平成 31 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

令和 2 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

目　次

第 1 章　緒言
1.1　本事業の背景と目的 ……1-1
1.2　実施計画 ……1-1
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 ……1-4
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 ……1-6
1.2.3　ニアフィールド性能の総合評価技術開発 ……1-8
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 ……1-9
参考文献 ……1-12

第 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
2.1　目的と 2 か年の計画 ……2-1
2.1.1　目的 ……2-1
2.1.2　2 か年の計画 ……2-1
2.2　オ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　2 か年の成果と今後の課題 ……2-26
2.3　緩衝材の変質挙動 ……2-26
2.3.1　炭素鋼-緩衝材境界領域における緩衝材の変質 ……2-27
(1) 背景と目的 ……2-27
(2) 実施内容 ……2-28
(3) 2 か年の成果と今後の課題 ……2-32
2.3.2　セメンテーションによる緩衝材特性の変化 ……2-32
(1) 背景と目的 ……2-32
(2) 実施内容 ……2-33
(3) 2 か年の成果と今後の課題 ……2-45
2.4　ニアフィールド THMC 連成挙動評価 ……2-45
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 ……2-48
(1) 背景と目的 ……2-48
(2) 実施内容 ……2-49
(3) 2 か年の成果と今後の課題 ……2-69
2.4.2　ニアフィールド長期力学解析コード開発 ……2-71
(1) 背景と目的 ……2-71
(2) 実施内容 ……2-71
(3) 2 か年の成果と今後の課題 ……2-90
2.4.3　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 ……2-91
(1) 背景と目的 ……2-91

(2) 実施内容 ……2-91
(3) 2 か年の成果と今後の課題 ……2-93
2.5 母岩中アルカリプルーム反応輸送挙動評価 ……2-93
2.5.1 グラウチング施工事例を対象とした調査・分析 ……2-94
(1) 背景と目的 ……2-94
(2) 実施内容 ……2-95
(3) 2 か年の成果と今後の課題 ……2-101
2.5.2 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 ……2-102
(1) 背景と目的 ……2-102
(2) 実施内容 ……2-104
(3) 2 か年の成果と今後の課題 ……2-110
2.6 流出現象等を考慮した緩衝材の健全性評価 ……2-111
2.6.1 背景と目的 ……2-111
2.6.2 実施内容 ……2-119
2.6.3 2 か年の成果と今後の課題 ……2-187
参考文献 ……2-190

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 か年の計画 ……3-1
3.1.1 目的 ……3-1
3.1.2 2 か年の計画 ……3-1
3.2 ニアフィールド岩盤中の核種移行評価技術の開発 ……3-3
3.2.1 背景と目的 ……3-3
3.2.2 実施内容 ……3-6
3.2.3 2 か年の成果と今後の課題 ……3-44
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 ……3-45
3.3.1 背景と目的 ……3-45
3.3.2 実施内容 ……3-46
3.3.3 2 か年の成果と今後の課題 ……3-75
3.4 有機物・微生物の影響評価技術の開発 ……3-77
3.4.1 有機物影響評価技術の開発 ……3-77
(1) 背景と目的 ……3-77
(2) 実施内容 ……3-77
(3) 2 か年の成果と今後の課題 ……3-89
3.4.2 微生物影響評価技術の開発 ……3-90
(1) 背景と目的 ……3-90
(2) 実施内容 ……3-91
(3) 2 か年の成果と今後の課題 ……3-102
参考文献 ……3-103

第 4 章　ニアフィールド性能の総合評価技術開発
4.1　目的と 2 か年の計画 …… 4-1
4.1.1　目的 …… 4-1
4.1.2　2 か年の計画 …… 4-1
4.2　現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
4.2.2　実施内容 …… 4-3
4.2.3　2 か年の成果と今後の課題 …… 4-20
4.3　ニアフィールド核種移行評価技術の開発 …… 4-21
4.3.1　背景と目的 …… 4-21
4.3.2　実施内容 …… 4-22
4.3.3　2 か年の成果と今後の課題 …… 4-27
参考文献 …… 4-28

第 5 章　結言
5.1　ニアフィールドシステム評価確証技術開発の 2 か年における主な成果 …… 5-1
5.2　おわりに …… 5-9

付録
付録 A …… 付 A-1
付録 B …… 付 B-1
付録 C …… 付 C-1

図　目　次

第 1 章　緒言
図 1.2-1　本事業で実施する「ニアフィールドシステム評価確証技術開発」の枠組みの概念図 …… 1-3
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 …… 1-3
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タスクマップ …… 1-11
図 1.2-4　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 …… 1-11

第 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
図 2.2-1　オーバーパック腐食試験の状況と試験の模式図 …… 2-3
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 …… 2-4
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 段目北側）の例 …… 2-5
図 2.2-4　ケイ砂混合率測定用緩衝材試料のサンプリング位置 …… 2-5
図 2.2-5　緩衝材から分離されたケイ砂の例 …… 2-5
図 2.2-6　解体時の模擬オーバーパックへのケイ砂の付着状況 …… 2-6
図 2.2-7　腐食センサー（6 段目、135°）の炭素鋼電極表面の外観（左）とスケッチ（右）および、顕微ラマン分光分析箇所（右図 A～E） …… 2-7
図 2.2-8　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 …… 2-7
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顕微ラマン分光分析結果 …… 2-8
図 2.2-10　pH と E_{pt}の測定結果 …… 2-9
図 2.2-11　模擬オーバーパック表面酸洗い後の表面全体の概略的な腐食深さ計測結果 …… 2-11
図 2.2-12　模擬オーバーパックの不均一腐食メカニズムの模式図 …… 2-12
図 2.2-13　模擬オーバーパックの腐食深さデータを用いた Gumbel プロットと MVLUE 法によるフィッティング結果 …… 2-12
図 2.2-14　実際のオーバーパック最大腐食深さ推定値 P_{max}（a=0.99)の原位置試験データ解析結果と既往の室内試験データ解析結果および酸素による全面腐食深さ評価式の比較 …… 2-13
図 2.2-15　試験カラムの模式図 …… 2-14
図 2.2-16　腐食試験後の試験片の外観 …… 2-16
図 2.2-17　腐食試験後の試験片表面の X 線回折結果 …… 2-17
図 2.2-18　平均腐食深さの経時変化 …… 2-18
図 2.2-19　SSRT 試験片の形状・寸法 …… 2-19
図 2.2-20　SSRT 試験セルの模式図 …… 2-19
図 2.2-21　応力-歪み線図の測定結果 …… 2-20
図 2.2-22　最大応力比（$\sigma_{sol}/\sigma_{oil}$）の NaCl, Na_2SO_4濃度依存性 …… 2-21
図 2.2-23　破断伸び比（$\varepsilon_{sol}/\varepsilon_{oil}$）の NaCl, Na_2SO_4濃度依存性 …… 2-21
図 2.2-24　試験後試験片の外観 …… 2-23
図 2.2-25　破断部近傍の SEM 観察結果例 …… 2-24
図 2.2-26　絞り比（$R.A._{sol}$/ $R.A._{oil}$）の NaCl、 Na_2SO_4濃度依存性 …… 2-25
図 2.2-27　SCC 破面率（Iscc）の NaCl、 Na_2SO_4濃度依存性 …… 2-25

図 2.3-1　原位置試験試料の TEM 画像（左：模擬オーバーパック接触面付近の試料
・右：接触面から 6 mm 程度離れた内側部分）……2-29
図 2.3-2　試料採取場所概要（左）と採取試料写真（右）……2-30
図 2.3-3　分析に使用した試料の外観……2-30
図 2.3-4　月布ベントナイト鉱山より採取した支保工と接触していた
ベントナイト試料の EPMA 分析結果……2-31
図 2.3-5　月布ベントナイト鉱山より採取した支保工と接触していた
ベントナイト試料の μ-XRD 測定結果……2-32
図 2.3-6　SEM 観察による分散試料の概観……2-34
図 2.3-7　SEM で観察された代表的な粒子形態……2-35
図 2.3-8　モンモリロナイト粒子表面の Si に富む部分の観察……2-35
図 2.3-9　TEM による微細粒子の観察結果……2-36
図 2.3-10　SEM で観察された構成粒子の代表例……2-37
図 2.3-11　実験前試料と実験後試料の不定方位 XRD パターン……2-39
図 2.3-12　実験前試料と実験後試料の定方位 XRD パターン……2-39
図 2.3-13　SEM での観察粒子とその EDS スペクトル①……2-40
図 2.3-14　SEM での観察粒子とその EDS スペクトル②……2-41
図 2.3-15　供試体成型器およびトリミングに用いた器具……2-43
図 2.3-16　膨潤圧の経時変化……2-43
図 2.3-17　標準圧密試験装置概略……2-44
図 2.3-18　膨潤圧の経時変化……2-44
図 2.3-19　体積ひずみ（圧縮が正）と載荷圧の関係……2-45
図 2.4-1　過渡期における THMC 連成マトリクスと本事業で取り組む課題……2-47
図 2.4-2　FEBEX の原位置試験のスケジュールと解析評価範囲……2-50
図 2.4-3　FEBEX プロジェクトにおける原位置試験レイアウト……2-50
図 2.4-4　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……2-52
図 2.4-5　FEBEX の原位置試験における温度の計測データと再現解析結果の比較……2-55
図 2.4-6　FEBEX の原位置試験における相対湿度の計測データと再現解析結果の比較…2-56
図 2.4-7　FEBEX の原位置試験における応力の計測データと再現解析結果の比較……2-57
図 2.4-8　FEBEX の原位置試験におけるサンプリング試料の飽和度測定結果と
再現解析結果の比較……2-58
図 2.4-9　熱-水-応力-化学（THMC）連成解析コード Couplys の計算体系……2-59
図 2.4-10　透過溶液中の NaCl 濃度と固有透過度の関係……2-61
図 2.4-11　浸潤試験の再現解析結果……2-62
図 2.4-12　オーバーパック腐食試験の解析モデル概要図……2-63
図 2.4-13　温度勾配による水分移動実験の再現解析による温度勾配水分移動係数の設定 …2-65
図 2.4-14　THMC 連成解析によるオーバーパック腐食試験の再現解析結果
（空間分布コンター図）……2-68
図 2.4-15　THMC 連成解析によるオーバーパック腐食試験の再現解析結果
（時間変化）……2-68
図 2.4-16　オーバーパック腐食試験で得られた計測結果と THMC 連成解析結果の比較 …2-69
図 2.4-17　解析メッシュ……2-72
図 2.4-18　埋戻し前のメッシュ図・境界条件および岩盤内の初期水圧分布……2-73

図 2.4-19　埋戻し後の坑道内のメッシュ図 ……2-74
図 2.4-20　ガラス固化体の発熱量 ……2-74
図 2.4-21　飽和度の時間変化 ……2-75
図 2.4-22　再冠水期間における緩衝材の体積ひずみ分布 ……2-81
図 2.4-23　再冠水期間における緩衝材の体積ひずみ変化 ……2-82
図 2.4-24　再冠水期間における緩衝材の要素状態 ……2-82
図 2.4-25　坑道内空変位（圧縮：負）再冠水挙動時 ……2-83
図 2.4-26　坑道内空変位（圧縮：負）長期力学挙動解析時 ……2-84
図 2.4-27　坑道内の体積ひずみ分布 ……2-84
図 2.4-28　10 万年後の各ケースの支保工のひび割れ状態と透水係数分布 ……2-85
図 2.4-29　CT 値と含水比の関係 ……2-86
図 2.4-30　CT 値と乾燥密度の関係 ……2-86
図 2.4-31　CT 値と湿潤密度の関係 ……2-86
図 2.4-32　膨潤圧試験装置 ……2-87
図 2.4-33　エックス線 CT 測定の概念図 ……2-87
図 2.4-34　膨潤圧装置への供試体設置前後の CT 値の分布 ……2-88
図 2.4-35　供試体の初期状態 ……2-88
図 2.4-36　膨潤圧の経時変化 ……2-89
図 2.4-37　CT 値分布の時間変化 ……2-89
図 2.4-38　各測定断面での CT 値の時間変化 ……2-89
図 2.4-39　供試体の状態変遷の模式図 ……2-90
図 2.4-40　圧縮に伴う凝集挙動（組織構造変化）のシミュレーション結果例 ……2-92
図 2.4-41　メソ MD 解析結果と含水系粘土の組織構造を特徴づける物理量との関係 ……2-92
図 2.4-42　メソ MD 解析結果で得られる組織構造を特徴づける物理量の評価例 ……2-93
図 2.5-1　地下水採水場所（深度 300 m 研究アクセス坑道） ……2-95
図 2.5-2　地下水中 pH 及び Ca^{2+}の変遷 ……2-95
図 2.5-3　瑞浪超深地層研究所深度 300 m 研究アクセス坑道における試料採取場所 ……2-96
図 2.5-4　採取した No.1 試料の採取場所及びコア写真並びに試料の状況 ……2-96
図 2.5-5　採取した No.3 試料のコア写真及び試料の状況 ……2-97
図 2.5-6　分析対象とした岩石薄片 ……2-97
図 2.5-7　No.1 試料の偏光顕微鏡及び SEM 観察結果 ……2-99
図 2.5-8　No.3 試料の偏光顕微鏡及び SEM 観察結果 ……2-100
図 2.5-9　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 ……2-104
図 2.5-10　感度解析に用いた三次元円筒座標系の反応輸送解析モデル ……2-105
図 2.5-11　下流側セルの岩盤亀裂内部の pH の変化
（透水量係数：10^{-7} m^2/s、動水勾配 0.001 の例） ……2-106
図 2.5-12　下流側セルの岩盤亀裂内部の pH の変化
（透水量係数：10^{-10} m^2/s、動水勾配 0.01 の例） ……2-107
図 2.5-13　岩盤の亀裂近傍のコンクリートセルにおける間隙率の変化 ……2-108
図 2.5-14　アルカリプルームの影響範囲に応じて異なる連成解析手法を適用する概念 …2-110
図 2.6-1　本事業の検討対象とする期間 ……2-112
図 2.6-2　本事業における各実施内容の関係性 ……2-118
図 2.6-3　3 号、5 号ケイ砂の粒度分布 ……2-120

図 2.6-4　吸光度と流出物含有量の関係 ……2-121
図 2.6-5　小型セル試験装置 ……2-121
図 2.6-6　ケイ砂未充填と充填した試験の状況 ……2-123
図 2.6-7　送水量と送水圧の経時変化 ……2-124
図 2.6-8　ケイ砂の粒径を変えた場合の緩衝材流出量と送水量の関係 ……2-125
図 2.6-9　供試体解体時の状況（3 号ケイ砂充填ケース） ……2-126
図 2.6-10　試験後の乾燥密度分布 ……2-126
図 2.6-11　幌延 URL 地下 350 m 試験の試験実施場所 ……2-127
図 2.6-12　緩衝材ブロック（扇形ブロック）の形状と寸法 ……2-128
図 2.6-13　原位置試験 試験系の概念図 ……2-129
図 2.6-14　湧水量測定結果 ……2-129
図 2.6-15　試験孔 2 への試験体の定置、試験体定置治具 ……2-130
図 2.6-16　土圧計・水位計　設置位置図 ……2-131
図 2.6-17　試験体の試験孔への設置手順の補足説明図 ……2-132
図 2.6-18　検量線（吸光度とベントナイト濃度の関係） ……2-133
図 2.6-19　試験時間（Day）に対する総流出量・流出濃度の関係 ……2-134
図 2.6-20　総排水量に対する総流出量・流出濃度の関係 ……2-134
図 2.6-21　試験時間（Day）に対する総流出量と単位時間あたりの排水量の関係 ……2-135
図 2.6-22　試験時間（Day）に対する総流出量と総排水量の関係 ……2-135
図 2.6-23　膨潤した緩衝材界面における緩衝材流出現象の概念図 ……2-136
図 2.6-24　水みち形成観察結果の概念図 ……2-137
図 2.6-25　ケース 1 の結果を生じた現象の推察 ……2-138
図 2.6-26　ケース 2 の結果を生じた現象の推察 ……2-140
図 2.6-27　ケース 1（ケイ砂充填）の試験体回収状況 ……2-141
図 2.6-28　ケース 1（ケイ砂充填）　緩衝材最上段（1 段目）の浸潤状況 ……2-141
図 2.6-29　ケース 2（隙間未充填）の試験体回収状況 ……2-142
図 2.6-30　ケース 2（隙間未充填）　緩衝材最上段（1 段目）の浸潤状況 ……2-143
図 2.6-31　ケース 2（隙間未充填）　緩衝材の浸潤状況 ……2-143
図 2.6-32　試料採取の位置 ……2-144
図 2.6-33　試験終了後の乾燥密度（コアサンプリング） ……2-145
図 2.6-34　試験終了後の含水比（コアサンプリング） ……2-146
図 2.6-35　山中式土壌硬度計の外観 ……2-148
図 2.6-36　緩衝材ブロックの貫入量測定位置 ……2-149
図 2.6-37　解析メッシュ ……2-151
図 2.6-38　最大せん断ひずみ分布（内圧負荷後の増分） ……2-152
図 2.6-39　工学規模試験セルのイメージ ……2-155
図 2.6-40　工学規模試験供試体の硬度測定位置 ……2-155
図 2.6-41　工学規模試験供試体の硬度測定結果 ……2-156
図 2.6-42　工学規模試験供試体のサンプリング位置 ……2-157
図 2.6-43　工学規模試験供試体の解体結果（未充填ケースの縦断面分布） ……2-158
図 2.6-44　工学規模試験供試体の解体結果（ケイ充填ケースの縦断面分布） ……2-158
図 2.6-45　工学規模試験供試体の解体結果（未充填ケースの横断面分布） ……2-159
図 2.6-46　工学規模試験供試体の解体結果（ケイ砂充填ケースの横断面分布） ……2-160

図 2.6-47　膨潤・隙間充填過程シミュレーション概念図 ……2-164
図 2.6-48　シミュレーション対象となるプロセス ……2-165
図 2.6-49　解析モデルと境界条件 ……2-166
図 2.6-50　供試体膨潤量の経時変化 ……2-167
図 2.6-51　隙間幅と隙間充填に至るまでに要する日数の関係 ……2-167
図 2.6-52　飽和度の経時変化 ……2-168
図 2.6-53　間隙比の経時変化（凡例は図 2.6-51 と同じ） ……2-168
図 2.6-54　供試体内の乾燥密度分布（黒：初期／赤：隙間充填時／青：平衡状態） ……2-169
図 2.6-55　鉛直全応力の経時変化 ……2-170
図 2.6-56　側方全応力の経時変化（凡例は図 2.6-51 と同じ） ……2-170
図 2.6-57　遠心模型試験の供試体と試験容器の概略図 ……2-172
図 2.6-58　水分量センサーのキャリブレーション結果および検量線 ……2-174
図 2.6-59　実物換算経過時間と飽和度の関係 ……2-175
図 2.6-60　遠心模型試験における注水圧を補正した浸潤フロントの進展状況 ……2-175
図 2.6-61　試験後の CT 撮影による供試体の断面画像と CT 値から換算した密度分布 ….2-178
図 2.6-62　1G 場試験および遠心場試験における浸潤フロントの進展状況 ……2-179
図 2.6-63　1G 場試験および遠心場試験における飽和度 50%の進展状況 ……2-180
図 2.6-64　1G 場試験および遠心場試験における飽和度 75%の進展状況 ……2-180
図 2.6-65　1G 場試験および遠心場試験における飽和フロントの進展状況 ……2-180
図 2.6-66　一次元浸潤速度取得試験（1G 場試験）の数値解析モデル ……2-182
図 2.6-67　緩衝材の水理特性をパラメータとした解析結果と試験結果の比較 ……2-183
図 2.6-68　間隙結合係数をパラメータとした解析結果と試験結果の比較……2-184

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
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　結晶質岩と堆積岩のマトリクス部と割れ目部を対象とした
複数の室内試験や原位置試験等を組合せた核種移行研究アプローチ ……3-5
図 3.2-2　グリムゼルの花崗閃緑岩に含まれる黒雲母等の形状、
サイズ、連続性の評価結果： ……3-7
図 3.2-3　オンカロの黒雲母片麻岩の黒雲母等分析結果：(a)分析対象試料、
(b)X 線 CT 像、(c)EPMA 分析像、(d)X 線 CT 像の粒子解析結果 ……3-8
図 3.2-4　グリムゼルの花崗閃緑岩マトリクスの不均質性を考慮したモデル解析体系 ….3-10
図 3.2-5　不均質場モデル解析で設定した黒雲母分布モデル（上段）と
拡散解析結果の陽イオン、陰イオン、中性粒子の比較（下段）：
黒雲母含有率(a)7.5%、(b)15%、(c)30% ……3-11
図 3.2-6　オンカロの黒雲母片麻岩中の HTO(a)と Na-22(b)の透過拡散試験の結果 ……3-12
図 3.2-7　オンカロにおける原位置拡散試験の試験孔レイアウト(a)及び
解析モデルの概要図(b) ……3-13
図 3.2-8　オンカロにおける原位置拡散試験結果とシミュレーション結果の比較：
(a)減衰曲線、(b)破過曲線（PP324）、(c)破過曲線（PP327）. ……3-13
図 3.2-9　より複雑な割れ目を有するグリムゼルの花崗閃緑岩コア試料と
X 線 CT に基づく割れ目構造の評価方法(a)、

割れ目開口幅の評価(b)及びガウジ領域の形状評価(c) ……3-15
図 3.2-10　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
トレーサー試験(a)に対する複数の解析モデルの設定(b)と、
解析結果と実測データとの比較(c) ……3-16
図 3.2-11　グリムゼル原位置試験場の GAM サイトの割れ目帯(a)とコア採取状況(b)、
採取した割れ目試料(c)と X 線 CT 分析結果(d)、
収着・拡散試験及びトレーサー試験試料の加工状況(e, f) ……3-17
図 3.2-12　グリムゼルの大型コア試料の割れ目部とマトリクス部を対象とした
拡散試験結果（Cs の例）(a)及びバッチ収着試験結果(b) ……3-18
図 3.2-13　グリムゼルの大型コア試料を用いた室内トレーサー試験の概念図(a)、
試験装置・試料設置状況(b)、トレーサー試験で得られた破過データ(c) ……3-19
図 3.2-14　グリムゼルの大型コア試料の割れ目周辺部の分析領域(a)と
EPMA 分析結果(b) ……3-20
図 3.2-15　グリムゼルの大型コア試料の切断・分割状況 ……3-20
図 3.2-16　グリムゼルの大型コア試料の分割試料の X 線 CT 像 ……3-21
図 3.2-17　割れ目中の核種移行解析体系のグリッド構成（a）と 2 次元モデルと
簡易 2 次元モデル（図中で 1.5D と表記）の試解析で得られた
液相中 Cs 濃度分布の比較（b, c） ……3-22
図 3.2-18　割れ目中の Cs の移行解析で得られた Cs 濃度分布の時間変化：(a)拡散のみを
考慮した Case-1、(b)Case-1 に対し鉱物の溶解・沈殿反応を考慮した Case-2、
(c)Case-2 に対し Cs の収着（Kd モデル）を考慮した Case-3 ……3-23
図 3.2-19　幌延の泥岩マトリクスの層理面に平行・直交方向の試料中の
(a) Cl ,(b) Na の拡散試験結果 ……3-24
図 3.2-20　層理面に直交する方向の泥岩試料の T2 分布(a)及び
T2 分布から求めた間隙分布(b) ……3-25
図 3.2-21　層理面に平行な方向の泥岩試料の T2 分布(a)及び
T2 分布から求めた間隙分布(b) ……3-26
図 3.2-22　3x2x1 のスーパーセルで作成したモンモリロナイト ……3-27
図 3.2-23　層の負電荷を生成する置換サイトを八面体及び四面体に変えて作成した
3x2x1 スーパーセルのモンモリロナイト構造 ……3-27
図 3.2-24　幌延の泥岩マトリクス中の Cs、HTO、I の実効拡散係数のモデル化結果(a)と
モデルで考慮した泥岩マトリクス中の間隙分布(b) ……3-29
図 3.2-25　ベントナイトの質量分率が 0.6 の場合の計算体系図。
3 次元鳥瞰図(a)、及び X-Y 断面図(b) ……3-31
図 3.2-26　層理面に対する異方性に着目した幌延の泥岩マトリクスにおける
原位置拡散試験：(a)試験体系と採取試料、(b)試験後の岩石中の Cs 濃度分布 ‥3-33
図 3.2-27　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 ……3-34
図 3.2-28　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 ……3-34
図 3.2-29　割れ目中トレーサー試験のウラニン及び Cs の解析結果……3-35
図 3.2-30　SW47 孔せん断割れ目の表面の Cs, Co 濃度分析結果 ……3-36
図 3.2-31　割れ目のトレーサー試験における割れ目やトレーサー分布に基づく
移行経路の推定 ……3-36
図 3.2-32　2 つの移行経路を考慮した解析モデル ……3-37

図 3.2-33　2 つの移行経路を考慮した解析モデルを用いた解析結果 ……3-37
図 3.2-34　フロー・スタグナント領域を考慮した解析モデル……3-38
図 3.2-35　フロー・スタグナント領域を考慮した解析モデルを用いた
割れ目中トレーサー試験のウラニン及び Cs の解析結果……3-38
図 3.2-36　反応性元素と Cl の関係（幌延地下水と HDB-1 孔 pore water の比較）……3-40
図 3.2-37　反応性元素と Cl の関係（幌延地下水と HDB-3 孔 pore water の比較）……3-40
図 3.2-38　岩石コアからの間隙水抽出の際に生じると推定される岩石中での
鉱物量の変化 ……3-42
図 3.2-39　岩石コアからの間隙水抽出の際に生じると推定される間隙水水質の変化 ……3-42
図 3.2-40　HDB-1 孔の反応性元素の深度方向濃度分布の
補正前（上）と補正後（下）の比較……3-43
図 3.2-41　HDB-3 孔の反応性元素の深度方向濃度分布の
補正前（上）と補正後（下）の比較……3-43
図 3.3-1　Fe(II)共存下での Am-241 の分配係数の pH 依存性……3-48
図 3.3-2　Fe(II)鉱物と Se(−II)の相互作用メカニズム解明のための
収着・共沈実験フロー ……3-49
図 3.3-3　初期共沈生成物及びエージングを行った固相の XRD 測定結果：
[A]実験 A、[B]実験 B……3-50
図 3.3-4　実験 A におけるエージング後の固相の SEM 分析結果……3-50
図 3.3-5　実験 A におけるエージング後の固相の
SEM 分析結果（左）と EDS 分析結果（右） ……3-51
図 3.3-6　実験 A・B の初期共沈物及びエージング後試料の
XANES(A)及び EXAFS(B, C)分析結果……3-51
図 3.3-7　幌延の泥岩試料（深度 140m の声問層、深度 350m の稚内層）(a)に含まれる
Se の逐次抽出試験結果(b)と XANES 分析結果(c) ……3-53
図 3.3-8　異なる塩濃度条件での 7.2nm デンドリマーの粒径分布 ……3-54
図 3.3-9　7.2nm(1)及び 5.7nm(2)のデンドリマーコロイドの拡散試験データと解析結果：
高濃度側の濃度減衰と低濃度側の破過データ(a)と
試験後のベントナイト中の濃度分布(b) ……3-56
図 3.3-10　幌延の泥岩とセメントの接触界面の採取位置と各試料の界面の状況 ……3-57
図 3.3-11　幌延の泥岩と OPC(a,b)または HFSC(c,d)の境界領域での Ca の元素分布……3-57
図 3.3-12　OPC と泥岩接触界面近傍における EPMA による
化学組成分析に基づく鉱物同定結果……3-58
図 3.3-13　OPC と泥岩接触試料の変質評価結果：(a)試料外観、(b)サンプリングポイント,
(c)界面近傍の FE-SEM 観察像、(d)サンプリング試料の μ-XRD 分析結果 ……3-59
図 3.3-14　イライトに対する Am の収着データの炭酸濃度及び pH に対する依存性 ……3-62
図 3.3-15　イライトに対する Th の収着データ及びモデルによる再現計算結果. ……3-63
図 3.3-16　モンモリロナイトに対する Th の収着データ及びモデルによる再現計算結果. ·3-64
図 3.3-17　幌延の泥岩に対する Th の収着データ及びモデルによる再現計算結果：
(a)pH 依存性、(b)炭酸濃度依存性.……3-65
図 3.3-18　LT-TRLFS スペクトル(3.2 K)の励起波長依存: ……3-66
図 3.3-19　LT-TRLFS スペクトル(lex = 360 nm)の解析によるピーク帰属：(a)残差プロット、
(b)観測したスペクトルとフィッティング結果、(c)ピーク分離手法による分割 ·3-67

図 3.3-20　Np 拡散試験の減衰曲線(a)、破過曲線(b)及びプロファイル(c) ……3-68
図 3.3-21　モンモリロナイト中の Np(V)の実効拡散係数（De）と ISD 計算結果の比較…3-69
図 3.3-22　Na-モンモリロナイト層間・粒子間間隙混合系の 0.8 ns 計算後の
スナップショット（298.15 K）：(a)3 層水和状態＋間隙水（8UO22+-16Cl-）.
(b)3 層水和状態＋間隙水（$8UO_2^{2+}$-$8CO_3^{2-}$）、
(c)4 層水和状態＋間隙水（$8UO_2^{2+}$-$16Cl^-$）、
(d)4 層水和状態＋間隙水（$8UO_2^{2+}$-$8CO_3^{2-}$）。 ……3-71
図 3.3-23　Na-モンモリロナイト層間・粒子間間隙混合系の 0.8 ns 計算後の
スナップショット（298.15 K）：(a)3 層水和状態＋間隙水（8NpO2+-8Cl-）、
(b)3 層水和状態＋間隙水（$8NpO_2^{+}$-$4CO_3^{2-}$）、
(c)4 層水和状態＋間隙水（$8NpO_2^{+}$-$8Cl^-$）、
(d)4 層水和状態＋間隙水（$8NpO_2^{+}$-$4CO_3^{2-}$） ……3-72
図 3.3-24　Mg-OH 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) ……3-73
図 3.4-1　（a）HHA/EDTA、（b）Zr^{4+}/EDTA、（c）Zr^{4+}/HHA/EDTA
共存試料の UV/Vis（HHA）と ICP-MS（Zr）検出から取得した
フラクトグラム ……3-79
図 3.4-2　pH 5、6、8 における Zr^{4+}結合量の
Zr^{4+}濃度依存性、及び NICA-Donnan モデルを用いたフィッティング結果 ……3-81
図 3.4-3　CE-ICPMS システム概略図 ……3-83
図 3.4-4　CE-ICPMS から取得した Zr^{4+}のフラクトグラム ……3-83
図 3.4-5　（a、b）PAHA、（c、d）HHA の SANS、SAXS プロファイルの比較 ……3-85
図 3.4-6　本試験系における Zr（IV）のスペシエーション ……3-86
図 3.4-7　Zr^{4+}の加水分解熱量滴定結果(a)と反応エンタルピーの
最小二乗法による当てはめ結果(b) ……3-87
図 3.4-8　捕集した代表的なコロイド粒子の SEM 観察像 ……3-89
図 3.4-9　微生物と元素との相互作用の概念図 ……3-91
図 3.4-10　幌延 URL におけるボーリング孔配置図 ……3-92
図 3.4-11　深度 140 m（07V140M03 孔）及び 250 m（09V250M02 孔）に分布する
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) 収着試験 1 日後、(b) 収着試験 3 日後、(c) 収着試験 7 日後 ……3-94
図 3.4-12　バルブ開放後の地下水流量の変化 ……3-96
図 3.4-13　地下水排水量に対する微生物数の変化 ……3-97
図 3.4-14　16S rRNA 遺伝子に基づくバルブ開放後の地下水中の微生物群集組成の変化 ‥3-98
図 3.4-15　rpS3 遺伝子に基づくバイオフィルム形成種 SM1 の空間分布と経時変化 ……3-100
図 3.4-16　バイオフィルムの EPS の構成要素である多糖等の生成に関わる
遺伝子の空間分布 ……3-101
図 3.4-17　ニアフィールド領域におけるバイオフィルム形成領域の概念図 ……3-102
図 3.4-18　滅菌済スポンジを用いて回収した地下水中の微生物を含む粒子の
SEM 観察像 ……3-102

第 4 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

図 4.2-1　緩衝材の状態変遷のパターンに関するストーリーボードによる整理結果 ……4-3

図 4.2-2　解析ツール間の連携の全体構造 ……4-5
図 4.2-3　コンクリート支保でネットワーク状に発達したひび割れにおける
地下水の流れを 1 本のひび割れによる流路として単純化する概念 ……4-6
図 4.2-4　MACBECE の力学解析で求められた変形に関する情報を QPAC の
化学－物質輸送解析のセル間の距離に反映する手法の概念……4-8
図 4.2-5　QPAC による水理解析と化学－物質輸送解析の円筒座標系三次元モデル ……4-9
図 4.2-6　MACBECE による力学解析の直行座標系二次元モデル ……4-9
図 4.2-7　連成解析におけるタイムステップと連成のタイミング……4-11
図 4.2-8　緩衝材とオーバーパックとの相互作用において鉄との化学的相互作用のみを
考慮するケースの 10 万年後の解析結果の例 ……4-16
図 4.2-9　緩衝材とオーバーパックとの相互作用において鉄との化学的相互作用と
化学的相互作用の双方を考慮するケースの 10 万年後の解析結果の例……4-17
図 4.2-10　10 万年後のモンモリロナイトの平均残存率の整理結果……4-18
図 4.2-11　閉鎖後過渡期に推定される状態の変化とそれらが
長期的な変遷挙動に与える影響の関係の概念図 ……4-20
図 4.3-1　核種移行解析モデルの概念図 ……4-23
図 4.3-2　核種移行開始から 10 万年後の単位体積当たりの Cs-135 の存在量 ……4-25
図 4.3-3　緩衝材の外側境界における核種移行率の時間変化（Cs-135 の例） ……4-26

付録
図 A-1　解析メッシュ（1/2） ……付 A-2
図 A-2　解析メッシュ（2/2） ……付 A-3
図 A-3　解析ステップ ……付 A-4
図 A-4　解析状況（試験孔壁面に内圧負荷） ……付 A-5
図 A-5　最大せん断ひずみ分布（内圧負荷後の増分）：再掲 ……付 A-6

図 B-1　送水量と送水圧の経時変化 ……付 B-3
図 B-2　試験中の圧力の経時変化（ロードセルにより測定） ……付 B-3
図 B-3　側部の圧力の経時変化（土圧計により測定） ……付 B-4
図 B-4　工学規模流出試験（3 号ケイ砂充填）の排水状況 ……付 B-4
図 B-5　送水量と送水圧の経時変化 ……付 B-5
図 B-6　未充填ケースの試験状況 ……付 B-6
図 B-7　試験中の圧力の経時変化（ロードセルにより測定） ……付 B-7
図 B-8　側部の圧力の経時変化（土圧計により測定） ……付 B-7
図 B-9　総送水量と緩衝材流出量・濃度の関係 ……付 B-8
図 B-10　既往の結果との比較
（原子力環境整備促進・資金管理センター, 2018 を基に作成） ……付 B-8

図 C-1　透水係数の間隙比依存性（鈴木ら, 1992； 松本ら, 1997） ……付 C-6
図 C-2　水分特性曲線（鈴木ら, 1999） ……付 C-6
図 C-3　一次元圧密試験（高治・鈴木, 1999）の要素シミュレーション ……付 C-8
図 C-4　非排水圧縮せん断試験（高治・鈴木, 1999）の要素シミュレーション：
有効応力経路 ……付 C-8

図 C-5　透非排水圧縮せん断試験（高治・鈴木, 1999）の要素シミュレーション：
応力－ひずみ関係 ……付 C-9
図 C-6　供試体内の所定の高さにおける間隙比変化および有効応力経路…… 付 C-11

表　目　次

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 ……1-10

第 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
表 2.2-1　ケイ砂混合率（%）の測定結果 ……2-6
表 2.2-2　浸漬試験条件 ……2-14
表 2.2-3　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 ……2-17
表 2.2-4　SSRT 試験条件 ……2-20
表 2.3-1　pH および主要溶存元素濃度の測定結果 ……2-38
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 ……2-53
表 2.4-2　オーバーパック腐食試験の解析評価における初期間隙水組成 ……2-66
表 2.4-3　オーバーパック腐食試験の解析評価に用いた物性値 ……2-66
表 2.4-4　解析ケース ……2-73
表 2.4-5　解析パラメータ ……2-74
表 2.4-6　長期力学挙動解析の解析ステップ ……2-75
表 2.4-7　緩衝材の解析用物性値（Case1） ……2-76
表 2.4-8　緩衝材の解析用物性値（Case2～4） ……2-77
表 2.4-9　セメント系材料の想定仕様 ……2-78
表 2.4-10　セメント系材料の解析用物性値（再冠水期間） ……2-78
表 2.4-11　セメント系材料の解析用物性値（長期力学解析以降） ……2-79
表 2.4-12　岩盤の解析用物性値（非線形粘弾性体） ……2-80
表 2.4-13　炭素鋼オーバーパック（腐食膨張要素）の解析用物性値 ……2-80
表 2.4-14　ガラス固化体の解析用物性値 ……2-80
表 2.5-1　SEM-EDS 観察仕様 ……2-98
表 2.5-2　室内試験と原位置分析結果の比較 ……2-101
表 2.5-3　岩盤中のアルカリプルームの反応輸送解析で対象としたパラメータ ……2-105
表 2.5-4　岩盤中の亀裂内 pH 分布の動水勾配の違いによる影響
（透水量係数：10^{-7} m²/s） ……2-106
表 2.5-5　岩盤中の亀裂内 pH 分布の亀裂透水量係数の違いによる影響
（動水勾配 0.01） ……2-107
表 2.5-6　岩盤中へのアルカリの移行による亀裂内部の間隙率の変化 ……2-108
表 2.6-1　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） ……2-114
表 2.6-2　地下水組成 ……2-120
表 2.6-3　小型セル試験装置を用いた試験ケース ……2-121
表 2.6-4　小型流出試験の試験体諸元 ……2-122
表 2.6-5　緩衝材ブロック仕様 ……2-128
表 2.6-6　原位置試験　試験ケース ……2-130
表 2.6-7　隙間充填用のケイ砂の仕様と充填後のかさ密度 ……2-131
表 2.6-8　計測項目 ……2-132
表 2.6-9　原位置試験結果（緩衝材流出量） ……2-133

表 2.6-10　乾燥密度の分析（採取位置による乾燥密度の整理）……2-148
表 2.6-11　含水比の分析（採取位置による含水比の整理）……2-148
表 2.6-12　山中式土壌硬度計仕様……2-149
表 2.6-13　流出試験終了後の緩衝材を対象とした硬度計を用いた貫入量（ケース 1）…2-150
表 2.6-14　流出試験終了後の緩衝材を対象とした硬度計を用いた貫入量（ケース 2）…2-150
表 2.6-15　解析ケース……2-151
表 2.6-16　限界せん断ひずみ……2-152
表 2.6-17　コアによる力学試験結果……2-153
表 2.6-18　工学規模試験装置を用いた試験ケース……2-154
表 2.6-19　各解析ケースの諸条件……2-164
表 2.6-20　構成モデルに使用する材料パラメータ……2-166
表 2.6-21　計測項目……2-173
表 2.6-22　20G 場試験における試験後の供試体の含水比、飽和度、密度……2-177
表 2.6-23　30G 場試験における試験後の供試体の含水比、飽和度、密度……2-177
表 2.6-24　浸潤解析に用いた緩衝材の物性パラメータ……2-182
表 2.6-25　緩衝材の物性値のばらつきに関する検討ケース……2-183
表 2.6-26　再冠水期間にモデル化すべきプロセスと評価方法……2-186

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 3.2-1　グリムゼルの花崗閃緑岩に含まれる黒雲母等の形状、
サイズ、連続性の評価結果……3-7
表 3.2-2　グリムゼル、オンカロ、エスポの岩石中の黒雲母等の分布解析結果の比較 ……3-9
表 3.2-3　シミュレーションに用いた核種移行パラメータ……3-14
表 3.2-4　層の負電荷を八面体および四面体に変えて作成した
3x2x1 スーパーセルのモンモリロナイトの ^{133}Cs ケミカルシフト(ppm) ……3-28
表 3.2-5　構造最適化によって得られたイライトの格子定数……3-28
表 3.2-6　イライトの最適化構造で得られた ^{133}Cs ケミカルシフト(ppm) ……3-28
表 3.2-7　ベントナイトの質量分布の変化に伴う諸量の変化……3-30
表 3.2-8　Partridge コードによる実効拡散係数の計算値と実測データとの比較 ……3-32
表 3.3-1　Fe(II)共存下での Am-241 収着試験条件 ……3-47
表 3.3-2　共沈反応直後とエージング（7 日間）後の液相中の pH, Eh, Fe・Se 濃度 ……3-50
表 3.3-3　導出されたイライトに対する Th の表面錯体生成定数 ……3-63
表 3.3-4　導出されたモンモリロナイトに対する Th の表面錯体生成定数 ……3-64
表 3.3-5　各試料の含水に使用した溶液の組成……3-68
表 3.3-6　数値計算によるフィッティングの結果……3-68
表 3.3-7　PHREEQC を用いた化学平衡計算の条件 ……3-69
表 3.3-8　平衡計算によるモンモリロナイト間隙水中の溶存化学種の割合……3-69
表 3.3-9　Si-OH 基の酸解離定数：本研究と他のグループとの比較 ……3-74
表 3.3-10　Al-OH_2基の酸解離定数：本研究と他のグループとの比較 ……3-74
表 3.3-11　Al-OH 基の酸解離定数：本研究と他のグループとの比較……3-74
表 3.4-1　HHA への Zr^{4+}結合反応の条件付き平衡定数 ……3-80
表 3.4-2　HHA に対する Zr^{4+}の結合データに対する NICA-Donnan モデルの
フィッティングより最適化されたパラメータ……3-82

表 3.4-3　CE-ICPMS による Zr^{4+}結合反応の条件付き平衡定数 ……3-84
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……3-97

第 4 章　ニアフィールド性能の総合評価技術開発
表 4.2-1　水理、化学－物質輸送及び力学の連成解析で対象とする解析ケース ……4-4
表 4.2-2　解析ツール間で受け渡されるパラメータの種類……4-5
表 4.2-3　予備解析で対象としたモンモリロナイトの溶解速度式と想定された
ゼオライトの種類 ……4-12
表 4.2-4　水理、化学－物質輸送及び力学の連成による感度解析パラメータ ……4-14
表 4.2-5　感度解析パラメータの組み合わせと解析ケースの対応……4-14
表 4.2-6　緩衝材中のモンモリロナイトの平均残存率（10 万年後） ……4-16
表 4.3-1　連成解析の結果から核種移行解析ツールに読み込まれるパラメータの
整理結果 ……4-23
表 4.3-2　核種移行解析で対象とした解析ケース ……4-24
表 4.3-3　収着分配係数 K_dの設定値 ……4-25

付録
表 A-1　解析用：深度 350 m の初期応力 ……付 A-3
表 A-2　解析用：岩盤物性値（森岡ら，2006） ……付 A-3
表 A-3　解析用：支保工物性値 ……付 A-4
表 A-4　解析ケース ……付 A-4
表 A-5　限界せん断ひずみ ……付 A-7
表 A-6　コアによる力学試験結果（青柳ら，2015） ……付 A-8

表 C-1　飽和状態にあるときの力学試験に基づき決定されるパラメータセット ……付 C-8

1. 緒言

1.1 本事業の背景と目的

本事業は、平成31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」という）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」という）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」という）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」という）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」という）が策定されている（経済産業省, 2018b）。

本事業は、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、平成30年度から継続して実施してきたものである（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2019）。この事業では、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などを実施する。

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、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などの情報を利用しつつ、サイト間の適切性の比較や、設計オプションの優劣の比較などを行いつつ、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。

- サイト間の適切性の比較や設計オプションの優劣の比較が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、岩盤の力学特性など）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、以下の三つのサブプロジェクト（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などの技術開発（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など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など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など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、既往の研究開発など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）など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など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、経験など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、の三つの枠組みが示されていた（経済産業省, 2018c）。本事業の実施に際しては、(1)～(3)の枠組みを、上記①～③の三つのサブプロジェクト（SP1、SP2及びSP3）に分類分けして実施することとした（表1.2-1参照）。

三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。

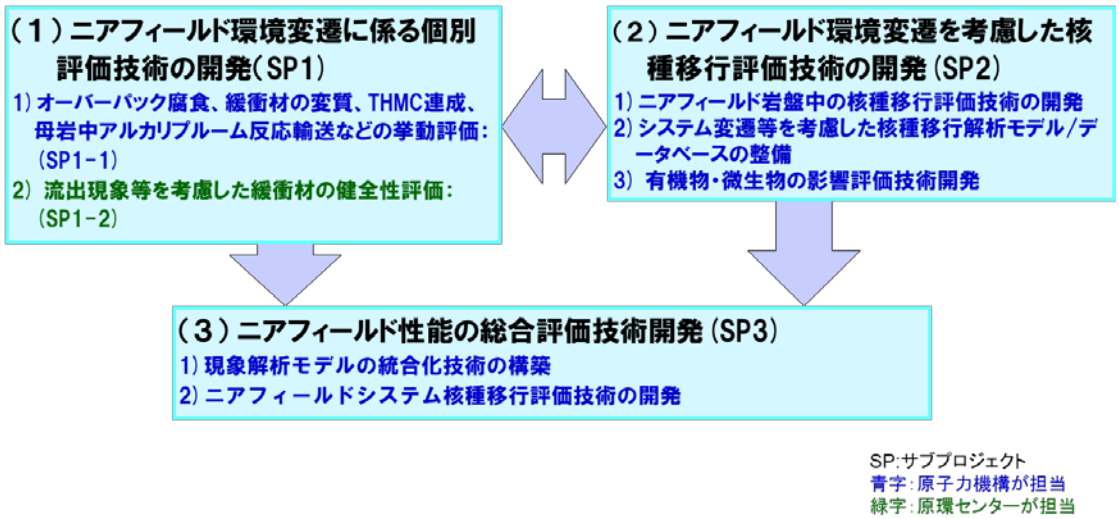


図1.2-1　本事業で実施する「ニアフィールドシステム評価確証技術開発」の枠組みの概念図

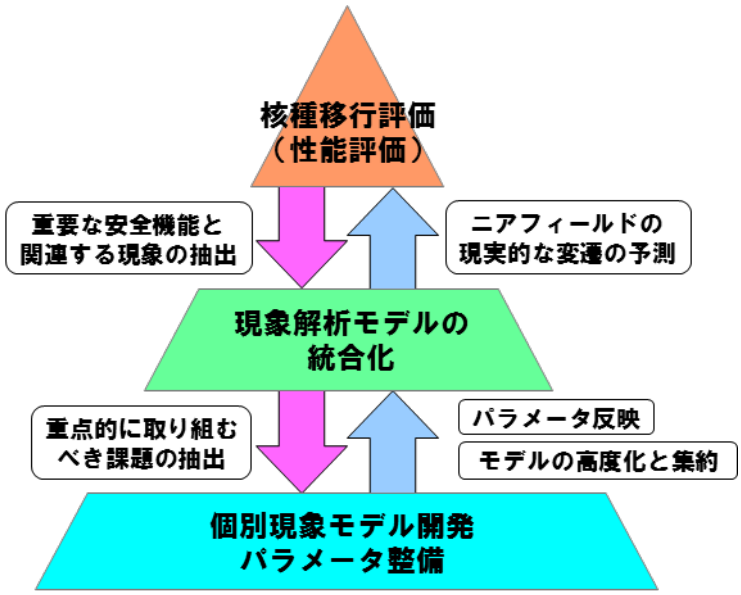
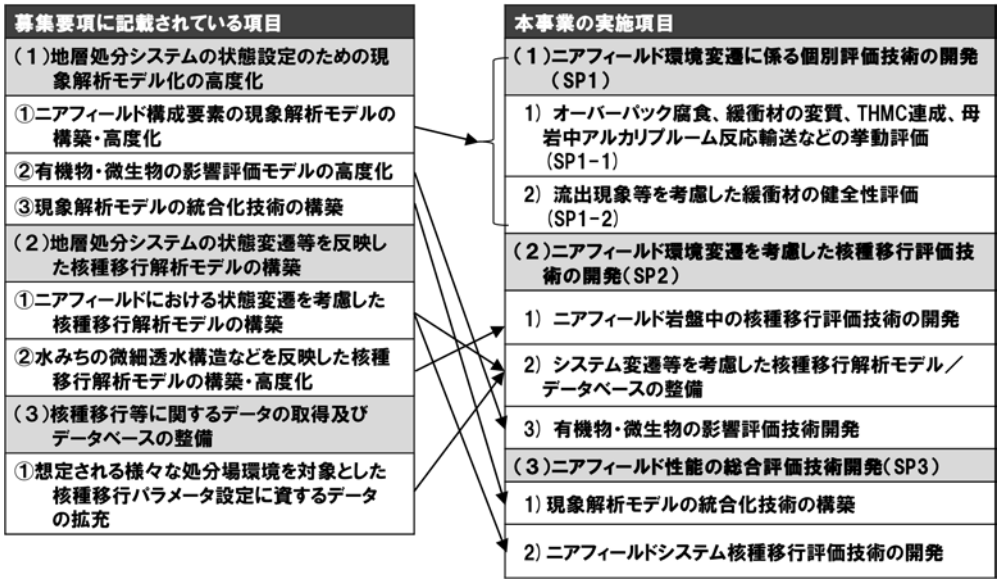


図1.2-2　ニアフィールド性能の総合評価技術開発に向けたアプローチ概念図
（個別現象モデル開発・パラメータ整備からのボトムアップによる現象解析モデルの統合化・核種移行評価と、その評価結果に基づくフィードバックの概念図）

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



1.2.1　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などについて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

過渡期におけるオーバーパックの腐食や緩衝材の変質などについてのTHMCの観点からのデータ取得について、平成30年度はTHMCに係る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を把握するために、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などに関する室内試験を実施するとともに、原位置試験試料などの分析に着手した。平成31年度はTHMC条件を制御した室内試験を複数の影響因子の組み合わせなど

を考慮した条件で実施し、環境条件が腐食挙動へ与える影響などに関するデータを取得するとともに、幌延地下研究施設で実施された原位置試験により得られた試料の分析を行い、緩衝材の環境条件と模擬オーバーパックの腐食挙動の関係を把握する。

2) 緩衝材の変質挙動評価

緩衝材の変質挙動評価に関して、平成30年度は、炭素鋼－圧縮ベントナイト境界領域におけるバリア間相互作用による鉱物の溶解・沈殿などの現象とそれによる緩衝材変質などに関するデータや、緩衝材の膨潤、透水性などのHM連成挙動とそれらに及ぼす緩衝材変質（C）の影響などに関するデータ取得に向けた室内試験、原位置試験及びナチュラルアナログ研究などに着手した。平成31年度は、炭素鋼－圧縮ベントナイト相互作用による緩衝材変質などに関して、原位置試験試料の透過型電子顕微鏡などを用いた構成鉱物の変質状態の分析や、ナチュラルアナログ事例サイトより採取した試料の分析などを実施するとともに、セメンテーションによる緩衝材基本特性の変化に関して、膨潤・透水特性への影響に関するデータを取得して剛性へ与える影響を検討する。

3) ニアフィールドTHMC連成挙動評価

現象解析モデルの妥当性確認に関して、平成30年度は、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の検討、腐食進展などに関する現象解析モデルの妥当性の検証を実施した。また、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などの理解を進め、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に着手した。平成31年度は、オーバーパックの腐食データを活用した腐食進展などに関するモデルの妥当性の検証に加えて、腐食寿命への影響が大きい重要な因子や現象については、現象解析モデルへの反映を検討する。また、緩衝材やそれ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などに関するデータを取得し、原位置試験の再現解析による現象解析モデルの妥当性確認などを実施する。

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・分析などとそれを用いた母岩中のアルカリプルームの反応輸送解析モデル構築について、平成30年度は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を通じ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提示した。平成31年度は、地下施設でのグラウト施工事例を対象に施工後10年程度経過したグラウト材-岩盤接触部から試料の採取・分析や地下水水質などの継続的なモニタリングによる原位置データを取得するとともに、母岩中のアルカリプルームの反応輸送解析モデルの高度化を進める。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－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

緩衝材流出現象については、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の検証を目的に、平成30年度には現実的な地下環境での緩衝材流出に係る挙動を確認するための原位置試験環境の整備を行った。原位置においては、試験孔の計測、湧水量測定、水理試験を行い、得られたデータを基に室内試験の条件を決定した。室内試験では、緩衝材と母岩の間の隙間充填を工学的な対策として設定し、ケイ砂を充填した時の効果を把握するため

の試験に着手した。また、隙間が緩衝材中の力学挙動と密度分布に与える影響を評価するための解析手法についての検討を行った。平成31年度には、地下での現実的な施工状態を想定して、緩衝材流出の有無や隙間充填による流出抑制効果を確認する。室内試験においては、緩衝材の流出を考慮した再冠水プロセスについて、特定の地下環境に限定しない汎用的な評価を可能とするためのモデル試験を行う。また、流出を考慮した再冠水後の緩衝材の状態を解析的に評価するための手法について検討するとともに、遠心模型試験によって再冠水期間のモデルを検証するデータを得ることの妥当性についての検討を行う。これらの試験及び解析的な検討により、緩衝材の流出を考慮した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に必要となる検討と課題の抽出を行う。

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適切性の評価を行うためには、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など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などを通じて開発する。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

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構築に関し、これまでは結晶質岩（花崗岩）及び堆積岩（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が構築されてきた。そこで、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など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、平成30年度は、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などにおいて今後取り組むべき課題として抽出された、割れ目などの不均質性や、地下水の酸化還元や塩濃度条件などの時間的・空間的変動などの地質環境の長期変遷を反映した核種移行解析モデルの開発に着手した。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した。平成31年度は、結晶質岩及び堆積岩の割れ目部とマトリクス部の不均質性の影響を定量化するためのデータをより多くの核種と条件を対象により分析精度を高めて取得するとともに、そ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など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の構築手法を今後の課題とともに提示する。

構築した核種移行解析モデルの妥当性確認を行うため、平成30年度は、これまでに取得された原位置トレーサー試験データやナチュラルトレーサーデータなどを活用し、モデルの適用性評価に向けた検討に着手した。平成31年度は、上記の室内トレーサー試験などにより取得したデータをもとに構築したモデルを、原位置試験データやナチュラルトレーサーデータなどへの適用を通じて妥当性を確認するとともに、それらのモデルをより大きな空間スケールと長期の時間スケールの核種移行解析に反映していくための方策と課題を提示する。

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、緩衝材など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。そこで、地下水化学の変遷に関する情報などに基づき、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などに基づくニアフィールドの状態変遷の設定について、平成30年度は、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などに基づき、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」（原子力環境整備促進･資金管理センター・日本原子力研究開発機構, 2019）で開発する現象解析モデルなどを活用して、ニアフィールドの状態変遷を設定するとともに、課題の抽出を行った。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った。

このうち、鉄影響については、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取得に着手した。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など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の取得に着手した。平成31年度は、鉄共存系での核種の競合収着や共沈に関するデータを取得するとともに、セメント共存系での緩衝材や岩石中での核種やコロイドの移行データを取得する。それぞれのデータをもとに鉄及びセメント共存が緩衝材や岩石中の核種移行へ与える影響を評価する手法を構築し、その影響評価の試行結果と今後の課題を提示する。

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などに重点を置き、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、平成30年度は、実際の深部環境で考慮すべき高炭酸濃度などの地下水条件範囲、及びその条件で炭酸錯体など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み合わせを抽出した。そのうえで、炭酸条件など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、重要な核種としてAmやThなどを対象に高炭酸条件での収着・拡散データの取得に着手した。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、分子動力学計算など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・拡散など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した。平成31年度は、平成30年度に試験に着手した重要核種を対象に、より多様な環境条件での収着・拡散データを取得するとともに、先端的な分析技術や計算科学技術を適用した核種移行メカニズムの把握を進め、それらの成果をもとに炭酸共存下の核種移行評価モデルを今後の課題とともに提示する。

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、これまでに、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。そこでさらに、有機物影響評価モデルの構築に資することを目的して、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することが求められている。微生物については、一部の種類を対象に核種の取り込みなどに関するデータが取得されてきた。そこでさらに、微生物影響評価

モデルの構築に資することを目的として、天然に存在する主要な微生物についてデータの取得を行う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。平成30年度は、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などにより取得するとともに、錯生成反応機構などの把握、モデル高度化及びパラメータ整備を進めた。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実施した。平成31年度は、IV価核種を主たる対象に、錯生成データの取得、錯生成反応機構などの把握を進め、それらの成果をもとに錯生成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や核種-有機物-岩三元系モデルの開発では、文献調査から抽出された課題のうち、重要度の高い課題に焦点を当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、平成30年度は、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った。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などの重要な現象に関するデータ取得に着手した。平成31年度は、天然地下環境における微生物による核種の収着データを多様な条件において取得するとともに、代謝による核種の取り込みや形質変換などの重要な現象の分析を進め、これらの現象が核種移行へ与える影響のメカニズムを把握する。

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。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、以下の二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。

連成解析を可能とするシステムの拡張について、平成30年度は、ニアフィールドにおける多様な現象群の連成効果（以下、「マルチフィジックス性」という）や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、このような現象群の連成や相互作用などの現象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の影響な

どのマルチスケールの諸現象のうち、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を抽出すると共に、これらのうち、セメント支保やオーバーパックとの相互作用により緩衝材の安全機能が失われる状態変遷のパターンに着目して、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した。そして、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などを有する）上に統合・連成させるための研究開発アプローチを提案した。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」のマルチフィジックス性や「コンクリート埋め戻し材の鉄腐食膨張に伴うひび割れの発生とニアフィールドの力学挙動の連成」などの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」（日本原子力研究開発機構, 2015）及び「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）で開発）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の構築に着手した。

平成31年度は、前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。具体的には、セメン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ための感度解析を行う。そして、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、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する。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、過渡期における状態の変化や人工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する。さらに、上記により抽出された、解析システムのプロトタイプの課題に対する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「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。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構築については、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、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など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した。平成31年度は、これに基づき、「現象解析モデルの統合化技術の構築」で開発する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、サブタスクでそれぞれ対象とする領域と時間を図1.2-3に示す。これらのタ

スクは個別に実施されるが、図1.2-4に示すように個々の成果は他のサブプロジェクトやサブ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。

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

ニアフィールドシステム評価確証技術開発	平成30年度												平成31年度											
	第1四半期			第2四半期			第3四半期			第4四半期			第1四半期			第2四半期			第3四半期			第4四半期		
	4	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3
全体工程	▼契約									報告書提出▼ 報告書作成			▼契約									報告書提出▼ 報告書作成		
(1) ニアフィールド環境変遷に係る個別評価技術の開発（SP1） **1) オーバーパックの腐食挙動評価** **2) 緩衝材の変質挙動評価** **3) ニアフィールドTHMC連成挙動評価** **4) 母岩中アルカリプルーム反応輸送挙動評価**	計画策定									取りまとめ			計画策定									取りまとめ		
	室内腐食試験、原位置試験試料のサンプリング、分析												室内試験データ拡充、原位置試験試料分析								腐食モデルの妥当性確認			
	緩衝材変質に関する原位置及び室内試験試料の分析、ナチュラルアナログ事例調査												原位置及び室内試験試料等の分析、ナチュラルアナログ事例調査								メカニズムの理解、モデルの妥当性確認に関する事例抽出			
	緩衝材の力学挙動に関する室内試験、解析モデルの改良												室内試験データ拡充、モデル改良、原位置試験等の再現解析											
	グラウト材-岩盤接触部の試料を用いた試験・分析、岩盤中の反応性物質の移行等に関する検討事例の調査												グラウト材-岩盤接触部の試料を用いた試験、分析検討、アルカリプルーム反応輸送モデルの検討											
5) 流出現象等を考慮した緩衝材の健全性評価 **- 原位置試験** **- 室内試験** **- 解析評価** **- 遠心模型試験**	計画策定、研究開発アプローチの検討									取りまとめ			計画策定									取りまとめ		
	試験環境の整備・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・再冠水挙動試験												室内での対策効果の確認試験・再冠水挙動試験											
	再冠水時の浸潤挙動、密度変化の解析												再冠水挙動に関する力学解析手法の検討											
	適用範囲の精査・妥当性確認浸潤試験												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開発（SP2） **1) ニアフィールド岩盤中の核種移行評価技術の開発** **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** **3) 有機物・微生物の影響評価技術の開発**	調査・開発計画の設定									取りまとめ													取りまとめ		
	結晶質岩（グリムゼル等）及び堆積岩（幌延）のマトリクス部/割れ目部の不均質性を対象とした室内試験とモデル開発												マトリクス部/割れ目部の不均質性を考慮したモデル高度化と原位置試験結果への適用による妥当性確認											
	オーバーパック-緩衝材、セメント-緩衝材・岩石の状態変遷を考慮した条件での核種移行データ取得												状態変遷を考慮した条件での核種移行データの拡充と核種移行解析モデルの構築											
	高炭酸濃度地下水条件での岩石中の核種移行データの取得、核種移行メカニズムの理解												高炭酸濃度地下水条件での岩石中の核種移行データの拡充、核種移行メカニズムの理解に基づく核種移行モデルの構築											
	有機物と核種の錯生成データ取得とモデルの高度化、微生物による核種収着や取り込み等のデータ取得												核種-有機物-岩三元系における核種収着データ取得とモデル検討、微生物影響のデータ拡充と核種移行への影響評価検討											
(3) ニアフィールド性能の総合評価技術開発（SP3） **1) 現象解析モデルの統合化技術の構築** **2) ニアフィールドシステム核種移行評価技術の開発**	計画検討・予備検討			研究開発アプローチの提案																				
				解析システムプロトタイプの構築						取りまとめ			解析システムプロトタイプの構築、安全上の重要課題の抽出・対処方策の提案									取りまとめ		
	計画検討・予備検討																							
				最新知見の調査・フレームワークの構築						取りまとめ			フレームワーク構築、核種移行モデル構築、試解析、課題抽出、研究アプローチの提案									取りまとめ		

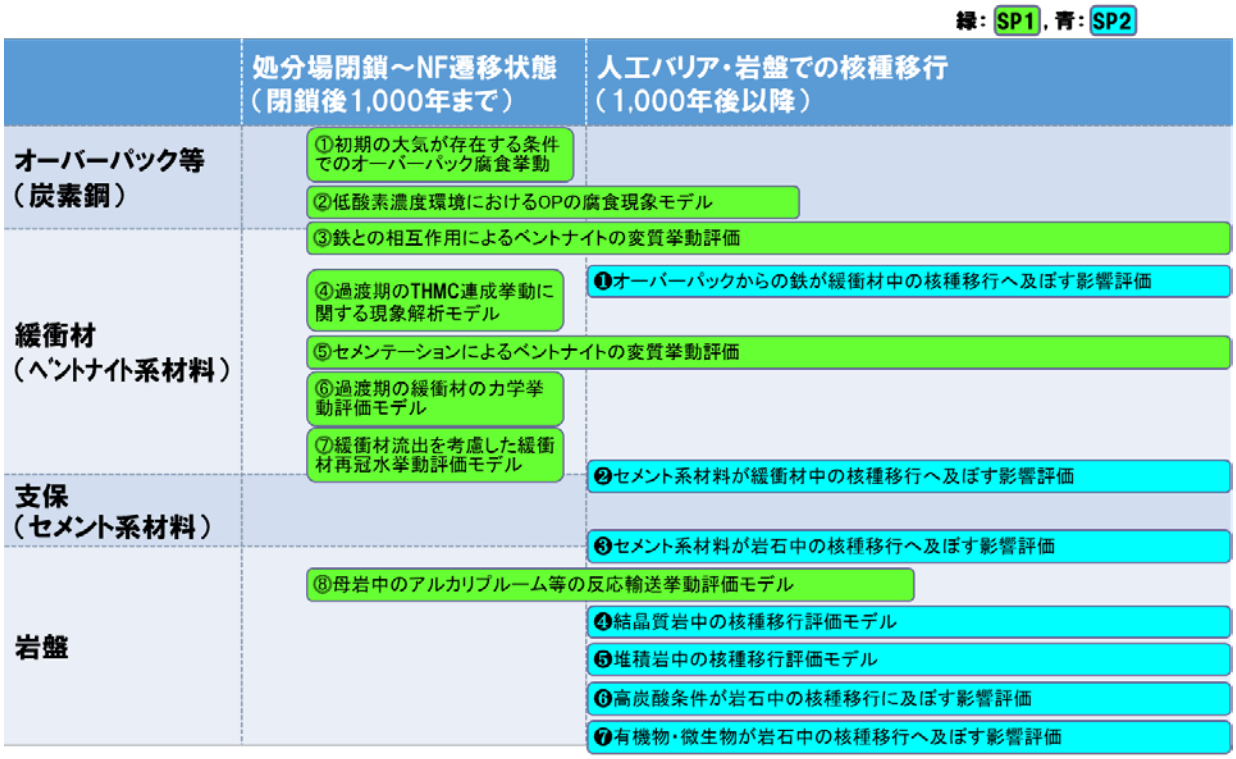


図1.2-3　ニアフィールドシステム評価確証技術開発のサブタスクマップ

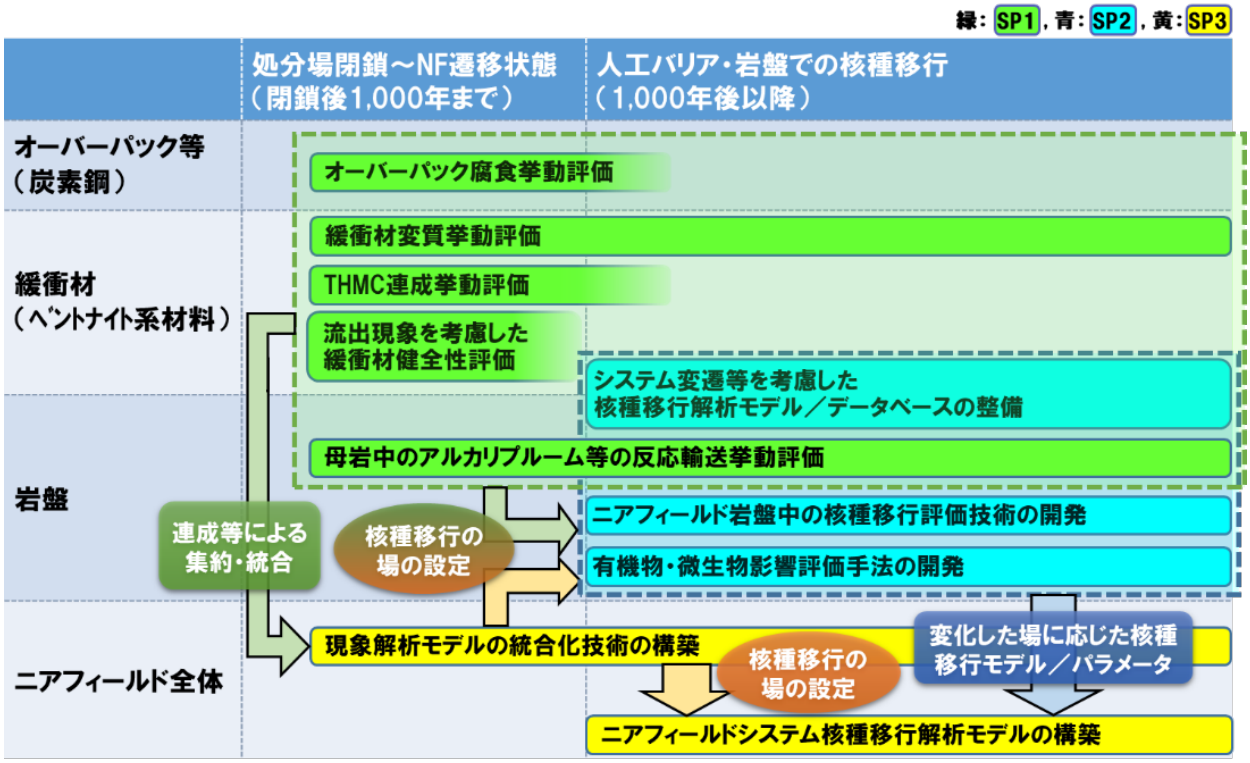


図1.2-4　ニアフィールドシステム評価確証技術開発のサブプロジェクト相関図

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/topics/201818112113.html （2020年3月3日最終閲覧）

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 （2020年3月3日最終閲覧）.

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 （2020年3月3日最終閲覧）.

経済産業省, 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研究開発事業（ニアフィールドシステム評価確証技術開発）」に係る企画競争の公募について, 2018c.
https://www.enecho.meti.go.jp/appli/public_offer/1804/180413b/ （2020年3月3日最終閲覧）.

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, 293p., 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.

日本原子力研究開発機構, 原子力環境整備促進・資金管理センター, 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, 318p., 2019.

原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 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 ＴＲＵ廃棄物処理・処分に関する技術開発報告書, 367p., 2019.

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 か年の計画

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 か年の計画

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, 2018）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, 2015b）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, 2018）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、個々のパラメータ値などの条件を変え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大きさ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。

そこで平成 30 年度は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（日本原子力研究開発機構, 2018）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。平成 31 年度は幌延 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緩衝材中の環境条件に関するデータや解析結果に基づいて環境条件の推定を行うとともに、模擬オーバーパックに観察された不均一腐食のメカニズムを推定した。

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。

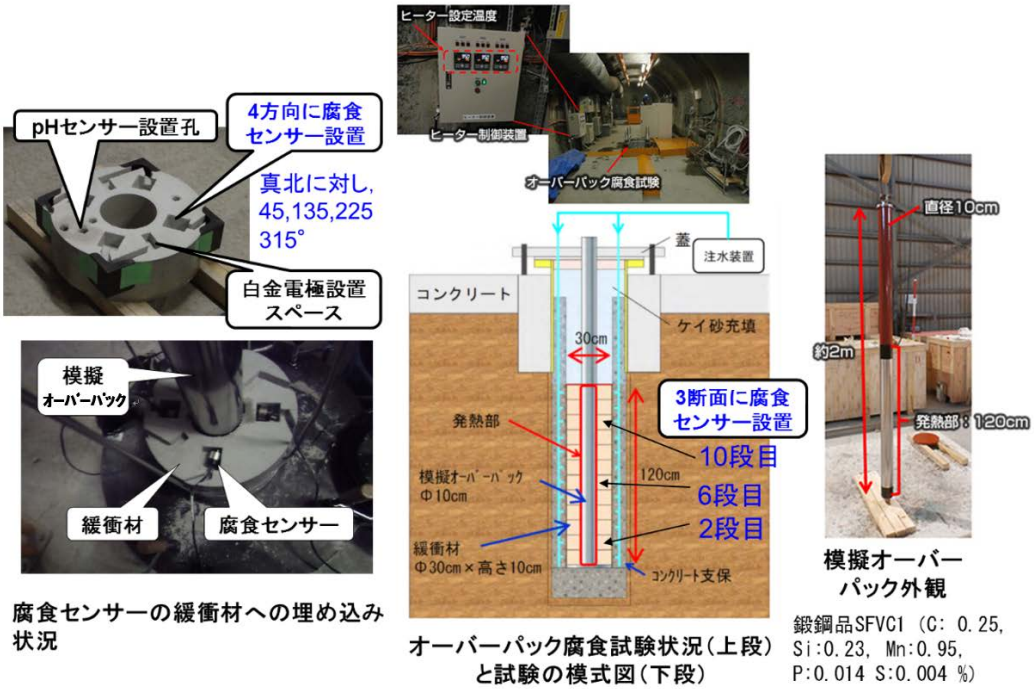


図 2.2-1　オーバーパック腐食試験の状況と試験の模式図

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。試験体の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。回収後の緩衝材の外観の一例として、5 段目北側の状況を図 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した。平成 30 年度は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。平成 31 年度は 2、6、10 段目のブロックを用いてケイ砂混合率の測定を行った。

図 2.2-4 に示すように、経方向の厚さ約 100 mm のうち、模擬オーバーパック表面から約 20 mm までの部分、40～60 mm のほぼ中央の部分、80～100 mm の支保側の部分からそれぞれ緩衝材試料をサンプリングした。また、各段とも真北を 0°とし角度を 3～4 条件変えてサンプリングした。試料は、恒温槽に入れて 120 °C で 1 時間以上乾燥させ、乾燥後の重量（W_1）を測定した。次に試料を塩水により洗浄してベントナイトを除去してケイ砂を分離して重量（W_2）を測定した。$100 \times W_2/W_1$ によりケイ砂混合率（%）を算出した。

分離後のケイ砂の外観の例を図 2.2-5 に示す。緩衝材中央（40～60 mm）ではほぼ白色のケイ砂のみであったが、模擬オーバーパック側（0～20 mm）と支保側（80～100 mm）では黒色の珪砂が混在しており、これがもともと緩衝材上部に充填物されていたケイ砂と考えられる。したが

って、緩衝材の内側だけでなく、外側にも緩衝材上部に充填されていたケイ砂が混入していたと考えられる。次にケイ砂混合率の測定結果を表 2.2-1 に示す。0～20 mm ではケイ砂混合率が高く、緩衝材上部充填用ケイ砂の混入を反映している。また、0～20 mm では上段、中段に比べ下段側でケイ砂混合率が低い値を示しており、下段に多くのケイ砂が混入していたという観察結果と異なる。これは下段に混入したケイ砂の一部が解体時に緩衝材から離脱または、図 2.2-6 に示すように模擬オーバーパック側に付着したためと推定される。40～60 mm では概ね緩衝材設計値 30%付近の値であり、緩衝材上部充填用ケイ砂の混合の可能性は低い。80～100 mm でもやや高い値を示しており、緩衝材/支保の隙間にも充填用ケイ砂が混入したと推定される。

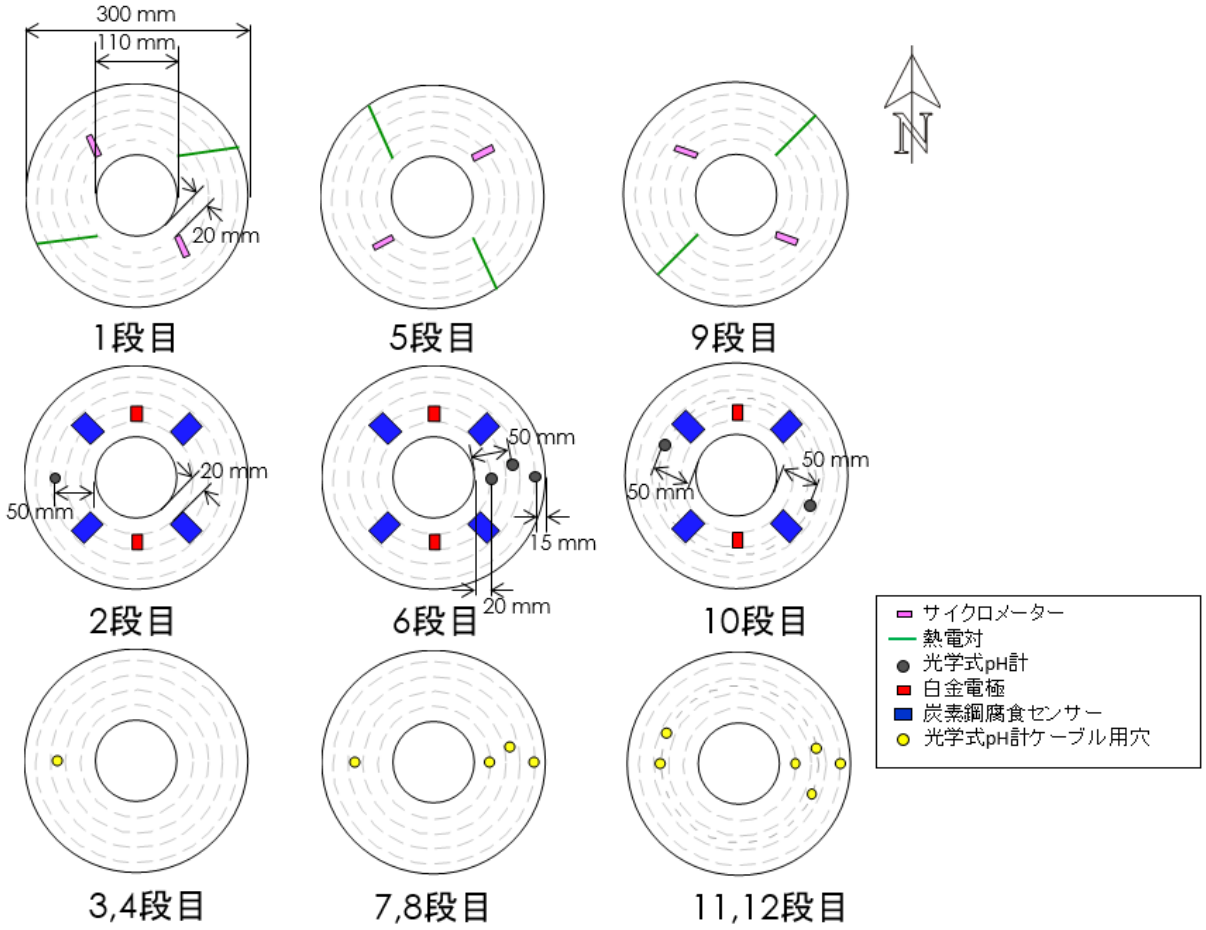


図 2.2-2　各緩衝材ブロック中の各種センサー類の設置状況（下からの積み上げ段数ごと）

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 段目北側）の例

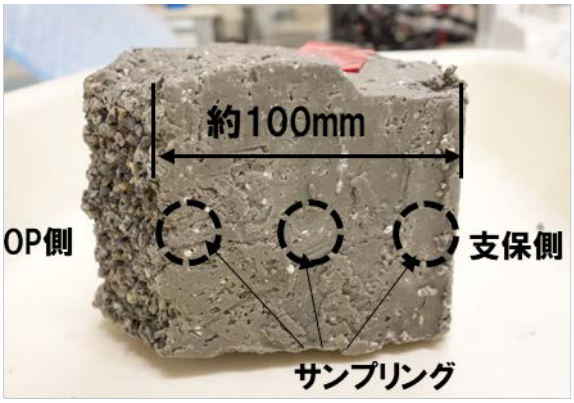


図 2.2-4　ケイ砂混合率測定用緩衝材試料のサンプリング位置

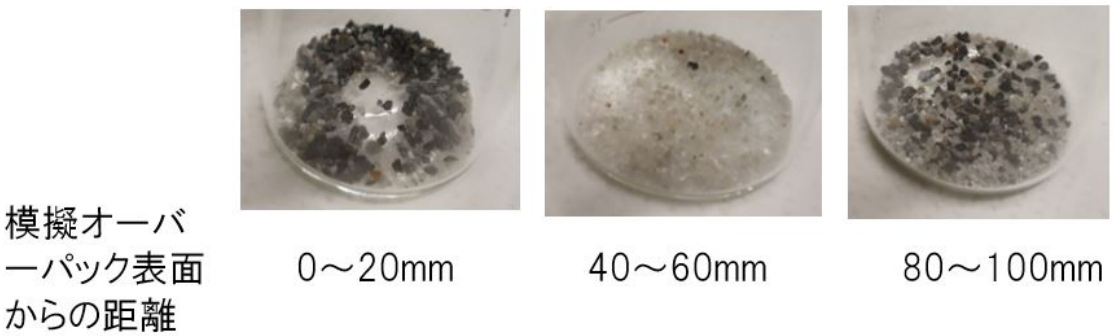


図 2.2-5　緩衝材から分離されたケイ砂の例（6 段目 0°）

中段付近　　下段付近

図 2.2-6　解体時の模擬オーバーパックへのケイ砂の付着状況

表 2.2-1　ケイ砂混合率（%）の測定結果

段数	角度 真北を 0°	模擬オーバーパック表面からの距離		
		0～20 mm	40～60 mm	80～100 mm
10 段目（上段）	60°	52.23	30.22	36.75
	130°	47.11	32.70	-
	330°	55.40	31.67	35.76
6 段目（中段）	0°	49.72	26.89	42.97
	90°	53.69	24.24	35.2
	180°	52.72	30.87	31.85
	270°	31.92	28.28	34.44
2 段目（下段）	60°	36.54	28.43	29.23
	180°	39.44	31.21	43.86
	270°	41.98	29.14	32.92

② 緩衝材中に埋設した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）。平成 30 年度は、このうち 2 段目と 10 段目の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、シデライト（$FeCO_3$）の存在を確認した。平成 31 年度は 6 段目のセンサーを用いて X 線回折と顕微ラマン分光分析を実施した。図 2.2-7 に腐食センサーの炭素鋼電極表面の外観とスケッチを示す。電極表面の付着物は色調や形状が不均一であり、複数の腐食生成物種が形成されていることが示唆された。次に、X 線回折結果を図 2.2-8 に示す。平成 30 年度の結果と同様に素地の炭素鋼の Fe 以外ではシデライト（$FeCO_3$）が同定され、FeOOH や Fe_2O_3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。顕微ラマン分光分析結果を図 2.2-9 に示す。X 線回折でも同定されたシデライト（$FeCO_3$）に加え、マグネタイト（Fe_3O_4）とゲーサイト（α-FeOOH）に帰属すると思われるピークが観察された。シデライトは 2 価鉄、マグネタイトは 2 価/3 価の混合、ゲーサイトは 3 価鉄の腐食生成物であることから、腐食センサー近傍は酸化性～低酸素濃度の酸化還元環境を経たと考えられる。今後、腐食センサー表面に生成した腐食生成物の分析を引き続き行い、場所による

違いなどについても検討を行う予定である。

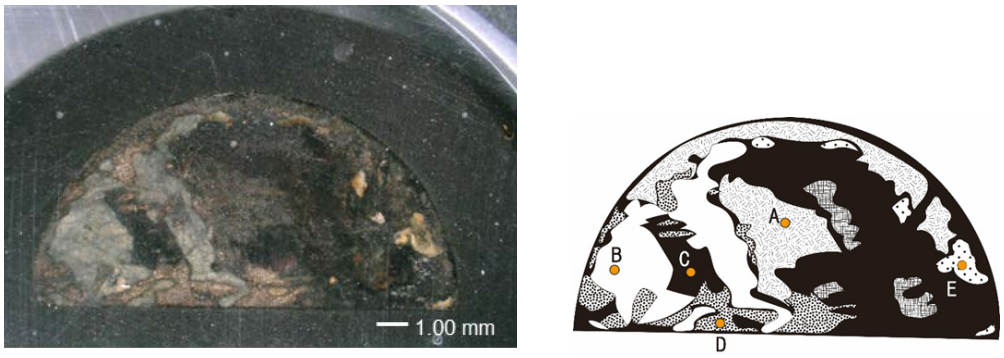


図 2.2-7　腐食センサー（6 段目、135°）の炭素鋼電極表面の外観（左）とスケッチ（右）および、顕微ラマン分光分析箇所（右図 A～E）

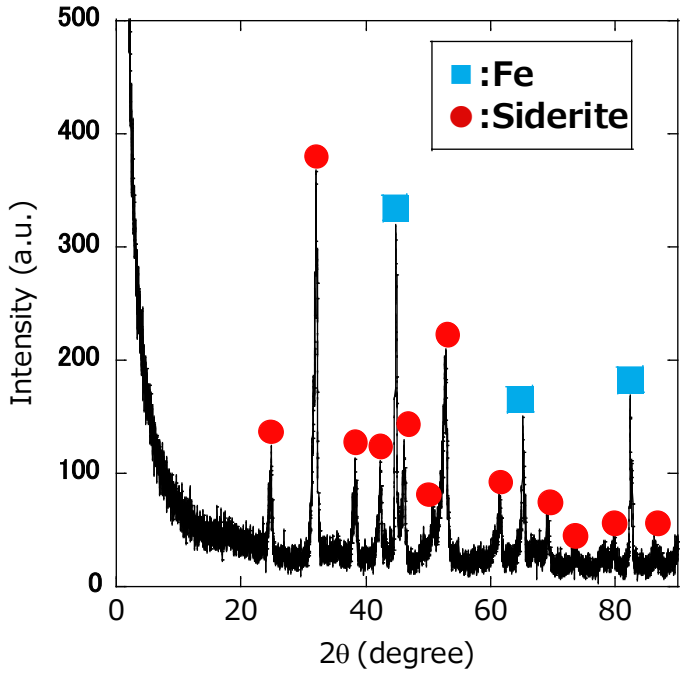


図 2.2-8　腐食センサーの炭素鋼電極表面に付着していた腐食生成物の X 線回折結果

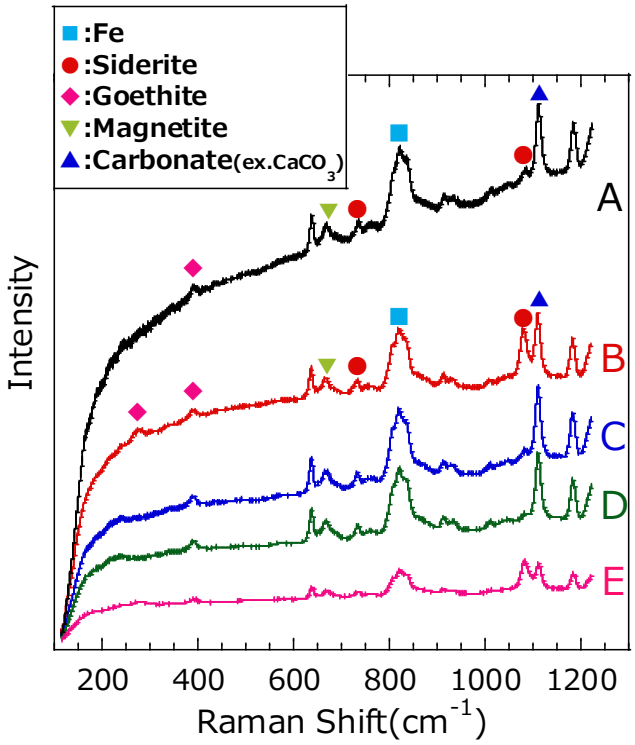


図 2.2-9　腐食センサーの炭素鋼電極表面に付着していた腐食生成物の顕微ラマン分光分析結果
（図中 A～E は図 2.2-7 右図の記号に対応）

③ 緩衝材中の環境条件の推定

原位置での試験期間中の緩衝材の化学的な環境条件については図 2.2-2 に示すように光学式 pH 計を用いた間隙水 pH の測定と、酸化還元性の目安として白金電極の電位測定を行うためのセンサーや電極が緩衝材中に埋め込まれている（中山，2018）。間隙水 pH の測定に使用したセンサーは、先行事業で開発された光学式 pH 計であり、pH 感受性を持つ感知部の吸光度から比色法に基づいて間接的に pH を測定する機器である（日本原子力研究開発機構, 2018）。この光学式 pH 計は pH 指示薬を含浸させた感知部が間隙水と接触することで計測可能となる。白金電極についても緩衝材中にある程度の地下水が浸潤し、電解質として導電性を有する状態に達した段階で計測可能となる。2.4 節に示す水分飽和度の解析結果によると、緩衝材内部の中央（模擬オーバーパック表面から 50 mm の付近）では試験開始から 100 日程度で飽和度が約 0.9 以上に達している。模擬オーバーパック表面近傍の水分飽和度は試験期間を通じて約 0.6 以下と解析結果では示されているが、試験終了後に実施したサンプリング試料の水分測定結果（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2019）によれば、緩衝材の飽和度は全体的に 0.9 程度であることが確認されており、実際には解析結果よりも速やかに地下水が緩衝材中に浸潤した可能性がある。また、試験期間中に腐食センサーを用いて行われた腐食モニタリングでは、試験開始から約 80 日で電気化学的な計測が可能となる程度まで地下水が浸潤したと推定されている（谷口・中山，2018）。これらのことから試験開始から遅くとも 100 日間程度経過した後は緩衝材内部にある程度の水が浸潤していたと推察される。

pH と白金電極電位 E_{pt} の計測結果の代表例として 6 段目の測定結果を図 2.2-10 に示す。図中の「内」「中」「外」はそれぞれ模擬オーバーパック表面近傍、表面から 50 mm の中央付近、支保近傍を示している。pH、E_{pt} ともに試験開始直後から計測値は得られているが、pH については「6 段目-内」で約 100 日までは値が大きく変動する挙動が見られたことから、この期間は上述の

とおりセンサー周囲に十分地下水が浸潤していなかった可能性がある。約 100 日以降は概ね安定した値を示しており、計測に十分な程度まで地下水が浸潤していたものと推察される。一方、「6 段目-中」と「6 段目-外」については試験開始直後から比較的安定した値を示しており、さらに早い段階でセンサー近傍に地下水が浸潤していたと考えられる。pH はいずれも約 300 日までは上昇する傾向を示し、それ以降は約 8.5～9 の範囲で概ね一定となった。E_{pt}については試験開始直後から不規則な変動などは見られず比較的安定した値が得られており、白金電極近傍は初期段階から計測可能な程度の導電性を有していたと推察される。また、初期の数十日間は値が上昇し、それ以降は時間とともに低下して約 500 日以降は概ね一定になった。E_{pt}が酸化還元性に対応しているとすると、緩衝材中は開始後数十日以降は低酸素濃度環境に変化していったと推察される。

これらの結果から、緩衝材中の pH と酸化還元性については試験開始後 pH8 程度の比較的酸化性環境から数 100～500 日程度の過渡状態を経て pH8.5～9 程度の弱アルカリ性の低酸素濃度雰囲気に向かったと推察される。既報の腐食センサーによる腐食速度のモニタリング結果（谷口・中山，2018）では、初期には数 10 μm/y と比較的酸化性環境での代表的な腐食速度を示すが、腐食速度は時間とともに低下して試験開始後数 100 日以降は中性～弱アルカリ性での低酸素濃度環境での代表的な腐食速度である数 μm/y 程度になることが示されており、環境条件の挙動はこれと概ね整合することが確認された。

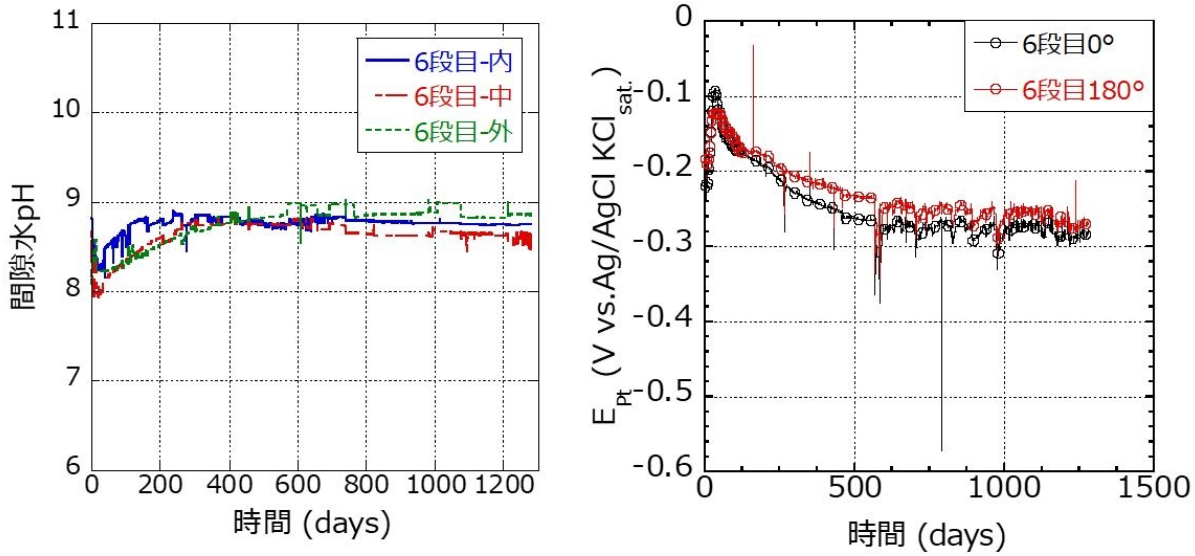


図 2.2-10　pH と E_{pt}の測定結果

④ 模擬オーバーパックの腐食深さ

模擬オーバーパックの腐食深さ分布については酸洗い後の表面全体の概略的な計測結果が図 2.2-11 のように得られている（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター，2019）。図中、赤い色が濃いほど腐食深さが大きく、青い部分は酸洗いで除去できなかった腐食生成物が残存した凸部を表している。この図より、腐食量は下部で大きく、中央部と上部は同程度であることがわかる。①に述べたとおり、試験体の解体時には下部のほうがより多くのケイ砂が混入しており、腐食の進展挙動の違いに影響を与えた可能性がある。模擬オーバーパックに観察された不均一な腐食のメカニズムとしては、図 2.2-12 に模式的に示すようにアノードとカソードの場所的な分離によるもの（マクロセル腐食）と全面腐食速度の場所による違いが考えられる。前者のメカニズムではケイ砂が緩衝材と模擬オーバーパックの間に多く混入した部分で酸素

などの模擬オーバーパック表面への供給は容易になるためカソード反応が支配的となり、ケイ砂の混入が少ない部分でアノード反応が支配的になると考えられる。この場合、ケイ砂混入量が少ない部分でアノード反応である金属の溶解反応が進展して減肉が大きくなると考えられるが、これは図 2.2-11 に示したように実際に観察された状況とは異なっている。一方、後者のメカニズムでは単純にケイ砂混入量の多い場所ほど酸素による全面腐食が促進されることとなり、実際に観察された腐食状況と整合する。ただし、ケイ砂混入量の場所による違いは解体時の観察結果に基づいて推定したものであり、ケイ砂混入量の空間的な分布を正確には把握できていないことや、ケイ砂混入による酸素の移行特性への影響についての詳細は明らかになっていないこと等から、前者のメカニズム（マクロセル腐食）による腐食の不均一化の可能性も否定できない。また、今回観察されたようなケイ砂混入は意図せず生じたものであり、実際には適切な人工バリアの施工が行われていれば十分回避可能と考えられる。今後は、実際の処分環境で生じうるより現実的な緩衝材中の不均一場とそれに対応した不均一腐食を再現し､その進展挙動を把握する必要がある。

ここで、腐食深さ分布のデータを活用して極値統計解析を行い、実際のオーバーパックにおける最大腐食深さの推定を予察的に試みた。模擬オーバーパックを上部、中央部、下部の 3 領域に分け、それぞれの領域を周方向に 12 分割して区画ごとに最大腐食深さのデータを抽出した。この 12 個の最大腐食深さデータを用いて各領域それぞれ Gumbel 分布関数による極値統計解析を行った。

各試験片の最大腐食深さを確率変数 x とすると､Gumbel 分布の累積分布関数 F(x)は以下の式で与えられる。

$$F(x) = \exp[-\exp\{-(x-\lambda)/\alpha\}] \qquad (2.2\text{-}1)$$

ここで、λは位置パラメータ（最頻値）、αは尺度パラメータと呼ばれる。基準化変数 y を式(2.2-2)で定義すると、その累積分布関数は式(2.2-3)で表される。

$$y=(x-\lambda)/\alpha \qquad (2.2\text{-}2)$$

$$F(y) = \exp[-\exp(-y)] \qquad (2.2\text{-}3)$$

また、ここで、ある特定の腐食深さが初めて観察される試験回数の平均値を T とすると、T と F(y)の関係は以下のようになる。

$$F(y) = 1-1/T \qquad (2.2\text{-}4)$$

T は再帰期間とよばれ、対象とする実機の表面積 S と腐食深さ測定におけるサンプリング面積 s の比（オーバーパック全面積をカバーするのに必要なサンプル数）として求められ、そのときの F(y)を求めれば、式(2.2-2)、(2.2-3)により x が求められる。これが実際のオーバーパックにおける最大腐食深さの推定値（最頻値）X_{max}となり、T が十分大きいとき以下の式で表される。

$$X_{max} = \lambda + \alpha \ln T \qquad (2.2\text{-}5)$$

解析手順は次のとおりである。まず各試験片の最大腐食深さ x を大きい順に並べ、各順位 i に対応する累積確率 F(y)を以下の式の平均ランク法に決定した。

$$F(y) = 1 - i/(N+1) \quad (2.2\text{-}6)$$

実際の解析は市販のソフトウエア EVAN-II を用い，λおよびαの推定は，MVLUE 法（腐食防食協会, 1993）により行った。Gumbel プロットと MVLUE 法によるフィッティング結果を図 2.2-13 に示す。オーバーパック表面積 S を S=55129 cm²（核燃料サイクル開発機構, 1999a）と仮定すると、1 個のデータがサンプリングされた面積は s=88.14 cm²であることから、再帰期間 T は T=625 となる。また、Gumbel プロットの直線を αln T だけ右にずらした直線が実際のオーバーパックにおける累積分布関数となる。ここで、F(y)=a を指定すると、信頼率 a におけるオーバーパックの最大腐食深さ P_{max}が得られる。これは 100×a%の確率で最大腐食深さがこの値を超えないという腐食深さに対応し、以下の式で表される。

$$P_{max} = X_{max} - \alpha\ln(-\ln a) = \lambda + \alpha\ln T - \alpha\ln(-\ln a) \quad (2.2\text{-}7)$$

ここでは信頼率を a=0.99 として P_{max}を求めた。すなわち、オーバーパックの最大腐食深さが P_{max}を超える確率は 1%となる。極値統計解析により得られた α、λ、X_{max}、P_{max}を表 2.2-2 に示す。また、P_{max} については酸素による全面腐食に関する既往の評価式（Taniguchi et al., 2011）との比較を行った。その結果を図 2.2-14 に示す。図中には幌延の地下水条件で実施された酸素を含む系での室内試験結果（Taniguchi et al., 2011）も示した。上段、中段、下段ともに既往の評価式を下回っており、既往のモデルによる評価が今回のような不均一腐食の事例に対しても保守的であることが確認された。ただし、解析に用いた腐食深さのデータは除去できなかった腐食生成物が残存した状態での概略的な値であり、解析も予察的に実施したものである。今後、残存した腐食生成物を十分除去し、より正確な腐食深さを計測したうえで、解析・評価を行う必要がある。また、実際の人工バリアの施工では回避可能な意図せずに生じた事象（ケイ砂の混入）の影響を含むデータであり、今後はより現実的な場での不均一腐食挙動についてデータを取得し、既往のモデルとの比較を行うとともに、より現実的な腐食進展モデルの構築に向けて過渡状態での不均一腐食の現象理解や、環境条件の変化に対応した腐食進展挙動の推定手法の検討を進める必要がある。

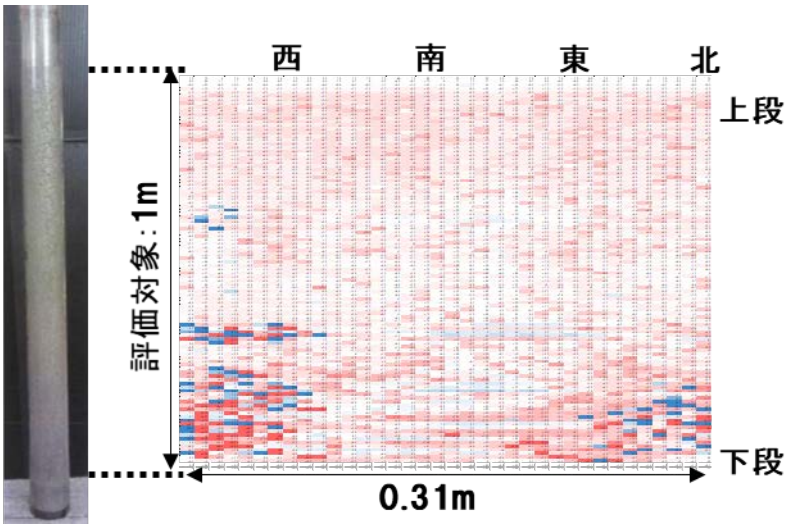


図 2.2-11　模擬オーバーパック表面酸洗い後の表面全体の概略的な腐食深さ計測結果
（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019）

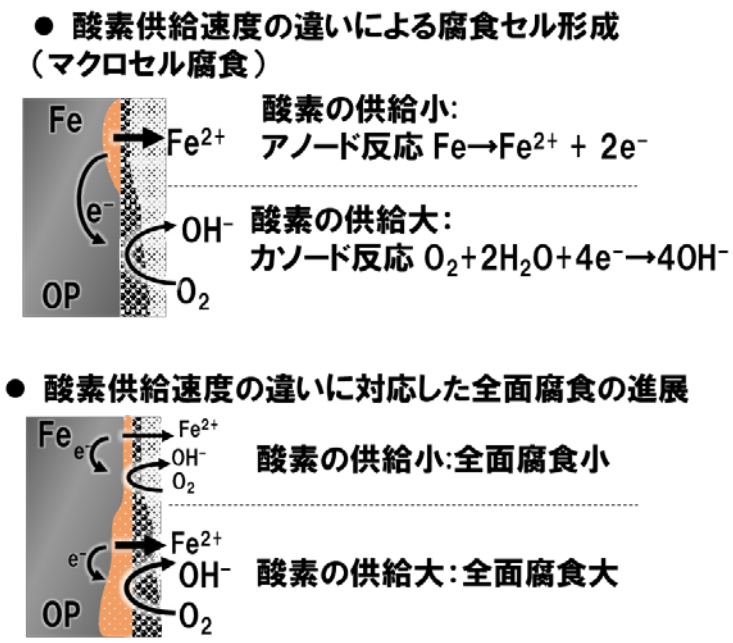


図 2.2-12　模擬オーバーパックの不均一腐食メカニズムの模式図

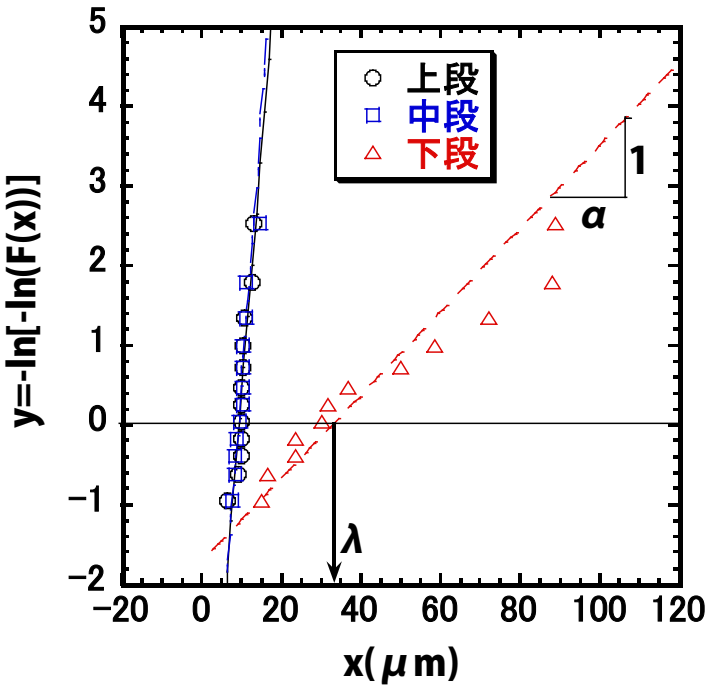


図 2.2-13　模擬オーバーパックの腐食深さデータを用いた Gumbel プロットと MVLUE 法によるフィッテング結果（図中 α、λ は下段の場合）

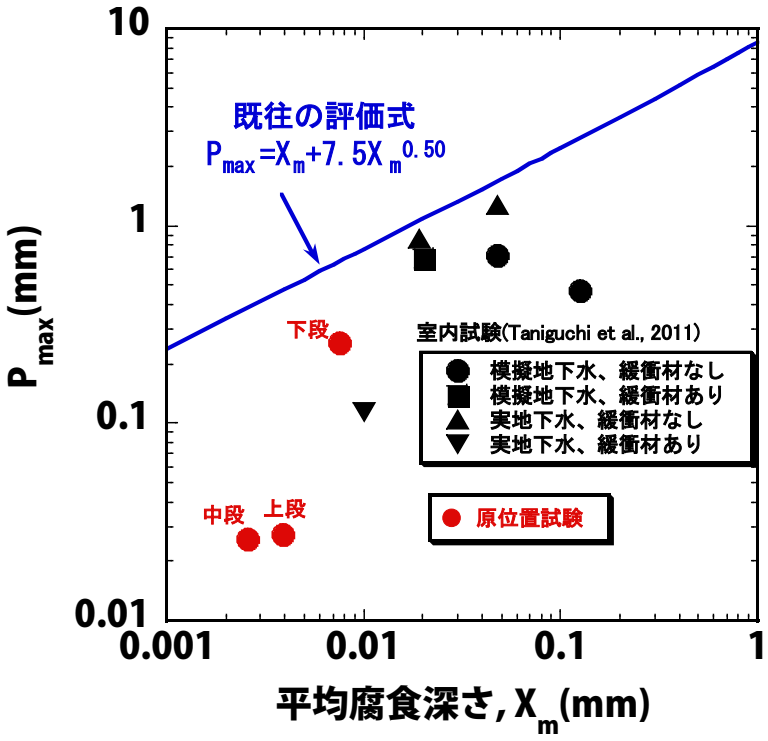


図 2.2-14　実際のオーバーパック最大腐食深さ推定値 P_{max}（a=0.99)の原位置試験データ解析結果と既往の室内試験データ解析結果および酸素による全面腐食深さ評価式の比較

(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, 2013)。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, 2018)。また、炭酸塩環境における応力腐食割れ感受性に及ぼす温度の影響に関するデータが 100 °C を超える条件を含めて取得された。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、平成 31 年度は、炭酸ガス環境での浸漬 3 年間のデータを取得した。また、炭酸塩環境での応力腐食割れ感受性に及ぼす環境条件の影響については、炭素鋼の不動態化を促進する化学種である炭酸塩とは対照的な作用である不動態化を阻害または不動態皮膜を破壊する作用を有する化学種に着目し、塩化物イオンおよび硫酸イオン共存の影響について代表的な電位条件での予察的なデータを取得した。

1) 炭酸ガス環境での浸漬試験

① 試験方法の概要

図 2.2-15 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:0.006mass%）
・ 試験片形状:30×30×t2 mm
・ 表面仕上げ:＃800研磨

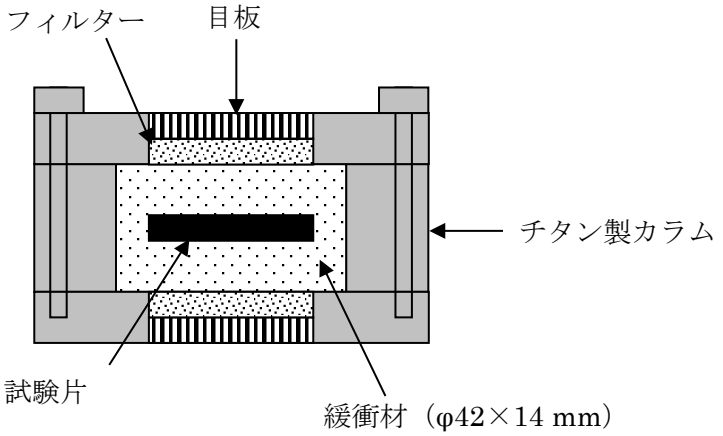


図 2.2-15　試験カラムの模式図

② 試験条件

試験溶液には、0.56 M 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 2.2-2 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^3

表 2.2-2　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 NaCl + 5%CO_2+ 95%N_2	4.4	80	1095
0.56M NaCl + 50%CO_2+ 50%N_2	3.9	80	1095
0.56M NaCl + 100%CO_2	3.7	80	1095

⑤ 試験手順

試験片を、緩衝材とともに図 2.2-15 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、1,095 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 2.2-16 に示す。いずれの条件でも黒色または灰色の皮膜が外観上はほぼ均一に形成されており、脱スケール後は均一な全面腐食が観察された。X 線回折による腐食生成物皮膜の分析結果を図 2.2-17 に示す。いずれの条件でも $FeCO_3$が同定された。また、回折ピークは炭酸ガス濃度 5%よりも 50%, 100%の高濃度条件で大きくなる傾向が認められた。

(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 2.2-3 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 2.2-18 に示す。図中にはべき乗則により近似した結果も示した。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、1 年以降の腐食量は、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)。

$$CO_2(g)+H_2O \quad \Leftrightarrow \quad H_2CO_3 \quad \Leftrightarrow \quad H^+ + HCO_3^- \qquad (2.2\text{-}8)$$

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_2や HCO_3^-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_2、$FeCO_2OH$ などの中間反応体の生成（Noda et al., 1995）や錯体 $Fe(CO_3)_2^{2-}$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_2CO_3または HCO_3^-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 CO_2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 $FeCO_3$に代表される炭酸鉄皮膜の沈殿・溶解挙動が影響を与え、$FeCO_3$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 $FeCO_3$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 $FeCO_3$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 1 年以降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 $FeCO_3$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。

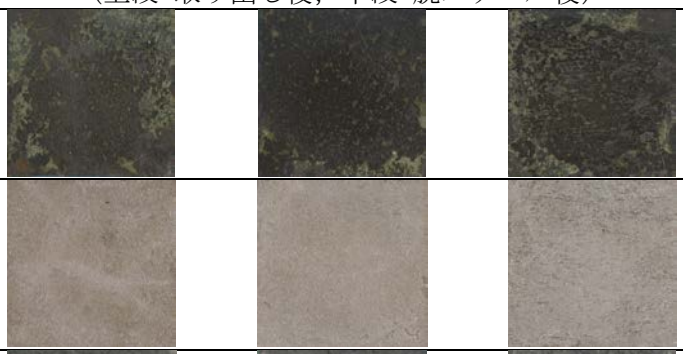
試験溶液	期間 (days)	試験片の外観 (上段:取り出し後，下段:脱スケール後)
0.56M NaCl + 5%CO_2+ 95%N_2	1095	
0.56M NaCl + 50%CO_2+ 50%N_2	1095	
0.56M NaCl + 100%CO_2	1095	

図 2.2-16　腐食試験後の試験片の外観（試験片表面寸法:30×30 mm）

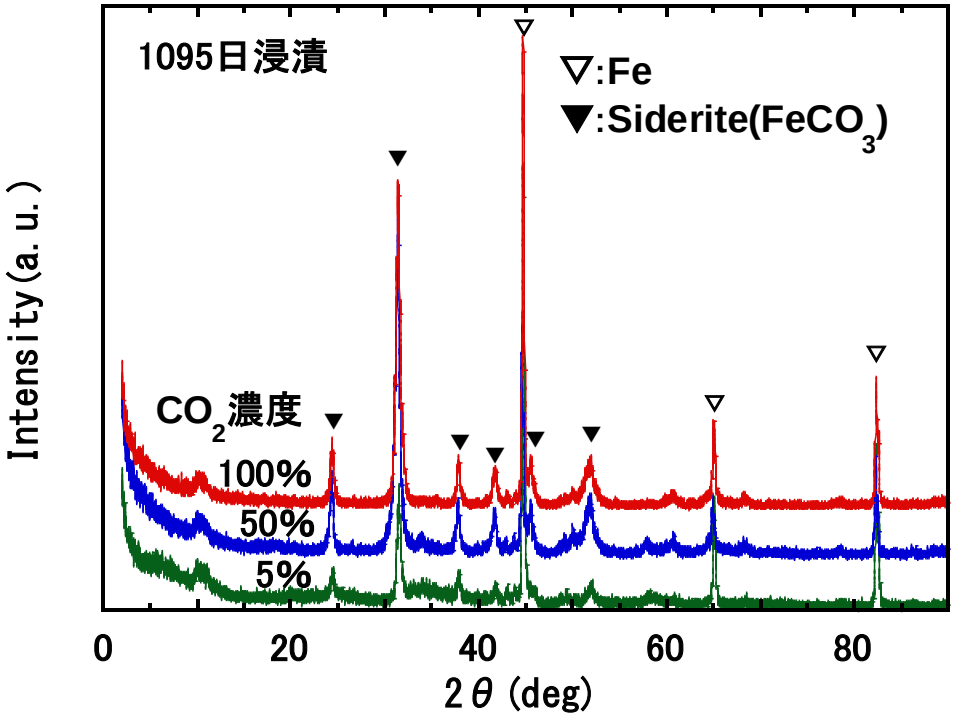


図 2.2-17　腐食試験後の試験片表面の X 線回折結果

表 2.2-3　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

試験溶液	浸漬期間 (days)	平均腐食深さ (mm)
0.56 M NaCl + 5%CO_2+ 95%N_2	1,095	1.40×10^{-2}
	1,095	1.35×10^{-2}
	1,095	1.28×10^{-2}
0.56 M NaCl + 50%CO_2+ 50%N_2	1,095	1.59×10^{-2}
	1,095	1.67×10^{-2}
	1,095	1.66×10^{-2}
0.56 M NaCl + 100%CO_2	1,095	1.20×10^{-2}
	1,095	9.57×10^{-3}
	1,095	1.01×10^{-2}

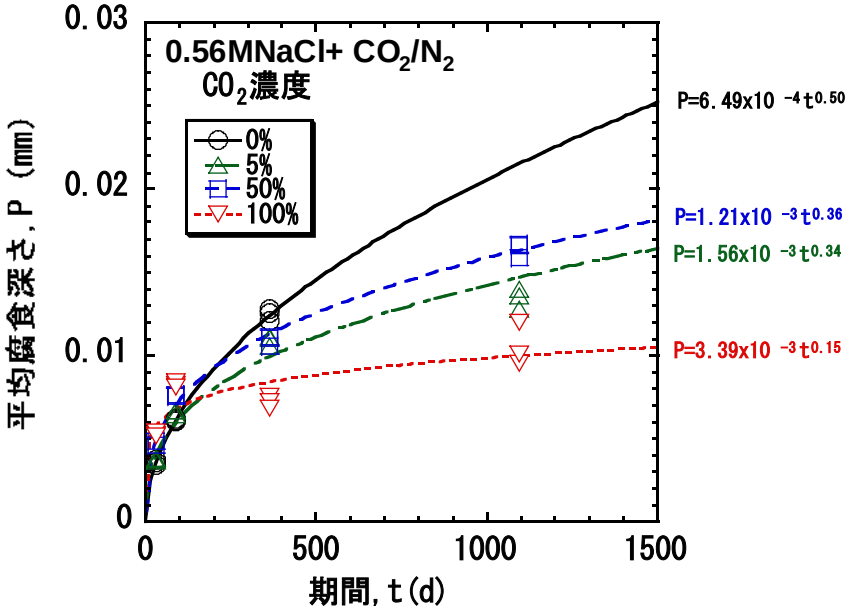


図 2.2-18　平均腐食深さの経時変化

2) 炭酸塩環境での応力腐食割れ試験

① 試験方法の概要

応力腐食割れ感受性は低歪み速度法（Slow Strain Rate Technique, SSRT）により評価した。図 2.2-19 に示すゲージ部直径 4 mm ゲージ長 25 mm の丸棒引張試験片を用いた。これを東伸工業株式会社製 SSRT 装置（MINI-1000T）に図 2.2-20 に示すように試験セルに設置し、定電位条件下での SSRT 試験を実施した。

② 試験片

試験片は、以下のとおりとした。

・ 炭素鋼材質：JIS G 3106 SM400B　（C:0.14, Si:0.21, Mn:1.11, P:0.016, S:0.004 mass%）
・ 表面仕上げ：＃800研磨

③ 試験条件と試験手順

わが国における天然の地下水中の炭酸塩濃度は 0.1 M 未満とされている（小田ほか，1999）。また、既往の研究により、80 °C の条件では炭酸塩濃度 0.5 M を超えると明らかに応力腐食割れ感受性を示すことが報告されている（Yokoyama et al., 2009）。しかし、地下水中の炭酸塩以外の共存成分が応力腐食割れ感受性に及ぼす影響については明らかになっていない。炭酸塩は炭素鋼の不動態化を促進する化学種のひとつであり、塩化物イオンや硫酸イオンは逆に不動態化を抑制または不動態皮膜を破壊する作用を有する化学種として知られている（Marsh et al., 1983; 大場ほか，1996）。よって、炭素鋼の不動態化に対して炭酸塩と相反する作用を有する塩化物イオン、硫酸イオンを添加した炭酸塩溶液を用いてこれらの濃度による応力腐食割れ感受性への影響を調べた。試験溶液には、0.5 M の $NaHCO_3$水溶液を用い、所定の濃度となるように NaCl または Na_2SO_4を添加した。温度は 80 °C とした。試験電位は 80 °C の 0.5 M $NaHCO_3$水溶液中で破面率が極大となった-717 mV vs. SCE（日本原子力研究開発機構，2018）とした。なお、比較のため、不活性環境での試験として、シリコーンオイル中での試験も実施した。SSRT 試験条件を表

2.2-4 に示す。

試験手順は次のとおり。試験溶液に窒素ガスを 2 時間以上吹き込んで脱気（溶存ガスを N_2 で置換）したのち、試験溶液を加熱し、80 °C に達した後に所定の電位に保持して SSRT 試験を開始した。歪み速度は既報（Mitsui et al., 2008）に準じて 8.3×10^{-7}/s とした。

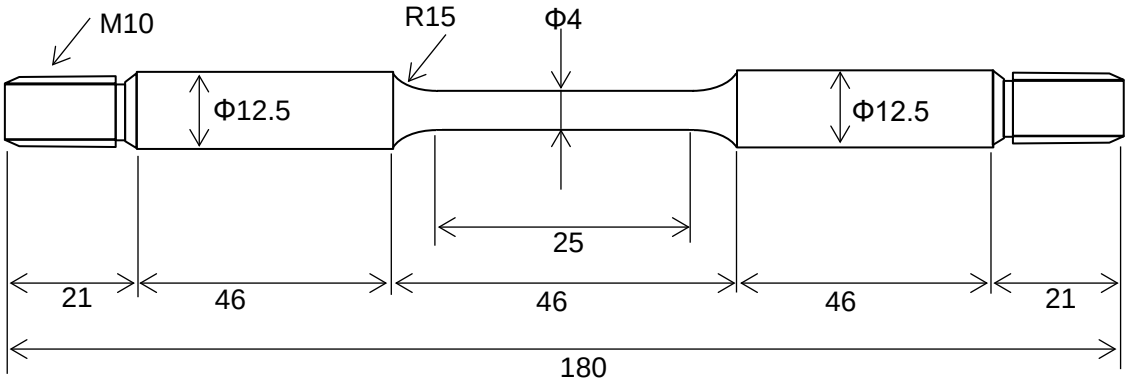


図 2.2-19　SSRT 試験片の形状・寸法

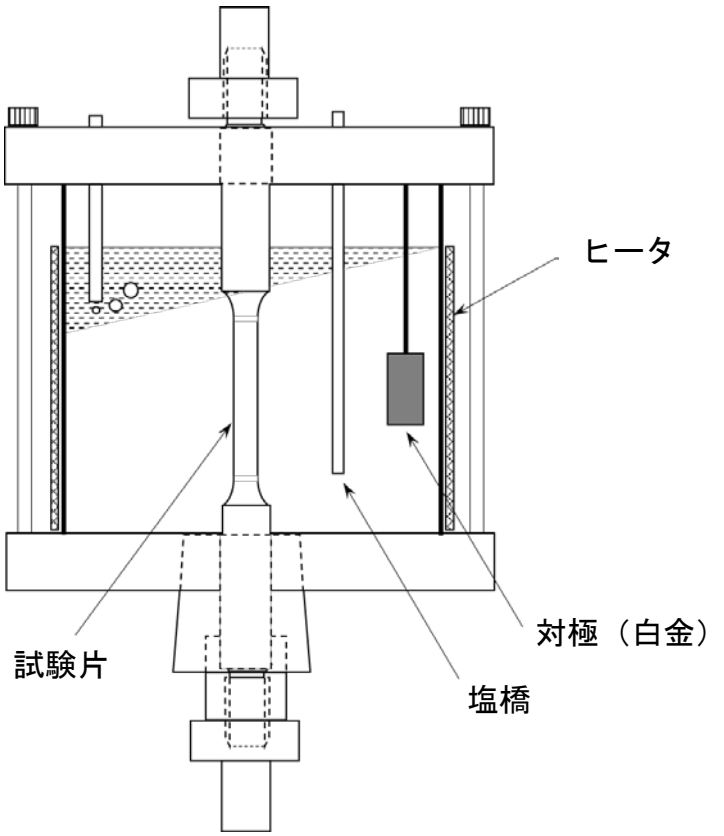


図 2.2-20　SSRT 試験セルの模式図

表2.2-4　SSRT試験条件

$NaHCO_3$	NaCl	Na_2SO_4	電位(mV vs. SCE)
0.5M	0	0	-717
	0.01	0	
	0.1	0	
	0.5	0	
	0	0.01	
	0	0.1	
シリコーンオイル			-

④ 試験結果と考察

SSRT 試験により得られた応力-ひずみ線図を図 2.2-21 に示す。この図より最大応力（σ_{sol}）と破断ひずみ（ε_{sol}）を求め、シリコーンオイル中での値（σ_{oil}、ε_{oil}）の比（$\sigma_{sol}/\sigma_{oil}$,、$\varepsilon_{sol}/\varepsilon_{oil}$）として求めた。最大応力比の NaCl、$Na_2SO_4$濃度依存性を図 2.2-22、破断ひずみ比の NaCl、Na_2SO_4濃度依存性を図 2.2-23 に示す。図中には先行事業で取得した同一規格（SM400B）でロットの異なる材料の試験片で得られたデータ（日本原子力研究開発機構, 2018）も示した。

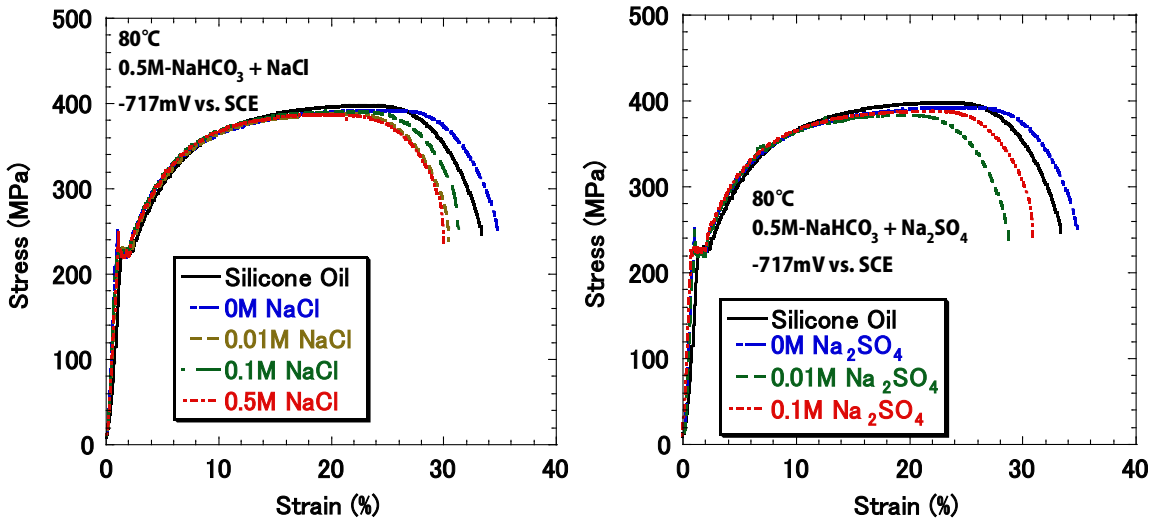


図 2.2-21　応力-歪み線図の測定結果

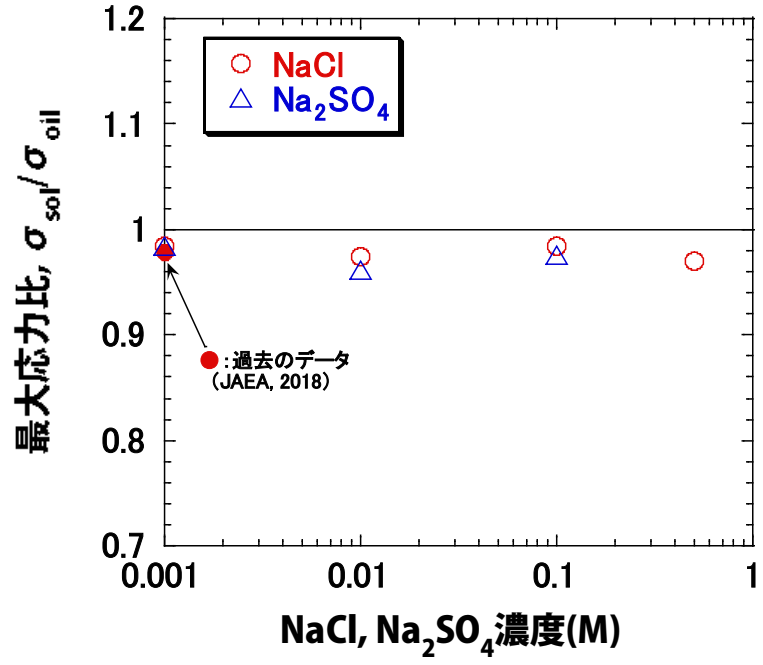


図 2.2-22　最大応力比（$\sigma_{sol}/\sigma_{oil}$）の NaCl, Na_2SO_4濃度依存性

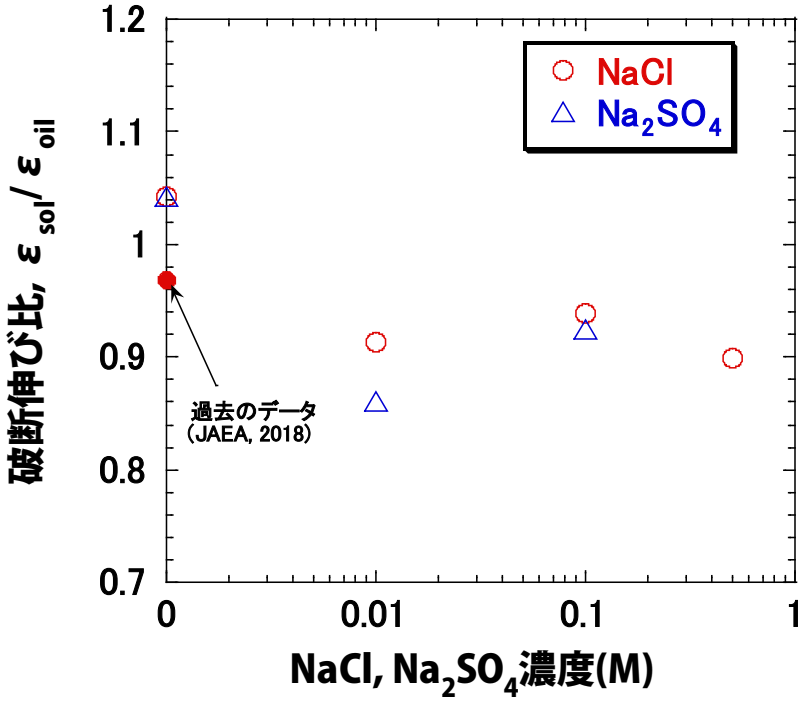


図 2.2-23　破断伸び比（$\varepsilon_{sol}/\varepsilon_{oil}$）の NaCl, Na_2SO_4濃度依存性

最大応力比は濃度によらず 1 に近く、ほとんどシリコーンオイル中の値との違いはないことがわかった。破断ひずみ比はいずれも NaCl、Na_2SO_4を添加した場合に比較的小さい値を示したが、濃度依存性は明瞭ではなく、NaCl、Na_2SO_4濃度ゼロで得られた過去のデータとほぼ同程度である。また、今回得られた NaCl、Na_2SO_4濃度ゼロの条件ではシリコーンオイル中での値を上回っ

ている場合もあることから、材料自体のばらつきなどの影響を含むと考えられる。

次に試験片の外観を図 2.2-24 に示す。いずれの条件でも外観上黒色または黒灰色の皮膜が形成されており、引張方向と垂直方向に亀裂が観察された。また、破断部近傍の SEM 観察結果例を図 2.2-25 に示す。破面では外周部にディンプルとは異なる応力腐食割れの破面が観察された。側面にも開口した亀裂が複数観察された。割れの形態は断面のミクロ組織観察などにより確認が必要であるが、粒界割れに近い様相が観察された。ここで、これらの観察結果から絞り $R.A._{sol}$ と応力腐食割れ破面率（SCC 破面率，I_{SCC}）を以下の式により算出した。

$$R.A._{sol} = 1-S_1/S_0 \quad (2.2\text{-}9)$$

$$I_{SCC} = Sscc/S_1 \quad (2.2\text{-}10)$$

S_1: 試験後の破面の面積

S_0: 試験前の平行部断面積

Sscc: SCC 破面の面積

絞りについては、試験溶液シリコーンオイル中での絞り（$R.A._{oil}$）との比として求めた。その NaCl、Na_2SO_4濃度依存性を図 2.2-26 に示す。いずれも濃度が高い条件で絞り比は低下する傾向がみられた。次に SCC 破面率の NaCl、Na_2SO_4濃度依存性を図 2.2-27 に示す。NaCl、Na_2SO_4を添加する場合は添加しない場合に比較して破面率は大きくなったが、濃度依存性は明確には認められなかった。絞り、SCC 破面率の結果はいずれも NaCl、Na_2SO_4添加によって応力腐食割れ感受性が高くなる兆候を示唆しているが、NaCl、Na_2SO_4濃度ゼロでの過去のデータと比較するとほぼ同程度であり、同一規格の材料での材質の違いによるばらつきに比較して NaCl、Na_2SO_4の添加による影響は顕著ではないと考えられる。

以上のように、破断伸び比、絞り比、SCC 破面率では NaCl、Na_2SO_4の添加によって割れ感受性が増加する兆候を示唆する結果も得られているが、NaCl、Na_2SO_4を添加しない条件での過去のデータ（同一規格材料、異なるロット）との比較から、データのばらつきに比較して NaCl、Na_2SO_4の添加による影響は大きいとは言えず、これらの塩の共存による応力腐食割れ感受性への影響は顕著ではないと考えられる。ただし、特定の電位条件のみでの結果であり、応力腐食割れ感受性を示す電位領域や感受性が極大となる電位条件は NaCl、Na_2SO_4の添加や濃度に応じて変化する可能性があるため今後、より幅広い電位条件でのデータを拡充し、これらの化学種の共存や濃度の影響について詳細な評価を行う必要がある。

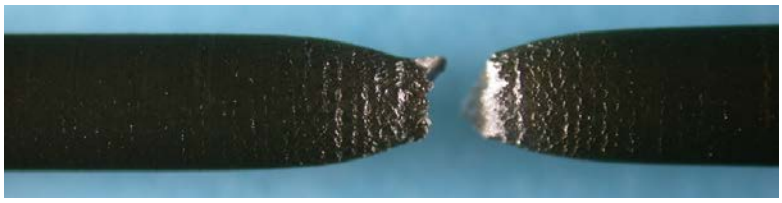
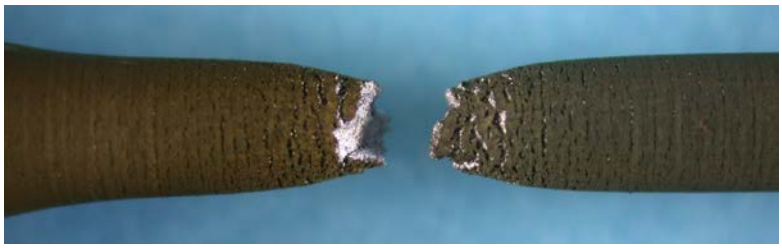
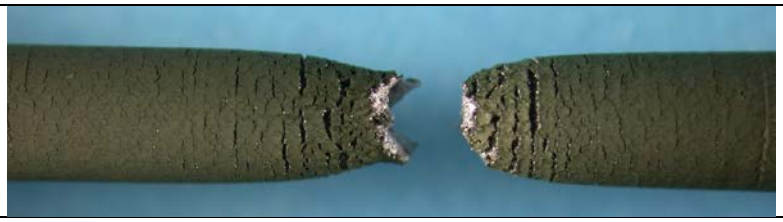
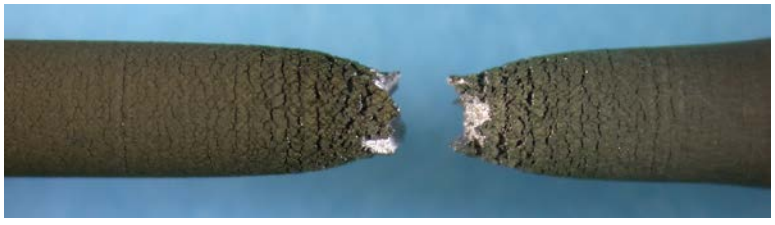
Silicone Oil	
0.5M $NaHCO_3$	
0.5M $NaHCO_3$ +0.01M NaCl	
0.5M $NaHCO_3$ +0.1M NaCl	
0.5M $NaHCO_3$ +0.5M NaCl	
0.5M $NaHCO_3$ +0.01M Na_2SO_4	
0.5M $NaHCO_3$ +0.1M Na_2SO_4	

図 2.2-24　試験後試験片の外観

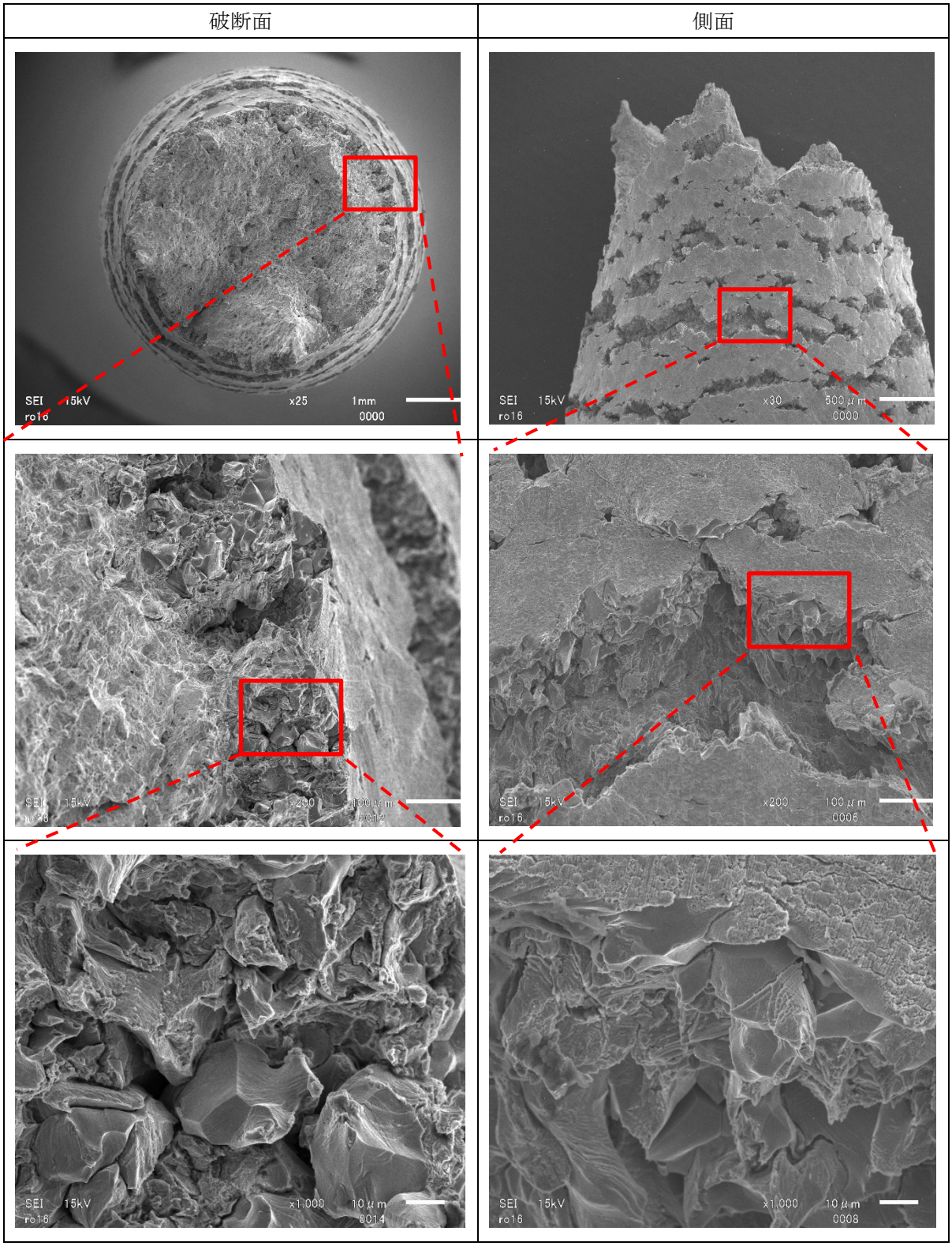


図 2.2-25　破断部近傍の SEM 観察結果例（0.5 M $NaHCO_3$+ 0.5 M NaCl）

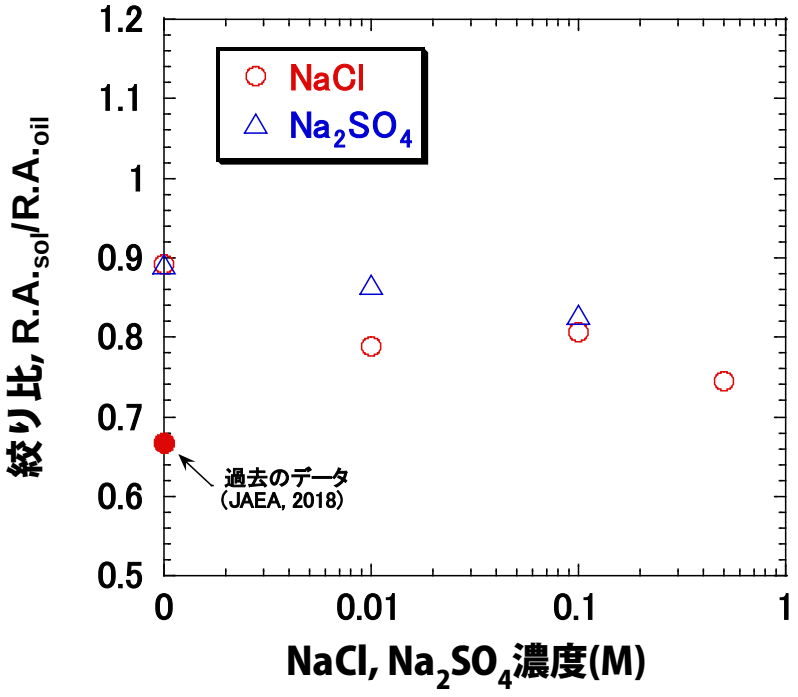


図 2.2-26　絞り比（$R.A._{sol}$/ $R.A._{oil}$）の NaCl、Na_2SO_4濃度依存性

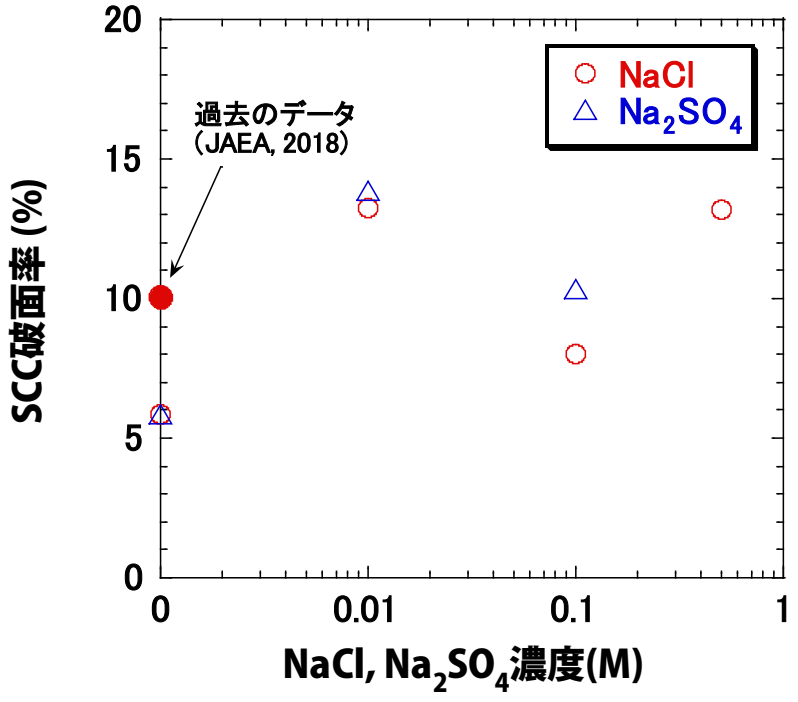


図 2.2-27　SCC 破面率（Iscc）の NaCl、Na_2SO_4濃度依存性

2.2.3 2 か年の成果と今後の課題

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緩衝材中の環境条件に関するデータや解析結果に基づいて環境条件の推定を行うとともに、模擬オーバーパックに観察された不均一腐食のメカニズムを推定した。緩衝材中の pH は弱アルカリ性であることや、経時的に酸化還元性が還元性に変化していたことなどが推定された。また、模擬オーバーパックに観察された不均一な腐食は緩衝材上部に充填されていたケイ砂が緩衝材内側に混入したことに起因すると考えられ、マクロセル腐食のようなアノード反応とカソード反応の場所的な分離の可能性と全面腐食速度の場所による違いの可能性を検討し、後者によるものと推定した。模擬オーバーパックの腐食深さデータに基づいて過渡状態で想定される酸素による最大腐食深さを推定して従来の評価手法による推定と比較した結果、既往のモデルにより保守的な評価が可能であることが確認された。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確認された。また、炭酸塩中での炭素鋼の応力腐食割れ感受性に及ぼす共存化学種の影響として、炭素鋼の不動態に対して攻撃型のイオンである塩化物イオン、硫酸イオンに着目して共存や濃度による影響を予察的に調査した。その結果、塩化物イオン、硫酸イオンの共存によって応力腐食割れ感受性が高まる傾向が示唆されたが、濃度による影響は明瞭には認められず、過去のデータとの比較からこれらのイオンの影響は顕著ではないと推察された。

今後は、微生物の分析を含めて原位置試験試料の調査、分析を進めるとともに、室内試験による過渡状態での環境条件や不均一腐食の再現などにより、緩衝材中の環境条件と模擬オーバーパックの腐食メカニズムをより詳細に理解し、過渡状態での腐食挙動評価手法の高度化を図る。また、環境条件が腐食に与える影響に関し、緩衝材中の環境条件と変遷に関する理解を進めつつ、引き続き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、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。これらの検討においては、2.4.1 項（2）2）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、応力緩衝性など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起因して発現するため、モンモリロナイトの結晶化学的変化（例えばイライト化や鉄サポナイト化）やそれ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といった変質が生じた場合、機能の低下などの影響を被る可能性がある。

このような緩衝材の変質がその機能に与える影響などの理解に資するため、これまでに結晶化学的変化について室内試験及び原位置試験試料を対象に鉄–ベントナイトの相互作用の調査を行うとともに、二次鉱物の沈殿についてセメンテーションを含む続成変質により生成したとされる月布鉱床のベントナイト原鉱石を対象にセメンテーションによる緩衝材特性の変化を把握してきた（日本原子力研究開発機構, 2018; 日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理セ

ンター，2019）。

平成 31 年度は、後述するこれらの変質挙動に関する課題の解決に向けた調査検討としてそれぞれ「炭素鋼–緩衝材境界領域における緩衝材の変質」（2.3.1 項）及び「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。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り、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）。一方で、鉄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、顕著な変質が観察された報告例はない。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する結果である（例えば、日本原子力研究開発機構，2016a）。

炭素鋼との相互作用に伴うベントナイトの変質は、オーバーパックが 1,000 年以上の長期にわたって圧縮ベントナイト中に残存し、腐食が継続することを想定して評価を行う必要がある。このような長期の変質挙動の評価を行う上では、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、確度の高い評価が難しい。そのため、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することが必要である。

このような背景を踏まえ、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，2013）。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^{2+}の生成、移行、Fe^{2+}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させることが課題である。

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った。その結果、EPMA 観察、μ-XRD 分析では、モンモリロナイトの変質は観察されなかった。また、こ

れまでに学術論文などで公表されている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ナチュラルアナログ研究に関する文献の調査を行い、調査により重要と考えられた5件の事例について概要調査を行った。これらの結果を元に、平成31年度の調査では、上記の原位置試験試料について、透過型電子顕微鏡（TEM）観察により変質鉱物の有無を詳細に分析するとともに、ナチュラルアナログ事例サイトより試料の採取を行い、ベントナイトの変質挙動の観察を行った。

(2) 実施内容

① 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された原位置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 段配置されていた。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。

平成 30 年度の調査において、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の分析を行った。分析の結果、模擬オーバーパック接触面付近の圧縮ベントナイト中で、カルサイト（$CaCO_3$）粒子が消失していることを確認するとともに、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推測される結果が得られた。このことから、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^{2+}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、バーチェリンなどの鉱物の存在は確認されなかった。これらの結果より、平成 31 年度の分析では、モンモリロナイトの変質鉱物の生成の有無などをより詳細に確認するため、より微少な領域に対して TEM による分析を実施した。

TEM 分析は、平成 30 年度に分析した試料のうち、原位置試験装置の下部から 5 段目に設置されていた圧縮ベントナイトブロック試料に対して実施した。分析には、本ブロックの模擬オーバーパック接触面付近の試料と、接触面から 6 mm 程度離れた内側部分の試料を使用した。各試料は、単孔メッシュに採取し、Ar^+イオンミリングにより調整して、TEM 分析試料とした。

図 2.3-1 に、試料の TEM 画像を示す。模擬オーバーパック接触面付近の試料と接触面から離れた内側部分の試料の TEM 画像を比較すると、接触面付近の試料の画像には、フレーク状のモンモリロナイト粒子の形状が明瞭に観察され、モンモリロナイトの粒子サイズが細粒化している傾向が見られたのに対し、6 mm 程度離れた内側部分の試料の画像ではそのような傾向は見られなかった。一方で、これらの試料に対して EDS マッピング分析や電子線回折による分析を実施したものの、モンモリロナイトの変質により生成すると考えられる鉱物は同定されず、モンモリロナイトが他鉱物へ変質したことを示す結果は得られなかった。

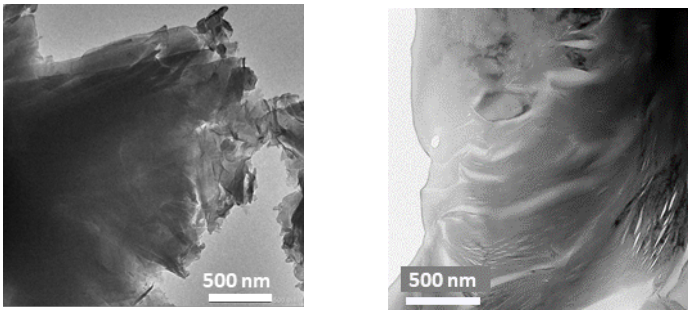


図 2.3-1　原位置試験試料の TEM 画像（左：模擬オーバーパック接触面付近の試料・右：接触面から 6 mm 程度離れた内側部分）

② ナチュラルアナログ事例サイトより採取した試料の変質挙動の調査

平成 30 年度の調査において、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について、平成 20 年度以降に公表された学術論文などについての文献調査を行い、重要と考えられた 5 件の事例を抽出して、その内容について概要調査を行った。一方で、文献調査により抽出されたナチュラルアナログ事例は、高 pH 地下水中における Fe 共存下でのベントナイトの変質挙動など、鉄の腐食反応に伴い想定される変質環境を模擬した事例に関する報告がほとんどであり、より処分場に近い変質環境である金属鉄と直接接触した圧縮ベントナイトに関する調査事例はほとんど報告されていないことがわかった。このことから、平成 31 年度の調査においては、金属鉄との接触による鉱物の変質などのナチュラルアナログ事例に焦点を当て、ナチュラルアナログ事例サイトの試料の分析を実施し、ナチュラルアナログ事例に関する知見を拡充することを目的とした調査を開始することとした。

平成 31 年度の調査においては、最も処分場環境に近い事例である金属鉄と圧縮ベントナイトが接触しているナチュラルアナログ事例として、クニミネ工業グループ所有のベントナイト鉱山である月布鉱山から採取された試料を用いて調査を実施した。月布鉱山においては、地中に坑道を掘りながらベントナイト鉱石を採取する坑内掘りにより採掘が行われており、坑道の維持には支保工が用いられていることから、鉄とベントナイトが長期にわたって接触している箇所が存在している。月布鉱山については、これまでにも調査が行われており、鉄と接触したベントナイトの陽イオン交換容量の測定や、モンモリロナイトの層間イオンの分析などが実施されている。平成 31 年度は、月布鉱山から新たに採取された試料を対象に、EPMA による支保工との接触面からの距離に応じた圧縮ベントナイトの変質状況の概要把握や、鉱物の検出下限の低い高輝度 X 線分析によるモンモリロナイトの変質により生成した鉱物、鉄腐食生成物などの同定を実施し、変質評価モデルの検証に活用できる分析結果を取得することを目的とした。

処分場環境における鉄とベントナイトの相互作用については、圧縮ベントナイトが地下水により飽和した後、地下水が炭素鋼製オーバーパックに接触し、オーバーパックが腐食することによって発生する。そのため、ベントナイトと支保工が接触している箇所のうち、ベントナイトが地下水により浸潤している箇所を調査の対象とする必要がある。月布鉱山においては、坑道内の 17 番層及び 29 番層と呼ばれるベントナイト鉱層において、圧縮ベントナイトが地下水により浸潤しており、かつ、支保工と接触している箇所が存在する。そのため、この箇所より採取された試料を分析に供した。圧縮ベントナイトが支保工に接触していた期間は 6～7 年程度とのことであった。

試料は、地下水により浸潤し、支保工と接触していることが確認された圧縮ベントナイトを、支保工に沿って上部より掘り進めることにより採取されている（図 2.3-2 左）。処分場環境を考

慮した場合、炭素鋼は低酸素環境で腐食し、圧縮ベントナイトと相互作用することから、比較的坑道表面から離れた深い位置で、坑道内の空気中の酸素の影響が最小限に抑えられている位置の試料を分析することが望ましい。また、低酸素雰囲気下で鉄が腐食すると、その腐食生成物は概ね緑色を呈する傾向がある。これらのことを考慮し、比較的深い位置で緑色を呈するベントナイト試料を分析に供した。試料は、支保工表面に付着したベントナイトをスクレイパーではぎ取るようにし、10 cm 四方程度のブロック状で採取されている。採取されたベントナイトは、空気中の酸素に触れて酸化することを防止するため、酸素透過性の低い保存袋に酸素吸収剤とともに封入し、分析まで低酸素状態が維持されている。

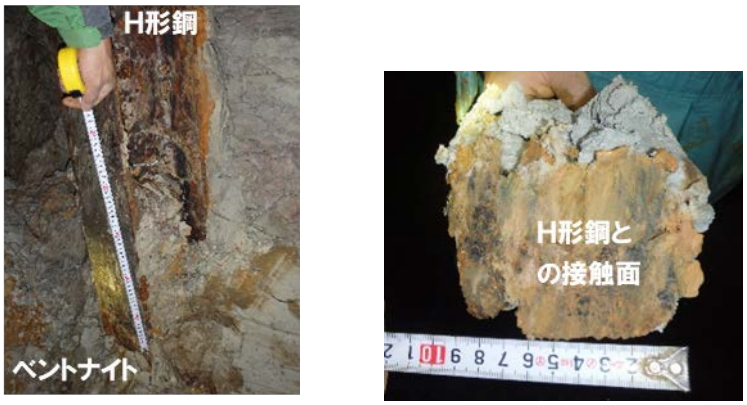


図 2.3-2　試料採取場所概要（左）と採取試料写真（右）

図 2.3-3 に、分析に使用した試料の外観を示す。試料には、黒色、緑色、黄土色を呈する部分が観察された。このうち、支保工との接触面に近い黒色の部分について EPMA による元素分布の観察及び μ-XRD 分析を行い、その他の部分については、μ-XRD 分析のみを実施した。EPMA 分析については、試料を採取して真空乾燥させた後に樹脂包埋し、切断して断面を観察した。切断した断面は、鏡面研磨し、炭素蒸着して分析試料とした。μ-XRD 分析では、真空乾燥させた試料を微細な破片に分割したものを測定に供した。

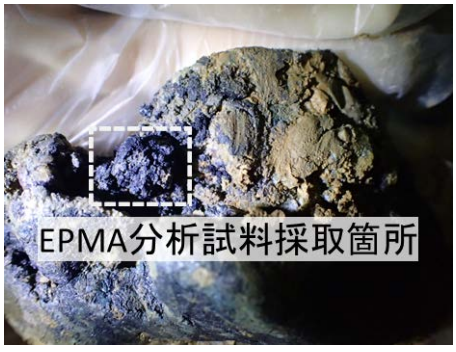


図 2.3-3　分析に使用した試料の外観
（図中の白点線四角は約 2 cm×2 cm）

EPMA 分析の結果を図 2.3-4 に示す。図 2.3-4 に示す画像の視野は約 7×7 mm^2であり、BEI が観察表面の反射電子像、Si、Al、O、Fe、Mg、Ca、Na 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。Fe のマッピング分析結果より、画像中の右上部分に Fe の濃度が高い部分が確認され、この部分には酸素を除く元素がほとんど含まれていないことから、鉄酸化物もしくは水酸化物と推測される。また、マッピング結果から示唆されるように、Fe の分布が部分的であり、支保工との接触面と判断できる直線的な Fe の分布は観察することが出来なかった。本試料以外の別の試料についても、同様の EPMA 分析を行って Fe の分布を確認したが、支保工との接触界面と判断できる Fe の分布を確認することが出来なかった。これは、ベントナイトを崩さないように支保工から慎重に採取されているものの、ベントナイトが柔らかく採取時に試料の形状が崩れてしまったためと推測される。

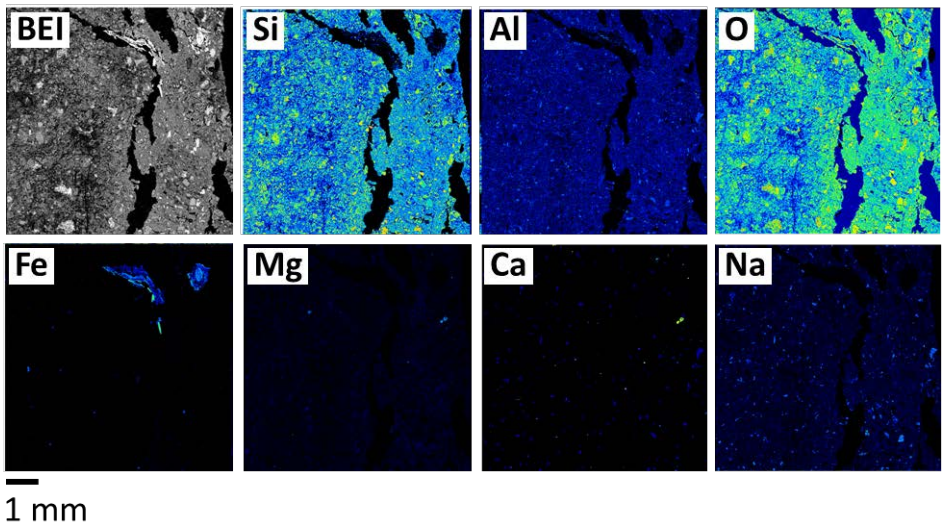


図 2.3-4　月布ベントナイト鉱山より採取した支保工と接触していたベントナイト試料の EPMA 分析結果（約 7×7 mm²）

図 2.3-5 に、黒色を呈していた部分の μ-XRD 測定結果を示す。μ-XRD 測定によりベントナイト中の鉱物を同定した結果、鉄腐食生成物としてマグネタイトが検出された。この結果は、EPMA において推定された Fe 酸化物の生成とも一致する結果であった。また、マグネタイトが生成していることから、低酸素雰囲気下で腐食が進んでいると推測された。一方で、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は検出されなかった。

