### 平成 30 年度

## 高レベル放射性廃棄物等の 地層処分に関する技術開発事業

## ニアフィールドシステム評価確証 技術開発

# 報告書

平成 31 年 3 月

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 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、経済産業省資源エネルギー庁からの委託事業として、国立 研究開発法人日本原子力研究開発機構と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年度高レベル放射性廃棄物等の 地層処分に関する技術開発事業「ニアフィールドシステム評価確証技術 開発」の事業報告書である。 目 次

쎀	1	幸	继二
퐈	Т	早	和 二

1.1 本事業の背景と目的
1.2 実施計画
1.2.1 ニアフィールド環境変遷に係る個別評価技術の開発
1.2.2 ニアフィールド環境変遷を考慮した核種移行評価技術の開発1-5
1.2.3         ニアフィールド性能の総合評価技術開発         1-7
1.2.4 ニアフィールドシステム評価確証技術開発の2か年計画1-8
参考文献

2.1 目首	的と2ヵ年の計画	2-1
2.1.1	目的	2-1
2.1.2	2ヵ年の計画	2-1
2.2 オー	ーバーパックの腐食挙動評価	······2-1
2.2.1	背景と目的	······2-1
2.2.2	実施内容	2-2
2.2.3	成果と今後の課題	2-15
2.3 緩征	衝材の変質挙動	2-16
2.3.1	炭素鋼・緩衝材境界領域における緩衝材の変質	·····2-16
2.3.2	セメンテーションによる緩衝材特性の変化	·····2-23
2.3.3	地下水・河川水と接触したベントナイトのナチュラルアナログ研究	2-27
2.3.4	緩衝材挙動に関するナノスケールシミュレーションモデルの構築	2-35
2.4 = 2	アフィールド THMC 連成挙動評価	2-38
2.4.1	過渡期の THMC 連成挙動に関する現象解析モデル開発	2-38
2.4.2	ニアフィールド長期力学解析コード開発	2-51
2.5 母岩	岩中アルカリプルーム反応輸送挙動評価	2-59
2.5.1	背景と目的	2-59
2.5.2	実施内容	2-59
2.5.3	成果と今後の課題	2-72
2.6 流出	出現象等を考慮した緩衝材の健全性評価・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-72
2.6.1	背景と目的	·····2-72
2.6.2	実施内容	·····2-91
2.6.3	成果と今後の課題	2-137
参考文献	武	2-139

第3	章 ニアフィールド環境変遷を考慮した核種移行評価技術の開発	
3.1	目的と2ヵ年の計画	-1

3.1.1	目的
3.1.2	2 ヵ年の計画
3.2 =	アフィールド岩盤中の核種移行評価技術の開発
3.2.1	背景と目的及び研究アプローチ
3.2.2	結晶質岩中の核種移行評価技術の開発
3.2.3	堆積岩中の核種移行評価技術の開発
3.2.4	成果と今後の課題
3.3 シン	ステム変遷等を考慮した核種移行解析モデル/データベースの開発
3.3.1	背景と目的及び研究アプローチ
3.3.2	オーバーパックからの鉄が緩衝材の核種移行へ及ぼす影響評価技術の開発3-41
3.3.3	セメント系材料の共存が緩衝材や岩石中の核種移行に及ぼす影響評価技術の開発…3-48
3.3.4	地下水中の高炭酸条件が岩石中の核種移行に及ぼす影響評価技術の開発3-56
3.3.5	成果と今後の課題
3.4 有相	幾物・微生物の影響評価技術の開発
3.4.1	有機物影響評価技術の開発
3.4.2	微生物影響評価技術の開発
参考文献	₹ ······3·91

第4章	ニアフィールド性能の総合評価技術開発
4.1 目白	りと2ヵ年の計画
4.1.1	目的
4.1.2	2ヵ年の計画
4.2 現象	象解析モデルの統合化技術の構築4-2
4.2.1	背景と目的
4.2.2	ニアフィールドの複合現象を評価するシステムの開発アプローチの提案4-2
4.2.3	ニアフィールドの複合現象を評価するシステムのプロトタイプの構築4-24
4.2.4	成果と今後の課題4-30
4.3 ニフ	アフィールド核種移行評価技術の開発4-31
4.3.1	背景と目的4-31
4.3.2	複合現象の評価結果を核種移行モデルの解析に反映する手法の概念4-31
4.3.3	複合現象解析との連携における核種移行解析モデルの要件とインプット
	パラメータの抽出
4.3.4	成果と今後の課題4-37
参考文献	<u>4</u> -38

第5章 結言

5.1	平成 30 年度における主な成果	5-1
5.2	おわりに・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	5-6

### 図目次

第1章 緒言

🗵 1.2-1	ニアフィールドシステム評価確証技術開発の枠組み1-3
🗵 1.2-2	ニアフィールド性能の総合評価技術開発に向けたアプローチ概念図1-3
🗵 1.2-3	ニアフィールドシステム評価確証技術開発のサブプロジェクト相関図1-9
第2章 ニア	アフィールド環境変遷に係る個別評価技術の開発
🗵 2.2-1	オーバーパック腐食試験の状況と試験の模式図
図 2.2-2	各緩衝材ブロック中の各種センサー類の設置状況
図 2.2-3	緩衝材の金属へらを用いた回収時の様子と回収された緩衝材の例2-4
図 2.2-4	含水比、乾燥密度測定と微生物分析用試料の採取位置
図 2.2-5	乾燥密度、含水比、飽和度の分布
図 2.2-6	緩衝材の試料採取状況
図 2.2-7	寒天培養法に基づく緩衝材中の微生物の好気性生菌数
図 2.2-8	緩衝材から取り出し後のセンサーの電極面の外観
図 2.2-9	腐食センサーの炭素鋼電極表面に付着していた腐食生成物のX線回折結果2-9
図 2.2-10	緩衝材回収後の模擬オーバーパックの外観
図 2.2-11	試験カラムの模式図
図 2.2-12	腐食試験後の試験片の外観
図 2.2-13	腐食試験後の試験片表面のX線回折結果
図 2.2-14	平均腐食深さの経時変化
図 2.3-1	分析に使用したベントナイトブロック試料と模擬オーバーパックに
	付着したベントナイト試料の採取時の写真
🗵 2.3-2	ベントナイトブロック試料の EPMA 分析結果(約 2×2 mm <sup>2</sup> )
🗵 2.3-3	ベントナイトブロック試料の EPMA 分析結果(約 200×200 µm <sup>2</sup> )2-19
図 2.3-4	模擬オーバーパックから剥離させたベントナイト試料の EPMA 分析結果
	(約 130×130 µm <sup>2</sup> ) ······2-20
図 2.3-5	炭素鋼製ヒーターとの界面のベントナイト試料の µ-XRD 測定結果2-20
図 2.3-6	膨潤圧試験と透水試験装置の概略図
図 2.3-7	膨潤圧-有効モンモリロナイト密度関係
図 2.3-8	透水係数-有効モンモリロナイト密度関係
🗵 2.3-9	アルキルアンモニウム処理を施した
	変質試験前後のモンモリロナイトの XRD 分析結果
図 2.3-10	安定性評価に用いたスメクタイト構造とその同型置換の位置2-31
図 2.3-11	同型置換構造の MD 計算による構造緩和後のエンタルピー
図 2.3-12	解析体系
図 2.3-13	モンモリロナイトの各イオン型の深度方向分布
	(方解石の溶解反応を含む)
図 2.3-14	モンモリロナイトの各イオン型の深度方向分布
	(方解石の溶解反応を含まない)
図 2.3-15	粘土含水系モデルを等方的に圧縮したときの挙動のシミュレーション例2-37

図 2.4-1	FEBEX プロジェクトにおける原位置試験の解析モデル概要図	··2 <b>-</b> 40
図 2.4-2	温度勾配による水分移動試験に基づく温度勾配水分拡散係数の同定	··2 <b>-</b> 42
図 2.4-3	FEBEX プロジェクトにおける原位置試験の解析結果	··2 <b>-</b> 45
図 2.4-4	FEBEX プロジェクトにおける原位置試験の計測値と解析結果の比較	··2-46
$\boxtimes 2.4-5$	緩衝材の透水係数と塩分濃度・カルシウム型化率との関係	··2 <b>-</b> 49
図 2.4-6	緩衝材の浸潤予察解析結果	··2-50
図 2.4-7	イオン交換サイト濃度に関する解析結果	··2-50
図 2.4-8	降伏曲面の概念図・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	··2 <b>-5</b> 3
図 2.4-9	不飽和領域での MACBECE の計算フロー	··2 <b>-5</b> 4
図 2.4-10	膨潤変形試験の概念図	··2-55
図 2.4-11	膨潤変形試験の再現解析モデル	··2-56
図 2.4-12	飽和度分布の時間変遷・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	··2-56
図 2.4-13	CASE1 と CASE4 の体積ひずみ分布	··2-57
図 2.4-14	吸水時の変位量の時間変化	··2-58
図 2.4-15	試験終了時の荷重と乾燥密度の関係	··2-58
図 2.5-1	地下水採水場所	··2-60
図 2.5-2	地下水中 pH 及び Ca <sup>2+</sup> の変遷	··2-60
図 2.5-3		··2-61
図 2.5-4	通水後の水質分析結果	··2-62
$ extstyle{2.5-5}$	偏光顕微鏡観察結果	··2-62
図 2.5-6	SEM 観察結果	··2-63
extstyle 2.5-7	EDS 面分析結果	··2-64
$ extstyle{2.5-8}$	グラウチングに伴うグラウト材と岩盤との相互作用メカニズムの	
	変遷に係る概念モデル・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	··2-65
$ extstyle{2.5-9}$	岩盤におけるアルカリプルームの輸送に対する現象相関の整理結果	··2-67
図 2.5-10	処分坑道周辺岩盤において二次鉱物による閉塞部を迂回する	
	地下水流れの概念	··2-68
図 2.5-11	マカーリンにおけるアルカリプルームと岩石の相互作用を対象とする	
	亀裂内部での二次鉱物沈殿に関するモデルの概念	··2-69
図 2.5-12	亀裂を二次元平行平板と仮定した準三次元モデルの概念	···2-69
図 2.5-13	準三次元モデルによる間隙率及び pH の評価結果	··2 <b>-</b> 71
図 2.5-14	準三次元モデルによるダルシー流速の評価結果	··2-71
図 2.6-1	緩衝材の流出試験に使用した小型セルの概要	··2 <b>-</b> 75
図 2.6-2	総流量と流出量の関係	··2-76
図 2.6-3	0.5M NaCl 水溶液を通水した時の流出量と総流量の関係と水みちの外観	··2 <b>-</b> 76
図 2.6-4	工学規模のセルとの概要	··2-78
$ extsf{2.6-5}$	地下坑道での試験の概要	··2-78
図 2.6-6	工学規模のセルでの流出試験の結果	··2-79
図 2.6-7	一次元浸潤速度取得試験装置の概要	··2-80
図 2.6-8	浸潤の進展状況	··2-81
図 2.6-9	浸潤フロントの形成	··2 <b>-</b> 81
図 2.6-10	実験から得られた関数と比較した浸潤フロントと飽和フロント	··2-82
図 2.6-11	力学物性(膨潤量)による密度均質化試験の概要	··2-83

図 2.6-12	膨潤に伴う乾燥密度の経時変化	2-83
図 2.6-13	乾燥密度変化及び間隙比-平均有効応力関係	2-84
図 2.6-14	本サブタスクの検討対象とする期間	2-88
図 2.6-15	本サブタスクにおける各実施内容の関係性	2-90
図 2.6-16	原位置試験と室内試験の関係 概念図	2-92
図 2.6-17	地下 350 m 試験坑道 5 説明図及び写真	2-93
図 2.6-18	試験孔の深さ測定位置図、コンクリートピット及び試験孔写真	2-93
図 2.6-19	計測前の試験孔、孔内排水	2-94
図 2.6-20	ターゲット設置、計測	2-94
図 2.6-21	計測、計測データ確認	2-95
図 2.6-22	試験孔 1 壁面の三次元表示結果	2-96
図 2.6-23	試験孔 2 壁面の三次元表示結果	2-97
図 2.6-24	湧水量測定結果	2-98
$ extsf{X}$ 2.6-25	透水試験の装置全体 概念図	2-99
図 2.6-26	透水試験結果 注水流量と水位差の関係	-102
図 2.6-27	原位置試験の概念図	-104
図 2.6-28	緩衝材ブロックの外観	105
図 2.6-29	小規模試験セル	-107
図 2.6-30	上部拘束時の隙間有りとケイ砂3号充填の試験ケースにおける総通水量	
	と緩衝材流出量の関係	-108
図 2.6-31	上部拘束と上部開放、及びケイ砂の粒度による影響の比較2	-109
図 2.6-32	上部開放、3 号ケイ砂充填ケースの試験状況	-110
図 2.6-33	工学規模試験セルのイメージ	-111
図 2.6-34	工学規模験セル	-111
図 2.6-35	工学規模試験での流出試験の状況	-112
図 2.6-36	総送水量と緩衝材流出量の関係	-113
図 2.6-37	膨出率試験セル	-113
図 2.6-38	最大膨潤率と初期有効粘土密度の関係	-114
図 2.6-39	膨潤・隙間充填過程シミュレーション概念図	-116
図 2.6-40	初期状態に至るまでのプロセス	-117
図 2.6-41	解析モデルと境界条件	-117
図 2.6-42	透水係数の間隙比依存性	-118
図 2.6-43	供試体高さの経時変化	-119
図 2.6-44	軸圧・側圧の経時変化	120
図 2.6-45	乾燥密度分布の履歴	-121
図 2.6-46	一次元膨潤過程の要素シミュレーション結果	122
図 2.6-47	有効応力経路・間隙比—平均有効応力関係	123
図 2.6-48	対象とする一次元浸潤速度取得試験の試験装置	125
図 2.6-49	緩衝材模型と透水容器	-127
図 2.6-50	緩衝材圧密用ピストン及び4層目作成用カラー	-127
extstyle 2.6-51	二端子電気抵抗測定の概要	-128
図 2.6-52	試験終了後に脱型した供試体状況	-129
図 2.6-53	水分量センサーの検定結果	-130

extstyle 2.6-55	実物換算経過時間と飽和度の関係
extstyle 2.6-56	所定時間に到達した時点の飽和度と実物換算した底面からの距離の関係2-132
extstyle 2.6-57	浸潤フロントの進展状況
図 2.6-58	注水圧を補正した浸潤フロントの進展状況
図 2.6-59	飽和度 45~55%の経過時間と底面からの距離の関係
図 2.6-60	膨潤圧の経時変化
図 2.6-61	X線CT撮影による供試体の断面画像、CT値から換算した密度分布2-136
第3章 ニン	アフィールド環境変遷を考慮した核種移行評価技術の開発
図 3.1-1	ニアフィールドのシステム変遷と核種移行評価に係る課題例3-1
図 3.1-2	本課題における3つのサブタスクとそれらの関係3-3
図 3.2-1	岩石マトリクスと割れ目中の核種移行研究アプローチと2つの対象岩石3-6
図 3.2-2	グリムゼル花崗岩マトリクス部(a)の X 線 CT 分析による
	黒雲母の分布評価(b)を反映した不均質場モデル(c)
	及び拡散係数の評価結果(d)
図 3.2-3	グリムゼル花崗閃緑岩中の黒雲母の配向性と連結性を変化させた
	中性粒子の拡散解析結果:(a)黒雲母配置:平行,(b)黒雲母配置:直交…3-8
図 3.2-4	グリムゼル花崗閃緑岩の不均質場モデル中の粒子移行解析結果:
	(a) 全空間における Cs 分布、
	(b) Cs 濃度の深さ分布の解析結果及び実測データ3-8
図 3.2-5	黒雲母の配向性の決定方法(a)と4つの岩石の評価結果例(b)3-9
図 3.2-6	エスポ花図崗閃緑岩中の EPMA による鉱物分布評価(a)
	と緑泥石含有率評価(b)
図 3.2-7	LTD 原位置試験結果とスケーリング手法によるモデル計算結果の比。
	(a) 減衰曲線, (b) Cs 濃度プロファイル
図 3.2-8	オンカロ片麻岩中のIの減衰・破過曲線
	(a) 平行方向試料(b)直交方向試料
図 3.2-9	オンカロ原位置試験及びそのモデルの概要図
図 3.2-10	シミュレーションによる HTO 及び Cl の破過曲線(a), Na の破過曲線(b) ·3·14
図 3.2-11	割れ目を含むグリムゼル花崗閃緑岩を対象とした試験研究のアプローチ3-15
図 3.2-12	グリムゼル花崗閃緑岩の割れ目中における室内トレーサー試験の解析のための
	3 層モデル概念とパラメータ設定(a),及び解析結果(b)3-15
図 3.2-13	より複雑な割れ目を有するグリムゼル花崗閃緑岩コア試料(a, b)と
	室内トレーサー試験カラム(c)
図 3.2-14	より複雑な割れ目を有するグリムゼル花崗閃緑岩を対象とした解析モデル(a)
	と、ガウジ層を考慮しない場合(b)及び考慮した場合の解析結果(c)3-17
図 3.2-15	グリムゼル原位置試験場の GAM サイトの割れ目帯とコア採取状況3-18
図 3.2-16	グリムゼル原位置試験場の GAM サイトから採取した割れ目試料(a)
	とその試料のX線CT分析結果(b)、収着・拡散試験及び
	トレーサー試験試料の加工(c, d)
図 3.2-17	隆起・侵食シナリオの核種移行解析:(a)隆起・侵食シナリオと考慮すべき
	プロセス、(b) 深度による領域分け(紫色の矢印は処分場からの核種移行経

	路)と(c)各領域での核種移行特性、(d)核種移行解析結果の例·······3-21
図 3.2-18	精緻な収着モデルと環境条件変遷とを考慮した核種移行解析の
	モデル体系(a)と境界条件変動として想定した Cs 濃度の経時変化(b)3-22
図 3.2-19	精緻な収着モデルと環境条件変遷とを考慮した核種移行解析結果の例:
	(a) 可逆収着モデル及び(b) 不可逆収着モデル
図 3.2-20	幌延の泥岩に対する Cs, HTO, I の実効拡散係数(a)及び Cs の
	収着分配係数(b)の実測データとモデル化結果の比較3-23
図 3.2-21	幌延泥岩中の HTO 拡散試験結果(直交試料;V1、平行試料;H1)·······3-24
図 3.2-22	CPMG 法による T <sub>2</sub> 測定法のパルスシーケンス
図 3.2-23	T2分布及びT2分布から求めた水の重量、間隙率及び水の分布3-25
図 3.2-24	バーミキュライトの <sup>133</sup> Cs 固体 NMR スペクトル
図 3.2-25	計算した原子モデルの上下四面体層と Cs 位置の関係と <sup>133</sup> Cs ケミカルシフト
	と 5 <sup>A</sup> 以内に存在する四面体層 Al の個数 (N)
図 3.2-26	健岩部 D05 孔の原位置トレーサー試験の試験体系(a)、
	オーバーコア試料の分析状況(b)
	及び1次元と円筒系での解析結果の比較(c)
図 3.2-27	幌延の泥岩マトリクスにおける地下水塩濃度を変化させた条件での
	原位置拡散試験のデータと解析結果:(a)トレーサー循環孔の Cs 濃度減衰、
	(b) 試験後の岩石中の Cs 濃度分布
図 3.2-28	幌延泥岩の割れ目を対象とした原位置トレーサー試験装置の概略図3-30
図 3.2-29	割れ目中の原位置トレーサー試験で得られた揚水孔のトレーサー濃度変化:
	(a) パルスソース試験, (b) コンスタントソース試験
図 3.2-30	原位置トレーサー試験後のコア採取位置と最大検出濃度(Cs,Co)··································
図 3.2-31	注水孔近傍(SW-47 孔)の割れ目表面のトレーサー濃度分析結果3-32
図 3.2-32	揚水孔近傍(SW-33 孔)の割れ目表面のトレーサー濃度分析結果·······3-33
図 3.2-33	割れ目中の核種移行評価の平行平板モデル概念図及び支配方程式
図 3.2-34	割れ目中トレーサー試験のウラニン及び Cs の解析結果
図 3.2-35	割れ目中トレーサー試験の Cs(コンスタントソース)の解析結果:
	(a) 破過曲線、(b) プロファイル濃度
図 3.2-36	反応性元素及び Cl・安定同位体比の深度方向での濃度プロファイル
	(HDB-1 孔) ···································
図 3.2-37	反応性元素及び Cl・安定同位体比の深度方向での濃度プロファイル
	(HDB-3 孔) ···································
図 3.3-1	鉄腐食生成物固相を変化させた場合の溶存鉄濃度の pH 依存性
図 3.3-2	マグネタイト、水酸化鉄(II)、シデライトを溶解度制限固相として仮定した
	場合のモンモリロナイト中の表面錯体サイトの飽和度の pH 依存性··································
図 3.3-3	Fe (II) に富む環境下での Se (-II) の固定メカニズムの概念図··································
図 3.3-4	Fe(II)に富む環境下でのSe(-II)の固定メカニズム分析のための実験概要3-47
図 3.3-5	初期共沈生成物及びエイジングを行った固相の XRD 測定結果
図 3.3-6	デンドリマーコロイドの透過拡散試験で取得された透過側フラックス:
	(a) Na 型モンモリロナイト、(b) Ca 型モンモリロナイト··································
図 3.3-7	グリムゼル花崗閃緑岩と OPC の接触試料 (a,b)と 接触界面の EPMA
	分析結果 (c-e) ····································

図 3.3-8	幌延の泥岩と OPC の接触試料(a-d)と EPMA による反射電子像(e-f)3-54
🗵 3.3-9	幌延の泥岩と OPC の境界領域での Ca, Si, Al の元素分布:
	(a) Area 1 と (b) Area 2
🗵 3.3-10	幌延の泥岩と OPC の境界領域の反射電子像とスポット分析の位置と
	同定された鉱物 ····································
🗵 3.3-11	イライトに対する Am 及び Eu の収着の pH 依存性
🗵 3.3-12	Am 及び Eu のイライトに対する収着の pH 依存性のモデルによる再現結果…3-59
🗵 3.3-13	イライトに対する Th の収着の pH 依存性
🗵 3.3-14	Th のイライトに対する収着の pH 依存性のモデルによる再現結果3-61
図 3.3-15	CO <sub>3<sup>2</sup></sub> 共存下におけるモンモリロナイト層間・粒子間間隙混合系での
	拡散履歴(298.15 K): (a)UO2 <sup>2+</sup> の挙動(2.0~2.4 ns、赤色)、
	(b) UO <sub>2</sub> <sup>2+</sup> の挙動(3.6~4.0 ns、赤色)、
	(c) NpO2+の挙動(2.0~2.4 ns、青色)、
	(d) NpO <sub>2</sub> +の挙動(3.6~4.0 ns、青色)
図 3.3-16	CO <sub>3<sup>2</sup></sub> 共存下におけるモンモリロナイト層間・粒子間間隙混合系での
	拡散履歴(323 K): (a)UO <sub>2</sub> 2+の挙動(0~0.4 ns、赤色)、
	(b) UO2 <sup>2+</sup> の挙動(1.6~2.0 ns、赤色)、(c) NpO2 <sup>+</sup> の挙動(0~0.4 ns、青色)
	(d) NpO <sub>2</sub> +の挙動(1.6~2.0 ns、青色)
🗵 3.3-17	(a) 第一原理分子動力学計算に用いたモンモリロナイト-水系の初期構造
	(b)Mg-OH 基を対象に拘束条件n <sub>H</sub> = 0.5を設定した場合の O-H 間の二体分布関数
	(pcf)と積算配位数(rcn) ····································
🗵 3.3-18	Mg-O のプロトン配位数の変化に対する自由エネルギーの微分値(a)、
	及び自由エネルギーの変化(b)
🗵 3.4-1	HFA/EDTA(a, d)、Zr <sup>4+</sup> /EDTA(b, e)、Zr <sup>4+</sup> /HFA/EDTA(c, f)共存試料の
	UV-Vis (HFA) と ICP-MS (Zr) 検出から取得したフラクトグラム3-69
🗵 3.4-2	FFF-ICPMS 法を用いて得られた HFA への Zr4+の結合量データへの
	NICA-Donnan モデルのフィッティング結果
🗵 3.4-3	Th(IV)とフミン酸との錯生成における化学量論係数 n の評価結果. (a,b)
	Aldrich 社製フミン酸、(c,d) Elliot 土壌フミン酸
図 3.4-4	pH 4.0~5.8 における Th <sup>4+</sup> と Aldrich 社製フミン酸(PAHA)との錯生成
	データへの NICA-Donnan モデルの当てはめの結果
図 3.4-5	ニアフィールドからファーフィールドへの地下水流動に伴って想定される
	有機物と岩との相互作用の変化と加成則性成立における課題
図 3.4-6	微生物と元素との相互作用の概念図
図 3.4-7	幌延 URL におけるボーリング孔配置図
図 3.4-8	地下水中のコロイドへの希土類元素の分配係数の経時変化(a)y 線滅菌処理
	を施して微生物を死活させた地下水中のコロイド(無機/有機コロイド)への
	分配係数(b)バイオコロイドの分配係数
図 3.4-9	バルブ開放後の地下水流速の変化
図 3.4-10	地下水排水量に対する微生物数の変化
図 3.4-11	16S rRNA 遺伝子に基づくバルブ開放後の 0.2F の微生物群集組成の変化3-86
⊠ 3.4-12	バイオフィルムが主な構成要素である画分への見かけの元素分配係数3-88
図 3.4-13	0.2FのSEM 観察像

図 3.4-14 0.2F の SEM-EDS マッピング結果の例

	(図 3.4-13 c の黄色点線で囲まれた領域を対象とした分析)	
図 3.4-15	バイオフィルム形成から元素収着までのメカニズムの概念図	3-89

第4章 二	アフィールド環境変遷を考慮した核種移行評価技術の開発
🗵 4.2-1	ニアフィールド性能の総合評価技術開発に向けたアプローチ概念図(再掲) …4-3
🗵 4.2-2	単独の安全機能の必要性の整理結果4-5
🗵 4.2-3	単独の安全機能の十分性の整理結果4-6
图 4.2-4	二つの安全機能の組合せの必要性に関する重要性の整理結果4-7
図 4.2-5	二つの安全機能の組合せの十分性に関する重要性の整理結果4-8
图 4.2-6	インフルエンスダイアグラムによる現象相関の整理結果4-12
図 4.2-7	コンクリート支保の変質挙動に関する分岐ダイアグラム4-14
図 4.2-8	緩衝材とコンクリート支保の境界領域における
	変質挙動に関する分岐ダイアグラム4-15
図 4.2-9	緩衝材とオーバーパックの境界領域における
	変質挙動に関する分岐ダイアグラム4-15
図 4.2-10	緩衝材を横断する領域で止水性やコロイドろ過性などの安全機能が失われる
	状況に至る状態変遷のパターンのストーリーボードによる整理結果4-16
図 4.2-11	ニアフィールド複合現象評価システムで扱う化学-物質輸送解析の概念モデル
	の例(コンクリート支保領域)4-18
図 4.2-12	ニアフィールド複合現象評価システムで扱う化学-物質輸送解析の概念モデル
	の例(緩衝材とコンクリート支保の境界領域)4-18
図 4.2-13	ニアフィールド複合現象評価の構成の概念4-23
🗵 4.2-14	解析ツール間の連携の全体構造4-25
図 4.2-15	コンクリート領域及び緩衝材との境界領域を対象とする準二次元の
	化学-物質輸送解析モデル4-27
🗵 4.2-16	緩衝材とオーバーパック境界領域を対象とする準二次元の
	化学-物質輸送解析モデル4-28
🗵 4.2-17	FEMWATER による水理解析に用いる有限要素(左)とダルシー流速の
	解析結果の例(右)4-29
図 4.2-18	連成解析の結果の例(FEMWATER と QPAC の連成解析で求められた
	緩衝材中のモンモリロナイトの密度の変化)4-29
🗵 4.3-1	緩衝材を横断する領域で安全機能が失われる場合の核種移行の概念4-33

第1章 緒言

表 1.2-1	本事業の実施項目と募集要項記載項目との対応表1-4
表 1.2-2	ニアフィールドシステム評価確証技術開発の2か年の実施スケジュール1-9
第2章 ニス	アフィールド環境変遷に係る個別評価技術の開発
表 2.2-1	浸漬試験条件
表 2.2-2	腐食試験前後の試験片の重量減量から算出した平均腐食深さ
表 2.3-1	供試体リスト
表 2.3-2	試験結果
表 2.3-3	NH4型、K型クニピア®Fを対象としたバッチ式高温変質試験条件2-29
表 2.3-4	アルキルアンモニウム法により推定される各試料の層電荷と底面間隔2-30
表 2.3-5	同型置換構造の MD 計算による構造緩和後のエンタルピー計算結果2-32
表 2.3-6	モンモリロナイトのイオン交換選択係数
表 2.4-1	FEBEX プロジェクトにおける原位置試験の解析評価に用いた物性値2-43
表 2.4-2	緩衝材の浸潤挙動におよぼす塩分濃度の影響を把握するための解析ケース2-49
表 2.4-3	試験条件
表 2.4-4	荷重条件
表 2.4-5	解析パラメータ
表 2.4-6	MACBECE で取り扱える力学現象
表 2.5-1	SEM-EDS 観察仕様
表 2.5-2	準三次元モデルによる解析における透水係数の設定値
表 2.6-1	室内試験の結果のまとめ
表 2.6-2	流出対策検討のまとめ
表 2.6-3	想定される現実的な坑道周辺の地下水の流れ
表 2.6-4	現実的な坑道周辺の地下水の流れ
表 2.6-5	原位置試験の2ヶ年計画
表 2.6-6	レベル測量結果 各試験孔深さ
表 2.6-7	各試験孔の容積算出結果
表 2.6-8	透水試験 試験ケース
表 2.6-9	透水試験結果 流量と水位(水頭)の経時変化図
表 2.6-10	透水係数の算出結果
表 2.6-11	緩衝材ブロックの仕様
表 2.6-12	小規模試験セルの試験ケース
表 2.6-13	幌延地下水と幌延模擬地下水の組成
表 2.6-14	工学模試験セルの試験条件
表 2.6-15	膨出率試験セルの試験ケース
表 2.6-16	DACSAR を使った力学解析の研究計画
表 2.6-17	解析ケース一覧
表 2.6-18	構成モデルパラメータ
表 2.6-19	緩衝材ブロックの仕様
表 2.6-20	水分量センサーにおける含水比・飽和度と測定電圧

表 2.6-21 試験後の供試体の定体積サンプリングによる含水比、飽和度、密度 …………2-135

第3章 ニアフィールド環境変遷を考慮した核種移行評価技術の開発

表 4.2-3 表 4.2-3

表 4.2-3 表 4.2-4

表 4.3-1

表 4.3-1

表 4.3-2

表 3.2-1	ニアフィールド岩盤(結晶質岩及び堆積岩)中の核種移行評価に係る
	国際的な課題
表 3.2-2	シミュレーションに用いた核種移行パラメータ
表 3.2-3	結晶質岩中の核種移行解析の高度化において考慮すべきプロセスと
	それらに関連した取り組みと課題
表 3.3-1	表面錯体サイトに対する選択定数
表 3.3-2	初期、Se(–II)添加直後及びエイジング(7 日間)後の溶液中の pH、
	温度及び Eh. 数値は n = 2 の平均
表 3.3-3	デンドリマーコロイドの透過拡散試験で得られた実効拡散係数3-51
表 3.3-4	モンモリロナイト及びイライトに対する収着への炭酸影響評価報告例3-57
表 3.3-5	イライトに対する Am 及び Th 収着試験の条件
表 3.3-6	導出したイライトに対する Am の収着パラメータ
表 3.3-7	導出したイライトに対する Th の収着パラメータ
表 3.4-1	HFA への Zr <sup>4+</sup> 結合反応の条件付き平衡定数と HHA の値との比較·································
表 3.4-2	Zr4+の HFA への結合について最適化された NICA-Donnan モデルパラメータ
	と HHA について最適化されたパラメータとの比較
表 3.4-3	Th <sup>4+</sup> とアルドリッチ社製フミン酸との結合における NICA-Donnan モデル
	パラメータと他の金属イオンとの結合におけるパラメータとの比較········
表 3.4-4	採取試料の日時、排水時間、排水量及び微生物細胞数3-85
第4章 ニン	アフィールド性能の総合評価技術開発
表 4.2-1	感度解析で対象とした安全機能4-4
表 4.2-2	個別の現象モデルを統合化して複合現象を評価する観点で

重要と考えられる評価課題の候補の整理例………………………………………4-9 ニアフィールド複合現象評価システムの個別現象解析モデルの要件(1/3)……4-19

ニアフィールド複合現象評価システムの個別現象解析モデルの要件(2/3) …4-20 ニアフィールド複合現象評価システムの個別現象解析モデルの要件(3/3) …4-21

解析ツール間で受け渡されるパラメータの種類……………………4-24

緩衝材を対象とした核種移行モデルに求められる要件(1/2) ………………4-35 緩衝材を対象とした核種移行モデルに求められる要件(2/2) …………4-36

複合現象評価で参照するパラメータの候補………………………………4-36

緩衝材を対象とする核種移行解析のインプットパラメータと

#### 1.1本事業の背景と目的

本事業は、平成30年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業(ニアフィー ルドシステム評価確証技術開発)として、経済産業省資源エネルギー庁(以下、資源エネルギー 庁)から国立研究開発法人日本原子力研究開発機構(以下、原子力機構)と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)の2機関が共同で受託したものである。 本事業の背景と目的を以下に記す。

我が国においては、現在、原子力発電所などで保管されている約18,000トンの使用済燃料を今 後再処理すると、すでに再処理された分も合わせ、ガラス固化体の総数は約25,000本となる(経 済産業省,2018a)。廃棄物を発生させた現世代の責任として将来世代に負担を先送りしないよう に、放射性廃棄物の地層処分対策を着実に進める必要がある。地層処分の事業は、事業期間が長 期にわたることに加え、その実施にあたっては、地質環境調査・評価技術、工学・設計技術、処分 場閉鎖後の長期安全性を確認するための安全評価技術などの多岐にわたる技術分野における個々 の技術の整備と、整備した技術を全体として統合化することが求められる。その着実な技術開発 のために、国、原子力発電環境整備機構(以下、NUMO)及び関係研究機関が実施する研究が緊 密に連携を図り地層処分の研究開発を計画的に進めるために「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)」(以下、全体計画)が策定されている(経済産業省,2018b)。

本事業では、全体計画に示された課題解決に向けて、地層処分事業における概要調査から精密 調査段階に有用となる調査・評価技術を開発することを目的に、人工バリアとその設置などによ り影響を受けると考えられる人工バリア近傍の岩盤とを合わせた領域(ニアフィールド)を対象 として、廃棄体定置後の過渡的な時期から閉鎖後長期に至る期間の地層処分システムの構成要素 間及び諸現象間の相互作用を考慮した現象の評価、地質環境の条件に応じた核種移行現象の理解 とデータの取得、ニアフィールド環境の長期変遷を評価した結果を反映した核種移行評価手法の 検討、等を実施する。

#### 1.2 実施計画

これまでの高レベル放射性廃棄物の地層処分における安全性の評価は、シナリオを構築して熱、 水理、力学、化学、核種移行など個別の現象に重点を置き、かつ保守的な条件に基づくものであ った(例えば、核燃料サイクル開発機構,1999;原子力発電環境整備機構,2018)。このような 安全性の評価は、分かりやすく不確実性や曖昧さを回避することで評価の頑健性を目指している。 今後は、処分事業の進展につれて経時的に充実するサイト条件等の情報を利用しつつ、サイト間 の適切性の比較や、デザイン間の優劣の比較等を行いつつ、処分施設設計や安全評価が進められ る。その実現には、下記の要件が満たされる、より現実的な評価技術が必要となる。

- サイト間の適切性やデザイン間の適切性を比較できる程度の分解能を持つ評価が必要。
- サイトの諸特性(地下水組成、水理特性、岩盤の力学特性等)が不均質に分布する地質 環境の特徴に応じた評価が必要。
- 保守的な仮定の確認や、過度な保守性を排除した評価が必要。
- バリア構成要素間の相互作用を含むニアフィールド環境の長期変遷を適切に考慮した評価が必要。

そのため本事業では、「より現実的な評価技術を開発する」という課題を設定し、実際のサイトにおける透水係数などの諸特性が不均質に分布する地質環境の特徴を考慮し、かつバリア構成

要素間の相互作用を含むニアフィールド環境の長期変遷を評価可能な技術開発を行うことした。 その課題を解決するため、以下の3つのサププロジェクト(図1.2-1)を実施する。

- ① ニアフィールド環境の変遷を評価するための個別現象モデル開発やパラメータ整備等の 技術開発(サブプロジェクト1:SP1)
- ② ①の環境変遷を考慮した核種移行を評価するための個別現象モデル開発・パラメータ整備(サブプロジェクト 2:SP2)
- ③ ①と②の成果に基づく、ニアフィールド性能を総合的に評価する技術開発(サブプロジェクト 3:SP3)。

ニアフィールド性能を総合的に評価する技術開発で実施する個々の現象解析モデルの統合化は、 図1.2-2に示すように、ニアフィールド環境の長期変遷のうちシステム性能として核種移行解析結 果に重大な影響を及ぼす現象やその相互作用から優先的に取り組むことした。そのような現象解 析モデルの統合化技術とその成果を反映した核種移行評価技術により得られる知見を個別現象モ デル開発等にフィードバックさせることで、地層処分システムの安全性に影響を及ぼす現象の重 要度分類や、より現実的なモデル化の必要性の検討に資すると考えられる。

本事業により得られる成果は、これまでの簡略かつ保守的な設定に基づく安全評価手法(例え ば、核燃料サイクル開発機構,1999;原子力発電環境整備機構,2018)に対し、概要調査から精 密調査段階で必要となる実際のサイトにおける地質環境調査等のデータを適切に反映させた評価 モデルの構築と、様々な処分概念や設計オプションの比較、それらの条件での性能評価による安 全性の成立性やサイト間の優劣等を検討するための技術基盤としての活用が期待される。

なお、本事業の実施にあたっては、地層処分を支える幅広い科学技術分野の知識を有すること を前提として、既往の研究開発等の成果を適切に取り込むとともに、成果の体系的な統合が必要 となる。このため、先行事業である処分システム評価確証技術開発(日本原子力研究開発機構, 2018)等の成果を適切に継承するとともに、現在までに関連する研究開発等に従事してきた組織 が共同で事業にあたることにより、各組織に蓄積されている知識、経験等を相互補完的に利用し、 かつ融合することによって事業全体としての総合的な高いレベルの成果の創出を目指すこととし、 原子力機構と原環センター2組織が共同で実施する。図1.2-1にそれぞれの組織が主に担当する箇 所を示す。

本事業の公募時には、(1) 地層処分システムの状態設定のための現象解析モデル化の高度化、 (2) 地層処分システムの状態変遷等を反映した核種移行解析モデルの構築、(3) 核種移行等に 関 する データの 取 得 及 び データベース 整 備 、の 3 つの 枠 組 み が 示 さ れ て い た (<u>http://www.enecho.meti.go.jp/appli/public offer/1804/1804/180413b/</u>参照)。本事業の実施に際し ては、(1)~(3)の枠組みを、上記①~③の3つのサブプロジェクト(SP1、SP2、SP3) に分類分け して実施することとした(表1.2-1参照)。

3つのサブプロジェクトについて、平成30年度から平成31年度の2か年の実施計画の概要を以下 に記す。





図1.2-2 ニアフィールド性能の総合評価技術開発に向けたアプローチ概念図





#### 1.2.1 ニアフィールド環境変遷に係る個別評価技術の開発

ニアフィールドはオーバーパック、緩衝材、セメント系材料など複数の材料と岩盤から構成さ れており、それらの劣化・変質や材料間の相互作用などにより環境条件は時間とともに変化し、 バリア構成要素の安全機能や核種移行挙動への影響を与える可能がある。そのため、ニアフィー ルドの長期挙動評価や環境変遷を評価する技術の開発とその技術の妥当性確認が求められている。

加えて、日本の地下環境には一般的に湧水があることが知られており、廃棄体の定置後に処分 孔内に孔壁からの湧水があることにより、緩衝材と孔壁の境界に水みちができ、緩衝材が流出す る可能性が指摘されている。緩衝材の流出は緩衝材を損失することにほかならず、人工バリアの 機能の低下につながる事象であるため重要な課題である。

複数の異なる構成材料からなるニアフィールドの状態変遷の評価は、これまで、オーバーパッ クやセメント系材料による緩衝材の変質に関する試験データが取得され、これらを表現できる解 析モデルが構築されている。今後は、過渡期におけるオーバーパックの腐食や緩衝材の変質等に ついてTHMC(T:熱、H:水理、M:応力、C:化学)の観点からデータを取得し、現象解析モデルの 妥当性確認を行うことが求められている。そして、これらを通じて重要な反応系が明らかになっ た場合には、取得したデータを活用して現象解析モデルへ取り込むことが求められている。また、 地下施設でのグラウト施工事例を対象に試験・分析等を実施し、母岩中のアルカリプルームの反 応輸送解析モデルを構築することが求められている。一方、過渡期に想定される緩衝材流出現象 については、緩衝材流出現象に係るデータの取得と現象解析モデルの開発を行うともに、開発し た現象解析モデルを用いて緩衝材流出対策の妥当性評価を実施することが求められている。

上記の課題解決に向けて、以下のサブタスクを実施する。

#### 1) オーバーパックの腐食挙動評価

THMCに係る過渡状態や長期的な環境条件の変遷に伴うオーバーパックの腐食挙動の変化の把握を目的に、THMC条件を制御しつつ全面腐食速度、局部腐食・応力腐食割れの生起進展、腐食生成物皮膜性状等に関する室内試験を実施するとともに、原位置試験試料等の分析によりTHMC条件と対応させた腐食データを取得する。

#### 2) 緩衝材の変質挙動評価

炭素鋼-緩衝材境界領域におけるバリア間相互作用のメカニズムや緩衝材のセメンテーション が緩衝材基本特性に与える影響等の理解を目的に、バリア間相互作用による鉱物の溶解・沈殿等 の現象とそれによる緩衝材変質等に関するデータや、緩衝材の膨潤、透水性等のHM連成挙動とそ れらに及ぼす緩衝材変質(C)の影響等に関するデータを室内試験、原位置試験及びナチュラルア ナログ研究等により取得する。

#### 3) ニアフィールドTHMC連成挙動評価

緩衝材に隣接するバリア材と緩衝材との力学的相互作用の把握と緩衝材のTHMC連成挙動に関 する現象解析モデルの改良と妥当性確認を目的に、緩衝材のTHMC条件がオーバーパックの腐食 挙動に与える影響を把握し、腐食進展等に関する現象解析モデルの妥当性の検証を行う。また、 腐食寿命への影響が大きい重要な因子や現象について現象解析モデルへ反映するとともに、緩衝 材に隣接するバリア材と緩衝材との相互作用のメカニズムや緩衝材変質による緩衝材基本特性へ の影響等の理解を進める。さらに、緩衝材のTHMC連成挙動に関する現象解析モデルの改良と妥 当性確認を行い、さらなる課題の抽出と対処方策の提案を行う。

#### 4) 母岩中アルカリプルーム反応輸送挙動評価

地下施設でのグラウト施工事例を対象とする試験・分析等に基づくセメントー岩石相互作用の 挙動評価と母岩中のアルカリプルームの反応輸送解析手法の構築を目的として、セメント系材料 が岩盤へ与える影響やそのプロセスの理解に関する試験・分析等を実施し、母岩中のアルカリプ ルームの反応輸送解析モデルを提示する。そして、先行事業成果を含む国内外の最新の知見を踏 まえて、セメントー岩石の相互作用に関するモデルの開発の課題を抽出し、原位置試験との連携 を含めた研究アプローチを提示する。

#### 5) 流出現象等を考慮した緩衝材の健全性評価

再冠水後の緩衝材の状態として密度分布が、緩衝材中の核種移行評価で期待される性能を満た すことを示す手法の構築を目的に、地下坑道における原位置試験による緩衝材流出に係る現象把 握と工学的対策の効果を検証するとともに、室内試験による現象確認ならびにデータを取得する。 また、これらの試験により得られた知見を踏まえ、緩衝材の定置から再冠水後の状態を把握する ため、緩衝材の流出を考慮した緩衝材の再冠水プロセスのモデル化を行い、安全評価の初期状態 を示すための解析的手法を整備する。さらに、解析的手法の検証ツールの整備を進めるとともに、 緩衝材流出抑制に係わる工学的な対策方法を提示する。

#### 1.2.2 ニアフィールド環境変遷を考慮した核種移行評価技術の開発

地層処分事業の概要調査から精密調査段階において、実際のサイト条件を対象に処分概念や安 全性の評価やサイト間の優劣の比較を行うためには、実際のサイトの地質環境の特徴や処分シス テムの長期的な変遷等を適切に反映することが可能な核種移行評価技術が求められる。そのため、 実際の地質環境の特徴やニアフィールドシステムの長期環境変遷を考慮した核種移行評価を行う ための個別現象モデルやデータベースを、室内試験、地下研究施設での原位置試験等を通じて開 発する。具体的には以下のサブタスクを実施する。

#### 1) ニアフィールド岩盤中の核種移行評価技術の開発

ニアフィールド岩盤中の透水構造を反映したより現実的な場を反映した核種移行解析モデルの

開発は、これまで、結晶質岩(花崗岩)および堆積岩(泥岩)のマトリクス中の核種移行特性を反映した核種移行解析モデルの構築が進められてきた。今後は、母岩中の割れ目内における充填鉱物への収着や、マトリクス部における間隙構造や鉱物分布等の不均質性を反映することが可能な 核種移行解析モデルを開発するとともに、構築した核種移行解析モデルの妥当性を確認すること が求められている。

核種移行モデルの開発については、結晶質岩及び堆積岩を対象として、これまでの関連プロジェクト等において今後取り組むべき課題として抽出された、割れ目等の不均質性や地質環境の長期変遷を反映した核種移行解析モデルを開発する。具体的には、国内外の地下研究施設の岩石試料を対象に、これまで主に対象としてきたマトリクス部の核種移行モデルの構築に加え、割れ目部及びそのマトリクス部との相互作用に重点をおき、最新の分析技術(例えば、ナノX線CT)を適用して不均質に分布する鉱物分布や間隙構造を定量的に評価する。さらに、室内トレーサー試験により割れ目部及びマトリクス部の核種移行データを取得する。さらに、これらのデータをもとに、マトリクス部の核種移行特性に加えて割れ目等の不均質に分布する水みちを取り扱い可能な核種移行解析モデルを開発する。

上記により構築した核種移行解析モデルは、これまでに取得された原位置トレーサー試験デー タ等をへの適用性を評価することによりその妥当性確認を行う。また、長期時間スケールでの核 種移行モデルの妥当性確認に向けて、地質環境の長期変遷や不均質性等を考慮したナチュラルト レーサーの解析評価事例の拡充と課題の抽出を行う。さらに、これらの成果に基づいた岩盤中の 割れ目等の不均質性や地質環境の長期変遷を考慮した核種移行解析の試行により、核種移行評価 への適用に向けた課題と今後の研究アプローチを提示する。

#### 2) システム変遷等を考慮した核種移行解析モデル/データベースの整備

セメント系材料と緩衝材との反応など、様々な現象が複合的に進行するニアフィールドを対象 として、これまでは、緩衝材等が変質した場合の基礎データが一部の条件や核種を対象に取得さ れてきた。今後は、地下水化学の変遷に関する情報等に基づき、ニアフィールドの状態変遷を設 定したうえで、その設定に応じた条件において変質した緩衝材や岩石中の核種の移行挙動に係る データを取得するとともに、核種移行解析モデルを構築し、さらに、その妥当性を確認すること が求められている。また、時間変化を考慮した地質環境モデルやニアフィールドを対象とした連 成解析の結果を、核種移行解析モデルへ反映する手法を構築することが求められている。

地下水化学の変遷に関する情報等に基づくニアフィールドの状態変遷の設定については、鉄製 オーバーパックと緩衝材との反応、セメント系材料と緩衝材及び岩石との反応を対象として、地 下水化学の変遷に関する情報等に基づき、ニアフィールド環境変遷に係る個別評価技術の開発 (1.2.1項参照)や関連事業「TRU廃棄物処理・処分に関する技術開発」で開発する現象解析モデ ル等を活用して、ニアフィールドの状態変遷を設定する。

その設定に応じた条件において変質した緩衝材や岩石中の核種の移行挙動に係るデータを取得 する。このうち、鉄影響については、その状態変遷に応じた条件で、室内試験により、鉄と核種 との競合収着現象や鉄鉱物と核種との共沈現象に関するデータを取得する。さらに、セメント影 響については、セメント共存系における地下水水質変化や変質等を想定した条件下での緩衝材や 岩石中の核種移行データを取得する。

核種移行解析モデルの構築とその妥当性確認については、上記の取得データやメカニズム理解 に基づき、鉄製オーバーパックと緩衝材との反応、セメント系材料と緩衝材及び岩石との反応に 伴う状態変遷を考慮した核種移行解析モデルを構築し、このモデルを既存データ等に適用して、 その妥当性を確認する。 核種移行パラメータ設定に必要となるデータについては、これまでに、文献調査に加え、室内 試験を通じて熱力学データベース(TDB)、収着データベース(SDB)、拡散データベース(DDB) の拡充が図られてきた。今後は、さらに多様な地質・地下水条件に対応していくため、比較的炭 酸濃度が高い地下水が存在する場等に重点を置き、岩石への核種の収着・拡散データを取得する ことが求められている。

このため、実際の深部環境で考慮すべき高炭酸濃度等の地下水条件範囲、及びその条件で炭酸 錯体等の影響が顕在化する核種を検討し、重要な地下水条件と核種との組合せを抽出する。その うえで、炭酸条件等を制御した岩石中の核種移行データの取得手法を構築し、先端的な分析技術 を適用して重要な核種の収着・拡散データを取得する。さらに、そのデータの信頼性確認と多様 な条件下での核種移行パラメータ設定に反映するため、分子動力学計算等の計算科学技術を適用 して炭酸共存下における核種の収着・拡散等のメカニズムを評価するとともに、それらを反映し た核種移行モデルの構築を行う。

#### 3) 有機物・微生物の影響評価技術の開発

有機物については、これまで、天然有機物と核種の錯体形成モデルの構築が実施されてきた。 今後は、天然有機物-核種-岩石の三元系における核種収着データを取得し、有機物影響評価モ デルの構築に反映することが求められている。

天然有機物-核種-岩石の三元系における核種収着データの取得については、天然有機物-核 種-岩石の三元系の評価の基礎となるデータのうち、核種-岩石の二元系のデータは既存のデー タを活用できるため、有機物-核種の二元系の錯生成データを取得する。具体的には、天然有機 物と錯体を形成しやすいIII価・IV価核種のうち、データ拡充の必要があるIV価核種を主たる対象 として、錯生成データを室内試験等により取得するとともに、錯生成反応機構等を把握し、モデ ル高度化とパラメータ整備を行う。さらに、核種と天然有機物との錯生成反応における不可逆性 の評価、核種-有機物-岩石三元系モデルの開発に向けた文献調査と課題抽出を行い、そのうち 重要度の高い課題に焦点をあててデータ取得を行う。

微生物については、一部の種類を対象に核種の取り込み等に関するデータが取得されてきた。 今後は、天然に存在する主要な微生物についてデータを取得し、微生物影響評価モデルの構築に 反映することが求められている。

天然に存在する主要な微生物のデータ取得については、核種移行に及ぼす微生物影響評価モデ ルを構築し、パラメータを整備するため、これまで未評価の微生物を対象に、核種移行への影響 の観点から文献調査を行い、研究課題の抽出とその重要度分類を行う。そのうえで、重要な微生 物を対象に、微生物による核種の収着や微生物の代謝による核種の取り込み等の重要な現象に関 するデータを取得し、これらの核種移行への影響メカニズムを把握する。さらに、これらの成果 と、これまでの感度解析等において重要と評価されたモデル・パラメータとの関係性を明らかに し、微生物影響を考慮した核種移行解析に反映する。

#### 1.2.3 ニアフィールド性能の総合評価技術開発

地層処分システムの性能評価では、ニアフィールドの長期挙動に影響を及ぼす可能性のある複数の現象とこれらの相関関係の理解に基づき、ニアフィールド環境変遷が評価されるとともに、 こうしたニアフィールド環境変遷評価から得られる知見や情報を、核種移行の場の設定に反映さ せることにより核種移行挙動が評価される。ニアフィールドでは、熱的、水理学的、力学的、化 学的なプロセスが相互に影響を及ぼし合うことにより環境条件が変遷するため、これらの多様な プロセスに関する個別のモデルによる評価だけでは不十分となる可能性がある。そのため、これ ら個別モデルを統合し、ニアフィールド環境の変遷及びそれを考慮した核種移行挙動を解析する ことの可能な解析ツールを開発することを目的に、以下のふたつのサブタスクを実施する。

#### 1) 現象解析モデルの統合化技術の構築

現象解析モデルの統合化技術の構築は、これまで、ニアフィールドの空間的・時間的な地層処 分システムの変遷を理解するための技術開発として、様々な現象解析モデルを統一したプラット フォームで連成し、解析することが可能となるシステム構築がなされてきた。今後は、処分場の 安全評価にとって重要な現象を対象に、様々な現象解析モデルを当該プラットフォームに取り込 み、それらの連成解析を可能とするシステムの拡張を行うことが求められている。また、本シス テムを用いた試行的な連成解析により、安全上の重要な課題を抽出することが求められている。

そのため、連成解析を可能とするシステムの拡張については、はじめに、ニアフィールドにお ける多様な現象群の連成効果、バリア材料間の界面等の局所的な領域で生ずる相互作用などの現 象とこれがニアフィールドシステムの挙動へ与える影響、間隙構造など微視的スケールでの不均 質性等のマルチフィジックスかつマルチスケールの諸現象を対象に、ニアフィールドシステムの 変遷を評価するために必要なスケール間や現象間の相互の関係を明らかにする。そして、各研究 分野において開発されている個別現象解析モデル/連成解析手法の最新知見の調査を行い、これら の知見に基づき、様々な現象解析モデルをプラットフォーム(解析モデル間の連成のルールに基 づき解析をコントロールする機能等を有する)上に統合・連成させるための研究開発アプローチ を提案する。さらに、その研究アプローチに沿って、先行事業「セメント材料影響評価技術高度 化開発(日本原子力研究開発機構,2015)」、「処分システム評価確証技術開発(日本原子力研 究開発機構,2018)」等で開発した解析システムを最大限活用して、ニアフィールド全体の振る 舞いが評価できる解析システムのプロトタイプを構築する。

さらに、試行的な連成解析による安全上の重要な課題の抽出については、上記のプロトタイプ を活用して試行的な解析を行い、その結果に基づき、核種移行パラメータや核種移行解析の前提 条件への影響の分析・整理を通じた課題の抽出と対処方策の提案を行う。

#### 2) ニアフィールドシステム核種移行評価技術の開発

前述の「1)現象解析モデルの統合化技術の構築」で開発する統合解析技術により求められる、 時間変化を考慮した地質環境モデルやニアフィールドを対象とした連成解析の結果を核種移行解 析モデルへ反映する手法を構築する。そのため、ニアフィールド条件の変化を設定するために必 要な、時間変化を考慮した地質環境モデルに関する最新知見や、ニアフィールドを対象として開 発されている現象解析モデルの最新知見を踏まえつつ、連成解析の結果を反映させて核種移行を 評価するための解析手順やデータ受け渡し等のフレームワークを構築する。そして、前述の連成 プラットフォームを利用した核種移行解析モデルを構築し、試行的な核種移行解析を実施する。 さらに、その試行結果に基づいた課題の抽出と、課題解決に向けた研究開発のアプローチを提案 する

#### 1.2.4 ニアフィールドシステム評価確証技術開発の2か年計画

平成30年度から平成31年度の2か年のスケジュールを表1.2-2に示す。1.2.1項から1.2.3項に記し たサブプロジェクト、サブタスクは個別に実施されるが、図1.2-3に示すように個々の成果は他の プロジェクトやタスクに受け渡され、ニアフィールド性能を総合的に評価する技術開発に向けて 統合化を進める。

	平成30年度											平成31年度				
ニアフィールドシステム	第1四半期		第2四半期		朝 第	第3四半期		第4四半期		期						
<b>詊恤谁</b> 訨汝 <b>俯</b> 開羌		5	5 6	7	8	9 10	11	12	1	2	3	第1四半期	第2四半期	第3四半期	第4四半期	
全体工程			▼契約	5					₩ 4	告書	提出▼	▼ 契約			報告書提出▼	
	-		51 S	百姓点	,				戦行	告書作	ド成	計画策定			<u>報告書作成</u> 取Uまため	
変遷に係る個別評			4	의 유 사	•				<b>→</b> <sup>4</sup> X	りまと	•	↔			400 ± 200	
価技術の開発 (SP1)					室内のサ	腐食試験	、原位 ( 分材	2置試	験試料			室内試験データ拡充、 腐食モデルの 原位置試験試料分析 菜当性確認				
1)オーバーパックの腐				•	~ / /		1 77 1	4				4		<b>&gt;</b> ⁴ メカ	 ニズムの理解、	
良宇動評価 2)緩衝材の変質挙動 評価				•	暖衝材ਭ 科の 分材	変質に関す f、ナチュ <sup>:</sup>	tる原 ラルア	位置刃 ナログ	む 室内 事例調	り試験 周査	€int →	原位置及び室 ナチュラルアナ	原位置及び室内試験試料等の分析、 モデルの妥当性確 ナチュラルアナログ事例調査 認に関する事例抽出			
部 御 が で つ イールドTHMC 連成業動評価				- -	暖衝材の 解析モテ	)力学挙動 ルの改良	助に関	する室	四試験	<b>倹</b> 、		室内試験デー	タ拡充、モデル改	良、原位置試験等	- 毎の再現解析	
4) 母岩中アルカリプ ルーム反応輸送挙			グラウ 岩盤中	ト材-: の反	岩盤接角 応性物1	91部の 試料 質の 移行	料を用! 等(こ関	いた討 する村	試験・分∺ 検討事 (	析、 例の言	周査	グラウト材-岩盤接触部の試料を用いた試験、分析 後討、アルカリブルーム反応輸送モデルの検討				
IJ評価 5) 流出現象等を考慮 した緩衝材の健全			≣t √⊂	画策? <u>コーチ</u>	É、研究 の検討	開発ア			▲□	のまる	<u>-</u> め	】 計画策定 ◆ <b>──</b> →			◆取りまとめ	
性評価						試馬	検環境	の整備	i・環境	計測		試験工程調整 地下での工学的対策の効果確認試験				
					対	策効果の	◀ 確認試	【験・再	冠水挙	► ■動試	≣¢	室内での対策効果の確認試験・再冠水挙動試験				
- 至内試験					揮	▲ 一 戸冠水時の	)浸潤:	挙動、	密度変	化の角	► 军杆	再冠水挙動に関する力学解析手法の検討				
- 遠心模型試験						適用範囲	目の精	査・妥	当性確	認浸潤	► JI試験	適用範囲・妥当性の精査・確認試験				
(2) ニアフィールド環境			•			•			•		-	•				
変遷を考慮した核種移行評価技術の			調査・P	開発言	†画の設	定			T	のまと	_ઝ` →				・取りまとめ ・	
開発(SP2) 1)ニアフィールド岩盤			結晶質 /割れ	[岩() 目部(	バリムゼ、 り不均衡	レ等) 及び 〔性を対象	チ堆積 きとした	岩(幌 室内)	延)の ¬ 試験と∃	マトリク モデル	7ス部 /開発	マトリクス部原位	/割れ目部の不均 位置試験結果への	質性を考慮したモ 適用による妥当↑	≟デル 高度化と 生確認	
中の核種移行評価 技術の開発 2)システム変遷等を考			, , ,	バー. 変遷	パック <del>-</del> 緑 を考慮し	暖衡材、t た条件で	2メント 'の 核和	-緩衝 腫移行	ī材・岩 データ	石の: 取得	状態	状態変え	を考慮した条件で 核種移行解れ	この核種移行デー ffモデルの構築	・ タの 拡充と	
慮した核種移行解 析モデル/データ			高	<u></u> 歲酸	農度地下の取得	▼水条件で 、核種移	この 岩 行メカ	石中の ニズム	) 核種利 の理解	多行テ 军	-9	高炭酸濃度地 移行メカ	下水条件での岩石 コニズムの理解に基	i中の核種移行デ 5づく核種移行モラ	ータの拡充、核種 デルの構築	
ベースの整備 3) 有機物・微生物の影 響評価技術の開発			有	"機物, 微生	と核種の 勿による	) 錯生成 <del>,</del> 核種収着		取得と リ込み	モデル 等のデ	の 高) ータ野	度化、 阪得	核種-有機物- 微生物景	・岩三元系における じ響のデータ拡充と	ら核種収着データ ≤核種移行への景	取得とモデル検討、 ジ響評価検討	
<ul> <li>(3) ニアフィールド性能</li> <li>の総合評価技術開 発(SP3)</li> </ul>			=+ <b>▲</b>	<b>村・</b> 予	備検討	•										
1)現象解析モデルの 統合化技術の構築					解析	研究開発 システム ▶	ア <i>ブロ</i> プロト3	ーチの タイプの	提案 )構築	取りま	まとめ	● 解析システムフ 課題の抽出・対	プロトタイプの構築、 す処方策の提案	安全上の重要	・ 取りまとめ	
2) ー アフィールトンステ ム核種移行評価技 術の開発			計画椅	(討・己	や備検討	【 最新知見 ワークの	しの 調査 構築	査・フレ		取りま	まとめ	◆ フレームワーク 試解析、課題打	?構築、核種移行モ 油出、研究アプロー	デル構築、 -チの提案	◆ 取りまとめ	

表1.2-2 ニアフィールドシステム評価確証技術開発の2か年の実施スケジュール

#### 禄: SP1,青: SP2,黄: SP3



図1.2-3 ニアフィールドシステム評価確証技術開発のサブプロジェクト相関図

#### 参考文献

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

(https://www.numo.or.jp/press/201818112114.html)

- 核燃料サイクル開発機構,わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性-地層 処分研究開発第2次取りまとめ-分冊3 地層処分システムの安全評価,JNC TN1400 99-023, 379p., 1999.
- 経済産業省, エネルギー基本計画, 105p., 2018a.

(https://www.meti.go.jp/press/2018/07/20180703001/20180703001-1.pdf) .

- 経済産業省,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),44p.,2018b. (https://www.meti.go.jp/report/whitepaper/data/pdf/20180329001\_01.pdf).
- 日本原子力研究開発機構, 平成26年度 地層処分技術調査等事業 セメント材料影響評価技術高度 化開発 -4ヵ年研究成果の取りまとめ報告書, 2015.
- 日本原子力研究開発機構, 平成29年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 処分システム評価確証技術開発 5 か年成果報告書, 259p., 2018.

#### 2. ニアフィールド環境変遷に係る個別評価技術の開発

#### 2.1 目的と2ヵ年の計画

#### 2.1.1 目的

ニアフィールドはオーバーパック、緩衝材、セメント系材料などの人工バリアと、人工バリアの 設置により影響を受けると考えられる人工バリア近傍の岩盤など複数の材料から構成されており、 それらの劣化・変質や材料間の相互作用などにより環境条件は時間とともに変化し、バリア構成 要素の安全機能や核種移行挙動への影響を与える可能がある。そのため、人工バリアの長期挙動 評価や環境変遷を評価する技術の開発とその評価の妥当性確認が重要となる。加えて、日本の地 下環境には一般的に湧水があることが知られており、廃棄体の定置後に処分孔内に孔壁からの湧 水があることにより、緩衝材と孔壁の境界に水みちができ、緩衝材が流出する可能性が指摘され ている。緩衝材の流出は緩衝材の損失をもたらし、人工バリアに期待されている安全機能の低下 につながる事象であるため重要な課題である。

複数の異なる構成材料からなるニアフィールドの状態変遷を評価する技術の開発と確証を目的 に、以下に示す現象を対象に評価技術開発を実施する。

- ・ オーバーパックの腐食挙動
- 緩衝材の変質挙動
- ・ ニアフィールドTHMC連成挙動
- ・ 母岩中アルカリプルーム反応輸送挙動
- ・ 緩衝材の流出現象及びその後の再冠水プロセスにおける挙動

#### 2.1.2 2ヵ年の計画

上記の項目のうち、オーバーパックの腐食と緩衝材の変質については、緩衝材が再冠水・飽和に 至る過渡期と飽和後の長期的な期間を対象に、THMC(T:熱、H:水理、M:応力、C:化学)の変遷 やそれによる影響などの観点からデータを取得し、既往の現象解析モデルの妥当性確認や、得ら れたデータを活用した現象解析モデルの改良、高度化を行う。THMCの変遷については、これま で開発されてきた連成解析モデルを用いて過渡状態などでの挙動を解析し、原位置試験データな どを活用してモデルの適用性や妥当性を検討するとともに、先行事業「処分システム評価確証技 術開発」(日本原子力研究開発機構, 2018a)などで抽出された課題である力学的挙動の解析手法 の高度化などに取り組む。母岩中アルカリプルーム反応輸送挙動については、地下施設の試料や 原位置試験データなどを活用して、セメント・岩石相互作用の理解を進めるとともに、その知見を 活用して先行事業「セメント材料影響評価技術高度化開発」(日本原子力研究開発機構, 2015c) などで構築された亀裂性岩盤におけるセメントと岩石との反応・物質輸送モデルなどをベースに ニアフィールド母岩を対象としたアルカリプルーム反応輸送挙動評価手法の高度化を図る。

緩衝材流出現象については、緩衝材流出現象に係るデータの取得と工学的対策効果の検証を行 うとともに、再冠水挙動の現象解析モデルを開発し、緩衝材流出を考慮した再冠水後の緩衝材の 健全性評価を実施する。

#### 2.2 オーバーパックの腐食挙動

#### 2.2.1 背景と目的

オーバーパック周囲の環境条件は時間とともに変化し、それに伴ってオーバーパックの腐食挙 動も変化すると考えられる。特に、処分場閉鎖後初期の過渡状態では温度、緩衝材飽和度、緩衝 材間隙水水質、酸化還元性などによって腐食挙動が大きく変化する可能性がある。また、過渡状 態以降においても温度など緩やかな変化に伴って長期的な腐食挙動も変化すると考えられる。こ のような環境条件の変遷に応じた腐食挙動の変化について、先行事業「処分システム評価確証技 術開発」(日本原子力研究開発機構, 2018a)では過渡状態における腐食モニタリングのための腐 食センサーを開発し、幌延深地層研究センターの地下研究施設(以下、「幌延 URL」)での工学的 スケールの原位置試験に適用して腐食挙動の時間的変化を把握した。また、不飽和緩衝材中での 室内試験により不均一な腐食の生起などを把握した。さらに、環境条件の変化を考慮した広範な 地下水条件(成分濃度、pH、温度など)において、個々のパラメータを振った比較的短期の室内 試験データを取得し、個々の環境因子による腐食挙動への影響を把握した。

しかしながら、緩衝材再冠水~飽和の初期の過渡状態における局部腐食などの不均一な腐食の 生起・進展挙動やメカニズムの理解にはある程度の規模の試験などが必要であることなどから工 学的規模での試験データを含めて更に知見を拡充することが必要である。また、環境因子が腐食 挙動へ与える影響についても長期データや複合的な作用の影響などの知見を拡充し、環境条件の 変遷に対応した腐食挙動評価に資する必要がある。

そこで過渡状態におけるオーバーパックの腐食挙動や腐食の不均一性を把握することを目的と して、幌延URLにて緩衝材が飽和に至る期間に着目して実施された原位置試験の試料を活用し、 模擬オーバーパックの腐食状況や緩衝材中の環境条件に関する調査を行った。また、環境条件に よる腐食への影響に関する知見の拡充を目的として、先行事業で開始した種々のパラメータを振 った広範な環境条件での室内試験の長期試験を継続し、データを取得した。

#### 2.2.2 実施内容

#### (1) 原位置試験試料の調査、分析

幌延 URL の 350 m 試験坑道において、処分孔へ定置後の初期の緩衝材が再飽和に至る期間に おける炭素鋼オーバーパックの腐食挙動を把握することを目的として平成 26 年 11 月 12 日より オーバーパック腐食試験が開始され、オーバーパックの腐食や緩衝材中の環境条件に関するモニ タリングが実施されてきた。オーバーパック腐食試験の状況と模式図を図 2.2-1 に示す。オーバ ーパック腐食試験は平成 30 年 5 月に終了し、その後、平成 30 年 5 月から 6 月にかけて試験体の 模擬オーバーパックと緩衝材に加えて周辺のコンクリートと一部の岩石の取り出しが行われた。 本事業では、取り出された試験体を利用して緩衝材中の環境条件とオーバーパックの腐食状況に 関する調査を行った。



#### ① 緩衝材の調査

緩衝材は模擬オーバーパック周囲に約 10 cm の厚さで 12 段積む形で施工され、図 2.2・2 に示 すように下から 1、5、9 段目にサイクロメーター及び熱電対、2、6、10 段目に腐食センサー、白 金電極及び光学式 pH センサーが埋め込まれた状態で試験が行われた。本解体においても上部か ら概ね 10 cm の厚さずつ 12 段に分けて図 2.2・3 (左) に示すように金属へらなどを用いてブロッ ク状に回収した。緩衝材は各段とも東西方向の中心線で 2 分割して回収した。以下、「N 側」、「S 側」などの記載における N、S はそれぞれ北、南を意味する。同様に、W、E の記載はそれぞれ 西、東を意味する。回収後の緩衝材の外観の一例として、5 段目 N 側の状況を図 2.2・3 (右) に示 す。緩衝材の多くは模擬オーバーパックと接していた内側にケイ砂が部分的または全体にわたっ て付着していた。これは、図 2.2・1 に示す緩衝材上部に充填されたケイ砂が、模擬オーバーパッ クと緩衝材のすきま(約 5 mm 幅)に施工後または試験開始後に流れ込んだものと考えられる。 この模擬オーバーパックと緩衝材の間へのケイ砂の流入は、試験で想定していたものではなく、 実際の処分場の施工でも想定しにくいが、後述の調査に影響を与える因子の一つとして考慮する こととする。回収した緩衝材のうち、1、3、7、11 段目のブロックを用いて図 2.2・4 に示した位 置から試料を採取し、緩衝材の含水比と密度、微生物に関する測定・分析を行った。その結果を 以下に示す。

#### (a) 密度と含水比

図 2.2-4 に示す部位から φ20×15 mm の円筒状のサンプラーを埋め込み、試料を採取した。採 取試料は、重量を測定した後、恒温槽に入れて 110°C で 1 日間乾燥させ、乾燥後の重量を測定し た。乾燥前後の重量とサンプラーの体積から乾燥密度と含水比を算出した。また、実測含水比の 飽和含水比に対する比率より飽和度を算出した。その結果を図 2.2-5 に示す。緩衝材ブロックと しては、設計より高めの乾燥密度である 1.8 Mg/m<sup>3</sup>に成型されたものを用いた。これは、施工上 必要な隙間などを考慮して、原位置での飽和後の乾燥密度が 1.6 Mg/m<sup>3</sup>となるように設計したも のである。図 2.2-5 のとおり、下段側ほど密度が高くなる傾向を一部示すものの、概ね 1.6~1.7 Mg/m<sup>3</sup>の範囲でほぼ均一となった。含水比と飽和度については逆に上段ほど高くなる傾向が一部 見られるものの、全体的に約90%前後に飽和しており、概ね均一であった。また、模擬オーバー パック表面からの距離に対する依存性は見られなかった。これらの結果から、試験終了時の緩衝 材の密度と水分量は、下部においてそれぞれやや高密度、低飽和度となっていることも示唆され るが、場所によって大きな違いはなく、ほぼ均一な状態であったと考えられる。



図 2.2-2 各緩衝材ブロック中の各種センサー類の設置状況(下からの積み上げ段数ごと)



図 2.2-3 緩衝材の金属へらを用いた回収時の様子(左)と 回収された緩衝材(右、5段目N側)の例



図 2.2-4 含水比、乾燥密度測定と微生物分析用試料の採取位置



#### (b) 微生物

模擬オーバーパック周囲の環境条件を分析する手法の一つとして、緩衝材中の微生物活性挙動の評価を試みた。そのため、緩衝材内部及びオーバーパック表面における微生物の現存量及び種組成に関するデータ取得のための試料を採取した。微生物分析試料採取時には、すべての工程において、人為的な汚染を防ぐためにオートクレーブ滅菌済みのミクロスパーテル及びスパチュラを用いるとともに、ゴム手袋を着用して作業を行った。緩衝材については、解体の過程で生じた人為的汚染の影響を排除するため、緩衝材表面を滅菌済みスパチュラ及びミクロスパーテルを用いて除去し、人為的汚染が生じていないと思われる内側から試料を採取した(図 2.2-4)。試料の採取状況を図 2.2-6 に示す。全菌計数、16S rRNA 遺伝子解析及び寒天培養法による生菌計数に供するために、オーバーパック表面から 0 cm、2 cm、4 cm、6 cm 離れた領域をそれぞれ採取し、その後の分析に応じて前処理した後、冷凍及び冷蔵保存した。なお、緩衝材下から 1 段目では、模擬オーバーパック表面付近に褐色のリング状の変色部分が認められたことから、模擬オーバーパック表面から 1 cm 離れた領域についても採取し、分析に供した。模擬オーバーパック表面に

は、全体的にケイ砂の粒子が固着しており、ベントナイト付着物は僅かであったが、全5か所か らケイ砂やベントナイトを含む表面付着物を採取した。また、腐食試験時に緩衝材を膨潤させる ために注水した地下水について、緩衝材中に侵入した微生物の初期状態を把握することを目的と して、全菌計数用試料及び微生物群集組成解析のための試料(2L)を採取した。生菌計数につい ては、好気性菌及び嫌気性菌を対象として、緩衝材試料採取後、直ちに試料を滅菌水に希釈し、 1倍、10倍、100倍の希釈率にて R2A 寒天培地に 100 mL ずつ塗布し、25°C にて1か月間培養 し、寒天培地に形成されたコロニー数を計数した。その結果、好気性生菌微生物はほぼすべての 試料中で検出された(図 2.2-7)。模擬オーバーパック表面近傍から採取した試料中においても、 10<sup>1</sup>~10<sup>6</sup> CFU/g (CFU: colony forming unit、寒天培地表面に形成されたコロニー数)の高密度 で好気性菌が検出された。原位置試験の施工の過程で模擬オーバーパックと緩衝材の間にケイ砂 が大量に混入していたことから、粒子の荒いケイ砂が水みちとなって模擬オーバーパック近傍に 地下水とともに微生物が多く混入したものと考えられる。しかしながら、1 か月の培養期間中す べての試料において、嫌気性菌が全く検出されなかったことから、これらの好気性菌は原位置試 験の施工の過程で地上から混入、あるいは緩衝材再冠水過程で地下水から混入し、同時に混入し た大気中の酸素を用いて増殖したものと考えられる。模擬オーバーパック表面に鉄酸化物が多く 付着していたことからも、試験の施工あるいは緩衝材再冠水過程で、緩衝材内部あるいは模擬オ ーバーパック周辺に酸素が混入しており、好気性菌が活動可能な環境条件であったことが推察で きる。オーバーパック中心に設置されたヒーターにより模擬オーバーパック近傍が 90°C 以上の 高温になることから、約5年間の原位置試験実施中では、酸素が消費された後及び緩衝材飽和後 は、好気性及び嫌気性菌は緩衝材内部で増殖せずに休眠状態であった可能性が高い。



図 2.2-6 緩衝材の試料採取状況



図 2.2-7 寒天培養法に基づく緩衝材中の微生物の好気性生菌数

#### ②緩衝材中腐食センサーの調査

回収した緩衝材のうち、2、6、10段目にそれぞれ真北に対して0、45、225、315°の方向に腐 食センサーが埋め込まれている(図 2.2・2 参照)。このうち 2 段目と 10 段目のセンサーの一部 (45°、225°)を用いて、センサー表面に生成した腐食生成物をX線回折により分析した。緩衝 材から取り出し後のセンサーの外観を図 2.2・8 に、X線回折結果を図 2.2・9 に示す。図 2.2・8 よ り、センサーの炭素鋼電極表面には黒色のほか茶褐色の腐食生成物が形成されており、これらは、 3 価鉄の腐食生成物であると推察される。したがって、試験期間中には比較的酸化性の環境に晒 されていた時期があったと考えられる。一方、X線回折結果では図 2.2・9 に示すように、結晶性 の腐食生成物として同定されたのは FeCO<sub>3</sub>のみであり、FeOOH や Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> に代表される 3 価の 鉄化合物の明瞭なピークは認められなかった。したがって、3 価の腐食生成物は非晶質の状態も しくは生成量が少なかった可能性がある。また、同じ段数の緩衝材ブロックから回収されたセン サーであっても埋め込まれていた位置(方角)によってX線回折パターンが異なっていたことか ら、緩衝材内の腐食に影響を及ぼす環境条件も位置によって異なっていた可能性がある。今後、 他のセンサーについても腐食生成物の分析を行うとともに、炭素鋼電極の腐食量などの調査を行 い、部位による腐食挙動の違いを確認する予定である。



図 2.2-8 緩衝材から取り出し後のセンサーの電極面の外観



図 2.2-9 腐食センサーの炭素鋼電極表面に付着していた腐食生成物の X 線回折結果

#### ③模擬オーバーパックの調査

緩衝材を全て回収した後の模擬オーバーパックの外観を図 2.2-10 に示す。模擬オーバーパックの表面の状態は位置や方向によって異なっており、図 2.2-10 左端に示すように、模擬オーバーパックの中央より上部の領域には、黒色の皮膜が形成された部分と、黄色から茶褐色の腐食生成物が付着した部分が認められた。ベントナイトはほぼ全面に付着していた。中央より下側の領域には、黄色から茶褐色の腐食生成物のみが観察された。また、特に下側の領域においてケイ砂が付着している様子が認められた。このケイ砂については、ヘラなどで容易に除去できる部分と、ベントナイトや腐食生成物とともに模擬オーバーパック表面に強く固着した部分が混在するなど、付着状態が一様ではなかった。

上記で示したように、黄色から茶褐色の腐食生成物が観察されたことから、腐食センサーの炭 素鋼電極表面の観察からの推定と同様に、試験期間中に比較的酸化性雰囲気の状態の期間を経た ことが推察される。このことは、①(b)に示したとおり緩衝材中の微生物の分析において好気性菌 が検出され、模擬オーバーパック表面に近い部分で比較的高い菌数を示すデータが得られたこと とも整合的である。また、下側の領域では、比較的多くのケイ砂が混入していたことから、残留 した酸素の模擬オーバーパック表面への供給が容易となり、表面付近でより酸化性の状態となっ ていたことが示唆される。今後、腐食深さ分布や付着状態の不均一性を詳細に検討予定であるが、 外観上は下段側の腐食量が比較的大きいように見られた。



図 2.2-10 緩衝材回収後の模擬オーバーパックの外観(左:西側、中:東側、右:東側下段部)

#### (2) 広範な環境条件での室内試験

広範な環境条件での腐食挙動については、先行事業「処分システム評価確証技術開発」におい て、地震活動による地下水水質の変動を想定して、サイト選定で除外されると考えられる高温水、 酸性水なども含めて、幅広くわが国の地下水の条件の整理が行われた(日本原子力研究開発機構, 2013a)。また、その条件に基づき、従来の想定範囲を超える地下水水質も想定して高塩濃度環境、 高温水環境、酸性水環境、炭酸ガス環境中での腐食試験が行われ、腐食データが取得された(日 本原子力研究開発機構, 2018a)。これらの条件下での腐食試験は、長期試験を含めて継続して実 施してきており、今回、炭酸ガス環境での浸漬1年間のデータを取得した。

#### ① 試験方法の概要

図 2.2-11 に示すように、チタン製のカラム内に炭素鋼試験片と緩衝材(ケイ砂混合ベントナイト)を入れ、緩衝材が所定の密度になるように圧縮成形した。テフロン容器に各濃度に調整した 溶液とチタンカラムを浸漬し、80°C における浸漬試験を実施した。

#### 2 試験片

試験片は、既往の条件に準じ、以下のとおりとした。

- ・炭素鋼材質: JIS G 3106 SM400B (C:0.13、Si:0.20、Mn: 1.04、P:0.017、S: 0.006 mass %)
- 試験片形状:30×30×t2 mm
- 表面仕上げ:#800研磨



図 2.2-11 試験カラムの模式図

#### ③ 試験条件

試験溶液には、0.56M NaCl 溶液に炭酸ガス濃度 5~100%のガスを大気圧下で吹き込んだ。試験条件を表 2.2-1 に示す。

#### ④ 緩衝材

第2次取りまとめにおける緩衝材仕様(核燃料サイクル開発機構, 1999a)に準じ、以下の仕様とした。

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

#### 表 2.2-1 浸漬試験条件

試験溶液	pH(試験前室温での値)	温度 (°C)	浸漬期間(days)
$0.56M \text{ NaCl} + 5\%CO_2 + 95\%N_2$	4.4	80	365
$0.56M \text{ NaCl} + 50\% \text{CO}_2 + 50\% \text{N}_2$	3.9	80	365
0.56M NaCl + 100%CO <sub>2</sub>	3.7	80	365

#### ⑤ 試験手順

試験片を、緩衝材とともに図 2.2-11 に示すチタン製のカラムに充填し、カラムごと試験溶液中 に定置したのち、試験溶液に所定の炭酸ガス濃度のガスを吹き込んだ。ガスの吹き込みは試験期 間を通じて行った。試験期間は、365 日間とした。腐食量評価の試験では、浸漬試験後の試験片 (3 枚)を脱錆処理した後に重量測定し、重量減少量から平均腐食量及び平均腐食速度を算出し た。さらに、各条件の試験後の試験片のうち1枚について、X線回折(XRD)及び顕微ラマン分 光により腐食生成物を分析した。いずれの分析も、雰囲気制御セルを用いて窒素ガス雰囲気を維 持した状態で行った。

#### ⑥ 浸漬試験結果と考察

#### (a) 試験片の外観と腐食生成物

腐食試験後の試験片の外観の観察結果を図 2.2-12 に示す。試験片表面には、灰色の皮膜が形成 していた。外観で一部褐色を呈するものは緩衝材であり、これに付着した腐食生成物の一部が、 取り出し時点から撮影時点までの間に大気中で乾燥したり一部酸化したため、茶色状に呈色した ものと考えられる。また、脱スケール後の外観から、表面はほぼ均一な全面腐食であり、孔食状 の腐食や腐食の局在化は認められなかった。

X線回折による腐食生成物の分析結果を図 2.2-13 に示す。いずれの条件でも腐食生成物として シデライト(FeCO<sub>3</sub>)が同定された。また、炭酸ガス濃度が高い条件ほど明瞭なピークが観察さ れた。

#### (b) 腐食量測定結果

腐食試験前後の試験片の重量減量から算出した平均腐食量を表 2.2-2 に示す。また、既報(日本原子力研究開発機構, 2017)の 90 日間までのデータを含めて平均腐食量の経時変化を図 2.2-14 に示す。90 日間までは炭酸ガス濃度が高いほど腐食量は大きくなっており、炭酸ガスによって腐食が促進される傾向が見られた。しかし、今回得られた 365 日の腐食量は、炭酸ガス濃度が高いほど小さくなっており、最も炭酸ガス濃度の高い 100%の条件で腐食量が最小となった。

炭酸ガス環境での鋼材の腐食は石油開発などの分野で「スイート腐食」として知られており、 以下に示すように溶存した炭酸ガスがプロトンを供給することによって腐食が促進されるといわ れている(石油公団石油開発技術センター, 1997)。

#### $CO_2(g)+H_2O \Leftrightarrow H_2CO_3 \Leftrightarrow H^+ + HCO_3^-$ (2.2-1)

また、同じ pH 条件でも塩酸環境に比較して炭酸ガス環境のほうが腐食速度は大きく、炭酸ガ ス環境では単に pH の低下だけが腐食速度の増大に寄与しているわけではないことが指摘されて いる(石油公団石油開発技術センター, 1997)。本試験は緩衝材共存下で実施されており、実際 に炭素鋼に接触する間隙水の pH は試験溶液中よりも高いと考えられる。また、pH 以外の要因 が腐食速度の違いに関与している可能性も考えられる。炭酸ガス環境や炭酸塩環境での Fe のア ノード溶解は溶存 CO<sub>2</sub>や HCO<sub>3</sub>の濃度の影響を受ける可能性が指摘されており(Nesic, 2007)、 アノード溶解機構として Fe-CO<sub>2</sub>、FeCO<sub>2</sub>OH などの中間反応体の生成(Noda et al., 1995)や錯 体 Fe(CO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>-の生成(Nesic, 2007)が提案されている。カソード反応についても、プロトンある いは水の還元反応に加えて H<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> または HCO<sub>3</sub>の還元反応の可能性も指摘されている(小池ほ か,2006)。このようなアノード/カソード反応に対する溶存 CO2 や炭酸塩の寄与が、今回観察さ れた初期の腐食速度の違いに影響を及ぼした可能性が考えられる。また、炭酸ガス環境での腐食 は表面に生成する FeCO<sub>3</sub> に代表される炭酸鉄皮膜の沈殿・溶解挙動が影響を与え、FeCO<sub>3</sub>の沈 殿しやすい条件では緻密な皮膜形成によって腐食が抑制されるといわれている(植田, 2007)。 本試験では X 線回折による腐食生成物の分析結果から、いずれの条件でも FeCO3 の生成が認め られており、炭酸ガス濃度の高い条件ほど明瞭なピークが観察された。したがって、高炭酸ガス 条件であるほど FeCO3 皮膜の生成が促進されていることが示唆されている。このような皮膜に よって 365 日の試験では高炭酸ガス濃度条件で腐食進展がより抑制された可能性がある。

一般に、炭酸ガス環境での腐食速度は炭酸ガス分圧や温度などに依存するが、炭酸ガス分圧 0.1 MPa で、常温での炭素鋼の腐食速度は 1~数 mm/y に達する場合があり、100°C 付近での腐食が 最も厳しく、局在化を伴って激しい腐食を生じる場合もある(石油公団石油開発技術センター, 1997)。したがって、このような高濃度の炭酸ガスを含む弱酸性の地下水が、緩衝材を介さず直 接的にオーバーパックに接触した場合には炭素鋼はオーバーパックに期待されている実用上の耐 食性をほとんど有しないと考えられる。しかしながら、本試験条件と同じようにオーバーパック が緩衝材で覆われた状態が維持される場合には、高濃度の炭酸ガスを含む地下水が人工バリア周 辺に到達した場合であってもその影響は緩衝材により大幅に緩和され、顕著な腐食促進が生じる ことはなく、むしろ FeCO3 皮膜の生成により抑制される場合もあると考えられる。ただし、上記 の試験結果は最大 0.1 MPa の炭酸ガス分圧での結果であり、深部地下環境を想定した場合、より 高い分圧での腐食挙動や腐食速度についても検討が必要である。また、より長期のデータの取得 によって、炭酸鉄皮膜がより長期にわたる腐食抑制効果や腐食速度へ与える影響についても確認 する必要があると考えられる。

試験溶液	期日 (days)	(上段:取	試験片の外観 (上段:取り出し後,下段:脱スケール後)				
0.56M NaCl + 5%CO <sub>2</sub> + 95%N <sub>2</sub>	365	Invalia Ibido s	1400 A				
0.56M NaCl + $50\%CO_2+$ $50\%N_2$	365	HR405	48405	HR407			
0.56M NaCl + 100%CO <sub>2</sub>	365	HR409	MR410	HR # 5 5			

図 2.2-12 腐食試験後の試験片の外観(試験片表面寸法:30×30 mm)




試験溶液	浸漬期間 (days)	平均腐食深さ (mm)
	365	$1.05  imes 10^{-2}$
0.56M NaCl + 5%CO2+ 95%N2	365	$1.10 \times 10^{-2}$
070002.0070142	365	$1.11 \times 10^{-2}$
O FOM N-OL	365	$6.83 \times 10^{-3}$
0.36M NaCl + $50%$ CO <sub>2</sub> + $50%$ N <sub>2</sub>	365	$8.82 \times 10^{-3}$
$50\%002 \pm 50\%102$	365	$8.35 \times 10^{-3}$
	365	$7.56  imes 10^{-3}$
0.56M NaCl + 100%CO2	365	$9.57 \times 10^{-3}$
100/0002	365	$1.01 \times 10^{-2}$

表 2.2-2	腐食試験前後の試験片の重量減量から算出した平均腐食深さ



図 2.2-14 平均腐食深さの経時変化

## 2.2.3 成果と今後の課題

幌延 URL にて実施された原位置試験試料を活用し、模擬オーバーパックの腐食状況や微生物 挙動を含めて緩衝材中の環境条件に関する調査を行った。その結果、模擬オーバーパックは比較 的酸化性の条件に置かれた時期が存在するとともに、ケイ砂が模擬オーバーパックへ付着してい る状態の不均一な様子や、緩衝材の密度や飽和度の部位による違いによって不均一な腐食が生じ うる条件であったことがわかった。また、環境条件による腐食への影響に関する知見の拡充を目 的として、先行事業で開始した種々のパラメータを振った広範な環境条件での室内試験の長期試 験を継続し、炭酸ガス環境での腐食挙動に関するデータを拡充した。炭酸ガス環境での初期の腐 食速度は炭酸ガス濃度が高いほど大きいものの、長期的には保護性の高い炭酸鉄皮膜の形成によ って腐食進展はむしろ抑制される可能性のあることがわかった。

今後は、原位置試験試料の調査、分析を進め、模擬オーバーパックの腐食挙動と環境条件のより詳細な調査により、不均一な腐食挙動とそのメカニズムを明らかにするとともに、模擬オーバーパックの腐食深さデータなどに基づいて過渡状態における腐食深さの評価手法の妥当性の検証 や高度化を図ることが課題として挙げられる。また、環境条件が腐食に与える影響に関し、原位 置試験データや天然事例なども活用して緩衝材中の THMC の特性や微生物挙動など環境条件に 関する理解を進めつつ、これらの複合的な要因が関与する系や環境条件の変化を伴う系での腐食 試験のデータや、さらに長期の試験によるデータなどを拡充することにより、長期的な環境条件 の変遷に対応した腐食挙動の評価を行うことも課題として挙げられる。これらの検討においては、 2.4.1 項(4)で記した THMC 連成解析によるオーバーパック腐食試験の再現解析などによる環境 条件の結果なども踏まえて進めていく予定である。

#### 2.3 緩衝材の変質挙動

多重バリアシステムにおける人工バリアのひとつである緩衝材は、廃棄体への地下水の接触と 核種の移行を抑制するために、低透水性、自己シール性(膨潤性)、地下水に対する化学的緩衝性 能、核種の収着能力、応力緩衝性等の多くの機能が期待されており、これらの機能が長期にわた って健全に保持されることが要求される。緩衝材に期待されている機能は、主要構成鉱物である モンモリロナイトの特性に大きく依存している。そのため、そのモンモリロナイトの結晶化学的 変化やその結晶化学的変化等に随伴する二次鉱物の沈殿(例えばシリカセメンテーション)、モン モリロナイトのイオン型の変化などの変質が生じた場合には、緩衝材に期待している機能が低下 する可能性がある。

今年度は、これらの変質挙動とそれが緩衝材に期待している機能に与える影響の理解のための 調査検討として、先行事業「処分システム評価確証技術開発」(日本原子力研究開発機構,2018) に引き続き「炭素鋼・緩衝材境界領域における緩衝材の変質」(2.3.1 項)、「セメンテーション による緩衝材特性の変化」(2.3.2 項)を実施するとともに、緩衝材のイオン交換に関する検討と して「地下水・河川水と接触したベントナイトのナチュラルアナログ研究」(2.3.3 項)、粘土含 水系における水分移動を考慮できるモデルの開発に向け「緩衝材挙動に関するナノスケールシミ ュレーションモデルの構築」(2.3.4 項)を実施した。

#### 2.3.1 炭素鋼-緩衝材境界領域における緩衝材の変質

#### (1) 背景と目的

高レベル放射性廃棄物の地層処分においては、ガラス固化体はオーバーパックに封入され、そ の周囲に緩衝材が配置される。オーバーパックは、地下水との接触により腐食して厚さが減少し、 一定期間後に破損することが想定されているが、その過程において、オーバーパックの腐食反応 に起因する緩衝材の変質が起こる可能性がある。これまでの研究により、オーバーパックの候補 材料である炭素鋼と、緩衝材として用いられるベントナイトの相互作用により、ベントナイトの 主要構成鉱物であるモンモリロナイトが他の鉱物へ変質することが報告されている(例えば、 Guillaume et al., 2004)。このような変質現象は、反応時の温度が高温であるほど顕著となる傾 向が見られているものの、100°C 以下の低温においても発生することが報告されており (Lantenois et al., 2005; Perronnet et al., 2008)、温度条件の観点からは、実際の処分場環境に おいても発生する可能性があると考えられる。一方で、このような鉄イオンとの反応によるモン モリロナイトの変質は、溶液中で鉄粉とモンモリロナイトを分散させて反応させるバッチ系の試 験においては顕著に観察されているが、実際の処分場と同様の条件である圧縮ベントナイトが炭 素鋼と接触する試験においては、モンモリロナイトが変質して生成したと考えられる鉱物の生成 が確認されるものの、その生成量は微量である。このことは、実際の処分環境においてモンモリ ロナイトの変質が広範に及ぶ可能性が低いことを示唆していると考えられる(例えば、日本原子 力研究開発機構, 2016a)。

オーバーパックは、一定の期間が経過した後では、腐食により厚さが減少して周囲の岩盤から の圧力などにより機械的に破損するが、少なくとも1,000年間は破損せず、地下水からガラス固 化体を隔離する機能が維持されることが想定されている(核燃料サイクル開発機構,1999a)。し かしながら、オーバーパックの厚さは、耐食性の観点から必要とされる厚さ(腐食代)に加え、 周囲からの圧力に対する耐圧性及び放射線遮へい性を考慮して設計されているため、破損後も長 期にわたってオーバーパック材が残存して腐食が継続することが想定される。そのため、炭素鋼 との相互作用に伴うベントナイトの変質は、数千年以上の長期を想定した評価が必要である。こ のような長期の変質挙動の評価に対して、短期の変質試験の結果を外挿することにより長期の変 質挙動を予測することは、予測結果の不確実性が大きくなることから、炭素鋼との相互作用によるベントナイトの変質メカニズムを理解し、圧縮ベントナイトの長期的な変質挙動を定量的に評価するためのモデルを構築して評価することが必要である。

このような背景を踏まえ、モンモリロナイトの変質が顕著となる条件や、モンモリロナイトの 変質により生成する鉱物種の同定など、実験的に得られた知見などに基づいて、圧縮ベントナイ トの長期的な変質挙動の定量的評価に向けたモデルが提案されてきている(例えば、日本原子力 研究開発機構,2013a)。この評価モデルにおいては、オーバーパックの腐食による Fe<sup>2+</sup>の生成、 移行、Fe<sup>2+</sup>が腐食生成物として沈殿するプロセスや、間隙水の高 pH 化に伴うモンモリロナイト の溶解と新たな二次鉱物として沈殿するプロセスなどの主要な変質プロセスに対し、モンモリロ ナイト溶解速度や鉱物の安定性に関する熱力学データなど、各プロセスにおいて考慮されている 反応に対するパラメータ値を設定して解析が行われている。評価モデルの信頼性向上のためには、 ベントナイトの変質メカニズムの理解を深め、モデルにおける各プロセスの取り扱いの要否を見 極めるとともに、モデルに必要なパラメータ値の精度を向上することが課題である。

平成 29 年度まで実施した先行事業「処分システム評価確証技術開発」においては、室内試験及 び国際共同プロジェクトとして実施された原位置試験におけるベントナイト変質の調査結果に基 づいて、評価モデルにおいて考慮する変質プロセスの見直しを行うとともに、モデルパラメータ 値の評価などに取り組んだ(日本原子力研究開発機構, 2018a)。その結果、モンモリロナイトの 変質鉱物として、Fe 共存下で生成しうる熱力学的に安定な鉱物種であるサポナイト、緑泥石、バ ーチェリンが生成していると推測されることを示すとともに、炭素鋼とモンモリロナイトの相互 作用に伴う微量のモンモリロナイト溶解量を定量し、評価モデルに必要なパラメータの一つであ る溶解速度に関するデータを取得した(日本原子力研究開発機構, 2016a;日本原子力研究開発機 構, 2018b)。しかしながら、モンモリロナイト変質鉱物の詳細な生成メカニズムの解明が十分で はなく、また、変質鉱物の生成速度などに関する定量的評価に関して課題が残った。

