高レベル放射性廃棄物（使用済燃料）の最終処分計画と処分場選定プロセスの年表をそれぞれ表 5.4.1-1と表5.4.1-2に示す。

表 5.4.1-1 使用済燃料最終処分計画

1980-1982	安全解析研究
1983-1985	立地特性評価の予備調査
1986-1992	選定地（5～10ヶ所）の特性予備調査
1993-2000	立地地域追加調査（2～3ヶ所）
2001-2010	立地選定地域の詳細調査ならびに施設・登記封入設備の事前準備

表 5.4.1-2 サイト選定プロセス

1983	サイト選定プロセスに着手
1984	岩盤調査法開発のため、最初の深層ボーリング調査はLaviaで行われた
1985	サイト調査のための候補地が100ヶ所程度あげられた
1987	実地調査は5ヶ所で始められた
1992	実地調査の中間報告が提出された
1993	詳細調査は4ヶ所で行われた
1994	原子力法の改正 (国内で発生する放射性廃棄物はすべて国内で取り扱われ、保管され、永久に処分されなくてはならない)
1996	ロヴィーサ発電所からの使用済燃料の輸出はこの年が最後となった
1996	TV0とフォーラムは合弁会社の設立と協力を合意した 合弁会社 Posiva は事業を開始し、TV0の最終処分計画を引き継いだ
1997-1999	環境影響評価が4候補地で実施された
1999	エウラヨキ自治体のオルキオトを最終処分施設建設地としてDiP（原則決定）を政府に申請 公聴会・意見書の要求
2000	意見書は専門家や地方自治体からおおよそ20件寄せられた
	STUKの意見書
	エウラヨキ自治体からの意見書（賛否：20対7）
2001年5月	政府決定（2000年12月） 国会承認（賛否：159対3）
2004年6月	地下特性調査施設(ONKALO)の建設開始
2012年12月	処分場建設許可を申請（2015年11月12日許可）

2) 政府の活動

1980年代にフィンランド政府は、TV0(フィンランド産業電力会社)が提出した資料をもとに、使用済燃料の最終処分計画を策定した。1983年に政府は放射性廃棄物管理に関する原則を決定した。そこでは、IV0(イマトラン電力会社、ロヴィーサ原子力発電所を所有)が使用済燃料をソ連(後にロシア)で再処理することを認めると同時に、その返還廃棄物をフィンランド国内で最終処分するための準備をすることを求めた。しかし、1994年に原子力エネルギー法が改正され、国内で発生するすべての放射性廃棄物は国内で管理・処分することが義務付けられた。このためロシアへの放射性廃棄物の輸出は1996年が最後となった、同年、IV0はTV0と共同で使用済燃料の最終処分事業主体となるPosiva社を設立した。1999年1月、政府はエウラヨキ自治体を使用済燃料の最終処分地とするPosivaからの申請書を受理した。引続き、意見書の提出を求めるなどの手続きが行われ、2000年1月、エウラヨキ自治体から提出された申請書などをもとに、政府は、2000年12月にこの件に関する原則決定(DiP)を行った。2001年5月に国会で承認され、エウラヨキは世界で初めて使用済燃料の最終処分候補地と決定した。その後、2012年12月に、この件に関する原則決定を行った。その後、2001年5月に国会で承認され、エウラヨキは世界で初めて使用済燃料最終処分地と決定した。放射性廃棄物処分に関して、政府は原子力発電所の廃炉を見越した計画を策定し検討を重ねるとともに、再処理輸出政策から自国内処分に政策を転換した。その背景として、再処理を他国で行うことの是非を含め、現状に即した政策決定を行い、結果として使用済燃料の最終処分場の立地に成功したといえる。

3) 事業主体の活動

1977年から、TV0により使用済燃料管理と最終処分に関する安全研究が始まり、使用済燃料処分計画に基づき、最終処分場に適する地域の選定を始めた。選定は、地質学ならびに環境要因（主として人口、自然保護、地下水、活用計画、輸送、土地の所有関係）によって行われた。予備調査であげられた適地の中から、選定地候補を絞り、立地のための環境影響評価が行われたのは、クーモ、アーネコスキ、エウラヨキ、ロヴィーサの4ヶ所であった。この4地点はいずれも使用済燃料の処分地として適地であることが確認されたが、地元の賛成意見はエウラヨキとロヴィーサで高かった。このうちエウラヨキにはオルキルトという広い処分用地があったこと、使用済燃料の大部分がすでにオルキルトにあったことにより、最終的な処分候補地はエウラヨキ自治体に決定された。

この間、特にTV0が力を入れたのが、意思決定者に対するコミュニケーション活動である。地方議会、国会の議員たちは使用済燃料廃棄物処分の概要に関する知識が乏しかったため、リーフレットなどの印刷物、対面コミュニケーション、インターネットでの情報発信（HP等）、セミナーの開催、政治活動の場でのプレゼンテーション、低レベル放射性廃棄物の中間貯蔵施設への招待等の方法を用いて積極的に情報提供活動を行った。この活動は、地域住民に対しても行われ、地域住民の使用済燃料処分に関する情報源として、一番にTV0（後継のPosiva）のリーフレットがあげられるほど浸透していた。これ以外にも、展示会や小規模な会合を開催するなど、情報の開示につとめていた。

エウラヨキ自治体で環境影響評価が行われている最中に、議会では自治体と事業主体との協力の発展が取り上げられた。議会の意を汲み、Posivaでは老人ホームや多目的ホールといった自治体の将来計画策定に関与した。またエウラヨキ自治体では、1990年までTV0からの地方税の税収があったが、1991年より事業所得税が廃止されたため自治体の税収が減った。1998年に財務省は固定資産税を値上げしたが、Posivaではこれら数年間の税収不足の補填を含む経済的な安定につながる提案を行った。

処分技術や処分地の選定をはじめ、使用済燃料処分事業主体として成果を得ることができたのは、事業主体に対する一定以上の評価が得られていたことが大きい。また、該当自治体との20年以上に亘る良好な関係と、将来に亘る関係の約束がこれを後押ししたと考えられる。

4) エウラヨキ自治体の活動

1976年に原子力発電所の運転が開始されたエウラヨキ自治体では、TV0より原子力発電所増設計画の申請が行なわれた際に、使用済燃料の最終処分場としないことを条件に、これを明文化した上で、発電所の増設を認めた。国内で使用済燃料最終処分場決定のためのプロセスが進行するに伴い、エウラヨキでは、明文化された条件の見直しが検討されたが、1993年12月の地方議会ではこの見直しは賛否同数となり、結局は否決された。

しかし1994年12月、地方議会は、使用済燃料最終処分に関する否定的な文言を削除する必要があるとの助言を受入れ、一方TV0は文言の削除を受けて、自治体の収入増につながる税制変更を行うこととした。地方議会の使用済燃料最終処分に対する態度を変容させる要因の一つとなったのは、1994年の原子力法改正である。1995年8月にエウラヨキ自治体とTV0の間で協力協定が結ばれた。協定締結に当たってエウラヨキのJuhani Niinimaeki市長は「自治体にとって何より大切なのは、安定的な収入だ」と述べている。

環境影響評価は、他の4自治体と同じく、1997年から1999年まで行われた。1980年代後半に、母岩調査研究のため、エウラヨキ自治体とTV0（1996年よりPosiva）との協議会が設立されていたが、この協議会は、環境影響評価の調査運営委員会として活動している。環境影響評価が行われている最中に、議会では自治体と事業主体との協力の発展が取り上げられ、この意を汲んで、Posivaは自治体の経済的安定も

含む将来計画策定に関与した。一方、環境影響評価が行われていた他の自治体のうち、特に原子力発電所立地地域であったロヴィーサとの競争も視野に入っており、Posivaと自治体で検討を続けた将来計画への期待が高まっていた。

高レベル放射性廃棄物処分場受入に対する1994年時点での各自治体の意見分布、ならびにエウラヨキ自治体の1997年の意見分布を表5.4.1-3に示す。

表 5.4.1-3 高レベル放射性廃棄物処分場受入に対する意見分布

	自治体	エウラヨキ	クーモ	アーネコスキ
1994年	賛成 (%)	37	24	21
	反対 (%)	38	63	63
	中立 (%)	26	13	16
	計 (%)	101	100	100
	人数	133	257	328
	地域住民概数	6000	13000	14000
1997年	賛成 (%)	59%	29	46

Cultural approach to the perception of risk (1999)から作成

2008年にエウラヨキ自治体住民に対して行われたアンケート調査によれば、使用済燃料処分に関する情報源として最も利用されているのは、TV0ニュースリフレット（現:Posiva調査リーフレット）、新聞、TVであり、インターネットの利用は少なかった。また、信頼する組織を聞いたところ、STUK（規制当局）、研究機関、大学、Posiva、TV0となっており、最も信頼できないのが政党という回答であった。

エウラヨキ自治体は原子力発電所立地地域であり、当初、使用済燃料に関する十分な知識はなかったかもしれないが、20年以上に亘り順調な発電所の運転実績を積んできたTV0に対して一定の評価があった。また、TV0や、その後継事業主体であるPosivaが行う地域の将来計画は地域経済に好結果をもたらすものでもあった。

5) 鍵となる点と検討課題

フィンランドでの使用済燃料最終処分場の決定にあたり、一番の鍵は、時間をかけたことにあると考えられる。原子力発電所立地から30年間、使用済燃料処分計画が策定されてから20年間をかけて最終処分計画を推進してきている。また、自国で発生した廃棄物はすべて自国内で処分するという方針が確認されたことも大きな要因だったといえる。

以下に、関係機関で行われ、鍵となったと考えられる項目を以下に列挙する。

① 政府

● 柔軟な政策決定

法律の改正を含む必要な施策を、柔軟に行った。原則決定をゆるがせにせず、手順を踏んで、決定に至った。

● 競争の導入

立地選定に当たっては、最後まで複数自治体を候補に挙げており、自治体間の競争を促した。

● 時間をかけた

20年以上の時間をかけて順次手続きを踏んでいった。

② 事業主体

● 順調な運転実績から得られた好評価

20年以上に亘る原子力発電所の順調な運転実績により、ある程度以上の好評価が得られていた。

- コミュニケーション活動（意思決定者に対して）

地方議員や国会議員をはじめ、意思決定者に対する情報提供ならびにコミュニケーション活動に力を入れた。

- 粘り強い交渉と自治体への利益供与

エウラヨキ自治体に使用済燃料は処分場を作らない、という当初の明文化された約束を、粘り強い交渉により最終的には撤回させることができた。法律改正などの追風もあったが、最終的には自治体の将来計画策定に関与し、税収の補填など将来に亘る利益供与によるところも大きかった。

③ 受入自治体

- 選択権と拒否権

自治体は強い拒否権を持っており、選択肢と拒否権との双方を握っていた。

- 原子力発電所の立地地域としての利益と責任

地域住民にとって、原子力発電所は身近に存在し、安定的な雇用が生まれた。

原子力発電所の増設に伴い、使用済燃料も増えていくことになり、自国内での処分を考えるときにその責任も感じられた。

- 原子力発電所の運転実績と好評価

オルキオト原子力発電所は運用開始以降、順調な運転実績を積んできていた。そのため、TVO（事業主体）に一定以上の好評価があった。

- 自治体（議会）の経済と将来計画

自治体にとって原子力発電所からの税収は地域経済の大きな割合を占めていた。中断された税収の補填や、策定された地域の将来計画に希望がみえた。

- 誇りと経済効果

世界で初めての処分場立地になることで、来訪者を含め、多くの経済効果があると予測された。

フィンランドの例を見るまでもなく、高レベル放射性廃棄物の処分場立地に関しては、科学技術的な取り組みだけで、地域住民の承認を得ることは難しく、社会科学的な視点を入れ段階を踏んで行うべき、とされている。科学技術の専門家は、医療従事者とは違い、日常的に研究成果を一般人と共有することに不慣れである。フィンランドでは、この乖離を埋めるべく、専門家と地域住民、国民の間をつなぐ役割を果たしたのが、事業主体であった。地域住民や国民から事業主体の活動、STUKの活動や環境影響評価報告などに、一定以上の評価が得られたことも、この事業が成功した要因である。

しかし、2008年に行われたエウラヨキ自治体住民に対するアンケート調査によれば、将来世代の健康・安全・福利に関して、住民の50%が不安を抱いている、との結果が出ている。自分たちで選択した道ではあるが、半数以上が抱く将来世代への不安にどのように向き合っていくかが、今後の政府や事業主体に問われ続けることになる。

(2) スウェーデン

1) 概要

スウェーデンでは、戦後30年間政権を担ってきた社民党が、1976年政権を失い、中央党、国民党、穏健統一党の3党右派連合が政権を取った。国会議員選挙の大きな争点となったのは原子力政策であった。しかし、反原発という先鋭的な政策を掲げる中央党と積極的原発推進派である穏健統一党との間の分裂を生み、短期間に政権交代を繰返すことになる。1979年に起きたTMI事故を受けて、放射性廃棄物問題や

環境問題、エネルギー問題への議論が高まり、社民党の主導により、原子力問題に関する国民投票が行われることになった。2000年に行われた国民投票の結果は以下の通りである。

- ① 計画通り 12 基（6 機稼働中、6 機建設・計画中）の原発を完成させ、稼働させる。それ以上の開発は行わず、代替エネルギーの開発を進めるなど。（穏健統一党 18.9%）
- ② 計画通り 12 基の原発を完成させ、稼働させる。それ以上の開発は行わない。2010 年までに廃棄、電力生産・分配は公的機関が管理する。代替エネルギーの開発を進め、その状況により原子炉を停止するなど。（社民党、国民党 39.1%）
- ③ 原子力開発は一切行わない。稼働中の 6 基は安全基準を高め、最大限 10 年以内に廃棄するなど。（中央党、左共産党 38.7%）

国民の約60%が、条件付きではありながら、現在ある原発の稼働を前提とする政策を選択した。

高レベル放射性廃棄物処分の研究調査は、このような政治体制のもとで始まり、1972年にSKBF (Swedish Nuclear Fuel Supply Company) が設立され、その後、放射性廃棄物処分の事業主体として、SKB (Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Company) に改組された。

スウェーデンにおける使用済燃料処分場選定の経緯を表に示す。

表 5.4.1-4 使用済燃料処分場選定の経緯

1970年代	地質調査開始
1980年代	地元の反対運動が強く中止
1992	SKB（事業主体）が全286自治体に公募通知を送付
	北部2自治体に対する予備調査実施と住民投票による拒否
1995～	6自治体に対する予備調査開始
2000	立地調査対象地域にエストハンマル、オスカーシャム、ティーエルプを選定
2002	ティーエルプは議会の反対で辞退
2009	エストハンマルが選定された

2) 政府の活動

1945年広島に原爆が投下された1ヶ月後には、スウェーデンは核兵器開発の秘密プログラムを開始した。そのときの文部大臣で1946年から23年間首相を務めたエランデルは、民生利用に関する原子力委員会の設置を求め、1946年に設置された委員会は、大学での原子力教育研究を推進し、ウランの国内生産と実験炉の設置を求める報告書を提出している。国連や核保有国の動き、国産ウランの低品質や産出量、再処理工場予定地の地元自治体の反対などの中、スウェーデンは1968年、国連核不拡散条約に加盟した。

原子力政策に関する主な政府の施策を表に示す。

表 5.4.1-5 政府による主な原子力施策

1946	原子力委員会設置
1956	原子力法制定
1958	放射線防護法制定
1972	AKA委員会設置
1977	原子力発電約定制制定
1980	原子力発電の推進を問う国民投票
1984	原子力活動法制定
1992	KASAM設置
1998	環境法典制定

実験炉を経て1972年最初の商用炉がオスカーシャムで操業されることになったが、この頃まで、放射性廃棄物に関しては、再処理を前提としており、再処理後の廃棄物等は考慮されていなかった。スウェーデンを含むOECD13ヶ国の協力プロジェクトEurochemic projectにより、ベルギーのモルに再処理施設を建設することになっていた。関係者にとって、この商用炉の操業と時期を同じくして、放射性廃棄物が現実的な問題として受け止められ、原子力発電への反対運動の核になり、国会で初めて使用済燃料処分問題が議論された。それを受けて通産大臣は、使用済燃料最終処分方法に関する国際的な合意事項はないが、AKA委員会（Swedish Government AKA Committee）を設置し、使用済燃料処分・管理問題の解決策の策定を委ねた。

使用済燃料処分・管理の方針は、1976年のAKA委員会最終報告にまとめられている。低中高レベル放射性廃棄物は、同じ地域の地下岩盤への深地層埋設処分を行うこととされており、高レベル放射性廃棄物は円筒型のカプセルに詰められる予定だった。

新政権内では原子力発電を巡る緊張が高まり、その結果、1977年に原子力発電約定法（Nuclear Power Stipulation Act）が制定されることになった。この法律は、原子力発電事業者は、使用済燃料を、どのようにどこに最終的に完璧に安全に処分するかを示すことを条件に、原子力発電所に燃料を供給することができる、としていた。政権政党の一つであった中央党にとって、放射性廃棄物は最も難しい課題であったためである。法律が施行され、完成していた原子力発電所も完璧に安全な使用済燃料処分システムが提示できなかつたので、政府からの操業許可が得られない状態が続いた。原子力発電事業者は使用済燃料処分システムの検討をSKBの前身(KBSF)に行かせたが、鉛とチタンの容器に入れベントナイトを緩衝材として地下500mの岩盤に処分するという計画で、AKA委員会報告書に提示されている処分方法と技術的に近似していた。原子力発電事業の実施は、安全な放射性廃棄物処分方法確立の成否にかかっていた。処分技術の安全性については、専門家の間でも論争が起り、市民も政治家も巻き込まれていたところにアメリカのTMI事故が起き、環境団体から提案されていた国民投票が行われることになった。

この時期の放射性廃棄物に関する規制機関としては、SKI（Nuclear Power Inspector）とSSI（Radiation Protection Authority）が活動していた。この2機関は2008年にSSM（Swedish Radiation Safety Authority）として統合され、放射性廃棄物処分事業を統括する安全規制機関となる。

廃棄物処分に関する資金確保も発電事業者に義務づけられた。

国民投票の結果、原子炉の稼働、建設計画は承認され、原子力事業者によって提示された放射性廃棄物処分方法も受入れられたが、直後に国会は、原子力発電所は2010年までに段階的に廃止されるべきであると決議している。

このような状況の下で、スウェーデンは高レベル放射性廃棄物処分技術の分野で世界のトップとなり、人工バリア・天然バリアを用いた多重防護システムKBS（Nuclear Fuel Safety）は、高レベル放射性廃棄物処分に関する国際的な技術標準となったのである。国民的議論が続く中で、KBSシステムの考え方は、独自のバックエンドシステムを可能にする直接処分方式のKBS-3に固まりつつあった。

繰返される政権交代の後1982年に国政を担うことになった社民党政権下で、それまで「絶対安全」を条件としていた原子力約定法に代わり、1984年に原子力活動法（Act on Nuclear Activities）が国会で議決された。

この法律は、原子力約定法とは異なり、原子力事業者に、包括的研究開発と使用済燃料の安全な処理と最終処分を含めた計画策定を義務づけるものであった。さらに、放射性廃棄物に関する新たな政府機関として設立されたSKN（National Board for Spent Nuclear Fuel）に対して3年ごとに報告書を提出

することも義務づけた。「完璧に安全な処分」は「放射性廃棄物の安全な処理処分」に変更されたのである。SKNの活動は1992年まで続けられた。

高レベル放射性廃棄物処分施設建設に先立ち、SKBはオスカーシャムにCLAB (Central Interim Storage Facility for Spent Fuel/30年間保存) を、またエストハンマルにSFR (Final Repository for Low and Intermediate Level Waste) を建設したが、これらはマスコミの注意を引くことなくそれぞれ1985年、1988年に操業を開始している。CLABの設置申請は1977年にすでに政府に提出されており、オスカーシャムを選択した理由の一つに原子力発電所(オスカーシャム発電所)の立地地域という地の利があげられていた。この点については、政府も認めていたが、国民投票の前にはプロジェクトを開始してはいけないとの条件をつけ、国民投票の後、1985年に操業を開始した。

SFRについても1982年に政府に申請書を提出し、ここでも、原子力発電所(フォルスマルク発電所)の立地地域であることの地の利が申立てられた。1983年、この申請は許可されたものの、SKIとSSIは、申請書と地域選択に関していくつかの指摘をしている。また、政府とSNF(Swedish Society for Nature Conservation)は、岩盤条件などでフォルスマルクの地質は他の地点より良好ではなかったことをあげた。

一方、高レベル放射性廃棄物処分場の適地を探す地質学的な研究は継続されていたが、地質調査が立地プロセスに結びつけられることを恐れた地域住民による反対は大きく、1980年に行われた原子力発電推進の可否を巡る国民投票で64.2%の反対票を投じた地域もあらわれ、最終的には環境大臣が、事業者が地域住民を排除するために警察を呼ぶことを辞めさせるように宣言する事態になった。地質調査と、高レベル放射性廃棄物の処分場立地、それぞれの概要が地域住民に十分周知されていなかったことから起きたことといわれている。

高レベル放射性廃棄物処分場の立地を担当する事業主体であるSKBは、1986年から1992年にかけて、政府の求めに応じてこれまで行われてきた地質調査を基盤とする立地手順に対して、新たな戦略を打ち出した。すなわち、地方自治体の自主的な申出を出発点として、これをもとに立地地域の選定を始める、というものであった。

SKBの新たな戦略に対してスウェーデン政府専門委員会は、最初に適切だと評価された広い地域から選択すべきで、段階的に自治体に次の調査の打診を諮って行くべきだとし、SGU(Swedish Geological Survey)もこの意見を支持した。さらにSKIは、SKBが科学的でないことなどを批判し、また1990年に廃棄物に関する対話プロジェクトを設置した。このプロジェクトには多くのステークホルダが招聘され、後に、参加した環境保護団体から高い評価も得られたが、肝心のSKBはこれに加わらなかった。

1992年、SKBは新たな戦略に基づいて、スウェーデン国内の全自治体宛に使用済燃料の最終処分地選定プロセスへの公募文書を送付した。これに応募した2自治体は、可能性調の査終了後に選定プロセスから離脱してしまう。このため、政府は1995年5月に、使用済燃料処分事業の可能性調査に協力する自治体に対して、住民への情報提供などのために、廃棄物基金から費用を支出することを許可した。SKBが進めようとする使用済燃料最終処分のための廃棄物封入施設建設、処分場立地などに関して、自治体には、独自に多くの技術的、社会的判断が要求されることになる。この政策は、自治体が、SKBの活動評価機関として、独自の役割を強化することを目的としたものであった。同時に政府は、自治体が必要と認めた情報や研究活動を調整するための調整役を特別顧問として任命し、関係者間の情報共有や政府見解を自治体に伝達する活動をさせるようになった。

これに先立つ1992年、政府は、中立の立場で放射性廃棄物処分に関する学術的な観点から評価し、政府や関係機関に助言する第三者機関として、原子力廃棄物評議会(旧名:KASAM/Swedish National Council

for Nuclear Waste) を立ち上げた。この機関は、この年に活動が中止されたSKNに代わり、3年ごとの提出が義務づけられているSKBの研究開発プログラムを評価し、3年に一度現状報告を提出することになっている。

放射性廃棄物処分場立地については、もう一つ、環境法典に基づく、環境影響評価を実施することも必要となっている。

スウェーデンの各自治体の新たな開発に対する拒否権は、この環境法典によって、認められているものである。ただしこの拒否権は、放射性物質や廃棄物の中間・最終処分施設の立地には適用されず、これらについては、国家として地方自治体の拒否権を拒否することも可能になっていた。原子力活動法や環境影響評価との関連もあり、国家としての拒否権が発動され、自治体自身が持つ拒否権が無効になることへの懸念は大きかった。この懸念は、1997年12月にオスカーシャム自治体宛にだされた環境大臣からの文書で払拭されることになった。

可能性調査に続き、SKBは詳細な立地調査を行う自治体を絞り込み、2001年11月1日、政府はSKBの立地調査実施を承認する。しかし同時に、SKBに対して、使用済燃料処分方法について他の処分方法を含めた研究開発の継続を求め、環境影響評価プロセスの評価を受けなければならないとした。

放射性廃棄物処分場立地に関係する各規制機関、評価機関はそれぞれの役割に応じて、2009年のSKBによるエストハンマル選定を受けて、処分場の立地・建設許可申請の審査等に当たっている。

3) 事業主体の活動

スウェーデンの原子力発電所を保有する電力会社4社（バッテンファール社、バーセベック社、OKG社、フォルスマルク社）は、1972年に共同出資により、SKBFをSKB（スウェーデン核燃料管理会社）に改組し、核燃料供給ならびに使用済燃料の管理と最終処分を行う事業主体を設立した。

使用済燃料処分場立地に向けて国内の地質調査に着手したSKBは、各地で警官の出動も含めた強固な住民の反対運動にあった。一方、CLABとSFRに引続き、使用済燃料処分技術開発を進めるため、SKBはオスカーシャムに、エスポー岩盤研究所の設立を計画した。ここの岩盤は地質学的に良好な場所ではなかったため、そのような地帯での処分に必要な技術的知見を得るための研究を行う予定であった。しかしオスカーシャム自治体はこの研究所が高レベル放射性廃棄物の最終処分場にはならないことの確約を求め、SKBは、研究所立地のため、その条件を受け入れた。

SKBの1986年の報告書には、サイト立地に関して、純粋な地質学的観点のみからの取り組み姿勢を考え直し始めていることが示されている。安全を担保するために、埋設を含む技術の高水準化をはかり、社会的紛争を避けるという戦略の変更が見られた。この戦略変更は、土地利用に関して地方自治体を持っている拒否権が大きかったためと推察される。

しかしこの年と、1989年に発表された報告書は、拙速に過ぎ、岩盤の地質学的調査箇所と合致していない、候補地としてあげられた三カ所の選択理由が示されていない、などの批判を受けることになった。前述の通り、スウェーデン政府専門委員会やSGUからの反対意見が表明されたのである。

これに対してSKBは、国内であれば殆どの地域で埋設処分は可能で、問題はむしろ、予定地の地層が崩落や水漏れが発生しやすいかなど詳細に技術的な調査をしなくてはわからないことだと主張した。そして、1992年の報告書により、使用済燃料処分場立地地区の選定に関しては、自発的に地層処分の立地地域になる可能性がある詳細な立地調査に関心を示す自治体を対象に選ぶべきだ、というSKBの新しい戦略が発表されたのである。

1992年10月、この戦略に従いSKBは、スウェーデン国内の286全自治体宛に、使用済燃料最終処分の最

適地域を選択するための可能性調査に協力する自治体を求めている旨の文書を送った。文書には、調査の受入が即ち最終処分地の決定に結びつくわけではないことが明記されており、自治体の意向を尊重する戦略が示されていた。

この文書が出された翌年に、ストールウーマンとマーロアが可能性調査の受入に応じた。しかし可能性調査が終了した後、ストールウーマンは1995年に住民投票で71%の、マーロアでは54%の反対があり、この後の計画は断念された。

この2自治体で行われた活動で重要と思われる項目を以下に示す。

- ① 調査受入れ決定から住民投票で意向が示されるまでの期間が2年から4年と短かった。
- ② 自治体の判断に用いられる情報は、主に事業主体であるSKBから提供されていた。
- ③ 交渉の場はSKBの2名、自治体の議員2名からなる運営委員会であり、一般市民が参加できる機会は殆どなかった。
- ④ 一般市民のための情報提供、情報交換の場が少なかった。
- ⑤ 廃棄物の陸路による搬入は隣接自治体の反対により、困難であった。
- ⑥ マーロアで住民投票が行われる前に、第三者による可能性調査の最終報告書がまとめられた。

これは、自治体が独自に調査や評価をして住民に情報提供するための資金が使えるように、政府が決定したことによる。

SKBは可能性調査の結果が好ましいものであっても、その後の調査を断った自治体での継続調査は行わないことを明確にし、調査の受入れを表明したエルブカーレビー、ティーエルプ、オスカーシャム、ニーシェーピン、フルツフレッド、エストハンマルの6ヶ所で調査を開始した。

詳細な立地調査に向けて、2000年に予定地は3ヶ所に絞られたが、2002年にティーエルプが辞退したため、最終的には、オスカーシャムとエストハンマルが調査対象自治体となった。

SKBの研究開発報告書は、技術的な報告が主であるが、立地選定プロセスとして、各自治体の調査受入れに関する評決結果等についても触れられている。

自治体の議員や住民にとって、独自の調査や評価をするための手段が必要であり、SKIとSSIが資金を提供したパイロット・プロジェクトRISCOM^{*} (Andersson, 2003) は、規制機関としての独立性と、より積極的な関与の求めに応じることの両立を目指し、オスカーシャム自治体も参加して行われた。このプロジェクトでは、規制機関や自治体をはじめとするステークホルダが、事業主体とともに立地選定プロセスの最初から関与すること、嘘のない明白な透明性を担保すること等の重要性が見いだされた。これは、2002年3月に議会決議を経てオスカーシャムが立地調査を受入れるに当たり条件としたオスカーシャムモデルにつながり、また、EC/EU/EURATOMによるFP5 (Fifth Framework Programme) の合意形成、意思決定のための活動にもつながっていく。

SKBが直接エストハンマルに対して行った広報活動は

- ① 近隣住民 (350軒が対象)
毎月のニュースレター、説明会の開催、日常的な訪問・接触、ホームパーティー
- ② エストハンマル住民 (21,000名が対象)
議会や病院をはじめとする各組織、職場や集会、学校、地元メディア、新聞広告、季刊誌の全戸

^{*} SKIとSSIによる資金の下で公聴会の開催方法の企画設計を検討することを目的に1996年から1998年にかけて実施された最初のプロジェクト。

配布、オスカーシャム等SKB施設の見学

のように、小規模で個別に行われるものが多かった。

SKBは科学的な立地調査に加え、地域住民との細やかなコミュニケーション活動を積重ねていき、両自治体ともに、高レベル放射性廃棄物処分場の受入に対する住民の意見は賛成が多数を占めるようになった。

2009年、SKBは岩盤調査の結果をもとに、エストハンマル市フォルスマルクを処分場に選定し、申請手続きを始めた。自治体への補償金は、オスカーシャムに75%、エストハンマルには25%が支払われることになる。エストハンマルには、さらに、新たな企業誘致の仕組みや高速道路の整備などが行われることになっている。

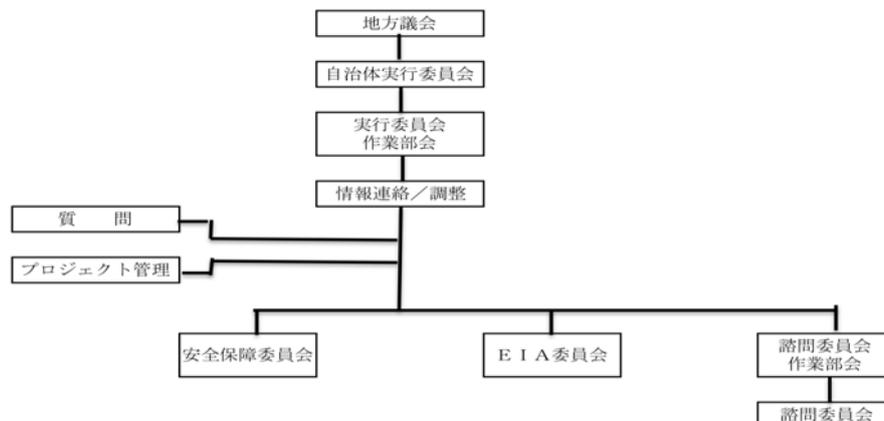
4) エストハンマル自治体の活動

エストハンマル自治体は海（ボスニア湾）に面しており、自然に恵まれた土地で、釣りや農業の他に古くから鉄鉱業が盛んな土地であった。

1971年の原子力発電所着工から1980年の操業に引続き、1982年にはSKBによるSFR（短寿命低中レベル放射性廃棄物処分場）の設立許可申請が出され、1988年には操業を開始している。SKBが1992年に使用済燃料の最終処分地選定プロセスへの応募書類を送ったとき、エストハンマルはすでに20年間、原子力施設とともに歩んでいたことになる

1995年、エストハンマルは、SKBからの打診があった4週間後には、この問題を住民に周知せず、住民投票も行わずに、議会だけ決したことへの、批判はあったものの、地方議会の議決を経て可能性調査に対して承諾の回答をした。この後、市議会のすべての政党代表者からなる委員会が設けられ、可能な限り、SKBが行う可能性調査を追跡調査し、住民に情報提供することになった。さらに、自治体の公務員が参加して作業部会を作り、役割分担をして活動を続けることになる。

廃棄物基金を利用して、諮問委員会を立ち上げ、SKBからの提供情報だけではなく、他の専門家による情報提供を得るなど、使用済燃料最終処分に関わる独自の活動を継続した。2009年の自治体内の組織図を図5.4.1-1に示す。関係する組織としては、このほかに、地域NGOや近隣自治体（ウプサラ県）もはいつてくる。



How the Municipality of Oesthammar has organized their review and communication with the public より

図 5.4.1-1 使用済燃料最終処分地選定に関わる自治体内の組織図

2001年にエストハンマルは立地調査を受入れたが、主として、長期安全性、環境影響、健康関連事項、社会経済の面に関する政治的配慮がなされた。

使用済燃料最終処分場となることに関してエストハンマルが考慮した主な項目を以下に示す。

- ①物品やサービスなど、地元の需要調査
- ②最終処分場を受入れた場合の経済効果
- ③不動産価格への潜在的影響
- ④将来地元が受ける可能性がある影響
- ⑤EUやその他の国々の廃棄物
- ⑥観光を始め、地域の印象に与える潜在的な影響
- ⑦環境影響

なお、2009年にエストハンマルは使用済燃料最終処分場に選定された。

5) 鍵となる点と検討課題

スウェーデンの使用済燃料最終処分場の決定プロセスにおける鍵となったのは、よいと思われることはすべて行う、という姿勢が、政府にも事業主体にも、また自治体ならびに住民にも見られるところである。政府は時に応じて政策の変更を行い、事業主体の試行錯誤もあり、常に状況が変化していく中で、それぞれが、ステークホルダとしての立場と最終目的を見失うことなく、柔軟な対応を示したことが成功に結びついたと考えられる。特に事業主体が、科学的知見に基づく立地選定方式から、自治体自身の意思を尊重する方式に変更したことは大きかった。また、40年間という長い時間をかけて活動を続けたことも成功の大きな要因であった。スウェーデン国内の全自治体を対象にした予備調査への招聘活動があっても、最終的に受入れたのは、原子力施設の立地地域もしくはその近隣地域であった。原子力施設に関する経験は、建設的な対話を進めることができた要因の一つであり、加えて原子力発電所や関連施設が安全操業を続けてきたことも、判断に寄与したことは確かであろう。さらに、立地候補地を複数箇所にすることや、合意形成プロセスが段階的に行われたことも鍵となる点であった。これら鍵となった点や検討課題を、①政府、②事業主体、③受入自治体ごとにそれぞれ以下に示す。

① 政府

- 政府に対する国民の信頼
OECDの調査によると、世界で2番目に、生活に対する満足度が高く、政府に対する信頼も厚いことがわかる。国の行政や地域行政に対する住民の信頼が基本にあってこそ実現したことだともいえる。
- 原子力政策の柔軟な変更
原子力は政権交代の争点になったが、発電と廃棄物処分を抱合せで進めるという政策は、放射性廃棄物処分技術水準を上げることにつながった。その後、実態に即した対応がとれるよう法律を改正するなど、柔軟で現実的な政策変更が行われた。
- 規制機関や第三者機関の設立など
規制機関や第三者機関の設立により、事業主体や事業の進め方に対する公正中立な評価が行える仕組みを作る努力をした。事業主体から3年ごとの報告を義務づけ、それを評価することを含めた仕組み作りである。
- 調査を受入れた自治体に対する政治的配慮
自治体の合意形成、意思決定に至るまでの自治体自身の活動費用に対して、廃棄物基金からの支出を認めるなどの配慮がなされた。

② 事業主体

- 社会的側面の勘案と取入れ

放射性廃棄物処理事業には、科学技術だけではなく、社会的な合意を得ることの重要性を認めた。SKBによる合意形成手法は、RISCOMから発展を続け、環境に影響を及ぼす施設の立地の際などに、多く適用されるようになっていく。

- 国際協力研究

のちにエスポー岩盤研究所につながったOECD/NEAの支援を受けたストリーパプロジェクトや、エスポー岩盤研究所におけるEUプロジェクトをはじめとする国際共同研究の実施など、処分技術に関する国際的な共同研究を行う枠組を最初に作った。また、RISCOMを合意形成手法とする国際的な研究体制も構築している。

- 自治体の将来計画への関与

自治体の将来に向けての関心事に注意を払い、可能な貢献策を探った。

- 自治体住民との密接なコミュニケーション

広報誌や小規模コミュニケーションによる情報共有がはかられ、住民からの質問や疑問に対しては必ず回答を出すなど、双方向のコミュニケーションを続けるよう努力した。SKBのコミュニケーション担当者は入替わることなく同じ人間が担当した。

③ 受入自治体

- 強い拒否権

拒否権があることにより、自治体ならびに住民は自分たちが一方的に振り回されることを心配せず、時間的、精神的に余裕を持って、納得がいくまで議論を重ねることができた。

- 原子力施設立地地域

原子力発電所の安全な運転実績やSFRに対するSKBの取組み姿勢に対する信頼があった。発電所の技術者が自ら放射線に関する知識を地域住民に提供するなど、双方の良好な関係が構築されていた。

- 経済効果

新たな企業誘致の仕組み、インフラの整備、雇用創出など将来に亘る経済効果が見込める。

- 環境、健康

将来の懸念事項に対する潜在的な影響を含め、可能な限りの予測と、調査の継続が行われることを評価した。

スウェーデンでの使用済燃料最終処分場立地の成功にもかかわらず、特に、環境に大きな変化をもたらす施設の立地等に当たっては、地方自治体、地域住民のプロセスへの参画ならびに合意形成が重視されるようになっていく。我が国でもステークホルダの参画、合意形成がいわれているが、事業主体や研究機関をはじめ、関与するステークホルダは誰と誰なのか、またそれぞれの役割は何であるのかを、もう少し明確に示すことが必要だと考えられる。また、地方自治体ならびに住民をステークホルダとするのであれば、その役割に応じた責任が何かを明らかにする必要もある。合意形成は最終的には51%対49%でよいのか、意思決定に住民はどのような形でどこまで参加できるのか、拒否権はどの時点まで使うことができるのかなど、実際に運用をはじめるときには、その時点におけるすべての要件と、柔軟な仕組みが常にテーブルの上にさらされている状態を作り、開示されていることが望ましい。地方自治体ならびに住民が独自に合意を形成し、意思決定するためには、処分技術や環境影響評価に関する自治体側

の専門家が必要になる。国際的な専門家のネットワークを構築し、多くの要望に応えられるようにすること、また、変化に対応できる柔軟さと、変わらないことで得られる安定をどのように組み合わせるかも重要だと考えられる。

5.4.2 高レベル放射性廃棄物対策に関する意見・態度についての事前調査

昨年度までの検討において、地層処分概念に関する議論に至る以前に、「原子力発電の継続に関する議論と切り離して廃棄物対策を議論すべきではない」という意見や「高レベル放射性廃棄物対策は必要であるが貯蔵・管理を継続すべき」という立場があることが示唆された。このような状況を踏まえ、本年度の検討では、まず、5.4.3項以降に紹介するサイエンスコミュニケーション、フォーカスグループインタビュー、アコモデーションワークショップ等の種々の活動に参加する可能性のある候補者（他分野の有識者や非専門家等）に対してアンケートを実施し、その結果から、大きく3つの意見（「原子力発電の継続に関する議論と切り離して廃棄物対策を議論すべきではないという意見」、「高レベル放射性廃棄物対策として貯蔵・管理を継続すべきという意見」、「地層処分を安全かつ適切な方法で実施すべきという意見」）に分類するとともに、そのような判断の背景となる認識や価値観についてもアンケート結果に基づいて分析を加えた。以下に、地層処分についての認知と、地層処分に対する態度についての結果を示す。

1) 「高レベル放射性廃棄物の地層処分」についての認知

図5.4.2-1に示すように、「高レベル放射性廃棄物の地層処分」に関する認知については「現在の状況や課題などを知っている」という人が7.0%、「廃棄物の内容や処分方法は知っている」という人が15.1%で、合わせて2割強。約6割が「言葉の意味はだいたい知っている」ないし「言葉だけ知っている」というレベルであった。

Q:あなたは原子力発電による「高レベル放射性廃棄物の地層処分」についてどの程度ご存知でしたか?

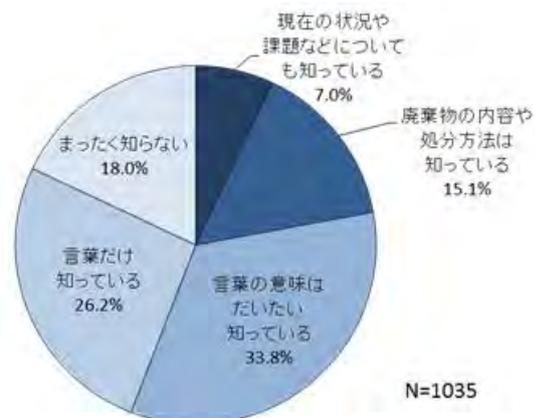


図 5.4.2-1 「高レベル放射性廃棄物の地層処分」についての認知

その内訳は、図5.4.2-2に示すように、女性より男性で高く、年代が高くなるほど認知度も高くなる傾向がみられた。学歴別では大卒が最も高く、短大卒よりは高卒のほうが高い。子どもの有無では年齢を反映して高校生以上の子どものいる層で高く、都市規模の大きい都市ほど認知度も高い傾向がみられる。

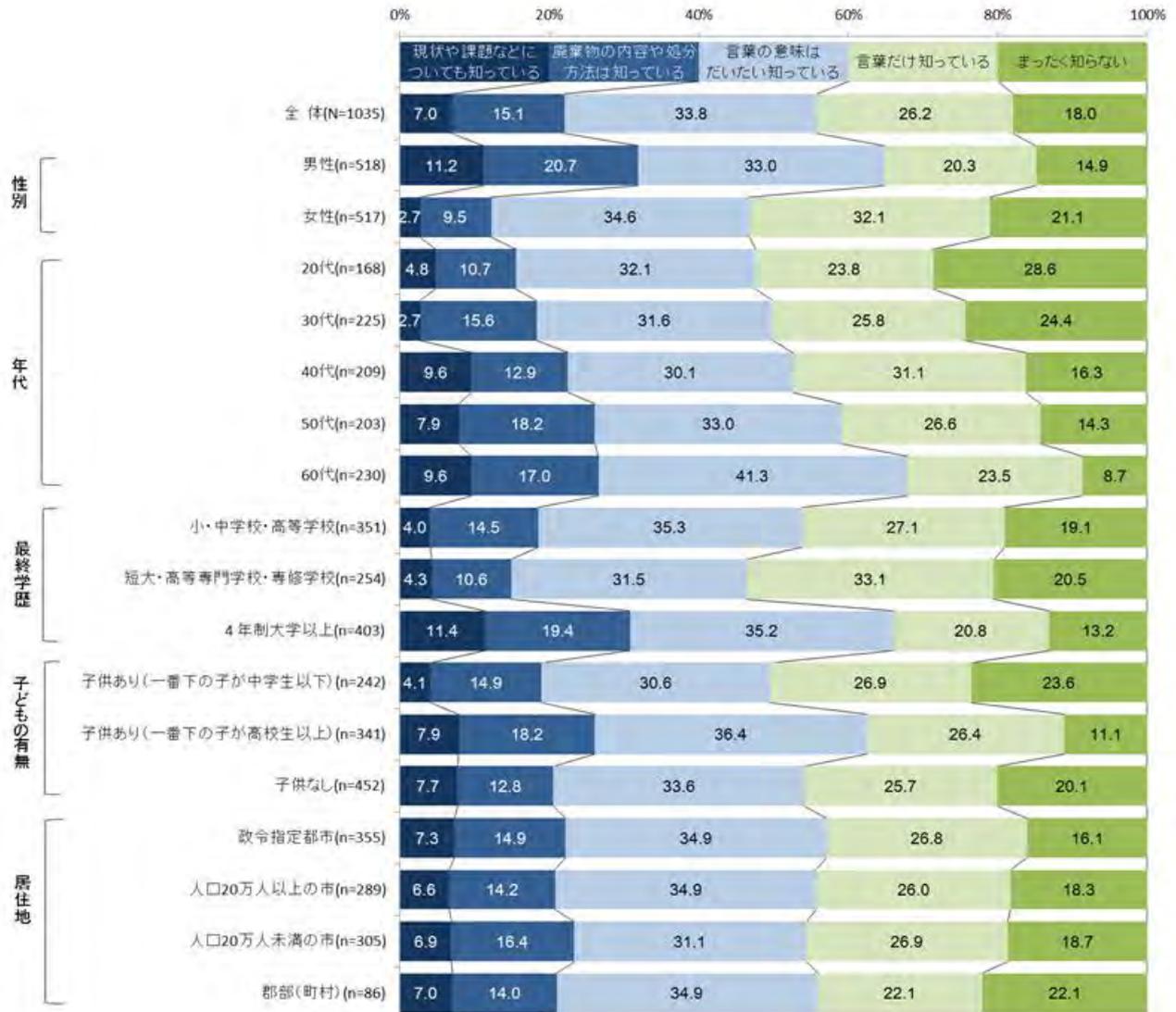


図 5. 4. 2-2 「高レベル放射性廃棄物の地層処分」についての認知（属性別）

また図5. 4. 2-3に示すように、地層処分に関する関心度が高いほど、怖さを感じるほど、国内での実施を推進したい人ほど認知度は高くなる傾向がみられる。図の下段に示すエコセグメントの人々（エコワーカー：エコに携わっている人、エココンシャス：エコを意識的に心がけている人、プチエコ：ちょっとしたことにエコを心がけている人、ノンエコ：エコを意識していない人、アンチエコ：エコとは逆のことを意識的に行う人）それぞれにおいて、エコ活性度（エコへの配慮の度合い）が高いほど、地層処分に対する認知度も高いという結果が得られた。

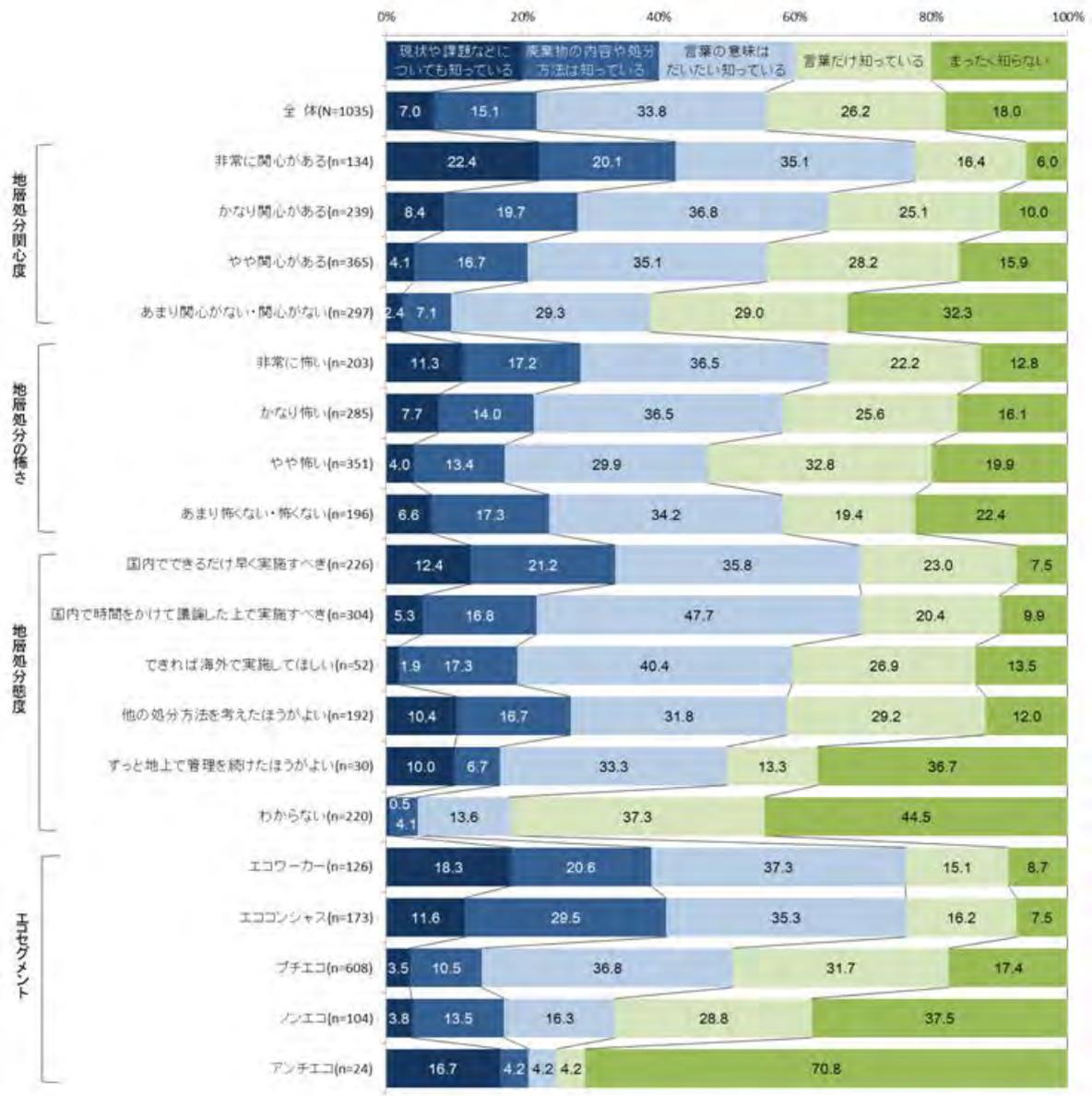


図 5. 4. 2-3 「高レベル放射性廃棄物の地層処分」についての認知（関心度等別）

2) 「高レベル放射性廃棄物の地層処分」についての態度

「高レベル放射性廃棄物の地層処分」に対する態度としては、図5. 4. 2-4 に示すように、「国内でできるだけ早く実施すべき」が21. 8%、「国内で時間をかけて議論した上で実施すべき」が29. 4%、合わせて過半数の51. 2%が国内での実施推進派となっている。「できれば海外で実施してほしい」が5. 0%、「他の処分方法を考えたほうがよい」が18. 6%、「ずっと地上で管理を続けたほうがよい」は2. 9%となっている。また、「わからない」という態度保留が2割強を占めた。

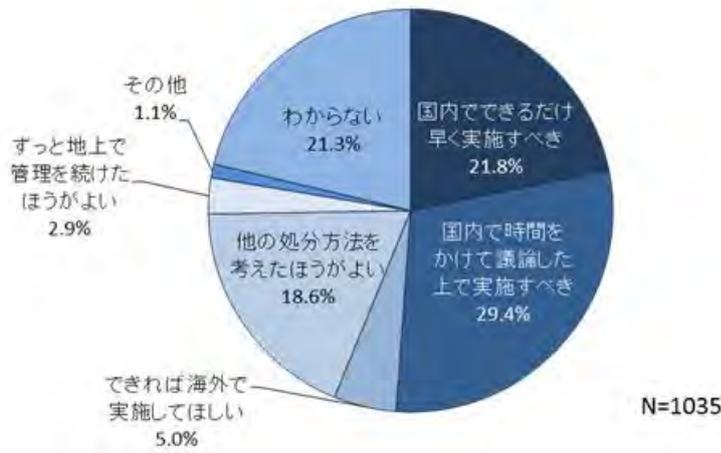


図 5.4.2-4 「高レベル放射性廃棄物の地層処分」についての態度

また、国内での実施の推進派は、図5.4.2-5に示すように、女性より男性、おおむね年代が上がるにしたがって多くなる傾向がみられる。また、学歴別では大卒が多い。

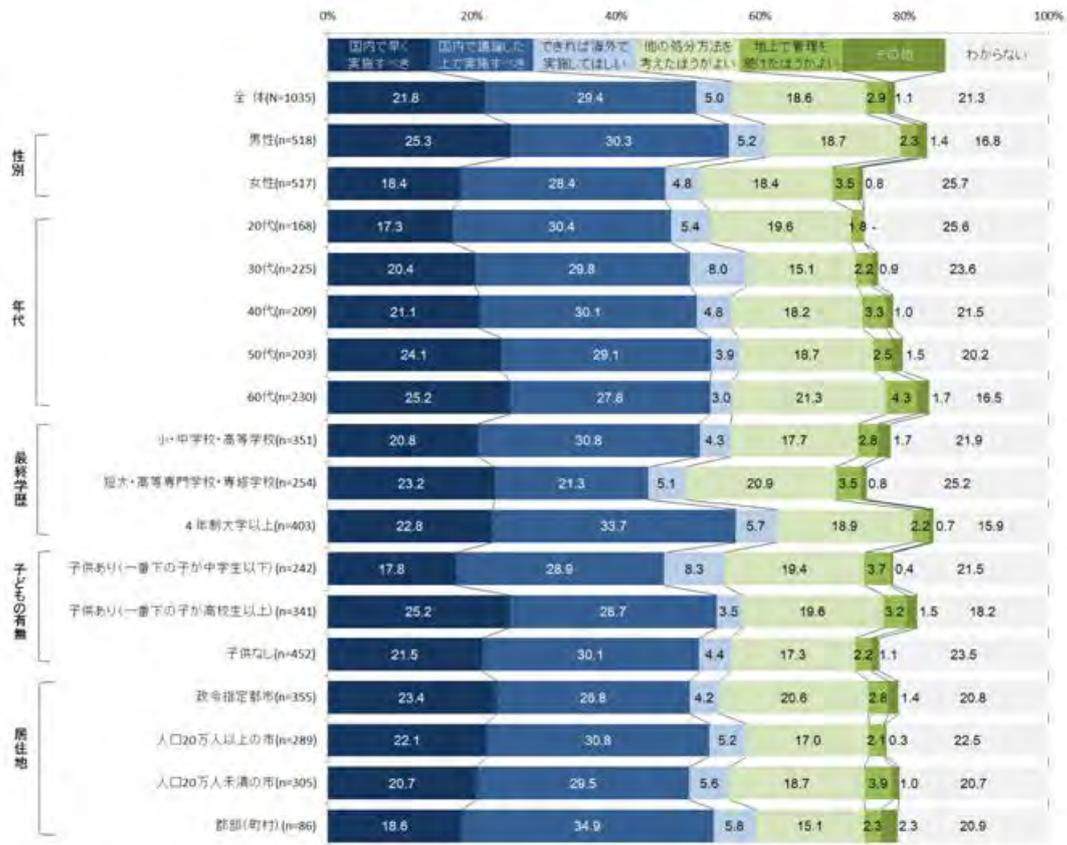


図 5.4.2-5 「高レベル放射性廃棄物の地層処分」についての態度（属性別）

さらに図5.4.2-6に示すように、地層処分に関心の高い層ほど、怖さの程度、「他の処分方法を考えたほうがよい」とする人が多くなる傾向がみられる。また、地層処分に関する認知度が高いほど国内実施推進派が多くなる。エコセグメントでは、エココンシャス層で国内推進派が最も多くなっている。

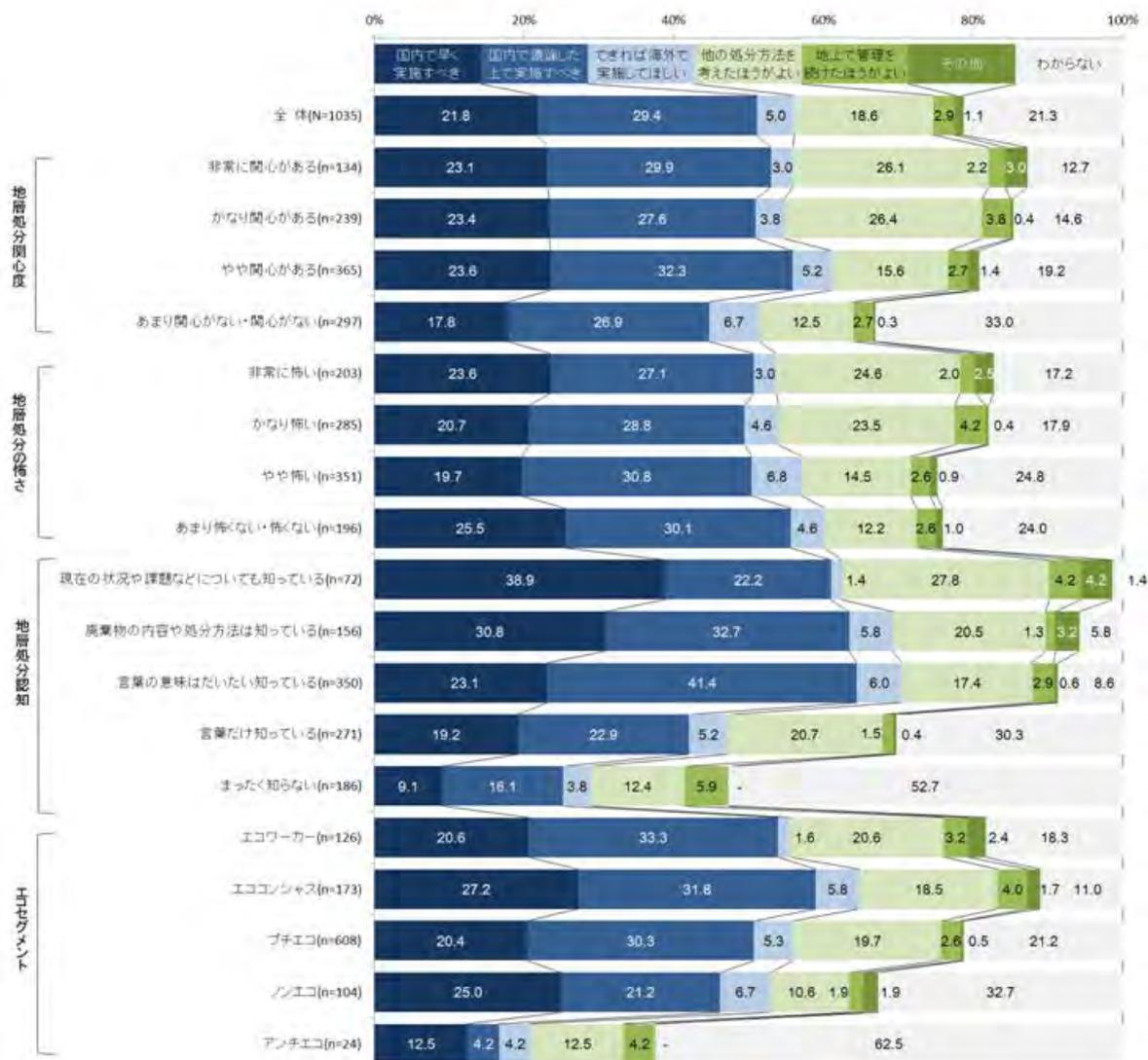


図 5.4.2-6 「高レベル放射性廃棄物の地層処分」についての態度（関心度等別）

5.4.3 地層処分及びその他の対策の背景知識に関するサイエンスコミュニケーション

本項では、前項の調査対象とした候補者に対して、地層処分及び他の技術的対策（長期貯蔵や核種分離・変換等）の原理や安全性に関する脅威となり得る現象等について背景となる科学・技術情報を非専門家にもわかりやすく伝えること（サイエンスコミュニケーション）により、次項以下の活動のための知識や情報の共有を図った。サイエンスコミュニケーションの具体的な方法としては、各テーマの専門家と寛いだ環境で自由に話し合うサイエンスカフェを採用し、特定の対策を推すのではなく極力中立的な立場から行った。

サイエンスコミュニケーション実施後に前項と同様のアンケート調査を行うことにより、背景知識の

(1) 合意形成に関する基本的事項

サイエンスカフェを試行するにあたり、合意および合意形成について以下のように定義した。まず、合意とは、

- ▶ 多様な利害関係者（ステークホルダ）の意見が一致すること
- ▶ 全員一致、大多数の意見の一致、意見は異なるものの大多数が受け入れられる状態（アコモデーション（多くの場合に実際的な目標となる））等の様々なレベルがある

合意形成とは、

- ▶ 議論などを通じて関係者の根底にある多様な価値を顕在化させ、相互の意見の一致を図る過程
- ▶ 合意形成手法（コンセンサスビルディング）は、最善（最大）の合意（多様な関係者のうちのできるだけ多くが納得できる）に達することを主眼としたアプローチ
 - 本来の合意形成プロセスは、特定の決定が支持されることを目指すのではない（一部のステークホルダの提案が全体としての決定事項となることを目指して他の関係者の了解や同意を取り付けるアプローチ（調整、交渉、根回し等）とは異なる）
 - しかし、実際的には、「合意形成」の名の下に調整、交渉あるいは根回しが行われることもある

1) 何について合意すべきか

本来の合意形成（コンセンサスビルディング）のプロセスには、複数の選択肢があり、かつ、各選択肢間の優劣が利害関係や価値観等に依存して異なるため、客観的な最適解が特定できない状況においてのみ適用されるべきである。しかし、数万年以上の長期にわたって潜在的な毒性を有する高レベル放射性廃棄物の安全性を確保するための実現可能な方法は、廃棄物を適切な形態で地下深部に定置し人間の管理を必要としない受動的な安全系を構築することのみであり、上記の要件には該当しないと考えられる。このため、廃棄物の最終方策としての地層処分は、関係するステークホルダの合意の対象ではなく、関連する種々の事実を共有することによって理解（同意）すべきものである。この場合、今後の技術の進展により将来世代が新たな管理方策に置き換えるかもしれないが、現時点では地層処分を暫定的なものとして捉え、それまでの一定の期間は貯蔵保管を行うケースも含む。

一方、以下のように地層処分システム概念の構成要素や実施に至るまでの計画や制度設計を含む様々な意思決定プロセスなどは、関係するステークホルダ間の合意を得ることが重要である。

- ▶ 人間の管理が期待できない「遠い将来」にわたり地下深部が本質的に有する機能により、現時点で発電所内のプールや中間貯蔵施設等に保管されている使用済燃料や海外再処理等で既に製造されているガラス固化体等を閉じ込め隔離するという受動的な安全系の状態に至るまでの手順（可逆性や回収可能性を含む）、場所（サイト）、具体的な方法やスケジュール及びこれらを決定するための社会的な意思決定プロセス
- ▶ 地下の受動的な安全系をどこに設置するか（深度・レイアウト等）、どのようなシステムとするか、どのようにして安全性を評価（確認）するか、どのような条件が満足された時点で管理を終了するか、そして、これらをどのように決定するか（処分システム概念の選択や許認可プロセス、モニタリングや安全確認計画等）

2) 誰の合意か

これまで各分野の代表者（地域の直接的利害関係者、専門家、政策決定者）との間の調整・交渉が主

であった意思決定プロセスを改善し、より幅広いステークホルダとの情報共有を図るとともに、必要に応じて彼らが望めば意思決定に参加することのできる枠組みを作ることが必要である。

3) 合意形成の試行

合意形成に向けた議論の場やプロセスを設計し、試行を通じて具体化方策や課題を抽出することを目的とした。具体的には、サイエンスコミュニケーションによる関連する事実や専門知識の共有の試行として、以下の項目を実施した。

- 地層処分及び他の技術的対策の原理や安全性に関する情報共有
- 高レベル放射性廃棄物対策の選択に関する議論

また、相互理解に基づく合意形成（アコモデーションワークショップ）の試行として、Multi-Stakeholder Consensus Buildingの手法（例えば、Susskind and Cruikshank, 2006）に沿って、地層処分を行ううえでの可逆性と回収可能性の社会的受容性をテーマに議論を行った。これら合意形成の試行の流れを図5. 4. 3-1に示す。

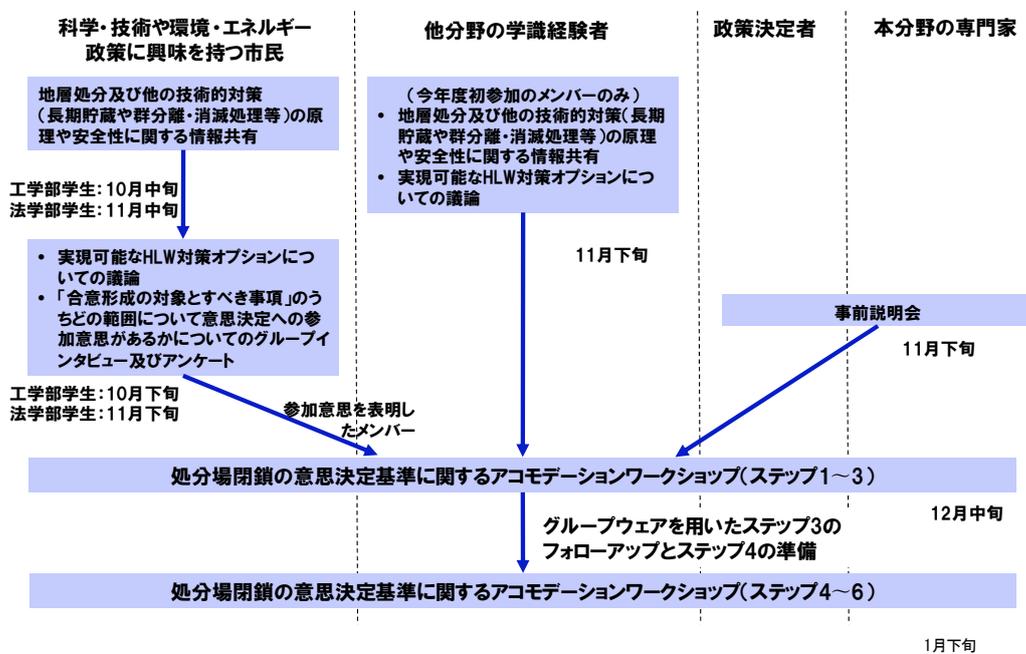


図 5. 4. 3-1 合意形成の試行の流れ

(アコモデーションワークショップの手順等詳細は図 5. 4. 4-1 を参照)

まず、科学・技術や環境・エネルギー政策に興味を持つ市民に対しては、地層処分及び他の技術的対策（長期貯蔵や核種分離・変換等）の原理や安全性に関する情報共有を行い、実現可能なHLW対策オプションについての議論と、「合意形成の対象とすべき事項」のうちどの範囲について意思決定への参加意思があるかについてのグループインタビュー及びアンケートを実施した。また、他分野の学識経験者に対しては、地層処分及び他の技術的対策（長期貯蔵や群分離・消滅処理等）の原理や安全性に関する情報共有を行うとともに、実現可能なHLW対策オプションについての議論を行う。政策決定者や本分野の専門家に対しては事前に説明会を実施した。

次に、上述した科学・技術や環境・エネルギー政策に興味を持つ市民、他分野の学識経験者、政策決

定者や本分野の専門家から代表者を抽出し、処分場閉鎖の意思決定基準に関するアコモデーションワークショップを実施した。

4)サイエンスコミュニケーション

サイエンスコミュニケーションとは、科学・技術に関する専門的な情報や知識を一般の人々（非専門家）にも理解しやすい形に変換し伝える行為である。サイエンスコミュニケーションの要点は以下のとおりである。

- Distillation：コアとなる情報に焦点をあて、もともとの知識や情報の複雑性や量を低減する
- Engaging：情報が公開されている（隠されていない）だけでなく、それらが人を引きつける魅力的なものとして提供される
- Value：サイエンスコミュニケーションで提供される情報には何らかの価値観が直接あるいは間接的に付与されている場合が多い（完全に中立であることは難しい）

類似したコミュニケーション方法としてリスクコミュニケーションがあるが、わからないものについて性急な判断を迫ることを避けるためには、リスクコミュニケーションの準備としてのサイエンスコミュニケーションが有用となり得る。

サイエンスコミュニケーションの試行として、今年度は、工学系および文科系の学生に対して地層処分及び他の技術的対策の原理や安全性に関する情報共有（表5.4.3-1）を行ったうえで、自らが適切と考える方策やその採択理由などを学生から紹介してもらい、それを基に議論を行った。なお地層処分とその他の技術方策について共有した事実項目を以下の表に示す。

表 5.4.3-1 サイエンスコミュニケーションで共有した事実

地層処分	その他の管理方策
<ul style="list-style-type: none"> ● 高レベル放射性廃棄物と地層処分の概要 ● 地層処分の安全性と技術的成立性 <ul style="list-style-type: none"> ➢ 地層の長期安定性と特性 ➢ 処分施設的设计 ➢ 安全性の評価 ● 長期安全性に関する不確実性の存在 ● 地層処分のコスト ● 地層処分事業の計画及び現在の進展状況 	<ul style="list-style-type: none"> ● 長期貯蔵 <ul style="list-style-type: none"> ➢ 長期貯蔵の概念 ➢ 貯蔵コスト ➢ 施設の耐用年数 ➢ 核物質防護の必要性 ● 代替処分概念 <ul style="list-style-type: none"> ➢ 氷床処分 <ul style="list-style-type: none"> ✓ 概念 ✓ 問題点 ✓ コスト試算例 ➢ 宇宙処分 <ul style="list-style-type: none"> ✓ 概念 ✓ 問題点 ✓ コスト試算例 ➢ 核種分離・変換 <ul style="list-style-type: none"> ✓ 概念と基本原理 ✓ 期待される効果 ✓ 主要な核種についての変換技術及び問題点

① 工学系グループの結果

工学系グループ（学生6名）に対して、2015/10/13、10/30の二回にわけてサイエンスコミュニケーションを実施した。事実の共有後に「説明を受けて考えたこと」や「高レベル放射性廃棄物の対策としてどうしていくとよいか」といった点を中心に、自ら思う所などを紹介してもらい、それを基に議論を行った。その結果、議論の過程で、「共通した意見」と「意見の競合や対立が見られた点」を表5.4.3-2に示す。

表 5.4.3-2 サイエンスコミュニケーションで「共通した意見」と「意見の競合や対立が見られた点」
(10月14日と30日に実施した工学部学生グループの例)

共通した意見	意見の競合や対立が見られた点
<ul style="list-style-type: none"> ● いずれの対策を選択するにしても、意思決定の前提として、幅広いステークホルダに放射性廃棄物に関する科学/技術的知識が共有されることが必要 ● 原発の継続の可否によらず、高レベル放射性廃棄物に対する何らかの対策は必要であることを認識して、国民全体が当事者意識を持つことが重要 ● 断層や火山の影響及び将来世代のリスクを考えれば地層処分は積極的に採用したい選択肢ではないが、他のオプションとの比較では最も無難 	<ul style="list-style-type: none"> ● 「地層処分に比べれば中間貯蔵の方が当面のサイトは見つけやすい」 vs 「テロ等の人為的リスクや将来世代への負担の問題を考えれば中間貯蔵は考慮すべきオプションではない」 ● 「氷床処分は南極条約等の問題が解決できれば技術的には良いオプションとなり得る」 vs 「南極の氷床内の不均質性や流動には未解明の問題が多く地下深部よりも不確実性が大きいので不適」 ● 「宇宙処分は事故確率とコストを下げられれば良いオプションとなり得る」 vs 「大きなエネルギーの燃料とHLWの組み合わせは常にリスクを伴う。また宇宙ゴミとの衝突リスク等も今後増大」 ● 「地層処分のNIMBYの問題に対しては国が責任をもってサイト選定を（半ば強制的に）行うべき」 vs 「全国の有望地に分散して複数の処分場を建設する等により公平性を確保すべき」 ● 「核種の分離・変換は現実的な技術オプションとは言えず、また、モラトリアムの原因となってしまうため研究開発は中止すべき」 vs 「HLWの現実的対策としてではなく基礎研究として進めるべき」

② 文科系グループの結果

文科系グループ（6名）での議論では、事実を共有した後、放射性廃棄物について思うところを各自より紹介してもらい、それを基に議論を行った。その議論のポイントを表5.4.3-3に示す。

表 5.4.3-3 サイエンスコミュニケーション（文科系グループ）：議論のポイント

議論のポイント	
<ul style="list-style-type: none"> ● 地層処分以外のオプションを考えるべきか？ ● 地層処分に技術的な問題が残されているというよりは、合意形成と意思決定の問題をクリアする必要があるのではないか？ ● 地層処分という決定はいったん白紙に戻して、当面は暫定保管を行い、そのあとに対策を決めるべきか？ ● 原子力発電に関する技術及び原子力政策のそれぞれについての不信感を払拭することが必要。このためには、欠如モデル（理解してもらえれば賛成、信頼してもらえろという考え方）ではダメ。安心は個人の価値観に依存していること、不合理な選択をする自由を認めるべき ● そもそも原子力発電を始めるべきではなかったということ国が認め、謝罪してからではないと地層処分は進められないものか？ ● 国民や地域住民を含めた幅広い関係者の対話と合意形成が必要であり、また、彼らの積極的参加も必要 ● 知識の偏在を解消したうえでの合意形成でなくてはならない 	<ul style="list-style-type: none"> ● NIMBY問題を解消し不公平感を低減するためには経済的インセンティブが必要ではないか？その際、当該自治体のみでなく、輸送経路上の地域や被害予想地域にまで広げるべきではないか？また、自治体への交付ではなく、住民への交付であるべきではないか？現在の価値観の多様性を考えれば、金銭以外の配慮が必要ではないか？ ● 公募よりも申し入れのほうが良いか？多数の処分場を全国に分布する技術的な適地に分散して立地することで受け入れやすくなるか？ ● 文献調査への応募がバラマキではなく、独自に専門家に委託して評価を行うことや長期的な地域共生といったものに向けられるべき。また、交付時期も適切なものとすべき ● 将来世代との合意形成は不可能だが、現在の繁栄の延長線上にすることを考えれば広い意味での受益者と言えるのではないか？ ● 世代間倫理が重要。現世代が最善を尽くすという責任の取り方と将来世代の選択の余地を残すという姿勢のどちらが良いか？