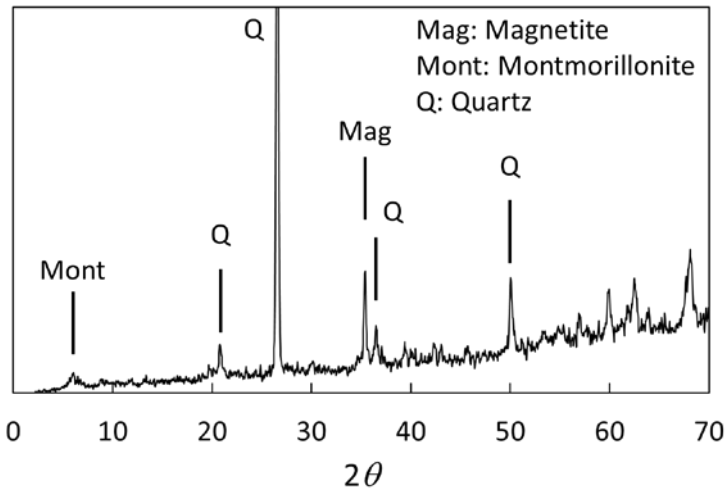


図 2.3-5　月布ベントナイト鉱山より採取された支保工と接触していたベントナイト試料の μ-XRD 測定結果

(3) 2 か年の成果と今後の課題

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、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推測される結果が得られた。また、TEM などにより変質鉱物の有無を詳細に観察したものの、モンモリロナイトの変質により生成すると考えられる鉱物は同定されなかった。ナチュラルアナログ事例に関する調査では、平成 20 年度以降に公表された学術論文などについての文献調査を行い、5 件の重要事例を抽出して内容の調査を行うとともに、文献調査により、より処分場に近い変質環境である金属鉄と直接接触した鉱物の変質事例はほとんど報告されていないことが明らかとなった。そのため、金属鉄と圧縮ベントナイトが接触しているナチュラルアナログ事例に関する知見の拡充のため、月布ベントナイト鉱山の支保工と接触したベントナイト試料の分析を行った。その結果、処分場の環境として想定される低酸素条件で変質したと推定される試料であったものの、モンモリロナイトが変質して生成した鉱物は観察されず、また、支保工との接触界面を適切に維持した状態で試料を採取することが困難であると推測された。これらの分析結果は、本調査の目的である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や評価モデルの検証に使用する上で不十分であると考えられるため、今後、鉄遺物に接触していた土壌の変質などの金属鉄との接触による鉱物の変質などのナチュラルアナログ事例を調査し、分析を進める予定である。

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

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，1999b）。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る。このような原鉱石

のセメンテーションの状態の分析や諸特性の評価は、処分環境における緩衝材のセメンテーションの可能性やそれによる諸特性の変化の理解に役立つと考えられる。これまで、山形県大江町月布のベントナイト鉱床から採取した 1 番層、29 番層、31 番層の原鉱石、及び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。再構成試料は、粉砕処理によりセメンテーションの影響を除去したものである。）を対象として、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，2018；日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター，2019）。その結果、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ることが確認された。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唆する。既往の研究（伊藤ほか, 2017）においても、本研究とは供試体の作製方法が異なっているものの、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おり、本研究の傾向と整合的であった。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唆した。

平成 31 年度は、月布鉱山産ベントナイト原鉱石のセメンテーションを示唆する平成 30 年度までの結果を踏まえ、膨潤圧の低下などの要因の特定に役立てるため、電子顕微鏡などを用いて月布鉱山産ベントナイト原鉱石のセメンテーション状態の観察を行った。また、地層処分で想定されている環境条件、時間スケールでセメンテーションが生じる可能性を評価するための実験的研究手法について予備的な検討を開始した。このほか、セメンテーション状態への影響がコア抜き法に比べて小さいと考えられるトリミング法により作製した供試体を用いた場合の膨潤圧の試験データの拡充を行うとともに、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の検討に着手した。

(2) 実施内容

1) 月布鉱山産ベントナイト原鉱石のセメンテーション状態の観察

スウェーデンの Kinnekule 鉱床の天然ベントナイトについては電子顕微鏡による分析によりスメクタイト鉱物粒子の端部にシリカが析出している状態が観察されており、これがベントナイトの膨潤性を低下させる原因であると考えられている（Pusch and Madsen, 1995）。平成 30 年度までの月布鉱山産ベントナイトを対象とした研究においても膨潤性の低下が観察されており（日本原子力研究開発機構，2018；日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター，2019）、Kinnekule 鉱床の天然ベントナイトと同様なセメンテーションを被っていると考えられる。膨潤圧の低下などの要因の特定に役立てるため、電子顕微鏡などを用いて月布鉱山産ベントナイト原鉱石のセメンテーション状態の観察を行った。

① 分析試料および分析手法

山形県大江町月布のベントナイト鉱床は、新第三紀中新世後期（10Ma 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 を越える層のベントナイト層が確認されている（小林・伊藤，1992）。本研究では、モンモリロナイト含有率が異なる原鉱石を比較するため、クニゲル V1 の原料として使用されている 29 番層と 31 番層から採取された原鉱石、及びクニゲル 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使用し、各番層について原鉱石試料と再構成試料を作製している。

原鉱石試料は、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、月布鉱山の坑道壁面から比較的大きなブロックとして採取したものである。再構成試料は、粒径が 63 μm 未満

の粒子が 90%となるように粉砕機を用いて原鉱石を微細に粉砕して作製したものである。

本項目では、原鉱石試料と再構成試料について、それぞれ（1）乾式研磨薄片試料、（2）分散試料、（3）ウルトラミクロトームによる超薄切片試料を調製し、走査型電子顕微鏡（SEM；日本電子製 JSM-6500F）及び透過型電子顕微鏡（TEM；日本電子製 JEM2010）を用いて観察・分析を行った。

② 原鉱石試料の観察結果

ベントナイト原鉱石を構成しているモンモリロナイト粒子および粒界の組織を確認するために、研磨薄片試料を光学顕微鏡および走査型電子顕微鏡（SEM）によって観察した。しかしながら、研磨薄片試料の観察ではモンモリロナイト粒子の粒界が極めて不明瞭であるため、粒子の周囲がセメンテーションされているかどうかの判別が非常に困難であった。モンモリロナイト粒子表面に存在する二次鉱物を可視化するには、粒子とその周囲の二次鉱物が結合した状態を保持したまま、粒界で各粒子が分散した状態にする必要があると考えられる。そこで、原鉱石試料の一部を 25 μm 篩の上で軽く砕き、篩を通過した粒子を直下の TEM 用グリッド上に回収して分散試料とし、これらの微細粒子の表面に残存した二次鉱物の有無を観察した。観察した分散試料の状態を図 2.3-6 に示す。Cu 製の TEM 用グリッドには 100 μm ピッチで空孔があり、空孔の上に張られたアモルファスカーボン製の網上に微粒子が捕集されている様子が分かる。

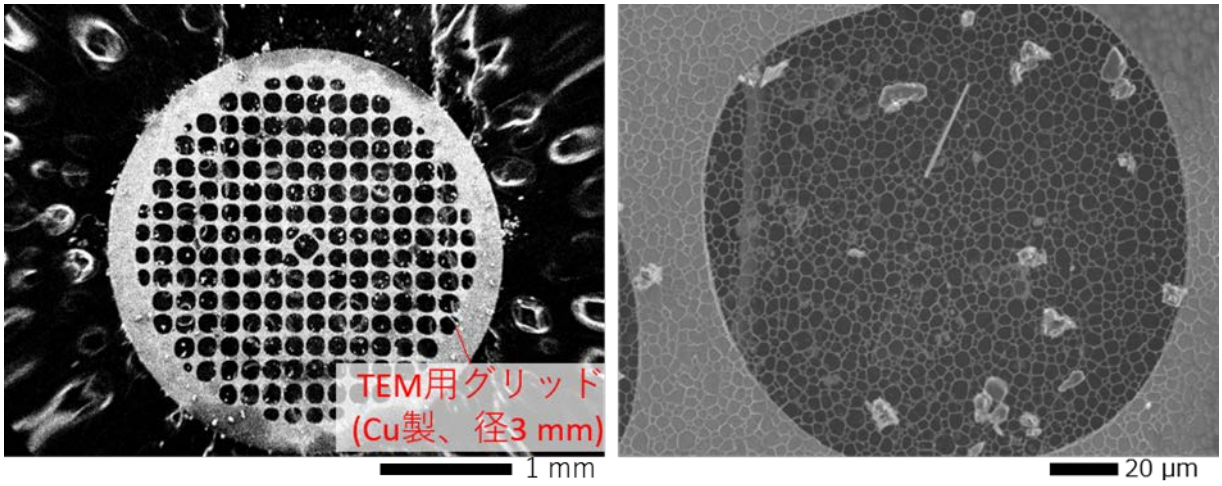


図 2.3-6　SEM 観察による分散試料の概観

分散試料の SEM 観察から、原鉱石試料は以下の 4 種類の粒子で主に構成されていることが分かった。（1）薄い葉片状のモンモリロナイト粒子の集合体、（2）細長い角柱状のモンモリロナイト粒子またはその集合体、（3）平滑な平板状のモンモリロナイト粒子、（4）より微細な粒状粒子の集合体。観察された代表的な各粒子の形態を図 2.3-7 に示す。これらの他に、微量ながらバライト（$BaSO_4$）の粒子も確認された。観察される粒子の数は（1）から（4）の番号順に少なくなる傾向を示す。また、（1）と（3）の粒子の境界は明確でなく、（3）はもともと（1）の粒子だったものが粉砕時に新鮮な剥離面を形成したものと考えられる。（1）～（3）については、特性 X 線による化学組成からモンモリロナイトであると推定したが、（4）については試料体積が非常に小さく化学組成の推定が困難であった。

このうち、最も主たる（1）平板状のモンモリロナイト粒子の集合体の中には、粒子の一部が Si に富んだ化学組成を示すものがいくつか見られた。Si に富む粒子の拡大像と特性 X 線スペクト

ルを図 2.3-8 に示す。粒子の右上側面が、細かな粒状の物質によって覆われている様子が見られる。粒子の平坦な部分（図 2.3-8(1)の(A)）と右上側面（図 2.3-8(1)の(B)）での点分析結果を比較すると、平坦な部分がモンモリロナイトを構成する Mg、 Al、 Si、O の特性 X 線ピークを示す一方で、側面は TEM 用グリッド成分である Cu と C を除く主要ば特性 X 線ピークは Si と O である。したがって、表面を覆っている物質は SiO_2組成だと推定される。ただし、SEM による観察のみでは、SiO_2組成の物質が非晶質シリカなのか、結晶質の石英なのかの判断が出来ないため、次に TEM による分散試料の観察を行った。

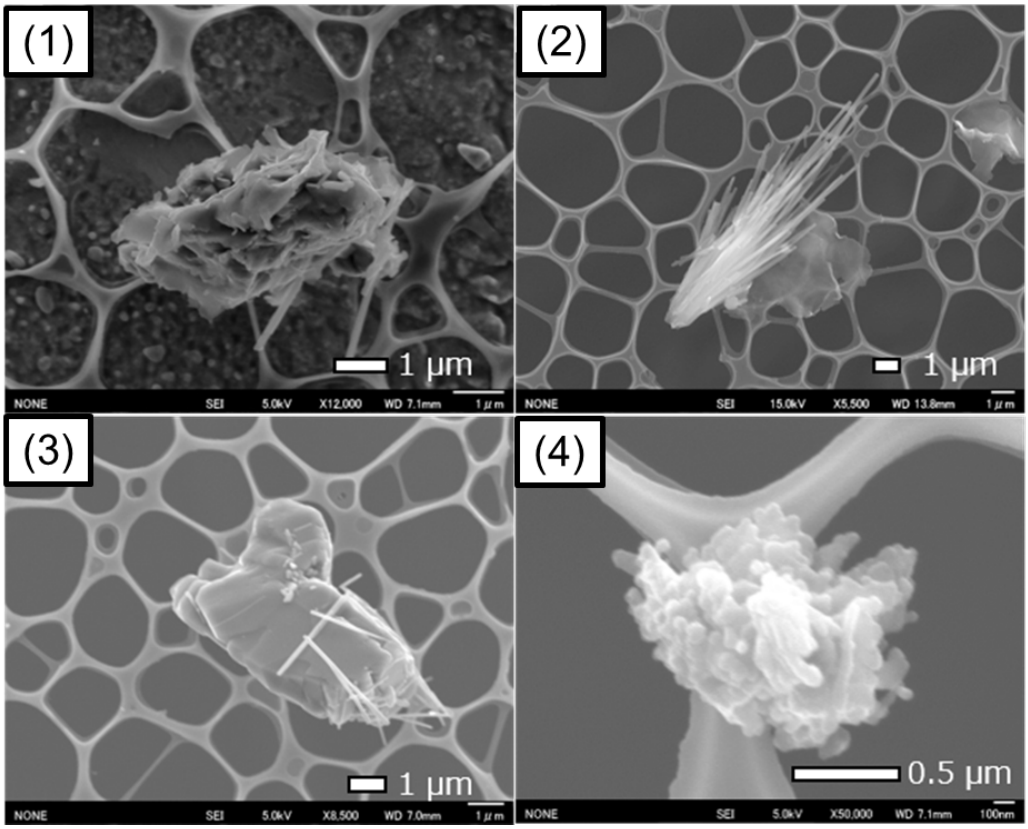


図 2.3-7　SEM で観察された代表的な粒子形態（原鉱石試料）

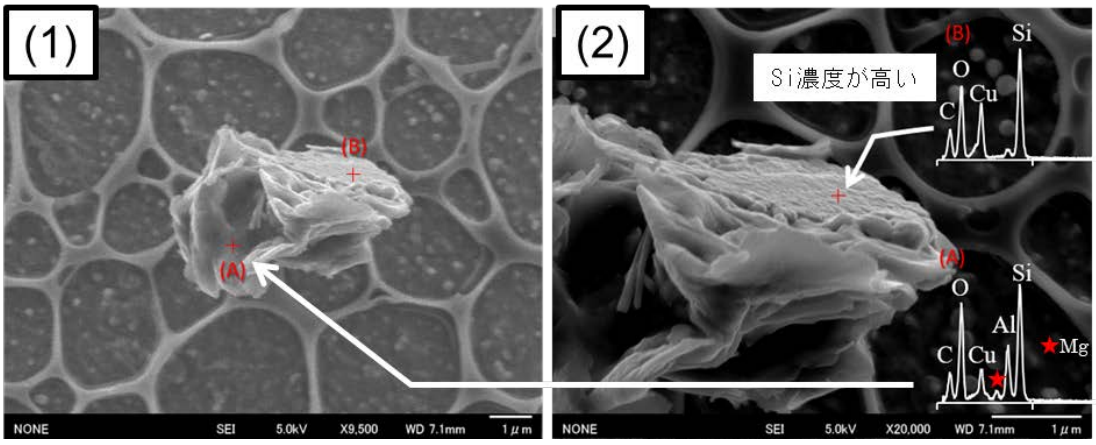
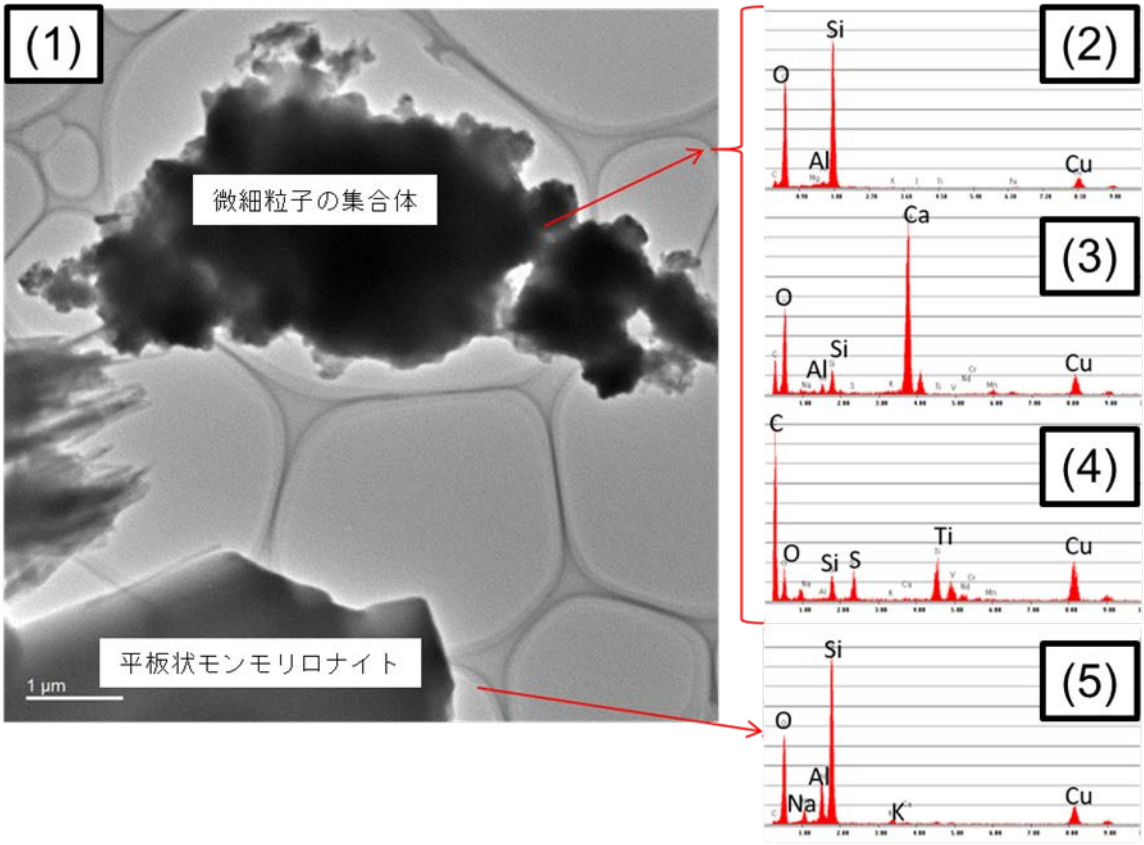


図 2.3-8　モンモリロナイト粒子表面の Si に富む部分の観察（原鉱石試料）
（★のピークは Mg）



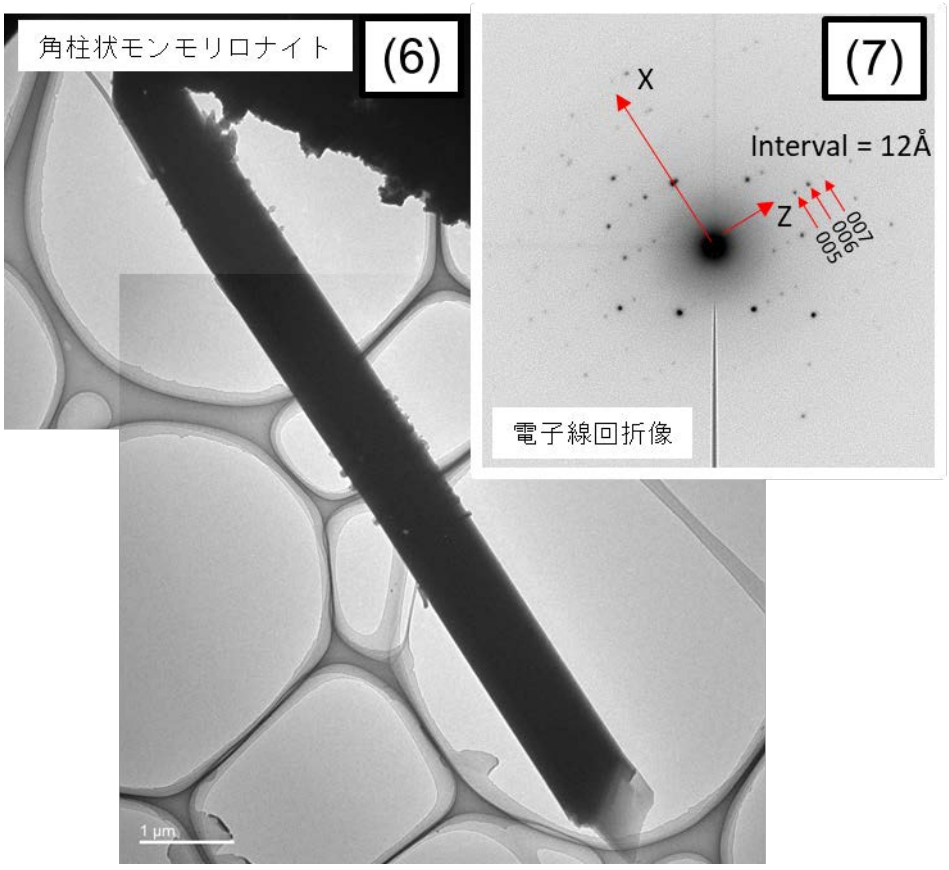


図 2.3-9　TEM による微細粒子の観察結果（原鉱石試料）

図 2.3-9 に TEM による分散試料の観察結果を示す。TEM 観察では平板状あるいは葉片状のモンモリロナイト粒子の端部に二次鉱物が結合している箇所を探索したが、その形態を呈する粒子は見つからなかった。立体的な構造を観察できる SEM では、モンモリロナイト粒子の表面が覆われている様子を確認できるものの、TEM による観察では観察に適した厚さをもつ場所が限られることが探索を困難にしている主な原因として挙げられる。引き続き、観察の試行回数を増やしてモンモリロナイト粒子と二次鉱物が結合した箇所を丁寧に探索する必要があると考えられる。図 2.3-7(4)に示したような微細な粒状粒子の集合体を TEM で観察した結果、図 2.3-9(2)～(4)に示す通り、微細粒子の集合体は一様な化学組成をしておらず、SiO_2、炭酸塩、有機物、硫酸塩あるいは硫化物組成の物質が凝集している様子が確認された。また、図 2.3-9(6)に示す細長い角柱状の粒子は 12 Å 周期の 00ℓ 反射に対応する制限視野電子回折パターン（図 2.3-9(7)）を示すことから単結晶のモンモリロナイト粒子であることが分かった。粒子の伸長方向と垂直に積層していること、電子線に弱く数秒で非晶質化すること、分析領域が狭いために組成分析中の Na の拡散の影響が強く Na の特性 X 線のピークがほとんど確認されないことが平板状モンモリロナイト（図 2.3-9(1)）と異なる特徴として挙げられる。

③ 再構成試料の観察結果

再構成試料についても原鉱石試料と同様に分散試料を調製し、SEM による観察を行った。図 2.3-10 に再構成試料を構成する粒子の代表的な形態を示す。原鉱石試料にみられた細長い角柱状モンモリロナイト粒子（図 2.3-7(2)）はほとんど見られなかった。これは粉砕されやすい粒子形態であったため、葉片・平板状の粒子と比較してより細かく粉砕されて取り除かれたことが考えられる。また、微細な球状粒子の集合体（図 2.3-7(4)）もほとんど観察されず、同様の理由が考えられる。また、図 2.3-10 の(1)に示すような平滑な面をもつモンモリロナイト粒子が、原鉱石試料と比べて多く観察される傾向が見られた。再構成試料を作製する過程で新鮮な剥離面が形成されたことが考えられる。

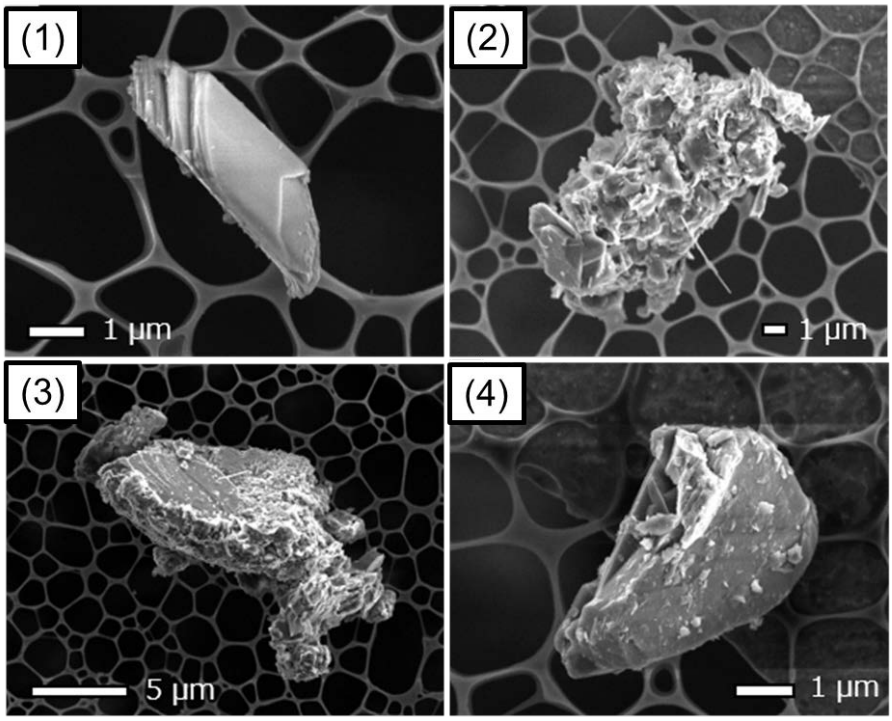


図 2.3-10　SEM で観察された構成粒子の代表例（再構成試料）

2) ベントナイトのセメンテーションに関する実験的研究手法の検討

本項目では、地層処分で想定されている環境条件、時間スケールでセメンテーションが生じる可能性を評価するため、加速的な溶液通水実験や変質試験などを用いた実験的研究手法を検討する。平成 31 年度は、圧縮ベントナイトに溶液を通水してセメンテーションした供試体を作成する前に、粉末状のベントナイトと溶液を反応させて、新しく沈殿相が生成して粉末試料が固化するか否かを検討した。

① 試料および実験手法

本実験では、月布鉱山産ベントナイト原鉱石試料（29 番層）を粉砕し篩を用いて粒径 53 μm 以上 75 μm 以下に分級した粉末状の試料を用いた。この粉末ベントナイト試料 4 g に対し、40 mL の水酸化マグネシウム水溶液（水酸化マグネシウム試薬をイオン交換水に浸漬させ上澄み溶液を分離したもの）を加えて、バッチ式変質実験を行った。60 °C に設定した恒温器の中で静置し、5 日間後に取り出して固液分離を行い、以下の分析を行った。

② 分析手法

溶液分析として、pH 測定および誘導結合プラズマ発光分析（ICP-AES）を行った。pH は、堀場製作所製の pH 電極（9625-10D）および pH メータ（LAQUAct D-74）を用いた。ICP-AES では、島津製作所製の ICP 発光分析装置（ICPE-9000）を用いて主要溶存元素の濃度を測定した。標準液（ICP multi-element standard solution IV, Merck KGaA; Silicon Standard Solution, 富士フィルム和光純薬）を用いて検量線を引くことで濃度の評価を行った。

固体分析としては、粉末 X 線回折（XRD）分析を行った。XRD 分析では、Cu 管球を有するリガク製 X 線回折装置（RINT-2100）を用い、その電圧・電流は 30 kV および 20 mA で設定した。実験前と実験後のベントナイト試料をメノウ乳鉢で粉砕し、2～70 ° 2θ をスキャンスピード 1 °/min で不定方位測定を行い、鉱物同定を行った。また、粉末試料 10 mg にイオン交換水 200 μL を加えて作製した懸濁液をスライドガラスに塗布し、2～40 ° 2θ をスキャンスピード 1 °/min で定方位測定を行い、層状ケイ酸塩鉱物の底面反射を評価した。

一方、鉱物粒子の形態観察のため、走査型電子顕微鏡（SEM; JEOL 製 JSM-6500F）を用いた。実験後の鉱物粒子の形状を保つため、乾式研磨法（大和田ほか, 2014）によって研磨片を作製し、粒子の断面を、カーボン蒸着を施して観察した。また、SEM の加速電圧は 10 kV に設定し、必要に応じて付属のエネルギー分散型 X 線分析（EDS）装置を使用して観察した鉱物粒子の化学組成を得た。

③ 分析結果

溶液分析の結果を表 2.3-1 に示す。初期溶液である水酸化マグネシウム水溶液は pH10.50 であり溶存 Mg の濃度は、～8 mg/L であった。実験後溶液の pH（～10）と溶存 Mg 濃度（～3.5）は、初期溶液よりも低下した。また実験後溶液では、溶存 Na、 Si、 Al の濃度が他元素に比べて比較的高い値を示した。

表 2.3-1　pH および主要溶存元素濃度の測定結果

溶液試料	pH	Al (mg/L)	Ca (mg/L)	Fe (mg/L)	K (mg/L)	Mg (mg/L)	Na (mg/L)	Si (mg/L)
初期溶液	10.50	-	-	-	-	8.12	-	-
実験後溶液	9.96	21.7	2.95	4.26	2.22	3.49	135.0	48.6

不定方位 XRD 分析の結果（図 2.3-11）より、本実験に使用したベントナイト試料は、スメクタイト（モンモリロナイト）、クリノプチロル沸石、石英から構成されており、これは横山ら（2004）における分析結果に整合的であった。この鉱物組み合わせは本実験の前後では変化はなかった。また定方位 XRD 分析を行うと、スメクタイト（モンモリロナイト）底面反射が強調された回折図形が得られた（図 2.3-12）。スメクタイトの一次反射は、実験前後いずれの試料も、12.5 Å に記録されており、これは Na 型モンモリロナイトの膨潤挙動（層間に水分子層が一層形成されている状態）に一致している（佐藤，1996）。

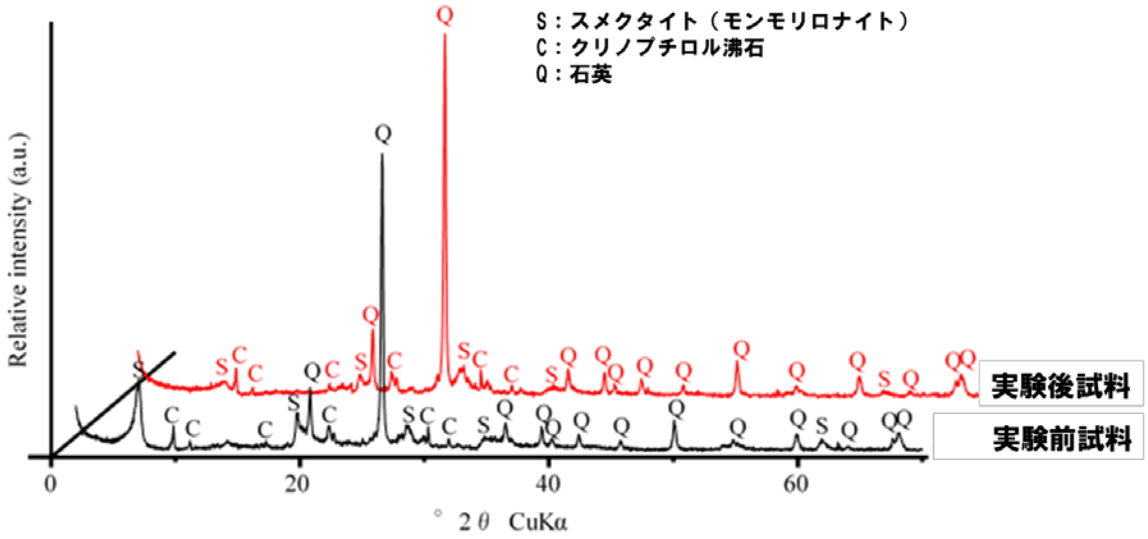


図 2.3-11　実験前試料と実験後試料の不定方位 XRD パターン

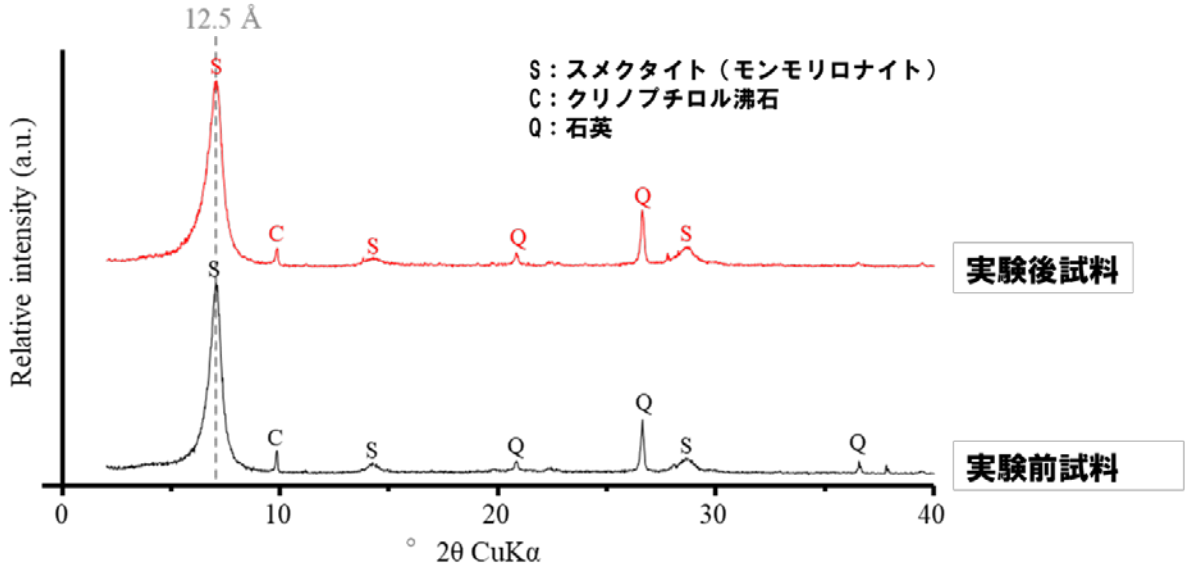


図 2.3-12　実験前試料と実験後試料の定方位 XRD パターン

実験後の固体試料は粒子どうしが固結され塊状になっており、その形状を保持したまま断面を作製し、SEM-EDS で観察した。Na、 Al、 Si、 O からなる層状粒子の凝集体（図 2.3-13）や、Si、 O からなる粒子の内部や表面が Na、 Mg、 Al、 Si、 O からなる物質で埋められている様

子が観察できた（図 2.3-14）。

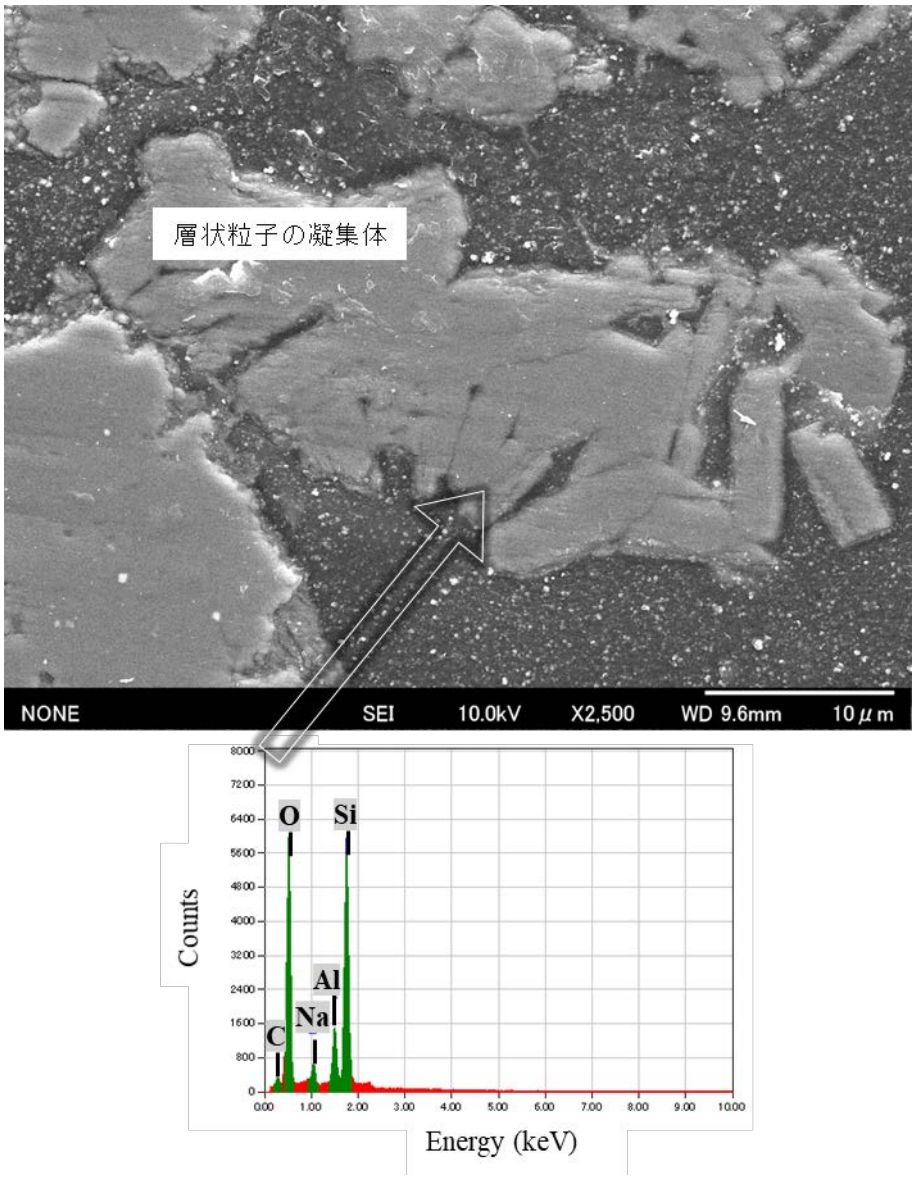


図 2.3-13　SEM での観察粒子とその EDS スペクトル ①

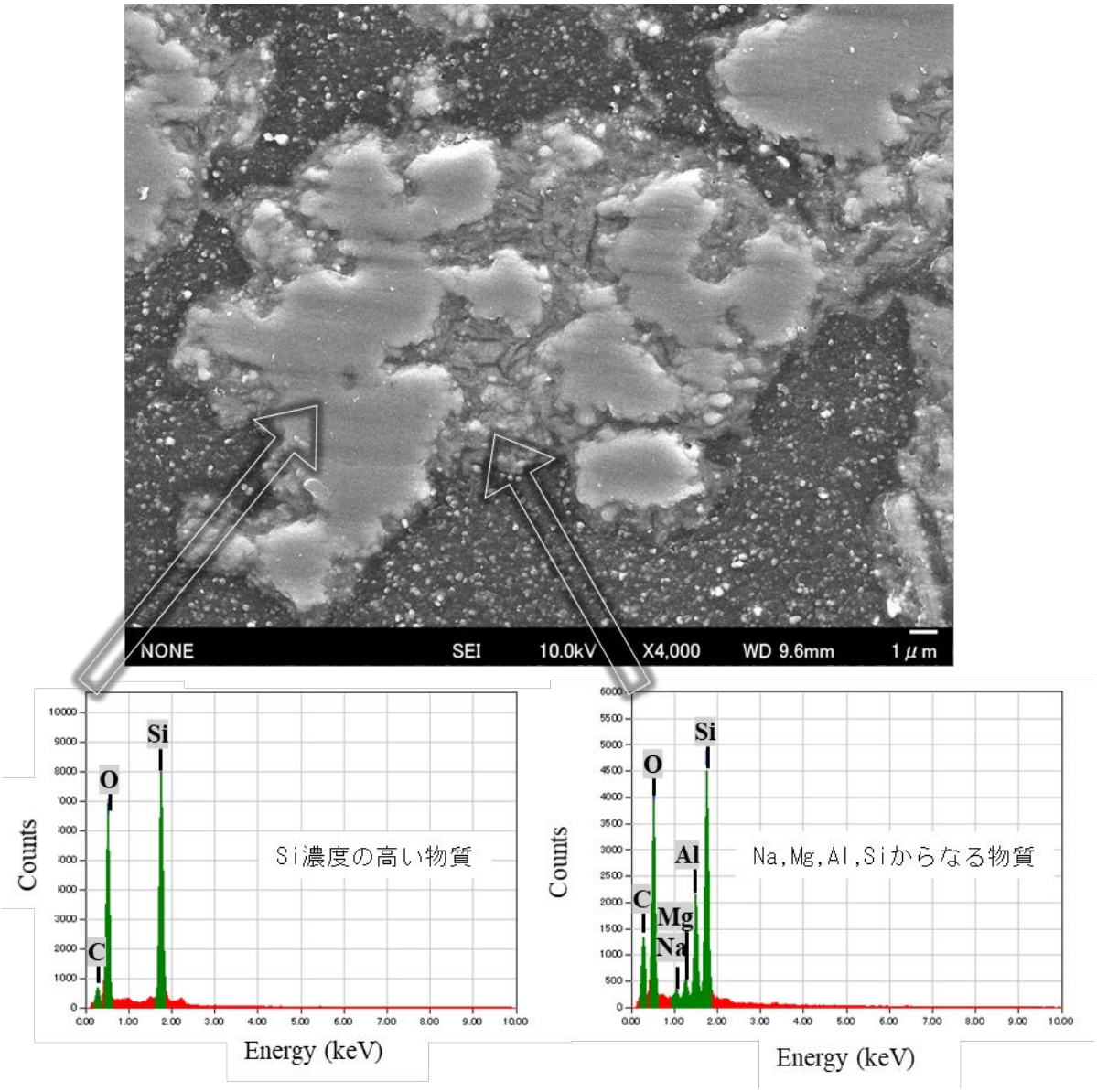


図 2.3-14　SEM での観察粒子とその EDS スペクトル ②

以上の分析結果から、粉末ベントナイトが新しく生成した Mg を含むシリケート相によってセメンテーションされていることが示唆される。実験前後で溶液中の溶存 Mg 濃度は 1/2 以上減少しており（表 2.3-1）、Mg が液相から固相へ移動したことがわかる。ここで固相中での Mg の行き先として考えられる一つは、ベントナイトの鉱物組成（図 2.3-11）より、スメクタイト（モンモリロナイト）の層間陽イオンとのイオン交換である。しかし、スメクタイトの XRD における底面反射の回折ピークは実験後も Na 型モンモリロナイトと同じ位置にあった（図 2.3-12）ことから、主なスメクタイトの層間陽イオンは、反応後も Na イオンであったと考えられる。実際に実験後の固体試料は粒子どうしが Mg を含むシリケートで固結されていたことも踏まえると、Mg はその沈殿相の生成に消費されているものと考えられる。

また、SEM 観察では、シリカ粒子（その反応性から非晶質シリカと考えられる）の一部が溶解し、その空隙が Mg を含むシリケートの二次的な沈殿形成により充填されている様子がうかがえる（図 2.3-14）。したがって、飽和水酸化マグネシウム溶液とベントナイトの非晶質シリカの反応

によって生成したこの二次相がセメンテーションに寄与していると考えられる。図 2.3-13 に示される層状粒子の凝集体は、1)で示した電子顕微鏡観察結果からも推察できるように、Na 型モンモリロナイトであると同定できる。このようなモンモリロナイト粒子に関しては、試料中で多く観察されたものの、図 2.3-14 のような粒子の溶解と二次的なフェーズによる沈殿は認められなかった。

以上の通り、水酸化マグネシウム溶液とベントナイト中のシリカ粒子の反応によりセメンテーション物質である Mg シリケートの二次相を沈殿させることが可能であることが確認できた。バッチ式変質実験でセメンテーションが観察されたのはシリカ粒子周辺のみであるが、溶液を通水する条件の場合、Mg シリケートのソースとなる溶存成分を供試体中に移行させることができるため、モンモリロナイト粒子周辺を含む供試体の間隙中により均一なセメンテーションを生じさせることができることが期待される。平成 31 年度の成果を踏まえ、溶液通水実験の具体化を進める。

3) 原鉱石試料及び再構成試料を対象とした基本特性データの取得

本項目では、平成 30 年度までの供試体の作製方法とは異なる方法を用いた場合の膨潤圧の試験データの拡充を行うとともに、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の検討に着手した。また平成 31 年度は、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、標準圧密試験を開始した。

③ 膨潤圧試験

平成 30 年度までは、ブロック状の原鉱石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たのち、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て得た試料の表面を研磨機で研磨して供試体表面の高さをそろえて、膨潤試験用供試体を作製していた。一方、伊藤ら（2017）は、トリミングにより原鉱石から任意の寸法に成型した供試体を用いた試験を実施しており、本研究とは供試体の作製方法が異なる。

そこで本検討では、供試体作製方法の違いによる影響を検討するため、29 番層の原鉱石に対してトリミングにより供試体を作製し、膨潤圧試験を実施した。ここで、膨潤圧試験とは供試体の体積を拘束した状態で給水し、その際に生じる膨潤圧を測る試験である。図 2.3-15 に供試体作製に用いた供試体成型器を示す。供試体作製手順は、まず手動のワイヤーソーを用いて原鉱石を供試体寸法の数倍程度の大きさに切断する。厚さ 10 mm、直径 50 mm のカッターリングなどを取り付けた供試体成型器に原鉱石を置き、ピストンを押し下げながら直ナイフを用いて試料の側面を削り、徐々にカッターリング内に入れる。最後にカッターリングの上下からはみ出た部分を削り、直径 50 mm、高さ 10 mm の供試体を作製した。本検討では合計 3 試料作製し、膨潤圧試験を実施した。

図 2.3-15　供試体成型器およびトリミングに用いた器具

図 2.3-16 に膨潤圧の経時変化を示す。後述の多段階圧密試験において測定したコア抜きにより作製した 29 番層原鉱石供試体の膨潤圧も示す。コア抜きにより試料を作製する方法で実施した場合の膨潤圧とトリミングにより試料を作製する方法で実施した場合の膨潤圧には大きな差異はないことがわかる。このことから、供試体作製方法の違いにより、生じる膨潤圧に顕著な違いはないものと考えられる。

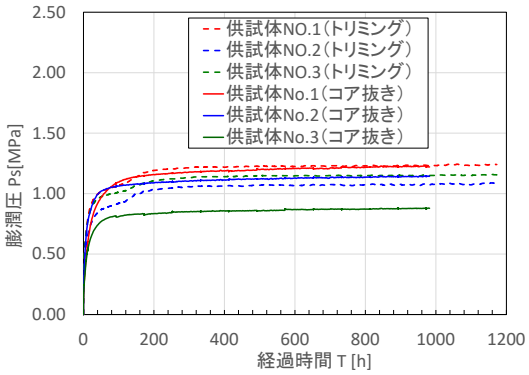


図 2.3-16　膨潤圧の経時変化

④　標準圧密試験

セメンテーションによる緩衝材基本特性の変化に関して、膨潤性・透水性に加えて剛性への影響に関するデータ取得を開始した。剛性への影響に関しては、原鉱石と再構成試料に対する標準圧密試験を実施し、両者の違いを分析する。月布鉱山の 29 番層の原鉱石を対象に、原鉱石および再構成試料それぞれ 3 試料に対して標準圧密試験を開始した。なお、原鉱石試料はダイヤモンドビットを用いて直径 60 mm の円柱状にコア抜きすることで供試体を作製した。また、平成 30 年度までに実施した膨潤圧・透水試験で用いた 29 番層の原鉱石の乾燥密度は 1.55～1.63 Mg/m^{3}程度であったため、再構成試料の締固め時の目標乾燥密度は、1.6 Mg/m^{3}とした。図 2.3-17 に標準圧密試験装置概略を示す。標準圧密試験では、まず体積拘束状態で給水し、膨潤圧を測定する。膨潤圧が一定となったら飽和したと仮定し、最大 19.6 MPa まで 8 段階に分けて載荷し、4 段階に分けて除荷、4 段階に分けて再載荷を行う。図 2.3-18 に膨潤圧の経時変化を示す。原鉱石および再構成試料の平衡膨潤圧は約 1 MPa であった。また、原鉱石の膨潤圧は時間の経過に対して単

調に増加しているが、再構成試料の膨潤圧は一度増加した後変化がなだらかになり、その後再度増加している。これらの違いは、セメンテーションの有無によって生じている可能性や、粉末試料を締め固めた際に生じる供試体内部の密度分布の影響によって生じている可能性などが考えられる。しかしながら、試験中の供試体内部の水分分布や密度分布などの状態変遷を把握することができないため、このような違いが生じる原因は明らかにされていない。そのため、これらの違いが生じる原因を明らかにするためには、まずは試験中の供試体内部の状態変遷を把握する技術を開発することが重要と考える。そこで、平成 31 年度からエックス線 CT 測定による膨潤圧試験中の供試体内部の観察を試みている。この成果については、2.4.2 にて後述する。

図 2.3-19 に現在までに得られている体積ひずみと載荷圧の関係を示す。体積ひずみは圧縮を正としている。再構成試料は 19.6 MPa まで載荷が終了、再構成試料は 9 MPa まで載荷が終了している。載荷圧の増加に対して、原鉱石の方が体積ひずみの増加量が小さく、剛性が高いことがわかる。これについては、セメンテーションの影響により剛性が高くなっている可能性のほかに、初期乾燥密度の違いによる影響などが考えられるため、今後は、試験後試料の乾燥密度測定の実施や試験データの拡充などにより剛性への影響の理解を進める予定である。

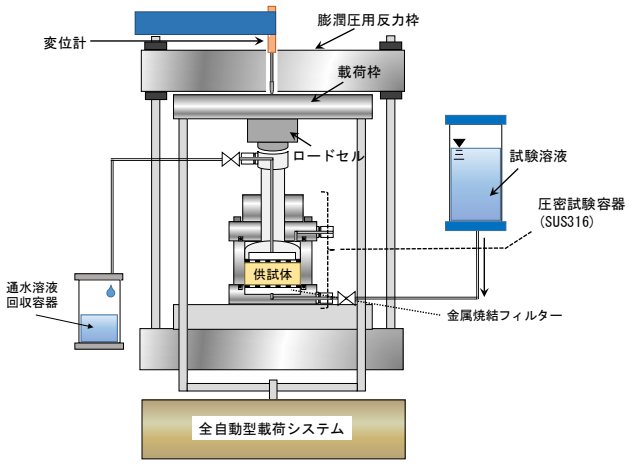
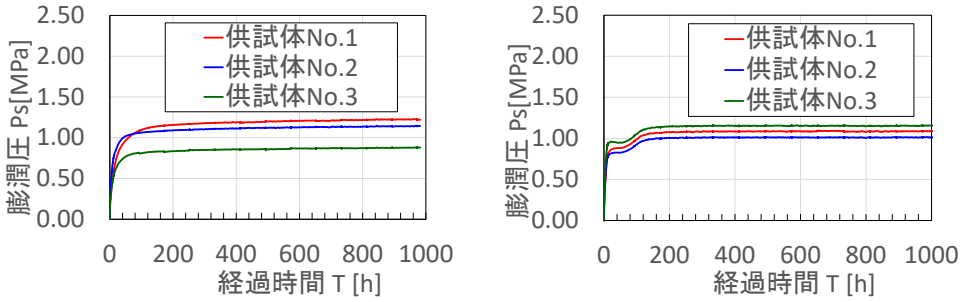


図 2.3-17　標準圧密試験装置概略



（a）原鉱石　　（b）再構成試料

図 2.3-18　膨潤圧の経時変化

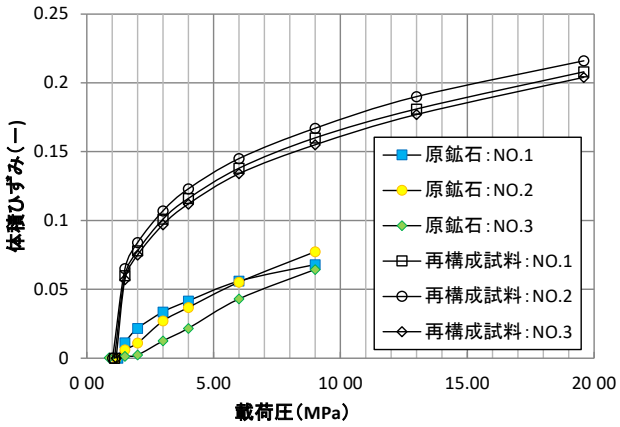


図 2.3-19　体積ひずみ（圧縮が正）と載荷圧の関係

(3) 2 か年の成果と今後の課題

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存の手法を用いて、山形県月布のベントナイト鉱床の原鉱石および再構成試料を対象とした膨潤圧・透水試験・標準圧密試験を実施してきた。セメンテーションの影響を受けていると推察される原鉱石については、圧縮ベントナイトと比べて平衡膨潤圧は低下し､剛性は増加するという傾向が認められたが､透水性は変化が認められなかった。剛性への影響について、今後、試験後試料の乾燥密度測定などにより、より詳細に検討していくとともに、試験データの拡充により剛性への影響の理解を進める予定である。

このような原鉱石および再構成試料の基本特性の違いの要因を特定するため、平成 31 年度より電子顕微鏡などを用いた観察・分析を開始した。今後、構成粒子の膨潤性の違いなど、観察・分析データを蓄積し、セメンテーション状態と基本特性の関係の考察を行う予定である。

また、地層処分で想定されている環境条件、時間スケールでセメンテーションが生じうるのか、セメンテーションの影響が長期的に持続するのかを評価するための実験的研究手法の検討に着手した。今後、溶液通水試験や長期の膨潤圧試験などを利用したデータ取得を進める予定である。

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。

このような背景のもと、平成 30 年度は、FEBEX プロジェクトにおける原位置試験において、廃棄体を模擬したヒーターを発熱させた 5 年間の試験期間を対象とした THM 連成解析を実施した。そして、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、廃棄体を模擬したヒーターを内蔵したキャニス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ることを確認した。また、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の評価手法を確立することを目的として、緩衝材中への海水の浸潤試験を想定した予察解析を実施し、地球化学解析と水理解析を連成させることによって、透水係数の塩濃度依存性を考慮した解析手法の整備を行った。また、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を考慮することなど、より精緻な浸潤解析が可能であることを示した。さらに、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て、長期力学挙動解析コード MACBECE に対して、過渡期の緩衝材の力学的な状態変化を解析する機能を追加した。

平成 31 年度は、FEBEX プロジェクトにおける原位置試験の試験開始から 5 年間以降の約 13 年間の計測データおよび幌延深地層研究計画におけるオーバーパック腐食試験での計測データを対象とし、これらの再現解析を通じて連成解析モデルの適切性の確認を実施した。これらの成果については 2.4.1 項で述べる。過渡期のニアフィールドで生じると考えられる連成現象に係る相関マトリクスにおいて、2.4.1 項で検討の対象とする領域を図 2.4-1 に示す。

また、2.4.2 項では、平成 30 年度に改良した MACBECE を用いて、過渡期から 10 万年後までの処分施設を対象とした長期力学解析を実施し、過渡期の処分施設の各材料及び周辺岩盤の力学的な相互作用を考慮したニアフィールドの長期力学挙動評価を実施した。さらに、過渡期の力学挙動がひずみ、透水係数分布などの処分施設の力学及び水理的な長期の状態変遷に与える影響を分析した。さらに、過渡期の緩衝材の力学モデルの高度化に向けて、緩衝材の膨潤挙動の現象理解の促進や解析コードの検証データの取得を目的として、エックス線 CT 測定による膨潤圧試験中の供試体内部の観察を試みた。

一方、2.4.3 項で述べる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では、これまで、過渡期の応力変化や密度変化などの力学挙動、それに伴う透水性や核種移行に関係する特性の変化などの理解や関連するデータ取得に向けてのアプローチの検討のひとつとして、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に着目し、粗視化メソスケール分子動力学モデルの開発を行ってきた。平成 30 年度までの粘土含水系のメソ MD 解析についての取り組み（日本原子力研究開発機構, 2018；日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019）では、モンモリロナイト粘土分子の単位構造とそこに水和された間隙水を一つの粗視化粒子で表し、粗視化粒子間の相互作用力は全原子 MD 計算の結果から与えている。この方法により、指定された温度、圧力で圧縮したときに生じる粘土含水系の凝集挙動を調べることができること、また、メソ MD 解析で得られた粘土含水系の組織構造モデルを用いて拡散や変形解析を行い、微視的多孔質構造を考慮したマクロ拡散係数や弾性係数の評価が可能であることを示してきた。平成 31 年度は、メソ MD 解析の結果として得られる粘土含水系の組織構造の特徴を、実測可能かつ物理的な意味が明確な物理量（マクロ物性など）として定量的に評価する手法の開発に着手した。

2.4.1 項～2.4.3 項に平成 31 年度の実施内容と成果を記す。

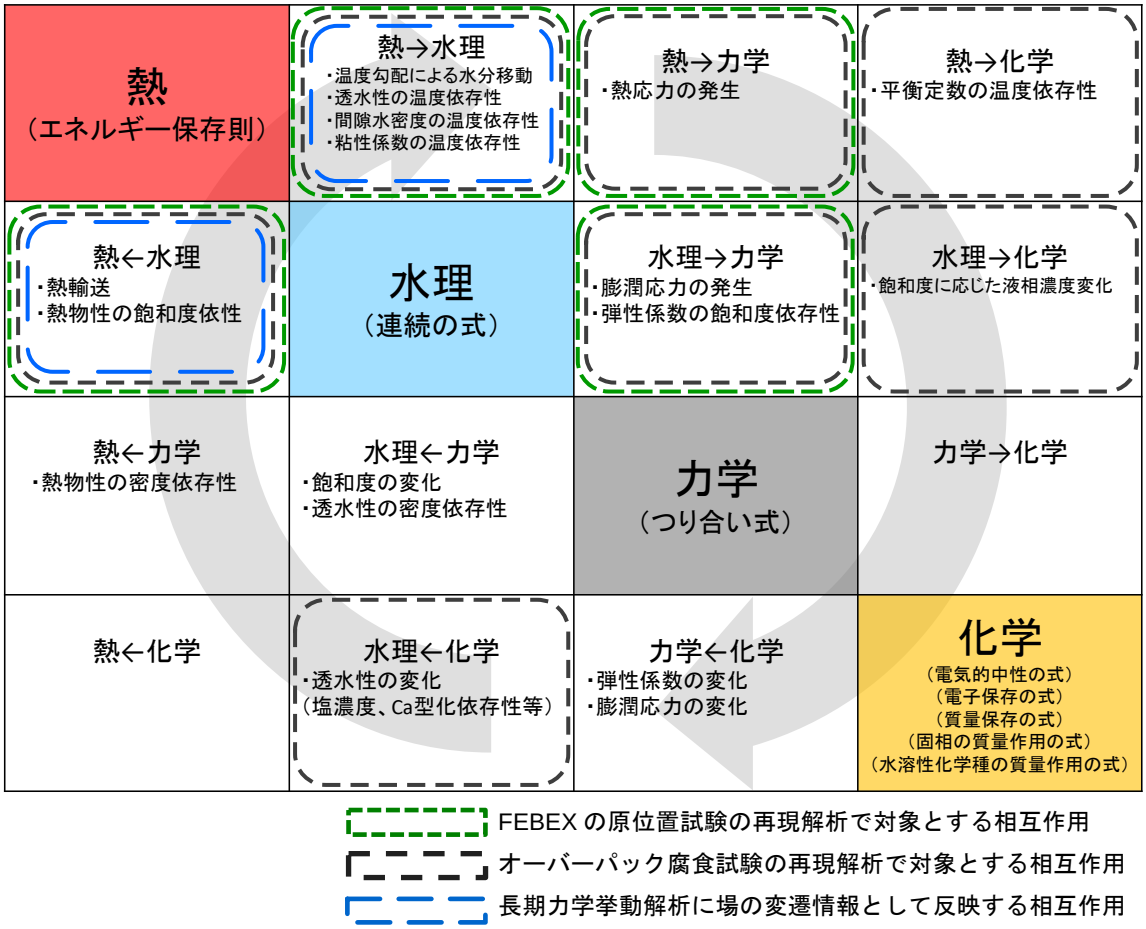


図 2.4-1　過渡期における THMC 連成マトリクスと本事業で取り組む課題

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

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では、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、鉱物の溶解沈澱など）が相互に影響を及ぼし合う連成現象が生じると考えられている。これまで、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、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；2012；2013；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（日本原子力研究開発機構, 2016a；2017）。

本事業では、これまでに開発した連成解析モデルの正確性を確認することを目的として、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）を対象とした再現解析を実施する。ここでは、緩衝材への地下水の浸潤が進んだ 19 年間の試験期間の解析評価を通じて THM 連成解析モデルの検証を行うとともに、様々な処分概念や設計オプションに柔軟に対応できる解析手法構築の観点からも、これまでに評価実績の少ない廃棄体横置き方式の人工バリア仕様や、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、原位置試験で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化学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。他方、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ことが求められている。

そこで、平成 30 年度は、FEBEX プロジェクトにおける原位置試験において、廃棄体を模擬したヒーターを発熱させた 5 年間の試験期間を対象とした THM 連成解析を実施した。そして、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、廃棄体を模擬したヒーターを内蔵したキャニス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ることを確認した。また、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の評価手法を確立することを目的として、緩衝材中への海水の浸潤試験を想定した予察解析を実施し、地球化学解析と水理解析を連成させることによって、透水係数の塩濃度依存性を考慮した解析手法の整備を行った。また、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を考慮することなど、より精緻な浸潤解析が可能であることを示した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター，2019）。

平成 31 年度は、FEBEX プロジェクトにおける原位置試験を対象とした THM 連成解析モデルの検証として、平成 30 年度に実施した試験開始から 5 年間の評価を含めて、その後の約 13 年間の解析を実施し、全試験期間である 19 年間を評価の対象とした。そして、全応力、相対湿度、温度に関する原位置の計測データや、緩衝材のサンプリング試料から得られたデータなどを活用して THM 連成解析モデルの妥当性の確認を行った。一方、THMC 連成解析モデルの検証については、緩衝材に幌延 URL 周辺の地下水と同程度の NaCl 濃度の溶液を浸潤させる実験結果に基づき、上述した透水係数の塩濃度依存性を考慮した解析手法により、海水系地下水に対する不飽和水理パラメータを取得した。そして、取得したパラメータを用いてオーバーパック腐食試験を対象とした再現解析を実施した。本解析では、廃棄体を模擬したヒーターを発熱させた高温条件下において、緩衝材の随伴鉱物である黄鉄鉱による酸素の消費と、コンクリート支保の影響を受けた地下水の浸潤にともなう緩衝材の間隙水化学に着目した。さらに、オーバーパック腐食試験で得られている間隙水 pH などの計測データとの比較を通じて THMC 連成解析モデルの再現性を確認した。

(2) 実施内容

1) FEBEX プロジェクトにおける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 背景と目的

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。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 et al., 2005）。この THM 連成解析モデルの信頼性を確認するため、平成 30 年度に引き続き FEBEX プロジェクトにおける原位置試験を対象として再現解析を実施する。FEBEX プロジェクトにおける原位置試験は、スペインの結晶質岩における処分形態に従い、スイスのグリムゼル試験場において、廃棄体を模擬したヒーターを収納した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仕様で実施されている。この試験は、1997 年から 2015 年までの約 19 年間にわたって行われており、試験開始からの約 5 年間は 2 台のヒーターによる加熱を行っている。その後 1 台のヒーターの加熱を停止し、停止したヒーターとその周辺の緩衝材の取り出しを行った後、残り 1 台のヒーターによる加熱試験を約 13 年間実施している（ENRESA, 2000）。

平成 30 年度は、図 2.4-2 に示すように、1997 年 2 月 27 日に 2 台のヒーターの加熱を開始してから、2002 年 2 月 28 日に、その内の 1 台のヒーターの加熱を停止し、キャニスターとその周辺の緩衝材の取り出しが終了するまでの期間を含む約 5 年間の評価を実施した。この期間は、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た状態であり、したがって、THM 連成解析モデルの検証としては、緩衝材への地下水の浸潤が比較的進んでいない不飽和状態の範囲に対してのものとなっている（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター，2019）。

平成 31 年度は、緩衝材中への地下水の浸潤がより進んだ状態までを評価するために、原位置試験の全試験期間である 19 年間を対象とした。そして、原位置試験で得られた計測データ及び緩衝材のサンプリング試料から取得した水分分布に関する測定結果との比較を通じて THM 連成解析モデルによる再現性を確認した。この FEBEX プロジェクトにおける原位置試験を対象とし

た THM 連成解析で考慮する相互作用は、図 2.4-1 の連成マトリクスに示した通りである。このうち、力学からの熱及び水理への作用については、膨出などによる緩衝材の大幅な密度低下は生じないと考えられること、緩衝材の物性値として、熱物性などの密度依存性に関するデータが得られていないことなどから、本解析においては、力学的な挙動の帰結として緩衝材の熱特性及び水理特性への影響は考慮していない。

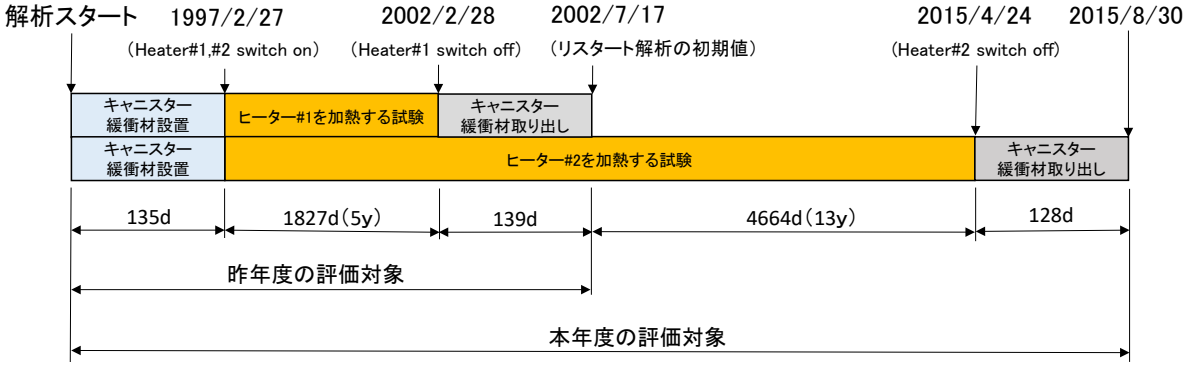


図 2.4-2 FEBEX の原位置試験のスケジュールと解析評価範囲

② 解析条件

図 2.4-2 で示したように、試験開始からの 5 年間は 2 台のヒーターを加熱する試験を、その後の約 13 年間は、1 台のヒーターを加熱する試験を実施している。そして、図 2.4-3 に示すように、試験開始から 5 年後には、加熱を停止したヒーター#1 を内蔵したキャニスターとその周辺の緩衝材及びコンクリートプラグを取り出し、新たにショットクリートのプラグを設置している。図中のダミーとは、キャニスターの一部が残留したものである。このような、試験レイアウトの変更に対応するため、試験開始からヒーター#1 を内蔵したキャニスター及びその周辺の緩衝材を取り出すまでの試験条件を対象とした解析結果を初期条件とし、新たに設置されるショットクリートプラグを考慮したリスタート解析により、その後の 1 台のヒーター#2 を加熱させる 13 年間の解析を行うことで 19 年間の全試験期間の評価を実施した。

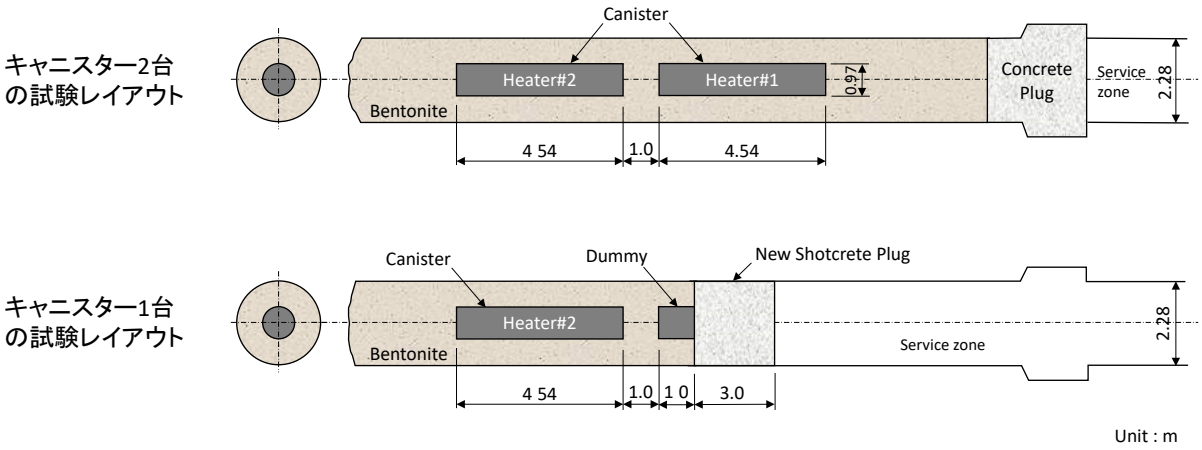


図 2.4-3 FEBEX プロジェクトにおける原位置試験レイアウト

解析メッシュモデルの概要を図 2.4-4 に示す。岩盤、緩衝材、コンクリートプラグ、ショットクリートプラグ、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について、原位置

試験の形状から坑道を中心に左右対称とみなした 1/2 の体系により、試験開始から 5 年後のまでの 2 台のキャニスターを配置した試験レイアウトでは、節点数 45,921、要素数 39,808 で、5 年後以降の 1 台のキャニスターを配置する試験レイアウトでは、節点数 37,179、要素数 31,888 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。

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（全水頭 80 mH_2O）での固定境界、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_2O 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。力学的境界条件については、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。また、キャニスター2 台から 1 台に試験レイアウトが切り替わる際のリスタート解析における温度及び圧力水頭については､キャニスター及びその周辺の緩衝材を取り出した 2002 年 7 月 17 日時点の値を初期条件として用いた。新たに設置されるショットクリートプラグの温度は 12 °C、圧力水頭については飽和を仮定して 0 mH_2O とした。一方、応力については、試験レイアウトの変更にともなうコンクリートプラグ及び緩衝材の撤去によって応力が解放されたことにより、緩衝材中の応力に関する計測値は、大きく低下する結果となっている（NAGRA, 2016a）。現時点での THAMES では、モデル構成要素の剛性を低下させるなどの方法によって、応力開放を表現する手法が整備されていないため、応力に関する評価については、リスタート解析ではなく、キャニスター2 台を配置する試験レイアウトのモデルを用いて、5 年後にヒーター#1 の加熱を停止する方法で 19 年間の評価を行った。

THAMES における水移動の支配方程式を下式に示す。

$$-\frac{\partial}{\partial x_i}\left\{\xi\rho_l k_r \frac{\partial\theta}{\partial x_i} + (1-\xi)\frac{\rho_l g\kappa}{\mu_l}\frac{\partial(\Psi+z)}{\partial x_i} + \rho_l D_T \frac{\partial T}{\partial x_i}\right\} + \frac{\partial}{\partial t}(\rho_l n S_r) = 0 \qquad (2.4\text{-}1)$$

ここに、ξ：不飽和パラメータ（飽和で0、不飽和で1）、ρ_l：液相密度、k_r：比透水係数、θ：体積含水率、κ：固有透過度、Ψ：圧力水頭、z：位置水頭、μ_l：液相粘性係数、g：重力加速度、D_T：温度勾配水分拡散係数、T：温度、n：間隙率、S_r：飽和度である。左辺第一項、第二項は、全水頭勾配による水の移動効果、左辺第三項は、温度勾配による水の移動効果、左辺第四項は、固相の貯留効果を示す。これより、解析パラメータとして、Ψ、k_r、κ、及びD_Tが必要となる。このうち、D_Tについては、平成30年度の評価においては、緩衝材の浸潤状況に依存せずに一定値として扱い、水分量の指標となる相対湿度について計測結果を再現する解析結果が得られている（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019）。しかしながら、後述するように､温度勾配水分移動係数を一定値とした場合､ヒーター#1の加熱を停止した5年後以降は、緩衝材への地下水の浸潤が進んで行く中で、ヒーター#2を内蔵したキャニスター近傍においては水分が低下し、相対湿度の計測データが示す挙動との一致が見られなくなった。そこで、平成31年度においては、この温度勾配水分移動係数D_Tを、水分飽和度S_rの関数とした次式を用いることとした。このモデルは、温度勾配によって生じる水分の移動は水蒸気によるものとし、低水分領域と高水分領域で水蒸気による水分の移動が小さくなるとするモデルである（Börgesson and

Hernelind, 1999）。

$$D_T = D_{Tv} \quad 0.3 \le S_r \le 0.7$$
$$D_T = D_{Tv} \cdot cos^a\left(\frac{S_r - 0.7}{0.3}\frac{\pi}{2}\right) \quad S_r \ge 0.7 \qquad (2.4\text{-}2)$$
$$D_T = D_{Tv} \cdot sin^b\left(\frac{S_r}{0.3}\frac{\pi}{2}\right) \quad S_r \le 0.3$$

ここで、D_{Tv}は、水蒸気による温度勾配水分移動係数（m²/sK）であり、供試体中の温度勾配を与えて水分を移動させる実験結果に基づき、THAMES によるパラメータスタディ解析によって導出した 2.00×10^{-11} m²/sK とした（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター，2019)。また、パラメータa及びbはともに 0.2 であり、絶乾状態と飽和状態とで温度勾配水分移動係数が 0 となる設定とした。ここでは、温度勾配水分移動係数として式（2.4-2）を用いた場合と、平成 30 年度の解析評価で用いた 2.00×10^{-11} m²/sK の一定値とした場合についての解析結果を比較した。

岩盤、コンクリートプラグ、緩衝材及びキャニスターの物性については、表 2.4-1 に示す通りであり、平成 30 年度に実施した THM 連成解析で設定した値と同様である（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター，2019)。また、新たに設置されるショットクリートプラグは、コンクリートプラグと同じ値とした。

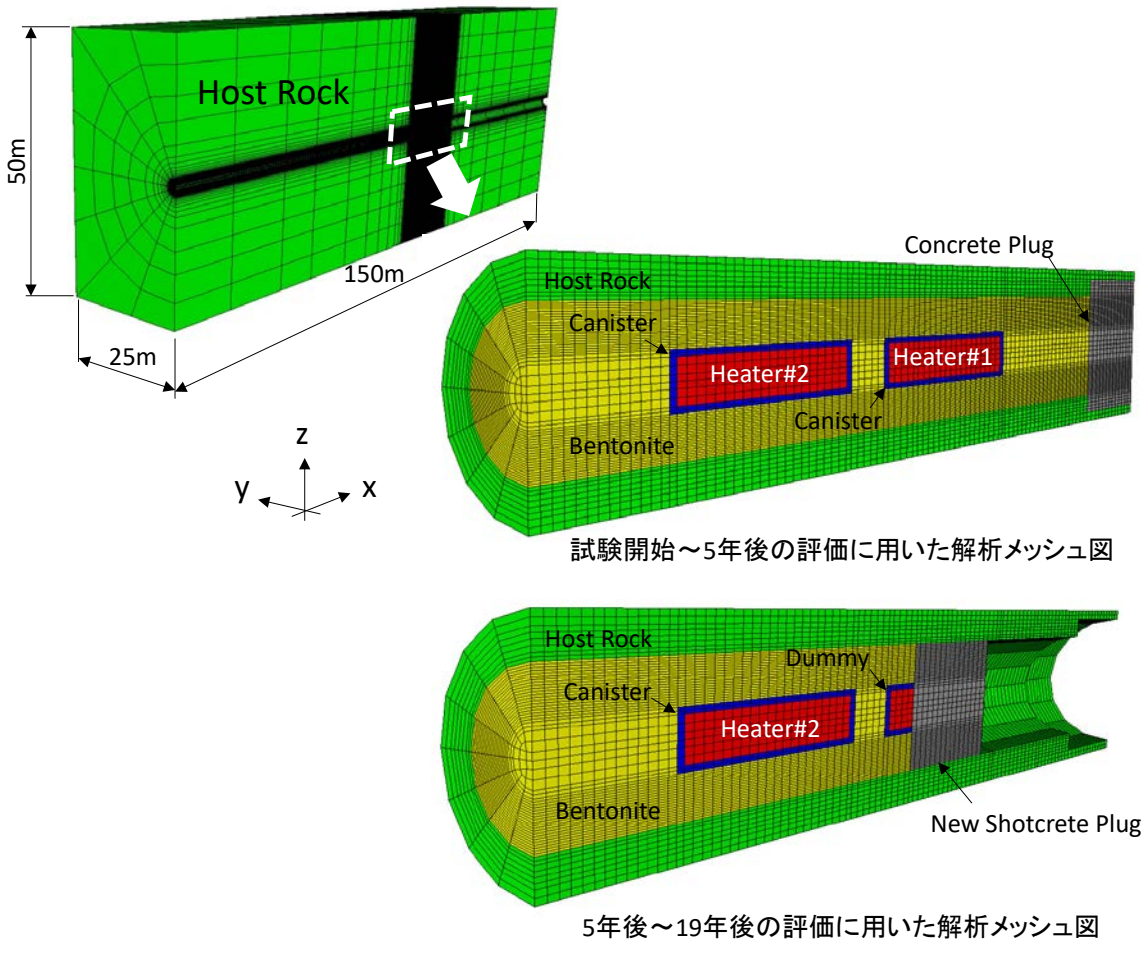


図 2.4-4　FEBEX プロジェクトにおける原位置試験の解析モデル概要図

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

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

*1 Rutqvist and Tsang(2004), *2 操上ほか(2004), *3 ENRESA(2000)

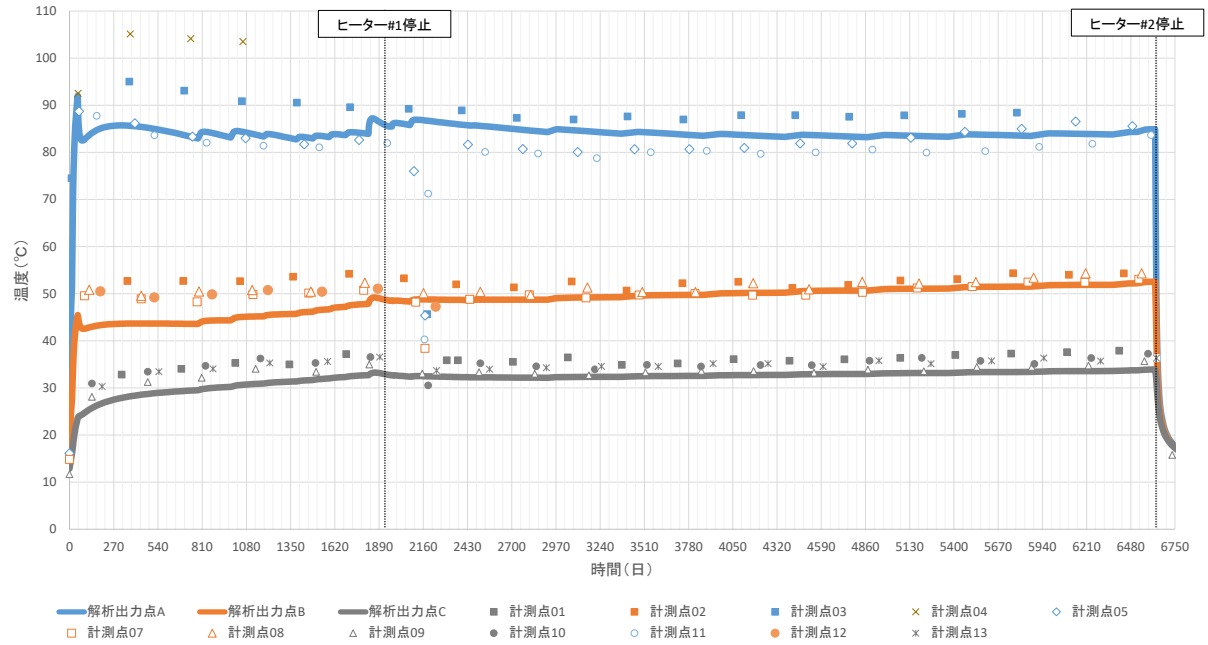
③ 解析結果

FEBEX プロジェクトにおける原位置試験において、緩衝材中に設置された計測センサーによって得られた温度、水分量の指標となる相対湿度及び全応力の時間変化を、THM 連成解析モデルによる再現解析結果と比較して図 2.4-5～7 に示す。また、試験終了後に取り出した緩衝材のサンプリング試料から求めた水分飽和度の分布を図 2.4-8 に示す。ここでは、原位置試験で得られた計測値をプロットで、解析値を実線で示しており、図中には、これらを比較する断面における計測点と解析出力点の位置を示している。なお、計測値については、公開された報告書（NAGRA, 2016a；2016b）に掲載されたグラフの座標をデータとして読み取るソフトを用いてプロットしている。これより、以下の結果が得られた。

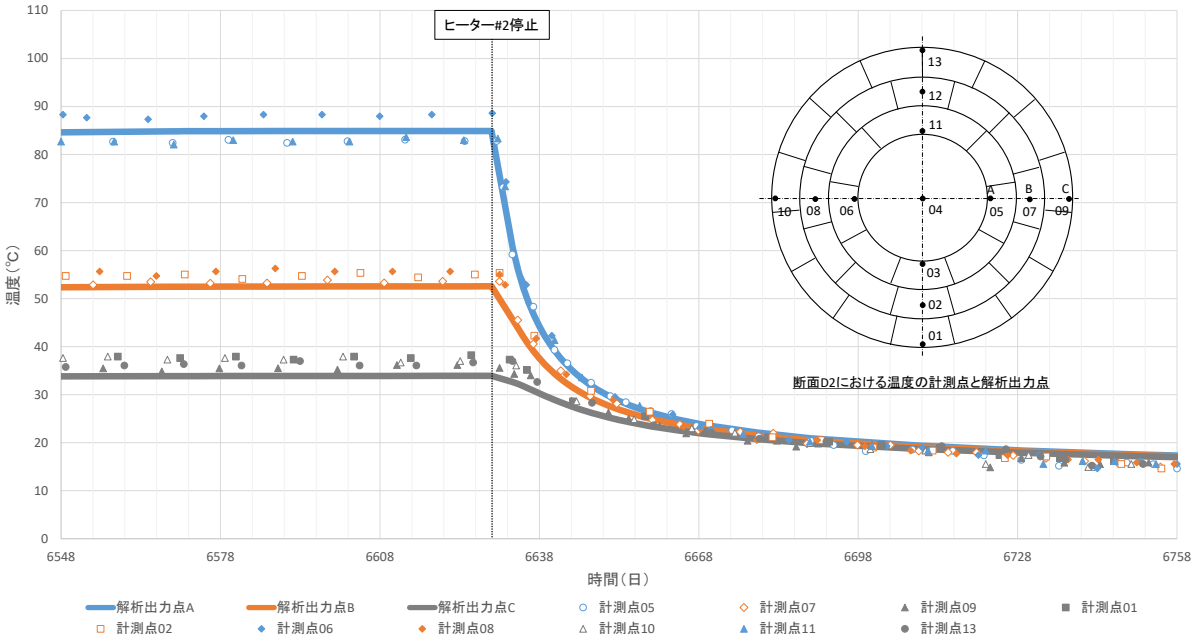
- 緩衝材中の温度の時間について、廃棄体を模擬したヒーターによる加熱を行った約19年間及び加熱を停止した後の冷却期間について、計測結果と解析結果を比較して図2.4-5に示す。冷却期間も含めて、両者がよく一致していることが分かる。これは、本試験のような100 °C以下の条件においては、熱移動が熱伝導に支配されていることを示唆していると考えられ、正確な熱物性値を与えることで緩衝材中の温度環境を的確に予測することが可能であることが確認できた。
- 緩衝材中の水分量の指標となる相対湿度について、湿度センサーによって得られた計測結果と再現解析結果を比較して図2.4-6に示す。図中には、前述したように、平成30年度の評価で用いた緩衝材の水分飽和度に依存しない一定値とした温度勾配水分移動係数を用いた場合の

解析結果を合わせて示す。これより、温度勾配水分移動係数を一定とした場合、1台のヒーターの加熱を停止した5年後に、キャニスター近傍の相対湿度は減少する方向に変化しており、地下水の浸潤が進んでいないことを示している。これに比べて、式（2.4-2）で示した温度勾配水分移動係数を水分飽和度の関数とするモデルを用いた場合、1台のヒーターの加熱を停止した後も、キャニスター近傍の相対湿度は上昇し続けており、センサーによる計測値が示す挙動を再現する結果となっている。なお、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もあることや、センサーの故障や、計測範囲外と考えられる理由により計測値が得られていない期間も存在している。

- 緩衝材の全応力の計測結果と解析結果を比較して図2.4-7に示す。比較する断面は、キャニスター中央と坑道最奥部分の二か所である。試験レイアウトの変更にともない撤去部分に近い断面F2においては、応力開放の影響によって計測データの多くは大きく値が低下している。一方、坑道最奥の断面B2では、その影響は見られない。そして、断面F2及びB2のいずれにおいても、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。この原因としては、平成30年度も述べたように（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019）、原位置において施工時に生じたベントナイトブロック間の隙間が閉塞するまで膨潤応力は小さく推移すると考えられる一方で、本解析においては、このようなブロック間の隙間が閉塞するプロセスを考慮していないためである。そして、緩衝材への地下水の浸潤が進むことによって、計測値は解析値に近づく結果となっている。なお、表2.4-1に示すように、緩衝材の膨潤応力は飽和時において5.82 MPaを発生する設定であるから、全応力の主成分は膨潤応力である。また、図中には、温度勾配水分移動係数を一定とした場合の解析結果を合わせて示している。キャニスター中央の断面F2では、図2.4-6で示したように、温度勾配水分移動係数を水分飽和度の関数とするモデルを用いた場合に比べて浸潤が進んでいないため、膨潤応力を主成分とする全応力の値は小さくなっている。一方、発熱体より遠い断面B2においては、両者の差異が小さいくなっている。その要因としては、断面F2に比べて形成される温度勾配が小さいため、温度勾配水分移動係数の影響が表れにくいものと考えられる。
- 緩衝材のサンプリング試料による水分量の測定結果と再現解析結果を比較して図2.4-8に示す。図中には、式（2.4-2）で示した温度勾配水分移動係数を水分飽和度の関数とするモデルを用いた場合と、平成30年度の評価で用いた一定値とした場合とを比較して示している。これより、キャニスターに近い部分での水分飽和度が0.8程度で、岩盤に近い部分は飽和状態となっている実測値に対して、温度勾配水分移動係数を水分飽和度の関数とした場合の再現解析の結果はよく一致している。前述したように、平成30年度は、温度勾配水分移動係数を一定値として扱ったが、平成31年度は、水分飽和度によって変化するモデルを用いた。平成30年度の評価対象とした試験開始から5年間のように緩衝材の浸潤が進んでいない場合には、温度勾配水分移動係数を一定値として扱っても計測結果を再現することが可能であった。しかしながら、試験開始から19年間までのより長期間を評価の対象とした場合には、温度勾配水分移動係数の水分飽和度依存性を考慮する必要があることが分かった。これは、緩衝材への地下水の浸潤が進み完全飽和した領域では、温度勾配による水分移動が浸潤挙動に及ぼす影響が小さくなることが要因として考えられる。



（a）　全試験期間



（b）減熱期間

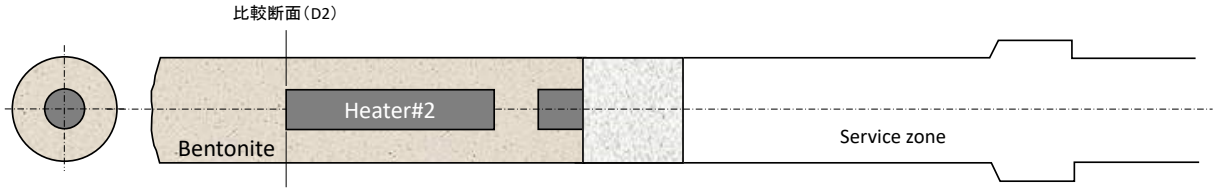
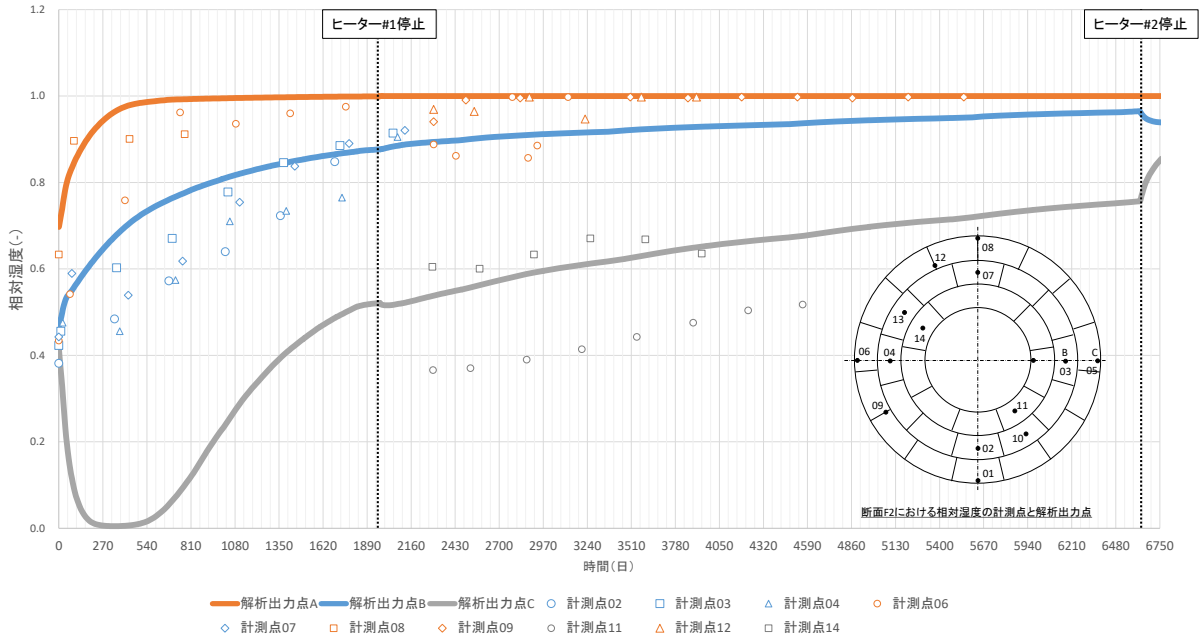
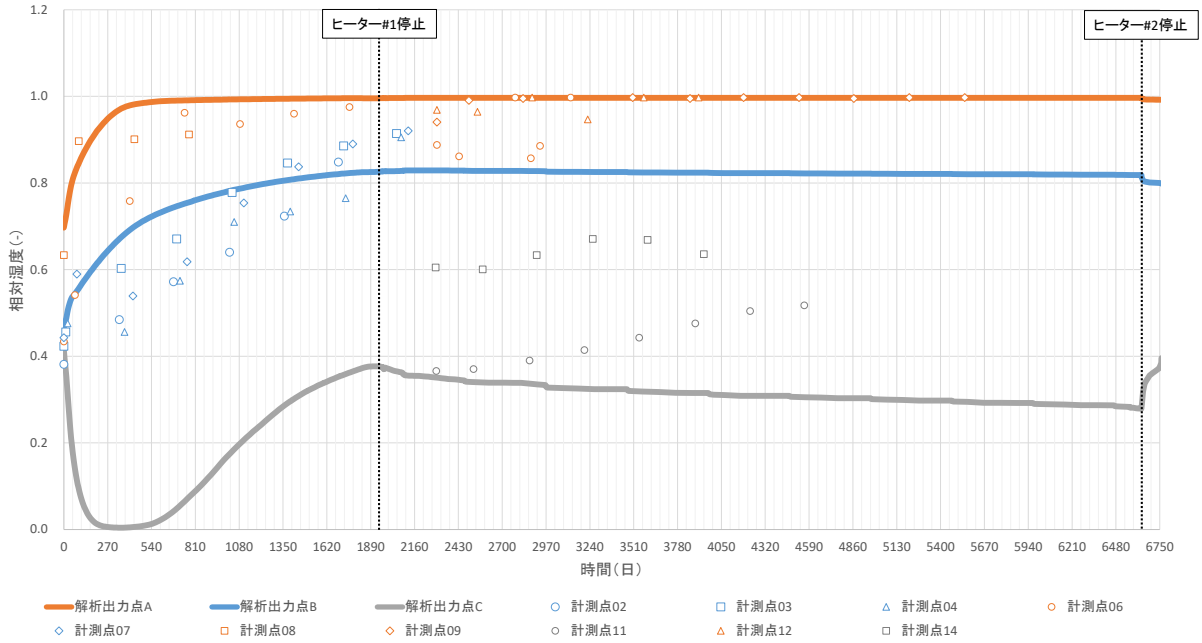


図 2.4-5　FEBEX の原位置試験における温度の計測データと再現解析結果の比較

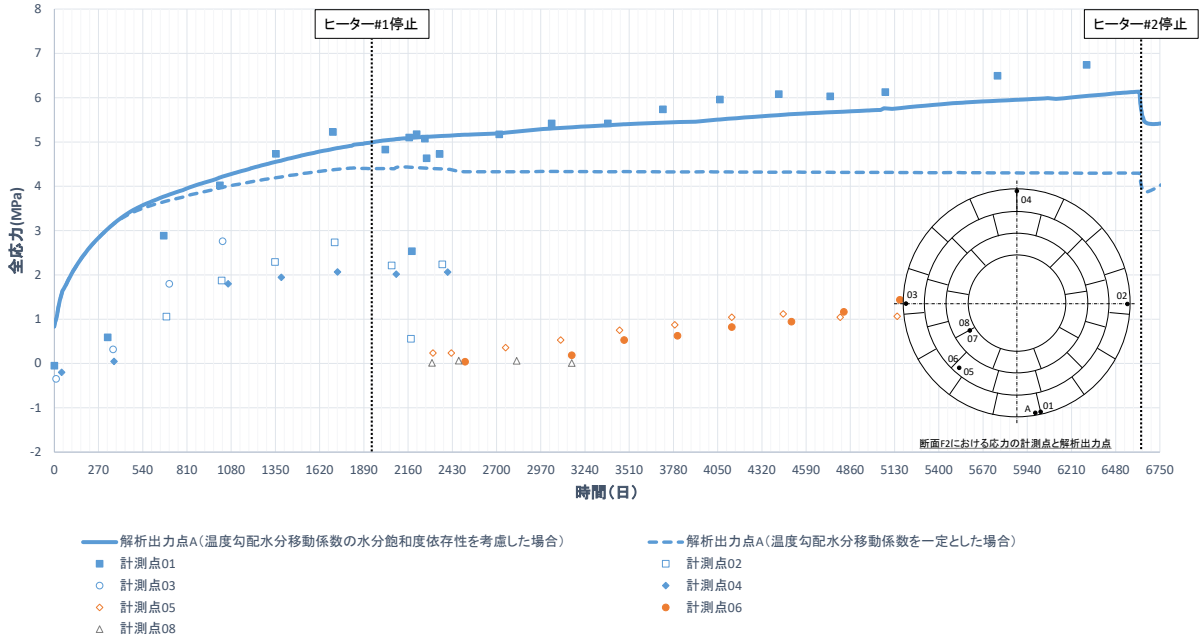


（a）　温度勾配水分移動係数を水分飽和度の関数とするモデルを用いた場合

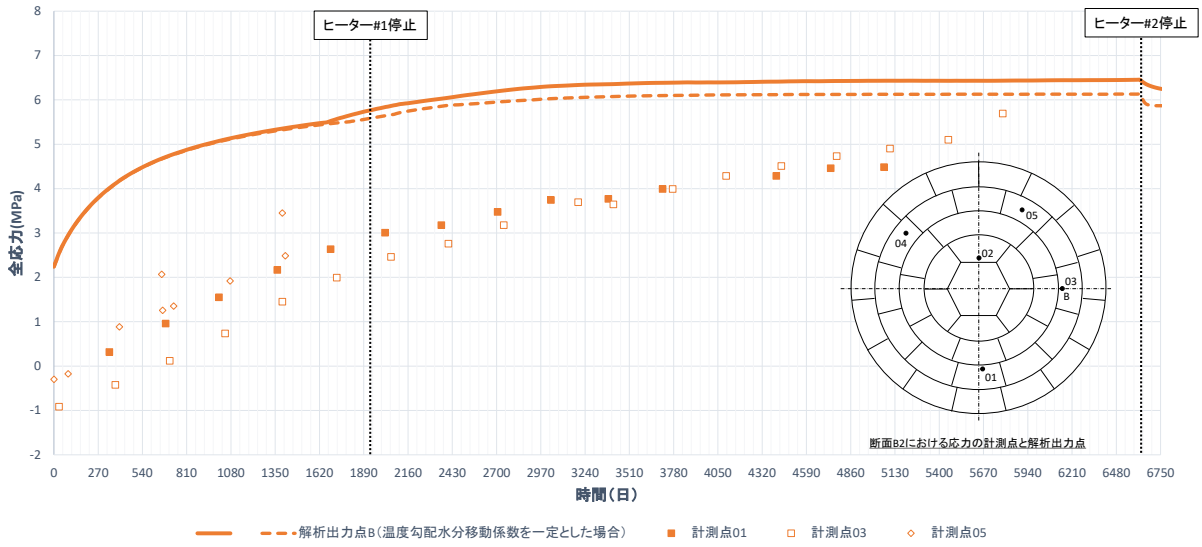


（b）　温度勾配水分移動係数を一定値とした場合（平成30年度の設定）

図 2.4-6　FEBEX の原位置試験における相対湿度の計測データと再現解析結果の比較



(a) 比較断面F2



(b) 比較断面 B2

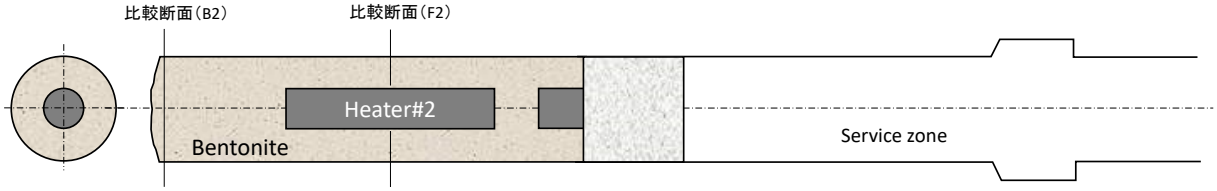
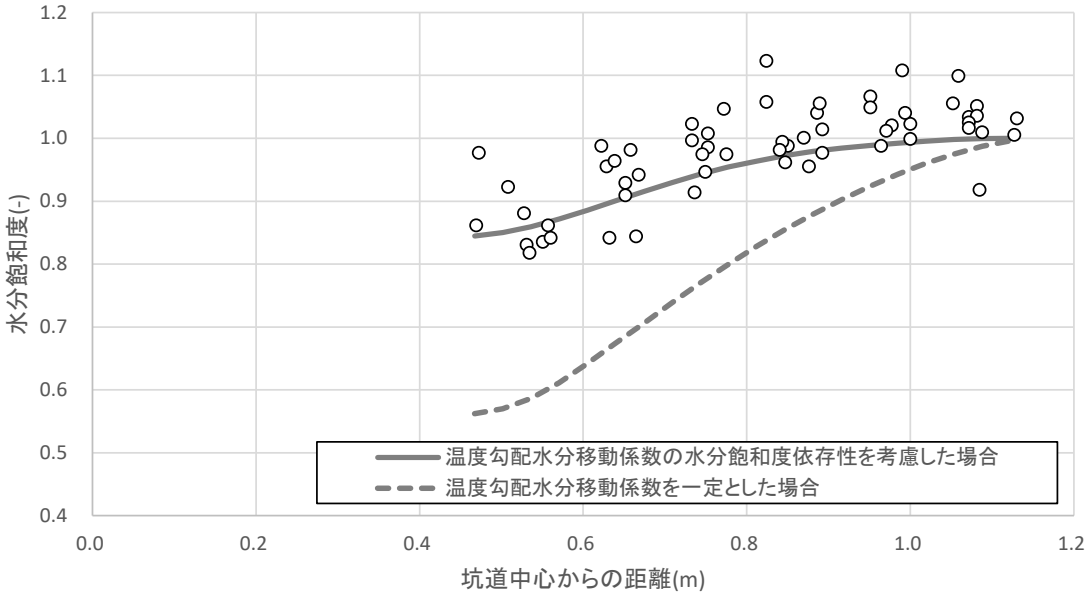
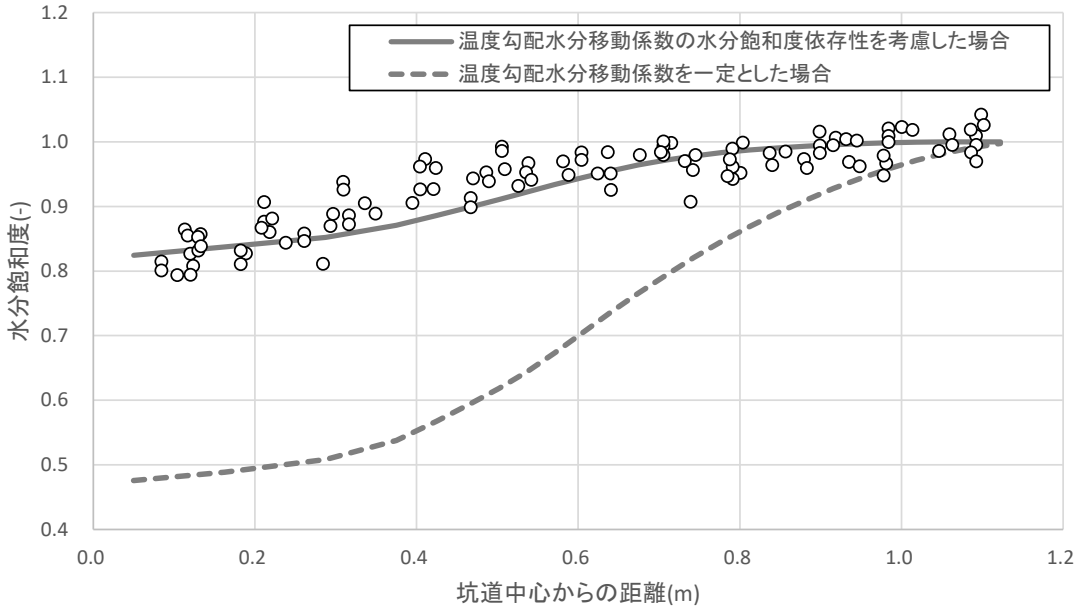


図 2.4-7　FEBEX の原位置試験における応力の計測データと再現解析結果の比較



(a) 比較断面A



(b) 比較断面B

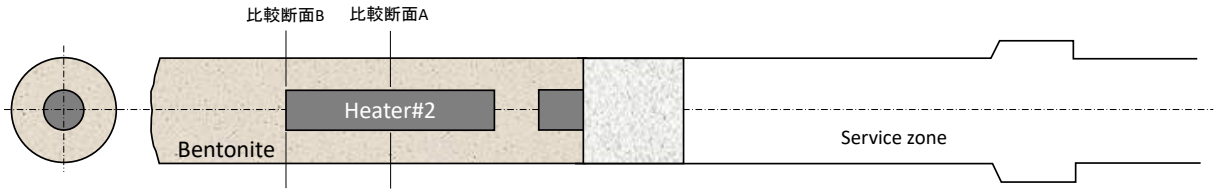


図 2.4-8　FEBEX の原位置試験におけるサンプリング試料の飽和度測定結果と再現解析結果の比較

2) オーバーパック腐食試験の再現解析に基づく THMC 連成解析モデルの信頼性の確認

① 背景と概要

熱-水-応力-化学（THMC）連成解析コードCouplysは、廃棄体定置後から緩衝材が飽和に至るまでの過渡期において、ニアフィールドで生じる熱的、水理学的、力学的及び地球化学的作用が相互に影響し合う複雑な環境での緩衝材の化学に重きを置いて開発が進められてきた。

Couplysは、前節で示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、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（木村ほか, 2010）及び鉱物の溶解沈殿、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（Parkhurst, 1999）で構成される。これら個別の解析コードは、プラットホーム上に搭載され、各解析コード間の連成対象変数の受け渡しを行う共有メモリと管理プログラムによって制御することにより連成解析システムが構築されている。現時点におけるCouplysの連成モデルの概念図を図2.4-9に示す。Couplysの開発では、上述したように、緩衝材の化学の評価に重きを置いてきており、例えば、緩衝材中の間隙水をスメクタ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、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、層間による保水が粒子間隙水よりも優先的に行われることなど、不飽和状態における保水形態を考慮した地球化学反応モデルが導入されている（日本原子力研究開発機構，2009；日本原子力研究開発機構，2010）。一方、応力変形の評価では、弾性体としての扱いしかできないことや、相互作用として応力変形による密度変化が熱や水理挙動に与える影響など、力学的な挙動の帰結として熱特性や水理特性へ与えられる影響について反映できていない。また、間隙水組成がおよぼす膨潤圧への影響や物質移行に関わる物性値の変化など、力学と地球化学との間の相互作用についても考慮できていないことなどが課題となっている。

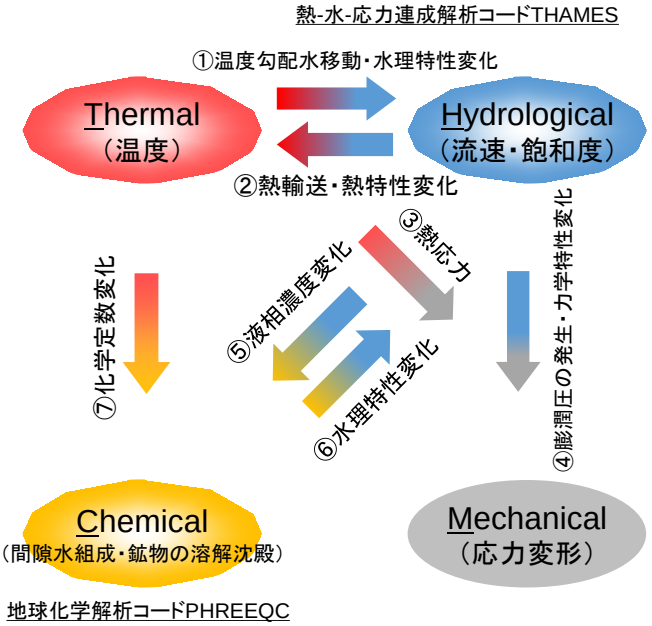


図 2.4-9　熱-水-応力-化学（THMC）連成解析コード Couplys の計算体系

本事業においては、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を対象とした THMC 連成解析を実施し、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に関する情報の提示を行う。また、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ことが求められている。

平成30年度は、海水系地下水環境下での緩衝材の浸潤挙動の評価手法として、Couplysによって緩衝材の間隙水化学解析と水理解析とを連成させることで、間隙水組成がおよぼす透水性への影響を考慮した予察解析を実施し、緩衝材のイオン交換反応を含むより精緻な浸潤挙動評価が可能であることを確認した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019）。

平成 31 年度は、オーバーパック腐食試験の THMC 解析評価を実施するために必要となる海水系地下水の浸潤に対する緩衝材の不飽和水理パラメータを取得するため、幌延 URL 周辺の地下水と同程度の NaCl 濃度の溶液を用いた浸潤試験を実施するとともに、上述した連成解析手法による再現解析によって緩衝材の不飽和水理パラメータを設定した。そして、得られた知見に基づき、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て、廃棄体を模擬したヒーターの発熱と、コンクリート支保の影響を受けた地下水の浸潤にともなう緩衝材間隙水の化学的な環境変化に着目した THMC 解析を実施した。さらに、オーバーパック腐食試験で得られている計測データとの比較検討を通じて THMC 連成解析モデルの再現性を確認した。

② 海水系地下水浸潤に関わる解析パラメータの設定

緩衝材の浸潤試験は、オーバーパック腐食試験で用いられた緩衝材ブロックの仕様に合わせ乾燥密度1.8 Mg/m³、ケイ砂30wt%混合ベントナイト、水分飽和度約0.3、直径5 cm、高さ5 cmの円柱状の供試体を用いて実施した。この供試体を拘束容器内に設置し、体積変化を生じさせない条件下において、供試体下面よりNaCl濃度が幌延URL周辺の地下水と同程度である0.2 mol/Lの溶液を浸潤させた。浸潤させる時間は、1、2、7、10、14、及び30日とした。所定の時間経過後、供試体を鉛直方向に10等分して水分量の測定を行うことで水分分布を求めた。試験は、約25°Cの室温環境下において実施した。なお、比較のために蒸留水を浸潤させた場合についても同様な試験を実施した。

次に、浸潤試験の再現解析を実施した。平成30年度に実施した予察解析と同様、地球化学と水理の連成解析により間隙水組成がおよぼす透水性への影響を考慮した。再現解析は、浸潤方向の分割数を10とした有限要素で構成したメッシュモデルを用いた。浸潤面となるモデル下面は、0 mH_2Oの圧力水頭を与え、これ以外は不透水境界とした。解析条件としての温度は、25 °Cで一定とし、全節点変位拘束とした。

Couplysにおける水移動の支配方程式は、式(2.4-1)で示した通りであり、圧力水頭、比透水係数、固有透過度の設定が必要となる。このうち、緩衝材の負の圧力水頭Ψ(mH_2O)と有効水分飽和度S_e(-)と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）。

$$S_e = \frac{\theta-\theta_r}{\theta_s-\theta} = [1+|\alpha\Psi|^n]^{-m} \qquad \mathrm{m} = 1-\frac{1}{n} \tag{2.4-3}$$

ここで、θ_s=0.328、θ_r=0、α＝0.005、n=1.38である（日本原子力研究開発機構, 2018）。

比透水係数k_r(-)は、水分飽和度S_rの関数として次式を用いた（日本原子力研究開発機構, 2018）。

$$k_r = {S_r}^3 \tag{2.4-4}$$

緩衝材の固有透過度κ（m^2）については、乾燥密度 1.8 Mg/m^3、ケイ砂 30wt%混合ベントナイトの供試体に、蒸留水及び NaCl 濃度が 1.18wt%（0.2 mol/L）の試験溶液を透過させた透水試験結果に基づき、NaCl 濃度依存性を考慮した次式を設定した（図 2.4-10）。

$$\kappa = 1.629 \times 10^{-20} exp(5.59 \times 10^{-1} C) \quad (2.4\text{-}5)$$

ここで、Cは、透過溶液中の NaCl 濃度（wt%）である。不飽和な緩衝材中に浸潤した透過溶液中の NaCl 濃度は、間隙水との混合による濃縮希釈やイオン交換反応及び鉱物の溶解沈殿などによって変化することが考えられる。熱-水-応力-化学連成解析コード Couplys では、図 2.4-9 で示したように、液相濃度変化と水理特性変化の相互作用を考慮することで、間隙水中の NaCl 濃度の計算結果に基づき、NaCl 濃度に応じた固有透過度が設定される計算体系を構築している（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019）。

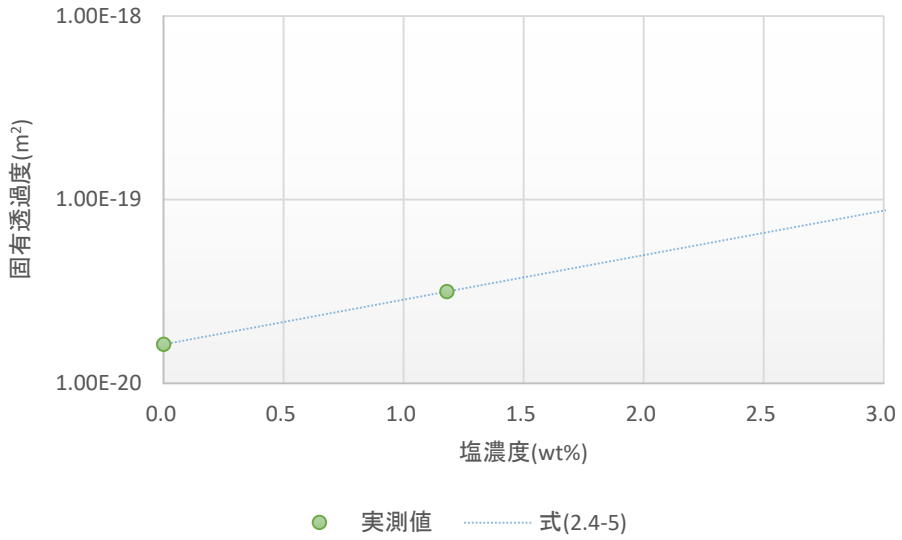
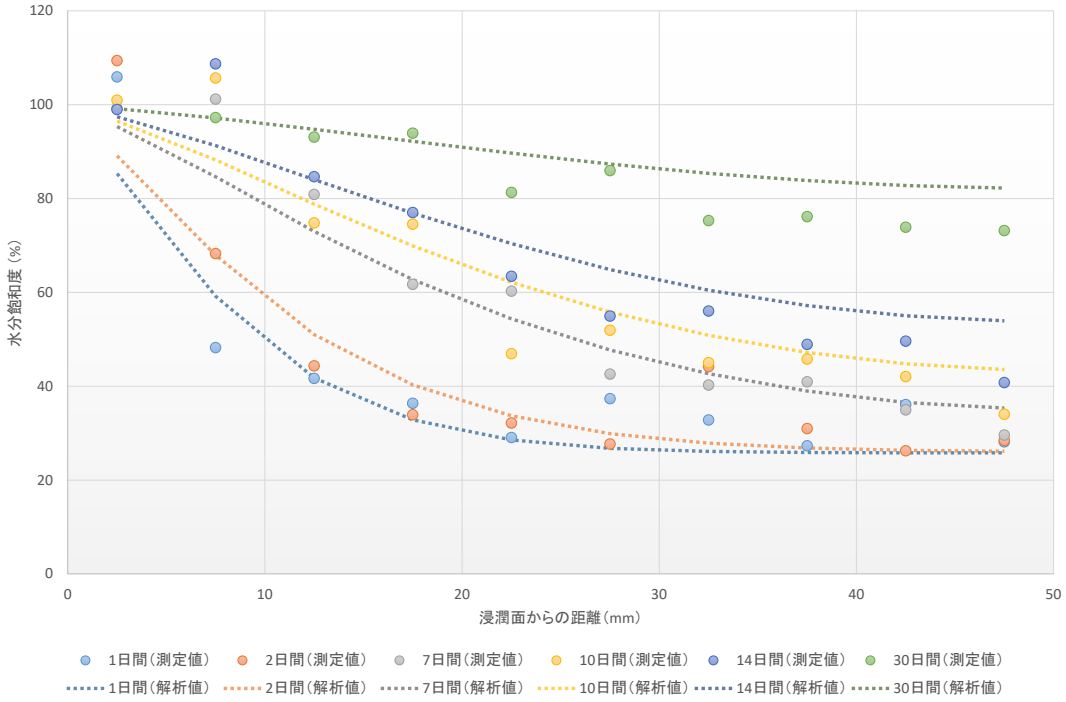


図 2.4-10　透過溶液中の NaCl 濃度と固有透過度の関係

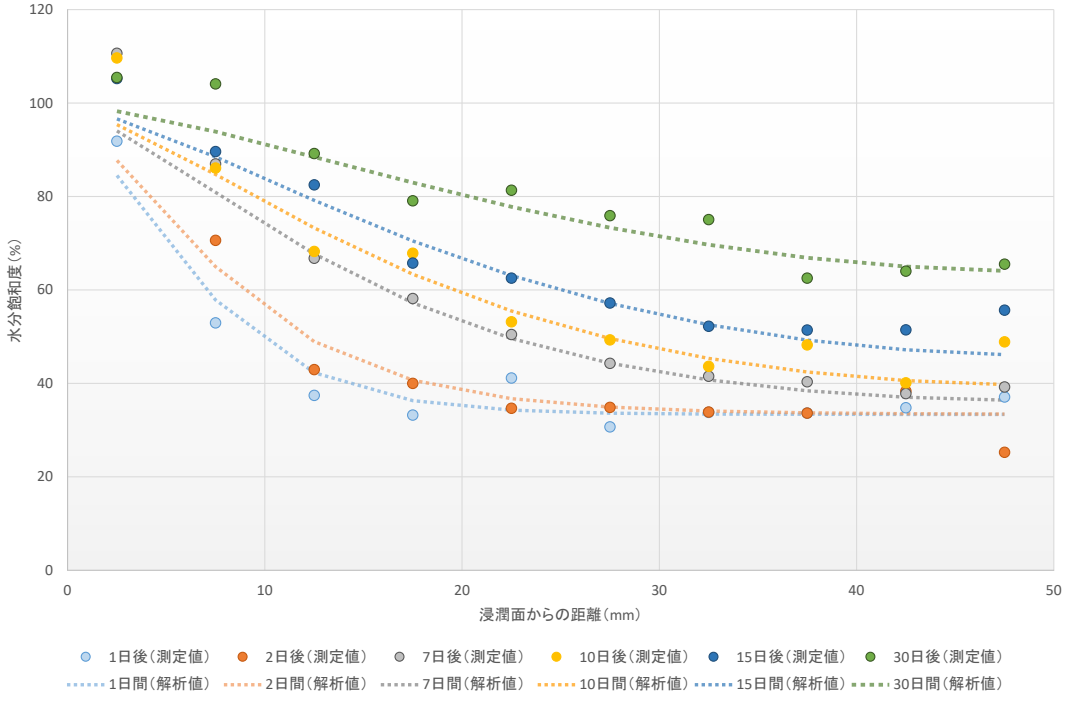
物質移行に関わるパラメータについては、第2次取りまとめにおける安全評価解析に準じて、海水系間隙水に対して設定された実効拡散係数として3.0×10^{-10} m^2/sとした（核燃料サイクル開発機構, 1999b）。縦分散長は、供試体高さの1/10とした。また、スメクタイトのイオン交換反応（交換性陽イオン組成ZNa：51.4 meq/100g、Z_2Ca：7.4 meq/100g、ZK：0.6 meq/100g、Z_2Mg：0.7 meq/100g、イオン交換反応選択係数2ZNa-Z_2Ca：0.69、ZNa-ZK：0.42、2ZNa- Z_2Mg：0.67、ZNa-ZH：1.88）を考慮した（核燃料サイクル開発機構, 1999b）。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。

Couplysによる浸潤試験の再現解析結果を図2.4-11に示す。プロットで示した水分飽和度の測定値のうち、浸潤面に近い個所で飽和度が100%以上の値を示していることや、浸潤面より遠くなるに従い飽和度が小さくなる拡散型のプロファイルを示していない値も存在している。しかしながら、浸潤時間に応じた水分分布が形成されていることや、蒸留水に比べて0.2 mol/LのNaCl濃度の溶液を浸潤させた場合の浸潤が速くなっていることなど、実線で示した解析結果は測定結果の傾向を再現できている。これより、上記で示した解析手法及び解析パラメータの設定値が妥当

であるものと考えられる。なお、測定値のバラツキの原因については、供試体を鉛直方向に10等分した各試料の密度を1.8 Mg/m³として水分飽和度を算出しているが、実際には、正確に10等分できていないことや、供試体作成時に生じた密度のバラツキや膨潤によって密度変化が生じたことなどが考えられる。解析におけるこの浸潤速度の違いについては、式(2.4-5)に示した固有透過度のNaCl濃度の依存性を考慮することによって生じている。



（a）0.2 mol/LのNaCl濃度の溶液を浸潤させた場合



（b）　蒸留水を浸潤させた場合

図2.4-11　浸潤試験の再現解析結果

③ 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再現解析

(a) 解析条件

オーバーパック腐食試験は、平成 26 年度より幌延深地層研究センターの深度 350 m の地下施設において、セメントの影響を考慮したオーバーパックの腐食現象を評価することを目的として実施されている。本試験は、試験坑道に掘削された試験孔内に、廃棄体からの発熱を模擬するための電気ヒーターが内蔵された炭素鋼製のオーバーパック、緩衝材及び原子力機構が開発した低アルカリ性セメントを用いたコンクリート支保を設置して実施した（中山，2018）。そして、人工バリアの過渡期の状態を模擬するため、廃棄体を模擬したヒーターの温度を 90 °C で発熱させるのと同時に、緩衝材中には、周辺のコンクリート支保を通じて 1 MPa の圧力で地下水が供給されている。

解析には、図 2.4-12 に示すように、①周辺岩盤、②試験坑道底面に打設されたコンクリート路盤、③試験孔内に設置されたコンクリート支保、④路盤と緩衝材の間に充填された砂層、⑤緩衝材、⑥オーバーパックで構成した三次元のモデルを用いた。解析領域については、オーバーパックを中心に軸対称とみなした 1/4 の部分について、試験孔底面の鉛直下方向（z 方向）及びオーバーパックの水平円周方向（x 方向、y 方向）において、温度に対して境界の影響が生じない距離として 5 m を確保した。緩衝材は、膨潤によって施工時に生じた隙間を閉塞した際の乾燥密度が 1.6 Mg/m^{3}となるように設計されているが、ここでは、設置時における緩衝材ブロックの仕様である乾燥密度 1.8 Mg/m^3、ケイ砂 30wt%混合ベントナイトとし、隙間を充填するような膨潤変形は考慮しないものとした。

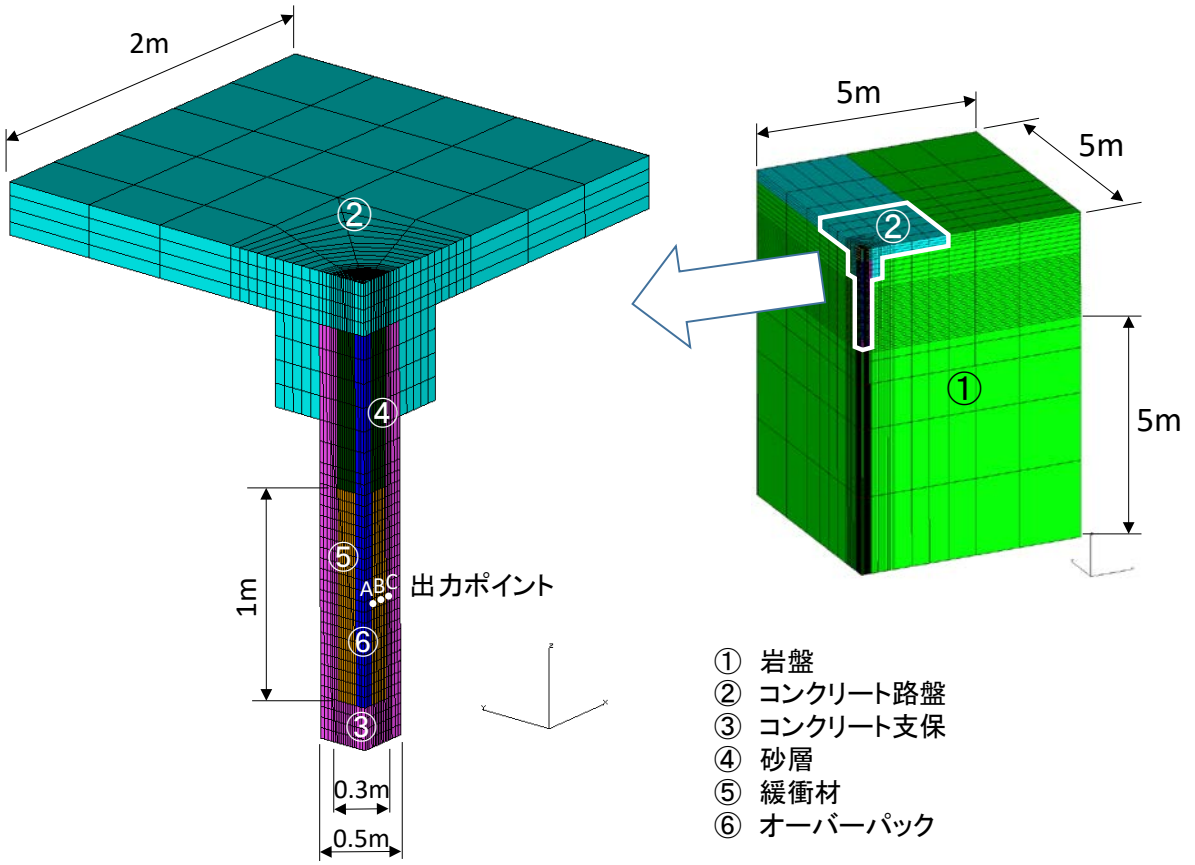


図 2.4-12　オーバーパック腐食試験の解析モデル概要図

解析初期条件として、温度については坑道内の平均的な温度を採用し全領域で 12 °C とした。水理的条件として、緩衝材はブロック製作時の平均的な水分飽和度として 0.591 に設定し、それ以外の岩盤やコンクリートなどの部分については飽和を仮定した。初期の地下水組成は、幌延深地層研究計画における試錐調査のうち、HDB6 孔で採取された地下水に対する分析結果に準じて設定した（藤田ほか, 2007）。地下水以外の初期間隙水組成については、大気中の酸素及び二酸化炭素の影響を考慮し、後述する設定鉱物あるいはセメント水和生成物と純水との平衡状態を仮定し、地球化学解析コード phreeqc を用いた計算によって求めた（表 2.4-2 参照）。境界条件としては、オーバーパック表面の温度を 90°C、路盤及び岩盤の外側面は初期温度の 12 °C とした。緩衝材への加圧給水を考慮し、路盤及び岩盤の外側面を全水頭 1 MPa で拘束した。また、路盤及び岩盤の外側面の地下水組成及び間隙水組成は表 2.4-2 に示した初期の組成で拘束した。

試験坑道の底面に設置されているコンクリート路盤は、普通ポルトランドセメントであり、平衡反応を考慮する水和物としては、先行事業におけるセメント水和生成物の溶解沈殿モデルで設定された $Ca(OH)_2$及び CSH(1.7)とした。また、試験孔内に設置されたコンクリート支保は、上述したように低アルカリ性セメントであり、平衡を考慮する水和物として CSH(1.1)及び CSH(1.0)とした（日本原子力研究開発機構, 2014）。砂層で考慮する鉱物は石英とした。緩衝材では、玉髄、方解石、黄鉄鉱とし、上述したイオン交換反応に加えて、酸・塩基反応（表面サイト酸・塩基解離定数：logK(-)=-7.92、 logK(+)=5.67、表面サイト密度：6.5×10^{-5} mol/g、表面サイト有効比表面積：29 m^2/g）を考慮した（核燃料サイクル開発機構, 1999b）。緩衝材中の不飽和領域には、大気分圧の酸素（$10^{-0.7}$atm）及び二酸化炭素（$10^{-3.5}$atm）を考慮した。黄鉄鉱が酸素を消費する反応は、次式の速度モデルで考慮した（Mark A. Williamson and J. Donald Rimstidt, 1994）。

$$r = 10^{-8.19} \frac{m_{DO}^{0.5}}{m_{H+}^{0.11}} A_{\min} \qquad (2.4\text{-}6)$$

ここで、r：反応速度（mol/m^2 s）、m_{DO}：溶存酸素濃度（mol/L）、m_{H+}：溶液中の水素イオン濃度（mol/L）、$A_{\min}$：鉱物の反応表面積（m^2）であり、ベントナイト中の黄鉄鉱の含有量を 0.7wt%（核燃料サイクル開発機構, 1999a）、分子量 119.98 g/mol、比表面積 0.047 m^2/g とした（Williamson and Rimstidt, 1994）。実効拡散係数は、緩衝材については前述の通りであり、それ以外については、第 2 次取りまとめで示された泥質岩・凝灰岩に対して設定された値とした（核燃料サイクル開発機構, 1999b）。緩衝材における気相中で考慮する酸素及び二酸化炭素の拡散係数については、文献値の 1.5×10^{-5} m^2/s を採用した（中野, 1991）。

熱力学データーベースは、核燃料サイクル開発機構が開発した解析的温度補正式の係数が整備された 990900c1.tdb（https://migrationdb.jaea.go.jp/tdb_j2/tdb_pre_j.html）（2020.03.18）を用いた。

緩衝材の熱伝導率λ（W/mK）及び比熱c（kJ/kgK）は、乾燥密度 1.8 Mg/m^3に対して取得されていないため、次式の含水比ω（%）の依存性を考慮した乾燥密度 1.6 Mg/m^3の物性を与えた（核燃料サイクル開発機構, 1999a）。

$$\lambda = 4.44\times10^{-1} + 1.38\times10^{-2}\omega + 6.14\times10^{-3}\omega^2 - 1.69\times10^{-4}\omega^3 \qquad (2.4\text{-}7)$$

$$c = \frac{3.41\times10^{1}+4.18\omega}{100+\omega} \qquad (2.4\text{-}8)$$

有効水分飽和度S_e(-)と負の圧力水頭Ψ(mH$_2$O)の関係を表す緩衝材の水分特性曲線は、式(2.4-3)を、固有透過度は、間隙水中の NaCl 濃度の依存性を考慮した式(2.4-5)を用いた。

温度勾配による水分の移動は、式(2.4-9)に示す温度勾配水分移動係数D_T（m^2/sK）で与えた。このパラメータは、密閉容器内に設置した直径 5 cm、高さ 10 cm の円柱状の供試体（乾燥密度 1.8 Mg/m^3、クニゲル V1、初期飽和度約 0.5）の両端をそれぞれ 45 °C と 25 °C で加熱し、温度勾配によって供試体中の水分を移動させる実験結果に基づき（鈴木ほか，1999）、熱－水連成解析モデルの THAMES によるパラメータスタディ解析によって設定した。これより、温度勾配水分移動係数は、図 2.4-13 に示すように、平均温度 35°C において、3×10^{-12} m^2/sK 程度であった。この値を基準として、第 2 次取りまとめで用いられた温度依存性を考慮した次式により設定した（核燃料サイクル開発機構，1999a）。

$$D_T = D_{T0} exp\left(\alpha \frac{T-T_0}{T_0}\right) \qquad (2.4\text{-}9)$$

ここで、D_{T0}=3×10^{-12} m^2/sK、T_0＝35 °C、α=1.2 である。

解析に用いた物性値を整理して表 2.4-3 に示す。岩盤の物性については、幌延深地層研究計画における地上からの調査研究結果に基づき設定した。幌延地域の大曲断層西側領域は、地質学的、物性的な観点から深度約 700 m までの範囲で鉛直方向に概ね深度 0～275 m、深度 275～375 m、深度 375～700 m の 3 つのゾーン構成で表現できている。そこで岩盤の物性値は、オーバーパック腐食試験が実施されている設定深度が 350 m に該当する岩盤の値とした（山本ほか，2005；太田ほか，2007）。岩盤中の実行拡散係数は、泥質岩に対する値として第 2 次取りまとめに準じて設定した（核燃料サイクル開発機構，1999b）。路盤及び支保については、第 2 次 TRU レポートにおいて軟岩系岩盤に対する吹き付けコンクリートの仕様に準じて設定した（電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構，2005）。また、間隙率、熱伝導率及び比熱は、コンクリート標準示方書に基づき設定した（土木学会, 1996）。オーバーパックについては、炭素鋼の物性として、第 2 次取りまとめに準じて設定した（核燃料サイクル開発機構，1999a）。

解析評価時間は、オーバーパック腐食試験が実施された平成 26 年 11 月から平成 30 年 5 月までの 1,300 日間とした（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2019）。

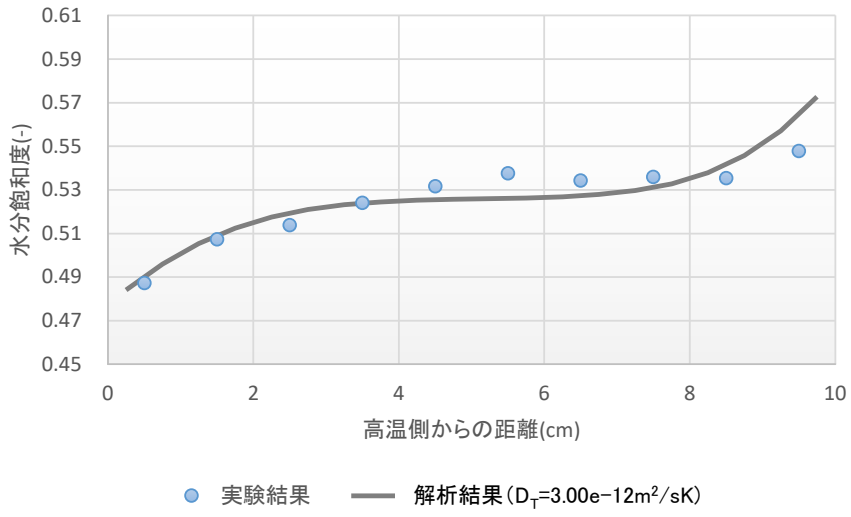


図 2.4-13 温度勾配による水分移動実験の再現解析による温度勾配水分移動係数の設定

表 2.4-2　オーバーパック腐食試験の解析評価における初期間隙水組成

	岩盤	路盤	支保	砂層	緩衝材
温度（℃）	12				
pH	6.80	12.55	11.45	5.60	7.30
pe	-2.80	9.05	10.14	15.99	14.30
Al(mol/m^3)	3.70×10^{-4}	1.00×10^{-7}	1.00×10^{-7}	1.00×10^{-7}	1.00×10^{-7}
全 C(mol/m^3)	4.10×10^{1}	1.84×10^{-2}	1.84×10^{-2}	1.84×10^{-2}	6.21×10^{0}
Ca(mol/m^3)	2.10×10^{0}	7.56×10^{0}	7.35×10^{-1}	1.00×10^{-7}	7.14×10^{0}
Cl(mol/m^3)	2.20×10^{2}	1.00×10^{-7}	1.00×10^{-7}	1.00×10^{-7}	6.61×10^{0}
Fe(mol/m^3)	1.50×10^{-2}	1.00×10^{-7}	1.00×10^{-7}	1.00×10^{-7}	1.00×10^{-7}
K(mol/m^3)	2.10×10^{0}	1.00×10^{-7}	1.00×10^{-7}	1.00×10^{-7}	9.16×10^{-1}
Mg(mol/m^3)	5.80×10^{0}	1.00×10^{-7}	1.00×10^{-7}	1.00×10^{-7}	1.97×10^{-1}
Na(mol/m^3)	2.30×10^{2}	1.00×10^{-7}	1.00×10^{-7}	1.00×10^{-7}	1.96×10^{2}
S(mol/m^3)	6.30×10^{-3}	1.00×10^{-7}	1.00×10^{-7}	1.00×10^{-7}	9.64×10^{1}
Si(mol/m^3)	1.10×10^{0}	6.65×10^{-1}	3.78×10^{-1}	4.83×10^{-2}	9.56×10^{-2}
溶存酸素(mol/m^3)	1.00×10^{-7}	6.65×10^{-1}	6.65×10^{-1}	6.65×10^{-1}	6.65×10^{-1}

表2.4-3　オーバーパック腐食試験の解析評価に用いた物性値

パラメータ	単位	岩盤	路盤	支保	砂層	緩衝材	オーバーパック
真密度	Mg/m^3	2.45	2.62	2.62	2.51	2.68	7.80
乾燥密度	Mg/m^3	1.35	2.28	2.28	1.40	1.80	7.80
初期水分飽和度	-	1.00	1.00	1.00	1.00	0.591	-
空隙率	-	0.448	0.130	0.130	0.442	0.328	-
熱伝導率	W/mK	1.24	2.56	2.56	2.04	式(2.4-7)	53.00
比熱	kJ/kgK	1.27	1.05	1.05	1.27	式(2.4-8)	0.46
固有透過度	m^2	1.33×10^{-15}	9.32×10^{-18}	9.32×10^{-18}	1.00×10^{-18}	式(2.4-5)	-
水分特性曲線	-	-	-	-	-	式(2.4-3)	-
比透水係数	-	-	-	-	-	式(2.4-4)	-
温度勾配水分移動係数	m^2/sK	-	-	-	-	式(2.4-9)	-
縦分散長	m	0.1					-
横分散長	m	0.01					-
実効拡散係数	m^2/s	9.0×10^{-12}				3.00×10^{-10}	-
ガス拡散係数	m^2/s	-	-	-	-	1.50×10^{-5}	-

(b) 解析結果

オーバーパック腐食試験を対象とした THMC 解析結果の一例として、廃棄体を模擬したヒーターの加熱を開始してから 1300 日後の温度、間隙水中の pH、間隙水中の溶存酸素及び Cl 濃度に関するコンター図を図 2.4-14 に示す。図 2.4-14 で示されるように、境界条件として 90 °C に設定したオーバーパックを中心として温度勾配が形成された温度環境となっている。間隙水の pH は、普通ポルトランドセメントを使用したコンクリート路盤及び低アルカリセメントを使用したコンクリート支保のセメント反応溶液が砂層や緩衝材中に浸潤し、これらの間隙水の pH は表 2.4-2 で示した初期の値よりも上昇する結果となっている。間隙水中の溶存酸素は、緩衝材中

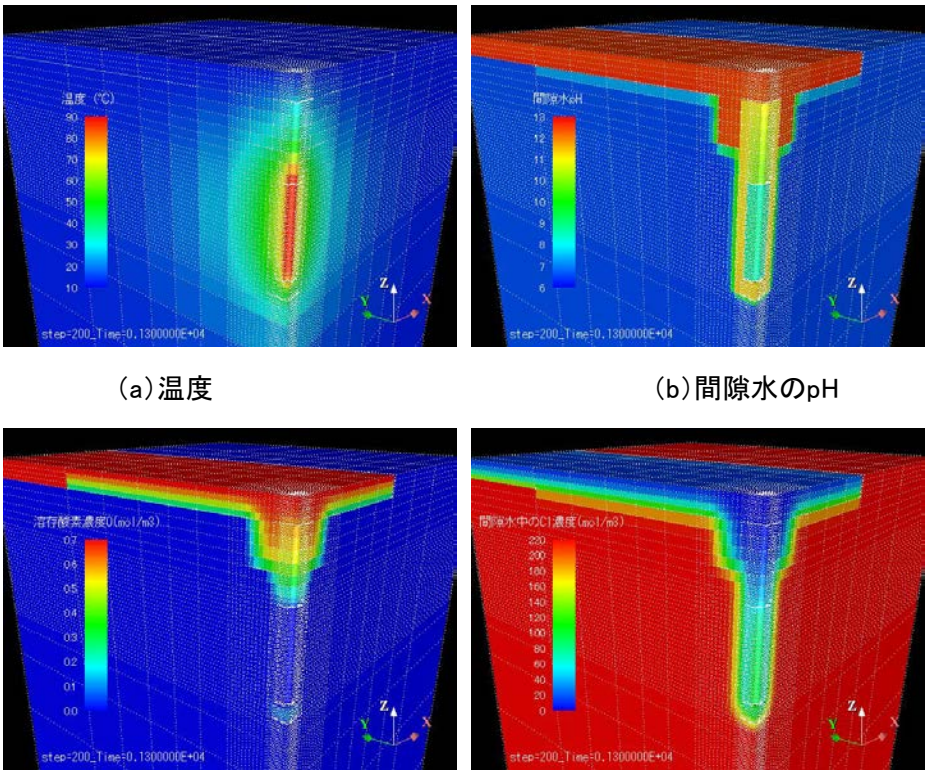
で考慮した黄鉄鉱が酸素を消費する反応によって、緩衝材中だけなく、隣接する支保や砂層の間隙水中の溶存酸素までも低下させる結果となっている。また、緩衝材中に地下水が浸潤することにより、緩衝材の間隙水中の Cl 濃度は、1,300 日後には、約 100 mol/m^{3}まで上昇する結果となっている。

次に、緩衝材中の温度、水分飽和度、間隙水の pH 及び間隙水の pe の時間変化に関する解析結果を図 2.4-15 に示す。解析出力ポイントは、図 2.4-12 中に示すように、緩衝材の中間深度における出力ポイント A、B、及び C である。出力ポイント A は、オーバーパックと接触している緩衝材、出力ポイント B は、オーバーパック壁面より水平方向に 50 mm の位置、出力ポイント C は、コンクリート支保と接触している緩衝材である。これより、温度については、廃棄体を模擬したヒーターの加熱を開始してから 100 日程度で定常状態となっており、オーバーパック近傍の温度は 90 °C 程度、支保近傍で 60 °C 程度となっている。水分飽和度については、支保と接触する部分では約 3 日後に飽和となっている。オーバーパックと接触する部分においては、温度勾配による水分移動により一時的に乾燥し、その後は地下水の浸潤によって、1,300 日後には初期の水分飽和度まで回復するような挙動を示している。また、1,300 日後の出力ポイント B の飽和度は 0.95 程度であり、緩衝材内部は不飽和な状態となっている。コンクリート支保を透過した高 pH の地下水が浸潤する緩衝材の間隙水 pH は、1,300 日後において、出力ポイント A で 8.2、出力ポイント C で 8.5 となっている。このような pH の緩衝作用は、設定したスメクタイトの酸・塩基反応及び黄鉄鉱が酸素する反応によるものである。また、間隙水の pe は、黄鉄鉱が酸素を消費する反応によって低下し、約 100 日後に酸素が消滅することによって、その後は低い状態で推移する結果となっている。

さらに、2.2 章で示した緩衝材中に設置させた計測センサーによって得られた間隙水 pH と pe の時間変化について、TMC 連成解析の結果と比較して図 2.4-16 に示す。間隙水 pe は図 2.2-10 の E_{Pt}を次式により変換した。

$$pe = \frac{FE_{Pt}}{2.303RT} \qquad (2.4\text{-}10)$$

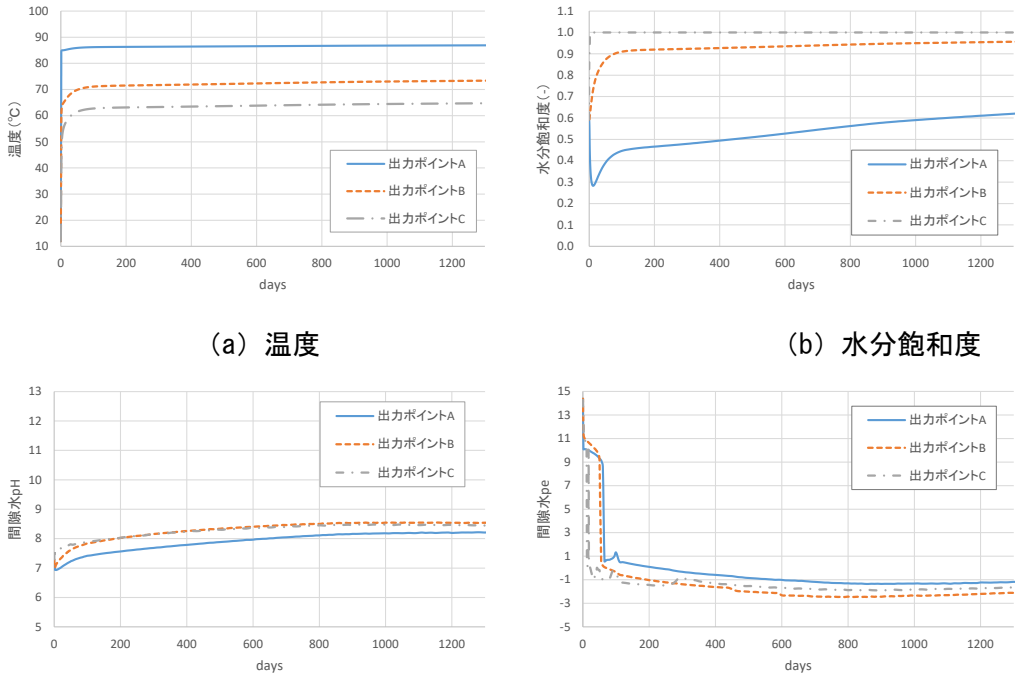
ここで、F：ファラデー定数(9.648×10^{4}sA/mol)、R：気体定数（8.314 m^{2}kg/s^{2}Kmol)、T：温度（K）である。比較する位置は、オーバーパック腐食試験においてセンサーが設置された緩衝材底面より上方に 550 mm、オーバーパック表面より 50 mm の場所であり、解析における出力ポイント B である。これより、間隙水の pH については、低アルカリセメントの影響を受け弱アルカリ性付近でほぼ一定値となることや、間隙水の pe は、試験開始より 100 日後に溶存酸素が低くなった可能性があるとした計測値を解析値はよく再現している結果となっている。



（a）温度　　（b）間隙水のpH

（c）溶存酸素濃度　　（d）間隙水中の Cl 濃度

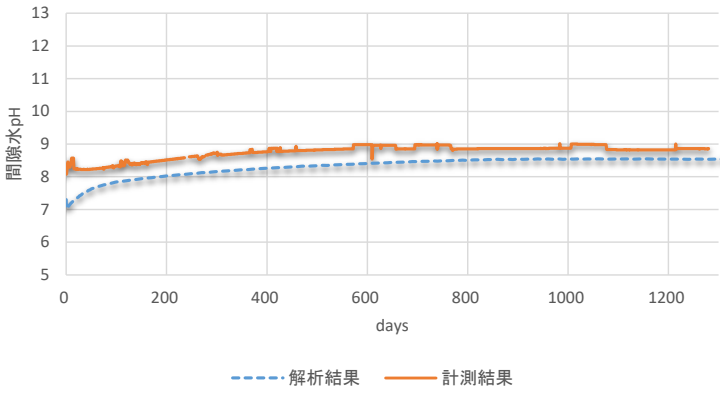
図 2.4-14　THMC 連成解析によるオーバーパック腐食試験の再現解析結果（空間分布コンター図）



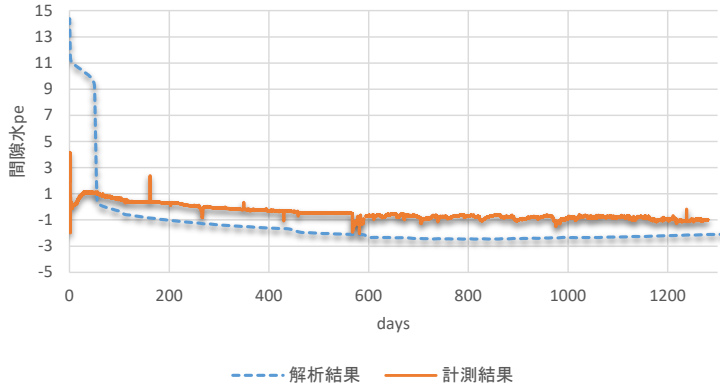
（a）温度　　（b）水分飽和度

（c）間隙水の pH　　（d）間隙水の pe

図 2.4-15　THMC 連成解析によるオーバーパック腐食試験の再現解析結果（時間変化）



（a）　間隙水pH



(b) 間隙水 pe

図 2.4-16　オーバーパック腐食試験で得られた計測結果と THMC 連成解析結果の比較

(3) 2 か年の成果と今後の課題

本事業では、これまでに開発した熱-水-応力-化学（THMC）連成解析モデルの正確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、①豊富な計測データが得られている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海水系地下水環境下における緩衝材の間隙水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けるオーバーパック腐食試験を対象としたTHMC連成解析を実施した。

FEBEXプロジェクトにおける原位置試験を対象としたTHM連成解析モデルの検証として、平成30年度に実施した試験開始から5年間の評価に引き続き、その後の約13年間の解析を実施し、廃棄体を模擬したヒーターの加熱を停止した後の冷却期間を含めた19年間の全試験期間の評価を実施した。そして、緩衝材中に設置されたセンサーによって得られている計測データや、緩衝材のサンプリング試料から得られたデータなどを通じてTHM連成解析モデルの正確性の確認を行った。その結果、廃棄体を模擬したヒーターの加熱中及び加熱を停止した後の減熱過程における緩衝材中の温度を適切に再現できていることを確認した。これは、熱移動が熱伝導に支配されていることを示すものであり、正確な熱物性値を与えることで緩衝材中の温度環境を的確に予測することが可能であることが分かった。また、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、キャニスター近傍では緩衝材が乾燥する様子など全体的な浸潤挙動を再

現できることを確認するとともに、緩衝材のサンプリング試料から得られた水分分布との比較により、原位置試験の浸潤挙動を適切に評価できていることを確認した。他方、浸潤が進んでいない比較的短期の解析評価において一定値として扱った温度勾配水分移動に関するパラメータについては、緩衝材への地下水の浸潤が進んだ長期間の評価を通じて、水分飽和度や温度などの変化が緩慢になる時期の水理挙動を再現するためには、温度勾配水分移動係数の水分飽和度依存性を考慮する必要があることが分かった。温度勾配による水分移動は、廃棄体周辺での緩衝材の乾燥の程度や、浸潤速度に大きく影響することから重要なパラメータの一つである。この値については、実験などに基づく測定例が少ことから、室内試験などを通じて水分飽和度依存性や温度依存性についてのデータを蓄積する必要がある。緩衝材の応力に関する解析評価では、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いないことから、解析結果は、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。しかしながら、緩衝材の浸潤が促進してブロック間の隙間が閉塞することによって計測値は上昇し解析値と一致する結果となっている。また、様々な処分概念や設計オプションに柔軟に対応できる解析モデルの構築の観点からも、これまでに評価実績の少ない廃棄体横置き方式の人工バリア仕様や、国産とは異なるベントナイトに対しても有効であることを確認することができた。以上のことから、FEBEXプロジェクトにおける原位置試験を対象とした長期の解析評価を通じて、図2.4-1に示したように、熱、水理、及び力学特性の相互作用のうち、力学的挙動の帰結として熱特性及び水理特性におよぼす影響を除く部分について妥当性を確認した。今後は、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に、埋戻し材を有する廃棄体縦置き仕様において、埋戻し材中への緩衝材の膨出にともな力学特性の変化がおよぼす熱特性及び水理特性への影響を考慮した再現解析を実施し、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THM連成解析モデルの正確性を確認していくことが課題としてあげられる。

一方、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 連成モデルの検証では、海水系地下水環境下における浸潤評価を行うために必要となる緩衝材の不飽和水理パラメータを取得し、これに基づき、廃棄体を模擬したヒーターの発熱とセメントの影響を考慮した地下水の浸潤にともなう緩衝材間隙水の化学的な環境変化に着目した THMC 連成解析を実施した。そして、コンクリート支保の影響を受けた地下水が浸潤する緩衝材の間隙水組成や、間隙水の酸化還元電位を把握した。さらに、オーバーパック腐食試験において計測された緩衝材の間隙水 pH と pe を再現できていることを確認した。以上のことから、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解析評価を通じて、図 2.4-1 に示したように、熱、水理、及び地球化学特性の相互作用による緩衝材の間隙水化学に関する評価の妥当性を確認した。今後は、THMC 連成解析モデルを活用し、オーバーパックの腐食挙動に影響をおよぼすと考えられている塩化物イオンや炭酸イオン濃度など、オーバーパックの腐食評価に必要となる情報を提供していくとともに、原位置試験のサンプリング試料の分析結果などから得られる緩衝材の変質や二次鉱物の生成の有無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が求められる。また、本研究で得られた温度勾配水分移動係数の水分飽和度依存性や、海水系の地下水浸潤モデルを用いて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 THMC 連成解析を実施し、海水系地下水環境下における人工バリアの浸潤挙動を把握していくことが課題としてあげられる。

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, 2018）。

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（Mechanical Analysis considering Chemical transition of BEntonite and CEment materials）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, 2018）。

しかしながら、MACBECE では、緩衝材施工後の再冠水挙動などの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、廃棄体の発熱による処分施設の温度変化に伴う構成材料の熱膨張や熱収縮挙動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ていなかった。このような背景のもと、平成 30 年度は、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て、過渡期の緩衝材の力学的な状態変化を解析する機能を MACBECE に追加した。

平成 31 年度は、過渡期の解析機能の効果を検証するため、MACBECE を用いて過渡期から 10 万年後までの処分施設の長期力学解析を実施し、過渡期の処分施設の各材料及び周辺岩盤の力学的な相互作用を考慮したニアフィールドの長期力学挙動評価を実施するとともに、過渡期の力学挙動がひずみ、透水係数分布などの処分施設の力学及び水理的な状態変遷に与える影響を分析した。

さらに、過渡期の緩衝材の力学モデルの高度化に向けて、エックス線 CT 測定による膨潤圧試験中の供試体内部の観察を行い、膨潤圧の変化と供試体内部の状態変化の関係の把握を試みた。

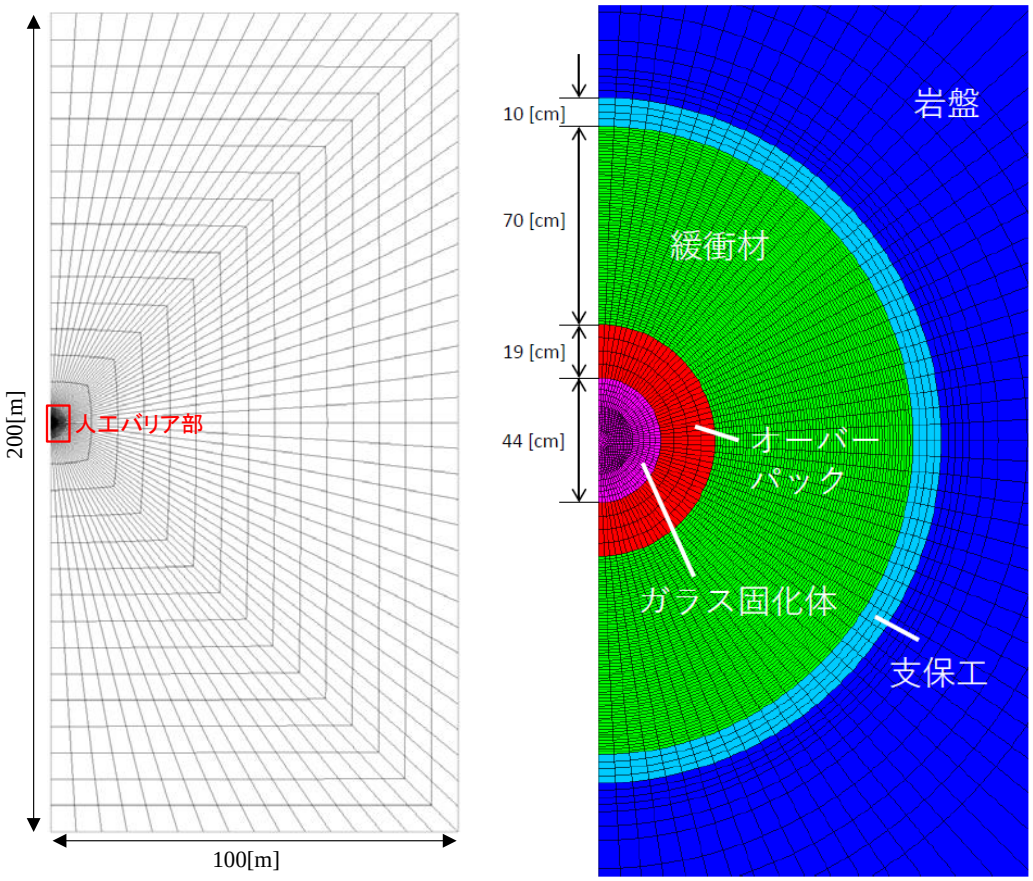
(2) 実施内容

1）ニアフィールドの長期力学挙動解析

①ニアフィールドの長期力学解析の概要

平成 30 年度改良した MACBECE を用いて、過渡期の処分施設の各材料及び周辺岩盤の力学的な相互作用を考慮した過渡期から 10 万年後までのニアフィールドの長期力学挙動評価を実施し