このような課題を解決するため、本事業における調査では、実際の処分環境を想定した圧縮状 態のベントナイトが炭素鋼と接触することに伴うベントナイトの変質に関して、原位置試験や室 内試験での変質試験試料の分析により、モンモリロナイト変質鉱物の詳細な生成メカニズムの理 解と、それに基づいた評価モデルに組み込む必要のあるプロセスの抽出を行う。また、評価モデ ルによる予測精度向上に向けて、モンモリロナイト変質鉱物の生成速度などのモデルに必要なパ ラメータの評価を行う。さらに、室内試験や原位置試験では評価することの難しい長期の変質挙 動の理解や、モデルによる評価結果の検証に向けて、ナチュラルアナログ事例を対象とした調査 による知見の拡充を進める。

平成 30 年度は、日本原子力研究開発機構の幌延深地層研究センターの地下坑道において実施 された原位置でのオーバーパック腐食試験より採取した試料の分析を行い、モンモリロナイト変 質鉱物の生成メカニズムの理解に向けた調査を行った。また、これまでに学術論文などで公表さ れているナチュラルアナログ研究に関する文献の調査を行い、炭素鋼と圧縮ベントナイトの接触 に伴うベントナイトの変質に関する天然の類似事例について概要調査を行った。

## (2) 原位置試験試料の変質挙動の調査

本調査の対象とした試料は、日本原子力研究開発機構が幌延深地層研究センターにおいて実施 した原位置試験である、オーバーパック腐食試験(図 2.2-1)により取得した圧縮ベントナイト試 料である。本原位置試験では、深さ約 160 cm、直径 55 cm の試験孔に、内径が約 30 cm となる ように試験孔を覆う形で低アルカリ性セメント材料のコンクリート支保が設置されていた。コン クリート支保の内側には、ヒーターを内蔵した炭素鋼製の直径 10 cm の模擬オーバーパックが設 置され、その周囲に外径 30 cm、内径 10 cm,厚さ 10 cm の円筒型圧縮成型ベントナイトブロックが 12 段配置された。原位置試験の実施期間中は、コンクリート支保内部へ試験坑道付近より 採取した地下水が供給されており、ヒーターの温度は 95°C に維持されていた。

分析に用いた試料は、この原位置試験より採取した圧縮ベントナイトブロックのうち、下部から5段目(下部から40~50 cm の位置)のブロックと、原位置試験試料解体後に炭素鋼製模擬オ ーバーパックに付着していたベントナイト試料である。模擬オーバーパックに付着していたベン トナイト試料は、下部から高さ94~99 cm、北を0°として時計回りに250~310°の位置より、付 着している試料を剥離することにより採取した。分析に使用したブロック試料と、模擬オーバー パックに付着したベントナイト試料の採取時の写真を図2.3-1に示す。ブロック試料から、300° 付近の炭素鋼製模擬オーバーパックとの接触面を含む領域を、数 cm 角程度に切り出して分析に 使用した。試料の分析については、電子線マイクロアナライザ(EPMA)による元素の分布状態 の確認と、微小領域 X線回折法(μ-XRD)による生成鉱物の同定を行った。EPMA分析用試料 は、ブロック試料及び模擬オーバーパックより剥離させた試料を真空乾燥させた後、樹脂に包埋 して切断して、表面研磨と炭素蒸着処理を行って作製したものである。



# 図 2.3-1 分析に使用したベントナイトブロック試料(下部から 5 段目・左)と 模擬オーバーパックに付着したベントナイト試料の採取時(下部から 94~99 cm・右)の写真

図 2.3・2 に、ブロック試料の EPMA 分析結果を示す。図 2.3・2 に示す画像の視野は約 2×2 mm<sup>2</sup> であり、BEI が観察表面の反射電子像、Si、Al、Ca、Fe、Mn で示す画像が各元素のマッピング 分析結果である。マッピング分析では、色の明るい部分が各元素の濃度が高い部分、色が暗い部 分が濃度の低い部分である。また、各画像の上部が、圧縮ベントナイトと炭素鋼製模擬オーバー パックが接触していた界面である。Fe のマッピング分析結果より、模擬オーバーパックとの接触 界面においてわずかながら Fe 濃度が高い部分が確認された。これは、模擬オーバーパックの腐 食に伴って Fe が圧縮ベントナイト中へ移行したことを示すものと考えられる。これに対し、Ca のマッピング分析結果では、圧縮ベントナイト中の模擬オーバーパックから離れた位置で観察される Ca の濃度が高い粒子が、模擬オーバーパックとの接触界面付近で減少していることが確認 された。この Ca に富む粒子は、クニゲル V1 に含まれるカルサイト (CaCO<sub>3</sub>) であり、模擬オーバーパック付近の圧縮ベントナイト中で、カルサイトの含有量が低下していることが示唆され る結果となった。



図 2.3-2 ベントナイトブロック試料の EPMA 分析結果(約 2×2 mm<sup>2</sup>)

図 2.3-2 の反射電子像(BEI) 左上に示す赤四角枠の箇所について EPMA 分析を行った結果を 図 2.3-3 に示す。画像の視野は約 200×200 µm<sup>2</sup> である。マッピング分析の結果より、Ca の濃度 が高い部分では、炭素鋼に含まれる元素である Fe 及び Mn の濃度も高くなっていることが確認 できる。一方で、この Ca、Fe、Mn の濃度の高い部分では、Si、Al の濃度が低く、局所的には Si、Al がほとんど含まれていない領域が存在することも確認できる。このことから、Ca、Fe、 Mn の濃度が高い部分では、これらの元素が粘土鉱物の結晶構造中や層間イオンとして取り込ま れた形で存在しているのではなく、別の鉱物として存在していることが示唆される。

図 2.3・4 に、模擬オーバーパックより剥離して採取したベントナイト試料の EPMA 分析結果を 示す。画像の視野は約 130×130 µm<sup>2</sup> である。この試料についても同様に、Ca、Fe、Mn の分布 に正の相関が見られるとともに、これらの元素の濃度が高い部分では、Si、Al がほとんど検出さ れていないことがわかる。



図 2.3-3 ベントナイトブロック試料の EPMA 分析結果(約 200×200 µm<sup>2</sup>)



図 2.3-4 模擬オーバーパックから剥離させたベントナイト試料の EPMA 分析結果 (約 130×130 µm<sup>2</sup>)

図 2.3-5 に、ブロック試料に対して実施した µ-XRD 測定により得られた回折線パターンを示 す。測定は、炭素鋼製模擬オーバーパックとの接触界面の圧縮ベントナイト試料に対して実施し た。図中の画像は、µ-XRD 測定を行った部分の画像である。分析結果より、回折線パターン中に はSで示すシデライトのピークが確認され、炭素鋼との接触界面においてシデライトを形成する Fe が存在することが確認された。一方で、鉄共存下でモンモリロナイトの変質鉱物として生成す ると予測されるサポナイト、緑泥石、バーチェリンのピークは観察されなかった。



図 2.3-5 模擬オーバーパックとの界面のベントナイト試料の µ-XRD 測定結果

p-XRD による分析では、シデライト(FeCO<sub>3</sub>)の存在を示すピークが観察されており、Fe は 炭酸塩として存在していると考えられる。この結果は、図 2.3-3 及び図 2.3-4 の EPMA 分析結果 より、Fe の濃度の高い部分は、Si、Al の濃度が低いことが確認され、Fe は Si、Al がほとんど含 まれていない鉱物として存在していると推測される結果ともよく一致する。また、Fe の濃度が高 い部分では Ca、Mn の濃度も高いことから、シデライトに付随して Ca、Mn も炭酸塩として圧 縮ベントナイト中に存在しているものと推測される結果となった。

## (3) ナチュラルアナログ研究に関する調査

本事業においては、室内試験などでは難しい長期の鉱物学的変化の観察に基づく現実的な概念 モデルの構築取得と、変質評価モデルによる長期変質挙動の予測結果を検証するための変質事例 の抽出を行うため、ナチュラルアナログ事例の調査を行う。ナチュラルアナログ事例の調査は、 本事業の先行事業にあたる「処分システム化学影響評価高度化開発」において、平成 19 年度か ら平成 20 年度にかけて実施している(日本原子力研究開発機構, 2008;日本原子力研究開発機 構、2009)。この調査においては、鉄とベントナイトの変質プロセスのアナログ事例として、堆 積層に鉄を含む岩石が貫入し変質した事例、堆積層に鉄に富む熱水溶液が浸透し変質したあるい は鉄に富む堆積層が熱水溶液により変質した事例、鉄に富む堆積層の続成作用に伴い変質した事 例などについて調査を行っている。抽出された事例については、時間と温度に着目し、鉄とスメ クタイトとの反応に伴い生ずる可能性のある変質生成物の変遷プロセスとしてまとめられてい る。本事業においては、平成20年度以降に公表された学術論文などについて調査を行い、上記 の事例に関する知見を収集する。また、平成 20 年度以降の鉄との相互作用に伴うベントナイト の変質挙動に関する研究の進展により、鉄の腐食反応に伴う圧縮ベントナイト間隙水の pH 上昇 と、それによるベントナイト中に含まれる鉱物の溶解、高 pH 環境での二次鉱物の沈殿のプロセ スが変質プロセスとして考えられてきていることから、このようなプロセスのアナログ事例にも 着目して調査を進める。平成 30 年度の調査においては、上記の観点により、平成 20 年度以降 に公表された学術論文などについて概要の調査を行った。

調査は J-STAGE、Research Gate などの検索サイトを用い、bentonite、alteration、Fe、 natural analgoue などのキーワードを用いて実施した。調査の結果、鉄とベントナイトの相互 作用に伴うベントナイトの変質に関するナチュラルアナログ事例などとして重要と考えられる学 術論文などとして 5 件を抽出した(Fukushi et al., 2010; Wersin et al., 2015; Siir, 2015; Pelayo et al., 2016; 原子力環境整備促進・資金管理センター, 2018a)。これらの文献の概要に ついて以降に記す。

Fukushi et al. (2010) では、宮城県蔵王地域の川崎ベントナイト鉱床において確認された緑 色鉱脈とその周辺のベントナイトの変質について調査を行っている。この緑色鉱脈を形成した Fe に富む熱水との相互作用により緑色鉱脈周辺のベントナイトが溶解、沈殿し、オパール粒子 と Fe を含む 2 八面体型スメクタイトを生成したものと推測されている。緑色鉱脈や周辺の鉱物 組成や産状は、熱水との相互作用は温度が 100°C 未満であり、反応した溶液は中性からアルカ リ性かつ還元性であったことを示唆する。

Wersin et al. (2015) は、スウェーデンの Äspö HRL において実施された鉄とベントナイト の相互作用に関する原位置試験試料について調査を行っている。約2年半、炭素鋼製ヒーター により 115°C までの高温で加熱されたベントナイト試料の調査の結果、鉄腐食生成物としてシ デライト、マグネタイト、ゲータイト、及びレビドクロサイトを含有する厚さ約 100 µm の腐食 層を確認している。他方、ベントナイト中のモンモリロナイトの著しい変質は観察されていな い。この報告において分析されている原位置試験試料は、本事業の先行事業である処分システム 評価確証技術開発において分析を行った原位置試験試料(日本原子力研究開発機構, 2016a)と 同じ試験より採取された試料である(ただし、ベントナイトの種類は、先行事業で使用されたク ニゲル V1 とは異なる)。先行事業における分析においても、モンモリロナイトの変質は観察さ れず、鉄腐食生成物としてシデライトの存在が示唆される結果が得られており、Wersin et al. (2015)における調査結果とよく一致する。

Siir (2015) は、スウェーデンを中心とした北欧及びその周辺地域における変質した火山灰層 中のベントナイトに関して広範囲で調査を行い、その生成挙動に関する研究を報告している。こ の研究における鉄とベントナイトの相互作用に関するナチュラルアナログ事例として活用できる 記述として、ベントナイト層中のケイ酸塩の結晶構造中の鉄濃度が、その上下層に含まれるケイ 酸塩の結晶構造中の鉄濃度に比べて多いまたは少ない事例などの記述が見られる。

Pelayo et al. (2016) は、スペインの Morrón de Mateo ベントナイト鉱床でのナチュラルア ナログ事例について報告している。この鉱床では、溶岩ドームを形成したマグマの貫入によって 温度が上昇するとともに Fe、Mg に富む溶液が供給されることにより、ベントナイトが変質し ている。具体的には、Al に富む 2 八面体型スメクタイトが変質してバイデライトとサポナイト の中間組成を有する Fe に富むスメクタイトに変化している。この報告では、このような変質挙 動を鉱物学的、結晶学的な観点からの分析を行っている。

原子力環境整備促進・資金管理センター(2018a)は、経済産業省資源エネルギー庁受託事業 「TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発」において、処分場においてセメント系材料の浸出に より生成する可能性のある高アルカリ性の間隙水によるベントナイトの変質に関するプロセスを 調べるナチュラルアナログプロジェクトとして、フィリピンのルソン島北西部に分布するベント ナイト鉱床でのナチュラルアナログ事例の調査を行っている。この事例については、セメントと ベントナイトの相互作用に関するナチュラルアナログ事例であるものの、鉄の腐食反応による圧 縮ベントナイト間隙水の高 pH 化と、それに伴う鉱物の溶解、沈殿のプロセスとして記述される 鉄とベントナイトの相互作用に関する知見の拡充に活用できると考えられる。この調査において は、ベントナイト鉱床中のモンモリロナイトが高アルカリ地下水と接触して溶解した後に、地下 水中に含まれる Fe と反応して鉄サポナイトなどとして沈殿するという知見が得られており、鉄 サポナイトなどの生成挙動については、地球化学シミュレーションモデルによる検討が行われて いる。

本年度の調査において抽出した、重要と考えられる上記5件の事例のうち、Wersin et al. (2015)の事例については、先行事業などでも詳細に調査されており、新たな知見は少ない (日本原子力研究開発機構,2016a)。また、Siir (2015)の事例については、鉄とベントナイト の相互作用によってベントナイトが著しく変質する現象に関する記述はなく、処分場環境に近い 条件でのナチュラルアナログ事例ではない。このため、これら2件の事例については、今後の 調査対象から除外する。一方で、Fukushi et al. (2010)、Pelayo et al. (2016)、原子力環境整 備促進・資金管理センター (2018a)の事例については、処分場における鉄とベントナイトの相 互作用プロセスのナチュラルアナログと見なすことができることから、今後、モンモリロナイト の変質プロセスの理解や、変質評価モデルによる長期変質挙動の予測結果を検証するための事例 として活用する可能性について調査を行う。特に、原子力環境整備促進・資金管理センター (2018a)の事例については、鉄共存下でのベントナイトの高アルカリ条件での変質であるとと もに、ベントナイトの相互作用の理解に活用できる知見を抽出し、整理することが重要であると考

#### (4) まとめと今後の課題

えられる。

原位置試験試料の変質挙動の調査においては、日本原子力研究開発機構の幌延深地層研究セン ターにおいて実施された原位置試験であるオーバーパック腐食試験により取得した圧縮ベントナ イト試料の分析を行った。その結果、炭素鋼製模擬オーバーパックの腐食により圧縮ベントナイ ト中に移行した Fe は、Ca、Mn とともに炭酸塩として存在すると考えられた。このことは、圧 縮ベントナイト中に存在する炭酸塩鉱物が、オーバーパックの腐食により生成した Fe<sup>2+</sup>の移 行、沈殿などのプロセスに影響を及ぼすことが示唆される結果である。一方で、鉄共存下でモン モリロナイトの変質により生成すると考えられるサポナイト、緑泥石、バーチェリンの存在は確認されず、モンモリロナイトの変質はほとんど起こっていないと推測された。現状においては、 試料の概略的な分析に留まっていることから、今後、TEM分析などによる、より微少な領域で のモンモリロナイトの変質鉱物の生成の有無などに着目した試料の詳細な分析を行うとともに、 室内試験によりモンモリロナイトの変質挙動を観察し、変質鉱物の生成速度などの評価を進める 予定である。

ナチュラルアナログ事例に関する調査においては、平成20年度以降の重要な事例として5件 抽出し、概要の調査を行った。今後、これらの事例から重要と考えられる3件の事例につい て、モンモリロナイトの変質プロセスの理解や、変質評価モデルによる長期変質挙動の予測結果 の検証に活用できる知見を抽出する。

## 2.3.2 セメンテーションによる緩衝材特性の変化

#### (1) 背景と目的

高レベル放射性廃棄物及び一部のTRU 廃棄物の処分施設において使用される緩衝材(ベント ナイト)については、モンモリロナイトあるいは随伴鉱物の溶解に伴うアモルファスシリカなど の二次鉱物の間隙への沈殿や、発熱廃棄体の近傍での間隙水の蒸発・凝縮の対流で生じる溶質の 析出に伴う、土粒子同士の固着(セメンテーション)により、モンモリロナイトの鉱物学的変質 が起こらない場合でも、膨潤特性や応力緩衝性などの緩衝材に要求される性能が低下することが 懸念される(例えば、核燃料サイクル開発機構, 1999a)。

他方、ベントナイト鉱山の原鉱石は、このセメンテーションを含む続成作用により、粒子同士 が固着した岩石の状態で存在している可能性があり、セメンテーションによる諸特性の変化を把 握する上で、このような原鉱石の特性を評価することが重要となる可能性がある。先行事業であ る「処分システム評価確証技術開発」では、山形県大江町月布のベントナイト鉱床における1番 層と 29 番層と呼ばれるベントナイト層からそれぞれ採取した原鉱石を対象として、粉状ベント ナイトを圧縮成形して作製した供試体(圧縮ベントナイト)に対して実施されてきた既往の膨潤 圧試験及び透水試験と同様の方法を用いて原鉱石の膨潤圧と透水係数を取得してきた(日本原子 力研究開発機構, 2018b)。その結果、膨潤圧については、多くの場合においてクニゲル V1 など の圧縮ベントナイトと同等の膨潤圧を示すものの、1 桁程度小さくなるケースも見られた。この ことは、セメンテーションの影響により膨潤圧が低くなる可能性を示している。一方、原鉱石の 透水係数は、圧縮ベントナイトと同等の値であり、セメンテーションの影響により透水性は変化 しない可能性を示した。

上記を踏まえ、本事業では、モンモリロナイト含有率の異なる条件などにおけるセメンテーションによる膨潤性・透水性の変化を把握することを目的として検討を進めるものとし、本年度においては、1番層、29番層よりもモンモリロナイト含有率の大きい31番層の原鉱石に対する膨潤圧試験と透水試験を実施して、試験データを拡充した。さらに、セメンテーションによる材料の膨潤性や透水性への影響に関する知見を拡充することを目的として、原鉱石を粉状に粉砕したものを締め固めることにより土粒子構造を再構成した試料(以降では、「再構成試料」と呼ぶ)に対しても上記の原鉱石と同様の試験を行い、土粒子間の固着が解放された状態である再構成試料の試験結果と、原鉱石の試験結果とを比較した。以下にその結果を示す。

#### (2) 対象とした原鉱石試料

月布のベントナイト鉱床は、新第三紀中新世後期(10 Ma 程度)の硬質頁岩中に互層状に夾在 する火山ガラス質の凝灰岩が続成的に変質したものであるとされ、30 を超える層のベントナイト 層が確認されている(小林・伊藤, 1992)。ここでは、モンモリロナイト含有率が異なる種々の原 鉱石を対象とするものとし、クニゲル V1の原料として使用される 29 番層と 31 番層から採取し た原鉱石と、クニゲル V1 よりモンモリロナイト含有率が小さいとされる1番層から採取した原 鉱石を試料として使用した。

## (3) 膨潤圧・透水試験用試料の加工方法

原鉱石の採取については、原鉱石内部の土粒子構造の変化をできるだけ抑えられるように、坑 道壁面から比較的大きなブロックとして採取し、試験開始直前に供試体サイズに加工することと した。採取したブロックからダイヤモンドビットを用いて直径 50 mm もしくは 20 mm の円柱状 にコア抜きし、ハンドソーを用いて 10 mm 程度の高さになるように切断した。このようにして 得た試料の表面を、研磨機を用いて研磨して高さをそろえたものを供試体とした。また、再構成 試料については、粉砕機を用いて、粒径が 63 µm アンダーが 90%となるように原鉱石を微細に 粉砕し、元の原鉱石と同等の乾燥密度まで締め固めることにより作製した。膨潤圧・透水試験に 用いた供試体のリストと透水試験の通水方向を表 2.3・1 にまとめる。

供試体 No.	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16
番層	29	29	29	29	31	31	31	1	1	1	31	31	31	31	31	31
種類					再構成	訪料							原	鉱石		
乾燥密度 (Mg/m³)	1.61	1.60	1.62	1.62	1.73	1.74	1.75	1.72	1.71	1.68	1.73	1.86	1.80	1.89	1.89	1.89
MB吸着量 (mmol/100g)	54	52	54	53	78	77	76	42	42	42	72	61	72	58	59	65
モンモリロナ イト含有率 (%)	36	34.7	36	35.3	52	51.3	50.7	28	28	28	48	40.7	48	38.7	39.3	43.3
土粒子密度 (Mg/m <sup>3</sup> )	2.54	2.54	2.54	2.54	2.66	2.66	2.66	2.52	2.52	2.52	2.66	2.66	2.66	2.66	2.66	2.66
通水方向												層に水平			層に垂直	
備考	・土粒・	土粒子密度は使用した原鉱石の代表値を使用した。														

表 2.3-1 供試体リスト

## (4) 膨潤圧・透水試験方法

膨潤圧試験と透水試験の試験装置の概略図を図 2.3-6 に示す。本研究では、同一の試料及び試 験機を用いて、膨潤圧試験終了後、透水試験を連続的に行った。ベントナイトなどの低透水性材 料に対しては、コンプレッサーなどの圧縮空気圧を利用した定水位型の透水試験装置が用いられ る(例えば、菊池ほか, 2005)ため、本研究においても同様の手法を採用した。



図 2.3-6 膨潤圧試験と透水試験装置の概略図

## (5) 膨潤圧·透水試験結果

得られた膨潤圧・透水試験結果を表 2.3・2 にまとめる。31 番層の原鉱石のうち、供試体 No.14 ~16 は、透水試験を1 年程度かけて実施したが、通水量がほとんどなく、透水係数を取得することができなかった。これは、供試体 No.14~16 は乾燥密度及びモンモリロナイト含有率が高いため、透水係数が他の供試体と比較して小さく、また、供試体の直径を 20 mm として試験を実施したため、通水量がごく微量となってしまったことが原因と考えられる。そのため、今後 31 番層の原鉱石の透水試験を実施する際は、供試体の直径を大きくすることなどにより(例えば 50 mm)、限られた時間で測定可能な通水量に増やす必要がある。

一般に、ベントナイトの膨潤圧と透水係数は、その乾燥密度やモンモリロナイト含有率に依存 する。そのため、表 2.3・2 に示した値と有効モンモリロナイト密度(単位体積あたりに含まれる モンモリロナイトの乾燥重量を、モンモリロナイト以外の土粒子の体積を除いた体積で割ること により得られる密度)との相関性を分析した。有効モンモリロナイト密度に対して膨潤圧を整理 した結果を図 2.3・7 に示す。図中には、昨年度までに取得した1番層と29番層の原鉱石の膨潤圧 (日本原子力研究開発機構, 2018b)と、圧縮ベントナイトの膨潤圧試験結果をもとに提案されて いる経験式(菊池ほか, 2005)、及び、それにより求められる膨潤圧の値を0.1倍及び3倍した曲 線も示している。再構成試料の膨潤圧は、圧縮ベントナイトに対して取得されてきた経験式と同 等の値を示すが、一部の原鉱石の膨潤圧は経験式よりも小さくなる傾向があり、有効モンモリロ ナイト密度が大きくなれば、その傾向が顕著になっている。

既往の研究(伊藤ほか,2017)においても、原鉱石の膨潤圧は再構成試料よりも1桁程度小さいとの結果が得られている。また、再構成試料の膨潤圧については、有効モンモリロナイト密度と正の相関性を示すが、原鉱石の膨潤圧については、有効モンモリロナイト密度によらずほぼ一定の膨潤圧を示すとされており、本研究の傾向と整合的である。伊藤ほか(2017)は、この理由として、原鉱石ではセメンテーション物質が土粒子同士を接着しており、このセメンテーション

物質の存在によって、流入する水とモンモリロナイトの接触が制限されたことでモンモリロナイトの膨潤が抑制された可能性が考えられるとしている。また、この水とモンモリロナイトの接触の制限により、供試体内のモンモリロナイト含有量によらず膨潤圧は低く留まる可能性があると 考察している。

今後は、セメンテーションによる微視的な状態の変化を把握することを目的として、電子顕微 鏡による表面状態の観察などを行うとともに、これによる観察結果と膨潤圧試験の結果との相関 関係を分析して、セメンテーションが膨潤圧に及ぼす影響のメカニズムを理解するための知見を 拡充していくことが重要である。

供試体 No.	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16
番層	29	29	29	29	31	31	31	1	1	1	31	31	31	31	31	31
種類	再構成試料							原鉱石								
膨潤圧 (MPa)	1.63	1.59	1.15	1.28	5.72	6.86	6.75	0.70	0.67	0.77	0.77	0.28	0.97	0.67	0.75	1.01
透水係 数 (m/s)	3.55 E-13	3.75 E-13	4.71 E-13	4.55 E-13	5.40 E-14	3.77 E-14	5.77 E-14	9.97 E-13	1.06 E-12	9.31 E-13	4.28 E-14	2.93 E-14	3.93 E-14			

表 2.3-2 試験結果



図 2.3-7 膨潤圧-有効モンモリロナイト密度関係

図 2.3-8 に透水係数を有効モンモリロナイト密度で整理した結果を示す。図中には、先行事業 で取得した1番層・29番層の原鉱石の透水係数(日本原子力研究開発機構, 2018b)と、圧縮ベ ントナイトの透水試験結果をもとに提案されている経験式(菊池ほか, 2005)も示している。再 構成試料及び原鉱石の透水係数は、圧縮ベントナイトに対して取得されてきた関係式と同等の値 を示していることがわかる。



図 2.3-8 透水係数-有効モンモリロナイト密度関係

## (6) 成果と今後の課題

緩衝材の基本特性に対するセメンテーションによる影響を評価する取り組みの一環として、圧 縮ベントナイトに対して実施されてきた既往の膨潤圧試験/透水試験の手法を用いて、山形県月 布のベントナイト鉱床の原鉱石及びその再構成試料の膨潤圧と透水係数を測定した。その結果、 原鉱石の膨潤圧は、圧縮ベントナイトよりも小さくなる傾向が見られた。このことから、セメン テーションの影響により膨潤圧が低くなる可能性が示唆された。一方、原鉱石の透水係数は、圧 縮ベントナイトと同等の値を示す結果となった。

今後、微視的な観察などを行い、セメンテーションと膨潤圧との関係に係るデータの取得を進 めていく。また、透水係数の測定においては、31 番層の原鉱石の一部の試料で透水係数が取得で きなかったため、供試体の断面積を増やして再試験を実施することなどにより、試験データを拡 充する。さらに、ベントナイトの応力緩衝性などの力学的特性に与えるセメンテーションの影響 についてはこれまで検討されていないことから、セメンテーションが力学的特性に与える影響を 検討するため、緩衝材の長期力学挙動評価において特に重要な圧密による変形特性に着目し、標 準圧密試験を実施していく予定である。また、このような物理的な特性の変遷だけでなく、セメ ンテーションに伴う鉱物や間隙水などの化学的変遷に関する既往の知見について、情報の収集を 行うことが重要である。

## 2.3.3 地下水・河川水と接触したベントナイトのナチュラルアナログ研究

#### (1) 背景と目的

ニアフィールドの状態変遷のうち、緩衝材の変質状態の時間的・空間的な拡がりや変質の程度 などを設定するには、イオン交換・変質に関する知見とそれに基づくモデルが必要であるが、こ れまでに構築されてきたモデルには、緩衝材におけるこれらの現象を表現するうえで不十分な点 があると考えられる。例えば、モンモリロナイトを含むベントナイトの原鉱石(ベントナイト鉱 山から採取した鉱石)は、処分場に設置される緩衝材が温度・圧力・化学条件にさらされること で生じる変質を想定したナチュラルアナログと考えることができるが、既存のモデルではその鉱 物組成やモンモリロナイトの層間陽イオン組成を十分に説明することはできない。 緩衝材の現実的な変質の時間・空間的な広がりや程度を把握するうえで、これまでに構築され てきた評価モデルでは十分に表現できない点として、モンモリロナイトの層間陽イオン組成が鉱 物の安定性に及ぼす影響が考慮されていないことが挙げられる。緩衝材中のモンモリロナイトの 層間陽イオン組成は、地下水などとの反応により変化し、非膨潤性鉱物などの二次鉱物への変質 のしやすさ、すなわちモンモリロナイトの安定性に影響を与える可能性がある。ベントナイト原 鉱石などのナチュラルアナログを含む実際の現象を再現するには、層間陽イオン組成がモンモリ ロナイトの安定性に与える影響を詳細に評価し、モデルに反映することが必要である。また、既 存のモデルでは、陽イオン交換反応の評価に分散系で取得されたイオン交換係数を用いているが、 分散系と圧密系の陽イオン交換反応に違いがある場合、圧密系である緩衝材中の陽イオン交換反 応を表現できないことになる。ベントナイト原鉱石などのナチュラルアナログを対象に、ベント ナイト-水相互作用解析を行い、既存の陽イオン交換反応評価の妥当性を確認する必要がある。

平成 30 年度は、層間陽イオン組成がモンモリロナイトの安定性に与える影響の評価に資する ため、バッチ実験によりモンモリロナイトの変質データを取得するとともに、分子動力学計算に より陽イオンースメクタイト構造-水分子相互作用の現象理解を進めた。また、既存の陽イオン交 換反応評価の妥当性を確認するため、長期にわたって地下水や河川水と接触したベントナイト原 鉱石を対象に、ベントナイト-河川水・地下水相互作用解析を実施した。

## (2) 粘土鉱物の層間陽イオンが水和・変質に与える影響に関する実験的・理論的検討

緩衝材に含まれるベントナイト中のモンモリロナイトの層間陽イオンは大部分が Na または Ca である。処分環境では、モンモリロナイトは地下水との反応により陽イオンの組成を変化さ せ、温度や pH の影響により、イライトなどの粘土鉱物や沸石などの他の二次鉱物に変質する可 能性がある。本項では、各種陽イオン型に交換したモンモリロナイトを加速変質試験に供し、層 間陽イオンの違いが変質に与える影響を X 線回折法 (XRD) によって評価し、変質に伴う層電荷 変化に関するデータを取得した。さらに、モンモリロナイト中の陽イオン組成及び層電荷の大き さが水和に与える影響を評価するため、スメクタイト構造の四面体シートの同型置換 (Si→Al) と八面体シートの同型置換 (Al→Mg) により安定構造となる複数の層電荷のスメクタイト構造を 設定の上、分子動力学計算を行った。

#### ① モンモリロナイトの加速変質試験による変質評価

変質に伴う層電荷変化を評価することを目的に、Na型やCa型と比べ、水和しづらくかつ変質 しやすい傾向のあるNH4型、K型モンモリロナイトを対象とした加速変質試験を実施した。クニ ピア®F(山形県月布産)をそれぞれNH4型、K型へ交換した試料を試験に用いた(以下、それぞ れNH4型クニピア®F、K型クニピア®Fと表記する)。NH4、Kへの交換割合はそれぞれ90%以 上であることを浸出陽イオン(LC)測定により確認した。これらの粘土試料を表 2.3・3 に示した 条件でテフロン容器内にて変質させた。一般に、スメクタイトのイライト化では、層電荷が増加 することが知られている(Sato et al., 1996)。そこで、本研究で変質試験を行った試料に対して、 アルキルアンモニウム法により層電荷の推定を行った。実験はLagaly(1994)に則って行い、炭 素鎖長 12 (nC=12; C12H25NH2)及び炭素鎖長 18 (nC=18;C18H37NH2)のアルキルアンモニウ ムで層間陽イオンを交換した試料のXRD分析(図 2.3・9)から得た底面間隔(doon)より、Olis et al. (1990)の手法を用いて層電荷を算出した(表 2.3・4)。nC=12で行った試験の結果、K型 では層電荷が変質試験前の0.313(esu.;doo1=15.852)から変質試験後には0.33(esu;doo1=16.833) へ増加していることが確認できた。また、NH4型は変質試験前が0.313(esu;doo1=15.852)、変質 試験後が0.324(esu:doo1=16.215)であり、層電荷がほぼ変化しておらず、K型と比較して変質 が進んでいないことが確認できた。nC=18 においても同様な結果が得られた。また AFM 観察の 結果、変質試験前と比較して変質試験後では 4 nm 以上の高さの粒子頻度が増加しており、変質 による積層数の増加が確認された。K型のほうが NH4型と比較して積層数の多い頻度プロファ イルを示しており、K型と比較して NH4型が変質しにくいことを支持する結果となった。これ は、Miklos and Cicel (1993)で実施された乾湿繰り返し試験の結果を支持するものと言え、層 電荷の違いがモンモリロナイト変質に重要な役割を果たすことを示している。

項目	条件						
粘土試料	NH4型クニピア®F,K型クニピア®F						
<b>沕</b> 海知己	0.5 mol/dm <sup>3</sup> 塩化アンモニウム水溶液 (NH4型クニピア®F に対して)						
俗似和风	0.5 mol/dm <sup>3</sup> 塩化カリウム水溶液 (K型クニピア®F に対して)						
液固比(mg/mL)	0.005 (粘土 500 mg / 溶液 100 mL)						
試験温度	$185^{\circ}\mathrm{C}$						
浸漬期間	2 ヵ月						

表 2.3-3 NH4型, K型クニピア<sup>®</sup>F を対象としたバッチ式高温変質試験条件



図 2.3-9 アルキルアンモニウム(アルキル鎖長(nC) 12 及び 18) 処理を施した 変質試験前後のモンモリロナイトの XRD 分析結果

	nC11	2	nC18		
	層電荷(esu)	d <sub>001</sub> (Å)	層電荷 (esu)	$d_{001}$ (Å)	
K型試験前(K-MMT)	0.313	15.852	0.301	18.506	
NH4型試験前(NH4-MMT)	0.313	15.852	0.298	18.410	
K 型試験後(K-MMT 2months)	0.343	16.833	0.347	20.082	
NH4型試験後(NH4-MMT 2months)	0.324	16.215	0.304	18.603	

表 2.3-4 アルキルアンモニウム法により推定される各試料の層電荷と底面間隔

## ② 分子動力学計算による異なる層電荷構造を持つスメクタイトの水和安定性評価

分子動力学計算を行う上で、層電荷の配置が層間陽イオン及び水分子の挙動に大きく影響する ことが考えられる。モンモリロナイトにおける層電荷の位置に起因する水和挙動の違いを確認す るため、粘土モデルにおいては均等に分布していると仮定されることの多い層電荷の発現位置を 検討した。

まず、図 2.3-10 に示す単位胞を a・b・c 軸方向に 2×2×1 配置したスメクタイト構造(計算セル1)の A もしくは B に八面体シートでの同型置換(Al→Mg)が少なくとも1つ存在し、四面体シートの同型置換(Si→Al)の位置を任意とした条件で、同型置換構造の MD 計算による構造緩和後のエンタルピーを比較した(図 2.3-11)。図 2.3-11 におけるプロットの集まりは、任意に置いた四面体シートの同型置換の各結果を示し、横軸は、A または B の位置に存在する八面体シート置換から最近接の八面体シート置換までの距離を示す。全体として、A の位置の八面体の同型置換が置かれた場合がより小さなポテンシャルエネルギー、つまり安定的な構造となることが確認された。

そこでAの位置に八面体同型置換位置を持つグループのうち、同じ八面体置換同士の距離を持 つ構造の中でエネルギー値が小さい構造に関してより大きな計算系(上述の単位胞モデルを a・ b・c 軸方向に 3×2×2 配置した構造モデル;計算セル 2)で計算を行った。その結果を表 2.3-5 に示した。八面体シート内の同型置換サイト間距離が異なるモデルにおいて、いずれの場合でも 八面体置換サイトと四面体置換サイトの間の距離が 4.377 Åの配置でエンタルピーが小さくなっ ていることが確認できる。この計算結果に関して構造モデルから詳細に検討したところ、八面体 置換サイトと四面体置換サイトの間の距離が 4.377 Åの構造では、各同型置換が比較的分散した 状態であることが確認された。また、各層間陽イオンの陽イオンに対して過不足なく同型置換サ イト由来の負電荷が供給されている場合で最も低いエンタルピー値を示すことが確認された。

以上より、粘土層内の同型置換サイトは分散して存在しており、特に層間陽イオンに対して過 不足なく存在していることが示唆された。前者は先行事業「処分システム評価確証技術開発」(日 本原子力研究開発機構, 2018)と同じ見解であるが、後者に関しては本研究で明らかとなった。 しかしながら本研究では層間陽イオン位置を仮定して計算を行ったため、層間陽イオンが異なる 配置であった際に同様な知見が適用できるか不明である。モンテカルロ法を用いて、層間陽イオ ンが様々な異なる配置を撮った場合にエンタルピーがどのように変化するのか今後検討する必要 がある。



図 2.3-10 安定性評価に用いたスメクタイト構造とその同型置換の位置



図 2.3-11 同型置換構造の MD 計算による構造緩和後のエンタルピー (単位胞を a・b・c 軸方向に 2×2×1 配置したスメクタイト構造について計算を実施)

	1								
酸素原子一位	固あたりの -(kJ/mol)	各同型置換サイト間の距離(Å)							
と標準偏差		01-02	01-T1	01-T2	O2-T1	O2-T2	T1-T2		
-2158.83	0.115	5.202	<u>4.377</u>	<u>4.377</u>	5.410	5.410	7.046		
-2158.82	0.113	5.202	3.148	5.410	4.475	<u>4.377</u>	5.569		
-2158.82	0.113	5.202	<u>4.377</u>	5.410	5.410	<u>4.377</u>	4.634		
-2158.81	0.116	5.202	3.148	<u>4.377</u>	4.475	5.410	7.693		
-2158.89	0.111	5.986	<u>4.377</u>	9.470	9.470	<u>4.377</u>	9.184		
-2158.87	0.117	5.986	<u>4.377</u>	<u>4.377</u>	9.470	9.470	7.046		
-2158.87	0.117	5.986	3.148	9.470	6.721	<u>4.377</u>	11.414		
-2158.84	0.114	5.986	3.148	<u>4.377</u>	6.721	9.470	7.693		
-2158.83	0.117	5.986	<u>4.377</u>	7.435	9.470	4.475	10.105		
-2158.88	0.116	6.002	<u>4.377</u>	4.475	4.475	<u>4.377</u>	5.569		
-2158.86	0.117	6.002	<u>4.377</u>	<u>4.377</u>	4.475	4.475	7.046		
-2158.83	0.115	6.002	3.148	<u>4.377</u>	5.410	4.475	7.693		
-2158.81	0.115	6.002	3.148	5.410	5.410	3.148	5.569		
-2158.81	0.115	6.002	3.148	4.475	5.410	<u>4.377</u>	4.634		
-2158.88	0.116	8.980	<u>4.377</u>	6.721	6.721	<u>4.377</u>	11.414		
-2158.86	0.115	8.980	<u>4.377</u>	<u>4.377</u>	6.721	6.721	7.046		
-2158.85	0.114	8.980	3.148	6.721	9.470	<u>4.377</u>	9.184		
-2158.85	0.117	8.980	3.148	9.470	9.470	3.148	11.414		
-2158.84	0.117	8.980	3.148	<u>4.377</u>	9.470	6.721	7.693		
-2158.79	0.116	10.378	<u>4.377</u>	7.435	7.435	<u>4.377</u>	10.105		
-2158.79	0.114	10.378	<u>4.377</u>	9.470	7.435	4.475	9.184		
-2158.79	0.115	10.378	<u>4.377</u>	4.475	7.435	9.470	5.569		
-2158.78	0.116	10.378	9.470	4.475	4.475	9.470	10.105		
-2158.78	0.116	10.378	3.148	9.470	9.990	4.475	11.414		
-2158.77	0.115	10.378	9.470	9.470	4.475	4.475	7.046		

## 表 2.3-5 同型置換構造の MD 計算による構造緩和後のエンタルピー計算結果 (各同型置換サイト間の距離は計算前の値)

 単位胞をa・b・c軸方向に2×2×1配置したスメクタイト構造のMD計算による構造緩和後のエンタルピー が低いケースについて、より大きな計算系(単位胞モデルをa・b・c軸方向に3×2×2配置した構造モデ ル)で計算を行った結果である。左欄にはエンタルピーと標準偏差を示している。

・ O1, O2は八面体シート内の同型置換サイト、T1, T2は四面体シート内の同型置換サイトを意味している。

・ 同じO1-O2距離のうち、最も低いエンタルピーを示した構造は網掛けで示した。

・ O-T距離が4.377Åである項目を太字, 下線で示した。

## (3) ナチュラルアナログ試料の陽イオン交換反応評価に向けた解析

本項では、既存の陽イオン交換反応評価の妥当性を確認するため、長期にわたって地下水と接触したベントナイト原鉱石の代表として青森県黒石鉱山の事例(石井ほか,1998)を対象として、ベントナイト-地下水相互作用解析を実施した。

## 1 解析方法

化学反応-物質輸送連成解析コード QPAC-JAEA (日本原 子力研究開発機構, 2013a)を用いてベントナイト・地下水相 互作用解析を行った。熱力学データベースとして JAEA-TDB v1.08 (日本原子力研究開発機構, 2018b)を用いた。

解析体系を図 2.3-12 に示す。黒石鉱山における鉛直方向 のボーリング(石井ほか,1998)を模擬した。帯水層となる 地下水面 5 m から深度 40 m までを対象とし、全長 35 m の 一次元解析体系とした。グリッドサイズは 1 m で一定間隔 とした。上端の境界条件は表層土壌水の濃度固定境界、下端 の境界条件は反射境界とした。

ベントナイト層の初期鉱物割合は石英 58%、モンモリロ ナイト 41%、方解石 1%とした。表層土壌水組成及びベント ナイト層の初期間隙水組成は既存の設定(大江ほか, 1999) と同様とした。計算時間は 100 万年、温度は 25°C とした。

鉱物溶解沈殿速度、物質輸送パラメータ、イオン交換選択 係数については既存の設定(日本原子力研究開発機構, 2018b)と同様とした。物質輸送は拡散のみを考慮し、実効 拡散係数 *D*。は以下の式で与えた。

$$D_{\rm e} = 2.27 \times 10^{-9} \times \theta^{\rm n} \ [{\rm m}^2/{\rm s}] \tag{2.3-1}$$

$$n = 2.22 \times f_{\rm s}^{0.13} + 1 \tag{2.3-2}$$

ここで、θはベントナイトの間隙率、f<sub>6</sub>はベントナイト中の モンモリロナイト含有割合である。モンモリロナイトのイ オン交換選択係数を表 2.3-6 に示す。



図 2.3-12 解析体系

表 2.3-6 モンモリロナイトのイオン交換選択係数(日本原子力研究開発機構, 2018b)

	logK (Gaines-Thomas)
2ZNa-Z <sub>2</sub> Ca	0.69
ZNa-ZK	0.42
2ZNa-Z <sub>2</sub> Mg	0.67

#### 2 解析結果

解析結果とボーリングによる実測値の比較を図 2.3-13 に示す。解析は帯水層となる地下水面 5 m から深度 40 m までが対象である。初期状態では Na 型の割合が多いが、地下水面に近づくに つれ Na 型が減少して Ca 型が増加している。この傾向は実測と一致していたが、定量的な再現 までには至らなかった。また、解析では地下水面付近の Mg 型や K型の増加傾向を再現すること はできなかった。この Na 型減少と Ca 型増加は、イオン交換反応でモンモリロナイトが Na 型 から Ca 型へ変化したためと推測される。そこで、Ca 供給源として方解石が寄与しうるのかを確

認するために方解石の溶解反応を含めずに計算を行ったところ、イオン型分布の変化は地下水面 のごく近傍に限られていた(図 2.3-14)。したがって、図 2.3-13の解析結果における深度 20~25 m より上側の Na 型減少と Ca 型増加は、方解石が溶解することで液相に Ca が供給され、イオ ン交換反応によって Na 型モンモリロナイトが Ca 型に変化したために生じたと考えられ、黒石 鉱山における鉛直方向のイオン型分布の変化は方解石の溶解が寄与していたことを示唆する。



図 2.3-13 モンモリロナイトの各イオン型の深度方向分布。プロットは実測値(石井ほか, 1998)、ラインは解析結果(方解石の溶解反応を含む)



図 2.3-14 モンモリロナイトの各イオン型の深度方向分布。プロットは実測値(石井ほか, 1998)、ラインは解析結果(方解石の溶解反応を含まない)

## (4) 成果と今後の課題

粘土鉱物の層間陽イオンが水和・変質に与える影響に関する実験的・理論的検討として、変質 に伴う層電荷変化を評価することを目的に、Na型やCa型と比べ、水和しづらくかつ変質しやす い傾向のあるNH4型、K型モンモリロナイトを対象とした加速変質試験を実施した。その結果、 NH4型モンモリロナイトは K 型モンモリロナイトに比べて、変質試験前後での層電荷が小さい ことを確認した。また、分子動力学シミュレーションを用い、層電荷の発現位置とスメクタイト 構造の安定性の関係について評価を行った。その結果、八面体シート内の同型置換サイト間の距 離が異なる場合、エンタルピー値が異なる、すなわちスメクタイト構造の安定性が異なることが 示唆された。

ナチュラルアナログ試料の陽イオン交換反応評価に向けた解析として、長期にわたって地下水 と接触したベントナイトである青森県黒石鉱山の事例を対象とし、ベントナイト-地下水相互作 用解析を実施した。その結果、モンモリロナイトの鉛直方向のイオン型分布について、Caの供給 源として方解石の溶解を仮定した条件での解析結果がボーリングによる実測値と一致し、黒石鉱 山における鉛直方向のイオン型分布には方解石の溶解が寄与していたことが示唆された。

今年度、層間陽イオン組成の違いが層電荷の違い,すなわち変質のしやすさに影響を及ぼすこ とを実験的に確認することができた。地下水や他の人工バリア材との反応により緩衝材を構成す るモンモリロナイトの層間陽イオンが、例えば Mg や K に変化し、その後他の鉱物に変質する可 能性が考えられるが、現状の解析においてはイオン交換に伴う層電荷の変化の効果は考慮されて いない。また、このような変質は実験では観察が困難な時間スケールで生じうることから,層間 陽イオン種と変質の程度の関係について、ナチュラルアナログを対象とした研究が必要である。

#### 2.3.4 緩衝材挙動に関するナノスケールシミュレーションモデルの構築

#### (1) 背景と目的

本項では、緩衝材の膨潤や透水性などのHM連成挙動などに関するデータの取得のアプローチの検討として、ナノスケールのシミュレーションモデルの構築を試みる。

ここで、緩衝材の処分環境における長期的な物理・化学的挙動を予測するには、緩衝材を構成 する膨潤性粘土鉱物と間隙水分の相互作用について理解し、粘土含水系が所定の温度、圧力下で どのような組織構造をとるかを知る必要がある。粘土鉱物は非常に微細かつ扁平なナノスケール の結晶であり、粘土鉱物間の間隙も同程度に小さく複雑な形状をしていると考えられている。し かしながら、鉱物の変形と配置、間隙構造を、顕微鏡下で直接観察することは難しく、粘土含水 系のとるナノからマイクロメートルオーダーの組織構造を明らかにするためには、理論的、数値 解析的な研究が必要となる。粘土鉱物と水和水分の相互作用や、積層した粘土鉱物間隙部におけ る物質拡散や収着については、量子化学計算や分子動力学計算の方法を用いた原子から分子スケ ールでの研究が活発に行われてきた。一方、緩衝材スケールでの変形や物質輸送は、連続体ベー スのモデル化に基づき有限要素法などの数値解析手法を用いてモデル化やシミュレーションが行 われることが一般的であり、原子や分子レベルでのモデルとのスケール差は非常に大きい。その ため、原子や分子スケールで得られた粘土含水系に関する知見を、時空間的なスケールギャップ を考慮せずそのまま連続体スケールに当てはめることは、両者の関係についての現象論的な説明 がつけづらく、また、評価の不整合や誤差の原因となる可能性もあることから、両者の中間スケ ール(メソスケール)におけるシミュレーションモデルを構築し、ナノスケールの微視的な物性 がメートルスケールのマクロ挙動にどのように発現するかを調べる方法が必要となる。

このことを踏まえて、先行事業(日本原子力研究開発機構,2018a)においては、ナノからマイ クロメートルオーダーでの粘土含水系の挙動を調べるためのシミュレーションモデルとして、二 次元の粗視化メソスケール分子動力学(以下、「粗視化メソ MD」とする)モデルとそのシミュレ ーションプログラムの開発を行ってきた。粗視化メソ MD は、多体粒子の運動を解く分子動力学 (MD)シミュレーションの方法であるが、水和粘土分子の単位構造を粗視化し一つの粒子(粗 視化粒子)で表現することで解くべき多体粒子系の自由度を削減し、通常の MD よりも大きな時 間的・空間的スケールの計算を行うことを目指したものである。これにより、多数の水和粘土鉱物が凝集、圧縮される過程や、凝集系が外力によって変形する挙動を調べることができる。先行 事業(日本原子力研究開発機構, 2018a)で開発してきた二次元の粗視化メソ MD シミュレーシ ョンプログラムでは、水和粘土の単位構造(粗視化粒子)の持つ水分量は一定であるとの仮定の もとでモデル化と計算を行っていた。これは、粘土含水系に水分が均一に分布し、系が平衡状態 にある場合にのみ有効な仮定である。したがって、系外から水分が供給される場合や初期水分分 布に偏りがある場合など、非平衡状態にある系の水分分布や応力状態の緩和挙動を調べる場合に はそのような仮定は成り立たない。

そこで本項目では、粘土含水系における水分移動を考慮することのできる粗視化メソ MD モデ ルの構築を目的とする。このようなモデルの構築は、不飽和状態での粘土含水系の挙動、例えば、 水分の浸透に伴う膨潤応力や膨潤ひずみの発生、それらによる粘土含水系の組織構造の変化、さ らには水分の浸透挙動への影響などを含む、水分浸透と化学-力学現象である膨潤挙動が連成し た複雑な問題に取り組んでいくための基盤技術となると考えられ、緩衝材設計と性能評価手法を 高度化する上で有用な知見を与えることにつながることが期待される。

## (2) 実施内容

本年度は、粘土含水系における水分移動を、粗視化粒子のもつ水和水分の量が時空間的に変動 することを許容した粗視化メソ MD モデルで表現することを試みた。具体的には、先行事業(日 本原子力研究開発機構, 2018a)で開発した二次元の粗視化メソ MD シミュレーションプログラ ムに対して、以下のような方法で水分移動を考慮する機能を取り込んだ。

- 不均一な水和水分布を表現するために、異方的なLenard-Jones型分子間力ポテンシャルを 開発することで、粘土分子の表裏面を区別するとともに、位置によって異なる水和水の分 布を考慮することを可能とした。
- 粗視化メソMDにおいて水分移動を考慮する方法として、水分分布の変化に伴うポテンシャルエネルギーの増減を基準として利用する方法を取り込んだ。この方法では、粘土分子の集合状態や層間の膨潤状態(水分量の多寡)、液相表面の形状の影響を考慮して水分の移動を評価することができる。ただし、本年度は、このような水分移動に影響する因子のうち、粘土分子の相互作用エネルギーEuに起因した水分移動のみを対象とした。

以上の方法で水分移動をシミュレーションする機能を実装し、粘土含水系の圧縮凝集シミュレ ーションを行い、水分移動を「考慮する場合」と「考慮しない場合」との比較、あるいは初期水 分状態が「均一な場合」と「不均一な場合」との比較を行った(図 2.3・15)。その結果、水分移動 を考慮しない場合には、粘土層間に微細な気泡が残ること、また、積層構造が発達し、その周辺 に比較的大きな間隙が形成されることが分かった。一方、水分移動を考慮する場合には、粘土層 間の微細な気泡はほとんどなく、また、粘土分子は積層しながら屈曲し、積層構造外の間隙が大 きくなりにくくなる傾向がみられた。なお、初期水分状態が不均一な場合(水分分布に偏りがあ る場合)には、空隙部の連結性が若干悪くなる傾向がみられた。現実には、粘土層間の小さな気 泡は、水分子の運動や粘土分子の接近によって消失すると考えられ、また、粘土が凝集した結果 として変形抵抗をもつためには、ある程度粘土分子の絡み合いが圧縮の途上で生じていると考え られることから、水分移動を考慮する場合のシミュレーションの傾向と整合していると考えられ る。これらの知見は、粘土含水系の現実的な組織構造を再現するためには、水分の移動を考慮す ることが必要であることを示唆していると考えられる。



図 2.3-15 粘土含水系モデルを等方的に圧縮したときの挙動のシミュレーション例

## (3) 成果と今後の課題

本年度は、粘土含水系の微視的多孔質構造を考慮した変形挙動の解析をひずみ及び応力制御下 において実施することを目的として先行事業で開発してきた二次元の粗視化 MD シミュレーシ ョンプログラムについて、系外から水分が供給される場合や初期水分分布に偏りがある場合など、 非平衡状態にある系の水分分布や応力状態の緩和挙動を調べることができるように、粘土含水系 における水分移動を考慮することを可能とする機能の拡張などを行った。本年度実装した水分移 動をシミュレーションする機能では、水分移動に関して、粘土分子間の相互作用エネルギーEuの みを考慮している。より現実的な組織構造モデルを得るためには、粘土分子と水分子の相互作用 エネルギーEH20や、液相の界面自由エネルギーEsurf も考慮してシミュレーションを行えるよう にしていくことが今後の課題となる。そのためには、EH20や Esurfを、分子動力学(MD)計算を 用いて定量的に求める必要がある。また、水分移動の頻度や量を、物理化学的な根拠をもって定 量的に与えることも分子動力学計算を援用して取り組むべき重要な課題のひとつと言える。例え ば、粗視化 MD の計算時間ステップあたりにどれだけの水分が移動しうるかといった条件は、粘 土層間水の局所的な拡散係数や粘性係数の値と整合的でなければならない。MD 計算は、これら 局所的な物性値を求め、水分子の水和や拡散挙動を詳しく観察することができるため、MD 計算 の結果を援用することで、粗視化 MD における水分移動を制御するパラメータを合理的に決定で きる可能性がある。最後に、粘土含水系モデルとシミュレーション結果の妥当性を検証するには、 弾性係数や電気化学インピーダンスをはじめとする、実験で観測できるマクロ物性値との比較を 行うことも重要である。このようなマクロ物性値には間隙や積層構造が影響すると考えられるこ とから、粗視化メソ MD モデルに外部から応力や電場を作用させたときの弾性係数や電気化学イ ンピーダンスの応答をみることで、それらマクロ物性値をメソスケールの組織構造の特徴を考慮 して予想できるようになることが期待できる。

## 2.4 ニアフィールド THMC 連成挙動

ニアフィールドはオーバーパック、緩衝材、セメント系材料などの人工バリアと、人工バリア の設置により影響を受けると考えられる人工バリア近傍の岩盤など複数の材料から構成されてお り、それらの劣化・変質や材料間の相互作用などにより環境条件は時間とともに変化し、バリア 構成要素の安全機能や核種移行挙動に影響を与える可能性がある。そのため、人工バリアの長期 挙動評価や環境変遷を評価する技術の開発とその評価の妥当性確認が重要となる。ここでは、こ れまで開発されてきた過渡期のニアフィールドの THMC 連成挙動に関する現象解析モデルの妥 当性確認を目的として、原位置試験を対象とする検証解析を実施した。また、これまで開発され てきた化学及び物質輸送と連携して処分施設の長期的な力学挙動を評価することが可能な長期力 学挙動解析コードに対して、過渡期の緩衝材の力学挙動を評価できるように拡張を行った。以下 にその検討結果を示す。

### 2.4.1 過渡期の THMC 連成挙動に関する現象解析モデル開発

#### (1) 背景と目的

高レベル放射性廃棄物の安全評価における核種移行の初期状態の設定や、オーバーパックの腐 食寿命評価に必要となるニアフィールド環境条件に関する情報の提供を目的とし、人工バリアを 設置した時点から緩衝材が飽和に至るまでの過渡的な期間に生じる熱的作用(熱輸送、熱膨張)、 水理的作用(地下水浸透、温度勾配による水分移動)、力学的作用(応力変形、膨潤圧の発生)及 び化学的作用(物質移行、ガスの発生と消費、間隙水の濃縮希釈、鉱物の溶解沈殿など)が相互 に影響を及ぼし合いながら形成される環境を評価するための熱-水-応力-化学(THMC)連成解 析コード(以下、Couplys という)の開発が進められてきた(日本原子力研究開発機構, 2008; 2009; 2010; 2011; 2012a; 2013a; 2014a; 2015a)。

Couplysにより、第2次取りまとめで示された人工バリア仕様(核燃料サイクル開発機構,1999a) を対象とした事例解析を実施し、ガラス固化体の放熱と人工バリア内への地下水の浸潤に伴うニ アフィールドの化学的な環境の変化について定量的な評価が可能であることが示された。そして、 このような数値実験的アプローチが過渡期のニアフィールドで生じる複合的なプロセスを理解す る上で有効な手法であることが確認された(日本原子力研究開発機構,2016a;2017)。

その後、Couplysの高度化を目指して、Couplysのシステムに組み込まれている、熱と水及び 応力変形間の連成問題を扱う解析コード(以下、THAMES という)について、緩衝材の膨潤に よって生じる可能性のある密度変化にともなう熱特性、水理特性及び力学特性の変化を反映でき るように改良された(日本原子力研究開発機構,2017)。この改良されたTHAMESコードを用い て、日本原子力研究開発機構が幌延深地層研究計画において実施している人工バリア性能確認試 験を対象とした熱-水-応力連成挙動の再現解析を行うことにより、モデルの適切性が確認された (日本原子力研究開発機構,2018a)。そして、ニアフィールドの長期挙動に関する事例解析を行 い、緩衝材が埋戻し材側へ膨出して緩衝材の密度が低下する挙動を定量的に明らかにした。この 結果の分析などを通じて、この評価技術によって安全評価における核種移行の初期条件として必 要となる緩衝材の密度分布に関する情報の提供が可能であることが示された(日本原子力研究開

#### 発機構, 2018a)。

上述した幌延深地層研究計画における人工バリア性能確認試験を対象とした解析評価は、2015 年1月15日に廃棄体を模擬したヒーターの加熱と緩衝材及び埋戻し材の浸潤を促進するための 加圧注水を開始してから440日後までのデータを対象としているが、その期間では緩衝材や埋戻 し材は飽和に至っておらず、水分や応力変形などに関わる計測値は変動中である(中山ほか、 2015)。緩衝材が飽和に至るまでの過渡的な期間を対象とする連成解析モデルの適切性の確認の ためには、緩衝材が飽和して応力や変形などが定常状態となるまでを対象とする必要がある。ま た、幌延での原位置試験は、廃棄体堅置き方式の人工バリア仕様であり、緩衝材には国産のベン トナイトが用いられているが、ニアフィールドの長期挙動評価に柔軟に対応していくためには、 廃棄体横置き方式や、異なるベントナイトに対しても適用できる解析モデルの構築が必要不可欠 である。他方、幌延深地層研究所がある地域の地下水は、起源が過去の海水と考えられる海水系 地下水であるが、塩分を含んだ地下水が緩衝材の浸潤挙動に及ぼす影響を把握することや、それ によって生じる熱や応力との相互作用を適切に評価することが必要である。さらに、緩衝材間隙 水中の溶存酸素などの化学成分やその酸化電位は、放射性核種の溶解度や、金属の腐食形態及び 腐食速度といったオーバーパックの腐食挙動に影響を及ぼすことが知られており(例えば、核燃 料サイクル開発機構,1999a)、間隙水組成などの地球化学に関わる実験データとの比較を通じて 連成解析モデルの妥当性を確認していくことも重要な課題となっている。

このようなことから、本事業では、これまでに開発した連成解析モデルを、豊富な計測データ が得られている FEBEX (Full scale Engineered Barriers Experiment) プロジェクトにおける 原位置試験(ENRESA, 2000)に適用し、より長期の評価を通じて THM 連成解析モデルの検証 を行うとともに、廃棄体横置き方式や国産とは異なるベントナイトに対しても有効であるかどう かの確認を行う。また、ニアフィールドにおける緩衝材の間隙水組成など地球化学を含む連成現 象の評価として、幌延深地層研究計画において実施しているオーバーパック腐食試験(中山, 2018) を対象とした THMC 連成解析を実施する。そして、原位置試験によって計測されている緩衝材 の間隙水の pH や酸化還元電位、さらには、サンプリング試料の鉱物分析結果などの化学的なデ ータを活用し、海水系地下水環境下における緩衝材の間隙水組成に重きを置いた連成解析モデル の適切性の確認を行うとともに、オーバーパックの腐食挙動評価に必要となるニアフィールド環 境条件として、過渡期における緩衝材の間隙水組成などの情報を提示する。さらに、原位置試験 におけるサンプリング試料の分析結果から得られる緩衝材の変質や二次鉱物の生成などの知見に 基づき、THMC 連成モデルへの反映を視野に入れた検討を実施する。

以上の事業計画から、平成 30 年度は、FEBEX プロジェクトにおける原位置試験(ENRESA, 2000)における、緩衝材を設置してから2台のヒーターの加熱を開始するまでの135日間、2台のヒーターを加熱した5年間、その後、1台のヒーターを停止させ140日間の冷却期間を含めた計2,100日を解析評価の対象とした。また、オーバーパック腐食試験(中山, 2018)を対象とした THMC 連成解析の事前検討として、海水系地下水環境下での緩衝材の浸潤挙動を把握することを目的に、塩水の浸潤試験を想定した予察解析を実施した。その実施内容と成果を事項に示す。

#### (2) 原位置試験に基づく THM 連成解析モデルの信頼性の確認

#### 1) 概要と目的

FEBEX プロジェクトは、スイスのグリムゼル試験場において実施され、スペインの結晶質岩 における処分形態に従い、廃棄体を模擬したヒーターを収納した炭素鋼製のキャニスターを坑道 内に水平に設置した、廃棄体横置き方式の人工バリアの仕様を対象としている。1997年2月27 日に廃棄体を模擬した2台のヒーターによる加熱を開始し、5年後の2002年2月28日に、その うちの1台のヒーターを停止している。そして、停止したヒーターを内蔵しているキャニスター 及びその周囲の緩衝材を取り出して緩衝材の密度や水分量などの測定を行っている。その後も、 1台のヒーターの加熱を行い、試験開始から18年後まで試験を継続している(ENRESA, 2000)。

本事業においては、ニアフィールドの長期挙動評価に柔軟に対応できる THM 連成解析モデル の構築を視野に入れ、廃棄体横置き仕様の原位置試験を対象として、より長期の評価を通じて連 成解析モデルの適切性を確認する予定である。本年度は、解析パラメータの設定及びこれまで解 析評価事例の少ないヒーター停止後の温度環境の変化にともなう連成挙動を把握することを目的 として、緩衝材を設置してから2台のヒーターの加熱を開始するまでの135日間、2台のヒータ ーを加熱した5年間、その後、1台のヒーターを停止させ140日間の冷却期間を含めた計2,100 日を解析評価の対象とした。

### 2) 解析条件

本解析に用いる THAMES は、移流拡散による熱移動、飽和-不飽和浸透流に基づく地下水移 動、それに、緩衝材の膨潤変形を考慮した力学挙動を連成させた熱-水-応力連成解析コードであ る。これまでに、国際共同研究などを通じた他の解析コードとの比較検証や、原位置試験の評価 を通じて解析コードとしての妥当性を示すデータが蓄積されてきている(例えば、千々松ほか, 2000; Rutqvist, 2005)。

本解析では、図 2.4-1 に示すように岩盤、緩衝材、コンクリートプラグ、廃棄体を模擬したヒ ーター及びこれを内蔵したキャニスターを、原位置試験の形状から坑道を中心に左右対称とみな して、1/2 の体系で、節点数 45,921、要素数 39,808 の有限要素でモデル化した。解析領域につい ては、人工バリアの鉛直上下(z 方向)及び水平円周方向(y 方向)について、温度に対して境界 の影響が生じない距離として 25 m を確保した。



図 2.4-1 FEBEX プロジェクトにおける原位置試験の解析モデル概要図

熱的境界条件として、モデル z 軸に沿って上下両端面、x 軸に沿って左右両端面及び y 軸の端 面は、初期温度(12°C)での固定境界、y 軸の端面は断熱境界とした。水理的境界条件として、 モデル上下両端面は、初期圧力水頭での固定境界(全水頭 80 mH<sub>2</sub>O)、モデル前面は不透水境界 とした。また、岩盤中の初期水圧は、坑道掘削による地下水位の低下を考慮し、人工バリアを設 置する前の坑道壁面の圧力水頭を 0 mH<sub>2</sub>O とした坑道からの排水を想定した定常解析の結果に基 づき設定した。力学的境界条件は、岩盤の節点変位を固定とし、それ以外の節点について、モデ ル前面は y 方向変位固定、モデル左右両端面は、y 及び z 方向に対してスライド境界とした。初 期温度は全領域で 12°C とした。そして、キャニスターの表面温度が、計測によって得られてい る温度と同じように推移させるために必要な発熱量をヒーターに相当する構成要素に与えた。岩 盤中には、透水係数が周辺より 1 オーダー程度大きい数 m の幅を持つ Lamprophyre dykes と呼 ばれるゾーンが存在するが (ENRESA, 2000)、これが、緩衝材の浸潤挙動に及ぼす影響が小さい という評価結果があることから (Rutqvist and Tsang, 2004)、ここでの岩盤は均一なものとし て扱った。また、緩衝材は、圧縮成形されたベントナイトブロックを原位置で組み立てる方法に よって設置され、ベントナイトブロック間や岩盤との間に隙間が生じている。これらの隙間が膨 潤によって消滅した際に、緩衝材の乾燥密度が 1.6 Mg/m<sup>3</sup>になるよう、ベントナイトブロックは これよりも高い密度で製作されている (ENRESA, 2000)。ベントナイトブロックは浸潤にとも ない膨潤して隙間を閉塞し、密度分布が全体的に均一化する方向に進むことが予想されるが (杉 田ほか, 2003)、膨潤にともなう隙間閉塞のプロセスが不明であることや、このような不連続な状 態を現在の THAMES では扱うことができないため、ここでは、緩衝材を均一なものとし、乾燥 密度を 1.6 Mg/m<sup>3</sup>で一定と仮定した。また、初期の含水比は 14.4%である。

緩衝材の透水係数 k は、密度によって大きく変化し、FEBEX ベントナイトに対して式 (2.4-1)のような実験式が得られている (Alonso and Alcoverro, 2005)。ここで、 $\rho_d$ は乾燥密度 (Mg/m<sup>3</sup>) である。前述したように、緩衝材は施工時に生じる隙間を閉塞することで設置時より密度が低下 すると予想されるが、サンプリング試料を対象とした乾燥密度の測定では、岩盤の近い部分で 1.3 Mg/m<sup>3</sup>程度、キャニスター周辺で 1.7 Mg/m<sup>3</sup>程度であった。ここでは、サンプリング試料の平均 値な乾燥密度 (1.5 Mg/m<sup>3</sup>) から、式 (2.4-1) に基づき緩衝材の透水係数を設定した。

$$logk = -2.96\rho_d - 8.57 \tag{2.4-1}$$

緩衝材の不飽和水理特性としての水分特性曲線は式(2.4-2)で、比透水係数 Kr は式(2.4-3)で与えた(ENRESA, 2000)。

$$S_r = 0.01 + (0.99)[1 + (s/35)^{1.43}]^{-0.30}[1 - s/4000]^{1.5}$$
(2.4-2)

$$K_r = S_r^3 \tag{2.4-3}$$

ここで、Srは水分飽和度(-)、sはサクション(MPa)である。

温度勾配による水分移動フラックスについては、拡散係数を用いて表現する。ここでは、 FEBEXのベントナイトを対象に、円柱状の供試体(乾燥密度 1.68 Mg/m<sup>3</sup>、含水比 15.3%)の上 下両端を異なる温度で加熱し、供試体中の水分を移動させた実験結果に基づき(ENRESA, 2000)、 THAMESによるパラメータスタディ解析によって温度勾配水分移動係数を導出した。その結果、 図 2.4-2 に示すように、実験によって得られている供試体中の水分分布を再現する温度勾配水分 移動係数 *Dr*を、2.00×10<sup>-11</sup> m<sup>2</sup>/sK と同定した。



図2.4-2 温度勾配による水分移動試験に基づく温度勾配水分拡散係数の同定(〇は実測値)

緩衝材の熱伝導率 $\lambda_m$  (W/mK) 及び比熱  $C_s$  (J/kgK) については、水分飽和度 $S_r$  (-) 及び温度 T (°C)の関数として、以下の値を用いた (ENRESA, 2000)。

$$\lambda_m = 1.28 - \frac{0.71}{1 + \exp((S_r - 0.65)/0.1)}$$
(2.4-4)

$$C_s = 1.38T + 732.5 \tag{2.4-5}$$

緩衝材の飽和時の膨潤応力Ps (MPa)は、次式で与えた(ENRESA, 2000)。

$$P_s = \exp(6.77\rho_d - 9.07) \tag{2.4-6}$$

ここで、 $\rho_d$ は乾燥密度であり 1.6 Mg/m<sup>3</sup>で一定とした。そして、膨潤応力は飽和時に最大となり、 水分飽和度の関数として初期の飽和度から飽和に向けて線形的に増加するものとして設定した。

以上、FEBEX プロジェクトにおける原位置試験の熱-水-応力連成解析に用いた物性値を整理 して表 2.4-1 に示す。

パラメータ	単位	岩盤	緩衝材	コンクリート プラグ	キャニスター
真密度	Mg/m <sup>3</sup>	2.728	2.712	2.738	7.000
乾燥密度	Mg/m <sup>3</sup>	$2.700^{*1}$	$1.600^{*1}$	$2.300^{*2}$	$7.000^{*2}$
初期水分飽和度	-	1.00	0.57	1.00	-
空隙率	-	$0.01^{*1}$	$0.41^{*1}$	$0.01^{*2}$	-
弾性係数	MPa	$3.50 \times 10^{3^{*1}}$	$3.64 \times 10^{2 * 1}$	$2.50 \times 10^{5}  {}^{*2}$	$2.10 \times 10^{7 * 2}$
ポアソン比	-	$0.30^{*1}$	$0.35^{*1}$	$0.17^{*2}$	$0.30^{*2}$
線膨張係数	-	$8.21 \times 10^{-6*1}$	$1.00 \times 10^{-5 * 1}$	$1.00 \times 10^{-5} * 2$	$1.00 \times 10^{-5} * 2$
熱伝導率	W/mK	$3.6^{*1}$	熱伝導率に関する 経験式(2.4 <sup>-</sup> 4)に より設定 <sup>*1</sup>	$1.88^{*2}$	200*2
比熱	kJ/kgK	$800^{*1}$	比熱に関する経験 式 (2.4 <sup>-</sup> 5) により 設定 <sup>*1</sup>	$750^{*2}$	$400^{*2}$
固有透過度	$\mathrm{m}^2$	水平方向 5.00×10 <sup>-19*1</sup> 鉛直方向 5.00×10 <sup>-18*1</sup>	$8.00 \times 10^{-21}$	$1.00 \times 10^{.19 * 2}$	-
水分特性曲線	-	-	水分特性曲線に関 する経験式(2.4- 2)により設定 <sup>*1</sup>	-	-
比透水係数	-	-	比透水係数に関す る経験式(2.4-3) により設定 <sup>*1</sup>	-	-
温度勾配水分移動係数	m²/sK	-	$2.00 \times 10^{-11}$ *2	-	-
飽和膨潤応力	MPa	-	$5.82^{*3}$	-	-

表2.4-1 FEBEXプロジェクトにおける原位置試験の解析評価に用いた物性値

\*1 J.Rutqvist and C.-F.Tsang(2014), \*2 操上ほか(2004), \*3 ENRESA(2000)

## 3) 解析結果

FEBEXプロジェクトにおける原位置試験を対象とした熱-水-応力連成解析結果として、温度、水分飽和度、全応力(一例として、x方向について表示)のコンターを図2.4-3に示す。ここでは、岩盤及び廃棄体を模擬したヒーターとこれを内蔵するキャニスターについては非表示としている。これより、以下の結果が得られた。

- 廃棄体を模擬したヒーターの発熱によってキャニスターを中心として緩衝材の温度が高くなっている。緩衝材の温度は、ヒーターの加熱を開始してから100日後には定常状態となっている。
- 周辺岩盤より緩衝材中へ地下水が浸潤し、時間の経過とともに水分飽和度が上昇しているが、廃棄体を模擬したヒーターの発熱によってキャニスター周辺の緩衝材は乾燥し、1,835日後(5年後)においても不飽和な状態が維持されている。そして、二台のヒーターのうちの一台を停止(1,960日後)した後には、停止した側の緩衝材の温度が低下し、それに応じてキャニスター周辺での水分飽和度が上昇する方向に変化している。
- 全応力については、時間の経過とともに大きくなっており、その分布は水分飽和度の分布 と概ね一致している。そして、全応力の最大値は約5MPa程度となっている。これは、岩

盤の変形を考慮していない本解析条件において、設定した緩衝材の最大膨潤応力と同程度 の値であることから、解析によって得られた全応力の主成分は緩衝材の膨潤圧といえる。

次に、温度、緩衝材の水分量の指標となる相対湿度及び全応力の計測結果と計算結果を比較し て図2.4-4に示す。比較ポイントは、図中に示す各断面(D1、E1及びE2)における3つの観測点 (P1、P2及びP3)である。ここでは、原位置試験で得られている計測値をプロットで、解析値 を実線で示している。これより、以下の結果が得られた。

- 緩衝材中の温度の計算結果は、計測値とよく一致する結果となっている。これは、本試験のような100°C以下の条件においては、熱移動が熱伝導に支配されていることを示唆するものであり、正確な熱物性値を与えることで温度環境を的確に予測できることを示すものである。
- 緩衝材中の相対湿度については、ヒーター近傍で低下することや、岩盤に近いほど高くなることなど、全体的な傾向は一致しているものの、一部に差異が生じている原因としては、(1)ブロック間の隙間が水みちとなり、そこを通じて不均一な水の流れが生じている可能性があること、(2)緩衝材の密度低下にともなう水理特性の変化を考慮できていないこと、(3)緩衝材中に埋設した湿度センサーは、その精度を保つために必要となる定期的な校正ができないため、正確な計測ができていない可能性があることなどが考えられる。なお、観測点 E1-P3 においては、センサーの故障により計測値が得られていないものと考えられる。
- 全応力については、解析結果に比べて計測値の方が緩慢な上昇となっている。この原因は、 原位置での施工時に必要なベントナイトブロック間の隙間の存在によるものと考えられ、 隙間が閉塞するまでの間、膨潤応力は小さく推移するものと考えられる。本解析では、膨潤 によってベントナイトブロック間の隙間が閉塞するプロセスを考慮しておらず、緩衝材は 均一なものとして扱っている。このため、計測値に比べて早期に大きな値が発生する結果 となっていると考えられる。

FEBEX 原位置試験における緩衝材中の温度、水分、応力に関する計測結果と解析結果との傾向の一致は、廃棄体横置き方式や、国産以外の異なるベントナイトにおいても、熱-水-応力連成解析モデルの THAMES で評価可能であることを示すものである。今後、5年以降のより長期の データを対象にモデルの妥当性の確認を行う。そして、更なる再現性の向上のためには、幌延深 地層研究計画における人工バリア性能確認試験を対象とした熱-水-応力連成解析で示したように、 膨潤などによって生じる緩衝材の密度変化にともなう熱特性、水理特性及び力学特性への影響や、 温度による力学特性への影響を考慮することが肝要であり(日本原子力研究開発機構, 2018a)、 そのためには、これら物性値の密度依存性と温度依存性に関するデータ整備が課題となる。



図 2.4-3 FEBEX プロジェクトにおける原位置試験の解析結果



図2.4-4 FEBEXプロジェクトにおける原位置試験の計測値と解析結果の比較

## (3) THMC 連成解析モデルによる海水系地下水環境下における緩衝材の浸潤予察解析

## 1) 概要と目的

熱-水-応力-化学(THMC)連成解析コードCouplysは、前述した熱と水及び応力変形間の連成 問題を扱う解析コードTHAMESによって得られた地下水流速を用いて、不飽和時のガス化学の拡 散プログラムを付加した物質移行コードにより移流分散の計算を行い、鉱物の溶解沈殿、イオン 交換反応、酸・塩基反応、ガスの溶解や脱気などの反応を扱うことができる地球化学解析コード PHREEQCによって緩衝材中で生じる地球化学反応の計算を行うシステムを構築している。また、 緩衝材における地球化学反応については、間隙水をモンモリロナイトの層間水とそれ以外の粒子 間隙水とに分離し、イオン交換反応は層間水によって、随伴鉱物や二次鉱物の溶解沈殿反応は粒 子間隙水との間で生じると仮定していることや、層間による保水が優先的に行われることなど、 不飽和領域における保水形態や浸潤履歴を考慮した反応モデルとなるよう精緻化が行われている (日本原子力研究開発機構, 2009;日本原子力研究開発機構, 2010)。

本事業においては、開発されたCouplysを用いて幌延深地層研究計画におけるオーバーパック 腐食試験のTHMC解析を実施し、試験で得られている計測データとの比較を通じて、海水系地下 水環境下での連成挙動評価の適切性の確認及びオーバーパックの腐食挙動評価に必要となるニア フィールド環境条件に関する情報の提示を行う計画であるが、本年度は、海水系地下水環境下で の緩衝材の浸潤挙動を把握することを目的に、塩水の浸潤試験を想定した予察解析を実施した。 Couplysでは、緩衝材中に浸潤してくる地下水と間隙水が混合し、イオン交換反応や鉱物の溶解 沈殿を考慮した地球化学反応により間隙水組成を計算し、間隙水中の塩分濃度に応じた透水係数 を用いて浸透流の計算を行うプロセスが構築されている。ここでは、このプロセスを用いた塩水 の浸潤予察解析を実施し、次年度に予定しているオーバーパック腐食試験を対象としたTHMC解 析評価で必要となる解析パラメータを取得した。

#### 2) 解析条件

緩衝材の浸潤予察解析は、ケイ砂30wt%混合ベントナイト、乾燥密度1.6 Mg/m<sup>3</sup>、初期の水分 飽和度0.5、直径5 cm、高さ10 cmの円柱状の供試体の下面より、NaCl濃度が3%の溶液を浸潤さ せた試験を想定した。温度は25°Cで一定、全節点変位拘束とし、熱及び応力との相互作用は考慮 しないものとした。

緩衝材の不飽和水理特性のうち、有効水分飽和度 $S_e$ (-)と負の圧力水頭 $\Psi$ (mH<sub>2</sub>O)の関係を 表す水分特性曲線については、次式を用いた(van Genuchten, 1980)。

$$S_e = \frac{\theta - \theta_r}{\theta_s - \theta} = [1 + |\alpha \Psi|^n]^{-m} \qquad m = 1 - \frac{1}{n}$$

$$(2.4-6)$$

ここで、 $\theta_s$ =0.403、 $\theta_r$ =0、 $\alpha$ =0.012、n=1.4である。また、比透水係数 $K_r$ は、水分飽和度 $S_r$ の関数として、 $K_r = S_r^3$ とした(日本原子力研究開発機構, 2018b)。

物質移行に関わるパラメータについては、第2次取りまとめにおける安全評価解析に準じて、実 効拡散係数 $3.0 \times 10^{-10}$  m<sup>2</sup>/s、縦分散長を0.01 mとした(核燃料サイクル開発機構, 1999a)。また、 スメクタイトのイオン交換反応(交換性陽イオン組成ZNa:51.4 meq/100g、Z<sub>2</sub>Ca:7.4 meq/100g、 ZK:0.6 meq/100g、Z<sub>2</sub>Mg:0.7 meq/100g、イオン交換反応選択係数2ZNa-Z<sub>2</sub>Ca:0.69、ZNa-ZK: 0.42、2ZNa-Z<sub>2</sub>Mg:0.67、ZNa-ZH:1.88)を考慮した(核燃料サイクル開発機構, 1999a)。緩 衝材中における方解石や黄鉄鉱などの随伴鉱物との反応及び不飽和時の気相中における酸素や二 酸化炭素などの気体は考慮せず、初期間隙水は純水を仮定した。 緩衝材の透水係数は、透過する溶液組成によって変化し、蒸留水に比べて人工海水など塩分を 含むことによって1オーダー程度大きくなるといった測定結果が得られている(菊池ほか,2003)。 また、Na型のベントナイトを強制的にCa型化させた場合に、透水係数が大きくなるといった測 定結果もある(棚井ほか,1998)。このような実験結果に基づき、透過溶液中のNaCl濃度及びモ ンモリロナイトのカルシウム型化率と透水係数の関係は、クニゲル V1に対して式(2.4-7)から 式(2.4-9)が整備されている(木村ほか,2010)。

$$\log k_s = -10.0914 - 2.3240\rho_{em} + 0.4073C + 0.0103Ca \qquad (2.4-7)$$

$$\rho_{em} = \frac{C_m \rho_e}{\left\{ 100 - (100 - C_m) \frac{\rho_e}{\rho_{nm}} \right\}} \qquad \rho_e = \frac{\rho_d (100 - Rs)}{\left( 100 - \frac{\rho_d Rs}{\rho_s} \right)}$$
(2.4-8)

$$Ca = \frac{\alpha - \alpha_0}{\alpha_{100} - \alpha_0} \times 100 \qquad \qquad \alpha = \frac{Ca^{2+}}{Ca^{2+} + Na^+}$$
(2.4-9)

ここで、 $\rho_{em}$ は有効モンモリロナイト密度(Mg/m<sup>3</sup>)であり、ベントナイト中に含まれる随伴鉱物 部分を除いたモンモリロナイトと空隙で構成される乾燥密度を意味する。*C*は透過溶液中の塩分 濃度(0 $\leq C \leq 3.3\%$ )、*Ca*はスメクタイトのカルシウム型化率(0 $\leq Ca \leq 100\%$ )、*Cm*はモンモリ ロナイト含有率で、ここでは50%、 $\rho_{nm}$ はベントナイト中におけるモンモリロナイト以外の鉱物の 土粒子密度で2.81 Mg/m<sup>3</sup>、 $\rho_s$ はケイ砂の土粒子密度で2.64 Mg/m<sup>3</sup>とした。 $\rho_e$ は有効粘土密度 (Mg/m<sup>3</sup>)、 $\rho_d$ は乾燥密度(Mg/m<sup>3</sup>)、*Rs*はケイ砂の乾燥質量での混合率(wt%)を表す。*a*は *Ca*<sup>2+</sup>イオンの含有率(-)、*Ca*<sup>2+</sup>はベントナイトに含まれる交換性Ca<sup>2+</sup>イオン総量(meg/100g)、 *Na*+は交換性Na<sup>+</sup>イオン総量(meg/100g)であり、*a*の添字の0と100は、それぞれ、*Ca*型化率0%

(Na型ベントナイト)と*Ca*型化率100%(Ca型化したNa型ベントナイト)を表す。クニゲル V1 の場合、交換性陽イオン分析結果から、 $\alpha_0=0.43$ 、 $\alpha_{100}=0.92$ とした(木村ほか、2010)。上式より、ケイ砂30wt%混合ベントナイト、乾燥密度1.6 Mg/m<sup>3</sup>の緩衝材の透水係数と浸潤溶液の塩分 濃度及びカルシウム型化率との関係は図2.4-5のようになる。

ここでは、緩衝材の浸潤特性におよぼす間隙水化学の影響を把握するため、蒸留水を透過させ たとした透水係数を用いた場合(case1)、3%NaClの塩分濃度を有する溶液を透過させたとした 透水係数を用いた場合(case2)、そして、3%NaClの浸潤溶液と緩衝材の間隙水が混合すること で変化する間隙水組成に応じて、式(2.4-7)から式(2.4-9)を適用することで求められる透水係 数を用いた場合(case3)の3ケースについて浸潤解析を実施した。解析にはCouplysを用い、case1 及びcase2については浸透流解析、case3については、浸透流解析と地球化学解析とを連成させた 解析として実施した。各解析ケースの条件を整理して表2.4-2に示す。

	解析手法	透過溶液	飽和時の透水係数
case1	浸透流解析	蒸留水	$6.4 \times 10^{-13} \mathrm{m/s^{*1}}$
case2	浸透流解析	3%NaCl溶液	$1.1 \times 10^{-11} \mathrm{m/s^{*1}}$
case3	2 法本 世球化学体成的长		間隙水組成及びカルシウム
	发透流地球化子建成胜机	3%INaUI沿的权	型化率により変化*2

表2.4-2 緩衝材の浸潤挙動におよぼす塩分濃度の影響を把握するための解析ケース

\*1 式(2.4-7)より、緩衝材のカルシウム型化率0%とした場合の値として設定した

\*2 式(2.4-8)より、初期の陽イオン浸出量として、Na+が54.6 meq/100g、Ca<sup>2+</sup>が41.9 meq/100g (核燃料サイクル開発機構、1999a)とし、初期のカルシウム型化率を0%とした



図2.4-5 緩衝材の透水係数と塩分濃度・カルシウム型化率との関係

### 3) 解析結果

各解析ケースにおける水分飽和度及び透水係数の時間変化を比較して図 2.4-6 に示す。case1 及 び case2 の透水係数は水分飽和度によって、case3 の透水係数は、水分飽和度、間隙水中の塩分 濃度及びカルシウム型化率により変化するモデルである。これより、設定した透水係数が大きい case2 の浸潤が速く、透水係数が小さい case1 の浸潤速度が遅くなっている。そして、3%NaCl の透過溶液が、純水を仮定した緩衝材中の間隙水と混合して希釈され、3%NaCl の場合よりも透 水係数が小さくなることが予想される case3 が、他の 2 ケースの中間的な浸潤速度を示しており、 所期に想定された通りの計算結果となっている。

図 2.4-7 は、間隙水の地球化学反応を考慮した case3 の場合のイオン交換サイトにおける NaZ 濃度と CaZ2 濃度の解析結果である。グラフ縦軸は、meq/100g の単位を、間隙率 0.403、ベント ナイトと間隙水との固液比 2779 g/L として変換した mol/m<sup>3</sup>として表示している。これより、浸 潤面よりイオン交換サイトにおける NaZ 濃度が上昇する一方で、CaZ2 濃度が低下していること が分かる。本解析条件においては、緩衝材のカルシウム型化は生じず、むしろ、浸潤する NaCl 溶液中に含まれるナトリウムによってスメクタイトの Na 型化が促進する結果となっている。






### (4) 成果と今後の課題

本事業では、これまでに開発した熱-水-応力-化学(THMC)連成解析モデルの適切性の確認及 びニアフィールド環境に関する情報をオーバーパックの腐食寿命評価などへ提供することを目的 とし、本年度においては、(1)廃棄体横置きの人工バリア仕様や、これまで評価実績の少ないヒ ーター停止後の温度環境の変化にともなう連成挙動を把握するためのFEBEXプロジェクトにお ける原位置試験を対象としたTHM連成解析、(2)幌延深地層研究計画におけるオーバーパック 腐食試験を対象としたTHMC連成解析に向けた海水系地下水環境下での緩衝材の浸潤挙動を把 握するための予察解析を実施した。

FEBEXプロジェクトにおける原位置試験のTHM解析では、岩盤からの地下水の浸潤によって 緩衝材の水分飽和度が上昇する一方で、ヒーター近傍で緩衝材が乾燥する様子など全体的な浸潤 挙動の再現が可能であり、廃棄体横置き仕様及び国産とは異なるベントナイトに対しても温度環 境や浸潤挙動の評価に対して、本解析モデルが適用できることを確認した。一方、緩衝材の膨潤 挙動については、全応力の緩慢な上昇を示す実測値に比べて解析結果は早い時期に全応力の上昇 が見られた。この差異は、実測値はベントナイトブロック間の隙間の存在に起因したベントナイ トの不均質な密度分布の影響を受けているものの、解析モデルはベントナイトの密度を一定と仮 定しているために生じたと考える。今後は、ヒーターを停止させることによる温度変化にともな う水分の変化や、より長期の評価を通じてTHM連成解析モデルの適切性を確認していく予定であ る。

一方、海水系地下水環境下における緩衝材の浸潤予察解析では、緩衝材の間隙水化学を考慮し た地球化学との連成解析によって、より精緻な浸潤解析が可能であることや、支保コンクリート を透過した高いカルシウム濃度の地下水が緩衝材に浸潤した場合に想定されるスメクタイトのカ ルシウム型化と、それによる透水係数の変化を考慮した計算も可能であることを示した。今後は、 幌延地域の地下水など高い塩分濃度の溶液を用いて緩衝材の浸潤試験を実施し、本予察解析との 比較を通じて本手法の適切性の確認を実施する。さらに、幌延深地層研究計画におけるオーバー パック腐食試験のTHMC解析を実施し、原位置試験で得られている計測データとの比較を通じて、 支保コンクリートの影響を含む海水系地下水環境下での連成挙動評価の適切性を確認するととも に、オーバーパックの腐食挙動評価に必要となる緩衝材の間隙水組成や酸化電位などの情報を提 示していく予定である。

### 2.4.2 ニアフィールド長期力学解析コード開発

## (1) 背景と目的

地層処分システムを対象とする従来の安全評価では、保守的に簡略化されたモデルや保守的設定に基づくパラメータが用いられてきた。今後の処分サイト選定段階における安全評価には、実際のサイトの地質環境条件などを反映することに加え、様々な処分概念や設計オプション間の比較、サイト間の優劣などが、より具体性をもって検討されると考えられる。従来の保守的な評価モデルではサイト間やデザイン間の相違を定量的に表現することができず、より現実に即した挙動を評価する手法が必要となる可能性がある。地層処分対象となる放射性廃棄物のうち、例えば、TRU 廃棄物の地層処分システムの場合は、周辺岩盤、支保工、緩衝材として使用されるベントナイト系材料、廃棄体や坑道内部の埋戻し材として使用されるセメント系材料などの複合的な材料で構成される。これらの材料間で多様な相互作用が生じ、これらが相互に影響しあいながら処分場の状態は変遷していくと考えられる。この現象は、変質の促進あるいは抑制の正負のフィードバックループを内包する非線形の連成現象であるとされる(電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構,2005)。このような化学・力学・物質輸送の連成及び材料間の相互作用がもたらす非線形

現象を評価するための複合現象評価技術の開発が進められている(例えば、日本原子力研究開発 機構,2018a)。

上記に示した複合現象評価技術の一部として、化学及び物質輸送と連携して処分施設の力学挙動を評価する技術が必要となる。このような背景のもと、長期力学挙動解析コード MACBECE

(<u>Mechanical Analysis considering Chemical transition of BEntonite and CEment materials</u>) の開発が進められてきた。これまで、岩盤クリープ、緩衝材の変質に伴う膨潤圧の低下、セメン ト系材料における Ca 溶出による剛性・強度の低下とそれによるひずみ軟化挙動、金属の腐食膨 張などによりセメント系材料に割れが発生する現象などを考慮できるように開発を行ってきた (例えば、三原ほか, 2010; 平野ほか, 2016; 日本原子力研究開発機構, 2018a)。

しかしながら、MACBECE では、緩衝材施工後の再冠水挙動などの、過渡期におけるベントナ イト系材料内部の飽和度の時空間変化によって生じる膨潤圧の発生や、それによる変形を解析す ることができないため、処分施設の各材料及び周辺岩盤の力学的な相互作用を過渡期における力 学・変形挙動を考慮した長期までの一貫した評価ができない。

そこで本検討では、過渡期の処分施設の力学的な状態変化を解析し、その結果から長期力学解 析を連続して解析できるようにすることで、処分施設の各材料及び周辺岩盤との力学的相互作用 を過渡期から長期まで一貫して評価できる解析システムの構築を目的とした改良を実施した。具 体的には、MACBECEに不飽和土の弾塑性構成モデルと水分特性曲線モデルを追加し、別途、水 理解析コードで計算された緩衝材内部の飽和度分布の時間変遷などの水理情報を入力して、過渡 期の緩衝材の力学挙動を解析する機能を追加した。本項では、この検討の成果を示す。

### (2) 過渡期の緩衝材の力学挙動の解析機能の追加

不飽和土の弾塑性構成モデルである Se-Hardening モデル(大野ほか, 2007; Takayama et al., 2017) 及び水分特性曲線モデルである van Genuchten モデル(van Genuchten, 1980)を MACBECE に組み込み、水理解析コードで計算した緩衝材内部の飽和度分布の時間変遷などの 水理情報を入力して水分特性曲線モデルから求めたサクションなどの情報に基づき、過渡期の緩 衝材の力学挙動を解析する機能を追加した。以下にその概要を示す。

Se hardening model は飽和土の弾塑性構成モデルを不飽和状態に拡張したモデルであり、有効飽和度の増減による軟化/硬化を表現することができる。不飽和時の有効応力は以下の式(軽部 ほか, 1996)を用いている。

 $\sigma = \sigma + p_s \mathbf{1}$ 

(2.4-10)

(2.4-12)

ここで、**o**は有効応力テンソル、**o**<sup>N</sup>はネット応力テンソル、**p**sはサクション応力、1はクロネ ッカーのデルタである。ネット応力テンソル及びサクション応力は、

$\sigma^{N} = \sigma - p_{a} 1$	(2.4)	-1	1)	

 $p_s = sS_e$ 

である。ここで、 $\sigma$ は全応力テンソル、 $p_a$ は間隙空気圧、sはサクション、 $S_e$ は有効飽和度 である。弾塑性状態での応力-ひずみ関係の導出などに使用する *Se*-hardening model の降伏関 数 fは、飽和の弾塑性構成モデルと同じとなる。本検討では以下の式で示される修正 Cam-clay モデルの降伏関数 (Roscoe and Burland, 1968) を使用した。

2-52

ここで、Mは限界応力比、Dはダイレイタンシー係数、p'は平均有効主応力、qは軸差応力、 $p'_{e}$ は降伏応力である。ダイレイタンシー係数については以下の関係式で導出した。

$$MD = (\lambda - \kappa)/(1 + e_0)$$
(2.4-14)

ここで、 $\lambda$  は圧縮指数、 $\kappa$  は膨潤指数、 $e_0$  は初期間隙比である。降伏応力  $p'_{c}$ は、 不飽和状態では、

 $p_{c}^{\prime} = \xi p_{sat}^{\prime}$  (2.4-15)

$$\boldsymbol{\xi} = \exp\{(1 - S_e\}^n \ln a\} \tag{2.4-16}$$

で表わされる。ここで、*p'sat* は飽和時の降伏応力、*a、n* はフィッティングパラメータである。 図 2.4-8 に後述の膨潤変形試験の再現解析で用いた降伏曲面を示す。飽和状態と比較して、不飽 和状態では式(2.4-15)に従い降伏曲面が大きくなる。



また、膨潤指数を以下のように表すことで不飽和から飽和に至る過程で生じるベントナイトの 膨潤挙動を表現している(Takayama et al, 2017)。

$$\kappa = \kappa_0 - (\kappa_0 - \kappa_{sat}) S_e^{\ l} \tag{2.4-17}$$

ここで、 $\kappa_0$ は  $S_e=0$  での膨潤指数、 $\kappa_{sat}$ は  $S_e=1$  での膨潤指数、lはフィッティングパラメータ である。

一方、van Genuchten モデルにおけるサクションと飽和度の関係は次式で表される。

 $S_{min} + (S_{max} \cdot S_{min}) \{1 + (va \cdot s)^{vn}\}^{-vm} = S_r$ 

(2.4-18)

ここで、 $S_{min}$ :最小(残留)飽和度、 $S_{max}$ :最大飽和度、va、vn、vm:フィッティングパラメータ、 s:サクション、 $S_r$ : 飽和度である。

図 2.4-9 に不飽和領域での MACBECE の計算フローを示す。図中の赤字が新たに MACBECE に追加した項目である。まず、飽和度、間隙空気圧の空間分布を読み込み、水分特性曲線からサクションの空間分布を計算する。次に、それらの情報から計算ステップにおける飽和度、間隙空気圧、サクションの各要素の増分を計算するとともに、サクションと間隙空気圧増分を等価節点外力に変換する。さらに、構成モデルから飽和度変化による有効応力変化を算出し、有効応力を更新すると共に、変化量を等価節点外力に変換する。最後に、求めたこれら等価節点外力を用いて、全体剛性方程式を解き、応力・変形状態を更新し、次のステップに進むこととした。



図 2.4-9 不飽和領域での MACBECE の計算フロー(赤字は今年度追加した項目)