5.4.4 高レベル放射性廃棄物対策に関するアコモデーションワークショップ

図5.4.3-1の試行の流れに沿って、地層処分を行ううえでの可逆性と回収可能性の社会的受容性をテーマにアコモデーションワークショップを実施した。

(1) 試行の進め方

試行は図5.4.4-1に示す手順に沿って実施することとした。

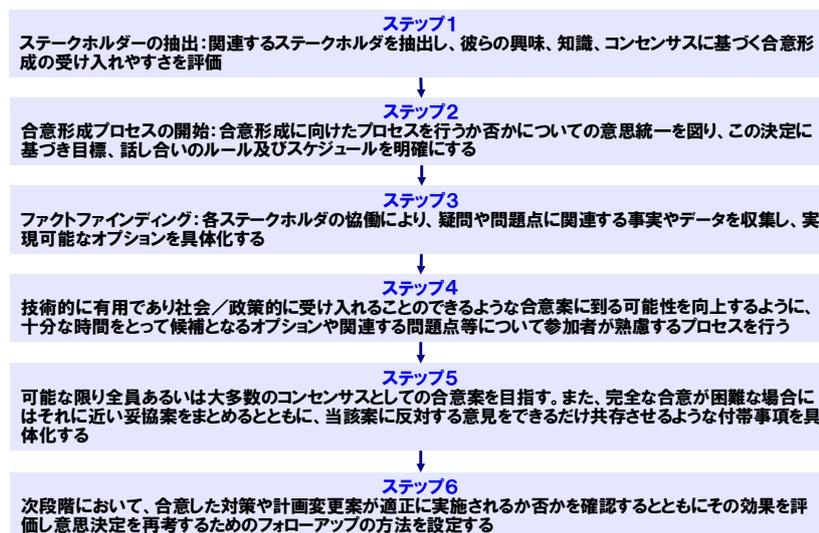


図 5.4.4-1 相互理解に基づく多様なステークホルダー間の合意形成手法

以下に、各ステップの概要を示す。なお、このアコモデーションワークショップの内容の詳細については、別途付録4「アコモデーションワークショップにおける議論の内容」に示す。

(2) ステップ1

アコモデーションワークショップには、以下のメンバーが参加した。

- 地層処分に関する専門家 7名
- 地層処分分野以外の有識者 4名
- サイエンスコミュニケーションに参加した工学系の学生 4名
- サイエンスコミュニケーションに参加した文科系の学生 1名
- 地層処分におけるコミュニケーションの研究に取り組んでいる学生 1名

サイエンスコミュニケーションに参加した学生には、地層処分の概要を説明してそれに基づき議論を行っていることから、アコモデーションワークショップでは地層処分の是非を問うような議論は実施しないこととした。また、地層処分分野以外の有識者としては、以下のようなバックグラウンドを持つ方にご参加いただき、幅広い意見を集めることとした。

- 環境・エネルギー分野
- 社会言語学、知識管理論
- 環境社会学
- 科学技術社会論

(3) ステップ2

サイエンスコミュニケーションにおいて、地層処分事業全般に係る議論を実施したこと、また、平成26年度実施したワークショップでの議論がやや漠然としていたという反省に基づき、今回のワークショップでは、学会会議が提唱している「可逆性と回収可能性 (R&R) 」に関して、国際的な考え方についての情報提供を行い、R&Rについて、「廃棄物の回収可能性をどの程度の期間確保し、その間に何をすべきか?」、「回収可能性を視野に入れつつ、どのような処分概念オプションを採用すべきか?」という点について議論を実施することとした。

(4) ステップ3

前項までに紹介したような議論を行う上で必要となる情報を収集し、以下の項目について参加者と情報共有を行った。

① 地層処分の概要

- 地層処分の選択と概念開発
 - 地層処分の歴史
 - なぜ地層処分か?
 - 地層処分の進め方
 - 各国における計画の進展
 - 安全性
 - セーフティケース
- 地層処分計画
 - 地層処分事業の進め方
 - 計画の再構築
 - 最終処分基本方針の改定
 - 科学的有望地の提示

② 地層処分事業における「可逆性」と「回収可能性」に関する社会的な論点

- 高レベル放射性廃棄物処分の「難しさ」
 - 「トランス・サイエンス」問題としての難しさ
 - 「安全性」の基準設定問題
 - 時間軸の長さの扱い
 - 「実証」の困難性
 - リスクに対する基本的スタンスの選択
 - 社会的な正当化の必要性
- 国際的な議論の経緯と動向
 - 日本政府の新方針における R&R
 - R&R におけるトレードオフ

③ どのような高レベル放射性廃棄物の「処分」が望ましいのか

- 政策を根本的に見直す仕組みを提案、試してみる
 - 市民インタビュー
 - 専門家インタビュー

－ 再び市民に意見を聞く

- ④ 廃棄物の回収可能性に関する処分概念オプションについて
- 可逆性と回収可能性 (R&R) に関する国際的な考え方
 - 回収技術の準備状況
 - 廃棄物を回収することを前提とした処分概念の例

(5) ステップ4

以上の情報提供を踏まえて、意見交換を実施した。詳細な議論の内容については付録4に譲るが、以下に主要なポイントを記載する。

- 15年前に法律で決まっているけど知らないステークホルダも多い。
- 回収可能期間について
 - 回収可能期間を100年、数100年とする案がある。これらと貯蔵との違いは何か？
 - コストよりベネフィットが大きければまだ議論の余地はあるのかもしれない。
- 可逆性を担保するための社会的費用をどのように考えるか。八ツ場ダムの実例で、人の人生は不可逆だという視点が紹介された。このポイントは非常に大切だが、あまり議論されていないからきちんとした議論が必要。
- また、信頼担保の手法として挙げられたジョイントファクトファイディングは、積極的な提案と思う。

(6) ステップ5～ステップ6

上述までのステップを踏まえて、ここでは、回収可能性の期間、地上貯蔵との違い、意味と実態のある回収可能性というようなポイントに的を絞って議論を実施した。主な議論の内容を以下に記載する。

- 回収可能性を想定する期間は100年間程度（処分場埋め戻しまで、あるいはプラスアルファの監視期間）？ そうだとすると、(本気で)回収可能性を保持した地層処分は地上貯蔵と同じであり、むしろ地上貯蔵の方がよいのではないか？
 - 回収可能性を担保すればするほど、人間が関与することなく放っておけるという地層処分システムがもともともっていたメリット（受動的な安全系）が薄まって、結局どうしたいのかわからなくなる。
 - 有害物の処理と同じで、回収可能性も誰の責任でどこまで管理するかを明確にする必要がある。事業者にしてみれば早く手離したいというのは本音だろう。
 - 今の放射性廃棄物処分の法律の大前提は、原子力発電の環境整備というものであり、原発により社会が豊かになるということが想定されている。しかし、これと切り離して、放射性廃棄物の処理は廃棄物を安全にするためのものだと考えるべき。
 - サイト選定を現実的に考えるときには、地元住民は費用負担に関する具体的な説明を当然求めると思う。今の費用負担の説明はなんとなく暗黙の合意的に進められていて、どの場合であれば誰のお金で、という実質的なところまで煮詰まっていない。色々シンポジウムを開催しているが、どこまでを税金でやるのかどこを NUMO がやるのかが曖昧なまま進められている印象がある。
 - みなさんの意見を聞いていると、回収可能性を高めるような優れた地層処分を考えようとい

うことではなく、今の地層処分のまま、制度設計的に回収可能性を進めていくということが適切であると感じられる。

- 以上の流れを踏まえ、OECD/NEA の「R-スケール」 (OECD/NEA, 2012) を考える。これは、処分場の開発段階の進展に応じて、回収の容易さ、受動的安全性 (passive safety)、能動的な管理がどのように変化するかを段階的に図示したものである。地層処分事業では、段階的に議論を進めていく上で知識や経験のデータが蓄積されていく。R スケールでの回収可能性は程度問題とされる。また、この考え方はフランスで作られていて、フランスの法律では地層処分のデザインに積極的に入れることになっている。フランスは研究開発として群分離消滅処理を活かしているが、つい最近やはり地層処分に決定した。
- 何事も起こらずに進んだとき、R-スケールの段階 4 (埋め戻された処分エリア) から段階 5 (閉鎖された処分エリア) にどういふことがあれば進めるのか。諸外国は許認可で決めるが、日本で何ごともなく段階 4 から 5 へどう進めるのかが懸念材料である。
- R-スケールは可逆性がないわけではないということを使うための概念図を作ったというだけだと受け止めており、これに基づいて詳細な制度設計が行われているわけではない。
- 段階 4 から 5 へのステップに移る際に廃棄物が無害化するわけではない。セーフティケースの説明をみんなが納得すれば段階の 4 から 5 に進める。つまり、皆さんがコンフィデンスを得た時点で動くことができる。
- 実体論として無害ではなく、リスクとして無害といえれば進める。段階 4 の状態で安全だから地層処分が安全というわけではなく、次の段階 5 に至るためには段階 4 で何をするか、を考える。そのときの政治的議論はどうなるのかに興味がある。
- 段階 4 の状態のまま開けておくと酸素が地下深くまで行くため、もともと地層が持っている特徴が失われる。また地下水が流れ込むといったリスクがある。
- 建物と跡地の所有・利用が回収可能性のポイントになりそうな気もするが、どこを回収可能性のポイントにするかどうかを色んな人に聞いて疑問を投げかけてもらうのがよい。
- 意思決定の可逆性ということを考えれば、R-スケールの段階 2 以降の話为非専門家に対して行ってもあまり意味がない。坑道を密封する前に何をチェックすべきで、その後、最終形 (跡地利用の在り方、制限等) についての議論が必要。
- 低レベル放射性廃棄物処分は深度が浅いので規制は厳しい。専門家はリスクで考える。素人はハザードで考えるため、低レベルでも跡地への立ち入りを制限しているのに、高レベルでは規制を行わないのかということになる。
- 法律上は高レベルの処分場跡地に制限をかけており、国が続いている限りは大丈夫。なお、法律では国が減びるということは想定していない。
- 廃棄物を掘りだすときは遠隔で行うことになる。
- 一旦埋めた廃棄物を取り戻すのか、処分場を閉鎖するのかの意思決定の主体は？
- 実施主体が方法を国に申請して経産省大臣が承認。許認可を発するまでに実際は地元の意見が効いてくると考えられる。フィンランドでは政府が原則決定する際に住民が決定に好意的であることは前提となっており、原則決定後に国会決定となった。日本もそうなると考えられ、地域の監視委員会が GO サインを出せるか、ということになる (=フランス方式)。回収した時に退避施設が必要。フランスは退避する施設も準備されている。

- 埋めてあるものを戻すのが安全かどうかを非専門家が議論するのは無理。段階2までは素人が議論できるところ。R-スケールよりカリバーシビリティ（可逆性）に特化したR-スケール（段階2～3）、つまり、リバーシビリティを保ちつつ進めることの方が当面は重要。
- 回収可能性は国民からの要求として出ているものとされ、学会会議が回収可能性を必要としている。その意図はポイントオブノーリターン（後戻りできない状態に至ること）を避けたいという要求である。
- 現在の処分計画では段階1～2までまだ進んでいないので、段階4～5のことをステークホルダーに言うのには注意が必要。
- ステークホルダーとのコミュニケーションの第一歩として、言われてから行うのではなく、あらかじめ準備しておくことは必要。一般の方は回収可能性を知らないし、専門家は知りすぎて言わない。その誤解を解くことが必要。
- 地層処分と回収可能性は根本的に矛盾している。回収可能性は技術的なフェイルセーフ。また、回収可能性は態度をためそうとしている。
- 可逆性についてはむしろ場所の選定までで、せいぜい段階2～3までに効いてくるキーワードである。また「想定外」というキーワードが使われているが、何を想定をしているかを示すべき。
- レメディエーション（修正可能）はコミュニケーションの原則で、人の尊厳として非常に重要であるが、原子力の分野ではその点が非常に抜けている。
- 回収可能性はレトリックであり、実体としては地層処分そのものなのではないか？また、以上を踏まえて、意味と実体のある可逆性／回収可能性というものはあるか？
 - (※：回収可能性は廃棄物の回収可能性、可逆性というのは意思決定のプロセスの可逆性)
 - レトリックとは巧みな表現、修辞学のこと。回収可能性はレトリックというよりは、回収可能性は対話に入ってきてもらうためのプロセスの出発点と考えるべき。回収可能性を備えた地層処分システムがあるのではなく、もともと備えている地層処分の属性を強調してフォーカスしたものであり、説明の出発点として捉えるべき。
 - 回収可能性の意味や実体はあると思っていて、フィードバック制御とも言える。意思決定するにしても回収可能性がある場合とない場合では、意思決定の重みや集めるべき情報が全く異なる。ただし、どのような条件設定にするかといった制度設計に落とし込むには非常に難しいと思う。
 - 時間も大切。50年間は回収可能性を保持しながらいろいろ場所を選ぶのと、国際情勢を見ながら様々な可能性を検討していくのとではずいぶん異なる。
 - 地層処分は本質的に回収が可能なのだから、回収が困難という理由でそのまま地層処分計画を進めていくということは通用しない、と捉えるべき。ただし、回収可能性は時間の経過とともに低下していくので、シナリオごとにクライテリアを決めるべき。

5.4.5 合意形成に向けた協働に関する結果の整理と今後の課題の抽出

平成26年度の検討では、高レベル放射性廃棄物対策に関する異なる意見や態度について、地層処分についてどう思うか、というやや漠然とした大きなテーマに基づいて議論を行った。本年度のサイエンスコミュニケーションにおいても、地層処分の是非には触れずに情報提供を行い、共有した情報に基づい

で議論を実施した。原子力発電を開始した過去の経緯や福島第一原子力発電所の事故等が原因で、高レベル放射性廃棄物対策に対しても様々な意見が存在したが、これらのコミュニケーションの試行から、きちんと情報提供を行い共有して議論を行えば、高レベル放射性廃棄物の最終方策として地層処分という処分方法が妥当であるといった態度に変容することが大勢を占めることがわかった。しかしながら、地層処分という大きなテーマに限って議論をするだけではステークホルダの不安を十分に払しょくできるわけではなく、今回のアコモデーションワークショップのようにある程度、議論的を絞って行うことが、より理解を促進するためには有効であった。その過程で生じる矛盾あるいは競合するニーズを解消するための方策としては、これまでに開発したTRIZ（発明的問題決定理論）に基づく「処分概念創出支援ツール」を活用し、また、公正性を保ちつつ合意に至る道筋を探るために、図5.4.5-1に示すようなマルチエージェントシミュレーションを行うことも有効である。

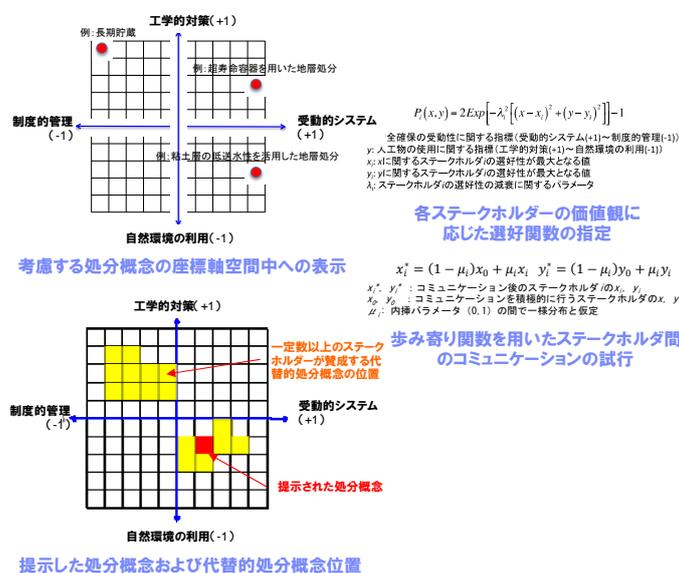


図 5.4.5-1 マルチエージェントの実施例

今回のアコモデーションワークショップでは、可逆性と回収可能性 (R&R) にテーマを絞って議論を行った。ここで得られた重要な点は、サイト選定の過程でステークホルダとの合意が一度だけ形成されればそれで良いというわけではなく、100年にもわたる処分事業期間の中で何度も合意形成を図らなければならない局面が生じうるということである。このような観点から、「回収可能性」という地層処分がもともと持っている特性は、ステークホルダとのコミュニケーションの一つのカードとして有効であり、その意味では「回収可能性」という特性についての情報の整理を十分に行い、ステークホルダの感情に寄り添う準備を行っていくことが大切である。

また、「回収可能性」という用語を用いたステークホルダとのコミュニケーションは一例にすぎず、上記に述べたように長期にわたる手段としての合意形成という観点からは、合意形成が必要となる段階を詳細に分析し、それぞれ対象とするステークホルダに応じたコミュニケーションの在り方を検討し続けることが肝要である。

今回はステークホルダの代表の方に集まっていたいでサイエンスコミュニケーションやアコモデー

ションワークショップを実施したが、より広範囲な方々を対象とするときには、「Webinar」*)のようなWebシステムをベースとしたe-learningシステムに、都度適切な教材を取り込み、参加者に学習やそれに基づく議論を促すような仕組みづくりが必要となる

5.5 まとめ

5.2項の「閉鎖後長期安全性に関するロバスト性の高い地層処分システムの概念構築」では、平成25年度の成果及び平成26年度の成果（経済産業省平成25年、平成26年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）（日本原子力研究開発機構，2014；2015a）を踏まえ、地層処分システムのロバスト性を向上するためのレジリエンス的取り組みの課題及び具体的な方策の候補を提案した。主な実施内容は以下のとおりである。

- ① 地層処分分野及び類似した他の分野における「システムのロバスト性を向上するためのレジリエンス的取り組み」に関する文献調査及び専門家へのヒアリングとこれに基づく事例ベースの作成
- ② 地層処分システムのロバスト性を向上するためのレジリエンス的取り組みに関する候補の抽出及び各候補の長所や短所あるいは制約条件等に関する分析
- ③ 上記の分析結果に基づく、個別の方策候補を組み合わせた相互補完的な戦略の提案及び導入に向けた計画の立案

5.3項の「受動的な安全系へ推移するまでの期間におけるレジリエンス的取り組みの具体化」では、「ロバスト性の高い地層処分システム及び受動的な安全系へ推移するまでの期間におけるレジリエンス的取り組み」の一環として、回収可能性やモニタリングを含む対策について、国内外の技術的整備の状況を整理するとともに、意思決定プロセス及び制度設計において何を議論し、どういった話し合いの場を設けるべきかといった調査検討を行った。

また、可逆性と回収可能性（R&R）を前提としたConfidence buildingの具体的方策の例として、モニタリング方法やモニタリング情報の可視化方法、擾乱に関する実証実験についての調査を実施し、5.4項でのアコモデーションワークショップにおける基本情報の準備とした。

5.4項の「多様なステークホルダ間の合意形成に向けた協働の試行」では、本年度のサイエンスコミュニケーションにおいても、地層処分の是非には触れずに情報提供を行い、情報提供に基づく議論を実施した。原子力発電が開始された過去の経緯や福島第一原発の事故等が原因で、高レベル放射性廃棄物対策に対しても様々な意見が存在するが、これらの議論を行うことにより、きちんと情報提供をして議論を行えば、地層処分という処分方法が妥当であるといったように態度が変容することが大勢となることがわかった。

また、R&Rを題材としたアコモデーションワークショップを行い、全員が賛成できないまでも受け入れることのできる計画の立案に資するための方法論を検討した。事業を進めるための手段としての合意形成の在り方として、地層処分という技術オプションがもともと持っている「回収可能性」という特性についての整理を行い、誤解を与えないように注意深く専門家が情報提供を実施していくことの重要性が

*) ウェブ(Web)とセミナー(Seminar)を組み合わせた造語で、インターネット上で行なわれるWeb会議。1方向だけの情報伝達であるウェブキャスト(Webcast)と対照し、ウェビナーは、実施者と参加者間の双方向で対話が可能。

確認された。さらに、対象とするステークホルダを分析し、合意形成が必要となる段階それぞれにおけるコミュニケーションの在り方を模索することが今後の課題と言える。また、このようにして得られたコミュニケーションの結果を、5.2項で整理した事例ベースや確証性の高い地層処分システムの創出の枠組みを活用しつつ、よりステークホルダの要求に即した地層処分システムの在り方に反映させるための仕組みづくりを検討する必要がある。

参考文献

- Andersson, K. et al. (2003): "Transparency and Public Participation in Radioactive Waste Management. RISCOM II Final report", SKI Report 2004:8.
- ANDRA (2005): Dossier 2005, Argile Tome Architecture and management of a geological repository, 2005.
- Brasseur, P.P. and Nihoul J.C.J. (Ed.): Data Assimilation: Tools for Modelling the Ocean in a Global Change Perspective, (Nato ASI Subseries I), Springer-Verlag, ISBN 978-3642789410 (2011/12/13). (Reprint of 1994).
- Breenl, B., Johnsonl, M., Frieg, B., Blechschmidt, I., Manukyan, E., Marelli, S. and Maurer, H.R. (2008): Development of Non-intrusive Monitoring Techniques - ESDRED & TEM Projects at Mont Terri and the Grimsel Test Site, International Conference Underground Disposal Unit Design & Emplacement Processes for a Deep Geological Repository, 16-18 June 2008, Prague.
- Dörner, D. and Wearing, A. J. (1995): Complex problem solving: toward a (computer simulated) theory. In: Frensch PA, Funke J (eds) Complex problem solving: the European perspective. Lawrence Erlbaum, Hillsdale, pp 65-99.
- 古谷正裕, 常盤井守泰, 三枝利有 (2000): チタン被覆による長寿命・高耐食キャニスタの成立性評価, 電力中央研究所報告, 報告書番号: L07013.
- 藤村 陽, 石橋克彦, 高木仁三郎 (2001) : 高レベル放射性廃棄物の地層処分はできるか II, 岩波書店『科学』2001年3月号264~274頁.
- 原子力委員会 (2012): 今後の原子力研究開発の在り方について (見解) , 平成24年12月25日.
- 原子力発電環境整備機構 (2010) : 安全確保構想 2009, ~安全な地層処分の実現のために~, NUMO-TR-09-05, 2010年3月.
- 原子力環境整備促進・資金管理センター (2009a) : 平成20年度 地層処分技術調査等委託費 高レベル放射性廃棄物処分関連 処分システム工学要素技術高度化開発 報告書 (第1分冊) -遠隔操作技術高度化開発-
- 原子力環境整備促進・資金管理センター (2009b) : 平成20年度 地層処分技術調査等委託費 高レベル放射性廃棄物処分関連 処分システム工学要素技術高度化開発 報告書 (第3分冊) -モニタリング技術の開発-
- 原子力規制庁 (2014) : 実用発電用原子炉及びその附属施設の位置, 構造及び設備の基準に関する規則の解釈の記載の適正化について, 平成26年4月16日.
- Hollnagel, E. (2012): FRAM: The Functional Resonance Analysis Method: Modelling Complex Socio-technical Systems, Ashgate.
- IAEA (2001): Monitoring of geological repositories for high level radioactive waste, IAEA-TECDOC-1208.
- IAEA (2003): "Reference Biospheres" for solid radioactive waste disposal, Report of BIOMASS Theme 1 of the BIOSphere Modelling and ASSESSment (BIOMASS) Programme, Part of the IAEA Co-ordinated Research Project on Biosphere Modelling and Assessment (BIOMASS).
- IAEA (2010) : Modelling the Environmental Transfer of Tritium and Carbon-14 to Biota and Man, Report of the Tritium and Carbon-14 Working Group of EMRAS Theme 1, Environmental Modelling for Radiation Safety (EMRAS) Programme.
- IPCC (2005): IPCC Special Report on Carbon Dioxide Capture and Storage.
- 板倉宏昭 (2010): 経営学講義, 勁草書房, ISBN 978-4-326-50334-6.

- Jansson, M. and Eriksen, T. (2001): CHEMLAB: A probe for in-situ radionuclide experiments, Diffusion studies, SKB TR01-14.
- 核燃料サイクル開発機構 (1999) : わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性—地層処分研究開発第2次取りまとめ—分冊3-, 地層処分システムの安全評価, JNC TN1400 99-023.
- Kollet S. J. and Maxwell, R. M. (2006): Integrated surface-groundwater flow modeling: a freesurface overland flow boundary condition in a parallel groundwater flow Model, Adv. Water Resour., 29(7), 945-958.
- Majer, E., Nelson, J., Robertson-Tait, A., Savy, J. and Wong, I. (2012): Protocol for Addressing Induced Seismicity Associated with Enhanced Geothermal Systems, U. S. Department of ENERGY.
- 丸山宏, 井上克巳, 椿広計, 明石裕, 岡田仁志, 南和宏 (2012) : システムズ・レジリエンス, 第11回情報科学技術フォーラム, 2012年9月.
- Muurinen and Carlsson (2010): Experiences of pH and Eh measurements in compacted MX-80 bentonite, Applied Clay Science 47 (2010) 23-27.
- OECD/NEA (2004): Post-Closure Safety Case for Geological Repositories, Nature and Purpose, Radioactive Waste Management, ISBN 92-64-02075-6.
- OECD/NEA (2012): Reversibility of Decisions and Retrievability of Radioactive Waste, Considerations for National Geological Disposal Programmes, Radioactive Waste Management, ISBN 978-92-64-99169-9.
- Okumura, M., Nakamura, H. and Machida, M. (2013): Mechanism of strong affinity of clay minerals to radioactive cesium: First-principles calculation study for adsorption of cesium at frayed edge sites in muscovite. J. Phys. Soc. Japan, 2013, 82, 033802.
- OPE (Observatoire pérenne de l'environnement) (2016): ホームページ <http://www.andra.fr/ope/> (平成28年3月2日閲覧)
- Proehl, G. (2015): MODARIA, Modelling and Data for Radiological Impact Assessment Context and overview, Interagency Steering Committee Meeting on Performance and Risk Assessment Community of Practice Annual Technical Exchange Meeting, 15-16 December 2015.
- 日本原子力研究開発機構 (2014): 確証性の高い処分概念の構築技術に関する調査検討— 2013 年度委託研究成果報告書 一, 2014年3月.
- 日本原子力研究開発機構 (2015a): 確証性の高い処分概念の構築技術に関する調査検討— 2014 年度委託研究成果報告書 一, 2015年3月.
- 日本原子力研究開発機構 (2015b): わが国における使用済燃料の地層処分システムに関する概括的評価— 直接処分第1次取りまとめ —, JAEA-Research 2015-016
- 下澤和幸, 田村博, 永山勝, 山本祐子 (1999) : コンクリート構造物の鉄筋腐食遠隔モニタリング, コンクリート工学年次論文報告集, 21-2, 997/1002.
- SKB (2006) : Long-term safety for KBS-3 repositories at Forsmark and Laxemar - a first evaluation, Main Report of the SR-Can project, SKB TR -06 -09, 2006.
- SKB (2011) : Long-term safety for the final repository for spent nuclear fuel at Forsmark. SR-Site Main report of the SR-Site project, SKB TR-11-01.
- SKB (2013) : RD&D Programme 2013, Programme for research, development and demonstration of methods for the management and disposal of nuclear waste, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co., SKB TR-13-08, Sep. 2013.
- 総合資源エネルギー調査会 原子力安全・保安部会 廃棄物安全小委員会 (2006) : 放射性廃棄物の地層処分に係る安全規制制度のあり方について, 平成18年9月11日.
- Susskind, L. and Cruikshank, J. (2006): Breaking Robert's Rules, New York, NY: Oxford.

UNSCEAR (1993) : Sources and Effects of Ionizing Radiation, UNSCEAR 1993 Report to the Assembly, with Scientific Annexes, United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation.

6. 地層処分事業に資するための地層処分システム評価確証技術の統合化

6.1 目的と5カ年の計画

6.1.1 目的

第1章で述べたように、資源エネルギー庁より受託している本プロジェクト「処分システム評価確証技術開発」の主たる目的は、先端科学技術を駆使した解析評価技術を開発するとともに、こうした評価技術と関連させ、地層処分にかかわる意思決定プロセスにおけるシステム評価の確証性を高めていくための仕組みを備えた地層処分システム開発の方法論を構築することである。このために、システムの拡張ロバスト性概念の構築を行い、これに基づいて処分場閉鎖前から閉鎖後の長期にわたる処分場近傍（ニアフィールド）領域を中心としたシステム変遷と核種移行を評価するための先端的評価技術（第2章）、高レベル放射性廃棄物や多様な長半減期低発熱放射性廃棄物（TRU 廃棄物）の共処分によるニアフィールドの影響評価技術（第3章）、及び断層発生などの過酷事象の地層処分システムへの影響に関する評価確証技術の開発（第4章）、可逆性と回収可能性などを考慮した処分システム概念の提示（第5章）に向けた検討をそれぞれ行っている。

これらを通じ、処分実施主体が行う処分場設計や性能評価の科学技術的基盤を与え、安全裕度の定量化等に資すると同時に、安全規制の策定に対しても科学技術的基盤を提供し、地層処分技術の社会的受容性向上に貢献することが別途求められている。このような観点から、本章のサブプロジェクト「地層処分事業に資するための地層処分システム評価確証技術の統合化」では、上記の第2章から第5章それぞれの各サブプロジェクトの成果について、

- 事業主体が行う処分場設計や性能評価技術の科学技術的基盤を与え安全裕度の定量化等
- 安全規制策定のための技術基盤、地層処分技術の社会的受容性向上

に資することを目的に、相互の関連性を踏まえ、先端的技術等を反映した各要素技術の統合化と知識の体系化を行うものである。

6.1.2 5カ年の計画

本サブプロジェクトの5カ年の計画を以下の図6.1.2-1に示す。初年度は、評価確証技術の統合化に向けた全体的な枠組みを構築し統合プラットフォームを開発した後、これまで専門家間の知識共有とステークホルダ間の対話と協働に資する試行や統合プラットフォームの改良を行ってきた。合わせて今後は段階的に技術と知識の体系化を図っていく。



図 6.1.2-1 「地層処分事業に資するための地層処分システム評価確証技術の統合化」の5カ年計画

6.1.3 今年度の実施内容

本プロジェクトで対象とする評価確証技術の要素技術の体系化と得られた知識の共有化の概念は以下の通りであり、図式化したものを図 6.1.3-1 に示す。

- 専門家と非専門家を含む多様なステークホルダ間の連携の各局面における知識の生成・格納・利用等の一連のプロセスを支援するためのツールとして統合プラットフォームを構築する
- 統合プラットフォームを用いて知識管理やステークホルダ間の対話と協働を試行する

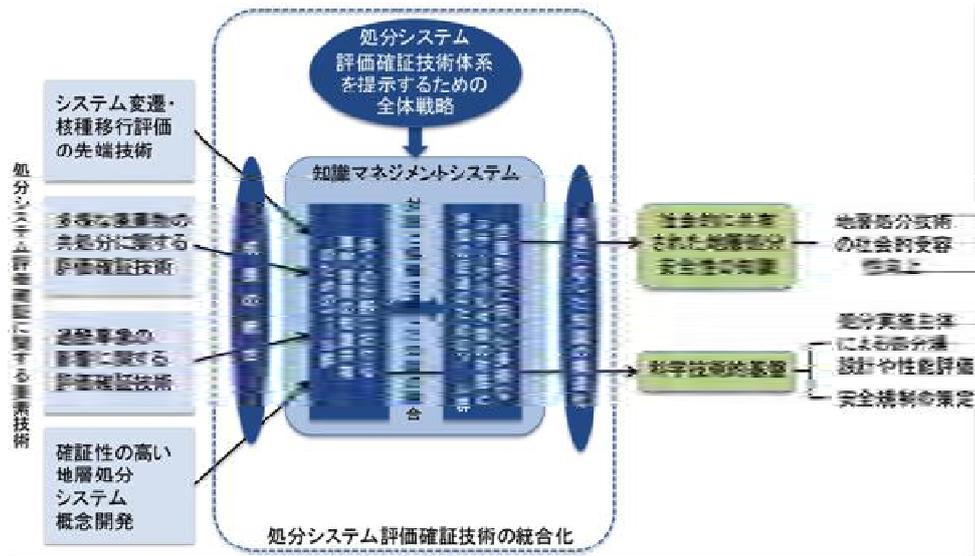


図 6.1.3-1 処分システム評価確証技術の統合化

これを踏まえ、本年度は以下の検討を実施した。

(1) 処分システム評価確証技術の統合化に関する試行 (6.2 項)

- 知識共有の試行を通じた統合プラットフォームの改良
- 非専門家向けのポータルサイトの構築

(2) 処分システム評価確証技術の認知拡大に関する試行 (6.3 項)

- 平成 26 年度作成の広報ツールの調査・評価
- システム評価確証技術の要素技術のブランドデザインの試行
- サイエンスコミュニケーションを通じた認知上の価値の創出や知識共有の試行
- 広義のデザインの検討

6.2 処分システム評価確証技術の統合化に関する試行

6.2.1 知識共有の試行を通じた統合プラットフォームの改良

1.2 で述べた「確証性の高い地層処分システム概念」の構築に向け、その構成要素の体系図を用いながら各サブプロジェクトの専門家間の知識共有と協働および多様なステークホルダの参加と対話を促進するための知識の融合と構造化に関する概念図を図 6.2.1-1 に示す。ここで、「確証性の高い地層処分システム概念」とは、処分計画に関係するすべてのステークホルダが納得し（腑に落ちる）処分システム概念を意味し、その構築にあたっては、システムの長期安全確保技

術について確信を持つことができること、およびその概念の構築過程（意思決定プロセス）が公正な手続きを通じて行われているかどうかが重要となる。同図に示すように、地層処分システム概念の構築には、直接的利害関係者のほか、地方自治体関係者、周辺住民、政策決定者、社会科学系学識経験者、環境／エネルギー政策に興味を持つ市民、専門家、科学・技術系学識経験者、科学・技術に興味を持つ市民等が関係する。各要素技術の統合と体系化については、当該分野の専門家によってのみなされるのではなく、研究の進捗に応じてこれらの非専門家から構成されるステークホルダとの議論を通じて成果の共有や目標設定の見直し等を行っていく必要がある。また同図に示すように、多様なステークホルダが各要素技術開発の研究成果についての知識共有や対話を行うための仕組みを、ソーシャルウェアを用いて構築するとともに、グループウェアを用いて多分野の専門家間の知識共有を図る。

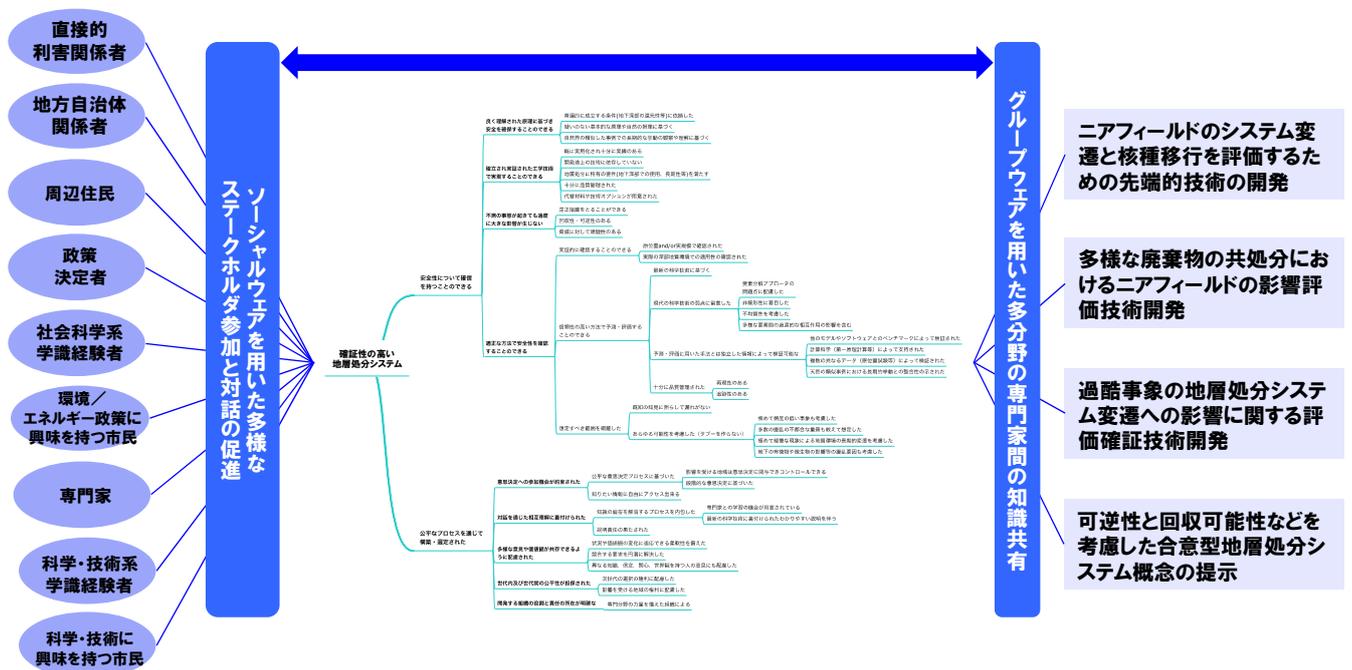


図 6.2.1-1 確証性の高い地層処分システムの構築に向けた多様なステークホルダ及び地層処分以外の分野の専門家間の対話と協働による知識の融合と構造化

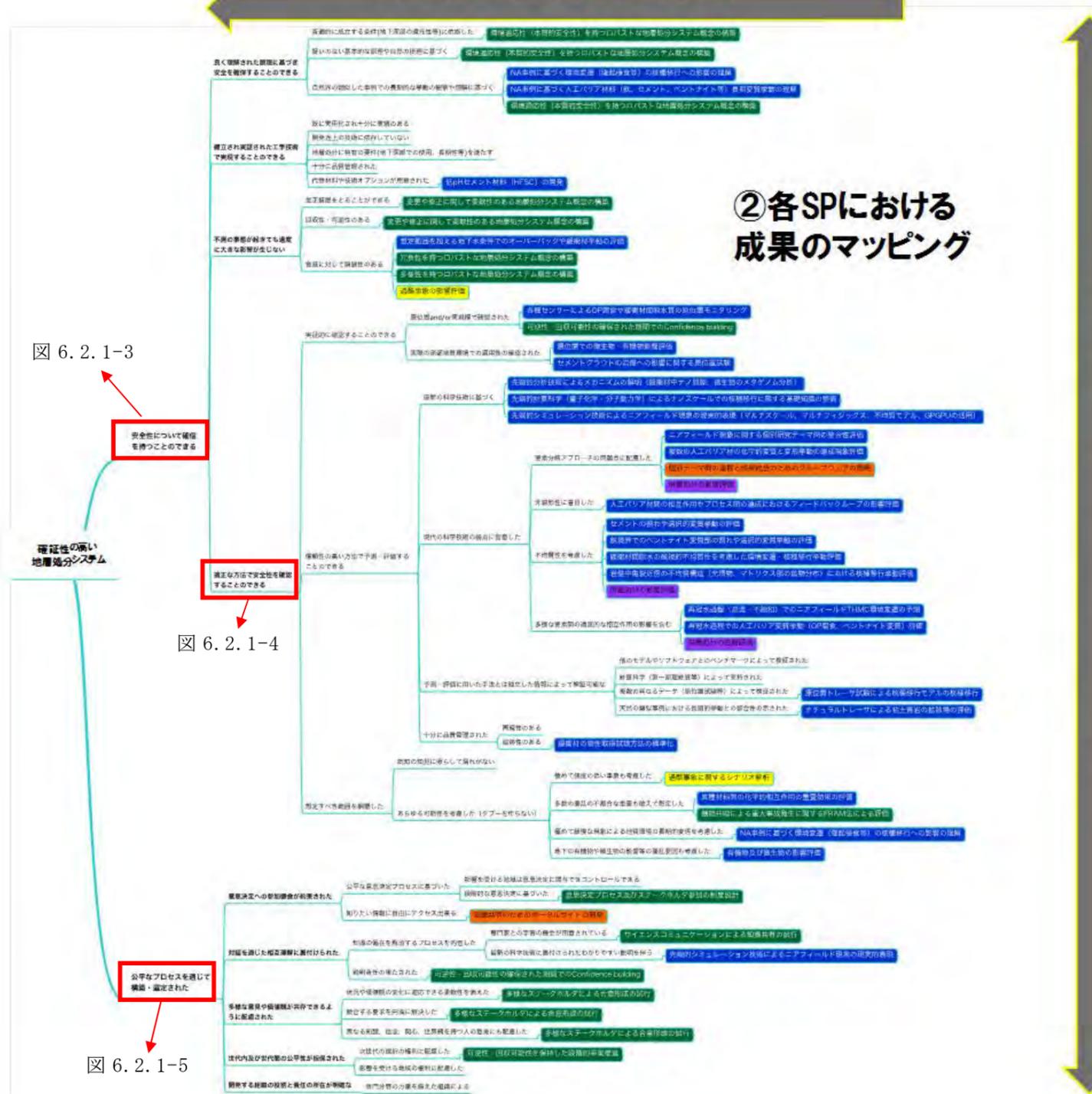
「確証性の高い地層処分システム概念」の体系図を用いて、各サブプロジェクトからの成果の統合の手順を図 6.2.1-2～図 6.2.1-5 に示す。図中に示す体系図のツリー構造では、「確証性の高い地層処分システム概念」の構築に求められる成果の要件を左側から順に階層ごとに提示することとし、最左端の「確証性の高い地層処分システム」から展開されるツリー構造の最下位に位置する要件それぞれを、「ニアフィールド先端技術開発」、「共処分ニアフィールド影響評価」、「過酷事象影響評価技術開発」、「可逆性や回収可能性などをシステム概念の提示」、「処分システム確証評価技術の統合化」の各サブプロジェクトとの対応付けを行っている。これらにより各研究成果の位置づけが明らかになるとともに、研究成果を可視化し、分野横断的に研究成果を連携し融合していくうえで有効となり、今後の研究開発計画を戦略的に進めていくうえで有益なツールとなりうる。またステークホルダとの対話を行ううえでも、この体系図の活用が可能である。

①合意形成のために求められる成果の要件

④研究開発成果の可視化

②各SPにおける成果のマッピング

③分野横断的連携及び成果の融合



SP1:ニアフィールド先端評価技術開発

SP2:共処分ニアフィールド影響評価

SP4:過酷事象影響評価技術開発

SP4:R&Rを考慮した合意型処分システム概念構築

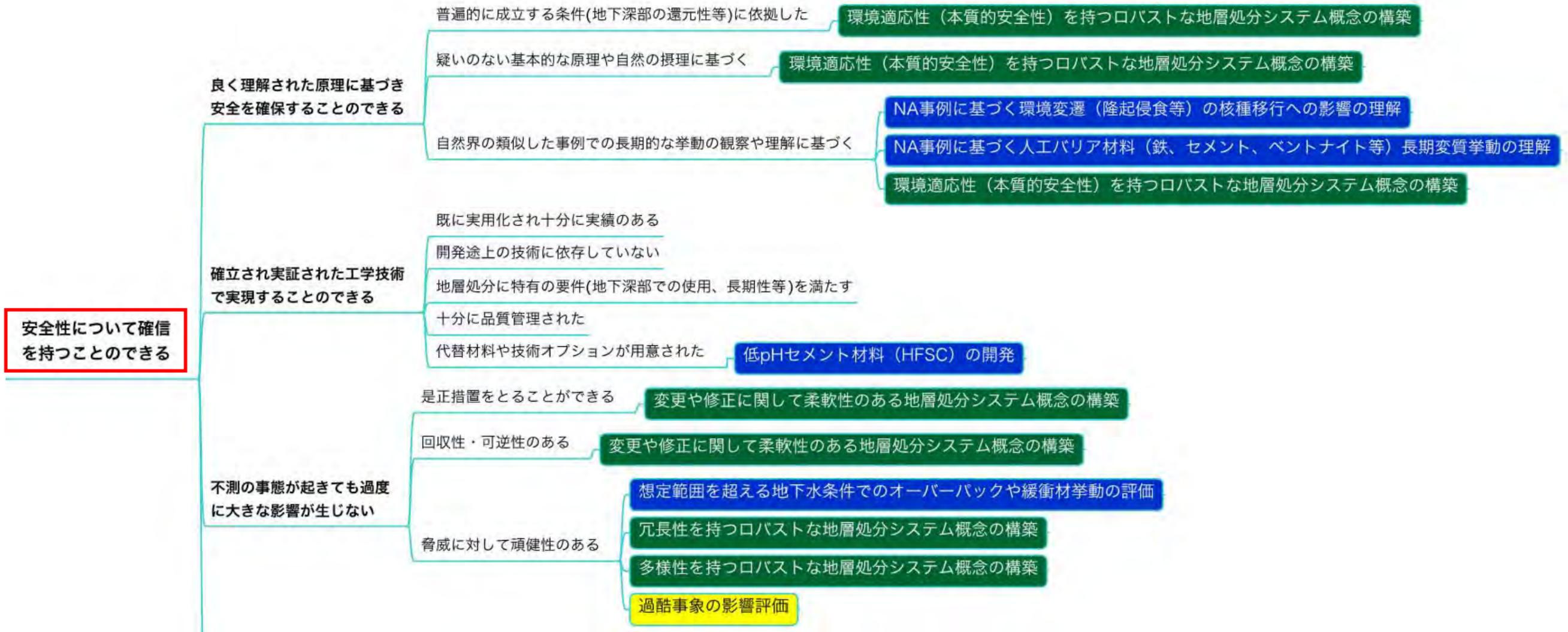
SP5:処分システム検証評価技術の統合化

図 6.2.1-3

確証性の高い
地層処分システム

公平なプロセスを通じて
構築・確認された

図 6.2.1-2 成果統合の手順



SP4:R&Rを考慮した合意型処分システム概念構築

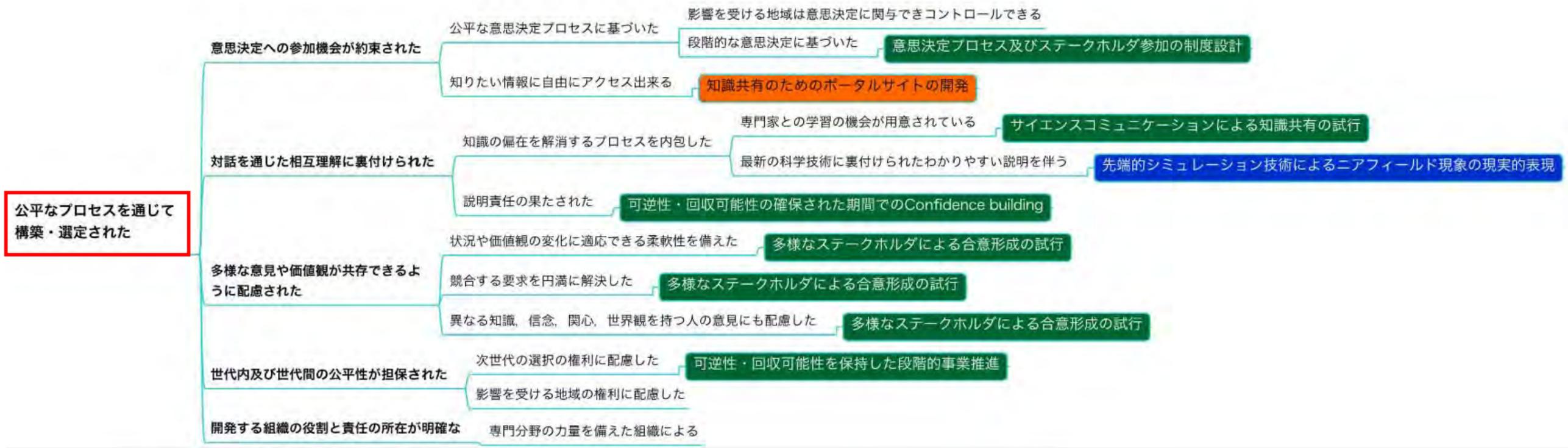
図 6.2.1-3 確証性の高い処分システム構築に求められる要件に応じた各技術の研究成果マッピング (その1)



SP4:R&Rを考慮した合意型処分システム概念構築

SP5:処分システム検証評価技術の統合化

図 6.2.1-4 確証性の高い処分システム構築に求められる要件に応じた各技術の研究成果のマッピング（その2）



SP4:R&Rを考慮した合意型処分システム概念構築

SP5:処分システム確証評価技術の統合化

図 6.2.1-5 確証性の高い処分システム構築に求められる要件に応じた各技術の研究成果のマッピング (その3)

また、上述の各サブプロジェクト成果の統合に関する知識共有の試行を行ううえで、これまでに構築した統合プラットフォームの改良を以下の観点から行った。

(1) 成果の統合に向けたグループウェアの活用方法

上述したように、各要素技術を関係者間で共有するために、本プロジェクトである「処分システム評価確証技術開発」に特化したグループウェアを活用し、図 6.2.1-6 に示すグループウェアを用いた協働ができるように統合プラットフォームを改良した。統合に向けた改良としては、以下の項目を行っている。

- 知識の生成と利用を円滑に行うための知識ベースの枠組みの整理
- 分野間での協働を支援するシステム利用環境の構築
- 関係者間での知識共有や分野横断的な議論の実施

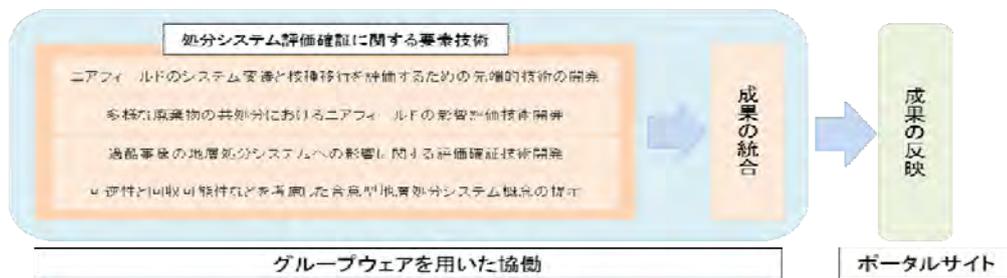


図 6.2.1-6 グループウェアを用いた協働

なお、グループウェアを活用した協働においては以下の要件が求められる。

- 関係者が意見を出し合えること
- 意見の意図や根拠の提示ができること
- 双方向性のあるコミュニケーションができること

(2) 協働を支援するグループウェアの機能

グループウェアには、各要素技術開発の統合した成果を関係者間で閲覧することによる知識共有や分野横断的なテーマについて議論する機能を実装した。この概念を図 6.2.1-7 に示す。また、各グループウェアに求められる要件と採用したツールを表 6.2.1-1 に示す。

例えば、電子掲示板やモデルベースシステムなどを用いて、各課題についての専門家間の知識共有や協働による問題解決に加え、研究成果それぞれについてコミュニティとの議論に活用することが期待される。また、コミュニティとの議論の内容を会議の場で利用するにあたっては、マネジメントコックピットが活用できる。



図 6. 2. 1-7 グループウェアを介した各ツールとの連携

表 6. 2. 1-1 グループウェアの機能

機能	要件	ツール
コミュニケーション	各課題についての研究開発における専門家間の知識共有や協働による問題解決 各課題についての研究成果とコミュニティにおける議論の結果を踏まえつつ、会議の場で対象とする論拠の成否を判断	モデルベースシステム 電子掲示板 ファイル共有
ソーシャルウェア	各テーマについてのコンセンサス会議の結果を踏まえつつ、アコモデーションの成立を目指して合意形成に向けた議論	討論型世論調査ツール
知識の利用	各課題についての研究成果とコミュニティにおける議論の内容を会議の場で都度利用	マネジメントコクピット
知識の共有	各テーマについての研究成果、外部の学識経験者の意見及び非専門家も含めたコンセンサス会議の判断を適宜参照	CoolRep
オントロジー	オントロジーによって適切にタグ付けされた知識を体系的に収納	統合知識ベース (現時点では未実装)

(3) グループウェアの活用による協働の試行

コミュニケーション機能のグループウェアを活用した協働の試行として、平成 26 年度に提示したリスク分析の方法論である FRAM 法を用いた情報の整理の支援を行った。図 6. 2. 1-8 に示すように、ここでは、FRAM 法構築ツールをモデルベースシステムとして組み入れ、同じ情報を共有しつつ、関係者間での議論が可能となるように実施した。なお、ここで整備したグループウェアの機能には、「情報の共有」、「意見の投稿」、「関連情報へのリンク」、「図への書き

込み」があり、これらには「双方向性」、「リアルタイム性」といった特徴がある。



図 6.2.1-8 FRAM 法構築ツールを組み込んだモデルベースシステム

図 6.2.19 は、環境あるいはエネルギー分野に興味を持つ市民からなるグループによるオンラインコミュニティをグループウェアで支援した事例の概念図である。オンラインコミュニティには電子掲示板を用いて議論を行うとともに、導入・事後アンケートを実施するうえで、「討論型世論調査ツール」を用いた。

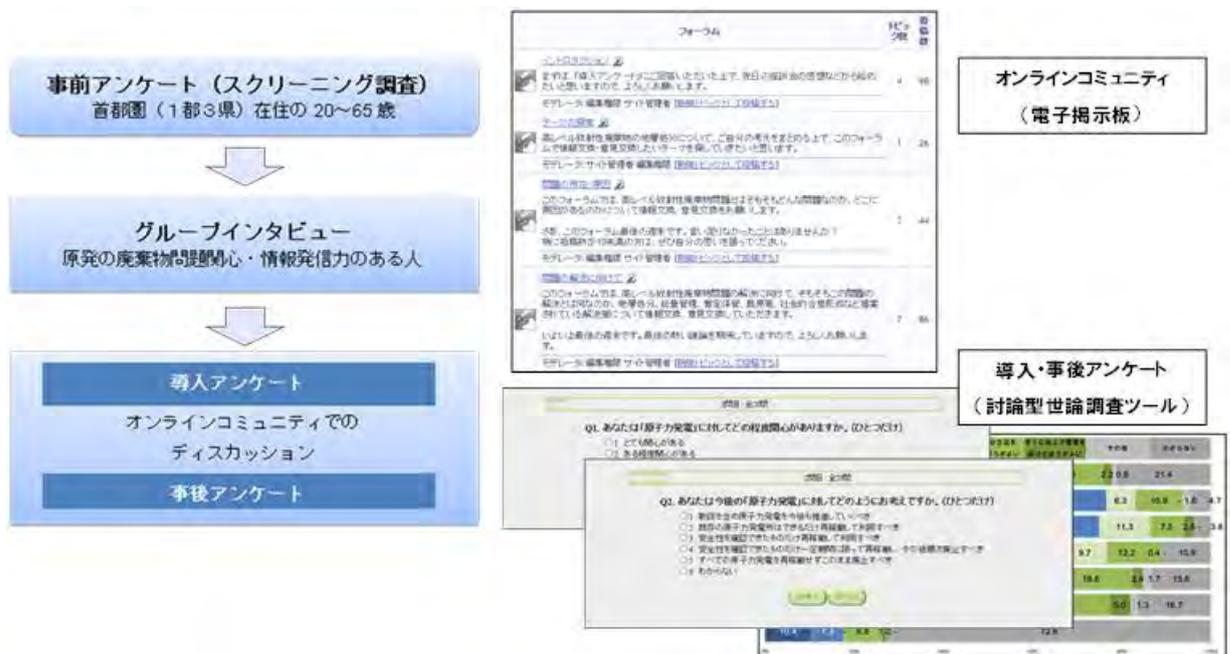


図 6.2.1-9 討論型世論調査での活用例

6.2.2 非専門家向けのポータルサイトの構築

「処分システム評価確証技術」の各実施項目の当該時点までの成果を統合した非専門家向けのポータルサイトを構築した。なお、このポータルサイトは、平成 26 年度までに構築した統合プラットフォームを機能拡張し、同じシステム環境上で動作するものとした。

(1)ポータルサイトの設計

非専門家向けのポータルサイトの構築にあたっては、原子力機構がこれまでに開発した次世代型の電子報告書‘CoolRep’の構成やコンテンツを参考にした。このため、ポータルサイトのコンテンツを編集するための環境として、CoolRepにて用いているコンテンツマネジメントシステム「Joomla!」(Joomla!, 2015)を用いることとした。

コンテンツマネジメントシステムとは、HTML や CSS 等の専門知識がなくてもポータルサイトの作成や管理を行うことのできるシステムである。Joomla!はコンテンツマネジメントシステムの一つであり、オープンソースとして提供されている。Joomla!の主な機能を表 6.2.21 に示す。

表 6.2.2-1 Joomla!の主な管理機能

機能	概要
記事管理	記事の新規追加、編集、公開/非公開の切り替え
カテゴリ管理	カテゴリの新規追加、編集、公開/非公開の切り替え
メディア管理	システムにアップロードするファイル(画像など)の管理
メニュー管理	メニューの新規追加、編集、公開/非公開の切り替え
ランゲージ管理	デフォルトの言語指定
ユーザ管理	ユーザの権限管理
基本設定	メンテナンス画面制御やディレクトリパスの設定など
モジュール管理	メニューやアクセスカウンタなどのモジュールの管理

Joomla!は2つの画面により構成されている。ひとつは閲覧者がサイトを訪問したときにコンテンツをブラウザに表示する機能であり、もうひとつはサイトの管理者がサイトの設定やコンテンツの作成を行う機能である。ここでは、主にポータルサイトの作成に関わるサイト管理者用の機能について紹介する。

1)基本構成

Joomla!ではポータルサイト全体を、ひとつのサイトとして管理する。サイトで管理するコンテンツは、図 6.2.2-1 に示すように Joomla!では記事として管理している。複数の記事を分類し、整理して管理するために、カテゴリという枠組みと関連付けて管理がなされる。

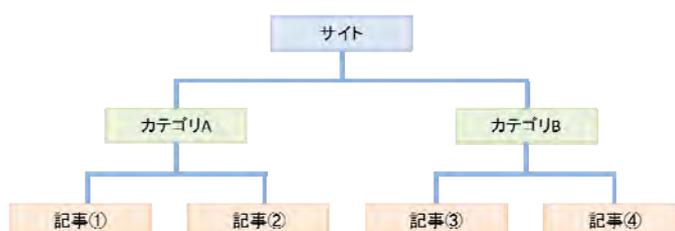


図 6.2.2-1 Joomla!の基本構成のイメージ

2) テンプレート

Joomla!を用いてポータルサイトを作成する際には、サイトのデザインを決めておく必要がある。Joomla!ではサイトのデザインの雛形として、複数のテンプレートが用意されている。コンテンツの内容を変更することなくテンプレートを変更だけでサイトのデザインを容易に変更することができる。ここでは、CoolRepと同様のテンプレートが用いられている。

3) カテゴリ

Joomla!のコンテンツは「カテゴリ」と「記事」により構成されている。カテゴリは記事を分類する枠組みとなる。このため、各分野を統合化した成果を記事として作成するためには、図 6.2.2-2 に示す画面を介して、新たなカテゴリをひとつ作成することになる。

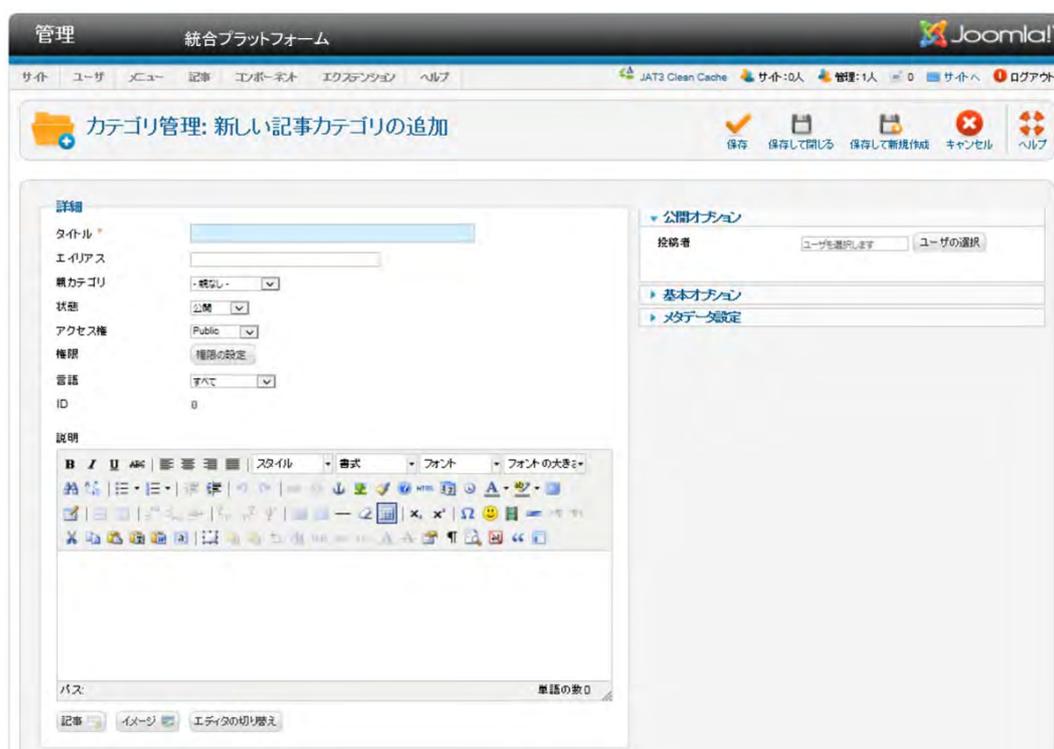


図 6.2.2-2 Joomla!のカテゴリ編集画面のイメージ

4) コンテンツ

ポータルサイトに表示するコンテンツは、Joomla!の記事として作成・管理することになる。このため、新たなコンテンツや作成・編集を行うためには、図 6.2.2-3 に示す Joomla!の記事管理機能を用いて行うことになる。なお、記事はポータルサイトに表示する Web ページごとにひとつずつ作成することになる。

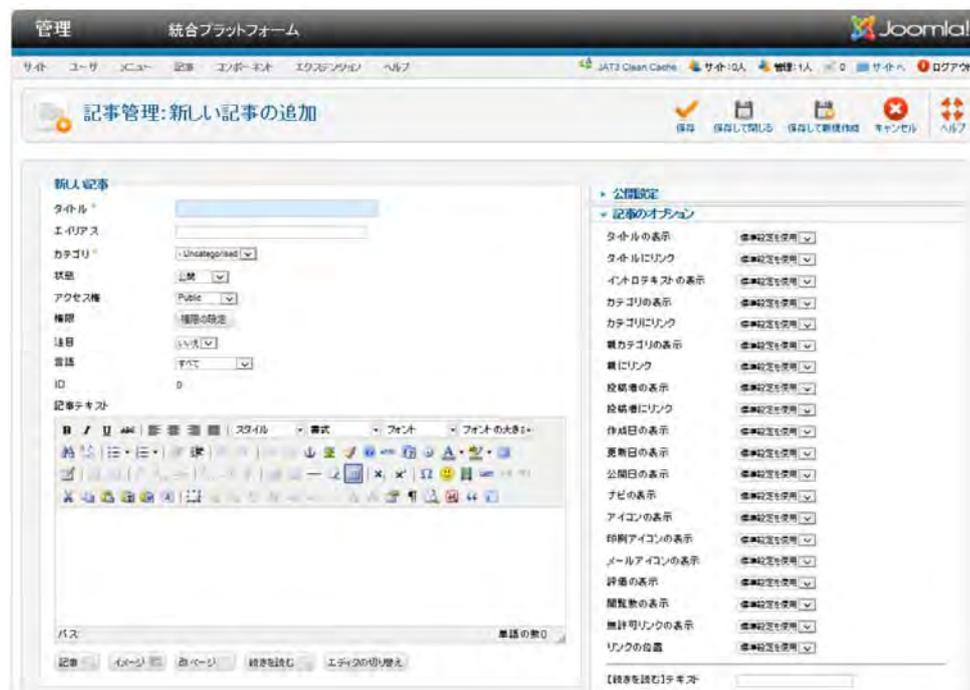


図 6.2.2-3 Joomla!の記事編集画面のイメージ

5) メニュー

Joomla!では、作成した記事をポータルサイトに表示するために、メニューを用いて管理される。メニューによる管理や新たなメニューの設定は、図 6.2.2-4 に示す Joomla!のメニュー管理機能を用いて行い、作成記事等を選択し登録しておくことになる。



図 6.2.2-4 Joomla!のメニュー編集画面のイメージ

(2) ポータルサイトの作成

ポータルサイトの作成では、コンテンツマネジメントシステム（Joomla!）の機能を用いて、以下のとおり実施した。

1) ポータルサイトのフロントページ

ポータルサイトのフロントページには、図 6.2.2-5 に示すように、平成 26 年度実施した「過酷事象影響評価技術」のブランドデザインの成果を活用し、そのデザインをコンテンツとして登録した。また、フロントページから他のコンテンツにアクセスするためにリンクの設定を行っている。



図 6.2.2-5 ポータルサイトのフロントページのイメージ

2) イラストを用いたコンテンツ

掲載するコンテンツの概念には、一般市民や他分野の専門家にも分かりやすく主要な成果を伝えることを目的に、過酷事象の影響評価の成果を事例として取り上げ、図 6.2.2-6 に示すように、イラストによるストーリー形式の説明を採用した。

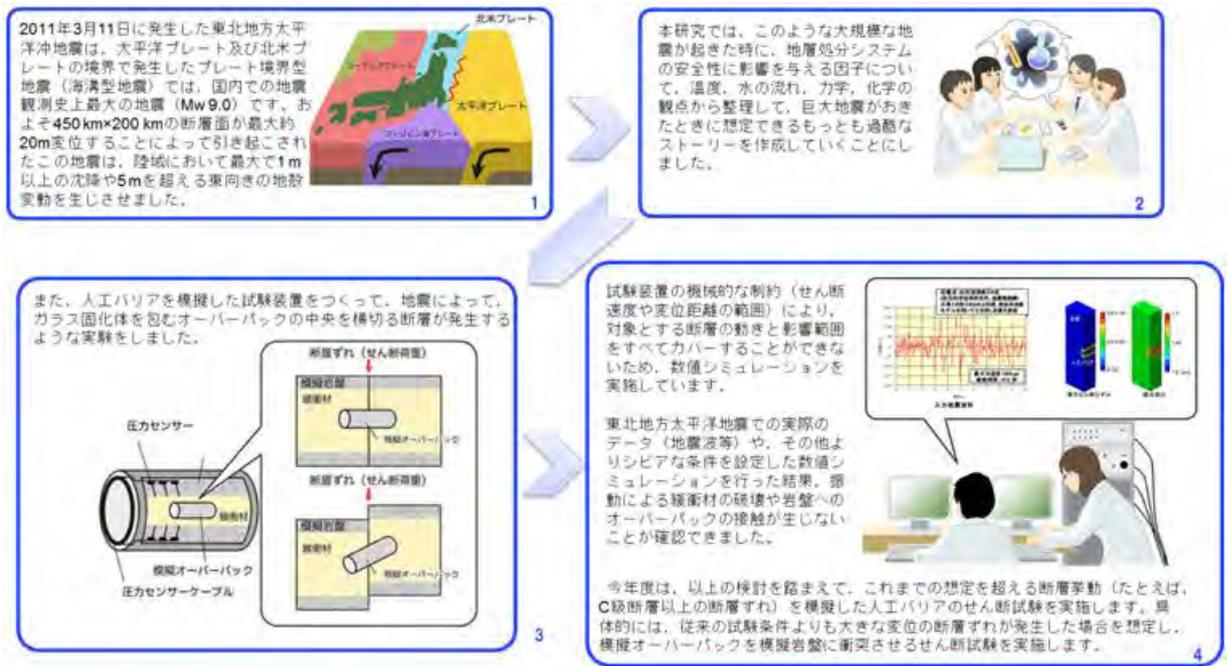


図 6.2.2-6 過酷事象の影響評価の成果についてイラストを用いてストーリー形式でわかりやすく説明

6.3 処分システム評価確証技術の認知の拡大に関する試行

6.3.1 平成 26 年度作成の広報ツールの調査・評価

平成 26 年度に行った「過酷事象影響評価技術」に関するブランドデザインの成果である広報ツールについて、今後改善すべき点や課題を抽出することを目的に、以下に示すように、技術ブランドの選好に焦点をあて、グループインタビューにより非専門家からの評価を受けた。非専門家としては、20～30 代のメンバー 6 人（このグループを G1）と 40～50 代のメンバー 6 人（このグループを G2）を選定した。選出にあたっては理系・文系、既婚・未婚等の属性に偏りがないように行った。グループインタビューによる評価の進行フローを表 6.3.1-1 に示す。

表 6.3.1-1 平成 26 年度作成の広報ツールに対するグループインタビューの進行表

項目	内容	時間	累積
1. イントロ	・趣旨説明	3分	
	・自己紹介（職業、科学技術以外の最近の関心事）	7分	10分
2. 科学技術に対する関心	・科学技術に対する関心度、関心の内容	5分	15分
	・科学技術がもたらす便益とリスクに関する認知・態度	5分	20分
	・災害のリスクと科学技術に関する認知・態度	5分	25分
3. SEE の広告案に対する評価	【A. 想定外を想定する①～④を提示】 ・第一印象での感想 ・コピーを読んでもらった上での感想	5分	30分
	【B. SEE①～③を提示】 ・第一印象での感想 ・コピーを読んでもらった上での感想	5分	35分
	【C. 10 万年の宿題①②を提示】 ・第一印象での感想 ・コピーを読んでもらった上での感想	5分	40分
	・9 種類のポスター案の中で一番よいと思うものと選定理由	5分	45分
4. SEE のブランド要素の評価	【タグライン評価:SEE】 ・伝わることは何か、印象は	5分	50分
	【キャッチコピー評価:3種】 ・一番よいと思うものはどれか、その理由	5分	55分
	【キービジュアル評価:火山、アインシュタイン、猛禽類、マンモス】 ・一番よいと思うものはどれか、その理由	5分	60分
5. シンポジウムやパンフレットの評価	【SEE ニュースリリースの提示】 ・SEE という科学者集団の設立についてどう思うか ・SEE のシンポジウムに行ってみたいと思うか	5分	65分
	【SEE 広報冊子の提示】 ・読んでみたいと思うか、どんな内容なら読んでみたいか	5分	70分
9. クロージング	・科学技術に対する関心や信頼を高めるためのアイデア	5分	75分

上記のグループインタビューの進行順に、「2. 科学技術に対する関心」から「5. シンポジウムやパンフレットの評価」までの項目ごとに得られた評価結果等の意見を以下に示す。

- 「2. 科学技術に関する関心」
 - 評価者としては、文系と理系をほぼ半数ずつリクルーティングしているため、科学技術に対する関心度は高いという人と低いという人が半数ずつ程度いる。関心領域としては、自分の生活や仕事、趣味等に関連した領域が多く、生活に役に立つものには関心が持てるとの指摘もあった。生物、宇宙、環境・エネルギー、先進医療、脳科学などの分野への関心をあげる人が多かった。科学技術の情報源としては、科学展、テレビ、日経バイオ、日本工業新聞などがあげられた。
 - 科学技術のリスクとベネフィットについては、20～30代グループでは科学技術に頼り過ぎることによって人の仕事や雇用が失われることが話題にされた。40～50代グループでは、遺伝子組み換え、電磁波、化学物質、食品添加物、ワクチンなど広く科学技術のり

スクが問題とされ、リスク削減のための科学者の倫理や情報開示が話題となった。

- 原子力発電や放射線のリスクについては両グループで発言がみられた。災害リスクと科学技術の関係については、建物の耐震・免震技術、地震予知、温暖化対策、新しい気象衛星ひまわりによる天気予報、台風による風水害などが話題になった。
- 「3. SEE (過酷事象評価)の広告案に対する評価」
- 「想定外を想定する」の広告案の事例(図 6.3.1-1)に対する評価を尋ねた。その一例として、火山噴火の事例に対するビジュアルとキャッチコピー、タグラインを見た第一印象の評価としては、以下の発言があった。これらの結果から「噴火の予測」に関するものかいうところまでは、第一印象で伝わりそうである。

【発言例】

- ✓ シビアそう、厳しそう。[G1]
- ✓ テクノロジーを使って何かする団体。本当に実現するなら素晴らしいことだが。[G1]
- ✓ 極限に挑む団体。[G1]
- ✓ 「想定外を想定する」？ 読まないとなんだかわからない。[G2]
- ✓ 「想定外を想定する」から地震予知？ [G2]
- ✓ 噴火はぼーっとしていてわかり難い。山の上から出ているのは噴火？ 噴火の予測？ [G2]
- ✓ 字が見づらい。山の形がはっきりしていないのはイヤ。稜線が見えるほうがよい。全体的に色合いが暗い。[G2]
- ✓ 噴火というより、宇宙に何かが出ているようだ。ゴジラが出てくるのか？ どかーんと噴火している方はパワーを感じる。一方はおとなしい。地熱発電所？ 富士山噴火？ [G2]

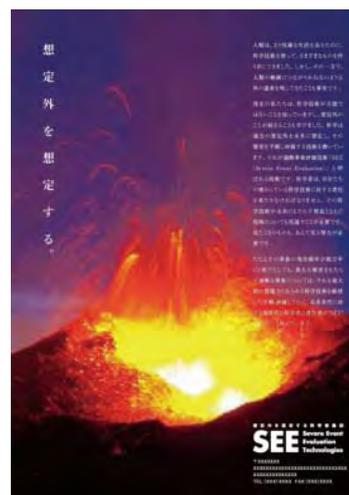


図 6.3.1-1 「想定外を想定する(SEE)」(火山)の広告案の例

次に、以下の表 6.3.1-2 に示すボディコピー(訴求する対象を詳しく説明するための文章)を読んでもらった上で、改めて評価を尋ねた。

表 6.3.1-2 SEE のポスターのボディコピー

人類は、より快適な生活を送るために、科学技術を使って、さまざまなものを作り出してきました。しかし、その一方で、人類の絶滅につながりかねないような負の遺産を残してきたことも事実です。

