平成３０年度

放射性廃棄物共通技術調査等事業

放射性廃棄物に係る重要な基礎的技術に関する研究調査の支援等に関する業務

報　告　書

平成３１年３月

公益財団法人　原子力環境整備促進・資金管理センター

本報告書は、経済産業省からの委託事業として、公益財団法人　原子力環境整備促進・資金管理センターが実施した平成３０年度放射性廃棄物共通技術調査等事業（放射性廃棄物に係る重要な基礎的技術に関する研究調査の支援等に関する業務）の成果を取りまとめたものです。

【 目 次 】

1．はじめに 1
1.1 調査目的と調査内容 1
1.1.1 調査目的 1
1.1.2 調査内容 1
1.2 調査の計画立案と実施方針 1
1.2.1 放射性廃棄物の地層処分を中心とした萌芽的・先進的な研究開発テーマの選定に関する作業計画 4
1.2.2 選定した研究開発に関する進捗管理・取りまとめに関する作業計画 4
2．放射性廃棄物の地層処分を中心とした萌芽的・先進的な研究開発テーマの選定 5
2.1 研究開発テーマの選定の方針、公募方法 5
2.2 研究テーマと研究実施者の公募・選考 7
2.3 選考委員会による応募研究テーマと研究実施者の選考 8
3．研究開発に関する進捗管理・取りまとめ 9
3.1 選定された研究テーマの平成 30 年度の成果概要 10
3.1.1 実施研究 1　研究者：北海道大学　胡桃澤 清文 10
3.1.2 実施研究 2　研究者：北海道大学　田中真悟 12
3.1.3 実施研究 3　研究者：山形大学　湯口貴史 14
3.1.4 実施研究 4　研究者：埼玉大学　富樫陽太 16
3.1.5 実施研究 5　研究者：東京大学　鈴木庸平 18
3.1.6 実施研究 6　研究者：早稲田大学　王海龍 20
3.1.7 実施研究 7　研究者：JAEA　渡辺勇輔 22
3.2 評価委員会による平成 30 年度の研究成果に対する評価 24
3.3 技術の実用化に向けた課題や課題解決に向けたアプローチの検討・整理 32

別添資料　実施研究報告

1 . はじめに

1.1　調査目的と調査内容

1.1.1 調査目的

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

これらの背景を踏まえて、本事業では高レベル放射性廃棄物の地層処分を中心とした萌芽的・先進的な研究開発を実施するとともに、その結果について処分実施主体が将来処分事業を進めるに当たり必要な技術基盤として整備することを目的とする。なお、本事業は、萌芽的・先進的な研究開発の実施を通じた幅広い分野の研究者・技術者の人材育成に資することを念頭に平成３０年度から５カ年程度で実施される予定となっている。

1.1.2 調査内容

上記の調査の目的を踏まえ本事業では、放射性廃棄物の地層処分を中心とした萌芽的・先進的な研究開発テーマ及び研究実施者を公募したうえで選定し、当該テーマに関する研究開発を実施するとともに、研究の実施に係る進捗管理や成果のとりまとめを行う。さらに、平成２６年度からの放射性廃棄物共通技術調査等事業（放射性廃棄物重要基礎技術研究調査）の４年間で得られた研究開発の結果に基づき、処分実施主体が将来処分事業を進めるに当たり必要となる技術の実用化に向けた課題や課題解決に向けたアプローチについて検討・整理する。

1.2　調査の計画立案と実施方針

前述した調査内容に基づき、具体的な作業内容について表 1.2-1 に示す。

表 1.2-1　本事業における作業内容

（１）　萌芽的・先進的な研究開発の成果とりまとめ及び新たな知見の実用化に向けた検討・整理 （２）の研究開発に対して、進捗管理や成果のとりまとめを実施する。具体的には、

有識者委員会等を設置し、選定した研究テーマの実施状況についてチェックアンドレビューを行う。

また、平成２６年度からの放射性廃棄物共通技術調査等事業（放射性廃棄物重要基礎技術研究調査）の４年間で得られた研究開発の結果に基づき、処分実施主体が将来処分事業を進めるに当たり必要となる技術の実用化に向けた課題や課題解決に向けたアプローチについて検討・整理する。

（２）処分技術に関連する萌芽的・先進的な研究開発テーマの選定

① 研究開発テーマの選定

概ね平成３０年８月程度までに、平成２８年度放射性廃棄物共通技術調査等事業（放射性廃棄物海外総合情報調査）等における海外や国内の地層処分や代替処分技術等の最新の研究開発動向調査結果を踏まえたテーマを広く一般から公募し、放射性廃棄物の地層処分に見識がある有識者（５名程度を想定）からなる選考委員会での議論を経て、同年１０月程度までに７テーマ（処分事業の社会的受容の推進に向けた社会科学的テーマを含む）を上限として選定する。有識者の選定や選考委員会の実施に当たっては、資源エネルギー庁と調整・相談の上、実施する。

② 研究実施者の公募

選定した研究テーマについて公募を行い、研究実施者の決定および実施に必要な手続きなどを行う。公募の手順等は、過去の実績を踏まえ以下のとおりとする。

なお、各研究テーマの実施期間については、最低３年とし、３年目に進捗状況や内容について精査し、その後については各テーマの状況を鑑み、資源エネルギー庁殿と調整・相談の上、決定する。

- 平成３０年度は研究テーマ１件当たり３００万円を上限として公募（平成３１年度以降は４００万円を上限として公募）し、応募者には、研究提案と共に資金計画を提出させる。
- ＨＰ上にて公募要領を掲載し、１ヶ月程度の公募を実施し応募者を募る。その際、研究開発テーマに関連した学会のメーリングリスト等も活用し広く情報を伝えることに留意する。
- 応募者から提出された提案書等について、書類審査を行う（１週間程度）。
- 書類審査を通過した応募者に対し、速やかに選考委員会を開催し２次審査を行う。

２次審査では、研究内容に関する応募者からのプレゼンを行い、最終的な研究実施者を決定する。

- 研究実施者決定後、速やかに研究が開始できるよう、研究実施者と再委託契約を行う。
- 再委託契約に伴う全ての権利（知的財産権など）は、受託事業者に原則帰属させるよう留意する。また再委託先は、秘密の保持に留意し、漏えい防止の責任を負う。

なお、応募者がなかった研究テーマについては、選考委員会の有識者からの推薦により研究実施者を選定する。また、応募者との契約手続きについては、各大学の産学連携部門等との手続きとなると想定されるが、各大学により異なることから、応募者からの提案書等の公募の際に、契約手続きに関わる窓口について明記させる。

（３）事業報告書の作成

受託事業者は、（１）、（２）の実施内容について、取りまとめた事業報告書を作成する。

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

(1) 放射性廃棄物の地層処分を中心とした萌芽的・先進的な研究開発テーマの選定

- 研究開発テーマの選定
- 研究実施者の公募（実施者については選考委員会で審査・決定）

(2) 選定した研究開発に関する進捗管理・とりまとめ

- 選定した研究開発テーマ実施に関する進捗管理・取りまとめを行い、その一環として有識者委員会等を設置し、研究者によるプレゼン報告に対してチェックアンドレビューを実施
- 平成２６年度からの放射性廃棄物共通技術調査等事業（放射性廃棄物重要基礎技術研究調査）の４年間で得られた研究開発の結果に基づき、処分実施主体が将来処分事業を進めるに当たり必要となる技術の実用化に向けた課題や課題解決に向けたアプローチについて検討・整理を実施

次節で、平成 30 年度に実施する作業計画を整理する。

1.2.1 放射性廃棄物の地層処分を中心とした萌芽的・先進的な研究開発テーマの選定に関する作業計画

前述の作業内容を踏まえて、放射性廃棄物の地層処分を中心とした萌芽的・先進的な研究開発テーマの選定は以下の手順で進める。

① 研究開発テーマの選定の方針、公募方法について、有識者からなる委員会（選考委員会）に諮る

② 原環センターのホームページ等を用いた公募

③ 応募があった研究開発テーマについて、選考委員会にて書類及びプレゼン審査による選考

①については、最初に公募の基本的な考え方や公募方法を整理した後に、設置した選考委員会にて妥当性を諮る。

②については、募集要領を原環センターのホームページに掲載することにより、研究実施者の応募を受け付ける。また、関連する学会等を活用して公募案内を周知する。

③については、応募のあった研究実施者について、書類審査、及びプレゼン審査の 2 段階の審査を実施し、研究テーマを実施する研究者を決定する。

1.2.2 選定した研究開発に関する進捗管理・取りまとめに関する作業計画

ここでは、以下を実施することを計画した。

・選定した研究開発に関する進捗管理・取りまとめ

① 評価委員会において最終報告を行うことにより進捗管理を行う

② 電子メールや研究者の所属する大学等への訪問し意見交換を実施することにより進捗管理を行う

③ 各研究者から提出された研究報告書の概要を取りまとめる

・技術の実用化に向けた課題や課題解決に向けたアプローチの検討・整理

④ 平成 26 年度放射性廃棄物重要基礎技術研究調査事業（平成 26 年度～平成 29 年度の 4 ヵ年事業）で得られた成果に基づき、将来の実用化につながる技術のために必要な課題・アプローチ方法について検討整理を行う

①については、表 1.2-1 にも示したように、大学等の外部有識者からなる評価委員会を設置し、各委員会において、対応する研究開発内容・進捗状況に関する報告を研究実施者に行わせ、チェックアンドレビューを行う。

②については、上記のように、電子メールや各大学等への訪問により意見交換を実施し、研究の進捗について管理する。特に研究開始初年度である今年度においては、委託費管理の留意点について研究実施者に注意を払うようコミュニケーションをとる。

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

④については、平成 26 年度放射性廃棄物重要基礎技術研究調査事業で実施した研究について、研究報告書の分析、及び国内外の研究開発動向を分析し、将来の技術の実用化に向けた課題を検討・整理する。

2 . 放射性廃棄物の地層処分を中心とした萌芽的・先進的な研究開発テーマの選定

放射性廃棄物の地層処分を中心とした萌芽的・先進的な研究開発テーマの選定については、以下のような手順により進めた。

2.1 研究開発テーマの選定の方針、公募方法

最初に、研究テーマの選定にあたり、大学等への委託研究の考え方について以下の方針とした。

- 地層処分の技術的信頼性向上に資する、かつ将来実施主体が発展的に技術開発することに資する萌芽的・基礎的な研究テーマを幅広に募集する。
- 処分技術に関する主に 4 つの分野（地質環境、工学技術、性能評価、代替オプション）で研究テーマ・研究実施者を公募する。(※)
- 公募では参考となる研究テーマを例示する。
- 人材育成の観点から、応募対象者を 45 歳以下の研究者とする。

※社会科学的研究テーマについては、原子力発電環境整備機構（NUMO）で社会的側面に関する研究支援が検討されていたため、資源エネルギー庁と相談の上、本委託事業では取り扱わないこととなった。

例示する研究テーマについては、上記の考え方に基づき、以下の国の政策や審議会の提言やその他の議論を参考に整理・抽出した。

- エネルギー基本計画（平成 30 年 7 月）[1]
- 特定放射性廃棄物の最終処分に関する基本方針（平成 27 年 5 月）[2]
- 地層処分研究開発に関する全体計画（平成 30 年度～平成 34 年度）[3]
- 地層処分技術WGとりまとめ（平成 29 年 4 月）[4]、中間とりまとめ（平成 26 年 5 月）[5]
- 海外の研究開発動向　（例えば平成 28 年度重要基礎技術研究調査における諸外国の国際共同研究に関する調査）[6]
- 平成 26 年度の本事業における公募時の例示テーマ[7]

上記の検討の結果、表 2.1-1 のように、地質環境分野、工学技術分野、性能評価分野、代替オプションに係る分野で例示する研究テーマ（案）を抽出した。

表 2.1-1　例示する研究テーマ（案）

地質環境分野
断層のバリア特性に関する研究（主に水理・物質移動の観点）
火山の分布及び地熱活動の評価に反映するための、マグマ成因論に関する知見の収集及びマントル内の熱対流モデルの評価手法に関する研究
地殻等の比較的浅い領域におけるマグマ溜まり大きさの高分解能評価手法に関する研究
上載地層がない断層の活動性評価に関する研究
天然現象の将来予測を行う上での前提となるプレートシステムの継続性の評価のための、プレートシステムの変遷と地質学的イベントに関する研究
深部流体および非火山性熱水の形成・移動メカニズムに関する研究
表層付近の酸化帯の形成メカニズムに関する研究
工学技術分野
回収・モニタリングのためのセンシング技術
オーバーパック等の新素材の長期安定性評価手法
性能評価分野
ガラス溶解の長期挙動メカニズム
栄養塩の評価も含めた微生物バイオフィルムの影響
金属腐食（炭素鋼）への微生物の影響（TRU 廃棄物における硝酸塩イオンの影響も含む）
代替オプションに係る分野
使用済燃料の放射性核種の溶出挙動に関する研究（瞬時放出と UO2 マトリクスの溶解に伴う放出）
無酸素条件における容器（銅等）の腐食に関する研究

次に、本事業で設置した有識者からなる選考委員会（詳細は後述）において、公募方針や例示する研究テーマ（案）の妥当性について諮った。その結果、公募方針については了

承された。ただし、例示するテーマ（案）に関しては、テーマがピンポイントであったり、分野により例示している数が偏っていることについて意見があり、また、研究テーマを抽出する際に用いた文献を参考にして研究テーマを提案してもらうのが良いとのことから、全体的なバランスを考えて、各分野で 2～3 程度挙げることとなった。

2.2 研究テーマと研究実施者の公募・選考

平成 30 年度より 3 ヵ年の事業期間の高レベル放射性廃棄物の地層処分を中心とした萌芽的・基礎的研究テーマ及び研究実施者の公募を実施した。公募においては原環センターのホームページに公募案内を掲載し（図 2.2-1）、また関連する学会のメーリングリスト等で案内することで公募の周知を図った。公募は平成 30 年 7 月 20 日に開始し、一カ月後の 8 月 20 日に応募を締切った。

放射性廃棄物の地層処分に係る萌芽的・基礎的研究テーマ及び研究実施者の募集

平成30年7月20日

公益財団法人原子力環境整備促進・資金管理センター（以下、原環センター）では、経済産業省からの委託を受けて、「放射性廃棄物に係る重要な基礎的技術に関する研究調査の支援等に関する業務」事業を実施しており、その一環として、高レベル放射性廃棄物の地層処分を中心とした萌芽的・基礎的な研究テーマ及び研究実施者を募集します。

1. 本事業の目的

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

これらの背景を踏まえて、本事業では、平成30年度より高レベル放射性廃棄物の地層処分を中心とした萌芽的・基礎的な研究開発を実施するとともに、その結果について処分実施主体が将来処分事業を進めるに当たり必要な技術基盤として整備することを目的としています。

2. 対象とする研究テーマ

地層処分の技術的信頼性向上に資する、かつ将来実施主体が発展的に技術開発することに資する、主に4つの分野（地質環境、工学技術、性能評価、及び代替オプション）における、萌芽的・基礎的な研究テーマを募集します。研究テーマの提案に関しては、以下の文献等を参照してください。

- ・エネルギー基本計画（平成30年7月）
- ・特定放射性廃棄物の最終処分に関する基本方針（平成27年5月）
- ・地層処分研究開発に関する全体計画（平成30年度～平成34年度）（平成30年3月）
- ・地層処分技術WGとりまとめ（平成29年4月）
- ・地層処分技術WG中間とりまとめ（平成26年5月）
- ・原子力白書（平成30年7月）
- ・海外の研究開発動向（例えば平成28年度重要基礎技術研究調査における諸外国の国際共同研究に関する調査）

図 2.2-1　原環センターHP に掲載した公募案内（一部）

2.3 選考委員会による応募研究テーマと研究実施者の選考

本事業で実施する研究開発テーマの選考にあたり、以下の役割を担う選考委員会を設置した。

- 公募方針についての妥当性を諮る
- 応募者の選考（書類審査（一次審査)、プレゼン審査（二次審査))

また選定委員会を以下のように 3 回開催した。

- 第 1 回選考委員会（平成 30 年 7 月 18 日）－公募方針の妥当性について諮る
- 第 2 回選考委員会（平成 30 年 9 月 4 日）－応募者の書類審査、プレゼン審査を受ける研究者の決定
- 第 3 回選考委員会（平成 30 年 9 月 18 日）－プレゼン審査による研究実施者の決定

第 1 回選考委員会で公募方針について了承された後に、公募を実施し、公募に対して応募された研究テーマ及び研究実施者の選考が第 2 回選考委員会（書類審査)、第 3 回選定委員会（プレゼン審査）においてなされ、その結果、以下の 7 件の研究テーマ及び研究実施者が採択された。

「ジオポリマー技術による人工バリア構築のための基礎的検討」
胡桃澤 清文（北海道大学）

「飽和度の変化に伴う堆積岩の変形異方性と放射性廃棄物の合理的な埋設方法に関する研究」
富樫 陽太（埼玉大学）

「メタンをエネルギー源とした微生物生態系の地質環境への影響評価」
鈴木庸平（東京大学）
・
「結晶質岩形成時に内包された割れ目発生・分布の潜在性の解明」
湯口 貴史（山形大）

「ナチュラルアログ手法 による締固めたベントナイトの膨潤特性・自己シール性能の年代変化に関する評価」
王 海龍（早稲田大学）

「新規析出促進法によるベントナイト緩衝材中の二次鉱物が拡散および透水挙動に与える影響評価」
田中 真悟（北大）

「断層周辺の地下水流動特性および物質移行特性に関する包括的研究」

渡辺 勇輔（(国研）日本原子力研究開発機構（JAEA))

3 . 研究開発に関する進捗管理・取りまとめ

本事業で選定された処分技術に関連する 7 件の研究テーマについて、年度末頃に有識者による委員会を設置して研究開発内容・進捗状況に関する報告を研究実施者に行わせ、チェックアンドレビューを行うこととしている。そのため、選定した研究テーマの進捗状況のチェックアンドレビューを行うための評価委員会を設置した。

また、上記評価委員会の他に、研究実施者との間で電子メールや各研究者が所属する大学等に訪問して意見交換を行うことにより、進捗管理を実施した。

以下の 3.1 節において、7 件の選定された研究テーマの平成 30 年度の成果概要について整理する。

3.1 選定された研究テーマの平成 30 年度の成果概要

3.1.1 実施研究 1　研究者：北海道大学　胡桃澤 清文

研究テーマ：ジオポリマー技術による人工バリア構築のための基礎的検討

（背景・目的）

放射性廃棄物処分施設では、人工バリアの一部としてコンクリートを含むセメント系材料の使用が想定されているが現在のセメント系材料は長期にわたり地下水に接することによって主要な生成物である水酸化カルシウム及び C-S-H（カルシウムシリケート水和物）中のカルシウム成分が溶出し多孔化することが問題視されている。そこで人工バリアの一部としてジオポリマー硬化体の適用が可能かどうかの基礎的検討を行う。特に強度などの機械的特性、収着性能、溶出特性、及び物質移動特性について定量的に明らかにすることを目的とする。

＊＊＊＊＊

（平成 30 年度の実施計画）

平成 30 年度は、ジオポリマー硬化体の適切な配合を検討する。メタカオリン及びアルカリ刺激剤の配合条件を決定し、流動性、強度、収着特性に優れた硬化体の作製を行う。作成した硬化体について、圧縮強度、引張強度および弾性係数の測定を行い、機械的特性を明らかにする。収着試験としては硬化体にヨウ素等を吸着させその収着特性について検討を行う。また、2 年間にわたる核種の溶出・溶脱試験を開始する。これらの作製した試験体のキャラクタリゼーションを ^{29}Si および ^{27}Al 固体核磁気共鳴装置によって行う。さらに硬化体内部の水分の状態分析を行うためにプロトン NMR による緩和時間測定を行う。初期の元素分布の状態を測定するために EPMA によってマッピングを行う。さらには ppm レベルでの元素の分布を分析するために LA-LIBS を用いてマッピングを行う。

＊＊＊＊＊

（平成 30 年度の成果概要）

2 種類のメタカオリンおよびアルカリ刺激剤を用いてジオポリマー硬化体を作製し、各種

物性試験とその微細構造測定を行った結果、異なるメタカオリンを用いた場合圧縮強度などの物性が大きく異なった。このことから適切なメタカオリンを選定する必要があることが示された。また、これらの物性の違いはメタカオリンの反応性に起因することを明らかにした。微細構造試験結果からアルカリ刺激剤の違いによりジオポリマー硬化体の構造変化が生じている可能性が示唆された。

平成 30 年度では使用するメタカオリンとアルカリ刺激剤の影響を明らかにしたが、これは Si/Al 比が 1 となるように設定した試験体のみであり、この比が異なる場合の検討が行われていない。したがって組成を変化させたジオポリマー硬化体について検討を行う必要がある。さらに温度環境が異なる場合の生成物の変質や長期的な溶出挙動を明らかにする必要がある。今後の計画として、ジオポリマー硬化体の適切な配合を明らかにし、それを用い収着試験を継続的に行い、長期にわたる収着特性について検討を行う。

3.1.2 実施研究 2　研究者：北海道大学　田中真悟

研究テーマ：新規析出促進法によるベントナイト緩衝材中の二次鉱物が拡散および透水挙動に与える影響評価

（背景・目的）

セメント―ベントナイト相互作用等によるベントナイト緩衝材の変質により、緩衝材の主要鉱物モンモリロナイトの変質・溶解や、二次鉱物の析出等が生じ、緩衝材のバリア性能（膨潤性、透水性、拡散性など）に影響を及ぼすことが懸念されている。一方で、処分環境（低動水勾配かつ圧縮系）では、緩衝材の変質反応が極めて緩慢であるため、緩衝材の長期変質評価において現実的な実験期間内（数年程度）で観測可能な変質を生じさせることが困難である。

本研究では、緩衝材に及ぼす二次鉱物の影響を評価するための新たな手法を提案する。具体的には、電場により様々な析出形態で二次鉱物を析出させた変質緩衝材を調製し、これ用いた拡散試験および透水試験から、析出量や析出形態の違いが緩衝材の拡散係数および透水係数に与える影響を明らかにすることを目的とする。

＊＊＊＊＊

（平成 30 年度の実施計画）

平成 30 年度は、電場により様々な析出形態で二次鉱物を析出させた変質緩衝材を調製することを目的として、二次鉱物析出の制御に必要な基礎データを整備するため、電位勾配下における圧縮モンモリロナイト中でのトレーサーの移行実験を行い、通電後の濃度分布から移流速度と分散係数を取得する。得られたデータを用いて数値解析を行い、二次鉱物の析出形態を制御するための最適な実験条件（電流値、通電時間、Ca 当量分率、CO_3^{2-}および SO_4^{2-}濃度など）を選定する。次に、事前解析で選定した初期条件になるように、Na/Ca 混在型モンモリロナイトと、Na_2SO_4 溶液または Na_2CO_3 溶液で飽和させた Na 型モンモリロナイトを接触させ、所定の時間、通電を行い、難溶性の $CaSO_4$ または $CaCO_3$ として析出させる。さらに、析出実験で得られた析出物の鉱物種を XRD にて同定するとともに、二次鉱物の析出形態を SEM および EPMA にて観察する。

＊＊＊＊＊

（平成 30 年度の成果概要）

様々な Ca 当量分率、Na_2CO_3 および Na_2SO_4 濃度条件下で緩衝材中を移行させるトレーサーとなるイオンの移流速度、分散係数を取得した後に、数値解析を実施し、3 パターンの初期条件を選定した。選定した 3 パターンの初期条件を基に緩衝材試料の変質調整を行ったところ、緩衝材中の $CaSO_4$ または $CaCO_3$ の析出が、範囲、サイズ等、析出形態が異なる結果となり、緩衝材の調製方法が確立できた。析出範囲は Ca^{2+}, SO_4^{2-}, CO_3^{2-}の濃度と移流速度のバランスで決まる可能性が示唆された。

析出物を XRD 分析また、二次鉱物の析出形態を SEM および EPMA にて観察した結果、$CaSO_4$ または $CaCO_3$ は Gypsum 及び Calcite として析出していることが確認できた。EPMA による析出物の観察を行ったところ、Gypsum は大きな凝集体を形成し、一方、Calcite は小さな凝集体として形成されており、析出形態が大きく異なる結果となった。この理由としては、K_{sp} の違いに由来する過飽和度の違いが核形成と凝集体の成長に影響を及ぼしている可能性が示唆された。

3.1.3 実施研究 3　研究者：山形大学　湯口貴史

研究テーマ：結晶質岩形成時に内包された割れ目発生・分布の潜在性の解明

（背景・目的）

高レベル放射性廃棄物の地層処分の安全評価において、地下水シナリオ(地下水によって放射性物質が処分施設から人間環境に運ばれるシナリオ)を想定した場合、結晶質岩(花崗岩)では、割れ目が地下水流動や物質移動の経路になることから、その分布を知ることは重要な課題となる。割れ目分布の将来変化を推定するためには、割れ目がどのように形成されたかを理解することが必要である。そこで、本研究では、花崗岩体の冷却過程に割れ目を形成する要因が隠されていることに着目し、岩石学的現象の理解を深め、花崗岩体中の現在の割れ目分布に加えて、将来的な割れ目発生の潜在性(将来的な発現の有無)を評価する手法の構築を目指す。この課題解決のため、本研究では花崗岩体の冷却の際に生じる岩石学的現象に着目する。特に 700-300℃の温度条件で生じる熱水変質の程度のパラメータ化を実施する。このデータと冷却を示す既存データ、割れ目頻度データ（物資移動に寄与する肉眼スケールの割れ目と顕微鏡観察によるマイクロスケールの割れ目）の比較を通じて、「規則性」を見出し、概要調査に際して効率的な評価手法の構築に資することを目的とする。

＊＊＊＊＊

（平成 30 年度の実施計画）

平成 30 年度は、中部日本の土岐花崗岩体を対象とし、熱水変質現象の岩石記載に基づくパラメータ化と生成温度・年代の決定に着手する。

(1) 試料採取地点の検討

本研究を実施するに際して試料選定が非常に重要となる。このため、土岐花崗岩体中の瑞浪超深地層研究所の割れ目データまた広域ボーリングより取得した割れ目データを精査し、サンプリング地点を選定する。

(2) 試料採取および試料成形

瑞浪超深地層研究所において、試料の採取を行う。その後、山形大学にて分析を行うた

めの試料の成形を行う。

(3) 偏光顕微鏡観察および電子顕微鏡観察・化学分析に着手

偏光顕微鏡による光学的な観察から、対象とする変質鉱物を定め、電子顕微鏡観察および化学分析に着手する。

＊＊＊＊＊

（平成 30 年度の成果概要）

平成 30 年度は、研究対象とする試料選定を実施した。選定に当たっては既存の割れ目情報を整理し、最終目標である熱水変質パラメータと割れ目との間の関連を議論するために、最も効率的な試料を選択する。その結果、瑞浪超深地層研究所の換気立坑の上部高密度割れ目帯の 12 試料と下部低密度割れ目帯の 13 試料、および温度時間履歴既知の 15 試料を研究対象として選択した。得られた試料は、観察や分析に資する薄片に成形した。その後、「熱水変質現象の記載岩石学的研究」と「熱水変質現象の生成温度・年代の決定」の作業を実施した。花崗岩体中の変質には、普遍的に緑泥石化、斜長石のソーシュライト化の 2 つの変質現象が観察される。本研究では特に緑泥石化に着目し、岩石記載と化学分析、物質移動特性、温度条件の決定を実施し、変質パラメータの導出に関して検討を行った。変質現象の発達の程度のパラメータとして、本研究では初生鉱物（黒雲母）と変質領域（緑泥石）の面積比を提案した。変質していない黒雲母では、変質パラメータは 0 となり、完全に緑泥石化した黒雲母において変質パラメータは 1 となる。今後は、これらの緑泥石化および斜長石のソーシュライト化に係る変質パラメータのデータを拡充し、このパラメータと肉眼で観察されるラージスケールの割れ目、顕微鏡サイズのマイクロスケールの割れ目との比較検討を実施する計画である。

3.1.4 実施研究 4　研究者：埼玉大学　富樫陽太

研究テーマ：飽和度の変化に伴う堆積岩の変形異方性と放射性廃棄物の合理的な埋設方法に関する研究

（背景・目的）

堆積岩は堆積構造に依存して方向によって異なる変形特性を示すことが知られており、このような堆積岩の地層に構造物を建造する場合には、その安定性を正確に評価するため、変形異方性を高精度に特定することが工学的に重要な課題となっている。異方性をもつ堆積岩の応力とひずみは非共軸なため特定の方向に変形が卓越することが考えられるが、そのような点に着目して検討を行った既往研究はほとんど見当たらない。異方性岩盤の最も剛性が大きい方向（異方性の主軸）とその構成パラメータを正確に特定することができれば、処分坑道の安定性評価に大きく寄与できるだけでなく、廃棄物の埋設方法に応用できる可能性があると考えられる。

本研究では、掘削による乾燥にともなって不飽和状態に移行する堆積岩の異方的な力学挙動を詳細に把握し、異方性を考慮した高レベル放射性廃棄物の埋設方法へと応用することを目的として、室内試験やスイス・モンテリ岩盤研究所における現地計測を通して、飽和度によって変化する堆積岩の変形異方性を詳細に特定することを試みる。

＊＊＊＊＊

（平成 30 年度の実施計画）

平成 30 年度は文献調査を行い、変形異方性や飽和度の変化に伴う岩石挙動に関する既往検討を整理し、実験条件や解析条件を決定するとともに，既存研究を参考にして乾燥収縮実験を行い、乾燥に伴う変形メカニズムを詳細に観察する。試料は、スイス・モンテリ研究所で採取されたボーリングコア、田下凝灰岩やベレア砂岩などの明確な変形異方性が確認されている堆積岩を用いる。

モンテリ岩盤研究所では、ボーリング深さの異なる水平孔のなかで湿度・気圧・温度の計測を常時行っており、この継続的なデータにより乾燥にともなって変化する岩盤の含水状態を長期に観察する。現地に行って計測器のメンテナンスなどを行うとともに、坑道の

変形特性（内空変位，孔壁ひずみ）を測定する方法について検討を進める。

＊＊＊＊＊

（平成 30 年度の成果概要）

文献調査の結果、本研究の主な着目点の一つである異方性の主軸を高精度に特定できる方法を既往研究から選定し、乾燥収縮実験について円柱供試体を用いて 3 次元のひずみテンソルを計測することとした。

田下凝灰岩を用いた室内での乾燥収縮実験から、気乾の条件では、4 日程度で飽和度が 20~30%まで低下し、8 日以降では数%のオーダーまで乾燥が進んだ。また、層理面とその直交方向にコアリングした供試体の三次元のひずみテンソルの応答は、等方材料では生じないせん断ひずみを伴い、異方的な応答を示すことがわかった。さらに、乾燥収縮時の主ひずみ方向は、飽和度の変化にともなって変化することがわかった。

スイス・モンテリ岩盤研究所におけるボーリング孔内の気温・気圧・湿度の計測では、ボーリング孔内の岩盤の応答が、孔外に比べて異なってくることがわかった。これは、岩盤内の透気現象によるものと考えられ、引き続き計測を進めるとともに計測データから乾燥に伴う不飽和領域の進展を評価する方法を考案していく予定である。

3.1.5 実施研究 5　研究者：東京大学　鈴木庸平

研究テーマ：メタンをエネルギー源とした微生物生態系の地質環境への影響評価

（背景・目的）

処分場閉鎖直後の酸化環境から処分場建設前の還元環境に回復する過程において、物質移動の場となる化学環境の形成の観点から微生物の役割は非常に重要である。地下深部に豊富に存在するメタンが、微生物による触媒的反応を介して還元剤となれば化学環境の回復を保証でき地層処分の安全性を高めることにつながる。地質環境に生息するメタン酸化微生物は、硝酸、鉄、硫酸等の多様な酸化剤を用いて代謝することが常圧条件下の試験により明らかになっている。しかし、地下の高圧条件下でメタン酸化古細菌が用いる酸化剤の種類や反応速度、形成される化学環境については未解明である。本研究の目標として、地下環境を模擬した室内高圧試験により、メタン酸化古細菌による酸化剤の利用選択性や代謝速度、形成される化学環境の評価を行うと共に、酸化剤の代謝反応が放射性核種の移行に与える影響についても考察する。

＊＊＊＊＊

（平成 30 年度の実施計画）

地下環境を模擬した室内高圧試験では、地下深部から湧出する高圧地下水を圧力維持して高圧容器に直接採取し、容器内の高圧状態を維持した状態で、^{13}C メタン及び酸化剤を任意の濃度で添加した後、室温で保存して高圧培養を行う。本年度は内部の圧力を調整可能な封圧容器を準備し、高圧培養実験の手法確立を行う。高圧培養実験の準備を行った後、瑞浪超深地層研究所の地下水を採取し、メタンと酸化剤をそれぞれ添加して、高圧培養を開始する。

また、メタン酸化古細菌は表層に生息することが知られており、処分場埋戻し後に増殖し化学環境形成や放射性核種移行に影響を及ぼす可能性があるため、表層環境に生息するメタン酸化古細菌のゲノムを解析し、地下に持ち込まれた微生物による影響可能性についての検討を行う。

＊＊＊＊＊

（平成 30 年度の成果概要）

室内高圧試験を実施する準備として、シャフト付きステンレス製封圧容器の性能試験を行い、圧力を維持しながら封圧容器に地下水を採取して試料の添加及び分取可能な手法を確立させた。地下環境を模擬した室内高圧試験の実施が可能になったので、瑞浪超深地層研究所の地下水を採取し、30 μM の ^{13}C メタンと酸化剤として濃度 0.1～10 mM で硝酸と硫酸、50 mg/L の三価鉄をそれぞれ添加して、高圧培養を開始した。

表層環境に生息するメタン酸化古細菌のゲノムを解析した結果、鉄と硫酸に加えて硝酸を酸化剤としてメタン酸化を行うことが明らかとなった。地下の高圧条件下で表層のメタン酸化古細菌がメタン酸化を行えるかについては未解明なため、高圧培養で評価する必要がある。本年度は、表層堆積物からメタン酸化古細菌を培養して、次年度以降で用いる準備も行った。

3.1.6 実施研究 6　研究者：早稲田大学　王海龍

研究テーマ：ナチュラルアログ手法 による締固めたベントナイトの膨潤特性・自己シール性能の年代変化に関する評価

（背景・目的）

放射性廃棄物の処分において利用が想定されている緩衝材は、内部にて膠結作用（モンモリロナイトや随伴鉱物が溶解し、間隙内で再結晶化して土粒子同士を固着させること）が発生し、自己シール性・膨潤性や圧密（圧縮）性などの材料特性が低下する可能性が考えられる。緩衝材の要求性能に関連する材料特性の長期健全性を評価する上で、膠結作用によるベントナイトの材料特性の経年変化の定量評価は極めて重要である。本研究では地質年代が数千万～数億年のベントナイト原鉱石を用いて、ナチュラルアナログ研究手法に基づき、締固めたベントナイトのベントナイト系緩衝材の膠結作用による膨潤特性・自己シール性の年代変化を定量的に評価し、ベントナイト系緩衝材の仕様設計に反映させる手法を提案することを目的とする。

＊＊＊＊＊

（平成 30 年度の実施計画）

4 種類のベントナイト原鉱石試料（月布産、富岡産、アメリカ産、中国産）を対象に、膨潤圧試験、一次元膨潤変形試験及び自己シール性能評価試験を測定し、原鉱石の各特性のデータベースを構築する。具体的には、原鉱石試料から膠結作用による固結を保持した不攪乱供試体と、粒径を 0.425 mm 以下になるまで粉砕・調整した試料を締固めた再構成供試体をそれぞれ作製し、膨潤圧試験，一次元膨潤変形試験および自己シール性能評価試験を実施した。

＊＊＊＊＊

（平成 30 年度の成果概要）

4 種類の原鉱石の膨潤圧、膨潤変形及び自己シール特性を評価した。その結果、交換性陽イオンとして Na^+を主体とする原鉱石において、地質年代が長いほど、膨潤圧または膨潤

変形が小さくなる傾向がみられた。ただし、現時点で得られたデータは原鉱石の生成環境などによる影響を考慮していない定性的な結果であるため、今後原鉱石ごとに詳細な調査を加えて、試験結果の精度向上を行うことが課題である。

また、月布原鉱石を 0.425mm 以下に粉砕し、締固めて作成した再構成供試体において、膨潤圧、膨潤変形及び自己シール特性を評価した結果、再構成供試体の膨潤圧は、同条件の原鉱石供試体の膨潤圧と比べて明らかに大きくなる傾向が確認された。一方、膨潤変形については、再構成と原鉱石供試体が同様の値に収束していることが確認された。しかしながら、原鉱石の膨潤変形率の変動幅が大きいため、今後試験数を追加し傾向を確認することが課題である。

今回の結果では、ベントナイト原鉱石によっては、試験データのバラツキが大きくなるものがあったため、今後はその原因の検討も含めて、原鉱石の特性を総合的に評価することが課題である。

3.1.7 実施研究 7　研究者：JAEA　渡辺勇輔

研究テーマ：断層周辺の地下水流動特性および物質移行特性に関する包括的研究

（背景・目的）

断層周辺の地下水流動は主にダメージゾーン内の水みちとなる割れ目で生じると考えられることから、断層ガウジやダメージゾーンに存在するこれらの鉱物と地下水の水 - 鉱物反応は物質移行を評価する上で重要である。特に、スメクタイトなどの粘土鉱物は花崗岩に含まれる造岩鉱物よりも高い元素収着能力を持っており健岩部とは異なる物質移行特性を持つと予想される。岩盤中の物質移行特性を適切に把握し、物質移行現象を精度良く予測するためには、対象なる岩石の元素収着特性を把握した上で、サイト周辺における水理特性や鉱物組成の空間変化を考慮した解析を行う必要があると考えられる。また、元素の収着挙動は対象元素の濃度や, 液相の pH やイオン強度などの地球化学特性によって異なるためこれらを考慮した吸着モデルを作成する必要がある。

本研究では、断層周辺の物質移行特性を精度よく評価する手法を構築することを目的として、断層によって形成されるコンパートメント構造などの地質構造を考慮した地下水流動解析・物質移行解析や、断層活動によって変質した岩石への元素収着試験を実施する。

＊＊＊＊＊

（平成 30 年度の実施計画）

地下水流動や物質移行を抑制する構造として低透水性の断層に囲まれた構造(コンパートメント構造)に着目し、コンパートメント構造を含み、断層ガウジの有無、ダメージゾーンの厚さなどを変化させた仮想的な水理地質モデルを作成する。本モデルを用いて、地下水流動解析と物質移行解析を行うことで、地下水流動や物質移行を抑制する構造としてコンパートメント構造の機能を明らかにする。

また、断層ガウジを含む断層破砕帯の岩石試料を用いた元素収着試験を実施する。対象元素は三価の陽イオンとして Eu、一価の陽イオンとして Cs を用いる。また、対象試料の化学組成・鉱物組成分析を行い、収着挙動と試料中に含まれる鉱物組成との関係について調

べ，断層内の物質移行挙動を明らかにする。

＊＊＊＊＊

（平成 30 年度の成果概要）

コンパートメント構造を含み、断層ガウジの有無、ダメージゾーンの厚さなどを変化させた地下水流動解析、物質移行解析を実施した結果、断層の特性(断層ガウジの有無と，断層ガウジおよびダメージゾーンの厚さ)が変化することで周辺の地下水流動状態や物質移行状態が変化し、高透水性のダメージゾーンのみが分布する場合に比べて、低透水性の断層ガウジが存在する場合にはコンパートメント領域内の物質移行が抑制されることが示された。今回の解析では収着などの水–岩石反応は考慮しなかったが、断層ガウジとその近傍に分布するダメージゾーンにおける鉱物組成の空間分布やその不均質さ、これらによる水―岩石反応を考慮した物質移行特性を明らかにすることが課題である。

瑞浪超深地層研究所研究坑道内の 10MI22 号孔岩石コア試料の観察、化学組成・鉱物組成分析を行い試料のキャラクタリゼーションを実施した。コアの健岩部、主立坑断層を貫いた変質部、及び断層ガウジの試料を用いた収着試験結果から、Eu と Cs が花崗岩およびその変質岩石に対して異なる収着挙動を持つことが示唆された。また、収着挙動の違いは各試料に含まれる黒雲母、緑泥石、イライトやその他の粘土鉱物の含有量の違いによるものであると推察された。また，次年度以降の pH やイオン強度を変化させた収着実験に向けて、試験時間や岩石試料の処理方法などの諸条件を検討することできた。

3.2　評価委員会による平成 30 年度の研究成果に対する評価

本年度選定した 7 件の研究テーマについて、設置した評価委員会（委員長：杤山修（原子力安全研究協会））において平成 30 年度実施内容等のチェックアンドレビューを以下の日程で行った。

平成 30 年度　第 1 回評価委員会
日時：平成 31 年 3 月 8 日（金）　13：00～17：30
場所：原環センター　第 1、2 会議室

各研究者から平成 30 年度の研究成果、来年度の計画等の報告について 20 分行い、その後委員からの質疑応答・評価記入を 15 分行った。

評価では、以下の項目について評価点数を付け、また平成 30 年度の研究に対する意見、次年度の研究の方向性等に対するアドバイス等を自由意見として記入する形式で行った。

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

以下に、各研究テーマに対する評価結果を整理する。なお、研究実施者と利害関係者となる委員については、該当研究テーマに対する評価を参考扱いとし評価点数は使用せず、平均評価点数は有効評価人数によって算出した。

平成 30 年度第 1 回評価委員会　評価結果（その 1）

研究テーマ	ジオポリマー技術による人工バリア構築のための基礎的検討 胡桃澤 清文（北海道大学）
評価項目	評価（平均）
・実施研究は計画通りに進められているか。進められていない場合、改善のための工夫や計画の変更を適切に行っているか。	4.2
・実施研究は新規性・独創性があるか	4.4
・地層処分事業へ寄与できる成果が上がっているか	4.2
・次年度以降の研究計画・スケジュールは妥当か	4.2
自由意見	・ セメント系材料ではひび割れを制御出来ない事が問題です。3 年間という期間で、本材料のひび割れの可能性について知見が得られることを期待します。また、固化体のマトリックスとしての使い道もあるかもしれません。 ・ ジオポリマーは、将来の活用が期待されます。 ・ 基礎的データを沢山出して早く実用化することをお願いします。 ・ 材齢を変えた場合の強度変化についての情報も必要ではないか。陰イオンの移動や閉じ込め能力についても調べてほしい。 ・ まだまだこれからかと思いますが、この方向で進めて下さい。 ・ 材料設計を提案している。サンプルに白/灰色があり、不均質か気泡なのか？ ・ 圧縮試験では、応力―ひずみを測ってほしい(脆性的か)、また、バラツキ、異方性、岩石との親和性もチェックしてほしい。さらに、収縮性（熱の影響 100℃まで水か？）、透水性のデータも見てみたい

（注）評価点数は 5（高い）～1（低い）

平成 30 年度第 1 回評価委員会　評価結果（その 2）

<table>
<tr><td>研究テーマ</td><td colspan="2">新規析出促進法によるベントナイト緩衝材中の二次鉱物が拡散および透水挙動に与える影響評価
田中 真悟（北海道大学）</td></tr>
<tr><td colspan="2">評価項目</td><td>評価（平均）</td></tr>
<tr><td colspan="2">・実施研究は計画通りに進められているか。進められていない場合、改善のための工夫や計画の変更を適切に行っているか。</td><td>4.0</td></tr>
<tr><td colspan="2">・実施研究は新規性・独創性があるか</td><td>4.3</td></tr>
<tr><td colspan="2">・地層処分事業へ寄与できる成果が上がっているか</td><td>4.0</td></tr>
<tr><td colspan="2">・次年度以降の研究計画・スケジュールは妥当か</td><td>3.8</td></tr>
<tr><td>自由意見</td><td colspan="2">・ Calcite や Gypsum の生成は面白いが、2 次鉱物はベントナイト中の初生鉱物が溶解する事がスタートとなって生成が始まっている。よって化学的な変質挙動のアナログとして充分かと言えば限界がある。むしろ物理的な空隙閉塞がどの様に影響するかを整理させる事に期待大です。
・ 31 年以降の研究目的と具体的なアプローチがよく分からなかった。方向性が明確になれば研究の意義が大きく評価されると思います。
・ 陽イオン、陰イオンの易動度から輪率を与えて数値解析してはどうか？Gypsum、Calcite それぞれの Ksp から析出物の成長速度を説明しているが、パラメータをもっと変化させて実験データを蓄積してほしい。
・ 興味深い観察データが得られています。この方針で進めて下さい。</td></tr>
</table>

（注）評価点数は 5（高い）～1（低い）

平成 30 年度第 1 回評価委員会　評価結果（その 3）

研究テーマ	結晶質岩形成時に内包された割れ目発生・分布の潜在性の解明 湯口 貴史（山形大学）
評価項目	評価（平均）
・実施研究は計画通りに進められているか。進められていない場合、改善のための工夫や計画の変更を適切に行っているか。	3.5
・実施研究は新規性・独創性があるか	4.0
・地層処分事業へ寄与できる成果が上がっているか	3.5
・次年度以降の研究計画・スケジュールは妥当か	3.8
自由意見	・ 作業仮設は着眼点として特色があると思います。熱歪みと断層活動がどの様に影響しているのかもう少し判り易く説明して頂ければ理解が進みます。 ・ マイクロな割れ目の形成とラージスケールの割れ目形成の関係を時間的にその形成発展過程が判るような解明をすすめていただければ、地層処分に活用できると思います。そういう方向を考えてみてください。 ・ マイクロクラックと熱水変質のメカニズムやシナリオの時間変化を示して、どの部分の関係を見ているのかを明確にしてほしい。温度を他の方法（フィッショントラック等）で調べられないか。 ・ 熱水変質と結晶質岩形成時の割れ目発生にどうような関係があるのかないのか、整理して研究を進めてください

（注）評価点数は 5（高い）～1（低い）

平成 30 年度第 1 回評価委員会　評価結果（その 4）

研究テーマ	飽和度の変化に伴う堆積岩の変形異方性と放射性廃棄物の合理的な埋設方法に関する研究 富樫 陽太（埼玉大学）
評価項目	評価（平均）
・実施研究は計画通りに進められているか。進められていない場合、改善のための工夫や計画の変更を適切に行っているか。	4.0
・実施研究は新規性・独創性があるか	3.5
・地層処分事業へ寄与できる成果が上がっているか	3.3
・次年度以降の研究計画・スケジュールは妥当か	3.8
自由意見	・ トンネル堀作では気乾→湿潤のプロセスを経ると思われますので、主軸の回転方向は気乾とは反対方向になると予想されます。その時はどう考えるのか興味深い課題です。 ・ 実験については理解できるが、処分で役立てるためには実際のトンネルの場合どうなるのかが重要だと思います。実験データを現場にどう適用するのか、あるいは適用して良いのかという検討が必要だと思います。 ・ 円筒計試料のデータを得ているが、円筒穴のデータは取らなくても良いのか？膨潤が完全に行われているか確認が必要。 ・ 変形異方性が合理的な埋没方法にどの程度影響するのかを示した上で研究のアプローチを整理して下さい。

（注）評価点数は 5（高い）～1（低い）

平成 30 年度第 1 回評価委員会　評価結果（その 5）

研究テーマ	メタンをエネルギー源とした微生物生態系の地質環境への影響評価 鈴木　庸平（東京大学）
評価項目	評価（平均）
・実施研究は計画通りに進められているか。進められていない場合、改善のための工夫や計画の変更を適切に行っているか。	4.4
・実施研究は新規性・独創性があるか	4.4
・地層処分事業へ寄与できる成果が上がっているか	3.8
・次年度以降の研究計画・スケジュールは妥当か	4.4
自由意見	・ 地表の細菌が地下に持ち込まれた時に、どの程度の活性を示すのかを調査するのは新しい着眼点です。利用する反応速度式中の定数がどの範囲で利用できるのか(出来る限り広い範囲で利用できるとうれしいのですが・・)を示して頂けると利用価値が高くなると思います。 ・ 地下の古細菌、微生物の研究は面白いし、興味がわく。但し地層処分の関係ではどう役立つのか、活用できるのか、どういう影響を与えているのかという説明が欲しい。 ・ 新しい分野なのでメタン酸化細菌のきちんとした研究を進めて欲しいので、有用性の宣伝は重要だと思う。 ・ 地上の微生物を埋め戻しで地下に入れた時、どんなことが起きるのかを説明出来たら良いと思う。 ・ 反応速度調査で速度定数に影響を与えるパラメータを明らかにしてほしい。 ・ 研究は非常に興味深いものがあるが「・・生態系の」「影響評価」といわれると大丈夫なのかなと思ってしまう。 ・ 順調に進んでいると思います。 ・ 速度論的な考察は大事ですが、処分事業の観点からどこ起源の微生物がどういった地下水環境の場で生き残ってきたかを示して頂くことも大事かと思います。 ・ 封圧容器を縦置きにしていますが、重力の影響は受けないのでしょうか。

（注）評価点数は 5（高い）～1（低い）

平成 30 年度第 1 回評価委員会　評価結果（その 6）

研究テーマ	ナチュラルアログ手法 による締固めたベントナイトの膨潤特性・自己シール性能の年代変化に関する評価 王 海龍（早稲田大学）

評価項目	評価（平均）
・実施研究は計画通りに進められているか。進められていない場合、改善のための工夫や計画の変更を適切に行っているか。	2.8
・実施研究は新規性・独創性があるか	3.0
・地層処分事業へ寄与できる成果が上がっているか	3.2
・次年度以降の研究計画・スケジュールは妥当か	2.6

自由意見	・ 試験データのばらつきの原因を明らかにした方が後のデータの精度の確保につながります。セメンテーションの程度を wet な XRD で測定する手法は有用です。ぜひ完成させて下さい。地質年代をパラメータとするのではなく、セメンテーションの程度で整理する方がよいでしょう。そのためにも XRD 手法は重要です。 ・ ベントナイトの膨潤特性等の年代変化をとらえるのは難しいと思うが、それが判れば大いに役立つと思います。実験結果だけでなく時間的にどう変化する可能性があるのか、岩石学的研究によっても情報を得てみてはいかがでしょうか。 ・ 原石中のモンモリロナイト以外の鉱物、膠結作用を起こすものを固定して長期性能の評価に寄与してほしい。 ・ 何に着目すればセメンテーションの効果がみられるかよく考えて下さい。 ・ 4 つの試料を用いて比較検討しているが、地質年代や産地だけではよい相関は得られないと思う。今後、密度、モンモリ含有率等を考慮するとしているが、はじめからすべきだった。セメント材料は、各ベントナイト試料で同じか異なるかと明らかにすべきだと思う。次年度に向けて計画が十分に練られていないことが心配である。

（注）評価点数は 5（高い）～1（低い）

平成 30 年度第 1 回評価委員会　評価結果（その 7）

<table>
<tr><td>研究テーマ</td><td colspan="2">断層周辺の地下水流動特性および物質移行特性に関する包括的研究
渡辺 勇輔（日本原子力研究開発機構）</td></tr>
<tr><td colspan="2">評価項目</td><td>評価（平均）</td></tr>
<tr><td colspan="2">・実施研究は計画通りに進められているか。進められていない場合、改善のための工夫や計画の変更を適切に行っているか。</td><td>3.2</td></tr>
<tr><td colspan="2">・実施研究は新規性・独創性があるか</td><td>3.2</td></tr>
<tr><td colspan="2">・地層処分事業へ寄与できる成果が上がっているか</td><td>3.4</td></tr>
<tr><td colspan="2">・次年度以降の研究計画・スケジュールは妥当か</td><td>2.8</td></tr>
<tr><td>自由意見</td><td colspan="2">・ 包括的研究というチャレンジングな課題設定は頼もしいのですが、ミクロスケールの収着研究とマクロなスケールでの地下水流動解析にスケールのギャップを感じます。収着については既存研究の整理で充分かと思われますので、後者に注力された方が新しい知見が得られると思います。
・ 30 年度の研究は破砕帯の吸着性能の実験に絞られているが、断層が水みちではなく遮水バリア性能があるという話が面白かった。ガウジとその周辺の地下水流動の様子(知見)を調べるべきでは。
・ 原位置の試料を用いたオリジナルモデルとデータの取得をしてほしい。
・ 断層のガウジにおける収着に注目するのではなく、地下水流動を見て下さい。
・ （吸着試験）　定性的ではなく、定量的な評価を。試料を砕いてはダメでは。また、断層ガウジが低透水性ならばそこまで物質は移動しにくいのでは？
・ （仮想断層モデル）　何を知りたいのか？はっきりしてほしい。思っていたことと異なる結果は得られたか。コンパートメントにこだわるからにはどのようにそのような構造ができるのか。</td></tr>
</table>

（注）評価点数は 5（高い）～1（低い）

3.3 技術の実用化に向けた課題や課題解決に向けたアプローチの検討・整理

平成２６年度からの放射性廃棄物共通技術調査等事業（放射性廃棄物重要基礎技術研究調査）の４年間で得られた研究開発の結果に基づき、処分実施主体が将来処分事業を進めるに当たり必要となる技術の実用化に向けた課題や課題解決に向けたアプローチについて検討・整理する。

○本検討における対象範囲

平成 26～29 年度に実施された研究は表 3.3-1 に示される 6 件であるが、社会科学系の研究については技術の実用化に向けた検討に適用しにくいため、今回の検討からは除外することとした。

表 3.3-1　平成 26 年度放射性廃棄物共通技術調査等事業（放射性廃棄物重要基礎技術研究調査）の４年間（H26~29）で実施した研究テーマ

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

○検討方法

以下の文書等の調査・分析から、実用化に向けた課題の整理、その課題解決に向けた研究開発の展開について整理した。

- 平成 26～29 年度に実施された研究開発報告書の内容把握・分析[8]
- 放射性廃棄物重要基礎技術研究調査の事業報告書に掲載されている、有識者による評価結果意見の分析[8]

・ NUMO の包括的技術報告書の分析[9]
・ 地層処分研究開発調整会議の取りまとめにおける関連課題の分析
・ 資源エネルギー庁殿の各種委託事業報告での、関連研究開発の分析
・ 諸外国の関連する研究開発の調査・分析
・ 専門家へのインタビュー

○整理方法

以下の構成で整理する。

目的：実施した研究の目的

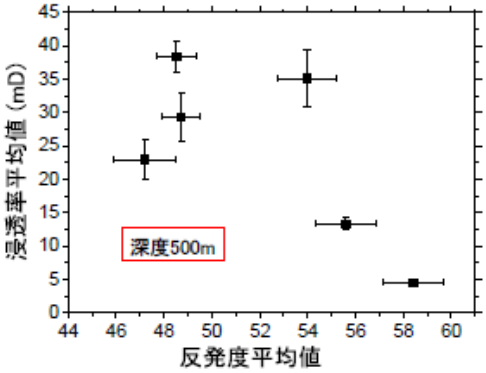
成果：実施研究の成果概要

実用化に向けた課題：技術の実用化に向けた課題を示す。ここで挙げた課題は今回の検討で整理した課題であり、様々な専門家から他にも課題案が示される可能性もあることにも留意されたい。

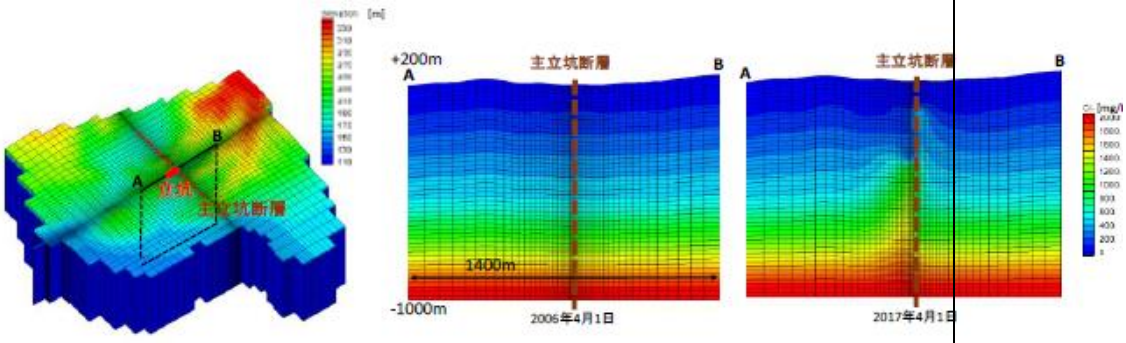
課題の検討段階：上記で示した実用化に向けた課題で実施されるいくつかの検討項目についての概略的な検討段階を示す。

以下の表 3.3-2～表 3.3-6 で 5 件の実施研究に対する、実用化に向けた課題を表形式で示す。

表 3.3-2　実用化に向けた課題（その 1）

<table>
<tr><td colspan="2">研究テーマ：
「断層周辺の地下水流動特性および物質移行特性に関する包括的研究」</td></tr>
<tr><td>目的</td><td>地下水流動・物質移行における断層の役割解明と、断層を考慮した地下水流動・物質移行の適切なモデル化</td></tr>
<tr><td>成果</td><td>・<u>断層からの距離に応じて岩盤基質部の浸透率変化を確認</u>
 

瑞浪超深地層研究所の主立坑断層周辺を対象として浸透率を測定（窒素ガス圧入式パーミアメータによる）、及びシュミットロックハンマーによる岩盤の反発度を測定し、反発度と浸透率に負の相関を確認（[8]より引用））

・<u>断層を含む系での局所的・広域的な水理モデルの構築</u>
 

物質移行解析による塩化物イオン濃度の時空間変化推定。立坑からの排水の影響により，断層南側で浅部から塩化物イオン濃度の低い地下水の浸透と深部から濃度の高い地下水の上昇が認められる（[8]より引用）</td></tr>
</table>

<table>
<tr><td colspan="2">研究テーマ：
「断層周辺の地下水流動特性および物質移行特性に関する包括的研究」</td></tr>
<tr><td>実用化に向けた課題</td><td>「簡易な岩盤の浸透率、透水係数の推定方法の開発」

研究では岩盤の浸透率測定方法として、窒素ガス圧入式パーミアメータによる岩盤浸透率測定、及びシュミットロックハンマーを用いた反発度測定を実施している。窒素ガス圧入式パーミアメータによる岩盤浸透率測定では、モデルにより浸透率、さらに換算により透水係数を求めている。また、シュミットロックハンマーによる反発度測定により、浸透率と反発度との間で一定の相関があることが明らかとなっている。しかしながら、得られたデータのバラツキが大きいことや、相関の精度が高くないことから、さらなる精緻化、高度化が図られることにより、本手法による現場での岩盤の簡易な浸透率、透水係数を確認する手法としての有効性が期待される。
具体的な実施項目は以下の通り。
・ 窒素ガス圧入式パーミアメータによる測定データからの浸透率算出モデルの再検討
・ 浸透率から透水係数算出モデルの妥当性確認
・ シュミットロックハンマーによる反発度と浸透率の相関に関するデータの再検証
・ 岩盤の透水係数を簡易に測定するための手法、あるいは上記方法の補完となる可能性のある他の非破壊検査手法の調査・検討</td></tr>
<tr><td>課題の検討段階</td><td>概略的な実施項目の検討段階を以下に示す。

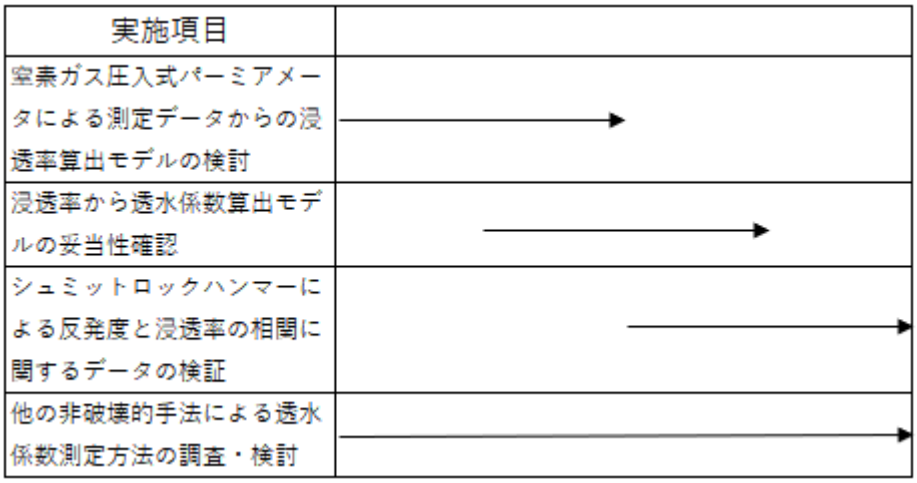
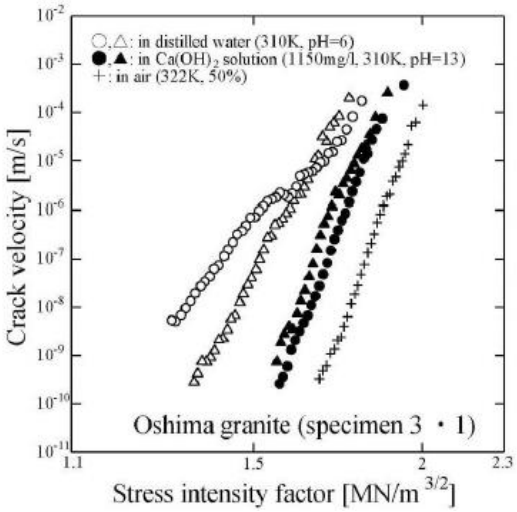
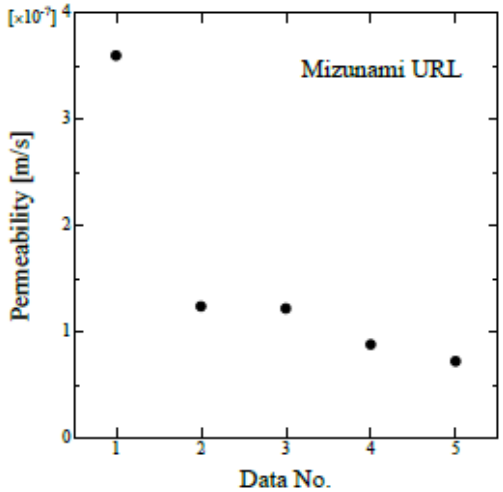
 
</td></tr>
</table>

表 3.3-3　実用化に向けた課題（その 2）

<table>
<tr><td colspan="2">研究テーマ：
「岩石き裂の治癒作用を利用した不連続面のバリア性能向上に関する研究」</td></tr>
<tr><td>目的</td><td>地下環境での結晶質岩の亀裂進展特性及び亀裂閉塞現象について明らかにする</td></tr>
<tr><td>成果</td><td>・<u>カルシウムイオン濃度が高い条件で亀裂進展速度が低下することを確認</u>
 

花崗岩のき裂進展速度と応力拡大係数の関係。カルシウムイオン濃度が高い環境下においてき裂進展速度が低くなる。（[8]より引用）

・<u>亀裂を有する花崗岩へ粘土懸濁液を供給することにより透水速度が低下することを確認</u>
 

瑞浪超深地層研究所の深度 300m研究坑道での原位置透水試験。岩盤内き裂に粘土懸濁水を流しながら試験をした結果、試験回数が増加するにつれて透水性が低下。（[8]より引用）</td></tr>
</table>

<table>
<tr><td colspan="2">研究テーマ：
「岩石き裂の治癒作用を利用した不連続面のバリア性能向上に関する研究」</td></tr>
<tr><td>実用化に向けた課題</td><td>「堆積物や炭酸カルシウムによる掘削影響領域の透水性に関する研究」

地層処分では坑道掘削により岩盤に掘削影響帯が形成されるが、人工的には埋戻し材が一部流出して堆積した堆積物による透水性の低下、あるいはセメント使用に伴う炭酸カルシウム形成による透水性低下の可能性が考えられる。
これらの影響について、操業～閉鎖後の段階を踏まえた数年間にわたる原位置試験を行うことにより、詳細な掘削影響帯の透水性の変遷に係る知見を得ることを目的とする。
また、上記のような掘削影響領域を埋め戻し、あるいはセメントで支保した坑道の掘削影響領域をナチュラルアナログとしてとらえた、透水性の調査を実施し、亀裂充填に関する知見を得る。これらの調査を通じて、掘削損傷領域の水みちとしての影響を低減するかどうかの評価に資することが期待される。
具体的な実施項目は以下の通り。
・ 既存研究の調査
・ 掘削損傷領域の岩盤の透水性測定（ベースライン）
・ セメントグラウト、坑道埋戻し
・ （一定の時間経過後に）坑道の再掘削、掘削損傷領域の性状調査、透水性試験
・ セメントや粘土で覆われた掘削損傷領域が存在するサイトでの、損傷領域の性状や透水性に関するナチュラルアナログ的研究</td></tr>
<tr><td>課題の検討段階</td><td>概略的な実施項目の検討段階を以下に示す。

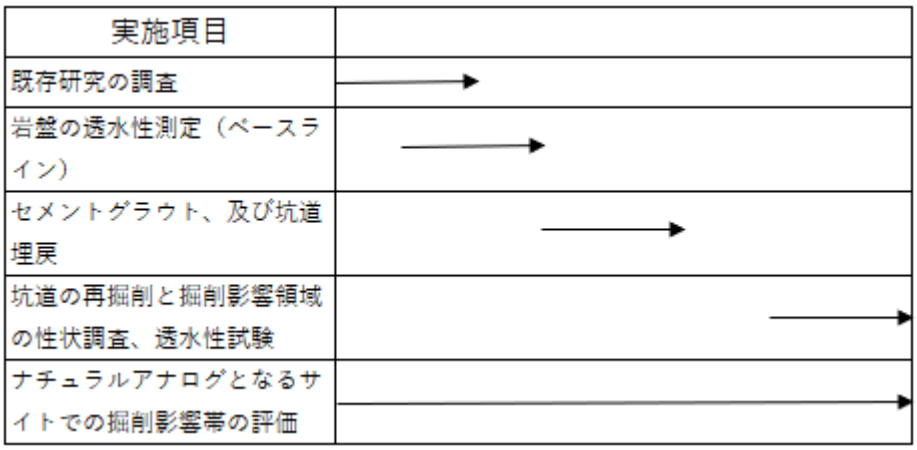
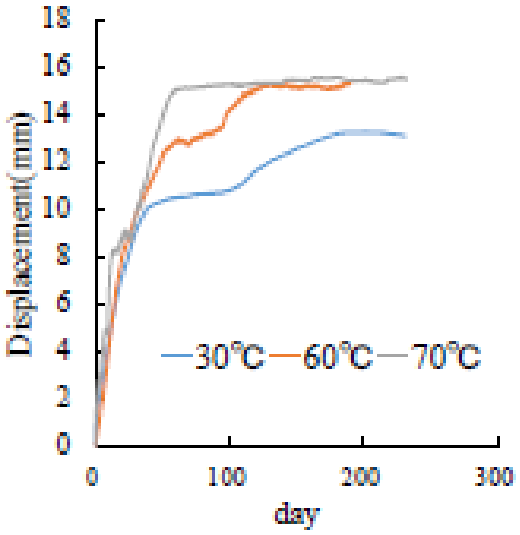
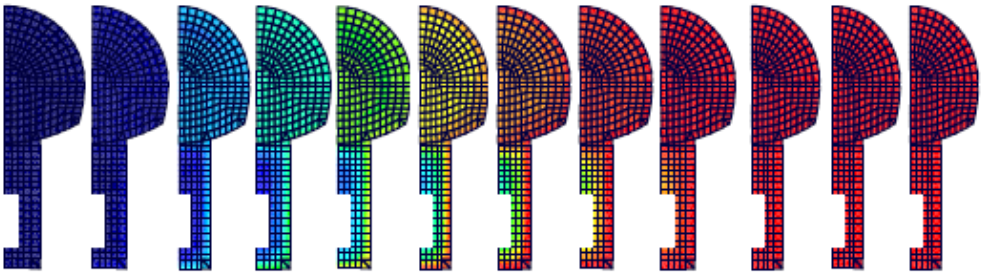
 
</td></tr>
</table>

表 3.3-4　実用化に向けた課題（その 3）

<table>
<tr><td colspan="2">研究テーマ：
「天然バリアと人工バリアの力学特性を考慮した放射性廃棄物処分施設の長期的な力学挙動予測システムの開発（処分施設の建設～操業～閉鎖～）」</td></tr>
<tr><td>目的</td><td>温度、および再冠水に伴う飽和度変化を考慮したベントナイト緩衝材の長期的な力学的基本特性の把握</td></tr>
<tr><td>成果</td><td>・<u>温度変化により、ベントナイト緩衝材の強度・膨潤特性が大きく変化することを確認</u>
 

膨潤試験において、温度が高くなるにつれてベントナイト膨潤量が大きくなる傾向（[8]より引用）

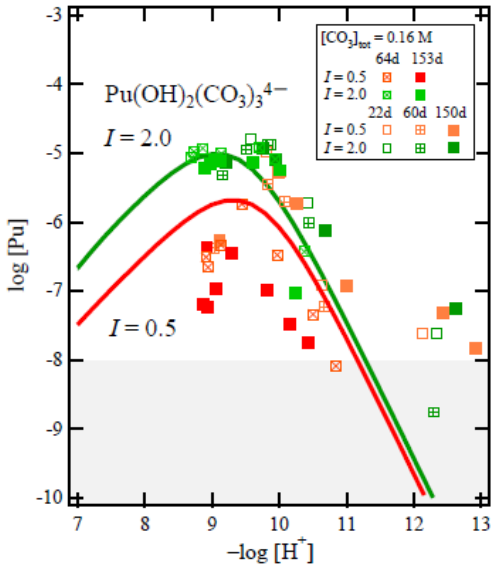
・解析により、廃棄体からの熱影響が及ぼす処分施設の再冠水過程の知見を獲得
 
処分施設を対象とした再冠水挙動解析。再冠水期間を 100 年とした場合、約 50 年で周囲の緩衝材が飽和し、60 年で全体が飽和。廃棄体熱の影響により、廃棄体周囲の緩衝材の飽和がおそくなることが示唆される（[8]より引用）</td></tr>
</table>

<table>
<tr><td colspan="2">研究テーマ：
「天然バリアと人工バリアの力学特性を考慮した放射性廃棄物処分施設の長期的な力学挙動予測システムの開発（処分施設の建設～操業～閉鎖～）」</td></tr>
<tr><td>実用化に向けた課題</td><td>「緩衝材膨潤挙動への熱影響のメカニズム解明、及び処分施設の長期的な力学挙動解析」

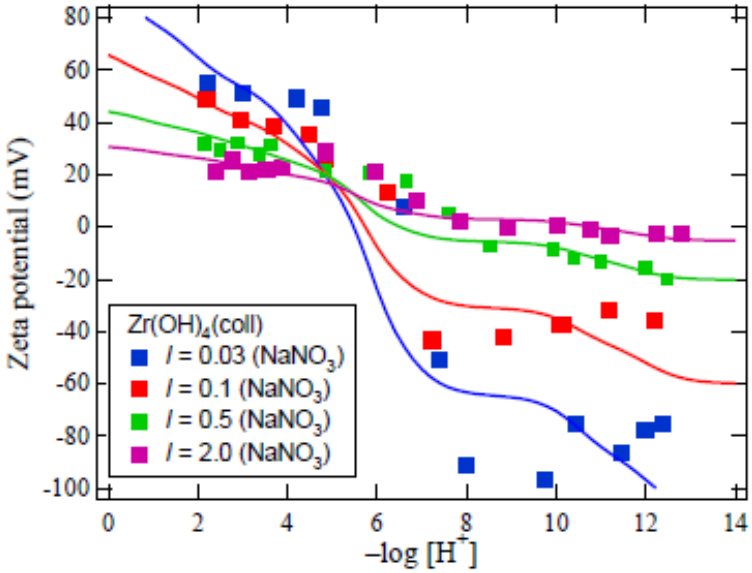
実施研究では、ベントナイト膨潤試験の結果、温度が高い方が、膨潤量が大きくなる傾向を示したが、そのメカニズムについては解明されていない。そのため、温度による膨潤量変化のメカニズムについての実験的・理論的検討を行う。
また、実施研究では、処分施設の再冠水過程の解析を行っているが、解析の対象としては処分坑断面のスケールであるため、坑道スケール、さらには処分施設のパネルスケールに拡大した解析を実施し、処分施設全体での力学挙動の知見を得ることを目的とする。さらに、既存の原位置試験等の結果を参照し、モデルの妥当性確認や解析コードの改良・高度化を行う。
これらの調査を通じて、処分場閉鎖から再冠水完了までの期間におけるニアフィールドスケール、パネルスケールでの力学的安定性に係る基本的変遷に係る評価の高度化に資することが期待される。
具体的な実施項目は以下の通り。
・ ベントナイト膨潤量変化に対する温度影響についての実験的・理論的検討
・ 熱影響を考慮した坑道スケール、パネルスケールでの緩衝材の力学的及び再冠水に関する解析
・ 解析結果の既存の原位置試験との比較、モデル改良</td></tr>
<tr><td>課題の検討段階</td><td>概略的な実施項目の検討段階を以下に示す。

<table><tr><td>実施項目</td><td></td></tr><tr><td>ベントナイト膨潤量変化に対する温度影響についての実験的・理論的検討</td><td>→</td></tr><tr><td>坑道スケール、パネルスケールでの力学挙動解析</td><td>→</td></tr><tr><td>既存の原位置試験との比較、解析モデル改良・高度化</td><td>→</td></tr></table></td></tr>
</table>

表 3.3-5　実用化に向けた課題（その 4）

<table>
<tr><td colspan="2">研究テーマ：
「硝酸塩影響評価のための高イオン強度下におけるアクチノイドの溶液化学的研究」</td></tr>
<tr><td>目的</td><td>アクチノイドの移行挙動に関連する見かけの溶解度に及ぼす硝酸塩影響の検討、およびモデルによる現象理解と総合的な硝酸塩影響評価</td></tr>
<tr><td>成果</td><td>・<u>硝酸塩条件でのアクチノイドの溶解度、錯生成定数を取得</u>
 

硝酸ナトリウム（0.5M, 2.0M）溶液中における、炭酸イオン（0.16M）共存下におけるプルトニウム溶解度（[8]より引用）。硝酸塩および炭酸イオン共存系において得られた 4 価アクチノイドの見かけの溶解度に基づき、熱力学的解析によりアクチノイド炭酸錯体の錯生成定数やイオン強度補正パラメータを取得

・<u>硝酸塩存在下での 4 価金属水酸化物コロイドのゼータ電位を熱力学的モデルにより解析し、測定結果を再現</u>
 

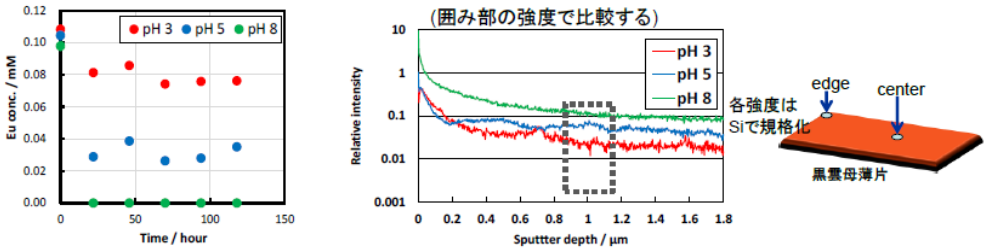
さまざまな硝酸ナトリウム濃度におけるジルコニウム水酸化物のゼータ電位と、モデル解析結果（[8]より引用）</td></tr>
</table>

<table>
<tr><td colspan="2">研究テーマ：
「硝酸塩影響評価のための高イオン強度下におけるアクチノイドの溶液化学的研究」</td></tr>
<tr><td>実用化に向けた課題</td><td>「塩水系環境におけるアクチノイド類似元素の移行挙動」

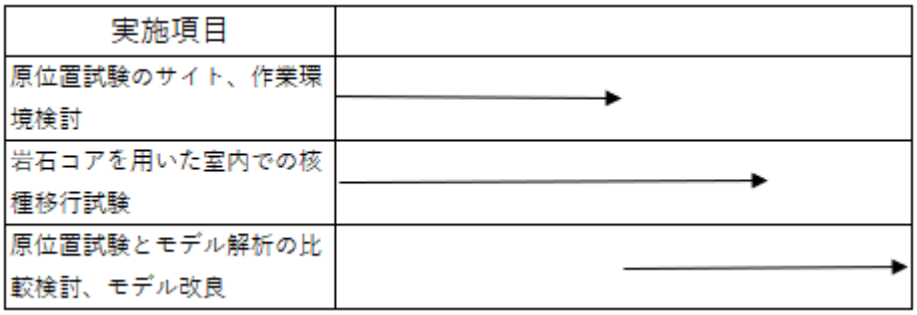
実施研究では、TRU 廃棄物由来の硝酸塩を考慮した研究であったが、天然環境で高硝酸塩濃度の地質環境はほとんどない。また、実施研究では溶解度やコロイドの実験系では岩相は存在しない系であった。沿岸海底下環境での処分の可能性も考慮して、沿岸海底下の地質環境を想定した塩水系地下水条件の地質条件において、アクチノイドと化学的に類似した元素（希土類元素、ジルコニウム等）の、実際の岩相がある系での現場での移行試験を行う。室内試験及び原位置での移行試験結果と、溶解度やコロイドの熱力学的モデルによる再現解析により、塩水環境下での 3 元系におけるアクチノイド移行挙動についての理解とモデルの改良を行う。
これらの調査を通じて、沿岸海底下環境でのアクチノイド移行パラメータ設定に係るデータの信頼性向上に資することが期待される。
具体的な実施項目は以下の通り。
・ 模擬的環境での水－核種－岩相の 3 元系での移行試験（室内試験）、及びモデルとの比較
・ 原位置試験のためのサイト選定、作業環境検討
・ アクチノイド類似元素の塩水系地下水での移行試験
・ 原位置試験とモデル比較・改良</td></tr>
<tr><td>課題の検討段階</td><td>概略的な実施項目の検討段階を以下に示す。

<table><tr><th>実施項目</th><th></th></tr><tr><td>室内の塩水系環境でのアクチノイド移行試験、モデルとの比較</td><td></td></tr><tr><td>原位置試験のサイト、作業環境検討</td><td></td></tr><tr><td>原位置でのアクチノイド類似元素移行試験</td><td></td></tr><tr><td>原位置試験とモデル解析の比較検討、モデル改良</td><td></td></tr></table></td></tr>
</table>

表 3.3-6　実用化に向けた課題（その 5）

<table>
<tr><td colspan="2">研究テーマ：
「地層処分の性能評価の精緻化を目指した薄片状雲母を用いた核種の収着メカニズムに関する基礎的研究」</td></tr>
<tr><td>目的</td><td>花崗岩内における核種移行評価の精緻化に資するため、黒雲母薄片内への拡散を伴う核種収着メカニズムを明らかにする</td></tr>
<tr><td>成果</td><td>・黒雲母薄片に対する核種収着が層構造内部への拡散過程を伴っていることを解明
・モデル解析から、黒雲母薄片内への核種拡散係数が母岩の実効拡散係数と同等であることを解明
 

(a) 液相のEu濃度変化　(b) SIMSによる薄片内部のEu分布(edge部)
黒雲母薄片へのユウロピウム（Eu）収着の pH 依存性と、薄片表面から内部への Eu 分布分析（[8]より引用）</td></tr>
<tr><td>実用化に向けた課題</td><td>「原位置試験による亀裂媒体中の核種移行挙動現象の解明」

実施研究では室内試験で花崗岩に含まれる黒雲母鉱物単体による核種収着挙動を検討しているが、地下研究所を活用した、原位置での地下水流動がある状態での亀裂を対象として核種移行試験を実施し、亀裂周辺での核種収着挙動について母岩の亀裂周辺の変質箇所や内部の健岩部の鉱物に対する収着影響について知見を取得し、核種移行モデルとの比較を行いモデル改良につなげる。
これらの調査を通じて、母岩の割れ目中水みちの微細透水構造や充填物への収着を取り入れた核種移行解析モデルの高度化に資することが期待される。
具体的な実施項目は以下の通り。
・　原位置試験のためのサイト選定や作業環境検討
・　岩石コアを用いた室内での核種移行試験
・　原位置試験とモデル解析の比較検討、モデル改良</td></tr>
<tr><td>課題の検討段階</td><td>概略的な実施項目の検討段階を以下に示す。
 
</td></tr>
</table>

参考資料

[1] エネルギー基本計画（平成 30 年 7 月）

（https://www.enecho.meti.go.jp/category/others/basic_plan/pdf/180703.pdf）

[2] 特定放射性廃棄物の最終処分に関する基本方針（平成 27 年 5 月 22 日閣議決定）

（https://www.meti.go.jp/press/2015/05/20150522003/20150522003-1.pdf）

[3] 地層処分研究開発調整会議, 地層処分研究開発に関する全体計画（平成 30 年度～平成 34 年度）, 平成 30 年 3 月

（http://www.meti.go.jp/report/whitepaper/data/pdf/20180329001_01.pdf）

[4] 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 地層処分技術 WG, 地層処分に関する地域の科学的な特性の 提示に係る要件・基準の検討結果 （地層処分技術ＷＧとりまとめ）（平成 29 年 4 月）

（ https://www.meti.go.jp/shingikai/enecho/denryoku_gas/genshiryoku/chiso_shobun/pdf/20170417001_1.pdf）

[5] 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 地層処分技術 WG, 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―（平成 26 年 5 月）

（ https://www.meti.go.jp/shingikai/enecho/denryoku_gas/genshiryoku/chiso_shobun/pdf/report_001.pdf）

[6] 公益財団法人原子力環境整備促進・資金管理センター, 平成２６ 年度放射性廃棄物共通技術調査等事業放射性廃棄物重要基礎技術研究調査（国庫債務負担行為に係るもの）報告書（平成 28 年度分）, 平成 29 年 3 月

[7] 公益財団法人原子力環境整備促進・資金管理センター, 平成２６ 年度放射性廃棄物共通技術調査等事業放射性廃棄物重要基礎技術研究調査（国庫債務負担行為に係るもの）報告書（平成 26 年度分）, 平成 27 年 3 月

[8] 公益財団法人原子力環境整備促進・資金管理センター, 平成２６ 年度放射性廃棄物共通技術調査等事業放射性廃棄物重要基礎技術研究調査（国庫債務負担行為に係るもの）報告書（平成 29 年度分）, 平成 30 年 3 月

[9] 原子力発電環境整備機構, 包括的技術報告：わが国における安全な地層処分の実現－適切なサイトの選定に向けたセーフティケースの構築－（レビュー版）, 2018

別添資料

（各実施研究の平成 30 年度報告）

研究報告１

ジオポリマー技術による人工バリア構築のための基礎的検討

北海道大学　大学院工学研究科

胡桃澤 清文

1. 背景・目的

我が国では原子力発電所等から排出される放射性廃棄物の処分が現在の課題となっている。また、福島第一原子力発電所の事故に伴い廃炉に向けた技術開発も急務となっており、多くの放射性廃棄物が発生しその減容や適切な処分方法の検討がなされている。現状における放射性廃棄物の処分概念を図 1 に示す。放射性廃棄物の処分方法は廃棄物のレベルに応じてトレンチ処分、ピット処分、中深度処分、地層処分の 4 つに分類される。また、図 2 に示すように低レベル放射性廃棄物の処分はすでに行われている。処分方法の放射性廃棄物の埋設処分に関する基本概念は、人工・天然バリアの多重防護によって核種の移行を抑制するとともに、天然バリアの核種の拡散・移行・遅延効果によって生活環境への影響が十分小さくなるまで安全に放射性物質を閉じ込め、段階的に管理を軽減するである。これらの埋設処分施設を構成する図 3 に示す人工バリア材料には、表 1 に示すように廃棄物の放射能濃度、特性および評価に応じた核種閉じ込め機能に対する性能が要求される。