## (3) 膨潤変形試験の再現解析による解析コードの妥当性検証

ここでは、開発した解析コードの妥当性の検証を目的として、膨潤変形試験(日本原子力研究 開発機構, 2017)の再現解析を実施した。膨潤変形試験は、図 2.4-10 に示すように、圧縮成型 したベントナイト供試体に荷重を載荷し、水の浸潤にともなって変形するベントナイト供試体上 端の変位を測定し、荷重と変位量の関係を把握するものである。試験は、初期乾燥密度 1.6 Mg/m<sup>3</sup>の供試体を用いて、4 ケースの荷重に対して実施している。試験条件を表 2.4-3 に、荷重 条件を表 2.4-4 に示す。



表 2.4-3 試験条件

材 料	ベントナイト(クニゲル V1)、3 号・5 号ケイ砂	
供試体仕様	乾燥密度 1.6 Mg/m <sup>3</sup> 、ケイ砂 30wt%混合ベントナイト	
供試体寸法	直径 20 mm×高さ 20 mm	
初期含水比	8.2%	
浸潤水	蒸留水	

表 2.4-4 荷重条件

解析ケース名	荷重(MPa)
CASE1	0.29
CASE2	0.47
CASE3	0.75
CASE4	1.58

図 2.4-11 に膨潤変形試験の再現解析モデルを示す。解析モデルは一辺 20 mm の正方形であ り、鉛直方向に一次元的に 50 要素で構成されている。境界条件は、下端を変位固定境界、側面 を水平方向の変位固定境界、上端面を試験の荷重条件に対応した荷重境界とする。上端にかける 荷重は、0.29、0.47、0.75、1.58 MPa の 4 ケースとする。荷重を載荷した後、飽和度を上昇さ せた。MACBECE では水理解析を行わないため、別途、不飽和土/水連成有限要素解析コード DACSAR-UA (金澤ほか, 2008) により計算された飽和度分布の時間変遷を外部ファイルとして 読み込むことで、同試験の再現を行った。なお、本解析で対象とする膨潤変形試験は、供試体上 端から間隙空気が抜ける構造となっているため、間隙空気圧の変化は考慮せず、常に大気圧と仮 定した。



図 2.4-11 膨潤変形試験の再現解析モデル

MACBECE の解析に使用したパラメータを表 2.4-5 に示す。飽和状態でのパラメータ(*A*、*Ksat*、 *M*、*D*、*v*)は、標準圧密試験(菊池・棚井,2005)及び三軸非排水圧縮試験(高治・鈴木,1999) を基に決定した。不飽和状態におけるパラメータ *a*、*n*は、静的締固め圧力 20MPa の締め固め曲 線(千々松ほか,1999)を基に決定した。不飽和状態におけるパラメータ *k*0、*l*については、別 途膨潤圧試験を想定した解析を実施し、生じる膨潤圧が実験で得られている膨潤圧と同等の値と なるように設定した。水分特性曲線については、既往の研究(核燃料サイクル開発機構,1999a) で用いられているパラメータを使用した。

		)	パラメータ		
力学 (飽和)	<i>λ</i> :0.125	<i>к<sub>sat0</sub></i> :0.09	<i>M</i> :0.63	v:0.1	
力学(不飽和)	K0:0.043	a:35	<i>n</i> :1.3	<i>l</i> :1.0	
水理 (水分特性曲線)	va:0.008	vm:0.375	vn:1.6	S <sub>min</sub> :0	S <sub>max</sub> :1.0
初期条件	$e_0: 0.6875$	<i>Sr</i> <sub><i>i</i></sub> :0.322			

表 2.4-5 解析パラメータ

図 2.4-12 に DACSAR-UA により計算された飽和度分布の時間変遷を示す。下端から飽和度が 上昇していることが分かる。図 2.4-12 に示した飽和度分布の変遷を読み込み、MACBECE によ り計算した体積ひずみ分布を図 2.4-13 に示す。図 2.4-5 は CASE1 と CASE4 の結果であり、体 積ひずみは膨潤を正、圧縮を負として表示している。載荷終了時では、CASE1 よりも載荷荷重の 大きい CASE4 のほうがより圧縮された状態となっている。その後、飽和度が上昇していくに伴 い、下端から順番に CASE1 では膨潤した領域が、CACE4 では圧縮した領域が広がっていくの が確認できる。



図 2.4-12 飽和度分布の時間変遷



図 2.4-13 CASE1 と CASE4 の体積ひずみ分布(圧縮を負として表示)

吸水時(飽和度上昇時)の上端の変位量を図 2.4-14 に示す。変位量は正が膨潤、負が圧縮を 表す。図中には実験データも併せて示している。載荷する荷重が大きい場合は圧縮挙動が生じ、 載荷する荷重が小さい場合は膨潤挙動が生じる傾向を計算でも再現できている。また、飽和度上 昇により生じる変位量も概ね実験を再現できているが、その絶対値には差異が認められる。ベン トナイト系材料の室内試験結果にはばらつきがあることが知られており(棚井ほか,2010)、今 回の解析と実験の変位量の相違はそのばらつきの範囲内とみなせる可能性もある。その確認に は、同じ荷重条件で複数試験を実施するなどによりばらつきの範囲を把握する必要がある。

図 2.4-15 に試験終了後の荷重と乾燥密度の関係を示す。図中には膨潤圧試験から得られた膨 潤圧と乾燥密度の経験式(菊池・棚井, 2005)も示す。実験では、乾燥密度 1.6 Mg/m<sup>3</sup>の緩衝材 の膨潤圧より載荷圧の小さい Case1 と Case2 では体積膨張、膨潤圧より載荷圧の大きい Case3 と Case4 では体積圧縮が生じているが、解析でもこの傾向を再現できていることが確認でき る。また、Case1~Case4 の載荷圧は、それぞれ乾燥密度が 1.27、1.49、1.67、1.85 Mg/m<sup>3</sup>の 膨潤圧と同等の荷重であるが、試験終了時の乾燥密度と載荷圧の関係は、膨潤圧試験から得られ ている乾燥密度と膨潤圧の関係式と一致するところまでは変形しておらず、解析においても同様 の傾向が表現できている。



図 2.4-14 吸水時の変位量の時間変化



図 2.4-15 試験終了時の荷重と乾燥密度の関係

# (4) 成果と今後の課題

本検討では、MACBECE に不飽和土の弾塑性構成モデルと水分特性曲線モデルを追加し、外部 の水理解析コードで計算した緩衝材内部の飽和度分布の時間変遷などの水理情報を入力して、過 渡期の緩衝材の力学挙動を解析する機能を追加した。追加した機能については、膨潤変形試験の 再現解析により緩衝材の飽和度上昇に伴う変形挙動を概ね再現できることを確認した。本検討で MACBECE に導入した不飽和土の弾塑性構成モデルは、飽和時には飽和土の弾塑性構成モデル に帰着するため、不飽和状態から飽和後の挙動までを連続的に取り扱うことが可能である。これ により、処分施設の各材料及び周辺岩盤との力学的相互作用を過渡期から長期まで一貫して評価 することが可能となった。表 2.4-6 に MACBECE で取り扱い可能な力学現象をまとめる。今後 は、過渡期の緩衝材の力学挙動を解析した結果を、飽和後の初期状態として使用した処分施設の 長期力学挙動解析を実施し、過渡期の緩衝材の力学挙動が処分施設の長期の力学挙動に与える影 響を検討していく予定である。

期間	MACBECEで取り扱う 力学現象例	化学反応解析からの 入力情報	水理解析からの 入力情報
処分施設 建設・操業時	・岩盤の掘削による応力変化 ・岩盤クリープ ・支保工による岩盤の支持		
処分施設 閉鎖後	・過渡期の緩衝材の力学挙動く ・岩盤クリープ ・金属の腐食膨張 ・変質によるセメント系材料のく 強度・剛性変化 ・セメント系材料のひび割れ ・変質による緩衝材の膨潤性 く の低下		□•飽和度分布

### 表 2.4-6 MACBECE で取り扱える力学現象

### 2.5 母岩中アルカリプルーム反応輸送挙動評価

# 2.5.1 背景と目的

処分場建設時には、湧水抑制対策としてセメント系材料を用いたグラウチング施工が行われる ことが想定される。セメント系材料は、人工バリア材料のみならず、周辺岩盤に化学的影響とし て変化を生じさせ天然バリアの性能を低下させることが懸念される。これまで、セメント系材料 による周辺岩盤への影響に関する研究が国内外で行われているが、特に亀裂性媒体においては物 質移行を促進もしくは遅延する両ケースの研究事例が報告されているなど、その影響を定量的に 評価するために必要な知見が得られているとは言い難い(Steefel and Lichtner, 1994; Bateman et al., 1998; 1999; Soler, 2003 など)。

特に、実際の地下環境におけるグラウト材料そのものの変遷やセメント系材料による周辺岩盤 への影響に関する知見は乏しいと言える。また、セメント由来による高 pH 地下水 (アルカリプ ルーム)が坑道周辺の処分システムに影響を与える懸念もあることから、その解明とモデル化が 必要である。

これまで、複数の異なる構成材料からなるニアフィールドの状態変遷の評価のため、様々な解 析モデルが構築されている。ここでは、それらのモデルの高度化のため、実際の地下施設でのグ ラウト施工事例を対象に試験・分析などを実施し、母岩中のアルカリプルームの反応輸送解析モ デルの構築に取り組むこととした。

### 2.5.2 実施内容

原子力機構東濃地科学センター瑞浪超深地層研究所では、地層処分研究開発における地層科学 研究の調査技術開発及び評価のため、深度 500 m までの立坑と水平坑道を整備しているが、坑道 周辺の地質環境の変化を把握するために定期的に地下水を採水して分析するとともに、坑道掘削 にあたって湧水抑制対策のため普通ポルトランドセメント(OPC)をグラウト材として注入した グラウチング施工を実施している箇所がある。そこで、原位置におけるセメント系グラウト材料 の変遷とその周辺岩盤への影響について理解すると共にこれらの概念モデルの構築を目標として これまで研究を進めてきた。

既往の研究としては、特にグラウチング施工をした深度 300 m 研究アクセス坑道を対象として、試料を採取して分析した結果、施工後3年程度のグラウト材料が炭酸化(方解石化)しつつあることが確認された(日本原子力機構開発機構, 2016a)。また、グラウト材料の初期状況を把

握のためのセメント供試体の作製・観察や、施工後約3年と約7年経過したグラウト材料コア試料の採取・観察を実施し、グラウト材料はセメント供試体に比べて早い時期から中性化が進行している可能性や、坑道を解放している段階ではグラウト材料による周辺岩盤への化学的影響が生じ難い可能性があることが考えられた(日本原子力研究開発機構,2017)。さらに、既存試料を用いた通水箇所及びその周辺の鉱物種の分布やグラウト材料・岩盤の変遷を把握するために地下水の水質分析や顕微鏡観察を実施するとともに、グラウト材料及び岩盤の変遷を把握する通水試験により、グラウト材と岩盤との相互作用メカニズムに関する情報の拡充と概念モデルの構築を実施した(日本原子力研究開発機構,2018b)。

平成 30 年度は、これまでの成果を踏まえ、原位置地下水水質の変遷の継続的な把握のための 地下水の水質分析や、より実環境に近い状態で長期間の通水試験を行った。また、先行事業(日 本原子力研究開発機構,2011;2012a;2013a;2014a;2014b)で構築された、亀裂性岩盤にお けるセメントと岩石との反応・物質輸送特性変化の評価手法と瑞浪における原位置データなどを 活用して、ニアフィールド母岩を対象とした評価手法の高度化に向けた研究アプローチを検討し た。

# (1) 地下水水質の変遷

グラウチング施工(2008年11月に施工)を実施した深度300m研究アクセス坑道における水 質の変遷を把握するため、図2.5-1に示すA-SP-198号孔及び199号孔から地下水を採水して分 析した。両孔とも坑道掘削前にプレグラウチング施工を実施した区間内に存在している。図2.5-2にグラウチング施工以降のpH及びCa<sup>2+</sup>の分析結果を示す。



図 2.5-1 地下水採水場所 (深度 300m 研究アクセス坑道)

図 2.5-2 地下水中 pH 及び Ca<sup>2+</sup>の変遷

水質分析結果から、2017年~2018年の Ca の濃度変化は、2016年(施工後7年)以降の Ca<sup>2+</sup> が増加から減少に転じた期間における変動の範囲内とみられる。一方、pH が施工後8年(2017 年)から上昇するといった変化が確認できる。これまでの研究でグラウト材と岩盤との相互作用 メカニズムの変遷に係る概念モデルを示しているが(日本原子力研究開発機構,2018b)、pH の上 昇理由として、地下水中の炭酸水素イオン(HCO<sub>3</sub>)とグラウト材中のポルトランダイト(Ca(OH)<sub>2</sub>) の溶出による Ca<sup>2+</sup>との相互作用において方解石(CaCO<sub>3</sub>)密集層がある程度形成されたことによ り、地下水中の OH<sup>-</sup>の消費が減って、元の高い pH の状態に戻りつつあることなどが考えられる。 来年度も継続して分析し、グラウチング施工による地下水水質の長期的な変遷を把握する。

## (2) 通水試験

グラウト材と岩盤について地下環境における変遷及び相互作用の把握を目的として、セメント 硬化体と岩盤の供試体の間に地下水を通水する試験を実施するとともに、通水後の供試体の観察・ 分析として偏光顕微鏡観察やエネルギー分散型 X 線分析装置付きの走査型電子顕微鏡(SEM -EDS)による観察・分析を行った。

試験に用いた岩盤の供試体としては、深度 300 m の研究アクセス坑道で採取した岩石(A-3 孔) を用いた。これを縦 40 mm×横 20 mm×厚さ5 mm に切り出し、この岩石供試体の面と同一の 不陸を有するようにセメントペースト(水セメント比(W/C)は1.0)を接合して硬化体を作製し た。その後、両供試体を剥離して両者間の片側に薄片上の酸化アルミニウムスペーサーを用いて 100 µm 幅の開口部を形成して固定した。この開口部に深度 300 m 予備ステージ 09MI20 号孔の 区間 3 から採取した地下水を 60 日通水した。

通水状況を図 2.5-3 に示す。先行事業においては同様の通水試験を 30 日行い、通水部分に方解 石の析出が確認されたが(日本原子力研究開発機構, 2018b)、方解石を構成する炭酸(CO<sub>3</sub>)の 由来として、大気中に含まれる CO<sub>2</sub>の影響が否定できないこと、実際のグラウチング施工箇所の 地質環境は還元環境が想定されることから、今回は試料通水部をアルゴン(Ar)パージしたグロ ーブボックス内に供試体をセットし、下部から上向流で通水することとした。

給水量はポンプなどで調整し、ポンプ給水による脈動など低減しつつ、約50 mL/hの一定流量 で給水した。通水する地下水については循環させていない。



瑞浪の地下水を下部から上向流で通水

図 2.5-3 通水試験状況(左:試験状況の写真、右:供試体設定のイメージ)

通水後の水質変化を図 2.5-4 に示す。0 日は通水前の水質を示す。K や Ca、全炭素(T-C)は、 通水直後に濃度が上昇後、通水前の濃度に減少して安定した。pH は、7.3~8.4 の間で変動した。 Na は、通水 20 日後に減少した後に通水前よりも増加した。

通水後の供試体から、通水側から約5mm付近の箇所から薄片を作製して、偏光顕微鏡観察と SEMによる表面分析を行った。岩石薄片の作製にあたっては、セメント部及び岩石部の接合部も 含めて観察できるようにした。図2.5-5に偏光顕微鏡観察結果を示す。セメントと岩石の通水側 には炭酸塩鉱物(矢印:平行ニコルで透明、直交ニコルで明るい色調)の析出が認められた。析 出量は、開口幅の大きい部分より小さい部分、岩石側よりセメント側で多い傾向が認められた。



図 2.5-4 通水後の水質分析結果



平行ニコル

500 µm 直交ニコル



平行ニコル

直交ニコル



(上図の枠内拡大が下図、下図矢印付近に炭酸塩鉱物とみられる析出物を確認)

次に、偏光顕微鏡観察に供した鏡面研磨薄片に炭素を蒸着した後、観察及び分析を行った。観察には、走査型電子顕微鏡(SEM:日本電子製/JSM-IT300HR)を用い、セメント部の溶脱状況や開口部に生成した鉱物に着目して、反射電子像観察を実施した。観察時の加速電圧は15kV、報告画像は反射電子像とし、観察倍率は適宜調整した。また、SEMに付属するエネルギー分散型スペクトル検出装置(EDS:日本電子製/JED2300)を用い、セメント中のCaの溶出などを視覚的にとらえるためEDS面分析を行った。使用した機器の仕様を表 2.5-1に示す。

図 2.5-6 に SEM 観察結果を示す。左図枠内をより高倍率に観察した結果を右図に示している が、偏光顕微鏡での観察結果と同様に、析出物がセメントの通水側に確認された(矢印部分)。こ の析出物について定量分析を実施した結果、CaO が確認されたことから、CaCO<sub>3</sub>と想定された。 先行事業での 30 日間の通水試験ではセメント中にいくつかの空隙が確認されたが(日本原子力 研究開発機構, 2018b)、今回の通水後のセメントは比較的均質で緻密であった。

装置名	日本電子製	JSM-IT300HR、JED2300
加速電圧	15 kV	
試料傾斜角	$0^{\circ}$	
試料前処理	研磨加工	

表 2.5-1 SEM-EDS 観察仕様



(左図黄色枠内拡大図)

# 図 2.5-6 SEM 観察結果

図 2.5-7 に EDS 面分析として、N、Mg、Al、Si、S、K、Ca の結果を示す。それぞれの元素の 特性 X 線強度に応じた疑似カラー画像で示した。なお、強度の低い方から、黒→青→…→赤→白 で示してある。通水部のセメント側及び岩石側の両側で、前述の定量分析結果から想定された CaCO<sub>3</sub>に起因すると想定される Ca の濃集帯が確認された。また、通水によるセメントからの Ca の溶脱が懸念されたが、通水部付近を中心とした Ca の濃度低下は明瞭には確認されなかった。



図 2.5-7 EDS 面分析結果

以上の試験結果から、地下水通水によるセメント系材料と岩盤との相互作用について考察する。 セメント中の Ca の形態に着目すると、一般的に全 Ca 中の 25%が Ca(OH)<sub>2</sub>、75%が C-S-H に含 まれるという知見があるとともに、Ca(OH)<sub>2</sub>の方が C-S-H よりも溶解性が高い(横関ほか, 2002)。 また、Ca(OH)<sub>2</sub> と HCO<sub>3</sub> との反応に関する知見(柴田ほか, 2002) や、通水後の水質として pH が大きく上昇しなかったこと、通水する供試体を Ar パージした状態として大気中の CO<sub>2</sub>の影響 を排除していることを踏まえると、下記反応が想定される。

$$Ca(OH)_2 \rightarrow Ca^{2+} + 2OH^{-}$$
(2.5-1)

# $Ca^{2+}+OH^{+}+HCO_{3}^{-}\rightarrow CaCO_{3}+H_{2}O$ (2.5-2)

これにより、通水部に方解石が析出したことや、水質分析結果についても通水直後を除いて大きな増減が見られなかったことを踏まえると、上記の反応は通水後4日までに起こった後、方解石の層が形成されることで地下水とセメントとの接触が遮断され、セメント内部の溶脱や変質が抑制されたと考えられる。なお、方解石の形成としてセメント内部に CO2 が拡散して炭酸化する知見(豊村ほか,2013)もあり、方解石の層が通水側だけでなくセメント側でも形成される可能性が考えられることから、方解石層形成メカニズムを把握するための分析方法などについて今後検討を進める。

今回の通水試験を踏まえて、施工直後や施工後における化学反応を追加した概念モデルを図 2.5-8 に示す。



図 2.5-8 グラウチングに伴うグラウト材と岩盤との相互作用メカニズムの 変遷に係る概念モデル

# (3) 亀裂性岩盤を対象とした母岩中アルカリプルーム反応輸送挙動評価

コンクリート支保や TRU 廃棄物の充填材などに使用されるセメント系材料は、長期のうちに 地下水に溶出してアルカリプルームとなり、岩盤中を移動するとともに、化学反応によって岩石 中の固相及び液相(地下水及び岩石中の間隙水)の性状を変化させる可能性がある。これらの変 化は、天然バリア中の核種移行挙動に影響を及ぼし、その結果、母岩が有するバリア性能の長期 健全性を阻害する可能性がある。そのため、ニアフィールド環境の長期変遷を評価するための解 析技術の構築においては、アルカリプルームの移動と岩盤との化学反応によって生じる固相及び 液相の変化の連成現象を適切に扱うことが可能な反応輸送解析モデルの開発が求められている。 既往の検討(例えば、電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構,2005)において、主として計算 負荷などの制約から用いられている均質な連続体を仮定した近似的なモデルは、特に、亀裂性岩 盤を対象とする場合には、アルカリプルームの影響に関する時間・空間スケールを概略的に把握 する上では有用なものの、以下の観点から、必ずしも実際の現象を的確に表現するものではない と考えられる。

- <u>岩石の化学的変質による地下水流動の変化など(連成現象)の取り扱い</u>:アルカリプルーム と岩石の反応により、岩石中の鉱物の溶解及び二次鉱物の沈殿が生ずる可能性がある。二次 鉱物の沈殿が初生鉱物の溶解に対して卓越する場合では、岩盤中の亀裂や間隙の開車によって地下水流動場や物質移動特 性が顕著に変化する可能性がある。これに対して、前出の近似的なモデルでは初期の水理や 物質移動特性などを固定しているため、このような連成現象を予測することができない。こ のことは、従来の検討結果がアルカリプルームの影響を的確に表現していない可能性がある ことを示唆するものと考えられる。
- <u>岩盤中の不均質性の取り扱い</u>: 天然バリア機能を期待する岩盤中には種々の透水性をもつ亀 裂が分布しており、近年の安全評価では、不均質かつ不連続な地下水流動場での核種移行を 想定したモデル(亀裂ネットワークモデルなど)が使用されている。セメント系材料に由来 するアルカリプルームについても、同様の地下水流動場を移動して地下水及び岩石と反応す るものと考えられるが、その不均質性及び不連続性が考慮されていない近似モデルでは、核 種移行のクリティカルパスとなる透水性亀裂によって遠方まで移行する効果を考慮していな いため、アルカリプルームの予想される影響範囲は廃棄体付近に留まるといった過小評価と なる可能性が否定できない。

ここでは、ニアフィールド母岩を対象とした評価手法の構築に向けた、上記に示した観点から の研究アプローチの検討として、アルカリプルームと岩盤の相互作用に関するナチュラルアナロ グの検討事例などを参考としつつ課題を抽出すると共に、抽出された課題の解決に向けた予察的 解析を実施した。岩盤としては、上記に示した現状の問題点が顕在化する可能性が高い亀裂性岩 盤を対象とした。本項目ではこの検討の成果を示す。

# 1) 母岩中アルカリプルーム反応輸送挙動評価手法の構築に向けた課題の抽出

本事業の先行事業である「セメント材料影響評価技術高度化開発」(平成23年度~26年度)で は、セメント材料に由来する高アルカリプルームと周辺岩盤との相互作用について、花崗岩の人 工亀裂への模擬セメント反応水の通水実験や通水後試料の分析などを行うと共に、この結果によ り得られた、二次鉱物の沈殿による亀裂の閉塞挙動の再現解析などを通じて、地球化学モデルと 修正三乗則に基づく透水量係数評価式を組み込んだ化学・物質輸送連成モデルを構築した(日本原 子力研究開発機構,2012b;2013b;2014b;2015b;2015c)。このような岩盤とアルカリプルー ムの反応問題において想定される現象相関を整理した結果を図2.5-9に示す。セメント溶出成分 などの化学物質の供給によって岩石が変質することが既往の天然現象の観測事例(例えば、亀井 ほか,2005など)や室内実験の結果(例えば、日本原子力研究開発機構,2014bなど)などにおい て示されているが、これによる変質の影響や程度及びその範囲については、化学反応とそれによ る物質輸送特性に跨る正負のフィードバックループのバランスによって影響を受けると考えられ る。正のフィードバックループとは、図 2.5-9 の赤線で示されている、マトリクス中の鉱物や亀 裂充填鉱物の溶解が溶質の移動を促進することによって変質を加速する経路によって表される。 また、負のフィードバックループとは、青線で示されている、二次鉱物の沈殿が溶質の移動を抑 制することによって変質を制限する経路によって表される。



※セメントとの反応によって析出した二次鉱物ではなく、初期から割れ目内に存在する充填鉱物を指す

## 図 2.5-9 岩盤におけるアルカリプルームの輸送に対する現象相関の整理結果

しかしながら、アルカリプルームと亀裂性岩盤の反応輸送に関するナチュラルアナログの解析 事例などの結果(例えば、Watson et al., 2016)から、ニアフィールド岩盤で亀裂のネットワー クが発達する数十メートルスケールにわたり、アルカリプルームの影響が生じる可能性は極めて 低いと考えられることから、以下のような課題への対処方策を検討することを優先してモデル開 発を進めることが有効であると考えられる。

単一亀裂スケールにおける二次元的な不均質性がもたらす影響に関する課題

上記で示したような連成現象に加えて、岩盤中の不均質性の影響をアルカリプルームの反応輸送挙動評価に取り入れるには、岩盤中の亀裂の面が二次元的な広がりを持つものであり、亀裂内部やその近傍の局所的なスケールで二次鉱物の沈殿により閉塞が生じても、そこを迂回することにより、地下水流動が継続する可能性を考慮することが必要となる可能性がある。このような二次元断面における地下水流動の概念を図 2.5-10 に示す。

このような、二次元断面における岩盤の不均質性がアルカリプルームとの相互作用に及ぼす影響は十分考慮されていない。先行事例で用いられたモデルは、亀裂面に直行する二次元断面を対象に、亀裂とその周辺の岩石マトリクスから構成される二重空隙モデル(例えば、日本原子力研究開発機構,2014b)などによる評価が行われており、亀裂面内の二次元的な広がりはモデルに組み込まれない。亀裂ネットワークモデル全域へのアルカリプルームの影響が否定しきれない場合には、正負のフィードバックループを考慮したアルカリプルームの反応輸送解析をできる亀裂ネットワークモデルを構築し、その影響を評価する必要がある。



図 2.5-10 処分坑道周辺岩盤において二次鉱物による閉塞部を迂回する地下水流れの概念

亀裂内部への二次鉱物沈殿による岩石マトリクスへの移行挙動への影響に関する課題

二次鉱物の沈殿による岩盤中の亀裂閉塞による移流の制限及び亀裂表面付近の間隙閉塞による マトリクス拡散の抑制のうち、亀裂閉塞の進展が抑制される場合や、閉塞に寄与した沈殿物が再 溶解する場合には、アルカリプルームの影響範囲は、反応速度や閉塞部の長期的安定性などに関 して不確実性が残される可能性が有ることから、性能評価の保守性の観点からは、特に前者(亀 裂の閉塞)を保守的に無視し、後者(マトリクス拡散の抑制)のみを想定した代替的な評価手法 を準備することが必要となる可能性がある。この場合、アルカリプルームの影響範囲は亀裂ネッ トワークのスケールに及ぶものと考えられるため、同じ岩盤領域を対象とした核種移行解析と整 合的な手法(特に不均質性や不連続性の表現)を用いることが必要となる。高アルカリ性水溶液 とアルミノ珪酸塩鉱物との相互作用に関するナチュラルアナログである、ヨルダンのマカーリン 地域で産出する天然セメントに由来するアルカリプルームと岩石との相互作用に関する解析事例

(Watson et al., 2016)では、亀裂内での二次鉱物沈殿について、沈殿物が局在的に分布することを無視して一様に亀裂内部に存在すると仮定して多孔質媒体(連続体)で近似する従来のモデルと、亀裂表面に薄層として生成することを仮定したモデル(Armoring モデルと呼ぶ)の2つのモデルオプションによる評価が行われている。このようなモデルの概念を図2.5-11に示す。

前述の先行事業における検討では、上記のようにマトリクス拡散が抑制される可能性があることを考慮して、亀裂表面で沈殿した二次鉱物により間隙が閉塞する状態を想定して、ニアフィールド岩盤でのマトリクス拡散による遅延効果を無視した核種移行解析を行い、これによる線量への影響を例示している(日本原子力研究開発機構, 2015b; 2015c)。しかしながら、本項1)の冒頭で示した、アルカリプルームと岩石の相互作用に関する化学・物質輸送連成モデルでは、このような現象は考慮されておらず、今後の検討が必要である。



図 2.5-11 マカーリンにおけるアルカリプルームと岩石の相互作用を対象とする 亀裂内部での二次鉱物沈殿に関するモデルの概念

# 2) 母岩中アルカリプルーム反応輸送挙動評価手法の開発の課題解決に向けた試解析

1)項で示した 2 つの課題のうち、「単一亀裂スケールにおける二次元的な不均質性がもたらす 影響に関する課題」については、図 2.5-10 で示したような、処分坑道周辺岩盤において二次鉱物 による閉塞部を迂回する地下水流れを考慮できるモデルの構築に向けて、まずは、簡易的なモデ ルにより閉塞部を迂回するような挙動がどのような条件の組み合わせで起こるかなどを把握する ことが重要となる可能性がある。ここでは、上記のような解析を行うための簡易的なモデルを構 築することを目的として、二次元平行平板で単一亀裂を表現する単純化したモデルによる予察的 な解析を行った。この結果を以下に示す。

化学物質輸送解析ツール QPAC (Quintessa Ltd., 2013)を用いて作成した準三次元の解析モ デルの概念図を図 2.5-12 に、本モデルに用いた透水係数の設定値を表 2.5-2 にそれぞれ示す。こ のモデルは亀裂の中央で面対称(図の z 軸方向)であると仮定している。地下水の流れについて は、亀裂面内を降水系高 pH 型地下水(FRHP)(核燃料サイクル開発機構, 1999b)が図 2.5-12 に示した方向に流れるものとし、流速については、流れ方向に動水勾配の境界条件を課すことで 設定した。また、亀裂の開口幅は 50 µm とした(モデル上は亀裂開口部の中央面で面対称を仮定 し、その半分の 25 µm をモデル化している)。水理学的な分散挙動については解析モデルの単純 化のため無視した。動水勾配としては 0.001 と 0.01 の 2 パターンを対象とした。



図2.5-12 亀裂を二次元平行平板と仮定した準三次元モデルの概念

	透水係数 [m/s]	備考
<b>コンクリート</b>	$\theta^3$	コゼニーカルマンの式に基づき、間隙率の関
	$4.34 \times 10^{-7} \times (\frac{1}{(1-\theta)^2})$	数として設定
角刻云山	$\theta$	三乗則に基づき、間隙率などの関数として設
电农曲的	$\rho g/12\mu \times (2D \times \overline{\theta_0})^{-1}$	定
岩盤マトリクス	$1 \times 10^{-12}$	

表2.5-2 準三次元モデルによる解析における透水係数の設定値

※  $\rho$  : 密度[Mg/m<sup>3</sup>]、  $\mu$  : 粘性係数[Mg/m/s]、g: 重力加速度[m/s<sup>2</sup>]、b: 開口幅[m]、 θ: 間隙率、 $\theta_0$ : 初期間隙率

解析結果の一例として、間隙率とpHの変化及びダルシー流速の変化を図2.5-13と図2.5-14にそ れぞれ示す。10年後の段階では、間隙率とpHのいずれについても、上流側から下流側にかけて一 様にコンクリートから溶出したアルカリによる影響(pHの上昇及び間隙率の低下)が認められた が、時間が経過するにつれて、下流側においてその影響範囲(セメントマトリクスからの距離) が拡大する傾向が認められた。また、図2.5-13の間隙率の結果では、亀裂の上流側から二次鉱物 の沈殿が始まり、時間の経過とともに沈殿する領域が下流側へ拡大する傾向が認められたが(亀 裂内部で沈殿が生じた領域を図中の点線で示す)、沈殿により間隙率が減少した領域はコンクリ ートのごく近傍に限られており、二次元的な亀裂平面の全域が閉塞されるには至らなかった。こ のため、上流側から亀裂内部に供給される地下水の流れが、亀裂内部への二次鉱物の沈殿によっ て遮られることはなく、動水勾配の方向に直行する方向(図2.5-14中のy方向)へも流れが生じる 挙動が認められた。このことは、コンクリートのごく近傍の亀裂内部で二次鉱物が生成すること により閉塞された領域もしくは亀裂開口幅の減少により透水性が低下した領域を迂回して下流側 へ移行する流れが生じたことを示唆していると考えられる。このような傾向は、動水勾配0.001の ケースでも同様であった。

今後は、地下水の流速や化学組成などのパラメータについて、閉塞部を迂回するような挙動が どのような条件の組み合わせで起こるかなどを把握することが重要となる可能性がある。また、 図 2.5-10 に示したような処分坑道を対象とする解析を行う場合には、アルカリソースとして想定 される、コンクリート支保などのセメント系材料の量と上記の閉塞部を迂回する挙動が生じる条 件との関係を把握することも重要となる可能性がある。この場合には、セメント系材料は緩衝材 などの人工バリア材料との相互作用により消費される影響も考慮する必要があるため、第4章で 検討する複合現象評価との連携を考慮することも必要であると考えられる。



図2.5-13 準三次元モデルによる間隙率及びpHの評価結果(動水勾配0.01の結果の例)



図 2.5-14 準三次元モデルによるダルシー流速の評価結果(動水勾配 0.01 の結果の例)

### 2.5.3 成果と今後の課題

実際の地質環境に近い形で CO<sub>2</sub>の影響がない還元環境下において、セメントと岩石の相互作用 を把握するための通水試験を実施した。両供試体の観察や通水後の水質分析結果を踏まえて、こ れまで検討してきたモデル(日本原子力研究開発機構, 2018b)のように、方解石(CaCO<sub>3</sub>)の析 出を確認し、関係する反応物質のやり取りを想定した概念モデルを示した。

今回の室内通水試験結果と瑞浪の地下研究施設における水質変動を比較すると、地下研究施設 の方が pH や Ca 濃度の変動が大きい。その理由としては、地下研究施設においては亀裂幅に対 する流量が室内試験よりも大きいため、地下水とセメント(原位置ではグラウト材)との接触が 限られることと、地下水流動による地下水の供給によって坑道周辺の地下水浅部の地下水と混合 することにより水質が変化することなどが考えられる。後者の水質変化は、深度 300 m 付近の花 崗岩領域の割れ目が多いという調査地点の特徴の影響と見ることもできるが、実際の処分場も坑 道掘削にともなう地下水水質や水量が変化する可能性はある。今後は、母岩中アルカリプルーム のモデル化に当たってグラウト材やその周辺の地質環境の長期的な変遷をどのように考慮してい くか検討が必要と考える。

亀裂性岩盤を対象とした母岩中アルカリプルームの反応輸送挙動評価においては、アルカリプ ルームと岩盤の相互作用に関するナチュラルアナログの検討事例や上記の原位置での検討などを 参考に、モデルの高度化に関する課題を幅広く抽出すると共に、抽出された課題の解決に向けた 予察的解析を実施した。今後は、地下水の流速や化学組成などのパラメータについて、閉塞部を 迂回するような挙動がどのような条件の組み合わせで起こるかなどを把握するための検討を進め ると共に、坑道周辺のグラウトなどを想定した条件などへの適用方法の検討など、ニアフィール ド母岩を対象とした評価手法の高度化に向けた研究アプローチを提示することが必要である。

### 2.6 流出現象を考慮した緩衝材の健全性評価

## 2.6.1 背景と目的

### (1) 背景

緩衝材は、定置後、再冠水が終了するまでの期間が最も状態が変化する期間であり、この期間 には、緩衝材に水が浸潤することによって低透水性や自己シール性などの緩衝材に期待する特性 が発揮される状態に移行する。一方で、施工後の水頭差を駆動力とする地下水の処分孔への流入 (湧水)に伴い、緩衝材が流出する可能性が懸念されている。緩衝材の流出による緩衝材の損失 については、海外でも検討されており、Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co.(ス ウェーデンの放射性廃棄物処分実施主体、以下、「SKB」と称す。)では緩衝材と岩盤の隙間に充 填するペレットにおけるパイピング現象を検討している。このパイピング現象はペレットのよう な低密度緩衝材がエロージョンによって自己シール出来ない状態で水みちとして残るものであり、 一旦、パイピング現象が生じると、緩衝材がその性能を損ねる程の量が流出することも懸念され ている(SKB, 2008)。原環センターでは、クニゲル V1 あるいはクニピア F を用いて、ペレット 及びブロックの形態のベントナイトを対象に、このパイピング現象を伴う緩衝材の流出について の検討を進めてきた(原子力環境整備促進・資金管理センター, 2018)。緩衝材の流出の問題は NUMOの包括的技術報告書(原子力発電環境整備機構,2018)でも取り上げられており、原環セ ンターの試験結果を基に、流出による緩衝材の損失の許容値が示されている。緩衝材に期待する 安全機能が発揮されるためには、飽和後の密度が所定の値以上のものでなければならない。その ため、緩衝材は施工時の密度と厚さが設計値として決められる。安全機能が確保されていること を示すことのできる初期状態を緩衝材が持つためには、飽和に至る過程での緩衝材の密度の減少 が許容される範囲でなければならない。また、放射性核種の閉じ込めに対して緩衝材領域の中に

密度差ができることは不利な条件となる可能性もあるため、飽和後の密度分布を確からしく見積 もれるようにしておくことも重要である。

緩衝材の流出は、堅置き処分孔で考えた場合、緩衝材施工後に地下水が処分孔の孔壁と緩衝材 ブロックの隙間に流入することによって発生する現象である。こうした地下水の流入(湧水)は、 わが国の地下環境では一般的に想定されると考えられるため、流出による緩衝材の損失の可能性 が着目されている。流出が起こる期間は、定置後、処分坑道が埋め戻されて水位が回復し、処分 孔に向かう動水勾配が十分に小さくなるまでの期間と考えられる。水位回復後には、地下水流動 は極めて緩慢になるため、緩衝材の膨潤性能により、水みちを伴うような緩衝材の流出はおきな いと考えられる。このため、緩衝材定置から埋め戻して水位が回復するまでの期間に着目し、地 下の湧水環境の変化を現実的に捉えてその間の流出挙動を把握し、緩衝材の機能に影響を与える 量の流出が起こり得る可能性があるかどうかを評価する必要がある。また、湧水量が多い環境で も緩衝材の流出を抑制できる工学的な対策工法を事前に準備しておくことにより、地下空間を処 分場として効果的に利用することができる。

なお、これまでの性能評価や安全評価では、完全飽和、密度均一の状態を前提とした解析モデ ルが用いられてきた。一方、上述したように、再冠水過程において想定される緩衝材流出による 密度低下に加えて、緩衝材に浸潤時の局所的な膨潤による変形やそれに起因する密度変化など、 過渡期における緩衝材の不均質な浸潤と局所的な力学的挙動が、飽和後の緩衝材の密度分布など の状態に影響を与える可能性がある。このような再冠水後の緩衝材の状態をより現実的に把握し、 それが安全評価に与える影響を検討し定量化することは、安全評価の不確実性の低減に繋がる重 要な課題と考える。そのため、再冠水期間の緩衝材の状態変化を把握し、浸潤、膨潤などの緩衝 材の特性の変化及び相互作用を反映した解析により、最も緩衝材の機能に影響を与える密度に着 目し、再冠水再冠水後の密度分布を評価する手法が必要である。

### (2) これまでの取り組みの概要と残された課題

緩衝材の再冠水挙動を対象とした調査研究については、これまでに資源エネルギー庁の委託調 査等事業として、平成19年度から平成24年度までの「処分システム工学要素技術高度化開発」 (原子力環境整備促進・資金管理センター,2012)及び平成25年度から平成29年度までの「処 分システム工学確証技術開発」(原子力環境整備促進・資金管理センター,2016)の中で取り組ま れてきた。以下に、これらの調査研究内容や得られた成果、並びに示された課題について整理す る。

#### 1) 緩衝材流出挙動に関する取り組み

緩衝材の流出に関して、SKB が先行的に取り組んだパイピング・エロージョンの試験方法 (Sanden et al., 2008)を参照して、クニゲル V1を用いた室内試験を行った(原子力環境整備 促進・資金管理センター, 2012; 2016)。用途によって異なる形状及び材質の小型セルを用いて、 ブロック成形したベントナイトとペレット状のベントナイトを対象として、挙動の違い、通水量、 液性、孔壁界面の透水性への影響などについて調査した。図 2.6-1 に使用したセルを示す。b)の セルは上面と側面が透明のアクリル製であり、緩衝材の表面に生じる水みちを観察できるように なっている。ブロック成形した供試体で隙間を設ける場合は、セルの側面と供試体の隙間を5mm とした。注水は、底面にポーラスメタルを設置し、底面全体から供給できる試験装置とした。

ブロック成形した供試体に対する通水量一定の試験では、隙間がない場合は通水とともに通水 圧は高まり、通水圧が急激に低下するなどの破過現象は見られなかったため、水みちができなか ったと考えられた。隙間がある場合には、一旦通水圧が上がるなどの隙間がシールされる過程が 見られ、その後、急激に通水圧が低下、あるいは低いままの推移によって定常的な流れが発生し、 水みちが生成したと考えられた。セルから排水される水にはベントナイトが懸濁しており、排水 液中のモンモリロナイトの濁度を吸光光度計で測ることによって、通水液中のモンモリロナイト 量を定量した。表 2.6-1 に、このような挙動の違いをもたらしたと想定される影響要素に対する 試験結果を示す。隙間がある場合の流出量は孔壁の状態(透水性)による影響がほとんどなかっ た。総通水量と流出量の関係を図 2.6-2 に示す。また、水みちはどの試験においても界面で1本 に収束し、この現象は、事前に内部に水みちとなる穴をあけたブロックに通水しても、界面の 1 本に収束することが確かめられた。通水量が多くなるほど、流出量は多くなった。

液種の違いによる影響を把握するための試験では、流出はイオン強度が高い NaCl 水溶液の方 が総通水量と流出量の関係を示す勾配が大きくなったが、その後、勾配が緩くなった。勾配が緩 くなった原因は、水みちを沈殿物が閉塞したことによるものと考えられた(図 2.6-3 赤のライ ン)。この沈殿物は主にベントナイト材料に含まれていたケイ砂であることが観察された。ケイ砂 が水みちを充填することにより、通水の流速が抑えられたことが流出量の抑制につながった可能 性があると考えられた。

小型セルにより流速や、緩衝材との接触するセルの側面の透水性を変えた流出試験の結果から は、原位置での湧水環境を考えた場合に、岩盤と緩衝材の隙間を流れる湧水の流速、液種が緩衝 材の膨潤特性と関連し、流出挙動に影響を与えることが認められた。水みちの形成と収束は、緩 衝材の膨潤により隙間が閉塞する途中で、流速を増加させ、この流速の増加により、膨潤によっ て密度が低下した緩衝材を作用する地下水が削り取る状態という条件が整って流出が起こったと 考えられる。



a) 小型セル① φ120×h 60 mm

b)小型セル② φ110×h 50 mm 隙間\*5 mm



※:セルの側面と供試体の間の隙間

# 図 2.6-1 緩衝材の流出試験に使用した小型セルの概要

影響要素	結果	
孔壁とベントナイト の間の隙間	隙間がある場合に、流出が起きる。	
孔壁界面	透水性の違いのある界面では影響なし (透水係数<10 <sup>-8</sup> m/s)	
通水量	通水量が多いと総流出量が増。	
液種	総流量·流出量の勾配は、NaCl水溶液 の方が蒸留水より大。 ただし、NaClの場合は途中から勾配 が緩くなる。(水みちを沈殿物が閉 塞)	
水みち	水みちは1本に収斂	







図 2.6-3 0.5 M NaCl 水溶液を通水した時の流出量と総流量の関係と水みちの外観

流出に対する抑制対策の検討のために、室内試験(工学規模にスケールアップしたセル)と地下での原位置試験を幌延 URL の 350 m の坑道内に設置した工学規模と同等の大きさで掘削した 試験孔)で実施した。室内での工学規模のセルを図 2.6-4 に、地下での原位置試験設備を図 2.6-5 に示す。

流出抑制の対策として、隙間にペレット充填する方法と隙間を緩衝材ブロックでプレ膨潤させ る方法を検討した。ペレット充填方法では、水みちは残るがブロック部の表面の密度低下が抑え られ、流出と総流量の関係の勾配は緩くなった(図2.6・6 参照)。また、地下での原位置試験では、 ペレット部が先行して膨潤することにより、ブロック部が守られるとともに、ブロック部の湿潤 過程が緩慢となりブロック部の急激な密度低下が抑えられた。これにより、流出が抑制されるこ とが示唆された。プレ膨潤させる方法では、通水せずに施工後に隙間に満たされる湧水によって 膨潤させてから流出試験を行い、隙間を膨潤によって先に充填することによる流出の抑制効果に ついて検討した。室内試験において蒸留水によってプレ膨潤させたところ、その後通水しても通 水による破過は起こらず、流出は起こらなかった。しかし、NaCl 水溶液(イオン強度 0.5 M)、 及び幌延地下水を模擬した組成を持つ水溶液でのプレ膨潤では、その効果は得られず、わずかな 注水圧で破過が起こった。地下の試験孔で、原位置の地下水(イオン強度約0.2 M)でのプレ膨 潤についても水みちが確認された。これらの結果から、イオン強度を有する水による膨潤では、 +分なシール性が得られなかったことが推測される。

以上の結果を表 2.6-2 にまとめる。これらの結果は、流出の抑制のためには、緩衝材と孔壁の 界面付近の緩衝材ブロックの密度が地下水の流れによって急激に低くなることを防ぐことが対策 となり得ることを示唆する。すなわち、湧水があることが前提の場合、緩衝材の膨潤を制御する ために隙間全体をどのように効果的に埋めるかが鍵となると考えられる。隙間なく緩衝材ブロッ クを施工することが最も効果的な対策ではあるが、堅置きブロック方式の定置の現実的な施工を 考えた場合には、隙間がある必要があるため、定置後の隙間に対する施工上の対策が必要である。 ペレットを充填する方法は SKB の堅置き定置方法にも採用されている (SKB, 2010)。しかし、 湧水が多い環境でのペレット充填は、ペレットが岩盤とブロック間の隙間の底まで沈降しないう ちに膨潤するなどによって途中で詰まる可能性があり、このような事象に対する効果的な施工方 法の工夫が必要である。その他の隙間の充填方法としては、幌延 URL での実規模人工バリア試 験でも行われたケイ砂の充填がある(日本原子力研究開発機構, 2016c)。そこでの原位置試験と しての目的は、緩衝材への水の浸潤を促進するための施工であるが、緩衝材ブロックの外部界面 に一様に地下水を供給できる程度の多孔質状の隙間を残しつつ、間隙の主たる部分を充填できる ことから、緩衝材ブロック全周に一様に水が供給でき、急激な局所的な膨潤による密度低下が起 きにくいという点で隙間の施工対策候補の一つになり得ると思われる。

2-77







図 2.6-5 地下坑道での試験の概要

流出抑制対策	室内試験	幌延 URL 原位置試験
ペレット充填	水みちは発生するが表面の密度低下 が抑えられ、流出速度も遅くなった。	緩衝材ブロック内部への浸潤が 遅くなった。
プレ膨潤	静水圧条件、蒸留水で膨潤させた場合 は流出が抑えられた。	原位置地下水(イオン強度 0.2 M 程度)では流出は促進する可能 性あり。

表 2.6-2 流出対策検討のまとめ



図 2.6-6 工学規模のセルでの流出試験の結果

# 2) 再冠水挙動の評価方法に関する取り組み

緩衝材の再冠水に至る迄の期間における主な挙動として、浸潤と膨潤による密度変化に着目し、 それぞれの現象について単純な系を使い、加速せずに実現象を模擬する条件での長期のモデル試 験を行い、データを取得した。更に、その結果を評価手法の検証モデルとして、解析的な評価手 法の開発整備に向けた検討を行った。複合的な再冠水挙動を予測する手法の構築のために、先行 して再冠水挙動の主な要素の現象の再現性を図ることにより、解析方法の基礎的な知見を蓄積し、 不確実性の少ない解析方法の構築に資することを目的とした。

浸潤速度

長尺ベントナイト供試体を用い、密度一定条件で一次元浸潤速度取得試験を行った。図 2.6-7 に試験装置の概要を示す。供試体の長さは 1 m であり、初期の乾燥密度が一様になるように 5 mm ずつセルの内部で圧縮して試験系を構築した。注水はフローポンプで行い、下から上に一方 向、一次元に浸潤させた。この際、注水は圧力が一定となるように流量を制御した。また、アク リル製セルに比抵抗計測用の電極を設置し、別途取得した比抵抗値と飽和度の関係を用いて浸潤 の進行状況を計測した。図 2.6-8 に飽和度が初期値から 1%増加した時点で浸潤フロントが到達 したと見なした場合の浸潤フロントの進展状況と 95%以上となったところを飽和フロントと定 義した場合の進展状況を示す。

図 2.6-8 a)に示した浸潤フロントの位置 d(mm)は、蒸留水のケースの場合、給水時間 t

(day)の指数関数で式 $d = 60t^{0.35}$ で近似された。この結果は、浸潤フロント位置d(mm) が給水時間t(day)の平方根に比例するという毛細管現象による水の拡散速度の理論式である Washburn 式(Washuburn, 1921)(図 2.6-8 中の破線、式(2.6-1))よりも緩慢である。

$$d = c \times t^{0.5} \tag{2.6-1}$$

c:濡れ角などの関数で表される材料と液種によって決まる係数

理論式と実測値を比較すると、理論式に比べ実測位置が徐々に遅くなる傾向を示している。これは、浸潤(膨潤)に伴うモンモリロナイトの基底間隔の変化によって、間隙構造が徐々に変化したためではないかと考えられた。一方、0.5 Mの NaCl 水溶液の場合、浸潤フロントの位置 d (mm)と給水時間 t (day)の関係は d = 14t<sup>05</sup>と近似され、浸潤フロントの進展状況は蒸留水の場合よりも遅かった。さらに、この浸潤フロントに対して給水圧を増加したことによって、NaCl 水溶液の場合には急激に浸潤フロントの移動速度が増加した。b)に示されるように、飽和フロントの進展状況は、蒸留水の場合に比べ NaCl 水溶液の場合の方が速かった。蒸留水の場合は、ベントナイトに供給された水が速やかに上部に拡散するため浸潤フロントは上部に向かって移動するが、NaCl 水溶液の場合は供給された NaCl 水溶液は供試体内部に拡散されずに浸潤フロントの移動が抑制されたと考えられる給水側に留まった。NaCl 水溶液ではイオン強度の影響でモンモリロナイトが凝集するため、毛細管現象に寄与する微小な空隙が減少するためと考えられた。



図 2.6-7 一次元浸潤速度取得試験装置の概要



図 2.6-8 浸潤の進展状況

この試験を対象とし、解析コード DACSAR (Iizuka et al., 1987)と商用 FEM コード COMSOL を用いて力学解析を実施し、その再現性を検証した(原子力環境整備促進・資金管理センター, 2017b)。DACSAR は、土・水・空気連成問題における支配方程式を用いており、飽和度の上昇に伴 う膨潤変形の発生を表現できる不飽和弾塑性構成モデルを基礎とする。

解析から得られた浸潤フロントを図 2.6-9 に示す。この解析には、Mualem の不飽和透水係数 推定モデル(Mualem, 1980)と van Genuchtenの透気係数式(van Genuchten, 1980)を用い た。解析ケースは Mualem 定数と初期サクション値を変えて設定しており、Mualem 定数が大き く、初期サクション値が大きな方が浸潤フロントの到達が早くなり、CASE1-1と CASE2-1 によ って、試験より得られる浸潤フロントの経時変化を概ね良好に表現できることが示された。



	初期サクション	Mualem 定数
CASE1-1	4.0MPa	3.0
CASE2-1	6.0MPa	3.0
CASE1-2	4.0MPa	1.0
CASE2-2	6.0MPa	1.0

図 2.6-9 浸潤フロントの形成

COMSOL による解析は、SKB により MX-80 などのベントナイトを対象として高度化されて きた解析手法を用いている。これまでにペレット充填箇所における蒸気の移行や空気の移動など 多くの過程がモデル化されている。モデルの支配方程式としては、水輸送には不飽和土壌中の水 の動きを表すリチャード方程式 (Richards et al., 1931)を、水蒸気輸送には拡散方程式を使用し た。

図 2.6-10 に浸潤フロント及び飽和フロントの解析結果と実験結果からフィッティングした関数との比較を示す。解析結果の飽和フロントと浸潤フロントは両者とも実験から得られた関数と良い一致を示した。なお、蒸気拡散の効果を除いた場合には、解析結果の浸潤フロントの進展が実験結果より遅かった。これより、浸潤フロントの進展には不飽和領域の蒸気圧の効果が重要であることが示唆された。



図 2.6-10 実験から得られた関数と比較した浸潤フロントと飽和フロント

# ② 密度分布が圧縮ベントナイトの膨潤圧に及ぼす影響

密度分布が圧縮ベントナイトの膨潤量に及ぼす影響を評価する試験は、図 2.6-11 に示すような 試験装置(以下、「直列膨潤量試験装置」という。)を使用した。試験は、一定の一次元方向に浸 潤させ、注水はシリンジポンプ(フローポンプ)によって行った。一つの供試体内に密度の異な るブロックを混在させると、その界面の移動の観察ができないため、密度の異なる均質供試体の 膨潤量試験装置のピストンを直列に繋ぎ、ピストンの動きを計測することによって界面の膨潤量 を計測した。なお、直列した膨潤量試験装置の下側に高密度供試体、上側に低密度供試体をセッ トし、下側の供試体にはピストンの死荷重が作用するため、ピストンの荷重を相殺するカウンタ ーウェイトを配置した。



図 2.6-11 力学物性(膨潤量)による密度均質化試験の概要

蒸留水による試験結果を図 2.6-12 に示す。低乾燥密度と高乾燥密度の組み合わせは、2 つの平 均が 1.6 Mg/m<sup>3</sup> になるように、1.4~1.8、1.2~2.0、1.5~1.7 の組み合わせとした。膨潤圧の大 きさは密度差と整合していた。試験の結果、初期の密度差が解消される方向に変化したが、均一 になることはなかった。膨潤圧がベントナイトの乾燥密度によって決まるのであれば、この膨潤 圧の経時変化は両供試体の乾燥密度が 1.6 Mg/m<sup>3</sup> になった時点で平衡状態に達するはずである。 試験の結果から、膨潤圧のつり合いが満足されるまで供試体の変形が継続し、乾燥密度が同じか どうかではなく、膨潤圧が釣合った時点で変形が止まったことを示していると考えることができ る。



図 2.6-12 膨潤に伴う乾燥密度の経時変化

前記①と同様に、この試験を対象として解析コード DACSAR を用いて力学解析を実施した。 ベントナイト緩衝材の飽和/不飽和化による力学挙動を表現する弾塑性構成モデルは、有効応力 の原理及び水分特性と連立し、対象とする問題に応じた適切な応力条件・ひずみ条件・含水比条 件を課すことにより、要素としての力学応答を記述・解析することができる。ここでは、試験を 2 要素の連結問題として扱い、試験条件に相当する制約条件を課し、解析を実施した。解析の条 件などは、原子力環境整備促進・資金管理センター(2017b)を参照されたい。 図 2.6-13 に吸水過程における乾燥密度変化及び間隙比-平均有効応力関係を示した。時間の 経過とともに密度差は小さくなるが、試験同様に密度差は解消されないという解析結果を得た。 初期含水比が同じであるケースについては、両供試体の初期乾燥密度の差が小さいほど最終的な 密度差は小さくなった。一方、初期乾燥密度は同じであるが異なる初期含水比をもつケースで は、最終的な密度差は同じになった。つまり初期乾燥密度が等しければ初期含水比の値に関わら ず密度差は同じになるという結果であった。吸水が始まってしばらくは間隙比の変化が小さい が、低密度要素が降伏し弾塑性状態に至った後は、低密度要素が剛性低下し大きな圧縮変形を呈 するとともに、高密度要素は弾性状態を維持しつつ膨張変形している。

以上のように、直列に配置された乾燥密度の異なる二つ供試体が力のつり合いを満足しながら 吸水過程を経て飽和状態に至るとき、二つの供試体の乾燥密度差が解消することなく残留すると いう実験結果を解析により再現することができた。このことは、力学理論に基づいて考えた場合 にも、密度差は残留するということを示すものであり、上述の試験結果を支持するものと考えら れる。





(高密度供試体:乾燥密度 1.8 Mg/m<sup>3</sup>、含水比 12%,低密度供試体:乾燥密度 1.4 Mg/m<sup>3</sup>、含水比 15%) 赤線は高密度要素、青線は低密度要素の経路を示しており、間隙比-平均有効応力関係における黒線は完全 飽和線を示している。

### (3) 本サブタスクの目的

本サブタスクは、緩衝材の定置後から再冠水に至る擾乱期における緩衝材の状態変化を対象と しており、緩衝材の飽和後の状態を予測し、安全評価の初期状態を示すとともに、期待される状 態にあるための施工方法、工学的な対策を提示することを目的としている。そのため、緩衝材の 機能に最も影響が大きいと考えられる、緩衝材の流出挙動の確認を課題とし、流出が起こる環境 では、工学的な対策により抑制する方法を提示する。

そのために、以下の2点を取り組むべき課題として設定した。

## 1) 緩衝材の流出を抑制するための工学的対策

処分孔竪置きブロック方式の処分概念を対象とし、緩衝材定置から周辺岩盤中の地下水位が回 復するまでの間に岩盤と緩衝材ブロックの隙間に湧水があることにより、発生が懸念される緩衝 材流出による緩衝材の損失についての課題に対し、実現性のある工学的対策を提示し(少なくと も一つ)、その効果を室内、原位置での試験により確認する。

# 2) 再冠水過程に係る検討

緩衝材の流出現象を考慮した再冠水後の状態を推定する解析手法を構築する。その方法として は、緩衝材の流出があった場合には、緩衝材流出終了後の緩衝材の質量の減少を、残りの緩衝材 の量及び、密度分布として解析の初期条件として取り込み、解析的に評価する。そのために、再 冠水プロセス及び再冠水後の緩衝材の状態(密度分布など)を示すための解析方法を単純な系か ら検討する。また、再冠水期間に起こる事象が緩衝材に及ぼす影響を把握することにより、必要 に応じて熱影響などと力学挙動の連成解析の手法の構築も考える。

また、数十から数百年オーダーの事象だと想定される再冠水過程の解析の検証ツールとしての 遠心模型試験の適用性を検討する。

### (4) 検討方針

現実的な施工方法や地下環境を踏まえた場の擾乱を抑制する工学的対策の検討、及び緩衝材の 再冠水プロセスのモデル化を進めるために、本サブタスクで検討対象とする期間や工学的対策、 再冠水プロセスのモデル化に関する方針を以下に示す。

### 1) 本サブタスクの検討対象とする期間の設定

本サブタスクでは、再冠水後の緩衝材の状態(密度分布)を予測することを目的とすることか ら、検討の対象とする期間は主として緩衝材が再冠水に至るまでの期間となる。しかし、湧水な どによる場の擾乱に伴う緩衝材の流出に着目した場合は、緩衝材の流出は操業-閉鎖後の再冠水 に至るまでの期間において一様に生じるのではなく、施工方法や操業過程に伴う原位置の水理環 境の変遷により大きく変化することが考えられる。従って、操業過程に伴う原位置の水理環境の 変遷について想定した上で、場の擾乱を抑制する工学的対策の検討や緩衝材の再冠水プロセスの モデル化を進める必要がある。そこでまず初めに、本サブタスクの検討対象とする処分孔竪置き ブロック方式の処分概念における、操業から再冠水に至る期間の現実的な坑道周辺の地下水の流 れの想定を、表 2.6-3、及び表 2.6-4 にまとめた。なお、表 2.6-3 は岩盤の基質部、表 2.6-4 は岩 盤の亀裂部の地下水の流れをそれぞれ示しているが、操業過程に伴う原位置の水理環境の変遷は 両者とも基本的には同様な変遷の傾向になると考えられる。廃棄体と緩衝材の定置前では、処分 坑道や処分孔に向かう地下水流動場が形成される。この時、処分孔内の排水処理を行っていない 場合は、表 2.6-3 の縦断図に示されるように処分孔内の水位は処分坑道の底盤付近で維持される ことが考えられる。一方、廃棄体と緩衝材の定置時には処分孔内の湧水を排水する必要があるこ とから、処分孔内の水位は表 2.6-3 の横断図に示されるように処分孔の底盤付近で維持されるこ ととなる。廃棄体と緩衝材の定置後は、処分坑道に向かう地下水流動場が形成され、処分孔及び 処分孔周辺の水位が回復することとなる。この時に処分孔竪置きブロック方式の場合、施工条件 上、処分孔における岩盤と緩衝材間に隙間が生じ、この隙間を流れる地下水流速や液種が緩衝材 の膨潤特性と関連して緩衝材表面付近の密度が低下し、緩衝材の流出に大きく影響を及ぼすこと が考えられる。特に表 2.6-3 の縦断図に示すような切羽面などの施設外縁部においては、周囲の 水圧が高いため湧水量も多くなり、緩衝材の流出が生じやすいと考えられる。処分坑道埋め戻し 後は、周辺岩盤では時間経過に伴って圧力は徐々に平衡状態となり、地下水の流れが緩慢となっ てくる。一方、緩衝材及び埋め戻し材の不飽和領域の周囲では、水圧差による浸透、不飽和土に よる毛管現象、間隙空気の地下水への溶解などの複合的な要因により地下水の流れが形成される。 従って、流速などの条件によっては、処分坑道の埋め戻し後も引き続き緩衝材の流出の可能性が ある。緩衝材、埋め戻し材ともに飽和した再冠水後では、水圧差に起因する地下水の流れはほぼ なくなることから、緩衝材の流出もほとんど生じないと考えられる。


表 2.6-3 想定される現実的な坑道周辺の地下水の流れ(岩盤の基質部)



表 2.6-4 現実的な坑道周辺の地下水の流れ(岩盤の亀裂)

図 2.6-14 に示すように、緩衝材の再冠水期間における緩衝材の流出が懸念される期間は、①緩 衝材定置・処分坑道埋め戻し前までの期間、②処分坑道埋め戻し後・緩衝材飽和までの期間、の大 きく 2 つに分けられる。特に①緩衝材定置・処分坑道埋め戻し前までの期間においては、湧水によ る地下水流動が顕著であることから、緩衝材の流出が最も懸念される期間であり、また場の擾乱 を抑制する工学的対策を施せる時期もこの期間となる。従って、本サブタスクにおいては、緩衝 材の流出挙動とその影響範囲の把握、及び場の擾乱を抑制する工学的対策の検討を行う対象期間 を、①緩衝材定置・処分坑道埋め戻し前までの期間と設定する。そして、緩衝材の影響範囲と工学 的対策の効果を踏まえた上で、再冠水プロセスのモデル化に取り組み、緩衝材の状態変遷を予測 する解析手法を構築することとする。

本検討では、緩衝材流出に関しての挙動把握と工学的対策を含んだ施工方法を踏まえて、解析 的な手法で再冠水後の緩衝材の状態を示すために、解析方法について検討を行う。そのためには、 浸潤挙動や膨潤による密度の均質化などの力学試験による再冠水プロセスのモデル化ともに、解 析的手法の検証ツールの整備が必要である。この解析的手法には、緩衝材の流出も考慮すること とし、緩衝材の流出によって失われる緩衝材の量を考慮し、緩衝材の表面が削られることを前提 とし、流出を経た緩衝材の飽和後の状態を示すための手法の整備が必要である。この解析には、 主として水理・力学解析手法を用いるが、モデル試験と検証試験による妥当性の検討を行い、影響 の大きさを確認しながら、必要に応じて熱の影響なども取り入れられる解析手法の構築が望まし い。



図 2.6-14 本サブタスクの検討対象とする期間

#### 2) 工学的対策方法の選定

上述してきたように、処分孔竪置きブロック方式の場合、施工条件上、処分孔における岩盤と 緩衝材間に隙間が生じることとなるが、この隙間があることで湧水による緩衝材の流出が起こり やすくなり、水みちの形成や緩衝材表面の密度低下により、緩衝材に求められる機能が満たされ なくなることが懸念されるとともに、再冠水プロセスにおける緩衝材の密度分布の予測がより困 難になることが予想される。これらの工学的対策としては、以下のようなものが考えられる。 ○湧水処理による対策

- ・処分坑道埋め戻しまでの遮水シートの設置(原子力発電環境整備機構,2018)
- ・処分孔周辺のグラウト施工(原子力発電環境整備機構, 2018)
- ・処分坑道埋め戻しまでの処分孔内の強制排水
- ・水抜きボーリングの設置
- ○上蓋設置による対策

○ベントナイトペレットやケイ砂、現地発生土などを充填する隙間処理による対策

本サブタスクでは、これらの工学的対策のうち、実現性のある施工オプションとして、隙間処 理による工学的対策を検討対象とし、室内試験や原位置試験によりその工学的対策の効果を示す こととする。これは、ブロックを使った施工には隙間は必須であり、また、その隙間は現実的な 施工としては、施工の安定性の観点からも埋められるべきものであると考えられ、隙間緩衝材の 流出現象が、隙間があることによりに発生すると考えた時にも緩衝材の抑制につながる可能性が 高いと考えるためである。2.6.1 項(2)で述べたように、岩盤と緩衝材間の隙間を充填することに より緩衝材の流出抑制の効果が期待でき、ベントナイトペレットによる隙間充填については、一 定の緩衝材流出抑制の効果が確認されている(原子力環境整備促進・資金管理センター,2018b)。 しかし、ベントナイトペレットは、水と接触するとすぐに膨潤してしまい、湧水環境下にある岩 盤とブロックの間を均一に充填することが難しいことから施工性(充填性)が悪い。施工品質の 保証の観点で一定の品質を保つためには、原位置におけるベントナイトペレットの充填方法の検 討が必要となる。一方、ケイ砂による充填は、施工性(充填性)が良く、さらに処分孔壁からの 湧水に対して緩衝材表面への浸潤を単純化・平滑化できる可能性がある。この場合、処分場内に おける多様な湧水環境に依存せずに緩衝材の浸潤、膨潤が進行させることから、膨潤後の緩衝材 の品質保証の観点からも有利である。さらに、再冠水プロセスのモデル化の境界条件を多様な湧 水環境に依存せずに設定できることも期待でき、その結果、モデルへの適用性が高まる。しかし、 ケイ砂充填による対策については、緩衝材流出抑制の効果を確認できていないことから、室内試 験や原位置試験により対策効果を示す必要がある。なお、ケイ砂充填の場合は、充填部分の透水 係数は下がることになるが、閉鎖後の長期評価でケイ砂充填(隙間)部分の扱いは別途評価する ことを考える。以上なような考え方に基づき、本サブタスクの2年間では、ケイ砂充填による隙 間処理の工学的対策を実現性のある施工オプションの一つとして選定し、検討を進めることとす る。そのために、まず室内試験によりケイ砂充填の緩衝材流出抑制の効果を確認した上で、原位 置試験においても同様に緩衝材流出抑制の効果を確認する。なお、隙間処理による工学対策の設 定は、反復的な開発を行ううえで最初に設定する処理オプションの一つであり、緩衝材の安全機 能(期待される初期状態)を満たさないと判断される場合には、更なる工学的対策を検討する。 例えば、室内試験でケイ砂充填の緩衝材流出抑制の効果が認められなかった場合は、ベントナイ トペレットの充填方法の検討を行い、原位置試験においてベントナイトペレット充填の緩衝材流

また、処分孔上部の坑道を埋め戻すまでに、緩衝材の上部が開放されている状態を想定した場 合は、緩衝材の膨出に対する工学的対策も必要となる可能性がある。緩衝材の膨出対策としては、 核燃料サイクル開発機構(1999a)においてキャップによる対策が考えられており、そのキャッ プに作用する緩衝材膨潤圧を押さえる荷重として200 t が必要とされている(核燃料サイクル開 発機構,1999a)。しかし、この荷重は飽和時の平衡膨潤圧力(乾燥密度1.6 Mg/m<sup>3</sup>、膨潤応力0.5 MPa)によって計算されたものであることから、本検討の対象期間でもある処分孔上部の坑道を 埋め戻すまでの荷重としては過大であると考えられる。処分孔上部の坑道を埋め戻すまで期間に おいて、実際に緩衝材の膨出がどの程度生じるかは明確ではないことから、本サブタスクでは室 内試験により緩衝材の膨出程度の把握を行うこととする。しかし本サブタスクでは流出対策の実 現性の見通しを得ることを優先するため、地下環境における試験では、緩衝材の流出挙動に関す る工学的対策について優先的に検討する。

## 3) 再冠水プロセスのモデル化

再冠水後の緩衝材の状態(密度分布)を示すためには、再冠水プロセスのモデル化が必要とな る。上述したように、これまでに浸潤速度や残留密度差のモデル化を行ってきた。本サブタスク においても緩衝材流出後の再冠水プロセスのモデル化に取り組むが、緩衝材定置-処分坑道埋め 戻し前までの期間において懸念される緩衝材流出は、再冠水後の緩衝材の状態に大きく影響する ことが考えられることから、緩衝材流出を考慮した再冠水プロセスのモデル化が必要となる。緩 衝材流出に関するモデル化については、剥離モデルと膨潤モデルを連成させた解析例(POSIVA, 2013)があるが、国内産ベントナイトに関しての研究例はなく、モデル化するためのパラメータ が不足しいるのが現状である。本サブタスクでは、緩衝材流出現象のモデル化については踏み込 まず、緩衝材流出にも影響し、再冠水後の密度分布を示すために必要な隙間の充填挙動に関する モデル化に先行して取り組む。緩衝材流出については、膨潤した緩衝材表面から予測される量の 緩衝材が失われたと見做すことで、緩衝材流出の影響を加味し、流出の可能性がある期間を経た 緩衝材に対して再冠水プロセスのモデル化を進めていく方針とする。

#### (5) 実施概要

上述の検討方針を踏まえ、本サブタスクの2年間では、下記の取組みを実施する。

● 現実的な処分場の状態変遷を踏まえた緩衝材影響への定量化と隙間処理の工学的対策効

果の把握

- 流出挙動(隙間処理の効果)や膨潤過程を考慮した再冠水後の緩衝材の状態を予測する
   解析手法の構築)
- ここでは、上記の取組みの概要と下記①~④の実施内容の関係について述べる。
  - 地下坑道における流出試験
  - 現象理解のための室内試験
  - ③ 流出現象を考慮した緩衝材の挙動評価手法の開発
  - ④ 遠心模型試験による人工バリア再冠水挙動の評価

図 2.6-15 に取組みと各実施内容の関係性を示す。



図 2.6-15 本サブタスクにおける各実施内容の関係性

# 1) 実際の処分場の状態変遷を踏まえた緩衝材影響への定量化と隙間処理の工学的対策効果の把握

本取組みについては、"①地下坑道における流出試験(以下「原位置試験」という)"と"②現象 理解のための室内試験(以下「室内試験」という)"により実施する。これらの試験では、実際の 処分場の環境状態の変遷を考慮した試験条件で、工学的対策を行わない隙間がある状態と工学的 対策方法として設定するケイ砂の隙間充填の状態の試験を行い、緩衝材流出の有無や密度の不均 一性の程度を把握し、緩衝材の影響範囲の定量化を行う。またこれらの試験において緩衝材の流 出が生じる場合には、緩衝材流出後の緩衝材密度分布を把握して、緩衝材への影響範囲を定量化 する。そして両者の試験を比較することで、隙間処理の工学的対策効果を確認する。

原位置試験では、実際の処分場の環境状態変遷を考慮した試験条件を設定するために、試験孔 の湧水量測定、試験孔の水理試験などの地下環境条件の整理と試験装置の設計を本年度実施した。 そして本年度の成果を基に、次年度に実施する原位置流出試験にて、隙間に起因する緩衝材の機 能変化の範囲や程度の定量化、緩衝材と孔壁間の隙間処理による工学的対策の提示を行う。

室内試験では、次年度の実施する原位置流出試験の事前のリファレンス試験として、ケイ砂に よる隙間充填効果や緩衝材上部の膨出状況の把握のための試験を実施した。原位置流出試験は緩 衝材の流出量を確実に測定できる保証がないが、室内試験では定量的に緩衝材の流出量を把握で きることから、その測定結果からケイ砂の隙間処理による工学的対策効果を確認した。

# 流出挙動(隙間処理の効果)や膨潤過程を考慮した再冠水後の緩衝材の状態を予測する解析 手法の構築

本取組みについては、"②現象理解のための室内試験"、"③流出現象を考慮した緩衝材の挙動評 価手法の開発(以下「解析評価」という)"、及び"④遠心模型試験による人工バリア再冠水挙動の 評価(以下「遠心模型試験」という)"を組わせて実施することで、モデル化及び解析手法の高度 化を行った。

解析評価では、検討方針で示したように処分孔における岩盤と緩衝材間の隙間閉塞・膨潤過程 をモデル化し、再冠水過程における緩衝材の状態の変遷及び、再冠水後の緩衝材の密度分布を予 測する解析手法を構築する。本サブタスクでは、実スケールを対象とした解析に先立ち、室内試 験で用いるコア試験体サイズの問題を解析対象としたシミュレーションを実施し、室内試験結果 との比較・照合から、解析手法の妥当性・確からしさの検証を実施した。比較的単純な境界条件 下で生じる現象を解析により再現することによって、現象を解析に考慮する方法についての理解 を深め、実スケールでの応答を判明するための根拠とする。

室内試験では、上記の隙間閉塞・膨潤過程のモデル化に資するデータを取得する試験を実施した。

遠心模型試験では、地層処分などの分野における遠心模型試験の適用性及び緩衝材の再冠水過 程を対象とした解析結果の妥当性確認に関する文献調査を行い、情報の整理を本年度に実施する。 併せて、遠心模型試験により、緩衝材中の水の浸潤距離と経過時間(実物換算時間で数十年程度) の関係を取得し、その結果と既往室内試験結果(数年程度の試験)とを比較することにより、緩 衝材中の水の浸潤挙動を対象とした加速試験としての遠心模型試験適用性を評価する。文献調査 と試験による検証を基に、遠心模型試験の適用範囲・妥当性を精査し、遠心模型試験が数百年オ ーダーの処分環境の予測の検証ツールとしての妥当性を確認する。

#### 2.6.2 実施内容

#### (1) 地下坑道における流出試験

#### 研究計画の策定

原位置試験では、前項(2.6.1項(4))で述べたように、再冠水までの期間を見据えた工学的対策 を施せる期間が「処分孔内への廃棄体定置から処分坑道埋め戻しまでの期間」であることを念頭 に置き、現実的な処分場変遷を踏まえた緩衝材の流出抑制の工学的対策を設定し、その工学的対 策に伴う影響の範囲(緩衝材流出の有無、緩衝材の密度分布)を把握・評価することを目的とし た。ここでは、まず原位置試験を検証試験と位置づけ、研究計画について述べる。

処分孔竪置きブロック方式の処分概念において、オーバーパック及び緩衝材の定置時に必要と 考えられる隙間(緩衝材と孔壁の間に生じる隙間)に着目し、実現性のある工学的対策の1オプ ションとして、隙間処理による工学的対策を設定し、その効果を原位置試験により検証する。な お、隙間処理による工学的対策の設定は、反復的な開発を行ううえで最初に設定する処理オプシ ョンの1つであり、安全評価の要求(期待される初期性能)を満たさないと判断される場合には、 更なる工学的対策を検討する。隙間処理の工学的対策の設定は、後述する室内内試験の結果を基 に決定していくことから、原位置試験と室内試験は、連携して進めなければならない。

図 2.6-16 に原位置試験と室内試験の関係を示した概念図を示す。



図 2.6-16 原位置試験と室内試験の関係 概念図

原位置試験の2ヶ年計画を表2.6-5に示す。今年度は、地下坑道の環境の把握を主とし、試験 孔の出来形計測、試験孔の湧水量測定などを実施した。また、来年度の原位置試験に向けて、試 験装置の設計、緩衝材ブロックの製作を行った。

次年度より、幌延 URL の地下 350 m の試験坑道 5 において、隙間処理による工学的対策の効果を検証試験として地下坑道における流出試験を実施する。

表 2.6-5 原位置試験の 2 ヶ年計画

	1年目	2年目**
	平成 30 年度	平成 31 年度
原位置試験	◆地下坑道における環境の把握	◆地下坑道における流出試験
実施内容	1. 試験環境の整備	・リファレンス(隙間あり)ケース
	・試験孔の出来形瀬計測	・隙間処理による工学的対策効果の
	2. 試験孔の湧水量測定	検証ケース
	3. 試験孔の水理試験	
	4.試験装置の概念設計	

※2年目の実施内容は、今年度の結果を基に随時更新

## 2) 地下坑道における環境把握

地下坑道における環境把握は、幌延 URL 地下 350 m 試験坑道 5 (図 2.6-17) 内に設置してい る試験孔 1 及び試験孔 2 を対象とし、湧水量測定、水理試験などを実施した。以下に、地下坑道 における環境把握として、今年度実施した個別の結果を記載する。



図 2.6-17 地下 350 m 試験坑道 5 説明図及び写真

# ① 試験孔の出来形計測

試験環境の整備として、試験孔1及び2の容積算出を目的とした試験孔の出来形計測(レベル 測量、3Dスキャナー計測)を実施した。各孔の測定位置を図2.6-18に示す。レベル測量結果を 表2.6-6に示す。なお、各位置の深さは、コンクリートピット底盤の8箇所(図2.6-18のA~H) で測定したレベルの平均値と試験孔底盤の各位置のレベル(図2.6-18の①~⑨)の差とした。3D スキャナー計測を基に算出した各試験孔の容積を表2.6-7に示す。また、データ処理後の孔壁の 三次元表示結果を図2.6-22、図2.6-23に示す。



図 2.6-18 試験孔の深さ測定位置図(左)、コンクリートピット及び試験孔写真(右)

	試験	孔 1	試験孔 2		
測定位置	深さ (m)	A~Hの 平均値との差 (m)	深さ (m)	A~Hの 平均値との差 (m)	
北①	1.774	-0.009	1.609	-0.006	
北東②	1.778	-0.005	1.618	0.003	
東③	1.794	0.011	1.623	0.008	
南東④	1.795	0.012	1.624	0.009	
南⑤	1.795	0.012	1.631	0.016	
南西⑥	1.798	0.015	1.641	0.026	
西⑦	1.775	-0.008	1.594	-0.021	
北西⑧	1.778	-0.005	1.608	-0.007	
中央⑨	1.763	-0.020	1.591	-0.024	
深さ平均値	1.784	標準偏差 0.012	1.615	標準偏差 0.016	

表 2.6-6 レベル測量結果 各試験孔深さ



図 2.6-19 計測前の試験孔(左)、孔内排水(右)



図 2.6-20 ターゲット設置(左)、計測(右)



図 2.6-21 計測 (左)、計測データ確認(右)

# 表 2.6-7 各試験孔の容積算出結果

孔名	容積(m³)
試験孔1	0.465
試験孔2	0.410





#### 試験孔の湧水量測定

試験孔1及び2について、湧水量測定を実施した。測定対象孔を排水した状態で連続測定可能 な投げ込み式水位計を孔底に設置し、湧水による水位回復過程において上昇する静水圧を測定し た。試験孔への湧水の流入量は、水位と試験孔またはコンクリートピットの断面積を乗じて得ら れた値とし、それを該当時間で除した値(すなわち、単位時間あたりの湧水の流入量)を流量と した。測定対象でない方の試験孔の水位は、満水状態とした。

湧水量の測定結果を図 2.6-24 に示す。





試験孔1の湧水量が回復する時間として、試験孔天端までの水位回復に6時間、コンクリート ピット天端までの水位回復には、4日となった。湧水量として、試験孔天端の水位では、1000 mL/min、コンクリートピット天端の水位では、10 mL/min となった。

試験孔 2 の湧水量が回復する時間として、試験孔天端までの水位回復に 13 時間、コンクリートピット天端までの水位回復には、5 日となった。湧水量として、試験孔天端の水位では、300 mL/min、コンクリートピット天端の水位では、20 mL/min となった。

# 3 試験孔の透水試験

# (a) 試験方法

湧水量測定の後、試験孔1及び2の周辺岩盤の水理特性(透水係数)を把握するため、透水試験を実施した。図2.6-25に透水試験の装置全体の概念図を示す



図 2.6-25 透水試験の装置全体 概念図

透水試験の具体的な手順を以下に示す。

- ・測定対象とする試験孔に注水などの配管を組み立てる。
- ・測定対象の試験孔を満水状態にするために、測定対象外の試験孔に注水流量 200 mL/min 程 度で注水する。この際、エア抜き用の配管バルブは開けておく。
- ・測定対象外試験孔のエア抜きが終わり、エア抜きバルブからの排水が確認されたら、バルブ を閉じ、注水を終了する。
- ・測定対象、及び測定対象外の試験孔の周辺岩盤の間隙水圧を安定させる(間隙水圧はコンク リートピット底盤から下方 830 mm の位置に投げ込み式水位計を設置して測定)。
- ・間隙水圧の安定が確認されたのち、測定対象の試験孔に1段階目の設定注水量で注水し、試験を開始する。
- ・試験区間の圧力(水頭)の安定を確認(30分程度静置)後、次の段階の流量まで増加する。 なお、各段階に増加させる量は一定量とし、試験孔1の場合は400mL/minずつ、試験孔2 の場合は200mL/minずつ増加させることとした。
- ・注水流量を4段階目まで増加後、試験区間圧力(水頭)の安定を確認した時点で、流量と注 水区間圧力(水頭)を測定し、試験を終了する。

ケース	試験孔1	試験孔 2	試験孔3
1	閉	測定	閉
2	開	測定	開
3	開	測定	閉
4	閉	測定	開
5	測定	開	開
6	測定	閉	閉

# 表 2.6-8 透水試験 試験ケース

閉:試験上部に設置した蓋のバルブを閉じた状態

開:試験上部に設置した蓋のバルブを開けた状態

# (b) 試験結果

## (i)段階注水による試験孔水位(水頭)の変化

段階的に注水流量を上昇させた際の試験孔水位(水頭)の時間変化のグラフを表 2.6-9 に示す。 グラフ中の試験孔水位(水頭)は、コンクリートピット底盤(試験孔上端)を基準面(0 mm)と している。また、水位(水頭)の計測は、コンクリートピット底盤(試験孔上端)面から-830 mm の位置に水位計を設置して、計測を行った。



# 表 2.6-9 透水試験結果 流量と水位 (水頭)の経時変化図

## (ii) 透水係数の算出

各試験孔周辺岩盤の透水係数を求めるために、注水流量と水位差の関係について整理したグラフを図 2.6-26 に示す。



(a) 試験孔2の結果(ケース1~ケース4)



図 2.6-26 透水試験結果 注水流量と水位差の関係

「地盤調査の方法と解説」(地盤工学会, 2013)に示される次式を用いて透水係数を算出した。

$$k = Q/2\pi s L^* \ln[L/D + \{1 + (L/D)^2\}^{1/2}]$$
(2.6-1)

ここに、 k:透水係数 (m/s) Q: 注水量(m<sup>3</sup>/s)

L:試験区間(m)

D: 試験孔直径(m)

s:水位(水頭)変動量(m)

表 2.6-10 に、各試験ケースの透水係数の算出結果を示す。

試験孔2では、どのケースにおいても、10<sup>-6</sup>(m/s)オーダーとなり、対象孔以外のバルブの状態(試験孔上部の開放状態)の違いによる透水係数への影響がない結果となった。

試験孔1では、ケース5でk=7.03×10<sup>6</sup>(m/s)、ケース6でk=6.18×10<sup>6</sup>(m/s)となり、大きな差はなく、試験孔2の透水試験と同様に、対象孔以外のバルブの状態(試験孔上部の開放状態)の違いによる透水係数への影響がない結果となった。

試験対象孔 ケースNo	ケースNo	対象外孔の バルブの	試験区間	試験孔直径	設定注水量	実注水量	水位変化	透水係数	平均 透水係数
		状態	L(m)	D(m)	(mL/分)	Q(mL/分)	s(m)	k(m/sec)	k(m/s)
	ケース1	孔1:閉 孔3:閉	0.83	0.58	800	800.7	2.213	$1.34 \times 10^{-6}$	
試験孔2	ケース2	孔1:開 孔3:開	0.83	0.58	800	798.9	2.138	$1.38 \times 10^{-6}$	1 2010-6
	ケース3	孔1:開 孔3:閉	0.83	0.58	800	802.3	2.146	$1.38 \times 10^{-6}$	1.39×10 *
	ケース4	孔1:閉 孔3:開	0.83	0.58	800	805.0	2.036	$1.46 \times 10^{-6}$	
計版7月1	ケース5	孔2:開 孔3:開	0.83	0.58	1800	1823.5	0.959	$7.03 \times 10^{-6}$	0.01×10 <sup>-6</sup>
試験孔1	ケース6	孔2:閉 孔3:閉	0.83	0.58	1800	1797.3	1.074	$6.18 \times 10^{-6}$	6.61×10 °

表 2.6-10 透水係数の算出結果

今回、本事業で実施した透水試験の結果は、幌延 URL の深度 350 m における掘削影響領域の 透水係数オーダー(日本原子力研究開発機構, 2016b)と、同等な結果となった。

#### 3) 試験装置

図 2.6-27 に示した原位置試験の概要図を示す。今後の試験に定置冶具が必要となるため、別途 設計を行う。



図 2.6-27 原位置試験の概念図

原位置試験では、8 個分の緩衝材ブロックを組み合わせてドーナツ状にし、これらを鉛直に 8 段積み重ね、試験孔に設置する。そのため、8 個×8 段分の緩衝材ブロックを試験孔に簡便に設置するための冶具を必要とする。設計を実施するにあたり、より現実的な湧水環境を模擬するため、最下段の緩衝材ブロックの底面が地下水と接触するように、定置冶具の底板全面に φ10 mm の穴を多数設けることとした。

なお、次年度に実施する原位置試験は、今年度の室内試験の結果を基に、随時更新していく計 画である。

#### 4) 緩衝材ブロックの製作

次年度に実施する原位置試験に向けて、緩衝材ブロックを製作した。製作した緩衝材ブロック の仕様を表 2.6-11 に、外観の模式図を図 2.6-28 に示す。

既往の成果(核燃料サイクル開発機構,1999a)より緩衝材において静的圧力による締固め特性 について示されており、ケイ砂混合率 30 wt%では静的圧力 20 MPa、及び静的圧力 50 MPa の いずれの場合でも含水比10%付近で締固め性が最も高くなる。これより、本緩衝材ブロックにつ いては、ケイ砂混合率 30 wt%、製作時乾燥密度1.92 Mg/m<sup>3</sup>(試験孔寸法に対し膨潤時の乾燥密 度1.60 Mg/m<sup>3</sup>)の緩衝材ブロックの製作時含水比を10.5%と設定した。

# 表 2.6-11 緩衝材ブロックの仕様

(a) 緩衝材ブロック製作に係る仕様

	ベントナイト(クニゲル V1)70 wt%					
材料(混合土) +ケイ砂 30 wt%						
	(日陶連原料	(日陶連原料(株)3 号 15 wt%+日陶連原料(株)5 号 15 wt%)				
混合水	水道水					
<i>赴祖 索</i> 広	膨潤後	$1.60 \mathrm{~Mg/m^{3}}$				
乾燥留度	製作時 1.92 Mg/m <sup>3</sup>					
混合土製作時の	11 15 0/					
含水比	11.15 %					

(b) 緩衝材ブロックの形状に係る仕様

形状	ドーナツの8分割型の扇型ブロック
寸法	外径 0.54 m、内径 0.21 m、厚さ 0.10 m のドーナツを 8 等分した形状
重量	5.1 kg/ブロック



図 2.6-28 緩衝材ブロックの外観(扇型ブロック)

# (2) 現象理解のための室内試験

# 1) 実施概要

室内試験では、次年度の実施する原位置流出試験の事前の試験として、ケイ砂による隙間充填 効果や緩衝材上部の膨出状況の把握のために下記の試験を実施する計画とした。

○工学的対策効果及び膨出状況の把握に係る試験小規模試験

工学的対策を行わない隙間がある状態と工学的対策方法として設定するケイ砂の隙間充填の状態の試験、及び試験セルの上部を開放した状態と拘束した状態の試験をそれぞれ実施することで、 隙間処理の工学的対策効果と緩衝材上部の膨出状況の把握を行う。本試験では直径十数 cm 程度 の小規模試験セルを用いて実施する。 ○工学的対策効果及び膨出状況の把握に係る試験工学規模試験

上記試験で使用する小型試験セルでは、原位置流出試験と比較して試験規模が小さくなること から、試験規模の違いによる影響の把握が必要となる。本試験では直径が数十 cm 程度の工学規 模試験セルを用いて、緩衝材流出の有無や密度の不均一性の程度を把握し、緩衝材の影響範囲の 定量化を行うことで、隙間処理の工学的対策効果と緩衝材上部の膨出状況を把握する。上記の試 験では、原位置流出試験では計測が困難な緩衝材流出量を定量的に計測できることから、緩衝材 流出量を測定することによって、ケイ砂の隙間処理による工学的対策効果を確認する。また、実 際の処分場の環境状態の変遷を考慮した試験条件とするため、2.6.2 項(1) 2)で把握した湧水環境 を基に注水方法・条件を設定することとする。

#### ○緩衝材の膨潤率試験

緩衝材の設計では、緩衝材の自己シール性を確保するために、緩衝材の最大膨潤率が緩衝材の 隙間体積比の2倍以上となるように厚さと密度を設定している(原子力発電環境整備機構,2018)。 ベントナイトの淡水や人工海水に対する最大膨潤率と初期有効粘土密度の関係は、田中・中村 (2005)や戸井田ほか(2005)により取得されているが、幌延地下水における関係は取得されて いない。本試験では、原位置流出試験結果を評価するために必要な、幌延地下水における緩衝材 の膨潤率を測定する。

○再冠水過程のモデル化に資するデータ取得試験

本サブタスクでは、後述する 2.6.3 項(3)の流出現象を考慮した緩衝材の挙動評価手法の開発に おいて、処分孔における岩盤と緩衝材間の隙間閉塞・膨潤過程のモデル化を行うことから、本試 験では、その膨潤・隙間充填過程シミュレーション結果の検証データを取得する試験を次年度に 実施する。

#### 2) 工学的対策効果及び膨出状況の把握に係る小規模試験

本試験では図 2.6-29 に示す小型試験セルを用いて、隙間処理の工学的対策効果と緩衝材上部の 膨出状況の把握を行った。実施した試験ケースを表 2.6-12 に示す。隙間処理の工学的対策効果を 把握するために、隙間がある状態と工学的対策方法として設定するケイ砂(3 号)の隙間充填の 状態の試験を実施した。また緩衝材上部の膨出状況の把握のために、試験セルの上部を開放した 状態と体積拘束した状態の試験を実施した。加えて、充填するケイ砂の粒径の違いによる工学的 対策効果の違いを把握するために、3 号ケイ砂で隙間充填した状態と 6 号ケイ砂で隙間充填した 状態の試験を実施した。

試験で使用した緩衝材の材料は、Na型ベントナイト(クニゲルV1)にケイ砂3号とケイ砂5 号を乾燥質量比7:1.5:1.5で混合したもので、供試体膨潤後の平均乾燥密度が1.60 Mg/m<sup>3</sup>程度 となるように作製した。2.6.2項(1)2)で把握した湧水環境を基に設定した10 mL/minの流速で2 連動のシリンジポンプにより7日間注水を行った。注水する液種は幌延地下水を模擬した組成の 水溶液(これ以降、「幌延模擬地下水」と記す)とした。幌延模擬地下水の組成表を表 2.6-13 に 示す。測定項目は、試験中の注水量、注水圧、緩衝材流出量、試験前後の緩衝材の乾燥密度と飽 和度、膨出量である。



図 2.6-29 小規模試験セル

	試験	ケース	供試体寸法	隙間 寸法	注水条件	試験 期間	液種
1	上如均古	隙間有り					
2	工即拘束	ケイ砂3号充填					幌延地下水
3		隙間有り	φ100×H50 mm	5  mm	10 mL/min	7日間	を模擬した
4	上部開放	ケイ砂3号充填			11112/111111		水溶液
5		ケイ砂6号充填					

表 2.6-12 小	規模試験セルの	試験ケース
------------	---------	-------

表 2.6-13 幌延地下水と幌延模擬地下水の組成

項目		幌延地下水	幌延模擬地下水
pH	_	7.9	7.8
ナトリウムイオン	mg/L	2,842	2,890
カリウムイオン	mg/L	125	63.6
カルシウムイオン	mg/L	53.8	26.8
マグネシウムイオン	mg/L	47.2	56.2
塩化物イオン	mg/L	3,464	3,420
炭酸水素イオン	mg/L	2,100	2,090
ホウ素	mg/L	69.9	71.4

なお緩衝材流出量の測定には、既往の研究において実績のあるバッチ式の測定方法(原子力環 境整備促進・資金管理センター,2012;2015;2016;2017a)を採用した。これは、一定期間の 排水を溜め置いて、十分に攪拌した排水を200 mL 程度採水して吸光度を計測し、事前に取得し た吸光度と緩衝材(緩衝材中のモンモリロナイト)の濃度の関係から、その期間の緩衝材の粘土 成分の流出量を算出する方法である。

上部拘束時の隙間有りとケイ砂3号充填の試験ケースにおける総通水量と緩衝材流出量の関係 図を図2.6-30に示す。ケイ砂による充填の有無で比較すると、ケイ砂を隙間に充填したケースの 方が、明らかに緩衝材流出量が小さかった。この結果から、定置後初期において、ケイ砂を隙間 に充填する効果はあると考えられる。ケイ砂を充填し、膨潤を抑制することによってパイピング 現象の発生を防いでおり、このため、隙間を充填しない場合の総送水量と緩衝材流出量の関係よ りも流出量が小さくなったものと考えられる。また、図中には既往研究(原子力環境整備促進・ 資金管理センター,2018)で得られた通水液を蒸留水とし、100 mL/min で通水した時の隙間有 りの試験で得られた総流量と緩衝材流出量の関係を近似線で示した。本試験と送水量が 10 倍異 なるが、総送水量と緩衝材流出量の関係は、最終的に既往の研究結果に漸近する結果となった。 既往の研究(原子力環境整備促進・資金管理センター,2012;2015;2016;2017a)によれば、 流出現象は、パイピング現象によって形成された水みち近傍での非常に局所的な現象であり、送 水量や乾燥密度などに依らずベントナイトの種類や液種の影響が大きいと考察されており、この 結果は既往の研究の考察と整合する結果である。

今回の試験は、約1週間(167時間)の試験であり、長期に通水を継続して緩衝材の膨潤が進 むことにより、流出の状態が変化する可能性もあるため、長期の試験も必要である。また、スケ ールアップした時の効果も確認する必要があるため、来年度以降、試験により確認する。

図2.6-31に示した3号ケイ砂を充填したケースでの上部拘束と上部開放の試験の比較では、上 部拘束した方が流出量は少なかった。これは、上部開放により膨出した緩衝材が流出量に加算さ れているためと考えられる。同図に示したケイ砂の粒度を変えた試験の比較では、6号ケイ砂を 隙間に充填したケースでは、上部を拘束して3号ケイ砂を充填したケースとほぼ同じ流出量であ り、上部開放した6号ケイ砂では、3号ケイ砂のケースのように膨出による緩衝材の外部への流 出の寄与がなかった可能性がある。また、3号ケイ砂の方が粒径は大きく、間隙が大きいことが 流速に影響したことも考えられるため、来年度、上部拘束したケースで粒度の効果を確認する。



図 2.6-30 上部拘束時の隙間有りとケイ砂 3 号充填の試験ケースにおける 総通水量と緩衝材流出量の関係



図 2.6-32 上部開放で 3 号ケイ砂を充填して 10 mL/min の流量で幌延地下水を通水したケース の、試験状況を示す。写真から、供試体が膨潤して、セルから 5 cm 程度膨出していることが分 かる。この際、底面はセルの底版と接している(図 2.6-32(d)) ことから、ケイ砂を充填すること で、常に一定の水みちが確保され、送水圧が全応力として供試体底面に作用することを防ぎ、浮 き上がりを防止していることが分かる。膨出部を除去した上部の面(図 2.6-32(e))では、供試体 の色から中央部の含水率が低いことがうかがえ、膨出部は充填したケイ砂近傍であり、供試体 のもから中央部の含水率が低いことがうかがえ、膨出部は充填しないケースでは、膨潤・膨 出が進み供試体底面に応力がかかった結果、供試体が浮き上がってしまった。セルの側面の摩擦 係数が低いこと、供試体の自重が小さいことなどが影響しているため、実規模での現象とは異な