現在の私たちは、科学技術が万能ではないことを知っていますし、想定外のことが起きることも学びました。科学は過去の想定外を未来に想定し、その被害を予測し評価する技術を磨いています。それが過酷事象評価技術「SEE (Severe Event Evaluation)」と呼ばれる技術です。科学者は、自分たちの携わっている科学技術に対する責任を果たさなければなりません。その科学技術が未来にもたらす便益とともに危険についても見通す必要があります。見たくないものも、あえて見る努力が必要です。

たとえその事象の発生確率が数万年に1度だとしても、甚大な被害をもたらす過酷な事象については、それを最大限の想像力とあらゆる科学技術を駆使して予測・評価していく。未来世代に対する現世代の科学者の責任感が“SEE！（見ろ！）”、と叫んでいます。

- このボディコピーを読んでもらった上での評価としては、次のような発言がみられた。

【発言例】

- ✓ 危機感というより、「想定外を想定し守ってくれる」という印象。[G1]
- ✓ やろうとしていることは、予期せぬ自然災害の予測を可能にする取り組みか。でも、「予期しないことが起こるから気をつけてね」「それを我々が予測しますという団体」であるかどうかはわからない。[G1]
- ✓ 自然災害について。[守ってくれるという感じはしない] 富士山爆発の噂が巷に広がっている。「想定外を想定しろ」という警告ではないか。絵がリアルでぞっとした。怖い。[G1]
- ✓ アラームを鳴らしている印象。[G1]
- ✓ 地震予知の話があったから、そういう団体なのでしょう？インパクトあり。電車に10分ぐらい乗る際にこの広告を見れば目が留まりそうだが、ちらっと見ただけではダメ。[G1]
- ✓ 抽象的すぎる。[G2]
- ✓ 「SEE」を「見る」にかけているのだな。自然災害以外も全て？薬とかも？民間の？[G2]
- ✓ 駅に貼ってあっても読まない。新聞広告ならヒマな人が読むかも。任意団体、科学者集団が存在しうるのか？学閥に縛られて参加者は干されてしまうのでは？[G2]
- ✓ 読もうとは思わない。駅に貼ってあっても読まない。A2の大噴火は、明るいところに目が行き、すぐ脇に「SEE」と書いてあるから目が行くかも。[G2]
- ✓ ピンとこない。もともと原発は事故を想定しないというルールで始まっている。いまさら想定がおかしいと言っているのか？放射能以外に何かあるのか？[G2]
- また、図 6.3.12 に示す「10 万年の宿題」のポスターについて、ビジュアルとキャッチコピー、タグライン（ブランドが持つ感情面と機能面の優れた点をわかりやすく伝えるための表現）を見た第一印象として、疑問形のキャッチコピーが興味を引くが、「恐竜展」のポスターかとの誤認の可能性が指摘された。また、ボディコピーについては、「10 万年の宿題」が高レベル放射性廃棄物の処分問題であることを、意外と感じている感想が得られた。

C1 「10万年の宿題」マンモス正面



C2 「10万年の宿題」マンモス横向き



図 6.3.1-2 「10万年の宿題」のポスター

- 提示した SEE (過酷事象評価) の広告案の中から最もよいと思うものを選んでもらい、その選定理由を尋ねた。その結果を表 6.3.1-3 に示す。20~30 代グループでは「10 万年の宿題」(マンモス) が、40~50 代グループでは「SEE」の他の広告案 (猛禽類) が最もよいと評価する人が多いという結果が得られた。

表 6.3.1-3 最もよいと思う「過酷事象評価(SEE)」の広告案と選定理由

広告案	G1	G2	合計 人数	主な選定理由
A1「想定外を想定する」火山噴火	1	0	1	<ul style="list-style-type: none"> ・パッと見た印象と中身の文章が合っている。 ・「想定外を想定する」が斜めに書いてあるのが素晴らしい。 ・科学者以外の人も読んで「今後守ってもらえそう」という期待が持てそう。
A2「想定外を想定する」火山大噴火	1	0	1	<ul style="list-style-type: none"> ・インパクトあり。読んでみたくなる。
A3「想定外を想定する」アインシュタイン顔	1	1	2	<ul style="list-style-type: none"> ・負の部分を見逃してはいけないが、科学は夢を持ってやってほしい。ゆえに、アインシュタインを前面に押し出した A3 もよい。 ・アインシュタインの顔がボンと出ていると「おっ、何だろう」と思ってちょっと読むかも。
A4「想定外を想定する」アインシュタイン全身	0	0	0	
B1「SEE」猛禽類両目	0	1	1	<ul style="list-style-type: none"> ・画像が美しい
B2「SEE」猛禽類ウインク	0	2	2	<ul style="list-style-type: none"> ・「SEE」が目立つ、バランスがよい。 ・サブタイトルが背景とかぶらず読みやすい。そこが最も重要なところ。フォントは変えたほうがよい。
B3「SEE」猛禽類片目	0	2	2	<ul style="list-style-type: none"> ・メッセージを読もうかという気になる。 ・パッと見て惹きつけられる。 ・あの目が刺さる。 ・「見たくないものを見なければならぬ」と書いてある。サブタイトルは長いが、読めばイメージがわく。 ・そして本当に見られている感じがする。インパクトがある。
C1「10 万年の宿題」マンモス正面	3	0	3	<ul style="list-style-type: none"> ・キャッチフレーズで広告を読み始めるタイプだから。 ・「10」という文字が強調され、バランスがよい。また、10 万年の生物の差の大きさを誇示するデザインは理解できる。 ・「10 万年かかる」という知識が全くなかったから。そして、わかりやすい。大きく「10 万年の宿題」と書いてあるのが目立ち、そこから「どういうことなんだ？」と思い、読んでいって「こういうことか」と感じ取れるのがよい。
C2「10 万年の宿題」マンモス横向き	1	0	1	<ul style="list-style-type: none"> ・「10 万年の宿題」というコピーに興味をそそられた。

※一部に複数選択の回答があるため、合計人数は出席者を上回る。

● 「4. SEE(過酷事象評価)のブランド要素の評価」

①「SEE」のタグラインの評価

想定外を想定する科学者集団「SEE」というタグライン(ブランドが持つ感情面と機能面の優れた点をわかりやすく伝えるための表現)に対して、「科学者集団」は親しみやすさ、「おしゃれさ」はあるが、どういう団体かがわかりにくい、得体が知れない、宗教団体のようなといった意見がみられた。

②キャッチコピーに対する評価

提示した3種類のキャッチコピーの中で最もよいと思うものを選んでもらい、その選定理由を尋ねた。その結果は表 6.3.1-4 に示すとおりである。20～30代グループでは「想定外を想定する」が多く、40～50代グループでは「SEE!見たくないものも見なければならぬ。それが未来に対する科学者の責任。」が多かった。「SEE!……」は、20～30

代グループでは「科学者の責任」とあることから、一般向けではなく科学者向けの解釈がなされた。

表 6.3.1-4 最もよいと思うキャッチコピーと選定理由

キャッチコピー案	G1	G2	合計 人数	主な選定理由
想定外を想定する。	4	1	5	<ul style="list-style-type: none"> ・ 使いやすい言葉だから。 ・ 「SEE!…」とどちらがよいか悩んだが、自分がやったことでリスク想定が足りなくて起きたことを「見たくない」はない。
SEE! 見たくないものも見なければならぬ。 それが未来に対する科学者の責任。	1	4	5	<ul style="list-style-type: none"> ・ 「科学」と入っているのが大きい。それを見ることで 3.11 といったことが無意識で思いつくコピーではないか。 ・ 何をする団体かわかりやすい。 ・ キャッチでなく文中のほうがよい。科学者団体や何かの機構の宣伝なら「科学者の責任」があったほうがよい。「そう思ってやってくれているんだな」と信用回復につながる。 ・ 科学者向けにはよい。企業のコピーのように。 ・ 「科学者の責任」は対象が限定されるので不要。「見たくないものも…」だけでよい。
10 万年の宿題。	2	0	2	<ul style="list-style-type: none"> ・ 10 万年の宿題って何だろうと惹きつけられる。 ・ 高レベル放射性廃棄物の問題を訴えるなら、一番わかりやすいから。

③キービジュアルに対する評価

提示した 4 種類のキービジュアルの中で最もよいと思うものを選んでもらい、その選定理由を尋ねた。その結果は表 6.3.1-5 に示す。20～30 代グループでは「猛禽類」が多く、40～50 代グループでは「アインシュタイン」と「猛禽類」で別れた。全体としては「猛禽類」が多かった。

表 6.3.1-5 最もよいキービジュアルと選定理由

キャッチコピー案	G1	G2	合計 人数	主な選定理由
火山の噴火	1	0	1	<ul style="list-style-type: none"> ・ A2 は過酷すぎるので A1。
アインシュタイン	2	3	5	<ul style="list-style-type: none"> ・ アインシュタインの顔が出ると「おっ、何だろう」と思って読みたくなる。 ・ A4 はおしゃれ。あまり見ないアインシュタイン像。
猛禽類	4	3	8	<ul style="list-style-type: none"> ・ フクロウがかawaii。 ・ 「見たくないものも見なければならぬ」で、フクロウが半目なのがよい。 ・ B2 がウインクしておちゃめ。 ・ B3 のフクロウがすごく精悍。 ・ 画像が美しい。 ・ あの目が刺さる。 ・ 本当に見られている感じがする。
マンモス	0	0	0	

④シンポジウムやパンフレットの評価

「想定外を想定する科学者集団 (SEE)」設立と設立記念シンポジウムに関するニュースリリース (図 6.3.1-3) を提示し、評価を尋ねた。

デザイン」(目標(目的)を達成させるための「計画(設計)」)の適用についても検討を行った。

今年度のブランディングの試行の対象として取り上げた要素技術は「ナチュラルアナログ」である。この選定にあたっては、他の要素技術に比べ、非専門家でも理解がしやすいこと、対象となるエビデンスが比較的身近な自然界に存在するものにあることなどを考慮した。また、ナチュラルアナログは、地層処分の問題と切り離し、それ単独でも一つの自律した技術として体系づけすることができる特徴を有している。

クリエイティブワークショップは2回開催し、ナチュラルアナログの専門家として北大の佐藤努先生にも参加いただいた。1回目のワークショップでは、佐藤努先生よりナチュラルアナログの概要が紹介された後、ブランド化に向けて適宜質疑応答を行い、ナチュラルアナログに関わる事実や特徴についての共有化を行った。この共有化を踏まえ、2回目のワークショップでは、クリエイターからナチュラルアナログを題材としたブランドデザイン案を披露しながら検討を行った。キャッチコピーとして、「地球はタイムカプセル」、「温故知球」、「100万年の過去、100万年の未来」、「アナログに学べ」、「地球は先生」の5つを挙げたうえで、それぞれ地球に学ぶ科学者の姿勢としての“約束“を提示しながら、そこから連想されるイメージを視覚的に訴えるポスターを作成した。また、「ナチュラルアナログ」という、一般には異なる意味でポピュラーな言葉の組み合わせが全く異なった意味であることにも配慮し、さらに先端科学技術に必ずしも好意的ではないステークホルダー層の“?”にストレスを与えないように配慮することとした。

これら5つのキャッチコピーに基づく試作例について、今後改善すべき点や課題を抽出することを目的に、6.3.1項と同じ非専門家グループからグループインタビューにより評価を受けた。この評価の進行フローをそれぞれの評価の視点とともに表6.3.2-1に示す。

表 6.3.2-1 ナチュラルアナログの広報ツールに対するグループインタビューの進行表

項目	内容	時間	累積
1. ナチュラルアナログの広告案に対する評価	【A. B 地球はタイムカプセルを提示】 ・第一印象での感想 ・コピーを読んでもらった上での感想	5分	5分
	【B. C. 温故地球を提示】 ・第一印象での感想 ・コピーを読んでもらった上での感想	5分	10分
	【E. F. 100 万年の過去、100 万年の未来。を提示】 ・第一印象での感想 ・コピーを読んでもらった上での感想	5分	15分
	【E. アナログに学べ。F. ナチュラルアナログって何だ。を提示】 ・第一印象での感想 ・コピーを読んでもらった上での感想	5分	20分
	【G. H. 地球が先生。を提示】 ・第一印象での感想 ・コピーを読んでもらった上での感想	5分	25分
	・10 種類のポスター案の中で一番よいと思うものと選定理由	5分	30分
2. ナチュラルアナログのブランド要素の評価	【タグライン評価:5 種類】 ・一番よいと思うものはどれか、その理由	5分	35分
	【キャッチコピー評価:5 種】 ・一番よいと思うものはどれか、その理由	5分	40分
	【キービジュアル評価:化石、琥珀、アンモナイト、時計、地球】 ・一番よいと思うものはどれか、その理由	5分	45分
3. クロージ ング	・科学技術に対する関心や信頼を高めるためのアイデア	5分	50分

上記のグループインタビューの進行順にて、キャッチコピーごとの広告案に対して得られた評価結果等の意見を以下に示す。

(1) 「1. ナチュラルアナログ」の各広告案に対する評価

- 「地球はタイムカプセル」に対する評価

図 6.3.2-1 の A、B に示す広告案を提示したうえで、評価を尋ねた。

A 「地球はタイムカプセル」化石



B 「地球はタイムカプセル」琥珀(こはく)

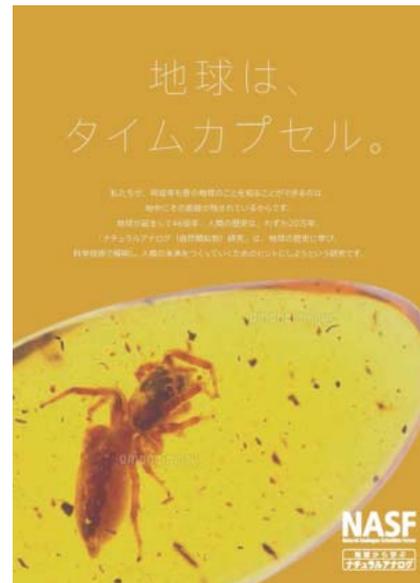


図 6.3.2-1 「地球はタイムカプセル」の広告案

その結果、ビジュアルとキャッチコピー、タグラインを見た第一印象の評価としては、以下の発言がみられた。これらの発言は、環境系、生物系、白衣、顕微鏡、学習キット、雑誌、グルメと多様な連想が広がっている。

【発言例】

- 環境系か。[G1]
- 写真からして、生物に関する何か？ [G1]
- なに？絵と文字がピッタリ。「琥珀」「化石」がタイムカプセルで昔のものがそのまま保存されて今見ることができるのはよくわかるが、何の広告かがわからない。
[G1]
- 「地球から学ぶ」の文字が目に入った。これは学習キットかな？ [G1]
- 白衣で顕微鏡を覗く人々が想像できる。[G1]
- ナチュラルアナログにすごく興味を持った。「あえてアナログ」「ナチュラルアナログ」だから、自然から学ぶ何かを研究しているのか？文字が細すぎる。だが「ナチュラルアナログ」の文字は大きさのわりに目立つ感じ。意外と上の方って見ないかも。これだけでは雑誌か何かわからない。[G2]
- 「地球はタイムカプセル」が読んでみて謎。何が言いたいのか？すぐにピンと来ない。ここから科学技術に行くのか行かないのかわからない広告。[G2]
- グルメな感じ。昆虫も食べられるし、そういうのがけっこう好きなので、食欲がわいてくる。[G2]
- ドイツの化学品メーカーBASF にそっくり。広告の出し方、色まで似ている。
[G2]

引き続き、表 6.3.2-2 に示す「ナチュラルアナログ」のボディコピー（訴求する対象を詳しく説明するための文章）を読んでもらった上で、改めて評価を尋ねた。

表 6.3.2-2 「ナチュラルアナログ」のボディコピー

私たちが、何億年も昔の地球のことを知ることができるのは、地中にその痕跡が残されているからです。地球が誕生して 46 億年、人類の歴史は、わずか 20 万年。「ナチュラルアナログ（自然類似物）研究」は、地球の歴史に学び、科学技術で解明し、人類の未来をつかっていくためのヒントにしようという研究です。

その結果、以下の発言が得られた。とくに「自然類似物」という言葉はナチュラルアナログよりわかりづらい、誤訳ではないかといった意見があった。

【発言例】

- 「そういう機構があるよ」という広告か。〔G1〕
- 人類の未来にどうやってつながっていくのだろう。〔G1〕
- 博物館系かな。〔G1〕
- 「ナチュラルアナログ」の後に「自然類似物」とあるが、先ほどの「過酷事象」と同様、業界ではふつうの言葉かもしれないがわかりにくい日本語だ。よけいわからなくなる。むしろ「ナチュラルアナログ」の方が、はっきりわからないながらもなんとなく自然な生き物といったイメージを持つことができそうだ。〔G2〕
- 興味はあるが、研究の名前なのか、団体の名前なのか？〔G2〕
- 「自然類似物」は誤訳ではないのか？〔G2〕
- 「温故知球」に対する評価

図 6.3.2-2 の C1、C2 に示す広告案を提示したうえで、評価を尋ねた。図 6.3.22 のビジュアルとキャッチコピー、タグラインを見た第一印象の評価としては、「温故知球」のキャッチコピーは、シンプルで内容を伝えやすいなど高い評価を得た。また表 6.3.2-1 のナチュラルアナログのボディコピーを読んでもらった上での意見としては、「温故知球」のキャッチコピーに比べて、ボディコピーの記述には疑問も多く提起されているとことであつた。

C1 「温故知球」(対角線)



C2 「温故知球」(並列)

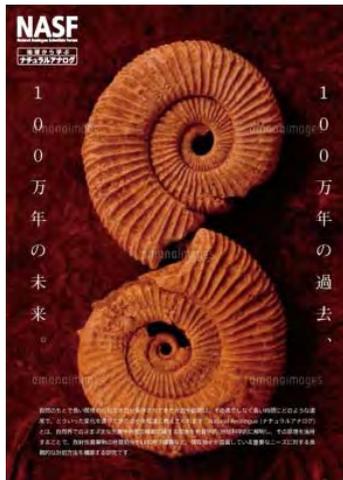


図 6.3.2-2 「温故知球」の広告案

- 「100 万年の過去・未来」に対する評価

図 6.3.2-3 の D1、D2 に示す広告案を提示したうえで、評価を尋ねた。図 6.3.23 のビジュアルとキャッチコピー、タグラインを見た第一印象の評価としては、過去と未来のつながりについてはイメージしやすい、アンモナイトには未来感がないとの指摘やアンモナイトは 100 万年前に生きていたかといった疑問も提起されているとの意見が得られた。

D1 「100 万年の過去・未来」(赤)



D2 「100 万年の過去・未来」(黒)

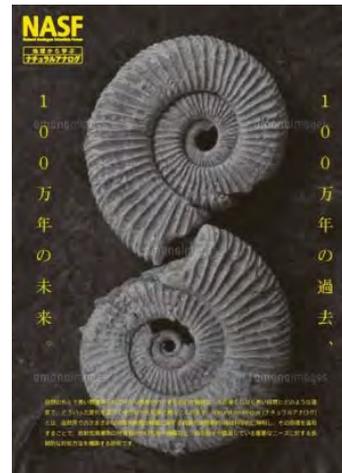


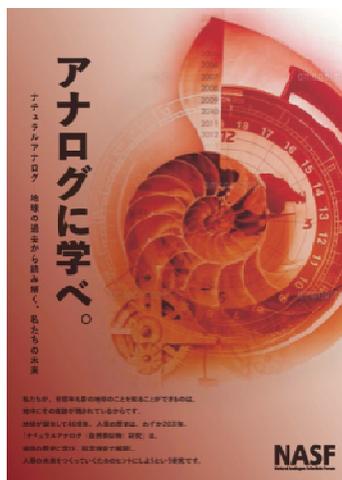
図 6.3.2-3 「100 万年の過去・未来」の広告案

上記と同様に、表 6.3.2-1 のナチュラルアナログのボディコピーを読んでもらった上での意見としては、20~30 代グループでは、全員が「過去がわかることで今後に役立つのだ」ということがイメージできたとしている。

- 「アナログに学べ。」「ナチュラルアナログってなんだ？」に対する評価

図 6.3.2-4 の E、F に示す広告案を提示したうえで、評価を尋ねた。図 6.3.2-4 のビジュアルとキャッチコピー、タグラインを見た第一印象の評価としては、様々な分野の研究があることが分かったというような発言がみられた。

E 「アナログに学べ。」



F 「ナチュラルアナログってなんだ？」



図 6.3.2-4 「アナログに学べ。」「ナチュラルアナログってなんだ？」の広告案

上記と同様に、表 6.3.2-1 のナチュラルアナログのボディコピーを読んでもらった上での評価としては、いままでの広告案を見てきたことでナチュラルアナログが理解できてきたとの意見があった。また、若い人向けという評価や、過去と未来が共存している感じがしてよいという評価も得られた。

● 「地球が先生」に対する評価

図 6.3.2-5 の G、H に示す広告案を提示したうえで、評価を尋ねた。図 6.3.25 のビジュアルとキャッチコピー、タグラインを見た第一印象の評価としては、今まで提示してきた広告案と異なり、小中学生対象と受け止められている発言が多かった。

G 広告⑨地球が先生 Natural Analogue H 広告⑩地球が先生ナチュラルアナログ



図 6.3.2-5 「地球が先生」の広告案

(2)最もよいと思う「ナチュラルアナログ」の広告案と選定理由

図 6.3.2-1～図 6.3.2-5 で提示した 10 種類の広告案の中で、最もよいと思うものを選んでもらい、その選定理由を尋ねた。その結果を表 6.3.2-3 に示す。

表 6.3.2-3 最もよいと思う「ナチュラルアナログ」の広告案と選定理由

広告案	G1	G2	合計 人数	主な選定理由
A「地球はタイムカプセル。」化石	0	0	0	
B「地球はタイムカプセル。」琥珀	0	0	0	
C1「温故知球」 (対角線)	1	3	4	<ul style="list-style-type: none"> ・もっとも目を引く。ボディコピーはともかく、キャッチコピーが印象的なのでちょっと見てしまう。 ・最も興味を引かれる。温故知新を知っているので、「温故地球」がバーンと出ているのを見て、どういう意味かと興味を引かれる。読みたくなる。 ・ビジュアルがきれい。NASF という文字には C2 の方が目が行く。
C2「温故知球」 (並列)	0	0	0	
D1「100 万年の過去、 100 万年の未来。」 (赤)	2	0	2	<ul style="list-style-type: none"> ・キャッチコピーと説明が合っている。色に暖かみがあって引かれる。 ・この団体の説明としてわかりやすい
D2「100 万年の過去、 100 万年の未来。」 (黒)	1	2	3	<ul style="list-style-type: none"> ・一番好き。かついい。 ・説明の文面がよい。 ・ボディコピーが具体的に何を研究なのか最もわかりやすい。 ・カラーは赤茶けたような感じ。一色抜くとなりそうな色。失敗したみたい。
E「アナログに学べ。」	0	0	0	
F「ナチュラルアナログってなんだ？」	0	0	0	
G「地球が先生」 Natural Analogue	0	0	0	
H「地球が先生」 ナチュラルアナログ	2	1	3	<ul style="list-style-type: none"> ・断然わかりやすい。「地球はお母さん、地球はお父さん、地球は先生」であり、それを学校に伝えるということだから。 ・看板や陳列にとって色合いは大事。緑は目を引くし、しかも地球があると「何か環境の面白いことをやっていそうだ」と思う。 ・G は「ナチュラルアナログ」が英文表記だから、みんなにわかりやすいのはHだろう。 ・わかりやすい。短い文章で的確に伝えようとしている。 ・内容が最もよい。ナチュラルアナログというものを広告 1 枚で伝えるのは無理な話。ならば地域に密着しジワジワ啓蒙、浸透させていく行動を表明している。他の案にはない特徴を持っている。 ・ビジュアルもよい。一見、子供っぽい感じがするが、内容との関連でこのビジュアルに落ち着くのがおさまりがよい。ただし団体名や連絡先の配置には問題が残る。

(3) 「ナチュラルアナログ」のブランド要素の評価

1) 「ナチュラルアナログ」のタグラインの評価

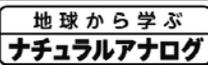
図 6.3.2-6 に示す「ナチュラルアナログ」のタグライン（ブランドが持つ感情面と機能面の優れた点をわかりやすく伝えるための表現）を提示して、その中から最も良いものを選んでもらうとともに、その選択理由を尋ねた。その結果を表 6.3.2-4 に示す。5 つのナチュラルアナログのタグラインの中では、5 の「地球が先生 ナチュラルアナログ」が最も多く挙げられ、親しみやすい、帽子のデザインがかわいい、わかりやすいなどが主な選択理由であった。

ナチュラルアナログ ロゴ・タグライン

1. 
2. 
3. 
4. 
5. 

図 6.3.2-6 ナチュラルアナログのタグライン例

表 6.3.2-4 最もよいと思うタグラインと選定理由

タグライン案	G1	G2	合計 人数	主な選定理由
1. 	0	1	1	<ul style="list-style-type: none"> ・ 伝えたい内容が含まれている。 ・ ゴチャゴチャしすぎ。
2. 	2	1	3	<ul style="list-style-type: none"> ・ 「地球が先生」はすごく好きだが、「ナチュラルアナログ」は長いから、NASFの方がよい。 ・ 消去法で 2、1 のカタカナの字体が気に食わない。4 は analogue というスペルが苦手で見づらい。5 の字体にすごく違和感あり、浮いている。
3. 	0	1	1	<ul style="list-style-type: none"> ・ 「地球から学ぶ」というコンセプトが私には最も自然に伝わってくる。
4. 	0	0	0	
5. 	4	3	7	<ul style="list-style-type: none"> ・ 「地球から学ぶ、地球が先生」はすごく親しみやすくてよい。先生の帽子のマークもかわいい。 ・ NASF という言葉は忘れても、「地球が先生」という言葉はずっと残りそうな気がする。 ・ 端的、単刀直入でわかりやすい。 ・ わかりやすいことが重要。 ・ アルファベットだけだと読み方がわからない。世間に通った名前なら頭文字でもよいが、初めてのものならカタカナの方がわかりやすい。 ・ 「地球が先生」というイメージはわかりやすい。 ・ わかりやすさから。一目見て「地球は先生、ナチュラルアナログ」がイメージしやすい。

2) キャッチコピーに対する評価

次に、図 6.3.2-1 から図 6.3.2-5 に記載されている 5 種類のキャッチコピーの中から最も

よいと思うものを選んでもらい、その選定理由を尋ねた。その結果を表 6.3.2-5 に示す。「温故知球」が最も多く挙げられ、シンプルで伝えやすい、四文字熟語などが主な理由となっている。

表 6.3.2-5 最もよいと思うキャッチコピーと選定理由

キャッチコピー案	G1	G2	合計人数	主な選定理由
地球は、タイムカプセル。	0	0	0	
温故知球	4	3	6	<ul style="list-style-type: none"> ・ 自然に受け取れる、すごく興味を引くコピー。 ・ 四文字がいい。 ・ シンプルでいい。 ・ 伝えやすい。 ・ 「温故知新」に引っ掛けているので、おっと思う。
100 万年の過去、100 万年の未来。	1	0	1	<ul style="list-style-type: none"> ・ 一番じっくりくる。ボディコピーの内容とシンクロする。
アナログに学べ。	0	2	2	<ul style="list-style-type: none"> ・ わかりやすい。 ・ 思想や生き様に対する檄文のようだ。 ・ コピーにメッセージ性があり、「おっ」と思えるものが目を引く。
ナチュラルアナログってなんだ？	1	1	2	<ul style="list-style-type: none"> ・ なんとなくわかりやすい。 ・ 疑問文なのでなんとなく読みたくなる。

3) キービジュアルに対する評価

また、図 6.3.2-1 から図 6.3.2-5 の広告案に用いられている 10 種類のキービジュアルの中から最もよいと思うものを選んでもらい、その選定理由を尋ねた。その結果を表 6.3.2-6 に示す。20～30 代と 40～50 代の両グループともに「アンモナイト・地球」を選ぶ人が多かった。

表 6.3.2-6 最もよいキービジュアルと選定理由

キャッチコピー案	G1	G2	合計人数	主な選定理由
化石	0	0	0	
琥珀	0	0	0	
アンモナイト・地球	3	4	7	<ul style="list-style-type: none"> ・ C1 の対称性や、「球」だけに丸をつけたのがおしゃれ。 ・ 丸いのが右上と左下にあって、バランスと色彩が好き。
アンモナイト・アンモナイト	2	1	3	<ul style="list-style-type: none"> ・ 伝えたい内容とシンクロする。 ・ アンモナイトの化石が過去と未来を象徴している。 ・ バランスがよい。 ・ 現在と過去・未来をくっつけることにかけて、図もくっついているのがよい。 ・ F にも同じものが出ているが、色味が暖かいほうがよいので E。 ・ あったかい感じの色だから。一周回って戻ってくる感じ。
アンモナイト・時計	1	1	2	<ul style="list-style-type: none"> ・ バランスがよい。 ・ 過去と未来のつながりが感じられる。
地球	0	1	1	<ul style="list-style-type: none"> ・ 可愛らしくて、心にずっと入ってくる。

※ 一部に複数選択の回答があるため、合計人数は出席者を上回る。

4) ナチュラルアナログのブランディングのまとめ

今年度は、ナチュラルアナログを新たな題材としてブランディング化を試行した。クリエイティブワークショップは2回開催し、昨年度と同じようにブランディングに関わるコピーライター等のクリエイターらが出席し、加えて今回はナチュラルアナログ研究の専門家として、北大の佐藤努先生にも参加いただいた。デザイン案のキャッチコピーには、「地球はタイムカプセル」、「温故知球」、「100 万年の過去、100 万年の未来」、「アナログに学べ」、「ナチュラルアナログって、なんだ」「地球は先生」など、地球に学ぶ科学者の姿勢としての“約束”を提示しながら、これらキャッチコピーから連想されるイメージを視覚的に訴えるようポスターが作成された(図 6.3.2-1~6.3.2-5)。なお、ポスターの作製方針として、「私たちの未来を、地球の歴史から学ぶ」という研究姿勢を打ち出し、「ナチュラルアナログ」という、一般には異なる意味でポピュラーな言葉の組み合わせが、全く異なった意味であることを明快に説明することを目指した。また、先端科学技術に必ずしも好意的ではないステークホルダー層の感覚にストレスを与えないよう、客観性で答えることを意識した。

これら作製したポスター等について、非専門家として 20 代・30 代・40 代・50 代のグループを対象に、科学技術や災害リスクに対する関心や関心分野を調査したうえで、それぞれのナチュラルアナログのブランド(図 6.3.2-1~6.3.2-5)に対する感想、ポスターやキャッチコピーに対する感想等についてインタビューを実施した。その結果、ナチュラルアナログについては、「興味がわく」、「この研究を推進すべきだと思う」などと意見や課題が得られ、今後の検討に反映させていくとともに、「ナチュラルアナログ」の成果を応用することにより、「地層処分」の安全性や信頼性が増すとの回答もあった。

このブランディングは、地層処分に限らず馴染みのない評価確証技術の要素技術に一般の人が話の切り口として興味を持ってもらえるかどうかの試みであり、ローヤリティを高めるような意図はないが、心に伝わる(留まる)ことやわかりやすい説明を目的としたコミュニケーション方法には何らかのニーズがあるかもしれないことから、名称も含め今後行う価値があるかどうかを見極めていくこととしている。

6.3.3 処分システム評価確証技術に対するサイエンスコミュニケーション

ここでは、処分システム評価確証技術の認知拡大の一環として、評価確証技術の代表例として上述したナチュラルアナログを取り上げ、背景となる科学・技術情報を非専門家にもわかりやすく伝えること(サイエンスコミュニケーション)を目的とした知識や情報の共有の試行を行った。このサイエンスコミュニケーションの具体的な方法としては、寛いだ環境で各テーマの専門家と自由に話し合う「サイエンスカフェ」や関連する科学的原理についての理科実験等を併用することが挙げられる。なお、サイエンスコミュニケーションは特定の対策を推すのではなく極力中立的な立場から行うものである。また、サイエンスコミュニケーション実施後に質問形式のアンケート調査により、背景知識の理解に伴う当該技術の有用性に関する評価の程度を把握するとともにその要因についての分析を実施した。

対象としては、グループインタビュー参加者 20 名を募った。その属性(性別、年齢、学歴、得意分野)を図 6.3.3-1 から図 6.3.3-4 に示す。

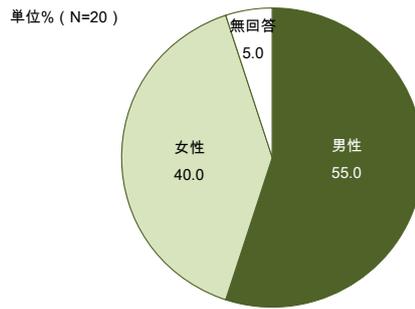


図 6.3.3-1 サイエンスコミュニケーション参加者属性：性別

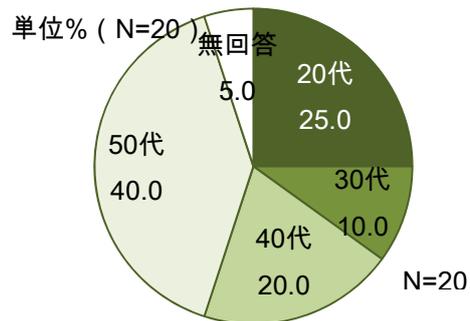


図 6.3.3-2 サイエンスコミュニケーション参加者属性：年齢

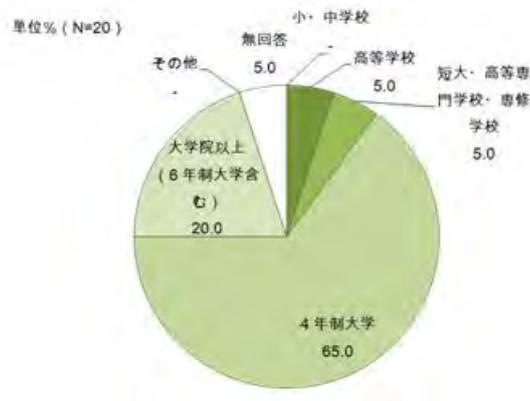


図 6.3.3-3 サイエンスコミュニケーション参加者属性：学歴

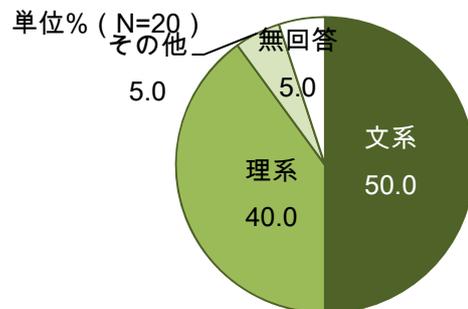


図 6.3.3-4 サイエンスコミュニケーション参加者属性：得意分野

「ナチュラルアナログ」に関するサイエンスコミュニケーション実施後に行ったアンケート調査での質問とその回答結果を、質問ごとに図 6.3.3-5 から図 6.3.3-13 と表 6.3.3-1 に示す。

- Q1. あなたは、今日の話を聞く前から「ナチュラルアナログ」を知っていましたか？

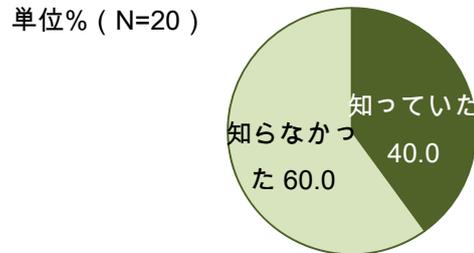


図 6.3.3-5 「ナチュラルアナログ研究」の認知

- SQ1. Q1で「1.知っていた」という人はどこで知りましたか？

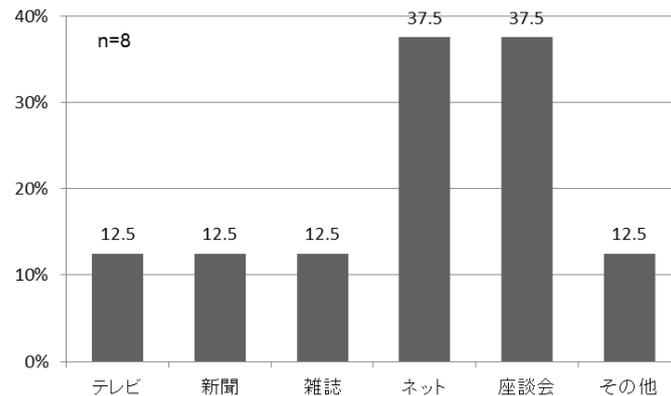


図 6.3.3-6 「ナチュラルアナログ」の認知経路

- Q2. 今回の「ナチュラルアナログ」の説明に対する評価は？

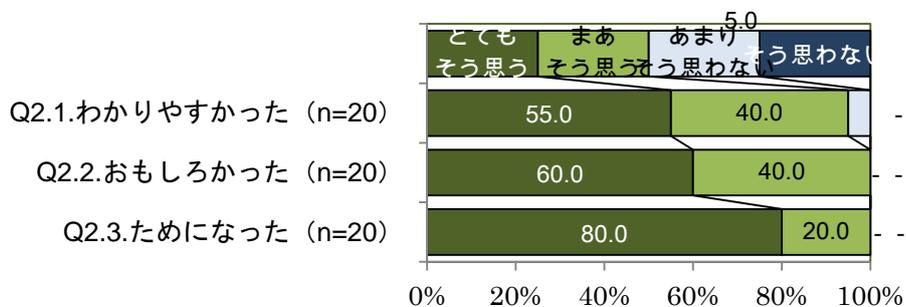


図 6.3.3-7 「ナチュラルアナログ」のレクチャーに対する評価

- Q3. 「ナチュラルアナログ」に対してあなたは興味をもちましたか？

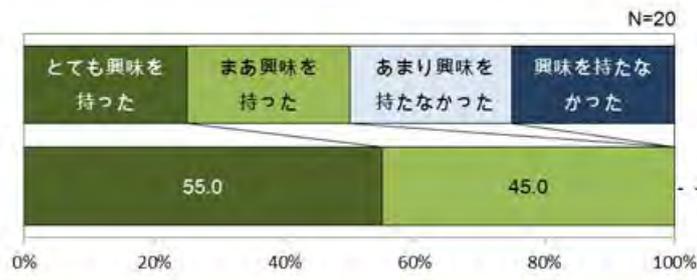


図 6.3.3-8 「ナチュラルアナログ」に対する興味

- Q4. あなたは「ナチュラルアナログ」のどんなところに興味を持ちましたか？

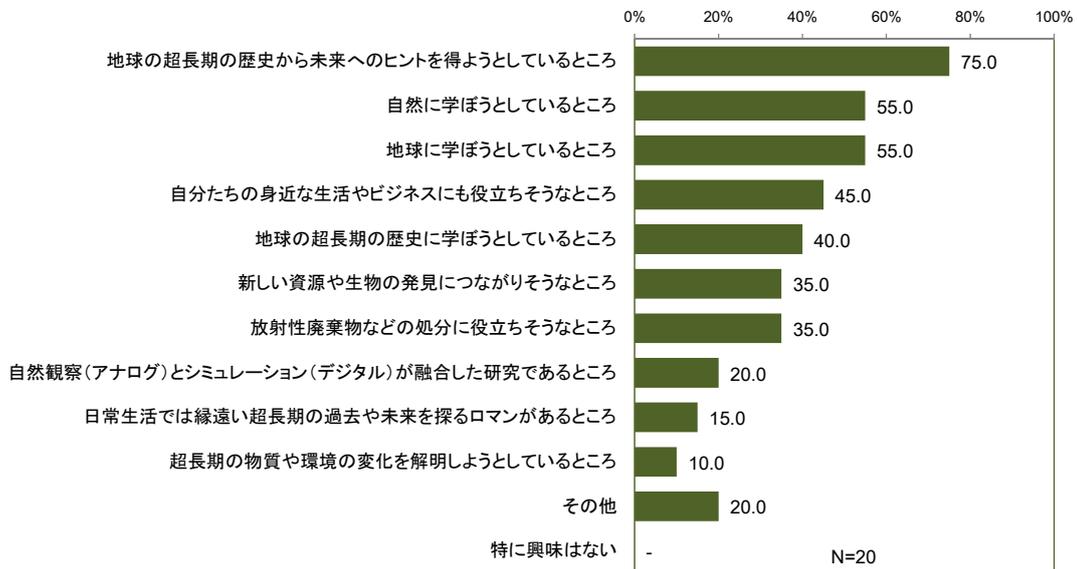


図 6.3.3-9 「ナチュラルアナログ」に対する興味の内容

- Q5. 「ナチュラルアナログ」は私たちの生活や社会にとって有用だと思えますか？

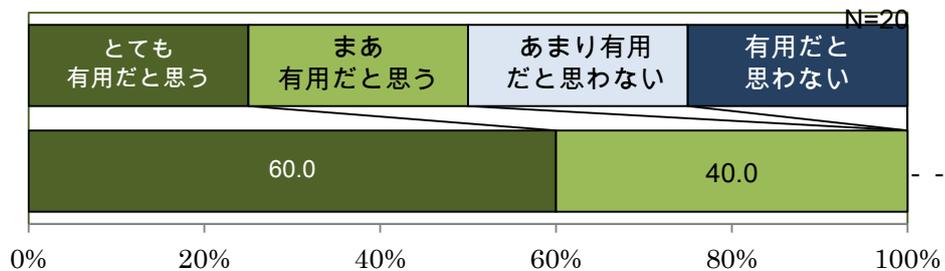


図 6.3.3-10 「ナチュラルアナログ」の有用性評価

- Q6. 「ナチュラルアナログ」はどのような分野に貢献すると思いますか？

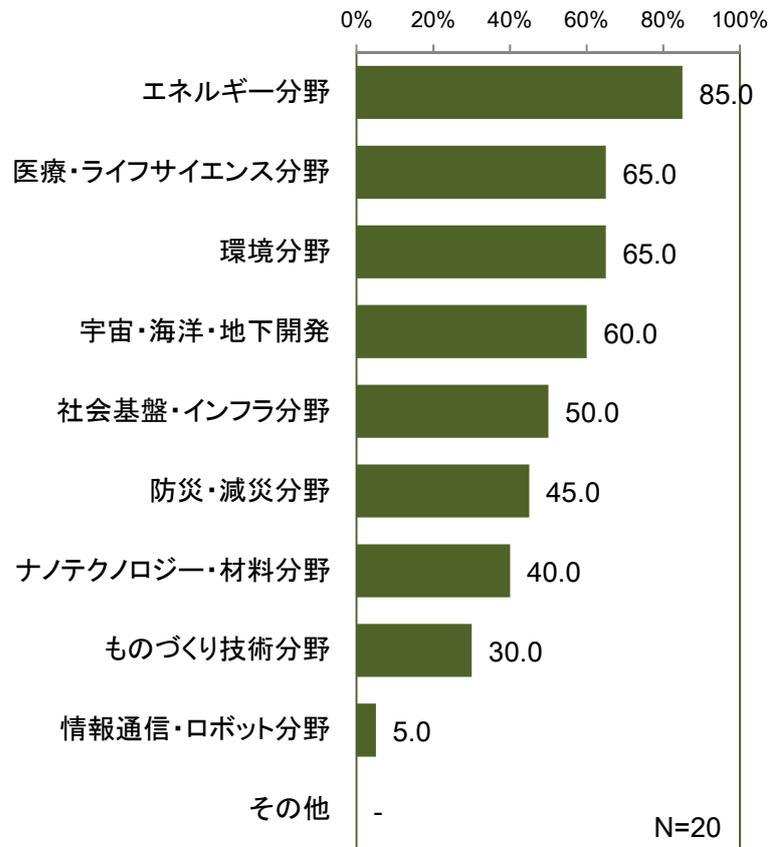


図 6.3.3-11 「ナチュラルアナログ」の貢献分野

- Q7. 「ナチュラルアナログ」の進展にあなたは期待しますか？

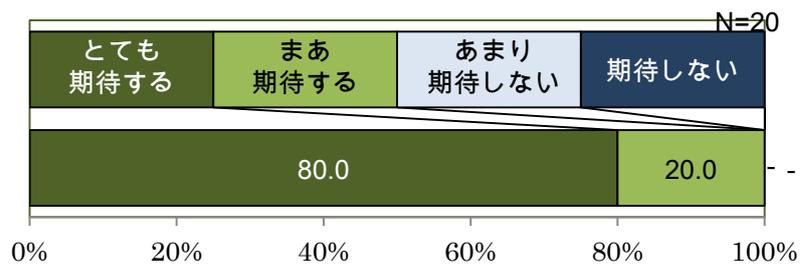


図 6.3.3-12 「ナチュラルアナログ」に対する興味

- Q8. あなたが「ナチュラルアナログ」に期待したいことを自由にお書きください。

表 6.3.3-1 「ナチュラルアナログ」に期待すること

- 自然エネルギーの活用、自然物質・素材の活用
- 地球がすでにやっている人間がこれからやろうとしている技術や現象の発見
- 放射能の処理など長い年月をかけて解決していかなければならない問題に対して期待している
- 人類が減びることなく生き続ける基礎となっていたきたい
- 放射性廃棄物処置などぜひ活用してほしい
- 人間の知恵の及ばぬ思いもしないアイデア。自然と調和した生活のヒントを得る
- 新しい技術の発見
- 新たな発見
- 人の造ったものでなく自然からより良いものが今後いろいろなジャンルに使われることに期待
- 石油・石炭に替わるエネルギーが人間社会に浸透するようになること
- 本年のノーベル賞を受賞した医学生理学賞もいわゆるナチュラルアナログ研究だと思う。がんや生活習慣病の予防など病気の治療の分野で期待したい。
- 高校の授業でやらないと専門家が多く育たないと思う。政府から研究費があまり出そうにないので、成果を出して増やしてください。大学→大学院→論文（博士）→民間企業？公共機関？
- ナチュラルアナログを通して、異なった分野の連携が促進されて、単一分野での研究から飛び出した面白い研究が出てくること
- 持続可能な社会の実現への貢献
- あらゆる研究分野に適用してみてもらいたい。予算も。
- エネルギー資源などはこれからの社会に有用になると思うのでよりよい物がつくられるとうれしいです
- 原発に代わるエネルギーの開発・放射性廃棄物の処理、医療の発展、生活の便利さの向上、子どもたちがより身近に学べる機会がもっとあればうれしい
- 自然から学ぶ、地球から学ぶ考え方はものづくりのヒントになるので良いと思います。
- 安全確実な地層処分の実施。新しい資源の発見

- Q9. あなたは「ナチュラルアナログ」の成果を応用することによって「高レベル放射性廃棄物対策としての地層処分」の安全性や信頼性が増すと思いますか？

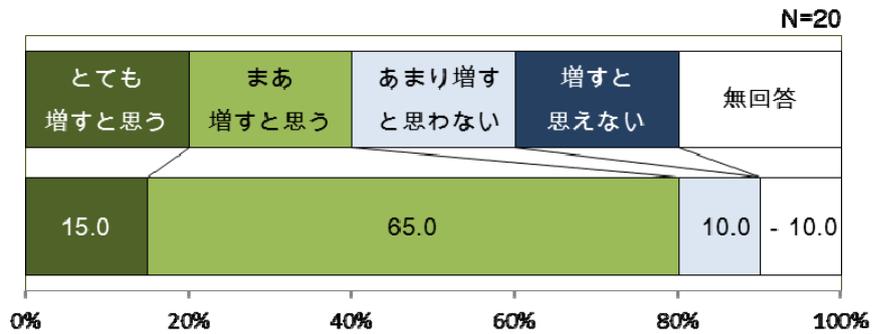


図 6.3.3-13 「ナチュラルアナログ」と地層処分の安全性や信頼性

図 6.3.3-5 から図 6.3.3-13 と表 6.3.3-1 に示した質問ごとの回答結果から、今回のサイエンスコミュニケーションにより、参加者に対してナチュラルアナログに関わる情報共有が効果的に行われ、背景知識の理解の程度が増したことにより、ナチュラルアナログの今後の有用性や高レベル放射性廃棄物の地層処分への適用の判断が十分に行えるレベルまで認知の程度を引き上げることに成功したと判断できる。

6.3.4 広義のデザインの検討

前項までに、システム評価確証技術の認知拡大を目的とした、ブランディング手法やサイエンスコミュニケーションを適用することの検討を行ったが、非専門家を含む多様なステークホルダとのコミュニケーションにおいては、表面的に情報だけが流れていくのではなく、心に伝わるような分かりやすい説明を意図した、いわゆる情報を対象者に的確に伝える「情報デザイン」の要素が重要となる。本項では、認知拡大の目的を達するため、より広義のコミュニケーションをデザインしていく上で必要となる検討を行った。

高レベル放射性廃棄物対策としてのわが国の地層処分計画は、今後、国による科学的有望地の提示後、実施主体による提案活動が行われ、さらには国による処分場候補地の申し入れなどが行われる計画となっている。こうしたプロセスにおいては、興味と関心を持つ幅広いステークホルダが、ステークホルダ相互の協働、あるいは実施主体や専門家との協働を通して、それぞれの価値観に基づき、技術や制度に関わる選択肢の中から納得できるものを主体的に選びとり、合意をつくりあげていくことが重要となる。そこで本項では、科学的有望地の提示後、地層処分に対する各地域の適性を客観的に示しつつ進めていくプロセスを、国民全体が認識・理解いただくための問題と位置付け、その上で、科学的有望地の提示後、まずは全国各地の方々に関心を持ち理解を深めていくための仕組み作りについて検討を行うこととした。

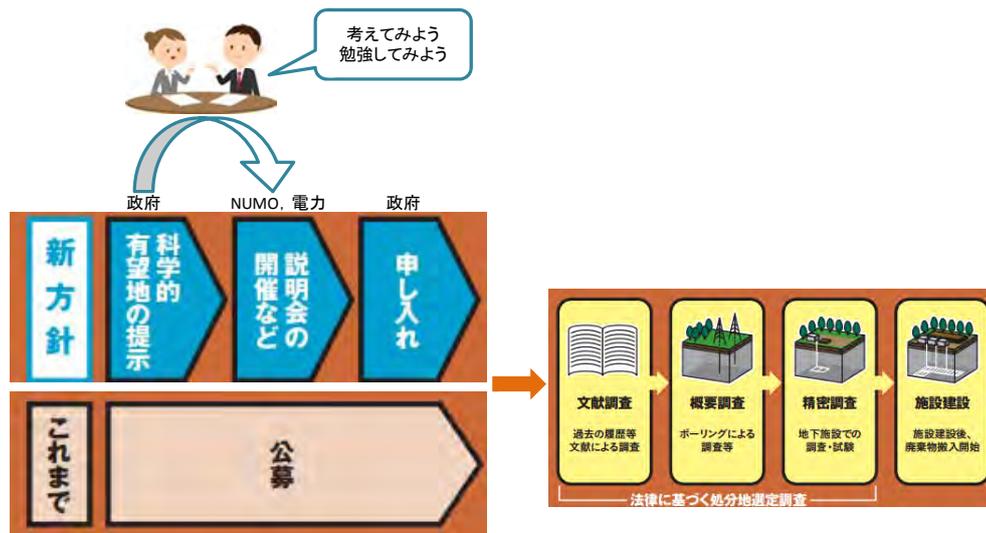


図 6.3.4-1 有望地選定におけるコミュニケーションデザイン

図 6.3.4-1 に示すコミュニケーションをデザインする上で、以下に示す既存の手法が有効と考えられる。

- マーケティング手法
- デザイン思考
- サイエンスコミュニケーション手法

以下に、これらの手法について概説するとともに、本検討への適用性を考察する。

(1) マーケティング手法

マーケティングとは、種々の企業が「お客様に価値を提供してお金をいただく」ために実施する広告戦略の一つである。マーケティングにおける主な概念は以下の 4 点である。

- どんな価値（ベネフィット）を：提供しようとしているプロダクトが有するターゲットにとっての価値
- 誰に（セグメンテーション&ターゲティング）：人により求める価値が違うため分けて考える
- 差別化と強み：競合より高い価値を提供
- 具体化（4P：製品、価格、販路、広告・販促）：ベネフィットを具体化して価値を実現

これらのうち、具体化については、処分システム概念構築や設計、安全評価など既に多くの研究開発の実績が示されていることから、本検討では対象としていない。

一方、地層処分によるメリット（例えば、長期にわたり人の管理を必要としない受動的安全系）をデメリット（例えば、長期にわたる安全確保を実証できない）と併せて提示することは必要であり、これらを提示する際には、ターゲットごとに情報提供の在り方や対話の仕方をわけていく等、様々な提示手法を活用することは有効だと考えられる。

(2) デザイン思考

デザインというと、絵を描いて形だけを決める仕事と思われがちであるが、本来のデザインという行為は、与えられた制限の中で、求められる最大限の結果を生み出すプロセス全てで

ある。その行為の中には、ターゲット層の設定や、どのようにコミュニケーションを行うかなどの全体のコンセプトの決定も含まれる。なぜそれがデザインという言葉になっているかというと、「絵を描く」という事に関係がある。人間というのはとてもビジュアルな感覚を重要視しているため、いくら情報が寄せられていても数値で示されていたり、言葉だけで表現されていたりすると、なかなか理解するのが難しいため、たとえば絵に描いてみせないと、直感的な判断が下せない。

現代のデザインにおいては、全体を理解し、たくさんの情報を整理しながら、重要なことをピックアップし、ビジュアル化を通して最適なコミュニケーションを行うことが必要とされる。企業や組織によっては、それらの役割は、「ディレクター」や「プロデューサー」と呼ばれる役職の人々が担うこともあるが、そこに、「デザイン思考」(本質的な問題を発見/設定し、「感性」に則った「創造的」問題 解決を目指す思考)という考え方(例えば、Simon, 1969)を取り入れていくことも重要である。この観点から、研究成果の見せ方や伝え方といったプロモーションやプレゼンテーションの手法も重要な要素となる。

デザイン思考のステップとしては、①問題の神髄を見極める、②出来るだけ多くの解決策を考えてみる、③幾つかのアイデアを選び、精度をあげる、④最終的なアイデアに絞り込む、⑤ビジュアルデザインに落としこむ、ことが挙げられる。

(3)サイエンスコミュニケーション手法

サイエンスコミュニケーションとは、6.3.3でも示したように、科学に関する情報を、専門家(ここでは科学者と呼ぶ)と非専門家(ここでは市民と呼ぶ)とがやりとりすること」と定義される(例えば、Miller and Miller, 1998)。

サイエンスコミュニケーションには3つの側面があり、

- 科学を市民に伝え、市民の科学リテラシーを高める手助けをすること
- 科学について市民がもつさまざまな思いを知り、科学者自身が社会リテラシーを高めること
- 科学と社会の望ましい関係について、市民と科学者がともに考えていくこと

が挙げられる。またサイエンスコミュニケーションの基本的な方針としては、

- 科学の本質のおもしろさを利用して、市民を科学の世界に巻き込む
- 市民の多様性を尊重する
- 市民と語り合う場を大切にする

が重要とされている。

本項では、全国各地の方々に関心を持ってもらうための仕組みづくりとして、主に上記0のデザイン思考と(3)のサイエンスコミュニケーションの要素を取り入れ、一部(1)のマーケティング手法も参考にしながら、全国各地の方々に関心を持っていただけるような仕組みづくりの検討を行った。

国による科学的有望地の提示後には、まずは全国各地の方々に「研究内容を見てみようかな、勉強してみようかな」と思っただけのような仕組みづくりが重要と考えられる。前項までに記載した手法はいずれかだけを適用すればうまくいくというのではなく、必要に応じて適用可能なものを適宜組み合わせることでいくことにより相乗効果を発揮すると言える。これらを

組み合わせ、地層処分に関する仕組みづくりのポイントを以下に示す。

- ターゲットに対する理解と共感： 少数向けのデザインと大衆向けのデザイン
- ターゲットの潜在的ニーズの抽出： 行動心理学を踏まえた分析
- 技術的実現性に関する情報提供： サイエンスコミュニケーションプロセスを含む、情報のデザイン
- ブランディングの手法を一部取り入れた信頼の醸成： ブランドプロミス、ブランドアソシエーション、ブランドパーソナリティ、ブランドストーリー等の提示

地層処分の認知拡大におけるコミュニケーションにおいては、ターゲットの心情に理解と共感を示し（Empathize）潜在的なニーズを抽出していくことが重要と考えられる。ターゲットに対するニーズを抽出する際に、ターゲットに対して単純に「何が解決すれば安心なのか、インセンティブとして何が欲しいか」を質問したとしても、彼らが想像出来る範囲での答えしか返ってこない。そのため、ターゲット自身が気づいていない潜在的な需要を見抜く必要がある。そこで、

- ターゲットを深く観察する（observe）
- ターゲットに直接聞いてみる（engage）

といったステップが必要となる。またここでは、ニーズだけではなく、ターゲットや社会情勢が将来どのような状態になっているか、未来にどのような変化が起こるかも含めて議論しつつ意見を抽出する「アクティブヒアリング」を行うことが必要とされる。

ターゲットとそのニーズを想定する時に、デザイン思考では、①ターゲットの属性をできるだけ具体的に書く、②ターゲットのニーズを書く、③それに基づいてターゲットの本音は何か、実は気づかなかったような視点から考察を書く。

ここでいうターゲットには、地層処分を受け入れる地元住民のほか、町長、知事等の自治体の長、職員も含まれ、彼らのニーズも分析する必要がある。

以上のような検討に基づき、今後の認知拡大に向けたコミュニケーションデザインでは、以下の基本方針を定めることとする。

- 地層処分技術を対象として、安全な地層処分の実現のためにこれまでに開発されてきた技術や蓄積されてきた知見を幅広いステークホルダにわかりやすく伝えることを主な目標とする。また、専門家の視点や価値観を押し付けるような「啓蒙」的な普及活動は不適切であり、この目標のために、対象とするステークホルダのニーズを把握した上でこれに即した形での情報デザインを行うことに重点をおいて検討を行う。
- 他方、ブランディングにおいて取り上げたナチュラルアナログ研究や地質環境の長期安定性といったテーマは、地層処分に特徴的な取り組みではあるものの地球科学や地質学といったより基盤的な科学における基本姿勢とも通底するものであり、これらの成果についての理解や研究者に対する信頼が得られることが翻って地層処分技術の認知や理解の促進につながると考えられる。そこで、これらのテーマについて幅広いステークホルダを対象としたサイエンスコミュニケーションを今後行っていくことが有効と考えられる。また、これらの研究の担い手である地球科学や地質学の研究者を取り上げて、信頼醸成に関する広報活動を行うとともに、適宜、ブランドデザインの手法等も参照しつつ

進める。

上記の二つの方針のうち、後者については、前者との関係性が明示的に成りすぎると中立性を失う可能性があることから、背景や目的の説明においては、基盤研究のテーマであることから始め、地層処分は重要な適用例の一つであること、そして、さらに広い適用範囲があることを説明することが肝要である。

地層処分技術を対象とした情報デザインに関する今後の作業に向け、デザイン思考に基づき、ターゲットのニーズ抽出およびインサイト（ターゲットの行動や思惑、それらの背景にある意識構造を見ぬくことによって得られる「ターゲットの意欲の核心やツボ」）の分析を試行した。その結果を表 6.3.4-1～表 6.3.4-3 に示す。ここでは、これまで本件で実施したグループインタビューなどのヒアリングから抽出したニーズを整理・記載し、インサイトの部分にそれぞれ分析結果や解釈等の記入を試みている。

インサイトを理解するうえでは、上記の検討に加えて実際のターゲットとの双方向のやり取りを行い、分析したインサイトについて検証を行うことが今後必要となることから、上記の試行結果を出発点としつつ、別途、「可逆性や回収可能性などを考慮した処分システム概念の提示」において実施するアコモデーションワークショップなどの前後にアクティブヒアリングを行う機会を設けていくことが重要となる。

表 6.3.4-1 ニーズ抽出およびインサイトの分析例 (1/3)

ターゲット (具体的に)	ニーズ (~したい)	インサイト (ターゲットのホンネ)
<p>一般市民 地層処分という問題に対して特別知識を持っていない。 また、大学等で特に専門的な学問を学んでいるわけではない方々。 例えば、エンジニア等の理系的知識を必要としない職業についている大人、ご高齢のご老人等。</p>	<ul style="list-style-type: none"> ・社会的理解や社会的合意形成を得るためには、座談会方式による小単位での意見交換により、勉強を兼ねた知識の共有化、知識の蓄積が重要。小単位の座談会形式によるコミュニケーションの場を多く提供してほしい。 ・地層処分の候補地を複数あげ、国民の関心を喚起してほしい ・処理処分の意思決定は、住民投票や住民によるコンセンサスを尊重すること ・高レベル放射性廃棄物を高レベル放射性でなくする技術革新の技術力を要求 ・最終処分場の規模に合わせた総量規制を要求 ・原発をなくし、自然エネルギーを普及させることを要求 (この意見が多い) ・地層処分よりも「見える範囲で管理」していく方法を要求 ・100年間の長い調査・建設・処分作業とその引継ぎ ・暫定的な結論に過ぎず、高度の安全性を備えている技術と評価することには疑問があり、ガラス固化体が強い放射線が完全バリア状態でどの程度まで減少するのか、地下水への汚染や、地下生物への影響 ・地殻変動によるプレートの移動が予測不可能であること、日本列島が形成されて3万年程度のため、10万年先は誰もわからないといった疑問点に対して、きちんと説明してほしい ・問題が起こったときの責任の明確化 ・手厚い補償と地層処分自体の危険性の具体的な説明 ・小学校から大学までの授業での問題意識の植え付け ・地層処分に関する議論の活発化 ・安全をより担保する技術革新 <p>(今年度実施の市民グループに対するアンケートやグループインタビュー結果より)</p>	<ul style="list-style-type: none"> ・なんとと言われてもいやなものはいや。 ・見えない放射線やその影響に対する恐怖心を取り除くことはできない。 ・地層処分が必要だと言われているが、今存在している廃棄物はどうなっているのか。それが安全なのであれば、なぜ今のままではいけないのか。それとも今の保管状態は危険なのか。そうだとしたらその方が問題だ。 ・自分の住んでいる地域は処分場に選定されることはないだろう。関係がないのであれば、自分の時間を使って勉強する必要はない。問題になりそうなときに注意すればよいことだ。 ・将来のことを含め、はっきりわからないことが不安を呼ぶのだ。 ・得体のしれない地層処分への不安や疑問を解消するために自分が求める的確な情報や答えを効率良く取得したい ・関心を有する人が多ければそれだけ自分の意思決定の荷(関与)が軽くなる ・民主的な進め方が行われれば納得がいく ・未来の科学技術の進展に期待 (or 問題の先送り) ・際限なく進められることへの歯止め ・潜在的リスクの観点から、核エネルギーよりも自然エネルギー ・直接監視できることの安心感 ・何世代も続く事業への不安 ・将来予測に基づく地層処分の安全確保に伴う不確実性への不安と疑問 ・事業主体が信用/信頼できない ・公正性を実現する手続きとして捉えたい ・問題の重要性を認識 ・現世代が解決すべき問題として認識 ・未来技術への期待 ・多くの事例がそうであるように、賛否に係るアンケート結果などに無関係に決定されがちであるが、そうあるべきではないと思う。 ・特定の加害者と可能性ある被害者で話し合わなければいけないし、そのためにはさまざまな情報共有や知識獲得が重要と思う。しかし、自分は加害者でも被害者でもないと思っているので、真剣に取り組む気になれない。 ・処分場はいくつ作り続けるのか、原発はまだ続くのかなどが分からず、だらだらと処分地が既成事実のように固定されていくのが不安。 ・未知が多すぎるので、前例が増えてから考えればよいのではないか？先の長い話なので立地選定が今必要であるとも思えない。世代間倫理といわれてもあまり興味を覚えない。 ・反対派が熱心な上、一部専門家や著名人も日本では地層処分はできないようなことを(報酬なく)言っているの、やはり信頼しきれない。 ・世論が地層処分ありきとなれば個人のニーズも変わるのではないか？

表 6.3.4-2 ニーズ抽出およびインサイトの分析例 (2/3)

ターゲット (具体的に)	ニーズ (～したい)	インサイト (ターゲットのホンネ)
<p>一般市民 理科系の知識を有する人。たとえば理工系の学科に在籍する学生等。</p>	<ul style="list-style-type: none"> ・高レベル放射性廃棄物を高レベル放射性でなくする技術革新の技術力を要求 ・最終処分場の規模に合わせた総量規制を要求 ・原発をなくし、自然エネルギーを普及させることを要求 (この意見が多い) ・地層処分よりも「見える範囲で管理」していく方法を要求 <p>(今年度実施の市民グループに対するアンケートやグループインタビュー結果より)</p>	<ul style="list-style-type: none"> ・科学技術が社会に受け入れられるためには何が必要なのだろうか。 ・先に希望が持てない科学技術は振興すべきではない。 ・なぜ合理的に考えて物事を決定しないのだろうか。 ・未来の科学技術の進展に期待 ・際限なく進められることへの歯止めとシステムとしての最適化 ・潜在的リスクの観点から、核エネルギーよりも自然エネルギー ・直接監視できることの確実性 ・社会科学的問題であって、解決できないと思う。結局はパフォーマンスであって政治が裏に表に決めてしまうものと思う。 ・科学技術の発展 (消滅処理、自然エネルギー普及も含め) で解決できるかもしれないが時間を要する。何故それまで待てないのだろうか？
<p>一般市民 文科系の知識を有する人 たとえば文科系の学科に在籍する学生等。</p>	<p>拒否権を含む、より厳密な法整備 保障、賠償の枠組みの整備</p> <p>(今年度実施のサイエンスカフェより)</p>	<ul style="list-style-type: none"> ・将来の限界集落に立地することができるだろう。どこまでを関連地域と考えるかだ。 ・特魔法では、「当該地区等の都道府県知事および市町村長の意見を聞き、これを十分に尊重しなければならない」とされているが、拒否権を所持することにより、たとえそれを行使しなくても、より一層の影響力を発揮させたいことを意図 ・公正性を実現する手続きとして捉える ・千差万別の感情的意見を超えて合意するためには、公正な判断基準を明確にすることが最低限必要である。
<p>地層処分分野以外の有識者</p>	<ul style="list-style-type: none"> ・興味と関心を持つ幅広いステークホルダが、ステークホルダ相互の協働、あるいは実施主体や専門家との協働を通して、それぞれの価値観に基づいて技術や制度についての選択肢の中から納得できるものを主体的に選びとり、合意をつくりあげていく仕組みが必要 ・地層処分事業・技術・専門家・関係機関等への信頼を培っていききたい ・技術専門家の側がこうしたプロセスにおいて提案しうる様々な技術・政策上の (技術的・社会的・経済的にフィージブルな) オプションをあらかじめ多様化する必要がある <p>(今年度実施の市民グループに対するアンケートやグループインタビュー結果より)</p>	<ul style="list-style-type: none"> ・予算を含め、国主導の支援を受けて進められてきた原子力分野であるから、国がもっと前面にたって物事を進めていくべきではないか。 ・科学技術の振興こそが、この問題を始め、多くの問題を解決するに違いない。 ・科学技術の持つリスクの許容範囲をどうやって決めるかが問題である。 ・社会の信用と信頼を得るためには、ステークホルダが納得できる技術や制度とすることが必要 ・組織や専門家に対する信用と技術に対する信頼の獲得 ・結果だけでなく合意に至るプロセスも論理的に納得できるよう、比較対象となる多様なオプションの存在は重要 ・地層処分技術分野は独特であって、広く学術的専門家が参加しているとは思えない。外側の学者が声高に反論を唱えると市民はそちらにひきずられるであろう。 ・科学技術の発展 (消滅処理、自然エネルギー普及も含め) で解決できるかもしれないが時間を要する。何故それまで待てないのだろうか？

表 6.3.4-3 ニーズ抽出およびインサイトの分析例 (3/3)

ターゲット (具体的に)	ニーズ (～したい)	インサイト (ターゲットのホンネ)
原子力市民委員会	<p>・核燃料サイクル開発事業（再処理、高速増殖炉、ウラン濃縮の開発事業）を廃止する。核燃料再処理と高速増殖炉は、巨額の損失をもたらす無用の事業であり、機微核技術として核不拡散・核セキュリティに関わる重大な難点を含んでいる。</p> <p>・原子力発電に関連して生じる全ての核物質を廃棄物と見なし、賢明な管理・処分を進める。再処理廃液ガラス固化体、使用済み核燃料、プルトニウム、回収ウラン、劣化ウラン、ウラン残土、核施設から排出される他の中低レベル放射性物質、使用済み核施設、福島第一原発の施設、事故で飛散した放射性物質などが、全て廃棄物であることは明らかである。</p> <p>天然ウランおよび濃縮ウランは経済的価値を有するので、その取引を禁ずるには立法措置と財産権補償が必要になる。不要・不急の核施設解体・撤去は行わない。厳重な管理体制のもとで放射能が減衰するまで十分な時間を置いて見守る。</p> <p>・新たな政府系機関として、〈日本原子力廃止措置機関 Japan Nuclear Decommissioning Authority (JNDA) 〉を設置し、核廃棄物の管理・処分を一元的に実施する。原発の廃止によって発生する放射性廃棄物の量は膨大で、管理・処分のための期間も超長期に及ぶ。それゆえ、政府による一元的な廃棄物管理・処分が必要である。ただし民間事業者の財務上の責任を免除するものではない。なお、福島第一原発については〈福島第一原発処理公社〉による「放射能汚染封じ込め作業」が一段落してから、〈JNDA〉に引き渡す。</p> <p>・核廃棄物の管理・処分施設は、日本国内に設置せざるを得ないが、設置場所については、可能な限り厳しい安全確保の実現と「負担の公正・公平化」の原則に立って国民的協議を行った上で決定する。</p> <p>(「原発ゼロ社会への道 - 市民がつくる脱原子力政策大綱」(原子力市民委員会, 2014) より)</p>	<p>・原子力発電、サイクル開発事業を辞めるにしても、すぐ廃止できるわけではない。これをどう誤魔化さないで説明していくべきか。</p> <p>・廃止するにしても、すでに存在している廃棄物の最終管理が必要、また指摘されているように、核燃料は核不拡散・核セキュリティの対象</p> <p>・天然ウランおよび濃縮ウラン等は核燃料物質であり、その取り扱いや所有は原子炉等規制法により許可制となっている。また、不要・不急に関わらず管理可能な環境下にある核施設等はすべて原子炉等規制法の対象</p> <p>・あらゆる核廃棄物は基本的に国の管理下に置く</p> <p>・安全確保の実現と「負担の公正・公平化」の原則に基づくのであれば、最終的な核廃棄物の管理・処分については合意</p> <p>・核燃料サイクルに係る受益者の利権や保身のための廃棄物処分計画は受け入れられない。</p>
自治体の町長・職員	<p>文献調査に応募した当時の東洋町前町長田嶋氏によると、文献調査の交付金は自治体の財源確保においてきわめて重要である。また、国のエネルギー問題に貢献できるし、文献調査だけでも受けて、勉強をしていく考えだった。しかし、手を挙げた途端に、反核派からの猛烈な反対を受け、自治体の運営どころではなくなった。</p> <p>もっと建設的な議論ができるように、国やNUMO がしっかりと守ってほしい。具体的な要望は以下の通り。</p> <ul style="list-style-type: none"> ・地方自治体における勉強会や説明会 ・連絡所やPRセンターの設置、住民の不安に対するできるだけ速やかな対応 ・集まった質問・疑問をデータベースにしてQ&Aで配布 ・原発職員が原発のすぐそばに住むように、NUMO職員も建設が始めると移住することをアピール ・インターネットにおける間違った情報の流布の取り締まり ・原子力問題を含み、エネルギー政策が教科書できちんと説明されているか ・最終処分場の必要性を生徒に伝えること <p>(「誰も知らなかった小さな町の原子力戦争」(田嶋, 2008) より)</p>	<p>・自治体には拒否権があると言われているが、本当に拒否権を使うことができるのか。</p> <p>・交付金稼ぎと言われないためには、どこまで協力すればよいのか。</p> <p>・本当に将来を考えても、この道しかないのか。</p> <p>・「うまい話には裏がある」を実感</p> <p>・公募に応じた後(文献調査開始に至るまで)のプロセスが曖昧であり不親切だった(計画へのステークホルダの関与、NUMOや国による支援等)</p> <p>・計画に関与することを希望するステークホルダは多い</p> <p>・猛烈に反対されたのは、国と自治体の力関係によって一方的に押し付けられる危惧があるためと思う。そのような危惧を払拭するように国やNUMOがしっかりと変わってほしい。</p>

参考文献

原子力市民委員会 (2014) : 原発ゼロ社会への道 - 市民がつくる脱原子力政策大綱.

Miller, J. and Miller, S. (1998): Science in Public: communication, culture and credibility (New York: Plenum), 11-17.

Simon, H. (1969): The Sciences of the Artificial. Cambridge: MIT Press. ([邦訳] 稲葉元吉、吉原英樹訳『システムの科学 第三版』パーソナルメディア、1999年)

田島裕起 (2008) : 誰も知らなかった小さな町の「原子力戦争」.