余裕深度処分施設の人工バリアの一部として図 4 に示すようにコンクリートを含むセメント系材料の使用が想定されているが、現在のセメント系材料は長期にわたり地下

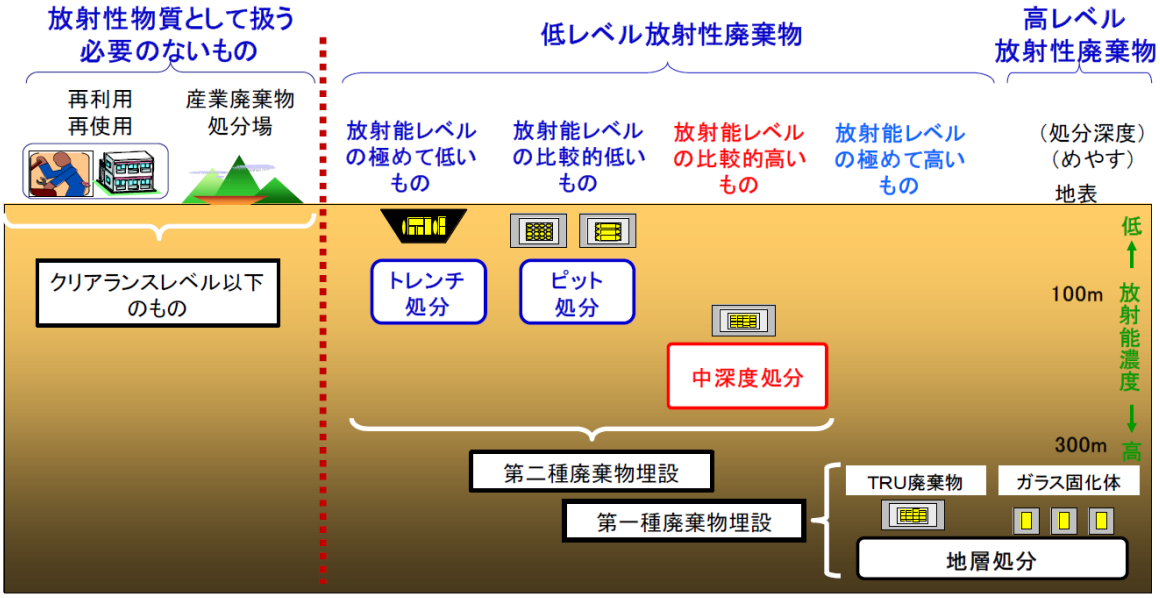


図 1　放射性廃棄物の処分概念[1]

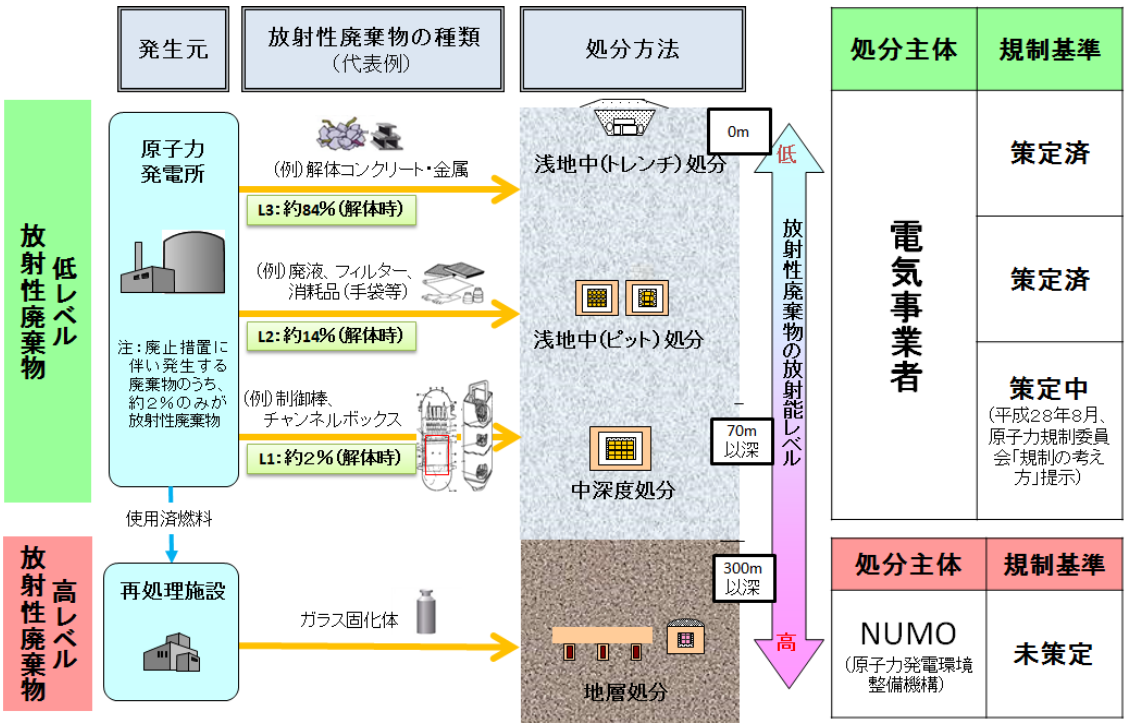


図 2　放射性廃棄物の種類に応じた処分方法[2]

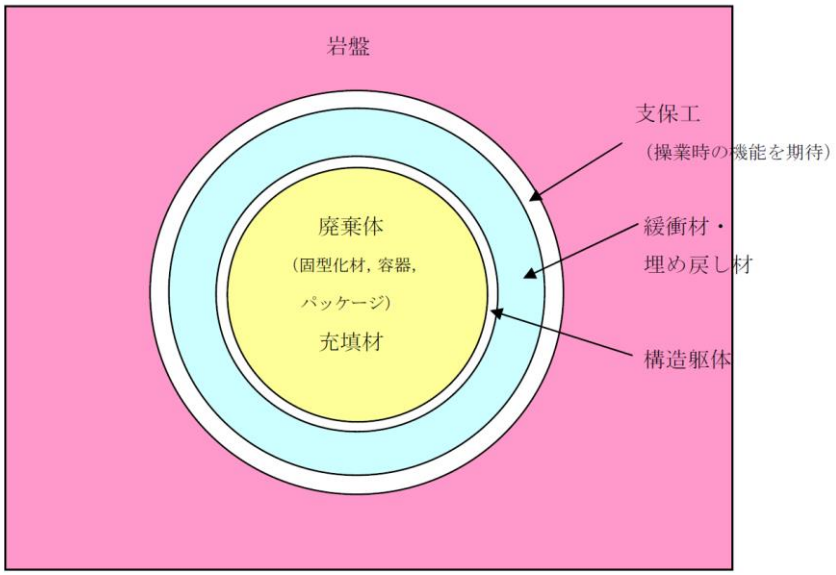


図 3　人工バリアの基本構成[3]

水に接することによって主要な生成物である水酸化カルシウムやケイ酸カルシウム水和物（C-S-H）中のカルシウム成分が溶出し多孔化することが問題視されている。筆者らは図５に示すようにセメント系材料の溶脱に伴う拡散性能の変化を明らかにしている。溶脱による拡散係数の変化はセメント硬化体中の水酸化カルシウムの溶出によるものであるが、フライアッシュや高炉スラグ微粉末を混和し水酸化カルシウムの生成量が少ない混合セメントにおいても拡散係数が高くなることが示された。したがってセメン

表 1　各人工バリアの設計上考慮すべき機能の整理[3]

区分	安全要件との対応		機　能	機能の内容	廃棄体		充填材	構造躯体	緩衝材	埋戻し材	支保工
					固型化材	容器（パッケージ）					
操業期間	操業中の安全確保	③，⑦	空洞安定性	坑道の形状維持及び壁面剥離防止	—	—	—	—	—	—	●
		③，⑦	廃棄体の定置	廃棄体定置及び充填材施工の効率化	—	●	—	●	—	—	—
		③，⑦	廃棄体の強度	廃棄体の耐埋設荷重強度	○	○	●	—	—	—	—
		③，⑦	汚染拡大防止	放射性核種の漏出防止	●	●	●	—	—	—	—
閉鎖後	溶出・移動の抑制	②	地下水移動の抑制	地下水浸入量の抑制	—	—	○	○	●	○	—
		②，⑥	放射性核種の溶出制限	放射性核種の物理的な閉じ込め	○	○	○	○	○	—	—
		②		化学的緩衝性	○	—	○	○	○	—	—
		②	放射性核種の収着	放射性核種の人工バリア材への収着	○	—	○	○	○	—	—
		②	自己シール性	発生空隙の充填	—	—	—	—	○	○	—
	力学的安定性	①	応力緩衝性	外力に対する緩衝性	—	—	—	—	○	○	○
		①	力学的支持性	廃棄体／構造躯体の支持	—	—	○	—	●	—	—
		①	坑道の安定性	処分坑道の力学的安定性	—	—	○	○	○	○	○
	化学的安定性	⑤	化学変質に対するバリア機能維持	長期的変質の考慮	○	○	○	○	●	—	○
	その他	④	熱伝導性	廃棄体発熱の放散	○	○	○	○	○	○	—
		④	透気性	ガス透過性／自己修復性	—	○	○	○	○	○	—
		④	コロイドの移動抑制	コロイドのろ過	—	—	—	—	○	—	—

●設計上考慮すべき機能

○設計上考慮せずに，設定された仕様によりその効果を確認する機能

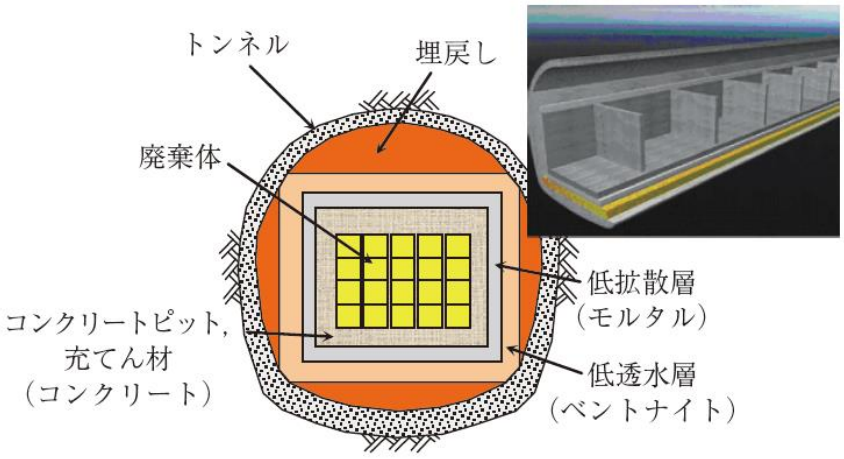


図 4　余裕深度処分施設の構成[4]

ト系材料を用いた場合には溶脱による性能変化が生じることになる。そこで本研究においては人工バリアの一部としてジオポリマー硬化体の適用が可能かどうかの基礎的検討を行う。ジオポリマー硬化体は図 6 に示すような特性を有し、1988 年にフランスの Joseph Davidovits により提唱された、活性フィラーとアルカリ溶液との反応によって形成される硬化体の総称であり、元来は燃えやすい有機物ポリマーに対して耐火性を持っている物質として研究されてきた物質であるが、近年土木建築分野での利用や産業廃棄物や放射性廃棄物の固型化材としての使用が考えられている。

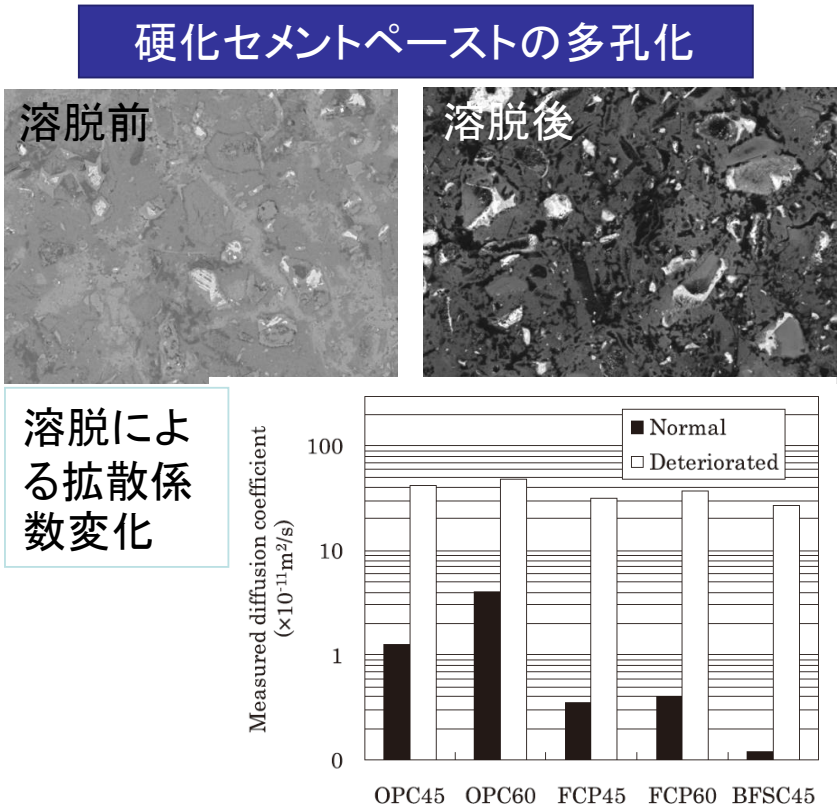


図 5　セメント硬化体の溶脱に伴う構造変化と拡散係数変化[5]

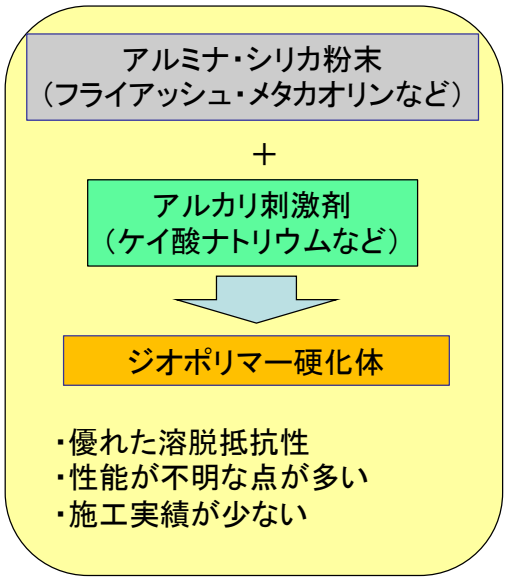


図 6　ジオポリマー硬化体の概要

特徴として、産業副産物である高炉スラグやフライアッシュとアルカリ溶液を反応させることにより作製可能であり、その硬化反応は脱水を伴う重縮合反応であるため硬化時の収縮が大きく、耐酸性が強い。加えて、普通ポルトランドセメントと比較して、耐火性に優れ、アルカリ骨材反応を生じにくい。一方、高炉スラグのみをアルカリ溶液で

反応させるだけでは一次元構造の C-S-H ゲルが生成されるだけであり、それらはジオポリマーと定義されず、アルカリアクティベートスラグ(AAS)と定義される。

ジオポリマー硬化体の構造は天然ゼオライトの構造に類似しており、アルミニウムとシリコンが 3 次元 4 面体形に連なったアルカリアルミノシリケート構造（-Si-O-Al-O-, Mn[-(SiO2)z-AlO2]n・wH2O、M は陽イオン）が生じて硬化したものである。ジオポリマー硬化体はセメント製造時に発生する CO2 排出が少なく、ジオポリマー硬化体は優れた溶脱抵抗性を持つことが報告されているが、使用する材料によって異なる物性を示すことが報告されており、施工実績がセメント系材料に比べると圧倒的に少ない。また、圧縮強度発現や硬化体がどのような微細構造であるかなど不明な点が残されている。そこで本研究においてはジオポリマー硬化体の流動特性、強度などの機械的特性、収着性能、溶出特性、及び物質移動特性について定量的に明らかにすることを目的とする。特に、機械的特性、収着性能、溶出特性および物質移動特性に優れるジオポリマーの最適な配合を固体 NMR やその他の最新の手法を用い微細構造の解析結果に基づき決定を行う。その結果に基づいた最適な配合条件からジオポリマーを作製し人工バリアに要求される各種性能について明らかにし、ジオポリマー配合をいろいろな環境条件と要求性能に基づきバリエーションをもたせられるジオポリマー材料の設計手法を提案する。

本研究で検討を行うジオポリマー技術が人工バリアとして適用可能であることが明らかとなればセメント系材料とともに多くの異なる環境条件下における使用可能な材料として検討を行うことができるためその選択肢が広がり社会への波及効果は高いといえる。また、ジオポリマー硬化体が核種の収着に有用であることが明らかとなれば、多くの有害金属の除去に有用である可能性も見いだせるため、本成果が異なる分野においても有用な知見を与えることができる。一方、本研究ではカオリンを焼成したメタカオリンを原材料として用いるが、同様の化学組成や微細構造を有していれば他の産業から排出される副産物においても同様の性能を得ることが可能であることが想定され、それらの利用によって廃棄物低減を行うことが可能となる。

参考文献

[1]原子力規制委員会：炉内等廃棄物の埋設に係る規制の考え方について、平成 28 年 8 月 31 日

[2] 資源エネルギー庁ホームページ：http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/gaiyo/gaiyo01.html

[3] 電気事業連合会、核燃料サイクル開発機構:TRU 廃棄物処分技術検討書―第 2 次 TRU 廃棄物処分研究開発取りまとめ―、JNC TY1400 2005-13,2005

[4] 庭瀬一仁、月永洋一、辻幸和：低レベル放射性廃棄物書部におけるセメント系材料の設計と施工に関する基礎的検討、日本コンクリート工学会誌、Vol.50,No.7,pp.585-

592、2012
[5] 青山 琢人, 胡桃澤 清文, 名和 豊春, 大和田 仁, セメント硬化体の 3 次元イメージモデルによる塩化物イオンの拡散予測, セメント・コンクリート論文集, 2010, 64 巻, 1 号, pp. 66-73

2. 全体研究計画（3 ヵ年における全体計画）

ジオポリマー硬化体はアルミノシリケートの粉体とアルカリ刺激剤によって重合することによって硬化する材料である。国内においてはフライアッシュ及び高炉スラグ微粉末にケイ酸ナトリウム溶液を使用した材料が検討されている。しかしながらフライアッシュは化学成分が一様ではなく取り扱いが困難であるためその使用が限定される。一方、高炉スラグ微粉末の化学組成は安定しているが、カルシウムを多く含むため長期間の地下水における暴露によって溶脱が進行する恐れがある。したがって、高炉スラグの使用をおさえるためにカオリンを焼成したメタカオリンの使用を試みる。メタカオリンは反応性が高いためアルカリ刺激剤によって早期に重合が進み硬化するため、このメタカオリンをベースとした硬化体の適切な配合を設定する。また、2 年間にわたる核種収着性能強度、及び溶出挙動について検討を行う。強度試験では圧縮強度、引張強度および弾性係数の測定を行い、機械的特性を明らかにし強度に及ぼす影響を明らかにする。

一方、作製した試験体のキャラクタリゼーションを ^{29}Si および ^{27}Al 固体核磁気共鳴装置によって行いシリカやアルミの結合状態の違いについて明らかにしそれが機械的特性や収着、溶脱性能に及ぼす影響を定量的に分析する。さらに硬化体内部の水分の状態分析を行うためにプロトン NMR による緩和時間測定を行い、プロトンがどのような状態で結合し、それらが収着や溶脱に及ぼす影響を明らかにする。収着や溶脱によって変質する硬化体内部の状態変化は、元素分布の状態を EPMA 測定によって把握する。さらには詳細な元素分布を ppm レベルにて分析するために LA-LIBS を用いて測定を行い定量的な評価を行う。以上の検討結果よりジオポリマー硬化体の微細構造に基づく材料設計手法について提案を行い、要求された性能を兼ね備えた硬化体の配合を導く。3 年間の全体計画を表 2 に示す。

初年度はジオポリマー硬化体の適切な配合を検討する。メタカオリン及びアルカリ刺激剤の配合条件を決定し、流動性、強度、収着特性に優れた硬化体の作製を行う。強度試験では圧縮強度、引張強度および弾性係数の測定を行い、機械的特性を明らかにする。収着試験としては硬化体にセシウムやヨウ素等を吸着させその収着特性について検討を行う。また、2 年間にわたる核種の溶出・溶脱試験を開始する。これらの作製した試験体のキャラクタリゼーションを ^{29}Si および ^{27}Al 固体核磁気共鳴装置によって行う。さらに硬化体内部の水分の状態分析を行うためにプロトン NMR による緩和時間測定を行う。初期の元素分布の状態を測定するために EPMA によってマッピングを行う。さらには ppm レベルでの元素の分布を分析するために LA-LIBS を用いてマッピングを行う。

次年度では、ジオポリマー硬化体の収着試験を継続的に行い、長期にわたる収着特性について検討を行う。2 年間にわたる溶出・溶脱試験の 1 年目における試験を行う。また、溶出試験や収着試験を行った試験体のキャラクタリゼーションを固体

核磁気共鳴装置によって同様に行い変質状態を分析する。さらに硬化体内部の水分の状態分析を行うためにプロトン NMR による測定も継続する。また、収着後および溶出試験後の元素分布の状態を測定するために EPMA によってマッピングを行う。さらには ppm レベルでの元素の分布を非乾燥状態にて分析するために LA-LIBS を用いてマッピングを継続して行う。

3 年目では、ジオポリマー硬化体の収着試験を継続的に行い、長期にわたる収着特性について検討を行う。2 年間にわたる溶出試験の 2 年における測定を行う。また、溶出試験や収着試験を行った試験体のキャラクタリゼーションを固体核磁気共鳴装置によって同様に行う。さらに硬化体内部の水分の状態分析を行うためにプロトン NMR による測定を行う。また、収着後および溶出試験後の元素分布の状態を測定するために EPMA によってマッピングを行う。さらには ppm レベルでの元素の分布を非乾燥状態にて分析するために LA-LIBS を用いてマッピングを行う。以上の結果から収着、溶出、物質移動特性に優れたジオポリマー硬化体の特性を定量的に明らかにしジオポリマー硬化体の材料設計手法を提案する。

表 2　全体研究計画

	30年度	31年度	32年度
最適配合	各種材料による配合条件の設定	→	
キャラクタリゼーション	各配合条件におけるキャラクタリゼーション	収着・溶脱後の試料のキャラクタリゼーション	→
機械的物性	圧縮強度、弾性係数、引張強度の測定	→	
収着性能	いくつかの配合にて核種の収着性能測定	→	分配定数または平衡定数の決定
溶脱特性	溶脱開始	1年溶脱量測定	2年溶脱量測定
材料設計			要求性能に基づく材料設計手法の提案

3. 平成 30 年度研究実施内容

3.1 平成 30 年度の計画、実施方法

ジオポリマー硬化体の適切な配合を検討する。メタカオリン及びアルカリ刺激剤の配合条件を決定し、流動性、強度、収着特性に優れた硬化体の作製を行う。強度試験では圧縮強度、引張強度および弾性係数の測定を行い、機械的特性を明らかにする。収着試験としては硬化体にヨウ素等を吸着させその収着特性について検討を行う。また、2 年間にわたる核種の溶出・溶脱試験を開始する。これらの作製した試験体のキャラクタリゼーションを ^{29}Si および ^{27}Al 固体核磁気共鳴装置によって行う。さらに硬化体内部の水分の状態分析を行うためにプロトン NMR による緩和時間測定を行う。初期の元素分布の状態を測定するために EPMA によってマッピングを行う。さらには ppm レベルでの元素の分布を分析するために LA-LIBS を用いてマッピングを行う。

3.1.1 実験概要

（1）使用材料と試験体

本研究では、表３に示すメタカオリン及び高炉スラグをアルミナ・シリカ粉末として使用した。メタカオリンは 2 種類使用し、MK1 は、平均粒形 1.2μm、BET 比表面積 14m^2/g、嵩比重は 320kg/m^3 であり、MK2 は、平均粒形 1.3μm、BET 比表面積 12.9m^2/g、嵩比重 260kg/m^3 である。また、アルカリ刺激剤作製のために、ケイ酸カリウム溶液、ケイ酸ナトリウム溶液、水酸化カリウム、水酸化ナトリウムおよび精製水を用いた。表 4 に配合を示す。表中の M_2O は K_2O, Na_2O を示し、それぞれモル比で示されている。また、NaK の試料では M_2O として Na_2O

表 3　試験体の配合

	SiO2	TiO2	Al2O3	Fe2O3	MnO	MgO	CaO	Na2O	K2O	P2O5	LOI	S
MK1	52.67	1.15	44.97	0.57	0.00	-	0.03	0.40	0.14	0.07	0.61	-
MK2	52.69	1.50	45.40	0.39	0.00	0.00	0.02	0.43	0.11	0.06	1.00	-
BFS	33.67	0.50	13.52	0.65	0.14	6.40	43.14	0.34	0.27	0.01	-	1.35

表 4　メタカオリン及び高炉スラグの化学組成

メタカオリン	試料名	メタカオリン	M2O/Al2O3	M2O/SiO2	H2O/M2O	MK(g)	Ca(OH)2(g)	BFS(g)	Activator(g)
MK1	MK1-Na	MK1	1	1	11	100	-	-	141.2
	MK1-K								155.5
	MK1-NaK								148.3
	MK1-K9				9				139.6
	MK1-NaK9								132.5
MK2	MK2-K	MK2			11				155.5
	MK2-Na								141.2
	MK2-NaK								148.3
	MK2-K9				9				139.6
	MK2-0.66K			0.6667	11				168.7
	MK2-Ca			1			0.17		155.4
	MK2-BFS					80	-	20.0	155.5

と K_2O を 0.5mol ずつとしている。この組成によって作製したアルカリ刺激剤をメタカオリンと練混ぜを行った。練り混ぜはミキサーを用いて 15 分間練り混ぜ、所定の型枠に打設し試験体に含まれているエアーを振動機によって抜いた。養生は 24 時間室温にて封緘養生を行い、MK1 の水が 11mol の試料では 40℃の加温養生を 1 日間行い、9mol の試料では 60℃の加温養生を 1 日行い、その後室温にて封緘養生を行った。MK2 の試料では加温養生は行わず室温にて封緘養生を行った。

（２）測定方法

a. フロー試験

JASS 15M-103 にしたがって測定を行った。直径 50 ㎜、高さ 50 ㎜の円筒形型筒に試料を入れ引き抜いた直後のフローを直交する 2 方向の長さを測定しその平均値をフロー値とした。スランプフローの経時変化は、写真 1 に示すように練り混ぜ直後、注水後 30,60,90,120,150,180 分後のスランプフロー値を測定した。

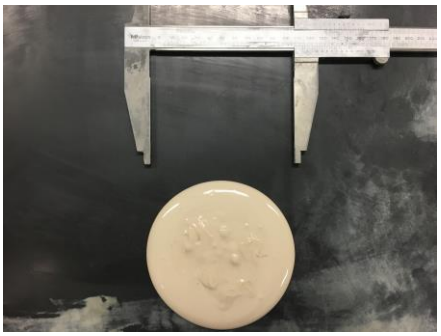


写真 1　フローの測定

b. 圧縮強度試験

測定試料は型枠を用いて写真に示すような試料φ50×100mm の硬化体試料を 3 本用いて、表面乾燥条件で一軸圧縮強さを測定した。測定により得られた破壊時の最大応力を端面の断面積で除すことにより一軸圧縮強度を算出した。

写真 2　作製したジオポリマー試験体

c.割裂引張り強度試験

測定試料は型枠を用いて作製した試料φ50×100mm の硬化体試料を用いて、表面乾燥条件で割裂引張り試験を行った。測定により得られた破壊時の最大応力と供試体の直径、長さにより割裂引張強度を算出した。

d.超音波伝播速度試験

Φ50mm×100mm のモールド缶を用いて作製した試験体を測定試料とし、超音波速度をマルイ製超音波非破壊試験器で測定した。測定試料は測定前に、端面にグリスを塗ることで、測定面の状態に左右されないようにした。測定器は測定直前にゼロ距離と較正試料を用いて較正した。測定した透過時間により試料長さを除すことによって超音波速度を算出した。

e.電子顕微鏡観察（SEM）

試料をエポキシ樹脂で包埋し、その表面の研磨を行った。その後白金蒸着を施して走査型電子顕微鏡観察用試料とした。加速電圧 15keV、ワーキングディスタンス 11mm にて測定を行った。

f.溶脱量測定

２から 5 mmに粉砕した試料および直径 50 mm、高さ 50 mm程度に成型した試験体を固体と液体の重量比を 10 倍に設定した精製水に浸漬し、一定期間ごとにその精製水を入れ替えた。入れ替えの際に質量変化を測定し、溶液に含まれる元素濃度を ICP－AES によって測定を行った。

g.プロトン NMR 測定

直径 8 ミリのガラス管に試料を打設し密閉することにより試験体を作製した。測定は CPMG 法による測定と Solid echo 法による測定をそれぞれ 2 本ずつ行った。

h.固体 NMR 測定

29SiMASNMR と 27AlMASNMR 測定を行った。

i.XRD 測定

粉砕した試料を凍結乾燥によって反応停止後、ボールミルにて微粉砕し、内部標準試料であるコランダム（α－Al2O3）を試料質量に対し内割りで 10％混合した。測定条件は角度 5～70°、スキャンスピード 3°/min にて測定を行った。

j.EPMA 測定

SEM 観察と同様の試料を用いて硬化体表面の元素分布を EPMA によって測定を行った。測定条件は、加速電圧 15kV、試料電流 5×10^{-9}A とした。

k.低温 DSC 測定

容量が 15μl のステンレス容器に試料を打設し、密閉後に低温 DSC 測定を行った。測定条件は、室温から-60℃までの凍結過程と-60℃から 10℃までの

融解過程にて行った。

l. 吸着量測定

2 から 5 ㎜程度に粉砕した試料を濃度の異なるヨウ化セシウム溶液に浸漬し一定期間後に溶液濃度を ICP―MS やイオンクロマトグラフによって測定を行った。

m. LA-LIBS 測定

SEM 観察と同様の試料を用いて硬化体表面のセシウムの濃度測定を行った。

3.2　平成 30 年度の成果内容

3.2.1　測定結果

（1）フロー試験結果

図 7 に練り混ぜ直後にフロー値を測定した結果を示す。MK1 の試料よりも MK2 の試料のほうが高いフロー値を示した。ナトリウムをアルカリ刺激剤として使用した試料のフロー値が低い値であり、水が 9mol の試料も値が低下した。このことから施工性を考慮した場合、カリウムを刺激剤として使用し、水量は 11mol を使用したほうがよいことが示された。

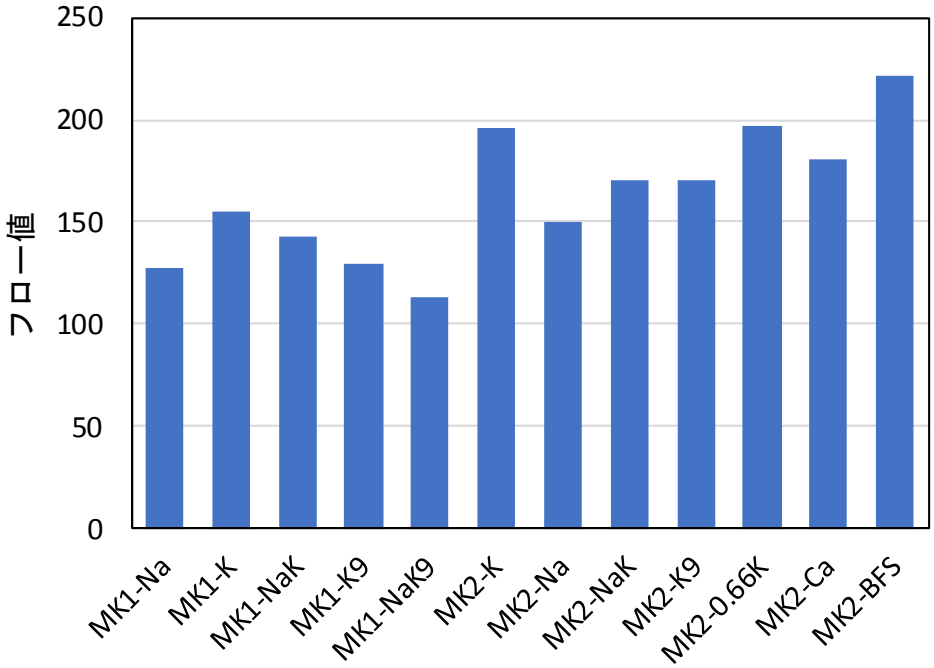


図 7　練混ぜ直後のフロー値

図 8 にフロー値の経時変化の結果を示す。いずれも時間の経過とともにフロー値は減少するが、MK2 を用いた試料では 2 時間経過した後でも MK1 の試料よりも高いフロー値を示した。ただし、MK2 の試料のフロー値の減少の程度は MK1 と比べると大きいこ

とから反応が早期に進行していると考えられる。

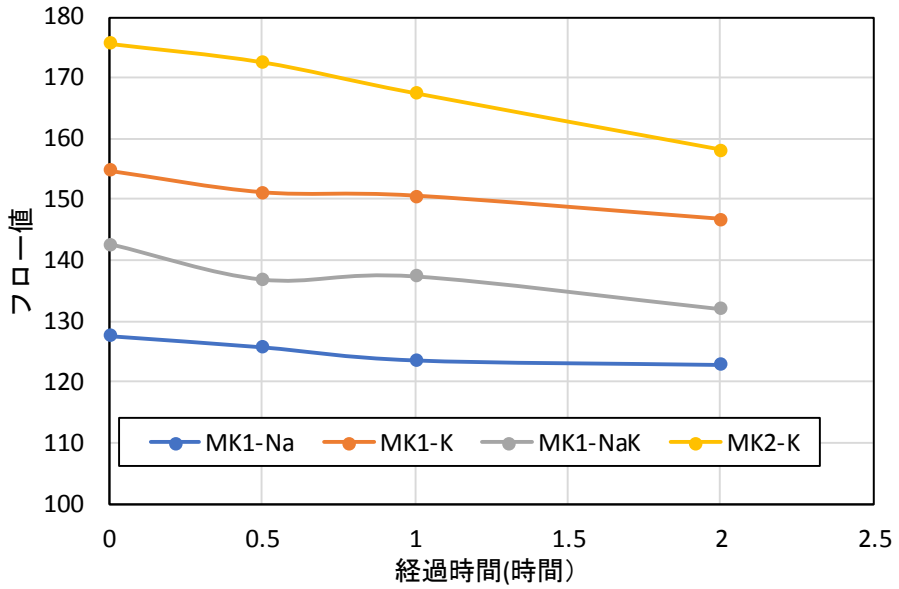


図 8　フロー値の経時変化

（２）密度、含水量、強熱減量測定結果

材齢 3 日における密度の測定結果を図 9 に示す。MK1-Na の試料は硬化しなかったため測定ができなかった。水が 9mol の試験体が密度は高く、MK1 の試料のほうが MK2 の試料よりも高密度であった。

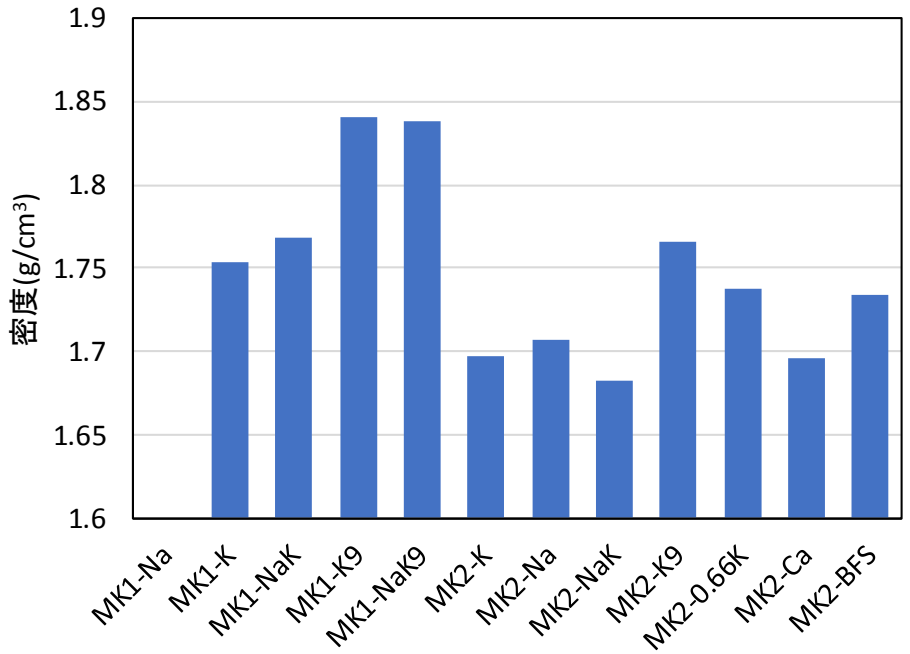


図 9　材齢 3 日における試験体密度

材齢 3 日における含水量を図 10 に示す。含水量は 105℃における乾燥質量を基

準として算出している。MK2 の試料の方が MK1 の試料より含水量は低い値であった。このことから MK2 の試料が MK1 の試料よりも反応が進行し 105℃で蒸発可能な水分量が減少したと考えられる。

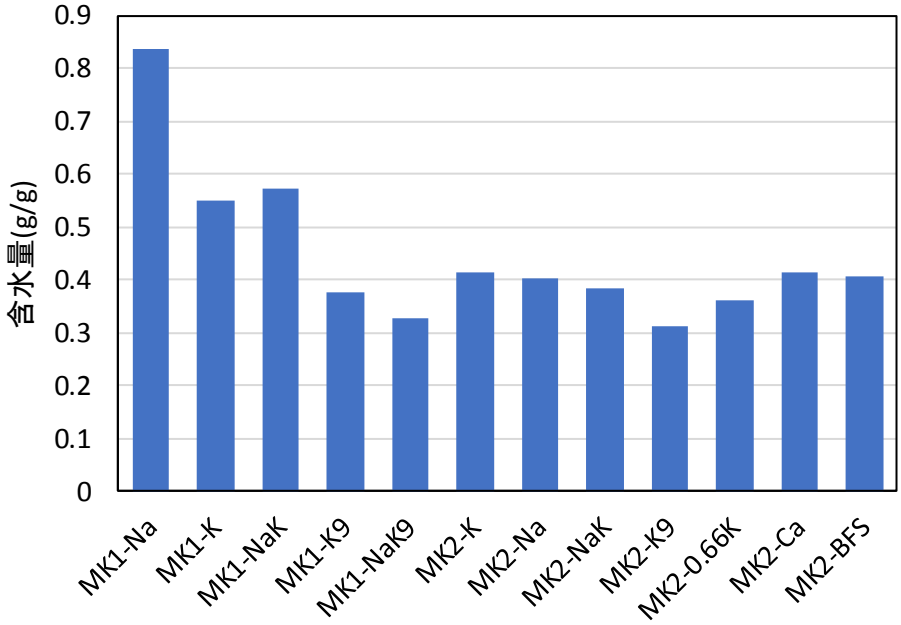


図 10　材齢 3 日における含水量

図 11 に材齢 3 日の 950℃の強熱減量を行った結果を示す。強熱減量の測定結果には明確な傾向はみられなかった。

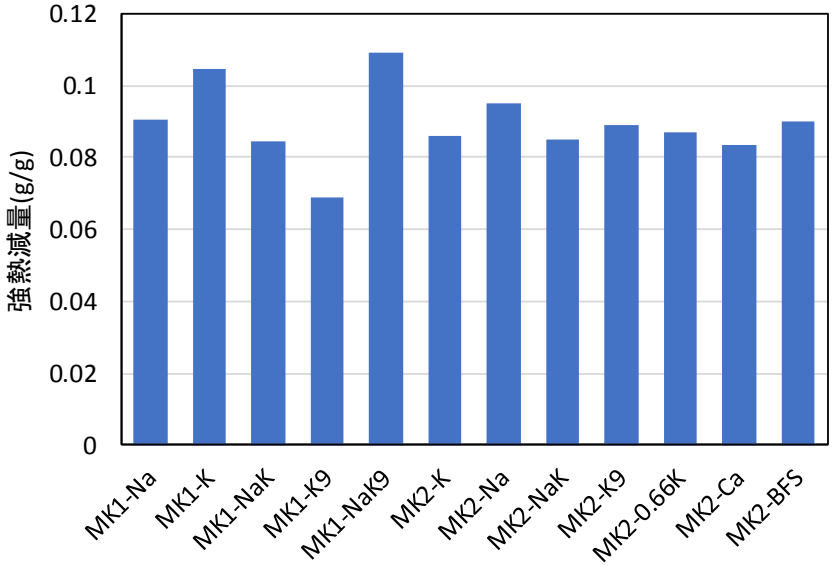


図 11　材齢 3 日における強熱減量

（３）圧縮強度試験結果

写真 3 に圧縮試験後の試験体を示す。短冊状に破片が飛び散っているようすがわかる。

写真 3　圧縮試験後の試験体

図 12 に材齢 3 日の圧縮強度試験結果を示す。MK1 の試料よりも MK2 の試料の方が圧縮強度は高い結果となった。このことから MK2 のメタカオリンの反応性が高いことが示された。アルカリ刺激剤の影響は明確には見られず、MK1 ではカリウム系の刺激剤が有効であるが、MK2 ではナトリウム系の刺激剤が有効であった。また、水量が 9mol の試料においても MK1 と MK2 では異なる傾向が示されたことからさらなる検討が必要である。

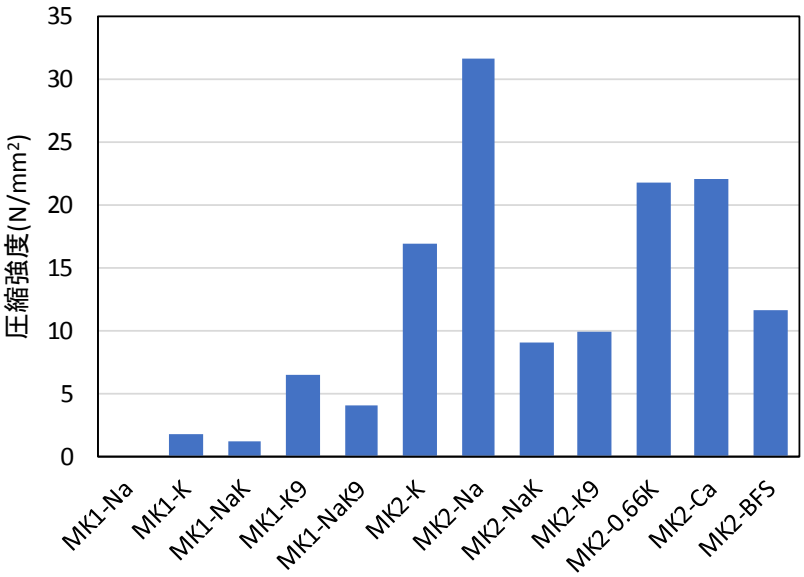


図 12　材齢 3 日における圧縮強度試験結果

（４）割裂引張強度試験結果

図 13 に材齢 3 日における割裂引張強度試験結果を示す。圧縮強度試験結果より MK1 の試験体は強度発現が十分ではないためここでは MK2 の試験体のみ測定を行った。圧縮強度試験結果と同様にナトリウム系の刺激剤を用いた試験体の強度が高い結果となった。水量の違いは強度に大きく影響を及ぼさなかった。

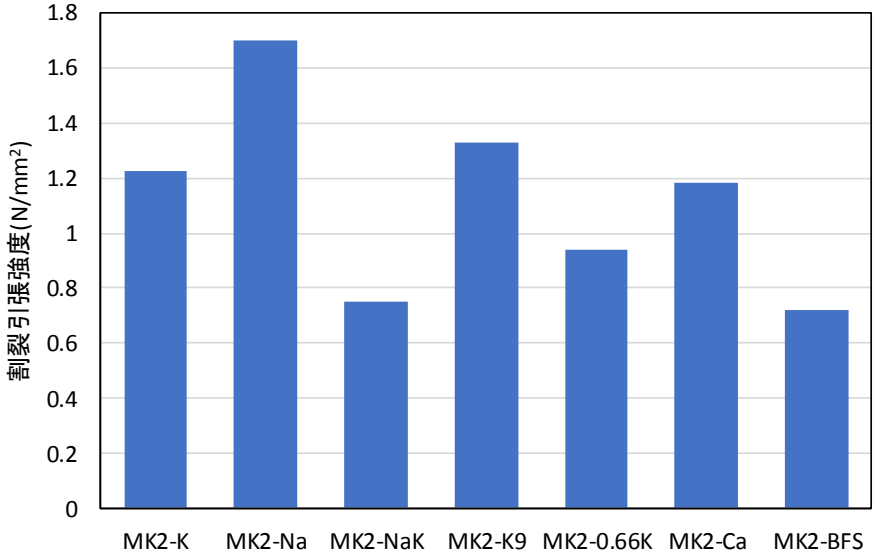


図 13　材齢 3 日における割裂引張強度試験結果

（５）超音波伝播速度

図 14 に材齢 3 日における超音波伝播速度測定結果を示す。圧縮強度試験の結果と同様に MK2 の試験体のほうが高い値であった。密度は MK1 の試験体のほうが高い結果であったのに対して超音波伝播速度は MK2 の試料が高い結果となったことから、MK2 においては反応によって固体の連続性が高まっていることが示唆された。ただし、アルカリ刺激剤や水量が及ぼす影響は明確には見られなかった。

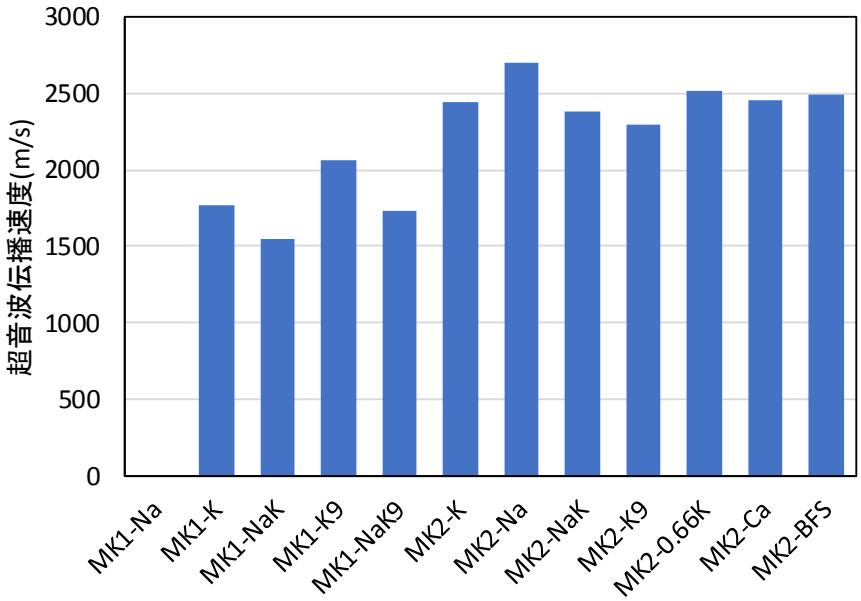


図 14　材齢 3 日における超音波伝播速度測定結果

（６）SEM 観察結果

図 15 に材齢 7 日におけるジオポリマー硬化体の反射電子像観察結果を示す。ナトリウムのみの硬化体では硬化が十分に進んでいないため黒く示される多くのひび割れが観察された。また、いずれの試料においても図中に白く示される未反応のメタカオリンが観察さ

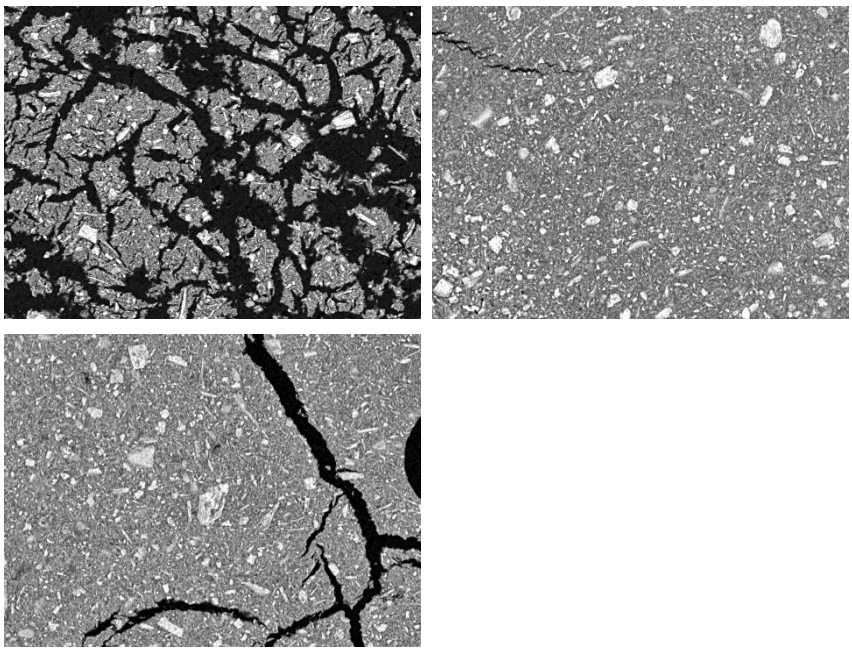


図 15　材齢 7 日におけるジオポリマー硬化体の反射電子像観察結果
（左上：MK1-Na、右上：MK1-K、左下：MK1-NaK）

れた。したがって今回用いたアルカリ刺激剤及び加温では MK1 の試料では十分に反応が進行していないことが示された。

（７）溶出量測定結果

図 16 に MK1 の試験体を精製水に浸漬し、所定の浸漬日数の後に溶出した元素濃度の累積量を示す。いずれの元素においても浸漬日数とともに溶出量が増加していることがわかる。粉砕試料とφ50 mmのバルク試料では、初期では粉砕試料からの溶出量が多いことがわかる。Al と比較すると Si の溶出量が 10 倍程度高くなっていることからアルカリ刺激剤として使用している溶液中の反応に使用されていない Si 成分が多く溶出していることが示唆された。

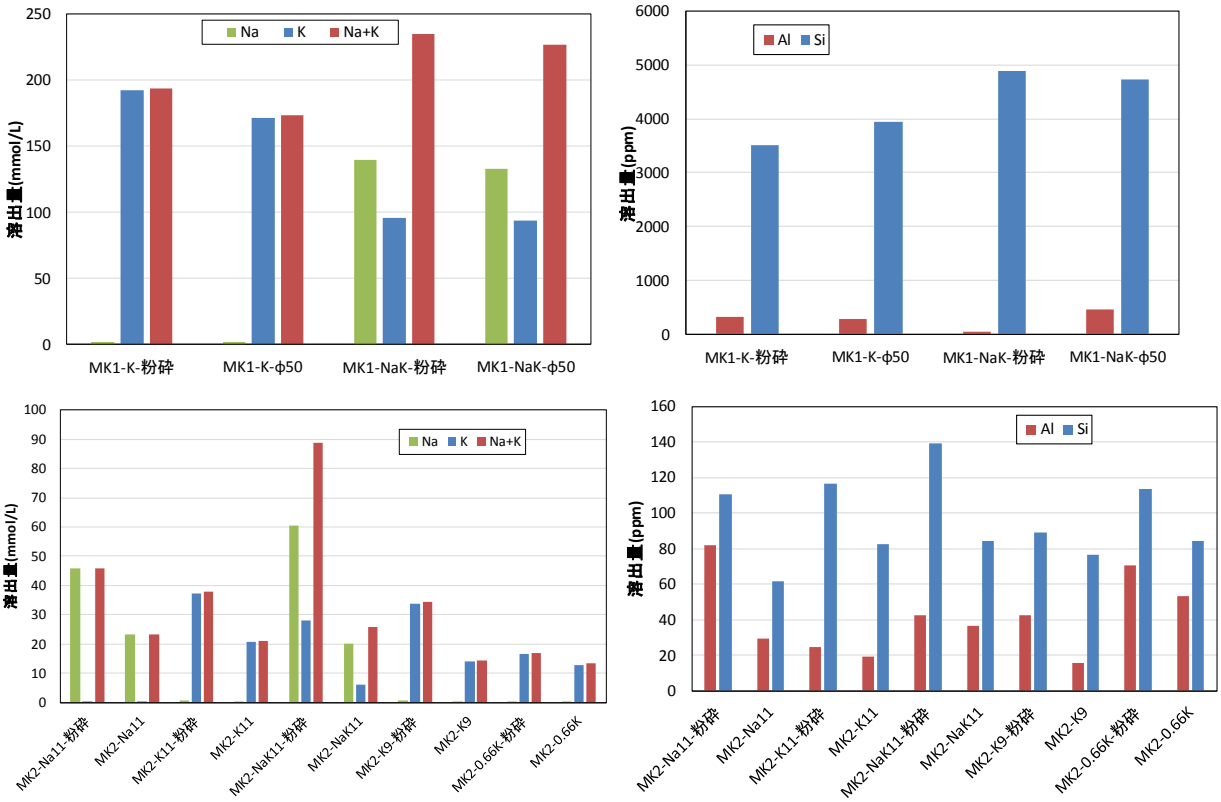


図 16　試験体からの溶出量測定結果

（８）プロトン NMR 測定結果

図 17 にプロトン NMR を用いて緩和時間測定を行った結果を示す。上図に示す Solid echo 法では固体中に含まれるプロトンとそれ以外の比較的自由に動くことのできるプロトンに分離することができる。MK2 の試料では信号の減衰が MK1 と比較し短い時間で生じるため固体中に含まれているプロトンが多いことが示された。また、水量を 9mol とした試料では信号強度も低く早く減衰することがわかる。下図は CPMG 法によって測定した結果であり、自由水中のプロトンの分布を示している。この結果においても MK2 の試験

体の減衰が早いことから自由に動ける水分が少ないことが示された。また、水量が同じであればアルカリ刺激剤の違いは大きく影響を与えないことが示された。

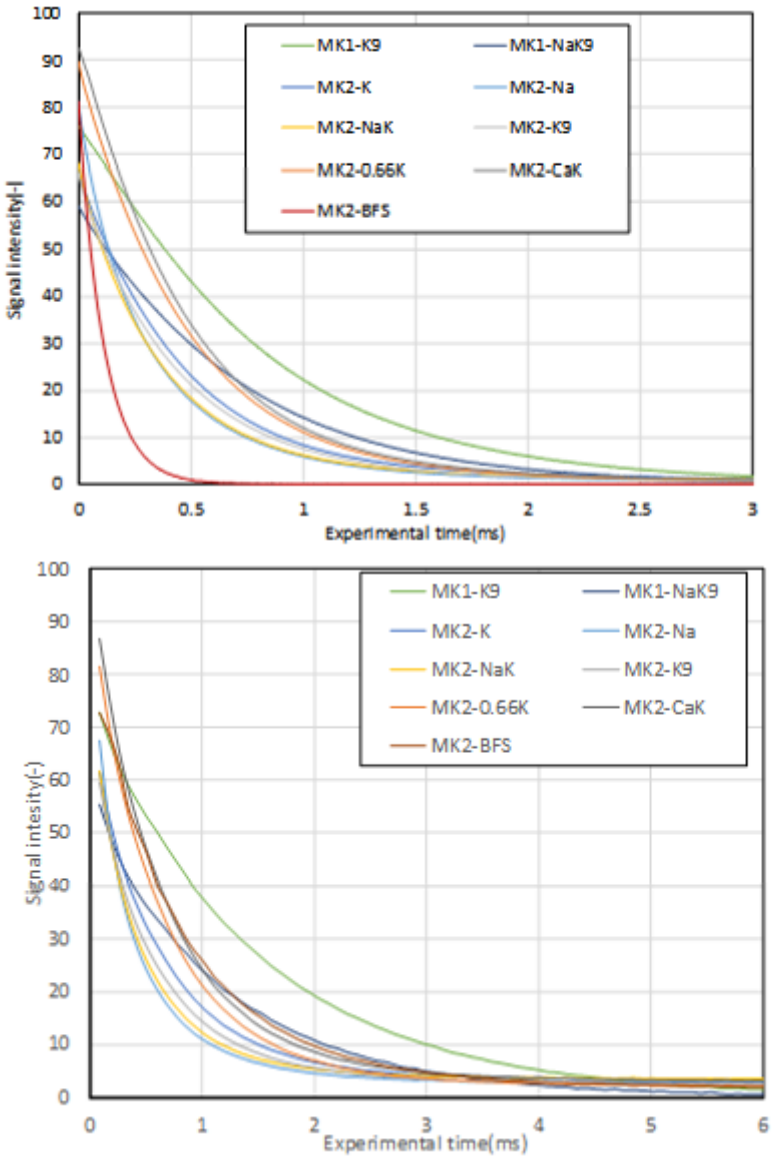


図 17　プロトン NMR 測定結果（上図：Solid echo 法、下図：CPMG 法）

（９）固体 NMR 測定結果

図 18 に材齢 3 日における固体 NMR 測定の結果を示す。上図は ^{27}Al　MAS の測定結果を示しており、下図は ^{29}Si　MAS の測定結果を示している。^{27}Al　MAS　の測定結果において 57ppm 付近と 7ppm 付近にピークがみられている。これはそれぞれアルミの配位数が 4 配位と 6 配位を示している。いずれの試料においてもこの 2 つのピークのみが検出されておりアルカリ刺激剤の違いは Al の微細構造に大きく影響を及ぼさないと考えられる。

^{29}Si　MAS の測定結果よりカリウム系のアルカリ刺激剤を用いた場合には 3 つの明確

なピークが観察された。ナトリウムのみのアルカリ刺激剤では多くのピークが重なりあい、明確なピークが検出されていないと考えられる。今後ピーク分離を行い詳細な構造解析を行う必要がある。

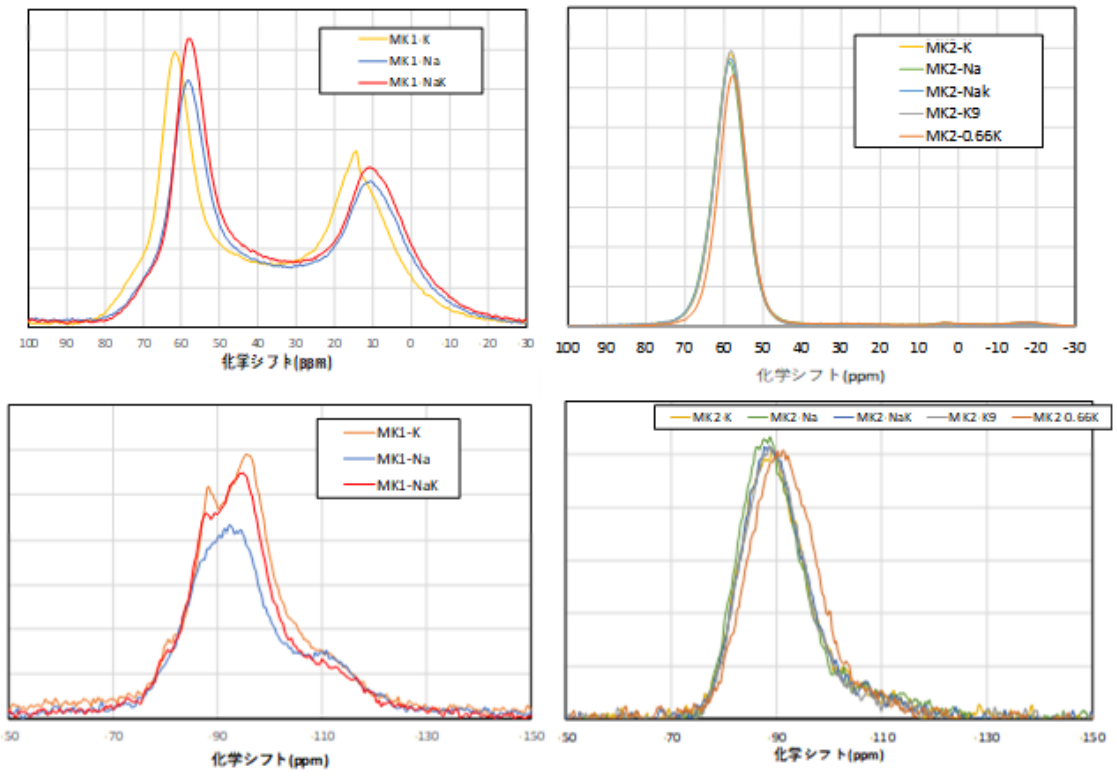


図 18　固体核磁気共鳴測定結果（上図：^{27}Al MAS、下図：^{29}Si MAS）

（１０）XRD 測定

図 19 に材齢 3 日の XRD 測定結果を示す。明確に検出されているピークは内部標準として混和したα-Al_2O_3であり、それ以外は明確なピークはほとんど見られず、25 から 35°付近に大きなブロードなピークが見られた。これは未反応のメタカオリンと反応後の生成物によるものであると考えられ生成物の多くが非晶質物質であることが示された。

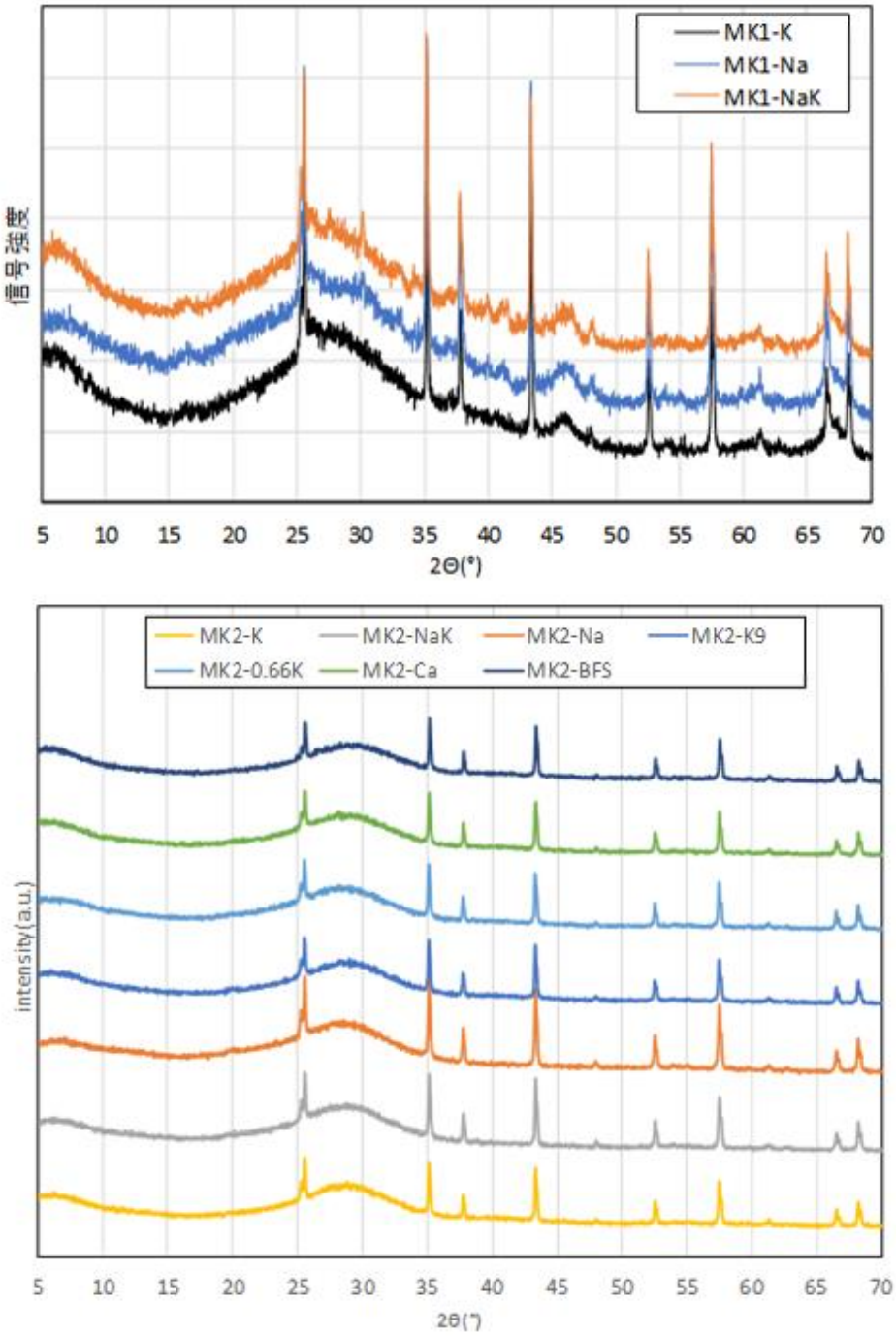
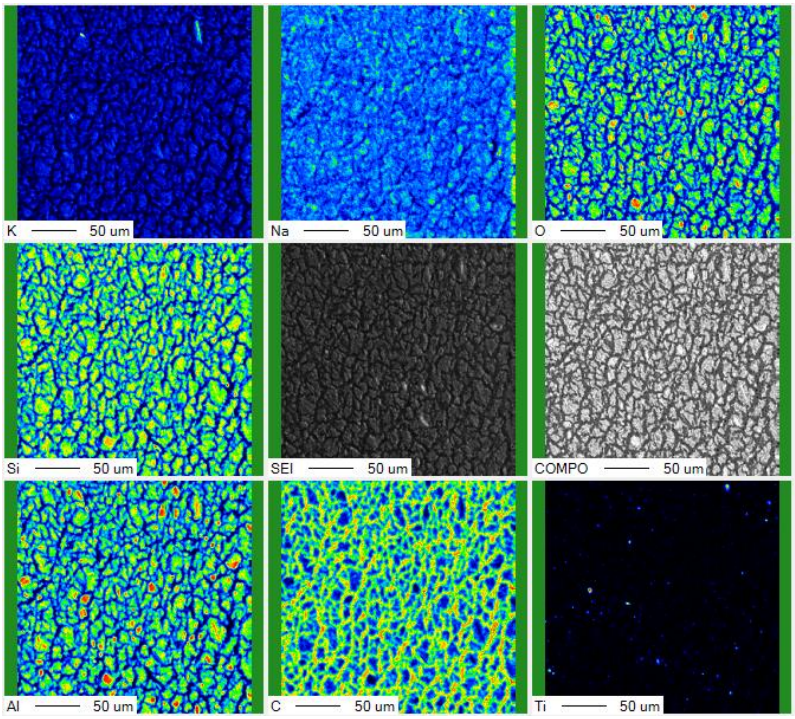


図 19　XRD 測定結果

（１１）EPMA 測定

図 20 に材齢 7 日の試験体表面を EPMA によって元素分布を測定した結果を示す。ナトリウムのみの試料では硬化が不十分ではなかったため多くのひび割れが発生しており、未反応のメタカオリン粒子が多く見られた。カリウムを含む試料においてはアルミとシリカが広く試験体内において分布しており反応が進行していることがわかる。このことから MK1 の試料においてはナトリウムのみの刺激剤では反応は十分に進行していないことが示された。



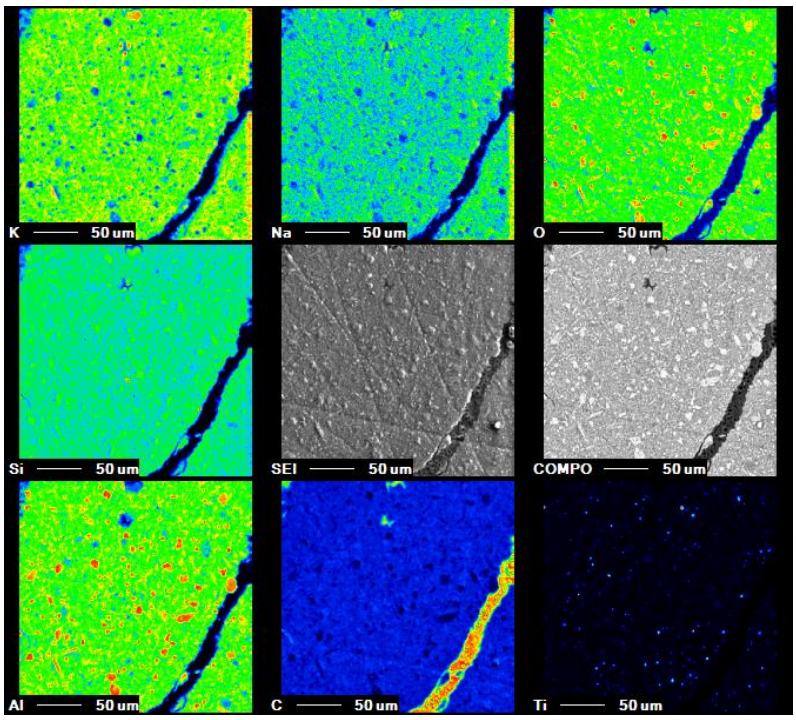


図 20　EPMA 測定結果①（上図：MK1-Na、下図：MK1-NaK）

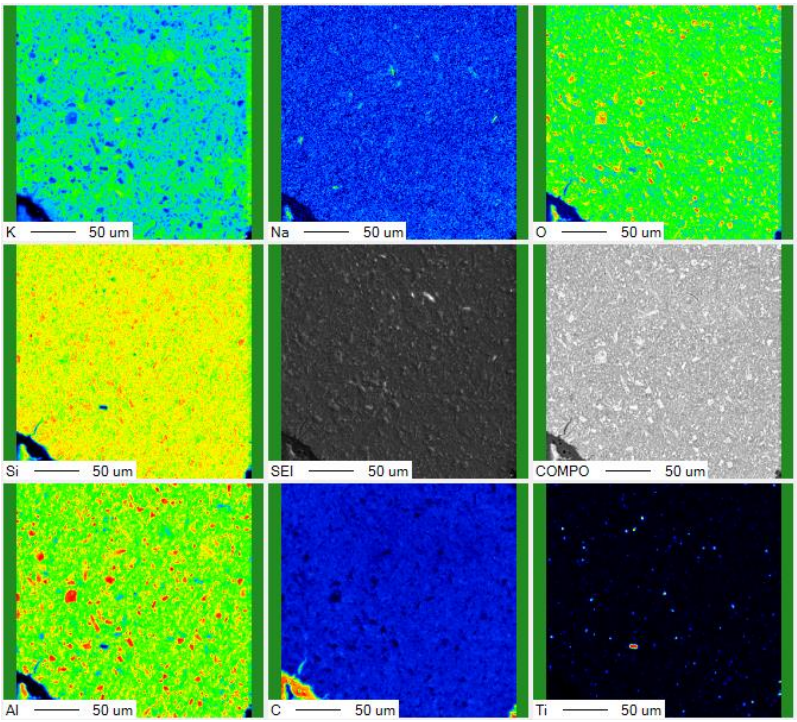


図 20　EPMA 測定結果②（MK1-K）

（１２）低温 DSC 測定

図 21 に低温 DSC 測定により得られた結果を示す。凍結過程においては多くの試料において 2 つのピークが見られた。-40℃付近のおいては全ての試料においてピークが見られた。この付近の温度で凍結する水は数 nm 程度の細孔内の水であり、作製したジオポリマー中に数 nm の細孔が存在していることがわかる。融解過程においては-5℃付近のピークのみであることからインクボトル型の細孔が含まれている試料があることが確認できた。

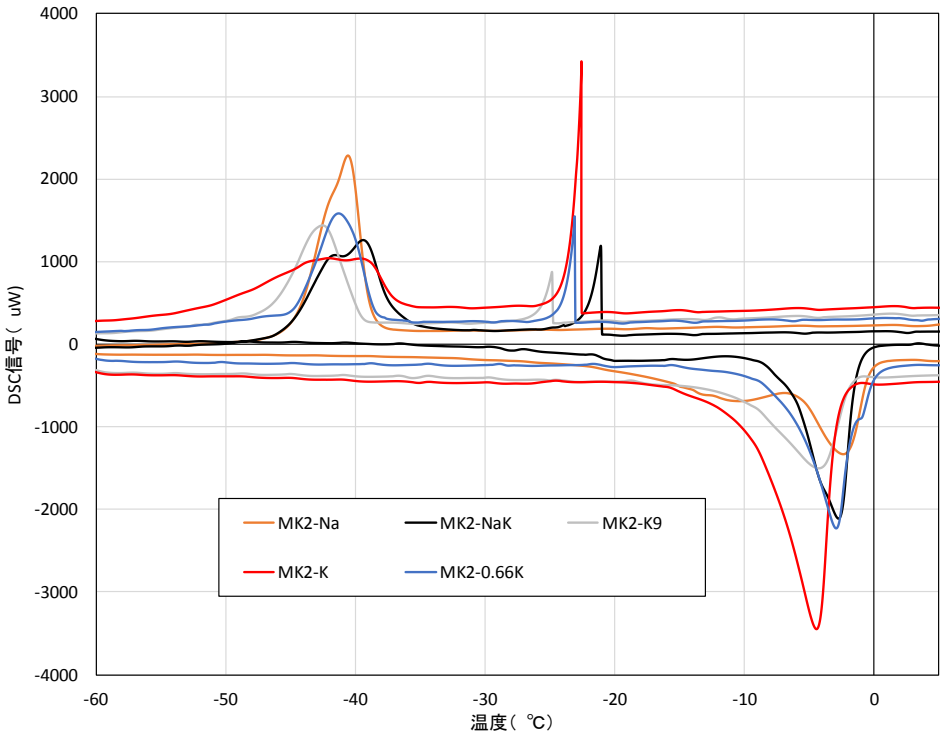


図 21　低温 DSC 測定による硬化体内部の水分の状態

（１３）吸着量測定

図 22 にセシウムの吸着等温線を示す。吸着量はいずれのアルカリ刺激剤を用いても大きくは変わらなかった。このことから吸着量に及ぼすアルカリ刺激剤の影響は低いと考えられる。

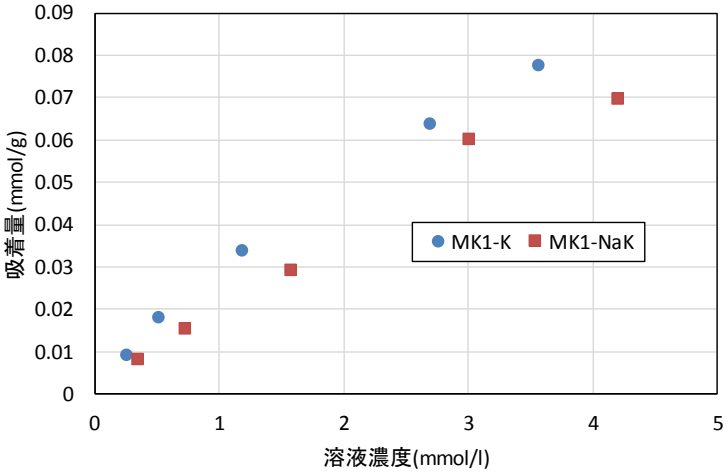


図 22　ジオポリマーのセシウム吸着等温線

（１４）LA-LIBS 測定

図 23 に LA-LIBS によって測定した結果を示す。本測定では、セシウムを吸着させたゼオライトをジオポリマーに混合し、水中に浸漬したのちにセシウムの分布を測定した。その結果、ゼオライト中に高濃度のセシウムがあり、マトリックス中にもセシウムが分布していることが示された。このことからセシウムはジオポリマー中に拡散していくことが示された。

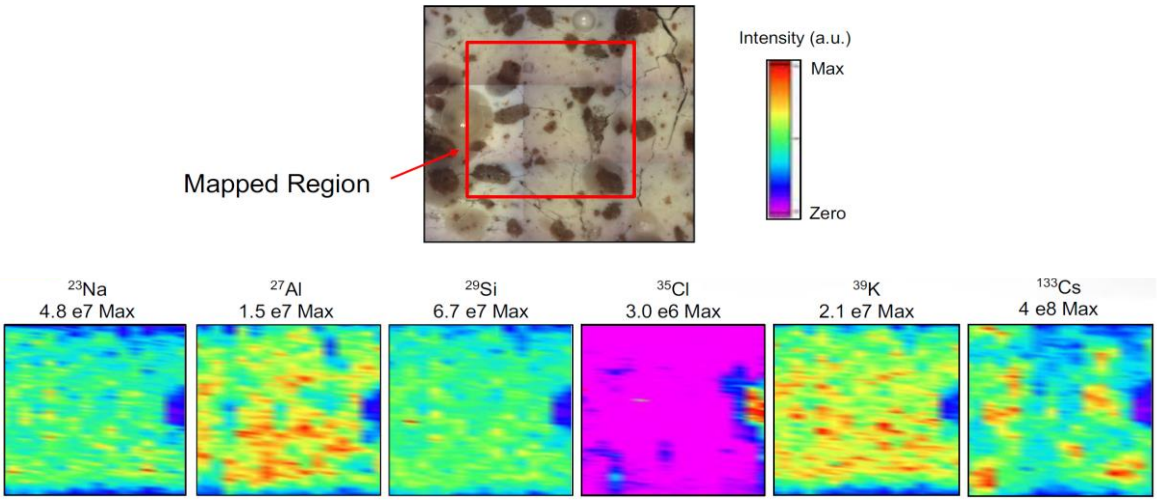


図 23　LA-LIBS によるジオポリマー中の元素濃度分布結果

3.3　残された課題と今後の計画

平成 30 年度では使用するメタカオリンとアルカリ刺激剤の影響を明らかにしたが、これは Si/Al 比が 1 となるように設定した試験体のみであり、この比が異なる場合の検討が行われていない。したがって組成を変化させたジオポリマー硬化体について検討を行う必要がある。さらに温度環境が異なる場合の生成物の変質や長期的な溶出挙動を明らかにする必要がある。

今後の計画として、ジオポリマー硬化体の適切な配合を明らかにし、それを用い収着試験を継続的に行い、長期にわたる収着特性について検討を行う。2 年間にわたる溶出・溶脱試験の 1 年目における試験を行う。また、溶出試験や収着試験を行った試験体のキャラクタリゼーションを固体核磁気共鳴装置によって同様に行い変質状態を分析する。さらに硬化体内部の水分の状態分析を行うためにプロトン NMR による測定も継続する。また、収着後および溶出試験後の元素分布の状態を測定するために EPMA によってマッピングを行う。さらには ppm レベルでの元素の分布を非乾燥状態にて分析するために LA-LIBS を用いてマッピングを継続して行う。

4. まとめ

2 種類のメタカオリンおよびアルカリ刺激剤を用いてジオポリー硬化体を作製し、各種物性試験とその微細構造測定を行った結果、異なるメタカオリンを用いた場合圧縮強度などの物性が大きく異なることを明らかにした。このことから適切なメタカオリンを選定する必要があることが示された。また、これらの物性の違いはメタカオリンの反応性に起因することを明らかにした。微細構造試験結果からアルカリ刺激剤の違いによりジオポリマー硬化体の構造変化が生じている可能性が示唆された。

研究報告 2

新規析出促進法によるベントナイト緩衝材中の二次鉱物が拡散および透水挙動に与える影響評価

北海道大学　大学院工学研究科

田中 真悟

1. 背景・目的

高レベル放射性廃棄物および TRU 廃棄物の地層処分では天然の岩盤と人工バリアからなる多重バリアシステムにより放射性物質を生物圏から隔離する（JNC 2000、JNC-FEPC 2005）。人工バリアの一つであるベントナイト緩衝材には低透水性（拡散支配）、核種収着性および物理的・化学的な緩衝性が期待されているが、地下水成分や併設される他の人工バリア（オーバーパック、セメント系材料等）との長期的な相互作用により、緩衝材の主要鉱物モンモリロナイトの変質・溶解や、二次鉱物の析出等が生じ、緩衝材のバリア性能（膨潤性、透水性、拡散性など）に影響を及ぼすことが懸念されている。したがって、長期的な変質を考慮した核種移行評価モデルの構築が課題とされている（地層処分研究開発調整会議 2018）。

緩衝材の長期変質評価については、変質シナリオに基づき、処分環境下で発生する可能性のある変質現象を抽出・列挙し、検討するアプローチが取られている（柴田ほか 2004、笹本ほか 2013, 小田ほか 2013）。これに関連し、ナチュラルアナログの観点からは、二次鉱物の閉塞作用により緩衝材のバリア性能が向上する可能性も報告されている（藤井ほか、2014）。その一方で、室内試験により、緩衝材の変質がバリア性能に与える影響を定量的に示すことは容易ではない。この理由として、処分環境（低動水勾配かつ圧縮系）では、緩衝材の変質反応が極めて緩慢であり、現実的な実験期間内（数年程度）で観測可能な変質を生じさせることが困難なことが挙げられる。そのため、例えばセメントベントナイト相互作用を模擬した室内試験では、動水勾配やアルカリ溶液の濃度（または接触量）を処分環境よりも大きく設定し、変質を促進させた試験が行われている。例えば、セメントと緩衝材を直列に配置した透水試験（柴田ほか 2011）では、セメント中の $Ca(OH)_2$ 溶脱に伴い、緩衝材中に Ca を含む二次鉱物が析出していることが示唆されている。また様々なアルカリ溶液に長時間（１年程度）浸漬した圧縮ベントナイトを用いた透水試験からは、Na 型モンモリロナイトから K 型または Ca 型へのイオン交換、モンモリロナイトのアルカリ溶解、二次鉱物の析出等の複合現象が透水性に影響を及ぼすことが報告されている（横山ほか 2010）。

二次鉱物が拡散挙動に与える影響については、透過拡散試験装置を用いた相互拡散法（Counter diffusion 法）にて粘土質岩中に鉱物を析出させ、これを用いた拡散研究が行われている。例えば、Chagneau ら(2015)は、illite 中に Celestite ($SrSO_4$)を析出させた試料を用い、HTO および Cl^-の透過拡散試験を行っている。その結果、Cl^-の実効拡散係数は HTO よりも顕著に小さく、析出物が大きな空隙を閉塞した結果、Cl^-の拡散が選択的に抑制されていると考察している。また Rajyaguru ら(2019)は相互拡散法にて石灰岩中に $BaSO_4$(Barite)および $CaSO_4$(Gypsum)を析出させ、HTO の実効拡散係数を比較したところ、空隙率の低下がほぼ等しいにもかかわらず Barite が析出した試料の方が小さな拡散係数を示すと報告している。このことは、空隙率のみならず、空隙構造が拡散係数に大きな影響を与えていることを示唆している。一方、相互拡散法による鉱物析出には３ヶ月程度を要するため、新たな手法により析出時間を短縮することができれば、多数の実験から、析出物の拡散への影響を詳細に検討できるようになると考えられる。

上述のように、透水や拡散をベースとした緩衝材の変質試験では、長い実験期間（数ヶ月～１年程度）を要するため、再現性の確認や様々な条件下でのデータ取得が困難である。とくに、透水試験による緩衝材の変質は、モンモリロナイトのアルカリ溶解、鉱物学的な変質、二次鉱物の析出等が複合的に生じるため、実験結果の解釈が難しく、実験結果を変質現象のモデル化に繋げるには未だ課題が多いと考えられる。柴田ら(2004)による緩衝材の長期変質評価の考え方によると、『抽出した現象に関する理解が不十分な場合は、発生を仮定した際の緩衝材性能へのインパクトを評価する』、とされている。したがって、二次鉱物析出の影響のみに着目し、その析出量や析出形態が緩衝材の拡散係数や透水係数に与える影響を厳密に評価できれば、緩衝材の変質を考慮した核種移行評価モデルの構築に貢献できると考えられる。

そこで本研究では、緩衝材に及ぼす二次鉱物の影響を評価するための新たな手法を提案する。具体的には、電場により様々な析出形態で二次鉱物を析出させた変質緩衝材を調製し、これ用いた拡散試験および透水試験から、析出量や析出形態の違いが緩衝材の拡散係数および透水係数に与える影響を明らかにすることを目的とする。とくに、これまでに開発した電場による二次鉱物の析出促進法（Tanaka, 2018）を応用し、短時間（１日程度）で緩衝材中に二次鉱物を析出させる。その際、移流分散と析出を考慮した数値解析により実験条件（電流、通電時間、Ca 当量分率、など）を最適化することで、析出形態（析出量、サイズ、範囲、位置など）が異なる変質緩衝材を調製する。なお、対象とする二次鉱物としては、セメントと緩衝材の相互作用で析出の可能性が報告されている石膏（$CaSO_4 \cdot 2H_2O$）と方解石($CaCO_3$)を対象とする（例えば Tinseau et al., 2006）。これらの鉱物は環境中で広く認められ、かつ反応が単純であり、核形成や結晶成長を含めた析出に関する知見が蓄積されている。また、石膏（$CaSO_4$）と方解石（$CaCO_3$）は溶解度積が大きく異なることから、析出形態も大きく異なることが予想され、析出形態と物質移行との関係性を議論するのに適していると考えられる。

2. 全体研究計画（3 ヵ年における全体計画）

2.1. 析出形態が異なる変質緩衝材試料の調製【課題 1】

2.1.1. 緩衝材中のイオン移行パラメータの整備と事前解析【課題 1-1】（平成 30 年度）

二次鉱物析出の制御に必要な基礎データを整備するため、電位勾配下における圧縮モンモリロナイト中での HTO, $^{35}SO_4^{2-}$, $^{14}CO_3^{2-}$, $^{22}Na^+$, $^{45}Ca^{2+}$等の移行実験を行う。通電後の濃度分布から移流速度と分散係数を取得する。