ると考えられる。



(a)上面

(b)側面

(c)斜め上方



(d)底面(e)膨出部除去面(f)断面図 2.6-32上部開放、3 号ケイ砂充填ケースの試験状況

# 3) 工学的対策効果及び膨出状況の把握に係る工学規模試験

本試験では図 2.6-33 及び図 2.6-34 に示す工学規模試験セルを用いて、工学的対策効果と膨出 状況における試験規模の違いの影響把握を行った。本年度は、実際の処分場の環境状態の変遷を 考慮した試験条件下で、緩衝材流出の有無や緩衝材上部の膨出の程度、及び密度の不均一性の程 度を把握するために、緩衝材の側部の隙間があり、緩衝材上部を開放した状態の試験を実施した。 試験条件を表 2.6-14 に示す。

試験で使用した緩衝材の材料や密度は、2.6.2 項(2) 2)の小規模室内試験と同様なものとした。 次年度実施する原位置試験の条件と2.6.2 項(1) 2)で測定した原位置の試験孔上部での湧水量を基 に設定した 300 mL/min の流量で2 連動のシリンジポンプにより4.5 日間程度注水を行い、緩衝 材流出の有無を観測した。一方、300 mL/min の流量で長期間の試験を実施することは困難なた め、300 mL/min で4.5 日間程度注水した後、段階的に注水量を落とし、原位置試験では、坑道 の底盤位置での湧水量にあたる10 mL/min の流量で30 日間注水して緩衝材上部の膨出の程度を 測定した。注水する液種は幌延地下水の組成を模擬した水溶液を調整し、用いた。測定項目は、 試験中の注水量、注水圧、緩衝材流出量、試験前後の緩衝材の乾燥密度と飽和度、膨出量である。



図 2.6-33 工学規模試験セルのイメージ



図 2.6-34 工学規模験セル

表 2.6-14 工学模試験セルの詞	試験条件
--------------------	------

試験	ケース	供試体寸法	隙間 寸法	注水条件	試験 期間	液種
上部開放	隙間有り	φ500×H600 mm	20~30 mm	300 mL/min ↓ 200 mL/min ↓ 100 mL/min ↓ 10 mL/min	4.5 日間 → 3 日間 → 3 日間 → 30 日間	幌延模擬 地下水

図 2.6-35 に通水量を 100 mL/min から 10 mL/min に切り替えた時点の緩衝材の側面の写真と 隙間が埋まっていく途中の状況を示す。a)、b)の写真から、パイピング現象が起きていることが わかる。隙間が緩衝材によってシールされているように見えるが、c)に示すように、供試体の表面から剥落した緩衝材が隙間に堆積して、その堆積物が隙間を充填していく状況が途中で観察された。この状況は、イオン交換水による試験(原子力環境整備促進・資金管理センター, 2018) とは異なるプロセスである。



a) 側面の水みち







c) 隙間が沈殿物で充填されていく状況

図 2.6-35 工学規模試験での流出試験の状況

図 2.6-36 には、総送水量と緩衝材流出量の関係を示す。図には、既往の研究(原子力環境整備 促進・資金管理センター,2016;2017a;2018b)で実施された工学規模試験の結果も併せて示す。 図から、同じ総送水量で比較すると、既往の研究結果に比べて今回の試験の緩衝材の流出量が大 きいことが分かる。これは、緩衝材の膨出部が崩れて流出することの影響や、幌延地下水の組成 を模擬した地下水に含まれる Ca<sup>2+</sup>イオンが炭酸カルシウムとして析出していることが確認され ており、その影響で流出量として計測される値が高くなっていることなどが影響している可能性 がある。いずれにしても、上部開放状態での試験であることが影響を与えていることになり、緩 衝材の上部は緩衝材の流出の工学的対策を確認するための試験は、上部を拘束した試験をする必 要があると言える。





# 4) 緩衝材の膨潤率試験

幌延地下水における最大膨潤率と初期有効粘土密度の関係がこれまでに取得されていないことから、原位置流出試験の評価に資するために、本試験では図 2.6-37 に示す試験セルを用いて幌延地下水における緩衝材の膨潤率を測定した。試験ケースは表 2.6-15 に示す緩衝材の初期の乾燥密度を 1.2~2.3 Mg/m<sup>3</sup>の範囲で異なる密度を 7 ケース設定した。

試験で使用した緩衝材の材料は、Na型ベントナイト(クニゲルV1)にケイ砂3号とケイ砂5 号を乾燥質量比7:1.5:1.5 で混合したものである。また液種は原位置の試験孔で採水した幌延 地下水を使用した。



図 2.6-37 膨出率試験セル

試験ケース					
	乾燥密度	有効ベントナイト乾燥密度	供試体寸法	境界条件	液種
	$Mg/m^3$	$Mg/m^3$			
1	1.2	0.97			
2	1.4	1.16	φ60×H5 mm MPa 荷重一定 0.0088 伊		幌延原位置の地下水
3	1.6	1.36			
4	1.8	1.57			
5	2.0	1.79			
6	2.2	2.01	]		
7	2.3	2.20			

表 2.6-15 膨出率試験セルの試験ケース

試験結果より得られた幌延地下水における最大膨潤率と初期有効粘土密度の関係を図 2.6-38 に示す。図には、既往の研究(田中・中村,2005;戸井田ほか,2005)の蒸留水、10%人工海水、 人工海水を用いて得られた結果も併せて示している。既往の研究では、初期有効ベントナイト乾 燥密度が大きくなるほど最大膨潤率は大きくなり、その関係は線形であった。また、その勾配は、 既往の研究において蒸留水と 10%人工海水を用いたケースでは平行で、人工海水の勾配は、蒸留 水や 10%人工海水を用いたケースに比べ、緩いという結果であった。蒸留水の場合が最も膨潤率 が大きく、10%人工海水、人工海水とイオン強度が高くなることにより膨潤率は低くなっていた。 本検討の結果では、初期有効ベントナイト乾燥密度と最大膨潤率の関係、既往の研究と同様に線 形であり、既往の研究と整合する結果となった。さらに、その膨潤率は、幌延地下水は人工海水 と比べるとイオン強度が低いにもかかわらず、人工海水を用いた既往の研究結果と概ね一致する ことが分かった。本検討の膨潤後乾燥密度が人工海水と同等の値になっているのは、供試体がケ イ砂を 30wt%含んでいるため膨潤性能が小さいのに対して、人工海水の 1/3 程度のイオン強度の ため膨潤しやすい条件となり、互いに相殺している可能性がある。



図 2.6-38 最大膨潤率と初期有効粘土密度の関係

今回得られた幌延地下水での膨潤率測定の結果から、緩衝材の自己シール性の機能を幌延地下 水環境で評価する場合には、海水環境での評価と同等と考えることができることがわかった。

#### (3) 流出現象を考慮した緩衝材の挙動評価手法の開発

#### 1) 再冠水過程を対象とした解析的評価に考慮すべき事象

ベントナイトの再冠水に関連するプロセスの評価については、SKBのレポートなどでも述べら れている(Hökmark et al., 2009; Börgesson et al., 2015; Leonira, 2018 など)。プロセスの検 討は KBS-3V の概念に基づいて行われているが、ほとんどのプロセスは緩衝材で一般的なもので あり、考慮すべき事象については廃棄体を囲むベントナイト緩衝材に関して共通のものとして扱 えるものと考えられる。以下に解析的な評価をする際に考慮すべき要素を挙げる。

- ·緩衝材流出
- ・緩衝材の温度変化(ピーク温度の計算)
- ・再冠水の時間スケール
- ・緩衝材の力学挙動の変化
- ・緩衝材の均質化
- ・ベントナイト質量の減少後の緩衝材均質化
- ・緩衝材の膨出
- ・キャニスターの沈下

これらの要素について、解析に取り入れて評価し、その結果を現実的な評価とするためには、 処分概念に基づいた評価が必要となる。日本における処分概念はまだ、決定されていないが、現 在の有力な概念である、竪置き定置方式と横置き PEM 方式については少なくとも再冠水プロセ スと再冠水後の状態を評価できるツールを持たなければならない。そのツールとしての力学的解 析に関しては、膨潤性粘土の性質の理解とその密度分布の均質化につながる基本的なプロセスの 把握、並びに数値モデリングの高度化が水理・力学的挙動とその結果として生じる人工バリアの性 能を評価するために不可欠である。

本サブタスクでは、2.6.1 項(4)で述べたように緩衝材の流出に関しては、ベントナイト質量の 減少として取り扱い、ベントナイト質量減少後の緩衝材の密度分布の均質化についての解析的な 検討手法について検討する。均質化を解析手法によって評価する際には、上記に示したその他の 要素も相互に影響し合い、関連しているため複数の要素の関連を考慮して総合的に評価すること が必要である。しかし、解析的な評価をするにあたり、これらを一度に連成させるには、現象・ 要素が相互に複雑に関連しているため、合理的ではないと考える。まずは、それぞれの事象につ いて単純な系での試験結果に基づいてモデル化し、解析手法を構築していくことにより、対象と すべき事象の影響の大小を把握し、必要に応じた連成をすべきと考える。

そこで、本年度からの力学解析については、緩衝材の流出を考慮した時に重要となる隙間の充 填のプロセスを対象とすることとした。流出は、緩衝材と岩盤の間に隙間がある場合に、緩衝材 の表面が膨潤により密度が低い状態となった時に主に発生し、緩衝材に作用する流速と緩衝材の せん断強度の大小によって、生じると考えられる。そのため、隙間が緩衝材の膨潤性によって埋 められていく過程で、緩衝材の密度分布がどのように変化するのかを把握することは重要である。 試験では、緩衝材内部の密度分布の変化の過程を把握することは困難であるため、解析的に把握 することは、現象理解のために有用な情報となる。また、質量が減少した際の均質化の評価も同 じ手法によってできると考えられる。

# 2) DACSAR を使った力学解析の検討

これまでの検討(原子力環境整備促進・資金管理センター,2018b)においては、2.6.1 項(2)に 示したように、室内試験における浸潤の進展に伴う再冠水挙動をある程度表現できるようになっ たが、緩衝材の流出現象は考慮されていない。そこで本検討では上述のように、緩衝材の流出現 象による緩衝材の損失を考慮することを最終目標とし、DACSARを解析ツールとして、緩衝材と 岩盤の隙間への膨潤による充填プロセスの把握を行う。この検討よって上述のような事象の評価 方法を構築するとともに、再冠水プロセスにおける緩衝材の密度や応力の変化のメカニズムを理 解することにもつながると考えられる。

表 2.6-16 に本取組の研究計画を示す。段階的な検討とする為、本年度はより簡易な初期状態を 飽和と仮定した膨潤・隙間充填過程シミュレーションを実施し、その結果を踏まえて来年度に不 飽和を初期状態としたケースを実施する。

	2018			2019						
	4	7	10	1	4	7	10	1		
	飽和供試体									
<b>哎!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!</b>										
脳泪・原间尤項適程										
9210-935	不飽和供試体						1	1		
							1	1	1	
取りまと										

表 2.6-16 DACSAR を使った力学解析の研究計画

#### 解析ケース

飽和した地盤材料の土/水連成問題を扱う有限要素解析コード DACSAR(金澤ほか,2008) を用い、一次元の膨潤・隙間充填過程シミュレーションを実施した。解析ケース一覧を表 2.6-17 に示す。Case 1 は膨潤変位の限界を設けず、解析対象とする期間中、常に自由膨潤状態 にあるとした。Case 2 から Case 4 までは、それぞれ隙間幅を 5.0、7.5、10.0 mm とした。こ れらを比較することにより充填プロセスの影響把握を行った。図 2.6-39 に膨潤・隙間充填過程 シミュレーションの概念図を示す。

	衣 2.0-17 胜州クラ	- 人一見	
ケース名	隙間幅	充填後の平均乾燥密度	
Case 1	膨潤変形の限界なし	_	
Case 2	5.0  mm	$1.60 \text{ Mg/m}^3$	
Case 3	7.5 mm	$1.07 \text{ Mg/m}^3$	
Case 4	10.0 mm	$0.80 \mathrm{~Mg/m^3}$	



# ② 解析条件

#### (a) 初期条件

初期状態は、緩衝材が高密度に締め固められ、さらに締固め後の乾燥密度を維持したまま、蒸留水によって飽和化した状態を想定する。解析の初期状態を作成するまでの過程の概念図を図 2.6-40 に示す。飽和供試体は均質であり、応力状態は等方応力状態にあるという仮定を設けた。 また、背圧はゼロと仮定した。



図 2.6-40 初期状態に至るまでのプロセス

膨潤圧は、同材料に対する鈴木・藤田(1999)によるケイ砂 30%混合クニゲル V1の膨潤圧試験の結果を参照して定めた。本解析の初期状態(乾燥密度:1.778 Mg/m<sup>3</sup>、間隙比:0.539)における膨潤圧は 1290 kPa と推定し、上述の初期応力を決定した。

# (b) 解析モデル及び境界条件

解析では、供試体側面と内壁面との摩擦を無視し、鉛直方向の変形、並びに、鉛直方向の間隙 水の流れのみを考えるため、円筒供試体の軸方向に沿った一次元問題とした。したがって、二次 元軸対称条件を仮定し、円筒供試体の半径方向の一断面を対象としつつも、半径方向には要素を 分割していない。円筒供試体の軸方向方向は、初期供試体高さ45mmに対して、9節点アイソパ ラメトリック要素を用いて25要素分割している。図2.6・41に解析モデルと境界条件を示す。ま た、排水/給水境界となる供試体上面に位置する節点に境界条件として与える水圧の時間変化を 図2.6・41の右図に示す。隙間への給水過程は、数値計算の収束性を良くするため60秒の時間を 設け、水圧を初期値・1290kPaから0kPaまで線形に上昇させた。その後は、境界の水圧を一定 に保ち、365日の放置期間を設けた。下端面の節点以外は、円筒供試体の軸方向方向の変位を許 すが、上端面の節点が所定の変位に達したとき、つまり、供試体が隙間を充填したと判断された とき、上端面の節点の変位を拘束した。



図 2.6-41 解析モデルと境界条件

#### (c) 解析物性值

#### (i) 力学パラメータ

本解析では飽和ベントナイトの吸水膨潤挙動を表現するために、有効応力とひずみの関係を記述する構成関係として、ダイレイタンシー応答を表現する弾塑性構成モデルである修正 Cam-clayモデル(Roscoe and Burland, 1968)に、塑性膨潤(Plastic rebound)の概念(Amerashinghe and Kraft, 1983)を考慮した構成モデル(伊藤, 2017)を用いる。用いた構成モデルのパラメーター覧を表 2.6-18 に示す。このうちパラメータくの決定にあたっては、理想的には、載荷・除荷・再載荷過程を含む等方圧密試験の結果があれば好ましい。しかしながら、ベントナイトのような低透水・膨潤性材料について、このような試験を実施することは供試体作製や制御の観点から困難である。よって本検討においては、対象とする材料(ケイ砂 30%混合クニゲル V1)について過去に実施されている一次元圧密試験(原子力環境整備促進・資金管理センター, 2018b)及び非排水せん断試験の両方の結果を要素応答として表現できるパラメータセット(パラメータくを含む)を解析で用いることとした(高治・鈴木, 1999)。

() () () () () () () () () () () () () (	,		
パラメータ名	記号	数値	ここで、
限界応力比	М	0.630	$\zeta \equiv \frac{p'_s}{r'_s - r'_s} = \frac{p'_s}{F};  p'_s = \zeta F  \text{and}  p'_s = (1 + \zeta)F$
圧縮指数	λ	0.800	$p_{\rm c} - p_{\rm s}$ $P$
膨潤指数	К	0.028	$f = \frac{q}{\tilde{M}^2} + (p' - p'_{\rm s})(p' - p'_{\rm c}) = \frac{q}{\tilde{M}^2} + (p' - \zeta F) \{p' - (1 + \zeta)F\} = 0$
ポアソン比	$\nu'$	0.400	$\tilde{M} = (1+2\zeta)M$
塑性膨潤パラメータ	ζ	0.450	

# 表 2.6-18 構成モデルパラメータ (高治・鈴木, 1999)

# (ii) 水理パラメータ

本検討では間隙中の流体の流れが Darcy 則に従うと仮定した。ベントナイトの透水係数の乾燥 密度(間隙比)依存性を考慮し、Börgesson et al. (1995)による透水係数モデルを採用した(図 2.6-42)。



図 2.6-42 透水係数の間隙比依存性

このモデルでは、透水係数は $k = k_0 \left(\frac{e}{e_0}\right)^{\lambda_k}$ と表される。ここで、 $k_0$ はリファレンスとなる間隙 比 $e_0$ に対応する透水係数であり、 $k_0$ は材料パラメータである。これらのパラメータを同定には、 シミュレーションの対象とする材料(ケイ砂 30%混合クニゲル V1)に対して実施されている透水試験(高治・鈴木, 1999; 鈴木ほか, 1992)の結果を参考とした。このリファレンス間隙比をシ ミュレーションの初期間隙比とするとき( $e_0 = 0.539$ )、 $k_0 = 2.68 \times 10^{-13}$ (m/s)、 $\lambda_k = 2.15$ とすれば、図 中の直線のように試験値の傾向を概ね表現できることから、シミュレーションでのパラメータ値 としても、これらを採用することとした。

#### ③ 解析結果

#### (a) 供試体高さ

図 2.6-43 に供試体高さの経時変化を示す。Case 1 は膨潤変位の限界がないケースであり、解 析期間として設定した 365 日まで、供試体の高さが単調に増加し膨潤し続けている。初期高さ 45 mm に対して、膨潤開始から 365 日経過時には、供試体高さが 59 mm まで増加する。Case 2 か ら Case 4 は、設定した隙間幅だけ供試体は膨潤し、隙間を供試体が充填すると、高さは一定にな る。隙間充填に要する日数は、Case 2 から Case 4 までのそれぞれについて、33.9 日、78.5 日、 147.5 日となった。



図 2.6-43 供試体高さの経時変化

#### (b)供試体の軸圧と側圧の経時変化

図 2.6-44 に、それぞれのケースにおける、供試体内の軸圧(軸方向全応力)と側圧(側方全応力)の経時変化を示す。比較のために、供試体高さの経時変化を破線で再掲している。

## ● 供試体軸圧

黒実線で示す軸方向の全応力は、要素・積分点ごとに鉛直有効応力と間隙水圧の和でもって算 出されるが、力のつり合い条件を満足するように支配方程式が解かれるため、供試体の高さ方向 のどの位置(要素・積分点)をとっても、常に一致する結果となる。ただし、解析では自重(重 力)の影響を無視していることを付記する。Case1では、供試体の上面が常に応力解放された境 界面となるため、鉛直全応力は常にゼロとなる。一方、Case2からCase4では、供試体が隙間 を充填し、上面がピストンに接すると同時に、膨潤変形を拘束するための拘束圧として鉛直全応 力が生じ始める。膨潤を抑制するための圧力であるから、これを膨潤圧と見ても差し支えない。 約300日経過後には、Case2からCase4のどのケースにおいても鉛直全応力(膨潤圧)は平衡 状態に至っており、隙間幅が大きいケース程、すなわち、膨潤・隙間充填後の供試体の平均乾燥 密度が小さいケース程、より小さな平衡膨潤圧が発生する結果となっている。

#### ● 供試体側圧

色付きの実線は、供試体高さ方向の側圧を示している。初期状態において供試体下面から9mm (赤)、18mm(青)、27mm(緑)、36mm(橙)の高さに位置する積分点の側方有効応力と間 隙水圧の和をもって表示している。まず、膨張制限のない Case 1 では、時差があるものの、どの 高さにおいても側圧が一旦上昇し、同値の最大値に至った後に、緩やかな減少に転じている。こ の応答は、吸水面である供試体上面に近いほど、早い(橙→緑→青→赤の順)。300日を経過して も、供試体が膨潤し続けることと同様、側圧の減少も収束していないが、いずれはゼロに漸近す ると仮定した経路を描いている。Case 2 から Case 4 における側圧の変化は、隙間充填に至るま では Case 1 と全く同じになるが、それ以降はそれぞれ異なる。どのケースにおいても、約 300 日経過後には、側圧も一定値に収束しているが、高さによって収束値が異なるようであり、側圧 の不均一分布が残留している。供試体の下部ほど側圧の収束値は大きくなっている。同じ高さに おける側圧をケースごとに比較すると、鉛直全応力と同様、隙間幅が大きいケース程、より小さ な値に収束している。



# (c) 乾燥密度分布の経時変化

各ケースの乾燥密度分布の経時変化を図 2.6-45 に示す。Case 1 では、吸水面に近い供試体の 上部ほど、より早期に乾燥密度が低下(膨潤)し、時間の経過に伴い、供試体下部にも低密度化 が広がる様子が見て取れる。先に示した供試体高さの変化は、このような高さ方向に不均一な膨 潤ひずみの積分として現れるものと解釈できる。Case 2 から Case 4 については、各々、隙間充 填に至った時刻を破線で示している。破線以前の推移は、Case 1 と全く同じである。隙間充填に 至った後は、ケースによって程度は異なるが、供試体の下部においては乾燥密度の低下が僅かな がら継続するものの、供試体の上部では、充填に至るまでに低下した乾燥密度が再度、増加し、 再圧縮する傾向が見られる。すなわち、隙間充填に至った時点(破線で示した時刻)で生じた乾 燥密度の不均一さが、それ以降において解消される傾向にあるわけであるが、定常状態に至って も完全に解消されるわけではなく、不均質な分布は残存している。



図 2.6-45 乾燥密度分布の履歴(初期配置参照、破線:隙間充填に至った時刻)
## ① 不均質な分布が残留するメカニズム

ここでは隙間充填により不均質な分布が残留するメカニズムに関して考察する。これに先立っ て、膨潤・隙間充填過程シミュレーションと同じ初期条件、パラメータセットを用いた、一次元 膨潤過程の要素シミュレーション(Case1の条件で供試体を均一、一様に設定)の結果を図 2.6・46に示す。Case2(隙間5 mm)における供試体内の積分点での間隙比-平均有効応力関係を 図2.6・47(a)に有効応力経路を(b)に示す。初期状態において供試体の下面から36、9 mmの高さ にあった位置を図示のために抽出している。各経路上には、初期点を白抜の丸(○)、供試体が 隙間を充填した時点を白抜き星(☆)、平衡状態を黒塗の丸(●)で示している。また、各図に は、比較のために、一次元膨潤過程の要素シミュレーションで得られた経路を破線で併記してい る。

供試体が隙間を充填するまでは、いずれの位置でも、破線で示す一次元膨潤経路に沿って状態 変化が進行している。吸水面に近い供試体上部ほど、より早期に負の間隙水圧が消散するため、 平均有効応力の減少が促され、吸水膨潤も先行する。供試体が隙間を充填した時点(図中、★ 印)における間隙比が供試体上部ほど高いのは、このためである。さらに時間が経過すると、供 試体の下部では破線に沿う吸水膨潤が継続するが、隙間が充填されることによって供試体の全体 高さが一定に保たれる。このため、上部境界で変位が拘束され、かつ供試体下部が継続膨潤領域 (吸水膨潤過程)であり有効応力が高いことにより、供試体上部において再圧縮が生じる。再圧 縮過程は、弾塑性状態にあった膨潤過程に対して非可逆な応答であり、弾性状態に転じるため、 膨潤経路とは異なる経路を辿ることになる。この非可逆性が、平衡状態に至っても、供試体内に 乾燥密度ないし間隙比の不均一分布が残留する理由となると考えられる。また、図2.6-47(b)に 平衡時の鉛直有効応力(=軸圧)の値を示す oa'= 200 kPa一定線を描いている。どの積分点 も、平衡時には応力状態がこの線上にあり、かつ軸差応力の値は異なるため、ひいては側圧が異 なることを示している。





図 2.6-47 有効応力経路・間隙比-平均有効応力関係(Case2)

② まとめ

本検討では、緩衝材と孔壁との間に隙間が存在するような状況を想定し、再冠水過程における 緩衝材の膨潤による隙間充填プロセス(隙間の充填、及び、充填後、平衡状態に至るまで)にお ける緩衝材の変状を評価するための解析手法を示した。また、緩衝材の状態変遷シミュレーショ ンを通して、乾燥密度や応力の分布性状が変化するメカニズムの説明を試みた。解析より得られ た知見及び課題を以下に示す。

〇知見

- 隙間を充填し、平衡状態に至る過程で負の間隙水圧は消散され、全応力と有効応力は等しく なる。鉛直方向の力のつり合いから軸圧は高さ方向に一様であるため、ひいては鉛直方向の 有効応力も一様になる。しかしながら、側方向の有効応力は高さ方向に不均一になる。この 側圧の不均一さは、再圧密領域と継続膨潤領域という履歴の違いによって生じる。
- 隙間が充填された後、飽和状態にある供試体の高さ(体積)が固定されるため、供試体の内 外での水のやり取りは起こりえず、専ら、供試体内部でのみ水が移動する。この水の移動が 供試体内部に継続膨潤する領域と再圧縮する領域を生み出すことになる。
- 継続膨潤領域は一次元膨潤の要素シミュレーションで得られた膨潤経路と同様となり、塑性 膨潤を伴う弾塑性状態が継続するが、再圧密領域は、再圧密に転じた時点から弾性状態に移 行する。膨潤経路と再圧密経路には非可逆性があることから、これが平衡状態に至っても、 供試体内に側圧ないし乾燥密度の不均一分布が残存する理由となる。

○課題

- 本検討では段階的な検討を行うため、初期状態として供試体が飽和状態にあり、かつ均一な 状態という単純な状態を設定した。次のステップとして初期に不飽和な状態にあるベントナ イト緩衝材を想定し、飽和化しつつ膨潤し、隙間を充填する挙動を解析的に追跡する必要性 がある。
- 本取組は単純な一次元条件での問題に限定した検討となっている。このため、今後は解析手 法の確からしさを確認するために効果的な例題を選定しながら、供試体スケールの隙間充填 シミュレーションを継続する必要性がある。

#### (4) 遠心模型試験による人工バリア再冠水挙動の評価

地層処分などの分野における遠心模型試験などに関する文献調査と、緩衝材の浸潤挙動を対象 とした遠心模型試験を実施する。また、遠心模型試験結果と重力場(1G場)における緩衝材の浸 潤試験結果(既往の数年程度の長期試験)を比較・検討することにより、緩衝材の浸潤挙動の加 速試験としての適用性について評価する。

#### 1) 地層処分等関連分野の遠心模型試験等に係わる文献調査

人工バリア定置後の長期挙動評価に数値解析を適用する上で必要となる、解析結果の妥当性確 認に関する既往研究の調査を行った。特に長期挙動を実験的に把握する上で重要となる、遠心模 型試験と数値解析の結果比較によるシミュレーションの妥当性確認の事例調査を行った。その結 果として、人工バリアやニアフィールドを対象とした事例については、室内における要素試験と の比較や、国際共同研究に見られる原位置試験との比較による妥当性確認事例は比較的多いが、 遠心模型試験との比較を行った事例は少なかった。一方、一般の地盤構造に対する地震時や浸透 破壊に関する遠心模型試験の適用事例は比較的多く、そのような遠心模型試験と数値解析の比較 事例についても調査を行った。主な調査結果を以下に示す。

#### ① 原位置試験との比較による妥当性確認

国際共同研究 DECOVALEX において 2012~2015 年に実施された Task B2 (Sugita, 2016) の事例を調べた。幌延 URL で実施されている人工バリア性能確認試験を対象としており、同じ 試験を対象に5 チームによる数値解析が行われたが、解析手法やモデル化方法、物性値の設定な どから解析結果には大きなばらつきが見られた。原位置試験は物性値や境界・初期条件に不確定 性が多いため、解析による再現は難しく、特に緩衝材の浸潤過程や膨潤挙動の再現について困難 があることが確認された。一方で、温度履歴については解析のモデル化や境界条件が適切であれ ば概ねどのチームの解析結果も実験と整合的であった。

#### ② 遠心模型試験との比較による人工バリアの長期挙動を対象とした妥当性確認

人工バリアの長期挙動評価に遠心模型試験を適用し、等温条件における再冠水過程の再現解析 が電力中央研究所で実施されている(西本,2012;澤田,2012)。原位置試験の結果と比較すると 諸条件の不確実さは減るが、解析に用いた諸条件に不確実さがあり、定性的には力学挙動は整合 的であるが、岩盤に生じるひずみやオーバーパックの変位の定量的な評価には課題があり、諸条 件のばらつきを考慮した評価が必要となる。

## ③ 遠心模型試験との比較によるそれ以外の一般地盤問題を対象とした妥当性確認

地震時に間隙水圧が上昇することにより、土堤の表面からの浸出による地盤変状問題に関する

数値解析の妥当性確認方法として、遠心模型試験が実施された事例がある(Higo, 2013)。遠心模型試験では、1/50模型に対して 50 G の遠心力を負荷し、24 時間浸潤させた後に 400 gal の地震動を加振する実験が行われた。この実験を対象とした動的な水・力学連成現象についての数値解析結果と遠心模型試験の結果から得られた地盤変形に良い一致が得られており、間隙水の作用が関係する動的な現象に対する数値解析の妥当性確認事例となっている。

#### 2) 遠心模型試験

緩衝材の浸潤挙動を対象とした遠心模型試験を実施し、実換算時間で数十年程度の緩衝材中の 水の浸潤距離と経過時間の関係について取得する。また、その結果と重力場(1G場)における緩 衝材の浸潤試験結果など(既往の数年程度の長期試験)を比較・検討することにより、緩衝材の 浸潤挙動の加速試験としての適用性について評価する。

## 試験方法

### (a) 対象とする一次元浸潤状況取得試験

本試験は長尺の緩衝材供試体を用いた一次元浸潤速度取得試験(10 年程度実施中)(原子力環 境整備促進・資金管理センター, 2018b)を対象とした(図 2.6-48)。



図 2.6-48 対象とする一次元浸潤速度取得試験の試験装置(再掲)

## (b) 材料

緩衝材を構成する材料は前述した一次元浸潤速度取得試験と同様に、ベントナイト(クニミネ 工業製、クニゲルV1)にケイ砂3号とケイ砂5号(共に愛知県八草産)を乾燥質量割合7:1.5: 1.5となるように混合し、作製した。

#### (c) 模型の作製

本試験の緩衝材模型と透水容器を図 2.6-49 に、緩衝材圧密用ピストン及び 4 層目作成用カラー を図 2.6-50 に示す。本試験に使用する透水容器には、緩衝材の膨潤圧測定のために小型土圧計及 び注水圧測定用に小型圧力計を設置する。また、模型内部に注水された水の浸潤を非破壊的かつ 連続的に計測するために、二極法による電気抵抗測定のための電極を模型底面から高さ方向に 6.25 mm 間隔、透水容器内面に沿って模型中心からの角度を 120°ごとにずらし 3 箇所に設置す る。

緩衝材供試体は乾燥密度 1.6 Mg/m<sup>3</sup>、高さ 25 mm、直径 50 mm となるよう、透水容器内部に Step1~Step6 に示す方法で作製し、その後 Step7~Step10 に示す方法で模型を作製した。

- Step1: 前述(b)で作製した緩衝材の材料をデシケータ中で吸湿させ、含水比が10%となるように 調整する。
- Step2: Step1 で含水比を調整した材料の含水比を測定する。
- Step3:1 層分の高さ 6.25 mm 乾燥密度 1.6 Mg/m<sup>3</sup>となる緩衝材の量 21.60 g を 4 分割で撒きだ す場合の量の 5.40 g を計量する。次いで図 2.6-49 に示す透水容器内に 4 分割撒き出し用 仕切り板を設置しその一区画ずつ 4 回に分けて 1 層分の緩衝材を撒き出す。
- Step4: 締め固め装置 (プレス機) で緩衝材に圧力を加え1層分の緩衝材を作製する。その際の荷 重は8kN~15kNとし、約5分間~10分間で所定の高さになるように調節する。またそ の際のひずみを計測する。
- Step5:水分量センサー電極を透水容器の底部から 6.25 mm または、12.50 mm になるように設置するための取り付け場所に固定した後、3 層目まで Step3~4 と同様の方法で緩衝材を 締め固める。
- Step6:水分量センサー電極を透水容器底部から 18.75 mm となる取付場所に固定した後図 2.6-50 に示すカラーを透水容器上端に設置した後、Step3~4 と同様の方法で 4 層目の緩 衝材を締め固める。
- Step7:透水容器底盤、土圧計及び、透水容器上蓋を取り付ける。
- Step8: 遠心プラットホーム及び中心軸上に設置する資機材全ての質量測定を行い、遠心載荷装置のカウンターウェイトの質量を調整する。
- Step9:透水容器及び供試体を遠心載荷装置に設置し、給排水タンクと透水容器を接続する。
- Step10:水分量測定装置と電極及び、水分量測定装置・土圧計(緩衝材膨潤圧測定)・水圧計(注 水圧測定)とデータロガーを結線する。なお、結線時には遠心力として 40G の力が各部に 働くので、それを考慮した上で配線の取り回しを行う。



2 試験条件

## (a) 条件

本研究での試験条件は遠心加速度を 40G とした。また、供試体への注水圧は装置の最小の注水 制御圧である 100 kPa とし、遠心載荷時間は約 10 日間とした。

#### (b) 計測項目

本試験では表 2.6-19 に示す項目の計測を行った。供試体への水の浸潤状況(水分量の経時変化)を遠心場で測定する方法(水分量センサー)の概要を図 2.6-51 に示す。この測定法は、市販ファンクションジェネレータで数 kHz、数 V の交流電流を発生させ、その電流を供試体内部に設置した電極に印加し、回路中に流れる電流量をアンプにて多点電圧計測が可能なデータロガーで読み取れる信号に調節して計測するものである。なお、本試験では水分量センサーの設定は電流を電圧に変換するための抵抗値を 2.0 kΩ、電極への電気信号は 10 kHz・sin 波・振幅 5 V (±2.5 Vp-p) とした。

緩衝材の膨潤圧は透水容器上蓋に設置した小型土圧計で測定し、注水圧は通水経路中に設けた 空気抜き・ボールバルブ・圧力計取り付けブロックに設置した小型圧力計で計測した(図2.6-49)。 遠心載荷試験終了後の含水比の測定は、底面からの距離 5 mm ごとを目標として試料を採取し、 その試料の体積と含水比を測定し飽和度、湿潤密度及び、乾燥密度を求めた。加えて、遠心載荷 試験終了後の供試体を X線 CT 装置で撮影することで、その断面画像及び密度分布を得た。

測定項目	計測/測定方法	目的					
供試体の水分量	水分両センサー	・供試体への水の浸潤状況を計測					
注水圧	水圧計	・注水圧のモニタリング					
供試体の膨潤圧	小型圧力計	・供試体の膨潤状況を計測					
遠心試験後の供試体の	供封休から封料を採取し	・直接供試体への水の浸潤状況を測定					
密度、含水比、飽和度の	一次両体加ら (1) (1) (1) (1) (1) (1) (1) (1) (1) (1)	・遠心試験時の水分量の測定方法が妥当であ るかどうかの確認					
分布	<b>人但1</b> 女例足						
遠心試験後の供試体内	V 迫 CT 壮罟で堤影	・供試体内部の状況、密度分布を把握					
部の密度分布	<b>Λ</b> 禄 UI 表 恒 C 取 応						

表 2.6-19 測定項目





(c) 手順

具体的な試験の手順を次の Step1~Step10 に示す。

- Step1:データロガー及び計測プログラムを設定し計測及びデータ収録を開始する。
- Step2:給水タンクのコックを閉じたまま、透水容器の給水コックを開ける。
- Step3:給水経路中に接続した真空ポンプを運転し、給水経路内を約10時間排気する。
- Step4:真空ポンプ側のコックを閉じ給水経路中の真空を保ったままポンプを取り外す。
- Step5:計測データに異常がないことを確認しながら給水タンクのコックを徐々に開け給水経路 を水で満たす。
- Step6:水圧計のデータから給水経路中に水が充填されていることを確認する。
- Step7:透水容器の排水コックを開放する。この時点で供試体下端面と間隙水が接触することに なる。間隙圧は大気圧程度である。
- Step8:計測各センサーの値に問題が無いことを確認した後、計測プログラムにて1分間隔での データ収録を開始し試験期間終了時までデータ収録を継続する。
- Step9:遠心装置運転前点検を行い異常が無い事を確認する。
- Step10: 定められた手順に従って遠心装置を起動し、計測データに異常がないことを確認しなが ら遠心加速度を 40 G まで上昇させる。
- Step11: 遠心加速度が 40 G に到達後、注水圧が 100 kPa であることを確認し、試験開始とする。 計測データなどに異常がないことを確認しながら試験を行う。
- Step12:試験期間終了後、定められた手順で遠心装置を停止する。
- Step13: 透水容器から供試体を押し抜き脱型する。脱型直後の試料の状況を図 2.6-52 に示す。 押し抜いた供試体は乾燥を防ぐためラップで覆いさらに、密閉容器に格納した後、X 線 CT 装置で撮影を行う。
- Step14:また、供試体を所定の治具に設置し、押し抜き量をモニタリングしつつ5mmごとに押 し出した後、押し出し量を1/100mm測定可能なノギスで測定後、試料を切削採取し、直 ちに質量を測定する。5層分の試料を採取した後、含水比を測定する。なお、測定後の試 料は密閉容器にて保管する。



図 2.6-52 試験終了後に脱型した供試体状況

## ⑤ 結果

#### (a) 水分量センサーの検定結果

本試験で供試体を作製した物と同一の材料を用い、含水比を調整した上で本試験と同一の条件

で水分量センサーの検定を行った。表 2.6-20 に水分量センサーの検定結果を、図 2.6-53 に検定 した飽和度 Sr と水分量センサー出力電圧 V の関係を示す。図 2.6-53 では平均値をプロットして いる。検定の結果、線形近似線では Sr=23.043 V+20.814 と求められ、その相関係数は 0.954 で あった。

日博会水比(0/)	実測含水比(%)	約至10(1)*	測定電圧(V)			
日悰百小比(%)		起作吸(%)"	$\bigcirc$	2	3	平均值
10.0	9.9	38.8	0.737	0.743	0.728	0.736
11.5	11.9	46.6	0.979	0.931	0.910	0.940
13.5	14.0	54.8	1.570	1.536	1.486	1.531
15.0	15.5	60.7	2.222	2.183	2.153	2.186
20.0	21.1	82.6	2.843	2.841	2.801	2.828
25.0	25.4	99.5	2.999	2.997	2.954	2.983

表 2.6-20 水分量センサーにおける含水比・飽和度と測定電圧



図 2.6-53 水分量センサーの検定結果

#### (b) 遠心模型試験の結果

実物換算経過時間と水分量センサー出力電圧の関係を図 2.6-54 に、電圧から換算した飽和度との関係を図 2.6-55 に示す。なお、遠心力が 40 G に達し、注水圧が 100 kPa となった時点を試験 開始とし、図の 0 時間としている。

試験開始時の出力電圧(飽和度)にはばらつきがあり、特に d=750 mm の電圧が低くなっていた。これは、供試体作製時の含水比のばらつき(1~2%)と考えられる。注水開始後の初期では、 飽和度は下方のセンサー(d=250 mm)から順に上昇し浸潤状況を捉えていると思われる。試験 終了時(換算時間 15,000 日≒41 年)の飽和度に差があまり見られなかった(86~88%)。一方、 試験後の供試体の目視状況や定体積サンプリングから(詳細は後述)、供試体下部では飽和、上部 では不飽和であることが確認されており、センサーの検定に課題があると考えられる。すなわち、 センサーの供試体への接触状況の影響や、検定の方法(線形近似が適切かどうか)、サンプル数が 十分でないことが課題としてあげられる(6 種類の含水比調整したサンプルを測定しているが、 高飽和度領域では感度が異なる可能性がある)。



図 2.6-54 実物換算経過時間と水分量センサー出力電圧の関係



図 2.6-55 実物換算経過時間と飽和度の関係

図 2.6-56 に、実物換算経過時間が1年(365日)、5年(1,826日)、10年(3,653日)、20年(7,305日)、40年(14,610日)に到達した時点の飽和度と実物換算した底面からの距離の関係 を示す。

前述したとおり、高飽和度領域におけるセンター感度の課題があるため、40年相当時を除き、 経過時間と共に各地点の飽和度は上昇し、供試体の下方から上方に向かって飽和度が上昇してい ることが分かり、供試体下部からの浸潤の進展状況を明確に捉えていると思われる。



図 2.6-56 所定時間に到達した時点の飽和度と実物換算した底面からの距離の関係

図 2.6-57 に浸潤フロントの進展状況を示す。飽和度が初期値から 1%増加した時点を飽和フロントと定義した場合の実測値、及び一次元浸潤状況取得試験で示されている飽和フロントの推定式 d=60×t<sup>0.35</sup>を、実物換算経過時間 t と浸潤フロントの位置(供試体底面からの距離) d の関係を示す。

浸潤フロントの進展状況について、毛細管現象による水の拡散速度の理論式である Washburn 式(d=c×t<sup>0.5</sup>、cは濡れ角などの関数で表される材料と液種によって決まる係数)(Washburn, 1921) よりやや指数が小さい(浸潤が緩慢) d=84×t<sup>0.35</sup>が得られた。一次元浸潤状況取得試験と同様の 指数(tの0.35乗)が得られている一方、係数は一次元浸潤状況取得試験より高い。これは本試 験では注水圧は100kPa(装置の最小制御値)であり、一次元浸潤状況取得試験の注水圧 60kPa より高いためである。このため、この注水圧分を補正(ダルシー則が成立すると仮定し、ある飽 和度における浸潤距離を注水圧(水頭差)の比で除した値)した結果を図 2.6-58 に示す。補正の 結果 d=50×t<sup>0.35</sup>と係数がやや小さいが、同様な結果と考えられる。

加えて、飽和度 45、50、55%時において経過時間と底面からの距離の関係について、一次元浸 潤状況取得試験(1G 試験)と遠心模型試験(遠心)を比較した(図 2.6-59)。遠心試験の結果は 注水圧を補正した得られた値を用いている。比較において飽和度 45、50、55%を選択した理由は、 初期の飽和度が 40%程度であったこと、遠心模型実験で用いた水分量センサーの検定において高 飽和度領域においてその精度に課題を有することなどを考慮したためである。飽和度 45%では浸 潤フロント同様、1G 試験に比べ遠心試験結果の方が等飽和域の進展状況はやや緩慢であるが、 飽和度が上昇するにつれ徐々に一致する傾向が見られる。



図 2.6-57 浸潤フロントの進展状況



図 2.6-58 注水圧を補正した浸潤フロントの進展状況



図 2.6-59 飽和度 45~55%の経過時間と底面からの距離の関係(1Gと遠心模型試験の比較)

図 2.6-60 に供試体の膨潤圧の経時変化を示す。膨潤圧は試験開始時点をゼロとしている。また 図に示した膨潤圧は、注水圧 100 kPa を差し引いた値である。

試験開始後から膨潤圧は上昇し、約1,000~2,000 日程度において既往研究(小峯ほか,1992) 同様、一旦上昇の傾きが緩やかになる。その後、再度上昇を続け、試験終了時では783 kPa を示 した。クニゲルV1(70%)+ケイ砂(30%)混合の緩衝材において、初期含水比10%、初期密度 1.6 Mg/m<sup>3</sup>の膨潤圧は、既往研究(原子力環境整備促進・資金管理センター,2018b)では700 kPa 程度が報告されているが、本試験ではやや高い値となった。一般的に緩衝材の膨潤圧は供試体の 上端面あるいは下端面に設置されたロードセルなどで計測される面圧から測定されることが多い。 一方、本試験の膨潤圧は、設置スペースなどの関係から模型容器上蓋に埋め込まれた土圧計によ って計測された点圧である。このためばらつきの中のある値を計測した可能性がある。



## (c) 供試体の定体積サンプリング及び X 線 CT 撮影結果

表 2.6・21 に試験終了後の供試体から定体積サンプリングによる含水比、飽和度、密度の結果を 示す。サンプリングは、供試体を目標 5 mm ごとにスライスし、試料高さを実測、供試体直径を 50 mm として、体積を計算、湿潤、乾燥状態の重量測定から密度を算出した。また、土粒子密度 を既往研究(原子力環境整備促進・資金管理センター,2018b)より仮定し、含水比、飽和度を求 めた。なお、15~20 mm はサンプリング中に供試体が欠損したため飽和度、密度計算が不可であ った。

サンプリングの結果、飽和度は供試体の下方から上方に向かうにつれ上昇している。また、0~5 mm、5~10 mm については飽和していると考えられる。0~5 mm について飽和度が 100%を 超えているが、供試体の最も注水側に近く下端面に注水した水が付着していた可能性がある。

底版からの試料	試料高さ	体積*	含力	<b>k</b> 比測定	<u>ਵ(g)</u>	含水比	飽和度**	湿潤密度	乾燥密度
目標採取位置	(mm)	(cm <sup>3</sup> )	ma	mb	mb	(%)	(%)	(Mg/m <sup>3</sup> )	(Mg/m <sup>3</sup> )
0~5mm	5.00	9.82	77.32	73.01	56.92	26.8	111.4	2.078	1.639
5~10mm	4.61	9.05	74.17	70.65	55.75	23.6	99.4	2.036	1.647
10~15mm	5.13	10.07	75.43	71.86	55.31	21.6	90.4	1.998	1.644
15~20mm	-	-	72.03	68.88	54.23	21.5	-	-	-
20~25mm	4.86	9.54	74.93	72.09	56.20	17.9	77.5	1.964	1.666

表 2.6-21 試験後の供試体の定体積サンプリングによる含水比、飽和度、密度

\*供試体の直径を 50.00 mm として算出

\*\*土粒子密度 ρsを 2.705 Mg/m<sup>3</sup>として算出

試験終了後の供試体について、X線 CT 撮影から得られた CT 画像(中心の縦断面)及び得ら れた CT 値から換算した供試体内部の密度(湿潤状態)分布を図 2.6・61 に示す。CT 画像におけ る濃淡は白から黒にかけて、密度の高低を表している。密度分布の図では、定体積サンプリング が得られた湿潤密度(表 2.6・20)を合わせてプロットしている。なお CT 画像において、図 2.6・61 に示したある一断面だけを見ると、ベントナイトとケイ砂の混合が不均質であるように見えるが、 全体的な分布はほぼ偏りなくケイ砂が分布していることを確認している。

CT 値から得られる緩衝材の湿潤密度は、供試体下端面が高く、上方に向かうほど低くなっている。局所的に密度が高くなっている箇所があるが、これはケイ砂の粒の値である。これを無視すれば、定体積サンプリングから求めた湿潤密度と CT 値から得られる密度は概ね一致していると言える。



図 2.6-61 X線 CT 撮影による供試体の断面画像(右)、CT 値から換算した密度分布(左)

(d) 遠心模型試験のまとめ

以下に遠心模型試験のまとめを記す。

- ・遠心模型試験において、水分量センサーは注水開始後の初期では、下方のセンサーから順に 飽和度が上昇している様子が計測されており、浸潤状況を捉えていると思われる。
- ・試験終了時(換算時間15,000日≒41年)の各部位の飽和度に差があまり見られなかった(86~88%)。これはセンサーの供試体への接触状況の影響や、検定の方法、検定サンプル数が十分でない可能性があることなどが課題としてあげられる。
- ・浸潤フロントの進展状況について、一次元浸潤状況取得試験と同様、Washburn 式よりやや 緩慢な結果が得られた。また、本試験は一次元浸潤状況取得試験より高い注水圧で試験をし ていることからこれを補正し飽和度ごとに浸潤速度を比較した結果、概ね一致した。
- ・試験終了後の約5mmスライスの供試体の定体積サンプリングによる含水比、飽和度、密度において、飽和度は供試体の下方から上方に向かうにつれて上昇しており、供試体の下端面から10mmの高さまでについては飽和しており、緩衝材の飽和時に想定される湿潤密度とほぼ一致した値であった。
- ・供試体のX線CT撮影の画像解析から得られるCT値を用い緩衝材の湿潤密度を求めた結果、
   供試体下端面が高く、上方に向かうほど低くなっていることが明らかとなった。これは定体
   積サンプリングから求めた湿潤密度と概ね一致していた。
- ・緩衝材の浸潤状況に関する遠心場の相似則に基づく加速試験については、概ね重力(1G)場の一次元浸潤状況取得試験結果と同等の結果が得られていると評価され、相似則が成立していると考えられる。

#### 2.6.3 成果と今後の課題

本サブタスクは、緩衝材の再冠水期間を対象として、再冠水挙動の現象解析モデルを開発し、 緩衝材流出を考慮した再冠水後の緩衝材の状態(密度分布)の提示と、緩衝材流出現象に係るデ ータの取得と工学的対策効果の検証を目的としている。日本の地下環境には一般的に湧水がある ことが知られており、廃棄体の定置後、処分孔内の孔壁からの湧水があることにより緩衝材の再 冠水が進行する。その際に、緩衝材と孔壁の境界に水みちができ、緩衝材が流出する可能性が指 摘されており、緩衝材の流出は、緩衝材を損失することにほかならないため、人工バリアの機能 の低下につながる事象であるため重要な課題だと考える。

緩衝材の流出は、岩盤と緩衝材の間に隙間があることにより発生するため、施工において隙間 が必要とされる、ブロック成形した緩衝材の定置方式において特に考慮しなければならない。そ のため、本サブタスクでは、竪置きブロック方式の処分概念を対象として、緩衝材の流出現象の 把握と、工学的対策を検討することとした。既存の緩衝材の流出に関しての知見を基に、より現 実的な条件での流出現象の発生の有無と、流出がある場合の工学的対策について検討するために、 原位置(幌延 URL、350 m 坑道)での湧水状況を把握した。原位置での試験に先立ち、室内試 験によって、工学的対策、蓋の必要性(膨出状況の把握)を検討した。室内試験の条件は、原位 置での計測結果を基に、設定した。

工学的対策としては、湧水量がある程度変動しても対応できる対策を念頭に、隙間の処理方法 による対策を検討することとした。具体的には、施工の容易性や施工による不均質が発生しない ことを勘案して、ケイ砂の充填を選択した。この方法が最善であるかどうかについて検討の余地 があるが、実証的な試験を行うことによって、地層処分の技術開発における反復的開発プロセス に沿って研究を進める。

ケイ砂の充填が緩衝材の流出に効果について、室内試験で小型セルを用いて確認した。体積拘 束した状態で、幌延地下水を模擬した水を通水し、隙間にケイ砂を充填することによって、流出 量が減少することが確認された。この試験は1週間程度の試験であるため、長期にわたっての効 果は別途確認する必要があるが、定置後の初期においては効果が認められたため、次年度以降、 工学規模試験、及び原位置試験(幌延 URL での試験)によってもその効果を確認することとす る。

また、原位置での試験の緩衝材流出後の緩衝材の評価のために、幌延の現地地下水を用いて、 膨潤率試験を行った。緩衝材に求められる機能を満たすために必要とされる密度と厚さには、自 己シール性に対する要求が最も高いことが原子力発電環境整備機構(2018)に示されている。そ のため、膨潤率が重要である。原子力発電環境整備機構(2018)が自己シール性を満たすための 密度を算定している蒸留水と人工海水の膨潤率に関するデータと今回取得したデータを比較した ところ、幌延地下水による膨潤率は、人工海水とほぼ同じ膨潤率であった。そのため、原位置で の試験における緩衝材の評価は、海水系地下水を対象とした緩衝材機能の評価方法を適応できる と考えられる。

再冠水過程、及びの緩衝材の状態(密度分布)の提示するために、力学解析方法についての検 討を行った。緩衝材の流出現象による緩衝材の損失を考慮することを最終目標とし、DACSAR を 解析ツールとして、今年度は、緩衝材と岩盤の隙間への膨潤による充填プロセス(隙間の充填、 及び充填後、平衡状態に至るまで)における緩衝材の変状を評価するための解析手法を示した。 また、緩衝材の状態変遷シミュレーションを通して、乾燥密度や応力の分布性状が変化するメカ ニズムの説明を試みた。この検討により、供試体内部に継続膨潤する領域と再圧縮する領域があ ることを示すことができ、膨潤経路と再圧密経路に非可逆性があることが、平衡状態に至っても、 供試体内に側圧ないし乾燥密度の不均一分布が残存する理由であることを示した。来年度は、不 飽和な状態からの膨潤による隙間の閉塞についての解析を行う。また、解析手法の確からしさを 確認するために効果的な例題を選定しながら、供試体スケールの隙間充填シミュレーションを継 続する必要性があると考える。

また、遠心模型試験では、数十年から数百年の再冠水期間の解析評価の検証データとしての適応性を検討するために、文献調査による妥当性の検討と要素試験による 10 年程度の室内試験との比較を行った。要素試験の結果、遠心模型試験での飽和度の上昇の計測値が、室内での実試験に相当するものであることが分かった。緩衝材の浸潤状況に関する遠心場の相似則に基づく加速試験が、概ね重力(1G)場の一次元浸潤状況取得試験結果と同等の結果が得られていると評価され、相似則が成立していると考えられる。来年度は、加速試験の条件を変化させ、また含水比の測定精度を上げる検討も行うことによって、さらに解析評価の検証データとしての適応性を示す予定である。

- Alonso, E.E. and Alcoverro, J., DECOVALEX III PROJECT Modelling of FEBEX In-Situ Test Task 1 Final Report, SKI Report 2005:20, 2005.
- Bateman, K., Coombs, P., Noy, D.J., Pearce, J.M. and Wetton, P.D., Numerical modelling and column experiments to simulate the alkaline disturbed zone around a cementitious radioactive waste repository, Sci. Basis Nucl.Waste Manage., Materials esearch Society, 506, pp.605-611, 1998.
- Bateman, K., Coombs, P., Noy, D.J., Pearce, J.M., Wetton P., Haworth, and Linklater A.C., Experimental simulation of the alkaline disturbed zone around a cementitious radioactive waste repository: numerical modelling and column experiments, Geological Society of London, 157, pp.183-194, 1999.
- Börgesson, L. and Sandén, T., Piping and erosion in buffer and backfill materials Current knowledge, SKB Report R-06-80, 2006.
- Börgesson, L., Sandén, T., Dueck, A., Andersson, L., Jensen, V., Nilsson, U., Olsson, S., Åkesson, M., Kristensson, O. and Svensson, U., Consequences of water inflow and early water uptake in deposition holes. EVA Project. SKB TR-14-22, Swedish Nuclear Fuel and Management Co., 2015.
- 千々松正和, 杉田 裕, 雨宮 清, 緩衝材の製作・施工技術に関する検討, JNC-TN8400 99-035, 1999.
- 千々松正和, 杉田 裕, 藤田朝雄, 雨宮 清, 小林 晃, 大西有三, 原位置試験場における熱-水-応 力連成試験結果および解析評価, 土木学会論文集 No.652/Ⅲ-51, pp.125-139, 2000.
- 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,一第2次TRU廃棄物処 分研究開発取りまとめー,JNC TY1400 2005-013, FEPC TRU-TR2-2005-02, 2005.

ENRESA, FEBEX project final report, publication tecnica 1/2000, 2000.

- Fukushi, K., Sugiura, T., Morishita, T., Takahashi, Y., Hasebe, N. and Ito, H., Iron-bentonite interactions in the Kawasaki bentonite deposit, Zao area, Japan, Applied Geochemistry. 25, pp.1120-1132, 2010.
- 原子力環境整備促進・資金管理センター, 平成 24 年度 地層処分技術調査等事業(高レベル放射 性廃棄物処分関連 処分システム工学要素技術高度化開発)遠隔操作技術高度化開発 人工バ リア品質評価技術の開発 モニタリング技術の開発-平成 19 年度~平成 24 年度の取りまと め報告書, 2012.
- 原子力環境整備促進・資金管理センター, 平成 26 年度地層処分技術調査等事業(高レベル放射性 廃棄物処分関連 処分システム工学確証技術開発)人工バリア品質/健全性評価手法の構築 (その 2) -緩衝材, 2015.
- 原子力環境整備促進・資金管理センター, 平成27年度地層処分技術調査等事業(高レベル放射性 廃棄物処分関連処分システム工学確証技術開発)人工バリア品質/健全性評価手法の構築 (その2) -緩衝材,2016.
- 原子力環境整備促進・資金管理センター, 平成28年度地層処分技術調査等事業(高レベル放射性 廃棄物処分関連処分システム工学確証技術開発)人工バリア品質/健全性評価手法の構築 (その2) -緩衝材,2017a.
- 原子力環境整備促進・資金管理センター,平成28年度地層処分技術調査等事業(高レベル放射性 廃棄物処分関連処分システム工学確証技術開発)人工バリア品質/健全性評価手法の構築

-平成25年度~平成29年度の取りまとめ報告書,2017b.

- 原子力環境整備促進・資金管理センター, 平成 29 年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関す る技術開発事業 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発 平成 25 年度~29 年度取りまとめ報 告書, 2018a.
- 原子力環境整備促進・資金管理センター, 平成 29 年度地層処分技術調査等事業(高レベル放射性 廃棄物処分関連処分システム工学確証技術開発)人工バリア品質/健全性評価手法の構築 (その 2) -緩衝材, 2018b.
- 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. (<u>https://www.numo.or.jp/press/201818112114.html</u>)
- Guillaume, D., Neaman, A., Cathelineau, M., Mosser-Ruck, R., Peiffert, C., Abdelmoula, M., Dubessy, J., Villiéras, F. and Michau, N., Experimental study of the transformation of smectite at 80 and 300°C in the presence of Fe oxides, Clay Minerals, 39, pp.17-34, 2004.
- Higo Y., Oka F., Kimoto S., Kinugawa T., Lee C.-W. and Doi T., Dynamic centrifugal model test for unsaturated embankments considering seepage flow and the numerical analysis, Proc. 18th Int. Conf. Soil Mech. Geotech. Eng., 18, 923–926, 2013.
- 平野史生,大谷芳輝,京川裕之,三原守弘,清水浩之,本田 明,TRU 廃棄物処分システムの性能 評価の観点からの人工バリアの透水性に対するセメント系材料のひび割れの影響に関する 検討,日本原子力学会和文論文誌,15, No.2, pp.97-114, 2016.
- Hökmark, H., Lönnqvist, M., Kristensson, O., Sundberg, J. and Hellström, G., Strategy for thermal dimensioning of the final repository for spent nuclear fuel. SKB R-09-04, Swedish Nuclear Fuel and Management Co., 2009.
- Iizuka, A. and Ohta, H., A Determination Procedure of Input Parameters in Elasto-Viscoplastic Finite Element Analysis, Soils & Foundations, Vol.27, No.3, pp.71-87, 1987.
- 石井 卓, 伊藤雅和, 中島 均, 菅 原宏, 大江俊昭, 平田征弥, 天然ベントナイトの変質状況調査 に基づく長期変質速度の推定, 粘土科学第38巻第1号10-22, 1998.
- 伊藤大知,小峯秀雄,諸留章二,関ロ高志,三浦玄太,ベントナイト原鉱石の膨潤圧特性から観た 緩衝材における膠結作用の定量評価の試み,第52回地盤工学会研究発表会,2017.
- 伊藤真司,除荷過程における地盤材料の塑性軟化特性を考慮した弾塑性構成モデル,神戸大学大 学院修士論文,平成 29 年 7 月.
- 地盤工学会,「地盤調査の方法と解説」,第7編単孔を利用した透水試験方法 P-524 (3.2.17), 2013.
- 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 次取りまとめー 分冊 2 地層処分の工学技術, JNC TN1400 99-022, 1999a.
- 核燃料サイクル開発機構,わが国における高レベル放射性廃棄物 地層処分の技術的信頼性 –地 層処分研究開発第2次取りまとめ- 分冊3 地層処分システムの安全評価, JNC TN1400 99-023, 1999b.
- 亀井玄人, W. Russell Alexander, John A.T. Smellie, マカーリンナチュラルアナログプロジェ クトの概要—フェーズ I~III までの主な成果—, JNC TN8400 2005-005, 2005.
- 小峯秀雄,緒方信英,西好一,高レベル放射性廃棄物地層処分のための緩衝材の力学特性(その1) - 締固めたベントナイトの吸水膨潤メカニズムの実験的検討-,電力中央研究所研究報告, U92039,35,1992.

- 金澤伸一,橘伸也,河井克之,大野新太郎,飯塚 敦,不飽和土/水連成有限要素解析における空間離散化手法の検討,応用力学論文集,Vol.11, pp.331-338, 2008.
- 軽部大蔵,加藤正司,浜田耕一,本田道識,不飽和土の間隙水の状態と土塊の力学的挙動の関係 について,土木学会論文集, No. 535, 83-92, 1996.
- 菊池広人,棚井憲治,松本一浩,上野健一,佐藤治夫,鐡 剛史,緩衝材の飽和透水特性−Ⅱ-海 水性地下水が緩衝材の透水特性に及ぼす影響, JNC TN8430 2003-002, 2003.
- 菊池広人,棚井憲治,幌延地下水を用いた緩衝材・埋め戻し材の基本特性試験, JNC TN8430 2004-005, 2005.
- 木村 誠, 九石正美, 藤田朝雄, 中間茂雄, 鈴木英明, 緩衝材中の化学影響評価に向けた熱-水-応力-化学連成解析モデルの開発, JAEA-Research 2010-034, 2010.
- 小林紘冶, 伊藤雅和, 最近のベントナイトの製造工程について, 粘土科学, 31, 222-230, 1992.
- 小池 充, 広谷卓也, 赤尾 昇, 原 信義, 杉本克久, アルカリ性水溶液を含む圧縮ベントナイト中 での炭素鋼の耐食性に及ぼす微量合金元素の影響, 材料と環境, 55, pp.445-451, 2006.
- 操上広志, 千々松正和, 小林 晃, 杉田 裕, 大西有三, グリムゼル試験場における熱—水—応力連 成原位置試験の解析, 土木学会論文集2004 (757), pp.127-137, 2004.
- Lagaly, G., Layer charge determination by alkylammonium ions. Pp. 1-46 in: Layer Charge Characteristics of Clays (A.R. Mermut, editor). CMS Workshop Lectures, 6. The Clay Minerals Society, Boulder, Colorado, 1994.
- Lantenois, S., Lanson, B., Muller, F., Bauer, A., Jullien, M. and Plancon, A., Experimental study of smectite interaction with metal Fe at low temperature: 1. smectite destabilization, Clays and Clay Minerals, 53, pp.597-612, 2005.
- Lavikainen, L. P. et al., 'Interaction of octahedral Mg(II) and tetrahedral Al(III) substitutions in aluminium-rich dioctahedral smectites', Theoretical Chemistry Accounts. Springer Berlin Heidelberg, 135(4), pp. 1–6, 2016.
- Leoni, M., Börgesson, L. and Keto, P., Numerical modelling of the buffer swelling test in Åspö HRL. Validation of numerical models with the buffer swelling test data. SKB TR-17-03, Swedish Nuclear Fuel and Management Co., 2018.
- 三原守弘, 佐藤信之, 大野進太郎, 森川誠司, TRU 廃棄物地層処分施設の力学挙動解析コード (MACBECE)の開発, JAEA-Data/Code 2009-026, 2010.
- Mualem, Y., A new model for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated porous media. Water Resources Research 12, No.3, 514-522, 1980.
- Miklos, D., Cicel, B., Development of interstratification in K and NH4-smectite from Jelsovy Potok (Slovakia) treated by wetting and drying. Clay Miner. 28(3), 435–443, 1993.
- 中山 雅, 大野宏和, 中山真理子, 小林正人, 幌延深地層研究センターにおける人工バリア性能確 認試験;計測データ集(平成26年度), JAEA-Data/Code 2015-013, 2015.
- 中山 雅, 幌延深地層研究計画におけるオーバーパック腐食試験; 模擬オーバーパック, 緩衝材 およびヒーターの製作, 設置, JAEA-Technology 2018-006, 2018.
- Nesic, S., Key Issues Related to Modelling of Internal Corrosion of Oil and Gas Pipelines, A review, Corrosion Science, 49, pp.4308-4338, 2007.
- 日本原子力研究開発機構, 平成19年度 地層処分技術調査等事業 処分システム化学影響評価高度 化開発報告書 平成20年3月, 2008.
- 日本原子力研究開発機構, 平成20年度 地層処分技術調査等事業 処分システム化学影響評価高度 化開発報告書 平成21年3月, 2009.

- 日本原子力研究開発機構, 平成21年度 地層処分技術調査等事業 処分システム化学影響評価高度 化開発報告書 平成22年3月, 2010.
- 日本原子力研究開発機構, 平成22年度 地層処分技術調査等事業 処分システム化学影響評価高度 化開発報告書 平成23年3月, 2011.
- 日本原子力研究開発機構, 平成23年度 地層処分技術調査等事業 処分システム化学影響評価高度 化開発報告書 平成24年3月, 2012a.
- 日本原子力研究開発機構, 平成23年度 地層処分技術調査等事業 TRU廃棄物処分技術セメント 材料影響評価技術高度化開発報告書 平成24年3月, 2012b.
- 日本原子力研究開発機構, 平成24年度 地層処分技術調査等事業 処分システム化学影響評価高度 化開発報告書 平成25年3月, 2013a.
- 日本原子力研究開発機構, 平成24年度 地層処分技術調査等事業 TRU廃棄物処分技術セメント 材料影響評価技術高度化開発報告書 平成25年3月, 2013b.
- 日本原子力研究開発機構, 平成24年度 地層処分技術調査等事業 高レベル放射性廃棄物処分関連 先進的地層処分概念・性能評価技術高度化開発 –巨大地震・津波を含む想定外事象への対応 -報告書 平成25年3月, 2013c.
- 日本原子力研究開発機構, 平成25年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発 報告書 平成26年3月, 2014a.
- 日本原子力研究開発機構,平成25年度 地層処分技術調査等事業 TRU廃棄物処分技術セメント 材料影響評価技術高度化開発報告書 平成26年3月,2014b.
- 日本原子力研究開発機構, 平成26年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発 報告書 平成27年3月, 2015a.
- 日本原子力研究開発機構, 平成26年度 地層処分技術調査等事業 セメント材料影響評価技術高度 化開発報告書 平成27年3月, 2015b.
- 日本原子力研究開発機構, 平成26年度 地層処分技術調査等事業 セメント材料影響評価技術高度 化開発-4ヵ年研究成果の取りまとめ-報告書 平成27年3月, 2015c.
- 日本原子力研究開発機構, 平成27年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発 報告書 平成28年3月, 2016a.
- 日本原子力研究開発機構, 幌延深地層研究計画における人工バリア性能確認試験-坑道の埋め戻し材に関する検討-, JAEA-Research2016-002, 2016b.
- 日本原子力研究開発機構, 幌延深地層研究計画における人工バリア性能確認試験-計測データ集 (平成27年度), JAEA-Data/Code 2016-005, 2016c.
- 日本原子力研究開発機構, 平成28年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発 報告書 平成29年3月, 2017.
- 日本原子力研究開発機構,平成 29 年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業「処分システム評価確証技術開発」5か年成果報告書,2018a.
- 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 処分システム評価確証技術開発 報告書 平成30年3月, 2018b.
- 西本壮志,岡田哲実,澤田昌孝,遠心力載荷装置を用いた高レベル放射性廃棄物 処分場周辺の長 期挙動評価(その2) -ニアフィールド模型試験法の確立と等方応力拘束条件下における長 期挙動-,電力中央研究所報告,N11040,2012.
- Noda, K., Hirota, Y. and Seo, M., Evaluation of Uniform Corrosion Rate of Carbon Steel in Deaerated Carbonate Solutions, Proc. of International Symposium on Plant Aging and LifePredictions of Corrodible Structures, pp.771-776, 1995.

- 大江俊昭, 石井 卓, 伊藤雅和, 中島 均, 平田征弥, 陽イオン移流・拡散モデルによる Na 型ベン トナイトの Ca 型への長期変質速度の考察, 粘土科学第 38 巻第 4 号 220-232, 1999.
- Olis, A.C., Malla, RB. and Douglas, L.A., The rapid estimation of the layer charges of 2:1 expanding clays from a single alkylammonium ion expansion. Clay Minerals, 25, 39-50, 1990.
- 大野進太郎,河井克之,橘伸也,有効飽和度を剛性に関する状態量とした不飽和土の弾塑性構成 モデル,土木学会論文集, Vol.63, No.4, 1132-1141, 2007.
- POSIVA, Current Status of Mechanical Erosion Studies of Bentonite Buffer, POSIVA 2012-45, 2013.
- Pelayo, M., García-Romero, E., Labajo, M.A. and Pérez del Villar, L., Evidence of montmorillonite/Fe-rich smectite transformation in the Morrón de Mateo bentonite deposit (Spain): Implications for the clayey barrier behaviour, Applied Clay Science, 131, pp.59-70, 2016.
- Perronnet, M., Jullien, M., Villieras, F., Raynal, J., Bonnin, D. and Bruno, G., Evidence of a critical content in Fe(0) on FoCa7 bentonite reactivity at 80° C, Applied Clay Science, 38, pp.187-202, 2008.
- Quintessa Ltd., QPAC: Quintessa's General-Purpose Modelling Software, QRS-QPAC-11, 2013.
- Richards, L.A.. "Capillary conduction of liquids through porous mediums". Physics 1 (5): 318– 333, 1931
- Roscoe, K.H. and Burland, J.B., On the generalized stress-strain behavior of 'wet' clay, Engineering Plasticity eds. J. Hoyman and F.A. Leeckie, Cambridge University Press, pp. 535-609, 1968.
- Rutqvist, J., Chijimatsu, M., Jing, L., Millard, A., Nguyen, T.S., Rejeb, A., Sugita, Y. and Tsang, C.F., A numerical study of THM effects on the near-field safety of a hypothetical nuclear waste repository – BMT1 of the DECOVALEX III project. Part 3: Effects of THM coupling in sparsely fractured rocks, International Journal of Rock Mechanics & Mining Sciences 42, pp.745-755, 2005.
- Rutqvist, J., and Tsang, C.F., A Fully coupled three-dimensional THM analysis of the FEBEX In-situ test with the ROCMAS code: Prediction of THM behavior in a bentonite barrier. Elsevier Geo-Engineering book series volume 2, pp 143-148, 2004.
- Rutqvist, J., and Tsang, C.F., A Fully coupled three-dimensional THM analysis of the FEBEX In-situ test with the ROCMAS code: Prediction of THM behavior in a bentonite barrier. Elsevier Geo-Engineering book series volume 2, pp 143-148, 2004.
- Sanden, T. and Borgesson, L., Deep repository-engineered barrier system. Piping and erosion in tunnel backfill Laboratory tests to understand processes during early water uptake, SKB Report R-06-72, 2008.
- Sato, T., Murakami, T. and Watanabe, T., Change in layer charge of smectites and smectite layers in illite/smectite during diagenetic alteration. Clays and Clay Minerals, 44(4), pp. 460-469, 1996.
- 澤田昌孝,岡田哲実,西本壮志,遠心力載荷装置を用いた高レベル放射性廃棄物処分場周辺の長 期挙動評価(その3)-等温条件の模型試験に対する水・応力連成解析-,電力中央研究所報 告,N11037,2012.
- SKB, Deep repository-engineered barrier system. Piping and erosion in tunnel backfill.

Laboratory tests to understand processes during early water uptake. SKB R-06-72, Swedish Nuclear Fuel and Management Co., 2008.

- SKB, Long-term safety for the final repository for spent nuclear fuel at Forsmark. Main report of the SR-Site project. Updated 2015-05. SKB TR-11-01, Swedish Nuclear Fuel and Management Co., 2011.
- SKB. Buffer, backfill and closure process report for the safety assessment SR-Site. (Updated 2014-01). SKB TR-10-47, Swedish Nuclear Fuel and Management Co., 2010.
- Sanden, T. and Borgesson, L., Deep repository-engineered barrier system. Piping and erosion in tunnel backfill Laboratory tests to understand processes during early water uptake, SKB Report R-06-72, 2008.
- 石油公団石油開発技術センター,石油開発における腐食と耐食性材料,石油公団石油開発技術センター,1997.
- 柴田真仁,芳賀和子,広永道彦,地下水成分によるセメント硬化体の変質に関する研究 -HCO<sub>3</sub>-イオンの影響-,土木学会第57回年次学術講演会,499-500,2002.
- Siir, S., Internal Geochemical Stratification of Bentonites (Altered Volcanic Ash Beds) and its Interpretation, PhD Thesis, Tallinn University of Technology, 2005.
- Soler, J.M., Reactive transport modeling of the interaction between a high-pH plume and a fractured marl: the case of Wellenberg, Appl. Geochem., 18, pp.1555-1571, 2003.
- Steefel, C.I. and Lichtner, P.C., Diffusion and reaction in rock matrix bordering a hyperalkaline fluid-filled fracture, Geochim. Cosmochim. Acta, 58, pp.3595-3612, 1994.
- Sucha and Siranova, Ammonium and potassium fixation in smectite by wetting and drying. Clays Clay Miner., 39, pp.556-559, 1991.
- 杉田 裕, 菊池広人, 棚井憲治, 人工バリアにおける緩衝材の隙間膨潤挙動に関する基礎試験(II), JNC-TN8430 2003-07, 2003.
- Sugita Y., Kwon S., Lee C., Massmann J., Pan P.-Z., Rutqvist J., DECOVALEX-2015 project Task B2 final report, DECOVALEX, 2016.
- 鈴木英明,藤田朝雄,緩衝材の膨潤特性,核燃料サイクル開発機構報告書, JNC-TN8400 99-038, 1999.
- Takayama Y., Tachibana S., iizuka A., Kawai K. and Kobayashi I., Constitutive modeling for compacted bentonite buffer ma-terials as unsaturated and saturated porous media, Soils and Foundations, Vol.57, Issue 1, 80-91, 2017
- 高治一彦,鈴木英明,緩衝材の静的力学特性,JNC-TN8400 99-041, 1999.
- 棚井憲治, 三原守弘, 田中益弘, 伊藤 勝, 前田崇宏, カルシウム型化及びカルシウム型ベントナ イトの基本特性-膨潤圧, 透水係数, 一軸圧縮強度及び弾性係数-, PNC TN8410 98-021, 1998.
- 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, JAEA-Research 2010-025, 2010.
- 田中幸久,中村邦彦,海水の濃度と高温履歴がベントナイトの膨潤特性に及ぼす影響,土木学会 論文集, No.806/Ⅲ-73, pp.93-111, 2005.
- 戸井田克, 笹倉 剛, 横関康祐, 小林一三, 渡邉賢三, 芦澤良一, 人工バリア材料の力学的物性取 得試験, JNC TJ8400 2004-036, 2005.
- 豊村恵理,伊代田岳史,異なる二酸化炭素濃度環境下における炭酸化メカニズムに関する一検討, コンクリート工学年次論文集, Vol.35, No.1, 2013.

- 植田昌克,炭酸ガス及び硫化水素を含む油井環境用の耐食材料開発,材料と環境,56, pp.43-50, 2007.
- van Genuchten, M.Th., A closed-form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils. Soil Soc. Am. J., 44: 892-898.1980.
- Washburn, E. W., The Dynamics of Capillary Flow, Physical Review, Vol. 17, Issue 3, pp.273-283., 1921.
- Watson, C., Wilson, J., Savage, D., Benbow, S. and Norris, S., Modelling reactions between alkaline fluids and fractured rock: the Maqarin Natural Analogue. Applied Clay Science, 121-122, 46-56, 2016.
- Wersin, P., Jenni, A. and Mäder U. K., Interaction of corroding iron with bentonite in the ABM1 experiment at ÄSPÖ, Sweden: A microscopic approach, Clays and Clay Minerals, 63, pp.51-68, 2015.
- 横関康佑,渡邉賢三,古澤靖彦,大門正機,大即信明,久田 真,カルシウムイオンの溶出に伴う コンクリートの変質に関する実態調査と解析的評価,土木学会論文集No.697, V-654, 51-64, 2002.

## 3. ニアフィールド環境変遷を考慮した核種移行評価技術の開発

## 3.1 目的と2か年の計画

## 3.1.1 目的

地層処分は長期にわたる事業であるために、常に最新の科学的知見に照らして、システムの安 全評価を行うとともに、評価の妥当性の確認や見直しが適切に行われていくことが重要である。 このため、最先端の科学的知見や手法を駆使して、処分システムにおいて発生することが想定さ れる諸現象について、科学的な現象の理解を進め、より現象に忠実なモデルを開発し、それらに 基づいて、処分システムの評価の妥当性を示すことが重要となる。本課題では、図3.1-1に示すよ うに、処分場の閉鎖前から閉鎖後の長期にわたって、人工バリアとその設置などにより影響を受 けると考えられる人工バリア近傍の岩盤とを合わせた領域(ニアフィールド)において発生する ことが考えられる様々な複合現象とその結果生じる環境変遷、及び地質環境が本来的に有してい る不均質性等を考慮して、核種移行を評価するための技術の高度化とその妥当性の確認を目的と する。この際、計算科学的な手法、室内試験、原位置試験あるいは天然類似事象の調査等のそれ ぞれのアプローチの特徴を踏まえ、それらを適切に組み合わせることで、モデルの確証性を高め ていくこととする。



図3.1-1 ニアフィールドのシステム変遷と核種移行評価に係る課題例

#### 3.1.2 2か年の計画

上記の目的を達成するために、2章におけるニアフィールドの環境変遷(サブプロジェクト1) の成果を踏まえながら、また、4章におけるニアフィールド性能の総合評価技術(サブプロジェク ト3)に反映することを念頭に、本課題では図3.1-2に示す3つのサブタスクを設定し、相互に連携 させつつ核種移行評価技術の開発を進める。3つのサブタスクの計画の概要を以下に示す。

#### (1) ニアフィールド岩盤中の核種移行評価技術の開発

核種移行モデルの開発については、結晶質岩及び堆積岩を対象として、これまでの関連プロジェクト等において今後取り組むべき課題として抽出された、割れ目等の不均質性や地質環境の長期変遷を考慮可能な核種移行解析モデルを開発する。具体的には、国内外の地下研究施設の岩石を用いて、これまで主に対象としてきたマトリクス部の核種移行モデルに加え、割れ目部及びそのマトリクス部との相互作用に重点をおき、最新の分析技術を適用して鉱物分布や間隙構造の不

均質性を定量的に評価するとともに、室内トレーサー試験により割れ目部及びマトリクス部の核 種移行データを取得する。さらに、これらのデータをもとに、マトリクス部の核種移行特性に加 えて割れ目等の不均質に分布する水みちを取り扱い可能な核種移行解析モデルを開発する。構築 した核種移行解析モデルの妥当性確認については、これまでに取得された原位置トレーサー試験 データ等を活用し、上記で開発したモデルの適用性を評価することによりその妥当性確認を行う。 また、長期時間スケールでの核種移行モデルの妥当性確認に向けて、地質環境の長期変遷や不均 質性等を考慮したナチュラルトレーサーの解析評価事例の拡充と課題の抽出を行う。さらに、こ れらの成果に基づいた岩盤中の割れ目等の不均質性や地質環境の長期変遷を考慮した核種移行解 析の試行により、核種移行評価への適用に向けた課題と今後の研究アプローチを提示する。

#### (2) システム変遷等を考慮した核種移行解析モデル/データベースの開発

ニアフィールドの状態変遷の設定については、炭素鋼製オーバーパックと緩衝材との相互作用、 セメント系材料と緩衝材及び岩石との相互作用を対象として、地下水化学の変遷に関する情報等 に基づき、ニアフィールドの状態変遷を設定する。その設定に応じた条件において変質した緩衝 材や岩石中の核種の移行挙動に係るデータの取得を行う。このうち、炭素鋼の腐食に伴う鉄によ る影響については、その状態変遷に応じた条件で、室内試験により、鉄と核種との競合収着現象 や鉄鉱物と核種との共沈現象に関するデータを取得する。さらに、セメント影響については、セ メント共存系における地下水水質変化や変質等を想定した条件下での緩衝材や岩石中の核種移行 データを取得する。核種移行解析モデルの構築と妥当性確認については、上記の取得データやメ カニズム理解に基づき、鉄製オーバーパックと緩衝材との反応、セメント系材料と緩衝材及び岩 石との反応に伴う状態変遷を考慮した核種移行解析モデルを構築し、このモデルを既存データ等 に適用して、その妥当性を確認する。

また、多様な地質・地下水条件に対応していくため、比較的炭酸塩濃度が高い地下水が存在す る場等に重点を置き、岩石への核種の収着・拡散データベースを整備する。実際の深部環境で考 慮すべき高炭酸塩濃度等の地下水条件範囲、及びその条件で炭酸錯体等の影響が顕在化する核種 を検討し、重要な地下水条件と核種との組合せを抽出したうえで、炭酸塩濃度条件等を制御した 岩石中の核種移行データの取得手法を構築し、先端的な分析技術を適用して重要な核種の収着・ 拡散データを取得する。さらに、そのデータの信頼性確認と多様な条件下での核種移行パラメー タ設定に反映するため、分子動力学計算等の計算科学技術を適用して炭酸共存下における核種の 収着・拡散等のメカニズムを評価するとともに、それらを反映した核種移行モデルの構築を行う。

#### (3) 有機物・微生物の影響評価技術の開発

有機物影響評価技術については、天然有機物・核種・岩石の三元系の評価の基礎となるデータの うち、有機物・核種の二元系の錯生成データを取得する。具体的には、天然有機物と錯体を形成し やすいⅢ価・Ⅳ価核種のうち、データ拡充の必要があるⅣ価核種を主たる対象として、錯生成デ ータを室内試験等により取得するとともに、錯生成反応機構等を把握し、モデル高度化とパラメ ータ整備を行う。さらに、核種と天然有機物との錯生成反応における不可逆性の評価、核種・有機 物・岩石三元系モデルの開発に向けた文献調査と課題抽出を行い、そのうち重要度の高い課題に焦 点をあててデータ取得を行う。

天然に存在する主要な微生物のデータ取得については、核種移行に及ぼす微生物影響評価モデ ルを構築し、パラメータを整備するため、これまで未評価の微生物を対象に、核種移行への影響 の観点から文献調査を行い、研究課題の抽出とその重要度分類を行う。そのうえで、重要な微生 物を対象に、微生物による核種の収着や微生物の代謝による核種の取り込み等の重要な現象に関 するデータを取得し、これらの核種移行への影響メカニズムを把握する。さらに、これらの成果 と、これまでの感度解析等において重要と評価されたモデル・パラメータとの関係性を明らかに し、微生物影響を考慮した核種移行解析に反映する。



SP3: ニアフィールド性能の総合評価技術開発

図3.1-2 本課題における3つのサブタスクとそれらの関係

#### 3.2 ニアフィールド岩盤中の核種移行評価技術の開発

## 3.2.1 背景と目的及び研究アプローチ

#### (1) 研究の背景と目的

ニアフィールド岩盤中の核種移行を評価するうえでは、岩石中の割れ目やマトリクス部の鉱物 や間隙の特性、地下水の地球化学的特性、そこでの核種の収着・拡散特性といった岩石自体の核 種移行特性に係る課題に加えて、隆起・侵食や海水準変動による地質環境の長期変遷の影響、セ メント等の人工バリア材に起因する長期変遷の影響、地質環境に存在する有機物、微生物、コロ イドの影響など、さまざまな影響要因やその核種移行への影響等について考慮する必要がある。 これらのニアフィールド岩盤中の核種移行評価について、従来の地質環境を特定しないジェネリ ックな評価段階においては、簡略かつ保守的に評価することを重視したモデルやパラメータが採 用されてきた(核燃料サイクル開発機構,1999)。一方で、今後の概要調査から精密調査段階で必 要となる実際のサイトにおける地質環境調査等のデータを適切に反映させた評価モデルの構築と、 様々な処分概念や設計オプションの比較、それらの条件での性能評価による安全性の成立性やサ イト間の優劣等を検討するための技術基盤を整備していく観点からは、最新の科学技術の成果を 反映した現象理解の深化や評価手法の高度化を図るとともに、実際の地質環境条件をいかに考慮 するか、あるいは、実際の地質環境での原位置試験等によっていかにそれらを確証していくか、 その方法論を検討しておくことが重要な課題となる。

本タスクでは、上記の背景を踏まえ、岩石中の割れ目やマトリクス部の不均質性や地質環境特 性の長期変遷等を考慮した核種移行評価技術について、室内試験、原位置試験及び天然事例評価 等を通じて高度化や確証を行うことを目的とする。この目的の達成に向けて、先行事業(日本原 子力研究開発機構,2013;2018)を含む既往の知見をもとに今後取り組むべき課題を抽出し、その 解決に向けたアプローチを提示した上で、室内試験や原位置試験等によるデータ取得、それらに 基づくモデルの構築や妥当性確認を進めていくこととする。

## (2) 課題と研究アプローチの設定

岩石中の核種移行モデルの開発については、先行事業(日本原子力研究開発機構, 2013; 2018) において、国内外の最新の知見の調査に基づき、結晶質岩及び堆積岩のそれぞれで取り組むべき 課題を抽出し、その課題解決に向けたアプローチを設定して研究開発に取り組んできた。表3.2-1 に、結晶質岩系と堆積岩系(主に粘土質岩)における重要な不確実性要因と課題の整理結果を示 す(日本原子力研究開発機構,2018)。結晶質岩では、割れ目とマトリクス部から成る二重間隙モ デル体系に関連した割れ目の特性(開口状態や充填鉱物等)やマトリクス拡散深さ等の評価に加 え、選択的に核種を収着する黒雲母等の分布の不均質性や収着試験時の試料粉砕に伴う表面積の 増大等の影響の評価が国際的に重要な課題となっている。一方、堆積岩では、その透水性が極め て低いために物質移動は拡散によって支配され、マトリクス部の拡散・収着メカニズムの理解と モデル化、間隙水の抽出・評価、天然同位体プロファイルによる長期拡散特性の立証等が中心的 な課題となっている。また、堆積岩でも割れ目が存在し割れ目に沿った選択的な地下水流動経路 を考慮する必要がある場合には、結晶質岩と同様に割れ目近傍の岩石変質状況や核種移行特性の 把握が重要となる。さらに、地質環境の長期変遷や、コンクリート支保等の人工材料起因の長期 変遷の影響についても、長期安全評価において重要な課題として取り組みが進められている。こ のような課題抽出及び先行事業の成果(日本原子力研究開発機構, 2018)を踏まえ、本タスクで は、グリムゼルの花崗岩(結晶質岩)及び幌延の泥岩(堆積岩)を主たる対象に研究を展開する こととする。

研究アプローチとしては、図3.2-1に示すように、グリムゼルの花崗閃緑岩(結晶質岩)及び幌 延の泥岩(堆積岩)を主たる対象として、これまでの先行事業と同様に、重要な不確実性要因に 着目して、室内試験データを系統的に取得し、そのデータをもとに評価モデルを構築したうえで、 原位置試験を活用したモデルの適用性評価や、ナチュラルアナログ的なアプローチによる長期時 間スケールでのモデルの確証を進める。これまでの先行事業において、上記2つの岩石のマトリ クス部については核種移行モデルを開発してきており(日本原子力研究開発機構,2018)、本事業 では、マトリクス部のモデルの更なる高度化と確証を図りつつ、特に割れ目部の不均質性を反映 したモデルの構築及び長期の環境変遷評価手法の構築に重点をおいた研究を進める。さらに、こ れらの成果に基づく岩盤中の割れ目等の不均質性や地質環境の長期変遷を考慮した核種移行解析 の試行と課題の抽出を行う。具体的には、結晶質岩と堆積岩のそれぞれについて、今年度は以下 のような研究を実施した。

結晶質岩については、従来より進めてきたスイスグリムゼルの花崗閃緑岩マトリクス部を対象 に構築してきた不均質性を考慮したモデル化手法の妥当性を確認するとともに、スウェーデンの エスポ及びフィンランドのオンカロの地下研究施設での原位置トレーサー試験の成果を活用して、 多様な結晶質岩マトリクス中の核種移行の現象理解とモデルの適用性評価を進める。また、割れ 目中の核種移行モデルの開発については、グリムゼルの比較的単純な割れ目試料を対象に、先行 事業で取り組んできた室内試験とモデル開発のアプローチ(日本原子力研究開発機構, 2018)を 踏襲し、より複雑な割れ目を対象にモデルの改良や適用性の確認を進める。さらに、これらの知 見へ反映しつつ、実際の地質環境の特徴や地質環境の長期変遷等を考慮した評価手法を構築する ために必要な解析技術の調査や開発を進める。

堆積岩系(粘土質岩)については、幌延の泥岩を対象とし、幌延深地層研究センターで実施中

のマトリクス部及び割れ目部の双方を対象とした原位置トレーサー試験との連携を通じ、原位置 試験をサポートする室内データを取得するとともに、これまでに開発してきたモデルの適用性の 確認を進める。また、泥岩のマトリクス中の鉱物や間隙の不均質性と核種移行現象との関係性の 理解とそれを反映したモデルの高度化を進める。さらに、先行事業で進めてきたナチュラルトレ ーサーを活用した長期時間スケールでの物質移行評価のアプローチと課題(日本原子力研究開発 機構, 2018)を踏まえ、長期環境変遷を考慮したより大きな空間スケールでの岩石中の物質移行 モデルの確証に取り組む。

分類	結晶質岩系(スウェーデンÄspö, フィンランド ONKALO, スイスGrimselなど)	堆積岩系(スイスMont Terri, フランスBure, ベ ルギーMolなど)
母岩・ 割れ目 特性	<ul> <li>・核種の移行経路となる割れ目近傍の間隙構造と変 質状態、被覆層や充填鉱物の種類等の把握</li> <li>・割れ目/充填物の多様性や不均質性の把握と、核種 移行評価上の重要な特性と代表性の評価</li> <li>・割れ目及びマトリクスにおける間隙の分布と連続 性の評価</li> <li>・収着を支配する鉱物(CECや比表面積の大きい雲 母鉱物等)の特定、その粒子サイズや分布の把握</li> </ul>	<ul> <li>・母岩の低透水性と拡散支配となることの同位体プロファイル等に基づく確認</li> <li>・低頻度ではあっても、卓越した核種移行経路となるような割れ目等の存在及びその近傍の岩石の変質状態等の把握</li> <li>・収着特性を規定するような鉱物種の特定、及び当該鉱物含有量の把握</li> </ul>
地下水 化学	<ul> <li>・透水性の高い亀裂ネットワークに沿った異種の水 塊の流入によって、将来の処分場領域の地下水水 質が種々に変化する可能性</li> <li>・特に、沿岸域における海退時の海水系地下水の淡水による置換、あるいは海進時の降水系地下水の 塩水による置換等</li> <li>・このような地下水化学の長期変遷を考慮して核種 移行データセットを作成するための、周囲に存在 する異種の地下水端成分の把握</li> </ul>	<ul> <li>・地下水/間隙水の抽出及び擾乱を与えることなく 水質分析を行うための手法(間隙水の抽出時の脱 ガスや酸化の擾乱影響を含んだ測定結果に対する 地球化学解析モデルを用いた補正方法を含む)</li> <li>・将来の地下水・間隙水の水質変化が緩慢であるこ とを立証するための証拠となる情報(深度方向の 同位体プロファイル等)の取得・評価</li> <li>・地球化学モデリングによる間隙水化学の解釈と収 着等の核種移行を支配する水質特性の把握</li> </ul>
拡散・ 収着 特性	<ul> <li>・割れ目とマトリクスから成る二重間隙モデルの体系に対応した亀裂充填物の収着・拡散特性、マトリクス拡散深さ等の評価</li> <li>・選択的に核種を収着する黒雲母等の分布の不均質性や試料粉砕の影響も考慮した室内データから原位置へのアップスケーリング手法(間隙率や比表面積の補正)</li> <li>・亀裂ネットワーク内の鉱物組成の空間的ばらつきを考慮した、その全体スケールに対して代表性を持つような核種移行特性の取得・設定</li> <li>・地下水化学の長期変遷に対応した核種移行特性(特に分配係数)の設定と不確実性の推定</li> <li>・陽イオン加速や陰イオン排除効果等、表面錯体等を考慮した拡散・収着モデル等の適用性</li> </ul>	<ul> <li>・原位置での拡散・収着データの取得と室内試験デ ータとの整合性の確認(地圧や異方性の影響、表 面積補正が不要であることの確認等)</li> <li>・粘土質岩で影響が顕著な陽イオン加速や陰イオン 排除効果の定量的把握</li> <li>・粘土を主体とした収着モデル(イオン交換、表面 錯体)の適用性評価</li> <li>・天然同位体プロファイル等の分析評価に基づく長 期拡散特性の立証</li> <li>・割れ目に沿った選択的な地下水流動経路を考慮す る必要がある場合、割れ目中の核種移行特性の取 得評価</li> <li>・コンクリート支保等による高アルカリ影響を考慮 した核種移行特性の評価</li> </ul>

# 表3.2-1 ニアフィールド岩盤(結晶質岩及び堆積岩)中の核種移行評価に係る国際的な課題 (日本原子力研究開発機構, 2018)



図3.2-1 岩石マトリクスと割れ目中の核種移行研究アプローチと2つの対象岩石

## 3.2.2 結晶質岩中の核種移行評価技術の開発

#### (1) 結晶質岩の岩石マトリクス中の核種移行モデルの開発

## 1) 結晶質岩マトリクス中の核種移行データ取得と不均質性を考慮したモデル構築

花崗岩のマトリクス部を対象とした不均質性等の影響を含む核種移行メカニズムの理解とモデ ルの開発については、先行事業において、スイスグリムゼルの原位置長期拡散(LTD)プロジェ クトと連携して、原位置試験場所から採取した岩石マトリクス試料を対象に、室内試験によって 多様な核種の収着・拡散データの取得を進めてきた。その結果、グリムゼルの花崗閃緑岩試料の 鉱物と間隙の不均質性、及び室内試験試料の加工の際に生じる擾乱影響を考慮することの重要性 が確認された(日本原子力研究開発機構, 2018; Tachi et al., 2015; 2018)。具体的には、取得さ れた実効拡散係数から、狭隘間隙中での静電的相互作用に起因した陽イオン加速と陰イオン排除 の傾向が確認され、その傾向は陽イオンの加速の方が顕著であり、これは花崗岩中の鉱物や間隙 の不均質性に起因するものと推定された。一方で、拡散試験後に取得された岩石中の核種の濃度 プロファイルは典型的な二重プロファイルを示し、試料表面の擾乱を受けた部分と未擾乱のマト リクス部の分配係数は大きく異なり、後者の分配係数の把握が実際の岩石マトリクスの収着特性 を評価するうえで重要となることを明らかとした。

さらに、グリムゼル花崗閃緑岩中の核種移行特性に及ぼす不均質性の影響を評価するうえで、 特に黒雲母の形状や分布が、イオンの拡散係数や拡散の異方性に及ぼす影響を理解することが重 要と考え、岩石中の黒雲母等の鉱物や間隙の不均質性の定量化と、不均質性を考慮した拡散挙動 の解析手法の開発を進めてきた。図3.2・2に示すように、X線CT等の分析により得られる鉱物・間 隙分布情報をもとに、黒雲母の層状構造とその不均質な分布を反映した不均質場モデルを構築し、 ランダムウォーク法による粒子拡散解析によって、層状の雲母鉱物のサイズや配向性、鉱物間の 粒界間隙の連続性、雲母間隙中における静電的相互作用による陽イオン加速や陰イオン排除の効 果などが拡散挙動へ及ぼす影響の把握を試みた。その結果、層状の黒雲母の配置の影響や粒界間 隙の連続性などの影響が明瞭に確認され、同図(d)に示すように黒雲母の連結性と粒界間隙の連続 性を調整したモデルにおいて、実測された中性化学種の拡散係数、陽イオン加速とイオン排除の 効果を概ね再現できることが確認された。





上記の成果を踏まえ、今年度は、黒雲母の連結性や配向性が拡散挙動に及ぼす影響のより詳細 な分析や、この不均質場モデル解析に収着の効果を加えることによって、岩石中の核種濃度プロ ファイルの評価手法を構築し、実測データの再現性評価を試みた。