7. 結言

7.1 平成27年度における主な成果

本事業において、得られた主な成果を以下に記述する。

2章「ニアフィールドのシステム変遷と核種移行を評価するための先端的技術の開発」では、処分場の閉鎖前から閉鎖後の長期にわたって処分場近傍（ニアフィールド）において発生することが想定される様々な複合現象と核種移行について、地質環境が本来的に有している不均質性等も考慮し、先端的な計算科学/分析技術の活用や深地層の研究施設での原位置試験等を通じた確証に重点をおいて、それら評価技術を構築・確証することを目指して、5つのサブタスクを進めた。

まず、「システムの過渡的变化評価技術開発」として、処分システムで生じる過渡的变化がシステムの長期安全性に及ぼす影響について、考慮すべき重要課題の抽出と研究アプローチを取りまとめた。再冠水過程の過渡的变化を評価するための連成解析コードについては、幌延URLで実施している人工バリア性能確認試験を対象とした解析を行うとともに、課題として見出された緩衝材変形挙動の取り扱いに関するデータ取得とコード改良を行った。オーバーパックスの腐食挙動評価については、再冠水過程における腐食挙動の把握を目的に、幌延URLの原位置試験に適用した腐食センサーによる腐食モニタリングを継続し、再冠水過程における液抵抗、分極抵抗等の経時変化とそのデータの妥当性を確認した。鉄-ベントナイトの相互作用評価に関しては、原位置で得られた変質ベントナイト試料の分析を進め、鉱物の変化や鉄腐食生成物の移行挙動等に関する知見を拡充した。

次に、「人工バリア中の核種移行に係る不確実性要因分析とそれに基づく性能評価技術開発」においては、最新の現象理解を反映したモデルの精緻化、システム変遷を考慮した評価を可能とするモデル開発を進めた。ベントナイト中の核種移行現象理解のため、Na型とCa型のモンモリロナイト中の収着・拡散特性など多様な核種・条件のデータ整備を進めた。また、NMRによるCa型モンモリロナイトの間隙構造及びCsのモンモリロナイトへの収着機構などに関する知見を得た。これらの知見を反映しつつ、間隙の不均質性や層間陽イオン（Ca型）の影響を考慮して収着・拡散モデルを改良するとともに、分子動力学及び量子化学計算によるモデルの裏付けとなる知見の拡充を図った。オーバーパックス鉄共存の影響について、Fe(II)と核種のモンモリロナイトへの競合収着に係るデータとモデルの整備を進めた。また、ガラス溶解への影響に関する予察試験としてMgCl₂溶液条件でのガラス浸出データを拡充した。

第3に、「天然バリア中の核種移行に係る不確実性要因分析とそれに基づく性能評価技術開発」においては、岩盤中の割れ目等の不均質性や有機物・微生物等が核種移行に及ぼす影響評価手法に着目し、原位置試験とも連携したデータ拡充とモデル高度化を進めた。割れ目等に着眼した核種移行研究としては、グリムゼル花崗岩について、室内試験によって割れ目の不均質構造と拡散・収着特性を把握するとともに、割れ目中の移行データの取得とそのモデル化を検討した。一方、幌延泥岩については、原位置試験と連携した室内補完試験及び原位置試験の予察解析等を進めたほか、幌延の既往データを活用したナチュラルトレーサー評価を検討した。有機物・微生物については、幌延の深地層研究施設で得られた地下水試料などを用いたデータ取得を進め、有機物については、幌延の有機物の特性評価、低濃度の核種との錯形成データを拡充した。一方、微生物については、微生物コロイドやバイオフィームが核種移行に及ぼす影響を評価するための基礎データとして、微生物コロイドと希土類元素との相互作用やバイオフィーム中への重元素の濃集挙動、微生物群集組成等の微生物特性評価手法に関する

る知見を得た。

第4に、「セメント系材料影響評価技術開発」においては、セメント系材料の化学・力学モデルの開発として、低アルカリ性セメント（HFSC）の水和反応モデルと関連する熱力学データを整備するとともに、連続体モデルによる割れの発生を考慮した力学解析を行うための解析手法の高度化を図った。核種移行への影響評価では、セメント環境中での収着挙動に関する実験的調査として、アルカリ性水溶液中におけるナトリウム型及びカルシウム型ベントナイトに対するジルコニウム及びスズの収着分配係数を整備した。また、セメント系材料によるニアフィールド岩盤への影響の把握のため、原位置でのセメント系材料と周辺岩盤との接触事例として瑞浪超深地層研究所で採取された既存のボーリングコアを用いた分析評価を行った。

最後に、「ニアフィールド複合現象／核種移行の体系的評価に向けた技術開発」については、ニアフィールド総合評価技術の開発として、ニアフィールド総合評価システムの全体構想を示すとともに、総合評価で必要となる基盤情報整備を行った。また、鉄影響による緩衝材変質を例題とし、ニアフィールドシステム変遷についての分野横断的・整合的な現象解析に向けた共通モデル・シナリオの整備を行い、化学-物質輸送-力学現象に跨るフィードバックループを考慮して現象解析を実施できるニアフィールド複合現象解析システムの開発に着手した。さらに、先端的な手法を取り入れたニアフィールド複合現象解析システムの開発として、より汎用性の高い次世代型化学-物質輸送解析モジュールの開発や、変質部のひび割れ現象に対するDEMを用いた力学解析手法開発を進めた。

3章「多様な廃棄物の共処分におけるニアフィールドの影響評価技術開発」の主たる成果は、2つに大別される。まず、「廃棄物の特性を踏まえた共処分概念の影響評価技術開発」として、模擬アスファルト固化体を用いた熱測定データの蓄積を行うとともに、これまでの発熱特性に関するパラメータ等を見直し、地層処分環境におけるアスファルト固化体の熱反応暴走に至る最低温度を160℃と評価した。アスファルト固化体処分における熱反応暴走を誘発する可能性があるシナリオとして、微生物活動による発熱及び高温流体の接近を抽出し、熱収支解析による試行的評価を実施したが、熱反応暴走を誘発する可能性は低いことが示された。硝酸イオン化学的変遷挙動評価モデル（NEON）の信頼性向上を目的とする確証試験及び天然事例との比較解析を実施した。確証試験では、処分環境を模擬したカラムを用い、拡散条件における硝酸イオンの変遷試験とNEONによる解析とを比較し、試験結果とモデル解析が概ね整合的であることを確認した。天然事例との比較解析では、カナダでの地下水硝酸塩汚染事例について、NEONを用いた解析により概ね再現することができ、部分的ではあるがNEONの微生物反応モデルの妥当性を示すことができた。廃棄物由来の影響因子のバリア候補材料への影響評価については、スメクタイトの特性や長期安定性に及ぼすアンモニウムイオンの影響について調査を行った。実験的検討によるアンモニウム型スメクタイトの特性評価では、湿潤乾燥処理によりアンモニア型スメクタイトは、カリウム型に比べ膨張性を失いにくいことが分かった。さらに、処分環境が高アルカリ性条件に変化する場合を想定して、高アルカリでナトリウムイオンが存在する場合の方が高アルカリでない場合と比較して、アンモニア型スメクタイトはナトリウム型になり易いことが示された。廃棄物由来化学物質として、セルロースの分解生成物であるイソサッカリン酸（ISA）及びISAと類似した化学構造を持つグルコン酸（GLU）について、ジルコニウムの見かけの溶解度に及ぼす影響を調査した。ジルコニウム溶解度のpH依存性やISAおよびGLU濃度依存性から、ISAやGLUとジルコニウムと錯体の存在を仮定し、溶解度の熱力学解析を行うことによりそれぞれの錯生成定数を導出した。

次に、「多様な廃棄物の影響を考慮した共処分概念案の構築」においては、硝酸塩の処分施設からの移行解析を3次元体系で実施し、その結果に基づき共処分におけるレイアウトを検討した。硝酸ナトリウムを含む廃棄体グループ3の処分坑道を、地下水の流向き下流側に配置し、上流側への硝酸イオンの拡がりを移流分散モデルにより解析し、その結果から、廃棄体グループ3の処分坑道を他の廃棄体の処分坑道の下流に300m程度離して設置するレイアウトを例示した。

4章「過酷事象の地層処分システムへの影響に関する評価確証技術開発」主たる成果は、2つに大別される。まず、(1)「地層処分システムにおける過酷事象の概念構築」では、地層処分システムにおける過酷事象の評価手法を高度化することを目的として、地層処分及び社会学の分野の専門家によるワークショップで得られた意見を踏まえ、トップダウン型のアプローチの位置付けを明確にしたうえで、平成26年度までに具体化した地層処分システムの過酷事象の検討フローを改良した。また、包括的懸念事項リストについては、試行を通じて単一/複合/機能共鳴といった複数の観点から記録できるように構造を具体化した。さらに、トップダウン型のアプローチに着目し、基準の設定、過酷事象となる条件の分析及びシナリオ探索の試行結果を提示した。また、地層処分の特徴である地下環境の頑健性を分析するため、ガラス固化体が地上にある状況とガラス固化体が地下ある状況を対象として、相対的な比較の考え方を整理した。

次に、(2)「巨大地震・断層活動を事例とした評価技術開発」の成果は、1)～3)の3つに大別される。

1)「巨大地震・断層活動によるシナリオの検討」として、平成26年度までに開発した地震・断層活動を対象としたシナリオ構築の手順に、安全機能の定量的な分析、影響の大きなシナリオ（たとえば被ばく線量が100mSvを超える）が発生するかどうかを判断するために着目すべき安全機能の劣化・喪失（あるいはその原因となるプロセス）の抽出、及び各分岐の発生条件の確認を追加するとともに、この手順を試行した。

2)「巨大地震・断層活動による地質環境への影響に関するデータ」として、①「岩盤ひずみの変化に伴う地下水流動の変化」では、東北地方太平洋沖地震を事例に原位置で観測されている岩盤ひずみ、弾性波、間隙水圧データへの影響について検討した。その結果、巨大地震・断層活動に伴う岩盤ひずみの変化が地下水流動への影響の可能性が低いことが示唆された。②「深部流体の流入に伴う地下水の温度・水質の変化」では、各地の温泉等で観測された地下水の化学組成及び水温データをもとに、内陸地震の発生前後における化学場と温度場の変化や、断層を通じた深部流体流入の可能性について検討した。また、シナリオに基づく地層処分システムへの影響評価解析に資する情報として、深部流体の化学的性状に関するデータの取得を行った。その結果、断層のずれに伴う透水性の増加が生じた場合に高温で炭酸化学種に富む深部流体が流入する可能性を示唆された。

3)「巨大地震・断層活動による処分場への影響評価手法の開発」として、①「断層のずれが人工バリアに与える影響」では、断層のずれによるオーバーパックと岩盤の衝突を想定した人工バリアせん断模型試験に向けた予備試験を実施するとともに、3次元モデルによる非線形大変形衝突解析手法を開発した。②「断層起源ガスが地下水流動場や地層処分システムに与える影響」では、巨大地震・断層活動に伴う地下に賦存するガスの放出や移行に係る解析を行った結果、埋め戻し部、緩衝材及び岩盤において、ガスフラクチャリングを起こすことが分かった。③「地震動による地下施設（支保工）の破壊」では、幌延深地層研究センターの地下施設を例とした新規制基準等に基づいた基準地震動の策定、影響評価を実施し、耐専式による包絡応答スペクトルを基準地震動とした場合、内空断面形状

は維持されるが、アスペリティの応力降下を1.5倍とした基準地震動の場合、設計基準強度を超える応力が発生し支保工が破壊されることが確認された。④「地震動が人工バリアに与える影響」では、処分場閉鎖後の人工バリアを対象として、緩衝材の繰返し非排水三軸試験により動的強度特性パラメータを設定するとともに、人工バリアと周辺岩盤の3次元非線形地震応答解析（有効応力）を実施した結果、想定地震における緩衝材への影響は微少であり、緩衝材の健全性は保たれるものと推察された。

5章「可逆性と回収可能性などを考慮した地層処分システム概念の提示」では、平成25年度より3つの項目（「①レジリエンス的視点に基づく地層処分システムのロバスト性概念の検討」、「②公正性に根ざした合意形成型の処分概念の構築手法の開発」、「③合意形成の促進に資するモニタリング技術等の検討・開発」）に大別して検討を行ってきたが、今年度からは成果の集約取りまとめに向け、これまでの「①レジリエンス的視点に基づく地層処分システムのロバスト性概念の検討」については、システムのレジリエンス性を高める個々の方策を駆使し相乗的な効果を発揮できるよう「(1)閉鎖後長期安全性に関するロバスト性の高い地層処分システム概念の構築」として概念を創出するとともに、従来の概念との比較検討を、システム性能、経済性、社会的受容性の観点から行った。これら比較検討の情報はステークホルダとの議論を行ううえでのインプットとなる。次に、上記の「①レジリエンス的視点に基づく地層処分システムのロバスト性概念の検討」に加え、これまでの「③合意形成の促進に資するモニタリング技術等の検討・開発」の成果を基に、「(2)受動的な安全系へ推移するまでの期間におけるレジリエンス的取り組みの具体化」として、とくに計画の可逆性や廃棄物の回収可能性(R&R)の活用を念頭にいたった取り組みの検討を行った。これらはシステムの詳細化、プロジェクト管理、あるいは政策レベルの観点から有効であり、また今後取り組むべき課題として、公衆参加の制度設計や地層処分技術に対する確信と社会の信頼獲得の観点からのR&Rの活用などの提案を行った。さらに、これまでの「②公正性に根ざした合意形成型の処分概念の構築手法の開発」の成果も加え、上記(1)と(2)提案される複数の処分システムのオプションを基に、模擬的なステークホルダを対象に、サイエンスコミュニケーションやアコモデーションワークショップなどの合意形成の試みを「(3)多様なステークホルダ間の合意形成に向けた協働」として行い、各手法等の特徴や効果等を見出すための検討を行った。

6章「処分事業に資するための処分システム評価確証技術の統合化」の主たる成果は、2つの項目（「(1)システム評価確証技術の統合化に関する試行」、「(2)処分システム評価確証技術の認知拡大に関する試行」）に大別される。前者の「(1)システム評価確証技術の統合化に関する試行」については、研究成果の統合に向けた全体的な枠組みと成果統合の検討を行うとともに知識共有の試行を通じた統合プラットフォームの改良を行った。また、成果内容についてイラストの活用や専門家によるビデオ解説などを取り入れた非専門家向けのポータルサイトの概念構築を行った。一方、「(2)処分システム評価確証技術の認知拡大に関する試行」については、平成26年度に作成した広報ツール（過酷事象の影響評価を対象とした）に関する調査・評価を行うとともに、システム評価確証技術の要素技術として、ナチュラルアナログ研究を事例に取り上げ、ブランドデザインの試行を行った。また、今後に向けサイエンスコミュニケーションを通じた認知上の価値の創出や知識共有の試行についての検討を行った。

7.2 おわりに

本年度はプロジェクトの開始から3年目（5ヵ年計画の中間点）に当たることから、延べ4日間に及ぶワークショップを開催し、多くの国内専門家を招聘して、本プロジェクトのこれまでの成果と今後の方針についてレビューを受けた（付録5参照）。非常に有益な議論を行うことができたと考えられ、その成果の一部はすでに本年度の成果に反映されている。また次年度以降の計画にワークショップの成果を反映することにより、本プロジェクトの成果の有効性を高めてくれるものと確信している。それにより地層処分システムが、ステークホルダーにとってより納得のいく（Convincing）ものとなることを期待するものである。

付録 1

化学物質輸送解析に用いるパラメータ

1.1 熱力学データベース

本解析では、JAEA TDB_2014β (ver. 0104 ; 2014-04-24) (日本原子力研究開発機構, 2015) を改良させた GWB15.dat (BETA v01.06) (2015-12-18) を用いる。詳細は 1.6 で述べる。

1.2 各材料の仕様

1.2.1 緩衝材 (ベントナイト)

緩衝材の仕様については付録表 1-1 に示す通り、TRU 廃棄物処分技術検討書—第 2 次 TRU 廃棄物処分研究開発取りまとめ— (電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構, 2005 ; 以下、「第 2 次 TRU レポート」と称す) における降水系地下水を用いた設定に従うものとする。なお、モンモリロナイトは Na 型、Ca 型、K 型、Mg 型、及び Fe 型が存在するものとし、それぞれの比は初期の交換性陽イオン組成の比とする。

付録表 1-1 緩衝材の仕様

パラメータ	設定値
乾燥密度[kg/dm ³]	1.6
ベントナイト配合率[%]	70
ケイ砂配合率[%]	30

初生鉱物の組成を付録表 1-2 示す。ベントナイトの鉱物組成は第 2 次 TRU レポートにおける降水系地下水を用いた設定に従うものとし、ケイ砂は全量石英とした。また、鉱物のモル体積とモル質量は GWB15.dat の値を引用し、密度はモル質量とモル体積から算出した。なお、第 2 次 TRU レポートで設定されている斜長石は曹長石と灰長石に等量で配分した。また、黄鉄鉱は反応に寄与しない鉱物として扱う。モンモリロナイトは 48.0%とあるが、ここではモンモリロナイトの全量を Na 型に代表させて設定した。これらのデータから算出された初生鉱物の設定値を付録表 1-3 に示す。

付録表 1-2 緩衝材における初生鉱物の組成

	ベントナイト [wt%]	ケイ砂 [wt%]	緩衝材 [wt%]	mol 体積 [cm ³ /mol]	mol 質量 [g/mol]	密度 [g/cm ³]
Montmor-Na	48.0		33.6	134.271	367.0171	2.7334
Quartz	0.6	100	30.42	22.688	60.0843	2.6483
Chalcedony	38.0		26.6	22.688	60.0843	2.6483
Calcite	2.4		1.68	36.934	100.0869	2.7099
Dolomite	2.4		1.68	64.365	184.4008	2.8649
Albite	2.35		1.645	100.25	262.223	2.6157
Anorthite	2.35		1.645	100.79	278.2073	2.7604
Analcime-I	3.3		2.31	97.1	220.1540	2.2673
Pyrite	0.6		0.42	23.94	119.9770	5.0116

付録表 1-3 緩衝材における初生鉱物の設定値

	体積分率[%]	濃度 [mol/dm ³]
Montmor-Na	19.633	1.462
Quartz	18.378	8.100
Chalcedony	16.042	7.071
Calcite	0.990	0.268
Dolomite	0.937	0.146
Albite	1.004	0.100
Anorthite	0.952	0.094
Analcime-I	1.627	0.168
間隙率	40.225	

モンモリロナイトのイオン交換選択係数は第2次 TRU レポートの設定に Fe²⁺を (Kamei et al., 1999) を追加し、付録表 1-4 の通りとする。

付録表 1-4 モンモリロナイトのイオン交換選択係数

	イオン交換反応選択係数 logK
2ZNa-Z ₂ Ca	0.69
ZNa-ZK	0.42
2ZNa-Z ₂ Mg	0.67
2ZNa-Z ₂ Fe	0.27

1.2.2 坑道支保 (コンクリート)

セメント系材料として OPC を設定する。OPC の配合は第2次 TRU レポートに準拠するものとし、

付録表 1-5 で表わされる。なお、コンクリートの水セメント比は 55%とした。また、セメントの化学成分は日本原子力研究開発機構（2014）に倣い、付録表 1-6 のように設定した。

付録表 1-5 OPC の配合

	単位セメント量 [kg/m ³]	単位水量 [kg/m ³]	細・粗骨材 [kg/m ³]
コンクリート (W/C=55%)	300	165	1877
モルタル	483	266	1449
セメントペースト	300	165	0

付録表 1-6 OPC の化学成分

wt%	ig	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	CaO	MgO	SO ₃	Na ₂ O	K ₂ O
OPC	0.73	21.57	5.3	2.76	64.3	1.95	1.95	0.26	0.46

初期水和物とする鉱物とその密度を付録表 1-7 に示す。鉱物のモル体積は日本原子力研究開発機構（2014）の値を用いた。また、モル質量は化学式から、密度はモル質量とモル体積から算出した。Na と K の配分は熱力学データベースに合わせて Na₂O および K₂O とした。

付録表 1-7 OPC の初期水和物として設定する鉱物とその密度

	モル体積 [cm ³ /mol]	モル質量 [g/mol]	密度 [g/cm ³]
Portlandite	33.06	74.0927	2.2411
C-S-H(1.65)	77.406	190.745	2.4642
Ettringite-Al	707.030	1255.1072	1.7752
Katoite-Al	150.000	378.2852	2.5219
Katoite-Fe	155.000	436.0121	2.8130
Brucite	24.63	58.3197	2.3678
Na ₂ O	25.000	61.9789	2.4792
K ₂ O	40.380	94.1960	2.3327

初期水和物量は下記の方法で算定した。

- OPC は完全に水和したもとする
- S を全て Ettringite-Al に配分する
- Fe を全て Katoite-Fe に配分する
- Mg を全て Brucite に配分する
- Si を全て CSH(1.65) に配分する
- Na を全て Na₂O に配分する
- K を全て K₂O に配分する
- C-S-H ゲルに取り込まれる Al を Honda et al. (2009) の方法により算出し、系から除外する
- 残りの Al を全て Katoite-Al に配分する
- 残りの Ca を全て Portlandite に配分する

計算の結果を付録表 1-8 に示す。

付録表 1-8 OPC の初期水和物量

	コンクリート		モルタル		ペースト	
	体積分率 [%]	水和物 [mol/dm ³]	体積分率 [%]	水和物 [mol/dm ³]	体積分率 [%]	水和物 [mol/dm ³]
Portlandite	4.028	1.218	6.501	1.966	14.990	4.534
CSH(1.65)	8.219	1.062	13.266	1.714	30.590	3.952
Ettringite-Al	1.698	0.024	2.740	0.039	6.319	0.089
Katoite-Al	0.619	0.041	1.000	0.067	2.305	0.154
Katoite-Fe	0.792	0.051	1.279	0.083	2.949	0.190
Brucite	0.352	0.143	0.569	0.231	1.312	0.533
Na ₂ O	0.031	0.012	0.050	0.020	0.115	0.046
K ₂ O	0.058	0.014	0.094	0.023	0.217	0.054
間隙率%	14.362		20.452		41.203	

付録表 1-8 では Na₂O と K₂O を固相としているが、両鉱物とも初期間隙水に全て溶解してしまうため、初期水和物量から除外する必要がある。さらに、セメントにおける鉄鉱物の挙動が不明な点が多いため、液相で Fe を考慮しているものの、Katoite-Fe を反応に寄与しない鉱物として扱う。上記を反映し、計算コードに入力した初期水和物量を付録表 1-9 に示す。

付録表 1-9 OPC の初期水和物量 (計算コードに入力したもの)

	コンクリート		モルタル		ペースト	
	体積分率 [%]	水和物 [mol/dm ³]	体積分率 [%]	水和物 [mol/dm ³]	体積分率 [%]	水和物 [mol/dm ³]
Portlandite	4.028	1.218	6.501	1.966	14.990	4.534
CSH(1.65)	8.219	1.062	13.266	1.714	30.590	3.952
Ettringite-Al	1.698	0.024	2.740	0.039	6.319	0.089
Katoite-Al	0.619	0.041	1.000	0.067	2.305	0.154
Brucite	0.792	0.051	1.279	0.083	2.949	0.190
間隙率%	14.451		20.596		41.535	

1.2.3 地下水および間隙水の組成

地下水は降水系地下水 FRHP (核燃料サイクル機構, 1999) とした。緩衝材初期間隙水は、第 2 次 TRU レポートで用いられた手法 (小田ほか, 1999) から TDB を GWB15.dat に変えて算出した。セメント系材料の初期間隙水組成は、付録表 1-9 のコンクリートを降水系地下水 FRHP と 25°C で平衡にさせて初期間隙水を算出した。計算コードには PHREEQC (Parkhurst and Appelo (1999)) を用いた。以上の結果を付録表 1-10 に示す。

付録表 1-10 地下水および緩衝材・コンクリートの初期間隙水組成の組成

	FRHP [mol/dm ³]	緩衝材 [mol/dm ³]	コンクリート [mol/dm ³]	モルタル [mol/dm ³]	ペースト [mol/dm ³]
pH	8.46	8.371	13.397	13.446	13.498
Al	3.43E-07	3.43E-07	1.25E-03	1.41E-03	1.60E-03
C	3.54E-03	1.59E-02	2.31E-04	3.08E-04	4.21E-04
Ca	1.09E-04	5.13E-05	9.05E-04	7.91E-04	6.85E-04
Cl	1.46E-05	1.46E-05	1.47E-05	1.47E-05	1.47E-05
K	9.73E-10	7.98E-08	9.76E-10	9.77E-10	9.77E-10
Mg	6.15E-05	1.29E-04	2.02E-01	2.29E-01	2.62E-01
Na	5.00E-05	4.20E-06	2.59E-09	2.33E-09	2.09E-09
S	3.55E-03	2.84E-02	1.77E-01	2.00E-01	2.29E-01
Si	1.11E-04	1.11E-04	6.13E-04	8.37E-04	1.18E-03

1.3 鉱物の溶解・生成反応モデル

鉱物の溶解・生成反応速度式には平成 25 年度に整備したデータセット (日本原子力研究開発機構, 2014) を用いた。

1.3.1 一般鉱物の溶解速度式

ギブス自由エネルギー ΔG_r を非線形関数とした場合の溶解反応速度式は(付録 1-1)式で表される。

$$r = A \cdot \left[k_a \cdot \exp\left\{\frac{-e_a}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0}\right)\right\} \cdot a_{H^+}^l + k_n \cdot \exp\left\{\frac{-e_n}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0}\right)\right\} + k_b \cdot \exp\left\{\frac{-e_b}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0}\right)\right\} \right] \cdot a_{H^+}^n \cdot \left[1 - \exp\left\{m \cdot \left(\frac{\Delta G_r}{RT}\right)^p\right\} \right] \quad (\text{付録 1-2})$$

ここで、 r は溶解速度 [$\text{mol m}^{-3} \text{s}^{-1}$]、 k_a 、 k_n および k_b は酸性領域、中性領域およびアルカリ性領域での単位比表面積当たりの溶解定数 [$\text{mol m}^{-2} \text{s}^{-1}$]、 A は水溶液の単位体積当たりの反応表面積 [m^{-1}]、 e_a 、 e_n および e_b は酸性領域、中性領域およびアルカリ性領域でのみかけの活性化エネルギー [J mol^{-1}]、 R は気体定数 [$\text{J mol}^{-1} \text{K}^{-1}$]、 T および T_0 は絶対温度および 25°C における絶対温度 [K]、 a_{H^+} はイオン活量 [-]、 l 、 m 、 n 、 p はパラメータ [-] を表す。

また、ギブス自由エネルギー ΔG_r は(付録 1-2)式で表される。

$$\Delta G_r = RT \cdot \ln\left(\frac{IAP}{K}\right) \quad (\text{付録 1-2})$$

ここで、 IAP は反応の化学量論に応じた溶存化学種の活量積 [-]、 K は反応平衡定数 [-] を表す。さらに、一部の鉱物において m のパラメータは(付録 1-3)式で表される。

$$m = \exp[4.75 \cdot \log(T) - 0.27 \cdot \text{pH} - 13.39] \quad (\text{付録 1-3})$$

なお、 $m=p=1$ の場合、(付録 1-3)式は飽和指数 SI を用いて、(付録 1-4)式とも表される

$$r = A \cdot \left[k_a \cdot \exp\left\{\frac{-e_a}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0}\right)\right\} \cdot a_{H^+}^l + k_n \cdot \exp\left\{\frac{-e_n}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0}\right)\right\} + k_b \cdot \exp\left\{\frac{-e_b}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0}\right)\right\} \right] \cdot a_{H^+}^n \cdot [1 - 10^{SI}] \quad (\text{付録 1-4})$$

付録表 1-11 に各鉱物毎の、(付録 1-4)式を用いる場合の溶解速度式中の定数を示す。なお、反応表面積 (式中の A) については別途記述する。また、C-S-H ゲルをはじめとした、反応速度が温度・ pH に依存しないと仮定した鉱物については後述する。

付録表 1-11 (付録 1-5)式を用いる場合の溶解速度式中の定数

	k_a [mol m ⁻² s ⁻¹]	k_n [mol m ⁻² s ⁻¹]	k_b [mol m ⁻² s ⁻¹]	e_a [kJ mol ⁻¹]	e_n [kJ mol ⁻¹]	e_b [kJ mol ⁻¹]	l	n	m	p
Albite	-	3.98E-13	5.25E-17	-	56.63	34.82	-	-0.5	(付録 1-3)式	3
Anorthite	-	3.98E-13	5.25E-17	-	56.63	34.82	-	-0.5	(付録 1-3)式	3
K-Feldspar	-	3.89E-12	6.31E-22	-	38	94.1	-	-0.823	(付録 1-3)式	3
Illite	-	2.82E-14	2.82E-15	-	22	22	-	-0.22	(付録 1-3)式	3
Analcime	-	-	3.91E-12	-	-	77.1	-	0	1	1
Chalcedony	-	-	3.09E-15	-	-	108.4	-	-0.52	1	1
Brucite	-	-	5.75E-9	-	-	42.0	-	0	1	1
Sepiolite	-	-	3.98E-13	-	-	29.0	-	0	1	1
Hydrotalcite	-	-	5.75E-9	-	-	42.0	-	0	1	1
Fe(OH) ₂	2.24E-8	3.16E-12	2.24E-17	-	-	-	0.992	-0.784	1	1
Magnetite	2.57E-9	1.66E-11	-	-	-	-	0.279	-	1	1
Berthierite	-	6.61E-14	8.91E-18	-	22.2	17.9	-	-0.472	1	1
Greenalite	-	6.61E-14	8.91E-18	-	22.2	17.9	-	-0.472	1	1

1.3.2 モンモリロナイトの溶解速度式

モンモリロナイトは各イオン型共通で(付録 1-5)式で表される。

$$r = A \cdot [k_b \cdot a_{H^+}^n \cdot \exp\left\{\frac{-e_b}{RT}\right\}] \cdot \left[1 - \exp\left\{m \cdot \left(\frac{\Delta G_r}{RT}\right)\right\}\right]^p \quad (\text{付録 1-5})$$

付録表 1-12 モンモリロナイトの溶解速度式中の定数を示す。

付録表 1-12 モンモリロナイトの溶解速度式中の定数

	$-k_b \cdot a_{H^+}^n$ [mol m ⁻² s ⁻¹]	e_b [kJ mol ⁻¹]	m	p
Montmorillonite	$10^{0.212 \cdot \text{pH} - 6.40}$	38.7	(付録 1-3)式	3

1.3.3 炭酸を含む鉱物の溶解速度式

炭酸を含む鉱物は CO₂ 分圧 P_{CO_2} を用いて(付録 1-6)式で表される。

$$r = A \cdot \left[k_a \cdot a_{H^+}^l + k_n \cdot \exp\left\{\frac{-e_n}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0}\right)\right\} + k_b \cdot \exp\left\{\frac{-e_b}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0}\right)\right\} \cdot P_{CO_2}^n \right] \cdot \left[1 - \exp\left\{m \cdot \left(\frac{\Delta G_r}{RT}\right)\right\} \right] \quad (\text{付録 1-6})$$

付録表 1-13 に各鉱物に対応するこれらの定数・パラメータの値を示す。

付録表 1-13 炭酸を含む鉱物の溶解速度式中の定数

	k_a [mol m ⁻² s ⁻¹]	k_n [mol m ⁻² s ⁻¹]	k_b [mol m ⁻² s ⁻¹]	e_a [kJ mol ⁻¹]	e_n [kJ mol ⁻¹]	e_b [kJ mol ⁻¹]	l	n	m	p
Calcite	5.01E-1	1.55E-6	3.31E-4	14.4	23.5	35.4	1	1	1	1
Dolomite	6.46E-4	2.95E-8	3.09E-6	36.1	52.2	34.8	0.5	0.5	1	1
Siderite	5.01E-1	1.55E-6	3.31E-4	14.4	23.5	35.4	1	1	1	1

1.3.4 石英の溶解速度式

石英は Al(OH)₄⁻ の反応抑制を考慮して (付録 1-7) 式で表される。

$$r = A \cdot \left[k_a \cdot \exp\left\{\frac{-e_a}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0}\right)\right\} \cdot a_{H^+}^l + (1 - S) \cdot k_b \cdot \exp\left\{\frac{-e_b}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0}\right)\right\} \cdot a_{H^+}^n \right] \cdot \left[1 - \exp\left\{m \cdot \left(\frac{\Delta G_r}{RT}\right)\right\} \right] \quad (\text{付録 1-7})$$

ここで、S は Al(OH)₄⁻ の物質質量 [Al(OH)₄⁻] [mol/kg] を用いて (付録 1-8) 式で表される

$$S = \frac{(-3000 \cdot \text{pH} + 39700) \cdot (-0.196 \cdot \text{pH} + 2.94) \cdot [\text{Al(OH)}_4^-]}{1 + (-3000 \cdot \text{pH} + 39700) \cdot [\text{Al(OH)}_4^-]} \quad (\text{付録 1-8})$$

以上の速度式を用い、各鉱物の溶解反応速度式を決定する。石英のパラメータは付録表 1-14 のようにまとめられる。

付録表 1-14 石英の溶解速度式中の定数

	k_a [mol m ⁻² s ⁻¹]	k_b [mol m ⁻² s ⁻¹]	e_n [kJ mol ⁻¹]	e_b [kJ mol ⁻¹]	l	n	m	p
Quartz	4.34E-12	8.22E-15	87.6	8.6 · pH + 13.0€ (上限 100)	0.3	-0.3	1	1

1.3.5 反応速度が温度、pH に依存しないものと仮定した鉱物の溶解速度式

これらの鉱物の場合、(付録 1-4) 式をさらに簡略化した形式になり、溶解速度は以下のように表される。

$$r = A \cdot k \cdot [1 - 10^{S1}] \quad (\text{付録 1-9})$$

C-S-H ゲルは、Trapote-Barreira et. al. (2014) によって提案された溶解反応速度式を C/S を

0.1 刻みで離散化して用いる（付録表 1-15）。また付録表 1-16 に反応速度が温度、pH に依存しないものと仮定したその他の鉱物の溶解速度定数を示す。

付録表 1-15 C/S 比に依存した C-S-H ゲルの速度定数

	logk
CSH165	-8.44
CSH155	-8.50
CSH145	-8.65
CSH135	-9.19
CSH125	-9.97
CSH115	-10.66
CSH105	-10.96
CSH095	-10.86
CSH085	-10.87

付録表 1-16 その他、設定した鉱物の速度定数

	logk	根拠
Portlandite	-6	C-S-H ゲルより溶解が早いため
Ettringite-Al	-10.94	CSH(1.0)と同じ
Monosulfate-Al	-10.94	Ettringiteと同じ
Laumontite	-11.41	25°Cにおけるゼオライトの沈殿速度式（全型）
Phillipsite	-11.41	Laumontiteと同じ（全型）
Heulandite	-11.41	Laumontiteと同じ（全型）
C3AH6	-10.94	CSH(1.0)と同じ
C4AH13	-10.94	CSH(1.0)と同じ
C4AH19	-10.94	CSH(1.0)と同じ
Katoite-Al	-10.94	CSH(1.0)と同じ
Katoite-AlSi084	-10.94	CSH(1.0)と同じ
Stratlingite	-10.94	CSH(1.0)と同じ
Friedel_Salt	-10.94	Ettringiteと同じ

1.3.6 鉱物の比表面積

鉱物の比表面積は、間隙率の減少に伴って鉱物と間隙水の接する面積を減らす効果を入れるため、以下の式に従って入力するものとする。

$$A = A_0 \left(\frac{n}{n_0} \right)^{2/3} \quad (\text{付録 1-10})$$

ここで A_0 は初期の比表面積（付録表 1-17）、 n は現在の間隙率、 n_0 は初期の間隙率である。

付録表 1-17 鉱物の初期比表面積

鉱物	比表面積(m ² /g)	鉱物	比表面積(m ² /g)
Calcite	10.00	Friedel_Salt-Al	9.80
Dolomite	10.00	Pyrophyllite	10.00
Illite	5.4	Gypsum	10.00
K-Feldspar	10.00	Phillipsite (全型)	10.00
Quartz	0.1	CSH165	22.43
Portlandite	10.44	CSH155	29.11
Ettringite-Al	9.80	CSH145	35.78
Hydrotalcite-Al	11.94	CSH135	42.46
Katoite-Al	10.00	CSH125	49.13
Katoite-ALSi084	10.00	CSH115	55.81
Stratlingite	10.00	CSH105	62.48
Brucite	10.00	CSH095	69.16
Analcime-I	10.00	CSH085	75.84
Montmorillonite (全型)	7.00	Fe(OH)2	1.76
Chalcedony	0.23	Magnetite	0.12
Laumontite (全型)	10.00	Siderite	0.16
Sepiolite	10.00	Berthierine	8.16
Monosulfate-Al	10.00	Greenalite	8.16
Heulandite (-dia)	10.00	Gypsum	10.00
C ₄ AH ₁₃	10.00	Monocarbonate-Al	10.00
C ₄ AH ₁₉	10.00	Hemicarbonate-Al	10.00

1.4 考慮する鉱物

1.4.1 セメントの初期水和物と溶解・変質に伴う二次鉱物

セメントで生成する可能性がある二次鉱物は、第2次 TRU レポートで考慮したものに加え、日本原子力研究開発機構（2013）で追加されたことを受けて2水石膏も考慮する（付録表 1-18）。

付録表 1-18 セメント系材料の化学モデルで考慮した二次鉱物

C-S-H gel (CSH155- CSH085)	Calcite
Katoite-AlSi084	Monocarbonate-Al
C4AH13	Hemicarbonate-Al
C4AH19	Monosulfate-Al
Stratlingite-Al	Friedel_Salt-Al
Sepiolite	Analcime-I
Hydrotalcite-Al	Laumontite-Ca
Gypsum	

1.4.2 ベントナイトの溶解・変質に伴い生成する二次鉱物

緩衝材中で生成する可能性がある二次鉱物は、第2次 TRU レポートに記載されている鉱物と鉄ケイ酸塩とする。ただし、C-S-H 化合物に関しては C-S-H ゲルとして沈殿するとし、結晶性 C-S-H (トバモライト等) は考慮しない。

付録表 1-19 ベントナイトの溶解・変質に伴い生成する二次鉱物

Phillipsite (-dia, -alk, -Na, -K)	Illite
Heulandite (-dia)	K-Feldspar
C-S-H gel (CSH165-CSH085)	Analcime-I
Katoite-AlSi084	Laumontite (-Ca, -dia)
Ettringite-Al	Greenalite
Monosulfate-Al	Berthierine
Friedel_Salt-Al	Portlandite
Monocarbonate-Al	Brucite
Hemicarbonate-Al	Calcite
Hydrotalcite-Al	Dolomite
Sepiolite	

1.5 拡散係数

1.5.1 セメント領域における拡散係数

セメントにおける実効拡散係数 De [m^2/s] は、(付録 1-11) 式で表される

$$De = 2.272 \times 10^{-9} \times \varepsilon^{3.05} \quad (\text{付録 1-11})$$

ここで、 ε は間隙率[-]を表す。

1.5.2 緩衝材領域における拡散係数

本検討では、緩衝材が変質した場合に MACBECE 内の該当要素の力学的性質をグリーンタフ相当 (弾性体) として扱うこととするが、その場合の条件は、モンモリロナイト残存量が初期値の 7

割を下回った場合とした。

(1) 未変質の緩衝材の実効拡散係数

通常の QPAC 解析での未変質緩衝材中の実効拡散係数は、TRU2 次報告書と同様、以下のベントナイトの実効拡散係数の評価式 (25°C) に従って計算した。

$$D_e = 2.27 \times 10^{-9} \times \theta^n \quad [\text{m}^2/\text{s}] \quad (\text{付録 1-12})$$

$$n = 2.22 \times f_g^{0.13} + 1$$

ここに θ はベントナイトの間隙率、 f_g はベントナイト中のモンモリロナイト含有割合である。なお、本検討では緩衝材の変質後も上記の評価式を用いて実効拡散係数の評価を行っているが、緩衝材が (例えば鉄影響により) 変質した後の実効拡散係数の評価については、今後の課題として挙げられる。

(2) 圧縮などによる体積変化を考慮した未変質の緩衝材の実効拡散係数

本検討においては、MACBECE 解析による体積変化 (MACBECE の「体積ひずみ」アウトプット) を、まず緩衝材の間隙率に反映させ、それを式 (付録 1-12) に適用することで実効拡散係数に反映させる。体積ひずみ ε_v と間隙率 θ の関係については、以下のように考えた (付録図 1-1 も参照のこと)。

まず、体積ひずみの定義より (圧縮を正とする)、 ε_v は次式で表される (但し、力学と化学の両方を同時に考慮する場合の全体積 V は、力学変形のみを考慮した場合の全体積 V^M と等しいと仮定する)。

$$\begin{aligned} \varepsilon_v &= \frac{V_0 - V^M}{V_0} = 1 - \frac{V^M}{V_0} = 1 - \frac{V_L + V_S}{V_0} = 1 - \frac{V_L}{V_0} - \frac{V_S}{V_0} = 1 - \frac{V_S}{V_0} - \frac{V_L}{V_0} = \theta^c - \frac{V_L}{V_0} = \theta^c - \frac{V_S}{V_0} \cdot \frac{V_L}{V_S} \\ &= \theta^c - (1 - \theta^c) \cdot e \end{aligned} \quad (\text{付録 1-13})$$

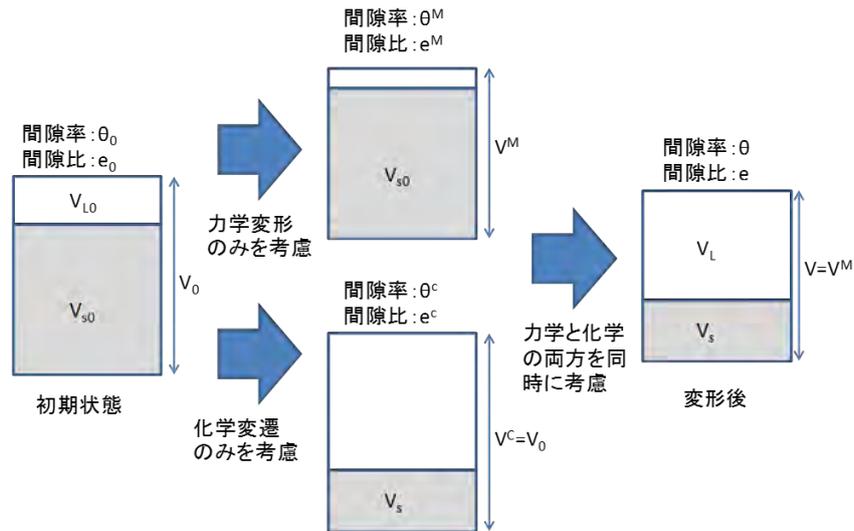
上式より、力学と化学の両方を同時に考慮したときの間隙比 e は次式で表される。

$$e = \frac{\theta^c - \varepsilon_v}{1 - \theta^c} \quad (\text{付録 1-14})$$

さらに、間隙比と間隙率の関係式から、力学と化学の両方を同時に考慮したときの間隙率 θ は次式で表される。

$$\theta = \frac{e}{1 + e} = \frac{\theta^c - \varepsilon_v}{1 - \varepsilon_v} \quad (\text{付録 1-15})$$

上式を用いて MACBECE の体積ひずみ ε_v から間隙率 θ を計算する。



付録図 1-1 体積ひずみを考慮した間隙率変化の概念図

(3) 「割れ」の入った変質後緩衝材の実効拡散係数

上記のモデルオプション 1 の部分で述べたように、MACBECE 解析で緩衝材変質部（上記のグリーンタフ相当に変質した部分）のうち引っ張り応力が強度を上回る領域があった場合、その部分の実効拡散係数を上昇させてQPAC 解析を行う。この際の実効拡散係数は以下のように取り扱うこととした。

1. 「割れ」が生じたと判定された要素の最小主ひずみの値をQPACに渡す
2. 上記の最小主ひずみに相当する部分の実効拡散係数は自由水中の実効拡散係数 (2.27×10^{-9} [m²/s]) であり、該当要素のその他（「割れ」以外）の部分は下記(付録 2-16)式で計算されるグリーンタフを想定した場合の実効拡散係数で表されると仮定する
3. 上記の仮定に従い、要素全体の実効拡散係数がそれらの体積の重みを考慮した平均で表されるものとして計算する。例えば、上記の最小主ひずみが 3%程度であった場合、「割れ」以外の部分の実効拡散係数が、間隙率 $\theta = 0.4$ の場合の値 ($D_g = 1.45 \times 10^{-10}$ [m²/s]) であった場合は以下のように計算する：

$$D_g = 1.45 \times 10^{-10} \times 0.97 + 2.27 \times 10^{-9} \times 0.03 = 2.01 \times 10^{-10} \text{ [m}^2/\text{s]}$$

なお、グリーンタフ化した部分（「割れ」以外の部分）の実効拡散係数については、第 2 次とりまとめ中の凝灰岩の実効拡散係数の評価などを参照し、以下の式において $n=1$ とし、間隙率に比例するものと仮定した（従って、緩衝材からグリーンタフに変化した瞬間は当該要素の実効拡散係数が不連続に変化する）。

$$D_g = 2.27 \times 10^{-9} \times \theta^n \text{ [m}^2/\text{s]}$$

(付録 1-16)

1.6 熱力学データベースの改良

19 種類の元素、142 種類の液相種や錯体種、285 種類の鉱物、12 種類のガスについて、熱力学特性 ($\Delta_f G^0$ 、 $\Delta_f H^0$ 、 S^0 、 V^0)、Helgeson-Kirkham-Flowers (H-K-F) 式のパラメータ (a_{1-4} 、 $c_{1,2}$ 、 ω^0) (Tanger IV and Helgeson, 1988)、Maier-Kelly 式による熱容量の温度依存式を適用した場合の各係数を入れるために JAEA β TDB (v1.06) を更新した。主な更新内容の概要は付録表 1-20 に、詳細は付録表 1-21 から付録表 1-31 に示す。

付録表 1-20 JAEA β -TDB (v1.06) における主な更新内容

Item	Description
New, revised or old entries	New or revised entries include 35 aqueous species/complexes, 156 minerals and 3 gases. All auxiliary data previously listed as log K data have been removed by deriving all necessary properties to be included in the SUPCRT (v1.1) ¹ format TDB.
Br	The element bromine (Br) has been added using Br^- as the basis species ² . Associated Br species/complexes and Br_2 as a liquid and a gas have also been added ³ .
Monomeric silica species	The basis species $\text{H}_4\text{SiO}_4(\text{aq})$ has been revised from quartz solubility data ⁴ . This important update affects the thermodynamic properties and/or log K values of other monomeric silica species and some 200 minerals that contain silicon (Si).
(H,Na,K,Ca,Mg)([C _y ,S,H ₂ Si][O _{4-y}]) aqueous complexes	Aqueous complexes relevant to high pH systems of general formula (H,Na,K,Ca,Mg)([C _y ,S,H ₂ Si][O _{4-y}]) have been added from the literature ⁵ or estimated by correlation methods ⁶ .
Elements	All 19 elements in their reference states have been added ⁷ .
C-S-H gel	The discrete solid phase type C-S-H gel solubility model ⁸ has been extended to account for changes in temperature, $t = 0.01\text{-}90^\circ\text{C}$ using published C-S-H gel solubility data ⁹ .
Crystalline CSH minerals	Crystalline CSH minerals have been revised from more recent values reported in the literature ¹⁰ .
Saponites (-Na,-K,-Ca,-Mg,-Fe)	Saponites with Na^+ , K^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+} , or Fe^{2+} in the interlayer and either Mg or Fe in the octahedral layer have been re-estimated using a polyhedral model and from additive properties of formation reactions from appropriate parents ¹¹ .
Fe-bearing minerals	Fe-bearing phases have been added or revised to account for steel overpack and bentonite buffer interactions ¹² .
Halide gases	Halide gases F_2 , Cl_2 and Br_2 have been added ¹³ .
Uncertainties	All data have been traced to their respective sources and uncertainties corresponding to the 95% confidence limit (1.96σ) have been added wherever possible.

References: 1: (Johnson et al., 1992). 2: (Cox, 1978; Shock and Helgeson, 1988). 3: (Shock and Helgeson, 1988; Shock et al., 1997; Sverjensky et al., 1997; Wagman et al., 1982). 4: (Anderson and Burnham, 1965; Crerar and Anderson, 1971; Davis et al., 2011; Fournier, 1960; Hemley et al., 1980; Kennedy, 1950; Kitahara, 1960b; Mackenzie and Gees, 1971; Manning, 1994; Morey et al., 1962; Morey and Hesselgesser, 1951; Rimstidt, 1997; Siever, 1962; Van Lier et al., 1960; Walther and Orville, 1983; Weill and Fyfe, 1964; Xie and Walther, 1993). 5: (Barbero et al., 1983; Butler and Huston, 1970; Capewell et al., 1998; Crea et al., 2006; Garrels et al., 1961; Larson et al., 1976; Nakayama, 1971; Pabalan and Pitzer, 1987; Phutela and Pitzer, 1986; Santschi and Schindler, 1974; Seward, 1974; Stefánsson et al., 2013). 6: (Shock et al., 1997; Sverjensky et al., 1997). 7: (Cox, 1978; Grenthe et al., 1992; Helgeson et al., 1978; Kelley, 1960; Robie et al., 1978; Stull and Prophet, 1971). 8: (Walker et al., 2016). 9: (Atkins et al., 1994; Atkinson et al., 1991; Barbarulo, 2002; Courault, 2000; Glasser et al., 1999; Haas and Nonat, 2015; L'Hôpital, 2014; Myers et al., 2015a; Myers et al., 2015b; Swanton et al., 2005). 10: (Blanc et al., 2010). 11: (Helgeson et al., 1978; Tardy and Garrels, 1974; Wolery and Jove-Colon, 2004). 12: (Arthur et al., 2012; Dilnesa, 2011; Dilnesa et al., 2011; Gailhanou et al., 2007; Gronvold and Westrum, 1962; Haas and Robie, 1973; Helgeson et al., 1978; Hummel et al., 2002; Kelley, 1960; Lemire et al., 2013; Lothenbach et al., 2008; Möschner et al., 2008; Mills, 1974; Robie et al., 1984; Robie et al., 1978; Robie and Waldbaum, 1968; Rozov et al., 2011; Wagman et al., 1982; Wilson et al., 2015; Wilson et al., 2006; Wolery and Jove-Colon, 2004; Ziemniak et al., 1995). 13: (Cox, 1978; Kelley, 1960).

付録表 1-21 JAEA β -TDB (v1.06)における Br-と関連する錯体の熱力学特性と H-K-F 式のパラメータ

Species/ complex	$\Delta_f G^{\circ i}$	$\Delta_f H^{\circ i,a}$	$S^{\circ ii}$	$C_p^{\circ ii}$	$V^{\circ iii}$	Revised H-K-F equation-of-state parameters							Z	Ref
						$a_1 \times 10^{iv}$	$a_2 \times 10^{-2i}$	a_3^v	$a_4 \times 10^{-4vi}$	c_1^{ii}	$c_2 \times 10^{-4vi}$	$\omega^0 \times 10^{-5i}$		
Br ⁻	-24870.0	-29040.0	19.800	-30.265	24.429	5.2690	6.5940	4.7450	-3.1430	-3.8000	-6.8110	1.3858	-1	1
Br ₃ ^{-b}	-25590.0	-31170.0	51.500	5.688	51.241	9.0992	14.4364	0.0759	-3.3758	17.2705	-1.8939	0.8490	-1	2
BrO ^{-b}	-8000.0	-22500.0	9.700	-27.847	-0.053	2.3206	-2.1131	6.5758	-2.6915	3.4104	-8.7381	1.4820	-1	3
BrO ₃ ^{-b}	4450.0	-16030.0	38.650	-20.492	35.081	6.9617	9.2173	2.1272	-3.1600	3.7059	-7.2308	1.0433	-1	2
BrO ₄ ^{-b}	28200.0	3100.0	47.600	-5.107	48.423	8.7361	13.5515	0.4200	-3.3391	11.4884	-4.0937	0.9085	-1	3
HBrO ^b	-19700.0	-27000.0	33.800	8.983	28.353	5.5795	5.8410	3.4565	-3.0204	9.8576	-1.2012	-0.1719	0	4
KBr	-90010.0	-86320.0	47.500	-7.970	46.002	8.0580	11.8970	1.0670	-3.2708	1.4496	-4.6580	-0.0050	0	5
NaBr	-85610.0	-84830.0	34.100	7.963	32.062	6.1257	7.1789	2.9214	-3.0757	10.1926	-1.4111	-0.0700	0	5

ⁱ cal/mol, ⁱⁱ cal/mol/K, ⁱⁱⁱ cm³/mol, ^{iv} cal/mol/bar, ^v calK/mol/bar, ^{vi} calK/mol. Superscript zeroes (⁰) in all tables are used to identify the property under reference conditions of 298.15K and 1.013 bar pressure. ^a Enthalpy of formation, $\Delta_f H^{\circ}$ for all species calculated from Gibbs energy relation: $\Delta_f H^{\circ} = \Delta_f G^{\circ} + 298.15 \cdot \Sigma S^{\circ}$ (see Table 1-24). ^b Redox sensitive species/complex.

References: 1 (Cox, 1978; Shock and Helgeson, 1988). 2 (Shock and Helgeson, 1988; Wagman et al., 1982). 3 (Shock and Helgeson, 1988; Shock et al., 1997; Wagman et al., 1982). 4 (Kelley, 1960; Wagman et al., 1982). 5 (Sverjensky et al., 1997).

付録表 1-22 JAEA β -TDB (v1.06)における単量体ケイ素の熱力学特性と H-K-F 式のパラメータ

Species/ complex	$\Delta_f G^{\circ i}$	$\Delta_f H^{\circ i,a}$	$S^{\circ ii}$	$C_p^{\circ ii}$	$V^{\circ iii}$	Revised H-K-F equation-of-state parameters							Z	Ref
						$a_1 \times 10^{iv,b}$	$a_2 \times 10^{-2i,b}$	$a_3^{v,b}$	$a_4 \times 10^{-4vi,b}$	c_1^{ii}	$c_2 \times 10^{-4vi}$	$\omega^0 \times 10^{-5i}$		
SiO _{2(aq)}	-199531.0 ^c	-212509.5	9.972 ^c	-5.110 ^c	16.100 ^c	1.8942 ^c	10.7244 ^c	-2.0213 ^c	-3.2223 ^c	26.5268 ^c	-14.6835 ^c	0.1952 ^c	0	1
HSiO ₃ ^{-*}	-242836.0 ^c	-273910.0	5.000 ^c	-31.166 ^c	5.761 ^c	2.9734	-0.5213	5.9549	-2.7575	24.1543 ^c	-21.5884 ^c	1.2429 ^c	-1	2
SiO ₃ ^{2-*}	-224609.0 ^c	-269200.0	-40.300 ^c	-64.504 ^c	-22.563 ^d	-0.0302	-7.8551	8.8374	-2.4543	92.2044 ^c	-59.7026 ^c	3.8237 ^e	-2	3

ⁱ cal/mol, ⁱⁱ cal/mol/K, ⁱⁱⁱ cm³/mol, ^{iv} cal/mol/bar, ^v calK/mol/bar, ^{vi} calK/mol. * Previously listed as auxiliary data. ^a Enthalpy of formation, $\Delta_f H^{\circ}$ for all species calculated from Gibbs energy relation: $\Delta_f H^{\circ} = \Delta_f G^{\circ} + 298.15 \cdot \Sigma S^{\circ}$ (see Table 1-25). ^b Except for SiO_{2(aq)}, parameters a_1 , a_2 , a_3 , and a_4 were calculated from V° and ω^0 using Eq.'s [33], [34], [35] and [36], respectively, in (Sverjensky et al., 1997). ^c Regression of experimental data, see entries under References column. ^d Estimated from S° using Eq. [92] in (Shock and Helgeson, 1988). ^e Estimated from S° using Eq. [40] in (Sverjensky et al., 1997).

References: 1 (Anderson and Burnham, 1965; Crerar and Anderson, 1971; Davis et al., 2011; Fournier, 1960; Hemley et al., 1980; Kennedy, 1950; Kitahara, 1960b; Mackenzie and Gees, 1971; Manning, 1994; Morey et al., 1962; Morey and Hesselgesser, 1951; Rimstidt, 1997; Siever, 1962; Van Lier et al., 1960; Walther and Orville, 1983; Weill and Fyfe, 1964; Xie and Walther, 1993). 2: (Aveston, 1965; Bilinski and Ingri, 1967; Busey and Mesmer, 1977; Flint and Wells, 1934; Greenberg, 1958; Greenberg and Price, 1957; Ingri, 1959; Lagerström, 1959; Roller and Ervin, 1940; Santschi and Schindler, 1974; Schwarz and Müller, 1958; Seward, 1974; Sjöberg et al., 1983; Sjöberg et al., 1981; Van Lier et al., 1960). 3: (Aveston, 1965; Busey and Mesmer, 1977; Ingri, 1959; Lagerström, 1959; Sjöberg et al., 1983; Sjöberg et al., 1981).

付録表 1-23 JAEA β -TDB (v1.06)における(H, Na, K, Ca, Mg) $[\text{C}_y, \text{S}, \text{H}_2\text{Si}][\text{O}_{4-y}]$ 錯体の熱力学特性とH-K-F式のパラメータ

Species/ complex	$\Delta_f G^{\circ i}$	$\Delta_f H^{\circ i,a}$	$S^{\circ ii}$	$C_p^{\circ ii}$	$V^{\circ iii}$	Revised H-K-F equation-of-state parameters							Z	Ref
						$a_1 \times 10^{iv,b}$	$a_2 \times 10^{-2 i,b}$	$a_3^{v,b}$	$a_4 \times 10^{-4 vi,b}$	c_1^{ii}	$c_2 \times 10^{-4 vi}$	$\omega^{\circ} \times 10^{-5 i}$		
CaHSiO ₃ ⁺	-376470.0 ^c	-403000.0	-1.100 ^f	15.563 ^g	-7.244 ^h	0.9891	-5.3663	7.8592	-2.5572	20.4781 ^j	0.1238 ^j	0.5671 ^e	+1	1
CaSiO _{3(aq)} ^{†,‡}	-362330.0 ^c	-390010.0	-4.900 ^c	-6.054 ^c	-36.247 ⁱ	-3.2095	-15.6177	11.8883	-2.1334	13.4875 ^c	-9.7867 ^c	-0.0380 ⁿ	0	2
MgSO _{4(aq)} [*]	-289730.0 ^o	-324100.0 ^o	-1.700 ^o	-68.726 ^p	-7.858 ^q	0.6752	-6.1326	8.1604	-2.5255	-34.4587 ^j	-17.0333 ^j	-0.0380 ⁿ	0	---
MgHSiO ₃ ⁺	-353130.0 ^c	-385070.0	-21.300 ^f	20.575 ^g	-11.322 ^h	0.5477	-6.4440	8.2827	-2.5126	26.2231 ^j	1.1382 ^j	0.8739 ^e	+1	1
MgSiO _{3(aq)} [†]	-340710.0 ^c	-372650.0	-21.300 ^k	20.481 ^k	-33.255 ^l	-2.8000	-14.6178	11.4954	-2.1747	8.4666 ^m	5.7420 ^m	-0.0380 ⁿ	0	1
NaHCO _{3(aq)} [†]	-203060.0 ^c	-222580.0	37.300 ^j	-0.625 ^r	23.632 ^r	4.9843	4.3886	4.0251	-2.9604	55.1367 ^c	-27.6108 ^c	-0.0380 ⁿ	0	3
NaCO ₃ ^{-†}	-190379.0 ^c	-216640.0	14.700 ^c	-51.072 ^k	-0.367 ^l	2.2491	-2.2898	6.6500	-2.6843	17.4881 ^c	-27.4315 ^c	1.4069 ^e	-1	4
NaHSO _{4(aq)} [*]	-238790.0 ^m	-265620.0	43.500 ^j	55.604 ^k	42.450 ^h	7.5594	10.6762	1.5539	-3.2204	38.4061 ^j	8.2928 ^j	-0.0380 ⁿ	0	---
NaHSiO _{3(aq)}	-307640.0 ^c	-333250.0	20.000 ^f	9.956 ^g	11.944 ^h	3.3850	0.4837	5.5599	-2.7990	11.6533 ^c	-1.0059 ^c	-0.0380 ⁿ	0	5
NaSiO ₃ ^{-*}	-287450.0 ^l	-326280.0	-24.400 ^l	-40.433 ^k	-17.523 ^l	0.1260	-7.4737	8.6874	-2.4700	0.7566 ^l	-11.3126 ^l	1.9979 ^e	-1	---
Na ₂ SiO _{3(aq)} [*]	-349660.0 ^l	-383720.0	-11.700 ^l	-46.712 ^l	-19.756 ^l	-0.9528	-10.1076	9.7227	-2.3612	-21.5572 ^l	-12.5490 ^l	-0.0380 ⁿ	0	---
KHCO _{3(aq)} [*]	-206610.0 ^l	-223740.0	48.500 ^l	-9.206 ^r	33.912 ^r	6.3910	7.8234	2.6751	-3.1024	0.4236 ^l	-4.9090 ^l	-0.0380 ⁿ	0	---
KCO ₃ ^{-*}	-192470.0 ^l	-217260.0	22.800 ^l	-59.667 ^k	12.130 ^l	3.9125	1.7716	5.0537	-2.8522	-17.0527 ^l	-15.2157 ^l	1.2837 ^e	-1	---
KHSiO _{3(aq)} [*]	-310080.0 ^l	-332180.0	34.900 ^l	-6.032 ^g	24.331 ^l	5.0800	4.6222	3.9333	-2.9701	2.2836 ^l	-4.2625 ^l	-0.0380 ⁿ	0	---
KSiO ₃ ^{-*}	-291710.0 ^l	-323560.0	2.200 ^l	-56.461 ^k	-6.355 ^l	1.5014	-4.1155	7.3676	-2.6089	-12.3209 ^l	-14.5691 ^l	1.5954 ^e	-1	---
K ₂ SiO _{3(aq)} [*]	-359530.0 ^l	-399340.0	-24.600 ^l	-59.974 ^l	-2.332 ^l	1.4314	-4.2863	7.4347	-2.6018	-29.3295 ^l	-15.2505 ^l	-0.0380 ⁿ	0	---

ⁱ cal/mol, ⁱⁱ cal/mol/K, ⁱⁱⁱ cm³/mol, ^{iv} cal/mol/bar, ^v calK/mol/bar, ^{vi} calK/mol. * New entry in JAEA β -TDB (v1.06) TDB. † Previously listed as auxiliary data. ‡ Entry for CaSiO_{3(aq)} subject to further updates as a consequence of C-S-H gel solubility modeling as a function of temperature and salinity. ^a Enthalpy of formation, $\Delta_f H^{\circ}$ for all species/complexes, except MgSO_{4(aq)}, calculated from Gibbs energy relation: $\Delta_f H^{\circ} = \Delta_f G^{\circ} + 298.15 \cdot \sum S^{\circ}$ (see Table 1-25). ^b Coefficients a_1 , a_2 , a_3 , and a_4 calculated from V° and ω° using Eq.'s [33], [34], [35] and [36], respectively, in (Sverjensky et al., 1997). ^c Regression of experimental data, see entries under References column. ^d Estimated from S° using Eq. [92] in (Shock and Helgeson, 1988). ^e Estimated from S° using Eq. [40] in (Sverjensky et al., 1997). ^f Estimated from S° using Eq. [66]-[68] & [74]-[77] in (Sverjensky et al., 1997). ^g Estimated from C_p° and Z using Eq. [53] in (Sverjensky et al., 1997). ^h Estimated from V° of the ligand using Eq. [62] in (Sverjensky et al., 1997). ⁱ Coefficient c_1 estimated from C_p° and ω° using Eq. [37] and c_2 from C_p° using Eq. [30] in (Sverjensky et al., 1997). ^k Calculated from isocoulombic reactions on the assumption that $\Delta_f C_p^{\circ} = 0$. ^l Linear correlation from ligand property. ^m Regression of estimated data. ⁿ $\omega \times 10^{-5} = -0.038$, Eq. [42] in (Sverjensky et al., 1997). ^o (Wagman et al., 1982). ^p (Pabalan and Pitzer, 1987) ^q (Phutela and Pitzer, 1986). ^r (Barbero et al., 1983).

References: 1: (Santschi and Schindler, 1974). 2: (Atkins et al., 1992; Atkins et al., 1994; Atkinson et al., 1989; Atkinson et al., 1991; Barbarulo, 2002; Chambers et al., 2005; Chen et al., 2004; Courault, 2000; Flint and Wells, 1934; Fujii and Kondo, 1981; Glasser et al., 1999; Greenberg and Chang, 1965; Grutzeck et al., 1989; Haas and Nonat, 2015; Harris et al., 2002; Henocq, 2005; L'Hôpital, 2014; Myers et al., 2015a; Myers et al., 2015b; Pointeau, 2000; Sugiyama, 2008; Swanton et al., 2005; Walker et al., 2007; Walker et al., 2016). 3: (Barbero et al., 1983; Butler and Huston, 1970; Crea et al., 2006; Nakayama, 1971; Stefánsson et al., 2013). 4: (Butler and Huston, 1970; Capewell et al., 1998; Crea et al., 2006; Garrels et al., 1961; Larson et al., 1976; Stefánsson et al., 2013). 5: (Seward, 1974). --- Unpublished (this report).

付録表 1-24 付録表 1-22 から 24 に記載されていない液相種と錯体の熱力学特性と H-K-F 式のパラメータ

Species/ complex	$\Delta_f G^{\circ i}$	$\Delta_f H^{\circ i,a}$	$S^{\circ ii}$	$C_p^{\circ ii}$	$V^{\circ iii}$	Revised H-K-F equation-of-state parameters							Z	Ref
						$a_1 \times 10^{iv}$	$a_2 \times 10^{-2i}$	a_3^v	$a_4 \times 10^{-4vi}$	c_1^{ii}	$c_2 \times 10^{-4vi}$	$\omega^{\circ} \times 10^{-5i}$		
CaOH ⁺	-171277.0 ^b	-179550.0 ^b	6.700	1.446	5.763	2.7243	-1.1303	6.1958	-2.7322	11.1286	-2.7493	0.4496	1	1
Fe ²⁺	-21870.0	-22050.0	-25.300	-7.576	-22.640	-0.7867	-9.6969	9.5479	-2.3780	14.9632 ^b	-4.6437	1.4382	2	2
H _{2(aq)}	4200.0 ^b	-1000.0	13.800	39.879	25.264	5.1427	4.7758	3.8729	-2.9764	27.6251	5.0930	-0.2090	0	3
MgOH ⁺	-149259.0	-164590.0 ^b	-19.100	30.886	1.642	2.3105	-2.1365	6.5827	-2.6906	32.0008	3.2394	0.8449	1	4
MgCl ⁺	-138830.0 ^b	-150120.0 ^b	-19.000	25.087	1.002	2.2230	-2.3505	6.6669	-2.6818	28.6016	2.0580	0.8449	1	5
MgF ⁺	-178448.0 ^b	-191715.0 ^b	-28.070	39.200	-17.767	-0.2975	-8.5049	9.0858	-2.4274	38.0239	4.9301	0.9706	1	6
Si ₂ O _{4(aq)} [*]	-400760.0	-427300.0	18.500	49.114	40.081	10.1000	2.6900	0.6700	-2.8900	35.8000	7.0000	0.1000	0	7
SrOH ⁺	-173300.0	-180200.0 ^b	14.600	-7.566	7.099	2.8620	-0.7922	6.0586	-2.7462	4.7576	-4.5826	0.3306	1	1

ⁱ cal/mol, ⁱⁱ cal/mol/K, ⁱⁱⁱ cm³/mol, ^{iv} cal/mol/bar, ^v calK/mol/bar, ^{vi} calK/mol. * New entry in JAEA β -TDB (v1.06) TDB. ^a Enthalpy of formation, $\Delta_f H^{\circ}$ calculated from Gibbs energy relation: $\Delta_f H^{\circ} = \Delta_f G^{\circ} + 298.15 \cdot \Sigma S^{\circ}$ (see Table 1-25). ^b Updated from JAEA β -TDB (v1.05).

References: 1: (Baes and Mesmer, 1976; Shock et al., 1997). 2: (Shock et al., 1989; Shock et al., 1997) 3: (Shock et al., 1989; Wagman et al., 1982). 4: (Palmer and Wesolowski, 1997; Shock et al., 1997). 5: (Majer and Stulik, 1982; Sverjensky et al., 1997). 6: (Richardson and Holland, 1979; Sverjensky et al., 1997). 7: (Sverjensky et al., 2014).

付録表 1-25 JAEA β -TDB (v1.06)における 298.15K と 1.013 bars での元素 19 種の熱力学特性と Maier-Kelley 式の係数

Element	Formula	State ^a	$\Delta_f G^{0i}$	$\Delta_f H^{0i}$	$S^{0ii,b}$	V^{0iii}	Maier-Kelley coefficients ^c			$C_p t_{max}^{vi}$	Ref
							a^{ii}	$b \times 10^{3iv}$	$c \times 10^{-5v}$		
Aluminum *	Al	s	0.0	0.0	6.776	9.993	4.9400	2.9600	0.0000	659	1
Boron *	B	s	0.0	0.0	1.410	4.377	4.1300	0.8300	1.7600	2027	1
Bromine *	Br ₂	l	0.0	0.0	36.379	51.460	19.2900	-4.0500	0.0000	60	2
Calcium *	Ca	s	0.0	0.0	9.940	26.195	5.2500	3.4400	0.0000	440	1
Carbon (as graphite)	C	s	0.0	0.0	1.372	5.298	4.0300	1.1400	-2.0400	2227	3
Chlorine *	Cl ₂	g	0.0	0.0	53.920	0.000	8.8500	0.1600	-0.6800	2727	1
Fluorine *	F ₂	g	0.0	0.0	48.443	0.000	8.2600	0.6000	-0.8400	2227	1
Hydrogen	H ₂	g	0.0	0.0	31.207	0.000	6.5200	0.7800	0.1200	2727	1
Iron	Fe	s	0.0	0.0	6.520	7.092	3.0400	7.5800	0.6000	760	4
Iodine *	I ₂	s	0.0	0.0	27.758	51.483	9.5900	11.9000	0.0000	96	1
Magnesium *	Mg	s	0.0	0.0	7.811	13.968	4.9700	3.0400	0.0400	650	1
Nitrogen	N ₂	g	0.0	0.0	45.770	0.000	6.8300	0.9000	-0.1200	2727	1
Oxygen	O ₂	g	0.0	0.0	49.005	0.000	7.1600	1.0000	-0.4000	2727	1
Phosphorus *	P	s	0.0	0.0	9.821	17.019	22.5000	0.0000	0.0000	44	1
Potassium (Kalium) *	K	s	0.0	0.0	15.459	45.358	1.3400	19.4000	0.0000	63	1
Silicon *	Si	s	0.0	0.0	4.496	12.054	5.7000	0.7000	-1.0400	1412	1
Sodium (Natrium) *	Na	s	0.0	0.0	12.261	23.799	4.0200	9.0400	0.0000	371	1
Strontium *	Sr	s	0.0	0.0	13.313	33.961	5.3100	3.3200	0.0000	589	5
Sulfur	S	s	0.0	0.0	7.661	15.610 ^d	3.5800	6.2400	0.0000	96	1

ⁱ cal/mol, ⁱⁱ cal/mol/K, ⁱⁱⁱ cm³/mol, ^{iv} cal/mol/K², ^v calK/mol, ^{vi} °C. * New entry in JAEA β -TDB (v1.06) TDB. ^a s = Solid, l = Liquid, g = Gas. ^b Entropy, S^0 values shown above are used to calculate enthalpies of formation, $\Delta_f H^0$ of most aqueous species/complexes, minerals and gases from the Gibbs energy relation: $\Delta_f H^0 = \Delta_f G^0 + 298.15 \cdot \sum S^0$. As an example, for portlandite, $\Delta_f G^0 = -214391$ (cal/mol) and $S^0 = 19.930$ (cal/mol/K) (Table 1-26). The formation of portlandite from the elements in their reference states ($Ca_{(s)} + O_{2(g)} + H_{2(g)} = Ca(OH)_2$) therefore gives $\Delta_f H^0 = -214391 + 298.15 \cdot (19.930 - 9.940 - 49.005 - 31.207) = -235328$ (cal/mol), as shown in Table 1-26. ^c Maier-Kelley equation as used in SUPCRT (Johnson et al., 1992), $C_p = a + b \cdot T + c \cdot T^{-2}$, where T is in Kelvin, from 0.01°C up to the temperature maximum shown under $C_p t_{max}$. ^d Updated from JAEA β -TDB (v1.05).

References: 1: (Cox, 1978; Kelley, 1960). 2: (Cox, 1978; Stull and Prophet, 1971). 3: (Cox, 1978; Helgeson et al., 1978). 4: (Kelley, 1960; Robie et al., 1978). 5: (Grenthe et al., 1992; Kelley, 1960).