た。さらに、過渡期の力学挙動がひずみ、透水係数分布などの処分施設の力学及び水理的な長期の状態変遷に与える影響を分析した。解析体系は、軟岩、深度 500 m、横置き方式などを想定し、図 2.4-17 に示す 2 次元断面とした。解析ケースは、表 2.4-4 に示すように、緩衝材の飽和度の空間分布の時間変遷や緩衝材及びセメント系材料の化学的変遷指標の組み合わせから 4 ケースの解析ケースを設定した。これらの解析結果の比較により、処分施設の力学及び水理的な長期の状態変遷に与える過渡期の力学挙動の影響を分析した。Case1 では、従来の長期力学解析と同様に、再冠水期間の緩衝材内部の飽和度分布の時間変遷を考慮せず、再冠水終了時に所定の膨潤圧を緩衝材全要素に載荷した。また、この期間の緩衝材を弾性体としてモデル化した。Case2～4 は再冠水期間には緩衝材を弾塑性体としてモデル化し、Case2 の飽和度分布は、再冠水終了までの期間、緩衝材全域で一様に線形的に飽和度が増加することとした。また、Case3,4 の緩衝材の飽和度の時空間変遷については、別途 THAMES を用いた熱-水連成解析を実施し、過渡期の緩衝材内部の飽和度分布の時間変化の情報を取得したものを用いた。また、Case4 では、化学変遷指標が線形的に変化すると仮定し、セメント系材料では 10 万年後にカルシウム溶出率が 0 から 1 に、緩衝材では交換性 Na 率が 0.85 から 0.15 に変化することとした。



(a)　全体図　　(b)　処分坑道拡大図

図2.4-17　解析メッシュ

表2.4-4　解析ケース

	再冠水	再冠水時の力学モデル	飽和度分布	化学変遷指標の変化
Case1	考慮しない	弾性	-	考慮しない
Case2	考慮する	弾塑性	一様分布	考慮しない
Case3	考慮する	弾塑性	THAMES による解析結果	考慮しない
Case4	考慮する	弾塑性	THAMES による解析結果	考慮する

②熱–水連成解析による再冠水時の緩衝材内の飽和度分布の時間変遷の取得

Case3 および 4 で使用する緩衝材の飽和度分布の時間変遷を取得するため、THAMES を用いた熱-水連成解析を実施した。熱-水連成解析でのガラス固化体の発熱量は、第 2 次取りまとめにおける処分場の温度評価（核燃料サイクル開発機構, 1999a）と同様に、再処理までの冷却期間を 4 年、中間貯蔵期間を 50 年とした時の発熱量とした。まず坑道埋め戻し前の岩盤内の水圧分布を求める解析を実施し、得られた岩盤内の水圧分布を坑道埋め戻し後の再冠水解析における初期条件として用いた。解析断面は MACBECE と同様、二次元断面とした。図 2.4-18 に坑道埋め戻し前の岩盤内の水圧分布を求める解析に使用したメッシュ図、境界条件、得られた岩盤内の水圧分布を示す。解析体系の水平方向の幅については、対称性から坑道離間距離の半分に設定した。また、坑道離間距離については、既往の研究（鈴木ら，2012）を参考に、処分坑道径の 11 倍とした。

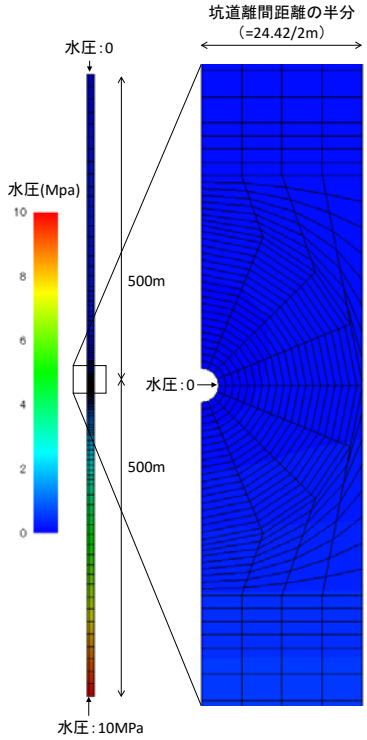


図 2.4-18　埋戻し前のメッシュ図・境界条件および岩盤内の初期水圧分布

図 2.4-19 に埋戻し後の坑道内のメッシュ図、図 2.4-20 にガラス固化体の発熱量を示す。なお、ガラス固化体の要素には、図 2.4-20 の発熱量（W/本）をガラス固化体の断面積（m^2）にガラス固化体ピッチ（3.13 m）をかけ合わせた体積（m^3）で除した時の平均的な発熱量（W/m^3）を与えた。表 2.4-5 に各材料のパラメータをまとめる。

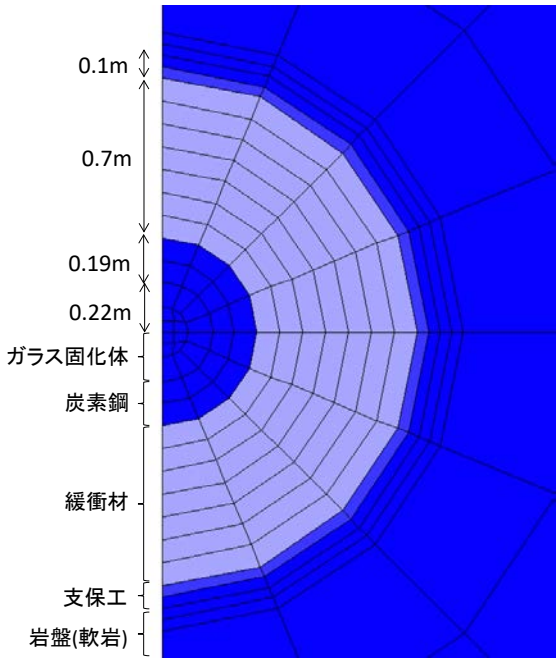


図 2.4-19　埋戻し後の坑道内のメッシュ図

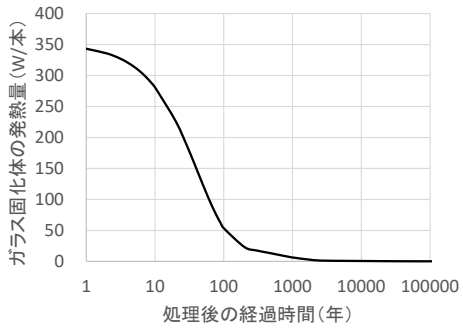


図 2.4-20　ガラス固化体の発熱量

表 2.4-5　解析パラメータ

パラメータ	単位	ガラス固化体	炭素鋼	緩衝材	支保	岩盤
間隙比	[-]	1.00×10^{-5}	1.00×10^{-5}	0.675[1]	0.149[3]	0.429[1]
比重	[-]	2.80[1]	7.86[1]	2.68[1]	2.62[3]	2.70[1]
固有透過度	[m2]	1.00×10^{-30}	1.00×10^{-30}	4.00×10^{-20}[1]	9.20×10^{-18}[3]	1.03×10^{-16}[1]
比透水係数	[-]			$Se^{1.3}$[2]		
比熱	[J/(kg･K)]	960[1]	460[1]	$(34.1+4.18w)/(100+w)$ [1] w：含水比（%）	1050[3]	1400[1]
熱伝導率	[W/(m･K)]	1.20[1]	53[1]	$0.444+0.0138w+6.14\times10^{-3}w^2+1.69\times10^{-4}w^3$[1]	2.56[3]	2.20[1]
温度勾配水分拡散係数	[m2/(s･K)]	-	-	$S_r \le 0.20: D_t = D_{t1}\sin^8\left(\frac{S_r}{0.2}\frac{\pi}{2}\right)$ $0.20 \le S_r \le 0.25: D_t = D_{t1}$ $0.25 \le S_r: D_t = D_{t1}\cos\left(\frac{S_r-0.25}{0.75}\frac{\pi}{2}\right)$ $D_{t1} = D_{t0}exp(0.063T), D_{t0} = 9\times10^{13}$[3]	-	-
水分特性曲線式	-	-	-	$S_e=[1+(\alpha s)^n]^{-(1-1/n)}$ α=8.00E-03,n=1.60[1]	-	-
初期温度	℃	80	30	30	30	30
初期飽和度	%	100	100	28	100	100
備考	[1]：核燃料サイクル開発機構（1999a）、[2]：日本原子力研究開発機構（2016）、[3]：鈴木ほか（2012）					

飽和度分布の時間変化を図 2.4-21 に示す。緩衝材全域が飽和するのは約 50 年であった。この飽和度分布の時間変化を、MACBECE を用いた長期力学挙動解析のインプット情報として用いる。

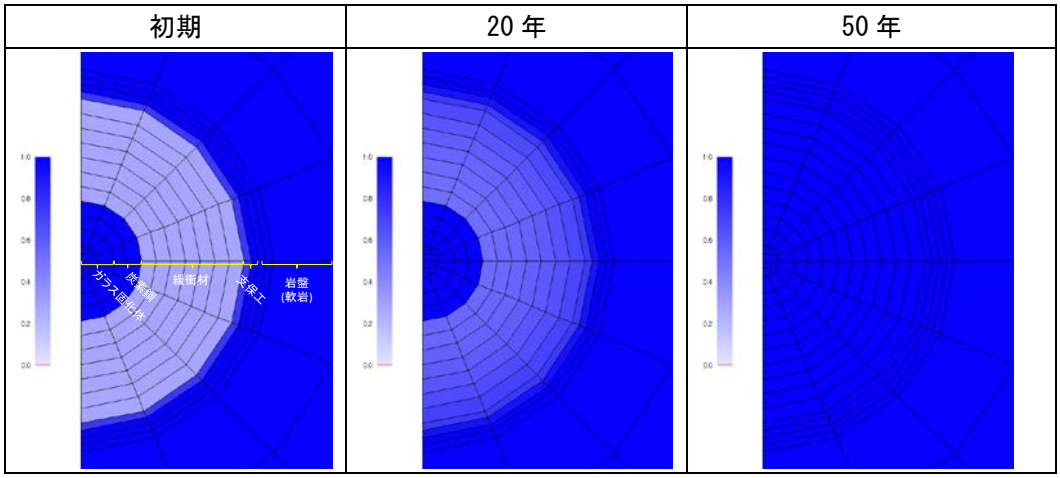


図 2.4-21　飽和度の時間変化

③ 処分施設を対象とする長期力学解析条件

長期力学解析の解析ステップを表 2.4-6 に示す。

表 2.4-6　長期力学挙動解析の解析ステップ

解析ステップ	内容	備考
1	岩盤の初期応力状態の設定	深度 500 m を想定・均質異方応力状態（側圧係数：1.066）
2	岩盤掘削	掘削解放率 65%
3	支保工施工・岩盤掘削	自重載荷・掘削解放率 35%
4	クリープ	5 年間放置（全坑道掘削期間）
5	緩衝材、オーバーパック施工	自重載荷
6	再冠水	50 年で再冠水終了を想定（Case1 のみ 50 年経過時点で所定の膨潤圧を載荷）
7	長期力学挙動解析	Case4 のみ緩衝材およびセメント系材料の化学変遷指標を考慮

緩衝材の物性値を表 2.4-7 および 8 に示す。Case2～4 のパラメータは平成 30 年度の膨潤変形試験の解析で用いたものと同様のものを用いた（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター，2019）。Case1 では再冠水期間は弾性体、再冠水終了後は弾塑性体として解析を行っているため、それぞれの物性値を示している。Case1 では、再冠水終了後の応力状態をそのまま長期力学解析の初期状態として使用している。また、Case1 の再冠水終了後のパラメータは Case2～4 と同様のものを用いているが、再冠水終了時の状態を弾塑性状態（過圧密比が 1）と仮定し、各要素の異方的な応力状態に応じて降伏曲面の異方性を設定した解析となっている。一方、Case2～4 では、再冠水期間を弾塑性体として計算しており、再冠水期間終了時の降伏応力

を引き継いで長期力学挙動解析を開始するため、ほとんどの要素において弾性状態からの計算となり、再冠水期間における応力履歴の影響を反映した評価が行われる。しかしながら、弾性状態から計算を行う際に二次圧密などの粘性挙動を考慮した場合、粘塑性体積ひずみが負（膨張側）の値をとる可能性がある。MACBECE でこれまで使用されてきた弾粘塑性構成モデルでは、粘塑性体積ひずみが正でなければ理論上計算することができない課題を有しているため（例えば、平田ら, 2013）、本検討ではすべてのケースで粘性挙動は考慮しないこととした。セメント系材料の想定仕様を表 2.4-9 に、再冠水期間及び長期力学解析以降におけるセメントの解析用物性値を表 2.4-10 および表 2.4-11 にそれぞれ示す。セメント系材料の物性値は「TRU 廃棄物処分技術検討書-第 2 次 TRU 廃棄物処分研究開発取りまとめ-」（電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構, 2005）と同様とした。岩盤の解析用物性値を表 2.4-12 に示す。岩盤の解析用物性値は、第二次とりまとめ（核燃料サイクル開発機構, 1999a）における、設計用岩盤データセット（軟岩系）を参考に設定した。炭素鋼オーバーパック（腐食膨張要素）の解析物性値を表 2.4-13 にまとめる。緩衝材に取り込まれた酸素がすべて腐食によって消費されると仮定して腐食量を評価した場合、横置き方式での炭素鋼オーバーパックの平均腐食深さは 0.3 mm と評価されている（核燃料サイクル開発機構, 1999a）。この腐食が再冠水期間中に生じると仮定し、再冠水期間中の平均的な腐食速度を MACBECE の再冠水期間中の腐食速度として使用した。THAMES を用いた熱水連成解析から、緩衝材全域が飽和するのは約 50 年であったことから、解析に用いる腐食速度は 6.0（μm/year）とした。ガラス固化体の物性を表 2.4-14 に示す。

表 2.4-7　緩衝材の解析用物性値（Case1）

期間	パラメータ	値
再冠水	単位体積重量 γ_t [kN/m^3]	16.7※1
	ヤング率 E [MPa]	57.6※2
	ポアソン比 ν [-]	0.42※3
	せん断弾性係数 G [MPa]	$G = E / 2(1+\nu)$
	初期膨潤圧 P_{bal} [MPa]	0.49
長期力学挙動解析	圧縮指数 λ [-]	0.125
	膨潤指数 κ [-]	0.09
	限界状態パラメータ M [-]	0.63
	有効ポアソン比 ν [-]	0.1
	初期間隙比 e_i [-]	0.675
	初期ケイ砂混合割合 C_{s0} [-]	0.3
	初期乾燥密度 ρ_{d0} [Mg/m^3]	1.6
	透水係数の補正係数 α_{perm} [-]	1.0
	スメクタイトの比重 G_{sme} [-]	2.7
	随伴鉱物の比重 G_x [-]	2.7
	ケイ砂の比重 G_{ss} [-]	2.7

※1：含水比 7%、比重 2.68 を想定した。（核燃料サイクル開発機構，1999a）
※2：含水比 7%を用いて、$E_{50} = 84.34 - 3.744w$（核燃料サイクル開発機構，1999a）により算出した。ただし、E_{50}：弾性係数（MPa）、w：含水比（%）である。
※2：奥津ら（2005）より設定

表 2.4-8　緩衝材の解析用物性値（Case2～4）

パラメータ	値
圧縮指数λ [-]	0.125
膨潤指数（飽和度 Sr=0 の時）κ_0 [-]	0.043
膨潤指数（飽和度 Sr=1 の時）κ_{sat}[-]	0.09
フィッティングパラメータ l[-]	1.0
限界状態パラメータ M [-]	0.63
有効ポアソン比ν [-]	0.1
正規圧密線を決定するパラメータ p'_{ref}　[MPa]	1.0
正規圧密線を決定するパラメータ e_{ref} [-]	0.62
初期鉛直全応力 σ_{vi} [MPa]	0.0
静止土圧係数 K_i [-]	1.0
初期間隙比 e_i [-]	0.675
Se-hardening model パラメータ a[-]	35
Se-hardening model パラメータ n[-]	1.3
最小（残留）飽和度[-]	0.0
最大飽和度[-]	1.0
van Genuchten モデルパラメータ *va*	0.008
van Genuchten モデルパラメータ *vm*	0.375
van Genuchten モデルパラメータ *vn*	1.6
初期ケイ砂混合割合 C_{s0} [-]	0.3
初期乾燥密度 ρ_{d0} [Mg/m^3]	1.6
透水係数の補正係数α_{perm} [-]	1.0
スメクタイトの比重 G_{sme} [-]	2.7
随伴鉱物の比重 G_x [-]	2.7
ケイ砂の比重 G_{ss} [-]	2.7

表 2.4-9 セメント系材料の想定仕様

部位	設定材料	骨材率	間隙率	真密度 [t/m^3]	圧縮強度 [MPa]
支保工（円形）	コンクリート（W/C=45%）	67vol%	13%	2.62	43

表 2.4-10 セメント系材料の解析用物性値（再冠水期間）

パラメータ	値
単位体積重量γ_t [kN/m^3]	24.1※1
ヤング率 E [MPa]	3.04×10^4※2
ポアソン比ν[-]	0.2※3
せん断弾性係数 G [MPa]	$G = E / 2(1+\nu)$
引張強度σ_{t0} [MPa]	4.3※4
ひび割れ後の剛性低下率[-]	1/100※5

※1：真密度及び間隙率から飽和状態の値として算出した。廃棄体定置部の値は廃棄体重量を加味した。長期的な溶出にともなう変化は、間隙率が変化する領域及び変化割合は限定されるとして考慮していない。

※2：第 2 次 TRU レポートを参考に以下の式を用いて算出した。

コンクリート： $E = 21000\times(\gamma/23)^{1.5}\times(\sigma_c/20)^{0.5}$

ただし、σ_c：一軸圧縮強度（MPa）、γ：気乾単位容積重量（kN/m^3）である。

※3：土木学会：コンクリート標準示方書[構造性能照査編]（2002）を参考に設定した。

※4：土木学会：コンクリート標準示方書[ダムコンクリート編]（2002）を参考に設定した。

※5：十分に小さい値である 1/100 を使用した。

表 2.4-11 セメント系材料の解析用物性値（長期力学解析以降）

パラメータ	値
初期ヤング率 E_0 [MPa]	3.04×10^4
ポアソン比 ν [降伏前]	0.20
[降伏後]	0.45※1
初期せん断弾性係数 G_0 [MPa]	$G_0 = E_0 / 2(1+\nu)$
初期粘着力 c_0 [MPa]	21.5※2
初期内部摩擦角 ϕ [deg.]	0※2
初期圧縮強度 σ_{c0} [MPa]	43
最小圧縮強度 $\sigma_{c\,min}$ [MPa]	0.43※3
水セメント比 W/C [%]	45
骨材容積割合 V_c [%]	67
気乾単位容積重量 γ [kN/m^3]	22.8
初期引張強度 σ_{t0} [MPa]	4.3※5
最小引張強度 $\sigma_{t\,min}$ [MPa]	0.043
ひび割れ後の剛性低下率 [-]	1/100
水の動粘性係数 [m^2/s]	1.0×10^{-6}※6
ひび割れ本数（1 要素当り）	1.0
透水係数の補正係数 α_{perm} [-]	1.0
圧縮強度の補正係数 $\alpha_{strength}$ [-]	1.0
弾性係数の補正係数 $\alpha_{elasticity}$ [-]	1.0

※1：日本コンクリート工学協会：コンクリート便覧[第二版]（1996） を参考に設定した。
※2：第 2 次 TRU レポートを参考に、初期内部摩擦角は 0[deg.]とし、初期粘着力は一軸圧縮強度の 1/2 とした。
※3：溶出が著しく進んだコンクリートの強度は初期の 1/10 程度残存すると推察されている（横関、2003；戸井田ら、2005）。ここでは、保守性を加味して 1/100 残存するとした（奥津ら、2005）。
※4：真密度及びコンクリートに占める体積割合から求めた。
※5：土木学会：コンクリート標準示方書[ダムコンクリート編]（2002）を参考に設定した。
※6：国立天文台編：理科年表（2016）を参考に設定した。

表 2.4-12 岩盤の解析用物性値（非線形粘弾性体）

パラメータ	値
単位体積重量γ_t [kN/m^3]	22.0
一軸圧縮強度 q_u [MPa]	15.0
引張強度σ_t [MPa]	2.1
初期ヤング率 E_0 [MPa]	3.50×10^3
初期ポアソン比 ν_0 [-]	0.30
延性のパラメータ m [-]	5.0
時間依存性のパラメータ n_0 [-]	20.0
ピーク強度到達時間 t_0 [sec.]	120.0
初期上載圧σ_{vi} [MPa]	11.0※1
側圧係数 K_i [-]	1.066※2
※1：深度 500 m を想定し、単位体積重量から算出した。 ※2：側圧係数は、深度 500 m を想定し、H12 レポート（核燃料サイクル開発機構, 1999a）と同様の算出式を用いて決定した。	

表 2.4-13 炭素鋼オーバーパック（腐食膨張要素）の解析用物性値

パラメータ	値
腐食膨張率β (-)	3.2
健全部剛性 E_0(MPa)	211400
腐食部剛性 E_{cor}(MPa)	250
ポアソン比ν(-)	0.333
再冠水期間の腐食速度α [μm/year]	6.0
再冠水後の腐食速度α [μm/year]	1.0
再冠水期間の腐食膨張速度γ [μm/year]	13.2※1
再冠水後の腐食膨張速度γ [μm/year]	2.2※1
再冠水期間の腐食ひずみ速度$\Delta\varepsilon$ [1/year]	6.95×10^{-5}※2
再冠水後の腐食ひずみ速度$\Delta\varepsilon$ [1/year]	1.12×10^{-5}※2
※1　腐食膨張速度 $\gamma = (\beta\text{-}1)\times\alpha = (3.2\text{–}1.0)\times\alpha$ [mm/year] ※2　腐食ひずみ速度　$\Delta\varepsilon=\Delta\varepsilon_x=\Delta\varepsilon_y = \gamma / h = \gamma/(0.19\times10^6)$	

表 2.4-14 ガラス固化体の解析用物性値

	ガラス固化体
弾性係数 E [MPa]	8.2×10^4
ポアソン比 ν [-]	0.3
密度 ρ [t/m^3]	2.8

③ 処分施設を対象とする長期力学解析結果

まず、再冠水期間における各ケースの解析結果を比較した。図 2.4-22 に各ケース（Case1～Case4）の再冠水期間における緩衝材の体積ひずみ分布、図 2.4-23 に緩衝材上側の体積ひずみの時間変化を示す。Case3 および Case4 は再冠水終了まで解析条件は同じであるため、同じ解析結果となっている。Case1 では腐食膨張および岩盤クリープにより全体的に圧縮変形が生じ、膨潤圧が載荷される 50 年後に膨潤挙動を示している。Case2 では均一に飽和度が上昇するため、Case3 および Case4 と比較して不均一な変形挙動は生じていない。Case3 および Case4 では、緩衝材外側から飽和度が上昇するため、40 年後程度までは外側が膨潤、内側が圧縮を示し、緩衝材全域が飽和する 50 年後では、他のケースと比較して不均一なひずみ分布となっている。図 2.4-24 に示す Case2、3、4 の再冠水期間における緩衝材の要素状態をみると、Case2 では再冠水期間を通じて常に弾性状態であったが、Case3、4 では 40 年後にオーバーパック側面に弾塑性状態となっている領域が存在する。これは、異方的な岩盤クリープや緩衝材の不均一な膨潤挙動、オーバーパックの腐食膨張などによってこの領域にせん断応力が卓越し、降伏したためである。この領域は 50 年後の体積ひずみ分布において圧縮された状態となっており、再冠水時に生じた応力履歴が再冠水終了時の体積ひずみ分布に影響を与えていることがわかる。

図 2.4-25 に再冠水時の坑道内空変位（圧縮：負）を示す。いずれのケースも坑道は鉛直方向に伸び、水平方向に縮む挙動を示している。これは、岩盤を異方的な応力状態に設定しているため、それに依存して異方的な岩盤クリープ挙動が生じたためと考えられる。しかしながら、各ケースで差異はあるが、その絶対値は 0.1 cm 以下であり、再冠水過程での緩衝材の膨潤挙動の違いが坑道内空変位に与える影響は小さい。

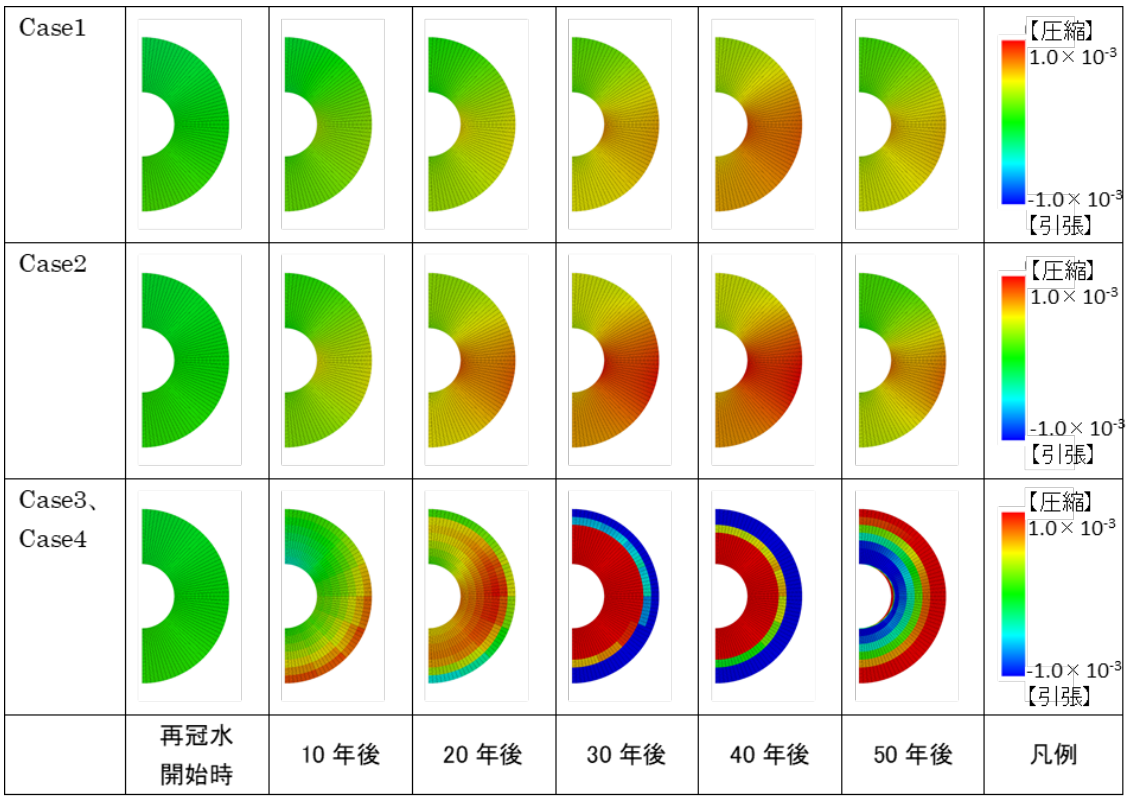


図 2.4-22 再冠水期間における緩衝材の体積ひずみ分布

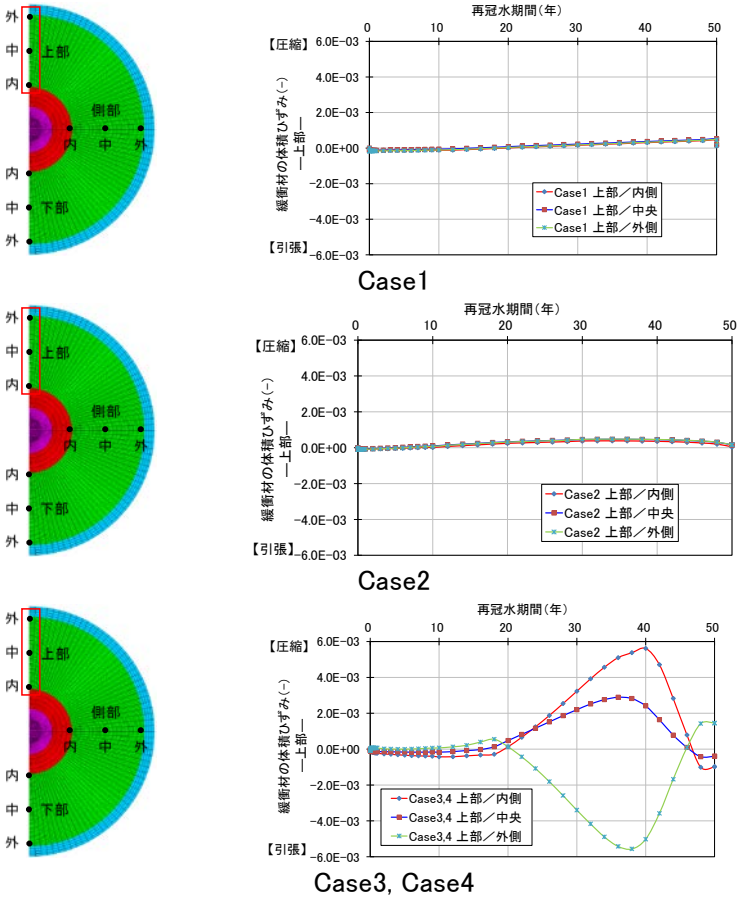


図 2.4-23 再冠水期間における緩衝材の体積ひずみ変化

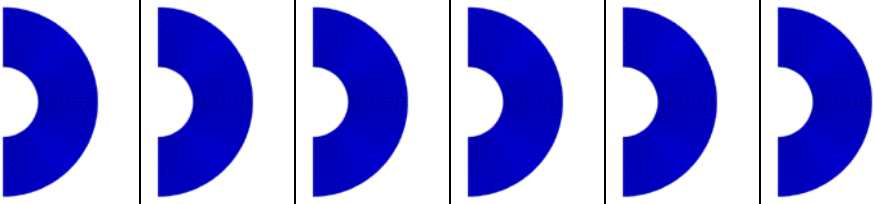
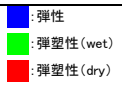
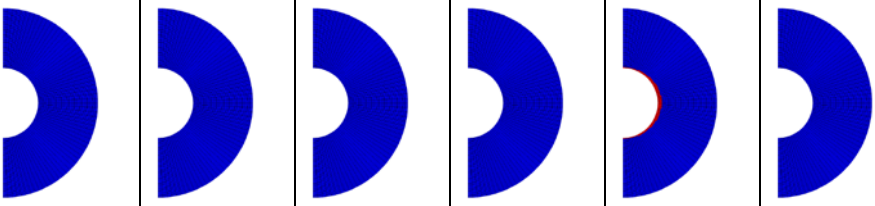
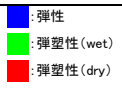
Case2							
Case3、Case4							
	再冠水開始時	10 年後	20 年後	30 年後	40 年後	50 年後	凡例

図 2.4-24 再冠水期間における緩衝材の要素状態

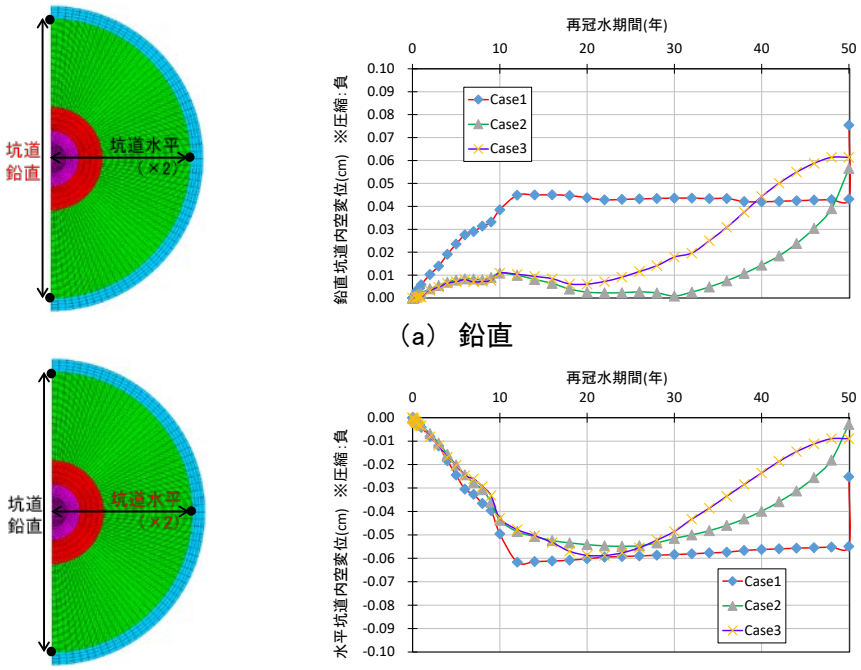


図 2.4-25　坑道内空変位（圧縮：負）　再冠水挙動時

図 2.4-26 に再冠水終了後から 10 万年後までの坑道内空変位（圧縮：負）を示す。図は、再冠水終了時を 0 年、変位を 0 として表示している。いずれのケースも約 67,000 年以降で変位がほとんど生じていないが、これは腐食膨張要素の腐食率が 100%となり、腐食膨張がこれ以上進行しなくなったためである。また、Case2 と Case3 では長期的な内空変位に差異はほとんどないことから、再冠水過程での飽和度分布の時間変化の違いによる影響は小さいことがわかる。Case1 と Case2 および Case3 とを比較すると、10 万年後の鉛直内空変位で約 0.2 cm、水平内空変位で約 0.7 cm の違いが見られるが絶対値としては小さく、再冠水時のモデル化の違いが長期的な内空変位に与える影響は小さい。Case3 と Case4 とを比較すると、変質による緩衝材の膨潤圧の低下や支保工の剛性の低下の影響により、絶対値は小さいものの、変位量の変化が大きくなっている。

図 2.4-27 に坑道内の体積ひずみ分布を示す。再冠水終了時には Case3 や 4 では緩衝材内に不均一なひずみ分布が生じているが、時間の経過に伴うオーバーパックの腐食膨張により緩衝材が圧縮され、1 万年以降の緩衝材の体積ひずみ分布は各ケースで大きな違いは見られなくなっている。一方、支保工の体積ひずみ分布は各ケースで違いが見られる。これは、支保工のひび割れ箇所や変質の考慮の有無の違いによるものと考えられる。図 2.4-28 に 10 万年後の各ケースの支保工のひび割れ状態と透水係数分布を示す。Case2 と Case3 ではひび割れの状態や透水係数の分布の傾向は類似し、ひび割れ箇所では局所的に透水係数が大きくなっている。一方、Case1 は、Case2 と Case3 と比較するとひび割れの発生個所の傾向が異なる。これは、Case1 の解析では、再冠水終了時までの応力履歴を考慮せず、再冠水終了時の緩衝材の応力状態に応じて降伏曲面の異方性を設定しているため、緩衝材の剛性が異方性を持っていることに起因すると考えられる。従って、再冠水過程のモデル化の違いが支保工のひび割れの発生個所に影響を与えることがわかった。Case4 では、他のケースと比較してひび割れの発生要素が少ない。これは、支保工のカルシウム溶出率の増加による剛性の低下により、支保工内の引張応力が他のケースと比べて小さくなり、引張強度を越えるような引張応力が発生しなかったためである。また、カルシウム溶出率の増加

により全体的に透水係数が大きくなっている。

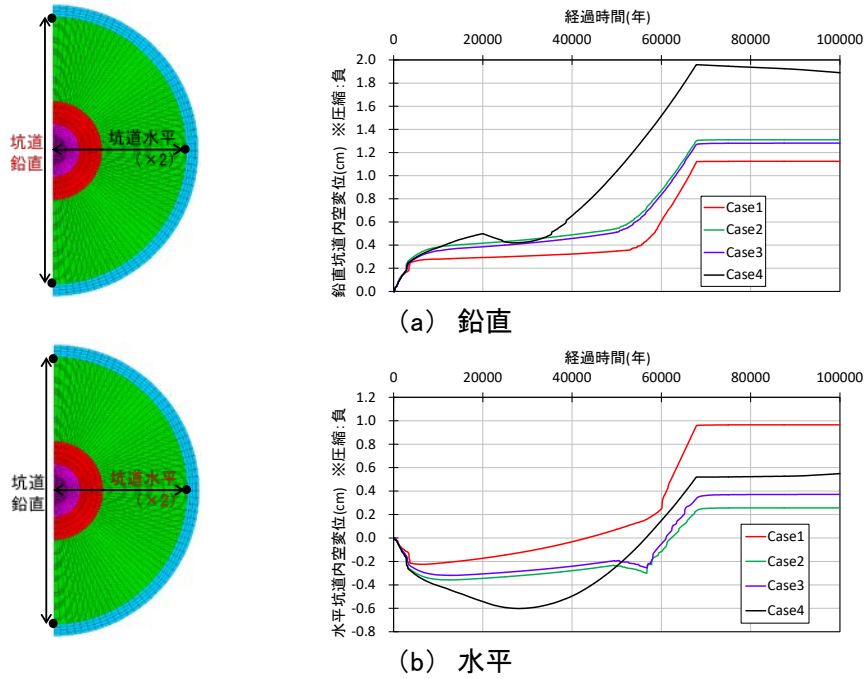


図 2.4-26　坑道内空変位（圧縮：負）　長期力学挙動解析時

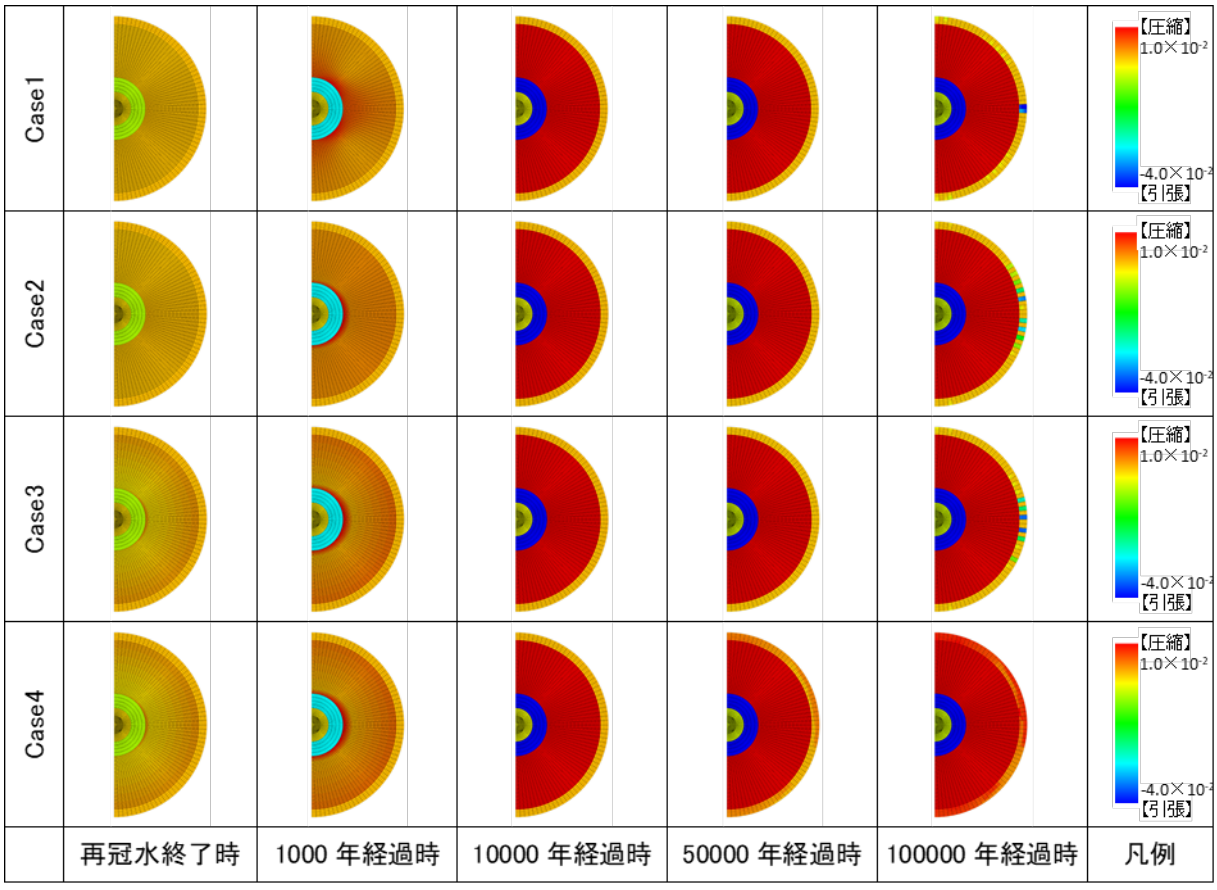


図 2.4-27　坑道内の体積ひずみ分布

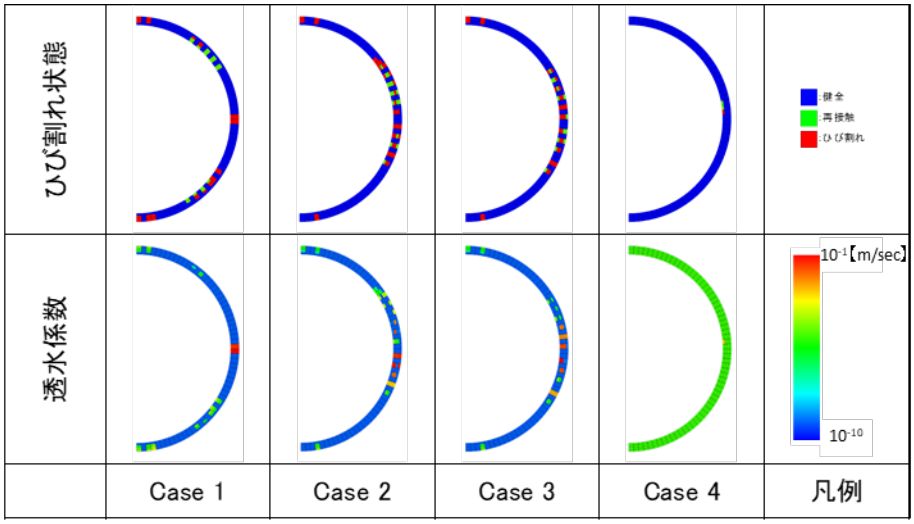


図 2.4-28　10 万年後の各ケースの支保工のひび割れ状態と透水係数分布

以上、平成 31 年度は、過渡期の解析機能の効果を検証するため、MACBECE を用いて過渡期から 10 万年後までの処分施設の長期力学解析を実施し、過渡期の処分施設の各材料及び周辺岩盤の力学的な相互作用を考慮したニアフィールドの長期力学挙動評価を実施するとともに、過渡期の力学挙動がひずみ、透水係数分布などの処分施設の力学及び水理的な状態変遷に与える影響を分析した。その結果、再冠水時の緩衝材の飽和度分布の時間変遷を考慮した場合、従来の解析手法を用いた場合や均一に飽和度が上昇した場合と比較して、飽和時の緩衝材の体積ひずみ分布が不均一になることが確認された。また、再冠水時の緩衝材の力学挙動（弾性モデル、弾塑性モデル）の違いが長期的な坑道内空変位に与える影響が小さいとこがわかった。さらに、再冠水時の緩衝材の飽和度分布の時間変遷を考慮した場合、従来の解析手法と比較すると、支保工のひび割れ発生個所がばらつき、支保工の透水係数分布に違いが生じることを確認した。

2）エックス線 CT 測定による膨潤圧試験中の供試体内部の観察

①背景と目的

これまで、放射性廃棄物の地層処分における緩衝材に用いるベントナイトの膨潤特性を把握するために膨潤圧試験が実施されてきた。膨潤圧試験は、締め固めた不飽和状態のベントナイトに対して体積を拘束した状態で給水し、発生する膨潤圧を計測する試験である。膨潤圧は、給水開始後の時間経過とともに単調に増加する場合や、一度増加した後に減少する場合など試験条件によって様々であるが、試験中の供試体内部の水の浸潤状況を把握できないため、このような膨潤圧の変化と供試体内部の状態変化の関係を明らかにすることは難しい。一方、膨潤圧の発生を表現する力学モデルの開発も進められてきているが、膨潤圧の変化と供試体内部の状態変化の両方の再現性を検証することができておらず、過渡期の緩衝材の力学モデルの検証や高度化のためには、膨潤圧の変化と供試体内部の状態変化の関係を把握することが重要と考える。本研究では、膨潤圧試験における膨潤圧の変化と供試体内部の状態変化の関係を把握し、緩衝材の力学モデルの開発・高度化に資するデータを取得することを目的に、エックス線 CT 測定による膨潤圧試験中の供試体内部の観察を行い、膨潤圧の変化と供試体内部の状態変化の関係の把握を試みた。

②CT 値とベントナイトの諸物性値との関係

まず、エックス線 CT 測定によって得られる CT 値（被写体の空間的なエックス線吸収値）とベントナイトの湿潤密度などの諸物性値との関係を把握した。測定には医療用エックス線 CT スキャナである東芝製 Alexion を用いた。ここでは、乾燥密度や含水比をパラメータとして供試体を作製し、作製した供試体に対してエックス線 CT 測定を実施した。ベントナイトとしてクニゲル V1®を用いた。測定条件は、管電圧は 120 kV、管電流は 35～40 mA、スキャン速度は 0.75 s、スライス厚さは 5.0 mm とした。図 2.4-29、30、31 に CT 値と含水比、乾燥密度、湿潤密度の関係を示す。図から、CT 値はベントナイトの湿潤密度と相関関係があることがわかる。

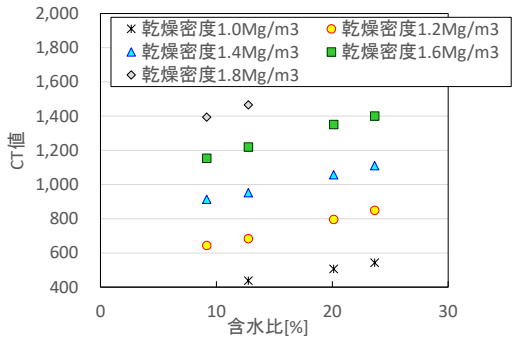


図 2.4-29　CT 値と含水比の関係

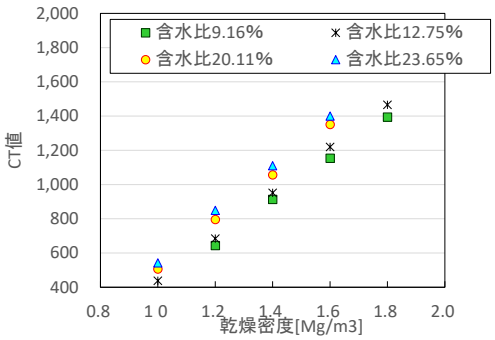


図 2.4-30　CT 値と乾燥密度の関係

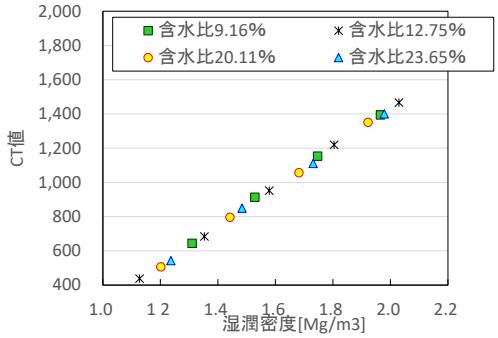
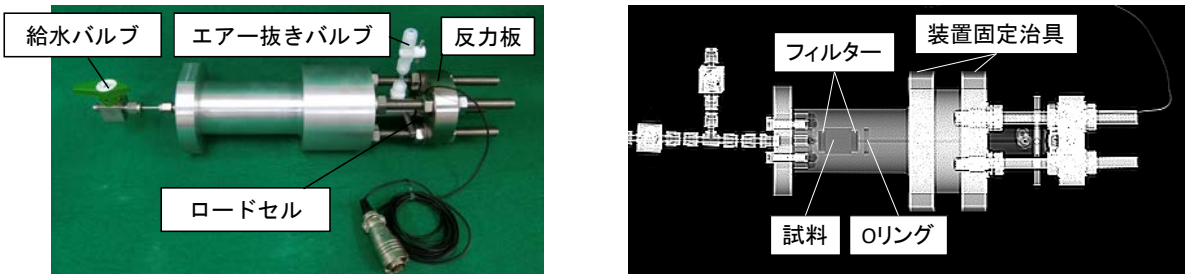


図 2.4-31　CT 値と湿潤密度の関係

③エックス線 CT 測定による膨潤圧試験中の供試体内部の観察

ここでは、エックス線 CT 測定による膨潤圧試験中の供試体内部の観察を試みた。試験試料はクニゲル V1、供試体の目標乾燥密度は 1.37 Mg/m^3、初期含水比は自然含水比（8.5%）、試験溶液は蒸留水、供試体寸法は高さ 20 mm、直径 20 mm とした。図 2.4-32 に用いた膨潤圧試験装置を示す。試験容器の材質はアルミ、フィルターの材質はセラミックとした。膨潤圧試験では、まずベントナイトを圧縮成型治具内で目標の乾燥密度まで締め固めた後、圧縮成型治具から供試体を取り出す。取り出した供試体を膨潤圧試験装置に入れる。その後浸潤を開始し、発生する膨潤圧を測定しながら適宜エックス線 CT 測定を行った。エックス線 CT 測定は、図 2.4-33 に示すように、浸潤方向に対して直行方向に 1 mm 幅ごとに 20 断面に対して行った。測定条件は、管電圧は 135 kV、管電流は 100 mA、スキャン速度は 1.0 s、スライス厚さは 1.0 mm とした。



（a）装置写真　　（b）エックス線透過画像

図 2.4-32　膨潤圧試験装置

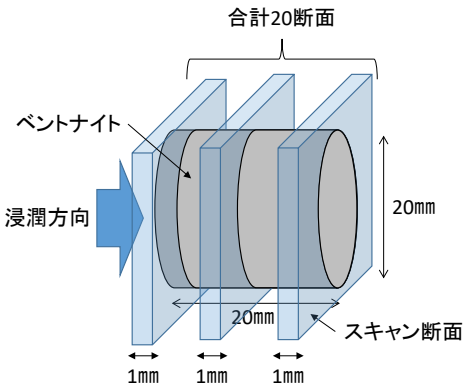


図 2.4-33　エックス線 CT 測定の概念図

まず、膨潤圧装置へ供試体を設置する前後での供試体内の CT 値の分布を図 2.4-34 に示す。浸潤面側の供試体端面を高さ 0 としている。膨潤圧試験装置に供試体を設置した後に測定した結果は、膨潤圧試験装置の材質であるアルミの影響をうけて設置前と比較して CT 値が 150 程度小さくなっている。今回用いた試験装置の CT 値は約 2,280 であり、供試体よりも大きな CT 値を持つ。エックス線がこの領域を透過した際にエックス線が減衰したため、供試体の CT 値が小さくなったものと考えられる。CT 値は、管電圧や管電流などの測定条件や試料サイズなどの様々な要因によって変化することが報告されているため（例えば、廣野ら、2004）、今後、今回の試験条件・測定条件における CT 値と湿潤密度との関係式を求めることで、得られた CT 値を湿潤密度に変換することが可能と考える。また、供試体高さ方向の CT 値の分布は設置前と設置後で同じであり、浸潤面の近くでは CT 値が高くなっている。この不均一な CT 値分布は供試体作製時に生じたものと考えられる。膨潤圧試験の初期状態をより詳細に把握するために、膨潤圧試験に用いる供試体とは別に作製した 2 つの供試体に対し、高さ方向に約 2 mm ごとにスライスし、炉乾燥により高さごとの含水比、乾燥密度、浸潤密度を測定した。図 2.4-35 に、測定結果を示す。浸潤面の近くほど湿潤密度が高い傾向があり、図 2.4-34 に示した CT 値の分布と同様の傾向である。また、乾燥密度も浸潤面付近ほど高くなる傾向があるが、含水比分布にはこのような傾向はみられない。

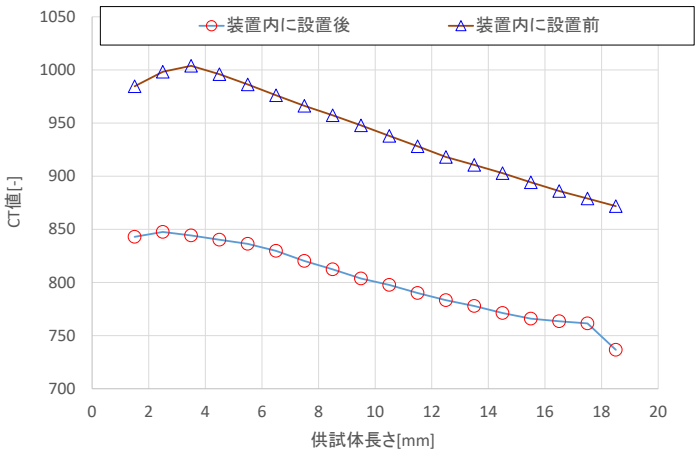
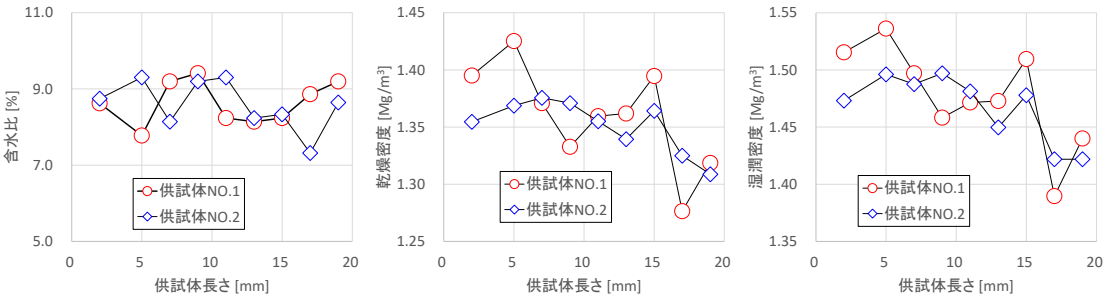


図 2.4-34　膨潤圧装置への供試体設置前後の CT 値の分布



（a）含水比分布　　（b）乾燥密度分布　　（c）浸潤密度分布

図 2.4-35　供試体の初期状態

得られた膨潤圧の経時変化を図 2.4-36 に、高さごとの CT 値分布の時間変遷を図 2.4-37 に、各測定断面での CT 値の時間変化を図 2.4-38 に示す。浸潤面側を 1 断面、反対側を 20 断面と定義している。1 断面および 20 断面の CT 値は供試体に接しているフィルターの影響を受け、他の断面と比べて CT 値が小さくなったため図には示していない。

測定された膨潤圧は、まず 0.37 MPa 程度まで上昇した後、0.2 MPa 程度まで減少し、再度 0.4 MPa 程度まで上昇している。400 時間程度で膨潤圧の変化はほとんどなくなっている。

CT 値分布の時間変化や各測定断面での CT 値の時間変化から、時間の経過に伴い浸潤面から徐々に CT 値が上昇しており、水が浸潤しているものと考えられる。また、膨潤圧の変化がほとんどなくなった 400 時間以降は CT 値の変化もほとんどないことから、供試体全域がおおむね飽和したと考えられる。最終的な CT 値分布は供試体端面では低く、内部では高くなっていることから、内部ほど乾燥密度が高くなっていると考えられ、初期の乾燥密度分布の傾向とは異なっていることがわかる。なお、試験終了後に供試体全体の平均的な飽和度、乾燥密度、湿潤密度を測定すると、それぞれ 116%、1.36 Mg/m^3、1.94 Mg/m^{3}であり、供試体は飽和状態であった。

また、図 2.4-38 の 2 断面での CT 値の時間変化を見ると、一度 CT 値が増加した後減少し、その後再度 CT 値が増加している。浸潤面に近い 2 断面では、比較的初期に飽和していると考えられるため、飽和した後乾燥密度が一度低下し、その後増加していることになる。さらに、飽和したベントナイトの膨潤圧は乾燥密度と相関関係があるため、この CT 値の変化と図 2.4-36 に示した膨潤圧の変化とは形状が類似していることがわかる。供試体全体としての体積は一定とすると、浸潤面付近以外の領域では逆の変形が生じていることとなる。つまり、浸潤面付近の領域が飽和し膨潤圧が高くなった状態で水の浸潤が進むと、浸潤面付近以外の領域では体積圧縮が生じる。

それにより浸潤面付近の乾燥密度が低下し膨潤圧が低下していく。膨潤圧が低下した状態でさらに浸潤が進むと浸潤面と反対側の領域が膨潤し、それにより浸潤面付近の乾燥密度が再度増加し、膨潤圧も再度増加したことになる。最後に、本研究で実施した膨潤圧試験で観測された供試体の状態変遷の模式図を図 2.4-39 にまとめる。

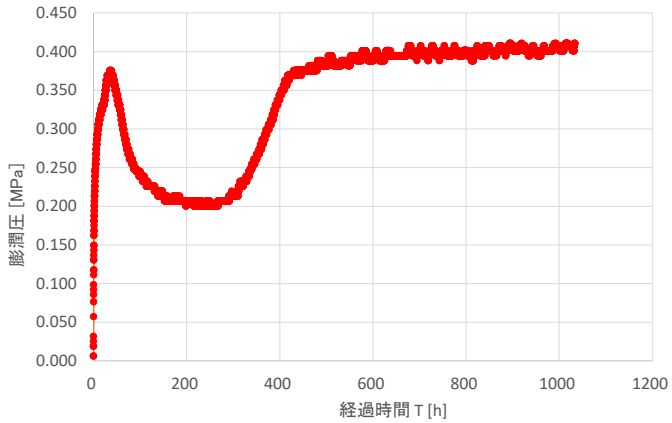


図 2.4-36　膨潤圧の経時変化

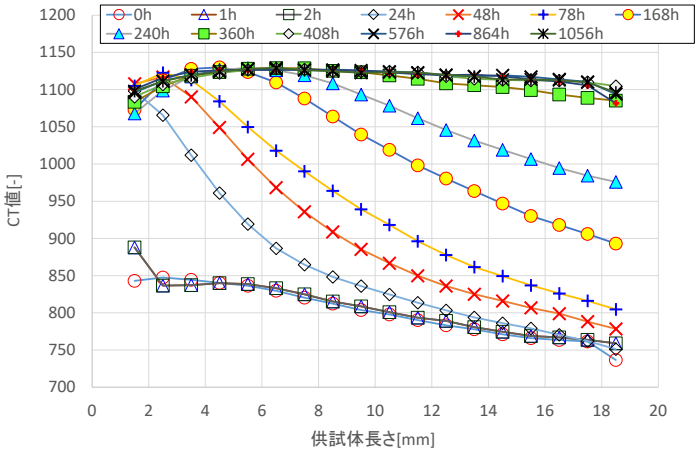


図 2.4-37　CT 値分布の時間変化

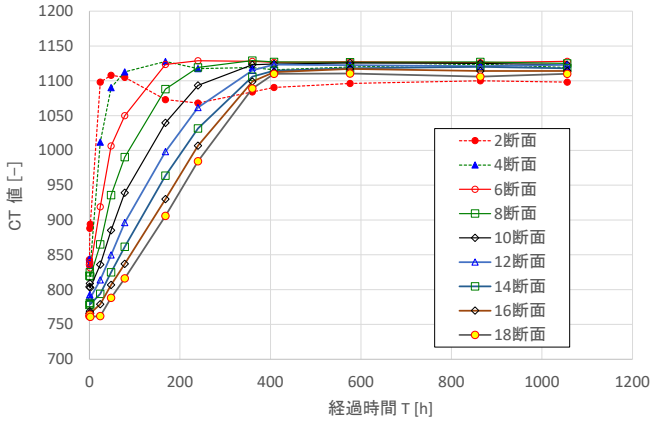


図 2.4-38　各測定断面での CT 値の時間変化

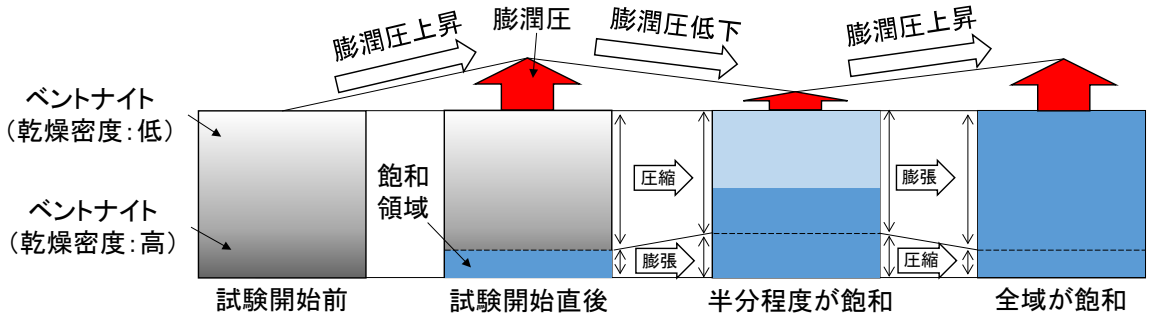


図 2.4-39　供試体の状態変遷の模式図

(3) 2 か年の成果と今後の課題

従来の MACBECE では、緩衝材施工後の再冠水挙動などの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、廃棄体の発熱による処分施設の温度変化に伴う構成材料の熱膨張や熱収縮挙動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ていなかった。このような背景のもと、ニアフィールド長期力学解析コード MACBECE に飽和度分布を入力して再冠水時の緩衝材の力学挙動を解析する機能を追加し、処分施設の各材料及び周辺岩盤の力学的な相互作用を再冠水時から長期までの一貫した評価が可能となった。それにより、過渡期の処分施設の力学的な状態変化やそれが長期的な力学挙動に与える影響を評価できるようになった。今後、より現実的に過渡期の処分施設の変形を評価できる解析手法を構築するためには、廃棄体の発熱による処分施設の温度変化に伴う構成材料の熱膨張や熱収縮などの温度変化による処分施設の変形を解析できるように拡張するなどの取り組みが必要である。

さらに、過渡期の緩衝材の力学モデルの高度化に向けて、エックス線 CT 測定による膨潤圧試験中の供試体内部の観察を試みた。平成 31 年度は、エックス線 CT 測定による膨潤圧試験中の供試体内部の観察を行い、膨潤圧の変化と供試体内部の状態変化の関係を把握した。今回の試験では初期乾燥密度の高い領域から浸潤を行ったため、今後は反対側からの浸潤や、初期乾燥密度分布の小さい場合などについても検討を行い、さらなる試験データの蓄積による膨潤挙動の現象理解を進めていくことが必要である。また、膨潤圧試験装置内での供試体の CT 値と湿潤密度の関係を把握し、得られた CT 値を湿潤密度に変換することで、力学モデルの開発・高度化のためのデータとして活用していくことが求められる。

2.4.3 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、過渡期の緩衝材の応力変化や密度変化などの力学挙動、それに伴う透水性や核種移行に関係する特性の変化などの理解や関連するデータ取得に向けてのアプローチの検討のひとつとして、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に着目し、粗視化メソスケール分子動力学(以下、「メソ MD 法」とする)モデルの開発を行う。

メソ MD 法は、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一種であるが、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場合の挙動を調べることができる。

粘土含水系のメソ MD 解析についての過年度の取り組み（日本原子力研究開発機構, 2018）では、モンモリロナイト粘土分子の単位構造とそこに水和された間隙水を一つの粗視化粒子で表し、粗視化粒子間の相互作用力は全原子 MD 計算の結果から与えることで、指定された温度、圧力で圧縮したときに生じる粘土含水系の凝集挙動を調べることができることを示した。平成 30 年度は、メソ MD 解析で得られた粘土含水系の組織構造モデルを用いて拡散や変形解析を試行し、微視的多孔質構造を考慮したマクロ拡散係数や弾性係数の評価が可能であることの見通しを得た。平成 31 年度は、メソ MD 解析の結果として得られる粘土含水系の組織構造の特徴を、実測可能かつ物理的な意味が明確な物理量（マクロ物性など）として定量的に評価する手法の開発に着手し、メソ MD 解析結果の組織構造から粘土分子の平均的な積層数や層間距離などを評価する手法を構築し評価を試行した。このような手法の開発は、メソ MD 解析結果の妥当性の検証、及びマクロ物性などに強い影響を与える因子の特定と定量化、マクロ物性などの発現メカニズムの理解などに資することができると考えられる。さらに、メソ MD 解析の検証を経て、不飽和粘土の物理量に関する定量的予測技術をより確かなものとしていくことができれば、例えば、緩衝材再冠水時の過渡的挙動を有限要素法などの手法で調べる際に必要となる、変形、熱伝導、透水、物質輸送などに関するパラメータを、種々の温度や圧力、水分状態において、実験を行うことなく数値解析的に推定することにもつながっていくことが期待される。

(2) 実施内容

初期状態からの圧縮に伴う凝集挙動（組織構造変化）についてのメソ MD 解析の結果例を図 2.4-40 に示す。全ての粘土分子は初期状態で二層膨潤に相当する水和水を持つものとしており、圧縮過程において、モデル全体のポテンシャルエネルギーが下がる方向に水和水が移動することを許容したモデルとなっている。この結果から、圧縮過程の比較的早い段階において近接する粘土分子が積層構造を作るが、積層する分子の数があまり大きくならないことが分かる。一方、図 2.4-41 のような結果を見ただけでは、得られた組織構造がどのような特徴を有しているかは明らかでない。

そこで、以下に示すような含水系粘土の組織構造を特徴づける物理量を、メソ MD 解析の結果として得られる組織構造のデータに基づき定量的に評価（図 2.4-41）するための手法を構築した。

- X線回折(XRD)パターン：
  組織構造から粘土分子による散乱X線の回折パターンを、組織構造に応じて、粘土分子内で一様に電荷が分布するとして散乱X線の干渉を計算することで評価。
  ⇒積層構造などに関する情報を提供することが可能。実験データと直接比較することでメ

ソMD解析の妥当性検証にも利用可能。

- 動径分布関数：
  着目粒子から一定距離離れた位置に存在する粒子の数を、粒子方向を考慮してカウントすることで評価。
  ⇒粘土分子の積層数を直接読み取ることが可能。
- 粒子数密度分布：
  組織構造中の粒子の質量と位置の情報から評価。
  ⇒間隙サイズと分布に関する情報を提供。
- 粒子方向分布：
  組織構造中の粒子の向きの情報から評価。
  ⇒配向性に関する情報を提供。

上記手法を用いた試行を行い、メソ MD 解析結果から得た XRD パターン（図 2.4-42(a)）は、実際に実験でも観測される二層膨潤状態にある粘土の層間距離に対応したピーク（2θ=6 度付近に現れる強い回析ピーク）が現れることを確認した。また、動径分布関数（図 2.4-42 (b)）のピークを見ることによって、複数のピーク位置にあたる動径距離は概ね 1.5 nm 間隔であり、これは二層膨潤状態における粘土層間距離に一致することから、平均的に二層膨潤状態にあることを示す情報が得られることを確認した。さらに、XRD パターンと動径分布関数は異なる仮定のもとで別の方法で評価したものであるが、両者の結果から読み取れる膨潤状態に関する情報が整合的であることは、メソ MD 解析方法及び上記の評価方法が妥当であることを裏付けるものと考えられる。

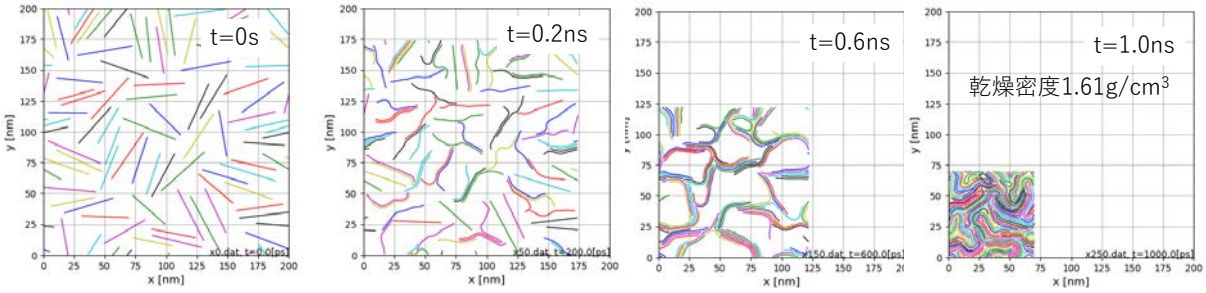


図 2.4-40　圧縮に伴う凝集挙動（組織構造変化）のシミュレーション結果例
（粘土分子数: 80、粗視化粒子数: 3,194、平均粒径(標準偏差): 40 (10)[nm]）

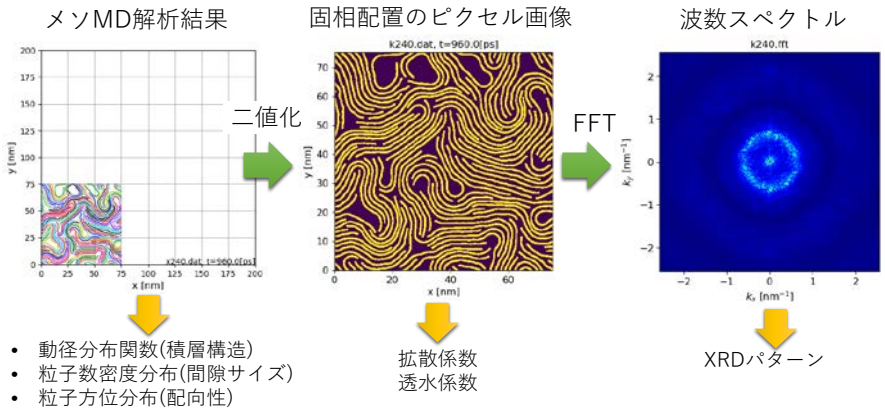
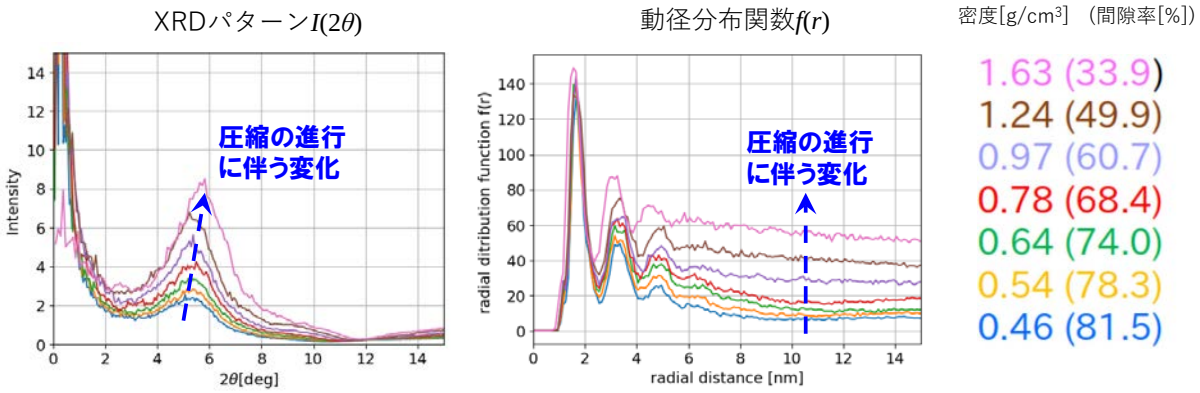


図 2.4-41　メソ MD 解析結果と含水系粘土の組織構造を特徴づける物理量との関係



(a) XRD パターン　　(b) 動径分布関数

図 2.4-42　メソ MD 解析結果で得られる組織構造を特徴づける物理量の評価例

(3) 2 か年の成果と今後の課題

メソ MD 解析手法について、平成 30 年度以降、メソ MD 解析で得られた粘土含水系の組織構造モデルを用いて、その組織構造の特徴を示す実測可能かつ物理的な意味が明確な物理量（マクロ物性など）の定量的な評価に向けての検討を進めてきた。平成 31 年度は、メソ MD 解析結果の組織構造から粘土分子の平均的な積層数や層間距離などを評価する手法を構築し評価を試行した。

一方、粒子数密度分布（間隙サイズ）や粒子方向分布（配向性）の評価手法は、今後、メソ MD 解析に基づく粘土含水系の組織構造と物質輸送特性との間に存在する因果関係を調べる上で必要な技術になるものと考えられる。例えば、粒子数密度分布のデータに基づきメソ間隙とナノ間隙を区別することは、今後マルチスケール解析を行っていく際に、ナノ構造を均質化してメソ多孔質体モデルを作成していくために必要になる。また、局所的な配向性のデータは、圧縮性及び透水や拡散などの物質輸送現象についての異方性を理解する上で重要な指標になることが期待される。

さらに、実験データとの比較により、メソ MD 手法及び本項で構築した評価手法などの妥当性の検証を進めていくことも今後の重要な課題となる。

2.5 母岩中アルカリプルーム反応輸送挙動評価

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。

セメント系材料による周辺岩盤への影響の評価に役立てるため、東濃地科学センター瑞浪超深

地層研究所におけるグラウチング施工を実施している箇所を対象に、グラウト材・岩盤の変遷を把握するための調査・分析を実施するとともに、グラウト影響に関する概念モデルの構築を進めてきた（日本原子力研究開発機構，2016a；2017；2018）。平成 30 年度は、実際の地質環境に近い条件下において、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、試験結果とこれまでの知見を踏まえグラウト材と岩盤との相互作用メカニズムの概念モデルを確認した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター，2019）。平成 31 年度は、このモデルの高度化に向け、瑞浪超深地層研究所におけるグラウチング施工を実施している箇所から施工後 10 年程度経過したグラウト材-岩盤接触試料を採取し、調査・分析を実施した。

また、支保工やグラウトに由来するアルカリプルームが岩盤中に移行することによって、岩盤マトリクス中の鉱物や亀裂充填鉱物が溶解して核種の移行が促進される可能性や、亀裂内部に二次鉱物が沈殿して核種の移行が抑制される可能性などが考えられる。このため、アルカリプルームの反応輸送挙動評価手法の高度化に向け、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取り扱うことが可能な反応輸送解析モデルの構築に取り組んでいる。平成 30 年度は、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施工事例を対象とした検討などを参考に、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（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター，2019）。平成 31 年度は、処分孔の支保工とそれに交差する単一の亀裂を対象とした反応輸送解析モデルを構築し、支保工からのアルカリの影響が処分孔近傍に留まるか否かの条件を感度解析などにより分析した。

2.5.1 グラウチング施工事例を対象とした調査・分析

(1) 背景と目的

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（見掛ほか，2010）。そこで、原位置におけるセメント系グラウト材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が炭酸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、グラウト材の初期状況を把握する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コア試料の採取・観察を実施し、グラウト材はセメント供試体に比べて早い時期から炭酸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・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, 2018）。加えて、実際の地質環境に近い形で CO_2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のように、カルサイト（$CaCO_3$）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確認した（日本原子力研究開発機構・

原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019)。

平成 31 年度は、地下施設でのグラウチング施工事例を対象に地下水水質などの継続的なモニタリングによる原位置データを取得するとともに、施工後 10 年程度経過したグラウト材-岩盤接触部から試料の採取・分析を実施した。

(2) 実施内容

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 300 m 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^{2+}の分析結果を示す。

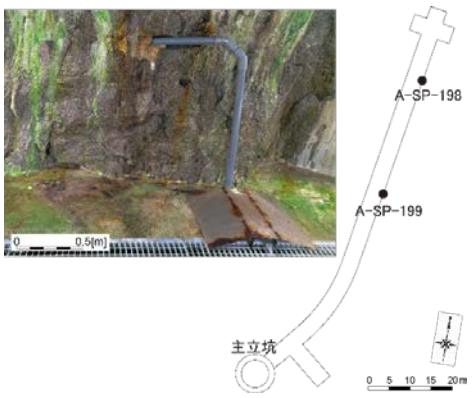


図 2.5-1　地下水採水場所
（深度 300 m 研究アクセス坑道）

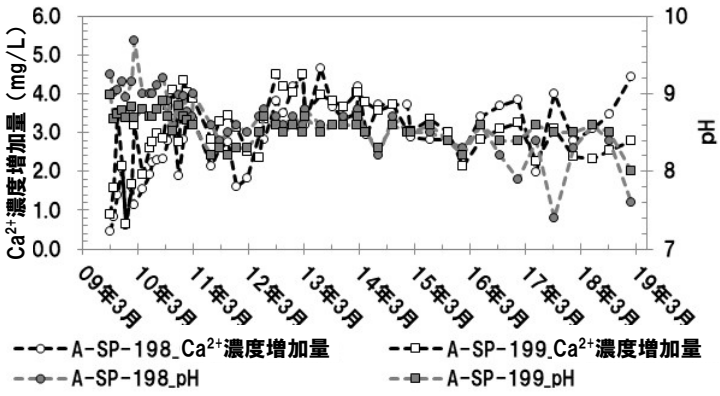


図 2.5-2　地下水中の pH 及び Ca^{2+}の変遷

水質分析結果から、2018 年～2019 年の Ca の濃度変化は、2017 年～2018 年に減少した後から増加に転じている。pH についても、2018 年 5 月頃を境に減少に転じているが、これまでの変動の範囲内で推移している。

2) セメント系材料が岩盤へ及ぼす影響の把握

① 試料採取

地下施設でのグラウチング施工事例を対象に、施工後 11 年経過した原位置から試料を採取して表面観察による岩盤やグラウト材の状況などを把握した。具体的には、深度 300 m 研究アクセス坑道において、グラウト材を含む岩盤割れ目の存在可能性が高い場所 9 カ所で岩盤から約 0.5～1 m 掘削した（吹付コンクリートは除く）。

採取した試料を観察した結果、グラウト材と思われる材料が明瞭に確認できた No.1 と No.3 の試料について、表面観察を行うこととした。図 2.5-3 に採取場所や採取した試料の状況を示す。No.1 と No.3 の試料の表面について観察した結果、いずれの試料も石英の粒径は φ2～7 mm、カリ長石の粒径は φ2～12 mm であり、中粒～粗粒の等粒状花崗岩であった。コアに変質はほとんど認められず、黒雲母は全量残存し、カリ長石は薄いピンク色を呈する。ハンマーの打撃で澄んだ金属音を発する程度の硬さで、節理が 20～30 cm 程度の間隔で認められることから、岩級区分を CH 級と評価された。

No.1 試料は 47～66 °の中～高角度に入る節理に黄色に着色されたグラウト材の挟在を確認した。No.3 試料は 77 °の高角度に入る節理に灰色のグラウト材の挟在を確認した。

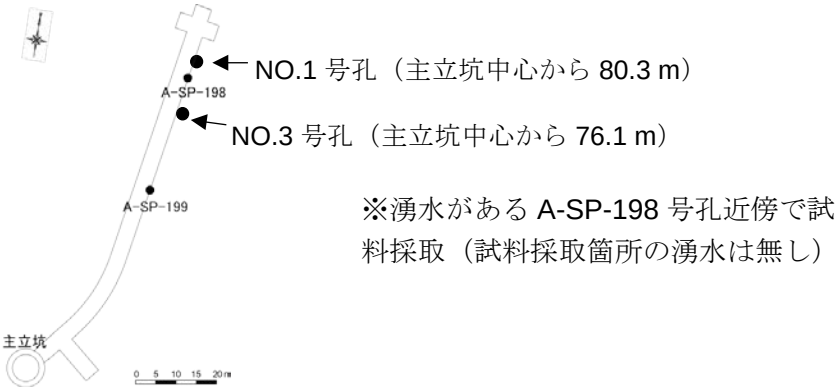
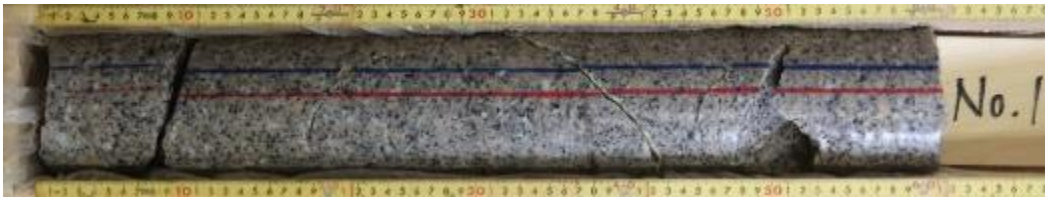
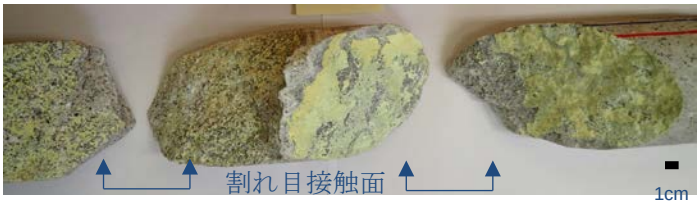


図 2.5-3　瑞浪超深地層研究所深度 300 m 研究アクセス坑道における試料採取場所

採取状況
（左：No.1 号孔の坑道壁面、
右：No.1 号孔の内部）

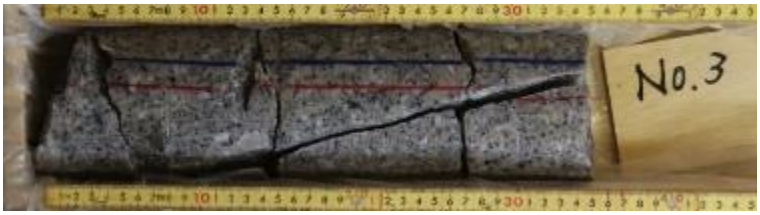


コア写真

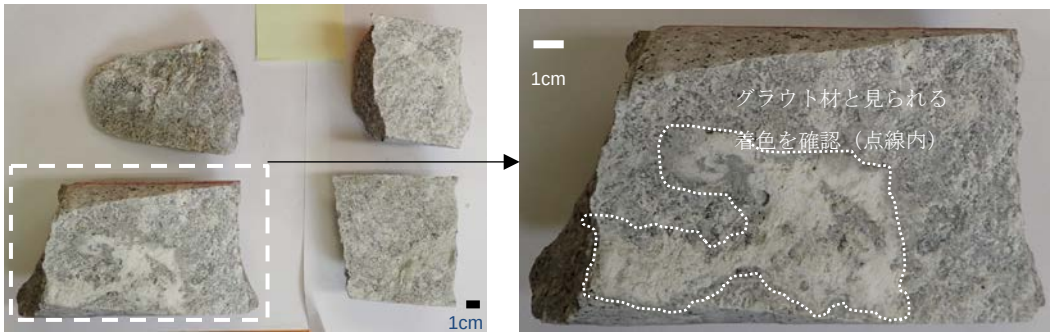


採取した試料の状況（割れ目面にグラウト材の色粉と見られる着色を確認）

図 2.5-4　No.1 試料の採取場所及びコア写真並びに試料の状況



コア写真



No.3 号孔から採取した試料の状況
（割れ目面にグラウト材の色粉と見られる着色を確認。右図は白破線の拡大図）

図 2.5-5　No.3 試料のコア写真及び試料の状況

② 試料の表面観察

①で得られた岩石試料を加工して鏡面研磨薄片 2 片（以降、No.1 および No.3 と表記）を製作した。図 2.5-6 に示す。この薄片を使って、まずグラウト材中の鉱物に着目して、数 mm 程度の視野の偏光顕微鏡観察を行った。この観察により、500 μm 程度の視野の走査型電子顕微鏡観察を実施する箇所を定めた。

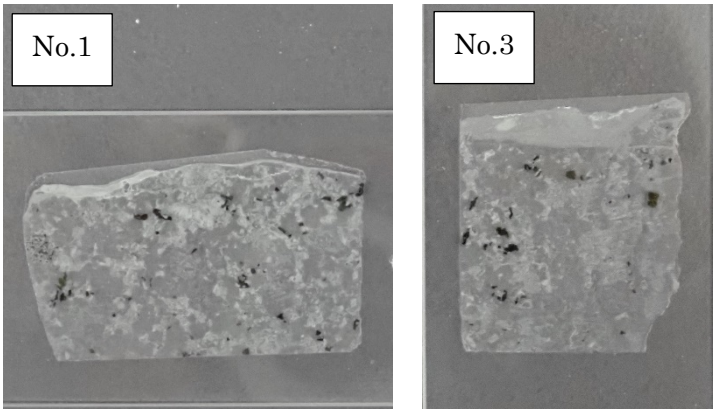


図 2.5-6　分析対象とした岩石薄片

続いて、走査型電子顕微鏡（SEM：日本電子社製 IT300HR）を用い、グラウト材中の鉱物に着目して、金を蒸着して反射電子像観察を行った。偏光顕微鏡観察と概ね同一の視野を撮影した。また鉱物の推定のため、SEM に付属するエネルギー分散型 X 線スペクトル検出装置（EDS：日本電子社製 JED2300）を用い、含有元素を特定した。

観察時の加速電圧は 15 kV、報告画像は反射電子像とした。表 2.5-1 に観察仕様を示す。

表 2.5-1　SEM-EDS 観察仕様

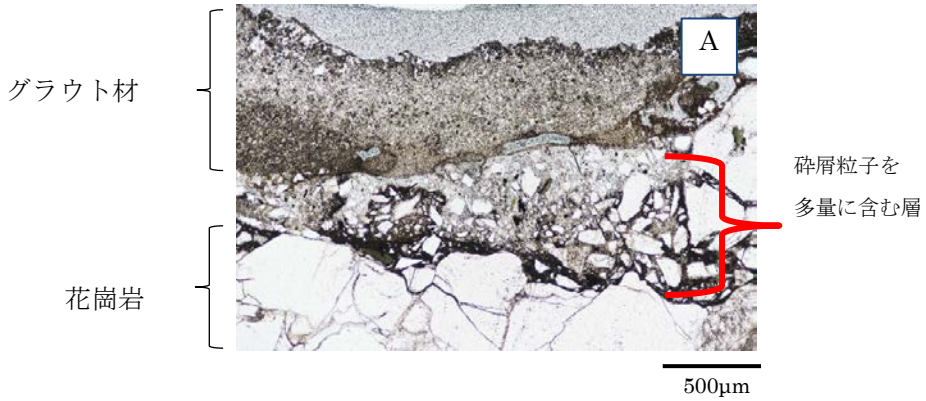
装置名	日本電子製　JSM-IT300HR 日本電子製　JED2300
加速電圧	15 kV
試料傾斜角	0°
試料前処理	研磨加工

表面観察結果として、No.1 の結果を図 2.5-7 に、No.3 の結果を図 2.5-8 に示す。

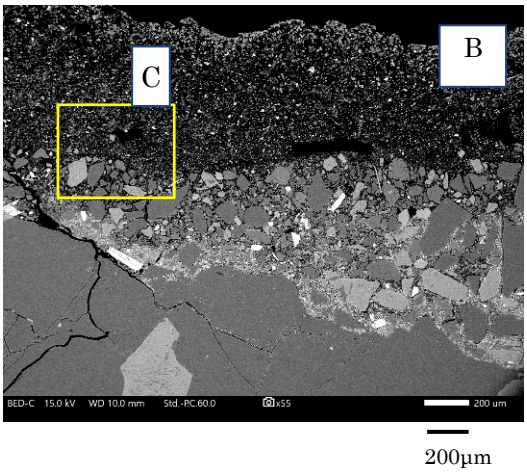
No.1 では、偏光顕微鏡観察ではグラウト材と花崗岩の間に花崗岩由来の砕屑粒子（石英・長石など）を多量に含む領域が確認された（A）。SEM による詳細観察を行なった結果、グラウト材と考えられる材料の微細構造は、セメント硬化体と同様の特徴を示す結果が得られた。セメントの主構成材であるセメントクリンカは数十 μm の径を持つ粒子で、水と反応して硬化組織を作るが、周辺に可溶性の水酸化カルシウムを析出し、内部には難溶性のカルシウムシリケート水和鉱物（C-S-H）を生成する。セメントクリンカは製造過程で高温での焼成過程を経るため、ガラス質の外殻を伴うことが多い（Karen, 2004）。図中の（C）では反応後のセメントクリンカの残留物で C-S-H の外殻と思われる構造が散見され、図中の（D）では、未水和のセメントクリンカも残留している状態が確認された。一方、これまでの試料で観察されていたグラウト材中のカルサイトは認められず、No.1 の試料は炭酸化が進行していないことが確認された。また、グラウト材近傍の花崗岩にはグラウト材の影響とみられる変質は観察されなかった。

No.3 では、偏光顕微鏡観察では花崗岩とグラウト材との間に、カルサイトの結晶からなる領域が見られた（A）。SEM による詳細観察を行なった結果、No.1 と比較して、グラウト材部分の密度が低いものの、セメント粒子の存在も認められた。また、グラウト材近傍の花崗岩にはグラウト材の影響とみられる変質は観察されなかった。

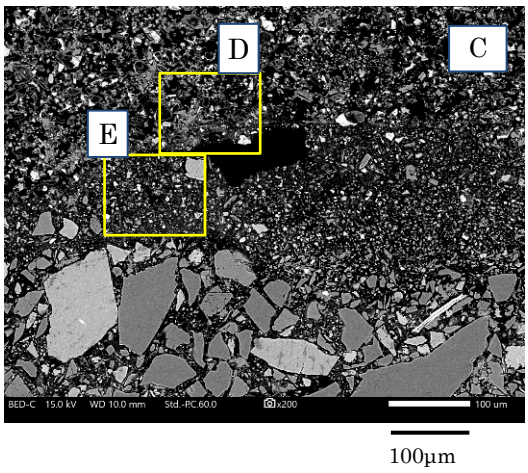
以上の通り、実環境で 11 年経過した岩盤中のグラウト材において、未水和のセメントクリンカが残存しかつ炭酸化によって生成したカルサイトが認められないケース（No.1）と炭酸化によって生成したカルサイトが認められるケース（No.3）があること、またいずれのケースでもグラウト材の影響とみられる変質が岩盤側に認められないことを確認した。まず前者について、未水和のセメントクリンカの残存は水和に必要となる水分の供給、すなわち地下水との接触が不十分であったことを意味する。後者については、カルサイトが観察されていることから、HCO_3^-を含む地下水がグラウト材に接触し、反応したことを意味する。このように、地下水との接触の有無が今回観察されたグラウト材の変質状態の違いに関係していると言える。



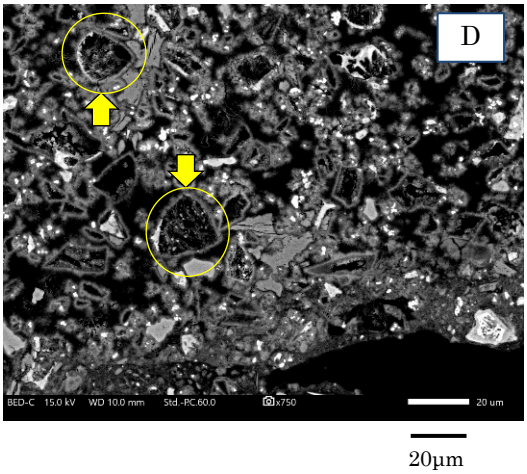
A：No.1 号孔試料から作製した薄片の偏光顕微鏡観察結果（平行ニコル）
（花崗岩とグラウト材の間に花崗岩由来の砕屑粒子を多量に含む領域がある。）



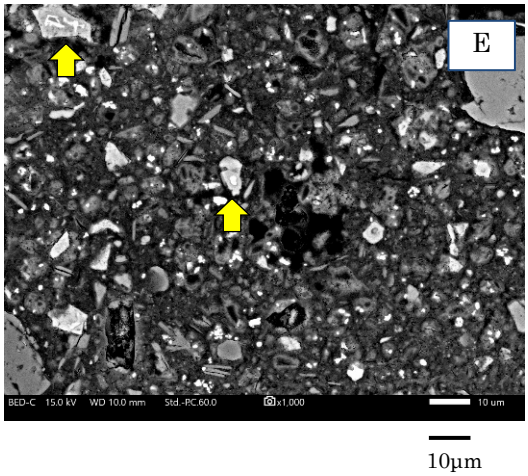
B：A と同じ視野の SEM 像



C：B の黄色枠 C の領域の拡大像



D：C の黄色枠 D の領域の拡大像
（矢印部に C-S-H が確認できる。）



E：C の黄色枠 E の領域の拡大像
（矢印部に未水和のセメントクリンカが確認できる。）

図 2.5-7　No.1 試料の偏光顕微鏡及び SEM 観察結果

A：No.3 号孔試料から作製した薄片の
偏光顕微鏡観察結果（平行ニコル）
（花崗岩とグラウト材の間にカルサイトを含む領域がある。）

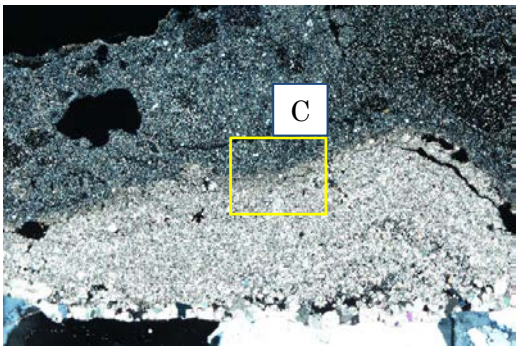
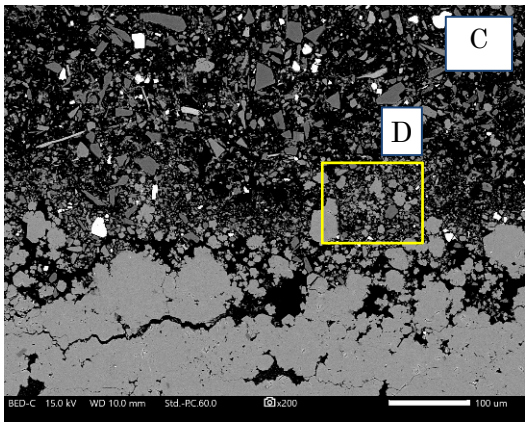
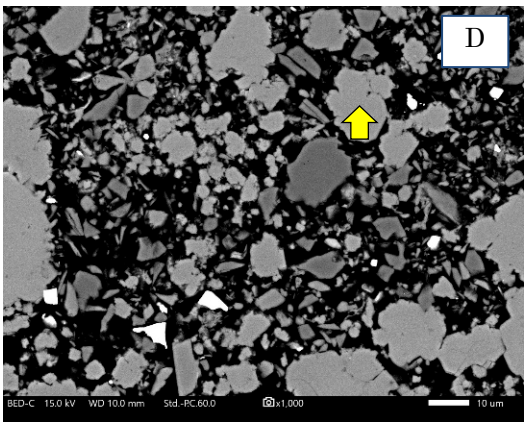


図 B：A と同一の視野の偏光顕微鏡観察結果
（直交ニコル）



C：B の黄色枠 C の領域の拡大像
（視野下方の領域にはカルサイトが確認できる。）



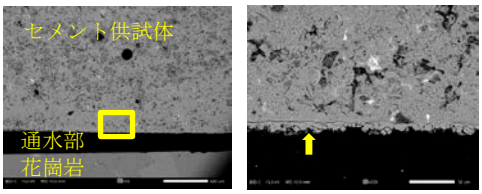
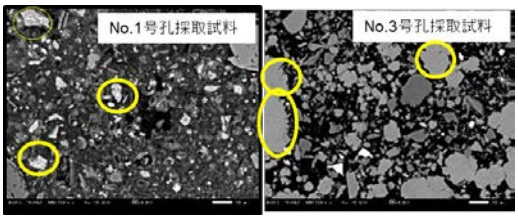
D：C の黄色枠 D の領域の拡大像
（矢印部にカルサイトが確認できる。）

図 2.5-8　No.3 試料の偏光顕微鏡及び SEM 観察結果

(3) 2 か年の成果と今後の課題

地下施設でのグラウチング施工事例を対象とする試験・分析などとそれを用いた母岩中のアルカリプルームの反応輸送解析モデル構築のため、平成 30 年度に室内通水試験を行い、平成 31 年度に実環境でのグラウト材-岩盤接触部から試料の採取・分析を行った。
2 か年の成果の概要を表 2.5-2 に示す。

表 2.5-2　室内試験と原位置分析結果の比較

	室内通水試験 （H30 年度）	原位置からの試料採取・分析 （H31 年度）
実施内容	Ar パージした環境下でセメント供試体と花崗岩の間に地下水を 60 日通水し、供試体や通水部の変化を把握。  （右図黄色枠内拡大図）	プレグラウチング施工後 11 年経過した現場で試料を採取し分析（試料採取場所の湧水は無し）。  （未水和のセメントクリンカが残存）　（炭酸化で生成したカルサイトが存在）
試験結果	通水側側面にカルサイトの析出（黄色矢印）や、セメント供試体中のポルトランダイトの溶脱を確認。	施工箇所によってグラウト材の変質状態が異なること、花崗岩の変質が無いことを確認。

アルカリプルームによる岩盤への影響に関して、高アルカリ浸出水によって岩盤に変質が生じる予測解析の知見が出されている（例えば、武田ほか, 2012）。これまでの知見ではイオン交換水や蒸留水を使用した浸漬試験を行っているが、これまで 2 年間で実施した室内通水試験及び原位置での試料採取・分析は、セメント材（グラウト材）と岩盤との接触による影響について、実際の地下水の通水や地下環境において把握した。

室内通水試験では、セメント供試体について地下水接触面近傍での炭酸化、またセメント供試体と岩石供試体の両者について地下水接触面におけるカルサイトの析出が観察され、これを踏まえて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作成した。

原位置で採取した試料の分析では、セメント材（グラウト材）の変質状態が施工箇所によって異なっており、未水和のセメントクリンカが残存しかつ炭酸化が認められないケースと炭酸化が認められるケースがあることが確認された。上述の通り、これは施工後のグラウト材と地下水の通水状況の違いがあったことを示唆する。後者で観察されるカルサイトは、セメント材に含まれる $Ca(OH)_2$ の溶解により Ca^{2+} が溶脱し、地下水中の HCO_3^- と反応して変質したと考えられる。なお、現在の坑道は開放状態であり、地下水が岩盤から坑道側に流動している環境での状況であるが、坑道壁面の地下水中の pH はプレグラウチング施工直後を除いて大きな変動がみられていない。

類似例として、瑞浪超深地層研究所の深度 500 m 冠水坑道において地下水を満たして坑道周辺の地質環境の変化を把握した再冠水試験において、地下水中に浸漬された坑道内の吹付コンクリートの表面にカルサイトが生成されるとともに、その変質が坑道表面側に限られたことが確認さ

れおり、カルサイトの生成反応として下記 2 式が示されている（林田ほか，2018）。

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

$$Ca^{2+} + HCO_3^- \rightarrow CaCO_3 + H^+ \quad (2.5\text{-}2)$$

上記式から、OH^-が余剰になることより pH の上昇が想定されるが（林田ほか, 2018）、図 2.5-2 のように坑道壁面に湧出する地下水の pH は大きな変動が見られていない。

カルサイト析出などについては、HCO_3^-濃度も関連するが、図 2.5-1 に示す孔壁に湧出している A-SP-198 号孔及び 199 号孔のアルカリ度からの HCO_3^-換算濃度（福田ほか, 2019；渡辺ほか, 2018；林田ほか, 2017；2016；大森ほか, 2014a；2014b；2013）の推移でみると、グラウチング施工（2009 年）からの 2、3 年といった比較的初期の段階で変動が確認されている。また、プレグラウチング施工後 8 年後に採取したグラウト材と岩盤接触部の試料の薄片観察結果（日本原子力研究開発機構，2017）と比較して、グラウト材やカルサイトの性状に大きな差が見られない。

以上より、プレグラウチング施工後初期の段階でグラウト材のポルトランダイトの溶脱やカルサイトへの変質の発生後は、その状態が維持されていると考えられた。なお、この状況は坑道が開放されて地下水の流動勾配がある状態で、坑道掘削が深部に進んだ後、坑道維持が 5 年程度継続したことに伴って浅部と深部の地下水が混合された条件での結果であることに留意する必要がある。

今後は、これまでの知見を踏まえて、坑道閉鎖によって地下水の動水勾配が無くなった状態で、セメント材の変質の有無が地下水や岩盤に対してどのような影響を及ぼすのか、解析によって把握する必要がある。

2.5.2 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

(1) 背景と目的

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。

- 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：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閉塞が、逆に溶解が卓越する場合では、岩盤中の亀裂や間隙の開口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。

- 岩盤中の不均質性の取り扱い：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。

上記に示した観点から、ニアフィールド岩盤における核種移行挙動などへのアルカリプルームの影響を評価する手法の構築に向けた研究アプローチを具体化していくには、処分坑道から放出したアルカリが、どのような化学的／水理的な場の条件において亀裂ネットワークを広範囲にわたって移行していくかを把握することが重要と考えられる。

これまで、「第 2 次取りまとめ」（核燃料サイクル開発機構, 1999b）のような、わが国の地質環境における平均的な動水勾配や亀裂の開口幅を想定した場合、坑道のコンクリート支保などに由来するアルカリプルームが処分坑道周辺の亀裂性岩盤における核種移行に及ぼす影響は、坑道近傍数 m 程度の領域に留まり、核種移行評価の対象となる 100 m 下流までのニアフィールド岩盤全域にわたって影響が及ぶことは想定されていなかった（日本原子力研究開発機構, 2015）。

しかしながら、このことは、岩盤中の亀裂を表す一次元チャンネルと、その周辺の岩盤マトリクスから構成される二重空隙モデルによる解析結果に基づくものであり、二次元的な「面」である亀裂が分布し、三次元のネットワーク上の移行経路が想定される現実の三次元の岩盤を対象に、坑道近傍数 m 程度の領域にセメント影響が留まるとする、上記の想定が妥当であるかについては確認されていなかった。

そこで、平成 30 年度は、亀裂面の二次元的な広がりがアルカリプルームの反応輸送挙動に及ぼす影響を把握することを目的として、岩盤中の単一亀裂を二次元平行平板でモデル化した準三次元モデルを構築して、亀裂内部を流れる地下水とコンクリートとの反応輸送解析を行った。このような解析モデルの概念図を図 2.5-9 に示す。その結果、亀裂内部での二次鉱物沈殿により閉塞された領域を迂回する地下水流路が生じることで、セメント影響がより下流に及ぶ可能性があるなどの知見を得た。セメントによる影響がニアフィールド岩盤のより下流に及ぶ場合には、亀裂の存在によって物質輸送特性が不均一に分布する流動場の影響と、岩石の溶解・二次鉱物沈殿などによる地下水流動場の変化の影響を考慮したモデルで解析評価を行う必要が生じる可能性がある。このような解析検討を通じて、セメント影響の及ぶ範囲や程度を把握することは重要である。

平成 31 年度は、上記に示した平成 30 年度の試解析の結果などを参考にしつつ、処分孔の支保工とそれに交差する単一の亀裂を対象とした反応輸送解析モデルを構築し、支保工からのアルカリの影響が処分孔近傍に留まるか否かの条件を把握することを目的とする感度解析を行った。また、この結果の分析などを通じて、支保工やグラウトに由来するアルカリプルームがニアフィールド岩盤に及ぼす影響を評価する手法の高度化に向けた研究アプローチを提示した。本項目ではこの検討の成果を示す。

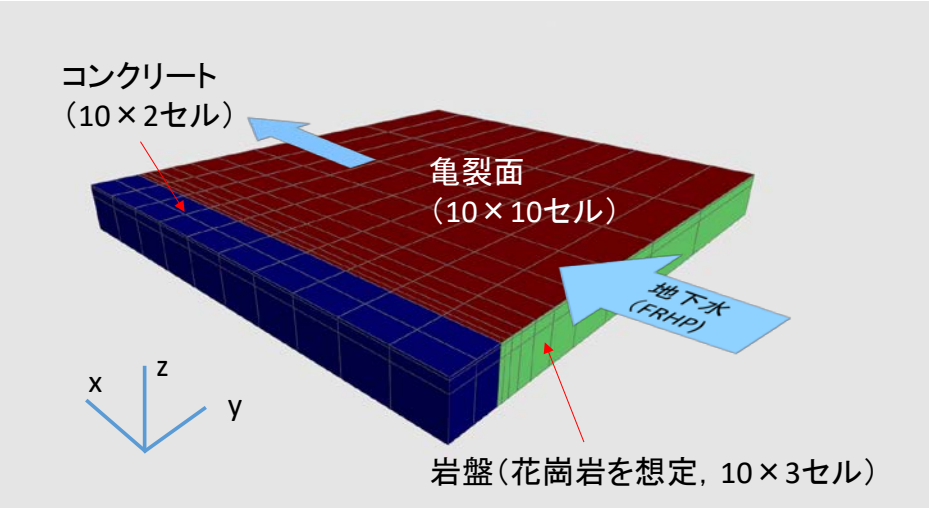


図 2.5-9　亀裂を二次元平行平板と仮定した準三次元モデルの概念
（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター，2019）

(2) 実施内容

1) 支保工からのアルカリの影響の広がりの程度などを把握するための感度解析

① 解析条件の設定とモデルの構築

解析モデルの概要を図 2.5-10 に示す。処分坑道に設置されるコンクリート支保と、これに交差する単一亀裂および岩盤マトリクスから成る体系を三次元円筒座標系でモデル化して、化学ー物質輸送と水理の連成解析を行った。解析コードとしては汎用解析コードである QPAC（Quintessa Ltd., 2013）を使用した。亀裂面内においては二次元の移流分散による物質移行をモデル化し、岩盤マトリクスにおいては、拡散による三次元の物質移行をモデル化した。図 2.5-10 における亀裂及び岩盤マトリクスの坑道支保からの距離 L を 10 m とし、この距離の範囲内で、種々の条件におけるアルカリプルームの広がりの程度を把握するための感度解析を行うものとした。亀裂の開口幅については、後述の表 2.5-3 に示す亀裂の透水量係数から、Snow の三乗則（Snow, 1965）により求めた値を設定した。境界条件については、図の x 方向に一定の動水勾配が与えられるように、図 2.5-10 に示すモデルの外周を水頭固定境界条件とした。また、図 2.5-10 の外周の上流側の弧 AC 上では、地下水組成が高 pH 降水系地下水（以下、「FRHP」という）の組成で一定、すなわち、濃度固定境界となるように境界条件を設定した。また、下流側の弧 BC 上では、ゼロ濃度勾配境界となるように設定した。

なお、岩盤とコンクリート支保の組成や二次鉱物の種類については既往の文献（日本原子力研究開発機構, 2015）を参考に設定した。熱力学データーベースとしては JAEA-TDB（v1.07）を使用した。

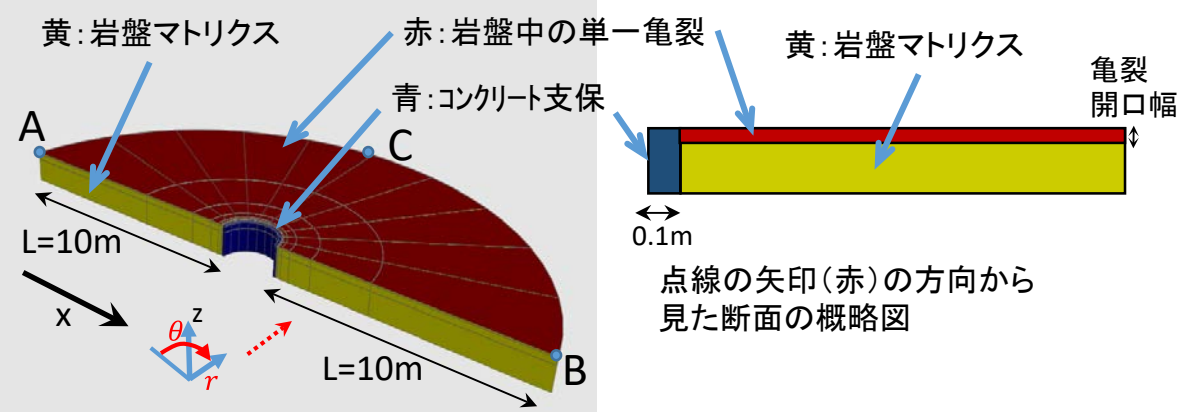


図 2.5-10　感度解析に用いた三次元円筒座標系の反応輸送解析モデル

コンクリート支保から岩盤側へアルカリ成分が供給され、それが岩盤中の亀裂を選択的流路として広域に移行する可能性を左右し得る因子を感度解析パラメータとして選定した。選定した感度解析パラメータを表 2.5-3 に示す。表 2.5-3 に示したパラメータのうち、コンクリート支保及び岩盤における二次鉱物の沈殿速度については、図 2.5-9 に示した、平成 30 年度と同様の準三次元の平行平板モデルによる感度解析を予備的に行ったところ、二次鉱物の沈殿速度による影響は認められなかった。そこで、ここでの解析では、表 2.5-3 に示すパラメータのうち、動水勾配と透水量係数を対象とした。

表 2.5-3 岩盤中のアルカリプルームの反応輸送解析で対象としたパラメータ

感度解析パラメータ	パラメータの値	パラメータ設定の考え方など
コンクリート支保及び岩盤における二次鉱物の沈殿速度	反応速度式※の1倍、10^{-4}倍	沈殿速度が基準値（1 倍）であっても、カルサイトなどの二次鉱物の沈殿が速やかに生じるほど十分速く、瞬時平衡に近い状態と考えられるため、基準値より小さい値のみを対象とする。
動水勾配	0.001、0.01、0.1	第 2 次取りまとめ（核燃料サイクル機構，1999b）の地下水シナリオの変動ケースの値を参考に設定。
岩盤亀裂の透水量係数（m^2/s）	10^{-7}、10^{-10}	第 2 次取りまとめ（核燃料サイクル機構，1999b）の地下水シナリオの変動ケースの値を参考に設定。

※既往の検討（日本原子力研究開発機構，2016a）と同様とした。

② 解析結果

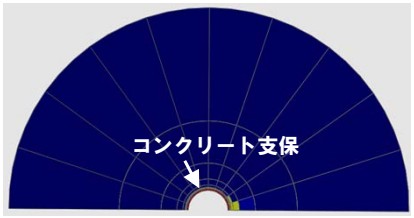
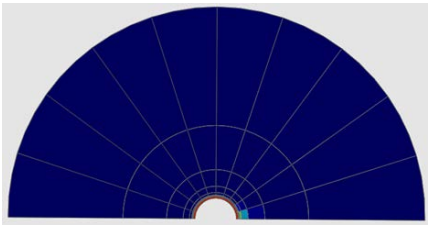
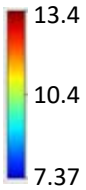
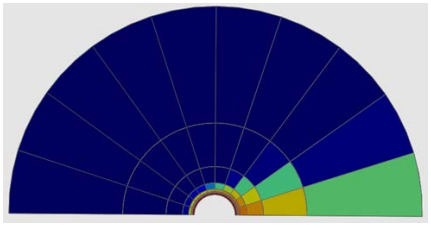
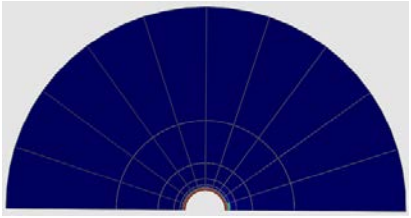
動水勾配が異なる場合について、処分坑道の下流側の亀裂における pH 分布と、処分坑道の下流側の領域の代表点における pH の時間変化の例を表 2.5-4 と図 2.5-11 にそれぞれ示す。動水勾配が低い 0.001 の場合では、コンクリート支保に由来するアルカリプルームが坑道の下流側に移行する結果となり、処分後 10 年後では、坑道から 10 m 下流の地点でも pH は 10 程度であった。その後、坑道の下流側の pH の値は時間とともに減少し、1,000 年後ではほぼ初期状態の FRHP 地下水の pH に回復した。このような傾向は、動水勾配が大きい 0.01 及び 0.1 のケースでは認められなかった。

亀裂の透水量係数が異なる場合について、処分坑道の下流側の亀裂における pH 分布と、処分

坑道の下流側の領域の代表点における pH の時間変化を表 2.5-5 と図 2.5-12 にそれぞれ示す。透水量係数が低い 10^{-10} m^2/s の場合では、コンクリート支保に由来するアルカリプルームが坑道の下流側に移行する結果となり、処分後 10 年後では初期状態とほぼ変わらないものの、その後、pH は時間と共に上昇し、1,000 年後では坑道から 10 m 下流の地点でも pH は 11 程度であった。この場合では、オーバーパックの核種閉じ込め機能が失われて人工バリアへの核種移行が開始する 1,000 年後以降においてアルカリが岩盤中の亀裂内部を移行することを示しており、核種移行の場の状態の評価において、このような処分坑道の下流側へアルカリが広がることによる影響を考慮することが必要となる可能性があると考えられた。

上記に示したように、亀裂内の流量が低い場合の方が、アルカリが下流側へ移行し易い傾向が認められた理由として、流量が小さいことによってアルカリ成分の希釈が妨げられたなどの可能性が考えられる。

表 2.5-4 岩盤中の亀裂内 pH 分布の動水勾配の違いによる影響（透水量係数：10^{-7} m^2/s）

動水勾配	10 年後	1000 年後	pH
0. 1			
0. 001			

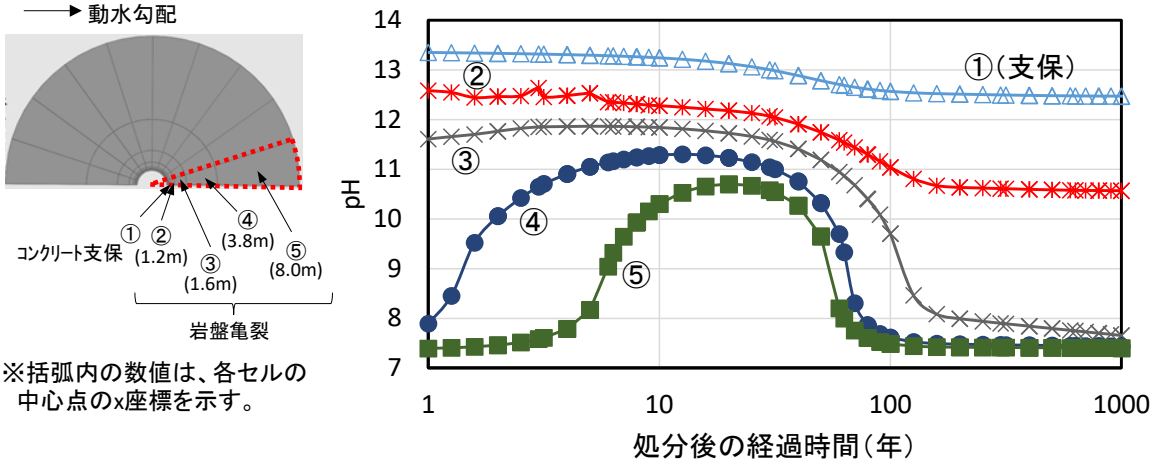
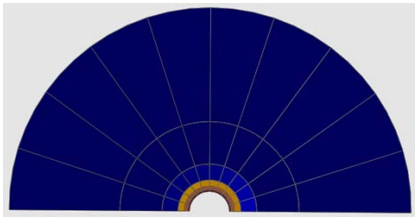
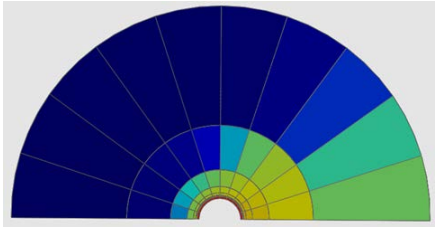
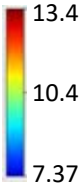
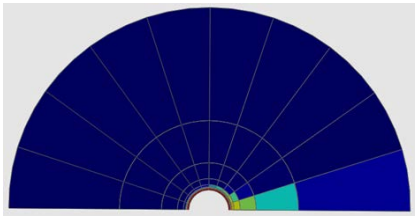
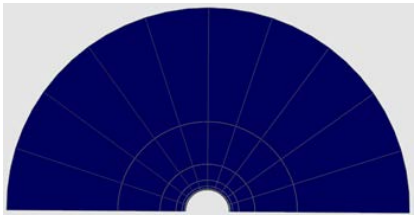
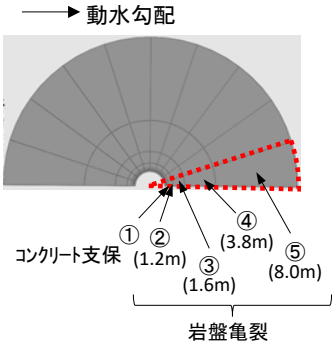


図 2.5-11 下流側セルの亀裂での pH の変化（透水量係数：10^{-7} m^2/s、動水勾配 0.001 の例）
（点線枠内のセルのうち、①~⑤のセルの pH の変化を示す）

表 2.5-5 岩盤中の亀裂内 pH 分布の亀裂透水量係数の違いによる影響（動水勾配 0.01）

透水量係数	10 年後	1000 年後	pH
10^{-10} m^2/s			
10^{-7} m^2/s			



※括弧内の数値は、各セルの中心点のx座標を示す。

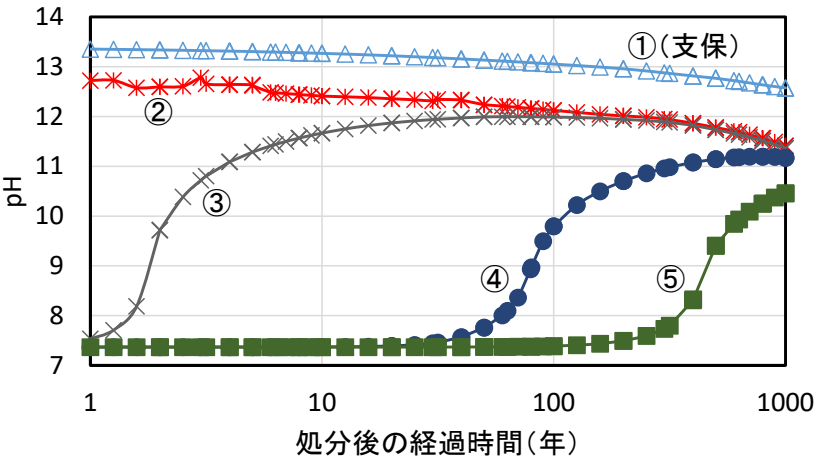


図 2.5-12 下流側セルの亀裂での pH の変化（透水量係数：10^{-10} m^2/s、動水勾配 0.01 の例）
（点線枠内のセルのうち、①~⑤のセルの pH の変化を示す）

岩盤の亀裂近傍のコンクリートセルにおける間隙率の変化の例を図 2.5-13 に示す。岩盤亀裂に隣接するコンクリート支保では、動水勾配と透水量係数の異なるいずれのケースにおいても、二次鉱物の沈殿によって、数百年以内で亀裂との境界での間隙率が下限値（1%）に達した。これによって、アルカリ成分の岩盤亀裂への移行が著しく抑制されると考えられた。

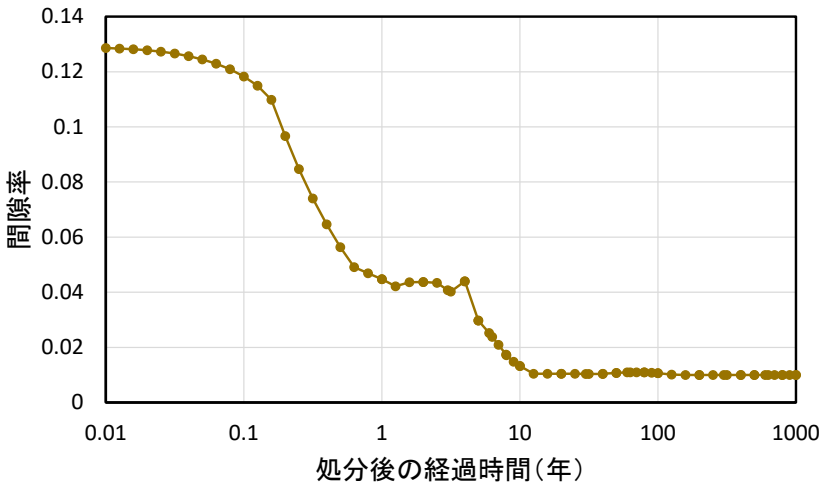
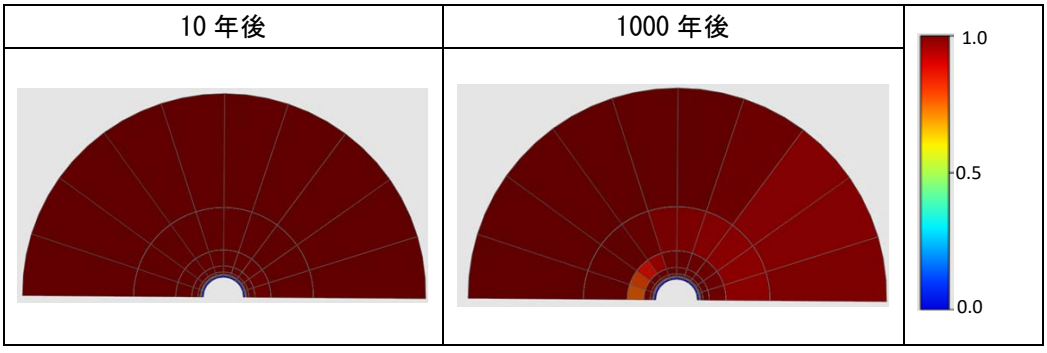


図 2.5-13 岩盤の亀裂近傍のコンクリートセルにおける間隙率の変化
（動水勾配 0.01、透水量係数：10^{-10} m^2/s の例）

上記に示した亀裂内部の pH の分布の評価結果のうち、処分後 1,000 年後以降にアルカリが坑道の下流側まで移行した、亀裂透水量係数が 10^{-10} m^2/s のケースについて、亀裂内部の間隙率の変化を解析した結果を表 2.5-6 に示す。1,000 年後においては、特に坑道の下流側において二次鉱物の沈殿による間隙率の変化が確認され、坑道の下流側 10 m でも 5%程度の間隙率の減少が認められた。このことは、坑道から 10 m ほど下流においても、アルカリと岩盤マトリクスが反応して二次鉱物が沈殿することによる亀裂の開口幅の変化や、亀裂表面での変質や被膜の形成などが起こり、岩盤の物質輸送挙動が変化する可能性があることを示唆していると考えられる。

表 2.5-6 岩盤中へのアルカリの移行による亀裂内部の間隙率の減少率
（透水量係数：10^{-10} m^2/s、動水勾配 0.01）



以上より、本解析で対象とした感度解析パラメータの範囲では、処分後 10 年程度で、岩盤亀裂に隣接するコンクリート支保の境界の間隙率が二次鉱物の沈殿によって著しく低下し、アルカリソースの岩盤側への移行が抑制されると考えられた。しかしながら、支保と岩盤中の亀裂の境界部では間隙が完全に閉塞されず、拡散による岩盤へのアルカリの移行が継続されることから、特に、岩盤中の地下水の流量が小さい場合では、処分後 1,000 年以降においても、10 m 程度下流側まで高い pH が維持される結果となった。このような結果となった理由として、岩盤中の地下水の流量が小さいために、アルカリプルームが希釈されなかったことによる可能性が考えられる。但し、上記で示したように、本解析では間隙率の下限値を 1%に設定しており、この設定値によっ

て結果が左右される可能性がある。今後、このような材料間の境界部分での状態変化のプロセスと、それに基づく境界部の変遷がアルカリプルームの岩盤中への移行に及ぼす影響を明らかにしていくと共に、この結果を踏まえて、上記で示した岩盤中へのアルカリの輸送のメカニズムの妥当性を確認していくことが重要である。

なお、本解析では、支保に由来するアルカリプルームを対象としたが、本節 2.5.1 項で示されているように、グラウトに由来するアルカリプルームを対象とする場合においても、グラウトと岩盤の亀裂の境界部分でのカルサイトの密集層の形成が観察された事例（日本原子力研究開発機構，2018）があり、コンクリート支保の場合と同様に、境界での二次鉱物の沈殿によって岩盤中へのアルカリの移行が抑制される可能性があると考えられる。但し、グラウトの場合では、グラウトが注入された領域の分布や注入された量に対する不確実性を評価においてどのように扱うかなど、コンクリート支保では考慮されていない課題への対処が今後必要となる可能性がある。

2) アルカリプルームが岩盤に及ぼす影響の評価手法の高度化に向けた研究アプローチの提示

2.5.2 項の(1)で示したように、支保などに由来するアルカリプルームと岩盤の化学反応によって生じる固相及び液相の変化を把握するための既往の反応輸送解析モデルにおいては、アルカリとの反応による岩石中の初生鉱物の溶解／二次鉱物の沈殿などがもたらす岩盤中の地下水流動場における経路／流速の変化や、透水性の異なる亀裂が分布することによる岩盤の不均質性に対する、亀裂ネットワークモデルなどによる取り扱いなどが十分でなく、必ずしも実際に起こり得る現象を表現できるものではない可能性がある。

このような地下水流動場の変化を解析において表現するためには、反応輸送と水理の双方向の連成解析が必要と考えられるが、前項 1)での解析結果は、必ずしも全ての条件において、亀裂ネットワーク全域で双方向の連成解析が必要であることを示唆するものではなく、条件に応じて、異なる連成のやり方を採用することが有効となる可能性があると考えられる。このような手法の概念を図 2.5-14 に示す。

図 2.5-14 の概念においては、アルカリプルームが岩盤へ移行することによってもたらされる核種移行挙動への影響のメカニズムとして、①岩盤亀裂の水理・物質輸送特性の変化、②亀裂表面の変質による岩石マトリクスへの物質輸送特性の変化、③地下水水質の変化の 3 つを想定し、これらの異なるメカニズムが発現する空間スケールのそれぞれにおいて適用されるべき連成解析手法を示した。①、②、③の順で、影響が及ぶ空間スケールが広がることとしたのは、地下水中に溶出したセメントの成分の濃度が坑道に近いほど高いと考えられるためである。このような区分で影響が異なるとする仮説を立てると、①の場合では、地下水流動モデルと反応輸送モデルとの間で双方向の連成解析が必要となり、それにより求められる場の状態を反映して核種移行解析を行うことが必要となる可能性がある。しかしながら、坑道のごく近傍では亀裂ネットワークをモデル化することが必要となる可能性は低く、1）で示したように坑道に交差する単一亀裂での解析が有効である可能性が高い。また、③の場合では、ニアフィールド岩盤全域にアルカリ影響が及ぶことから、亀裂ネットワークモデルでの反応輸送解析が必要と考えられるものの、岩盤マトリクスの間隙や亀裂内部の液相の組成のみが変化することから、地下水流動モデルにより求められた流速などの結果を反応輸送モデルの解析に反映するといった、一方通行の情報のやり取りで十分であり、これらの双方向の連成解析は不要と考えられる。他方、②のように、①と③の中間の空間スケールでは、アルカリと岩盤との反応によって液相と固相の双方の状態が変化することが想定され、亀裂ネットワークモデルによる地下水流動解析と化学－物質輸送解析の双方向の連成解析が必要となる可能性がある。

1）で示した解析結果からは、人工バリア及び岩盤中の核種移行が始まる 1,000 年後で、坑道の

下流に 10 m ほど離れた領域においても、亀裂内部の pH の上昇と二次鉱物の沈殿による間隙率の低下が認められた。既往の検討（核燃料サイクル開発機構, 1999b）では、ニアフィールド岩盤における亀裂の頻度として 0.3 本/m 程度を想定しており、このような岩盤を想定する場合では、亀裂ネットワークにおいて、液相の変化のみならず固相の状態が変化することも考えられ、図 2.5-14 の C）で示したような空間スケールにおいては亀裂ネットワークでの地下水流動解析と化学-物質輸送解析の双方向の連成が必要となる可能性を除外できないと考えられる。亀裂ネットワークにおける地下水流動モデルでは、複数の亀裂が交差する場合の地下水の希釈の効果や、複数の処分坑道からのアルカリ成分の重畳によって濃度が増加する可能性などを考慮することが必要となることも考えられる。

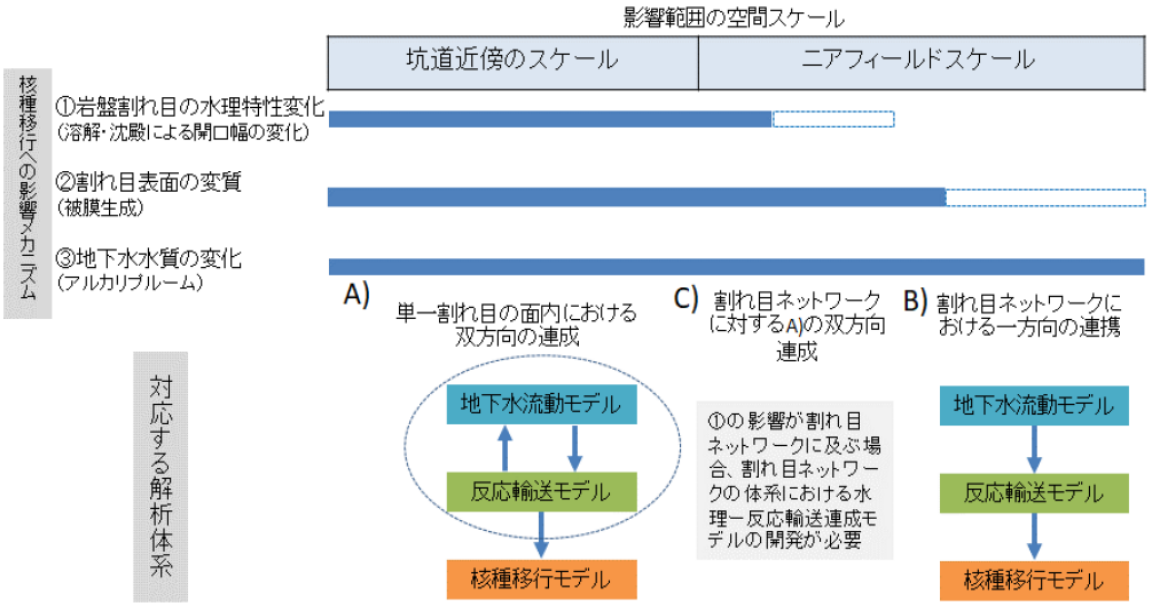


図 2.5-14　アルカリプルームの影響範囲に応じて異なる連成解析手法を適用する概念

(3) 2 か年の成果と今後の課題

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、平成 30 年度の試解析の結果などを参考にしつつ、処分孔の支保工とそれに交差する単一の亀裂を対象とした反応輸送解析モデルを構築し、支保工からのアルカリの影響が処分孔近傍に留まるか否かの条件を把握することを目的とする感度解析を行った。また、この結果の分析などを通じて、支保工やグラウトに由来するアルカリプルームがニアフィールド岩盤に及ぼす影響を評価する手法の高度化に向けた研究アプローチを提示した。今後は、アルカリプルームが下流側まで広がる要因の分析や、亀裂ネットワークモデルによる水理解析と化学-物質輸送解析との連成が必要となる条件などの把握が課題である。

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) 概要

緩衝材には、人工バリアとして複数の機能が期待されている。これらの機能は緩衝材の飽和後に発揮されるものであり、緩衝材の長期にわたる性能の評価は、完全飽和、密度均一の緩衝材を初期状態として行われている。施工時には、緩衝材の施工方法に応じてベントナイト系材料は適切な含水率に調整される。例えば、竪置きブロック方式の場合、圧縮成形されるブロックは含水率 10%前後で製作され、不飽和な状態で定置された緩衝材は、その後の地下水の浸潤過程を経て飽和に至ることとなる。緩衝材は水の浸潤に伴い、膨潤圧の発生、透水性の変化などが起こるため、この飽和に至る迄の期間に最も状態が変化する。飽和に至る迄の緩衝材の状態の変化は、ブロックの製造品質や施工品質の影響を受け、また、隙間などへの先行的な浸潤と膨潤・閉塞など、不均質な浸潤環境の影響も受ける。このような再冠水期間に発生する緩衝材の初期の密度分布は、飽和に至る過程で均質化することが期待されるが、局所的な膨潤による変形やそれに起因する不均一な密度分布が、飽和後の緩衝材の密度分布に影響を与える可能性がある。既往の研究によれば、密度の均質化は応力が釣り合ったところで定常となるため、緩衝材内に生じる密度の分布の幅に応じて不均質な密度となることが示されている（原子力環境整備促進・資金管理センター, 2018a など）。緩衝材に期待する長期的な性能の発揮には、緩衝材の飽和後の密度が所定の範囲内にある必要がある。そのため、飽和過程において緩衝材の状態がどのように変遷するかを把握し、飽和後に残存する緩衝材の密度分布を確からしく評価することが望まれる。飽和後の緩衝材の状態は、長期の性能評価の初期状態となるため、これをより確からしいものとして与えることは性能評価の不確実性の低減に繋がる。

一方で、定置後の初期段階に緩衝材の密度に影響を与えるものとして、定置後の孔内への地下水の流入（孔内湧水）に伴う緩衝材の流出の可能性が懸念されている。竪置きブロック方式において、緩衝材の流出が起こる期間として大きく 2 つの期間が想定される。最初の期間は緩衝材の定置直後の上部の処分坑道の埋め戻しがなされるまでの期間であり、孔内湧水が処分孔上部（処分坑道底盤）から排出される可能性のある期間である。次の期間は、処分坑道の埋め戻しが完了し、その後に処分抗道内の水位が回復するまでの期間であり、この間に、周囲の地下水が処分孔内の水みちを介して処分坑道へ流れる可能性のある期間である。坑道内外の動水勾配が十分に小さくなる水位回復後には、地下水流動は極めて緩慢（拡散支配の場）となり、水みちを伴う緩衝材の流出を引き起こすような坑内（孔内）への湧水は終息すると想定される。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の地下の湧水環境の変化を踏まえた流出挙動の把握が重要であり、緩衝材の機能に影響を与えるほどのベントナイトがこの期間に流出する可能性があるかどうかを評価する必要がある。また、湧水量が多い地下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準備しておくことで、多様な地下環境条件への適用性を高め、処分場において湧水量の上限値を決めて処分孔の使用の可否を決める場合においても、掘削した処分孔の利用効率を高めることができる。

また、緩衝材の密度に影響する他の要因の 1 つとして、緩衝材の定置後、上部の処分坑道を埋め戻すまでの期間における緩衝材の膨出挙動が危惧されている。緩衝材の膨出対策の 1 つとして、緩衝材上面をキャップなどで拘束することが考えられており、緩衝材の膨潤に伴いキャップに作用する荷重は 200 ton と見積もられている（核燃料サイクル開発機構, 1999a）。しかし、処分孔上部の坑道を埋め戻すまでの期間において実際に緩衝材の膨出がどの程度生じ得るかを把握し、それを抑制するための工学的な対策の適切性や実現性に関する実証的な研究には至っていない。

以上の背景を踏まえて本事業では、緩衝材の健全性を保つための緩衝材の流出に関する工学的

な対策を具体化するとともに、許容可能な緩衝材の流出量を考慮した飽和に至るまでの緩衝材の状態変化（浸潤、膨潤などの緩衝材の特性の変化）を予測評価するための解析手法の構築を目指す。併せて、工学的対策を施す緩衝材施工の際に同時に問題となる膨出挙動の把握に資するデータを試験により取得する。

(2) 研究のアプローチ

1) 基本的な考え方

上述したように、本事業では再冠水に至るまでの場の擾乱期を経た後の緩衝材の状態（密度分布）を確からしく予測評価するための技術を整備することが最終目標である（図 2.6-1 に再冠水に至る迄の緩衝材の状態変化の概念を示す）。併せて、緩衝材の流出及び膨出を抑制するための実現可能な工学的対策を具体化することである。

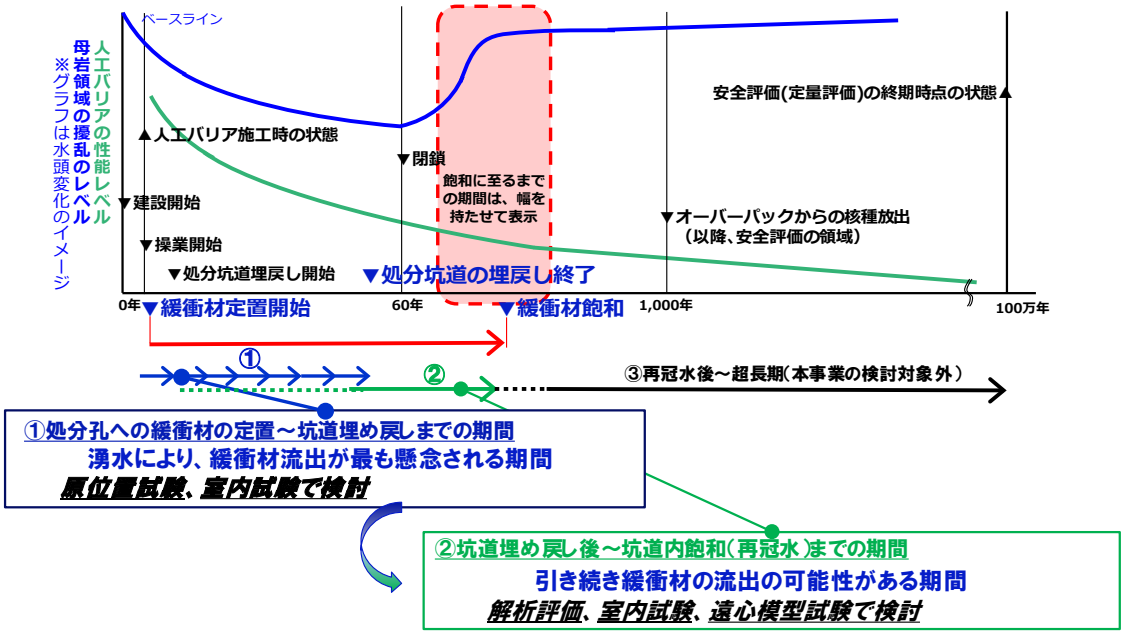


図 2.6-1　本事業の検討対象とする期間

このような課題に対する研究の進め方について、次のような考え方のもとで研究アプローチを設定する。

○ここでの実現可能な工学的対策とは、緩衝材を閉鎖後長期の性能評価や安全評価が期待する“理想的な状態（例えばバラツキのない一様な要件を満たす密度）”にすることを目指すのではなく、許容可能な一定量の流出や膨出の範囲に抑えるような対策を指す。例えば、１つの対策オプションが、施工技術としての実現性が見通せる一方で、一定量の緩衝材の流出や膨出を伴い結果として緩衝材領域に密度分布が残存する可能性がある。後者の影響の可能性を定量的に示し、閉鎖後長期の性能評価や安全評価との議論のたたき台とすることで、許容可能な境界条件が明確になるとともに、工学的対策としての更なる高度化の課題が明確になることが期待できる。なお、膨出については上部を拘束する蓋（キャップ）を設置するなど、既に幾つかの工学的対策が想定されるため、流出の抑制に係る工学的対策を当面の優先課題として捉える。

○緩衝材の状態を確からしく予測評価するための技術では地盤材料の土／水連成問題を扱うことができる有限要素解析コード DACSAR をベースとして、膨潤性を持つ粘土系材料への対

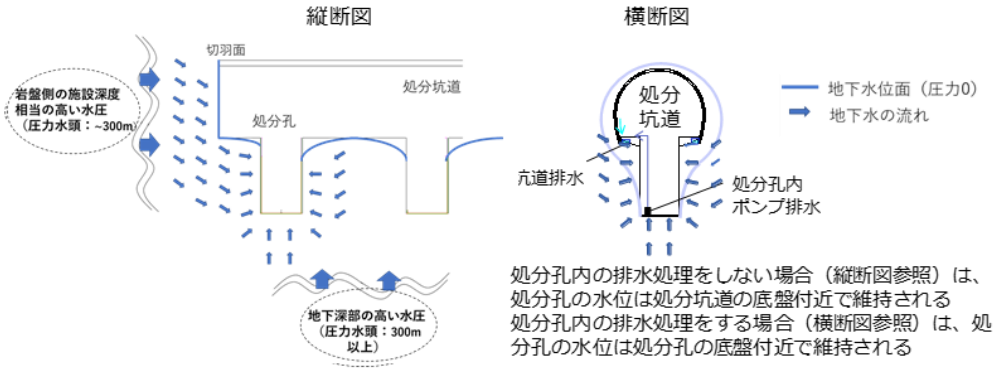
応、廃棄体からの熱の影響の考慮など、必要な機能を段階的に開発・高度化する。竪置きブロック方式を対象とした緩衝材の流出や膨出については、それらの挙動を精緻にモデル化するのではなく、まずは、上記の工学的対策の導入の結果として想定される初期の流出量などを既知の条件として考慮できるようにすることから始める。最終的には、PEM 内の緩衝材ならびに PEM 周囲の隙間充填材や処分坑道などの埋め戻し材などの粘土系材料を含む構成要素への適用を目指す。

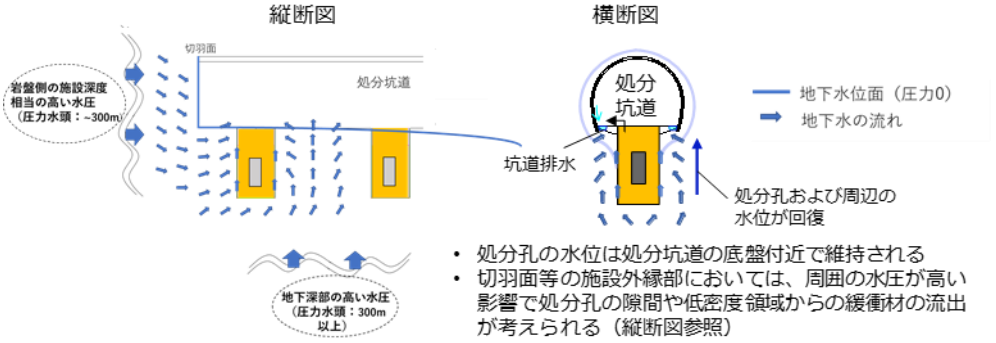
○本事業で扱う再冠水に至る迄の期間を対象とした緩衝材の流出、浸潤、膨潤といった挙動では、THMC（熱・水・応力・化学）の全てが関連する。本事業で開発を進める上記の 2 項目では、まずは、水・応力の考慮、その後に熱の考慮と段階的に進める。化学については、他の研究開発の取組の進展にも留意しつつ、影響の程度を見極めて反映方法の検討を進める。

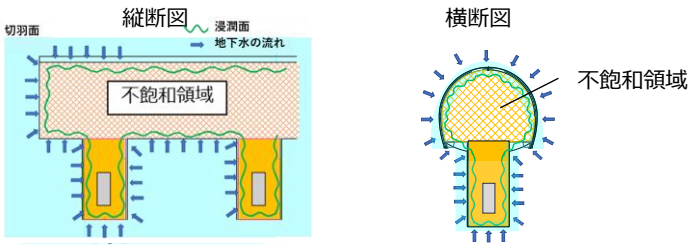
2) 検討対象期間に想定される緩衝材およびニアフィールドの状態変化

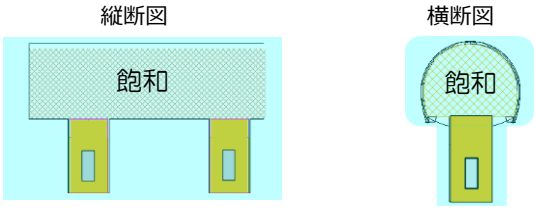
再冠水後の緩衝材の状態（密度分布）を示すことを目的とした本事業の検討対象期間は、処分坑道内が飽和に至るまでの期間である。同期間には、坑道掘削から操業・閉鎖に至る迄の坑内湧水の排水に伴い、当初のベースラインから特に水理環境に大きな擾乱が想定される。このような水理場の擾乱の中で、緩衝材を取り巻く水理場の変化を表 2.6-1 のように想定する。

表 2.6-1　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）

<table>
<tr><td>定置前</td><td>


処分孔内の排水処理をしない場合（縦断図参照）は、処分孔の水位は処分坑道の底盤付近で維持される
処分孔内の排水処理をする場合（横断図参照）は、処分孔の水位は処分孔の底盤付近で維持される
・ 処分坑道や処分孔に向かう地下水流動場が形成される
</td></tr>
<tr><td>定置後</td><td>


・ 処分孔の水位は処分坑道の底盤付近で維持される
・ 切羽面等の施設外縁部においては、周囲の水圧が高い影響で処分孔の隙間や低密度領域からの緩衝材の流出が考えられる（縦断図参照）
・ 処分坑道に向かう地下水流動場が形成される
</td></tr>
<tr><td>埋め戻し後</td><td>


・ 周辺岩盤は、時間経過に伴って圧力は徐々に平衡状態に近づき、地下水の流れが緩慢になる。
・ 坑道周辺は、処分坑道の埋め戻し材、処分孔内の緩衝材の不飽和領域に地下水が浸潤する。
</td></tr>
<tr><td>再冠水後</td><td>


・ 緩衝材、埋め戻し材ともに飽和する。
・ 動水勾配（圧力差）に起因する地下水の流れは、ほぼなくなる。
</td></tr>
</table>

【表 2.6-1 の解説】

○緩衝材の定置前

処分坑道や処分孔に向かう地下水流動場が形成される。開放坑道内への湧水の排水処理に伴い、緩衝材定置前の処分孔内の水位は処分坑道の底盤付近で維持されると想定される。一方、廃棄体と緩衝材の定置時には処分孔内の湧水を一旦排水する必要があることから、処分孔内の水位は表 2.6-1 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

処分坑道は引き続き開放中であり、湧水の排水処理が継続されれば、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。この時に岩盤と緩衝材間の隙間を流れる地下水により、緩衝材が膨潤することにより緩衝材表面付近の密度が低下し、緩衝材の流出現象が発生することが懸念される。特に処分坑道の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

周辺岩盤では時間経過に伴って圧力は徐々に初期のベースラインに近づき、地下水の流れが緩慢となる。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、不飽和領域に侵入した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が流出する可能性がある。

○再冠水後

緩衝材、埋め戻し材ともに飽和した再冠水後では、動水勾配（圧力差）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。

以上のような再冠水に至るまでに想定される坑道周辺の地下水の流れを踏まえれば、緩衝材の流出挙動の観点から、次の 2 つの期間に留意が必要となる。

期間①：緩衝材定置～処分坑道埋め戻し前までの期間

期間②：処分坑道埋め戻し後～処分坑道内が飽和するまでの期間

特に期間②では、水頭が回復しつつある周辺岩盤と処分孔を含む坑内との間の圧力差が生じることが想定され、処分坑道に裏面排水などが施され、緩衝材に高透水部が残存している場合には、処分孔を介した坑内への地下水流入が支配的となり、緩衝材の流出が継続する可能性がある。

本事業では、まずは期間①を対象として、緩衝材の流出挙動とその影響範囲の把握ならびに流出抑制対策の効果を把握するための試験と考察を先行させる。その後、期間②を念頭に置いた試験や考察に取り組み、これらの現象論的知見から、期間①及び②をとおしての緩衝材の流出量の定量化（見積もり）を試みる。このような定量的な緩衝材の流出量に係る知見は、飽和過程における緩衝材の密度分布に関する予測評価（解析的手法）の初期条件として反映させる。

3) 個別研究課題の進め方

①緩衝材の流出を抑制するための工学的対策の具体化

処分孔竪置きブロック方式の場合、原位置での施工性を考慮して、緩衝材ブロックと処分孔（孔壁）との間には隙間（ギャップ）が設けられる。ギャップを介して孔内湧水が緩衝材に浸潤することで、緩衝材が膨潤して自己シール機能が発揮されるが、既往の研究から、この間に界面を流れる坑内湧水の移流に伴い、上部から緩衝材が流出する可能性が示唆されている（SKB, 2006; Posiva, 2013; 原子力環境整備促進･資金管理センター, 2018a など）。このような状況における

工学的な流出抑制対策として、以下のようなものが考えられる。

○孔内湧水の制御

・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

○上蓋の設置

○隙間処理（ベントナイトペレットやケイ砂、現地発生土などの充填）

本事業では、これらの工学的対策オプションのうち、後述する理由から、「ケイ砂による隙間処理」を先行検討対象として抽出し、室内試験や原位置試験によりその工学的対策の効果を確認していく。なお、本オプションが、長期の性能評価や安全評価の観点で、期待される機能を満たさない場合には更なる工学的対策を検討する。先行検討対象としての本オプションの選定は、設計および性能評価・安全評価間での反復的開発プロセスにおける最初のステップである。

【ケイ砂による隙間処理を先行検討対象として抽出する背景・理由】

○ベントナイトペレットによる隙間充填は、一定の流出抑制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, 2018a）。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、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）が悪く、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。

○ケイ砂による充填は、施工性（充填性）が良く、また、当初の隙間領域を減らし（緩衝材が膨潤して界面の密度が低くなる領域を減らす）、地下水と緩衝材界面での接触面積を減らすことにより、流出量を抑制する効果が期待でき、更に次のような効果も期待できる。

・不均質な処分孔壁からの湧水を、ケイ砂領域を介して緩衝材界面へ接触させることにより、浸潤が内部に向かって均一に進む環境となり、解析的に取り扱う場合に単純化することができる。

・上記の結果、処分場内における多様な孔内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ができることから、膨潤後の緩衝材の品質保証の観点からも有利である。

・更に、再冠水プロセスの解析的手法の境界条件を、多様な湧水環境に依存せずに設定できるため、モデル開発の境界条件問題を簡素化できる。

・孔内湧水がケイ砂充填部（緩衝材外側）を意図的に流すため、緩衝材の流出抑制に加え、孔内湧水量の多い処分孔への適用性が高められる。

・他方、ケイ砂充填部の高透水性に伴う長期的な性能や安全性への影響については、今後も議論が必要である（長期の安全評価では、ケイ砂充填部分を EDZ（掘削損傷領域：Excavation Damaged Zone）の一部と扱うことができると考える）。

②緩衝材の飽和プロセスを対象とした解析的手法の構築

緩衝材の再冠水後の状態を把握するための実処分環境を模擬した実規模試験では、緩衝材の飽和までに数十年の期間を要すると想定され、多様な環境条件を念頭に置いた現象論的な実験データを拡充することは現実的ではない。そのため、多様な環境条件に適用可能な解析的な予測評価手法の整備が望まれる。

本事業においては、緩衝材の特性を考慮して、土骨格の変形と間隙水圧の流れを連成して解く土／水連成有限要素解析手法を用い、解析コードとして DACSAR を使用する。DACSAR は、解析対象となる材料の構成モデルの高度化・充実化、多物理現象の考慮、ならびに、数値解析手法

の高度化など、様々な形で更新されている。ここでは、不飽和状態にあるベントナイト緩衝材の力学特性を表現するためのアップデートを施したものを用いる。この解析コードは緩衝材の飽和・不飽和を問わず、力学的な緩衝材の評価に用いられている実績があり、緩衝材の長期挙動についても解析手法の検討が行われている。そのため、再冠水プロセスの評価手法として DACSAR を適用し、手法を構築することにより、将来的には再冠水から長期までを連続的に解析評価できると考えられる。

これまでに原子力環境整備促進・資金管理センターは、浸潤速度や残留密度差のモデル化のための試験を行ってきた（原子力環境整備促進・資金管理センター, 2018a）。これらの検討は、緩衝材の浸潤、膨潤挙動を理想的な形で試験し、モデル化したものであり、DACSAR によって再現解析を行い、手法の構築を行ってきた。一方で緩衝材流出は、不均一な緩衝材の状態をもたらし、再冠水後の緩衝材の状態に大きく影響すると考えられる。そのため、現実的な飽和後の緩衝材の状態を評価するためには、緩衝材流出を考慮した解析手法が必要となる。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、流出現象が湧水環境に大きく影響を受けると考えられるため、堆積岩も視野に入れた地下環境でのモデル化のためには、多くのパラメータを考慮する必要があり、容易ではないのが現状である。本事業では、緩衝材流出現象のモデル化については踏み込まず、試験によって把握した定量的データから予測される量の緩衝材が失われたと見做し、流出後の緩衝材の状態を初期条件とすることを方針とする。再冠水時の挙動評価としては、緩衝材流出にも影響し飽和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解析手法に先行して取り組むこととする。

緩衝材の不飽和から飽和に至る解析のためには、膨潤挙動と浸潤挙動が同時に起こるため、幾何学的な形状が応力の配分などに影響するため、サイズの小さいモデルからの外挿によって一気に実規模の飽和後の状態予測することはできないと考えられる。そのため、本検討においては検証データの取得も含め、段階的に検討を進めていくこととする。

また、再冠水プロセスが数十年から数百年の期間にわたって継続する挙動であることにより、実データとして検証データを得ることは不可能であり、解析的手法の妥当性の検証をするためのツールが必要である。本事業では、妥当性を示す検証ツールとして、及び再冠水後の緩衝材の状態に関する予測評価技術として、遠心模型試験技術の適用性を確認する。確認のための検証データの 1 つとして既往の長期室内試験の結果（緩衝材への地下水の湿潤挙動）を選定し、模型縮尺や加速度をパラメータとした遠心模型試験を実施し、比較検討をとおして遠心模型試験技術の妥当性を確認する。

(3) 本事業における成果目標と実施概要

前述した 2 つの個別課題（①緩衝材の流出を抑制するための工学的対策の具体化、②緩衝材の再冠水プロセスを対象とした解析的手法の開発整備）について、2 か年計画である本事業としての成果目標と実施概要（図 2.6-2）を以下に整理する。

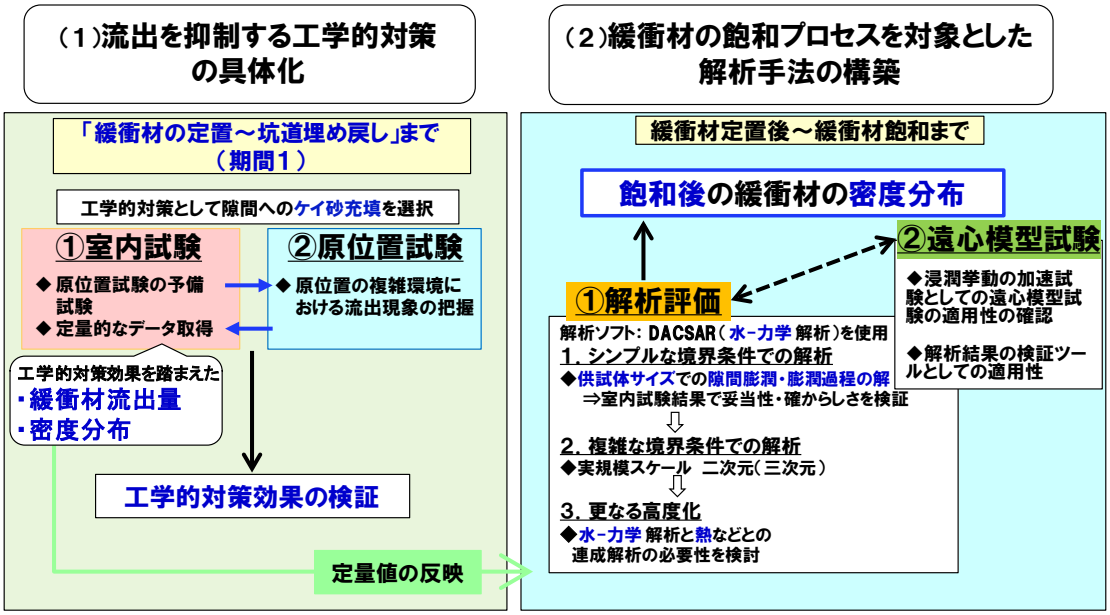


図 2.6-2　本事業における各実施内容の関係

1) 緩衝材の流出を抑制するための工学的対策の具体化

前述したように、処分孔竪置きブロック方式の処分概念を対象とした「ケイ砂による隙間処理」を先行検討対象として、その効果を確認し、実現性のある工学的対策オプションの 1 つとしての見通しを示すことを 2 か年の目標とする。

目標達成に向けて、次の 2 種の試験を組み合わせて（相互補完して）、より定量的な知見を拡充しつつ、緩衝材の流出対策効果を確認する（図 2.6-2 の左側を参照）。