これらのデータをもとに、各イオンの移流分散と析出を考慮した Fortran による数値解析を行い、通電後のイオン濃度分布と析出範囲および位置を推定する。解析結果をもとに、二次鉱物の析出形態を制御するための最適な実験条件（電流値、通電時間、Ca 当量分率、CO_3^{2-}および SO_4^{2-}濃度など）を選定する。

2.1.2. 析出量、析出範囲、析出位置が異なる変質緩衝材の調製【課題 1-2】（平成 30 年度）

事前解析で選定した初期条件になるように、Na/Ca 混在型モンモリロナイトと、Na_2SO_4 溶液または Na_2CO_3 溶液で飽和させた Na 型モンモリロナイトを接触させ、所定の時間、通電を行う。Ca^{2+}をカソード側へ、SO_4^{2-}または CO_3^{2-}をアノード側へ移動させ、難溶性の $CaSO_4$ または $CaCO_3$ として析出させる。析出実験後、各元素の濃度を分析し、析出範囲および析出物の濃度分布を取得する。この結果から、後の拡散試験および透水試験に供するための最適な析出条件を見出す。

2.1.3. XRD による鉱物同定と、SEM・EPMA による析出形態観察【課題 1-3】（平成 30 年度）

析出実験で得られた析出物の鉱物種を XRD にて同定するとともに、二次鉱物の析出形態を SEM および EPMA にて観察する。

2.2. 二次鉱物の析出形態が緩衝材の拡散係数および透水係数に与える影響評価【課題 2】

2.2.1. 変質緩衝材を用いた拡散試験【課題 2-1】（平成 31 年度）

二次鉱物の析出形態が異なる変質緩衝材試料を用いた拡散試験を透過拡散法（または非定常拡散法）にて行う。具体的には、析出後の緩衝材試料を用い、トレーサー（HTO, $^{125}I^-$, $^{137}Cs^+$等）を拡散させる。透過拡散法では下流側の濃度の経時変化から実効拡散係数および保持因子を評価する。非定常拡散法では、拡散後に試料をスライスし、濃度分布から見かけの拡散係数を評価する。また二次鉱物が析出していない試料を用いた比較実験を行う。拡散試験後、試料をスライスし、含水率および Na、Ca 濃度分布等を取得し、析出物の変化の有無を確認する。なお、試験方法は析出物の析出形態およびトレーサーの収着性などを考慮し、最適な手法を選択する。

2.2.2. 変質緩衝材を用いた透水試験【課題 2-2】（平成 32 年度）

二次鉱物の析出形態が異なる変質緩衝材試料を用いた透水試験を、加圧定水位法にて行う。具体的には、析出実験後の緩衝材試料を整形し、窒素ガスで透水溶液を加圧することで所定の時間、溶液を透過させる。透過溶液としてはイオン交換水または NaCl 溶液を用いる。

表 1　年次計画

実施項目	平成30年度		平成31年度		平成32年度	
	前期	後期	前期	後期	前期	後期
課題1. 析出形態が異なる変質緩衝材試料の調製						
課題1－1. 移行パラメータ整備と事前解析		■	■ ■ ■ ■	■ ■ ■ ■	■ ■ ■ ■	■ ■
課題1－2. 変質緩衝材試料の調製		■	■	■	■	■
課題1－3. 析出形態の観察		■	■	■ ■ ■ ■	■ ■ ■ ■	■ ■
課題2. 二次鉱物が拡散・透水係数に与える影響評価						
課題2－1. 変質緩衝材を用いた拡散試験			■	■	■ ■ ■ ■	■ ■
課題2－2. 変質緩衝材を用いた透水試験					■	■
総括報告書の作成						■

また二次鉱物が析出していない試料を用いた比較実験を行う。透水試験後、試料をスライスし、含水率および Na、Ca 濃度分布等を取得し、析出物の変化の有無を確認する。

3. 平成 30 年度研究実施内容

3.1 平成 30 年度の計画、実施方法

平成 30 年度は年次計画（表１）に基づき、【課題１】析出形態が異なる変質緩衝材試料の調製、を行った。具体的な実施方法を以下に示す。

3.1.1. 緩衝材中のイオン移行パラメータの整備と事前解析【課題 1-1】

事前解析に必要なイオン移行パラメータ（電位勾配下での移流速度および分散係数）については、Tanaka(2018)にて報告した 5mA（モンモリロナイト密度 1.0 kg/dm^3）における Ca および SO_4 のデータを基に、既報のイオン移行挙動の電流値依存性（Tanaka et al., 2011）を参考にして設定した。具体的には、①移流速度は電流値に比例する、②分散係数の電流値依存性は無視できるほど小さい、および③SO_4^{2-}と CO_3^{2-}の移流分散挙動はほぼ等しい、と仮定して設定した。また、Ca の移流速度はモンモリロナイトの Ca イオン当量分率(X_{Ca})に依存し（Tanaka, 2018）、SO_4 および CO_3 の移流速度はそれぞれの濃度に依存するため、これを考慮した。

数値解析プログラムは Fortran で記述した。電位勾配下での Ca および SO_4(または CO_3)の移行挙動は移流分散の式に従うため、(1)式を有限差分法（時間微分は前進差分、拡散項は中心差分、移流項は後退差分）で離散化し、(2)式を得た。

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D_{h,i} \cdot \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - V_{a,i} \cdot \frac{\partial C}{\partial x} \tag{1}$$

$$\frac{C_j^{k+1} - C_j^k}{\Delta t} = D_{h,i} \cdot \frac{C_{j+1}^k - 2C_j^k + C_{j-1}^k}{\Delta x^2} - V_{a,i} \cdot \frac{C_j^k - C_{j-1}^k}{\Delta x} \tag{2}$$

ここで、$D_{h,i}$ は化学種iの水理学的分散係数(m^2/s)、$V_{a,i}$ は化学種iの見かけの移流速度(m/s)、j および k は空間および時間の格子点番号、ΔxおよびΔtはそれぞれ位置ステップ幅および時間ステップ幅である。また、C_j^k は格子点j, kにおけるCa、SO_4またはCO_3のイオン当量濃度(eq/kg)を表す。なお、それぞれの化学種は溶液中においてはfreeのイオン（Ca^{2+}など）やイオン対（$CaSO_4^0$）など、様々な化学形で存在していると考えられるが、実験からは全ての化学種の平均の移流速度および分散係数のみが取得可能なことから、ここではトータルとしての（すなわちCaおよびSO_4(またはCO_3)としての）移流分散として取り扱う。またステップ幅および格子数は、Δx = 0.1 mm (j = 1,000まで), Δt = 10 s (k = 10,000まで)を基準として設定した。また、CaおよびSO$_4$(またはCO$_3$)の移流分散は互いに独立であり、電気的中性条件はNaにより補償されると仮定した。

圧縮ベントナイト中の析出反応をモデル化する際には、空隙構造とそこでのイオン分布を仮定する必要がある。これについては陰イオン排除モデルやドナンモデルなど、様々なモ

デルが提案されているが(例えば、Vanloon et al. (2007), Birgersson and Karnland (2009), Tournassat and Appelo (2011)) 、統一的なモデル構築には至っていない。そこで本研究では、陰イオン排除をベースとした既報のモデル（Tanaka, 2018)に基づき、空隙構造としては層間、外表面および粒子間空隙の存在を仮定し、陰イオンは外部溶液と等しい濃度で粒子間空隙中に存在すること（陰イオン完全排除)、および層間・外表面と粒子間空隙との間には陽イオン交換平衡が成立すると仮定した。計算手順の概要は以下の通りである。まず、粒子間空隙中のCaおよびSO_4(またはCO_3)のモル濃度(mol/ dm^3)をイオン当量濃度(eq/kg)から以下のように計算した。

$$[\mathrm{M}_i^{2-}] = \frac{C_\mathrm{i}\rho}{z_\mathrm{i}\varepsilon_{acc}} \tag{3}$$

ここで、$[\mathrm{M}_i^{2-}]$はSO_4またはCO_3のモル濃度（mol/ dm^3)、C_i はイオン当量濃度(eq/kg)、ρ は乾燥密度（1.0 kg/dm^3)、z_iは価数（= 2)、ε_{acc}は陰イオン空隙率で実験的に見積もることが可能である（詳細は結果で述べる)。はじめに全てのCaが粘土側（層間および外表面）に存在し、freeなNa^+は粒子間空隙に存在すると仮定すると、Naのモル濃度はSO_4のモル濃度と電気的中性条件から以下となる。

$$[\mathrm{Na}^+] = 2[\mathrm{M}_i^{2-}] \tag{4}$$

また陽イオン交換平衡定数(K_{GT})はGaines-Thomasの定義を用いると以下のように記述できる。

$$2\mathrm{NaX} + \mathrm{Ca}^{2+} \Leftrightarrow 2\mathrm{Na}^+ + \mathrm{CaX}_2 \tag{5}$$

$$K_{\mathrm{GT}} = \frac{X_{\mathrm{Ca}} \cdot a_{\mathrm{Na}^+}^2}{(1-X_{\mathrm{Ca}})^2 \cdot a_{\mathrm{Ca}^{2+}}} \tag{6}$$

$$X_i = C_i/CEC \tag{7}$$

ここでX_iはモンモリロナイトのNaまたはCa当量分率、CECはモンモリロナイトの陽イオン交換容量である（CEC = 1.05 eq/kg)。(6)式より、平衡時の粒子間空隙中におけるCa^{2+}濃度（最大値）は以下のように見積もることができる。

$$[\mathrm{Ca}^{2+}] = \frac{X_{\mathrm{Ca}} \cdot \gamma_{\mathrm{Na}^+}^2 \cdot [\mathrm{Na}^+]^2}{(1-X_{\mathrm{Ca}})^2 \cdot \gamma_{\mathrm{Ca}^{2+}} \cdot K_{\mathrm{GT}}} \tag{8}$$

なおK_{GT}の値としては、Tanaka (2018)による圧縮系での推定値であるK_{GT} = 200を用いた。

析出量を見積もる際には、厳密には核形成、結晶成長などの速度論的な取扱いや、イオン対形成反応によるfreeなCa^{2+}の消費を考慮する必要があると考えられる。一方、石膏および方解石の析出反応は比較的速いこと（山本、2005)、およびこれらは難溶性であるため析出反応が支配的に進行すると考えられることから、まずは瞬時平衡を仮定して析出量を算出した。石膏（$CaSO_4 \cdot 2H_2O$）および方解石（$CaCO_3$）のイオン活量積（Ion activity product: IAP）は、それぞれ以下のように記述できる。

$$IAP = a_{\mathrm{Ca}^{2+}} \cdot a_{\mathrm{SO}_4^{2-}} a_{\mathrm{H_2O}}^2 = \gamma_{\mathrm{Ca}^{2+}}[\mathrm{Ca}^{2+}]\gamma_{\mathrm{SO}_4^{2-}}[\mathrm{SO}_4^{2-}] \cdot a_{\mathrm{H_2O}}^2 \tag{9}$$

$$IAP = a_{\mathrm{Ca}^{2+}} \cdot a_{\mathrm{CO}_3^{2-}} = \gamma_{\mathrm{Ca}^{2+}}[\mathrm{Ca}^{2+}]\gamma_{\mathrm{CO}_3^{2-}}[\mathrm{CO}_3^{2-}] \tag{10}$$

ここで水の活量は 1 と仮定する。$IAP > K_{sp}$（溶解度積）の場合、以下の式を解くことで析出量xを計算できる。

$$([Ca^{2+}] - x)([SO_4^{2-}] - x) = \frac{K_{sp}}{\gamma_{Ca^{2+}} \cdot \gamma_{SO_4^{2-}}} \quad (11)$$

$$([Ca^{2+}] - x)([CO_3^{2-}] - x) = \frac{K_{sp}}{\gamma_{Ca^{2+}} \cdot \gamma_{CO_3^{2-}}} \quad (12)$$

析出量は時間ステップごとに全ての格子点で計算し、析出したCa、SO_4およびCO_3の再溶解は無いと仮定した。なお、計算の過程で活量補正（Truesdell-Jones）を行っている。この際、各パラメータはPHREEQC Ver. 2.18のデータベースから引用した（Parkhurst and Appelo 1999）。

3.1.2. 析出量、析出範囲、析出位置が異なる変質緩衝材試料の調製【課題 1-2】

クニピア F を Na 型および Ca 型に精製したモンモリロナイトを混合し、Na/Ca 混在型モンモリロナイトを調製した。Ca イオン当量濃度は 0, 0.25, 0.5 および 1.0 に設定した。これらを乾燥密度 1.0 kg/dm^3 に圧縮成形した。試料の形状は、直径 20 mm, 長さ 10 mm または 20 mm の円柱状とした。これらの試料をイオン交換水にて図 1 のように浸し、真空デシケータにて脱気したのち、長さ 10 mm の試料については 7 日間以上、長さ 20 mm の試料については 30 日以上膨潤させた。

SO_4 または CO_3 の源として、長さ 10mm の Na 型モンモリロナイトを 1.0 M Na_2SO_4 溶液または 1.0 M Na_2CO_3 溶液（pH = 11.5）に浸し、放射性トレーサーとしてそれぞれ S-35 または C-14 を添加して 7 日間以上飽和させた。飽和後、初期の Na, SO_4 および CO_3 濃度を決定した。全ての Na(交換性陽イオン、free イオンおよび可動性のイオン対)については、NH_4Cl または HCl にて抽出し、ICP-AES にて定量した。一方、可動性の SO_4 および CO_3 についてはイオン交換水で抽出し、S-35 および C-14 の放射線計測により定量した。

図 2 に析出実験装置を示す。図中のモンモリロナイト部は、3 種類の試料、(i)Na/Ca 混在

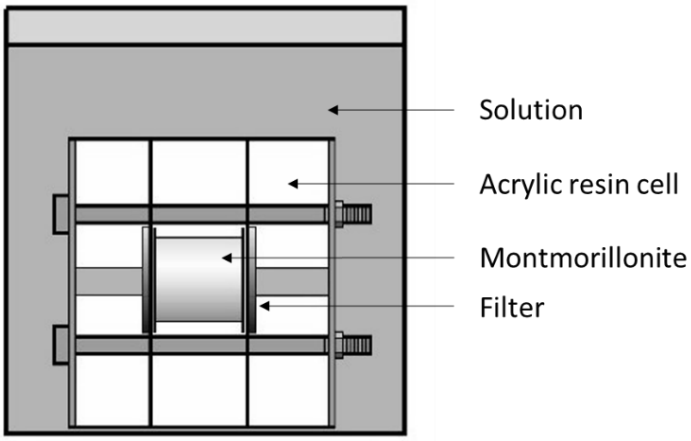


図 1　モンモリロナイト試料の膨潤

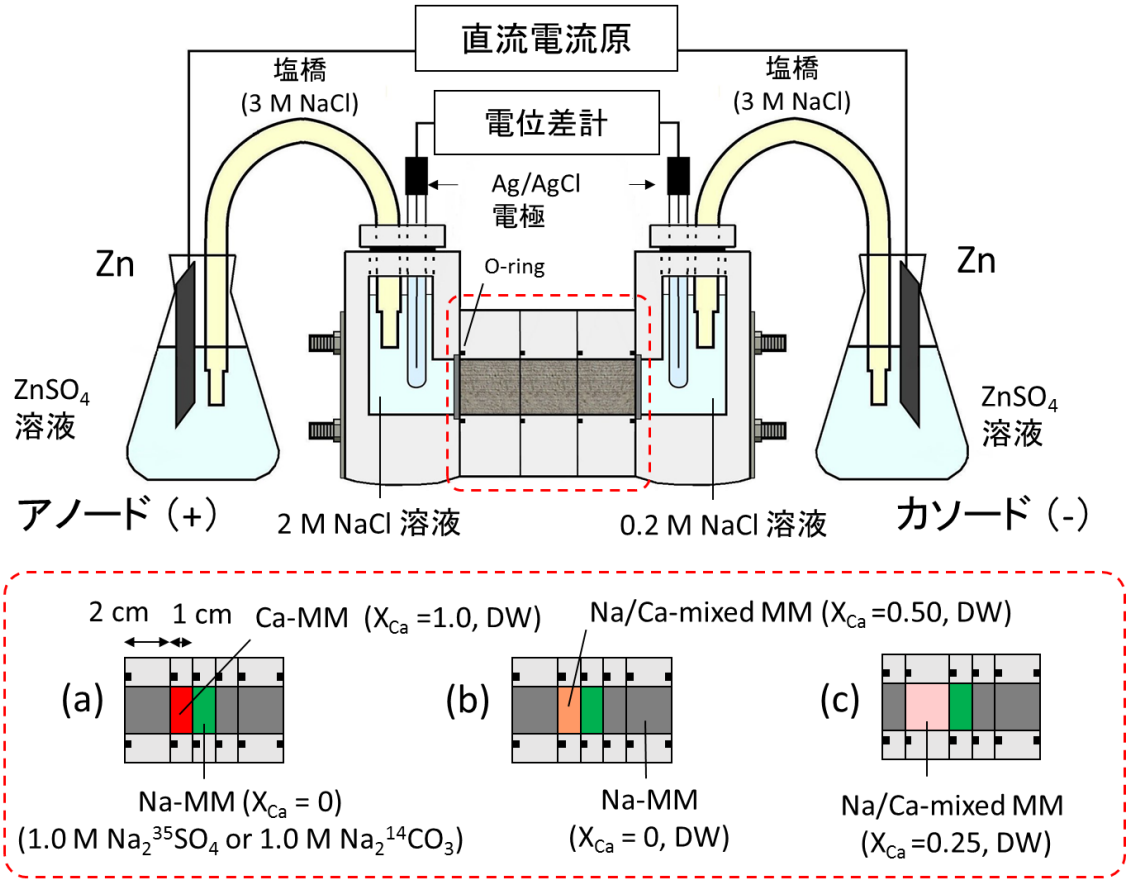


図２　析出実験装置の概念図。MM：モンモリロナイト、DW：イオン交換水

型モンモリロナイト（脱イオン水で飽和）、(ii) 1.0 M Na_2SO_4 溶液または 1.0 M Na_2CO_3 溶液で飽和させた Na 型モンモリロナイト、(iii)Na 型モンモリロナイト（脱イオン水で飽和）、から構成される。これらの組み合わせを図２(a), (b)および(c)に示す。モンモリロナイト試料の両側には、2 M NaCl 溶液（アノード側）および 0.2 M NaCl 溶液（カソード側）で満たされたリザーバを配置し、これと $Zn/ZnSO_4$ 溶液とを NaCl 塩橋を用いて接続した。モンモリロナイトにかかる電位差は Ag/AgCl 電極を用いて計測した。

電流値および通電時間は後述する事前解析の結果から、15 mA、86,400 s（24 h）とした。通電後、試料を 0.5 mm 厚にセクショニングし、Na および Ca 全量を NH_4Cl 溶液または HCl 溶液で抽出し、ICP-AES で定量した。また可動性の $^{35}SO_4$ および $^{14}CO_3$ については、析出物の溶解を抑制するため、飽和 $CaSO_4$ 溶液（Tanaka, 2018）および飽和 $CaCO_3$ 溶液（Rachmadetin et al., 2016）を用いて 1 時間懸濁させ、遠心分離およびフィルトレーション（0.45 μm）後の上澄み液の放射能を測定し、比放射能から SO_4 および CO_3 濃度を決定した。固相（$CaSO_4$）として析出した SO_4 については、NH_4Cl 溶液にて全量を溶解させたのち、遠心分離およびフィルトレーション（0.45 μm）後の上澄み液の S-35 放射能を測定し、定量した。また固相（$CaCO_3$）として析出した CO_3 については、可動性の CO_3 抽出後の懸濁液に直接シンチレーションカクテルを加えることで C-14 放射能を測定し、定量した。

3.1.3. XRD による鉱物種の同定と、SEM・EPMA による析出形態の観察【課題 1-3】

鉱物の同定には粉末 X 線回折法（XRD）を用いた。析出実験終了後、析出が認められた箇所を採取し、室温にて真空乾燥した。その後、アルミナ製乳鉢を用いて粒径 75 μm 以下となるようにふるい分けを行い、再び真空乾燥して粉末試料とした。これを、X 線回折装置（SmartLab, Rigaku 製）にて、CuKα、管電圧 40 kV、管電流 200 mA の条件にて、0.02 度毎、4 度／分の条件下にて測定を行った。

析出形態については電子プローブマイクロアナライザ（EPMA）を用いて行った。析出実験後、試料を 5 mm 四方にて切り出し、真空乾燥した。その後、エポキシ樹脂(EpoFix , Struers)にて樹脂埋めしたのち、x 軸に平行な面を SiC 研磨紙で研磨した（最小粒径 4 μm）。研磨後の表面を炭素蒸着したのち、EPMA（JXA-8530F, JEOL）にて反射電子像と元素マッピング（Mg, Al, Si, S および Ca）を行った。なお、EPMA 分析は、プローブ電流 4.5×10^{-8} A、加速電圧 15 kV にて行った。

3.2 平成 30 年度の成果内容

3.2.1. 緩衝材中のイオン移行パラメータの整備と事前解析【課題 1-1】

3.2.1.1 初期濃度の設定

図３に、1.0 M Na_2SO_4 溶液および 1.0 M Na_2CO_3 溶液で飽和した Na 型モンモリロナイト中の Na, SO_4, および CO_3 濃度分布を示す。濃度は距離によらずほぼ一定の値を示し、飽和が完了していることを示している。1.0 M Na_2SO_4 溶液の場合、Na 当量濃度は $C_{Na,total}$ = 1.55

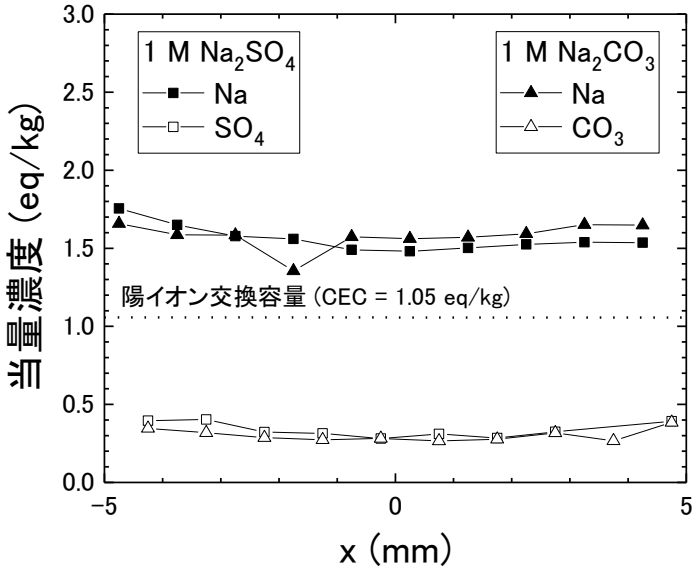


図３　1.0 M Na_2SO_4 溶液および 1.0 M Na_2CO_3 溶液で飽和した Na 型モンモリロナイト中の Na、SO_4 および CO_3 当量濃度分布

(eq/kg) 、SO_4 当量濃度は C_{SO4} = 0.34 (eq/kg)となり、1.0 M Na_2CO_3 溶液の場合、Na 当量濃度は $C_{Na,total}$ = 1.58 (eq/kg)、CO_3 当量濃度は C_{CO3} = 0.30 eq/kg となった。これらの当量濃度の間には、電気的中性条件より以下の式が成り立つ。

$$C_{Na,free} = C_{Na,total} - CEC \quad (11)$$

$$C_{Na,\ free} = C_{SO4\ or\ CO3} \quad (12)$$

$C_{Na,free}$ と $C_{SO4\ or\ CO3}$ との平均を計算し、最終的な SO_4 当量濃度は C_{SO4} = 0.42 (eq/kg)、CO_3 当量濃度も同様に C_{CO3} = 0.42 (eq/kg)と見積もった。また、陰イオン空隙率は、SO_4, および CO_3 が完全に層間および外表面から排除され、外部溶液と等しい濃度で粒子間空隙に存在すると仮定すると、以下の式で見積もることができる（Tanaka 2018）。

$$\varepsilon_{acc} = \frac{C_i \rho}{z_i [M_i]} \quad (13)$$

ここで、C_i は SO_4 または CO_3 の当量濃度(eq/kg)、ρ は乾燥密度、z_i は価数、$[M_i]$は膨潤に用いた溶液のモル濃度である（1.0 M）。これらを(13)式に代入することで、ε_{acc} = 0.21 が得られた。

図４に、事前解析により選定した３パターンの初期条件(a), (b) および(c)を示す。ここで“可動性”という標記については、Na, Ca, SO_4 および CO_3 は通常、様々な化学種（交換性陽イオン、free なイオン、イオン対など）から構成されるが、実験では基本的に各元素（化学種）の総量のみ測定可能であるため、化学種の違いを区別しないという意味である。横点線はクニピア F の陽イオン交換容量（1.05 eq/kg）を表している。条件(a)では、Ca 当量分率 X_{Ca} = 1.0、長さ 10 mm とし、Ca 当量濃度が SO_4 または CO_3 当量濃度の約２倍となるように設定した。条件(b)では、Ca 当量分率 X_{Ca} = 0.50、長さ 10 mm とし、Ca 当量濃度が SO_4 または CO_3 当量濃度とほぼ等しくなるように設定した。条件(c)では、Ca 当量分率を X_{Ca} = 0.25、長さ 20 mm とし、Ca 量が SO_4 または CO_3 量と等しいが、(b)と比

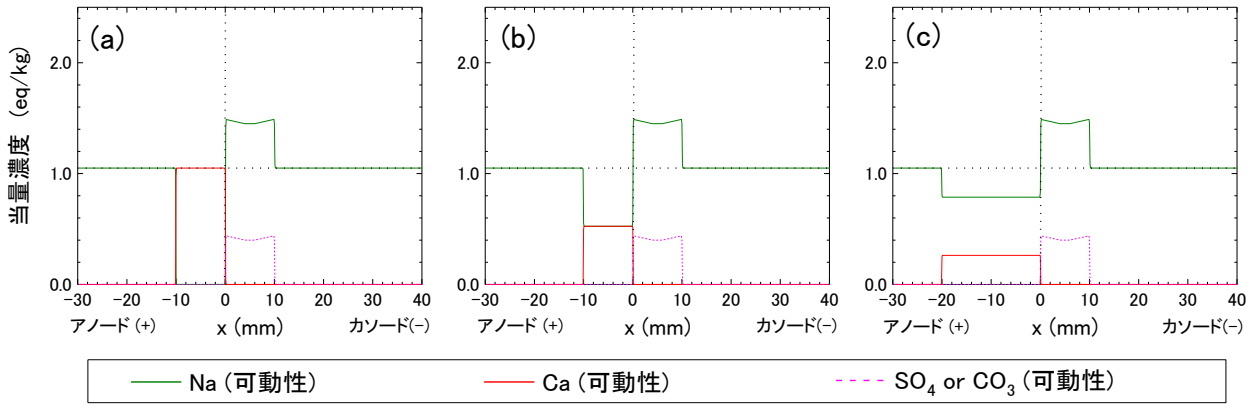


図４　初期濃度(a), (b), (c)における Na、Ca および SO_4(または CO_3)当量濃度分布

べて濃度が半分で長さが２倍となるよう設定した。

3.2.1.2. 移行パラメータと数値解析結果

表２に数値解析に用いた電流値 15 mA における Na, Ca, SO_4 および CO_3 の水理学的分散係数 $D_{h,i}$ (m^2/s)および見かけの移流速度 $V_{a,i}$ (m/s)を示す。Ca の $V_{a,i}$ は Ca 当量分率（X_{Ca}）に依存し（Tanaka, 2018）、SO_4 および CO_3 の $V_{a,i}$ はそれぞれのモル濃度に依存するため、解析ではこれらを考慮した。また SO_4 および CO_3 の $V_{a,i}$ と $D_{h,i}$ はそれぞれ等しいと仮定した。

図５に $CaSO_4$ 析出の解析結果を示す。各元素の濃度分布は、初期濃度(a), (b), (c)において 15 mA の電流を 24 時間通電した場合の結果である。初期濃度(a)の場合、カソード側へ移行した Ca は SO_4 と反応して $CaSO_4$ として析出し、余剰の Ca はカソード側に移行することが分かる。また、Ca 濃度が比較的高いため、SO_4 の大部分が固相（$CaSO_4$）として析出することが示唆された。初期濃度(b)の場合、カソード側へ移行した Ca は SO_4 と反応して $CaSO_4$ として析出し、析出範囲は(a)と比較してやや狭くなった。また未反応の Ca と SO_4 が残り、それぞれカソードおよびアノード側へ移行することが示唆された。初期濃度(c)の場合、析出範囲はさらに狭くなる可能性が示唆された。

図６に $CaCO_3$ 析出の解析結果を示す。各元素の濃度分布は、初期濃度(a), (b), (c)において

表２　数値解析に用いた電流値 15 mA における Na, Ca, SO_4 および CO_3 の水理学的分散係数 $D_{h,i}$ (m^2/s)および見かけの移流速度 $V_{a,i}$ (m/s)

Species	**Solution**	**Ca 当量分率 X_{Ca}**	**移流速度 V_a (m/s)**	**分散係数 D_h (m^2/s)**
Ca	Deionized Water	0	2.2×10^{-7}	2.2×10^{-10}
		0.25	2.5×10^{-7}	
		0.50	2.9×10^{-7}	
		0.75	3.5×10^{-7}	
		1	4.7×10^{-7}	
SO_4 or CO_3	0 M	0	-7.2×10^{-8}	8.1×10^{-11}
	0.5 M		-6.0×10^{-8}	
	1.0 M		-4.8×10^{-8}	

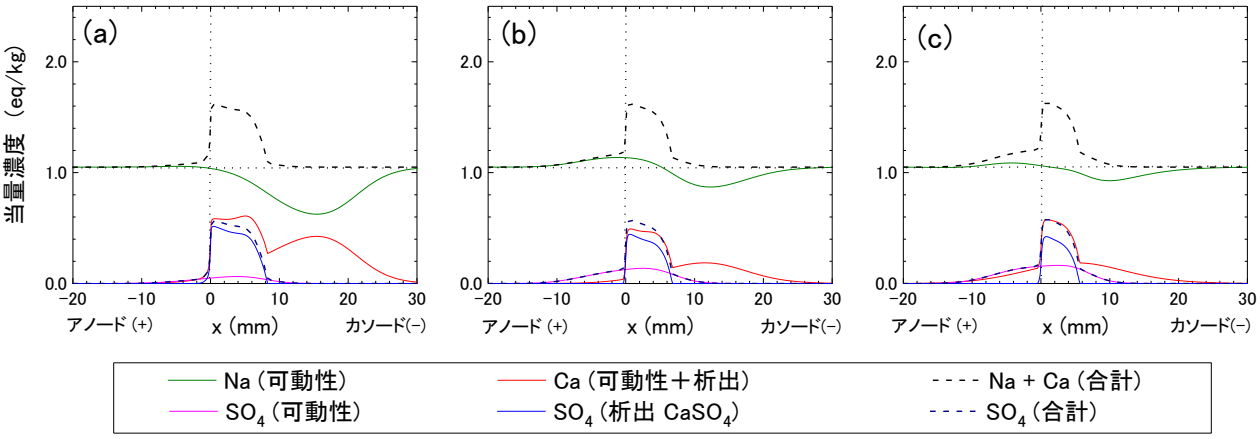


図 5　$CaSO_4$ 析出解析結果（初期濃度(a), (b), (c) 、電流値 15 mA で 24 時間通電）

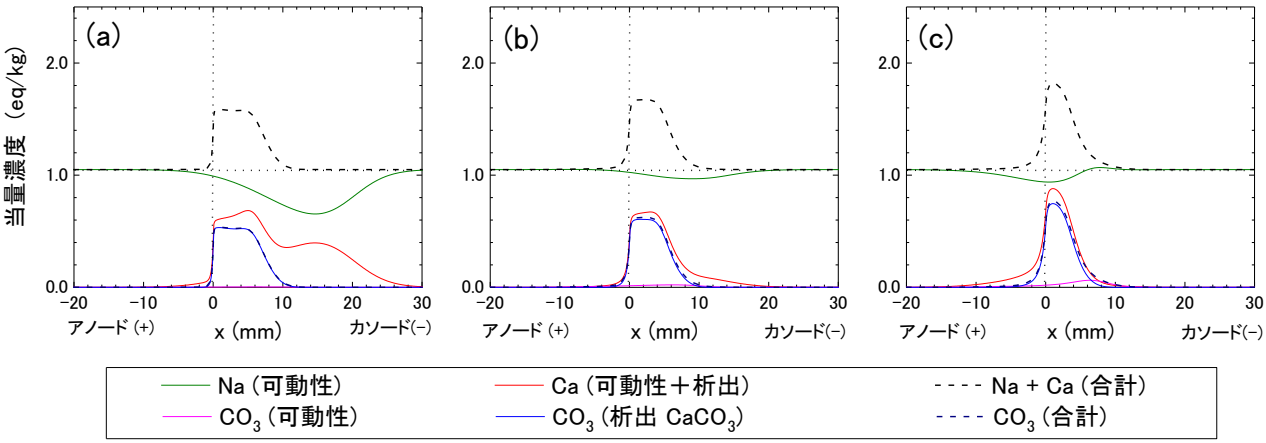


図 6　$CaCO_3$ 析出解析結果（初期濃度(a), (b), (c) 、電流値 15 mA で 24 時間通電）

15 mA の電流を 24 時間通電した場合の結果である。$CaSO_4$ 析出の結果と同様に、(a)では余剰の Ca がカソード側へ移行することが確認された。また初期 Ca 当量分率が低下するにつれて、析出範囲が狭くなることが明らかとなった。

初期 Ca 当量分率が低下するにつれて析出範囲が狭くなる傾向については、Ca の移流速度が、SO_4 または CO_3 の移流速度と比較して 5 倍程度大きいことに起因する可能性がある。すなわち、移流速度の大きい Ca の初期濃度を下げることにより、Ca のカソード側への供給量と、SO_4 または CO_3 のアノード側への供給量が接触面（0mm）付近で釣り合い、この位置で析出が支配的に生じた可能性が考えられる。

3.2.2. 析出量、析出範囲、析出位置が異なる変質緩衝材試料の調製【課題 1-2】

図 7 に $CaSO_4$ 析出実験で得られた各元素の濃度分布を示す。初期濃度(a)においては、解析と同様に、Ca がカソード側に移行して一部が $CaSO_4$ として析出し、余剰の Ca がさらにカソード側へ移行していることが分かる。一方、(b)では接触面（0 mm）に特異的なピーク

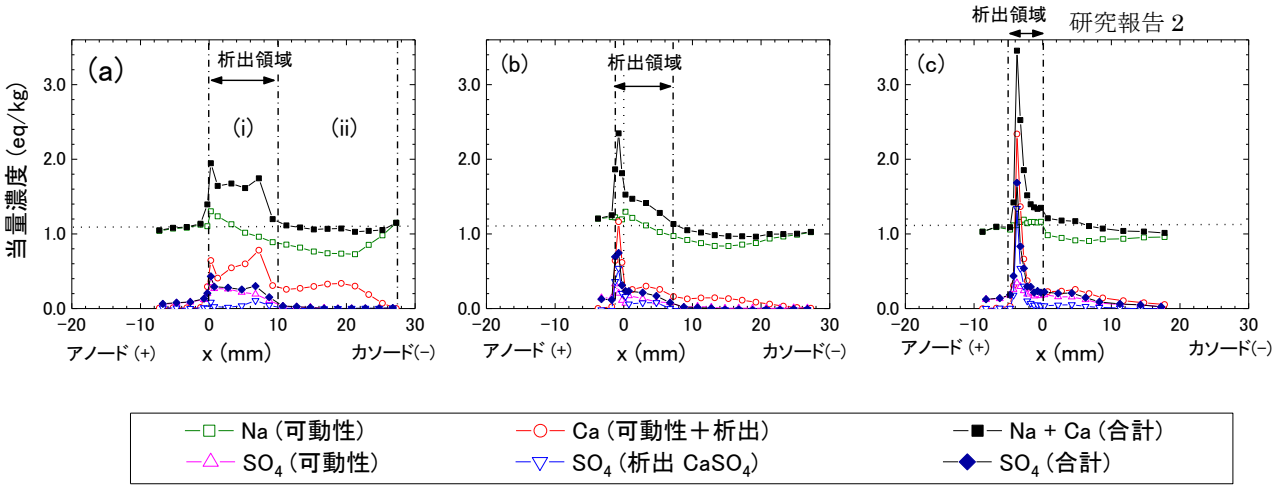


図 7　$CaSO_4$ 析出実験結果（電流値 15 mA、24 時間通電）

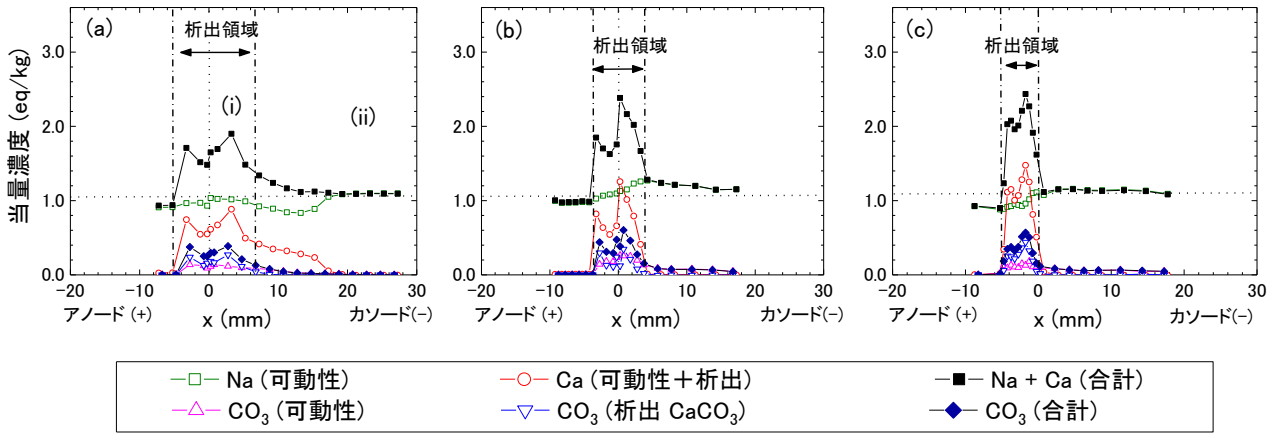


図 8　$CaCO_3$ 析出実験結果（電流値 15 mA、24 時間通電）

が生じ、その後、なだらかに減少した。さらに、(c)では解析では見られなかった鋭いピークが生じることが明らかとなった。これは、難溶性ではあるが溶解度積が比較的高い $CaSO_4$（Gypsum: $K_{sp} = 10^{-4.58}$）では、核形成よりも結晶成長が支配的で、この位置で析出物が成長している可能性を示唆している。

図 8 に $CaCO_3$ 析出実験で得られた各元素の濃度分布を示す。$CaSO_4$ と比べて未反応の Ca および CO_3 が少ないことが分かる。これは $CaCO_3$（Calcite: $K_{sp} = 10^{-8.48}$）の小さな K_{sp} に起因すると考えられる。初期濃度(a)においては、$CaSO_4$ 析出実験の結果と同様に、広い範囲に析出物が生じ、余剰の Ca はカソード側へ移行していることが分かる。また(b), (c)では、初期 Ca 当量分率が低下するにつれて、析出範囲が狭く、析出物の濃度が高くなった。これは Ca の移流速度が、SO_4 または CO_3 の移流速度と比較して 5 倍程度大きいことに起因する可能性がある。すなわち、移流速度の大きい Ca の供給量は、Ca 当量分率 0.25 において、CO_3 のアノード側への供給量とおおよそ釣り合い、接触面(0 mm)近傍で析出が支配的になったと考えられる。(a), (b), (c)いずれの実験結果も解析と整合的であり、溶解度積の低い $CaCO_3$ では核形成が支配的で、析出挙動は瞬時平衡を仮定することで表現できることが示唆され

た。一部で、２つのピークが認められた原因についてはイオン対の影響等が考えられるが、詳細は今後の課題である。

以上の実験結果から、緩衝材中に析出層・析出帯を形成させるためには、Ca 当量分率 0.25 の Na/Ca 混在型モンモリロナイト(2 cm)と、1M Na_2SO_4 または 1M Na_2CO_3 溶液で飽和させた Na 型モンモリロナイト(1 cm)を接触させ、15 mA にて 24 時間通電を行うことが最適であることを見出した。

3.2.3. XRD による鉱物種の同定と、SEM・EPMA による析出形態の観察【課題 1-3】

図９に、析出領域（−5〜0 mm）における XRD の結果を示す。Gypsum および Calcite の明瞭なピークが認められ、$CaSO_4$ または $CaCO_3$ の少なくとも一部はそれぞれ Gypsum または Calcite として析出していることが明らかとなった。

図１０に、EPMA による $CaSO_4$ の観察結果（反射電子像、Ca と Si の元素マッピング）を示す。Ca の強度は $CaSO_4$ 含有量、Si の強度はモンモリロナイト含有量に対応している。図の点線はおおよその接触面（0 mm）を示している。(a)においては、300 μm 程の凝集体がま

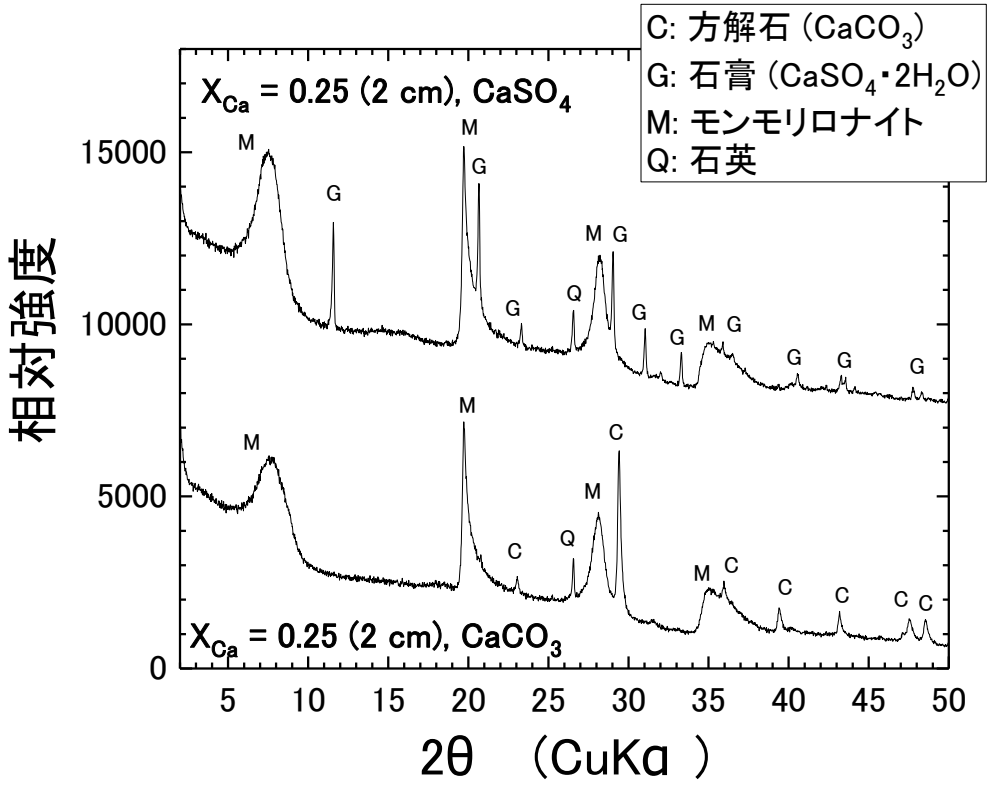


図９　XRD による分析結果

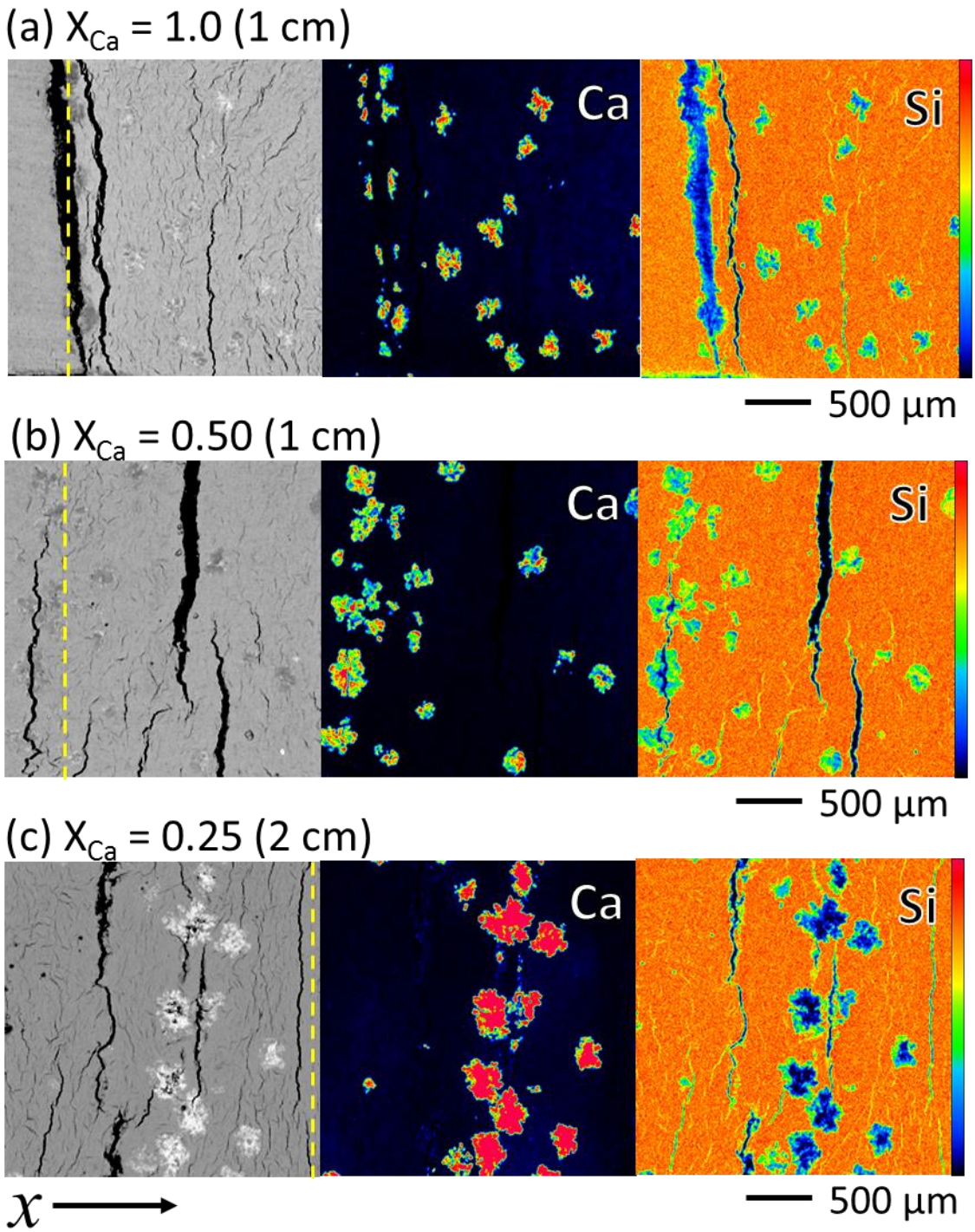


図１０　EPMA による $CaSO_4$ 凝集体の観察結果

ばらに析出していることが分かった。この理由としては、高い Ca 当量分率による比較的大きな過飽和度により核形成が支配的となったことが考えられる。(b)では、接触面(0 mm)にて比較的大きな凝集体が密集し、その後、接触面からの距離が離れるにつれて、小さな凝集体が(a)よりもまばらに析出していることが明らかとなった。(c)においては、大きな凝集体が x 軸に対して垂直方向に層状に密集している一方で、層の両側には析出物が認められな

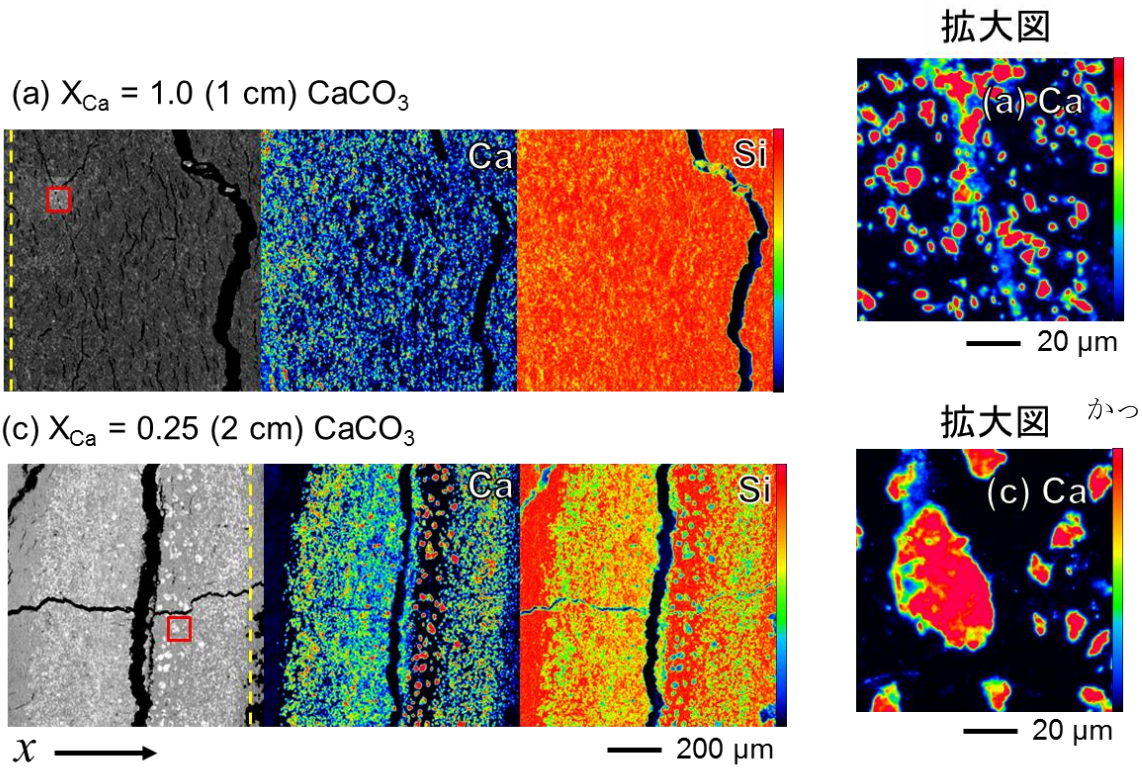


図１１　EPMA による $CaCO_3$ 凝集体の観察結果

た。EPMA 観察により明らかとなった $CaSO_4$ 凝集体の密度と、図 7 の Ca および SO_4 当量濃度の傾向が良く一致し、とくに図 7 (c)で認められた鋭いピークは大きな凝集体が層状に析出していることに対応していることが明らかとなった。

図１１に、EPMA による $CaCO_3$ の観察結果（反射電子像、Ca と Si の元素マッピング）を示す。Ca は $CaCO_3$ 含有量、Si はモンモリロナイト含有量に対応している。また図の点線はおおよその接触面（0 mm）を示している。(a)においては、非常に細かい凝集体がモンモリロナイト中に均一に析出しており、赤四角で示した箇所における拡大観察から、そのサイズは数 μm 程度であることが明らかとなった。このような析出形態をとる理由としては、初期の高い Ca 当量分率（X_{Ca} = 1.0）に加え、Calcite の比較的小さな K_{sp}（= $10^{-8.48}$）に由来する大きな過飽和度により、核形成が支配的となったことが考えられる。(c)では、帯状の析出領域が形成され、その真ん中付近で比較的大きな凝集体が認められた。赤四角で示した箇所における拡大観察から、この大きな凝集体のサイズは数 10 μm 程度であることが明らかとなった。凝集体が成長する理由としては、初期の低い Ca 当量分率（X_{Ca} = 0.25）により Calcite の過飽和度が下がり、(a)と比較して(c)のほうが凝集体の成長が促進された可能性が考えられる。

3.3 残された課題と今後の計画

今年度の主な成果としては、$CaSO_4$(Gypsum)および $CaCO_3$(Calcite)の析出形態が異なる緩衝材の調製方法を確立し、拡散試験および透水試験に供するための基準となる析出条件を

見出すことができた。一方、$CaSO_4$(Gypsum)の析出実験結果では、特異的なピークが認められ、この傾向は数値解析では再現できなかった。この理由としては、数値解析では考慮していない結晶成長などが影響している可能性がある。今後は、数値解析モデルに結晶成長を組み込む方法について検討し、モデルの高度化を図る。

次年度は、図４に示した初期条件(c)において、$CaSO_4$(Gypsum)および $CaCO_3$(Calcite)を析出させた変質緩衝材を調製し、透過拡散試験から析出による空隙構造の変化が実効拡散係数に与える影響について調査を進める。また空隙率と拡散係数および透水係数との関係式について文献調査し、拡散データを解釈するための既往の知見を整理する。

4. まとめ

今年度は「【課題１】析出形態が異なる変質緩衝材試料の調製」を行い、以下の成果が得られた。

課題１－１　移行パラメータの整備と事前解析

・各元素（Ca, SO_4, CO_3）の電位勾配下での移流分散と析出を表現できる数値計算プログラムを開発した。

・数値解析が析出範囲の推定や、析出実験条件（初期濃度、電流値、通電時間など）の設定に有効であることが示された。

課題１－２　変質緩衝材試料の調製

・$CaSO_4$(Gypsum)および $CaCO_3$(Calcite)の析出範囲、サイズ等、析出形態が異なる緩衝材の調製方法を確立した。

・析出範囲は Ca^{2+}, SO_4^{2-}, CO_3^{2-}の濃度と移流速度のバランスで決まる可能性がある。

・バランスが取れていると考えられる条件(c)でも、$CaSO_4$(Gypsum)と $CaCO_3$(Calcite)では異なる析出挙動を示し、K_{sp} の違いに由来する過飽和度の違いが核形成と凝集体の成長に影響を及ぼしている可能性が示唆された。

課題１－３　析出形態の観察

・EPMA が析出形態の観察に有効であり、析出形態の違いを明瞭に観察する手法を確立した。また $CaSO_4$(Gypsum)と $CaCO_3$(Calcite)の析出形態が大きく異なることを明らかにした。

平成 30 年度　外部発表リスト

Tanaka, S. Electrokinetic control of the growth of gypsum aggregates in compacted montmorillonite, Applied Clay Science (査読中)

参考文献　（abc 順）

・Birgersson, M., Karnland, O., Ion equilibrium between montmorillonite interlayer space and an external solution—Consequences for diffusional transport, Geochimica et Cosmochimica Acta 73, 1908-1923 (2009).

・Chagneau, A., et al., Complete Restriction of $^{36}Cl^{-}$ Diffusion by Celestite Precipitation in Densely Compacted Illite, Environmental Science & Technology Letters 2, 139-143 (2015).

・藤井直樹ほか、フィリピン国・ルソン島北西部に分布するザンバレスオフィオライトで生成されたアルカリ溶液との反応によって変質されたベントナイトの地球化学的・鉱物学的特性、地質学雑誌、第 120 巻、第 10 号、361-375 (2014).

・JNC（核燃料サイクル開発機構）　わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性−地層処分研究開発第 2 次取りまとめ− (2000).

・JNC-FEPC（核燃料サイクル開発機構－電気事業連合会）　TRU 廃棄物処分技術検討書－第 2 次 TRU 廃棄物処分研究開発取りまとめ－(2005).

・経済産業省ほか、地層処分研究開発に関する全体計画（平成 30 年度～平成 34 年度）、地層処分研究開発調整会議 (2018).

・小田治恵ほか、セメント系材料由来のアルカリ性条件における緩衝材の鉱物学的変遷シナリオに基づく化学反応・物質移動連成解析、粘土科学、第 51 巻、第 2 号、34-49 (2013).

・Parkhurst, D.L., and Appelo, C.A.J., User’s guide to PHREEQC (Version 2) –A computer program for speciation, batch-reaction, one-dimensional transport, and inverse geochemical calculations (1999).

・Rachmadetin, J., et al., Basic studies for developing rational treatment and disposal system of radioactive wastes generated by Fukushima Dai-ichi nuclear accident (56) Precipitation of calcium carbonate in compacted bentonite by electrokinetic method, Abstract of AESJ spring meeting 2F02 (2016).

・Rajyaguru, A., et al., Experimental characterization of coupled diffusion reaction mechanisms in low permeability chalk 503, 29-39 (2019).

・笹本広ほか、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 39-52 (2013).

・柴田真仁ほか、圧縮ベントナイトとセメント界面における相互作用の評価、日本原子力学会和文論文誌、Vol.10, No.2, 91-104 (2011).

・柴田雅博ほか、緩衝材の長期安定性評価技術の現状（研究報告）、核燃料サイクル開発機構、JNC TN8400 2004-010 (2004).

・Tanaka, S. Gypsum precipitation enhanced by electrokinetic method and porewater chemistry in compacted montmorillonite. Applied Clay Science, 161, 482-493 (2018).

・Tanaka, S., et al., Electrokinetic study of migration of anions, cations, and water in water-saturated compacted sodium montmorillonite. Journal of Nuclear Science and Technology, 48, 454-462 (2011).

・Tinseau, E., et al., Mineralogical characterization of the Tournemire argillite after in situ interaction

with concretes. Waste Management 26, 789-800 (2006).
・Tournassat, C., Appelo, C.A.J., Modelling approaches for anion-exclusion in compacted Na-bentonite, Geochimica et Cosmochimica Acta 75, 3698-3710 (2011).
・Van Loon, L.R., et al., Anion exclusion effects in compacted bentonites: Towards a better understanding of anion diffusion, Applied Geochemistry 22, 2536-2552 (2007).
・山本肇、地下水－岩石反応を考慮した水理・物質移行解析　－解析コード TOUGHREACT と CO2 地下貯留への適用－、大成建設技術センター報　第 38 号(2005).
・横山信吾、中村邦彦、放射性廃棄物処分におけるベントナイト系材料のアルカリ溶液による変質挙動（その１）－アルカリ性の各種溶液に浸漬した締固めベントナイトの鉱物学的な変質と透水性の変化－、電力中央研究所報告、N09015 (2010).

研究報告 3

結晶質岩形成時に内包された割れ目発生・分布の潜在性の解明

山形大学　理学部

湯口　貴史

1. 背景・目的

高レベル放射性廃棄物の地層処分の安全評価において、地下水シナリオ(地下水によって放射性物質が処分施設から人間環境に運ばれるシナリオ)を想定した場合、結晶質岩(花崗岩)では、割れ目が地下水流動や物質移動の経路になる（図 1)。このことから、結晶質岩内の割れ目の分布を把握すること、さらにその将来変化を評価することは重要な課題である。割れ目分布の将来変化を推定するためには、割れ目がどのように形成されたかを理解することが必要である。そこで本研究では、花崗岩体の冷却過程に割れ目を形成する要因が隠されていることに着目し、岩石学的現象の理解を深めることによって、花崗岩体中の現在の割れ目分布ひいては将来的な割れ目発生の潜在性(将来的な発現の有無)を評価する手法を構築する。このメリットとして、高レベル放射性廃棄物の処分地選定の際（特に概要調査の際）に、本研究によって提案する手法を用いることで、将来的に割れ目が多く発生する可能性がある領域を推定することが可能となる。

結晶質岩(花崗岩)の地質環境特性の将来予測には、数値計算に基づく、長期的な地質構造モデルや地下水流動モデル等の構築が検討されている（例えば、平成 29 年度地層処分技術調査等事業・地質環境長期安定性評価確証技術開発報告書)。本研究で得られる「将来的な割れ目発生の潜在性」の評価手法に基づくデータは地質環境の長期変遷のモデル化（特に地下水流動モデル）に必要不可欠な情報になり得る。さらに、入力情報を精緻化することにより、数値モデルや解析結果の不確実性を低減でき、ひいては地層処分の長期安全性に対する信頼性を向上することが期待できる。

既存研究において、Yuguchi et al. (2012)では、土岐花崗岩体（図 2）の微小組織であるミルメカイトやパーサイトに着目し、それらの微小組織の発達の程度（発達パラメータ）が示す冷却挙動と割れ目頻度との間に関連があることを見出した（図 3)。これらの微小組織はおおよそ 700℃から 300℃の間で生成されることが分かっている（Yuguchi et al., 2011A and B)。Yuguchi et al. (2019)では、熱年代学的な手法によって、岩体内部の位置ごとの冷却挙動を解明した（図 4)。熱年代学的な手法とは、放射年代測定法を用いて試料が経験した温度時間履歴を推定する手法である。それぞれの年代

測定法には閉鎖温度という年代を刻み始める固有の温度条件がある。この温度条件と年代を一対とし、それを複数取得することで、岩石の温度時間履歴を得ることができる。Yuguchi et al. (2019)では、ジルコン U-Pb 年代、黒雲母 K-Ar 年代、ジルコンフィッション・トラック年代、アパタイトフィッション・トラック年代、フィッション・トラックデータに基づく逆解析から構成される。熱年代学的手法により取得した冷却挙動（700-300℃）と割れ目頻度の間に関連があることを見出した（図 5）。このように、これらの既存研究（Yuguchi et al., 2012; 2019)から、700℃から 300℃の間の岩体の冷却と割れ目分布の間に関連があることを見出している。

本研究では花崗岩体の冷却の際に生じる岩石学的現象に着目する。特に 700-300℃の温度条件で生じる熱水変質現象に着目し、その変質の程度をパラメータとして抽出する。熱水変質とは、結晶質岩のようなマグマに由来する岩石が固結した後に、高温の流体が岩体内を循環し、もともとの鉱物を異なる鉱物に置き換える現象である。この変質パラメータと冷却を示す既存データ、割れ目データの比較を通じて、「規則性」を見出し、概要調査に際して効率的な評価手法の構築を目指すものである。

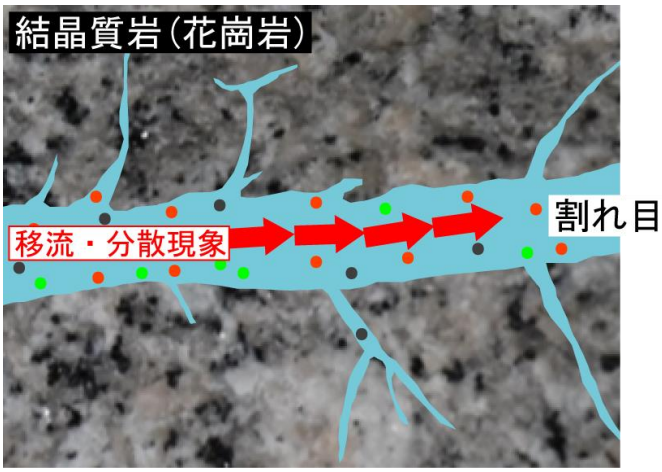


図 1　結晶質岩中の地下水流動および物質移動の経路となる割れ目の概念図

結晶質岩中の地下水流動および物質移動は、割れ目を移動経路とした移流・分散現象に強く支配される。

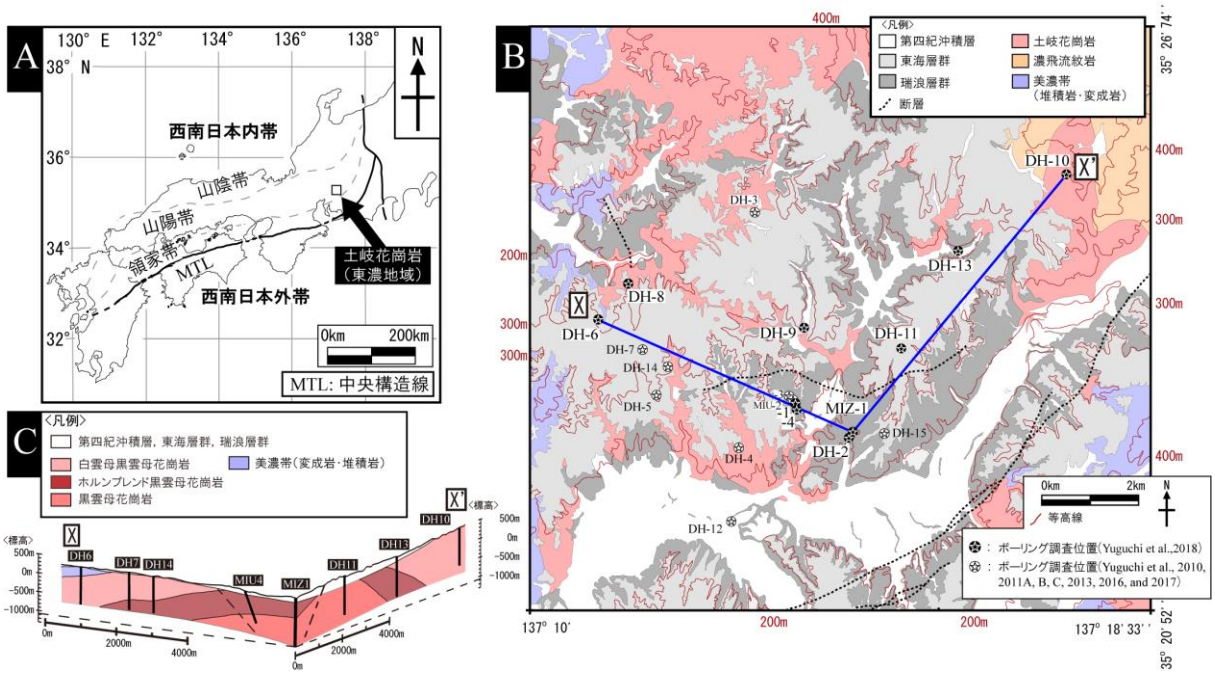


図 2　土岐花崗岩体の位置図（A）、土岐花崗岩体が位置する東濃地域の地質図（B：赤色部分が土岐花崗岩の分布領域を示す）、土岐花崗岩体中の岩石種の違いを示す断面図（C：B の X から X'までの断面図であり、色の相違は岩石種の違いを表す）

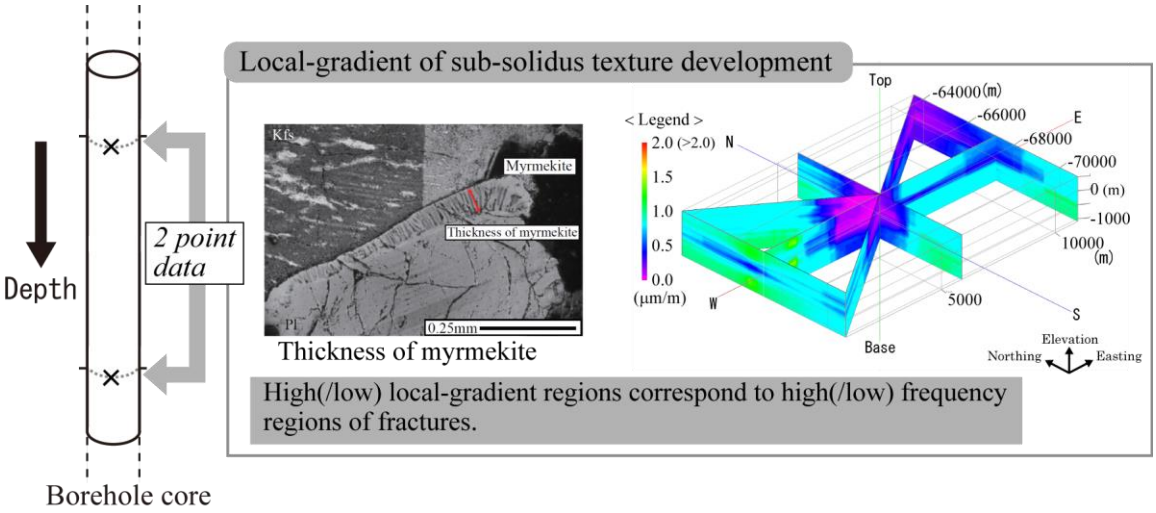


図 3　結晶質岩中の微組織（ミルメカイト）を用いた割れ目分布評価手法の概念図（Yuguchi et al., 2012）

ボーリング孔の 2 地点から微小組織の発達の程度の差を取得し、その大小を 3 次元コンタ図で表示。図中の寒色域は冷却速度が大きいことを示し、割れ目頻度も高い傾向を持つ。また暖色域は冷却速度が小さいことを示し、割れ目頻度も低い傾向を持つ。

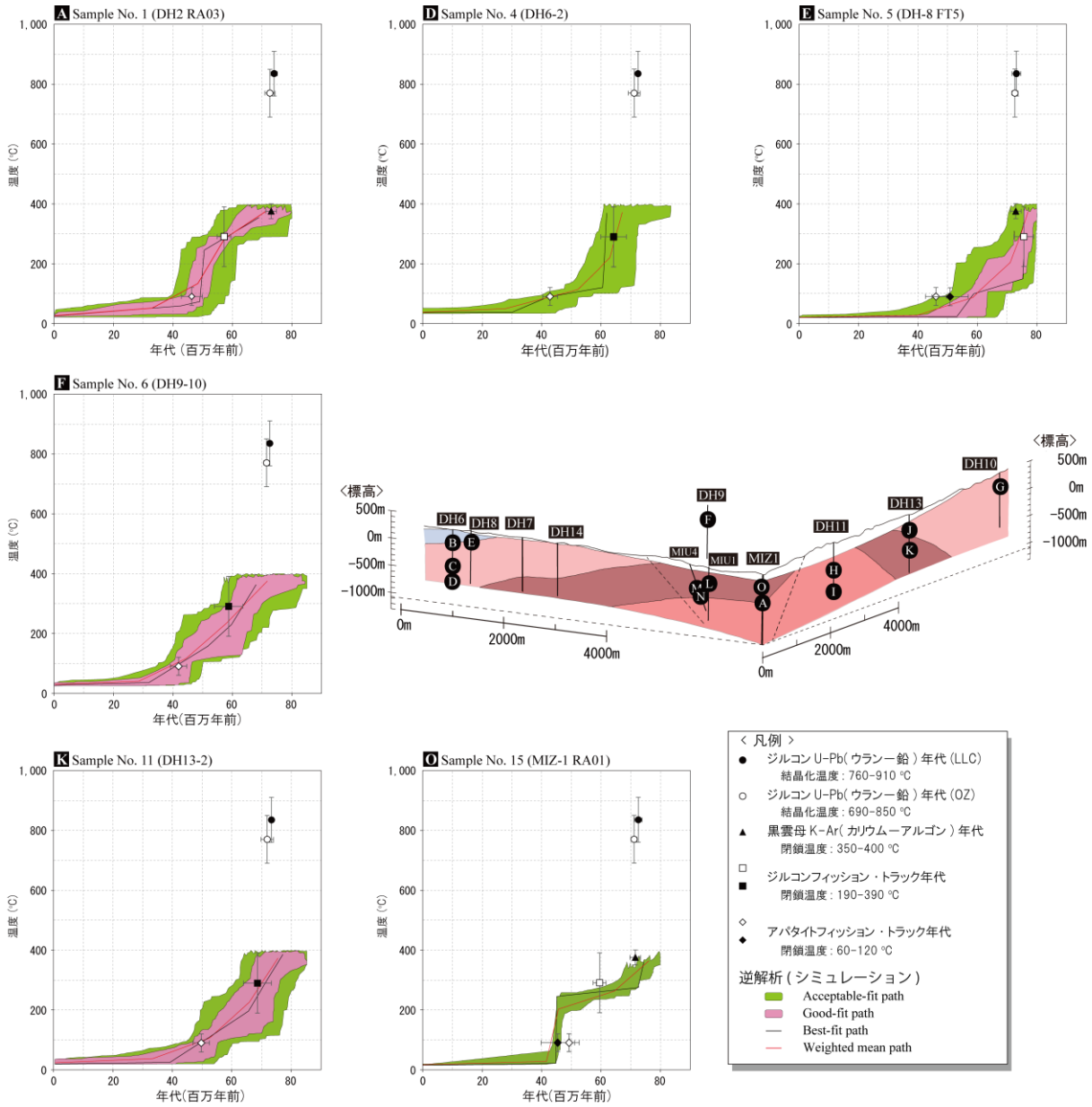


図 4　土岐花崗岩体中の領域ごとの温度時間履歴（Yuguchi et al., 2019 を一部改編）

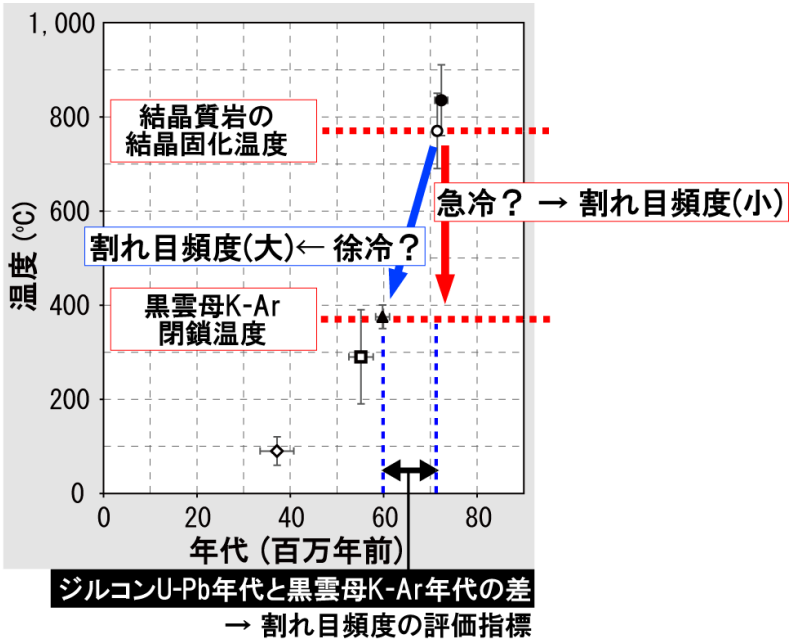


図 5　温度時間履歴と割れ目頻度との関係を示した概念図

（Yuguchi et al., 2019 を一部改編）

1. 全体研究計画（3 ヵ年における全体計画）

本研究は中部日本の土岐花崗岩体を対象とし、以下の 4 つの STEP を設定し、段階的に研究を実施する。

STEP1　熱水変質現象の記載岩石学的研究（パラメータ化）

STEP2　熱水変質現象の生成温度・年代の決定（パラメータ化）

STEP3　熱水変質現象と Yuguchi et al. (2012；2019)で得た冷却データ、現在の割れ目データとの比較検討

STEP4　花崗岩体中の現在の割れ目分布ひいては将来的な割れ目発生の潜在性の評価手法の体系化

研究対象とするのは中部日本（岐阜県東濃地域）に位置する土岐花崗岩体（図 2）である。土岐花崗岩体は著者らの既存研究（湯口ほか，2010，Yuguchi et al., 2011A, 2011B, 2012, 2013, 2016, 2017, 2019）によって形成過程に関する知見が蓄積されている。また西本ほか(2008)や Nishimoto and Yoshida (2010)、Yuguchi et al. (2015)によって花崗岩体中の熱水変質に関する知見も報告されている。また土岐花崗岩体では日本原子力研究開発機構によって 19 本の広域ボーリング調査（核燃料サイクル開発機構，2000）（図 2）や瑞浪超深地層研究所（核燃料サイクル開発機構，2002）（図 6）を活用した研究開発が行われており、ここで得られた岩石試料を用いることにより、深成岩体中の三次元的な岩石試料を取得することができる。また土岐花崗岩体のボーリング調査では、BTV(Bore hole television)を用いた調査が実施されており（図 7)、物資移動に寄与する肉眼スケールの割れ目の分布や頻度を精度良く取得可能である点も土岐花崗岩体を研究対象とする利点である。

STEP1 では、岩体の冷却（700℃から 300℃）の際に生じる熱水変質現象の記載岩石学的研究に基づき、熱水変質現象の程度を、冷却を反映する現象としてパラメータ化する。図 8A と図 8B はそれぞれ黒雲母の緑泥石化、ホルンブレンドの緑泥石化を示した偏光顕微鏡写真である。マグマから晶出した黒雲母やホルンブレンドが、鉱物の粒間や鉱物内の劈開に沿って流入した熱水によって緑泥石に変質している。また図 9 は斜長石の変質（ソーシュライト化）を示した偏光顕微鏡写真である。干渉色の高い領域が変質によって生じたソーシュライト領域を示しており、図 9A では変質領域が中心部分のみであるのに対して、図 9B では変質領域が粒子全体に広がっている。このように変質の程度には差があり、そ

の程度の差をパラメータとして抽出する。STEP2 では、STEP1 で取り扱う変質現象の温度条件あるいは年代の決定を行う。このことは、どの変質現象が割れ目の分布と関連するのかの解明を通じて、どの温度条件（年代）が割れ目形成に関連するかを評価可能となる。STEP3 では、BTV で得られた「今日の割れ目データ」および顕微鏡スケールのマイクロクラックと、STEP1 と STEP2 で得たパラメータ（岩石学的・年代学的なデータ）との比較を行い、両者の関連性を定量的に評価する。STEP4 では、花崗岩体中の現在の割れ目分布ひいては将来的な割れ目発生の潜在性の評価手法の体系化を実施する。この冷却過程中の岩石学的現象の解明は、「将来的な割れ目発生の潜在性」の評価にも有効である。それは冷却過程において割れ目の種が形成され、その後の断層活動などによって、この種から割れ目が発現するという概念(Yuguchi et al., 2012)に基づく。つまり、割れ目の種の分布を明らかにできれば、将来的な割れ目分布の潜在性を評価できることを意味し、さらには割れ目の種が分布する領域を避けることが出来れば、将来的に割れ目が多く発達する領域を避けることが出来ることを意味する。

本研究では、顕微鏡で観察されるマイクロスケールの割れ目が、物質移動に大きく寄与する肉眼で観察されるラージスケールの割れ目の種として働くのではないかという作業仮説のもと検討を進める。このマイクロスケールの割れ目が熱水変質をもたらす流体の経路であることが既存研究にて論じられている（例えば Nishimoto and Yoshida, 2010; Yuguchi et al., 2015）。一連の研究を通じて「熱水変質のパラメータ」「BTV で得られるラージスケールの割れ目」「顕微鏡サイズのマイクロスケールの割れ目」そして「岩体の冷却」の間の「関連性」の検討に基づいて、将来的な割れ目発生の潜在性を評価する手法の構築を目指す（図 10）。

平成 30 年度は試料選定や試料採取・成形を第一の課題とし、それが完了し次第、STEP1 と STEP2 に着手する。花崗岩体中に普遍的に観察される 2 つの現象（黒雲母の緑泥石化、斜長石のソーシュライト化: Nishimoto and Yoshida, 2010; Yuguchi et al., 2015）に着目し、岩石記載と化学分析、温度条件の決定を実施し、割れ目高頻度域と低頻度域における相違を基本とし、パラメータの抽出に資する変質現象に対して記載岩石学的なアプローチを行う。2019 年度は STEP1 と STEP2 を継続しつつ、後半期に STEP3 に着手する。2020 年度は STEP1 と STEP2 の不足データを補いつつ、STEP3 および STEP4 を中心に実施する。

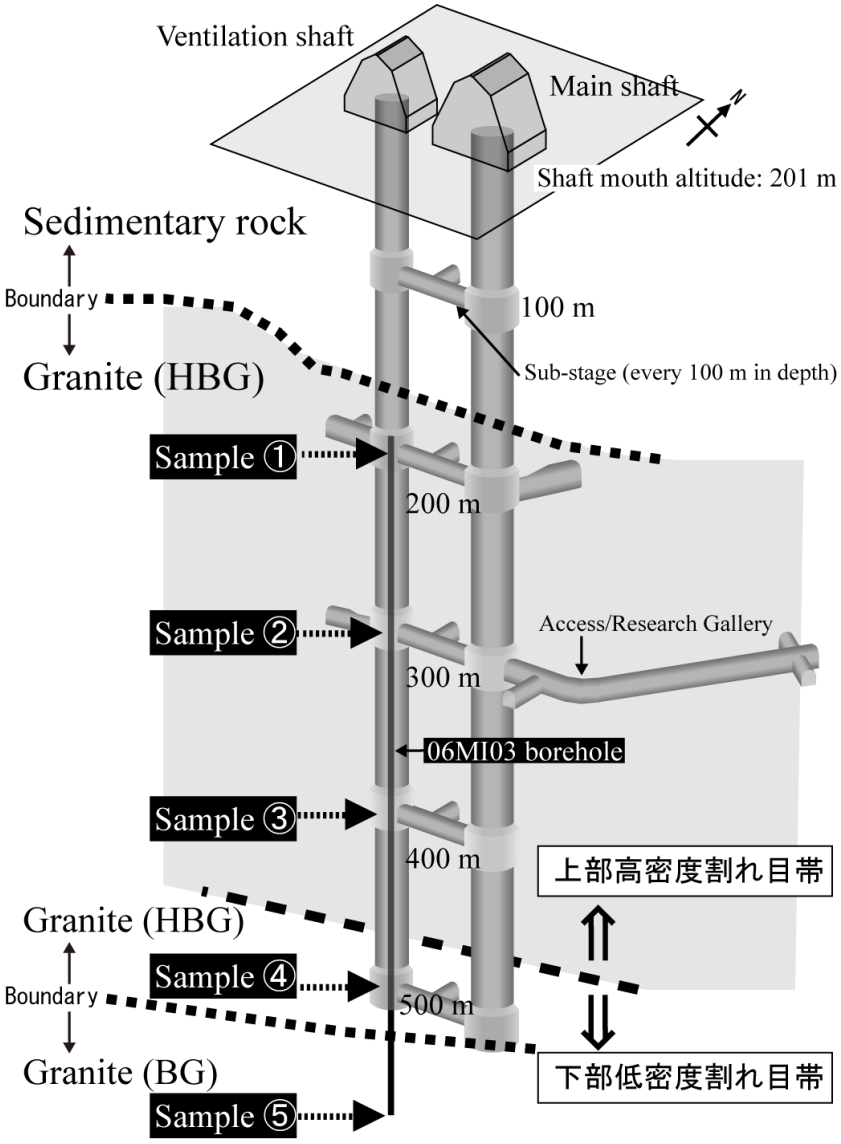


図 6 土岐花崗岩体に位置する瑞浪超深地層研究所の研究坑道の概念図

（Yuguchi et al., 2015 を一部改編）

上部高密度割れ目帯と下部低密度割れ目帯の境界は深度 460m に位置する。

Sample ①～⑤は等間隔のサンプリングを実施する際の概念を示す。

06MI03 号孔は換気立坑が深度 200m まで掘削された際、パイロットボーリングとして実施。

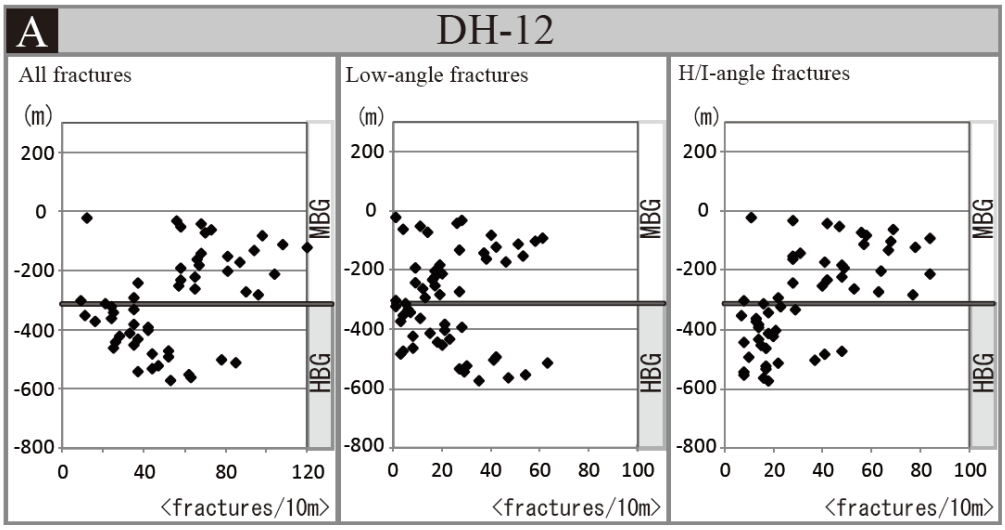


図 7 BTV を用いて得られた土岐花崗岩体の DH-12 号孔の鉛直方向（標高）

に対する割れ目頻度の変化（Yuguchi et al., 2012）

MBG は白雲母黒雲母花崗岩(Muscovite Biotite Granite)、HBG はホルンブレンド黒雲母花崗

岩(Hornblende Biotite Granite)の略称、太横線は岩相の境界を示す。

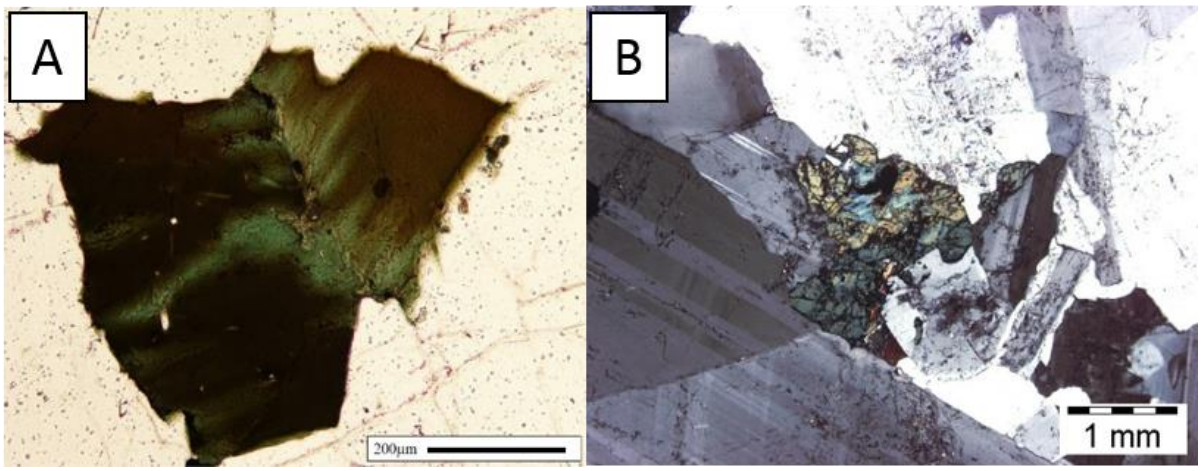


図 8 土岐花崗岩体中の緑泥石化を示した偏光顕微鏡写真

A. 黒雲母の緑泥石化、B. ホルンブレンド（角閃石）の緑泥石化

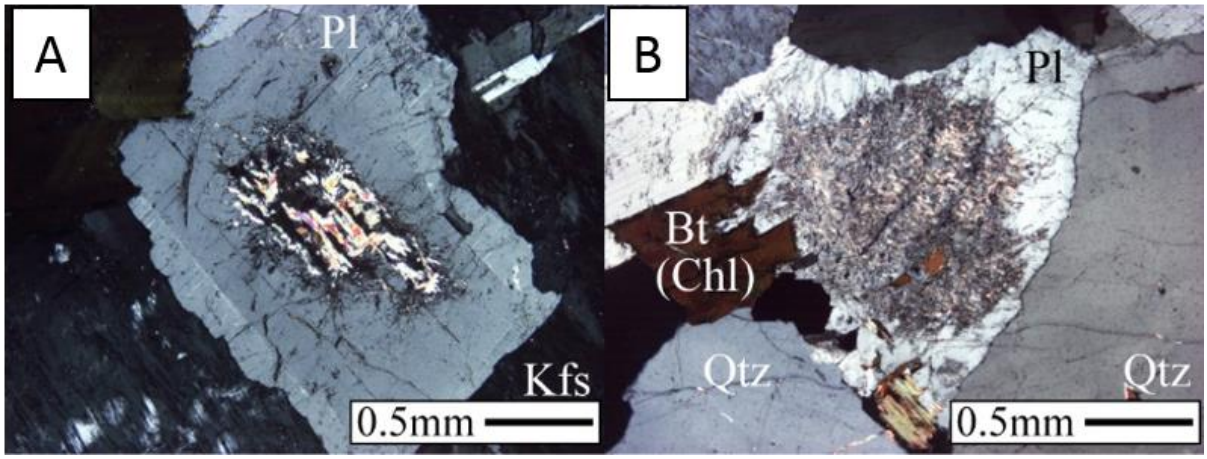


図 9 土岐花崗岩体中の斜長石の変質（ソーシュライト化）を示した偏光顕微鏡写真

A. 変質領域はコア部分のみ、B. 変質領域は粒子全体に広がる。

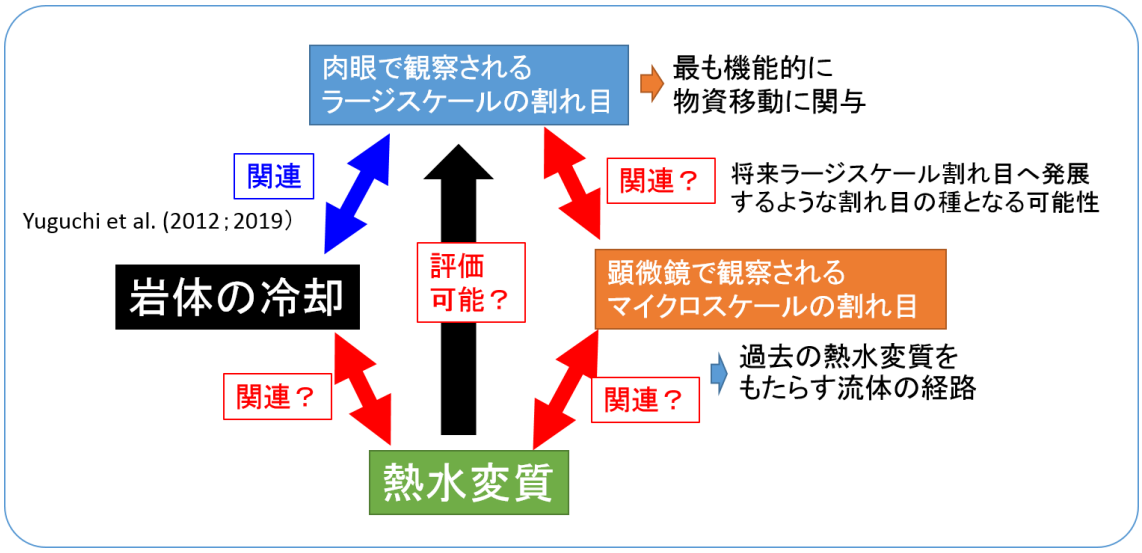


図 10 「熱水変質のパラメータ」「BTV で得られるラージスケールの割れ目」「顕微鏡サイズのマイクロスケールの割れ目」そして「岩体の冷却」の間の「関連性」の検討

3. 平成 30 年度研究実施内容

3.1 平成 30 年度の計画、実施方法

3.1.1 平成 30 年度の実施計画

平成 30 年度は、研究対象とする試料選定を実施する。選定に当たっては割れ目情報を整理し、最終段階である熱水変質パラメータと割れ目との間の関連を議論するために、最も効率的な試料を選択する。得られた試料は、観察や分析に資する薄片に成形する。それらの作業の後、STEP1「熱水変質現象の記載岩石学的研究」と STEP2「熱水変質現象の生成温度・年代の決定」に着手する。花崗岩体中の変質には、普遍的に 2 つの現象が観察される（緑泥石化、斜長石のソーシュライト化: Nishimoto and Yoshida, 2010; Yuguchi et al., 2015）。特にこの緑泥石化に着目し、岩石記載と化学分析、温度条件の決定を実施する。また、平成 30 年度は研究期間が短いため、対象試料に対して優先順位をつけ、効率的に作業を行う。以下に実施内容を示す。

(1) 試料採取地点の検討

本研究を実施するに際して試料選定が非常に重要となる。このため、土岐花崗岩体中の瑞浪超深地層研究所の割れ目データまた広域ボーリングより取得した割れ目データを精査し、サンプリング地点を選定する。

(2) 試料採取および試料成形

瑞浪超深地層研究所において試料の採取を行う。その後、山形大学にて分析を行うための試料の成形を行う。

(3) 偏光顕微鏡観察および電子顕微鏡観察・化学分析に着手

偏光顕微鏡による光学的な観察から、対象とする変質鉱物を定め、電子顕微鏡観察および化学分析に着手する。

(4) 平成 30 年度取りまとめ

得られた知見の取りまとめを行い、報告書の執筆、委員会報告を行う。

3.1.2 試料採取地点の検討

表 1 にリスト化した日本原子力研究開発機構の報告書を利用し、試料採取地点の検討を行った。瑞浪超深地層研究所のボーリング孔に関する報告書は資料番号 1 から資料番号 3 を活用し、広域ボーリングに関するデータは Yuguchi et al. (2019)を活用し検討を行った。

表 1　試料採取地点選定に用いた試料

資料番号	資料
1	上野 孝志; 徳安 真吾; 川本 康司; 窪島 光志; 石橋 正祐紀; 鶴田 忠彦; 笹尾 英嗣; 池田 幸喜; 見掛 信一郎; 原 郁夫; 山本 勝(2012) 超深地層研究所計画,瑞浪超深地層研究所; 研究坑道におけるボーリングデータ集 JAEA-Data/Code 2012-008, 136pp.
2	石橋正祐紀; 笹尾英嗣 研究坑道におけるボーリング調査によって確認された割れ目データ集 JAEA-Data/Code 2016-009, 10pp.
3	鶴田忠彦; 竹内真司; 竹内竜史; 水野崇; 大山卓也 瑞浪超深地層研究所における立坑内からのパイロットボーリング調査報告書 JAEA-Research 2008-098 81pp.