付録表 1-26 JAEA β -TDB (v1.06)における 298.15K と 1.013 bars での C-S-H ゲルの熱力学特性と Maier-Kelley 式の係数

Mineral	Formula	$\Delta_f G^{\circ i}$	$\Delta_f H^{\circ i,a}$	$S^{\circ ii}$	$V^{\circ iii}$	Maier-Kelley coefficients ^b			$C_p t_{max}^{vi}$	Ref
						a^{ii}	$b \times 10^3^{iv}$	$c \times 10^{-5v}$		
Portlandite ^c	Ca(OH) ₂	-214391.0 ^d	-235328.0 ^d	19.930	33.060	21.7795 ^d	7.8140 ^d	-2.8440 ^d	397	1
CSH165 [*]	(CaO) _{1.65} (SiO ₂)(H ₂ O) _{2.1167}	-591710.0 ^e	-643160.0	55.700 ^e	77.406 ^e	46.3540 ^e	14.7310 ^e	0.0000	90	2,3
CSH155 [*]	(CaO) _{1.55} (SiO ₂)(H ₂ O) _{2.0167}	-570270.0 ^e	-619620.0	53.700 ^e	74.746 ^e	43.4341 ^e	13.8143 ^e	0.0000	90	2,3
CSH145 [*]	(CaO) _{1.45} (SiO ₂)(H ₂ O) _{1.9167}	-548810.0 ^e	-596070.0	51.700 ^e	72.135 ^e	41.8560 ^e	13.3070 ^e	0.0000	90	2,3
CSH135 [*]	(CaO) _{1.35} (SiO ₂)(H ₂ O) _{1.8167}	-527330.0 ^e	-572530.0	49.600 ^e	69.573 ^e	40.2241 ^e	12.7905 ^e	0.0000	90	2,3
CSH125 [*]	(CaO) _{1.25} (SiO ₂)(H ₂ O) _{1.7167}	-505820.0 ^e	-548960.0	47.500 ^e	67.059 ^e	38.5305 ^e	12.2616 ^e	0.0000	90	2,3
CSH115 [*]	(CaO) _{1.15} (SiO ₂)(H ₂ O) _{1.6167}	-484270.0 ^e	-525350.0	45.400 ^e	64.585 ^e	35.5700 ^e	11.3360 ^e	0.0000	90	2,3
CSH105 [*]	(CaO) _{1.05} (SiO ₂)(H ₂ O) _{1.5167}	-462640.0 ^e	-501720.0	43.100 ^e	62.131 ^e	34.3890 ^e	10.9590 ^e	0.0000	90	2,3
CSH095 [*]	(CaO) _{0.95} (SiO ₂)(H ₂ O) _{1.4167}	-440900.0 ^e	-478030.0	40.600 ^e	59.657 ^e	31.9740 ^e	10.2050 ^e	0.0000	90	2,3
CSH085 [*]	(CaO) _{0.85} (SiO ₂)(H ₂ O) _{1.3167}	-418950.0 ^e	-454260.0	37.700 ^e	57.074 ^e	29.9640 ^e	9.5720 ^e	0.0000	90	2,3
CSH083 ^c	(CaO) _{0.8333} (SiO ₂)(H ₂ O) _{1.3}	-415243.0 ^e	-450232.0	37.179 ^e	56.623 ^e	29.4120 ^e	8.7690 ^e	0.0000	90	2,3
CSH075 [*]	(CaO) _{0.75} (SiO ₂)(H ₂ O) _{1.17}	-394170.0 ^e	-427030.0	34.300 ^e	54.111 ^e	28.0930 ^e	8.9830 ^e	0.0000	90	2,3
CSH065 [*]	(CaO) _{0.65} (SiO ₂)(H ₂ O) _{1.014}	-368770.0 ^e	-399000.0	31.000 ^e	51.027 ^e	23.7840 ^e	7.6260 ^e	0.0000	90	2,3
CSH055 [*]	(CaO) _{0.55} (SiO ₂)(H ₂ O) _{0.858}	-343310.0 ^e	-370870.0	27.800 ^e	47.867 ^e	22.0210 ^e	7.0390 ^e	0.0000	90	2,3
SiO _{2(am)} ^c	SiO ₂	-203215.0 ^d	-216009.0 ^d	10.590 ^d	29.000	25.0130 ^d	10.7360 ^d	-17.7020 ^d	300	4

ⁱ cal/mol, ⁱⁱ cal/mol/K, ⁱⁱⁱ cm³/mol, ^{iv} cal/mol/K², ^v calK/mol, ^{vi} °C. * Previously listed as auxiliary data. ^a Enthalpy of formation, $\Delta_f H^{\circ}$ for all minerals calculated from Gibbs energy relation: $\Delta_f H^{\circ} = \Delta_f G^{\circ} + 298.15 \cdot \sum S^{\circ}$ (see Table 1-25). ^b Maier-Kelley equation as used in SUPCRT (Johnson et al., 1992), $C_p = a + b \cdot T + c \cdot T^{-2}$, where T is in Kelvin, from 0.01°C up to the temperature maximum shown under $C_p t_{max}$. ^c Solid solution in aqueous solution (SSAS) end-member components used to derive properties of the C-S-H gel components CSH165→CSH055. Non-ideality of mixing described by 2-term Guggenheim expression (Guggenheim, 1952; Redlich and Kister, 1948). ^d Updated from JAEA β -TDB (v1.05). ^e Regression of experimental data, see entries under References column.

References: 1: (Baes and Mesmer, 1976; Chase, 1998). 2: $\Delta_f G^{\circ}$, S° , a , b : (Atkins et al., 1992; Atkins et al., 1994; Atkinson et al., 1989; Atkinson et al., 1991; Barbarulo, 2002; Chambers et al., 2005; Chen et al., 2004; Courault, 2000; Flint and Wells, 1934; Fujii and Kondo, 1981; Glasser et al., 1999; Greenberg and Chang, 1965; Grutzeck et al., 1989; Haas and Nonat, 2015; Harris et al., 2002; Henocq, 2005; L'Hôpital, 2014; Myers et al., 2015a; Myers et al., 2015b; Pointeau, 2000; Sugiyama, 2008; Swanton et al., 2005; Walker et al., 2007; Walker et al., 2016). 3: V° : (Beaudoin et al., 1990; Bonaccorsi et al., 2005; Cong and Kirkpatrick, 1996; Fujii and Kondo, 1981; Howison and Taylor, 1957; Taylor and Howison, 1956). 4: (Alexander et al., 1954; Chen and Marshall, 1982; Elmer and Nordberg, 1958; Fournier and Rowe, 1977; Greenberg and Price, 1957; Gunnarsson and Arnórsson, 2000; Helgeson et al., 1978; Hitchen, 1935; Kitahara, 1960a; Lenher and Merrill, 1917; Marshall, 1980; Marshall and Warakowski, 1980).

付録表 1-27 JAEA β -TDB (v1.06)における 298.15K と 1.013 bars での結晶質 C-S-H 鉱物の熱力学特性と Maier-Kelley 式の係数

Mineral	Formula	$\Delta_f G^{\circ i}$	$\Delta_f H^{\circ i}$	$S^{\circ ii, a}$	$V^{\circ iii}$	Maier-Kelley coefficients ^d			$C_p t_{max}^{vi}$	Ref
						a^{ii}	$b \times 10^{3iv}$	$c \times 10^{-5v}$		
Afwillite	$Ca_3Si_2O_4(OH)_6$	-1068243.0 ^g	-1160168.0 ^g	69.148 ^g	129.567	72.5502 ^g	0.0000 ^g	0.0000 ^g	NR	1
C2SH-alpha *	$Ca_2HSiO_4(OH)$	-585427.0	-629812.0	29.232	71.120	26.7400	0.0000	0.0000	NR	1
Foshagite	$Ca_4Si_3O_9(OH)_2(H_2O)_{0.5}$	-1349060.0 ^g	-1441889.0 ^g	70.495 ^g	129.567 ^g	73.9436 ^g	0.0000 ^g	0.0000 ^g	NR	1
Gyrolite	$Ca_2Si_3O_7.5(OH)(H_2O)_2$	-1087577.0 ^g	-1175483.0 ^g	73.824 ^g	137.340	77.9015 ^g	0.0000 ^g	0.0000 ^g	NR	1
Hillebrandite	$Ca_2SiO_3(OH)_2(H_2O)_{0.17}$	-593273.0 ^g	-636398.0 ^g	42.927 ^g	70.469	42.4140 ^g	0.0000 ^g	0.0000 ^g	NR	1
Jaffeite *	$Ca_6Si_2O_7(OH)_6$	-1546565.0	-1666682.0	77.928	174.380	82.4331	0.0000	0.0000	NR	1
Jennite *	$Ca_9Si_6O_{16}(OH)_{10}(H_2O)_6$	-3319355.0	-3630500.0	200.229	456.400	223.0425	0.0000	0.0000	NR	1
Okenite	$CaSi_2O_4(OH)_2(H_2O)$	-688794.0 ^g	-749480.0 ^g	49.323 ^g	94.770 ^g	26.7400 ^g	0.0000 ^g	0.0000 ^g	NR	1
Tobermorite-11A	$Ca_5Si_6O_{16}(OH)_2(H_2O)_{4.5}$	-2363792.0 ^g	-2552937.0 ^g	165.235 ^g	300.804	182.8179 ^g	0.0000 ^g	0.0000 ^g	NR	1
Tobermorite-14A	$Ca_5Si_6O_{16}(OH)_2(H_2O)_{9.5}$	-2650807.0 ^g	-2910067.0 ^g	208.616 ^g	372.555	232.6793 ^g	0.0000 ^g	0.0000 ^g	NR	1
Truscottite *	$Ca_7Si_{12}O_{29}(OH)_4(H_2O)$	-3781475.0	-4028551.0	221.558	478.730	247.1558	0.0000	0.0000	NR	1
Xonotlite	$Ca_6Si_6O_{17}(OH)_2$	-2262456.0 ^g	-2395511.0 ^g	137.114 ^g	264.212	150.2486 ^g	0.0000 ^g	0.0000 ^g	NR	1

ⁱ cal/mol, ⁱⁱ cal/mol/K, ⁱⁱⁱ cm³/mol, ^{iv} cal/mol/K², ^v calK/mol, ^{vi} °C. * New entry in JAEA β -TDB (v1.06) TDB. ^a Entropy, S° for all minerals calculated from Gibbs energy relation: $(\Delta_f H^{\circ} - \Delta_f G^{\circ}) \cdot 298.15^{-1} = \Sigma S^{\circ}$.

^b Maier-Kelley equation as used in SUPCRT (Johnson et al., 1992), $C_p = a + b \cdot T + c \cdot T^{-2}$, where T is in Kelvin, however $C_p t_{max}$ was not reported (NR). ^c Updated from JAEA β -TDB (v1.05).

References: 1: (Arthur et al., 2012; Blanc et al., 2010).

付録表 1-28 JAEA β -TDB (v1.06)における 298.15K と 1.013 bars でのサポナイト (-Na, -K, -Ca, -Mg, -Fe)の熱力学特性と Maier-Kelley 式の係数

Mineral	Formula	$\Delta_f G^{\circ}$ i,a	$\Delta_f H^{\circ}$ i,b	S° ii,c	V° iii,d	Maier-Kelley coefficients ^e			C_p t_{max} vi	Ref
						a ⁱⁱ	b $\times 10^3$ iv	c $\times 10^5$ v		
Saponite-CaMg	$Ca_{0.165}Mg_3Al_{0.33}Si_{3.67}O_{10}(OH)_2$	-1345100.0	-1436873.0	61.238	130.018	85.5259	39.3776	11.9995	NR	1
Saponite-FeMg ^{*†}	$Fe_{0.165}Mg_3Al_{0.33}Si_{3.67}O_{10}(OH)_2$	-1325969.0	-1417234.0	62.367	129.102	85.6035	39.5356	12.1321	NR	2
Saponite-KMg	$K_{0.33}Mg_3Al_{0.33}Si_{3.67}O_{10}(OH)_2$	-1345968.0 [†]	-1438134.0 [†]	63.380	134.403	86.6548 [†]	40.6260 [†]	12.1117 [†]	NR	1
Saponite-Mg	$Mg_{3.165}Al_{0.33}Si_{3.67}O_{10}(OH)_2$	-1341259.0	-1433079.0	60.726	128.260	85.2803	39.4859	12.0126	NR	1
Saponite-NaMg	$Na_{0.33}Mg_3Al_{0.33}Si_{3.67}O_{10}(OH)_2$	-1343883.0	-1435964.0	62.609	130.978	86.6116 [†]	40.0061 [†]	11.7801 [†]	NR	1
Saponite-CaFe [*]	$Ca_{0.165}Fe_3Al_{0.33}Si_{3.67}O_{10}(OH)_2$	-1094973.0	-1179027.0	83.114	145.315	91.3617	40.3668	-12.4926	NR	2
Saponite-Fe ^{*†}	$Fe_{0.165}Fe_3Al_{0.33}Si_{3.67}O_{10}(OH)_2$	-1075838.0	-1159380.0	84.260	144.399	91.4330	40.5362	-12.3576	NR	2
Saponite-KFe [*]	$K_{0.33}Fe_3Al_{0.33}Si_{3.67}O_{10}(OH)_2$	-1095837.0	-1180283.0	85.262	149.700	92.4837	41.6277	-12.3778	NR	2
Saponite-MgFe [*]	$Mg_{0.165}Fe_3Al_{0.33}Si_{3.67}O_{10}(OH)_2$	-1091128.0	-1175229.0	82.605	143.557	91.1092	40.4877	-12.4768	NR	2
Saponite-NaFe [*]	$Na_{0.33}Fe_3Al_{0.33}Si_{3.67}O_{10}(OH)_2$	-1093752.0	-1178111.0	84.499	146.275	92.4405	41.0078	-12.7094	NR	2

ⁱ cal/mol, ⁱⁱ cal/mol/K, ⁱⁱⁱ cm³/mol, ^{iv} cal/mol/K², ^v calK/mol, ^{vi} °C. * New entry in JAEA β -TDB (v1.06) TDB. [†] Saponites containing interlayer Fe²⁺ subject to updates based on data published by Kamei et al. (Kamei et al., 1999). ^a Gibbs free energy of formation, $\Delta_f G^{\circ}$ estimated from (Tardy and Garrels, 1974) as implemented by (Wolery and Jove-Colon, 2004) ^b Enthalpy of formation, $\Delta_f H^{\circ}$ for all minerals calculated from Gibbs energy relation: $\Delta_f H^{\circ} = \Delta_f G^{\circ} + 298.15 \cdot \Sigma S^{\circ}$ (see Table 1-25). ^c Entropy, S° calculated from Eq. [62] in (Helgeson et al., 1978). ^d Molar volumes, V° estimated by summation of 'silicated' oxide components after (Wolery and Jove-Colon, 2004). ^e Maier-Kelley equation as used in SUPCRT (Johnson et al., 1992), $C_p = a + b \cdot T + c \cdot T^2$, where T is in Kelvin, however C_p t_{max} was not reported (NR). Values of a , b and c estimated from solid phase reactions assuming $\Delta_f C_p^{\circ} = 0$ for all temperatures (Helgeson et al., 1978). Talc ($Mg_3Si_4O_{10}(OH)_2$) was used as the parent mineral for saponites containing octahedral Mg (Mg_3) and minnesotaite ($Fe_3Si_4O_{10}(OH)_2$) was used as the parent mineral for saponites containing octahedral Fe (Fe_3). ^f Updated from JAEA β -TDB (v1.05).

References: 1: (Helgeson et al., 1978; Tardy and Garrels, 1974; Wolery and Jove-Colon, 2004). 2: Using methods described in 1).

付録表 1-29 JAEA β -TDB (v1.06)における鉄を含む鉱物の熱力学特性と Maier-Kelley 式の係数
(付録表 1-25 の Fe と付録表 1-28 の鉄サポナイトを除く)

Mineral	Formula	$\Delta_f G^{\circ}$ ^{i,a}	$\Delta_f H^{\circ}$ ^{ii,b}	S° ^{iii,c}	V° ^{iii,d}	Maier-Kelley coefficients ^e			C_p t_{\max} ^{vi}	Ref
						a ⁱⁱ	$b \times 10^3$ ^{iv}	$c \times 10^{-5}$ ^v		
Beidellite-Ca(avg)	$\text{Ca}_{0.23}\text{Fe}_{0.02}\text{Al}_{2.48}\text{Si}_{3.51}\text{O}_{10}(\text{OH})_2$	-1294717.0	-1383298.0	63.136	136.251	75.7170	67.2720	-18.8220	247	1,2
Beidellite-Fe *	$\text{Fe}_{0.165}\text{Al}_{2.33}\text{Si}_{3.67}\text{O}_{10}(\text{OH})_2$	-1267442.0	-1355332.0	63.806	135.784	74.3950	68.3680	-18.0830	247	1,2
Beidellite-Fe(avg) *	$\text{Fe}_{0.23}\text{Fe}_{0.02}\text{Al}_{2.48}\text{Si}_{3.51}\text{O}_{10}(\text{OH})_2$	-1269986.0	-1357984.0	64.291	135.155	75.8210	67.5000	-18.6350	247	1,2
Beidellite-K(avg)	$\text{K}_{0.46}\text{Fe}_{0.02}\text{Al}_{2.48}\text{Si}_{3.51}\text{O}_{10}(\text{OH})_2$	-1296271.0	-1385399.0	66.126	141.683	77.2900	69.0130	-18.6650	247	1,2
Beidellite-Mg(avg)	$\text{Mg}_{0.23}\text{Fe}_{0.02}\text{Al}_{2.48}\text{Si}_{3.51}\text{O}_{10}(\text{OH})_2$	-1289770.0	-1378469.0	62.433	134.982	75.3750	67.4240	-18.8030	247	1,2
Beidellite-Na(avg)	$\text{Na}_{0.46}\text{Fe}_{0.02}\text{Al}_{2.48}\text{Si}_{3.51}\text{O}_{10}(\text{OH})_2$	-1292542.0	-1381600.0	65.077	138.145	77.2310	68.1490	-19.1280	247	1,2
Berthierine *	$\text{Fe}_2\text{Al}(\text{SiAl})\text{O}_5(\text{OH})_4$	-832700.0	-907068.0	64.500	107.070	85.7940	25.1440	-20.3200	NR	3
Chamosite-7A	$\text{Fe}_2\text{Al}_2\text{SiO}_5(\text{OH})_4$	-826814.0	-901122.0	64.700	106.200	84.9100	25.4000	-18.7700	727	4,5
Daphnite-14A	$\text{Fe}_5\text{Al}_2\text{Si}_3\text{O}_{10}(\text{OH})_8$	-1551520.0	-1696560.0	138.810	213.420	176.2100	43.7600	-33.8200	727	4,6
Daphnite-7A	$\text{Fe}_5\text{Al}(\text{AlSi}_3)\text{O}_{10}(\text{OH})_8$	-1544392.0	-1689504.0	138.900	221.200	172.5300	52.2800	-37.2300	727	4,5
Ettringite-Fe	$\text{Ca}_6\text{Fe}_2(\text{SO}_4)_3(\text{OH})_{12}(\text{H}_2\text{O})_{26}$	-3413463.0	-3980276.0	418.235	717.560	449.3810	222.3530	-10.8400	60	4,7
Fe(OH)2(cr) *	$\text{Fe}(\text{OH})_2$	-120100.0	-138613.0	24.593	26.430	9.1364	2.7240	10.2778	288	8,9
Fe(OH)3(am)	$\text{Fe}(\text{OH})_3$	-167328.0	-198871.0	21.084	34.306	6.6500	12.4500	0.0000	150	1,10
Fe(OH)3(mic)	$\text{Fe}(\text{OH})_3$	-170057.0	-201573.0	21.084	43.355	6.6500	12.4500	0.0000	50	1,11
FeO	FeO	-60100.0	-65020.0	14.520	12.000	12.1220	2.0720	-0.7500	1327	4,12
Friedel_Salt-Fe	$\text{Ca}_4\text{Fe}_2(\text{OH})_{12}\text{Cl}_2(\text{H}_2\text{O})_4$	-1410152.0	-1559984.0	307.578	277.853	135.3257	218.5143	3.2952	50.15	13
Goethite *	FeOOH	-117140.0	-134070.0	14.300	20.820	4.4550	49.1640	-0.4140	396	9
Greenalite	$\text{Fe}_3\text{Si}_2\text{O}_5(\text{OH})_4$	-716530.0	-788483.0	72.600	115.000	81.6500	32.6000	-15.3900	727	4,5
Hematite	Fe_2O_3	-178155.0	-197720.0	20.940	30.274	23.4900	18.6000	-3.5500	1800	4
Hydrotalcite-FeI	$\text{Mg}_4\text{Fe}_2(\text{OH})_{14}(\text{H}_2\text{O})_3$	-1314262.0	-1503122.0	139.950	232.400	76.6090	341.5120	-15.0000	100	1,11
Hydrotalcite-FeII *	$\text{Mg}_3\text{Fe}(\text{OH})_8(\text{CO}_3)_{0.5}(\text{H}_2\text{O})_{2.5}$	-927974.0	-1055217.0	100.692	119.000	124.5870	0.0000	0.0000	70	1,14
Katoite-Fe	$\text{Ca}_3\text{Fe}_2(\text{OH})_{12}$	-985368.0	-1079697.0	207.663	155.000	78.8720	304.2540	-11.3290	80	1,15
Katoite-FeSi084	$\text{Ca}_3\text{Fe}_2(\text{SiO}_4)_{0.84}(\text{OH})_{8.64}$	-1070997.0	-1152908.0	200.666	149.000	88.6650	114.2550	-16.7990	60	1,15
Katoite-FeSi134	$\text{Ca}_3\text{Fe}_2(\text{SiO}_4)_{1.34}(\text{OH})_{6.64}$	-1119253.0	-1193936.0	195.946	145.000	94.4070	91.5390	-20.0530	60	1,15
Magnetite	Fe_3O_4	-242574.0	-267250.0	34.830	44.524	21.8800	48.2000	0.0000	1800	4,16
Minnesotaite	$\text{Fe}_3\text{Si}_4\text{O}_{10}(\text{OH})_2$	-1070057.0	-1153283.0	83.500	147.860	88.3100	42.6100	-11.1500	527	4,5
Monocarbonate-Fe	$\text{Ca}_4\text{Fe}_2(\text{CO}_3)(\text{OH})_{12}(\text{H}_2\text{O})_6$	-1595119.0	-1788885.0	293.234	292.000	146.2720	277.2470	-1.3700	50	1,17
Monosulfate-Fe	$\text{Ca}_4\text{Fe}_2(\text{SO}_4)(\text{OH})_{12}(\text{H}_2\text{O})_6$	-1642729.0	-1831327.4	341.355	321.000	137.9063	294.9331	4.8279	80	1,17
Montmor-Fe *	$\text{Fe}_{0.165}\text{Mg}_{0.33}\text{Al}_{1.67}\text{Si}_4\text{O}_{10}(\text{OH})_2$	-1255627.0	-1342993.0	65.155	132.478	71.7700	71.1370	-15.5020	247	1
Montmor-Fe(avg) *	$\text{Fe}_{0.295}\text{Mg}_{0.32}\text{Al}_{1.63}\text{Si}_{3.9325}\text{O}_{10}(\text{OH})_2$	-1243445.0	-1330776.0	65.460	132.478	71.8310	71.8930	-15.3190	247	1
Pyrite	FeS_2	-38293.0	-41000.0	12.650	23.940	17.8800	1.3200	-3.0500	727	4,12,18
Ripidolite-14A *	$\text{Mg}_3\text{Fe}_2\text{Al}_2\text{Si}_3\text{O}_{10}(\text{OH})_8$	-1798613.0	-1947355.0	130.407	209.634	170.3800	42.7600	-36.0100	NR	5
Ripidolite-7A *	$\text{Mg}_3\text{Fe}_2\text{Al}_2\text{Si}_3\text{O}_{10}(\text{OH})_8$	-1794011.0	-1944023.0	126.147	215.380	166.7000	51.2800	-39.4200	NR	5
Siderite	FeCO_3	-162426.0	-179878.0	22.819	29.378	21.3374	9.3868	-3.9901	327	9,19
Stratlingite-Fe	$\text{Ca}_2\text{Fe}_2\text{SiO}_2(\text{OH})_{10}(\text{H}_2\text{O})_3$	-1149820.0	-1303508.0	139.049	227.000	89.9590	200.6990	0.3560	80	11

ⁱ cal/mol, ⁱⁱ cal/mol/K, ⁱⁱⁱ cm³/mol, ^{iv} cal/mol/K², ^v calK/mol, ^{vi} °C. * New entry in JAEA β -TDB (v1.06) TDB. **References:** 1:(Arthur et al., 2012). 2:(Gailhanou et al., 2007). 3:(Wilson et al., 2015; Wilson et al., 2006). 4:(Helgeson et al., 1978). 5:(Wolery and Jove-Colon, 2004) 6:(Wagman et al., 1982). 7:(Möschner et al., 2008). 8:(Ziemniak et al., 1995). 9:(Lemire et al., 2013). 10:(Hummel et al., 2002). 11:(Lothenbach et al., 2008). 12:(Robie and Waldbaum, 1968). 13:(Dilnesa, 2011). 14:(Rozov et al., 2011). 15:(Kelley, 1960; Robie et al., 1978). 16:(Haas and Robie, 1973). 17:(Dilnesa et al., 2011). 18:(Gronvold and Westrum, 1962; Mills, 1974). 19:(Robie et al., 1984).

付録表 1-30 付録表 1-25 から 29 に記載されていない鉱物の熱力学特性と Maier-Kelley 式の係数

Mineral	Formula	$\Delta_f G^{\circ i}$	$\Delta_f H^{\circ i}$	$S^{\circ ii}$	$V^{\circ iii}$	Maier-Kelley coefficients ^a			$C_p t_{\max}^{vi}$	Ref
						a^{ii}	$b \times 10^{3iv}$	$c \times 10^{-5v}$		
Analcime-Na096(deh) *	$Na_{0.96}Al_{0.96}Si_{2.04}O_6$	-670100.0	-709890.0	41.040	89.100	40.2651	26.2094	-7.9830	727	1
Analcime-Na096 *	$Na_{0.96}Al_{0.96}Si_{2.04}O_6(H_2O)$	-735500.0	-788000.0	54.200	97.100	26.2844	70.1243	2.9909	327	1
Anhydrite	$CaSO_4$	-315925.0 ^o	-342760.0 ^o	25.500 ^o	45.940	16.7800	23.6000	0.0000	1180	2,3
Anhydrite-alpha *	$CaSO_4$	-314030.0	-340600.0	26.500	45.940	23.9500	0.0000	0.0000	NR	4a,5
Anhydrite-beta *	$CaSO_4$	-312980.0	-339550.0	26.500	45.940	23.6710	0.0000	0.0000	NR	4a,5
Aragonite	$CaCO_3$	-269680.0	-288560.0 ^o	21.560	34.150	20.1300	10.2400	-3.3400	327	2,6
Beidellite-Ca	$Ca_{0.165}Al_{2.33}Si_{3.67}O_{10}(OH)_2$	-1285181.0	-1373489.0 ^o	62.978	136.570 ^o	74.3200 ^o	68.2040 ^o	-18.2170 ^o	247	4,7
Beidellite-Ca(avg)	$Ca_{0.23}Fe_{0.02}Al_{2.48}Si_{3.51}O_{10}(OH)_2$	-1294717.0	-1383298.0 ^o	63.136	136.251 ^o	75.7170 ^o	67.2720 ^o	-18.8220 ^o	247	4,7
Beidellite-Fe *	$Fe_{0.165}Al_{2.33}Si_{3.67}O_{10}(OH)_2$	-1267442.0	-1355332.0	63.806	135.784	74.3950	68.3680	-18.0830	247	4,7
Beidellite-Fe(avg) *	$Fe_{0.23}Fe_{0.02}Al_{2.48}Si_{3.51}O_{10}(OH)_2$	-1269986.0	-1357984.0	64.291	135.155	75.8210	67.5000	-18.6350	247	4,7
Beidellite-K	$K_{0.33}Al_{2.33}Si_{3.67}O_{10}(OH)_2$	-1286304.0	-1375004.0 ^o	65.123	140.467 ^o	75.4490 ^o	69.4530 ^o	-18.1040 ^o	247	4,7
Beidellite-K(avg)	$K_{0.46}Fe_{0.02}Al_{2.48}Si_{3.51}O_{10}(OH)_2$	-1296271.0	-1385399.0 ^o	66.126	141.683 ^o	77.2900 ^o	69.0130 ^o	-18.6650 ^o	247	4,7
Beidellite-Mg	$Mg_{0.165}Al_{2.33}Si_{3.67}O_{10}(OH)_2$	-1281643.0	-1369997.0 ^o	62.473	135.660 ^o	74.0750 ^o	68.3120 ^o	-18.2030 ^o	247	4,7
Beidellite-Mg(avg)	$Mg_{0.23}Fe_{0.02}Al_{2.48}Si_{3.51}O_{10}(OH)_2$	-1289770.0	-1378469.0	62.433	134.982 ^o	75.3750 ^o	67.4240 ^o	-18.8030 ^o	247	4,7
Beidellite-Na	$Na_{0.33}Al_{2.33}Si_{3.67}O_{10}(OH)_2$	-1283627.0	-1372238.0 ^o	64.369 ^o	137.929 ^o	75.4060 ^o	68.8320 ^o	-18.4360 ^o	247	4,7
Beidellite-Na(avg)	$Na_{0.46}Fe_{0.02}Al_{2.48}Si_{3.51}O_{10}(OH)_2$	-1292542.0	-1381600.0	65.077	138.145 ^o	77.2310 ^o	68.1490 ^o	-19.1280 ^o	247	4,7
Berthierine *	$Fe_2Al(SiAl)O_5(OH)_4$	-832700.0	-907068.0	64.500	107.070	85.7940	25.1440	-20.3200	NR	8
Brucite	$Mg(OH)_2$	-199646.0 ^o	-221390.0 ^o	15.090	24.630	24.1470	4.0124	-6.1100	627	2,9
C2AH8	Deleted (superseded by C2AH75)	---	---	---	---	---	---	---	---	---
C2S-beta	Ca_2SiO_4	-524020.0 ^o	-551420.0 ^o	30.500 ^o	51.790	34.8700 ^o	9.7400 ^o	-6.2600 ^o	697	10
C3A	$Ca_3Al_2O_6$	-810282.0	-857461.0 ^o	49.100 ^o	89.217	62.2800	4.5800	-12.0100 ^o	1527	11
C3S	Ca_3SiO_5	-665250.0 ^o	-700000.0 ^o	40.300 ^o	73.180	49.8500	8.6200	-10.1500	1527	10
CaCl2(s) *	$CaCl_2$	-1538727.0	-190200.0	25.000	51.620	16.4583	4.3412	-0.3010	772	12
Celadonite	$K(MgAl)Si_4O_{10}(OH)_2$	-1305843.0 ^o	-1394899.0	74.900	157.100	80.2500	25.3000	-18.5400	727	2,13
Chalcedony	SiO_2	-204335.0 ^o	-217290.0 ^o	10.050 ^o	22.688	11.2200	8.2000	-2.7000	575	2,14
Chamosite-7A	$Fe_2Al_2SiO_5(OH)_4$	-826814.0 ^o	-901122.0 ^o	64.700	106.200	84.9100	25.4000	-18.7700	727	2,13
Clinoptilolite-Ca	$Ca_{0.55}Si_{4.9}Al_{1.1}O_{12}(H_2O)_{3.9}$	-1526609.0 ^o	-1654180.0 ^o	118.371 ^o	209.660 ^o	72.5260 ^o	167.3440 ^o	-10.9610 ^o	227	15
Clinoptilolite-K *	$K_{1.1}Si_{4.9}Al_{1.1}O_{12}(H_2O)_{3.9}$	-1530512.0	-1652053.0	150.130	209.660	66.3460	213.9790	-10.9220	227	15
Clinoptilolite-Na *	$Na_{1.1}Si_{4.9}Al_{1.1}O_{12}(H_2O)_{3.9}$	-1521478.0	-1645801.0	137.280	209.660	72.6275	174.8278	-10.9082	227	15
Daphnite-14A	$Fe_5Al_2Si_3O_{10}(OH)_8$	-1551520.0 ^o	-1696560.0 ^o	138.810 ^o	213.420	176.2100	43.7600	-33.8200	727	16
Daphnite-7A	$Fe_5A_2Si_3O_{10}(OH)_8$	-1544392.0 ^o	-1689504.0	138.900	221.200	172.5300	52.2800	-37.2300	575	2,13
Dawsonite *	$NaAlCO_3(OH)_2$	-426860.0	-469370.0	31.550	59.300	31.3000	9.3320	0.0000	300	17
Ettringite-Al	$Ca_6Al_2(SO_4)_3(OH)_{12}(H_2O)_{26}$	-3636181.0 ^o	-4205789.0 ^o	409.465 ^o	707.030	463.1300 ^o	188.0000 ^o	0.0000	60	18
Ettringite-CO3	$Ca_6Al_2(CO_3)_3(OH)_{12}(H_2O)_{26}$	-3483079.0 ^o	-4022149.0 ^o	419.515 ^o	650.400	448.4400 ^o	221.2850 ^o	15.6240 ^o	60	2a,19
Ettringite-Fe	$Ca_6Fe_2(SO_4)_3(OH)_{12}(H_2O)_{26}$	-3413463.0 ^o	-3980276.0 ^o	418.235 ^o	717.560	449.3810 ^o	222.3530 ^o	10.8400 ^o	60	2a,20
Fe(OH)2(cr) †	$Fe(OH)_2$	-120100.0	-138613.0	24.593	26.430	9.1364	2.7240	10.2778	288	21
Fe(OH)3(mic)	$Fe(OH)_3$	-170057.0 ^o	-201573.0 ^o	21.084 ^o	43.355 ^o	6.6500	12.4500	0.0000	50	4a,22
Faujasite-Ca *	$CaAl_2Si_4O_{12}(H_2O)_8$	-1829536.0	-2008288.0	181.637	280.160	109.5070	196.0570	-9.4560	227	15
Faujasite-Na *	$Na_2Al_2Si_4O_{12}(H_2O)_8$	-1820206.0	-1993055.0	216.017	280.160	109.6920	209.6630	-9.3590	227	15
Friedel_Salt *	$Ca_4Al_2(OH)_{12}Cl_2(H_2O)_4$	-1635700.0	-1830980.0	155.751	265.530	84.4150	25.1680	94.9540	100	2a,23

付録表 1-30 (続き)

Mineral	Formula	$\Delta_f G^\circ$ ⁱ	$\Delta_f H^\circ$ ⁱ	S° ⁱⁱ	V° ⁱⁱⁱ	Maier-Kelley coefficients ^a			$C_p t_{\max}$ ^{vi}	Ref
						a ⁱⁱ	$b \times 10^{3iv}$	$c \times 10^{-5v}$		
Friedel_Salt-Al	$\text{Ca}_4\text{Al}_2(\text{OH})_{12}\text{Cl}_2(\text{H}_2\text{O})_4$	-1630120.0 ^o	-1825400.0 ^o	155.751	265.530	84.4150 ^o	25.1680 ^o	94.9540 ^o	100	24
Friedel_Salt-Fe	$\text{Ca}_4\text{Fe}_2(\text{OH})_{12}\text{Cl}_2(\text{H}_2\text{O})_4$	-1410152.0	-1559984.0 ^o	307.578 ^o	277.853	135.3257	218.5143	3.2952	50	25
Goethite [†]	FeO_2H	-117140.0	-134070.0	14.300	20.820	4.4550	49.1640	-0.4140	99.6	26
Greenalite	$\text{Fe}_3\text{Si}_2\text{O}_5(\text{OH})_4$	-716530.0 ^o	-788483.0 ^o	72.600	115.000	81.6500	32.6000	-15.3900	727	2,13
Gypsum	$\text{CaSO}_4(\text{H}_2\text{O})_2$	-429600.0 ^o	-483420.0 ^o	46.400	74.690	41.9370 ^o	35.7130 ^o	-6.9720 ^o	60	27
Hemicarbonate-Al	$\text{Ca}_4\text{Al}_2(\text{CO}_3)_{0.5}(\text{OH})_{13}(\text{H}_2\text{O})_{5.5}$	-1755228.0	-1978324.0	170.273 ^o	284.515	147.9300	248.4180	-4.8820	100	19,22
Hemihydrate	$\text{CaSO}_4(\text{H}_2\text{O})_{0.5}$	-343280.0 ^o	-376490.0 ^o	32.060 ^o	61.730	29.6610	0.0000	0.0000	NR	4,5
Hemihydrate-alpha [*]	$\text{CaSO}_4(\text{H}_2\text{O})_{0.5}$	-343510.0	-377000.0	31.150	61.730	29.6606	0.0000	0.0000	NR	4a,5
Hemihydrate-beta [*]	$\text{CaSO}_4(\text{H}_2\text{O})_{0.5}$	-343280.0	-376490.0	32.060	61.730	29.6610	0.0000	0.0000	NR	4a,5
Heulandite-Ca [*]	$\text{CaAl}_2\text{Si}_7\text{O}_{18}(\text{H}_2\text{O})_6$	-2325836.0	-2520299.0	178.028	327.000	114.8860	239.2960	-15.7200	227	15
Heulandite-Na [*]	$\text{Na}_2\text{Al}_2\text{Si}_7\text{O}_{18}(\text{H}_2\text{O})_6$	-2316506.0	-2505066.0	212.409	327.000	115.0700	252.9020	-15.6240	227	15
Hydromagnesite	$\text{Mg}_5(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_4(\text{H}_2\text{O})_4$	-1401710.0 ^o	-1557090.0	120.380 ^o	208.800	141.4600	65.2800	-21.6700	727	2,28
Hydrotalcite-Al	$\text{Mg}_4\text{Al}_2(\text{OH})_{14}(\text{H}_2\text{O})_3$	-1530231.0	-1721717.0	131.160 ^o	220.200	80.6090	325.7140	-19.8290	100	4,22,29
Hydrotalcite-CO3II [*]	$\text{Mg}_3\text{Al}(\text{OH})_8(\text{CO}_3)_{0.5}(\text{H}_2\text{O})_{2.5}$	-1038203.0	-1166255.0	98.281	115.000	122.5140	0.0000	0.0000	70	4a,30
Hydrotalcite-FelI [*]	$\text{Mg}_3\text{Fe}(\text{OH})_8(\text{CO}_3)_{0.5}(\text{H}_2\text{O})_{2.5}$	-927974.0	-1055217.0	100.692	119.000	124.5870	0.0000	0.0000	70	4a,30
Illite	$\text{K}_{0.6}\text{Mg}_{0.25}\text{Al}_{2.3}\text{Si}_{3.5}\text{O}_{10}(\text{OH})_2$	-1303942.0 ^o	-1394709.0	63.676 ^o	138.940	86.0435	38.5670 ^o	-17.8230 ^o	327	13
Jennite(gel)	$\text{Ca}_{1.6667}\text{SiO}_{3.6667}(\text{H}_2\text{O})_{2.1}$	-593334.0 ^o	-651263.0 ^o	33.617 ^o	78.400	50.0790	28.6970	-7.3350	100	4a,22
K2O	K_2O	-77060.0 ^o	-86800.0 ^o	22.500 ^o	40.380	18.5100 ^o	8.6500 ^o	-0.8800 ^o	827	2,12
K2SO4(s)	K_2SO_4	-315353.0 ^o	-343698.0 ^o	41.519 ^o	65.500	28.7562 ^o	23.8143 ^o	-4.2463 ^o	583	4,31
K-Feldspar	KAISi_3O_8	-895610.0	-949459.0 ^o	51.130	108.870	76.6170	4.3110	-29.9450	1127	2,32
Kaolinite	$\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_5(\text{OH})_4$	-906020.0 ^o	-982630.0 ^o	48.530	99.520	72.7700	29.2000	-21.5200	727	2
Katoite-Al	$\text{Ca}_3\text{Al}_2(\text{OH})_{12}$	-1198870.0	-1325195.0	100.955 ^o	150.000	69.3120	153.9200	-7.7630	120	4a,33
Katoite-AlSi041	$\text{Ca}_3\text{Al}_2(\text{SiO}_4)_{0.41}(\text{OH})_{10.36}$	-1243151.8 ^o	-1363996.3 ^o	95.590 ^o	146.000 ^o	71.6668 ^o	141.3038 ^o	-9.2234 ^o	100	4a,34
Katoite-AlSi080	$\text{Ca}_3\text{Al}_2(\text{SiO}_4)_{0.8}(\text{OH})_{8.8}$	-1285134.0 ^o	-1401381.0 ^o	88.424 ^o	143.340	60.7480	131.6820	1.0220	90	4a,34
Katoite-AlSi084	Deleted (superseded by Katoite-AlSi080)	---	---	---	---	---	---	---	---	---
Katoite-Fe	$\text{Ca}_3\text{Fe}_2(\text{OH})_{12}$	-985368.0 ^o	-1079697.0 ^o	207.663 ^o	155.000 ^o	78.8720 ^o	304.2540 ^o	-11.3290 ^o	80	4a,34
Katoite-FeSi084 [*]	$\text{Ca}_3\text{Fe}_2(\text{SiO}_4)_{0.84}(\text{OH})_{8.64}$	-1070997.0	-1152908.0	200.666	149.000	88.6650	114.2550	-16.7990	60	4a,34
Katoite-FeSi095	Deleted (superseded by Katoite-FeSi095)	---	---	---	---	---	---	---	---	---
Katoite-FeSi134 [*]	$\text{Ca}_3\text{Fe}_2(\text{SiO}_4)_{1.34}(\text{OH})_{6.64}$	-1119253.0	-1193936.0	195.946	145.000	94.4070	91.5390	-20.0530	60	4a,34
Katoite-FeSi152	Deleted (superseded by Katoite-FeSi134)	---	---	---	---	---	---	---	---	---
KOH(s) [*]	KOH	-90553.0	-101500.0	18.849	27.450	21.7933	-2.6248	-4.9932	406	4a,31
Kuzel_Salt	$\text{Ca}_4\text{Al}_2(\text{SO}_4)_{0.5}\text{Cl}(\text{OH})_{12}(\text{H}_2\text{O})_6$	-1802247.0 ^o	-2054076.0	145.644 ^o	287.734	143.2800 ^o	266.9020 ^o	-0.7190 ^o	85	24
Laumontite(dia)	$\text{K}_0.6\text{Na}_{0.6}\text{Ca}_{5.4}\text{Al}_2\text{Si}_{24}\text{O}_{72}(\text{H}_2\text{O})_{24}$	-9616035.0 ^o	-10404390.0	716.501	1219.200	516.0670	825.5840	-54.4200	227	15,35
Leucite	KAISi_2O_6	-687354.0 ^o	-726255.0 ^o	47.850	88.390	35.4610	32.1000	-5.1570	682	31
Lime	CaO	-144353.0 ^o	-151790.0 ^o	9.500 ^o	16.764	11.6700	1.0800	-1.5600	1727	2,9,36
Magnesite	MgCO_3	-245658.0 ^o	-265630.0 ^o	15.738	28.018	19.7310	12.5390	-4.7480	727	2,9
Maximum_Microcline	KAISi_3O_8	-895610.0	-949489.0 ^o	51.130	108.741	63.8300	12.9000	-17.0500	1127	2,32
Minnesotaite	$\text{Fe}_3\text{Si}_4\text{O}_{10}(\text{OH})_2$	-1070057.0 ^o	-1153283.0 ^o	83.500	147.860	88.3100	42.6100	-11.1500	527	2,13
Monocarbonate-Al	$\text{Ca}_4\text{Al}_2(\text{CO}_3)(\text{OH})_{12}(\text{H}_2\text{O})_5$	-1755577.0	-1973532.0	156.997 ^o	261.958	147.6820	234.5970	-6.2000	80	4,19,22
Monocarbonate-Fe	$\text{Ca}_4\text{Fe}_2(\text{CO}_3)(\text{OH})_{12}(\text{H}_2\text{O})_6$	-1595119.0	-1788885.0 ^o	293.234 ^o	292.000	146.2720	277.2470	-1.3700	50	4,37
Monosulfate-Al	$\text{Ca}_4\text{Al}_2(\text{SO}_4)(\text{OH})_{12}(\text{H}_2\text{O})_6$	-1860989.0	-2093030.0	196.253 ^o	309.030	142.0120	279.1590	0.0000	80	4,19,22
Monosulfate-Fe	$\text{Ca}_4\text{Fe}_2(\text{SO}_4)(\text{OH})_{12}(\text{H}_2\text{O})_6$	-1642729.0	-1831327.4 ^o	341.355 ^o	321.000	137.9063	294.9331	4.8279	80	4,37

付録表 1-30 (続き)

Mineral	Formula	$\Delta_f G^{\circ i}$	$\Delta_f H^{\circ i}$	$S^{\circ ii}$	$V^{\circ iii}$	Maier-Kelley coefficients ^a			$C_p t_{\max}^{vi}$	Ref
						a^{ii}	$b \times 10^{3iv}$	$c \times 10^{-5v}$		
Monticellite	CaMgSiO ₄	-512816.0 ^o	-540800.0	26.400	51.470	36.8200	5.3400	-8.0000	1127	2,59
Montmor-Fe *	Fe _{0.165} Mg _{0.33} Al _{1.67} Si ₄ O ₁₀ (OH) ₂	-1255627.0	-1342993.0	65.155	132.478	71.7700	71.1370	-15.5020	247	2a,7,15
Montmor-Fe(avg) *	Fe _{0.295} Mg _{0.32} Al _{1.63} Si _{3.9325} O ₁₀ (OH) ₂	-1243445.0	-1330776.0	65.460	132.478	71.8310	71.8930	-15.3190	247	2a,7,15
Mordenite(dia)	K _{0.9} Na _{2.1} Ca _{1.5} Al ₆ Si ₃₀ O ₇₂ (H ₂ O) ₂₂	-9026685.0 ^o	-9762364.0	752.408	1273.500	413.2870	1058.4930	-66.7640	227	15,35
Mullite	Al ₆ Si ₂ O ₁₃	-1537114.0 ^o	-1627730.0 ^o	64.400 ^o	134.550	111.6132 ^o	12.8159 ^o	-33.7360 ^o	1527	31
Na ₂ O	Na ₂ O	-89883.0 ^o	-99140.0 ^o	17.935 ^o	25.000 ^o	18.2500 ^o	4.8900 ^o	-2.8900 ^o	727	2,12,38
NaAlO ₂ (s) *	NaAlO ₂	-256260.0	-271508.0	16.900	29.869	19.1800	7.1400	-3.3600	467	39
NaOH(s) *	NaOH	-90739.0	-101769.0	15.400	27.450	21.7933	-2.6248	-4.9932	323	31
Na ₂ SO ₄ (s)	Na ₂ SO ₄	-303530.0 ^o	-331690.0 ^o	35.750 ^o	53.330	13.9760 ^o	54.4290 ^o	0.0000 ^o	177	31
Natrolite	Na ₂ Al ₂ Si ₃ O ₁₀ (H ₂ O) ₂	-1276853.0 ^o	-1366938.0 ^o	105.843 ^o	169.720	69.6599 ^o	89.6178 ^o	-6.6419 ^o	227	2,15
Periclase	MgO	-136086.0 ^o	-143800.0 ^o	6.440 ^o	11.248 ^o	10.1800 ^o	1.7400 ^o	-1.4800 ^o	1827	2,12
Phillipsite-Ca	CaAl ₂ Si ₅ O ₁₄ (H ₂ O) ₅	-1862698.0 ^o	-2019552.0 ^o	141.452 ^o	265.000 ^o	97.9160 ^o	173.4990 ^o	-11.3240 ^o	227	2,15
Phillipsite-K	K ₂ Al ₂ Si ₅ O ₁₄ (H ₂ O) ₅	-1869793.0 ^o	-2015685.0 ^o	199.195 ^o	265.000	86.6790 ^o	258.2890 ^o	-11.2520 ^o	227	2,15
Phillipsite-Na	Na ₂ (Al ₂ Si ₅ O ₁₄ (H ₂ O) ₅)	-1853367.3 ^o	-2004318.6 ^o	175.832 ^o	265.000	98.1009 ^o	187.1047 ^o	-11.2271 ^o	227	2,15
Pyrite	FeS ₂	-38293.0 ^o	-41000.0 ^o	12.650	23.940	17.8800	1.3200	-3.0500	727	2,9,41
Ripidolite-14A	Mg ₃ Fe ₂ Al ₂ Si ₃ O ₁₀ (OH) ₈	-1798613.0 ^o	-1947355.0 ^o	130.407 ^o	209.634 ^o	170.3800 ^o	42.7600 ^o	-36.0100 ^o	NR	13
Ripidolite-7A [†]	Mg ₃ Fe ₂ Al ₂ Si ₃ O ₁₀ (OH) ₈	-1794011.0	-1944023.0	126.147	215.380	166.7000	51.2800	-39.4200	NR	13
Sepiolite	Mg ₄ Si ₆ O ₁₅ (OH) ₂ (H ₂ O) ₆	-2211770.0 ^o	-2418574.0 ^o	146.600	285.600	157.9200	104.3000	-18.6800	527	2,42
Siderite	FeCO ₃	-162426.0 ^o	-179878.0 ^o	22.819 ^o	29.378	21.3374 ^o	9.3868 ^o	-3.9901 ^o	327	26,43
Stratlingite-Al	Ca ₂ Al ₂ Si ₂ O ₇ (OH) ₁₀ (H ₂ O) ₃	-1365766.0 ^o	-1522132.0 ^o	130.673 ^o	216.110	93.9580	184.9190	-4.4740	100	19,22
Stratlingite-Fe	Ca ₂ Fe ₂ Si ₂ O ₇ (OH) ₁₀ (H ₂ O) ₃	-1149820.0 ^o	-1303508.0 ^o	139.049 ^o	227.000	89.9590	200.6990	0.3560	80	22
Syngenite	K ₂ Ca(SO ₄) ₂ (H ₂ O)	-690056.0 ^o	-758652.0 ^o	77.840 ^o	127.540	48.0790	73.6020	-4.2590	100	4a,29
Talc	Mg ₃ Si ₄ O ₁₀ (OH) ₂	-1320188.0	-1410919.0	62.340	136.250	82.4800 ^o	41.6100 ^o	13.3400 ^o	527	2,9
Thaumasite	Ca ₆ Si ₂ O ₆ (SO ₄) ₂ (CO ₃) ₂ (H ₂ O) ₃₀	-3616623.0 ^o	-4159287.0 ^o	427.943 ^o	660.000 ^o	492.8300 ^o	125.7170 ^o	-16.2280 ^o	70	4a,45
Thomsonite *	Na ₄ Ca ₆ Al ₂₀ Si ₂₀ O ₈₀ (H ₂ O) ₂₄	-11037667.0	-11902362.0	750.866	1359.600	661.9000	600.9480	-46.0600	227	15,35
Vaterite *	CaCO ₃	-269106.0	-287833.0	22.050	38.000	71.7600	26.8800	-58.3000	100	2,6
ZeoliteP-Ca *	CaAl ₂ Si _{2.66} O _{9.32} (H ₂ O) ₄	-1330462.0	-1445292.0	101.498	196.000	79.0380	99.2100	-6.1960	227	15,46

ⁱ cal/mol, ⁱⁱ cal/mol/K, ⁱⁱⁱ cm³/mol, ^{iv} cal/mol/K², ^v calK/mol, ^{vi} °C. * New entry in JAEA β-TDB (v1.06) TDB. [†] Previously listed as auxiliary data. ^a Enthalpy of formation, $\Delta_f H^{\circ}$ for all minerals calculated from Gibbs energy relation: $\Delta_f H^{\circ} = \Delta_f G^{\circ} + 298.15 \cdot \Sigma S^{\circ}$ (see Table 1-25). ^b Maier-Kelley equation as used in SUPCRT (Johnson et al., 1992), $C_p = a + b \cdot T + c \cdot T^{-2}$, where T is in Kelvin, from 0.01°C up to the temperature maximum shown under $C_p t_{\max}$. ^c Updated from JAEA β-TDB (v1.05).

References: 1: (Johnson et al., 1982). 2: (Helgeson et al., 1978). 2a Using methods described in 2. 3: (Wagman et al., 1982). 4: (Arthur et al., 2012). 4a: Using methods described in 4. 5: (Garvin et al., 1987). 6: (Plummer and Busenberg, 1982). 7: (Gailhanou et al., 2007). 8: (Wilson et al., 2015; Wilson et al., 2006). 9: (Robie and Waldbaum, 1968). 10: (Kelley, 1960; King, 1951; Todd, 1951). 11: (Coughlin, 1956; Kelley, 1960; King, 1955b). 12: (Stull and Prophet, 1971). 13: (Wolery and Jove-Colon, 2004). 14: (Arnorsson et al., 1983; Fournier and Rowe, 1966). 15: Using methods described in (Arthur et al., 2011; Vieillard, 2010). 16: (Saccocia and Seyfried, 1993). 17: (Benezeth et al., 2007; Robie et al., 1978). 18: (Atkins et al., 1992; Atkins et al., 1991; Baur et al., 2004; Damidot et al., 1992; Ederova and Satava, 1979; Ghorab and Kishar, 1985; Glasser et al., 1999; Lea and Desch, 1956; Macphee and Barnett, 2004; Perkins and Palmer, 1999; Warren and Reardon, 1994). 19: (Matschei et al., 2007). 20: (Möschner et al., 2008). 21: (Lemire et al., 2013; Ziemniak et al., 1995). 22: (Lothenbach et al., 2008). 23: (Zhang et al., 1980). 24: (Balonis et al., 2010; Birnin-Yauri and Glasser, 1998; Bothe and Brown, 2004; Glasser et al., 1999; Hobbs, 2001; Honda et al., 2009). 25: (Dilnesa, 2011). 26: (Lemire et al., 2013). 27: (Parker et al., 1971; Robie and Hemingway, 1995; Robie et al., 1989). 28: (Robie and Hemingway, 1973). 29: (Lothenbach and Winnefeld, 2006). 30: (Rozov et al., 2011). 31: (Robie et al., 1978). 32: (Sverjensky et al., 1991). 33: (Lothenbach et al., 2012). 34: (Dilnesa et al., 2014). 35: (Chipera and Apps, 2001). 36: (Huber and Holley, 1956). 37: (Dilnesa et al., 2011). 38: (O'Hare, 1972). 39: (Hemingway and Robie, 1977; Kelley, 1960; King, 1955a). 40: (Baes and Mesmer, 1976; Chase, 1998). 41: (Gronvold and Westrum, 1962; Mills, 1974). 42: (Stoessell, 1988). 43: (Robie et al., 1984). 44: (Alexander et al., 1954; Chen and Marshall, 1982; Elmer and Nordberg, 1958; Fournier and Rowe, 1977; Greenberg and Price, 1957; Gunnarsson and Arnórsson, 2000; Hitchen, 1935; Kitahara, 1960b; Marshall and Warakowski, 1980; Piryutko, 1959). 45: (Matschei and Glasser, 2015). 46: (Atkins et al., 1994).

付録表 1-31 JAEA β -TDB (v1.06)におけるハロゲンガスの熱力学特性と Maier-Kelley 式の係数

Mineral	Formula	$\Delta_f G^0$ ⁱ	$\Delta_f H^0$ ⁱ	S^0 ⁱⁱ	V^0 ⁱⁱⁱ	Maier-Kelley coefficients ^a			C_p t_{\max} ^{vi}	Ref
						a ⁱⁱ	$b \times 10^3$ ^{iv}	$c \times 10^5$ ^v		
Chlorine ^{*,†}	Cl ₂	0.0	0.0	53.920	0.000	8.8500	0.1600	-0.6800	2727	1
Fluorine ^{*,†}	F ₂	0.0	0.0	48.443	0.000	8.2600	0.6000	-0.8400	2227	1
Bromine [*]	Br ₂	-4193.0	7388.0	58.642	0.000	8.9200	0.1200	-0.3000	5727	2

ⁱ cal/mol, ⁱⁱ cal/mol/K, ⁱⁱⁱ cm³/mol, ^{iv} cal/mol/K², ^v calK/mol, ^{vi} °C. * New entry in JAEA β -TDB (v1.06) TDB. † Also shown in Table 1-25. ^a Maier-Kelley equation as used in SUPCRT (Johnson et al., 1992), $C_p = a + b \cdot T + c \cdot T^{-2}$, where T is in Kelvin, from 0.01°C up to the temperature maximum shown under C_p t_{\max} . ^b Enthalpy of formation, $\Delta_f H^0$ for bromine calculated from Gibbs energy relation: $\Delta_f H^0 = \Delta_f G^0 + 298.15 \cdot \sum S^0$ (see Table 1-25).

References: 1: (Cox, 1978; Kelley, 1960). 2: (Cox, 1978; Stull and Prophet, 1971).

参考文献

- Alexander, G. B., Heston, W. M., and Iler, R. K. (1954) The solubility of amorphous silica in water. *Journal of Physical Chemistry*, 58(6), 453-455.
- Anderson, G. M., and Burnham, C. W. (1965) The solubility of quartz in supercritical steam. *American Journal of Science*, 263, 494-511.
- Arnorsson, S., Gunnlaugsson, E., and Svavarsson, H. (1983) The chemistry of geothermal waters in Iceland. II. Mineral equilibria and independent variable controlling water compositions. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 47(3), 547-566.
- Arthur, R. C., Sasamoto, H., Walker, C., and Yui, M. (2011) Polymer model of zeolite thermochemical stability. *Clays and Clay Minerals*, 59(6), 626-639.
- Arthur, R. C., Sasamoto, H., Walker, C. S., and Yui, M. (2012) Development of a consistent set of standard thermodynamic properties for clay minerals, zeolites and Portland cement hydrates. 5th International Meeting on Clays in Natural and Engineered Barriers for Radioactive Waste Containment. October 22nd-25th 2012, Montpellier, France.
- Atkins, M., Glasser, F. P., and Kindness, A. (1992) Cement hydrate phases: solubility at 25°C. *Cement and Concrete Research*, 22(2-3), 241-246.
- Atkins, M., Glasser, F. P., Moroni, L. P., and Jack, J. J. (1994) Thermodynamic modelling of blended cements at elevated temperature (50-90°C). Department of the Environment (UK) HMIP report, DoE/HMIP/RR/94.011, 1-193.
- Atkins, M., Macphee, D. E., Kindness, A., and Glasser, F. P. (1991) Solubility properties of ternary and quaternary compounds in the CaO-Al₂O₃-SO₃-H₂O system. *Cement and Concrete Research*, 21(6), 991-998.
- Atkinson, A., Hearne, J. A., and Knights, C. F. (1989) Aqueous chemistry and thermodynamic modeling of CaO-SiO₂-H₂O gels. *Journal of the Chemical Society Dalton Transactions*(12), 2371-2379.
- Atkinson, A., Hearne, J. A., and Knights, C. F. (1991) Aqueous chemistry and thermodynamic modelling of CaO-SiO₂-H₂O gels at 80 °C. DOE (UK) Report, DoE/HMIP/RR/91/D45.
- Aveston, J. (1965) 821. Hydrolysis of sodium silicate: Ultracentrifugation in chloride solutions. *Journal of the Chemical Society*, 4444-4448.
- Baes, C. F., and Mesmer, R. E. (1976) *The hydrolysis of cations*. 490 p. John Wiley & Sons, Inc., New York, NY, USA.
- Balonis, M., Lothenbach, B., Le Saout, G., and Glasser, F. P. (2010) Impact of chloride on the mineralogy of hydrated Portland cement systems. *Cement and Concrete Research*, 40(7), 1009-1022.
- Barbarulo, R. (2002) *Comportement des matériaux cimentaires: Actions des sulfates et de la température*. Département de génie civil, Ph. D., p. 272. Université Laval, Québec, Canada.
- Barbero, J. A., Hepler, L. G., McCurdy, K. G., and Tremaine, P. R. (1983) Thermodynamics of aqueous carbon dioxide and sulfur dioxide: heat capacities, volumes, and the temperature dependence of ionization. *Canadian Journal of Chemistry*, 61, 2509-2519.
- Baur, I., Keller, P., Mavrocordatos, D., Wehrli, B., and Johnson, C. A. (2004) Dissolution-precipitation behaviour of ettringite, monosulfate, and calcium silicate hydrate. *Cement and Concrete Research*, 34(2), 341-348.
- Beaudoin, J. J., Ramachandran, V. S., and Feldman, R. F. (1990) Interaction of chloride and C-S-H. *Cement and Concrete Research*, 20(6), 875-883.
- Benezeth, P., Palmer, D. A., Anovitz, L. M., and Horita, J. (2007) Dawsonite synthesis and reevaluation of its thermodynamic properties from solubility measurements: Implications for mineral trapping of CO₂. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 71(18), 4438-4455.
- Bilinski, H., and Ingri, N. (1967) A determination of the formation constant of SiO(OH)₃⁻. *Acta Chemica Scandinavica*, 21, 2503-2510.
- Birnin-Yauri, U. A., and Glasser, F. P. (1998) Friedel's Salt, Ca₂Al(OH)₆(Cl, OH)_{0.6}:5H₂O: Its Solid Solutions and Their Role in Chloride Binding. *Cement and Concrete Research*, 28(12), 1713-1724.

- Blanc, P., Bourbon, X., Lassin, A., and Gaucher, E. C. (2010) Chemical model for cement-based materials: Temperature dependence of thermodynamic functions for nanocrystalline and crystalline C-S-H phases. *Cement and Concrete Research*, 40(6), 851-866.
- Bonaccorsi, E., Merlino, S., and Kampf, A. R. (2005) The Crystal Structure of Tobermorite 14 Å (Plombierite), a C-S-H Phase. *Journal of the American Ceramic Society*, 88(3), 505-512.
- Bothe, J. V., and Brown, P. W. (2004) Phreeqc modeling of Friedel's salt equilibria at 23 +/- 1°C. *Cement and Concrete Research*, 34(6), 1057-1063.
- Busey, R. H., and Mesmer, R. E. (1977) Ionization equilibria of silicic acid and polysilicate formation in aqueous sodium chloride solutions to 300°C. *Inorganic Chemistry*, 16(10), 2444-2450.
- Butler, J. N., and Huston, R. (1970) Activity coefficients and ion pairs in the systems sodium chloride - sodium bicarbonate - water and sodium chloride - sodium carbonate - water. *Journal of Physical Chemistry*, 74, 2976-2983.
- Capewell, S. G., Hefter, G., and May, P. M. (1998) Potentiometric investigation of the weak association of sodium and carbonate ions at 25°C. *Journal of Solution Chemistry*, 27, 868-877.
- Chambers, A. V., Heath, T. G., Hunter, F. M. I., Manning, M. C., and Williams, S. J. (2005) The effect of sodium chloride on the dissolution of calcium silicate hydrate gels, p. 38. Serco Assurance, Didcot, UK.
- Chase, M. W. J. (1998) NIST-JANAF Thermochemical tables (4th ed.) Part 1, Al-Co. *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, Monograph 9, 1951p.
- Chen, C.-T., A., and Marshall, W. L. (1982) Amorphous silica solubilities IV. Behavior in pure water and aqueous sodium chloride, sodium sulfate, magnesium chloride, and magnesium sulfate solutions up to 350°C. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 46(2), 279-287.
- Chen, J. J., Thomas, J. J., Taylor, H. F. W., and Jennings, H. M. (2004) Solubility and structure of calcium silicate hydrate. *Cement and Concrete Research*, 34(9), 1499-1519.
- Chipera, S. J., and Apps, J. A. (2001) Geochemical stability of natural zeolites. In D. L. Bish, and D. W. Ming, Eds. *Natural zeolites: Occurrence, properties, applications*, 45, p. 117-161. The Mineralogical Society of America, Washington, DC, USA.
- Cong, X., and Kirkpatrick, R. J. (1996) ²⁹Si MAS NMR of the structure of calcium silicate hydrate. *Advanced Cement Based Materials*, 3, 144-156.
- Coughlin, J. P. (1956) Heats of formation of crystalline CaO, Al₂O₃, 12CaO, 7Al₂O₃, and 3CaO, Al₂O₃. *Journal of the American Chemical Society*, 78(21), 5479-5482.
- Courault, A.-C. (2000) Simulation expérimentale des C-S-H dans les bétons modernes: Etude de la composition et des propriétés à l'équilibre dans des milieux complexes. *Laboratoire de Recherches sur la Réactivité des Solides*, Ph. D., p. 212. Université de Bourgogne, Dijon, France.
- Cox, J. D. (1978) CODATA recommended key values for thermodynamics, 1977 Report of the CODATA task group on key values for thermodynamics, 1977. *Journal of Chemical Thermodynamics*, 10, 903-906.
- Crea, F., De Stefano, C., Gianguzza, A., Piazzese, D., and Sammartano, S. (2006) Protonation of carbonate in aqueous tetraalkylammonium salts at 25°C. *Talanta*, 68, 1102-1112.
- Crerar, D. A., and Anderson, G. M. (1971) Solubility and solvation reactions of quartz in dilute hydrothermal solutions. *Chemical Geology*, 8(2), 107-122.
- Damidot, D., Atkins, M., Kindness, A., and Glasser, F. P. (1992) Sulfate attack on concrete: Limits of the Aft stability domain. *Cement and Concrete Research*, 22(2-3), 229-234.
- Davis, M. C., Wesolowski, D. J., Rosenqvist, J., Brantley, S. L., and Mueller, K. T. (2011) Solubility and near-equilibrium dissolution rates of quartz in dilute NaCl solutions at 398-473 K under alkaline conditions. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 75, 401-415.
- 日本原子力研究開発機構 (2013) : 地層処分技術調査等事業 T R U 廃棄物処分技術セメント材料影響評価技術高度化開発報告書. 2013. 3.

- 日本原子力研究開発機構 (2014) : 地層処分技術調査等事業セメント材料影響評価技術高度化開発報告書. 2014. 3.
- 日本原子力研究開発機構 (2015) : 地層処分技術調査等事業セメント材料影響評価技術高度化開発報告書. 2015. 3.
- Dilnesa, B. Z. (2011) Fe-containing hydrates and their fate during cement hydration: thermodynamic data and experimental study. Laboratoire des matériaux de construction, Ph.D., p. 208. École Polytechnique Fédérale de Lausanne, Lausanne.
- Dilnesa, B. Z., Lothenbach, B., Le Saout, G., Renaudin, G., Mesbah, A., Filinchuk, Y., Wichser, A., and Wieland, E. (2011) Iron in carbonate containing AFm phases. *Cement and Concrete Research*, 41(3), 311-323.
- Dilnesa, B. Z., Lothenbach, B., Renaudin, G., Wichser, A., and Kulik, D. A. (2014) Synthesis and characterization of hydrogarnet $\text{Ca}_3(\text{Al}_x\text{Fe}_{1-x})_2(\text{SiO}_4)_y(\text{OH})_{4(3-y)}$. *Cement and Concrete Research*, 59(May), 96-111.
- Ederova, J., and Satava, V. (1979) Heat capacities of C_3AH_6 , $\text{C}_4\text{A}\cdot\text{H}_{12}$ and $\text{C}_6\text{A}\cdot\text{H}_{32}$. *Thermochemica Acta*, 31, 126-128.
- Elmer, T. H., and Nordberg, L. C. (1958) Solubility of silica in nitric acid solutions. *Journal of the American Ceramic Society*, 41(12), 517-520.
- Flint, E. P., and Wells, L. S. (1934) Study of the system $\text{CaO-SiO}_2\text{-H}_2\text{O}$ at 30°C and of the reaction of water on anhydrous calcium silicates. *Journal of Research of the National Bureau of Standards*, 12, 751-783.
- Fournier, R. O. (1960) Solubility of quartz in the temperature interval from 250°C to 300°C . *Geological Society of America Bulletin*, 71, 1867-1868.
- Fournier, R. O., and Rowe, J. J. (1966) Estimation of underground temperatures from the silica content of water from hot springs and wet-steam wells. *American Journal of Science*, 264, 685-697.
- Fournier, R. O., and Rowe, J. J. (1977) The solubility of amorphous silica in water at high temperatures and pressures. *American Mineralogist*, 62, 1052-1056.
- Fujii, K., and Kondo, W. (1981) Heterogeneous equilibrium of calcium silicate hydrate in water at 30°C . *Journal of the Chemical Society, Dalton Transactions*, 2, 645-651.
- Gailhanou, H., van Miltenburg, J. C., Rogez, J., Olives, J., Amouric, M., Gaucher, E. C., and Blanc, P. (2007) Thermodynamic properties of anhydrous MX-80, Illite IMt2 and mixed layer illite-smectite ISCz-1 as determined by calorimetric methods, Part 1: Heat capacities, heat contents and entropies. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 71, 5463-5473.
- Garrels, R. M., Tompson, M. E., and Siever, R. (1961) Control of carbonate solubility by carbonate complexes *American Journal of Science*, 260, 57-66.
- Garvin, D., Parker, V. B., and White, H. J. (1987) CODATA Thermodynamic tables. Selections for some compounds of calcium and related mixtures: A prototype set of tables. Springer Verlag, Berlin, Germany.
- Ghorab, H. Y., and Kishar, E. A. (1985) Studies on the stability of the calcium sulfoaluminate hydrates. Part 1: Effect of temperature on the stability of ettringite in pure water. *Cement and Concrete Research*, 15, 93-99.
- Glasser, F. P., Tyrer, M., Quillin, K., Ross, D., Pedersen, J., Goldthorpe, K., Bennett, D., and Atkins, M. (1999) The chemistry of blended cement and backfills intended for use in radioactive waste disposal, p. 333. Environment Agency, Bristol, UK.
- Greenberg, S. A. (1958) The nature of the silicate species in sodium silicate solutions. *Journal of the American Chemical Society*, 80, 6508-6511.
- Greenberg, S. A., and Chang, T. N. (1965) Investigation of the colloidal hydrated calcium silicates. II. Solubility relationships in the calcium-silica-water system at 25°C . *Journal of Physical Chemistry*, 69(1), 182-188.
- Greenberg, S. A., and Price, E. W. (1957) The solubility of silica in solution of electrolytes. *Journal of Physical Chemistry*, 61, 1539-1541.

- Grenthe, I., Fuger, J., Konings, R. J. M., Lemire, R. J., Muller, A. B., Nguyen-Trung, C., Wanner, H., and Forest, I. (1992) Chemical thermodynamics of Uranium. North Holland Elsevier Science Publishers B.V., Amsterdam, The Netherlands.
- Gronvold, F., and Westrum, E. F. J. (1962) Heat capacities and thermodynamic functions of iron disulfide (pyrite), iron diselenide, and nickel diselenide from 5 to 3500K. The estimation of standard entropies of transition metal chalcogenides. *Inorganic Chemistry*, 1(1), 36-48.
- Grutzeck, M., Benesi, A., and Fanning, B. (1989) Silicon-29 magic angle spinning nuclear magnetic resonance study of calcium silicate hydrates. *Journal of the American Ceramic Society*, 72(4), 665-668.
- Guggenheim, E. A. (1952) Mixtures: The theory of the equilibrium properties of some simple classes of mixtures, solutions and alloys. 270 p. Oxford University Press, London, UK.
- Gunnarsson, I., and Arnórsson, S. (2000) Amorphous silica solubility and the thermodynamic properties of $H_4SiO_4^0$ in the range of 0° to 350°C at P_{sat} . *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 64(13), 2295-2307.
- Haas, J., and Nonat, A. (2015) From C-S-H to C-A-S-H: Experimental study and thermodynamic modelling. *Cement and Concrete Research*, 68(2), 124-138.
- Haas, J. L., and Robie, R. A. (1973) Thermodynamic data for wustite, $Fe_{0.947}O$, magnetite, Fe_3O_4 , and hematite, Fe_2O_3 . *American Geophysical Union Transactions*, 54, 483.
- Harris, A. W., Manning, M. C., Tearle, W. M., and Tweed, C. J. (2002) Testing of models of the dissolution of cements - leaching of synthetic CSH gels. *Cement and Concrete Research*, 32(5), 731-746.
- Helgeson, H. C., Delany, J. M., Nesbitt, H. W., and Bird, D. K. (1978) Summary and critique of the thermodynamic properties of rock-forming minerals. *American Journal of Science*, 278a, 1-229.
- Hemingway, B. S., and Robie, R. A. (1977) Enthalpies of formation of low albite ($NaAlSi_3O_8$), Gibbsite ($Al(OH)_3$), and $NaAlO_2$; Revised values for $\Delta H^{of, 298}$ and $\Delta G^{of, 298}$ of some aluminosilicate minerals. *United States Geological Survey Journal of Research*, 5(4), 413-429.
- Hemley, J. J., Montoya, J. W., Marinenko, J. W., and Luce, R. W. (1980) Equilibria in the system $Al_2O_3-SiO_2-H_2O$ and some general implications for alteration/mineralization processes. *Economic Geology*, 75(2), 210-228.
- Henocq, P. (2005) Modelisation des interactions ioniques a la surface des silicates de calcium hydrates, Ph.D., p. 204. L'Universite Laval, Quebec, Canada.
- Hitchen, S. (1935) A method for the experimental investigation of hydrothermal solutions, with notes on its application to the solubility of silica. *Transactions of the Institute of Mining and Metallurgy*, 44, 255-280.
- Hobbs, M. Y. (2001) Solubilities and ion exchange properties of solid solutions between the OH, Cl and CO₃ end members of the monocalcium aluminate hydrates. *Earth Sciences*, Ph.D., p. 206. University of Waterloo, Waterloo, Ontario, Canada.
- Honda, A., Masuda, K., Nakanishi, H., Fujita, H., and Negishi, K. (2009) Modeling of pH elevation due to the reaction of saline groundwater with hydrated ordinary Portland cement phases. *Materials Research Society Symposium Proceedings*, 1124(Q10-12).
- Howison, J. W., and Taylor, H. F. W. (1957) A method for the calculation of the specific gravities of calcium silicates from their refractive indices. *Magazine of Concrete Research*, 9(25), 13-16.
- Huber, E. J. J., and Holley, C. E. J. (1956) The heat of combustion of calcium. *Journal of Physical Chemistry*, 60(4), 498-499.
- Hummel, W., Berner, U., Curti, E., Pearson, F. J., and Thoenen, T. (2002) Nagra / PSI Chemical Thermodynamic Database 01/01. 589 p. Universal Publishers, Florida, USA.
- Ingri, N. (1959) Equilibrium studies of polyanions IV. Silicate ions in NaCl medium. *Acta Chemica Scandinavica*, 13, 758-775.