まず、黒雲母の連結性と配向性の効果をより詳細に分析するため、図3.2-2に示したモデル体系 (鉱物粒子間の間隙はすべて連続していることを仮定)において、黒雲母鉱物を1枚、2枚、2枚×2 枚と連結性を変化させ、それぞれ拡散方向に対して黒雲母を平行と直交方向に配置したモデルを 設定して粒子拡散解析を行った。解析方法の詳細については、これまで先行事業において実施し てきた手法(日本原子力研究開発機構, 2018)と同様である。図3.2-3に、中性粒子の解析結果の 比較分析の例を示す。同図(a)に示す黒雲母を拡散方向に平行に配置したケースでは、黒雲母1枚に 対して、2枚連結のケースでは実効拡散係数が12%程度大きくなり、2×2枚連結のケースでは2枚連 結の場合とほぼ同じ値である。黒雲母を平行に配置することにより拡散方向に沿って直進可能な 経路が増えるため、また、2枚連結させた場合にはその距離が長くなるため拡散係数が増加すると 考えられる(2×2枚連結は、2枚連結に対して拡散方向への直進経路の寄与は同じであるため変化 しない)。一方で、同図(b)に示すように、黒雲母を拡散方向に対して直交方向に配置した場合、 黒雲母1枚に対して、2枚連結のケースでは実効拡散係数は約15%小さく、さらに、2×2枚連結のケ ースでは約35%小さくなる結果となった。これは、黒雲母のベーサル面が粒子拡散の障壁となり、 1枚から2枚、2×2枚連結とその面積が単純に増加することによって、粒子が障壁に当たる確率が 上がり、また障壁をよけるのに大きく迂回しなければならず実効拡散係数はより低下するものと 考えられる。グリムゼルの花崗閃緑岩で観察されたように、層状の黒雲母が連結して分布するよ うな場合、その連結性や配向性は拡散特性に大きく影響を及ぼすことが確認された。ここで分析 したような中性粒子の拡散挙動への影響から拡散係数を支配する重要なパラメータの一つである 幾何学因子(特に屈曲度)を評価することが可能となり、さらに、図3.2-2(d)に示したような陽イ オンと陰イオンを含めた影響解析と実測データの比較評価によって、陽イオン加速や陰イオン排 除の効果を含めて、結晶質岩中の鉱物や間隙の不均質性を考慮した拡散評価が可能となると考え られる。今後、これらの不均質性を考慮した拡散評価手法を、後述するようなスウェーデンのエ スポやフィンランドのオンカロの岩石に対して適用性を確認していく。



図3.2-3 グリムゼル花崗閃緑岩中の黒雲母の配向性と連結性を変化させた中性粒子の拡散解析 結果:(a)黒雲母配置:平行、(b)黒雲母配置:直交

さらに、この不均質場のモデル解析に収着の効果を加えることによって、岩石中の核種濃度プ ロファイルの評価手法を検討するとともに、拡散試験において実測されたデータ(Tachi et al., 2015)の再現性評価を試みた。図3.2-2(c)及び(d)に示した結果から、実測された実効拡散係数を比 較的良く再現できた45度斜行した黒雲母を4枚連結させたモデルを対象に解析を行った。鉱物や 間隙の分布、各間隙における拡散係数はこれまでの設定(日本原子力研究開発機構,2018)と同様 とし、黒雲母及びその他鉱物の粒界における分配係数の設定は、拡散試験で取得されたデータ (Tachi et al., 2015)に基づき設定した。具体的には、先行研究の知見から、黒雲母の分配係数 をその他鉱物の分配係数の10倍と仮定したほか、試料表層の擾乱影響によるKaの増加効果(Tachi et al., 2015)を踏まえて、初期粒子配置面(図3.2-4(a)の赤い面)から5 mm以深については岩石 マトリクスの値を使用し、一方で、表層から5 mmまでは段階的に分配係数と実効拡散係数を変動 させた。図3.2-4(a)に示す解析結果から、初期粒子配置面から時間とともに拡散により試料内部に 移行していく様子が確認できる。解析結果の各時間と距離における粒子数分布の平均化処理によ って、同図(b)に示すようなCsイオンの試料の深さ方向の濃度分布を評価した結果、同図に示す実 測された二重プロファイルを概ね再現できること、また、プロファイルの形状は時間によってそ



れほど変化しないことが確認できた。

図3.2-4 グリムゼル花崗閃緑岩の不均質場モデル中の粒子移行解析結果:(a)全空間におけるCs 分布、(b)Cs濃度の深さ分布の解析結果及び実測データ

#### 2) 多様な結晶質岩の鉱物・間隙分布の分析評価

上記したように、グリムゼル花崗閃緑岩のマトリクス部を対象とした不均質場解析において、 黒雲母の連結性や配向性が拡散挙動に及ぼす影響を明らかにするとともに、このような評価を検 討するうえで黒雲母等の拡散・収着現象を支配する鉱物や間隙の不均質な分布に関する定量的情 報が重要となることを示した。これまでにグリムゼルの花崗閃緑岩を主な対象に様々な分析手法 の適用によって鉱物の不均質性を定量化するとともに、スウェーデンエスポの花崗閃緑岩及びフ ィンランドオンカロの片麻岩にも対象を拡張して分析研究を進めてきた(日本原子力研究開発機 構, 2018)。

ここでは、これら3つの岩石を対象として、上述したようなマトリクス部の不均質場モデルの 構築に必要な情報の取得を目的として、それぞれの岩石の葉理構造あるいは黒雲母の配向性をX 線CT分析によって定量化する手法を検討し、3つの岩石の特徴を比較した。岩石コア試料内の黒 雲母の配向は、図3.2-5 (a)に示すように、X線CT像から黒雲母に対応した輝度領域を抽出した二 値化画像をコアの拡散方向(円柱の軸方向)を基準(角度ゼロ)に、傾斜させながら結像させる ことで平均傾斜角を決定する手法を検討した。透過投影可能なCT解析ソフトOsirixを用いて、同 図(b)に示すように、黒雲母領域の投影が最も濃密になる角度を画像の目視により求め、この時の コアの底面に対する角度を読み取って、コアの軸方向(拡散試験試料の拡散方向)に対する黒雲 母配向角AOF (angle of foliation)を決定した。それぞれの拡散試験用に加工した岩石試料コア 内の黒雲母はやや傾いた葉理構造を持っているが、それぞれの試料のX線CT像の黒雲母に対応し た輝度分布の半値幅が最小になる傾斜から拡散方向に対する黒雲母の傾斜角を、同図(b)に示すよ うに評価した。



図3.2-5 黒雲母の配向性の決定方法(a)と4つの岩石の評価結果例(b)

岩石中に含まれる黒雲母量が多い場合には、上記のような手法の適用によって、X線CT像から 黒雲母の含有率、配向性及びサイズ情報を定量化し、それらを反映した不均質場モデルの構築と 核種移行解析が可能となる。ここで検討対象とした岩石のうち、グリムゼルの花崗閃緑岩は5~ 20%程度の黒雲母を含有し、一方、オンカロの片麻岩は30%を超える黒雲母を含んでいる。しかし ながら、エスポの花崗閃緑岩については、黒雲母の含有量が少なく、黒雲母の変質状況とその変 質鉱物の分布を把握することが重要となり、ここではEPMA分析の適用によりその評価を試みた。 割れ目面を含むエスポ花崗閃緑岩コアの縦断面を切り出し、その片面のEPMAマッピング及びス ポット分析を行った結果の例を図3.2-6に示す。同図(a)に示す反射電子線像(BEI)から、試料上 部の割れ目部には、花崗閃緑岩マトリクス部とは異なる組織をもつアプライト(カリ長石に富む 後期マグマ結晶化過程の脈状組織)とその間に発達する割れ目とそれを充填するゼオライトや炭 酸塩で構成される二次鉱物が確認できる。一方で、マトリクス部には、石英やカリ長石に加え、 緑泥石が広く分布し、さらに一部バイデライト質スメクタイトが含まれており、これらの層状ケ イ酸塩はもともとのマグマ結晶化過程では黒雲母であったものが、アプライトを形成する後期熱 水変質過程(~350 ℃)からさらに低温の風化過程において変質したものと考えられる。これを 踏まえ、EPMAで取得された元素マップのうち、同図(b)に示すような、緑泥石を表すFeとMgマ ップの重ね合わせた画像(Fe+Mg)から、緑泥石の分布と存在率を計算した。岩石マトリクス中 の緑泥石の存在率は、空間中の粒子の形状の異方性はないと仮定すると、面積分率=体積分率と 近似できるので、同図(b)に示すFe+Mgマップのヒストグラムより15.43 vol.%と評価された。



図3.2-6 エスポ花崗閃緑岩中のEPMAによる鉱物分布評価(a)と緑泥石含有率評価(b)

#### 3) オンカロの岩石マトリクス中の原位置拡散試験への適用性評価

上記のような室内分析等に基づき構築した核種移行モデル及びパラメータを、最終的に原位置 条件において適用し、その妥当性を確認することが重要である。このような課題に対応するため、 諸外国でも様々な視点での原位置トレーサー試験が進められてきており、先行事業(日本原子力 研究開発機構,2013;2018)において、スイスグリムゼルの原位置長期拡散(LTD)プロジェクト との連携により、室内試験データから原位置条件でのパラメータを推定評価する手法を構築し、 実際に原位置試験データをもとにその手法の適用性を確認してきた。さらに、スウェーデンSKB による岩盤中の水理・物質移行モデルのモデリングに関するタスクフォースの枠組みを活用して、 スウェーデンのエスポ、フィンランドのオンカロにおける原位置トレーサー試験データを活用す ることによって、室内から原位置へのアップスケーリング手法を含めた核種移行評価技術の適用 性を検討してきた(日本原子力研究開発機構, 2017; 2018)。

これまでの先行事業(日本原子力研究開発機構, 2013; Tachi et al., 2015)において、室内実験 での拡散・収着試験から取得した間隙率、De及びKaから、実際の地下環境下における核種移行パ ラメータを補正評価する手法の開発を進めてきた。室内試験に用いる試料は、岩圧の差から生じ る間隙率の増加、及び掘削時に生じる岩石の擾乱部(Borehole Disturbed Zone: BDZ)が存在す るため、原位置条件における核種移行を評価する際は、これらの影響を反映したモデル設定とパ ラメータ補正が必要となる。これまでに、グルムゼルのLTDプロジェクトと関連付け、グリムゼ ル花崗閃緑岩のマトリクス部を対象とした室内試験による収着・拡散データを取得し、それらの データから原位置試験用のパラメータ・モデルを設定し、LTD原位置試験結果とモデル計算結果 の比較評価を実施してきた。具体的には、Kdについては、収着に影響する表面積を室内試験条件 と同様であると仮定し、室内拡散試験で得られた表層のBDZ領域と内部のマトリクス部のプロフ ァイルから得られた値を適用した。一方、Deは室内データをもとに室内と原位置の間隙率の相違 をArchie則を用いて補正することにより設定した。LTD原位置試験の注入孔のトレーサー減衰デ ータ及びモデルによるシミュレーション結果を比較すると、定量的には差異があるものの、収着・ 拡散特性が高いトレーサーほど減衰が大きくなる傾向(Cl < HTO < Na < Cs)が概ね再現された (図3.2-7a)。また、高収着性のCsの注入孔近傍のCs濃度プロファイルから、注入孔から1 mm距 離のBDZ領域とマトリクス領域から形成される濃度プロファイルについても再現された(図3.2-7b)。これらの結果から、室内試験データから室内と原位置条件の差異を補正して原位置での核 種移行パラメータの推定するスケーリング手法の妥当性を確認してきた。



図3.2-7 LTD原位置試験結果とスケーリング手法によるモデル計算結果の比。(a) 減衰曲線、(b) Cs濃度プロファイル(日本原子力研究開発機構, 2013)

上記したスケーリング手法はグリムゼルの花崗閃緑岩を対象とした場合にその有用性が確認されたが、様々な条件下での適用性を調査することが課題であり、ここでは、フィンランドのオンカロの片麻岩の原位置拡散試験を対象とし、スケーリング手法による核種移行モデルの適用性を検討した。オンカロの片麻岩は、グリムゼル花崗岩と比較し、黒雲母の含有率が高い(~30%)ため陽イオン加速・陰イオン排除効果の影響が顕著に見られること、また、Foliation構造に起因する黒雲母の層状の分布による拡散方向の異方性が観測されている。従って、本研究では、陽イ

オン加速・陰イオン排除効果及びこれらの異方性による影響に着目し、片麻岩を対象とした室内 試験を実施するとともに、オンカロの原位置トレーサー試験(Through-Diffusion Experiment: TDE)で得られたデータを活用することによって、上記のスケーリング手法の適用性評価を進め ることとした。室内試験では、Foliation構造に対して平行及び直交方向にトレーサーが拡散する ようなディスク状の片麻岩(直径2 cm、長さ1 cm)試料を用いた。これら平行及び直交方向の試 料を対象に、非放射性元素(Cs, Sr, I, Ni, Eu)をトレーサーとした循環型透過拡散試験を実施し た。結果の一例として、平行及び直交方向の試料のIの減衰・破過曲線を図に示す。図3.2-8の平行・ 直交方向試料の結果を比較すると、減衰曲線ではほとんど違いが観測されなかったが、破過曲線 では、平行方向試料のIの濃度が直交方向試料より高い値になった。この結果は、片麻岩中のIは直 交方向より平行方向に拡散し易いことを示し、Iの拡散に異方性があることが示唆される。一方で、 その他の陽イオントレーサーについては、異方性はほとんど観測されなかった。しかし、いずれ のトレーサーについても片麻岩中の拡散は非常に遅く、定量的に評価するためには試験日数が十 分とは言えず、また、プロットにバラつきがあることから、今後も引き続きデータを取得し、デ ータの精度を高めていく必要がある。



図3.2-8 オンカロ片麻岩中のIの減衰・破過曲線(a)平行方向試料(b) 直交方向試料

ー方、フィンランドのオンカロ地下調査施設におけるREPROサイトで実施されている原位置ト レーサー試験では、地下施設坑道にボーリング孔を掘削し、孔間の片麻岩マトリクス中のトレー サーの拡散挙動及び拡散の異方性の評価に着目した試験を実施している。原位置試験の孔位置の 概要図を図3.2-9(a)に示す。ボーリング孔PP321とPP322は水圧測定用の孔であり、PP326はトレ ーサー注入孔、PP324とPP327は観測孔である。注入孔には放射性元素(HTO, Cl-36, Na-22, Cs-134, Ba-133)を含むトレーサー溶液を循環し、片麻岩マトリクス中にトレーサーを拡散させてい る。トレーサー注入後、注入孔からFoliation構造に対して直交方向の観測孔(PP327)及び平行 方向に設置した観測孔(PP324)中の溶液のトレーサー濃度を測定することによって、トレーサ ー減衰・破過曲線を取得する。本試験は現在継続中のため結果は未公表であるが、ここでは、室 内試験データから原位置における拡散・収着パラメータを用いたスケーリング手法によって、原 位置試験結果の予測評価を実施した。シミュレーションでは、図3.2-9(b)に示すようなマトリクス 領域と注入孔・観測孔から1mm以内にBDZ領域が存在するモデル体系を構築し、GoldSimコード (ver. 10.1; GoldSim Technology Group, 2010)を用いた二次元核種移行解析を実施した。パラ メータ設定について、BDZでは、マトリクス領域より高い間隙率(~5%)とKa値を設定し、それ らの値は孔壁面を最大値としてマトリクス領域にかけて直線的に減少すると仮定した。一方、マ
トリクス領域では、その間隙率(0.98%)、D<sub>e</sub>及びK<sub>d</sub>は一定値とした。また、マトリクス領域及 びBDZの各トレーサーのDe及びKdは室内試験データをもとに原位置条件に適用するための補正 を行った。具体的には、Deについては、陰イオン排除及び陽イオン加速効果を室内試験データか ら算出した補正係数を用いてCl、Na、Ba、CsのDe値を設定し、さらに、Archie則によって室内 試験と原位置試験の間隙率の差を補正した。Kdについては、Kdは黒雲母の粒径に依存することが 分かっていたため、バッチ試験によってKaの粒径依存性を評価し、その関係からBDZ及びマトリ クスのKdをそれぞれ補正し、設定した。シミュレーションに使用したパラメータを表3.2-2にまと めて示す。以上のモデル及びパラメータ設定に基づいて、注入孔 (PP326) のトレーサー減衰曲 線、平行と直交の位置にある2つの観測孔(PP324とPP327)の破過曲線を10年間の試験期間を想 定してシミュレーションした。HTO及びClの破過曲線と減衰曲線のシミュレーション結果を図 3.2-10(a)に示す。HTO及びClの減衰曲線をPP324とPP327の両観測孔の結果で比較すると、 PP324から破過するHTOとClの量はPP327の場合より高い値になることが予測された。この結果 は、岩石のFoliation構造に対して直交方向に拡散するより、平行方向に拡散しやすいことを示す。 また、HTOの直交方向の破過した量の差よりも、Clの直交方向の破過した量の差の方がより大き い。すなわち、Cl拡散の異方性の影響はHTOよりも顕著に観測されることが予測され、その要因 として陰イオン排除効果は異方性に左右されることが示唆される。一方、同図(b)に示すように、 Naについても同様に平行と直交方向で異なる結果が得られた。しかし、Naの破過曲線の濃度は HTOやClと比較し、非常に低いことが予測された。同様の結果がCs及びBaについても得られてお り、陽イオントレーサーの場合、試験期間中にその破過を検出することは困難であることが示さ れた。今後、原位置試験結果との比較評価を行い、スケーリング手法による予測評価の妥当性を 確認していく予定である。



図3.2-9 オンカロ原位置試験及びそのモデルの概要図



図3.2-10 シミュレーションによるHTO及びCIの破過曲線(a), Naの破過曲線(b)

	10.2		ノコンにの	しいこれ又作主作多日」		
	Е	BDZ(最大值)			マトリクス	
	平行De (m²/s)	直交De (m²/s)	K <sub>d</sub> (m³/kg)	平行De (m²/s)	直交De (m²/s)	K <sub>d</sub> (m³/kg)
НТО	$5.2 \times 10^{-12}$	$2.5 \times 10^{-12}$	-	4.0×10 <sup>-13</sup>	$1.9 \times 10^{-13}$	-
Cl	$4.6 \times 10^{-12}$	$6.7 \times 10^{-14}$	-	$3.5 \times 10^{-13}$	$5.1 \times 10^{-15}$	-
Na	$8.2 \times 10^{-12}$	$3.8 \times 10^{-12}$	$1.2 \times 10^{-3}$	$6.2 \times 10^{-13}$	$2.9 \times 10^{-13}$	$1.0 \times 10^{-3}$
$\mathbf{Cs}$	$1.3 \times 10^{-11}$	$6.3 \times 10^{-12}$	$5.1 \times 10^{-2}$	$1.0 \times 10^{-12}$	4.8×10 <sup>-13</sup>	$2.8 \times 10^{-2}$
Ba	$5.2 \times 10^{-12}$	$2.5 \times 10^{-12}$	$3.9 \times 10^{-2}$	4.0×10 <sup>-13</sup>	$1.9 \times 10^{-13}$	$2.5 \times 10^{-2}$

表3.2-2 シミュレーションに用いた核種移行パラメータ

# (2) 結晶質岩割れ目中の核種移行モデルの開発

割れ目からマトリクスにかけての核種移行特性を理解するため、先行事業において、グリムゼル原位置試験場から採取した単一割れ目を含む花崗閃緑岩のコア試料を対象として、割れ目部とマトリクス部の鉱物・間隙分布の分析、割れ目を含むコア状の試料を用いた室内トレーサー試験及び拡散・収着試験を組合せた研究を、図3.2-11に示すようなアプローチでを実施してきた(日本原子力研究開発機構, 2018; Tachi et al., 2018)。



図3.2-11 割れ目を含むグリムゼル花崗閃緑岩を対象とした試験研究のアプローチ

拡散・収着特性の異なる多様なトレーサー(HDO:重水, Cs, Se, Ni, Eu)を用いた、割れ目中 トレーサー試験で得られた破過挙動からは、トレーサーによる遅延特性の差異(Eu > Ni > Cs > Se≈ HDO)が確認され、この傾向は透過拡散試験及びバッチ法収着試験によって得られた各元素 間の収着・拡散特性の関係と整合する結果であった。一方で、割れ目からマトリクスにかけての 鉱物や間隙のX線CT及びEPMA分析によって、割れ目近傍には黒雲母及び白雲母が濃集している 層が存在し、さらに割れ目表層には雲母の風化が進んだ高間隙率のバーミキュライト層が存在す ることが確認された。これらの分析情報をもとに、図3.2-12に示すように、割れ目近傍の不均質性 を忠実に再現した3層モデルを構築し、マトリクスのみを考慮した1層モデル、マトリクスと雲母 の濃集層を考慮した2層モデルにおける実測データとの不整合が改善され、多様な特性のトレーサ ーの破過曲線を良好に再現できることが確認された。



図3.2-12 グリムゼル花崗閃緑岩の割れ目中における室内トレーサー試験の解析のための3層モ デル概念とパラメータ設定(a)、及び解析結果(b)(日本原子力研究開発機構, 2018)

上記において比較的な単純な天然の割れ目を対象として、より現実的なモデルを構築すること ができたが、実際の割れ目はより複雑な形状を有することから、本事業では、より複雑な割れ目 を含むグリムゼル岩石試料を対象に、室内トレーサー試験を実施し、上記で開発してきたモデル 化手法の適用性の確認と改良の検討を行うこととした。今回試験に用いたコア試料は、図3.2-11 及び12に示した試験に用いた岩石コアを対象に、図3.2-13(a)に示すより複雑な割れ目特性を有す る部分から採取した。同図(b)に示すように、割れ目の両側を樹脂で固定した状態で、割れ目の幅 が約30 mm、長さが45 mmの形状に加工した。X線CTの分析結果からは、同図(b)に示すように、 図3.2-11に示した比較的単一割れ目に近い形状と比較し、より複雑な形状を有しており、割れ目 内に変質したガウジ層を挟みこんた形状となっていることが確認できる。この試料を、同図(c)に 示すような室内トレーサー試験のカラムに設置し、一定期間模擬地下水で飽和させたのち、5種類 のトレーサーを含む模擬地下水を一定流量(0.2 mL/min)で通液させて、破過データを取得した。

(a) 割れ目を含むグリムゼル花崗閃緑岩コア



図3.2-13 より複雑な割れ目を有するグリムゼル花崗閃緑岩コア試料(a,b)と 室内トレーサー試験カラム(c)

この室内トレーサー試験によって得られた破過データは、図3.2-12に示した試験結果と同様に、 I、Seについては数日のうちに破過し、その後Cs, Niと破過が認められ、Euは全く破過しない結果 が得られた。このトレーサー元素間の遅延の傾向(Eu > Ni > Cs > Se≈I)は、前回の試験と整合 するものであったが、収着性トレーサーではより遅延が大きな結果となった。上記の図3.2-12で 記載した通り、グリムゼルの花崗閃緑岩中の割れ目からマトリクスにかけて、バーミキュライト 層、雲母層、マトリクスからなる3層構造を有しており、それぞれの層の厚さや間隙率、収着・拡 散特性を室内試験・分析によって定量化し、それらを反映したモデルによって、多様なトレーサ ーの破過挙動を良好に再現することができた。まずは、この3層モデルを今回の割れ目の形状に対 して適用して解析を行った(図3.2-14(a)の左図)。解析は汎用的なシミュレーションソフトウェ アであるGoldSim(ver.10.1; GoldSim Technology Group, 2010)を用い、層の厚さや間隙率、 収着・拡散係数等のパラメータは、全て前回試験で導出した値(Tachi et al., 2018)をそのまま 適用した。このモデル解析結果のうち、非収着性のIと収着性のCsの結果を同図(b)に例示する。非 収着性のIの場合は再現できているが、収着性のCsの結果では、3層モデルを考慮しても、その遅 延特性が過小に評価されている。そこで、図3.2-13(b)に示した割れ目内に含まれるガウジ層を単 純な平行平板で表現し、この両面に同様の3層モデルを仮定したモデル(図3.2-14(a)の右図)によって解析を行った。図3.2-14(c)に示すように、ガウジ層を考慮することによって、Csのより遅延された破過データに近づく結果を得ることができた。しかしながら、解析結果と実測の破過データとの間には乖離があり、今後ガウジ層の形状や特性についてより現実的なパラメータを設定するための検討が必要である。



図3.2-14 より複雑な割れ目を有するグリムゼル花崗閃緑岩を対象とした解析モデル(a)と、ガウ ジ層を考慮しない場合(b)及び考慮した場合の解析結果(c)

上記で示したような割れ目中の核種移行モデルを、原位置条件の割れ目へ適用可能なモデルと していくうえで、天然の割れ目の不均質性をより現実的なスケールと実際の原位置の条件で明ら かにしていくことが重要となる。特に、結晶質岩においては割れ目内の開口部の連続性(チャン ネル構造)の把握とその核種移行への影響の評価が重要となるが、このようなチャンネル構造を 評価するうえで、より大きなスケールでの試験や原位置条件での試験が不可欠となる。ここでは、 別途実施される国際共同研究として計画されているグリムゼル原位置試験場での割れ目を対象と した原位置トレーサー試験(この原位置試験は本事業とは別の事業で実施されるものである)と の連携を念頭に、より複雑で大きなスケールの割れ目試料を対象として、図3.2-11に示した体系 的な室内試験アプローチを適用して、割れ目の特性評価、収着・拡散試験、トレーサー試験を実 施し、割れ目中の核種移行評価モデルの高度化を検討することとした。原位置試験の候補として 検討している、図3.2-15(a)に示すグリムゼル原位置試験場のGAMサイト(以前にガス移行試験が 実施されたサイト) (Marschall and Lunati, 2006)の割れ目帯の坑道壁面から、同図(b)に示す ように割れ目を中心付近に含むコア試料を採取した。



図3.2-15 グリムゼル原位置試験場のGAMサイトの割れ目帯とコア採取状況

採取された大型のコア試料を対象に、図3.2-11に示した体系的な分析試験アプローチを適用す るため、図3.2-16に示すような試料の加工と分析を行った。採取したコア試料は同図(a)に示すよ うな直径約20 cm、長さ約30 cmの形状である。このコアを同図(a)に示す赤線部分で3分割したう えで、奥側の試料を用いてX線CT分析を行った。その結果を同図(c)に示すが、コアの目視でも確 認された2つの連続した割れ目の存在に加え、上記の先行研究(図3.2-12参照)でも確認されてい る割れ目面近傍のマトリクス部に割れ目と平行な黒雲母鉱物の葉理構造が認められた。坑道側の 試料を用いて、同図(b)に示すように収着・拡散試験用の試料を、それぞれ割れ目面とマトリクス 部を対象に加工した。さらに、同図(d)に示すコア試料中央部分は、室内トレーサー試験用とした。 これらの試料を対象に、先行事業の試験(図3.2-12参照)と同様のトレーサー(HDO: 重水, Cs, Se, Ni, Eu)を用いて、バッチ収着試験、透過拡散試験及び割れ目中のトレーサー試験に着手し た。これらの試験結果をもとに、上記の先行研究で実施したような不均質な割れ目特性の理解と、 それを反映した核種移行モデルの構築を進めていく計画である。



図3.2-16 グリムゼル原位置試験場のGAMサイトから採取した割れ目試料(a)とその試料のX線 CT分析結果(b)、収着・拡散試験及びトレーサー試験試料の加工(c, d)

### (3) 核種移行モデルの性能評価解析への反映に関する検討

### 1) 結晶質岩の核種移行解析の高度化として考慮すべき視点と課題

ニアフィールド岩盤のうち、花崗岩等の結晶質岩中の核種移行評価においては、これまでの先 行事業において現象理解とそれを反映した現象解析モデルの開発に取り組んできた(日本原子力 研究開発機構,2018)。ここでは、結晶質岩中の核種移行に係る現象解析モデルにおいて考慮すべ き重要なプロセスと、その性能評価への反映に関するこれまでの取り組み状況と今後に向けた課 題を抽出した。

具体的には、結晶質岩中の核種移行評価においては、割れ目の開口や連続性、割れ目表面の充 填物や変質層、マトリクス部の鉱物分布などの不均質性を考慮することが、特に重要と考え、上 記(1)、(2)に示したような様々な現象理解とモデル開発を進めてきた。マトリクス部の不均質性や、 割れ目からマトリクスにかけての不均質性については、それぞれ試験や分析の結果をもとに開発 した現象解析モデルをもとに、割れ目の開口や連続性の不均質性が核種移行解析への影響 についてGoldSimコードを用いた解析を試み、それぞれの不均質性が核種移行への及ぼす影響を 把握した。また、実験室スケールの小規模試料の試験データに基づく現象解析モデルから、より 大きな空間スケールへ如何にアップスケーリングをしていくかが重要な課題であることを確認し た。このような割れ目の不均質の取り扱いに加え、核種移行研究の最新知見を踏まえれば、収着 現象における核種濃度依存性、反応速度や不可逆反応等のプロセスについて、核種移行解析モデ ルやパラメータ設定に適切に反映していくことが重要となる。さらに、本事業の主たる目的であ るニアフィールドの環境変遷を反映した核種移行解析に対して、これらの核種移行モデル開発の 成果を反映していくうえでは、環境条件の変遷(例えば、地下水の酸化還元条件や塩濃度条件等 の時間的・空間的変遷等)の核種移行への影響を取り扱う手法や、より空間的に大きなスケール に拡張していくためのアップスケーリングの手法についても検討していくことが必要である。

高度化の視点	考慮すべき主要なプロセス	これまでの取り組みと課題
割れ目の不均質性の影響	<ul> <li>マトリクス部の鉱物や間隙 分布の不均質性の影響</li> <li>割れ目からマトリクスにか けての変質層等の不均質性 の影響</li> <li>割れ目の開口状態やその連 続性についての不均質性の 影響</li> </ul>	<ul> <li>・グリムゼルの岩石マトリクスを対象にPARTRIDGEコードを用いた解析手法を構築し、その妥当性や不均質性の影響を評価してきた(上記(1)参照)。</li> <li>・割れ目表面の変質層の影響は、グリムゼルの割れ目試料を対象に層状の不均質構造を取り入れたモデルをGoldSimコードで構築し、その適用性を確認した(Tachi et al., 2018)。</li> <li>・割れ目の表面の不均質性と割れ目開口の連続性を考慮した解析をGoldSimコードで試行するとともに、アップスケーリングの手法を課題として抽出(日本原子力研究開発機構, 2018)。</li> </ul>
収着・拡散メカ ニズムの影響	<ul> <li>・収着の核種濃度依存性の影響(Freundlichモデル等)</li> <li>・収脱着の反応速度の影響</li> <li>・不可逆収着の影響</li> <li>・共沈や析出の影響</li> <li>・陽イオン加速や陰イオン排除の影響</li> </ul>	<ul> <li>・個別現象解析モデルについてはそれぞれ実験データに基づく適用性評価が進められている例があるが(例えば、Tachi et al., 2011; 2016)、これらのプロセスを核種移行解析に取り込んだ検討事例は少ない。</li> <li>・後述するCABALETコードでは、Freundlichモデルや不可逆収着などを考慮した評価が可能である。</li> </ul>
核種移行場の時 間的変遷の影響	<ul> <li>(隆起シナリオの場合)</li> <li>・pHや塩濃度などの地下水 化学条件の変遷影響</li> <li>・酸化還元条件の変遷影響</li> <li>・割れ目表面等での鉱物特性 の変遷影響</li> <li>・割れ目開口等による地下水</li> </ul>	<ul> <li>・隆起シナリオにおいて想定される地質環境条件の時空間 変遷と、その影響による核種移行パラメータの変化を考 慮した核種移行解析手法として、コンパートメントモデ ルに基づく核種移行解析コードAMBERを適用した評価 を試行してきた(日本原子力研究開発機構,2018)。</li> <li>・一方で、上記のような割れ目の不均質性や収着・拡散メカ ニズムの影響との組み合わせによる影響評価が重要な課</li> </ul>

# 表3.2-3 結晶質岩中の核種移行解析の高度化において考慮すべきプロセスと それらに関連した取り組みと課題

このような観点から、先行事業において、結晶質岩の割れ目の不均質性を考慮した核種移行モ デルのアップスケーリングに関する検討や、地質環境の長期変遷として隆起・侵食シナリオを事 例として、割れ目の不均質性や収着現象の精緻な取り扱い及び環境変遷の影響を考慮可能な核種 移行評価手法の開発を進めてきた(日本原子力研究開発機構, 2018)。隆起・侵食シナリオの解析 では、図3.2・17に示すように、わが国の結晶質岩の隆起・侵食に付随する地質環境変遷とその核種 移行への影響プロセスを整理したうえで(同図(a))、核種移行経路の地球化学環境及び核種移行 パラメータの時間的・空間的変遷を設定して(同図(b)及び(c))、核種移行解析を行う手法を構築 して隆起・侵食の核種移行への影響を評価した(同図(b))。ここで構築された評価手法は、AMBER コードを用いたコンパートメントモデルに基づく解析手法であり、割れ目の表層部分の変質領域 は考慮しているが、上記したような収着プロセスの考慮や、その地球化学環境の変遷の影響など の取り扱いについては検討できていない。本事業では、これらの先行事業のアプローチと成果を 踏襲しつつ、より現実的な核種移行現象の取り込みや環境変遷の影響の反映を実現するための核 種移行解析手法についての調査、解析手法の構築と試解析に取り組んだ。以上の検討結果を表3.2-3に整理して示す。

題である。

流動の変遷影響



図3.2-17 隆起・侵食シナリオの核種移行解析:(a)隆起・侵食シナリオと考慮すべきプロセス、 (b)深度による領域分け(紫色の矢印は処分場からの核種移行経路)と(c)各領域での核種移行特 性、(d)核種移行解析結果の例(日本原子力研究開発機構, 2018)

# 2) 核種移行プロセスと地質環境の長期変遷を考慮した核種移行解析手法の検討

ここでは、割れ目の不均質性や収着における核種濃度依存性や不可逆反応等のより精緻な核種 移行プロセスを考慮することに加え、環境条件の変遷等の影響を考慮することが可能な解析ツー ルの検討とそれを用いた試解析を行った。具体的には、有限体積法による物質移行シミュレーシ ョンが可能なQPACコード(Quintessa, 2013)を用いて、精緻な収着モデルと環境条件変遷とを 考慮可能なコードの改良を実施した。図3.2-18(a)に示すような割れ目中の核種移行モデル概念と 解析体系を対象に、割れ目中の地下水の流れと岩盤マトリクス側への拡散・収着を考慮した核種 移行解析を行った。ここでは、核種としてCsを対象に、収着現象における不可逆収着の考慮と、 環境条件変遷を想定した境界条件変化としてCsの濃度の経時変化を考慮した解析を行った。ここ で、Cs濃度の経時変化は、図3.2-18(b)に示すように、1000年間は一定濃度のCsの流入が生じたあ と、徐々にCs濃度が低下していく系を設定した。

この不可逆収着と境界条件(Cs濃度)の経時変化の影響を確認するために、可逆収着(Kdモデル)と不可逆収着の2つのモデルでの解析結果を図3.2-19に示した。同図(a)の可逆収着モデルと同図(b)の不可逆収着モデルの結果を比較すると、5000年後まではいずれも全く同じCs濃度分布を示すことが確認できる。一方で、1000年後から境界条件のCs濃度が徐々に変化することに伴い、5000年以降においてマトリクスの深い領域や割れ目側への拡散や固相からの脱離反応を伴いつつ、ゆるやかに液相及び固相内のCs濃度の低減が生じる。一方で、不可逆収着モデルの場合、固相のCs濃度が一定のままとなるものの、液相中のCs濃度は割れ目側への拡散によって急激に低下することとなる。今後、地下水の酸化還元条件や塩濃度条件などの時間・空間的な変動の取り扱いや、

より大きな空間スケールへの拡張について検討を進めていくこととする。



図3.2-18 精緻な収着モデルと環境条件変遷とを考慮した核種移行解析のモデル体系(a)と境界条 件変動として想定したCs濃度の経時変化(b)



図3.2-19 精緻な収着モデルと環境条件変遷とを考慮した核種移行解析結果の例:(a)可逆収着モ デル及び(b)不可逆収着モデル(上段はモデル体系中の液相中Cs濃度、中・下段は体系のピンク 色で示した領域の液相・固相中のCs濃度の経時変化)

# 3.2.3 堆積岩中の核種移行評価技術の開発

# (1) 堆積岩マトリクス中の核種移行モデルの開発

# 1) 幌延の泥岩マトリクス中の核種移行モデルの開発

これまでに先行事業(日本原子力研究開発機構, 2013; 2018)において、幌延深地層研究センタ ーの地下深部から採取した泥岩マトリクスを対象として、多様な核種の収着・拡散データを室内 試験により取得するとともに、粘土成分を主体としたモデル化手法を構築してきた(Tachi et al., 2011; 2016)。具体的には、幌延深地層研究センターのHDB-6孔の地下500mレベルから採取 した稚内層珪質泥岩を用いて、間隙水塩濃度を変化させた条件での透過拡散試験やバッチ収着 試験によって、Cs、Ni、Am、Se、I、HTO等の収着・拡散データを取得してきた。その結果 の例を図3.2·20に示す。同図(a)に示すように、実効拡散係数(De)については、陽イオンで あるCsはHTOのDeよりも高く、塩濃度とともに減少傾向を示し、一方で陰イオンのIではそ の逆の傾向を示した。このことは、これまでにベントナイト系で観測されている傾向と同じ であり、狭隘間隙中での固液界面の静電的相互作用を考慮する必要性、すなわち、幌延の泥 岩においても粘土成分がイオンの拡散挙動に支配的な寄与をしている可能性が確認された。 圧縮ベントナイトを対象に構築してきた統合収着・拡散モデルを、岩石の不均質な間隙分布 特性を踏まえて適用することによって得られた解析結果を同図(a)に示す。本モデルにより、 塩濃度に対する陽イオン・陰イオンの傾向性を定性的には説明可能であるものの、定量的な 面では差異が確認され、特に、低塩濃度におけるCsやIの結果には違いが認められる。この原 因の一つとして、この評価で用いた水銀圧入法による間隙径分布の測定では、粘土層間など のナノサイズ間隙に水銀は侵入できないこと、また、岩石の不均質な間隙構造の影響などが 考えられた。一方、同図(b)には、Csの収着データの間隙水塩濃度やCs濃度に対する依存性と そのモデル化結果を示す。泥岩に含まれる主要な粘土鉱物であるスメクタイトとイライトの イオン交換モデルの組合せによって、実測データを概ね再現できた。これらのモデルの妥当 性確認や更なる高度化を図っていくうえで、粘土層間のナノサイズ間隙を含めた間隙分布の 定量化とそれを反映した不均質性を考慮したモデルの開発、これら粘土鉱物に対するCs等核 種の収着メカニズムの解明が必要である。



図3.2-20 幌延の泥岩に対するCs, HTO, Iの実効拡散係数 (a)及びCsの収着分配係数(b) の実測データとモデル化結果の比較(日本原子力研究開発機構, 2013)

### 2) 幌延の泥岩中の間隙特性評価

上記1)で示した幌延の泥岩中の核種移行モデルの高度化を検討するうえで、不均質な間隙特性 やその核種移行挙動への影響を評価していく必要がある。ここでは、後述する原位置でのモデル の確証における課題も踏まえ、幌延の泥岩の層理面と関連付けた拡散特性の異方性のHTOの拡散 実験による把握と、核磁気共鳴法を適用した間隙構造の定量評価を検討した。

幌延の泥岩中の核種移行の異方性について評価するため、幌延URLの地下坑道から採取したコ アから層理面に対して直交・平行方向の拡散試験用の試料(直径:20mm,長さ:5mm)を作製 し、各試料に対してHTOをトレーサーとした透過拡散試験を実施した。高濃度側と低濃度側の HTO濃度の経時変化を図3.2-21に示す。28日までの試験データにより得られた実効拡散係数は、 平行試料で1.8×10<sup>-10</sup> m<sup>2</sup>/s、直交試料で1.6×10<sup>-10</sup> m<sup>2</sup>/sであった。層理面に対する試料の向きの違 いによるHTOの実効拡散係数の違いはわずかであり、その影響は顕著ではないことが確認された。



図3.2-21 幌延泥岩中のHTO拡散試験結果(直交試料; V1、平行試料; H1)

幌延の泥岩の間隙構造の不均質性を反映した核種移行モデルの改良を行うためには、層間を含 めた不均質な間隙分布の定量評価が必要である。一般的に、泥岩のような多孔質性岩石の間隙構 造評価は水銀圧入法やガス吸着法、電子顕微鏡による直接観察により細孔径分布を取得すること で行われる。水銀圧入法やガス吸着法による評価では、前処理として間隙を充填した水を脱水処 理等で取り除き水銀やガスを岩石中に導入することで行われる。一方で、核磁気共鳴(NMR)法 による間隙構造評価は、試料の間隙を充填した水そのものの信号を観察することから前処理の必 要がなく水が存在する間隙を選択的に評価することが可能であること、H2OとD2Oのように1H NMRに活性の液体から不活性な液体に交換することで、水の物質移動を直接観察することが可能 である点が優れている(例えば、Ohkubo et al, 2008; 2016)。このような観点から、幌延の泥岩 中の間隙構造評価を目的とし、NMRの分析試験を行った。具体的には、幌延深地層研究センター の地下350 mの研究坑道から採取された泥岩試料(直径:8 mm、長さ:29 mmの円筒形試料)を対 象として、Oxford社製Maran Ultra NMR(静磁場強度: 0.54 T)を用いて、湿度100%の飽和蒸気 圧下で試料の水の<sup>1</sup>H 緩和時間(T<sub>2</sub>)分布を測定した。T<sub>2</sub>測定は、Carr-Purcell-Meiboom-Gill シ ーケンス(CPMG法) (Meiboom et al., 1959) により行った。また、岩石中に存在する水は、緩 和時間の短く(~100 µs)狭い間隙に存在する水から、緩和時間の長い(~1 s)大きい間隙に存 在する水まで幅広い Teをもつため、100 μs のエコー時間 τ から多数のエコーを生成して少なくと も1s まで信号を観測する必要がある。そこで、図3.2-22に示すパルスシーケンスを作成し、τを 可変にすることで 111 回のパルス照射で 5.5 s までエコー信号をサンプリングすることで、再 現性のある 72分布を取得した。幌延泥岩試料の72分布を図3.2-23に示す。図3.2-23から、3.2 ms付 近にピークをもつ主ピークと、0.15 ms及び100 ms付近の二つの小さいピークが観測された。主 ピークは泥岩の間隙に存在する水に相当し、0.15 ms付近のピークは、泥岩に含まれる粘土鉱物の 層間等に吸着した水に相当すると考えられる。また、100 ms付近の長い T2のピークは、岩石の表 面に吸着している水と考えられる。図3.2-23の赤点線を閾値として各ピークのピーク強度の積算 を求め、三つのピーク強度を棒グラフで整理した結果を図3.2-23に示す。ピーク強度は任意単位 であるが、水の重量とピーク強度の関係をバルク水を使って求めており、ピーク強度は任意単位 であるが、水の重量とピーク強度の関係をバルク水を使って求めており、ピーク強度を水の重量 に換算できることから、全ピークの強度から求めた試料に含まれる水の重量及びサンプル体積で 水の重量を除することによって、間隙率(ф)を算出した。本研究で調整した条件(湿度100%で 飽和)で含まれる水の量から求めた間隙率はおよそ9.20%程度であり、幌延の泥岩試料で報告され ている40%程度の値と比較して小さい。この結果は、一部の間隙に水が充填していないためと考 えられ、飽和蒸気によって水が吸着した間隙のみを選択的に観測しているためと考えられる。今 後は、含水状態や溶液の塩濃度などを変化させた条件でのNMRデータの測定による間隙構造の評 価や、H2OとD2Oによる間隙水の飽和・交換挙動のNMR分析による水の交換挙動の評価などを検 討していく予定である。



図3.2-23 T<sub>2</sub>分布及びT<sub>2</sub>分布から求めた水の重量、間隙率及び水の分布

# 3) 粘土鉱物へのCs等核種の収着機構の評価

Cs収着挙動の評価では、粘土鉱物(スメクタイトやイライト)のイオン交換モデルによって解 釈できることを確認するとともに、スメクタイトへのCsの収着形態を核磁気共鳴分析法(NMR法) と第一原理計算によるスペクトル解析により同定する手法を開発してきた(Ohkubo et al., 2018)。 このような先端的な分析技術を適用して、核種移行現象に対する理解をさらに深め、その理解に 基づき核種移行モデルの妥当性の確認や高度化を図っていくことは今後の重要な課題である。特 に、岩石中の核種移行評価モデル高度化を行う上で、粘土鉱物や間隙分布の不均質性に加え、粘 土鉱物(イライトやスメクタイト等)に対する核種の収着形態の解明、が課題として挙げられる。 ここでは、岩石中に含まれる代表的な粘土鉱物であるバーミキュライトを対象に、NMRによるCs の吸着形態と吸着サイトの評価を試みた。乾燥させたCs吸着バーミキュライト試料を対象に、マ ジックアングルスピニング (MAS) による<sup>133</sup>Cs NMRスペクトル測定の結果を図3.2・24に示す。 <sup>133</sup>Cs MAS NMRスペクトルには、50 ppm、-24ppm、-113ppmにそれぞれピークが観測され た。ピークの帰属を行うため、バーミキュライトの原子モデルを構築し、第一原理計算に基づい た<sup>133</sup>Csケミカルシフトσ<sub>iso</sub>をGauge Including Projector Augmented Wave (GIPAW)法 (Pickard et al., 2001) によって評価した。第一原理計算による原子モデルの上下四面体層ラベル付けした Csのσ<sub>iso</sub>を図3.2・25示す。すべてのCsは四面体層のSi、Al及びOによって形成される六員環の中 央付近に吸着している。σ<sub>iso</sub>とNMRスペクトルを比較すると、実験的に観測された 50 ppmのピ ークは、吸着サイトの5Å以内に四面体層Alが4または5個存在するサイトと考えられる。一方、 NMRスペクトルに観測された-24 ppmと-113 ppmのピークは、今回の計算で再現できなかった ことから、層間外の吸着サイトに存在するCsに相当すると考えられる。今後は、層電荷の量や位 置の影響を系統的に理解するため、イライトの分析・解析を行い、スメクタイト、バーミキュラ イト、イライトへの吸着形態の比較評価を進める。





図3.2-25 計算した原子モデルの上下四面体層とCs位置の関係と<sup>133</sup>Cs ケミカルシフトと5Å以 内に存在する四面体層AIの個数(N)

### 4) 幌延の泥岩マトリクス中の核種移行モデルの原位置試験による確証

これまでの先行事業(日本原子力研究開発機構,2018)において、幌延深地層研究センターで実施中の原位置トレーサー試験と連携することによって、これまでに室内試験で構築してきたマトリクス部、割れ目部を対象とした核種移行モデルの実際の原位置条件への適用性を確認してきた。 具体的には、幌延深地層研究センターの地下350 m調査坑道において進められている、マトリクス部及び割れ目部を対象とした原位置トレーサー試験との連携により、原位置試験をサポートする室内データ(原位置トレーサー試験後の試料分析、コア試料を用いた室内試験)を取得しつつ、室内と原位置とのデータの整合性評価や、これまでに整備してきたモデルの適用性評価等を進めた。わが国においては、原位置試験において放射性トレーサーを利用できない状況も考慮して、原位置条件でいかに信頼性の高いデータを取得し、処分条件に適用可能な核種移行モデルとして確証していくかといった視点が重要な課題であり、これらの視点を重視して取り組みを進めてきた。

これまでにマトリクス部の原位置拡散試験として、幌延深地層研究センターの地下350 m調査 坑道に開削した試験孔D05孔(孔径 76mm)を対象に、オーバーコア試料中の内部プロファイル の取得、及び室内拡散試験を行い、原位置試験でのデータ取得・解析法の妥当性の確認や、原位 置と室内試験データの整合性等の評価を検討してきた(日本原子力研究開発機構,2018)。この試 験では、図3.2-26に示すような体系で、HDO(重水)、I、Mo、Cs、Sr、Co、Eu等の安定同位体 トレーサーを含む模擬地下水を循環させ、トレーサー濃度の減衰データを約11カ月間取得したう えで、オーバーコア岩石中のトレーサー分布を取得した(同図(b))。同図(c)にCsとSrの結果を例 示するように、各トレーサーの収着特性等に対応した良好な減衰データ及び濃度プロファイルが 得られ、一次元の境界条件が変動する体系での拡散方程式の厳密解を同時フィッティングするこ とによって、実効拡散係数(D<sub>e</sub>)及び収着分配係数(K<sub>d</sub>)を導出した。同様の一次元系及び実際 の原位置試験の円筒系でのGoldSimコード(ver. 10.1: GoldSim Technology Group, 2010)による 解析から一次元での解析解による評価の妥当性を確認した。また、安定同位体トレーサーを用い た条件でのデータ取得の有効性を確認するため、バックグラウンド(BG)濃度が初期に存在する 系での解析を行い、最もBG濃度の影響が大きいSrの場合でも、その影響はわずかであることを確 認した。さらに、原位置試験で取得された収着・拡散データを、同じ岩石を用いた室内試験デー タと比較することによって、原位置と室内試験での地下水のpH条件の差異に留意する必要がある ものの、拡散係数における陽イオン加速や陰イオン排除効果、分配係数の傾向性などについて、 両試験で傾向性は概ね整合することが確認された。



図3.2-26 健岩部D05孔の原位置トレーサー試験の試験体系(a)、オーバーコア試料の分析状況(b)及び1次元と円筒系での解析結果の比較(c)(日本原子力研究開発機構, 2018)

本事業では、試験孔D05孔で得られた成果を踏まえ、より多様な条件での原位置拡散試験手法 と拡散モデルの適用性を確認する観点から、地下水の塩濃度条件に着目して幌延の350m坑道で実施された原位置拡散試験を対象に、これまでと同様の試験後に採取されたオーバーコア試料の内 部プロファイルの取得、及び原位置試験の解析評価と、それらを塩濃度が幌延の泥岩中の拡散・ 収着挙動に及ぼす影響を評価した。ここでは、先行事業(日本原子力研究開発機構,2018)で実施 してきた模擬地下水(塩濃度0.23M)を用いたD05孔と全く同じ試験体系で行ったD09孔(4%海 水相当の塩濃度の模擬地下水)及びD06孔(10%海水相当の塩濃度)の結果を報告する。これらの 原位置拡散試験では、D05孔の試験に使用した模擬地下水に塩濃度のみを高い濃度に調整した溶 液を、試験孔周辺岩石中の間隙水に十分なじませた上で、Cs、Sr、I等のトレーサーを循環させる 手法で行った。最も信頼性の高いデータ取得が可能なCsを対象に、トレーサー減衰データ及び岩 石中の内部プロファイルを図3.2・27に示す。同図(a)に示すトレーサー減衰曲線は、塩濃度増加と ともに、濃度減衰が低下する傾向が、同図(b)に示す濃度プロファイルは地下水塩濃度の増加に伴 い、岩石中のCs濃度は低下し、より深くまで拡散する傾向が確認された。図3.2・27に示した解析 解のトレーサー減衰と濃度プロファイルへの同時フィッティングによって、それぞれの条件の実 測データを概ね再現する結果が得られた。



図3.2-27 幌延の泥岩マトリクスにおける地下水塩濃度を変化させた条件での原位置拡散試験の データと解析結果:(a)トレーサー循環孔のCs濃度減衰、(b)試験後の岩石中のCs濃度分布

# (2) 堆積岩割れ目中の核種移行モデルの開発

#### 1) 幌延の泥岩割れ目中の原位置トレーサー試験の概要

これまでの先行事業において、幌延深地層研究センターの350 m調査坑道において実施された 割れ目部を対象とした原位置トレーサー試験との連携により、原位置試験をサポートする室内デ ータ(原位置トレーサー試験後の岩石コア試料分析、コア試料を用いた室内試験等)を取得しつ つ、原位置試験結果の解釈に取り組んできた(日本原子力研究開発機構,2018)。本年度は、試験 終了後に採取された割れ目試料表面のトレーサー濃度の分析データを拡充し、その結果も活用し つつ、解析手法の改良と適用性の確認を進めた。

天然の割れ目を対象とした原位置トレーサー試験は、幌延深地層研究センターの深度350 mの 調査坑道において、図3.2・28に示すような複数の割れ目が存在する割れ目帯領域を対象に、2本の 試錐孔を利用した孔間方式で実施された(武田ほか,2017)。注水孔及び揚水孔は孔径約10 cm、 約1 mの離間距離であり、坑道壁面から約2~3 m付近にパッカーを設置して試験区間を形成し(試 験区間:注水孔 30 cm、揚水孔 60 cm)、注入孔(40 mL/min)から揚水孔に一定流量(30 mL/min) で多様なトレーサー(Cs, Co, Mo, I, 重水, ウラニン)を含んだ地下水が通液された。最初にトレ ーサー溶液を注水孔に10分間のみ投入し、割れ目及び岩盤中を移行して揚水孔に達したトレーサ ーの濃度変化を計測した(パルスソース試験)。次に、高収着性のトレーサーについて揚水孔で の破過データを取得するため、同様の試験体系において、注水孔のトレーサー濃度が常に一定の 条件でトレーサー溶液を投入し続けるトレーサー試験を実施した(コンスタントソース試験、ト レーサーとしてはMo, Cs, Co, Eu)。



図3.2-28 幌延泥岩の割れ目を対象とした原位置トレーサー試験装置の概略図

パルスソース試験及びコンスタントソース試験で得られた揚水孔中のトレーサー濃度の経時変 化を図3.2・29に示す(對馬ほか,2018)。パルスソース試験では、非一低収着性のウラニン、重水 (HDO)、Mo、Iは注水孔からのトレーサー投入に対応した濃度ピークが観測されたが、高収着 性のCs及びCoはほとんど観測されなかった。コンスタントソース試験では、非収着性のMoやウ ラニンに加え、Cs、Coのような高収着性のトレーサーについても濃度の増加が確認された。Moと ウラニンについては、濃度変化がほぼ一定になっており、完全に破過していることが推定される。 Csについては、徐々に濃度が上昇する傾向が確認され、岩石中に含まれるバックグラウンド濃度 も低いため、信頼性の高い破過データが得られたものと考えられる。ただし、Coについては徐々 に濃度が上昇しているが、Coが高い収着性を有することも踏まえ、この破過挙動を注意深く分析 する必要がある。なお、Euについて、その収着分配係数はCsと比較しても非常に高いため、コン スタントソースでも揚水孔で検出されなかったと考えられる。

試験終了後に、割れ目の分布状況の観察及び割れ目表面のトレーサー分布の測定を行い、トレ ーサーの移行経路を推定するため、注水孔側部周辺及び孔間からコア試料を採取した。本事業で は、採取されたコア試料中に含まれる割れ目表面のトレーサー元素の分布の測定及び一連の結果 を踏まえた解析を実施することとし、本年度は割れ目表面の分析データの拡充とそれを踏まえた 解析手法の改良に取り組んだ。



図3.2-29 割れ目中の原位置トレーサー試験で得られた揚水孔のトレーサー濃度変化:(a)パルス ソース試験、(b)コンスタントソース試験

### 2) 原位置トレーサー試験後の割れ目試料の分析と移行経路の推定

割れ目中のトレーサーの移行経路を把握するため、試験終了後に注水孔と揚水孔の周辺から採取した13孔のコア試料の約50箇所の割れ目を対象に、そこに含まれる割れ目面からの試料採取とトレーサー濃度分析を行った。試料の採取・分析方法は割れ目表面の表層1 cm四方を0.1 mm深さ程度削り出し、採取した粉末試料を1 M硝酸におよそ2週間浸漬した後、ICP-MSを用いて各試料片に含まれるトレーサー濃度を測定した。原位置トレーサー試験後のコア採取位置と最大検出濃度を図3.2-30に示す。SW-47孔では、Cs, Co濃度ともに注入孔と交わるSW46とほぼ同じ濃度を検出し、SW-42孔, SW-49孔及びSW-43孔でもSW-46孔と比べ1桁程度小さい値が検出された。



### 図3.2-30 原位置トレーサー試験後のコア採取位置と最大検出濃度(Cs,Co)

トレーサーが検出された注水孔付近(SW-47孔)と揚水孔付近(SW-33孔)の分析結果の詳細 を図3.2-31と図3.2-32に示す。SW-47孔のコア分析は坑道壁面から2.62~3.77m区間の6つの割れ 目を対象に約50箇所の表面分析を行った。5つの割れ目から有意な値を検出し、図上部に割れ目の 表面の削りだした位置に検出されたトレーサー濃度を赤色で濃淡をつけて示しているが、各割れ 目表面の比較的狭い領域においても濃度は一定ではなく、高い濃度領域から徐々に濃度が低下し ていく明瞭な濃度分布が観察された。



図3.2-31 注水孔近傍(SW-47孔)の割れ目表面のトレーサー濃度分析結果

一方で、揚水孔近傍のSW-33孔のコア分析は坑道壁面から2.76~4.07 m区間の5つの割れ目を 対象に約30箇所の表面分析が行われている(日本原子力研究開発機構, 2018)。そのうち3.24~ 3.48 m区間に位置する割れ目より有意な値を検出したため、その割れ目を対象に、14箇所(9-2-1 ~14)の追加分析を行った。そのうち5箇所(9-2-10~14)で有意なCs、Co濃度が確認された。 Cs濃度については、日本原子力研究開発機構(2018)で検出した削りだした表面(9-37,38)の周 りに同等の値を検出した。さらにSW-46孔及びSW-47孔で確認された濃度に対して1~2桁低い値 であり、図3.2-29(b)に示したコンスタントソースの破過曲線でCsの揚水側濃度が注水側濃度の5% 程度まで上昇していることと整合的である。SW-47孔の各割れ目において割れ目内での濃度の差 が確認されたことや、SW-33孔で一部の領域だけCs、Coが検出されたことは、割れ目全体を均質 にトレーサーが流れるのではなく、選択的な移行経路に沿ってトレーサーが流れたことが示唆さ れる。







# 3) 原位置トレーサー試験結果のモデル解析

孔間トレーサー試験は、複数の割れ目が存在する割れ目帯領域を対象に実施された試験である (日本原子力研究開発機構,2018)。注水孔側の割れ目の分布状況や開口幅、注水孔及び揚水孔近 傍の割れ目表面のトレーサー分布状況が確認されたものの、移行経路となる割れ目や連続性など のトレーサーの移行経路に関する情報は限られている。上記の2)に示した割れ目表面のトレーサ ーの分析結果からは、流れの不均質性(複数の割れ目と移行経路の存在、フロー領域とスタグナ ント領域の存在など)が示唆されたが、ここでは単純な平行平板モデルと均質な流れ場を仮定し たモデル解析を検討した。図3.2-33に示すモデル概念、支配方程式と初期・境界条件をもとに、 GoldSimコード(ver.10.1:GoldSim Technology Group,2010)のPipePathway及びCellpathway オブジェクトを用いた解析を行い、パルスソース及びコンスタントソースの実測の破過データ、 収着性トレーサーCsは表面濃度分析結果との比較を行った。

割れ目の流路長については、実際の注水区間及び揚水区間の距離は約1.3 mであるが、図3.2-30 に示す通り、注入孔及び揚水孔の直線上に存在するSW-34孔及びSW-35孔の割れ目表面において 収着性トレーサーが未検出であることから経路を迂回するものと仮定し流路長を2 mとした。ま た、割れ目幅及び開口幅をGoldsimの最適化機能を用いて、ウラニンのパルスソース及びコンス タントソースを対象に使用し、割れ目幅を1.5 m、開口幅を0.5 mmと設定を行った。流量は貯水 タンクから注入孔まで40 mL/minで注入しているが、割れ目中に注入される流量を30 mL/min、 残り10 mL/minは直接揚水孔へ寄与しない領域に流れることを仮定した。一方、マトリクス拡散 と収着に関するパラメータはこれまでに幌延のマトリクス岩を対象に取得された室内及び原位置 試験データをもとに設定を行った。



図3.2-33 割れ目中の核種移行評価の平行平板モデル概念図及び支配方程式

初期設定の流路条件(流路長:2m,流路幅:1.5m,開口幅:0.5mm)での解析結果を図3.2-34に示すが、ウラニンのパルスソースの試験結果に対してピーク時間は同程度になるものの、解 析結果は実測データと乖離している。しかし、コンスタントソースの試験結果に対して比較的近 い傾向を示した。一方で、Csのコンスタントソースについては実測データで認められるような立 ち上がりが確認できない。ここで、マトリクス拡散や収着分配係数は、これまでに幌延のマトリ クス岩に対する拡散・収着試験で取得されたデータをもとに設定したが、特に、Csの収着分配係 数についてはCs濃度依存性と今回高濃度条件を採用した点を考慮する必要がある(例えば、Tachi et al., 2011)。ここでは、Cs収着の濃度依存性を考慮して、収着分配係数を1/2及び1/10に設定し た解析及び実効拡散係数を3/4及び1/2に設定した解析を実施した。収着分配係数1/10と実効拡散 係数3/4の条件で実測データと同程度の破過が得られる結果となった(図3.2-35)。

さらに、Csの破過挙動に最も近い結果が得られたケースにおいて、上記2)で得られた割れ目表 面のトレーサー分析結果と解析結果との比較を行った。実測値は注入孔から対象とする割れ目ま での距離とその割れ目における最大濃度をプロットしている、最大濃度と比較しても解析結果の ほうが1桁程度高く、乖離がみられる。本解析においては、割れ目中を平行平板モデルと均質な流 れ場を仮定した解析を実施した。その結果、上記流路条件において、パルスソース及びコンスタ ントソース試験で得られたウラニン、Csの破過曲線の傾向性を概ね表現できる可能性を確認し た。しかし、割れ目表面の濃度プロファイルは乖離しており、今後、コア情報等に基づく割れ目 の空間分布、それらの連続性、流れの不均質性等を考慮した、より現実的な解析モデルについて 検討するとともに、上記の割れ目表面のトレーサー分析データ等をもとに、モデルの妥当性を確 認していく必要がある。







#### 4) 幌延のナチュラルトレーサー評価に関する検討

粘土質堆積岩は、透水性が極めて低い拡散バリアとしての性能が期待されており、諸外国でも これら岩石における長期にわたる拡散バリア性能の立証が中心的な課題となっている。これまで に、幌延の堆積岩を一例に、地下水(間隙水)中に含まれる非収着性(弱収着性)の元素濃度プロ ファイル(ナチュラルトレーサープロファイル;以下「NTプロファイル」と略す)を基に、NTプ ロファイルの形成過程の解釈を試み、主要な物質移行プロセスの検討を進めてきた(日本原子力 研究開発機構,2018)。検討にあたっては、幌延深地層研究計画における地上からの調査研究段階

(第1段階)で掘削されたボーリング孔(HDB-1孔~HDB-11孔)のうち、NTプロファイルが相 対的に明瞭であること、大曲断層や褶曲軸から比較的離れた場所に位置していること(水理地質 構造が相対的に単純と想定されること)、埋没・続成作用の過程におけるシリカ鉱物の相変化と 脱水により深部地下水のCl濃度の希釈が概ね解釈可能であること、NTプロファイルの形状が相互 に異なることを条件に対象とするボーリング孔(HDB-1孔及びHDB-3孔)を選定した(日本原子 力研究開発機構,2016)。検討の結果、両孔で認められるNTプロファイルは、移流・拡散を基本 とした物質移行プロセスでの解釈が適当であること、HDB-3孔はHDB-1孔に比べると移流の影響 は小さいこと等が示唆された(日本原子力研究開発機構, 2018)。なお、NTプロファイルの解釈 における不確実性の大きいパラメータとして、移流速度及び移流・拡散期間が抽出され、これら を主なパラメータとしたbounding analysis(保守的に境界条件を見積もった解析)では、実測さ れたNTプロファイルと比較的良い整合を示す解析結果が幾つかの条件設定の組み合わせで得ら れた(日本原子力研究開発機構,2018)。このことは、幌延の堆積岩を対象に移流・拡散を基本と した物質移行モデルにより最適な条件を導出するには、非収着性元素の濃度プロファイルの解釈 だけでは不十分であることを示唆する。このため、本検討では、非収着性元素の濃度プロファイ ルに加え、反応性元素の濃度プロファイルの解釈も併せて行うことで、条件の絞りこみに繋がる ような検討が可能かどうかを試行する。本年度は、反応性元素の濃度プロファイルの解釈を進め る上で必要な概念モデルを検討し、モデルで考慮すべき反応・プロセスの整理を行った。また、 解析対象とするHDB-1孔及びHDB-3孔における反応性元素(Na, K, Ca, Mg, SO4)の濃度プロフ ァイルに係るデータの整理も行った。以下に、本年度の成果をまとめる。

#### ① 概念モデルで考慮すべき反応・プロセスの整理

幌延の地下水の水質形成は、大局的に見た場合、浅層に分布する降水系地下水と深層に分布す る海水系地下水の混合により解釈される(例えば、Yamamoto et al., 2005)。地下水中の成分と しては、このような異なる地下水の混合で地下水中の濃度を概略評価できる元素(例えば、Cl) と単純に混合だけでは濃度評価が困難な元素(反応性元素)に分けられる。また、地下水のpHや 酸化還元電位(Eh)も鉱物-水反応により支配されると考えられ、異なる地下水の混合だけでは 評価が困難である。鉱物-水反応を基本とした幌延の地下水の水質形成に係わる検討については、 これまでに幾つかの報告例がある(Yamamoto et al., 2005; Hama et al., 2007; Sasamoto et al., 2007; Iwatsuki et al., 2009; Sasamoto et al., 2011)。これらの報告の中では、地下水中の反応性 元素の濃度支配に係わる反応・プロセスの検討が行われている。本検討では、これら既存の報告 例を基に、反応性元素の濃度プロファイルを解釈するための概念モデルで考慮すべき反応・プロ セスを整理した。

反応性元素のうち、Na、K、Ca及びMgについては、以下に示すようなイオン交換反応による 濃度支配が想定されている(Yamamoto et al., 2005)。

$Na^{+} + 0.5Ca^{-}X_{2} = 0.5Ca^{2+} + Na^{-}X$	K <sub>Na/Ca</sub>
$Na^{+} + 0.5Mg^{-}X_{2} = 0.5Mg^{2+} + Na^{-}X$	$K_{\rm Na/Mg}$
$Na^+ + K - X = K^+ + Na - X$	K <sub>Na/K</sub>
$Na^+ + H^-X = H^+ + Na^-X$	$\mathrm{K}_{\mathrm{Na/H}}$

上記の反応式において、Xはイオン交換サイト、K<sub>Na/Ca</sub>、 K<sub>Na/Mg</sub>、 K<sub>Na/K</sub>及びK<sub>Na/H</sub>は各反応式 におけるNaに対する選択係数を示す。幌延の堆積岩である声問層及び稚内層には、スメクタイト 等の粘土鉱物が含まれるため、これら粘土鉱物によるイオン交換反応が示唆されている。また、 Yamamoto et al. (2005) は、H+とNa+のイオン交換反応による地下水のpH支配の可能性についても触れている。一方、地下水のpH支配に係る代替案として、地下水と方解石の溶解平衡反応も示唆されている(Hama et al., 2007; Sasamoto et al., 2011)。後者の代替案では、地下水に溶存するCO<sub>2</sub>(g)の脱ガスがpHに与える影響も考慮している。概念モデルにおける地下水のpH支配に関しては、これら2つの反応・プロセスを候補として考慮する。

反応性元素であるSO4及び地下水のEhに関しては、黄鉄鉱・菱鉄鉱・針鉄鉱等の鉱物と地下水 との反応による濃度や値の支配の可能性が示唆されている(Yamamoto et al., 2005; Sasamoto et al., 2011; Hokari et al., 2014)。概念モデルの中では、初生鉱物である黄鉄鉱の酸化反応の速度 論と二次鉱物との平衡に係わる反応・プロセスを候補として考慮する必要がある。

### ② 反応性元素の濃度プロファイルに係るデータの整理

解析対象とするHDB-1孔及びHDB-3孔における反応性元素(Na, K, Ca, Mg, SO4)の濃度プロ ファイルに係るデータの整理を行った。参照したデータは、國丸ほか(2007)で報告された揚水 による地下水 (pumped water) と岩石コアからの間隙水 (pore water) である。基本的に揚水に よる地下水のデータ数は少なく、多くは岩石コアからの間隙水の値である。岩石コアから圧縮抽 出された水は、抽出過程での雰囲気(大気、不活性雰囲気)の影響やそれに付随する化学反応(黄 鉄鉱等の還元性鉱物の酸化溶解、方解石等の炭酸塩鉱物の溶解)の影響が想定されるため、報告 値の信頼性については別途詳細に検討する必要があるものの(Sasamoto et al., 2011)、まずは 実測値を基に各ボーリング孔における深度方向での濃度プロファイルを整理した(図3.2-36及び 図3.2-37)。なお、これらの図では、反応性元素に加え、非収着性(弱収着性)であるCl及び安定 同位体比の値も併せて示した。両孔の濃度プロファイルにおいて、反応性元素のうち、Naについ ては、Clと同様に深度との相関を示唆するプロファイルの形状を示すものの、その他の元素は明 瞭な相関は認められず、データのバラツキが大きい。SO4については、還元性地下水のため、 pumped waterではほとんど検出されない濃度であるのに対し、pore waterでは数千ppmを超え る高濃度の値を示すデータもあり、抽出過程での黄鉄鉱の酸化溶解の影響が示唆される。また、 K, Ca及びMgについては、黄鉄鉱の酸化によるpH低下を緩衝する反応として方解石等の炭酸塩鉱 物の溶解が想定され、これらの反応により実際のpore water中の濃度とは異なる可能性がある。

本年度の検討を踏まえ、今後は、反応性元素の濃度プロファイルの解釈を進めるため、概念モ デルで考慮する反応・プロセスを取り込んだ解析モデルを構築し、Geochemist's Workbench (Bethke, 2008)を用いて、移流・拡散に化学反応を加えた解析を行う予定である。また、反応 性元素の濃度プロファイルについては、コアからの間隙水の抽出過程における人為的影響に伴う 元素濃度への影響を補正するための手法についても検討を進める計画である。







図3.2-37 反応性元素及びCI・安定同位体比の深度方向での濃度プロファイル(HDB-3孔)

#### 3.2.4 成果と今後の課題

本タスクでは、結晶質岩及び堆積岩を対象に、割れ目やマトリクス部の不均質性や地質環境特 性の長期変遷等を考慮した核種移行評価技術について、室内試験、原位置試験及び天然事例評価 等を通じた高度化と適用性評価を進めた。

結晶質岩については、グリムゼルの花崗閃緑岩のマトリクス部を対象に、鉱物や間隙の不均質 性を反映したモデルの改良を行い、その実測データへの適用性を確認した。今後は、この手法を エスポやオンカロの岩石マトリクスの室内及び原位置試験データへ適用し、その妥当性を確認し ていく。一方、グリムゼルの岩石のより複雑な割れ目を対象として、数emスケールの割れ目試料 を用いて室内トレーサー試験を実施するとともに、その結果へのモデルの適用性評価の結果から、 割れ目内のガウジ層の収着・拡散への寄与等のより複雑な割れ目の特徴が割れ目内の核種移行に 影響を与えることを示した。また、実際の原位置環境でより大きなスケールの割れ目を対象とし た原位置試験によるモデルの高度化に向けて、グリムゼルの原位置試験対象割れ目から採取され た大型の岩石コア試料を用いて、割れ目性状分析や室内核種移行試験を実施した。今後は、より 複雑な割れ目性状の分析と、それらの収着・拡散特性の把握を進め、核種移行モデルの改良と室 内トレーサー試験結果に基づく適用性を確認する。さらに、これらの高度化された核種移行モデ ルを環境条件の変遷を考慮した核種移行解析へ反映していく観点から、より現実的な核種移行現 象や環境変遷の影響を反映するための核種移行解析手法の構築と試解析を実施した。今後、地下 水の酸化還元条件や塩濃度条件などの時間・空間的な変動の取り扱いや、より大きな空間スケー ルへの拡張について検討を進める。

堆積岩については、幌延URLの稚内層の泥岩マトリクス部のNMR等による鉱物・間隙分析と核 種拡散データの取得を進めた。また、幌延URLの350 m坑道の稚内層の泥岩マトリクス部におい て地下水塩濃度の異なる条件で実施された原位置拡散試験後の岩石試料のトレーサー濃度分析と モデル解析を行い、Csの実効拡散係数と収着分配係数の間隙水塩濃度との明瞭な相関を原位置で 確認した。今後は、幌延の泥岩マトリクス中の鉱物・間隙特性を反映した核種移行モデルの改良 と、異方性や塩濃度影響を含む原位置試験データの拡充とそれらへの適用を通じたモデルの改当 性確認を進める。さらに、堆積岩の割れ目中の核種移行挙動評価については、幌延URLの割れ目 を対象としたトレーサー試験後に、周辺部から採取した割れ目表面のCs等のトレーサー分布を分 析した結果、割れ目に沿ったトレーサーの不均質な移行経路を示唆する情報を得ることができた。 今後は、複数の移行経路や不均質な流れ場等を考慮した核種移行モデルの改良とその適用性につ いて検討する。また、幌延URLの既存データを活用した地質環境の長期変遷等を考慮したナチュ ラルトレーサーの評価手法について、反応性トレーサーの事例として利用可能なNa等の反応性ト レーサーのデータセット、鉱物イオン交換反応や黄鉄鉱の酸化反応など着目すべき反応を抽出し た。今後は、地質環境の長期環境変遷を考慮可能な核種移行解析手法を構築し、ナチュラルトレ ーサー等の情報を活用した核種移行解析手法の妥当性の確認を進める。

### 3.3 システム変遷等を考慮した核種移行解析モデル/データベースの開発

# 3.3.1 背景と目的及び研究アプローチ

#### (1) 研究の背景と目的

ニアフィールドシステムの長期的な環境変遷と核種移行を評価するうえでは、図3.1-1に示した ように、ガラス固化体、オーバーパック、ベントナイト緩衝材、セメント系材料、岩盤の複数の バリア材や処分施設構成材の相互作用を含むニアフィールドシステムの状態の変遷を把握した上 で、それらの変遷が核種移行に及ぼす影響を理解し、その影響を評価する手法を整備する必要が ある。従来の性能評価においては、このような人工バリア環境の長期的な変遷や、長期的な変遷 が核種移行に及ぼす影響に対して、そのメカニズムを理解し影響を定性的に評価した上で、これ らの影響を考慮しつつ簡略的かつ保守的に評価することを重視した性能評価モデルとモデルへ導 入するパラメータ値が採用されてきた。地層処分の安全評価が信頼に足るものとして社会に受け 入れられるためには、最新の科学技術を活用して得られた成果に基づいてニアフィールドシステ ムの長期変遷を把握したうえで、その変遷を適切に考慮した核種移行評価技術を構築し、それら を基盤技術として組み込んだ地層処分の長期安全評価技術の妥当性を確認していくことが重要で ある。

このような背景をもとに、本タスクでは、先行事業として実施してきた「処分システム評価確 証技術開発」(日本原子力研究開発機構,2018)や2章に示したニアフィールドシステム長期変遷 評価に関する成果を活用しつつ、複数のバリア材の間で生じる相互作用によるニアフィールド環 境の変遷や地下水条件等の地質環境の長期変遷等を考慮した核種移行評価を可能とするため、こ れら環境変遷が核種移行へ影響を及ぼすプロセスに係る現象理解を進め、それらを反映した核種 移行評価技術を開発することを目的とする。

### (2) 課題と研究アプローチの設定

本タスクでは、ニアフィールド環境の変遷や地下水条件等の地質環境の長期変遷等のうち、1) オーバーパックからの鉄が緩衝材中の核種移行へ及ぼす影響、2)セメント系材料の共存が緩衝材 や岩石中の核種移行に及ぼす影響、3)高炭酸濃度の地下水が岩石中の核種移行に及ぼす影響に着 目して、それぞれ以下のようなアプローチで研究を進める。

#### 1) オーバーパックからの鉄が緩衝材中の核種移行へ及ぼす影響の評価

オーバーパックの共存が核種移行へ及ぼす影響については、先行事業「処分システム評価確証 技術開発」(日本原子力研究開発機構,2018)でも取り組んできた課題であり、その成果や2章で の成果を活用し、鉄と緩衝材との相互作用によって生じる緩衝材領域における環境変遷を評価し つつ、その環境において発生する核種移行へ影響を及ぼす因子を抽出し、その影響の評価に向け た研究のアプローチを設定する。具体的な課題としては、先行研究でも課題として取り組んでき た、緩衝材への核種の収着が溶存する鉄イオンとの競合によって低減する収着競合に関する検討 に加え、鉄と緩衝材の境界領域での鉄鉱物の沈殿反応に核種が取り込まれる共沈現象等に着目し た調査やデータ取得を行う。得られたデータ等をもとに、それらが核種移行に及ぼす影響を評価 するモデルを構築するとともに、既存データ等を活用したモデルの適用可能性評価を通じて、評 価モデルの有効性を確認する。

### 2) セメント系材料の共存が緩衝材や岩石中の核種移行に及ぼす影響の評価

セメント系材料が緩衝材や岩石へ及ぼす影響については、先行事業「処分システム評価確証技 術開発」(日本原子力研究開発機構,2018)で取り組んできた。その成果に加えて、2章での成果 や関連事業の「TRU廃棄物処理・処分に関する技術開発」の成果等を活用して、セメント系材料 共存系での緩衝材や岩石の間隙水組成や鉱物組成の変遷を評価しつつ、その環境において発生す る核種移行へ影響を抽出し、その影響の評価に向けた研究のアプローチを設定する。具体的な課 題として、緩衝材については、先行研究でも課題として取り組んできた緩衝材のCa型化に伴うコ ロイド移行挙動の変化に着目するとともに、セメントが岩石に及ぼす影響については、間隙水組 成の変化や鉱物の変質等が核種の収着に及ぼす影響に着目する。得られたデータ等をもとに、そ れらが核種移行に及ぼす影響を評価するモデルを構築するとともに、既存データ等を活用したモ デルの適用性評価を通じて、評価モデルの有効性を確認する。

#### 3) 高炭酸濃度の地下水が岩石中の核種移行に及ぼす影響の評価

これまでも多様な地質・地下水条件に対応していくため、様々な岩種や地下水条件において地 層処分評価対象核種の核種移行データを取得、あるいは、文献情報を調査し、核種移行データベ ースとして整備してきた。ここでは、比較的炭酸濃度が高い地下水条件における核種の収着、拡 散挙動の評価に着目し、実際の深部環境で考慮すべき炭酸濃度等の地下水条件の範囲、及びその 範囲において炭酸錯体等の生成により収着、拡散挙動への影響が顕在化する核種を検討し、重要 な地下水条件と核種との組合せを抽出する。そのうえで、炭酸濃度条件等を制御した岩石中の核 種移行データの取得手法を構築し、核種の収着・拡散データを取得する。また、先端的な分析技 術を適用し、炭酸共存下での核種の収着・拡散メカニズムの解明に取り組む。さらに、そのデー タの信頼性確認と多様な条件下での核種移行パラメータ設定に適用するため、分子動力学計算等 の計算科学技術を適用して炭酸共存下における核種の収着・拡散等のメカニズムを評価し、それ らの知見をもとに核種移行モデルの構築を行う。

# 3.3.2 オーバーパックからの鉄が緩衝材の核種移行へ及ぼす影響評価技術の開発

#### (1) 鉄共存下での核種移行研究の現状・課題とアプローチ

わが国の高レベル放射性廃棄物の地層処分概念においては、ガラス固化体は炭素鋼製オーバー パックに封入され、オーバーパックの周囲には緩衝材として圧縮ベントナイトが配置される。定 置後、オーバーパックは処分場内に浸入した地下水との接触により腐食し、圧縮ベントナイト中 に鉄腐食生成物が移行する。オーバーパックは腐食によって機械的強度を失って破損し、ガラス 固化体が地下水と直接接触することによりガラス固化体に含有されている放射性核種が溶出して、 圧縮ベントナイト中を移行することが想定されているが、その際、圧縮ベントナイト中に存在す る鉄腐食生成物が放射性核種の移行に影響を及ぼすことが考えられる。オーバーパックは、周囲 からの圧力に対する耐圧や放射線の遮蔽を考慮した厚さで設計されているため、破損後もオーバ ーパックが残存して腐食が継続する。そのため、鉄腐食生成物が長期にわたって圧縮ベントナイ

炭素鋼製オーバーパックの腐食や鉄腐食生成物の溶解に伴って、圧縮ベントナイト間隙水中に 鉄イオンや電気的に中性の鉄溶存化学種(以下、鉄イオン等)が放出される。鉄イオン等は、ベ ントナイトの主要構成鉱物であるモンモリロナイトに収着することから、放射性核種と収着が競 合することにより、放射性核種のモンモリロナイトへの分配係数が低下する可能性がある。一方 で、鉄腐食生成物固相には、放射性核種の収着や放射性核種との共沈等(以下、収着挙動等)、放 射性核種との相互作用による移行遅延効果が期待され、性能評価上考慮することができる可能性 がある。このような影響を評価するためには、間隙水中の鉄イオン濃度の算出や核種の収着挙動 等に直接影響する鉄腐食生成物の存在形態を考慮して評価を進める必要があるとともに、鉄腐食 生成物の存在形態の時間的変遷についても考慮する必要がある。 圧縮ベントナイト中において、オーバーパックの候補材料である炭素鋼の腐食に伴い生成する 鉄腐食生成物は、降水系地下水においてはマグネタイトが、炭酸濃度が高い地下水中ではシデラ イトが熱力学的に安定な鉱物となる(核燃料サイクル開発機構,1999)。しかしながら、熱力学的 に安定な状態への変遷が長期にわたる場合には、準安定な鉱物が長期間共存する可能性があり、 圧縮ベントナイト中に移行した鉄腐食生成物が、一定の期間水酸化物の形態で存在するという報 告もある(Ishidera et al., 2008)。このような準安定な鉱物が長期間存在する場合、間隙水中の 鉄イオン等の濃度が水酸化鉄(II)の溶解度により支配され、その濃度が大きく上昇する可能性があ る(核燃料サイクル開発機構,1999)。また、放射性核種の鉄腐食生成物への収着挙動等を評価す る上では、鉄腐食生成物として存在する各鉱物に対する収着挙動等を評価する必要があるととも に、各鉱物の時間的変遷に伴う収着挙動等の変化についても考慮に入れる必要がある。

このような背景より、本調査においては、鉄腐食生成物が放射性核種の移行挙動に及ぼす影響 を評価するため、圧縮ベントナイト間隙水中に溶存する鉄イオン等がモンモリロナイトに収着し、 放射性核種と収着が競合することにより起こる可能性のある放射性核種の分配係数低下に関する 評価と、放射性核種の鉄腐食生成物への収着挙動等の相互作用に関する評価を実施する。評価に おいては、2章において実施する炭素鋼-緩衝材境界領域における緩衝材の変質挙動の評価により 得られる知見についても適宜考慮に入れながら進める。

本年度の調査においては、これまでに得られている炭素鋼と圧縮ベントナイトの相互作用に関 する知見と、平成29年度まで実施した先行事業において取得した鉄イオン等のモンモリロナイト への収着挙動に関する知見を活用し(日本原子力研究開発機構,2018)、鉄イオン等と放射性核種 の収着競合が顕著となる可能性のある条件として、モンモリロナイトの表面錯体サイトが鉄イオ ンにより飽和する条件について検討を行った。また、鉄腐食生成物への放射性核種の収着挙動等 に関する評価として、水酸化鉄(II)へのSe(-II)の収着挙動等について検討を行った。

#### (2) 鉄腐食生成物と放射性核種の競合収着に関する検討

#### 1) 背景と目的

平成29年度まで実施した先行事業においては、鉄イオン等のモンモリロナイトへの収着と、鉄 イオン等が共存する条件におけるCs、Ni、Euの分配係数を取得し、鉄イオン等と放射性核種の収 着競合現象について評価を行ってきた(日本原子力研究開発機構,2018)。先行事業により、鉄イ オン等のモンモリロナイトへの収着挙動について定量的に評価するため、モンモリロナイトのイ オン交換サイト及び表面収着サイトに対する鉄イオン等の選択定数の整備を行った。しかしなが ら、鉄イオン等の収着挙動については、pH6付近とpH8付近の2つの条件で評価したのみであり、 pH条件に関して詳細な評価を実施していない。一方で、2.3.1項で実施している炭素鋼-緩衝材境 界領域における緩衝材の変質挙動の評価では、炭素鋼の腐食反応に伴う圧縮ベントナイト間隙水 のpH上昇が変質プロセスの一つとして考えられている。鉄イオン等のモンモリロナイトへの収着 挙動はpHに依存することから、より高いpH領域における鉄イオン等の収着挙動を定量的に評価 し、鉄イオン等と放射性核種の収着競合が顕著となるモンモリロナイトの表面錯体サイトが鉄イ オン等により飽和するpH領域を明確にすることが必要である。

鉄イオン等による表面錯体サイトの飽和挙動について影響を及ぼす要因として、表面錯体サイトへの選択定数に加えて、溶存する鉄イオン等の濃度が重要なパラメータとなる。鉄イオン等の溶存濃度は、鉄腐食生成物固相の溶解度により制御されると考えられる。処分場環境においては、 鉄腐食生成物固相として、マグネタイト、シデライト、あるいは水酸化鉄(II)が考えられるが、これらの鉱物の溶解度は、pHや炭酸濃度の影響を受けて変化する。そのため、鉄イオン等による表面錯体サイトの飽和可能性について検討する上では、これらの鉱物の溶解度の変化を考慮した評 価を行うことが必要である。

このような知見を踏まえ、本年度の評価においては、鉄イオン等によるモンモリロナイト中の 表面錯体サイトの飽和の可能性について、鉄腐食生成物固相の溶解度を考慮した検討を行った。

#### 2) 鉄腐食生成物の溶解度の評価

(1)で述べたように、鉄腐食生成物として熱力学的に安定と予測される鉱物としてマグネタイト、 準安定な鉱物として水酸化鉄(II)、炭酸濃度の高い地下水条件の場合にはシデライトが鉄腐食生成 物として存在すると考えられる。これらの鉱物のうち、マグネタイトと水酸化鉄(II)については溶 解度がpHに依存し、シデライトについては溶解度が溶液中の炭酸濃度に依存する。そのため、こ れらの鉱物の溶解度を評価する上では、pHと炭酸濃度の両方をパラメータとする必要があるが、 我が国の地層処分において使用が想定されているベントナイトであるクニゲルV1にはカルサイ トが含まれており、圧縮ベントナイト間隙水中でカルサイトの溶解平衡が成り立っていると考え られる(核燃料サイクル開発機構,1999)。そのため、溶解度の評価においてはpHのみをパラメ ータとし、鉄腐食生成物固相としてシデライトを想定した場合には、間隙水中の炭酸濃度がカル サイトとの溶解平衡により制御されていることを仮定した。

図3.3-1に、マグネタイト、水酸化鉄(II)、シデライトを鉄腐食生成物固相として仮定した場合の、 pHの変化に伴う鉄イオン等の溶存濃度の変化を示す。溶解度計算には、Geochemist's Workbench<sup>®</sup>: GWB (Bethke, 2008) を使用し、図3.3-1 (a)に示すマグネタイトの溶解度計算に は、熱力学データベースとしてJAEA TDB(Kitamura et al., 2014)を使用した。図3.3-1 (b)及 び(c)の計算には、JAEA\_TDBに水酸化鉄(II)の熱力学データが含まれていないため、Geochemist's Workbenchに搭載されているLLNL(Lawrence Livermore National Laboratory) により作成さ れた熱力学データベースであるthermo.com.V8.R6+を使用した(Bethke, 2008)。また、マグネ タイト及び水酸化鉄(II)の計算においては、その他の鉄鉱物の沈殿は無視し、シデライトの溶解度 計算においては、シデライトのほかに水酸化鉄(II)の沈殿を考慮した。また、便宜上、各計算にお いては1×10<sup>-3</sup> mol/l を溶存Fe濃度の上限とした。図3.3-1 (a)に示すように、固相としてマグネタ イトを仮定した場合には、pH8程度で溶存鉄イオン濃度は1×10<sup>-6</sup> mol/I以下となるのに対し、固相 として水酸化鉄(II)を仮定した図3.3-1 (b)の場合には、pH9程度でも1×10-3 mol/1程度溶存が可能 であり、溶解度が最も低下するpH11程度でも1×10<sup>-6</sup> mol/l程度溶存可能であることがわかった。 図3.3-1 (c)に示す固相としてシデライトを仮定した場合については、pH6からpH9程度では、シデ ライトにより溶解度が制御されるため、固相として水酸化鉄(II)を仮定した場合と比べて溶存鉄イ オン濃度が低下するが、それ以上のpHにおいては、溶解度制限固相として水酸化鉄(II)が支配的 となるため、図3.3-1 (b)と同様の結果となった。



(a)固相としてマグネタイトを仮定

(b)固相として水酸化鉄(II)(Fe(OH)<sub>2</sub>)を仮定



(c) 固相としてシデライトを仮定 図3.3-1 鉄腐食生成物固相を変化させた場合の溶存鉄濃度のpH依存性

# 3) 鉄イオン等によるモンモリロナイト中の表面錯体サイト飽和度の検討

図3.3・1に示す各鉱物の溶解度より各pHでの溶存鉄イオン濃度を算出し、算出された溶存鉄イ オン濃度におけるモンモリロナイトの表面錯体サイトの鉄イオンによる飽和度を計算した。その 結果を図3.3・2に示す。計算においては、表面錯体サイトに対するFe<sup>2+</sup>とH+の選択定数について、 先行事業により取得した選択定数及び文献値を元に、表3.3・1に示す値を用いた(日本原子力研究 開発機構,2016; Bradbury and Baeyens, 2005a)。図3.3・2に示すように、マグネタイトを固相と して仮定した場合においては、pH8付近で表面錯体サイトの飽和度が低下し始めるのに対し、水 酸化鉄(II)を固相として想定した場合においては、pH12においても鉄イオンにより表面錯体サイ トが飽和するという結果が得られた。シデライトについても、シデライト以外の鉄腐食生成物固 相として想定した水酸化鉄(II)と同様の結果が得られている。これらの結果より、マグネタイトの 溶解度により圧縮ベントナイト間隙水中の鉄イオン濃度が制御されている場合、炭素鋼の腐食に 伴って間隙水中のpHが上昇すると鉄腐食生成物固相の溶解度が大きく低下することから、鉄イオ ンと放射性核種の収着競合による分配係数の低下は無視できることが確認された。一方で、圧縮 ベントナイト間隙水中の鉄イオン濃度が水酸化鉄(II)の溶解度により制御される場合、pHが上昇 してもサイト飽和度は低下せず、鉄イオンと放射性核種の収着競合を高いpH領域まで考慮する必



図3.3-2 マグネタイト、水酸化鉄(II)、シデライトを溶解度制限固相として仮定した場合のモン モリロナイト中の表面錯体サイトの飽和度のpH依存性

選択定数	表面錯体反応式	参考文献		
$\log K_0 = -0.94$	$SOH + Fe^{2+} = SOFe^+ + H^+$	日本原子力研究開発機構, 2016		
$\log K_{1} = -10.4$	$SOH + Fe^{2+} + H_2O = SOFe(OH) + 2H^+$	Bradbury and Baeyens, 2005a		
$\log K_2 = -19.8$	$SOH + Fe^{2+} + 2H_2O = SOFe(OH)_2 + 3H^+$	Bradbury and Baeyens, 2005a		

表3.3-1 表面錯体サイトに対する選択定数

#### (3) 水酸化鉄(II)とSe(-II)の相互作用挙動の評価

#### 1) 背景と目的

高レベル放射性廃棄物に含まれる<sup>79</sup>Seは半減期が長いことから、地層処分の安全評価において 重要な核種の一つである。Seは酸化還元条件の変化に伴って価数が変化し、地下深部の還元環境 では-II価(Se<sup>2-</sup>)、酸化性環境ではIV価(SeO<sub>3</sub><sup>2-</sup>)またはVI価(SeO<sub>4</sub><sup>2-</sup>)で溶存するものの、いずれも陰 イオンの形態をとることから、ベントナイトへの収着による移行遅延効果を期待することが難し い。一方で、鉄酸化物相への収着や表面沈殿の生成等、鉄酸化物相との相互作用によるSeの移行 遅延効果については、これまでにいくつか報告がなされている(例えば、Scheinost and Charlet, 2008)。鉄酸化物相は母岩に含まれているほか、オーバーパックの腐食に伴って生成することか ら、性能評価上考慮することが可能な現象である。しかしながら、鉄酸化物相との相互作用によ る移行遅延を性能評価上考慮に入れるためには、その相互作用メカニズムを明らかにし、処分環 境においてSeの移行が遅延されることを明確にする必要がある。

地層処分環境においては、マグネタイト(Fe(II)Fe(III)<sub>2</sub>O<sub>4</sub>)が長期間にわたって安定に存在する 鉄酸化物相である。マグネタイト中には2種類の酸化数のFeが含まれていることから、Seのよう な酸化還元に鋭敏な元素に対して、マグネタイトは酸化・還元の両反応を触媒すると考えられる。 さらに、マグネタイト表面に存在する収着サイトも、核種の収着に関与すると考えられる。Seと マグネタイトの相互作用には先行研究があり、Scheinost and Charlet (2008) はSeO<sub>3</sub><sup>2-</sup>が還元さ れてセレン化鉄が生成することを確認している。また、Missana et al. (2009) はSeO<sub>3</sub><sup>2-</sup>のマグネ タイト微細結晶への収着試験から、酸性条件では表面沈殿生成、アルカリ条件では表面吸着が関 与することを報告している。これらの報告は、マグネタイトがSeの移行遅延に有効であることを 示しているものの、マグネタイトが当初から存在することを想定して評価を行っている。しかし ながら、オーバーパックの腐食により生成するマグネタイトは、結晶性の低い準安定相を経由し て生成する可能性があることから(Schikorr反応)、その過程におけるSeの収着挙動の変化を評価する必要があると考えられる。近年では、Seの酸化性化学種と結晶性の低い酸化水酸化鉄(III)であるフェリハイドライトとの反応から、フェリハイドライトはSeの保持に有効であるものの、pHによって熱力学的に安定な相が異なることから、Seの保持量もpHによって異なることが報告されている(Börsig et al., 2017; Francisco et al., 2018)。このことは、鉄酸化物相の変化によりSeの移行が遅延されるだけでなく、促進される可能性についても評価を行う必要があることを示唆している。

上記の研究はSeの酸化性化学種を対象として実施されたものであるが、地層処分環境ではSeは Se<sup>2</sup>-等の化学種として溶存する。既往の報告では、このような環境においては、SとSeの化学的性 質の類似性から、Seはパイライト(FeS<sub>2</sub>)やマッキナワイト(FeS)との共沈により固相中に保 持されると考えられてきた(Diener and Neumann, 2011; Finck et al., 2012)。一方で、水酸化 鉄(II)が共存する環境においては、水酸化鉄(II)によるSeの保持挙動についても評価することが 重要であると考えられる。その相互作用機構として、収着、セレン化鉄の生成、酸化還元反応が 考えられるが、詳細は明らかにされていない。また、初期に水酸化鉄(II)により保持されている Seが、水酸化鉄(II)のマグネタイトへの変遷に伴ってマグネタイトに構造的に取り込まれるか、ま たは結晶性のセレン化鉄やセレン単体のように分離した相になるのか等、水酸化鉄(II)のマグネタ イトへの変質がSeの保持挙動に及ぼす影響も不明である(図3.3・3)。



図3.3-3 Fe(II)に富む環境下でのSe(-II)の固定メカニズムの概念図

本調査では、結晶性の低い水酸化鉄(II)準安定固相によるSe(-II)の保持挙動と、その後のマグネ タイトへの変質に伴う保持挙動の変化について調査を行う。調査では、初めにバッチ共沈試験に よって水酸化鉄(II)に取り込まれたSe(-II)の存在形態を調べ、その後、加熱処理による水酸化鉄 (II)からマグネタイトへの変質過程におけるSe(-II)の存在形態の変化について調査する。また、マ グネタイトへの変質はpHによって変化する可能性があることから、pHの影響についても検討を 行う。

# 2) 試験手法

実験概要を図3.3・4に示す。試験は酸素濃度1 ppm以下の窒素雰囲気グローブボックス内でバッ チ共沈法により行った。溶液調製には、窒素雰囲気で脱気した超純水を用いた。試験試料の調製 に用いたFe(II)溶液(0.1 M)はモール塩((NH4)<sub>2</sub>Fe<sub>2</sub>(SO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>・6H<sub>2</sub>O)を溶解することで調製し、Se(-II) 溶液(0.01 M)はNa<sub>2</sub>Seを0.1 Mヒドラジンに溶解することで調製した。

本試験では、二つの試験条件を設定した。一つは、Se(-II)溶液をFe(II)溶液に滴下する条件であ

る(Case A)。本条件では、最終的なSe(-II)濃度が1 mM、Fe(II)濃度が10 mMとなるように設定した。なお、Se(-II)溶液の初期pHは約12、Fe(II)溶液の初期pHは約4であり、最終的なFe-Se 混合溶液のpHは約8であった。もう一つの条件は、Fe(II)溶液に1 M NaOHを添加してpHを12程 度にし、水酸化鉄(II)の沈殿を生成させた後にSe(-II)溶液を滴下するものである(Case B)。こ の手順により、Se(-II)は溶存するFe(II)ではなく水酸化鉄(II)沈殿と反応することとなる。両条件 ともに試験溶液はPTFE製のボトルに入れ、80°Cの恒温槽で7日間エイジングを行った。上記の共 沈生成反応及びエイジング操作の後、濾過により固相を回収した。溶液の上澄みは回収し、分析 に供した。