3.1.3　電子顕微鏡観察および鉱物化学分析

偏光顕微鏡による光学的な観察から、変質鉱物のグループ分けを行い、その後そのパターンごとに電子顕微鏡観察および鉱物化学分析を実施する。組成（BSE）像および組成マッピングには山形大学理学部に設置された電子顕微鏡装置（JEOL IT-100A + Gatan Mini CL）を使用した。分析条件は加速電圧 15kV、電流値 1.0nA。鉱物化学分析には山形大学理学部に設置された波長分散型 X 線分析装置（WDS）内臓の電子プローブマイクロアナライザー（EPMA: JEOL JXA-8900）を用いた。分析条件は加速電圧 15kV、電流値 20nA とした。

3.2　平成 30 年度の成果内容

3.2.1　試料選定

土岐花崗岩体は、深度に対して上部高密度割れ目帯と下部低密度割れ目帯が分布する（石橋・笹尾，2016）。土岐花崗岩体に位置する瑞浪超深地層研究所は、坑口からの深度 500m の主立坑と換気立坑、および鉛直方向に 100m 間隔の横抗から構成されている(図 2)。この研究坑道において、高密度割れ目帯と低密度割れ目帯の境界はおおよそ深度 460m の間に相当する(図 2)。上部高密度割れ目帯と下部低密度割れ目帯における試料を用いることにより、比較的狭い領域において割れ目頻度の高い試料と低い試料を効率的に採取することができる。また瑞浪超深地層研究所の研究坑道の主立坑では、鉛直方向に延びる断層が位置する（主立坑断層）。このため、本研究では熱水変質を扱うため、断層の影響のない換気立坑（06MI03 号孔）が効率的となる。

地表露頭の花崗岩は、変質現象とともに風化現象を被っている。このため、変質現象のみを評価することが困難である。それに対して、花崗岩体の深部より得られた岩石試料は、風化の影響を被っておらず、変質現象を効率的に評価できる。これが換気立坑（06MI03 号孔）を用いるもう一つの利点となる。

また 06MI03 号孔は上野ほか（2012）、石橋・笹尾（2016）および鶴田ほか（2008）により、BTV データに基づく割れ目情報が整備されており、表 2 はそれらの BTV データをもとに 06MI03 号孔の割れ目情報（特に 5m 間隔の割れ目頻度）をまとめたものである。割れ目頻度は深度 200～240m 付近で最も高く、15～48 本/5m であり、一方深度 460m 以深では 0 本/5m の領域も散見される。このデータからも割れ目密度の鉛直方向の推移が認められる。図 2 のような等間隔の試料あるいは割れ目の顕著に多い領域と少ない領域からの試料を研究対象とすることを基本とし、割れ目低密度帯に位置するサンプル No.1～12、割れ目の高密度帯に位置するサンプル No.A1～A13 までを選択した。なお No.1 と No.7 は割れ目頻度 0 本/5ｍの領域の情報を確実に収集するため、0 本/5ｍ区間内で約 50cm 離れた領域で採取を行った。

Yuguchi et al. (2019)では土岐花崗岩体内の領域ごとの温度時間履歴について報告している。Yuguchi et al. (2019)で用いた岩石試料（表 3）を対象とすることにより、鉱物の温度条件を決定できれば生成年代を知ることができ、逆に鉱物年代を決定できれば

生成温度を把握することできる。これらの試料（15 試料）も変質鉱物の年代学的な検討を行う際に有効であるため研究対象とする。平成 30 年度にすべての試料を扱うことは困難なため、平成 30 年度は試料を既に取得済みの下部低密度割れ目帯試料（サンプル No. 1～12）を中心に扱い、2019 年度に上部高密度割れ目帯試料（サンプル No. A1～A13）および温度時間履歴既知の試料（サンプル No.B1～B15）を研究対象に順次加える。

表 2　06MI03 号孔の割れ目情報とサンプリング地点

06MI03 号孔孔口からの位置（mabh）*		地表からの深度（m）		標高　（masl)**		割れ目本数	サンプル番号	割れ目	岩相
7.67	12.67	198.67	203.67	2.23	−2.77	15		高密度	ホルンブレンド黒雲母花崗岩
12.67	17.67	203.67	208.67	−2.77	−7.77	17			
17.67	22.67	208.67	213.67	−7.77	−12.77	48	No.A1		
22.67	27.67	213.67	218.67	−12.77	−17.77	16			
27.67	32.67	218.67	223.67	−17.77	−22.77	26			
32.67	37.67	223.67	228.67	−22.77	−27.77	29			
37.67	42.67	228.67	233.67	−27.77	−32.77	15			
42.67	47.67	233.67	238.67	−32.77	−37.77	31	No.A2		
47.67	52.67	238.67	243.67	−37.77	−42.77	40	No.A3		
52.67	57.67	243.67	248.67	−42.77	−47.77	12			
57.67	62.67	248.67	253.67	−47.77	−52.77	10			
62.67	67.67	253.67	258.67	−52.77	−57.77	6			
67.67	72.67	258.67	263.67	−57.77	−62.77	6			
72.67	77.67	263.67	268.67	−62.77	−67.77	7	No.A4		
77.67	82.67	268.67	273.67	−67.77	−72.77	7			
82.67	87.67	273.67	278.67	−72.77	−77.77	4			
87.67	92.67	278.67	283.67	−77.77	−82.77	8			
92.67	97.67	283.67	288.67	−82.77	−87.77	7			
97.67	102.67	288.67	293.67	−87.77	−92.77	35	No.A5		
102.67	107.67	293.67	298.67	−92.77	−97.77	31	No.A6		
107.67	112.67	298.67	303.67	−97.77	−102.77	15			
112.67	117.67	303.67	308.67	−102.77	−107.77	18			
117.67	122.67	308.67	313.67	−107.77	−112.77	28	No.A7		
122.67	127.67	313.67	318.67	−112.77	−117.77	6			
127.67	132.67	318.67	323.67	−117.77	−122.77	5			
132.67	137.67	323.67	328.67	−122.77	−127.77	11	No.A8		
137.67	142.67	328.67	333.67	−127.77	−132.77	6			
142.67	147.67	333.67	338.67	−132.77	−137.77	6			
147.67	152.67	338.67	343.67	−137.77	−142.77	10			
152.67	157.67	343.67	348.67	−142.77	−147.77	6	No.A9		
157.67	162.67	348.67	353.67	−147.77	−152.77	10			
162.67	167.67	353.67	358.67	−152.77	−157.77	13			
167.67	172.67	358.67	363.67	−157.77	−162.77	6			

*mabh: meters along borehole

**masl: meters againts sea level

→サンプル採取位置

表 2　06MI03 号孔の割れ目情報とサンプリング地点（つづき）

06MI03 号孔孔口からの位置（mabh）*		地表からの深度（m）		標高　（masl)**		割れ目本数	サンプル番号	割れ目	岩相
172.67	177.67	363.67	368.67	−162.77	−167.77	2	No.A10	高密度	ホルンブレンド黒雲母花崗岩
177.67	182.67	368.67	373.67	−167.77	−172.77	5			
182.67	187.67	373.67	378.67	−172.77	−177.77	13			
187.67	192.67	378.67	383.67	−177.77	−182.77	12			
192.67	197.67	383.67	388.67	−182.77	−187.77	3	No.A11		
197.67	202.67	388.67	393.67	−187.77	−192.77	9			
202.67	207.67	393.67	398.67	−192.77	−197.77	4			
207.67	212.67	398.67	403.67	−197.77	−202.77	3			
212.67	217.67	403.67	408.67	−202.77	−207.77	6			
217.67	222.67	408.67	413.67	−207.77	−212.77	18	No.A12		
222.67	227.67	413.67	418.67	−212.77	−217.77	7			
227.67	232.67	418.67	423.67	−217.77	−222.77	14			
232.67	237.67	423.67	428.67	−222.77	−227.77	14			
237.67	242.67	428.67	433.67	−227.77	−232.77	15			
242.67	247.67	433.67	438.67	−232.77	−237.77	15			
247.67	252.67	438.67	443.67	−237.77	−242.77	11			
252.67	257.67	443.67	448.67	−242.77	−247.77	3	No.A13		
257.67	262.67	448.67	453.67	−247.77	−252.77	5			
262.67	267.67	453.67	458.67	−252.77	−257.77	13			
267.67	272.67	458.67	463.67	−257.77	−262.77	2			
272.67	277.67	463.67	468.67	−262.77	−267.77	3		低密度	
277.67	282.67	468.67	473.67	−267.77	−272.77	1			
282.67	287.67	473.67	478.67	−272.77	−277.77	0	No.2		
287.67	292.67	478.67	483.67	−277.77	−282.77	2	No.3		
292.67	297.67	483.67	488.67	−282.77	−287.77	2	No.4		
297.67	302.67	488.67	493.67	−287.77	−292.77	2	No.5		
302.67	307.67	493.67	498.67	−292.77	−297.77	2	No.6		
307.67	312.67	498.67	503.67	−297.77	−302.77	0	No.1 No.7		
312.67	317.67	503.67	508.67	−302.77	−307.77	8	No.8		
317.67	322.67	508.67	513.67	−307.77	−312.77	16	No.9		
322.67	327.67	513.67	518.67	−312.77	−317.77	3	No.10		
327.67	332.67	518.67	523.67	−317.77	−322.77	10	No.11		黒雲母花崗岩
332.67	337.67	523.67	528.67	−322.77	−327.77	0	No.12		

*mabh: meters along borehole

**masl: meters againts sea level

→サンプル採取位置

表 3　温度時間履歴既知の試料（サンプル No.B1～B15）の割れ目情報

（Yuguchi et al., 2019 を一部改編）

サンプル		位置情報				岩相 ***	割れ目		
No.	サンプル名	X(northing)	Y(easting)	深度 (mabh)*	標高 (masl)**		本数	/	10m interval in depth
B1	DH2 RA03	-69125.0	6437.4	495.4	-302.1	BG	4	/	490-500 mabh
B2	DH-6 FT-8	-66630.9	978.7	268.5	50.8	MBG	12	/	260-270 mabh
B3	DH-6 FT-7	-66630.9	978.7	792.9	-473.6	MBG	28	/	790-800 mabh
B4	DH6-2	-66630.9	978.7	1010.8	-691.5	MBG	0	/	1000-1010 mabh
B5	DH-8 FT5	-66002.9	1871.9	222.5	47.3	MBG	0	/	220-230 mabh
B6	DH9-10	-66857.4	5511.2	500.1	-224.7	HBG	25	/	500-510 mabh
B7	DH10-1	-63745.2	10945.7	279.3	196.2	MBG	27	/	270-280 mabh
B8	DH11-1	-67285.4	7560.5	456.6	-116.7	BG	44	/	450-460 mabh
B9	DH11-2	-67285.4	7560.5	751.7	-411.9	BG	19	/	750-760 mabh
B10	DH13-1	-65324.7	8625.8	354.5	-77.0	HBG	47	/	350-360 mabh
B11	DH13-2	-65324.7	8625.8	530.0	-252.5	HBG	10	/	530-540 mabh
B12	MIU-1 FT-4	-68280.3	5217.4	750.6	-520.1	BG	8	/	750-760 mabh
B13	MIU-4 FT5-02	-68237.2	5408.2	573.0	-279.3	HBG	85	/	570-580 mabh
B14	MIU-4 FT9	-68231.9	5413.5	593.0	-296.5	HBG	114	/	590-600 mabh
B15	MIZ-1 RA01	-68867.7	6503.7	110.8	95.7	HBG	6	/	110-120 mabh

* Depth from the ground surface denotes meters along borehole (mabh).　** Altitude stands for meters above sea level (masl).　***BG: 黒雲母花崗岩, HBG: ホルンブレンド黒雲母花崗岩, MBG: 白雲母黒雲母花崗岩

3.2.2　岩石試料採取・形成

選定した岩石試料に対して、2018 年 11 月 12 日（月）に国立研究開発法人・日本原子力研究開発機構・東濃地科学センター（瑞浪超深地層研究所）の岩芯倉庫にて岩石コア（サンプル No. A1～A13）の採取を行った。サンプル No. A1 から A13 の採取位置を図 11 に示す。また採取深度を表 4 に記す。一方サンプル No. 1 から No.12 まではすでに 284mabh から 334mabh まで 5m 間隔での試料採取を行っており、取得済みの試料を本研究で用いる（表 5）。

その後、サンプル No. 1～12 とサンプル No. A1～A13 に対して、偏光顕微鏡観察および化学組成分析のために試料から薄片を作成した。薄片作成に際して、同一薄片で偏光顕微鏡観察と化学組成分析を実施するために、少し厚めの薄片を作成した（偏光顕微鏡観察には 0.03mm の厚さの薄片が最適であるが、EPMA を用いた化学分析を行う際にはより厚い方が適している。このため本研究では 0.04mm 程度の薄片を作成した）。

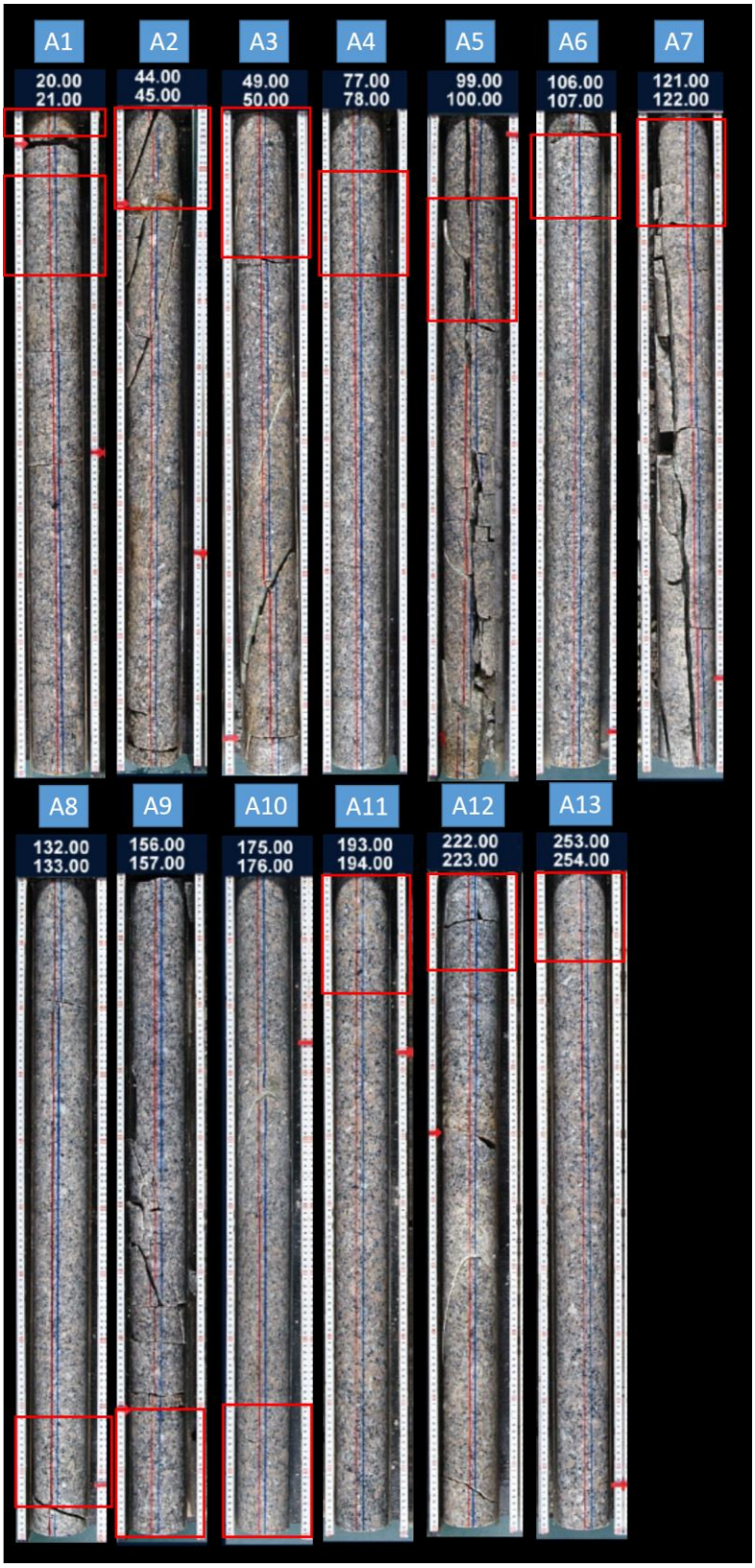


図 11 06MI03 号孔からのサンプル No. A1～A13 試料採取位置

（鶴田ほか，2008 を一部改編）

表 4　06MI03 号孔サンプル No. A1～A13 試料採取情報

サンプル No.	06MI03 号孔口からの採取位置（mabh）
A1	21.00-21.02
	21.10-21.25
A2	44.00-44.16
A3	49.00-49.22
A4	77.10-77.25
A5	99.13-99.31
A6	106.05-106.17
A7	121.01-121.17
A8	132.82-132.96
A9	156.79-157.00
A10	175.80-176.00
A11	193.00-193.19
A12	222.00-222.16
A13	253.00-253.14

表 5　06MI03 号孔サンプル No. 1～12 試料採取情報

サンプル No.	06MI03 号孔口からの採取深度（mabh）
1	309.00
2	284.00
3	289.00
4	294.00
5	299.00
6	304.00
7	309.00
8	314.00
9	319.00
10	324.00
11	329.00
12	334.00

3.2.3　熱水変質現象

3.2.3.1　岩石記載の概要

平成 30 年度は下部低密度割れ目帯試料（サンプル No. 1～12）に対してパラメータの抽出に記す記載岩石学的研究を実施する。サンプル No.1 から No.12 までの岩石記載の結果を表 6 に示す。サンプル No.1 から No.10 までの試料はホルンブレンド黒雲母花崗岩に相当する（図 2）。ホルンブレンド黒雲母花崗岩は完晶質の等粒状花崗岩であり、ホルンブレンドの出現をもって定義づけられる（湯口ほか，2010）。構成鉱物は、石英、斜長石、カリ長石、黒雲母、ホルンブレンド、白雲母、磁鉄鉱、およびチタン鉄鉱からなり、副成分鉱物として褐簾石、ジルコン、アパタイトが観察される。斜長石は、粒径 1-20mm の半自形から自形結晶である。特に粒径 1-7mm 程度の半自形結晶が広く認められ、コアからリムに向けて Ab70 から Ab82 へアルバイト成分が増大する累帯構造を持つ（湯口ほか，2010）。斜長石のコア部分には細粒な白雲母（イライト）から構成されるソーシュライト化が高い頻度で観察される。またソーシュライト化はコア部分のみにとどまらず、リム部分までの広範囲で観察されるケースも散見される（図 12）。カリ長石は、パーサイト構造を有し粒径 1-12mm の他形を呈する。カリ長石はコアおよびリムともに Or95 前後の平均組成を有する（湯口ほか，2010）。斜長石とカリ長石の間にはミルメカイトや反応縁が普遍的に認められる。黒雲母は粒径 1-5mm で半自形から自形を示し、annite と siderophyllite の中間的な組成を有する(湯口ほか，2010)。緑泥石化が進んでおり、一部をあるいは全体を緑泥石に置換される黒雲母が広く観察される（図 13A）。ホルンブレンドは細粒なものが多く、粒径 1-2.5mm で半自形から自形を示す。多色性が強く、軸色は X において無色、Y と Z においては淡緑色である．Leake et al. (1997)の Ca 角閃石分類図で ferropargasite ないし ferroedenite に相当する (湯口ほか，2010)。角閃石の緑泥石化も観察される（図 13B）。白雲母は粒径 0.2-0.9mm 程度の細粒な他形から半自形結晶である。チタン鉄鉱は、黒雲母などの有色鉱物の近傍に産出することが多く、粒径 0.8-2.0mm 程度の半自形結晶である。熱水変質の二次鉱物として、緑泥石化や斜長石のソーシュライト化も普遍的に観察される。また、初生鉱物を切る緑泥石脈や方解石脈も観察される。

サンプル No.11 と No.12 の試料は黒雲母花崗岩に相当する（図 2）。黒雲母花崗岩は、

ホルンブレンドと白雲母のいずれをも伴わない鉱物組み合わせで定義される(湯口ほか，2010)。白雲母黒雲母花崗岩、ホルンブレンド黒雲母花崗岩より、長石の割合が多く、黒雲母の割合が少ない傾向を持ち、優白質な花崗岩相である。黒雲母花崗岩は完晶質の等粒状花崗岩である。白雲母黒雲母花崗岩、ホルンブレンド黒雲母花崗岩で観察された長石の巨晶を含む顕著な斑状組織は観察されない。構成鉱物は、石英、斜長石、カリ長石、黒雲母、磁鉄鉱、およびチタン鉄鉱からなり、副成分鉱物として褐簾石、ジルコン、およびアパタイトが含まれる。斜長石は、粒径 1-15mm の半自形から自形結晶である。ホルンブレンド黒雲母花崗岩と同様に斜長石のコア部分には細粒な白雲母（イライト）から構成されるソーシュライト化が高い頻度で観察される。またソーシュライト化はコア部分のみにとどまらず、リム部分までの広範囲で観察されるケースも散見される。カリ長石はパーサイト構造を有し粒径 1-10mm の他形を呈する。黒雲母は粒径 0.3-2.0mm で半自形を呈し、annite と siderophyllite の中間的な組成を有する。一部をあるいは全体を緑泥石に置換される黒雲母が広く認められる。熱水変質の二次鉱物として、緑泥石化や斜長石のソーシュライト化も普遍的に観察される。初生鉱物を切る緑泥石脈や方解石脈が認められる。

No.1 から No.12 の岩石サンプル中には、熱水変質による緑泥石化ならびに斜長石の変質（ソーシュライト化）が普遍的に観察される。3.2.3.2 節では緑泥石化に関して、記載岩石学的な手法により、パラメータの抽出に資する変質現象について議論する。

表 6　サンプル No.1 から No.12 までの岩石記載（その 1）

	〈試料名〉	〈深度 (m)〉	〈標高 (m)〉	〈構成鉱物とモード〉			〈岩石記載〉				岩相
1	06MI03 号孔 309mabh'	500	−299	Qtz	29.0	vol%	石英	半自形～他形	波状消光　包有物(Bt, Pl, Zr, Apt)		ホルンブレンド黒雲母花崗岩
				Pl	33.8	vol%	斜長石	半自形～他形	顕著なソーシュライト化	リム部:ミルメカイト	
				Kfs	26.8	vol%	カリ長石	他形	パーサイト卓越		
				Bt	5.0	vol%	黒雲母	他形	リム部が Chl に部分的に置換		
				Chl	2.2	vol%	緑泥石	他形(黒雲母のリム部を置換)	粒間にあるものは細粒，黒雲母を置換する Chl は比較的粗大		
				Other	3.0	vol%	その他	Zr, Apt, Alla, Opq			
2	06MI03 号孔 284mabh	475	−274	Qtz	30.7	vol%	石英	半自形～他形	波状消光　包有物(Bt, Zr, Apt)		
				Pl	30.3	vol%	斜長石	半自形～他形	顕著なソーシュライト化+Bt, Chl および Hb の包有物	リム部:ミルメカイト	
				Kfs	31.4	vol%	カリ長石	他形	パーサイト卓越		
				Bt	4.6	vol%	黒雲母	他形	リム部が Chl に部分的に置換	内部に Opq を含有	
				Chl	1.7	vol%	緑泥石	他形(黒雲母のリム部を置換)	粒間にあるものは細粒，黒雲母を置換する Chl は比較的粗大		
				Hb	0.2	vol%	ホルンブレンド	自形	変質領域多い		
				Other	1.1	vol%	その他	Zr, Ill, Opq, allanite, Cal			
3	06MI03 号孔 289mabh	480	−279	Qtz	31.6	vol%	石英	半自形～他形	波状消光　包有物(Bt, Pl, Zr, Apt)		
				Pl	30.6	vol%	斜長石	半自形～他形	顕著なソーシュライト化+Bt, Chl および Hb の包有物	リム部:ミルメカイト	
				Kfs	30.9	vol%	カリ長石	他形	パーサイト卓越		
				Bt	4.6	vol%	黒雲母	他形	リム部が Chl に部分的に置換	内部に Opq を含有	
				Chl	1.5	vol%	緑泥石	他形(黒雲母のリム部を置換)	鉱物を置換		
				Hb	0.1	vol%	ホルンブレンド	自形	変質領域多い		
				Other	0.7	vol%	その他	Zr, Ill, Opq, allanite, Cal			
4	06MI03 号孔 294mabh	485	−284	Qtz	28.9	vol%	石英	他形	波状消光　包有物(Bt, Pl, Zr, Apt)		
				Pl	25.1	vol%	斜長石	半自形～他形	顕著なソーシュライト化+Bt, Chl および Hb の包有物	リム部:ミルメカイト	
				Kfs	38.7	vol%	カリ長石	他形（巨晶:30×15 ㎜）	パーサイト卓越		
				Bt	5.0	vol%	黒雲母	他形	リム部が Chl に部分的に置換	含有物:Opq, Zr	
				Chl	1.4	vol%	緑泥石	他形(黒雲母のリム部を置換)	粒間にあるものは細粒，黒雲母を置換する Chl は比較的粗大		
				Hb	0.1	vol%	ホルンブレンド	自形	変質領域多い		
				Other	0.8	vol%	その他	Zr, Ill, Opq, allanite, Cal			

Qtz（石英）、Pl（斜長石）、Kfs（カリ長石）、Chl（緑泥石）、Zr（ジルコン）、Apt（アパタイト）、Ill（イライト）、Opq（暗色鉱物）、Alla（褐廉石）、Cal（カルサイト）

表 6　サンプル No.1 から No.12 までの岩石記載（その 2）

	〈試料名〉	〈深度 (m)〉	〈標高 (m)〉	〈構成鉱物とモード〉			〈岩石記載〉				岩相
5	06MI03 号孔 299mabh	490	−289	Qtz	20.1	vol%	石英	他形	波状消光　包有物(Bt, Pl, Zr, Apt)		ホルンブレンド黒雲母花崗岩
				Pl	31.9	vol%	斜長石	半自形～他形	顕著なソーシュライト化+Chl の包有物	リム部:ミルメカイト	
				Kfs	41.0	vol%	カリ長石	他形（巨晶:30×15 ㎜）	パーサイト卓越		
				Bt	5.2	vol%	黒雲母	他形	リム部が Chl に部分的に置換		
				Chl	1.1	vol%	緑泥石	他形(黒雲母のリム部を置換)	粒間にあるものは細粒，黒雲母を置換する Chl は比較的粗大		
				Other	0.7	vol%	その他	Zr, Ill, Opq, allanite, Cal			
6	06MI03 号孔 304mabh	495	−294	Qtz	29.4	vol%	石英	半自形～他形	波状消光　包有物(Bt, Pl, Zr, Apt)		
				Pl	29.0	vol%	斜長石	半自形～他形	顕著なソーシュライト化+Bt, Chl および Hb の包有物	リム部:ミルメカイト	
				Kfs	29.2	vol%	カリ長石	他形（巨晶:30×15 ㎜）	パーサイト卓越		
				Bt	9.9	vol%	黒雲母	他形	リム部が Chl に部分的に置換　含有物:Opq, Zr	石英と接する Bt 外側にハロー	
				Chl	1.4	vol%	緑泥石	他形(黒雲母のリム部を置換)	粒間にあるものは細粒，黒雲母を置換する Chl は比較的粗大		
				Hb	0.2	vol%	ホルンブレンド	自形	クラックに沿って Chl 化		
				Other	0.8	vol%	その他	Zr, Ill, Opq, allanite, Cal	マイクロクラックに沿ってカルサイト脈が卓越		
7	06MI03 号孔 309mabh	500	−299	Qtz	32.6	vol%	石英	半自形～他形　（巨晶:25×20 ㎜）	波状消光　包有物(Bt, Pl, Zr, Apt)		
				Pl	28.1	vol%	斜長石	半自形～他形	顕著なソーシュライト化+Bt, Chl および Hb の包有物	リム部:ミルメカイト	
				Kfs	27.6	vol%	カリ長石	他形	パーサイト卓越		
				Bt	8.0	vol%	黒雲母	他形	リム部が Chl に部分的に置換　含有物:Opq, Zr	BtとChl の変質関係を観察するのに良試料	
				Chl	2.1	vol%	緑泥石	他形(黒雲母のリム部を置換)	粒間にあるものは細粒，黒雲母を置換する Chl は比較的粗大		
				Hb	0.2	vol%	ホルンブレンド	自形	クラックに沿って Chl 化		
				Other	1.5	vol%	その他	Zr, Ill, Opq, allanite, Cal	マイクロクラックに沿ってカルサイト脈が卓越		
8	06MI03 号孔 314mabh	505	−304	Qtz	30.3	vol%	石英	半自形～他形	波状消光　包有物(Bt, Pl, Zr, Apt)		
				Pl	29.3	vol%	斜長石	半自形～他形　（巨晶:20×10 ㎜）	顕著なソーシュライト化+Bt, Chl および Hb の包有物	リム部:ミルメカイト	
				Kfs	27.4	vol%	カリ長石	他形	パーサイト卓越		
				Bt	8.6	vol%	黒雲母	他形	リム部が Chl に部分的に置換　含有物:Opq, Zr	BtとChl の変質関係を観察するのに良試料	
				Chl	3.2	vol%	緑泥石	他形(黒雲母のリム部を置換)	粒間にあるものは細粒，黒雲母を置換する Chl は比較的粗大		
				Other	1.2	vol%	その他	Zr, Ill, Opq, allanite, Cal	変質が非常に顕著な薄片		

Qtz（石英）、Pl（斜長石）、Kfs（カリ長石）、Chl（緑泥石）、Zr（ジルコン）、Apt（アパタイト）、Ill（イライト）、Opq（暗色鉱物）、Alla（褐廉石）、Cal（カルサイト）

表 6　サンプル No.1 から No.12 までの岩石記載（その 3）

〈試料名〉		〈深度 (m)〉	〈標高 (m)〉	〈構成鉱物とモード〉			〈岩石記載〉					岩相
9	06MI03 号孔 319mabh	510	−309	Qtz	26.7	vol%	石英	半自形～他形	波状消光	包有物(Bt, Pl, Zr, Apt)		ホルンブレンド黒雲母花崗岩
				Pl	30.3	vol%	斜長石	半自形～他形　（巨晶:20×10 ㎜）	顕著なソーシュライト化+Bt, Chl および Hb の包有物		リム部:ミルメカイト	
				Kfs	30.7	vol%	カリ長石	他形（巨晶:30×15 ㎜）	パーサイト卓越			
				Bt	10.3	vol%	黒雲母	他形	リム部が Chl に部分的に置換	含有物:Opq, Zr		
				Chl	0.9	vol%	緑泥石	他形（黒雲母のリム部を置換）	粒間にあるものは細粒，黒雲母を置換する Chl は比較的粗大			
				Hb	0.3	vol%	ホルンブレンド	自形	クラックに沿って Chl 化			
				Other	0.8	vol%	その他	Zr, Ill, Opq, allanite, Cal	Pl コアが Chl の比較的粗大結晶に置換			
10	06MI03 号孔 324mabh	515	−314	Qtz	30.0	vol%	石英	半自形～他形	波状消光	包有物(Bt, Pl, Zr, Apt)		
				Pl	24.8	vol%	斜長石	半自形～他形	顕著なソーシュライト化+Bt, Chl および Hb の包有物		リム部:ミルメカイト	
				Kfs	37.3	vol%	カリ長石	他形（巨晶:30×15 ㎜）	パーサイト卓越			
				Bt	6.3	vol%	黒雲母	他形	リム部が Chl に部分的に置換	含有物:Opq, Zr		
				Chl	0.7	vol%	緑泥石	他形（黒雲母のリム部を置換）	粒間にあるものは細粒，黒雲母を置換する Chl は比較的粗大			
				Hb	0.3	vol%	ホルンブレンド	12 試料中最下限で産出　自形	クラックに沿って Chl 化			
				Other	0.7	vol%	その他	Zr, Ill, Opq, allanite, Cal				
11	06MI03 号孔 329mabh	520	−319	Qtz	32.2	vol%	石英	半自形～他形	波状消光	包有物(Bt, Pl, Zr, Apt)		黒雲母花崗岩
				Pl	32.3	vol%	斜長石	半自形～他形	顕著なソーシュライト化+Bt, Chl および Hb の包有物		リム部:ミルメカイト	
				Kfs	29.5	vol%	カリ長石	他形（巨晶:27×14 ㎜）	パーサイト卓越			
				Bt	4.3	vol%	黒雲母	他形	リム部が Chl に部分的に置換	含有物:Opq, Zr	Bt, Chl, Opq の複合体	
				Chl	1.0	vol%	緑泥石	他形（黒雲母のリム部を置換）	粒間にあるものは細粒，黒雲母を置換する Chl は比較的粗大			
				Other	0.8	vol%	その他	Zr, Ill, Opq, allanite, Cal 脈	鉱物全般で dusty			
12	06MI03 号孔 334mabh	525	−324	Qtz	25.7	vol%	石英	半自形～他形	波状消光	包有物(Bt, Pl, Zr, Apt)		
				Pl	31.3	vol%	斜長石	半自形～他形	顕著なソーシュライト化+Bt, Chl および Hb の包有物		リム部:ミルメカイト	
				Kfs	37.0	vol%	カリ長石	他形	パーサイト卓越			
				Bt	3.6	vol%	黒雲母	他形	リム部が Chl に部分的に置換	含有物:Opq, Zr		
				Chl	1.5	vol%	緑泥石	他形（黒雲母のリム部を置換）	粒間にあるものは細粒，黒雲母を置換する Chl は比較的粗大			
				Other	0.9	vol%	その他	Zr, Ill, Opq, allanite, Cal 粒子と Cal 脈	鉱物全般で dusty			

Qtz（石英）、Pl（斜長石）、Kfs（カリ長石）、Chl（緑泥石）、Zr（ジルコン）、Apt（アパタイト）、Ill（イライト）、Opq（暗色鉱物）、Alla（褐廉石）、Cal（カルサイト）

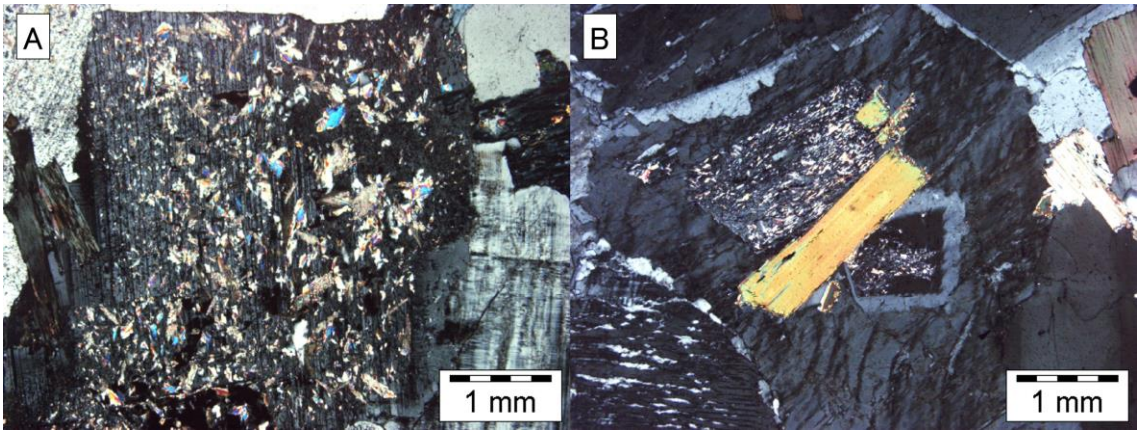


図 12　コアからリムの広範囲に発達する斜長石のソーシュライト化

A.　サンプル No. 8　　B.　サンプル No. 9（偏光顕微鏡写真）

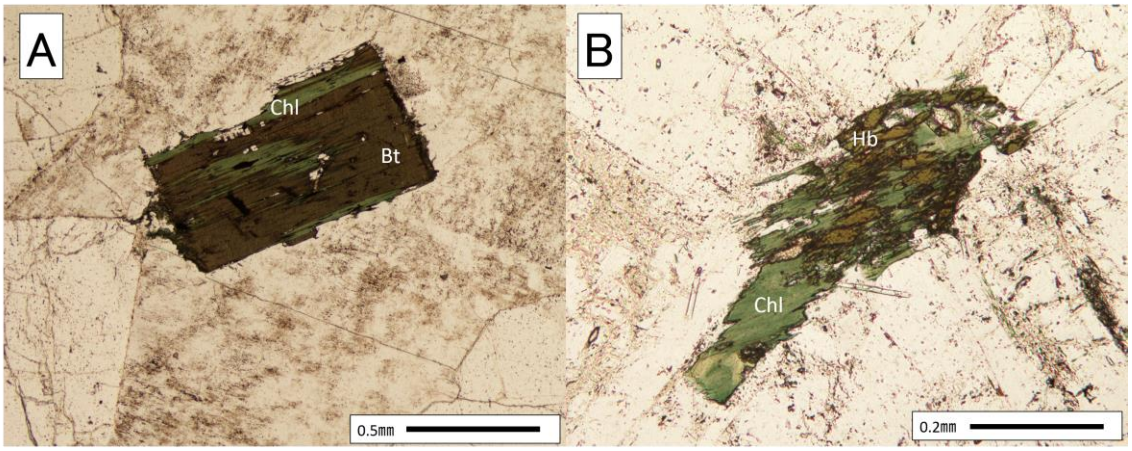


図 13　サンプル中で観察される緑泥石化（偏光顕微鏡写真）

A.　黒雲母の緑泥石化（サンプル No. 5）　　B.　角閃石の緑泥石化（サンプル No. 5）

3.2.3.2　緑泥石化

サンプル No.1 から No.12 の観察において、緑泥石化には複数の産状（タイプ）が観察される。以下に緑泥石化のタイプ区分、およびタイプごとの温度条件について記述する。次にパラメータとしての可能性について検討する。

3.2.3.2.1　緑泥石化のタイプ分けと記載

緑泥石化には 3 種類に大別される。黒雲母の緑泥石化、ホルンブレンドの緑泥石化ならびに充填緑泥石化である（図 14）。

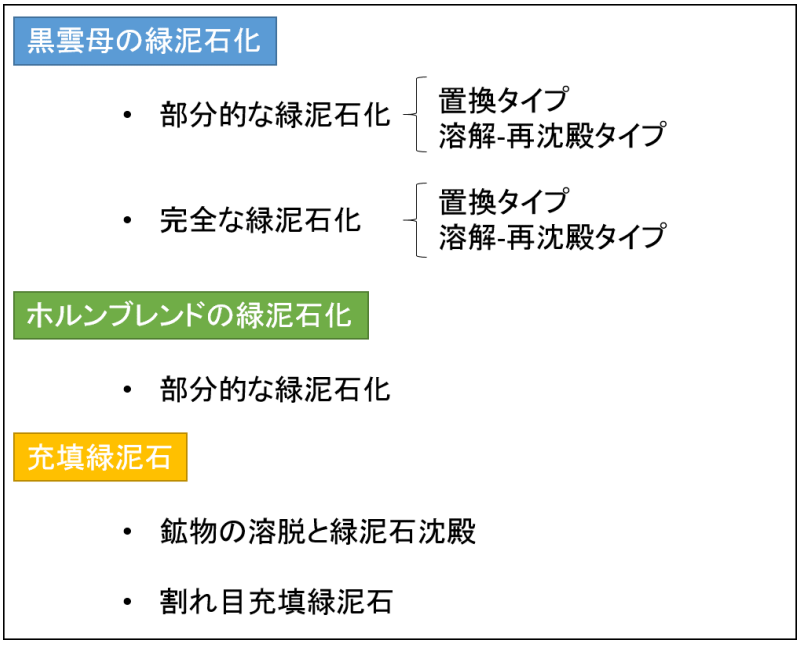


図 14　緑泥石化のタイプ区分

黒雲母の緑泥石化には、部分的な緑泥石化および完全な緑泥石化が報告されている（Yuguchi et al., 2015）。また最新の知見（石井ほか，2018）では黒雲母のフレームを引き継いで緑泥石に転移（置換）したタイプと、黒雲母の溶解-再沈殿により、完全な溶液から緑泥石が形成されたタイプの 2 つのパターンが報告されている。このため黒雲母の緑泥石化には 4 つのタイプが存在する（図 14）。置換タイプと溶解-再沈殿タイ

プの相違は、緑泥石にチタンが含有されるかで識別できる（石井ほか，2018）。チタンを含有するのは置換タイプで、もともとの黒雲母のフレームを引き継ぐため、黒雲母に含まれるチタンが緑泥石中にも残留する。一方、溶解-再沈殿タイプは完全な溶解を経験するため、黒雲母由来のチタンを含まない。また黒雲母の緑泥石化には複数の付随鉱物を伴う。付随鉱物として、チタナイト、イルメナイト、カリ長石、蛍石が観察される（図 13）。黒雲母、緑泥石およびこれらの付随鉱物の化学組成を表 7 に示す。黒雲母の緑泥石化に伴う本質的な物質移動としてはアルミニウム、鉄、マンガン、カルシウムの流入とケイ素、カリウム、フッ素の流出を伴う（Yuguchi et al., 2015）。

ホルンブレンドの緑泥石化はサンプル No.1 から No.10 までの試料で観察される。ホルンブレンドの緑泥石化はへき開から進行し、ホルンブレンドはいくつかの領域に分裂し、その間を緑泥石が埋める（図 15）。ホルンブレンドが完全に緑泥石化している産状は観察されない。ホルンブレンドの緑泥石化にも反応の過程で生じた複数の付随鉱物を伴う。付随鉱物として、チタナイトや石英が観察される（図 16）。このホルンブレンドの緑泥石化に対して、反応式を構築する。反応式構築に係るホルンブレンド、緑泥石およびこれらの付随鉱物の化学組成を表 8 に示す。反応式構築により、以下のような開いた系における物質の流入出を明らかにすることが出来る：

ホルンブレンド + 流入成分 → 緑泥石 ＋ チタナイト ＋ 石英 ＋ 流出成分

反応式構築には、いくつかの保存則が必要となる。ホルンブレンドの係数を 1 とすると、未知の係数は緑泥石、チタナイト、石英の 3 つであり、3 つの方程式が必要となる。1 つ目は反応物と生成物の間での体積保存、2 つ目は生成物である緑泥石とチタナイトの面積比、3 つ目は緑泥石と石英の面積比である。

1 つ目の体積分率は、化学組成より表 8 のように示される。緑泥石、チタナイト、石英の係数を a, b, c とすると以下の関係が成り立つ。

$$279.073 = 212.098a + 159.212b + 56.129c \ldots(1)$$

次に各鉱物間の面積（体積）比を明らかにする。面積比の導出には、Adobe Photoshop の画像処理ソフトと Scion image の二値化ソフトを用いる。図 17 は画像処理の手順を示したものである。まず対象鉱物以外の領域を暗色化（図 17A）、変質領域（緑泥石、チタナイト、石英）以外の領域を暗色化（図 17B）、石英以外の領域を暗色化（図 17C）、チタナイト以外の領域を暗色化（図 17D）し、それぞれの画像に対して、二値化することで面積比を算出する。その結果、以下の 2 式を導出出来る。

$212.098a$ ： $159.212b = 1850665$ ： 137973 …(2)

$212.098a$ ： $56.129c = 1850665$ ： 164527 …(3)

方程式（1）から（3）を解くことで、以下の反応式を得た。

$$Hb + 0.185H_4SiO_4 + 10.05H_2O + 0.158Ti^{2+} + 4.104Al^{3+} + 4.161Fe^{2+} + 0.121Mn^{2+} + 1.492Mg^{2+} \rightarrow 1.131Chl + 0.112Qtz + 0.380Ttn + 20.841H^{+} + 1.233Ca^{2+} + 0.968Na^{2+} + 0.190K^{+} + 0.201F^{-} + 0.068Cl^{-}$$

ホルンブレンドの緑泥石化に伴う本質的な物質移動としてはチタン、アルミニウム、鉄、マンガン、マグネシウムの流入とカルシウム、ナトリウム、カリウム、フッ素、塩素の流出を伴う。黒雲母の緑泥石化とアルミニウム、鉄、マンガンの流入とケイ素、カリウム、フッ素の流出は一致する。このことは、緑泥石化をもたらす熱水流体はアルミニウム、鉄、マンガンに富んでおり、緑泥石化に伴い、それらが消費される。また緑泥石化に進行に伴い流体中のケイ素、カリウム、フッ素は増大する。

充填緑泥石には 2 つのタイプが認められる。一つは何らかの鉱物の溶脱と緑泥石の沈殿である（図 18A）。このタイプの緑泥石と周囲の鉱物との境界は直線的なのが特徴である。もう一つは割れ目充填緑泥石である（図 18B）。充填緑泥石は、先に示した黒雲母の緑泥石化およびホルンブレンドの緑泥石化と比べて出現頻度は低い。特に割れ目には炭酸塩鉱物が充填することが多いが、少ない割合で割れ目充填緑泥石が観察される。充填緑泥石にも複数の付随鉱物を伴う。付随鉱物として、カリ長石が観察され

る（図 18)。充填緑泥石にはチタンがごく微量にしか含まれない（表 9)。これは充填緑泥石が溶解－再沈殿で生じたことを示唆する。

3.2.3.2.2　緑泥石化のタイプごとの温度条件

3.2.3.2.1 において、全部で 3 種の緑泥石化が観察された。今後割れ目情報と比較検討を行うためのパラメータを抽出する上で、それぞれのタイプがどのような温度条件で生成されたかを示すことは重要となる。3 種類の緑泥石の化学組成を表 9 に示す。緑泥石温度計は一般的に四配位のアルミニウム含有量と結晶化温度の間に相関があることを利用し、緑泥石の結晶化温度を導出するための温度計である（例えば米田・前田、2008)。本研究では、Yuguchi et al. (2015)で用いた米田・前田、(2008）で提唱された緑泥石温度計を利用し、それぞれのタイプの生成温度に関して検討を行う。図 19 はタイプごとの生成温度を示した図である。黒雲母の緑泥石化の生成温度幅は 160℃から 400℃、ホルンブレンドの緑泥石化の生成温度条件は 230℃から 320℃、充填緑泥石は 280℃から 340℃の幅を持つ。それぞれの温度条件に大きな相違はなく、冷却する岩体中において同様の温度条件で緑泥石化が生じたことを示す。一方で黒雲母の緑泥石化の生成温度条件では 200℃以下を示すケースも認められる。このような温度条件は一般的な緑泥石生成温度からは低く、これらの値が妥当であるかの検討も今後必要となる。また 3 種を比較する上でデータ数も少なく、データの拡充によりさらなる議論が可能となる。

3.2.3.2.3　パラメータとしての可能性（面積比の議論）

変質現象の発達の程度のパラメータとして、本報告ではオリジナル鉱物（黒雲母）と変質領域の面積比を提案し、その導出方法の検討を行う。面積比はソフトウェア Adobe Photoshop と Scion image を用いた画像解析により導出する（図 20)。これ

は Adobe Photoshop による領域の選択と Scion image による二値化に基づく。手法としては、偏光顕微鏡像あるいは電子顕微鏡による組成像を取得し（図 20A）、Adobe Photoshop により黒雲母の緑泥石化を生じる粒子の周囲の領域を白(黒)色化する（図 20B）。次に Scion image により、粒子全体（黒雲母と緑泥石を含む）とその他の領域（白色領域）との二値化を行い、それぞれのピクセル数を取得する（図 20C）。さらに Scion image の色調分類機能を用いて、緑泥石領域(黒色領域)とその他の領域(黒雲母領域を含む白色領域)で二値化し、それぞれのピクセル数を取得する（図 20D）。なお緑泥石化に伴い付随して産出する鉱物（チタナイトなど）は緑泥石中に含む。スケールバーから 1 ピクセルあたりの面積（1 ピクセル = 0.713 μm^2）を導出し、黒雲母領域および緑泥石領域の面積を算出する（黒雲母領域面積：409,876 μm^2　緑泥石領域面積：95,391 μm^2）。現在緑泥石が観察される領域も元々は黒雲母が分布したことが推定される。このため変質の程度を示すパラメータとして、緑泥石領域を初生的な黒雲母領域（緑泥石領域と現在の黒雲母領域の和）で割った値を提案する。図 20 のケースでは 0.188 となる。つまり変質していない黒雲母では、この変質パラメータは 0 となり、完全に緑泥石化した黒雲母において変質パラメータは 1 となる。図 21 はその他 4 つのケースの変質パラメータを導出したものである。図 21B はホルンブレンドの緑泥石化を変質パラメータとして抽出したものである。サンプル中でホルンブレンドの割合は黒雲母のものより乏しい。パラメータとして活用するために 1 試料あたりどの程度の変質パラメータを抽出するべきなのかの検討も今後の課題となる。

上記の課題を検討しつつ、これらの緑泥石化に係る変質パラメータのデータを拡充し、このパラメータと肉眼で観察されるラージスケールの割れ目、顕微鏡サイズのマイクロスケールの割れ目との比較検討を実施する計画である。

表 7　サンプル中の黒雲母・ホルンブレンドの緑泥石化に伴う代表的な鉱物化学組成

Sample No.	06MI03 309mabh ④	06MI03 289mabh ③	06MI03 314mabh ①	06MI03 314mabh ②	06MI03 309mabh ⑧	06MI03 309mabh ⑧	06MI03 309mabh ③	06MI03 314mabh ①	06MI03 309mabh ④	06MI03 319mabh ②
Location	63	328	175	210	72	99	55	171	69	252
Altitude	−299.1m	−279.1m	−304.1m	−304.1m	−299.1m	−299.1m	−299.1m	−304.1m	−299.1m	−309.1m
Mineral	Bt core	Bt core	Chl core	Chl rim	Hb core	Hb rim	Ttn core	Ttn core	Il core	Kfs rim
(wt%)		−		−						
SiO_2	34.86	36.28	23.96	30.09	39.61	39.48	−	31.33	−	64.36
TiO_2	3.00	1.35	−	3.71	2.36	2.24	30.11	26.46	50.92	−
Al_2O_3	13.53	16.03	19.55	13.96	9.23	9.63	27.48	8.76	−	17.91
FeO	27.47	25.00	35.51	29.66	26.33	25.36	6.52	1.09	33.72	−
MnO	1.07	0.95	1.32	0.71	2.12	1.83	2.08	−	13.62	−
MgO	5.17	5.46	6.50	5.92	3.38	3.74	−	−	−	−
CaO	−	−	−	0.51	10.23	10.24	27.14	29.36	−	−
Na_2O	−	−	−	−	2.05	2.17	−	−	−	0.28
K_2O	9.45	9.66	−	3.79	0.90	0.90	−	−	−	16.13
F	0.57	0.55	0.22	0.06	0.27	0.36	1.37	1.66	−	−
Cl	0.08	0.03	0.02	0.07	0.11	0.15	−	0.01	−	−
Total	95.20	95.31	87.08	88.48	96.59	96.10	94.70	98.67	98.26	98.68
(atom)										
(anion)	22	22	28	28	23	23	5	5	3	8
Si	5.57	5.67	5.42	6.59	6.39	6.36	1.00	1.01	−	3.00
Ti	0.36	0.16	−	0.61	0.29	0.27	0.69	0.64	0.99	−
Al	2.55	2.95	5.21	3.61	1.76	1.83	0.26	0.33	−	0.98
Fe	3.67	3.27	6.72	5.43	3.55	3.42	0.06	0.03	0.73	−
Mn	0.15	0.13	0.25	0.13	0.29	0.25	−	−	0.30	−
Mg	1.23	1.27	2.19	1.93	0.81	0.90	−	−	−	−
Ca	−	−	−	0.12	1.77	1.77	0.97	1.01	−	−
Na	−	−	−	−	0.64	0.68	−	−	−	0.03
K	1.93	1.93	−	1.06	0.19	0.18	−	−	−	0.96
F	0.29	0.27	0.16	0.04	0.14	0.18	0.14	0.17	−	−
Cl	0.02	0.01	0.01	0.02	0.03	0.04	−	−	−	−
Total	15.77	15.38	19.79	19.48	15.69	15.66	3.02	3.02	2.02	4.98

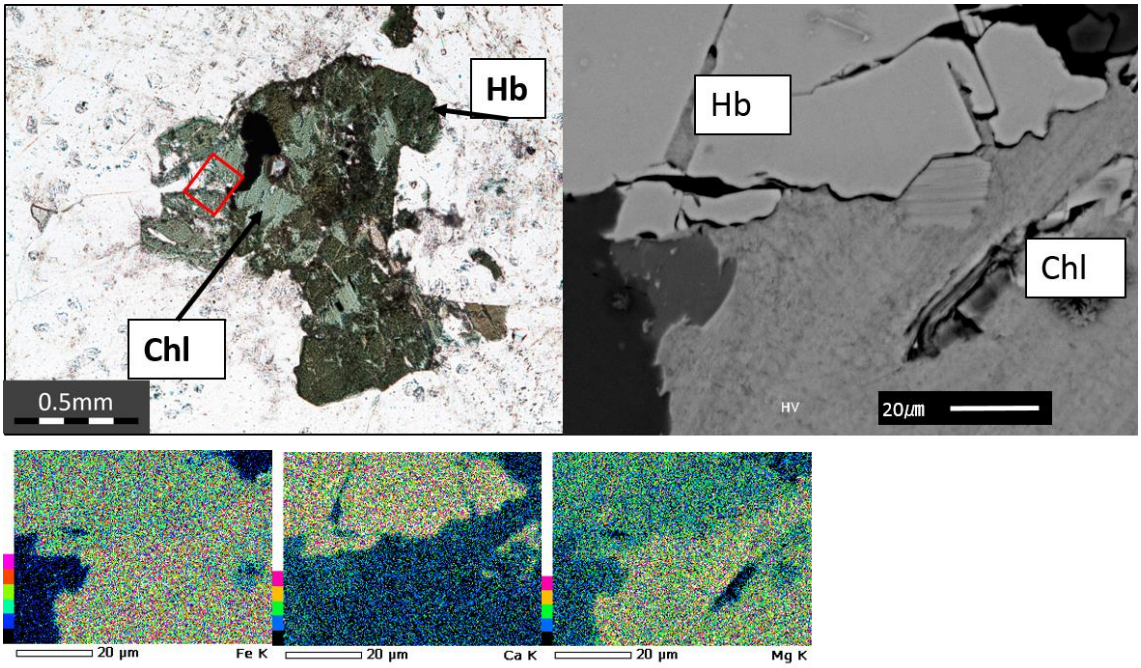


図 15　サンプル中で観察されるホルンブレンドの緑泥石化を示す偏光顕微鏡写真、組成像、化学組成マッピング

ホルンブレンドの緑泥石化はへき開から進行し、ホルンブレンドはいくつかの領域に分裂し、その間を緑泥石が埋める。

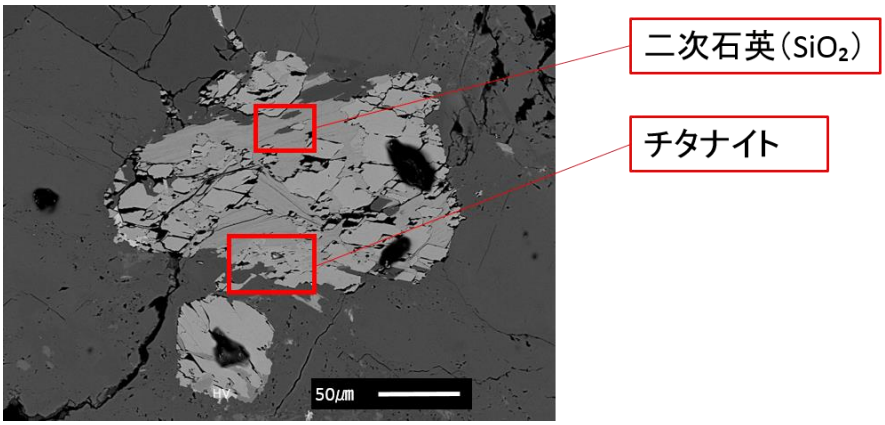


図 16　サンプル中で観察されるホルンブレンドの緑泥石化を示す組成像

緑泥石化の付随鉱物としてチタナイトと二次石英が産出する。

表 8　ホルンブレンドの緑泥石化の反応式構築に用いる鉱物化学組成

Mineral	Hb	Chl	Qtz	Ttn
SiO2	42.81	25.37	100.00	31.46
TiO2	0.98	0.07	0.00	27.3
Al2O3	9.44	19.56	0.00	6.01
FeO (total)	25.35	35.59	0.00	4.43
MnO	2.17	1.93	0.00	0
MgO	4.56	6.84	0.00	0.21
CaO	9.80	0.12	0.00	26.67
Na2O	3.30	0.05	0.00	0
K2O	1.14	0.10	0.00	0.17
F	0.50	0.01	0.00	0.97
Cl	0.26	0.00	0.00	0.02
cations and anions				
	23	28	2	5
Si	6.63	5.58	1.00	1.04
Ti	0.11	0.01	0.00	0.68
Al	1.72	5.07	0.00	0.23
Fe	3.28	6.54	0.00	0.12
Mn	0.29	0.36	0.00	0
Mg	1.05	2.24	0.00	0.02
Ca	1.63	0.03	0.00	0.95
Na	0.99	0.02	0.00	0
K	0.22	0.03	0.00	0.01
F	0.24	0.00	0.00	0.1
Cl	0.07	0.00	0.00	0
V* (cm^3/mol)	279.0727	212.0976	159.212	56.12867

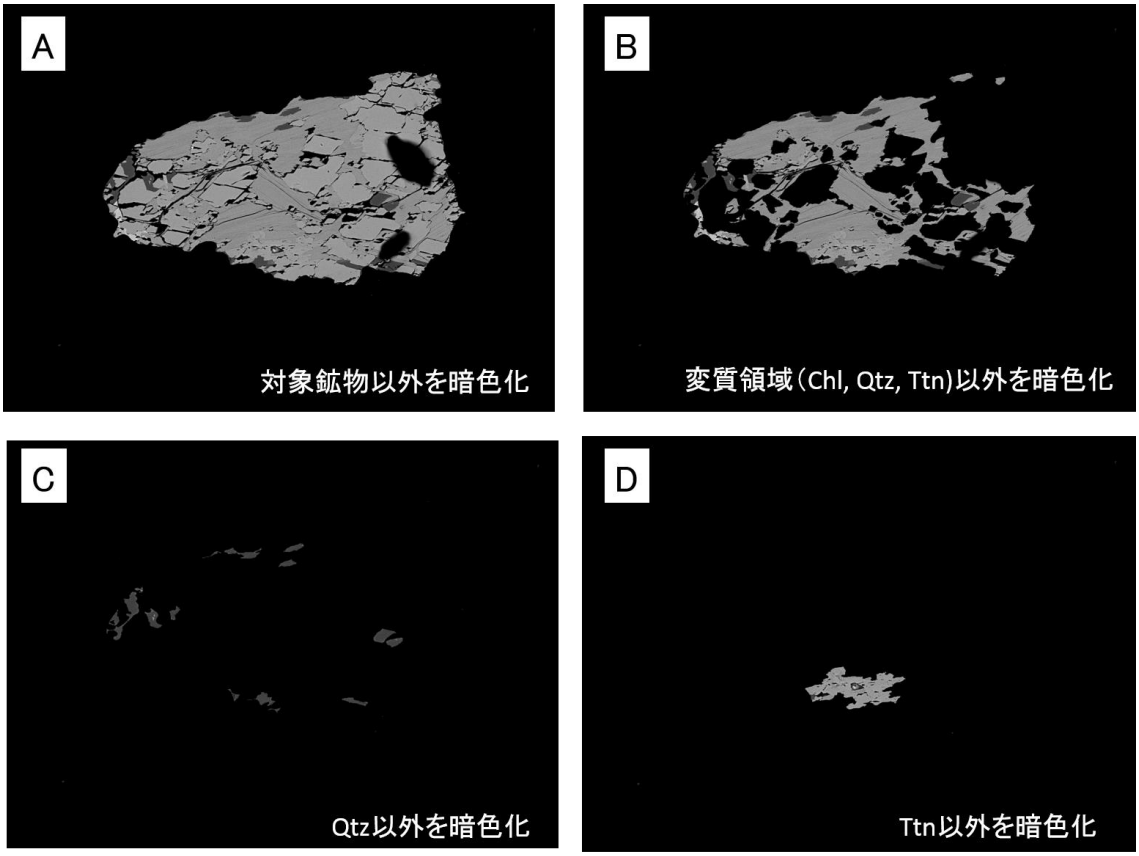


図 17　ホルンブレンドの緑泥石化の生成鉱物比を算出するための画像解析

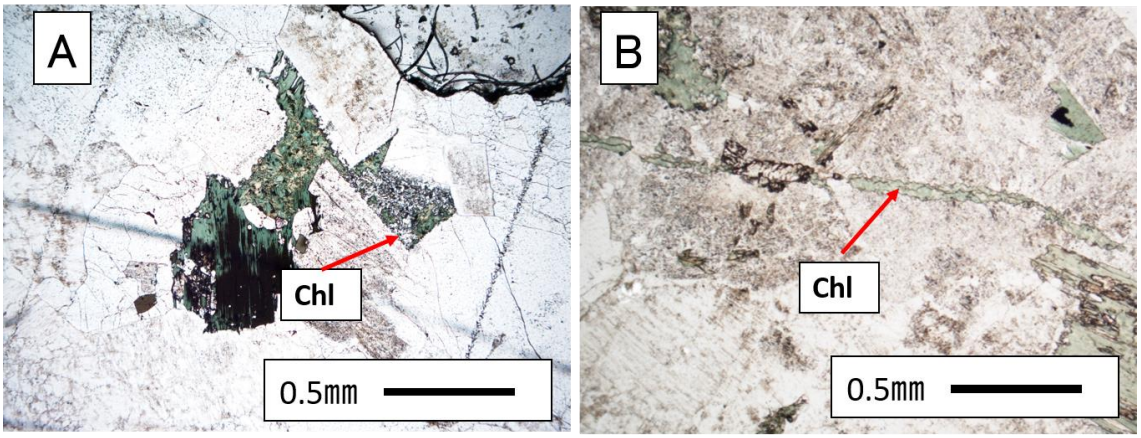


図 18　充填緑泥石の偏光顕微鏡写真

（A）鉱物の溶脱と緑泥石の沈殿　（B）割れ目充填緑泥石

表 9　3 種の緑泥石（黒雲母起源緑泥石、ホルンブレンド起源緑泥石、充填緑泥石）の化学組成

	黒雲母の緑泥石化				ホルンブレンドの緑泥石化				充填緑泥石		
									鉱物溶脱		割れ目
wt%	4	11	46	123	18	64	93	95	14	43	72
SiO2	27.07	25.02	24.38	24.64	25.12	26.76	27.36	24.26	24.84	24.53	24.15
TiO2	0.58	0.17	0.05	0.69	0.04	0.22	0.09	0.00	0.09	0.05	0.04
Al2O3	17.48	19.55	19.42	20.64	20.94	18.57	18.63	18.92	19.75	19.83	22.21
FeO	35.70	38.62	37.40	34.16	35.08	36.15	34.20	35.83	33.91	35.96	34.30
MnO	1.30	2.69	1.97	1.19	1.64	1.77	1.88	2.23	2.27	2.24	1.23
MgO	6.85	4.99	6.37	6.29	7.02	6.47	7.78	6.09	5.74	5.03	5.42
CaO	0.40	0.01	0.03	0.87	0.03	0.15	0.43	0.08	0.04	0.00	0.04
Na2O	0.13	0.00	0.05	0.09	0.01	0.07	0.08	0.00	0.02	0.00	0.07
K2O	0.32	0.03	0.07	0.05	0.00	0.62	0.20	0.04	0.28	0.30	0.03
F	0.18	0.05	0.03	0.00	0.00	0.00	0.01	0.21	0.02	0.10	0.05
Cl	0.00	0.02	0.05	0.00	0.03	0.04	0.07	0.02	0.00	0.05	0.00
Total	89.96	91.26	90.00	88.63	89.96	90.85	90.80	87.63	87.05	88.12	87.71
cations for 28 anions											
Si	5.93	5.52	5.42	5.44	5.47	5.82	5.88	5.52	5.61	5.54	5.38
Ti	0.10	0.03	0.01	0.11	0.01	0.04	0.02	0.00	0.02	0.01	0.01
Al	4.51	5.08	5.09	5.37	5.37	4.76	4.72	5.07	5.26	5.28	5.83
Fe	6.54	7.12	6.95	6.31	6.39	6.58	6.14	6.82	6.41	6.79	6.39
Mn	0.24	0.50	0.37	0.22	0.30	0.33	0.34	0.43	0.43	0.43	0.23
Mg	2.24	1.64	2.11	2.07	2.28	2.10	2.49	2.06	1.93	1.70	1.80
Ca	0.09	0.00	0.01	0.21	0.01	0.04	0.10	0.02	0.01	0.00	0.01
Na	0.06	0.00	0.02	0.04	0.01	0.03	0.03	0.00	0.01	0.00	0.03
K	0.09	0.01	0.02	0.01	0.00	0.17	0.05	0.01	0.08	0.09	0.01
F	0.12	0.03	0.02	0.00	0.00	0.00	0.01	0.15	0.01	0.07	0.04
Cl	0.00	0.01	0.02	0.00	0.01	0.02	0.03	0.01	0.00	0.02	0.00
Total	19.91	19.95	20.08	19.79	19.85	19.87	19.82	20.10	19.79	19.94	19.75

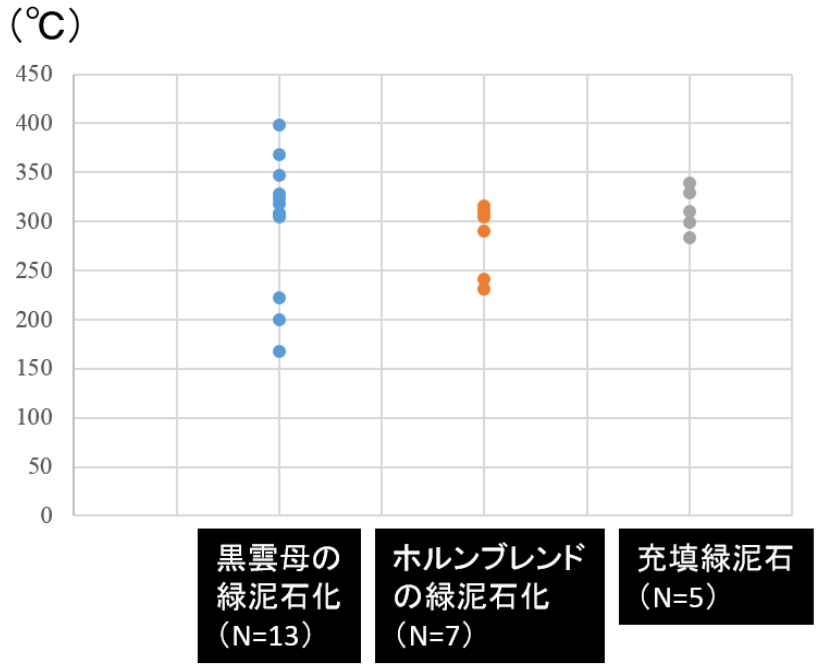


図 19　黒雲母起源緑泥石、ホルンブレンド起源緑泥石、充填緑泥石の生成温度

米田・前田（2008）の緑泥石温度計を用いて緑泥石生成温度を算出。

黒雲母の緑泥石化の生成温度幅は 160℃~400℃、ホルンブレンドの緑泥石化の生成温度条件は 230℃~320℃、充填緑泥石は 280℃~340℃の幅を持つ。それぞれの温度条件に大きな相違はなく、冷却する岩体中において同様の温度条件で緑泥石化が生じたことを示す。

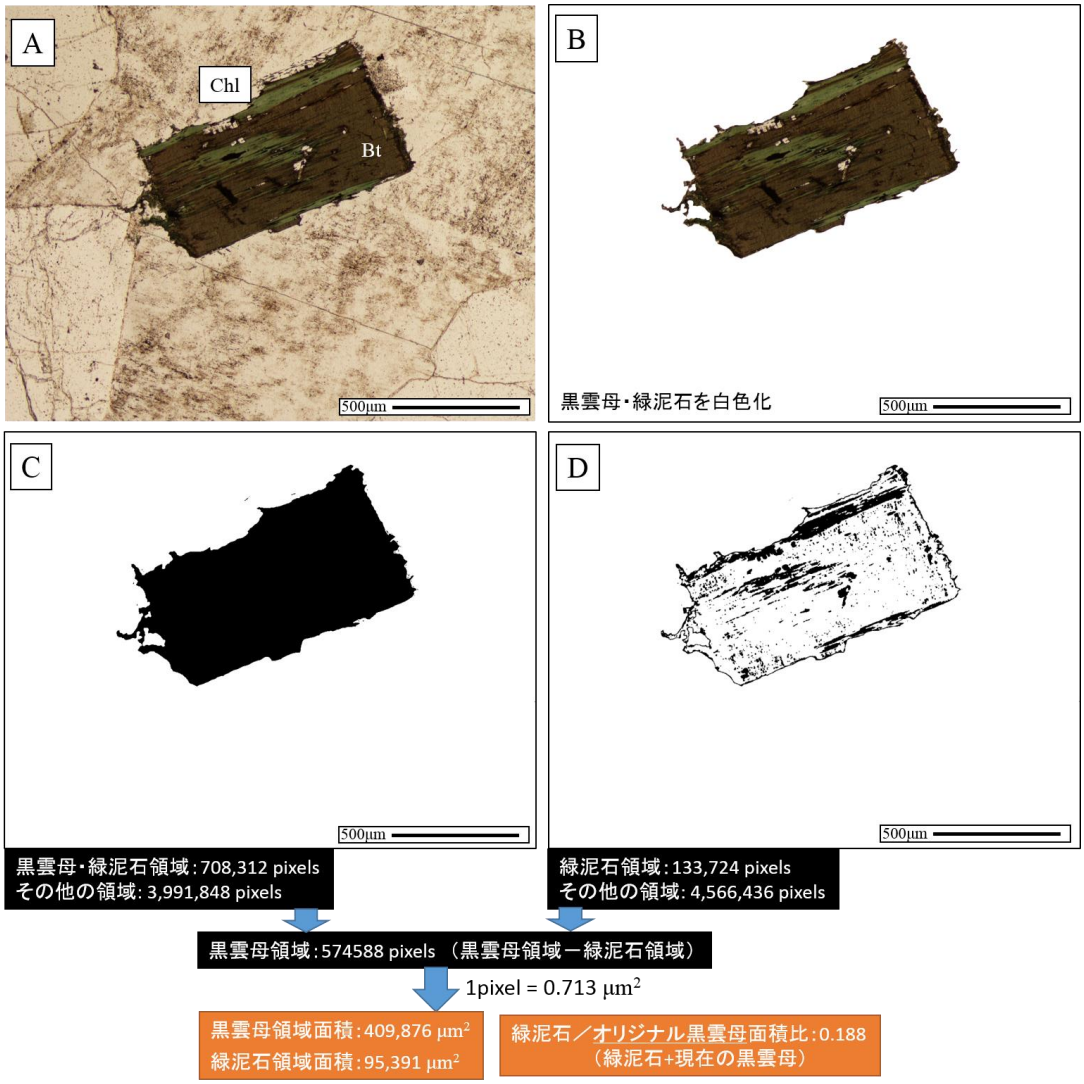


図 20　Adobe Photoshop / Scion image を用いた画像解析による

変質（黒雲母緑泥石化）パラメータの導出

（A）サンプル中の黒雲母の緑泥石化（オープンニコル）

（B）黒雲母と緑泥石化以外の領域を白色化

（C）黒雲母・緑泥石領域とそれ以外の領域で二値化し、それぞれのピクセル数を導出

（D）緑泥石領域とそれ以外の領域で二値化し、それぞれのピクセル数を導出。黒雲母領域、緑泥石領域および面積比を導出

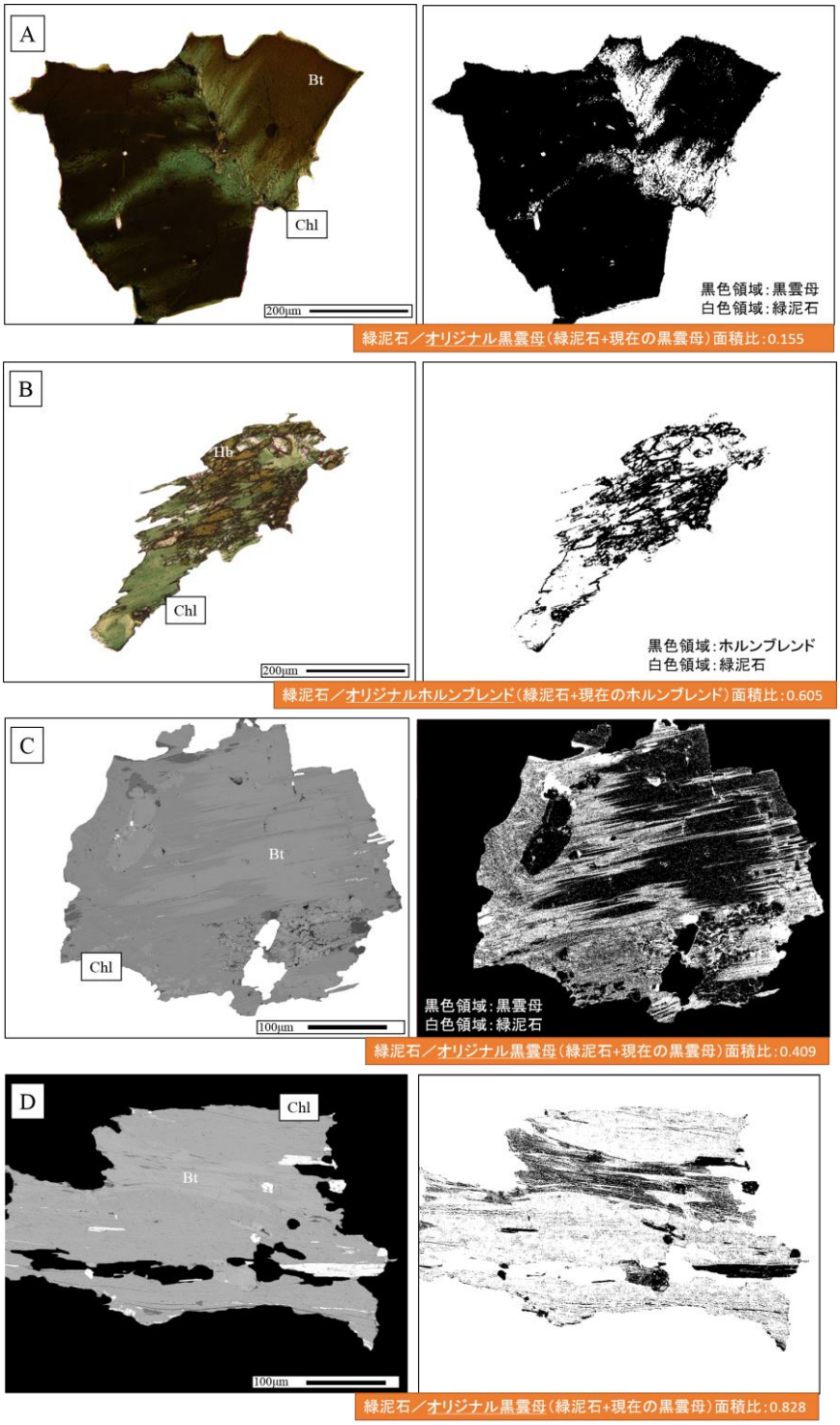


図 21　画像解析による変質パラメータの導出例（4 ケース）

（A）黒雲母の緑泥石化　（B）ホルンブレンドの緑泥石化（偏光顕微鏡写真）

（C）（D）黒雲母の緑泥石化（電子顕微鏡による組成像）

3.3　残された課題と今後の計画

本年度の研究を通じて、緑泥石化面積とオリジナルの初生的な黒雲母面積の比から、緑泥石化に係る変質パラメータを提案した。しかし変質パラメータとして確立するには、緑泥石化がどのようなメカニズムで生じるかを把握することが重要となる。黒雲母の緑泥石化、ホルンブレンドの緑泥石化、充填緑泥石の統合的な緑泥石化メカニズムを確立することを目指す。また、次年度は斜長石のソーシュライト化のパラメータ化、生成温度や年代条件の決定も実施する計画である。このソーシュライト化および緑泥石化を含めて、各試料での更なるデータの拡充が必要である。本年度対象とした試料（サンプル No.1–12）は低密度割れ目帯のものである。次年度は高密度割れ目帯の試料（サンプル No.A1–A13）および広域ボーリングから得られた温度時間履歴の既知の試料（サンプル No.B1–B15）を加えることで、緑泥石化およびソーシュライト化の変質パラメータの拡充を図り、その上でこれらの緑泥石化やソーシュライト化の中でどの現象が、サンプリング領域を代表するパラメータとして適切なのかの検討を行う。その上で、顕微鏡スケールのマイクロクラックおよび肉眼スケールの割れ目との関連について検討し、割れ目を評価するパラメータとしての有効性の評価を実施する。

4. まとめ

高レベル放射性廃棄物の地層処分の安全評価において、地下水シナリオを想定した場合、結晶質岩(花崗岩)では、割れ目が地下水流動や物質移動の経路になることから、その分布を知ることは重要な課題である。割れ目分布の将来変化を推定するためには、割れ目がどのように形成されたかを理解することが必要となる。そこで、本研究では花崗岩体の冷却過程に割れ目を形成する要因が隠されていることに着目し、岩石学的現象の理解を深め、花崗岩体中の現在の割れ目分布に加えて、将来的な割れ目発生の潜在性を評価する手法の構築を目指す。この課題解決のため、本研究では花崗岩体の冷却の際に生じる岩石学的現象に着目する。特に 700-300℃の温度条件で生じる熱水変質の程度のパラメータ化を実施する。変質パラメータと冷却を示す既存データ、割れ目頻度データ（顕微鏡スケールのマイクロクラックと肉眼スケールの割れ目）の比較を通じて、「規則性」を見出し、概要調査に際して効率的な評価手法を構築する。

本年度は、研究対象とする試料選定を実施した。選定に当たっては既存の割れ目情報を整理し、最終目標である熱水変質パラメータと割れ目との間の関連を議論するために、最も効率的な試料を選択する。瑞浪超深地層研究所の換気立坑（06MI03 号孔）では深度 460m を境として上部高密度割れ目帯と下部低密度割れ目帯が分布する。割れ目低密度帯に位置するサンプル No.1～12、割れ目の高密度帯に位置するサンプル No.A1～A13 を研究対象として選択した。また Yuguchi et al. (2019)による温度時間履歴既知の試料（サンプル No.B1～B15）を研究対象とした。得られた試料は、観察や分析に資する薄片に成形した。その後、STEP1「熱水変質現象の記載岩石学的研究」と STEP2「熱水変質現象の生成温度・年代の決定」に着手した。花崗岩体中の変質には、普遍的に緑泥石化、斜長石のソーシュライト化の 2 つの変質現象が観察される。本年度は特に緑泥石化に着目し、岩石記載と化学分析、温度条件の決定を実施し、変質パラメータの導出に関して検討を行った。

割れ目低密度帯に位置するサンプル No.1～12 では、3 種類の緑泥石化が観察される。そ

れは黒雲母の緑泥石化、ホルンブレンドの緑泥石化ならびに充填緑泥石化である。ホルンブレンドの緑泥石化に対して、反応式を構築し、緑泥石化をもたらす物質移動について明らかにした。ホルンブレンドの緑泥石化に伴う本質的な物質移動としてはチタン、アルミニウム、鉄、マンガン、マグネシウムの流入とカルシウム、ナトリウム、カリウム、フッ素、塩素の流出を伴う。黒雲母の緑泥石化に伴う本質的な物質移動としてはアルミニウム、鉄、マンガン、カルシウムの流入とケイ素、カリウム、フッ素の流出を伴う（Yuguchi et al., 2015）。つまり、ホルンブレンドの緑泥石化と黒雲母の緑泥石化では、アルミニウム、鉄、マンガンの流入とケイ素、カリウム、フッ素の流出は一致する。黒雲母の緑泥石化、ホルンブレンドの緑泥石化および充填緑泥石の生成温度は概ね 200℃から 350℃の幅で一致する。このことは、それぞれの温度条件に大きな相違はなく、冷却する岩体中において同様の温度条件で緑泥石化が生じたことを示す。つまり、この温度条件において、緑泥石化をもたらす熱水流体はアルミニウム、鉄、マンガンに富んでおり、緑泥石化に伴い、それらが消費される。また緑泥石化に進行に伴い流体中のケイ素、カリウム、フッ素は増大することを示す。

変質現象の発達の程度のパラメータとして、本報告ではオリジナルの初生鉱物（黒雲母）と変質領域（緑泥石）の面積比を提案し、その導出方法について提示した。変質していない黒雲母では、この変質パラメータは 0 となり、完全に緑泥石化した黒雲母において変質パラメータは 1 となる。今後は、これらの緑泥石化に係る変質パラメータのデータを拡充し、このパラメータと肉眼で観察されるラージスケールの割れ目、顕微鏡サイズのマイクロスケールの割れ目との比較検討を実施する計画である。

引用文献

石橋正祐紀，笹尾英嗣，2016．研究坑道におけるボーリング調査によって確認された割れ目データ集．JAEA-Data/Code 2016-009, 10pp.