①地下坑道における流出試験（以下「原位置試験」という）

②現象理解のための室内試験（以下「室内試験」という）

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のもとで、次の 2 つの状態（条件）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、緩衝材への影響範囲の定量化を行う。

・条件 1 ：工学的対策を施さない隙間がある状態

・条件 2 ：工学的対策としてケイ砂の隙間充填を施した状態

平成 31 年度までの室内試験は原位置試験の予備試験として、試験に用いるケイ砂の選定のための試験と試験装置の形状の影響などを把握するための試験を行う。原位置試験では、試験孔の水理環境計測などによって試験環境を把握するとともに、定量値としての精度に限界があるものの、流出試験後の密度分布や流出したベントナイト量について、より定量的なデータを取得する。得られたデータは、今後、解析手法の構築に反映される。

これら 2 種の試験結果を踏まえ、隙間に起因する緩衝材の密度変化の範囲や程度の把握や岩盤との隙間にケイ砂を充填した場合の工学的対策の効果について確認する。

2) 緩衝材の飽和プロセスを対象とした解析手法の構築

解析手法の開発・整備の第 1 段階として、緩衝材の浸潤・膨潤プロセスに伴う隙間充填挙動に着目し、小型供試体サイズを対象として力学解析によって飽和後の密度分布を示す手法を構築することを 2 か年の目標とする。加えて、解析的手法の検証ツールなどとしての遠心模型試験技術

の適用性を確認するために、緩衝材への水の浸潤挙動を対象として加速しない条件での試験結果との比較により、妥当性を確認する。

具体的には、図 2.6-2（右側）に示した以下の取組を進め、解析手法の構築と検証方法に関する検討を進める。

①流出現象を考慮した飽和後の緩衝材の状態を評価する解析手法の構築（以下「解析評価」という）

②遠心模型試験の緩衝材再冠水挙動評価のための検証ツールとしての適用性の検討（以下「遠心模型試験」という）

解析評価では、実スケールを対象とした解析に先立ち、比較的単純な境界条件下で生じる現象として、室内試験（流出試験）と同等の小型供試体サイズを対象とした解析を行い、緩衝材の膨潤挙動に関する理解を深め、実スケールでの応答を予測するための根拠とする。

遠心模型試験では、緩衝材中の水の浸潤距離と経過時間（実換算時間で数十年程度）の関係を取得し、その結果と既往の室内試験結果（浸潤フロントに関する 8 年程度の期間にわたる試験結果，原子力環境整備促進･資金管理センター, 2018a）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の適用性を評価する。これを基に、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、解析的手法の検証ツールあるいは数百年オーダーの処分環境の予測評価ツールとしての適用性を確認する。

2.6.2 実施内容

(1) 流出を抑制する工学的対策の具体化

1) 小型試験によるケイ砂の充填効果の確認試験

平成 30 年度に、工学的対策の一つとして「ケイ砂による隙間充填」を選定し、短期的（7 日間）な室内試験によって流出抑制の効果を伺うことができた。

平成 31 年度の室内試験では、引き続き「ケイ砂による隙間充填」を対象として、数か月程度の期間を対象に、隙間に充填するケイ砂の粒径をパラメータとして、緩衝材の流出に及ぼす影響をより定量的に把握した。これらの試験で得られる結果は、後述の原位置試験の条件に反映することも目的の一つである。また、ケイ砂の充填により一様な浸潤環境を人工的に作ることができる可能性があり、このことは浸潤過程を単純化することにつながる。本検討では浸潤過程の単純化に対する効果についても確認することを目的とし、試験後の密度なども測定する。

① 試験方法

試験で使用する供試体の材料は、多くの試験でレファレンスケースとして用いられている、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 で混合したものとする。ケイ砂の粒径分布を、図 2.6-3 に示す。また、試験セルー供試体間の隙間を考慮した上で作製する供試体の乾燥密度は、充填物の有無にかかわらず、セルの体積を基に膨潤後の平均乾燥密度が 1.60 Mg/m^{3}程度となるように設定した。供試体は直径 100 mm、高さ 50 mm の円筒形であり、セルの直径は 110 mm、高さ 50 mm である。これらの形状を考慮した供試体の初期乾燥密度は 1.94 Mg/m^{3}である。初期含水比は 10%程度とした。

使用する溶液は、原位置試験（幌延 URL の地下での試験）との整合性に留意して、原位置の地下水組成を模擬した溶液とした。模擬幌延地下水の組成は既往の分析結果（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019）を基に設定した（表 2.6-2）。

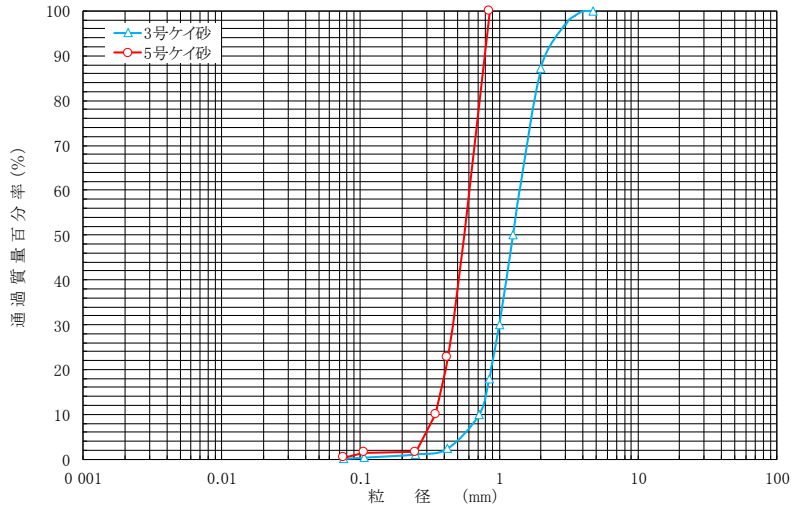


図 2.6-3　3 号、5 号ケイ砂の粒度分布

表 2.6-2　地下水の組成（実地下水及び模擬）

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

※：幌延 URL の試験孔 2 にて採水（位置については、後述の図 2.6-11 参照）

流出物質の測定は、既往の吸光光度計を用いてベントナイトの濁度を測定する方法（原子力環境整備促進･資金管理センター, 2018a）を用いた。測定にあたっては、一定期間の流出物質を含む排水を溜め置いた上で十分に攪拌した溶液を 200 mL 程度採水し、吸光度を計測することで溶液中のベントナイト濃度を計測し、その期間の流出量を算出する。吸光度とベントナイト濃度の関係は、検量線として事前に取得した。図 2.6-4 に検量線を示す。

試験には、図 2.6-5 に示す小型セル試験装置を用いた。アクリル製セルと供試体の間には 5 mm の隙間がある。送水条件は、原位置試験における平均流速（約 0.857 cm/min）をもとに、隙間の体積を考慮して、14 mL/min とした。測定項目は、隙間充填したケイ砂のかさ密度、試験中の送水量、送水圧、緩衝材流出量、および試験前後の緩衝材の乾燥密度と飽和度である。

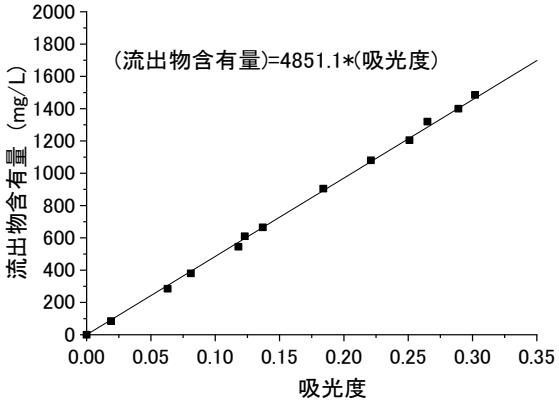
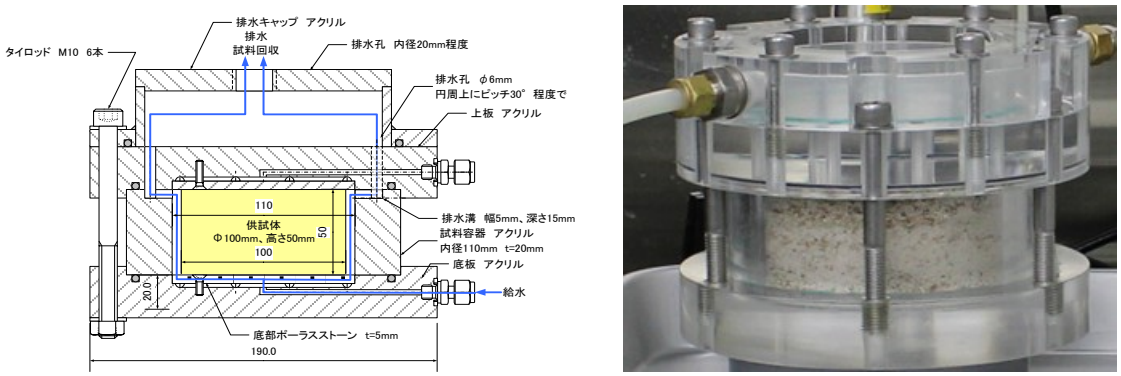


図 2.6-4　吸光度と流出物含有量の関係



a)　試験装置の概念図　　b)　試験装置の側面写真

図 2.6-5　小型セル試験装置

実施した試験ケースを表 2.6-3 に示す。ケイ砂充填の数か月間の工学的対策効果を確認し、隙間に充填するケイ砂の粒径の違いによる緩衝材流出量の違いを把握するために、隙間に充填するケイ砂を、3 号のみ、3＋5 号（乾燥質量比 1：1）、5 号のみ及び隙間ありの 4 種とし、試験ケースを設定した。試験体の諸元を表 2.6-4 に示す。試験体に関する形状、含水比などは作成時の実際の値であり、ケイ砂充填部の諸元については、充填部体積はベントナイト試験体の形状から算出、乾燥密度は充填時に使用したケイ砂の重量から算出した。バラつきがあることが認められるが、作成時にはこうしたバラつきは制御できず、今回の作成状況は許容される誤差であると考える。

表 2.6-3　小型セル試験装置を用いた試験ケース

試験ケース	境界条件	試験セルー供試体間の隙間充填材	送水条件	送水液種	試験期間
1	体積拘束	隙間あり	地下での流速を基に設定（14 mL/min）	模擬幌延地下水	2 か月程度
2		ケイ砂 3 号のみ			
3		ケイ砂 3 号＋5 号の混合材			
4		ケイ砂 5 号のみ			

表 2.6-4　小型流出試験の試験体諸元

部位	物性形状	単位	ケース 1		ケース 2		ケース 3		ケース 4	
ベントナイト供試体	土粒子密度	(Mg/m^3)	2.707							
	状態		初期	膨潤時	初期	膨潤時	初期	膨潤時	初期	膨潤時
	設計乾燥密度	(Mg/m^3)	1.936	1.600	1.936	1.600	1.936	1.600	1.936	1.600
	直径	(cm)	10.005	11.000	10.005	11.000	10.007	11.000	10.006	11.000
	高さ	(cm)	4.956	5.000	4.960	5.000	4.984	5.000	4.846	5.000
	体積	(cm^3)	389.593	475.166	389.888	475.166	391.951	475.166	381.003	475.166
	含水比	(%)	9.97	---	10.93	---	11.05	---	9.94	---
	乾燥密度	(Mg/m^3)	1.945	1.595	1.945	1.596	1.940	1.601	1.984	1.591
	間隙比	(---)	0.392	0.697	0.391	0.696	0.395	0.691	0.364	0.701
	飽和度	(%)	68.89	---	75.58	---	75.75	---	73.86	---
隙間充填部	材料		充填物ナシ		3 号ケイ砂		5 号ケイ砂		3 号+5 号	
	土粒子密度	(Mg/m^3)	---		2.639		2.647		2.647	
	充填部体積	(cm^3)	---	---	110.395	---	108.332	---	119.280	---
	含水比	(%)	---	---	0.00	---	0.00	---	0.00	---
	乾燥密度	(Mg/m^3)	---	---	1.447	---	1.622	---	1.531	---
	間隙比	(---)	---	---	0.824	---	0.632	---	0.729	---
	飽和度	(%)	---	---	0.00	---	0.00	---	0.00	---

② 結果と考察

(a)ケイ砂充填の効果と粒径の影響

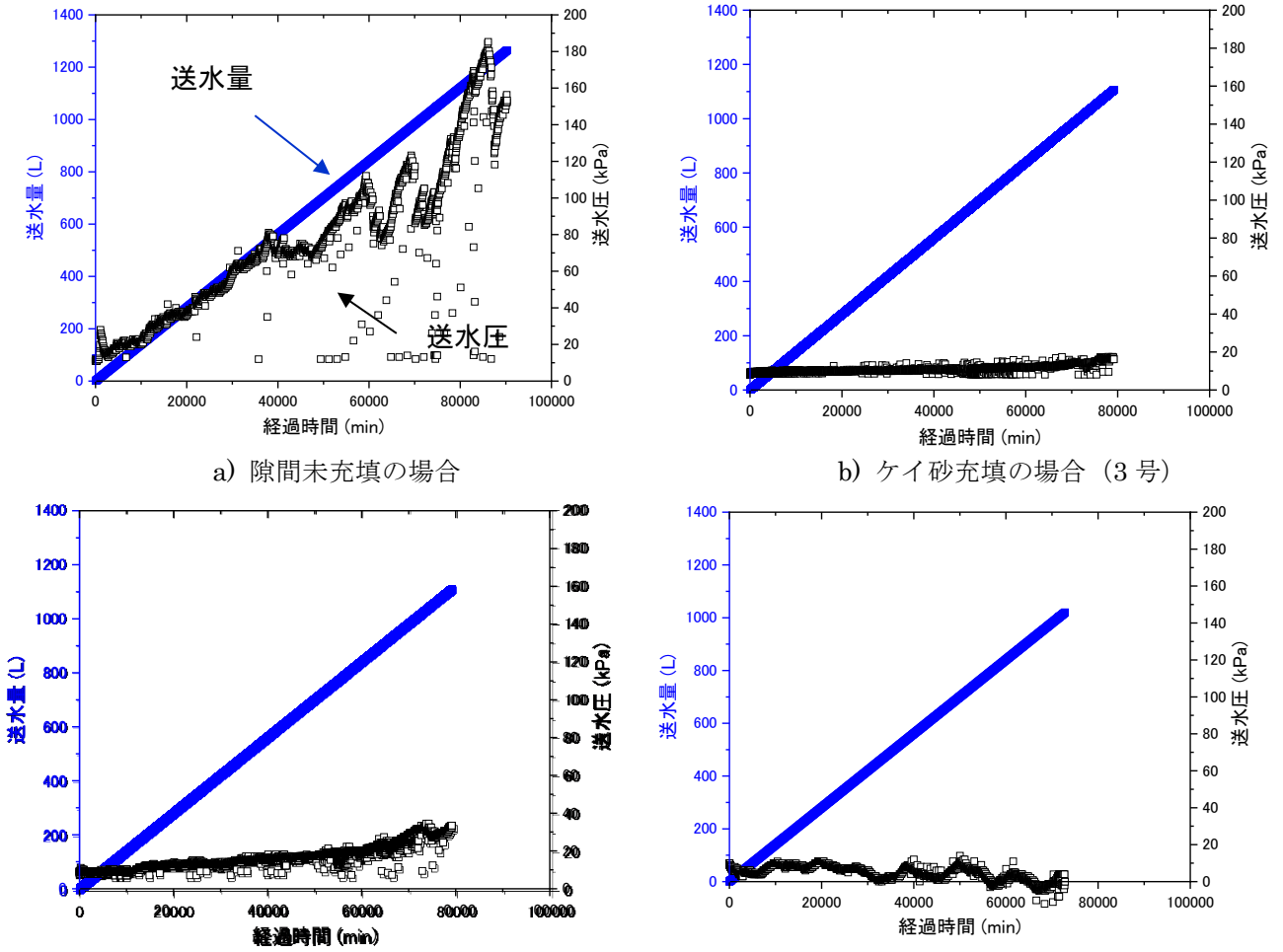
図 2.6-6 に各ケースの試験中の側方からの写真と上面からの写真を示す。ケース 1 の隙間に何も充填していないケースでは水みちの形成が観察された。隙間にケイ砂を充填したケースでは、ケイ砂がほぼ均一に充填されており、試験中に水みちの発生やケイ砂の流動などの変化は見られなかった。上面は、隙間未充填のケース 1 では、水の浸潤による濡れが全面に見られたが、隙間にケイ砂を充填したケースでは濡れていない箇所も見られる。ケイ砂充填ケースでは、試験体の周辺部の密度が低減せずに止水性が高かったことが推察される、

図 2.6-7 に試験中の送水量と送水圧の経時変化を示す。 a) に示したケース 1（未充填の場合）の送水圧は送水開始直後から時間経過に伴って増加した。供試体とアクリル製セルの間の隙間が膨潤によって減少し、それに伴って送水圧が増加したと考えられる。送水圧が増減を繰り返しているのは、形成された水みちに沿って緩衝材が膨潤して水みちが閉塞しその後水圧によって破過することを繰り返した、あるいは緩衝材に含まれるケイ砂が水みちや排水経路を一時的に閉塞、破過したためと考えられる。b) には、3 号ケイ砂を隙間に充填したケース 2 の送水量と送水圧の経時変化を示す。送水圧は 10 kPa 程度でほぼ一定であった。このケースでは、供試体とセルとの間の隙間が充填した 3 号ケイ砂の間隙が保持されており、膨潤による流路の閉塞などの現象が

発生しなかったことを意味していると考えられる。c)、d)に示したケース 3、4 でも同様に、送水圧は低いまま推移し、ケース 1 で見られたような送水圧の上昇及び破過によると考えられる上下動は見られなかった。ケイ砂充填層があることにより、水の流動が定常的になり、常に一定速度で供給された水が流れていることがこの結果から読み取れる。このことは、浸潤が一定の条件で進むことを意味し、解析評価のためのモデルを単純化することにつながる。

充填物	側面	上面
なし		
3 号ケイ砂		
5 号ケイ砂		
3 号＋5 号ケイ砂		

図 2.6-6　ケイ砂未充填と充填した試験の状況



a）隙間未充填の場合

b）ケイ砂充填の場合（3 号）

c）ケイ砂充填の場合（5 号）

d）ケイ砂充填の場合（3 号＋5 号）

図 2.6-7　送水量と送水圧の経時変化

図 2.6-8 には、ケース 1 から 4 までの試験で得られた総送水量と緩衝材流出量の関係を示す。隙間にケイ砂を充填しないケースに比べ、ケイ砂を充填した 3 つのケースは明らかに流出量が少なかった。試験終了時の流出量の割合は、試験開始時の供試体乾燥重量が 761 g であったのに対し、隙間未充填の場合に 2.4 %（流出量≒18 g）、ケイ砂 3 号充填の場合には、0.3%（流出量≒2 g）であった。この結果は、平成 30 年度に 7 日間の試験によって確認されたケイ砂充填による流出抑制の効果が数か月の期間においても継続することを示している。このことにより、2 か月以上の間はケイ砂充填による効果は継続することが確認された。

また、ケイ砂を充填した 3 つケース間では流出量にほとんど差がなく、今回試験に用いたケイ砂の粒径の違いでは結果に影響がないという結果であった。ケイ砂の間隙比は、表 2.6-4 に示したように、ケース 2、3、4 でそれぞれ 0.824、0.632、0.729 であったが、この範囲ではケイ砂の流出抑制の効果に差がないと認められる。実際に使用する可能性のあるケイ砂の粒径（号数）による影響がほとんど見られなかったため、隙間への充填の際に粒径が粗い砂の方が落下させ易いなどの取り扱いの容易性を考えて、原位置での試験には 3 号ケイ砂を用いることとした。

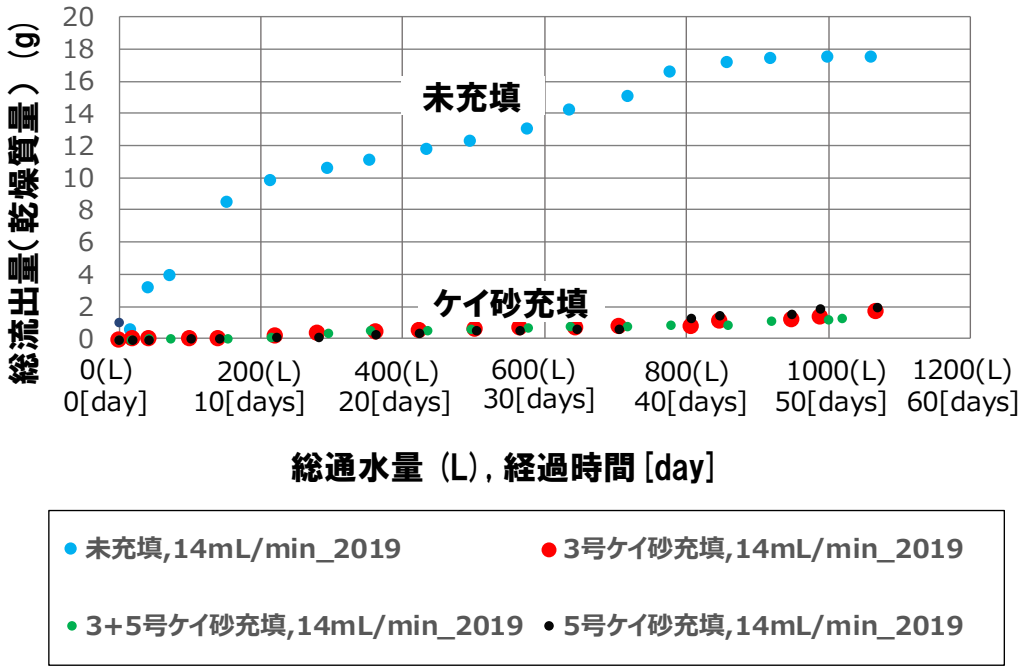


図 2.6-8　ケイ砂の粒径を変えた場合の緩衝材流出量と送水量の関係

(b)試験後の解体試料の分析

図 2.6-9 には、3 号ケイ砂を充填したケースの供試体の解体時の状況を示す。ケイ砂を充填したケースは、全周が均等に浸潤しており、充填による一様な浸潤環境を人工的に作ることが確認できた。図 2.6-10 に試験後の乾燥密度分布を示す。隙間未充填のケースは膨潤によって全体的に密度が低下しており、水みちが形成された箇所では特に密度が低くなっていた。それに対し、ケイ砂を充填したケースは、供試体の乾燥密度の低下が少なく、密度分布の幅も狭くなっていた。ケイ砂を充填することによって、体積がある程度拘束されたため、供試体の膨潤による乾燥密度の低下が抑制されるとともに、水みちを伴う流出現象は生じずに流出量が少なくなったと推察され、その効果により密度の減少が抑えられ、密度の均一性が保たれた結果が得られている。

図 2.6-9　供試体解体時の状況（3 号ケイ砂充填ケース）

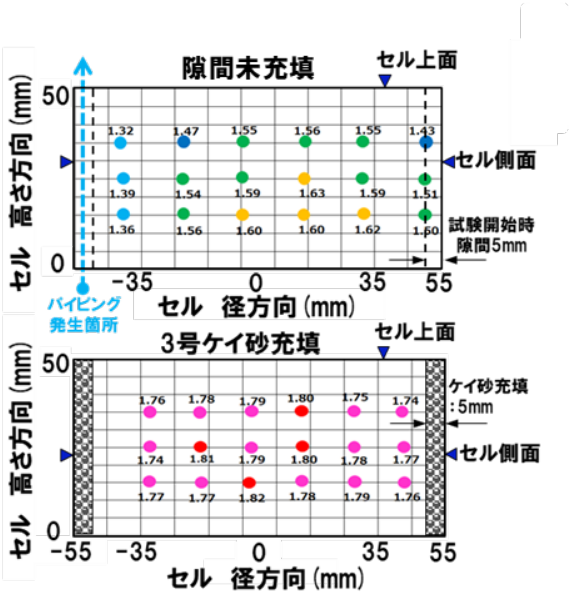


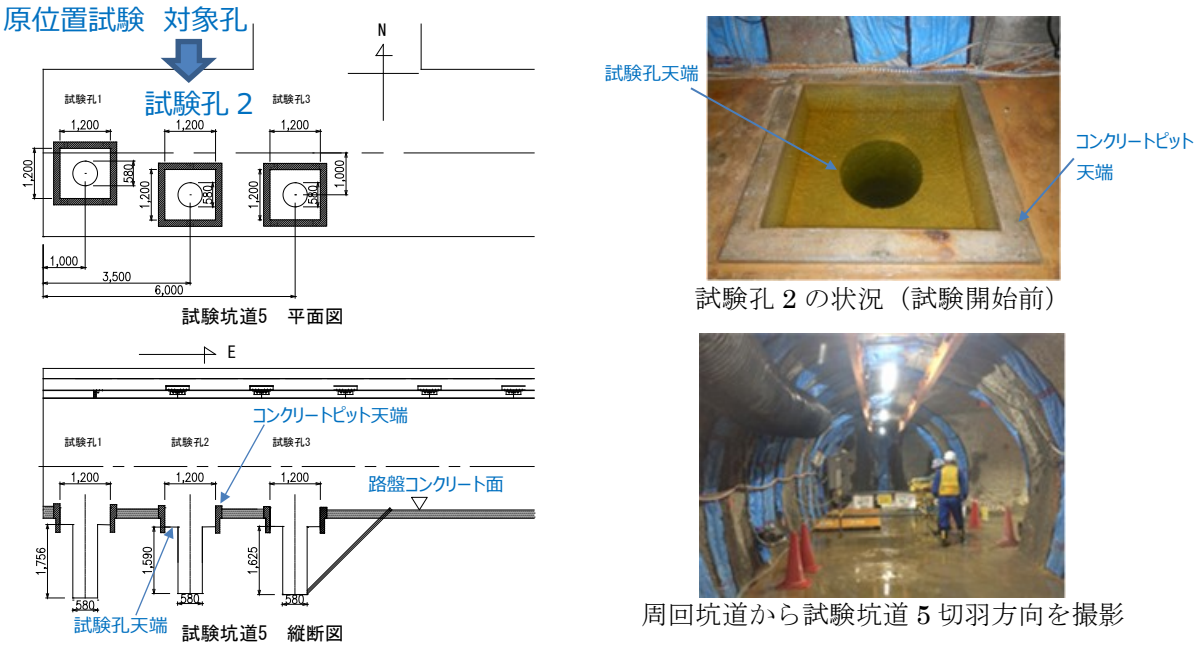
図 2.6-10　試験後の乾燥密度分布

2) 原位置試験

原位置試験では、2.6.1 3)で述べたように、処分孔竪置きブロック方式の処分概念に対し、「ケイ砂による隙間処理」を検討対象として、緩衝材の流出抑制効果を確認し、実現性のある工学的対策オプションの 1 つになり得る見通しを示すことを目標とした。

上記の目標達成に向け、原位置試験は、図 2.6-11 に示した幌延 URL 地下 350 m 試験坑道 5 内に設置した試験孔 2 を使用し、自然湧水環境において、以下の 2 つの状態（条件）の流出試験を行い、緩衝材の流出量、試験後の緩衝材の密度計測などを行い、隙間処理（ケイ砂充填）による工学的対策の効果を確認した。

・ケース 1：試験孔内への緩衝材の定置後、緩衝材外周と孔壁との間に隙間がある状態
・ケース 2：試験孔内への緩衝材の定置後、工学的対策として、ケイ砂による隙間充填を施した状態



試験孔 2 の状況（試験開始前）

周回坑道から試験坑道 5 切羽方向を撮影

図 2.6-11 幌延 URL 地下 350 m における試験の実施場所

①試験方法

(a)緩衝材ブロックの製作

原位置試験で使用する緩衝材ブロックを静的な圧縮による方法で製作した（表 2.6-5）。

緩衝材ブロックの製造時の乾燥密度は、緩衝材と孔壁との隙間（20 mm）に対し緩衝材が湧水の浸潤により膨潤した場合に 1.60 Mg/m³となるように、1.92 Mg/m³と設定した。

表 2.6-5　緩衝材ブロック仕様

原材料及び配合	Na型ベントナイト70wt%（クニゲルV1） ＋ケイ砂30wt%（日陶連原料（株）3号15wt%＋日陶連原料（株）5号15wt%）	
乾燥密度	製作時	1.92 Mg/m^3
	膨潤時	1.60 Mg/m^3（緩衝材と孔壁との隙間20 mm膨潤時）
製造時含水比	11.15%（製作した緩衝材ブロックの平均含水比） (目標含水比；10.5%±2%以内)	
形状と数量	ドーナツの8分割型の扇型ブロック（参照） 計64個	
寸法	外径0.54 m、内径0.21 m、厚さ0.10 m （1段あたり、これを8分割）	
重量	5.1 kg/ブロック	

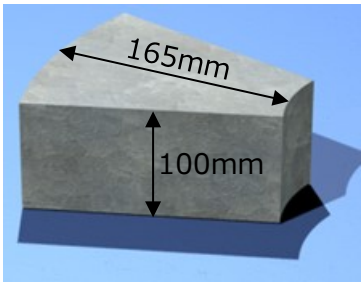


図 2.6-12　緩衝材ブロック（扇形ブロック）の形状と寸法

(b)試験系

原位置試験における試験系を図 2.6-13 に示す。この試験系は、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」（レビュー版）（原子力発電環境整備機構, 2018）に記載されている竪置き・ブロック方式の寸法仕様を約 1/4～1/5 で模擬したものである。また、本試験では、試験孔天端（コンクリートピット底盤）の高さで採水・排水を行うことから、平成 30 年度の試験孔 2 の湧水量測定の結果（図 2.6-14）を参考として、冠水後の定常状態の湧水量は 300 mL/min 程度（試験孔天端水位；13 hr 以降）を想定した。

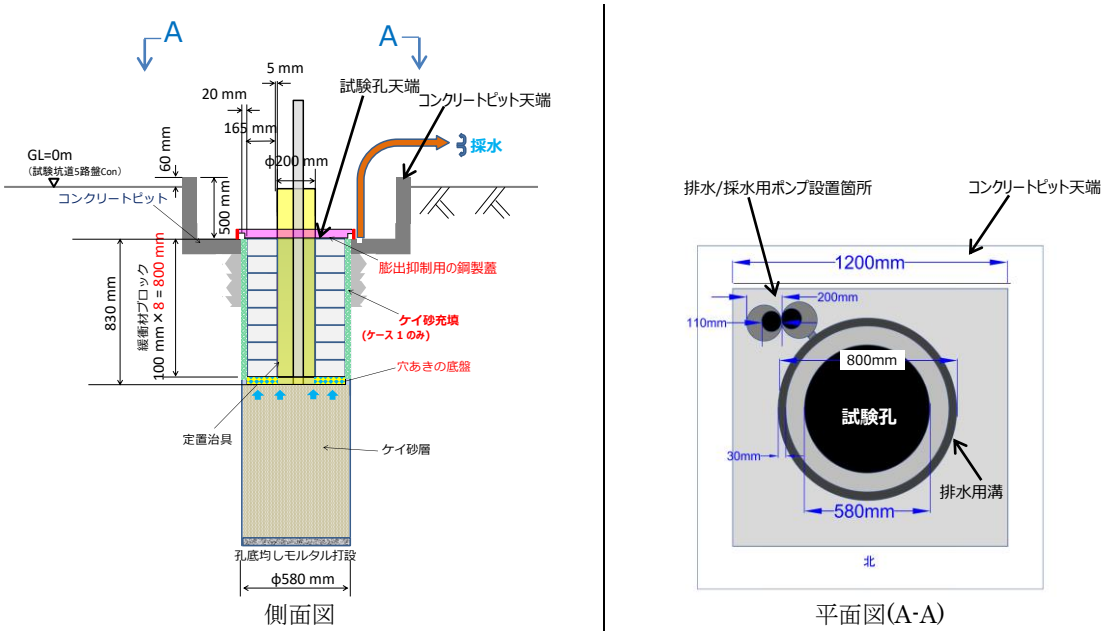


図 2.6-13　原位置試験 試験系の概念図

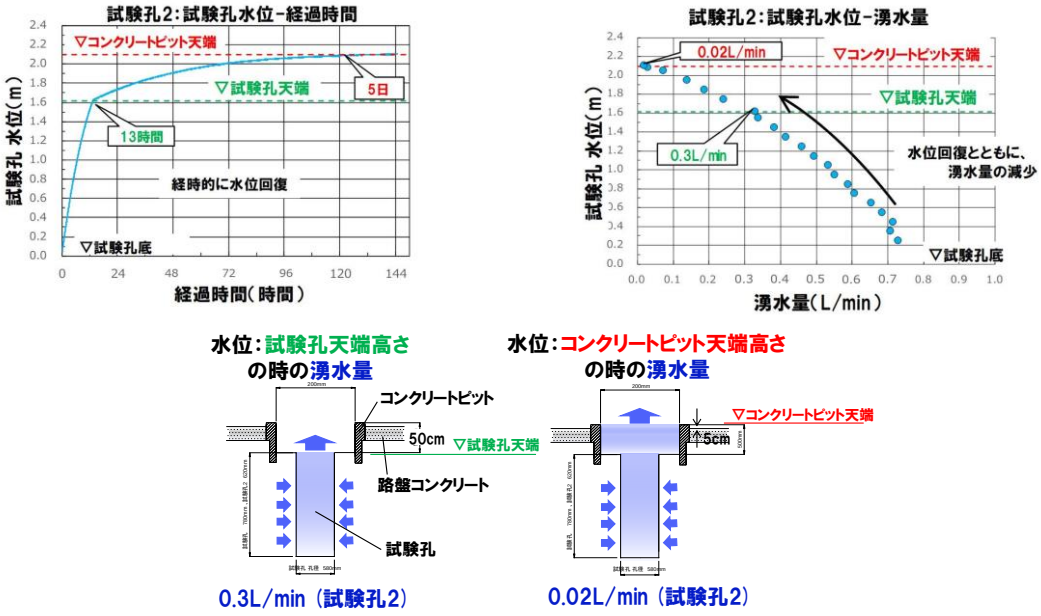


図 2.6-14　湧水量測定結果

(c) 試験ケース

試験ケースを表 2.6-6 に示す。試験孔 2 の自然湧水条件下において、工学的対策として隙間を処理（緩衝材ブロックと孔壁の隙間にケイ砂を充填）するケース 1、隙間を処理しない（隙間未充填）ケース 2 の順に 2 ケースを実施した。

表 2.6-6　原位置試験　試験ケース

ケース 1	ケース 2
対象孔：幌延 URL 地下 350 m 試験坑道 5 試験孔 2　自然湧水条件下での試験	
工学的対策として緩衝材ブロックと孔壁の隙間にケイ砂を充填	工学的対策なし 緩衝材ブロックと孔壁の隙間 未充填

(d)試験体の組立・定置

製作した定置治具の上に試験体（緩衝材ブロック 8 個/段×8 段）を積み上げた後、坑道内に設置した吊り具を使用し、試験孔 2 内に試験体を定置した（図 2.6-15）。

試験体の定置状況

試験体の試験孔内への定置完了状況

定置治具

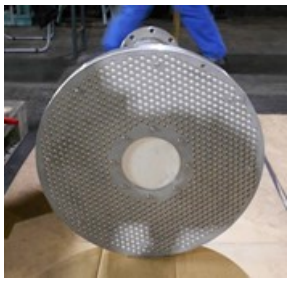

試験体定置治具（底面）

図 2.6-15　試験孔 2 への試験体の定置、試験体定置治具

試験体の組立、試験孔内への定置に併せて、土圧計・水位計を設置した。土圧計は、緩衝材ブロック最上面（鋼製蓋の裏面）、緩衝材ブロック側面（試験孔壁面）の上・中・下部、緩衝材ブロックの最下面に設置した。水位計は、定置治具の中央管最下部に設置した（図 2.6-16）。

また、試験体の試験孔への定置後、試験ケース 1 では、緩衝材ブロックと孔壁の隙間にケイ砂（3 号）を人力にて自然落下により充填した。

充填したケイ砂の仕様および、充填後のかさ密度を表 2.6-7 に示す。

以上の試験孔への試験体設置に係る手順は以下のとおりである（併せて、図 2.6-17 を参照されたい）。

Step 1：試験孔 2 内の湧水を水中ポンプで排水する。

Step 2：試験孔 2 のコンクリートピット上部に H 鋼材を 2 本横向きに設置、その上に試験体定置治具を置き、高さ 10 cm の緩衝材ブロックを 8 個/段×8 段を治具上に組み立てる。組立の際、緩衝材ブロックの最上面および最下段に土圧計を設置する。なお、土圧計を設置する緩衝材ブロックには、事前に土圧計の形状を模した切欠きを準備しておき、設置後に生じる隙間には、ベントナイト（クニゲル V1）を密に充填する。

Step 3：坑道内に設置した吊り具を使用して、組み立てた試験体を試験孔の孔底に充填されたケイ砂上に定置する。

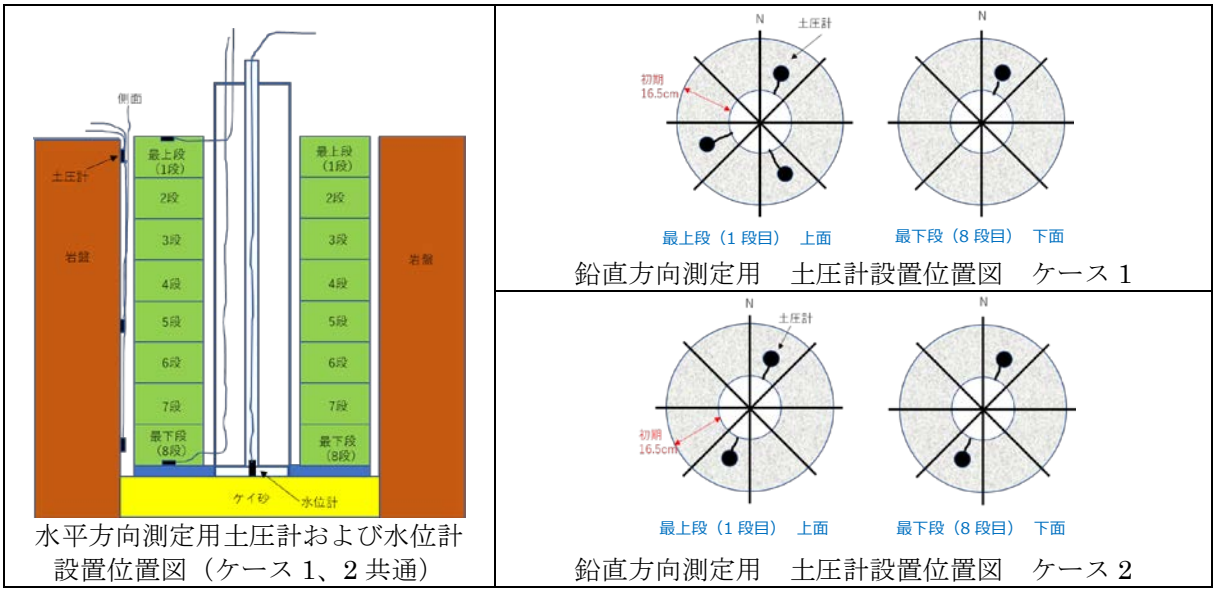
Step 4：緩衝材ブロックと孔壁との隙間に、水平方向測定用の土圧計を設置する。

Step 5：ケース 1 では、緩衝材ブロックと孔壁との隙間にケイ砂（3 号）を人力にて自然落下により充填する。

Step 6：試験体上部に鋼製蓋を設置し、定置治具の中央管最下部に水位計を設置する。

Step 7：土圧計、水位計ケーブルをロガーに接続し、計測を開始する。

Step 8：排水/採水用ポンプをコンクリートピット底部の排水/採水用穴に設置し、自動採水装置及び積算流量計に接続し、採水及び積算流量の計測を開始する。



水平方向測定用土圧計および水位計設置位置図（ケース 1、2 共通）

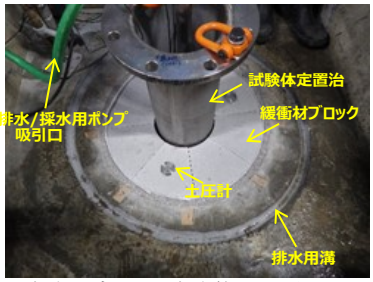
鉛直方向測定用　土圧計設置位置図　ケース 1

鉛直方向測定用　土圧計設置位置図　ケース 2

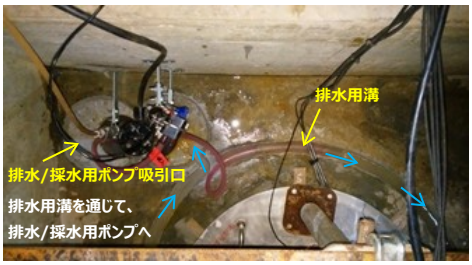
図 2.6-16　土圧計・水位計　設置位置図

表 2.6-7　隙間充填用のケイ砂の仕様と充填後のかさ密度

産地	瑞浪産
種類、粒径	3 号、粒径 1.7 mm～0.6 mm
隙間充填量	36.3 kg
隙間容積	0.3 m^3
充填後のかさ密度	1.21 Mg/m^3



試験孔内への試験体設置後状況



排水/採水用ポンプ設置状況

図 2.6-17　試験体の試験孔への設置手順の補足説明図

(e)試験中の計測項目

流出試験中は土圧、試験孔内水位、積算排水量を連続的に計測するとともに、試験孔内からの排水を適宜採水して、流出した緩衝材（ベントナイト）の濃度を吸光度分析により測定した。流出試験中の計測項目を表 2.6-8 に示す。

表 2.6-8　計測項目

測定項目	計測/測定方法	目的
試験体の膨潤圧	土圧計	試験体への湧水の浸潤に伴い発生する膨潤圧を連続的に計測
試験孔内の水位（水圧）	水位計	試験孔内の水位（水圧）を連続的に計測
積算排水量	積算流量計	試験孔からの排水量を連続的に計測
緩衝材濃度	吸光度分析	排水から、分析用の試料を採水し、吸光度分析により緩衝材濃度を測定、濃度と排水量より、緩衝材流出量（ベントナイトの乾燥重量）を算出

本試験では、前出の 1)で述べた室内試験（小型試験）と同様に、緩衝材流出濃度を吸光度分析により測定した。測定にあたっては、ベントナイトの吸光スペクトルが卓越した 420 nm を採用し、ベントナイト標準溶液は、湧水中に含まれるバックグラウンドの影響を減ずるため、原位置の湧水を使用した。図 2.6-18 に作成した検量線を示す。

採水した試料は、地盤工学会基準（JGS0251-2000）に則り、試料調整を行った。また、分光光度計にて吸光度を測定する際には、分散液（片山化学工業製ミラクル DP-200）を採水試料に滴下し、マグネスティックスターラーで十分に撹拌した。

測定した吸光度からベントナイト濃度を算出し、ベントナイト濃度(mg/L)と排水量（L）の積から、ベントナイト重量（緩衝材流出量）を算出した。

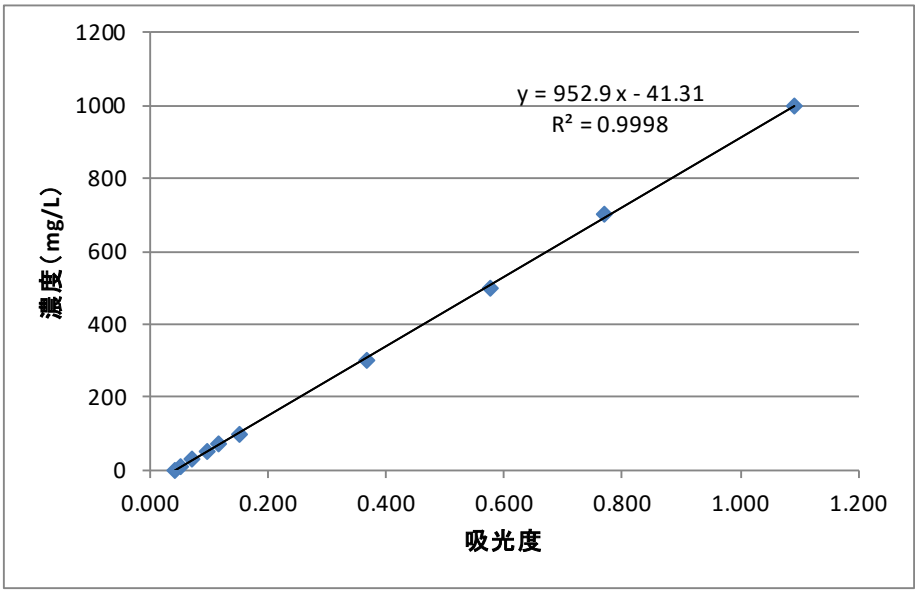


図 2.6-18　検量線（吸光度とベントナイト濃度の関係）

②結果と考察

(a)緩衝材流出量

工学的対策としてケイ砂による隙間処理を実施したケース 1 では、試験期間 29 日における緩衝材の総流出量は 558 g、総排水量は 29,000 L、試験終了時の流出割合（試験開始時の試験体（緩衝材）の乾燥重量 298 kg に対する総流出量の割合）は 0.2%となった。なお、ケース 1 の試験期間は、定置治具の強度と後述する土圧計の計測値を考慮し 29 日間で終了した。

工学的対策を施さない（隙間未充填）ケース 2 では、試験期間 56 日おける緩衝材の総流出量は、3,325 g、総排水量は 7,444 L、試験終了時の流出割合は 1.1%となった。

原位置試験結果を表 2.6-9、図 2.6-19～図 2.6-22 に示す。

なお、表 2.6-9 には、両ケースの同条件（試験期間、総排水量）での緩衝材流出量の比較として、試験途中の測定値を参考として示している（表 2.6-9 中の緑色、黄色箇所）。

表 2.6-9　原位置試験結果（緩衝材流出量）

湧水条件	試験ケース	試験期間	総緩衝材流出量	総排水量	試験終了時の流出割合 ※1
自然湧水	ケース 1； 工学的対策あり ケイ砂による隙間処理	29 日 ※2	558 g	29,000 L	0.2%
		約 12 日	約 110 g	（参考） 約 7,400 L 時点	0.04%
	ケース 2； 工学的対策なし 隙間未充填	56 日	3,325 g	7,444 L	1.1%
		（参考） 29 日時点	約 3,100 g	約 6,700 L	約 1.0%

備考；
幌延 URL 地下 350 m 試験坑道 5 試験孔 2 を使用、自然湧水条件での流出試験
※1 試験開始時の試験体（緩衝材）の乾燥重量 298 kg に対する試験終了時の流出割合
※2 定置治具の強度と土圧計の計測値を考慮して 29 日で試験終了とした

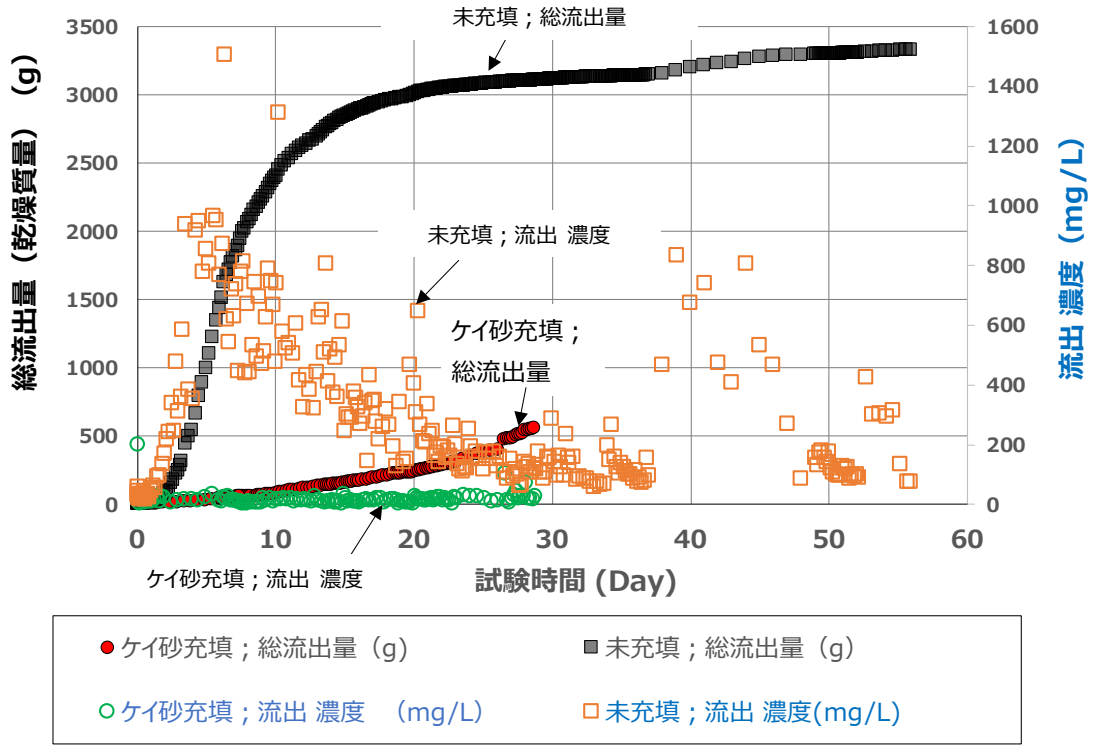


図 2.6-19　試験時間（Day）に対する総流出量・流出濃度の関係

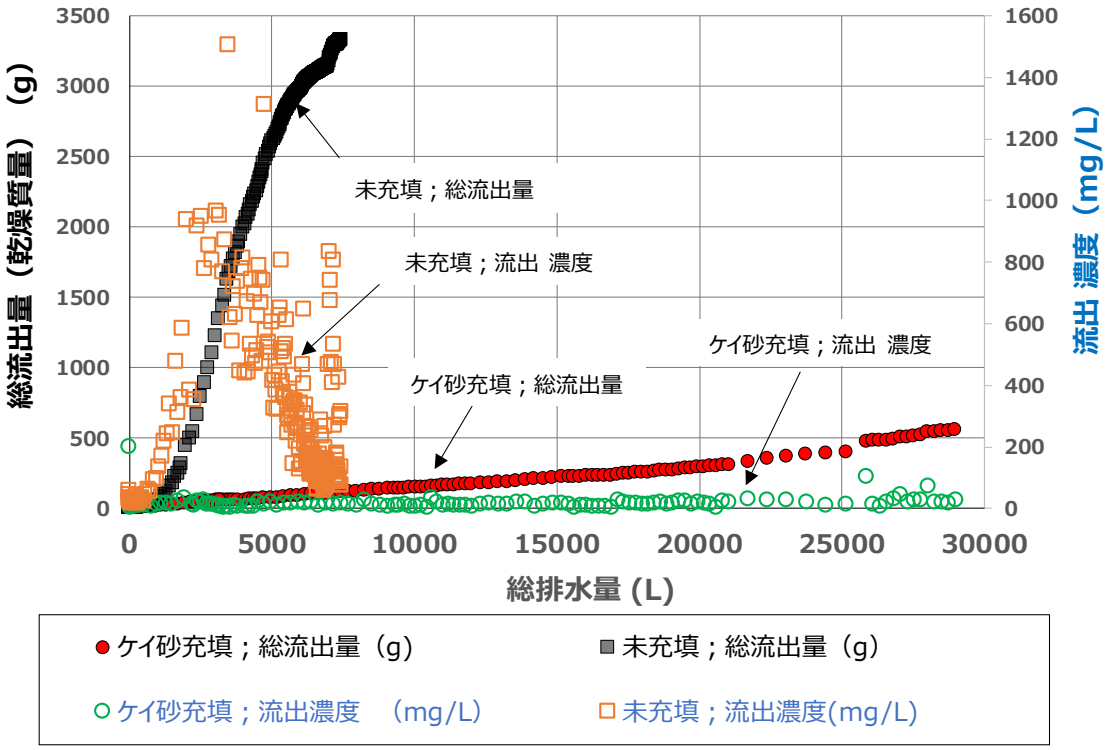


図 2.6-20　総排水量に対する総流出量・流出濃度の関係

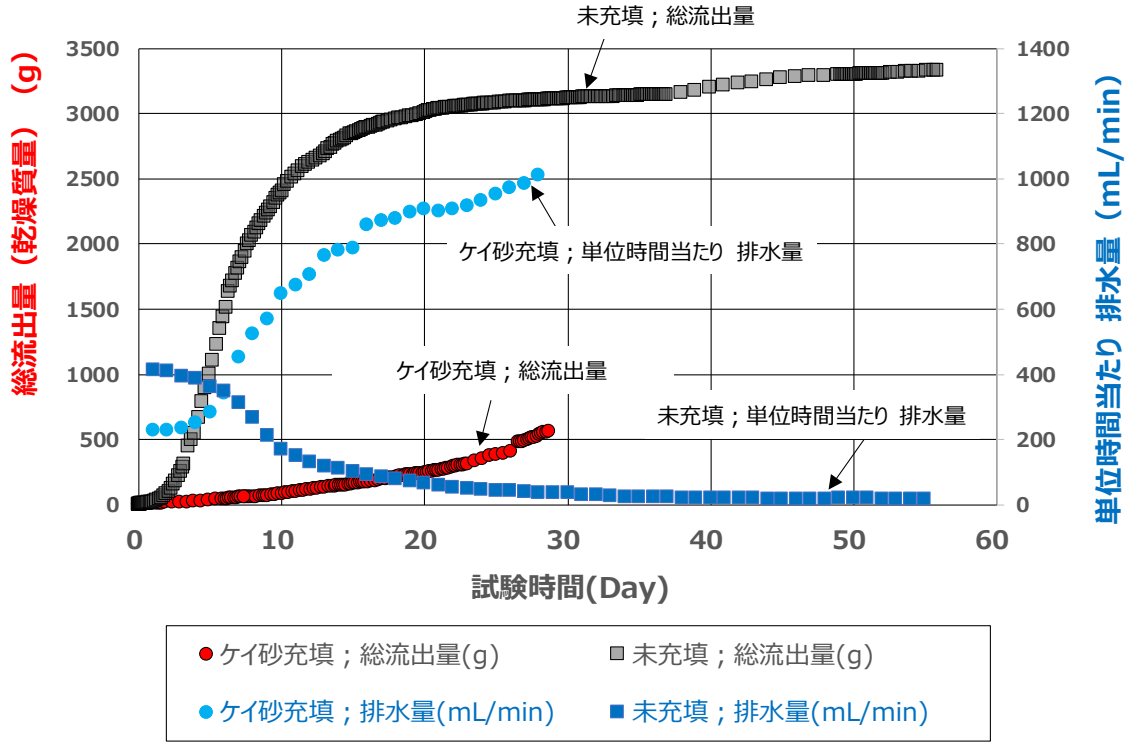


図 2.6-21　試験時間（Day）に対する総流出量と単位時間あたりの排水量の関係

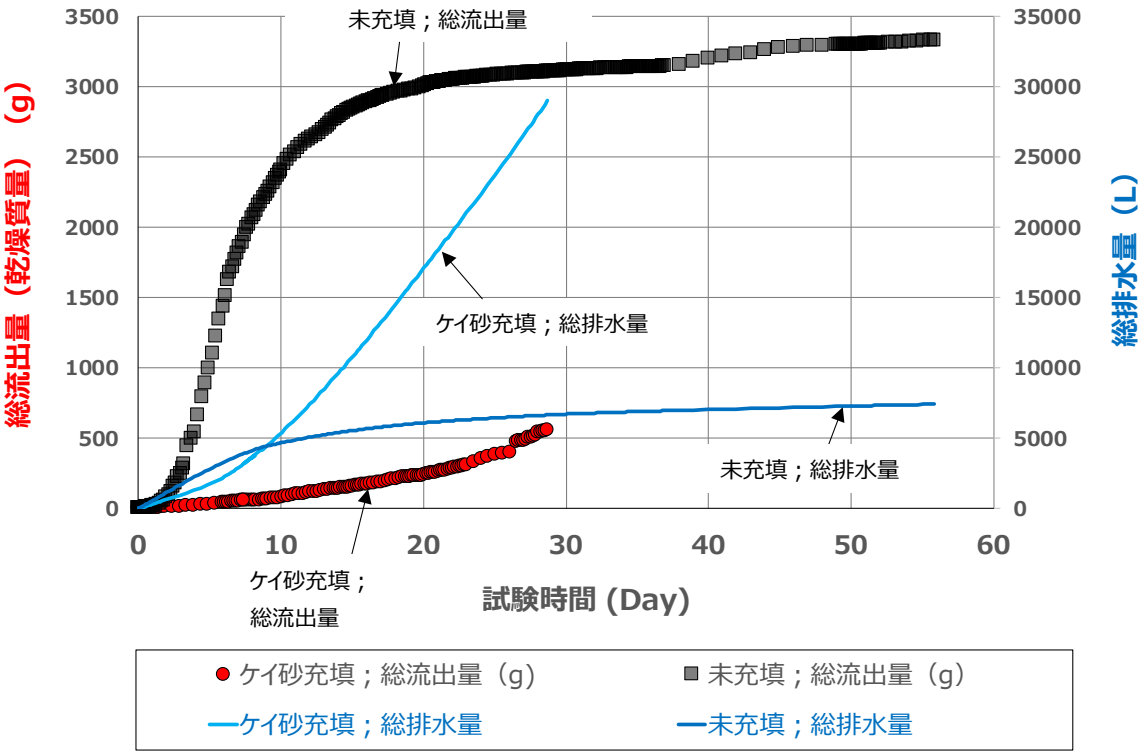


図 2.6-22　試験時間（Day）に対する総流出量と総排水量の関係

前述した通り、「緩衝材の流出量」は、「流出したベントナイト濃度(mg/L)」と「排水量（L)」の積として算出することから、「流出濃度」と「排水量」に着目し、ケース毎の結果と考察を以下に述べる。

【ケース 1；工学的対策として隙間に「ケイ砂充填」】

◆流出濃度

試験体の定置直後に 200 mg/L と高い濃度を測定したが、以後は、0～100 mg/L となり、試験期間中の平均濃度は 18 mg/L となった（図 2.6-19、図 2.6-20)。

◆排水量

平成 30 年度に実施した試験孔内の湧水量測定の結果（図 2.6-14）より、300 mL/min を想定したが、試験開始時の 200 mL/min から経時的に排水量が増加し、試験終了時で 1,000 mL/min 程度となった。（図 2.6-21）

◆緩衝材流出量

上述の結果から、主に「排水量」の増加を原因として、緩衝材の流出量が経時的に増加する傾向を得た。試験終了時（試験期間 29 日、総排水量 29,000 L）において、総流出量は 558 g となった（図 2.6-20)。なお、試験終了時における流出割合は 0.2%となる。

◆考察

ここで、ケース 1 の結果の考察の前に、緩衝材の流出の発生条件などについて、既往研究（原子力環境整備促進・資金管理センター, 2015）を基に以下に記載する。

【緩衝材の発生条件；既往検討より】

＜緩衝材界面のせん断強度と水の流速に起因するせん断応力の関係＞

緩衝材は水と接触すると膨潤するために、体積拘束するような境界条件を課さない限り、密度を減少させつつ、ある程度の乾燥密度まで膨潤変形する。膨潤した緩衝材と水との界面における緩衝材流出現象の概念図を図 2.6-23 に示す。膨潤した緩衝材は、水との界面で最も乾燥密度が小さくなり、せん断強度も小さくなる。一方、水みちを流れる水の粘性抵抗は界面で最も大きくなり、水の流速に起因するせん断応力＞緩衝材界面のせん断強度となる場合に、緩衝材の流出が生じるものと考えられる。

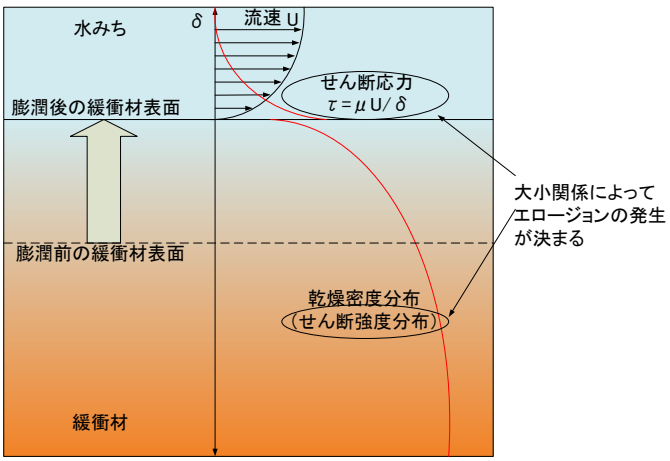


図 2.6-23　膨潤した緩衝材界面における緩衝材流出現象の概念図

【不均一な膨潤による水みち形成；既往検討より】

＜緩衝材界面の不均一な膨潤による水みち形成と水の流速の関係＞

アクリルセルを用いた工学規模の流出試験の成果として、緩衝材の水みち形成の観察結果より、「緩衝材の膨潤は決して一様ではなく、膨潤が早期に発生する場所と遅れて膨潤する場所が存在し、遅れて膨潤する場所が水みちとして残る」と推測としている（図 2.6-24）。なお、膨潤が遅れる要因として、緩衝材設置時の誤差、モンモリロナイト含有率分布、含水比分布の影響を挙げている。

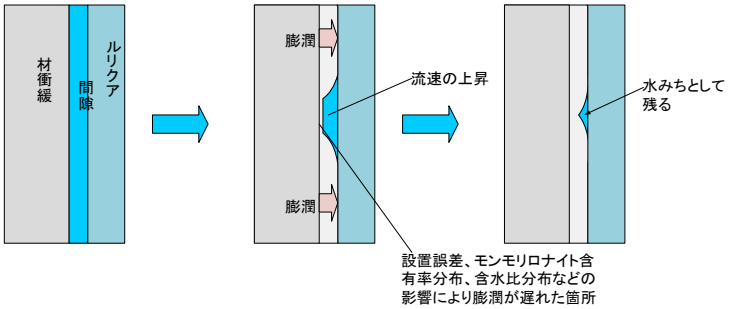


図 2.6-24　水みち形成観察結果の概念図

【考察】

緩衝材流出量の増加の要因となる「排水量（流速）の増加」に対し、「流出濃度の増加が生じない」結果を得た。これは、2.6.1(2) 3)で述べたように、下記の「ケイ砂充填」に期待する 2 つの効果が発揮された結果と見込まれる。

・ケイ砂を隙間に充填することで、当初の隙間領域を減らし、緩衝材の膨潤による緩衝材界面の密度低下領域を減らす効果（緩衝材界面のせん断強度を保つ効果；既往研究を基にした推察）

・地下水と緩衝材界面との接触面積を減らすともに、緩衝材の膨潤に伴う隙間（流路）断面積の減少が防がれ、湧水流速の増加が抑制されることによる、緩衝材界面の流出を減らす効果（湧水の流速に起因するせん断力を減ずる効果；既往研究を基にした推察）

一方で、想定していなかった「排水量の増加」という現象が生じた。この現象の要因に関する解析による分析・検討結果については、後述の「③排水量増加の要因分析に資する検討」に示す。

ケース 1 の結果を生じた現象は、以下のように整理できる（併せて図 2.6-25 を参照のこと）

① （試験開始）緩衝材に湧水が接触し、緩衝材界面の膨潤開始

② 未充填のケースに比べ早期に緩衝材側面方向の膨潤圧が発生

・隙間にケイ砂を充填しているため、側面方向は体積拘束に近い状況

・側面の膨潤圧の値は、上下方向に比べ低い値（試験期間 29 日時点で約 0.7 MPa）となった。膨潤圧 0.7 MPa となる有効粘土密度を既往式（原子力発電環境整備機構, 2018）から、試算すると約 1.5 Mg/m^{3}となり、ケイ砂混合率に変化が無い（30%）として、乾燥密度を算出すると、約 1.73 Mg/m^{3}となる。

③ 上下方向の緩衝材の膨潤圧が発生

・上下方向は体積拘束されており、初期乾燥密度 1.92 Mg/m^{3}に応じた膨潤圧が発生

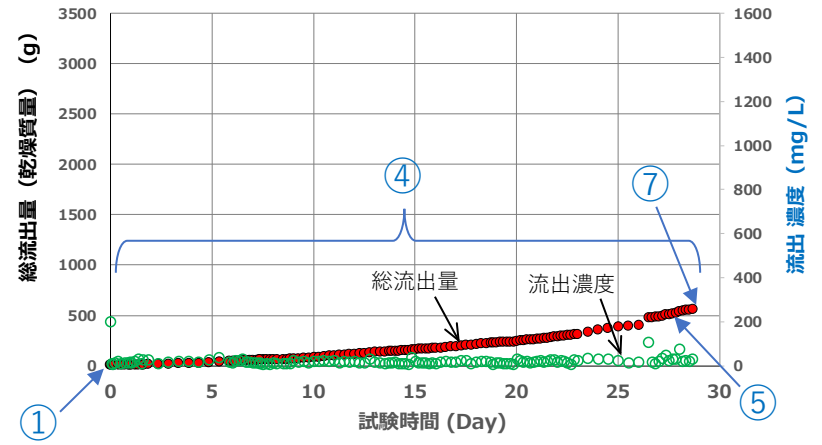
④ 「ケイ砂充填」に期待した効果により、流出濃度は低い状態を維持

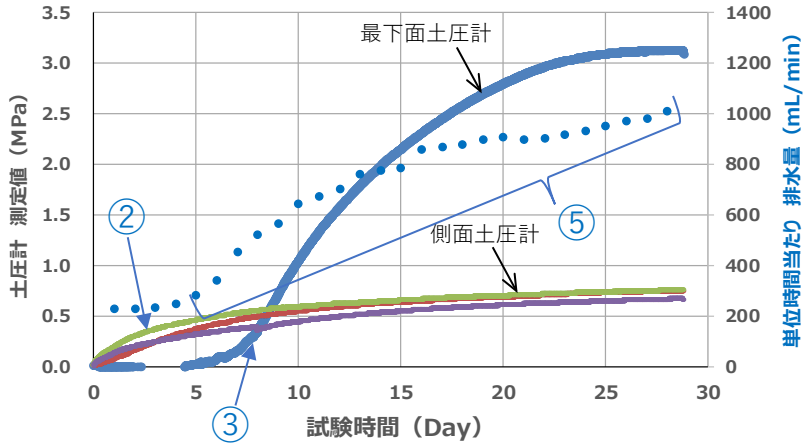
⑤ 「排水量」が経時的に増加し、「排水量の増加」を主因とする「流出量の増加」

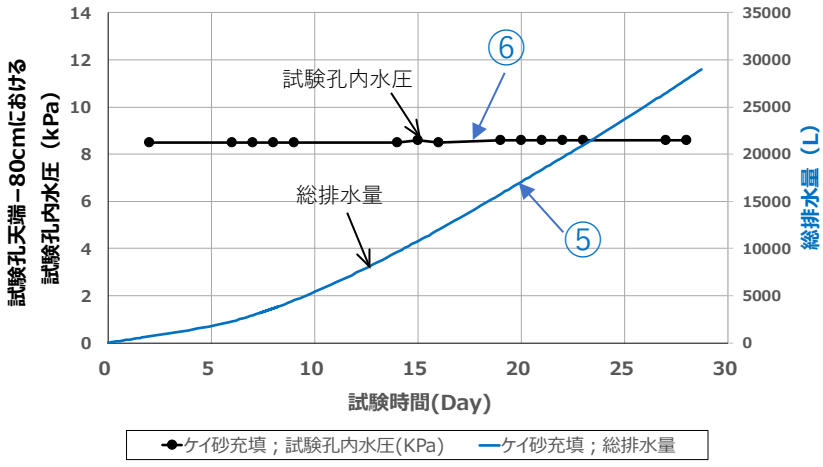
⑥ 試験孔内の水圧変化はなし

・ケイ砂充填部に湧水を意図的に流すことにより、水圧変化の緩和

⑦ （試験終了）試験期間 29 日間における総流出量は 558 g、流出割合は 0.2%







①試験開始
・緩衝材に湧水が接触
・緩衝材界面の膨潤開始

⇩

②ケース 2 に比べ
早期に側面方向の膨潤圧が発生
・隙間にケイ砂を充填しているため
側面方向は体積拘束に近しい

⇩

③上下方向（最下面）の
膨潤圧が発生
・上下方向は体積拘束されており、
初期乾燥密度 1.9Mg/m^3 に応じた
膨潤圧が発生

⇩

④「ケイ砂充填」に期待した効果により
「流出濃度」は、低い状態を維持

⇩

⑤「排水量」が、経時的に増加
・「排水量の増加」を主因とする
「流出量の増加」
・ただし、ケース 2 に比べると「流出量」
の値は小さい

⇩

⑥試験孔内の水圧に変化はなし
・ケイ砂充填部に湧水を意図的
に流すことにより、水圧変化の緩和

⇩

⑦試験終了（29 日間）
・総流出量は 558g
・流出割合は 0.2%

図 2.6-25　ケース 1 の結果を生じた現象の考察

【ケース 2；工学的対策を施さない「隙間未充填」】

◆流出濃度

試験体定置後より流出濃度が上昇し、試験開始後 6 日（総排水量 3,400 L）において、1,500 mg/L と最大の濃度を計測した。その後、経時的に（試験開始から 30 日程度までに）濃度が減少していく傾向となった（図 2.6-19、図 2.6-20）。ケース 2 の流出濃度については、経時的な変化が大きいため、参考値となるが、試験期間中の平均濃度は、288 mg/L となった。

ここで、試験開始後 40～50 日にかけて、湧水中に微生物などが繁殖したことによる若干の黒濁りが採水試料に確認され、本期間の吸光度分析による流出濃度の算出に影響を与えたと考えられる。この影響については定量的に判断できないため、この影響を一部含んだ結果となるが、ケース 1 の「ケイ砂充填ケース」と比較するとケース 2「隙間未充填」では、流出濃度が高かった。（参考；ケース 2 の平均流出濃度 288 mg/L > ケース 1 の平均流出濃度 18 mg/L）

◆排水量

試験開始時の 400 mL/min から経時的に排水量が低下し、試験終了時で 20 mL/min 程度となった。（図 2.6-21）

◆緩衝材流出量

試験開始後 6 日後の流出濃度のピークから 30 日後までの流出濃度の値がケース 1 に比べ高く、この期間の「流出濃度」が高いことが主因となって、緩衝材流出量が増加した。一方で、試験開始後 30 日以降は、流出濃度および排水量が減少したことから、緩衝材流出量（例えば、図 2.6-21 の総流出量の傾き）は減少した。

試験終了時（試験期間 56 日、総排水量 7,444 L）において、総流出量は 3,325 g となった（図 2.6-20）。なお、試験終了時における流出割合は 1.1%となる。

◆考察

ケース 2 の結果を生じた現象を以下のように整理する（併せて図 2.6-26 を参照のこと）。

① （試験開始）緩衝材に湧水が接触し、緩衝材界面の膨潤開始

② 上下方向（最下面）の膨潤圧が発生

・上下方向は体積拘束されており、初期乾燥密度 1.92 Mg/m^{3}に応じた膨潤圧が発生

③ 定置後初期から「流出濃度」の上昇

・緩衝材界面の密度（強度）低下により、湧水の流速に起因するせん断応力＞緩衝材界面のせん断強度 となり「流出濃度の増加」を主因とする「流出量の増加」

④ 上下方向の膨潤圧の低下

・緩衝材の膨潤による隙間充填の進展により、「緩衝材浸潤領域の密度の低下」

・初期乾燥密度 1.92 Mg/m^3→ 隙間充填時 1.60 Mg/m^{3}への密度低下に応じた膨潤圧に収束

⑤ 側面方向の膨潤圧の増加

・隙間の膨潤とともに、徐々に側面方向が体積拘束され、孔壁からの反力が発生

⑥ 試験孔内の水圧変化（4 kPa）

・試験孔周辺の水位が回復、緩衝材の隙間への膨潤が進行したことで、試験孔内が被圧され、4 kPa(約 40 cm の水頭)の水圧変化

・緩衝材の表面の膨潤圧が湧水の水圧より大きくなり、湧水が減少→「流出量の減少」

⑦ 一方で、排水量が 0 mL とはならず 20 mL/min 程度の排水が継続し、「流出の継続」

・不均一な膨潤による、局所的な水みちの形成（既往研究を基にした推察および図 2.6-2 に示した試験体回収後の緩衝材表面の水みちの痕跡から推察）

⑧ （試験終了）試験期間 56 日間における総流出量は 3,325 g、流出割合は 1.1%

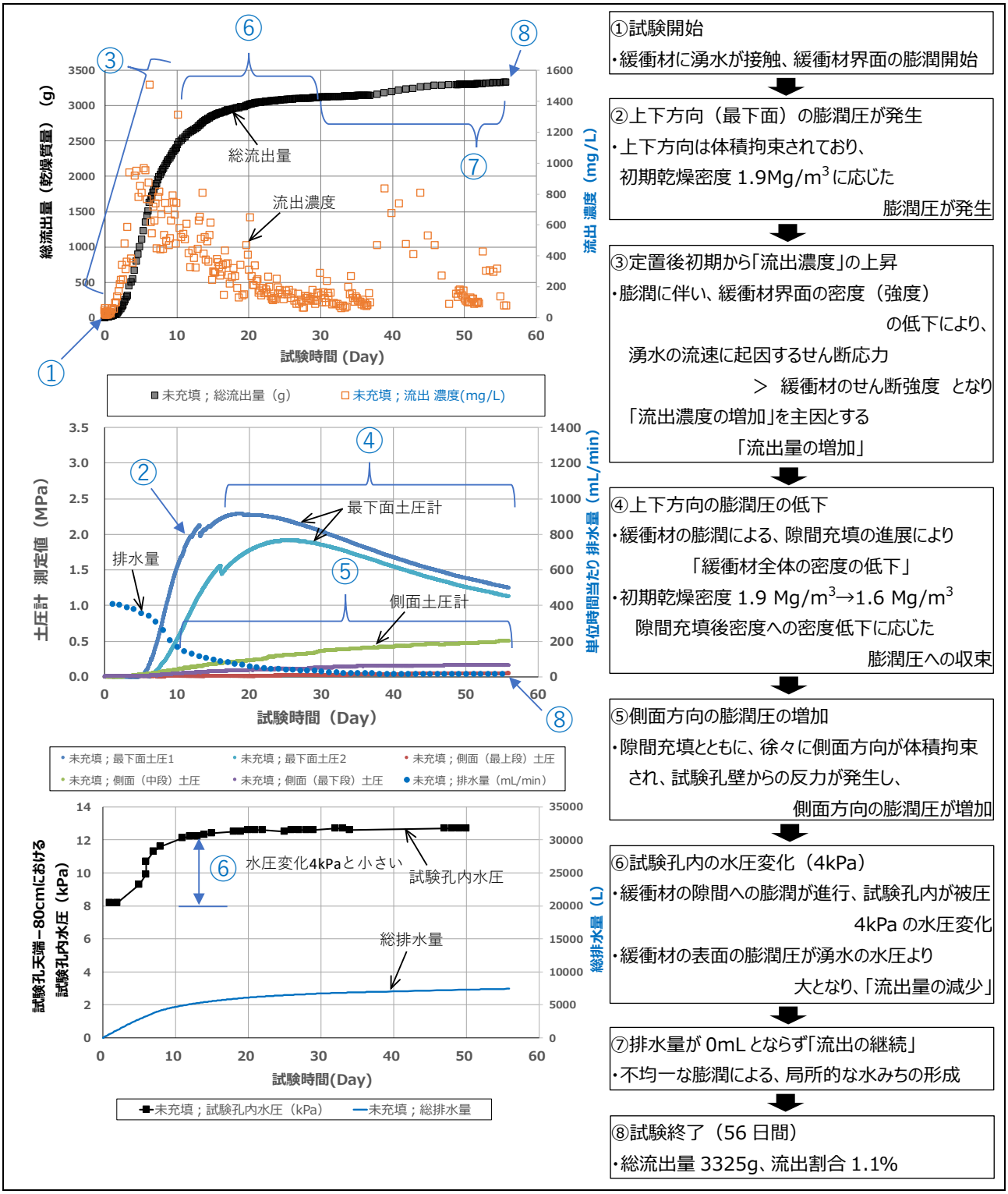


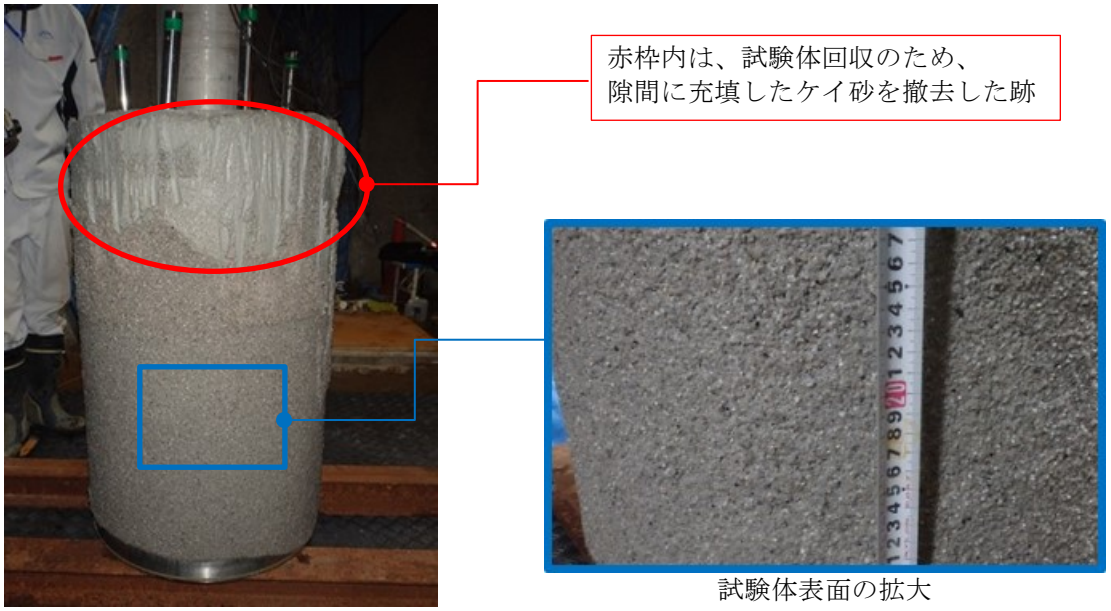
図 2.6-26　ケース 2 の結果を生じた現象の考察

(b)試験体の回収

試験体の回収状況・浸潤距離の目視確認結果などを以下に示す。

【ケース 1；工学的対策として隙間充填した「ケイ砂充填ケース」】

試験体の回収状況などを図 2.6-27 に示す。緩衝材界面にケイ砂が均一に被覆されていることが目視確認でき、緩衝材界面と湧水との接触面積の低減に寄与していると考えられた。



試験体回収直後 全景

試験体表面の拡大
ケイ砂による緩衝材界面の被覆状況

図 2.6-27 ケース 1（ケイ砂充填）の試験体回収状況

緩衝材上部の鋼製蓋を撤去後、緩衝材の最上面（1 段目）の浸潤状況を目視確認すると、緩衝材外周部からの湧水の浸潤距離は約 40 mm であった。

また、浸潤距離（約 40 mm）は、緩衝材の位置によらず、緩衝材外側よりほぼ均一に浸潤していることが確認できた（図 2.6-28）。

なお、緩衝材最上段の中央部に設置した土圧計まで湧水の浸潤は進んでいなかった。

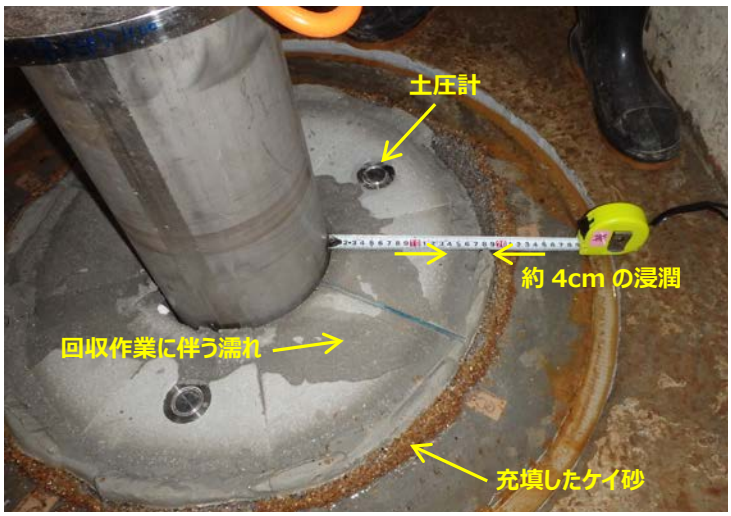
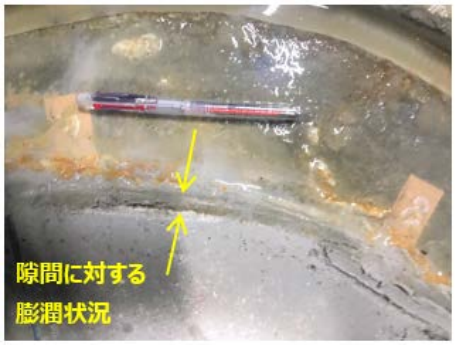


図 2.6-28 ケース 1（ケイ砂充填） 緩衝材最上段（1 段目）の浸潤状況

【ケース 2；工学的対策を施さない「未充填ケース」】

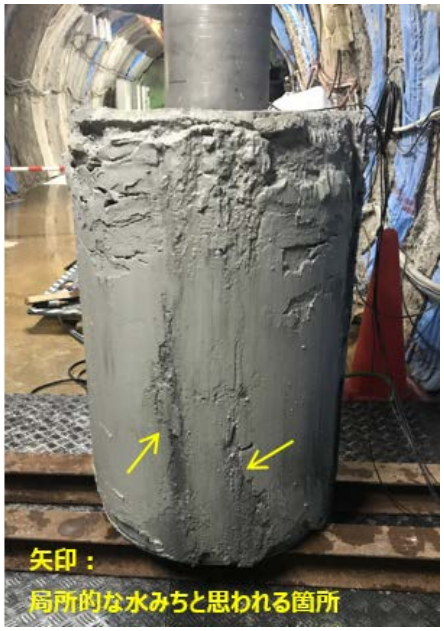
試験体の回収状況などを図 2.6-29 に示す。緩衝材上部の鋼製蓋を撤去後の、緩衝材最上面の目視観察では、緩衝材外周部と孔壁との隙間 20 mm は緩衝材の膨潤により閉塞した状態となっており、水みち箇所を特定することはできなかった。一方、試験体の回収後の緩衝材界面全体の目視観察では、局所的な水みちと思われる箇所が 2 箇所特定（図 2.6-29 右下の写真参照）された。なお、水みちの形成・残存は図 2.6-26 で示した、ケース 2 の結果に対する現象の推察に一致する。

試験体回収前 近景（鋼製蓋撤去前）



1 段目緩衝材と孔壁の隙間 2 cm に対する膨潤状況

試験体回収直後 全景（東面）



試験体回収直後 全景（西面）

図 2.6-29　ケース 2（隙間未充填）の試験体回収状況

ケース 1 と同様に、緩衝材の最上面（1 段目）の浸潤状況を目視確認すると、緩衝材外周部からの湧水の浸潤距離は、約 40～70 mm であった。

ケース 1（ケイ砂充填）の浸潤状況（緩衝材の位置によらず均一に緩衝材外側から約 40 mm 浸潤）と比較すると、緩衝材の位置により、浸潤距離にバラつきがみられた（図 2.6-30）。

ケース 2（隙間未充填）において、不均一な浸潤が生じた要因の一つとして、原位置環境に依存する要因（例えば、特定箇所からの湧水影響、試験孔壁の凸凹の影響）が考えられる。

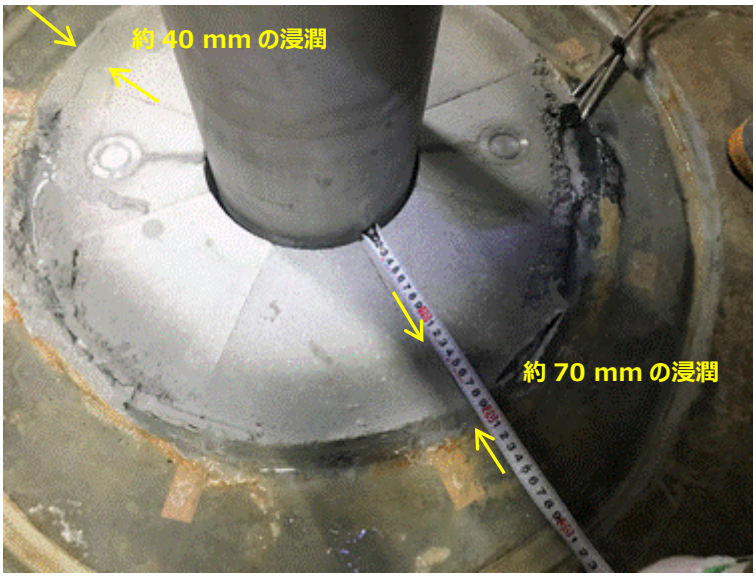
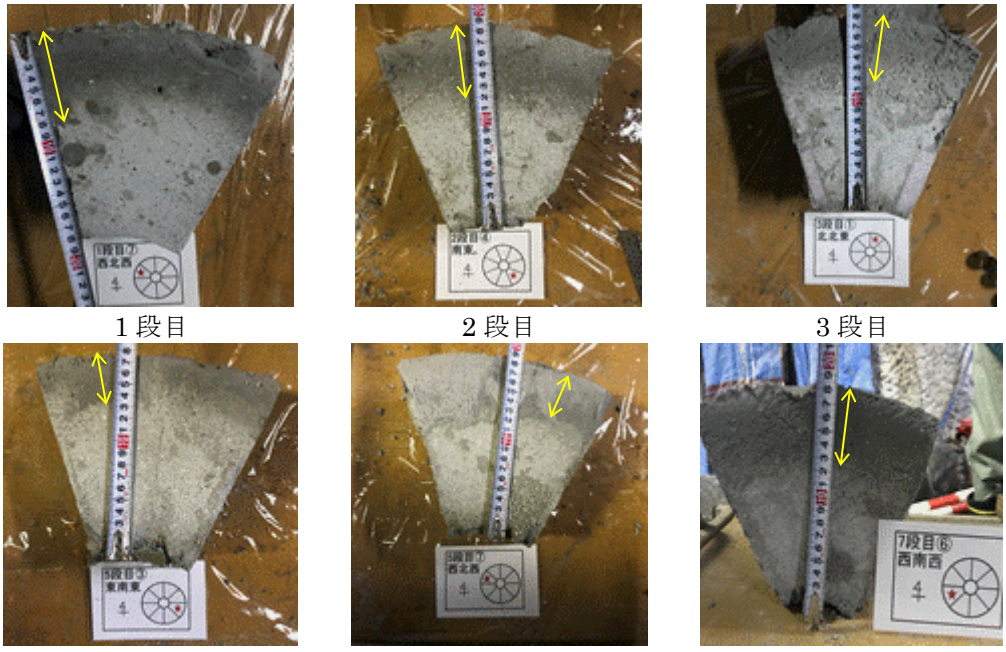


図 2.6-30　ケース 2（隙間未充填）　緩衝材最上段（1 段目）の浸潤状況

各段の緩衝材ブロックについても、湧水の浸潤距離を目視確認すると、緩衝材外側からの浸潤距離は約 40～90 mm であり、緩衝材の最上段（1 段目）と同様に、浸潤距離のバラつきが生じていた（図 2.6-31）。



1 段目　2 段目　3 段目

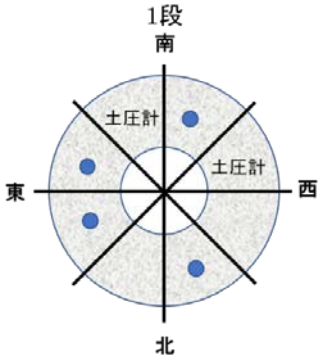
5 段目　5 段目　7 段目

図 2.6-31　ケース 2（隙間未充填）　緩衝材の浸潤状況

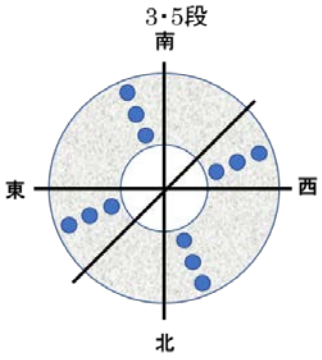
これらの結果より、ケイ砂による隙間充填の効果として、「原位置の環境に依存する処分孔壁からの湧水に対し、ケイ砂領域を介することで、緩衝材界面への浸潤環境（例えば、浸潤速度など）を単純化・平滑化する」可能性・見込みを得たと考えられる。今後、更なる知見の蓄積や効果の検証を進めていきたい。

(c)流出試験終了後の緩衝材の乾燥密度、含水比

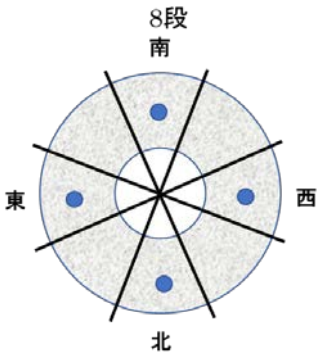
流出試験終了後、試験孔より試験体を回収し、緩衝材の密度・含水比などを測定する土質試験を実施した。試料採取の位置を図 2.6-32 に示し、乾燥密度、含水比の試験結果を図 2.6-33、図 2.6-34 に示す。



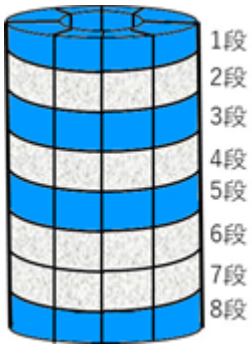
1 段目　試料採取位置



3、5 段目　試料採取位置



8 段目　試料採取位置



鉛直方向試料採取段
（青ハッチ段）

図 2.6-32　試料採取の位置

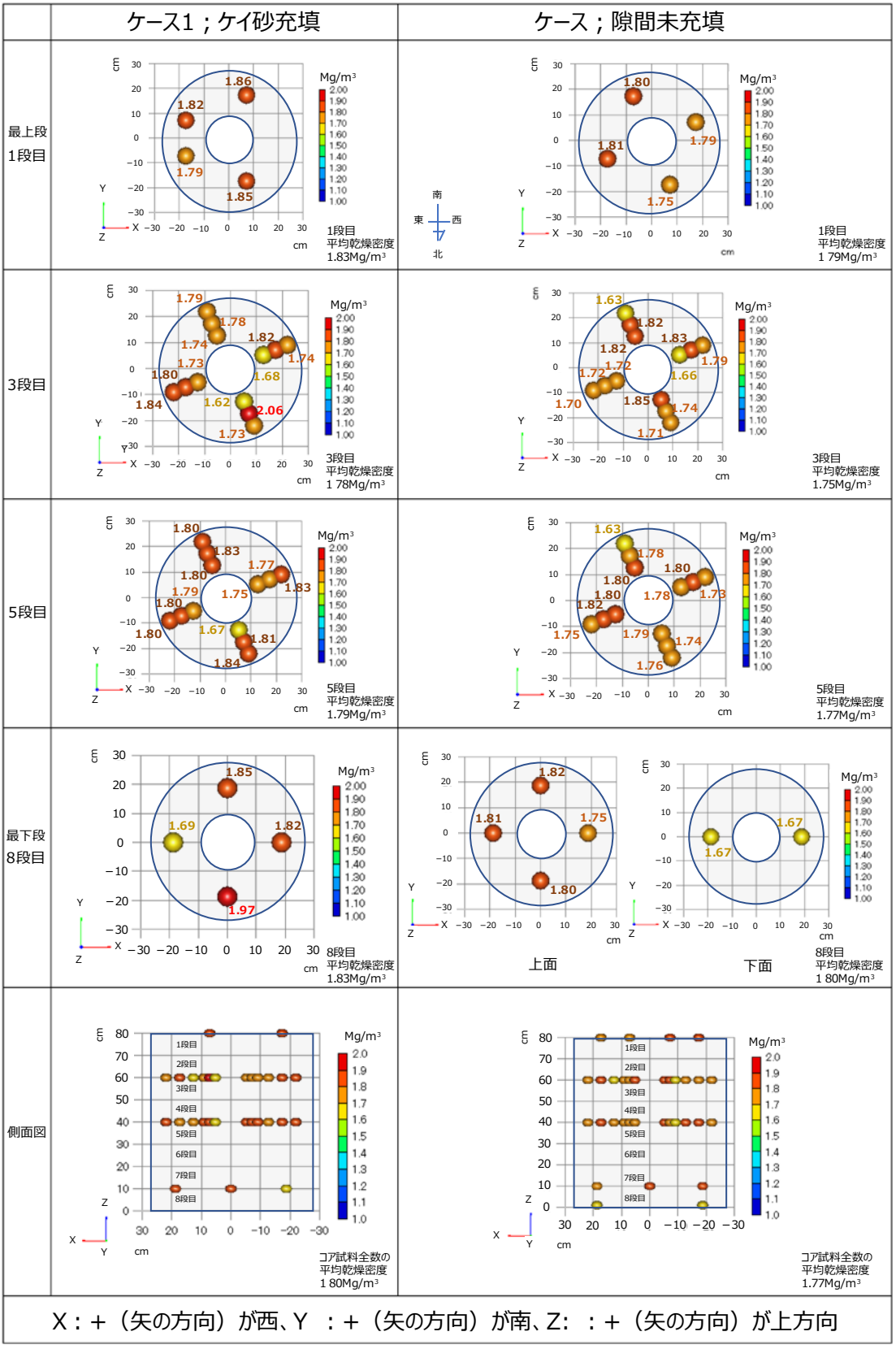


図 2.6-33　試験終了後の乾燥密度（コアサンプリング）

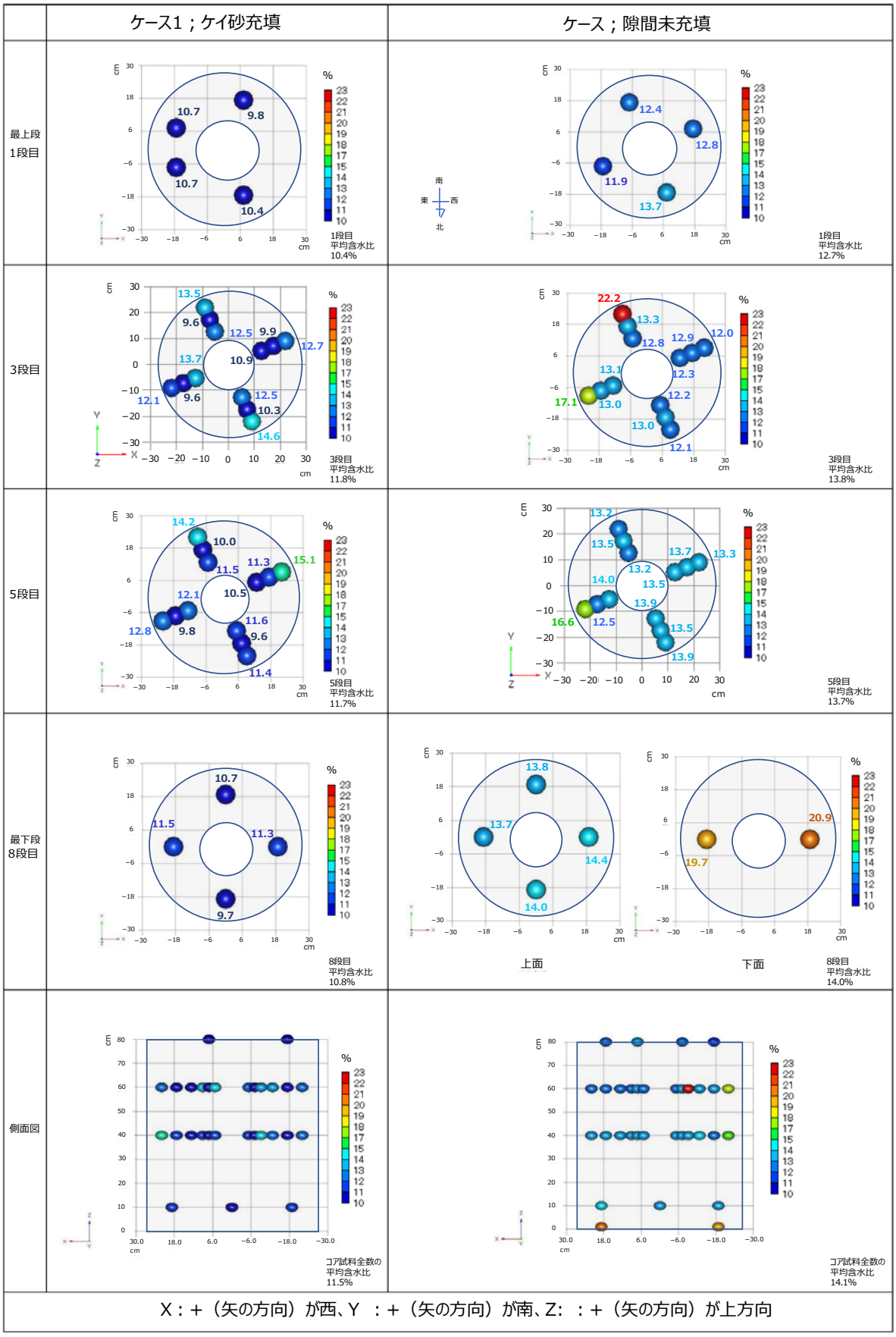


図 2.6-34　試験終了後の含水比（コアサンプリング）

土質試験結果（乾燥密度、含水比）の概要を以下に述べる。

◆乾燥密度

【ケース 1；ケイ砂充填】

試験体の 1 段目（最上段）の乾燥密度の平均は 1.83 Mg/m^3、3 段目は 1.78 Mg/m^3、5 段目は 1.79 Mg/m^3、最下段の 8 段目は 1.83 Mg/m^{3}となった。コアサンプリング試料（32 試料）全数の乾燥密度の平均は 1.80 Mg/m^{3}となった。緩衝材の上下方向（各段）の位置による密度差は、最大で 0.05 Mg/m^{3}と小さく、上下方向の位置による密度への影響は小さい結果となった。

【ケース 2；隙間未充填】

試験体の 1 段目（最上段）の乾燥密度の平均は 1.79 Mg/m^3、3 段目は 1.75 Mg/m^3、5 段目は 1.77 Mg/m^3、最下段の 8 段目は 1.80 Mg/m^{3}となった。コアサンプリング試料（34 試料）全数の乾燥密度の平均は 1.76 Mg/m^{3}となった。緩衝材の上下方向（各段）の位置による密度差は、最大で 0.05 Mg/m^{3}と小さく、上下方向の位置による密度への影響は小さい結果となった。

◆含水比

【ケース 1；ケイ砂充填】

試験体の 1 段目（最上段）の含水比の平均は 10.4%、3 段目は 11.8%、5 段目は 11.7%、最下段の 8 段目は 11.5%となった。コアサンプリング試料（32 試料）全数の含水比の平均は 11.5%となった。緩衝材の上下方向（各段）の位置による含水比の差は、最大で 1.4%と小さく、上下方向の位置による含水比への影響は小さい結果となった。

【ケース 2；隙間未充填】

試験体の 1 段目（最上段）の含水比の平均は 12.7%、3 段目は 13.8%、5 段目は 13.7%、最下段の 8 段目は 14.0%となった。コアサンプリング試料（34 試料）全数の含水比の平均は 14.1%となった。緩衝材の上下方向（各段）の位置による含水比の差は、最大で 1.3%と小さく、上下方向の位置による含水比への影響は小さい結果となった。

◆考察

コアサンプリング試料全数の乾燥密度の平均値を比較すると、

ケース 1（ケイ砂充填）1.80 Mg/m^3 ＞ ケース 2（隙間未充填）1.76 Mg/m^3 となる。

ケース 1（試験期間 29 日）とケース 2（試験期間 56 日）では、試験期間および試験期間中の流出量が異なることから、単純比較することはできないが、各々の試験期間における流出量はケース 2（3,325 g）、ケース 1（558 g）であり、流出量の少ないケース 1 の乾燥密度が高い結果となったことは順当である。ただし、コア試料全数から求めた各々の平均値の差は 0.04 Mg/m^{3}と小さい。

ここで、コアの採取位置毎に乾燥密度を整理した表を表 2.6-10 に示す。

流出試験後に回収した試験体（緩衝材）の浸潤距離は、約 40～70 mm（目視確認結果）であったことから、最も湧水の影響をうけたと考えられる緩衝材外側の乾燥密度に着目し、密度のバラつき（範囲）を算出すると、ケース 1 では 0.03 Mg/m^3、ケース 2 では 0.13 Mg/m^{3}となる。

ケース 2（隙間未充填）に比べ、ケース 1（ケイ砂充填）において、緩衝材外側の乾燥密度のバラツキ（範囲）が小さくなる結果を得た。

上記と同様に、コアの採取位置毎に含水比を整理（表 2.6-11）し、緩衝材外側の含水比のバラつき（範囲）を確認すると、ケース 1 では 1.4%、ケース 2 では 5.0%となり、ケース 2 に比べケース 1 のバラつきが少ない結果となった。

表 2.6-10　乾燥密度の分析（採取位置による乾燥密度の整理）

◆ケース 1；ケイ砂充填

	東側	西側	南側	北側	平均	範囲
外側	**1.82**	**1.79**	**1.80**	**1.79**	**1.80**	**0.03**
中央	1.78	1.80	1.83	1.93	1.84	0.15
内側	1.76	1.72	1.77	1.65	1.73	0.12
平均	1.79	1.77	1.80	1.79	―	―

◆ケース 2；隙間未充填

	東側	西側	南側	北側	平均	範囲
外側	**1.73**	**1.76**	**1.63**	**1.74**	**1.72**	**0.13**
中央	1.77	1.77	1.81	1.76	1.78	0.05
内側	1.76	1.72	1.81	1.82	1.78	0.10
平均	1.75	1.75	1.75	1.77	―	―

表 2.6-11　含水比の分析（採取位置による含水比の整理）

◆ケース 1；ケイ砂充填

	東側	西側	南側	北側	平均	範囲
外側	**12.5**	**13.9**	**13.9**	**13.0**	**13.3**	**1.4**
中央	10.5	10.8	10.0	10.0	10.3	0.8
内側	12.9	10.7	12.0	12.1	11.9	2.2
平均	12.0	11.8	12.0	11.7	―	―

◆ケース 2；隙間未充填

	東側	西側	南側	北側	平均	範囲
外側	**16.9**	**12.7**	**17.7**	**13.0**	**15.1**	**5.0**
中央	14.2	14.9	13.3	13.6	14.0	1.60
内側	13.6	12.9	13.0	13.1	13.15	0.70
平均	14.9	13.5	14.7	13.2	―	―

これらの結果から、ケイ砂による隙間充填の効果として、「原位置の環境に依存する処分孔壁からの湧水に対し、ケイ砂領域を介することで、緩衝材界面への浸潤環境（例えば、浸潤速度など）を単純化・平滑化」するとともに、「緩衝材の乾燥密度に対しても、平滑化（例えば、密度のバラツキの緩和など）」する可能性・見込みを得たと考えられる。今後、更なる知見の蓄積や効果の検証を進めていきたい。

【土質試験結果からの考察（ケイ砂による隙間充填の効果の可能性）に対する補完データ】

土壌の硬さを調べるために考案された山中式土壌硬度計を利用して、流出試験終了後の緩衝材ブロックの位置による貫入量の違いを定量的に調べることで、土質試験結果からの考察（ケイ砂による隙間充填の効果の可能性；「原位置の環境に依存する処分孔壁からの湧水に対し、ケイ砂領域を介することで、緩衝材界面への浸潤環境（例えば、浸潤速度など）を単純化・平滑化」）の補完データとした。

図 2.6-35 に山中式土壌硬度計の外観を、表 2.6-12 に仕様を示す。高度計の円錐体部を緩衝材ブロックの表面に対して垂直に押込み、貫入量を測定した。なお、一般的に貫入量の値が大きいほど、対象物の支持力強さが大きいことを示す。

図 2.6-35　山中式土壌硬度計の外観

表 2.6-12　山中式土壌硬度計仕様

項目	値
目盛	0～40 mm
1 目盛	1 mm
バネ強度	8 kg（対 40 mm）
コーン寸法	φ18 mm×40 mm
寸法・重量	φ50×L230 mm　650 g

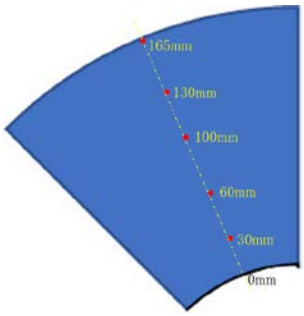


図 2.6-36　緩衝材ブロックの貫入量測定位置

流出試験終了後の緩衝材ブロックを対象とした貫入量の測定結果を表 2.6-13、表 2.6-14 に示す。表中の枠内の色は、貫入量の大小を示しており、貫入量（対象物の支持力）の値が小さく軟質であった箇所は「赤色」とした。すなわち、湧水の浸潤に伴い緩衝材の強度低下が進行していると見込まれる箇所が「赤色」である。ケース 1（ケイ砂充填）では、1 段目の緩衝材ブロック外縁部（165 mm）の貫入量が 8 mm と小さく、軟質な箇所が生じたが、2～8 段目の同箇所では、貫入量 20～28 mm と同程度の結果となった。また、各段の同位置の貫入量のバラつきも少ない結果となった。

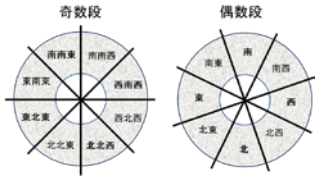
一方、ケース 2（隙間未充填）では、全段の緩衝材ブロック外縁部（165 mm）の貫入量が小さい値（0～18）となり、湧水の浸潤に伴う緩衝材の強度低下が、全体的に進行していると見込まれた。また、各段の同位置の貫入量にバラつきが生じる結果となり、この傾向は、試験体回収後に確認した緩衝材外周部から内部への浸潤距離の結果と同様の傾向である。

ケース 1 とケース 2 では、試験期間（緩衝材への湧水の浸潤期間）が異なることから、測定結果を単純比較することはできないが、上記の貫入量の測定結果から、隙間にケイ砂を充填することで、緩衝材への浸潤程度のバラつきを減ずる効果が見込まれると考えられる。

表 2.6-13　流出試験終了後の緩衝材を対象とした硬度計を用いた貫入量（ケース 1）

段数	位置	緩衝材ブロック内側端からの距離（mm）					段数	位置	緩衝材ブロック内側端からの距離（mm）				
		165（140）※1	130（120）※1	100	60	30			165（140）※1	130（120）※1	100	60	30
1	西南西	8	30	35	34	31	1	—	—	—	—	—	—
2	—	—	—	—	—	—	2	—	—	—	—	—	—
3	西北西	28	34	34	34	34	3	西北西	30	34	34	32	30
4	北西	26	33	34	34	26	4	北西	21	33	34	34	27
5	西北西	26	33	35	35	34	5	西北西	26	34	34	34	34
6	北	28	34	35	33	32	6	北	25	34	34	34	31
7	西南西	20	32	34	34	34	7	西南西	27	34	35	34	32
8	北東	24	32	34	33	32	8	北東	23	32	34	34	30

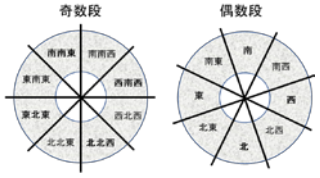
※1：4段目北西のみ



色	貫入量
	0～19mm
	20～29mm
	30～32mm
	33mm以上

表 2.6-14　流出試験終了後の緩衝材を対象とした硬度計を用いた貫入量（ケース 2）

段数	位置	緩衝材ブロック内側端からの距離（mm）					段数	位置	緩衝材ブロック内側端からの距離（mm）				
		165	130	100	60	30			165	130	100	60	30
1	西北西	0	18	34	35	35	1	東南東	12	30	35	35	35
2	—	—	—	—	—	—	2	—	—	—	—	—	—
3	北北西	4	27	33	32	29	3	南南東	16	29	34	34	33
4	北西	7	25	33	34	31	4	南	9	27	33	33	33
5	北北東	20	30	34	34	32	5	西北西	8	26	34	34	32
6	北	12	27	32	32	32	6	西	9	26	33	33	30
7	北北東	13	28	32	32	33	7	南南東	12	28	32	32	32
8	北	11	27	33	33	33	8	南西	8	27	32	32	32



色	貫入量
	0～19mm
	20～29mm
	30～32mm
	33mm以上

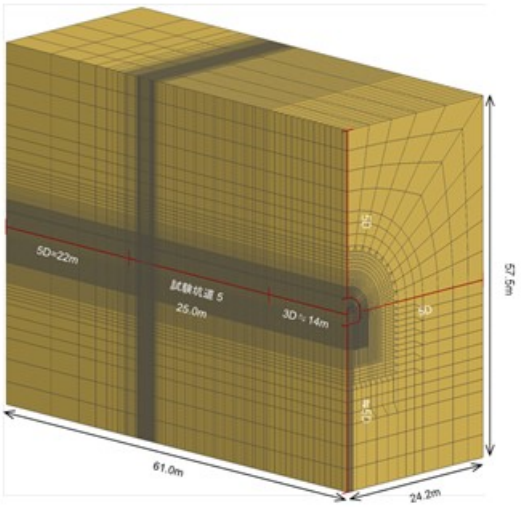
③排水量増加の要因分析に資する検討

緩衝材ブロックと孔壁の隙間にケイ砂を充填したケース 1 の流出試験において、試験期間中に排水量が増加する現象が生じた。

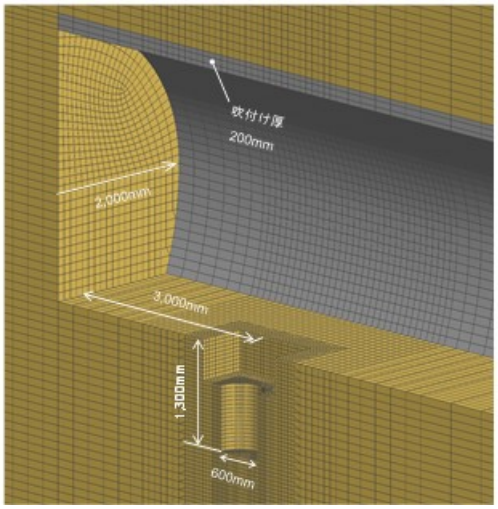
本現象の要因を分析・検討するため、緩衝材の膨潤圧が試験孔壁に作用した場合の、孔壁部分のひずみ、応力状態についての数値解析を実施した。解析コードは三次元有限差分コード FLAC3D ver.5.01 を用いた。解析条件などの詳細は付録 A に示す。

(a)解析方法

解析メッシュの全体図、解析メッシュの試験孔を含む坑道近傍の拡大図、試験孔周辺の拡大図を図 2.6-37 に示す。メッシュの規模は、検討対象である試験孔周辺に境界の影響が及ばないようにした。



全体



解析対象部拡大図

図 2.6-37　解析メッシュ

解析は表 2.6-15 に示す 2 ケースを実施した。ケース 1 の流出試験（ケイ砂充填）の結果より、鉛直方向の膨潤圧の最大値が 3 MPa であったことから、解析ケース 1 では、すべての方向の土圧を 3 MPa とした。一方、解析ケース 2 は、鉛直方向の土圧は 3 MPa、水平方向の土圧は 0.8 MPa とした。

表 2.6-15　解析ケース

	壁面内圧（MPa）	底盤内圧（MPa）
解析ケース 1	3.0	3.0
解析ケース 2	0.8	3.0

(b)解析結果

解析結果のうち最大せん断ひずみ分布を図 2.6-38 に示す。なお、妻部、または坑道（空洞）の影響を把握するために、図 2.6-38 の下段に示したように表示方向を変えて両者を比較した。その結果、どちらの影響もみられず、同じ傾向を示した。

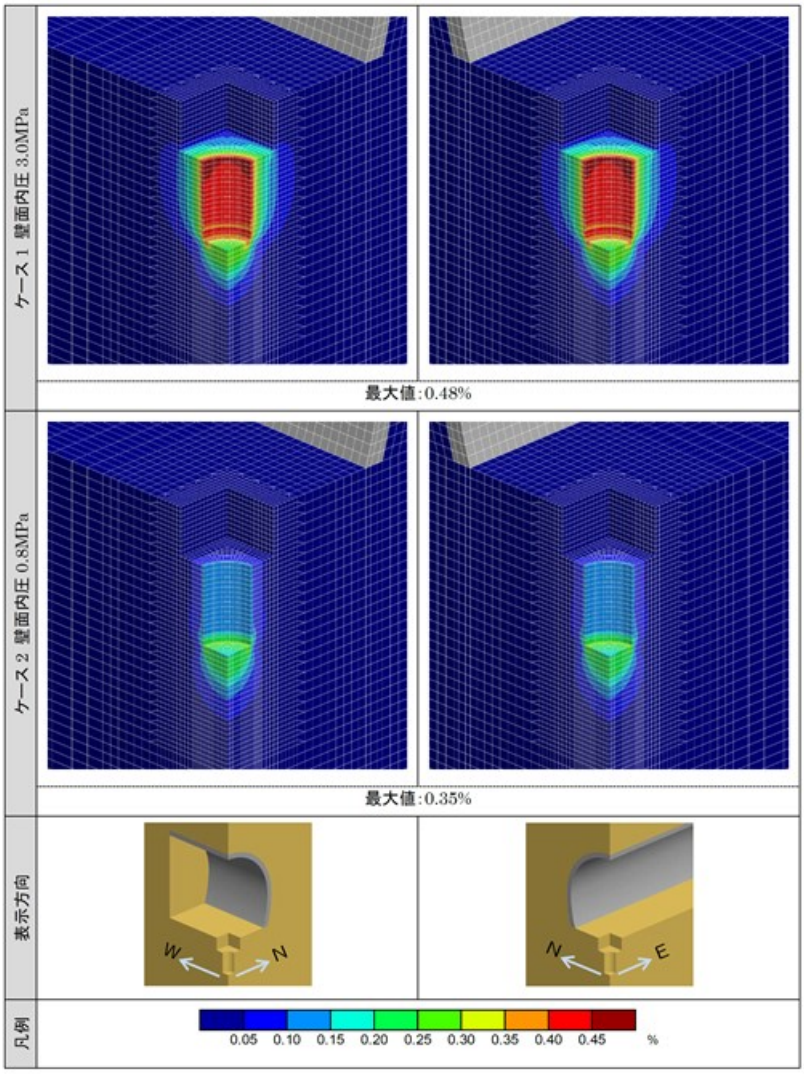


図 2.6-38　最大せん断ひずみ分布（内圧負荷後の増分）

(c)排水量増加の要因分析の検討

a) 最大せん断ひずみの検討

試験孔壁面の安定性の評価について、最大せん断ひずみによって行った。解析に使用した物性値から、桜井ら（1988）が提案している限界ひずみ、および限界せん断ひずみを求め、解析結果における最大せん断ひずみの値と比較した。

以下に、限界せん断ひずみの算出式を示す。

$$\gamma_0 = (1+\nu) \times \varepsilon_0$$

γ_0は限界せん断ひずみ、ν は解析に用いたポアソン比、ε_0は解析に用いた弾性係数を示す。

表 2.6-16 に解析に使用した物性値と、求めた限界せん断ひずみを示す。

表 2.6-16　限界せん断ひずみ

岩盤等級	弾性係数（MPa）	ポアソン比	限界せん断ひずみ（%）		
			上限値	中央値	下限値
CM-M（Hr）	1,350	0.186	1.55	0.66	0.28

図 2.6-38 に示した解析結果より、最大せん断ひずみの最大値は、ケース 1 の場合 0.48%、ケース 2 の場合は 0.35%であった。これらは、限界せん断ひずみの指標の「中央値～下限値」の範囲にあり、孔壁の安定性評価では「やや不安定」と評価される。一方、孔壁全体の最大せん断ひずみはケース 1 の場合は 0.4%、ケース 2 の場合は 0.1%であり、孔壁の安定性評価では、ケース 1 の場合は「やや不安定」、ケース 2 の場合は下限値以下のため「安定」領域と評価された。

b) 孔壁に発生した応力の検討

幌延 URL 深度 350 m で採取したコアで実施した力学試験結果を表 2.6-17 に示す。周方向応力の解析結果より、試験孔表面の周方向に発生した最大応力は、ケース 1 は 2.4 MPa の引張応力、ケース 2 は 0.65 MPa の引張り応力であった。一方、試験の場である孔口から深度約 50 cm の位置での応力はいずれも引張応力で、その値はケース 1 では約 2 MPa、ケース 2 では約 1 MPa であった。表 2.6-17 の圧裂引張強さの値と比較すると、両ケースとも若干不安定である。

半径方向応力および鉛直方向応力の解析結果より、孔壁に発生した最大応力は、ケース 1 では半径方向応力 3.0 MPa、鉛直方向で 3.0 MPa の圧縮応力（いずれも負荷した応力）、ケース 2 では半径方向応力 0.8 MPa、鉛直方向で 3.0 MPa の圧縮応力（いずれも負荷した応力）であった。これより、孔壁に発生した圧縮応力は一軸圧縮強さと比較して小さい値であり、孔壁が破壊する可能性はほとんどないと考えられる。

表 2.6-17　コアによる力学試験結果（青柳ら，2015）

深度	一軸圧縮強さ平均値（MPa）	圧裂引張強さ平均値（MPa）
350 m	26.6	2.4
標準偏差（MPa）	8.7	0.8

(d) 検討結果のまとめ

平成 31 年度に実施した地下での流出試験の結果、緩衝材ブロックと孔壁の隙間にケイ砂を充填した流出試験ケースにおいて、試験期間中に、排水量（自然湧水量）が増加する結果を得た。そのため、緩衝材の膨潤圧が試験孔壁に作用した場合の、孔壁部分のひずみ、応力状態についての数値解析を実施した。

解析は、流出試験時に得た土圧の経時変化を考慮し、2 ケース実施した。ケース 1 は試験孔壁面に最大土圧 3 MPa を負荷した場合、ケース 2 は実際の試験状況を模擬し、孔壁に 0.8 MPa、孔底に 3 MPa を負荷した。

解析の結果より、孔壁の安定性を評価する指標とした最大せん断ひずみに着目すると、実際の試験と同じ土圧を負荷したケース 2 の場合は、孔壁全体に 0.4%、ケース 2 の場合は 0.1%であった。これは、孔壁の安定性評価では、やや不安定～安定と評価される。したがって、試験中、緩衝材の膨潤によって孔壁が破壊され、破壊部から自然湧水量が増加したとは考えにくい。しかし、ケース 2 において、試験孔内 50 cm 近傍の周方向応力は約 1 MPa であり、コアから求めた圧裂引張強さが 2.4 MPa（標準偏差 0.8 MPa）であることから、既に存在していた亀裂の方向によっては、開口幅や長さが増加した可能性はある。この亀裂が水みちであった場合には自然湧水量は増加する。この結果のみにより、湧水量の増加の原因を結論づけることはできないが、岩盤の特性によっては起こり得る現象であることに留意して、今後さらに知見を拡充していきたい。

3) 室内試験（工学規模試験）

工学規模試験は、原位置試験と室内試験（小型試験）の結果の評価を行う上で補完的に定量的なデータを取得することを目的として行った。原位置での試験では試験後の供試体の形状を維持したまま回収することが難しく、試験後の密度計測の精度が低いため、原位置とほぼ同じサイズの工学規模試験において試験後の密度分布を詳細に測定した。また、小型試験と同じ素材のセルを用いているため、小型試験との比較によりスケールの違いによる影響を検討することも意図している。

平成 31 年度に実施した工学規模試験は、原位置試験とは送水の速度や水圧、ベントナイト供試体との界面の性状に差があるため、原位置試験と直接比較はできない。室内試験では、設備やセルの耐圧限界により制限が加わるため、全く同じ条件での試験をすることはできなかった。そのため、ここでは定量的なデータとして工学規模試験が補足すべき、試験後の供試体に関する測定結果として、硬度、含水比、及び乾燥密度分布の測定結果について述べる。(その他の結果を、付録 B にまとめて示す)。

① 試験方法

本試験では図 2.6-39 に示す工学規模試験セルを用いた。注水液は、小型試験と同様の模擬幌延地下水を使用した。また、セルと供試体の間の隙間は原位置試験と同様の 20 mm とし、供試体側面の土圧と供試体上下に生じる圧力（ロードセルを使用して計測）を測定した。

試験ケースを表 2.6-18 に示す。工学的対策として隙間処理をしないケース（未充填ケース）と隙間にケイ砂を充填するケース（ケイ砂充填ケース）の 2 ケースを実施した。ケイ砂の効果を確認する試験における緩衝材とセルとの隙間に充填するケイ砂の種類については、小型試験の結果より、3 号ケイ砂を用いた。

試験で使用する緩衝材の材料は、小型試験と同様にレファレンスケースとして用いられる 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 で混合したものとする。また、作製する供試体の乾燥密度は、供試体膨潤後の平均乾燥密度が 1.60 Mg/m^3程度となるように設定した。但し、ケイ砂を充填したケースでは隙間がある状態での試験と同じ密度の供試体とした。供試体作製時（膨潤前）の直径は 500 mm、高さは 600 mm である。1 個当たり高さ 100 mm の円筒形ブロックを 6 段積層して 1 個の供試体とした。

表 2.6-18　工学規模試験装置を用いた試験ケース

試験ケース	境界条件	試験セル－供試体間の隙間充填材	注水条件	注水液種	試験期間
1	体積拘束（上蓋に切欠きあり）	なし	0.1 L/min	模擬幌延地下水	32 日間
2		3 号ケイ砂			19 日間 ※

※：セルの耐圧限界を考慮して終了

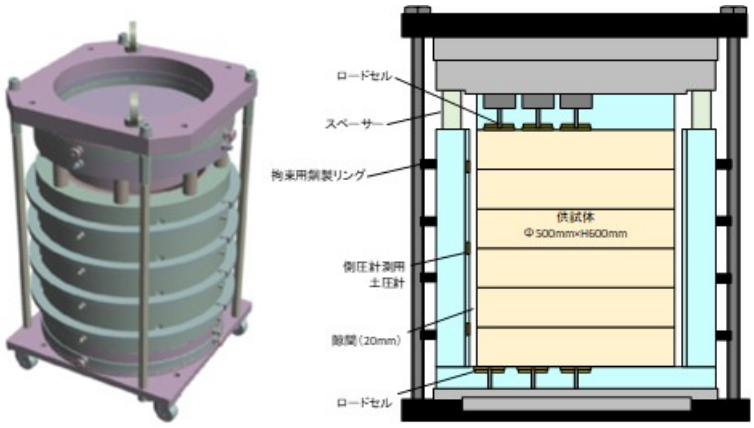


図 2.6-39　工学規模試験セルのイメージ

② 結果と考察

ここでは、試験後の解体した供試体についての測定結果を示す。

a) 硬度分布

前述 2)の原位置試験でも測定した山中式土壌硬度計を用いて硬度測定を行った。図 2.6-40 に硬度測定（各層表面で 9 点×3 深度=27 点）の位置を、測定結果を図 2.6-41 に示す。

硬度計測は供試体作製時と解体時の供試体に対して実施しているが、試験前と後では直径が異なる。図から、未充填のケース（「充填物ナシ」）では試験前には均一であった硬度が、解体時には膨潤によって供試体表面側に硬度の低下が見られた。硬度の低下範囲は表面から 130 mm の範囲（中心から半径方向に約 130～260 mm）であり、供試体の下方ほど浸潤による強度の低下が大きくなる傾向があった。これに対して、ケイ砂充填のケース（「充填物アリ」）では、上部は、切り欠きがあり拘束されていないためか、硬度は未充填とほぼ同様であったが、ケイ砂が隙間に充填されている位置では、浸潤による強度低下範囲が未充填の場合に比べて小さかった。試験期間の差を考慮しても、差があると考えられた。ケイ砂があることにより体積が拘束され、表面付近の密度が下がらなかったと考えられる。この硬度は、飽和度にも通じ、緩衝材の流出量と相関を持っていると考えられる。

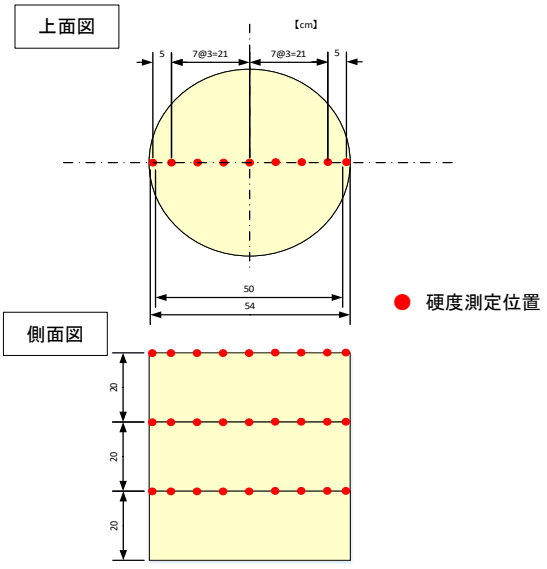


図 2.6-40　工学規模試験供試体の硬度測定位置

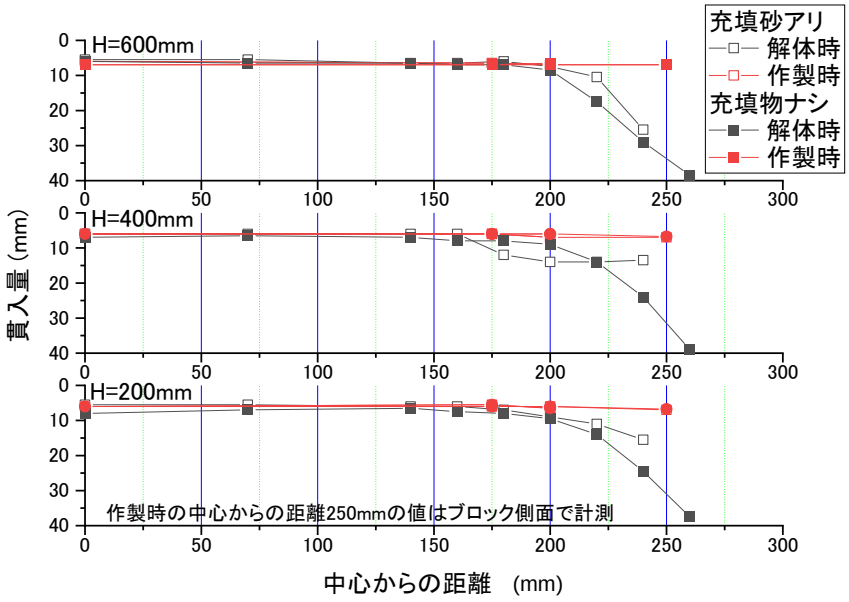


図 2.6-41　工学規模試験供試体の硬度測定結果

b) 含水比と緩衝材密度の分布

供試体の密度分布、飽和度分布を得るため、図 2.6-42 のように十字方向（定点撮影方向）、及び水みちが発生した場合には、その方向で供試体を採取（16 地点×6 深度=96 試料）することとして測定点を決め、含水比と乾燥密度を測定した。実際には、2 ケースとも水みちは観察されなかったため、未充填のケースでは試験後の供試体の硬度が低い部分で試料を採取した。

未充填のケースの含水比と乾燥密度の分布を各縦断面でのコンター図として図 2.6-43 に示す。未充填のケースでは、供試体の 50～100 mm の範囲で浸潤に伴う膨潤によって含水比が増加し、乾燥密度の低下が見られた。上部に近いほど供試体表面から深部まで膨潤している傾向となっており、図 2.6-41 の結果と整合していた。供試体上部が、側部の隙間だけでなく、上面の切欠きに向かって膨潤したためと考えられる。図 2.6-44 には、ケイ砂充填ケースの含水比と乾燥密度の分布を示す。図から、供試体から 50 mm 程度の範囲で浸潤に伴い含水比が増加していることが分かる。また、同じ範囲で浸潤に伴う膨潤により乾燥密度が低下していた。この浸潤に伴う変化は、底部と上部において大きい。しかし、低下量は、未充填のケースより小さい結果となっている。試験期間が異なるため、直接比較することはできないが、ケイ砂充填により、浸潤が遅くなっている傾向は見られた。

図 2.6-45 には未充填ケースの各高さにおける横断面でのコンター図を示す。図から、北西方向の浸潤が進んでおり、膨潤に伴う乾燥密度の低下も著しいことが分かる。最底部の横断面図から、乾燥密度の低下が深部にまで到達していることが分かる。今回の試験では、水みちは明確に観察できなかったが、乾燥密度の測定結果より、北西の位置に水みちが形成されていた可能性がある。図 2.6-46 にはケイ砂充填ケースの横断面でのコンター図を示す。底部は南西方向、上部は北方向の浸潤が早いように見えるが、その差はわずかであり、全体的には、概ね均一に浸潤が進んでいたと言える。ケイ砂充填により供試体周囲の流速が均一になり、均等に送水液が供給されたためだと考えられる。解体の結果、局所的な高含水比領域や低密度領域が存在しなかったため、充填砂によって水みちの形成が阻害され、かつ膨潤による密度低下も抑制されたと考えられる。

以上のように、平成 31 年度の工学規模試験によって、密度分布と含水率を取得した。原位置試

験においては、試験状態を保持した細かい試料採取が難しく、解析に反映するための定量的なデータ取得には、室内試験で得られるデータを活用することが有効といえる。平成 31 年度の結果により、ケイ砂充填により、密度が保持され、浸潤が遅くなる傾向があることが示された。他方、ケイ砂とベントナイトが今回の試験期間を超えて長期に接した場合に、ケイ砂の間隙にベントナイトが進入する可能性が否定できず、その場合には、密度分布も変化するとともに、緩衝材流出量にも影響する可能性がある。

そのため、長期試験や加速した試験によってベントナイトのケイ砂間隙への進入による影響を把握することが必要である。さらに、処分孔上部の埋め戻し後の流出挙動や、ケイ砂を使った施工が人工バリアの長期性能や安全評価に及ぼす影響を評価するための定量的なデータも必要であり、こうしたデータは、原位置での実現象を反映した室内試験で取得していく。

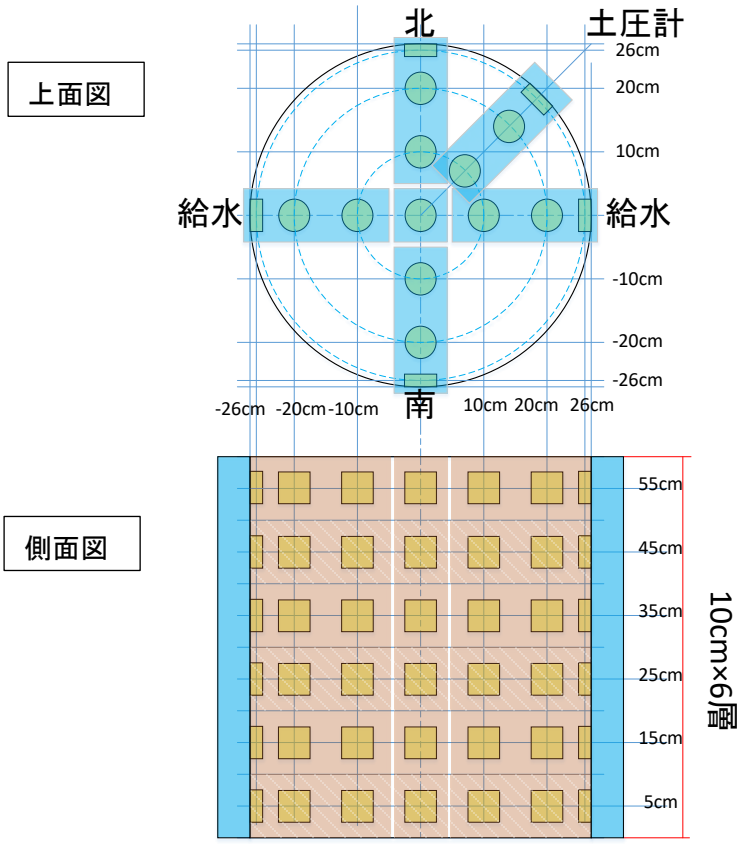


図 2.6-42　工学規模試験供試体のサンプリング位置

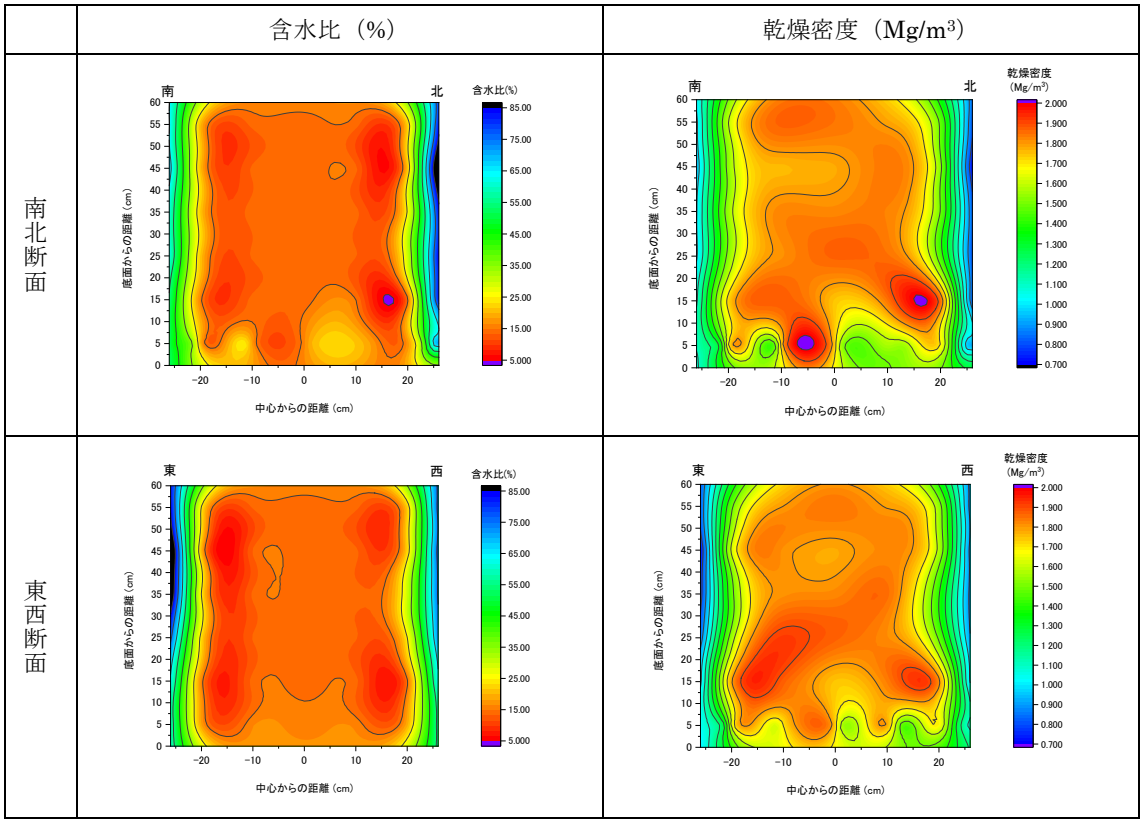


図 2.6-43　工学規模試験供試体の解体結果（未充填ケースの縦断面分布）

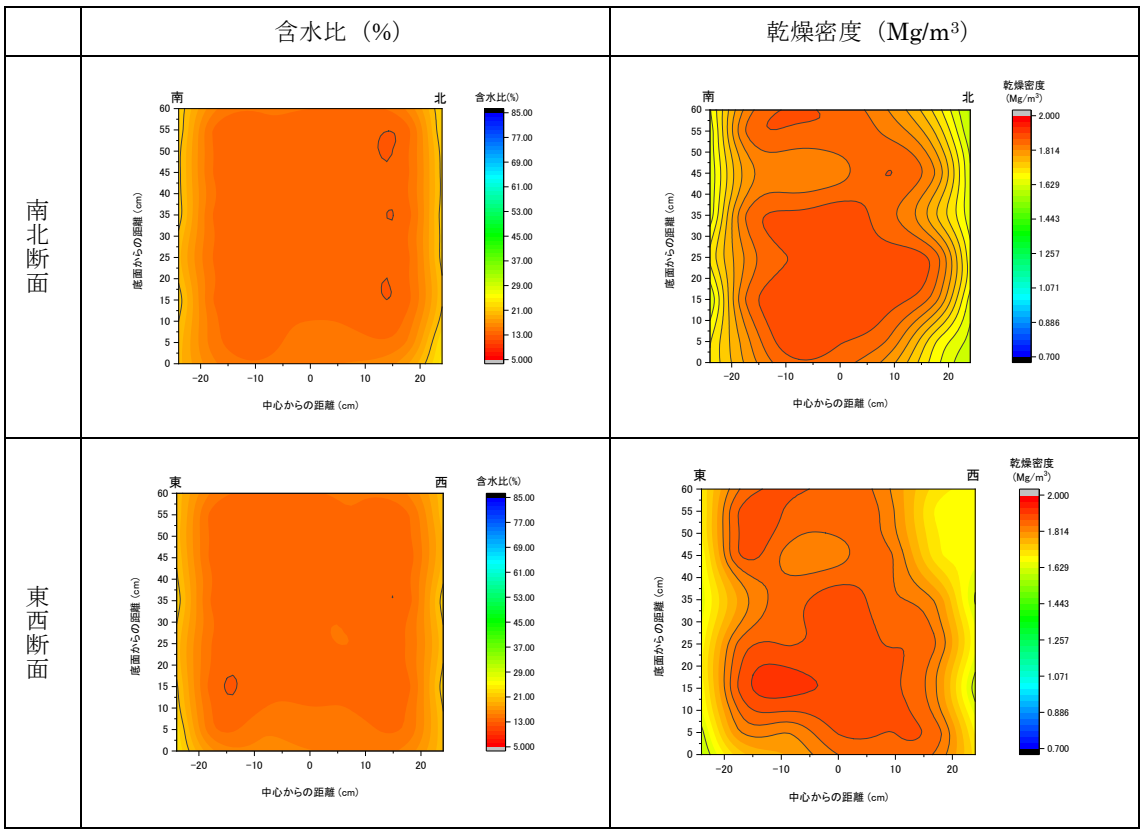


図 2.6-44　工学規模試験供試体の解体結果（ケイ砂充填ケースの縦断面分布）

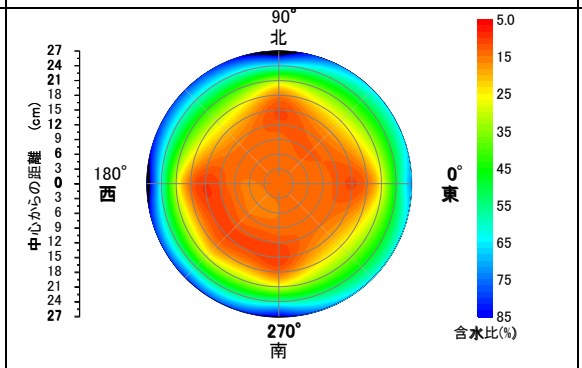
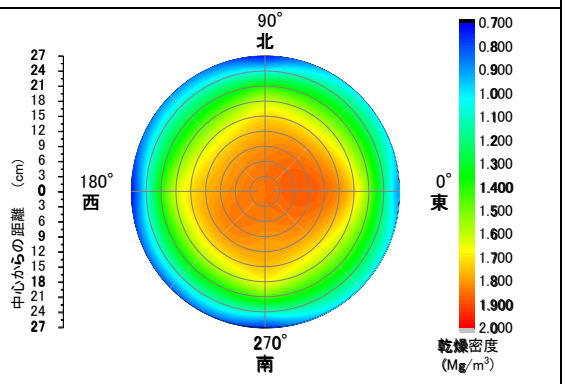
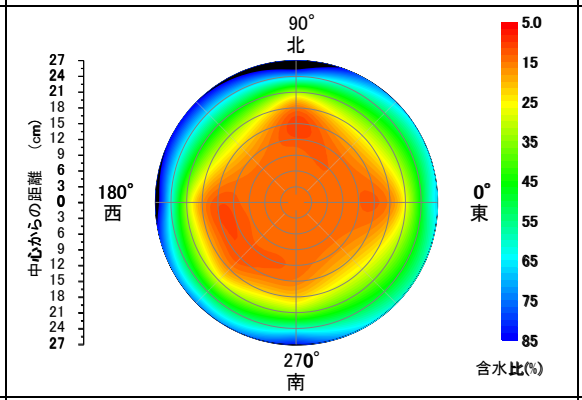
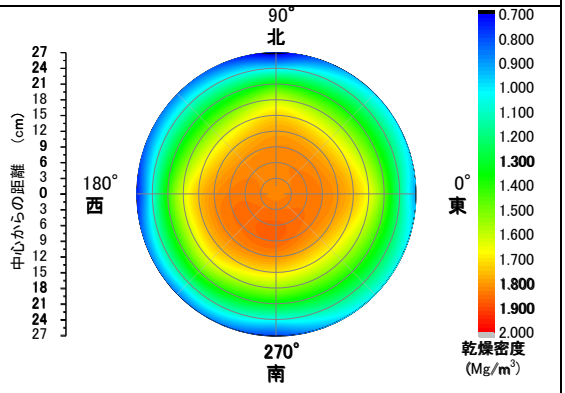
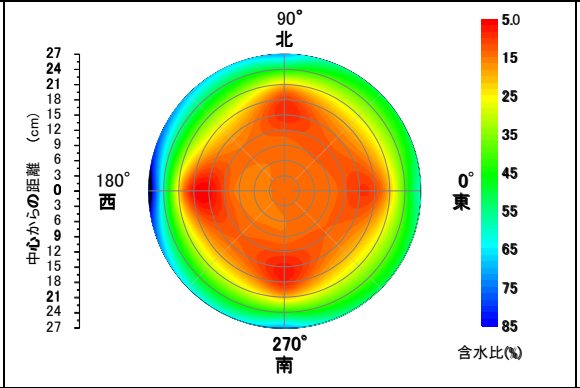
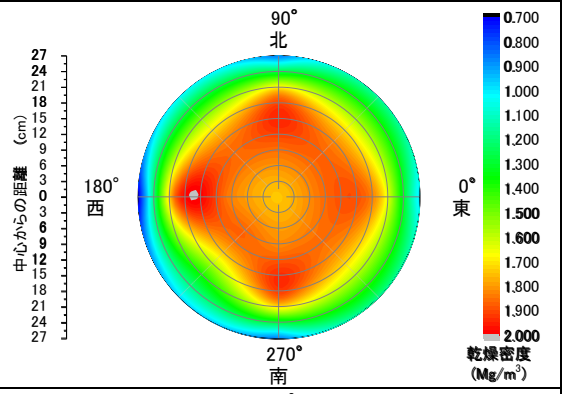
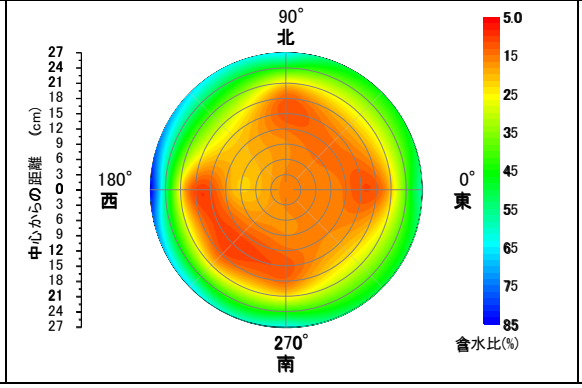
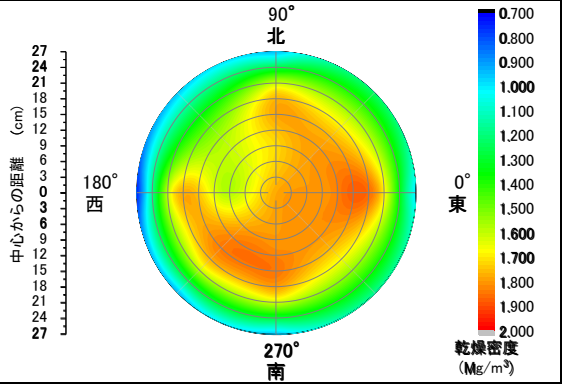
断面高さ（cm）	含水比（%）	乾燥密度（Mg/m³）
55		
35		
15		
5		

図 2.6-45　工学規模試験供試体の解体結果（未充填ケースの横断面分布）

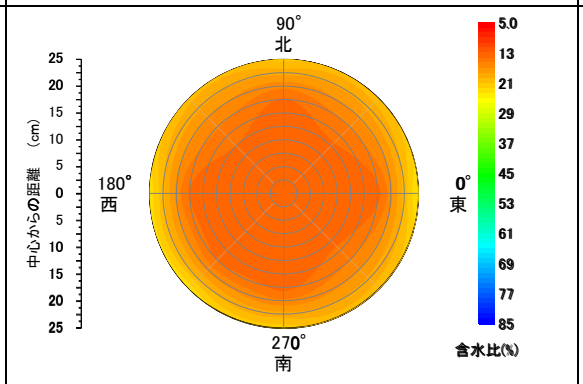
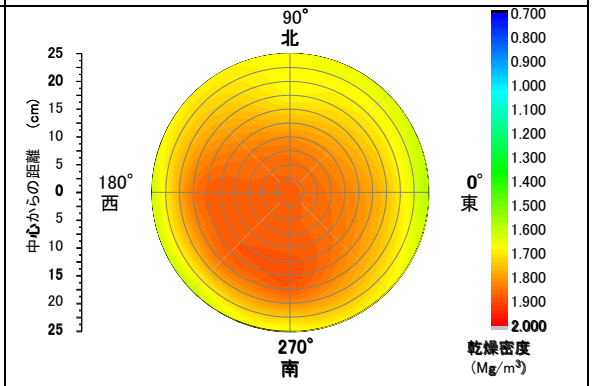
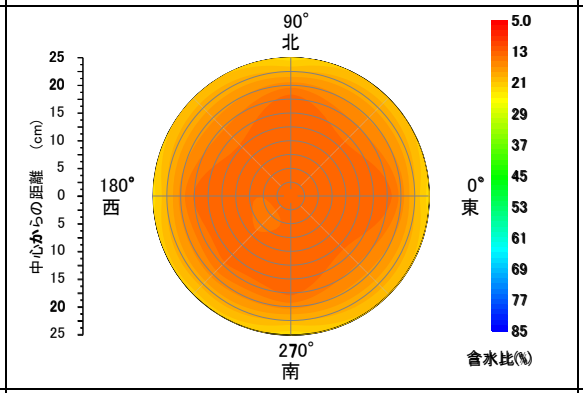
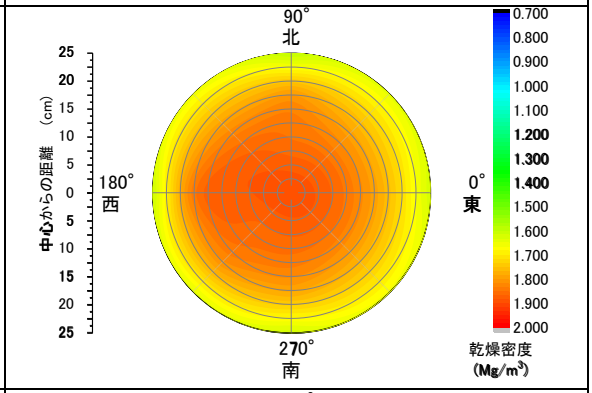
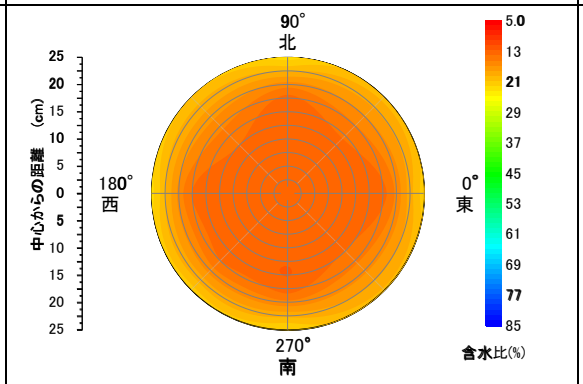
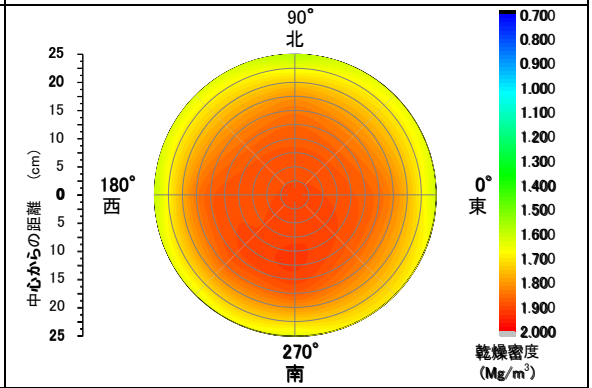
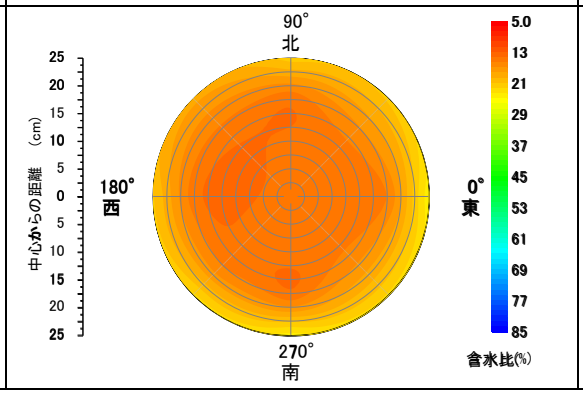
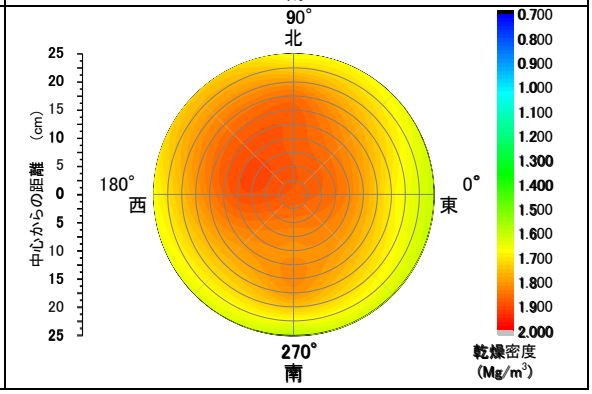
断面高さ（cm）	含水比（%）	乾燥密度（Mg/m^3）
55		
35		
15		
5		

図 2.6-46　工学規模試験供試体の解体結果（ケイ砂充填ケースの横断面分布）

4) 流出を抑制する工学的対策の具体化のまとめ

平成 31 年度は、「ケイ砂による隙間処理」の効果について検討を行った。原位置試験では、処分孔竪置きブロック方式を検討対象として、緩衝材の流出抑制効果を確認し、実現性のある工学的対策オプションの 1 つとしての見通しを示すことを目標とした。室内試験は原位置試験の予備試験、及び定量的なデータの取得を行った。

上記目標に対し、平成 31 年度に得られた成果を以下に示す。

◆　「ケイ砂の粒径効果」について

隙間処理のために充填するケイ砂の粒径を 3 号、5 号、3+5 号と変えた室内試験（小型試験）では、ケイ砂充填の効果が 2 ヵ月以上継続することを確認するとともに、用いた範囲の粒径の変化は効果に影響しないことがわかった。ケイ砂充填の際に落下させ易いなどの施工性の観点から、粒径の大きい 3 号ケイ砂を用いて原位置試験及び工学規模試験を行うこととした。

◆「ケイ砂による隙間処理」に期待する効果のうち、緩衝材流出抑制効果について

原位置試験においてケイ砂による隙間処理を実施したケースについては、試験期間 29 日における緩衝材の総流出量は 558 g、総排水量は 29,000 L、試験終了時の流出割合（試験開始時の試験体（緩衝材）の乾燥重量 298 kg に対する総流出量の割合）は 0.2%となった。ケイ砂充填ケースでは、緩衝材流出量の増加要因となる「排水量（湧水流速）の増加」に対し、「流出濃度の増加が生じない」との結果が得られたことから、定性的ではあるが、ケイ砂充填に期待した次の 2 つの効果の見通しが得られたことを意味する。

- ケイ砂を隙間に充填することで隙間領域が減り、緩衝材の膨潤による界面の密度が低下する領域を減らす効果（緩衝材界面のせん断強度を保つ効果）
- 地下水と緩衝材界面との接触面積を減らすともに、緩衝材の膨潤に伴う隙間（流路）断面積の減少を抑制、湧水流速の増加が抑えられることで、緩衝材界面からの流出を抑制する効果（湧水の流速に起因するせん断力を減ずる効果）

工学的対策を施さない隙間未充填のケースについては、試験期間 56 日における緩衝材の総流出量は、3,325 g、総排水量は 7,444 L、試験終了時の流出割合は 1.1%となった。未充填ケースでは、試験開始後 6 日後の流出濃度のピークから 30 日後までの流出濃度の値がケイ砂充填ケースに比べて高く、「流出濃度の高さ」に起因して緩衝材の総流出量が初期に増加した。一方で、試験開始後 30 日以降は、緩衝材の膨潤による隙間の閉塞が進行し、流出濃度および排水量が減少、緩衝材流出量が初期に比べて減少する結果を得た。ただし、試験終了時においても、排水が 0 mL とはならず、20 mL/min 程度の排水が継続し、流出の継続が確認された。

◆「ケイ砂による隙間処理」に期待する効果のうち、緩衝材界面に対する浸潤環境の単純化について

ケイ砂充填ケースの流出試験の終了後、緩衝材上部の鋼製蓋を撤去後、緩衝材最上面の浸潤状況を目視観察した結果、湧水による緩衝材外側からの浸潤距離は、どの位置においても、約 40 mm 程度であり、緩衝材外側よりほぼ均一に浸潤している状況であった。

一方、未充填ケースでは、湧水の浸潤距離は、緩衝材の位置により約 40～70 mm とバラつきがあり、ケイ砂充填ケースの浸潤状況と比較すると、緩衝材への不均一な浸潤が生じていた。

また、流出試験終了後に試験孔内から回収した緩衝材に対し、山中式土壌硬度計を利用して、緩衝材の各箇所の硬度を確認した結果、浸潤状況の目視確認結果と同様に、ケイ砂充填ケースに比べ、未充填ケースの硬度の値は、ブロックの位置、段数によりバラつきが生じる結果を得た。

上記結果より、ケイ砂による隙間充填に期待する効果として、「不均一な処分孔壁からの湧水に対し、ケイ砂領域を介することで、緩衝材界面への浸潤環境を単純化する効果」の見通しを得た。

◆　流出試験後の乾燥密度、含水率分布について

試験後、供試体を解体して乾燥密度と含水率の分布を測定した。原位置試験における測定結果では、ケイ砂充填ケースの方が、密度が高く、含水率のバラつきが小さい傾向が見られた。ただし、最も外側の部分は、試験後の試験孔からの引き上げの際に削られるため、計測ができないこともあり、最外周部の密度の減少に関するデータは得られず、2 つのケースで顕著な差は見られなかった。

室内試験では、供試体との接触面が平滑なセルを用いているために、試料の採取が容易であり、解体時の供試体の形状も保たれるため、原位置の試験より精度よく乾燥密度、含水率を計測することができる。小型試験では、同条件の試験により、ケイ砂充填ケースの方が密度の分布幅が低いことが認められた。また、工学規模試験においてもケイ砂充填ケースにおいて、浸潤がほぼ均等に進んでいる結果が得られた。再冠水プロセスの解析評価に反映するためには、原位置の試験結果による環境の影響を把握し、室内試験により定量的な把握と現象のモデル化をしていくことが有効である。