- Johnson, G.K., Flotow, H.E., and O'Hare, P.A.G. (1982) Thermodynamic studies of zeolites: analcime and dehydrated analcime. *American Mineralogist*, 67(7-8), 736-748.
- Johnson, J.W., Oelkers, E.H., and Helgeson, H.C. (1992) SUPCRT92: A software package for calculating the standard molal thermodynamic properties of minerals, gases, aqueous species, and reactions from 1 to 5000 bar and 0 to 1000 deg C. *Computers and Geosciences*, 18, 899-947.
- Kamei, G., Oda, C., Mitsui, S., Shibata, M., and Shinozaki, T. (1999) Fe(II)-Na ion exchange at interlayers of smectite: adsorption-desorption experiments and a natural analogue. *Engineering Geology*, 54, 15-20.
- Kelley, K.K. (1960) Contributions to the data in theoretical metallurgy XIII: High temperature heat content, heat capacities and entropy data for the elements and inorganic compounds. *United States Bureau of Mines Bulletin*, 584, 1-232.
- Kennedy, G.C. (1950) A portion of the system silica-water. *Economic Geology*, 45, 629-653.
- King, E.G. (1951) Heats of formation of crystalline calcium orthosilicate, tricalcium silicate and zinc orthosilicate. *Journal of the American Chemical Society*, 73, 656-658.
- King, E.G. (1955a) Heat capacities at low temperatures and entropies at 298.16 oK of aluminates and ferrites of lithium and sodium. *Journal of the American Chemical Society*, 77, 3189-3190.
- King, E.G. (1955b) Heat capacities at low temperatures and entropies at 298.16o K of crystalline calcium and magnesium aluminates. *Journal of Physical Chemistry*, 59, 218-219.
- Kitahara, S. (1960a) The polymerization of silicic acid obtained by the hydrothermal treatment of quartz and the solubility of amorphous silica. *Review of Physical Chemistry of Japan*, 30(2), 131-137.
- Kitahara, S. (1960b) The solubility of quartz in water at high temperature and pressures. *Review of Physical Chemistry of Japan*, 30(2), 109-114.
- L'Hôpital, E. (2014) Aluminium and alkali uptake in calcium silicate hydrates (C-S-H). *Laboratoire des Matériaux de Construction*, Ph.D., p. 172. *École Polytechnique Fédérale de Lausanne*.
- Lagerström, G. (1959) Equilibrium studies of polyanions III. Silicate ions in NaClO4 medium. *Acta Chemica Scandinavica*, 13, 722-736.
- Larson, T.E., Sollo, F.W.J., and McGurk, F.F. (1976) Complexes affecting the solubility of calcium carbonate in water - Phase II, *Water Resources Center Report 108*, p. 57. *University of Illinois at Urbana-Champaign, Urbana, IL, USA*.
- Lea, F., and Desch, C. (1956) *The chemistry of cement and concrete* (2nd ed.). *St. Martin's Press, New York, NY, USA*.
- Lemire, R. J., Berner, U., Musikas, C., Palmer, D. A., Taylor, P., and Tochiyama, O. (2013) *Chemical thermodynamics of Iron*, Part 1. *OECD Nuclear Energy Agency, Issy-les-Moulineaux, France*.
- Lenher, V., and Merrill, H.B. (1917) The solubility of silica. *Journal of the American Chemical Society*, 39, 2630-2640.
- Lothenbach, B., Matschei, T., Möschner, G., and Glasser, F.P. (2008) Thermodynamic modelling of the effect of temperature on the hydration and porosity of Portland cement. *Cement and Concrete Research*, 38(1), 1-18.
- Lothenbach, B., Pelletier-Chaignat, L., and Winnefeld, F. (2012) Stability in the system CaO- Al_2O_3 - H_2O . *Cement and Concrete Research*, 42(12), 1621-1634.
- Lothenbach, B., and Winnefeld, F. (2006) Thermodynamic modelling of the hydration of Portland cement. *Cement and Concrete Research*, 36(2), 209-226.
- Möschner, G., Lothenbach, B., Rose, J., Ulrich, A., Figi, R., and Kretzschmar, R. (2008) Solubility of Fe-ettringite ($Ca_6[Fe(OH)_6]_2(SO_4)_3 \cdot 26H_2O$). *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 72(1), 1-18.
- Mackenzie, F.T., and Gees, R. (1971) Quartz: Synthesis at earth surface conditions. *Science*, 173(3996), 533-535.

- Macphee, D.E., and Barnett, S.J. (2004) Solution properties of solids in the ettringite-thaumasite solid solution series. *Cement and Concrete Research*, 34(9), 1591-1598.
- Maier, C.G., and Kelly, K.K. (1932) An equation for the representation of high temperature heat content data. *Journal of the American Chemical Society*, 54(8), 3243-3246.
- Majer, V., and Stulik, K. (1982) A study of the stability of alkaline-earth metal complexes with fluoride and chloride ions at various temperatures by potentiometry with ion-selective electrodes. *Talanta*, 29(2), 145-148.
- Manning, C.E. (1994) The solubility of quartz in H₂O in the lower crust and upper-mantle. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 58, 4831-4839.
- Marshall, W.L. (1980) Amorphous silica solubilities -I. Behavior in aqueous sodium nitrate solutions; 25-300°C, 0-6 molal. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 44(7), 907-913.
- Marshall, W.L., and Warakowski, J.M. (1980) Amorphous silica solubilities-II. Effect of aqueous salt solutions at 25°C. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 44(7), 915-924.
- Matschei, T., and Glasser, F.P. (2015) Thermal stability of thaumasite. *Materials and Structures*, 48(7), 2277-2289.
- Matschei, T., Lothenbach, B., and Glasser, F.P. (2007) Thermodynamic properties of Portland cement hydrates in the system CaO-Al₂O₃-SiO₂-CaSO₄-CaCO₃-H₂O. *Cement and Concrete Research*, 37(10), 1379-1410.
- Mills, K.C. (1974) Thermodynamic data for inorganic sulphides, selenides and tellurides. 845 p. Butterworths, London, UK.
- Morey, G.W., Fournier, R.O., and Rowe, J.J. (1962) The solubility of quartz in water in the temperature interval from 250 to 300°C. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 26(10), 1029-1043.
- Morey, G.W., and Hesselgesser, J.M. (1951) The solubility of quartz and some other substances in superheated steam at high pressures. *American Society of Mechanical Engineers Transactions*, 73, 868-875.
- Myers, R.J., L'Hôpital, E., Provis, J.L., and Lothenbach, B. (2015a) Effect of temperature and aluminium on calcium (aluminosilicate) hydrate chemistry under equilibrium conditions. *Cement and Concrete Research*, 68, 83-93.
- Myers, R.J., L'Hôpital, E., Provis, J.L., and Lothenbach, B. (2015b) Composition-solubility-structure relationships in calcium (alkali) aluminosilicate hydrate (C-(N,K)-A-S-H). *Dalton Transactions*, 44, 13530-13544.
- Nakayama, F.S. (1971) Thermodynamic functions for the dissociation of NaHCO₃, NaCO₃⁻, H₂CO₃ and HCO₃⁻. *Journal of Inorganic Nuclear Chemistry*, 33, 1287-1291.
- O'Hare, P.A.G. (1972) Thermochemical and theoretical investigations of the sodium-oxygen system. I The standard enthalpy of formation of sodium oxide (Na₂O). *Journal of Chemical Physics*, 56(9), 4513-4516.
- 小田治恵, 柴田雅博, 油井三和 (1999) : 地層処分研究開発第2次取りまとめにおける緩衝材間隙水化学の評価 JNC TN8400 99-078
- Pabalan, R.T., and Pitzer, K.S. (1987) Thermodynamics of concentrated electrolyte mixtures and the prediction of mineral solubilities to high temperature for mixtures in the system Na-K-Mg-Cl-SO₄-OH-H₂O. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 51, 2429-2443.
- Palmer, D.A., and Wesolowski, D.J. (1997) Potentiometric measurements of the first hydrolysis quotient of magnesium(II) to 250°C and 5 molal ionic strength (NaCl). *Journal of Solution Chemistry*, 26(2), 217-232.
- Parker, V.B., Wagman, D.D., and Evans, W.H. (1971) Selected values of chemical thermodynamic properties. NBS Technical Note, p. 119. National Bureau of Standards, Washington, DC, USA.
- 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.
- Perkins, R. B., and Palmer, C. D. (1999) Solubility of ettringite ($\text{Ca}_6[\text{Al}(\text{OH})_6]_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 26\text{H}_2\text{O}$) at 5-75°C. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 13/14, 1969-1980.
- Phutela, R. C., and Pitzer, K. S. (1986) Densities and apparent molar volumes of aqueous magnesium sulfate and sodium sulfate to 473 K and 100 bar. *Journal of Chemical and Engineering Data*, 31(3), 320-327.
- Piryutko, M. M. (1959) The solubility of silicic acid in salt solutions. *Russian Chemical Bulletin*, 8(3), 355-360.
- Plummer, L. N., and Busenberg, E. (1982) The solubilities of calcite, aragonite and vaterite in $\text{CO}_2\text{-H}_2\text{O}$ solutions between 0 and 90°C, and an evaluation of the aqueous model for the system $\text{CaCO}_3\text{-CO}_2\text{-H}_2\text{O}$. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 46(6), 1011-1040.
- Pointeau, I. (2000) Etude mecanistique et modelisation de la retention de radionucleides par les silicates de calcium hydrates (CSH) des ciments. *Chimie, Ph.D.*, p. 198. L'Universite de Reims Champagne-Ardenne, Reims, France.
- Redlich, O., and Kister, A. T. (1948) Thermodynamics of non-electrolyte solutions, x-y-t relations in a binary system. *Industrial and Engineering Chemistry*, 40(2), 341-345.
- Richardson, C. K., and Holland, H. D. (1979) The solubility of fluoride in hydrothermal solutions, an experimental study. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 43(8), 1313-1325.
- Rimstidt, J. D. (1997) Quartz solubility at low temperatures. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 61(13), 2553-2558.
- Robie, R. A., Haselton, H. T. J., and Hemingway, B. S. (1984) Heat capacities and entropies of rhodochrosite (MnCO_3) and siderite (FeCO_3) between 5 and 600 K. *American Mineralogist*, 69, 349-357.
- Robie, R. A., and Hemingway, B. S. (1973) The enthalpies of formation of nequehonite, $\text{MgCO}_3 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$, and hydromagnesite, $5\text{MgO} \cdot 4\text{CO}_2 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$. *United States Geological Survey Journal of Research*, 1(5), 543-547.
- . (1995) Thermodynamic properties of minerals and related substances at 298.15 K and 1 bar (10^5 pascals) pressure and at higher temperatures. *United States Geological Survey Bulletin*, 2131, 461.
- Robie, R. A., Hemingway, B. S., and Fisher, J. R. (1978) Thermodynamic properties of minerals and related substances at 298.15K and 1 bar (10^5 pascals) pressure and at higher temperatures. *United States Geological Survey Bulletin*, 1452, 456.
- Robie, R. A., Russell-Robinson, S., and Hemingway, B. S. (1989) Heat capacities and entropies from 8 to 1000 K of langbeinite ($\text{K}_2\text{Mg}_2(\text{SO}_4)_3$), anhydrite (CaSO_4) and of gypsum ($\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$) to 325 K. *Thermochimica Acta*, 139, 67-81.
- Robie, R. A., and Waldbaum, D. R. (1968) Thermodynamic properties of minerals and related substances at 298.15oK (25.0oC) and one atmosphere (1.013 bars) pressure and at higher temperatures. *United States Geological Survey Bulletin*, 1259, 1-256.
- Roller, P. S., and Ervin, G., Jr. (1940) The system calcium-silica-water at 30°. The association of silicate ion in dilute alkaline solution. *Journal of the American Chemical Society*, 62(3), 461-471.
- Rozov, K., Berner, U., Kulik, D. A., and Diamond, L. W. (2011) Solubility and thermodynamic properties of carbonate-bearing hydrotalcite-pyroaurite solid solutions with a 3:1 Mg/(Al+Fe) mole ratio. *Clays and Clay Minerals*, 59, 215-232.
- Saccoccia, P. J., and Seyfried, W. E. J. (1993) A resolution of discrepant thermodynamic properties for chamosite retrieved from experimental and empirical techniques. *American Mineralogist*, 78(5-6), 607-611.
- Santschi, P. H., and Schindler, P. W. (1974) Complex formation in the ternary systems $\text{CaII-H}_4\text{SiO}_4\text{-H}_2\text{O}$ and $\text{MgII-H}_4\text{SiO}_4\text{-H}_2\text{O}$. *Journal of the Chemical Society, Dalton Transactions*(2), 181-184.

- Schwarz, R., and Müller, W.D. (1958) Zur Kenntnis der Kieselsäuren. XIV. Die wasserlösliche Monokieselsäure. *Zeitschrift für Anorganische und Allgemeine Chemie*, 296(1-6), 273-279.
- Seward, T.M. (1974) Determination of the first ionization constant of silicic acid from quartz solubility in borate buffer solutions to 350°C. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 38(11), 1651-1664.
- Shock, E.L., and Helgeson, H.C. (1988) Calculation of the thermodynamic and transport properties of aqueous species at high pressures and temperatures: Correlation algorithms for ionic species and equation of state predictions to 5 kb and 1000 degC. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 52, 2009-2036.
- Shock, E.L., Helgeson, H.C., and Sverjensky, D.A. (1989) Calculation of the thermodynamic and transport properties of aqueous species at high pressures and temperatures: Standard partial molal properties of inorganic neutral species. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 53, 2157-2183.
- Shock, E.L., Sassani, D.C., Willis, M., and Sverjensky, D.A. (1997) Inorganic species in geological fluids: Correlations among standard molal thermodynamic properties of aqueous ions and hydroxide complexes. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 61(5), 907-950.
- Siever, R. (1962) Silica solubility, 0°-200°C, and the diagenesis of siliceous sediments. *Journal of Geology*, 70(2), 127-150.
- Sjöberg, S., Hägglund, Y., Nordin, A., and Ingri, N. (1983) Equilibrium and structural studies of silicon(IV) and aluminium(III) in aqueous solution. V. Acidity constants of silicic acid and the ionic product of water in the medium range 0.05-2.0 M Na(Cl) at 25°C. *Marine Chemistry*, 13, 35-44.
- Sjöberg, S., Nordin, A., and Ingri, N. (1981) Equilibrium and structural studies of silicon(IV) and aluminium(III) in aqueous solution II. Formation constants for the monosilicate ions $\text{SiO}(\text{OH})_3^-$ and $\text{SiO}_2(\text{OH})_2^{2-}$. A precision study at 25°C in a simplified seawater medium. *Marine Chemistry*, 10, 521-532.
- Stefánsson, A., Bénézech, P., and Schott, J. (2013) Carbonic acid ionization and the stability of sodium bicarbonate and carbonate ion pairs to 200°C - A potentiometric and spectrophotometric study. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 120, 600-611.
- Stoessell, R.K. (1988) 25°C and 1 atm dissolution experiments of sepiolite and kerolite. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 52, 365-374.
- Stull, D.R., and Prophet, H. (1971) JANAF Thermochemical Tables, p. 1141. National Bureau of Standards, Washington DC, USA.
- Sugiyama, D. (2008) Chemical alteration of calcium silicate hydrate (C-S-H) in sodium chloride solution. *Cement and Concrete Research*, 38(12), 1270-1275.
- Sverjensky, D.A., Harrison, B., and Azzolini, D. (2014) Water in the deep Earth: The dielectric constant and the solubilities of quartz and corundum to 60 kb and 1200 °C. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 129, 125-145.
- Sverjensky, D.A., Hemley, J.J., and D'Angelo, W.M. (1991) Thermodynamic assessment of hydrothermal alkali feldspar-mica-aluminosilicate equilibria. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 55(4), 989-1004.
- Sverjensky, D.A., Shock, E.L., and Helgeson, H.C. (1997) Prediction of the thermodynamic properties of aqueous metal complexes to 1000 C and 5 kb. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 61(7), 1359-1412.
- Swanton, S.W., Fairbrother, H.J., and Turner, N.A. (2005) The effect of sodium chloride on the dissolution of calcium silicate hydrate gels. II. Effect of temperature and cation type. Serco Assurance, UK, Report SA/ENV-0725, p. 32.
- Tanger, J.C., and Helgeson, H.C. (1988) Calculation of the thermodynamic properties of aqueous species at high pressures and temperatures: Revised equations of state for the standard partial molal properties of ions and electrolytes. *American Journal of Science*, 288, 19-98.

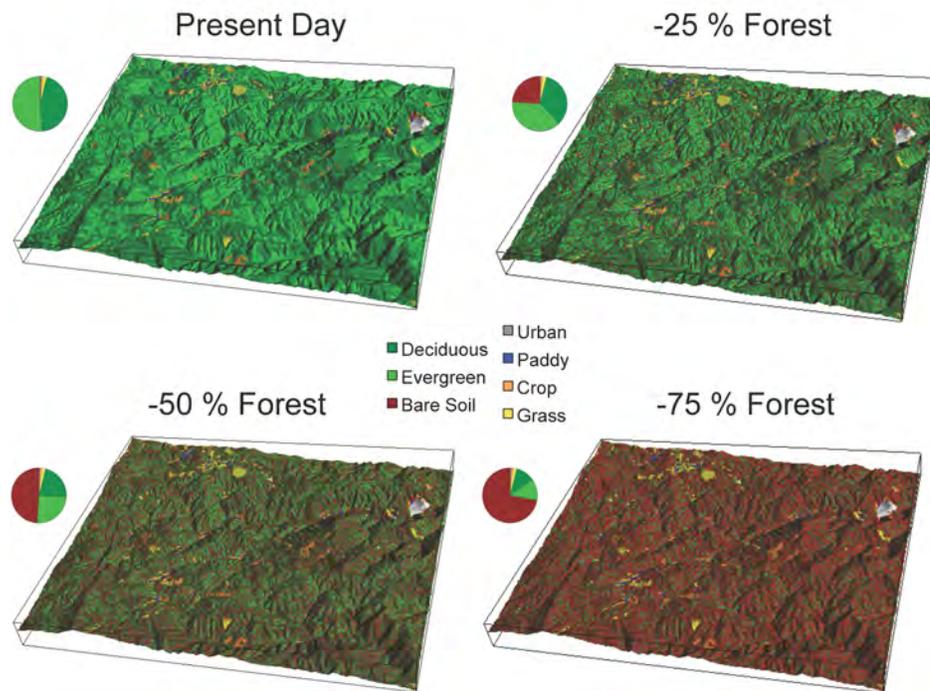
- Tardy, Y., and Garrels, R.M. (1974) A method of estimating the Gibbs energies of formation of layer silicates. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 38(7), 1101-1116.
- Taylor, H.F.W., and Howison, J.W. (1956) Relationships between calcium silicates and clay minerals. *Clay Minerals*, 3(16), 98-111.
- Todd, S.S. (1951) Low temperature heat capacities and entropies at 298.16 oK of crystalline calcium orthosilicate, zinc orthosilicate and tricalcium silicate. *Journal of the American Chemical Society*, 73, 3277-3278.
- Torapote-Barreira, A., Cama, J. and Soler, J.M. (2014): Dissolution kinetics of C-S-H gel: Flow-through experiments. *Physics and Chemistry of the Earth*, Vol.70-71, 17-31.
- Van Lier, J.A., de Bruyn, P.L., and Overbeek, J.T.G. (1960) The solubility of quartz. *Journal of Physical Chemistry*, 64(11), 1675-1682.
- Vieillard, P. (2010) A predictive model for the entropies and heat capacities of zeolites. *European Journal of Mineralogy*, 22, 823-836.
- Wagman, D.D., Evans, W.H., Parker, V.B., Schumm, R.H., Halow, I., Bailey, S.M., Churney, K.L., and Nuttall, R.L. (1982) The NBS tables of chemical thermodynamic properties, selected values for inorganic and c1 and c2 organic substances in SI units. *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, 11(2), 1-392.
- Walker, C.S., Savage, D., Tyrer, M., and Ragnarsdottir, K.V. (2007) Non-ideal solid solution aqueous solution modeling of synthetic calcium silicate hydrate. *Cement and Concrete Research*, 37(4), 502-511.
- Walker, C.S., Sutou, S., Oda, C., Mihara, M., and Honda, A. (2016) Calcium silicate hydrate (C-S-H) gel solubility data and a discrete solid phase model at 25°C based on two binary non-ideal solid solutions. *Cement and Concrete Research*, 79, 1-30.
- Walther, J.V., and Orville, P.M. (1983) The extraction-quench technique for determination of the thermodynamic properties of solute complexes: application to quartz solubility in fluid mixtures. *American Mineralogist*, 68(7-8), 731-741.
- Warren, C.J., and Reardon, E.J. (1994) The solubility of ettringite at 25°C. *Cement and Concrete Research*, 24(8), 1515-1524.
- Weill, D.F., and Fyfe, W.S. (1964) The solubility of quartz in H₂O in the range 1000-4000 bars and 400-500oC. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 28(8), 1243-1255.
- Wilson, J.C., Benbow, S., Sasamoto, H., Savage, D., and Watson, C. (2015) Thermodynamic and fully-coupled reactive transport models of a steel-bentonite interface. *Applied Geochemistry*, 61, 10-28.
- Wilson, J.C., Savage, D., Cuadros, J., Shibata, M., and Ragnarsdottir, K.V. (2006) The effect of iron on montmorillonite stability. (I) Background and thermodynamic considerations. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 70(2), 306-322.
- Wolery, T.J., and Jove-Colon, C.F. (2004) Qualification of thermodynamic data for geochemical modeling of mineral-water interactions in dilute systems. Bechtel Saic Company LLC, Las Vegas, NV, USA.
- Xie, Z., and Walther, J.V. (1993) Quartz solubilities in NaCl solutions with and without wollastonite at elevated temperatures and pressures. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 57, 1947-1955.
- Zhang, F., Zhou, Z., and Lou, Z. (1980) Solubility product and stability of ettringite. *Proceedings of the 7th International Symposium on the Chemistry of Cement*, II, 88-93.
- Ziemniak, S.E., Jones, M.E., and Combs, K.E.S. (1995) Magnetite solubility and phase stability in alkaline media at elevated temperatures. *Journal of Solution Chemistry*, 24(9), 837-877.

付録 2

2015 年度 JAEA-LBNL 共同研究報告書



FY15 Annual Report



JAEA-LBNL Collaboration on

“Repository Geoscience and PA Technology Development”

Task C: Contribute to the Compilation of Knowledgebase of Repository Science and Technology

*Erica Woodburn, Laura N. Lammers, Carl I. Steefel, Kenneth
Williams, Ian C. Bourg, Garrison Sposito, Jens Birkholzer
Earth Sciences Division, Lawrence Berkeley National Laboratory
Berkeley, CA 94720*

March 2016

JAEA-LBNL Collaboration on
“Repository Geoscience and PA Technology Development”

**Task C: Contribution to a Knowledge Base of Repository
Science and Technology**

Erica Woodburn, Carl Steefel, Kenneth Williams

I. Accomplishments Summary

Since the last reporting period in April 2015, the following key objectives have been addressed. Preliminary outcomes are the development of tools related to mechanistic biosphere models including:

- A demonstration of risk management scenarios via integrated hydrologic models including land area and land use (LALU) effects
- Proposed methods for dynamic vegetation integration into hydrologic simulation
- Advancements related to hydrologic spin-up simulation times
- Assessment of topographic terrain processing and the impact on flow patterns

II. Background

Environmental contamination, climate change, and land-use change affect the interactions among the vegetation, soil, fluvial, and subsurface compartments of watersheds today. Understanding the functions of the biosphere is important to assess and predict water quality and quantity in the future. However, developing a predictive understanding of watersheds is challenging as complex interactions occurring within a heterogeneous watershed affect things such as the surface energy cycle, water availability, nutrient and metals loading, and carbon cycling. These interactions can have significant implications for energy production, agriculture, water quality, and other benefits valued by society. In this work we develop a number of tools related to mechanistic biosphere modeling at the watershed scale to aid in a better understanding of watershed dynamics.

III. Mechanistic Biosphere Simulation

With the use of integrated hydrologic watershed model simulators, increasingly high resolution and high fidelity hydrologic models can be used to capture the non-linear dynamics of a watershed system. We propose a modeling approach using the integrated physical hydrologic model ParFlow (Ashby and Falgout, 1996; Jones and Woodward, 2001; Kollet and Maxwell, 2006). This simulator was designed for massively parallel computer environments (Kollet et al., 2010) thus making it an excellent candidate where high-resolution data is available.

ParFlow is an “integrated” biosphere model meaning that multiple equations are used to solve different compartments of the domain. For example, variably saturated groundwater flow is solved using three-dimensional Richards equation, overland flow is solved using the two dimensional kinematic or diffusive wave equations, and flow depth-discharge is solved using Mannings equation. The incorporation of meteorological forcing (wind, temperature, radiation, precipitation, humidity, and pressure) is possible through integration with a seamlessly coupled land model, the Common Land Model (CLM). CLM calculates a coupled water energy balance at every surface cell of the domain (Dai et al., 2001) and incorporates spatially distributed vegetative processes by incorporating specified land use types. Parameters such as leaf dimensions, rooting distribution, leaf and stem area index, reflectance, and transmittance are incorporated into the simulations. Through this integrated setup, ParFlow is capable of simulating the entire critical zone (CZ) from the top of the forest canopy and surrounding atmosphere to the bottom of the host rock material, as shown in Figure 1.

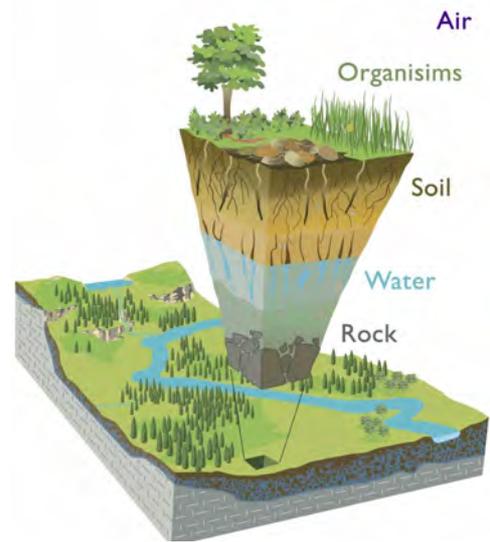


Figure 1. Schematic illustration of the regions encompassing the critical zone (CZ), all of which are captured in our biosphere model (criticalzone.org).

III.1. Risk Management Scenarios with mechanistic biosphere simulation

As a demonstration of the biosphere model’s capabilities in risk management, a number of scenarios were considered and implemented into numerical experiments. For demonstration, we simulate forest thinning risk management scenarios which could be important to understand the impact on water quality and quantity within a given region. We use a large-scale, high-resolution watershed model spanning approximately 8.3 by 6.8 km laterally and 21 m vertically. The lateral discretization is 12.4 m with a range of vertical discretization from 0.3-10 m, where near-surface soils are the most highly resolved. The number of cells in this watershed model is approximately 1.8 million, requiring the use of high performance computing.

The subsurface is comprised of five layers which constitute two stratified units with the following properties: layers 1 and 2 (top 1.0 m) have an associated hydraulic conductivity of $K = 3.6 \times 10^{-2}$ (m/h) and a porosity of $\theta = 0.3$ (-); layers 3-5 (bottom 20.0 m) have an associated hydraulic conductivity of $K = 3.6 \times 10^{-3}$ (m/h) and a porosity of $\theta = 0.2$ (-). The entire domain utilizes the Van Genuchten parameters of $\alpha = 3.5$ and $N = 2.0$. Laterally heterogeneous subsurface porous media were avoided in this demonstration as the focus is to illustrate how different land use and land cover changes impact the water-energy budget, and therefore a heterogeneous subsurface would impair this comparison. Seven land use and land cover types cover the model domain, which is primarily a combination of deciduous and evergreen forests (~96%). As a control, a first simulation referred to hereafter as the “base case” utilizes the present day land use and land cover types, as shown in Figure 2a.

Three subsequent simulations are run as part of the numerical experiment and risk management demonstration. Figures 2 b-d show sequential decreases in the base case forest land cover (both deciduous and evergreen) by 25, 50, and 75 percent

(respectively). Forest locations are replaced with bare soil land cover types randomly throughout the domain, as shown in Figure 2.

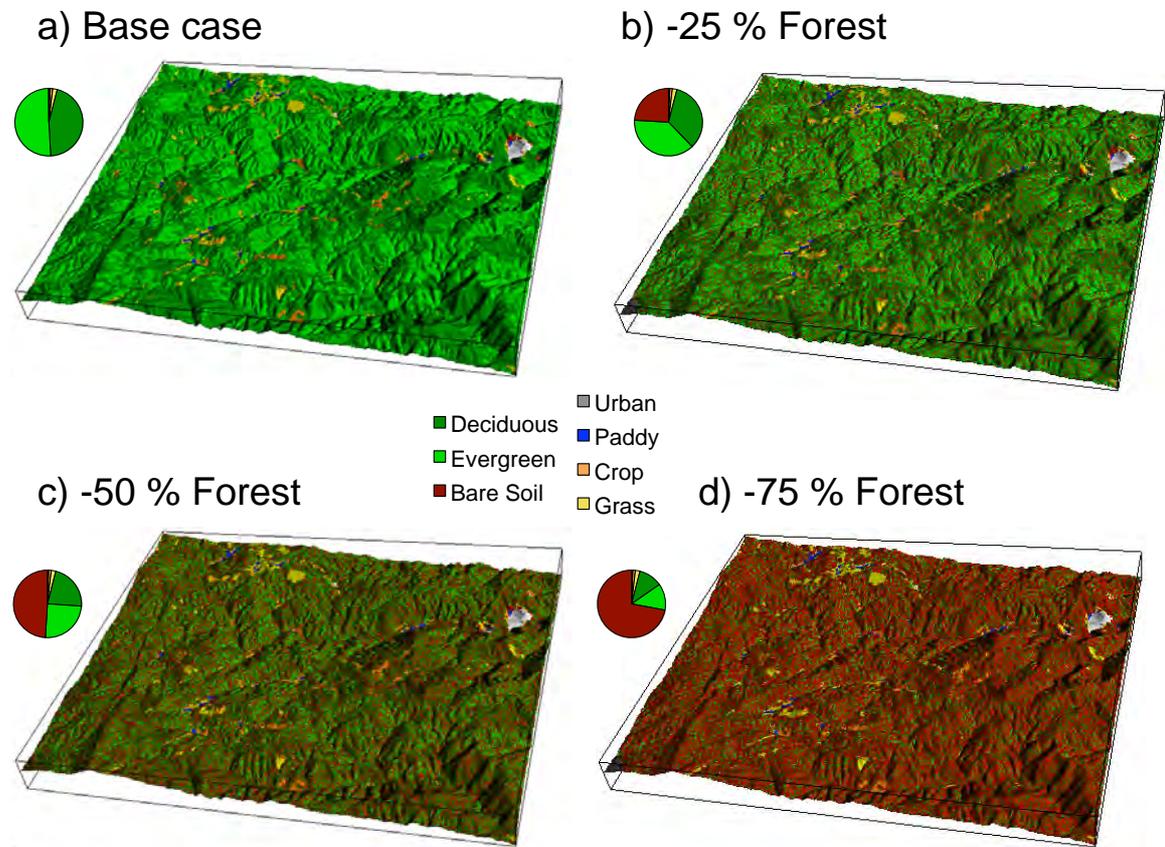


Figure 2. Land use and land cover (LULC) base case (a) and three forest management scenarios (c-d).

For all numerical experiments (base case and forest management scenarios -25, -50, and -75% forest cover), the same atmospheric forcing is used. Hourly parameterization inputs include: long and short wave solar radiation, humidity, wind direction and magnitude, atmospheric pressure, and temperature. A 48-hour simulation covering a high intensity rainfall event was used to determine the impact of forest cover on the water-energy budget. The precipitation signal used is shown in Figure 3.

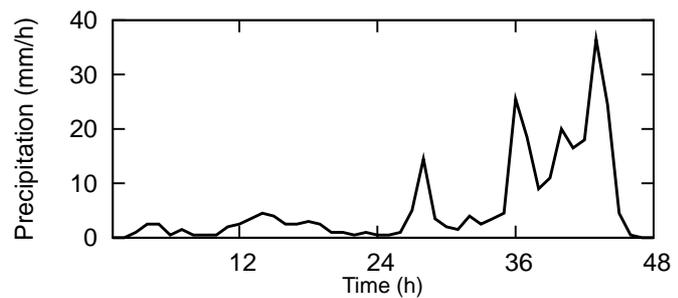


Figure 3. Two day precipitation signal used in numerical experiments.

Figure 4a shows an example sub-region of the base-case model domain where different land use and land cover types such as rice paddy and crops are located within a majority of forested land (see key in Figure 2). Figure 4b illustrates how evaporation spatially differs in these land cover regions within a watershed. For example, the paddy and croplands may have a lower associated evaporation flux compared to the forested regions of the watershed. It is important to note that a number of factors control the water-energy cycle in this integrated system. Water

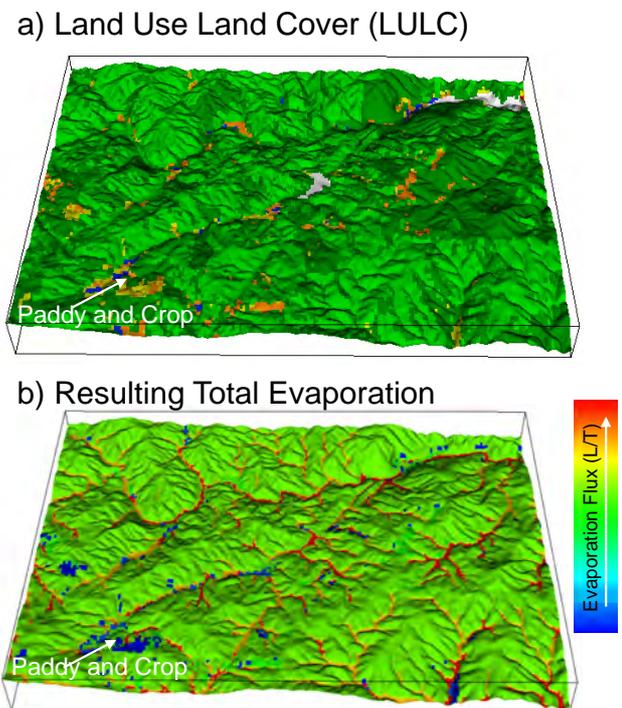


Figure 4. Example sub-region of the base case model domain (a) and the resulting total evaporation at a snap-shot in time (b).

flow is complex across the different compartments of the domain (saturated, vadose, and surface water) and is impacted by topography and the parameterization of the land use types in the land model. The numerical experiments outlined above capture these dynamics, and are quantified in our results by tracking the amount of model surface area emerging with “new” overland flow. We define new overland flow area as any cell within the model domain which prior to the onset of the 48 hour atmospheric forcing did not contain surface water but does after at any point during the precipitation signal in Figure 3. We focus on the appearance and disappearance of surface water as 1) it links across the different hydrologic domains of the watershed (the vadose zone and

therefore deeper groundwater) and 2) surface processes such as surface evaporation into the atmosphere and evapotranspiration via vegetation.

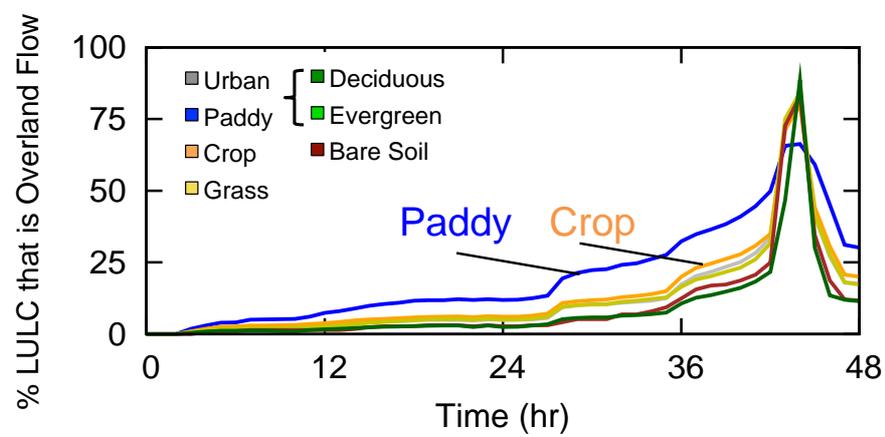


Figure 5. Overland flow watershed area as a function of time within the 48 hour numerical experiment for the base case land cover type. Results are normalized by the relative amount of each land use and land cover type present within the domain.

The results from the base case simulation for “new” overland flow area are shown in Figure 5 as a function of time. Overland flow area is divided by land use and land cover types and normalized by the relative area of these regions within the watershed. Due to the high presence of forests within the base case scenario, the highest areas experiencing an increase in overland flow are the forests. However, as shown in Figure 5 when normalized by the relative abundance of the different land use types within the watershed, the rice paddy and croplands show the highest amount of potential for surface water. This is likely due to the lower canopy cover and evapotranspiration associated with these land cover types when compared to forests. As shown in Figure 5, forests act as a buffer in the system, essentially removing water out through canopy interception and evapotranspiration during light to moderate rainfall. Only at the extreme rainfall intensity close to 40 mm/h (at approximately 42 hours into the simulation) does surface water begin to form within the forests.

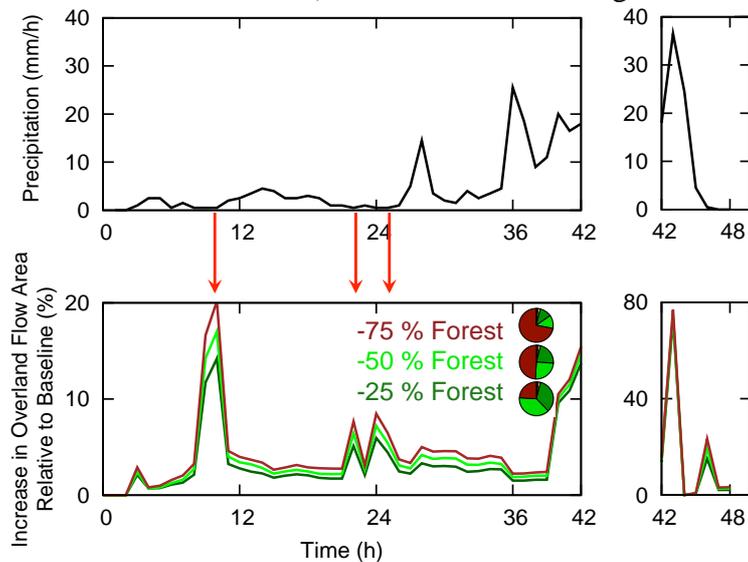


Figure 6. Risk management forest thinning simulation results relative to the baseline simulation.

The results from the risk management simulations for “new” overland flow area are shown in Figure 6 as a function of time. The precipitation signal is also shown for direct comparison. Total overland flow area is compared (in contrast to Figure 5 which shows area by land use type) as a percent relative increase from the base case total overland flow area. In the first 42 hours of simulation during light to moderate rainfall, it is clear that less forest cover results in more new overland flow area. However, the relationship is not linear. In other words, the difference between a 25% and 50% decrease in forest cover does not correspond to a difference of relative overland flow area increase by 25%. The peaks in the relative increase signal (denoted with three red arrows) appear when the precipitation signal tends towards zero. In the three forest thinning scenarios which contain a higher amount of bare soil than the base case, the total amount of new overland flow within the watershed remain constant. In the base case scenario that is mainly populated with forestland, the total amount of new overland flow within the watershed actually decreases, thus causing a bigger discrepancy in the relative difference from the forest thinning scenarios. The reason can be attributed to the forest’s ability to capture and/or remove water that would otherwise result in surface water via processes such as canopy interception and evapotranspiration.

During the peak precipitation signal after hour 42, the increase of new overland flow is drastically higher for the forest thinning scenarios relative to the base case (note the y-axis change in Figure 6). Subsequent to the highest precipitation signal around hour 44, the entire watershed is at maximum saturation, and there is not any difference between the baseline and forest management scenarios (thus a relative increase of 0%).

This demonstration of risk management scenarios illustrates the utilization of a mechanistic biosphere model to assess the integrated behavior of different management scenarios such as forest thinning. Future work includes assessing the spatial correlation of different components of the watershed with the resulting fluxes in the water-energy budget. Examples include cross-correlations between topography (such as slope, aspect, and length of hillside) with land use and land cover type and the effect on evaporation and other parameters such as latent heat flux.

III.2. Proposed methods for dynamic vegetation simulation and integration into hydrologic simulation

As illustration in the previous section, the impact of vegetation type on the water-energy balance can be profound. It is also important to consider changes in vegetation structure and spatial distributions over time, as these have an impact on water, carbon, nutrient and metal fluxes at the watershed scale. Surface-subsurface hydrology models such as ParFlow have incorporated the impacts of vegetation on water fluxes across compartments (specifically across the ground surface, in the ParFlow case) to represent infiltration, evapotranspiration, and root uptake processes. However, these vegetation models are not truly dynamic in the sense that the majority of parameters related to photosynthesis are time invariant. For example, litter fall, tree mortality, or growth are not accounted for. Further, accounting of carbon or nitrogen cycling or key processes such as tree mortality, which are critical to capture vegetation dynamics and the effect on overall watershed biogeochemistry, have not been included.

Recently, land models such as the CLM can solve the governing equations for energy, water, and C-N balances, which are necessary to simulate vegetation dynamics at relevant scales. Examples of DV packages are CLM-NCDV (Carbon Nitrogen Dynamic Vegetation) or CLM-ED (Ecosystem demography model). The development of dynamic vegetation models is however an active area of effort and interest across many DOE-funded projects, including the ACME, NGEA-Arctic and -Tropics, and Biofuels programs. Rather than developing a new DV model, we seek to incorporate existing and future models into watershed-scale hydrological models, with the

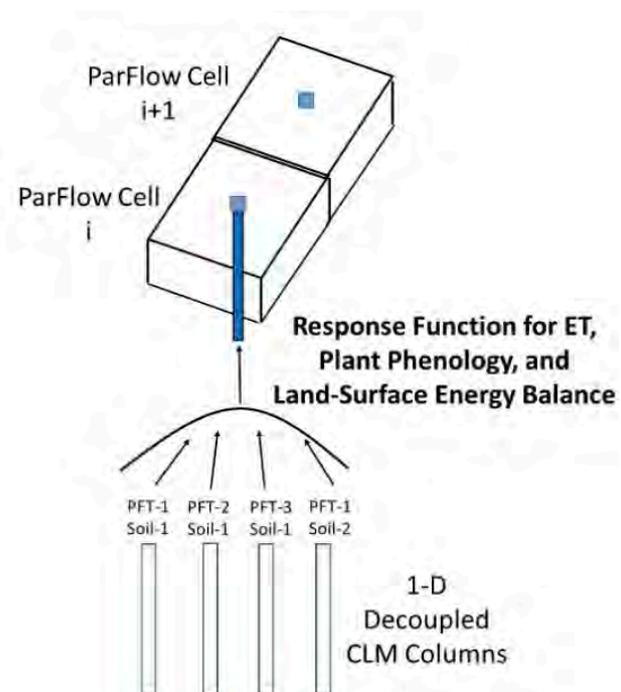


Figure 7. Schematic representation of hierarchical approach used by ParFlow to access the response function for evapotranspiration, plant phenology, and the land-surface energy balance. The ability to handle multiple soil columns, will be developed.

surface-subsurface hydrologic model ParFlow being the principal target initially. This modeling interface will aim to be easily updated as dynamic vegetation models evolve, and will aid in the aforementioned questions related to understanding effects of different components of the watershed (e.g. land use type) in a more realistic, dynamic system.

ParFlow is currently coupled to an early version of CLM that is accessed through subroutine calls to solve the governing equations for energy and water and this will be extended to simulate vegetation dynamics at relevant scales. The approach outlined in Figure 7 will be used to consider multiple plant types and their effect on evapotranspiration, plant phenology, and the land-surface energy balance. The dynamic vegetation interface developed here will be able to accommodate enhanced CLM capabilities via subroutine calls (as currently implemented in ParFlow), but will also allow for the use of the ecosys (e.g., Grant et al., 1999) land-surface model, which currently has a sophisticated set of capabilities for coupling land surface energy, vegetation, and nutrient (carbon and nitrogen) effects. The primary focus of the dynamic vegetation module will be on plant phenology rather than mortality.

III.3. Advancements related to hydrologic spin-up simulation times

Before the biosphere model can be run, an initial condition of the water distribution (i.e. pressure) needs to be established. A preliminary simulation is run to obtain this initial condition; once the distribution of water is nearly static and realistic (i.e. in accordance with observations), the final pressure field from this preliminary simulation is used as the initial condition for any subsequent simulations. This ensures there isn't any bias in the simulations from the system being out of equilibrium.

A number of recent studies have recently demonstrated the need for an accurate initial condition resulting from the so-called “spin-up” step of watershed modeling (Ajami et al., 2014; Ajami et al., 2015; Seck et al., 2015). Examples of initial conditions vary in complexity, ranging from a simple approach such as utilizing a constant depth below the ground surface as a “best guess” to applying an average precipitation minus evapotranspiration to the domain for several hundreds to thousands of simulation years essentially allowing water to naturally distribute until a dynamic equilibrium is reached. This spin-up process is notoriously computationally expensive. For comparison, a ParFlow watershed model required approximately 2.5 M core hours for this step in the simulation alone (Maxwell et al., 2015). Although the spin-up time is model specific, if the number of cells within the watershed is high (several million) computation time and resources may be a limiting factor.

We have tried a number of different methods to obtain the hydrologic initial condition to determine an optimal spin-up workflow. These tests were performed on the watershed described in section III.2 and include starting the spin-up with 1) a completely dry initial condition and “filling” the watershed until a dynamic equilibrium was reached and 2) a completely wet initial condition and “draining” the watershed until a dynamic equilibrium was reached. In all cases, a constant precipitation minus evapotranspiration boundary condition from the top face of the model was applied. From our analyses, we determined starting from a completely wet initial was less computationally expensive, as described below.

When starting the spin-up simulation with a completely dry domain (i.e. the water table at the base of the bottom layer of the domain), a number of numerical techniques

can be utilized to speed the simulation time. First, because surface water moves quickly in comparison to groundwater flow, the time-step needed for solver convergence when solving integrated groundwater-surface water flow is typically much smaller than solving simply solving groundwater flow. Thus one option to decrease spin-up time is to remove any surface water flow (pressure head greater than zero at the surface of the model) and only solve three-dimensional Richards equation. A second technique is to apply a “dampening” to the pressure head term, Ψ (m) of the overland flow equations with two constants. The pressure head term in a simulation with dampening follows the form $P1 \exp(P2\Psi)$. The values of P1 and P2 are optimally determined by the user based on the speed at which the simulation solves. When these techniques are employed in simulations, the model time-step can be much larger than it would be otherwise, allowing the simulation to reach several thousands of years. Both of these techniques have been implemented into the hydrologic simulator ParFlow and were used for testing.

Figure 8 shows the progression and spatial distribution of saturated groundwater in the watershed (only pressure greater than zero shown; white areas denote a water table deeper than the model domain). The top image shows little progression of saturated water after nearly 12,000 years of simulation time using the dampening technique. The bottom image shows the progression of the same simulation one year later once the dampening technique was removed. Although in the bottom image a larger fraction of the subsurface has filled with water (denoted by more color regions thus regions of saturated groundwater), the system is not close to a dynamic equilibrium where the watertable depth is static. We performed a number of simulations with and without different combinations of the two described numerical spin-up techniques and an array of P1 and P2 values. In total, we used a large amount of computation time to conduct these sensitivity analyses: approximately 9 million core hours on the National Energy Research Scientific Computing Center (NERSC) supercomputers Edison and Hopper. From this large dataset of simulations, we found that starting from a dry watershed initial spin-up condition required too long of simulation times to achieve a realistic initial condition.

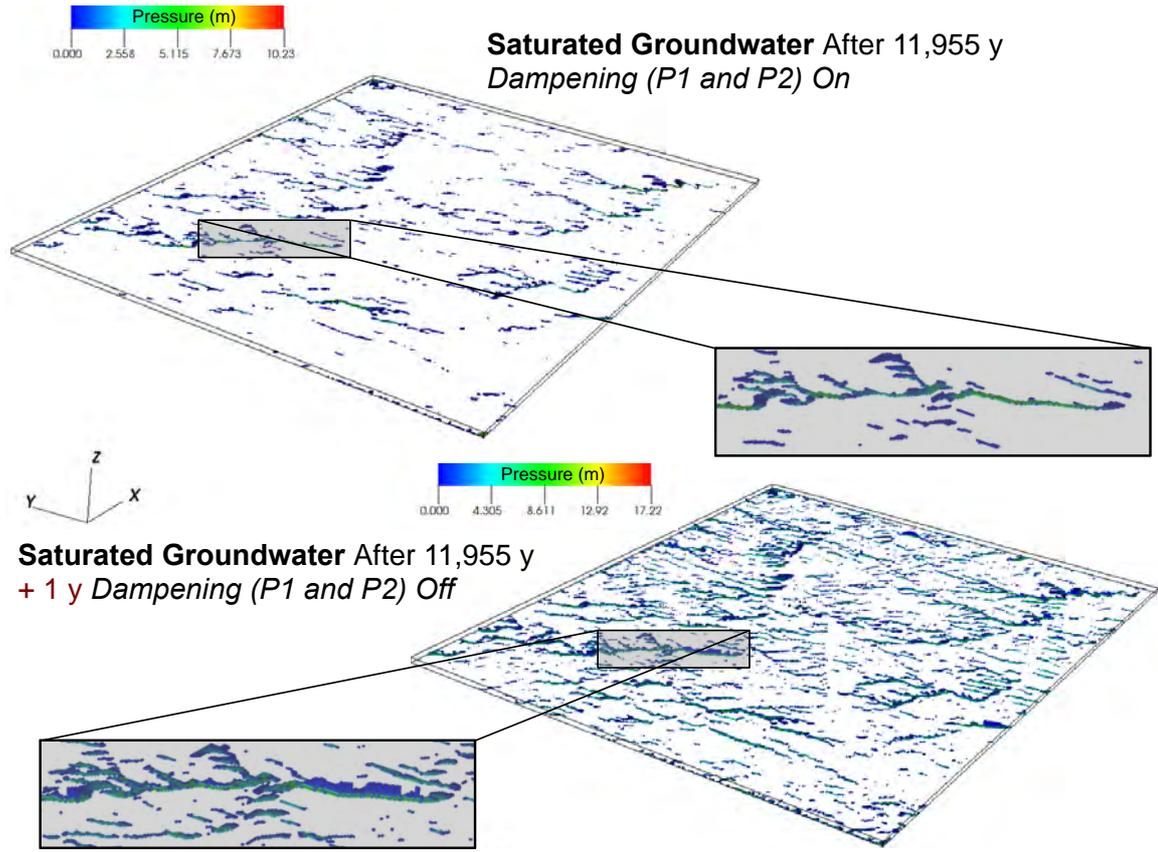


Figure 8. Example spin-up results obtained from starting with a dry initial condition and the effects of the dampening parameters P1 and P2 on the watershed pressure distribution.

As an alternative, we performed a number of tests on initial spin-up conditions that were wet (where the water table is at the land surface of the model). For these simulations, we found that allowing the solver to continue without dampening of the overland flow equation was more efficient in terms of simulation time. Figure 9 shows the results of surface runoff, Q (m^3/h), equivalent to the discharge area A (m^2) multiplied by the velocity, V (m/h), computed with Mannings equation:

$$V = \frac{\psi^{2/3} \sqrt{S}}{n} \quad (1)$$

where Ψ is pressure head (m), S is the slope (-), and n is Mannings coefficient ($\text{m}^{1/3}/\text{s}$). Q is compared to total inflow (red line in Figure 9a) and the associated percent error (Figure 9b) as a function of simulation time. Total inflow, I (m^3/h) resulting from the average precipitation minus evapotranspiration forcing, R_{P-ET} (m/h) is computed by:

$$I = R_{P-ET} \times nx \times ny \times dx \times dy \quad (2)$$

where nx and ny are the number of cells and dx and dy are the discretizations in the x and y directions, respectively. I is shown in Figure 9a as a horizontal red line. Percent Error, PE (-), is calculated by:

$$PE = \frac{\left(\int_{i=1}^{i=2nx+2ny} Q \right) - I}{I} \times 100 \quad (3)$$

where i are the edge-cells on the surface layer of the model. After 475 days of simulation time, inflow nearly matches outflow ($Q \approx I$), where the associated percent error is approximately only 1%. With this very low percent error, we can conclude that the dynamic equilibrium of the watershed has been reached and any subsequent simulations with an initial condition of the final pressure distribution of the spin-up simulation.

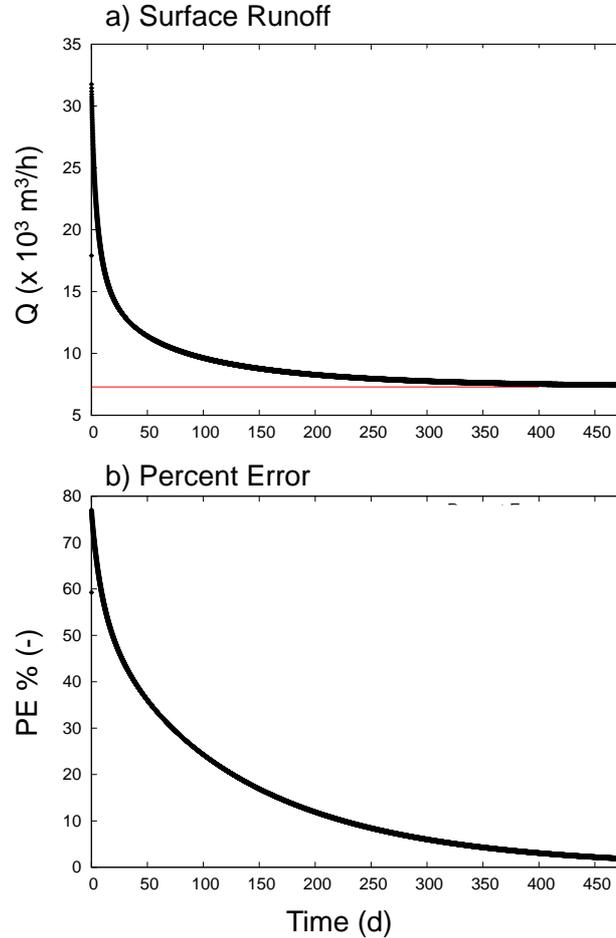


Figure 9. Evolution of surface runoff (a) and the associated percent error (b) of the spin-up starting with a wet initial condition. Results are shown as a function of time and compared to total inflow (red line in a).

We also quantified the change in storage in both surface water (SW) and groundwater (GW) compartments of the watershed as a function of time:

$$Storage_{GW} = \int_i^{i=nx+ny+nz} Sat_i \times \psi_i \times SS_i \times dx \times dy \times dz \quad (4)$$

where i is the cell number within the entire domain, Sat is the saturation, SS is the specific storage, and dx , dy , dz are the cell dimensions in the x, y, and z dimensions respectively.

$$Storage_{SW} = \int_i^{i=nx+ny} \psi_i \times dx \times dy \times dz \quad (5)$$

where i is the cell number within the surface layer of the domain.

Figure 10 shows the evolution of both compartments as the system drains from the fully saturated state. Surface water approaches a steady state value more rapidly than groundwater as shown by the leveling of the black curve in Figure 10. This is

partially attributed to subsurface water storage being four orders of magnitude larger than surface water storage in this model.

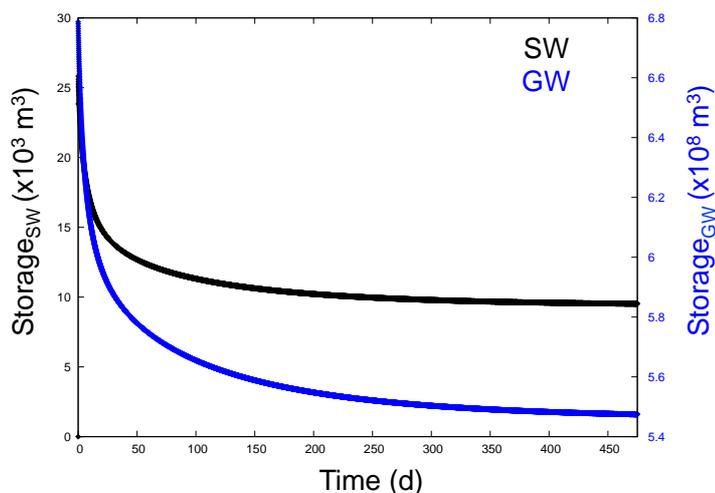


Figure 10. Change in surface and subsurface water storage as a function of time for the spin-up starting with a wet initial condition.

III.4. Assessment of topographic terrain processing and the impact on flow patterns

Topography in a mechanistic biosphere model can be represented a number of ways. One option is to use a digital elevation model (DEM) of the watershed area, typically obtained from remote sensing. From the spatially distributed elevation in x-y space, slopes in the both directions are calculated then used as input in the model. A number of methods to calculate the watershed analysis functions (sub-watershed basins, flow direction, water accumulation, etc.) have been developed, many of which are available in common geographic information system (GIS) software programs such as ARC-GIS, GRASS-GIS, and Q-GIS. From these GIS outputs, slopes can then be calculated. As demonstrated above, mechanistic biosphere models can be computationally expensive and thus make ways to improve simulation performance important. We are currently assessing different options to process terrain and the subsequent impact on flow patterns and simulation time.

Currently we are comparing differences between slopes which are one-dimensional (flow is only in the x or y direction either north/south or east/west) and two-dimensional (flow can move in a combination of north/south and east/west directions). The r.watershed package in GRASS-GIS is used to calculate the aforementioned watershed functions which are then post-processed and used to generate either 1D or 2D slopes. For a test watershed, a comparison of 1D and 2D x and y direction slopes are shown in Figure 11a and b-c, respectively. Positive slopes in the x-direction denote flow west; negative x-direction slopes denote flow east. Conversely, positive slopes in the y-direction denote flow south; negative y-direction slopes denote flow north. In the 1D scenario, areas that have non-zero slopes must have a corresponding slope in the other direction that equals zero. In the 2D scenario, this is not necessarily true, where x and y direction slopes can both be non-zero values.

1D slopes are more typically used in watershed analysis as surface flow in 2D often leads to discontinuities in stream accumulation and ponding of water which does not drain from the watershed. This is especially problematic when overland flow is solved with the kinematic wave equation as opposed to the diffusive wave equation.

While 1D slopes are advantageous in this regard, 2D slopes are arguably a better representation of reality, as flow does not move in right angles in nature. To address this issue we are performing tests using Gaussian smoothing techniques on the digital elevation model. We hypothesize this smoothing may allow for the use of 2D slopes which do not result in discontinuities in stream accumulation and ponding water in the domain. Figure 11b-c show slopes generated with Gaussian smoothing with varying radii (1 and 2 cells, respectively). A comparison of flow patterns and simulation times of these different watershed terrains is currently underway.

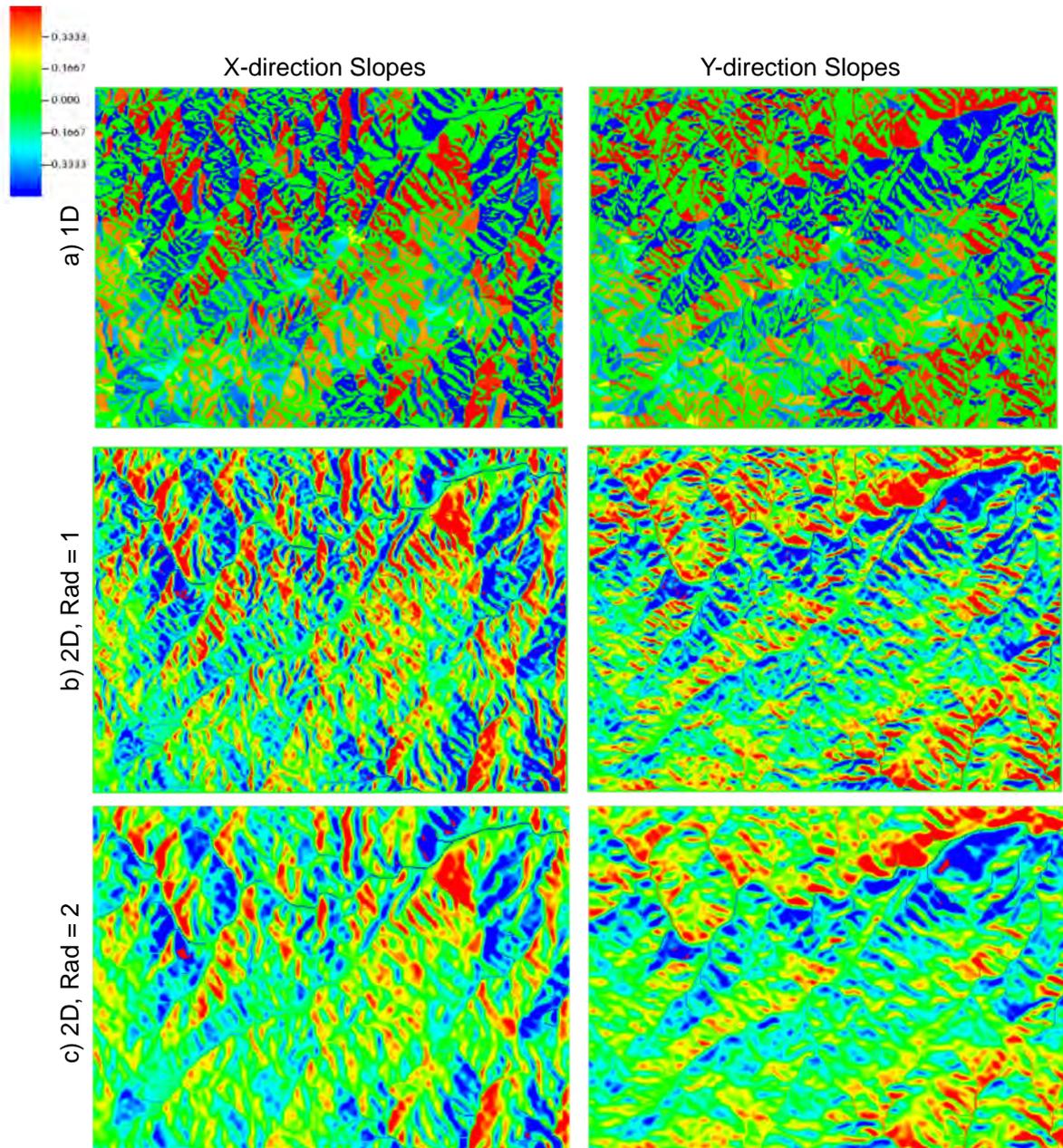


Figure 11. Plan view (x-y) of different terrain processing techniques and the resulting x and y-direction slopes.

IV. Summary

Mechanistic biosphere models show promise in watershed analysis as a way to assess non-linear dynamics in the water-energy balance. With the use of an example watershed, we demonstrate the effects of land area and land use (LALU) on the water-

energy balance. We illustrate through forest thinning scenarios how mechanistic biosphere models can be used to inform risk management decisions. To further assess the impacts of vegetation, we propose new methods to simulate dynamic vegetation in integrated hydrologic simulation, and outline future steps for these advancements. A number of advancements and tests have been made in terms of hydrologic spin-up and topographical terrain processing with regards to simulation time.

V. References

- Ajami, H., J.P. Evans, M.F. McCabe, S. Stisen (2014), Technical Note: Reducing the spin-up time of integrated surface water-groundwater models, *Hydrol. Earth Syst. Sci.*, 18, 5169-5179.
- Ajami H., M.F. McCabe, J.P. Evans (2015), Impacts of model initialization on an integrated surface water-groundwater model. *Hydrol. Process*, doi:10.1002/hyp.10478.
- Ashby S.F., R.D. Falgout (1996), A parallel multigrid preconditioned conjugate gradient algorithm for groundwater flow simulations, *Nucl Sci Eng*, 124(1):145–59.
- Dai X.P., X. Xeng, and C.D. Dickinson (2001), The Common Land Model (CLM): Technical documentation and user’s guide.
- Grant, R. F., T. A. Black, G. den Hartog, J. A. Berry, H. H. Neumann, P. D. Blanken, P. C. Yang, C. Russell, and I. A. Nalder (1999), Diurnal and annual exchanges of mass and energy between an aspen-hazelnut forest and the atmosphere: Testing the mathematical model Ecosys with data from the BOREAS experiment, *J Geophys Res-Atmos*, 104(D22), 27699-27717.
- Jones J.E., C.S. Woodward (2001), Newton–Krylov-multigrid solvers for large-scale, highly heterogeneous, variably saturated flow problems, *Adv Water Resour*, 24(7):763-74.
- Kollet S.J., R.M. Maxwell (2006), Integrated surface–groundwater flow modeling: a freesurface overland flow boundary condition in a parallel groundwater flow Model, *Adv Water Resour*, 29(7):945–58.
- Kollet S.J., R.M. Maxwell, C.S. Woodward, S.G. Smith, J. Vanderborght, H. Vereecken, C. Simmer (2010), Proof-of-concept of regional scale hydrologic simulations at hydrologic resolution utilizing massively parallel computer resources, *Water Resour Res*, 46:W04201.
- Maxwell, R.M., Condon, L.E. , and Kollet, S.J. (2015), A high resolution simulation of groundwater and surface water over most of the continental US with the integrated hydrologic model ParFlow v3. *Geoscientific Model Development*, 8, 923-937.
- Seck, A., C. Welty, R.M. Maxwell (2015), Spin-up behavior and effects of initial conditions for an integrated hydrologic model, *Water Resour. Res.*, 51.

JAEA-LBNL Collaboration on
“Repository Geoscience and PA Technology Development”

Task C: Environmental Assessment Methods and Sciences

**C2: Molecular Dynamics Sorption Modeling
FY 2015 Interim Report**

Ian C. Bourg, Laura N. Lammers, Kedarnath Kollfuri, and Garrison Sposito

Accomplishments, Updates, and Future Outlook

The enclosed report details molecular modeling and analysis tasks accomplished towards the FY 2015-2016 project goal of understanding the kinetics and thermodynamics of radiocesium attenuation by micaceous clay minerals (illites). These phases are of particular interest in the geological disposal of radioactive waste due to their high affinity and selectivity for Cs^+ . The contents of this report reflect the completion of the first stage of our research effort and will be submitted in similar form to a peer-reviewed journal for publication. Since the prior report submitted to JAEA in April 2015, we have accomplished several key project objectives detailed in this report:

- Completion of extended (50 ns) molecular dynamics (MD) simulations of Na-Cs exchange on our illite nanoparticle requiring approximately 2.5 million mpp hours of supercomputing resources;
- Determination (from MD results) of site-specific partitioning (K_d) and selectivity (K_v) coefficients as well as exchange dynamics;
- Execution of thermodynamic integration (TI) calculations to determine free energies of ion exchange at various structural sites; and,
- Development of a conceptual model for key mechanisms controlling long-term Cs^+ retention.

Our future efforts will focus on evaluating the impact of solution conditions associated with long-term storage of radiocesium-contaminated soils and sediments on the stability (susceptibility to exchange) of adsorbed Cs^+ . We plan to investigate the

dynamics of Cs⁺ remobilization in the context of waste-reduction and development of low-activity clay and sand-bearing cements. Incorporation of classification products into cement will expose the clay mineral-associated Cs⁺ to high salinity and alkalinity fluid conditions as well as solid mineral phases such as tobermorite (structurally similar to clay minerals) not typically associated with soils or clay barriers. These simulation efforts will be spearheaded by a new member of the team, Karol Kulasinski, who will be supported by our remaining JAEA funds. In addition, we will continue to seek the expertise of the Monteiro group at UC Berkeley, which is world renown for its expertise in the molecular-scale chemical properties of cements and has a long-standing collaboration with P.I. Sposito.

Note: The following sections (I-III) are formatted for submission to a peer-reviewed journal.

1. Introduction

Any future reliance on nuclear energy to play a major role in lessening our dependence on fossil fuels brings with it a need to address the potential for long-term environmental contamination by radioisotopes (Pacala and Socolow, 2004). Two radioisotopes of cesium, ¹³⁵Cs and ¹³⁷Cs, are among the most important contaminants associated with the nuclear fuel cycle because of their high fission yield, long half lives (2.3×10^6 and 30 a, respectively), high solubility in water, and metabolic similarity to potassium. These radioisotopes are key concerns in the geologic storage of radioactive waste (McCombie, 1997; Gaboreau et al., 2012; Chen et al., 2014), in the management of legacy sites contaminated during the development of nuclear power (Evans et al., 1983; Olsen et al., 1986), and in the remediation of soils contaminated by catastrophic releases such as those that occurred at the Chernobyl and Fukushima Daiichi nuclear power plants (Filipovic-Vincekovic, 1991; Yasunari et al., 2011; Yoshida and Kanda, 2012). In the Fukushima region, in particular, ¹³⁷Cs remains the main source of external radiation dose five years after the nuclear disaster.

The most important process controlling the solubility and mobility of cesium in soils, sediments, and sedimentary rocks is the formation of strong surface complexes with clay minerals (Anderson and Sposito, 1991), and particularly with the micaceous

minerals (illite, vermiculite, and mica; Evans et al., 1983; Bourg and Sposito, 2011; Mukai et al., 2014). For example, studies of Fukushima soils show that cesium retention correlates significantly with native K content, an indicator of the quantity of micaceous minerals (Nakao et al., 2014). Cesium adsorption on illite is of particular importance, because illite often dominates the mineralogy of shales that are considered for use in geologic storage of radioactive waste (Tachi et al., 2011; Gaboreau et al., 2012). In fact, the high affinity of cesium for illite has been used in the *in situ* remediation of contaminated surface water (Hinton et al., 2006).

Studies of the adsorption of Cs^+ by illite have a long history (Tamura, 1961; Sawhney, 1972; Eberl, 1980; Brouwer et al., 1983; Comans and Hockley, 1992; Smith and Comans, 1996; Staunton and Roubaud, 1997; Poinssot et al., 1999; Rajec et al., 1999; USEPA, 1999; Bradbury and Baeyens, 2000; McKinley et al., 2001, 2004; Bostick et al., 2002; Zachara et al., 2002; Liu et al., 2003; Baeyens and Bradbury, 2004; de Koning and Comans, 2004; Bergaoui et al., 2005; Turner et al., 2006). Recent efforts have deployed a combination of wet chemistry experiments (Wampler et al., 2012; Benedicto et al., 2014; Dzene et al., 2015), high-resolution imaging (Kogure et al., 2012; Mukai et al., 2014; Tamura et al., 2014; Fuller et al., 2015), synchrotron X-rays (Fan et al., 2014), and atomistic-level simulations (Okumura et al., 2013; Suehara and Yamada, 2013; Ikeda et al., 2015) to elucidate cesium adsorption on illite and related clay minerals. The emerging view from these studies is that Cs^+ adsorption on illite involves at least three types of surface sites (Benedicto et al., 2014; Fan et al., 2014): *basal sites* located on the external basal surfaces of illite particles, *slow sites* that are likely to be located in collapsed illite interlayers, and *high affinity sites* of unclear nature. Adsorption on the basal sites is rapid (< 24 hr), reversible, relatively weakly selective, and analogous to cesium adsorption on the basal surfaces of smectite (swelling) clay minerals. The total capacity of the basal sites is essentially equal to cation exchange capacity of illite external basal surfaces. The slow sites have slow adsorption and desorption kinetics (weeks to months) and a higher total capacity than the basal sites, in agreement with these sites being located in collapsed interlayers (Benedicto et al., 2014). Finally, the high affinity sites have a very small total capacity and a very high affinity for cesium and other weakly hydrated cations (K^+ , NH_4^+). The high-affinity sites and slow sites are particularly important, because they

strongly influence the long-term migration of cesium in the geosphere (Comans et al., 1989; Turner et al., 2006; Shiozawa, 2014). Indeed, selective retention of Cs⁺ makes Cs adsorption-desorption a sensitive indicator of Cs-attenuating sites in soils (Chorover and Sposito, 1995; Chorover et al., 1999).

Despite the key importance of the high-affinity and slow sites of illite for cesium fate and transport, several important questions remain unanswered regarding the properties of these sites. First, the structure of the high affinity sites is a continuing topic of investigation (Kim and Kirkpatrick, 1998; McKinley et al., 2004; Suehara and Yamada, 2013; Okumura et al., 2013). The predominant hypothesis is that they occur in so-called “wedge” regions where illite or vermiculite interlayers transition from a collapsed state to an expanded state (Chorover et al., 1999; Wampler et al., 2012; Okumura et al., 2013). In illite and mica, the existence of wedge regions is supported by observations that weathering reactions result in a significant “fraying” of the edge surfaces of mineral grains (McKinley et al., 2004; Nakao et al., 2008), perhaps associated with the replacement of K⁺ by Ca²⁺ near the edges of collapsed interlayers (Fuller et al., 2013). Second, the selectivity and kinetics of the slow sites remain poorly understood, perhaps because of a lack of long-term adsorption and desorption studies (for example, no study has determined the time-dependence of the full cesium adsorption isotherm, to the best of our knowledge). Cesium adsorption isotherms, when plotted on a double logarithmic scale, consistently show a single “kink” associated with the saturation of high-affinity sites. As a consequence, some studies have hypothesized that the slow site has the same ion-exchange selectivity as the basal site in the Na-K-Cs system (Benedicto et al., 2014), in sharp disagreement with atomistic simulations which suggest that Na-Cs exchange in collapsed clay interlayers should be much more selective than on external basal surfaces (Rotenberg et al., 2009). Third, our ability to predict cesium adsorption by the slow sites is complicated by the observation that Cs can form interstratified structures (Okumura et al., 2014), in which all ions in a given interlayer are replaced by Cs. Thus, the capacity of illite for Cs intercalation may depend on the rate of ion interstratification in a given layer. Finally, the adsorption-desorption kinetics of the slow and high-affinity sites remain incompletely understood. In particular, several existing studies suggest that high concentrations of monovalent cations can strongly inhibit both the kinetics of

adsorption on the slow sites (Benedicto et al., 2014) and the kinetics of desorption from the high-affinity sites (de Koning and Comans, 2004). This inhibition is hypothesized to result from a salinity-driven collapse of the frayed edges, but this mechanism has not been directly observed. This similar inhibition of the kinetics of slow and high-affinity sites further suggests that the two sites bear some affinity or that they are kinetically linked, a possibility that remains mostly unexplored. Instead, geochemical models of cesium adsorption on illite almost invariably ignore the slow sites (Bradbury and Baeyens, 2000; Steefel et al., 2003; Gaboreau et al., 2012; Fuller et al., 2014) or assume that their properties are identical to those of the basal sites (Benedicto et al., 2014), with very few exceptions (Comans and Hockley, 1992; Turner et al., 2006). The model parameters used by studies that ignore the slow sites are compiled in Table 1.

Table 1. Site densities and selectivities used in surface complexation models of cesium adsorption on illite or related minerals (e.g., micaceous sediments). The “weak” high affinity site (high affinity site 2) has almost no influence of Cs adsorption and primarily serves to obtain a smoother adsorption isotherm; its actual mechanistic significance is not well established. The few studies that modeled the slow sites as distinct adsorption sites are not included. Relative site densities were not included if they were reported by studies that used long (> 1 day) experiments and modeled slow sites as planar sites (Benedicto et al., 2014) or that used sediments containing a mixture of swelling and non-swelling clays (Steefel et al., 2003; Fuller et al., 2014).