石井貴大，小暮敏博，菊池亮佑，宮脇律郎，湯口貴史．2018．熱水変質による花崗岩中黒雲母の緑泥石化機構の再考．日本鉱物科学会 2018 年年会

Japan Nuclear Cycle Development Institute (2000) Regional Hydrogeological Study Project Result from 1992-1999. JNC Technical Report, JNC TN7400 2003-007, Tono Geoscience Center.

Japan Nuclear Cycle Development Institute (2002) Master Plan of the Mizunami Underground Research Laboratory Project. JNC Technical Report. JNC TN7410 2003-001, Tono Geoscience Center.

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構，平成 29 年度地層処分技術調査等事業・地質環境長期安定性評価確証技術開発報告書，http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2017/29fy_tyoukiannteisei_honnbunn.pdf，2018 年 12 月 5 日閲覧.

Nishimoto, S., Yoshida, H. 2010. Hydrothermal alteration of deep fractured granite: Effects of dissolution and precipitation. Lithos, 115, 153-162.

西本昌司，鵜飼恵美，天野健治，吉田英一，2008．地下深部花崗岩の変質プロセス解析 ：土岐花崗岩を例にして．応用地学雑誌，49，94-104.

鶴田忠彦，竹内真司，竹内竜史，水野崇，大山卓也，2008．瑞浪超深地層研究所における立坑内からのパイロットボーリング調査報告書．JAEA-Research 2008-098 81pp.

上野孝志，徳安真吾，川本康司，窪島光志，石橋正祐紀，鶴田忠彦，笹尾英嗣，池田 幸喜，見掛信一郎，原郁夫，山本勝，2012．超深地層研究所計画,瑞浪超深地層研究所; 研究坑道におけるボーリングデータ集．JAEA-Data/Code 2012-008, 136pp.

米田哲朗，前田寛之，2008．熱水性鉱床に産する緑泥石の化学組成と緑泥石地質温度計の適用性．Journal of MMJ，124，694-699.

Yuguchi, T., Sasao, E., Ishibashi, M. and Nishiyama, T. 2015. Hydrothermal chloritization process from biotite in the Toki granite, Central Japan: Temporal variation of chemical characteristics in hydrothermal fluid associated with the chloritization. American Mineralogist, 100, 1134-1152.

Yuguchi, T., Sueoka, S., Iwano, H., Izumino, Y., Ishibashi, M., Danhara, T., Sasao, E. Hirata, T., Nishiyama, T. 2019. Region-by-region cooling paths within the Toki granite, central Japan: their constrained factors and the relation with fracture population in a pluton. Journal of Asian Earth Sciences,169, 47-66.

Yuguchi, T., Tagami, M., Tsuruta, T., Nishiyama, T. 2012. Three-dimensional fracture distribution in relation to local cooling rate in a granitic body: An example from the Toki granitic pluton, Central Japan. Engineering Geology 149–150, 35–46.

湯口貴史，鶴田忠彦，西山忠男，2010．中部日本土岐花崗岩体の岩相と化学組成の累帯変化，岩石鉱物科学, 39, 50-70.

Yuguchi, T., Tsuruta, T., Nishiyama, T. 2011A. Three-dimensional cooling pattern of a granitic pluton I: The study of exsolution sub-solidus reactions in the Toki granite, Central Japan. Journal of Mineralogical and Petrological Sciences, 106, 61-78.

Yuguchi, T., Tsuruta, T., Nishiyama, T. 2011B. Three-dimensional cooling pattern of a granitic pluton II: The study of deuteric sub-solidus reactions in the Toki granite, Central Japan. Journal of Mineralogical and Petrological Sciences, 106, 130-141.

Yuguchi, T., Tsuruta, T., and Nishiyama, T. 2013. The spatial variation of initial 87Sr / 86Sr ratios in the Toki granite, Central Japan: Implications for the intrusion and cooling processes of a granitic pluton. Journal of Mineralogical and Petrological Sciences. 108, 1-12.

Yuguchi, T., Sueoka, S., Iwano, H., Danhara, T., Ishibashi, M., Sasao, E. and Nishiyama, T., 2017. Spatial distribution of the apatite fission-track ages in the Toki granite, central Japan: Exhumation rate of a Cretaceous pluton emplaced in the East Asian continental margin. Island Arc, 26, 1-15.

研究報告 4

飽和度の変化に伴う堆積岩の変形異方性と放射性廃棄物の合理的な埋設方法に関する研究

埼玉大学　大学院理工学研究科

富樫　陽太

1. 背景・目的

高レベル放射性廃棄物の地層処分では，廃棄物を埋設する環境として周辺岩盤の変形が小さいことが求められる[1)]。そのため，処分坑道の掘削に伴って生じる掘削影響領域（EDZ）を定量的に把握することが極めて重要である。特に，堆積岩の地層が処分地として選択された場合には，掘削された坑道に大気が流入することで岩盤の乾燥収縮が進んで微細なクラックが生じることが懸念される。そのため，掘削による応力開放だけでなく，乾燥によって不飽和状態に変化していく岩盤坑道に生じる EDZ の評価が極めて重要となってきている。実際に，田中[2)]は，トンネルなどの岩盤構造物の安定性を議論するため，泥岩の乾燥収縮実験を行い，飽和度の変化に伴うひずみの進展を観察している。Ghortbani et al.[3)]は，地層処分や岩盤斜面の大規模崩壊のメカニズム解明のため，乾燥収縮過程における泥岩コアの超音波速度の変化を計測し，乾燥に伴って剛性が変化することを指摘している。

ところで，堆積岩は堆積構造に依存して方向によって異なる変形特性を示すことが知られている[4)]。このような堆積岩の地層に構造物を建造する場合には，その安定性を正確に評価するため，変形異方性を高精度に特定することが工学的に重要な課題となっている。特に地層処分においては，人工バリアや廃棄物そのものの高い安定性が要求される[1)]ので，上述した不飽和状態における EDZ の評価に加えて，変形異方性を正確に評価することが肝要である。このような背景から，長田と Adikaram[5)]は，層理方向とその直交方向にサンプリングした凝灰岩供試体を用い，乾燥収縮に伴うひずみの進展を測定するとともに，超音波速度の測定を行って飽和度と層理の方向に応じて変化する P 波 S 波速度を計測している。

以上のような検討が進められている一方で，異方性をもつ堆積岩の応力とひずみは非共軸なため特定の方向に変形が卓越することが考えられるが，そのような点に着目して検討を行った既往研究はほとんど見当たらない。異方性岩盤の最も剛性が大きい方向（異方性の主軸）とその構成パラメータを正確に特定することができれば，処分坑道の安定性評価に大きく寄与できるだけでなく，廃棄物の埋設方法に応用できる可能性があると考えられる。

そこで本研究では，掘削による乾燥にともなって不飽和状態に移行する堆積岩の異方的な力学挙動を詳細に把握し，異方性を考慮した高レベル放射性廃棄物の埋設方法へと応用することを目的として，室内試験やスイス・モンテリ岩盤研究所における現地計測を通して，飽和度によって変化する堆積岩の変形異方性を詳細に特定することを試みる。

研究代表者らの既往検討[4)]によって新第三紀の堆積岩の飽和状態での変形異

方性が特定されており，堆積層方向の剛性がその直交方向に比べ 1.5～2.7 倍大きいことが示されている。地層処分をはじめとする岩盤構造物の建設・保守においては, 岩盤の含水状態は必ずしも飽和しているとは限らない。本研究では, 研究代表者らが開発した三軸試験方法[6)]を用いて, 不飽和状態での変形異方性を正確に特定し，より実現象に近い詳細な岩盤剛性の評価を試みる。これに加え，本研究では，モンテリ岩盤研究所での湿度・気圧・温度の常時モニタリングをおこなって，掘削に伴う岩盤の含水状態の変化を取得する。これにより，掘削に伴って乾燥が進んで不飽和状態に変化していく領域を原位置において特定できると考えている。さらに，以上の成果に基づいて，有限要素法などを用いた変形シミュレーションを行って，坑道（トンネル）の変形特性を把握することで，地層処分における処分坑道の安定性評価や廃棄体の埋設方法に応用できる知見が得ていく。

2. 全体研究計画（3 ヵ年における全体計画）

平成 30 年度には，文献調査を行い，変形異方性や飽和度の変化に伴う岩石挙動に関する既往検討を整理し，実験条件や解析条件を決定するとともに，長田と Adikaram [5)]を参考に乾燥収縮実験を行い，乾燥に伴う変形メカニズムを詳細に観察する。試料は，スイス・モンテリ研究所で採取されたボーリングコア，田下凝灰岩やベレア砂岩などの明確な変形異方性が確認されている堆積岩を用いる。ここでは，岩石供試体の飽和度を効果的に調整する方法についても検討を行う。モンテリ岩盤研究所では，ボーリング深さの異なる水平孔のなかで湿度・気圧・温度の計測を常時行っており，この継続的なデータにより乾燥にともなって変化する岩盤の含水状態を長期に観察する。現地に行って計測器のメンテナンスなどを行うとともに，坑道の変形特性（内空変位，孔壁ひずみ）を測定する方法について検討を進める。

平成 31 年度には，平成 30 年度に行った検討や準備状況を踏まえ，研究代表者らが開発した三軸試験 [6)]により堆積岩供試体の圧密排気三軸圧縮試験を行って，掘削に伴う乾燥が進行していく状況を想定した不飽和変形異方性を特定する。開発方法による三軸試験の結果をとりまとめ，複数の堆積軟岩の最も剛性の大きい方向を特定するとともに，処分坑道の変形シミュレーションのためのパラメータ整理やメッシャーやソルバーの構築など，有限要素法における数値計算の環境整備を行う。モンテリ岩盤研究所の現地調査では，平成 30 年度に行ってきた計測を継続するとともに新規の計測器を随時設置する。また，計測器や計測システムは問題が生じれば更新し，長期のデータを確実に取得できるようにメンテナンスする。

平成 32 年度には，平成 31 年度に環境整備した数値解析の実施を通して，処分抗の掘削および高レベル放射性廃棄物の埋設に伴う堆積岩地層の主ひずみ方向を分析し，岩盤の最も硬い方向の変化を捉えていく。モンテリ岩盤研究所の現地計測では，引き続き長期計測を続けるとともに計測器のメンテナンスを随時行う。最後に得られた成果を整理するとともに，地層処分事業に応用できる知見として取りまとめる

図 1 には研究の全体計画を示している。

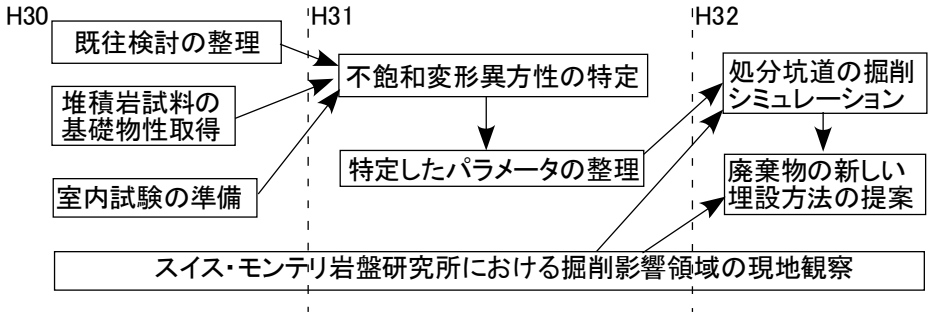

H30
H31
H32
既往検討の整理
堆積岩試料の
基礎物性取得
室内試験の準備
不飽和変形異方性の特定
特定したパラメータの整理
処分坑道の掘削
シミュレーション
廃棄物の新しい
埋設方法の提案
スイス・モンテリ岩盤研究所における掘削影響領域の現地観察

図 1　研究の全体計画

3. 平成 30 年度研究実施内容

3.1 実施方法

(1) 文献調査

Science Direct などの学術雑誌プラットフォームを利用し，変形異方性や乾燥収縮の検討に関する文献調査を行い，既往検討を整理し，次年度以降に実施する実験や解析の条件を整理する。

(2) 乾燥収縮試験

図 2 に示す堆積岩から作製した円柱供試体を用いて，**図 3** に示す乾燥収縮実験を行う。この試験は，飽和状態の岩石供試体を気乾させ，その変形量と質量の変化を計測するものである [5)]。長田ら [5), 7)-12)]による検討によれば，乾燥収縮時の供試体の境界条件は，直応力とせん断応力が作用せず（$\sigma_{ij} = \sigma_{ii} = 0$ ($i,j = X, Y, Z$)），毛管圧力 p だけが等方的に作用する条件になる。供試体は地盤工学会基準 [13)]に従って 48 時間以上浸水させ飽和状態として，気乾による変形を計測するとともに水分の蒸発量を小数点下二桁まで測定可能な電子天秤（島津製作所 TX3202N）で測定した。

図 2　田下凝灰岩供試体（直径 50mm，高さ 100mm）

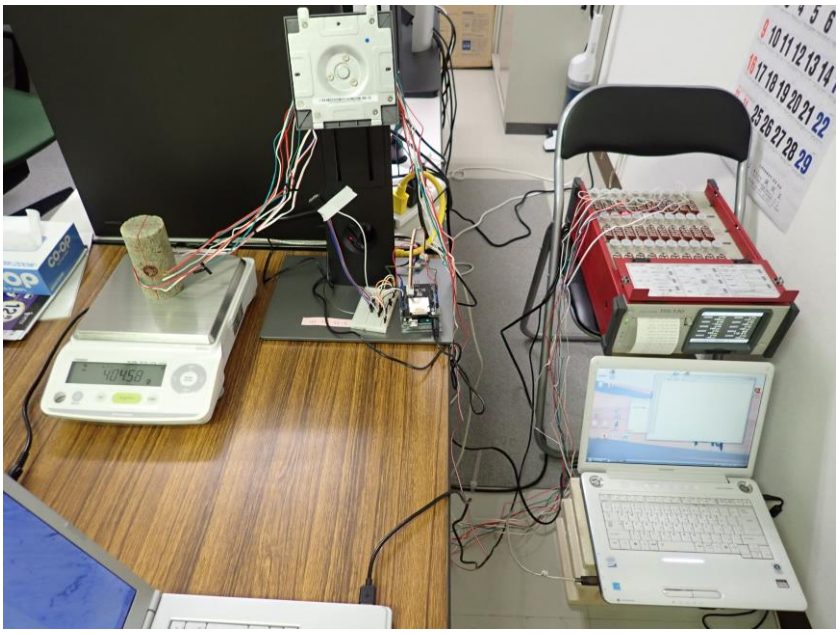


図 3　乾燥収縮実験の様子

ここでは，**図 4** に一例を示すように，供試体側面に 3 枚～9 枚のロゼットゲージ（東京測器，FRA-10T-11 と FRA-10T-11-3TLJBT を併用）を貼りつけて 3 次元のひずみテンソルを測定することで詳細に変形を計測している。いま層理の傾斜 ξが X 軸の回転のみで表されるように直交座標系（X, Y, Z）を設定すると，9 枚のひずみゲージ（3 枚のロゼットゲージ）で計測した直ひずみ成分 x^{n} $(n = 1 \sim 9)$と列ベクトルで成分表示した微小ひずみテンソルε_{ij} （$i, j = X, Y, Z$）の関係は次式で表される [4].

$$\boldsymbol{\varepsilon} = (\mathbf{E}^{\mathrm{T}}\mathbf{E})^{-1}\mathbf{E}^{\mathrm{T}}\mathbf{x} \tag{1}$$

ここに，

$$\mathbf{x}^{\mathrm{T}} = \begin{pmatrix} x^1 & x^2 & x^3 & x^4 & x^5 & x^6 & x^7 & x^8 & x^9 \end{pmatrix}$$

$$\boldsymbol{\varepsilon}^{\mathrm{T}} = \begin{pmatrix} \varepsilon_{\mathrm{XX}} & \varepsilon_{\mathrm{YY}} & \varepsilon_{\mathrm{ZZ}} & 2\varepsilon_{\mathrm{XY}} & 2\varepsilon_{\mathrm{ZY}} & 2\varepsilon_{\mathrm{ZX}} \end{pmatrix}$$

である．また，E は 9 枚のひずみゲージの単位方向ベクトルから定まる 9 行 6 列の行列で，本研究の座標軸の設定において次式で与えられる．

$$
\mathbf{E} = \begin{pmatrix}
0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 \\
0.75 & 0.25 & 0 & -0.43 & 0 & 0 \\
0.38 & 0.13 & 0.5 & -0.22 & -0.25 & 0.43 \\
0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 \\
0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\
0 & 0.5 & 0.5 & 0 & 0.5 & 0 \\
0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 \\
0.75 & 0.25 & 0 & 0.43 & 0 & 0 \\
0.38 & 0.13 & 0.5 & 0.22 & -0.25 & -0.43
\end{pmatrix}
$$

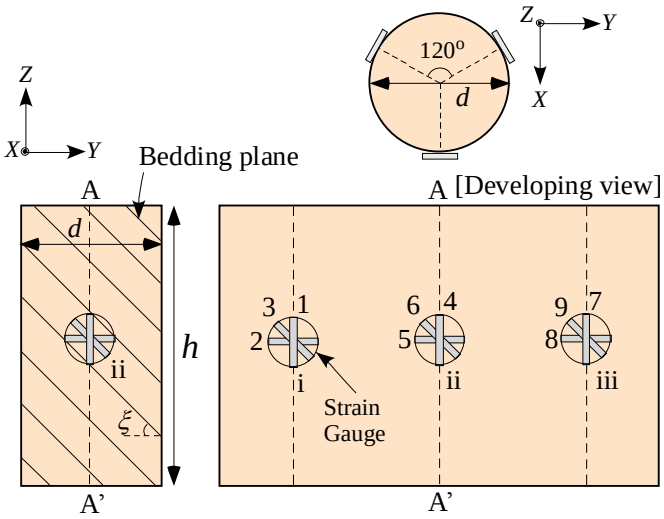


図 4　ひずみゲージの貼付け方法の一例

式(1)は計測値 **x** からひずみテンソル成分 **ε** を最小二乗法により定めているため，ひずみゲージの枚数が多いほど測定誤差や電気ノイズによる許容誤差の影響を低減する効果を期待できる．式(1)で得たひずみテンソルを対角化して三主ひずみおよび主ひずみ方向を取得して，考察を加えていく。なお，本検討では測温式ひずみゲージ（FRA-10T-11-3TLJBT）を用いて供試体の温度変化を測定するとともに，**図 5** に示すように汎用マイコンである Arduino Uno を用いた BME280 を搭載した環境センサモジュールによる温度・湿度・気圧の変化も測定している。

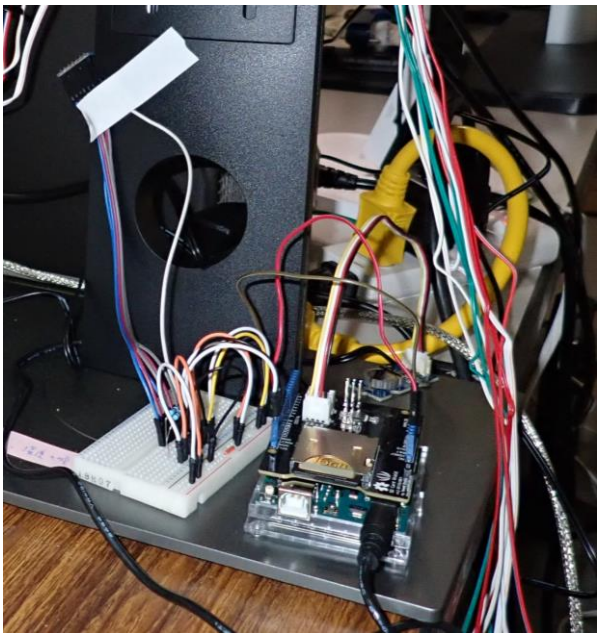


図 5　Arduino による計測の様子

以上の検討に加え，次年度以降に実施する一軸・三軸試験で用いる試料の準備も行っていく。

(3) モンテリ岩盤研究所での現地計測

図 6 に示すモンテリ岩盤研究所において，2018 年 7 月より，**図 7** のように深さの異なる水平孔のなかに Arduino による環境センサを設置し，湿度・気圧・温度の長期計測を行っている。この継続的なデータにより岩盤が乾燥することによる影響がおよぶ範囲を観察していく。本年度は，坑道の変状調査と計測器のメンテナンスを行うとともに，坑道の変形特性（内空変位，孔壁ひずみ）を測定する方法についても検討を進める。

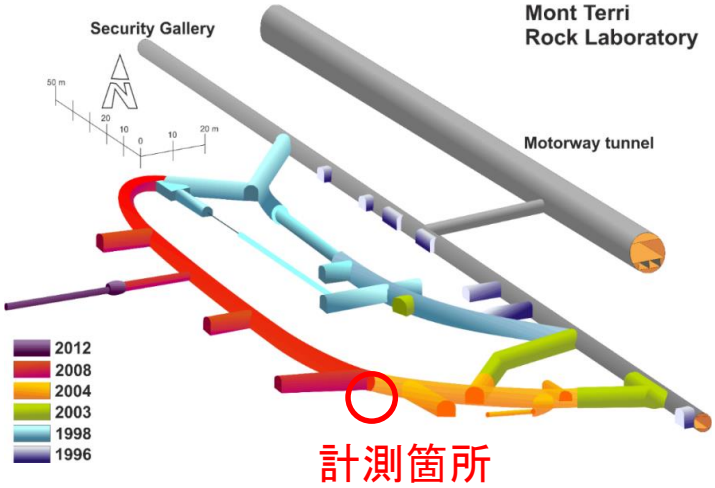


図 6　モンテリ岩盤研究所

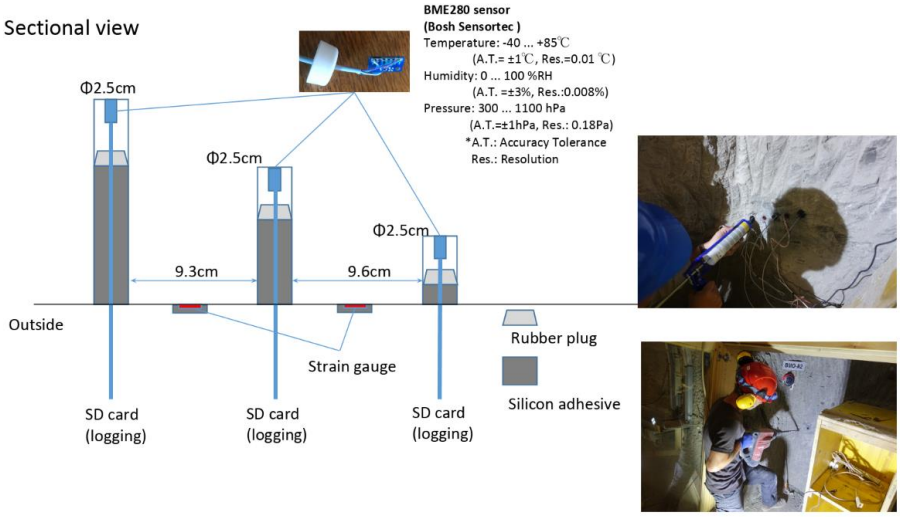


図 7　環境センサの設置状況

3.2　平成 30 年度の成果内容

(1) 文献調査の結果

トンネル掘削における安定問題を議論するために，岩石の飽和度の変化や乾燥収縮現象を実験的に検討した例は多い。田中[2)]は 1cm 角の正 6 面体形状をなした泥岩供試体を用いて飽和→乾燥→飽和の状態変化を与え，一方向のひずみの変化を測定した。Ghorbani et al.[3)]は泥岩のボーリングコアを用い，気乾と炉乾燥による乾燥過程における超音波速度の変化を検討している。Bagherieh et al.[14)]は Double porosity 理論に基づいて，風化した岩石の乾燥収縮過程における水分特性曲線を加圧法によって求めている。Valès et al.[15)]は頁岩を対象として，供試体の軸・側方ひずみを計測しながら乾燥から飽和へ状態変化させる実験を行い，飽和度によって変化する供試体の変形を測定するとともに，別途，飽和度を調整した供試体の三軸試験を実施して，力学的性質の変化を調べている。長田らによる検討[5), 7)-12)]では，円柱供試体を用いて乾燥収縮に伴うひずみの進展を測定するとともに，超音波速度を測定して体積弾性率を特定し，水分特性曲線を特定する方法を提案している。特に長田と Adikaram の検討[5)]では，異方的な変形挙動を検討するとともに乾燥収縮に伴って，剛性の最も大きい方向が入れ替わる現象が確認されている。いずれの検討でも，一次元あるいは二次元のひずみ応答を検討しており，三次元のひずみ応答および三主ひずみを検討した事例は見当たらない。また，供試体形状は角柱あるいは円柱であるが，得られたひずみの応答を比較すると，概ね同様の傾向が得られており，形状の影響は大きくないと考えられる。

岩石を対象とした変形異方性の特定方法は古来より検討されている。Amadei[16)]は方向を変えた 3 本の一軸圧縮試験により面内等方弾性のパラメータを特定する方法を考案し, Hakala et al.[17)]はこの方法を実現場に適用している。三軸試験を用いた方法では，Gonzaga et al.[18)]が三軸試験による面内等方弾性のパラメータを特定する方法を提案し，石灰岩を用いた実証実験を行っている。Togashi et al.[6)]は一回の三軸試験によって異方性の主軸と面内等方弾性のパラメータの両方を特定する方法を提案し，凝灰岩[4)]や泥岩[19)]などの堆積岩を対象として実証実験を行っている。中空円筒の供試体・試験体を用いた方法では，Nunes[20)]が CRSIRO の三軸セルを用いて，内圧・外圧の載荷によって異方弾性パラメータを特定する方法を提案した。Talsnick and Ringel[21)]は中空ねじり試験による同パラメータの特定方法を提案し，Togashi et al.[22)]は同様の試験で異方性の主軸と同パラメータを特定する方法を提案した。それ以外の方法では, 3 つの正六面体供試体を用いた超音波速度計測によって直交異方弾性のパラメータを特定する方法[例えば 23)]や，18 面体供試体を用いた同様の方法[24)]が提

案されている。これらの方法のなかで，本研究の主な着目点の一つである異方性の主軸を高精度に特定できる方法は，Togashi et al.の方法[6), 22)]であり，特に乾燥収縮実験との関連で言えば，円柱供試体を用いた三軸試験を利用した方法[6)]を採用することが合理的であると考える。

以上により，本年度に実施する乾燥収縮実験は円柱供試体を用い，3 次元のひずみテンソルを計測するものとする。これにより，今までほとんど明らかになってこなかった飽和から不飽和状態に変化する場合の力学的挙動が詳細に計測できると考える。また，次年度以降には，異方性の主軸とその弾性パラメータを精度よく取得できる Togashi et al.[6)]の三軸試験方法を用いて，不飽和状態における構成パラメータを取得していくこととする。

(2) 乾燥収縮による堆積岩の変形挙動

実験結果の一例として，**表 1** に示すように田下凝灰岩を用いて，2 ケースの乾燥収縮実験を行った結果を示す。Case1 は層理面が供試体の円柱軸に直交し（ξ=0°），Case2 は平行なケース（ξ=90°）である。

表 1　試験ケース

Case	Dry or Wet	Diameter D (mm)	Height H (mm)	Mass m (g)	Density (g/cm^3)
1	Dry	50.30	100.48	350.20	1.75
	Wet	50.48	101.36	413.98	2.04
2	Dry	49.95	100.11	350.65	1.79
	Wet	50.33	100.85	404.65	2.02

図 8 にはそれぞれのケースにおける飽和度の時系列変化の関係を示している。飽和度 S_r は既往検討を参考に次式で計算している。

$$S_r = \frac{m_p - m_d}{m_{sat} - m_d} \times 100 \tag{2}$$

ここに，m_p, m_d, m_{sat} はそれぞれ現在，乾燥，飽和状態の質量である。乾燥収縮に伴って S_r の値は小さくなる。1 日経過するまでの S_r の低下が最も激しく，その後はなだらかに減少していく。気乾でも，4 日程度で S_r が 20~30%まで低下し，8 日以降では数%のオーダーまで乾燥が進むことがわかった。

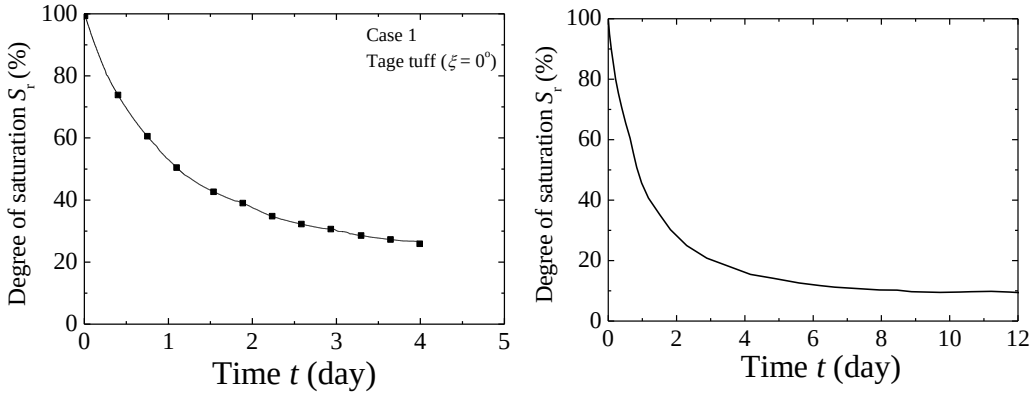


図 8　飽和度の時系列変化

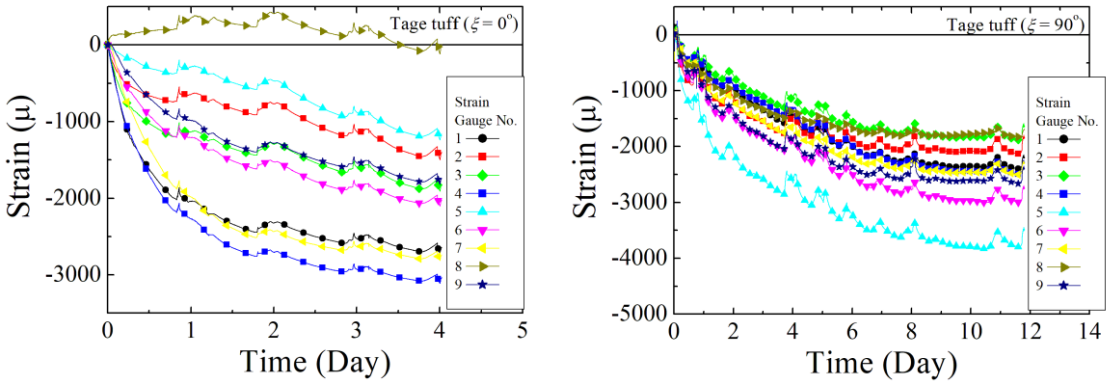


図 9　ひずみゲージの計測値

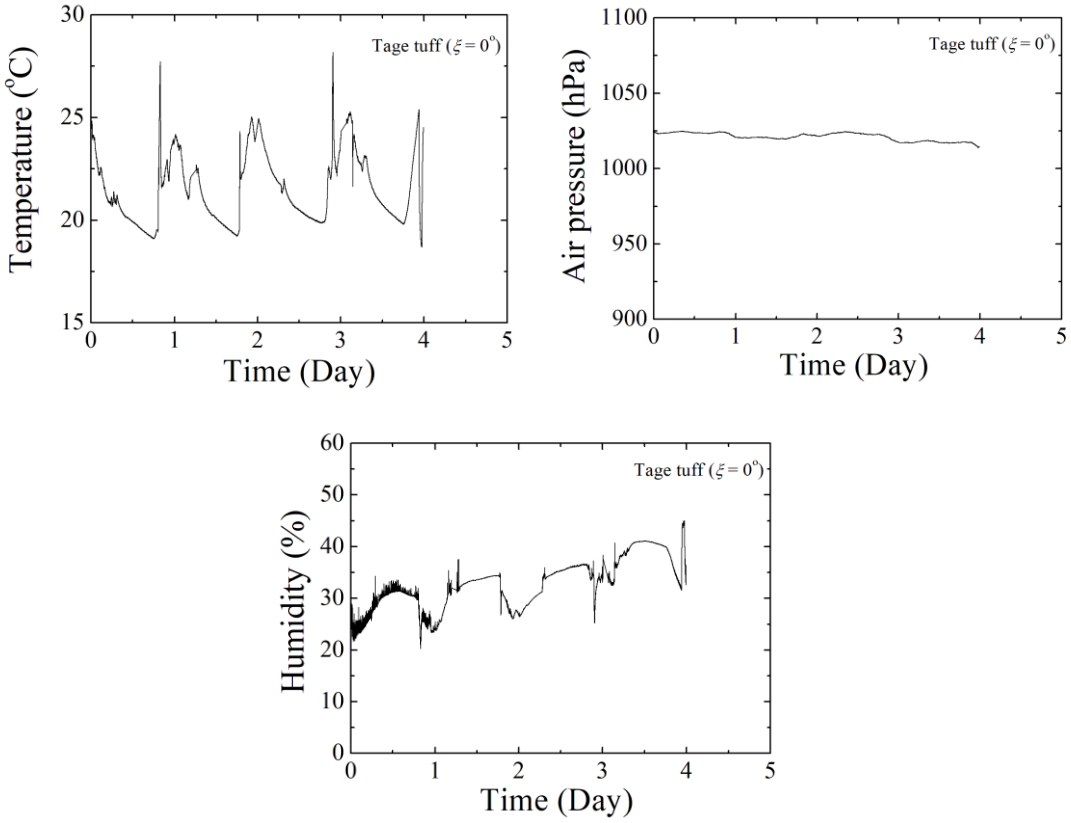


図 10　温度，気圧，相対湿度の変化（Case1）

図 9 には，Case1 と Case2 で得られたひずみゲージの計測値を示す。これらは，引張方向に正の値で示している。いずれのひずみゲージでも連続したデータが取得できていることがわかる。**図 10** には Case1 において環境センサモジュールで計測した温度・気圧・相対湿度を一例として示す。室温と相対湿度はそれぞれ 20°～25°と 20%~40%で日変動している。気圧は 1025hPa 程度で

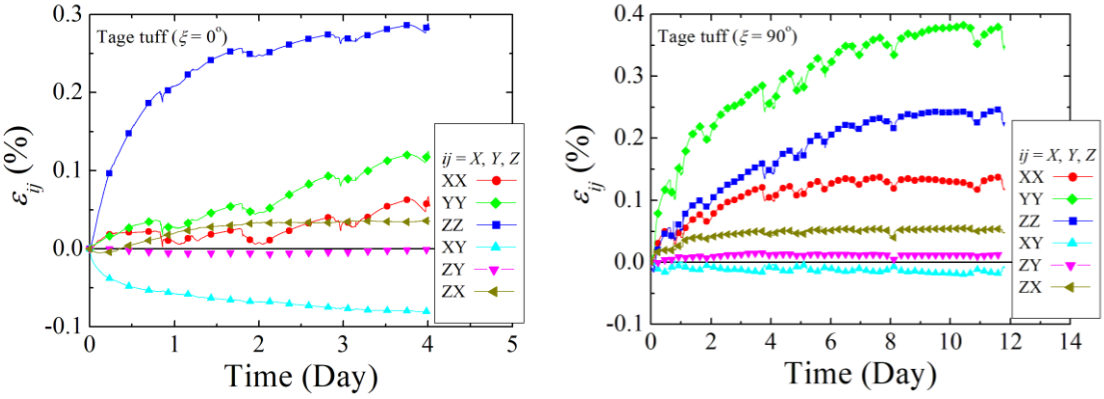


図 11　ひずみテンソルの時系列変化

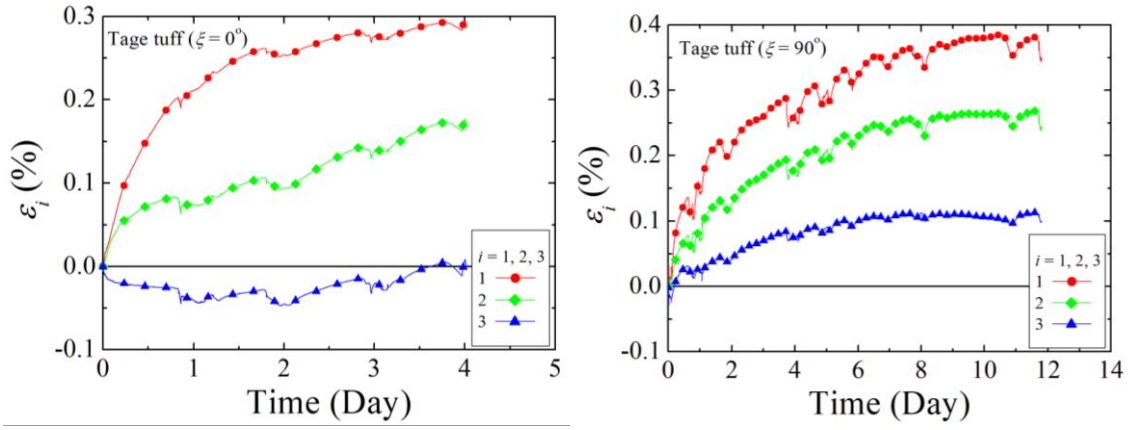


図 12　三主ひずみの時系列変化

安定していることがわかる。**図 9** のひずみを，式(1)を用いて（X, Y, Z）座標系のひずみテンソルに変換すると**図 11** のようになる。ここでは，岩盤力学の慣例にならって直ひずみとせん断ひずみのそれぞれを圧縮方向と反時計回りに正として示している。いずれのケースでも直ひずみε_{ii} が正の値を示すことから，乾燥に伴って供試体が収縮している。また，直ひずみε_{ii} が異なる値を示し，せん断ひずみε_{ij} ($i \neq j$)が生じていることがわかる。既往検討[4)]においても田下凝灰岩は層理面の方向に応じて異方的な変形挙動を示すことが報告されており，毛管圧力に起因して供試体が概ね等方な応力下であることを踏まえると，本試験で確認されたひずみテンソルの挙動は異方的と言えよう。さらに，層理面に直交する方向（Case1 では Z 方向，Case2 では Y 方向）の直ひずみが特に大きい値を示すことから，乾燥収縮に伴って，層理面が閉口していると考えられる。続いて**図 12** には，三主ひずみの応答を示す。ほとんどのデ

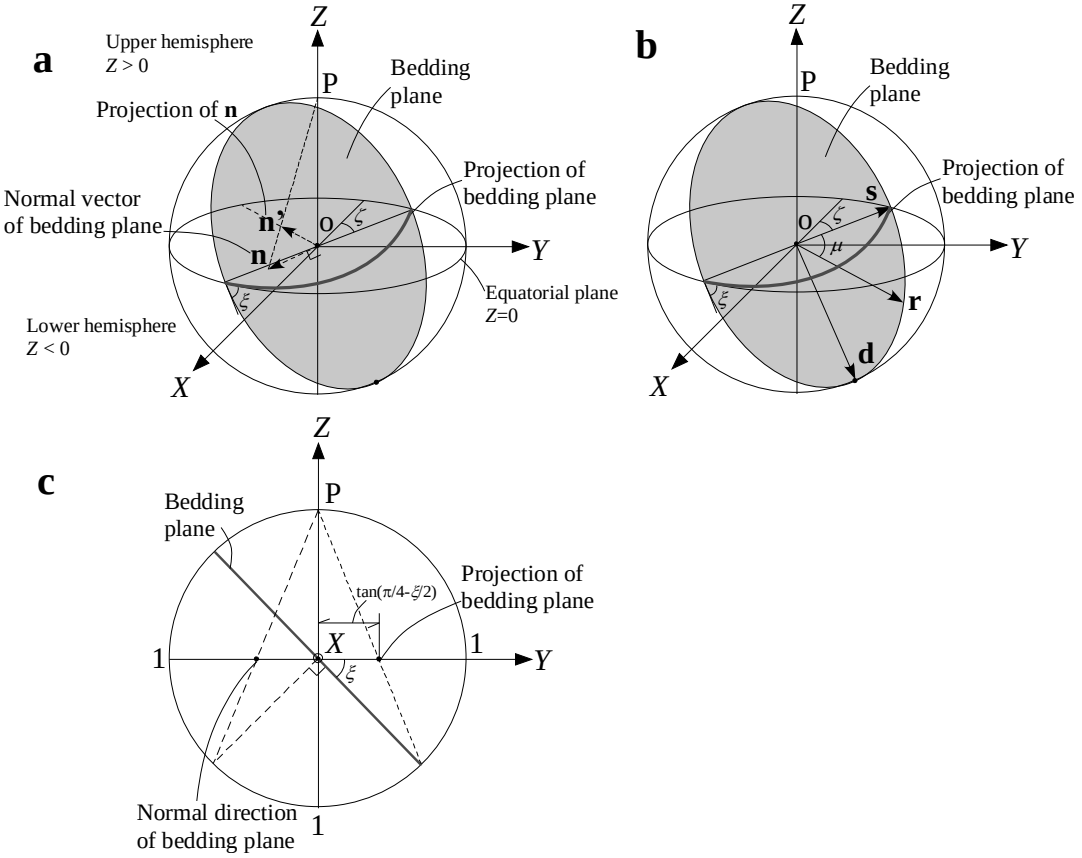


図 13　下半球投影のウルフネットの概念

ータで圧縮変形を示していることがわかるが，Case1 の最小主ひずみε_3だけが引張方向に生じている。これは，*XY* 面のせん断ひずみε_{XY}が時計回りの方向に卓越している影響と考えられるが，引き続き調査する必要があろう。三主ひずみの方向は，異方性の主軸と一致すること [25]が示されており，層理面の方向によって変化することが指摘されている [4]。本研究では，**図 13** に概念を示している下半球投影のウルフネットを用いて乾燥収縮に伴う三主ひずみ方向を議論する。**図 14** には，それぞれのケースにおける三主ひずみ方向を比較する。この図では，（*X, Y, Z*）座標系を基準として，丸，ひし形，三角のプロットをそれぞれ最大，中間，最小主ひずみ方向として示している。オリーブ色のラインは層理面方向である。Case1 では，試験開始直後（図の a_1）に最大主ひずみε_1方向が層理面に近い方向を向いているが，乾燥に伴って層理面に直交する *Z* 方向に近づいていく。これに対し，Case2 のε_1方向は，初期（図 a_1）に層理面から 60°程度傾斜した方向を向いているが，次第に層理面方向に近づいていく。また，ε_2とε_3方向の方向は概ね層理面上に位置している。最大主ひずみ方向が最も剛性が低い方向と考えれば，長田と Adikaram [5]が示したよ

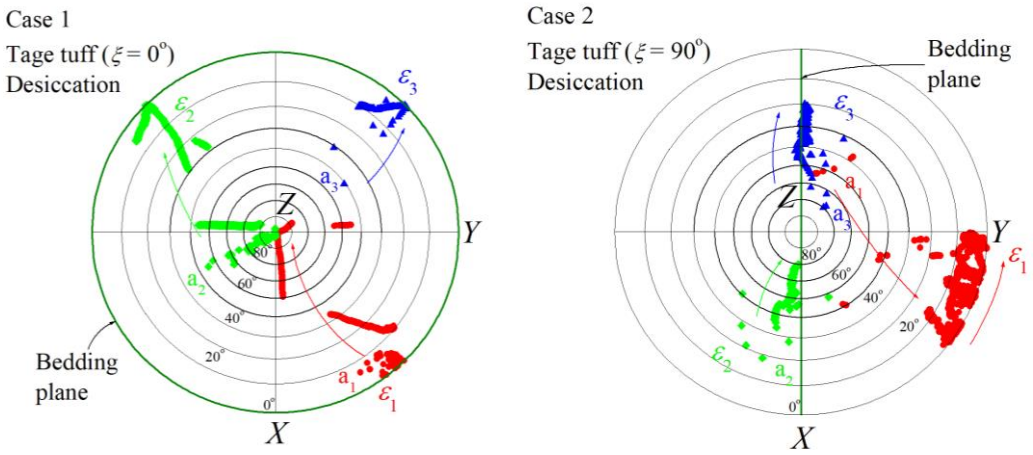


図 14　三主ひずみの方向

うに，飽和状態では層理面よりもその直交方向の剛性が大きいが，乾燥に伴って，直交方向の剛性が層理面よりも大きくなることと調和した結果であると言える。

(3) モンテリ岩盤研究所での現地計測

図 15 に示すように 2018 年 12 月 13 日～12 月 17 日にモンテリ岩盤研究所において現地調査を行い，計測データの回収，計測機器などのメンテナンスを実施した [26]。

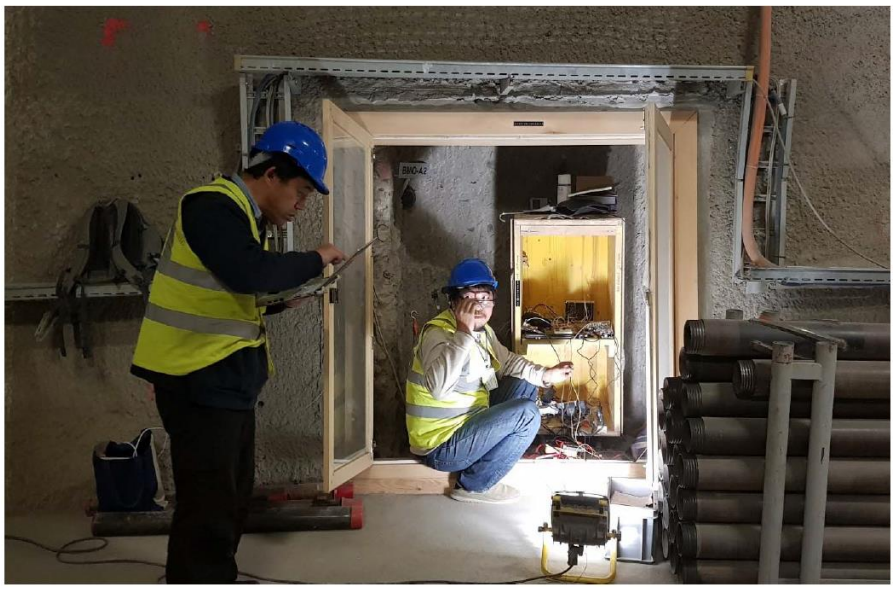


図 15　現地調査の様子

図 16 には，11 月 5 日から 11 月 29 日に計測された**図 7** のボーリング抗の外側での温度・相対湿度・気圧・絶対湿度を示す。

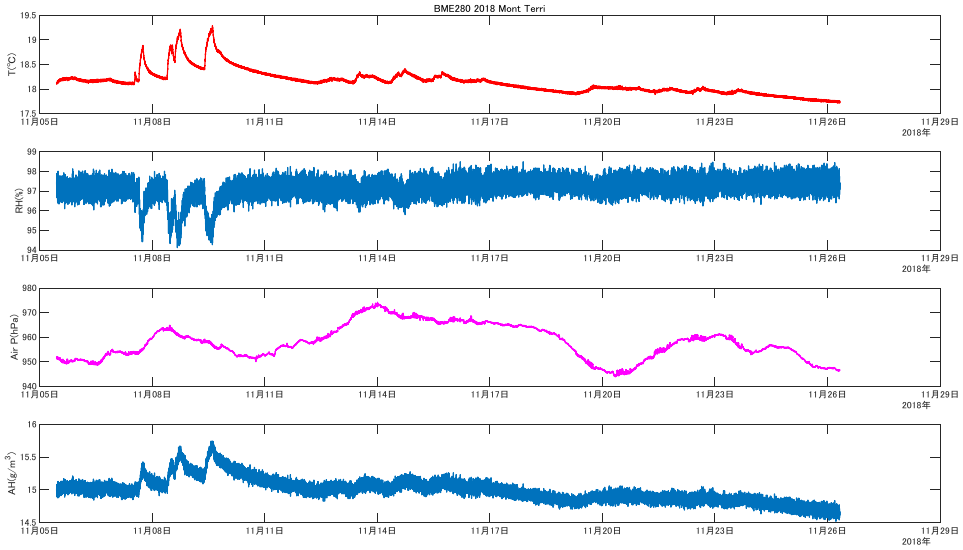


図 16　ボーリング孔の外での計測結果

ボーリング抗の外側は**図 6** に示す坑道と空間的につながっており，研究所の坑口の開閉などによって気圧・湿度・温度が変動することを確認している。例えば，11/8 時点での温度の変動は，朝 8:00 に研究所の坑口を開き，18:00 に閉じたことに起因している。

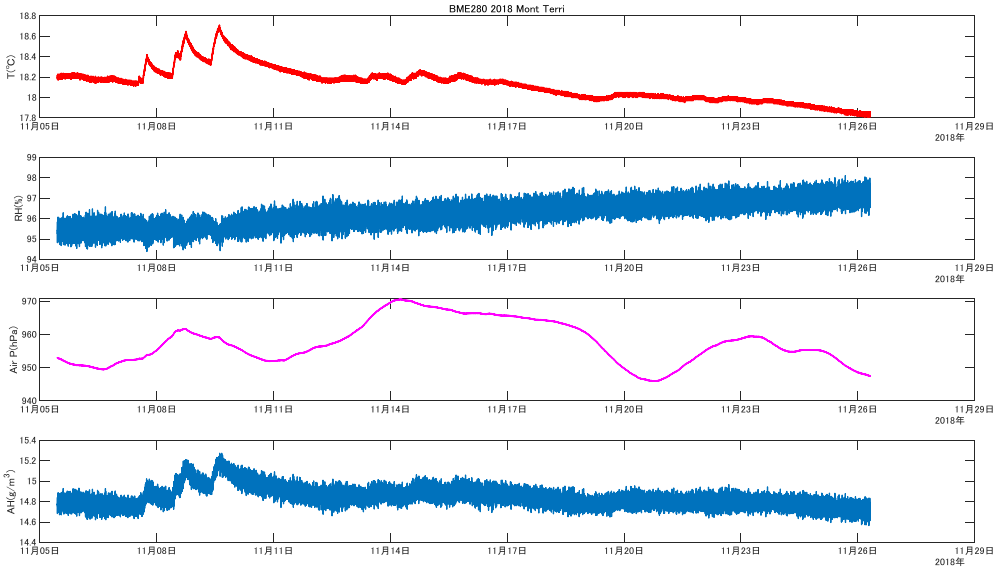


図 17　ボーリング孔内での計測結果

これに対して，一例として，**図 7** の右側の一番浅いボーリング孔で測定した結果を**図 17** に示す。**図 16** と比較すると，ボーリング孔内部での応答がやや異なっていることがわかる。これは，岩盤の透気現象によるものと考えられ，岩盤内での応答の遅れが，乾燥に伴って生じる不飽和領域の特定につながる可能性がある。

今回の現地調査では，各ボーリング孔内に設置した環境センサモジュールの計測同期をおこなうとともに Arduino を用いてひずみを長期で連続的に計測する試みもおこなった。

3.3　残された課題と今後の計画

室内試験では，本年度は，田下凝灰岩を用いた乾燥収縮実験を行って，飽和度の変化に伴うひずみの進展を詳細に取得した。既往検討では確認されていない新しい知見として，主ひずみ方向の変化を確認した。

現地計測では，2018 年 7 月より計測を行っていたデータを回収するとともに，岩盤内部での温度・湿度・気圧の応答が坑道の応答と一致しないことを確認した。引き続き，データの取得を行っていくとともに，データの回収や，計測機器のメンテナンス，新しい計測機器の設置を行っていく。また，坑道における乾燥に伴う不飽和領域の形成についても評価する方法を考案していく予定である。

平成 31 年度には，引き続き，乾燥収縮実験を行うとともに，当初予定していた通り，Togashi et al.[6)]による三軸試験を実施して，異方弾性パラメータとその主軸方向を求める。求めたパラメータを整理したうえで，有限要素法による坑道の安定性を検討するため，数値計算の環境整備を行っていく予定である。モンテリ岩盤研究所では，引き続き計測を続けていくとともに，新しい計測機器の設置を試みるとともに，岩盤の透気現象を把握するためのデータ分析方法についても検討していく。

4. まとめ

本研究では，掘削による乾燥にともなって不飽和状態に移行する堆積岩の異方的な力学挙動を詳細に把握し，異方性を考慮した高レベル放射性廃棄物の埋設方法へと応用することを目的として，室内試験を実施するとともに，スイス・モンテリ岩盤研究所において現地調査を行った。

室内で行った凝灰岩の乾燥収縮実験からは，気乾の条件では，4 日程度で飽和度が 20~30%まで低下し，8 日以降では数%のオーダーまで乾燥が進むことがわかった。また，層理面とその直交方向にコアリングした供試体の三次元のひずみテンソルの応答は，等方材料では生じないせん断ひずみを伴い，異方的な応答を示すことがわかった。さらに，乾燥収縮時の主ひずみ方向は，飽和度の変化にともなって変化することがわかった。

スイス・モンテリ岩盤研究所におけるボーリング孔内の気温・気圧・湿度の計測では，ボーリング孔内の岩盤の応答が，孔外に比べて異なってくることがわかった。これは，岩盤内の透気現象によるものと考えられ，引き続き計測を進めるとともに，計測データから乾燥に伴う不飽和領域の進展を評価する方法を考案していく予定である。

参考文献

1) 総合エネルギー調査会地層処分 WG：地層処分に関する地域の科学的な特性の提示に係る要件・基準の検討結果，p.39, 2004.
2) 田中芳則 : 水分ポテンシャルからみた泥岩の乾燥収縮と湿潤膨張, 応用地質, 21(3), pp.13-21, 1980.
3) Ghorbani A., Zamora M. and Cosenza P.: Effects of desiccation on the elastic wave velocities of clay-rocks, Int. J. Rock Mech. Min. Sci., 46 (8), pp. 1267-1272, 2009.
4) Togashi Y., Kikumoto M., Tani K., Hosoda K. and Ogawa K.: Detection of deformation anisotropy of tuff by a single triaxial test on a single specimen, *Int. J. Rock Mech. Min. Sci.*, 108, pp. 23-36, 2018.
5) 長田昌彦, Adikaram NM : 田下凝灰岩の力学的異方性と飽和度の変化に伴う弾性波速度および変形の変化傾向，第 41 回岩盤力学に関するシンポジウム講演論文集, pp.300-304, 2012.
6) Togashi Y., Kikumoto M. and Tani K.: An Experimental Method to Determine the Elastic Properties of Transversely Isotropic Rocks by a Single Triaxial Test, *Rock Mech. Rock Eng.*, 50(1), pp.1-15, 2017.
7) 長田昌彦，山辺正：堆積岩の乾燥変形過程と多孔質弾性論的解釈，第 36 回岩盤力学に関するシンポジウム講演論文集, pp.335-338, 2007.
8) 長田昌彦 : 各種岩石の乾燥変形現象の比較によるその支配要因の検討，第 40 回岩盤力学に関するシンポジウム講演論文集, pp.397-400, 2011.
9) 長田昌彦，高橋学，竹村貴人：堆積岩の乾燥変形現象とそれに起因した現象と課題，J.MMIJ, 127, pp.127-131, 2011.
10) Soe AKK., Osada M., Takahashi M. and Sasaki T.: Characterization of drying-induced deformation behavior of Opalinus Clay and tuff in no-stress regime, *Environ. Geol.*, 58, pp.1215-1225, 2009.
11) Soe AKK., Osada M. and Win TTN.: Drying-induced deformation behaviour of Shirahama sandstone in no loading regime, *Eng. Geol.*, 114, pp.423-432, 2010.
12) Soe AKK., Osada M. and Win TTN.: Evaluating the deformation behaviour of Shirahama sandstone in moisture transfer process, Int. J. JCRM, 5(2), pp.69-76, 2009.
13) 地盤工学会：岩石の圧密排水三軸圧縮試験方法，JGS2534-2009.
14) Bagherieh AR., Khalili N., Habibagahi G. and Ghahramani A.: Drying response and effective stress in a double porosity aggregated soil, *Eng. Geol.*, 105, 2009.
15) Valès F., Nguyen Minh D., Gharbi H. and Rejeb A.: Experimental study of the influence of the degree of saturation on physical and mechanical properties in Tournemire shale (France), *Int. J. Rock Mech. Min. Sci.*, 26 (1-4), pp. 197-207,

2004.
16) Amadei B.: Importance of anisotropy when estimating and measuring in situ stresses in rock, *Int. J. Rock Mech. Min. Sci.*, 33 (3), pp. 293-325, 1996.
17) Hakala M., Kuula H. and Hudson A.: Estimating the transversely isotropic elastic intact rock properties for in situ stress measurement data reduction: A case study of the Olkiluoto mica gneiss, Finland, *Int. J. Rock Mech. Min. Sci.*, 44 (1), pp. 14-46, 2007.
18) Gonzaga GG., Leite MH. and Corthésy R.: Determination of anisotropic deformability parameters from a single standard rock specimen, *Int. J. Rock Mech. Min. Sci.*, 45 (8), pp. 1420-1438, 2008.
19) 富樫陽太，菊本統，谷和夫，細田光一，小川浩司：一回の三軸試験で特定した泥岩の異方弾性パラメータ，材料，67(3), pp. 338-345, 2018.
20) Nunes ALLS.: A new method for determination of transverse isotropic orientation and the associated elastic parameters for intact rock, *Int. J. Rock Mech. Min. Sci.*, 39 (2), pp. 257-273, 2002.
21) Talesnick ML. and Ringel M.: Completing the hollow cylinder methodology for testing of transversely isotropic rocks: torsion testing, *Int. J. Rock Mech. Min. Sci.*, 36 (5), pp. 627-639, 1999.
22) Togashi, Y., Kikumoto, M. and Tani, K.: Determining anisotropic elastic parameters of transversely isotropic rocks through single torsional shear test and theoretical analysis, *J. Petrol. Sci. Eng.*, 169, 184-199, 2018.
23) 奈良禎太，金子勝比古：花崗岩の異方弾性定数の評価法に関する研究，資源と素材，119(6-7), pp.396-402, 2003.
24) Shin K.: Simplified Method for the Assessment of the Stiffness Anisotropy of Rocks at Small Strains, *Rock Mech. Rock Eng.*, 38(1), pp.41–58, 2005.
25) Allirot D., Boehler JP. and Sawczuk A.: Irreversible deformations of an anisotropic rock under hydrostatic pressure, *Int. J. Rock Mech. Min. Sci.*, 14 (2), pp. 77-83, 1977.
26) Mont Terri Rock Laboratory: Field report: December 10–16, 2018 (Phase 24), 2018.

研究報告 5

メタンをエネルギー源とした微生物生態系の地質環境への影響評価

東京大学　大学院理学系研究科

鈴木　庸平

1. 背景・目的

高レベル放射性廃棄物の地層処分に関わる研究開発では、瑞浪や幌延の地下研究所での研究により、物質移動特性に関わる化学環境の形成に微生物が重要な役割を果たすことが明らかになりつつある。特に、最近の研究でメタンをエネルギー源とした地下微生物が化学環境に与える影響の重要性が明らかになりつつある。最初に、瑞浪超深地層研究所と幌延深地層研究所で行われた先行研究について整理する。研究の目的・実施意義について説明した後、地層処分事業における位置付け・研究実施により期待される波及効果について記載する。

1.1. 瑞浪超深地層研究所における調査事例

1.1.1. 水理地質学および生物地球化学の特性評価

瑞浪超深地層研究所において、花崗岩の地下水水質形成への微生物影響を評価するために、地下施設の地下 200、300、400 m の水平掘削孔の 07MI07、09MI20 と 10MI26 で 2007 年から 2012 年の 6 年間に渡る長期観測結果の取りまとめが行われた(Suzuki, et al., 2014)。

立坑建設前の地上からの掘削時に調査された近傍の DH-2 号孔の水質データから、掘削前のベースラインでは塩化物イオン濃度と深度が直線性良く(R^2 = 0.950, 図 1.1.1.1A)相関した(Iwatsuki, et al., 2005)。また、地下深部における微生物代謝の基質になる硫酸塩イオンと溶存無機炭素(DIC)も深度と直線性良く相関していた(R^2 はそれぞれ 0.664 と 0.843)。これらの直線性から、浅層地下水は硫酸と DIC に富み塩化物に乏しいが, 深層地下水は逆に硫酸と DIC に乏しく塩化物に富むことを示す。

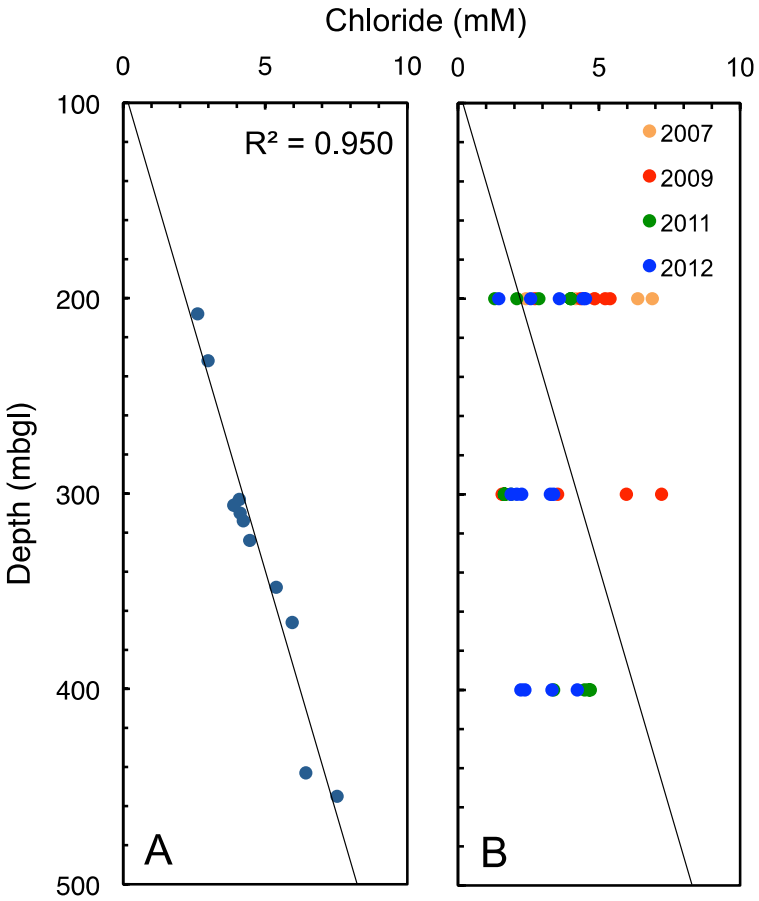


図 1.1.1.1. 立坑建設前後の深度と塩化物イオン濃度との相関。(A) 建設前の地上からの掘削孔 DH-2 号孔の結果。 (B) 地下坑道からの掘削孔からの結果。(Suzuki, et al., 2014 より引用)

立坑建設後、塩化物濃度の深度プロファイルは大きく乱れ (図 1.1.1.1B)、圧力開放された坑道に向けて深部の地下水が上昇したと解釈される(Mizuno, et al., 2013)。地下水水質の乱れは立坑掘進時に顕著で、その後の壁面湧水地点の止水により影響程度は減少する(図 1.1.1.2)。

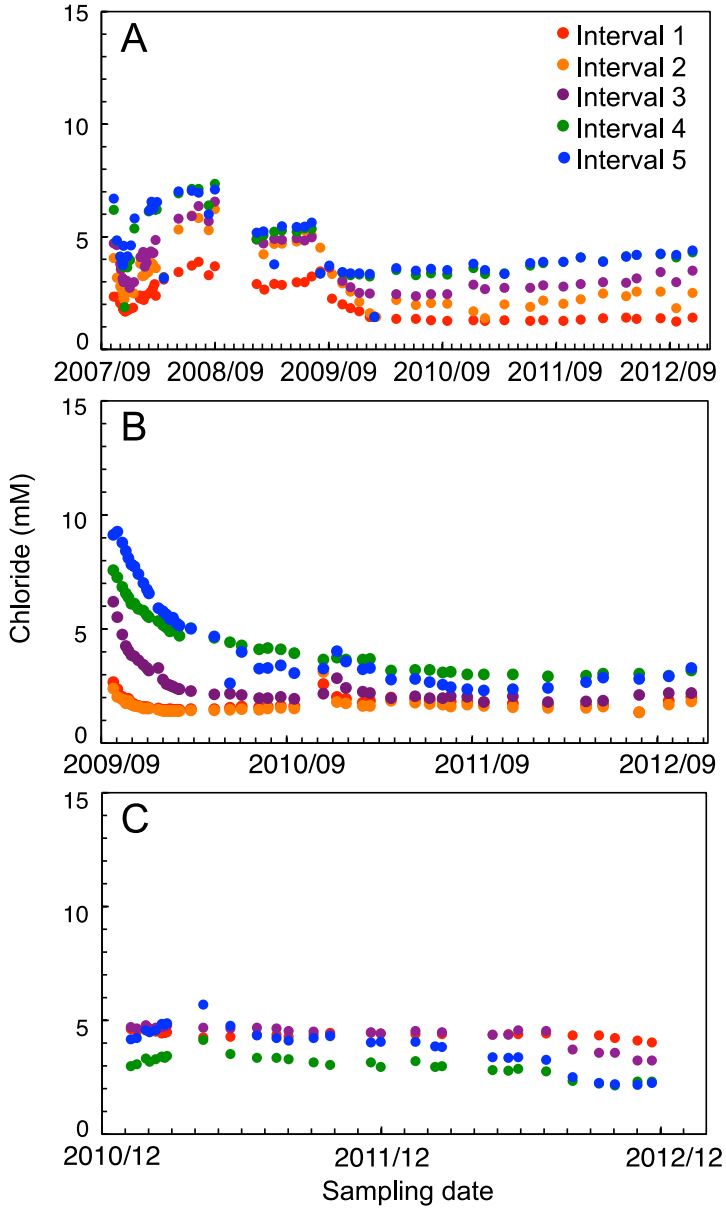


図 1.1.1.2. 地下施設建設中の地下水中の塩化物イオン濃度の経時変化。(A) 07MI07 号孔、(B) 09MI20 号孔、(C) 10MI26 号孔。(Suzuki et al., 2014 より引用)

立坑建設の影響により異なる深度の地下水が混合し、元来の深度プロファイルが失われたが、塩化物と硫酸と DIC の相関をプロットしたところ、掘削前と同様の直線性が得られた(Suzuki et al., 2014)。硫酸は R^2 が 0.801 (図 1.1.1.3A) で DIC は R^2 が 0.662 (図 1.1.1.3B)であり、塩化物との相関は失われておらず、深度の替わりに塩化物濃度でプロットすることによりベースライン時の深度プロファイルを復元できることを明らかにした。地上からの

掘削とその後の揚水によるサンプリングでは定量的な測定が難しいメタン(CH_4)は、脱ガスの影響を最小限にできる地下坑道からのサンプリングにより、信頼性の高い濃度測定が可能である。不確実性が低減した濃度を用いることにより、塩化物と良好な直線性を示すため($R^2 = 0.779$, 図 1.1.1.3C), メタン濃度はベースライン時に深度と共に増加したされる。

微生物の代謝活動により硫酸、DIC、CH_4 の濃度が変化すると大きな同位体分別が起きることが知られる。そこで、硫酸 、DIC 、CH_4 の同位体組成と塩化物濃度の相関を図 1.1.1.3D-F に示す。硫酸の $\delta^{34}S$ 値は塩化物濃度の増加と共に ^{34}S に富むが (図 1.1.1.3D)、DIC と CH_4 の $\delta^{13}C$ 値は塩化物濃度に対してほぼ一定であった (図 1.1.1.3E–F)。後者は、浅層と深層の地下水の単純な混合を示し、DIC と CH_4 間に大きな分別を起こす微生物によるメタン生成の DIC の減少と CH_4 の増加への寄与は小さい。

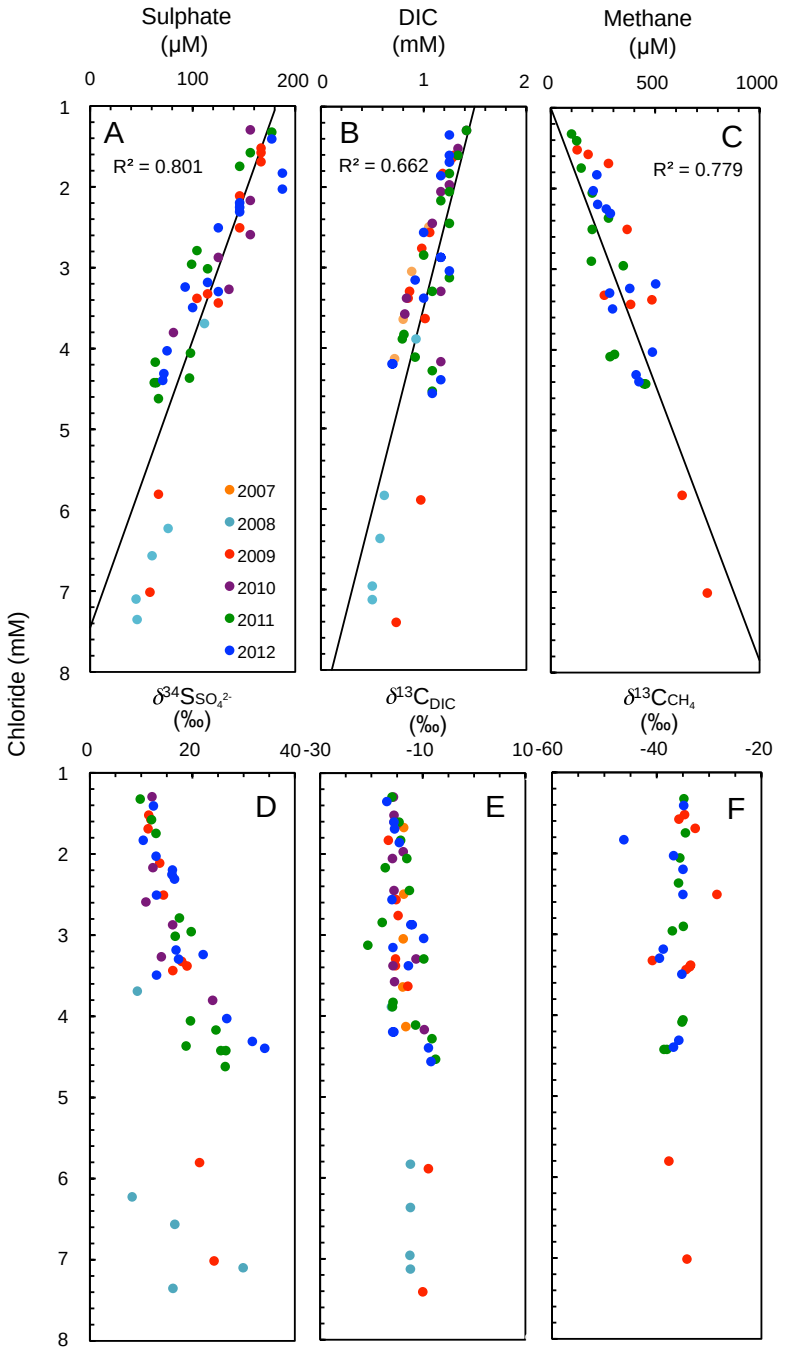


図 1.1.1.3. 塩化物イオン濃度と硫酸, DIC, CH_4 の濃度と同位体組成の相関。(A) 硫酸濃度、(B) DIC 濃度、(C) メタン濃度、(D) $\delta^{34}S_{SO_4^{2-}}$値、 (E) $\delta^{13}C_{DIC}$値、(F) $\delta^{13}C_{CH_4}$値。$\delta^{13}C$ 値と $\delta^{34}S$ 値はそれぞれ Vienna Pee Dee Belemnite と Cañon Diablo meteorite 規格で示す。(Suzuki et al., 2014 より引用)

温度が 250℃より低い系では、微生物による硫酸還元作用が硫酸濃度を減少させる主要因である。微生物の硫酸還元は、反応物の硫酸と生成物の硫化水素に大きな同位体分別作用が伴われることが知られている(Ohmoto & Lasaga, 1982)。そこで、硫化水素の濃度と硫化水素の $\delta^{34}S$ 値および硫酸−硫化水素間の同位体分別をそれぞれ塩化物濃度との相関を示す(図 1.1.1.4.) (Suzuki et al., 2014)。

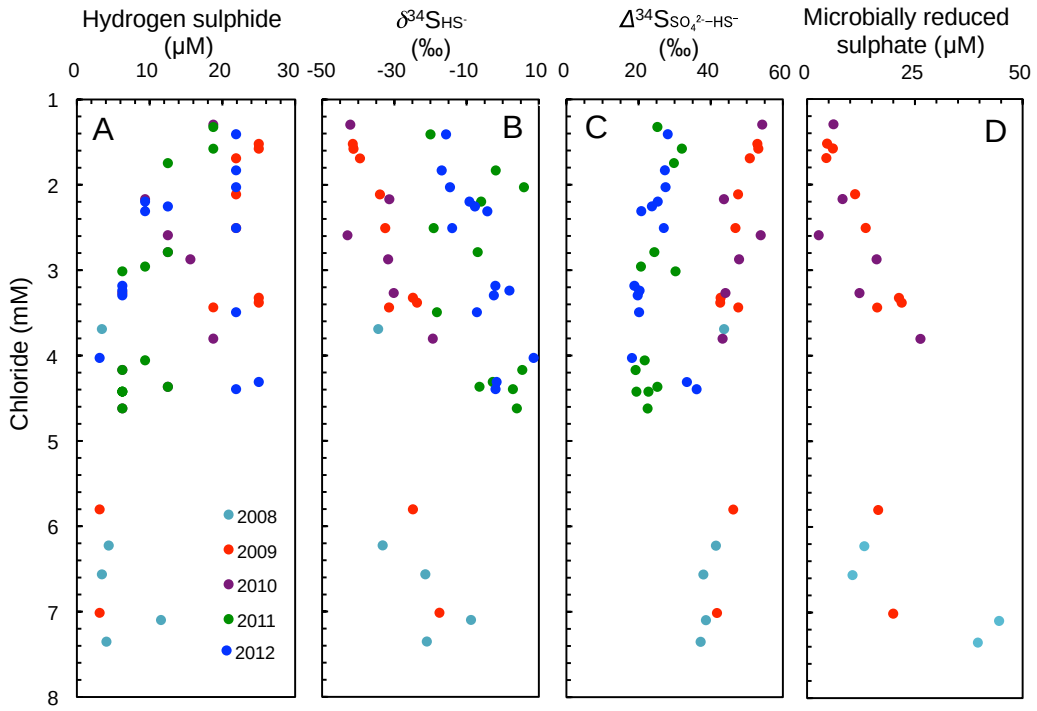


図 1.1.1.4. 微生物の硫酸還元作用の指標と塩化物濃度との相関性。(A) 硫化水素濃度、(B) 硫化水素の $\delta^{34}S_{HS^-}$値、(C) 硫酸−硫化水素間の同位体分別($\Delta^{34}S_{SO_4^{2-}-HS^-}$値)、(D) 微生物硫酸還元の推定量。(D)は 2011-2012 の値を含めずに示す。(Suzuki et al., 2014 より引用)

硫酸とは対照的に、硫化水素濃度は塩化物濃度と相関しなかった (図 1.1.1.4.A)。この結果は、硫化水素は硫化物鉱物として沈殿するため、溶液から取り除かれていることが要因である。硫化水素の硫黄同位体組成は、硫酸と比べて著しく軽く(図 1.1.1.4.B) 、2008−2010 年度は 40−60‰の同位体分別であった(図 1.1.1.4.C)。しかし、2011−2012 年度は分別が 20−40‰に減少した。この同位体分別のシフトの原因は明らかではないが、硫酸濃度と塩化物濃度の相関もシフトしており、微生物代謝の活発化や異なる起源の地下水の混合の可能性が考えられる(Iwatsuki, et al., 2005)。

花崗岩の帯水層中で微生物により還元された硫酸量を、硫酸濃度の減少と同位体組成のシフトを加味して計算できないか試みた(Suzuki et al., 2014)。混同による濃度減少では分別

がなく、微生物代謝による減少では硫酸と硫化水素間の同位体分別を伴うと想定して計算を行った。その結果、帯水層中での微生物により還元された硫酸濃度は 10–50 μM となり、地下水中の硫化水素濃度の幅とほぼ一致した(図 1.1.1.4.A, D)。

花崗岩を覆う堆積岩下位の地下水年代は放射性炭素(^{14}C)により 9.3 ka と示されている(Iwatsuki, et al., 2005)。花崗岩中では深度が>600 m になると、^{14}C の放射能が検出限界を下回り、年代が>50 ka とされる(Iwatsuki, et al., 2005)。放射性炭素年代からの滞留時間の幅を 9.3–50 ka とし、計算された微生物による硫酸還元濃度を 10–50μM とした場合、現場硫酸還元速度は 9.3 ka では〜1-5 nM/yr、50 ka では 0.2-1 nM/yr と求められた(Suzuki et al., 2014)。後者の幅は、これまでに速度が求められた深度 400 m の海洋堆積物 (0.66 nM/yr)(Wang, et al., 2008)と南アフリア金鉱山の深度 4 km の帯水層 (0.22–1.45 nM/yr)(Lin, et al., 2006)との値と同程度である。

微生物の硫酸還元反応は溶存有機物 (DOC) をエネルギー源とする場合と、H_2 または CH_4 をエネルギー源とする。瑞浪の花崗岩中の地下水の濃度幅は硫酸呼吸の 1–5 nM と低く、2011 年に H2 濃度が上昇したが、翌年には 1–5 nM の領域に戻り安定している(図 1.1.1.5A)。DOC 濃度は検出限界付近と低く、塩化物濃度との相関性は見られなかった(図 1.1.1.5B)。東濃地域の地下水中の腐植物質を高感度で検出するために確立された手法を用いて(Nagao, et al., 2003) 、帯水層全体の腐植様物質の半定量測定を行った結果、塩化物濃度と R2=0.571 程度の直線性で相関した(図 1.1.1.5C) (Suzuki et al., 2014)。この結果は、表層の植生または堆積岩由来の腐植様物質は深層地下水の混合に希釈され、微生物の硫酸還元のエネルギーとしては不十分な可能性が高い。深度が増すにつれて濃度が増加する CH_4 が硫酸還元のエネルギーとして利用するには、硫酸濃度が 0.5 mM より高いこと(LaRowe, et al., 2008)、および H_2 濃度が 0.1 nM より低い条件であるため、本研究対象の帯水層は両者の制約を満たさないため CH_4 がエネルギー源になっている可能性も低い。従って、微生物に用いられるエネルギーは不明であり、既知の微生物プロセスでは花崗岩深部での硫酸呼吸が説明できないことが判明した。