◆　緩衝材膨潤過程による湧水環境の変化について

原位置では緩衝材の膨潤圧の発生に伴う岩盤への圧力伝搬によって湧水環境が変化する可能性がある。これは、ケイ砂充填ケースの原位置試験において経時的に試験孔上部への排水量が増加した事実があったこと、また、ひずみの解析によって亀裂が開口する（透水性が高くなる）可能性が示唆されたことによる。ケイ砂充填ケースでは、隙間体積がケイ砂の充填により小さくなり、体積膨張が許されないため乾燥密度が高い状態で発生する膨潤圧が、ケイ砂層を介して岩盤に伝搬する。本検討で使用した供試体は、未充填の場合と同じ乾燥密度（約 1.9 Mg/m^3）であったため、約 3 MPa の膨潤圧が岩盤にかかった。この影響により、湧水量が増加した可能性がある。しかし、この現象は今回の原位置試験を実施した岩盤に特有な現象である可能性がある（原位置の環境に依存する可能性がある）。また、平成 31 年度の試験は工学的対策の有無で流出量の比較を行うために、供試体の乾燥密度は同じものを使ったが、ケイ砂充填により緩衝材の膨潤できる容積が減ることから、膨潤後の密度を 1.6 Mg/m^3にするための初期乾燥密度を減らすこともできる。乾燥密度を低くすることにより、膨潤圧を低く抑えることもでき、緩衝材作成時のベントナイト使用量を減らすこともできるため、今後、試験によって挙動を確認する。

また、未充填のケースでは、供試体の膨潤により隙間が狭められると同時に、緩衝材が含水することによって透水性が低くなるため、試験孔上部への排水が少なくなった。当初、約 400 mL/min だった排水量は約 20 mL/min まで減少したものの、完全に排水が止まることはなく、排水は継続した。長期に継続する場合は、少量であっても流出が継続することは緩衝材量の損失につながるため、さらに長期的な試験によって挙動を確認する必要がある。

再冠水期間の緩衝材の流出量を見積もるためには、水理環境の変化を考慮して予測することが重要である。今後、より長期的な緩衝材の流出量を見積もるためには、緩衝材の定置による処分孔の水理環境を確からしく予測し、湧水環境の変化を考慮した試験が必要となる。

以上のような成果により、処分孔竪置きブロック方式の処分概念に対して、緩衝材の流出抑制に関する工学的対策オプションの一つとして抽出した「ケイ砂による隙間処理」の効果の見通しを得ることができたと考える。ただし、坑道埋め戻し後の湧水環境を考慮した条件での「ケイ砂による隙間処理」の効果の確認や、「隙間未充填」とした場合の隙間閉塞後の長期的な緩衝材の浸

潤・流出挙動の確認、埋め戻し後の緩衝材流出現象の把握など、更なる知見の拡充が望まれる。

(2) 緩衝材の飽和プロセスを対象とした解析手法の構築

1) 力学解析手法の検討

2.6.1 項で述べたように、ベントナイトを含む緩衝材の飽和過程（状態変化）をより確からしく予測評価することは、性能評価の不確実性の低減に繋がる。本検討では、飽和後の緩衝材の状態をより現実的に評価するために、許容される緩衝材の流出量を考慮した解析手法を構築することを目的として、段階的に開発・高度化を進める。緩衝材の流出、浸潤、膨潤といった再冠水に至る迄に予期される挙動では、THMC（熱・水・応力・化学）の全てが関連するものの、開発の最初のステップとして、隙間の充填挙動（水・応力）に関する解析手法に先行して取り組む。具体的には、緩衝材を処分孔に定置した不飽和な状態から飽和に至る間の膨潤・隙間充填過程シミュレーション（乾燥密度や膨潤圧の分布状態の変化などを把握）が可能となるように、モデルの高度化を行う。

平成 30 年度には緩衝材が飽和している状態を初期状態として、膨潤による隙間充填に関する力学解析手法を検討した。その結果を踏まえ、平成 31 年度はベントナイト緩衝材の隙間充填と均一化過程を「不飽和状態から飽和状態への変遷」としてシミュレーションすることを主眼に置いた。不飽和を初期状態とし、浸潤過程を考慮した力学解析の検討を行うために、不飽和状態にあるベントナイト緩衝材の力学挙動を表現するために拡張した弾塑性構成モデルを適用した。

① 解析手法

解析手法には、土骨格の変形と間隙水圧の流れを連成して解く土／水連成有限要素解析手法を用い、解析コードとして DACSAR を使用した。DACSAR は、Iizuka and Ohta（1987）に端を発する有限要素解析コード群の総称であり、解析対象となる材料の構成モデルの高度化、扱える物理現象の拡張、ならびに数値解析技術そのものの高度化など、様々な形で機能が拡張・更新されている。本検討で用いるコードは、この解析コード群の一つである DACSAR-I（Takeyama et al., 2015）をベースとしつつも、不飽和状態にあるベントナイト緩衝材の力学特性を表現するためのアップデートを施したものである。この解析コードは緩衝材の飽和・不飽和を問わず、緩衝材の力学的な評価に用いられている実績があり、緩衝材の長期変遷挙動に対する適用性に係る検討が進められている。そのため、本事業で対象とする再冠水プロセスの解析手法として DACSAR を用いることにより、将来的には再冠水から長期までを連続的に解析評価できる利点がある。

ベントナイト緩衝材の力学応答を表現するべく、土骨格の変形を支配するモデルとして塑性膨潤の概念を取り入れた弾塑性構成モデルを採用した。ベースとなる弾塑性構成モデルは、飽和状態にある地盤材料の力学挙動表現に広く用いられている修正 Cam-clay モデルであるが、塑性膨潤の概念を取り入れることにより、緩衝材に用いられるベントナイト（あるいは、その混合土）に特有の膨潤挙動を要素応答としてうまく再現できる。想定材料としたケイ砂 30wt%混合 Na 型ベントナイトについて、過去に実施されている圧密試験や非排水せん断試験を参照しつつ、モデルが必要とする材料パラメータを決定し、シミュレーションに用いた（詳細は付録 C（a）を参照）。

不飽和状態にある地盤材料を解析対象とするとき、地盤材料は固相・液相・気相の多相混合体からなる連続体としてモデル化され、地盤材料の変形とその間隙に存在する間隙流体の運動が有限要素法によって近似的に求解されることになる。地盤の間隙に液体と気体が 2 相間隙流体として混在する不飽和状態を考え、間隙が間隙水で満たされる飽和状態への変遷も連続的に記述される場の支配方程式、及び、有限要素離散化の手続きは、金澤ら（2008）が報告している、多相混

合体に作用する応力のつり合い条件、固相と液相に関する連続条件、及び、固相と気相に関する連続条件が場の支配方程式の素地となる。ここに多相混合体の材料モデルを加味し、有限要素法によって解析対象領域を空間離散化することによって、混合体の変位と 2 相の間隙流体の圧力(間隙水圧及び間隙空気圧）を未知数とする全体剛性方程式が形成される。さらに、対象とする問題に応じて、適切な初期条件と境界条件を設定することにより、解くべき全体剛性方程式が構築され、時々刻々と変化する状態が数値解析的に得られることになる。

有限要素法によって空間的に分割された有限要素の各積分点における応答は、不飽和地盤材料で用いられる、土骨格の変形を記述するための構成モデル、各間隙流体の運動を記述するダルシー則、ならびに、マトリックサクション（土粒子と間隙流体の間の物理・化学的作用による吸着力や間隙水の表面張力によるサクション）と飽和度を関連付ける水分特性曲線モデルに支配されるものとした。平成 31 年度の緩衝材の不飽和状態からの変遷を考慮する構成モデルは、飽和状態に至ったときに、平成 30 年度の飽和状態を対象とした構成モデル修正 Cam-clay モデルに塑性膨潤の効果（Amerashinghe and Kraft , 1983）を導入）に帰着するよう考慮した。ダルシー則における透水係数は、平成 30 年度と同様に乾燥密度（間隙比）依存性を考慮した透水係数モデル（Börgesson et al. , 1995）を使用した。水分特性曲線は、杉井・宇野（1997）によるロジスティック曲線モデルにより得られる単一ロジスティック曲線を解析対象への影響などを鑑みて使用した。

②　解析体系及び解析ケース

平成 31 年度までの検討では、一次元の膨潤・隙間充填過程シミュレーションを実施するもとした。その解析ケースと諸条件を表 2.6-19 に、シミュレーションの概念を図 2.6-47 に示す。Case1 から Case5 は、供試体（ベントナイト）の高さ H と隙間幅 G の合計を 50 mm とし、G を 1.0、3.0、5.0、7.0、9.0 mm とした。初期乾燥密度は、隙間充填後に供試体高さが 50 mm に至ったときに、いずれのケースでも 1.6 Mg/m^{3}になるように設定した。供試体の初期含水比はどのケースでも一律に 10%とし、初期飽和度は、設定した飽和度と乾燥密度から求められる。飽和度とサクションの 1 対 1 の関係を水分特性に仮定しているため、初期サクションは初期飽和度に対して一意に得られる。

表 2.6-19　各解析ケースの諸条件

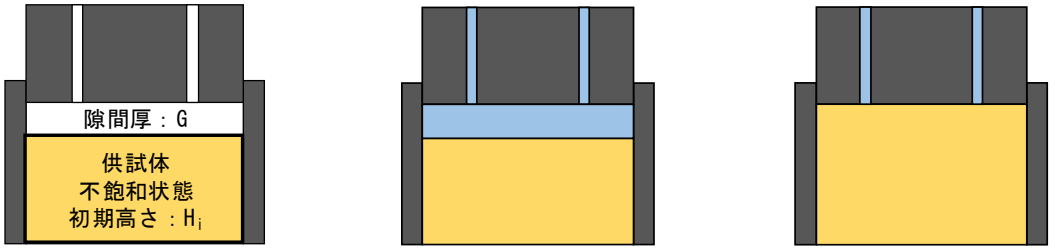
Case	供試体高さ(H) (mm)	隙間幅 (G) (mm)	初期乾燥密度 (Mg/m^3)	初期飽和度	初期サクション (MPa)
1	49.0	1.0	1.632	0.404	6.34
2	47.0	3.0	1.702	0.450	5.23
3	45.0	5.0	1.778	0.508	4.13
4	43.0	7.0	1.860	0.581	3.09
5	41.0	9.0	1.951	0.680	2.05

図 2.6-47　膨潤・隙間充填過程シミュレーション概念図

③　解析条件

(a)シミュレーション対象とするプロセス

解析の対象とする材料は、ケイ砂 30%混合クニゲル V1（土粒子密度：2.736 Mg/m^3、クニゲル V1 の土粒子密度：2.773 Mg/m^3、ケイ砂の土粒子密度：2.650 Mg/m^3）とする。初期状態は緩衝材が高密度に締め固められ、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するプロセスを対象とする。概念図を図 2.6-48 に示す。



① 初期状態　② 給水過程　③ 膨潤充填／均一化過程

図 2.6-48　シミュレーション対象となるプロセス

本解析では、初期高さを持つ円筒形の不飽和供試体の上部には厚さ G の隙間が存在するものとした。給水過程では、この隙間に蒸留水が供給されることになり、供試体の膨潤する余裕代となる。供給水に背圧は作用せず、その水圧はゼロとする。後に詳述するように、初期供試体は、その飽和度に見合うマトリックサクションを負の間隙水圧として持つため、隙間に蒸留水が供給された後は、供試体の外部から内部へと動水勾配が生じることになり、供試体への供給水の浸透が促される。同時に、マトリックサクションが供試体上面に近い側から消散することになり、これが有効応力の減少を促すことから、上載圧の無い状態での供試体の自由膨潤が隙間を充填するまで続くことになる。隙間が充填されれば、供試体全体としての高さは不変となる。不飽和状態である期間内は、供試体の外部から内部への水の流入が生じるが、飽和状態に至ると、この流入も生じなくなる。しかしながら、供試体内の間隙水圧の不均一さ（動水勾配）が解消するまで、供試体内部での間隙水の流れは起こり得る。供試体の体積が一定であり、外部との水のやり取りがない状況の下で、内部において間隙水の流れが生じれば、局所的には体積変化も生じる。ある領域が膨潤すれば、全体の体積を一定に保つために、他の領域では収縮しなければならない。本解析では、この押し合い圧し合いの末、乾燥密度や応力が如何なる分布を示すかを境界値問題として追跡した。

(b) 解析モデル及び境界条件

図 2.6-49 に、解析モデルと境界条件を示す。本解析では、供試体側面と内壁面との摩擦を無視し、鉛直方向の変形、ならびに、鉛直方向の間隙水の流れのみを考えた一次元問題とした。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て、半径方向の要素分割はないものとした。鉛直方向は、初期供試体高さ H_i に対して、9 節点アイソパラメトリック要素を用いて 60 要素分割とした。

下端面の節点以外は、鉛直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するとした。このような接触問題を有限要素法で扱う場合、ペナルティ法（Zienkiewicz et al., 2005）やラグランジュ法（Pantano et al., 2002；Nergheim et al., 2004）などの界面接合手法が適用されることが多いが、一次元問題である本解析では、接触面が単純であることから、特別な解法を用いず、各ステップの時間増分を十分に細かく設定することにより、各ステップに生じる変位増分が極めて小さくなることから、隙間充填を満足したと見なされる変位をわずかにでも超過した時点をもって、上端面の節点の変位を拘束する境界条件に切り替えた。

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 2.6-49 に示す。隙間への給水過程は、60 秒の時間を設け、初期サクションの負値から 0 MPa まで線形に水圧を上昇させ、その後は、境界の水圧を一定に保ち、300 日の放置期間を設けた。

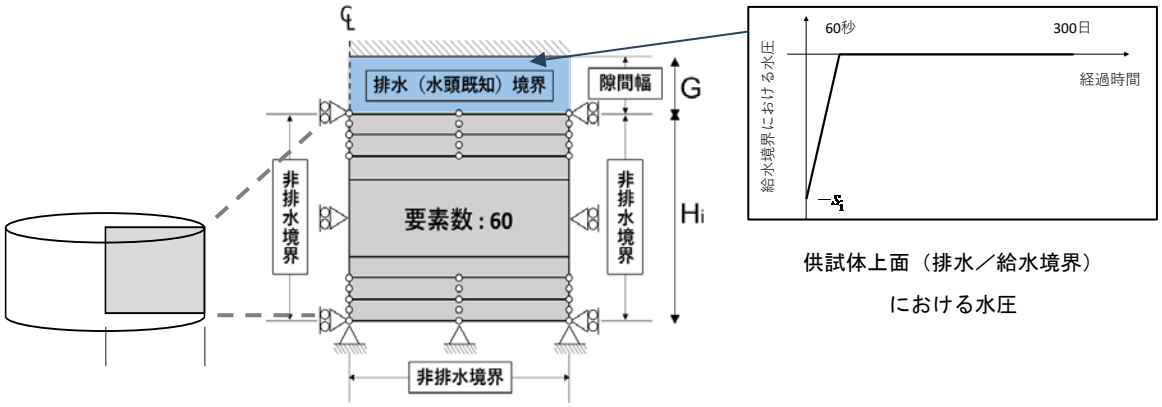


図 2.6-49　解析モデルと境界条件

(c)材料パラメータ

構成モデルに使用する材料パラメータを表 2.6-20 に示す（パラメータの詳細については付録 C（b）を参照）。飽和状態に関する材料パラメータは、平成 30 年度の検討と同様とし、不飽和状態に関する構成則に使用する材料パラメータは、不飽和状態の初期平均有効応力と飽和後の平均膨潤圧の関係式と鈴木ら（1999）のベントナイトの膨潤応力の測定結果をもとに決定した。

表 2.6-20　構成モデルに使用する材料パラメータ

	パラメータ名	記号	数値
飽和状態（平成 30 年度）	限界応力比	$\bar{M}$	0.63
	圧縮指数	λ	0.14
	膨潤指数	$\bar{\kappa}$	0.028
	ポアソン比	ν'	0.40
	塑性膨潤パラメータ	ζ	0.45
不飽和状態の構成モデルに関するパラメータ		θ	0.65
		α	6.37
		l	2.23

透水係数モデルに関するパラメータは、平成 30 年度と同様に $e_0 = 0.539$ 、 $k_0 = 2.68\times10^{-13}(\mathrm{m/s})$ 、$\lambda_k = 2.15$ とし、水分特性曲線モデルのパラメータは、鈴木ら（1999）の保水性試験の結果をもとに

$$A = -1.40 \text{ 、 } B = 1.12 \text{ 、 } S_{r0} = 0.10$$

とした。

④ 解析結果

(a)　膨潤量の経時変化

図 2.6-50 に供試体膨潤量の経時変化を示す。膨潤量は、供試体の上面に位置する節点の鉛直方向の変位をもって表した。また、図 2.6-50 には表 2.6-19 に示した 5 ケースの他にも隙間幅の異なる解析ケースの結果も併記し、300 時間後までの変位を示した。

供試体が自由膨潤する隙間充填過程に注目すると、隙間幅が大きく初期乾燥密度が高いものほ

ど、膨潤の速度は大きかった。隙間充填過程における膨潤は、サクションの低下に起因する有効応力の低下も寄与するが、飽和度増加に伴う塑性膨潤の発現がより支配的である。初期の含水比が一律の場合、密な供試体ほど初期の飽和度が高くなり（表 2.6-19 参照）、飽和度が高ければ、弾性域が狭いため、容易に弾塑性状態に移行し、有効応力が低下するような応力経路が与えられたとき、塑性膨潤が生じる。隙間が大きいケースでは、供試体の上部から下部にかけて早期に弾塑性化し塑性膨潤が生じたため、供試体全体としての膨潤速度が大きくなったものと考えられる。一方、隙間が小さいケースは、初期飽和度が低く、元々弾性域が広いため、弾性状態を維持する領域が広く、供試体全体としての膨潤が緩慢となったと考えられる。本解析では透水係数については、乾燥密度の依存性を考慮したモデルを用いている。このため、より密なものほど浸透速度は小さくなり、膨潤速度とは逆の傾向を与えていることになる。

このことは隙間充填に至るまでに要する時間にも影響を及ぼす。図 2.6-50 に隙間幅と隙間充填に至るまでに要する日数の関係を示す。初期状態が同じであれば、隙間幅が大きいほど、隙間充填までに長い時間を要すると推測できる。しかしながら、本解析では隙間幅によって初期状態が異なるため、隙間幅が大きい場合により長い充填時間を要するという結果にはならず、図 2.6-51 に示すように、ある隙間幅を境に充填時間が逆転するという結果が得られた。なお、隙間充填に要する時間は、高さ 45 mm の供試体が 5 mm の隙間を充填するために約 100 日を要する結果であった。ケイ砂 30%混合クニゲル V1 を用いた長尺供試体に対する一次元浸潤速度取得試験（膨潤変形条件：初期乾燥密度 1.60 Mg/m^3、初期含水比 10.58%、供試体高さ 300 mm の供試体）が 50 mm 自由膨潤に要する時間は約 40 日（原子力環境整備促進･資金管理センター, 2018）であるのと比較すると、本解析は、試験体の形状は異なるが、膨潤速度が遅い結果となった。また、シミュレーションが遅い膨潤速度を予測しているとすれば、本検討のように、隙間膨潤過程にある供試体の膨潤を境界値問題と捉えるとき、供試体全体としての膨潤速度の緩急は複合的な要因に左右されると考えられる。解析で対象とした現象を鑑みると、浸透によってサクション低下と有効応力低下が生じたとしても、供試体の大部分が弾性状態を維持し、大きな膨潤が発生する除荷降伏に至りにくい状況である。塑性膨潤への移行を容易にするためには、初期有効応力がより小さければよく、理論的には水分特性曲線を見直すことによって解決できるが、特に、低含水状態におけるデータ取得が難しいマトリックサクションを如何に評価するかに課題がある。今後、本解析と同様な条件での試験結果による検証を含め、浸潤速度を遅延させる要因について検討し（付録 C（c）に考察を記載）、現実的な結果が得られるよう検討を進める。

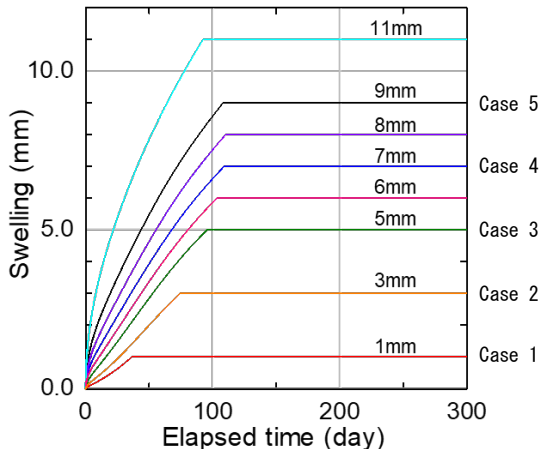


図 2.6-50 供試体膨潤量の経時変化

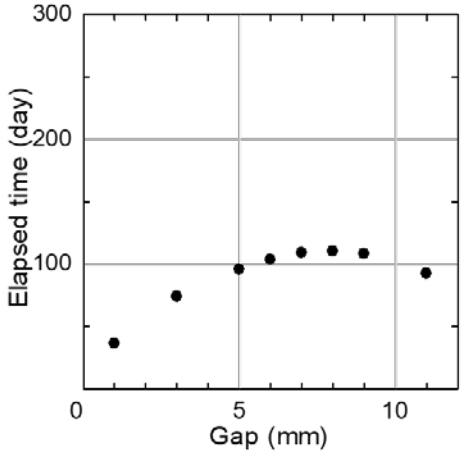
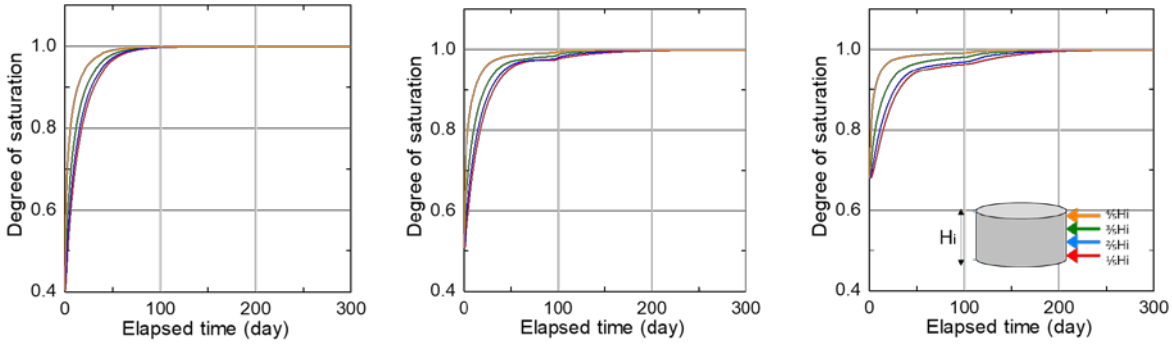


図 2.6-51 隙間幅と隙間充填に至るまでに要する日数の関係

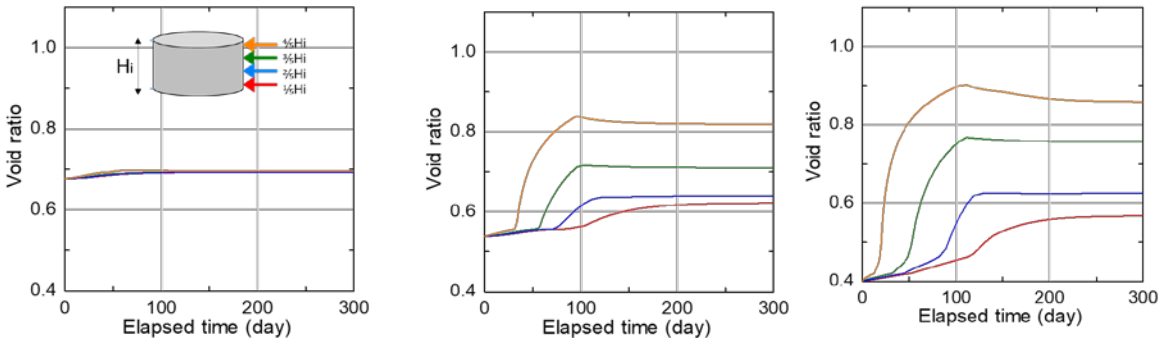
(b)飽和度と間隙比

供試体の間隙の状態の変化に関して、飽和度の経時変化及び間隙比の経時変化について、ケース 1、3 及び 5 の解析結果をそれぞれ図 2.6-52 及び図 2.6-53 に示す（いずれもケース 2 はケース 1 と 3、ケース 4 はケース 3 と 5 の中間的な結果であった）。間隙の飽和度は、供試体の上面に近い側から飽和度が単調に上昇し、いずれの供試体も飽和に達した。供試体の乾燥密度が大きいケース 5 が飽和までの時間が最も長かった。供試体の上面からの浸潤に従い膨潤して間隙比が上昇し、隙間が閉塞した後は、供試体下部の膨潤により上部は圧縮されて間隙が減少した。



Case 1（隙間厚 1.0 mm）　Case 3（隙間厚 5.0 mm）　Case 5（隙間厚 9.0 mm）

図 2.6-52　飽和度の経時変化



Case 1（隙間厚 1.0 mm）　Case 3（隙間厚 5.0 mm）　Case 5（隙間厚 9.0 mm）

図 2.6-53　間隙比の経時変化（凡例は図 2.6-52 と同じ）

(c)乾燥密度分布

供試体内の乾燥密度分布の経時変化を図 2.6-54 に示す。供試体が上部へと膨潤することで乾燥密度は上部の方がより低下して高さ方向の密度差が発生し、隙間が充填された後は、下部が膨潤により乾燥密度が低下、それに伴い上部の乾燥密度が高くなることで高さ方向の乾燥密度差が小さくなるという挙動を示している。平衡状態における供試体の平均乾燥密度はいずれも 1.60 Mg/m^{3}であるが、平衡状態に至るまでの履歴によって、その分布性状は大きく異なった。供試体レベルの解析の結果から、実寸規模の緩衝材の密度分布を考える場合においては、緩衝材周りの隙間がより小さいと、乾燥密度が低下する範囲が小さくなることは明らかである。初期乾燥密度を高くした場合でも、乾燥密度が低下する範囲を小さくすることは難しいと考えられる。これらの解析結果より、施工によって生じる隙間を減らすこと、流出などによる隙間の増加を抑制する

ことなどにより、再冠水過程を経た緩衝材の乾燥密度分布の残存を低減できることが読み取れる。しかし、密度分布そのものを定量的に把握するためには、供試体寸法のシミュレーションから外挿して実規模における挙動を予測することは困難であり、実規模と整合する寸法や境界条件を設定した解析を実施するには、多次元化、解析モデルのスケールアップなどの解析手法などの段階的な検討が必要である。

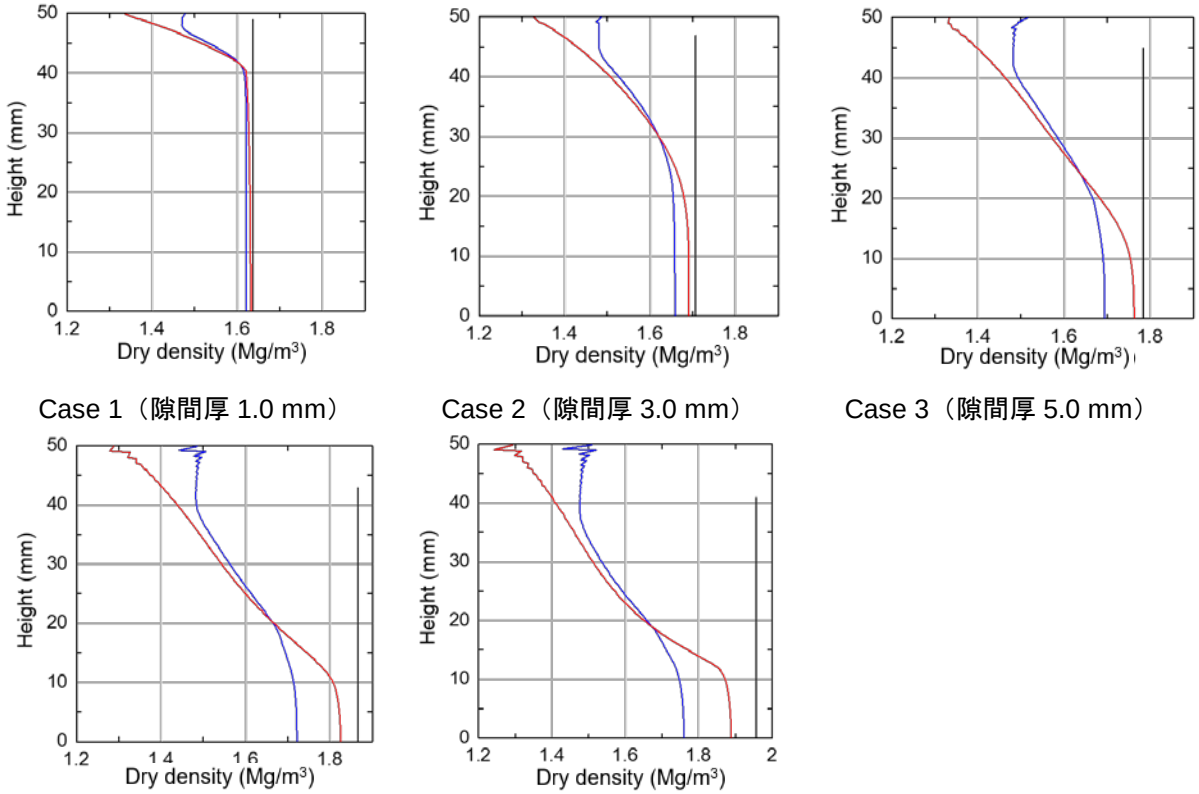
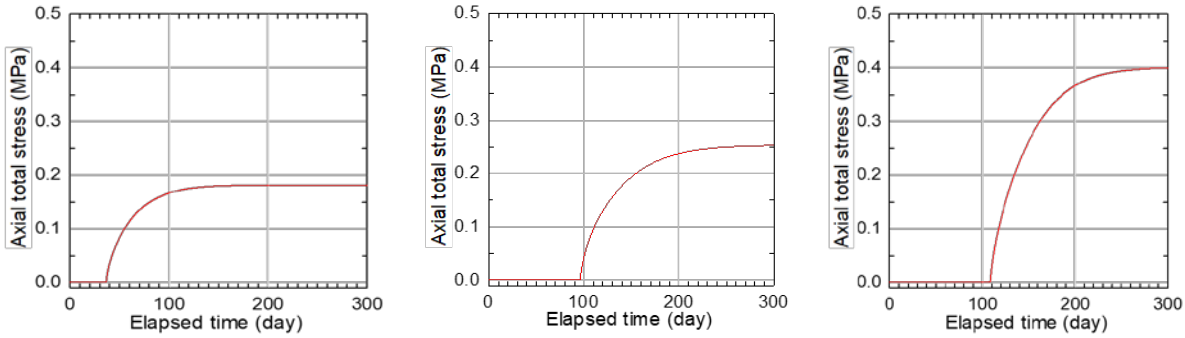


図 2.6-54　供試体内の乾燥密度分布（黒：初期／赤：隙間充填時／青：平衡状態）

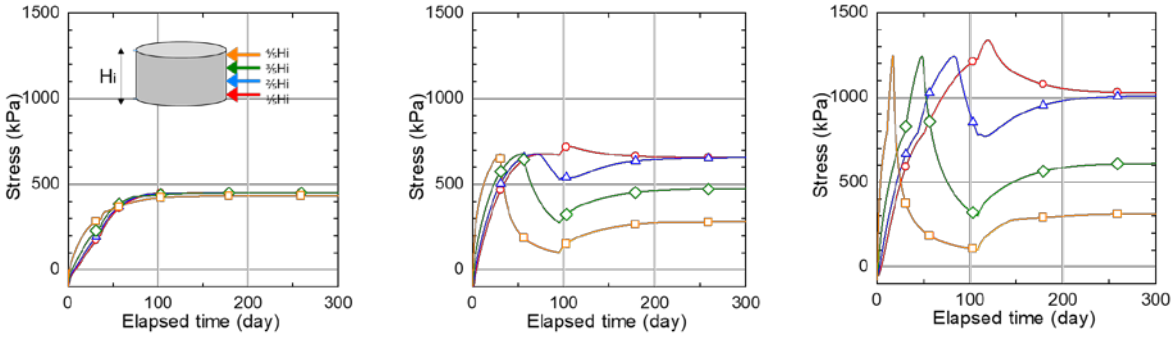
(d) 応力状態

供試体内応力状態について、供試体内の軸圧（鉛直全応力）と供試体の所定の高さにおける側圧（側方全応力）の変化をそれぞれ図 2.6-55 及び図 2.6-56 に示す。鉛直応力は隙間が充填された後に膨潤変形を拘束するための拘束圧として発生する。隙間充填後の平均乾燥密度は一律に 1.60 Mg/m³あるが、平衡に達した膨潤圧の値には差が見られ、隙間幅が大きくても、初期乾燥密度が高い供試体ほどより大きな平衡膨潤圧が発生する結果となっている。側方応力は、供試体高さが一定となる隙間充填過程においては、給水面に近い供試体上部から順に側圧がピークを示し減少に転じる応答が見られ、鉛直応力と同様に隙間幅が大きく供試体の初期乾燥密度が大きいケースほど最大応力が大きかった。隙間が充填された後は、再度側方応力が上昇し、隙間充填過程に生じた下部の側方全応力は減少が継続した。しかしながら、平衡状態に至っても側圧が供試体の上から下まで均一になることはなく、差が残留した。その差は、隙間幅が小さい場合（例えば、Case1）は無視できるほど小さいが、初期が高密度であり隙間幅が大きくなればなるほど、顕著に残留することがわかった。



Case 1（隙間厚 1.0 mm）　Case 3（隙間厚 5.0 mm）　Case 5（隙間厚 9.0 mm）

図 2.6-55　鉛直全応力の経時変化



Case 1（隙間厚 1.0 mm）　Case 3（隙間厚 5.0 mm）　Case 5（隙間厚 9.0 mm）

図 2.6-56　側方全応力の経時変化（凡例は図 2.6-52 と同じ）

⑤ まとめ

ベントナイト系緩衝材と孔壁との間に隙間が存在する状況を想定し、再冠水過程における緩衝材の不飽和状態から飽和状態に至る膨潤による隙間の充填、及び、充填後、平衡状態に至るまでの緩衝材の乾燥密度分布などの変化の過程を解析的に評価する手法を構築することを目的に、既往の力学解析手法を高度化し、ベントナイト供試体の状態変遷シミュレーションを行った。これにより、解析手法を示すと共に、その結果より、再冠水過程での緩衝材の乾燥密度分布が発生するメカニズムの理解を進めることが出来た。

実規模の緩衝材の再冠水過程での乾燥密度分布を予測するためには、膨潤、浸潤の挙動が複合的に起こり、初期の乾燥密度や隙間幅、緩衝材の厚さ、応力の方向などにより膨潤速度と浸潤速度が影響を受けるため、供試体寸法のシミュレーションから外挿して予測することは難しいと考えられる。そのため、今後、手法の構築に向けて、多次元での解析、スケールアップによる効果の確認などを段階的に行うことが必要である。また、平成 31 年度の解析で得られた結果は、これまでの試験結果の膨潤速度とは乖離した結果であった。現実的な評価を行うために、同じ材料に対する同条件での試験結果を比較検証しながら、適切なパラメータを選択しつつ解析手法を構築する必要がある。

2) 遠心模型試験による人工バリア再冠水挙動の評価

緩衝材のような低透水性の材料は飽和までに長期間を要するため、試験で実際の大きさの緩衝材の飽和後の状態を把握することは現実的ではない。そのため、飽和後の緩衝材の状態の予測評価手法として、解析的な手法が有効な手段となる。解析では材料物性や境界条件などのパラメータを任意に設定することで、任意の時間における状態や物理量を解析結果として出力することができるが、その妥当性を確認する方法が課題となる。

遠心模型試験は、実際の対象物を $1/n$ に縮尺した模型を用いて重力加速度の n 倍の遠心加速度を作用させることにより、実物と同じ自重による応力状態で試験を実施することを可能とする模型試験である。地盤の圧密や杭の支持力の安定性評価などの比較的長い時間の変化（実現象で数年程度）を対象として、時間縮尺が $1/n^2$ になる“静的場の相似則”を適用した遠心模型試験が利用される例が多数ある。地層処分の分野では、再冠水過程におけるオーバーパックの変位や緩衝材と岩盤中の水の浸潤などを対象として、遠心模型試験と解析の比較検討による研究例があるが、両者の結果には差があり、とくに複数の材料で構成されるニアフィールド領域を対象とした場合には、これらの妥当性を確認する方法に課題が残されている（中村・田中, 2004；2006；2009；西本ほか, 2012；2014；澤田ほか, 2012；Nishimoto et al., 2016；Sawada et al., 2017, 原子力環境整備促進･資金管理センター, 2018b）。

上記の課題を踏まえ、まずは、単一の構成材料を対象として重力場（遠心場ではない通常の場）での試験と縮尺模型を用いた遠心模型試験の結果の違いを把握し、その後、構成材料を増加させて段階的に解析結果の妥当性を確認していくといったアプローチが望まれる。

一般的に、遠心模型試験における成立性（現象の再現性）は、Modeling of prototype（実物スケールの試験と縮尺模型を用いた遠心模型試験で同じ挙動を示すことの確認）や Modeling of models（模型縮尺と遠心加速度を変化させた挙動確認）の考え方に基づいて取り組まれている。本検討においてもこの考え方に基づいて、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。比較対象とする実物スケールの試験として、平成 29 年度処分システム工学確証技術開発事業で得られた、注水液種に蒸留水を用いた一次元浸潤速度取得試験（原子力環境整備促進･資金管理センター, 2018a。以下、「1G 場試験」という）を選定した。これに対し、縮尺 1/20、1/30（遠心加速度はそれぞれ 20G、30G）の縮尺模型を用いた 2 ケースの遠心模型試験を実施し、それらの結果と重力場（1G）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）及び 1G 場試験の再現解析結果を比較することにより、緩衝材の浸潤挙動に対する加速試験としての遠心模型試験の適用性について考察した。

①　供試体及び試験条件

(a)供試体

遠心模型試験に用いる緩衝材は、1G 場試験と同様にクニゲル V1（クニミネ工業製）、ケイ砂 3 号及びケイ砂 5 号（共に愛知県八草産）とし、それらの乾燥質量割合は 7 : 1.5 : 1.5、乾燥密度は 1.6 Mg/m^{3}とした。

1G 場試験の供試体高さは 1,000 mm であることから、20G と 30G 場の試験での供試体高さはそれぞれ 1/20 の 50 mm、1/30 の 33.33 mm とした。供試体と試験容器の概略図を図 2.6-57 に示す。試験中の水の浸潤位置を連続的に計測するために、供試体には二極法による電気抵抗測定のための電極（以下、水分量センサーとする）を模型中心から 120° ごとにずらして設置した。

遠心模型は以下の手順で作製した。

Step 1：混合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。

Step 2：Step1 で含水比を調整した材料の含水比を測定する。

Step 3：緩衝材の材料を水分量センサーの設置高さ毎に試験容器内で締め固める。乾燥密度 1.6 Mg/m³となる緩衝材の 1 層分の高さを 4 分割で撒き出すための計量を行う。次に試験容器内に 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。

Step 4：締固め装置（プレス機）で圧力を加え一層分の材料に緩衝材を作製する。その際の最大荷重は 6～8 kN とし、15 分間で所定の高さになるように調節する。また、締固め時の最大荷重を記録する。

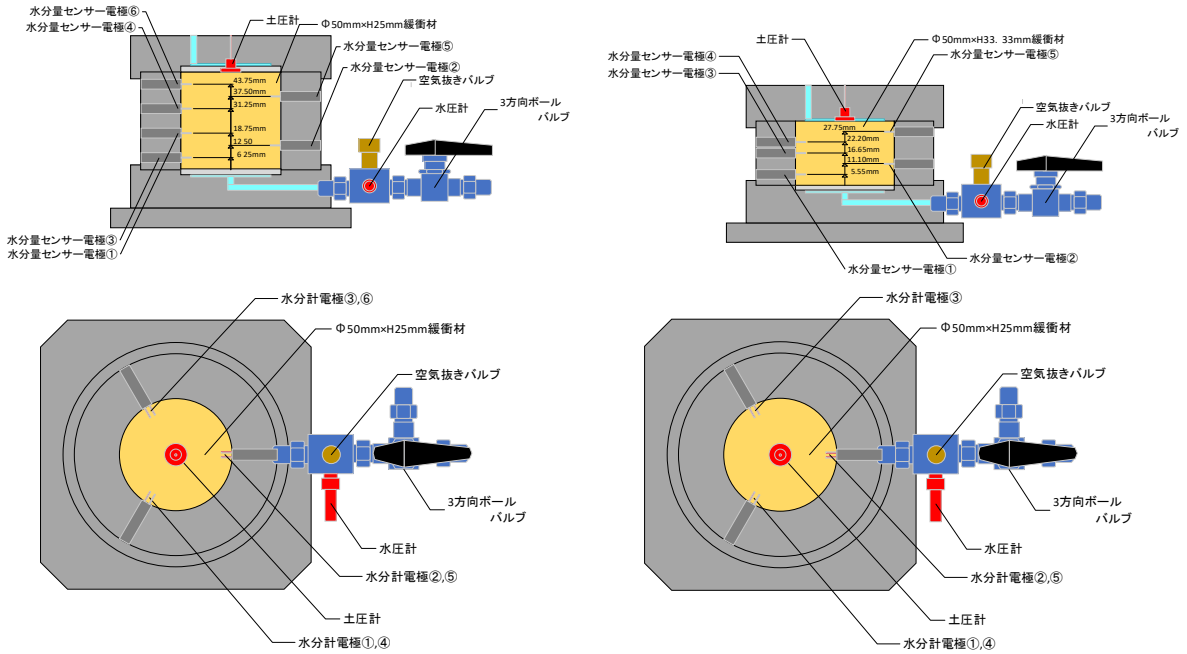
Step 5：水分量センサーを試験容器に設置する。センサーの電極は締め固めた一層分の緩衝材の上端面に位置する形となる。所定の箇所にセンサーを固定した後、最上層まで Step 3～4 と同様の方法で材料を締め固める。

Step 6：試験容器上蓋を取り付ける。

Step 7：遠心プラットホームおよ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。

Step 8：供試体を含む試験容器を遠心載荷装置に設置し、給排水タンクと試験容器を接続する。

Step 9：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、試験時には遠心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および養生を行う。



a) 20G 場　　b) 30G 場

図 2.6-57　遠心模型試験の供試体と試験容器の概略図

(b)試験条件及び計測項目

遠心加速度は 20G 及び 30G 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 に設定した。遠心模型試験の試験時間は、20G 場試験では 1G 場試験の試験期間を目安に約 10 日間（実換算時間で約 9 年）、30G 場試験では模型高さの半分以上が飽和する状態を目

安に約 16 日間（実換算時間で約 40 年）とした。

試験中及び試験後の計測項目を表 2.6-21 に示す。試験中の供試体の水分量の時間変化は、水分量センサー（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019）で測定した。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。

遠心模型試験終了後の含水比の測定は、底面からの距離 5 mm 毎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て飽和度、湿潤密度、及び乾燥密度を算出した。加えて、遠心模型試験終了後の供試体を X 線 CT 装置で撮影することで､その断面画像および密度分布を得た。

表 2.6-21　計測項目

測定項目	計測/測定方法	目的
供試体の水分量	水分量センサー	供試体中の水分量の時間変化を計測
注水圧	水圧計	注水圧を計測
供試体の膨潤圧	小型圧力計	供試体の膨潤圧の時間変化を計測
遠心模型試験後の供試体の密度、含水比、飽和度の分布	供試体から試料を採取して直接測定	・試験後の供試体の含水比を測定 ・試験中の水分量センサーの結果の妥当性確認
遠心模型試験後の供試体内部の密度分布	X 線 CT 装置で撮影	・供試体内部の状況、密度分布を把握

(c)試験手順

試験は以下の Step 1 から Step 14 の手順で実施した。

Step 1：データロガーおよび計測プログラムを設定し計測およびデータ収録を開始する。

Step 2：給水タンクのコックを閉じたまま、試験容器の給水コックを開ける。

Step 3：給水経路中に接続した真空ポンプを運転し、給水経路内を数時間排気する。

Step 4：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。

Step 5：計測データに異常がないことを確認し、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。

Step 6：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。

Step 7：試験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。

Step 8：各計測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。

Step 9：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それぞれ目標の大きさまで上昇させる。

Step11：遠心加速度が目標の大きさまで到達したことを確認し試験開始とする。注水圧を 100 kPa に保持するよう調整しつつ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：試験容器から供試体を押し抜き脱型する。脱型し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：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 5 mm 毎に押し出した後、押し出し量を 1/100 mm 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。各層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。

(d)水分量センサーのキャリブレーション

供試体と同一の材料を用いて含水比を調整した後に、乾燥密度ρ_d = 1.6 Mg/m^{3}に締固めた緩衝材を用いて水分量センサーのキャリブレーションを実施した。図 2.6-58 に飽和度 S_rと水分量センサーの出力電圧 Vの関係を示す。図には、最小二乗法により求めた近似式を併せて示した。キャリブレーションの結果、今回使用した水分量センターの電圧 V と飽和度 S_rの関係として、以下の式を得た。

$$V = 4.14S_r^3 - 12.70S_r^2 + 25.10S_r + 26.41 \quad (2.6\text{-}1)$$

キャリブレーション用の緩衝材は、事前に材料を均質に混ぜて含水比が 10%になるように調整したが、試験で使用した水分量センサーは、図 2.6-58 のエラーバー（誤差範囲）で示すように、飽和度に 5%程度の誤差を含む。これは、センサーが 2 極法のため計測する電圧が差動信号でないこと、緩衝材と電極の接触加減により出力が変化する可能性があることなどが要因である。

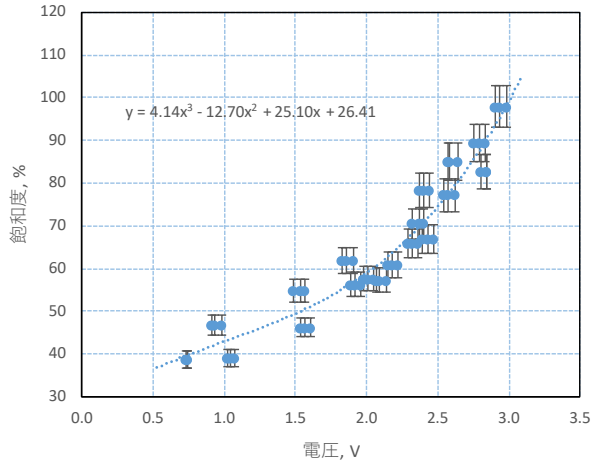


図 2.6-58　水分量センサーのキャリブレーション結果および検量線

② 試験結果

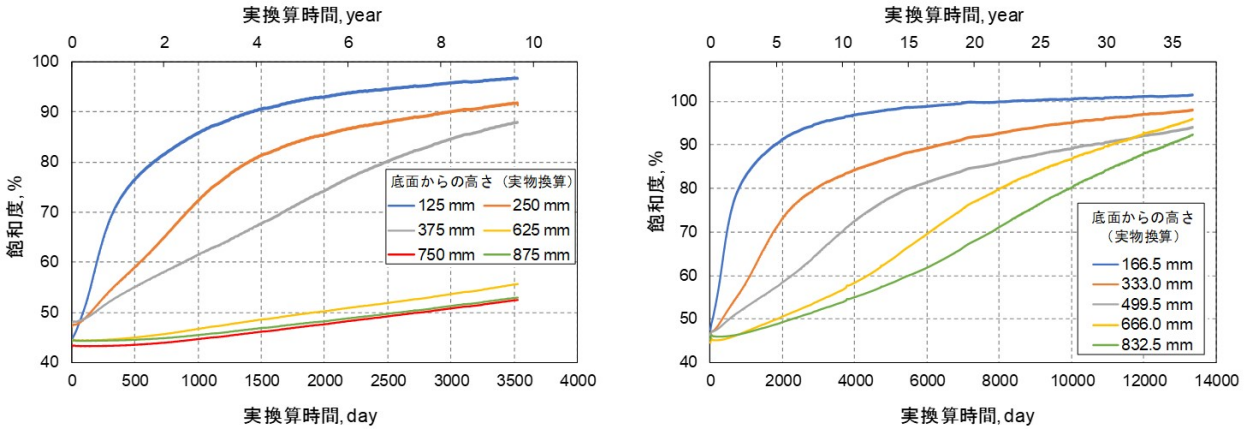
(a) 試験中の飽和度の測定結果

20G 場試験と 30G 場試験における水分量センサーの出力電圧から求めた飽和度と実換算経過時間の関係を図 2.6-59 に示す。図中の時間 0 は、遠心力が所定の加速度に達し、注水圧が 100 kPa となった時点である。また、飽和度は実物の高さに換算した供試体下端面からの高さ位置で示した。時間 0（試験開始時）における飽和度は、43～48%の範囲でばらつきが見られるが、水分量センサーには 5%程度の誤差が存在するため、誤差の範囲内において同程度の飽和度と見なすことができる。

試験開始後の時間経過とともに、下方の水分量センサーから順に各計測位置の飽和度は増加した。20G 場試験の試験終了時点（実物換算で約 9.6 年）では、d = 125 mm における飽和度は約

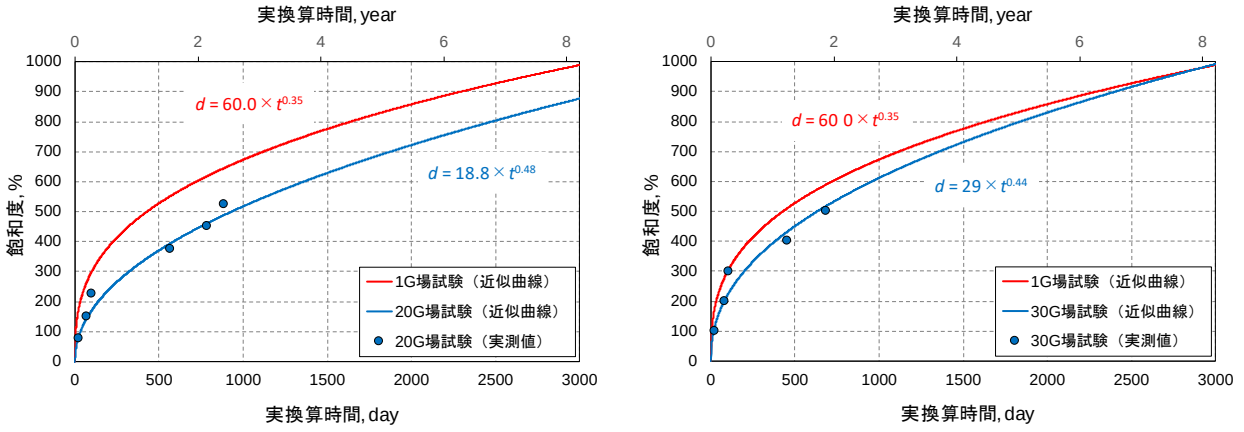
97%であり、d = 625 mm 以上では飽和度の増加量は相対的に小さく約 52～55%であった。30G 場試験では、試験終了時点（実物換算で約 36.5 年）の飽和度は、全ての計測位置で 90%以上であった。

飽和度が初期値から 1%増加した位置を浸潤フロントと定義し、20G 場試験と 30G 場試験における浸潤フロントの進展状況を図 2.6-60 に示す。遠心模型試験では、試験装置の制約により注水圧を 100 kPa に設定しており、1G 場試験の注水圧 60 kPa とは異なる。そのため、図中に示した浸潤フロントは、ダルシー則が成立すると仮定して、ある飽和度における浸潤距離を注水圧の比で除して補正した値で示した。また、図には、1G 場試験の結果から得られた飽和フロントの推定式 $d = 60 \times t^{0.35}$を併せて示した。浸潤フロントの進展状況から、毛細管現象による水の拡散速度の理論式である Washburn 式（$d = c \times t^{0.5}$、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）に当てはめると 20G 場試験では $d = 18.8 \times t^{0.48}$、30G 場試験では $d = 29.0 \times t^{0.44}$ となり、Washburn 式に近い傾向であった。



a) 20G 場試験　　b) 30G 場試験

図 2.6-59　実物換算経過時間と飽和度の関係



a) 20G 場試験　　b) 30G 場試験

図 2.6-60　遠心模型試験における注水圧を補正した浸潤フロントの進展状況

(b) 試験後の飽和度などの測定結果

試験終了後に試験容器から供試体を脱型して X 線 CT 撮影を行った結果を図 2.6-61 に示す。また、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分布（湿潤状態）を併せて図に示した。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。CT 値は局所的な値であるため、ベントナイトの位置に比べてケイ砂の粒の位置に対応する部分の密度は相対的に高い値として示されている。

試験終了後に測定した 20G 場試験と 30G 場試験における供試体の含水比、飽和度、及び密度を表 2.6-22 及び表 2.6-23 に示す。試験後の緩衝材の密度は、供試体を高さ方向に約 5 mm 毎にスライスし、試料高さ、湿潤及び乾燥状態の重量の実測値を用いて算出した。なお、試料の直径は、供試体の直径と同じ 50 mm とした。また、土粒子密度は 2.705 g/cm^3（原子力環境整備促進・資金管理センター, 2018b）として含水比、飽和度を求めた。なお、45～50 mm はサンプリング中に供試体が容器から脱落して分割できなかったため 40～50 mm として測定した。また、0－5 mm の範囲では飽和度が 100%を超えていたが、供試体の注水側に近いため下端面に注水した水が付着していた可能性が考えられる。

表 2.6-22 及び表 2.6-23 に示したサンプリングの結果から、供試体の下方から上方に向かって飽和度は低下しており、図 2.6-59 に示した水分量センサーで求めた試験終了時点の飽和度の傾向と一致していた。ただし、水分量センサーで求めた飽和度に比べて、サンプリングの結果から求めた飽和度は低くなる傾向にあった。図 2.6-61 の左図には、CT 値とサンプリング結果から得られた試験終了時点の湿潤密度を示す。CT 値から得られた湿潤密度に比べてサンプリング結果から得られた湿潤密度は低くなる傾向にあった。試験後のサンプリング時には、試料の乾燥を防ぐために養生などの対策を実施したが、試料の厚さが 5 mm 程度ということもあり乾燥を完全に防ぐことができなかった可能性がある。そのため、サンプリングから得られた密度は低下したことが考えられる。また、20G 場試験において、25～30 mm の飽和度、20～25 mm 及び 30～35 mm の乾燥密度が、その上下に比べて大きく異なっている。これは、脱型時に 5～35 mm 付近に亀裂が生じたことにより、サンプリングされた緩衝材の体積や質量が正確に測定できていな可能性がある。

X 線 CT 装置は測定対象物に対する大きさや装置の X 線強度（透過能力）の制限があるが、供試体を解体する必要がないため、試料を乱すことなく短時間で CT 値を得ることができ、その CT 値から供試体の密度を算出することができる。そのため、X 線 CT 装置は、縮小模型を用いた遠心模型試験における緩衝材などの密度測定には有効な測定方法である。

表 2.6-22　20G 場試験における試験後の供試体の含水比、飽和度、密度

底板からの試料採取位置 (mm)	実物換算高さ (mm)	試料高さ (mm)	体積* (cm^3)	湿潤質量 (g)	乾燥質量 (g)	含水比 (%)	飽和度** (%)	湿潤密度 (Mg/m^3)	乾燥密度 (Mg/m^3)
0-5	0-100	4.25	8.35	19.30	15.40	25.3	146.9	2.312	1.845
5-10	100-200	5.15	10.11	19.79	16.12	22.8	88.5	1.958	1.595
10-15	200-300	5.53	10.86	20.39	17.06	19.5	73.1	1.877	1.571
15-20	300-400	5.29	10.38	19.08	16.32	16.9	63.5	1.838	1.572
20-25	400-500	4.85	9.52	18.46	16.19	14.0	64.3	1.940	1.702
25-30	500-600	6.09	11.96	20.52	18.29	12.2	42.9	1.716	1.530
30-35	600-700	3.80	7.47	14.80	13.39	10.5	55.9	1.981	1.792
35-40	700-800	5.07	9.95	16.83	15.20	10.7	37.6	1.691	1.527
40-50***	800-1000	9.97	19.58	32.36	29.09	11.2	37.1	1.653	1.486

*供試体の直径を 50.00 mm として算出

**土粒子密度ρ_sを 2.705 g/cm^3として算出

***採取位置 45～50 mm は容器から自重で落下したため分割して測定できなかった

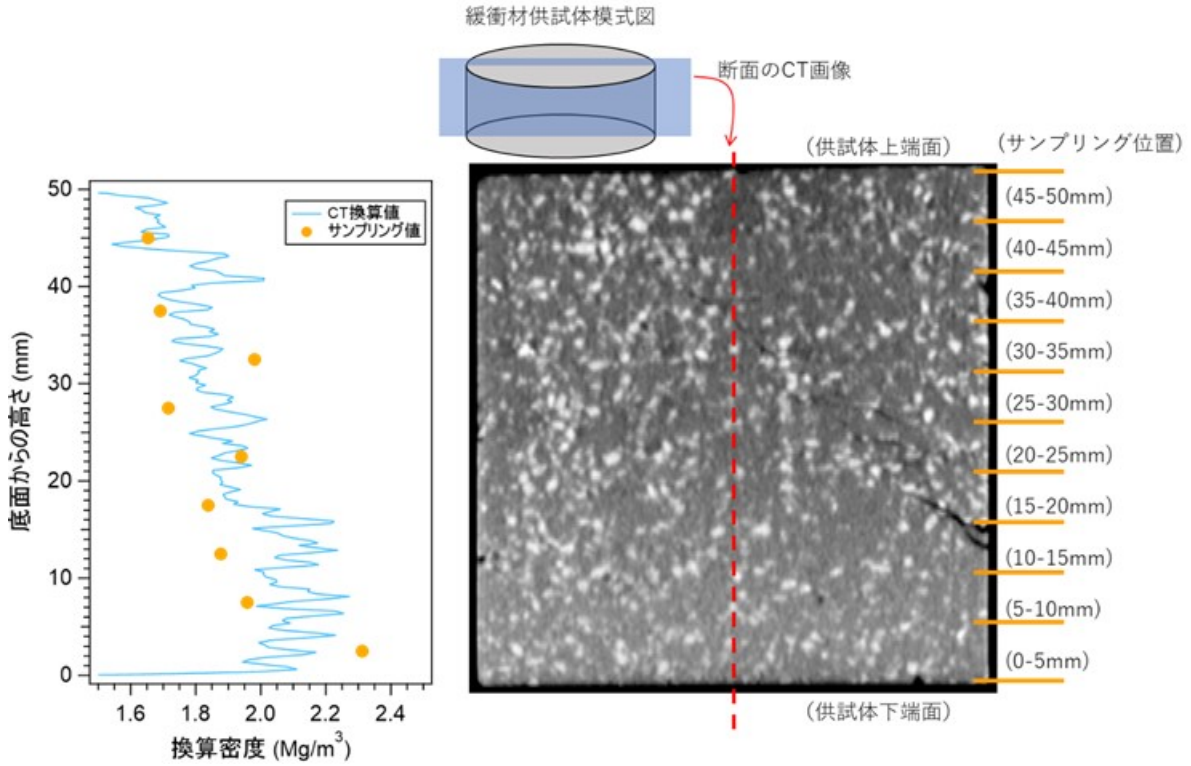
表 2.6-23　30G 場試験における試験後の供試体の含水比、飽和度、密度

底板からの試料採取位置 (mm)	実物換算高さ (mm)	試料高さ (mm)	体積* (cm^3)	湿潤質量 (g)	乾燥質量 (g)	含水比 (%)	飽和度** (%)	湿潤密度 (Mg/m^3)	乾燥密度 (Mg/m^3)
0-5	0-150	4.69	9.20	20.89	16.46	26.9	142.2	2.270	1.789
5-10	150-300	4.93	9.67	18.80	15.20	23.7	88.8	1.944	1.572
10-15	300-450	5.06	9.94	19.17	15.59	23.0	85.7	1.928	1.568
15-20	450-600	4.88	9.59	18.52	15.33	20.8	81.3	1.931	1.599
20-25	600-750	5.15	10.12	19.15	16.03	19.5	74.5	1.893	1.585
25-33.33***	750-1000	8.62	16.92	30.69	25.96	18.2	64.6	1.814	1.534

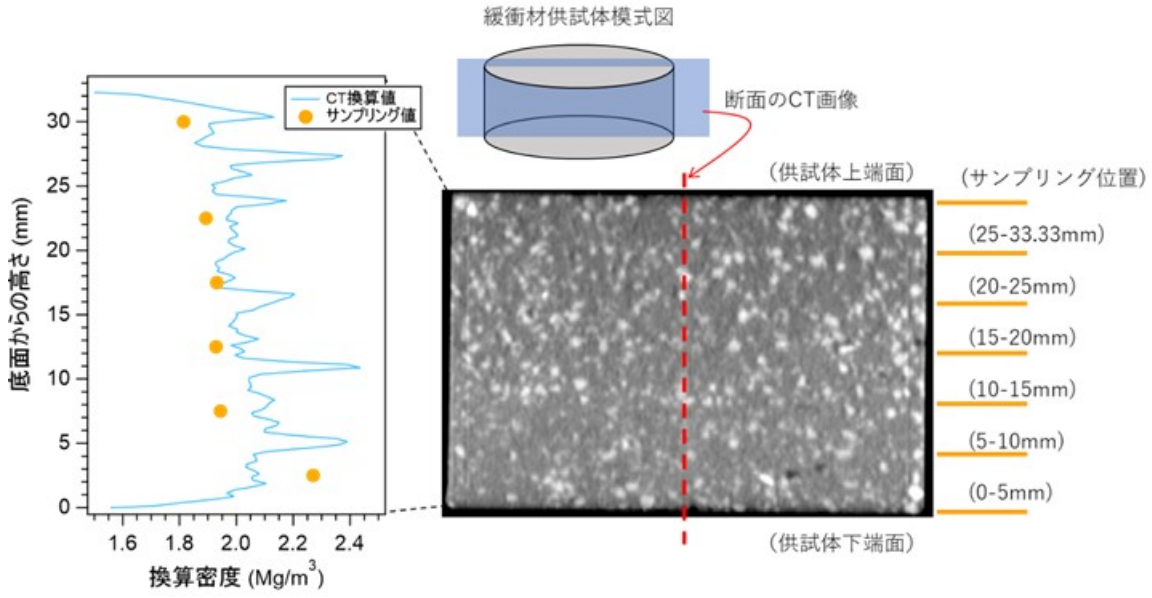
*供試体の直径を 50.00 mm として算出

**土粒子密度ρ_sを 2.705 g/cm^3として算出

***採取位置 25～33.33 mm は容器からの切削時に脱落したため分割して測定できなかった



a) 20G 場試験



b) 30G 場試験

図 2.6-61　試験後の CT 撮影による供試体の断面画像と CT 値から換算した密度分布

③ 浸潤速度に対する模型縮尺と遠心加速度の影響

緩衝材中の水の浸潤挙動に対する加速試験としての遠心模型試験の適用性を確認するために、1G 重力場および遠心模型試験の浸潤フロント、飽和度 50%、75%、飽和フロントの位置と時間の関係を比較した。

20G、30G 場試験における浸潤フロント、飽和度 50%、75%、飽和フロントの位置と時間の関係を図 2.6-62 から図 2.6-65 に示す。図には、40G 場試験の結果（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019）を併せて示した。20G～40G 場試験における浸潤フロント、飽和度 50%、75%、飽和フロントは、時間の経過とともに同様の傾向で増加した。20G～40G 場試験の各飽和度における浸潤距離にはばらつきは見られるが、模型縮尺及び遠心加速度による依存性は見られなかったことから、遠心加速度 20G～40G では遠心模型試験の相似則が成立していると考えられる。

また、図 2.6-62 から図 2.6-65 には 1G 場試験及び 20G～40G 場試験における測定結果の近似曲線を示した。なお、飽和フロントについてはデータ数が少ないため、図 2.6-65 では参考として近似式を示した。1G 場試験と遠心模型試験の近似曲線を比較すると、飽和度 50%までの遠心模型試験と 1G 場試験では、浸潤距離と経過時間の関係の差は小さいことがわかる。飽和度が 75%以上では両者の差は大きくなり、1G 場試験に比べて遠心模型試験の浸潤速度は遅くなる傾向が見られた。遠心模型試験では、遠心加速度の不均一性（模型の重心位置を基準に遠心加速度を設定）や材料と模型の寸法効果（模型を縮尺してもケイ砂の粒径などの材料の縮尺は変更できない）などの試験上の制約があるため、遠心模型試験で 1G 場試験の結果を完全に再現することは難しかった。ただし、1G 場試験と遠心模型試験における緩衝材中の水の飽和までの時間差を定量的に把握した上で、人工バリアを含む遠心模型試験を実施することにより、実スケールの緩衝材の飽和時間の推定や再冠水後の人工バリアの状態把握に活用できると考えられる。

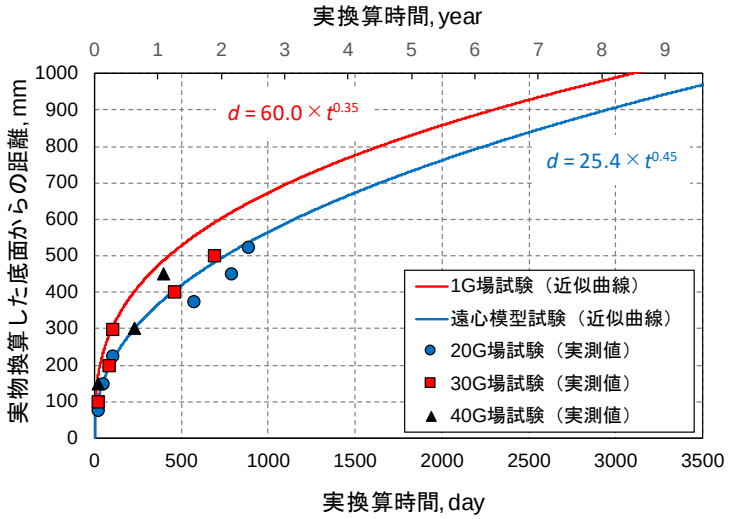


図 2.6-62　1G 場試験および遠心場試験における浸潤フロントの進展状況

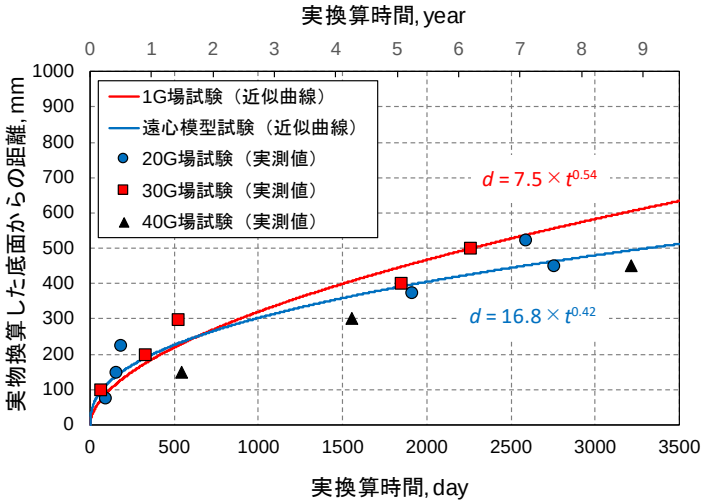


図 2.6-63　1G 場試験および遠心場試験における飽和度 50%の進展状況

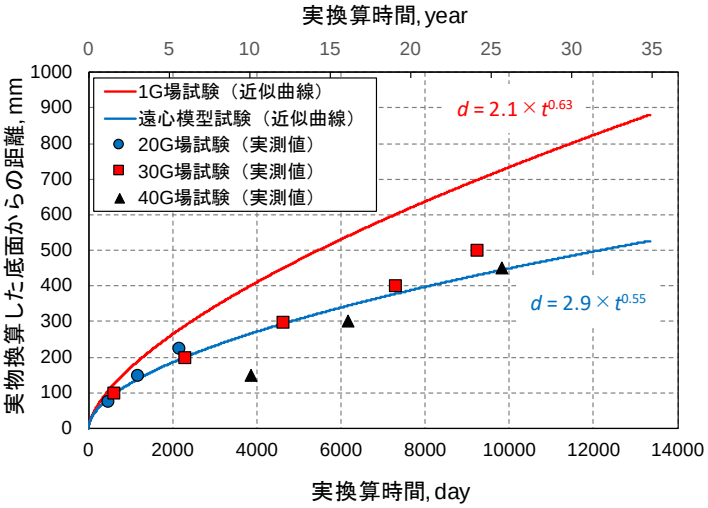


図 2.6-64　1G 場試験および遠心場試験における飽和度 75%の進展状況

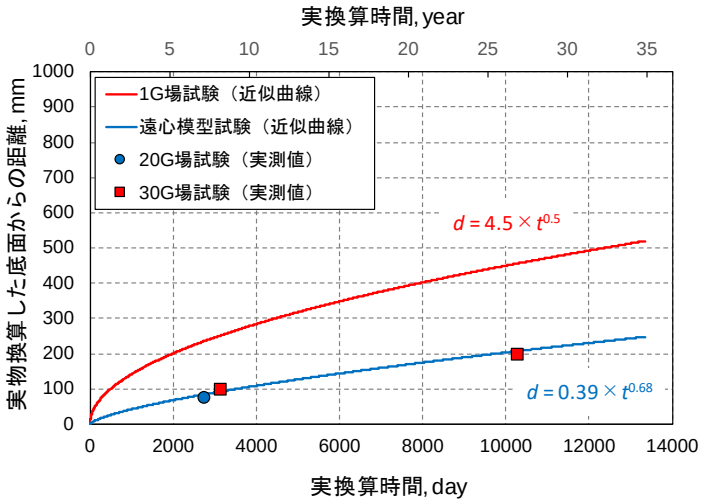


図 2.6-65　1G 場試験および遠心場試験における飽和フロントの進展状況

③　一次元浸潤速度取得試験（1G 場試験）の数値解析

(a) 数値解析コード

数値解析コードは熱・水・応力（THM）連成解析コードである“放射性廃棄物地層処分における地下空洞長期安定性解析プログラム（LOSTUF）”（澤田ほか, 2006）を使用した。力学モデルは等方線形弾性体と仮定した。膨潤評価式のパラメータについては文献の値（小峯・緒方, 1999）を用いた。

(b) 解析モデル

1G 場試験の数値解析モデルを図 2.6-66 に示す。直径 50 mm、高さ 1,000 mm の供試体の軸対称 FEM メッシュを作成し、要素分割は高さ方向に 40 分割とした。力学拘束条件は全周をローラー支持（垂直方向は固定、水平方向は移動可能）とし、モデル下端の給水側境界として圧力を 60 kPa で一定とし、上端の排水側境界は浸出面境界として設定を行った。試験条件では初期は流量一定で制御され、30 日経過時頃より圧力一定条件で制御されているが、解析では最初から圧力一定条件とした。下面から給水された水分が上面に到達し、飽和に至ることで浸出面境界より排水され、大気圧で一定の境界となるよう設定した。温度については特に加熱などの制御は行われていないため、平均的な温度としてモデル全体を 17℃で一定とした。

浸潤解析で用いる緩衝材の力学特性、膨潤特性、水理特性には、既往研究（原子力環境整備促進･資金管理センター, 2016 ; 2017 ; 2018b）で実施した要素試験の結果を用いて設定した。浸潤解析に用いた緩衝材の物性パラメータを表 2.6-24 に示す。表中には、要素試験の結果から統計的にばらつきが評価可能なものについては平均値と$\pm 2\sigma$を示し、試験数量の不足などによりばらつきが評価できなかった透水係数については最大値及び最小値を示した。ヤング率は飽和度との関係で整理された回帰式から、緩衝材の初期飽和度相当の飽和度 40%における剛性を設定した。また、飽和時のヤング率として 10 MPa を設定した。なお、ポアソン比については、要素試験結果では 0.5 に近かったが、今回の解析では土材料の一般的な値として 0.3 を設定した。また、緩衝材の保水特性として van Genuchten（VG）モデル（van Genuchten, 1980）を用い、$\alpha = 0.244$ MPa^{-1}、$n = 1.53$ とした。

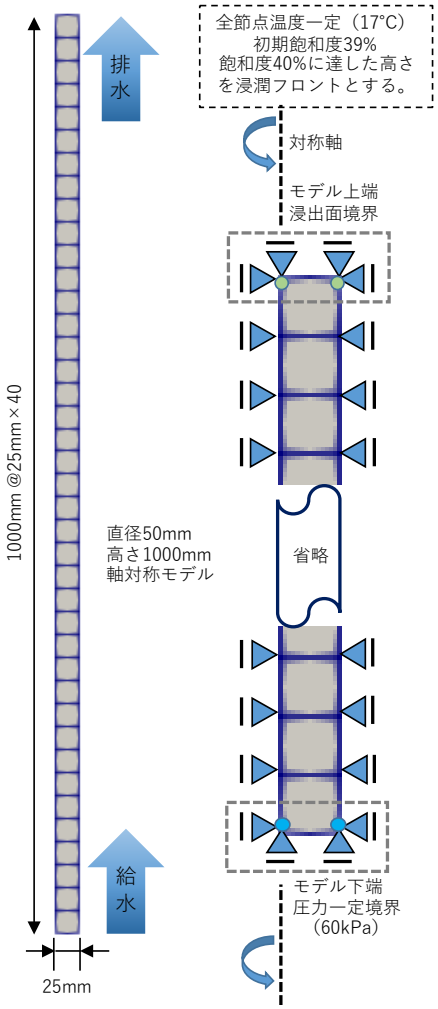


図 2.6-66　一次元浸潤速度取得試験（1G 場試験）の数値解析モデル

表 2.6-24　浸潤解析に用いた緩衝材の物性パラメータ

物性項目	−2σor 最小値	平均値	+2 σor 最大値
乾燥密度（Mg/m^3）	1.557	1.591	1.625
透水係数（m/s）	4.10×10^{-13}	4.70×10^{-13}	5.50×10^{-13}
飽和度 40%時ヤング率（MPa）	64	101	138
飽和時ヤング率（MPa）	10		
間隙率（%）	0.402	0.414	0.426
ポアソン比	0.30		

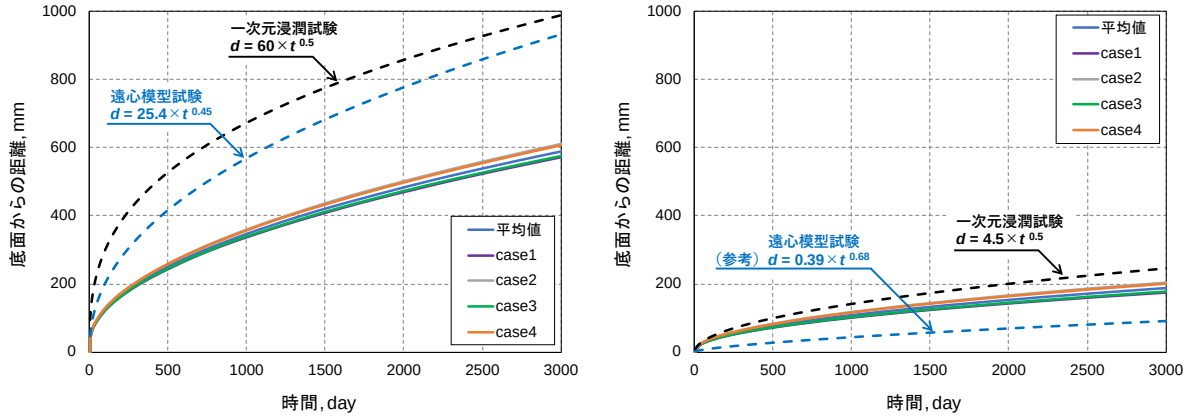
(c) 浸潤解析と試験の結果の比較

緩衝材の力学特性、膨潤特性、水理特性のばらつきが浸潤速度に及ぼす影響を把握するために、表 2.6-25 に示す透水係数及び間隙率をパラメータとして浸潤解析を行った。表 2.6-24 に示した乾燥密度とヤング率のばらつきについては、事前の予備解析で浸潤速度に及ぼす影響は無視できるほど小さい（1G 場試験では緩衝材の周囲が拘束された条件のため、緩衝材の変形が透水性に及ぼす影響が小さい）ことを確認している。

緩衝材の水理特性をパラメータとした浸潤解析と 1G 場試験及び遠心模型試験の結果を図 2.6-67 に示す。全ての解析ケースで 1G 場試験よりも浸潤速度は遅くなる傾向にあり、±2σの範囲で透水係数及び間隙率を変化させても、浸潤速度の変化量は小さかった。これらのことから、緩衝材の飽和時の水理特性のばらつきが浸潤速度に及ぼす影響は小さいことがわかった。

表 2.6-25　緩衝材の物性値のばらつきに関する検討ケース

検討ケース	透水係数 (m/s)	間隙率	ヤング率 (MPa)	乾燥密度 (Mg/m³)
平均値	4.70×10^{-13}	0.414	101	1.591
Case1	4.10×10^{-13}			
Case2	5.50×10^{-13}			
Case3	4.10×10^{-13}	0.402		
Case4	5.50×10^{-13}	0.426		



a）浸潤フロント（飽和度 40%）　　b）飽和フロント（飽和度 95%以上）

図 2.6-67　緩衝材の水理特性をパラメータとした解析結果と試験結果の比較

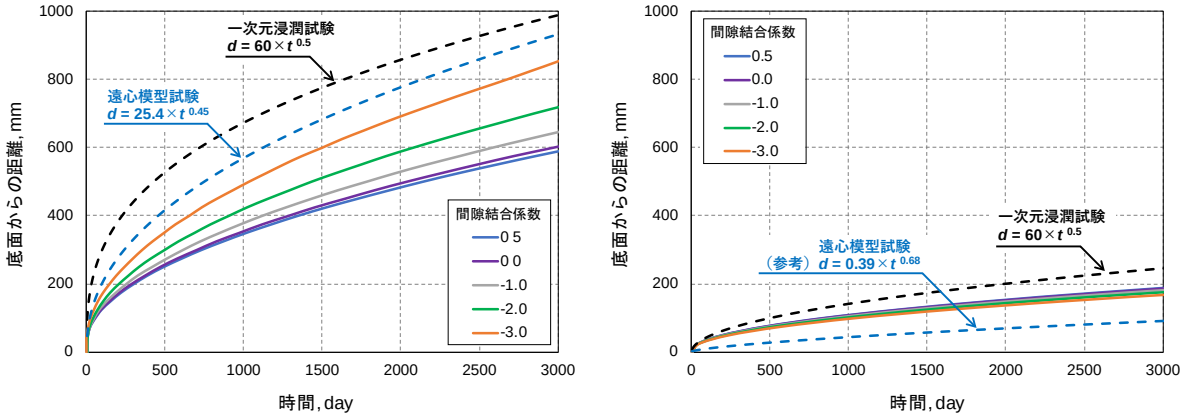
不飽和土の浸潤速度に支配的なパラメータの一つとして相対透水係数（不飽和透水係数と飽和透水係数の比）があり、VG モデルのパラメータから計算される相対透水係数は一般に間隙結合係数を 0.5 とした場合の特性である。このパラメータは土壌材料によって大きく変わることが知られている。そのため、間隙結合係数をパラメータとして浸潤速度に及ぼす影響を確認した。

間隙結合係数をパラメータとして、浸潤解析の結果から得られた浸潤フロント（飽和度 40%）と飽和フロント（飽和度 95%以上）における底面からの距離と経過時間の関係を図 2.6-68 に示す。浸潤フロントに比べて飽和フロントに対する間隙結合係数の依存性は小さかった。

図には、一次元浸潤試験と遠心模型試験から得られた浸潤フロント及び飽和フロントの結果を点線で示した。一次元浸潤試験と浸潤解析を比較すると、浸潤フロントと飽和フロントともに浸潤解析の浸潤速度が遅く、解析結果は一次元浸潤試験の結果を再現できていなかった。浸潤過程は不飽和から飽和に至る過程であり、不飽和を対象とした解析で 1G 場試験と同程度の浸潤速度が得られなければ、緩衝材の飽和フロントや飽和後の状態を適切に表現することは難しい。図 2.6-68 a)の結果から、現状では浸潤解析において緩衝材の不飽和特性が適切に表現できていない

と考えられる。

緩衝材を対象とした浸潤解析で妥当な結果を得るためには、まずは不飽和特性を適切に考慮するとともに、緩衝材の乾燥密度を変えることで不飽和特性などをパラメータとした浸潤解析を実施することが必要になると考えられるが、緩衝材の透水係数が低いことから解析結果の妥当性確認のための試験には長期間を要する。図 2.6-62 から図 2.6-65 に示したように、一次元浸潤試験と遠心模型試験の結果が完全に一致するわけではないが、例えば、1/40 の縮小模型を用いて 40G の遠心加速度で 10 日間の遠心模型試験を実施することにより、約 40 年相当の浸潤試験結果を得ることができた。1G 場試験と遠心模型試験の結果の差には留意する必要があるが、浸潤解析の精度向上や解析結果の妥当性確認のために遠心模型試験は有効な手段になると考えられる。



a) 浸潤フロント（飽和度 40%）　　b) 飽和フロント（飽和度 95%以上）

図 2.6-68　間隙結合係数をパラメータとした解析結果と試験結果の比較

③ まとめ

遠心模型試験では、緩衝材への水の浸潤を対象とした加速試験としての有効性を確認するために、模型縮尺と遠心加速度をパラメータとして緩衝材中の飽和度と経過時間などに関する試験データを取得した。その結果、20G～40G 場試験では、飽和度と実物換算した底面からの距離の関係にばらつきはみられるが、模型の縮尺と遠心力の大きさに依らず概ね一致した結果が得られたことから、遠心場の相似則が成立していることが示された。ただし、一次元浸潤速度取得試験（1G 場試験）の結果と比較すると、20G～40G 場試験では浸潤速度が遅くなる傾向が見られた。遠心模型試験では、遠心加速度の不均一性（遠心試験では、遠心加速度を供試体の重心に設定するため、重心より下では加速度が高く、上では加速度が低くなる）や材料（砂など）と模型の寸法効果などの試験上の制約がある。そのため、遠心模型試験で 1G 場試験の結果を完全に再現することは難しかったと考えられる。しかし、1G 場試験と遠心模型試験における緩衝材中の水の飽和までの時間の違いを定量的に把握した上で、人工バリアを含む遠心模型試験を実施することなどにより実スケールの緩衝材の飽和時間を推定することができ、再冠水後の人工バリアの状態をより確からしく把握することができると考えられる。また、例えば、1/40 の縮小模型を用いて 40G の遠心加速度で遠心模型試験を実施した場合には、10 日間の試験期間で約 40 年相当の浸潤試験結果を得ることができるため、1G 場試験と遠心模型試験の結果の差を把握した上で、浸潤解析の精度向上や解析結果の妥当性確認のために遠心模型試験は有効な手段になると考えられる。

3) 海外の再冠水プロセスに関する評価方法

① はじめに

本事業では、スウェーデンの処分実施主体である SKB 社より、緩衝材の再冠水に至るプロセスに関する解析的手法及び解析的評価に必要な情報の提供を受けている。平成 31 年度は、緩衝材の再冠水プロセスの評価に関する SKB 社の経験（先行的な取組に基づく知見）として、ベントナイトの再冠水プロセスと緩衝材の健全性に関連する SKB 社の戦略及び方法論についての情報提供を受けた。以下にその概要を示す。

② SKB 社の戦略と方法論

(a) 安全評価の方法論

最終処分場の閉鎖後の安全評価にあたり、処分システムとその変遷に関する科学的及び技術的に裏付けられた知見を整理して明確に示すことは、安全性を示すための文書化において重要な要素である。

安全評価『SR-Site』（SKB 社による建設許可申請に係る安全評価書（SKB, 2011））は以下に示す 11 の主要ステップで構成されており、ベントナイトの再冠水プロセスはステップ 4（プロセスの記述）で記述されている。

- ステップ1：FEPの処理
- ステップ2：初期状態の記述
- ステップ3：外部条件に関する記述
- ステップ4：プロセスに関する記述
- ステップ5：安全機能の定義
- ステップ6：データのコンパイル
- ステップ7：レファレンス変遷の分析
- ステップ8：シナリオの選定
- ステップ9：選定されたシナリオの分析
- ステップ10：追加的な分析と補足的な論拠
- ステップ11：結論

(b) プロセスの記述

長期の処分場システムで発生する様々なプロセス（変遷の過程）に関する充分な検討と理解がなされることは、安全評価にとって重要である。そのための基本的な情報源は、すでに数十年にわたり SKB 社及びその他の組織が行ってきた研究開発活動で得られた成果である。研究開発活動により、人工バリア及び長期安全性と関連性の高い多くのプロセスが抽出された。

安全評価におけるプロセスの取り扱い方法はプロセス表としてまとめられている。プロセス表は、必要に応じて、考慮すべき期間ごとに記述されている。その上で、抽出されたプロセスが定量化されるべきか、それがどのように扱われるかに関して簡略に記述されている。

プロセス表における記載は、再冠水期間と再冠水後の長期の 2 つの時間枠に分類されており、緩衝材に関しては全部で 26 のプロセスが取り上げられている。26 のプロセスのうち、再冠水期間でモデル化の必要性があるとされている 12 のプロセスとその評価方法を表 2.6-26 に示す。

表 2.6-26　再冠水期間にモデル化すべきプロセスと評価方法

再冠水期間でモデル化すべきプロセス	評価方法
熱影響（Heat transport）	・システムモデル
不飽和状態における吸水および輸送 (Water uptake and transport for unsaturated conditions)	・THM モデル
パイピング/エロージョン（Piping/ Erosion）	・モデルスタディ
膨潤/質量再分配（Swelling/ mass redistribution）	・THM モデル（緩衝材/埋め戻し材と熱膨張（thermal expansion）の相互作用を含む） ・システムモデル（最終膨潤）
移流による核種の移動 （Advective transport of species）	・冠水時の溶存種の物質以降に関する簡易的な仮説
核種の拡散移動 （Diffusive transport transport of species）	・化学モデル（熱　飽和/不飽和は無視する）
吸着（イオン交換を含む） （Sorption(including ion-exchange)	
不純物の変質	
溶存化学種及びその反応 （Aqueous speciation and reaction）	
浸透（Osmosis）	・実証データとの比較による評価
モンモリロナイトの変質 （Montmorillonite transformation）	・モデル計算（熱　飽和/不飽和は無視する）
セメンテーション（Cementation）	・モンモリロナイトの変質と共通の議論

(c) 再冠水プロセスの安全評価での取り扱い

プロセスに関する記述内容は、第 7 のステップであるレファレンス変遷の分析で用いられることになる。レファレンス変遷の分析は、それ以前の 6 つのステップに関するすべての記述に基づいて、処分システムの基本的な変遷に関する定義及び分析が行われる。その中には再冠水期間のプロセスも含まれる。プロセスに関しては『プロセス報告書』（SKB, 2010）に詳細に記述されており、人工バリア及び母岩と関連性が高いプロセスに関する知見と、安全評価におけるそれぞれプロセスの取り扱い方法も記載されている（たとえば、実験や分析の裏付けなどに基づくことなど)。

その後行われる安全評価におけるシナリオ選定は､レファレンス変遷の分析を基に実施される。「主要シナリオ」は、レファレンス変遷により構築されている。さらに、処分システムの安全機能が維持されない状況を引き起こす可能性を扱う「追加シナリオ」が作られる。すなわち追加シナリオは安全機能の支配的な役割を果たす「閉じ込め」が維持されない場合のシナリオである。スウェーデンの方法では、再冠水期間にベントナイトに起こる可能性のある変遷のすべてがレファレンス変遷（主要シナリオ）の中で扱われており、追加シナリオには取り上げられていない。これは、再冠水期間に起こる安全を損なうと考えられる環境に対し、指標を設けて除外しているためだと考えられる。例えば、処分孔は湧水量が 0.1 L/min 以上の場合は使用しないとされており、これによって、緩衝材の流出があっても緩衝材の機能にも影響を及ぼさない程度の流出量におさまると考えられている。緩衝材の機能に最も影響を及ぼすと考えられているプロセスは、長

期変遷として扱われるエロージョン（ケミカルエロージョンと呼ばれることもある）であり、これは、気候の長期変動により間氷期に氷河が溶けることによって、処分場周辺の地下水が淡水化することより、緩衝材が分散して亀裂などに流出するプロセスである。

スウェーデンのシナリオの選定は、スウェーデンの規制要件に従い、地下環境と処分概念をもとに行われているため、日本の評価手法にそのまま取りいれることはできず、日本の地下環境と処分概念を基にプロセスを抽出し、シナリオを構築することが必要である。そのため、地質、水理環境を踏まえたプロセスの把握と、人工バリアの性能を損なわないための処分場の設計指標に資する定量的評価を進めることが重要である。

2.6.3　2 か年の成果と今後の課題

(1) 流出を抑制する工学的対策の具体化

平成 31 年度は、「ケイ砂による隙間処理」の効果について検討を行った。原位置試験では、処分孔竪置きブロック方式の処分概念を検討対象として、緩衝材の流出抑制効果を確認し、実現性のある工学的対策オプションの 1 つとしての見通しを示すことを目標とした。室内試験は原位置試験の予備試験、及び補足データの取得を行った。

原位置試験、工学規模試験の予備試験として、小型試験によって、隙間の充填にケイ砂を用いた場合の工学的対策としての継続の確認と、ケイ砂の粒径の効果を検討した。ケイ砂の粒径を 3 号、5 号、3+5 号と変えた試験によって、隙間を充填しないケースとの比較で、ケイ砂を充填する効果が 2 ヵ月以上継続することを確認するとともに、用いた範囲の粒径の変化は効果に影響しないことが明らかとなった。これらの結果より、ケイ砂充填の際に落下による充填がし易いなどの施工性の観点から、粒径の大きい 3 号ケイ砂を用いて、原位置試験及び工学規模試験を行うこととした。

原位置試験においてケイ砂による隙間処理を実施したケースについては、試験期間 29 日における緩衝材の総流出量は 558 g、総排水量は 29,000 L、試験終了時の流出割合（試験開始時の試験体（緩衝材）の乾燥重量 298 kg に対する総流出量の割合）は 0.2%となった。ケイ砂充填することにより、緩衝材流出量の増加の要因となる「排水量（湧水流速）の増加」に対し、「流出濃度の増加が生じない」という結果を得た。これは、以下に記載したケイ砂充填に期待する 2 つの効果が発揮されたためと見込まれる。

- ケイ砂を隙間に充填することで隙間領域が減り、緩衝材の膨潤による界面の密度が低下する領域が減る効果（緩衝材界面のせん断強度を保つ効果）
- 地下水と緩衝材界面との接触面積を減らすとともに、緩衝材の膨潤に伴う隙間（流路）断面積の減少を抑制することにより、湧水流速の増加が抑えられ、緩衝材界面からの流出を抑制する効果（湧水の流速に起因するせん断力を減ずる効果）

工学的対策を施さない隙間未充填のケースについては、試験期間 56 日における緩衝材の総流出量は、3,325 g、総排水量は 7,444 L、試験終了時の流出割合は 1.1%となった。未充填ケースでは、試験開始後 6 日後の流出濃度のピークから 30 日後までの流出濃度の値がケイ砂充填ケースに比べて高く、「流出濃度の高さ」に起因して緩衝材の総流出量が初期に増加した。

一方で、試験開始後 30 日以降は、緩衝材の膨潤による隙間の閉塞が進行し、流出濃度および排水量が減少、緩衝材流出量が初期に比べて減少する結果を得た。ただし、試験終了時においても、排水が 0 mL とはならず、20 mL/min 程度の排水が継続し、流出の継続が確認された。長期に継続する場合は、少量であっても流出が継続することは緩衝材量の損失につながるため、さらに長期的な試験によって確認する必要があると考える。

ケイ砂充填ケースの流出試験の終了後、緩衝材上部の鋼製蓋を撤去後、緩衝材最上面の浸潤状

況を目視観察した結果、湧水による緩衝材外側からの浸潤距離は、どの位置においても、約 40 mm 程度であり、緩衝材外側よりほぼ均一に浸潤している状況であった。一方、未充填ケースでは、湧水の浸潤距離は、緩衝材の位置により約 40～70 mm とバラつきがあり、ケイ砂充填ケースの浸潤状況と比較すると、緩衝材への不均一な浸潤が生じていた。また、流出試験終了後に試験孔内から回収した緩衝材に対し、山中式土壌硬度計を利用して、緩衝材の各箇所の硬度を確認した結果、浸潤状況の目視確認結果と同様に、ケイ砂充填ケースに比べ、未充填ケースの硬度の値は、ブロックの位置、段数によりバラつきが生じる結果を得た。

上記の結果より、ケイ砂による隙間充填に期待する効果として、不均一な処分孔壁からの湧水に対し、ケイ砂領域を介することで、緩衝材界面への浸潤環境を単純化することができる見込みを得た。

試験後、供試体を解体して乾燥密度と含水率の分布を測定した。原位置での試験で測定した結果では、ケイ砂充填ケースの方が、密度が高く、含水率のバラつきも小さい傾向が見られた。ただし、最も外側の部分は、試験後の試験孔からの引き上げの際に削られるため、計測ができないこともあり、最外周部の密度の減少に関するデータは得られず、2 つのケースで顕著な差は見られなかった。室内試験では、供試体との接触面が平滑なセルを用いているために、試料の採取が容易であり、解体時の供試体の形状も保たれるため、原位置の試験より精度よく乾燥密度、含水率を計測することができる。小型試験では、同条件の試験により、ケイ砂充填ケースの方が密度の分布幅が低いことが認められた。また、工学規模試験においてもケイ砂充填ケースにおいて、浸潤がほぼ均等に進んでいる結果が得られた。再冠水プロセスの解析評価に反映するためには、原位置の試験結果による環境の影響を把握し、室内試験により定量的な把握と現象のモデル化をしていくことが有効である。緩衝材の流出が継続する期間を考慮して、長期的な緩衝材流出現象の推移を見積もるために試験を行うことが必要であり、長期的な水理環境の変化を試験に取り込むための条件設定が今後の課題である。

緩衝材の膨潤によって、原位置においては岩盤に圧力が伝搬するために湧水環境が変化する可能性がある。これは、ケイ砂充填ケースの試験において、経時的に試験孔上部への排水量が増加したこと、ひずみの解析によって、亀裂が開いてもおかしくない状況が得られたことによって示唆された。ケイ砂充填ケースでは、隙間体積がケイ砂の充填により小さくなり、体積膨張が許されないため乾燥密度が高い状態で発生する膨潤圧が、ケイ砂層を介して岩盤に伝搬する。本検討で使用した供試体は、未充填の場合と同じ乾燥密度（約 1.9 Mg/m^3）であったため、約 3 MPa の膨潤圧が岩盤にかかった。この影響により、湧水量が増加した可能性がある。しかし、この現象は原位置の岩盤に特有な現象である可能性があり、原位置の環境に依存すると考えられる。また、ケイ砂充填により隙間の容積が減少するため、緩衝材の初期乾燥密度を減らすことができると考えられ、このことは、膨潤圧が低くなることにつながる。このことは、緩衝材作成時のベントナイト使用量の合理化にもつながるため、検討すべきだと考える。

再冠水期間の緩衝材の流出量を見積もるためには、水理環境の変化を考慮して予測することが重要である。今後、より長期的な緩衝材の流出量を見積もるためには、緩衝材の定置による処分孔の水理環境を水理解析などによって予測し、湧水状況を反映した試験が必要となる。

以上のように、処分孔竪置きブロック方式の処分概念に対し、緩衝材の流出抑制に関する工学的対策オプションの一つとして、「ケイ砂による隙間処理」について、実現性があることの見通しを示すことができたと考える。ただし、坑道埋め戻し後の湧水環境を考慮した条件での「ケイ砂による隙間処理」の効果の確認や、「隙間未充填」とした場合の隙間閉塞後の長期的な緩衝材の浸潤・流出挙動の確認、埋め戻し後の緩衝材流出現象の把握などの課題に対し、継続的に試験を実施することで、知見の拡充を進めたい。

(2) 緩衝材の飽和プロセスを対象とした解析手法の構築

飽和までのプロセスを対象とした解析手法の構築のために、平成 31 年度は、隙間の充填挙動についての解析方法についての検討を行った。ベントナイト系緩衝材と孔壁との間に隙間が存在する状況を想定し、再冠水過程における緩衝材の不飽和状態から飽和状態に至る膨潤による隙間の充填、及び充填後、平衡状態に至るまでの緩衝材の乾燥密度分布などの変化の過程を解析的に評価する手法を構築することを目的とした。平成 31 年度の検討により、隙間充填プロセスの解析手法を示すと共に、再冠水過程での緩衝材の乾燥密度分布が発生するメカニズムの理解を深めることが出来た。

実規模の緩衝材の再冠水過程での乾燥密度分布を予測するためには、膨潤、浸潤の挙動が複合的に起こり、初期の乾燥密度や隙間幅、緩衝材の厚さ、応力の方向などにより膨潤速度と浸潤速度が影響を受けるため、供試体寸法のシミュレーションから外挿して予測することは難しいと考えられる。そのため、今後、手法の構築に向けて、多次元での解析、スケールアップによる効果の確認などを段階的に行うことが必要である。

また、平成 31 年度の解析で得られた結果は、これまでの試験結果の隙間充填までの期間より長い結果である可能性がある。適切なパラメータが選択できていない可能性があり、今後の課題である。現実的な評価を行うために、同じ材料に対する同条件での試験結果と比較検証しながら、適切なパラメータを選択しつつ解析手法を構築する必要がある。

遠心模型試験では、緩衝材への水の浸潤を対象とした加速試験としての有効性を確認するために、模型縮尺と遠心加速度をパラメータとして緩衝材中の飽和度と経時変化に関する試験データを取得した。その結果、20～40G 場試験では、飽和度と実物換算した底面からの距離の関係が、模型の縮尺と遠心力の大きさに依らず概ね一致した結果となり、これによって遠心場の相似則が成立していることが示された。ただし、一次元浸潤速度取得試験（1G 場試験）の結果と比較すると、20～40G 場試験では浸潤速度が遅くなる傾向が見られた。遠心模型試験では、遠心加速度の不均一性（遠心試験では、遠心加速度を供試体の重心に設定するため、重心より下では加速度が高く、上では加速度が低くなる）や材料（砂など）と模型の寸法効果などの試験上の制約がある。そのため、遠心模型試験で 1G 場試験の結果を完全に再現できなかったと考えられる。しかし、1G 場試験と遠心模型試験における緩衝材中の水の飽和までの時間の違いを定量的に把握することにより、実スケールの緩衝材の飽和時間を推定することができると考えられる。そのため、再冠水後の人工バリアの状態をより確からしく把握するためには、1G 場試験との差を把握が課題である。このような課題を解決していくことにより、遠心模型試験は、数日間の試験期間で約数十年相当の浸潤試験結果を得られるため、解析の精度向上や解析結果の妥当性確認のために有効な手段になると考えられる。

参考文献

Amerashinghe, S. F. and Kraft, L. M., Application of a cam-clay model to overconsolidated clay. International Journal for Numerical and Analytical Methods in Geomechanics 7, pp.173-186, 1983.

青柳和平, 櫻井彰孝, 丹生屋純夫, 延深地層研究センターの 350 m ポンプ座における初期地圧測定, JAEA-Data/Code2015-010, 2015.

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 Hernelind, J., Coupled thermo-hydro-mechanical calculations of the water saturation phase of a KBS-3 deposition hole. TR-99-41, 1999.

Börgesson, L., Johannesson, L. E., Sanden, T. and Hernelind, J., Modelling of the physical behavior of water saturated clay barriers. Laboratory tests, material models and finite element application, SKB TR-95-20, Svensk Kärnbränslehantering AB, 1995.

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, 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, －第2次TRU廃棄物処分研究開発取りまとめ－, JNC TY1400 2005-013, FEPC TRU-TR2-2005-02, 2005.

土木学会, コンクリート標準示方書[構造性能照査編], 2002.

土木学会, コンクリート標準示方書「ダムコンクリート編」, 2002.

土木学会, コンクリート標準示方書「設計編」（平成 8 年制定）, 1996.

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

藤田朝雄, 谷口直樹, 松井裕哉, 棚井憲治, 西村繭果, 小林保之, 平本正行, 前川恵輔, 澤田 淳, 牧野仁史, 笹本 広, 吉川英樹, 柴田雅博, 若杉圭一郎, 濱 克宏, 操上広志, 國丸貴紀, 石井英一, 竹内竜史, 中野勝志, 太田久仁雄, 瀬尾俊弘, 宮原 要, 内藤守正, 油井三和, 幌延深地層研究計画における地上からの調査研究段階（第 1 段階）研究成果報告書 分冊「地層処分研究開発」, JAEA-Research 2007-045, 2007.

福田健二, 渡辺勇輔, 村上裕晃, 天野由記, 林田一貴, 青才大介, 熊本義治, 岩月輝希, 超深地層研究所計画における地下水の地球化学に関する調査研究; 瑞浪層群・土岐花崗岩の地下水の地球化学特性データ集（2017年度）, JAEA-Data/Code 2018-021, p.76, 2019.

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 処分システム工学確証技術開発報告書(第 2 分冊)－人工バリア品質／健全性評価手法の構築－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 処分システム工学確証技術開発報告書（第 3 分冊）－人工バリアと周辺岩盤の長期挙動評価手法の構築－, 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 処分システム工学確証技術開発報告書（第 3 分冊）－人工バリアと周辺岩盤の長期挙動評価手法の構築－, 2017.
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 処分システム工学確証技術開発（第 2 分冊）－人工バリア品質／健全性評価手法の構築－緩衝材, 2018a.
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 処分システム工学確証技術開発報告書（第 3 分冊）－人工バリアと周辺岩盤の長期挙動評価手法の構築－, 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.
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 300ºC in the presence of Fe oxides, Clay Minerals, 39, pp.17-34, 2004.
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, 52(1), pp.55-71, 2018.
林田一貴, 加藤利弘, 宗本隆志, 青才大介, 乾 道春, 久保田満, 岩月輝希, 超深地層研究所計画における地下水の地球化学に関する調査研究; 瑞浪層群・土岐花崗岩の地下水の地球化学特性データ集（2015年度）, JAEA-Data/Code 2017-008, p.52, 2017.
林田一貴, 宗本隆志, 青才大介, 乾 道春, 岩月輝希, 超深地層研究所計画における地下水の地球化学に関する調査研究; 瑞浪層群・土岐花崗岩の地下水の地球化学特性データ集(2014年度), JAEA-Data/Code 2016-001, p.64, 2016.
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.
平田昌史, 飯塚 敦, 太田秀樹, 二次圧密による先行効果を考慮した弾・粘塑性構成モデルの拡張, 土木学会論文集, 69, No.4, pp.404-416, 2013.
廣野哲郎, 西村征洋, 竹村貴人, 徐 垣, 村山雅史, 安田尚登, 医療用X線CT装置における階調, 2004.
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.
腐食防食協会編, 装置材料の寿命予測入門, 丸善, 1984.
Iizuka, A. and Ohta, H., A determination procedure of input parameters in elasto-plastic finite element analysis, Soils and Foundations 27 (3), pp. 71-87, 1987.
伊藤大知, 小峯秀雄, 諸留章二, 関口高志, 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.
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.
金澤伸一, 橘 伸也, 河井克之, 大野進太郎, 飯塚敦, 土/水連成有限要素解析手法における空間離散化手法の検討, 応用力学論文集, 土木学会, Vol. 11, pp. 331-338, 2008.
Karen, L. S., Backscattered electron imaging of cementitious microstructures: understanding and quantification, Cement and Concrete Composites, Vol.26, Issue.8, pp.935-945, 2004.
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, pp.222-230, 1992.
国立天文台編, 理科年表 平成29年, 2016.
小峯秀雄, 緒方信英, 高レベル放射性廃棄物処分のための緩衝材・埋戻し材の膨潤評価式の提案－砂とベントナイトの配合割合およびベントナイト中の陽イオンの種類・組成の影響－, 電力中央研究所 研究報告, U99013, 1999.
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.
Leoni, M., Börgesson, L. and Keto, P., Numerical modelling of the buffer swelling test in Äspö HRL. Validation of numerical models with the buffer swelling test data. SKB TR-17-03, Swedish Nuclear Fuel and Management Co., 2018.
Marsh, G. P., Bland, I. W., Desport, J. A., Naish, C., Westcott, C. and Taylor, K. J., Corrosion Assessment of Metal Overpacks for Radioactive Waste Disposal, European Appl. Res. Rept.-Nucl. Sci. Technol. Vol.5, No.2 pp.223-252, 1983.
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.
見掛信一郎, 山本 勝, 池田幸喜, 杉原弘造, 竹内真司, 早野 明, 佐藤稔紀, 武田信一, 石井洋司, 石田英明, 浅井秀明, 原 雅人, 久慈雅栄, 南出賢司, 黒田英高, 松井裕哉, 鶴田忠彦, 竹内竜史, 三枝博光, 松岡稔幸, 水野 崇, 大山卓也, 結晶質岩を対象とした坑道掘削における湧水抑制対策の計画策定と施工結果に関する考察, JAEA-Technology 2010-026, p.146, 2010.
Mitsui, H., Takahashi, R., Asano, H., Taniguchi, N. and Yui, M., Susceptibility to Stress Corrosion Cracking for Low-Carbon Steel Welds in Carbonate-Bicarbonate Solution, Corrosion, Vol. 64, No. 12, pp.939-948, 2008.
NAGRA, Final Sensor Data Report (FEBEX “in situ” Experiment), NAB 16-19, 2016a.
NAGRA, FEBEX-DP on-site analyses report, NAB 16-12, 2016b.
中村邦彦, 田中幸久, ベントナイトの種類と密度がオーバーパックの沈下量に与える影響, 土木学会論文集C, 65, 1, pp.85-96, 2009.
中村邦彦, 田中幸久, 高レベル放射性廃棄物処分孔での オーバーパックの沈下挙動－ベントナイト種類の影響と沈下予測手法の高度化－, 電力中央研究所報告, N05029, 2006.
中村邦彦, 田中幸久, 高レベル放射性廃棄物処分孔での廃棄体の沈下挙動-遠心模型実験と簡易沈下予測法の提案-, 電力中央研究所研究報告書, U03074, 2004.
中野政詩, 土の物質移動学, 東京大学出版会, 1991.

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.
Nergheim, J., Jyho, E., Steinmann, P., A hybrid discontinuous Galerkin/interface method for the computational modeling of failure, Commun, Numer. Meh. Engng., Vol.20, pp.511-519, 2004.
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, 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 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, 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, 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－計測データ集（平成 27 年度）, JAEA-Data/Code 2016-005, 2016b.
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.
日本原子力研究開発機構, 幌延深地層研究計画 平成 30 年度調査研究成果報告, 2019.
日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 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, 2019.
日本コンクリート工学協会, コンクリート便覧[第二版], 1996.
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, 41, 2012.
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4） －加熱型廃棄体を用いた等方応力拘束条件下における 熱－水－応力

連成模型実験－, 電力中央研究所報告, N14003, 30, 2014.
Nishimoto, S., Sawada, M. and Okada, T., New Rapid Evaluation for Long-Term Behavior in Deep Geological Repository by Geotechnical Centrifuge. Part 1: Test of Physical Modeling in Near Field Under Isotropic Stress-Constraint Conditions, Rock Mech. Rock Eng., 49, 8, pp.3323-341, 2016.
大場和弘, 原 信義, 杉本克久, 本田 明, 石川博久, ベントナイト接触水中における炭素鋼の不動態化と脱不動態化, 材料と環境, Vol.45, No.4 pp.209-216, 1996.
大森一秋, 新宮信也, 萩原大樹, 増田 薫, 飯塚正俊, 乾 道春, 岩月輝希, 超深地層研究所計画における地下水の地球化学に関する調査研究; 瑞浪層群・土岐花崗岩の地下水の地球化学特性データ集（2011年度）, JAEA-Data/Code 2013-001, p.330, 2013.
大森一秋, 長谷川隆, 宗本隆志, 増田 薫, 青才大介, 乾 道春, 岩月輝希, 超深地層研究所計画における地下水の地球化学に関する調査研究; 瑞浪層群・土岐花崗岩の地下水の地球化学特性データ集（2013年度）, JAEA-Data/Code 2014-019, p.121, 2014a.
大森一秋, 新宮信也, 増田 薫, 青才大介, 乾 道春, 岩月輝希, 超深地層研究所計画における地下水の地球化学に関する調査研究; 瑞浪層群・土岐花崗岩の地下水の地球化学特性データ集（2012年度）, JAEA-Data/Code 2013-024, p.284, 2014b.
太田久仁雄, 阿部寛信, 山口雄大, 國丸貴紀, 石井英一, 操上広志, 戸村豪治, 紫野一則, 濱 克寛, 松井裕哉, 新里忠史, 高橋一晴, 丹生屋純夫, 大原英史, 浅森浩一, 森岡宏之, 舟木泰智, 茂田直孝, 福島龍朗, 幌延深地層研究計画における地上からの調査研究段階（第 1 段階）研究成果報告書 分冊「深地層の科学的研究」, JAEA-Research 2007-04, 2007.
大和田朗, 佐藤卓見, 平林恵理, 永好けい子, 鈴木正哉, 乾式研磨法による脆弱試料薄片の作製法, 特許第5633078号, 2014.
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.
Pantano, A. and Averill, R. C., A penalty-based finite element interface technology, Computers and Structures, Vol.80, pp.1725-1748, 2002.
Parkhurst, D. L., User's Guide to PHREEQC (VERSION 2) A Computer Program for Speciation, Batch-Reaction, One-Dimensional Transport, and Inverse Geochemical Calculations, U.S. geological Survey, Water-Resources Investigations Report 99-4259, 1999.
POSIVA, Current Status of Mechanical Erosion Studies of Bentonite Buffer, POSIVA 2012-45, 2013.
Pusch, R. and Madsen, F. T., Aspects of the illitization of the Kinnekulle bentonites. Clays and Clay Minerals, 43, pp.133-140, 1995.
Quintessa Ltd., QPAC: Quintessa's General-Purpose Modelling Software, QRS-QPAC-11, 2013.
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.
桜井春輔, 足立紀尚, 都市トンネルにおける NATM, 鹿島出版会, 1988.
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.
佐藤 努, 粘土鉱物の水和と吸着水の構造, 鉱物学雑誌第25巻第3号, pp.99-110, 1996.
澤田昌孝, 岡田哲実, 長谷川琢磨, 高レベル放射性廃棄物処分地下施設の長期挙動予測評価プログラムの開発－緩衝材膨潤評価式の数値モデル化と熱・水・応力連成解析スキームの構築－, 電力中央研究所 研究報告, N05028, 2006.
澤田昌孝, 岡田哲実, 地下施設力学的相互作用解析のための軟岩クリープモデルの開発, 電力中央研究所 研究報告, N04028, 2005.
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, 23, 2012.
Sawada, M., Nishimoto, S. and Okada, T., New Rapid Evaluation for Long-Term Behavior in Deep Geological Repository by Geotechnical Centrifuge-Part 2: Numerical Simulation of Model Tests in Isothermal Condition, Rock Mech. Rock Eng., 50, pp.159-169, 2017.
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.
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.
Snow, D. T., A parallel plate model of fractured permeable media. Ph. D. Thesis, University of California., Berkley, California, 1965.
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.
杉井俊夫, 宇野尚雄, 新しい水分特性曲線のモデル化について, 土木学会・第 50 回年次学術講演会概要集, pp. 130-131, 1997.
鈴木英明, 千々松正和, 藤田朝雄, 温度勾配による緩衝材内の水分移動と膨潤応力の測定, JNC TN8400 99-020, 1999.
鈴木英明, 仲間茂雄, 藤田朝雄, 今井 久, 九石正美, 熱－水－応力－化学連成解析による緩衝材の地球化学環境の変遷に着目したニアフィールド長期挙動評価の一例, 原子力バックエンド研究, 19, No.2, pp.39-50, 2012.
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.
武田聖司, 西村優基, 宗像雅広, 澤口拓磨, 木村英雄, TRU廃棄物の地層処分における高アルカリ性地下水の広がりに関する地球化学-物質移行解析による検討, 原子力バックエンド研究, Vo.19, No.2, pp.23-38, 2012.
Takeyama, T., Tachibana, S. and Furukawa, A., A finite element method to describe the cyclic behavior of saturated soil, International Journal of Material Science and Engineering 2 (1), pp.20-25, 2015.
谷口直樹, 中山 雅, IV. 各種環境での電気化学測定－原子力 II（地層処分）深部地下環境における炭素鋼の腐食モニタリング－, 材料と環境, vol.67, No.12, pp.487-494, 2018.
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.

van Genuchten, M. Th., A closed-form equation for predicting hydraulic of unsaturated soils, Soil Science Society American Journal 44, pp.892-898, 1980.
渡辺勇輔, 林田一貴, 加藤利弘, 久保田満, 青才大介, 熊本義治, 岩月輝希, 超深地層研究所計画における地下水の地球化学に関する調査研究; 瑞浪層群・土岐花崗岩の地下水の地球化学特性データ集（2016年度）, JAEA-Data/Code 2018-002, p.108, 2018.
Williamson, Mark A. and Rimstidt, J. Donald, The kinetics and electrochemical rate-determining step of aqueous pyrite oxidation, Geochemica et Cosmochimica Acta, Vol.58, No.24, pp.5443-5454, 1994.
山本卓也, 下茂道人, 藤原 靖, 服部弘道, 各合牧人, 田所照夫, 中垣真一, 幌延深地層研究計画における試錐調査（HDB-6, 7, 8）のうち HDB-6 孔, JNC TJ5400 2005-004, 2005.
横山信吾, 黒田真人, 筒井政則, 佐藤 努, 鈴木啓三, 榎戸洋之, 月布ベントナイト鉱床における川向坑産ベントナイトと梅ノ木田坑産ベントナイトの鉱物学的比較, 粘土科学第44巻第2号, pp.45-52, 2004.
横関康祐, コンクリートからの成分溶出を対象とした千年レベルの長期耐久性に関する研究, 東京工業大学 博士学位論文, 2003.
Zienkiewicz, O. C., Taylorm R. L. and Zhu, J. Z., The finite element method -Its basis & fundamentals 6th edition, Elsevier, 2005.

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、評価手法や結果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行うことを目的とする。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特徴を踏まえ、それらを適切に組み合わせることで、核種移行評価で対象とする時間・空間スケールの視点も含めたモデルの適用性や信頼性を高めていくこととする。

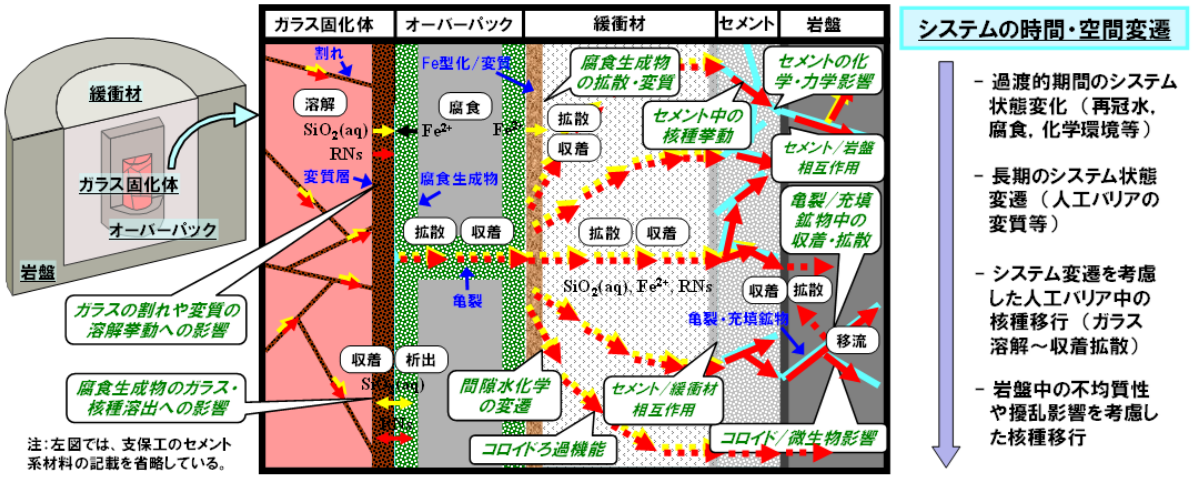


図3.1-1　ニアフィールドのシステム変遷と核種移行評価に係る課題例

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）に反映させることを念頭に、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の特性を反映した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。

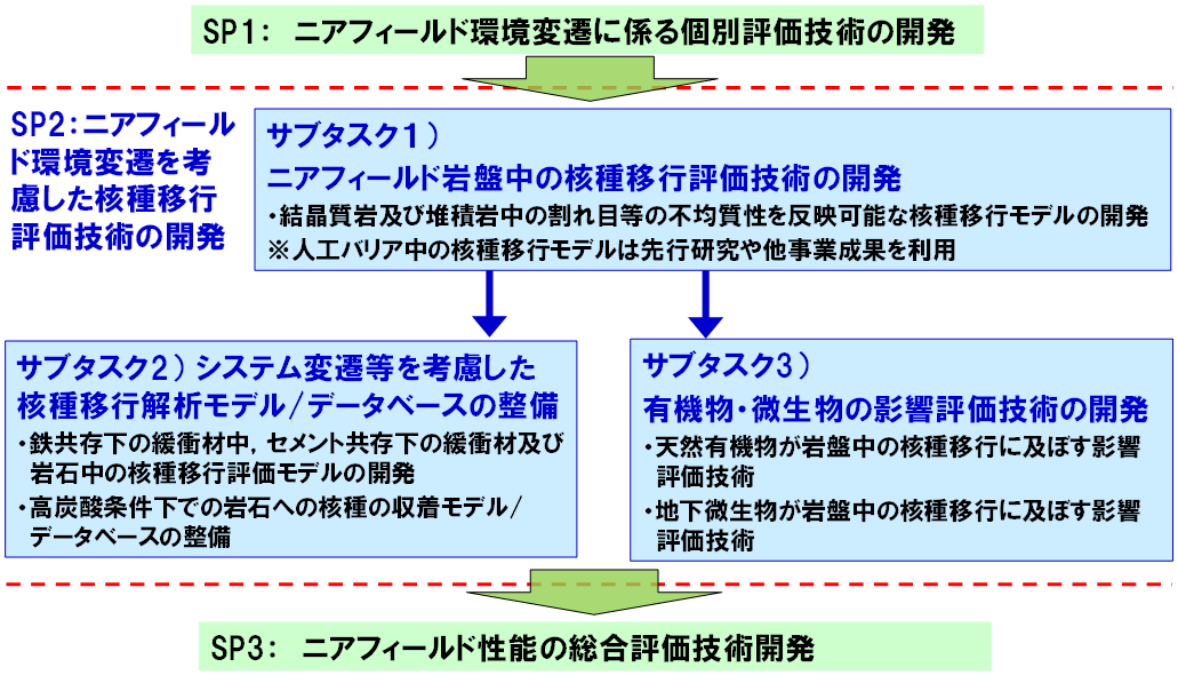


図3.1-2　本課題における3つのサブタスクとそれらの関係

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

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・侵食や海水準変動等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。今後の研究開発においては、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を構築するとともに、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必要がある。このような観点からは、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）において、結晶質岩及び堆積岩のそれぞれを対象に進めてきた研究開発成果を含む既往の知見をもとに、今後取り組むべき課題とアプローチを設定し、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の確認を進めていくこ

ととした（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019）。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（開口状態や充填鉱物等）やマトリクス（鉱物や間隙）の不均質性の把握と、それらを反映したモデルの構築が重要な課題となる。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に加え、堆積岩でも割れ目が存在する場合には、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。このような課題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、結晶質岩としてグリムゼルの花崗閃緑岩等を、堆積岩として幌延の泥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、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。

平成30年度は、結晶質岩と堆積岩のそれぞれの課題について、以下のような取り組みを進めた（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019）。

結晶質岩については、スイスグリムゼルの花崗閃緑岩マトリクス部を対象に、これまで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、室内試験結果との比較によって確認するとともに、スウェーデンのエスポ及びフィンランドのオンカロの岩石への適用性の確認に向けた室内試験や予察解析を実施した。また、割れ目中の核種移行モデルについては、グリムゼルのより複雑な割れ目を対象に室内トレーサー試験データの取得とモデルの改良や適用性の確認を進めるとともに、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妥当性確認への展開を念頭に、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た室内試験に着手した。さらに、これらの知見を反映しつつ、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を実施した。

堆積岩については、幌延URLの稚内層の泥岩マトリクス部を対象とした室内拡散試験やNMR法を適用した分析を行い、間隙構造や収着・拡散メカニズムの解明を進めたほか、幌延URL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。また、幌延URLの割れ目を対象とした原位置トレーサー試験後の割れ目表面のトレーサー分布を取得するとともに、予察的な核種移行解析によって今後の課題を抽出した。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、粘土鉱物の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。

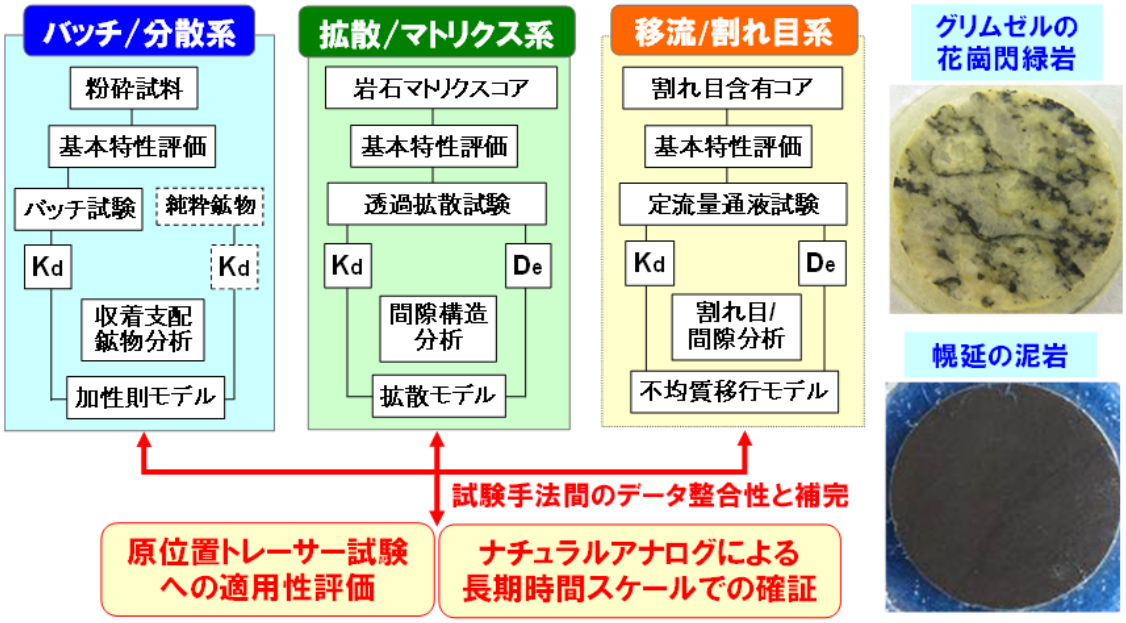


図3.2-1　結晶質岩と堆積岩のマトリクス部と割れ目部を対象とした複数の室内試験や原位置試験等を組合せた核種移行研究アプローチ

結晶質岩と堆積岩のそれぞれについて、上記のような平成30年度の取り組みを踏まえ、平成31年度は以下のような取り組みを進める。

結晶質岩については、これまでに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の妥当性を確認するため、フィンランドのオンカロやスウェーデンのエスポの岩石マトリクス部を対象に黒雲母等の鉱物分布等の不均質性の定量評価手法の改良を進め、室内試験や原位置試験で得られたデータを対象にモデルの適用性を検討する。また、グリムゼルの岩石割れ目部を対象に、平成30年度に取得したより複雑な割れ目試料中の室内トレーサー試験データを解釈可能なモデルの改良を進めるとともに、平成30年度にグリムゼルの原位置から採取・加工した大型の割れ目試料を対象に、室内トレーサー試験、収着・拡散試験、各種分析によって核種移行データや割れ目周辺の鉱物・間隙等の不均質性に関するデータを取得する。さらに、これらの知見を反映しつつ、核種の収着・拡散や溶解沈殿等のより精緻な取り扱い、実際の地質環境の不均質性や環境条件の変遷等による核種移行への影響の取り扱いを可能とする解析手法を調査・検討するとともに、その適用性評価に向けた天然事例に関する調査を実施する。

堆積岩系については、幌延の泥岩を対象とし、泥岩マトリクス中の鉱物や間隙の不均質性や核種移行特性を室内拡散試験やNMR分析により把握し、それらを反映したモデルの高度化を進めるとともに、幌延深地層研究センターの地下調査坑道で実施した層理面に対する異方性に着目したマトリクス部の拡散試験を対象に、試験後の岩石試料の分析と解析評価を行う。また、幌延の調査坑道で実施された割れ目中の原位置トレーサー試験を対象に、平成30年度までに検討してきたモデルの改良と適用性確認を進める。さらに、幌延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、反応性トレーサーを対象とした解析に向けた既存のデータセットの信頼性の評価や補正手法の検討を進める。

3.2.2 実施内容

(1) 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鉱物分布の不均質性評価

結晶質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: Long-Term Diffusion）プロジェクトと連携して研究を進めてきた。グリムゼルの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・拡散データの取得とモデルの開発を進めるとともに、その原位置試験データへの適用性を評価してきた。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、花崗閃緑岩中の拡散特性として、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、これは花崗閃緑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。さらに、この鉱物や間隙の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核種拡散挙動に及ぼす影響が重要であることが示唆されたことから、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。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てきた（日本原子力研究開発機構, 2018）。

上記のような過年度の成果を踏まえ、平成31年度は、従来対象としてきたスイスグリムゼルの花崗閃緑岩に加え、スウェーデンエスポの花崗閃緑岩、フィンランドオンカロの片麻岩を対象として、黒雲母の連結性や配向性の定量評価をX線CTデータの解析によって試みるとともに、これらの黒雲母の特徴を反映した不均質場モデルによる解析評価を行った。

黒雲母の連結性や配向性の定量評価については、平成30年度までに葉理構造に起因した雲母等層状ケイ酸塩鉱物（黒雲母及び白雲母）の配向性を、X線CT像の黒雲母等に対応した輝度領域を抽出した画像を傾斜させながら結像する方法で配向性（黒雲母等の層状構造の傾斜角度）を評価した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2019）。平成31年度は、同様の岩石試料のX線CT像の黒雲母等に対応した輝度領域抽出画像の画像解析によって、黒雲母等層状ケイ酸塩鉱物のサイズや連結性の評価を検討した。

グリムゼルの花崗閃緑岩（LTD-I試料：LTDプロジェクトの1回目の原位置拡散試験；Tachi et al., 2015）を例に試行した評価手法と結果を以下に示す。平成30年度の評価において、当該花崗閃緑岩中の黒雲母等はコアの軸方向に対して、約24°の傾斜で黒雲母等の葉理構造（層状構造）が存在していると評価したが、ここでは、この葉理構造に対して雲母粒子がどのような形状やサイズで分布しているかの評価を試みた。まず、図3.2-2(a)に示すような手順で、黒雲母等の葉理構造の角度に傾斜させたX線CT像の輝度画像を調整したうえで、黒雲母等ケイ酸塩鉱物の<100>, <010>, <001>面に相当する画像を抽出した（図3.2-2(b)）。同図(b-1)から<100>面は、ある程度の大きさをもった直方体の形状が確認でき、また、同図(b-2)及び(b-3)からは、黒雲母等の層状構造に加えて、複数の雲母鉱物粒子が連続的にジグザグに連結している状況が確認できる。さらに、画像解析ソフトを用いて、黒雲母等の粒子解析を試みた。各断面に対して、黒雲母に相当する輝度を設定し、その該当輝度領域を黒雲母等粒子と見なして粒子毎の識別を行ったうえで（同図(c)の色付けは識別された粒子を表す）、粒子数と粒子サイズ・形状（粒子面積、長辺・短辺、それら

の比）の評価を試みた。その評価結果を表3.2-1に示す。図3.2-2(c)に示すように、粒子識別の結果、小さな領域も含めて粒子として識別するほか、わずかな不連続領域でも別個の粒子として判定されるため、粒子サイズの中央値は長軸で263～307μm程度、短軸で161～181μm程度と非常に小さなサイズとして評価され、また、葉理構造に平行な<001>面でも、他の面と大きな差異はない結果となった。このことから、ここで検討した黒雲母等の粒子サイズ・形状の評価手法は、定性的には有効な情報を与えうるが、定量的な評価については、更なる検討が必要である。

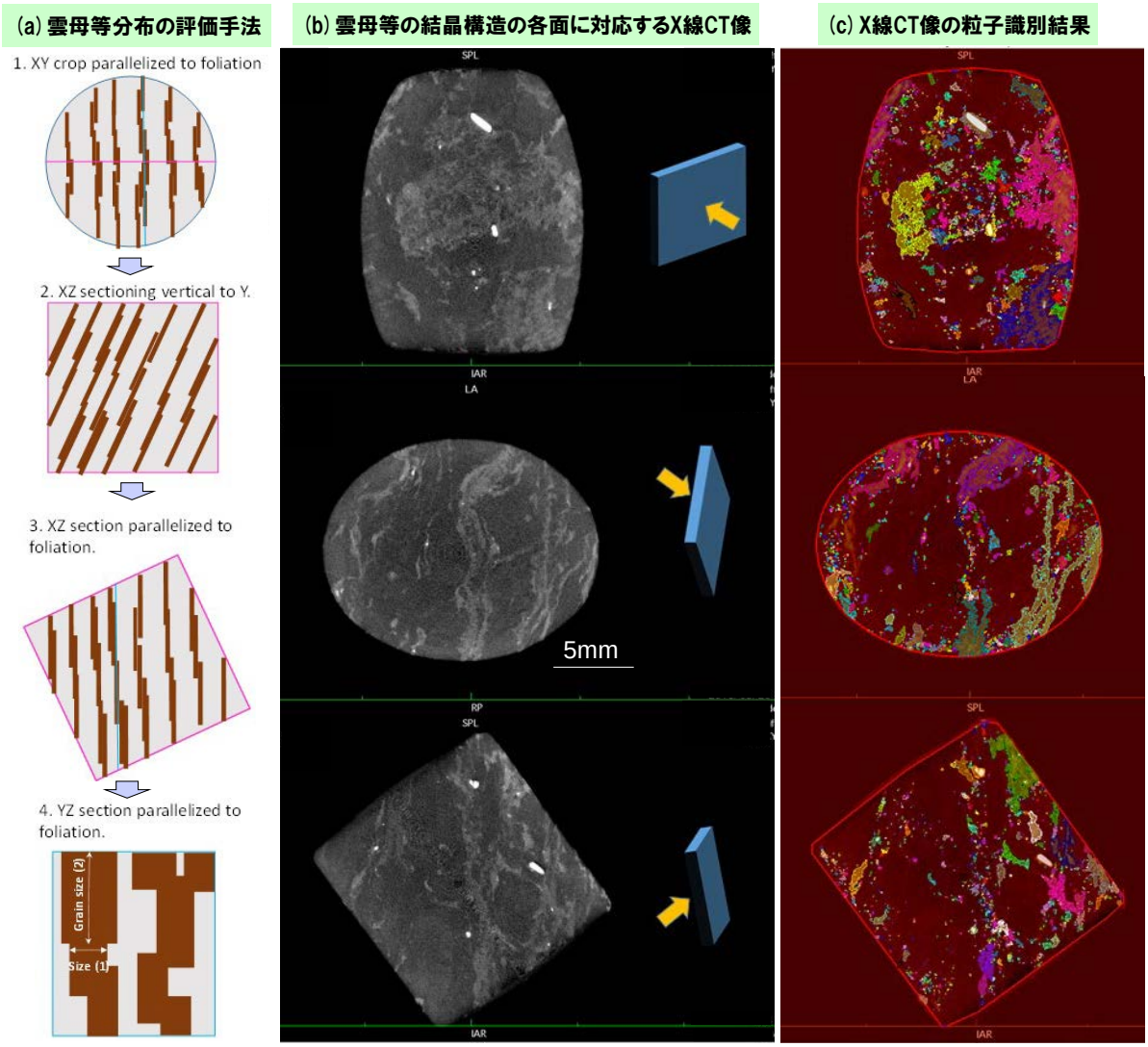


図3.2-2　グリムゼルの花崗閃緑岩に含まれる黒雲母等の形状、サイズ、連続性の評価結果：(a)評価の手順、(b)黒雲母等の構造面に対応したX線CT輝度画像、(c)粒子解析結果

表3.2-1　グリムゼルの花崗閃緑岩に含まれる黒雲母等の形状、サイズ、連続性の評価結果

	粒子数	面積(μm^2)	長軸(μm)	短軸(μm)	長軸/短軸比
<001>	1225	4054.875	271.59	174.07	1.546
<100>	947	3462.024	263.00	160.83	1.544
<010>	870	4054.875	306.55	181.37	1.549

さらに、スイスグリムゼルの別の場所から採取された花崗閃緑岩（LTD-II試料：LTDプロジェクトの2回目の原位置拡散試験；Martin et al., 2019）、オンカロの黒雲母片麻岩、エスポの花崗閃緑岩を対象として、同様の評価を行った。オンカロの黒雲母片麻岩の分析結果の例を図3.2-3に示す。同図(a)に示すディスク状の試料のX線CT像を同図(b)に示すが、黒雲母等の高い含有率と明瞭な葉理構造が確認できる。同図(c)に示すEPMA分析からは、黒雲母片麻岩であるこの試料には、結晶質岩類に含まれる主要構成鉱物（石英、カリ長石、長石、黒雲母、緑泥石）に加え、バーミキュライトやバイデライト等の風化粘土鉱物や磁硫鉄鉱(FeS)が変成鉱物として確認できる。上記のグリムゼルの花崗閃緑岩に適用したX線CT像の画像解析によって、黒雲母等の分布・形状等の解析を行った結果（同図(d)）、黒雲母等の葉理構造・配向性は明瞭ではあるものの、黒雲母等の粒子サイズがグリムゼルの花崗閃緑岩よりも小さく、また、粒子の連結性も確認できない。このように、黒雲母等の含有率や配向性に加え、その粒子サイズや連結性も核種拡散特性に大きく影響を及ぼす可能性が考えられ、後述するような不均質場解析や室内・原位置拡散試験データとあわせて評価していく必要がある。

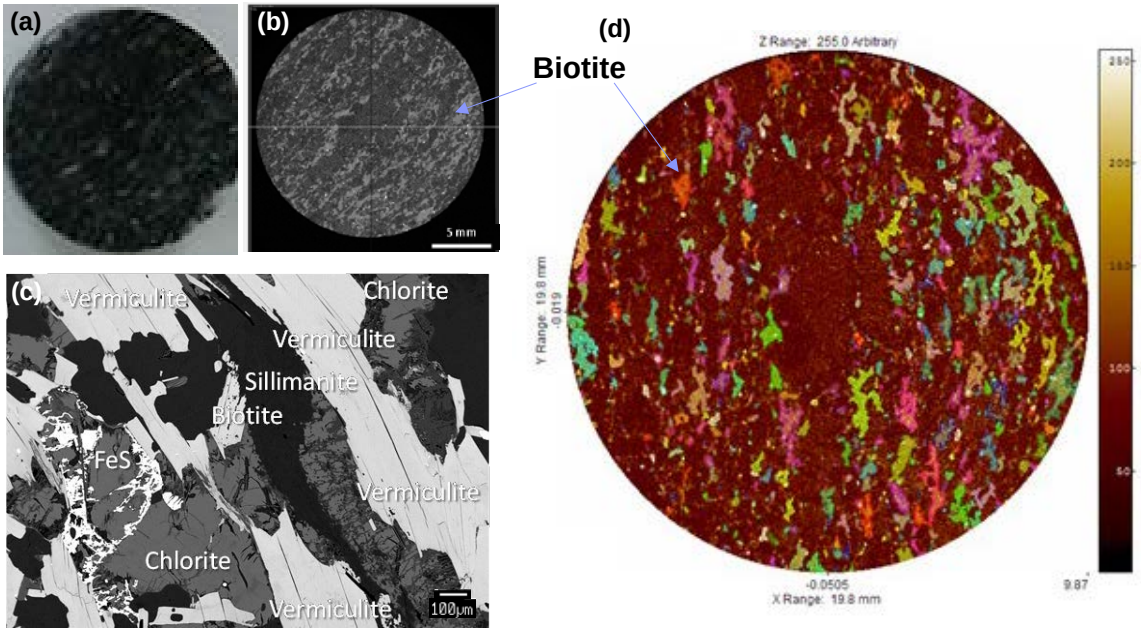


図3.2-3　オンカロの黒雲母片麻岩の黒雲母等分析結果：(a)分析対象試料、(b)X線CT像、(c)EPMA分析像、(d)X線CT像の粒子解析結果

上記の方法によって評価されたグリムゼルの異なる場所から採取された花崗閃緑岩（LTD-I及びLTD-II試料）、オンカロの黒雲母片麻岩、エスポの花崗閃緑岩の黒雲母等の含有率、配向角度、粒子サイズ等の特徴を表3.2-2にまとめる。グリムゼルの2つの試料を比較すると、LTD-Iに対してLTD-IIの試料の方が、黒雲母の含有率の差異に加え、粒子サイズが小さく、連結性も比較的低い特徴が確認できた。オンカロの黒雲母片麻岩とエスポの花崗閃緑岩は、黒雲母等の含有率が顕著に異なるものの、粒子サイズが小さく、連結性が低いという類似した特徴をもつことが確認できた。

表3.2-2　グリムゼル、オンカロ、エスポの岩石中の黒雲母等の分布解析結果の比較

岩石試料	黒雲母等含有率(%)	配向性傾斜角(°)	短軸(μm)	長軸(μm)	長軸/短軸比
グリムゼル花崗閃緑岩（LTD-I試料）	4.1-14.4	24.4	161-181	263-307	1.54-1.55
グリムゼル花崗閃緑岩（LTD-II試料）	2.7-5.1	19.1	37.8-56.6	58.4-115	1.36-1.56
オンカロ黒雲母片麻岩（REPRO試料）	29.3-40.2	4.2	43.0-48.5	84.1-87.1	1.46-1.52
エスポ花崗閃緑岩（LTDE-SD試料）	＜1.0-5.0	46.8	32.9-73.5	57.0-125	1.55-1.64

② 結晶質岩マトリクス中の不均質性を考慮した核種移行モデルの構築

上記①で評価したグリムゼルの花崗閃緑岩中の黒雲母等層状ケイ酸塩鉱物の配向性や連続性が、当該岩石中で実測された陽イオン加速や陰イオン排除効果に影響を及ぼしているとの想定のもと、黒雲母等の不均質性が核種拡散挙動に及ぼす影響を定量評価するため、ランダムウォーク法に基づくPartridgeコードを用いた粒子拡散解析を実施してきた（日本原子力研究開発機構，2018）。これまでに黒雲母の層状構造に由来する拡散の異方性、及びイオンの電荷の差異による陽イオン加速や陰イオン排除との関係性を把握するとともに、グリムゼルの花崗閃緑岩で実測された実効拡散係数データを再現可能なことを確認してきた。平成31年度は、上記したグリムゼルの2種類の花崗閃緑岩、オンカロの黒雲母片麻岩、エスポの花崗閃緑岩における黒雲母等の特徴を反映した解析手法を検討するため、雲母含有率の影響を把握するための解析評価を実施した。

Partridgeコードによるランダムウォーク法解析では、直方体の構造格子から構成される解析体系で、構造格子の一つ一つのセルに対してそれぞれ物性値を設定することで、不均質場における拡散挙動を表現することができる。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。各格子セルは立方体とし、全体のセル数は195×195×195=7,414,875セルとした。全体の解析体系サイズは、一つのセルサイズを0.033 mmに設定したため、6.435×6.435×6.435 mm^3である。図3.2-4(a)に示すように、黒雲母鉱物ユニットを3層で構成し、外側は粒子の入り込まない間隙率0の層を配置し、層間の拡散を表現するための内部の層を設けた。ユニットのサイズは0.1 mm(層状構造の積層厚さ)×1 mm×1 mmを仮定し、黒雲母鉱物ユニット全体の間隙率は分析結果に基づき2.5%と設定した。一方、黒雲母以外の鉱物ユニットは、0.5 mm角のサイズとして15×15×15=3,375セルを用いて表現し、外側の1セル分の表面領域を粒界とみなし、粒界間隙が0.7%となるように設定を行った。図3.2-4(b)に示すように、まず黒雲母以外の鉱物ユニットをxyz方向に13ユニットずつ敷き詰め、195×195×195セルの解析体系を作成した。その後、黒雲母ユニットが所定の体積割合を占めるまで埋め込んでいく形で配置を行った。黒雲母ユニットの位置についてはモンテカルロ法によりランダムに設定し、黒雲母ユニット同士が重複しないように配置した。平成30年度までの解析では、黒雲母鉱物を1枚、2枚、4枚、8枚と連結性を変化させた構造を設定するとともに、それぞれ拡散方向に対して黒雲母を平行、直交、45°方向に配置したモデルを設定して粒子拡散解析を行い、それらの影響を定量評価してきた。ここでは、平成30年度までの検討でグリムゼルの花崗閃緑岩（LTD-I）の実測データを最も良く再現できた黒雲母4枚連結させたモデルを例に、黒雲母の含有率を従来の15%に対し、半分の7.5%及び2倍の30%の条件での解析を行い、その影響を評価した。なお、上記の通り、黒雲母の粒子サイズや連結性、さらには間隙率等のその他の条件も岩石によ

って異なると考えられるが、ここでは黒雲母の含有率のみを変動させて影響を把握することとした。

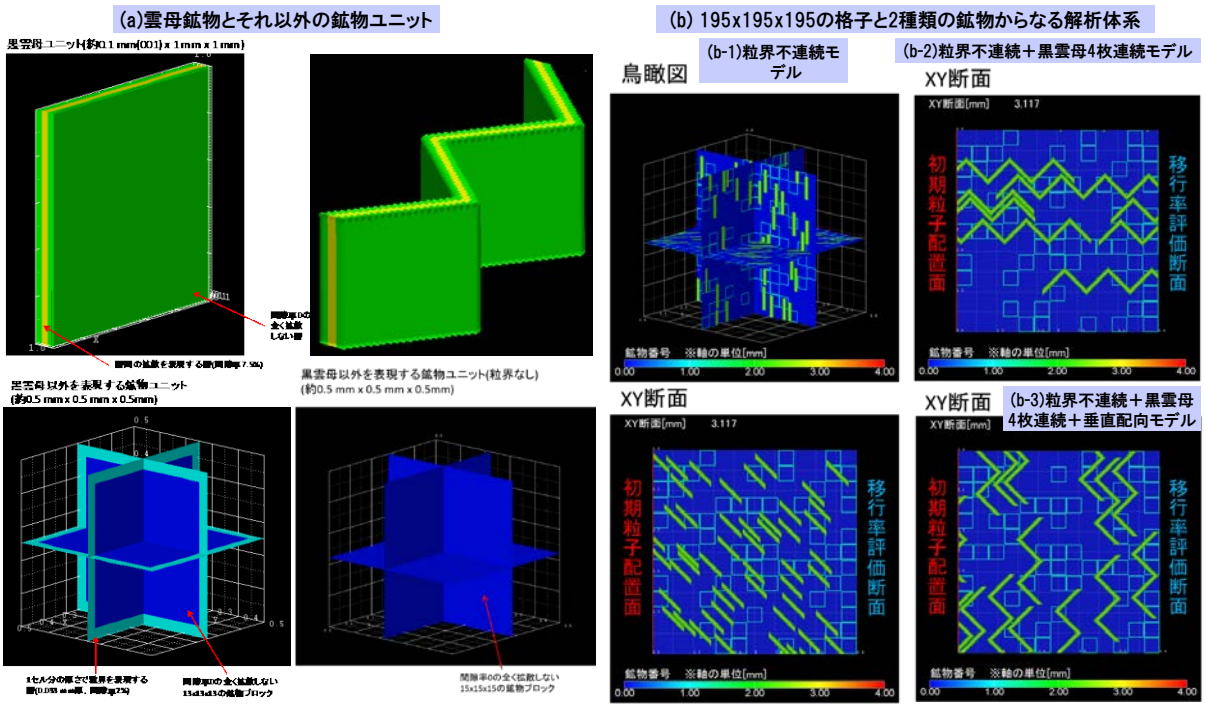


図3.2-4　グリムゼルの花崗閃緑岩マトリクスの不均質性を考慮したモデル解析体系

拡散解析ではx=0面から粒子を放出し、x=6.435 mm面を評価面として移行率を算出した。なお、間隙中での拡散係数は、中性粒子はトリチウム水（HTO）、陽イオンはCs^+、陰イオンはI^-の自由水中の拡散係数（D_0）を与え、黒雲母の層間間隙では静電的な相互作用による陽イオンの加速（D_0の10倍）、陰イオンの排除（D_0の1/10倍）を考慮した。移行率については、同一解析モデルにおけるイオン種別の比較や、同イオン種での解析モデル間の比較が評価できるように解析を行った。得られた解析結果に対し、無限遠で濃度が0となる１次元拡散方程式の解析解を用いたフィッティングによって拡散係数を求め、拡散係数を指標として不均質場が拡散係数に及ぼす影響の比較を行った。

黒雲母含有率7.5%，15%，30%の不均質場モデル（配向性が平行の場合）とそれぞれの含有率のモデル解析で得られた実効拡散係数をまとめたものを図3.2-5に示す。それぞれの含有率で、黒雲母配向は平行、垂直、45°の解析ケースで得られた中性粒子、陽イオン、陰イオンの実効拡散係数に対し、陽イオン及び陰イオンの拡散係数の中性粒子に対する比を整理した。まず、どの黒雲母含有率のモデルでも、黒雲母配向が平行の場合が、最も陽イオン加速と陰イオン排除の効果が顕著に表れており、45°の結果は平行と垂直の中間的なふるまいとなる。また、黒雲母の含有率が高くなるほど、この効果はより顕著となることが確認できる。これは、黒雲母を平行に配置した場合、黒雲母の層間鉱物において陽イオン加速の効果が主に拡散方向に引き起こされるのに対し、黒雲母を垂直に配置した場合、黒雲母ユニットの層状構造のベーサル面（1mm×1mmに設定した面）の不拡散の層によって、移行経路が遮断される割合が高くなっていることと、評価断面方向に対して直交した方向への経路が増加するため必要な移行距離が増加するためと考えられる。これらの結果から、黒雲母の含有率と配向性のいずれも陽イオン加速と陰イオン排除効果を含むイオンの拡散挙動に大きな影響を及ぼすことがわかる。また、例えば、オンカロの黒雲母片

麻岩のように黒雲母含有率が30%程度と高く、強い葉理構造・配向性を示す岩石の場合、拡散に対する異方性の効果、陽イオン加速や陰イオン排除の効果が非常に大きくなることが想定される。今後、各岩石のより現実的な特性を反映した不均質場モデルの設定と解析を行いつつ、平成30年度までに検討したような実測データとの比較を通じて本評価手法の妥当性を確認していく必要がある。

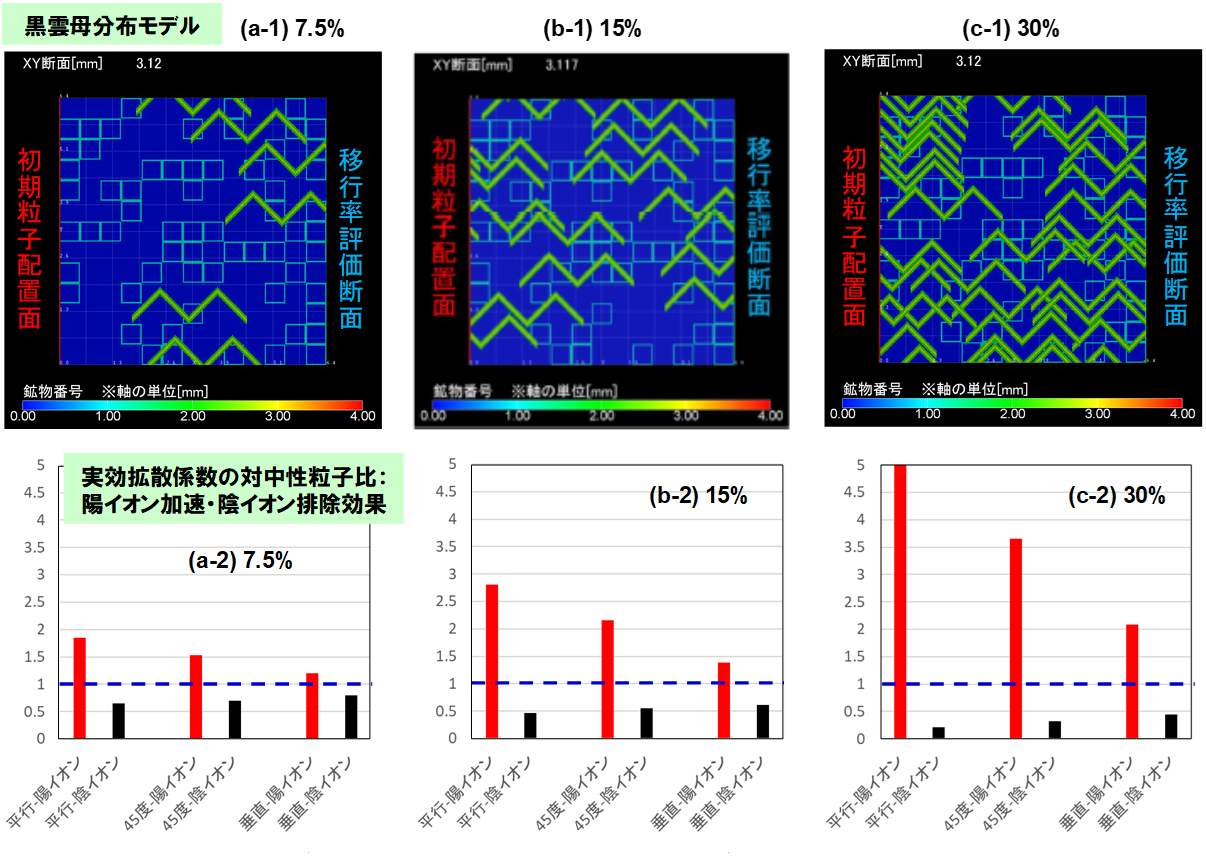


図3.2-5　不均質場モデル解析で設定した黒雲母分布モデル（上段）と拡散解析結果の陽イオン、陰イオン、中性粒子の比較（下段）：黒雲母含有率(a)7.5%、(b)15%、(c)30%

③ オンカロの岩石マトリクス中の原位置拡散試験の評価

上記のような室内試験や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。このような観点から、先行事業（日本原子力研究開発機構, 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てきた。ここでは、室内試験データから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適用性を評価することに加え、上記①, ②に示したような岩石マトリクス中の黒雲母等鉱物の不均質性やその拡散への影響の評価に資することを目的として、フィンランドのオンカロ地下調査施設で実施された原位置トレーサー拡散試験（Through-Diffusion Experiment: TDE）を活用した検討を実施した。具体的には、オンカロ施設の地下坑道から採取された試料を用いた透過拡散試験によって収着・拡散データを取得するとともに、室内試験データをもとに原位置条件のパラメータを補正・推定する手法を適用して原位置試験の予測評価を行った。

室内試験では、ディスク状の黒雲母片麻岩試料（直径2 cm、長さ0.5 cm）を用いて、放射性核種（HTO, Na-22, Cl-36）をトレーサーとした循環型透過拡散試験を実施した。ここでは、これま

での試験で十分な破過データが得られているHTOとNa-22を対象に減衰・破過曲線を図3.2-6に示す。また、HTOとNa-22の減衰・破過曲線をFickの拡散方程式の厳密解を用いてフィッティングし、D_eを算出したところ、それぞれ8.8×10^{-13} m²/s、3.0×10^{-13} m²/sであった。上記①, ②で評価したように、これまでのグリムゼルの花崗閃緑岩で得られている拡散試験の結果と、オンカロの黒雲母片麻岩の黒雲母含有率や配向性を考慮すれば、Naのような陽イオンのD_eはHTOのD_eより高くなる陽イオン加速効果が顕在化することが考えられた。しかし、本試験の結果では、Na-22のD_eはHTOのD_eより低い値を示し、予想された傾向とは一致しなかった。当該岩石は間隙率が非常に低く、既報の拡散データにもばらつきが大きいこともあり、試験に使用した片麻岩の鉱物組成や間隙特性等によって試験結果が影響されることが考えられるため、今後既報の拡散データとの比較等を含めてさらに検討していく必要がある。

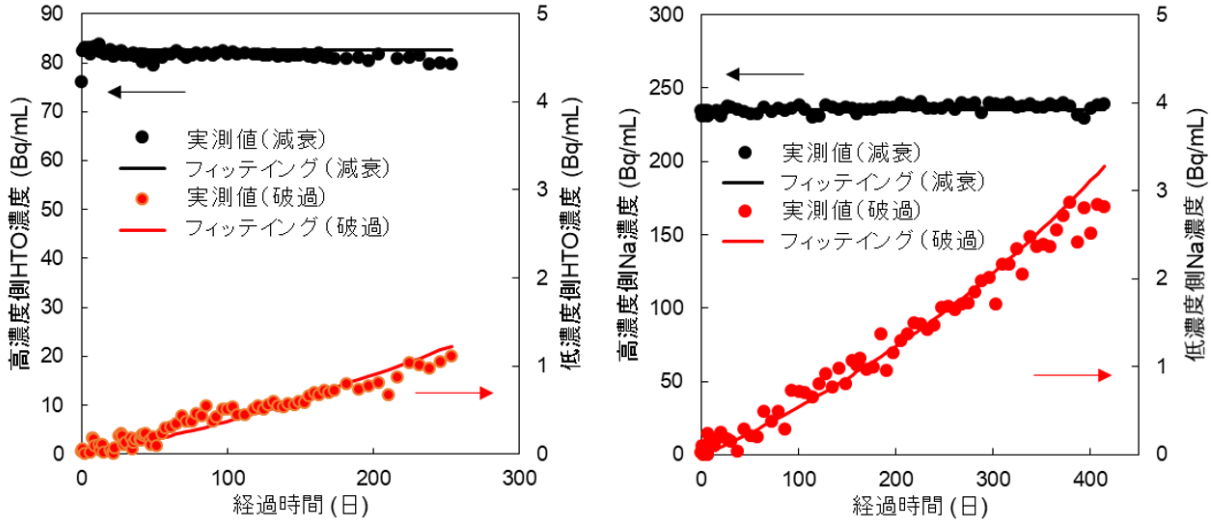


図3.2-6 オンカロの黒雲母片麻岩中のHTO(a)とNa-22(b)の透過拡散試験の結果

フィンランドのオンカロ地下施設のREPROサイトにおいて、地下施設坑道に近接する複数の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原位置トレーサー拡散試験が実施された（Aromaa et al., 2019）。原位置試験の試験孔位置の概要図を図3.2-7(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。試験の注入孔には放射性核種（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た。トレーサー注入後、注入孔から葉理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・破過曲線が取得された。PP327及びPP324の観測孔は、注入孔からそれぞれ150mm、115mmの距離に位置する。図3.2-8に各トレーサーの初期濃度で規格化した減衰・破過曲線を示す。減衰曲線では、Cl-36> HTO> Na-22> Ba-133>Cs-134の順に減衰傾向が大きく、これはトレーサーの拡散及び収着特性と一致した結果となった。一方、破過曲線では、観測孔PP324とPP327いずれにおいても、非収着性であるHTOとClの透過が観測され、それら以外の収着性の元素の透過は観測されなかった。PP324とPP327のHTOとCl濃度はどちらもおよそ1000日前後で平衡に達しており、平衡後のPP324 とPP327のHTO及びClの破過曲線を比較すると、PP324とPP327の注入孔からの距離の違いにかかわらず、HTOとClの破過濃度に大きな違いは現れなかった。また、葉理構造から予想された拡散係数の異方性の影響もそれらの破過曲線からは観測され