Site type	High affinity site 1	High affinity site 2	Planar site
Site density (%)	0.25 ^{a,d}	0.2 ^{a,d}	0.8 ^{a,d}
$\log K_{\text{Na}}^{\text{Cs}}$	7.0 ^{a,b,d} , 6.8 ^c , 7.2 ^e	3.6 ^{a,b} , 3.9 ^c , 3.8 ^d , 4.9 ^e	1.6 ^{a,b} , 1.7 ^{c,d} , 2.0 ^e
$\log K_{\text{K}}^{\text{Cs}}$	4.6 ^{a,d} , 5.5 ^b , 5.0 ^{c,e}	1.5 ^{a,d} , 3.0 ^b , 1.1 ^c , 1.8 ^e	0.5 ^{a,d} , 1.1 ^{b,c} , 0.7 ^e

^aBradbury and Baeyens (2000), ^bFuller et al. (2014), ^cBenedicto et al. (2014), ^dFan et al. (2014), ^eSteefel et al. (2003),

The questions listed above persist in part because the three types of surface sites are challenging to isolate experimentally. Furthermore, spectroscopic or high-resolution imaging results are challenging to obtain at the very low surface loadings characteristic of the high affinity sites. Atomistic-level simulations techniques can, in principle, circumvent these difficulties by allowing a direct observation of the properties

of cesium on selected adsorption sites. Existing simulations have probed cesium adsorption in the interlayer nanopores of swelling clay minerals (Nakano et al., 2003; Teppen and Miller, 2006; Rotenberg et al., 2009; Bourg and Sposito, 2010; Ikeda et al., 2015), in collapsed clay interlayers (Rotenberg et al., 2009; Suehara and Yamada, 2013), and near artificially-created wedge sites (Okumura et al., 2013; Zaunbrecher et al., 2015) using molecular dynamics (MD) and density function theory (DFT) techniques. However, no existing study has comparatively examined cesium adsorption selectivity on different adsorption sites on the same illite particle, to the best of our knowledge.

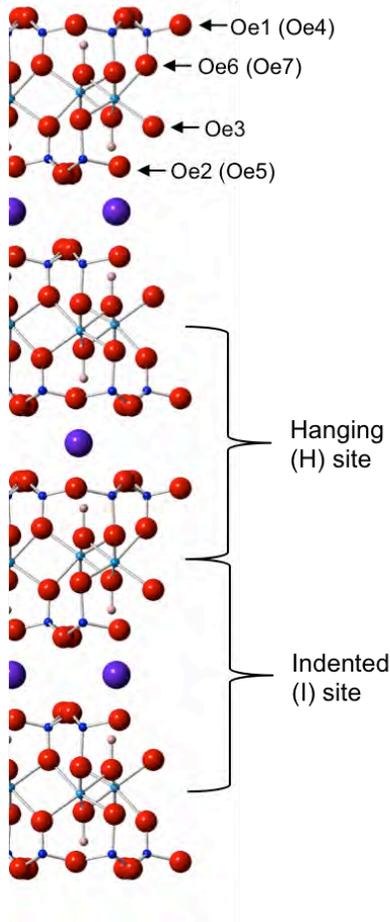
Here, we present the results of classical MD simulations used to investigate the kinetics and thermodynamics of Cs sorption and exchange at the basal, edge, and interlayer sites of illite. These simulations allow us to probe Cs affinity and ion exchange kinetics at basal, edge, and frayed-edge sites on a molecular level. Our choice of simulation methodology was motivated by two design constraints: first, we used classical MD simulations (which can probe time-scales up to hundreds of nanoseconds) rather than *ab initio* MD simulations (which can probe time-scales up to nanoseconds). The time-scales accessible to classical MD simulations allowed us to probe the slow dynamics of cesium near hydrated clay surfaces (Nakano et al., 2003; Bourg and Sposito, 2010). The slow migration of cesium in collapsed illite interlayers is beyond the reach of direct atomistic-level simulations and will be examined in a later study.

Second, we used a fully flexible model of the illite particles. This choice was motivated by the desire to eventually examine the properties of illite frayed edges, which are thought to determine the properties of the high affinity site. The formation of frayed edges requires a bending of the clay layers. Therefore, prediction of the properties of using MD simulations requires an inter-atomic potential model capable of describing flexible clay edges. The ClayFF model was designed to describe fully-flexible clay mineral structures in studies of basal plane surfaces and interlayer nanopores, but it was not parameterized to simulate fully-flexible structures with cleaved edge surfaces. The primary objectives of the study are to develop a stable edge parameterization to simulate sorption and ion exchange and to perform a preliminary evaluation of ion exchange selectivity on basal surfaces and edges.

2. Simulation Methods

2.1. System setup

Atomistic simulations were performed using the molecular dynamics (MD) code LAMMPS, which solves the Newton-Euler equations of motion for many-particle systems interacting through pairwise potentials. The Joung-Cheatham model for monovalent alkali ions Na^+ , K^+ , and Cs^+ (Joung & Cheatham, 2001) was used along with the ClayFF model (Cygan, 2004), which specifies Coulomb and van der Waals interactions for each atomic site, as well as bond-stretching parameters for structural OH groups. The ClayFF model has been successfully tested against experimental data on the structure and dynamics of water and ions on basal surfaces of 2:1 clay minerals (Bourg & Sposito, 2011), in clay interlayer nanopores (Bourg & Sposito, 2010; Ferrage et al., 2011; Marry et al., 2011), and on hydroxylated silica and quartz surfaces (Skelton et al., 2011; Bourg & Steefel, 2012). In the case of clay mineral-water systems, MD simulation



studies have focused almost exclusively on basal surfaces or hydrous interlayer nanopores, such that adsorption on clay edge surfaces remains almost entirely unexamined. This is due in part to the fact that the ClayFF model was not parameterized to simulate clay edge surfaces.

Figure 1. Schematic illustration of the AC edge of 2:1 clay minerals, which is occupied by two silanol sites, one aluminol site, and one bridging oxygen in the absence of isomorphic substitutions. Edge oxygen sites corresponding to tetrahedral, octahedral, and bridging oxygens are labeled, and sites associated with Al substitutions are listed in parentheses. Distinct edge structures are labeled hanging (H-site) and indented (I-site).

Edge parameterization

We created a model illite nanoparticle to simulate Cs^+ sorption and ion exchange on both edges and basal surfaces. To construct this cell, the edge of bulk illite was cleaved along the most stable cleavage

plane, identified by White & Zelazny (1988) to be the AC bond chain based on periodic bond chain theory. This theory identifies the chains of atoms that are most strongly bound, and cleaves the structure parallel to the direction of strongest binding. The choice of the AC edge structure is supported by quantum mechanical calculations (Churakov, 2006).

A total of seven distinct molecular configurations of O can be identified along the AC edge of illite (Table 1; Fig. 1). Edge protonation is an important property of clay minerals that controls the dependence of the cation exchange capacity on pH. We assigned the protonation state of the cleaved illite edge surfaces in a manner designed to mimic near-neutral pH conditions. Under these conditions, illite edge surfaces are thought to carry four distinct protonated sites (Tournassat et al., 2004; Bourg et al., 2007). Proton positions were assigned to minimize excess charge on the AC edge, which then stabilizes the structure. Sites Oe1, Oe2, Oe4, and Oe5 (i.e. tetrahedral silanol and aluminol sites) are singly protonated. Site Oe3, which is associated with the largest charge undersaturation, is doubly-protonated, while the bridging edge oxygen site is not protonated. The doubly-protonated oxygen sites (Oe3) were assigned a partial charge distribution identical to SPC/E water, consistent with DFT calculations that show a gap in the electron density distribution between the OH₂ and the adjacent octahedral Al (Okumura, *pers. comm.*). Edge oxygens are non-bonded to the alumina and silica metal centers, so these edge waters are free to exchange with water molecules in the bulk aqueous solution.

Partial charges of edge O sites are not defined in the ClayFF model, and creation of a stable, flexible edge structure is required for a comprehensive evaluation of ion exchange on clay minerals. We systematically calculated edge oxygen partial charges based on an algorithm that accounts for bond valence, charge saturation, and cation charge. In this calculation, we assume that the partial charge on edge oxygen atoms depends on the oxygen valence (-2.00 v.u.) balanced by the total effective charge contributed by coordinating cations *i*:

$$Z_{Oej}^P = -2.00 + \sum_i \frac{N_i(Z_i - Z_i^P)}{CN_i}, \quad [1]$$

where Z_i is the valence of cation i , Z_i^P is the partial charge of i , N_i is the number of i cations coordinating edge oxygen j , and CN_i represents the total number of O atoms coordinating cation i . This procedure ensures net neutrality and captures the variable charge delocalization due to isomorphic substitution. A list of edge oxygen sites, their coordination, and calculated partial charges is provided in Table 2.

Simulation cell setup

A four-layer illite nanoparticle cleaved along the AC edge was constructed using the structural parameters reported in Gualtieri (1999). Isomorphic substitutions of Si by Al were distributed randomly across the eight tetrahedral sheets according to the chemical formula: $K_{0.7}Al_2(Si_{3.3}Al_{0.7})O_{10}(OH)_2$. Substituted sites were not allowed to occur side-by-side (Sainz-Díaz et al., 2001). Potassium ions were initially distributed randomly in ditrigonal cavity positions between the sheets and on both basal-plane surfaces such that the average occupancy of cavity positions was twice as large in the interlayer as on the external surfaces. The interlayer potassium distribution was equilibrated prior to performing MD simulations following the scheme detailed below. The final nanoparticle structure was equilibrated in a bath of SPCE/water and Na^+ , Cs^+ , and Cl^- ions and contains a total of 33,403 atoms. For our MD simulations, this structure was periodically replicated in three dimensions, making a series of illite nanoparticles infinitely elongated parallel to the crystallographic b-axis and cleaved along the AC plane.

The slanted structure of the AC cleavage leads to the formation of two distinct edge sites, which we designate here as “hanging” (H) and “indented” (I) sites (Table 2 and Fig. 1). Atomic configurations adjacent to these sites differ substantially, leading to the formation of two unique edge-surface coordination environments for adsorbed cations. Our simulations enabled us to distinguish the interactions of these two different sites with aqueous ions (*i.e.* Na^+ , Cs^+ , and Cl^-).

Table 2. Description of edge oxygen sites.

Edge O-Site	Site Description	Partial Charge	B.V.	Cation Charge	# Coordinating Cations (N_i)			
					Al oct.	Si tet.	Al tet.	H
Oe1	Hanging tetrahedral O-Si	-0.95000	2.00	0.95000	-	1	-	1
Oe2	Indented tetrahedral O-Si	-0.95000	2.00	0.95000	-	1	-	1
Oe3	Hanging octahedral O-Al	-0.8476	2.50	1.3476	1	-	-	2
Oe4	Hanging tetrahedral O-Al	-1.06875	1.75	0.81875	-	-	1	1
Oe5	Indented tetrahedral O-Al	-1.06875	1.75	0.81875	-	-	1	1
Oe6	Bridging O-Si	-1.28750	1.50	0.78750	1	1	-	-
Oe7	Bridging O-Al	-1.40625	1.25	0.65625	1	-	1	-

Edge M-Site	Site Description	Partial Charge
Al _{0e}	Octahedral edge Al	1.8125

Optimization of interlayer ion distributions

In clays, the random substitution of tetrahedrally coordinated Si^{4+} by Al^{3+} creates a local charge deficit. Each layer of illite may, therefore, possess a different structural charge. The position of charge-compensating interlayer K^+ ions relative to these local charge defects significantly impacts the total mineral stability. We used a recently-developed method using stochastic sampling techniques to obtain an optimal distribution of ions in the illite clay interlayers (Kolluri & Lammers, *in prep.*). Figure 2 shows the change in the distribution of cohesive energies of interlayer K^+ ions before and after optimizing their distribution. Our analysis of 20 optimized illite structures suggests that segregation of K^+ ions to Al^{3+} substituted regions is energetically favorable. In fact, we find that ionic sites that have three neighboring Si^{4+} sites substituted by Al^{3+} are all occupied by K^+ ions. Optimization of K^+ positions was performed during the construction of the nanoparticle simulation cell to simulate FES formation.

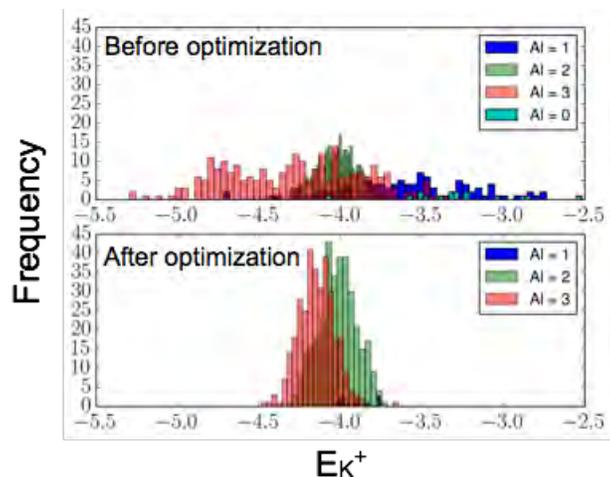


Figure 2. Distribution of cohesive energies of interlayer K^+ ions pre- and post-optimization

MD equilibration and production run methods

Standard (unconstrained) MD simulations were carried out to assess the stability of the edge structure and to determine the site-specific thermodynamics and kinetics of Cs^+ - Na^+ ion exchange as well as bulk partition coefficients. MD simulation trajectories were calculated over an interval in excess of 50 ns for ten different initial aqueous solution compositions at fixed total numbers of electrolyte ions ($N_{Na}+N_{Cs} = 2N_{Cl}$) and various mole fraction of Cs^+ ($x_{Cs} = N_{Cs}/(N_{Na}+N_{Cs}) = 0.1, 0.2, 0.3, 0.4, 0.5, 0.6, 0.7, 0.8, 0.9$ and 1.0). The total electrolyte concentration translates to an average ionic strength, $I = 0.70 \pm 0.01$ M. In all MD simulations, interlayers were occupied by K^+ only.

All systems were initially equilibrated in the NVE ensemble (fixed number of atoms, volume, and total energy), and production runs were performed in the NPT ensemble using LAMMPS. Simulations were performed allowing the illite structure to be fully flexible. Water molecules were kept rigid using the SHAKE algorithm (Ryckaert et al., 1977). Interlayer and aqueous ions were also allowed to move freely.

Thermodynamic Integration methods

The thermodynamic integration (TI) method was used out to predict the Gibbs free energies of ion exchange reactions between Na, K, and Cs in bulk liquid water, on illite basal surfaces, and in collapsed illite interlayers. The TI method has been widely applied to predict free energies of solvation and the cation selectivity of proteins

(Straatsma et al., 1986). Only two MD simulation studies have used the TI method to predict free energy of cation exchange on clay minerals (Teppen and Miller, 2006; Rotenberg et al., 2009). Both studies focused on the interlayer nanopores of swelling (smectite) clay minerals, an adsorption environment distinct from the ones that exist on illite. More recently, Okumura et al. (2013) applied the TI method to DFT simulations of illite frayed edges and predicted that Cs^+ would be favored to displace K^+ in an interlayer wedge sites if the illite basal spacing d_{001} increased by $\Delta d \sim 1 \text{ \AA}$.

Briefly, our TI calculations consisted in simulating a K-exchanged illite nanoparticle (created and equilibrated as described above) in the NP_zT ensemble ($P_z = 0 \text{ MPa}$, $T = 298 \text{ K}$) using the same methodological choices as described above. During each TI simulation, a subset of the K^+ ions in the simulation cell was slowly transformed to Na^+ or Cs^+ by modifying their short-range interaction potentials in a series of small regular steps. More precisely, we slowly modified the σ_i and ϵ_i parameters of the cations of interest in the Lennard-Jones (LJ) 6-12 interaction model, where the short-range interaction potential ϕ between atoms of type i and j separated by a distance r equals $\phi_{ij}(r) = 4\epsilon_{ij}[(\sigma_{ij}/r_{ij})^{12} - (\sigma_{ij}/r_{ij})^6]$ and the values of σ_{ij} and ϵ_{ij} were obtained using the Lorentz-Berthelot combining rules, $\sigma_{ij} = \frac{1}{2}(\sigma_i + \sigma_j)$ and $\epsilon_{ij} = \epsilon_i^{1/2}\epsilon_j^{1/2}$. Each TI simulation consisted in 30 (K to Cs) or 50 (K to Na) transformation steps. Each adjustment in LJ parameters of the cations of interest was sufficiently small that the total energy of the system changed by less than 2.5 kJ mol^{-1} as conventionally applied (Straatsma et al., 1986; Teppen and Miller, 2006). Each transformation step was followed by 0.5 ns of equilibration and 1.5 ns of simulation in the NP_zT ensemble. The absence of hysteresis was verified by carrying out all TI simulations in both direction (from K to Na or Cs, as well as from Na or Cs to K). Results are reported hereafter as average values obtained in both directions.

In order to examine the cation-exchange selectivity of different surface sites, we carried out four different TI simulations. The first consisted in transforming all cations on the external basal surface of our model illite nanoparticle. The second consisted in transforming all cations in one of the collapsed interlayers within our illite nanoparticle. The third consisted in transforming a small subset of the interlayer cations in our simulated particle (more precisely, ten interlayer cations distributed between the three

interlayers in our illite nanoparticle). The fourth consisted in transforming a single cation in a simulation cell containing only one cation and 999 water molecules.

III. Results and Discussion

Edge structure stability

Ten extended (> 50 ns) standard MD simulations were run to assess the stability of the new edge model and to investigate the kinetics and thermodynamics of ion exchange on illite nanoparticle edges and basal surfaces. The edge parameterization constructed for these simulations does not incorporate any additional bonding parameters between edge water or hydroxyl groups, so both are free to exchange with bulk solution. A snapshot of the 1:1 Na:Cs simulation after 50 ns is shown in Fig. 3, where all water molecules are hidden except those that were initially part of the octahedral coordination shell of edge Al atoms. All hydroxyl groups remained adjacent to the edge, while most of the edge water molecules had exchanged with bulk water. Several edge alumina were observed to “pop” out of the structure, reducing their coordination with respect to structural oxygen from the initial 6-fold coordination to a minimum of 1-fold coordination. No alumina were completely dissociated from the structure. It is apparent that the edges have remained mostly intact throughout the course of the simulation, and there is no evidence of significant instability.

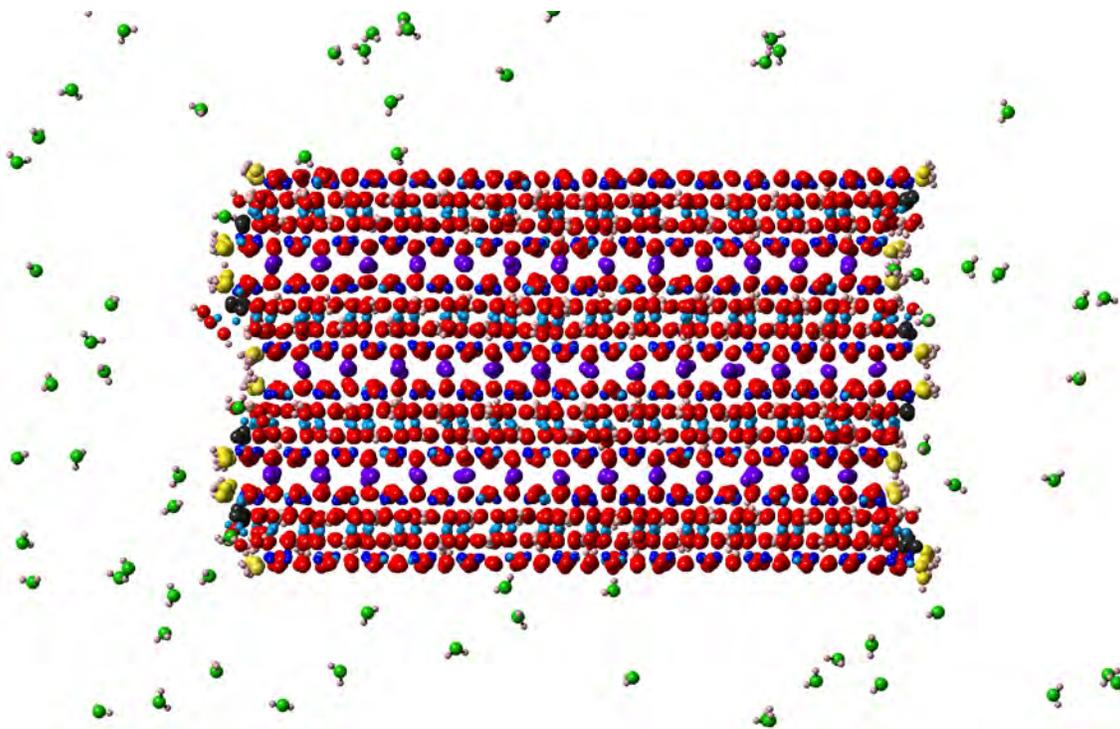


Figure 3. Snapshot of simulation after 50 ns of equilibration with edge oxygen atoms colored for ease of differentiation. Doubly protonated edge oxygens (Oe3; green) exchanged freely with bulk water, while edge hydroxyls (Oe1, Oe2, Oe4, and Oe5; yellow) largely remained in their original locations despite the fact that they are not bonded to the underlying cations.

Surface-specific adsorption behavior

Time integrated density maps of ions and water oxygen were derived from MD trajectories to identify ion sorption sites on illite edges and basal surfaces for each of the 10 simulations. Sites with a high affinity for adsorbed counterions – ions that compensate the negative structural charge of the illite – are characterized by a local density maximum. A characteristic average density map for Cs is illustrated in Fig. 4 for a 50 ns simulation with $x_{Cs} = 0.5$. Strong sorption sites are localized at edge H-sites and adjacent to ditrigonal cavities along the basal surfaces. The high affinity of H-sites for adsorbed ions is expected, as these sites neighbor an edge silanol (or aluminol) group with excess negative charge. In contrast, the vicinity of the I-sites is depleted in adsorbed counterions. These sites are adjacent to the doubly protonated edge aluminol group, which has excess positive charge. Due to the symmetry of the illite structure, positive and negative charge

excess sites form neighboring pairs that give the H- and I- sites their distinct sorption behavior.

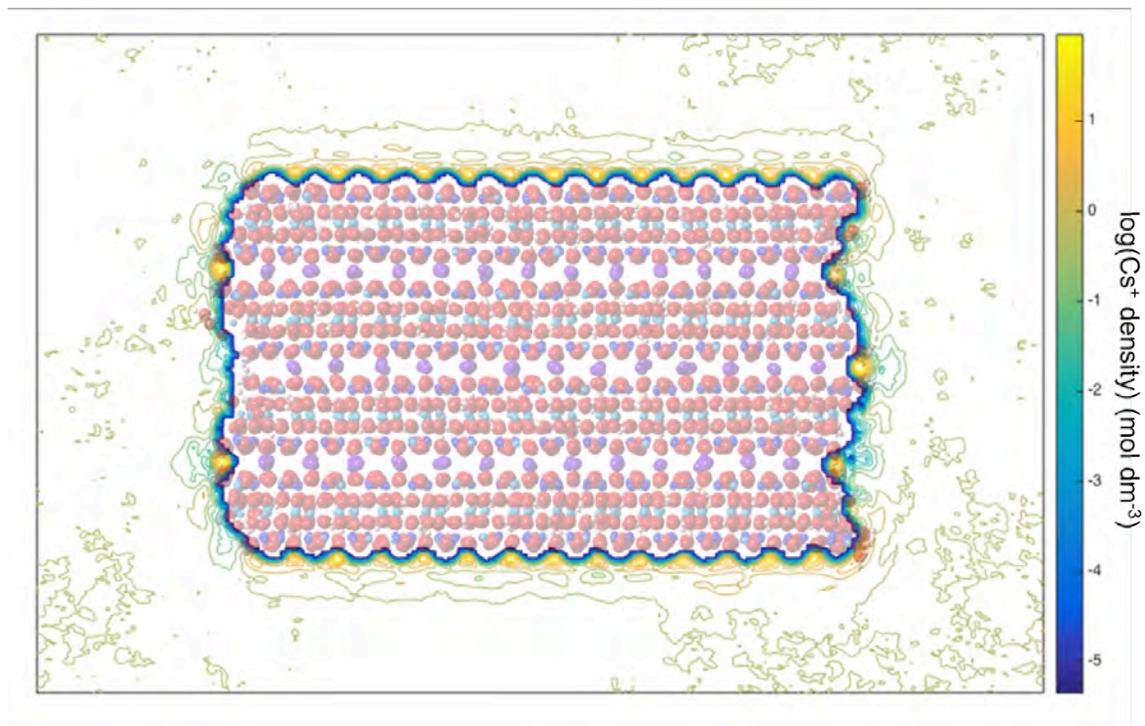


Figure 4. Map of Cs density averaged over a single 50 ns simulation with aqueous Cs mole fraction $x_{Cs} = 0.5$. Cesium primarily accumulates adjacent to ditrigonal cavities along basal surfaces and adjacent to hanging (H) sites along edges.

Surface area normalized density profiles of adsorbed ions yield valuable information about the prevailing sorption mechanisms of ions adjacent to charged surfaces. Density profiles and maps for Na and Cs adjacent to basal surfaces are given in Fig. 5a-b for low ($x_{Cs} = 0.1$) and high ($x_{Cs} = 0.9$) Cs end-member simulations. Density profiles adjacent to the basal surfaces are broadly consistent with the triple layer model picture of the electrical double layer (EDL), whereby adsorbed ions form either inner- or outer-sphere surface complexes (*i.e.* ions adsorbed directly to the surface or adsorbed as fully solvated cations) or take part in the diffuse ion swarm (*i.e.* adsorbed ions separated from the surface by more than one water layer). Cesium adsorbs almost exclusively as a single type of inner-sphere surface complex, as observed experimentally on the basal surface of mica (Lee et al., 2014). Sodium has a much more complex behavior: based on the relative location of the Na and water density peaks in Fig. 5a, it forms two types of inner-sphere surface complexes and an outer-sphere surface complex.

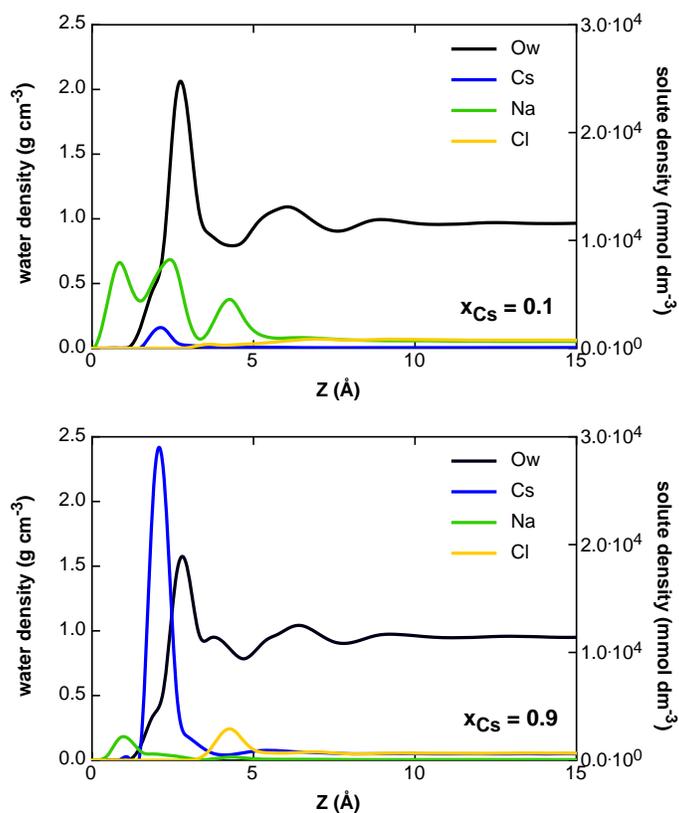


Figure 5. Density profiles of adsorbed solutes (Na^+ , Cs^+ , and Cl^-) and water adjacent to illite basal surfaces time averaged over 50 ns simulations at $x_{\text{Cs}} = 0.1$ (top) and $x_{\text{Cs}} = 0.9$ (bottom). Sodium ions appear to sit closer to the surface, because they enter the ditrigonal cavities on the basal surface. The “0” or surface plane in these figures is defined as the distance where all solute and solvent ion concentrations go to zero.

A comparison of the locations of inner-sphere counterions should be consistent with the difference in size of the adsorbed ions. If density peak positions are calculated relative to the average position of basal surface O atoms, the first Na density peak position (1.25\AA) is less than the hard-sphere radius of the ion (2.583\AA), indicating that these ions are sitting deeply in ditrigonal cavities of the siloxane surface. The Cs density peak is located further from the plane of basal surface O atoms (2.26\AA) in agreement with its larger hard-sphere radius (3.883\AA) and in agreement with the peak position measured by X-ray reflectivity [$2.26 \pm 0.01\text{\AA}$ (Lee et al., 2012)]. A smaller fraction of the hard-sphere radius of Cs sits below the basal O surface indicating that Cs^+ ions do not “fit” as snugly in these cavities as does Na^+ . The distance of closest approach for Na^+ calculated here is significantly less than the value of 2.6\AA for Na^+ observed in MD simulations of

smectite by Bourg & Sposito (2011). The discrepancy is likely due either to the fact that isomorphic substitutions in the present study are located in the tetrahedral rather than in the octahedral sheet (*i.e.* closer to the basal surface) or to the fact that the simulations presented here were performed using a flexible structure, which has been shown in the past to yield a distortion and increase in symmetry of the ditrigonal cavities. This distortion allows counterions to sit more deeply in the cavities. As shown in Fig. 5, the majority of adsorbed Na and Cs ions in our simulations formed inner-sphere complexes. This observation contrasts with the prevailing assumption in surface complexation models based on the well-known triple layer model (TLM) that inert electrolyte ions do not form inner-sphere surface complexes.

Given the structural heterogeneity of the edge, it is not reasonable to construct a single area normalized density profile. Instead, we calculated density as a function of distance for two equally sized regions centered on each of the two types of sorption sites (H and I) identified based on density maps. Neither site is smooth, so it is important to choose an appropriate “0” plane that is representative of the surface termination. This plane was chosen as the location of closest approach of water oxygen. Site-specific edge density profiles are shown in Fig. 6.

Inner-sphere sorption sites both Cs^+ and Na^+ can be identified adjacent to H-sites at edges. However, only Cs^+ appears to form inner-sphere complexes adjacent to I-sites in this high-Cs simulation (Fig. 6). Cesium ions are not present in the diffuse swarm adjacent to either type of edge site, and in fact, each site has a distinct low-density feature that is consistent with the presence of an energy barrier to ion exchange.

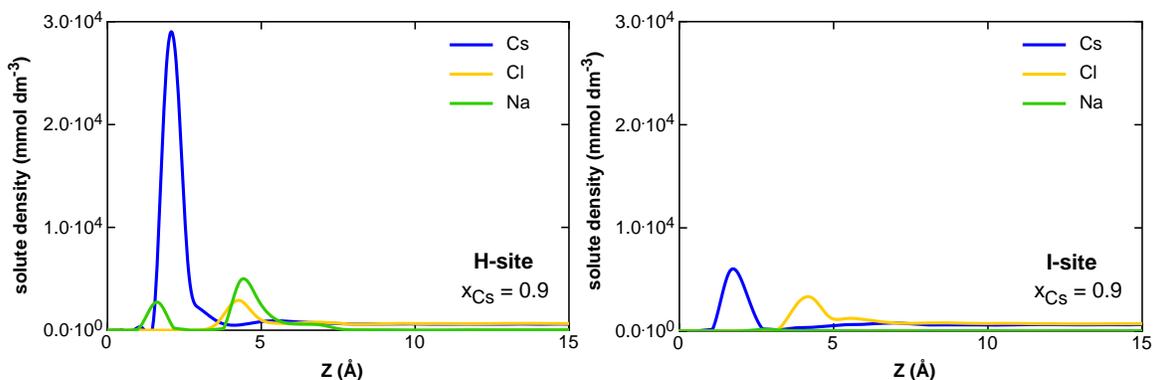


Figure 6. Density profiles of adsorbed ions adjacent to hanging (a) and indented (b) sites along the illite edge.

Na-Cs adsorption isotherms

The high cation exchange capacity (CEC) of clay minerals makes them excellent sorbents for metal contaminants and cationic radionuclides. This capacity arises from surface excess adsorption of counterions, and the total adsorption capacity of clay minerals is determined by the magnitude of structural and net proton charge not compensated by counterions located in the interlayer region. The extent of adsorption relative to ion concentrations in the bulk water region can be directly quantified from the MD density maps as Gibbs surface excess (n_i^w , mol/kg) :

$$n_i^w = \frac{1}{A} [N_i - c_i V^{fl}], \quad [2]$$

where A (m^2), N_i (moles), c_i ($mol\ m^{-3}$) are the interfacial area of a given site-type, moles of i in volume V^{fl} (m^3) adjacent to the site, and bulk aqueous concentration of i far from the surface. The average affinity of each site can be compared quantitatively by measuring the excess adsorption adjacent to each surface normalized to the area, in units of moles adsorbed per m^2 . No distinction is made among the adsorbate configurations typical of the electrical double layer. Surface, edge-site specific, and total particle values for Na and Cs surface excess are summarized in Table 3 for each of the 10 MD simulations performed. The overall adsorption behavior can be illustrated using adsorption isotherms for both basal (Fig. 7a) and edge (Fig. 7b) surfaces.

Table 3. Surface excess sorbed Na and Cs at each site type identified, with 2 s.e. uncertainties.

xCs	n_{Cs}^w ($\mu mol\ m^{-2}$)				n_{Na}^w ($\mu mol\ m^{-2}$)			
	basal	edge H-site	edge I-site	whole particle	basal	edge H-site	edge I-site	whole particle
0.1	0.15(3)	0.22(5)	-0.03(2)	0.34(5)	1.69(14)	1.13(17)	0.25(6)	2.91(5)
0.2	0.29(2)	0.57(6)	-0.01(4)	0.69(6)	1.62(12)	0.65(9)	0.05(8)	2.41(4)
0.3	0.44(4)	1.24(9)	0.03(4)	0.95(8)	1.52(11)	0.54(10)	-0.09(7)	2.32(5)
0.4	0.74(5)	0.92(7)	-0.04(4)	1.31(11)	1.10(8)	0.94(7)	0.05(8)	1.86(4)
0.5	0.75(5)	1.39(9)	0.01(9)	1.57(9)	1.26(7)	0.66(7)	-0.09(9)	1.72(7)
0.6	1.17(9)	1.10(19)	-0.32(11)	1.71(10)	0.82(12)	0.76(16)	0.24(6)	1.55(8)
0.7	1.33(6)	1.38(10)	-0.23(11)	1.94(11)	0.70(13)	0.40(7)	0.14(11)	1.16(4)
0.8	1.68(6)	1.43(8)	-0.04(8)	2.61(16)	0.43(8)	0.42(5)	0.016(5)	0.73(3)
0.9	1.78(7)	1.28(20)	0.22(10)	3.04(27)	0.25(5)	0.35(3)	-0.01(5)	0.41(2)
1.0	2.23(6)	1.23(7)	0.05(5)	3.29(13)	0.00(0)	0.00(0)	0.00(0)	0.00(0)

We performed thermodynamic modeling of basal and edge adsorption and ion exchange behavior. Sorption behavior was treated to be consistent with the thermodynamics of ion exchange, and vice versa. An equation can be written for individual Na and Cs sorption reactions, respectively:



and



where “X” represents the surface sorption site. The equilibrium constant for the adsorption reaction for ion i with aqueous activity a_i and surface activity a_{Xi} becomes,

$$K_{eq}^i = \frac{a_{Xi}}{a_i a_X}. \quad [5]$$

The activity of unoccupied surface sites are given as a_X , and we assume a unit activity coefficient for unoccupied surface sites, such that $a_X = n_X$. For monovalent ion exchange, we assume the ratio of aqueous activity coefficients to equal unity. Activity coefficients of occupied surface sites may deviate from unity. Activities of sorbed surface species are given as,

$$a_{Xi} = \gamma_{Xi} n_i, \quad [6]$$

and surface excess values are calculated separately for basal and edge (H) surface sites. The total site capacity is given as n_{tot} , and for Na-Cs ion exchange, the concentration (as surface excess) of unoccupied surface sites $n_X = n_{tot} - n_{Cs} - n_{Na}$. Combining Eqs. 5 and 6, we can derive a thermodynamic equilibrium expression for surface excess sorption of Na as a function of surface activity coefficients, aqueous ion activities, equilibrium constants of reactions 3 and 4, and total site capacities:

$$n_{Na} = \frac{K_{eq}^{Na} a_{Na} (n_{tot} - n_{Cs})}{\gamma_{XNa} + K_{eq}^{Na} a_{Na}} \quad [7]$$

Similarly,

$$n_{Cs} = \frac{K_{eq}^{Cs} a_{Cs} (n_{tot} - n_{Na})}{\gamma_{XCs} + K_{eq}^{Cs} a_{Cs}}. \quad [8]$$

These expressions are similar to the well-known Langmuir isotherm equation, except that surface excess concentrations of exchanging species are not independent.

Adsorption isotherms are plotted for basal and edge surfaces in Figures 7a-b. Surface excess concentrations of Na and Cs calculated from the MD simulations are plotted as a function of the bulk aqueous concentration of each species, and model curves based on Eqs. 7 and 8 are plotted for Na and Cs sorption respectively. Surface ion activity coefficients were calculated assuming a regular solution model, which has a single free parameter, α : $\gamma_{XNa} = \exp(\alpha x_{XCs}^2)$ and $\gamma_{XCs} = \exp(\alpha x_{XNa}^2)$. This model simplifies to an ideal surface solution model when $\alpha = 0$. Model curves were fitted using unconstrained nonlinear optimization of three parameters: the equilibrium constants K_{eq}^{Na} and K_{eq}^{Cs} and surface solution activity parameter α . The total site capacities for basal and edge H-site surfaces ($n_{tot} = 0.0022 \text{ mmol m}^{-2}$ and $0.00166 \text{ mmol m}^{-2}$ H-site respectively) were determined based on the average combined surface occupancy of Na and Cs from the 10 MD simulations. Surface excess concentrations were only determined at a single total monovalent ion concentration, so value of n_{tot} represents a lower-limit to the total available sorption site density, and fitted equilibrium constants represent upper-limit values.

Adsorption to basal surfaces for Na^+ and Cs^+ appears to follow an approximately linear (constant K_d) adsorption isotherm behavior in the simulated range of concentrations (Figure 7a). The optimized surface solution activity parameter α was very close to 0 (-0.001), indicating that ion exchange on the basal surfaces follows ideal solution behavior. Fitted equilibrium constants were determined for Na and Cs sorption were determined to be $K_{eq}^{Na} = 0.017 \text{ mmol m}^{-2}$ and $K_{eq}^{Cs} = 0.012 \text{ mmol m}^{-2}$ respectively. At low loadings, Na is favored over Cs, consistent with a slightly Na-selective basal surface (Table 1; Bradbury and Baeyens, 2000; Fuller et al., 2014; Benedicto et al., 2014; Fan et al., 2014; Steefel et al., 2003).

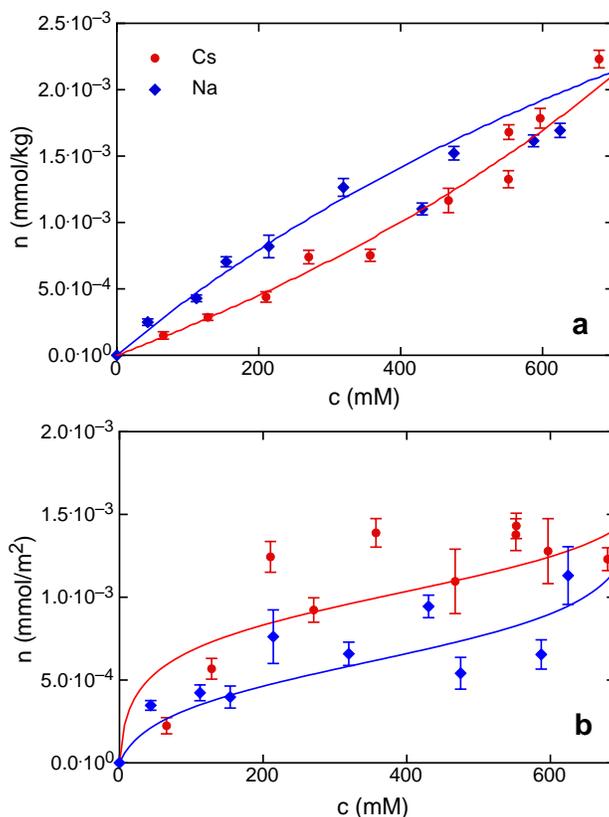


Figure 7. Surface excess adsorption isotherms for Na (blue diamonds) and Cs (red circles) determined from the 10 MD simulation runs on (a) basal surfaces and (b) edge H-sites. Isotherms were fitted using the thermodynamic model Eqs. 7-8.

Ion adsorption behavior at edge H-sites is distinctly different from basal surfaces (Fig. 7b). Calculated errors on surface excess are larger than those associated with the basal adsorption isotherms, because there are fewer available adsorption sites resulting in poorer statistics. For edge H-sites, the optimized $\alpha = 2.8$, which is significantly greater than 0 indicating that the edges are characterized by non-ideal surface solution behavior. Optimized equilibrium constants $K_{\text{eq}}^{\text{Na}}$ and $K_{\text{eq}}^{\text{Cs}}$ were significantly larger than their basal sorption counterparts with values of 0.045 and 0.14, respectively. The non-ideal adsorption behavior characteristic of the edge sites indicates that their selectivity behavior depends upon the aqueous solution composition, and in particular, on the mole fraction of Cs in the aqueous phase at fixed ionic strength.

Na-Cs ion exchange thermodynamics from MD

Ion exchange selectivity is a measure of the extent to which one sorbed ion is preferred over another on a given surface or surface site. As noted in the introduction, micaceous clay minerals are thought to have multiple sorption sites with varied Na/Cs exchange selectivity (Table 1). External basal surfaces are thought to account for the weakly selective Cs adsorption observed at high Cs loadings, while a low capacity high affinity site of unclear nature (potentially associated with illite edges) accounts for the highly selective Cs adsorption observed at very low Cs loadings. Simulated Na and Cs adsorption data were used to determine ion exchange selectivity coefficients as a function of the Cs mole fraction in the current simulations. The Na/Cs ion exchange reaction can be written,



with a corresponding mass action equation,

$$K_{eq}^{Na/Cs} = \frac{a_{Na^+} a_{XC s^+}}{a_{Cs^+} a_{XNa^+}} = \frac{K_{eq}^{Cs}}{K_{eq}^{Na}}, \quad [10]$$

where a_i represents the solid or surface activity of species i . For ideal surface solutions, the ratio of surface activities is equivalent to the ratio of surface excess concentrations, yielding the Vanselow selectivity model for equilibrium ion exchange (cf. Sposito, 2008):

$$K_V^{Na/Cs} = \frac{a_{Na^+} n_{Cs^+}}{a_{Cs^+} n_{Na^+}}. \quad [11]$$

The Vanselow selectivity coefficient (K_V) is constant and independent of aqueous mole fraction of Cs (x_{Cs}) for ideal surface solutions. A conditional selectivity coefficient (K_C) can also be defined that is expressed in terms of measurable quantities including aqueous and surface species concentrations,

$$K_c^{Na/Cs} = \frac{c_{Na^+} n_{Cs^+}}{c_{Cs^+} n_{Na^+}}. \quad [12]$$

The value of K_c is equivalent to K_V for ideal, monovalent ion exchange.

We calculated the conditional Na/Cs ion exchange selectivity (Eq. 12) for the basal and edge surfaces of illite (Figure 8a-b). Exchange selectivity behavior can be illustrated by plotting the aqueous vs. solid mole fractions of Cs. In this framework, an

ideal non-selectivity isotherm will follow the 1:1 line, a Na-selective isotherm falls below the 1:1 line, and a Cs-selective isotherm falls above the 1:1 line. The exchange selectivity of basal surfaces is plotted in Figure 7a along with the Vanselow selectivity model assuming a constant $K_V = K_{\text{eq}}^{\text{Cs}}/K_{\text{eq}}^{\text{Na}} = 0.7$. The simulated Na/Cs exchange reaction on basal surfaces is consistent with an ideal surface solution model, and the simulated flexible basal surfaces are slightly Na-selective. Exchange selectivity of the edge surfaces is plotted in Figure Xb, along with a conditional selectivity model (Eq. 12), where surface excess adsorption to the edges for Na and Cs is described by their respective adsorption isotherms (Eqs. 7-8). In stark contrast to the adsorption behavior observed on basal surfaces, Na/Cs exchange on edge surfaces is significantly non-ideal, resulting in a conditional selectivity coefficient that varies with aqueous mole fraction of Cs. At very low Cs loadings, edge surfaces are Cs-selective, while at high loadings, surfaces become Na-selective. This shift in selectivity indicates that the sorption of Cs changes the molecular structure of the edge, altering surface ion affinities.

Ion exchange behavior for illite under an ionic strength gradient has been shown to be non-ideal (Liu et al., 2004), but this non-ideality has been completely attributed in the past to the impact of variable water activity. The H- and I-sites as defined actually consist of several distinct sorption structures. Some insight into the non-ideality of edge ion exchange may be gained by scrutinizing the sorption behavior of individual structures. Ions located in the density maximum location in Figure 6a are inner-sphere sorbed ions bound in the H-sites. With increasing aqueous mole fraction of Cs, the capacity of these sites for monovalent ions (Na + Cs) actually increases from approximately 0.5 ions per site at $x_{\text{Cs}} = 0.1$ to approximately 0.7 ions per site at $x_{\text{Cs}} = 1.0$. The significant increase in H-site occupancy by inner-sphere complexed ions suggests that Cs changes the structure of the site itself, causing non-ideal adsorption behavior.

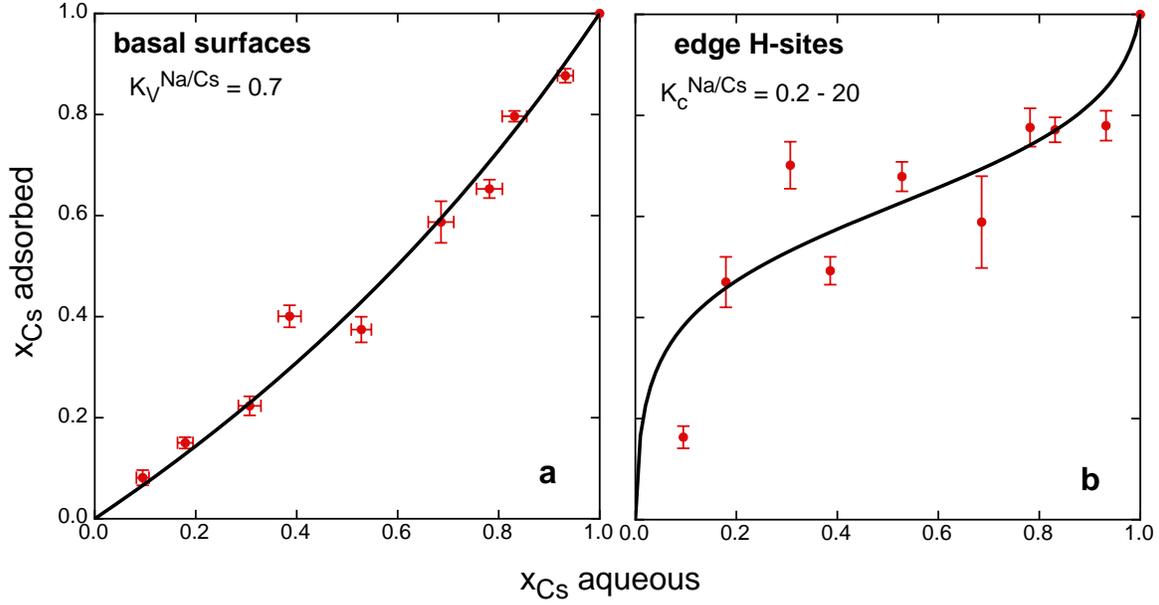


Figure 8. Na-Cs exchange selectivity isotherms for (a) basal and (b) edge sites. Basal exchange behavior is consistent with ideal surface solution, while edges exhibit non-ideal exchange behavior. Edges are significantly Cs selective at low Cs surface loadings but become increasingly Na-selective as the aqueous mole fraction of Cs approaches 1.0.

Na-Cs ion exchange thermodynamics from TI simulations

Our thermodynamic integration (TI) simulations yielded the Gibbs free energy changes associated with alchemical transformations of Na to Cs in bulk liquid water and at three different sites on the illite surface: external basal surfaces, collapsed interlayers in which all cations were simultaneously transformed, and collapsed interlayers in which only a few dispersed ions were transformed in an otherwise K-filled interlayer. More precisely, our calculations yielded the free energy change $\Delta G_{\text{Na}-i}$ associated with the transformation of Na into i , where i corresponds to a range of monovalent cations with interatomic potential parameters intermediate between those of Na and those of Cs. From the TI simulation results, we calculated the Gibbs free energy of the cation exchange reaction between Na and i as the difference between our predicted values of $\Delta G_{\text{Na}-i}$ on illite surfaces and in bulk liquid water:

$$\Delta G_{\text{ex}}^{\text{Na}/i} = (\Delta G_{\text{Na}-i})_{\text{adsorbed}} - (\Delta G_{\text{Na}-i})_{\text{aqueous}} \quad [13]$$

Finally, we calculated the ion-exchange selectivity coefficient between Na^+ and i with the relation:

$$K_{\text{eq}}^{\text{Na}/i} = \exp(-\Delta G_{\text{ex}}^{\text{Na}/i}/RT), \quad [14]$$

where R is the ideal gas constant and $T = 298$ K. Our predicted values of the free energy of ion exchange are shown in Figure 9 as a function of the free energy of hydration, where both values are reported relative to a reference value of zero for Na^+ . The values for Na, K, and Cs are highlighted with larger symbols. The results presented in Figure 9 yield $\log K_{\text{eq}}^{\text{Na}/\text{K}} = 0.6$ and $\log K_{\text{eq}}^{\text{Na}/\text{Cs}} = 0.3$ on external basal surfaces, $\log K_{\text{eq}}^{\text{Na}/\text{K}} = 4.5$ and $\log K_{\text{eq}}^{\text{Na}/\text{Cs}} = 4.0$ for ion exchange in an entire collapsed interlayer, and $\log K_{\text{eq}}^{\text{Na}/\text{K}} = 7.8$ and $\log K_{\text{eq}}^{\text{Na}/\text{Cs}} = 4.3$ for ion exchange of a few dispersed ions in an otherwise K-filled collapsed interlayer.

Our simulations predict that ion exchange on illite basal surfaces is essentially non-selective. This result is consistent with the ion adsorption isotherm shown in Fig. 8a and confirms that our 50 ns MD simulations with mixed Na-Cs-Cl electrolytes were sufficiently long to probe equilibrium conditions on the basal surfaces. The magnitude of the Na-K and Na-Cs selectivity is likely underestimated by our simulations as a result of an artifact related to the use of a flexible clay structure (the LAMMPS force field, when used to simulate a fully flexible clay sheet, predicts that the ditrigonal cavities of the siloxane surface become larger hexagonal cavities). In related TI calculations, the use of a rigid mineral structure resulted in a decreased tendency of Na^+ ions to drop deeply within the hexagonal cavities and in a more selective exchange ($\log K_{\text{eq}}^{\text{Na}/\text{K}} = 2.4$ and $\log K_{\text{eq}}^{\text{Na}/\text{Cs}} = 2.0$), in agreement with spectroscopic data (Lee et al., 2012) and in rough agreement with the properties of the planar sites in existing models of Cs^+ adsorption on illite planar sites ($\log K_{\text{eq}}^{\text{Na}/\text{K}} = 0.9 \pm 0.4$ and $\log K_{\text{eq}}^{\text{Na}/\text{Cs}} = 1.8 \pm 0.2$, Table 1). Overall, our results indicate that, apart from a significant loss of selectivity associated with the relaxation of the ditrigonal cavities, our simulation results are consistent with the planar sites being located on illite external basal surfaces.

With regard to the ion exchange selectivity of collapsed illite interlayers, our simulations indicate that the interlayer nanopores have a high selectivity for weakly hydrated cations (K, Cs) that is roughly consistent with that reported for the high affinity sites. Existing adsorption data suggest that $\log K_{\text{eq}}^{\text{Na}/\text{K}} = 2.2 \pm 0.4$ and $\log K_{\text{eq}}^{\text{Na}/\text{Cs}} = 7.0 \pm 0.5$ on the high affinity sites (Table 1). Our simulations also predict that the collapsed interlayers have a high selectivity for weakly hydrated cations ($\log K_{\text{eq}}^{\text{Na}/\text{K}} =$

4.5 to 7.8 and $\log K_{\text{eq}}^{\text{Na/Cs}} = 4.0$ to 4.3), though adsorption in the interlayers is relatively more favorable towards K and less favorable towards Cs than on the high affinity site, in agreement with Okumura et al. (2013).

Finally, our TI calculations provide evidence of a strong driving force for cation segregation in collapsed illite interlayers: K-Cs exchange has very little selectivity if the entire population of interlayer cations is transformed from K to Cs, but it is highly unfavorable (by about 20 kJ mol^{-1}) if only a few K^+ ions are exchanged for Cs^+ in an otherwise K-filled interlayer. This strong selectivity is likely related to the fact that, during replacement of the interlayer population of interlayer cations, the collapsed interlayer adjusts its basal spacing to accommodate the size of the interlayer cations. If only a few K^+ ions are converted to Cs^+ in an otherwise K-filled interlayer, however, the large population of interlayer K ions must impose a basal spacing that is too small to comfortably accommodate the larger Cs^+ ions.

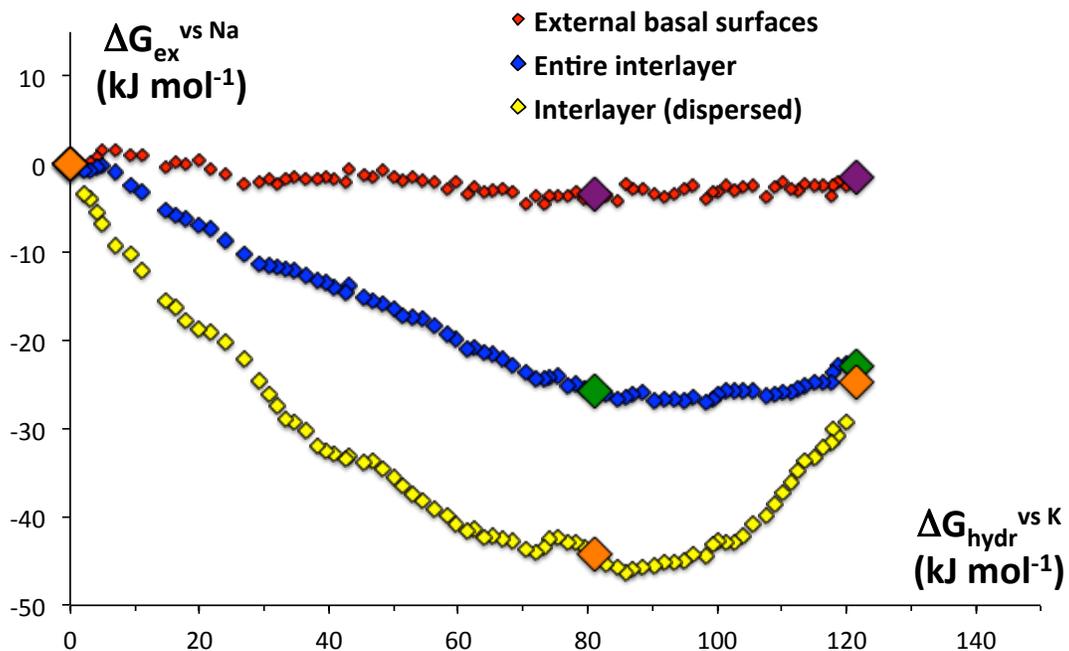


Figure 9. Thermodynamic integration (TI) prediction of the Gibbs free energy of cation exchange (relative to Na^+) as a function of the Gibbs free energy of hydration (relative to Na^+). The different colors show results obtained at three different sites on the illite surface: on the external basal surface (red), in a collapsed interlayer where all interlayer ions are simultaneously transformed (blue), and in a collapsed interlayers where almost all interlayer ions remain K^+ while a few dispersed ions are alchemically transformed

(yellow). The large symbols show free energies obtained for Na⁺, K⁺, and Cs⁺ (from left to right); smaller symbols show the intermediate steps of the alchemical transformations.

Ion exchange kinetics

Molecular dynamics simulation results were used to investigate the kinetics of ion exchange at basal and edge surface sites using a waiting time distribution technique analogous to a 1D jump diffusion model (Bourg & Sposito, 2011; Marry et al., 2008). Over MD timescales, no ions were observed to migrate from the bulk solution to the interlayer or within the interlayer itself due to significant energetic barriers to interlayer ion exchange. The kinetics of this process will be the subject of future work. Because the ion exchange kinetics at individual sorption sites (basal, hanging, and indented) is of interest, we determined the amount of time that inner-sphere complexed Na and Cs ions reside in the vicinity of each individual site. Positions of high affinity Na and Cs sorption sites were identified using density maps integrated over the complete simulation time. Geometries of inner-sphere edge sites differed from those of basal sites, so exchange events at these sites are calculated in a slightly different way. Ions are assumed to have left (or entered) an edge site when crossing out of (or into) a cylindrical zone with 2Å radius surrounding the Cs or Na site. Ion exchange events involving a hop parallel to the edge are not counted. Basal surface ion exchange events are counted when an ion leaves or enters a slab within 3Å of the closest-approaching Na⁺ ions, which approximately separates inner- and outer-sphere complexed ions for both Cs and Na (Figure 5a). For each type of site, we calculated the distribution of ion residence times between exchange events (Figure 10), as well as the time within which 90% of the Na or Cs ions leave the site (Table 4). We refer to the latter quantity as τ_{90} . This approach enables us to directly compare the ion exchange fluxes between sites, and for Na vs. Cs.

The typical distribution of ion residence times included a high probability of exchange over short timescales (i.e. many transient visits to the site) and a low probability of exchange over long timescales, on order of the length of the entire simulations (i.e. few prolonged visits to the site). A histogram of residence times is plotted for Na and Cs on basal surfaces and edge H- and I-sites for the $x_{Cs} = 0.5$ simulation in Fig. 10. The τ_{90} values for each simulation, ion, and site type are listed in Table 4 for comparison. On average, Na and Cs τ_{90} ion residence times at the basal

surfaces are within error of one another at 0.30 ± 0.03 ns and 0.34 ± 0.03 ns (2 s.e.) respectively. In contrast, the average τ_{90} of Cs ions at edge H-sites (7.25 ± 2.34 ns) is considerably longer than that of Na ions at the same sites (0.82 ± 0.47 ns). The same is true for edge I-sites, 2.93 ± 2.83 ns for Cs and 0.22 ± 0.07 ns for Na, except that the large errors for Cs make the values within error. These results indicate that (1) it may be difficult to reach exchange equilibrium with respect to Cs at edge H-sites over the course of a 50 ns simulation, and (2) Cs ion binding at edge sites is considerably more stable than for Na. The much poorer statistics for edge compared to basal sites arises from the fact that there are many more available basal sorption sites in each simulation.

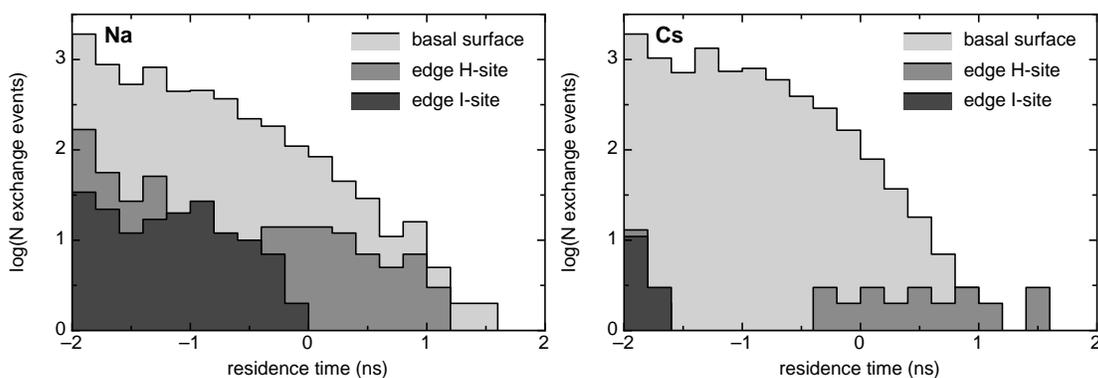


Figure 10. Histogram of Na^+ (left) and Cs^+ (right) residence times at edge and basal sites. Exchange dynamics of Cs^+ at edge H-sites are highly skewed towards long (nm) residence times compared with the fast-exchanging Na^+ .

Table 4. Average timescales over which 90% of inner-sphere complexed ions exchanged with outer-sphere or diffuse swarm ions.

Na			Cs		
τ_{90} basal (ns)	τ_{90} edge H-site (ns)	τ_{90} edge I-site (ns)	τ_{90} basal (ns)	τ_{90} edge H-site (ns)	τ_{90} edge I-site (ns)
0.30 ± 0.03	0.82 ± 0.47	0.22 ± 0.07	0.34 ± 0.03	7.25 ± 2.34	2.93 ± 2.83

IV. Conclusions

Our work demonstrates for the first time the distinctly different dynamic and thermodynamic properties of clay edges and basal surfaces with respect to Cs^+ immobilization and shed light on the molecular-level nature of the *basal*, *slow*, and *high-affinity* sites identified in batch adsorption studies. Ions sorbed to basal illitic surfaces exchange readily with bulk aqueous solution, and the surfaces themselves are only

weakly Cs⁺ selective. Edge sites, in contrast, exhibit slow Cs⁺ ion exchange dynamics, have a high affinity for Cs⁺ at low surface loadings, and interestingly display non-ideal exchange behavior. Although site selectivities derived directly from MD underestimate the expected values inferred from experiment, the results are valuable in that they inform the underlying causes controlling *relative* affinities of each site type. In the case of basal surfaces, this discrepancy is an artifact of the flexible illite structure, while in the case of edges, this may be due to the fact that spontaneous FES formation and ion intercalation do not occur over MD (10s of ns) timescales. However, Our TI simulations of interlayer ion exchange in contrast gave reasonably good agreement with the selectivity of the *high affinity* site. Thus, we conclude that the availability and exchange kinetics of *slow* and *high affinity* sites are likely related to the dynamics of interlayer ion exchange. Our ongoing molecular simulations in this system are investigating the impact on solution chemistry, and in particular chemical variables likely to be important in the interim storage context (i.e. salinity and Ca²⁺ availability), on ion exchange at these sites, which regulate the long-term retention of radiocesium by clay minerals.

References

- S.J. Anderson, G. Sposito, Soil Sci. Soc. Am. J. 55 (1991) 1569.
- B. Baeyens, M.H. Bradbury, Clays Clay Miner. 52 (2004) 421.
- A. Benedicto, T. Missana, A.M. Fernández, Environ. Sci. Technol. 48 (2014) 4909.
- B.C. Bostick, M.A. Vairavamurthy, K.G. Karthikeyan, J. Chorover, Environ. Sci. Technol. 36 (2002) 2670.
- I.C. Bourg, G. Sposito, Environ. Sci. Technol. 44 (2010) 2085.
- I.C. Bourg, G. Sposito, J. Colloid Interface Sci. 360 (2011) 701.
- M.H. Bradbury, B. Baeyens, J. Contam. Hydrol. 42 (2000) 141.
- E. Brouwer, B. Baeyens, A. Maes, A. Cremers, J. Phys. Chem. 87 (1983) 1213.
- R.N.J. Comans, J.J. Middelburg, J. Zonderhuis, J.R.W. Woittiez, G.J. De Lange, H.A. Das, C.H. Van Der Weijden, Nature 339 (1989) 367.
- R.N.J. Comans, M. Haller, P. De Preter, Geochim. Cosmochim. Acta 55 (1991) 433.
- R.N.J. Comans, D.E. Hockley, Geochim. Cosmochim. Acta 56 (1992) 1157.
- L. Dzene, E. Tertre, F. Hubert, E. Ferrage, J. Colloid Interface Sci. 455 (2015) 254.

- D.D. Eberl, *Clays Clay Miner.* 28 (1980) 161.
- D.W. Evans, J.J. Alberts, R.A. Clark III, *Geochim. Cosmochim. Acta* 47 (1983) 1041.
- Q.H. Fan, M. Tanaka, K. Tanaka, A. Sakaguchi, Y. Takahashi, *Geochim. Cosmochim. Acta* 135 (2014) 49.
- A.J. Fuller, S. Shaw, C.L. Peacock, D. Trivedi, J.S. Small, L.G. Abrahamsen, J.T. Burke, *Appl. Geochem.* 40 (2014) 32.
- A.J. Fuller, S. Shaw, M.B. Ward, S.J. Haigh, J.F.W. Mosselmans, C.L. Peacock, S. Stackhouse, A.J. Dent, D. Trivedi, I.T. Burke, *Appl. Clay Sci.* 108 (2015) 128.
- S. Gaboreau, F. Claret, C. Crouzet, E. Giffaut, C. Tournassat, *Appl. Geochem.* 27 (2012) 1194.
- T. Ikeda, S. Suzuki, T. Yaita, *J. Phys. Chem. A* 119 (2015) 8369.
- T. Kogure, K. Morimoto, K. Tamura, H. Sato, A. Yamagishi, *Chem. Lett.* 41 (2012) 380.
- S.S. Lee, P. Fenter, K.L. Nagy, N.C. Sturchio, *Langmuir* 28 (2012) 8637.
- C. Liu, J.M. Zachara, S.C. Smith, J.P. McKinley, C.C. Ainsworth, *Geochim. Cosmochim. Acta* 67 (2003) 2893.
- V. Marry, B. Rotenberg, P. Turq, *Phys. Chem. Chem. Phys.* 10 (2008) 4802.
- C. McCombie, *Physics Today* 50 (1997) 56.
- J.P. McKinley, C.J. Zeissler, J.M. Zachara, R.J. Serne, R.M. Lindstrom, H.T. Schaef, R.D. Orr, *Environ. Sci. Technol.* 35 (2001) 3433.
- J.P. McKinley, J.M. Zachara, S.M. Heald, A. Dohnalkova, M.G. Newville, S.R. Sutton, *Environ. Sci. Technol.* 38 (2004) 1017.
- H. Mukai, T. Hatta, H. Kitazawa, H. Yamada, T. Yaita, T. Kogure, *Environ. Sci. Technol.* 48 (2014) 13053.
- A. Nakao, S. Ogasawara, O. Sano, T. Ito, J. Yanai, *Sci. Tot. Environ.* 468-469 (2014) 523.
- M. Okumura, H. Nakamura, M. Machida, *J. Phys. Soc. Japan* 82 (2013) 033802.
- C. Poinssot, B. Baeyens, M.H. Bradbury, *Geochim. Cosmochim. Acta* 63 (1999) 3217.
- S. Staunton, M. Roubaud, *Clays Clay Miner.* 45 (1997) 251.
- B. Rotenberg, J.-P. Morel, V. Marry, P. Turq, N. Morel-Desrosiers, *Geochim. Cosmochim. Acta* 73 (2009) 4034.
- C.I. Steefel, S. Carroll, P. Zhao, S. Roberts, *J. Contam. Hydrol.* 67 (2003) 219.

- T.P. Straatsma, H.J.C. Berendsen, J.P.M. Postma, *J. Chem. Phys.* 85 (1986) 6720.
- S. Suehara, H. Yamada, *Geochim. Cosmochim. Acta* 109 (2013) 62.
- K. Tamura, T. Kogure, Y. Watanabe, C. Nagai, H. Yamada, *Environ. Sci. Technol.* 48 (2014) 5808.
- T. Tamura, *Clays Clay Miner.* 10 (1961) 389.
- N.B. Turner, J.N. Ryan, J.E. Saiers, *Water Resour. Res.* 42 (2006) W12S09.
- J.M. Wampler, E.J. Krogstad, W.C. Elliott, B. Kahn, D.I. Kaplan, *Environ. Sci. Technol.* 46 (2012) 3837.
- J.M. Zachara, S.C. Smith, C. Liu, J.P. McKinley, R.J. Serne, P.L. Gassman, *Geochim. Cosmochim. Acta* 66 (2002) 193.
- L.K. Zaunbrecher, R.T. Cygan, W.C. Elliott, *J. Phys. Chem. A* 119 (2015) 5691.