図3.3-4 Fe(II)に富む環境下でのSe(-II)の固定メカニズム分析のための実験概要

### 3) 結果と考察

初期のSe(-II)溶液は赤紫色を呈しており、ポリセレニド(Sen<sup>2-</sup>)が支配的な化学種であると考えられた。両条件ともFe(II)を添加すると直ちに磁性を持たない黒色沈殿が生成し、Case Aでは Ehの低下が確認された(表3.3-2)。また、沈殿により溶液からポリセレニドが取り除かれて上澄 みは透明になり、エイジング後も透明のままであった。しかしながら、エイジング後にCase Aで はpHの低下とEhの上昇が見られた一方、Case BではpH及びEhに変化は見られなかった。このこ とは、生成した固相の組成が異なることを示唆している。

表3.3-2 初期、Se(-II)添加直後及びエイジング(7日間)後の溶液中のpH、温度及びEh. 数値は*n* = 2の平均

	Α			В		
	Initial	Se(-II) addition	Aged	Initial	Se(-II) addition	Aged
pН	4.2	8.0	6.7	11.9	12.0	12.0
Temperature (°C)	21.7	23.1	24.0	25.9	26.0	22.9
Eh (mV)	435	-425	19.0	-495	-506	-536

図3.3-5に初期共沈生成物及びエイジングを行った固相のXRD測定の結果を示す。両条件ともに 初期共沈生成物のピークは弱く、結晶性に乏しいことが確認された。さらに、Se固相に相当する ピークも確認されず、Seは共沈の際に非晶質な物質として存在しているか固相に収着している可 能性が示唆された。しかしながら、Case AとCase Bでは生成固相が異なり、Case Aではゲータイ ト(α-FeOOH)、Case Bではフェロキシハイト(δ-FeOOH)が生成していた。これらはともに 乾燥の過程で水酸化鉄(II)が酸化してできたものであると考えられ(Chukrov et al., 1997; Encina et al., 2014)、ゲータイトは中性付近、フェロキシハイトはアルカリ性のpHで生成することが報 告されている(Yoshinaga and Kanasaki, 1993)。また、固相に収着したSeは水酸化鉄(II)の酸 化及び生成固相に影響を与える可能性があるが、これについてはさらなる調査が必要である。 両条件ともエイジング後の固相の主成分はマグネタイトであることが確認された。Case Aでは フェロセライト(FeSe2)に相当するピークが確認され、Seは相変化中に分離した相として取り込 まれたと考えられる。フェロセライトは還元環境下でのSe(-II)の制限固相であることが報告され ている(Iida et al., 2007)。しかしながら、フェロセライトの結晶化の経路は明らかになってい ない。一方、Case BではSeが結合した固相に相当するピークは見られず、Seは収着等により固定 されている可能性が示唆された。また、Se(-II)がSe(IV)またはSe(VI)に酸化されて収着している 可能性も考えられるが、これについてはさらなる調査が必要である。



# 3.3.3 セメント系材料の共存が緩衝材や岩石中の核種移行に及ぼす影響評価技術の開発 (1) セメント系材料が緩衝材や岩石中の核種移行に及ぼす影響に関する課題の設定

高レベル放射性廃棄物の地層処分において支保工やグラウト材として、またTRU廃棄物におい て充填材などとして用いられるセメント系材料が、緩衝材や岩盤等のニアフィールド環境に及ぼ す影響、さらには核種移行への及ぼす影響を把握するとともに、定量的な評価手法を整備してお く必要がある。セメント系材料は、TRU廃棄物の地層処分において、処分坑道の支保工、構造躯 体、充填材といった多様な目的に、かつ多量に用いられることから、TRU廃棄物の地層処分の研 究において様々な研究が進められてきた(電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構,2005)。こ こでは、このTRU廃棄物関連の先行研究を含む国内外の最新の成果をもとに、セメント系材料が ニアフィールド環境の変遷に及ぼす影響とさらにその結果として生じる核種移行への影響につい て、重要な知見と課題を整理し、本事業で取り組むべき課題とアプローチを設定する。

セメント系材料がニアフィールド環境や核種移行に及ぼす影響は、先行研究(例えば、電気事 業連合会・核燃料サイクル開発機構,2005)おいて取りまとめられている。その影響プロセスは、 セメント系材料が地下水と反応することにより、セメント系材料から可溶性鉱物が溶脱すること によってセメント系材料自体が変質するとともに、周囲の地下水の組成やpHを大きく変化させる ことに起因する。普通ポルトランドセメント(OPC)を用いた場合、反応初期にはNaやKの溶出 が卓越してpHは13以上になり、その後はCa(OH)2との平衡に相当する12.5程度に保持されたのち、 C-S-HゲルからのCaの選択的溶出によるCa/Si比の低下に伴い、pHは連続的に低下することとな る(Atkinson, 1985)。このようなセメント系材料と地下水との反応による地下水環境の長期的 変遷、その地下水と緩衝材や岩盤との反応やそこでの物質移行によってニアフィールドの環境が 変化し、その結果として形成される間隙水化学、鉱物変質や間隙特性変化が核種移行に影響を及
ぼすこととなる。

緩衝材に対する影響としては、セメントとの反応で高pH条件に変化した間隙水条件によって緩 衝材中に含まれるモンモリロナイトの層間陽イオンのCa型への変化や鉱物学的変質が生じる可 能性がある。これらの反応によって緩衝材の特性が変化し、その結果として核種移行の観点から は、コロイドフィルトレーション、核種収着による移行遅延の安全機能などへの影響が懸念され る。

緩衝材の鉱物学的長期安定性については、先行研究(たとえば、柴田ほか,2004;小田ほか,2005) によれば、高pH条件でのモンモリロナイトの溶解に伴い、C-S-Hゲルやゼオライトが生じる可能 性や、セメント系材料からの高濃度のKを含む高アルカリ性環境下でのモンモリロナイトがイラ イト等の非膨潤性の層状ケイ酸塩鉱物へ変化する可能性などが検討されているものの、そのよう な変質が緩衝材全体に及ぶ可能性は低いと評価されている。一方で、モンモリロナイトのイオン 型のCa型への変化については比較的広い範囲に及ぶ可能性が高いとされている。このイオン型の Ca型化は、前節で検討したオーバーパックの鉄共存の影響に伴う緩衝材の内側領域でのイオン型 のFe型化とも共通する課題である。このモンモリロナイトのCa型化が、間隙構造、核種移行、コ ロイドフィルトレーションへ及ぼす影響については、先行事業「処分システム評価確証技術開発 (日本原子力研究開発機構,2018)」において検討してきている。本事業では、これらの先行事業 のアプローチを継承し、特に安全評価上の影響が大きいコロイドフィルトレーション機能に着目 して、ベントナイトのCa型による影響評価研究に取り組むこととする。一方で、鉱物変質による 収着等の核種移行への影響については、高pH条件の影響やC-S-H等二次鉱物の影響など岩石への 影響評価と共通する課題として、岩石への影響評価に係る課題として検討する。

ニアフィールド岩盤への影響については、緩衝材の場合と同様に、セメントの影響によって地 下水・間隙水のpHが12~13 程度と高pH条件が拡がり、岩石構成鉱物の溶解や二次鉱物の沈殿等 による変質が生じることが想定される。この周辺岩盤の溶解や変質によって、岩石中の間隙構造 や鉱物の収着特性に変化をもたらし、地下水組成の変化とあわせて、核種移行挙動に影響を及ぼ すこととなる。さらに、岩盤中のセメント影響については、2章で詳細を検討しているように、割 れ目とマトリクスからなる評価体系において、高アルカリプルームの拡がりや、二次鉱物の生成 による割れ目の閉塞、割れ目表面に二次鉱物が沈殿することによりマトリクス拡散や収着の抑制 といったより複雑な影響プロセスも考慮する必要が生じる。本タスクでは、2章における高アルカ リプルームの評価や岩盤への変質評価などを踏まえながら、前節の岩盤中の核種移行モデル開発 において、主な研究対象としているグリムゼルの花崗閃緑岩と幌延の泥岩に着目して、セメント 系材料の共存による生じる核種移行特性の変化に関する分析試験、収着等の核種移行特性への影響評価に必要なデータやモデルの調査を進めることとする。

### (2) セメント系材料共存に伴うCa型ベントナイト中のコロイド移行特性の評価

緩衝材として用いられる圧縮ベントナイトは、コロイド粒子を物理的にろ過するコロイドフィルトレーション機能により、緩衝材内部での核種移行に及ぼすコロイドの影響を排除することが期待されている(核燃料サイクル開発機構,1999)。これまでに報告されている圧縮ベントナイト中のコロイドの透過試験においては、試験溶液の塩濃度や圧縮ベントナイトの乾燥密度等の条件によっては、サイズの小さいコロイドがベントナイト中を移行することが確認されている(黒澤,2005; Holmboe et al., 2010; Wold et al., 2007; Iijima et al., 2009)。しかしながら、既存の研究で検討された条件は限られており、圧縮ベントナイトがコロイドフィルトレーション機能を発揮する条件を明確化することが必要である。特に、本事業で焦点をあてるバリア材料間の相互作用を含むニアフィールド環境の長期変遷の影響を考慮する際、この環境変遷がコロイドフィルトレ

ーション機能に及ぼす影響を評価しておくことは、コロイドフィルトレーション機能が喪失した 場合の影響の大きさを考慮すると重要な課題である。

このような観点から、先行事業(日本原子力研究開発機構,2018)において、多様な環境条件に おける圧縮ベントナイト中のコロイドの移行特性データの取得に取り組んできた。具体的には、 多様な環境条件で試験を行うためのコロイドとして、人工高分子であるデンドリマーコロイドに 着目し、その多様な条件での安定性評価を行うとともに、循環型の透過拡散試験によって、圧縮 ベントナイト中のコロイドの移行特性を評価してきた。コロイドのデンドリマーの種類について は、アニオン性の官能基であるカルボン酸ナトリウムを表面に持つPAMAMデンドリマー Generation 4.5 (Sigma-Aldrich製、分子量 26,252、直径約5.7 nm)を使用した。先行事業では、 主に乾燥密度0.8 Mg/m<sup>3</sup>のNa型モンモリロナイト(クニピアF®)及びCa型モンモリロナイト中の コロイド移行特性を、間隙水の塩濃度が異なる条件下で取得してきた。これらの試験の結果、Na 型とCa型モンモリロナイトでの差異、間隙水塩濃度の変化に応じたコロイドの移行特性(実効拡 散係数)が明瞭に変化する傾向が確認された一方で、この乾燥密度0.8 Mg/m<sup>3</sup>の条件では、いずれ の塩濃度条件でも、デンドリマーコロイドが破過することが確認された(日本原子力研究開発機 構, 2018)。

これを踏まえ、今年度は、乾燥密度1.2 Mg/m<sup>3</sup>のNa型とCa型モンモリロナイトを対象に、間隙 水塩濃度が異なる条件でのコロイド移行試験を実施した。今回実施した乾燥密度1.2 Mg/m<sup>3</sup>のNa 型とCa型モンモリロナイトで得られたコロイドの試料下流側でのフラックスを、先行事業で取得 してきたデータとあわせて図3.3・6に示す。さらに、定常状態のフラックスから導出した実効拡散 係数を表3.3・3にまとめる。各条件で取得された実効拡散係数を比較すると、Na型とCa型のいず れのモンモリロナイトでも、乾燥密度の増加及び間隙水塩濃度の低下とともに、実効拡散係数は 低下する傾向を示した。また、同じ間隙水塩濃度条件で比較すると、Ca型はNa型に比べて実効拡 散係数が大きいことが確認された。これらの傾向性は、先行研究(日本原子力研究開発機構, 2018) において取り組んできた、層間イオン種の違いや間隙水塩濃度による膨潤特性や間隙特性の変化、 及び核種移行特性等と整合する結果であり、妥当な傾向性が得られていると考えられる。今後は、 コロイドの移行特性と、間隙特性や核種移行特性とを関連付けた評価を検討するとともに、より 高い密度条件でのコロイド移行試験を行い、コロイドフィルトレーションの発現条件を確認して いく必要がある。



図3.3-6 デンドリマーコロイドの透過拡散試験で取得された透過側フラックス:(a)Na型モンモ リロナイト、(b)Ca型モンモリロナイト

イオン型	試料ID	乾燥密度[Mg/m <sup>3</sup> ]	塩濃度[mol/dm <sup>3</sup> ] (イオン強度)	実効拡散係数 <i>De</i> [m <sup>2</sup> /s]
	Na_0.8_0.05	0.8	0.05	4.89E-12
	Na_1.2_0.05_1	1.2	0.05	3.39E-12
	Na_1.2_0.05_2	1.2	0.05	3.30E-12
Na型	Na_0.8_0.5_1	0.8	0.5	1.37E-11
	Na_0.8_0.5_2	0.8	0.5	7.37E-12
	Na_1.2_0.5_1	1.2	0.5	8.69E-12
	Na_1.2_0.5_2	1.2	0.5	6.80E-12
	Ca_0.8_0.05_1	0.8	0.0167(0.05)	1.69E-11
	Ca_0.8_0.05_2	0.8	0.0167(0.05)	1.65E-11
	Ca_1.2_0.05_1	1.2	0.0167(0.05)	6.61E-12
○○刑□	Ca_1.2_0.05_2	1.2	0.0167(0.05)	7.87E-12
Ca	Ca_0.8_0.5_1	0.8	0.167(0.5)	2.16E-11
	Ca_0.8_0.5_2	0.8	0.167(0.5)	2.49E-11
	Ca_1.2_0.5_1	1.2	0.167(0.5)	6.04E-12
	Ca_1.2_0.5_2	1.2	0.167(0.5)	8.75E-12

表3.3-3 デンドリマーコロイドの透過拡散試験で得られた実効拡散係数

## (3) セメント系材料共存に伴うニアフィールド岩盤中の核種移行特性の評価

上記(1)で記述したように、2章における高アルカリプルームの評価や岩盤への変質評価などを 踏まえながら、結晶質岩であるグリムゼルの花崗閃緑岩及び堆積岩である幌延の泥岩を対象とし て、セメント系材料の共存による生じるこれら岩石中の核種移行特性の変化について調査を進め る。

結晶質岩におけるセメント系材料の影響に関する検討は、フィンランドPOSIVAやスウェーデンSKBなどによって進められている(例えば、Soler et al., 2011)。結晶質岩の場合、セメントと岩盤の境界部で生じるpH条件の差異は粘土岩と大きくは変わらないものの、結晶質岩は化学的緩衝性に乏しいことから、鉱物の溶解や沈殿反応が比較的早く生じる。花崗岩や花崗閃緑岩に含まれる長石、石英、雲母等の溶解によって生じるSi成分と、セメントからの高pH間隙水中に含まれるCaとの反応によってカルシウムシリケート水和物(C-S-H)ゲルやゼオライトが生成する(Soler and Mader, 2010; Lothenbach et al., 2017)。そのほかに、エトリンガイトが観察された事例(Fernandez et al., 2010)や、2章で瑞浪URLを対象とした検討でも報告されているように、地

下水中の炭酸濃度条件によってカルサイトの生成が重要となる。

スイスのグリムゼル原位置試験場では、このようなセメント系材料と結晶質岩の花崗閃緑岩との相互作用に関する現象理解と影響評価モデル構築を目的に、HPF(Hyperalkaline Plume in Fracture rock)プロジェクト(例えば、Soler and Mader, 2010)やLCS(Longterm Cement Study) プロジェクト(例えば、Chaparro et al., 2017)が進められてきた。LCSプロジェクトでは、ボア ホールと透水性割れ目の交差部に設置された普通ポルトランドセメント(OPC)との反応で生じ た高アルカリプルームが割れ目内充填鉱物と反応しつつ下流側の観測孔及び揚水孔へと至る状況 が3年程度の期間観測されるとともに、反応移動解析によって解釈がなされている。試験の結果、 pHの明瞭な上昇や地下水成分の変化が実測され、試験中に生じた鉱物反応としては、割れ目充填 鉱物の溶解と二次鉱物の生成が支配的であり、岩石マトリクス部の反応は顕著ではなかったとさ れている(Chaparro et al., 2017)。

ここでは、セメント共存下での岩石の変質とその核種移行への影響の評価手法の検討に資する ため、上記のグリムゼル原位置試験場のHPFプロジェクトの場所からグリムゼル花崗閃緑岩と OPCが約14年間接触していた試料を対象として、岩石とセメントの接触界面での変質状態の分析 を行った。セメント部分、セメントとの接触面近傍の岩石試料、接触面から数cm以上離れた岩石 試料を対象に、それぞれの試料の2カ所以上の領域を対象に、 EPMA分析を行い、鉱物の変質状況を予察評価した。図3.3-7(a)に示すグリムゼル花崗閃緑岩とOPCの接触試料から、接触界面近傍を切り出し(同図(b))、樹脂含浸、鏡面研磨、炭素蒸着の処理を行った試料を対象に、EPMA (JEOL JXA-8200,加速電圧15 kV)によって元素マッピングを取得した。同図(c)には、視野サイズ10×10 mm<sup>2</sup>での境界領域での元素マッピングを例示している。セメント側の接触界面の数mmの範囲で、Caがやや減少していること、SiやAlにやや富む領域であることが確認できる。これらは境界領域のセメント部分でのCaの溶脱や、C-S-HやAlが固溶したカルシウムシリケート水和物(C-A-S-H)の存在を暗示している。

上記のEPMAの分析の結果から、花崗閃緑岩側にはセメント接触界面に小さなくぼみがあって、 そこにセメント物質由来のCaの濃度の高い領域が生成されていることがわかった(同図(c)の赤枠 部)。そこで、その部分を含む花崗岩内部までの0.3×0.7 mm<sup>2</sup>の領域に着目した詳細なマッピン グを図3.3-7(d)及び(e)に示す。接触界面のくぼみに見られる大きなポルトランダイト(Ca hydroxide: CH)粒子が、花崗閃緑岩の雲母(黒雲母と白雲母)に近接して存在しており、同図(d) に示すCaの分布を見ると、ここを起点として花崗閃緑岩内部へCaが移行しており、同図(e)に示す Mgの分布との比較から、雲母鉱物中の層状の間隙に沿ってCaが移行している可能性が示唆され た。今回の予察的な分析からは、岩石側での二次鉱物の析出は確認できなかったが、今後、セメ ントと岩石の接触面付近を中心に複数個所で分析データを拡充して、セメントと花崗閃緑岩の相 互作用プロセスについて検討を進めていく。



図3.3-7 グリムゼル花崗閃緑岩とOPCの接触試料(a,b)と接触界面のEPMA分析結果(c-e): (c)は10 × 10mm<sup>2</sup>, (d)-(e)は0.3 × 0.7 mm<sup>2</sup>

一方で、堆積岩におけるセメント系材料の影響に関する検討は、主に粘土岩を対象に、スイス Nagra、フランスANDRA及びベルギーONDRAF/NIRASによって進められている。セメントと粘 土岩との間で生じる相互作用においては、間隙水化学が重要な役割を果たす。セメントから生じ る陽イオン(K, Na, Ca等)が粘土岩中へ移行し、粘土の層間陽イオンとのイオン交換を通じ、膨 潤特性や核種移行特性へ影響を及ぼす。さらに、高pHの間隙水の影響で、ケイ酸塩鉱物や粘土鉱 物の溶解とC-S-Hやゼオライト等の二次鉱物の生成が生じる。二次鉱物として想定されるのは、 C-S-H、C-A-S-H、炭酸塩、水酸化物、硫酸塩などの鉱物であり、これらはモデルによって予測さ れるだけではなく、原位置・室内試験やナチュラルアナログ研究で観察されている(Alexander et al., 1998; Mäder et al., 2017; Savage 2011; Savage et al., 2011)。また、NagraによるMont Terri 原位置試験(Jenni et al., 2014; Mäder et al., 2017; Lerouge et al., 2017)と反応輸送解析

(Kosakowski and Berner 2013) では、鉱物の変質を伴う領域は1万年間で2 m程度、間隙水の 高pHによる影響は6 m程度と評価している。

ここでは、幌延の泥岩試料へのセメント共存影響を評価するため、幌延 URL の 140 m 坑道か ら採取された、幌延の泥岩と OPC が約 9 年間接触していた試料(図 3.3-8(a),(b))を対象として、 岩石とセメントの接触界面での変質状態の分析を行った。同図(c,d)に示す領域(Area 1 及び Area 2)を対象に、 EPMA 分析(JEOL JXA-8200,加速電圧 15 kV)を行い、鉱物の変質状況を予察評 価した。同図(e,d)には、同図(c,d)で示した領域の反射電子像を示す。さらに、同図(c)及び(d)に示 したエリアの Ca, Si, Al の元素分布の分析結果を図 3.3-9 に示す。セメントから生成した Ca が岩 石内部へと移行して二次鉱物として析出している様子が確認できる。Ca 移行による二次鉱物の生 成は、同図(b)で確認できるような岩石の掘削時に生成していたと思われる初期の割れ目部と、マ トリクス部の微細な間隙とに大別できる。割れ目部の比較的サイズの大きな間隙部分では、Ca 濃 度が高く(Ca 分布の黄色を呈する領域)、この領域にはカルサイト(CaCO<sub>3</sub>)が多いことが、Si の強度がカウントされていないことから推察できる。一方で、やや Ca に富む領域(Ca 分布の青 色を呈する領域)はマトリクス部への侵入に特徴的であるが、この領域は Si もカウントしている ため、C-S-H などの二次鉱物が析出しているものと推察できる。

さらに、セメント接触界面から内部にかけて、反射電子像による観察を行いながらスポット分析を実施した。観察した反射電子像に、分析スポットの位置と同定された鉱物を図3.3-10に示す。 幌延の泥岩を構成する鉱物である石英(Qz)、長石(Plag)、モンモリロナイト(Mont)等に加 えて、セメントからのCa成分の二次鉱物としてカルサイト(Cal)やAlが固溶したカルシウムシ リケート水和物(CASH)が岩石内部で生成していることが確認できる。今後、岩石側での二次鉱 物の空間的な生成状況を把握するとともに、セメントの種類や接触時間の異なる試料の分析を行 い、セメントと幌延の泥岩の相互作用プロセスについて検討を進めていく。



図3.3-8 幌延の泥岩とOPCの接触試料(a-d)とEPMAによる反射電子像(e-f)



図3.3-9 幌延の泥岩とOPCの境界領域でのCa, Si, Alの元素分布: (a)Area 1と(b)Area 2



図3.3-10 幌延の泥岩とOPCの境界領域の反射電子像とスポット分析の位置と同定された鉱物

上記の通り、セメント系材料が共存することによって、ニアフィールド岩盤及び緩衝材ベント ナイト中の核種移行に及ぼす影響としては、セメントの影響によって地下水・間隙水のpHが 12~13 程度の高アルカリ条件となることの影響に加え、岩石及びベントナイトの構成鉱物の溶解 や二次鉱物の沈殿等による鉱物変質が生じることの影響が想定される。この周辺岩盤の溶解や変 質によって、岩石中の間隙構造や鉱物の収着特性に変化をもたらし、地下水組成の変化とあわせ て、核種移行挙動に影響を及ぼすこととなる。このようなセメント系材料の共存による岩石や緩 衝材中の核種移行の影響については、諸外国において特に核種の収着への影響に着目した試験研 究が進められているほか、安全評価のパラメータ設定手法についても検討がなされている(例え ば、Nagra, 2002; POSIVA, 2013)。スイスNagraの場合、高pH間隙水の影響や、二次鉱物の生 成の影響を不確実性要因として想定して、それぞれの状況に応じたパラメータ手法を検討してい る(Bradbury and Baeyens, 2004)。このような先行事例も参考としつつ、まずは、核種収着へ の影響を評価するため、高pH間隙水の影響及び二次鉱物として想定されるC-S・Hやカルサイトの 核種収着データの調査を実施した。高pH間隙水の影響については、3.3.4項の高炭酸条件の影響評 価技術に記載しているように既往の収着研究における環境条件のバリエーションの視点として多 くの研究が実施されており、それらのデータやモデルを活用することが可能である。一方、C-S・ Hについては、セメントへの収着データベースの整備の一環として、様々な核種のデータが取得 されている(例えば、Ochs et al., 2016)。カルサイトについても、米国のグループを中心として、 データ取得・調査とモデル化検討がなされている(Zavain et al., 2004a; 2004b)。今後、これら の既往の研究の調査・分析を行い、収着影響の評価手法の検討と課題の抽出を進めるとともに、 収着以外の核種移行影響プロセスについても検討を進めていく。

## 3.3.4 地下水中の高炭酸条件が岩石中の核種移行に及ぼす影響評価技術の開発

# (1) 高炭酸条件が岩石中の核種移行に及ぼす影響評価に関する課題の設定

わが国の地下水環境においては、溶存する炭酸濃度が比較的高い地下水が存在するため、ベントナイト間隙水中の炭酸濃度も高い濃度条件が長期にわたり継続する可能性がある。炭酸イオンと錯体を形成する核種の場合、錯体形成によって岩石やベントナイト中の収着や拡散挙動は影響を受け、アクチニド等の粘土鉱物への表面錯体反応によって収着する核種の収着分配係数については一般的に低下することが知られている(例えば、Marques Fernandes et al., 2008; 2012; Tachi et al., 2014)。しかしながら、比較的炭酸濃度が高い条件での核種の収着・拡散データや、そのメカニズムに関する知見は限られ、特に還元性地下水条件や炭酸濃度を変動させた条件での収着・拡散に係るデータ取得やモデル化の報告事例は非常に少ない。日本原子力発電環境整備機構

(NUMO)が最近公表した包括的技術報告書(原子力発電環境整備機構,2018)においても、この高炭酸濃度の影響が課題となっており、特にUの支配化学種が高炭酸条件でU(VI)になることや、その収着分配係数の低減の影響の結果、Uが線量評価の支配核種となる結果が得られている。このような課題を踏まえ、ここでは、主に幌延の泥岩やその構成鉱物で収着・拡散への関与が大きい粘土鉱物を対象に、アクチニドの炭酸共存系での泥岩や粘土鉱物への収着データを取得するとともに、既往のデータも活用しつつ収着モデルの検討を進め、炭酸系表面化学種の収着への寄与の可能性も含めた収着モデルパラメータの導出とその適用性評価を検討する。具体的には、実際の深部環境で考慮すべき高炭酸濃度等の地下水条件範囲、及びその条件で炭酸錯体等の影響が顕在化する核種を検討し、重要な地下水条件と核種との組合せを抽出する。そのうえで、炭酸条件等を制御した岩石中の核種移行データの取得手法を構築し、重要な核種の収着・拡散データを取得する。さらに、そのデータの信頼性確認と多様な条件下での核種移行パラメータ設定に反映するため、分子動力学計算等の計算科学技術を適用して炭酸共存下における核種の収着・拡散等のメカニズムの評価、それらを反映した核種移行モデルの構築に着手する。

### (2) 高炭酸条件が岩石中の核種移行に及ぼす影響評価

### 1) 先行研究の調査と課題の設定

本研究で対象とする幌延の泥岩の場合、その構成鉱物のうち、粘土鉱物のモンモリロナイトと イライトが収着に大きく寄与することが想定され、これまでの先行研究から、これらの粘土鉱物 への収着反応を加成則で考慮するCA (Component Additivity) モデルによって説明可能であると 評価されている(Tachi et al., 2011; 2016)。このため、高炭酸環境下での泥岩中における核種移 行挙動を評価するためには、モンモリロナイト・イライトへの炭酸共存下での収着データが必要 となる。表3.3・4にモンモリロナイト及びイライトに対する収着への炭酸影響に関する既往の報告 を示す。3価のランタニド・アクチニド元素であるEu、Am、Cmは互いに化学的性質が似ている 化学アナログとして用いられているため、まとめて示す。モンモリロナイトでは三価ランタニド・ アクチニドに関する報告が多く、分光学的観察(TRLFS, EXAFS)から炭酸共存下ではエッジサ イトーランタニド・アクチニドー炭酸イオンの三元錯体を形成することが示唆されている (Marques Fernandes et al., 2008; 2016)。また、Np(V)においてもEXAFS測定から三元錯体を 形成する可能性が報告されている(Wendt, 2009)。一方、U(VI)についても三元錯体形成をEXAFS で確認する試みがなされているが直接的な情報を得ることはできておらず(Marques Fernandes et al., 2012)、三元錯体を形成していないとする報告もある(Tournassat et al., 2018)。イライ トはモンモリロナイトと比較すると報告が少なく、三元錯体形成を分光学的観察で調べた例はな い。また、炭酸濃度を変化させて収着挙動を調べた報告も、イライトにおいてIida et al. (2016)の 一例があるのみである。

これらの先行研究の状況を踏まえ、粘土鉱物のイライトと幌延の泥岩を対象として、炭酸共存 系でのアクチニドの収着データ取得とモデル構築を進めることとし、今年度は、Am(III)及び Th(IV)を対象として、炭酸共存下でのイライトに対する収着分配係数の取得とモデル化の試行に 取り組んだ。

Flomont	Data	Reference				
	Data	Montmorillonite	Illite			
	Atmospheric CO <sub>2</sub>	Marques Fernandes et al. (2008, 2016), Guo et al. (2009)	Marques Fernandes et al. (2015)			
Eu(III)/Am(III)/Cm(III)	Variable CO <sub>2</sub>	Marques Fernandes et al. (2008)	-			
	Microscopic analysis	Marques Fernandes et al. (2010, 2016): TRLFS, EXAFS	-			
	Atmospheric CO <sub>2</sub>	-	-			
Th(IV)	Variable CO <sub>2</sub>	Iida et al. (2016)	Iida et al. (2016)			
	Microscopic analysis	-	-			
	Atmospheric CO <sub>2</sub>	Turner et al. (1998), Wendt (2009)	-			
Np(V)	Variable CO <sub>2</sub>	-	-			
	Microscopic analysis	Wendt (2009): EXAFS	-			
	Atmospheric CO <sub>2</sub>	Marques Fernandes et al. (2012), Tournassat et al. (2018)	Gao et al. (2013)			
U(VI)	Variable CO <sub>2</sub>	Marques Fernandes et al. (2012), Tournassat et al. (2018)	-			
	Microscopic analysis	Marques Fernandes et al. (2012): EXAFS	-			

表3.3-4 モンモリロナイト及びイライトに対する収着への炭酸影響評価報告例

## 2) 収着データの取得

収着分配係数はバッチ法で取得した。試験条件を表3.3-5に示す。固相には、フランス産のイラ イトであるillite du Puyを用いた。イライトは孔径50µmのメッシュを通過した画分を使用し、イ オン型の調整及び不純物の除去処理は行わなかった。大気からの二酸化炭素の混入を防ぐため、 溶液調製にはN2またはAr雰囲気のグローブボックス内で不活性ガスを通じた脱気水を用いた。バ ックグラウンド溶液は0.1 M NaClとし、NaHCO3及びNa2CO3を加えて炭酸濃度を調製した。な お、本試験条件のpH領域では表面錯体形成反応が主であり、NaHCO3及びNa2CO3の添加に伴う イオン強度変化が収着分配係数に与える影響は無視できると考えられる。酸の添加により炭酸が 二酸化炭素として脱離することを防ぐため、pH調整はNaHCO3及びNa2CO3の混合比率を変える ことで行った。トレーサーを添加して所定の反応期間が経過した後、遠心分離により固相分離を 行い、上澄みを採取して測定試料とした。Amを用いた試験では熱力学計算から、Thを用いた試験

	Am	Th
Solid phase	Illite du Puy (< 50 µm, as received)	Illite du Puy (< 50 µm, as received)
BG solution	0.1 M NaCl + NaHCO <sub>3</sub> /Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	0.1 M NaCl + NaHCO <sub>3</sub> /Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>
pН	8~11	9, 11
DIC (mM)	20, 50, 100	100, 250
S/L ratio (g/L)	0.2	1
C <sub>init</sub> (M)	$6.5  imes 10^{-10}$	$1.0  imes 10^{-6}$
Atmosphere	$N_2$	Ar
Time (d)	12	7
Separation	Centrifugation	Centrifugation
Measurement	LSC	ICP-MS

表3.3-5 イライトに対するAm及びTh収着試験の条件

図3.3・11に本試験で得られたイライトに対するAmの収着分配係数を示す。試験を行ったpH範囲において、収着分配係数はpHの上昇に伴って増加し、pH10以上ではばらつきが大きかった。 また、炭酸濃度による収着傾向の明瞭な差は確認されなかった。比較として、N2雰囲気条件で得られたAmの収着データ、及びAmの化学アナログであるEuのN2雰囲気及び大気平衡条件で得られた収着データを図3.3・11に併せて示す。文献によりやや差が見られるが、AmとEuの収着傾向は類似している。また、大気平衡条件ではEuの収着分配係数はpH8程度から急激に低下している。 本試験の結果をN2雰囲気条件で取得されたものと比較すると、炭酸の存在により収着分配係数が低下していることが確認できる。



図3.3-11 イライトに対するAm及びEuの収着のpH依存性

### 3) 収着モデルの適用性評価

収着モデルには静電項無視表面錯体モデル(Bradbury and Baeyens, 2005a)を用いた。表面 錯体生成定数は地球化学計算コードPHREEQCを用いたフィッティング解析により求め、熱力学 データとしてJAEA-TDBを使用した。

イライトに対するAmの収着データは限られているが、化学アナログであるEu及びCmの収着デ

ータは比較的充実している。そこで、Amの熱力学データを用いてAm、Eu、Cmの収着データセットに対してフィッティング解析を行い、収着パラメータを導出し、得られた値を平均化した。 平均化した収着パラメータを固定値とし、本試験で取得したデータに対してフィッティング解析 を行い、三元錯体の収着パラメータを導出した。導出した収着パラメータ及びモデルによる再現 結果をそれぞれ表3.3-6及び図3.3-12に示す。本試験で取得したpH領域では、炭酸イオンが3つ配 位した表面錯体 ( $\equiv$ S<sup>s</sup>OAm(CO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>4-)を仮定することで、実測値の傾向を概ね再現することがで きた。

Reaction	log K	Referred dataset
$3X^{-} + Am^{3+} = AmX_{3}$	2.2	
$\equiv S^{S}OH + Am^{3+} \equiv \equiv S^{S}OAm^{2+} + H^{+}$	2.5	Wang et al. (1998)
$\equiv S^{S}OH + Am^{3+} + H_{2}O = \equiv S^{S}OAmOH^{+} + 2H^{+}$	-4.3	Poinssot et al. (1999)
$\equiv S^{S}OH + Am^{3+} + 2H_{2}O = \equiv S^{S}OAm(OH)_{2} + 3H^{+}$	-13.0	Raburg et al. (2005) Bradbury and Baayans (2005b 2000a 2000b)
$\equiv S^{S}OH + Am^{3+} + 3H_{2}O = \equiv S^{S}OAm(OH)_{3}^{-} + 4H^{+}$	-23.4	Margues Fernandes et al. (2015)
$\equiv S^{S}OH + Am^{3+} + CO_{3}^{2-} = \equiv S^{S}OAmCO_{3} + H^{+}$	10.1	Schnurr et al. (2015)
$\equiv S^{S}OH + Am^{3+} + 2CO_{3}^{2-} = \equiv S^{S}OAm(CO_{3})_{2}^{2-} + H^{+}$	14.0	
$\equiv S^{S}OH + Am^{3+} + 3CO_{3}^{2-} = \equiv S^{S}OAm(CO_{3})_{3}^{4-} + H^{+}$	17.6	This study

表3.3-6 導出したイライトに対するAmの収着パラメータ



図3.3-12 Am及びEuのイライトに対する収着のpH依存性のモデルによる再現結果

図3.3-13に本試験で得られたイライトに対するThの収着分配係数及び比較として既往の報告値 を示す。本試験においてpH9、炭酸濃度100 mMの条件で取得された収着分配係数は、lida et al. (2016)のものと近い値であった。lida et al. (2016)の報告から、炭酸濃度の上昇とともに収着分 配係数が大きく低下する傾向が確認できる。また、炭酸共存下における収着分配係数はpH10程度 まではpHの上昇とともに低下し、その後上昇する傾向が見られる。本試験ではpH11における収 着分配係数はpH9の値よりも高かった。また、pH9における値は炭酸濃度の増加に伴ってやや低 下しているものの、pH11では大きな差は見られなかった。





イライトに対するThの収着を行った報告は少ないため、Th及びその加水分解種の収着パラメー タはBradbury and Baeyens (2009b)のデータに対してフィッティング解析を行うことにより求め、 固定値とした。三元錯体の収着パラメータはIida et al. (2016)が報告しているが、高炭酸濃度条件 において収着分配係数が実測値とモデルで一桁程度異なっていることから、本試験の結果と併せ てフィッティング解析により導出した。また、JAEA-TDBを用いた熱力学計算では一部の条件に おいて沈殿が生成していると評価されるが、沈殿の影響を無視できると仮定して計算を行った。 導出した収着パラメータ及びモデルによる再現結果をそれぞれ表3.3・7及び図3.3・14に示す。Iida et al. (2016) は 3 種 類 の 三 元 錯 体 ( = S<sup>s</sup>OTh(OH)<sub>2</sub>(CO<sub>3</sub>)<sub>2</sub><sup>3-</sup>, = S<sup>s</sup>OThOH(CO<sub>3</sub>)<sub>4</sub><sup>6-</sup>, = S<sup>s</sup>OTh(OH)<sub>4</sub>CO<sub>3</sub><sup>3-</sup>)を仮定したが、本試験結果を含めたフィッティング解析の結果、2種類の三元 錯体(=S<sup>s</sup>OTh(OH)<sub>2</sub>(CO<sub>3</sub>)<sub>2</sub><sup>3-</sup>, =S<sup>s</sup>OThOH(CO<sub>3</sub>)<sub>4</sub><sup>6-</sup>)を仮定することで結果を良好に再現するこ とができた。

Reaction	$\log K$	Referred dataset
$4X^- + Th^{4+} = ThX_4$	3.2	
$\equiv S^{S}OH + Th^{4+} = \equiv S^{S}OTh^{3+} + H^{+}$	6.7	
$\equiv S^{S}OH + Th^{4+} + H_{2}O = \equiv S^{S}OThOH^{2+} + 2H^{+}$	2.6	Bradbury and Baeyens (2009b)
$\equiv S^{S}OH + Th^{4+} + 3H_{2}O = \equiv S^{S}OTh(OH)_{3} + 4H^{+}$	-8.3	
$\equiv S^{S}OH + Th^{4+} + 4H_{2}O = \equiv S^{S}OTh(OH)_{4}^{-} + 5H^{+}$	-15.1	
$\equiv S^{S}OH + Th^{4+} + 2H_{2}O + 2CO_{3}^{2-} = \equiv S^{S}OTh(OH)_{2}(CO_{3})_{2}^{3-} + 3H^{+}$	10.1	Iida et al. (2016)
$\equiv S^{S}OH + Th^{4+} + H_{2}O + 4CO_{3}^{2-} = \equiv S^{S}OThOH(CO_{3})_{4}^{6-} + 2H^{+}$	24.3	This study

表3.3-7 導出したイライトに対するThの収着パラメータ



図3.3-14 Thのイライトに対する収着のpH依存性のモデルによる再現結果

## (3) 高炭酸条件での核種移行現象についての計算科学手法による評価

## 1) 粘土層間と粒子間間隙が共存する系での古典MD計算による拡散挙動評価

炭酸共存下における岩石中の核種の収着・拡散挙動を解明するため、主要鉱物であるモンモリ ロナイトー水溶液系を対象に、古典MD計算を用いてアクチニド核種の収着・拡散挙動を定量的に 評価することは重要な課題である。これまでの研究では、アクチニド核種としてウラニルイオン

(UO<sub>2</sub><sup>2+</sup>)及びネプツニルイオン(NpO<sub>2</sub><sup>+</sup>)を対象に、モンモリロナイト層間における拡散挙動を評価した(日本原子力研究開発機構,2017)。また、より現実的な間隙構造における核種の挙動を評価するため、層間間隙及び粒子間間隙が共存するスーパーセルを作成し、各種イオンの層間への 侵入挙動について評価するとともに、炭酸イオン(CO<sub>3</sub><sup>2-</sup>)の存在を考慮してCO<sub>3</sub><sup>2-</sup>を含む系でのシ ミュレーションを実施した(日本原子力研究開発機構,2018)。本報告では、これまでの成果を踏 まえ、ウラニルイオン及びネプツニルイオンを対象に炭酸イオンの共存下での層間/粒子間間隙 スーパーセル内において、より長時間に亘る挙動の推移を調べることで炭酸錯体生成状態の安定 性を評価するとともに、系の温度を上げることで炭酸錯体生成の促進効果や錯体構造の安定性な どについて評価を試みた。

計算対象を、以下のように設定する。

- ・層電荷0.33のNa型モンモリロナイト、2層水和状態: Na<sub>0.33</sub> · (Al<sub>1.67</sub>Mg<sub>0.33</sub>)Si<sub>4</sub>O<sub>10</sub>(OH)<sub>2</sub> · 5H<sub>2</sub>O
- ・層間間隙は2層水和状態(層間幅≒0.74 nm)とし、NVTアンサンブルで計算
- ・エッジ表面は{010}面(Rotenberg et al., 2007)
- ・エッジ表面に現れるSi<sup>4+</sup>にはOH<sup>-</sup>基を計算初期に付加
- ・エッジ表面に現れるAl<sup>3+</sup>にはOH<sup>-</sup>基とH<sub>2</sub>Oを計算初期に付加
- ・エッジ表面に現れるMg<sup>2+</sup>にはH<sub>2</sub>Oを計算初期に付加
- ・系全体の総電荷はエッジに付加したOH-基の電荷を調整することによりゼロにする

MDシミュレーションの状況を示す解析事例として、初期状態の粒子間間隙にはNaイオンが存在せず(対イオンとして層間間隙にのみ存在)、ウラニルイオンと炭酸イオンがそれぞれ8個ずつ粒子間間隙に共存する系(図3.3-15(a),(b))、及びネプツニルイオン8個と炭酸イオン4個が粒子間間隙に共存する系(図3.3-15(c),(d))について各イオンの拡散履歴を図示した。図3.3-15(a),(b)

は、いずれも298.15 Kにおけるウラニルイオンの拡散履歴を赤色のプロットで表し、そのうち炭酸錯体を形成したイオンについては黒色矢印で示した。図(a)は、2.0 nsから2.4 nsの時間間隔における拡散挙動であり、これは運動方程式を解く際の1 time-stepを0.4 fsとして5×10<sup>6</sup> time-stepから6×10<sup>6</sup> time-step の拡散履歴に相当する。一方図(b)は、さらに時間が経過した後の3.6 nsから4.0 nsの時間間隔における拡散挙動を表す。両図からわかるように、炭酸錯体を形成していないウラニルイオンが層間に侵入して長期間にわたり安定であり、一方、炭酸錯体を形成するウラニルイオンは全て層間外間隙に存在している。これは、錯体を形成することによりイオンサイズが大きくなり、また負電荷が増加したことに起因すると考えられる。図3.3-15 (c),(d)は、同じく298.15 Kにおけるネプツニルイオンの拡散履歴を青色のプロットで表したものである。ネプツニルイオンが多くなることがわかる。炭酸錯体を形成する利力ンが少ないのは、ウラニルイオンの系に比べ、炭酸イオンの個数が少ないことに起因していると思われる。

次に、温度を323 Kに上げた場合の拡散履歴を図3.3-16に図示した。図(a),(b)はウラニルイオン の系、図(c),(d)はネプツニルイオンの系であり、イオンの個数は298.15 Kの場合と同じである。ウ ラニルイオンの系を見ると、298.15 Kの場合に比べ錯体を形成するイオンが減少しているが、こ れは温度の上昇により錯体構造が不安定になることが起因していると思われる。また熱エネルギ ーの上昇によってイオンの拡散挙動が活発になり、298.15 Kの場合に比ベイオンの拡散範囲が広 がるとともに、層間に侵入するイオンの数も増加する傾向にあることが確認できる。ネプツニル イオンの系についても、同様の結果が得られた。



図3.3-15 CO<sub>3</sub><sup>2-</sup>共存下におけるモンモリロナイト層間・粒子間間隙混合系での拡散履歴 (298.15 K) : (a)UO<sub>2</sub><sup>2+</sup>の挙動(2.0~2.4 ns、赤色)、(b)UO<sub>2</sub><sup>2+</sup>の挙動(3.6~4.0 ns、赤色)、 (c)NpO<sub>2</sub><sup>+</sup>の挙動(2.0~2.4 ns、青色)、(d)NpO<sub>2</sub><sup>+</sup>の挙動(3.6~4.0 ns、青色) 黒色矢印は、いずれも炭酸錯体を示す

モンモリロナイト層間間隙と粒子間間隙が共存する系におけるアクチニド核種を対象とした今回の古典MD計算により、層間領域へのイオンのアクセス性に関する温度影響の知見を得ることができた。アクチニド核種に関する実測データは、鉱物間隙のみならずバルク溶液中においても

ほとんど得られておらず、今回の結果は計算科学的手法の有効性を示す重要な結果といえる。今 回のシミュレーションでは、層間間隙が2層水和状態の場合のみを仮定して実施したが、1層水和 及び3層水和状態も考慮してシミュレーションを実施することにより、アクチニド系イオンのアク セス性に関する情報、特に錯イオン形成の影響についてさらなる情報が得られるものと考えられ る。また現状MD計算のポテンシャルモデルは、ウラニル炭酸錯体・ネプツニル炭酸錯体とも炭酸 イオンが1配位の構造が安定になるモデルであるが、実際のアルカリ環境下では、より高い配位数 の錯体構造も安定になると考えられる。炭酸イオンの配位数が高い錯イオンは、分子構造の対称 性が高くなることや負電荷の価数が高くなることなどから、これまでポテンシャルモデルの作成 が困難であった。量子化学計算を用いたアクチニド核種の安定な錯体構造の解析は、ポテンシャ ルモデルの作成を目的に本研究の一環として進めており、密度汎関数法の基底関数を見直すこと で高配位炭酸錯体の構造最適化が可能になることが、Tsushima et al. (2002) により示されてい る。このような高配位炭酸錯体のポテンシャルモデルを取り入れたMD計算は、今後の課題の一つ である。



図3.3-16 CO<sub>3</sub><sup>2-</sup>共存下におけるモンモリロナイト層間・粒子間間隙混合系での拡散履歴(323 K):(a)UO<sub>2</sub><sup>2+</sup>の挙動(0~0.4 ns、赤色)、(b)UO<sub>2</sub><sup>2+</sup>の挙動(1.6~2.0 ns、赤色)、(c)NpO<sub>2</sub><sup>+</sup>の挙 動(0~0.4 ns、青色)、(d)NpO<sub>2</sub><sup>+</sup>の挙動(1.6~2.0 ns、青色) 黒色矢印は、いずれも炭酸錯体を示す

## 2) 第一原理電子状態計算によるモンモリロナイト・エッジ表面の酸解離定数評価

岩石中の核種移行評価において考慮すべき不確実性要因のうち、高炭酸条件が岩石中の核種移 行に及ぼす影響を評価することは重要な課題である。本節では、炭酸共存下における炭酸錯体等 の岩石中の収着・拡散メカニズムの解明を目的として、量子化学計算を適用した収着挙動評価を 実施する。荷電核種の移行に影響を及ぼすと考えられる粘土鉱物のうち、特にモンモリロナイト は岩石に含まれる主要な粘土鉱物の一つであり、その結合断裂面(エッジ表面)のモデル化に際 しては、エッジ表面が接する水溶液のpH条件に応じた官能基の変化を取り込む必要がある。そこ で本報告では、モンモリロナイト・エッジ表面の官能基ごとの酸解離定数を、第一原理電子状態 計算を用いて評価する。酸解離定数の計算手法としては、昨年度にH2Oに関して実施したBluemoonアンサンブル法 (Carter et al., 1989; Ciccotti et al., 2005; 日本原子力研究開発機構, 2018) を採用した。

はじめにモンモリロナイト・エッジ表面の初期構造を設定する。モンモリロナイトの層電荷は  $y = 0.5 (e^{-}/Si_4O_{10})$ として、過去に検討した表面エネルギーが小さく最も安定と考えられる{130} 面を対象とした(Sakuma et al., 2017)。計算コストを小さくするため、モンモリロナイトの最 小単位である106原子とし、その組成はNa<sub>2</sub>·(Al<sub>6</sub>Mg<sub>2</sub>)Si<sub>16</sub>O<sub>40</sub>(OH)<sub>8</sub>·8H<sub>2</sub>Oと記述される。ここで 8H<sub>2</sub>Oはエッジ表面で不安定なダングリングボンドを除去するために化学的に吸着させたH<sub>2</sub>Oであ り、層間やエッジ面近傍に存在するH<sub>2</sub>Oではない。モンモリロナイトの周りを75H<sub>2</sub>Oで取り囲み、 水環境下でのモンモリロナイト・エッジ表面の構造モデルを作成した(図3.3-17(a))。第一原理 計算を実施する準備として安定な初期構造を得るため、298.15 K, 0.1 MPaの*NTP*アンサンブルで 古典分子動力学計算を実施した。また第一原理MD計算は、Born-Oppenheimer MD(BOMD)法 を採用し、計算プログラムQuantum ESPRESSOで実施した。

はじめにMg – OH基の酸解離定数を評価するため、図3.3-17 (a)の右下八面体シートに表れているMgの周りのOH基について酸解離定数を計算した。プロトン配位数の拘束条件として $n_{\rm H}$  = 0.5 に設定した解析例を、図3.3-17(b)に示す。注目している酸素原子と周囲のプロトンとの二体相関関数 (pcf、左縦軸)を赤線で、また積算配位数 (ren、右縦軸)を青線で示す。設定配位数 $n_{\rm H}$ を変化させて同様の描画をすると、 $n_{\rm H}$  = 1.0の場合はOH間距離 $r_{\rm OH}$ が約1Åの位置にpcfの第一ピークが現れ、 $n_{\rm H}$ が小さくなるに従ってpcfの第一ピーク位置は大きくなる。これは、拘束条件付きMD計算によって、プロトン配位数が正しく制御されていることを示している。また図3.3-18は、Mg – 0のプロトン配位数の変化に対する自由エネルギーの微分値 (図(a)) と、これら微分値の変化を積分することによって求めた自由エネルギーの変化 (図(b)) である。図(a)を見ると、自由エネルギーの傾きは $n_{\rm H}$  < 1.0で負の値を示し、 $n_{\rm H}$  > 1.0で正の値を示すことがわかる。このことは、Mg – O基はプロトンを近づけると自由エネルギーとして安定になることを示唆している。また図(b)からわかるように、 $n_{\rm H}$  = 1付近で極小値を持ち、Mg – OHの形態で存在することが安定な状態であると言える。プロトン解離に伴う自由エネルギー変化は図(b)より、 $\Delta G^{0}$  = 52.65 kcal/molと見積もることができ、したがってMg – OH基の酸解離定数はp $K_{\rm a}$ (Mg – OH) = 28.8となる。このように酸解離定数が非常に高いため、想定される環境条件下では、プロトンは解離しないと言える。



図3.3-17 (a)第一原理分子動力学計算に用いたモンモリロナイトー水系の初期構造。エッジ表面 は{130}面を対象とする、(b)Mg-OH基を対象に拘束条件n<sub>H</sub> = 0.5を設定した場合のO-H間の二体 分布関数(pcf)と積算配位数(rcn)

同様な評価手法によりモンモリロナイト・エッジ表面のSi – OH基、Al – OH<sub>2</sub>基及びAl – OH – Al 基の酸解離定数を計算した結果、 $pK_a(Si – OH) = 6.3$ 、 $pK_a(Al – OH_2) = 5.7$ 及び $pK_a(Al – OH – Al) = 17.6$ となった。これらの結果から、次のようなモンモリロナイトエッジモデルが考えられる。

•酸性条件 (pH < 7) :  $\equiv$ Si - OH, - Mg - OH, = Al - OH<sub>2</sub>, = Al - OH - Al =

・アルカリ条件 (pH > 7) :  $\equiv$  Si - O, - Mg - OH, = Al - OH, = Al - OH - Al =

本解析で得られた酸解離定数の結果は、他の研究グループによる計算結果(Tazi et al., 2012; Liu et al., 2013; 2014)と比較すると、計算条件の違いはあるものの概ね整合的である。今後の課 題としては、本解析の結果に基づいてpH条件を考慮したモンモリロナイト・エッジ表面の構造モ デルを構築し、第一原理計算を用いてCs+などのイオンの吸着構造に関する解析を実施する。



図3.3-18 Mg-Oのプロトン配位数の変化に対する自由エネルギーの微分値(a)、及び自由エネル ギーの変化(b)

### 3.3.5 成果と今後の課題

本タスクでは、ニアフィールド環境の変遷や地下水条件等の地質環境の長期変遷等のうち、1) オーバーパックからの鉄が緩衝材中の核種移行へ及ぼす影響、2)セメント系材料の共存が緩衝材 や岩石中の核種移行に及ぼす影響、3)高炭酸濃度の地下水が岩石中の核種移行に及ぼす影響に着 目して研究を実施した。

鉄共存系での核種移行影響評価として、これまでに取得したFe(II)のモンモリロナイトへの分 配係数に基づき、鉄イオンによるモンモリロナイト中の表面錯体サイト飽和挙動を評価した。そ の結果、鉄腐食生成物固相の溶解度と表面錯体サイト飽和度の関係を整理し、収着競合が起こる 可能性のあるpH領域を示した。また、鉄腐食生成物によるSe<sup>2</sup>の保持挙動評価のため、Fe(II)鉱物 へのSe<sup>2</sup>の取り込み挙動及び結晶化に伴うSe<sup>2</sup>の保持挙動の変化をバッチ共沈試験により調査し、 初期pHが中性の場合、最終的にマグネタイトとともにフェロセライト(FeSe<sub>2</sub>)としてSeの取り 込みが生じることを確認した。今後は、鉄イオンにより収着サイトが飽和するpH領域での3-6価 核種の収着競合データの拡充と収着モデルパラメータの導出や、多様な条件でのFe(II)鉱物への Seの取り込みデータの取得、EXAFS等の分光学的手法を適用したFe鉱物へのSe取り込み形態の 解明を進める。

セメント共存系での緩衝材中の核種移行に重大な影響を与える因子として、モンモリロナイトのCa型化に伴う間隙構造変化とコロイドフィルトレーション機構への影響を抽出し、圧縮Ca型モンモリロナイト中のデンドリマーコロイド(直径約5.7 nm)の拡散データを、異なる乾燥密度や 塩濃度条件で取得した。その結果、乾燥密度1.2 Mg/m<sup>3</sup>以下の条件ではCa型モンモリロナイトか らのコロイドが破過することを確認し、コロイドの実効拡散係数が乾燥密度や塩濃度条件に依存 して変化することを示すデータを得た。今後は、より高密度条件でのコロイド移行・フィルトレ ーションデータの拡充と、これまでに取得してきたCa型(及びNa型)の間隙構造や核種移行特性 の環境条件依存性とも関連付けたコロイド移行特性の評価を進める。セメント系材料が岩石中の 核種移行へ与える影響として、高アルカリ間隙水が収着挙動に与える影響、二次鉱物への収着・ 共沈や、二次鉱物によるマトリクス拡散の阻害等に着目し、グリムゼル試験場や幌延URLなどの 原位置においてセメントと岩石の相互作用が生じていると考えられるセメントー岩石接触試料の 界面の変質状況に関する分析に着手した。今後は、グリムゼル試験場や幌延URLの試料の分析を 進め、「母岩中アルカリプルーム反応輸送挙動評価」の成果を活用したセメントによる岩石中の 移行経路の変遷評価とともに、そのような環境変遷が収着特性に与える影響を評価する手法を構 築する。

高炭酸条件下での核種移行モデルの開発としては、幌延URLの岩石・地下水条件において炭酸 錯体等の影響が顕在化する核種と、炭酸影響データが不足する条件を抽出し、炭酸条件等を制御 した岩石中の核種移行データの取得手法を整備しつつ、Am及びThのイライトへの収着データの 取得を実施した。その結果、炭酸共存による収着分配係数の低下と三元錯体形成を考慮する必要 性を確認した。また、分子動力学計算によるU(VI)やNp(V)の炭酸錯体の粘土鉱物層間へのアクセ ス性評価、第一原理計算による粘土鉱物エッジへの収着評価など、拡散・収着モデルを裏付ける 知見を得た。今後は、高炭酸条件での核種収着、拡散データの拡充に加え、先端的な分析技術や 計算科学技術によるメカニズムに関する知見を取得しつつ、高炭酸条件へ適用可能な核種移行評 価モデルと課題を提示する。

### 3.4 有機物・微生物の影響評価技術の開発

## 3.4.1 有機物影響評価技術の開発

### (1) 背景と目的

地下水に溶存する天然有機物には、カルボキシル基や水酸基等の酸性官能基を有し、金属イオ ンと安定な錯体を生成することが出来るものが存在する(Thurman, 1985)。高レベル放射性廃 棄物の地層処分システムにおいて、核種がそのような有機物と錯体を生成すると、地下水に対す る核種の見掛けの溶解度が上昇するとともに、母岩への核種の収着・拡散が抑制されて、核種移 行が促進される可能性がある(Artinger et al., 1998; 2003; McCarthy et al., 1998a; 1998b; Mahara and Kudo, 1995; Matsunaga et al., 2004; Maes et al., 2006)。一方、核種と天然有機物 との錯生成反応は、地下水に溶存する炭酸イオン等の無機配位子によって抑制される可能性があ る他(Pourret et al., 2007)、核種と天然有機物との錯体は母岩へ収着する可能性がある(Bryan et al., 2012)など、地下水中の天然有機物は必ずしも核種移行の促進に寄与するとは限らない。 そのため、核種移行に対する天然有機物の影響を評価するには、多様な水質の地下水における核 種と天然有機物との錯生成反応やその錯体の母岩中での移行を定量的に評価する必要がある。

日本原子力研究開発機構(2018)は、平成29年度までに、III価核種を主な対象に信頼性の高い 錯生成モデル・パラメータを開発し、それらを用いて降水系地下水条件における評価対象核種の 天然有機物への分配係数を整備するとともに、その分配係数を用いた性能評価解析から有機物に よる核種移行への影響をより現実的に評価した。その結果、核種移行は天然有機物により促進さ れるが、その地層処分システム性能に与える影響は限定的になる可能性を指摘した。一方、整備 した分配係数には不確実性がある他、過度に保守的なシナリオ(例えば、「有機錯体の母岩への 収着・拡散は考慮しない。」)を設けて評価を行っているなど、用いた影響評価手法には「信頼 性」や「現実性」の観点から課題があることを同時に指摘した。 本事業では、課題である影響評価手法の信頼性と現実性の向上を目的に、「1)核種-天然有機物錯生成モデルの開発」及び「2)核種-有機物-母岩三元系における核種収着モデルの開発」を計画した。具体的には、影響が顕在化する可能性が高いIV価核種やモデル未整備の核種を対象に、モデルの適用範囲を広げるとともに、天然有機配位子としての腐植物質の代表性確認やパラメータ設定手法の開発から、天然有機物の多様性を考慮した評価手法を開発する。また、核種移行評価への展開の観点から、核種-有機物-母岩三元系における核種収着モデルの開発に取り組む。

- 1) 核種と天然有機物との錯生成モデルの開発
- ・モデル適用核種の拡充: IV価核種、モデル未整備の核種
- ・ 有機物の多様性への対応: 腐植物質の代表性、モデルパラメータの設定手法
- 2) 核種-有機物-母岩三元系における核種収着モデルの開発
- ・二元系(核種-岩/核種-有機物/有機物-岩)モデルの加成則性の確認
- ・二元系における反応の瞬時・可逆性の把握

本年度は、文献調査及び室内試験により、IV価核種と天然有機物との錯生成データの取得やその錯生成反応機構の把握から、モデル高度化の検討とパラメータ整備を行った。また、文献調査 を通して、二元系モデルの加成則や各二元系における反応の瞬時・可逆性に関わる現状と課題を 整理し、核種-有機物-岩三元系モデルの開発に向けての課題を抽出した。

# (2) 実施内容

### 1) 核種と天然有機物との錯生成モデルの開発

有機物影響を考慮した性能評価の実施に当たっては、多様な地下水条件での核種と腐植物質と の錯生成を高い信頼性をもって評価する必要がある。NICA-Donnanモデル(式3.4-1)は、金属イ オンと腐植物質との相互作用に特徴的な錯生成反応の不均一性(非線形性)と静電相互作用を考 慮することで、熱力学モデルに類似した評価が可能であり(Kinniburgh et al., 1996; Benedetti et al., 1996; Koopal et al., 2005)、これまでに日本原子力研究開発機構(2013)は、多様な地下 水条件での錯生成評価に用いるモデルとして、このNICA-Donnanモデルを暫定的に選定してき た。しかし、NICA-Donnanモデルは、錯生成試験から取得したデータセットへのモデルの当ては め(フィッティング)によってモデルパラメータを設定していることから、フィッティングに用 いたデータセットから外れる条件(例えば、異なる腐植物質、高pH条件、低い核種濃度など)で の錯生成評価に対しては、評価の信頼性を十分担保できないという課題がある。本事業では、 NICA-Donnanモデルを対象に、深部地下水から分離・精製した腐植物質等へのIII・IV価核種の 錯生成データへのモデルの適用性を調査し、この結果を踏まえ、モデルの高度化、モデルパラメ ータの整備を進める。

$$Q_{i} = \frac{n_{i1}}{n_{H1}} \cdot Q_{\max 1,H} \cdot \frac{\left(\tilde{K}_{i1}C_{i}\right)^{n_{i1}}}{\sum_{i} \left(\tilde{K}_{i1}C_{i}\right)^{n_{i1}}} \cdot \frac{\left[\sum_{i} \left(\tilde{K}_{i1}C_{i}\right)^{n_{i1}}\right]^{p_{i1}}}{1 + \left[\sum_{i} \left(\tilde{K}_{i1}C_{i}\right)^{n_{i1}}\right]^{p_{i1}}} + \frac{n_{i2}}{n_{H2}} \cdot Q_{\max 2,H} \cdot \frac{\left(\tilde{K}_{i2}C_{i}\right)^{n_{i2}}}{\sum_{i} \left(\tilde{K}_{i2}C_{i}\right)^{n_{i2}}} \cdot \frac{\left[\sum_{i} \left(\tilde{K}_{i2}C_{i}\right)^{n_{i2}}\right]^{p_{2}}}{1 + \left[\sum_{i} \left(\tilde{K}_{i1}C_{i}\right)^{n_{i1}}\right]^{p_{2}}}$$
(3.4-1)

$Q_{ m i}$	:有機物に結合した金属イオンiの濃度 [mol g <sup>-1</sup> ]
$C_{ m i}$	: 遊離体の金属イオン濃度 [mol dm <sup>-3</sup> ]
$Q_{ m max1,H}$	: 結合サイト1の濃度 [meq g <sup>·1</sup> ]
$Q_{ m max2,H}$	: 結合サイト2の濃度 [meq g <sup>·1</sup> ]
$\log K_{ m i1}$	:金属イオンiの結合サイト1に対する親和定数(結合定数)
$\log K_{ m i2}$	:金属イオンiの結合サイト2に対する親和定数(結合定数)
$nH_1$	:H+結合サイト1の不均一パラメータ
$nH_2$	:H+結合サイト2の不均一パラメータ
<i>n</i> <sub>i1</sub>	: 金属イオンiに対する結合サイト1の不均一パラメータ
<i>n</i> <sub>i2</sub>	: 金属イオンiに対する結合サイト2の不均一パラメータ
$p_1$	:結合サイト1の親和性分布幅
$p_2$	:結合サイト2の親和性分布幅

### ① IV価核種と天然有機物との錯生成モデルの開発

## (a) Zr(IV)と地下水中の溶存腐植物質との錯生成データ取得とNICA-Donnanモデルの当てはめ

日本原子力研究開発機構(2018)は、流動場分画法(flow-field flow fractionation, FI-FFF)と 誘導結合プラズマ質量分析(ICP-MS)を組み合わせたFFF-ICP-MSを用いて、Zr(IV)と幌延深地 層研究センターの深度250m(09-V250-M02孔)の地下水から分離精製したフミン酸(HHA)と の錯生成データを取得し、そのNICA-Donnanモデルパラメータを整備した。一方、地下水中の腐 植物質は、フミン酸だけでなくフルボ酸によって構成されるため、HHAの錯生成データのみから IV価核種と腐植物質との錯生成評価が可能になるとは限らない。そのため、フルボ酸についても 同様に、Zr(IV)の錯生成データを取得し、NICA-Donnanモデルパラメータを整備する必要がある。 本調査では、FFF-ICP-MS法を用いて、同地下水から分離精製したフルボ酸(HFA)とZr(IV)と の錯生成データを取得し、そのデータへのNICA-Donnanモデルの当てはめからモデルパラメー タを算出した。

FFF-ICP-MS法によるZrと腐植物質(HS)との錯生成データ取得では、Zrの遊離体、加水分解 種、Zr-EDTA錯体はFFFチャンネル内の限外ろ過膜(分画分子量:300 Da)を透過するが、Zr-HS錯体は透過しないことが前提である。そのためFFF-ICP-MS法の適用に当たり、手法の前提と なるZr-EDTA錯体等及びZr-HS錯体の限外ろ過膜に対する透過性について調査した。図3.4-1に、 pH5及び6におけるHFA/EDTA、Zr<sup>4+</sup>/EDTA、Zr<sup>4+</sup>/HFA/EDTA共存試料のUV-Vis(HFA)とICP-MS(Zr)検出から取得したフラクトグラムを示す。その結果、pH5と比べてpH6の条件では、HFA はFFFチャンネル内の膜を透過しないこと(図3.4-1(a),(d))、Zr-EDTA錯体は膜を透過すること (図3.4-1(b),(e))、Zr-HFA錯体は膜を透過しないこと(図3.4-1(c),(f))を確認した。しかし、分 離条件が良好なpH6に条件においてさえ、膜を透過しないHFAの割合(回収率)は、全HFAの30% 程度であり、FFF-ICP-MS法により取得できるZrとHFAとの錯生成データがHFAの一分画に限ら れることが分かった。同条件の下、FFF-ICP-MSによって取得したHHAの回収率は50%程度あり、 それと比べてHFAの回収率は著しく低い。この原因として、HFA(0.30 nm)とHHA(0.55 nm) との分子サイズの違い(Saito et al., 2015)及びFFFチャンネル内の限外ろ過膜との相互作用が 考えられた。



図3.4-1 HFA/EDTA (a, d)、Zr<sup>4+</sup>/EDTA (b, e)、Zr<sup>4+</sup>/HFA/EDTA (c, f)共存試料のUV-Vis (HFA)とICP-MS (Zr)検出から取得したフラクトグラム

FFF-ICP-MS法により取得したZrとHFAとの錯生成データを用いて、Zr<sup>4+</sup>とHFAとの条件付き 平衡定数(K<sub>c</sub>)を算出した。K<sub>c</sub>はZr<sup>4+</sup>がHFAのカルボキシル基サイトと1:1で錯生成反応するこ とを仮定した平衡定数であり、その対数値(logK<sub>c</sub>)の算出は、Zr<sup>4+</sup>-EDTA錯体とZr<sup>4+</sup>-HFA錯体と の交換反応の平衡定数(logK<sub>exch</sub>)とZr<sup>4+</sup>とEDTAとの錯生成の平衡定数(logK<sub>ZrEDTA</sub>= 29.25, Morel et al., 1993)とを用いて、式(3.4-2)から行った(Stern et al., 2014)。

$$\log K_{\rm c} = \log K_{\rm exch} + \log K_{\rm ZrEDTA} \tag{3.4-2}$$

算出したlogKcの値を表3.4-1に示す。logKcの値は、Zr<sup>4+</sup>濃度の減少により増加し、Zr<sup>4+</sup>が腐植物 質の親和性の高い結合サイトへ優先的に結合することを確認した。一方、HHAにおいて観察され るpHの上昇によるlogKcの増加は、HFAでは観察されなかった。一般に、pHの上昇によって腐植 物質の酸性官能基の解離が進むため、腐植物質への金属イオンの結合は促進されることになるが、 今回の結果は、この一般的な傾向と一致しないことを示唆している。この理由として、pHによる HFA回収率の変化(pH5では約4%、pH6では30%)によって、Zr<sup>4+</sup>結合量の異なるHFAが分画さ れ、その結果、異なるpHにおいてlogKcが近似したものと考えられた。

HS pH	$C_{\mathrm{T, Zr}}$	$\begin{bmatrix} \text{COOH} \end{bmatrix}$		$\log K_{ m c}$	出典	
		(µmol am )				
HFA	5.0	0.110	1026	-5.03	24.2	本研究
		0.055	2051	-3.89	25.4	本研究
	6.0	0.110	1026	-5.10	24.1	本研究
		0.055	2051	-4.81	24.1	本研究
		0.022	5127	-4.26	25.0	本研究
HHA	5.0	0.110	796	-8.89	20.4	日本原子力研究開発機構, 2018
		0.055	1593	-8.79	20.5	日本原子力研究開発機構, 2018
		0.022	3982	-8.41	20.8	日本原子力研究開発機構, 2018
	6.0	0.110	796	-7.3	21.9	日本原子力研究開発機構, 2017
		0.055	1593	-7.2	22.1	日本原子力研究開発機構, 2017
		0.022	3982	-6.2	23.0	日本原子力研究開発機構, 2017

表3.4-1 HFAへのZr4+結合反応の条件付き平衡定数とHHAの値との比較

<sup>1</sup>腐植物質のカルボキシル基サイトのモル濃度とZr濃度との比.

 $^{2}$ NaClO<sub>4</sub> = 5 mmol dm<sup>-3</sup>,  $C_{T,HHA}$  = 20 mg dm<sup>-3</sup>,  $C_{T,EDTA}$  = 0.25 µmol dm<sup>-3</sup>.

FFF-ICPMS法を用いて得られたHFAへのZr<sup>4+</sup>の結合量データへのNICA-Donnanモデルのフ ィッティング結果を図3.4-2に、最適化されたNICA-Donnanモデルのパラメータを表3.4-2に示す。 このフィッティングでは、pH5と6及び0.022~0.110  $\mu$ mol dm<sup>-3</sup>のZr<sup>4+</sup>濃度条件から得られた結合 量データを対象としたことから、カルボキシル基サイト (Site 1) への結合のみを考慮した。また、 EDTAへのH+とZr<sup>4+</sup>の結合反応、Zr<sup>4+</sup>の加水分解反応についても考慮した。フィッティングの結果

(図3.4-2)から、モデルがHFAに対するZr<sup>4+</sup>の結合量データを再現することを確認した。また、 表3.4-2より、最適化されたカルボキシル基サイトへのZr<sup>4+</sup>の結合反応の生成定数(logK<sub>1</sub>)の値は、 Cu<sup>2+</sup>の値(Saito et al., 2015)よりも大きくなり、Zr<sup>4+</sup>に対してHFAの親和性が高いことを示し た。また、結合反応における金属イオン固有の非理想性を表す $n_1$ の値は、Zr<sup>4+</sup>に対して0.22となり、 Cu<sup>2+</sup>の値( $n_1=1$ )と比べて小さい。HFAに対するH<sup>+</sup>及びCu<sup>2+</sup>の結合等温線の評価から、HFAの カルボキシル基サイトは化学的に均質で、Cu<sup>2+</sup>との結合は1:1反応であることが結論づけられて

いる(Saito et al., 2015)。従って、Zr<sup>4+</sup>に 対して得られた*m* = 0.22は、IV価金属イオ ンとの結合に対してHFAの非理想性が大き いことを意味しており、HFAが高次構造の 変化等を伴ってZr<sup>4+</sup>と多座配位する可能性 を示唆している。さらに、HFAとHHAとを 比較すると、Cu<sup>2+</sup>に対するlogK<sub>1</sub>の値は、大 きな相違が観察されないのに対し、Zr<sup>4+</sup>に対 するlogK<sub>1</sub>は、HFAにおいて2程度小さい値 を示すことが分かった。この結果は、金属イ オンに対するHFAとHHAとの結合能が、IV 価金属イオンでは異なる可能性があること を示唆している。一方、以上のHFAの結合 パラメータは、HFAの低い回収率における 結合量データに対して最適化されたことか



図3.4-2 FFF-ICPMS法を用いて得られたHFA へのZr<sup>4+</sup>の結合量データへのNICA-Donnanモデ ルのフィッティング結果

ら、信頼性は低い可能性がある。そのため、信頼性の高いHFAの結合パラメータの整備に向けて、 FFF-ICPMS法におけるHFA回収率を向上させる必要がある。しかし、FFFチャンネル内の限外 ろ過膜を300 Da以下のものへと変更することが、系が高圧になるため流動場制御の観点から難し いことから、IV価核種と腐植物質との錯生成データ取得において実績のあるキャピラリー電気泳 動(CE)とICP-MSを連結させたCE-ICP-MS法等の適用について検討する必要があるものと考え られた。

HFA <sup>1</sup>	Substrate parameter <sup>3</sup>					
	Donnon h	$Q_{ m r}$	nax,H		p	
	Donnan, D	Site1	Site2	Site1	Site2	
	0.87	5.64	4.09	1	0.270	
		Ion	specific parame	ters		
	Ion	$\log K_1$	$n_1$	$\log K_2$	$n_2$	
	H+	3.63	1	10.48	1	
	$Cu^{2+}$	1.16	1	15.05	0.29	
	$ m Zr^{4+}$	6.1(8)	0.22(0.2)	_	_	
$HHA^2$		Substrate paramet		zer <sup>3</sup>		
	Donnan, <i>b</i>	$Q_{ m max,H}$			p	
		Site1	Site2	Site1	Site2	
	0.81	4.38	4.44	1	0.355	
		Ion-specific paramet		ters		
	Ion	$\log K_1$	$n_1$	$\log K_2$	$n_2$	
	$\mathrm{H}^{+}$	3.74	0.82	10.62	1	
	$Cu^{2+}$	1.32	1	14.43	1	
	$ m Zr^{4+}$	8.2(6)	0.28(0.2)	—	—	

表3.4-2	Zr4+のHFAへの結合について最適化されたNICA-DonnanモデルパラメータとHHAにつ
	いて最適化されたパラメータとの比較

1) H<sup>+</sup>及びCu<sup>2+</sup>: Saito et al., 2015、Zr<sup>4+</sup>:本調査

2) H<sup>+</sup>及びCu<sup>2+</sup>: Saito et al., 2015、Zr<sup>4+</sup>:日本原子力研究開発機構, 2018.

3) Substrate parameter : Saito et al., 2015

## (b) Th(IV)と腐植物質との錯生成反応機構とモデルパラメータの整備

深部地下水中の腐植物質を対象としたIV価核種との錯生成データについては、(a)に記載した 通り、Zr(IV)についてその整備を進めている。一方、これまでにAldrich社製フミン酸やElliot土壌 フミン酸を対象に、IV価核種に対する錯生成データが報告されている(Sasaki et al., 2012; Stern et al., 2014)。これまでに日本原子力研究開発機構(2017)は、それらの報告されたTh(IV)のデ ータについて、NICA-Donnanモデルの当てはめから、モデルパラメータの整備を進めてきた。し かし、モデルで想定する化学形態(Th<sup>4+</sup>)と実際の化学形態(Th(IV)の加水分解種)とは異なる 可能性があったことから、最適化されたパラメータの信頼性には課題があった。一方、U(IV)と腐 植物質との錯生成反応では、U(IV)が加水分解し、その結果生じる多核種と腐植物質とが結合する 可能性が指摘されている(Marsac et al., 2014)。この化学形態は、NICA-Donnanモデルでは、 考慮されていないものであり、パラメータ最適化の課題となっている可能性が考えられた。そこ で、本調査では、これまでに検討したTh(IV)とAldrich社製フミン酸との錯生成データ(Sasaki et al., 2012)について、化学量論解析を行うことで、各pH条件におけるTh(IV)多核種の錯生成への 寄与を調査した。

Th(IV)と腐植物質との錯生成反応における化学量論係数(*n*)の評価は、U(IV)の解析事例に倣って行った(Marsac et al., 2014)。係数*n*のThがフミン酸(HA)の結合サイト(L)と反応する場合、その化学平衡は、以下として記述でき、

$$n\mathrm{Th} + \mathrm{L} = \mathrm{Th}_{n}\mathrm{L} \tag{3.4-3}$$

条件付き錯生成定数Kexpは、以下の様に記述することができる。

$$K_{\exp} = \frac{[\text{ThnL}]}{[\text{Th}]_{\text{eq}}{}^{n}[\text{L}]} = \frac{[\text{ThL}]/n}{[\text{Th}]_{\text{eq}}{}^{n}[\text{L}]}$$
(3.4-4)

ここで、 $[Th]_{eq}$ は、HAと結合していないThであり、Th<sup>4+</sup>の他、加水分解種が含まれる。[ThnL]は、Lに結合したn核のTh多核種の濃度(mol dm<sup>-3</sup>)であり、HAに結合したTh全濃度([ThL])をnで割った値として記述できる。[L]は、Thと結合していないHAの結合サイト濃度(eq dm<sup>-3</sup>)である。上記の式の両辺の対数をとって、整理すると、以下の式が得られる。

$$\log \frac{[\text{ThL}]}{[\text{L}]} = \log K_{\text{exp}} + \log n + n \log[\text{Th}]_{\text{eq}}$$
(3.4-5)

[L]は、Thと結合していない結合サイト濃度であり、本来、仮定した化学量論係数とLの総濃度 から算出する。しかし、本調査では、化学量論係数を評価するため、[L]を算出できない。そこで、 既往の文献(Marsac et al., 2014)に従って、[L]を任意のpHにおけるHAの解離基総濃度(CRa) として算出を行った。この時、式(3.4-5)は、CRaを用いて、以下の通り記述される。

$$\log \frac{[\text{ThL}]}{C_{\text{R}}\alpha} = \log K_{\text{exp}} + \log n + n\log[\text{Th}]_{\text{eq}}$$
(3.4-6)

 $log[Th]_{eq}$ に対して、  $log[ThL]/C_{R\alpha}$ をプロットし、その傾きから、nを評価した。

図3.4-3に、Th(IV)とフミン酸との錯生成における化学量論係数nの評価結果を示す。Aldrich社 製フミン酸及びElliot土壌フミン酸の双方について、pH3.6~4.8ではn < 1、pH5.8ではn = ~1、 pH7.4以上ではn > 1となり、pHの上昇とともにnが増加することが分かった。nは1モル当たりの Lに結合するTh(IV)のモル数であることから、以上の結果は、Th(IV)とHAの結合サイトLとの結 合反応がpH3.6~4.8では1:2及び1:1、pH5.8では1:1、pH7.4以上では6~12:1で起こること を示唆している。特に、pH7.4以上では、6~12核のTh(IV)の多核種がHAと結合することになり、 NICA-Donnanモデルでは想定されない相互作用が存在することを示唆している。従って、Th(IV) とHAとの錯生成データへのNICA-Donnanモデルの当てはめでは、pH5.8以下の錯生成データの みが有効になるものと考えられた。そこで、pH5.8以下の錯生成データを対象に、NICA-Donnan モデルの当てはめを行った。



図3.4-3 Th(IV)とフミン酸との錯生成における化学量論係数nの評価結果. (a,b) Aldrich社製フミン酸、(c,d) Elliot土壌フミン酸

図3.4-4にpH4.0~5.8におけるTh<sup>4+</sup>とAldrich 社製フミン酸との錯生成データへのNICA-Donnanモデルの当てはめの結果を示す。錯生成データとモデルとの間の相関係数 (R<sup>2</sup>) は、0.82 となり(図3.4-4a)、モデルが錯生成反応を概ね良好に再現することを確認した。また、各pH条 件における結合等温線(log[Th<sup>4+</sup>] とlog[Th<sup>4+</sup>] bound との関係)へのモデルの当てはめ結果から(図 3.4-4b)、pH5.8ではモデルと錯生成データとの解離が大きくなることを確認し、酸性pH領域ほ どモデルの再現性が高いことを確認した。一方、pH4.0~8.0のデータに対してモデルを当てはめ た結果(R<sup>2</sup> = 0.79:日本原子力研究開発機構, 2017)と比べると、本調査から得られた相関係数 はわずかに改善した。この結果は、多核種との錯生成が想定されるデータを、本調査では棄却し たことによるものと考えられるが、データ棄却前後における相関係数の差は小さいことから、モ デルの当てはめへの多核種の影響は限定的であると考えられる。

表3.4・3に、pH4.0~5.8におけるTh<sup>4+</sup>とアルドリッチ社製フミン酸との結合におけるNICA-Donnanモデルパラメータを示す。ここでは、pH4.0~5.8の弱酸性領域における錯生成反応を取 り扱うため、低親和性サイトであるカルボキシル基サイト(Site 1)への結合のみを仮定して、モ デルパラメータを評価した。その結果、logK1及びm値は、当てはめに用いたデータの相違(pH4.0 ~5.8とpH4.0~8.0との錯生成データ)に関わらず、ほぼ同程度になり、Th(IV)多核種との錯生成 反応によるパラメータへの影響は限定的になることが分かった。一方、他の金属イオンについて 整備したlogK1の値と比較すると、Th<sup>4+</sup>に対するlogK1の値は、Cu<sup>2+</sup>やEu<sup>3+</sup>の値と同程度になるこ とが分かった。一般に、これら金属イオンの第一加水分解定数から予測されるTh<sup>4+</sup>のlogK1の値は、 Cu<sup>2+</sup>やEu<sup>3+</sup>の値と比べて大きくなる。事実、幌延の地下水から分離・精製したフミン酸(HHA) へのZr<sup>4+</sup>の結合におけるlogK1の値(表3.4・2)は、Cu<sup>2+</sup>の値と比べて8倍程度大きい。従って、本 調査から得られたTh<sup>4+</sup>のlogK1の値は有意に小さいと考えられる。この理由は、当てはめに用いた Th<sup>4+</sup>の錯生成データはCu<sup>2+</sup>やEu<sup>3+</sup>のものと同定であったことから、モデルやその当てはめの問題 ではなく、Th<sup>4+</sup>の錯生成データ自身に由来しているものと考えられた。今後、信頼性の高いNICA-Donnanモデルパラメータの整備に向けて、信頼性の高いIV価金属イオンと腐植物質との錯生成 データの整備を進める必要があるものと考えられた。



図3.4-4 pH4.0~5.8におけるTh<sup>4+</sup>とAldrich社製フミン酸(PAHA)との錯生成データへの NICA-Donnanモデルの当てはめの結果

表3.4-3	Th <sup>4+</sup> とアルドリッチ社製フミン酸との結合におけるNICA-Donnanモデルパラメータと
	他の金属イオンとの結合におけるパラメータとの比較

		出典				
	Donnon h	$Q_{ m max,H}$		ŀ	)	
	Dominan, D	Site1	Site2	Site1	Site2	
	0.63	2.99	2.66	0.89	0.38	Saito et al., 2004
		Ion-speci	fic parame	eters		
Data	Ion	$\log K_1$	$n_1$	$\log K_2$	$n_2$	
nH4 0~5 8		2.57	0.45		_	<b>十</b> 週本
p114.0 <sup>~5</sup> .8	1111	(0.88)	(0.06)			平明旦
pH4.0~8.0	$\mathrm{Th}^{4+}$	3.16	0.46	6.37	0.28	日本原子力研究開発機構, 2017
	$\mathrm{H}^{+}$	3.53	0.66	7.95	0.66	Saito et al., 2004
	$Cu^{2+}$	2.26	0.42	6.96	0.47	Saito et al., 2004
	Eu <sup>3+</sup>	2.73	0.63	4.41	0.33	日本原子力研究開発機構, 2017

## 2) 核種-有機物-岩三元系における核種収着モデルの開発

天然有機物による核種移行への影響を現実的に評価するには、核種の岩石への収着に対する天 然有機物による影響を定量的に評価する必要がある。しかし、この定量評価には、核種-天然有 機物-岩三元系における核種収着モデルが不可欠となるが、現在、有用なモデルは存在しない。 そのため、核種-天然有機物-岩三元系における核種収着モデルの開発に向けて、金属イオン-天然吸着媒(岩、土壌、堆積物など)、金属イオン-天然有機物、天然有機物-天然吸着媒の二元 系モデルの加成則アプローチの検討とともに、速度論モデルの適用を念頭に各二元系における反 応の瞬時・可逆性について調査が進められている。本調査では、これまでに研究が進められてき た二元系モデルの加成則性と各二元系における反応の瞬時・可逆性について既往の文献を調査し、 核種-天然有機物-岩三元系における核種収着モデルの開発に向けた課題を抽出する。

## ① ニ元系モデル(核種-岩/核種-有機物/有機物-岩)の加成則性

金属イオンー天然有機物ー天然吸着媒三元系における金属イオンの収着モデルの開発に向けて、 金属イオンー天然吸着媒、金属イオンー天然有機物、天然有機物ー天然吸着媒の二元系モデルの 加成則アプローチが検討されている。このアプローチは、独立した三つの二元系モデルを足し合 わせることで、天然吸着媒への金属イオンの吸着量を算出する手法であり、既存の二元系モデル やパラメータを多元系に展開できる可能性があることから様々な三元系における金属イオンの収 着モデリングへの適用が検討されている。このアプローチは、任意の二元系相互作用が他の二元 系相互作用に影響しないことが前提となる。例えば、金属イオンの存在によって天然有機物の収 脱着性が変化しないこと、天然有機物は収着脱着によってその錯生成能に変化が生じないこと、 岩石をはじめとする天然吸着媒は有機物の収着脱着によって金属イオンの吸着脱着機能が変化し ないことが挙げられる。しかし、実際の三元系においては、各二元系の反応は相互に影響し、加 成則アプローチの前提が成立する条件は必ずしも多くはない。これまでに、腐植物質共存下にお ける粘土鉱物(カオリナイト、モンモリロナイト、イライト他)や金属酸化物(ゲーサイト、ヘン マタイト、ギブサイト他)への金属イオンの収着モデリングへの加成則アプローチの適用性が調 査されている(例えば、Rihetto et al., 1991; Zachara et al., 1994; Fairhurst et al., 1995a, 1995b; Vermeer et al., 1999; Samadfam et al., 2000; Christl and Kretzschmar, 2001; Sakuragi et al., 2004; Heidmann et al., 2005; Lippold et al., 2005; Saito et al., 2005; Weng et al., 2008; Lippold • Lippmann-Pipke, 2009; Alessi · Fein, 2010; Bruggeman et al., 2010; Kar et al., 2011; Xiong et al., 2015)。その結果の多くは、実験から評価した金属イオンの鉱物への収着量が、二元系モデ ルの加成則アプローチから予測される収着量よりも高くなることを指摘している。この実験値と 計算値とが解離する理由として、モデルで記述されない鉱物表面電荷へ金属イオンが結合する影 響(Robertson, 1996; Saito et al., 2005)や吸着にともなう腐植物質の分画化の影響(吸着した腐 植物質と溶存した腐植物質との化学特性の相違)が指摘されている(Tipping et al., 1983; Amal et al., 1992; Au et al., 1999; Eita, 2011; Janot et al., 2011; Janot et al., 2012) 。このうち、分 画化の影響については、比較的均質なフルボ酸(Heidmann et al., 2005)や高濃度のフミン酸

(Bruggeman et al., 2010)を用いた場合に、分画化の影響が抑制されて、加成則アプローチによるモデリングが成功することから、実験的にその影響の寄与が確認されている。また、吸着による腐植物質の分画化の影響をより詳細に調査する目的で、三元系における金属イオンの収着機構に関わる研究が展開されている。Janot et al. (2011)は、レーザー分光法を用いて酸化アルミニウム(α-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)に吸着した腐植物質とEu(III)との相互作用を調査し、酸性pH領域ではEu(III)が主に腐植物質と錯体を生成して収着することを確認するとともに、腐植物質の脱着が大きく促進する塩基性pH領域においても、鉱物表面にわずかに収着した腐植物質がEu(III)の収着に強い影響を与えることを見出している。これは、鉱物表面に腐植物質が収着すると、金属イオンの吸着過程や腐植物質の立体構造が変化することで、金属イオンに対して高い親和性を持つサイトが形成されることに起因するものと推察されている。

一方、以上の研究は、金属イオン-腐植物質-鉱物三元系における金属イオンの収着モデルの 開発を念頭に、加成則アプローチの成立性を調査したものであり、多様な鉱物や有機物によって 構成される実際の岩石や天然有機物を想定した三元系を対象としていない。実際の深部地下環境 においては、反応前の有機物と粘土鉱物が、実験室のように存在することはなく、それらが既に 相互作用した反応後の状態で存在している(図3.4-5)。また、地下水と堆積岩とに存在する有機 物の分布は、地下水と岩石との間における有機物の吸着平衡の結果だけでなく、有機物の続成作 用の結果として存在している可能性がある(Shen et al., 2015)。さらに、岩石に存在する有機物 には、岩石と収脱着可能なものと不可能なもの(例えば、腐植物質のヒューミン分画など)とが 存在する場合がある(図3.4-5)(Forsman and Hunt, 1958)。しかし、核種-天然有機物-岩石 三元系における加成則アプローチの成立性を調査した事例は少なく(Joseph et al., 2011; 2013; Seida et al., 2010;日本原子力研究開発機構, 2013)、上記の影響についての知見は十分得られて いない。特に、地下水と岩石との間での天然有機物の分布が吸脱着平衡によるものかの確認、地 下水中の溶存有機物と岩石から脱着した有機物との錯生成反応や岩石基質に対する収着脱着の違 いの確認、核種存在下での地下水と岩石との間での天然有機物の分布の確認は、加成則アプロー チから実際の地質環境における核種-天然有機物-岩三元系における核種収着モデルを開発する 点において不可欠であるが(図3.4-5)、これまでにそれらに関するデータは得られていない。従 って、これらデータ取得は、今後、取り組むべき課題になるものと考えられる。

ニアフィールド		ファーフィールド		加成則性成立における課題
酸性pH	した しょーミン 吸着有機物 溶存腐植物質	使性pHの地下水が移行し、 中性pHの地下水・岩と接 触する。その後、中性pHの 地下水組成となる。		〇溶存有機物と吸着有機物およびヒュー ミンとの錯生成能は、同じか? 〇核種が存在しても、地下水中の溶存有 機物と岩石中有機物の分布は、変化しないか?
中性рН	し し し し し し し し し し し し し	中性pHの地下水と核種が 移行し、中性pHの地下水・ 岩と接触する。地下水組成 は変化しない。	し し し し こ し し し し し し し し し し し し し	〇溶存有機物と吸着有機物およびヒュー ミンとの錯生成能は、同じか? 〇核種が存在しても、地下水中の溶存有 機物と岩石中有機物の分布は、変化しないか?
塩基性pH	オ         ビューミン           溶存腐植物質         脱高有砚物	塩基性pHの地下水が移行 し、中性pHの地下水・岩と 接触する。その後、中性pH の地下水組成となる。		〇溶存有機物と吸着・脱着有機物および ヒューミンとの錯生成能は、同じか? 〇ニアフィールドで脱着した有機物は、 ファーフィールドで吸着有機物が存在する 岩へ収着するか? 〇核種が存在しても、地下水中の溶存有 機物と吸脱着有機物の分布は、変化しないか?