なかった。

室内試験データから原位置における拡散・収着パラメータを推定する手法によって、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3.2-7(b)に示すようなマトリクス領域と注入孔・観測孔から1 mm以内に掘削に伴う影響領域（BDZ：Borehole Disturbed Zone）が存在するモデル体系を構築し、GoldSimコード（ver. 11.1; GoldSim Technology Group, 2014）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K_d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_e及びK_dは一定値とした。マトリクス領域及びBDZの各トレーサーのD_e及びK_d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。また、PP326からPP324の方向に対して平行D_e、PP326からPP327の方向に対して直交D_eをそれぞれ設定した。シミュレーションに使用したパラメータを表3.2-3に示す。シミュレーションによる各トレーサーの減衰・破過曲線を図3.2-8に示す。原位置試験データと比較し、観測孔でのHTOとClの破過、及び減衰曲線の各トレーサーの減衰の傾向性は定性的に予測することができた。しかし、減衰・破過曲線ともに、原位置試験データとシミュレーション結果は定量的には一致していないため、今後、モデルやパラメータの設定方法及びそれらの不確実性についてさらに検討していく計画である。

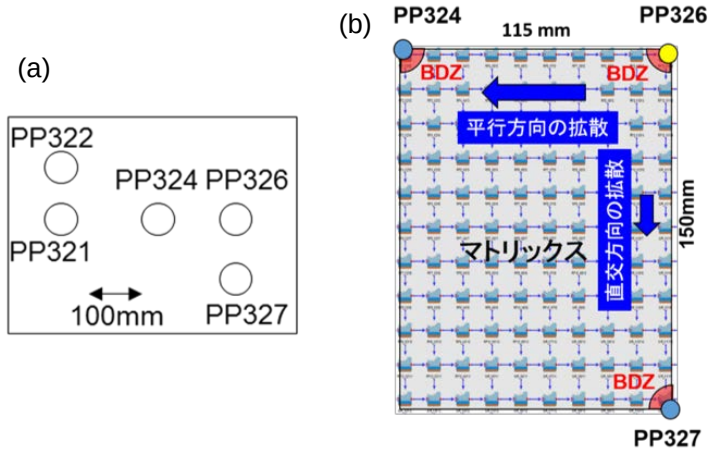


図3.2-7　オンカロにおける原位置拡散試験の試験孔レイアウト(a)及び解析モデルの概要図(b)

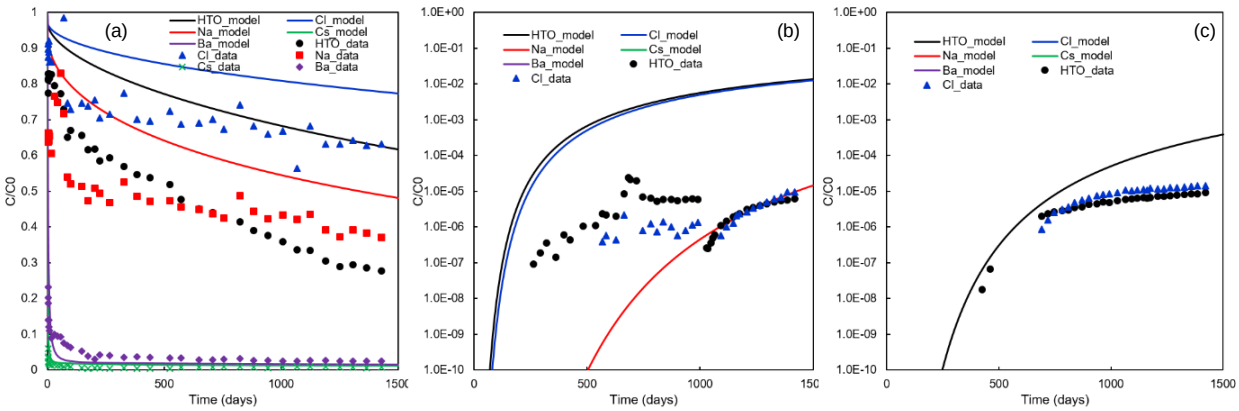


図3.2-8　オンカロにおける原位置拡散試験結果とシミュレーション結果の比較：
(a)減衰曲線、(b)破過曲線（PP324）、(c)破過曲線（PP327）

表3.2-3　シミュレーションに用いた核種移行パラメータ

	BDZ（最大値）			マトリクス		
	平行D_e (m^2/s)	直交D_e (m^2/s)	K_d (m^3/kg)	平行D_e (m^2/s)	直交D_e (m^2/s)	K_d (m^3/kg)
HTO	5.2×10^{-12}	2.5×10^{-12}	-	2.2×10^{-13}	1.1×10^{-13}	-
Cl	4.6×10^{-12}	6.7×10^{-14}	-	2.0×10^{-13}	2.9×10^{-15}	-
Na	4.0×10^{-12}	1.9×10^{-12}	9.5×10^{-7}	1.7×10^{-13}	8.1×10^{-14}	8.3×10^{-7}
Cs	4.0×10^{-11}	1.9×10^{-12}	3.0×10^{-2}	1.7×10^{-13}	8.1×10^{-14}	1.6×10^{-2}
Ba	1.1×10^{-12}	5.5×10^{-13}	2.6×10^{-2}	4.6×10^{-14}	2.2×10^{-14}	1.7×10^{-2}

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、割れ目を含むコア試料中の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実施してきた（日本原子力研究開発機構, 2018; Tachi et al., 2018）。先行事業では比較的単純な小規模な割れ目試料を対象としてきたが、実際の割れ目に適用可能なより現実的なモデルを構築するため、本事業ではより複雑で、より大きなスケールの割れ目を含むグリムゼルの岩石試料を対象として、これまでに開発してきたモデル化手法の適用と改良を目指した研究に着手した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2019）。その最初のステップとして、図3.2-9に示すような、より複雑な割れ目特性を有する小規模なグリムゼルの割れ目試料（割れ目の幅：約30 mm、長さ：50 mm）を用いて、先行研究と同様の多様なトレーサー（HDO: 重水, Cs, Se, Ni, Eu）を用いた割れ目中トレーサー試験と、より複雑な割れ目性状を考慮したモデルの改良を進めてきた。平成30年度にトレーサー試験データ取得とガウジ層を簡易に考慮したモデル検討までを行ったが、平成31年度は複雑な割れ目性状をX線CT像の解析から定量評価するとともに、その知見を反映したより現実的なモデルの改良を試みた。

トレーサー試験に用いたグリムゼルコア試料は、図3.2-9(a)に示すように、先行研究（Tachi et al., 2018）と同じコアから採取したものであるが、より複雑な形状を有しており割れ目内にガウジ層を挟み込んだ形状となっていることが確認できる。X線CT像からもその状況は確認でき、このX線CT像を同図(a)に示すように、ガウジ領域を分割することによって、割れ目開口幅と割れ目中央部に連続的に存在するガウジ領域の形状を定量評価することを試みた。割れ目の平均開口幅は、同図(b)に示すように、割れ目上面と下面のそれぞれの基準面に対する高さ分布の差分をとることによって得られる割れ目開口幅の分布から、平均的な開口幅として4.37 mmが導出された。一方で、ガウジ領域の形状については、同図(c)に示すように、X線CT像のガウジ領域に対して幅と厚さの分布から平均値を導出したうえで、ガウジ領域の形状や、割れ目における連続性などを仮定することによってガウジ領域の厚さを定量的に評価することができる。

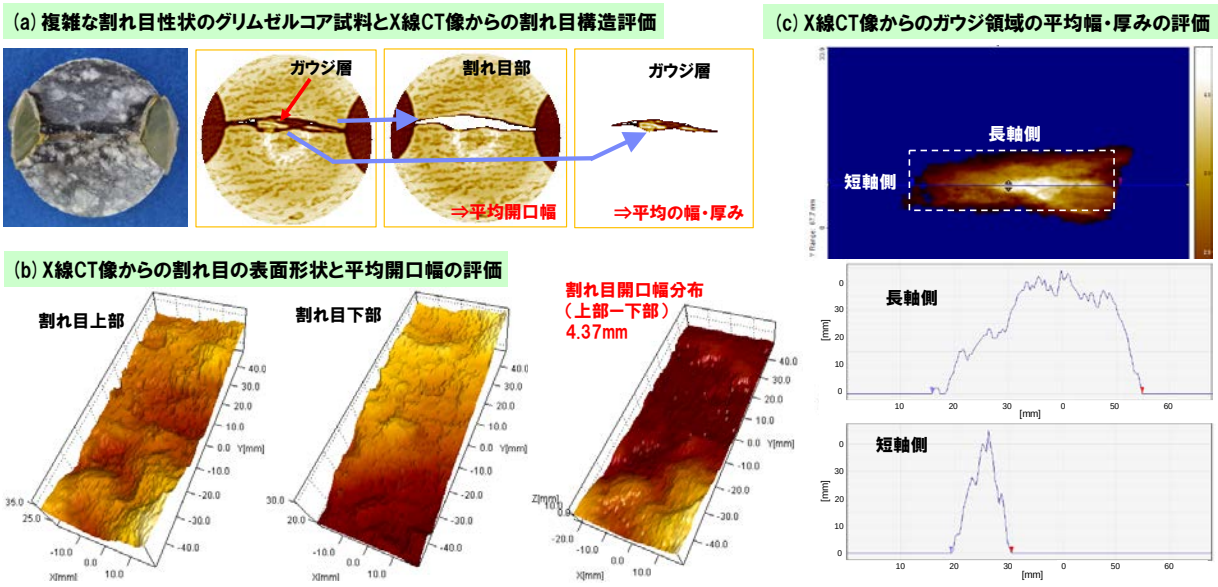


図3.2-9　より複雑な割れ目を有するグリムゼルの花崗閃緑岩コア試料とX線CTに基づく割れ目構造の評価方法(a)、割れ目開口幅の評価(b)及びガウジ領域の形状評価(c)

このような複雑な割れ目形状に対して、X線CT像の解析によって得られた割れ目の平均的な開口幅とガウジ領域の平均的な幅と厚さを反映したモデル解析を行った。図3.2-10に室内トレーサー試験装置と得られた破過データを示すが、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ている（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2019）。このトレーサー元素間の遅延の傾向（Eu > Ni > Cs >Se ≈ I）は、より単純な割れ目試料に対する先行試験（Tachi et al., 2018）と整合するものであったが、収着性トレーサーでは複雑な割れ目性状を反映してより遅延が大きな結果であった。この試験結果に対し、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層構造を仮定し、それぞれの層の厚さや間隙率、収着・拡散特性を室内試験・分析データから設定した、先行研究（Tachi et al., 2018）で構築したモデル概念と核種移行パラメータを適用してモデル解析を行った。モデル概念としては、図3.2-10(b)に示すように、ガウジ領域の存在とその形状の効果を確認するため、①ガウジ領域の存在を考慮しないモデル、②割れ目領域が割れ目全面に存在するモデル、さらに、③上記のガウジ領域の幅と厚さの定量評価結果を反映したモデルを設定した。解析は汎用的なシミュレーションソフトウェアであるGoldSim（ver. 11.1; GoldSim Technology Group, 2014）を用い、割れ目表面からマトリクスにかけての3層構造のそれぞれの厚さや間隙率、収着・拡散係数等のパラメータは、全て先行研究で導出した値（Tachi et al., 2018）をそのまま適用した。

これら3つのモデルによる解析結果を実測された破過データとともに、図3.2-10(c)に示す。これらのうち、非収着性のIと弱収着性のSeについては、破過データの立ち上がりを概ね表現できているが、非収着性のIで3つのモデル解析結果がほとんど一致していることから、本試験体系ではマトリクス拡散の効果は見えにくい条件であることがわかる。信頼性の高いデータ取得が可能である収着性トレーサーのCsについては、ガウジ領域を考慮しないモデルでは過小評価、全面にガウジ層を考慮した場合には過大評価となっているのに対し、ガウジ領域をより現実的な状態で仮定したモデルによって、実測データにより近い結果を得ることができた。しかしながら、より高収着性のNiについては、ガウジをより現実的に考慮したモデル③と実測との乖離が確認でき、Niの場合には岩石中にもともと含まれているNiの影響、収着・拡散パラメータの不確実性も相対的に

大きいことから、これらの不確実性も考慮した評価を引き続き検討していく。

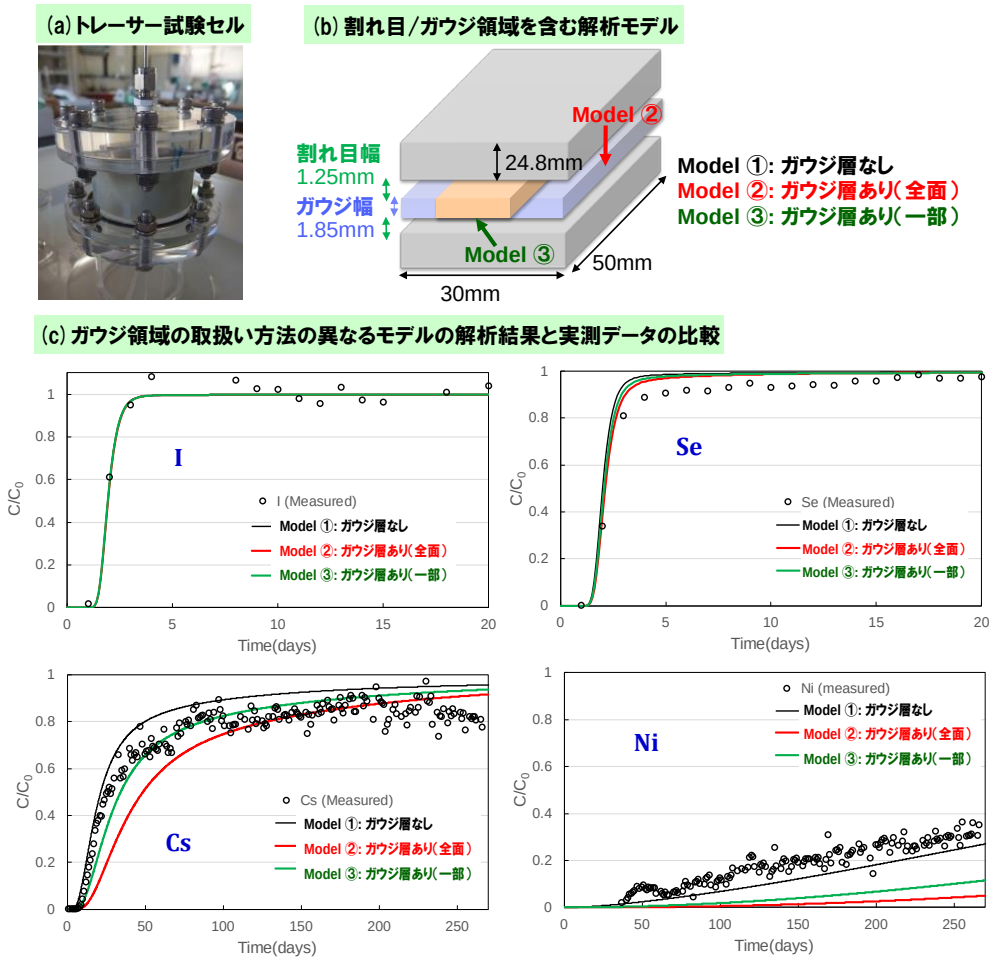


図3.2-10　より複雑な割れ目を有するグリムゼル花崗閃緑岩を対象としたトレーサー試験(a)に対する複数の解析モデルの設定(b)と、解析結果と実測データとの比較(c)

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連続した流路（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、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。平成30年度に、図3.2-11(a~c)に示すように、原位置試験の候補として検討している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割れ目を中心付近に含む20cmほどの直径と長さのコア試料を採取した。さらに、同図(d~f)に示すような収着・拡散試験やトレーサー試験の試料を加工するとともに、予備的なX線CT分析などを行った（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2019）。

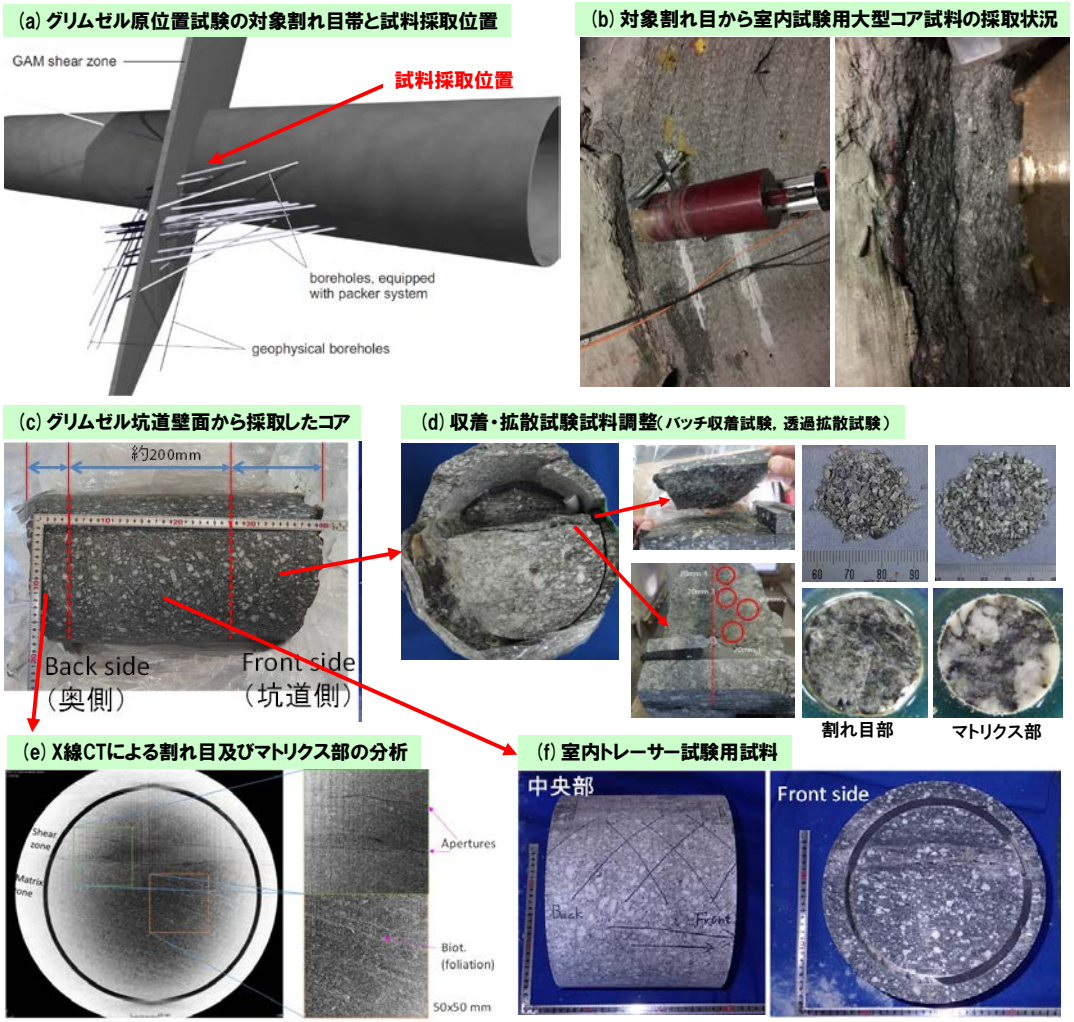


図3.2-11　グリムゼル原位置試験場のGAMサイトの割れ目帯(a)とコア採取状況(b)、採取した割れ目試料(c)とX線CT分析結果(d)、収着・拡散試験及びトレーサー試験試料の加工状況(e, f)

大型のコア試料から加工した割れ目部と割れ目から離れたマトリクス部の2種類の試料を用いて実施した、移行特性の異なるトレーサー（HDO: 重水, Cs, Se, Ni, Eu）を対象とした透過拡散試験及びバッチ収着試験の結果を図3.2-12に例示する。同図(a)にCsの拡散試験結果（減衰・破過データ及び拡散方程式のフィッティングから導出した拡散係数）を例示するが、いずれのトレーサーでもマトリクス部と比較して割れ目部の実効拡散係数が低い結果となり、拡散係数を低下させる要因が割れ目表面近傍に存在する可能性が示唆された。この傾向は、グリムゼルの割れ目試料を用いた先行試験の結果（Tachi et al., 2018）と同様であった。一方、割れ目部近傍とマトリクス部の粒径サイズの異なる粉末試料を用いたバッチ収着試験結果からは、同図(b)に示すように、Eu>Ni>Cs>Seの分配係数の傾向性が明瞭に確認されたほか、元素のよって程度は異なるものの、粒径サイズが大きくなるほど分配係数は低下する傾向や、割れ目部の試料の方がマトリクス部に比べて分配係数がやや大きい傾向が確認された。これらの収着分配係数の傾向についても、先行試験の結果（Tachi et al., 2018）と概ね同様の傾向であった。

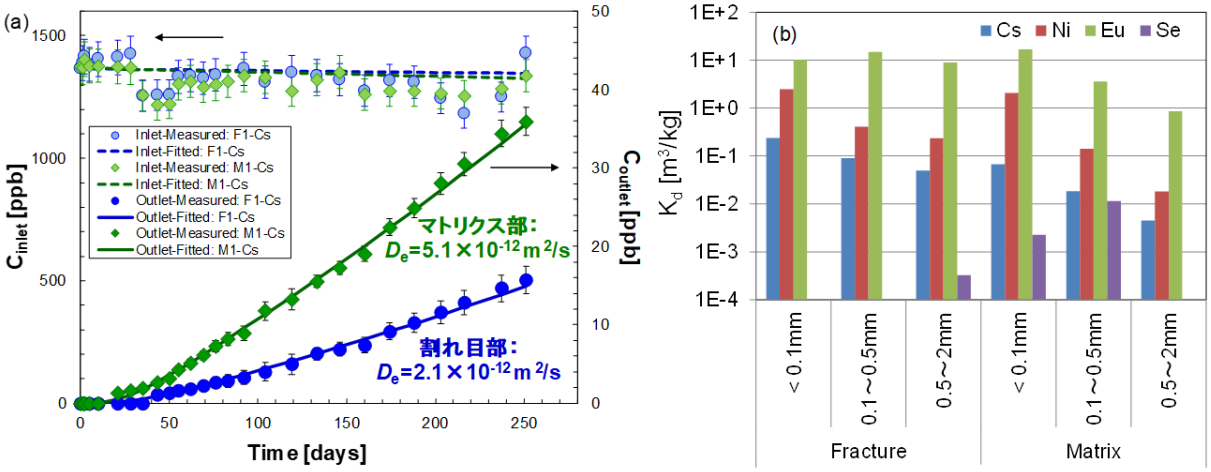


図3.2-12　グリムゼルの大型コア試料の割れ目部とマトリクス部を対象とした拡散試験結果（Csの例）(a)及びバッチ収着試験結果(b)

大型コア試料を用いた室内トレーサー試験の概念図と試験セル設置状況、試験結果を図3.2-13に示す。コア試料は、同図(a, b)に示すように、コア周辺部をシリコン樹脂で補強するとともに、トレーサー接触を対象割れ目周辺に限定する処置を行ったうえで、アクリル製のセルに設置した。この状態で、上記の拡散試験と同様の移行特性の異なるトレーサー（HDO：重水, Cs, Se, Ni, Eu）を含む混合トレーサー溶液を、定流量ポンプを用いて一定流量で通液させた。流量は、これまでの先行研究での条件設定や試料のサイズ等を考慮して4mL/hour(96mL/day)に設定した。取得されたトレーサーの破過データを同図(c)に示す。非収着及び低収着性のI、Seについては、数日のうちに破過し、低収着性を有するSeにおいて、非収着性のIよりも遅延される傾向が確認できた。一方で、収着性のCsについては、40日程度かけて徐々に濃度が上昇する傾向が確認できたが、40日付近から濃度上昇が停滞し、さらに50日以降で濃度がわずかながら減少する傾向が確認された。さらに高収着性のNiは、Csよりさらに破過が遅れる傾向で、50日付近に一度濃度が減少して、その後再度濃度が上昇してくる傾向はCsよりも明瞭であった。このようにトレーサー試験に結果は、トレーサーの移行特性に応じた遅延の傾向性（Eu > Ni > Cs > Se > I）が明瞭に確認でき、先行研究で得られた傾向（Tachi et al., 2018）とも一致するとともに、上記の収着・拡散試験から確認された各トレーサーの収着・拡散特性の関係とも整合する結果となった。一方で、40日以降のCsとNiの濃度変化からは、トレーサーの移行経路が試験中に変化した可能性が示唆され、後述するような割れ目の連続性や割れ目中のトレーサー分析の結果も踏まえて、この原因の詳細について検討していく必要がある。

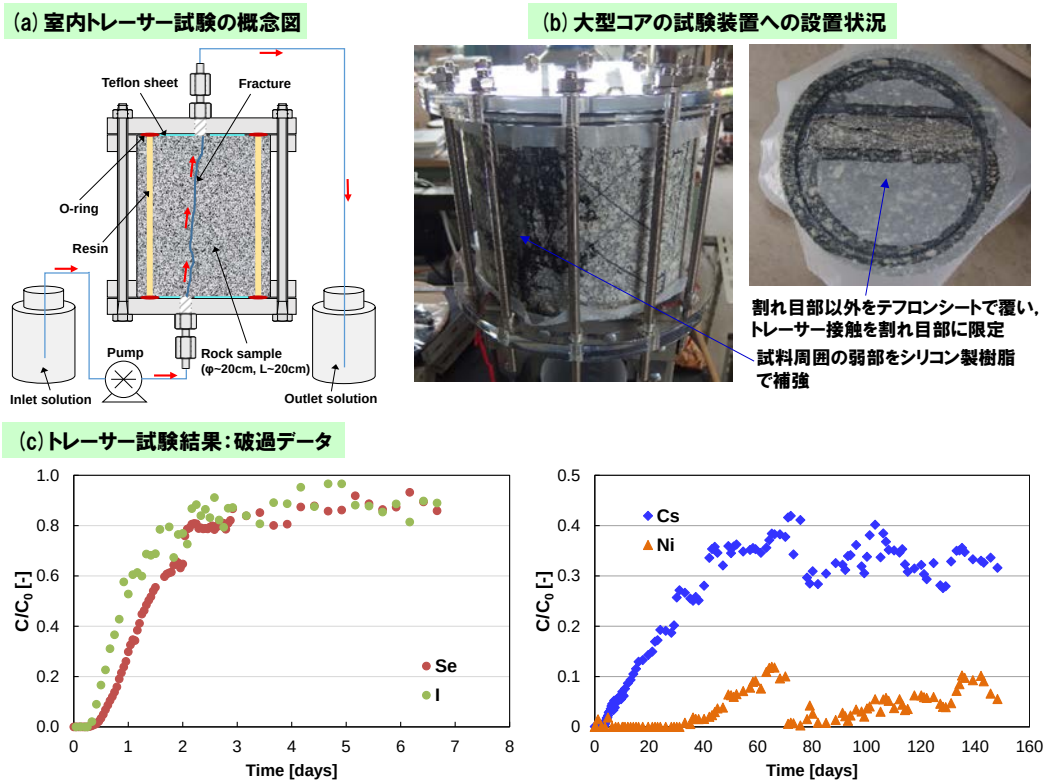


図3.2-13　グリムゼルの大型コア試料を用いた室内トレーサー試験の概念図(a)、試験装置・試料設置状況(b)、トレーサー試験で得られた破過データ(c)

大型割れ目試料中に含まれる割れ目部周辺とそこからマトリクス部にかけての鉱物や間隙の分布の不均質性を把握するため、図3.2-11(c)に示したBackside（坑道からみて奥側）の切断試料を用いて、EPMAによる反射電子像及び元素マッピングを取得した。図3.2-14(a)に示すように、試料観察から確認された2本の割れ目を対象に、同図(b)の左側に示すような10mm×10mmの反射電子像を観察した。図3.2-14 (b-1)のAperture 2に対応する反射電子像（BEI）からは比較的単純な割れ目開口状況が確認されるのに対し、同図(b-2)のAperture 1に対応するBEIからはより複雑な割れ目性状が確認できる。後述するように、Aperture 1の方が試料全体に連続して存在し、支配的な移行経路である可能性が高いことから、さらに詳細な分析結果を同図の右側に示した。元素マッピングの結果を踏まえた鉱物分布もあわせて示しているが、同図(b-3)のBEIからは、上記の小規模なグリムゼルの割れ目を含むコア試料対象とした先行試験（図3.2-9参照）でも確認されたような、割れ目中にガウジ層が挟み込まれている状況が確認された。さらに、同図(b-4)からは、ガウジ層が黒雲母・白雲母を主体とし、また、割れ目内のガウジ部分には、より風化が進んだ粘土鉱物のバーミキュライト層を含む高間隙率の領域が存在することが確認できた。さらに、割れ目表面近傍には配向した雲母層の存在も確認できる。このように割れ目近傍にはガウジや風化粘土鉱物などが複雑に存在しているが、割れ目表面近傍に配向した雲母層と、さらに風化が進展した粘土鉱物層が存在している状況は、グリムゼルの先行研究で観察された性状（Tachi et al., 2018）に類似しており、この先行研究で構築してきた割れ目表面からマトリクスにかけての3層からなるモデルを適用することが可能と考えられる。

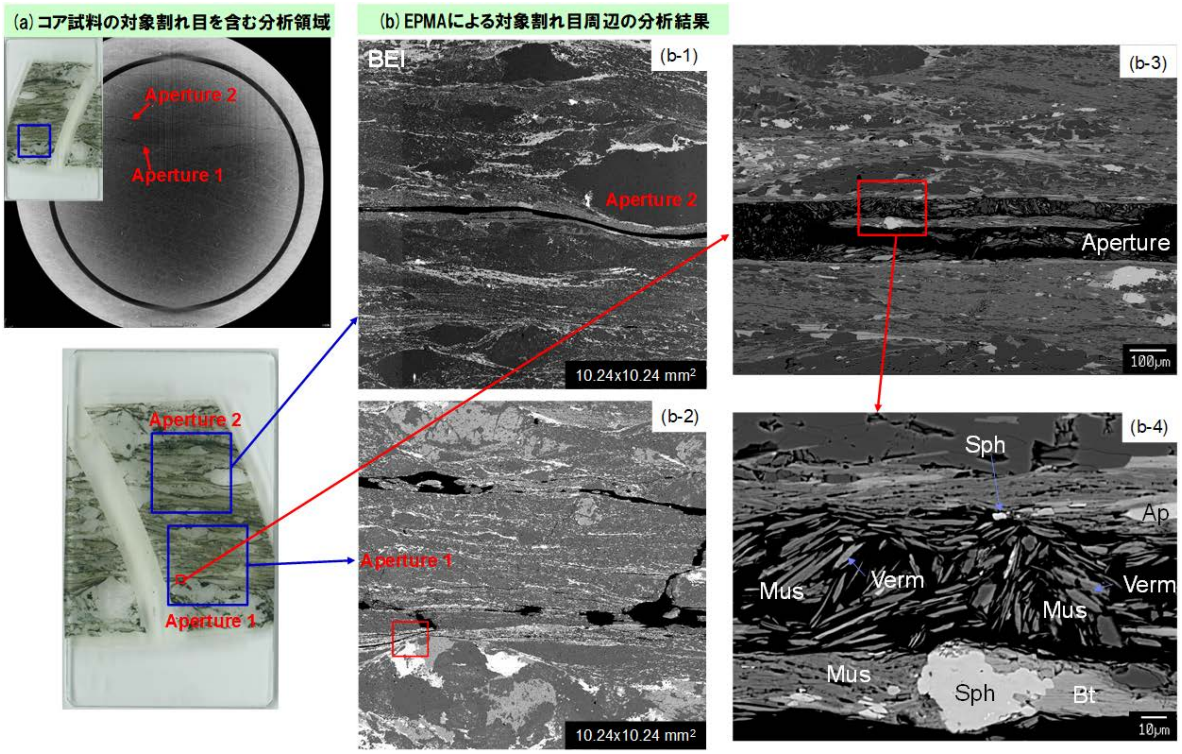


図3.2-14　グリムゼルの大型コア試料の割れ目周辺部の分析領域(a)とEPMA分析結果(b)

さらに、トレーサー試験後の大型コア試料を用いて、上記で示したような複数の割れ目の開口状態の分布やその連続性を把握するためのX線CT分析を行うとともに、割れ目近傍のトレーサー元素の分布状況を把握するため、図3.2-15に示すように、直径約20cm、長さ約20cmのコア試料を厚さ約5cmの4つの試料片の切断・分割した。なお、ここで4分割したのは、もとのサイズではX線CT測定が困難であり、X線CT測定が可能なサイズに調整するためと、割れ目部を開口させて割れ目表面のトレーサー分布を分析する際の作業性の観点からである。同図の右側に4つの試料のそれぞれの下面の写真を示すが、上記図3.2-14に示した2つの割れ目のうち、Aperture 1の方が開口が大きく、試料全体を通じて連続性が高い割れ目であることが確認できる。

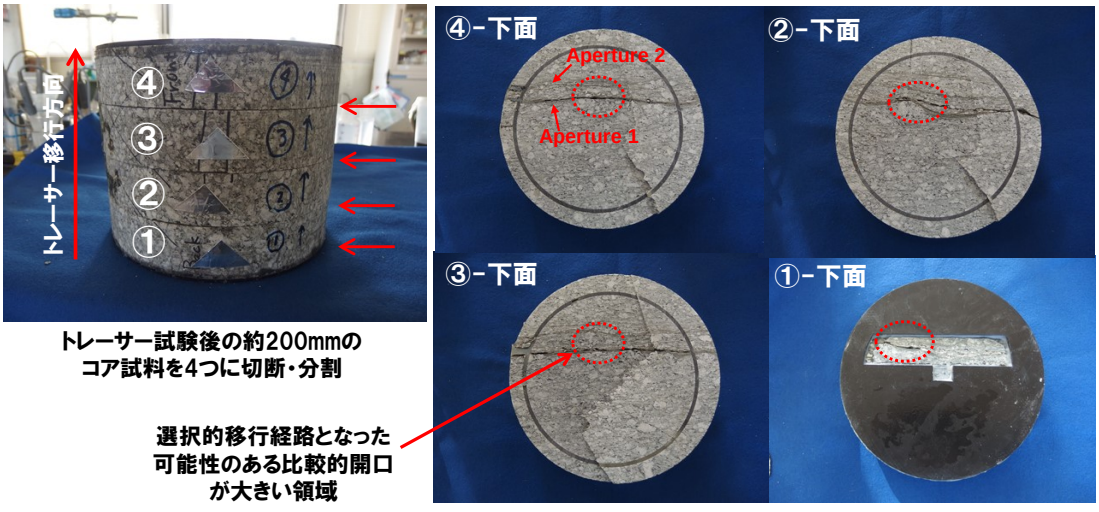


図3.2-15　グリムゼルの大型コア試料の切断・分割状況

上記の4分割されたコア試料を対象として、X線CT装置（Toshiba, TOSCANER 3000）を用いてCT像を取得した。図3.2-16に示すX線CT像からも、上記の図3.2-14に示した2つの割れ目のうちのAperture 1に対応する割れ目の開口が卓越しており、図3.2-16の右上に示す割れ目面に直交するX線CT像から、試料全体を通じて、この割れ目が連続していることが確認できる。また、Aperture 2についても、開口領域は相対的に狭いものの、試料全体に連続して存在していることが確認された。

今後、ここで得られたX線CT像の解析によって割れ目開口部の開口幅や連続性等を定量評価するとともに、割れ目部から試料を解体して割れ目表面のトレーサー元素の分布を取得し、一連の試験・分析データをもとに、不均質性を考慮した割れ目中の核種移行モデルの高度化と適用性確認を進めていく計画である。

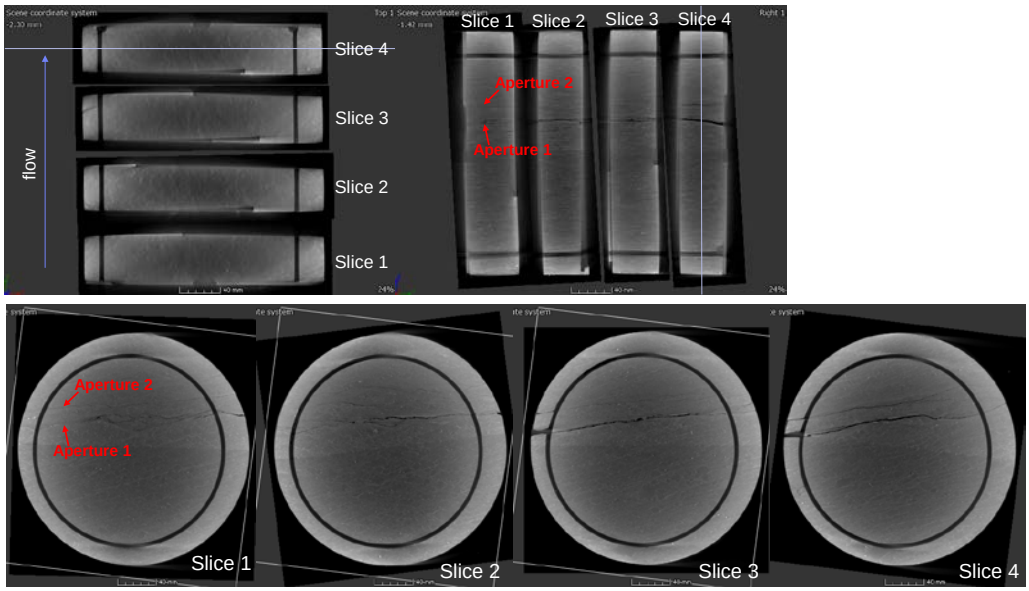


図3.2-16　グリムゼルの大型コア試料の分割試料のX線CT像

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

結晶質岩中の核種移行評価手法として、上記のようにマトリクス部と割れ目部を対象に、鉱物や間隙の分布の不均質性とその核種移行への影響に関する現象理解とそれを反映した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）。これらの成果をもとに、核種の収着・拡散や溶解沈殿等の核種移行現象のより精緻な取り扱い、実際の地質環境の不均質性や環境条件の変遷等が核種移行へ及ぼす影響を取り扱うための解析手法を構築し、核種移行評価への影響度の大きい重要なプロセスを抽出するとともに、その性能評価への反映方策を検討していくことが重要である。ここでは、平成30年度までに調査・検討してきた、核種移行プロセスや環境条件の変遷等が核種移行へ及ぼす影響を取り扱うための割れ目を有する岩石を対象とした解析手法（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019）をもとに、さらに大きなスケールまでの解析を可能とする解析手法の構築と、地質環境の変遷に伴う様々なプロセスを考慮した解析手法の検討を実施した。

解析手法の開発には、平成30年度に実施した環境変遷を考慮した核種移行解析検討（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019）と同様に、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）を用いた。平成30年度と同様に、結晶質岩の割れ目からマトリクス部を対象に、割れ目中の移流・分散、割れ目表面の変質層

からマトリクスにかけての拡散・収着を考慮するとともに、流入する地下水組成の時間変化とそれに伴う鉱物の溶解・沈殿反応や間隙率の変化を考慮した。対象とするスケールについては、平成30年度の0.5mのスケールでの検討（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019）に対して、ここでは500mの大きなスケールでの評価を検討した。解析体系を図3.2-17(a)に示す。割れ目からマトリクス方向へは、1mを25セルで構成し、割れ目部を1セル、変質領域（5cm）を5セル、残りの未変質マトリクス部（95cm）を19セルで表現した。割れ目面に平行な方向（500m）へは幾何級数的にサイズを増加させた100セルで構成した。平成30年度までの解析では、マトリクス領域での割れ目に平行な方向への拡散も考慮した2次元での解析を実施した。平成31年度で検討する、より大きなスケールでの解析での計算効率を考慮し、マトリクス領域での拡散を割れ目と垂直方向のみに限定した簡易な2次元モデル（以下、簡易2次元モデル）での検討を行うこととし、まずは、この簡易2次元モデルと従来の2次元モデルとの比較によってその有効性を確認した。解析については、平成30年度と同様に、核種としてCsを対象に、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。Cs濃度の経時変化は、1000年間は一定濃度のCsの流入が生じたあと、流入地下水中のCs濃度が徐々に（時間とともに線形で）低下していく系を設定した。割れ目内の移流・分散とマトリクスの拡散のみを考慮した両モデルでの試解析で得られた液相中Cs濃度分布を図3.2-17(b)及び(c)に示す。両モデルの解析結果を比較すると、割れ目面に平行な方向の拡散を考慮した2次元モデルの方が、Cs濃度分布がより遠方まで進展していることが確認できるが、それを無視した簡易2次元モデルとのCs濃度分布の差異は顕著ではないことから、ここでは計算効率の観点から簡易2次元モデルを用いた解析を実施することとした。

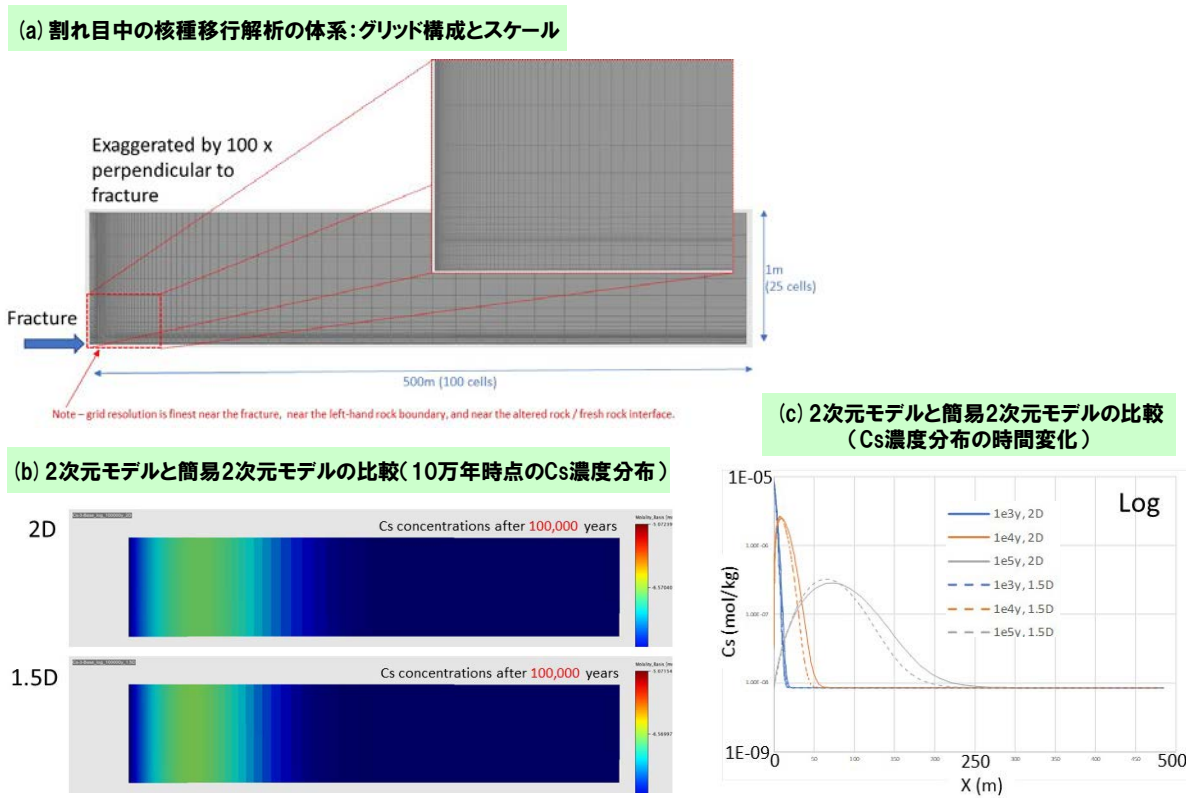


図3.2-17　割れ目中の核種移行解析体系のグリッド構成（a）と2次元モデルと簡易2次元モデル（図中で1.5Dと表記）の試解析で得られた液相中Cs濃度分布の比較（b, c）

このモデル体系でのCsの移行解析を、拡散や収着、鉱物の溶解・沈殿の考慮の有無や、その取扱い方法などを変更した複数のケースを設定して実施した。ここでは、鉱物の溶解・沈殿の考慮の影響に着目した解析結果を例示する。解析は上記の簡易2次元モデルの予察評価と同様に、1000年間は一定濃度のCsの流入が生じたあと、Cs濃度が徐々に低下していく条件で実施した。鉱物の溶解・沈殿は、方解石の沈殿・溶解と長石の粘土鉱物への変質を考慮した。図3.2-18(a)に示すCase-1は、上記と同様にマトリクス中の拡散のみを考慮したモデルで得られた液相中のCs濃度分布の時間変化である。同図(b)のCase-2は、Case-1に対して鉱物の溶解・沈殿を考慮したモデルであり、鉱物の沈殿反応に伴う間隙率の低下によって、マトリクス拡散が抑制され、その結果としてCs濃度分布の進展が抑制されていることが確認できる。さらに、Case-2に対して、マトリクス部での収着をK_dモデルで考慮したCase-3の解析結果を同図(c)に示す。収着を考慮した場合には、液相中のCs濃度が低下するためにCs濃度分布の進展がみえにくいが、同図右に示す固相に収着したCs濃度分布の時間変化から、大部分のCsは5m程度の範囲に留まっていることが確認できる。今後、拡散や収着、鉱物の溶解・沈殿、地下水条件の変遷等を変動させた解析によって、拡散や収着モデルの取り扱いの違い、環境条件の変遷、空間スケールのバリエーションが核種移行解析結果に与える影響を定量的に把握する。さらに、このような地質環境変遷や核種移行現象を精緻に取り扱うモデルと、地質環境変遷に伴う核種移行特性の変遷を、核種移行パラメータ（例えばK_d）の時間・空間的な変化で与える簡略化した評価手法とを比較することによって、環境変遷を考慮した核種移行解析手法の有効な方法論を検討していく計画である。

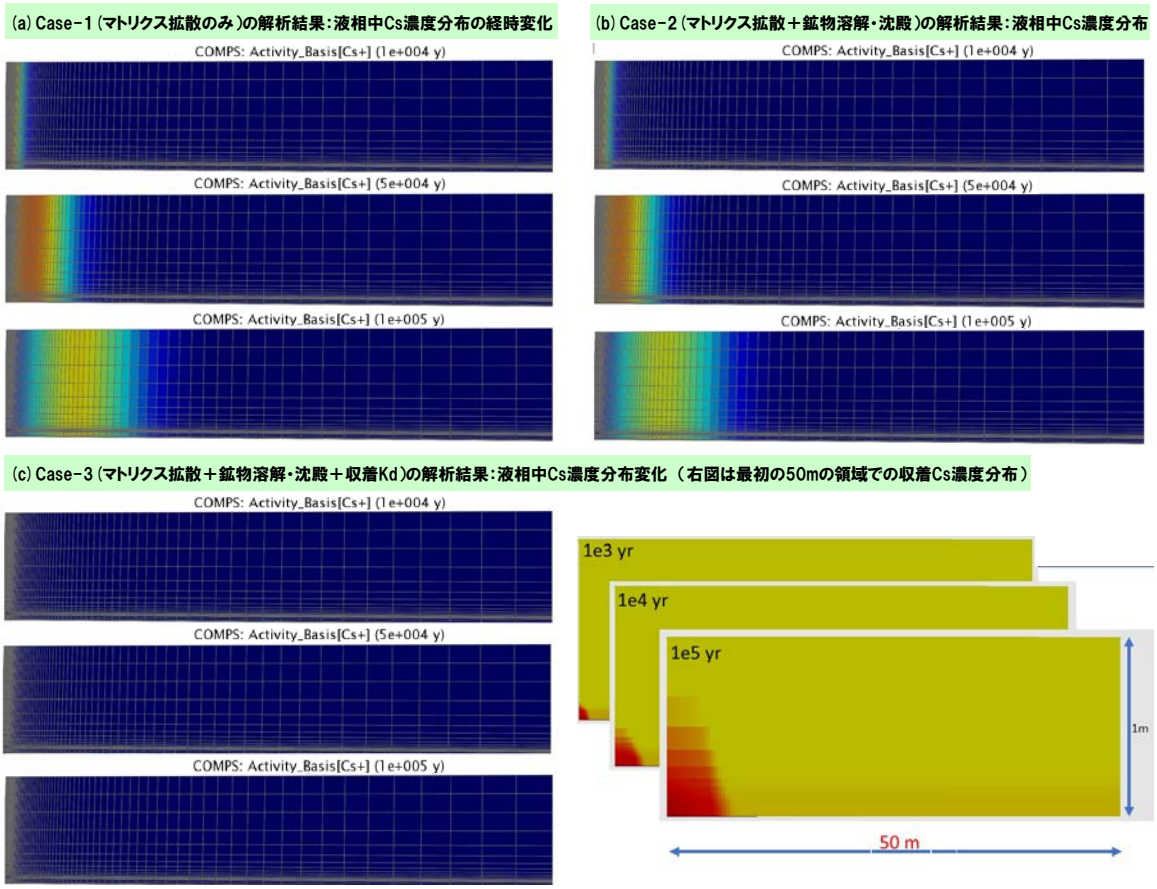


図3.2-18　割れ目中のCsの移行解析で得られたCs濃度分布の時間変化：(a)拡散のみを考慮したCase-1、(b)Case-1に対し鉱物の溶解・沈殿反応を考慮したCase-2、(c)Case-2に対しCsの収着（K_dモデル）を考慮したCase-3

(2) 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データの取得

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）。ここでは、幌延の泥岩マトリクス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観点と、後述する原位置において拡散モデルを確証していく観点から研究に取り組むこととする。このような観点から、幌延の泥岩マトリクスの層理面と関連付けた拡散特性を把握するため、層理面に対して直交・平行方向に加工した試料（幌延URLの350m坑道から採取した稚内層試料）を対象に、Na^+とCl^-の拡散データを透過拡散試験により取得した。高濃度側と低濃度側のNa^+とCl^-濃度の経時変化を図3.2-19に示す。30日までの試験データにより得られたCl及びNaの実効拡散係数は、それぞれ平行試料で9.7×10^{-11} m²/s、2.2×10^{-10} m²/s、直交試料で6.8×10^{-11} m²/s、2.0×10^{-10} m²/sであった。水平・直交のいずれの試料でも、実効拡散係数はNa>HTO>Clの順（HTOのデータは平成30年度の報告書を参照：日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019）で、先行研究と同様の陽イオン加速・陰イオン排除の明瞭な傾向が確認できた。層理面に平行方向と直交方向で比較すると、いずれも平行方向の方が実効拡散係数は大きい値を示し、Clにおいてやや大きな差異が確認された。

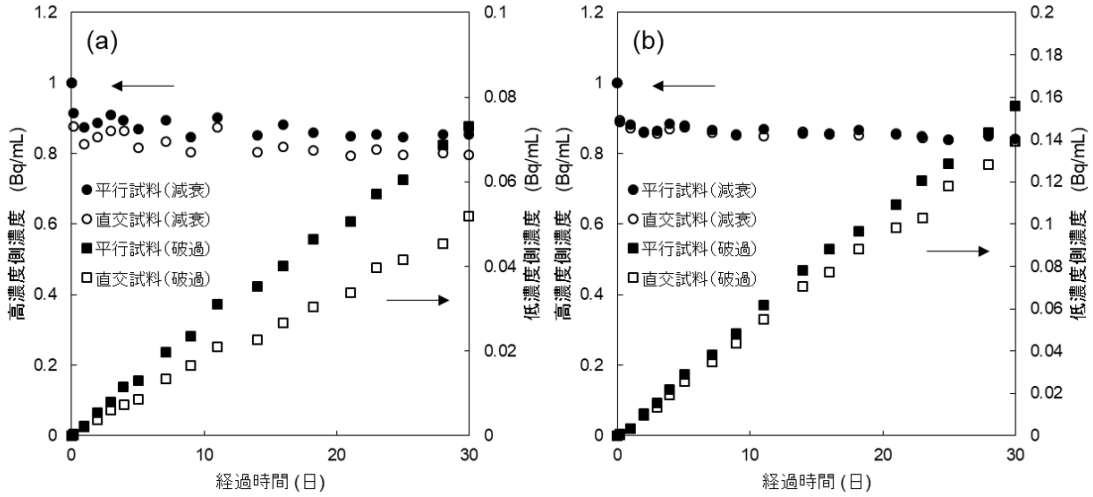


図3.2-19　幌延の泥岩マトリクスの層理面に平行・直交方向の試料中の
(a) Cl ,(b) Naの拡散試験結果

② 幌延の泥岩マトリクス中の間隙特性評価

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把握する必要がある。ここでは、後述する核種移行モデルの高度化や原位置でのモデルの確証の観点から、幌延の泥岩の間隙特性や拡散特性とその層理面と関連付けた異方性の影響について、核磁気共鳴（NMR）法を適用した定量評価を検討した。一般的に、泥岩のような多孔質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、

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、H_2OとD_2O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、H_2Oで間隙を飽和させた試料、さらにD_2O溶液に浸漬させた試料を対象に水の^1H 緩和時間（T_2）分布を測定した。T_2測定は、Carr-Purcell-Meiboom-Gill シーケンス（CPMG法）（Meiboom et al., 1959）に基づくパルスシーケンスを作成して行った（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2019）。

層理面に直交する方向に加工した試料（直交試料）を対象に、H_2Oで間隙を飽和した後、D_2O溶液に1～3日間浸漬させた際のNMR信号のT_2分布を図3.2-20に示す。得られたT_2分布はD_2Oへの浸漬時間が長くなるにしたがって強度が減少しており、間隙を充填したH_2Oが時間の経過にしたがってD_2Oと化学交換している現象が確認された。同図(a)に示すように、H_2O飽和試料で得られたT_2分布は、10^{-3}から10^{-2} sに主ピークとその他の緩和時間領域に小さいピークをもつ。緩和時間は間隙サイズと比例することから、10^{-4} s程度の広いサイズ分布をもつ間隙が試料に存在すると考えられる。これらのピークに相当する間隙量を評価するために、5つの緩和時間(T_2<0.001、 0.001< T_2<0.01、 0.01< T_2<0.1、 0.1< T_2<1.0、 1.0< T_2)にピークを分類してピーク強度の割合を求めた（同図(b)）。0.001<T_2<0.01の主なピークが80%程度を占め、その他のピークは20%程度である。また、これまでの研究より堆積岩のような多孔質岩石には、膨潤性の粘土鉱物が含まれることが知られている（Tachi et al., 2011）。粘土鉱物中の水は極めて小さい間隙に存在する。そのため、T_2<0.001のピークは、粘土鉱物に取り込まれた水に相当すると考えられる。一方、0.01以上のT_2をもつ間隙は、比較的大きいサイズの間隙に分類される。主ピークは、0.001から0.01の領域で得られ、D_2Oの浸漬時間に関わらず80%から90%程度の強度である。逆ラプラス処理による強度の誤差(10%程度)を考慮すると、D_2O浸漬によるピーク強度の割合はほぼ一定と考えられる。

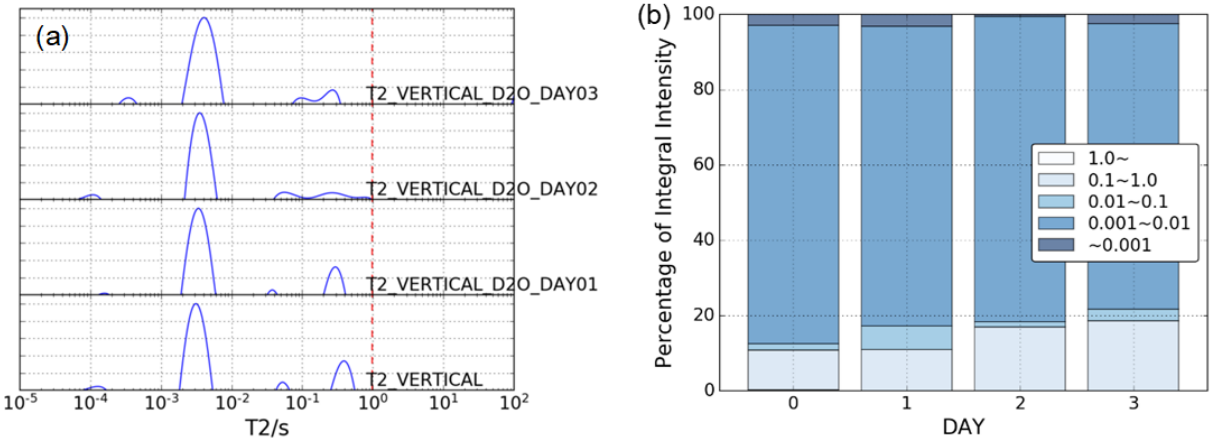


図3.2-20　層理面に直交する方向の泥岩試料のT_2分布(a)及びT_2分布から求めた間隙分布(b)

層理面に平行な方向に加工した試料（平行試料）を対象に、H_2Oで間隙を飽和した後、D_2O溶液に1 ～ 3日間浸漬させた際のNMR信号のT_2分布を図3.2-21に示す。図3.2-20の直交試料と同様に、D_2Oの浸漬による信号減衰と5つのT_2領域にピークが得られた。主ピークは、直交試料と同様に

0.001から0.01 sの領域で、D_2Oへの浸漬時間に依存せず80%程度であった。0.01以上でのT_2のピーク強度割合にややばらつきがみられるものの10%程度の範囲であり、D_2O浸漬による間隙中のH_2O分布の変化は小さいと考えられる。D_2Oに浸漬した直交及び平行試料を対象に得られたT_2分布の経時変化より、T_2分布で識別されたサイズの異なる5つの間隙は、等価に拡散する間隙として考えることができる。この結果の解釈として、それぞれの間隙が空間的に連結しており、化学交換によってD_2Oの拡散が各間隙で均等化されていると考えられる。拡散現象は、間隙の幾何学形状（間隙率や屈曲率）による整理が行われる。一般に、サイズの大きい間隙は、間隙率が大きく屈曲率も1に近い幾何学形状になることから、サイズの大きい間隙へのD_2O拡散は大きくなる。その結果、長いT_2をもつピークの減少が顕著に観測されるはずであるが、本研究の実験結果と一致しない。この理由は、サイズの異なる間隙が連結しており、速い交換時間によって、間隙間のD_2O拡散のコントラストが無視できる程度まで小さくなっているためと考えられる。今後、低温環境下での実験や重金属イオンによる交換実験等の化学交換の速度を小さくした条件での分析によって、間隙のサイズや連結性と物質移動特性との関係に対する理解をさらに深めることができると考えられる。

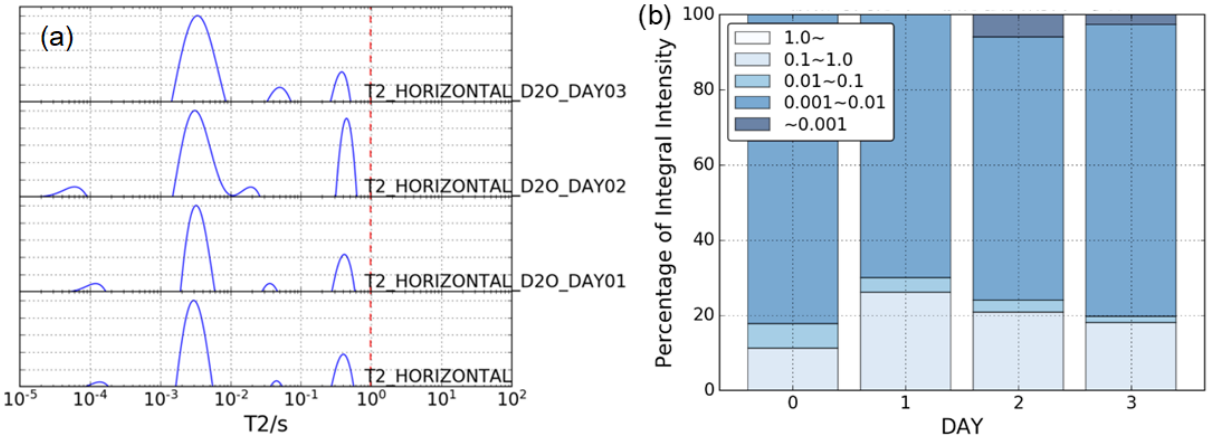


図3.2-21　層理面に平行な方向の泥岩試料のT_2分布(a)及びT_2分布から求めた間隙分布(b)

③ 粘土鉱物へのCs等核種の収着メカニズムの評価

幌延の泥岩中に含まれる粘土鉱物（スメクタイト、イライト、バーミキュライト）はCs等核種の収着現象を支配すると考えられ、これらの粘土鉱物への核種収着モデルによって泥岩中の核種収着を解釈できる可能性を示してきた（Tachi et al., 2011; 2016）。本研究では、^{133}Cs固体NMRにより、粘土鉱物に吸着したCsの吸着サイトの同定と定量を目標とし、モデル構造の第一原理電子状態計算により実測可能な^{133}Cs NMRパラメータの解釈を試みた。先行研究においてスメクタイトへのCsの吸着現象の解明に取り組んできており（Ohkubo et al., 2018）、これまでの研究より、原子選択性のある固体^{133}Cs NMR法は、そのスペクトル上で複数の吸着サイトを識別・定量できること、モデル構造の第一原理計算でピークの帰属ができる可能性を示してきた。本研究では、より包括的に粘土鉱物の特性に応じたCs吸着構造を^{133}Cs NMRによって把握するために、さまざまな組成をもつ粘土鉱物の第一原理計算を行い、Cs吸着構造と^{133}Csケミカルシフトの相関を調べた。

3x2x1のスーパーセルで作成したモンモリロナイトの最適化構造を図3.2-22に示す。この構造では、四面体層SiのAl置換は1つで八面体層AlのMg置換は5つで6個のCsが層間に吸着しているモデルである（層の負電荷は-6）。この最適化構造を基準に6個の置換サイトを四面体と八面体に割り

当てて構造を作成し（図3.2-23）、構造最適化計算を行った。置換サイトを変えて作成したモンモリロナイトのケミカルシフトを表3.2-4に示す。四面体の置換サイト数が減るにしたがってケミカルシフトは高磁場側にシフトするが、四面体の置換サイト数が0の場合、もっとも低磁場のケミカルシフトとなる。このように層電荷が同じ場合でも、置換サイトによってケミカルシフトは著しく変化することがわかった。

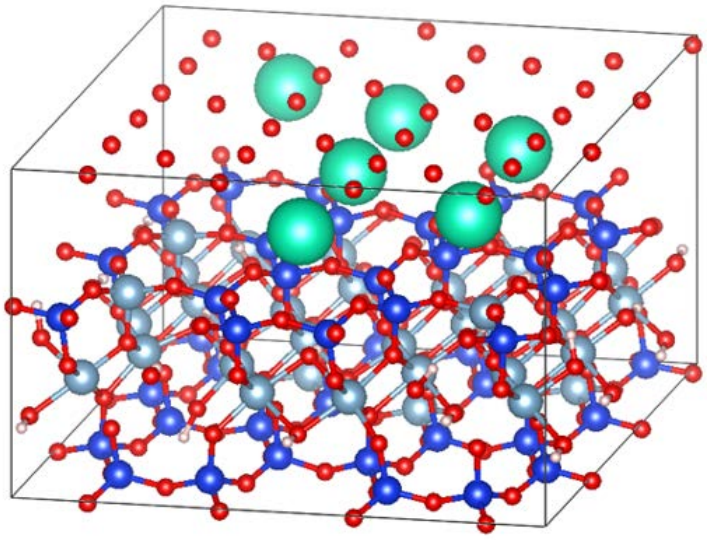


図3.2-22　3x2x1のスーパーセルで作成したモンモリロナイト
四面体層SiのAl置換は1つで八面体層AlのMg置換は5つ
（赤; O，青; Si，白; H，橙; Mg，銀; Al，黄緑; Cs）

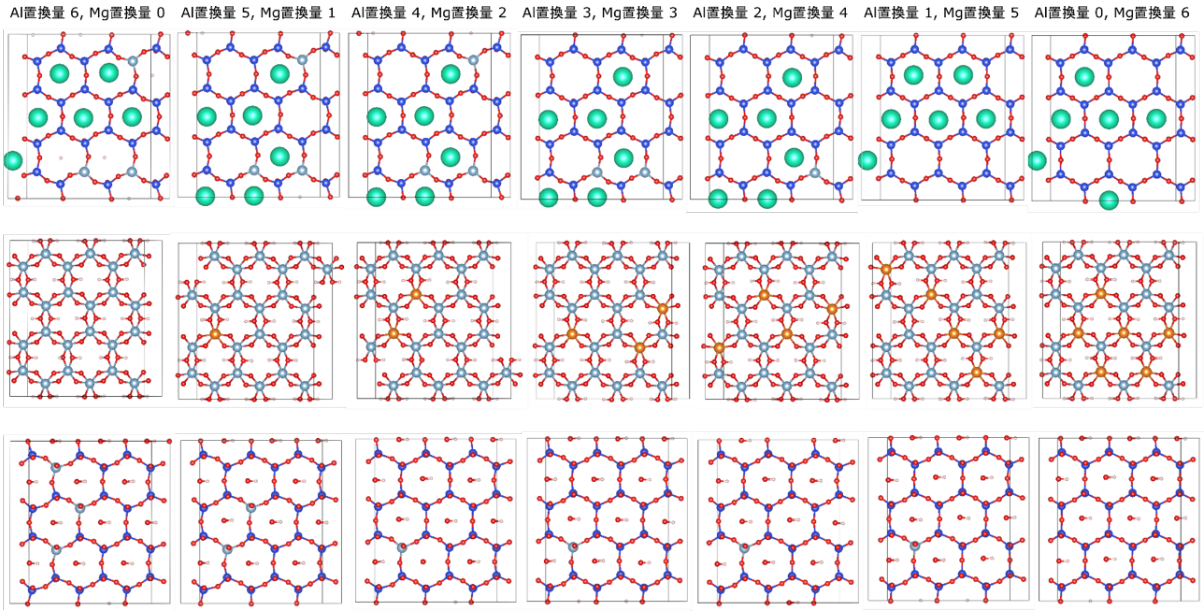


図3.2-23　層の負電荷を生成する置換サイトを八面体及び四面体に変えて作成した
3x2x1スーパーセルのモンモリロナイト構造
（赤; O，青; Si，白; H，橙; Mg，銀; Al，黄緑; Cs）

表3.2-4　層の負電荷を八面体及び四面体に変えて作成した3x2x1スーパーセルのモンモリロナイトの^{133}Cs ケミカルシフト(ppm), Al(IV)は四面体層SiのAl置換数

Al(IV)	Cs1	Cs2	Cs3	Cs4	Cs5	Cs6
6	-4.7	6.2	23.9	25.3	31.5	39.4
5	-36.4	-11.0	-10.3	-9.1	-2.7	-0.2
4	-40.3	-30.1	-23.9	-6.5	-1.3	1.2
3	-32.5	-25.3	-20.8	-16.9	-7.5	3.9
2	-39.8	-31.6	-28.3	-19.7	-7.5	3.9
1	-21.6	-19.2	-5.5	-3.5	10.9	15.6
0	10.3	16.0	21.0	26.2	28.0	32.7

次にイライトに吸着した^{133}Csのケミカルシフトを計算するために、天然のイライト組成になるようモンモリロナイトの層構造をベースに初期構造を作成した。作成した構造は、1層3x2x1と2層2x1x2の2パターンとした。構造最適化によって得られた格子定数とケミカルシフトを表3.2-5及び表3.2-6に示す。格子定数は、3x2x1と2x1x2のスーパーセルでほぼ等しい結果となった。ケミカルシフトは、モンモリロナイトと比較して高磁場側にシフトした。イライトは四面体SiのAl置換サイトを持たないため、四面体Alによる電子吸引の影響を受けず低磁場側のケミカルシフトが出現しないと考えられる。

表3.2-5　構造最適化によって得られたイライトの格子定数

	A	b	c	alpha	beta	gamma
3x2x1	15.82	18.19	11.27	90.00	100.77	90.00
2x1x2	10.55	9.09	22.53	90.00	100.77	90.00

表3.2-6　イライトの最適化構造で得られた^{133}Cs ケミカルシフト(ppm)

	Cs1	Cs2	Cs3	Cs4	Cs5	Cs6
3x2x1	-15.1	-22.7	-20.3	0.2	-11.2	-22.4
2x1x2	-19.8	-19.9	-15.3	-15.3		

平成31年度は、層電荷が一定で置換サイトを変えたモンモリロナイト及びイライトに吸着した^{133}Csのケミカルシフト計算を行った。計算から得られたケミカルシフトは、定性的にCsの吸着構造を反映するが、層の組成や置換サイト、層間距離に依存し厳密にCs吸着構造と^{133}Cs ケミカルシフトを結びつけることが難しい。今後、さらに吸着構造と^{133}Cs ケミカルシフトのデータを蓄積するとともに、統計処理等手法を利用した解析により構造と^{133}Cs ケミカルシフトの関係を定量的に結びつけ、Csの吸着構造を^{133}Cs NMRスペクトルから評価できる手法を検討していく。

④ 幌延の泥岩マトリクス中の核種移行モデルの開発

核種移行評価上の重要パラメータである緩衝材及び岩石中の核種の収着・拡散パラメータは、化学環境条件によって大きく変化するため、メカニズム理解に基づく現象論的モデルの開発が重要となる。このような観点から、これまでの国内外のモデル開発動向を踏まえ、性能評価で対象とする多様な核種と幅広い地球化学条件への適用性、実際の処分環境で考慮すべき複合鉱物系や圧縮系への適用性といった視点を重視して、緩衝材ベントナイトを対象に、“統合収着・拡散モデ

ル（ISDモデル ; Integrated Sorption and Diffusion Model）”を開発してきた（Tachi and Yotsuji, 2014; Tachi et al., 2014）。さらに、このモデルを岩石中の核種拡散評価に拡張するため、幌延の泥岩を対象に取得された核種の拡散・収着データを対象に、その適用性評価を進めてきた。具体的には、幌延深地層研究センターのHDB-6孔（地下500 mレベル）から採取した泥岩試料を用いて、透過拡散試験によって、Cs、I、HTOの実効拡散係数を取得するとともに、水銀圧入法により間隙径分布を取得した。この間隙径分布をもとに、サイズの異なる間隙中の核種移行を想定したISDモデルの適用を試みてきた（Tachi et al., 2011）。しかし、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の層間に水銀は侵入できないため、静電的相互作用が顕著となるために核種移行の重要な経路である粘土層間の割合を適切に評価できていなかった。そこで、間隙構造の不均質性の定量評価に有効な手法として、核磁気共鳴法（NMR）に着目し、幌延泥岩の間隙構造の不均質性の定量評価手法及び吸着メカニズムを評価し、それらデータのモデルへの反映を検討した。

上記②で示したNMRを用いた水分子の緩和時間（T_2）測定によって、幌延泥岩の層間を含めた間隙分布を定量化した。その結果、粘土鉱物の層間中の水（T_2=0.001 s）は全体の間隙率の数%であることが分かった。この結果は上記先行研究（Tachi et al., 2011）で推定された値（3.5%）と整合する結果であった（図3.2-24 (b)）。この間隙分布をISDモデルに適用し、各間隙サイズの電気的収れん度を算出し、間隙の長さ割合に対する重み付けを収れん度に与えることによって導出したCs、I、HTOの実効拡散係数を図3.2-24 (a) に示す。ISDモデルによる計算結果によって実測データの傾向性を再現できることから、幌延泥岩のような多重間隙を対象とした系においても、その拡散挙動が主にナノサイズの層間間隙を含めた間隙のサイズと静電相互作用を考慮することによって評価できることが分かった。

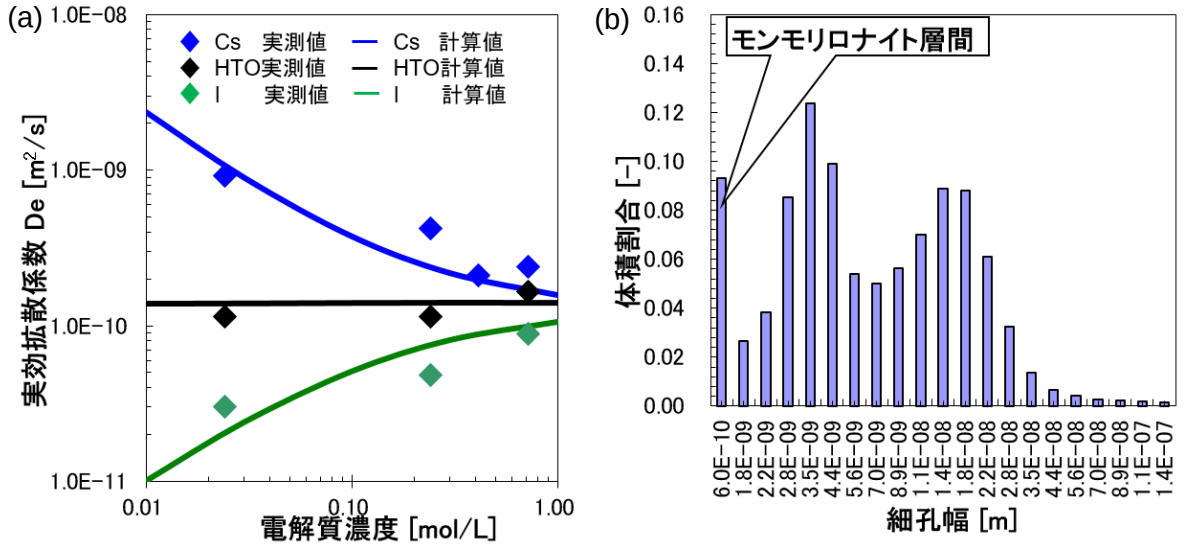


図3.2-24　幌延の泥岩マトリクス中のCs、HTO、Iの実効拡散係数のモデル化結果(a)とモデルで考慮した泥岩マトリクス中の間隙分布(b)

上記のようなISDモデルを適用した不均質媒体中の拡散モデルに対して、上記(1)1)②に示した結晶質岩における核種移行評価においては、不均質場モデルを設定し、ランダムウォーク法による拡散モデリングに取り組んでいる。ここでは、上記のような粘土鉱物間隙中のISD拡散モデルと間隙サイズの分布とを組み合わせたモデル化手法の妥当性を検討する観点から、ランダムウォーク法（Random Walk, RW）による不均質場の拡散解析を検討する。幌延の泥岩マトリクスが粘

土鉱物とケイ酸鉱物を主体とした岩石であり、緩衝材ベントナイトとの類似性が高いことから、双方のモデル化手法の妥当性を確認する視点での検討を進めた。

核種の移行経路となる粘土鉱物と移行の障害となるケイ砂等の他の鉱物をランダムに分布して、これらの媒体の構造モデルを作成し、その構造のなかで核種をRWさせて核種移行のシミュレーションを実行する。RWシミュレーションに用いる解析コードには、上記(1)1)②の結晶質岩中の拡散メカニズムを理解するために黒雲母の層状構造を考慮した仮想的な解析体系に適用してその有効性が示されているPartridgeコードを用いた（日本原子力研究開発機構, 2016）。以下では解析事例として、クニゲルV1とケイ砂を様々な比率で混合した供試体をモデル化し、シミュレーション解析の結果と実測データを比較する。

Kato et al.（1999）では、クニゲルV1と天然のケイ砂（粒径≒0.2 mm）あるいは球状のガラスビーズ（粒径＝0.04～5.0 mm）を様々な比率で混合して20 mm角の供試体を作成し、透過拡散法によりHTOの実効拡散係数を測定して、その混合比依存性を評価している。さらに、クニゲルV1におけるHTOの実効拡散係数をもとに、ケイ砂やガラスビーズの存在に起因した幾何学的因子の評価を試みている。本解析では、Kato et al.（1999）におけるクニゲルV1－ケイ砂混合系をシミュレートするため、2×2×2セルの構造を1ユニットとして、解析体系全体を100×100×100ユニットで構成する。各ユニットは、次のような2種類の何れかとする。

①クニゲルユニット：クニゲルV1を模擬したユニット。すべてのクニゲルユニットは同じ間隙率を設定し、さらにその間隙率に応じた実効拡散係数を設定する

②ケイ砂ユニット：天然のケイ砂あるいはガラスビーズを模擬したユニット。すべてのケイ砂ユニットは間隙率ゼロとし、粒子はユニット内を拡散しないものとする

緩衝材（クニゲルV1+ケイ砂混合系）の乾燥密度（$\rho_{\mathrm{b}}^{\mathrm{buff}}$）を一定（＝1600 kg/m^3）に保ちつつ、ベントナイト（クニゲルV1）の質量分率（α_{bent}）を変化させていくと、α_{bent}の変化に伴ってケイ砂の質量分率（$\alpha_{\mathrm{sand}} = 1 - \alpha_{\mathrm{bent}}$）、ベントナイトの乾燥密度（$\rho_{\mathrm{b}}^{\mathrm{bent}}$）、ベントナイトの体積分率（$R_{\mathrm{bent}}$）、ケイ砂の体積分率（$R_{\mathrm{sand}} = 1 - R_{\mathrm{bent}}$）、ベントナイトの間隙率（$\varepsilon_{\mathrm{bent}}$）、緩衝材の間隙率（$\varepsilon_{\mathrm{buff}}$）及びベントナイト中のHTOの実効拡散係数（$D_{\mathrm{e}}^{\mathrm{bent}}$）は、それぞれ表3.2-7のように変化する。

表3.2-7　ベントナイトの質量分布の変化に伴う諸量の変化

ベントナイトの質量分率 [–]	ケイ砂の質量分率 [–]	ベントナイトの乾燥密度 [kg/m^3]	ベントナイトの体積分率 [–]	ケイ砂の体積分率 [–]	ベントナイトの間隙率 [–]	緩衝材の間隙率 [–]	ベントナイト中の実効拡散係数 [10^{-9}m^2/s]
0.1	0.9	0.348	0.460	0.540	0.871	0.401	0.971
0.2	0.8	0.616	0.520	0.480	0.772	0.401	0.624
0.3	0.7	0.828	0.580	0.420	0.693	0.402	0.439
0.4	0.6	1.000	0.640	0.360	0.630	0.403	0.330
0.5	0.5	1.143	0.700	0.300	0.577	0.404	0.260
0.6	0.4	1.263	0.760	0.240	0.532	0.404	0.213
0.8	0.2	1.455	0.880	0.120	0.461	0.406	0.156
1.0	0.0	1.600	1.000	0.000	0.407	0.407	0.122

ベントナイト中のHTOの実効拡散係数は、Kato et al.（1995）で得られた実測データを基に、クニゲルV1の乾燥密度の関数として指数関数で最適化した次のような実験式を用いて算出した。

$$D_{\mathrm{e}}^{\mathrm{bent}} = 1.727 \times \exp\left(-1.655 \times \rho_{\mathrm{b}}^{\mathrm{bent}}\right), \qquad 0.5 \le \rho_{\mathrm{b}}^{\mathrm{bent}} \le 2.0 \qquad (3.2\text{-}1)$$

ベントナイトの質量分率が0.6の場合を例にして、2種類の構成ユニット（クニゲル及びケイ砂ユニット）を3次元に配置した計算体系のイメージ図を、図3.2-25に示す。図の緑色がクニゲルユ

ニットであり、青色がケイ砂ユニットである。1つのユニットのサイズを0.2 mm×0.2 mm×0.2 mmとすると、系全体で一辺の長さが20 mmの立方体試料に相当する。初期条件として図3.2-25(b)に示す赤色の端面に拡散粒子（本解析ではHTO）を配置し、反対側の端面から体系外に移行する際の移行率（flux）を算出する。

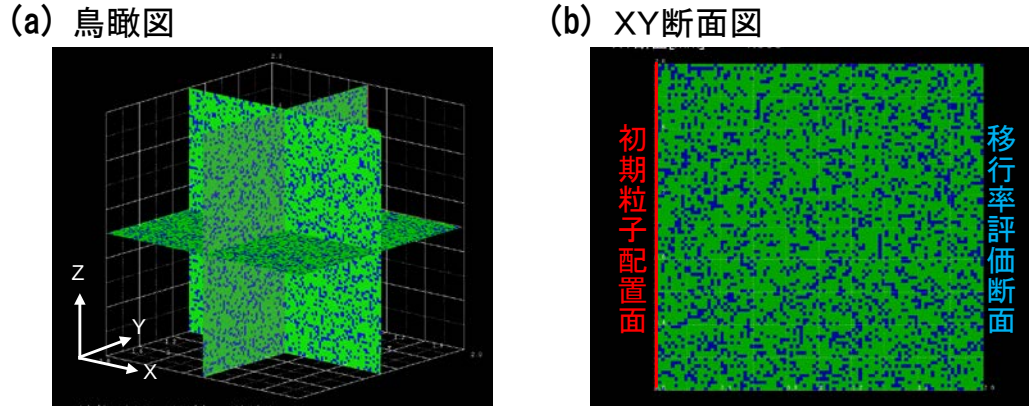


図3.2-25　ベントナイトの質量分率が0.6の場合の計算体系図。3次元鳥瞰図(a)、及びX-Y断面図(b)を示す。緑色はクニゲルユニット、青色はケイ砂ユニットを表す

HTOの実効拡散係数は、下流側端面における粒子移行率の経時変化をプロットし、1次元拡散方程式の解析解とのフィッティングにより算出した。Partridgeコードによる実効拡散係数の計算結果を、表3.2-8に示す。現時点では、ベントナイト（クニゲルV1）の質量分率を0.1, 0.3, 0.6及び1.0に変化させた解析結果が得られている。比較のため、Kato et al.（1999）で得られたHTOの実効拡散係数の実測データも示した。シミュレーションでは、単純に拡散を阻害する物質としてケイ砂をランダムに配置しているため、極めて粗略なモデル化ではあるが、シミュレーションの結果と実測データとはおおむね整合的であるといえる。ベントナイトの質量分率が小さくなるにしたがって、実測データに対する相対誤差が大きくなる傾向にあるが、これはケイ砂の構造や配置に関するモデル化に起因するものと考えられる。ちなみに、ケイ砂ユニットのユニットサイズを0.4 mm×0.4 mm×0.4 mmに変えて試計算した結果、ベントナイト質量分率が同じならば0.2 mm角の場合とほぼ同じ実効拡散係数の値が得られ、実効拡散係数は粒子サイズにほとんど依存しないというKato et al.（1999）のデータを支持する結果が得られた。また、ケイ砂混合割合に対する幾何学的因子を評価するため、緩衝材（クニゲルV1+ケイ砂混合系）中のHTOの実効拡散係数を$D_{\mathrm{e}}^{\mathrm{buff}}$として

$$D_{\mathrm{e}}^{\mathrm{buff}} = (1 - aR_{\mathrm{sand}})D_{\mathrm{e}}^{\mathrm{bent}} \qquad (3.2\text{-}2)$$

の関数形でフィッティングしたところ、Partridgeコードによるシミュレーションの結果から$a \simeq 1.50$の値が得られた。一方、Kato et al.（1999）による実測データを用いた場合は$a \simeq 1.35$であり、おおむね整合的な結果であった。

幌延堆積岩中の拡散モデルの一つとして検討した本解析モデルでは、クニゲルV1中の粒子の拡散移行にISD拡散モデルを適用し、さらに共存鉱物の粒子移行への影響をシミュレートするためRWシミュレーションを適用した。ISD拡散モデルはHTOの実測データに基づいて構築されたモデルであるため、HTOを対象とした今回の計算では、クニゲルV1中の拡散係数評価については自明な結果である。一方、RWシミュレーションの結果から得られた実効拡散係数とKato et al.（1999）で得られた実測データが整合的であることは非自明な結果であり、Partridgeコードによる核種移

行解析の有効性を示すものといえる。今後の課題としては、HTOを対象とした上記手法による解析データの拡充とその分析結果を反映したモデルの高度化を検討する。さらに荷電粒子を対象とした解析を実施し、ISD拡散モデルとRWシミュレーションを連成した解析の有効性について検証するとともに、より複雑な系として幌延の泥岩へのモデルの適用を検討していく予定である。

表3.2-8　Partridgeコードによる実効拡散係数の計算値と実測データとの比較

ベントナイトの質量分率 [-]	ケイ砂の体積分率 [-]	Partridgeによる実効拡散係数の計算値 [$10^{-9}m^2/s$]	Kato et al. (1999)による実効拡散係数の実測値 [$10^{-9}m^2/s$]
0.1	0.540	0.205	0.270～0.294
0.3	0.420	0.157	0.172～0.206
0.6	0.240	0.128	0.135～0.140
1.0	0.000	0.129	0.115～0.121

⑤ 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拡散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、幌延の地下350m調査坑道でのマトリクス部を対象とした原位置拡散試験とあわせて、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）を取得するとともに、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を進めてきた（日本原子力研究開発機構, 2018）。

本事業では、先行事業における試験孔D05孔での原位置拡散試験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、平成30年度に、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の室内分析データ取得と解析を行い、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（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019）。平成31年度は、上記①や②でも検討した堆積岩の層理面に対して水平・直交の異方性を原位置で確認するための原位置拡散試験と連携して、試験後の周辺岩石のトレーサー分布の取得と層理面に対する異方性が拡散に及ぼす影響を評価した。

原位置拡散試験は、図3.2-26に示すように、幌延の深度350m坑道の坑道底面から層理面に直交する方向に削孔したD11孔において、基本的にはD05孔の先行試験と同様に、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（塩濃度0.23 M）を循環させる方法で行った。1年程度トレーサーを循環・拡散させて、トレーサーの減衰データを取得したのち、同図に示すように、トレーサー注入区間を含む岩石をオーバーコアしたうえで、層理面に平行な孔側面と、層理面に直交する孔底部の岩石を採取した。これらの試料に対して、同図に中央に示すような位置において、同図右に示す方法で、岩石をトレーサー接触面から研削して、得られた粉末岩石中に含まれるトレーサー濃度を測定することによって、周辺岩石中へのトレーサーの拡散プロファイルを取得した。得られたCsの濃度プロファイルをD05孔の結果とあわせて同図右に示す。水平方向については、2か所の分析結果で同様のプロファイルが得られ、D05孔のプロファイルともほぼ整合する結果となった。一方で、層理面に直交方向の孔底部のCsの濃度プロファイルは、現時点では1か所のプロファイルのみを取得できた状況であるが、岩石表面のCs濃度が1桁程度低い結果が得られた。拡散試験の体系において試験区間中のトレーサー濃度は均一に保たれていると想定されること、また、試験区間中の泥岩の特性が均質であることを考慮すれば、岩石表面の

トレーサー濃度は同程度になると想定される。それにもかかわらず、孔底部でこのような濃度プロファイルが得られた原因の一つとして、試験孔を掘削する際の孔底部への擾乱影響が考えられる。今後、同図中央に示すように、孔底部の複数個所でプロファイルを取得し、その原因を検討するとともに、層理面に水平と垂直の差異を検討していくこととする。

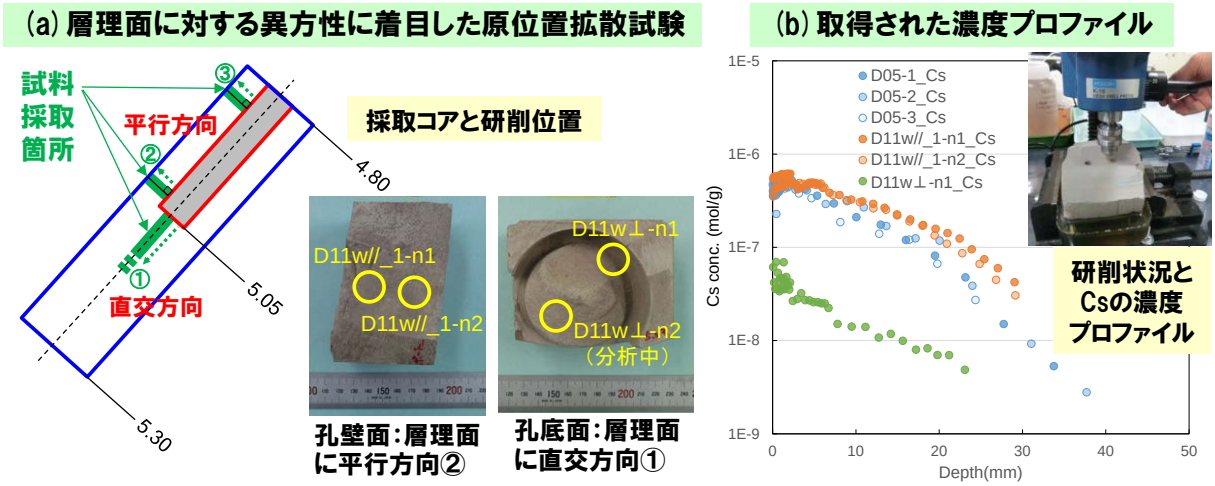


図3.2-26　層理面に対する異方性に着目した幌延の泥岩マトリクスにおける原位置拡散試験：(a)試験体系と採取試料、(b)試験後の岩石中のCs濃度分布

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深度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・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019）。平成31年度は、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等のトレーサーの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と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もとに、複数の移行経路または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した。

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3.2-27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）を含んだ原位置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分間注入し、その後トレーサーを含まない原位置地下水の注水を継続した状態で、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、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、注水孔に一定濃度のトレーサーを含む原位置地下水を注水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）。

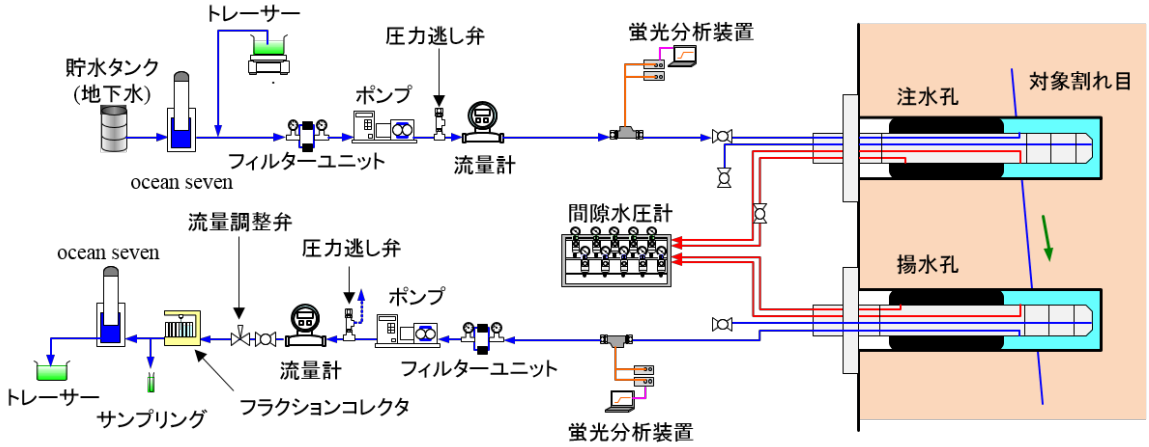
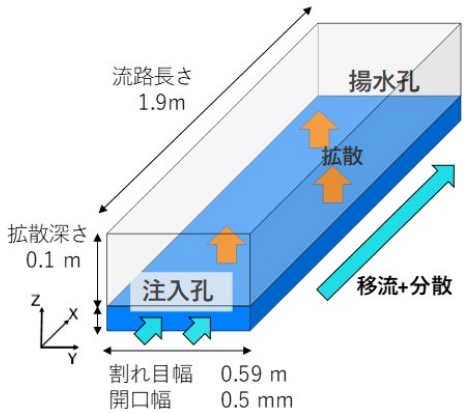


図3.2-27　幌延泥岩の割れ目を対象とした原位置トレーサー試験装置の概略図

② 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、卓越した割れ目やその連続性などのトレーサーの移行経路を特定するための情報は限られている。日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター(2019)で得られた割れ目表面のトレーサーの分析結果からは、複雑な移行経路（複数の割れ目を介した移行、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、はじめに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3.2-28 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. 11.1：GoldSim Technology Group, 2014）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 の割れ目表面濃度データとの比較を行った。



割れ目中の核種移行に関する支配方程式(Goldsim Pipe Pathway)

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} = -\left[\left(\frac{Q}{A}\right)\frac{\partial C_i}{\partial x} - \left(\frac{AD_w + \alpha Q}{A}\right)\frac{\partial^2 C_i}{\partial x^2}\right] - \frac{1}{A} D_e P \left.\frac{\partial C_i^m}{\partial z}\right|_{z=0}$$

マトリクス中の核種移行に関する支配方程式

$$\frac{\partial C_i^m}{\partial t} = \frac{D_e}{\theta R_i^m}\frac{\partial^2 C_i^m}{\partial z^2} + \left(\frac{D_e}{\theta A^m R_i^m}\right)\frac{\partial A^m}{\partial z}\frac{\partial C_i^m}{\partial z}, \left(R_i^m = 1 + \frac{\rho K_d}{\theta}\right)$$

初期条件：初期濃度

割れ目中 $C_i(x,t) = 0 \ (t = 0)$, マトリクス中 $C_i^m(x,y,z) = 0 \ (t = 0)$

パルスソース　$C_i(0,t) = C_0 \ (0 < t < 10 \ min)$

コンスタントソース　$C_i(0,t) = C_0$

境界条件

割れ目表面　$C_i(x,t) = C_i^m(x,0,t)(z = 0)$

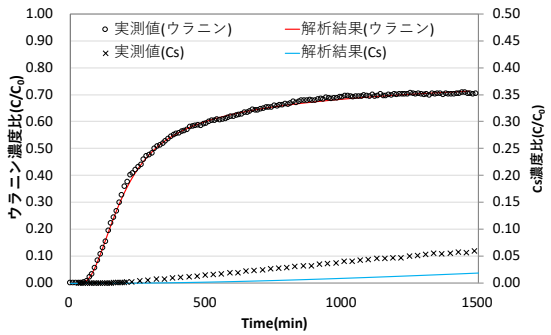
拡散の最大深度　$\left.\frac{\partial C_i^m}{\partial z}\right|_{z=d} = 0 \ (z = d)$

Q	:	割れ目中の流量	m^3/sec	z	:	割れ目表面からの垂直方向への距離	m
Ci	:	割れ目中の濃度	kg/m^3	C_i^m	:	マトリクス中の濃度	kg/m^3
A	:	割れ目の断面積	m^2	θ	:	空隙率	-
D_w	:	自由水中の拡散係数	m^2/sec	R_i^m	:	マトリクス中の遅延係数	-
α	:	縦方向の分散長	M	A^m	:	拡散領域/割れ目の長さ	m
D_e	:	マトリクス中の実効拡散係数	m^2/sec	ρ	:	マトリクスの乾燥密度	kg/m^3
P	:	割れ目の周囲長（開口長さ）	m	K_d	:	収着分配係数	m^3/kg

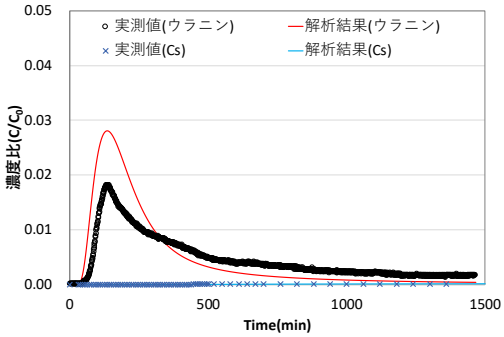
図3.2-28　割れ目中の核種移行評価の平行平板モデル概念図及び支配方程式

平成30年度は、ウラニンのパルス試験及びコンスタント試験結果をもとに移行経路の推定を行った。平成31年度は、高い濃度が計測されているコンスタント試験の実測データを対象に、GoldSimの最適化機能を用いて、平行平板モデルを仮定した際の移行経路等の推定を行い流路長さ1.9 m、割れ目幅 0.59 m、割れ目開口幅 1 mmと設定した。また、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25 mL/min、残り15 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。

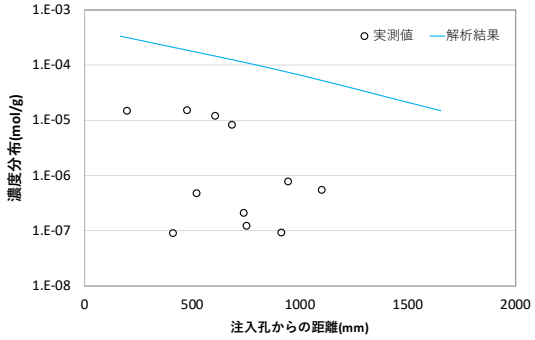
初期設定の流路条件（流路長：1.9 m, 割れ目幅：0.59 m, 開口幅：1 mm）での解析結果を図3.2-29に示す。ウラニンのコンスタントソース試験の破過曲線（同図(a)）においては、解析結果は実測データと概ね整合しているものの、Csの傾向については若干の乖離が見られる。また、同じ試験孔で行われた、ウラニンのパルスソースの試験結果(図(b))に対してピーク時間は同程度になるものの、ピーク値及び緩やかな濃度低下の解析結果は実測データと乖離している。一方、平成30年度と同様にCsの割れ目表面のトレーサー分析結果（実測値は注入孔から対象とする割れ目までの距離とその割れ目における最大濃度をプロット）と解析結果との比較を行ったが、最大濃度と比較しても解析結果のほうが1桁程度高く、実測値を再現する結果とはなっていない。



(a)コンスタントソース試験の破過曲線



(b)パルスソース試験の破過曲線



(c)Cs濃度分布

図3.2-29　割れ目中トレーサー試験のウラニン及びCsの解析結果

上記解析においては、割れ目中のトレーサーの移行を平行平板モデルと均質な流れ場を仮定しており、その結果、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Csの濃度は実測と解析結果で乖離しており、平成31年度は試験後の複数の場所から採取した割れ目表面のCs濃度の分析結

果（図3.2-30）等を考慮し、2つ移行経路を移行する解析モデル及びフロー・スタグナント領域を設定した解析モデルについて検討し、割れ目表面のトレーサー分析データ等をもとに、モデルの適用性について検討を進めた。

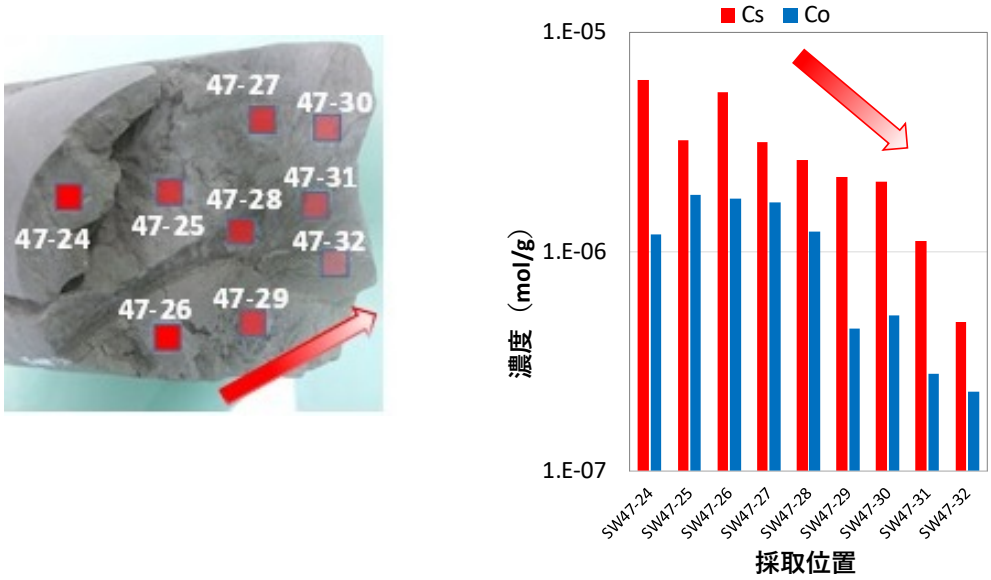


図3.2-30　SW47孔せん断割れ目の表面のCs, Co濃度分析結果

a) 2経路を考慮した解析モデル

今回の原位置トレーサー試験は、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り、図3.2-31に示すように複数の移行経路を経由してトレーサーが移行している可能性が想定されるため、2つの移行経路を考慮した解析モデルを検討した。モデル概念は、図3.2-32に示すように、基本的には1次元平行平板モデルの結果を重ね合わせるもので、注水孔から揚水孔までの流路を2つ設定し、それぞれの流路長さ、割れ目幅、開口幅の6つの条件を変動させることでコンスタントソース試験及びパルスソース試験の実測値を同時に満たす条件の探索を行った。ここで、それぞれの割れ目への注入流量は2つの移行経路の断面積の比で割り振り、2つの移行経路の全体での流量は一定になるように調整した。

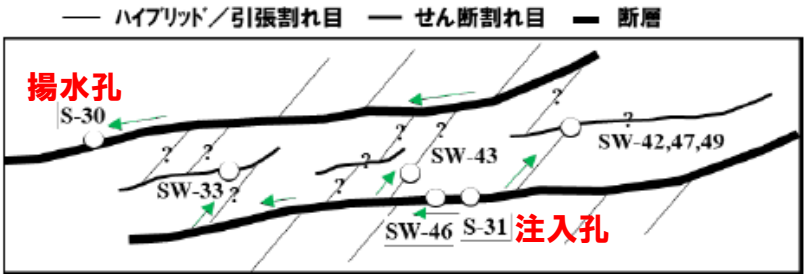


図3.2-31　割れ目のトレーサー試験における割れ目やトレーサー分布に基づく移行経路の推定

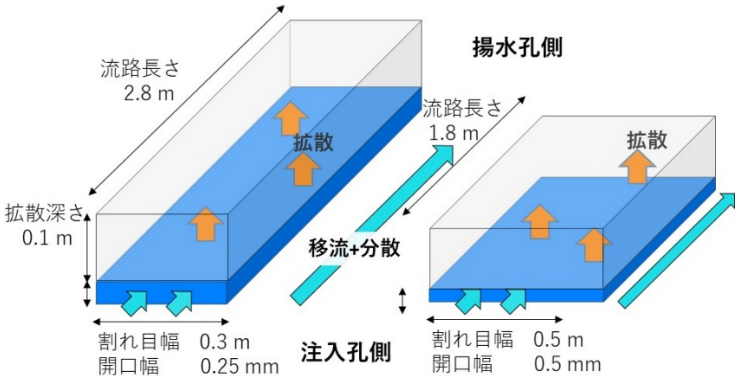
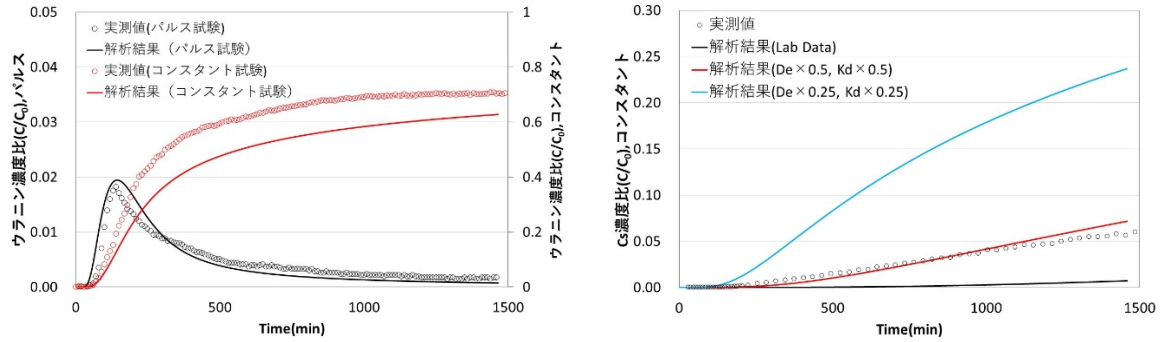


図3.2-32　2つの移行経路を考慮した解析モデル

非収着性トレーサーであるウラニンは、流路長さまたは割れ目幅を短く設定することでトレーサー破過曲線はマトリクスへの拡散面積減少するためピーク値が大きくなる。割れ目開口幅の設定は、割れ目の開口面積が変化することで、流速が変化し破過曲線の立ち上がりに影響を与える結果となる。これらの影響を考慮し、コンスタントソース試験及びパルスソース試験の実測値を同時に満たす割れ目の条件の探索を行った。解析結果の例を図3.2-33に示す。同図(a)に示すウラニンの破過曲線において、パルス試験のピーク傾向を1つの割れ目で再現しつつ、もう1つの割れ目で破過曲線のテール部の形状を含めて、破過曲線全体の再現を試みたが、現時点でパスルソースとコンスタントソースの破過曲線を同時に再現するには至っていない。一方で、同図(b)に示すコンスタントソース試験でのCsの破過曲線は、同図(a)に示したウラニンの解析で設定した2つの割れ目の条件で、室内試験に基づくCsの実効拡散係数や収着分配係数を与えた場合には、平成30年度までの検討と同様にCsの遅延を過大評価する結果となった。室内試験と原位置試験の条件の差異を考慮し、これらのCsの移行パラメータを1/2に設定した場合に、Csの破過曲線を概ね再現することが可能であった。



(a)ウラニンの破過曲線　　(b) Csの破過曲線

図3.2-33　2つの移行経路を考慮した解析モデルを用いた解析結果

b) フロー・スタグナント領域を考慮した解析

先行事業における幌延の泥岩の割れ目試料を用いた室内トレーサー試験では、試験に用いた割れ目のX線CT分析や試験後の割れ目表面の観察結果から、せん断割れ目の凹凸によって形成されたチャンネルに沿った選択的に流れが卓越したフロー領域と流れが生じていないスタグナント領域を想定したモデルを用いて評価を行ってきた（日本原子力研究開発機構，2018）。今回の原位置試験においても、図3.2-30に示したように、割れ目表面においてCs等のトレーサー濃度の濃淡分布が確認された。これを踏まえ、原位置試験においても割れ目内にフロー・スタグナント領域が

生じていた可能性を考慮し、図3.2-34に示すようなフロー・スタグナント領域を設定したモデルによって、パルス及びコンスタント試験に対して解析を実施した。ここでは、図3.2-29に示した平行平板モデルの解析と同じ条件で解析した結果を図3.2-35に示す。図3.2-29に示した解析結果と比較することによって、スタグナント領域を設定しても破過曲線には大きな影響を与えないものの、割れ目表面のトレーサー分布についてはフロー・スタグナント領域を考慮することによって表現できる可能性が示唆された。

今後、複数のトレーサー（ウラニン、Cs、Mo等）のコンスタントソース試験及びパルスソース試験の破過曲線、各トレーサーの移行パラメータや回収率、割れ目表面のCs濃度分布の一連のデータセットに対し、モデル・パラメータの最適化とその妥当性の確認について更なる検討を進めていく。

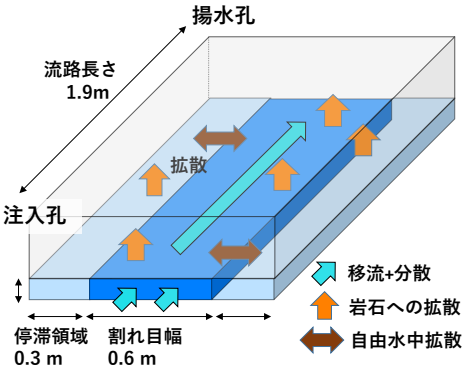
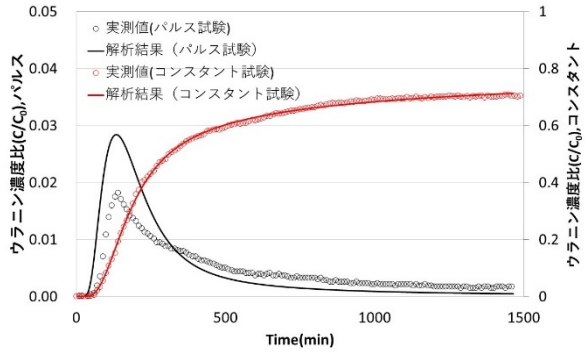
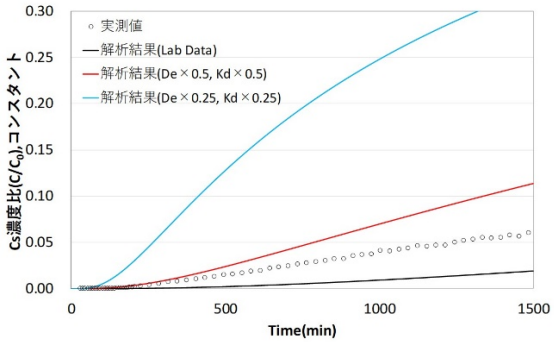


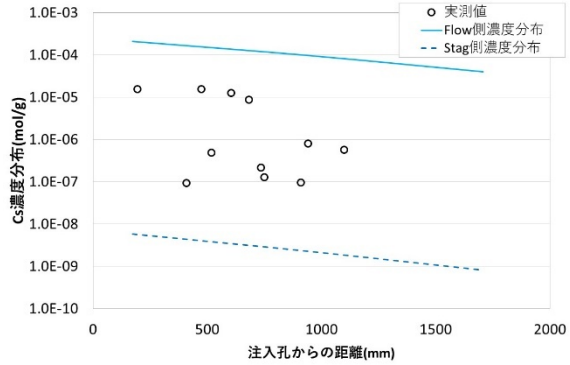
図3.2-34　フロー・スタグナント領域を考慮した解析モデル



(a)ウラニン試験の破過曲線



(b)Csコンスタント試験の破過曲線



(c)Cs濃度分布

図3.2-35　フロー・スタグナント領域を考慮した解析モデルを用いた
割れ目中トレーサー試験のウラニン及びCsの解析結果

3) 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（Mazurek et al., 2009）。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）をもとに、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等から、HDB-1孔及びHDB-3孔を選定し、それらの解析検討から、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確認された。また、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抽出した移流速度及び移流・拡散期間をパラメータとした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。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、本事業では、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。平成30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（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2019）。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, SO_4）の濃度プロファイルに係るデータの整理も行った。平成31年度は、反応性元素の濃度プロファイルを対象とした移流・拡散に化学反応を加えた解析評価に先立ち、岩石コアから抽出された間隙水データの信頼性を評価するとともに、データの品質に影響を与えると考えられる間隙水抽出時の人為的影響の評価手法についても検討した。以下に、平成31年度の成果をまとめる。

①　岩石コアから圧縮抽出された間隙水データの信頼性に係る検討

解析対象とするHDB-1孔及びHDB-3孔における反応性元素の濃度プロファイルに係るデータには、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）が含まれる。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抽出された間隙水の値である。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（例えば、Pearson et al., 2003; Sasamoto et al., 2011）。このため、HDB-1孔及びHDB-3孔の間隙水（pore water）のデータを対象に、データの信頼性について検討した。検討にあたっては、まず、國丸ほか（2007）でまとめられた幌延の地下施設周辺における地上からのボーリング孔で得られた揚水地下水（pumped water）のデータをもとに信頼性を確認した。データの信頼性は、掘削水の影響が小さいこと（掘削水に添加したトレーサーの地下水中濃度＜3%）及び電荷不均衡が小さいこと（＜5%）の2点で確認した。その後、スクリーニングされた信頼性が高いデータを対象に、Na^+, Mg^{2+}, Ca^{2+}, K^+及びSO_4^{2-}の各イオンとCl^-との相関図を作成し、べき乗則による回帰直線を求めた（図3.2-36及び図3.2-37）。

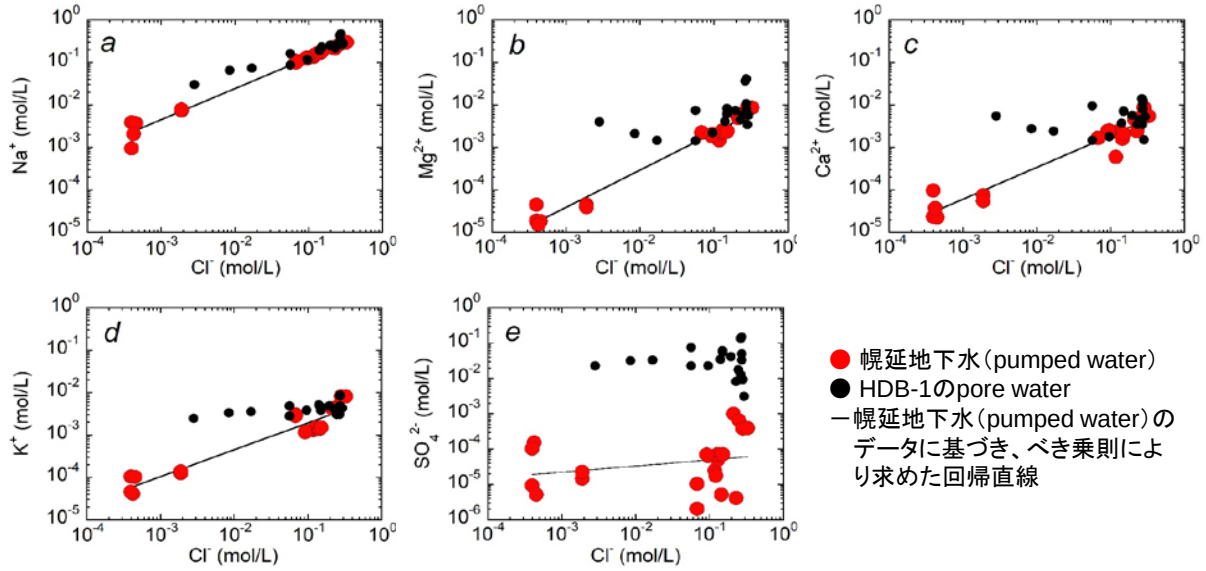


図3.2-36　反応性元素とClの関係（幌延地下水とHDB-1孔pore waterの比較）

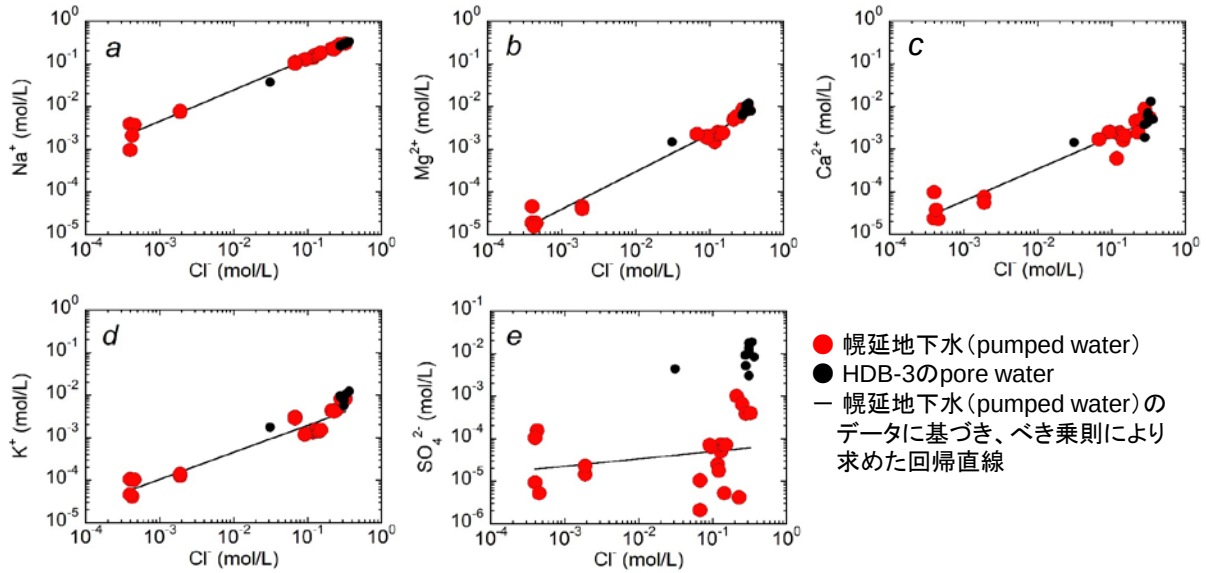


図3.2-37　反応性元素とClの関係（幌延地下水とHDB-3孔pore waterの比較）

得られた回帰直線に対するR^2値は、Na^+の場合で0.995、Mg^{2+}の場合で0.902、Ca^{2+}の場合で0.747、K^+の場合で0.692、SO_4^{2-}の場合で0.143となった。この結果を見ると、Na^+及びMg^{2+}とCl^-の相関が最も高く、これらの回帰直線は、幌延の地下水中のNa^+及びMg^{2+}とCl^-との関係をほぼ代表していると考えられる。これらに次いで相関が高いのがCa^{2+}及びK^+であり、SO_4^{2-}は相関が低く、Cl^-との関係で利用するのは困難である。なお、SO_4^{2-}については、幌延の地下水は還元性のため、pumped waterではほとんど検出されない濃度であることや、採水から分析に至るまでの時間経過の違いに伴う酸化の影響等により、バラつきが大きくなっている可能性も否めないため、ここでは検討対象には含めないこととした。このため、本検討では、陽イオンであるNa, Mg, Ca, Kの4元素を対象とした。

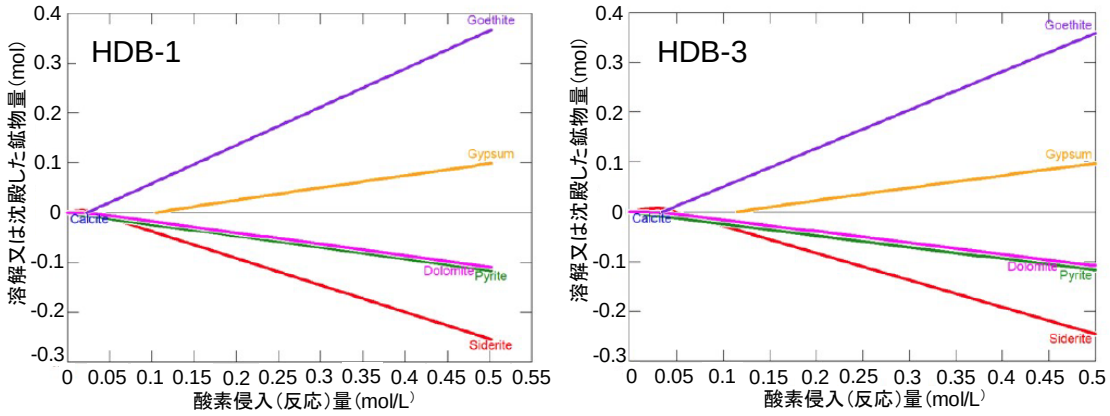
次に、HDB-1孔及びHDB-3孔におけるpore waterのデータの信頼性を検討するため、各々のpore waterのデータと回帰直線とを比較した（図3.2-36及び図3.2-37）。比較の結果、HDB-1孔の

pore waterデータ（20点）では、回帰直線付近に分布するデータが多いものの、6点のデータについては明らかな不整合が確認された。一方、HDB-3孔のpore waterデータ（10点）については、基本的に回帰直線付近に分布しており、HDB-1孔のpore waterデータに比べると信頼性が高いことが確認された。

② 間隙水抽出時の人為的影響の評価手法に係る検討

上記分析の結果、HDB-1孔のpore waterには、信頼性が低いと考えられるデータが含まれることが確認された。この要因として、間隙水抽出時における人為的影響が考えられる。ここでは、大気条件における間隙水抽出時のガスの出入りを考慮し、水質への影響を評価するモデルをもとに検討した。本検討で考慮したモデルの概念を以下にまとめる。還元性の地下水である幌延の地下水では、岩石コア中の間隙水の酸素分圧は大気のそれよりも低いと考えられるため、間隙水抽出時には大気中の酸素が岩石コアに侵入する。一方、幌延の地下水は比較的溶存炭酸濃度が高く、pHが中性付近である（Sasamoto et al., 2011）ことを考慮すると、岩石コア中の間隙水の二酸化炭素分圧は大気のそれよりも高いと考えられる。このため、間隙水抽出時には間隙水に溶存していた二酸化炭素が脱ガスし、大気中に移行する。このようなガスの出入りに伴い、岩石中に含まれる黄鉄鉱や炭酸塩鉱物の溶解が生じ、水質が変化することが想定される。上述したモデルの概念及びガスの出入りに伴い生じるプロセスを考慮し、間隙水の抽出時に水質がどのように変化し得るかを計算した。計算には、地球化学解析コードであるGeochemist's Workbench：GWB（Bethke, 2008）のReactモジュールを使用した。Reactモジュールを用いた計算では、酸素及び二酸化炭素のガスの出入り速度は同一と仮定した。また、岩石コア中の間隙に含まれる水は、HDB-1孔及びHDB-3孔におけるpumped waterの水質を初期値として仮定した。

まず、図3.2-38に、岩石コアからの間隙水抽出の際、ガスの出入りに伴いHDB-1孔及びHDB-3孔の岩石コア中でどのような鉱物の溶解・沈殿が起こり得るかを推定した結果を示す。図3.2-38では、ガスの出入りの指標として、大気中の酸素が岩石コアに侵入する量を横軸とし、縦軸には、酸素の侵入量の変化に伴う鉱物の溶解・沈殿量を示した。なお、縦軸で正の値は沈殿、負の値は溶解を意味する。鉱物の溶解・沈殿の変化の傾向は、HDB-1孔及びHDB-3孔ともに同様であり、酸素の侵入に伴い黄鉄鉱の溶解が生じ、それに伴う間隙水の酸性化が炭酸塩鉱物（菱鉄鉱・苦灰石）の溶解を引き起こす。また、初期の間隙水に対して飽和状態であった方解石が間隙水から沈殿するが、速やかに溶解する。さらに、黄鉄鉱や菱鉄鉱の溶解に伴い生じたFe^{2+}は、酸化されFe^{3+}となり、針鉄鉱として沈殿する。石膏は、酸素の侵入量が0.1 mol/L程度辺りから沈殿する。これは、方解石の溶解に伴い生じたCa^{2+}と黄鉄鉱の溶解に伴い生じたSO_4^{2-}に起因する。



Calcite:方解石、Goethite:針鉄鉱、Gypsum:石膏、Dolomite:苦灰石、Pyrite:黄鉄鉱、Siderite:菱鉄鉱

図3.2-38　岩石コアからの間隙水抽出の際に生じると推定される岩石中での鉱物量の変化

次に、図3.2-39には、ガスの出入りに伴いHDB-1孔及びHDB-3孔の間隙水の水質がどのように変化し得るかを推定した結果を示す。図3.2-39では、Mg^{2+}, Ca^{2+}及びSO_4^{2-}の変化を示しているが、Na及びKについては含めていない。Na及びKの変化は、幌延の岩石に含まれる粘土鉱物との関連が想定されるが、粘土鉱物の溶解・沈殿を考慮する場合、AlやSiのデータも加味する必要がある。しかしながら、pore waterのデータには、これら成分の分析結果は含まれていないことから今回の推定対象からは除外した。間隙水抽出時のガスの出入りとそれに起因する岩石コア中での鉱物の溶解・沈殿に伴う間隙水の水質の変化は、HDB-1孔及びHDB-3孔ともに同様であり、両者での初期の間隙水組成の違いにより影響は小さいことが示唆された。また、図3.2-39には、HDB-1孔及びHDB-3孔の間隙水のMg^{2+}, Ca^{2+}及びSO_4^{2-}の平均値も示した。HDB-1孔及びHDB-3孔の両ケース共に、これらの平均値に達するまでの酸素の侵入量は、比較的少量であることがわかる。なお、SO_4^{2-}の場合を見ると、HDB-3孔の平均値に達するよりもHDB-1孔の平均値に達する方が酸素の侵入量が大きい。すなわち、HDB-1孔のpore waterのデータは、HDB-3孔よりも酸化影響を受けたデータが多いことを示唆する。このことは、pump waterの回帰直線との比較により、HDB-1孔のpore waterの中には信頼性が低いデータが含まれると推定された結果を支持するものである。

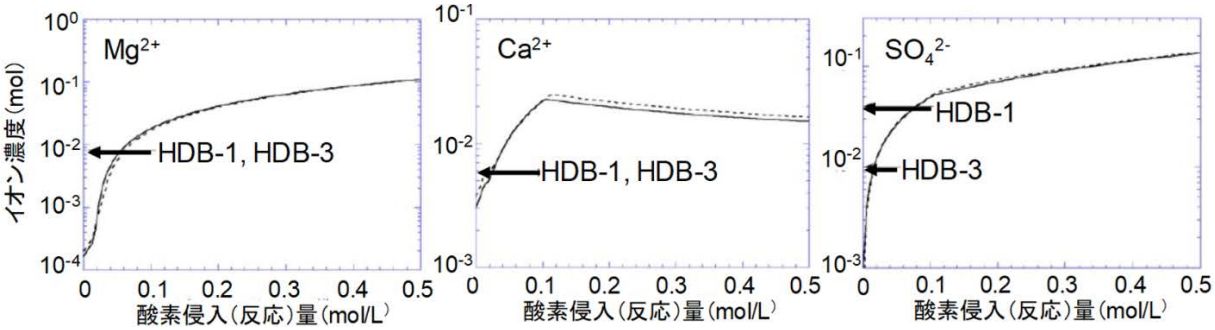


図3.2-39　岩石コアからの間隙水抽出の際に生じると推定される間隙水水質の変化

以上述べたような検討結果を踏まえ、HDB-1孔及びHDB-3孔に対する反応性元素（Na, K, Ca, Mg）の濃度プロファイルに係るデータの再整理を行った。再整理にあたっては、前述した回帰直線をもとに、各反応性元素とClとの関係に基づきデータを補正した後、深度との関係で整理した。

図3.2-40及び図3.2-41に、HDB-1孔及びHDB-3孔における補正前後での反応性元素に対する深度方向での濃度プロファイルの比較を示す（上：補正前、下：補正後）。

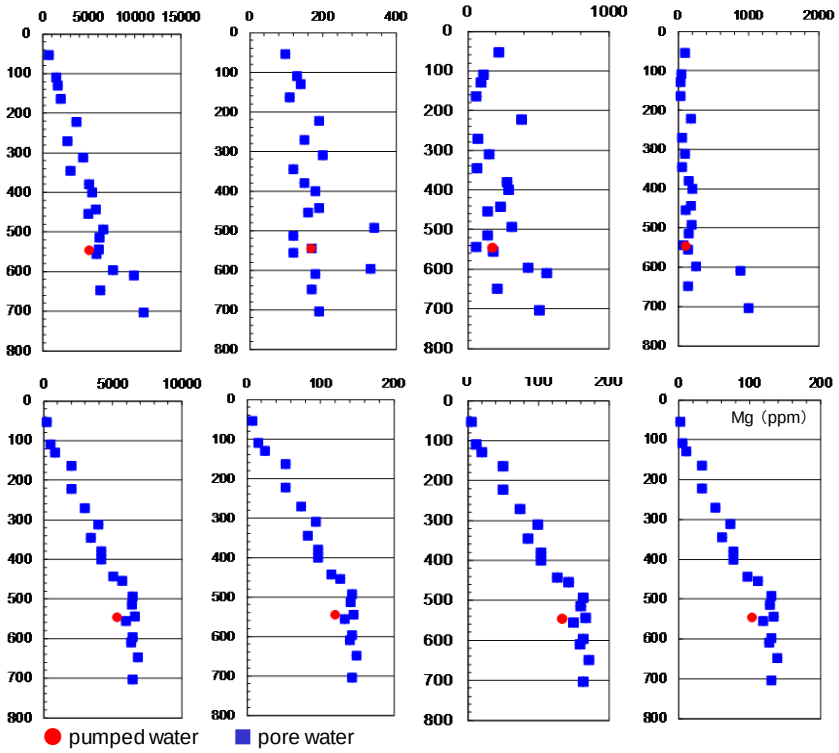


図3.2-40　HDB-1孔の反応性元素の深度方向濃度分布の補正前（上）と補正後（下）の比較

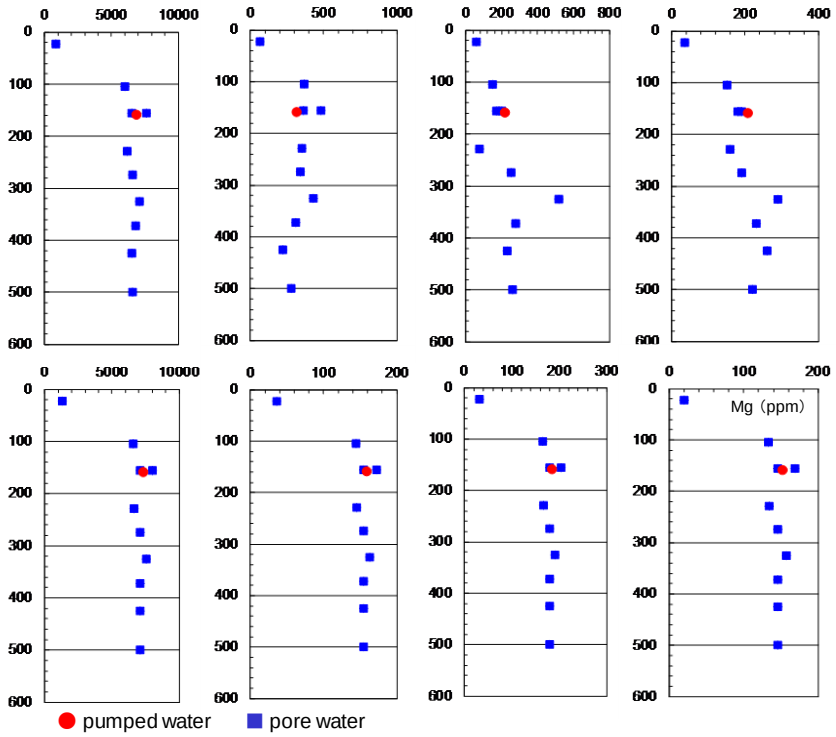


図3.2-41　HDB-3孔の反応性元素の深度方向濃度分布の補正前（上）と補正後（下）の比較

今後は、反応性元素の濃度プロファイルを解釈するため、平成30年度に整理した概念モデルで考慮することとした粘土鉱物のイオン交換反応や鉱物の溶解・沈殿反応等を取り込んだ解析モデルを構築し、平成31年度の検討により再整理された深度方向での反応性元素の濃度プロファイルを対象に、移流・拡散に上記反応を加えた解析を行う予定である。

3.2.3 2ヶ年の成果と今後の課題

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、スイスグリムゼルの花崗閃緑岩やフィンランドオンカロの片麻岩等のマトリクス部を対象として、黒雲母等の鉱物分布の不均質性の定量評価手法の改良を進め、室内試験や原位置試験で得られたデータとの比較によって、黒雲母等の分布の特徴が核種拡散へ及ぼす影響を明らかにした。今後は、これまでに開発してきた不均質性を考慮したモデルの室内試験や原位置試験データへの適用評価事例を拡充し、その有効性を確認するとともに、さらに多様な結晶質岩への適用評価を進める。結晶質岩の割れ目部については、グリムゼルの岩石割れ目部を対象として、より複雑な割れ目性状を有する試料を用いた室内トレーサー試験データを取得し、実際の割れ目の特徴を考慮したモデルの改良と適用性の確認を進めたほか、大型の割れ目試料を対象に、室内トレーサー試験、収着・拡散試験、各種分析によって核種移行データや割れ目周辺の鉱物・間隙等の分布に関するデータを取得した。今後は、グリムゼルの大型コア試料を用いたトレーサー試験後の試料分析と、一連のデータを解釈するためのモデルの改良と適用性評価を進める。さらに、これまでに得られた知見を反映しつつ、実際の地質環境の不均質性や環境条件の変遷等が核種移行へ及ぼす影響を取り扱うための解析手法の構築と改良を進め、原位置試験や天然事例等に基づく妥当性確認を進める。

堆積岩については、幌延URLの泥岩（稚内層）マトリクス部を対象とし、鉱物や間隙の不均質性や核種移行特性を室内拡散試験やNMR分析によって把握するとともに、それを反映したモデルの適用事例を提示した。また、幌延URLで実施した層理面に対する異方性に着目したマトリクス部の拡散試験を対象に、試験後の岩石試料の分析によって層理面に対する異方性が拡散に及ぼす影響を検討した。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モデルの改良と、層理面に対する異方性や塩濃度等の地下水条件の違いによる影響の評価を進めるとともに、これまでに取得された一連の原位置試験データへの適用を通じてモデルの妥当性を確認する。割れ目部については、幌延URLで実施された割れ目中の原位置トレーサー試験を対象に、試験後試料の分析によって移行経路を把握するとともに、複数の移行経路や不均質な流れ場を考慮したモデルの改良と適用性の検討を進めた。さらに、幌延URLにおける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、反応性トレーサーを対象とした解析に向けた既存データの信頼性や補正手法の検討を進めた。今後は、幌延URLにおける割れ目中の原位置トレーサー試験結果を対象に、上記で構築した不均質等を考慮した核種移行モデルの適用性評価と妥当性評価を進めるほか、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

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、それが核種移行に及ぼす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評価モデルと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、最新の科学技術に基づいて、ニアフィールドシステムの長期変遷と、その変遷を適切に考慮した核種移行を評価するために技術を構築し、それらを反映した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。

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や岩石中の環境において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

これまでにも多様な地質・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 実施内容

(1) 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年度までに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）。先行事業においては、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、主にpH8付近において実測値を拡充し、モンモリロナイトのイオン交換サイト及び表面錯体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。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上昇が想定されていることから、pHが高い領域まで考慮した鉄イオン等と放射性核種の収着競合を定量的に評価するための実測値を整備する必要がある。

平成30年度の検討においては、処分場環境において生成する鉄腐食生成物固相として、マグネタイト、シデライト、水酸化鉄(II)を想定し、pH6-12の範囲での各固相の溶解に伴う溶存鉄イオン等の濃度を評価し、それに基づいてモンモリロナイトの表面錯体サイトの飽和挙動について評価した。その結果、シデライト、水酸化鉄(II)を鉄腐食生成物固相として想定した場合、鉄イオン等により表面錯体サイトが飽和し、鉄イオン等と放射性核種の収着が競合する可能性があることが明らかとなった。そのため、平成31年度の検討においては、これまでに競合収着挙動について評価を行っていないAmを対象として、2価鉄（Fe(II)）共存下でpHをパラメータにモンモリロナイトへの収着試験を実施し、鉄イオン等との競合収着の可能性について検討した。

③　鉄共存下でのモンモリロナイトに対するAm収着挙動の評価

Amの収着挙動はバッチ収着試験により評価した。試験条件を表3.3-1に示す。トレーサーとしてAm-241を使用し、初期濃度は1×10^{-8} mol/lとした。試験溶液は、亜ジチオン酸ナトリウム（$Na_2S_2O_4$）の濃度を0.05または0.005 mol/lとし、溶液中の全Na濃度が0.5 mol/lとなるように塩

化ナトリウムと亜ジチオン酸ナトリウムを混合した溶液とした。試験溶液のpHは7-11程度の範囲で調整した。試験溶液のFe(II)濃度は、pH9以下の試験では1×10^{-4}、1×10^{-6}、1×10^{-8} mol/lの3条件とし、pHが9より高い試験では1×10^{-6}、1×10^{-8} mol/lの２条件とした。これらのFe(II)濃度は、$Fe(OH)_2$の溶解度を考慮し、各pHにおいてFe(II)が$Fe(OH)_2$として沈殿しない濃度として設定した。固相は、モンモリロナイトとしてクニミネ工業製クニピアFを使用し、使用前にクニピアFに含まれるカルサイトを除去したものを用いた。クニピアF中のカルサイトは、pH 5の酢酸ナトリウム溶液に浸漬し、カルサイトを溶出させることにより除去した。除去後、NaCl溶液によりモンモリロナイトをNa型に調整した。液固比は500 ml/gとした。試験は室温で実施し、窒素雰囲気グローブボックス内で行った。

試験は、最初に所定量の固相を採取し、試験溶液とFe(II)を所定の濃度で添加した後、3日程度静置した。静置後、Am-241トレーサーを添加し、28日後まで定期的にサンプリングを実施した。試験中は試験溶液のpHを定期的に確認し、pHが変化している場合には、NaOHまたはHClにより所定のpHに調整した。サンプリングは、試験容器を振とうして固相とともに試験溶液を採取した後、試験溶液の一部を再度採取して遠心分離を行い、その上澄み液を採取した。採取した上澄み液中のAm-241濃度より液相中のAm-241濃度を算出し、固相とともに採取した試験溶液中のAm-241濃度より、試料中の全Am-241濃度を算出した。これらの濃度より、Am-241のモンモリロナイトに対する分配係数を算出した。Am-241濃度の測定は、液体シンチレーションカウンターにより行った。

表3.3-1　Fe(II)共存下でのAm-241収着試験条件

核種	初期濃度 (mol/l)	固相	試験溶液条件				
			液固比 (ml/g)	NaCl 濃度 (mol/l)	$Na_2S_2O_4$ 濃度 (mol/l)	Fe(II)濃度（初期） (mol/l)	pH
Am-241	1×10^{-6}	モンモリロナイト	500	0.4	0.05	1×10^{-4} 1×10^{-6} 1×10^{-8}	7
				0.49	0.005	1×10^{-4} 1×10^{-6} 1×10^{-8}	9
				0.49	0.005	1×10^{-6} 1×10^{-8}	11

試験結果を図3.3-1に示す。試験の結果、試験溶液中のAm-241濃度は14日程度で概ね変化がなくなり、収着平衡に達していることが確認された。図3.3.1に示す結果は、収着平衡後の約28日後のサンプリングにより算出した分配係数とした。図3.3.1に示すように、いずれの共存Fe(II)濃度条件においても分配係数に大きな差がなく、共存Fe(II)の影響がないことがわかる。一方、各Fe(II)初期濃度における本条件でのモンモリロナイト中の表面錯体サイトのFe(II)による飽和度を、平成30年度の検討と同様の方法で算出すると（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2019）、pH9及びpH11の条件においては、Fe(II)初期濃度が1×10^{-4} mol/lの条件においては表面錯体サイトが飽和しているものの、1×10^{-6} mol/lでは飽和度が約25%と算出された。そのため、pH9においては、Fe(II)初期濃度が1×10^{-4} mol/lの条件における分配係数が、他のFe(II)初期濃度条件の分配係数と変化が見られないことから、Fe(II)とAmの間での収着競合はないものと推測される。一方で、pH11の条件においては、Fe(II)の溶解度が低いことから、Fe(II)初期濃度

が1×10^{-4} mol/lの条件での試験を実施できなかった。そのため、Fe(II)によりサイトが飽和した条件での試験結果が得られていないものの、サイト飽和度が約25%であるFe(II)初期濃度が1×10^{-6} mol/lの条件でも、分配係数の大きな低下が見られないことから、Fe(II)とAmの間での強い収着競合はないものと推測される。

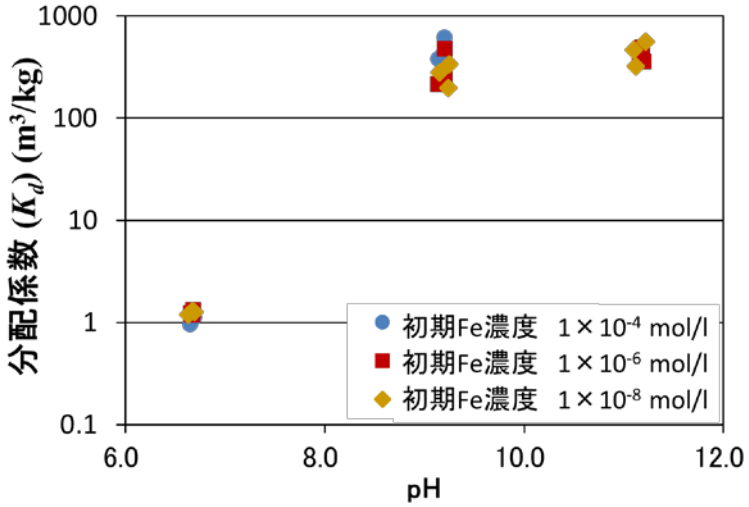


図3.3-1　Fe(II)共存下でのAm-241の分配係数のpH依存性

2) 鉄(II)鉱物へのSe(-II)の収着・取込挙動の評価

① 背景と目的

高レベル放射性廃棄物に含まれる^{79}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^{2-})、酸化性環境ではIV価(SeO_3^{2-})またはVI価(SeO_4^{2-})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、ベントナイトや岩石構成鉱物への収着による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取込等の相互作用によるSeの遅延効果については、これまでに先行研究が報告されている（例えば、Naveau et al., 2007; Scheinost and Charlet, 2008）。鉄酸化物相は岩石中に普遍的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が想定される。しかしながら、鉄酸化物相との相互作用による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($Fe(II)Fe(III)_2O_4$)が長期間にわたって安定に存在する鉄酸化物相として想定される。マグネタイトによるSeの収着・取込反応としては、マグネタイト表面での収着反応に加え、マグネタイト中に含まれるFe(II)及びFe(III)による酸化・還元反応が生じる可能性がある。例えば、Scheinost and Charlet (2008) はマグネタイト表面で、SeO_3^{2-}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。さらに、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、その過程におけるSeの収着・取込挙動の理解が重要となる。Se(IV)化学種と酸化水酸化鉄(III)であるフェリハイドライトとの相互作用に関する近年の研究では、pHによる熱力学的安定相の差異によって、Seの保持量も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伴って、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考慮する必要があることを示唆している。さらに、処分環境においては、SとSeの化学的類似性から、Seはパイライト（FeS_2）等との共沈反応により固相中に保持される可能性が指摘

されてきた（Diener and Neumann, 2011; Finck et al., 2012）。このような鉱物中への取込反応については、鉱物表面への収着反応に比較して、より安定的にSeを取込・保持する可能性が期待できる。

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)の収着・取込挙動と、その後のマグネタイト酸化物相への変遷に伴うSeの保持挙動について、反応プロセスやpH条件等を変動させたバッチ収着実験と各種分析手法の適用によってメカニズムの解明を試みた。

② 室内実験と分析の手法

実験概要を図3.3-2に示す。共沈・収着試験は酸素濃度1 ppm以下の窒素雰囲気グローブボックス内でバッチ法により行った。試験試料の調製に用いたFe(II)溶液(0.1 M)はモール塩（$(NH_4)_2Fe_2(SO_4)_2 \cdot 6H_2O$）を脱気した超純水に溶解することで調製し、Se(−II)溶液（0.01 M）はNa_2Seを0.1 Mヒドラジンに溶解することで調製した。共沈・収着試験は2種類の手順で実施した。そのうち一つ目の手順（実験A）は、Se(−II)溶液をFe(II)溶液に添加する共沈試験である（実験A）。本試験では、Se(−II)濃度が10 mM、Fe(II)濃度が10 mMの条件に設定し、Fe-Se混合溶液のpHは約8であった。もう一つの手順（実験B）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)溶液を添加するものである（実験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日間反応させた。その後、固液分離を行い、液相中のSe及びFe濃度をICP-AESで、Se化学種をUV-Visで測定した。一方、固相については、XRD及びSEM分析を行うとともに、SeとFeの分子構造を把握するためのXAFS分析をSPring-8で実施した。

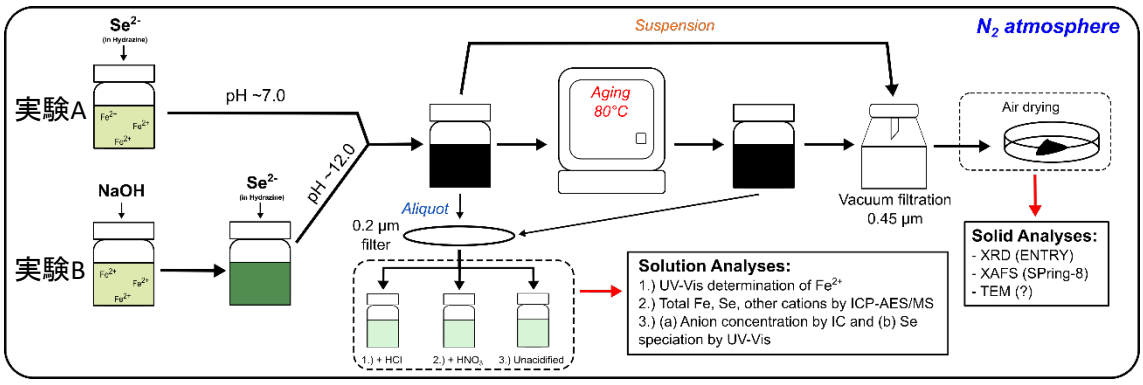


図3.3-2　Fe(II)鉱物とSe(−II)の相互作用メカニズム解明のための収着・共沈実験フロー

③ 試験結果と考察

溶液分析の結果（表 3.3-2）からは、両方の実験で共沈直後に Se(–II)濃度は<0.1 mM に低下することが確認された一方で、7 日間のエージング後の Se の挙動は 2 つの実験間で異なる傾向となった。実験 A では、液相中 Se(–II)濃度がさらに低下し、一方、実験 B では液相中 Se(–II)濃度が有意に増加する傾向が観察された。液相の UV-Vis 分光分析からは、液相中の Se が HSe^-の形で存在することが確認でき、Se の固液の再分配において Se の酸化還元反応は寄与していない可能性が示唆された。ただし、最初の Se(–II)の約 20%がまだ固相側に存在している点は重要であり、Se(–II)が少なくとも部分的に保持されていることを示している。

表3.3-2 共沈反応直後とエージング（7日間）後の液相中のpH, Eh, Fe・Se濃度

Experiment	Coprecipitation				After aging (7 days)			
	pH	Eh (mV)	Fe (mM)	Se (mM)	pH	Eh (mV)	Fe (mM)	Se (mM)
A	7.9	-210	4.9(1)	0.016(2)	6.5	230	1.37(7)	0.0054(2)
B	11.9	-260	0.004(3)	0.014	11.9	-330	0.0048(1)	0.80(2)

最初の共沈生成物とエージング後の固相のXRDプロファイル（図3.3-3[A]）からは、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。実験Aでは、グリーンラスト及びマグネタイトに対応するピークが観察され、これらの相は初期に沈殿した中性pHで準安定固相である$Fe(OH)_2$から形成された可能性が高い。SEM観察（図3.3-4）からは、マグネタイト磁鉄鉱の結晶が小さな（<1 μm）結晶からなる凝集体（～5 μm）として形成されていることを示す。マグネタイト粒子の形態は、結晶性の低いマトリクス内で核形成された一次粒子の凝集とそれに続く再結晶を伴う結晶化経路を示唆している。さらに、XRDプロファイルからは、フェロセライト（$FeSe_2$）に対応する小さなピークも観察される。EDSマッピングで特定されたフェロセライト結晶は、マグネタイト結晶凝集体を覆う微細な（<1 μm）球状粒子として存在することが確認できた。

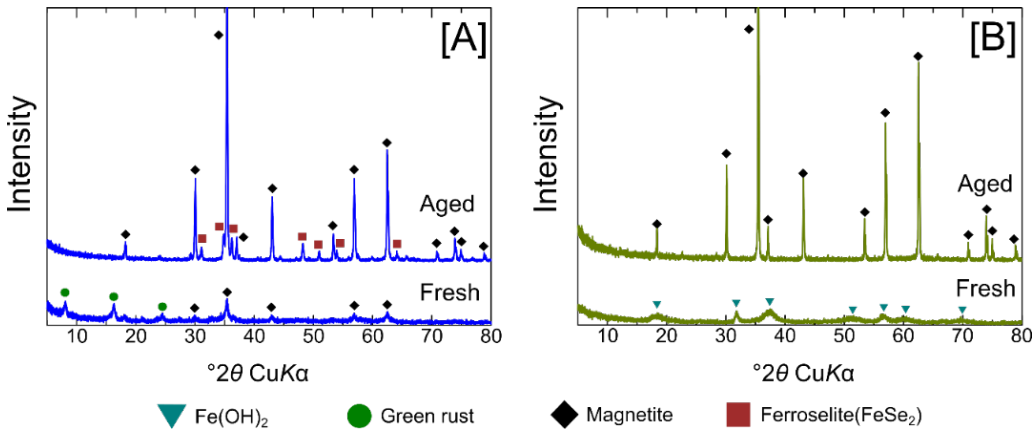


図3.3-3　初期共沈生成物及びエージングを行った固相のXRD測定結果：[A]実験A、[B]実験B

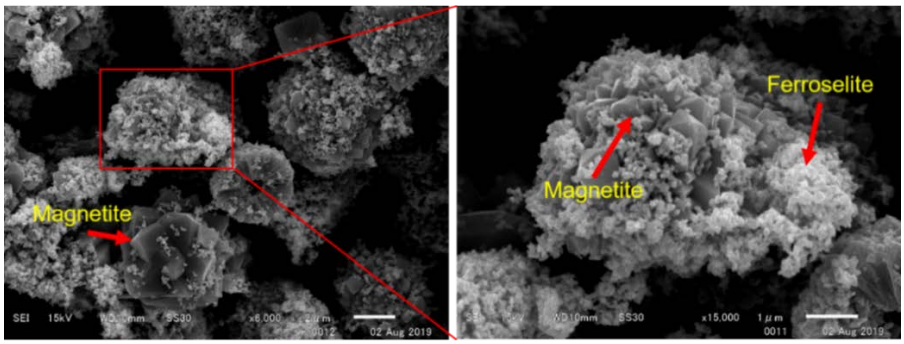


図3.3-4　実験Aにおけるエージング後の固相のSEM分析結果

実験Bでは、初期に$Fe(OH)_2$の緑白色沈殿が生成したのちに、Se(–II)溶液の添加によって急速に黒色の沈殿物が生成したことを確認した。初期に生成した固相のXRD分析結果（図3.3-3[B]）からも、$Fe(OH)_2$に対応するブロードな低強度ピークが確認できた。一方、エージング後の沈殿物にはマグネタイトのみが観察され、Seを含む固相は確認できなかった。実験Aのエージング後の固相

のSEM観察（図3.3-5）からは、マグネタイト結晶は平均粒径が約1μmの離散的な正方晶として生じており、マグネタイトは溶液から直接結晶化した可能性が示唆された。XRDとSEMの分析からは、エージング後の固相試料中には独立したSe相は観察できず、溶液中のSe濃度の変化（表3.3-2）と整合する結果となった。結晶のEDS分析（図3.3-5）からは、マグネタイト領域にSeが存在していることが確認できるが、Seがマグネタイト結晶の内部または表面に存在するかどうかは不明である。このように、エージングの過程で、一部のSeが溶液中への脱離が生じたものの、マグネタイトへの保持も一定の割合で維持されたことが確認できた。

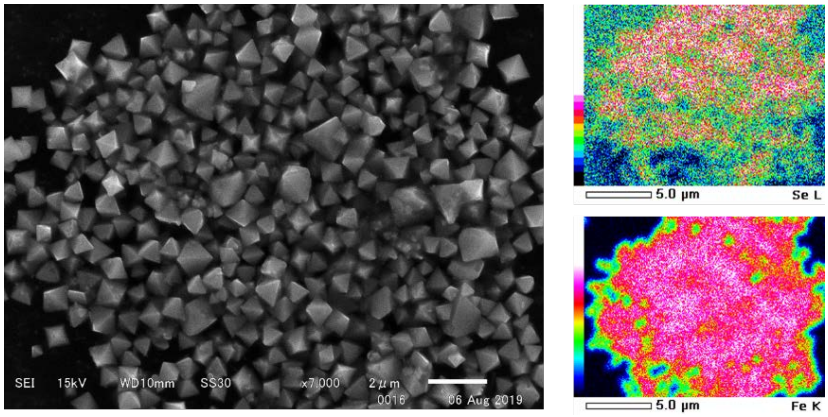


図3.3-5　実験Aにおけるエージング後の固相のSEM分析結果（左）とEDS分析結果（右）

次に、初期共沈物及びエージング後固相のXANES及びEXAFS分析結果を図3.3-6に示す。同図(A)に示すXANESスペクトルから、実験Aの初期共沈物はFeSeのスペクトルと同様の形状を示し、Se(–II)の酸化状態での存在が示唆される。エージング後の固相では、スペクトルは$FeSe_2$に類似した結果となった。一方で、実験Bの初期共沈物のXANESスペクトルは、実験Aの初期共沈物及びFeSeのスペクトルに非常に似ており、同様の酸化状態を示唆している。エージング後の試料のスペクトルからは、セレンの酸化状態が混合した状態であることが示唆された。

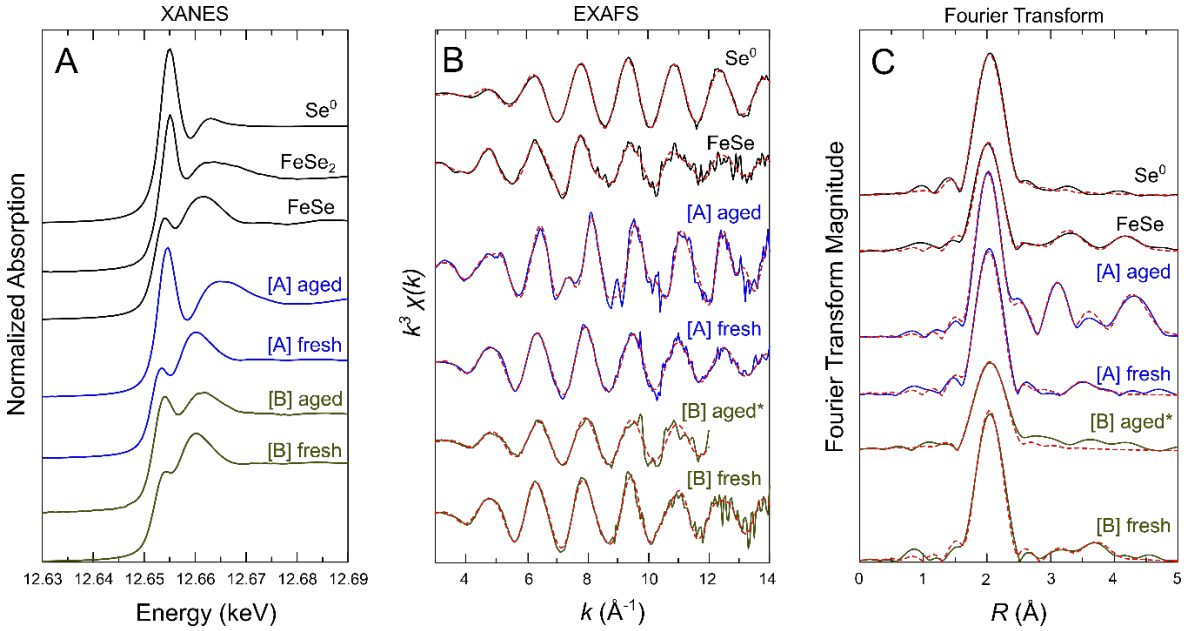


図3.3-6　実験A・Bの初期共沈物及びエージング後試料のXANES(A)及びEXAFS(B, C)分析結果

同図(B)及び(C)に示すEXAFSスペクトルからは、実験Aからの初期共沈物は、XANESと同様にFeSeと類似しており、EXAFSモデリングの結果から、この特徴が約2.39 Åの距離に存在する約2.6個のFe原子によって解釈され、FeSeの局所構造に合致することが確認できた。エージング試料のEXAFSスペクトルのモデリングからは、第一配位圏が約2.36 Åで約2.6個のFe原子に加え、約2.56 Åで約0.7個のSe原子によって解釈され、第一配位圏にFe原子とともにSe原子が存在することは、フェロセライトの構造と一致しており、XRDやSEM-EDS分析とも整合する結果が得られた。一方、実験Bの初期共沈物も同様に、第一配位圏は約2.39 Åの距離に存在する約2.6個のFe原子によって解釈され、実験Aの場合と同様のFeSeの局所構造を示した。ただし、第一配位圏を超える領域の構造は、FeSe及び他のセレン化鉄の構造とも一致しない結果となった。エージング後試料のEXAFSスペクトルは、Seの濃度が低いため使用可能なスペクトルの範囲が限定的ではあるが、実験A及びBからの初期共沈物、及びFeSeに類似した局所構造を示した。