付録3

地表環境での物質移動に関する予測モデル等の開発状況

地表環境での物質移動に関する予測モデル等の開発状況

放射性核種が仮に処分場から人間の生活圏（地表の環境）に到達するような状態が生じた場合、どのように地表の環境中を移行し最終的に人間に影響を与えるかはステークホルダーの関心対象の一つであり、「合意形成の促進（境界領域）に資するモニタリング技術等の開発」では、ステークホルダーに信頼性の高い技術情報を提供するために、地表環境での物質移行の予測モデルの追従性や精度・分解能などをモニタリング結果と整合させる際に必要なモデルの開発・改良を行うこととしている。具体的には、原子力機構が平成26年度より開始した米国ローレンス・バークレー国立研究所（LBNL）との共同研究（付録2参照）などを通じて、下記の項目について検討した。

- (1) モニタリングデータの統合、分析、可視化
- (2) 土壌中での放射性核種の収着挙動に関する基礎的な理解とモデリング

平成27年度の検討の成果について概要を以下に述べる。

(1) モニタリングデータの統合、分析、可視化

地表環境での物質移行の予測モデルの追従性や精度・分解能などをモニタリング結果と整合させる際には、被ばく評価を精度よく実施できることが求められ、その際使用されるモデルの一つがモンテカルロ輸送コードである。また、実際の地表上の環境での被ばく評価では、構造物や地形など地表の性状の影響を受ける。モニタリング結果を用いてこのようなモデルの妥当性を示すためには、現実の地表環境の実態に則した構造物等の形状をコンピューター上で再現し、任意の濃度の放射性核種をそれらの表面等に分布させ、空間線量等を評価する必要があるが、複雑な形状の構造物を構築するのは煩雑な入力手続が必要となり、十分に整備されていない。

上記の現状を鑑み、モンテカルロ輸送コードとして汎用の粒子・重イオン輸送計算コード（Particle and Heavy Ion Transport code System: PHITS）を用いて、地形効果、各構造物等の形状と放射性核種の分布を入力し、各地点にて空間線量を評価するために、以下に示す開発手順にてコード開発を行った。

- i. 構造物・地形の入力データに即した線源分布を実現するための、三角柱分布ソースの開発
- ii. i に対応し、構造物・地形の高さデータからPHITS計算の入力データを作成し、表面にソースを分布させるスクリプトの作成（図1参照）
- iii. 森林環境等の線源分布を実現するため、樹木（自然構造物）モデルの開発（図2,3,4参照）
- iv. 人口構造物表面の線源分布を実現するため、家屋及び公共建屋モデルの開発
- v. iii. 及びiv. の自然及び人口構造物のデータを基にPHITS計算の入力データを作成し、ソースを分布させるスクリプトの作成

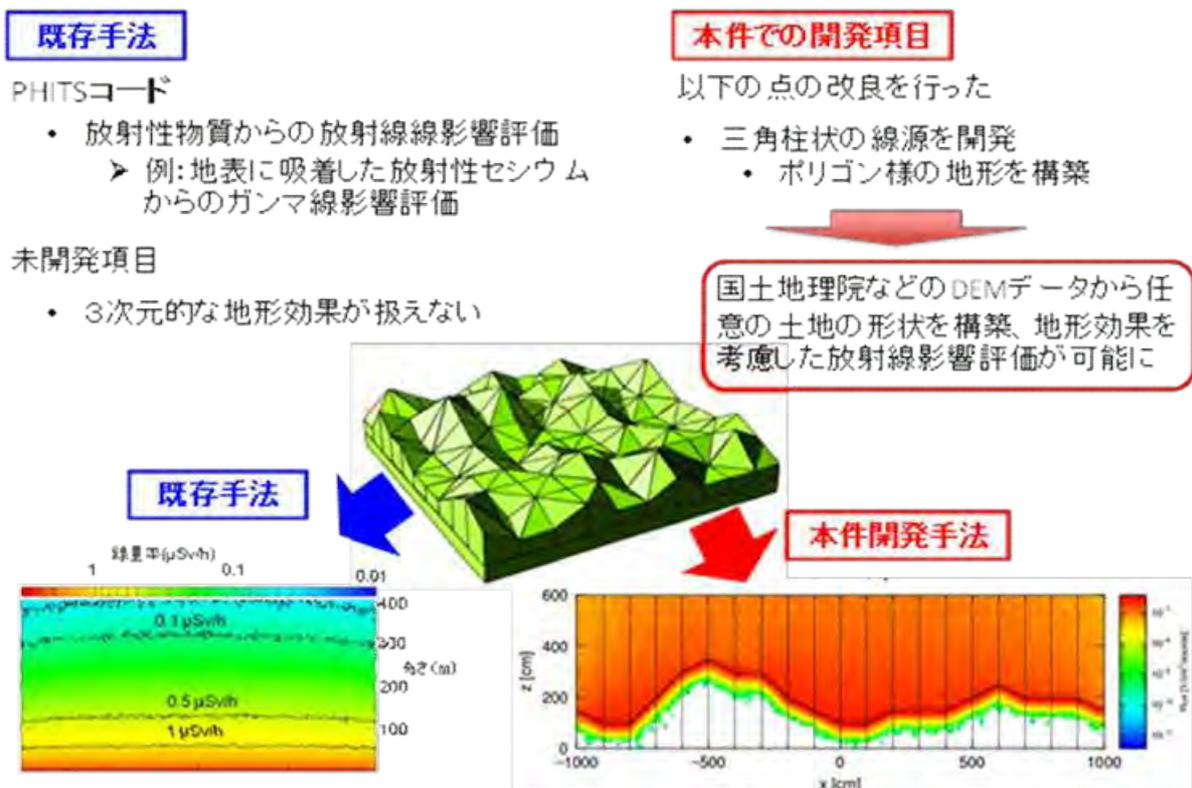


図1 3次元的な地形効果を考慮したPHITSコードによる放射線影響評価技術の開発の概要

上記の手順にて開発したコード（ツール）を用いることで、国土地理院などが一般公開している数値標高モデル（Digital Elevation Model: DEM）データから任意の土地の形状を構築し、地形効果を考慮した放射線影響評価が可能となった（図1参照）。地表環境での物質移行の予測モデルの追従性や精度・分解能などを実際のモニタリング結果と整合させるためには、これまでの地層処分安全評価で採用されてきた無限平板の線源を仮定した評価方法では限界があったが、本研究により3次元の地形効果を考慮できる評価コードが開発されたことは意義ある成果と位置づけられる。

さらに、上記開発済み三角柱分布ソースを基に、地上の様々な自然及び人工構造物を再現し、放射性核種をそれらの表面及び内部に分布させ、任意の地点にて空間線量評価を実施可能とするツールを開発した。開発したツールとしては、自然構造物の代表的例として樹木と、人工構造物としては、家屋と公共建物とした。まず、樹木に対しては、以下のようなパーツを樹木特徴づけるパラメータを与えることで構築可能とした（図2参照）。

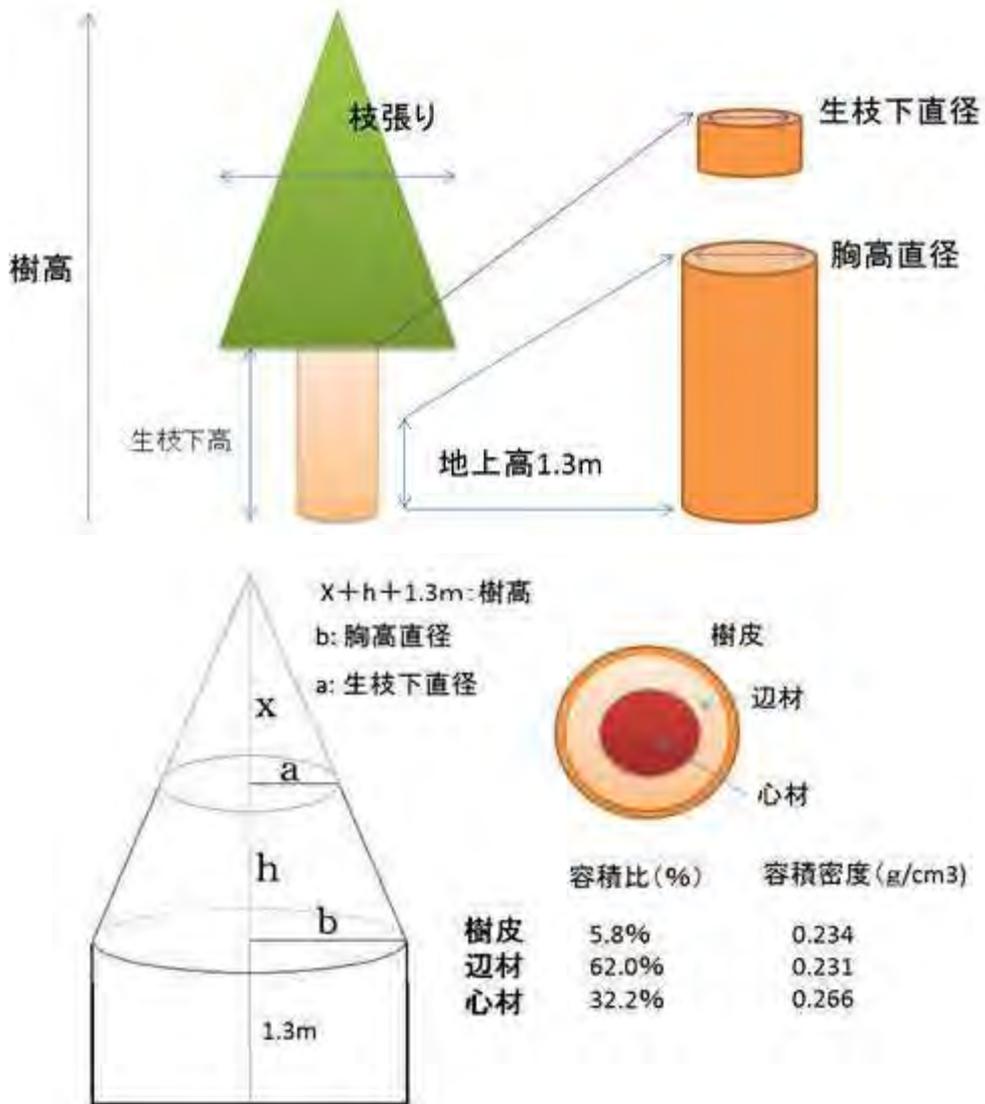


図2 樹木を3次元構造物として考慮するモデルの概要と必要パラメータ

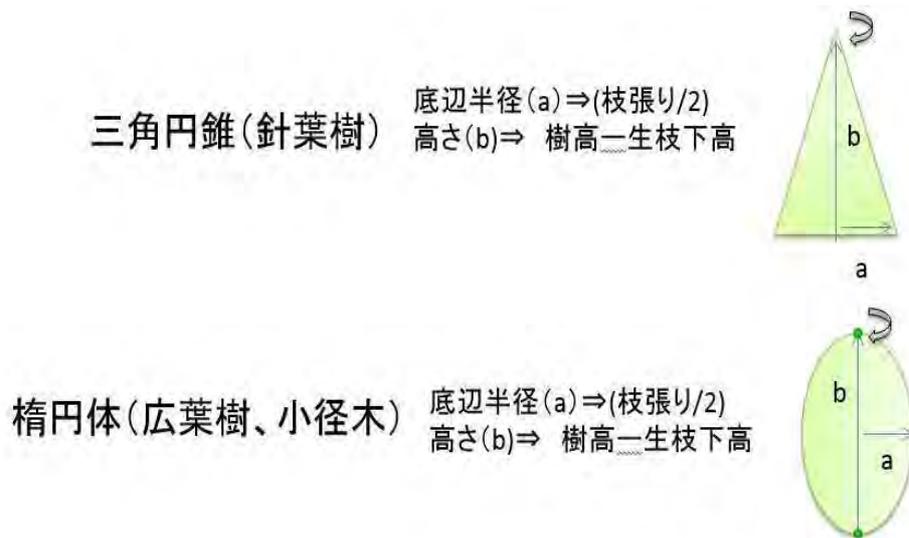


図3 針葉樹と広葉樹及び小径木モデルの枝葉形状の違い



図4 枝葉重量を決定するための樹木パラメータ

樹幹にたいしては、生枝下高以下は円筒形とし、枝葉内に隠れた部分は円錐形状とした。また、針葉樹の枝葉については三角円錐形状として枝葉重量を与えた他、広葉樹と樹種に依らずに小径木に対しては、回転楕円体として形状と枝葉重量を与えることとした（図3、4参照）。これらのモデリングにより、樹木パーツの様々な部分に任意の放射性核種分布を付与することが可能となり、森林をこれらの樹木パーツの集団として、観測された樹木密度に従って森林全体のモデルを構築することができる。

次に人工建造物のパーツとして、家屋（一般住居）（図5参照）と公共建屋（図6参照）を作成した。

これらの3次元構造は、図に記された寸法（パラメータ）を付与することで、任意の建造物数値モデルを構成することができる。

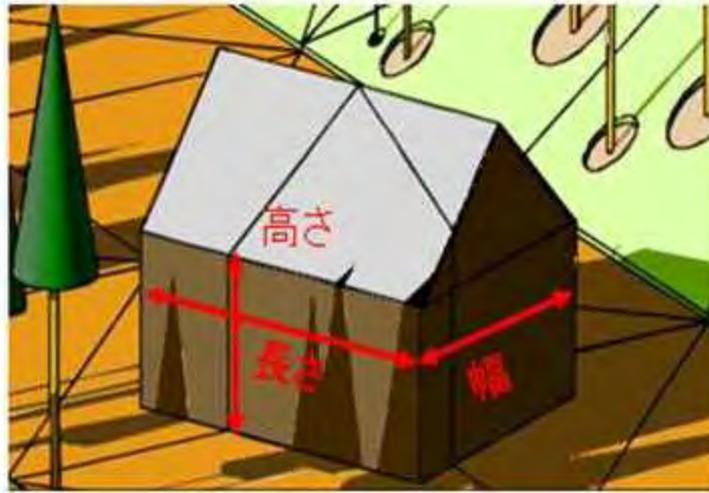


図5 家屋（一般住居）モデルと形状決定のためのパラメータ

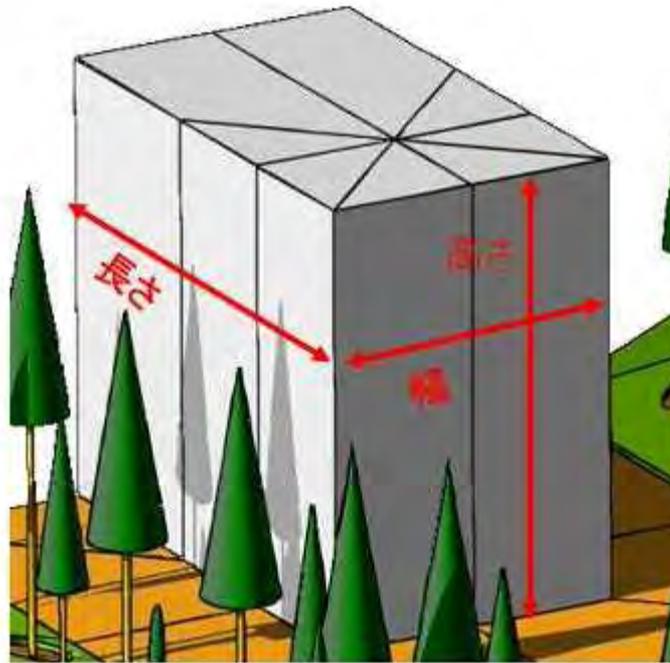


図6 公共建屋モデルと形状決定のためのパラメータ

上記のパーツ群を用いて、地表環境での放射源分布の付与と空間線量空間分布を計算するテスト計算を下記の環境モデル（図7参照）を作成し、実施した。図8は、放射源を適宜、森林内樹木と地表に分布させた場合の一例の断面図である。図8では家屋周囲の平地にも放射源を分布させている。

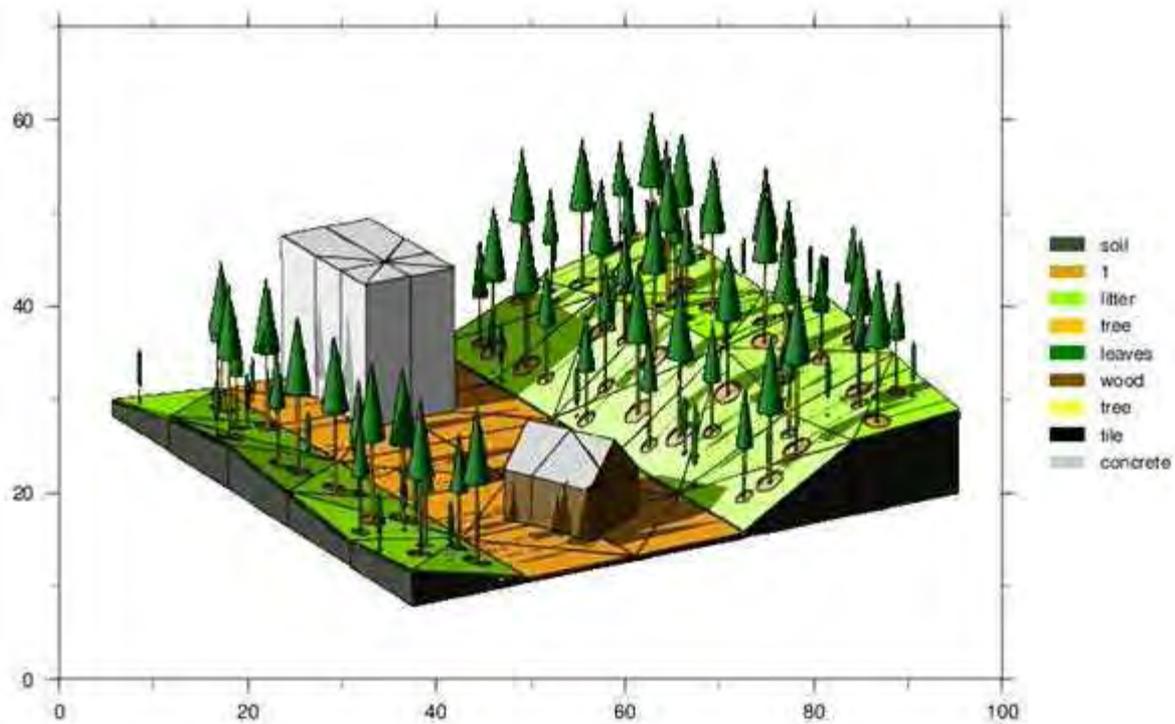


図7 テスト計算（放射源分布と空間線量評価）を実施する環境モデル

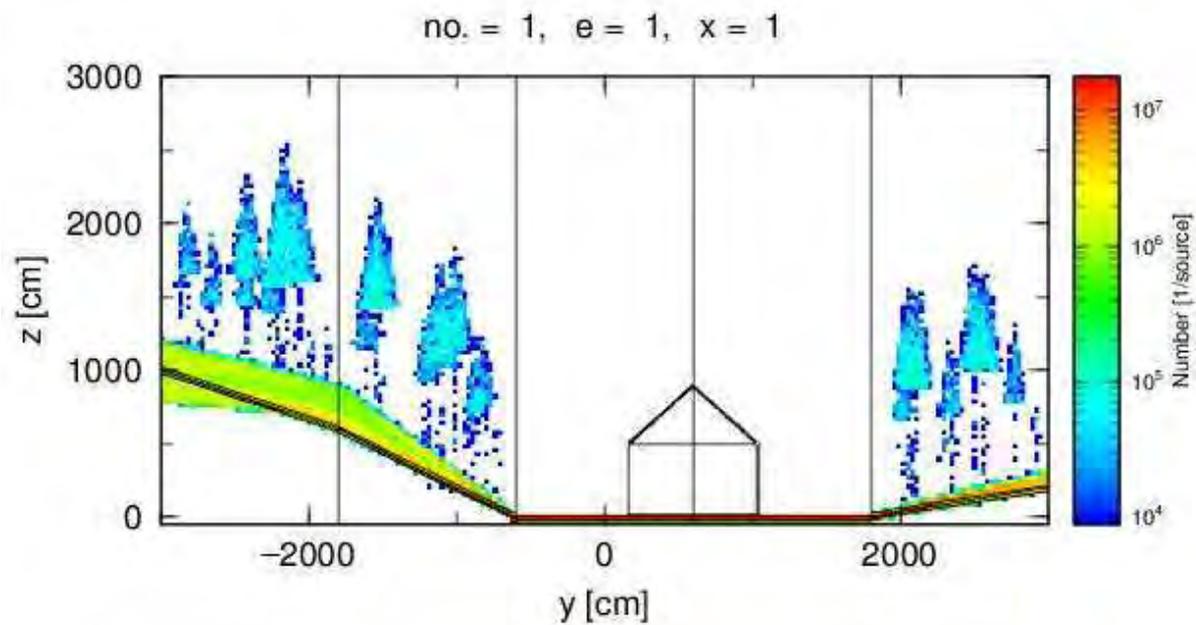


図8 環境モデル（図7参照）の断面図と付与した放射源分布

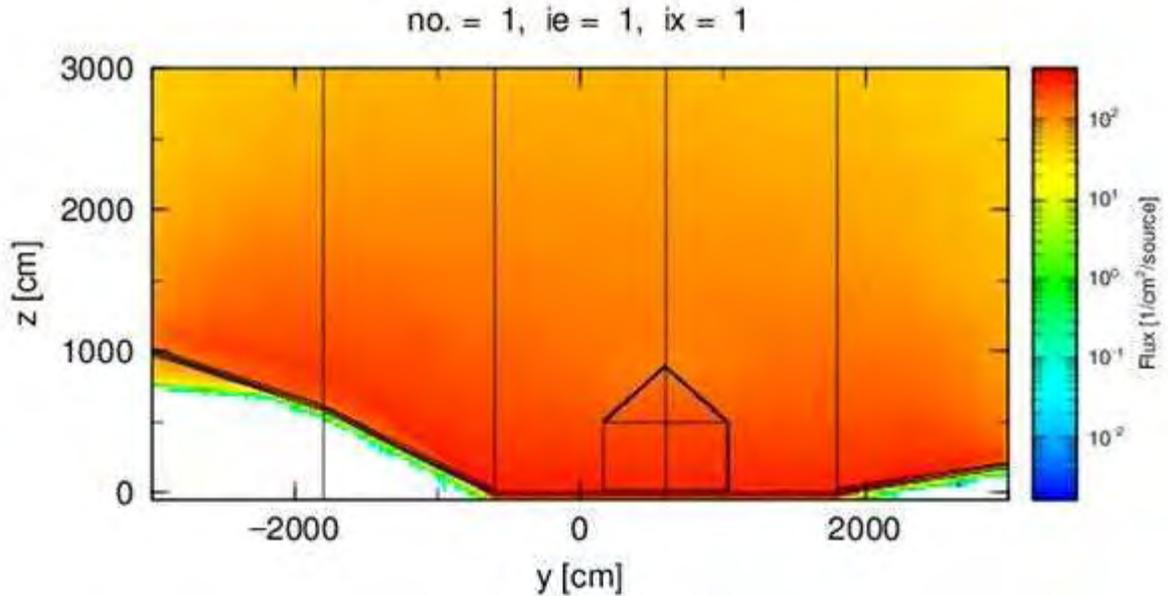


図9 空間線量計算結果（図8の放射源分布）断面図

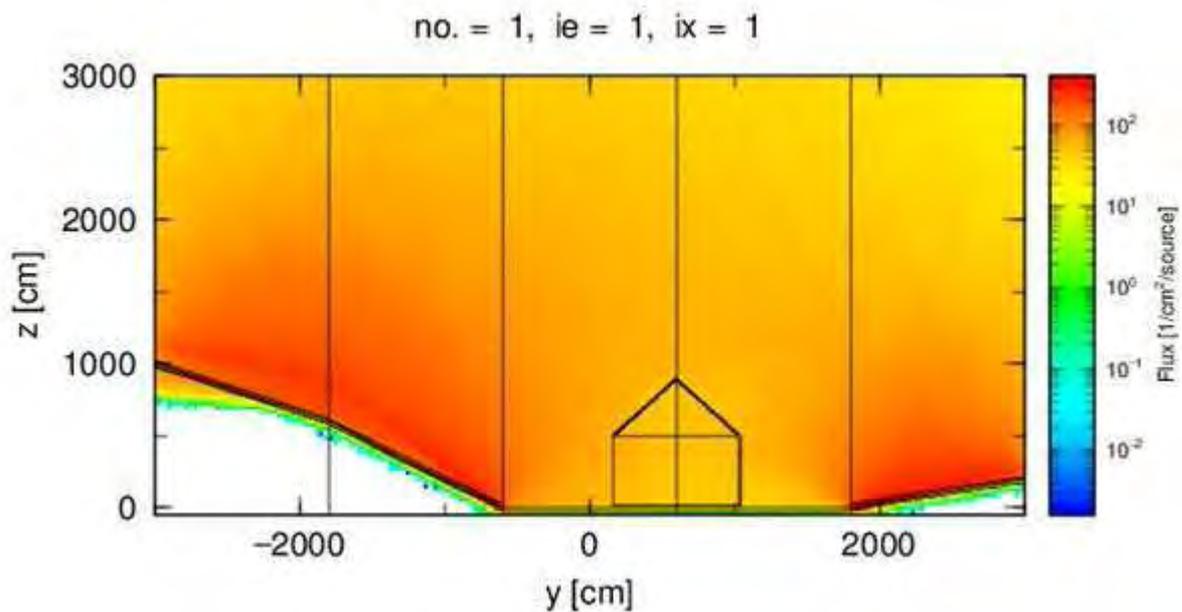


図10 空間線量計算結果（図8の放射源分布に対し家屋付近平地の除染を実施）断面図

図8に示した分布から、計算により得られた空間線量分布の結果を図9に示す。この場合は家屋周囲の平地と森林斜面からの放射線の影響を受け家屋での空間線量が比較的高い様子が示されているが、家屋周囲の平地の除染を実施（放射源を取り除く）することで、家屋を中心として空間線量が減少する様子が示された（図10参照）。

以上、様々な現実地形と環境構造物を入力データとするツールを開発することで、3次元的な放射源の分布をした場合の空間線量評価コードを開発し、テスト環境で空間線量計算を行った。また、除染を実施した場合等の比較計算も実施し、ツールの妥当性等について検討した結果の概略を報告した。

(2) 土壌中での放射性核種の収着挙動に関する基礎的な理解

粘土鉱物は、イオンを強く吸着する性質を持つため、核種を収着・保持することが可能である。この性質を利用して、放射性廃棄物処分における核種の自然・人工バリアとしての利用が期待されている。人工バリアとしての粘土鉱物については、様々な研究がなされており、近年、コンピューターの著しい発展とともに、数値シミュレーションによる研究も重要な役割を果たしている。これまでの研究対象は主にバルクの粘土鉱物であったが、実際の吸着現象は粘土鉱物表面が重要な役割を果たしており、粘土鉱物表面を含んだより現実的な数値シミュレーションが望まれていた。そこで、LBNL/UCBとの国際共同研究においては、粘土鉱物表面におけるイオン吸着に着目し、スーパーコンピューターを用いた大規模シミュレーション研究を行った。この共同研究では、特に、2:1型層状ケイ酸塩によるセシウムの吸着を主な対象としている。

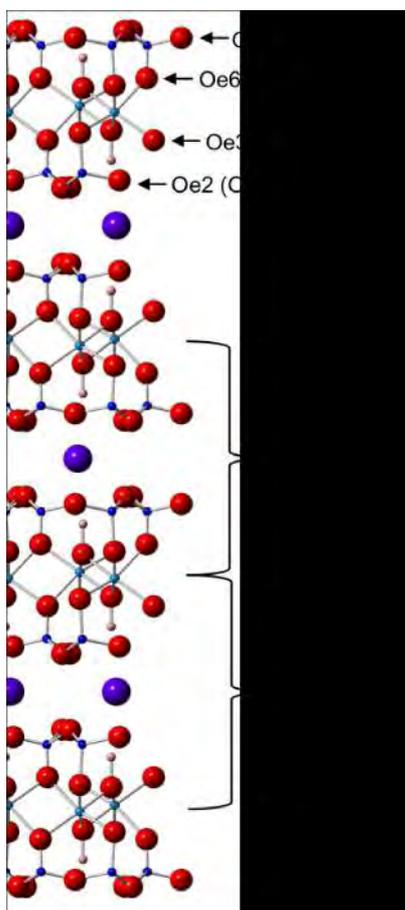


図11 エッジの概略図 赤い球は酸素を、青い球はカリウムを表す。

LBNL/UCBとJAEAは、セシウムを強く吸着することが知られている2:1型層状ケイ酸塩の一つであるイライトについて、分子動力学 (Molecular Dynamics: MD) 法を用いて基盤表面と(110)エッジを含む4層からなるモデルを構築した。さらに、環境中の粘土鉱物を再現するため、粘土鉱物の周囲に水分子を多数配置した。さらに、セシウム吸着に対する他のカチオンの効果も評価するため、今回はナトリウムイオンも環境中に入れ、シミュレーションを行った。

MDシミュレーションで用いる力場パラメータはCLAY-FF (Cygan *et al.*, 2004)を用いた。しかし、CLAY-FFにはエッジ部分を記述するパラメータがないため、ポーリング則などを基に、本研究で独自にパラメータを設定した (図11、表1)。これらのパラメータを用いて、上記モデルを構築した (図12)。

イライトはシリコンと酸素からなる四面体層と、アルミニウムと酸素からなる八面体層で構成されている。この内、(110)エッジの八面体層部分について、エッジ部分のアルミニウムの酸素に対する安定な配位数は6であり、さらにその一つは電荷中性条件から H_2O を構成することが知られている。しかし、エッジ部分の力場パラメータを決めるために必要な、エッジ部分の各原子の部分電荷等の詳細については未だ明らかになっていない。そこで、JAEAは密度汎関数法を用いて、Bader電荷及びHirshfeld電荷を評価し、エッジ部分の各原子の部分電荷を得た。その結果、エッジ部分のアルミニウムに配位する H_2O 部分は、ほぼ電荷的に中性であるが、水素結合に由来する少量の電荷移動があることがわかった。しかし、その量は非常に小さいため、この H_2O 部分の力場パラメータとしては環境中の水分子と同じパラメータを用いれば良いことがわかった。この結果とCLAY-FFを基にエッジ部分のパラメータを決定し (表1)、シミュレーションを行った。

表1 エッジ部分のカ場パラメータ

Edge O-Site	Site Description	Partial Charge	B.V.	Cation Charge	# Coordinating Cations (N_i)			
					Al oct.	Si tet.	Al tet.	H
Oe1	Hanging tetrahedral O-Si	-0.95000	2.00	0.95000	-	1	-	1
Oe2	Indented tetrahedral O-Si	-0.95000	2.00	0.95000	-	1	-	1
Oe3	Hanging octahedral O-Al	-0.8476	2.50	1.3476	1	-	-	2
Oe4	Hanging tetrahedral O-Al	-1.06875	1.75	0.81875	-	-	1	1
Oe5	Indented tetrahedral O-Al	-1.06875	1.75	0.81875	-	-	1	1
Oe6	Bridging O-Si	-1.28750	1.50	0.78750	1	1	-	-
Oe7	Bridging O-Al	-1.40625	1.25	0.65625	1	-	1	-

Edge M-Site	Site Description	Partial Charge
Al _{0e}	Octahedral edge Al	1.8125

※各記号については図11を参照。

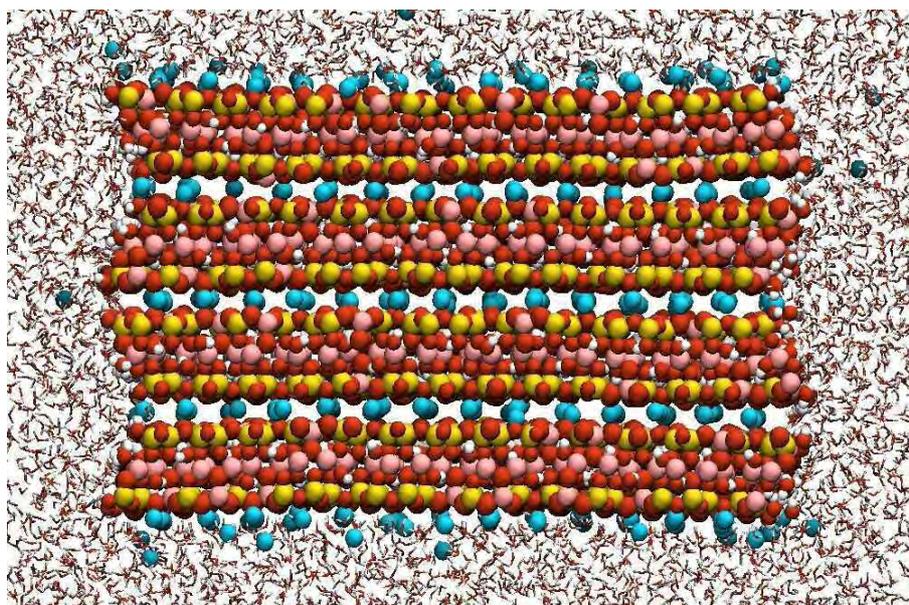


図12 MDシミュレーションのスナップショット

このエッジ部分のアルミニウムに配位しているH₂O部分は、そのアルミニウムとのイオン結合と、周囲のOH基との水素結合によってエッジに保持されている。しかし、それらの結合力は弱いため、環境中においてどのように振る舞うか未知であった。そこで、本研究では、このH₂O部分に着目してその動きを追跡した。その結果、最初エッジ部分に吸着していたH₂Oは頻繁に環境中のH₂Oと交換を繰り返し、環境中に分散していくことがわかった（図13）。

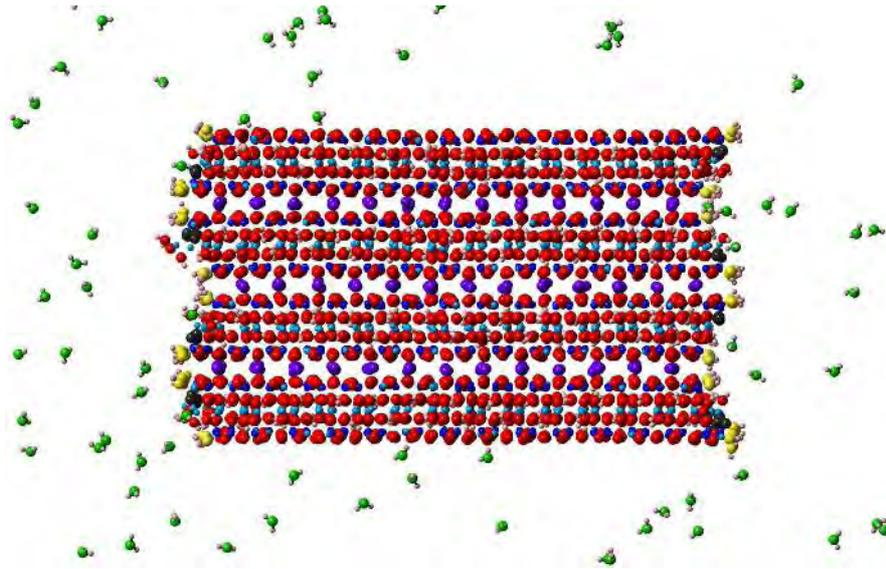


図13 Cs:Na = 1:1の系における50ns後のエッジ部分のH₂Oの分布

次に、セシウムイオンのイライト片への吸着について調べた。シミュレーションを50ns行い、セシウムの平均密度を評価した。その結果、基盤平面に比べて、エッジ部分が強くセシウムを吸着することがわかった（図14）。エッジ部分による強い吸着は実験で示唆されていたが(Brouwer *et al.*, 1983)、シミュレーションでその結果を再現したのは本研究が初めてである。また、実験では観測することが難しい、ミクロな吸着の様子を視覚化することに成功している。図14から、エッジ部分への吸着については、層間に対応するエッジ部分への吸着が支配的であることがわかる。エッジへの吸着については、これまで、どの部分にどのように吸着するのか全く分かっていなかったが、本研究でその様子が初めて明らかにされた。

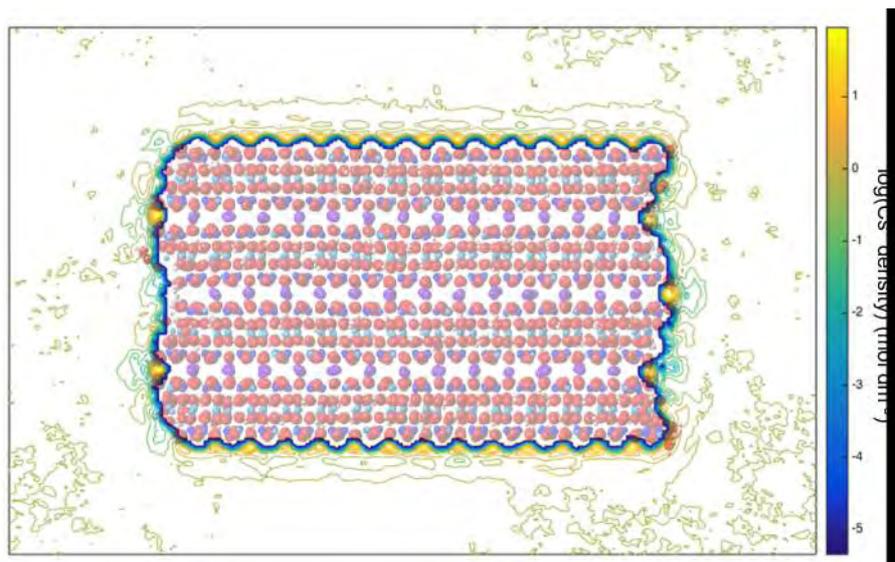


図14 イライト片周辺のセシウム濃度

次に、基盤表面とエッジにおけるセシウム吸着のセシウムとナトリウムの選択性を評価した。図15

は溶存セシウム量と吸着されたセシウム量をナトリウムとの個数比で表したものである。個数比 x_c は次の式で定義される。

$$x_c = \frac{N_{Cs}}{N_{Na} + N_{Cs}}$$

図15aは基盤表面による吸着の選択特性を表している。この図から、吸着されるセシウム量は、溶液中のセシウムイオン個数比に依存せずに、ほぼ選択性を示さないことがわかる。しかし、エッジによる吸着特性を示す図15bを見ると、溶存セシウムが低濃度の場合、高いセシウム選択性を示すことがわかる。これは、粘土鉱物のエッジがセシウムを選択的に吸着することを示した最初の計算結果であり、粘土鉱物による放射性セシウムの吸着を考える際には、エッジを考慮する必要があることを示している。

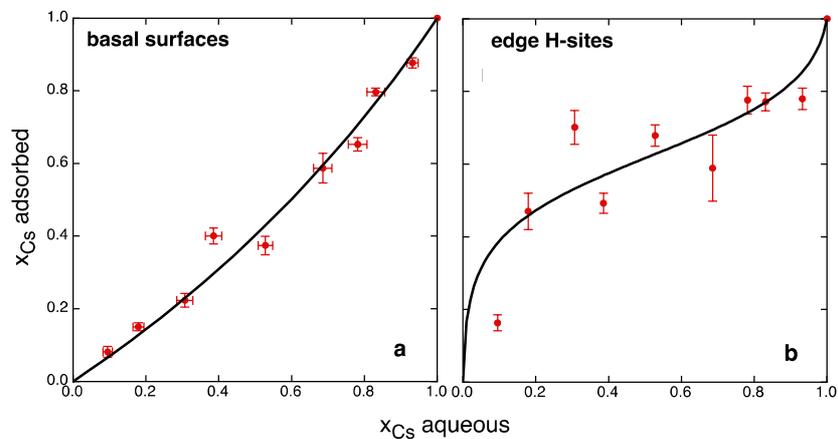


図15 基盤表面とエッジにおけるセシウムとナトリウムの選択性 a)基盤表面、b)エッジにおける溶存-吸着セシウムのナトリウムに対するモル濃度比。横軸は溶存ナトリウムに対する溶存セシウム個数比、縦軸は吸着ナトリウムに対する吸着セシウム個数比をそれぞれ表す。

以上、分子動力学法を用いてイライト片のモデルを構築して、粘土鉱物によるセシウム吸着におけるエッジの果たす役割を評価し、エッジがセシウムを選択的に吸着することを示した研究結果の概略を報告した。

参考文献

- Bea, S. A., Wainwright, H., Spycher, N., Faybishenko, B., Hubbard, S. S., Denham, M. E. (2013): Identifying key controls on the behavior of an acidic-U(VI) plume in the Savannah River Site using reactive transport modeling, *Journal of Contaminant Hydrology*, 2013, 151, 34-54.
- Brouwer, E., Baeyens, B., Maes, A., Cremers, A. (1983): Cesium and Rubidium Ion Equilibria in Illite Clay, *The Journal of Physical Chemistry*, 294, 1213-1219.
- Cygan, R., Liang, J., Kalinichev, A.G. (2004): Molecular Models of Hydroxide, Oxyhydroxide, and Clay Phases and the Development of a General Force Field, *The Journal of Physical Chemistry B*, 108, 1255-1266.

付録 4

アコモデーションワークショップにおける議論の内容

「地層処分の概要」の説明（情報共有）に対する簡単な Q&A

- ユッカマウンテン計画におけるどのプロセスが不透明だったのか？大変面白いポイントだと思う。
→ 1989年に候補地が三つ残っていて、その中でユッカマウンテンを選出するという宣言が突然なされた。ユッカマウンテンに決めるプロセスについてみなさんに真意をうかがわなかった。
- 火山の中心から地下水の水質の pH が下がったり、地下水の温度が高い影響領域が 15km で、それを要件としているが、15km より外側なら安全かということではないでは？
→ 影響の及ぶ可能性の低い 15km より外側のエリアを選ぶことになるが、だからといって安全というわけではない。

「R&R に関する社会的な論点」、「廃棄物の回収可能性に関する処分概念オプション」に対する簡単な Q&A

- 午前中のセッションで違和感を感じたのは、地層処分の話が先に入ってきて、なぜ、地層処分なのか、現状の保管を続けていると危ない、ということ比較がない。飛行機はリスクより便益があるが、地層処分は将来の危険について予防的イノベーションであり、まず予防的イノベーションのお話が必要であり、その次の話として可逆性と回収可能性（R&R）がある。
- 学生の皆さんにはなぜ地層処分が必要という話はしているので省略した。
- ここにきている人は地層処分が必要と思っているが、このワークショップは一般の方にどう訴求するかということの話合い。そうだとすると一般の方はどう思っているかということについて議論した方がここにいる方の前提ができてよいと思う。
- 「地層処分の概要」のスライドの中で、現状は、何もせず貯蔵しておく。この状態から地層処分にもっていく。数万年間にわたり状態を維持するにはコストもかかるし、維持するための社会的な枠組みが将来も残っているかも不明。スライドを使って、このようなことをまず説明する。
- 建物をずっと維持するのは大変だし、コンクリートは劣化する、といった部分の説明がどの程度なされているか？
- 廃棄物に近づいた時の放射線レベル、建て替えのコスト試算、テロの話等については説明している。
- この会合の目的は？
- アウトプットとしては、地層処分をすることを前提として、R&R に絞ってその社会的受容性について議論したい。

- 地層処分に関するメリット論はこれまで出尽くしており、それだけでは地層処分が進まない。地層処分は後戻りできないのに不確実性が大きいところにコミットしろというところがあるので、それに対する答え方として R&R がある。R&R という提案がみなさんの不安を払しょくするものであるのかどうか、そこを含めて議論したい。
- 技術屋の人たちが R&R に取り組んでみたら、実は合意形成の観点でいいかもと思ってやっているが、それは社会的に意味がないのかもしれないということであれば早く知りたい。
- 地層処分の社会的受容性は原発自体をどうするのかということと常に天秤にかけられる。地層処分を認める＝原発を認める、拡大するという懸念も反対派にはある。一方廃棄物は何らかの形で処分しないとイケないし、技術的に可能であるが、原発継続の言い訳になると困るということもある。
- 地層処分の成立性の見込み次第で、原発を継続するものなのかどうかも変わってくる。R&R の議論をしてもただちに総論の結論が出るわけではない。
- 既に存在している使用済燃料やガラス固化体の貯蔵と今後拡大した時の廃棄物を分けて考える議論はどこかで行われているのか？ 処分場のスケールが現在のままという場合と、スケールが変わる場合のサイト選定に関する議論は関係者の間で検討されているのか？
- 学術会議の議論では総量を確定してからとされており、これまでに発生したもの、これから発生するものとを分けている。今後の廃棄物は基本的にはあり得ない、という意味で確定したいが、そうすると、原発を継続する場合に処分ができないため、その点についてはあいまいな議論となっている。
- 合意形成という点からみると、その辺に胡散臭さを感じる。
- 国により最終処分計画が作られるが、その中では処分対象とする本数を明記し、費用を計算する。これまでは以前の処分計画のものが活かされているが、昨年 5 月にこの最終処分計画が改定されたのでこれから見直される。今は 4 万本とされているが、これは当時のエネルギー需給計画から推測されている。しかし、2012 年以降は、ほとんどの原発は止まっていたし、これからも 20% くらいかもしれないので、4 万本という本数は当然変わる。当然、エネルギー政策と処分計画のスケールの見直しはリンクする必要がある、そういった枠組みは存在する。
- 現状の発生分は処分場 1 か所でのスケールか、今後の増分については複数に、というような説明もある。
- 4 万本はスケールメリットかつこれまでの廃棄物の量と合致するため。ただ、既存、今後を区切っても、反対派の方にはあまり関係ないように思う。このようにどうしても議論が発散しやすいので、今日はテーマを絞って議論していきたいと思う。
- だいたい、コストは 13 銭/kW で、これは割安だが、刈り込んでるんでしょ、とすぐ言われる。事故耐用費用等を組み込んで考えるととても大きくなる。

- 他国の処分費用はここ最近高くなっている。これは予備費（2割。日本の予算制度の中でごまかすのは大変。自由に使える予算を確保しないと進めにくい。）を積んでいるため。一方、今の日本は財務省の考え方では、最小限で積むということになる。必要になったら積むということで、見かけ上安くなっているということはある。

学生の皆さんからの議論

- この地層処分を行うに当たって、どれくらいの合意を得られれば大丈夫そうか。100人の1割2割は賛成、7割は不安、1割はどうしてもだめという人ということでしょうか。
- 答えにくいですが、どうしてもだめっていう方を説得するのは無理で諦め。残り8割の方ができるだけいいと思って行ってほしい。まあ5割を超えて6割くらいかな、という感覚。半分を超えるのが目安。
- 2/3あれば何やってもいいのかよ、と思う昨今の政治情勢の中で、7割はめざしたい。
- 合意の度合いを数で図るのは如何なものでしょうか？ 15年も前に法律が国会での数時間の議論で決まっている。でも、実体としてどうか？
- 法律があるということ自体を一般の人は知らない。なんですかそれ、という感じで、合意形成の場に立てていない。
- 15年前に決まったことをごり押し通すなら地層処分の議論すること自体無駄。
- そもそも地層処分が嫌だというのは、もう決まっているけど、R&Rの余地は残っているけどどうする？というのが政府の見解。
- 取り出せる＝不安定なシステムを意味する。
- 取り出せるよう空洞をつくっていることで脆弱になっている。何万年のスケールを考えるなら、建設のときだけ可逆性を残しておいて漏れたときの拡散予測や地上からのモニタリング技術がどれくらい進んでいるかが気になった。
- 放射性廃棄物を回収することの理由、埋めてしまったものを取り出すことによって得られるメリット。
- 具体的な状況として回収しなければいけないという状況はあまり考えられない。
- 品質管理のエラーが後で発覚したとか。
- そこで出すことが安全なのか、そのまま放っておくのが安全なのか。絶対的に出さねばならないシナリオとはどんなものか？
- 容器にピンホールが開いていたら、漏れて汚染されている周囲の粘土も回収するので被ばくのデメリットやコストがかなり大きくなる。ただし、資源に使えるとか、再生医療により被ばくしても大丈夫になるのであればメリットはある。
- 取り出すことを仮に認めるとすれば、永久的に認めるのか、一定時期認めるかについての検討が必要。技術的なこと、手続き的なことで、人間がエラーを起こすというこ

とを踏まえた制度設計が必要だと思われる。

- R&R はメリットがあるからやるというよりは心理的に不安を和らげる、受け入れやすいという効果が強いように感じられる。エラーに対して何か対応できるということ。
- 戦略的な柔軟性を持つておくためにも必要じゃないかなと思っている。大変なことが起きてそれを後片付けする意味で R&R が位置づけられているが、処分の本数が変わったとか技術が発展したとかそういったことも含めて柔軟に対応するという見方で、地層処分のバリエーションがあって、時と場合に応じた選択肢と捉えていきたい。
- R&R の考え方と現状の貯蔵と何が違うのか。
- 地上管理だと地震が起きた時に半地下がいいかも、そのあと少しまた地下にするというようなグラデーションの中で、地上の方が R&R をしやすいけれど今日明日何か起きたらどうするというようなトレードオフ、でもあまりに深いところではなく、適度に深いところというようなバランスをとる中で R&R がある。
- そういう色々なオプションを考えたときに、出てきたのが地層処分。
- R&R を広く認めすぎると一時保管とあまり変わらなくなってしまうので、R&R を認めるのであれば、かなり厳格な要件を課しないと地層処分を選択するメリットがなくなってくる。
- そのあたりが R&R に実態がないとされる理由。非可逆的なこと（後戻りできない状況）になるのではないかと、という不安がどうしても出てくるので、あえて回収可能性を確保するといっている。いつまで R&R が必要と思うか？
- 100 年まで。
- 言うだけで、とりあえずは回収しない。
- 情報が残っている間。数 100 年くらい。
- 100 年くらい。必要であれば後々半永久的に生じると思う。
- 公共事業で可逆的であることが法律上要請されることは？
- 何年かごとに見直し規制が必要だし、意思決定のプロセスの中で見直しを求めることもある。行政は決めたことはなるべく効力を維持したいというのがあるが、再検討の機会というのは設けられて然るべき。

「どのような高レベル放射性廃棄物の”処分”が望ましいのか」の説明に関する議論

- 調査対象とされた専門家の分野は？
→できるだけ若手を対象として、地層処分の専門家、核不拡散、地質学系、実施主体、研究機関、電力会社、大学等
- 専門家の回答の分布は広い？
→思ったより広い。宇宙エレベーターの話でもりあがった。

- 不可逆性を担保するときの社会的費用をどう考えるか。やるといってやめますというのは、立地前提のプロセスだと人生を振り回す。不可逆的なプロセスを作ること自体、非倫理的と言える。信頼の問題なので信頼をもたらすうえでこの種の不可逆性を担保していることは信頼を得る上で必要。予測のところでリスクを認めて、フィードバック制御をかける必要があるといえ、一個人が責任もって決めますという逆逆に不信感をもたれる。シミュレーションよりも実現性があるし、想定外が起こった時のことを見せる方法として、利害が相反する人たちに実験調査を実施してもらおうジョイントファクトファインディングを実施するといいかもかもしれない。
- この話は階層がわからない。階層をわけないで話をするのが難しいということではなくて、それをやらないから話がややこしい。100年レベルの話だと地層処分とR&Rは変わらず、政府としてもレトリックの話。そこに問題を絞れば掘りだしてというのはわざわざいうまでもない。R&Rを（確保）した方が、信頼性が高まるのかどうかはネット調査などで調べてみては？
- もっと長いスパンの話であれば他の事例は援用できないが、スパンを限れば援用できるところもある。問題のスパンを区切って、レトリックでいくのか他の分野の技術を援用するのかといったところを決めていく。
- 切り分けのプロセス自体も見られる。国として進めていく場合にはグランドビジョンのもとで進めるのが必要である。人間のタイムスケールと物の劣化の時間スケールは異なる。内部での専門家がより外部からの提案や意見に対して論拠を示し、エビデンスを共同で見直していくということも信頼確保の上では必要。共同事実確認は恣意的なデータの使い方も含めて実施する必要がある。
- ジョイントファクトファインディング（共同事実確認）では反対派はそういう場に出ること自体警戒するし、日本では規制側が信頼醸成にうまくかかわっていないことは事実。また、レトリックでいいじゃないか、といっても、この分野はかなりまじめで、技術の裏付け等をしっかりとろうとする。ヨーロッパの技術的に詰めるところが先行しているためと考える。
- ただ事実をみるとレトリックにならざるを得ない。どこをレトリックにして、どこは技術的に裏付けるか、どこに法律があるのか。処分場サイト決定のプロセスをどう合意してもらうかが今は問題。2000年に法律つくったけれど「もんじゅ」もあんなことあったし、っていうことで日本の中で **comparative analysis** をすれば根拠のある政策決定になり、それが遠回りだけど近道だと思う。西洋の意識と日本の意識はずいぶん違う。何にもしなくていいようにするのがいいというのが西洋的で、大切なことであればひきついでいくべきだというのが日本の意識。
- 2000年の法律は法律があるからやらなきゃいけないということではない。
- 2000年以降、専門家の方は **agree** しているのか？
- むしろ2000年より前にその **agree** があったからこそ法律が通ったし、サイクル機構の

平成 12 年レポートが通った。

- 15 年の間こういった WS は開かれていたのか？国民に聞かれていたのか。
- やるという方針の中でのやり方の話はいくらでも国としてはいいし、そういった集会はしているが、あくまでも法律の枠を出られないので、地層処分をするという枠は出られない。
- 法律の認知度は？
- 法律はご存知ですか？という問いかけは今まで見たことがない。
- ただ、この問題に対する認知度は割と高い。3.11 以降は事故廃棄物の報道もあり、かなり認知度があがっている。ただし、処分場どうしますかということになると途端に議論がとまる。
- 他のオプションと比べて地層処分でなければならないということを見せていく必要がある。
- お金で済む問題はお金で済ませればいいけど、お金を使ってお金で解決できないことを解決していくことが大切。
- お金をかけて社会を維持するのが日本という国なので、あまり経済合理性を追求することもないかも。

ここまでの議論のポイント

- 15 年前に法律で決まっているけど知らないステークホルダも多い。
 - 政府は都合のいいことは言うけどあまり騒がせたくないことは言わない。いつの間にか通っていた感じがある。
 - 最上位の法律を改正するのは大変だが、その下の施工例についての改正手続きは随分簡素になってきている。
- R&R について、回収することの意味
 - 積極的な理由があるというよりも良くないことがおきたというような理由で回収することが多そうだ。
 - 回収に伴うリスクはいくつかある。
 - 回収する理由として、受容性を高めるためのアリバイ工作として言うのは少し弱いと思う。
- 回収可能期間について
 - 回収可能期間を 100 年、数 100 年とする案がある。これらと貯蔵との違いは？
 - コストよりベネフィットが大きければまだ議論の余地はあるのかもしれない。
- 渡辺さんのプレゼン
 - 一般市民の方は無邪気に色んな事をおっしゃるが、それに対する専門家のレスポンスについて、無知をさげすむようなことをしないように間に立った方が気をつけないといけないので、そういったテクニックが必要。

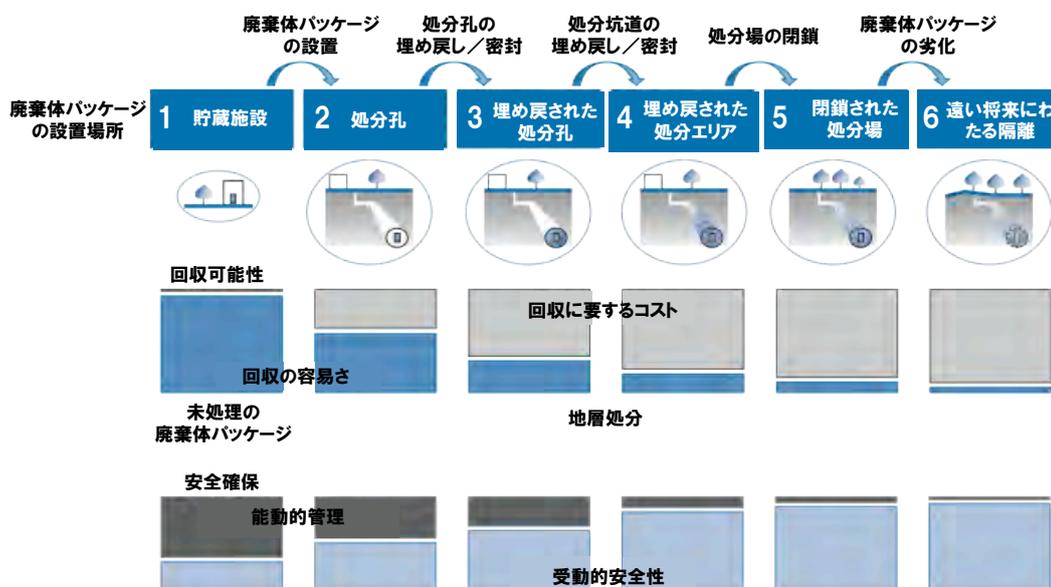
- 丸山先生の可逆性を担保するための社会的費用をどのように考えるか。八ツ場ダム的事例で、人の人生は不可逆だという視点が紹介された。このポイントは非常に大切だが、あまり議論されていないからきちんとした議論が必要。
- また、信頼担保の手法として挙げられたジョイントファクトファインディングは、積極的な提案と思う。

回収可能性に的を絞った議論

- 回収可能性を想定する期間は 100 年間程度（処分場埋め戻しまで、あるいはプラスアルファの監視期間）？ そうだとすると、（本気で）回収可能性を保持した地層処分は地上貯蔵と同じであり、むしろ地上貯蔵の方がよいのではないか？
 - 地層処分の意義と回収可能性が違う。地層処分は将来の人に責任をとらせないという印象。回収可能性はその反対で回収可能性を入れた場合、将来まで人が面倒をみるが、回収可能性を保持した場合、恒久的な処理ではなくなるのでは？
 - 実態として、回収可能性がゼロの地層処分概念は今のところあまり現実的には考えられておらず、閉鎖までの間で回収可能性のある地層処分とない地層処分の是非を考えると良い。
 - 回収可能性を担保すればするほど、ほうっておけるという地層処分がもともとあったメリットが薄まって、結局どうしたいのっていうところがわからない。
 - 有害物の処理と同じで、回収可能性も誰の責任でどこまで管理するかを明確にする必要がある。事業者にしてみれば早く手離れしたいというのは本音だろう。
 - 今の放射性廃棄物の法律の大前提は、原子力発電の環境整備というものであり、原発により社会が豊かになるということが想定されている。しかし、これと切り離して、放射性廃棄物の処理は廃棄物を安全にするためのものだと考えるべき。
 - サイト選定を現実的に考えるときには、地元住民は費用負担に関する具体的な説明を当然求めると思う。今の費用負担の説明はなんとなく暗黙の合意的に進んでいて、どの場合ならだれのお金で、という実質的なところまで煮詰まっていない。色々シンポジウムをしているが、どこまでを税金でやるのか、どこを NUMO がやるのか微妙なまま進んでいる。
 - みなさんの意見を聞いていると、回収可能性を高めるようなすぐれた地層処分を考えようということではなく、今の地層処分のまま、制度設計的に回収可能性を進めていくという議論が適切である。
 - 以上の流れを踏まえ、図付 4-1 の R スケールを考える。地層処分事業では、段階的に議論を進めていく上で知識や経験のデータが蓄積されていく。R スケールでの回収可能性は程度問題とされる。また、この考え方はフランスで作られていて、フランスの法律では地層処分のデザインに積極的に入れることになっている。フランスは研究開発として群分離消滅処理を活かしているが、つい最近やはり地層

処分に決定した。

- 何事も起こらずに進んだとき、図 1 の段階 4（埋め戻された処分エリア）から段階 5（閉鎖された処分エリア）にどうすることがあれば進めるのか。諸外国は許認可で決めるが、日本で何もなく段階 4～5 でどう進めるのかが懸念材料である。



図付 4-2 R-scale の概念 (OECD/NEA, 2012 より)

- R-スケールは可逆性がないわけではないということを行うための概念図を作ったというだけだと受け止めており、これに基づいて詳細な制度設計が行われているわけではない。
- 段階 4～5 のステップに移る際に廃棄物が無害化するわけではない。セーフティケースの説明をみんなが納得すれば段階 4 から 5 に進める。つまり、皆さんのコンフィデンスができた時点で動くことができる。
- 実体論として無害ではなく、リスクとして無害といえれば進める。
- 段階 4 の状態で安全だから安全ですではなく、段階 5 に至るためには段階 4 で何をするか、を考える。そのときの政治的議論はどうなるのかに興味がある。
- 段階 4 の状態のまま開けておくと酸素が地下まで行くので、もともと持っている地層処分に適した地下深部の特徴が失われる。また水が地表から流れ込むといったリスクもある。
- 建物と跡地の所有・利用が回収可能性のポイントになりそうな気がするが、どこを回収可能性のポイントにするかどうかを色んな方に聞いて疑問を投げかけてもらうのがよい。
- 意思決定の可逆性ということを考えれば、R-スケールの 2 以降の話为非専門家と

してもあまり意味がない。坑道を密封する前に何をチェックすべきで、そのあと、最終形（跡地利用の在り方、制限等）についての議論が必要。

- 低レベル放射性廃棄物処分は深度が浅いので規制は厳しい。専門家はリスクで考えるが、素人はハザードで考えるため、低レベルでは跡地を制限しているのに高レベルではなぜ規制しないのかとの疑問が生じる。
- 法律上は高レベル跡地に制限をかけるため、国が続いている限りは大丈夫。ただし、法律上は国が減びるということは想定しないため、裁判ではその理屈は通る。
- 掘りだすときは遠隔です。精密調査をするときに処分場の上を買い取るかもしれない。
- いったん埋めた廃棄物を取り戻すか、処分場を閉鎖するか意思決定の主体は？
- 実施主体が方法を申請して経産省大臣が承認。許認可を発するまでに実際は地元の意見が効いてくると考えられる。フィンランドは政府が原則決定する際に住民が決定に好意的であることは前提となっており、原則決定後に国会決定となる。日本もそうなると考えられ、地域の監視委員会が GO サインを出せるか、ということになる（＝フランス方式）。回収した時に退避施設が必要。フランスは退避する施設も準備されている。
- 埋めてあるものを戻すのが安全かどうかを非専門家が議論するのは無理。R スケールの段階 2 までは素人が議論できる。廃棄物の回収可能性よりリバーシビリティ（R スケールの段階 2～3）の R-スケール、つまり、可逆性（リバーシビリティ）を保ちつつ進めるということの方が当面は必要。リバーシビリティの R-スケールにはグローバルなリバーシビリティとローカルなリバーシビリティがあり、全体的なものを示したうえでローカルな話をするべき。全体的な話がどれだけ詰められているかということはローカルな人にはすぐにわかってしまう。
- 回収可能性は国民からの要求として出ているものだとされているのと、学会会議が回収可能性を必要としている。ポイントオブノーリターンを避けたいという欲求はある。
- 現在は段階 1～2 がまだ進んでいないので、段階 4～5 のことをいきなり言うのではなく注意が必要。
- コミュニケーションの第一歩として、言われてから行うのではなく、あらかじめ準備しておくことが重要。一般の人は回収可能性を知らない、専門家は知りすぎて言わない。その誤解を解くことが必要。
- （処分場を）全部埋めきった後にも掘り返せるということを初めに宣言しておけば、終わりなのでは？ 閉鎖後も下手に開けておくよりは埋めておいた方がいいとか、そのような議論は起こりうるため、この観点からの技術的なエビデンスがまだ収集されきれていないとも言える。
- 環境防護の立場から地層処分がこれだけいいということが確実にいえないと話が

振り出しに戻る。

- 地層処分と回収可能性は根本的に矛盾している。回収可能性は技術的なフェイルセーフ。また、回収可能性は態度を試そうとしている。
- 可逆性はむしろ場所の選定まで、せいぜい段階 2~3 までに効いてくるキーワードである。また想定外というキーワードがあるが、何を想定しているかを開示すべき。
- レメディエーション（修正可能）はコミュニケーションの原則で、人の尊厳として非常に重要であるが、原子力の分野はそこが非常に抜けている。
- 回収可能性はレトリックであり、実体としては地層処分そのものなのではないか？また、以上を踏まえて、意味と実体のある可逆性／回収可能性というものはあるか？
 - ※回収可能性は廃棄物の回収可能性、可逆性というのは意思決定のプロセスの可逆性
 - レトリックとは巧みな表現、修辞学のこと。回収可能性はレトリックというよりは、回収可能性は対話に入ってきてもらうためのプロセスの出発点。回収可能性つき地層処分があるのではなく、もともと備えている地層処分の属性を強調してフォーカスしたものであり、説明の出発点としてある。
 - 回収可能性というオプションつき地層処分システムがあるのではなく、もともと備えている地層処分の属性を強調してフォーカスし、説明の出発点として「回収可能性」を捉えるべき。
 - 回収可能性の意味はあると思っていて、フィードバック制御とも言える。意思決定するにしても回収可能性がある場合とない場合では、決定の重みや集めるべき情報（の質と量）が全然異なる。ただし、どういう条件設定にするかという制度設計に落とし込むときには非常に難しいと思う。
 - 米国ヤッカマウンテン計画は法的には依然として廃棄物の最終処分場としての効力を有している。ただ、予算措置がすべてストップしている。法的にはキャンセルされておらず、政策的には、今後変わる可能性もある。また民主党の政権が今後も続いたとしても、議員によって変わるかもしれない。
 - 時間も大切。50 年は回収可能性を保持しながらいろんな場所を選んでいくのと、国際情勢を見ながら様々な可能性を検討していくとではずいぶん異なる。
 - 地層処分は本質的に回収が可能なのだから、回収が困難だからという理由でそのまま地層処分計画を進めていくということは通用しない、と捉えるべき。ただし、回収可能性は時代とともに低下していくので、シナリオごとにクライテリアを決めることが重要。

付録-5

中間評価ワークショップの概要

1. 概要

平成27年11月16日、17日（第1回）及び11月30、12月1日（第2回）の4日間にかけて、国内専門家（24名）を招聘し、本プロジェクトの平成25年度からのこれまでの成果と今後の方針についてレビューを行うためのワークショップを開催した。

2. 日時場所

第1回

日時：H27年11月17日（火）10:00～16:30、H27年11月18日（水）9:00～16:30

場所：経済産業省別館1階 101-2共用会議室、103共用会議室、105共用会議室

第2回

日時：H27年11月30日（月）10:00～17:30、H27年12月1日（火）9:30～17:05

場所：東京八重洲ホール、ホール（B2）

3. 頂いた主なご意見

国内専門家から頂いた主なご意見を各サブプロジェクト毎に以下に示す。

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

3.1.1 全体概要

- ▶ サブプロジェクトの評価確証の視点とアプローチは非常に野心的であるが、本プロジェクトで特に焦点を当てる課題の具体化とともに、どこまでのレベルを目指すのか、できる範囲を明確化しつつ、限界・課題もあわせて整理すべき
- ▶ 大学等の専門家と詳細に議論する場も必要であり、そのような枠組みも検討すべき

3.1.2 NFシステムの過渡的変化評価技術の開発

(1) システムの過渡的変化の評価手法の開発

- ▶ 時間変遷の区分の考え方が重要である。時間区分内のみで考えれば良いのか、そこから外れる場合はどのように考えれば良いのか。時間変遷を設定する際には、その設定の妥当性の示し方が課題である。
- ▶ 時空間のアップスケーリングの問題については、解っていることと知らないことを明らかにすることが重要である。
- ▶ 非線形問題は、典型例として亀裂の発生は予測不可能であり、それにより将来予測は大きく変わるため、解っていることと知らないことを明らかにすることが重要である。
- ▶ 時間変遷の区分の中では、ベントナイトのセメンテーションについても考慮が必要となる期間がある。岩石の特性を取得する必要がある。

(2) 過渡的状態における緩衝材の連成挙動評価技術開発

- ▶ 膨潤圧は実験と解析結果が合うが変形が合わないということであれば、支配方程式の精査が必要である。
- ▶ 供試体サイズ依存性があるということは、膨潤（圧）の現象が理解できていないと考えられる。単なる体積変化として捉えては先に進めない。
- ▶ 剛性の変化を扱う場合、非線形の剛性（弾塑性、粘弾塑性）を適用する必要がある。

(3) 過渡的状態におけるオーバーパックの腐食挙動評価技術開発

- ▶ ベントナイト中の腐食速度の把握は重要であり、モニタリングで得られた値が妥当かどうか、重量法のような信頼性の高い方法で得られる値との比較・検証が必要である。
- ▶ 炭素鋼自然電位の測定結果も参考にしつつ、引き続き原位置での測定により腐食速度、メカニズム解明が進められることを期待する。

3.1.3 人工バリア中の核種移行評価技術の開発

(1) 人工バリア核種移行に関するメカニズム分析と精緻化モデルの開発

- ▶ Kd モデルについては、収着の濃度依存性などの実際の現象理解との関係を最終的にどのような折り合いをつけるのかまでを含めて検討すべき。
- ▶ MD 計算による層間の拡散係数やベール面での吸着評価については、マクロの拡散係数や分配係数の評価にどうつなげるのかまでを検討すべき。また、そのような MD 計算とアップスケールリングまで含めたアプローチに対し、ポアソン-ボルツマン式をベースとしたモデル化を検討する必要性について説明されるべき。
- ▶ 複数の経路や複数の化学種の平均化については、その考え方や妥当性をさらに説明・検討がなされる必要がある。
- ▶ 先端分析・計算科学のアプローチは適用範囲に限界があり、アクチニドなどを含めた多様な核種の基礎データの蓄積も含めた従来研究の継続、それらの相互補完を含めた取り組みが重要である。

(2) システム変遷を考慮した核種移行評価～鉄共存影響の評価～

- ▶ 実験により実現できる時間スケールでは、鉄-ベントナイト相互作用によるスメクタイトの変質量は非常に少ない。このような微量の変質を分析する方法が課題である。
- ▶ 生成鉱物の熱力学データを整備するとともに、熱力学データから予測される鉱物が実際に生成するかどうか、実験的に検証する必要がある。
- ▶ 原位置試験においては塩濃縮挙動が観察されているが、現状の変質評価モデルでは、塩濃縮挙動に伴う物質移動等の影響を考慮することができない。原位置試験の結果を基にモデルの検証を行う場合、THMC 連成解析コード等を組み合わせた評価を行う必要がある。

3.1.4 天然バリア中の核種移行評価技術の開発

(1) 天然バリア中の核種移行評価モデルの開発

- ▶ 割れ目やマトリクスの不均質性や収着・拡散メカニズムの詳細理解を、分配係数やマトリクス拡散係数・深さといった性能評価パラメータにどう反映するのかまでを含めたアプローチの説明が必要。
- ▶ ニアフィールド岩盤が対象ということであれば、例えばコンクリートやグラウトの影響、コロイドの影響なども考慮すべきではないか。対象やアプローチの明確化が必要。
- ▶ X線 CT による岩石の不均質性の分析は構成鉱物の分離評価、粒界や粒子内の間隙の評価などの限界、亀裂の形状の解析評価手法の最新動向の反映などの検討が必要。
- ▶ 花崗岩については、グリムゼル岩を対象にしているが、割れ目充填物や変質層等の特徴が異なるわが国の岩を用いた研究、あるいはそれらとの関連付けた議論が必要。また、堆積岩に

- についても、堆積岩系の多様な割れ目の特徴や断層ガウジのデータ整備なども検討が望まれる。
- ▶ ナチュラルトレーサー評価においてラボスケールのスケールアップをどのように検討するのかアプローチの具体化が必要。また、花崗岩系ではスケールやアプローチも異なる可能性があり、両岩の特徴を踏まえたアプローチも検討されるべき。

(2) 有機物・微生物の影響評価手法の開発

- ▶ バイオフィルム影響については、作業時から閉鎖後の環境条件を考慮して核種移行への影響を再整理する必要がある。
- ▶ メタゲノム解析結果を重視しすぎず、坑道周辺の pH の分布等地球化学条件の空間的違いに応じた微生物活性など、実際の地質環境の原位置データに根ざした微生物活性評価を行う必要がある。
- ▶ 有機物の核種移行解析に用いたパラメータについては、今後も妥当性に関する検討を進める必要があり、実環境の場を考慮した評価が必要。

3.1.5 セメント影響評価技術開発

- ▶ コンクリートの非連続的な挙動（ひび割れ発生）については、FEM と DEM は相互補完でやるのがよい。
- ▶ 高 pH 条件での Kd 設定については、低レベル処分研究成果を調べること。
- ▶ グラウト影響については、施工・工学技術の検討ではなく、セメント・周辺岩盤相互作用の検討であることをはっきりと説明すること。

3.1.6 NF複合現象/核種移行の体系的評価に向けた技術開発

- ▶ 本研究は、相互作用の問題に取り組みつつシステム全体を捉えた評価に向けた技術開発であり、次世代へ継承するための体制作りと、世界に向けた情報発信とを期待する。
- ▶ 情報・知見が一方向的にならないよう、専門家間の議論、最新知見の取り込みができる仕組みが重要。
- ▶ システムのプラットフォームの設計図の具体化が必要であり、IES などが参考になる。
- ▶ システム開発で全てが解決される訳ではないため、できていない点を明示し、議論できるような仕組みが重要。
- ▶ ソルバーの最適化としては、種々の問題の特徴に応じて適切な手法をとること。
- ▶ 操業中～過渡期の材料物性変化などを考慮して初期条件を適切に与えることも重要。
- ▶ 鉄・ベントナイト相互作用についての DEM の検討では、将来的に定量的評価を行う際には移流・拡散などに関するパラメータの物理的意味を考えることが重要。

3.2 多様な廃棄物の共処分におけるニアフィールドの影響評価技術開発

3.2.1 硝酸塩と有機物との熱反応暴走評価技術開発

- ▶ 断層の影響については、断層の発生位置など、今後検討要。
- ▶ 低温度側の発熱量測定を進める。
- ▶ 処分施設閉鎖前の評価にも使えるように研究開発を進める。

3.2.2 硝酸イオンの化学的変遷評価技術開発

- ▶ 天然事例の解析については、今後、間隙率などのデータが公表される可能性があり、その都

度解析を見直していく。

- ▶ 熱量測定については、液相分析の精度とを比較し、その適用性を検討していく。

3.2.3 硝酸イオン変遷物質の緩衝材影響評価技術開発

- ▶ モンモリロナイトとアンモニウムイオンとの相互作用について、層間でのイオンの水和の状態、底面との共有結合の有無が膨張性と関係があると考えられる。
- ▶ 今後、MD 計算の（混合エンタルピーなどの）定量性を高め、Cs など類似性のある他イオンとの比較を行い、膨張性のメカニズム解明に取り組む。

3.2.4 硝酸イオン／有機物の放射性核種への影響評価技術開発

- ▶ 高塩濃度の影響については、Pitzer や SIT などの比較が有用である。
- ▶ 全て実験で求めることは難しいことから、他のカルボン酸などアナログを用いる手法も有用である。

3.3 過酷事象の地層処分システムへの影響に関する評価確証技術開発

3.3.1 地層処分システムにおける過酷事象の概念構築

(1) 閉鎖後の地層処分システムにおける過酷事象の概念構築

- ▶ トップダウンによる過酷事象の抽出は100mSvからスタートして、システマティックに、これまで気づいていなかったFEPを見つけること。

(2) 地層処分システムのロバスト性

- ▶ テーマと検討の位置づけを整理し直すこと。

3.3.2 巨大地震・断層活動の発端を事例とした評価技術開発

(1) 岩盤ひずみの変化に伴う地下水流動の変化

- ▶ 計測方法、岩盤と岩片の物性の取り扱いの整理、東濃の観測データ、既往の数値計算結果等を参考にとりまとめを行うこと。

(2) 透水性の増加に伴う地下水の温度・水質の変化（深部流体の流入）

- ▶ 深部流体の性状とともに、活動継続性についての知見を得ること。

(3) 断層のずれが人工バリアに与える影響

- ▶ 模擬実験、解析条件設定、材料物性について根拠を示すこと。試験規模スケールではなく、実スケールのシミュレーションをすることが重要である。全体のストーリーを分かり易く示すこと。

(4) 断層起源ガスが地下水流動場や地層処分システムに与える影響

- ▶ 単位時間当たりに出るガス量の設定と、安全評価上、どういうプレッシャーがかかったら問題になるかという視点で整理すること。内陸地震のデータを基に設定した方が良い。

(5) 地震動による地下施設(支保工)の破壊

- ▶ 過酷事象になるかの判断が必要であり、一般公衆の不安と過酷事象の検討を分けて提示すること。

(6) 地震動が人工バリアに与える影響

- ▶ モデル、解析の条件設定、材料物性の設定根拠を明確にすること。液状化という表現を見直すこと。

(7) 巨大地震・断層活動による過酷事象シナリオの検討

- ▶ 過酷事象の検討と不安に対する性能評価を整理し、自然現象に対して多くの事象を細かく調査すること。

3.4 可逆性と回収可能性などを考慮した地層処分システム概念の提示

3.4.1 全体概要

- ▶ 「確証性の高い(合意しやすい)」は「腑に落ちる」に変更する。

3.4.2 受動的安全系へ推移するまでの期間におけるレジリエンス的取り組み

- ▶ カタカナ(英語)の用語は、その概念が正しく伝わるように表現/翻訳を修正する。
- ▶ 10頁の「議論の場の制度設計」の図で、「公共性」は「代表性」に変更する。

3.4.3 多様なステークホルダー間の合意形成に向けた協働

- ▶ 失敗事例については、反省点と停滞の要因を特定する分析も進める。
- ▶ 調査事例のソースを明記する。
- ▶ 韓国の中低レベル処分場の事例について、六ヶ所の事例と対比させる。

3.4.4 ワークショップ議論のまとめ

- ▶ マインドマップの図は、「信頼性の高い地層処分システム」を構築していくうえで必要となる研究開発を戦略的に示すことが期待できることから、今後、委員会委員の先生方にもぜひ作成に参加いただき、時間をかけてでも充分性や完成度を高めて仕上げていくことが重要との認識に至った。

3.5 処分事業に資するための地層処分システム評価確証技術の統合化

3.5.1 処分システム評価確証技術の統合化

- ▶ 統合化プラットフォームについて、以下の指摘を踏まえ、今後開発を行っていく。
- ▶ ステークホルダーの属性(たとえば政策決定者、社会学者、住民など)等によって必要とする情報が異なるため、従来のFAQを用いた対処とは異なり、システムで対処できるところと人が介在せざるをえないところを認識しておく。
- ▶ 運用面の問題として、たとえば特異な質問に対して誰がどのようにシステムを使っていくかといったユーザーとシステムのやりとりを設計で考慮。

3.5.2 処分システム評価確証技術の認知拡大

- ▶ ここでの目的は、ブランディングを実行することではなく、ブランディングという手法がコミュニケーションツールとして役に立つかどうかであり、その枠組みで検討すべき。
- ▶ ブランドとしてロイヤルティを高める意味はない。表面的に情報だけが流れていくのではなく、心に伝わるような分かりやすい説明、いわゆる情報のデザインが重要だと考える。その観点からセッティングを見直したい。何らかのニーズがあるはず。
- ▶ 研究プロジェクトのブランディングを行うのであれば、仮想的な集団ではなく、実在の組織を対象に行うべき。

以上