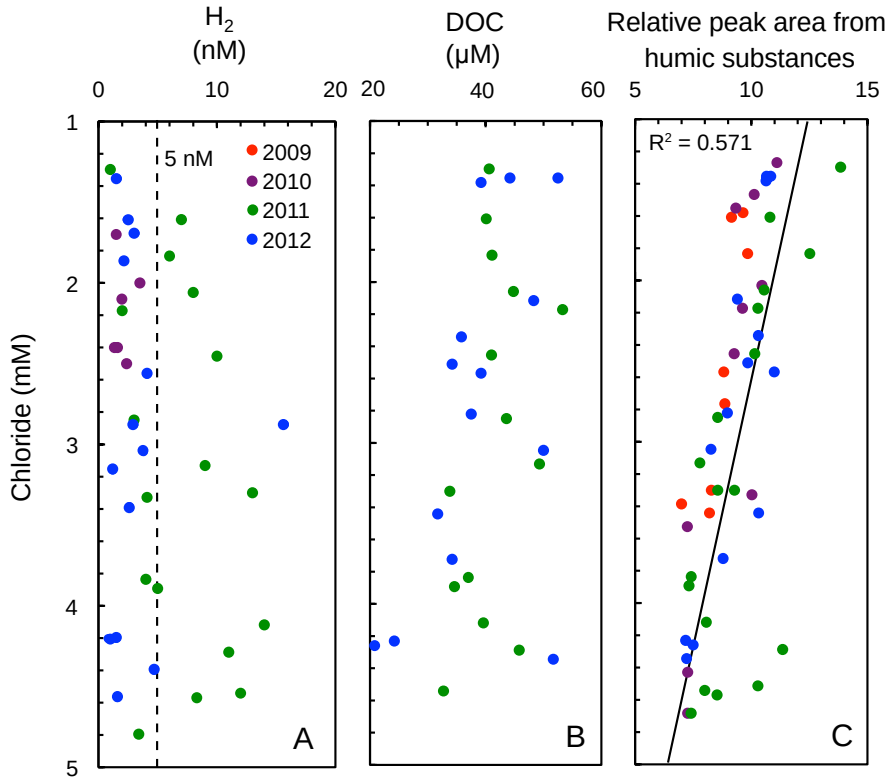


図 1.1.1.5. 塩化物濃度とエネルギー源の相関性。(A) H_2 濃度、(B) 溶存有機物濃度、(C) サイズ排除クロマトグラフィーにより半定量された腐植様物質の相対ピークエリア。(Suzuki et al., 2014 より引用)

1.1.2. 微生物特性の評価

微生物特性の評価については、地下 300 m の水平掘削孔の 09MI20 と 09MI21 を用いて行われてきた(Ino et al., 2018)。09MI20 は花崗岩の亀裂密度の高い高密度割れ目帯(highly fractured domain)に掘削されたボーリング孔(HFDB)であるのに対し、09MI21 は亀裂密度の低い低密度割れ目帯(sparesely fractured domain)に掘削されたボーリング孔(SFDB)である(図 1.1.1.6a-b)。割れ目の密度と相関して透水係数も大きく異なり、HFDB では硫酸と DIC の濃度が高く、SFDB ではこれらの濃度が著しく下がり水素とメタンに富むことが明らかになった(図 1.1.1.6c)。DIC とメタンの濃度と炭素同位体組成をプロットしたところ、HFDB は DIC 濃度が高く同位体が軽いのに対し、SFDB は濃度が低く同位体が重かった(図 1.1.1.6d)。DIC とは反対に、HFDB はメタン濃度が低く同位体が重いのに対し、SFDB は濃度が高く同位体が軽かった(図 1.1.1.6e)。以上の結果は、HFDB でメタン酸化が、SFDB でメタン生成がより卓越して微生物により行われているという解釈を支持した(Ino et al., 2018)。

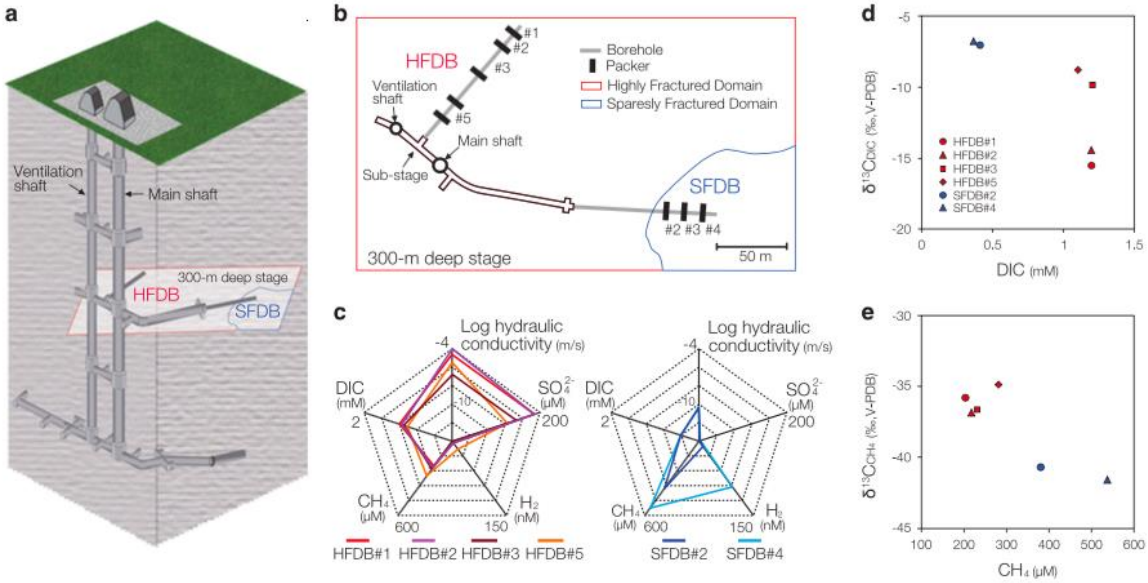


図 1.1.1.6.瑞浪超深地層研究所深度 300 メートルのステージの特徴。(a) 地下 300m 掘削孔 HFDB と SFDB、(b) HFDB は岩石の亀裂が多い地域に存在し、SFDB は岩石の亀裂が少ない地域に存在する、(c) 2012 年に採水した地下水中の SO_4^{2-}、H_2、CH_4 および DIC、 (d および e) DIC とメタン濃度の同位体比。(Ino et al., 2018 より引用)

次に、微生物の群集組成を 16S rRNA 遺伝子配列を用いて解析した結果、HFDB にメタン酸化古細菌が、SFDB にはメタン生成古細菌が優占していることが明らかになり、DIC とメタンのプロファイルから得られた解釈と整合的であった(Ino et al., 2018)。環境因子の主成分分析により代表的な環境因子を選択し(図 1.1.1.7a)、その環境因子と微生物間の正準コレスポンデンス分析を行った(図 1.1.1.7b)。その結果、メタン酸化古細菌の存在度は硫酸濃度と強い相関性を示したため、硫酸を酸化剤としてメタン酸化していることが推察された。

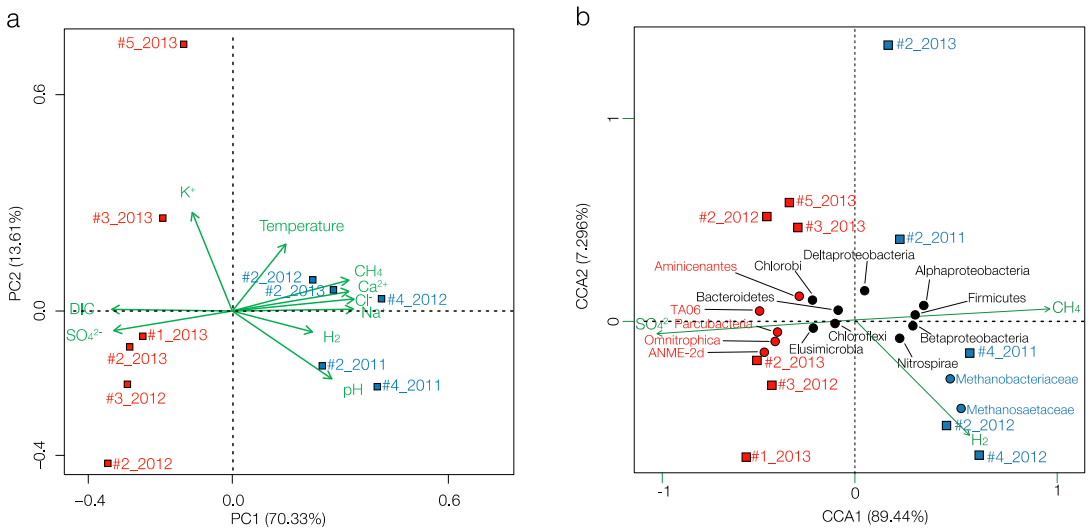


図 1.1.1.7. 環境因子と微生物群集組成の多変量解析。(a) 掘削孔 HFDB と SFDB の各区間における環境因子と水質の主成分分析(PCA)。矢印と四角は環境因子と各区間を示す。(b) 環境因子と微生物間の正準コレスポンデンス分析(CCA)。円と四角は、微生物の分類群と各区間における微生物群集を示す。HFDB は赤、SFDB は青で示した。(Ino et al., 2018 より引用)

硫酸を酸化剤としたメタン酸化が HFDB に生息する微生物により行われているかを明らかにするために、^{13}C でラベルされたメタンを常圧条件で添加して 2 週間の培養を行った(Ino et al., 2018)。その結果、^{13}C でラベルされた DIC と硫化水素が生成された(図 1.1.1.8)。一方、硫酸を酸化剤とした呼吸をモリブデンにより阻害したところ反応が進行しなかったため、メタン酸化が硫酸を酸化剤として微生物により還元されていることが明らかとなった。また DIC の濃度と同位体組成から計算されたメタン酸化速度は 3.7 nM/year であり、上述の硫酸の濃度と同位体組成から計算された硫酸還元速度とほぼ一致した。

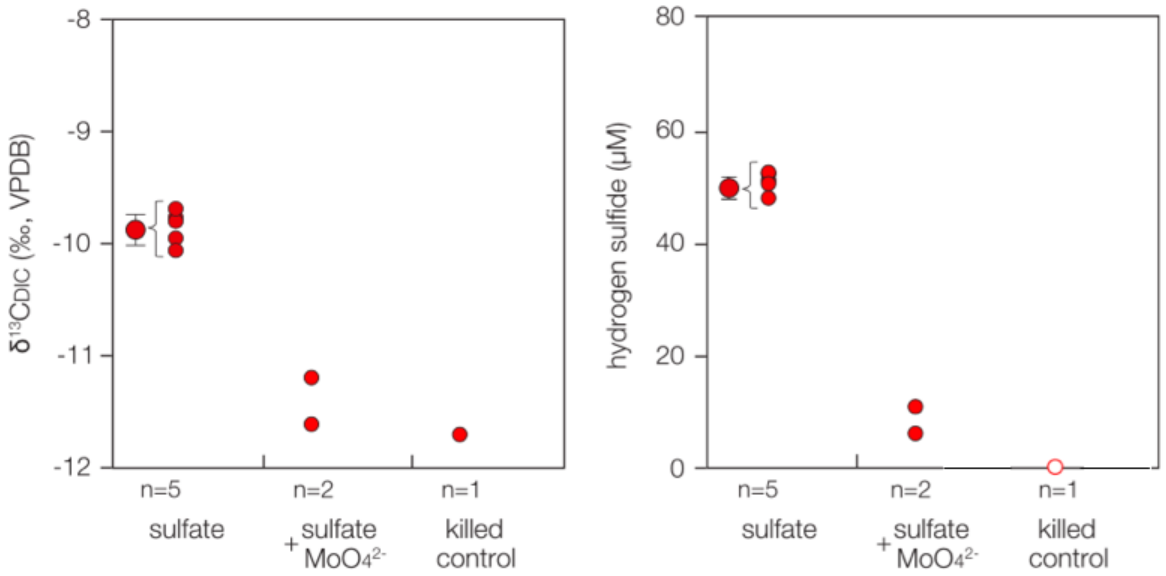


図 1.1.1.8. 安定同位体標識による炭素同位体比率と硫化水素生成の測定。SFDB 地下水に～400 μM の ^{13}C ラベルしたメタン、～60 nM の水素、～70 μM の硫酸に加え、SFDB からの生きた微生物細胞と死滅させた微生物細胞を用いて、2 週間の培養を行った。モリブデンは、硫酸還元の阻害剤であるとして添加した。赤で示した丸は、DIC の安定炭素同位体組成と硫化水素の濃度。未検出の場合は、白い丸で示した。n は測定回数を示す。(Ino et al., 2018 より引用)

陸域の地下深部はメタンまたは硫酸濃度が低いため、これまで微生物によるメタン酸化が起きないと考えらえてきた(LaRowe, et al., 2008)。しかし、以上の研究により、瑞浪の花崗岩に代表されるような淡水起源の地下水が主要な深部地質環境での微生物によるメタン酸化の重要性が示された(Ino et al., 2018)。

1.2. 幌延深地層研究所における調査事例

1.2.1. 水理地質学および生物地球化学の特性評価

幌延深地層研究所周辺は主に声問層が露出し、その下部には稚内層が分布する。稚内層はオパール A からオパール CT への相転移を伴い、埋没温度が 30–60°C 程度であり(Aoyagi and Kazama, 1980)。地温勾配から最大埋没深度は 800–1100 m と推定される（福沢, 1987）。堆積埋没後、大曲断層と幌延断層の活動や背斜構造の形成を伴う隆起、氷期間氷期サイクルによる浸食の促進と海水準変動により、海水・海退を経験したことが知られる(中山ほか, 2010)。これら気候・地質現象が駆動する地下水流動の情報を、地下水の水質や安定同位体は記録することが知られる(甲斐・前川, 2009)。幌延深地層研究所周辺では, 大曲断層近傍の背斜成長により天水起源の地下水が地層中に侵入し、淡水化の進行が稚内層上部の亀裂帯を伴ったゾーンで顕著である(Ishii et al., 2011)。

幌延深地層研究所の東立坑脇で SAB-1 号孔のボーリング調査が実施され、深度 150 から

512.8 m のコアリングおよび水理試験後の 3 区間での地下水採取が行われた (深部地質研究コア, 2009; 産業技術総合研究所, 2016)。声問層から 2 深度, 稚内層から 6 深度のコア試料を間隙水抽出に供し, 地下水に関しては 3 区間 (RW3-5) を対象とした(図 1.2.1.1)。しかし、間隙水が抽出できない深度や、抽出できた場合も少量で分析項目が限られるため、データ補完のため浸漬法により間隙水の水質を推定した。埋没・続成作用後に変質した海水は、塩分濃度が海水の約半分で酸素の安定同位体が海水より正の値を示すことが知られ(甲斐・前川, 2009)、幌延深地層研究所地下施設周辺では稚内層深部に停滞し、その上部で塩淡境界を形成することが確認された。

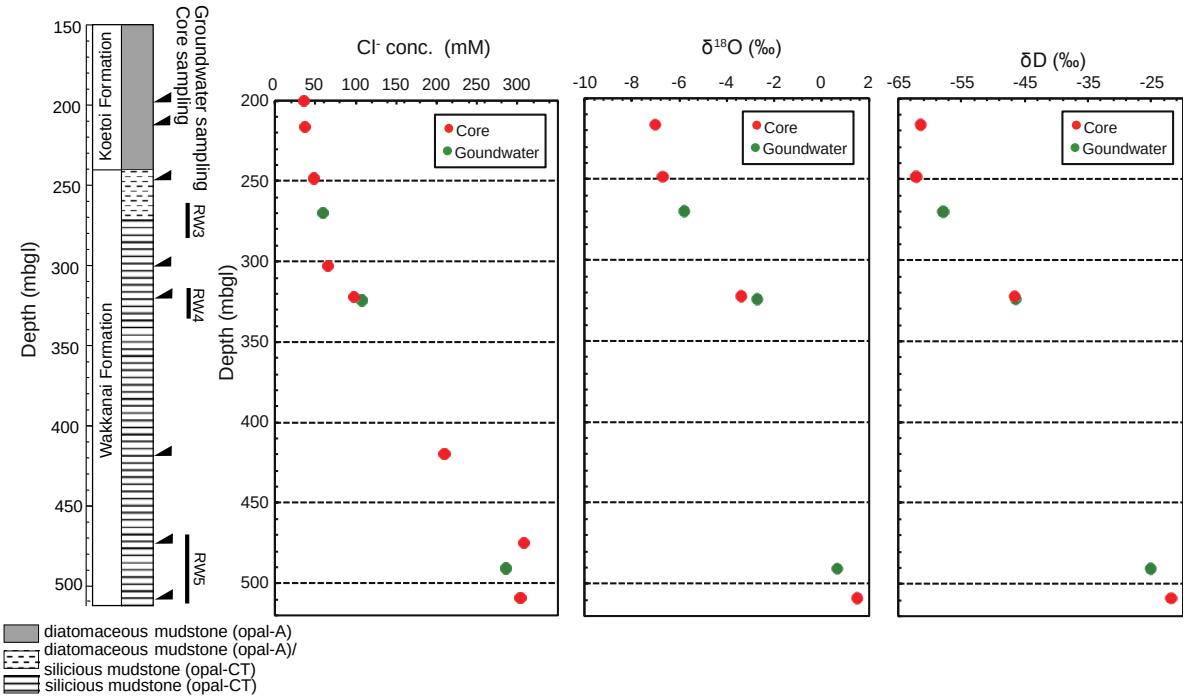


図 1.2.1.1. SAB1 号孔の柱状図とコア試料の採取深度（矢印）および地下水採取区間。コアから抽出された間隙水と揚水した地下水の塩化物イオン濃度および水の酸素・水素安定同位体組成。（産業技術総合研究所, 2016 より引用）

稚内層内の塩淡境界を横断して採取された地下水中のガス濃度を封圧採水後の全ガス抽出により測定した結果、メタン濃度と二酸化炭素濃度は深度と共に増加し、水素濃度は深度に関わらずほぼ一定であった(表 1.2.1.1)(産業技術総合研究所, 2016)。また、メタンの炭素・水素安定同位体組成とメタンの炭素安定同位体組成と二酸化炭素の炭素安定同位体組成を Whiticar (1999)が考案した相関図にプロットした結果、メタンは微生物の水素をエネルギー源とした二酸化炭素の還元により海水から形成したことが示唆された(図 1.2.1.2)。また地下水の水素安定同位体組成とメタンの水素安定同位体組成を Whiticar (1999)が考案した

図にプロットしたところ、メタンは淡水ではなく海水から形成したことが示唆された。二酸化炭素の炭素安定同位体組成は化石海水の停滞する深部では 10‰と淡水化が進行する深度の炭素安定同位体組成の 17‰よりも有為に軽かった。

表 1.2.1.1. 地下水中の溶存ガス濃度と安定同位体組成。（産業技術総合研究所，2016 より引用）

Sample name	RW3	RW4	RW5
Samling year	2008	2008	2008
CH_4 (mM)	31.3 ± 3.6	49.3	60.9
$\delta^{13}C_{CH4}$ (‰)	-55.7	-56.5	-57.2
δD_{CH4} (‰)	-165.8	-180.3	-164.2
CO_2 (mM)	54.3	77.2	100.4
$\delta^{13}C_{CO2}$ (‰)	+17.8	+17.5	+10.8
H_2 (μM)	2.8 ± 0.6	2.0 ± 0.7	4.2
δD (‰)	-772	-790	-825
O_2 (μM)	<100	<100	<100

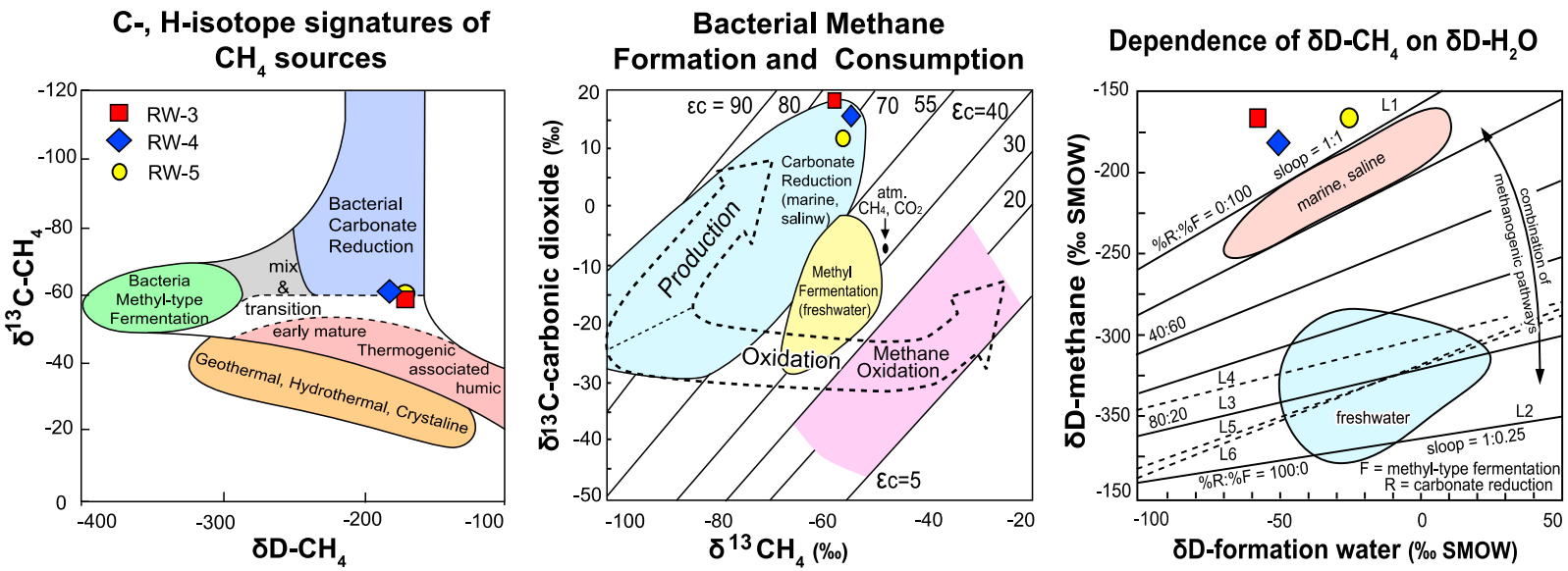


図 1.2.1.2. 揚水地下水中のメタンの炭素・水素安定同位体組成、二酸化炭素の炭素安定同位体組成、および形成場の水の水素安定同位体組成から推定されるメタンの起源および形成環境。(Whiticar, 1999 より引用)

メタンの微生物による生成が、現在の化石海水中で起きているのか、または堆積後の初期続成当時に生成されて現在は生成していないかを明らかにするため、メタン生成活性を測定した(図 1.2.1.3)(産業技術総合研究所, 2016)。その結果, 安定同位体組成から示唆された微生物の二酸化炭素還元によるメタン生成が化石海水の残る深度で高いことが明らかになった。またメタン生成の原材料になる酢酸濃度を間隙水と地下水で測定して比較したところ、地下水中で酢酸濃度が間隙水に比べて著しく減少していることが判明した. 同様に酸化還元反応に関わる硫酸や亜硝酸イオンを比較した結果、程度に違いはあるが地下水中で濃度が間隙水に比べて低下することが明らかになった。同様の結果はその他の地上からの掘削調査でも報告されており(Sasamoto, et al., 2011)、地下深部における酸化還元状態の評価と核種移行の長期予測に不確実性を生じる原因なり得る。また、水理特性に影響を及ぼすガス生成が、淡水化により弱体する可能性を示唆した。

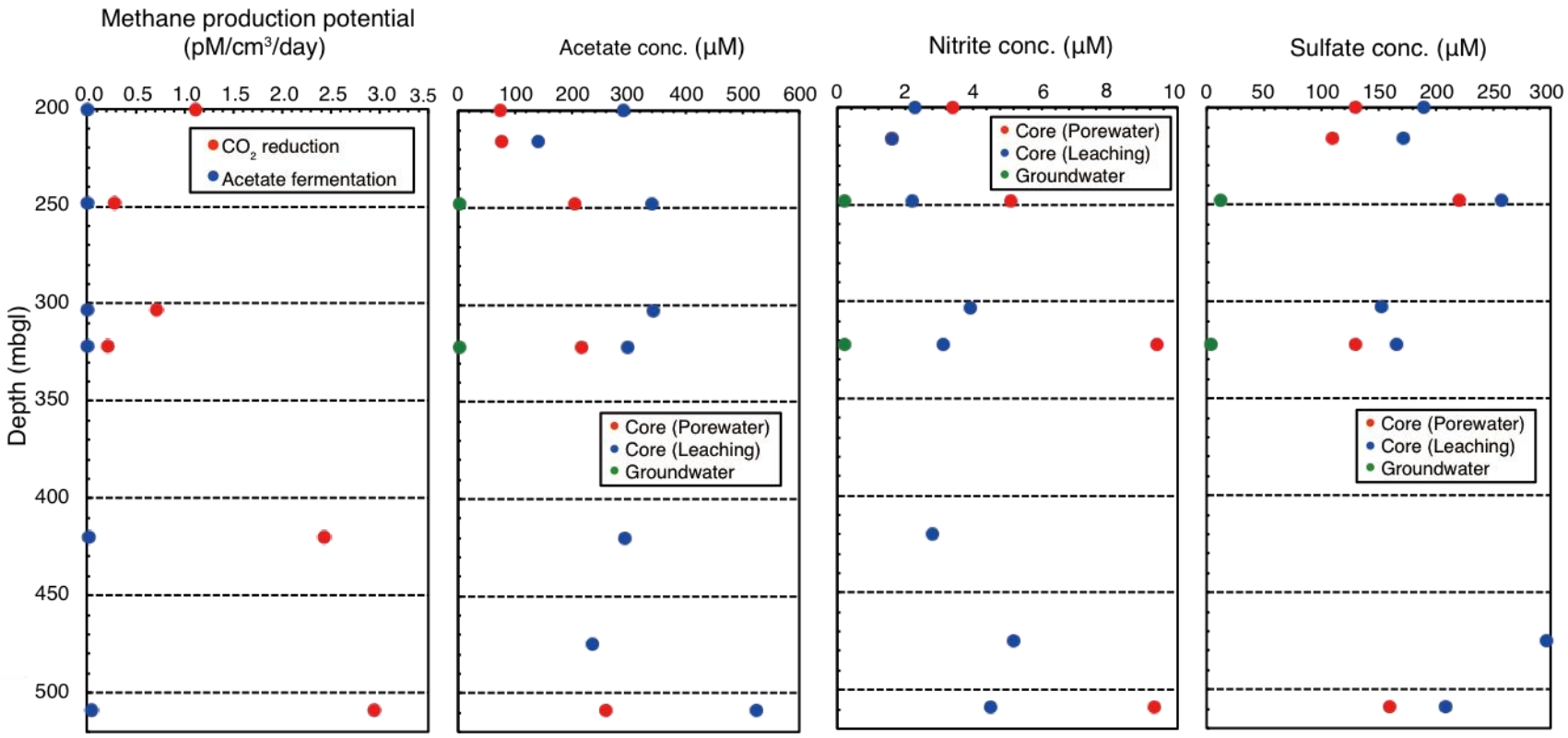


図 1.2.1.3. コア試料中の二酸化炭素還元と酢酸発酵を介したメタン生成活性、コアから抽出した間隙水、浸漬実験により外挿された間隙水および揚水地下水中の酢酸、亜硝酸、硫酸塩濃度。(産業技術総合研究所, 2016 より引用)

1.2.2. 微生物特性の評価

幌延深地層研究所の地下施設を用いた微生物調査は換気立坑側のボーリング孔 V140m と V250m、東立坑側のボーリング孔 E160m、E185m、E215m で行われた(図 1.2.2.1)(Ise et al., 2017; Hernsdorf et al., 2017)。微生物調査の結果については Hernsdorf(2017)に報告されており、メタン酸化古細菌に関連する部分について詳述する。

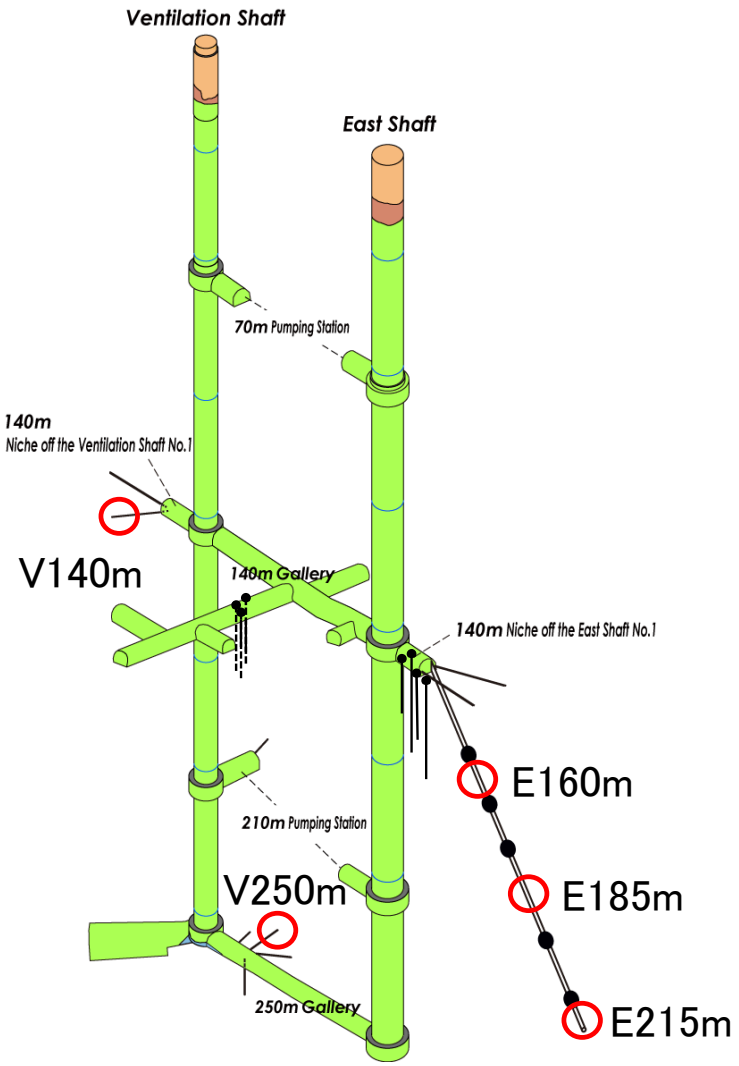


図 1.2.2.1. 幌延深地層研究所の地下施設における東立孔(East Shaft)と換気立孔(Ventilation Shaft)およびボーリング孔とサンプリング区間。(Ise et al., 2017 より改変して引用)

次に、微生物の群集組成を 16S rRNA 遺伝子配列を用いて解析した結果、メタン酸化古細菌(HGW-Methanoperedenaceaea-1)が、E215m で全体の 30%程度をしめることが明らかとなった(図 1.2.2.2) (Hernsdorf et al., 2017)。

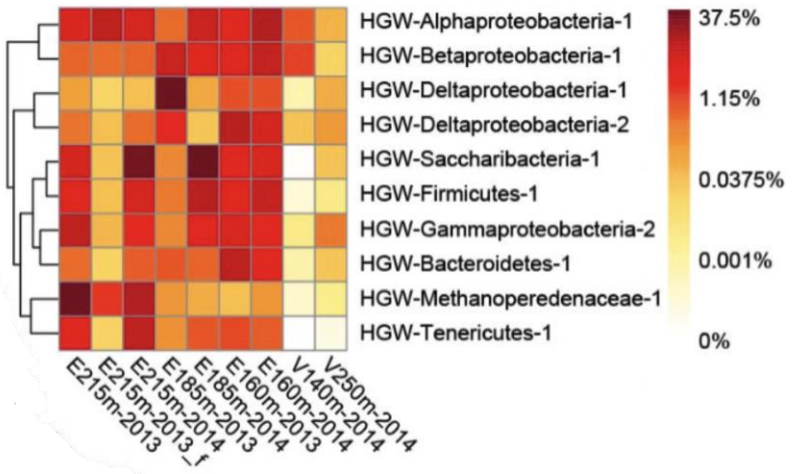


図 1.2.2.2.　16S rRNA 遺伝子配列解析で検出した微生物データを東立孔(E)および換気立孔(V)の地下水試料ごとにヒートマップ解析した結果。(Hernsdorf et al., 2017 より引用)

瑞浪と同様に環境因子の主成分分析により代表的な環境因子を選択し(図 1.2.2.3a)、その環境因子と微生物間の正準コレスポンデンス分析を行った(図 1.2.2.3b) (Hernsdorf et al., 2017)。その結果、メタン酸化古細菌の存在度は鉄濃度と強い相関性を示したため、三価鉄を酸化剤としてメタン酸化していることが推察された。

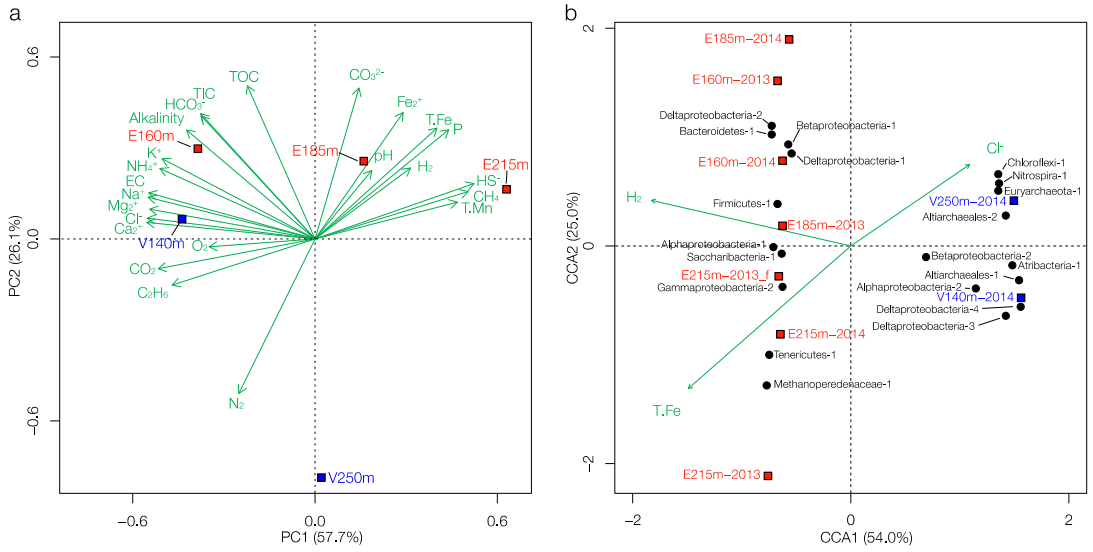


図 1.2.2.3.　環境因子と微生物群集組成の多変量解析。(a) 東立孔(E)の深度 165 m、185 m、215 m、および換気立孔(V)の 140 m 、250 m の環境因子と水質の主成分分析(PCA)。(b)地下水試料中の微生物群衆組成と環境要因の正準コレスポンデンス分析(CCA)。微生物の分類群と各区間における群集を円と四角、東立孔と換気立孔は赤と青で示した。(Hernsdorf et al., 2017 より引用)

しかし、幌延のメタン酸化古細菌のメタン酸化の活性測定は常圧でも行われていないため、実際にメタン酸化しているのかは不明である。

1.3. 研究の目的・実施意義

地質環境に生息するメタン酸化微生物は、硝酸、鉄、硫酸等の多様な酸化剤を用いて代謝することが常圧条件下の試験により明らかになっている。しかし、地下の高圧条件下でメタン酸化古細菌が用いる酸化剤の種類や反応速度、形成される化学環境については未解明である。本研究の目標として、地下環境を模擬した室内高圧試験により、メタン酸化古細菌による酸化剤の利用選択性や代謝速度、形成される化学環境の評価を行うと共に、酸化剤の代謝反応が放射性核種の移行に与える影響についても考察する。

1.4. 地層処分事業における位置付け・研究実施により期待される波及効果

処分場閉鎖直後の酸化環境から処分場建設前の還元環境に回復する過程において、物質移動の場となる化学環境の形成の観点から微生物の役割は非常に重要である。地下深部に豊富に存在するメタンが、微生物による触媒的反応を介して還元剤となれば化学環境の回復を保証でき地層処分の安全性を高めることにつながる。三価鉄還元はマルチヘムサイトクロムと呼ばれる電子伝達酵素で触媒され、ウラン等の放射性核種の還元反応を触媒し、溶解度制限固相の形成を促進することが期待される。本提案で開発する技術は概要調査を想定した地上からの掘削でも利用可能であるため、汎用的調査技術の発展にも寄与する。

2. 全体研究計画（3 ヵ年における全体計画）

瑞浪超深地層研究所と幌延深地層研究所の母岩は花崗岩と海成堆積岩と大きく異なるが、地下坑道から掘削した水平ボーリング孔から採取される高品質な地下水試料中には、無酸素条件下でメタンをエネルギー源にして増殖する嫌気的メタン酸化古細菌が主要な微生物として存在していた。これらの結果から、微生物によるメタン酸化が化学環境の形成に重要であることを世界に先駆けて示した。しかし、先行研究では常圧条件で ^{13}C ラベルしたメタンを添加して、メタン酸化速度を測定するに留まった。微生物の代謝活動とメタンの溶解度は圧力に敏感に変化するため、正確な代謝速度を測定するには現場と同じ高圧条件で培養を行う必要がある。本提案研究では、嫌気的メタン酸化古細菌が生息する両サイトの地下水試料を用いて、高圧培養実験手法の開発と微生物代謝速度を測定する。

2.1. 高圧培養実験手法の開発

地下水を掘削孔から採取する際に圧力低下を防ぐため、高水圧ポンプを用いて高圧容器

に地下水を採取し、高圧状態を維持しながら高圧容器に硝酸・三価鉄・硫酸を任意の量を添加する手法を確立する。地下水中のメタン濃度は微生物のメタン酸化で減少する濃度変化量に比べて大きいため、メタン濃度の減少を測定して、メタン酸化速度を測定するのは不可能である。そのため、^{13}C ラベルされた CH_4 を溶存ガス濃度の 10 分の 1 量添加して培養し、メタン酸化で生じる ^{13}C ラベルされた無機炭酸の量を測定して酸化速度に換算する。

2.2. 硝酸・三価鉄・硫酸を酸化剤として用いたメタン酸化速度の測定

瑞浪と幌延の地下水は、硝酸と硫酸の濃度が低いため、メタン酸化により消費される硝酸と硫酸の量については濃度変化の測定により明らかにできる。しかし、幌延の地下水には二価鉄が高濃度で含まれるため、安定同位体ラベルされた三価鉄(^{57}Fe)を加えることでメタン酸化と同様に、三価鉄の還元速度の測定が可能となる。硝酸と硫酸を高濃度で添加する場合は、代謝産物である亜硝酸、亜酸化窒素、窒素、硫化水素等の生成量を測定して酸化速度に換算する。

2.3.1. H30 年度実施内容

(a) 瑞浪超深地層研究所における高圧培養手法の確立およびメタン酸化速度の測定

溶存ガス濃度が低く、高水圧状態で地下水を扱いやすい瑞浪の地下水を用いて高圧培養手法を確立する。瑞浪地下水の溶存メタン濃度は 300 μM 程度であるため、^{13}C メタン 30 μM を高圧容器に加える。硝酸・三価鉄・硫酸の濃度条件を変えてメタン酸化速度を測定し、微生物代謝速度を加味した安全評価に必要なパラメーター(最大代謝速度 Vmax、半飽和濃度 Ks)を取得する。三価鉄は実験室で合成した ^{57}Fe ラベルしていない非晶質三価鉄(フェリハイドライト)を用いて速度を測定する。

(b) 幌延深地層研究所における三価鉄を用いたメタン酸化速度の測定手法の確立

^{57}Fe を主成分とする金属鉄を塩酸溶液中で溶解し、その後中和して非晶質三価鉄を合成する。マルチコレクタ ICP-MS による $^{56}Fe/^{57}Fe$ の同位体比測定は既に立ち上がっているので利用する。

2.3.2. H31 年度実施内容

(a) 幌延深地層研究所における高圧培養手法の確立およびメタン酸化速度の測定

幌延地下水の溶存メタン濃度は 30 mM 程度と高いため、^{13}C メタン 3 mM を封圧容器に加える。硝酸と硫酸は瑞浪と同様に測定し、三価鉄に関しては ^{57}Fe でラベルされた非晶質三価鉄を加えて培養を行う。

(b)メタン濃度条件ごとのメタン酸化速度の測定

現場メタン濃度に近い条件で酸化剤の種類と濃度を変えて測定した H30 年度(a)と H31 年度(a)の実施結果を加味して、酸化剤濃度を固定した条件でメタン酸化速度を測定する。メタン濃度はヘッドスペースと呼ばれる容器中の気体の体積を変えて、メタン濃度に応じたメタン酸化速度を測定し、安全評価に必要な最大代謝速度 Vmax と半飽和濃度 Ks を取得する。

2.3.3. H32 年度実施内容

(a) 異なる三価鉄鉱物を用いたメタン酸化速度の測定

幌延深地層研究所の堆積岩中には三価鉄を含む粘土鉱物が含まれることが明らかになっているため、岩石コア中の粘土鉱物を用いてメタン酸化速度を測定する。地上に保管されている酸化された岩石を用いてメタン酸化速度の測定を行い、埋め戻し後の回復過程への影響を評価する。

(b)取りまとめと成果発信

微生物の鉄還元はウラン、ネプツニウム等の放射性核種の還元反応を促進し、溶解度制限固相の形成に影響を及ぼす。また、微生物は硝酸を用いて窒素ガスや亜硝酸を生成し、地質環境へ影響を与える。これらの影響についても取りまとめ、成果発信として地層処分関連学会での発表と国際誌への論文投稿を行う。

3. 平成 30 年度の計画、実施方法

【平成 30 年度の成果内容】

3.1. 瑞浪超深地層研究所における高圧培養手法の確立およびメタン酸化速度の測定

地質環境に生息するメタン酸化古細菌は、硝酸、鉄、硫酸等の多様な酸化剤を用いて代謝することが常圧条件下の試験により明らかになっているが(Ino et al., 2018)、地下の高圧条件下でメタン酸化古細菌が用いる酸化剤の種類や反応速度、形成される化学環境については未解明である。本計画では、瑞浪超深地層研究所の地下水を高圧条件下で培養して、地質環境のメタン酸化古細菌による酸化剤の利用選択性や代謝速度、形成される化学環境の評価を行うと共に、酸化剤の代謝反応が放射性核種の移行に与える影響についても考察することを目的とした。地下環境を模擬した室内高圧試験では、地下深部から湧出する高圧地下水を圧力維持して高圧容器に直接採取し、容器内の高圧状態を維持した状態で、^{13}C メタン及び酸化剤を任意の濃度で添加した後、室温で保存して高圧培養を行う。高圧培養した地下水を分析する為に高圧容器から真空バイアル瓶へ採取するが、経時間変化を追う際は高圧培養の途中で地下水を分取する必要がある。従来の耐圧容器では、容器内への試料の添加や容器からの採取の際に圧力が低下するという問題があった為、本年度は内部の圧力を調整可能な封圧容器を準備し、高圧培養実験の手法確

立を行った。高圧培養実験の準備を行った後、瑞浪超深地層研究所の地下水を採取し、メタンと酸化剤をそれぞれ添加して、高圧培養を開始した。

3.1.1. 封圧培養容器の準備と高圧培養実験手法の開発

本研究では、高圧培養用に容量 300 ml のステンレス製封圧容器 12 体を準備した。封圧容器は、内部の圧力を任意に調節する為に、内部をシャフトで連結されたピストンにより下流側と上流側の 2 室に分けた構造にし、下流側と上流側のそれぞれ配管接続用クイックコネクター(Swagelock 製)を取り付けた(図 3.1.1.1)。機密性を高め、容器内の試料を分取する際の流量を調節する為に、下流側と上流側に無回転ステム式ニードル・バルブ(Swagelock 製)を取り付けた。保存中や採水時における容器内部の圧力を測定する為、地下水試を採水する下流側にアナログ式の圧力計を設置した。

準備した封圧容器に地下水試料を採水する際は、下流側のクイックコネクターを介して封入する。その際、ピストンの下流側に加圧ポンプにて水を送り込むとピストンは上流側に移動し、ピストンが上流側まで完全に移動した後、さらに水を送り込むと下流側は加圧状態となる。下流側の圧力が高い状態では、上流側の採取口のみを開けてもピストンは移動しない。また、下流側の採取口を解放すると、圧力が低下してピストンが下流側に戻り上流側には水が流入する。上流側にポンプを取り付け加圧しながら下流側のバルブを開けることで、圧力を保ったまま内部の地下水を分取することが可能となる。

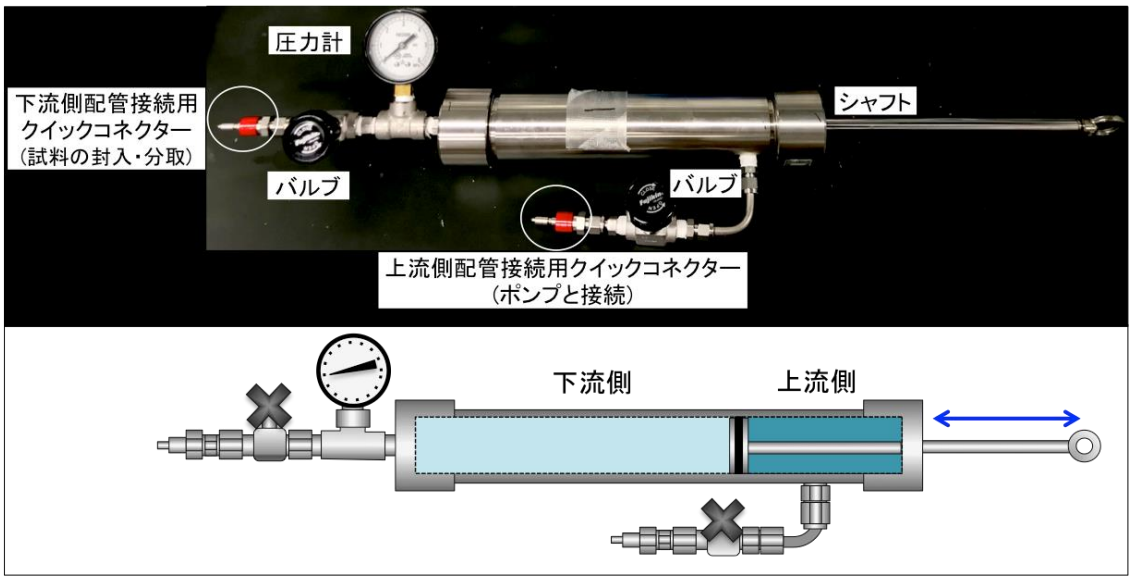


図 3.1.1.1. ステンレス製封圧容器と内部構造。

封圧容器の耐圧性と機密機密性、及び気体成分の散逸や容器内における気体成分の発生の有無を確認する為の性能試験を実施した。耐圧性と機密機密性に関しては、封圧容器の下流側にクイックコネクターを介して超純水を 5.0 MPa の圧力で採取した後、室温（21

度）で 1 週間保存して容器内部における圧力の変化を調べ、採取時の圧力に対して±10%以内で、内部の圧力がある程度保たれること確認した(表 3.1.1.1)。

表 3.1.1.1. 封圧容器の耐圧・気密試験。

	数値
超純水採取後の圧力指示値(MPa)	5.0
1 週間保存後の圧力指示値(MPa)	5.0
変動率(%)	0.0

地下水試料中に溶存する気体成分の散逸や容器内における気体成分の発生の有無に関しては、封圧容器で地下水を一週間保持した後に容器内試料を大気非接触で真空バイアルに採取し、抽出された地下水に溶存する気体成分(水素、メタン、一酸化炭素)を測定して確認した。試験には瑞浪超深地層研究所の地下水を用い、メタンの測定にはガスクロマトグラフ水素炎イオン検出器 GC-FID を用いた。真空バイアルに採取した地下水試料をそれぞれ測定した結果、3 成分とも一週間の変動率は±20%以内で、気体成分の散逸や容器内における気体成分の発生は殆どないことが示された(表 3.1.1.2)。

表 3.1.1.2. 気体成分の散逸・生成確認試験。

	保存開始時間濃度	保存後濃度(MPa)	変動(%)
水素	8.0	9.3	+16
メタン	178	197	+10.7
一酸化炭素	40.7	34.7	-14.8

封圧容器の下流側に地下から湧出する高圧地下水を圧力維持したまま採水した後、^{13}C メタン及び酸化剤などを添加する際は、大気の混入を防ぐ必要がある。本研究では、両端に配管接続用クイックコネクターを接続したチューブを用いて内部に試料を添加する手法を開発した。最初に、大気の混入を防ぐため、チューブの片側にクイックコネクターを介してポンプを接続し、真空引きを行った。真空引きしたチューブの反対側に接続したシリンジを利用して、添加する ^{13}C メタンや酸化剤をチューブ内に封入した(図 3.1.1.2)。次に、封圧容器の下流側に添加剤を封入したチューブ、上流側にはポンプをそれぞれクイックコネクターを介して接続した。ポンプを動かしながら、バルブを解放することで、内部の圧力を一定に保ったまま、封圧容器内に試料を添加することに成功した(図 3.1.1.3)。

図 3.1.1.2. ポンプで真空引きしたチューブ内に ^{13}C メタンを封入する手法。

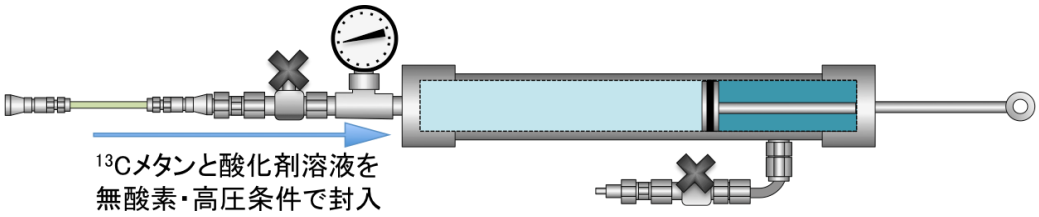


図 3.1.1.3. チューブを用いて封圧容器に試薬を添加する手法。

室内高圧試験後に、内部の圧力を維持しながら培養した地下水を分取可するために、地下水を採取した封圧容器の上流側と下流側に配管接続用クイックコネクターを介してポンプと注射針をそれぞれ接続し、採水用の真空バイアル瓶を用意した(図 3.1.1.4)。上流側のポンプを動かし圧力を一定にしながら下流側のバルブを開けたところ、圧力が一定のまま内部の地下水試料を真空バイアル瓶に採取することができた。真空バイアル瓶は、溶存無機炭素(DIC)の同位体測定を行うため、瓶内にアミド硫酸を封入し、真空引きして作成した。

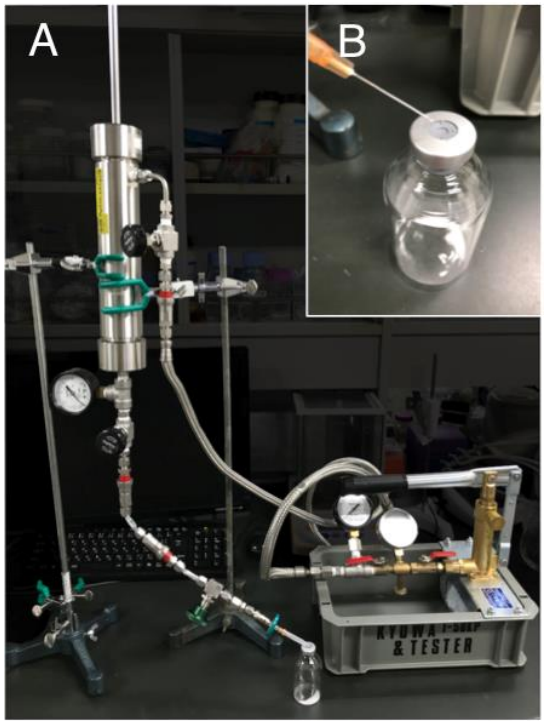


図 3.1.1.4. 封圧容器内の圧力を下げずに分取する系（A）とアミド硫酸を入れた真空バイアル瓶に採水する様子(B)。

3.1.2. 瑞浪超深地層研究所におけるメタン酸化速度の測定

地下環境を模擬した室内高圧試験を実施する準備が整ったので、地下の高圧条件下でメタン酸化古細菌の代謝によって形成される化学環境や放射性核種の移行に与える影響を評価に地下水の高圧培養を開始した。本実験では、瑞浪超深地層研究所内の地下坑道の深度 300m に位置する 09MI20 号孔(区間 1)から湧出する高圧地下水を圧力維持したまま、3.1.1 で準備した封圧容器に直接採水した。下流側から採水する際は、上流側にチューブ付きクイックコネクターを接続し、バルブを解放して、封圧容器のシャフトを上流側に移動させた。封圧容器の内部から大気を取り除く為に、下流側を解放してから上流側に地下水を封入して、内部の気体と地下水を排出して、再び下流側に地下水を封入する作業を 3 回繰り返した。内部の圧力は、下流側のバルブを閉じた状態で上流側から地下水を封入し、シャフトを動かすことで任意の 2.0 MPa となるよう調節した。地下水の封入後は、バルブを閉じて圧力が一定に保たれるようにした。

瑞浪地下水の溶存メタン濃度は 300 μM 程度であるため、添加する ^{13}C メタンの濃度は 30 μM とした。メタン酸化速度を測定するために、0.1～10 mM で濃度を変えた酸化剤の硝酸と硫酸、09MI20 号孔(区間 1)の地下水から回収した微生物を用意した。2019 年 2 月 12 から 14 日に実施した超深地層研究所における高圧培養実験では、高圧培養には、硫酸濃度の低い 09MI21 号孔(区間 2)の地下水を 0.2μm フィルターを介して 12 体の封圧容器にそれぞれ直接採水した。地下水を封入した封圧容器に、^{13}C メタンと酸化剤を本研究で開発したクイックコネクター付きのチューブ(図 3.1.1.2)を用いて添加した後、

封圧容器は室内に静置して、高圧培養をスタートさせた。本研究では今後、アミド硫酸入りの真空バイアル瓶に分取した地下水を用いて溶存無機炭素(DIC)の同位体を測る予定である。三価鉄は実験室で合成した ^{57}Fe ラベルしていない非晶質三価鉄(フェリハイドライト)を 50 mg/L 用意した。

3.2. 表層に生息するメタン酸化古細菌が埋め戻し時に及ぼす影響の評価

瑞浪と幌延の深層地下水中に生息するメタン酸化古細菌は、それぞれ硫酸と鉄を酸化剤としてメタン酸化することが判明したが、表層環境に生息するメタン酸化古細菌はどのような酸化剤を用いるのか、および深層地下水でメタン酸化を行えるのか等、不明な点が多い。そこで深層地下水と表層環境に生息するメタン酸化古細菌のゲノムを比較して、地下環境への適応進化と代謝の中でも特に窒素固定や酸化剤の利用に関する遺伝子群の有無を調べた。

メタン酸化古細菌ゲノムとして、瑞浪(Mizunami *Methanoperedens*)と幌延(Horonobe Methanoperedens)のゲノムサイズを調べた結果、表層の *Methanoperedens niroreduces* と *Methanoperedens* sp. BLZ1 と比べて 100 万塩基(Mbp)を超えるほど縮小していることが明らかとなった(表 3.2.1)。ゲノムサイズの縮小は生存に不必要な遺伝子を喪失し、より過酷な環境に適応する上で必要な生物進化であることが知られているため（Madigan & Martinko, 2005）、瑞浪と幌延の深層地下水環境が表層と比べると生物にとっては存在が困難であることが伺える。

表 3.2.1. 表層環境と瑞浪と幌延の地下水から得られたメタン酸化古細菌のゲノム比較

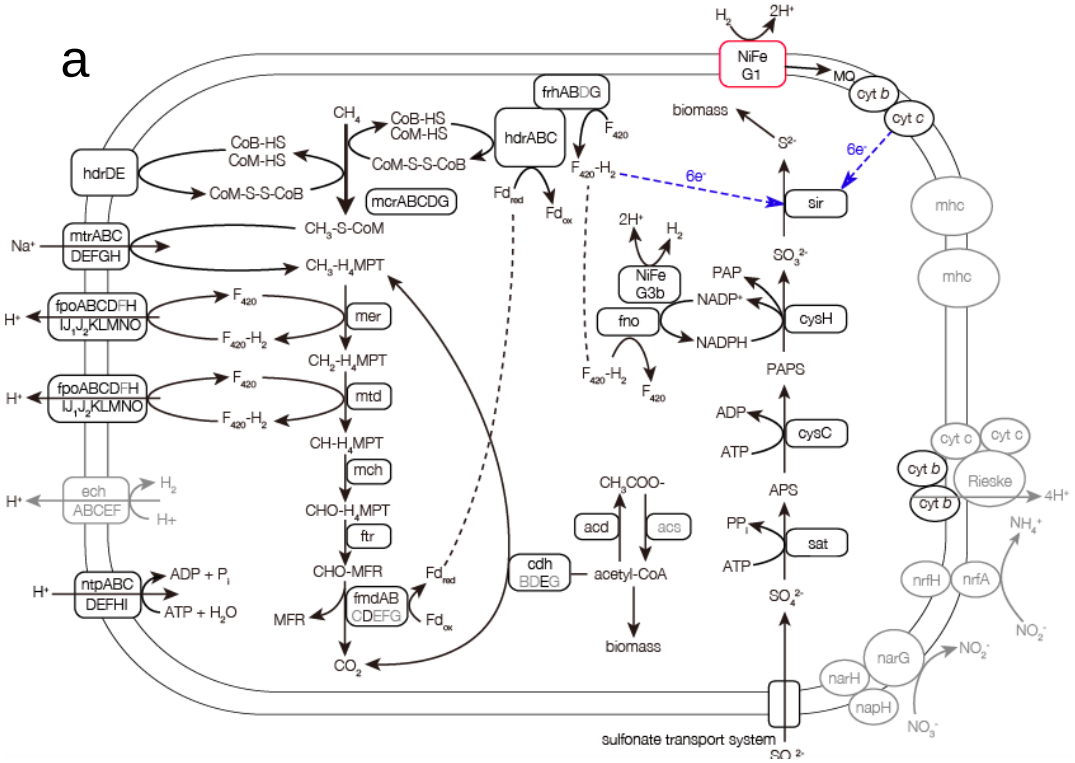
Organisms	Bin size (Mbp)	GC content (%)	Contigs #	Gene #	Competion (%)
Mizunami*Methanoperedens*	2.04	44.7	161	2468	98.8
Horonobe *Methanoperedens*	1.93	43.2	100	2213	96.8
Methanoperedens nitroreducens	3.20	43.2	10	3254	98.8
Methanoperredens sp. BLZ1	3.74	40.2	514	4528	96.8

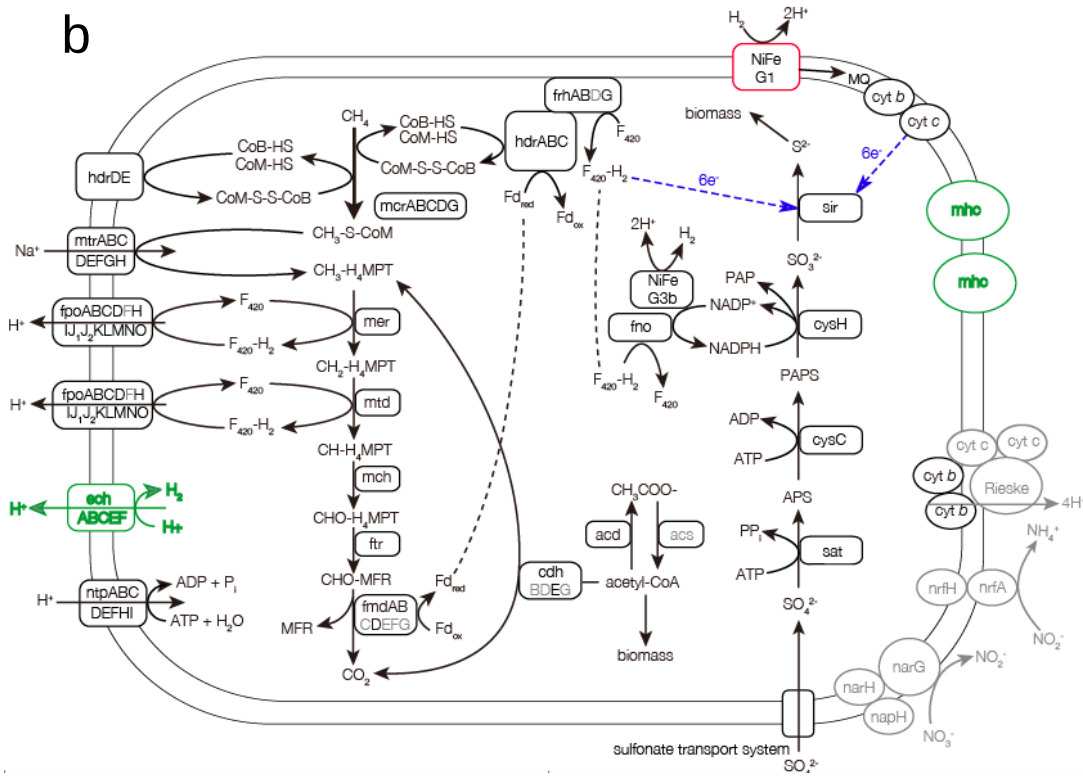
メタン酸化に関わる遺伝子群の比較については報告されているが(Haroon, et al., 2013、Arshad, et al., 2015、Ino ,et al., 2018、Hernsdorf, et al., 2017)酸化剤の比較に関してはまだ行われていない。硝酸を酸化剤としたメタン酸化については、硝酸が検出下限をしたまわる瑞浪と幌延のゲノム中には硝酸に関連した代謝遺伝子が無いのに対し、表層環境のゲノム中には硝酸から亜硝酸、および亜硝酸からアンモニアへの反応に関わる遺伝子が存在した(表 3.2.2)。窒素固定に関する遺伝子も表層環境のゲノムにのみ含まれるため、窒素代謝の遺伝子群が大きくことなることが判明した。深層地下水にはアンモニアが高濃度で含まれていることが一般的であるため、地下では不必要な遺伝子であったと考えられる。

表 3.2.2. 表層環境と瑞浪と幌延の地下水から得られたメタン酸化古細菌のゲノム中の窒素関連遺伝子群の比較。

	Mizunami *Methanoperedens*	Horonobe *Methanoperedens*	*Methanoperedens nitroreducens*	*Methanoperredens* sp. BLZ1
M00175 Nitrogen fixation				
K02588 Nitrogenase iron protein nifH			1	1
K02586 Nitrogenase molybdenum-iron protein alpha chain nifD			1	1
K02591 Nitrogenase molybdenum-iron protein beta chain nifK			1	1
M00530 Dissimilatory nitrate reduction				
K00370 Nitrate reductase / nitrite oxidoreductase, alpha subunit narG, narZ, nxrA			1	2
K00371Nitrate reductase / nitrite oxidoreductase, beta subunit narH, narY, nxrB			1	2
K00374 Nitrate reductase gamma subunit narI, narV				1
K03385 Nitrite reductase (cytochrome c-552) nrfA			2	1
K15876 Cytochrome c nitrite reductase small subunit nrfH			2	1

一方、硫酸を酸化剤として利用するための遺伝子群は、瑞浪だけでなく幌延や表層環境のゲノムにも含まれている(図 3.2.1)。しかし、亜硫酸から硫化水素の反応に関わる遺伝子が、通常の硫酸を酸化剤として理由する微生物の遺伝子と異なるため(Ino, et al., 2018)、メタン酸化古細菌が硫酸を酸化剤として単独でメタン酸化を行うかは今後決定していく必要がある。また、三価鉄やウラン等の放射性核種を酸化剤にする際に用いる遺伝子(図中で mhc と記す)は、瑞浪のゲノムには含まれないが幌延と表層環境では含まれているため、花崗岩深部では三価鉄等の酸化剤が欠乏していること伺える。加えて、表層環境のゲノムには硝酸、硫酸、三価鉄等の多様な酸化剤を用いるために必要な遺伝子が含まれており、様々な環境に適応する潜在能力が高いことが推察される。


a
NiFe G1
MQ
cyt b
cyt c
frhABDG
hdrABC
hdrDE
mcrABCDG
mtrABC DEFGH
fpoABCDFH IJ1J2KLMNO
mer
mtd
mch
ftr
fmdAB CDEFG
ech ABCEF
ntpABC DEFHI
fno
NiFe G3b
sir
cysH
cysC
sat
acd
acs
odh BDEG
acetyl-CoA
biomass
sulfonate transport system
mhc
Rieske
nrfH
nrfA
narG
narH
napH
CoB-HS
CoM-HS
CoM-S-S-CoB
CH3-S-CoM
CH3-H4MPT
CH2-H4MPT
CH-H4MPT
CHO-H4MPT
CHO-MFR
MFR
CO2
ADP + Pi
ATP + H2O
PAP
NADP+
NADPH
PAPS
ADP
ATP
APS
CH3COO-
6e-
4H+


b
NiFe G1
MQ
cyt b
cyt c
frhABDG
hdrABC
hdrDE
mcrABCDG
mtrABC DEFGH
fpoABCDFH IJ1J2KLMNO
mer
mtd
mch
ftr
fmdAB CDEFG
ech ABCEF
ntpABC DEFHI
fno
NiFe G3b
sir
cysH
cysC
sat
acd
acs
odh BDEG
acetyl-CoA
biomass
sulfonate transport system
mhc
Rieske
nrfH
nrfA
narG
narH
napH
CoB-HS
CoM-HS
CoM-S-S-CoB
CH3-S-CoM
CH3-H4MPT
CH2-H4MPT
CH-H4MPT
CHO-H4MPT
CHO-MFR
MFR
CO2
ADP + Pi
ATP + H2O
PAP
NADP+
NADPH
PAPS
ADP
ATP
APS
CH3COO-
6e-
4H+

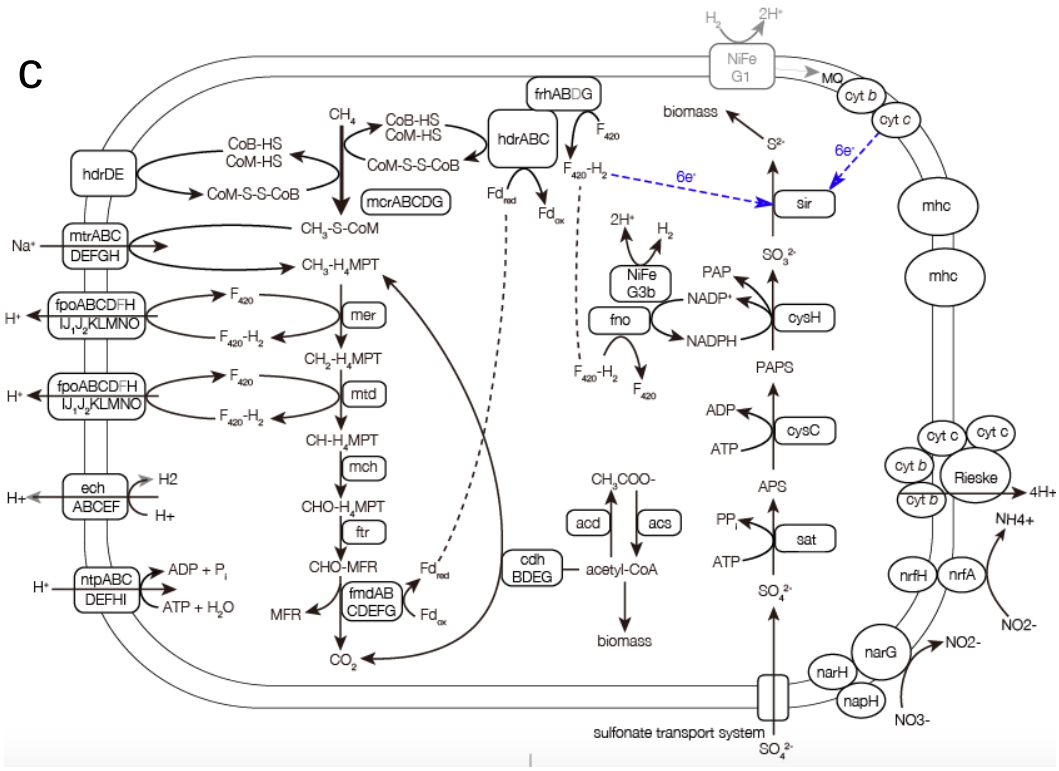


図 3.2.1. ゲノムから構築されたメタン酸化古細菌の代謝マップ（a）瑞浪地下水、(b) 幌延地下水、(c)表層環境。(Ino et al., 2018 より一部改変して引用)

現在、表層環境型のゲノムを持つメタン酸化古細菌が生息することが明らかとなっている小石川植物園内の池堆積物を、10 mM のメタンと 10 mM の硝酸を添加した条件で集積培養を行っており、次年度以降で表層環境のメタン酸化古細菌が深層地下水環境で生存して多様な酸化剤を用いたメタン酸化を行うのかを高圧培養によって明らかにする予定である。

4. 残された課題と今後の計画

本年度は地下環境を模擬した室内高圧試験を実施する準備と手法の開発を行った後、瑞浪超深地層研究所の地下水を採取し、^{13}C メタンと酸化剤を添加して、高圧培養を開始した。今後、培養が終了次第、溶存無機炭素(DIC)を分析し、メタン酸化速度の算出を行う予定である。

比較ゲノムにより硝酸を酸化剤としてメタン酸化を行うことが明らかとなったメタン酸化古細菌を、表層堆積物から培養した。今後、埋め戻し後に表層環境に生息するメタン酸化古細菌が化学環境の形成や放射性核種の移行に与える影響についても明らかにする。

5. まとめ

本年度は、地下の高圧条件下でメタン酸化古細菌の代謝によって形成される化学環境や

放射性核種の移行に与える影響を評価するために、地下環境を模擬した室内高圧試験を実施する準備と高圧培養を開始した。室内高圧試験を実施する準備として、シャフト付きステンレス製封圧容器の性能試験を行い、圧力を維持しながら封圧容器に地下水を採取して試料の添加及び分取可能な手法を確立させた。地下環境を模擬した室内高圧試験の実施が可能になったので、瑞浪超深地層研究所の地下水を採取し、30 μM の ^{13}C メタンと酸化剤として濃度 0.1～10 mM で硝酸と硫酸、50 mg/L の三価鉄をそれぞれ添加して、高圧培養を開始した。

深部地質環境に生息するメタン酸化古細菌は、酸化剤として鉄と硫酸を用いて代謝することが常圧条件下の試験により明らかになっている。メタン酸化古細菌は表層に生息することが知られており、埋め戻し後に増殖し化学環境形成や放射性核種移行に影響を及ぼす可能性がある。表層環境に生息するメタン酸化古細菌のゲノムを解析した結果、鉄と硫酸に加えて硝酸を酸化剤としてメタン酸化を行うことが明らかとなった。地下の高圧条件下で表層のメタン酸化古細菌がメタン酸化を行えるかについては未解明なため、高圧培養で評価する必要がある。本年度は、表層堆積物からメタン酸化古細菌を培養して、次年度以降で用いる準備も行った。

6. 参考文献

Arshad A, Speth DR, de Graaf RM, Op den Camp HJM, Jetten MSM, Welte CU. (2015) A metagenomics-based metabolic model of nitrate-dependent anaerobic oxida- tion of methane by Methanoperedens-like archaea. Front Microbiol 6, 1423.

Haroon MF, Hu S, Shi Y, Imelfort M, Keller J, Hugenholtz P et al. (2013) Anaerobic oxidation of methane coupled to nitrate reduction in a novel archaeal lineage. Nature, 500(7464), 567–570.

Hernsdorf AW, Amano Y, Miyakawa K, Ise K, Suzuki Y, Anantharaman K, Probst A., Burstein D, Thomas BC, Banfield JF (2017) Potential for microbial H2 and metal transformations associated with novel bacteria and archaea in deep terrestrial subsurface sediments. The ISME Journal, 11(8), 1915-1929.

Ino K, Hernsdorf AW, Konno U, Kouduka M, Yanagawa K, Kato S,Fukuda A (2018) Ecological and genomic profiling of anaerobic methane-oxidizing archaea in a deep granitic environment. The ISME journal, 12(1), 31.

Ise K, Sasaki Y, Amano Y, Iwatsuki T, Nanjo I, Asano T & Yoshikawa H (2017) The Succession of Bacterial Community Structure in Groundwater from a 250-m Gallery in the Horonobe Underground Research Laboratory. Geomicrobiology journal, 34(6), 489-499.

Ishii E, Sanada H, Funaki H, Sugita Y and Kurikami H (2011) The relationships among brittleness, deformation behavior, and transport properties in mudstones: An example from the Horonobe Underground Research Laboratory, Japan. Journal of Geophysical Research: Solid Earth (1978–2012), 116(B9).

Iwatsuki T, Hagiwara H, Ohmori K, Munemoto T, Onoe H (2015) Hydrochemical disturbances measured in groundwater during the construction and operation of a large-scale underground facility in deep crystalline rock in Japan. Environmental Earth Sciences, 74(4) 3041-3057.

LaRowe DE, Dale AW, Regnier P (2008) A thermodynamic analysis of the anaerobic oxidation of methane in marine sediments. Geobiology, 6(5), 436-449.

Lin LH, Hall J, Onstott TC, Gihring T, Sharwood Lollar B, Boice E, Pratt L, Lippman-Pipke J, Bellamy RES (2006) Planktonic microbial communities associated with fracture-derived groundwater in a deep gold mine of South Africa. Geomicrobiol J., 23(6), 475–497.

Madigan MT, Martinko JM. Brock biology of microorganisms (11th edn), Prentice Hall, Englewood Cliffs, NJ (2005).

Mizuno T, Aosai D, Shingu S, Hagiwara H, Yamamoto Y and Fukuda A (2013) Hydrochemical Changes Associated with Construction of Mizunami Underground Research Laboratory. Journal- Atomic Energy Society of Japan, 12(1), 89-102.

Ohmoto H & Lasaga AC (1982) Kinetics of reactions between aqueous sulfates and sulfides in hydrothermal systems. Geochimica et Cosmochimica Acta, 46(10), 1727-1745.

Sasamoto H, Arthur RC, and Hama K (2011) Interpretation of undisturbed hydrogeochemical conditions in Neogene sediments of the Horonobe area, Hokkaido, Japan. Applied Geochemistry, 26(8), 1464-1477.

Suzuki Y, Konno U, Fukuda A, Komatsu DD, Hirota A, Watanabe K et al. (2014). Biogeochemical Signals from Deep Microbial Life in Terrestrial Crust. PLoS ONE, 9(12), e113063.

Wang, G., A. J. Spivack, S. Rutherford, U. Manor and S. D'Hondt (2008) Quantification of co-occurring reaction rates in deep subseafloor sediments. Geochimica et Cosmochimica Acta, 72(14), 3479-3488.

Whiticar MJ (1999) Carbon and hydrogen isotope systematics of bacterial formation and oxidation of methane. Chemical Geology, 161(1-3), 291-314.

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 74: 96-106.

産業技術総合研究所深部地質環境研究コア（2009）平成 20 年度地下水流動解析モデルの総合的検証手法の検討、p7-1-28.

中山 雅, 佐野 満昭, 真田 祐幸, 杉田 裕（2010）幌延深地層研究計画 平成 21 年度調査研究成果報告. JAEA-Review 2010-039.

福沢 仁之(1987)北海道北部, 新第三紀後期の層状珪質岩の堆積場. 地学雑誌 93: 37-55.

産業技術総合研究所 (2016) 超長期の時間枠における地質学的変動，海水準変動等を考慮した地下水流動系の評価手法の整備、平成 27 年度事業報告書 pⅣ-14-89.

研究報告 6

ナチュラルアログ手法による締固めた
ベントナイトの膨潤特性・自己シール性能の
年代変化に関する評価

早稲田大学　理工学術院総合研究所

王　海龍

目次

1　背景・目的 1
2　全体研究計画（3 ヵ年における全体計画） 4
3　平成 30 年度研究実施内容 5
3.1　平成 30 年度の計画、実施方法 5
3.1.1　使用した試料の概要 6
3.1.2　不攪乱供試体および再構成供試体の作製方法 9
3.1.3　膨潤圧測定試験の概要 10
3.1.4　一次元膨潤変形試験の概要 12
3.1.5　自己シール性能評価試験の概要 14
3.2　平成 30 年度の成果内容 15
3.2.1　不攪乱供試体における膨潤圧挙動 15
3.2.2　不攪乱供試体における膨潤変形挙動 17
3.2.3　不攪乱供試体における自己シール性挙動 19
3.2.4　不攪乱供試体の密度と膨潤特性の関係 21
3.2.5　月布産原鉱石の不攪乱供試体と再構成供試体の比較 22
3.2.6　地質年代と膨潤特性の関係 24
3.2.7　原鉱石試験結果のまとめ 25
3.3　残された課題と今後の計画 26
4　まとめ 28
参考文献 29

図・表リスト

図 1-1　地層処分システムの概念図 1
図 3-1　原鉱石サンプルの様子 6
図 3-2　原鉱石の粉末試料の鉱物組成分析結果 8
図 3-3　不攪乱供試体（左）と再構成供試体（右）の作製概念図 9
図 3-4　膨潤圧試験装置の概略図 11
図 3-5　一次元膨潤変形試験装置 13
図 3-6　自己シール性能評価試験および実験手順の概念図 14
図 3-7　膨潤圧の試験結果 16
図 3-8　膨潤変形の試験結果 18
図 3-9　自己シール試験の試験結果 20
図 3-10　不攪乱供試体の密度と膨潤圧の関係（a）本研究の結果，（ｂ）本研究とクニゲルＶ１[21] の比較 21
図 3-11　不攪乱供試体の密度と膨潤変形の関係 21
図 3-12　月布産原鉱石の不攪乱供試体と再構成供試体の比較 23
図 3-13　地質年代と膨潤特性の関係（a）膨潤圧，(b)膨潤変形 24

表 2-1　本研究の実施計画 4
表 3-1　H30 年度の研究スケジュール 5
表 3-2　原鉱石の基本的性質 7
表 3-3　測定条件 8
表 3-4　原鉱石の膨潤圧試験供試体の諸元 15
表 3-5　原鉱石の膨潤変形試験供試体の諸元 17
表 3-6　原鉱石の自己シール性試験供試体の諸元 19
表 3-7　月布産原鉱石の再構成供試体の諸元 22
表 3-8　原鉱石試験結果のまとめ 25
表 3-9　H31 年度の研究スケジュール 27

1　背景・目的

現代のわが国において，原子力発電における使用済み燃料から生じる高レベル放射性廃棄物（以下 HLW）の処分は未だ実現しておらず，解決されるべき極めて重要な課題である． HLW の処分方法として， 2000 年に成立した「特定放射性廃棄物の最終処分による法律」において，地表から 300m 以深の深い地層中に埋設する地層処分が定められている．HLW 地層処分では，HLW に含まれる放射性核種が地表へ接近することをできるだけ遅延させるため，地層が有する物質移動を遅延させる機能（天然バリア）と，バリア機能を向上させるために HLW の周囲に人工的に施工される人工バリアを組み合わせた，多重バリアシステムが採用される [1]．人工バリアは，ガラス固化体（使用済み燃料の処理過程で生じる極めて放射能レベルの高い廃液を，ガラスと溶かし合わせたあとに冷やして固めたもの），オーバーパック（ガラス固化体を格納する金属製の容器）および緩衝材によって構成される．そのうち緩衝材の要求性能として，自己シール性，止水性，核種吸着性，応力緩衝材など 11 項目が挙げられている [2]．これらの性能を総合的に満たす材料として，吸水膨潤性や低透水性，イオン交換性を有する，ベントナイトと呼ばれる粘土系材料を用いることが極めて有力となっている [3]．図 1-1 に地層処分システムの概念図を示す．

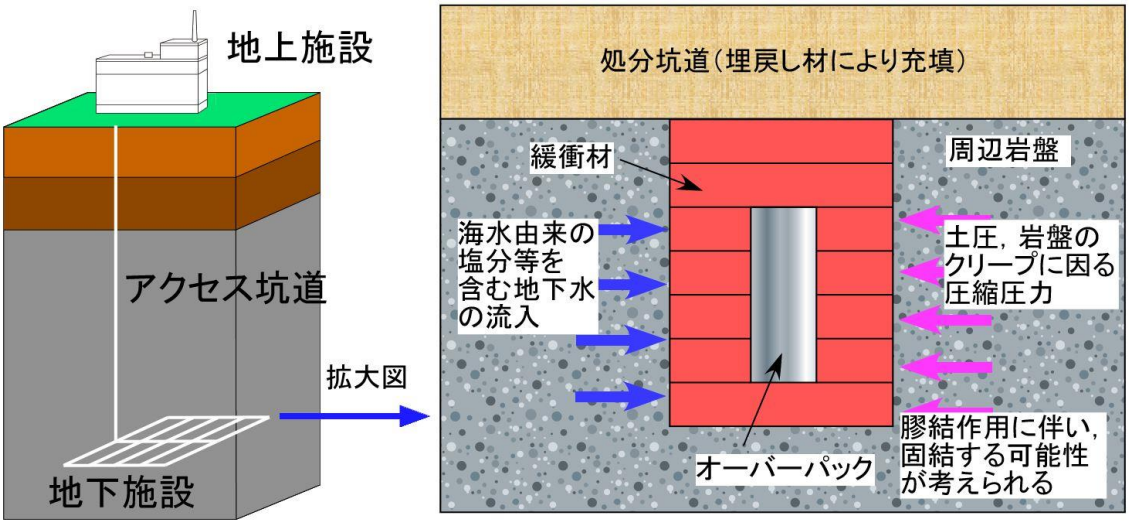


図 1-1　地層処分システムの概念図

HLW に含まれる放射性核種の放射能の十分な低下には，数万年を要するため，ベントナイト系緩衝材の設計にあたっては長期的な健全性が求められる．緩衝材はそのような長期間にわたって，処分場の深度に起因する高い土圧の作用や，海水由来の塩分を含む地下水の流入を始めとする，緩衝材の健全性に対する阻

害要因に晒される．この時，緩衝材内部にて膠結作用（モンモリロナイトや随伴鉱物が溶解し，間隙内で再結晶化して土粒子同士を固着させること）が発生する可能性がある[4]．この時，緩衝材の土粒子骨格が緻密となり，強度や低透水性が向上すると考えられる一方で，自己シール性や応力緩衝性に関連する膨潤性や圧密（圧縮）性の材料特性が低下する可能性が考えられる．緩衝材の要求性能に関連する材料特性の長期健全性を評価する上で，膠結作用によるベントナイトの材料特性の経年変化の定量評価は極めて重要である．

緩衝材の長期挙動評価に向けて，これまでに各研究機関においてバッチ型[5]やカラム型[6]の実験装置を用いた変質加速試験や，遠心力模型試験[7]などを活用した取り組みが行われてきた．しかし，前者は経年と変質状況の相関に関する定量評価が困難であり，後者は時間スケールにおける加速可能期間が 100～200 年程度に留まることが課題である．このような室内試験によるアプローチの一方，地質学的観点からナチュラルアナログ研究と呼ばれる研究手法も数多く実施されている．これは，廃棄物やバリア材の天然の類似体（ナチュラルアナログ）を自然界から見出し，類似体における物質移動のプロセスとメカニズムを評価する研究手法である[8]．自然現象を研究対象とするため，数億年といった超長期間の変質現象についても評価することが可能であるが，ナチュラルアナログ研究の多くは，バリア材料の類似体の変質状況の鉱物学的観点に基づく定性評価にとどまっている[9]．故に，膨潤特性や透水特性等の物理特性の評価まで至っておらず，処分事業における緩衝材の設計に直接的に資することは難しい現状にある．

以上のような背景から，本研究では地質年代が数千万～数億年のベントナイト原鉱石を用いて，ナチュラルアナログ研究手法に基づき，締固めたベントナイトのベントナイト系緩衝材の膠結作用による膨潤特性・自己シール性の年代変化を定量的に評価し，ベントナイト系緩衝材の仕様設計に反映させる手法を提案することを目的とする．そのために，まずベントナイト原鉱石および原鉱石を粉砕した後に締固めて作製した再構成試料の膨潤圧，膨潤変形特性および自己シール性能評価試験を実施し，上記に関するデータベースを作成する．続いて，作成したデータベースに基づき，ベントナイトにおける膠結作用の影響の定量評価方法を構築すると同時に，原鉱石の地質年代と膨潤圧，膨潤変形特性および自己シール性の低下関係の定量評価を行う．最後に，以上を総括してベントナイト系緩衝材（締固めたベントナイト）の性能評価に向けたナチュラルアナログを活用した工学的評価方法を構築する．

本研究は，ベントナイト系緩衝材における膨潤特性・自己シール性の年代変化を定量評価して設計に反映するものであり，本研究から得られる成果によっ

て緩衝材，ひいては地層処分システム全体の安全性，技術的信頼性を大いに担保することができる．これにより，21 世紀の我が国における重大な課題である，HLW の地層処分事業の実現に寄与することができる．

2　全体研究計画（3 ヵ年における全体計画）

ベントナイトの透水性が極めて低いため，各試験の測定期間は非常に長くなることが予想される．そのため，本研究では表 2-1 に示すように，基本的に原鉱石の種類ごとに試験を行い，各年度の試験結果を整理した上で，次年度の実施計画の見直しを行う．また，必要に応じて，X 線回析，化学分析及び電子顕微鏡観察などを随時行う．

（1）H30 年度実施内容：本年度は，主に 4 種類のベントナイト原鉱石試料（月布産，富岡産，アメリカ産，中国産）を対象に，膨潤圧試験，一次元膨潤変形試験及び自己シール性能評価試験を測定し，原鉱石の各特性のデータベースを構築する．また，月布産原鉱石の再構成試料を対象に，各試験を行い，その結果を踏まえて，次年度の実施計画を見直す．

（2）H31 年度実施内容：本年度は，3 種類の原鉱石の再構成試料を対象に行う．前年度の月布産原鉱石の再構成試料の試験を続けると共に，地質年代の最も古い中国産原鉱石の再構成試料の試験を行う．また，他の 3 種類の原鉱石（Na 型）と異なる富岡産原鉱石（Ca 型）の再構成試料の試験を開始する．

（3）H32 年度実施内容：本年度は，3 種類の原鉱石の再構成試料を対象にする．前年度の富岡産原鉱石の再構成試料の試験を続けることと共に，地質年代の中間部であるアメリカ産原鉱石の再構成試料の試験を行う．また，全体の試験結果に基づいて，1 種類の試料（例えば，緩衝材の予備原料と類似する月布産原鉱石の再構成試料）を対象に 1～2 ケースを追加する．

表 2-1　本研究の実施計画

	H30 年度	H31 年度	H32 年度
上半期	・月布産原鉱石試料 ・アメリカ産原鉱石試料 ・中国産原鉱石試料	・月布産原鉱石の再構成試料（粒径 1～2 ケース） ・中国産原鉱石の再構成試料（粒径 1～2 ケース）	・富岡産原鉱石の再構成試料（粒径 1～2 ケース） ・アメリカ産原鉱石の再構成試料（粒径：1～2 ケース））
下半期	・富岡産原鉱石試料 ・月布産原鉱石の再構成試料（粒径 1～2 ケース）	・中国産原鉱石の再構成試料（粒径 1～2 ケース） ・富岡産原鉱石の再構成試料（粒径 1～2 ケース）	・アメリカ産原鉱石の再構成試料（粒径：1～2 ケース） （※以上の試験結果に応じて，いずれかの試料において 1～2 ケースの粒径を追加して行う）

3　平成 30 年度研究実施内容

3.1　平成 30 年度の計画、実施方法

平成 30 年度においては，まず富岡産原鉱石の基本的性質に関するデータの取得を実施した．また，月布産，中国産，アメリカ産および富岡産の原鉱石試料から膠結作用による固結を保持した不攪乱供試体と，粒径を 0.425 mm 以下になるまで粉砕・調整した試料を締固めた再構成供試体をそれぞれ作製し，膨潤圧試験，一次元膨潤変形試験および自己シール性能評価試験を実施した．表 3-1 に本年度の研究スケジュールを示す.