以上の結果より、還元条件下でのFe(II)とSe(-II)の初期共沈物の生成から安定固相であるマグネタイトへの変遷に伴うSeの収着・取込現象について、様々な分析的根拠を組合わせてメカニズムの理解を深めることができた。今後、TEMなどの他の分析手法の活用や、試験条件の拡充によって、さらにメカニズムの解明を進めるとともに、次項に示すような、天然環境におけるFeとSeの相互作用に関する分析研究を進めていく。

④ 岩石中のFe鉱物とSeの相互作用に関する調査

上記室内試験において、地層処分環境において、Se(−II)は鉄(II)鉱物に共沈・収着現象によって保持されることを確認するとともに、初期共沈固相から安定固相への変遷過程における核種の保持・脱離挙動に係るメカニズムを把握した。しかしながら、室内試験では短期間の反応しか観察できないため、地層処分の安全評価で考慮される時間スケールでの反応とは異なる可能性があり、地層処分の安全評価技術の向上のためには、鉄鉱物に収着されたSeの長期的な移行・保持挙動を理解する必要がある。地下環境における元素の長期移行挙動を調べる手法としては、天然類似事象を対象としたナチュラルアナログ研究が有用である。放射性廃棄物の地層処分に関するナチュラルアナログ研究としては、ウラン鉱床を対象とした研究が多数実施されている（例えば、Smellie and Karlsson, 1996; Yoshida, 1994）。また、放射性核種の化学的アナログとして非放射性の希土類元素を対象に、地下深部環境における保持機構についてもいくつか研究が行われており、これらの岩石中の移行・保持挙動はその環境で生じる鉱物の吸着・共沈反応に影響される可能性が指摘されている（Iida et al., 1998; 村上ほか, 2016）。天然環境中でのSeの移行特性の評価については、主に鉱山のずりや頁岩からの溶出挙動に着目した調査が行われており、SeはFe(III)水和物や黄鉄鉱といった鉄鉱物によって保持されることが報告されている（Hendry et al., 2015）。また、Fe(III)水和物によるSeの収着では、共存する有機物がSeの移行に影響を与えることが報告されている（Tolu et al., 2014）。しかし、Seの移行・保持挙動に関する既往の研究では、地表から深度数m程度の酸化的環境における調査研究事例が多く、深度数百m以深の還元的環境における調査はほとんど存在しない。FeとSeは、ともに酸化還元状態に敏感な元素であり、地層処分における長期移行挙動を理解するためには、深部地下環境の還元環境下でのSeの存在形態について調べる必要がある。

そのため、本調査では深部地下環境中でのSeの長期的な移行挙動を理解するために、幌延の地下環境を対象にSeの存在形態に関する調査を行うこととし、平成31年度は調査の方針を検討するための予察的な分析を実施した。具体的には、深度140 m（声問層）及び350 m（稚内層）の異なる岩相の健岩部から得られた岩石試料（深度350 mの稚内層試料を図3.3-7(a)に示す）に対して、Seの含有量や収着形態に関する分析を行った。それぞれの岩石試料に対して実施した酸分解試験

では、岩相の違いによらず、Seは堆積岩中に1 μg/g程度含まれていることが明らかになった。また、Seの収着形態について明らかにするために、6種類の異なる抽出液（蒸留水、リン酸緩衝溶液、水酸化ナトリウム溶液、亜硫酸ナトリウム溶液、酢酸溶液及び混酸）を用いた逐次抽出試験を行った結果、図3.3-7(b)に示すように、岩相の違いによらず、亜硫酸ナトリウム溶液によるSeの抽出量が最も多く、堆積岩中ではSe(0)の固相として収着されていることが推察された。同様の結果は同図(c)に示すXAFS分析からも得られており、岩石中のSeのXANES分析結果はSe(0)の標準試料のものと概ね一致した。次年度以降は、収着固相の同定や局所的なSeの価数分析を実施することで、より詳細な収着メカニズムの違いについて明らかにしていく方針である。また、健岩部のみならず、亀裂充填部や断層ガウジ部などのSeの収着形態分析を実施し、長期的な地質環境の変化に伴うSeの収着形態の変化についても評価を行う予定である。

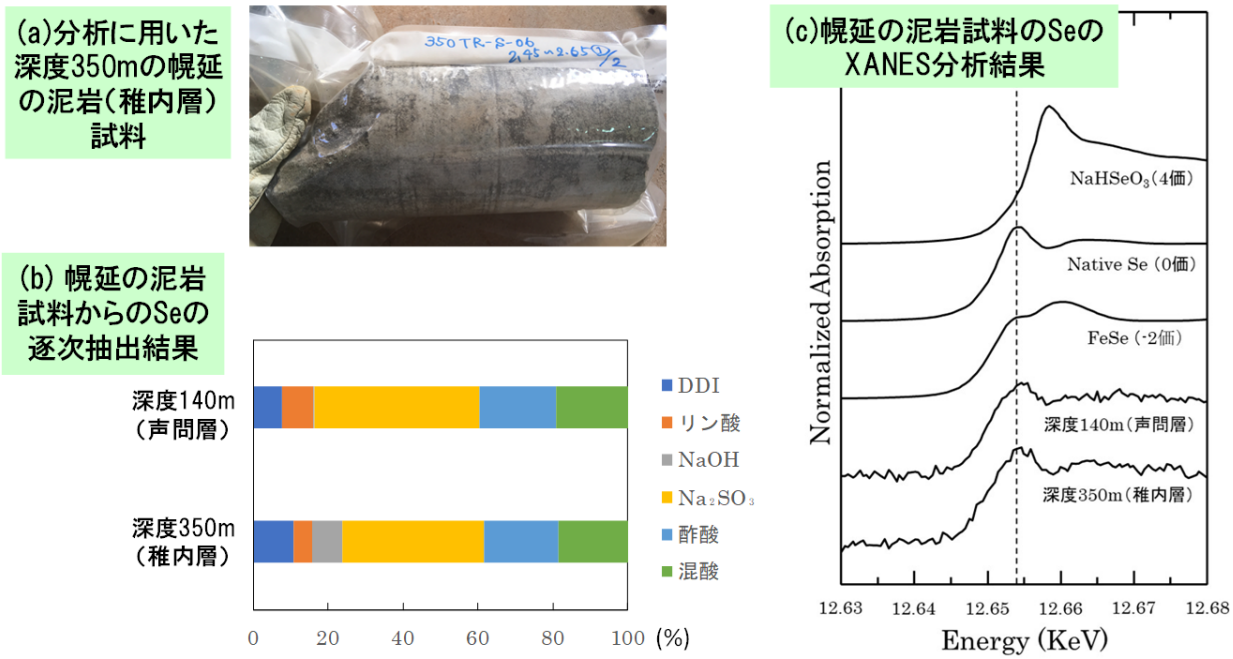


図3.3-7　幌延の泥岩試料（深度140mの声問層、深度350mの稚内層）(a)に含まれるSeの逐次抽出試験結果(b)とXANES分析結果(c)

(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評価技術の開発

1) 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

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については、平成30年度に実施した先行研究の調査結果をもとに、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によるニアフィールドの環境変遷、その結果として生じる間隙水化学、鉱物変質や間隙特性変化が核種移行に及ぼす影響プロセスの理解が重要であり、そのための課題とアプローチを設定した。そのうちセメント系材料の共存が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、これに伴い緩衝材の特性が変化し、その結果としてコロイドフィルトレーション機能へ影響が及ぶ可能性を最重要の課題として抽出した。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）において構築してきたデンドリマーコロイドを用いた圧縮ベントナイト中のコロイド移行特性評価手法を活用し、平成30年度事業において、間隙水塩濃度の異なる条件でのCa型ベントナイト中のデンドリマーコロイドの移行データを取得してきた（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019）。その結果、乾燥密度1.2 Mg/m^{3}までの条件では、5.7 nmサイズのデンドリマーコロイドが破過すること、その拡散係数は乾燥密度や塩濃度による明瞭な傾向を示すことが確認された。この結果を踏まえ、平成31年度はより高い乾燥密度条件1.6 Mg/m^{3}でのデータ取得に着手するとともに、より大きいサイズのデンドリマーコロイドの安定性評価と移行特性データ取得を実施した。高密度条件1.6 Mg/m^{3}での拡散試験はコロイドの破過に至っていない状況であり、ここでは、サイズの異なるデンドリマーコロイド（7.2 nm）の安定性評価と拡散試験の結果を報告する。

試験に供するデンドリマーとして、前年度までと同様に、一定のサイズで球状の構造を有する樹状高分子であるカルボン酸ナトリウムを末端基に持つポリアミドアミン（PAMAM）デンドリマー(Aldrich製)を使用した。デンドリマーのサイズは、5.7 nm (Generation 4.5、分子量 26,252)に加え、平成31年度はサイズの大きい7.2 nmサイズのデンドリマー（Generation 5.5、分子量52,900)を使用した。今回新たな対象とした7.2 nmのデンドリマーコロイドの安定性評価のため、デンドリマー分散溶液にNaCl溶液を添加し、7.2 nmデンドリマーを0 mol/L及び0.05 mol/Lに調整し、動的光散乱法による粒径測定を行い、塩濃度条件による粒径分布の違いを確認した。その結果、図3.3-8に示すように、5から10nm付近に散乱強度のピークが見られ、塩濃度の増減による粒径の大きな変化は確認されなかった。この結果から、本試験の対象とした0.05 mol/Lまでの塩濃度条件の範囲において、デンドリマーは溶液中で安定に分散した状態であり、拡散試験に適用できることが確認できた。

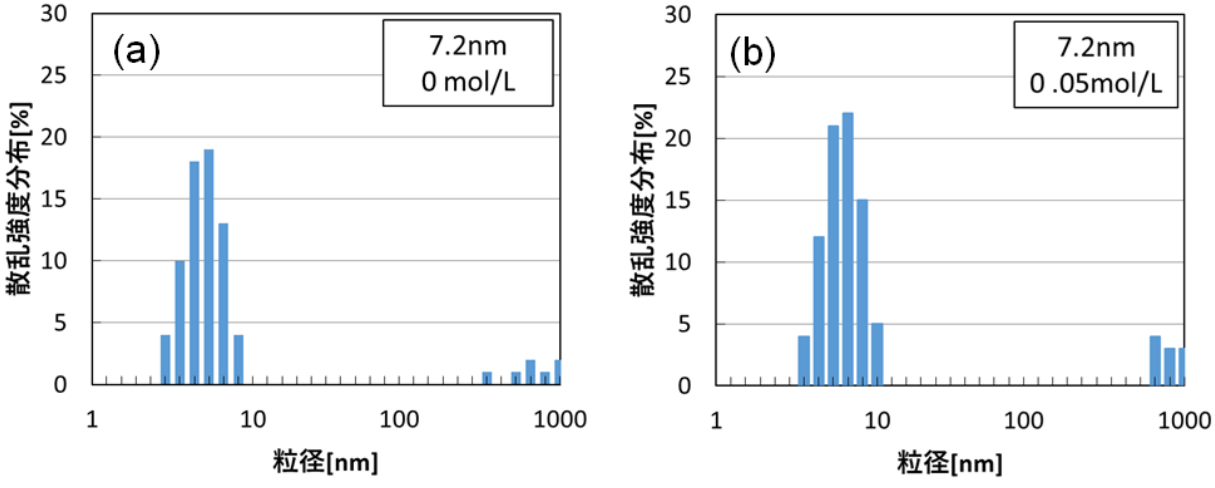


図3.3-8 異なる塩濃度条件での7.2 nmデンドリマーの粒径分布

安定性確認試験の結果を踏まえ、7.2 nmデンドリマーの透過拡散試験を、循環型の透過拡散試験セル（日本原子力研究開発機構, 2018）を用いて行った。ベントナイトとしてはNa型のクニピアF® (クニミネ工業)を使用し、乾燥密度は0.8 Mg/m^{3}とした。試験溶液は0.05 mol/Lに調整したNaCl溶液を使用し、NaOHを用いてpH 8に調整した。溶液の量は、高濃度側は250 ml、低濃度側は15mlとした。拡散物質であるデンドリマーは溶媒中のメタノールを除去したものを使用した。試験開始後、一定期間ごとに低濃度側溶液を新しい溶液に入れ替え、採取した低濃度側溶液をTOC計（島津製作所TOC-Lcph）で測定した。高濃度側の溶液は一定期間毎にサンプリングし、TOCを測定した。試験終了後、拡散セルを解体し、クニピアF®をスライスした。スライス片を1mol/LのNaCl溶液に入れ、2週間攪拌した後、遠心分離装置にかけ上澄みを採取し、TOC計でクニピアF®中のデンドリマーの濃度を測定した。

得られた7.2 nmのデンドリマーコロイドの高濃度側の濃度減衰データ及び低濃度側の破過データを図3.3-9(a-1)に、試験後のベントナイト中のデンドリマーコロイドの濃度分布を同図(b-1)に示す。同図(a-2)及び(b-2)には、先行事業で同じ条件（Na型ベントナイト、乾燥密度0.8 Mg/m^3, NaCl濃度0.05 mol/L）で取得された5.7 nmのデンドリマーコロイドの結果をあわせて示す。これらのデータに対して、上流側のデンドリマー濃度の平均値を用いて、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（日本原子力研究開発機構，2018）を適用して、実効拡散係数を導出した。同図(a-1)及び(a-2)にフィッティング結果と実効拡散係数を示す。7.2 nmのデンドリマーコロイドで得られた実効拡散係数は3.32×10^{-12} m^2/sと、5.7 nmのコロイドで得られた実効拡散係数値の4.97×10^{-12} m^2/sよりも低い値となった。コロイドサイズが大きいほど、物理的なサイズの影響による幾何学的な狭窄度と静電的な狭窄度の双方の影響によって拡散係数が小さくなる傾向は妥当であり、サイズの異なるコロイドの妥当な拡散係数が評価できていると考えられる。さらに、実効拡散係数を導出した際の実効拡散係数と形状因子からは同図(b-1)及び(b-2)に示す実線で示す濃度分布が予測される。しかしながら、実測された濃度分布からはより高い濃度のデンドリマーがベントナイト間隙水中に存在していることが確認でき、このことは、デンドリマーコロイドがベントナイト中の狭隘間隙中を移行する過程でろ過されたためと考えられる。実測の濃度プロファイルに拡散方程式をフィッティングさせた図中の破線と実線との差から、デンドリマーコロイドのろ過率を評価した結果、図中に示すように、7.2 nmのコロイドでは平均64%（最大80%～最小59%)、5.7 nmのコロイドでは平均55%（最大83%～最小32%）となった。サイズが大きい7.2nmのコロイドの方がろ過率が高い妥当な結果となった。これまでは実効拡散係数のみを評価してきたが、このような方法でろ過率を評価することができ、また、ろ過率の空間的な分布を定量評価することで、従来把握が困難であったベントナイト中の間隙サイズや連続性に関する情報を得ることができると考えられる。

今後は、現在継続実施中の高密度条件1.6 Mg/m^{3}での拡散データを取得したうえで、これまでの一連の取得データに対して、上記のような方法でのろ過率の導出を行い、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や、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。

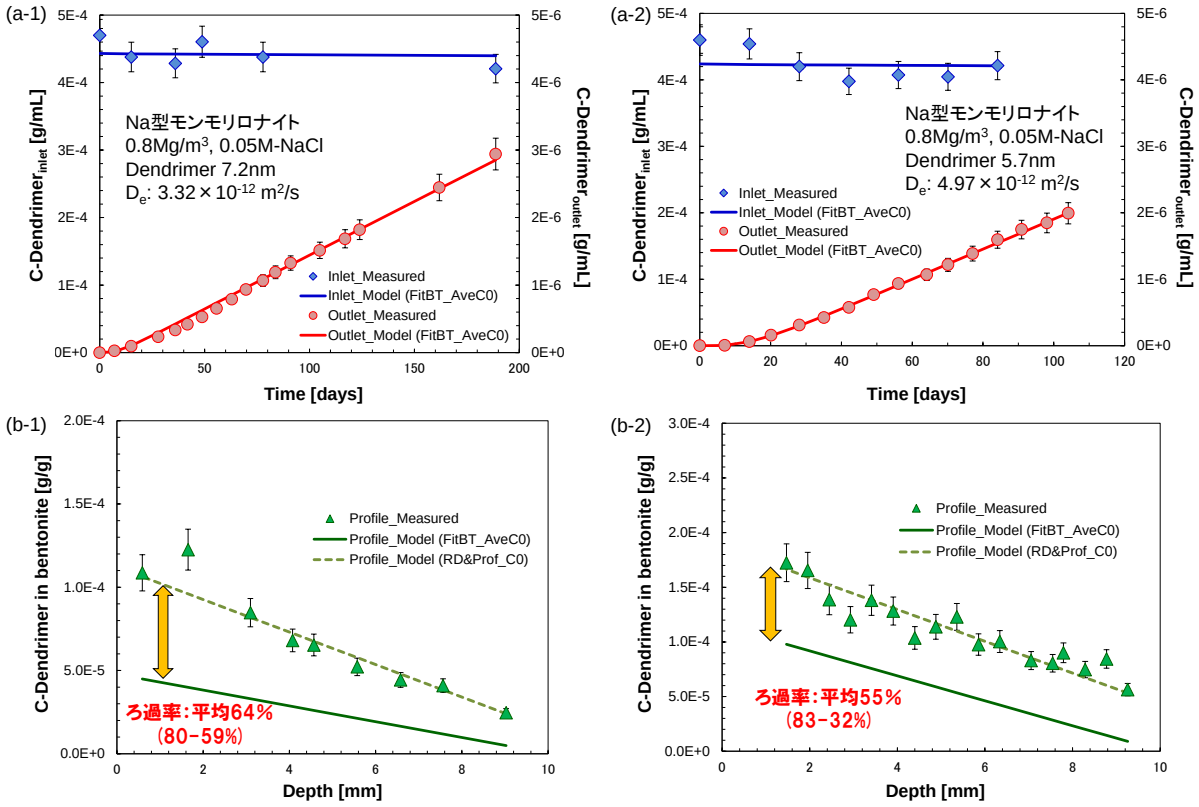


図3.3-9　7.2 nm(1)及び5.7 nm(2)のデンドリマーコロイドの拡散試験データと解析結果：高濃度側の濃度減衰と低濃度側の破過データ(a)と試験後のベントナイト中の濃度分布(b)

2) 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

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泥岩（声問層）とOPCの接触試料、及び泥岩（声問層）とHFSCの接触試料、350 m坑道から採取された泥岩（稚内層）とHFSCの接触試料の3種類(図3.3-10参照)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。なお、140 m坑道の声問層から採取した泥岩は約9.5年間、350 m坑道の稚内層から採取した泥岩は約5.5年間、それぞれセメントと接触していた。これらの接触試料は、真空樹脂含浸を行い、接触界面の保護を行ったのち、接触面中央で分割して断面観察試料とし、EPMAの分析に供した。

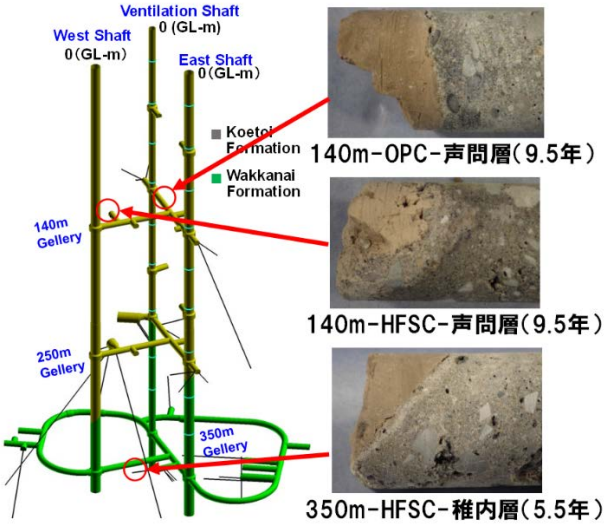


図3.3-10　幌延の泥岩とセメントの接触界面の採取位置と各試料の界面の状況

ここでは、OPCと接触していた泥岩試料の2か所（図3.3-11(a),(b)）と異なる深さの坑道から採取したHFSCと接触していた泥岩試料（図3.3-11(c),(d)）を対象として、EPMA分析(JEOL JXA-8,200、加速電圧15 kV)、FE-SEM分析、μ-XRD分析を行い、変質状況を評価した。

図3.3-11(a-d)に示すEPMAによるCaの元素分布図では、図中の赤い点線で示した泥岩とセメントの境界から上部に泥岩、下部にセメントが位置しており、相対的にCaに富んだセメント側から泥岩側へのCaの移行をOPC、HFSCのいずれの試料においても確認することができる。これは、OPCではポルトランダイトの、HFSCではC-A-S-Hゲルの溶解によって生じていると考えられる。

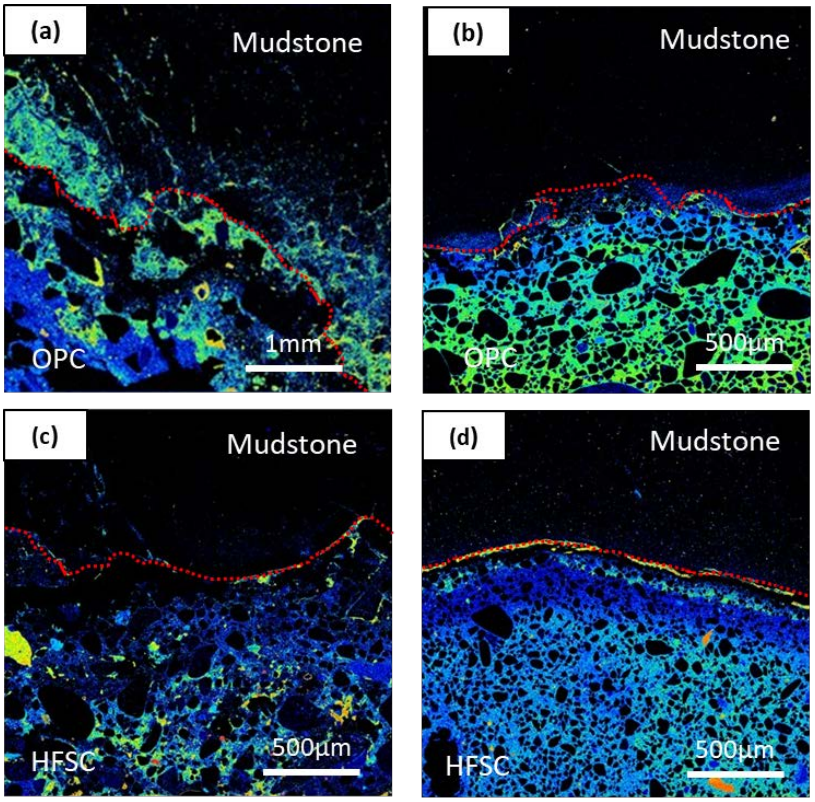
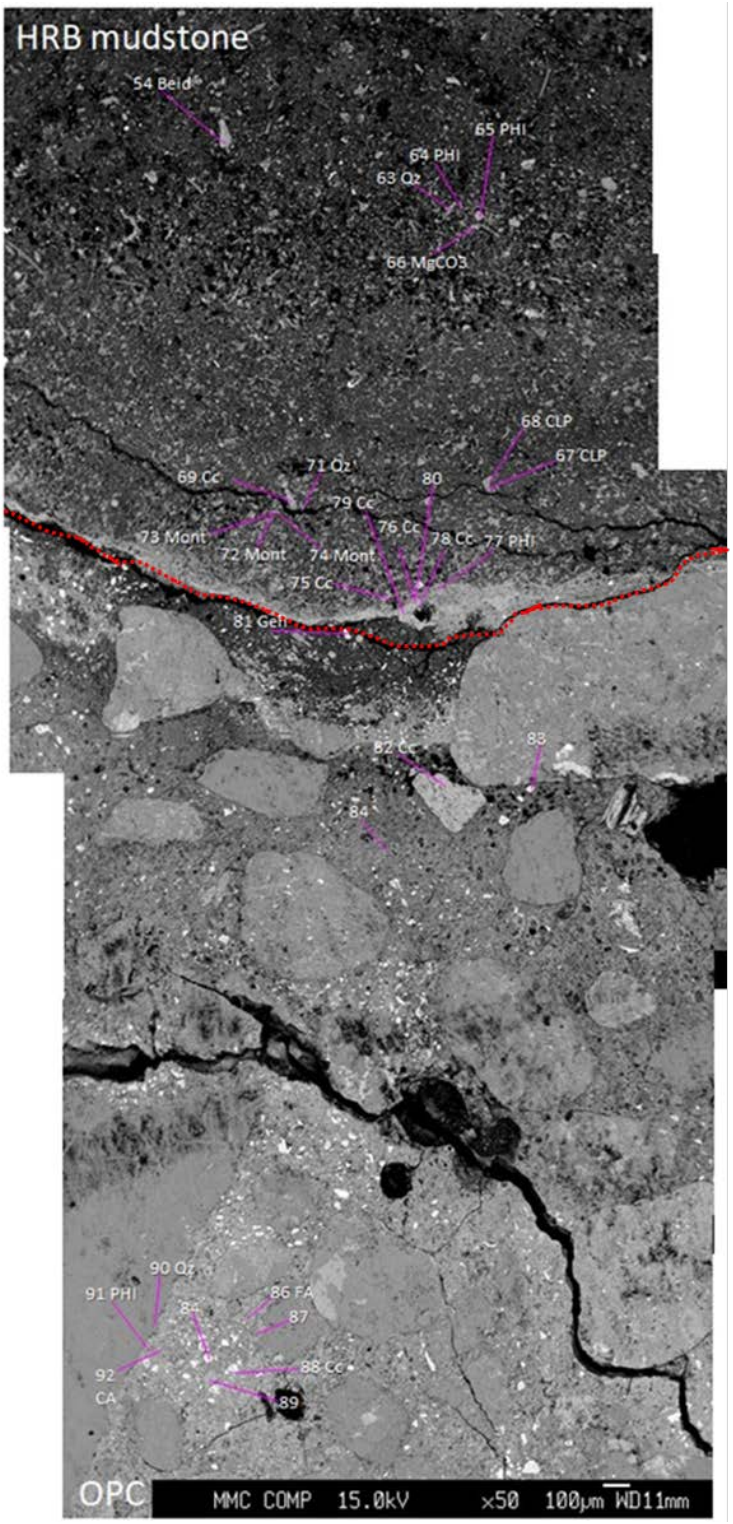


図3.3-11　幌延の泥岩とOPC(a,b)またはHFSC(c,d)の境界領域でのCaの元素分布

OPCと泥岩の接触試料では、Caの泥岩側への移行が同図(a)に示す試料で1 mm程度である一方、同図(b)に示す試料においては100 μm程度であることが確認できた。EPMAによる化学組成分析結果に基づき、OPCと泥岩の接触界面近傍における鉱物同定を行った結果、界面近傍ではカルサイト、泥岩側ではモンモリロナイトとバイデライトといった粘土鉱物、クリノプチロライトやフィリップサイトといったゼオライトが確認された(図3.3-12)。



鉱物標記凡例

Mont	モンモリロナイト
Beid	バイデライト
Cc	カルサイト
Qz	石英
CLP	クリノプチロライト
PHI	フィリップサイト
Gen	ジェナイト
MgCO3	マグネサイト

図3.3-12　OPCと泥岩接触界面近傍におけるEPMAによる化学組成分析に基づく鉱物同定結果

さらに、同試料(図3.3-13(a))に対してサンプリング(図3.3-13(b))を行い、FE-SEMによる形態観察及び化学組成分析、μ-XRD分析による鉱物同定に供した。FE-SEMによる分析から、界面近傍にはカルサイトが二次的に生成していることが確認され(図3.3-13(c))、μ-XRD分析から、その生成量はOPC側で多くなっていることが確認された(図3.3-13(d))。今後は、泥岩中の粘土鉱物やゼオライトが接触変質により生じたものであるかを評価するため、変質を受けていない泥岩の分析が必要となる。

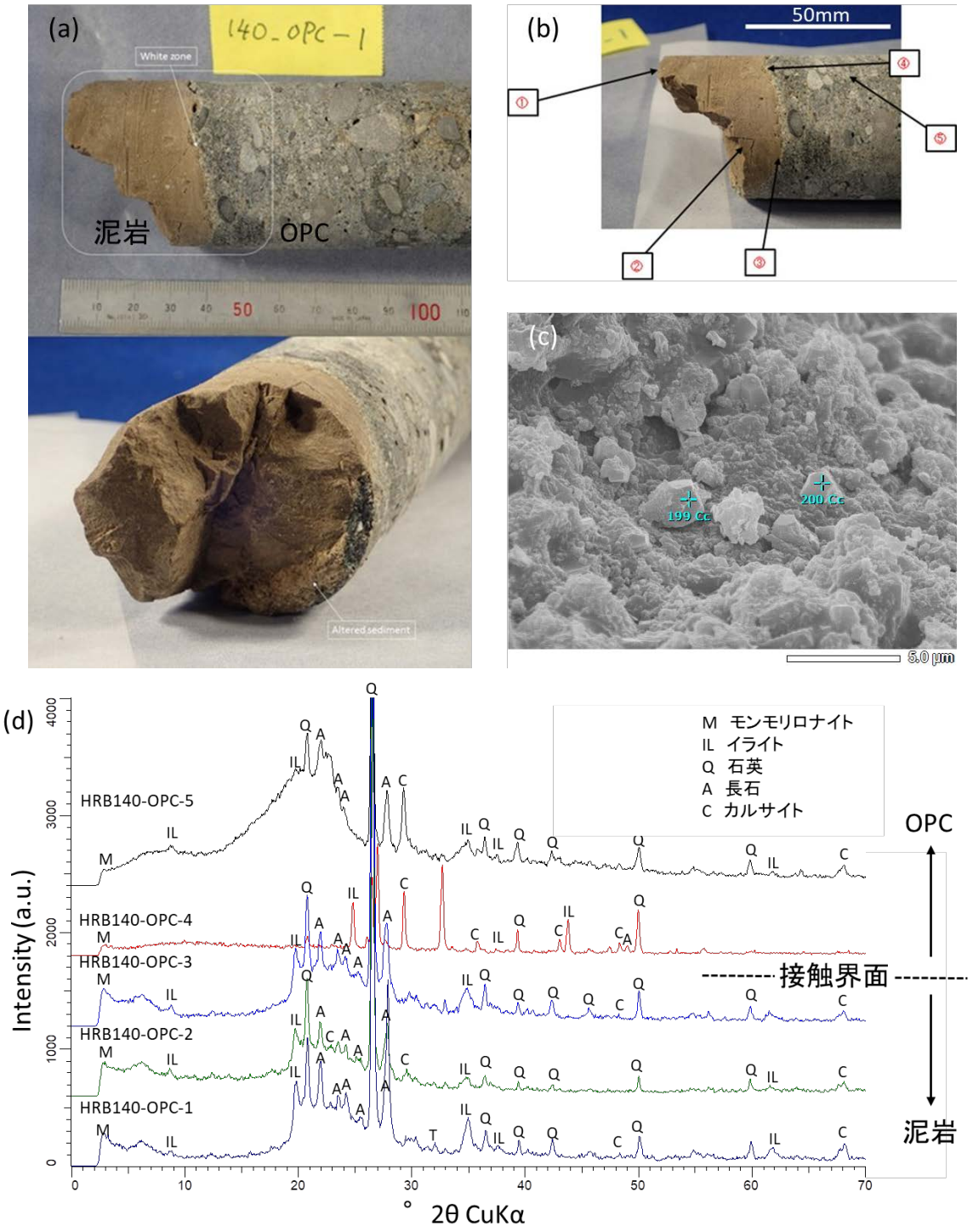


図3.3-13　OPCと泥岩接触試料の変質評価結果：(a)試料外観、(b)サンプリングポイント,
(c)界面近傍のFE-SEM観察像、(d)サンプリング試料のμ-XRD分析結果

一方で、HFSCと泥岩の接触試料では、図3.3-11(c),(d)に示すように、接触期間が泥岩の違いによらず顕著なCaの移行を確認することはできなかった。さらに、図3.3-13に示したものと同様のSEM分析による形態観察及び元素分析及びμXRD分析からは、境界面に緻密な炭酸塩鉱物層の形成が確認された。図3.3-11(d)のHFSC側におけるCaの枯渇と、Na-HCO_3に富む地下水組成(Hama et al., 2007)を考慮すると、これらの炭酸塩鉱物は、HFSCの打設後に二次的に生成したものであると考えられる。また、同図(c)においても同図(d)ほど明瞭ではないが炭酸塩の生成が確認された。泥岩とセメント接触後比較的早い段階で炭酸塩鉱物の生成することにより、Caの移行が抑制されうることが示唆された。

今後は、セメント間隙水及び地下水組成、泥岩の鉱物組成や間隙特性をもとに、Caをはじめとする元素の移行とそれに伴う鉱物の変質を評価することで、OPCやHFSCといったセメントの種類の違いが岩石変質に与える影響、さらに接触期間が変質範囲に与える影響を定量的に評価していくことが必要となる。

上記で観察されたように、セメントと泥岩の接触界面ではCaの泥岩側への移行とカルサイト等の二次鉱物の沈殿が生じることが想定され、これらの二次鉱物の生成に伴う核種の取込等によって核種移行が遅延されることが期待される。二次鉱物の生成による核種の移行遅延に関する研究では、吸着反応と共沈反応の二種類の反応が考慮される。例えば、陽イオン(Cu(II)、Zn(II)、Pb(II)、Np(V)など)に対するカルサイトの吸着反応については、内圏錯体によって生じるとされている(Elzinga et al., 2006; Heberling et al., 2011)。一方、陽イオンの共沈反応に関しては、Curti (1999)においてまとめられており、2価や3価の陽イオンは、Ca^{2+}と置換することで、カルサイトの構造中に取り込まれると報告されている。また、陰イオン(As(III、V)、Cr(VI)、Se(IV)など)についても、吸着・共沈試験が実施されており、吸着反応については、pH上昇に伴い吸着率が減少することが確認されている。一方、共沈反応では、カルサイト中のCO_3^{2-}との置換によってSe(IV)やAs(III)が収着され、その親和性はCO_3^{2-}との分子構造の類似性によって決まると報告されている（Aurelioet al., 2010; Bardelli et al., 2011; Cowan et al., 1990）。他にも、Chakraborty et al. (2010)では、Fe^{2+}を表面吸着したカルサイトは、Se(IV)を還元させ、Se(0)として沈殿させることが明らかになっており、アルカリ条件における陰イオンに対する吸着や取込への寄与も期待されている。さらに、カルサイトは天然の岩石の変質部にて頻繁に確認されるため、天然のカルサイトに含有された微量元素についても、いくつか調査が行われている。例えば、土岐花崗岩中の変質部にでは、軽希土類元素のカルサイトへの濃集が確認されている（Iida et al., 1998; 土橋・鹿園, 2008）。

C-S-Hへの核種の吸着反応についても、多数の研究が行われている。C-S-Hは、生成時の溶液条件によって様々なCa/Siをとり、その比率によって表面電荷、すなわち微量元素に対する吸着特性が大きく異なる（Nachbaur et al., 1998）。例えば、陽イオンであるSr(II)やCs(I)に対するC-S-Hによる吸着反応では、Ca/Siの上昇とともに吸着率が減少する一方、陰イオンであるSe(IV)に対しては、Ca/Si比の上昇に伴い、Seの収着率の上昇が確認されている（Missana et al., 2019; Ochs et al., 2006; Tits et al., 2006）。また、Missana et al. (2019)では、Se(IV)が高濃度の場合、微量元素を含むCa鉱物(例えば、$CaSeO_3$など)としてSeが溶液から取り除かれる例も報告されている。

さらに、カルサイトやC-S-Hに関しては、表面錯体モデルによる吸着挙動の再現計算が行われている。C-S-Hの表面錯体モデルによる計算では、pHに依存する表面サイトのプロトン化及び脱プロトン化のみならず、表面基に対するCaの脱着反応も重要であり、溶存Ca濃度の影響を考慮した、吸着挙動の再現計算が行われている（Missana et al., 2018; Pointeau et al., 2006）。以上のように、カルサイトやC-S-Hはアルカリ条件においても微量元素の吸着・取込反応が期待できるため、これらの二次鉱物の生成状況の把握とあわせ、これらの二次鉱物への核種の吸着・取込現

象についても理解を進め、その定量評価手法を検討していく必要がある。

今後は、上記の幌延のセメントと泥岩の接触試料の界面近傍の二次鉱物中の微量元素を分析するとともに、関連する室内試験や分析をあわせて実施することによって、カルサイト等の二次鉱物中への元素の取り込みメカニズムを検討していくこととする。

(3) 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) 背景と目的

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中での収着・拡散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・拡散モデルの検討を進め、特に、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。また、モデル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、先端的な分析技術や、分子動力学計算及び第一原理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解明を進め、それらを反映した核種移行モデルを高度化する。

2) 高炭酸条件が岩石中の核種移行に及ぼす影響評価

① 高炭酸条件下でのアクチニドの収着データ取得とモデル評価

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。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先行研究によれば、3価のランタニド・アクチニド元素のモンモリロナイトへの収着において、分光学的観察（TRLFS, EXAFS）から炭酸系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）。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、平成30年度には、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。これを踏まえ、平成31年度は、引き続き、Am(III)及びTh(IV)を対象として、炭酸共存下でのイライトやモンモリロナイトへの収着データに加え、幌延の泥岩への収着データを取得し、イライトやモンモリロナイトへの収着モデルを加成則で考慮するCA（Component Additivity）モデルの適用性評価を試みた。

a) 粘土鉱物への収着データ取得とモデル化

平成30年度に実施した炭酸共存下におけるイライトへのAmの収着試験の結果、炭酸が存在することによってAmのK_d値が低下するものの、ばらつきが大きく、その濃度依存性は不明瞭であった。その原因として、不純物の除去処理を行っていなかったことや粒径の不均一な分布が考えられた。そこで、平成31年度はBradbury and Baeyens (2009a)の方法を用いて不純物(主に石英やカルサイト)の除去及び粒径を0.5 μm未満に調整したイライトを用いてデータの取得を行った。図3.3-14にイライトに対するAmの収着データを示す。平成30年度の結果と比較するとデータのばらつきは小さくなり、炭酸濃度が高くなるほどK_d値が低下する傾向は見られた。しかしながら、pH 8付近では炭酸濃度依存性は不明瞭であった。なお、後述のThのデータは、不純物の除去処理を行っていないイライトを用いても明瞭な炭酸濃度依存性を確認できた。Amの収着データについては今後試験手法の妥当性とモデルによる説明可能性の両方から検討を進めていく。

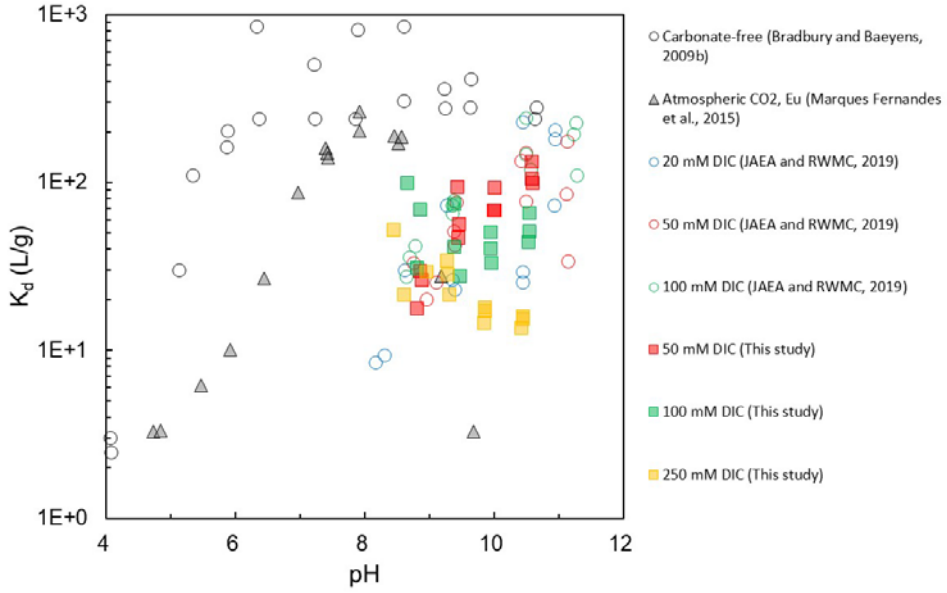


図3.3-14　イライトに対するAmの収着データの炭酸濃度及びpHに対する依存性

一方で、平成30年度に実施した炭酸共存下（炭酸濃度100及び250 mM）でのイライトへのThの収着試験の結果では、100 mMでは既往の報告(Iida et al., 2016)と同程度のK_d値が得られ、250 mMではK_d値が100 mMにおける値より低くなる傾向を確認することができた。これを踏まえ、平成31年度は、炭酸濃度250 mMの条件におけるデータの拡充を行った。図3.3-15にイライトに対するThの収着データを示す。平成31年度に取得したデータにおいても、炭酸濃度250 mMの条件では、炭酸濃度100 mMの条件で得られたK_d値よりも低くなる傾向が確認された。また、他の炭酸濃度条件と同様に、K_d値はpH 10程度で極小値となり、pH 10以上ではpH値の上昇とともにK_dは増加する傾向が確認された。これは、高pH条件ではThの支配的な溶存化学種が炭酸錯体から加水

分解種となり、表面錯体も加水分解種の収着によるものが支配的になるからであると解釈できる。既往の報告値及び得られたデータを用いてフィッティング解析を行い、エッジサイトーThー炭酸の三元錯体の生成を仮定し、表面錯体生成定数の導出を行った。平成30年度は2種類の三元錯体($\equiv S_i^S OTh(OH)_2(CO_3)_2^{3-}$及び$\equiv S_i^S OThOH(CO_3)_4^{6-}$)の生成を仮定したが、追加で得られたデータを用いて再度フィッティング解析を行った結果、1種類($\equiv S_i^S OTh(OH)_2(CO_3)_2^{3-}$)の三元錯体で結果を再現することができた。得られた表面錯体生成定数とそれらを用いて再現計算を行った結果をそれぞれ表3.3-3と図3.3-15(実線)に示す。得られた表面錯体生成定数は、K_d値の炭酸濃度上昇に伴う低下及びpH 10以上での上昇を再現することができた。

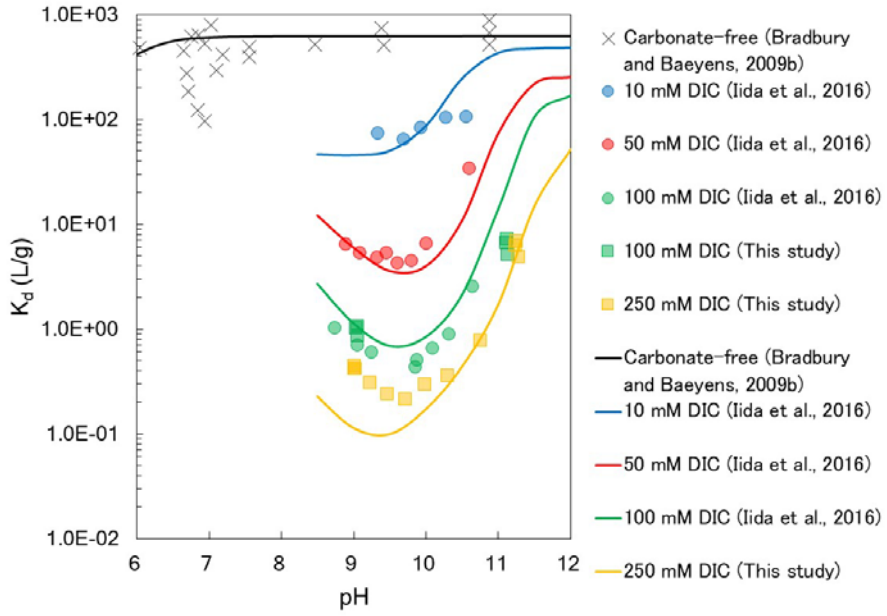


図3.3-15　イライトに対するThの収着データ及びモデルによる再現計算結果

表3.3-3　導出されたイライトに対するThの表面錯体生成定数

Reaction	log *K*
$\equiv S_i^S OH + Th^{4+} = \equiv S_i^S OTh^{3+} + H^+$	6.7
$\equiv S_i^S OH + Th^{4+} + H_2O = \equiv S_i^S OThOH^{2+} + 2H^+$	2.3
$\equiv S_i^S OH + Th^{4+} + 3H_2O = \equiv S_i^S OTh(OH)_3 + 4H^+$	−9.0
$\equiv S_i^S OH + Th^{4+} + 4H_2O = \equiv S_i^S OTh(OH)_4^- + 5H^+$	−15.1
$\equiv S_i^S OH + Th^{4+} + 2H_2O + 2CO_3^{2-} = \equiv S_i^S OTh(OH)_2(CO_3)_2^{3-} + 3H^+$	10.3

さらに、平成31年度は、モンモリロナイトに対するThの収着データの拡充を行った。モンモリロナイトでは炭酸濃度100 mMでの取得データが存在(Iida et al., 2016)するため、上記のイライトと同様に炭酸濃度250 mMの条件でデータを取得した。図3.3-16にモンモリロナイトに対するThの収着データを示す。モンモリロナイトにおいても、イライトと同様にK_d値の炭酸濃度の上昇に伴う低下と高pH領域での上昇が確認できる。しかしながら、イライトでは炭酸濃度10 mMと50 mMの条件ではK_d値に1桁程度の差が見られたが、モンモリロナイトではその差は小さかった。一方、モンモリロナイトでは炭酸濃度100 mMと250 mMの条件ではK_d値に1桁程度の差が見られた

が、イライトではその差は小さかった。モンモリロナイトにおいてもイライトと同様にフィッティング解析を行い、表面錯体生成定数の導出を行った。三元錯体についてもイライトと同様に、炭酸イオンが2つ配位したもの(≡S_m^SOTh$(OH)_2(CO_3)_2^{3-}$)を仮定した。得られた表面錯体生成定数とそれらを用いて再現計算を行った結果をそれぞれ表3.3-4と図3.3-16(実線)に示す。得られた表面錯体生成定数はK_d値の炭酸濃度及びpH依存性を定性的には表すことはできたものの、実測された収着の炭酸濃度依存性に対し定量的には十分な再現を得ることはできなかった。

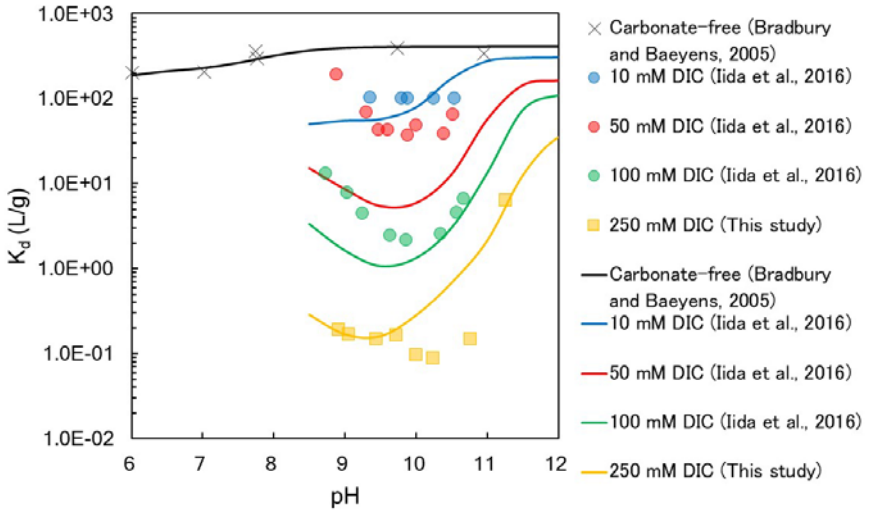


図3.3-16　モンモリロナイトに対するThの収着データ及びモデルによる再現計算結果.

表3.3-4　導出されたモンモリロナイトに対するThの表面錯体生成定数

Reaction	log *K*
≡S_m^SOH + Th^{4+} = ≡S_m^SOTh^{3+} + H^+	7.0
≡S_m^SOH + Th^{4+} + H_2O = ≡S_m^SOThOH^{2+} + $2H^+$	2.1
≡S_m^SOH + Th^{4+} + $3H_2O$ = ≡S_m^SOTh$(OH)_3$ + $4H^+$	−9.4
≡S_m^SOH + Th^{4+} + $4H_2O$ = ≡S_m^SOTh$(OH)_4^-$ + $5H^+$	−17.0
≡S_m^SOH + Th^{4+} + $2H_2O$ + $2CO_3^{2-}$ = ≡S_m^SOTh$(OH)_2(CO_3)_2^{3-}$ + $3H^+$	8.8

b) 幌延の泥岩への収着データ取得とモデル化

イライト及びモンモリロナイトは泥岩を構成する主要粘土鉱物である。泥岩（稚内層）に対する元素の収着をこの2種の粘土鉱物が収着に対して支配的に寄与すると仮定して再現する方法が試みられている(例えば、Bradbury and Baeyens, 2011; Marques Fernandes et al., 2015; Tachi et al., 2016)。そこで、幌延泥岩を用いてTh収着試験を行い、イライト及びモンモリロナイトを用いた試験において得られた表面錯体生成定数を用いて結果の再現を試みた。幌延の泥岩は粉砕後、イライトと同様に粒径50 μm未満のものを回収して用いた。pHを固定(pH 10)して炭酸濃度を変化させた試験及び炭酸濃度を固定(250 mM)してpHを変化させた試験を行った。図3.3-17に結果を示す。幌延泥岩に対するThのK_d値は、イライト及びモンモリロナイトで得られた結果と同様に炭酸濃度及びpH依存性を示した。幌延泥岩のイライト及びモンモリロナイトの割合をそれぞれ10%及び16%(Tachi et al., 2011)とし、この2種の鉱物のみが収着に寄与すると仮定して再現計算

を行った結果を図3.3-17に示す。炭酸濃度依存性については、その傾向を再現することはできているものの、10–100 mM条件では1桁近く過大評価となっている。一方、炭酸濃度250 mMで取得したpH依存性については、概ね傾向を再現することができた。

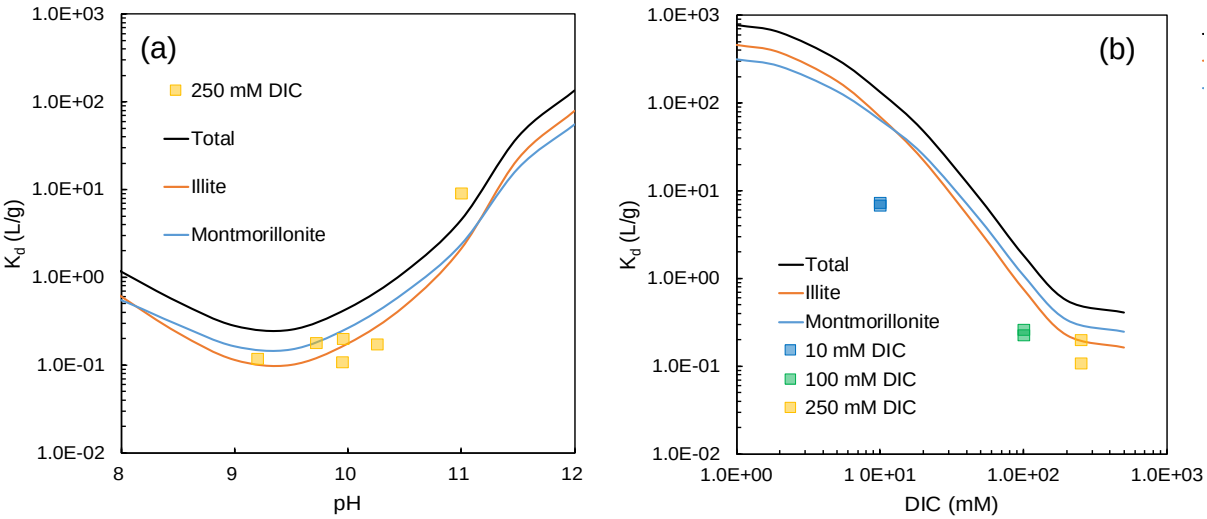


図3.3-17　幌延の泥岩に対するThの収着データ及びモデルによる再現計算結果：(a)pH依存性、(b)炭酸濃度依存性.

幌延の泥岩において結果を十分に再現できなかった理由の一つとして、導出したイライト及びモンモリロナイトの表面錯体生成定数の不確実性が考えられる。イライトでは比較的良好に実測値を再現できているものの、モンモリロナイトでは実測値を十分に再現することはできなかった。炭酸影響を評価する試験では、試験中にその炭酸濃度が一定に保たれている必要がある。Iida et al. (2016)及び本試験では$NaHCO_3$及びNa_2CO_3を用いて炭酸濃度を調整しているが、両者ともに実際の炭酸濃度を測定していない。図3.3-17において、K_d値は炭酸濃度10 mMから100 mMの間で2桁程度変化しており、この範囲において炭酸濃度を正確に把握することの重要性を示している。加えて、「炭酸なし」とされている条件においても、実際には微量の炭酸が含まれている可能性がある。Tournassat et al. (2018)は、注意深く炭酸を排除した試験であっても、溶液中には微量の炭酸が存在すること、また、このような微量の炭酸がU(VI)のモンモリロナイトに対する収着に影響を及ぼしている可能性を指摘している。炭酸なしの条件におけるイライト及びモンモリロナイトにおける収着データはそれぞれBradbury and Baeyens (2009b)及びBradbury and Baeyens (2005)のみに基づいており、低炭酸濃度における再現性はこれらのデータに大きく依存する。今後、各データの信頼性を検討した上で、再現性の向上を目指していく。

② 炭酸共存下での核種の収着メカニズムの分析評価

上記①で検討したように、アクチニド核種の粘土鉱物や岩石への収着モデルの信頼性を高めるうえで、モデルで仮定する炭酸系表面化学種に対する分析的な根拠を与えることが重要である。ここでは、ウラニルイオン($U^{VI}O_2^{2+}$)–炭酸イオン(CO_3^{-})–ベントナイトの三元系における収着構造の理解を構造論的観点から深めるために、分光学的手法の適用に向けた予察的試験を行った。特に、紫外線照射時のウラニルイオンからの可視光の放射を活用する発光分光試験の感度を高めるために、試料を十分冷却した上で計測することを計画した。極低温（通常10 K前後を指す）の試料冷却によって、発光強度を増大させるだけでなく、スペクトルの温度拡がりを極力小さくした

状態が得られるために波長分解能を高めることができる。この原理を利用して、鉱物に収着したウラニルイオン近傍の化学種の種類又は構造を詳細に論じることを狙いとしている。

平成31年度は、GM型冷凍機(GM: ギフォード・マクマホン)を用いて、極低温下(3.5 K以下)に冷却した試料の時間分解型レーザー誘起蛍光分光(以下、TRLFS)測定を行った。この計測手法は、極低温TRLFS(以下、LT-TRLFS)と言い、極少量のウランを含む試料におけるウラニルの定量検出が可能であることに加え、精度の高い発光スペクトルが得られるために、収着形態を評価するうえで効果的である。

新手法の導入にあたり、その有効性を確認するための予察的試験を行った。試料として模擬試験片(Uを収着させたセメント試料)を用い、紫外～可視光の領域のレーザーパルスを照射し、この際に試料から放射される発光スペクトルを計測した。結果を図3.3-18に示す。試料は全て3.2 Kに冷却し、励起波長を変化させたときの時間分解発光スペクトル（レーザー照射後10−10010 μsを1データ中に積分したもの）を計測した。左から順に、(a)λ_{ex} = 360 nm, (b)λ_{ex} = 403 nm, (c)λ_{ex} = 419 nmと変化させた中で、発光強度が最も高いのは(a)λ_{ex} = 360 nmの紫外光励起したスペクトルである。波長を可視光（b, c）にすると発光強度は大幅に減少することが分かった。また、このときにスペクトルの形状も併せて変化することが確認できる。

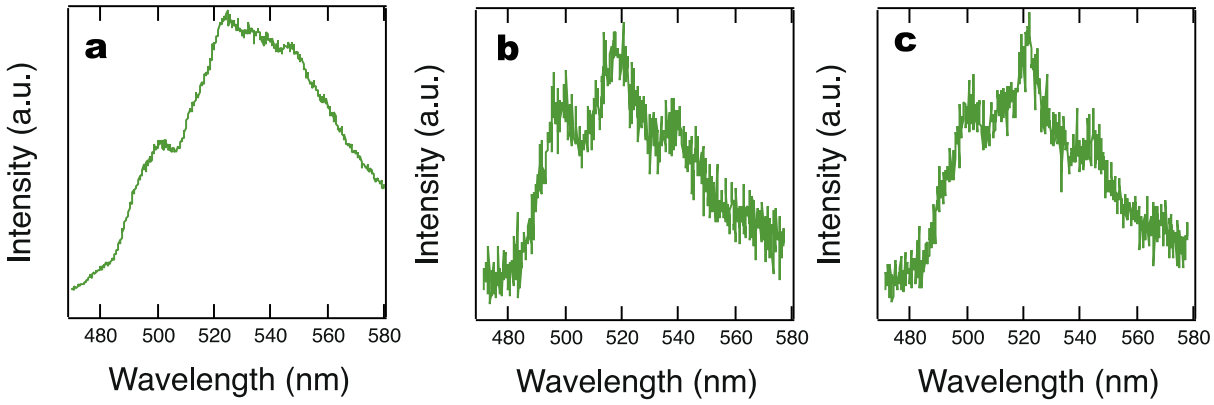


図3.3-18　LT-TRLFSスペクトル(3.2 K)の励起波長依存:
(a)λ_{ex} = 360 nm, (b)λ_{ex} = 403 nm, (c)λ_{ex} = 419 nm.

この結果から、本試料においては(a)λ_{ex} = 360 nmが分析条件に適していると言える。このスペクトルを複数のガウス関数によってピーク分離すると、図3.3-19に示す結果が得られる。図3.3-19(c)の色の違いが、化学種の違いに起因するグループ分けと同じと考えられる。したがって、観測されたスペクトル中には、試料中でウラニルイオンの化学種が複数(2又はそれ以上)存在することを示唆している。また、励起波長に依存したスペクトル形状の変化からも、ウラニルの収着形態が複数存在することを示している。つまり、複数存在する化学種は、それぞれ異なる吸収帯を持ち、本試験ではこれらが同時に観測されることが分かった。これらの結果から、低濃度で存在する複数のウラニルの収着形態を測定できる可能性が示された。今後、粘土鉱物や岩石へのウラニル及びその炭酸錯体の収着試料に対して、本手法を適用していく。

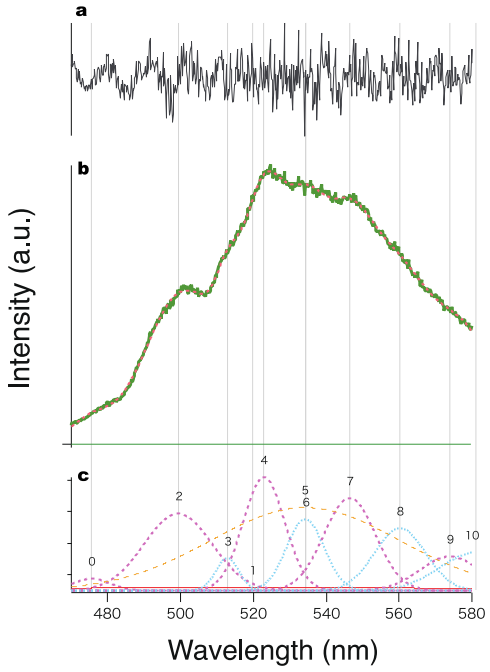


図3.3-19　LT-TRLFSスペクトル(l_{ex} = 360 nm)の解析によるピーク帰属：(a)残差プロット、(b)観測したスペクトルとフィッティング結果、(c)ピーク分離手法による分割

④　炭酸イオン濃度の異なる条件でのモンモリロナイト中のNp(V)の拡散データの取得

多価イオンの核種の場合、処分環境において複数の加水分解種が共存する条件であるとともに、地下水中に溶存している炭酸イオンと錯形成するため、複数の化学種が共存した状態で圧縮ベントナイト中を拡散する。そのため、このような条件における拡散メカニズムの評価が課題の一つとなっている。Np-237は地層処分の安全評価において重要な核種の一つである。炭酸イオン共存下では、Np(V)は水溶液中で主にNpO_2^+、$NpO_2CO_3^-$及び$NpO_2(CO_3)_2^{3-}$の化学種として存在し、pH8~9程度の場合、炭酸イオン濃度が1×10^{-4} mol/Lの希薄な条件では主にNpO_2^+として、炭酸イオン濃度が~1×10^{-1} mol/Lの比較的高い条件では$NpO_2CO_3^-$及び$NpO_2(CO_3)_2^{3-}$として存在する。一方で、炭酸イオン濃度が1×10^{-4}～1×10^{-1} mol/Lの間においては、NpO_2^+、$NpO_2CO_3^-$及び$NpO_2(CO_3)_2^{3-}$の化学種が共存する条件となる。そのため、圧縮ベントナイト間隙水中の炭酸イオン濃度を制御することにより、NpO_2^+、$NpO_2CO_3^-$及び$NpO_2(CO_3)_2^{3-}$の各化学種の拡散係数を取得することが可能であり、また、これらのデータに基づいて、各化学種が共存する系での拡散挙動を検討することが可能である。本試験では、Na型ベントナイトを用いた透過拡散試験により、炭酸イオン共存下におけるNp(V)の実効拡散係数を取得し、NpO_2^+、$NpO_2CO_3^-$及び$NpO_2(CO_3)_2^{3-}$の実効拡散係数を評価した。

試験には、乾燥密度0.8 Mg/m^{3}のNa型モンモリロナイトを使用し、炭酸イオン濃度が1×10^{-4}～1×10^{-1} mol/Lの範囲となるようにNaClと$NaHCO_3$を混合した溶液を用いてモンモリロナイト試料を含水した（表3.3-5）。各溶液で含水したモンモリロナイト試料を用いて、透過拡散試験を実施した。拡散試験の結果として得られた減衰曲線、破過曲線及び濃度プロファイルを図3.3-20に示す。各試料の濃度プロファイルを比較すると、炭酸イオン濃度が高い場合、プロファイル中のNp濃度が小さい。また、破過曲線では、炭酸イオン濃度が比較的高い試料（NAMO-0803とNAMO-0804）と低い試料（NAMO-0801とNAMO-0802）でその傾向性が明確に区別された。これらの結果から、炭酸イオン濃度が高い場合では、Npの収着量は低く、拡散しやすい傾向にあり、一方で炭酸イオン濃度が低い場合ではモンモリロナイトへの収着がその拡散に大きく影響することが分

かった。また、試料NAMO-0801とNAMO-0802の減衰曲線は、試験開始直後から急激に減少した。しかし、この減少のほとんどはトレーサー溶液が粘土試料と接触するまでに通過したテフロンチューブ及びフィルターへの収着によるものと考えられる、試験終了後の減衰曲線、破過曲線及び濃度プロファイルのデータからトレーサーの物質収支を計算した結果、NAMO-0801では試験に使用したNp濃度の6割程度、NAMO-0802では4割程度が、チューブやフィルター等に収着したと見積もられた。

表3.3-5　各試料の含水に使用した溶液の組成

試料ID	NaCl (M)	$NaHCO_3$ (M)
NAMO-0801	0.4995	0.0005
NAMO-0802	0.495	0.005
NAMO-0803	0.45	0.05
NAMO-0804	0	0.5

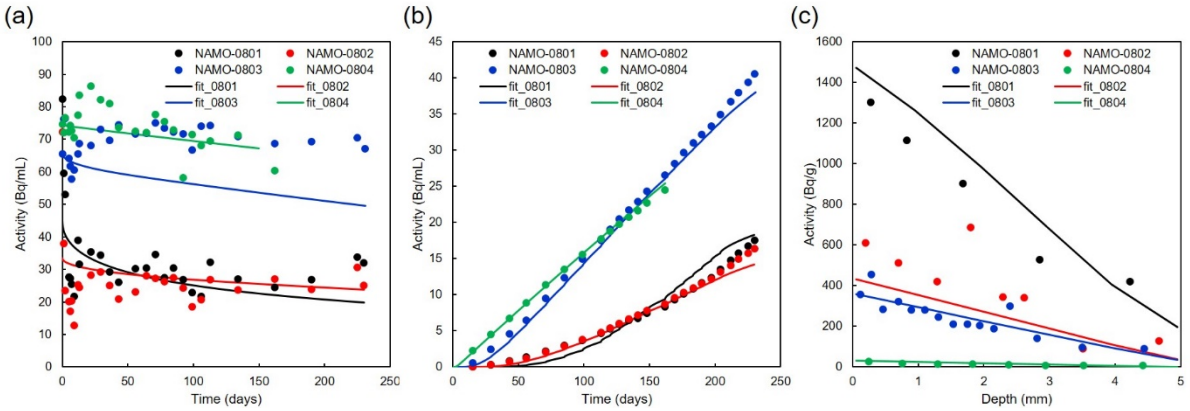


図3.3-20　Np拡散試験の減衰曲線(a)、破過曲線(b)及びプロファイル(c)

Fickの第二法則に基づいた一次元の拡散方程式の数値解析により、減衰曲線、破過曲線及び濃度プロファイルをフィッティングし、それぞれの試料中のNpの実効拡散係数（D_e）及び収着分配係数（K_d）を求めた（表3.3-6）。同表より、炭酸イオン濃度が高くなるのに伴い、D_e及びK_dは低くなった。また、各試験条件での試料中のNpの溶存化学種の割合を表3.3-7のパラメータ条件のもとPHREEQC（Parkhurst et al., 1999）を用いて計算した結果を表3.3-8に示す。表3.3-8より、炭酸イオン濃度が高くなるのに伴い、$NpO_2CO_3^-$及び$NpO_2(CO_3)_2^{3-}$の割合が増える結果が得られた。表3.3-6及び表3.3-8の結果から、炭酸イオン濃度が高い試料の場合、$NpO_2CO_3^-$及び$NpO_2(CO_3)_2^{3-}$の陰イオンのNp錯体が主に存在するため、モンモリロナイトへの収着量が低くなり、また、負に帯電した粘土表面からの静電的相互作用による陰イオン排除により拡散が遅くなったと考えられる。一方、炭酸イオン濃度が低い試料の場合は、陽イオンであるNpO_2^+が主な化学種であるため、D_e及びK_dともに高い値を示したと考えられる。

表3.3-6　数値計算によるフィッティングの結果

試料ID	D_e (m^2/s)	K_d (m^3/kg)
NAMO-0801	$3.8\pm0.3\times10^{-11}$	0.134±0.006
NAMO-0802	$2.1\pm0.4\times10^{-11}$	0.040±0.003
NAMO-0803	$1.6\pm0.2\times10^{-11}$	$9.9\pm0.3\times10^{-3}$
NAMO-0804	$1.2\pm0.4\times10^{-11}$	0

表3.3-7　PHREEQCを用いた化学平衡計算の条件

収着サイト

CEC（meq/100g）	108
Edge site density (mol/g)	4.31×10^{-5}
Surface area (m^2/g)	50

イオン交換サイト	log K
$X^- = X^-$	0.0
$NaX + NpO_2^+ = NpO_2X + Na^+$	-0.26

表面錯体サイト	log K
SOH = SOH	0.0
$SOH + H^+ = SOH_2^+$	5.75
$SOH = SO^- + H^+$	-8.30
$SOH + NpO_2^+ = SOHNpO_2^+$	2.80
$SOH + NpO_2^+ = SONpO_2 + H^+$	-4.45
$SOH + NpO_2^+ + H_2O = SONpO_2OH^- + 2H^+$	-14.5

表3.3-8　平衡計算によるモンモリロナイト間隙水中の溶存化学種の割合

	NpO_2^+	$NpO_2CO_3^-$	$NpO_2(CO_3)_2^{3-}$
NAMO-0801	0.453	0.543	$< 1\times10^{-3}$
NAMO-0802	0.05	0.942	0.007
NAMO-0803	0.005	0.923	0.072
NAMO-0804	$< 1\times10^{-3}$	0.452	0.841

表3.3-6のD_eをNpO_2^+、$NpO_2CO_3^-$及び$NpO_2(CO_3)_2^{3-}$の各D_eの割合平均と想定し、各Np溶存化学種のD_eを計算した。また、均質な間隙構造を仮定した平行平板中での静電的相互作用を電気二重層モデルで粘土中のトレーサーの拡散係数を算出するISDモデルを用いて、NpO_2^+、$NpO_2CO_3^-$及び$NpO_2(CO_3)_2^{3-}$のD_eを比較評価した（図3.3-21）。取得したNpO_2^+、$NpO_2CO_3^-$及び$NpO_2(CO_3)_2^{3-}$のD_eは、ISDモデルの計算によって概ね再現された。これらの結果から、複数化学種が共存する系においても、その拡散挙動は陽イオン加速・陰イオン排除のような静電的相互作用によって支配されることが分かった。

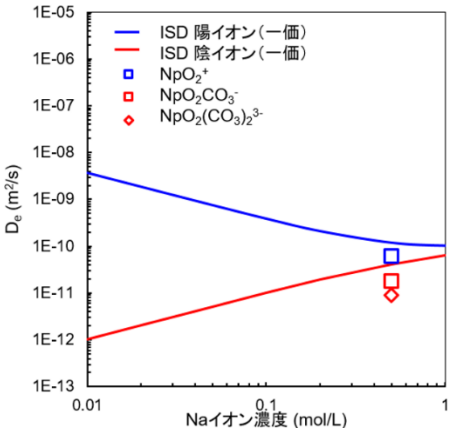


図3.3-21　モンモリロナイト中のNp(V)の実効拡散係数（D_e）とISD計算結果の比較

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 古典MD計算を用いた炭酸共存下における粒子間間隙から層間間隙への拡散挙動評価

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_2^{2+}）及びネプツニルイオン（NpO_2^{+}）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拡散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_3^{2-}）の存在を考慮してCO_3^{2-}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）。平成30年度は、特に2層水和状態に対して長時間シミュレーションを実施し、アクチニド核種の長期拡散挙動、また炭酸錯体生成状態の安定性などについて評価した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019）。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、層間がより膨潤した状態（3層及び4層水和状態）での拡散挙動への影響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、

3層水和状態：$Na_{0.33}\cdot(Al_{1.67}Mg_{0.33})Si_4O_{10}(OH)_2\cdot 7.5H_2O$

4層水和状態：$Na_{0.33}\cdot(Al_{1.67}Mg_{0.33})Si_4O_{10}(OH)_2\cdot 10H_2O$

・エッジ表面は{010}面（Rotenberg et al., 2007）

・エッジ表面に現れるSi^{4+}にはOH^-基を計算初期に付加

・エッジ表面に現れるAl^{3+}にはOH^-基とH_2Oを計算初期に付加

・エッジ表面に現れるMg^{2+}にはH_2O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

スーパーセルの構造作成については、まず3層及び4層水和状態のNa型モンモリロナイト構造（この段階では粒子間間隙水は含まない）を、298.15 K・0.1 MPaの*NTP*アンサンブルで計算する。その結果、3層水和状態の底面間隔は1.98 nm（層間幅≒1.33 nm）、4層水和状態の底面間隔は2.30 nm（層間幅≒1.66 nm）の結果を得た。次に、バルク水の構造を298.15 K・0.1 MPaの*NTP*計算で作成しておき、モンモリロナイト構造のエッジ面に、作成したバルク水（粒子間間隙水）を隣接させて構造を安定化させる計算を行う。その際、エッジ面に垂直な方向に体積を変化させながら*NVT*計算を繰り返し、粒子間間隙水の水分子二体相関関数を計算して、バルク水の構造が再現できるようにスーパーセル全体の体積を調整する。こうして作成されたスーパーセルは、平衡状態を得るための*NVT*計算を継続しても、系の圧力はほぼ0.1 MPaで推移することが確認された。

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8個と塩化物イオン16個が粒子間間隙に共存する3層水和状態の系（図3.3-22(a)）、ウラニルイオン8個と炭酸イオン8個が粒子間間隙に共存する3層水和状態の系（図3.3-22(b)）、ウラニルイオン8個と塩化物イオン16個が粒子間間隙に共存する4層水和状態の系（図3.3-22(c)）及びウラニルイオン8個と炭酸イオン8個が粒子間間隙に共存する4層水和状態の系（図3.3-22(d)）について、それぞれ2×10^6 time-step（0.8 ns）後のスナップショットを図示した。なお運動方程式を解く際の1 time-stepは、0.4 fsに設定した。図3.3-22(a),(c)を見ると、ウラニルイオンとともに陰イオンである塩化物イオンも層間への移行が確認できる。平成30年度実施した2層水和状態のシミュレーションでは、塩化物イオンの層間への移行は確認できなかったため、層間幅の拡張により陰イオン排除の傾向が弱まったと考えられる。

また図3.3-22(b)を見ると、ウラニルイオンの層間への移行が確認できるが、炭酸イオンは確認できない。塩化物イオンのイオン半径（0.181 nm、Marcus,1997）と炭酸イオンのイオン半径（0.178 nm、Marcus,1997）はほぼ等しいので、陰イオンの価数が高いことによる排除効果が効いているものと考えられる。一方図3.3-22(d)を見ると、炭酸イオンも層間へ移行している例が確認できるが、これは層間幅の拡張により陰イオン排除の減少傾向に因るものか、あるいはNaイオンと錯体を形成して陰イオンの価数を低下させたことに因るものと思われる。また、粒子間間隙中においてウラニル炭酸錯体の形成はされているものの、層間への移行は確認できない。

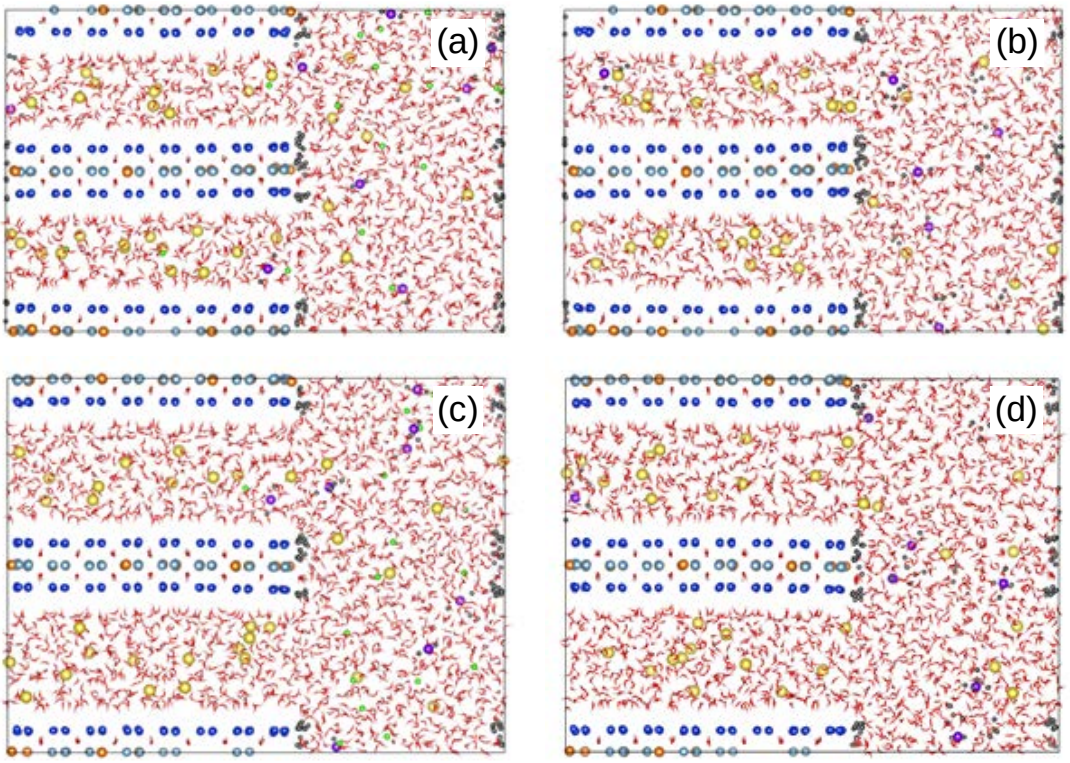


図3.3-22　Na-モンモリロナイト層間・粒子間間隙混合系の0.8 ns計算後のスナップショット（298.15 K）：(a)3層水和状態＋間隙水（$8UO_2^{2+}$-16Cl^-）.(b)3層水和状態＋間隙水（$8UO_2^{2+}$-8CO_3^{2-}）、(c)4層水和状態＋間隙水（$8UO_2^{2+}$-16Cl^-）、(d)4層水和状態＋間隙水（$8UO_2^{2+}$-8CO_3^{2-}）。ただしイオンの色は、黄色：Na、緑色：Cl、紫色：U、茶色：C

次に、ネプツニルイオン8個と塩化物イオン8個が粒子間間隙に共存する3層水和状態の系（図3.3-23(a)）、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3層水和状態の系（図3.3-23(b)）、ネプツニルイオン8個と塩化物イオン8個が粒子間間隙に共存する4層水和状態の系（図3.3-23(c)）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4層水和状態の系（図3.3-23(d)）について、それぞれ2×10^6 time-step後のスナップショットを図示した。陰イオン種の層間への移行挙動は、上記ウラニルイオンの場合に確認された挙動とおおむね同様の傾向を示すことが確認できる。すなわち、層間幅の拡張により陰イオン排除の傾向が低下し、また陰イオンの価数が小さい塩化物イオンの方が層間に比較的移行しやすい傾向にある。ウラニルイオンとネプツニルイオンの挙動を比較すると、イオン半径はほぼ等しいので（Marcus,1997）、陽イオンの価数が大きいウラニルイオンの方が比較的移行しやすい傾向にあるといえる。またウラニルイオン・ネプツニルイオンともに粒子間間隙中では炭酸錯体の形成が確認されるが、炭酸錯体として層間への移行は確認できない。この現象が錯体形成によるイオン半径の拡張に因るものか、

あるいはイオン価数の変化に因るものかは、現状では判断できない。

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、層間間隙へのイオンのアクセス性に関する層間幅の影響について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。現状の解析結果の問題点としては、①計算対象のスーパーセル内におけるアクチニド核種・炭酸イオンの絶対数が少なく、十分な統計量が取れていないこと、②各ケースの計算時間（ステップ数）は0.8 nsで、2層水和状態の場合（4.0 ns）に比べて短く、平衡状態に達していない可能性があること、③その結果、層間間隙へのイオンのアクセス性に関する定量的評価（層間間隙への移行割合の層間幅・イオンサイズ・イオン価数などに関する依存性の定量的評価）には至っていないことなどが挙げられ、今後これらの問題点への対応を検討していく。

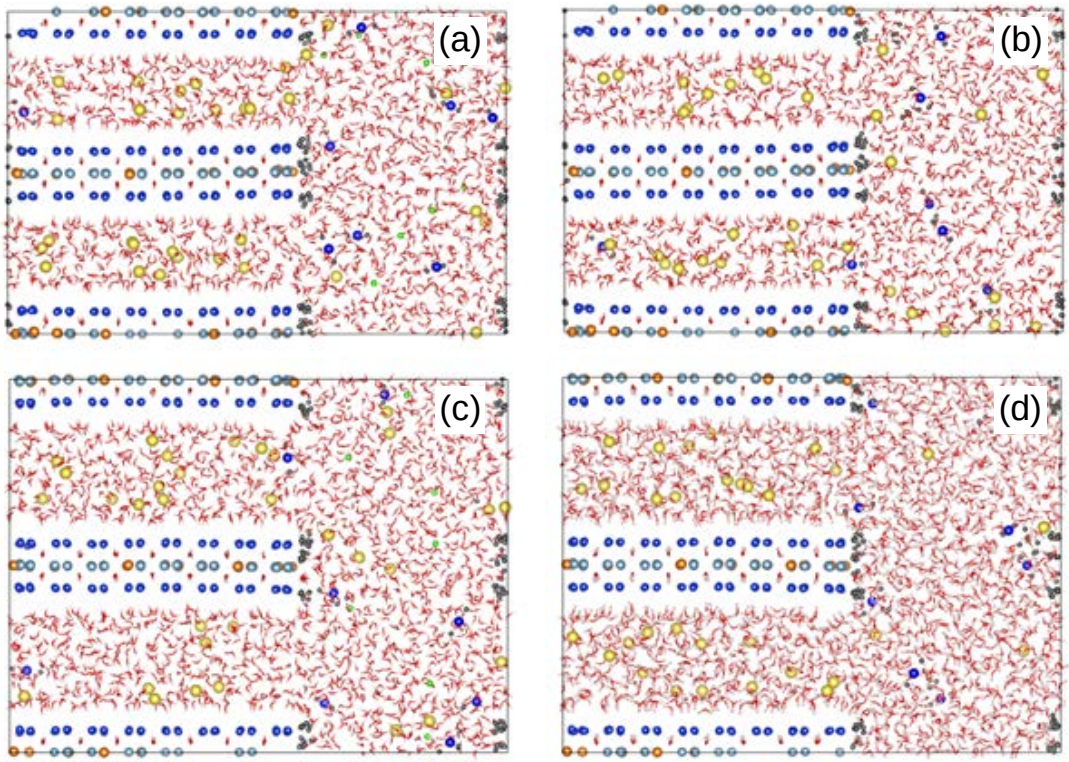


図3.3-23　Na-モンモリロナイト層間・粒子間間隙混合系の0.8 ns計算後のスナップショット（298.15 K）：(a)3層水和状態＋間隙水（$8NpO_2^+$-$8Cl^-$）、(b)3層水和状態＋間隙水（$8NpO_2^+$-$4CO_3^{2-}$）、(c)4層水和状態＋間隙水（$8NpO_2^+$-$8Cl^-$）、(d)4層水和状態＋間隙水（$8NpO_2^+$-$4CO_3^{2-}$）。ただしイオンの色は、黄色：Na、緑色：Cl、紺色：Np、茶色：C

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。エッジ表面の初期構造は、層電荷0.5のNa型モンモリロナイトの{130}面を対象に（Sakuma et al., 2017）、298.15 K・0.1 MPaの*NTP*アンサンブルで古典MD計算を用いて作成し、その後の第一原理MD計算は計算ソフトQuantum ESPRESSOを用いてBorn-Oppenheimer MD（BOMD）法で計算した。また酸解離定数の計算手法は、Blue-moon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）を採用する。これら一連の手法の有効性は、水分子H_2Oに対する評価などにより検証されている（日本原子力研究開発機構, 2018）。

はじめに、モンモリロナイト・エッジ表面に現れる$Mg-OH$基の酸解離定数を評価した。図3.3-24は、$Mg-O$のプロトン配位数n_H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$n_H < 1.0$で負の値を示し、$n_H > 1.0$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、$n_H = 1$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$pK_a(Mg-OH) = 28.8$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。

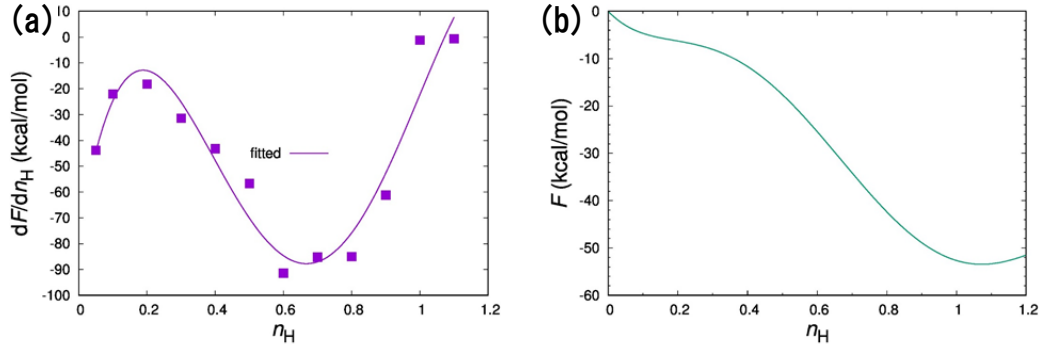


図3.3-24　Mg-OHのプロトン配位数の変化に対する自由エネルギーの微分値(a)、及び自由エネルギーの変化(b)

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、$Al-OH_2$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（$pH < 7$）：　$\equiv Si-OH$,　$-Mg-OH$,　$=Al-OH_2$,　$=Al-OH-Al=$

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

本研究で得られた酸解離定数の結果を、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。$Si-OH$基を対象とした他グループとの比較を、表3.3-9に示した。酸解離定数は$pK_a = 6$~8の値を示すが、層電荷0.25のモンモリロナイトで官能基が$(MgO-)Si-OH$のケースでは比較的大きな値（> 10）を示す（Liu et al., 2013）。これは層間距離を固定してLiイオンを置いたモデルであり、LiイオンがMgの同形置換（八面体シートのAlをMgで置換）によって生じた負の電荷を補償する安定位置として適切でない可能性があり、現実的な

系とは異なる構造にあるためと考えられる。

表3.3-9　Si-OH基の酸解離定数：本研究と他のグループとの比較

Surface group	Mineral (Layer charge)	Miller index of edge surface	p*K*a	error	Ref.
(AlO−)Si−OH	pyrophyllite	{010}	6.8	0.4	Tazi *et al*., 2012
(AlO−)Si−OH	pyrophyllite	{110}	8.3	0.3	Liu *et al*., 2014
(AlO−)Si−OH	pyrophyllite	{110}	8	0.5	Liu *et al*., 2014
(AlO−)Si−OH	montmorillonite (0.25)	{010}	7	0.7	Liu *et al*., 2013
(MgO−)Si−OH	montmorillonite (0.25)	{010}	10.8	0.5	Liu *et al*., 2013
(MgO−)Si−OH	Li−montmorillonite (0.25)	{110}	11	0.8	Liu *et al*., 2014
(MgO−AlO−)Si−OH	Na−montmorillonite (0.5)	{130}	6.3	−	This study

$Al-OH_2$基及び$Al-OH$基を対象とした他グループの結果を、表3.3-10及び表3.3-11に示す。エッジ表面の構造が異なるため厳密な比較はできないが、$Al-OH_2$基では$pK_a = 6\sim8$、$Al-OH$基では$pK_a > 17$の値が得られている。いずれのケースでも、計算条件などの違いはあるものの概ね整合的であるといえる。なお$Mg-OH$基を対象としたケースは過去の解析例が知られておらず、本研究の結果は希少な解析例であるといえる。

表3.3-10　Al-OH_2基の酸解離定数：本研究と他のグループとの比較

Surface group	Mineral (Layer charge)	Miller index of edge surface	p*K*a	error	Ref.
(HO−)Al−OH_2	pyrophyllite	{010}	7.6	1.3	Tazi *et al*., 2012
(HO−)Al−OH_2	montmorillonite (0.25)	{010}	8.3	1	Liu *et al*., 2013
Al−OH_2	Na−montmorillonite (0.5)	{130}	5.8	−	This study

表3.3-11　Al-OH基の酸解離定数：本研究と他のグループとの比較

Surface group	Mineral (Layer charge)	Miller index of edge surface	p*K*a	error	Ref.
(H_2O−)Al−OH	pyrophyllite	{010}	22.1	1	Tazi *et al*., 2012
Al−OH−Al	Na−montmorillonite (0.5)	{130}	17.6	−	This study

今後の課題は、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、核種吸着の第一原理計算を実施することであるが、海外の先行研究事例の一端を紹介しておく。

Zhang et al. (2017)では、粘土表面上の重金属陽イオン錯体形成に関する原子レベルでのメカニズムを理解するため、第一原理MD計算を用いて、パイロフィライトの{010}エッジ表面に形成されたNi(II)錯体の構造・自由エネルギー及び酸解離定数を評価している。評価対象は、≡ SiO基に単座配位したNi錯体、≡ $Al(OH)_2$基に二座配位したNi錯体、及び八面体シートのAlイオンが空所の部分（八面体空所）に四座配位したNi錯体の3種類である。自由エネルギーの変化は、反応座標に沿って平均力を積分することで算出している（Sprik, 1998; Sprik and Ciccotti, 1998）。自由エネルギーの計算結果から、八面体空所に四座配位した錯体が他の2つに比べてかなり安定した吸着構造を示すことが分かった。また酸解離定数については、vertical energy gap法と第一原理MD計算を組み合わせた手法で評価している（Cheng et al., 2009; Costanzo et al., 2011）。酸解離定

数の計算結果から、八面体空所に四座配位した錯体は$pK_a \simeq 8.4$となり環境条件によっては脱プロトン化する可能性があり、一方他の2つは酸解離定数が非常に高いため、脱プロトン化しないものと考えられる。この論文ではCo(II)及びCu(II)についても評価されており、Ni(II)と同様に八面体空所に安定した錯体構造で吸着する。ただし、Co(II)はNi(II)と同じ四座配位だが、Cu(II)の場合は五座配位する。同手法によるCd(II)の解析（Zhang et al., 2016）では、八面体空所に安定した錯体構造で吸着するが、Ni(II), Co(II)及びCu(II)の場合と異なり八面体空所の骨格中には収まらない。これはイオン半径の違いに起因するものと思われる。一方Fe(II)の場合（Liu et al., 2013; 2014）は、八面体空所での錯体構造がNi(II)の場合と近似している。

さらにZhang et al. (2018)では、同じ計算手法を用いて、ウラニルイオン（UO_2^{2+}）の吸着構造について解析している。吸着サイトは、Li型モンモリロナイトの{010}エッジ表面の≡ $Al(OH)_2$基及び≡ AlOHSiO基、また{110}エッジ表面の≡ AlOHOa基及び≡ SiOOa基である。ウラニルイオンは、これらのサイトにすべて二座配位した錯体構造を形成し、吸着の自由エネルギーも同程度であることがわかった。また、これらの二座配位錯体は加水分解され、計算で得られた酸解離定数の値（$pK_{a1} \simeq 5$及び$pK_{a2} \simeq 9$）から、環境のpH条件における主要なウラニル錯体として$UO_2(OH)^+$及び$UO_2(OH)_2$の2種類が存在し得ることが示唆された。

これらの先行研究を参考に、第一原理MD計算を用いて核種の吸着構造に関する解析を検討していく計画である。

3.3.3 2ヶ年の成果と今後の課題

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等における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や粘土鉱物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、ベントナイト緩衝材中における鉄と核種の競合収着については、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するとともに、共存するFe(II)濃度が異なる3条件でモンモリロナイトへのAmの収着データのpH依存性を取得し、Am(III)の場合には、Ni(II)の場合とは異なり、Fe(II)とは収着競合しない可能性を示した。今後、AmやNiのFe(II)との収着競合データを拡充するとともに、他の核種（II価金属やIV価以上のアクチニド核種等）でもデータを取得し、Fe(II)との競合影響評価手法を構築する。Fe(II)鉱物へのSe(-II)の取り込み挙動については、試験方法とpH条件の異なる2種類の試験で得られた初期生成固相から安定固相への変化とSeの取込、保持、脱離挙動を、XAFS分析やSEM分析等を組合せた評価によりそのメカニズムを解明したほか、幌延の泥岩中のFe鉱物へのSeの取り込みに関する検討に着手した。今後、2種類の試験方法を異なるpH条件やSe初期濃度で実施し、多様な環境条件でのFe(II)鉱物へのSe(-II)の取り込みに関する評価モデルの妥当性を確認するとともに、幌延の泥岩を対象とした分析試験による天然環境中でのSeとFeの挙動の理解とあわせて、FeとSeの相互作用メカニズムを解明する。

セメント共存系での核種移行影響評価として、セメント共存による圧縮ベントナイト中のコロイドフィルトレーション機能への影響については、高密度条件（乾燥密度1.2～1.6 Mg/m^3）でのデンドリマーコロイドの移行・ろ過データを取得するとともに、サイズの異なるデンドリマーコロイドを用いたデータ取得を行い、濃度プロファイルを含めた解釈からろ過率を評価する手法を提案した。今後は、高密度条件や異なるコロイドサイズでのコロイド移行・ろ過データを拡充し、これまでに取得してきたCa型（及びNa型）の一連のデータの評価から、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・ろ過特性を評価する。セメント系材料が岩石中の核種移行へ与える影響については、幌延の泥岩-セメント接触領域を対象に、セメントの種類（普通ポルトランドセメントや低アルカリセメント）や接触期間（5年～10年程度）の差異に着目した変質状況等に関する分析データから、岩石中への二次鉱物の生成とそのセメント種類による差異を確認した。また、セメント共存による鉱物変遷等に伴う収着影響に関する文献調査と課題抽出を行った。今後は、幌延の泥岩-セメント接触試料の分析データを拡充するとともに、界面近傍に生成した二次鉱物中の微量元素の分析等により核種との相互作用に係る知見を得るとともに、2章に示したセメントによる岩石中の鉱物・間隙の変遷評価とあわせて、そのような環境変遷が核種移行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、高炭酸条件下での核種収着モデルの開発については、イライト・スメクタイト及び幌延の泥岩を対象にTh、Amの高炭酸条件下での収着データを拡充し、複数の粘土鉱物の加成則に基づく収着モデルの適用性を確認した。また、高炭酸条件での収着メカニズム解明のためのTRLFS分析技術の適用に向けてUを対象にした予察分析を実施した。また、炭酸濃度が異なる条件下でのモンモリロナイト中のNpの拡散データを取得し、その結果に対してベントナイト中の収着・拡散モデルの適用性を提示した。さらに、分子動力学計算や第一原理計算による炭酸錯体等の拡散・収着挙動の解明に向けた解析手法の調査と解析事例の拡充を行い、高炭酸条件における核種移行評価モデルの構築に必要な知見を提示した。今後は、高炭酸条件でのAmやU等核種の収着・拡散データの拡充に加え、先端的な分析技術（TRLFS等）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を構築する。

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解離性官能基を有し、金属イオンと安定な錯体を形成することができるものが存在する（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、廃棄体から溶出した核種がそのような有機物と錯体を形成すると、地下水に対する核種の見かけの溶解度が上昇するとともに、母岩への核種の収着・拡散が抑制されることで、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）。一方で、核種と天然有機物の錯生成反応は、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ほか（Pourret et al., 2007）、核種と天然有機物との錯体が母岩へ収着する可能性がある（Bryan et al., 2012）など、地下環境中の複雑な系において天然有機物が核種移行の促進・遅延にどのように寄与するかは明らかになっていない。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ためには、多様な水質の地下水における核種と天然有機物の錯生成反応や、その錯体の母岩中での移行挙動を定量的に評価する必要がある。

このような観点から、先行事業（日本原子力研究開発, 2018）において、III価核種を主な対象に信頼性の高い錯生成モデル及びモデルパラメータを整備し、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。また、文献調査及び室内試験により、影響が顕在化する可能性の高いIV価核種と天然有機物との錯生成データを取得し、モデル高度化の検討とパラメータ整備を行った。さらに、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検討すべき課題を抽出した。

平成31年度は、室内試験によるIV価核種と天然有機物との錯生成データの拡充と、より信頼性の高い錯生成データを取得するための手法の整備を行った。また、IV価核種の錯生成反応機構を把握するために室内試験によるデータの取得を行った。さらに、核種-有機物-岩三元系モデルの開発に向けて、二元系における反応の瞬時・可逆性の観点で、IV価核種と天然有機物の錯生成・解離反応機構の解明に資する予察的なデータの取得を行った。

(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; Bemedetti 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価・IV価核種の錯生成データへのモデルの適用性を調査し、その結果を踏まえ、モデルの高度化及びモデルパラメー

タの整備を進める。

$$Q_i = \frac{n_{i1}}{n_{H1}} \cdot Q_{max1,H} \cdot \frac{\left(\tilde{K}_{i1} C_i\right)^{n_{i1}}}{\sum_i \left(\tilde{K}_{i1} C_i\right)^{n_{i1}}} \cdot \frac{\left[\sum_i \left(\tilde{K}_{i1} C_i\right)^{n_{i1}}\right]^{p_1}}{1+\left[\sum_i \left(\tilde{K}_{i1} C_i\right)^{n_{i1}}\right]^{p_1}} + \frac{n_{i2}}{n_{H2}} \cdot Q_{max2,H} \cdot \frac{\left(\tilde{K}_{i2} C_i\right)^{n_{i2}}}{\sum_i \left(\tilde{K}_{i2} C_i\right)^{n_{i2}}} \cdot \frac{\left[\sum_i \left(\tilde{K}_{i2} C_i\right)^{n_{i2}}\right]^{p_2}}{1+\left[\sum_i \left(\tilde{K}_{i2} C_i\right)^{n_{i2}}\right]^{p_2}} \quad (3.4\text{-}1)$$

Q_i ：有機物に結合した金属イオンiの濃度［mol g^{-1}］
C_i ：遊離体の金属イオン濃度［mol dm^{-3}］
$Q_{max1,H}$ ：結合サイト1の濃度［meq g^{-1}］
$Q_{max2,H}$ ：結合サイト2の濃度［meq g^{-1}］
$\log K_{i1}$ ：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）
$\log K_{i2}$ ：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）
n_{H1} ：H+結合サイト1の不均一パラメータ
n_{H2} ：H+結合サイト2の不均一パラメータ
n_{i1} ：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
n_{i2} ：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 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-Donnnanモデルの当てはめ

平成30年度までに、流動場分画法（flow-field flow fractionation, Fl-FFF）と誘導結合プラズマ質量分析（ICP-MS）を組み合わせたFFF-ICPMSを用いて、Zr（IV）と幌延深地層研究センターの深度250 m（09-V250-M02孔）の地下水から分離精製したフミン酸（HHA）及びフルボ酸（HFA）との錯生成データをpH 5と6の条件下で取得し、そのNICA-Donnanモデルパラメータを整備した。しかし、腐植物質が有する代表的な酸解離性官能基の一つである水酸基は、pH 5や6といった弱酸性条件下ではほとんど解離せず錯生成反応に寄与できないため、（3.4-1）式におけるサイト2に関するパラメータの信頼性が不十分であるという課題があった。そのため、水酸基が錯生成に寄与できるようになる中性から弱アルカリ条件において、Zr（IV）との錯生成データを取得し、より信頼性の高いNICA-Donnanモデルパラメータの整備を進める必要がある。本調査では、FFF-ICPMS法を用いてHHAとZr（IV）との錯生成データをpH 8の条件下で取得し、前年度までに取得したデータと合わせてNICA-Donnanモデルを当てはめ、モデルパラメータを算出した。

図3.4-1に、pH 8における（a）HHA/EDTA、（b）Zr^{4+}/EDTA、及び（c）Zr^{4+}/HHA/EDTAのUV/Vis（HHA）とICP-MS（Zr）検出から取得したフラクトグラムを示す。分画ステップ開始直後からHHAの流出が開始していることから、HHAが非常に小さなサイズ分子を含んでいることがわかる。また、FFF-ICPMS法によるデータ取得では、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-HHA錯体は透過しないことを前提としている。今回の試験におけるHHAの回収率は48 %程度であり、先行事業における回収率（52.6 %）と同程度であることから、HHAの分画が十分行われていることがわかる。（b）Zr^{4+}/EDTAのフラクトグラムを見ると、UV/Vis検出器のシグナルに有意なピークは確認されず、ICP-MSによるZr^{4+}のシグナルも十分小さい（全量の1.6 %に相当）。このことから、Zr^{4+}/EDTA錯体が限外ろ過膜に残留することはなく、HHAへのZr^{4+}の結合量評価に影響を及ぼさないことが確認された。さらに、（c）Zr^{4+}/HHA/EDTAのフラクトグラムのピーク位置、形状は

HHA自体のフラクトグラムと同様であり、(a) Zr^{4+}が存在しない場合の結果とも対応することから、今回の条件ではZr^{4+}との結合によってHHAのサイズ（構造）があまり変化しないこともわかった。

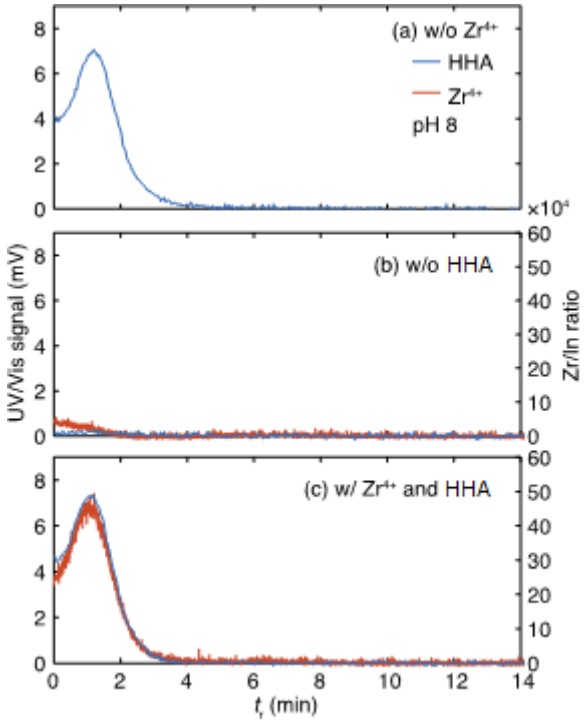


図3.4-1　(a) HHA/EDTA、(b) Zr^{4+}/EDTA、(c) Zr^{4+}/HHA/EDTA共存試料のUV/Vis（HHA）とICP-MS（Zr）検出から取得したフラクトグラム

FFF-ICPMS法により取得したZrとHHAとの錯生成データを用いて、Zr^{4+}とHHAとの条件付き平衡定数（K_c）を算出した。K_cはZr^{4+}がHHAのカルボキシル基サイトと1：1で錯生成することを仮定した平衡定数であり、その対数値（log K_c）は以下の式（3.4-2）で定義される。

$$Zr^{4+} + HA^{-} = ZrHA^{3+} \quad \text{において} \quad K_c = \frac{[ZrHA^{3+}]}{[Zr^{4+}][HA^{-}]} \tag{3.4-2}$$

Zr^{4+}、HHA、EDTAが存在する系において、Zr^{4+}-EDTA錯体とZr^{4+}-HHA錯体との交換反応の平衡定数（logK_{exch}）は以下の式(3.4-3)で定義される。

$$ZrEDTA^{0} + HA^{-} = ZrHA^{3+} + EDTA^{4-} \quad \text{において} \quad K_{exch} = \frac{[ZrHA^{3+}][EDTA^{4-}]}{[ZrEDTA^{0}][HA^{-}]} \tag{3.4-3}$$

よって、以下の式 (3.4-4) で定義されるZr^{4+}とEDTAとの錯生成の平衡定数 (logK_{ZrEDTA}= 29.25, Morel et al., 1993）を用いて、K_cは式(3.4-5)から導出される（Stern et al., 2014）。

$$Zr^{4+} + EDTA^{4-} = ZrEDTA^{0} \quad \text{において} \quad K_{ZrEDTA} = \frac{[ZrEDTA^{0}]}{[Zr^{4+}][EDTA^{4-}]} \tag{3.4-4}$$

$$\log K_{\mathrm{c}} = \log K_{\mathrm{exch}} + \log K_{\mathrm{ZrEDTA}} \qquad (3.4\text{-}5)$$

算出した$\log K_c$の値とZr^{4+}-HHA錯体との交換反応の平衡定数（$\log K_{exch}$）、先行事業において取得したpH 5と6における同値をまとめたものを表3.4-1に示す。$\log K_c$の値はpHの増加、Zr^{4+}濃度の減少に伴って増加している。実験結果から計算されるZr^{4+}のHHAの結合量は、pHの減少とともにpH 5から6の範囲で増加したが、EDTAへのZr^{4+}の結合（錯生成）のpH依存性が考慮されている$\log K_c$ではそのようなpH依存性は見られず、pHとともに結合の平衡定数が増加するという、腐植物質への金属イオンの結合に一般的にみられる傾向となっていることがわかる。また、Zr^{4+}濃度の減少に伴う$\log K_c$の増加は、カルボキシル基を主体とするHHAの結合サイトへのH^+の競合とHHAに対するZr^{4+}の結合反応の平衡定数の分布を反映したものであり、金属イオンの腐植物質への結合反応において一般的にみられる傾向と合致している。一方、先行研究（Saito et al., 2015）からHHAのカルボキシル基サイトは、親和性分布幅を意味するp1の値がほぼ1であるため、表層環境由来の腐植物質とは異なり化学的に均質であり、また、H^+やCu^{2+}の結合反応の化学量論比を反映したイオン固有の非理想性は小さいことから、Zr^{4+}の結合反応におけるこのような不均質性は、Zr^{4+}のような多価イオンに固有のものである可能性がある。

表3.4-1　HHAへのZr^{4+}結合反応の条件付き平衡定数

$C_{\mathrm{T,\,Zr}}$ (μM)	[COOH]/[Zr]モル比[i]	$\log K_{\mathrm{exch}}$	$\log K_{\mathrm{c}}$
pH 5 ($C_{\mathrm{T,\,EDTA}}$ = 0.25 μM)[ii]			
0.110	796	-8.89	20.4
0.055	1593	-8.79	20.5
0.022	3982	-8.41	20.8
pH 6 ($C_{\mathrm{T,\,EDTA}}$ = 0.25 μM)[ii]			
0.110	796	-7.3	21.9
0.055	1593	-7.2	22.1
0.022	3982	-6.2	23.0
pH 8 ($C_{\mathrm{T,\,EDTA}}$ = 0.50 μM)			
0.110	1026	-4.57	24.7
0.055	2051	-4.81	24.4
0.022	5127	-4.26	25.0

i. NICA-Donnan パラメータより計算される HHA のカルボキシル基型サイトのモル濃度と Zr 濃度の比.

ii. 日本原子力研究開発機構(2018)

FFF-ICPMS法を用いて得られたHHAへのZr^{4+}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、平成30年度までとは異なり、低親和性サイト（カルボキシル基型サイト）への結合に加えて、高親和性サイト（水酸基型サイト）への結合も考慮している。また、EDTAへのH^+及びZr^{4+}の結合に加え、Zr^{4+}の加水分解反応も考慮した。図3.4-2よりモデルがHHAに対するZr^{4+}の結合反応のZr^{4+}濃度依存性と、見かけ上のpH依存性の傾向を再現していることがわかる。一方、最適化されたカルボキシル基型サイト、水酸基型サイトへのZr^{4+}の結合反応の生成定数（log K）の値は、先行研究（Saito et al., 2015）で報告されているHHAに対するCu^{2+}の値よりも大きく、IV価の金属イオンであるZr^{4+}へのHHAの親和性が非常に高いことがわかる。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の値はカルボキシル基型サイトで0.30、水酸基型サイトで0.57と、前者ではCu^{2+}と比べて小さい値に、後者では大きい値となった。この結果は、多価の金属イオンの結合におけるHHAのカルボキシル基型サイトの非理想性が大きく、高次構造の変化などを伴い、多座配位を形成している可能性を示唆するものである。本手法におけるHHAの回収率は50%程度であり、Zr^{4+}の結合量の評価ではFFFのチャンネルから流出しなかったHHAにもZr^{4+}が結合しているとして、補正を施している。この補正による不確実性を低減するために、HHAの回収率を向上させる、あるいは後述するキャピラリー電気泳動質量分析（CE－ICPMS）法を用いて取得したデータとの整合性を確認することが重要になると考えられる。また、今回のフィッティングは、pH 5、6、8の3点の条件で行った。より信頼性の高いモデルパラメータを設定するために、中性、弱アルカリ性の条件下で更なる錯生成データの拡充を進めていく必要がある。

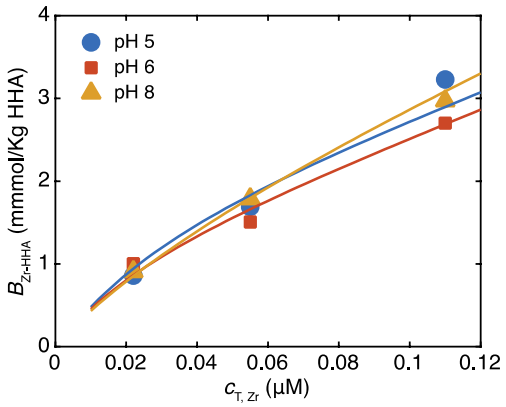


図3.4-2　pH 5、6、8におけるZr^{4+}結合量のZr^{4+}濃度依存性、及びNICA-Donnanモデルを用いたフィッティング結果

表3.4-2　HHAに対するZr^{4+}の結合データに対するNICA-Donnanモデルのフィッティングより最適化されたパラメータ

Generic parameter				
Donnan, b [i]	0.81			
	Site 1 (high-affinity)		Site 2 (low-affinity)	
$Q_{max,H}$ [i]	4.38		4.44	
p [i]	1		0.355	
Ion specific parameters				
	$log\widetilde{K}_1$	n_1	$log\widetilde{K}_2$	n_2
H^+ [i]	3.74	0.82	10.62	1
Cu^{2+} [i]	1.32	1	14.43	0.28
Zr^{4+} [ii, iii]	7.93 (7)	0.30 (0.2)	22.80 (0.8)	0.57 (0.2)

i. Loeb et al., 1961

ii. This study. R^2 = 0.9854.

iii. 括弧内数字は，フィッティングの 95%の信頼幅に対応するパラメータの誤差を表す。

② キャピラリー電気泳動質量分析装置(CE-ICPMS)を用いた錯生成データ取得

平成30年度までに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-ICPMS法（Stern et al., 2014）の適用について検討する必要があることを示した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金･管理センター, 2019）。CEでは試料溶液中のイオンの電荷やサイズに起因する移動速度の差を利用して分離を行うため、極少量の試料で高分離能を達成でき、試料の損失が極めて少ないという利点がある。本事業では、天然有機物としての腐植物質とIV価金属イオンのZr^{4+}、競合配位子としてEDTAを混合した系にCEを適用し、Zr^{4+}/フミン酸錯体とZr^{4+}/EDTA錯体を分離し定量することで、腐植物質に対するZr^{4+}の錯生成反応の見かけの平衡定数を導出した。一般的なCEでは、分離したイオン等をUV/Vis検出器によって検出するが、本事業で対象とする系にはこの検出方法は適用できない。これは、極少量のZr^{4+}や腐植物質及びEDTAの錯生成の有無をUV/Vis検出器では検出できないためである。よって、CEをICP-MSと連結させ、質量分析からZr^{4+}のフラクトグラムを作成して見かけの錯生成定数K_cを導出した。その際、FFF-ICPMS法と同様にZr^{4+}がカルボキシル基サイトと1：1で錯生成することを仮定し、式（3.4-5）を使用した。

本事業で開発したCE-ICPMSシステムの概略を図3.4-3に示す。Agilent 7100 CEの外部接続用インターフェースを用いて装置外部に取り出したキャピラリーを、クロスインターフェースを介してAgilent 7900のネブライザーに接続した。このクロスインターフェースには、シリンジポンプとアースを接続し、シリンジポンプには濃度10 ppbのインジウムを含む0.1 Mの硝酸溶液を充填し、キャピラリーからの泳動液を支持するシースフローとして3 μl min^{-1}の流速で流した。また、泳動試料は圧力によってキャピラリーに導入されるため、測定毎の試料導入量は厳密に同じ量とはならない。よって、本項目で測定するすべての試料にセシウムを濃度10 ppbとなるように添加し、内標準として導入サンプル量の補正を行った。

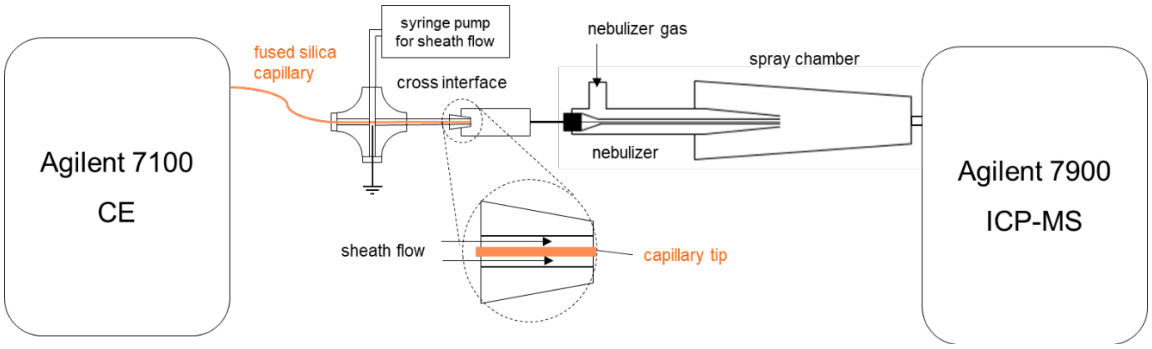


図3.4-3　CE-ICPMSシステム概略図

図3.4-4にZr^{4+} = 10 ppb、EDTA = 0.1 μM、pH 5の条件下における、10 ppbのフミン酸の有無によるZr^{4+}フラクトグラムの変化を示す。フミン酸は国際腐植物質学会（International Humic Substances Society）から購入した、Pahokee Peat標準フミン酸を用いた。また、図3.4-4では内標準として用いたCsのピーク位置から、Zr^{4+}のピーク位置を補正している。この図から、フミン酸の存在によって、Zr-EDTA錯体からZr-HA錯体への交換反応が起こっていることが確認できる。このフラクトグラムから、Zr^{4+}のEDTA、フミン酸に対する結合量を導出し、式（3.4-5）から見かけの錯生成定数を導出した結果を、Pahokee Peat標準フミン酸とZr^{4+}の錯生成定数の報告値（Stern et al., 2014）とともに表3.4-3にまとめた。本調査で導出した見かけの錯生成定数は、pHの増加によるカルボキシル基の解離の進展と、官能基に対するZr^{4+}濃度が低いことから、報告値の条件よりも強く錯生成することを反映しており、開発したCE-ICPMSシステムが見かけの錯生成定数の導出に有用であることが示された。今後、このCE-ICPMSシステムを用いて、pHやフミン酸濃度といったサンプル条件を変化させた際の適用性評価や、幌延深部地下水から分離・精製した腐植物質とZr^{4+}との錯生成データの取得を進めることで、NICA-Donnanモデルの高度化を図るとともに、FFF-ICPMS法から導出したモデルパラメータと比較してその妥当性の評価を行うことが必要になると考えられる。

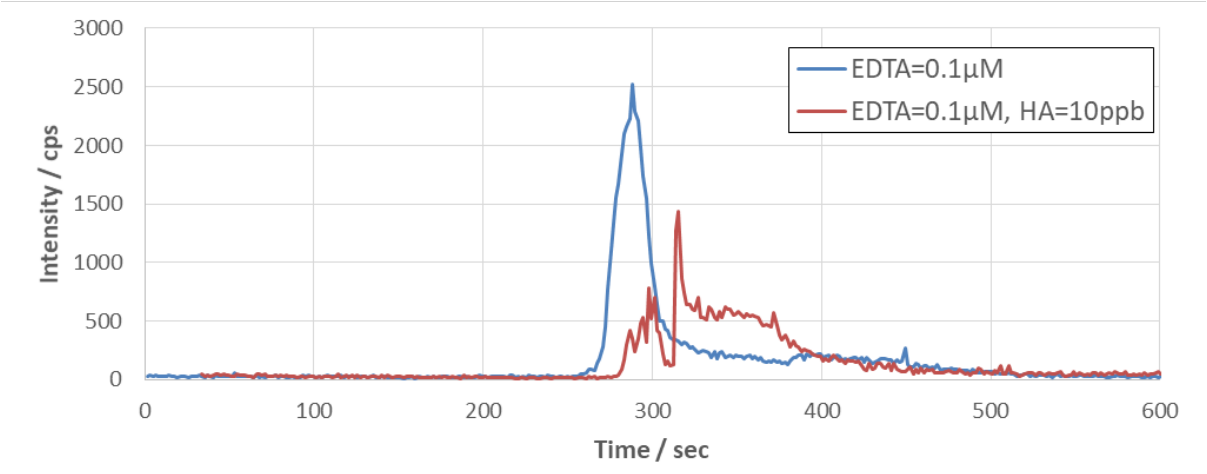


図3.4-4　CE-ICPMSから取得したZr^{4+}のフラクトグラム

表3.4-3　CE-ICPMSによるZr^{4+}結合反応の条件付き平衡定数

$C_{T,Zr}$ (μM)	[COOH]/[Zr]モル比	logK_{exch}	logK_c
pH 5 ($C_{T,EDTA}$ = 0.1 μM)			
0.110	796	-8.37	20.88
pH 3.5 ($C_{T,EDTA}$ = 1.8 μM)[i]			
0.132	710	-10.26	18.99

i. Stern et al., 2014.

③ 小角散乱を用いたZr（IV）-有機物複合体のメゾスコピック構造評価

地下水中に溶存している天然有機物としての腐植物質は、その生成履歴から複雑な組成と構造を持つことが知られており、一般に高分子電解質としての性質と不均質性を持つ（Artinger et al., 2000）。カルボキシル基や水酸基といった官能基を有する腐植物質がZr^{4+}のような高価数の核種と錯生成することで、腐植物質の構造が変化し、凝集体を形成することが考えられる。本事業では、飛行時間（time-of-flight）型中性子小角散乱（SANS）とX線小角散乱（SAXS）という異なるプローブを用いた小角散乱測定から、HHAとAldrichフミン酸（PAHA）について、Zr^{4+}との結合による凝集体の形成を評価した。

SANSは茨城県東海村にある大強度陽子加速器施設J-PARC、生命科学実験施設（MLF）のBL-15（大観）で行った。腐植物質濃度が2 g L^{-1}となるよう調製した測定試料を直径2 mmの石英セルに充填し、室温で測定を行った。得られた中性子の散乱は異なるエネルギー成分を含むことから、$\Delta q/q$ = 0.1のウィンドウでqの関数として平均化を行い、グラッシーカーボン（GC）で規格化した換算係数を乗ずることで、絶対散乱強度に変換した。ここで、qは散乱ベクトルであり、散乱角度2 θと中性子の波長λを用いて以下の式（3.4-6）で表される。

$$q = \frac{4\pi}{\lambda}\sin\theta \qquad (3.4\text{-}6)$$

得られた散乱プロファイルに対して、試料の透過率、空セルや溶媒からのバックグラウンド散乱を差し引いた。

SAXSは高エネルギー加速器研究機構（KEK）、フォトンファクトリー（PF）のBL-6Aで行った。このビームラインではλ = 1.5 Åに単色化した高強度のX線を用いて散乱実験が可能である。SANSと同様の試料を厚さ1 mmの溶液用セルに充填し、広いq領域をカバーするために0.25 mと2.5 mの2種類のカメラ長（試料と検出器の距離）で測定を行い、得られた散乱プロファイルを結合した。得られた2次元の散乱X線による画像データに、ビームストッパー及び寄生散乱を除去するためのマスクを施した後、円環平均を行い、qの関数として散乱プロファイルを得た。その後、SANS測定の場合と同様に、GCの散乱プロファイルを用いて絶対散乱強度に変換し、空セルや溶媒のバックグラウンドを差し引いた。

SANSとSAXSはプローブとなる入射線が異なるため、検出できる散乱体の性質が異なる。SANSの場合、特にD_2O媒体では主に構造中のH分布の粗密を反映した散乱プロファイルが得られる。一方、SAXSの場合は構造中の電子密度の粗密を反映し、有機物であればHではなく、C、Oなどの元素の分布を反映する。Zr^{4+}の存在の有り無しでHHAとPAHAのSANSとSAXSを比較した結果を図3.4-5に示す。HHAはSANSプロファイルがZr^{4+}の添加によって変化し、q = 0.03 $Å^{-1}$

付近の散乱強度が増加している。これは、Zr^{4+}の添加によってHHAの一次粒子が凝集し、20 nm程度の散乱体が形成したことによるものと考えられる。一方SAXSプロファイルはZr^{4+}の添加によって$q = 0.025$ Å^{-1}付近の散乱が増加している。HHAのSANS・SAXSの散乱プロファイルはよく対応しており、HとC、Oの分布の点で均質な（一次）粒子がZr^{4+}との結合によって凝集していることが示唆された。一方、PAHAのSANSプロファイルは、Zr^{4+}の有無によって変化しない。SAXSプロファイルはZr^{4+}の添加によって変化し、$q = 0.5$ Å^{-1}付近の散乱強度が減少し、$q = 0.2$ Å^{-1}付近に明確な変曲点が現れている。これは、1 nm程度の比較的小さなPAHA一次粒子がZr^{4+}との結合によって4 nm程度の凝集体を形成することを示唆している。また、$q = 0.025$ Å^{-1}付近にも明瞭な散乱構造（25 nm）が見て取れる。PAHAのSANS・SAXSプロファイルは異なっており、HとC、Oなどの元素の分布が不均質である可能性がある。特にSANSのプロファイルがZr^{4+}によって変化していないため、Hに富んだ構造のサイズはZr^{4+}の添加によって変化せず、C、Oに富んだ構造がZr^{4+}との結合によって変化しているといえる。これは、PAHAがHに富んだ“シェル”内部にC、Oが富んだ“コア”が埋め込まれたコア-シェル状の構造を有しており、後者がZr^{4+}の添加によって4 nm、25 nmの階層的凝集体を形成しているという構造モデルの可能性を意味する。特にこのコアは官能基に富み、電荷にも富んでおり、Zr^{4+}のような多価の金属イオンの結合に敏感に反応して凝集体を形成しているものと考えられる。このように、SANSとSAXSの比較は、多価金属イオンとの結合による腐植物質のような天然有機物の凝集体形成、特に、凝集体の不均質性に関する知見が得られる有力な分析手法であるといえる。

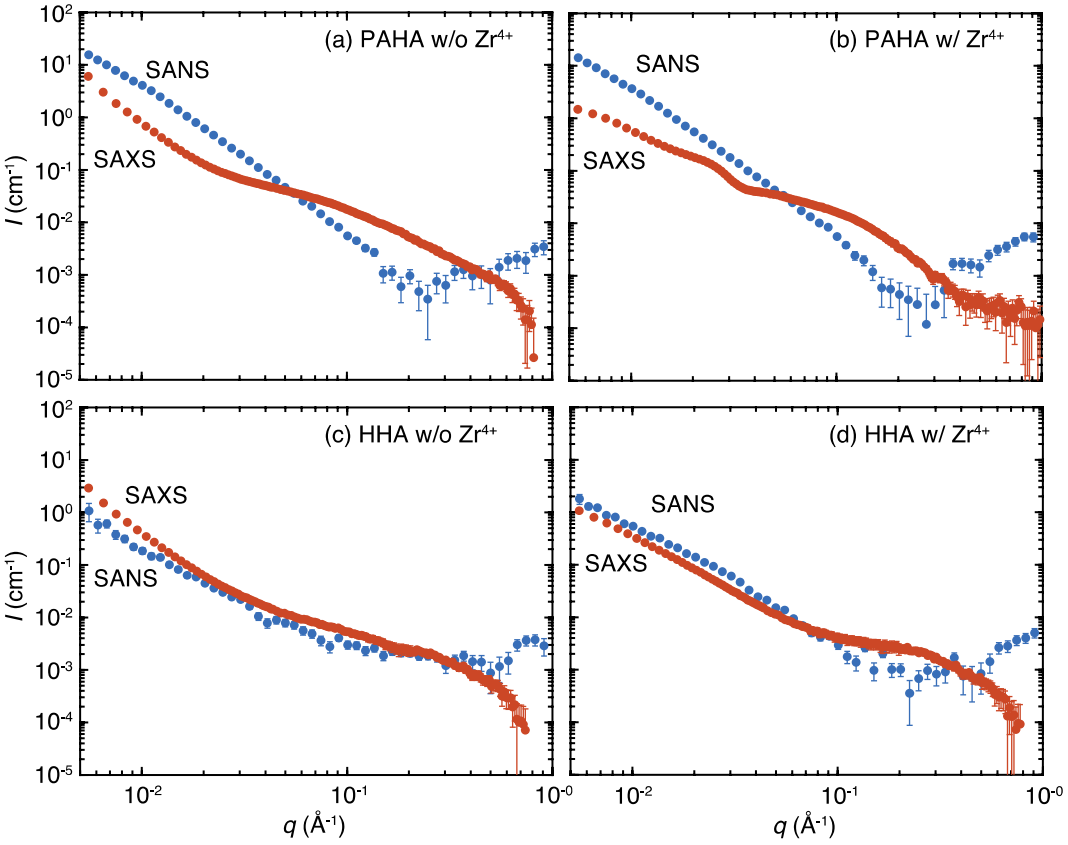


図3.4-5（a、b）PAHA、（c、d）HHAのSANS、SAXSプロファイルの比較
（a、c）Zr^{4+}を含まない試料と（b、d）0.1 mMのZr^{4+}を含む試料

④ 熱量滴定法によるZr(IV)の加水分解反応における熱力学量の導出

IV価の陽イオンであるZrは、水溶液中では容易に加水分解種を生成することが知られており、水酸基の配位数や形式電荷も溶液中のpHによって多様に変化すると考えられている（Brown P.L. et al., 2005; Rai D. et al., 2018）。しかしながら、Zr^{4+}の加水分解反応における熱力学量の報告値はギブス自由エネルギーに相当する平衡定数に限られており、結合エネルギーを意味する反応エンタルピーを反応熱から導出した例はない。Zr^{4+}が地下水中の天然有機物と錯生成する際の化学形についても知見が不足しており、加水分解したZr^{4+}に結合している水酸基の、天然有機物との錯生成への寄与の有無についても明確ではない。本事業では、ナノジュールオーダーで溶液反応における反応熱を測定可能な熱量滴定法をZr^{4+}の加水分解反応に適用し、バッチ式にpHの変化を電極でモニタリングしながら反応熱を測定し、加水分解反応における反応エンタルピーの導出を行った。

本試験系におけるZr^{4+}のスペシエーションの計算結果を図3.4-6に示す。この図より、pHが増加するにつれてZrの加水分解が進展し、Zr^{4+}単体での存在割合が低くなることがわかる。本調査においては、pH 0.5のZr^{4+} 過塩素酸溶液に水酸化ナトリウム溶液を滴定し、pHを変化させた際の反応熱を測定した。なお、測定系のイオン強度がI = 1.0と高いため、支持電解質の存在によってpH電極の読み値（pH_{read}）から計算する水素イオン濃度と、実際の系内の水素イオン濃度（pcH）に差が生じる。そのため、それぞれ濃度既知の過塩素酸溶液を水酸化ナトリウム溶液でI = 1.0の条件下で滴定し、得られた以下の補正式（3.4-7）を用いて電極の読み値を補正した。

$$pcH = 0.9735 \times pH_{read} + 0.3915 \qquad (3.4\text{-}7)$$

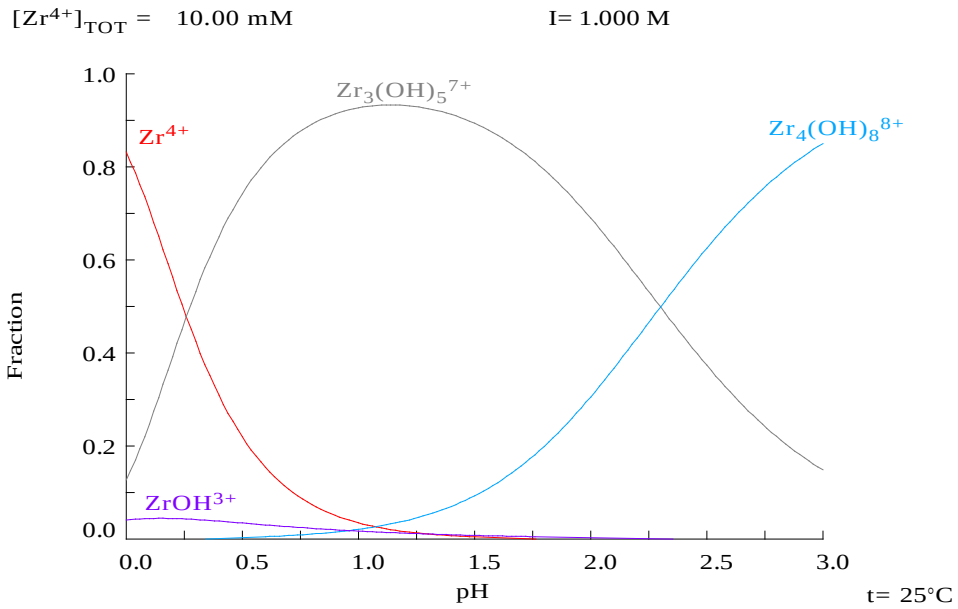


図3.4-6　本試験系におけるZr（IV）のスペシエーション

得られた熱量滴定の結果（a）と、$Zr_3(OH)_5^{7+}$及び$Zr_4(OH)_8^{8+}$の生成エンタルピーを最小二乗法から計算し、実測値への当てはめを行った結果(b)を図3.4-7に示す。この図（a）より、Zr^{4+}-過塩素酸溶液に水酸化ナトリウム溶液を滴下すると、ミリジュールオーダーの非常に大きな反応熱が発生することがわかる。これは、滴下されたOH^-イオンが系内でH^+と結合しH_2Oを形成する際の水の生成熱によるところが大きいと考えられる。水酸化ナトリウム溶液の滴定によって、溶液の

pHは0.5から2.8まで変化した。（b）に示した通り、ジルコニウム加水分解種の変化が顕著になるpH ＞ 1のデータを用いて、最小二乗法により、$Zr_3(OH)_5^{7+}$及び$Zr_4(OH)_8^{8+}$の生成エンタルピーを、それぞれ−370.24±0.01 kJmol^{-1}、−342.37±0.01 kJmol^{-1}と決定した。$Zr_3(OH)_5^{7+}$が$Zr_4(OH)_8^{8+}$よりも生成する際の結合エネルギーの利得が大きいのは、H_2OからOH^-が脱離する際に必要なエネルギーの差によるものと考えられる。このように、熱量滴定法には反応熱から直接熱力学量が導出できるため、反応エンタルピーを精度良く決定できるという利点があり、検討を進めることで反応機構の解明に資する知見を得ることが期待できる。一方で、熱力学量が未知の系においては一回の滴下毎にどの程度反応が進行するかの推定ができないため、腐植物質とZr^{4+}の錯生成反応に熱量滴定法を適用するためには、CE-ICPMS法によるデータ取得やNICA-Donnanモデルの高度化を進めていく必要がある。また、腐植物質とZr^{4+}の錯生成反応においては、腐植物質のカルボキシル基や水酸基が解離する弱酸性から中性のpH領域においてZrO_2(s)の固相が生じることを防ぐために、EDTAなどの競合配位子を添加する必要がある。よって、Zr^{4+}とEDTAの錯生成反応における反応熱力学量の整備を進めていくことが必要になる。

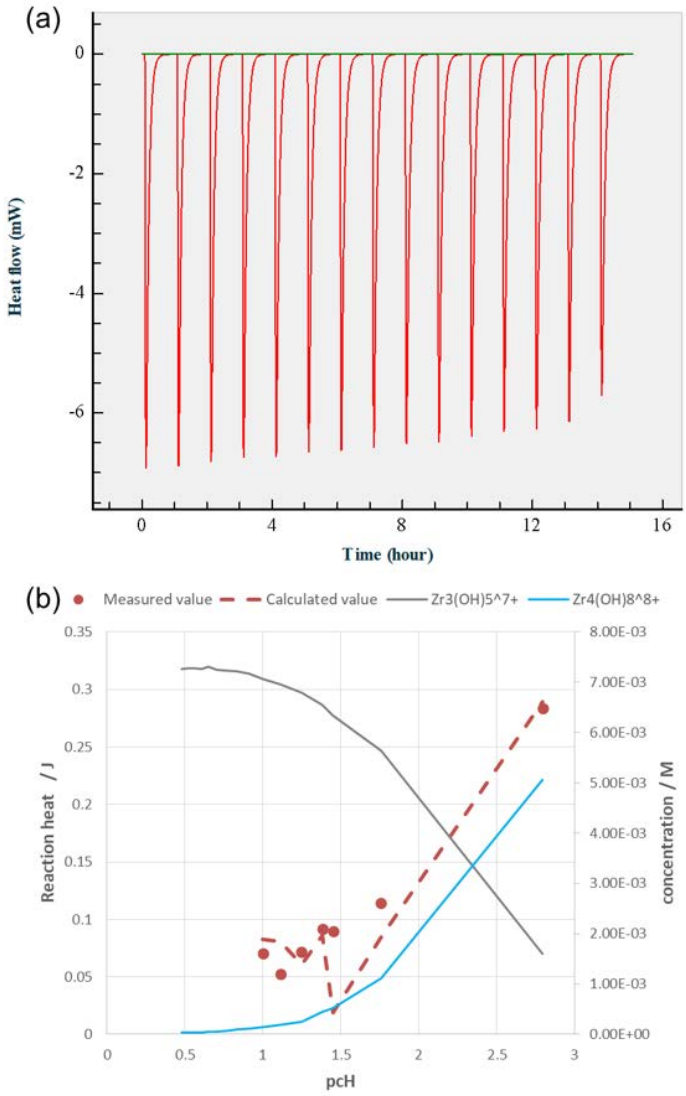


図3.4-7 Zr^{4+}の加水分解熱量滴定結果(a)と反応エンタルピーの最小二乗法による当てはめ結果(b)

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。日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金･管理センター（2019）は、平成30年度までの文献調査を通じて、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り、特に高価数の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。このことから、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が、核種-天然有機物-岩三元系モデルの開発のために重要な課題となる。

本事業では、上記の課題解決のため深部地下水に存在する未分画の天然有機物の特性評価を行い、無機コロイドと複合化した天然有機物が存在するのか等、予察的なデータの取得を行った。幌延深地層研究センターの深度350 mボーリング孔（13-350-C01）にて還元雰囲気を維持したまま地下水を採取し、窒素雰囲気のグローブボックス内で、孔径0.35 μmのガラスフィルターを用いてろ過処理を行った。その後、sartorius製Vivaflow200を用いてクロスフローろ過法による脱塩・濃縮を行った。この際の分画分子量は10 kDaとした。クロスフローろ過法ではろ紙に対して水平方向に溶液が流れるため、ろ紙の目詰まりが起こりづらく、短時間で多量のろ過を行うことができる利点がある。このクロスフローろ過システムを用いて、採取した深部地下水10 Lを10倍の体積の超純水で脱塩した後、体積が1 Lとなるまで濃縮した。その後、分画分子量3 kDaのフィルターを用いて限外ろ過を行い、深部地下水中のコロイド粒子を捕集した。コロイド粒子を捕集したフィルターを24時間凍結乾燥した後、SEM-EDSにて分析を行った。代表的な粒子の画像を図3.4-8に示す。本調査でフィルター上に捕集されたコロイド粒子には、図3.4-8のaに示したような有機物とシリカの凝集体が多く見られた。またその凝集体中にb-dに示したような粒径の小さな鉱物が点在していた。これは、深度350 m地下水中での金属イオンの振る舞いとして、同種の金属が鉱物として析出した小さな粒子が、有機物とシリカ等を主体とする粒径の大きなコロイド粒子に物理的に収着している可能性を示唆している。しかしながら、本調査におけるフィルターの捕集量が多く、粒径の小さなコロイド粒子が埋もれてしまっている可能性がある。今後未分画の天然有機物の特性評価を進めていくにあたっては、高精度の電子天秤を用いたコロイド粒子捕集量の定量的な評価や、pHを変化させた際の解離挙動について調査が必要になると考えられる。また、核種-有機物-岩三元系のモデル開発にむけて、アクチニド元素を模擬した希土類元素と幌延深部地下水、幌延深部の堆積岩を用いた収着試験を行い、核種の収着・移行挙動に関するデータの取得を進めていくことも必要となる。

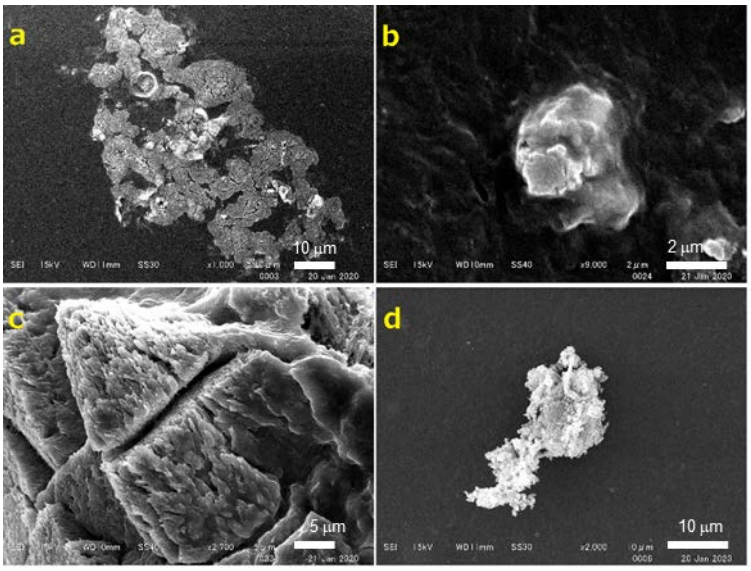


図3.4-8　捕集した代表的なコロイド粒子のSEM観察像。a. 有機物とシリカが主成分の比較的大きな粒子、フィルターに捕集されたコロイド粒子の大部分がこのような凝集体を形成していた。b. 酸化鉄と思われる直径2 µm程度の粒子。有機物は共存していない。c. 直径20 µm程度のカルシウムを主成分とする粒子。カルサイトと思われる。d. マグネシウムとシリカを主成分とするケイ酸マグネシウム鉱物と思われる粒子。

(3) 2ヶ年の成果と今後の課題

これまでの2ヶ年では、FFF-ICPMS法を用いてZr^{4+}と幌延深部地下水から分離・精製したフミン酸・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の整備を行った。また、FFF-ICPMS法では腐植物質の回収率が低く、錯生成データの妥当性が明らかでないという課題に対して、試料の損失が極めて少ないCE-ICPMS法による錯生成データ取得手法を整備し、その適用性を確認した。さらに、小角散乱を用いたZr^{4+}との結合による幌延深部地下水フミン酸の構造変化や、熱量滴定法によるZr^{4+}の加水分解反応熱力学量など、Zr^{4+}と腐植物質の錯生成反応機構の理解に資するデータの取得を進めた。核種-有機物-岩三元系での核種収着モデルの開発については、地質環境条件（有機物、岩石、地下水条件）の多様性や複雑性に着目した文献調査から課題を抽出し、核種-有機物二元系における収着反応機構に関する予察的なデータ取得を行った。

今後の課題として、NICA-Donnanモデルパラメータの整備を進め、モデルの高度化を進めるために、幌延深部地下水から抽出・精製したフミン酸・フルボ酸について更に多様な条件下での錯生成データの取得を進める必要がある。さらに、幌延深部地下水フミン酸に対してCE-ICPMS法を適用し、錯生成データの取得及びNICA-Donnanモデルの当てはめを行うことで、モデルパラメータの妥当性を多角的に評価することも必要となる。IV価核種と腐植物質の錯生成反応機構の理解のためには、熱量滴定法による熱力学量の導出等のデータ取得を進めていく必要がある。核種-有機物-三元系の核種収着モデルの開発に向けては、反応の瞬時・可逆性の観点でデータ取得を進めるとともに、幌延深部地下環境中の実地下水、堆積岩を使用した室内試験を行うことで、核種収着のデータ整備を進めていく。

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）、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。核種の移行への微生物影響については、AECL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した（図3.4-9）。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。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、微生物と核種との相互作用反応により、核種移行への影響は異なってくると考えられる。そこで、平成30年度はバイオコロイド及びバイオフィルムの形態として地下環境に存在する微生物群集を対象に、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た。平成31年度は、平成30年度に引き続き、水質・微生物特性等が異なる地下水試料を対象としてバイオコロイドへの元素収着に関するデータを取得した。また、バイオフィルムの生息域や代謝機能等に関する情報を取得するとともに、評価手法について提案し、取得したデータをもとに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。

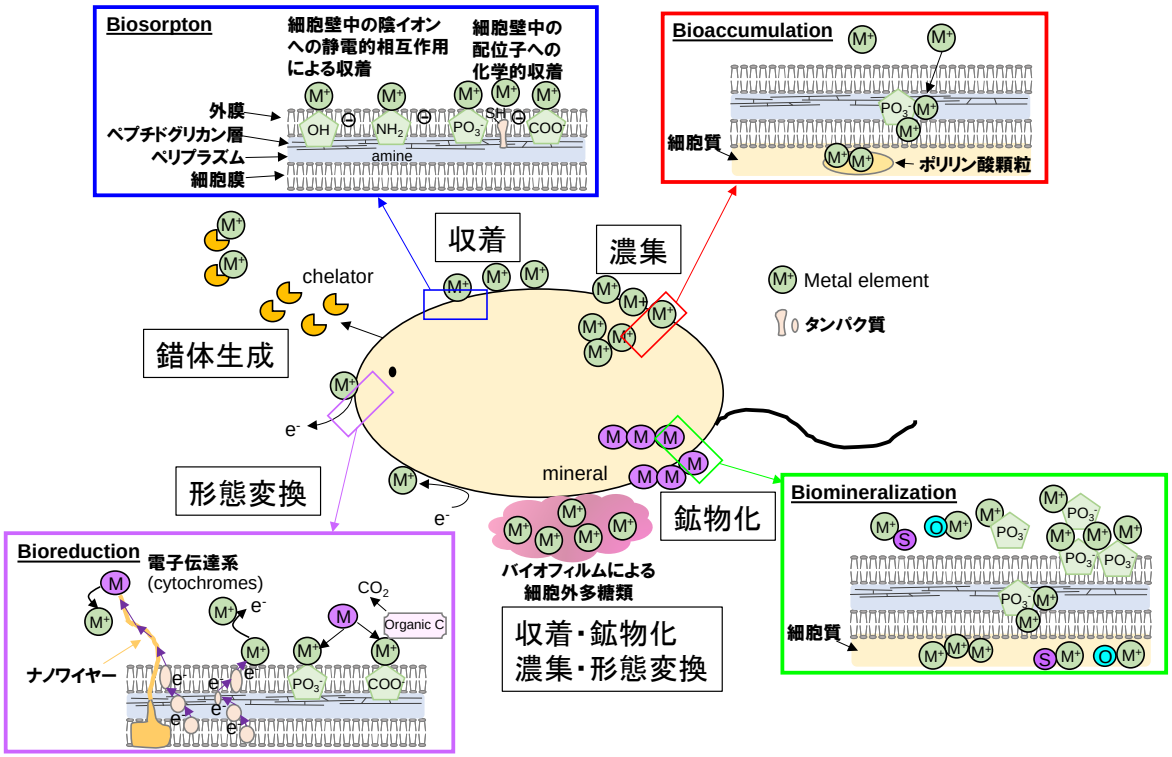


図3.4-9　微生物と元素との相互作用の概念図

(2) 実施内容

平成30年度に実施した、微生物と核種との相互作用に関する現象モデル開発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、以下の試験を継続して実施した。

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を促進する可能性が懸念されている（Miller et al., 2000; Kersting et al., 1999; Penrose et al., 1990）。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類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核種が取り込まれて濃集した場合、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（Anderson et al., 2011; 大貫, 2002; Pedersen, 2005）、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収着分配係数、収着の不可逆性に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、幌延深地層研究センターの地下施設（Horonobe Underground Research Laboratory; 以下、幌延URL）のボーリング孔地下水（図3.4-10）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, 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かったことから、平成30年度は、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。平成31年度は、地下水中のバイオコロイドへの核種の収着特性データを拡充するため、幌延URLの深度250 m坑道において採取した、コロイド密度・微生物密度・微生物種組成・微生物代謝・地下水組成等の異なる地下水を用いて、コロイドへの希土類元素の収着試験を実施した。

幌延URLの250 m坑道から掘削されたボーリング孔（09-V250-M02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、脱酸素剤とともに採取瓶を真空パック保存した。地下水採取容器は、γ線を高線量照射した際に安定性が良く物性が変化しにくい材質であるガラス容器（JIS R3503「ほうけい酸ガラス-1」に相当するDURAN ㊮）及び黒キャップ（フェノール樹脂製、パッキンはEPDM）を使用した。その後、線量53.5～71.8 kGyのγ線滅菌処理をした地下水を、実験室にて、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。耐圧ステンレス容器は、使用前にあらかじめ硝酸洗浄・オートクレーブ滅菌を施した後、99.999%アルゴンガスで容器内の空気を置換した後試験に用いた。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_3^-, TOC, TIC, Total Fe, Fe^{2+}, S^{2-}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。

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28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線滅菌処理を施した地下水中のコロイド、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3.4-11）。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3.4-11）。分配係数の算出に用いた地下水中のコロイド濃度は、実際の地下環境にて取得した実測値の平均値として、深度140 mの地下水については0.608 mg/L、深度250 mの地下水については0.091 mg/Lを用いた。取得した分配係数結果から、どの分画においても分配係数は軽希土類の方が高い傾向を示し、Laが最も高い値を示すが、重希土類元素に向かうほど

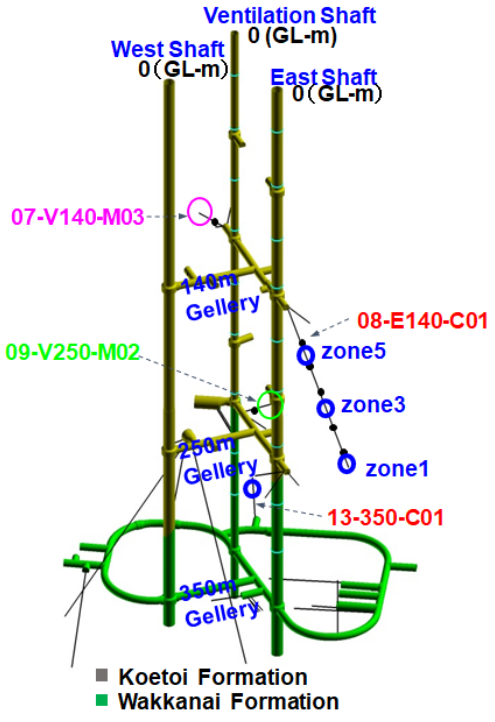


図3.4-10　幌延URLにおける
ボーリング孔配置図

分配係数は低下し、時間の経過にともなう分配係数の著しい変化は、収着試験開始から14日間では認められなかった（図3.4-11）。収着試験開始7日後の値を見ると、深度140 mの地下水では、全コロイドの分配係数はlog K_d (m^3/kg)として3.03～4.68の範囲（Ceを除く）であったのに対し、無機コロイドは2.35～3.90、バイオコロイドは2.92～4.60の範囲（Ceを除く）となり、バイオコロイドの分配係数は無機コロイドより高く、全コロイドと同等の値が得られた。一方、深度250 mの地下水では、全コロイドの分配係数はlog K_d (m^3/kg)として4.47～5.33の範囲で得られたのに対し、無機コロイドは3.27～4.10、バイオコロイドは3.76～4.73の範囲となり、深度140 mの地下水と比較すると、全コロイド、無機コロイド、バイオコロイドのいずれの分配係数も比較的高い値となった。これは、深度250 mの地下水中に存在するコロイド濃度が、深度140 mの地下水のものに比べて約一桁低いことが要因であると考えられる。全コロイドに対するバイオコロイドの分配係数を見ると、深度140 m及び250 mの両地下水において、希土類元素は無機コロイドよりバイオコロイドに分配されている傾向が確認され、その傾向の経時的な変化は認められなかった。本試験で得られた収着分配係数値の信頼性については、今後データ数の拡充などにより検証していく必要があるが、本試験結果から、地下水中に存在するコロイドのうち、バイオコロイドの方が無機コロイドより希土類元素の収着反応に重要な役割を果たす可能性が示唆された。バイオコロイドに希土類元素が収着する要因としては、微生物細胞表面の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、アミノ基等が細胞表面への希土類元素の収着に関与していると推察され（図3.4-9; 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。また、環境中に存在する微生物種や元素によっては、細胞表面の官能基と元素の反応だけでなく、微生物代謝が関与してくる可能性があり、様々な微生物種や元素に対してデータを拡充する必要がある。なお、深度140 mの地下水を用いた全コロイドの収着試験では、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、全コロイドに対する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可能性もあるが、深度250 mの地下水を用いた試験では、Ceの濃度を取得することができたことから、データの再現性も含めてCeの値を再度検討する必要がある。本試験で算出された全コロイド、無機コロイド、バイオコロイドの分配係数値は、これまでに単一の培養株である*Acremonium* sp.を対象として評価された希土類元素の収着パターンと概ね近似しているが（Tanaka et al., 2010）、単離株*Bacillus subtilis*の培養液を用いた収着試験の報告では、単離株への希土類元素の収着パターンが本試験結果や*Acremonium* sp.培養株の結果と逆の傾向を示しており、重希土元素ほど分配係数が高くなることが示されている（Takahashi et al., 2005; 2010）。このパターンの違いは、収着試験の溶液条件（pHや溶液の化学組成等）に依存すると考えられる。また分配係数についても、単離株を用いた試験では溶液条件に応じて異なる傾向を示しており、本試験のpH条件と比較的近いpH6.91の試験条件下では、分配係数はlog K_d (m^3/kg)として5.08～5.50の範囲で取得されていた（Tanaka et al., 2010）。この既存報告の分配係数は、本試験で得られた複数の微生物種が混在する微生物群集を対象としたバイオコロイドの分配係数と比較すると元素によっては高い傾向を示しているものの、比較的近い値の分配係数値が得られていることから、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。地層処分システムにおけるコロイドの核種移行影響について、信頼性を向上させるためには、今後も引き続き水質や微生物群集組成の特徴の異なる地下水中のコロイドへの核種を含めた元素の分配係数のデータを拡充していく必要がある。

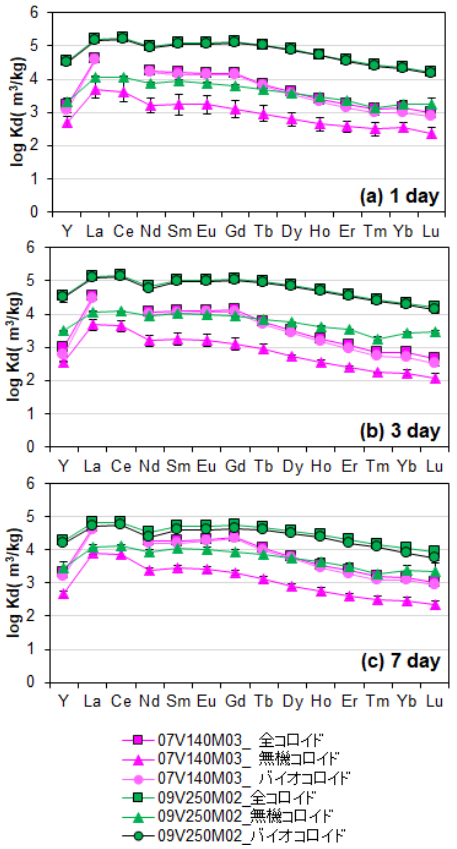


図3.4-11　深度140 m（07V140M03孔）及び250 m（09V250M02孔）に分布する地下水中のコロイドへの希土類元素の分配係数の経時変化．全コロイド；地下水中に存在する全コロイド（無機/有機コロイド）．無機コロイド；γ線滅菌処理を施して微生物を死活させた地下水中のコロイド（無機及び生きたバイオコロイドを除く有機コロイド）．バイオコロイド；全コロイドの分配係数から無機コロイドの分配係数を減算したもの．(a) 収着試験1日後、(b) 収着試験3日後、(c) 収着試験7日後.