図3.4-5 ニアフィールドからファーフィールドへの地下水流動に伴って想定される有機物と岩 との相互作用の変化と加成則性成立における課題

# ② 二元系における反応の瞬時・可逆性

## (a) 金属イオンと天然有機物との錯生成反応と解離反応

金属イオンと天然有機物との錯生成反応の速度については、ストップ-フロー測定により腐植物 質の酸性官能基と溶液間での金属イオンの交換速度が調査されており、その値はミリ秒スケール になることが報告されている(Eidner and Kumke, 2008)。また、腐植物質の嵩張った構造に存 在する溶液との間での交換速度は、更に速くなると考えられており、その様な嵩張った構造は、 高分子量の腐植物質や低分子量の腐植物質の会合によって形成されると考えられている。一方、 解離反応の速度については、イオン交換樹脂を用いた天然有機物からのEu(III)の脱離試験によっ て調査されており、その値は時間単位になることが報告されている(Geckeis et al., 2002)。こ の時、腐植物質と結合したEu(III)の内、約50%がイオン交換樹脂に移行するが、1~2週間の後に は、残りのEu(III)もその大部分が解離することが確認されている。しかし、分離・精製を行って いない未分画の天然有機物に結合している微量金属の解離反応速度は、日単位となり、かなりゆ っくり進行することが明らかにされている。この時、Sr(II)では約100%、Pb(II)では約80%、Eu(III) では約50%、U(IV)では約50%、Th(IV)では約20%が、不可逆に結合した部分を残して、解離する ことが確認されている。以上の結果は、分離・精製した腐植物質と未分画の天然有機物とでは、 解離反応機構が異なること、及び、高価数核種ほど未分画の天然有機物と不可逆に結合する割合 が高くなることを指摘している。従って、三元系における核種収着モデルの開発に向けて、以上 の知見から抽出される課題は、「IV核種と腐植物質との錯生成反応における瞬時・可逆性の確認」 と「未分画の天然有機物に結合した核種の解離反応機構の解明」と言える。このような背景を踏 まえ、後者の課題について既に研究が展開されており、腐植物質が金属酸化物に吸着することに より不可逆なサイトが形成される可能性について検討が行われている。Wang et al. (2005) は、 イオン交換樹脂を用いて、フミン酸で被覆された酸化アルミニウムコロイド (γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) に不可逆 に結合する<sup>243</sup>Amの割合を評価し、pHの上昇とともに、その割合が増加することを報告した。し かし、深部地下水において、無機コロイドと複合化した天然有機物が存在するのか、また、その 様な天然有機物がどの程度不可逆な結合に寄与しているのかは不明であり、今後、反応機構の解 明に向けて深部地下水に存在する未分画の天然有機物の特性評価研究を進める必要があると考え られる。

### (b) 金属イオンの天然吸着媒への収脱着反応

金属イオンの添加順序によって、三元系の平衡状態が異なることが報告されている。Cm(III)を 予めy-Al2O3に収着させた系にフミン酸を添加した場合とフミン酸とCm(III)とが錯生成平衡にあ る系にγ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>を添加した場合とについて、Cm(III)の吸着量と時間との関係を、レーザー分光法を 用いて調査したところ、数時間までは吸着量に相違が観察されるが、11日後には両系における Cm(III)吸着量は同じになることが確認されている(Wang et al., 2004)。近年では、III価金属イ オンについては収脱着反応の定量評価モデルが報告されている(Peng et al., 2018)。一方、IV価 の金属イオンは、添加順序の違いによって、三元系の平衡状態は明瞭に異なることが報告されて いる(Takahashi et al., 1999; Reiller et al., 2005; Bouby et al., 2011)。腐植物質と鉱物とが収 着平衡にある系にIV価金属イオンを添加した場合とIV価金属イオンと鉱物が収着平衡にある系 に腐植物質を添加した場合とでは、後者においてIV価金属イオンの液相への溶出量は著しく低下 する。この理由として、腐植物質の収着にともなう分画化の影響(錯生成能が高い腐植物質分画 の優先吸着) (例えば、Guo et al., 2002; Quigley et al., 2002) や鉱物構造内への取り込みによる 影響(例えば、Romanchuk et al., 2002)が挙げられている。しかし、双方が影響している場合も あり、IV価金属イオンの鉱物に対する不可逆な収着が起こる機構の詳細な理解は得られていない。 このため、鉱物をはじめとする天然吸着媒におけるIV価核種の存在形態と脱着機構との関係理解 が、IV価核種-天然有機物-岩石三元系のIV価核種の収着モデル開発にとって必要になるものと 考えられる。

### (c) 天然有機物の天然吸着媒に対する収脱着反応

鉱物等の天然吸着媒に対する天然有機物の収脱着反応に関する速度論的研究の事例は、多くない。これまでに、カオリナイトとヘマタイトへのフミン酸の吸着速度が調べられており、その速度はイオン強度の上昇とpHの低下に伴って上昇すること、及び、吸着平衡までには15~30分程度掛かることが報告されている(Shaker et al., 2012)。また、吸着速度解析から、カオリナイトやヘマタイトへのフミン酸の吸着反応が、主に化学吸着によって起こることが確認されている(Shaker et al., 2012)。一方、脱離速度については、クロライト、イライト、カオリナイトに対するフミン酸の吸脱着性が様々なイオン強度条件について調査されており、イオン強度の変化に伴うフミン酸の吸着反応が可逆性であることが報告されている(Rashid et al., 1972)。酸化鉄粒

子に対する天然有機物(NOM)の収脱着反応には、吸着ヒステリシス(吸着と脱着のプロセスが 一致しない現象)が観察されることが報告されている(Gu et al., 1995)。このヒステリシス発現 の理由として、吸着に伴うNOMの分画化により、吸着と脱着過程とにおいて溶液組成とその平衡 が異なるものになる可能性があると指摘している。また、AvenaとKoopal(1998)は、反射型干 渉分光法を用いて、酸化鉄粒子からのフミン酸の脱着過程を調査し、pHを変化させる場合とフミ ン酸の濃度を変化させる場合とで脱着過程が異なることを見出している。具体的には、pHを変化 させた場合のフミン酸の脱着は瞬時・可逆であるのに対し、フミン酸の濃度を変化させた場合の フミン酸の脱着は遅く、且つ、不可逆的であるとしている。一方、岩石やその成分となる粘土鉱 物に対して、同様な吸脱着過程が存在するかは確認されていない。今後、天然有機物と岩石との 相互作用に関わる研究の一環として、岩石からの有機物の脱着過程についての調査が必要と考え られる。

### (3) 成果と今後の課題

本調査では、FFF-ICP-MS法を用いて、Zr<sup>4+</sup>と幌延の深部地下水から分離・精製したフルボ酸と の錯生成データを取得し、そのデータへのNICA-Donnanモデルの当てはめから、モデルパラメー タを整備した。また、Th<sup>4+</sup>と腐植物質との錯生成データを文献から収集し、その化学量論解析か ら、NICA-Donnanモデルに適用可能な錯生成データを抽出した。さらに、その抽出したデータへ のNICA-Donnanモデルの当てはめからモデルパラメータを取得し、それと抽出前のデータを用 いて取得したモデルパラメータとを比較して、多核種との錯生成によるNICA-Donnanモデルパ ラメータへの影響を評価した。これらの調査を通して、IV価金属イオンと天然有機物との錯生成 モデルパラメータの整備に向けて、より現実的な錯生成データの取得が不可欠であることを確認 するとともに、そのデータ取得に向けて新たな手法の適用を検討する必要があることを確認した。 一方、核種-有機物-岩石三元系での核種収着モデルの開発の観点から、地質環境条件(有機物、 岩石、地下水条件)の多様性や複雑性を念頭に、二元系モデルの加成則と瞬時・可逆平衡の成立 性について、文献調査を実施し、有機物-岩相互作用機構や核種-有機物二元系における脱離反 応機構に関わるデータ取得の必要性を確認した。

### 3.4.2 微生物影響評価技術の開発

## (1) 背景と目的

放射性廃棄物の地層処分システムにおいて、人工バリアやその周辺母岩で構成されるニアフィ ールド及び天然バリアには、放射性物質の移行を抑制する安全機能が期待される。しかしながら、 地下環境には膨大な数の微生物が存在することが明らかにされており(例えば, Fredrickson and Fletcher, 2001; Inagaki et al., 2015; Pedersen et al., 2014)、処分システムの安全機能にこれら の微生物が影響を及ぼす可能性が指摘されている(Pedersen, 1999; West et al., 2002; Pedersen, 2005)。地層処分システムに及ぼす微生物影響については、処分場閉鎖後の酸化還元状態の回復 促進や水質形成、人工バリア内の金属容器の腐食、放射性核種の移行などが想定されており

(Pedersen et al., 2014; 日本原子力研究開発機構, 2014; 日本原子力研究開発機構, 2015)、微 生物影響評価の不確実性を低減させるためには、地下環境を対象とした影響評価手法の開発と 様々な環境から取得した知見の拡充が求められている。特に微生物は、「生きて活動している」 というその性質上、室内試験における評価だけでなく、天然の地下環境を対象とした評価手法の 確立やデータの取得が必要である。処分場閉鎖後の酸化還元状態の回復促進については、スウェ ーデンのThe Äspö Hard Rock Laboratory (Äspö HRL)、日本の幌延URL、瑞浪URLを対象とし た室内試験及び原位置試験が行われており、酸化還元状態が擾乱を受けた場合でも、岩石・地下水 -微生物の相互作用によって速やかに酸素が消費され(Kotelnikova & Pedersen, 1999)、還元環境が回復することが示されている(Amano et al., 2012;林田ほか, 2018;日本原子力研究開発機構, 2010)。処分システムにおける金属容器の腐食への微生物影響については、多くの原位置試験が実施されており(Masurat et al., 2010; Stroes-Gascoyne, et al., 2010)、現在も日本を含む世界各国で影響評価が進められている。核種の移行への微生物影響については、カナダ原子力公社の地下研究施設やÄspö HRLにおいて花崗岩環境下のバイオフィルムを対象とした原位置試験等が報告されているが(Vandergraaf et al., 1997; Anderson and Pedersen, 2003; Anderson et al., 2006)、天然環境における核種と微生物の相互作用を理解する上で十分な知見があるとは言い難い。

そこで本研究では、地層処分システムにおいて想定されている微生物影響のうち、地下深部に 存在する微生物が岩盤中の核種移行に及ぼす影響を評価するための技術を整備することを目的と して、平成30年度は、核種移行への影響の観点から文献調査を行い、核種と微生物の相互作用反 応について整理するとともに、地下環境に優占する微生物を対象に、微生物による核種の収着や 微生物の代謝による核種の取り込み等の重要な現象に関するデータを取得し、これらの核種移行 への影響メカニズムを把握することとした。

# (2) 実施内容

## 1) 微生物影響評価に関する文献調査と課題抽出

地下環境に生息する微生物が核種移行に及ぼす影響については、微生物の生息形態に大きく依存すると考えられる。すなわち、微生物が浮遊性か付着性かにより、核種移行の促進/遅延影響が異なる。また、いずれの生息形態の場合でも、微生物と核種がどのように相互作用するかによって、核種移行への影響は異なってくると考えられる。微生物と核種を含む元素の相互作用反応としては、①細胞表面への収着(biosorption)、②濃集(bioaccumulation)、③酸化還元反応による形態変換(bioreduction/oxidation)、④鉱物化(biomineralization)が主なものとして挙げられる。図3.4-6に、微生物と元素の相互作用の模式図とそのメカニズムの概要を示す。

微生物が関与する収着反応は、微生物の代謝反応とは無関係に、生きている、あるいは死んだ 微生物細胞表面に元素が吸着する反応であり、グラム陽性菌・グラム陰性菌両方の微生物の細胞 表面が静電的にマイナスに帯電しているため、金属陽イオンを収着しやすい状態となっている。 微生物の細胞表面は、細菌のうちグラム陰性菌、グラム陽性菌、古細菌でそれぞれ構造が異なり、 グラム陰性菌は細胞膜の外側にペリプラズム、細胞壁としてのペプチドグリカン層を有し、その 外側に外膜を有する。グラム陽性菌は細胞膜の外側に厚いペプチドグリカン層を有し、外膜を持 たない。古細菌はペプチドグリカン層を持たない代わりに、蛋白質で構成されたS層を有する。い ずれの細胞構造も、外膜、ペプチドグリカン層、S層それぞれにタンパク質やリン脂質などの生体 分子が存在する。これらの生体分子はカルボキシル基、アミノ基、ヒドロキシル基、リン酸基、 チオール基などの官能基を有しており(Beveridge and Murray, 1980; Lloyd and Macaskie, 2000)、官能基が化学的に金属と結合することで細胞表面に収着されると考えられている。収着 はPb, Zn, Cu, Fe, Cd, U, Thなど様々な元素で起こることが報告されており(Volesky and Holan, 1995; Tsezos and Volesky, 1981)、微生物のウラン収着能力は、45~615 mg/g(細胞乾燥重量と して) であるとの報告もある (Suzuki and Banfield, 1999)。 Takahashi et al. (2010) は、培養 細胞が希土類元素を細胞表面に高濃度に濃集する現象を実験的に示し、希土類元素が細胞表面の リン酸基に結合していることを明らかにしている。一方で、収着反応は細胞内への元素の取込反 応と比べて反応速度が速いが、取込反応より細胞表面からの脱離も早く生じることも示されてい る (Schiewer and Volesky, 2000)  $_{\circ}$ 



図3.4-6 微生物と元素との相互作用の概念図

微生物細胞は、様々な元素を細胞内に取込んで濃集あるいは鉱物化することが知られている。 取込反応の多くは、生命活動維持に必要であるために行われるが、ウランについては生物活動と しての機能は全く知られていない。しかしながら、ウランも微生物細胞内に取込まれ、濃集され ることが報告されている(Suzuki et al., 2002; Ohnuki et al., 2005)。細胞内に取込まれる理由 は明らかにされていないが、濃集のメカニズムとして、ウランの毒性により細胞表面の透過性が 増加する可能性があると考えられている(Suzuki and Banfield, 1999)。ウランの細胞内濃集は、 ウラニルリン酸塩の形態のみであり(Kazy et al., 2009; Choudhary and Sar, 2011)、細胞内へ のポリリン酸の濃集が、ウランの濃集や鉱物化に関与することが報告されている(Sakamoto et al., 2010)。しかしながら、ウランの濃集メカニズムはほとんど解明されていないのが現状であ る。

微生物は代謝反応や増殖の過程でエネルギーを必要とするが、分子状酸素(O<sub>2</sub>)の存在しない 環境下では、微生物は代謝のためのエネルギーを獲得するために様々な種類の電子受容体を使っ て呼吸反応を行うことが知られている。嫌気的環境下において用いられる電子受容体としては、 酸化還元電位に応じてNO<sub>3</sub>, Mn(IV), Fe(III), SO<sub>4</sub><sup>2</sup>, CO<sub>2</sub>の順で還元反応が進行していき、CO<sub>2</sub>は 最終的にメタンに還元される。これらの反応の中には、硝酸イオンと金属、あるいは硫酸イオン と金属の還元を同時に行う微生物も報告されている(Madden et al., 2007; Williams et al., 2011)。 また、硫酸還元菌や鉄還元菌は、硫黄や鉄の還元だけでなく、V<sup>5+</sup>, Cr<sup>6+</sup>, Co<sup>3+</sup>, As<sup>5+</sup>, Tc<sup>7+</sup>, Ag<sup>+</sup>, Se<sup>6+</sup>, Au<sup>3+</sup>, Pb<sup>2+</sup>, Hg<sup>2+</sup>, U<sup>6+</sup>, Np<sup>5+</sup>, Pu<sup>4+</sup>など多様な金属イオンを還元することが報告されている(例え ば、Lloyd, 2003; Newsome et al., 2014)。これらの還元反応には、硫黄あるいは鉄還元に関わる 酵素だけでなく、細胞外電子伝達物質、すなわちシトクロム*c*、電気伝導性ナノワイヤーや、フラ ビン・フェナジン・キノン等の電子メディエーターなどが関与している(井上, 2011; Yamasaki et al., 2017)。また、これらの機構を用いて、微生物がイオン形態のものだけでなく、固体金属 を還元することも明らかになってきた。このように、微生物が金属(特に鉄)を還元するメカニ ズムについては*Geobacter sulfurreducensやShewanella oneidensis*などのモデル微生物を対象 として詳細な研究が進められているが、これらの機構が地下環境でどの程度起こっているのかに ついては、ほとんど知見がない。また、ウランを電子受容体として用いたウラン還元呼吸のメカ ニズムについては、詳細が明らかにされていない。

以上の知見を踏まえると、微生物と核種との相互作用に関しては、実験室レベルの知見は数多 く報告されているが、還元状態である地下環境の微生物を対象とした報告例は限られているのが 現状である。核種との相互作用については様々な反応が想定されるが、実際の地下環境でどのよ うな現象が活発に起こっているのかを明らかにすることが重要である。また、地下環境において 微生物とアクチノイドが相互作用した場合、微生物の生息形態(すなわち浮遊性か付着性か)に よって、核種移行への影響も異なってくる。したがって、核種移行への微生物影響を評価するた めには、地下環境に生息する微生物を対象として、微生物と核種の相互作用に関する理解を深め るだけでなく、地下環境における微生物の生息形態(浮遊/付着)に関する評価手法の確立と原位 置環境から取得した知見の拡充が極めて重要であると考える。上記の現象理解を進める上で、本 研究では、次の課題を優先課題として抽出した。

- 地下微生物のうち、コロイド態として機能する浮遊性微生物(以下、バイオコロイド)及び付着 微生物で構成されているバイオフィルムについて、それらの分布と核種との相互作用に関わ る現象の把握及びデータの拡充。核種との相互作用については、反応が比較的速やかに起こ ると考えられる収着及び濃集を対象とする。
- 核種との関連性の高い微生物代謝のうち、重要な反応の一つである硫黄代謝及び鉄代謝について、代謝を行う微生物量、それらの空間分布及び代謝経路等の基礎的情報の取得。

### 2) 核種と微生物の相互作用に関する現象モデル開発

上述の微生物と核種との相互作用に関する現象と重要課題の整理を踏まえて、地下環境におけ る微生物の生息形態に関する調査手法の確立と浮遊・付着微生物への収着・濃集挙動を把握する ために、以下の試験を実施した。

### ① バイオコロイドに対する希土類元素の分配係数データ拡充

地下水中には、無機あるいは有機の形態の様々な化学種のコロイドが存在することが知られて おり、地層処分システムにおいて、これらのコロイドが放射性核種の移行に影響を及ぼす可能性 が懸念されている。微生物は、生態学的に固体表面に付着して生息するものと、水中において浮 遊状態で生息するものが存在するが、後者の場合はコロイドと形態が近似していることから、浮 遊状微生物(すなわちバイオコロイド)に核種が収着あるいは濃集された場合には、核種移行が 促進されることが危惧される。また、微生物代謝により細胞内に取り込まれて濃集された細胞で は、核種の収着/脱着反応が不可逆的であると予測されるため、無機コロイド等と比較すると核 種移行の促進がより顕在化される可能性がある。GoldSim (ver. 10.1:GoldSim Technology Group, 2010)及びColfrac (Ibaraki and Sudicky, 1995)を用いた核種移行解析結果やコロイド影 響を考慮した既存の核種移行解析結果からは、コロイドが核種移行を顕在化する条件は、地下水 中のコロイド密度、コロイドへの元素の分配係数、不可逆性に大きく関係することが示されてい る (久野・笹本, 2009;日本原子力研究開発機構, 2014)。平成29年度までに、幌延URLのボーリ ング孔地下水を対象として、地下水中に存在する無機・有機形態の全コロイドの密度及びコロイ ドへの元素の分配係数についてデータを拡充した(日本原子力研究開発機構,2015;2016;2017)。 しかしながら、地下水中のバイオコロイドへの収着挙動については、データがほとんど取得され ていない。そこで本研究では、地下水中に存在する全コロイド(無機/有機)のうち、バイオコロ イドへの核種の収着特性データを取得するため、幌延URLの深度140 m坑道から掘削されたボー リング孔から採取した地下水に対し、微生物をγ線滅菌した試料を用いて希土類元素の収着試験 を実施した。

幌延URLの140 m坑道から掘削されたボーリング孔(07-V140-M03孔)から、硝酸洗浄・オートクレーブ滅菌済みの1 Lデュラン瓶12本に地下水を採取し、数分間オーバーフローさせた後酸素が混入しないようにボトルを密閉した後、脱酸素剤とともにボトルを真空パック保存した。その後、線量50 kGyのγ線滅菌処理をした地下水を、実験室にて、硝酸洗浄・オートクレーブ滅菌後に99.999%アルゴンガス置換した耐圧ステンレス容器に嫌気的に移し替えて地下水中のコロイドへの収着試験に供した。試験には、アクチノイドと元素の挙動が類似しており天然環境中でアクチノイドのアナログ元素とされている希土類元素を用い、嫌気的に希土類元素をγ線滅菌地下水中に添加し、希土類元素のコロイドへの収着挙動を評価した。一定期間元素と反応させた溶液中のコロイドを、微生物サイズとして孔径0.2 µmのメンブレンフィルターにてサイズ分画し、固相を捕集したフィルターと液相のろ液及び未ろ過液(原液)を採取した。溶液試料については、Na, K, Ca, Mg, Cl, HCO<sub>3</sub>, TOC, TIC, Total Fe, Fe<sup>2+</sup>, S<sup>2</sup>等の一般水質分析を行った。希土類元素については、ICP-MS(パーキンエルマー社製, NexION300X型)を用いて測定した。



図3.4-7 幌延URLにおけるボーリング孔配置図

添加した各元素の溶液中の濃度分析結果から、すべての添加元素は溶液中に溶存状態であるか、 コロイドに収着したと仮定して、希土類元素添加直後から35日後までの間、コロイドを含む未ろ 過溶液と0.2 µmフィルターろ液中の希土類元素濃度を分析し、γ線滅菌処理を施されたコロイド、 すなわちバイオコロイドを除くコロイド(無機/有機コロイド)への希土類元素の分配係数を算出 した(図3.4-8(a))。また、地下水中の全コロイドを対象として実施した希土類元素の収着試験結 果を参照し(日本原子力研究開発機構,2015;2016)、全コロイドへの分配係数から本試験により 求めた無機/有機コロイドの分配係数を減算し、バイオコロイドの分配係数を求めた(図3.4-8(b))。 その結果、いずれの分配係数も軽希土類の方が高い傾向を示し、Gdが最も高い値を示すが、重希

土類元素に向かうほど収着分配は低下する傾向が確認された。バイオコロイドの分配係数は、log Kd (m<sup>3</sup>/kg)として2.6-5.0の範囲で示されており、時間の経過とともに分配係数が高くなる傾向が 認められた(図3.4-8 (b))。なお、本試験では、0.2 μmフィルターろ液中のCe濃度が検出限界値 以下となったことから、Ceの分配係数を算出することができなかった。このことは、Ceのコロイ ドへの分配係数が極めて高いことを示しているが、今後再分析等を行いデータの信頼性について 確認する必要がある。本試験で算出されたバイオコロイドの分配係数値は、これまでに単一の培 養微生物を対象として評価された希土類元素の分配係数値(Takahashi et al., 2005; 2010; Tanaka et al., 2010)と概ね近似した値を示していることから、様々な微生物種が混在している 地下水中の微生物群集を対象とした場合でも、室内試験で取得した希土類元素の分配係数結果を 参照できる可能性がある。一方で、バイオコロイドへの分配係数値は、無機/有機コロイドと比較 して高い傾向を示しており、微生物細胞表面への収着のメカニズムとしては、細胞膜に含まれる リン酸基、カルボキシル基、ヒドロキシル基、アミノ基等が関与していると推察され(図3.4-6; Takahashi et al., 2010; Newsome et al., 2014)、地下水中の微生物密度が高い場合には、核種の 移行促進が顕在化される可能性がある。今年度は、バイオコロイドへの希土類元素の分配係数デ ータ取得のための手法を確立するために、140 m坑道から掘削されたボーリング孔地下水を一例 として試験を実施した。今後、pH、Eh、水質組成、微生物群集組成の異なる様々な地下水条件下 における微生物密度とバイオコロイドへの分配係数のデータを拡充する必要がある。



図3.4-8 地下水中のコロイドへの希土類元素の分配係数の経時変化 (a) γ線滅菌処理を施して 微生物を死活させた地下水中のコロイド (無機/有機コロイド) への分配係数 (b) バイオコロイド の分配係数. 全コロイドの分配係数から微生物を死活させたコロイドの分配係数を減算して求め た

## ② バイオフィルムの生物学的特性評価及び元素収着特性評価

水界環境に生息する多くの微生物は、固体表面に付着し、そこで増殖して細胞外高分子物質 (Extracellular polymeric substances: EPS)を生成する。これらの微生物集団とEPSによって 形成される高次構造体をバイオフィルムといい(Flemming and Wingender, 2010; O'Toole, et al., 2000)、地球上の9割以上の微生物が自然環境中にバイオフィルムの形態で存在するとも言われて いる(Lerchner et al., 2008; Stoodley et al., 2002)。形成されたバイオフィルムの高次構造体が 成熟すると、一部の細菌は成熟バイオフィルムから脱離して浮遊状態に移行するが、やがて浮遊 菌体はまた新たな環境を見つけて付着することが知られている(Flemming and Wingender, 2010)。EPSを含むバイオフィルムは、様々な機能を有しており(Flemming and Wingender, 2010)、その中でも有機化合物、無機イオン、鉱物粒子を収着することが報告されている(MacLean et al., 2007; Moreau et al., 2007; Takahashi et al., 2005; Amano et al., 2017)。 このような生態 を考慮すると、地層処分システムにおいてバイオフィルムは放射性核種の移行を遅延あるいは促 進の両方に影響を及ぼす可能性があり(Pedersen, 2005; Anderson et al., 2011)、地下環境にお けるバイオフィルムの現存量と金属元素との相互作用について理解し、知見を拡充する必要があ る。地下環境におけるバイオフィルムの研究については複数の報告例があるが(Ekendahl et al., 1994; MacLean et al., 2007; Jägevall et al., 2011)、坑道掘削やボーリング孔掘削等の人為的な 影響を受けていない岩盤亀裂表面を対象としたバイオフィルムに関する直接的な観察例は報告さ れていない。

幌延URLを活用して、これまでに実施してきたバイオフィルム調査の中で、堆積岩内部におい てバイオフィルムが形成されている可能性を示すデータが取得されてきた(日本原子力研究開発 機構, 2017)。そこで平成30年度は、幌延URLにおけるボーリング孔の中で、堆積岩岩盤内部に バイオフィルム形成の可能性が示唆されているボーリング孔 07-140-M03孔を用いて、バイオフ ィルムの形成領域(採水チューブ内、ボーリング孔孔壁、あるいは岩盤内部)を特定するために、 ボーリング孔からの採水バルブを開けた直後から地下水を連続的に採取した。採取した地下水及 びバイオフィルム試料について、化学成分・微量元素濃度、微生物現存量・種組成、メタゲノム 解析データを取得した。

図3.4-9に地下水採取バルブ開放後からの流量の変化を示す。地下水流量は、採取開始から時間 の経過とともに低下し、開放3日後には、開放直後の1/2まで低下した。流量の実測値をもとに地 下水流量の変化量の式を求め、それをもとにバルブ開放後からの地下水排水量とボーリング孔採 水区間あたりの排水量比を算出した。ボーリング孔採水区間の容積は、117.75 Lとした。また、 各採取試料中の微生物細胞数を、直接計数法により計数した。各項目の結果を表3.4-4に、地下水 排水量に対する細胞数の変化を図3.4-10に示す。バルブ開放直後及び4.5時間後は、微生物数が多 く、特に4.5時間後の地下水中には、その他の試料と比較して一桁高い値の微生物数が存在してい た。蛍光顕微鏡観察像から、この試料中には球菌、短稈菌、長桿菌等様々な形態の微生物細胞が 観察されたことから、微生物群集は多様な種で構成されており、バルブ閉鎖時に採水区間内に溜 まっていた地下水中あるいはボーリング孔壁で増殖したものが採取されたものと推察された。採 水区間容積分を排水した後、バルブ開放直後から数時間後と比較すると、細胞数は顕著に低下し、 その後ほぼ一定の値を示すとともに顕微鏡観察時の細胞形態も一様な球菌が観察された。さらに、 76時間後、採水区間容積を3.8倍以上排水した後の地下水中の細胞数は、それ以前のものと比較す ると2倍程度増加しており、大量のEPSとともに一様な形態の球菌が観察された。また、DNA解析 結果から、76時間後の試料中では比較的SM1の割合が多くなっていることが示された(図3.4-11)。 これらの結果から、07-V140-M03孔で検出された*Altiarchaeales*に近縁な種(SM1)は、天然の 堆積岩岩盤内部でバイオフィルムを形成していることが示唆された。SM1はバイオフィルムを形 成する種として報告されており(Henneberger et al., 2006)、これまでにドイツ、米国ユタ州の クリスタルガイザーで採取される地下水等からも検出されている(Perras et al., 2014; Probst et al., 2014) 。


図3.4-9 バルブ開放後の地下水流量の変化

Sampling date	Depth (mbgl)	Time for sampling (hours)	Volume of groundwater drainage (L)	Times of the volume in sampling section	cell number (cells/ml)	LOG cell number (cells/ml)	STDEV (cells/ml)
2014/10/14 10:30	140	0	0	0.00	621250	5.79	144087
2014/10/14 15:00	140	4.5	35.1	0.30	1288125	6.11	160977
2014/10/15 10:30	140	24	171.3	1.45	231563	5.36	22733
2014/10/15 15:00	140	28.5	195.5	1.66	221607	5.35	12372
2014/10/16 10:30	140	48	308.2	2.62	197250	5.30	10146
2014/10/17 14:30	140	76	455.7	3.87	283594	5.45	27042

表 3.4-4 採取試料の日時、排水時間、排水量及び微生物細胞数

1) 地下水排水量は、サンプリング時の地下水流量をもとに算出した。

2) 区間容積を117.75 Lとして、区間容積あたりの排水量を算出した。



図3.4-10 地下水排水量に対する微生物数の変化



図3.4-11 16S rRNA遺伝子に基づくバルブ開放後の0.2Fの微生物群集組成の変化

幌延URLの堆積岩岩盤内で形成されているSM1の金属元素濃集能力を調べるために、細胞を 0.2 µmフィルター上に捕集し、ICP-MSにて金属元素濃度を測定した。フィルター中に混入して いる金属元素濃度をブランク値として把握するため、未使用のフィルターについても、同様の前 処理を実施し、金属元素濃度を測定した。また、地下水中の金属元素濃度も同様に測定した。そ の結果、微生物群集組成がバイオフィルムで主に構成されている0.2 µm以上の分画(以下、0.2F と記す。)には、Cr, Fe, Ni, Cu, Zn, Mo, Sn, W, Pb, Ce, Nd, Gd, Th, Uが高濃度で濃集されてお り、これらの元素の0.2Fへの見かけの生物濃縮係数(分配係数:バイオフィルム中の金属元素濃 度/地下水中の金属元素濃度)は、約2.1 × 10<sup>1</sup>~1.5 × 10<sup>2</sup> m<sup>3</sup>/kgであることが示された(図3.4-12)。0.2Fに濃集する元素の傾向は、これまでに調査した幌延URLにて採取されたバイオフィル ムを対象とした分析結果と類似しており、さらに、東濃ウラン鉱床周辺の地下環境下で採取され たバイオフィルムに濃集する元素の傾向とも一致していた(Amano et al., 2017)。一方で、DNA 解析結果から、微生物群集組成は、各バイオフィルム試料で異なる種組成を示していたことから、 バイオフィルムへの元素濃集は微生物群集組成に起因するものではなく、バイオフィルムの主要 な構成成分であるEPSが重要な役割を果たしていることが推察された。SEM-EDSの観察結果か ら、本ボーリング孔から採取した地下水中にはSM1様細胞形態を有する微生物を優占とするバイ オフィルムが観察されており(図3.4-13)、バイオフィルム中にはSi, Al, O, Na, Mgを主成分とす る珪酸塩鉱物(図3.4-14), Ca, Oを主成分とするカルサイト様鉱物、Fe, S, Cu等を主要構成成分 とする粒子が捕獲されていることが確認された。0.2F中の優占種であるSM1は、細胞表面から鉤 針状の形態をした突起状の糸のようなものを出してSM1の細胞間を連結させることが知られてい る (Henneberger et al., 2006; Perras et al., 2014; Probst et al., 2014) 。 しかし、これらの鉱物 粒子は、バイオフィルムを構成するEPSやSM1細胞表面から出された突起物に絡まれ、しっかり とトラップされている様子が観察されたことから、0.2Fで観察されたコロイド及び鉱物粒子は、 地下水中の浮遊物がSEM観察のための前処理の過程でバイオフィルムと一緒に捕集されたもの ではなく、地下環境下でバイオフィルムにトラップされた状態で存在していたものと推測される。

以上の結果から、バイオフィルムに元素が収着するメカニズムとして、まず微生物が固体に付着してバイオフィルムを形成する過程でEPSが生成され、地下水中のコロイド状の鉱物粒子や溶存イオンがEPSに収着する、あるいは物理的にトラップされ、さらにEPSにトラップされた鉄鉱物や粘土鉱物粒子はSM1細胞表面から発生する突起物によってしっかりと捕獲される。その後、バイオフィルム内のEPSやトラップされたコロイド・鉱物粒子に元素が収着するというメカニズムが推察された(図3.4-15)。成熟したバイオフィルムのうち、大半はEPSで構成され、菌体が占める割合は乾燥重量で1割程度であると言われている(Flemming and Wingender, 2010)。EPSの成分はバイオフィルムを構成する微生物によって大きく異なるが、一般的に、水、細胞外多糖、DNA、タンパク質が主要な構成成分として知られていることから、EPSに元素が収着される理由としては、アミノ糖やタンパク質の中にある-NH<sub>3</sub>+等の陽イオン、ウロン酸やタンパク質の中にあ

る・COO・や・HPO4などの陰イオン、芳香族アミノ酸や多糖類等が機能していると推察される (Flemming, 1995; Flemming & Wingender, 2010)。しかしながら、バイオフィルムへの元素 濃集の選択性に関しては、バイオミネラリゼーションなどの微生物代謝が関与している可能性が ある。例えば、硫酸還元菌は排水などに混入しているCr, Fe, Zn, Cu, Mo, Tc, As, Se, Au, Pb, Ni, Cd, Uを除去/濃縮し、ZnS, CdS, CuS, FeSなどの不溶性硫黄化合物の形態に変化させることが 報告されている(White & Gadd, 1998; 2000; Lloyd, 2003; Suzuki et al., 2002; Gadd, 2010)。 これらの元素は、本研究で0.2Fへの濃集が顕著に認められた種類と一致しており、幌延URLの地 下環境で明らかにされた0.2Fへの高濃度の元素濃集についても、微生物代謝が関与している可能 性がある。今後は、微生物代謝との関連を明らかにするために、ゲノムデータをより詳細に解析 することにより、バイオフィルム中に存在する微生物の代謝機能を推定するとともに、バイオフ ィルム中の鉱物粒子の同定や原位置の化学条件に基づく地球化学計算を行い、鉱物との関連性に 関する考察を進める予定である。



図3.4-12 バイオフィルムが主な構成要素である画分への見かけの元素分配係数



図3.4-13 0.2FのSEM観察像. a. SM1様の球状の形態をした微生物が細胞から突起物をお互いに 出している様子. この突起物を介して、細胞間が連結されていく. b.コロイド状の粒子がバイオフ ィルムにトラップされ、細胞間だけでなくコロイド状粒子も突起物でトラップされている. c. 0.2F で観察される細胞及びEPSを含むバイオフィルムとコロイド及び鉱物粒子. d. cの黄色四角で示さ れた部分の拡大像. バイオフィルム中のEPS及びSM1細胞から出た突起物でコロイド及び鉱物粒 子がしっかりとトラップされている様子



図3.4-14 0.2FのSEM-EDSマッピング結果の例(図3.4-13 cの黄色点線で囲まれた領域を 対象とした分析)カラーバーの単位は、cps (counts per second)



図3.4-15 バイオフィルム形成から元素収着までのメカニズムの概念図

## (3) 成果と今後の課題

核種移行への影響の観点から文献調査を行い、核種と微生物の相互作用反応について整理し、 室内試験を対象とした微生物と核種との相互作用に関する知見は数多く報告されているが、地下 環境を模擬した条件下で実施された試験や地下微生物を対象とした試験については知見が非常に 限られていることが確認された。したがって、地層処分システムにおける微生物の核種移行影響 について、信頼性の高い評価を行うためには、地下環境に生息する微生物を対象としてこれらの 相互作用に関する知見の拡充の重要性が挙げられた。核種移行への微生物影響を評価するために は、微生物と核種の相互作用に関する理解を深めるだけでなく、地下環境における微生物の生息 形態(浮遊/付着)に関する評価手法の確立と原位置環境から取得した知見の拡充が極めて重要で あると考える。また、バイオコロイドやバイオフィルムによる元素の収着や生息状況に関するデ ータを取得し、バイオフィルムへの元素の濃集は微生物が生成するEPSや微生物代謝に起因する 可能性があることが示された。

今後は、地下環境における微生物と核種の相互作用理解のために、ウランやセレン等の金属還 元反応と深い関わりがある硫黄あるいは鉄代謝について、地下環境から基礎的情報を収集すると ともに、取得したデータに基づき核種移行への影響メカニズムを評価する予定である。

- Alessi, D. and Fein, J.B., Cadmium adsorption to mixtures of soil components: Testing the component additivity approach, Chemical Geology, Vol. 270, pp. 186–195, 2010.
- Alexander, W., Mazurek, M., Waber, H., Arlinger, J., Erlandson, A., Hallbeck, L., Hanschman, G., Haworth, A., Hodginson, E., Hughes, C.R., Hyslop, E.K., Ilett, D., Karlsson, F., Kemp, S.J., Khoury, H.N., Kopinke, F-D., Lagerblad, B., Linklater, C.M., Longworth, G., Mazurek, M., Milodowski, A.E., Pearce, J.M., Pedersen, K., Pitty, A.F., Pörschmann, J., Reeder, S., Rochelle, C.A., Salameh, E., Savage, D., Smellie, J.A.T., Smith, B., Tweed, C.J., Waber, H.N., Wetton, P.D., Wragg and J., MAQARIN natural analogue study: Phase III SKB Technical Report, TR-98-04 (V.1). Stockholm, Sweden, 1998.
- Amal, R., Raper, J.A. and Waite, T.D., Effect of fulvic acid adsorption on the aggregation kinetics and structure of hematite particles, Journal of Colloid and Interface Science, Vol. 151, pp. 244–257, 1992.
- Amano, Y., Iwatsuki, T. and Naganuma, T. Characteristics of naturally grown biofilms in deep groundwaters and their heavy metal sorption property in a deep subsurface environment, Geomicrobiology Journal, Vol. 34, pp. 769–783, 2017.
- Amano, Y., Sasao, E., Niizato, T. and Iwatsuki, T., Redox buffer capacity in water-rock-microbe interaction systems in subsurface environment, Geomicrobiology Journal, Vol. 29, pp. 628–639, 2012.
- Anderson, C. and Pedersen, K., In situ growth of Gallionella biofilms and partitioning of lanthanides and actinides between biological material and ferric oxyhydroxides, Geobiology, Vol. 1, pp. 169–178, 2003.
- Anderson, C., Johnsson, A, Moll, H. and Pedersen, K., Radionuclide geomicrobiology of the deep biosphere, Geomicrobiology Journal, Vol. 28, pp. 540–561, 2011.
- Anderson, C., Pedersen, K. and Jakobsson, A.M., Autoradiographic comparisons of radionuclide adsorption between subsurface anaerobic biofilms and granitic host rocks, Geomicrobiology Journal, Vol. 23, pp. 15–29, 2006.
- Atkinson, A., The time dependence of pH within a repository for radioactive waste disposal, AERE-R11777, UKAEA, 1985.
- Artinger, R., Buckau, G., Zeh, P., Geraedts, K., Vancluysen, J., Maes, A. and Kim, J.I., Humic colloid mediated transport of tetravalent actinides and technetium, Radiochimica Acta, Vol. 91, pp. 743–750, 2003.
- Artinger, R., Kienzler, B., Schüßler, W. and Kim, J.I., Effects of humic substances on the <sup>241</sup>Am migration in a sandy aquifer: column experiments with Gorleben groundwater/sediment systems, Journal of Contaminant Hydrology, Vol. 35, pp. 261–275, 1998.
- Au, K.K., Penisson, A.C., Yang, S.L. and O'Melia, C.R., Natural organic matter at oxide/water interfaces: Complexation and conformation, Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol. 63, pp. 2903–2917, 1999.
- Avena, M.J. and Koopal, L., Desorption of humic acids from an iron oxide surface, Environmental Science & Technology, Vol. 32, pp. 2572–2577, 1998.
- Benedetti, M. F., Van Rimemsdijk, W. H. and Koopal, L. K., Humic substances considered as a heterogeneous donnan gel phase, Environmental Science & Technology, Vol. 30, pp.

1805–1813, 1996.

- Bethke, C.M., Geochemical and biogeochemical reaction modeling. Cambridge University Press, New York, NY, 2008.
- Beveridge, T.J. and Murray, R.G., Sites of metal deposition in the cell wall of *Bacillus subtilis*, Journal of Bacteriology, Vol. 141, pp. 876–887, 1980.
- Börsig, N., Scheinost, A.C., Shaw, S., Schild and D., Neumann, T., Uptake mechanisms of selenium oxyanions during the ferrihydritehematite recrystallization, Geochimica et Cosmochimica Acta, 206, pp. 236–253, 2017.
- Bouby, M., Geckeis, H., Lützenkirchen, J., Mihai, S. and Schäfer, T., Interaction of bentonite colloids with Cs, Eu, Th and U in the presence of humic acid: A flow field-flow fractionation study, Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol. 75, pp. 3866–3880, 2011.
- Bradbury, M.H. and Baeyens, B., Sorption data bases for Opalinus clay influenced by a high pH plume, Nagra, TR-03-12, 2004.
- Bradbury, M. H. and Baeyens, B., Modelling the sorption of Mn(II), Co(II), Ni(II), Zn(II), Cd(II), Eu(III), Am(III), Sn(IV), Th(IV), Np(V) and U(VI) on montmorillonite: Linear free energy relationships and estimates of surface binding constants for some selected heavy metals and actinides, Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol. 69(4), pp. 875–892, 2005a.
- Bradbury, M.H. and Baeyens, B., Experimental and modelling investigation on Na-illite, Acidbase behaviour and the sorption of strontium, nickel, europium and uranyl, Bericht Nr. 05-02, 2005b.
- Bradbury, M.H. and Baeyens, B., Sorption modelling on illite Part I, Titration measurements and the sorption of Ni, Co, Eu, and Sn, Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol. 73, pp. 990–1003, 2009a.
- Bradbury, M.H. and Baeyens, B., Sorption modelling on illite Part II, Actinide sorption and linear free energy relationships, Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol. 73, pp. 1004– 1013, 2009b.
- Bruggeman, C., Liu, D.J. and Maes, N., Influence of Boom Clay organic matter on the adsorption of Eu<sup>3+</sup> by illite Geological modeling using the component additivity approach, Radiochimica Acta, Vol. 98, pp. 597–605, 2010.
- Bryan, N.D., Abrahamsen, L., Evans, N., Warwick, P., Buckau, G., Weng, L. and van Riemsdijik, W.D., The effects of humic substances on the transport of radionuclides: Recent improvements in the prediction of behavior and the understanding of mechanisms, Applied Geochemistry, Vol. 27, pp. 378–389, 2012.
- Carter, E.A., Ciccotti, G., Hynes, J. T. and Kapral, R., Constrained reaction coordinate dynamics for the simulation of rare events, Chemical Physics Letters, Vol. 156, pp. 472– 477, 1989.
- Chaparro, M.C., Saaltink, M.W. and Soler, J.M., Reactive transport modelling of cementgroundwater-rock interaction at the Grimsel test site, Physics and Chemistry of the Earth Vol. 99, pp. 64–76, 2017.
- Choudhary, S. and Sar, P., Uranium biomineralization by a metal resistant *Pseudomonas aeruginosa* strain isolated from comtaminated mine waste, Journal of Hazardous Materials, Vol.186, pp. 336–343, 2011.
- Christl, I. and Kretzschmar, R., Interaction of copper and fulvic acid at the hematite-water

interface, Geochimica et Comochimica Acta, Vol. 65, pp. 3455-3442, 2001.

- Chukrov, F.V., Zyvagin, B.B., Gorshkov, A.I., Yermilova, L.P., Korovushkin, V.V., Rudnitskaya, Y.S. and Yakubovskaya, N.Y., Feroxyhyte, a new modification of FeOOH, International Geology Review, Vol. 19, pp. 873–890, 1977.
- Ciccotti, G., Kapral, R. and Vanden-Eijnden, E., Blue Moon Sampling, Vectorial reaction coordinates, and unbiased constrained dynamics, ChemPhysChem, Vol. 6, pp. 1809–1814, 2005.
- 電気事業連合会,核燃料サイクル開発機構,TRU廃棄物処分技術検討書,一第2次TRU廃棄物処分 研究開発取りまとめー,JNC TY1400 2005-013, FEPC TRU-TR2-2005-02, 2005.
- Diener, A. and Neuman, T., Synthesis and incorporation of selenide in pyrite and mackinawite, Radiochimica Acta, Vol. 99, pp. 791–798, 2011.
- Eidner, S. and Kumke, M.U., Spectroscopical determination of thermodynamic and kinetic parameters to describe complexation between humic substances and metal ions, in Marquardt, C., Migration of Actinides in the System Clay, Humic Substances, Aquifer. Report FZKA 7407, Karlsruhe, Germany, Karlsruhe Institute of Technology, pp. 351–389, 2008.
- Eita, M., Insight into the adsorption of humci acid/Gd<sup>3+</sup> complex on the surface of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> studied in situ by QCM-D and ex situ by ellipsometry and XPS, Soft Matter, Vol. 7, pp. 7424–7430, 2011.
- Ekendahl, S., Arlinger, J., Ståhl, F. and Pedersen, K., Characterization of attached bacterial populations in deep granitic groundwater from the Stripa research mine with 16S rRNA gene sequencing technique and scanning electron microscopy, Microbiology, Vol. 140, pp. 1575–1583, 1994.
- Encina, E., Distaso, M., Klupp Taylor, R.N. and Peukert, W., Synthesis of goethite α-FeOOH particles by air oxidation of ferrous hydroxide Fe(OH)<sub>2</sub> suspensions: Insight on the formation mechanism, Crystal Growth & Design, Vol. 15, pp. 194–203, 2014.
- Fairhurst, A.J., Warwick, P. and Richardson, S., The influence of humic-acid on the adsorption of europium onto inorganic colloids as a function of pH, Colloids and Surfaces A, Vol. 99, pp. 187–199, 1995a.
- Fairhurst, A.J., Warwick, P. and Richardson, S., The effect of pH on europium-mineral interactions in the presence of humic acid, Radiochimica Acta, Vol. 69, pp. 103–111, 1995b.
- Fernández R., Cuevas J. and M\u00e4der U., Modeling experimental results of diffusion of alkaline solutions through a compacted bentonite barrier, Cement and Concrete Research, Vol. 40(8), pp. 1255–1264, 2010.
- Finck, N., Dardenne, K., Bosbach, D. and Geckeis, H., Selenide retention by mackinawite, Environmental Science & Technology, Vol. 46, pp. 10004–10011, 2012.
- Flemming, H.C., Sorption sites in biofilms, Water Science & Technology, Vol. 32, pp. 27–33, 1995.
- Flemming, H.C. and Wingender, J., The biofilm matrix, Nature Reviews Microbiology, Vol. 8, pp. 623–633, 2010.
- Forsman, J.P. and Hunt, J.M., Insoluble organic matter (kerogen) in sedimentary rock, Geochimica et Cosmochimca Acta, Vol. 15, pp. 170–182, 1958.
- Francisco, P.C.M, Sato, T., Otake, T., Kasama, T., Suzuki, S., Shiwaku, H. and Yaita, T.,

Mechanisms of Se(IV) co-precipitation with ferrihydrite at acidic and alkaline conditions and its behavior during aging, Environmental Science & Technology, Vol. 52, pp. 4817–4826, 2018.

- Fredrickson, J.K. and Fletcher, M.(eds.), Subsurface microbiology and biogeochemistry. Wiley-Liss, Inc., New York. 2001.
- Gadd, G.M., Metals, minerals and microbes: Geomicrobiology and bioremediation, Microbiology, Vol. 156, pp. 609–643, 2010.
- Gao, Y., Shao, Z. and Xiao, Z., U(VI) sorption on illite: Effect of pH, ionic strength, humic acid and temperature, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol. 303, pp. 867– 876, 2015.
- Geckeis, H., Rabung, T., Manh, T.N., Kim, J.I. and Beck, H.P., Humic colloid-borne natural polyvalent metal ions: Dissociation experiment, Environmental Science & Technology, Vol. 36, pp. 2946–2952, 2002.
- 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)(https://www.numo.or.jp/press/201818112114.html),2018.
- GoldSim Technology Group, 2010. GoldSim Version 10.1.
- Gu, B., Schmitt, J., Chen, Z., Liang, L. and McCarthy, J.F., Adsorption and desorption of different organic matter fractions on iron oxide, Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol. 59, pp. 219–229, 1995.
- Guo, L.D., Hung, C.C., Santschi, P.H. and Walsh, I.D. <sup>234</sup>Th scavenging and its relationship to acid polysaccharide abundance in the Gulf of Mexico, Marine Chemistry, Vol. 78, pp. 103–119, 2002.
- Guo, Z., Xu, J., Shi, K., Tang, Y., Wu, W. and Tao, Z., Eu(III) adsorption/desorption on Nabentonite: Experimental and modeling studies, Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects, Vol. 339, pp. 126–133, 2009.
- Hama, K., Kunimaru, T., Metcalfe, R. and Martin, A. J., The hydrogeochemistry of argillaceous rock formations at the Horonobe URL site, Japan, Physics and Chemistry of the Earth, Vol. 32, pp. 170–180, 2007.
- Harvey, G.R., Boran, D.A., Chesal L.A. and Tokar, J.M., The structure of marine fulvic and humic acids, Marine Chemistry, Vol. 12, pp. 119–132, 1983.
- 林田一貴,加藤利弘,久保田 満,村上裕晃,天野由記,岩月輝希,坑道閉鎖試験に基づく坑道掘 削・閉鎖時の化学環境変化プロセスの考察.地球化学, Vol. 52, pp. 55-71, 2018.
- Heidmann, I., Christl, I. and Kretzschmar, R., Sorption of Cu and Pb to kaolinite-fulvic acid colloids: Assessment of sorbent interaction, Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol. 69, pp. 1675–1686, 2005.
- Henneberger, R., Moissl, C., Amann, T., Rudolph, C. and Huber, R., New insights into the lifestyle of the cold-loving SM1 Euryarchaeon: Natural growth as a monospecies biofilm in the subsurface, Applied and Environmental Microbiology, Vol. 72, pp. 192–199, 2006.
- Hokari, T., Iwatsuki, T. and Kunimaru, T., Estimation of in-situ groundwater conditions based on geochemical equilibrium simulations, Journal of Sustainable Development of Energy, Water and Environmental Systems, Vol. 2(1), pp. 15–29, 2014.
- Holmboe, M., Wold, S. and Jonsson, M., Colloid diffusion in compacted bentonite:

microstructural constraints, Clays and Clay Minerals, Vol. 58(4), pp. 532-541, 2010.

- Hoshino, T., Toki, T., Ijiri, A., Morono, Y., Machiyama, H., Ashi, J., Okamura, K. and Inagaki, F. Atribacteria from the subseafloor sedimentary biosphere disperse to the hydrosphere through submarine mud volcanoes, Frontiers in Microbiology, Vol. 8, 1135, 2017.
- Ibaraki, M. and Sudicky, E.A., Colloid-facilitated contaminant transport in discretely fractured porous media: 1. Numerical formulation and sensitivity analysis, Water Resources Research, Vol. 31(12), pp. 2945–2960, 1995.
- Iida, Y., Barr, L., Yamaguchi, T. and Hemmi, K., Sorption behavior of thorium onto montmorillonite and illite, 原子力バックエンド研究, Vol. 23(1), pp. 3-8, 2016.
- Iida, Y., Yamaguchi, T., Tanaka, T., Kitamura, A. and Nakayama, S., Determination of the solubility limiting solid of selenium of iron under anoxic conditions, In Proceedings of the Mobile Fission and Activation Products in Nuclear Waste Disposal Workshop, La Baule, France, 2007.
- Iijima, K., Kurosawa, S., Tobita, M., Kibe, S. and Ouchi Y., Diffusion behavior of humic acid in compacted bentonite: Effect of ionic strength, dry density and molecular weight of humic acid, Materials Research Society Symposium Proceedings, Vol. 1124, pp. 263–270, 2009.
- Inagaki, F., Hinrichs, K.-U., Kubo, Y., Bowles, M.W., Heuer, V.B., Hong, W.-L., Hoshino, T., Ijiri, A., Imachi, H., Ito, M., Kaneko, M., Lever, M.A., Lin, Y.-S., Methé, B.A., Morita, S., Morono, Y., Tanikawa, W., Bihan, M., Bowden, S.A., Elvert, M., Glombitza, C., Gross, D., Harrington, G.J., Hori, T., Li, K., Limmer, D., Liu, C.-H., Murayama, M., Ohkouchi, N., Ono, S., Park, Y.-S., Phillips, S.C., Prieto-Mollar, X., Purkey, M., Riedinger, N., Sanada, Y., Sauvage, J., Snyder, G., Susilawati, R., Takano, Y., Tasumi, E., Terada, T., Tomaru, H., Trembath-Reichert, E., Wang, D.T. and Yamada, Y., Exploring deep microbial life in coal-bearing sediment down to ~2.5 km below the ocean floor, Science, Vol. 349, pp. 420–424, 2015.
- 井上謙吾, 微生物の細胞外電子伝達, Journal of Environmental Biotechnology, Vol. 11, pp. 33-37, 2011.
- Ise, K., Sasaki, Y., Amano, Y., Iwatsuki, T., Nanjo, I., Asano, T. and Yoshikawa, H., The succession of bacterial community structure in groundwater from a -250-m gallery in the Horonobe Underground Research Laboratory, Geomicrobiology Journal, Vol. 34, pp. 489– 499, 2017.
- Ishidera, T., Ueno, K., Kurosawa, S. and Suyama, T., Investigation of montmorillonite alteration and form of iron corrosion products in compacted bentonite in contact with carbon steel for ten years, Physics and Chemistry of the Earth, 33, pp,S269–S275, 2008.
- Iwatsuki, T., Ishii, E. and Niizato, T., Scenario development of long-term evolution for deep hydrochemical conditions in Horonobe area, Hokkaido, Japan, Journal of Geology, Vol. 118(4), pp. 700–716 [in Japanese], 2009.
- Jägevall, S., Rabe, L. and Pedersen, K., Abundance and diversity of biofilms in natural and artificial aquifers of the Äspö Hard Rock Laboratory, Sweden, Microbial Ecology, Vol. 61, pp. 410–422, 2011.
- Janot, N., Reiller, P.E., Zheng, X., Croué, J.-P. and Benedetti, M.F., Characterization of humic acid reactivity modifications due to adsorption onto α-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Water Research, Vol.46,

pp.731-740, 2012.

- Janot, N., Benedetti, M.F. and Reiller, P.E., Colloidal α-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, europium(III) and humic substances interactions: A macroscopic and spectroscopic study, Environmental Science & Technology, Vol. 45, pp. 3224–3230, 2011.
- Jenni A., Mäder U., Lerouge C., Gaboreau S. and Schwyn B., In situ interaction between different concretes and Opalinus clay, Physics and Chemistry of the Earth, Parts A/B/C, Vol. 70–71, pp. 71–83, 2014.
- Joseph, C., Schmeide, K., Sachs, S., Brendler, V., Geipel, G. and Bernhard, G., Sorption of uranium(VI) onto Opalinus clay in the absence and presence of humic acid in Opalinus clay pore water, Chemical Geology, Vol. 284, pp. 240–250, 2011.
- Joseph, C., Stockmann, M., Schmeide, K., Sachs, S., Brendler, V. and Bernhard, G., Sorption of U(IV) onto Opalinus clay: Effects of pH and humic acid, Applied Geochemistry, Vol. 36, pp. 104–117, 2013.
- 核燃料サイクル開発機構,わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性,地層 処分研究開発第2次取りまとめ,分冊3, JNC TN1400 99-023, 1999.
- Kar, A.S., Kumar, S., Tomar, B.S. and Manchanda, V.K., Sorption of curium by silica colloids: Effect of humic acid, Journal of Hazardous Materials, Vol. 186, pp. 1961–1965, 2011.
- Kazy, S.K., D'Souza, S.F. and Sar, P., Uranium and thorium sequestration by a *Pseudomonas* sp.: mechanism and chemical characterization, Journal of Hazardous Materials, Vol. 163, pp. 65–72, 2009.
- Kinniburch, D.G., Milne, C.J., Pinheiro, J.P., Filius, J., Koopal, L.K. and van Riemsdijk, W.H., Metal ion binding by humic acid: Application of the NICA-Donnan model, Environmental Science & Technology, Vol. 30, pp. 1687–1698, 1996.
- Kitamura, A., Doi, R. and Yoshida, Y., Update of JAEA-TDB: Update of Thermodynamic Data for Palladium and Tin, Refinement of Thermodynamic Data for Protactinium, and Preparation of PHREEQC Database for Use of the Brønsted- Guggenheim- Scatchard Model. JAEA-Data/Code 2014-009, 2014.
- Koopal, L.K., Saito, T., Phinheiro, J.P. and van Riemsdijk, W.H., Ion binding to natural organic matter: general considerations and the NICA-Donnan model, Colloids and Surfaces A, Vol. 265, pp. 40–54, 2005.
- Kosakowski G. and Berner U., The evolution of clay rock/cement interfaces in a cementitious repository for low- and intermediate level radioactive waste. Physics and Chemistry of the Earth, Parts A/B/C, Vol. 64, pp. 65–86, 2013.
- Kotelnikova, S. and Pedersen, K., The Microbe-REX project. Microbial O<sub>2</sub> consumption in the Äspö tunnel. SKB Technical Report TR-99-17. 1999.
- 國丸貴紀, 柴野一則, 操上広志, 戸村豪治, 原 稔, 山本 肇, 幌延深地層研究計画における地下水, 河川水および降水の水質分析, JAEA-Data/Code 2007-015, 2007.
- 黒澤 進,高レベル放射性廃棄物地層処分システムにおける核種移行評価に及ぼすコロイド影響 に関する研究 - 第2次とりまとめ以降の検討 -, JNC TN8400 2005-007, 2005.
- 久野義夫, 笹本 広, 岩盤亀裂中でのコロイドに助長された核種移行に関する解析検討. 日本原子 力研究開発機構 技術報告書. JAEA-Research 2009-071, 2009.
- Lerchner, J., Wolf, A., Buchholz, F., Mertens, F., Neu, T.R., Harms, H. and Maskow, T., Miniaturized calorimetry – A new method for real-time biofilm activity analysis, Journal

of Microbiological Methods, Vol. 74, pp. 74-81, 2008.

- Lerouge C., Gaboreau S., Grangeon S., Claret F., Warmont F., Jenni A., Cloet V. and M\u00e4der U., In situ interactions between Opalinus clay and low alkali concrete, Physics and Chemistry of the Earth, Parts A/B/C, Vol. 99, pp. 3–21, 2017.
- Lippold, H. and Lippmann-Pipke, J., Effect of humic matter on metal adsorption onto clay materials: Testing the linear additive model, Journal of Contaminant Hydrology, Vol. 109, pp. 40–48, 2009.
- Lippold, H., Muller, N. and Kupsch, H., Effect of humic acid on the pH-dependent adsorption of terbium(III) onto geological materials, Applied Geochemistry, Vol. 20, pp. 1209–1217, 2005.
- Liu, X., Cheng, J., Sprik, M., Lu, X. and Wang, R., Surface acidity of 2:1-type dioctahedral clay minerals from first principles molecular dynamics simulations, Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol. 140, pp. 410–417, 2014.
- Liu, X., Lu, X., Sprik, M., Cheng, J., Meijer, E.J. and Wang, R., Acidity of edge surface sites of montmorillonite and kaolinite, Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol. 117, pp. 180–190, 2013.
- Lloyd, J.R. Microbial reduction of metals and radionuclides, FEMS Microbiology Reviews, Vol. 27, pp. 411–425, 2003.
- Lloyd, J.R. and Macaskie, L.E., Bioremediation of radionuclide-containing wastewaters. In: Lovley, D.R. (Ed.), Environmental microbe-metal interactions, ASM Press, Washington D.C., pp. 277–327, 2000.
- Lothenbach B., Bernard E. and Mäder U., Zeolite formation in the presence of cement hydrates and albite, Physics and Chemistry of the Earth, Parts A/B/C, Vol. 99, pp. 77–94, 2017.
- MacLean, L.C.W., Pray, T.J., Onstott, T.C., Brodie, E.L., Hazen T.C and Southam, G., Mineralogical, chemical and biological characterization of an anaerobic biofilm collected from a borehole in a deep gold mine in South Africa, Geomicrobiology Journal, Vol. 24, pp. 491–504, 2007.
- Madden, A.S., Smith, A.C., Balkwill, D.L., Fagan, L.A. and Phelps, T.J., Microbial uranium immobilization independent of nitrate reduction, Environmental Microbiology, Vol. 9, pp. 2321–2330, 2007.
- Mäder U., Jenni A., Lerouge C., Gaboreau S., Miyoshi S., Kimura Y., Cloet V., Fukaya M., Claret F., Otake T., Shibata M. and Lothenbach B., 5-year chemico-physical evolution of concrete-claystone interfaces, Mont Terri rock laboratory (Switzerland), Swiss Journal of Geosciences, Vol. 110(1), pp. 307–327, 2017.
- Maes, N., Wang, L., Hicks, T., Bennett, D., Warwick, P., Hall, T., Walker, G. and Dierckx, A., The role of natural organic matter in the migration behavior of americium in the Boom Clay – Part I: Migration experiments, Physics and Chemistry of the Earth, Vol. 31, pp. 541–547, 2006.
- Mahara, Y. and Kudo, A., Plutonium released by the Nagasaki A-bomb: Mobility in the environment, Applied Radiation and Isotopes, Vol. 46, pp. 1191–1201, 1995.
- Marques Fernandes, M., Baeyens, B. and Bradbury, M.H., The influence of carbonate complexation on lanthanide/actinide sorption on montmorillonite, Radiochimica Acta, Vol. 96, pp. 691–697, 2008.

- Marques Fernandes, M., Baeyens, B., Dähn, R., Scheinost, A.C. and Bradbury, M.H., U(VI) sorption on montmorillonite in the absence and presence of carbonate: A macroscopic and microscopic study, Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol. 93, pp. 262–277, 2012.
- Marques Fernandes, M., Scheinost, A.C. and Baeyens, B., Sorption of trivalent lanthanides and actinides onto montmorillonite: Macroscopic, thermodynamic and structural evidence for ternary hydroxo and carbonato surface complexes on multiple sorption sites, Water Research, Vol. 99, pp. 74–82, 2016.
- Marques Fernandes, M., Stumpf, T., Baeyens, B., Walther, C. and Bradbury, M.H., Spectroscopic identification of ternary Cm–carbonate surface complexes, Environmental Science & Technology, Vol. 44, pp. 921–927, 2010.
- Marques Fernandes, M., Vér, N. and Baeyens, B., Predicting the uptake of Cs, Co, Ni, Eu, Th and U on argillaceous rocks using sorption models for illite, Applied Geochemistry, Vol. 59, pp. 189–199, 2015.
- Marsac, R., Banik, N.L., Marquardt, C.M. and Kratz, J.V., Stabilization of polynuclear plutonium(IV) species by humic acid, Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol. 131, pp. 290–300, 2014.
- Marschall, P. and Lunati, I., GAM Gas migration experiments in a heterogeneous shear zone of the Grimsel Test Site, Nagra Technical Report 03-11, 2006.
- Masurat, P., Eriksson, S. and Pedersen, K., Microbial sulfide production in compacted Wyoming bentonite MX-80 under in situ conditions relevant to a repository for high-level radioactive waste, Applied Clay Science, Vol. 47, pp. 58–64, 2010.
- Matsunaga, T., Nagao, S., Ueno, T., Takeda, S., Amano, H. and Tkachenko, Y., Association of dissolved radionuclides released by the Chernobyl accident with colloidal materials in surface water, Applied Geochemistry, Vol. 19. pp. 1581–1599, 2004.
- McCarthy, J.F., Sanford, W.E. and Stafford, P.L., Lanthanide field tracers demonstrate enhanced transport of transuranic radionuclides by natural organic matter, Environmental Science & Technology, Vol. 32, pp. 3901–3906, 1998a.
- McCarthy, J.F., Czerwinski, K.R., Sanford, W.E., Jardine, P.M. and Marsh, J.D., Mobilization of transuranic radionuclides from disposal trenches by natural organic matter, Journal of Contaminant Hydrology, Vol. 30, pp. 49–77, 1998b.
- Meiboom, S., Carr-purcell-meiboom-gill sequence (cpmg), Review of Science Instruments, Vol. 29, pp. 688–691, 1959.
- Missana, T., Alonso, U., Scheinost, A.C., Granizo, N. and García-Gutiérrez, M., Selenite retention by nanocrystalline magnetite: Role of adsorption, reduction and dissolution/co-precipitation processes, Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol. 73, pp. 6205–6217, 2009.
- Moreau, J.W., Weber, P.K., Martin, M.C., Gilbert, B., Hutcheon, I.D. and Banfield, J.F., Extracellular proteins limit the dispersal of biogenic nanoparticles. Science 316, pp.1600-1603, 2007.
- Morel, F.M.M. and Hering, J.G., Principales and applications of aquatic chemistry, John Wiley & Sons, New York, 1993.
- Nagra, Project Opalinus Clay: Safety report Demonstration of disposal feasibility for spent fuel, vitrified high-level waste and long-lived intermediate-level waste, Nagra technical report NTB-02-05. Nagra, Wettingen, Switzerland, 2002.

- Newsome, L., Morris, K. and Lloyd, J.R. The biogeochemistry and bioremediation of uranium and other priority radionuclides, Chemical Geology, Vol. 363, pp. 164–184, 2014.
- 日本原子力研究開発機構, 平成24年度 地層処分技術調査等事業 高レベル放射性廃棄物処分関連 処分システム化学影響高度化開発, 2010.
- 日本原子力研究開発機構, 平成24年度 地層処分技術調査等事業 高レベル放射性廃棄物処分関連 処分システム化学影響高度化開発, 2013.
- 日本原子力研究開発機構, 平成25年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発 報告書 平成26年3月, 2014.
- 日本原子力研究開発機構, 平成26年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発 報告書 平成27年3月, 2015.
- 日本原子力研究開発機構, 平成27年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発 報告書 平成28年3月, 2016.
- 日本原子力研究開発機構, 平成28年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発 報告書 平成29年3月, 2017.
- 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 処分システム評価確証技術開発 報告書 平成30年3月, 2018.
- Ochs M., Mallants D. and Wang L., Radionuclide and metal sorption on cement and concrete Topics in safety, risk, reliability and quality, Vol. 29. Cham, Heidelberg, New York: Springer, 2016.
- 小田治恵, 佐々木良一, Savage, D., Arthur, R.C., 本田 明, 緩衝材の鉱物学的長期変遷シナリオ, JNC TN8400 2005-020, 2005.
- Ohkubo, T., Okamoto, T., Kawamura, K., Guégan,R., Deguchi, K., Ohki, S., Shimizu, T., Tachi,Y. and Iwadate, Y., New insights into the Cs adsorption on montmorillonite clay from <sup>133</sup>Cs solid-state NMR and density functional theory calculations, The Journal of Physical Chemistry A. Vol. 122(48), pp. 9326–9337, 2018.
- Ohkubo, T., Kikuchi, H. and Yamaguchi, M., An approach of NMR relaxometry for understanding water in saturated compacted bentonite, Physics and Chemistry of the Earth, Vol. 33, pp. S169–S176, 2008.
- Ohkubo, T., Ibaraki, M., Tachi, Y. and Iwadate. Y., Pore distribution of water-saturated compacted clay using NMR relaxometry and freezing temperature depression; Effect of density and salt concentration, Appied Clay Science, Vol. 123, pp. 148–155, 2016.
- Ohnuki, T., Ozaki, T., Yoshida, T., Sakamoto, F., Kozai, N., Wakai, E., Francis, A.J. and Iefuji,
  H., Mechanisms of uranium mineralization by the yeast *Saccharomyces cerevisiae*,
  Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol. 69, pp. 5307–5316, 2005.
- O'Toole, G., Kaplan, H.B. and Kolter, R., Biofilm formation as microbial development, Annual Review of Microbiology, Vol. 54, pp. 49–79, 2000.
- Pedersen, K., Subterranean microorganisms and radioactive waste disposal in Sweden, Engineering Geology, Vol. 52, pp. 163–176, 1999.
- Pedersen, K., Bomberg, M. and Itävaara, M., Summary report microbiology of Olkiluoto and ONKALO groundwater, POSIVA 2012-42, 2014.
- Pedersen, K., Microorganisms and their influence on radionuclide migration in igneous rock environments, Journal of Nuclear and Radiochemical Sciences, Vol. 6, pp. 11–15, 2005.
- Peng, L., Liu, P., Feng, X., Wang, Z., Cheng, T., Liang, Y., Lin, Z. and Shi, Z., Kinetics of heavy

metal adsorption and desorption in soil: Developing a unified model based on chemical speciation, Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol. 224, pp. 282–300, 2018.

- Perras, A.K., Wanner, G., Klingl, A., Mora, M., Auerbach, K., Heinz, V., Probst, A.J., Huber, H., Rachel, R., Meck, S. and Moissl-Eichinger, C., Grappling archaea: Ultrastructural analyses of an uncultivated, cold-loving archaeon, and its biofilm, Frontiers in Microbiology, Vol. 5, 397, 2014.
- Pickard, C.J. and Mauri, F., All-electron magnetic response with pseudopotentials: NMR chemical shifts, Physical Review B, Vol. 63, pp. 245101–245115, 2001.
- Poinssot, C., Baeyens, B. and Bradbury, M. H., Experimental studies of Cs, Sr, Ni, and Eu sorption on Na-illite and the modelling of Cs sorption, Bericht Nr. 99-06, 1999.
- Posiva Oy, Safety case for the disposal of spent nuclear fuel at Olkiluoto Models and data for the repository system 2012, POSIVA 2013-01, 2013.
- Posiva, Safety Case for the Disposal of Spent Nuclear Fuel at Olkiluoto Models and Data for the Repository System 2012, POSIVA 2013-01, Posiva Oy. 474p., 2013.
- Pourret, O., Davranche, M., Gruau, G. and Dia, A., Competition between humic acid and carbonates for rare earth elements complexation, Journal of Colloid and Interface Science, Vol. 305, pp.25–31, 2007.
- Probst, A.J., Weinmaier, T., Raymann, K., Perras, A., Emerson, J.B., Rattei, T., Wanner, G., Klingl, A., Berg, I.A., Yoshinaga, M., Viehweger, B., Hinrichs, K.U., Thomas, B.C., Meck, S., Auerbach, A.K., Heise, M., Schintlmeister, A., Schmid, M., Wagner, M., Gribaldo, S., Banfield, J.F. and Moissl-Eichinger, C., Biology of a widespread uncultivated archaeon that contributes to carbon fixation in the subsurface. Nature Communications, Vol. 5, pp. 1–13, 2014.
- Quigley, M.S., Santschi, P.H., Hung, C.C., Guo, L.D. and Honeyman, B.D., Importance of acid polysaccharides for <sup>234</sup>Th complexation to marine organic matter, Limnology Oceanography, Vol. 47, pp. 367–377, 2002.
- Quintessa, QPAC: Quintessa's General-Purpose Modelling Software, QRS-QPAC-11, 2013. (http\*//www.quintessa.org/qpac-overview-report.pdf)
- Rabung, T., Pierret, M.C., Bauer, A., Geckeis, H., Bradbury, M.H. and Baeyens, B., Sorption of Eu(III)/Cm(III) on Ca-montmorillonite and Na-illite. Part 1: Batch sorption and timeresolved laser fluorescence spectroscopy experiments, Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol. 69(23), pp. 5393–5402, 2005.
- Rashid, M.A., Buckley, D.E. and Robertson, K.R., Interactions of a marine humic acid with clay minerals and a natural sediments, Geoderma, 1972.
- Reiller, P., Casanova, F. and Moulin, V., Influence of addition order and contact time on thorium(IV) retention by hematite in the presence of humic acid, Environmental Science & Technology, Vol. 39, pp. 1641–1648, 2005.
- Righetto, L., Bidoglio, G., Azimonti, G. and Bellobono, I.R., Competitive actinide interactions in colloidal humic acid-mineral oxide systems, Environmental Science & Technology, Vol. 25, pp. 1913–1919, 1991.
- Romanchuk, A.Y., Kalmykov, S.N. and Aliev, R.A., Pultonium sorption onto hematite colloids at femto- and nanomolar concentrations, Radiochimica Acta, Vol.99, pp.137–144, 2011.
- Robertson, A.P., Goethite/humic acid interactions and their effects on copper(II) binding [Ph.D.

thesis], Palo Alto, CA, Stanford University, 1996.

- Rotenberg, B., Marry, V., Vuilleumier, R., Malikova, N., Simon, C. and Turq, P., Water and ions in clays: Unraveling the interlayer/micropore exchange using molecular dynamics simulation, Geochimica et Cosmocimica Acta, Vol. 71, pp. 5089–5101, 2007.
- Saito, T., Koopal, L., Nagasaki, S. and Tanaka, S., Analysis of copper binding in the ternary system Cu<sup>2+</sup>/humic acid/goethite at neutral to acidic pH, Environmental Science & Technology, Vol. 39, pp. 4886–4893, 2005.
- Saito, T., Koopal, L.K., Nagasaki, S. and Tanaka, S., Application of the NICA-Donnan model for proton, copper and uranyl binding to humic acid, Raiodchimica Acta, Vol. 92, pp. 564– 574, 2004.
- Saito, T., Terashima, M., Aoyagi, N., Nagao, S., Fujitake, N. and Ohnuki, T., Physicochemical and ion-binding properties of highly aliphatic humic substances extracted from deep sedimentary groundwater, Environmental Science: Processes & Impacts, Vol. 17, pp. 1386–1395, 2015.
- Sakamoto, F., Ohnuki, T., Fujii, T. and Iefuji, H., Response of Saccharomyces cerevisiae to heavy element stress: Lead vs. uranium, Geomicrobiology Journal, Vol. 27, pp. 240–244, 2010.
- Sakuma, H., Tachi, Y., Yotsuji, K., Suehara, S., Arima, T., Fujii, N., Kawamura, K. and Honda, A., Stability of montmorillonite edge faces studied using first-principles calculations, Clays and Clay Minerals, Vol. 65, pp. 252–272, 2017.
- Sakuragi, T., Sato, S., Kozaki, T., Mitsugashira, T., Hara, M. and Suzuki, Y., Am(III) and Eu(III) uptake on hematite in the presence of humic acid, Radiochimica Acta, Vol. 92, pp. 697–702, 2004.
- Samadfam, M., Jintoku, T., Sato, S., Ohashi, H., Mitsugashira, T., Hara, M. and Suzuki, Y., Effects of humic acid on the sorption of Am(III) and Cm(III) on kaolinite, Radiochimica Acta, Vol. 88, pp. 717–721, 2000.
- Sasaki, T., Aoyama, S., Yoshida, H., Kulyako, Y., Samsonov, M., Kobayashi, T., Takagi, I., Miyasoedov, B. and Moriyama, H., Apparent formation constants of Pu(IV) and T(IV) with humic acids determined by solvent extraction method, Raidochimica Acta, Vol. 100, pp. 737–745, 2012.
- Sasamoto, H., Arthur, R.C. and Hama, K., Interpretation of undisturbed hydrogeochemical conditions in Neogene sediments of the Horonobe area, Hokkaido, Japan, Applied Geochemistry, Vol. 26, pp. 1464–1477, 2011.
- Sasamoto, H., Yui, M. and Hama, K., A preliminary interpretation of groundwater chemistry in the Horonobe area, Japan, In: Water-Rock Interaction (Bullen and Wang, eds.), Taylor and Francis Group, London, U.K., 2007.
- Savage D., A review of analogues of alkaline alteration with regard to long-term barrier performance, Vol. 75(4), pp. 2401–2418, 2011.
- Savage D., Soler J., Yamaguchi K., Walker C., Honda A., Inagaki M., Watson C., Wilson J., Benbow S., Gaus I. and Rueedi J., A comparative study of the modelling of cement hydration and cement-rock laboratory experiments, Applied Geochemistry, Vol. 26(7), pp. 1138–1152, 2011.
- Scheinost, A.C. and Charlet, L., Selenite reduction by mackinawite, magnetite and siderate:

XAS characterization of nanosized redox products, Environmental Science & Technology, Vol. 42, pp. 1984–1989, 2008.

- Schiewer, S. and Volesky, B., Biosorption processes for heavy metal removal. In: Lovley, D.R. (Ed), Environmental microbe-metal interactions, ASM Press, Washington D.C., pp. 329– 362, 2000.
- Schnurr, A., Marsac, R., Rabung, T., Lützenkirchen, J. and Geckeis, H. Sorption of Cm(III) and Eu(III) onto clay minerals under saline conditions: Batch adsorption, laserfluorescence spectroscopy and modeling, Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol. 151, pp. 192–202, 2015.
- Seida, Y., Terashima, M., Tachi, Y., Iijima, K., Nakazawa, T., Yamada, M. and Yui, M., Sorption and diffusion of Eu in sedimentary rock in the presence of humic substances, Radiochimica Acta, Vol. 98, pp. 703–709, 2010.
- Shaker, A.M., Komy, Z.R., Heggy, S.E.M. and Ei-Sayed, M.E.A., Kinetic study for adsorption humic acid on soil minerals, The Journal of Physical Chemistry, Vol. 116, pp. 10889–10896, 2012.
- Shen, Y., Chapelle, F.H., Strom, E.W. and Benner, R., Origins and bioavailability of dissolved organic matter in groundwater, Biogeochemistry, Vol. 122, pp. 61–78, 2015.
- 柴田雅博, 笹本広, 神 徳敬, 油井三和, 緩衝材の長期安定性評価技術の現状, JNC-TN8400 2004-010, 2004.
- Soler J. and Mäder U., Cement-rock interaction: Infiltration of a high-pH solution into a fractured granite core, Geologica Acta, Vol. 8(3), pp. 221–233, 2010.
- Soler J., Vuorio M. and Hautojärvi A., Reactive transport modeling of the interaction between water and a cementitious grout in a fractured rock. Application to ONKALO (Finland), Applied Geochemistry, Vol. 26(7), pp. 1115–1129, 2011.
- Stern, J.C., Foustoukos, D.I., Sonke, J.E. and Salters, V.J.M., Humic acid complexation of Th, Hf and Zr in ligand competition experiments: Metal loading and pH effects, Chemical Geology, Vol. 363, pp. 241–249, 2014.
- Stoodley, P., Sauer, K., Davies, D.G. and Costerton, J.W., Biofilms as complex differentiated communities, Annual Review of Microbiology, Vol. 56, pp. 187–209, 2002.
- Stroes-Gascoyne, S., Hamon, C.J., Maak, P. and Russell, S., The effects of the physical properties of highly compacted smectite clay (bentonite) on the culturability of indigenous microorganisms, Applied Clay Science, Vol. 47, pp. 155–162, 2010.
- Suzuki, Y. and Banfield, J.F., Geomicrobiology of uranium. In Uranium: Mineralogy, Geochemistry and the Environment, Review in Mineralogy (Burns, P.C., and Finch, R. ed.), 38, Mineralogical Society of America, Washington D.C. pp. 393–432, 1999.
- Suzuki, Y., Kelly, S.D., Kemner, K.M. and Banfield, J.F., Nanometre-size products of uranium bioreduction, Nature, Vol. 419, 134, 2002.
- Tachi, Y., Ebina, T., Takeda, C., Saito, T., Takahashi, H., Ohuchi, Y. and Martin, A.J., Matrix diffusion and sorption of Cs<sup>+</sup>, Na<sup>+</sup>, I<sup>-</sup> and HTO in granodiorite<sup>:</sup> Laboratory-scale results and their extrapolation to the in situ condition, Journal of Contaminant Hydrology, Vol. 179, pp. 10–24, 2015.
- Tachi, T., Ito, T., Akagi, Y., Satoh, H. and Martin, A.J., Effects of fine-scalesSurface alterations on tracer retention in a fractured crystalline rock from the Grimsel test site, Water

Resources Research, Vol. 54(11), pp. 9287–9305, 2018.

- Tachi, Y., Ochs, M. and Suyama, T., Integrated sorption and diffusion model for bentonite. Part 1: Clay-water interaction and sorption modeling in dispersed systems, Journal of Nuclear Science and Technology, Vol. 51(10), pp. 1177–1190, 2014.
- Tachi, Y., Suyama, T., Yotsuji, K., Ishii, Y. and Takahashi, H., Clay-based modelling approach for diffusion and sorption in the argillaceous rock from the Horonobe URL: Application for Ni(II), Am(III) and Se(IV), CMS workshop lecture series 21 (Filling the gaps - from microscopic pore structures to transport properties in shales), Chap. 19, pp. 241–250, 2016.
- Tachi, Y., Yotsuji, K., Seida, Y. and Yui, M., Diffusion and sorption of Cs<sup>+</sup>, I<sup>-</sup> and HTO in samples of the argillaceous Wakkanai Formation from the Horonobe URL, Japan: Claybased modeling approach, Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol. 75, pp. 6742–6759, 2011.
- Takahashi, Y., Chatellier, X., Hattori, K.H., Kato, K. and Fortin, D., Adsorption of rare earth elements onto bacterial cell walls and its implication for REE sorption onto natural microbial mats, Chemical Geology, Vol. 219, pp. 53–67, 2005.
- Takahashi, Y., Minai, Y., Ambe, S., Makide, Y. and Ambe, F., Comparison of adsorption behavior of multiple inorganic ions on kaolinite and silica in the presence of humic acid using multitracer technique – A comparison with dissolved aluminium, Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol. 63, pp. 815–836, 1999.
- Takahashi, Y., Yamamoto, M., Yamamoto, Y. and Tanaka, K., EXAFS study on the cause of enrichment of heavy REEs on bacterial cell surfaces, Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol. 74, pp. 5443–5462, 2010.
- 武田匡樹,大野宏和,石井英一,舘 幸男,幌延URLにおける物質移行特性評価:(1)泥岩中の割れ 目およびマトリクスを対象とした原位置トレーサー試験,日本原子力学会2017年秋の大会 予稿集1H14,2017.
- Tanaka, K., Tani, Y., Takahashi, Y., Tanimizu, M., Suzuki, Y., Kozai, N. and Ohnuki, T., A specific Ce oxidation process during sorption of rare earth elements on biogenic Mn oxide produced by *Acremonium* sp. Strain KR21-2, Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol. 74, pp. 5463–5477, 2010.
- Tazi, S., Rotenberg, B., Salanne, M., Sprik, M. and Sulpizi, M., Absolute acidity of clay edge sites from ab-initio simulations, Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol. 94, pp. 1–11, 2012.
- Thurman, E. M., Organic geochemistry of natural waters, Martinus Nijhoff/Dr W. Junk Publishers, a member of the Academic publishers group, DORDRECHT / BOSTON / LANCASTER., 1985.
- Tipping, E., Griffith, J.R. and Hilton, J., The effect of adsorbed humic substances on the uptake of copper(II) by goethite, Croatica Chemica Acta, Vol.56, pp.613–621, 1983.
- Tournassat, C., Tinnacher, R.M., Grangeon, S. and Davis, J.A., Modeling uranium(VI) adsorption onto montmorillonite under varying carbonate concentrations: A surface complexation model accounting for the spillover effect on surface potential, Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol. 220, pp. 291–308, 2018.
- Tsezos, M. and Volesky, B., Biosorption of uranium and thorium. Biotechnology and Bioengineering, 23, pp.583-604, 1981.
- Tsushima, S., Uchida, Y. and Reich, T., A theoretical study on the structures of UO<sub>2</sub>(CO<sub>3</sub>)<sub>3</sub><sup>4-</sup>,

Ca<sub>2</sub>UO<sub>2</sub>(CO<sub>3</sub>)<sub>3<sup>0</sup></sub>, and Ba<sub>2</sub>UO<sub>2</sub>(CO<sub>3</sub>)<sub>3<sup>0</sup></sub>, Chemical Physics Letters, Vol. 357, pp. 73–77, 2002.

- 對馬正人,武田匡樹,大野宏和,幌延深地層研究計画における稚内層中の割れ目帯を対象とした 物質移行試験-ボーリング調査および物質移行試験データ集-,JAEA-Data/Code-2018-008, 2018.
- Turner, D.R., Pabalan, R.T. and Bertetti, F.P., Neptunium(V) sorption on montmorillonite: An experimental and surface complexation modeling study, Clays and Clay Minerals, Vol. 46(3), pp. 256–269, 1998.
- Vandergraaf, T.T., Miller, H.G., Jain, D. K., Hamon, C. J. and Stoes-Gascoyne, S., The effect of biofilms on radionuclide transport in the geosphere: Results from an initial investigation. Atomic Energy of Canada LTD. Technical Report, TR-774, COG-96-635-I, 1997.
- Vermeer, A.W.P., McCulloch, J.K., van Riemsdijik, W.H. and Koopal, L.K., Metal ion adsorption to complexes of humic acid and metal oxides: Deviation from the additivity rule, Environmental Science & Technology, Vol. 33, pp. 3892–3897, 1999.
- Volesky, B. and Holan, Z.R., Biosorption of heavy-metals. Biotechnology Progress, 11, pp.235-250, 1995.
- Wang, L., Maes, A., De Canniére, P. and van der Lee, J., Sorption of europium on illite (Silver Hill Montana), Radiochimica Acta, Vol. 82, pp. 233–237, 1998.
- Wang, X., Chen, C., Du, J., Tan, X., Xu, D. and Yu, S., Effect of pH and aging time on the kinetic dissociation of <sup>243</sup>Am(III) from humic acid-coated y-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>: A chelating resin exchange study, Environmental Science & Technology, Vol. 39, pp. 7084–7088, 2005.
- Wang, X.K., Rabung, T., Geckeis, H., Panak, P.J., Klenze, R. and Fanghänel, T., Effect of humic acid on the sorption of Cm(III) onto γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> studied by the time-resolved laser fluorescence spectroscopy, Radiochimica Acta, Vol. 92, pp. 691–695, 2004.
- Wendt, S., Sorption and direct speciation of neptunium(V) on aluminium oxide and montmorillonite [Ph.D. thesis], University of Mainz, 2009.
- Weng, L., Van Riemsdijik, W.H. and Hiemstra, T., Cu<sup>2+</sup> and Ca<sup>2+</sup> adsorption to goethite in the presence of fulvic acids, Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol. 72, pp. 5857–5870, 2008.
- West, J.M., McKinley, I.G. and Stroes-Gascoyne, S., Microbial effects on waste repository materials. In Keith-Roach, M.J. and Livens, (ed.) Interactions of Microorganisms with Radionuclides, Elsevier, pp. 255–277, 2002.
- White, C. and Gadd, G.M., Accumulation and effects of cadmium on sulfate reducing bacterial biofilms, Microbiology, Vol. 144, pp. 1407–1415, 1998.
- White, C. and Gadd, G.M., Copper accumulation by sulfate reducing bacterial biofilms, FEMS Microbiology Letters, Vol. 183, pp. 313–318, 2000.
- Williams, K.H., Long, P.E., Davis, J.A., Wilkins, M.J., N'Guessan, A.L., Steefel, C.J., Yang, L., Newcomer, D., Spane, F.A., Kerkhof, L.J., McGuinness, L., Dayvault, R. and Lovley, D.R., Acetate availability and its influence on sustainable bioremediation of uraniumcontaminated groundwater, Geomicrobiology Journal, Vol. 28, pp. 519–539, 2011.
- Wold, S. and Eriksen, T., Diffusion of humic colloids in compacted bentonite, Physics and Chemistry of the Earth, Vol. 32, pp. 477–484, 2007.
- Xiong, J., Koopal, L.K., Weng, L., Wang, M. and Tan, W., Effect of soil fulvic and humic acid on binding of Pb to goethite-water interface: Linear additivity and volume fraction of HS

in the stern layer, Journal of Colloid and Interface Science, Vol. 457, pp. 121-130, 2015.

- Yamamoto, H., Shimo, M., Fujiwara, Y., Kunimaru, T., Xu, T. and Laakshoharju, M., Longterm geochemical transport simulation to evaluate ambient chemical conditions at Horonobe URL site, Japan. Paper Number H11D-1293, American Geophysical Union Fall Meeting, 2005.
- Yamazaki, S., Tanaka, K., Kozai, N. and Ohnuki, T., Effect of flavin compounds on uranium(VI) reduction- kinetic study using electrochemical methods with UV-vis spectroscopy, Applied Geochemistry, Vol. 78, pp. 279–286, 2017.
- Yoshinaga, N. and Kanasaki, N., Synthesis of ferrihydrite and feroxyhyte, Clay Science, Vol. 9, pp. 43–51, 1993.
- Zachara, J.M., Resch, C.T. and Smith, S.C., Influence of humic substances on Co<sup>2+</sup> sorption by a subsurface mineral separate and its mineralogic components, Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol. 58, pp. 553–566, 1994.
- Zavarin, M. and Bruton, C.J., A non-electrostatic surface complexation approach to modeling radionuclide migration at the Nevada test site: I. Iron oxides and calcite, Lawrence Livermore National Laboratory, UCRL-TR-208673, Livermore, USA, 2004.
- Zavarin, M., Carle, S.F. and Maxwell, R.M., Upscaling radionuclide retardation—Linking the surface complexation and ion exchange mechanistic approach to a linear Kd approach. Lawrence Livermore National Laboratory, UCRL-TR-204713, Livermore, USA, 2004.