表 3-1　H30 年度の研究スケジュール

項　目	H30/10	11	12	H31/1	2	3
富岡産原鉱石の基本的性質に関するデータの取得		→	→	→		
各種ベントナイト原鉱石の膨潤圧試験，一次元膨潤変形試験，自己シール性能評価試験の実施	→	→	→	→		
取得したデータの分析			→	→	→	→
報告書作成				→	→	→

また，本項では使用した試料の基本的性質，不攪乱供試体と再構成供試体の作製方法，膨潤圧測定試験，一次元膨潤変形試験および自己シール性能評価試験の概要について述べる.

3.1.1　使用した試料の概要

本研究で使用したベントナイト原鉱石は，山形県月布産の Na 型ベントナイト（以下月布産），群馬県富岡産の Ca 型ベントナイト（以下富岡産），中華人民共和国吉林省劉房子産の Na 型ベントナイト（以下中国産），アメリカ合衆国ワイオミング州 Ten Sleep 産の Na 型ベントナイト（以下アメリカ産）の計 4 種である．これらの原鉱石はいずれも続成変質作用により生成されたと考えられており，地質学的検討から地質年代として月布産は約 1000 万年，富岡産は約 1500 万年，中国産は約 1 億 5000 万年，アメリカ産は約 1 億年と考えられている[10),11),12),13)]．図 3-1 に使用した原鉱石サンプルの様子を示す．

（a）月布産原鉱石

（b）中国産原鉱石

（c）アメリカ産原鉱石

（d）富岡産原鉱石

図 3-1　原鉱石サンプルの様子

本研究では，原鉱石の基本的性質として土粒子の密度，液性限界，塑性限界，モンモリロナイト含有率，膨潤力，陽イオン交換容量（CEC）および交換性陽イオン容量（EXC）の測定を実施した．これらの測定に際しては，伊藤らの研究[14]を参考とし，各原鉱石を粒径 0.425 mm 以下になるまで粉砕し，110℃に設定された乾燥炉内にて 24 時間乾燥した粉末試料を用いた．土粒子の密度および液性限界の測定は，小峯らの研究[15]に則って行った．塑性限界の測定は日本工業規格「土の液性限界・塑性限界試験方法」（JIS A 1205：2009）[16]にしたがって行った．メチレンブルー（MB）吸着量の測定は，ベントナイトの MB 吸着量試験を参考として行った．モンモリロナイト含有率は，MB 吸着量試験により得られた MB 滴定量から純モンモリロナイト含有率を 140 mmol/100 g[17]として算出した．また，膨潤力に関しては日本ベントナイト工業会標準試験方法[18]の膨潤力（容積法）に基づいて実施した．また， CEC（陽イオン交換容量）および EXC（交換性陽イオン容量）の測定は，「地盤工学会基準（JGS0261-2009）：土の陽イオン交換容量（CEC）の試験方法」[19]に基づいて行った．表 3-2 に以上の各試験から得られた，使用した原鉱石の基本的性質を示す．

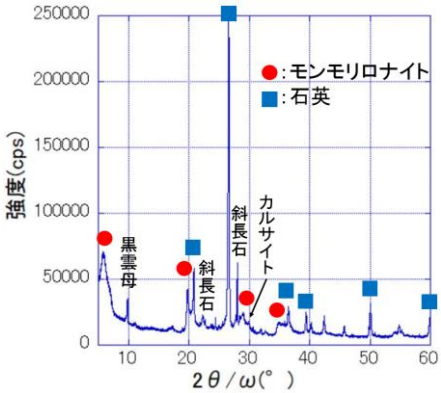
表 3-2　原鉱石の基本的性質

	月布産	中国産	アメリカ産	富岡産
土粒子の密度(Mg/m^3)	2.77	2.73	2.67	2.61
液性限界(%)	438.5	541.6	588.2	83.1
塑性限界(%)	28.0	35.6	57.2	42.2
塑性指数	410.5	506.0	531.0	40.9
モンモリロナイト含有率(%)	44.7　(29-1) 38.6　(29-2) 51.4　(29-3)	51.1	50.4	45.8
膨潤力(ml/2g)	12	13	16	5.5
陽イオン交換容量 (meq/100g)	39.3	39.4	38.8	54.8
交換性 Na^+イオン容量 (meq/100g)	42.5	42.3	53.8	2.52
交換性 Ca^{2+}イオン容量 (meq/100g)	10.2	20.1	17.8	55.9
交換性 Mg^{2+}イオン容量 (meq/100g)	0.8	3.7	0.4	定量下限値以下
交換性 K^+イオン容量 (meq/100g)	定量下限値以下			

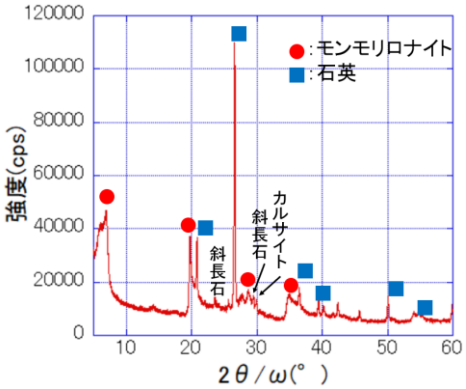
また，各原鉱石の鉱物組成を分析するため，粉末試料に対して X 線回折を実施した．今回用いたのは早稲田大学物性計測センターラボが保有する Rigaku 社製 RINT-UltimaⅢである．また，本試験の測定条件を表 3-3 に示す．得られた各原鉱石の X 線回折分析結果を図 3-2 に示す．

表 3-3　測定条件

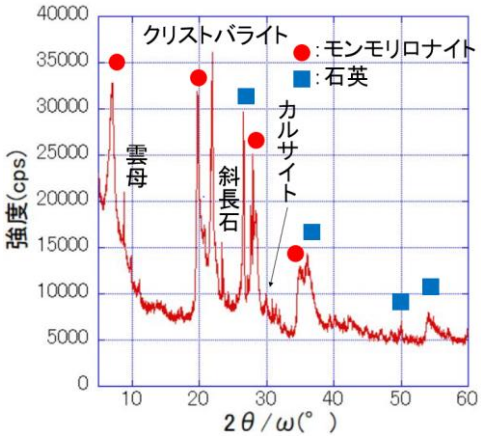
光学系	集中法
測定範囲	5°～60°
ステップ	0.02°
スキャンスピード	10°/min
発散スリット	2/3°
散乱スリット	8.00mm
受光スリット	13.00mm



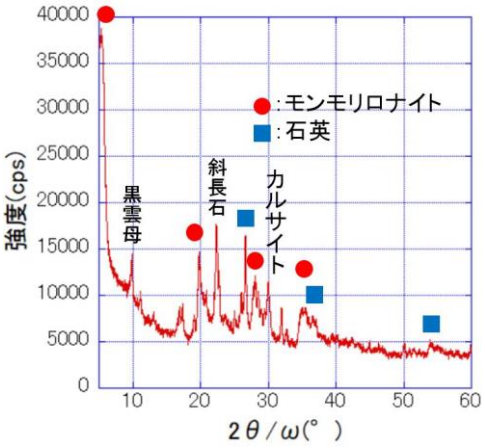
（a）月布産原鉱石



（b）中国産原鉱石



（c）アメリカ産原鉱石



（d）富岡産原鉱石

図 3-2　原鉱石の粉末試料の鉱物組成分析結果

3.1.2　不攪乱供試体および再構成供試体の作製方法

不攪乱供試体は，カッターリング，包丁，トリマーなどのトリミング用器具を用いて，直径 28 mm，高さ 10 mm の円柱形を目標に成形し，作製した．その際，亀裂やリングと岩片との間に隙間が生じないように留意した．一方，再構成供試体は岩片をメノウ乳鉢，乳棒もしくは破砕機を用いてすりつぶした後に 0.425 mm ふるいにかけ，通過した粉末試料に対し，静的荷重を 15 分間作用させることにより締固め，作製した．再構成供試体の乾燥密度は，不攪乱供試体の乾燥密度と同程度になるよう，静的荷重を調整した．図 3-3 に不攪乱供試体と再構成供試体の作製概念図を示す．

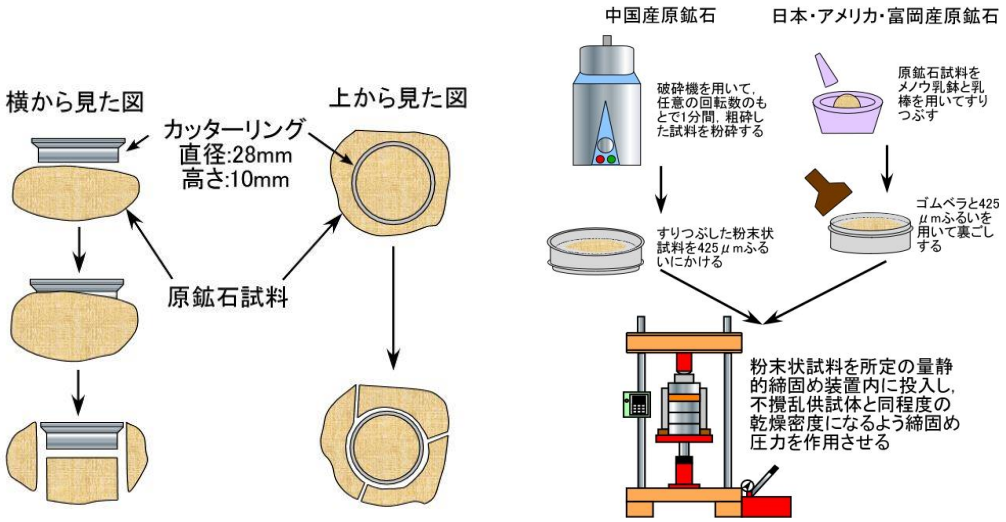


図 3-3　不攪乱供試体（左）と再構成供試体（右）の作製概念図

3.1.3　膨潤圧測定試験の概要

ベントナイト系緩衝材の吸水膨潤に伴い発生する膨潤圧に関して，過大である場合は他の人工バリアの損傷を引き起こす可能性があり，過小である場合地下水との接触に伴い流出による層厚の減少が考えられ，いずれの場合においてもバリア性能が低下を引き起こす可能性が考えられる．故に，緩衝材が膠結作用に伴い固結した場合の膨潤圧特性の変化を評価し，バリア性能の著しい低下が生じるかを照査することは非常に重要である．そこで本研究では，不攪乱供試体と再構成供試体を用いて膨潤圧測定試験を実施し，膨潤圧特性における膠結作用の影響に関して評価を行った．

本試験では，供試体下部から蒸留水を供給し，供試体の吸水膨潤に関して側方方向は SUS316L 製リングにより拘束し，鉛直方向の変形はクランプノブを締めることで抑制した．すなわち，本試験で測定する膨潤圧は，鉛直方向の膨潤変形を抑制するのに必要な圧力を指す．以下に本試験の手順を示す．まず，3.1.3 で述べた方法により作製した供試体を SUS316L 製リングに移し替え，供試体の上下端に定性ろ紙（No.5A）を設置し，膨潤特性実験容器を組み立てた．実験容器底板の下部給水口と二重管ビュレットをシンフレックスチューブにより接続した．次に，ベロフラムシリンダーの空気圧を調整することによりピストンを供試体上部に接触させ，クランプノブを締めることで鉛直方向の変位を固定した．そのまま 5 分程度放置した後，供試体への給水とロードセルによる膨潤圧および変形量の測定を開始した．図 3-4 に本試験で用いた膨潤圧測定試験装置を示す．また，試験開始時には 20～40 kPa の鉛直圧を作用させ，ピストンと供試体上端が確実に接触するよう留意した．膨潤圧の測定には，最大容量 50 kN，最小目盛 0.012 kN のロードセルを用いた．また，鉛直方向の変位は完全には抑制できないため，最大容量 25 mm，最小目盛り 0.002 mm の変位計を用いて変位量（膨潤変形量）を測定し，式(1)を用いて乾燥密度を補正した．

$$\rho_{d0} = \frac{m}{A \times (H_0 + \Delta d)} \times 1000 \tag{1}$$

ここに，ρ_{d0}：乾燥密度補正値(Mg/m^3)，m：供試体乾燥質量(g)，A：供試体断面積(mm^2)，H_0：供試体初期高さ(mm)，Δd：供試体変位量(mm)である．

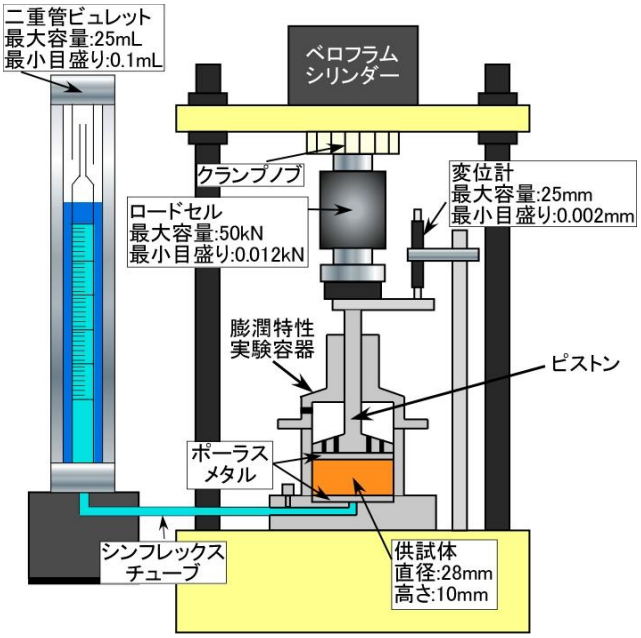


図 3-4　膨潤圧試験装置の概略図

3.1.4　一次元膨潤変形試験の概要

地層処分において廃棄体を埋設する際，施工上の観点から周辺岩盤とベントナイト系緩衝材の間には空隙が生じることが懸念される．故に，この空隙を地下水の吸水に伴う膨潤変形により充填すること（自己シール性）が，ベントナイト系緩衝材には期待されている．そこで本研究では，膠結作用による固結に伴う膨潤変形挙動の変化を評価するため，不攪乱供試体と再構成供試体を用いて，図 3-5 に示す装置により一次元膨潤変形率を測定した．3.1.3 で述べた膨潤圧測定試験装置との最大の違いは，本試験においては鉛直方向の膨潤変形を抑制せず，鉛直圧 19.6 kPa のもとで膨潤変形量を測定する点である．本試験装置はステンレス製リング，ピストン，ペデスタル，載荷板から成る膨潤特性実験容器と，除震台，載荷用の重り，変位計，二重管ビュレットで構成される．載荷用の重りは載荷板, ピストンの重量と合わせて 19.6 kPa の載荷圧となるよう，ポリプロピレン製容器内に鉛玉を投入した．膨潤変形量の測定については，最大容量 25 mm，最小目盛り 0.002 mm の変位計を用いた．以下に本試験の手順を示す．まず，3.1.2 の方法で作製した供試体を SUS316L 製ステンレスリングに移し替え，その上下に定性ろ紙（No.5A）を設置し，膨潤特性実験容器を組み立てた．その後，載荷用の重りを載荷板上に載せ，供試体下部からの給水を開始すると同時に膨潤量の測定を開始した．また，膨潤変形量は初期供試体高さによる影響を受けるため，膨潤変形挙動の評価にあたっては変形量を初期供試体高さで除した値である，一次元膨潤変形率を式(2)により算出した．

$$\varepsilon_s = \frac{\Delta S}{H_0} \times 100 \tag{2}$$

ここに，ε : 一次元膨潤変形率（%），ΔS : 膨潤変形量(mm)，H_0 : 供試体初期高さ(mm)である．

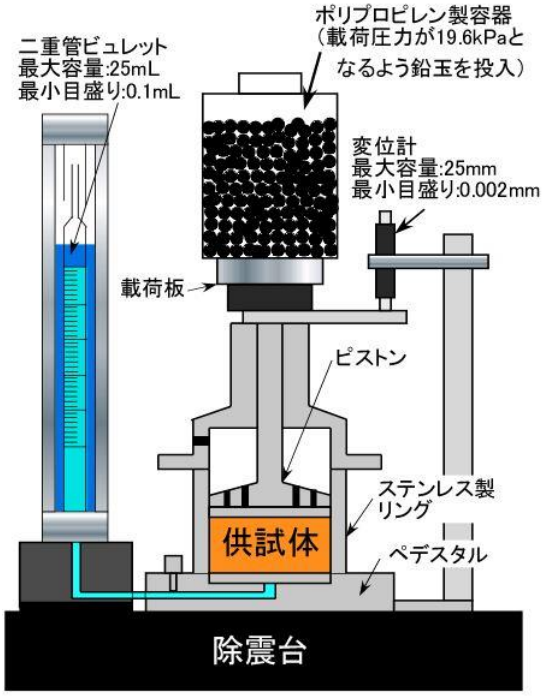


図 3-5　一次元膨潤変形試験装置

3.1.5　自己シール性能評価試験の概要

本実験は，ベントナイト系緩衝材が吸水膨潤により，施工時の都合上生じる緩衝材ブロックと周辺岩盤との間の隙間や掘削時の岩盤の損傷によるひび割れを充填する自己シール性の評価を目的とする．また，長期間を経て緩衝材が膠結作用を受けて固結した後に，断層変位等に伴い周辺岩盤と緩衝材間に水みちとなり得る隙間が生じる可能性も考えられる．そこで，不攪乱供試体および再構成供試体が隙間を膨潤変形により充填し，その後の吸水膨潤に伴い発生する圧力をロードセルにより測定し，隙間の充填に要する時間および充填後の発生圧力を比較することで，膠結作用による固結に伴う自己シール挙動変化の評価を目指す．

図 3-6 に自己シール性能評価試験の概念図および実験手順の概念図を示す．なお，実験装置および実験手順は参考文献 20)を参考とした．今回，設定隙間幅を 1.250 mm とした根拠として，緒方らによる処分孔仕様の一案[3)]において，施工上の観点から緩衝材の幅 400 mm に対して，緩衝材と周辺岩盤との間に 40 mm，緩衝材とオーバーパックとの間に 10 mm，合計で 50 mm の隙間が生じるとされていることが挙げられる．この緩衝材の幅 400 mm と隙間 50 mm との比（8：1）を基に，本実験における供試体高さが 10 mm であることから，隙間幅を 1.25 mm と設定した．

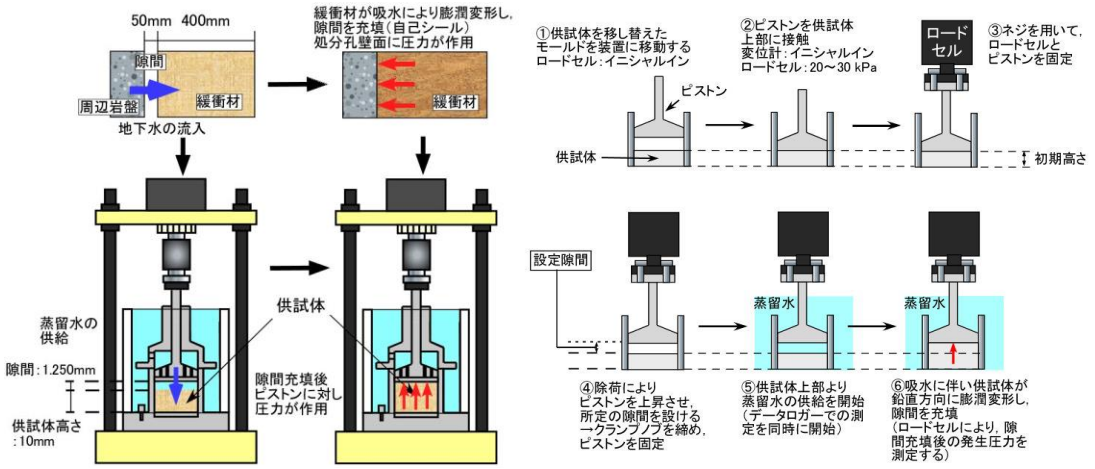


図 3-6　自己シール性能評価試験および実験手順の概念図

3.2　平成 30 年度の成果内容

本項では，膨潤圧試験結果，一次元膨潤変形試験および自己シール性能評価試験により得られた結果について述べる．

3.2.1　不攪乱供試体における膨潤圧挙動

表 3-4 に 4 種類の原鉱石の膨潤圧試験供試体の諸元をまとめる．図 3-7 に各原鉱石から作製した不攪乱膨潤圧の経時変化を示す．膨潤圧は，月布産において約 500～1000 kPa，富岡産において約 100 kPa，アメリカ産では約 600 kPa，中国産では約 500～2000 kPa に収束した．ただし，原鉱石によって，膨潤圧測定値のバラつきの程度が異なる．アメリカ産原鉱石における膨潤圧の一致性が非常に良いことに対して，中国産原鉱石の膨潤圧の変動幅が非常に大きいことがわかる．また，Ca 型の富岡産原鉱石においては，他の原鉱石の結果と比べて，膨潤圧が非常に小さいことが確認された．Na 型原鉱石においては，乾燥密度が高いほど膨潤圧が大きくなる傾向が概ねみられる．

表 3-4　原鉱石の膨潤圧試験供試体の諸元

原鉱石	月布産原鉱石			中国産原鉱石			アメリカ産原鉱石		富岡産原鉱石
試料名	不攪乱1	不攪乱2	不攪乱3	不攪乱1	不攪乱2	不攪乱3	不攪乱1	不攪乱2	不攪乱1
試験開始時の乾燥密度 (Mg/m^3)	1.72	1.85	1.73	1.84	1.84	1.84	1.5	1.46	1.54
試験開始時の有効モンモリロナイト密度(Mg/m3)	1.17* (29-1)	1.21* (29-2)	1.28* (29-3)	1.41	1.41	1.41	1.06	1.02	1.06
最大膨潤圧発生時の乾燥密度(Mg/m3)	1.71	1.81	1.72	1.82	1.84	1.83	1.48	1.46	1.54
最大膨潤圧発生時の有効モンモリロナイト密度 (Mg/m3)	1.16* (29-1)	1.16* (29-2)	1.25* (29-3)	1.39	1.41	1.4	1.04	1.02	1.06
初期含水比(%)	12.3	10.4	10	15.8	16.7	15	32.2	32.2	23.4
最大膨潤圧(kPa)	480	757	1036	2086	560	2452	678	678	100

*月布産原鉱石のサンプル29-1，29-2，29-3はそれぞれモンモリロナイト含有率が異なる

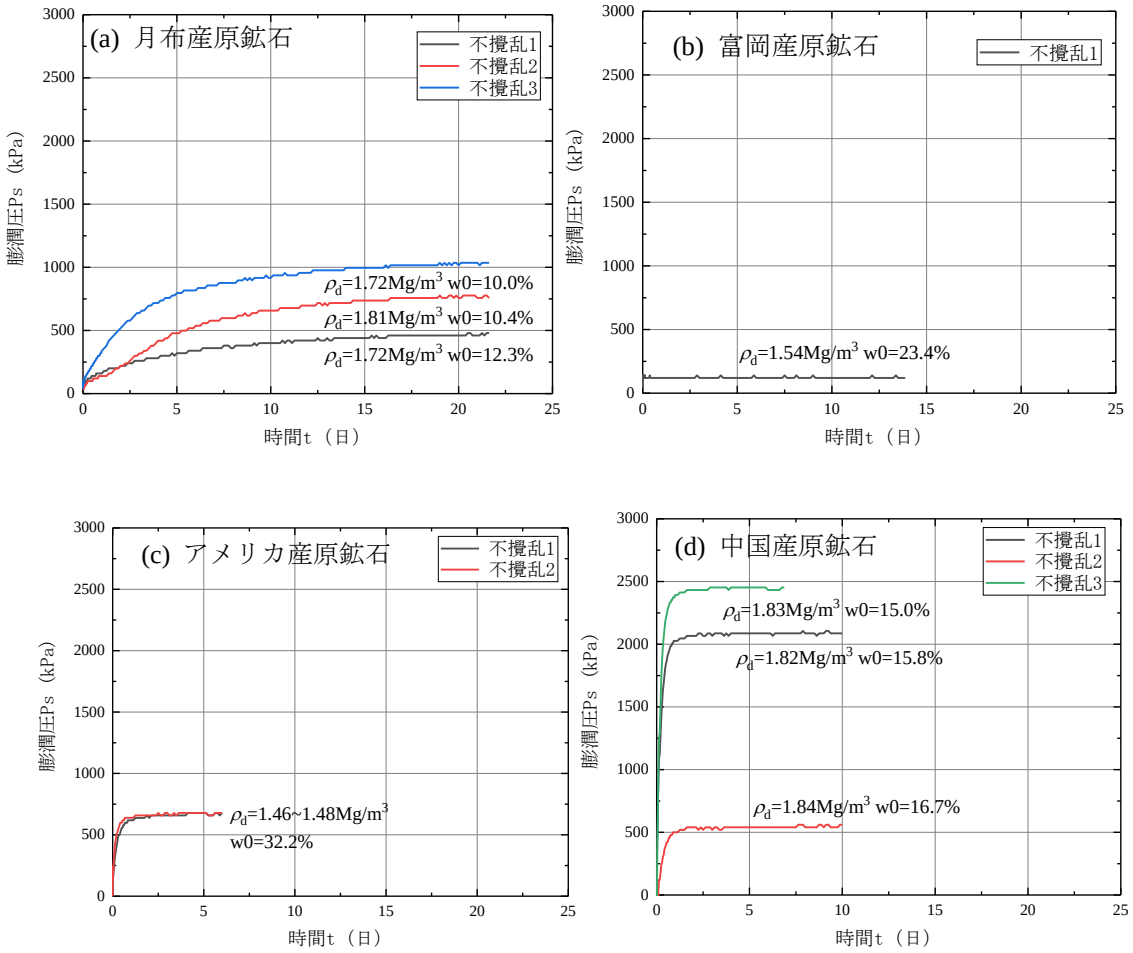


図 3-7　膨潤圧の試験結果

3.2.2　不攪乱供試体における膨潤変形挙動

表 3-5 に 4 種類の原鉱石の膨潤変形試験供試体の諸元をまとめる．図 3-8 に各原鉱石から作製した不攪乱供試体の一次元膨潤変形率の経時変化曲線を示す．月布産において，18～173%，富岡産原鉱石において 1%未満，アメリカ産では，105～120%，中国産原鉱石においては 50～95%に 40 日間程度で収束した．しかし，一次元膨潤変形率の変動は原鉱石によって異なることが分かった．特に月布産の原鉱石において，変動幅が非常に大きいことが確認された．なお，月布原鉱石における乾燥密度の変動が大きいことも確認された．Ca 型の富岡産原鉱石においては，他の原鉱石の結果と比べて，膨潤変形率が非常に小さいことも確認された．

表 3-5　原鉱石の膨潤変形試験供試体の諸元

原鉱石	月布産				中国産			アメリカ産			富岡産	
試料名	不攪乱1	不攪乱2	不攪乱3	不攪乱4	不攪乱1	不攪乱2	不攪乱3	不攪乱1	不攪乱2	不攪乱3	不攪乱1	不攪乱2
試験開始時の乾燥密度 (Mg/m^3)	1.83	1.61	1.69	1.76	1.83	1.89	1.92	1.41	1.46	1.46	1.44	1.49
試験開始時の有効モンモリロナイト密度(Mg/m^3)	1.28 (29-1)*	0.96 (29-2)*	1.22 (29-3)*	1.21 (29-1)*	1.40	1.47	1.51	0.98	1.02	1.02	0.96	1.01
試験終了時の乾燥密度 (Mg/m^3)	1.54	0.77	0.62	0.65	1.00	0.97	1.25	0.69	0.66	0.66	1.43	1.48
試験終了時の有効モンモリロナイト密度(Mg/m^3)	0.91	0.36	0.28	0.33	0.63	0.60	0.83	0.40	0.38	0.38	0.95	1.00
初期含水比(%)	10.5	12.7	14.7	11.2	16.0	15.8	13.3	34.9	30.0	30.0	31.0	25.5
最大一次元膨潤変形率(%)	18.3	107.6	173.8	173.0	82.2	95.1	53.3	104.8	121.4	120.4	0.3	0.9

*月布産原鉱石のサンプル29-1，29-2，29-3はそれぞれモンモリロナイト含有率が異なる

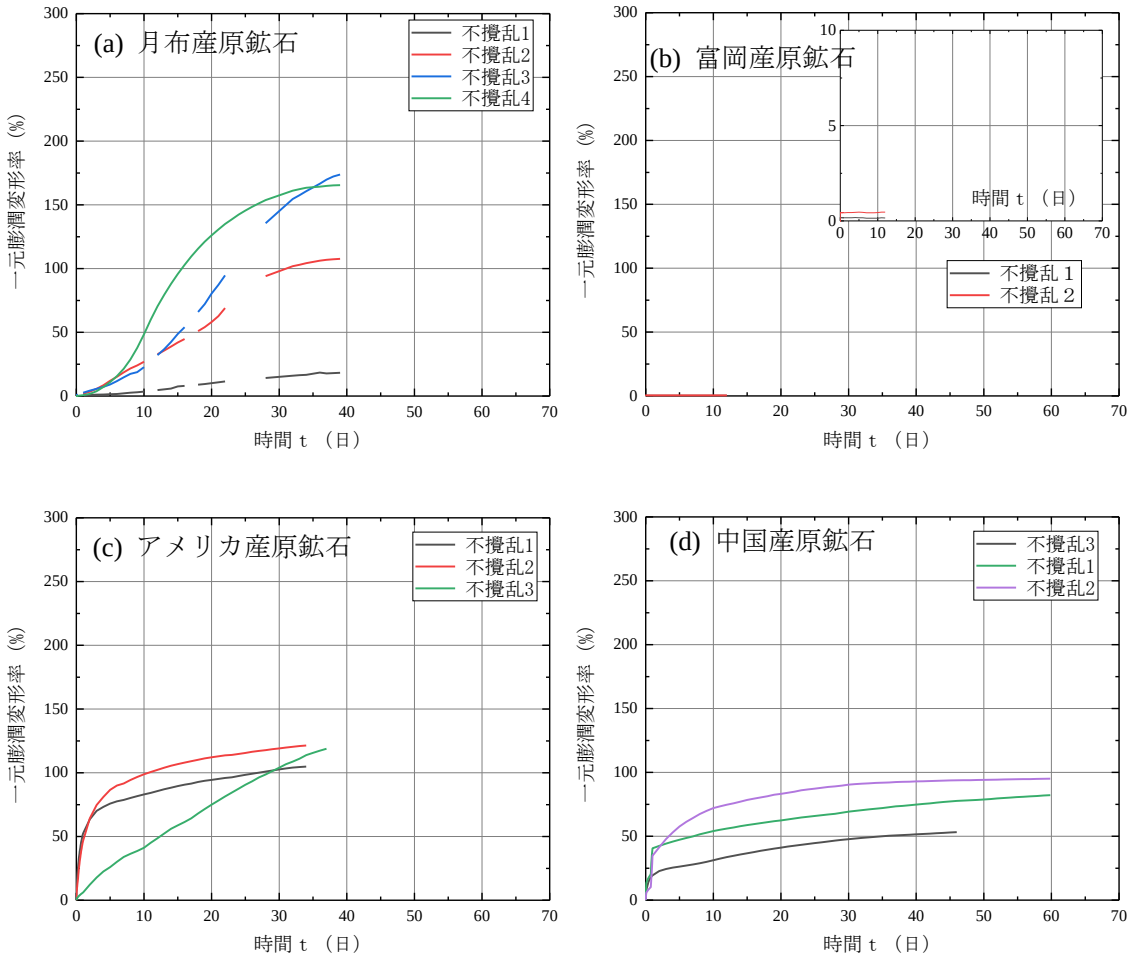


図 3-8　膨潤変形の試験結果

3.2.3　不攪乱供試体における自己シール性挙動

表 3-6 に 4 種類の原鉱石の自己シール性試験供試体の諸元をまとめる. 図 3-9 に原鉱石が吸水膨潤によって原鉱石上部に設置された隙間（幅 1.25 mm）を埋めてからロードセルにより測定した発生圧力の経時変化を示す．月布産，アメリカ産及び中国産原鉱石においては，発生圧力が計測されたことに対し，富岡産の原鉱石においては，15 日間の計測で発生圧力が 0 kPa となった．これは，膨潤圧及び膨潤変形が他の原鉱石と比べて非常に小さい結果と一致し，富岡産の原鉱石の膨潤性が相対的に低いことが示された．月布産，アメリカ産及び中国産原鉱石においては，軸圧力の発生時点を比べると，月布産，アメリカ産が 0.05 日程度（約 1 時間程度）ことに対して，中国産が 0.5 日程度となっており，吸水膨潤の速度が明らかに遅いことが示された．発生圧力の収束値から見ると，乾燥密度が高いほど発生圧力が高くなる傾向も見られ，膨潤圧試験の結果と一致した．

表 3-6　原鉱石の自己シール性試験供試体の諸元

原鉱石	月布産		中国産	アメリカ産		富岡産
試料名	不攪乱1	不攪乱2	不攪乱 1	不攪乱1	不攪乱2	不攪乱1
試験開始時の乾燥密度 (Mg/m^3)	1.77	1.76	1.93	1.54	1.6	1.47
試験開始時の有効モンモリロナイト密度(Mg/m^3)	1.13	1.12	1.53	1.11	1.16	0.99
隙間充填後の乾燥密度 (Mg/m^3)	1.58	1.57	1.72	1.37	1.36	1.30*
隙間充填後の有効モンモリロナイト密度(Mg/m^3)	0.94	0.93	1.27	0.94	0.93	0.83*
初期含水比(%)	10.3	9.8	12.4	25.1	27	30
隙間充填後の発生圧力(kPa)	360	279	480	199	240	0

*隙間を充填したと仮定した算出値

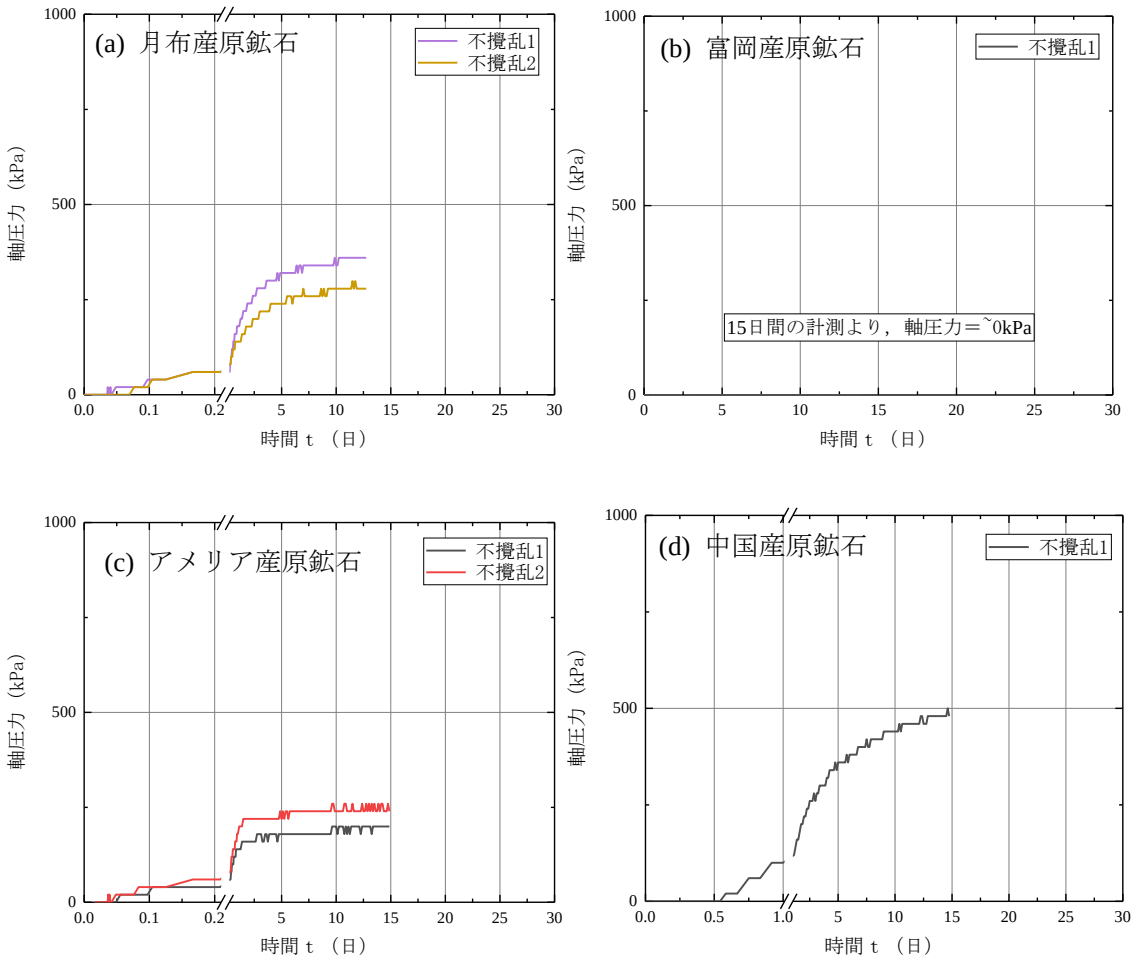


図 3-9　自己シール性試験の試験結果

3.2.4　不攪乱供試体の密度と膨潤特性の関係

図 3-10（a）に 4 種類の原鉱石において計測された膨潤圧また発生圧力と乾燥密度の関係を示す（乾燥密度は，試験終了時の乾燥密度である）．今回の結果は，バラつきの中で，乾燥密度が大きいほど，膨潤圧が大きくなる傾向がみられる．また，本研究の結果は，文献 21）にてまとめられたクニゲル V1 の結果との比較も図 3-10（b）に示す．図に示すように原鉱石の膨潤圧がニゲル V1 結果の下部に分布していることが示されている．図 3-11 に 4 種類の原鉱石において計測された膨潤変形と乾燥密度の関係を示す．富岡産原鉱石を除いて，膨潤変形率が密度の増加に伴い，膨潤変形率が若干低下する傾向が確認された．

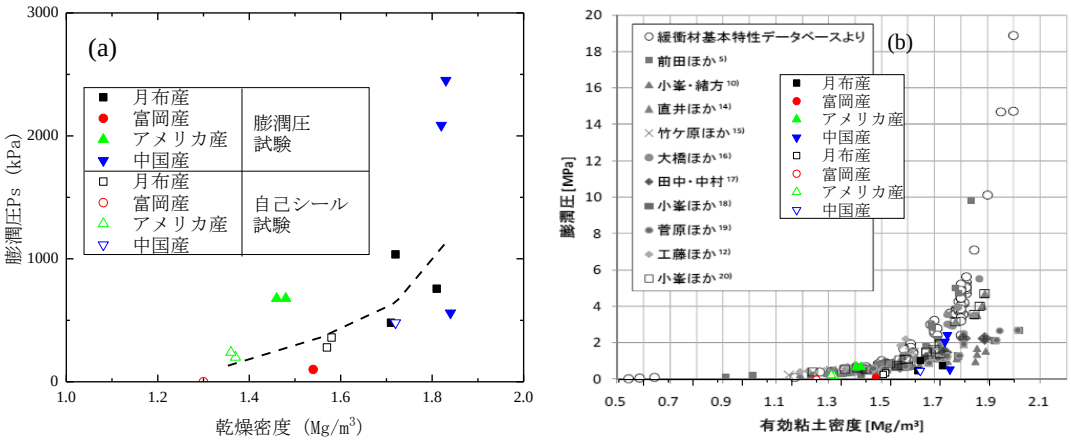


図 3-10　不攪乱供試体の密度と膨潤圧の関係（a）本研究の結果，（b）本研究とクニゲル V 1[21] の比較

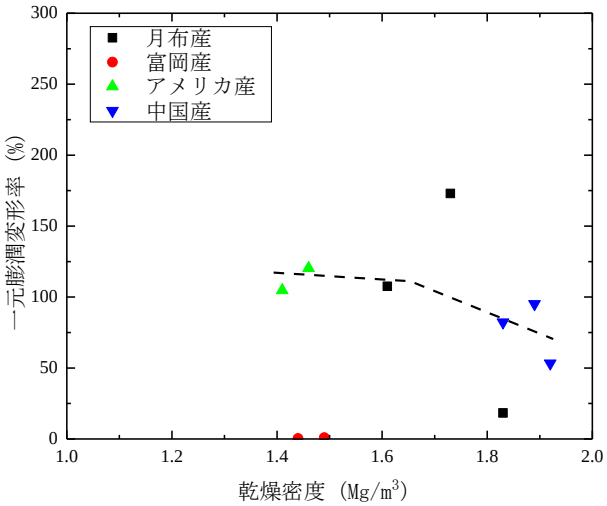


図 3-11　不攪乱供試体の密度と膨潤変形の関係

3.2.5　月布産原鉱石の不攪乱供試体と再構成供試体の比較

表 3-7 に月布産原鉱石の再構成供試体の諸元をまとめる．図 3-12 に月布産原鉱石を粉砕して，締固めて作成した再構成供試体の結果を破線で示す．図に示すように，膨潤圧または軸圧力において，原鉱石供試体の結果と比べて，明らかに大きいことが確認された．一方，膨潤変形試験においては，　再構成供試体の膨潤変形率は試験開始直後から上昇し，120～160%の値に収束する傾向が見受けられた．不攪乱供試体においては，膨潤変形率の増加に時間遅れが生じているものの，再構成供試体と同様の値に収束していることが分かる．故に，月布産原鉱石において，固結の影響により膨潤変形挙動の発現に遅れは生じるものの，顕著な低下は生じないと言える．ただし，原鉱石の変形率の変動幅が大きくて，今後，試験数追加などの手法より確認する必要がある．

表 3-7　月布産原鉱石の再構成供試体の諸元

試験名	膨潤圧試験		
試料名	再構成1	再構成2	再構成3
試験開始時の乾燥密度(Mg/m^3)	1.69	1.8	1.83
試験開始時の有効モンモリロナイト密度(Mg/m3)	1.04* (29-2)	1.16* (29-2)	1.37* (29-3)
最大膨潤圧発生時の乾燥密度(Mg/m3)	1.67	1.71	1.81
最大膨潤圧発生時の有効モンモリロナイト密度(Mg/m3)	1.03	1.07	1.35
初期含水比(%)	9.1	6.1	9.3
最大膨潤圧(kPa)	1155	1593	2680

試験名	膨潤変形試験		
試料名	再構成1	再構成2	再構成3
試験開始時の乾燥密度(Mg/m^3)	1.80	1.57	1.62
試験開始時の有効モンモリロナイト密度(Mg/m^3)	1.26 (29-1)*	0.93 (29-2)*	1.15 (29-3)*
試験終了時の乾燥密度(Mg/m^3)	0.65	0.72	0.61
試験終了時の有効モンモリロナイト密度(Mg/m^3)	0.33	0.33	0.35
初期含水比(%)	12.0	11.4	14.1
最大一次元膨潤変形率(%)	179.5	118.5	165.7

試験名	自己シール試験	
試料名	再構成1	再構成2
試験開始時の乾燥密度(Mg/m^3)	1.71	1.75
試験開始時の有効モンモリロナイト密度(Mg/m^3)	1.06	1.10
隙間充填後の乾燥密度(Mg/m^3)	1.53	1.55
隙間充填後の有効モンモリロナイト密度(Mg/m^3)	0.89	0.91
初期含水比(%)	9.1	9.1
隙間充填後の発生圧力(kPa)	578	518

*月布産原鉱石のサンプル29-1，29-2，29-3はそれぞれモンモリロナイト含有率が異なる

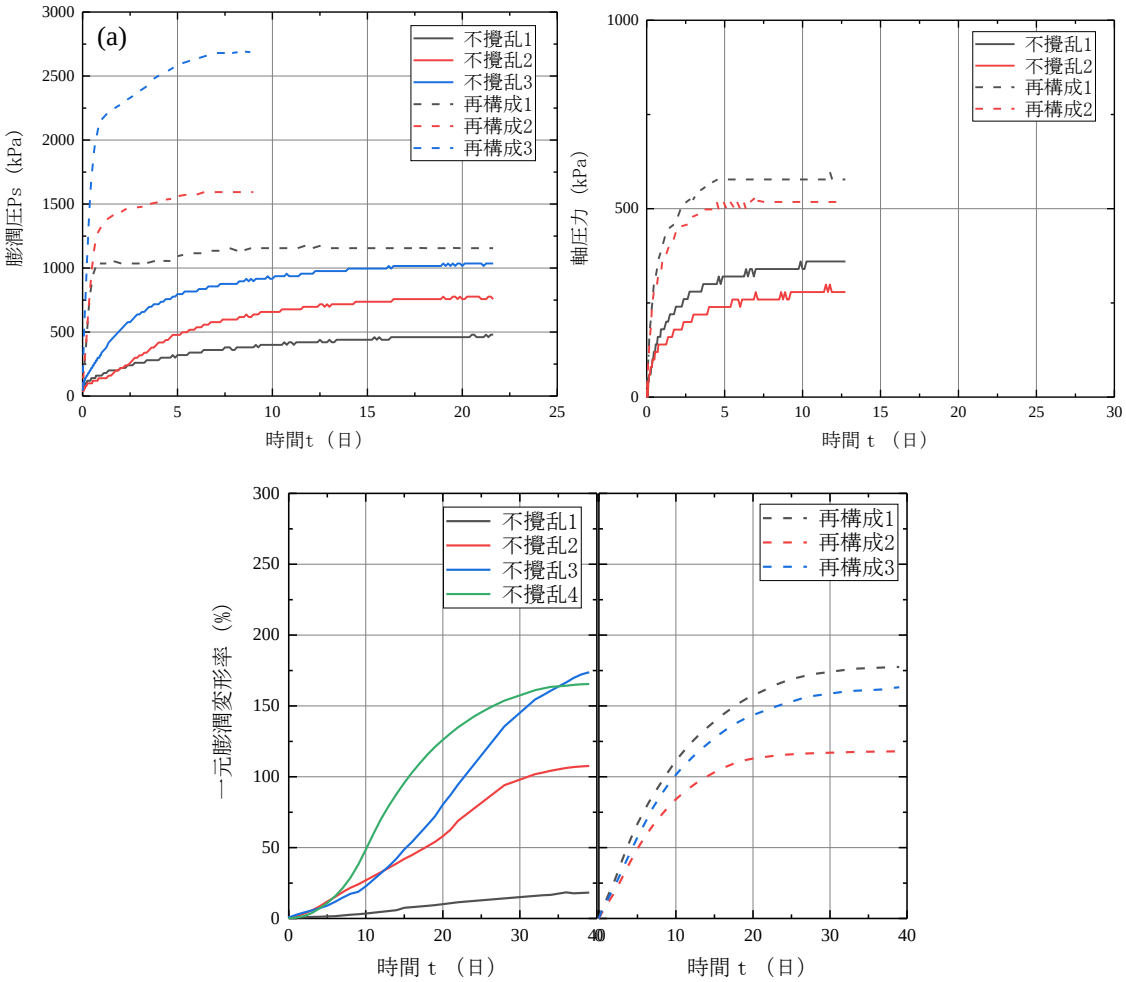


図 3-12　月布産原鉱石の不攪乱供試体と再構成供試体の比較

3.2.6　地質年代と膨潤特性の関係

図 3-13 に原鉱石の地質年代と膨潤圧及び膨潤変形率の関係を示す．また，月布産原鉱石の再構成供試体の結果を地質年代が 1 万年と仮定して，図内に記載した．図中の破線で示すように，地質年代が古いほど，膨潤圧または膨潤変形率が小さくなる傾向がみられる．ただし，図 3-13 には，供試体の密度，原鉱石のモンモリロナイト含有率，交換性イオンの種類および膠結作用の程度が考慮されておらず，現時点での試験結果のみにより確認された結果である．そのため，今後の研究については，これらの条件を考慮した上，図 3-13 の精度を向上する必要がある．

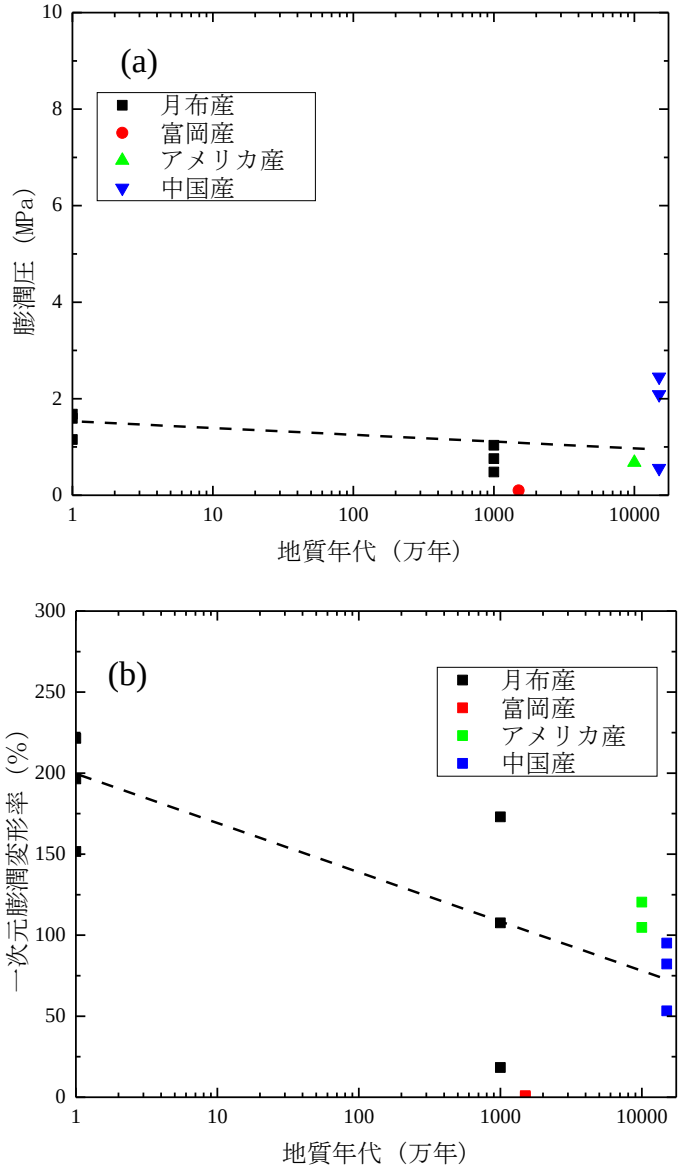


図 3-13　地質年代と膨潤特性の関係（a）膨潤圧，(b)膨潤変形

3.2.7　原鉱石試験結果のまとめ

表 3-8 に 4 種類の原鉱石供試体の膨潤圧試験，膨潤変形試験及び自己シール試験において，供試体の測定値の範囲および試験開始時の乾燥密度をまとめる．表 3-8 に示すように，月布産原鉱石の試験開始時の乾燥密度および膨潤変形の変動が大きい；富岡産原鉱石の乾燥密度において変動幅が小さいものの，他の原鉱石と比べて膨潤性が低いことがわかる．アメリカ産原鉱石の乾燥密度の変動が小さく，試験結果の再現性も良い．一方，中国産原鉱石は，密度変動は小さいものの，膨潤圧の変動幅が非常に大きい．現時点でデータ数が少ないため，詳細な検討ができていないが，試験条件の統一性及び試験結果の再現性の観点から，今後の研究においては，交換性陽イオンとして Na^+を主体とする原鉱石を中心に膠結作用の影響評価を行うべきであると考える．

表 3-8　原鉱石試験結果のまとめ

	膨潤圧試験	膨潤変形試験	自己シール性試験
原鉱石（種類） 地質年代	膨潤圧（MPa）　（試験数） 試験開始時の密度（Mg/m³）	膨潤変形(%)　（試験数） 試験開始時の密度（Mg/m³）	軸圧（MPa）　（試験数） 試験開始時の密度（Mg/m³）
月布産（Na+） 1 千万年	0.5～1　(3) 1.71～1.81	20～170　(4) 1.61～1.83	0.28～0.36　(2) 1.76～1.77
富岡産（Ca2+） 1.5 千万年	0.1　(1) 1.54	0.3～0.9　(2) 1.44～1.49	0　(1) 1.47
アメリカ産（Na+） 1 億年	0.7　(2) 1.46～1.48	100～120　(3) 1.41～1.46	0.20～0.24　(2) 1.54～1.60
中国産（Na+） 1.5 億年	0.6～2.5　(3) 1.82～1.84	50～100　(3) 1.83～1.92	0.50　(1) 1.93

3.3　残された課題と今後の計画

今年度の研究において残された課題を以下に示す.

1) 月布産原鉱石の密度，一次元膨潤変形率，および中国産原鉱石の膨潤圧の変動幅が非常に大きいため，今後供試体の初期条件の統一に向けて工夫するとともに，変動の原因を調べる必要がある．一方，Ca 型ベントナイトである富岡産原鉱石については，他の Na 型ベントナイト原鉱石の挙動と明らかに異なるため，実験条件の統一性の観点から，来年度の研究においては，研究対象から外す.

2) 現時点の研究から，膨潤特性と地質年代の関係を予測するのは，決して容易ではない．まず，生成環境の異なる原鉱石においては，各原鉱石の膠結作用の程度が不明である．月布原鉱石と富岡原鉱石の地質年代差が 500 万年程度，アメリカ産と中国産原鉱石の地質年代差が 5 千万年程度であるため，生成環境によって，必ずしも膠結作用の程度の差が明白に存在するとは断定できない．そのため，本研究では，これまでに調査を実施した原鉱石の基本的な特性（モンモリロナイト含有率，交換性陽イオンなど）において，鉱物組成などについてより詳細な検討を実施すると共に，XRDなどを活用して膠結作用の程度を評価する手法を検討する.

3) 再構成試料の膨潤圧試験，膨潤変形試験および自己シール性試験について，ケース数を追加して，データベースを構築する必要がある.

上記の課題と表 2-1 に示した 3 か年の全体計画を踏まえて，H31 年度の研究スケジュールを表 3-9 に示す.

表 3-9　H31 年度の研究スケジュール

項　目	H31/4	5	6	7	8	9	10	11	12	H32/1	2	3
月布産原鉱石（再構成試料）の膨潤圧試験，一次元膨潤変形試験，自己シール性能評価試験の実施(粒径 1～2 ケース)	→	→	→	→								
中国産原鉱石（再構成試料）の膨潤圧試験，一次元膨潤変形試験，自己シール性能評価試験の実施(粒径 1～2 ケース)				→	→	→	→					
アメリカ産原鉱石（再構成試料）の膨潤圧試験，一次元膨潤変形試験，自己シール性能評価試験の実施(粒径 2～4 ケース)							→	→	→	→		
XRD・TEM による微視的構造観察など	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→
報告書作成										→	→	→

4　まとめ

今年度，本研究で得られた成果を以下に示す.

1) 4 種類の原鉱石の膨潤圧，膨潤変形及び自己シール特性を評価した．その結果，交換性陽イオンとして Na^+を主体とする原鉱石において，地質年代が長いほど，膨潤圧または膨潤変形が小さくなる傾向がみられる．ただし，現時点で得られたデータは，原鉱石の生成環境などによる影響を考慮していない定性的な結果であり，今後の研究において，原鉱石ごとに詳細な調査を加えて，試験結果の精度向上を行うことが必要である.

2) 月布原鉱石を 0.425mm 以下に粉砕し、締固めて作成した再構成供試体において，膨潤圧，膨潤変形及び自己シール特性を評価した．試験結果によると，再構成供試体の膨潤圧が，同条件の原鉱石供試体の膨潤圧と比べて，明らかに大きくなる傾向が確認された．一方，膨潤変形においては，再構成と原鉱石供試体が同様の値に収束していることが分かる．しかし，原鉱石の膨潤変形率の変動幅が大きいため，今後試験数を追加し傾向を確認することが必要である.

3) 本研究から，自然材料である 4 種類のベントナイト原鉱石において，非常に複雑な特性により，試験結果の再現性および供試体の初期状態の統一性を確保する難しさが確認された．今年度に得られた結果から，今後の研究においては，試料の養生，状態確認などに細心の注意を払いながら，ほかの試験手法を加えて，原鉱石の特性を総合的に評価することが必要であると考えられる.

参考文献

[1] 社団法人土木学会，エネルギー土木委員会，新エネルギー技術小委員会：土木技術者のための高レベル放射性廃棄物地層処分の現状と技術的課題 pp.26-27，1990.

[2] 核燃料サイクル開発機構：わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性，ー地層処分研究開発第 2 次取りまとめー，分冊 2　地層処分の工学技術，JNC TN1400 99-022，p.Ⅳ-69，1999.

[3] 緒方信英，小崎明郎，植田浩義，朝野英一，高尾肇：高レベル放射性廃棄物処分の事業化技術，ーその 4　人工バリアの設計と製作ー，原子力バックエンド研究，Vol.5，No.2，pp.103-121，1999.

[4] 核燃料サイクル開発機構：わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性，ー地層処分研究開発第 2 次取りまとめー，分冊 3 地層処分システムの安全評価，JNC TN1400 99-023，p.Ⅳ-44，1999.

[5] 例えば，核燃料サイクル開発機構東海事業所：アルカリ性水溶液中で変質させたベントナイトの膨潤試験（試験報告），JNC TN8430，2005-003，pp.1-47，2005.

[6] 例えば，三好悟，木村志照，森上慎也，甚野智子，山本修一： 放射性廃棄物処分におけるベントナイト層の長期性能に関す る研究，大林組技術研究所報 No.77，pp.1-10，2013.

[7] 西本壮志，岡田哲実，澤田昌孝：高レベル放射性廃棄物処分場ニアフィールド模型を用いた遠心力載荷装置による長期挙動評価試験，第 41 回岩盤力学に関するシンポジウム講演集，公益社団法人土木学会，pp.173-178，2012.

[8] 鹿園直建：放射性廃棄物の地層処分に対するシミュレーション研究とナチュラルアナログ研究の意義，地質ニュース 499 号，pp.13-22，1996.

[9] W. Russell Alezander, Heini M. Reijonen, Ian G. McKinley：Natural analogues: studies of geological processes relevant to radioactive waste disposal in deep geological repositories, Swiss Journal of Geosciences, 108, pp.75-100, 2015.

[10] 寺田賢二，関根一郎，雨宮清，伊藤雅和：中国産ベントナイトの利用可能性調査報告書, 原環センター技術報告書 RWMC-TRJ-10002, pp.57-62, 2011.

[11]伊藤雅和，石井卓，中島均，平田征弥：ベントナイトの成因・生成環境に関する一考察，粘土科学第 38 巻第 3 号，pp.181-187，1999.

[12]関根一郎，伊藤雅和，山本卓也，雨宮清，佐藤泰，寺田賢二：海外産ベントナイトの特徴と放射性廃棄物処分への適用可能性調査，土木学会第 63 回年次学術講演会，CS05-23，pp.213-214，2008.

[13]澤田武夫：安中―富岡地域ベントナイト鉱床に関する被熱履歴の推定，粘土科学第 43 巻第 3 号，pp.137-144，2004.

[14]伊藤弘志，鈴木啓三，小峯秀雄：粒状ベントナイトの締固め・透水特性とその簡易評価方法，土木学会論文集 C Vol. 62，No. 4，pp. 803-813，2006.

[15]小峯秀雄，緒方信英：塑性限界を導入した粘土の締固め特性の評価法の提案，土木学会論文集 No. 436，Ⅲ-16，pp. 103-110，1991，9.

[16]地盤工学会：地盤材料試験の方法と解説―二分冊の 1―, pp.137-142, 2009.

[17]動力炉・核燃料開発事業団東海事業所：ベントナイトの鉱物組成分析, PNC TN8430，93-003，pp.1-114，1993.

[18]日本ベントナイト工業会：日本ベントナイト工業会試験方法―ベントナイト（粉状）の膨潤試験方法―，JBAS-104-77，pp.7-9.

[19]地盤工学会：地盤材料試験の方法と解説―二分冊の 1―, pp.361-367, 2009.

[20]小峯秀雄，安原一哉，村上哲：人工海水環境下におけるベントナイトの一次元自己シール性，土木学会論文集 C，Vol.65，No.2，pp.389-400，2009.

[21]棚井憲治，菊池広人，中村邦彦，田中幸久，廣永道彦：ベントナイト系材料の標準的室内試験法構築に向けての試験法の現状調査と試験による検討，日本原子力研究開発機構/電力中央研究所共同研究報告書(共同研究)，JAEA-Research 2010-025，2010.

平成 30 年度　外部発表

【学術論文】

【口頭発表】

1. D. Ito, H. Komine, S. Morodome, T. Sekiguchi, G. Miura, Evaluating influence of cementation in bentonite buffer material based on the swelling properties of bentonite ore, Proceedings of the 7th International Congress on Environmental Geotechnics, pp.97-104, Hangzhou, China, 2018.10.
2. 伊藤大知，小峯秀雄，諸留章二，関口高志，三浦玄太：生成年代の異なるベントナイト原鉱石の膨潤変形特性に基づく膠結作用の定量評価，第 53 回地盤工学研究発表会（高松），D-05，pp.2295-2296，2018.7
3. 王海龍，小峯秀雄，白河部匠，伊藤大知，市川雄太：締固めたベントナイトの吸水膨潤時における水分子の移動，第 54 回地盤工学研究発表会（さいたま），2019.7 発表予定
4. 伊藤大知，小峯秀雄，後藤　茂，王　海龍，諸留章二，関口高志，北原慎也：固結したベントナイト系緩衝材の自己シール性能の維持に関する一考察，第 54 回地盤工学研究発表会（さいたま），2019.7 発表予定
5. Hailong WANG, Takumi SHIRAKAWABE, Hideo KOMINE, Daichi ITO, Takahiro GOTOH, Yuta ICHIKAWA, Qiao CHEN: Movement of water in compacted bentonite: a new testing procedure for both interlayer and global water movements. 投稿予定

研究報告 7

断層周辺の地下水流動特性および物質移行特性に関する包括的研究

日本原子力研究開発機構　東濃地科学センター

渡辺　勇輔

1. 背景・目的

高レベル放射性廃棄物の地層処分の安全評価では，地下水の作用により埋設された廃棄体から放射性核種が漏出，移行し，生物圏に到達することを想定した「地下水シナリオ」が重要な評価対象となる。そのため，地下深部での核種の移行挙動を評価するために重要な地下水流動や物質移行を支配する地質構造の働きを理解する必要がある。

地殻中に存在する断層は，断層活動による割れ目の形成によって選択的な地下水の移行経路になると考えられる一方で，基盤岩の変質によって生成する粘土が低透水性を示すことからこれらを抑制する構造としても機能しうることが知られている。断層の内部構造は断層コア，ダメージゾーン，原岩に大きく分けることができる(Caine et al., 1996，図 1)。断層コアは断層の中央に位置し，断層帯の中で最も大きなひずみや変位が生じている(Bense et al., 2013)。断層コアは単独のすべり面や，未固結粘土を多く含むガウジ帯，角礫化した変質帯，カタクレーサイト帯などを含むことがある(Caine et al., 1996)。走向あるいは傾斜方向における断層コアの厚さの変化，内部構造と組成が流体流動特性の支配因子であると考えられている(Caine et al., 1996)。その周りに分布しているダメージゾーンでは，亀裂や小規模な断層が認められ(Bense et al., 2013)，断層帯からの距離に応じて亀裂密度や浸透率が低下するとの報告がある(Mitchell and Faulkner, 2012)。さらに，ダメージゾーンの外側には断層の影響がほとんど認められない原岩が分布する(Caine et al., 1996)。これらの内部構造に応じて，断層は conduit あるいは barrier，conduit-barrier システムとして働くことが知られており，断層帯におけるコアやダメージゾーンの割合により，断層の水理特性が変化すると考えられている(Caine et al., 1996)。また，断層の水理特性に影響を及ぼすプロセスとして，透水性を増大させるものとしては，粒子の流動，亀裂の発生，角礫化などが，減少させるものとしては，粒子の移動，フィロ珪酸塩スミアの形成，圧砕などが考えられている(Bense et al., 2013)。さらに，透水性に影響を及ぼす二次的および地質学的プロセスとして，流体流動に伴う鉱物の溶解やセメンテーション，圧力溶解などが考えられている(Bense et al., 2013)。断層帯における流体の流動特性は時間経過に伴い変化する可能性があるため(Goddard and Evans, 1995；Caine et al., 1996)，特定の断層帯の概念モデルを構築する際には断層が発達する過程のどの段階にあるかを明らかにする必要がある(Caine et al., 1996)。

上述のように，断層は多様な水理特性を示すが，放射性廃棄物の地層処分の安全評価では，主に放射性核種の移行経路として考えられてきた。例えば，安全評価において主要な評価対象となる地下水シナリオに関連して，第 2 次取りまとめ報告書(核燃料サイクル開発機構, 1999)では断層を一次元平行平板モデル

で表現して物質移行解析が行われた。その一方で，一定の割合の断層は地下水流動や物質移行を抑制する構造として働くことが知られている。例えば，Scibek et al. (2016)は世界の断層の水理特性に関するデータに基づいて，barrier として機能する断層が 30%程度, conduit-barrier システムが 20%程度であるとした。

地下水や石油，ガスなど，地下の流体移動に影響を及ぼす地質構造として，コンパートメント構造に関する検討も行われている。Wangen (2001)は，コンパートメントを低透水性の岩相に囲まれた透水性岩相の区画とし，シンプルなモデルを用いた数値解析を行うことで, 2 つの過剰間隙圧が発生したコンパートメント間の断層を介した相互作用について検討した。Muggeridge et al. (2004)は，数値解析により，断層のような薄いバリアに囲まれたコンパートメントにおいて，異常間隙圧が時間的にどのように減衰していくかについて検討した。チュニジアとアルジェリアに分布する Kasserine 帯水層に関する一連の研究(Hassen et al., 2016; Hassen et al, 2018; Hassen et al., 2019)では，構築した地質モデルを用いて，コンパートメント内およびコンパートメント間の地下水流動に断層が果たしている役割が明らかにされた(Hassen et al., 2016)。また，Hassen et al. (2018)は同位体を含む地球化学的指標に基づいて，溶質の起源や水質変化のメカニズム，涵養・混合プロセスを解釈した。さらに，Hassen et al. (2019)では, 4 つのコンパートメントに分割された Kasserine 帯水層の地下水流動における断層の影響を地下水流動解析を通して解釈した。Tian et al. (2016)は，Dongying 背斜域において，断層がバリアとして働き，コンパートメントを形成することで，潜在的な炭化水素資源のトラップとなっている可能性を指摘した。Chihi et al. (2015)は，チュニジアの Jeffara de Medenine 帯水層において地球物理学や水理地質学，地球統計学，地球化学などを用いた検討を行い，コンパートメント構造が水理特性や地下水の地化学特性に及ぼす影響について解釈した。日本でもコンパートメント構造の存在は指摘されており，例えば Onoe et al. (2011)は岐阜県東濃地域に分布する Main Shaft Fault(主立坑断層)近傍に断層などの低透水性構造に囲まれたコンパートメント領域が存在することを指摘している。

以上のように，低透水性の断層に囲まれたコンパートメント構造内の領域では外部との流体の流出入が抑制される可能性がある。

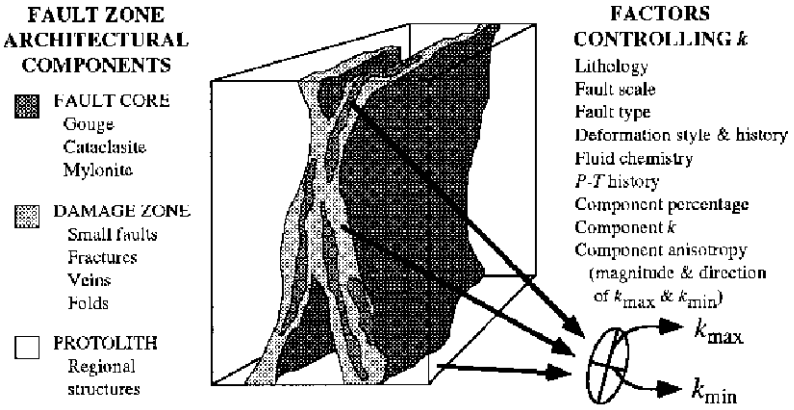


図 1　断層の内部構造(Caine et al., 1996)

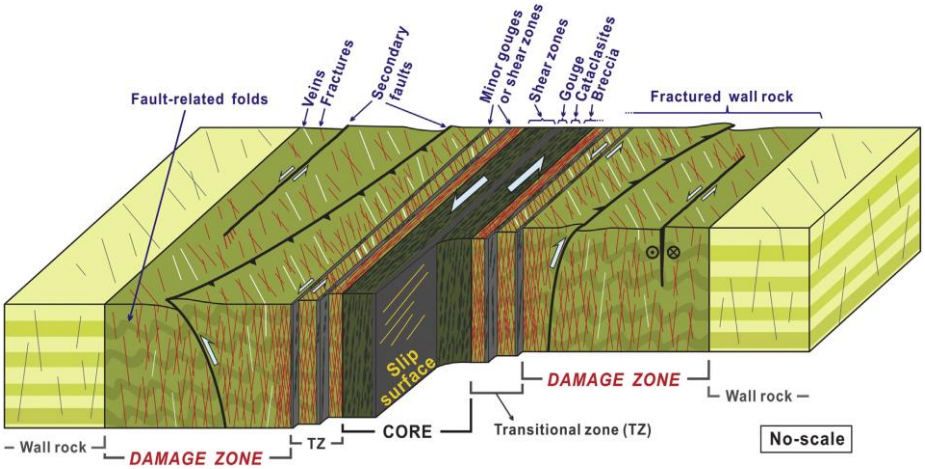


図 2　断層の内部構造(Choi et al., 2016)

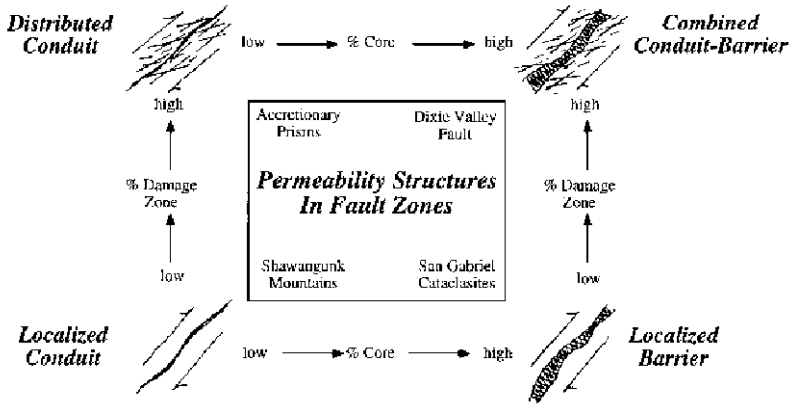


図 3　断層帯における断層コアおよびダメージゾーンの割合に応じた断層の水理特性変化(Caine et al., 1996)

また，断層の内部では断層コアからの距離や発達段階，分布深度に応じて様々な鉱物組成を示すと考えられる。花崗岩中に形成した断層内には，母岩にほとんど含まれないスメクタイトが観察される例が報告されており，このような粘土鉱物は断層活動によって生成したと考えられる(金折ほか，1982，植木ほか，2016)。また，瑞浪超深地層研究所内の主立坑断層では，断層活動によって生成した割れ目内を熱水や地下水が浸透することによって緑泥石や方解石が充填し，割れ目の透水性を低下させた可能性がある(Ishibashi et al., 2016)。また，地表付近の酸化的な地下水や天水が浸透することによって水酸化鉄などの酸化物が形成する場合がある(吉田ほか，2009)。

断層周辺の地下水流動は主にダメージゾーン内の水みちとなる割れ目で生じると考えられることから，断層ガウジやダメージゾーンに存在するこれらの鉱物と地下水の水 - 鉱物反応は物質移行を評価する上で重要である。特に，スメクタイトなどの粘土鉱物は花崗岩に含まれる造岩鉱物よりも高い元素収着能力を持っており健岩部とは異なる物質移行特性を持つと予想される。岩盤中の物質移行特性を適切に把握し，物質移行現象を精度良く予測するためには，対象なる岩石の元素収着特性を把握した上で，サイト周辺における水理特性や鉱物組成の空間変化を考慮した解析を行う必要があると考えられる。また，元素の収着挙動は対象元素の濃度や, 液相の pH やイオン強度などの地球化学特性によって異なるためこれらを考慮した吸着モデルを作成する必要がある(Fan et al., 2017)。

本研究では，断層周辺の物質移行特性を精度よく評価する手法を構築することを目的として，断層によって形成されるコンパートメント構造などの地質構造を考慮した地下水流動解析・物質移行解析や，断層活動によって変質した岩石への元素収着試験を実施する。

2. 全体研究計画(3 ヵ年における全体計画)

(1)H30 年度実施内容

地下水流動や物質移行を抑制する構造として低透水性の断層に囲まれた構造(コンパートメント構造)に着目し，コンパートメント構造を含み，断層ガウジの有無，ダメージゾーンの厚さなどを変化させた仮想的な水理地質モデルを作成する。本モデルを用いて，地下水流動解析と物質移行解析を行うことで，地下水流動や物質移行を抑制する構造としてコンパートメント構造の機能を明らかにする。

また，断層ガウジを含む断層破砕帯の岩石試料を用いた元素収着試験を実施する。対象元素は三価の陽イオンとして Eu，一価の陽イオンとして Cs を用いる。また，対象試料の化学組成・鉱物組成分析を行い，収着挙動と試料中に含

まれる鉱物組成との関係について調べ，断層内の物質移行挙動を明らかにする。

⑵ H31 年度実施内容

仮想的なコンパートメントモデルに加え，実際にコンパートメント構造が存在すると考えられているサイトを選定して水理地質モデルを作成する。これらのモデルを用いて地下水流動解析を行い，周辺で測定される水圧データと比較することでモデルの修正を行う。さらに，トリチウムや水素酸素同位体，塩化物イオンなど，水—岩石反応を考慮する必要がない保存性トレーサーについて物質移行解析を行い，周辺の地下水における実測値と比較することでモデルの修正を行う。

引き続き断層周辺試料の鉱物組成分析，収着試験を実施し，断層活動による変質に鉱物の種類や変質程度に応じて岩盤中の物質移行挙動がどのように異なるのか明らかにする。

⑶ H32 年度実施内容

前年度までに得られた収着試験の結果を物質移行解析に反映させ，岩石による収着反応を考慮した物質移行解析を実施する。

また，前年度に引き続き，pH，イオン強度，元素濃度等の条件を変化させて収着試験を行い，ダメージゾーンに生成した物質に対する元素の収着挙動を詳細に明らかにすることで，地下環境で起きる水—岩石反応の解明を目指す。

3. 平成 30 年度研究実施内容

3.1 実施内容および手法

(1) 仮想的な水理地質モデルを用いた地下水流動解析および物質移行解析

コンパートメント構造が周辺の地下水流動や物質移行に及ぼす影響を明らかにするための予察的検討として，コンパートメント領域を含む仮想的な水理地質モデルを作成し，コンパートメント構造を形成する断層の特性を変化させて地下水流動解析と物質移行解析を実施した。

考慮したコンパートメント構造の概念図を図 4 に示す。この概念モデルでは方の断層系に直交する断層系の左横ずれによりコンパートメント構造が形成されている。また，健岩部の基盤上に風化部が分布する。このような構造を考慮し，地下水流動解析や物質移行解析に使用する図 5 のような水理地質モデルを作成した。本モデルのグリッド分割数は水平方向 151×151 グリッド，深度方向 20 グリッドである。各グリッドの大きさは水平方向 10×10 m，深度方向 20 m であり，解析領域は水平方向 1510×1510 m，深度方向 400 m に相当する。

今回の解析では，断層の内部構造の影響を考慮するため，断層ガウジの有無やダメージゾーンの厚さを変化させた 4 種類のモデルを作成した(表 1 および図 6)。モデル 1 は断層ガウジを含まず，ダメージゾーンのみが厚さ 30 m で分布するものである。一方で，モデル 2 からモデル 4 は厚さ 30m の断層ガウジの周辺にダメージゾーンが分布するモデルで，モデル 2(ダメージゾーンの厚さ 10 m)からモデル 4(ダメージゾーンの厚さ 50 m)へと昇順でダメージゾーンが厚くなる。透水係数は健岩部を 1×10^{-8} m/s，最上部の風化層を 1×10^{-5} m/s とした。また，断層部は断層ガウジや変質帯からなる低透水部(以後断層ガウジと称する)と高透水性のダメージゾーンに分割し，断層ガウジの透水係数を 1×10^{-8} m/s に，ダメージゾーンの透水係数を 1×10^{-3} m/s として設定した。なお，コンパートメント構造は低透水性の領域に囲まれた高透水性の領域を示すことが多いが(例えば，Wangen (2001); Muggeridge et al. (2004))，高レベル放射性廃棄物処分では透水性の低い岩体内に廃棄体が埋設されると考えられることから，ここでは健岩部と断層ガウジの透水性を同程度と仮定した。また，最上部のグリッドの 1 辺に固定水頭(0 m)を与え，それ以外のグリッドは自由水頭とした。最上部のグリッドに年間 300 mm の涵養を与え，定常状態での地下水流動解析を行った。地下水流動解析には三次元有限差分地下水流動モデルである MODFLOW(McDonald and Harbaugh, 1988)を用いた。

さらに，地下水流動解析で算出された地下水流動状態を踏まえ，コンパートメント領域における物質移行解析を行った。今回の物質移行解析では，深度 300 m 以深のコンパートメント領域内にトレーサーの初期濃度を与え，トレーサーが 10 万年間でどのように移行するかを算出した。計算には，三次元多成分物質

移行解析モデル MT3DMS(Zheng and Wang, 1999)を使用し，10 万年間の非定常解析を実施した。物質移行解析に関する条件を表 3 に示す。また，初期濃度は断層に対応するグリッド(ダメージゾーンあるいは断層ガウジ)から 1 グリッド空け，コンパートメント領域内部に設定した(図 7)。

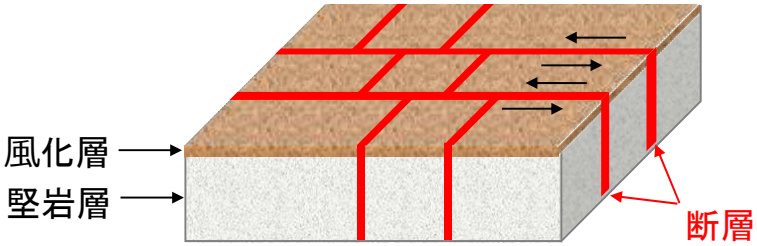


図 4　今回の解析で考慮したコンパートメント構造の概念モデル

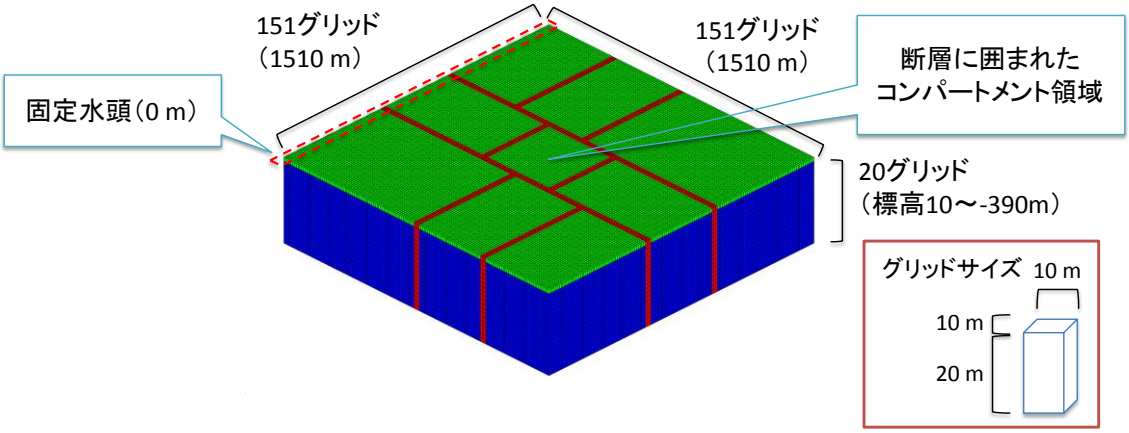


図 5　コンパートメント構造の概念モデル(図 4)を踏まえて作成した地下水流動解析および物質移行解析用の水理地質モデル(数値モデル)

表 1　各モデルにおける断層ガウジおよびダメージゾーンの厚さ

モデル	断層ガウジの厚さ(m)	ダメージゾーンの厚さ(m)
1	0	30
2	30	10
3	30	30
4	30	50

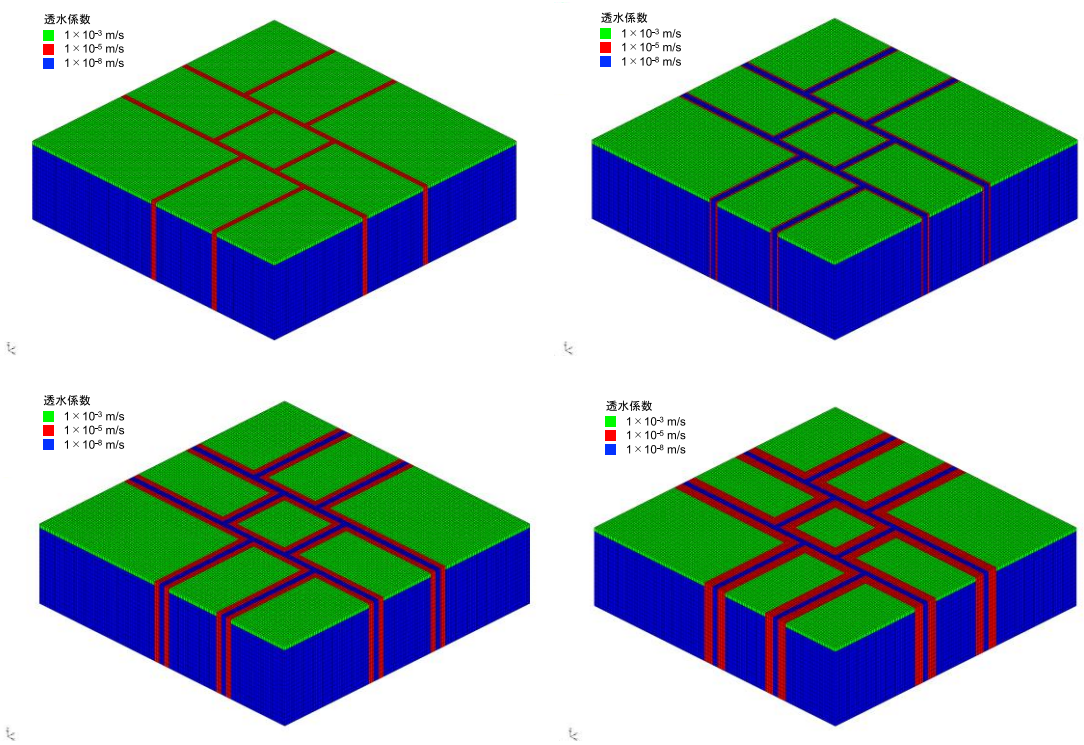


図 6　解析に用いた水理地質モデル

左上：モデル 1(断層ガウジなし，ダメージゾーン 30 m)

右上：モデル 2(断層ガウジ 30 m，ダメージゾーン 10 m)

左下：モデル 3(断層ガウジ 30 m，ダメージゾーン 30 m)

右下：モデル 4(断層ガウジ 30 m，ダメージゾーン 50 m)

表 2　地下水流動解析における設定パラメータ

項目	設定値
涵養速度	0.3 m/年
透水係数	風化帯：1×10^{-5} m/s 堅岩帯：1×10^{-8} m/s 断層角礫：1×10^{-3} m/s 断層ガウジ：1×10^{-8} m/s

表 3　物質移行解析における設定パラメータ

項目	設定値
間隙率	風化部　20% 堅岩部，ダメージゾーン，断層ガウジ　10%
分散長	縦分散長　10 m 横分散長　1 m
解析期間	10 万年
トレーサー性状	非収着性のトレーサーを仮定し 水–岩石反応や崩壊は考慮しない

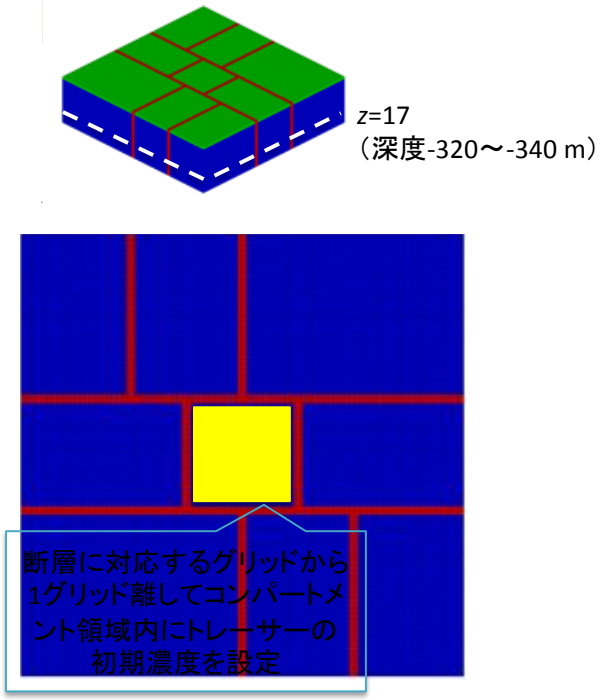


図 7　トレーサー初期濃度を与えたグリッド

(2) 断層周辺試料のキャラクタリゼーション

瑞浪超深地層研究所研究坑道内の深度 300 m におけるボーリング調査(鶴田ほか，2012)によって採取された 10MI22 号孔岩石コア試料の観察，化学組成・鉱物組成分析を行い試料のキャラクタリゼーションを実施した。10MI22 号孔は掘削長 76 m～111 m で主立坑断層を貫いており，断層ガウジ帯，カタクレーサイト帯，断層角礫帯，断層周辺の母岩の変質を伴う割れ目帯等が観察されている。図 8 に鶴田ら(2012)で報告されたコア観察結果と本研究で用いた試料の採取場所を示す。得られた結果を用いて試料毎の鉱物組成，断層影響による変質状況を評価した。

1）試料の前処理

コア試料を掘削深度別に採取し，以下の手順により粉砕，細粒化した。

①10 数 g の岩石試料をハンマーによって粉砕する。粉砕作業はビニール袋を三重にして入れる等，ハンマーからの重金属の汚染や粉砕時の試料の飛散が無いように留意して実施した。

②粉砕した試料をメノウ乳鉢によってすりつぶすことで細粒化した。

③細粒化した試料は 250 μm の篩を通過した試料のみを回収した。篩を通過しなかった試料は再びメノウ乳鉢で細粒化し，すべての試料が篩を通過するまで繰り返した。

2）化学組成分析

主要化学成分分析は蛍光 X 線(XRF)分析装置(ZSX PrimusII，リガク社製)を用いてガラスビード法によって実施した。ガラスビード法はケイ酸塩質岩石を融剤とともに融解して均質なガラスにすることで鉱物や粒径の違いによるマトリックス効果を排除して分析を行うことができる。以下にガラスビード法による XRF 分析の手順を示す。

①1)で作成した粉砕試料は吸着水を取り除くために 110°C で 2 時間以上加熱する。融剤(Spectroflux 100B：$LiBO_2$ 80% + LiB_4O_7 20%, Johnson Matthey 社製)は結晶水および吸着水を取り除くため 500°C で 5 時間以上加熱した。

②試料 0.50 g と融剤 5.0 g を天秤で秤量し秤量値をノートに記録した。

③試料と融剤をメノウ乳鉢に移し，酸化剤(硝酸アンモニウム，富士フィルム和光純薬社製)を 100 mg 加えて混合させた。

④白金るつぼに移し剥離剤(よう化リチウム，Strem Chemicals 社製を 50%水溶液に調整)をマイクロピペットで 60 μL 加えた。

⑤高周波溶融装置(TK‐4100，東京科学社製)で溶融しガラスビードを作製した。溶融条件は初段加熱を 860°C で 120 秒，本加熱溶融を 1050°C で 360 秒，揺動加熱を 1050°C で 240 秒とした。作成したガラスビードはビニール袋に入れて保管した。

⑥各試料の XRF 強度を測定し，検量線法によって定量分析を行った。検量線作成試料として，産業技術総合研究所地質調査総合センターが提供している岩石標準試料(JG-1，JG-2，JG-3，JR-1，JR-2，JR-3，JA-1，JA-2，JA-3，JB-1b，JB-2，JB-3，JG-1a)13 試料，アメリカ地質調査所が提供している岩石標準試料(GSP-2)1 試料を用いた。岩石標準試料の標準値は，(清水ほか，2016)を参照した。測定条件は，X 線管はエンドウィンド型 Rh 管球で加速電圧と電流はそれぞれ 50 kV，60 mA で出力 3 kW とし，測定時間は 1 試

料あたり約 10 分とした。

3) 鉱物組成分析

鉱物組成分析は X 線回折(XRD)分析装置(Smart Lab，リガク社製)によって実施した。本年度は不定方位試料の分析のみを実施し，試料全体の鉱物組成の解析を行った。測定条件は Cu Kα 線，管電圧と管電流はそれぞれ 40 kV，40 mA，走査範囲は 3°～90°，スキャン速度は 1 °/分，ステップ幅は 0.01°とした。

(3)Eu と Cs の収着試験

(2)において作成した粉末試料を対象として Eu と Cs のバッチ式収着試験を実施した。以下に収着試験の手順を示す。本年度は次年度以降の収着試験に向けた予察的な収着試験として，各元素の添加濃度と試験期間と収着量の関係についてのパラメータを取得した。pH やイオン強度については瑞浪超深地層研究所深度 300 m のボーリング孔で採取された地下水から観測されている pH，イオン強度を参考にしてそれぞれ 8.5, 0.005 とした。以下に収着試験の手順を示す。なお，②以降の作業はアルゴン雰囲気下のグローブボックス内で実施した。

①(2)-1)で作成した粉末試料 100 mg を試験容器に量り取った。

②試験容器に 0.005 mol/L 塩化ナトリウム溶液(特級，富士フィルム和光純薬社製を超純水で調整) 50 mL を加えた。

③塩酸および水酸化ナトリウム(多摩化学工業社製を適宜希釈)をマイクロピペットで添加し pH を 8.5 に調整した。

④1 mmol/L 塩化ユウロピウム六水和物および 1 mmol/L 塩化セシウム(富士フィルム和光純薬社製を超純水に溶解) 1，5，20，50，100 μL を添加した。添加した時間をノートに記録し試験開始時間とした。

⑤マグネチックスターラーで試料を撹拌しながら塩酸と水酸化ナトリウムで pH を 8.4～8.6 の範囲に入るように調整した。

⑥試験開始から 1，6，12，24，48，72 時間後に各試験容器から試料 1 mL を採取し 0.45 μm メンブレンフィルターでろ過した。

⑦ICP 質量分析計(ICP-MS，Agilent 7700x，Agilent Technologies 社製)を用いて Eu および Cs 濃度を測定した。試料は内部標準試料による補正を行うため In および Bi を添加し，測定は同重体による干渉を防ぐためにコリジョンリアクションセルに He ガスを導入して実施した。

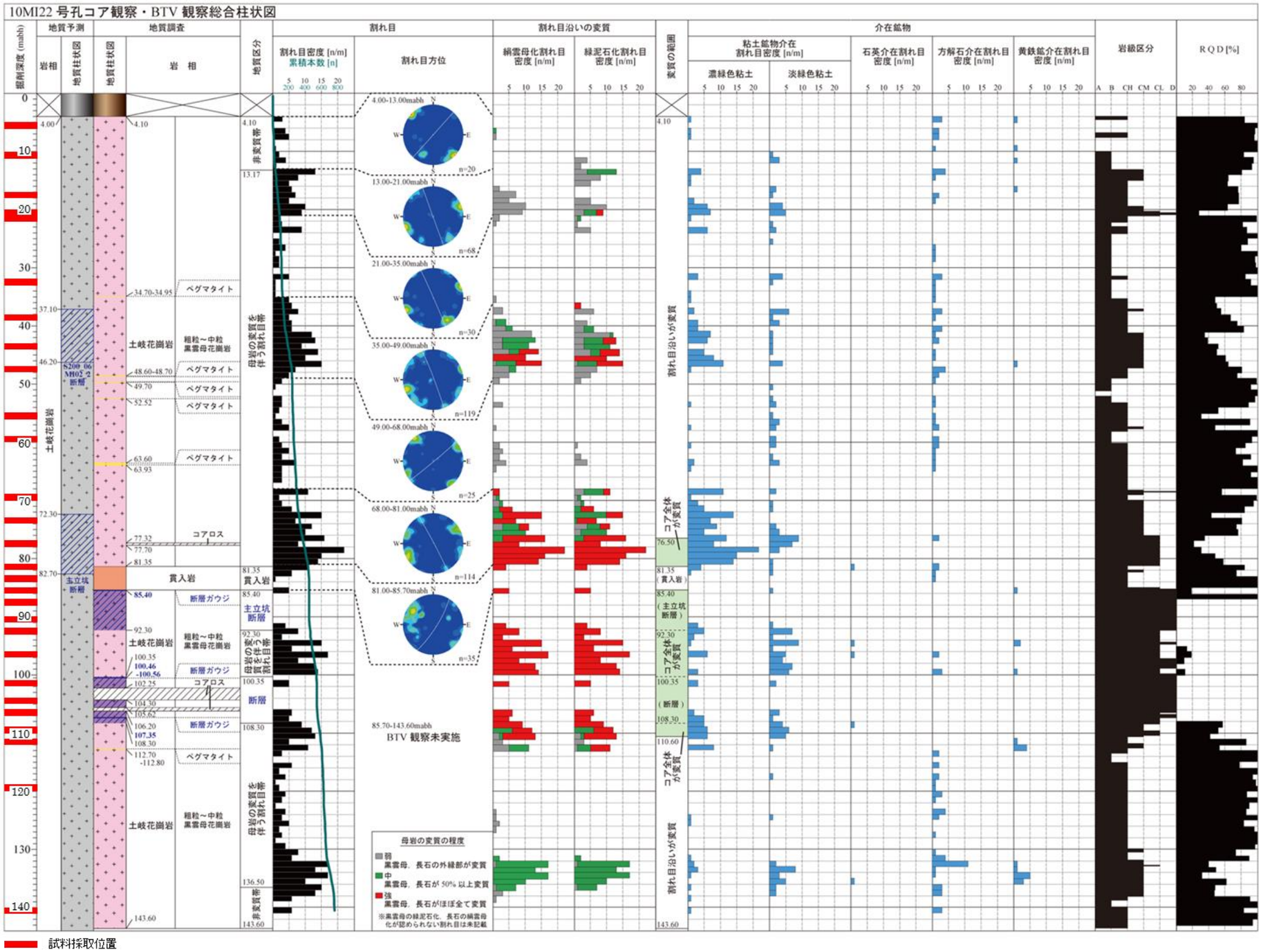


図 8　10MI22 号孔コア観察・BTV 観察総合柱状図および試料採取位置(鶴田ほか, 2012 に加筆)

3.2　結果

(1) 仮想的な水理地質モデルを用いた地下水流動解析および物質移行解析

4 種類の水理地質モデルを用いて行った地下水流動解析の結果を図 9～図 13 に示す。図 9 は平面図であり，断層ガウジとダメージゾーンの厚さが異なる各モデルにおいて，風化層に対応する最上位グリッド(z=1)と後述する物質移行解析でトレーサーの初期濃度を設定した深部のグリッド(z=17)で算出された水頭をグリッドの色で，流動速度ベクトルを矢印の大きさと色で示している。また，図 10～図 13 はモデル中心を通る断面，断層ガウジ内の断面，ダメージゾーン内の断面における解析結果である。

ダメージゾーンのみを設定したモデル 1 では，断層に分割された領域の内部で，断層から離れるほど水頭が高く，そのような領域の内部から断層に向けた地下水流動が認められる。また，断層に対応するグリッドの水頭は低い。浅部(z=1)に比べて深部(z=17)の水頭は低く，地下水の速度ベクトルを示す矢印はほとんど認められない。断面図では，ダメージゾーンに沿った浅部から深部への地下水流動が認められるが，深部ほど地下水流動の速度ベクトルは小さくなる。

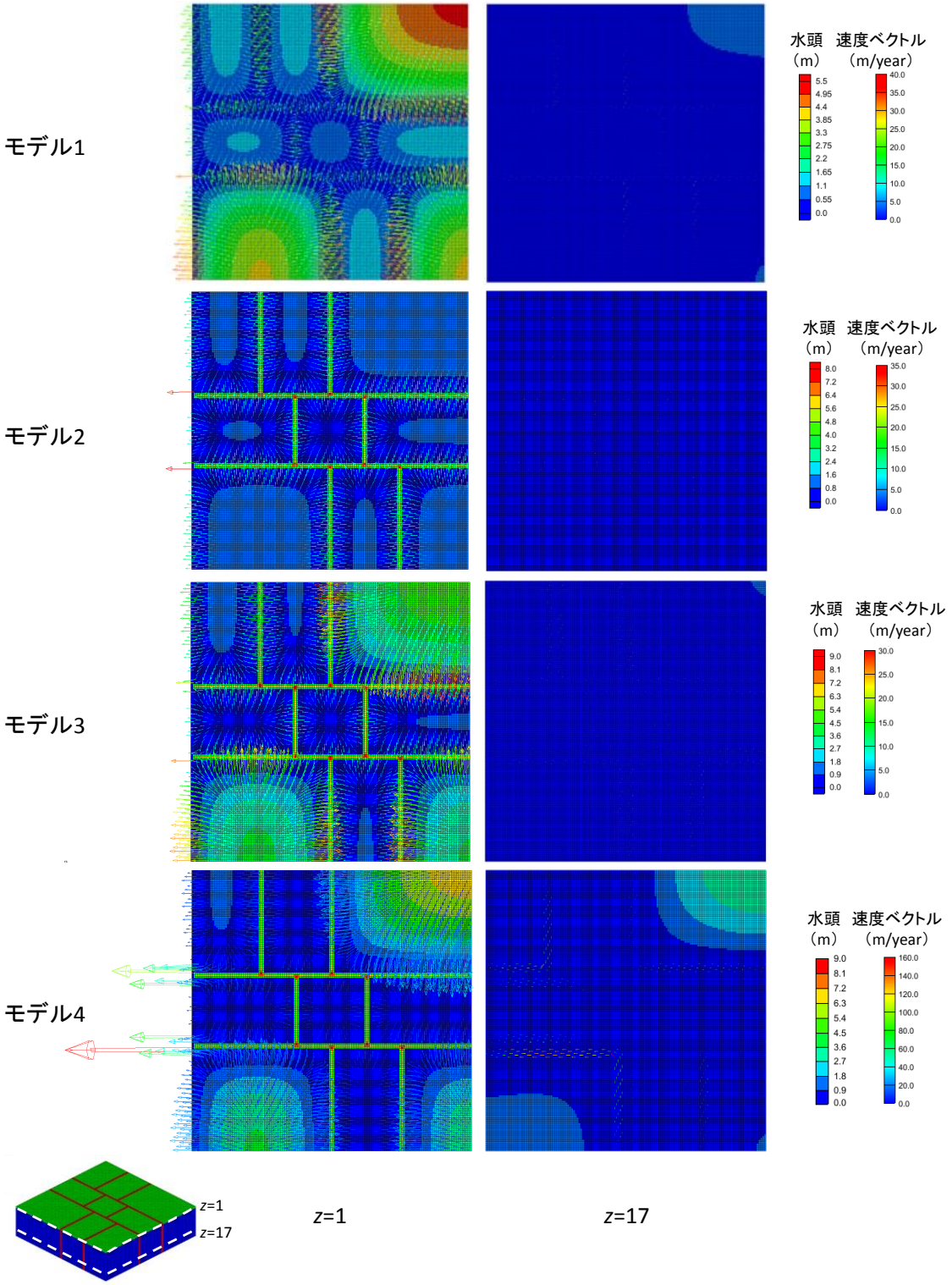


図 9　地下水流動解析で算出された水頭と地下水流動の速度ベクトル（z=1(最上部の風化層)と z=17(後述する物質移行解析でトレーサーの初期濃度を設定した層)における平面図で，グリッドの色が水頭を，矢印の色と大きさが地下水流動の速度を，矢印の向きが流動方向を表している）

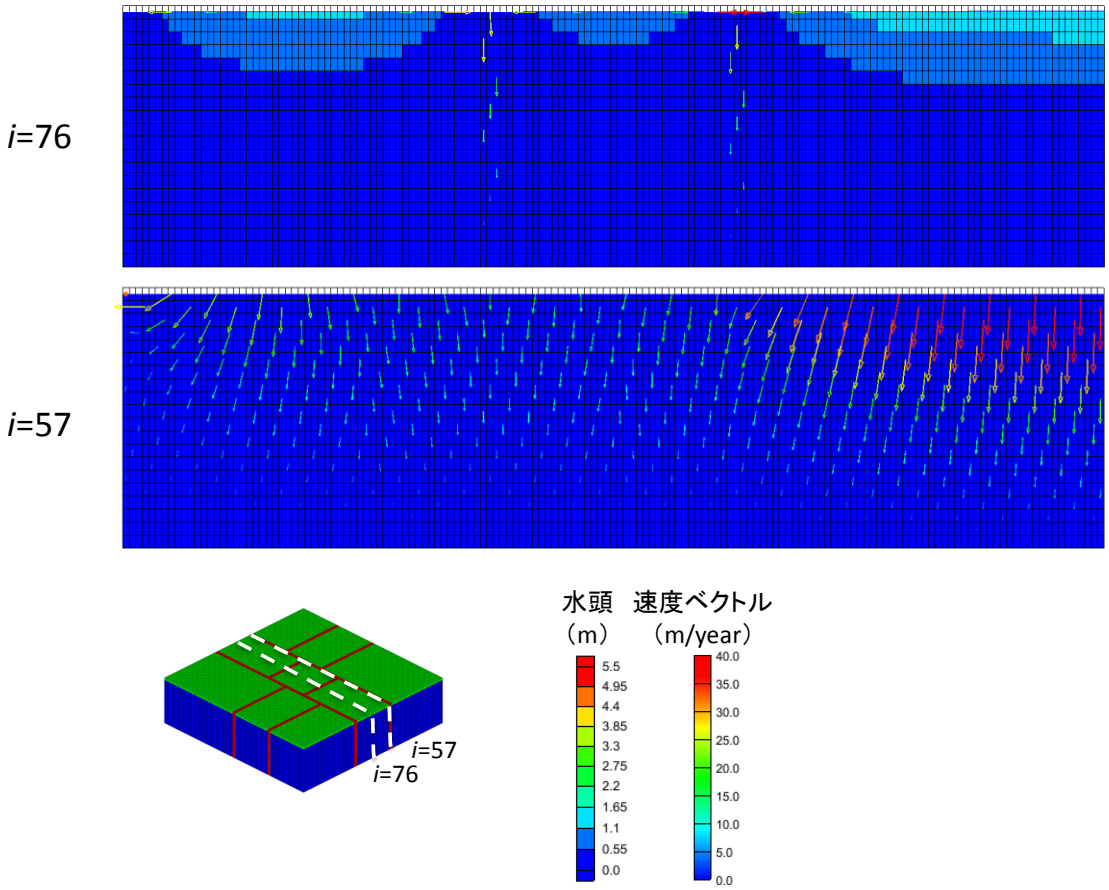


図 10　モデル 1 で算出された水頭と地下水流動の速度ベクトル
（i=57(ダメージゾーン内部)と i=76(モデル中央を通る面)における断面図）

一方で，断層ガウジを考慮したモデル 2～モデル 4 では，断層に分割された領域の内部で水頭が高い傾向はモデル 1 と同様であるのに加え，断層ガウジに対応するグリッドでも水頭が高くなった。その原因として，今回の解析では表面流出が考慮されないため，透水係数の低い断層ガウジに涵養した水が排水されないことで水頭が高くなったものと考えられる。その結果モデル 2～モデル 4 では，断層に分割された領域からダメージゾーンに向かう流れと，流速としては小さいが断層ガウジからダメージゾーンに向かう流れが認められた。

また，各モデルの計算結果の断面図(図 10～図 13)において，断層と直交する断面(図 10～図 13 の i=76)やダメージゾーン内(図 11 の i=59，図 12 の i=60，図 13 の i=61)での計算結果では，浅部から深部に向かい，わずかに断層に分割された領域からダメージゾーンに向かう流れが卓越する。さらに，ダメージゾーンが厚いモデル 4 での計算結果(図 9 および図 13)では深部でも断層に沿った流れが明確に認められるのがわかる。

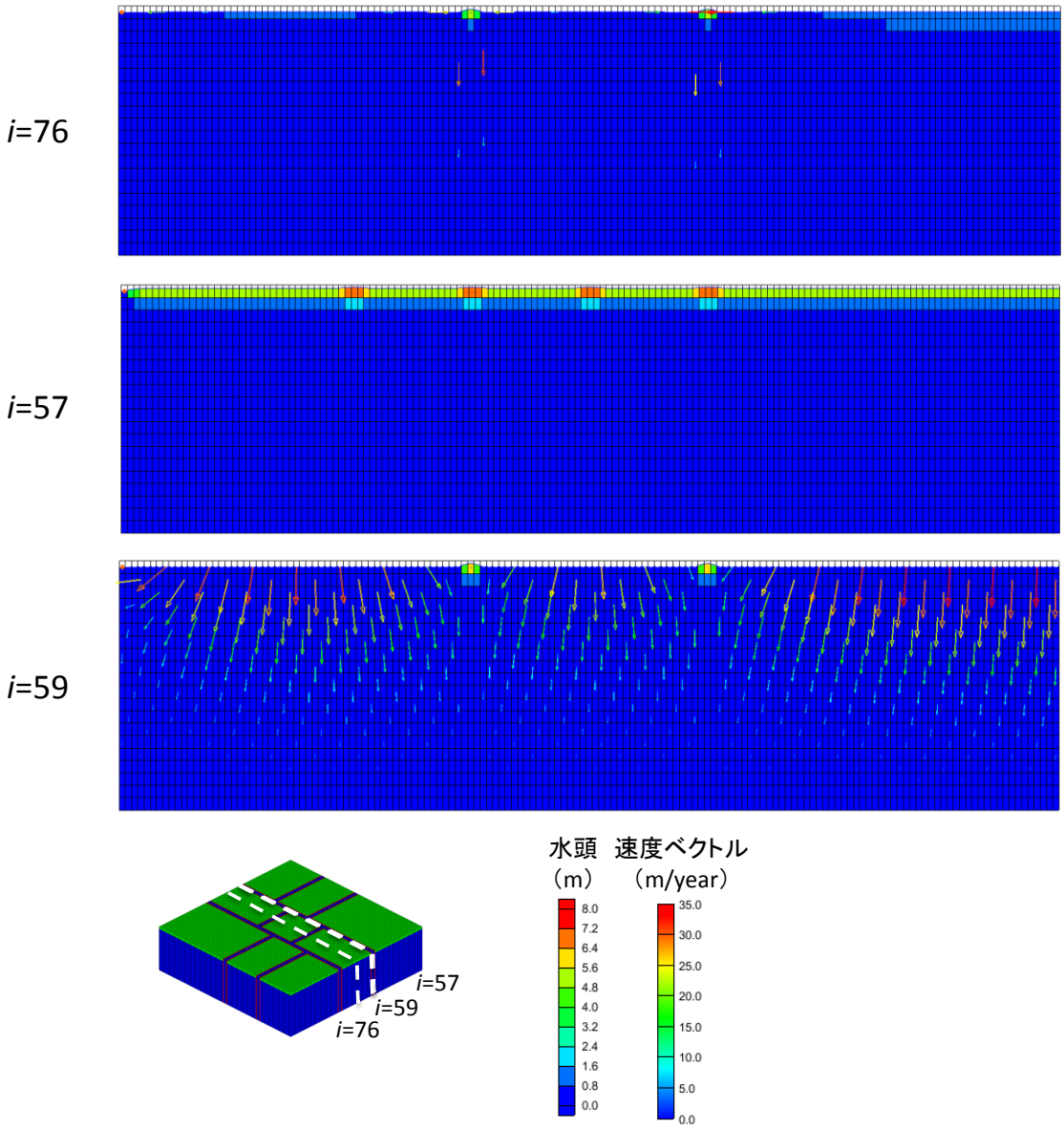


図 11　モデル 2 で算出された水頭と地下水流動の速度ベクトル
（i=57(断層ガウジ内部)，i=59(ダメージゾーン内部)と i=76(モデル中央を通る面)における断面図）

また，断層と直交する断面(図 10～図 13 の i=76)や断層ガウジ内(図 11 の i=57，図 12 の i=57，図 13 の i=57)の計算結果で明らかなように，今回の解析条件では断層ガウジの上部で算出される水頭が高くなるものの，断層ガウジ内の地下水流動は周辺のダメージゾーンに比べて限定される。

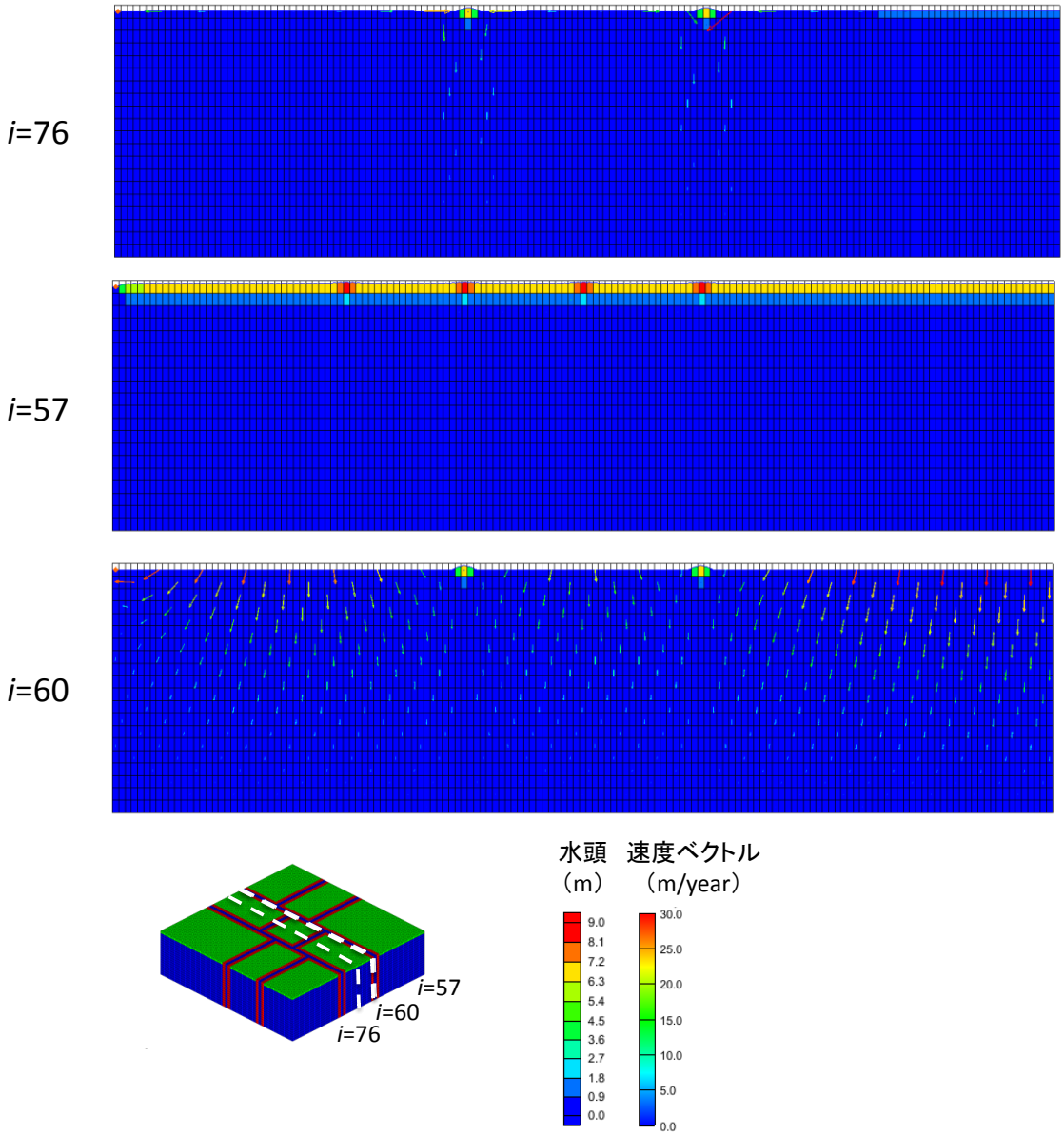


図 12　モデル 3 で算出された水頭と地下水流動の速度ベクトル
（i=57(断層ガウジ内部)，i=60(ダメージゾーン内部)と i=76(モデル中央を通る面)における断面図）

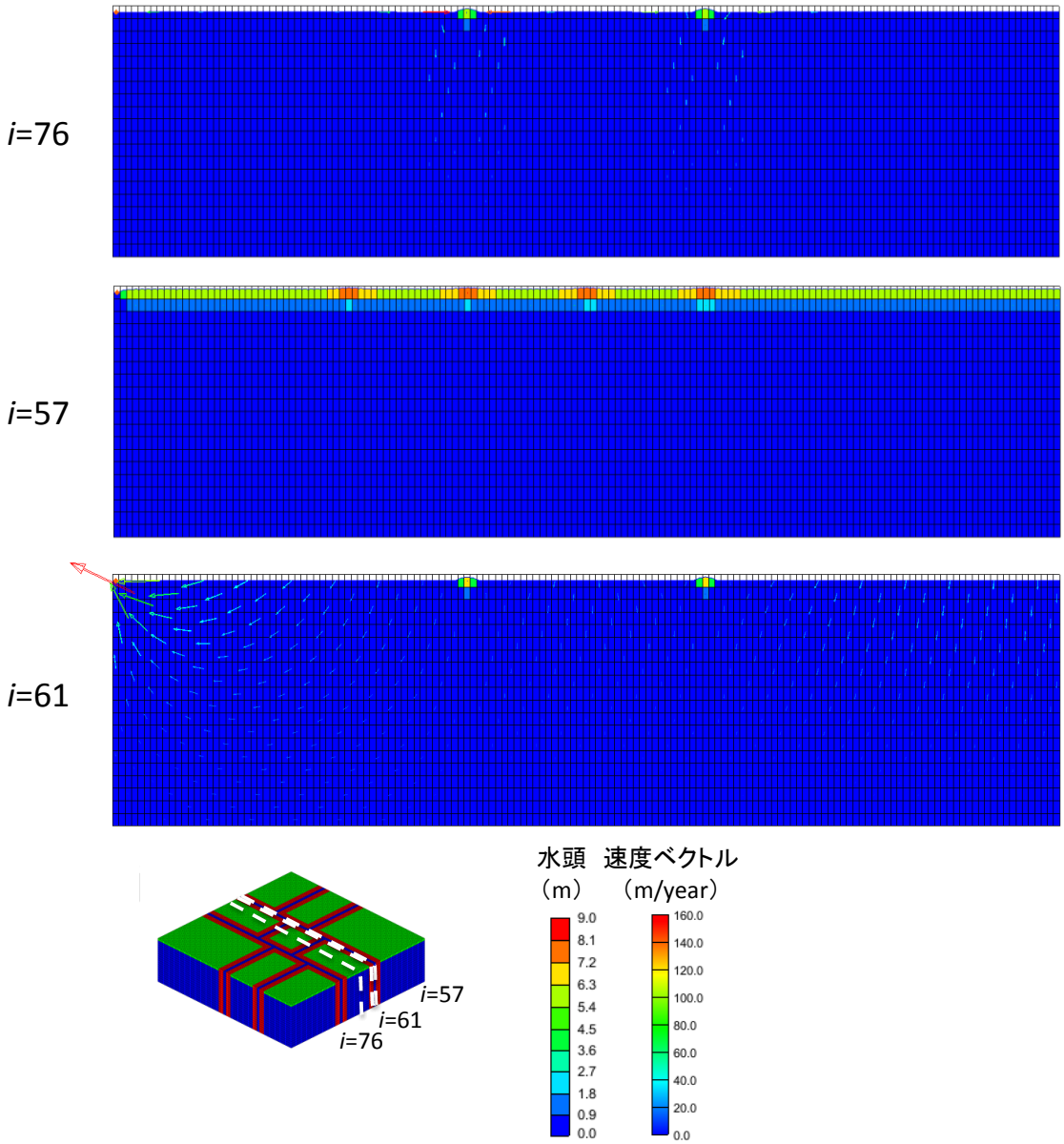


図 13　モデル 4 で算出された水頭と地下水流動の速度ベクトル
（*i*=57(断層ガウジ内部)，*i*=61(ダメージゾーン内部)と *i*=76(モデル中央を通る面)における断面図）

上述のような各モデルにおける地下水流動状態を踏まえて算出されたトレーサーの物質移行解析結果を図 14～図 18 に示す。断層ガウジが存在しないモデル 1(図 14)では, 移行開始から 100 年後の解析結果ではトレーサー初期濃度(100 mg/L)から大きな変化は認められないが，5 万年，10 万年と時間が経過すると初期濃度を設定したグリッドの濃度が低下し，相対的に深部の(初期濃度 0)のグリッドで濃度が上昇することから，地下水流動により初期濃度を設定したグリッドから深部へのトレーサーの移行が生じているものと考えられる。一方で，断層ガウジを有するモデル 2～モデル 4(図 15～図 17)では，初期濃度を設定したグリッドの下位だけでなく，上位のグリッドでも濃度上昇が認められる。また，断層ガウジが存在しないモデル(モデル 1)に比べて存在するモデル(モデル 2～4)では 10 万年経過後のトレーサー濃度が高く，このこともトレーサーの移行が生じにくいことを表していると考えられる。

以上から，コンパートメントを構成する断層の特性(断層ガウジの有無と，断層ガウジおよびダメージゾーンの厚さ)が変化することで周辺の地下水流動状態や物質移行状態が変化し，高透水性のダメージゾーンのみが分布する場合に比べて，低透水性の断層ガウジが存在する場合にはコンパートメント領域内の物質移行が抑制されることが示された。

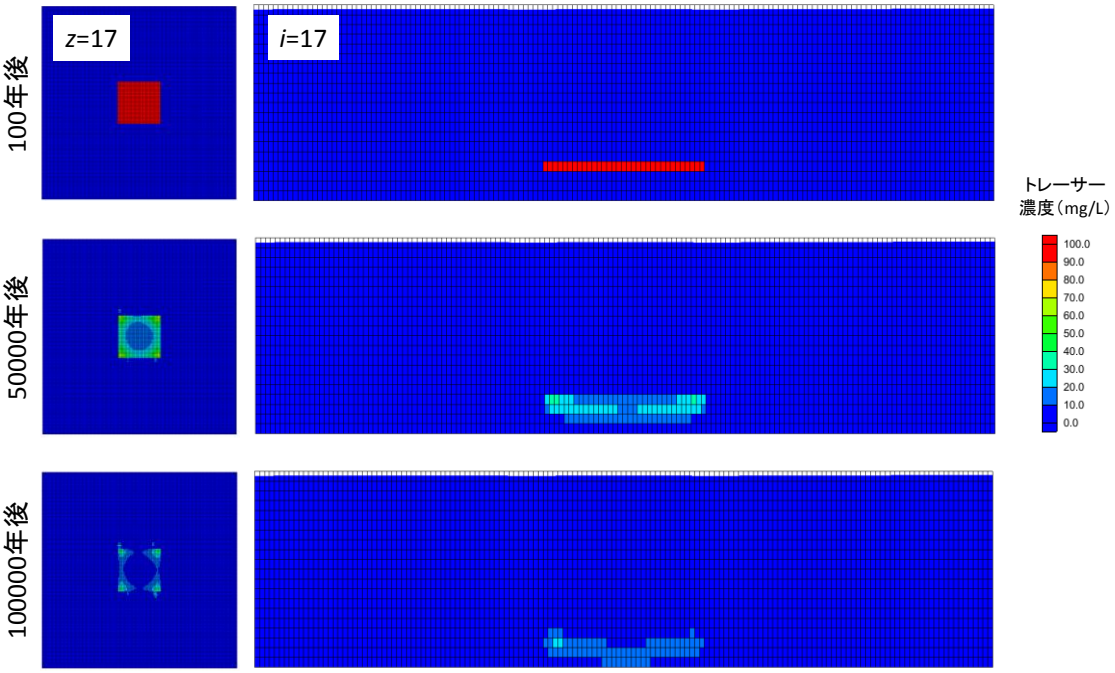


図 14　モデル 1 での物質移行解析結果

(左：z=17(トレーサー初期濃度を設定したグリッド)における平面図，右：i=76(モデル中央を通る面)における断面図)

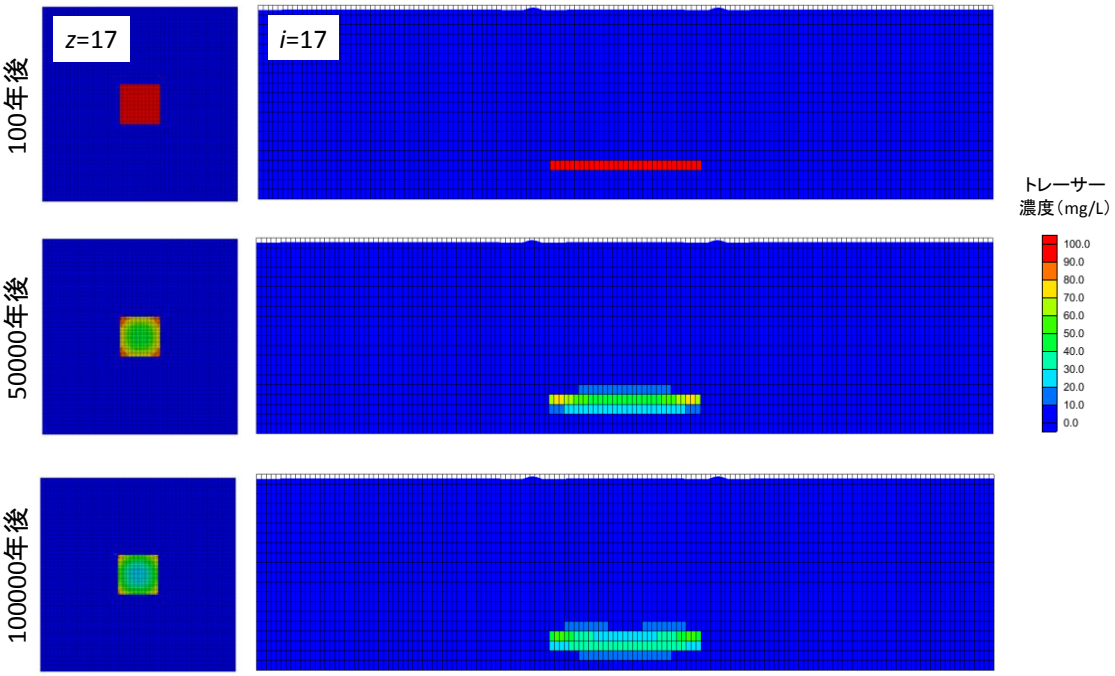


図 15　モデル 2 での物質移行解析結果
(左：z=17(トレーサー初期濃度を設定したグリッド)における平面図，右：i=76(モデル中央を通る面)における断面図)

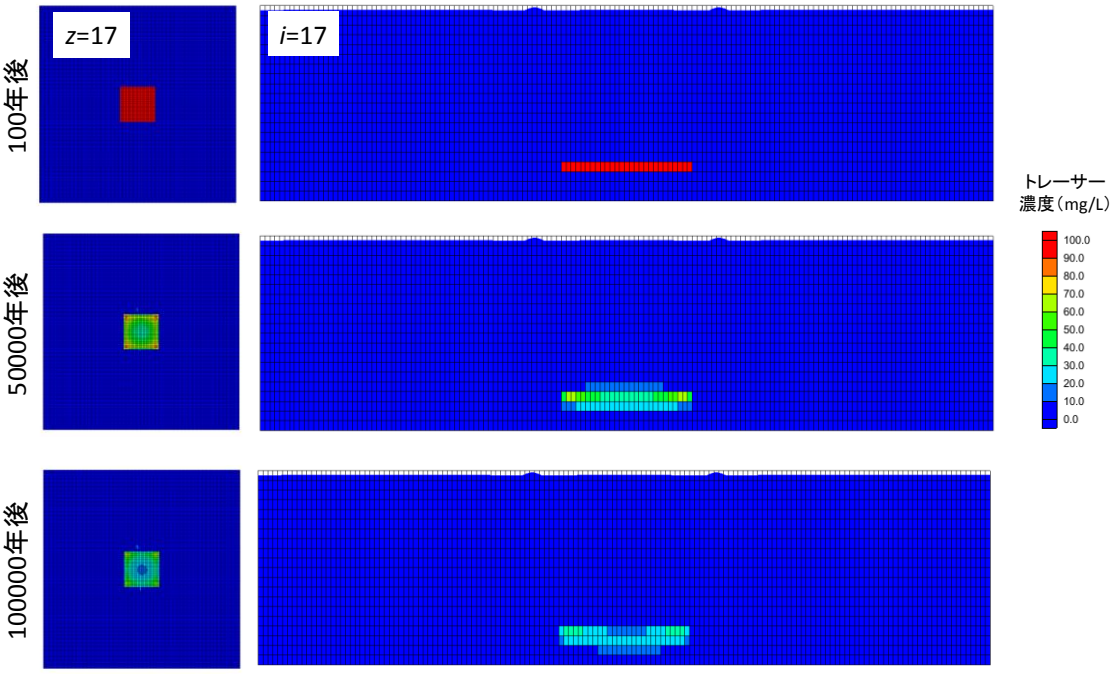


図 16　モデル 3 での物質移行解析結果
(左：z=17(トレーサー初期濃度を設定したグリッド)における平面図，右：i=76(モデル中央を通る面)における断面図)

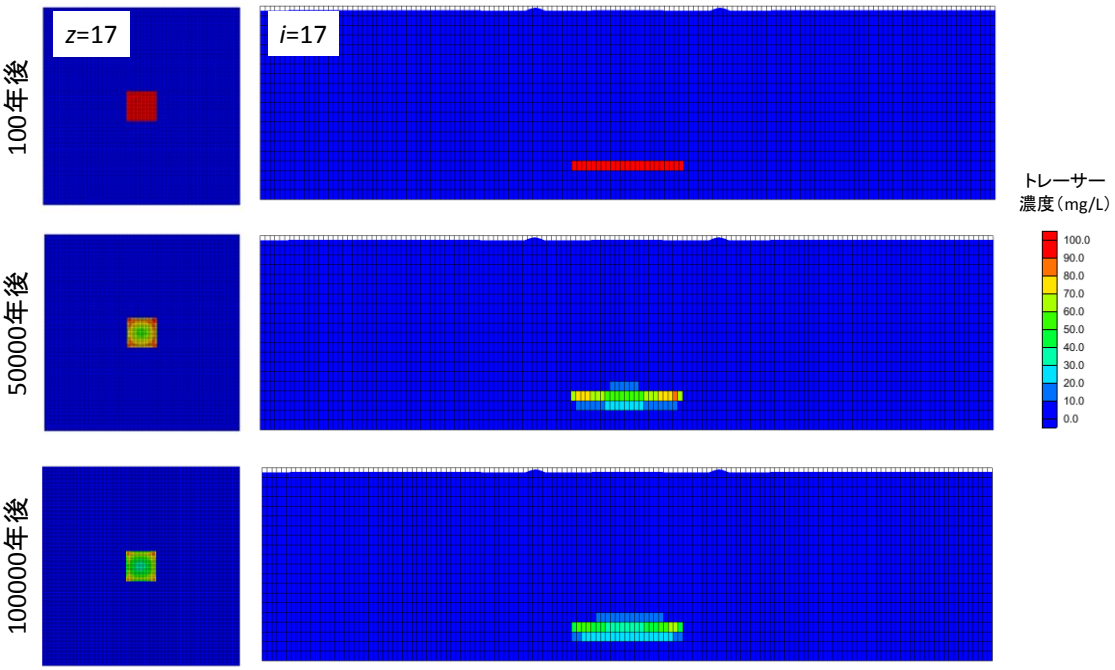


図 17　モデル 4 での物質移行解析結果
（左：z=17(トレーサー初期濃度を設定したグリッド)における平面図，右：i=76(モデル中央を通る面)における断面図）

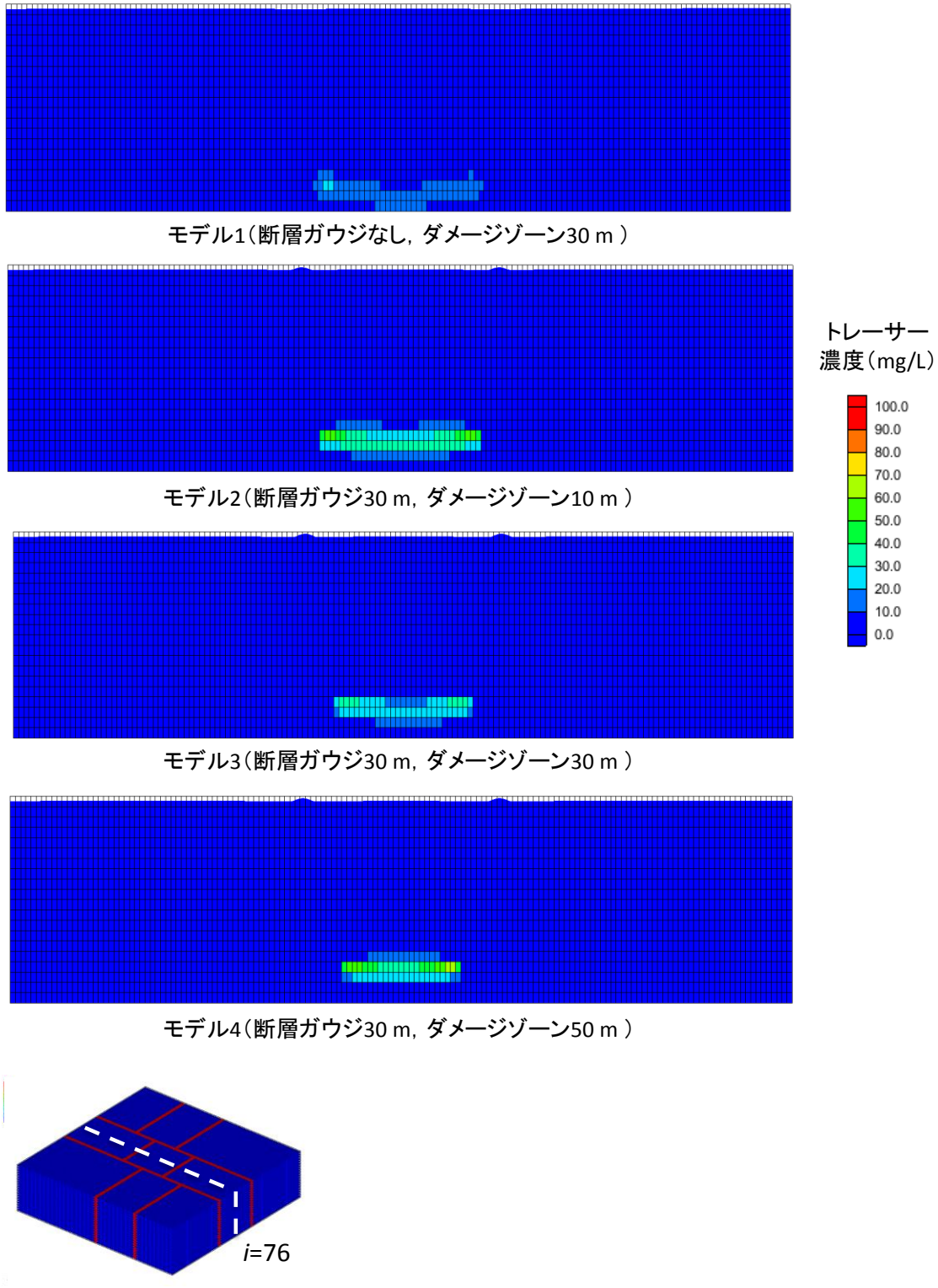


図 18　10 万年後のトレーサー濃度分布推定結果

⑵ 断層周辺試料のキャラクタリゼーション

各試料の化学組成分析の結果を表 4，鉱物組成分析の結果を図 19 に示す。各掘削深度における地質区分は鶴田ほか(2012)による記載に基づく。化学組成は断層からの距離，岩相に応じて異なる値を示した。断層からの距離が近い試料については長石類の変質に伴うと考えられる Na や Ca の減少が観察された。貫入岩においては他の岩相と比較すると Si が低く，Ti，Fe，Mn，Mg，Ca が高かった。

鉱物組成は断層からの距離が離れている試料については長石，斜長石のピークが強く観察され，近い試料ではそれらのピーク強度は減少した。緑泥石は断層からの距離によらず多くの試料で観察されたが，貫入岩試料に多く含まれていることが示唆された。貫入岩を含む断層近傍の試料からは方解石が観察された。また，10 Å 付近のピーク形状から，断層近傍の試料は黒雲母の変質とイライトやセリサイトの生成が予想された。10 Å のピークについては本年度の検討では黒雲母とイライトの明確な区別は出来ておらず，加水ハロイサイトなどの粘土鉱物も含まれている可能性がある。本年度の XRD 分析では元素の収着挙動に大きく影響すると考えられる粘土鉱物について同定が十分にできておらず，定方位試料を用いた詳細な分析が今後必要である。

本年度は鉱物分離を行わずに全岩の化学組成と鉱物組成の分析を行った。化学組成は断層活動による変質の違いよりも母岩の組成の違いが反映されたが，鉱物組成分析と合わせて評価することで断層運動の影響と考えられる鉱物組成の変化を確認することができた。

表 4 10MI22 号孔コア試料の化学組成

		化学組成(wt.%)										
採取深度(mabh※1)	地質区分※2	SiO_2	TiO_2	Al_2O_3	Fe_2O_3	MnO	MgO	CaO	Na_2O	K_2O	P_2O_5	LOI※3
5-6	非変質帯	76.4	0.14	12.3	1.87	0.06	0.19	1.10	3.51	4.14	0.03	0.26
10-11		72.7	0.14	13.8	2.02	0.06	0.23	1.22	3.65	5.06	0.04	1.02
17-18	母岩の変質を伴う割れ目帯	76.3	0.07	12.3	1.10	0.03	0.14	0.93	3.13	5.16	0.02	0.85
20-21		75.0	0.10	13.5	0.71	0.01	0.07	0.97	4.15	4.45	0.03	1.03
21-22		74.8	0.07	13.5	0.95	0.03	0.15	1.01	3.61	5.29	0.02	0.54
32-33		74.4	0.13	13.6	1.64	0.05	0.21	1.16	3.63	4.88	0.03	0.33
38-39		71.8	0.20	14.4	2.41	0.09	0.39	1.43	3.75	4.84	0.05	0.71
43-44		74.2	0.18	13.0	2.21	0.07	0.27	1.48	3.71	3.74	0.05	1.14
47-48		72.3	0.15	14.2	1.80	0.06	0.23	1.31	3.72	5.01	0.04	1.20
55-56		75.4	0.15	12.7	1.84	0.06	0.23	1.08	3.37	4.71	0.04	0.35
59-60		75.3	0.16	12.9	1.98	0.07	0.26	1.25	3.55	4.17	0.04	0.35
69-70		74.2	0.14	12.9	1.59	0.04	0.19	1.51	3.38	4.57	0.04	1.42
73-74		74.7	0.15	12.9	1.86	0.05	0.21	1.01	3.51	4.56	0.04	0.96
77-78		77.3	0.13	11.5	1.45	0.03	0.17	1.37	3.20	3.20	0.04	1.62
81-82	貫入岩	48.3	0.95	16.0	8.92	0.16	5.47	6.13	2.26	2.25	0.20	9.35
83-84		40.0	0.76	11.6	6.17	0.26	4.60	15.3	1.66	2.14	0.16	17.3
85-86	断層	44.8	0.95	14.5	6.86	0.18	3.81	8.86	1.41	4.07	0.20	14.3
85.4	断層ガウジ	74.4	0.18	12.6	1.47	0.07	0.27	1.80	2.55	4.02	0.05	2.60
87-88	断層	71.4	0.21	14.1	1.78	0.07	0.28	1.50	2.33	5.51	0.06	2.76
90-91		80.3	0.17	9.43	1.52	0.05	0.22	1.47	1.44	3.32	0.04	2.08
92-93		72.9	0.19	12.5	2.34	0.11	0.26	1.40	3.53	4.04	0.05	2.62
96-97	母岩の変質を伴う割れ目帯	73.0	0.18	12.5	2.28	0.11	0.26	1.36	3.49	3.98	0.05	2.77
101-102	断層	74.3	0.20	12.8	2.57	0.08	0.36	0.87	2.36	3.74	0.05	2.69
104-105		76.0	0.15	11.7	1.69	0.03	0.39	1.73	0.35	4.04	0.04	3.90
106-107		74.3	0.17	12.6	1.70	0.08	0.19	1.12	3.33	4.38	0.05	2.07
109-110	母岩の変質を伴う割れ目帯	74.6	0.19	12.7	2.12	0.06	0.27	1.22	3.34	4.38	0.05	1.06
111-112		74.9	0.17	12.4	2.07	0.07	0.29	1.24	3.36	4.23	0.05	1.22
119-120		76.0	0.16	12.4	1.95	0.06	0.25	1.24	3.36	4.16	0.04	0.38
140-141	非変質帯	73.9	0.17	13.4	2.01	0.07	0.29	1.29	3.61	4.76	0.04	0.50

※1 meter along bore hole
※2 鶴田ほか(2012)による地質区分
※3 Loss on Ignition

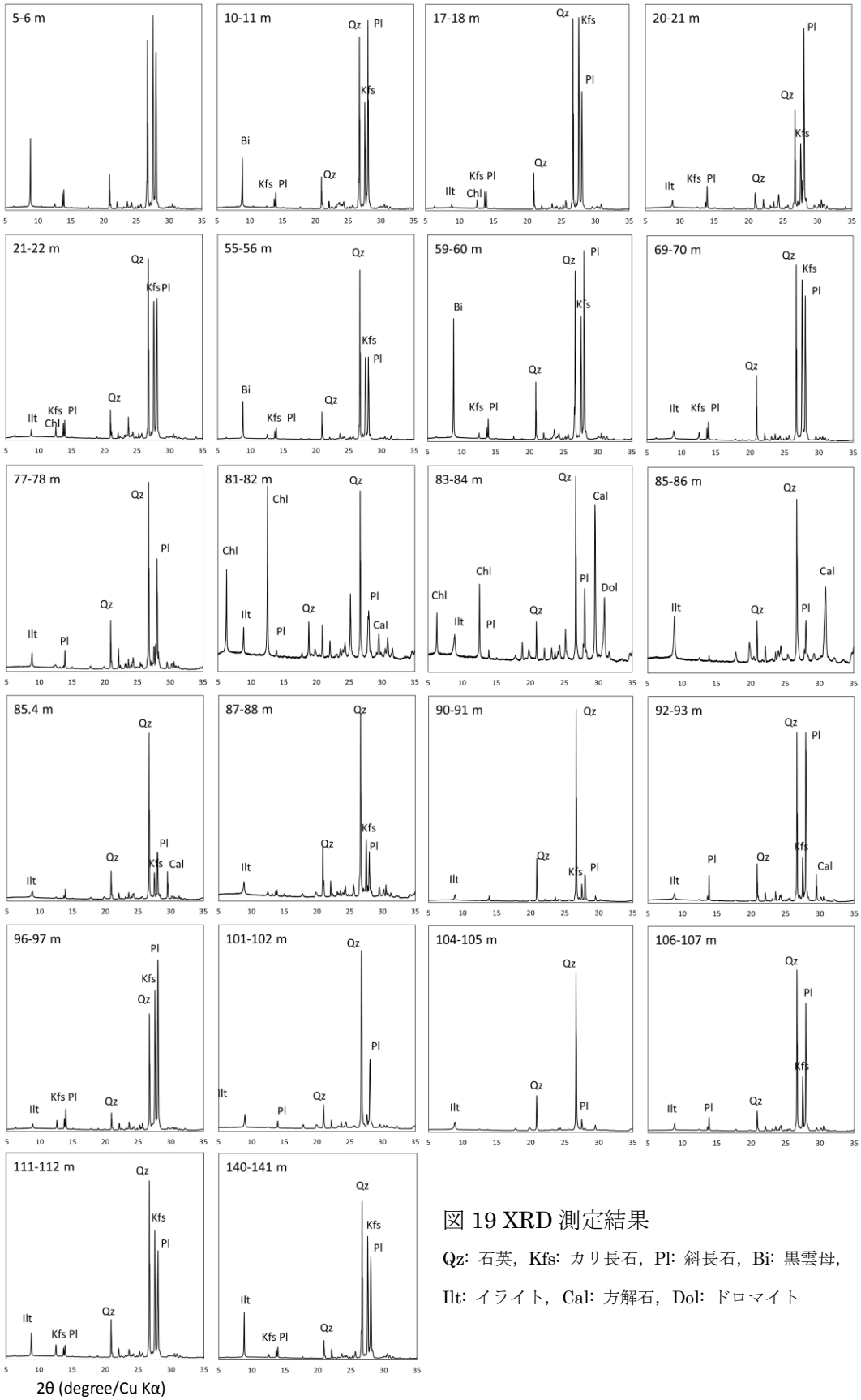


図 19 XRD 測定結果

Qz: 石英，Kfs: カリ長石，Pl: 斜長石，Bi: 黒雲母，

Ilt: イライト，Cal: 方解石，Dol: ドロマイト

(3)Eu と Cs の収着試験

140-141 m 試料に対する収着試験時間と収着率の関係を図 20 に示す。添加した Eu および Cs の初期濃度は 0.2 μmol/L であった。収着率は初期濃度から試料採取時までの濃度の減少割合を示す。Eu および Cs は概ね 24 時間以降，収着率が安定しており収着平衡に達したことが示唆されことから，本試験において収着試験の試験時間として 24 時間以上が妥当であると考えられる。Eu と Cs の収着率を比較すると Eu が平衡到達時約 80%の収着率であった一方，Cs は約 10%であった。

図 21 に Eu と Cs の 140-141 m，81-82 m，断層ガウジ各試料への収着試験結果をそれぞれ示す。Eu は 140-141 m 試料への収着量が最も大きく，81-82 m 試料への収着量が最も小さかった。Eu は花崗岩中の黒雲母に強く収着すると考えられ，黒雲母の変質が小さい 140-141 m 試料への収着量が大きくなったと考えられる。81-82 m 試料と断層ガウジ試料は黒雲母の含有量が少ないと考えられるが，イライトやその他の粘土鉱物へ収着したと考えられる。緑泥石とイライトへの収着挙動では緑泥石への収着が小さいと考えられるため，緑泥石の含有量が多い 81-82 m 試料では収着量が小さくなったと考えられる(原環センター, 2018)。Cs は黒雲母，イライト，緑泥石に対して Eu よりも比較的少ない収着量を示すと考えられるが, 81-82 m と断層ガウジ試料については Eu と同程度の収着量を示した。これは断層活動によって生成した 2:1 型の粘土鉱物に強く収着したためである可能性がある(Yamaguchi et al., 2018)。本年度の鉱物分析では各試料に含まれる粘土鉱物の同定が十分にできておらず，Cs を強く収着する粘土鉱物が含まれているか検討する必要があると考えられる。

本年度の収着試験結果から，Eu と Cs が花崗岩およびその変質岩石に対して異なる収着挙動を持つことが示唆された。また，収着挙動の違いは各試料に含まれる黒雲母，緑泥石，イライトやその他の粘土鉱物の含有量の違いによるものであると推察された。また，次年度以降の pH やイオン強度を変化させた収着実験に向けて，試験時間や岩石試料の処理方法などの諸条件を検討することできた。

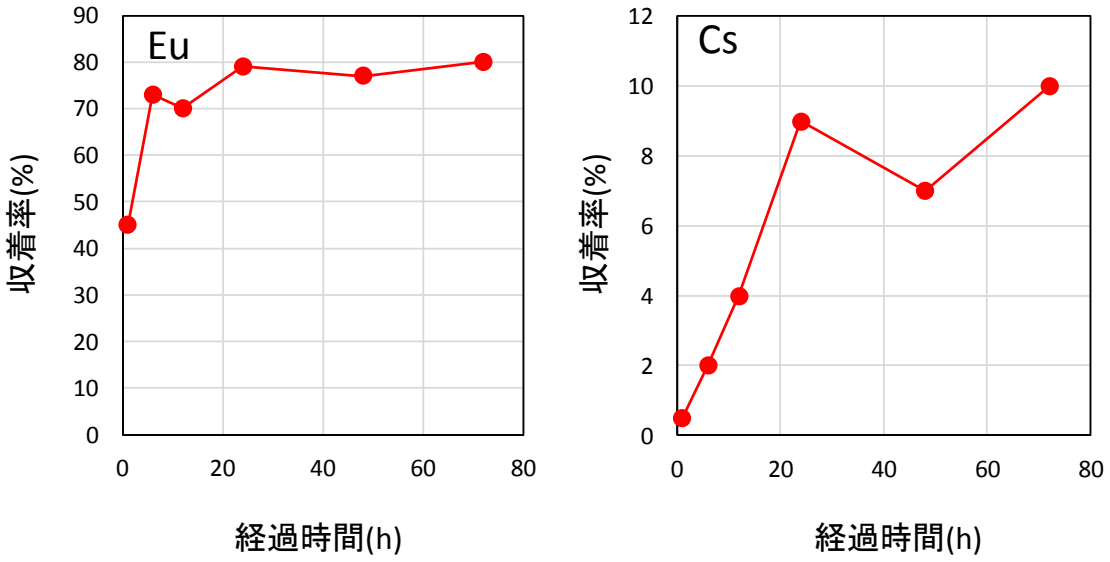


図 20　Eu および Cs の花崗岩に対する収着率の経時変化

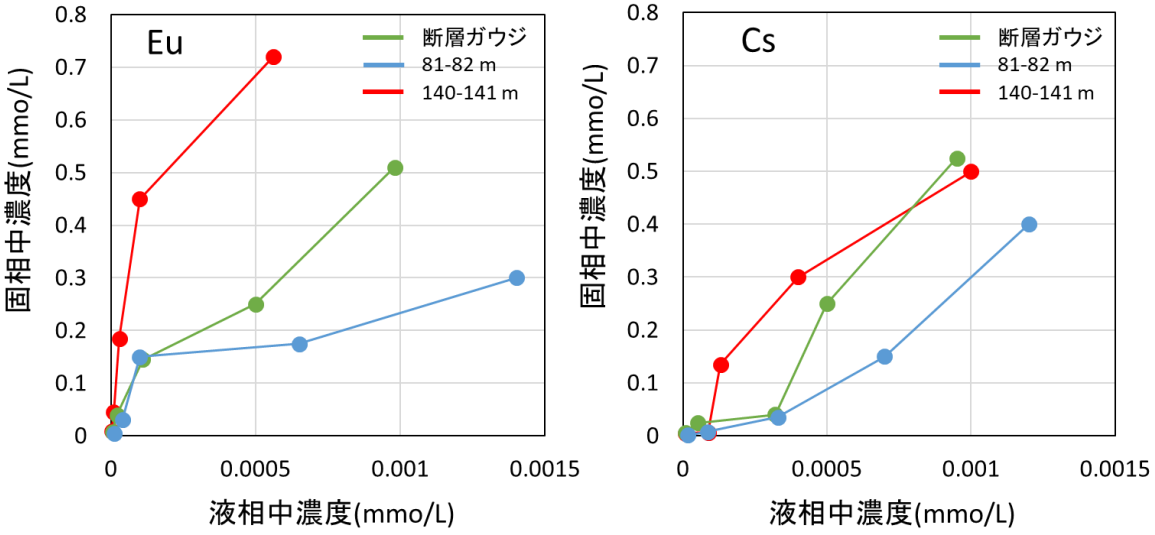


図 21　Eu および Cs の各試料に対する収着量

4. まとめと今後の計画

平成30年度は複数の仮想的なコンパートメント構造を用いた地下水流動解析と物質移行解析を実施し，断層ガウジやダメージゾーンの厚さが水頭分布や地下水流動速度に影響を及ぼすことが確認されたとともにガウジを伴う低透水性の断層に囲まれたコンパートメント構造により，物質移行が抑制されることが確認された。今回の解析では収着などの水−岩石反応は考慮しなかったが，断層ガウジとその近傍に分布するダメージゾーンにおける鉱物組成の空間分布やその不均質さ，これらによる水—岩石反応を考慮した物質移行特性を明らかにする必要がある。

断層ガウジを有するモデル(モデル 2〜モデル 4)では，断層と断層の交差部にも連続的にガウジが存在すると仮定した。また，今回はシンプルなモデルを考慮し，断層ガウジやダメージゾーンには均質に水理特性を設定した。断層ガウジの連続性や水理特性の不均質さは周辺の地下水流動特性や物質移行特性に大きな影響を及ぼすと考えられることから，断層ガウジの連続性や水理特性の不均質さと周辺の地下水流動状態や物質移行状態の関係について，仮想的なモデル構築と解析を行うことで検討を続ける予定である。

また，実際の断層周辺岩石試料を用いて鉱物組成分析と Eu と Cs の収着実験を実施し，収着実験の諸条件について検討行った。本年度の収着試験によって各岩石試料の鉱物組成や対象とする元素によって収着挙動が異なることが示唆された。また，鉱物組成分析では，収着挙動に大きく寄与すると考えられる粘土鉱物の同定が十分にできておらず，次年度以降詳細な各試料の鉱物組成の違いについて検討する必要がある。次年度以降は引き続き pH やイオン強度などをパラメータとして収着試験を実施し，断層周辺試料の元素収着特性を明らかにする。

引用文献

植木忠正，田辺裕明，丹羽正和，石丸恒存，島田耕史（2016）花崗岩中に発達する粘土脈の観察・分析データ. JAEA-Data/Code 2016-010.

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.

金折裕司，猪原芳樹，宮腰勝義，佐竹義典（1982）跡津川断層に伴う断層内物質（その 1）. 応用地質，23，137–155.

原子力環境整備促進・資金管理センター（2018）平成 26 年度 放射性廃棄物共通技術調査等事業 放射性廃棄物重要基礎技術研究調査（国庫債務負担行為に係るもの）報告書(平成 29 年度分).

清水麻由子，佐野直美，　柴田健二（2016）東濃地科学センターにおける蛍光 X 線分析装置を用いた岩石試料の主要元素および微量元素の定量分析. JAEA-Testing 2016-004.

鶴田忠彦，武田匡樹，上野孝志，大丸修二，徳安真吾，尾上博則，新宮信也，石橋正祐紀，竹内竜史，松岡稔幸，水野崇，田上雅彦（2012）超深地層研究所計画　主立坑断層を対象としたボーリング調査結果報告書. JAEA-Technology 2012-001.

吉田英一，大嶋章浩，吉村久美子，長友晃夫，西本昌司（2009）断層周辺に発達する割れ目形態とその特徴 -阿寺断層における‘ダメージゾーン’解析の試み-. 応用地質，50，16–28.

Bense, V.F., Gleeson, T., Loveless, S.E., Bour, O., Scibek, J. (2013) Fault zone hydrogeology. Earth Science Reviews. 127, 171-192.

Caine, J.S., Evans, J.P., Forster, C.B. (1996) Fault zone architecture and permeability structure. Geology. 24, 1025-1028.

Chihi, H., Marsily, G., Belayouni, H., Yahyaoui, H. (2015) Relationship between tectonic structures and hydrogeochemical compartmentalization in aquifers: Example of the "Jeffara de Medenine" system, south-east Tunisia. J.Hydrol.Reg.Stud. 4, 410-430.

Choi, J.H., Edwards, P., Ko, K., Kim, Y.S. (2016) Definition and classification of fault damage zones: A review and a new methodological approach. Earth Sci. Rev. 152, 70-87.

Fan, Q. and Takahashi, Y. (2017) Employment of the generalized adsorption model for the prediction of the solid-water distribution of radiocesium in the river-estuary-ocean system. Applied Geochemistry, 79, 75-84.

Goddard, J.V., Evans, J.P. (1995) Chemical changes and fluid-rock

interaction in faults of crystalline thrust sheets, northwestern Wyoming, U.S.A. J.Struct.Geol. 17, 533-547.

Hassen, I., Hamzaoui-Azaza, F., Bouhlila, R. (2018) Establishing complex compartments-aquifers connectivity via geochemical approaches towards hydrogeochemical conceptual model: Kasserine Aquifer System, Central Tunisia. J.Geochem.Explor. 188, 257-269.

Hassen, I., Gibson, H., Hamzaoui-Azaza, F., Negro, F., Rachid, K., Bouhlila, R. (2016) 3D geological modeling of the Kasserine Aquifer System, Central Tunisia: New insights into aquifer-geometry and interconnections for a better assessment of groundwater resources. J.Hydrol. 539, 223-236.

Hassen, I., Milnes, E., Gibson, H., Bouhlila, R. (2019) Impact of groundwater flow across tectonic aquifer compartments in a Miocene sandstone aquifer: three-dimensional hydrogeological modeling of the Kasserine aquifer system in central Tunisia and northeastern Algeria. Hydrogeol.J.

Ishibashi, M., Yoshida, H., Sasao, E., Yusuchi, T. (2016) Long term behavior of hydrogeological structures associated with faulting: An example from the deep crystalline rock in the Mizunami URL, Central Japan. Engineer. Geol. 208, 114-127.

McDonald, M.G., and A.W. Harbaugh (1988) A modular three-dimensional finite-difference ground-water flow model. U.S. Geological Survey Techniques of Water-Resources Investigations, book 6, chap. A1. Reston, Virginia: USGS.

Mitchell, T.M., Faulkner, D.R. (2012) Towards quantifying the matrix permeability of fault damage zones in low porosity rocks. Earth Plan. Sci. Lett. 339-340, 24-31.

Muggeridge, A., Abacioglu, Y., England, W., and Smalley, C. (2004) Dissipation of anomalous pressures in the subsurface. Journal of Geophysical Research. 199, B11104.

Onoe, H., Takeuchi, R., Saegusa, H., Daimaru, S., Karino, T. (2011) Interpretation of Hydrogeological Characteristics based on Data from Long-Term Cross-Hole Pumping Test. 19th International Conference on Nuclear Engineering, Proc. ICONE-19-43560.

Scibek, J., Gleeson, T., McKenzie, J.M. (2016) The biases and trends in fault zone hydrogeology conceptual models: global compilation and categorical data analysis. Geofluids. 16, 782-798.

Tian, F., Yang, J., Cheng, M., Lei, Y., Zhang, L., Wang, X., et al. (2016) Geometry, kinematics and dynamic characteristics of a compound transfer zone: The Dongying anticline, Bohai Bay Basin, eastern China. Open Geosci. 8, 612-629.

Wangen, M. (2001) Communication between overpressured compartments. Geofluids. 1, 273-287.

Yamaguchi, A., Tanaka, M., Kurihara, Y., Takahashi, Y. (2018) Local structure of strontium adsorbed on 2:1 clay minerals and its comparison with cesium by XAFS in terms of migration of their radioisotopes in the environment. J. Radioanal. Nucl. Chem. 317, 545-551.

Zheng, C., and P.P. Wang (1999) MT3DMS: A modular 3-D multispecies model for simulation of advection, dispersion and chemical reactions of contaminants in ground- water systems. Documentation and user's guide. Contract Report SERDP-99-1. Vicksburg, Mississippi: Army Engineer Research and Development Center.

（様式２）

二次利用未承諾リスト

平成30年度放射性廃棄物共通技術調査等事業（放射性廃棄物に係る重要な基礎的技術に関する研究調査の支援等に関する業務）報告書

平成30年度放射性廃棄物共通技術調査等事業（放射性廃棄物に係る重要な基礎的技術に関する研究調査の支援等に関する業務）

公益財団法人原子力環境整備促進・資金管理センター

頁	図表番号	タイトル
（別添）研究報告1-9	表3	メタカオリン及び高炉スラグの化学組成
（別添）研究報告1-9	表4	試験体の配合
（別添）研究報告1-12	図7	練混ぜ直後のフロー値
（別添）研究報告1-13	図8	フロー値の経時変化
（別添）研究報告1-13	図9	材齢3日における試験体密度
（別添）研究報告1-14	図10	材齢3日における含水量
（別添）研究報告1-15	図12	材齢3日における圧縮強度試験結果
（別添）研究報告1-16	図13	材齢3日における割裂引張強度試験結果
（別添）研究報告1-17	図14	材齢3日における超音波伝播速度測定結果
（別添）研究報告1-17	図15	材齢7日におけるジオポリマー硬化体の反射電子像観察結果
（別添）研究報告1-18	図16	試験体からの溶出量測定結果
（別添）研究報告1-19	図17	プロトンNMR測定結果（上図：Solid echo法、下図：CPMG法）
（別添）研究報告1-20	図18	固体核磁気共鳴測定結果（上図：27Al MAS、下図：29Si MAS）
（別添）研究報告1-21	図19	XRD測定結果
（別添）研究報告1-23	図20	EPMA測定結果
（別添）研究報告1-25	図21	低温DSC測定による硬化体内部の水分の状態
（別添）研究報告1-25	図22	ジオポリマーのセシウム吸着等温線
（別添）研究報告1-26	図23	LA-LIBSによるジオポリマー中の元素濃度分布結果
（別添）研究報告2-8	図３	溶液および1.0 M Na2CO3 溶液で飽和したNa型モンモリロナイト中のNa、SO4 および
（別添）研究報告2-9	図４	初期濃度(a), (b), (c)におけるNa、Ca およびSO4(またはCO3)当量濃度分布
（別添）研究報告2-10	表２	15 mAにおけるNa, Ca, SO4 および CO3の水理学的分散係数Dh,i (m2/s)および見か
（別添）研究報告2-11	図５	CaSO4析出解析結果（初期濃度(a), (b), (c) 、電流値15 mAで24時間通電）
（別添）研究報告2-11	図６	CaCO3析出解析結果（初期濃度(a), (b), (c) 、電流値15 mAで24時間通電）
（別添）研究報告2-12	図７	CaSO4析出実験結果（電流値15 mA、24時間通電）
（別添）研究報告2-12	図８	CaCO3析出実験結果（電流値15 mA、24時間通電）
（別添）研究報告2-13	図９	XRDによる分析結果
（別添）研究報告2-14	図１０	EPMAによるCaSO4凝集体の観察結果
（別添）研究報告2-15	図１１	EPMAによるCaCO3凝集体の観察結果
（別添）研究報告3-15	表２	06MI03号孔の割れ目情報とサンプリング地点
（別添）研究報告3-19	表4	06MI03号孔サンプルNo. A1～A13試料採取情報
（別添）研究報告3-19	表5	06MI03号孔サンプルNo. 1～12試料採取情報
（別添）研究報告3-22	表6	サンプルNo.1からNo.12までの岩石記載
（別添）研究報告3-25	図12	コアからリムの広範囲に発達する斜長石のソーシュライト化
（別添）研究報告3-25	図13	サンプル中で観察される緑泥石化（偏光顕微鏡写真）
（別添）研究報告3-31	表7	サンプル中の黒雲母・ホルンブレンドの緑泥石化に伴う代表的な鉱物化学組成
（別添）研究報告3-32	図15	サンプル中で観察されるホルンブレンドの緑泥石化を示す偏光顕微鏡写真、組成像
（別添）研究報告3-32	図16	サンプル中で観察されるホルンブレンドの緑泥石化を示す組成像
（別添）研究報告3-33	表8	ホルンブレンドの緑泥石化の反応式構築に用いる鉱物化学組成
（別添）研究報告3-34	図17	ホルンブレンドの緑泥石化の生成鉱物比を算出するための画像解析

（様式２）

（続き）

頁	図表番号	タイトル
（別添）研究報告3-34	図18	充填緑泥石の偏光顕微鏡写真
（別添）研究報告3-35	表9	3種の緑泥石（黒雲母起源緑泥石、ホルンブレンド起源緑泥石、充填緑泥石）
（別添）研究報告3-36	図19	黒雲母起源緑泥石、ホルンブレンド起源緑泥石、充填緑泥石の生成温度
（別添）研究報告3-37	図20	Adobe Photoshop / Scion imageを用いた画像解析による変質（黒雲母緑泥石化）
（別添）研究報告3-38	図21	画像解析による変質パラメータの導出例（4ケース）
（別添）研究報告4-12	図8	飽和度の時系列変化
（別添）研究報告4-13	図9	ひずみゲージの計測値
（別添）研究報告4-13	図10	温度，気圧，相対湿度の変化（Case1）
（別添）研究報告4-14	図11	ひずみテンソルの時系列変化
（別添）研究報告4-14	図12	三主ひずみの時系列変化
（別添）研究報告4-16	図14	三主ひずみの方向
（別添）研究報告4-17	図16	ボーリング孔の外での計測結果
（別添）研究報告4-18	図17	ボーリング孔内での計測結果
（別添）研究報告5-22	図3.1.1.1.	ステンレス製封圧容器と内部構造
（別添）研究報告5-24	図3.1.1.2.	ポンプで真空引きしたチューブ内に13Cメタンを封入する手法
（別添）研究報告5-24	図3.1.1.3.	チューブを用いて封圧容器に試薬を添加する手法
（別添）研究報告5-25	図3.1.1.4.	封圧容器内の圧力を下げずに分取する系（A）とアミド硫酸を入れた真空バイアル
（別添）研究報告5-23	表3.1.1.1.	封圧容器の耐圧・気密試験
（別添）研究報告5-23	表3.1.1.2.	気体成分の散逸・生成確認試験
（別添）研究報告5-26	表3.2.1.	表層環境と瑞浪と幌延の地下水から得られたメタン酸化古細菌のゲノム比較
（別添）研究報告5-27	表3.2.2.	表層環境と瑞浪と幌延の地下水から得られたメタン酸化古細菌のゲノム中の窒素関
（別添）研究報告6-7	表 3-2	原鉱石の基本的性質
（別添）研究報告6-8	図 3-2	原鉱石の粉末試料の鉱物組成分析結果
（別添）研究報告6-15	表 3-4	原鉱石の膨潤圧試験供試体の諸元
（別添）研究報告6-16	図 3-7	膨潤圧の試験結果
（別添）研究報告6-17	表 3-5	原鉱石の膨潤変形試験供試体の諸元
（別添）研究報告6-18	図 3-8	膨潤変形の試験結果
（別添）研究報告6-19	表 3-6	原鉱石の自己シール性試験供試体の諸元
（別添）研究報告6-20	図 3-9	自己シール試験の試験結果
（別添）研究報告6-21	図 3-10	不攪乱供試体の密度と膨潤圧の関係（a）本研究の結果，（b）本研究とクニゲル
（別添）研究報告6-21	図 3-11	不攪乱供試体の密度と膨潤変形の関係
（別添）研究報告6-22	表 3-7	月布産原鉱石の再構成供試体の諸元
（別添）研究報告6-23	図 3-12	月布産原鉱石の不攪乱供試体と再構成供試体の比較
（別添）研究報告6-24	図 3-13	地質年代と膨潤特性の関係（a）膨潤圧，(b)膨潤変形
（別添）研究報告6-25	表 3-8	原鉱石試験結果のまとめ
（別添）研究報告7-7	図4	今回の解析で考慮したコンパートメント構造の概念モデル
（別添）研究報告7-7	図5	コンパートメント構造の概念モデル(図4)を踏まえて作成した地下水流動解析およ
（別添）研究報告7-7	表1	各モデルにおける断層ガウジおよびダメージゾーンの厚さ
（別添）研究報告7-8	図6	解析に用いた水理地質モデル
（別添）研究報告7-8	表2	地下水流動解析における設定パラメータ
（別添）研究報告7-9	表3	物質移行解析における設定パラメータ
（別添）研究報告7-9	図7	トレーサー初期濃度を与えたグリッド
（別添）研究報告7-12	図8	10MI22号孔コア観察・BTV観察総合柱状図および試料採取位置(鶴田ほか，2012に加
（別添）研究報告7-14	図9	地下水流動解析で算出された水頭と地下水流動の速度ベクトル
（別添）研究報告7-15	図10	モデル1で算出された水頭と地下水流動の速度ベクトル

（様式２）

（続き）

頁	図表番号	タイトル
（別添）研究報告7-16	図11	モデル2で算出された水頭と地下水流動の速度ベクトル
（別添）研究報告7-17	図12	れた水頭と地下水流動の速度ベクトル
（別添）研究報告7-18	図13	モデル4で算出された水頭と地下水流動の速度ベクトル
（別添）研究報告7-19	図14	モデル1での物質移行解析結果
（別添）研究報告7-20	図15	モデル2での物質移行解析結果
（別添）研究報告7-20	図16	モデル3での物質移行解析結果
（別添）研究報告7-21	図17	モデル4での物質移行解析結果
（別添）研究報告7-18	図18	10万年後のトレーサー濃度分布推定結果
（別添）研究報告7-24	表4	10MI22号孔コア試料の化学組成
（別添）研究報告7-25	図19	XRD測定結果
（別添）研究報告7-27	図20	EuおよびCsの花崗岩に対する収着率の経時変化
（別添）研究報告7-27	図21	EuおよびCsの各試料に対する収着量