# 4. ニアフィールド性能の総合評価技術開発

## 4.1 目的と2ヵ年の計画

## 4.1.1 目的

地層処分システムの性能評価では、ニアフィールドの長期挙動に影響を及ぼす可能性のある複 数の現象とこれらの相関関係の理解に基づき、ニアフィールド環境変遷を評価するとともに、こ うしたニアフィールド環境変遷評価から得られる知見や情報を、核種移行の場の設定に反映させ て核種移行挙動を評価する必要がある。人工バリア及び周辺の岩盤からなるニアフィールドにお いては、熱的、水理学的、力学的及び化学的なプロセスが相互に影響を及ぼし合うことにより環 境条件が変遷するため、これらの多様なプロセスに関する個別のモデルによる評価だけでは不十 分となる可能性がある。

こうした観点から、これらの個別のモデルを統合し、ニアフィールド環境の変遷及びそれを考慮した核種移行挙動を解析することの可能な解析ツールを開発することを目的として、個別の現象モデルを統合してニアフィールドの空間的・時間的な変遷を解析するためのシステムを構築する(サブタスク1において実施)とともに、このシステムの解析によって予測される場の変遷を 核種移行解析モデルへ適切に反映する手法を構築する(サブタスク2において実施)。

#### 4.1.2 2ヵ年の計画

サブタスク1について、平成30年度は、ニアフィールドにおける化学、水理、力学などの異 なる物理現象の連成効果 (マルチフィジックス性と呼ぶ)、バリア材料間の界面などの局所的な領 域で生ずる相互作用などの現象とこれがニアフィールドシステムの挙動へ与える影響や間隙構造 など微視的スケールでの不均質性など(マルチスケール性と呼ぶ)を有する諸現象を対象に、ニ アフィールドシステムの変遷を評価するために必要なスケール間や現象間の相互の関係を明らか にする。そして、各研究分野において開発されている個別現象解析モデルや連成解析手法の最新 知見の調査を行い、これらの知見に基づき、様々な現象解析モデルを解析モデル間の連成のルー ルに基づき解析をコントロールする機能などを有するプラットフォーム上に統合・連成させるた めの研究開発アプローチを提案する。さらに、その研究アプローチに沿って、「緩衝材へのオーバ ーパックの腐食影響」や「コンクリート埋め戻し材の鉄腐食膨張に伴うひび割れ」などのマルチ フィジックス性とマルチスケール性の複合問題に対処できるニアフィールド複合現象解析システ ム(先行事業「セメント材料影響評価技術高度化開発」(平成 23 年度~平成 26 年度)(日本原 子力研究開発機構、2012;2013;2014a;2015a)及び「処分システム評価確証技術開発」(平成 25 年度~平成 29 年度)(日本原子力研究開発機構, 2014b; 2015b; 2016; 2017; 2018)で開 発)を最大限活用して、ニアフィールドの振る舞いが評価できる解析システムのプロトタイプの 構築に着手する。平成31年度は、プロトタイプを活用して試行的な解析を行い、その結果に基づ き、核種移行パラメータや核種移行解析の前提条件への影響の分析・整理を通じた課題の抽出と 対処方策の提案を行う。

サブタスク2については、平成30年度は、ニアフィールド条件の変化を設定するために必要 な、時間変化を考慮した地質環境モデルに関する最新知見や、ニアフィールドを対象として開発 されている現象解析モデルの最新知見を踏まえつつ、連成解析の結果を反映させて核種移行を評 価するための解析手順やデータ受け渡しなどのフレームワークの構築に着手する。平成31年度 は、上記の連成プラットフォームを利用した核種移行解析モデルを構築し、試行的な核種移行解 析を実施する。さらに、その試行結果に基づいた課題の抽出と、課題解決に向けた研究開発のア プローチを提案する。

## 4.2 現象解析モデルの統合化技術の構築

#### 4.2.1 背景と目的

本事業の先行事業である「処分システム評価確証技術開発」(平成25年度~平成29年度)では、 ニアフィールドのシステム変遷と核種移行解析の体系的評価技術として、ニアフィールドシステ ム変遷に関する複合現象の解析とその現象解析結果に追随して核種移行解析を行う手法を開発し、 ニアフィールド複合現象評価手法、核種移行評価手法、共通モデル・シナリオ・データベース及 び成果の体系化手法をまとめたニアフィールド総合評価システムを構築した(日本原子力研究開 発機構,2016;2017;2018)。この先行事業の取り組みでは、個別モデルによる解析だけでは、 ニアフィールド全体性能への影響の把握が困難な現象として、主に「コンクリートでのひび割れ の発生・進展問題」に着目し、プラットフォームを中核とするシステムの開発を実施した。これ により、コンクリートのひび割れ発生・進展とその周囲の化学的変質などに係る局所スケールの 現象が、坑道全体スケールの挙動にどのような影響を及ぼすかという点に着目した化学ー物質輸 送ー力学連成解析が可能となった。このような解析では、4.1.2項で示した「マルチフィジックス 性」と「マルチスケール性」を有する諸現象を統合させることにより解析モデルが構築されてい る点が特徴的である。

しかしながら、当該システムで対象とする現象は、上記で示したコンクリートのひび割れ・進 展問題に限定されており、ニアフィールドで考慮する必要のある複合現象と、それが安全機能に 与える影響に関する情報の抽出とその分析・整理が十分に行われていない。また、システムで対 象とする現象が変わる場合には、個別現象モデルやそれらの統合・連成の構造なども変わる可能 性があることから、これらを反映したシステムの整備も不十分であると考えられる。

そこで本節では、コンクリートにおけるひび割れの発生・進展問題に限らず、幅広い現象を対 象として、個別現象モデルを統合し、ニアフィールドの空間的・時間的な変遷を解析するシステ ムを構築することを目的として、このようなシステムの開発に向けたアプローチを提案するとと もに、これに基づき、システムのプロトタイプを構築した。本節ではこの検討の成果を示す。

#### 4.2.2 ニアフィールドの複合現象を評価するシステムの開発アプローチの提案

個別現象のモデルを統合することによりニアフィールドの複合現象を評価するシステムでは、 先行事業で開発されたシステムと同様に、バリアシステムに使用される異種材料間の相互作用や 複数分野のプロセス群を複合的に考慮する必要のある現象(複合現象)を対象とすることが想定 される。このような現象は、本質的に、「マルチフィジックス性」と「マルチスケール性」を有す る。平成 30 年度に開発するシステムで取り扱う現象の選定にあたり、このような現象から、バリ ア構成要素の安全機能や核種移行挙動への影響が大きい現象を抽出していくことが必要である。 したがって、このような評価システムの開発には、個別のモデルを統合するボトムアップ的な視 点からの検討に加えて、地層処分システム全体の核種の閉じ込め性能(核種移行解析などにより 評価)からのトップダウン的な視点を取り入れて検討を進めていくものとした。本システムの開 発における現象解析モデルの統合化の構造を図 4.2-1 に示す。

トップダウン的な視点からの検討としては、ニアフィールドを対象とする性能評価の感度解析 を行うことにより、重要性の高い安全機能を抽出するとともに、抽出された安全機能が、一定の レベルで確実に担保されることを実証できるようにするために、これに関連する現象群を抽出し、 これらの複合現象を評価するうえで重点的に取り組むべき課題を設定することが必要である。ま た、上記の課題に着目して、個別の現象理解の研究の優先度を判断するとともに、複合現象のシ ミュレーションに必要な現象解析モデルの要件の抽出や適切なモデルの選定などを実施すること が必要と考えられる。 他方、ボトムアップ的な検討としては、トップダウン的な検討により選定された現象解析モデ ルを、「マルチフィジックス性」「マルチスケール性」の観点から集約・統合させるためのシステ ムを開発していくことが挙げられる。ここで、先行事業では考慮されていなかったこととして、 処分場が建設される場所の地質環境条件の変遷(隆起・侵食、海水準変動、地震動による影響な ど)とともにニアフィールドの状態が変化していく可能性が考えられる。そこで、上記の「マル チフィジックス性」「マルチスケール性」の観点に加えて、このような地質環境条件などの外的な 要因による変化(ダイナミクス性と呼ぶ)を含む三つの観点から集約・統合させるためのシステ ムを開発して、個別現象の理解促進のための研究で得られた知識やデータを活用しつつ、ニアフ ィールドの現実的な変遷を予測するとともに、その結果に基づき、核種移行の場を設定すること が必要となる。さらに、複合現象評価システムによるシミュレーションの結果に基づき、設定し た課題に対する達成度の評価や得られた課題の抽出などを行い、個別の現象解析モデル開発にフ ィードバックしていくことも重要である。

上記に示した現象解析モデルの統合化の構造に則って、ニアフィールドを対象とする性能評価 の感度解析によるトップダウン的な視点から重要性の高い安全機能を抽出し、これらの複合現象 を評価するうえで重点的に取り組むべき課題を設定するとともに、設定された課題のうち、緩衝 材の長期的変遷挙動にかかわる課題に着目して、「マルチフィジックス性」「マルチスケール性」 「ダイナミクス性」の観点から、システム構成の具体化に向けた検討を行った。以下では、この 検討の成果を「(1) ニアフィールド複合現象評価システムで対象とすべき課題の抽出」「(2) 緩衝 材の長期的変遷挙動の予測に向けたシステム構成の具体化」の順に示す。



図 4.2-1 ニアフィールド性能の総合評価技術開発に向けたアプローチ概念図(再掲)

## (1) ニアフィールド複合現象評価システムで対象とすべき課題の抽出

4.2.2 項の冒頭で示した検討の手順に従い、はじめに長期的安全確保上重要な安全機能を抽出 するため、第2次取りまとめ(核燃料サイクル開発機構,1999)と同様の核種移行解析モデルを 用いてケーススタディを実施した。具体的には、ガラス固化体からニアフィールド岩盤までの領 域を対象として、この領域における人工バリア及び天然バリアが有する多重の安全機能の一部も しくは複数が失われた場合を想定したケーススタディを行った。このような状況は、現実的に起 こりうる状況を想定したものではなく、長期にわたる安全性を確保する上で重要な安全機能を相 対比較により抽出するために、敢えて、安全機能が失われる状況を想定していることに注意が必 要である。なお、核種溶解度制限の前提となる地下水水質の還元性については常に成立するもの と仮定した。感度解析で対象とした安全機能を表 4.2-1 に示す。感度解析の結果から、重要な安 全機能の抽出を以下の二つの視点から行うこととした。

- 十分性…着目する安全機能(あるいはそれらの組み合わせ)が担保されれば、他の安全機能 の如何によらず全体として安全性を確保し得る。
- 必要性…着目する安全機能(あるいはそれらの組み合わせのいずれも)が失われる場合、他のバリアで代替することはできず、大きな影響が生ずる可能性がある。

対象とする 安全機能	機能する場合の想定	安全機能が失われる 場合の想定	備考
オーバーパック 閉じ込め性	容器寿命 1,000 年	容器寿命 100 年*	*制度的管理などを考慮して 100 年 を最短の閉じ込め期間と仮定
ガラス固化体 低浸出性	溶解期間 70,000 年	溶解期間 7,000 年*	*容器腐食膨張によるガラスの割れ 及び鉄と Si の共沈による溶解促進 などを考慮
緩衝材止水性	緩衝材中は拡散場	緩衝材中は移流場	流量は EDZ <sup>1)</sup> を通過する地下水流量 と同等とし、同時に、核種収着性も 失われると仮定
緩衝材 コロイドろ過性	コロイドは緩衝材外 部には移行しない	核種は全てコロイド として岩盤に移行	ガラス固化体からの調和溶解によ る核種の放出率をコロイドとして の岩盤への移行率の上限とし、同時 に、止水性と核種収着性も失われる と仮定
緩衝材核種収着性	直接処分第 1 次取り まとめ <sup>20</sup> のレファレ ンスケース	全核種の 収着分配係数 $K_d = 0$	緩衝材変質などにより実際に収着 分配係数 ( $K_d$ ) が低下する事に加え、 データの不確実性に対する悲観的 想定が必要となる可能性を考慮
EDZ <sup>1)</sup> 流量制限	直接処分第 1 次取り まとめ <sup>20</sup> のレファレ ンスケース	現実的に十分大きいと 考えられる流量*	*緩衝材止水性が機能している場合 は外側核種濃度 0 境界(EDZ <sup>1)</sup> 流量 が無制限に大きい状況)、それ以外 はレファレンスの 100 倍と仮定
ニアフィールド 岩盤中移行遅延性	直接処分第 1 次取り まとめ <sup>2)</sup> のレファレ ンスケース*	岩盤中の 核種移行時間= 0*	*岩盤不均質性やセメント影響など に起因する不確実性に対する悲観 的想定が必要となる可能性を考慮

表4.2-1 感度解析で対象とした安全機能

1) 掘削影響領域を意味する。

2) 日本原子力研究開発機構(2015c)

単独の安全機能に着目した感度解析結果の分析

単独の安全機能に着目した場合の、その安全機能の必要性及び十分性の整理結果を、それぞれ 図4.2-2及び図4.2-3に示す。縦軸のフラックスは、表4.2-1で示した安全機能がすべて担保される 場合のフラックスで規格化された数値である。この結果から、必要性の観点からは「EDZ流量制 限」が失われるケースのフラックスが最も高く、相対的に最も重要性の高い安全機能となる結果 が得られた。また、十分性の観点からは「ニアフィールド岩盤中移行遅延」のフラックスが最も 低く抑えられ、相対的に最も重要性の高い安全機能となる結果が得られた。

このうち「ニアフィールド岩盤中移行遅延」については、十分性の観点からは重要性が高いと 考えられたものの、必要性の観点からは、他の安全機能と比較して重要性が必ずしも高いとは言 えない。また、「EDZ流量制限」については、上記の感度解析では、人工バリアから放出した核 種が、EDZで岩盤中の地下水と瞬時に均質混合するものとして単純化したモデルが使用されてい ることから、複合現象評価を行う観点で重要な課題として選定する前に、まずは個別現象モデル 開発として、EDZにおける地下水と核種の移行挙動に関する現象の理解に関する研究を進めると ともに、それが適切に反映された移行モデルを構築することが必要と考えられる。また、EDZ流 量は、岩盤の透水性に影響を受けることから、表4.2·1の「安全機能が失われる場合の想定」で記 述した流量が大きい状況は、サイト選定で避けられる可能性が高い。こうした理由から、「EDZ 流量制限」については、これ以降の複合現象評価で重要となる課題の対象から除外した。

上記で示した単独の安全機能に着目した分析では、十分性の観点からの「ニアフィールド岩盤 中移行遅延」の結果を除くと、重要性に大きな違いが生じる結果ではなかった。このことは、地 層処分システムが多重バリアとして構成されていることにも起因していると考えられ、単独の安 全機能のみが担保あるいは失われることで地層処分システム全体の性能が顕著に変化する可能性 は小さいことを示唆していると考えられる。



(図中の「NF」は「ニアフィールド」を示す)



(図中の「NF」は「ニアフィールド」を示す)

二つの安全機能の組み合わせに着目した感度解析結果の分析

上記で示した通り、単独の安全機能が担保されるケースと失われるケースの分析結果では、一 部を除き、重要性に大きな違いが生じる結果ではなかったことから、任意の二つの安全機能の組 み合わせに着目して、これが同時に担保されるケースと失われるケースについても解析を行い、 結果の分析を行うものとした。二つの安全機能の組み合わせに着目した場合の、必要性及び十分 性の整理結果を図4.2-4及び図4.2-5にそれぞれ示す。縦軸のフラックスは、単独の安全機能の解析 結果と同様に、表4.2-1で示した安全機能がすべて担保される場合のフラックスで規格化された数 値である。

必要性の観点からは、「EDZ流量制限」を除くと、上位から順に、「緩衝材コロイドろ過性」 「ニアフィールド岩盤中移行遅延」「緩衝材止水性」「オーバーパック閉じ込め性」「緩衝材核 種収着性」のいずれか二つの安全機能が失われるケースにおいて、フラックスが特に高い値を示 す傾向が認められたことから、これらの安全機能の重要性が特に高いと考えられた。また、十分 性の観点からは、「ニアフィールド岩盤中移行遅延」とそれ以外の安全機能が担保されるケース において、フラックスが特に低い値を示す傾向が認められたことから、「ニアフィールド岩盤中 核種移行遅延」の安全機能の重要性が特に高いと考えられた。

以上より、上記で抽出された五つの安全機能について、個別の現象モデルを統合化して複合現 象を評価する観点で重要となる評価課題の候補を表4.2-2に示すように整理した。





課題	着目すべき 安全機能	目標	重要度が高いと判断した理由
閉鎖後過渡期の 人工バリア挙動の予測	オーバーパック 閉じ込め性	過渡期における人工バリアの変遷挙動の範囲 を予測して、オーバーパック寿命が千年以上と なる腐食環境となり、Sr-90などの短半減期核 種が確実に閉じ込められることを示す。	<ul> <li>特に、「ニアフィールド岩盤中核種移行遅延」と</li> <li>同時に安全機能が失われる場合には、核種の移行フラックスが高く、必要性の観点から重要な</li> <li>安全機能である。</li> </ul>
緩衝材の 長期的変遷挙動の予測	緩衝材止水性、 コロイドろ過性、 核種収着性	他のバリア材や岩盤・地下水との相互作用によ る、閉鎖後長期における緩衝材の状態変遷を予 測し、緩衝材の止水性、コロイドろ過性及び核 種収着性が継続されることを示す。	<ul> <li>特に、「ニアフィールド岩盤中核種移行遅延」と</li> <li>同時に安全機能が失われる場合には、核種の移行フラックスが高く、必要性の観点から重要な</li> <li>安全機能である。</li> </ul>
ニアフィールド岩盤中の 核種移行遅延の予測	岩盤中の 核種移行遅延	岩盤中の核種移行場を現実的に想定した場合、 フラックスが顕著に低減されることを示す。	<ul> <li>特に、オーバーパックや緩衝材と同時に安全機 能が失われる場合には、核種の移行フラックス が高く、必要性の観点から重要な安全機能であ る。</li> <li>単独で安全機能が担保される場合でも、核種の 移行フラックスが低く抑えられ、十分性の観点 からも重要な完全機能である。</li> </ul>

以上に示した性能評価の感度解析の結果及びその分析により抽出された三つの課題を対象として、ニアフィールドの複合現象を評価するシステムを構築するには、統合化に向けて必要となる 個別の現象モデル群やそれらを連携させる手法が十分に整備されている必要がある。

閉鎖後過渡期の人工バリア挙動の予測については、2章で示しているように、オーバーパックの 閉じ込め性に着目して、孔食などの局在的な腐食の生起可能性を把握するための実験的検討など が行われているものの、緩衝材との相互作用なども考慮した複合現象としての現実的な挙動を表 現するためのモデル間の連携手法の検討などは行われていない。また、岩盤を対象とする場合に は、モデルやパラメータの値の不確実性が大きいことに加えて、サイトが確定していない段階で は、岩盤に関する情報が限定的であるなどの理由により、より現実的な検討には、3章で示した核 種移行モデルの高度化の取り組みに加えて、実際のサイトのデータをいかに活用するかが問題と なる。

一方で、他のバリア材や岩盤・地下水との相互作用による緩衝材の長期的変遷挙動の予測については、先行事業である「セメント材料影響評価技術高度化開発」(平成23年度~平成26年度)及び「処分システム評価確証技術開発」(平成25年度~平成29年度)において、緩衝材の状態の変化に着目して、オーバーパックに使用される鉄や坑道支保などに使用されるセメント系材料との相互作用に関する現象解析モデルとその連携手法の検討が行われており(日本原子力研究開発 機構,2014a;2015a;2016;2017;2018)、この成果を最大限活用することで、効率的にシステムの開発を進めることが見込まれる。こうした観点から、上記で抽出された三つの課題のうち、「緩衝材の長期的変遷挙動の予測」を優先的に取り組む課題としてシステム開発を進めるものとした。

## (2) 緩衝材の長期的変遷挙動の予測に向けたシステム構成の具体化

上記で示した「緩衝材の長期的変遷挙動の予測」の課題を対象として、「マルチフィジックス 性」、「マルチスケール性」及び「ダイナミクス性」の三つの観点から、ガラス固化体の地層処 分システムを対象として、関連する状態変遷のパターンを抽出するとともに、評価のためのシス テム構成の具体化を試みた。

#### 1) 緩衝材の安全機能が失われる状態変遷パターンの抽出

表 4.2・2 で示したように、緩衝材の変遷挙動を予測し、長期にわたって緩衝材の止水性やコロ イドろ過性などの安全機能が担保されることを示すには、このような安全機能が失われる状態変 遷のパターンを具体化するとともに、その生起可能性を解析によって定量的に評価することが有 効であると考えられる。そこでまず、緩衝材を横断する領域において止水性やコロイドろ過性な どの安全機能が失われる状況に至る状態変遷のパターンを抽出するために、このような悲観的な 状態変遷のパターンを含む複合的な現象相関の全体像をインフルエンスダイアグラムの形式で整 理した。次に、全体像の整理結果に基づき、このような状態変遷のパターンが生起するための分 岐点とそれを左右し得る条件を抽出するとともに、抽出された状態変遷のパターンを、バリア構 成要素の安全機能や核種の移行挙動への影響の観点からストーリーボードの形式で整理した。

なお、本検討では、緩衝材の周囲にコンクリート支保が設置されている状態を想定し、再冠水 終了後において、コンクリート支保と、オーバーパックに使用される鉄材料との長期的な相互作 用などによって緩衝材の状態が時間の経過とともに著しく変化する可能性に着目して、状態変遷 パターンの抽出を試みた。ここで、状態変遷のパターンとは、着目している状況に至る状態変遷 の過程を意味する。

## ① 緩衝材における長期的な変遷の全体像の把握

セメント系材料や鉄と緩衝材との間では多様な相互作用が生じ、これらが有機的に影響しあい ながら全体として長期的な変質をもたらすと考えられる。このような変質現象は、変質の促進あ るいは抑制の正負のフィードバックループを内包する非線形の連成現象であるとされる (Metcalfe and Walker, 2004)。そこで、このような化学的現象、物質輸送現象及び力学的現象 に跨るフィードバックループを含む非線形挙動が起こり得る領域や現象相関のポイントを以下に 示すように明示しつつ、緩衝材の長期的な変遷の全体像をインフルエンスダイアグラムとして整 理した(図4.2-6参照)。

- ガラス固化体の地層処分システムで、再冠水終了後において想定される、コンクリート支保、 緩衝材、炭素鋼オーバーパックにおける現象及びそれらの材料間相互作用を対象とした。
- 「ダイナミクス性」の観点から、地震動による影響を考慮した。
- インフルエンスダイアグラムを作成する際は、上記の部材ごとに領域を分け、各々の領域において生起すると考えられる現象間の関連性について記載した。なお、緩衝材については、外側(コンクリート支保との相互作用により状態が変化する部分)、内側(オーバーパックとの相互作用により状態が変化する部分)、それ以外の部分(緩衝材の本体に相当する箇所で、少なくとも処分場閉鎖直後の段階では上記の相互作用による状態の変化が生じない部分)では、現象相関などの特徴が異なると考えられることから、これら三か所に分けて記載した。



図 4.2-6 インフルエンスダイアグラムによる現象相関の整理結果

#### ② 緩衝材の安全機能が失われる状況に至る分岐点と状態変遷のパターンの抽出

図4.2・6のインフルエンスダイアグラムから、緩衝材を横断する領域において止水性やコロイドろ 過性などの安全機能が失われる状況に至る可能性を左右し得る複数の分岐点を抽出し、分岐が生じ る現象と、分岐のどの方向に進行するかを左右する条件(分岐条件と呼ぶ)を書き込んだ分岐ダ イアグラムを、コンクリート支保、緩衝材とコンクリート支保の境界及び緩衝材とオーバーパッ クとの境界の三つの領域に分けて作成した。なお、コンクリート支保やオーバーパックとの境界 以外の緩衝材の領域における分岐については、境界領域における分岐の構造と共通であることか ら、分岐ダイアグラムにおいては割愛した。

コンクリート支保の変質挙動に関する分岐ダイアグラムを図 4.2-7 に示す。コンクリート支保 が岩盤中の亀裂を移行してきた地下水と接触することによって溶解し、セメント成分が緩衝材へ 移行する可能性を左右する分岐点として、Ca などのセメント成分の溶出とひび割れの発生を考 えた。

前者については、図 4.2-6 のインフルエンスダイアグラムより、セメント溶出が促進されてい く経路(セメント溶出促進ループと呼ぶ)と、逆に、溶出挙動が抑制されていく経路(セメント 溶出抑制ループと呼ぶ)に分岐することが考えられる。これらの分岐は、セメント成分が溶出し た後に二次鉱物として沈殿する速度と、溶出した成分の移動速度の大小関係などによって、どち らの経路に進むかが左右される可能性がある。後者については、コンクリートが割れた後に、割 れの内部を地下水が流れることで割れ面からセメント成分が溶出し続ける経路(セメント割れ・ 溶出促進ループと呼ぶ)と、二次鉱物の沈殿により割れの内部が閉塞することで溶出挙動が抑制 されていく経路(割れの自己修復ループと呼ぶ)に分岐することが考えられる。この場合にも、 溶出した成分が二次鉱物として割れの内部に沈殿する速度と、溶出した成分の移動速度との大小 関係などによって、どちらの経路に進むかが左右される可能性がある。

緩衝材外側の変質挙動に関する分岐ダイアグラムを図 4.2-8 に示す。上記で示した経路のいず れかを辿り、コンクリート支保からアルカリ成分が緩衝材に移行してきた場合に、緩衝材とアル カリの反応が継続的に進行する可能性を左右する分岐点として、緩衝材中のベントナイトに含ま れる膨潤性粘土鉱物であるモンモリロナイトの溶解と、その後に二次鉱物が沈殿して境界層とし て成長した後に、それが破壊される現象を考えた。

前者については、モンモリロナイトの溶解が生じた後で、変質が促進される経路(緩衝材変質 促進ループと呼ぶ)と抑制される経路(緩衝材変質抑制ループと呼ぶ)に分岐されると考えられ、 上記のセメント成分の溶出と同様に、二次鉱物の沈殿速度と反応生成物の移動速度との大小関係 などによって、どちらの経路に進むかが左右される可能性がある。後者については、上記に示し た二つの経路のうち「緩衝材変質抑制ループ」を辿り、コンクリート支保と緩衝材の境界領域で、 非膨潤な材料として二次鉱物が層状に成長し、これが脆性的な特性を有する場合に分岐点になり 得ると考えられる。地震動や、材料と地下水の反応などで発生したガスの蓄積による圧力などが 作用して、応力緩衝性を失った境界層が破壊された後に、変質が進展する経路(境界層破壊・再 生反復による変質継続ループ)と、二次鉱物の沈殿が優勢となり変質が抑制される経路(割れの 自己修復ループ)に分岐されると考えられる。この場合においても、二次鉱物の沈殿速度と反応 生成物の移動速度との大小関係などによって、どちらの経路に進むかが左右される可能性がある。

緩衝材内側のオーバーパックとの境界領域における変質挙動に関する分岐ダイアグラムを図 4.2-9に示す。この領域における特徴的な現象として、緩衝材がオーバーパックの鉄材料との相互 作用により変質する現象が挙げられる(例えば、2.3.1項参照)。この場合においても、緩衝材と コンクリート支保との境界領域と同様に、緩衝材の変質の促進/抑制の経路の分岐点が存在する と考えられる。また、抑制する経路を辿る場合には、境界領域において非膨潤性の二次鉱物の沈 殿が進展して脆性的な特性を有する境界層が形成されると、それが地震動やガス圧などにより破壊された後で、「境界層破壊・再生反復による変質継続ループ」と「割れの自己修復ループ」の経路に分岐される可能性があると考えられる。この場合の分岐条件も、コンクリート支保との境界と同様である。

上記の分岐ダイアグラムで示された、セメント影響による緩衝材の変質と鉄影響による変質が 緩衝材の内部に向けて進展し、両者の変質領域が連結されて大きな変質領域が形成されることに よって、緩衝材の外側から廃棄体へ横断する領域で、止水性やコロイドろ過性などの安全機能が 失われる状況に至る可能性があると考えられる。







図 4.2-9 緩衝材とオーバーパックの境界領域における変質挙動に関する分岐ダイアグラム

これら分岐ダイアグラムでの整理結果を踏まえて、評価対象となる場や現象の概念を明確にす ることを目的として、緩衝材の止水性とコロイドろ過性などの安全機能を維持する観点から、好 ましくない状況に至る状態変遷のパターンをストーリーボードの形式で整理した。この結果を図 4.2-10 に示す。岩盤中の亀裂を通して地下水が流入してコンクリート支保のセメントが溶出し、 それによる緩衝材の変質が進展するとともに、オーバーパックとの境界領域でも鉄との相互作用 によって変質が進展した結果、両者の変質領域が重なることで、横断的に安全機能が失われる状 況に至るものと考えた。


図 4.2-10 緩衝材を横断する領域で止水性やコロイドろ過性などの安全機能が失われる状況に至る状態変遷のパターンのストーリーボードによる整理結果(坑道断面のストーリーボードにおいて赤枠で表現している部分を拡大した図を併記する)

# 2) ニアフィールド複合現象評価システムの構成の具体化

4.2.2 項(2)の 1)で整理した状態変遷のパターンに至る諸条件で着目すべき特徴と対応する現象 解析モデルの要件を具体化するとともに、解析ツールの候補を選定した。また、それらを組み合 わせて解析を行うための連携手法の概念を構築した。

#### ① 個別モデルに必要な要件の抽出と候補となる解析ツールの選定

緩衝材を横断する領域で止水性やコロイドろ過性などの安全機能が失われる状況に至る状態変 遷のパターンの生起可能性を定量的に把握するために個別モデルに求められる要件を抽出して整 理した。抽出された要件を表 4.2-3 に示す。「着目するプロセス」の欄に、ストーリーボードによ る状態変遷のパターンで抽出された個別のプロセスを記載するとともに、4.2.2 項(2)の 1)で抽出 された、水理、力学及び化学-物質輸送に跨る正負のフィードバックループの分岐などを解析的 に表現するうえで、これらの個別モデルに求められる要件を、「マルチフィジックス性」、「マルチ スケール性」、「ダイナミクス性」の観点から抽出して整理した。

表4.2·3で示された要件を満足するモデルにより連成解析を行うには、二次元あるいは三次元的 な非対称性及び不均質性を表現できることが、全てのモデルに共通する要件として考慮する必要 があると考えられる。例えば、コンクリート支保の外側境界条件となる地下水水質が、地下水流 動の上流側(未反応の地下水に近い組成)と下流側(コンクリートとの反応生成物などを含む水 質)で異なると、緩衝材変質の程度も両者で異なる可能性がある。また、岩盤中の亀裂や、コン クリート支保中のひび割れなどからの局所的な地下水の供給や、緩衝材ブロック間に隙間が存在 する場合などでは、材料の変質が不均質に生じる可能性があると考えられる(例えば、2.5.1項(3) 参照)。このような場合には、非対称性や不均質性に関する二次元あるいは三次元的な特徴とそ の影響を、適切な解像度で取り扱うことの可能なモデルで解析を行うことが必要である。

このような非対称性や不均質性に関する影響を考慮できる二次元の化学-物質輸送解析モデル の例として、コンクリート支保領域を対象とするものを図4.2-11に、緩衝材とコンクリート支保 の境界領域を対象とするものを図4.2-12に示す。図4.2-11は、支保中に複数の割れが生じて複雑 な流路が生じた場合を想定しつつ、それらの割れが連結した主たる流路を一次元の化学-物質輸 送モデルとして近似的に表現したモデルと、マトリクス部における二次元の化学-物質輸送モデ ルを統合した準二次元の化学-物質輸送モデルの概念を表している。また、図4.2-12は、上記の 流路を流れる高pH水をアルカリのソースタームとして、緩衝材中での化学-物質輸送を解析する 準二次元モデルの概念を表している。これらのモデルで解析を行うことにより、割れなどが連結 して地下水が選択的に移行する経路と、その周辺のマトリクス部分での変質及びそれによる拡散 場から移流場への変化などを二次元断面で表現することを想定している。

上記により抽出された要件を備えた解析ツールの候補として、化学-物質輸送解析コードとしては、QPAC(Quintessa Ltd., 2013)やGarfield-CHEM(日本原子力研究開発機構, 2018)などが挙げられ、定常水理解析コードとしては、FEMWATER(Yeh, 1987; Lin et al., 1997)が挙げられる。また、力学解析コードとしては、MACBECE(三原ほか, 2010;平野ほか, 2016;三原ほか, 2017;日本原子力研究開発機構, 2018)やDEAFRAP(日本原子力研究開発機構, 2018)などが挙げられる。これらの解析コードについては、先行事業である「セメント材料影響評価技術高度化開発」(平成23年度~平成26年度)及び「処分システム評価確証技術開発」(平成25年度~平成29年度)において、「コンクリートでのひび割れの発生・進展問題」などのニアフィールドにおける複合現象の評価において活用された実績(日本原子力研究開発機構, 2014a; 2015a; 2016; 2017; 2018)があり、緩衝材の状態変遷を対象とする評価においても活用できると考えられる。なお、上記の解析コードのうち、化学種の濃度勾配や割れの発生に応じて適切なメッシュ

を自動的に作成できる、可変グリッド機能を有する化学-物質輸送解析コードであるGarfield-CHEMと、粒状体個別要素法による力学解析コードであるDEAFRAPについては、コンクリート や、変質した緩衝材において割れが発生するような、不連続な挙動を含む状態の変化を対象とす るシミュレーションに適しており、ここで着目しているコンクリート支保と緩衝材の状態の変化 においても、これらの材料における割れの発生・進展を表現する場合には、有効な解析コードで あると考えられる。

但し、表4.2-3に示した要件のうち、地震動やガス圧によって、コンクリート支保などの脆性材料で割れが発生する現象に関するダイナミクス性に属する要件については、これらの現象によって生じる外力などを境界条件として与える必要がある。







実1 2-3	- ニアフィールド抜会租象証価システムの個別租象解析モデルの更供(1	131
124.2-0	ーノノイ ルド後日玩家計画ノベノムの回別玩家肝伽 こノルの安什()	10)

個別モデル (対象領域)	着目するプロセス	マルチフィジックス性 に関する要件	マルチスケール性 に関する要件	ダイナミクス性 に関する要件
水理解析 モデル (全領域)	<ul> <li>・セメント溶出成分(Ca, K, Na, OH など)の支保割れ目(新たに生じた割れ目を含む)あるいは変質部での移流</li> <li>・セメント溶出成分(Ca, K, Na, OH など)の移流(緩衝材変質部)</li> <li>・地下水の廃棄体領域への流入</li> <li>・新たに生じた割れにおける移流</li> </ul>	<ul> <li>・コンクリート固相化学組成の変化 に応じて、マトリクス間隙率の増 減や割れの閉塞・開口などを考慮 した透水係数(例えば、三原ほか, 2003)及び割れ目の開口幅と透水 量係数の関係(例えば、Snow, 1965)を規定する関係式が設定さ れていること</li> <li>・緩衝材外側の化学-物質輸送解析 結果(モンモリロナイト含有率低 下など)を指標として変質部の透 水係数の上昇を表現する関係式 (例えば、伊藤・三原, 2005)が 設定されていること</li> </ul>	<ul> <li>・コンクリート支保内割れ目の透水量 係数及びコンクリート溶脱部や緩衝 材変質部の透水係数上昇といった微 視的構造変化を考慮して坑道スケー ルの地下水流動場を推定できること</li> <li>・周辺岩盤の流動に関しては、卓越し た流路となる岩盤亀裂を陽に表現可 能であること</li> </ul>	・保層で質開端でするい人物です。 ・保層で質開がする。 「な水状壊、中とす 重線がのる でする。 のの内な する。 でする。 のの内な でする。 の切可 に あの外側でする。 切可 能 に るの外側でする。 り能 でする。 でする。 のの内な でする。 のの内な でする。 ののりまで していの切可 に でする。 のののた のの していの切可 に していのの でする。 のののた のの していのの に していのの に していのの に していのの に していのの に していのの た でする。 ののの た の り 能 で で で ののた のの た の た で ま のの た の た の た の た の り に し の た の た の た の し た で し い の の で し の た の た の し の た の た の た の た の た の た の た の た の た の た の し た の た の た の た の た の た の た の た で し い の た の こ こ こ こ こ こ こ こ つ し の で で っ い し の で つ し の た の た こ こ こ こ こ こ こ こ こ し の で う つ し の で 一 、 の う の し の で う つ し の つ し で つ し つ し つ し つ し つ し つ し つ し の つ し で う つ し し で 一 つ し の し の し つ つ し つ し の う つ し つ の つ し の つ つ し つ し つ し つ し つ し つ し つ し つ し つ し つ つ つ の つ の つ の つ の つ の つ の つ の つ の つ つ つ つ つ つ つ つ つ つ つ つ つ
力学解析 モデル (全領域)	<ul> <li>・緩衝材膨潤及び膨潤性の相違による緩衝 材の密度変化(未変質部の膨潤と変質部 の圧縮)</li> <li>・緩衝材膨潤圧、地圧(偏圧)や地震動によ るコンクリート支保割れ</li> <li>・緩衝材中の非膨潤性二次鉱物層の割れ</li> <li>・オーバーパックに使用される鉄の腐食膨 張</li> </ul>	<ul> <li>・化学-物質輸送解析における鉄腐 食生成物層の体積と整合的にオー バーパック腐食膨張の程度を表現 できること(例えば、日本原子力研 究開発機構,2016)</li> <li>・緩衝材の変質による層間陽イオン の組成やモンモリロナイト含有率 などの変化に起因する膨潤性や剛 性などの力学特性の変化を定量的 に示す関係式が設定されているこ と(例えば、奥津ほか,2005)</li> <li>・セメントの C/S 比低下によるコン クリート支保の強度低下を考慮し て(例えば、戸井田ほか,2005)、 割れの解析が可能であること</li> </ul>	<ul> <li>・コンクリートの割れ、割れ目付近の 溶脱部の強度低下、二次鉱物による 割れ目の閉塞による強度変化などの 微視的な構造と整合的な平均的力学 パラメータを用いて坑道スケールの 力学解析が可能であること</li> <li>・坑道スケールの力学解析における応 力場の中でコンクリート支保や緩衝 材内側変質層の割れに関する局所的 な挙動を解析可能であること(日本 原子力研究開発機構, 2015a; 2016)</li> </ul>	・地震動やガス圧の 蓄積といった外力 を境界条件の切り 替えなどとして取 り扱い可能である こと

	表4.2-3	ニアフィール	/ド複合現象評価シ	ノステムの個別現象	\$解析モデルの要件(2/3)
--	--------	--------	-----------	-----------	-----------------

個別モデル (対象領域)	着目するプロセス	マルチフィジックス性 に関する要件	マルチスケール性 に関する要件	ダイナミクス性 に関する要件
化学-物質輸送 解析モデル (コンクリート 支保領域)	<ul> <li>・セメントの溶解(Ca, K, Na, OH などの溶出)</li> <li>・固相化学組成の変化(セメントのC/S比低下及び二次鉱物沈殿)</li> <li>・セメント溶出成分(Ca, K, Na, OHなど)のマトリクス拡散</li> </ul>	<ul> <li>・コンクリート固相化学組成の変化に応じて、マトリクス間隙率の増減や割れの閉塞・開口などを考慮したマトリクス部の実効拡散係数の変化を規定する関係式(例えば、Mihara and Sasaki, 2005)が設定できること</li> <li>・二次鉱物沈殿に関する反応速度式が設定されていること。</li> <li>・上記の溶質の移動速度と二次鉱物沈殿の反応速度のいずれが優勢であるかに関する情報を提供できること</li> </ul>	<ul> <li>・割れなどによって透水性の上昇した 支保を通じた坑道スケールンクリート 変質の進行を表現できること(セメント溶出成分の大半は緩合など)</li> <li>・移流の生ずる割れ目と拡散合など)</li> <li>・移流のが支配的となる近傍のマトリクス部とを明確に区分した局所的構造を設定することにより、セメント素変質部の相応であり、ためで、ためで、たくないても緩衝材に流入する水のpH は低下している場合など)</li> </ul>	<ul> <li>・二次て、一次ないので、一次で、「したいので、「したいので、」ののガスで、「したいので、」のが、「したいので、「したいので、」ののガスで、「したいので、「したいので、「したいので、」のので、「したいので、「したいので、」ののガスで、「したいので、」ののガスで、「したいので、」ののガスで、「したいので、」ので、「したいので、」ので、「したいので、」ののが、「したいので、」ののガスで、「したいので、」ののガスで、「したいので、」、「したいので、」、、、、、、、、、、、、、、、、、、、、、、、、、、、、、、、、、、、</li></ul>
化学-物質輸送 解析モデル (緩衝材とコン クリート支保 との境界部分)	<ul> <li>・セメント溶出成分(Ca, K, Na, OH など)の拡散(緩衝材未変質部)</li> <li>・モンモリロナイト及び他のベントナ イト成分の溶解</li> <li>・固相化学組成の変化(モンモリロナ イトなどの初期鉱物の含有率低下及 び二次鉱物沈殿)</li> <li>・モンモリロナイト溶解成分の拡散</li> </ul>	<ul> <li>・変質部境界付近で二次鉱物が沈殿した場合にマトリクス間隙閉塞に伴う拡散の低減による未変質部のモンモリロナイト溶解の抑制効果を表現できるようマトリクス間隙率と実効拡散係数の関係式(例えば、Mihara and Sasaki, 2005)が設定できること</li> <li>・二次鉱物沈殿に関する反応速度式が設定されていること。</li> <li>・上記の溶質の移動速度と二次鉱物沈殿の反応速度のいずれが優勢であるかに関する情報を提供できること</li> </ul>	<ul> <li>・セメント影響による変質に伴い透水 性の上昇した緩衝材外側領域も含め た坑道スケールの地下水流動状況に 基づき移流による溶質移動を表現可 能であること</li> <li>・移流の生ずる緩衝材変質部と拡散支 配の未変質部との境界付近での二次 鉱物沈殿や間隙率変化などの微視的 な挙動も上記の坑道スケールと同時 に表現可能であること</li> </ul>	・二次鉱物 物 た て 閉 外 し た ガ ス に れ に れ の が 外 よ っ て 引 の 切 り オ ス で の 切 り ス ろ と わ っ て い の た ガ ス に よ ろ っ て い の た ガ の た ガ の た の た の の の の の の の の の の

個別モデル	着目するプロセス	マルチフィジックス性	マルチスケール性	ダイナミクス性
(対象領域)		に関する要件	に関する要件	に関する要件
化学-物質輸送 解析モデル (緩衝材とオー バーパックとの 境界部分)	<ul> <li>・還元環境での炭素鋼腐食</li> <li>・鉄腐食生成物層の形成(マグネタイトやシデライトなど)</li> <li>・余剰の溶存鉄イオンと水酸化物イオンの拡散</li> <li>・モンモリロナイトなどの初期鉱物の溶解</li> <li>・固相化学組成の変化(モンモリロナイトなどの初期鉱物の含有率低下及び二次鉱物沈殿)</li> <li>・モンモリロナイト溶解成分の拡散</li> <li>・非膨潤性二次鉱物層の形成</li> </ul>	<ul> <li>・生成する二次鉱物の種類(膨潤性、 脆性の有無など)に応じて鉄イオン の拡散経路となるような割れが生成 するか否かを判断する基準が設定できること</li> <li>・割れが生ずる場合には、鋼製ワイヤ を用いたベントナイト変質試験結果 (例えば、Milodowski et al., 2009) や非膨潤性二次鉱物の割れに関する 力学解析結果などに基づき、割れ 間間にや頻度などを設定できること</li> <li>・変質部境界付近で二次鉱物が沈殿し た場合に減による未変質部のモンモリクス間隙率と実効拡 散係数の関係式(例えば、Mihara and Sasaki, 2005)が設定できること</li> <li>・二次鉱物沈殿に関する反応速度式が 設定されていること。</li> <li>・上記の溶質の移動速度と二次鉱物沈 酸の反応速度のいずれが優勢である かに関する情報を提供できること</li> </ul>	<ul> <li>・緩衝材-オーバーパック境界から拡 大する緩衝材変質部を包含するスケ ールを解析対象領域とし得ること</li> <li>・非膨潤性二次鉱物の割れが生ずる場 合、割れにおける鉄イオンの比較的 速い拡散(例えば Milodowski et al., 2009)とそれ以外の部位での遅い拡 散及び反応といった、微視的な挙動 を表現できること</li> </ul>	<ul> <li>・二っ目な開態計な扱と鉄材外な部影水応可 次てがど口の算どい</li> <li>影内側っか響の問能で 物塞力よるりりよ能 に変響時の受入にあ いたガていわタてあ る領域でメた伴りる</li> <li>・・材外な部影水応引し、</li> <li>・・</li> <li>・・</li> <li>・・</li> <li>・</li> <li>・</li></ul>

表4.2-3 ニアフィールド複合現象評価システムの個別現象解析モデルの要件(3/3)

#### ② ニアフィールド複合現象評価システムにおける解析コード間の連携構造の具体化

上記①で抽出された解析コードを用いて力学、水理、化学-物質輸送の連成解析を行うため のシステムの全体構成の概念を図4.2-13に示す。このような複数のモデルを連携しつつ解析を行 うシステムとして、先行事業「システム評価確証技術開発」(平成25年度~平成29年度)のニア フィールド複合現象評価システムにおいて活用されたモデル連成フレームワークであるOpenMI

(OpenMI Association, 2015)を活用することが考えられる(日本原子力研究開発機構, 2018)。このシステムにおいては、個別解析コードは、それぞれについて専用に作成された、 Wrapperと呼ばれるインタフェイスを通じて、実行指示や共有データストレージ、パラメータ 授受などを管理する役割を持つソフトウェアに接続される。解析実行の際には、このような役割 を担うソフトウェアから各解析コードに対して、実行や停止といった実行指示命令の他、各モデ ルへの入力情報などが送られる。そして、各個別解析コードからモデルの実行により得られた出 力データが送られ、集約される(日本原子力研究開発機構, 2018)。

このようなシステムとすることにより、それぞれの分野で独自に開発された、解析の対象とな る領域・現象や手法の異なる種々の解析コードを適切に組み合わせて連携させることが容易とな る。例えば、①で示したGarfield-CHEM及びDEAFRAPを連携させる場合では、コンクリート などの脆性材料における割れの発生・進展と、割れにおける地下水の移行及びその近傍で変質が 進展する現象などの不連続かつマルチフィジックス性を有する現象を効果的にシミュレートする ことが可能である(日本原子力研究開発機構,2018)。但し、割れなどの不連続な部分が生じ ていない材料の変質や変形などをシミュレートする場合には、QPACやMACBECEなどの連続 体モデルにより計算を行う解析コードと組み合わせ、対象とする空間・時間の特徴の分布状況や 条件などに応じて、これらを柔軟に使い分けつつ計算を行うことが有効となる可能性がある。ま た、個別の現象理解に関わる研究の進展などにより、関連する現象解析モデルの改良が図られた 場合でも、インタフェイスのみを改良することにより、柔軟にシステムを再構築することが可能 であると考えられる。



図 4.2-13 ニアフィールド複合現象評価の構成の概念 (図中の「Wrapper」とは、OpenMIにおけるインタフェイスを意味する(日本原子力研究開発 機構, 2018))

### 4.2.3 ニアフィールドの複合現象を評価するシステムのプロトタイプの構築

4.2.2 項で示したニアフィールドの複合現象を評価するシステムの開発アプローチとそれに沿った具体例の検討結果に従い、4.2.2 項(2)で対象とされた「緩衝材を横断する領域において止水性やコロイドろ過性などの安全機能が失われる状況に至る状態変遷のパターン」を対象課題として、図 4.2-7~図 4.2-9 で示された、この状態変遷のパターンが生起する分岐条件や、生起した場合の状態変化の進展速度などを定量的に評価できるシステムのプロトタイプの構築と試解析を試みた。

#### (1) 解析ツール間のインタフェイスの構築

4.2.2 項(2)で選定された解析ツールのうち FEMWATER、QPAC 及び MACBECE による連成 解析を行うことを想定して、ニアフィールド複合現象評価システムのプロトタイプを構築するも のとした。これらの連携の全体構造を図 4.2-14 に、解析ツール間で受け渡されるパラメータの種 類を表 4.2-4 にそれぞれ示す。これらの解析ツールにより、解析ツール間で結果の数値情報をや り取りしつつ、水理、化学-物質輸送、力学の連成解析を行うものとした。

なお、4.2.2 項(2)で抽出されたモデルの要件で示されているように、マルチフィジックス性、 マルチスケール性及びダイナミクス性を有する複合現象を評価するには、非対称性及び不均質性 を考慮することが重要であることから、平成 30 年度においては、この点を優先してシステム開 発を進めるものとした。具体的には、非対称性及び不均質性を有する FEMWATER による水理解 析結果を QPAC に受け渡すインタフェイスと、その結果を MACBECE に受け渡すインタフェイ ス (オーバーパックの鉄腐食膨張率を受け渡すインタフェイスを除く)及び MACBECE から FEMWATER に受け渡すインタフェイスの構築を優先してシステム開発を行い、試解析において その動作確認を行うものとした。

No.	From	То	概要	交換パラメータ
1	QPAC	MACBECE	<b>QPAC</b> の出力に基づき MACBECE の各要素にお けるモンモリロナイト含有 率などを指定	<ul> <li>・間隙率</li> <li>・交換性 Na 型率</li> <li>・スメクタイト部分密度</li> <li>・イオン当量濃度</li> </ul>
2	QPAC	MACBECE	QPAC の出力に応じてオー バーパック腐食膨張率を指 定	• 鉄腐食膨張率
3	FEMWATER	QPAC	FEMWATER の出力に基づ き QPAC の解析体系内の流 量を指定	・ QPAC 解析体系内の流量
4	MACBECE	QPAC	MACBECE の出力に応じ て QPAC の各要素における 密度変化を指定	<ul> <li>(主に緩衝材の)変形及びこれ</li> <li>に伴う密度変化</li> </ul>
5	MACBECE	FEMWATER	MACBECE の出力に応じ て支保や緩衝材の透水係数 を指定	<ul> <li>MACBECE で出力された透水係 数(1の化学変質の情報も含めた 値)</li> </ul>

表 4.2-4 解析ツール間で受け渡されるパラメータの種類

※本年度に構築したシステムでは、No.1, 3, 5のインタフェイスを実装した。



## 1) 水理解析モデルとインタフェイスの概要

水理解析では、処分坑道に交差する高透水性の亀裂を含むニアフィールド岩盤から人工バリア に流入する地下水の流れと、人工バリア内部での流速ベクトル場の変遷とを解析する必要がある。 4.2.2 項(2)で選定された化学-物質輸送解析コードである QPAC では、人工バリア内部での地下 水浸透流を解析することも可能であり、2)で後述する化学-物質輸送解析と弱連成によりデータ をやり取りしつつ解析を行うことが可能である。しかし、QPAC は坑道外部の岩盤における地下 水流動を解析する機能は有していない。そこで、図4.2-14に示されるように、処分坑道周辺のニ アフィールド岩盤を含む広範囲の領域の水理解析を FEMWATER で行い、人工バリアに流入す る地下水量を算出した結果を QPAC に入力することにより、QPAC の二次元水理解析モデルを用 いて人工バリア内部の地下水浸透流を解析するものとした。具体的には、各コード間の連携時刻 ごとに FEMWATER の各部材(支保、緩衝材など)の有限要素の流速ベクトルを積算して上流 セルからの地下水の流入や下流側セルへの流出フラックスを算出するものとした。コンクリート 支保については、4.2.2 項(2)の概念モデル(図 4.2-11)で示されたように、ネットワーク上に発 達すると想定されるひび割れ中を移行する流路を、支保の周方向に平行な1本の割れ目による流 路として単純化して、この流路における物質輸送を移流として扱うものとし、多孔質媒体に対し て算出される平均流量を透水量係数の比に応じてひび割れとマトリクス変質部に分配した。緩衝 材においても、以下で示す透水係数で流速ベクトルを算出することにより、変質が進行した領域 においては、移流による物質移行が考慮されるものとした。

FEMWATER による水理解析については、人工バリア内部の状態の変化がニアフィールド岩盤の地下水流動の挙動に及ぼす影響は小さいと考えられることから、人工バリア内の透水係数変化量(局所的な変化量の最大値の下限あるいは変化量の空間的積分値の下限など)に関して予め基準値を設け、それが該当する時点を連携時刻と見なして FEMWATER の解析をそれぞれスナップショット的に実施して、QPAC ヘデータを受け渡すこととした。

これらの水理解析で用いられる緩衝材の透水係数としては、伊藤・三原(2005)により報告さ れている関係式を用いて、間隙率やモンモリロナイト含有率などを透水係数に換算した値を使用 するものとした。また、コンクリート支保のマトリクス部分の透水係数については、電気事業連 合会・核燃料サイクル開発機構(2005)及び三原ほか(2003)により報告されている関係式を用 いて、間隙率を透水係数に換算した値を使用するものとした。

#### 2) 化学-物質輸送解析モデルとインタフェイスの概要

化学-物質輸送解析については、コンクリート支保及び緩衝材の境界領域ではセメントに由来 するアルカリとの反応を中心とする状態の変化が想定される。一方で、緩衝材とオーバーパック の境界領域では、鉄の腐食により発生する鉄イオン及び水酸化物イオンとの反応を中心とする状 態の変化が想定される。これらの領域では、それぞれ異なる変質挙動が生じると考えられるため、 それぞれの領域を対象として、割れが連結した流路における一次元の物質輸送と、マトリクス部 における二次元の物質輸送を統合した準二次元の化学-物質輸送モデルを構築して解析を行うも のとした。解析ツールとしては QPAC を使用した。これらの解析モデル間では、強連成によりデ ータがやり取りされる。

コンクリート領域及びコンクリートと緩衝材の境界領域の準二次元の化学-物質輸送解析モデルの概念図を図 4.2-15 に、鉄ーベントナイト相互作用を考慮した緩衝材とオーバーパック境界領域の準二次元の化学-物質輸送解析モデルの概念図を図 4.2-16 に、それぞれ示す。図 4.2-15 では、図 4.2-11 と図 4.2-12 の概念モデルの考え方に基づき、本来は支保中に形成され緩衝材とも接する複雑な形状を呈すると想定されるネットワーク上の割れ目の流路を、支保と緩衝材の双方

と接する1本の流路として近似的にモデル化した。これによってコンクリート支保に含まれるセ メントの影響による地下水の組成の変化と、組成が変化した地下水が、緩衝材と接して流れる場 合の緩衝材に与える影響と、支保の溶解によるセメント影響水の組成変化とを表現するものとし た。図4.2-16では、オーバーパックの腐食膨張などによって緩衝材変質領域に生じる複数の割れ を、上記のコンクリート支保との境界におけるモデルと同様に、1本の割れ目に近似した。ただ し、コンクリート支保側から進展する緩衝材の変質が、この変質領域と重なるまでは、この領域 においては地下水の流れが生じることは想定せず、自由水中の拡散係数を与えることにより、鉄 イオンなどの拡散が促進されることを表現するものとした。

物質輸送を解析するための人工バリア内部における流速ベクトルについては、1)で示した QPACの二次元水理解析モデルの解析結果をインプットとして使用するものとした。また、緩衝 材中の拡散については、要素ごとの間隙率とスメクタイト含有率を、既存の関係式(Mihara and Sasaki, 2005)によって算出した実効拡散係数を用いて計算するものとした。コンクリート支保 の拡散については、マトリクス部分に対しては、間隙率をパラメータとする既存の関係式(Mihara and Sasaki, 2005)によって算出した実効拡散係数を用いて計算し、図 4.2-16 で示した、変質部 で割れた部分に対しては、上記で示したように自由水中の拡散係数を与えて計算するものとした。



図4.2-15 コンクリート領域及び緩衝材との境界領域を対象とする準二次元の化学-物質輸送解 析モデル



図4.2-16 緩衝材とオーバーパック境界領域を対象とする準二次元の化学-物質輸送解析モデル (紫の部分は、鉄イオンとの反応で変質した領域を表している。変質した領域のうち、割れの部 分には、自由水中と同等の実効拡散係数を、マトリクス部分には既存の関係式(Mihara and Sasaki, 2005)で求めた実効拡散係数を与えるものとした)

## 3) 力学解析モデルとインタフェイスの概要

カ学解析については、緩衝材の変形を扱う二次元弾粘塑性体モデル、コンクリート支保の変形 とひび割れの発生を扱う非線形弾性モデル及びオーバーパックの腐食膨張を扱う弾性体モデルに より、これらの現象を同時に解析するものとした。解析ツールとしては MACBECE を使用した。 MACBECE での力学解析では、緩衝材については、表 4.2-4 に示すように、2)で示した QPAC に よる化学-物質輸送解析により求められた間隙率、交換性 Na 型率、スメクタイト部分密度、イ オン当量濃度をインプットとして剛性、強度、膨潤性などの力学特性を算出して力学解析を行う ものとした。同様に、コンクリート支保については、QPAC による解析で求められた Ca 溶脱率 をインプットとして、剛性、強度などの力学特性を算出して力学解析を行うものとした。これら のパラメータの授受については、化学変遷を考慮した MACBECE を活用した既往の解析(日本 原子力研究開発機構, 2016)と同様に行うものとした。

なお、本システムの開発では、4.2.2項で示したように、先行事業「システム評価確証技術開発」で開発されたニアフィールド複合現象評価システムの開発環境として活用されたモデル連成フレームワークであるOpenMIを活用するものとし、上記の1)、2)、3)で示した機能を持つインタフェイスプログラムの一部について、OpenMIにおいて個別モデル間のインタフェイスを担うプログラムであるWrapperプログラムの仕様に基づき構築するものとした。

#### (2) 試解析の実施

4.2.3 項(1)で構築したニアフィールド複合現象評価システムのプロトタイプの動作確認を目的 として、ガラス固化体の処分システムを対象とする体系を構築して試解析を実施した。4.2.2 項 (2)で抽出されたモデルの要件で示されているように、「マルチフィジックス性」、「マルチスケー ル性」及び「ダイナミクス性」を有する複合現象を評価するには、非対称性及び不均質性を考慮 することが重要であることから、オーバーパックの周囲に配置される緩衝材と、その外側に配置 されるコンクリート支保及び周辺岩盤の円筒断面で構成される二次元の解析体系を構築して、水 理、力学、化学-物質輸送の連成解析を実施した。なお、この試解析では、簡略化のために図 4.2-16 で示した鉄との境界部近傍の化学-物質輸送を考慮したモデルは含めていない。また、上記の 不均質性の観点から、岩盤中に存在する亀裂が坑道に交差する状態をモデルで表し、そこを主た る地下水の流路として地下水がコンクリート支保に流入するものとした。解析体系の例として、 FEMWATER の水理解析に用いる有限要素とダルシー流速の解析結果の例を図 4.2-17 に示す。 岩盤中で濃い赤で示されている部分は、ダルシー流速が大きく、坑道に交差している高透水性の 亀裂が存在する部分である。

試解析の結果の例として、QPAC による化学-物質輸送解析と坑道内部の水理解析及び FEMWATER による岩盤を含むスケールでの水理解析とを連成させた場合の、緩衝材中のモンモ リロナイトの密度の変化を図 4.2-18 に示す。岩盤中の亀裂が交差している領域を中心にモンモリ ロナイトの溶解が進展する、不均質な変遷挙動が生じていることが確認できた。



図 4.2-17 FEMWATER による水理解析に用いる有限要素(左)と
 ダルシー流速の解析結果の例(右)
 (点線は連成解析の対象領域を示す)



モンモリロナイト密度 [mol/m<sup>3</sup>]

図 4.2-18 連成解析の結果の例

(FEMWATER と QPAC の連成解析で求められた緩衝材中のモンモリロナイトの密度の変化) (赤い矢印は岩盤の高透水性亀裂が坑道に交差している位置を示す)

#### 4.2.4 成果と今後の課題

平成 30 年度においては、複数分野のプロセスを複合的に考慮する必要のある複合現象であり、 かつ、安全機能や核種移行への影響が大きい現象を幅広く抽出して、これを対象とする評価シス テムを構築する研究開発アプローチを提案した。また、上記のアプローチに基づき、「緩衝材の長 期変遷挙動の予測」を優先的に取り組む課題として評価システムのプロトタイプを構築するとと もに、これによる試解析を行った。その結果、ニアフィールド複合現象評価における連成解析で 想定している現象として、例えば、コンクリート支保のセメント影響を受けた地下水による緩衝 材の変質が進展する様子と、その変質が地下水の流動に依存して不均質に分布することなどを解 析できることが確認できた。

今後は、平成 30 年度に構築されたプロトタイプを活用して、バリア材料に期待している安全 機能が劣化・喪失する可能性のある現象が発現する条件を定量的に分析することが必要であると 考えられる。具体的には、コンクリート支保やオーバーパックとの相互作用により緩衝材に期待 している安全機能が失われる状態変遷のパターンに着目して、この状態に至る分岐条件などを定 量的に評価することが必要と考えられる。このような分岐条件と、ニアフィールドの化学、水理 などの状態の時間的変遷や核種移行挙動に与える影響との相関関係などを分析することを通じて、 ニアフィールドの複合的な振る舞いを評価するためのシステム開発に向けた課題を抽出できると 期待される。

また、平成 30 年度に抽出されたバリア構成要素の安全機能や核種移行挙動への影響が大きい と考えられる現象のうち、閉鎖後過渡期における状態の変化及び人工バリアと岩盤の相互作用が もたらす影響について、ニアフィールドの変遷を評価するために必要なスケール間や現象間の相 互の関係を明らかにすることが必要と考えられる。これにより、過渡期における状態の変化や人 エバリアと岩盤の相互作用が長期的なバリア構成要素の安全機能や核種移行挙動に与える影響を 評価することが可能なシステム開発に向けた課題を抽出できると期待される。

# 4.3 ニアフィールド核種移行評価技術の開発

#### 4.3.1 背景と目的

4.2節で示したように、本事業の先行事業である「処分システム評価確証技術開発」(平成25年 度~平成29年度)では、ニアフィールドのシステム変遷と核種移行解析の体系的評価技術として、 ニアフィールドシステム変遷に関する複合現象の解析と、その現象解析結果に追随して核種移行 解析を行う手法を開発し、ニアフィールド複合現象評価手法、核種移行評価手法、共通モデル・ シナリオ・データベース及び成果の体系化手法をまとめたニアフィールド総合評価システムを構 築した。この先行事業の取り組みでは、個別モデルによる解析だけではニアフィールド全体性能 への影響の把握が困難な現象として、主に「コンクリートでのひび割れの発生・進展問題」に着 目し、プラットフォームを中核とするシステムの開発を実施した。

ニアフィールドの場の状態を反映して核種移行評価を行う手法の開発については、ニアフィー ルド複合現象解析モデルによって評価される過渡的な場の状況を捉えて、核種移行解析を行うこ とのできる可変グリッド型の核種移行解析モデルGarfield-RNT (Grid adaptive refinement finite element discretisation-Radio Nuclides Transport)を開発してきた。これにより、コンク リート支保などのセメント系材料におけるひび割れの発生・進展を中心とする、化学、水理及び 力学に跨る状態の変化と、それに追随して核種移行解析を行うことが可能となった。特に、緩衝 材を使用せずに、坑道内部のスペースをセメント系材料で充填する処分システムにおいては、こ のようなひび割れにおける地下水の流れとそれに関連する変質挙動がバリアシステム全体の核種 の閉じ込め性能に大きな影響を及ぼし得ることから、このようなシステム開発の重要性が高いと 考えられた(日本原子力研究開発機構, 2018)。

しかしながら、上記で示した核種移行解析モデルは、対象とする問題がコンクリートのひび割 れ・進展問題に限定されており、ニアフィールドで考慮する必要のある様々な複合現象を対象と した核種移行解析に適用することはできない。

そこで本節では、4.2 節で示したニアフィールド複合現象評価システムで求められる連成解析 の結果を、核種移行解析モデルへ反映する手法における解析手順やデータ受け渡しなどのフレー ムワークを検討した。そのため、ニアフィールド複合現象評価システムから求められる環境変遷 を、核種移行モデルによる解析に反映する手法の概念を整理し、これに基づき、化学、水理及び 力学に跨る状態の変化に追随して核種移行解析を行うモデルの要件と、核種移行解析で必要なイ ンプットパラメータを抽出して整理した。なお、本検討では、4.2.3 項のニアフィールド複合現象 評価システムのプロトタイプと同様に、緩衝材を横断する領域において止水性やコロイドろ過性 などの安全機能が失われる状態の変遷パターンにおける核種移行挙動を解析することを想定した。 次項より、この検討の成果を示す。

#### 4.3.2 複合現象の評価結果を核種移行モデルの解析に反映する手法の概念

緩衝材を横断する領域において止水性やコロイドろ過性などの安全機能が失われる状況におけ る核種移行の概念を図 4.3-1 に示す。このような核種移行解析では、複合現象モデルで得られた 水理場や化学変質の時空間情報を、物質移行特性や核種移行遅延特性などの時空間情報に変換し て解析を実施することが想定される。このような核種移行挙動は、例えば、多孔質媒体に近似し た上で、次の式(4.3-1)に示す支配方程式で表現することが可能であると考えられる。

$$\theta \frac{\partial C}{\partial t} = \nabla \cdot \frac{1}{R(\theta)} \left( D_{eff} \nabla C - \boldsymbol{q} C \right) - \theta \lambda C \tag{4.3-1}$$

ここで、C (mol/kg) は核種濃度、 $\theta$  (-) は間隙率、 $D_{eff}$  (m<sup>2</sup>/y) は実効拡散係数、q (m/y) はダル シー流速ベクトル、 $\lambda$  (y<sup>-1</sup>)は崩壊定数である。また、R (-) は遅延係数であり、 $K_d$  (m<sup>3</sup>/kg)は収着 分配係数、 $\rho_d$  (kg/m<sup>3</sup>)はバルクの乾燥密度を表すものとすると、次式(4.3-2)のように間隙率  $\theta$  の 関数で表される。

$$R(\theta) = 1 + \frac{\rho_d}{\theta} K_d \tag{4.3-2}$$

複合現象モデルとの連成では、上記のパラメータのうち、溶解度やK<sub>a</sub>などの核種移行解析に特 有のパラメータについては、領域内に設定された各要素の物性タイプごとに設定可能であること、 かつ、地球化学的パラメータに依存して値の時間的な変化を設定できることが求められる。他方、 透水係数などの、複合現象評価と共通的な特性の変化については、複合現象モデルで得られた数 値情報をそのまま使用することで、整合的な取り扱いが容易になると考えられる。

また、解析体系やメッシュの構造については、パラメータの変換の際に、時間方向について適切な方法で補間を行うとともに、空間方向については化学ー物質輸送解析の解像度(メッシュサイズ)に応じたパラメータ授受を行う必要があると考えられる。上記に示した溶解度やK<sub>a</sub>などの核種移行パラメータは、4.3.3 項において後述するように、化学ー物質輸送解析で求められる状態変遷の指標(例えば、pH など)に依存して変化する可能性があるため、化学ー物質輸送解析と共通の解析メッシュを使用して核種移行解析を行うことが有効となる可能性があると考えられる。

なお、上記で示した緩衝材を対象とする核種移行解析において、オーバーパックやコンクリート支保との相互作用による状態の変化に限定せず、地質環境条件の変遷(隆起・侵食、海水準変動、地震動による影響など)による影響についても考慮し、これらの時空間変化に追随した核種移行解析を行うことが必要となる可能性がある。Noseck et al. (2014) では、ドイツのゴアレーベンにおける淡水系地下水と塩濃度の高い地下水が不均質に混在する状況を対象として、表面錯体反応とイオン交換反応による収着モデルによって、これらの地下水条件に対応した*K*<sub>d</sub>の変動を評価するアプローチ(Smart-*K*<sub>d</sub>アプローチと呼ばれる)により、核種移行解析を行っている。このようなアプローチを参考として、オーバーパックやコンクリート支保との相互作用も考慮しつつ、地質環境条件の変遷に追随した核種移行解析を行うことが有効となる可能性がある。



図 4.3-1 緩衝材を横断する領域で安全機能が失われる場合の核種移行の概念

## 4.3.3 複合現象解析との連携における核種移行解析モデルの要件とインプットパラメータの抽出

セメントや鉄などとの相互作用の帰結として、長期的な時間スケールで緩衝材の安全機能が失われる状態変遷のパターンにおいて生じる個々のプロセスが核種移行に与える影響を、関連する 文献の調査結果などを参考に抽出した。そして、抽出した情報に基づき、核種移行解析モデルに 具備すべき要件を整理した。また、その要件を備えた核種移行モデルと、ニアフィールド複合現 象評価システムとを連携する場合に必要となる、関連するパラメータなどの整理を行った。なお、 本検討では緩衝材中における核種移行のみを対象とし、コンクリート支保における核種移行及び オーバーパックからの核種の放出については対象外とした。

緩衝材とコンクリート支保との境界領域及び緩衝材とオーバーパックとの境界領域のそれぞれ について、核種移行解析モデルに求められる要件を整理した結果を表 4.3-1 にまとめて示す。ニ アフィールド複合現象評価システムの個別現象解析モデルの要件の整理表(表 4.2-3)で記述され た個々のプロセスを核種移行に対する影響因子と考え、そこで想定された影響の有無や程度を定 量的に評価するうえで求められる要件とを対応付けて整理した。

コンクリート支保及びオーバーパックとの境界近傍では、緩衝材中の pH が時間とともに変化 すると考えられる。この場合には、核種の溶解度及び緩衝材に対する*K*<sub>d</sub>が変化するとされる事例 (例えば、Ochs et al., 2016; 三原, 2006; Baeyens et al., 2014; Tournassat et al., 2018)が存 在すること及び pH の変化を考慮して性能評価における核種移行パラメータとして溶解度及び*K*<sub>d</sub> を設定した事例(例えば、日本原子力研究開発機構, 2015)が存在することから、pH をパラメ ータとして溶解度及び収着性の時空間的な変化を表現できることを、核種移行モデルに求められ る要件として記述した。また、3.3.2 項に示したように、鉄イオンとの競合により核種の収着性は 変化する可能性があることから、オーバーパックとの境界近傍では、これによる収着性の時空間 的な変化を表現できることも要件として記述した。

上記の高 pH 化に伴うモンモリロナイトの溶解及び二次鉱物の生成による固相の変化に対して

は、間隙率及びモンモリロナイト含有率に応じて核種の実効拡散係数及び透水係数が変化するこ とから、これらをパラメータとする経験式(例えば、Mihara and Sasaki, 2005;伊藤・三原, 2005)が提案されている。そこで、間隙率やモンモリロナイト含有率などをパラメータとして実 効拡散係数の時空間的な変化を表現できることを要件として記述した。また、核種の収着特性に ついては、モンモリロナイト含有率によって変化すると考えられることから、モンモリロナイト 含有率などをパラメータとして収着特性の変化を表現できることを要件として記述した。なお、 前項で示したように、複合現象評価と共通的な特性の変化については、複合現象モデルで得られ た数値情報をそのまま使用することで、整合的な取り扱いが容易になると考えられることから、 透水係数の変化については、核種移行モデルの要件には含めず、複合現象評価で求められた地下 水の流速をインプットとして反映することなどにより、移流による核種移行を扱えることを要件 として記述した。また、コロイドによる移行が考慮できることも要件として記述した。

上記の変質が進展して脆性的な材料に変化し、地震動などの影響によりこれが破壊されるよう な状態の変化に対しても、上記と同様に、実効拡散係数の変化を扱えることと、移流場への変化 を扱えることを要件として記述した。また、さらに変質が進展して、緩衝材の外側境界からオー バーパックまで横断する領域で移流場が形成される場合には、移流場での溶解度の考慮やコロイ ドとしての核種移行が表現できることが必要となる可能性があることから、これらを要件として 記述した。

人工バリアにおける複合現象を構成する個々のプロセスから要件として抽出されたパラメータ の変化については、複合現象の評価と同様に、二次元あるいは三次元的な非対称性及び不均質性 を考慮することが必要と考えられる。これにより、4.2.2 項(1)で実施したような従来の核種移行 評価モデルでは扱うことが難しい現象(例えば、図 4.3-1 に示すような、部分的に緩衝材の止水 性・コロイドろ過性などの安全機能が失われる場合における、緩衝材での核種の遅延特性の空間 的不均質性及びその帰結として現れる核種移行挙動や岩盤への核種移行率の変化など)が核種移 行挙動に与える影響を解析によって定量的に評価できる可能性がある。

以上の検討によって整理された核種移行モデルに対する要件に基づき、緩衝材における核種移 行解析で必要と考えられるインプットパラメータと、複合現象の評価で参照するパラメータの候 補を抽出し、これらの関係を整理した。この結果を表 4.3-2 に示す。

今後は、上記で示した核種移行モデルの要件の整理結果と、核種移行パラメータを設定するう えで参照すべき複合現象解析のパラメータの候補の整理結果などを踏まえて、サブタスク1(4.2 節参照)で構築したニアフィールド複合現象評価システムを利用した核種移行解析モデルを構築 し、試行的な核種移行解析を実施することにより、緩衝材の長期的状態変遷のパターンにおける 場の状態に追随した核種移行評価の高度化に向けた課題の抽出と、抽出された課題の解決に向け た研究開発のアプローチを検討していくことが必要である。

# 表 4.3-1 緩衝材を対象とした核種移行モデルに求められる要件(1/2)

# (コンクリート支保との相互作用に着目)

着目するプロセス	核種移行に与える影響	核種移行モデルの要件
<ul> <li>セメント溶出成分の輸送(供給) に関するプロセス</li> <li>セメント溶出成分(Ca, K, Na, OHなど)の拡散(緩衝 材未変質部)</li> <li>セメント溶出成分(Ca, K, Na, OHなど)の移流(緩衝 材変質部)</li> </ul>	<ul> <li>pHの変化に伴う溶解度の変化</li> <li>pHの変化に伴う収着性の変化</li> </ul>	<ul> <li>pHをパラメータとして溶解度の 変化を表現できること</li> <li>pHをパラメータとして収着性の 変化を表現できること</li> </ul>
<ul> <li>モンモリロナイト溶解に関する プロセス</li> <li>モンモリロナイト及び他のベントナイト成分の溶解</li> <li>固相化学組成の変化(モンモリロナイトなどの初期鉱物の含有率低下及び二次鉱物沈殿)</li> <li>モンモリロナイト溶解成分の拡散</li> <li>膨潤性の相違による緩衝材の密度変化(未変質部の膨潤と変質部の圧縮)</li> </ul>	<ul> <li>モンモリロナイト溶解に伴う収 着性の変化</li> <li>モンモリロナイト溶解、二次鉱 物の沈澱による拡散性の変化</li> <li>モンモリロナイト溶解、二次鉱 物の沈澱による透水性の変化</li> <li>上記の拡散性と透水性の変化に 伴う拡散場から移流場への変 化、コロイドによる移行</li> </ul>	<ul> <li>モンモリロナイト含有率などを パラメータとして収着性の変化 を表現できること</li> <li>間隙率やモンモリロナイト含有 率などをパラメータとして核種 の拡散性の変化を表現できること</li> <li>透水性が上昇して移流場に変化 した場合に、移流による核種移 行を取り扱えること</li> <li>コロイドとしての核種移行が表 現できること</li> </ul>
<ul> <li>境界層の破壊に関するプロセス</li> <li>コンクリート・緩衝材境界の保護的変質層の破壊と再生の反復</li> </ul>	<ul> <li>境界層の破壊などによる拡散性の変化</li> <li>境界層の破壊などによる透水性の変化と、これによる拡散場から移流場への変化、コロイドによる移行</li> </ul>	<ul> <li>間隙率やモンモリロナイト含有率などをパラメータとして拡散性の変化を表現できること</li> <li>透水性が上昇して移流場に変化した場合に、移流による核種移行を取り扱えること</li> <li>コロイドとしての核種移行が表現できること</li> </ul>
【凡例】 赤:化学に関するプロセス 青:水理に関するプロセス 緑:力学に関するプロセス 黒:異種のプロセス間の相互作用		【凡例】 赤:核種移行モデルで考慮すべき要 件 青:複合現象の解析で考慮された要 件を引き継ぐ部分

# 表 4.3-1 緩衝材を対象とした核種移行モデルに求められる要件(2/2)

# (オーバーパックとの相互作用に着目)

着目するブロセス	核種移行に与える影響	核種移行モデルの要件
<ul> <li>鉄腐食による鉄イオン溶出に関するプロセス</li> <li>還元環境での炭素鋼腐食</li> <li>鉄腐食生成物層の形成(マグネタイトやシデライトなど)</li> <li>鉄腐食によるオーバーパック膨張</li> <li>余剰の溶存鉄イオン及び水酸化</li> </ul>	<ul> <li>鉄腐食反応によるpHの変化に 伴う溶解度の変化</li> <li>鉄腐食反応によるpHの変化に 伴う収着性の変化</li> <li>鉄イオンと核種の競合による収 着性の変化</li> </ul>	<ul> <li>pHをパラメータとして溶解度の変化を表現できること</li> <li>pHをパラメータとして収着性の変化を表現できること</li> <li>鉄イオンと核種の競合による収着性の変化を表現できること</li> </ul>
<ul> <li>物イオンの拡散</li> <li>鉄イオン、水酸化物イオンとベントナイトの反応に関するプロセス</li> <li>モンモリロナイトなどの初期鉱物の溶解</li> <li>固相化学組成の変化(モンモリロナイトなどの初期鉱物の含有率低下及び二次鉱物沈殿)</li> <li>モンモリロナイト溶解成分の拡散</li> </ul>	<ul> <li>モンモリロナイト溶解に伴う収着性の変化</li> <li>モンモリロナイト溶解、二次鉱物の沈澱による拡散性の変化</li> <li>モンモリロナイト溶解、二次鉱物の沈澱による透水性の変化</li> <li>上記の拡散性と透水性の変化に伴う拡散場から移流場への変化、コロイドによる移行</li> </ul>	<ul> <li>モンモリロナイト含有率など をパラメータとして収着性の 変化を表現できること</li> <li>間隙率やモンモリロナイト含 有率などをパラメータとして 核種の拡散性の変化を表現で きること</li> <li>透水性が上昇して移流場に変 化した場合に、移流による核 種移行を取り扱えること</li> <li>コロイドとしての核種移行が 表現できること</li> </ul>
<ul> <li>         ・非膨潤性二次鉱物層形成に関するプロセス         ・非膨潤性二次鉱物層の形成         ・非膨潤性二次鉱物層の割れ         </li> </ul>	<ul> <li>モンモリロナイト溶解、二次鉱物の沈澱による拡散性の変化</li> <li>モンモリロナイト溶解、二次鉱物の沈澱による透水性の変化</li> <li>上記の拡散性と透水性の変化に伴う拡散場から移流場への変化、コロイドによる移行</li> </ul>	<ul> <li>間隙率やモンモリロナイト含 有率などをパラメータとして 拡散性の変化を表現できること</li> <li>透水性が上昇して移流場に変 化した場合に、移流による核 種移行を取り扱えること</li> <li>コロイドとしての核種移行が 表現できること</li> </ul>
<ul> <li>              緩衝材領域を横断する移流に関するプロセス             ・地下水の廃棄体領域への流入          </li> <li>             【凡例】             ホ: 化学に関するプロセス         </li> </ul>	<ul> <li>移流場での核種溶解</li> <li>溶存形あるいはコロイドとしての核種の移流による人工バリアから外部への移行</li> </ul>	<ul> <li>移流場での溶解度の変化を表現できること</li> <li>コロイドとしての核種移行が表現できること</li> <li>【凡例】</li> <li>赤:核種移行モデルで考慮すべき</li> </ul>
<ul> <li></li></ul>		要件           青:複合現象の解析で考慮された           要件を引き継ぐ部分

# 表 4.3-2 緩衝材を対象とする核種移行解析のインプットパラメータと複合現象評価で参照する

パラメータの候補

核種移行解析で必要なパラメータ	複合現象解析で参照するパラメータの候補
	モンモリロナイト含有率
収着分配係数(K <sub>d</sub> )	pH
ű	鉄イオン濃度
~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~	pH
宇动世界核教	間隙率
关划拉取休敛	モンモリロナイト含有率
流速分布	複合現象の解析で求められる流速分布の情報をそのまま 使用する

#### 4.3.4 成果と今後の課題

4.3 節では、ニアフィールド複合現象評価システムから求められる環境変遷を、核種移行モデルによる解析に反映する手法の概念を整理し、これに基づき、化学、水理及び力学に跨る状態の変化に追随して核種移行解析を行うモデルの要件と、核種移行解析で必要なインプットパラメータを抽出して整理した。

今後は、上記で示した核種移行モデルの要件の整理結果と、核種移行パラメータを設定するう えで参照すべき複合現象解析のパラメータの候補の整理結果などを踏まえて、サブタスク1(4.2 節参照)で構築した複合現象評価システムを利用した核種移行解析モデルを構築する。そして、 試行的な核種移行解析を通じて、緩衝材の長期的状態変遷のパターンにおける場の状態に追随し た核種移行評価の高度化に向けた課題の抽出と、抽出された課題の解決に向けた研究開発のアプ ローチを検討していくことが必要である。

### 参考文献

- Baeyens, B., Thoenen, T., Bradbury, M. H. and Fernandes, M., Sorption data bases for argillaceous rocks and bentonite for the provisional safety analyses for SGT-E2, Nagra Technical Report NTB 12-04, Nagra, Wettingen, Switzerland, 2014.
- 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 2005-002, 2005.
- 平野史生,大谷芳輝,京川裕之,三原守弘,清水浩之,本田明,TRU 廃棄物処分システムの性能評価の観点からの人工バリアの透水性に対するセメント系材料のひび割れの影響に関する検討,日本原子力学会和文論文誌,Vol.15, No.2, pp.97-114, 2016.
- 伊藤弘之,三原守弘,ベントナイト系材料の飽和透水係数の変遷評価式,JNC TN8400 2005-029, 2005.
- 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,一地 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 99-23,1999.
- Lin, H.-C. J., Richards, D. R., Talbot, C. A., Yeh, G.-T., Cheng, J.-R., Cheng, H.-P. and Jones, N.L., A Three-Dimensional Finite Element Computer Model for Simulating Density-Dependent Flow and Transport in Variably Saturated Media, Version 3.0, 1997.
- Metcalfe, R. and Walker, C., Proceedings of the International Workshop on Bentonite-Cement Interaction in Repository Environments, NUMO-TR-04-05, 2004.
- Milodowski, A. E., Cave, M. R., Kemp, S. J., Taylor, H., Vickers, B. P., Green, K. A. and Shaw, R. A., Mineralogical investigations of the interaction between iron corrosion products and bentonite from the NF-PRO Experiments (Phase 1)., 2009.
- 三原守弘, TRU 廃棄物処分システムの安全評価における核種移行データセット, JAEA-Review 2006-011, 2006.
- 三原守弘, 平野史生, 高山裕介, 京川裕之, 大野進太郎, TRU 廃棄物地層処分施設の化学的変遷を 考慮した長期力学挙動解析コードの開発, 原子力バックエンド研究, Vol.24, No.1, pp.15-26, 2017.
- 三原守弘,大澤勉,大井貴夫,藤田英樹,根岸久美,横関康裕,渡邉賢三,TRU 廃棄物処分における N.F.水理場の変遷に関する研究(6)-セメント系材料の変遷と水理・力学特性の変化-,日本原子力学会,2003 年秋の大会予稿集(第Ⅲ分冊), p.580, 2003.
- Mihara, M. and Sasaki, R., RAdio-nuclides Migration DAtasets(RAMDA) on cement, bentonite and rock for the performance assessment of TRU repository in Japan, JNC TN8400 2005-027, 2005.
- 三原守弘, 佐藤信之, 大野進太郎, 森川誠司, TRU 廃棄物地層処分施設の力学挙動解析コード (MACBECE)の開発, JAEA-Data/Code 2009-026, 2010.
- 日本原子力研究開発機構,平成23年度地層処分技術調査等事業 TRU廃棄物処分技術 セメン ト材料影響評価技術高度化開発報告書,平成24年3月,2012.
- 日本原子力研究開発機構,平成24年度地層処分技術調査等事業 TRU廃棄物処分技術 セメント材料影響評価技術高度化開発報告書,平成25年3月,2013.
- 日本原子力研究開発機構, 平成 25 年度 地層処分技術調査等事業 セメント材料影響評価技術高 度化開発報告書, 平成 26 年 3 月, 2014a.
- 日本原子力研究開発機構, 平成 25 年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開

発報告書, 平成 26 年 3 月, 2014b.

- 日本原子力研究開発機構,平成 26 年度 地層処分技術調査等事業 セメント材料影響評価技術高度化開発報告書,平成 27 年 3 月,2015a.
- 日本原子力研究開発機構, 平成 26 年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開 発報告書, 平成 27 年 3 月, 2015b.
- 日本原子力研究開発機構,わが国における使用済燃料の地層処分システムに関する概括的評価-直接処分第1次取りまとめ-, JAEA-Research 2015-016, 2015c.
- 日本原子力研究開発機構, 平成 27 年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開 発報告書, 平成 28 年 3 月, 2016.
- 日本原子力研究開発機構, 平成 28 年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開 発報告書, 平成 29 年 3 月, 2017.
- 日本原子力研究開発機構,平成 29 年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 処分システム評価確証技術開発報告書,平成 30 年 3 月,2018.
- Noseck, U., Britz, S., Flügge, J., Mönig, J., Brendler, V. and Stockmann, M., New methodology for realistic integration of sorption processes safety assessments, Waste Management 2014 Conference, 2014.
- Ochs, M., Mallants, D. and Wang, L., Radionuclide and metal sorption on cement and concrete, Springer International Publishing Switzerland, 2016.
- 奥津一夫,森川誠司,広中良和,前田宗宏,新保弘,畔柳幹雄,田部井和人,佐原史浩,村上 武志,青山裕司,ニアフィールド水理場の長期的変遷,評価システム構築に関する研究IV,JNC TJ8400 2005-012, 2005.
- OpenMI Association, Annual Report 2015, 2015. https://www.openmi.org/dashboard2 (2019 年 3 月 14 日最終閲覧).
- Quintessa Ltd., QPAC: Quintessa's General-Purpose Modelling Software, QRS-QPAC-11, 2013.
- Snow, D. T., A parallel plate model of fractured permeable media. Ph. D. Thesis, University of California., Berkley, California, 1965.
- Tournassat, C., Tinnacher, R. M., Grangeon, S. and Davis, J. A., Modeling uranium (VI) adsorption onto montmorillonite under varying carbonate concentrations: A surface complexation model accounting for the spillover effect on surface potential. Geochimica et Cosmochimica Acta, 220, pp.291-308, 2018.
- Yeh, G.-T., FEMWATER, a Finite Element Model of Water Flow through Saturated-Unsaturated Porous Media, First Revision. Oak Ridge, Tenn., Springfield, Va., Environmental Sciences Division, Oak Ridge National Laboratory, available from National Technical Information Service, 1987.

#### 5.1 平成30年度における主な成果

本事業において、得られた主な成果を以下に記述する。

2章「ニアフィールド環境変遷に係る個別評価技術の開発」では、オーバーパック、緩衝材、セ メント系材料など複数の材料と岩盤から構成されるニアフィールドの状態変遷を評価する技術の 構築と、その技術の検証を目的に、5つのサブタスクを実施した。

まず、「オーバーパックの腐食挙動評価」では、幌延URLにて実施されたオーバーパック腐食 試験の試験試料を活用し、模擬オーバーパックの腐食状況や微生物挙動を含めて緩衝材中の環境 条件に関する調査を行った。その結果、模擬オーバーパックは比較的酸化性の条件に置かれた時 期が存在するとともに、ケイ砂が模擬オーバーパックへ付着している状態の不均一な付着や一様 ではない様子や緩衝材の密度や飽和度の部位による違いによって不均一な腐食が生じうる条件で あったことがわかった。また、環境条件による腐食への影響に関する知見の拡充を目的として、 炭酸ガス環境での腐食挙動に関するデータを拡充した。炭酸ガス環境での初期の腐食速度は炭酸 ガス濃度が高いほど大きいものの、長期的には保護性の高い炭酸鉄皮膜の形成によって腐食進展 はむしろ抑制される可能性のあることがわかった。今後は、原位置試験試料の調査、分析を進め、 不均一な腐食挙動とそのメカニズムを明らかにするとともに、模擬オーバーパックの腐食深さデ ータ等に基づいて過渡状態における腐食深さの評価手法の妥当性の検証や高度化を検討する。ま た、環境条件による腐食への影響に関し、原位置試験データや天然事例等も活用して緩衝材中の THMCの特性や微生物挙動など環境条件に関する理解を進めつつ、これらの複合的な要因が関与 する系や環境条件の変化を伴う系での腐食データ、長期データ等を拡充することにより、長期的 な環境条件の変遷に対応した腐食挙動の評価を行うことも課題として挙げられる。

次に、「緩衝材の変質挙動評価」では、幌延URLにおいて実施されたオーバーパック腐食試験 により取得した圧縮ベントナイト試料の分析から、炭素鋼製模擬オーバーパックの腐食により圧 縮ベントナイト中に移行したFeは、Ca、Mnとともに炭酸塩として存在している可能性を示した。 一方で、鉄共存下でモンモリロナイトの変質により生成すると考えられるサポナイト、緑泥石、 バーチェリンの存在は確認されず、モンモリロナイトの変質はほとんど生じていないことが推測 された。この結果は試料の概略的な分析に基づくものであり、今後TEM分析等でのより微少な領 域での変質鉱物生成の有無など、試料の詳細な分析を進める。また、緩衝材変質に関するナチュ ラルアナログ事例に関する文献調査の結果、平成20年度以降の重要な事例として5件を抽出した。 今後、これらの事例のうちから重要と考えられる3件の事例について、モンモリロナイトの変質プ ロセスの理解や、変質評価モデルによる長期変質挙動の予測結果の検証に活用可能な知見の抽出 を進める。さらに、緩衝材の基本特性に対するセメンテーションによる影響を評価する取り組み の一環として、圧縮ベントナイトに対して実施されてきた既往の膨潤圧試験/透水試験手法を用い て、山形県月布のベントナイト鉱床の原鉱石および再構成試料の膨潤圧と透水係数を測定した。 その結果、原鉱石の膨潤圧は圧縮ベントナイトよりも小さくなる傾向が示され、セメンテーショ ンが膨潤圧を低下させる可能性があることがわかった。今後、ベントナイト試料の微視的な観察 等により詳細に分析し、セメンテーションと膨潤圧との関係に係るデータの取得を進めるととも に、セメンテーションがベントナイトの応力緩衝性等の力学的特性に与える影響検討も進める。 さらに、モンモリロナイトの加速変質試験と分子動力学シミュレーション等の分析の結果から、 ベントナイトに含まれるモンモリロナイトの変質の進展には、そのモンモリロナイト構造中の層 電荷と層間陽イオン組成が影響を与える可能性があることが示された。モンモリロナイトの陽イ

オン組成が、例えばMgやKに変わることで、モンモリロナイトから他の鉱物に変遷する可能性が 考えられる。

第3に、「ニアフィールドTHMC連成挙動評価」では、FEBEXプロジェクトにおける原位置試 験データを対象としたTHM解析を実施し、岩盤からの地下水の浸潤によって緩衝材の水分飽和度 が上昇する一方で、ヒーター近傍で緩衝材が乾燥する様子など全体的な浸潤挙動の再現が可能で あり、廃棄体横置き仕様および国産とは異なるベントナイトに対しても本解析モデルが温度環境 や浸潤挙動の評価に適用できることを確認した。一方、緩衝材の膨潤挙動については、施工時の ベントナイトブロック間の隙間をモデルに考慮していないことの影響から実測された初期の膨潤 圧の変化を再現できないことが示された。今後は、より長期の評価を通じてTHM連成解析モデル の適切性の確認を進める。また、海水系地下水環境下における緩衝材の浸潤解析を実施し、緩衝 材の間隙水化学を考慮した地球化学との連成解析によって、支保コンクリートを透過した高いカ ルシウム濃度の地下水が、緩衝材中のモンモリロナイトのカルシウム型化に与える影響や、それ による透水係数の変化などの緩衝材の特性に与える影響の可能性を示した。今後は、幌延地域の 地下水など高い塩分濃度の溶液を用いて緩衝材の浸潤試験を実施し、解析結果との比較を通じて 本手法の適切性を確認する。そして、幌延URLで実施されたオーバーパック腐食試験データを活 用したTHMC解析により、支保コンクリートの影響を含む海水系地下水環境下での連成挙動評価 の適切性を確認するとともに、それらの解析結果からオーバーパックの腐食挙動評価に必要とな る緩衝材の間隙水組成や酸化電位などの情報を提示していく予定である。また、長期力学挙動解 析コードMACBECEに不飽和土の弾塑性構成モデルと水分特性曲線モデルを追加し、外部の水理 解析コードで計算した緩衝材内部の飽和度分布の時間変遷等の水理情報を入力して、過渡期の緩 衝材の力学挙動を解析する機能を追加するとともに、膨潤変形試験の再現解析により緩衝材の飽 和度上昇に伴う変形挙動を概ね再現できることを確認した。本検討でMACBECEに導入した不飽 和土の弾塑性構成モデルは、飽和時には飽和土の弾塑性構成モデルに帰着するため、不飽和状態 から飽和後の挙動までを連続的に取り扱うことが可能である。従って、MACBECEを用いれば処 分施設の各材料および周辺岩盤との力学的相互作用を過渡期から長期まで連続して評価すること が可能となった。今後は、過渡期の緩衝材の力学挙動を解析した結果を、飽和後の初期状態とし て使用した処分施設の長期力学挙動解析を実施し、過渡期の緩衝材の力学挙動が処分施設の長期 の力学挙動に与える影響を検討していく予定である。

第4に「母岩中アルカリプルーム反応輸送挙動評価」では、実際の地質環境に近いCO2の影響が 小さい還元環境下において、セメント・地下水・岩石の相互作用を把握するための室内試験を実施 し、方解石(CaCO3)がセメント表面や岩石表面に皮膜状に析出していること、セメント中のCa の溶脱などの顕著な変質が観察されない、などの相互作用メカニズムの概念モデル化に資する知 見を得た。瑞浪の地下研究施設では坑道周辺の地下水のpHやCa濃度が経時的に変化しており、坑 道周辺の地下水流動の変化に依存してセメント・地下水・岩石の相互作用の影響が変化すると考え られる。今後は、地下研究施設などの坑道周辺のスケールのセメント影響の評価に向けて、瑞浪 地下研究施設でグラウチング施工後10年程度経過した場所を対象とした試料の分析を進める。ま た、亀裂性岩盤を対象とした母岩中アルカリプルームの反応輸送挙動モデルの高度化に向けて、 アルカリプルームと岩盤の相互作用に関するナチュラルアナログの検討事例や上記の原位置での 検討等を参考に、モデルの高度化に関する課題を幅広く抽出すると共に、抽出された課題の解決 に向けた予察的解析を実施した。今後は、地下水の流速や化学組成等のパラメータについて、鉱 物等の沈殿に伴う亀裂部の閉塞、閉塞部を迂回するような挙動、閉塞部の再溶解等がどのような そ件の組み合わせで起こるか等を把握するための検討を進めるとともに、坑道周辺のグラウトな どを想定した条件などへの適用方法の検討など、ニアフィールド母岩を対象とした評価手法の高 度化に向けた研究アプローチを提示する。

最後に、「流出現象等を考慮した緩衝材の健全性評価」では、竪置きブロック方式の緩衝材の 定置から埋め戻しまでの期間を対象とした緩衝材の流出に対する工学的な対策として、ケイ砂を 孔壁と緩衝材ブロックの隙間に充填する方法を提示するとともに、室内試験によってケイ砂の隙 間充填が緩衝材の流出を抑制する効果があることを確認した。また、幌延URLの原位置での緩衝 材流出抑制の確認試験に向けて、試験孔への地下水湧水量等の環境条件を確認した。今後は、室 内試験により、期間、試験規模、注水量等の条件がケイ砂充填による緩衝材流出抑制効果に与え る影響についてのデータを取得するとともに、原位置試験により緩衝材が流出するのを抑制する 効果の確認を進める。

3章「ニアフィールド環境変遷を考慮した核種移行評価技術の開発」では、実際の地質環境の特徴やニアフィールドシステムの長期環境変遷を考慮した核種移行評価を行うための個別現象モデルやデータベースを、室内試験、地下研究施設での原位置試験等を通じて開発することを目的に、 3つのサブタスクを実施した。

まず、「ニアフィールド岩盤中の核種移行評価技術の開発」では、グリムゼルの岩石のマトリ クス部について、鉱物や間隙の不均質性を反映したモデルの改良を行い、その実測データへの適 用性を確認した。今後は、この手法をエスポやオンカロの岩石マトリクスの室内及び原位置試験 データへ適用し、その妥当性を確認していく。一方、グリムゼルの岩石のより複雑な割れ目を対 象として、数cmスケールの割れ目試料を用いて室内トレーサー試験を実施するとともに、その結 果へのモデルの適用性評価の結果から、割れ目内のガウジ層の収着・拡散への寄与等のより複雑 な割れ目の特徴が亀裂内の核種移行に影響を与えることを示した。また、実際の原位置環境でよ り大きなスケールの割れ目を対象とした原位置試験によるモデルの高度化に向けて、グリムゼル の原位置試験対象割れ目から採取された大型の岩石コア試料を用いて、割れ目性状分析や室内ト レーサー試験を実施した。今後は、より複雑な割れ目性状の分析と、それらの収着・拡散特性の 把握を進め、核種移行モデルの改良と室内トレーサー試験結果に基づく適用性を確認する。堆積 岩については、幌延URLの稚内層の泥岩マトリクス部のNMR等による鉱物・間隙分析と核種拡散 データの取得を進めた。また、幌延URLの350 m坑道の稚内層の泥岩マトリクス部において地下 水塩濃度の異なる条件で実施された原位置拡散試験後の岩石試料のトレーサー濃度分析とモデル 解析を行い、Csの実効拡散係数と収着分配係数の間隙水塩濃度との明瞭な相関を原位置で確認し た。今後は、幌延の泥岩マトリクス中の核種移行モデルの鉱物・間隙特性を反映した改良と、異 方性や塩濃度影響を含む原位置試験データの拡充とそれらへの適用を通じたモデルの妥当性確認 を進める。さらに、堆積岩の割れ目中の核種移行挙動評価については、幌延URLの割れ目を対象 としたトレーサー試験後に、周辺部から採取した割れ目表面のCs等のトレーサー分布を分析した 結果、割れ目に沿ったトレーサーの不均質な移行経路を示唆する情報を得ることができた。今後 は、複数の移行経路や不均質な流れ場等を考慮した核種移行モデルの改良とその適用性について 検討する。地質環境の長期変遷が核種移行に与える影響や、空間的なアップスケールの影響を取 り扱い可能な核種移行解析手法については、割れ目表面変質層、収着の不可逆性、酸化還元環境 の変化等の精緻な取り扱いが可能な解析手法と、パラメータの時空間変化の取り扱いが可能な簡 易な解析手法とを組み合わせた核種移行解析手法を検討し、隆起シナリオを事例に解析を試行し た。また、幌延URLの既存データを活用した地質環境の長期変遷等を考慮したナチュラルトレー サーの評価手法について、反応性トレーサーの事例として利用可能なNa等の反応性トレーサーの データセット、鉱物イオン交換反応や黄鉄鉱の酸化反応など着目すべき反応を抽出した。今後は、 核種移行の現象理解と地質環境の長期環境変遷を考慮可能な核種移行解析手法の構築と、ナチュ

ラルトレーサー等の情報に活用した核種移行解析手法の妥当性の確認を進める。

次に「システム変遷等を考慮した核種移行解析モデル/データベースの整備」では、鉄共存系で の核種移行影響評価として、これまでに取得したFe(II)のモンモリロナイトへの分配係数に基づ き、鉄イオンによるモンモリロナイト中の表面錯体サイト飽和挙動を評価した。その結果、鉄腐 食生成物固相の溶解度と表面錯体サイト飽和度の関係を整理し、収着競合が起こる可能性のある pH領域を示した。また、鉄腐食生成物によるSe<sup>2</sup>の保持挙動評価のため、Fe(II)鉱物へのSe<sup>2</sup>の取 り込み挙動及び結晶化に伴うSe<sup>2</sup>の保持挙動の変化をバッチ共沈試験により調査し、初期pHが中 性の場合、最終的にマグネタイトとともにフェロセライト(FeSe2)としてSeの取り込みが生じる ことを確認した。今後は、鉄イオンにより収着サイトが飽和するpH領域での3-6価核種の収着競 合データの拡充と収着モデルパラメータの導出や、多様な条件でのFe(II)鉱物へのSeの取り込み データの取得、EXAFS等の分光学的手法を適用したFe鉱物へのSe取り込み形態の解明を進める。 セメント共存系での緩衝材中の核種移行に重大な影響を与える因子として、モンモリロナイトの Ca型化に伴う間隙構造変化とコロイドフィルトレーション機構への影響を抽出し、圧縮Ca型モン モリロナイト中のデンドリマーコロイド(直径約5.7 nm)の拡散データを、異なる乾燥密度や塩 濃度条件で取得した。その結果、乾燥密度1.2 Mg/m³以下の条件ではCa型モンモリロナイトから のコロイドが破過することを確認し、コロイドの実効拡散係数が乾燥密度や塩濃度条件に依存し て変化することを示すデータを得た。今後は、より高密度条件でのコロイド移行・フィルトレー ションデータの拡充と、これまでに取得してきたCa型(及びNa型)の間隙構造や核種移行特性の 環境条件依存性とも関連付けたコロイド移行特性の評価を進める。セメント系材料が岩石中の核 種移行へ与える影響として、高アルカリ間隙水が収着挙動に与える影響、二次鉱物への収着・共 沈や、二次鉱物によるマトリクス拡散の阻害等に着目し、グリムゼル試験場や幌延URLなどの原 位置においてセメントと岩石の相互作用が生じていると考えられるセメントー岩石接触試料の界 面の変質状況に関する分析に着手した。今後は、グリムゼル試験場や幌延URLの試料の分析を進 め、「母岩中アルカリプルーム反応輸送挙動評価」の成果を活用したセメントによる岩石中の移 行経路の変遷評価とともに、そのような環境変遷が収着特性に与える影響を評価する手法を構築 する。高炭酸条件下での核種移行モデルの開発としては、幌延URLの岩石・地下水条件において 炭酸錯体等の影響が顕在化する核種と、炭酸影響データが不足する条件を抽出し、炭酸条件等を 制御した岩石中の核種移行データの取得手法を整備しつつ、Am及びThのイライトへの収着デー タの取得を実施した。その結果、炭酸共存による収着分配係数の低下と三元錯体形成を考慮する 必要性を確認した。また、分子動力学計算を行う、U(VI)やNp(V)の炭酸錯体の粘土鉱物層間への アクセス性評価、第一原理計算による粘土鉱物エッジへの収着評価など、拡散・収着モデルを裏 付ける知見を得た。今後は、高炭酸条件での核種収着、拡散データの拡充に加え、先端的な分析 技術や計算科学技術によるメカニズムに関する知見を取得しつつ、高炭酸条件へ適用可能な核種 移評価モデルと課題を提示する。

最後に、「有機物・微生物の影響評価技術の開発」では、腐食物質とIV価金属イオンとの錯生 成データを文献から収集し、その化学量論解析からNICA-Donnanモデルに適用可能な腐植物質 とIV価核種との錯生成データを抽出した。そして、そのデータへのNICA-Donnanモデルの当ては めから、モデルパラメータ値を取得した。また、FFF-ICP-MS法を用いて、Zr(IV)と幌延の深部地 下水から分離・精製したフルボ酸との錯生成データを取得し、そのデータへのNICA-Donnanモデ ルの当てはめから、モデルパラメータ値を取得した。さらに、核種、有機物、岩石、地下水条件を 念頭に、二元系モデルの加成則性、瞬時平衡と可逆性について、文献調査を実施し、有機物・岩相 互作用モデルの構築、核種・有機物二元系における核種脱離に関わるデータ拡充の必要性を確認し た。今後は、IV価核種と天然有機物との錯生成データ取得手法の開発とその錯生成反応機構の把 握、および、核種・天然有機物・岩三元系における核種収着モデルの開発に向けた、二元系相互作用 データの取得を進める。微生物が核種移行挙動へ与える影響については、文献情報に基づき核種 と微生物の相互作用反応について整理した上で、地下微生物の生態等の知見を拡充することの重 要性を示した。そして、幌延URLの深度140 mの坑道から削孔されたボーリング孔から採取した 地下水に対し、微生物をy線滅菌し、無機/有機コロイドへの希土類元素の収着データを取得し、そ れに基づいて地下水中のバイオコロイドへの希土類元素の分配係数を得た。さらに、幌延URLの ボーリング孔から地下水を連続的に採取し、化学成分・微量元素濃度、微生物現存量・種組成デ ータを取得した。そして、顕微鏡観察、細胞計数、DNA解析結果等から岩盤内部において形成し たバイオフィルムであることを確認するとともに、バイオフィルムが主な構成要素である分画中 の元素分析結果からCr、Fe、Ni、Cu、Zn、Mo、Sn、W、Pb、Ce、Nd、Gd、Th、U等が高濃度 で濃集されていることを確認した。これらの元素の濃集は主に細胞外高分子物質(EPS)と微生 物代謝に起因している可能性があることを示した。今後は、上記で取得したバイオコロイドやバ イオフィルムへの元素収着データをもとに、微生物による核種の収着や微生物の代謝による核種 の取り込み等を含む核種移行への影響メカニズムの評価を進め、これらを反映した微生物の核種 移行への影響評価手法を提示する予定である。

4章「ニアフィールド性能の総合評価技術開発」では、個別現象モデルを統合してニアフィールドの空間的・時間的な変遷を解析するシステムの構築と、時間変化を考慮した地質環境モデルやニアフィールドを対象とした連成解析の結果を核種移行解析モデルへ反映する手法の構築を目的に、2つのサブタスクを実施した。

まず、「現象解析モデルの統合化技術の構築」では、ニアフィールド複合現象を評価するシス テムの開発アプローチとして、バリア構成要素の安全機能や核種移行挙動への影響というトップ ダウンの視点と、既存の個別モデルの統合というボトムアップという視点の双方の視点からの検 討の必要性を示した。そして、そのアプローチに沿った具体的な検討として、性能評価の感度解 析による重要な安全機能の抽出結果と、既存の個別現象モデル開発の「現状と課題」に関する情 報の集約結果から、「緩衝材の長期的変遷挙動の予測」を優先的に取り組む課題として設定した。 さらに、緩衝材で生じる現象とその相互作用のうち、「緩衝材を横断する領域において止水性及 びコロイドろ過性等の安全機能が失われる状況に至る状態変遷のパターン」を含む複合的な現象 をストーリーボード形式で整理した上で、解析手法の具体化として個々の現象モデルの要件の抽 出と個別現象モデル間の連成の構造を示した。そして、個々のモデル間で連携して解析が可能な ツール間のインタフェイスを整備して、ストーリーボードで示した状態変遷のパターンが生起す る分岐条件や、生起した場合の状態変化の進展速度等を定量的に評価できるシステムのプロトタ イプを構築した。今後は、構築したプロトタイプを活用して、緩衝材に期待している安全機能が 失われる状態に至る分岐条件等を定量的に評価するための感度解析を通じて、ニアフィールドの 複合的な振る舞いを評価するためのシステム開発に向けた課題抽出を進める。

次に「ニアフィールドシステム核種移行評価技術の開発」では、上記で抽出された緩衝材の長 期的変遷のパターンにおいて重要と考えられたプロセスが核種移行に与える影響を抽出するとと もに、核種移行解析モデルに具備すべき要件を抽出した。そして、その要件を備えた核種移行モ デルによる解析とニアフィールド複合現象評価システムとを連携する場合に、両者の対応関係に 基づき、核種移行解析で必要なインプットパラメータを抽出した。今後は、構築した複合現象評 価システムを利用した核種移行解析モデルを構築して試行的な核種移行解析を実施するとともに、 その試行結果に基づいた課題の抽出と、課題解決に向けた研究開発のアプローチを提案する。

# 5.2 おわりに

本報告書は、平成30年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業(ニアフィ ールドシステム評価確証技術開発)として、資源エネルギー庁から原子力機構と原環センターが 受託し、地層処分事業における概要調査から精密調査段階に有用となる調査・評価技術を開発す ることを目的として実施した技術開発の成果を取りまとめたものである。地層処分が安全で信頼 に足るものとして社会に受け入れられるものとするために本事業の成果が活用され、地層処分シ ステムが、ステークホルダーにとってより納得のいくものとなることを期待している。