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。

これまでに幌延URLを活用して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。その結果、優占種として検出された微生物は、バイオフィルムを形成する種として知られる*Altiarchaeales*に近縁な種（SM1）であり、これらの微生物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。しかしながら、3日間の調査の後半において、微生物数が増加する傾向が確認されたため、環境中におけるバイオフィルムを含む微生物分布の均一性及び再現性を確認し、地下環境におけるバイオフィルムの形成領域についての情報を取得するために、平成31年度は、同孔にて調査期間を9日及び22日間に延長してバイオフィルム特性調査を実施した。

図3.4-12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1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、式を用いて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。排水量比の算出にあたり、ボーリング孔採水区間の容積は、117.75 Lとした。バイオフィルム調査は平成30年度から合計3回実施したが、いずれの調査においてもバルブを開放した後の地下水流量の変化は認められなかったことから、調査孔周辺の間隙水圧や水理状態が安定していること、及び調査の再現性が確認された。

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3.4-13に示す。バルブ開放直後から区間容積量の地下水を排出するまでの間は、微生物数が多く、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、短桿菌、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微生物が増殖しており、岩盤中の地下水に生息する微生物とは異なる生態系が形成されていることが推察された。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（表3.4-4）、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。平成30年度実施した調査では、バルブ開放から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。しかしながら、平成30年度の調査で、採水区間体積の3.8倍地下水を排水した際に観察された菌数の増加は、平成31年度の調査では観察することができなかった。排水過程での菌数の増加は、堆積岩岩盤内部にバイオフィルムが不均一に形成されている可能性を示唆するものと予想し、岩盤内部でのバイオフィルム形成の均一性と、菌数データの再現性を確認するために平成31年度より長期に渡り再調査を実施したが、予想していた結果を得ることはできなかった。平成31年度2回実施した調査結果から、採水区間容量以上を排水した後は、地下水中の全菌数は安定した値を示したことから、調査対象とした堆積岩地下環境の岩盤内部では、形成されているバイオフ

ィルム密度は比較的均一なものであることが推察された。

各採取試料中の微生物群集組成を明らかにするために、16S rRNA遺伝子を対象とした解析を実施した。微生物細胞の全DNAをExtrap Soil DNA Kit Plus ver.2（日鉄住金環境株式会社製)を用いて抽出し、微生物の16S rRNA遺伝子をターゲットとしたPCR増幅産物について、次世代シーケンス解析（MiSeq, Illumina社製）を実施した。解析には、次のプライマーを用いた。

V4-5 region primers:

V4-F (5'-AYTGGGYDTAAAGNG-3'), V4-R (5'-CCGTCAATTYYTTTRAGT-3')

得られた配列解析データについて、複数の解析ツールが統合されたQIIMEパイプラインを用いて、塩基配列のチェック、OTU (Operation Taxonomic Unit）の選定、代表配列の決定を行うとともに、各OTUの代表配列について16S rRNA遺伝子データベースに対する相同性検索を行い、系統分類を推定するとともに菌種構成比を算出した。解析結果から、採水区間容積分の地下水を排出するまでは*Altiarchaeales*に近縁な種（SM1）の検出割合が増加するが、その後は検出割合としてはやや減少することが示された（図3.4-14）。しかしながら、採水区間容積の3倍以上を排出した後もSM1が優占種として40～50%の割合で検出されていることから、SM1はバルブ閉鎖時に採水区間内に溜まっていた地下水中で増殖しただけでなく、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。地下水中から検出されたSM1以外の微生物種としては、未培養微生物であるJS1の他、*Actinobacteria*、*Bacteroidetes*、*Chloroflexi*、*Firmicutes*、*Planctomycetes*、*Proteobacteria*が存在しており、排水過程における微生物種組成の変化は、検出割合は多少異なるが、構成種の傾向は平成30年度の解析結果と近似していた。また、平成31年度の結果からも、採水区間容積分以上の地下水を排水させた後は、微生物種組成及びその検出割合はほぼ安定する傾向が確認されたことから、本結果は調査対象とするボーリング孔の近傍の堆積岩地下水中の微生物特性を反映できているものと考えられる。

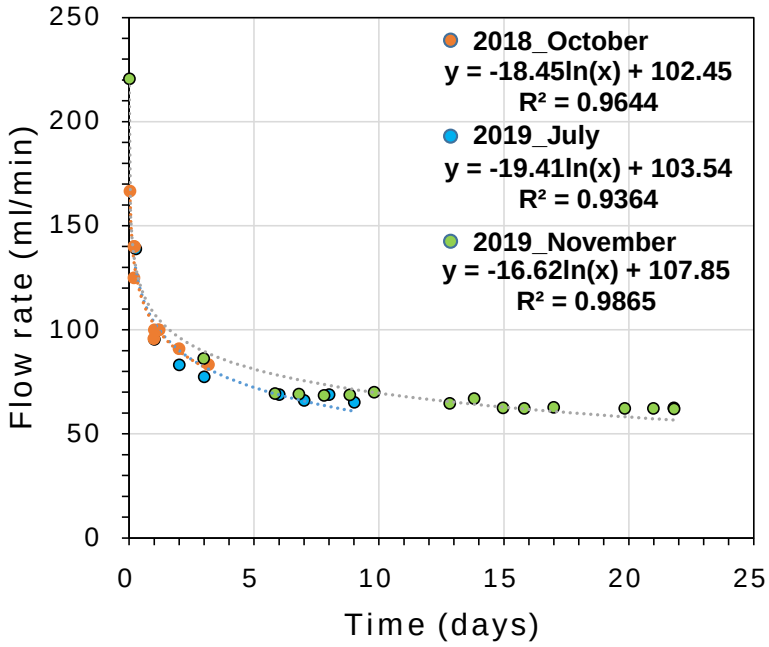


図3.4-12　バルブ開放後の地下水流量の変化

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

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)
2019/7/2 10:00	140	0.0	0.0	0.00	839296.9	5.92	215539.9
2019/7/2 13:09	140	3.2	27.7	0.23	7470000.0	6.87	439374.6
2019/7/2 16:15	140	6.3	51.8	0.44	1188656.3	6.08	149934.5
2019/7/3 10:00	140	24.0	174.1	1.48	394875.0	5.60	35468.7
2019/7/4 10:00	140	48.0	312.0	2.65	105341.5	5.02	34307.4
2019/7/5 10:00	140	72.0	435.5	3.70	91488.9	4.96	30756.1
2019/7/8 10:00	140	144.0	757.9	6.44	70708.3	4.85	29399.3
2019/7/9 10:07	140	168.1	854.6	7.26	81087.7	4.91	21862.8
2019/7/10 10:00	140	192.0	947.3	8.05	87398.4	4.94	27368.0
2019/7/11 10:11	140	216.2	1036.6	8.80	86020.8	4.93	6361.6
2019/11/5 14:50	140	0.0	0.0	0.00	1237500	6.09	353883.6
2019/11/8 14:15	140	71.4	450.3	3.82	109598.2	5.04	8438.9
2019/11/11 10:50	140	140.0	795.8	6.76	79921.9	4.90	24702.9
2019/11/12 9:44	140	162.9	902.3	7.66	72500.0	4.86	7098.6
2019/11/13 9:59	140	187.2	1010.0	8.58	70312.5	4.85	14811.7
2019/11/14 10:48	140	212.0	1118.9	9.50	71692.0	4.86	3053.7
2019/11/15 10:07	140	235.3	1216.5	10.33	72544.6	4.86	14610.1
2019/11/18 10:45	140	307.9	1512.2	12.84	72979.1	4.86	13988.0
2019/11/19 10:07	140	331.3	1601.6	13.60	63223.2	4.80	9096.5
2019/11/20 13:58	140	359.1	1708.3	14.51	63850.4	4.81	4826.0
2019/11/21 10:19	140	379.5	1783.2	15.14	66276.8	4.82	11161.2
2019/11/22 14:30	140	407.7	1886.3	16.02	76997.8	4.89	24313.1
2019/11/25 10:52	140	476.0	2132.3	18.11	54136.4	4.73	14851.6
2019/11/26 14:25	140	503.6	2225.8	18.90	61420.5	4.79	5508.4
2019/11/27 10:05	140	523.3	2294.1	19.48	59010.4	4.77	4228.4

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。

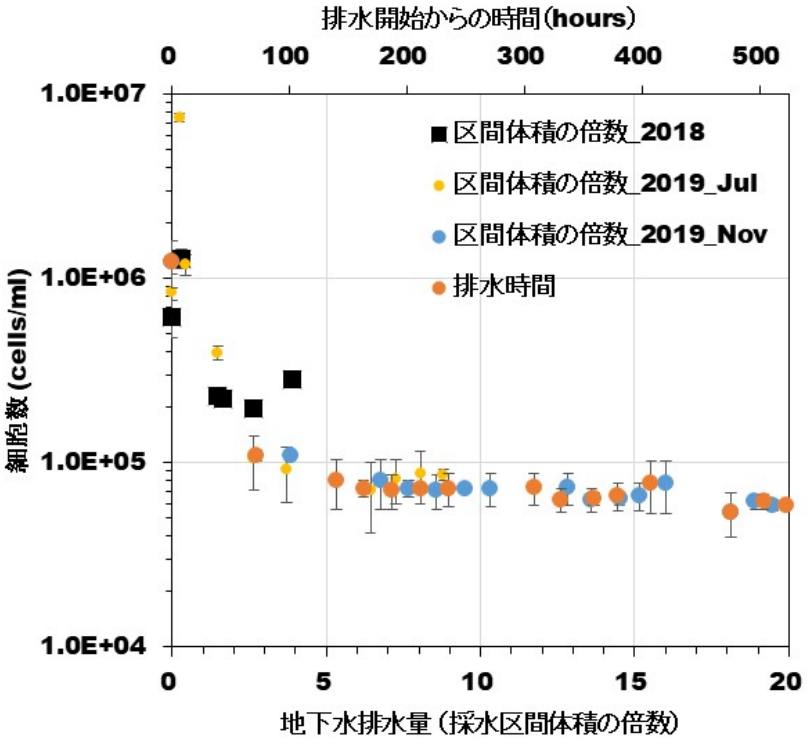


図3.4-13 地下水排水量に対する微生物数の変化

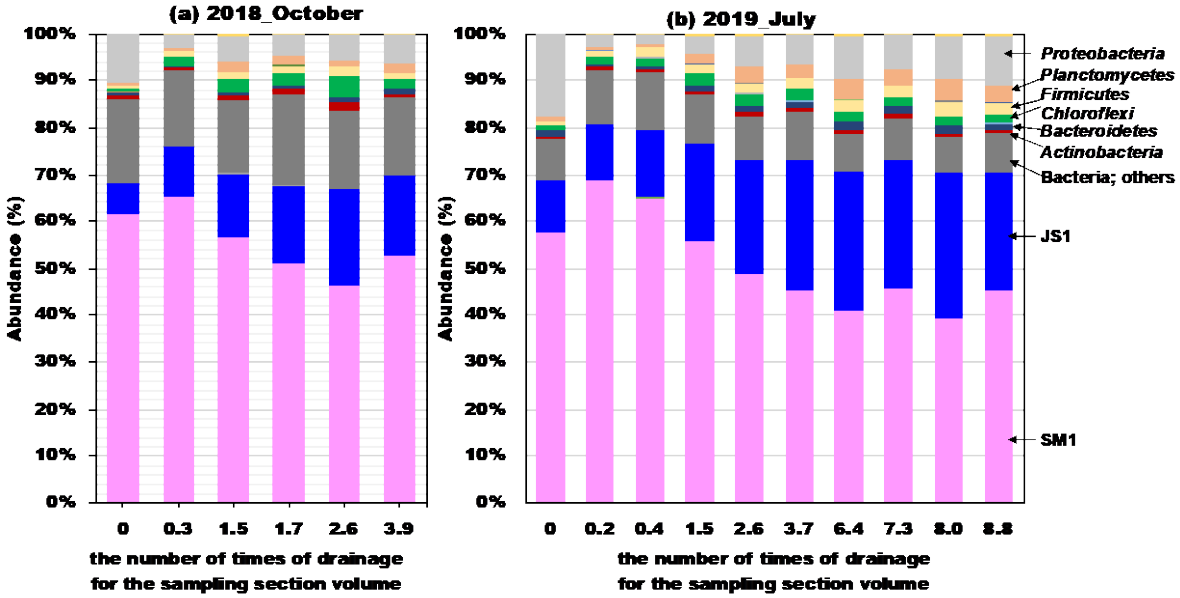


図3.4-14　16S rRNA遺伝子に基づくバルブ開放後の地下水中の微生物群集組成の変化

地下施設内に掘削された深度140 mから350 mまでの合計4ボーリング孔（08-E140-C01, 07-V140-M03, 09-V250-M02, 13-350-C01）を利用して、6区間から地下水を採取し、地下施設建設過程において16S rRNA遺伝子解析及びメタゲノム解析を実施している。平成31年度も継続して、孔径0.2 μmのメンブランフィルター（GVWP; Millipore）上に捕集した微生物細胞を対象として、微生物多様性及び代謝機能に関する情報を取得するための解析を実施した。メタゲノム解析については、捕集した微生物細胞の全DNAをExtrap Soil DNA Kit Plus ver.2（日鉄住金環境株式会社製)を用いて抽出し、抽出したDNAについてゲノムDNA断片化を行い、ビーズ精製により550 bpインサートを基準としてサイズ選択した後、Agilent 2100BioAnalyzerにより濃度測定・品質を確認することでシーケンス用ライブラリ調製を行った。シーケンス解析は、Paired-End法にて150 bpを対象として実施した。Paired-End解析のゲノム配列データセットについて、checked and quality trimmed, idba ud (Peng)を用いてゲノム配列の再構築（アセンブル）を行った。meta-Prodigalを用いて1000bp以上のコンティグについてオープンリーティングフレーム（ORF; 推定遺伝子領域。塩基配列のうち、タンパク質として機能していると予測される領域のこと）を推定した。カリフォルニア大学バークレー校のBanfield研究室で構築されたアノテーションパイプラインを用いて、ORFsの予察的な機能の推定やrRNA, tRNAの推定を行った。その後、ゲノム配列データベース中からそれぞれのORFについて最も相同性の高いものを同定した（Wrighton et al., 2012）。

幌延地下環境におけるSM1の空間分布を明らかにするために、rpS3遺伝子に着目し、これまでに実施したメタゲノム解析データを対象として、各採水区間における種組成の経時変化について解析を実施した。その結果、SM1が優占種として分布しているのは、07-V140-M03孔、08-E140-C01孔、09-V250-M02孔、13-350-C01孔で、掘削坑道壁面に採水区間が近い試料のみであることが明らかになった（図3.4-15）。SM1が検出されている採水区間は、坑道壁面から約20 mの領域に限定されることが示されたことから、本調査環境で検出されたバイオフィルム形成種であるSM1は、坑道壁面近傍の約20 mの範囲に優占して分布することが示唆された。また、一部の領域（09-V250-M02孔）では時間の経過とともに、出現率が減少することが示された（図3.4-15）。

堆積岩地下環境に存在する微生物が有するバイオフィルム形成能力のポテンシャルを推定するために、これまでのメタゲノム解析データについて、rpS3遺伝子の他に、バイオフィルムの細胞外マトリクス成分を構成するリポ多糖（LPS; lipopolysaccharide)、多糖（pda; polysaccharide deacetylase)、グルコシルトランスフェラーゼ（gtf; glycosyl transferase)等の生成に必要な遺伝子の有無について解析を行った。その結果、これらの遺伝子は調査を行った採水区間においてほぼ均一に分布していることが明らかになった（図3.4-16）。このことは、微生物が広域的にバイオフィルム形成の潜在能力を有していることを示唆している。しかしながら、これまでに実施した微生物の遺伝子解析、菌計数、顕微鏡観察の結果から、地下試料中で検出されるバイオフィルムはSM1でほぼ占められており、その他の種については、バイオフィルム形成の潜在能力を有しているにも関わらず、SM1のように観察できるレベルでバイオフィルムを形成していないことが推定された。また、SM1によるバイオフィルムが顕著に形成される領域は、坑道近傍のニアフィールド領域に限定され、坑道掘削から時間が経過するにつれて減退する可能性が示唆された。坑道壁面近傍から離れた領域にてEPSが顕微鏡で観察できるレベルでの顕著なバイオフィルムの形成が少ない要因として、バイオフィルムの形成には付着するための基盤に加えて、炭素源やエネルギー源が供給されるための水流が必要になるが、地下環境にはバイオフィルムが高密度で形成されるための栄養条件や水流が十分でないことが考えられる。バイオフィルム形成（微生物増殖）に必要な炭素源としては、無機炭素と有機炭素が挙げられ、一般的には様々な種類の低分子・高分子有機物（アミノ酸、タンパク質、脂質等を含む）を利用する微生物が大部分を占めるが、地下環境は微生物が利用可能な有機物量が欠乏した状態である。幌延地下環境における地下水中の全有機炭素濃度は、約15～30 mg/Lであることが調査結果から明らかにされているが（例えば、笹本ほか，2014）、そのうち60.9~67.0%は微生物にとって難分解性有機物として知られるフミン酸やフルボ酸などの腐植物質であると報告されている（Terashima et al., 2020）。微生物に利用されやすい酢酸やギ酸などの低分子有機物は、地下水中には極めて低濃度でしか存在しておらず、幌延地下環境ではメタン生成菌などとの競合により速やかに消費されており（玉村ほか，2012；玉村ほか，2014）、利用可能な形態の有機炭素は量的に非常に限られていると推察される。一方で、幌延URLにて検出されているバイオフィルムの主な形成種であるSM1は、炭素源として無機炭素であるCO_2あるいは炭酸イオンを利用する能力を有することがゲノム解析の予察的な結果から推定されており、SM1が優占的にバイオフィルムを形成しているのは、幌延の地下環境に豊富に存在するCO_2を炭素源として利用することができるためであると考えられる。

上述した平成31年度及びこれまでのバイオフィルム調査やメタゲノム解析、顕微鏡観察、菌計数等の分析結果から、バイオフィルムは、地下環境において水理・地球化学環境の擾乱が生じる処分施設の建設・操業時において、地下水が湧水する坑道壁面や坑道壁面近傍の数10 mの領域（幌延URLの事例では、約20 mの領域）で形成されるが、利用可能な有機炭素量が限られているために形成密度は小規模であり、地下水流量の変化に応じて次第に減退していく可能性が示唆された（図3.4-17）。

バイオフィルムの核種移行影響の観点で考察すると、平成30年度の研究成果から、バイオフィルムを大量に含む分画が重金属元素を濃集していることが示された。一方で、これまでのゲノム解析データの予察解析結果から、幌延の原位置地下環境で形成されているバイオフィルムの主要構成種であるSM1は、炭酸固定反応によりエネルギーを獲得しており、電子伝達系に関与する遺伝子は非常に限られていることから、代謝反応により核種を含む金属元素との相互作用を行う可能性は高くないと考えられる。したがって、バイオフィルムへの重金属元素の濃集は、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。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が生成される（図3.4-18）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。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 & 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_3^+等の陽イオン、ウロン酸やタンパク質の中にある-COO^-や-HPO_4^-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）。今後は、微生物代謝との関連性をより詳細に明らかにするために、ゲノムデータの詳細な解析を進めるとともに、主要な微生物の代謝機能や官能基等の情報を取得することにより、バイオフィルムへの核種の収着・取込メカニズムを明らかにすることで、より信頼性の高い微生物影響評価を構築していく計画である。

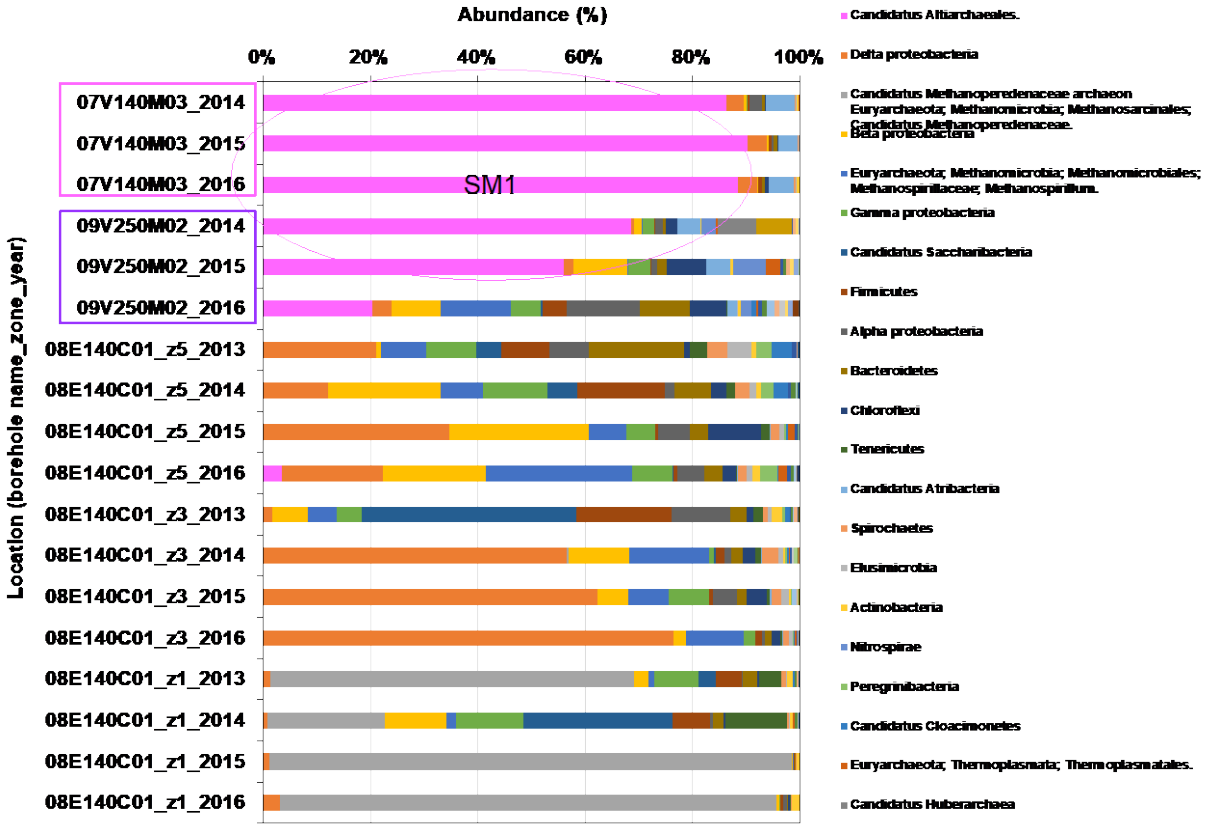
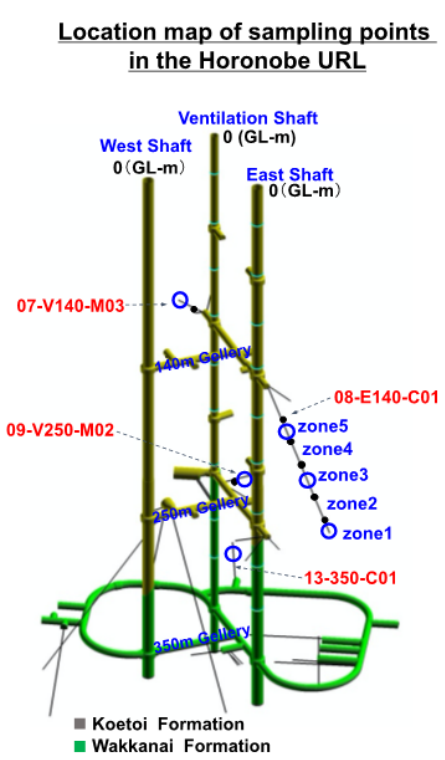


図3.4-15　rpS3遺伝子に基づくバイオフィルム形成種SM1の空間分布と経時変化



location	Distance from the gallery wall (m)
07-V140-M03_zone1	4 - 20
08-E140-C01_zone1	57.00 – 62.93
08-E140-C01_zone3	31.21 – 46.03
08-E140-C01_zone5	16.25 – 25.17
09-V250-M02_zone1	4 - 20
13-350-C01	4-20

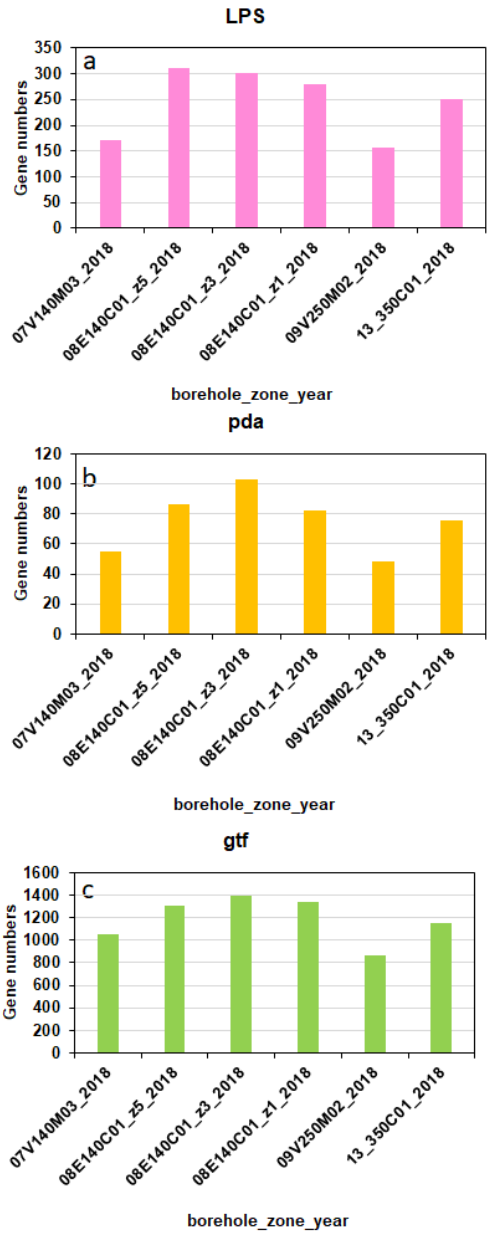


図3.4-16　バイオフィルムのEPSの構成要素である多糖等の生成に関わる遺伝子の空間分布．横軸はボーリング孔名_採水区間_採水年を示す．a リポ多糖 (LPS; lipopolysaccharide)、b 多糖 (pda; polysaccharide deacetylase)、c グルコシルトランスフェラーゼ (gtf; glycosyl transferase) 各酵素等をコードする遺伝子の数.

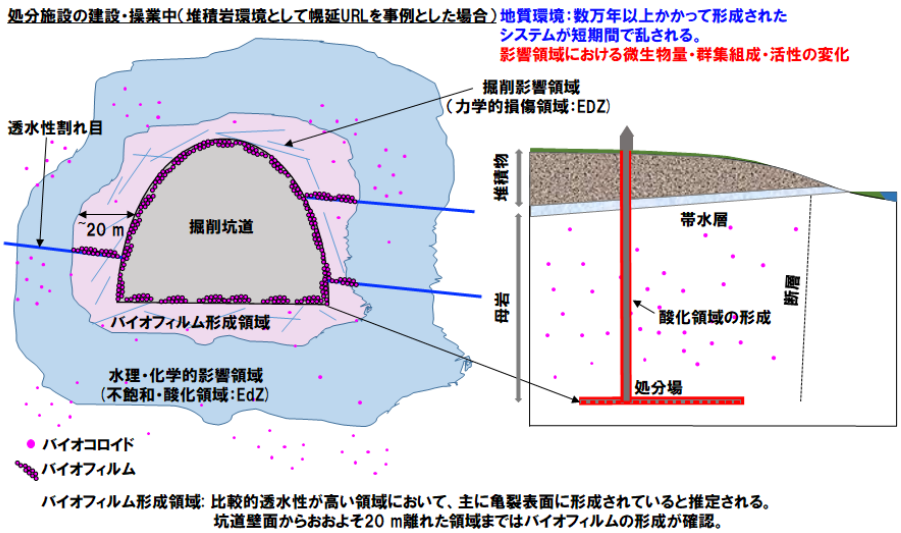


図3.4-17　ニアフィールド領域におけるバイオフィルム形成領域の概念図

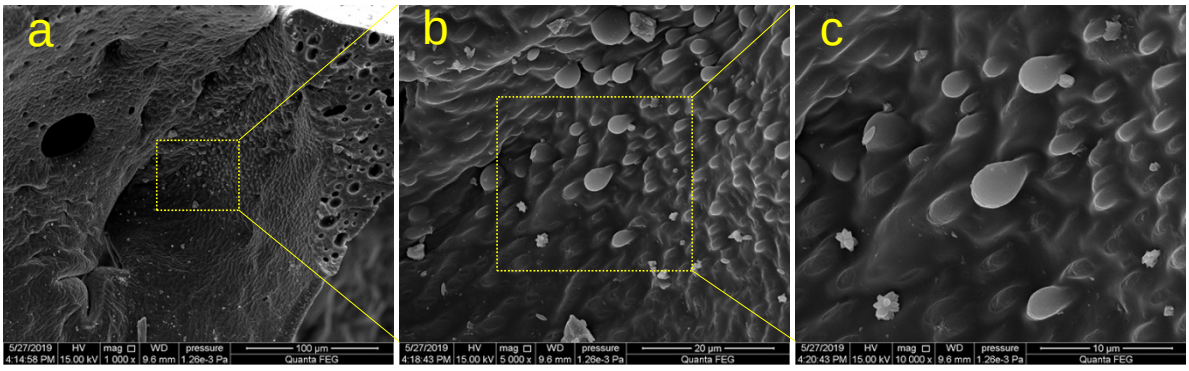


図3.4-18　滅菌済スポンジを用いて回収した地下水中の微生物を含む粒子のSEM観察像．a. スポンジ表面に多数の粒子が付着している様子．b. aの拡大図．SM1様の球状の形態をした細胞がスポンジを基盤としてバイオフィルムを形成し、成熟している様子．コロイド状の粒子がバイオフィルムにトラップされている．c. bの拡大図.

(3) 2ヶ年の成果と今後の課題

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たところ、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。抽出された重要度の高い研究課題を踏まえて、幌延URLの深度140 m及び250 mのボーリング孔から採取した地下水に対し、全コロイド（無機/有機）のうち、バイオコロイドへの希土類元素の収着特性データを取得した。バイオフィルムの核種移行影響評価に関しては、幌延の地下環境を対象として、バイオフィルムの分布とその形成の潜在能力、収着特性について評価手法を提示した。また、幌延の地下環境において形成されているバイオフィルムには、重金属元素が濃集することが確認されたが、バイオフィルムへの元素の濃集はバイオフィルム構成微生物種ではなく、主に細胞外高分子物質の量に起因する可能性が示唆された。バイオフィルムを形成しているSM1は、坑道壁面近傍に優占して分布することが示されるとともに、一部の領域では時間の経過とともに出現率が減少することが示されたことから、SM1によるバイオフィルム形成が顕著にみられる領域は坑道近傍のニアフィールド領域に限定され、坑道掘削から時間が経過するにつれて減退する可能性が示唆された。

今後は、核種移行に及ぼす微生物影響評価モデルの構築とパラメータ整備を目的として、バイオコロイドへの希土類元素の収着分配係数について、再現性確認試験によりデータの信頼性を向上させるとともに、様々な地下水水質を対象とした収着挙動評価に加えて希土類元素以外の重要核種についても評価を行い、収着データを拡充する必要がある。また、地下に生息する微生物生態系や施設建設過程におけるバイオフィルムを含めた微生物特性の変化の基礎情報に関する知見の拡充により、より信頼性の高い微生物影響評価につなげることができる。さらに、主要な微生物の代謝機能や官能基等の情報を取得することにより、バイオコロイド及びバイオフィルムへの核種の収着・取込メカニズムの解明を目指す。

参考文献

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.

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.

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.

Aromaa, H., Voutilainen, M., Ikonen, J., Yli-Kaila M., Poteri, A. and Siitari-Kauppi, M., Through diffusion experiments to study the diffusion and sorption of HTO, ^{36}Cl, ^{133}Ba and ^{134}Cs in crystalline rock, Journal of Contaminant Hydrology, Vol.222, pp.101-111, 2019.

Artinger, R., Buckau, G., Fritz, P., Wolf, M. and Kim, J.I., Characterization of groundwater humic substances: influence of sedimentary organic carbon, Applied Geochemistry Vol. 15, pp.97-116, 2000.

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 ^{241}Am migration in a sandy aquifer: column experiments with Gorleben groundwater/sediment systems, Journal of Contaminant Hydrology, Vol. 35, pp.261-275, 1998.

Aurelio, G., Fernández-Martínez, A., Cuello, G. J., Román-Ross, G., Alliot, I. and Charlet, L., Structural study of selenium(IV) substitutions in calcite, Chemical Geology, Vol. 270, pp.249-256, 2010.

Bardelli, F., Benvenuti, M., Costagliola, P., Di Benedetto, F., Lattanzi, P., Meneghini, C., Romanelli, M. and Valenzano, L., Arsenic uptake by natural calcite: An XAS study, Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol. 75, pp.3011-3023, 2011.

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.

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.

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, 2005.

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.

Bradbury, M.H. and Baeyens, B., Predictive Sorption Modelling of Ni(II), Co(II), Eu(III), Th(IV) and U(VI) on MX-80 Bentonite and Opalinus Clay: A “Bottom-Up” Approach. Appl. Clay Sci. 52, pp.27-33, 2011.

Brown, P.L., Curti, E. and Grambow, B., Chemical Thermodynamics of Zirconium. Chemical Thermodynamics, Vol. 8. Elsevier B. V., Amsterdam, 2005.

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.

Chakraborty, S., Bardelli, F. and Charlet, L., Reactivities of Fe(II) on calcite: Selenium reduction, Environmental Science and Technology, Vol. 44, pp.1288-1294, 2010.

Cheng, J., Sulpizi, M. and Sprik, M., Redox potentials and pKa for benzoquinone from density functional theory based molecular dynamics, J. Chem. Phys., 131, 154504, 2009.

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.

Costanzo, F., Sulpizi, M., Della Valle, R. G. and Sprik, M., The oxidation of tyrosine and tryptophan studied by a molecular dynamics normal hydrogen electrode, J. Chem. Phys., 134, 244508, 2011.

Cowan, C. E., Zachara, J. M. and Resch, C. T., Solution ion effects on the surface exchange of selenite on calcite, Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol. 54, pp.2223-2234, 1990.

Curti, E., Coprecipitation of radionuclides with calcite: estimation of partition coefficients based on a review of laboratory investigations and geochemical data. Appl. Geochem., 14, pp.433-445, 1999.

Diener, A. and Neuman, T., Synthesis and incorporation of selenide in pyrite and mackinawite, Radiochimica Acta, Vol. 99, pp.791-798, 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.

Elzinga, E. J., Rouff, A. A., and Reeder, R. J., The long-term fate of Cu2+, Zn2+, and Pb2+ adsorption complexes at the calcite surface: An X-ray absorption spectroscopy study, Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol. 70, pp.2715-2725, 2006.

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.

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.

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.

GoldSim Technology Group, 2014. GoldSim Version 11.1.

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.

Heberling, F., Scheinost, A. C. and Bosbach, D., Formation of a ternary neptunyl (V) biscarbonato inner-sphere sorption complex inhibits calcite growth rate, Journal of Contaminant Hydrology, Vol. 124, pp.50-56, 2011.

Hendry, M. J., Biswas, A., Essilfie-Dughan, J., Chen, N., Day, S. J. and Barbour, S. L., Reservoirs of Selenium in Coal Waste Rock: Elk Valley, British Columbia, Canada. Environmental Science and Technology, Vol. 49, pp.8228-8236, 2015.

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.

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., Ohnuki, T., Isobe, H., Yanase, N., Sekine, K., Yoshida, H., and Yusa, Y., Hydrothermal redistribution of rare earth elements in Toki granitic rock, central Japan, Journal of Contaminant Hydrology, Vol. 35, pp.191-199, 1998.

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.

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.

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.

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.

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.

Kato, H., Nakazawa, T., Ueta, S. and Yato, T., Measurements of Effective Diffusivities of Tritiated Water in Sand-mixed Bentonite, In Proceedings of the 7th International Conference on Radioactive Waste Management and Environmental Remediation,

Nagoya, Japan, 1999.
Kato, H., Muroi, M., Yamada, N., Ishida, H. and Sato, H., Estimation of effective diffusivity in compacted bentonite, Mat. Res. Soc. Symp. Proc., 353, pp.277-284, 1995.
Kersting, A.B., Efurd, D.W., Finnegan, D.L., Rokop, D.J., Smith, D.K. and Thompson, J.L. Migration of plutonium in groundwater at the Nevada Test Site: Nature 397, 56-59, 1999.
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.
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.
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 Mäder 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.
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.
Loeb, A. L., Wiersema, P. H., Overbeek, J.T.G., The electrical double layer around a spherical colloidal particle, M.I.T. Press, Cambridge, Mass., 1961.
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.
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.

Marcus, Y., Ion properties, Marcel Dekker, Inc., New York, 1997.

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., 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.

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.

Martin, A., Fukatsu, Y., Tachi, Y., Ishida, K., Muuri, E., Siitari-Kauppi, M., Havlova, V. and Vokal, A., AN OVERVIEW AND KEY RESULTS FROM THE LONG TERM IN SITU DIFFUSION PROJECT (LTD) AT THE GRIMSEL TEST SITE, SWITZERLAND, 17th International Conference on the Chemistry and Migration Behavior of Actinides and Fission Products in the Geosphere, 2019.

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.

Mazurek, M., Alt-Epping, P., Bath, A., Gimmi, T. and Waber, H.N., Natural tracer profiles across argillaceous formations: The CLAYTRAC project. OECD/NEA Report 6253, OECD Nuclear Energy Agency, Paris, France, 2009.

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.

Miller, W.M., Alexander, W.R., Chapman, N.A., McKinley, I.G. and Smellie, J.A.T. :Geological Disposal of Radioactive Wastes and Natural Analogues. Waste Management Series 2,

Pergamon, Amsterdam, 2000.
Missana, T., García-Gutiérrez, M., Mingarro, M., and Alonso, U., Comparison between cesium and sodium retention on calcium silicate hydrate (C-S-H) phases, Applied Geochemistry, Vol. 98, pp.36-44, 2018.
Missana, T., García-Gutiérrez, M., Mingarro, M., and Alonso, U., Selenite Retention and Cation Coadsorption Effects under Alkaline Conditions Generated by Cementitious Materials: The Case of C-S-H Phases, ACS Omega Vol. 4, pp.13418-13425, 2019.
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.
村上拓馬, 笹本 広, 水野 崇, 希土類元素・トリウムおよびウランの 堆積岩中における保持状態 : 北海道幌延地域における調査例, 地球科学, 50 巻, 299-317, 2016.
Nachbaur, L., Nkinamubanzi, P. C., Nonat, A., and Mutin, J. C., Electrokinetic properties which control the coagulation of silicate cement suspensions during early age hydration, Journal of Colloid and Interface Science, Vol. 202, pp.261-268, 1998.
Naveau A., Monteil-Rivera F., Guillon E. and Dumonceau J., Interactions of Aqueous Selenium (−II) and (IV) with Metallic Sulfide Surfaces. Environ. Sci. Technol. Vol. 41, pp.5376 - 5382, 2007.
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, 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 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.
日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 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 平成31年3月, 2019.
Ochs, M., Pointeau, I., and Giffaut, E., Caesium sorption by hydrated cement as a function of degradation state: Experiments and modelling, Waste Management, Vol. 26, 725-732, 2006.
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 ^{133}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.

大貫敏彦，地層処分における微生物の影響－研究の現状と今後の課題－，原子力バックエンド研究，Vol.9,pp.35-42, 2002.

O'Toole, G., Kaplan, H.B. and Kolter, R., Biofilm formation as microbial development, Annual Review of Microbiology, Vol. 54, pp.49-79, 2000.

Parkhurst, D.L. and Appelo, C.A.J., User's guide to PHREEQC (ver. 2) - A computer program for speciation, batch-reaction, one-dimensional transport, and inverse geochemical calculations, U.S. Geological Survey, Water-resources investigations report, pp.99-4259, 1999.

Pearson, F.J., Arcos, D., Bath, A., Boisson, J.-Y., Fernandez, A.M., Gabler, H.-E., Gaucher, E., Gautschi, A., Griffault, L., Hernan, P. and Waber, H.N., Mont Terri Project-Geochemistry of Water in the Opalinus Clay Formation at the Mont Terri Rock Laboratory, Reports of the Federal Office for Water and Geology, Geology Series, No.5, 2003.

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.

Penrose, W.R., Polzer, W.L., Essington, E.H., Nelson, D.M. and Orlandini, K.A. Mobility of plutonium and americium through a shallow aquifer in a semiarid region. Environ. Sci. Tech. 24, pp.228-234, 1990.

Pointeau, I., Reiller, P., Macé, N., Landesman, C., and Coreau, N., Measurement and modeling of the surface potential evolution of hydrated cement pastes as a function of degradation, Journal of Colloid and Interface Science, Vol. 300, pp.33-44, 2006.

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.

Quigley, M.S., Santschi, P.H., Hung, C.C., Guo, L.D. and Honeyman, B.D., Importance of acid polysaccharides for ^{234}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)

Rai, D., Kitamura, A., Altmaier, M., Rosso, K.M., Sasaki, T. and Kobayashi, T., A thermodynamic model for ZrO_2(am) solubility at 25 ℃ in the Ca^{2+}－Na^{+}－H^{+}－Cl^{-}－OH^{-}－H_2O system: A critical review, Journal of Solution Chemistry, Vol. 47, pp.855-891, 2018.

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., 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.

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.

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.

笹本広，山本信幸，宮川和也，水野崇，幌延深地層研究計画で得られた地下水の水質データ（2011年度～2013年度），JAEA-Data/Code 2014-033, 2014.

Savage D., A review of analogues of alkaline alteration with regard to long-term barrier performance, Mineralogical Magazine, 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.

Smellie, J., and Karlsson, S., A reappraisal of some Cigar Lake issues of importance to performance assessment, SKB Technical Report, TR-96-08, p.101, 1996.

Sprik, M., Coordination numbers as reaction coordinates in constrained molecular dynamics, Faraday Discuss., 110, pp.437-445, 1998.

Sprik, M. and Ciccotti, G., Free energy from constrained molecular dynamics, J. Chem. Phys., 109, pp.7737-7744, 1998.

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.

Tachi, Y., Ebina, T., Takeda, C., Saito, T., Takahashi, H., Ohuchi, Y. and Martin, A.J., Matrix diffusion and sorption of Cs^+, Na^+, I^- and HTO in granodiorite: 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. and Yotsuji, K., Diffusion and sorption of Cs^+, Na^+, I^- and HTO in compacted sodium

montmorillonite as a function of porewater salinity: Integrated sorption and diffusion model, Geochim. Cosmochim. Acta, 132, pp.75-93, 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^+, I^- and HTO in samples of the argillaceous Wakkanai Formation from the Horonobe URL, Japan: Clay-based 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., 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.

土橋竜太, 鹿園直建, 東濃ウラン鉱床周辺堆積岩中炭酸塩鉱物の希土類元素に関する地球化学的研究 -高レベル放射性廃棄物地層処分に関するナチュラルアナログ研究の例-, 地球化学, 42巻, pp.79-98, 2008.

玉村修司，遠藤亮，清水了，岩月輝希，天野由記，大味泰，五十嵐敏文，北海道幌延地区における地下水中の有機酸のメタン生成微生物の基質としての可能性，J. MMIJ，128，pp.570-575，2012.

玉村修司，赤塚真依子，井川怜欧，越谷賢，清水了，上野晃生，大味泰，金子勝比古，五十嵐敏文，丸井敦尚，北海道北西部の声問層～沖積層に胚胎する溶存メタンの起源，地球化学，48，pp.39-50, 2014.

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.

Terashima, M., Endo, T. and Miyakawa, K., Determination of humic substances in deep groundwater from sedimentary formations by the carbon concentration-based DAX-8 resin isolation technique, J. Nuclear Science and Technology, 57, pp.380-387, 2020.

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.

Tits, J., Wieland, E., Müller, C. J., Landesman, C., and Bradbury, M. H., Strontium binding by calcium silicate hydrates, Journal of Colloid and Interface Science, Vol. 300, pp.78-87, 2006.

Tolu, J., Thiry, Y., Bueno, M., Jolivet, C., Potin-Gautier, M., and Le Hécho, I., Distribution and speciation of ambient selenium in contrasted soils, from mineral to organic rich, Science of the Total Environment, Vol. 479–480, pp.93–101, 2014.

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.

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.

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.

Wold, S. and Eriksen, T., Diffusion of humic colloids in compacted bentonite, Physics and Chemistry of the Earth, Vol. 32, pp.477-484, 2007.

Wrighton, K.C., Thomas, B.C., Sharon, I., Miller, C.S., Castelle, C.J., VerBerkmoes, N.C., Wilkins, M.J., Hettich, R.L., Lipton, M.S., Williams, K.H., Long, P.E. and Banfield, J.E., Fermentation, hydrogen, and sulfur metabolism in multiple uncultivated bacterial phyla. Science, 337, pp.1661-1665, 2012.

Yoshida, H., Relation between U-series nuclide migration and microstructural properties of sedimentary rocks, Applied Geochemistry, Vol. 9, pp.479-490, 1994.

Zhang, C., Liu, X., Lu, X., He, M., Meijer, E. J. and Wang, R., Surface complexation of heavy metal cations on clay edges: insights from first principles molecular dynamics simulation of Ni(II), Geochim. Cosmocim. Acta, 203, pp.54-68, 2017.

Zhang, C., Liu, X., Lu, X., Tinnacher, R. M. and Tournassat, C., Mechanistic Understanding of Uranyl Ion Complexation on Montmorillonite Edges: A Combined First-Principles Molecular Dynamics–Surface Complexation Modeling Approach, Environ. Sci. Technol., 52, pp.8501-8509, 2018.

Zhang, C., Liu, X., Lu, X., Meijer, E. J., Wang, K., He, M. and Wang, R., Cadmium(II) complexes adsorbed on clay edge surfaces: insight from first principles molecular dynamics simulation, Clays. Clay Miner., 64, pp.337-347, 2016.

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 か年の計画

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 か年の計画

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（以下、「マルチフィジックス性」という）、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（以下、「マルチスケール性」という）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ように先行事業「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）で開発されたニアフィールド複合現象解析システムを最大限活用して、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－物質輸送－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。

そこで平成 30 年度は、複数のプロセスを複合的に考慮する必要のある複合現象で、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、その現象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すると共に、こ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した。このプロトタイプによる試解析の結果、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、コンクリート支保のセメント影響を受けた地下水によって緩衝材の変質が不均質に進展していく様子などが確認できた。しかしながら、構築したプロトタイプを用いて、バリア材料に期待している安全機能の維持あるいは劣化・喪失に至る可能性のある現象が発現する条件を定量的に分析し、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することは今後の課題とされた。

そこで平成 31 年度は、平成 30 年度に構築され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を活用して、バリア材料に期待している機能の維持／喪失に至るプロセスが発現する条件を定量的に分析することを目的とする感度解析を行った。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機能に影響を及ぼし得る複数の状態変遷のパターンなどに着目して、この状態に至る条件などを定量的に評価するための感度解析を行った。そして、このような条件の分析などを通じて、ニアフィールドの複合的なふるまいを評価するためのシステム開発に向けた課題を抽出した。また、平成 30 年度に抽出されたバリア構成要素の機能や核種移行挙動への影響が大きいと考えられた現象のうち、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した。本節ではこの検討の成果を示す。

4.2.2 実施内容

(1) 解析で対象とする状態変遷のパターンと解析ケースの設定

平成 30 年度に実施された、緩衝材の機能に影響を及ぼす可能性がある状態の変化に関する現象間の相関関係のインフルエンスダイアグラムによる整理結果（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019）や、緩衝材の機能喪失に至る状態変遷のパターンのストーリーボードなどによる整理結果（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019）から、ニアフィールド複合現象評価システムのプロトタイプによる水理、化学ー物質輸送及び力学の連成による感度解析で対象とする緩衝材の状態変遷のパターンを選定した。緩衝材の機能が喪失される場合の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を図 4.2-1 に示す。図 4.2-1 に示した現象のうち、コンクリート支保との相互作用については、コンクリート支保から緩衝材へセメントの溶出成分が供給されることによるモンモリロナイトの溶解や二次鉱物の沈殿などの化学的現象とそれによる地下水の流路の変化(緩衝材での移流の発生など)及び未変質の緩衝材の膨潤による密度の再配分などの力学的現象を考慮するものとした。また、オーバーパックとの相互作用については、オーバーパックの腐食により生じた Fe(Ⅱ)イオン及び OH^-イオンが緩衝材に移行してモンモリロナイトの溶解や鉄ケイ酸塩鉱物などの二次鉱物が沈殿する化学的現象と、境界において鉄腐食生成物が形成され、膨張による応力が緩衝材に載荷されて圧密される力学的現象を考慮するものとした。

設定した解析ケースを表 4.2-1 に示す。コンクリート支保と緩衝材との相互作用については、ひび割れなどを通じて緩衝材へ地下水が供給されることで、上記に示した変質などの化学的現象と力学的現象を考慮するものとした。また、オーバーパックと緩衝材との相互作用については、オーバーパックの腐食生成物の腐食膨張によって緩衝材が圧密される影響を考慮しない場合と考慮する場合を分けて異なる解析ケースとして設定した。

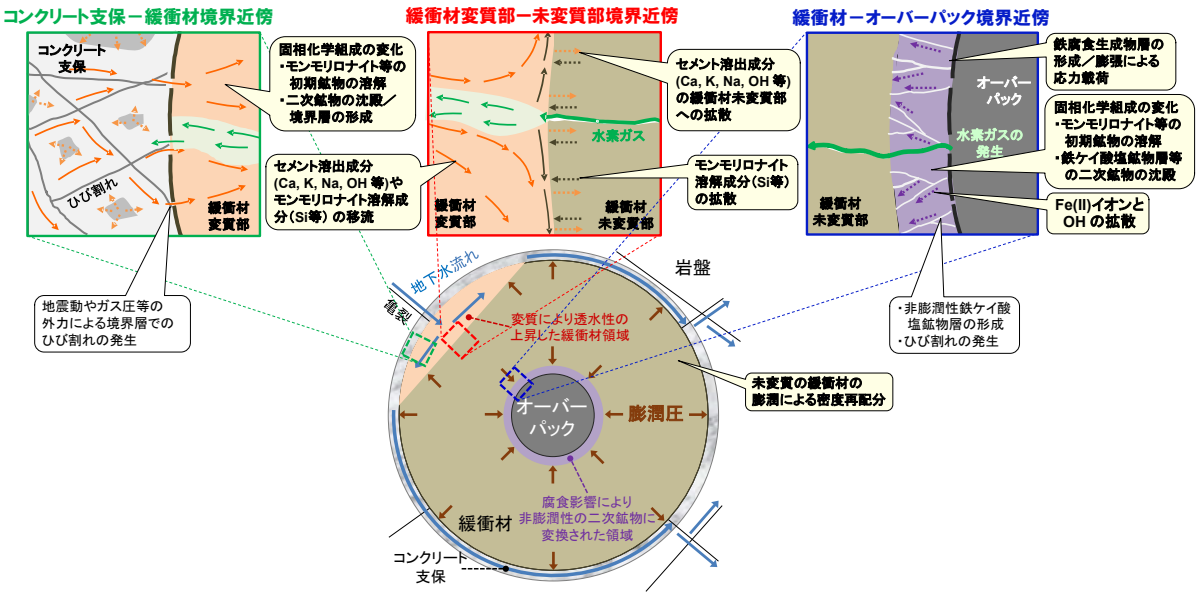


図 4.2-1　緩衝材の状態変遷のパターンに関するストーリーボードによる整理結果
（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター(2019)に基づき作成。
吹き出し内に太字で書かれたものは解析で対象とした現象を示す。）

表 4.2-1　水理、化学－物質輸送及び力学の連成解析で対象とする解析ケース

解析ケース	コンクリート支保と緩衝材の境界	オーバーパックと緩衝材の境界
緩衝材とオーバーパックとの境界では鉄との化学的相互作用のみを考慮するケース	コンクリート支保のひび割れを通じて地下水が供給されることで緩衝材が変質する化学的影響と未変質の緩衝材の膨潤による力学的影響を考慮	鉄イオンとの反応によって緩衝材が変質する化学的影響のみを考慮
緩衝材とオーバーパックとの境界では鉄との化学的相互作用と力学的相互作用を考慮するケース		鉄の腐食膨張によって緩衝材が圧密される力学的影響と、鉄イオンとの反応によって緩衝材が変質する化学的影響を考慮

(2) 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改良

本項(1)で設定した緩衝材の状態変遷を対象とした解析を行うために、平成 30 年度に開発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改良を行った。プロトタイプによる連成解析におけるモデル間の連携の構造を図 4.2-2 に、解析ツール間で受け渡されるパラメータの種類を表 4.2-2 にそれぞれ示す。この評価システムにおいては、先行事業「処分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（OpenMI Association, 2015）が活用されている（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019)。

表 4.2-2 に示されている解析コード間のインタフェイスのうち、No.3 については、平成 30 年度は FEMWATER（Yeh, 1987；Lin et al., 1997）で行っていた水理解析を汎用解析コードである QPAC (Quintessa Ltd., 2013)で行うように変更したことに伴い、同一の解析コード間で水理解析と化学－物質輸送解析を行うことになったことから、インタフェイスとしては除外した。No.5 についても、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）で計算された密度変化を考慮したモンモリロナイトの間隙比などを用いて QPAC 内で計算する改良を行ったため、インタフェイスとしては除外した。また、平成 31 年度に実施した感度解析においては、本項(1)で示したようにオーバーパックの鉄の腐食膨張に伴う緩衝材の圧密などの力学現象の結果を化学－物質輸送解析に受け渡す必要があることから、平成 30 年度においては開発の対象外とされていた No.2 及び No.4 のインタフェイスの開発を新たに行った。水理、化学－物質輸送及び力学のそれぞれの解析モデルとインタフェイスの概要を以下に示す。

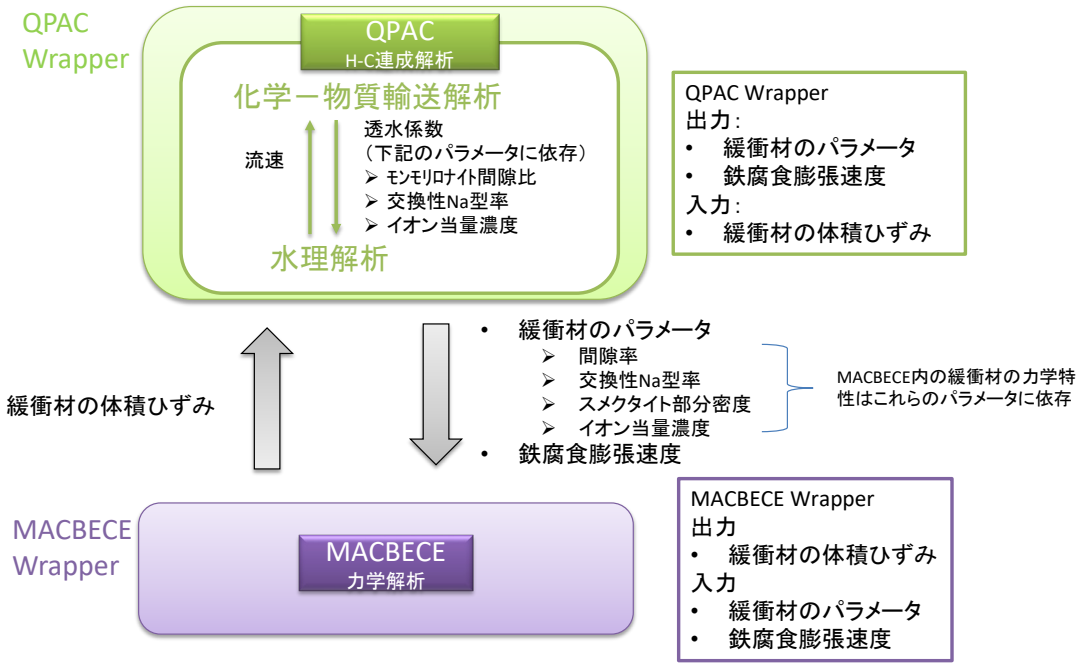


図 4.2-2　解析ツール間の連携の全体構造

（図中の「Wrapper」とは OpenMI におけるインタフェイスを意味する。）

表 4.2-2　解析ツール間で受け渡されるパラメータの種類

（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター(2019)を一部改訂）

No.	From	To	概要	交換パラメータ	平成 30 年度からの変更内容
1	QPAC	MACBECE	QPAC の出力に基づき MACBECE の各要素における力学特性に影響を与えるパラメータを指定	• 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	• 変更なし
2	QPAC	MACBECE	QPAC の出力（鉄腐食セル b) で生成した鉱物の体積膨張速度）に応じて鉄の腐食膨張速度を指定	• 鉄腐食膨張速度	• 平成31年度に新たに開発a)
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 の解析体系内の流量	• 水理解析コードをFEMWATERからQPACに変更したことに伴い削除
4	MACBECE	QPAC	MACBECE の出力に応じて QPAC の隣接セル間距離を指定	• 緩衝材の体積ひずみ	• 平成31年度に新たに開発a)
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	• MACBECE で出力された透水係数（No.1 の化学変質の情報も含めた値）	• QPACで透水係数を計算する改良を行ったことに伴い削除

a) 平成 31 年度は、No.2 及び No.4 のインタフェイスを新たに実装した。
b) 本項(2)の 2)で後述する。

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、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。平成30年度のプロトタイプでは、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した。平成31年度は、水理解析コードについては、ニアフィールド岩盤と人工バリアにおける地下水流動のいずれについてもQPACで行うように改良を行い、同じ時空間メッシュを用いた同じ解析コードの中でパラメータをタイムステップごとに授受できるようにした。

コンクリート支保では、支保に含まれる鉄筋の腐食膨張などによりひび割れがネットワーク状に発達して地下水の流路が形成されることが考えられる。このような流路の形成は、セメント成分の溶出による強度の劣化や応力の分布状態の変化などによって影響を受けると考えられるが、ここでは、平成30年度に開発されたプロトタイプと同様に、ネットワーク状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本の層状のひび割れによる流路に単純化して、この流路における物質輸送を移流として扱うものとした。このような単純化の概念を図4.2-3に示す。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、移流による物質の輸送が考慮されるものとした。

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、後述の化学－物質輸送解析モデルと力学解析モデルとの連成で求められたモンモリロナイト間隙比、交換性Na型率及びイオン当量濃度から計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、三原ほか（2003）及び電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構（2005a）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。

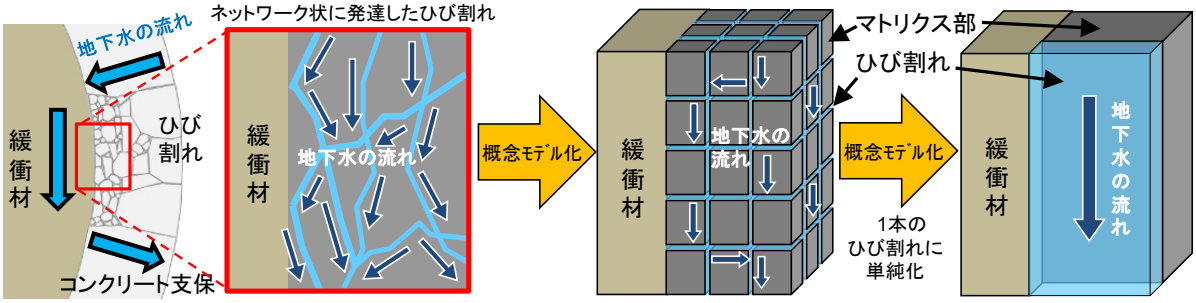


図 4.2-3　コンクリート支保でネットワーク状に発達したひび割れにおける地下水の流れを１本のひび割れによる流路として単純化する概念

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、コンクリート支保の状態の変化（鉱物の溶解、二次鉱物の沈殿）と、これによるアルカリとの反応を中心とする緩衝材の状態の変化（鉱物の溶解、二次鉱物の沈殿及び層間イオンの交換）を想定した。この領域では、ひび割れが連結した流路における物質輸送と、マトリクス部における物質輸送を統合した化学－物質輸送モデルを構築して解析を行うものとした（概念モデルは図 4.2-3 に示した水理解析の概念モデルと同様）。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緩衝材の状態の変化(鉱物の溶解、二次鉱物の沈殿及び層間イオンの交換）を想定した。この領域においても、上記のコンクリート支保と緩衝材境界領域と同様のモデルで解析を行うが、図 4.2-3 のようなひび割れの発生やひび割れが連結した流路は考えないものとした。なお、緩衝材とオーバーパックの境界領域にマグネタイトやシデライトなどの鉄腐食生成物が生成されることを考慮する場合（表 4.2-1 での「鉄との化学的相互作用と力学的相互作用を考慮するケース」が該当する）では、既往の検討（日本原子力研究開発機構, 2015）を参考に、緩衝材の内側に鉄腐食生成物の沈殿を考慮できる仮想的なセル（以下、「鉄腐食セル」という）を設けて解析を行った。QPAC では、鉄腐食セル内で鉄腐食生成物が沈殿すると、その時のタイムステップ幅と沈殿による体積の増加分から体積膨張速度が算出され、図 4.2-2 に示すようにインタフェイスを通じて力学解析コード MACBECE に受け渡される。

緩衝材の構成鉱物であるモンモリロナイトの溶解速度式については、本項(3)で後述する予備解析の結果から選定するものとした。緩衝材やコンクリート支保における、それ以外の初生鉱物や二次鉱物の溶解・沈殿については、既往の検討（日本原子力研究開発機構, 2016）と同様の反応速度式による計算を行うものとした。

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は、平成 30 年度に開発されたプロトタイプと同様に、本項(2)の 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、緩衝材中の拡散は、要素ごとの間隙率とスメクタイト含有率から、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。間隙率については、後述の MACBECE の力学解析で求められる体積ひずみの変化から力学的な変形を考慮した間隙率に換算した値を用いた。また、コンクリート支保の拡散は、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 4.2-3 で示した、変質部でひび割れが発生した部分に対しては、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。

上記の体積ひずみを QPAC の化学ー物質輸送解析のセル間の距離に反映させる手法の概念を図 4.2-4 に示す。QPAC においては、各々のセルの大きさそのものを MACBECE の結果の情報を反映させて変更させると、固相の鉱物組成を解析の途中で分配する必要があり、解析の負荷が大きくなって解析に要する時間が膨大となると考えられる。そこで、QPAC のセルの大きさそのものを MACBECE の解析結果を反映して変更させるのではなく、隣接するセルとの距離に反映させるものとした。また、QPAC の解析体系におけるセルの大きさは、MACBECE と比較するとかなり大きいことから、QPAC のあるセルに対応する MACBECE の複数のセルにおいて体積ひずみの平均値を算出し、その値を QPAC に反映するものとした。体積ひずみεの定義とその平均値ε_{ave}を算出する式を以下に示す。

$$\varepsilon = 1 - \frac{V}{V_{initial}} \tag{4.2-1}$$

$$\varepsilon_{ave} = \frac{1}{V_{total}} \sum V_i \varepsilon_i \tag{4.2-2}$$

ここで、Vはセルの体積を示し、$V_{initial}$はその初期値を示している。また、添字のiは MACBECE のセル番号を表すものとし、QPAC のあるセルに対応する MACBECE のセルの体積の和を、V_{total}と表している。隣接するセル間の距離を表す式を以下に示す。

$$d_j' = d_j\sqrt{1-\varepsilon_{ave,j}}, \qquad (j = 1,2) \tag{4.2-3}$$

$$\begin{aligned} d' &= d_1' + d_2' \\ &= d_1\sqrt{1-\varepsilon_{ave,1}} + d_2\sqrt{1-\varepsilon_{ave,2}} \end{aligned} \tag{4.2-4}$$

ここで、添え字の$j(=1,2)$はQPACのセル番号である。セル1とセル2の間の距離と、その境界からのセルjの距離をそれぞれdとd_jとし、体積ひずみ$\varepsilon_{ave,j}$によってd_jがd_j'に、dがd'へ変化するものとした。

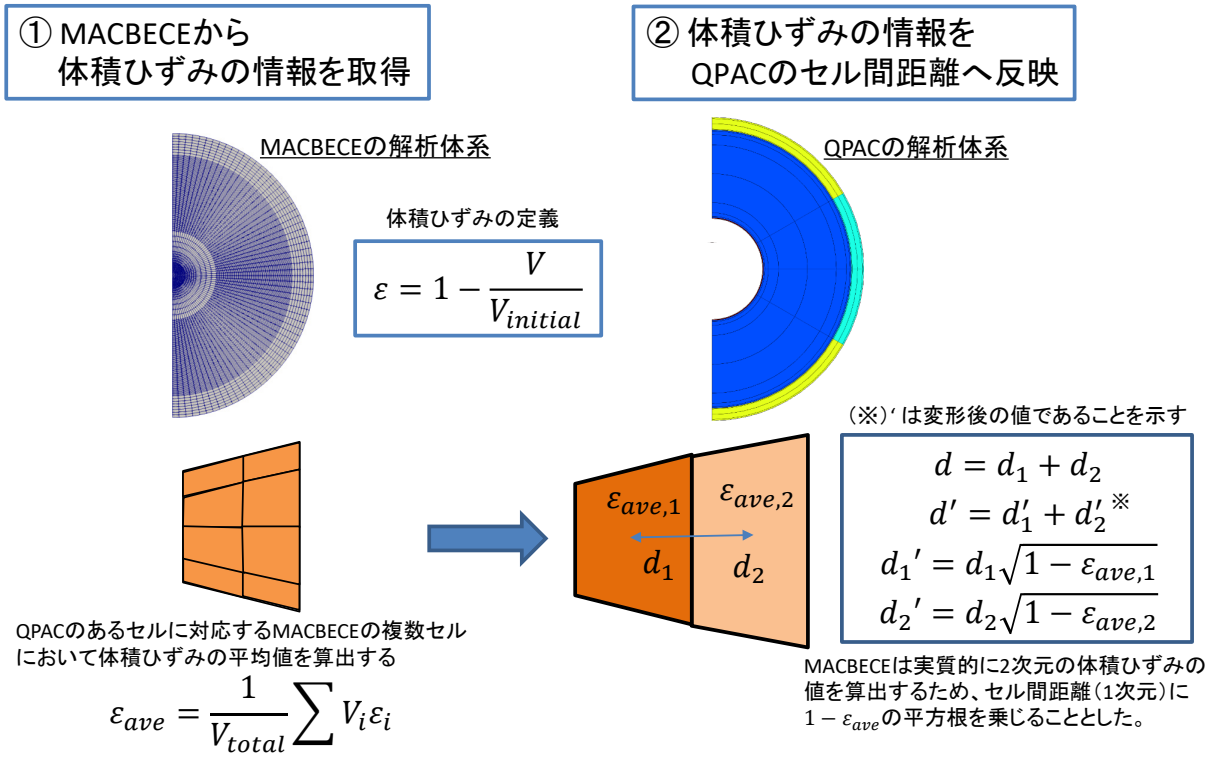


図 4.2-4　MACBECE の力学解析で求められた変形に関する情報を QPAC の化学ー物質輸送解析のセル間の距離に反映する手法の概念

3)　力学解析モデルとインタフェイスの概要

力学解析については、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ことが必要となる。解析ツールとしては平成30年度に開発されたプロトタイプと同様にMACBECEを使用した。

緩衝材については、平成30年度に開発されたプロトタイプと同様に、MACEBCEに装備されている、以下に示す化学的な状態の変化を表す指標（これ以降「化学的変遷指標」と呼ぶ）の変化を反映して力学解析を行う機能（奥津ほか, 2005；電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構, 2005b；三原ほか, 2010）を活用して、本項(2)の2)で示したQPACによる化学ー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及び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。なお、MACBECE

では二次鉱物の生成による力学特性の変化は考慮されていない。また、オーバーパックの鉄腐食生成物の膨張を考慮する場合には、QPACで計算された鉄腐食生成物の体積膨張速度も上記の化学的変遷指標に加えてインプットとし、緩衝材の体積ひずみの変化などを計算するものとした。

コンクリート支保については、化学的な変質による剛性・強度などの力学特性の変化を考慮しなかった。なお、既往の検討（例えば、三原ほか, 2010；平野ほか, 2016；三原ほか, 2017）と同様に、コンクリート支保の外側では岩盤領域を設定し、非線形の粘弾性構成モデルにより岩盤クリープ挙動を解析するものとした。

4) 連成解析モデルの概要

本項(2)の1)～3)で示した、QPACにおける水理解析と化学－物質輸送解析のモデルと、MACBECEにおける力学解析モデルの概念図を図4.2-5と図4.2-6にそれぞれ示す。コンクリート支保では、図4.2-5に示す角度θで定められる領域でひび割れのネットワークが発達して、坑道の周方向に沿った流路が形成されるものとして、このような流路をモデル化した。本項(3)で後述する感度解析では、上記の角度θを60°と設定した。なお、θの値を変化させる場合でも連成解析が可能であることは確認済みである。

また、図4.2-3のひび割れの単純化の概念で示したように、坑道の軸方向（図4.2-5のZ軸方向）に沿ってひび割れのセルとセメントのマトリクスのセルが隣接するようにモデル化した。緩衝材においては坑道軸方向のセルの分割は行わずに二次元でモデル化し、力学解析との連成を行った。

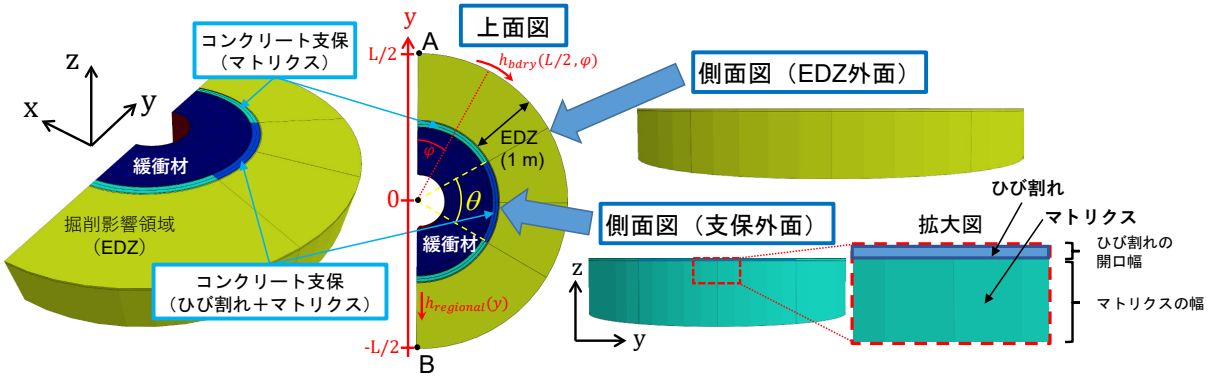


図 4.2-5　QPAC による水理解析と化学－物質輸送解析の円筒座標系三次元モデル

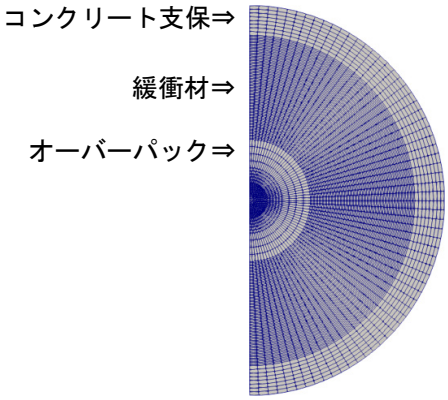


図 4.2-6　MACBECE による力学解析の直行座標系二次元モデル
（人工バリア領域のみを示す）

水理的境界条件としては、図 4.2-5 の掘削影響領域（以下、「EDZ」という）の外周に一定の動水勾配を持つような境界条件を設定した。解析体系上の水頭の値$h_{regional}$は、図 4.2-5 で示されるy座標の関数として式(4.2-5)のように表されるものとした。ただし、EDZ 外側の境界上では、水頭の値h_{bdry}は動径方向とy方向のなす角度φの関数として式(4.2-6)のように表されるものとした。

$$h_{regional}(y) = \frac{H_0}{L}\left(y + \frac{L}{2}\right) - \frac{H_1}{L}\left(y - \frac{L}{2}\right) \tag{4.2-5}$$

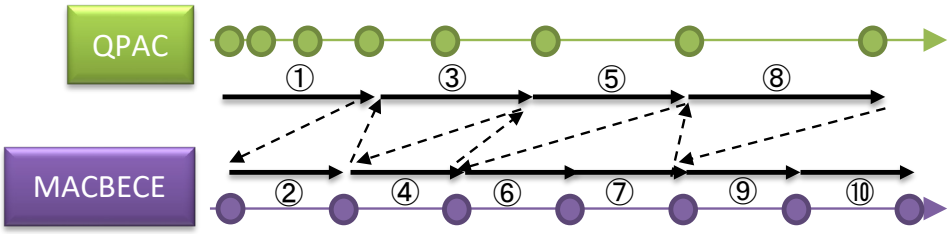
$$h_{bdry}\left(r\left(=\frac{L}{2}\right), \varphi\right) = h_{regional}\left(\frac{L}{2}\cos\varphi\right) \tag{4.2-6}$$

ここで、H_0、H_1はそれぞれ図 4.2-5 の A 点、B 点における全水頭である。また、Lは EDZ を含めた解析体系全体の直径であり、$y = (L/2)\cos\varphi$で表される。

化学的境界条件としては、図 4.2-5 の EDZ の外周（弧 AB）の上半分（地下水が流入する側）では、地下水組成が高 pH 降水系地下水（以下、「FRHP」という）の組成で一定、すなわち、濃度固定境界となるように境界条件を設定した。また、下半分（地下水が流出する側）では、ゼロ濃度勾配境界となるように設定した。緩衝材及び支保の初期間隙水の組成としては、FRHP との平衡状態に達した後の組成を、地球化学計算コード PHREEQC（Parkhurst, 1995 ; Parkhurst et al., 2013）で予め計算して設定した。なお、今回の解析では、EDZ 部分では、鉱物の反応は起こらないものと仮定した。また、オーバーパックとの境界においては鉄の腐食により鉄イオンが供給される条件を設定した。

水理と化学ー物質輸送の連成解析（QPAC）と力学解析（MACBECE）におけるそれぞれのタイムステップと、これらの解析コード間でデータを受け渡すタイミングを図 4.2-7 に示す。また、これらの解析コード間の連成解析の手順を以下に示す。

1. QPACで水理と化学ー物質輸送の連成解析を実施し、MACBECEの最初のタイムステップまでの化学変遷情報を取得する（図4.2-7の①）。QPACは初期のタイムステップがMACBECEと比較して非常に細かいため、図中①で実施するタイムステップ数も非常に多くなる（図では簡略化して4点のみを示しているが、実際にはそれ以上の膨大なタイムステップ数である）。
2. 1.で取得した化学変遷情報を用いてMACBECEの最初のタイムステップまでの解析を実施する（図4.2-7の②）。
3. 2.の解析を実施した時にMACBECEの次のタイムステップまでの化学変遷情報があるかを判定し、ない場合はMACBECEの次のタイムステップまでの化学変遷情報を取得するための解析をQPACで実施する（図4.2-7の③）。
4. 以降、上記の2.と3.を繰り返す。なお、QPACのタイムステップは次第に大きくなるのに対し、MACBECEのタイムステップは期間中一定なので、どこかのタイミングでQPACがMACBECEの二つ分以上のタイムステップの計算を行うことがあり得る（図4.2-7の⑤）。その場合は、化学変遷情報がある時点までの計算をMACBECEで実施することになる（図4.2-7の⑥、⑦）。



番号は解析コードの実行順、実線は解析コードの実行部分、破線はデータの授受を示す

図 4.2-7　連成解析におけるタイムステップと連成のタイミング
（実線矢印は解析コードの実行、丸数字はその実行順、破線矢印はデータの授受を表す。）

(3) ニアフィールド複合現象評価システムを用いた感度解析

前項(2)で示した、改良され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を用いて、表 4.2-1 で整理した解析ケースを対象として、「わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性 －地層処分研究開発第 2 次取りまとめ－」（以下、「第 2 次取りまとめ」という）（核燃料サイクル開発機構, 1999）を参考に、軟岩系岩盤を対象とする横置き方式での処分坑道断面の仕様に基づき、図 4.2-5 及び図 4.2-6 に示す解析体系を構築して、水理、化学－物質輸送及び力学の連成解析を行った。解析においては、本項(1)で示した状態変遷のパターンが生起する状況を幅広く把握するために、この状態変遷のパターンに関係するパラメータ群を感度解析パラメータとして設定した。また、緩衝材に期待される機能に影響を及ぼし得る因子として、緩衝材に含まれるモンモリロナイトの残存率に対して解析結果を整理すると共に、状態の変化を表す指標として pH、Eh 及び間隙率の解析結果についても整理した。

なお、緩衝材やコンクリート支保の材料組成などの仕様については、第 2 次取りまとめなどの既往の文献を参考とした。また、化学－物質輸送解析で対象とする二次鉱物の種類や力学解析で使用される解析パラメータなどの条件については既往の文献（例えば、日本原子力研究開発機構, 2016）における緩衝材を対象とする連成解析での条件を参考に設定した。熱力学データベースとしては JAEA-TDB(v1.07)（日本原子力研究開発機構，2017）を使用した。

1) 感度解析パラメータの設定

緩衝材の変質の進みやすさについては、モンモリロナイトの溶解速度式の種類や、二次鉱物として沈殿するゼオライトの種類（安定相または準安定相）によって影響を受けることが考えられる。そこで、本項(2)で示した連成解析で使われる化学－物質輸送解析モデルを用いて予備解析を行い、保守側の想定としてこれらの組合せのうち最も変質が進みやすいパターンを抽出した。予備解析においては、コンクリート支保でのひび割れの発生を考慮せず、コンクリート支保及び緩衝材中では拡散のみを考慮する単純な物質輸送の場の状態を想定したモデルとした。予備解析で対象としたモンモリロナイトの溶解速度式と想定されたゼオライトの種類の組み合わせのパターンを表 4.2-3 に示す。

モンモリロナイトの溶解速度式としては、Sato et al.（2004）によって提案された式と Cama et al.（2000）の飽和度依存性の経験式（以下、「Cama 式」という）を統合したモンモリロナイトの溶解速度式（以下、「Sato-Cama 式」という）及び小田ほか（2013）によって提案されたモンモリロナイトの溶解速度式（以下、「小田式」という）を対象とした。なお、Cama 式は pH8.8(80℃)の実験系で算出された溶解速度への飽和度の影響を表現した式であり、小田式は pH12.1(70℃) の実験系で算出された式である。

セメント-ベントナイト相互作用によって生成される二次鉱物の変遷パターンについては、既

往の検討（小田ほか, 2005）で整理された、アルミノケイ酸塩鉱物に関する鉱物変遷の概念に基づき、緩衝材構成鉱物及び二次鉱物を以下の①～⑤のグループに分類した。

① 初生鉱物としてのモンモリロナイト、カルサイト及びカルセドニ
② C-S-H ゲルなど短期間で生成可能な二次鉱物
③ アルカリ条件でモンモリロナイトより安定なイライト
④ 相対的に準安定なゼオライト
⑤ 安定なゼオライト及びカリ長石

上記のうち③については、本解析のように温度が100℃以下に制限される環境下ではイライトが析出する可能性は低いため（石川ほか, 1994）、本検討では二次鉱物として考慮しないこととした。小田ほか（2005）によると、鉱物の変遷経路に③を含まない変遷パターンは3通りあることから、予備解析では、表4.2-3に示すように、解析対象時間内（最大で100万年後まで）に析出するゼオライトの組み合わせとして、安定相のみ、準安定相のみ及び安定相＋準安定相の3パターンを対象とすることとした。

上記の予備解析の結果、緩衝材中のモンモリロナイトの溶解は、表4.2-3に示すパターンのうち、パターン3において最も進行が速い傾向が認められたことから、本項(2)で構築したニアフィールド複合現象評価システムによる、水理、化学－物質輸送及び力学の連成による感度解析では、モンモリロナイトの溶解速度式と、想定するゼオライトの種類としてパターン3に示す組み合わせを対象とするものとした。

表 4.2-3　予備解析で対象としたモンモリロナイトの溶解速度式と想定されたゼオライトの種類

	モンモリロナイトの溶解速度式	想定されたゼオライトの種類
パターン 1	小田式	安定相ゼオライトのみ
パターン 2		準安定相ゼオライトのみ
パターン 3		安定相ゼオライト＋準安定相ゼオライト
パターン 4	Sato-Cama 式	安定相ゼオライトのみ
パターン 5		準安定相ゼオライトのみ
パターン 6		安定相ゼオライト＋準安定相ゼオライト

本項(1)で示した緩衝材の状態変遷のパターンを対象として、緩衝材の機能の維持／喪失の可能性を左右しうる感度解析パラメータを整理した。平成 30 年度に実施された、緩衝材における変質の進みやすさを左右する因子の分岐ダイアグラムによる整理結果（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019）から、このような因子として、コンクリート支保やオーバーパックとの境界における鉱物の溶解・沈殿の反応速度と溶質の移動速度が考えられ、これらの競合の程度などによって緩衝材の変質の進みやすさが影響を受けると考えられたことから、これに関連するパラメータを抽出して整理した。この結果を表 4.2-4 に示す。鉱物の溶解・沈殿の反応速度などの化学反応に関するパラメータと、物質輸送に関するパラメータをそれぞれ整理した。

前者のパラメータとしては、コンクリート支保と緩衝材における鉱物の反応速度に関するパラメータをそれぞれ考慮した。このうちコンクリート支保における初生鉱物と二次鉱物の反応速度については、本項(2)の2)で示したように、既往の検討（日本原子力研究開発機構, 2016）と同様

の反応速度式により計算を行うものとした。反応速度と溶質の移動速度（特に支保のひび割れ内の移流速度）が競合することで、カルサイトやCSHといった二次鉱物の析出の有無が変化すると考えられるが、上記の反応速度式では十分に反応速度が速く、瞬時平衡に近い状態であると考えられたため、この値を十分小さく（10^{-4}倍）した値を設定して、本項(1)で示した連成解析で使われる化学－物質輸送解析モデルを用いて予備解析を行った。しかしながら、このような極端な値を用いて解析を行っても緩衝材の状態にはほとんど変化は認められなかったため、ここでは感度解析パラメータとしては考慮しなかった。

モンモリロナイトの溶解速度に影響を及ぼすパラメータのうち、モンモリロナイトの反応比表面積については、分散系と比べて圧縮系でのモンモリロナイトの溶解速度が1～2桁程度小さいのは、圧縮によって反応比表面積が1～2桁程度減少したとすることで説明できるという分析結果（原子力環境整備促進･資金管理センター, 2013）に基づき、感度解析パラメータの一つとした。上記の小田式では、反応比表面積として分散系での値が使われていることから、圧縮系での値も想定して、分散系での値の1倍（7.0 m^2/g）、0.5倍（3.5 m^2/g）、0.1倍（0.70 m^2/g）、0.05倍（0.35 m^2/g）及び0.01倍（0.070 m^2/g）の5通りの設定で解析を行うこととした。以下、モンモリロナイトの反応比表面積は、分散系でのモンモリロナイトの反応比表面積に対する倍率で表すこととする。

他方、後者に示した物質輸送に関するパラメータとしては、動水勾配、コンクリート支保におけるひび割れの開口幅及びコンクリート支保のひび割れと緩衝材との接触面積率の三つを考慮した。このうち動水勾配については、第 2 次取りまとめにおける性能評価のデータ不確実性ケースの設定値と同様に、0.001～0.1 の範囲で上下限を設定した。また、コンクリート支保におけるひび割れの開口幅については、「コンクリート標準示方書」（土木学会, 2002）の鋼材の腐食に対する許容ひび割れ幅や水密性に対する許容ひび割れ幅の値を参考に、0.1 mm～1.0 mm の範囲で設定した。また、コンクリート支保のひび割れと緩衝材との接触面積率とは、コンクリート支保におけるひび割れネットワークが緩衝材と直接接触する面積の割合であり、次式(4.2-7)のように表される（図 4.2-5 参照）。

$$\text{接触面積率} = \frac{\text{ひび割れの開口幅}}{\text{ひび割れの開口幅} + \text{マトリクスの幅}} \times 100 \ (\%) \qquad (4.2\text{-}7)$$

図 4.2-3 で示したように、地下水は直接接触するひび割れを介して緩衝材に流入することを想定した。また、コンクリート支保において、ひび割れの密度が高いことなどにより、ひび割れが占める体積割合が大きいほど、接触面積率も大きくなると仮定した。コンクリート支保において処分後の長期においてどのようなひび割れが進展し、緩衝材との接触面積率がどの程度となるかについては十分な知見が得られていないことから、1%～50%の間で感度解析的に扱うものとした。なお、本解析では、図 4.2-3 に示したようにモデルの単純化のためにひび割れの流路を一次元でモデル化していることから、コンクリート支保のひび割れと緩衝材との接触面積率については、幾何学的なひび割れの開口幅とコンクリートマトリクスの幅との比で表すものとした（図 4.2-5 参照）。したがって、接触面積率のパラメータを変化させる場合には、ひび割れの開口幅は一定とし、コンクリートマトリクスの幅を変化させた（例えば、ひび割れの開口幅が 1 ㎜で、かつ、接触面積率が 50%の場合では、コンクリートマトリクスの幅を 1 ㎜とした）。

表 4.2-4　水理、化学－物質輸送及び力学の連成による感度解析パラメータ

パラメータの種類		パラメータの幅	設定の考え方
化学反応に関するパラメータ	支保内の初生鉱物や析出する二次鉱物の反応速度※	0.0001 倍、1 倍	✓ 緩衝材－支保境界部や支保内ひび割れの閉塞に最も寄与する二次鉱物としてカルサイトを選定。 ✓ 沈殿速度が基準値（1倍）であっても、カルサイトの沈殿が速やかに生じるほど十分速く、瞬時平衡に近い状態と考えられるため、基準値より小さい値のみを対象とする。
	モンモリロナイトの反応比表面積（分散系での反応比表面積に対する倍率として表す）	0.01 倍、0.05 倍、0.1 倍、0.5 倍、1 倍	✓ 圧縮系でのモンモリロナイトの溶解速度が分散系での速度より1桁～2桁遅くなることを、反応比表面積の減少で説明できるという既往の研究成果（原子力環境整備促進・資金管理センター, 2013）に基づき設定。
物質輸送に関するパラメータ	動水勾配	0.1, 0.01, 0.001	✓ 支保のひび割れなどにおける移流速度に係る要素として設定。 ✓ 第2次とりまとめより、動水勾配の測定値を基に、0.001～0.1の間で設定。
	ひび割れの開口幅	0.1 mm, 1mm	✓ 支保のひび割れ中の流量に係る要素として設定。 ✓ コンクリート標準示方書（土木学会, 2002）より、鋼材の腐食に対する許容ひび割れ幅や水密性に対する許容ひび割れ幅を基に設定。
	コンクリート支保のひび割れと緩衝材との接触面積率	1%, 10%, 20%, 30%, 40%, 50%	✓ 1%～50%の範囲で設定。

※予備解析の結果、影響がほとんど認められなかったため、本解析では感度解析パラメータとしては考慮しなかった。

2) 解析結果

本項(3)の 1)で抽出した感度解析パラメータのうち、モンモリロナイトの反応比表面積及びコンクリート支保のひび割れと緩衝材との接触面積率の値の違いが、モンモリロナイト含有率や pH の変化に対して特に顕著な影響を及ぼし、それ以外のパラメータの影響は軽微であったことから、ここでは、上記の二つのパラメータの違いに関する解析結果を示す。ここで示す解析条件の組み合わせのパターンを表 4.2-5 に示す。

表 4.2-5　感度解析パラメータの組み合わせと解析ケースの対応

	緩衝材とオーバーパックとの相互作用において鉄との化学的相互作用のみを考慮するケース			緩衝材とオーバーパックとの相互作用において鉄との化学的相互作用と力学的相互作用を考慮するケース
解析ケース / 解析パラメータ	(a)	(b)	(c)	(d)
支保のひび割れの開口幅	1 mm	1 mm	1 mm	1 mm
動水勾配	0.01	0.01	0.01	0.01
モンモリロナイトの反応比表面積（分散系での反応比表面積に対する倍率として表す）	1 倍	1 倍	0.1 倍	1 倍
コンクリート支保のひび割れと緩衝材との接触面積率	1%	50%	50%	50%

表 4.2-5 の解析ケースのうち、緩衝材とオーバーパックとの相互作用について、境界で鉄腐食生成物が形成されずに、腐食で発生した Fe(Ⅱ)イオンが全て緩衝材に移行して鉄ケイ酸塩鉱物などとして沈殿するような、鉄との化学的相互作用のみを考慮するケースに対して化学－物質輸送と水理の連成解析を行った。この解析結果の例を図 4.2-8 に示す。また、10 万年後の緩衝材中のモンモリロナイトの平均残存率を表 4.2-6 に示す。なお、この解析ケースでは、オーバーパックの腐食膨張を扱っておらず、緩衝材の変形や膨潤などの力学的な効果は軽微であったことから、力学も連成した解析結果については割愛した。

表 4.2-5 に示したパラメータのうち、支保のひび割れと緩衝材との接触面積率による、モンモリロナイトの残存量（初期値 : 1464.782 mol/m^3）などに対する影響が最も大きい結果となった。表 4.2-5 に示した解析ケースのうち、接触面積率を 1%とした(a)のケースでは、10 万年後においても緩衝材全体のモンモリロナイトの平均残存量は 76.2%であった。他方、接触面積率が 50%になると、接触面積率が 1%の場合と比較して 6 割程度と低い値を示した。また、接触面積率が 50%の場合で、モンモリロナイトの反応比表面積を分散系での値の 0.1 倍として計算すると（解析ケース(c)）、モンモリロナイトの残存率などに対する影響はやや緩和された。

上記に示したように、コンクリート支保のひび割れと緩衝材との接触面積率によって、緩衝材の変質の程度に違いが認められた理由として、コンクリート支保のひび割れにおける二次鉱物の沈殿／間隙率の低下の程度が異なるために、緩衝材への地下水の供給量に違いが生じたことが考えられる。すなわち、接触面積率が 1%の場合では、支保のひび割れ内部で二次鉱物が沈殿して間隙率が著しく減少してほぼ閉塞された状態となるために、ひび割れを通じた緩衝材への地下水の供給が制限されて、緩衝材の変質が抑制されるが、接触面積率が 50%の場合では、ひび割れの閉塞が起こらず、ひび割れを通じて地下水が緩衝材に供給され続ける状態が解析において表現されたと考えられる。このようなひび割れにおける閉塞の有無の違いは、式(4.2-7)で示したように、接触面積率によって、ひび割れに対するコンクリートマトリクスの体積が異なる（例えば、接触面積率が高いほど、ひび割れに対するコンクリートマトリクスの体積が小さくなる）ことによると考えられる。

また、解析ケース(b)と(c)では、緩衝材の pH は、初期の 8.4 程度から、特に緩衝材外側において数年で 12 程度まで上昇するが、その後は減少し続け、数万年後以降では 8.4 以下まで低下した。Eh についても同様に、解析ケース(b)と(c)では、初期状態と 10 万年後の値はほぼ同じであった。このことから、これらのケースでモンモリロナイトが減少したことは、アルカリとの反応だけではなく、岩盤からの FRHP 地下水の供給が継続されることで平衡からのずれが生じて溶解速度が変化することにも起因する可能性があると考えられる。

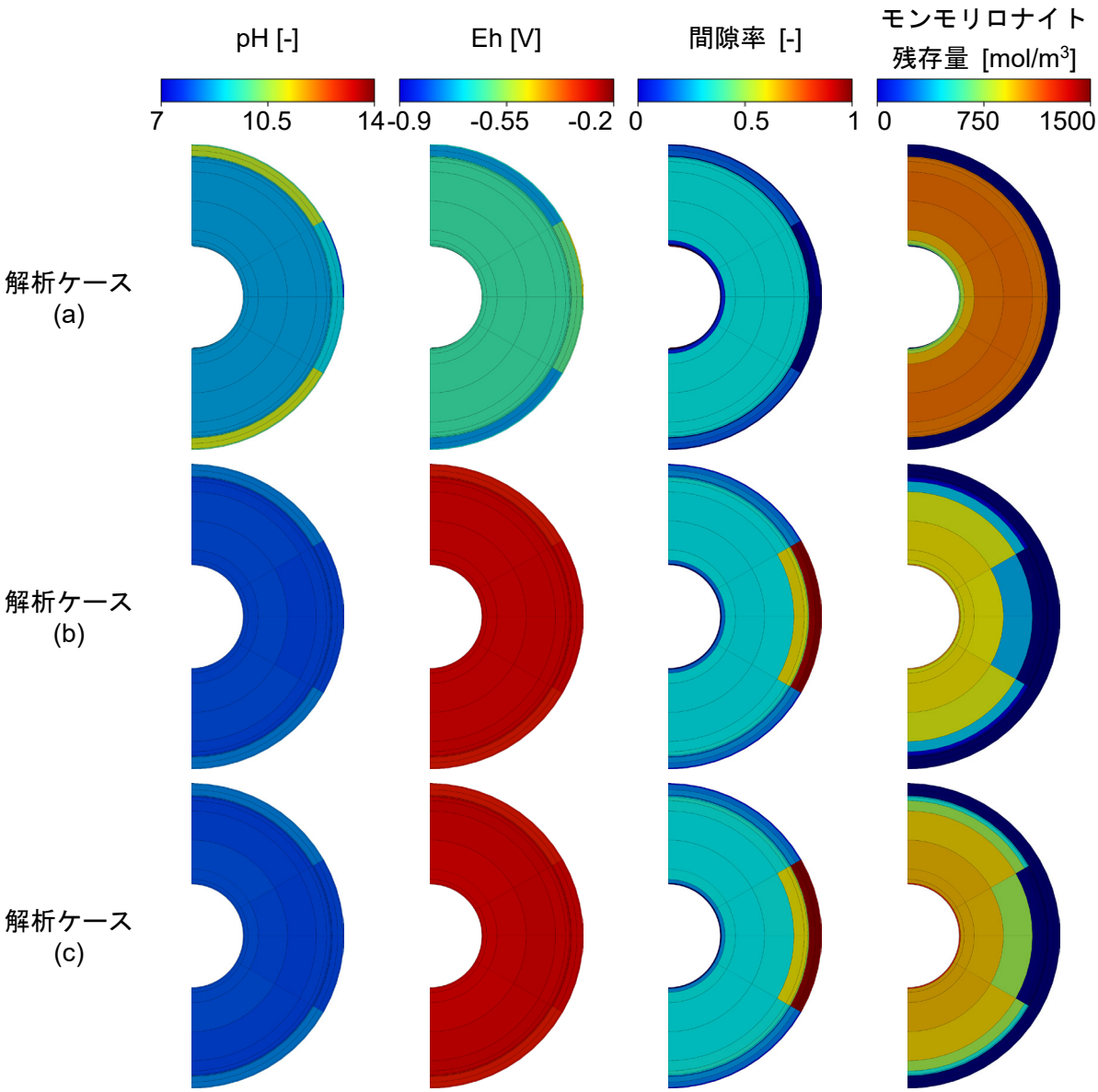


図 4.2-8　緩衝材とオーバーパックとの相互作用において鉄との化学的相互作用のみを考慮するケースの 10 万年後の解析結果の例

表 4.2-6　緩衝材中のモンモリロナイトの平均残存率（10 万年後）

解析ケース	緩衝材中のモンモリロナイトの平均残存率（%）
(a)	76.2%
(b)	49.0%
(c)	59.1%
(d)	45.7%

表 4.2-5 に示した、水理、化学－物質輸送及び力学の連成解析で対象とする解析ケースのうち、オーバーパックとの相互作用について、鉄の腐食膨張によって緩衝材が圧密される力学的影響と、腐食で発生した Fe(Ⅱ)イオンが緩衝材に移行して鉄ケイ酸塩鉱物などとして沈殿する化学的影響の双方を考慮するケース(d)の解析結果の例を図 4.2-9 に示す。

鉄との化学的相互作用のみを考慮するケース(b)と比較すると、特に緩衝材領域中央部においては、実効拡散係数が 30%程度低下し、その結果、地下水との反応によるモンモリロナイトの溶解が 10 万年時点で 8%程度緩和される結果となった。これは、腐食膨張により緩衝材がコンクリート支保側に圧密されることによるものと考えられる。他方、オーバーパックとの境界近傍においては、鉄との化学的相互作用のみを考慮するケースよりも緩衝材の変質が進展する結果となった。

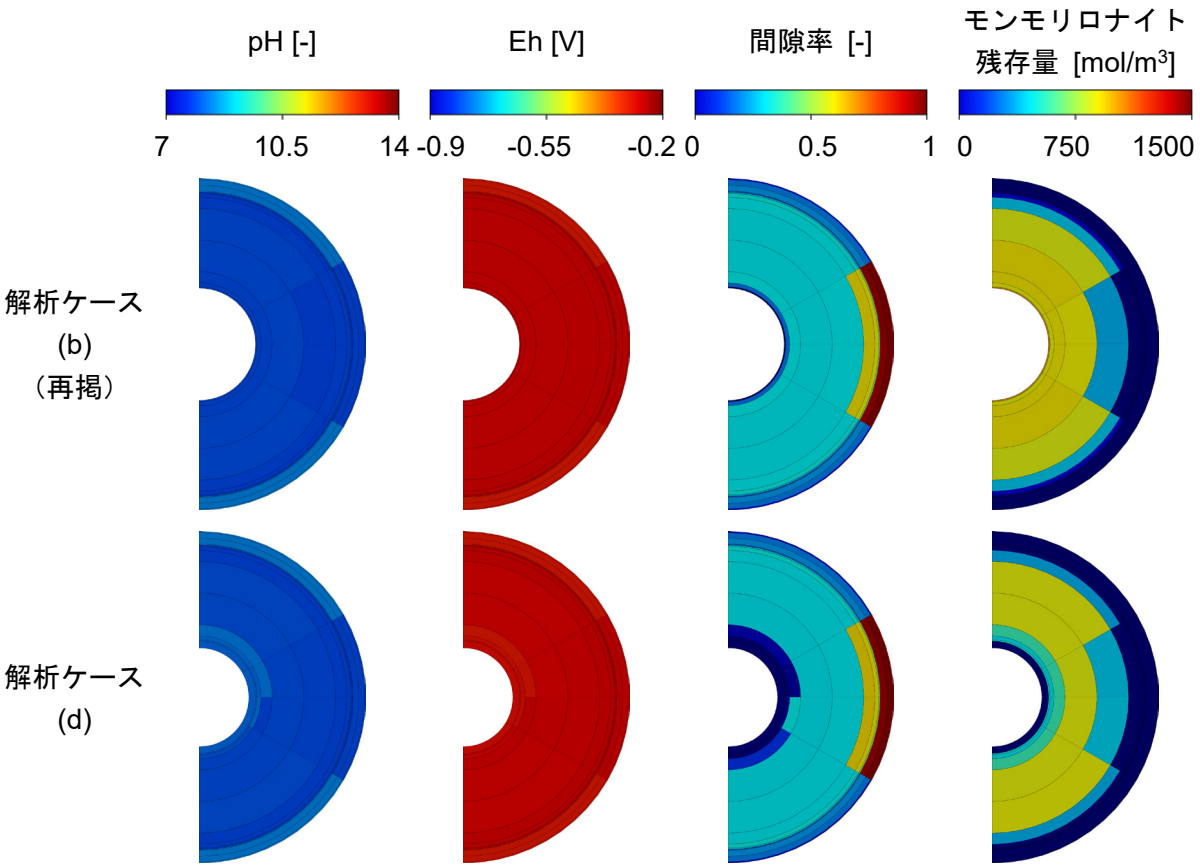


図 4.2-9　緩衝材とオーバーパックとの相互作用において鉄との力学的相互作用と化学的相互作用の双方を考慮するケースの 10 万年後の解析結果の例

解析で対象とした感度解析パラメータのうち、モンモリロナイト残存量や pH などに対して特に顕著な影響が認められた、モンモリロナイトの反応比表面積と、コンクリート支保のひび割れと緩衝材との接触面積率を縦軸と横軸にそれぞれ配置したパラメータ空間において、緩衝材とオーバーパックとの相互作用において鉄との化学的相互作用のみを考慮するケースで、化学ー物質輸送と水理の連成解析によって求められた、10 万年後のモンモリロナイトの残存率の平均値を示した結果を図 4.2-10 に示す。特に、コンクリート支保のひび割れと緩衝材との接触面積率が高い領域では、モンモリロナイトの反応比表面積が大きいほど、モンモリロナイトの溶解は進行し、残存率は低くなる傾向であることが確認された。また、特にモンモリロナイトの反応比表面積が大きい領域では、コンクリート支保のひび割れと緩衝材との接触面積率が高いほど、モンモリロナイトの溶解は進行し、残存率は低くなる傾向であることが確認された。また、モンモリロナイトの反応比表面積を分散系での値の 0.01 倍とすると、コンクリート支保のひび割れと緩衝材との接触面積率を 50%としても、10 万年後においても 8 割近いモンモリロナイトが残存する結果となった。

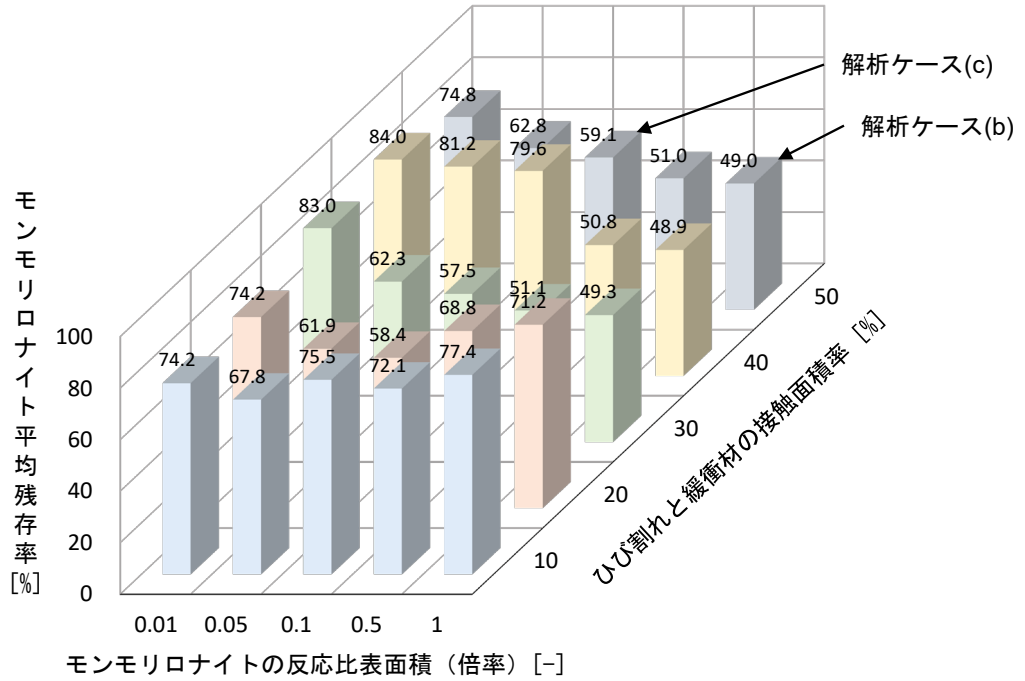


図 4.2-10　10 万年後のモンモリロナイトの平均残存率の整理結果
（グラフ上の数値はモンモリロナイトの平均残存率 (%)を示す。）

(4) ニアフィールド複合現象評価システムの高度化に向けた課題の整理

前項(3)で示した解析結果から、緩衝材に隣接するコンクリート支保において、ひび割れを流路とする地下水の流れが存在し、かつ、ひび割れ内部での二次鉱物の沈殿による閉塞が生じにくい状況では、流路を通じて緩衝材に地下水が供給され続け、緩衝材の変質が進展することにより、緩衝材に期待している機能が劣化する可能性があると考えられる。このような解析結果から、緩衝材の機能が維持／喪失される条件を評価することなどにより、今後、ニアフィールド複合現象評価システムの性能評価での活用を検討するうえで、対処が必要となる可能性がある課題を以下に示すように整理した。

本項で実施した連成解析では、図 4.2-3 で示したように、コンクリート支保においてひび割れがネットワーク状に発達すると共に、そこを流路として緩衝材に地下水が供給されることを想定した。また、このようなネットワーク状のひび割れを 1 本のひび割れで単純化した解析を行った。しかしながら、この解析モデルでは、支保に含まれる鉄筋の腐食膨張や緩衝材からの応力によるひび割れの発生／進展や、岩盤クリープによるひび割れの閉塞などの力学的挙動を解析で表現できていない。すなわち、コンクリート支保においては、水理と化学ー物質輸送との連成のみが行われており、力学との連成解析は行われていない。このため、今後、こうした力学挙動も考慮に入れて、上記に示したような、ひび割れを介した緩衝材への地下水の供給が現実的に起こりうるかを把握できる解析手法を構築することが必要となる可能性がある。TRU 廃棄物の処分施設などを対象としてコンクリートの支保や坑道の埋め戻し材での現実的なひび割れ発生挙動のモデル化に取り組んだ既往の検討（日本原子力研究開発機構, 2015；日本原子力研究開発機構, 2018）では、粒状体個別要素法による力学解析手法と、本解析でも使用した力学解析コード MACBECE を組み合わせた解析手法を提案しており、コンクリート支保における現実的なひび割れの発生と、そこを介した地下水の流れのシミュレーションを可能とするために、このような手法を活用してニアフィールド複合現象評価システムを改良することなどが考えられる。

オーバーパックと緩衝材の境界領域では、オーバーパックの腐食により生じた鉄イオンなどが緩衝材に移行して緩衝材中の鉱物の変質などをもたらす化学的な影響と、緩衝材との境界で生成した鉄腐食生成物が体積膨張して緩衝材を圧密する力学的な影響とを考慮した解析を行った。解析結果から、力学的影響と化学的影響を同時に考慮する場合では、鉄との化学的相互作用のみを考慮するケースよりも、オーバーパックとの境界に近い領域で緩衝材の変質が進展する傾向が認められた。このような傾向は、鉄腐食生成物が体積膨張して緩衝材が圧密される場合では、間隙率が減少して、オーバーパックの腐食で生成した鉄イオンの緩衝材中での拡散などによる移行が抑制される可能性があることや、鉄腐食生成物の沈殿が起こることにより、緩衝材との反応で消費される鉄イオンの量が減る可能性があることなどと整合的ではない可能性があると考えられる。今後、力学的影響と化学的影響を同時に考慮するケースの方が、鉄との化学的相互作用のみを考慮するケースよりも、オーバーパックとの境界に近い領域で緩衝材の変質が進展する傾向が認められた原因を分析し、例えば、本項(2)の 2)で示した鉄腐食セルの設定などに関する解析技術上の課題が存在するかを確認することが必要である。

上記に示した緩衝材を対象とした連成解析では、核種移行解析の前提となる、水理及び化学的な場の状態を把握することに主眼が置かれているが、このような場の初期状態としては、坑道掘削前の安定的な場の状態（還元性、地下水飽和及び地温）に回復することが想定されている。閉鎖後過渡期における状態の変化とそれらの連成解析での想定との関係を図 4.2-11 に示す。図 4.2-11 に示されているように、例えば、周辺岩盤からの地下水が不均質に緩衝材に浸入して密度分布や透水係数が不均質な分布を持つなどの閉鎖後過渡期における状態の変化が、その後の核種移行の場の状態にもたらす影響を定量的に評価することが必要となる可能性がある。

人工バリアと岩盤の相互作用については、2.5.2 項で示したように、コンクリート支保やグラウトに由来するアルカリプルームが岩盤中を移行して pH などの間隙水組成や地下水輸送の流速や経路が変化する可能性を把握して、その結果を反映して性能評価を行うためには、アルカリプルームの影響範囲（坑道からの距離）に応じて異なる解析手法を適用することが有効となる可能性がある。

また、本項(3)の冒頭で示したように、本項では緩衝材に期待される機能に影響を及ぼし得る因子として、緩衝材に含まれるモンモリロナイトの残存率を対象として解析結果を整理した。この結果に基づき緩衝材の機能が維持／喪失される条件を評価するためには、緩衝材に期待される機能（核種の閉じ込め性、応力緩衝性、化学的緩衝性など）を表すための指標を定義するとともに、モンモリロナイトの残存率などの解析結果が、これらの指標に及ぼす影響に着目して解析結果を整理することが必要となる可能性がある。このような指標の考え方については、4.3.2 項(3)で後述する。

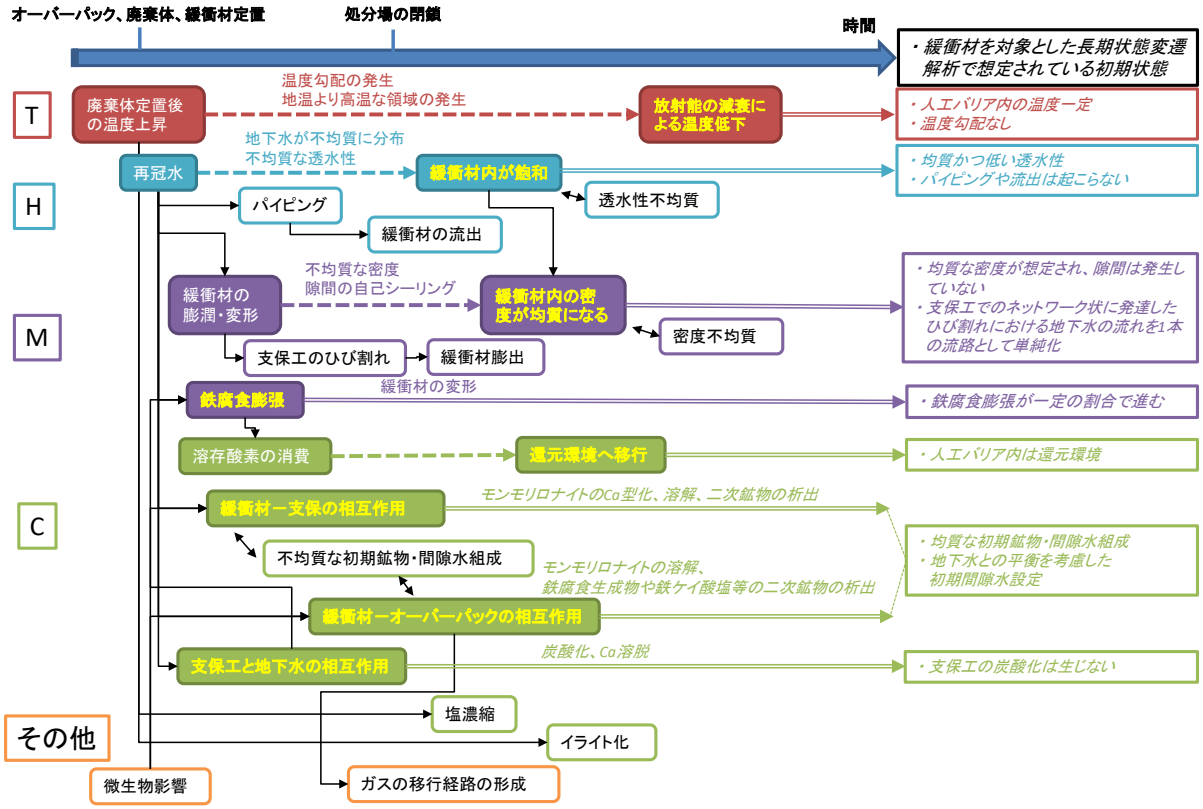


図 4.2-11　閉鎖後過渡期に推定される状態の変化とそれらが長期的な変遷挙動に与える影響の関係の概念図

4.2.3　2 か年の成果と今後の課題

先行事業から行われていた、個別の現象モデルやパラメータ整備の成果を統合するだけではなく、性能評価の観点からトップダウン的に重要な機能や関連する現象を抽出する手法を組み合わせた研究開発のアプローチを提案した。また、こ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した。さらに、上記で構築したプロトタイプを活用して、緩衝材の機能の維持／喪失の可能性を左右し得る状態の変化のパターンに着目した感度解析を行い、ニアフィールド複合現象の評価手法を例示すると共に、この解析結果に基づき評価システムの高度化に向けた課題を抽出した。

今後は、過渡期の状態の変化や岩盤との相互作用などによる影響も考慮しつつ、緩衝材の長期変遷挙動の結果として緩衝材に期待される機能が維持／喪失される条件を定量化できるようにするためにプロトタイプの機能を拡張していくことが必要と考えられる。

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（日本原子力研究開発機構, 2018）。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。

そこで平成 30 年度は、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。

平成 31 年度は、核種移行解析で必要なインプットパラメータの整理結果などに基づき、4.2 節の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、核種移行解析と複合現象評価との間のデータの受け渡し構造を具体化して、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手法を構築すると共に、試行的な核種移行解析を実施した。また、その試行結果に基づいた課題を示すと共に、それらの対処方策を提案した。本節ではこの検討の成果を示す。

4.3.2 実施内容

(1) 緩衝材における状態変遷を反映できる核種移行解析手法の構築

4.2 節で構築したニアフィールド複合現象評価システムによる、水理、化学ー物質輸送及び力学の連成解析によって求められた、地球化学的な場や地下水流動の場の状態に関する数値情報を読み込み、その後に、その数値情報に基づく核種移行パラメータを対象とする核種ごとに設定して核種移行解析を行うものとして、核種移行解析ツールを構築した。上記の連成解析により求められた数値情報を一方通行的に核種移行解析のインプットとして反映させるものとし、核種移行解析の結果を連成解析の結果に反映させることは想定しなかった。緩衝材における核種移行解析の支配方程式を以下の式(4.3-1)に示す（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2019）。

$$\theta \frac{\partial C}{\partial t} = \nabla \cdot \frac{1}{R(\theta)} \left(D_{eff} \nabla C - \boldsymbol{q} C \right) - \theta \lambda C \tag{4.3-1}$$

ここで、C (mol/m³)は核種濃度、θ (-)は間隙率、D_{eff} (m²/y)は実効拡散係数、$\boldsymbol{q}$ (m/y)はダルシーフラックス、λ (y⁻¹)は崩壊定数である。また、R (-)は遅延係数であり、K_d (m³/kg)は収着分配係数、ρ_d (kg/m³)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θの関数で表される。

$$R(\theta) = 1 + \frac{\rho_d}{\theta} K_d \tag{4.3-2}$$

上記のパラメータのうち、K_dのような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、実効拡散係数などの、連成解析と共通的な特性の変化については、連成解析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。このような核種移行解析を行うために、以下に示す三つの機能を核種移行解析ツールに実装するものとした。

A) 核種の崩壊／生成の連鎖を解析する機能。
B) 4.2節で構築した連成解析システムによる解析で得られた状態変遷を表すパラメータ（pHや間隙率など）や、実効拡散係数などを読み込む機能。
C) 人工バリアにおける、上記に示した状態変遷を表すパラメータの変化に伴う核種の移行遅延特性などの時空間的な変化を取り入れて解析を行う機能（例えば、pHの値と収着分配係数の値との対応関係が整理された別表からlookupして用いる機能）

上記の B と C の機能で読み込まれるパラメータを整理した結果を表 4.3-1 に示す。

表 4.3-1　連成解析の結果から核種移行解析ツールに読み込まれるパラメータの整理結果

パラメータ名	核種移行解析ツールでの用途
ダルシーフラックス	連成解析で計算されたダルシーフラックスの分布を読み込むことで、現象解析モデルの結果として得られた水理場における核種移行解析を実施する。ダルシーフラックスを以下に示す間隙率で除して、実流速に換算する。
実効拡散係数	連成解析において、化学変遷や力学的変形を考慮した間隙率を反映させた実効拡散係数を読み込む。ただし、核種移行解析においては核種ごとに異なる実効拡散係数を、現象解析モデルとは独立に設定するケースも想定されることから、核種移行解析ツールにおいて別途実効拡散係数の値を指定するオプションも設定した。
間隙率	移行遅延の計算や上記の水理場（実流速場）の計算に必要となる間隙率を読み込む。
pH	K_dがpHに依存する場合に用いられる。
鉱物組成	連成解析において計算された鉱物組成の変化から乾燥密度を計算する。
モンモリロナイト残存量	K_dがモンモリロナイト残存量に依存する場合に用いる。

上記に示した解析を行うための核種移行モデルの概念図を図 4.3-1 に示す。上記で示したように、核種移行解析に使用されるK_dなどのパラメータは、ニアフィールド複合現象評価システムによる連成解析における化学－物質輸送解析で求められる、pH やモンモリロナイト含有量などの地球化学的なパラメータに依存する。そこで、核種移行解析モデルでは、化学－物質輸送解析と同様の解析体系及びメッシュ構造を用いるものとし、図 4.3-1 に示すように、ガラス固化体から放出した核種が、緩衝材、コンクリート支保及び EDZ を移行するものとしてモデルを構築した。核種はガラス固化体から調和溶解で放出するものとし、オーバーパックによる遅延効果などは考慮しなかった。EDZ の外側境界においてはゼロ濃度境界を設定した。

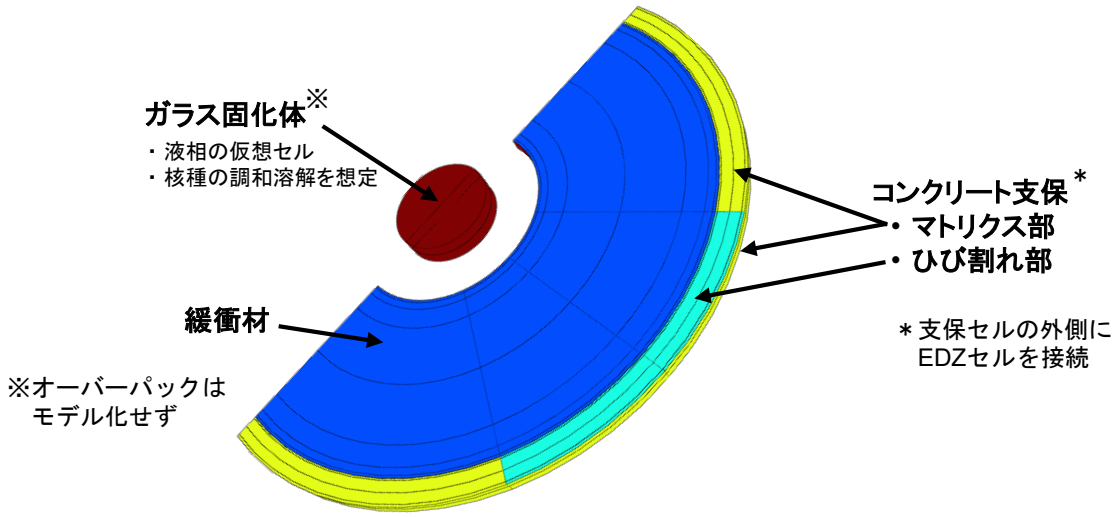


図 4.3-1　核種移行解析モデルの概念図

(2) 緩衝材における状態変遷を反映した核種移行解析

4.3.2 項(1)で構築した核種移行解析モデルを用いて、サブタスク 1 で対象とした複数の状態変遷のパターンが核種移行挙動に与える影響などを把握することを目的とした核種移行解析を実施した。核種移行解析で対象とした解析ケースを表 4.3-2 に示す。4.2 節で示した連成解析の結果から、モンモリロナイトの含有率に違いがみられた代表的なケースとして、表 4.2-5 で示した「緩衝材とオーバーパックとの相互作用において鉄との化学的相互作用のみを考慮するケース」の(a)と(b)を対象とするものとした。なお、ここでは、上記の(a)と(b)を対象とした 100 万年までの連成解析を行い、その結果から表 4.3-1 に示したパラメータを読み込んで核種移行解析を行った。

表 4.3-2　核種移行解析で対象とした解析ケース

解析パラメータ	(a)	(b)
支保のひび割れの開口幅	1 mm	1 mm
動水勾配	0.01	0.01
モンモリロナイトの反応比表面積（分散系での反応比表面積に対する倍率として表す）	1 倍	1 倍
コンクリート支保のひび割れと緩衝材との接触面積率	1%	50%
複合現象評価システムの解析で求められたモンモリロナイト残存率の平均値	76.2%	49.0%

1) 解析条件の設定

本解析においては、表 4.3-1 に示されている pH やモンモリロナイトの含有量に対するK_dが整備されている既往の核種移行パラメータのデータセットとして、RAMDA（Mihara and Sasaki, 2005）を参考とし、このデータセットにおいて上記に示した pH などの化学的指標に対して収着性が変化する核種として、Pd-107 と Cs-135 を選定した。これらの核種の緩衝材におけるK_dの設定値を表 4.3-3 に示す。溶解度については、RAMDA の設定値に従い、いずれの核種についても可溶性とした。

なお、表 4.3-3 に示している「変質ベントナイト」とは、クニゲル V1（20 wt%）とアナルサイム（80 wt%）の混合物であるとして RAMDA では定義されている。本解析では、これを参考として、モンモリロナイトの重量%濃度が 20 wt%を下回る場合に「変質ベントナイト」として定義した。なお、RAMDA では、これらの核種について変質ベントナイトのK_dは未変質ベントナイトより高い値となっているが、ここでは、RAMDA の設定値に加えて、未変質ベントナイトのK_dを 0.1 倍した値も設定するものとした。

緩衝材における核種の実効拡散係数については、RAMDA における陽イオンに対する実効拡散係数として 4×10^{-10} m²/s を採用した。

上記以外のパラメータとして、ガラス固化体中の上記の二つの核種の初期インベントリー（処分後 1,000 年後の値をインプットとする）、ガラス固化体の溶解速度、ガラス固化体や人工バリアの幾何学的形状については、第 2 次取りまとめにおける地下水シナリオのレファレンスケースの条件と同一とした。なお、本解析では、オーバーパックの閉じ込め時間を、第 2 次取りまとめと同様に 1,000 年とし、4.2 節で示した連成解析の開始時期が核種移行開始時期（処分後 1,000 年後）に一致するものとした。

表 4.3-3　収着分配係数 K_d の設定値

	未変質ベントナイト		変質したベントナイト※
	pH>11	pH<11	（pHに依存しない）
Pd-107	0.1	0.05	0.5　または　0.005
Cs-135	0.05	0.05	0.1　または　0.005

※ベントナイト中のモンモリロナイトの重量%濃度が 20%以下となった状態として定義。

2)　解析結果

解析結果として、10 万年後の単位体積当たりの Cs-135 の存在量の分布について、変質ベントナイトのK_dを未変質ベントナイトの値の 0.1 倍とする場合の例を図 4.3-2 に示す。pH 及びモンモリロナイト含有率などの化学的な場の状態の変化による影響については、モンモリロナイトの含有率の低下に伴う核種存在量の違いが認められた。

緩衝材とコンクリート支保との境界での Cs-135 の核種移行率を図 4.3-3 に示す。横軸は処分後にオーバーパックの閉じ込め機能が失われた後の経過時間である。縦軸は、核種移行率（緩衝材の入口及び出口境界を単位時間あたりに通過する核種の量）である。これらの核種移行率は、緩衝材外側の境界を単位時間あたりに通過する核種の量を積分したものである。図 4.3-3 より、核種移行開始後、約 2 万年後に核種移行率の値が上昇した。これは、モンモリロナイトの重量%濃度が 20%を下回り、K_dが急激に変化したことによるものである。このことから、複合現象評価による場の状態の変化を反映できる核種移行ツールが整備されたことが確認できた。

なお、Pd-107 については、Cs-135 とほぼ同様の傾向となったため、ここでは割愛する。

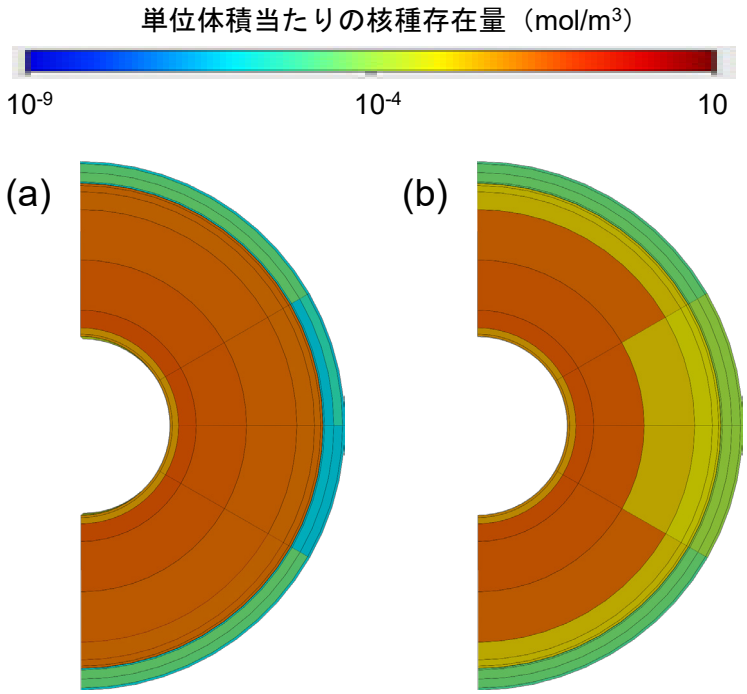


図 4.3-2　核種移行開始から 10 万年後の単位体積当たりの Cs-135 の存在量
（変質ベントナイトの K_d を未変質ベントナイトの値の 0.1 倍とした例）

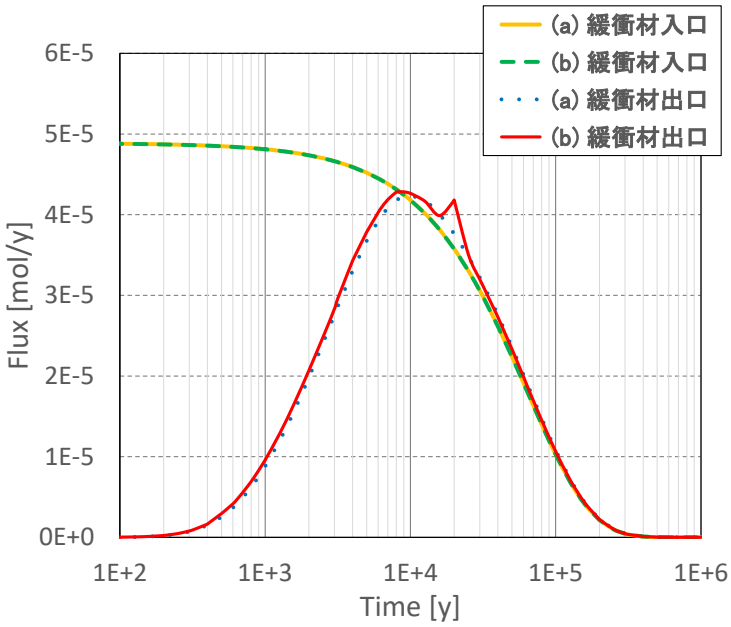


図 4.3-3　緩衝材の外側境界における Cs-135 の核種移行率の時間変化
（変質ベントナイトの K_d を未変質ベントナイトの値の 0.1 倍とした例）

(3)　状態変遷を反映した核種移行解析の性能評価での活用について

本項(1)で構築した、緩衝材における状態変遷の解析結果を反映して核種移行解析を行う手法は、ニアフィールドを対象とした性能評価手法の高度化に資するツールとして活用することができると考えられる。例えば、従来の性能評価のように定常かつ保守的な条件を想定するだけではなく、緩衝材において現実に起こり得る現象をモデル解析に反映させることによって、そのような現象が核種移行の遅延性能に与える影響を評価することが可能となることが期待される。また、従来の「保守的な性能評価」の結果との比較を通じて、その保守性の程度を定量化することにもつながり、これによって性能評価結果の説明性が向上することも期待される。

このような性能評価の説明性の向上には、核種移行解析などの結果からニアフィールドのどの部分でどのようなメカニズムで核種の閉じ込め性が発揮されているかを示すことが有効であると考えられる。本項(2)で示した、緩衝材の状態変遷を核種移行の場に反映した解析では、ニアフィールドの状態の変遷が核種移行に及ぼす影響を評価するための指標として、緩衝材とコンクリート支保との境界における核種移行率を採用した。この指標は、緩衝材の状態変遷が緩衝材全体の核種遅延性能に及ぼす影響を評価する上で有効である。しかし、緩衝材とコンクリート支保との境界の核種移行率の結果だけでは、緩衝材における状態変遷の帰結として生じ得る核種遅延性能の空間的な分布やその時間的な変化などの詳細な情報を把握することはできないことから、核種の閉じ込め性（核種をその場に留める能力）で鍵となるメカニズムや、それに影響し得る状態変遷のプロセスを把握することは困難である。

核種移行解析の結果から核種の閉じ込め性を定量化・可視化する手法を構築する上で、ニアフィールドのどこに、どのように核種が保持されているかを整理する手法が参考となる可能性がある。例えば、第 2 次取りまとめでは、地下水シナリオにおけるレファレンスケースの核種移行解析の結果から、Cs-135 及び Np-237 を対象として、核種が存在する場所（ガラス固化体や緩衝材など）や存在形態（収着、沈殿など）ごとに核種量の経時変化を整理することを通じて、各々の核種遅延性能が時間と共にどのように変化していくかを分析している（核燃料サイクル開発機構, 1999）。

また、核種の閉じ込め性は、核種移行の駆動力に対する遅延性と核種の化学的保持性に分けて整理することができ、例えば、以下のような分類に基づき、これらの組合せで閉じ込め性を評価することが有効となる可能性があると考えられる。

- 核種移行の駆動力に対する遅延性
  - ✓ 容器や緻密な境界層などにより核種の移行が生じない状態
  - ✓ 拡散によってのみ核種の移行が抑制されている状態

- 核種の化学的保持性
  - ✓ ガラス固化体と核種が調和溶解して移行が抑制されている状態
  - ✓ 沈殿として熱力学的に安定に核種が存在して移行が抑制されている状態
  - ✓ 収着によって核種が固相に存在して移行が抑制されている状態

このような分類で表される状態で存在する核種量の経時変化を整理することで、閉じ込め性を定量化・可視化することが期待できる。

4.3.3 2か年の成果と今後の課題

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。また、上記の整理結果に基づき、サブタスク1の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、核種移行解析と複合現象評価との間のデータの受け渡し構造を具体化して、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手法を構築すると共に、試行的な核種移行解析を実施することを通じて、複合現象の評価を核種移行に反映する手法を例示した。今後は、このような起こり得る場の状態の変化を反映した核種移行解析の結果からバリアの閉じ込め性能がどの程度期待できるかを定量化・可視化することなどにより、性能評価においてこのような核種移行解析の結果を活用する手法を構築することが必要と考えられる。

参考文献

Cama, J., Ganor, J., Ayora, C. and Lasaga, A.C., Smectite dissolution kinetics at 80℃ and pH 8.8. Geochim. Cosmochim. Acta, 64, pp.2701-2717, 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, ―第 2 次 TRU 廃棄物処分研究開発取りまとめ―, JNC TY1400 2005-002, FEPC TRU-TR2-2005-01, 2005a.

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―, 根拠資料集, 分冊 1 地層処分の工学技術、廃棄物処分の合理化、TRU 廃棄物処分の代替技術, JNC TY1450 2005-001(1), FEPC TRU-TR2-2005-03, 2005b.

土木学会, 2002 年制定 コンクリート標準示方書 構造性能照査編, 2002.

原子力環境整備促進・資金管理センター, 平成 24 年度 地層処分技術調査等事業 TRU 廃棄物処分技術 人工バリア長期性能評価技術開発報告書（第 1 分冊）, －人工バリアの長期挙動の評価－, 平成 25 年 3 月, 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, Vol.15, No.2, pp.97-114, 2016.

石川博久, 柴田雅博, 藤田朝雄, 放射性廃棄物処分における緩衝材のイライト化変質シミュレーション, 粘土科学 第 34 巻 第 3 号, pp.149-156, 1994.

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, －地層処分研究開発第 2 次取りまとめ－, 分冊 3 地層処分システムの安全評価, JNC TN1400 99-23, 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.

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.

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.

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, 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.
日本原子力研究開発機構, 原子力環境整備促進・資金管理センター, 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, 2019.
小田治恵, 本田 明, 高瀬博康, 小曽根健嗣, 佐々木良一, 山口耕平, 佐藤 努, セメント系材料由来のアルカリ性条件における緩衝材の鉱物学的変遷シナリオに基づく化学反応・物質移動連成解析, 粘土科学 第 51 巻 第 2 号, pp.34-49, 2013.
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.
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 （2020 年 2 月 14 日最終閲覧）.
Parkhurst, D. L., User's Guide to PHREEQC-A Computer Program for Speciation, Reaction-Path, Advective-Transport, and Inverse Geochemical Calculations, U. S. Geological Survey, Water-Resources Investigations Report 95-4227., 1995.
Parkhurst, D.L. and Appelo, C.A.J., Description of input and examples for PHREEQC version 3 - A computer program for speciation, batch-reaction, one-dimensional transport, and inverse geochemical calculations, Denver, CO., 2013.
Quintessa Ltd., QPAC: Quintessa's General-Purpose Modelling Software, QRS-QPAC-11, 2013.
Sato, T., Kuroda, M., Yokoyama, S., Tsutsui, M., Fukushi, T., Tanaka, T. and Nakayama, S., Dissolution mechanism and kinetics of smectite under alkaline conditions. Proceedings of the International Workshop on Bentonite-Cement Interaction in Repository Environments, NUMO-TR-04-05, pp.A3-38-A3-41, 2004.
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. 結言

5.1 ニアフィールドシステム評価確証技術開発の2か年における主な成果

本事業において、平成30年度～平成31年度で得られた主な成果と今後の課題を以下に記述する。

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、五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緩衝材中の環境条件に関するデータや解析結果に基づいて環境条件の推定を行うとともに、模擬オーバーパックに観察された不均一腐食のメカニズムを推定した。緩衝材中のpHは弱アルカリ性であることや、経時的に酸化還元性が還元性に変化していたことなどが推定された。また、模擬オーバーパックに観察された不均一な腐食は緩衝材上部に充填されていたケイ砂が緩衝材内側に混入したことに起因すると考えられ、マクロセル腐食のようなアノード反応とカソード反応の場所的な分離の可能性と全面腐食速度の場所による違いの可能性を検討し、後者によるものと推定した。模擬オーバーパックの腐食深さデータに基づいて過渡状態で想定される酸素による最大腐食深さを推定して従来の評価手法による推定と比較した結果、既往のモデルにより保守的な評価が可能であることが確認された。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、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確認された。また、炭酸塩中での炭素鋼の応力腐食割れ感受性に及ぼす共存化学種の影響として、炭素鋼の不動態に対して攻撃型のイオンである塩化物イオン、硫酸イオンに着目して共存や濃度による影響を予察的に調査した。その結果、塩化物イオン、硫酸イオンの共存によって応力腐食割れ感受性が高まる傾向が示唆されたが、濃度による影響は明瞭には認められず、過去のデータとの比較からこれらのイオンの影響は顕著ではないと推察された。

今後は、微生物の分析を含めて原位置試験試料の調査、分析を進めるとともに、室内試験による過渡状態での環境条件や不均一腐食の再現などにより、緩衝材中の環境条件と模擬オーバーパックの腐食メカニズムをより詳細に理解し、過渡状態での腐食挙動評価手法の高度化を図る。また、環境条件が腐食に与える影響に関し、緩衝材中の環境条件と変遷に関する理解を進めつつ、引き続き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、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。これらの検討においては、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。

次に、「緩衝材の変質挙動評価」では、原位置試験試料の変質挙動の調査においては、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を行った。その結果、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推測される結果が得られた。また、TEMなどにより変質鉱物の有無を詳細に観察したものの、モンモリロナイトの変質により生成すると考えられる鉱物は同定されなかった。ナチュラルアナログ事例に関する調査では、平成20年度以降に公表された学術論文などについての文献調査を行い、5件の重要事例を抽出して内容の調査を行うとともに、文献調

査により、より処分場に近い変質環境である金属鉄と直接接触した鉱物の変質事例はほとんど報告されていないことが明らかとなった。そのため、金属鉄と圧縮ベントナイトが接触しているナチュラルアナログ事例に関する知見の拡充のため、月布ベントナイト鉱山の支保工と接触したベントナイト試料を採取し、分析を行った。その結果、処分場の環境として想定される低酸素条件で変質したと推定される試料は採取できたであったものの、モンモリロナイトが変質して生成した鉱物は観察されず、また、支保工との接触界面を適切に維持した状態で試料を採取することが困難であることがわかっ推測された。

セメンテーションによる緩衝材の変質については、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存の手法を用いて、山形県月布のベントナイト鉱床の原鉱石及び再構成試料を対象とした膨潤圧・透水試験・標準圧密試験を実施してきた。セメンテーションの影響を受けていると推察される原鉱石については、圧縮ベントナイトと比べて膨潤圧は低下し、剛性は増加するという傾向が認められたが、透水性は変化が認められなかった。また、このような原鉱石及び再構成試料の基本特性の違いの要因を特定するため、電子顕微鏡などを用いた観察・分析を実施した。そして、地層処分で想定されている環境条件、時間スケールでセメンテーションが生じうるのか、セメンテーションの影響が長期的に持続するのかを評価するための実験的研究手法を検討した。

今後は、金属鉄と圧縮ベントナイトが接触しているナチュラルアナログ事例に関する知見の拡充について、これまでの調査は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や評価モデルの検証に使用する上で不十分であると考えられるため、鉄遺物に接触していた土壌の変質などの金属鉄との接触による鉱物の変質などのナチュラルアナログ事例を調査し、分析を進める予定である。セメンテーションが緩衝材の剛性に与える影響については、試験後試料の乾燥密度測定などにより、より詳細に検討していくとともに、試験データの拡充により剛性への影響の理解を進める。また、構成粒子の膨潤性の違いなど、観察・分析データを蓄積し、セメンテーション状態と基本特性の関係の考察を行う。そして、セメンテーションを正起させるための溶液通水試験や長期の膨潤圧試験などを利用したデータ取得を進める。

第三に、「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を対象としたTHM連成解析モデルの検証として、試験開始から5年間の評価に引き続き、その後の約13年間の解析を実施し、廃棄体を模擬したヒーターの加熱を停止した後の冷却期間を含めた19年間の全試験期間の評価を実施した。そして、緩衝材中に設置されたセンサーによって得られている計測データや、緩衝材のサンプリング試料から得られたデータなどを通じてTHM連成解析モデルの正確性の確認を行った。その結果、廃棄体を模擬したヒーターの加熱中及び加熱を停止した後の減熱過程における緩衝材中の温度を適切に再現できていることを確認した。これは、熱移動が熱伝導に支配されていることを示すものであり、正確な熱物性値を与えることで緩衝材中の温度環境を的確に予測することが可能であることが分かった。また、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、キャニスター近傍では緩衝材が乾燥する様子など全体的な浸潤挙動を再現できることを確認するとともに、緩衝材のサンプリング試料から得られた水分分布との比較により、原位置試験の浸潤挙動を適切に評価できていることを確認した。他方、浸潤が進んでいない比較的短期の解析評価において一定値として扱った温度勾配水分移動に関するパラメータについては、緩衝材への地下水の浸潤が進んだ長期間の評価を通じて、水分飽和度や温度などの変化が緩慢になる時期の水理挙動を再現するためには、温度勾配水分移動係数の水分飽和度依存性を考慮する必要があることが分かった。温度勾配による水分移動は、廃棄体周辺での緩衝材の乾燥の程度や、浸潤速度に大きく影響することから重要なパラメータの一つ

である。この値については、実験などに基づく測定例が少ことから、室内試験などを通じて水分飽和度依存性や温度依存性についてのデータを蓄積する必要がある。緩衝材の応力に関する解析評価では、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いないことから、解析結果は、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。しかしながら、緩衝材の浸潤が促進してブロック間の隙間が閉塞することによって計測値は上昇し解析値と一致する結果となっている。また、様々な処分概念や設計オプションに柔軟に対応できる解析モデルの構築の観点からも、これまでに評価実績の少ない廃棄体横置き方式の人工バリア仕様や、国産とは異なるベントナイトに対しても有効であることを確認することができた。以上FEBEXプロジェクトにおける原位置試験を対象とした長期の解析評価を通じて、熱、水理、及び力学特性の相互作用のうち、力学的挙動の帰結として熱特性及び水理特性におよぼす影響を除く部分について妥当性を確認した。

一方、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連成モデルの検証では、海水系地下水環境下における浸潤評価を行うために必要となる緩衝材の不飽和水理パラメータを取得し、これに基づき、廃棄体を模擬したヒーターの発熱とセメントの影響を考慮した地下水の浸潤にともなう緩衝材間隙水の化学的な環境変化に着目したTHMC連成解析を実施した。そして、コンクリート支保の影響を受けた地下水が浸潤する緩衝材の間隙水組成や、間隙水の酸化還元電位を把握した。さらに、オーバーパック腐食試験において計測された緩衝材の間隙水pHとpeを再現できていることを確認した。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解析評価を通じて、熱、水理、及び地球化学特性の相互作用による緩衝材の間隙水化学に関する評価の妥当性を確認した。

ニアフィールド長期力学評価に必要な解析コード開発としては、ニアフィールド長期力学解析コードMACBECEに飽和度分布を入力して再冠水時の緩衝材の力学挙動を解析する機能を追加し、処分施設の各材料及び周辺岩盤の力学的な相互作用を再冠水時から長期までの一貫した評価が可能となった。それにより、過渡期の処分施設の力学的な状態変化やそれが長期的な力学挙動に与える影響を評価できるようになった。そして、過渡期の緩衝材の力学モデルの高度化に向けて、エックス線CT測定による膨潤圧試験中の供試体内部の観察を試み、膨潤圧の変化と供試体内部の状態変化の関係を把握した。また、メソMD解析手法による粘土含水系の組織構造モデルを用いて、その組織構造の特徴を示す実測可能かつ物理的な意味が明確な物理量（マクロ物性など）の定量的な評価に向けての検討を進め、メソMD解析結果の組織構造から粘土分子の平均的な積層数や層間距離などを評価する手法を構築し評価を試行した。

今後は、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に、埋戻し材を有する廃棄体縦置き仕様において、埋戻し材中への緩衝材の膨出にともなう力学特性の変化がおよぼす熱特性及び水理特性への影響を考慮した再現解析を実施し、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THM連成解析モデルの正確性を確認していく。また、THMC連成解析モデルを活用し、オーバーパックの腐食挙動に影響をおよぼすと考えられている塩化物イオンや炭酸イオン濃度など、オーバーパックの腐食評価に必要となる情報を提供していくとともに、原位置試験のサンプリング試料の分析結果などから得られる緩衝材の変質や二次鉱物の生成の有無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が求められる。さらに、本研究で得られた温度勾配水分移動係数の水分飽和度依存性や、海水系の地下水浸潤モデルを用いて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THMC連成解析を実施し、海水系地下水環境下における人工バリアの浸潤挙動を把握していく必要がある。ニアフィールドの力学挙動評価として、より現実的に過渡期の処分施設の変形を評価できる解析手法を構築するためには、廃棄体の発熱による処分施設の温度変化に伴う構成材料の熱膨張や熱収縮などの温度変化による

処分施設の変形を解析できるように拡張するなどの取り組みが必要である。エックス線CT測定による膨潤圧試験中の供試体内部の観察については、初期乾燥密度の高い領域からの浸潤だけではなく反対側からの浸潤や、初期乾燥密度分布の小さい場合などについても検討を行い、さらなる試験データの蓄積による膨潤挙動の現象理解を進めていくことが必要である。また、膨潤圧試験装置内での供試体のCT値と湿潤密度の関係を把握し、得られたCT値を湿潤密度に変換することで、力学モデルの開発・高度化のためのデータとして活用していくことが求められる。一方、粒子数密度分布（間隙サイズ）や粒子方向分布（配向性）の評価手法は、今後、メソMD解析に基づく粘土含水系の組織構造と物質輸送特性との間に存在する因果関係を調べる上で必要な技術になるものと考えられる。例えば、粒子数密度分布のデータに基づきメソ間隙とナノ間隙を区別することは、今後マルチスケール解析を行っていく際に、ナノ構造を均質化してメソ多孔質体モデルを作成していくために必要になる。また、局所的な配向性のデータは、圧縮性及び透水や拡散などの物質輸送現象についての異方性を理解する上で重要な指標になることが期待される。さらに、実験データとの比較により、メソMD手法及び本項で構築した評価手法などの妥当性の検証を進めていくことも今後の重要な課題となる。

第四に「母岩中アルカリプルーム反応輸送挙動評価」では、セメント由来によるアルカリプルームが地下水や岩盤へ与える影響として、グラウチング施工後11年経過した瑞浪での調査（坑道開放状態）においては、施工後2年～3年を除いて地下水水質の変動は確認されなかった。また、周辺岩盤への影響も確認されなかった。原位置のグラウト材の状態は試料採取箇所によって異なっていることが確認された。その結果、プレグラウチング施工後初期の段階でグラウト材のポルトランダイトの溶脱やカルサイトへの変質析出やポルトランダイトの溶脱の発生後は、その状態が維持されていると考えられた。なお、この状況は坑道が開放されて地下水の流動勾配がある状態で、坑道掘削が深部に進んだ後、坑道維持が5年程度継続したことに伴って浅部と深部の地下水が混合して定常化された条件での結果であることに留意する必要がある。

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評価においては、処分孔の支保工とそれに交差する単一の亀裂を対象とした反応輸送解析モデルを構築し、支保工からのアルカリの影響が処分孔近傍に留まるか否かの条件を把握することを目的とする感度解析を行った。その結果、アルカリの影響が数m程度の下流にまで及ぶ可能性があることが示唆された。そして、支保工やグラウトに由来するアルカリプルームがニアフィールド岩盤に及ぼす影響を評価する手法の高度化に向けた研究アプローチを提示した。

今後は、グラウチング施工後11年経過した瑞浪での調査により原位置や室内試験でこれまでに得られたデータを用いて、坑道閉鎖によって地下水の流動勾配が無くなった状態で、グラウト材の変質の有無が地下水や岩盤に対してどのような影響を及ぼすのか、解析によって把握する必要がある。また、支保工からのアルカリプルームが下流側まで広がる要因の分析や、亀裂ネットワークモデルによる水理解析と化学-物質輸送解析との連成が必要となる条件などの把握が課題である。

最後に、「流出現象など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の原位置での地下環境での自然湧水条件において、緩衝材流出現象を把握し、定置後初期流出量が多いことを確認した。また、ケイ砂を充填した場合には緩衝材の流出濃度が低くなり、流出が抑制されること

を示した。さらに、緩衝材の再冠水プロセスを対象とした解析モデルの開発として、不飽和から飽和に至る過程でのベントナイト材料の膨潤による隙間の閉塞プロセスとその後の密度分布の変化に関する力学解析方法を検討し、土骨格の変形を支配するモデルとして塑性膨潤の概念を取り入れた弾塑性構成モデルによりベントナイト緩衝材の力学応答を表現できる可能性を示した。また、縮尺と遠心加速度を変えた遠心模型試験（20G～40G）を行い、緩衝材中への水の浸潤については加速試験として成立することを確認した。しかし、1G場試験に比べて浸潤速度は遅くなる傾向が見られた。遠心模型試験で1G場試験の結果を完全に再現することは難しいが、例えば、1G場試験と遠心模型試験における緩衝材中の水の飽和までの時間の違いを定量的に把握した上で、人工バリアを含む遠心模型試験を実施することで、実スケールの緩衝材の飽和時間の推定や再冠水後の人工バリアの状態把握に活用することができると考えられる。

今後は、緩衝材流出と工学的対策に係る現象把握とメカニズムの理解に向けた室内試験を継続して行うとともに、地下環境において、流出現象の緩衝材の膨潤、地下水環境の影響による変化などを把握するためにさらに長期的な試験を行い、確認する必要がある。また、緩衝材の再冠水プロセスを対象とした解析モデルの開発では、多次元化や実規模を対象としたモデル体系の構築やパラメータ値設定手法を整備していく必要がある。

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などを通じて開発することを目的に、ニアフィールド岩盤中の核種移行評価技術の開発、システム変遷などを考慮した核種移行解析モデル/データベースの整備、有機物・微生物の影響評価技術の開発、の三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、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など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などを通じた高度化と適用性評価を進めた。そのうち結晶質岩のマトリクス部については、スイスグリムゼルの花崗閃緑岩やフィンランドオンカロの片麻岩などのマトリクス部を対象として、黒雲母などの鉱物分布などの不均質性の定量評価手法の改良を進め、室内試験や原位置試験で得られたデータとの比較によって、黒雲母などの分布の特徴が核種拡散へ及ぼす影響を明らかにした。結晶質岩の割れ目部については、グリムゼルの岩石割れ目部を対象として、より複雑な割れ目性状を有する試料を用いた室内トレーサー試験データを取得し、実際の割れ目の特徴を考慮したモデルの改良と適用性の確認を進めたほか、大型の割れ目試料を対象に、室内トレーサー試験、収着・拡散試験、各種分析によって核種移行データや割れ目周辺の鉱物・間隙などの分布に関するデータを取得した。

今後は、結晶質岩のマトリクス部については、これまでに開発してきた不均質性を考慮したモデルの室内試験や原位置試験データへの適用評価事例を拡充し、その有効性を確認するとともに、さらに多様な結晶質岩への適用評価を進める。結晶質岩の割れ目部については、グリムゼルの大型コア試料を用いたトレーサー試験後の試料分析と、一連のデータを解釈するためのモデルの改良と適用性評価を進める。さらに、これまでに得られた知見を反映しつつ、実際の地質環境の不均質性や環境条件の変遷などが核種移行へ及ぼす影響を取り扱うための解析手法の構築と改良を進め、原位置試験や天然事例などに基づく妥当性確認を進める。

堆積岩のマトリクス部については、幌延URLの泥岩（稚内層）マトリクス部を対象とし、鉱物や間隙の不均質性や核種移行特性を室内拡散試験やNMR分析によって把握するとともに、それを反映したモデルの適用事例を提示した。また、幌延URLで実施した層理面に対する異方性に着目

したマトリクス部の拡散試験を対象に、試験後の岩石試料の分析によって層理面に対する異方性が拡散に及ぼす影響を検討した。堆積岩の割れ目部については、幌延URLで実施された割れ目中の原位置トレーサー試験を対象に、試験後試料の分析によって移行経路を把握するとともに、複数の移行経路や不均質な流れ場を考慮したモデルの改良と適用性の検討を進めた。さらに、幌延URLにおける地質環境の長期変遷などを考慮したナチュラルトレーサーの評価手法について、反応性トレーサーを対象とした解析に向けた既存データの信頼性や補正手法の検討を進めた。

今後は、堆積岩のマトリクス部について、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モデルの改良と、層理面に対する異方性や塩濃度などの地下水条件の違いによる影響の評価を進めるとともに、これまでに取得された一連の原位置試験データへの適用を通じてモデルの妥当性を確認する。堆積岩の割れ目部については、幌延URLにおける割れ目中の原位置トレーサー試験結果を対象に、上記で構築した不均質などを考慮した核種移行モデルの適用性評価と妥当性評価を進めるほか、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など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、ニアフィールド環境の変遷や地下水条件などの地質環境の長期変遷などのうち、オーバーパックからの鉄が緩衝材などにおける核種移行へ及ぼす影響、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、高炭酸濃度の地下水が岩石や粘土鉱物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のうち、ベントナイト緩衝材中における鉄と核種の競合収着については、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するとともに、共存するFe(II)濃度が異なる3条件でモンモリロナイトへのAmの収着データのpH依存性を取得し、Am(III)の場合には、Ni(II)の場合とは異なり、Fe(II)とは収着競合しない可能性をした。また、Fe(II)鉱物へのSe(-II)の取り込み挙動については、試験方法とpH条件の異なる2つの試験で得られた初期生成固相から安定固相への変化とSeの取込、保持、脱離挙動を、XAFS分析やSEM分析などを組合せた評価によりそのメカニズムを解明したほか、幌延の泥岩中のFe鉱物へのSeの取り込みに関する検討に着手した。

今後は、鉄と核種の競合収着については、AmやNiのFe(II)との収着競合データを拡充するとともに、他の核種（II価金属やIV価以上のアクチニド核種など）でもデータを取得し、Fe(II)との競合影響評価手法を構築する。また、Fe(II)鉱物へのSe(-II)の取り込み挙動については、2種類の試験方法を異なるpH条件やSe初期濃度で実施し、多様な環境条件でのFe(II)鉱物へのSe(-II)の取り込みに関する評価モデルの妥当性を確認するとともに、幌延の天然の泥岩を対象とした分析試験による天然環境中でのSeとFeの挙動の理解とあわせて、FeとSeの相互作用メカニズムを解明する。

セメント共存系での核種移行影響評価のうち、セメント共存による圧縮ベントナイト中のコロイドフィルトレーション機能への影響については、高密度条件（乾燥密度1.2～1.6Mg/m^3）でのデンドリマーコロイドの移行・ろ過データを取得するとともに、サイズの異なるデンドリマーコロイドを用いたデータ取得を行い、濃度プロファイルを含めた解釈からろ過率を評価する手法を提案した。セメント系材料が岩石中の核種移行へ与える影響については、幌延の泥岩-セメント接触領域を対象に、セメントの種類（普通ポルトランドセメントや低アルカリセメント）や接触期間（5年～10年程度）の差異に着目した変質状況などに関する分析データから、岩石中への二次鉱物の生成とそのセメント種類による差異を確認した。また、セメント共存による鉱物変遷などに伴

う収着影響に関する文献調査と課題抽出を行った。

今後は、セメント共存による圧縮ベントナイト中のコロイドフィルトレーション機能への影響については、高密度条件や異なるコロイドサイズでのコロイド移行・ろ過データを拡充し、これまでに取得してきたCa型（及びNa型）の一連のデータの評価から、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・ろ過特性を評価する。また、セメント系材料が岩石中の核種移行へ与える影響については、幌延の泥岩-セメント接触試料の分析データを拡充するとともに、界面近傍に生成した二次鉱物中の微量元素の分析などにより核種との相互作用に係る知見を得るとともに，2章に示したセメントによる岩石中の鉱物・間隙の変遷評価とあわせて、そのような環境変遷が核種移行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については、イライト・スメクタイト及び幌延の泥岩を対象にTh，Amの高炭酸条件下での収着データを拡充し、複数の粘土鉱物の加成則に基づく収着モデルの適用性を確認した。また、高炭酸条件での収着メカニズム解明のためのTRLFS分析技術の適用に向けてUを対象にした予察分析を実施した。そして、炭酸濃度が異なる条件下でのモンモリロナイト中のNpの拡散データを取得し、その結果に対してベントナイト中の収着・拡散モデルの適用性を提示した。さらに、分子動力学計算や第一原理計算による炭酸錯体などの拡散・収着挙動の解明に向けた解析手法の調査と解析事例の拡充を行い、高炭酸条件における核種移行評価モデルの構築に必要な知見を提示した。

今後は、高炭酸条件でのAmやUなど核種の収着・拡散データの拡充に加え、先端的な分析技術（TRLFSなど）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を構築する。

最後に、「有機物・微生物の影響評価技術の開発」のうち、有機物影響評価技術の開発としては、FFF-ICPMS法を用いてZr4+と幌延深部地下水から分離・精製したフミン酸・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の整備を行った。また、FFF-ICPMS法では腐植物質の回収率が低く、錯生成データの妥当性が明らかでないという課題に対して、試料の損失が極めて少ないCE-ICPMS法による錯生成データ取得手法を整備し、その適用性を確認した。さらに、小角散乱を用いたZr4+との結合による幌延深部地下水フミン酸の構造変化や、熱量滴定法によるZr4+の加水分解反応熱力学量など、Zr4+と腐植物質の錯生成反応機構の理解に資するデータの取得を進めた。核種-有機物-岩三元系での核種収着モデルの開発については、地質環境条件（有機物、岩石、地下水条件）の多様性や複雑性に着目した文献調査から課題を抽出し、核種-有機物二元系における収着反応機構に関する予察的なデータ取得を行った。

今後は、NICA-Donnanモデルパラメータの整備を進め、幌延深部地下水から抽出・精製したフミン酸・フルボ酸について更に多様な条件下での錯生成データの取得を進める必要がある。さらに、幌延深部地下水フミン酸に対してCE-ICPMS法を適用し、錯生成データの取得及びNICA-Donnanモデルの当てはめを行うことで、モデルパラメータの妥当性を多角的に評価することも必要となる。IV価核種と腐植物質の錯生成反応機構の理解のためには、熱量滴定法による熱力学量の導出などのデータ取得を進めていく必要がある。核種-有機物-三元系の核種収着モデルの開発に向けては、反応の瞬時・可逆性の観点でデータ取得を進めるとともに、幌延深部地下環境中の実地下水、堆積岩を使用した室内試験を行うことで、核種収着のデータ整備を進めていく。

微生物影響評価技術の開発としては、核種移行への影響の観点から文献調査を行い、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。抽出された重要度の高い研究課題を踏まえて、幌延URLの深度140 m及び250 mのボーリング孔から採取した地下水に対し、全コロイド（無機/有機）のうち、バイオコロイドへの希土類元素の収着特性データを取得した。バイオフィルムの核種移行影響評価に関しては、幌延の地下環境を対象として、バイオフィルムの分布とその形成の潜在能力、収着特性について評価手法を提示した。また、幌延の地下環境において形成されているバイオフィルムには、重金属元素が濃集することが確認されたが、バイオフィルムへの元素の濃集はバイオフィルム構成微生物種ではなく、主に細胞外高分子物質の量に起因する可能性が示唆された。バイオフィルムを形成しているSM1種は、坑道壁面近傍に優占して分布することが示されるとともに、一部の領域では時間の経過とともに出現率が減少することが示されたことから、SM1種によるバイオフィルム形成が顕著にみられる領域は坑道近傍のニアフィールド領域に限定され、坑道掘削から時間が経過するにつれて減退する可能性が示唆された。

今後は、核種移行に及ぼす微生物影響評価モデルの構築とパラメータ整備を目的として、バイオコロイドへの希土類元素の収着分配係数について、再現性確認試験によりデータの信頼性を向上させるとともに、様々な地下水水質を対象とした収着挙動評価に加えて希土類元素以外の重要核種についても評価を行い、収着データを拡充する必要がある。また、地下に生息する微生物生態系や施設建設過程におけるバイオフィルムを含めた微生物特性の変化の基礎情報に関する知見の拡充により、より信頼性の高い微生物影響評価につなげることができる。さらに、主要な微生物の代謝機能や官能基などの情報を取得することにより、バイオコロイド及びバイオフィルムへの核種の収着・取込メカニズムの解明を目指す。

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、二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、個別の現象モデルやパラメータ整備の成果を統合するだけではなく、性能評価の観点からトップダウン的に重要な機能や関連する現象を抽出する手法を組み合わせた研究開発のアプローチを提案した。また、こ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した。さらに、このプロトタイプを活用して、緩衝材の機能の維持／喪失の可能性を左右し得る状態の変化のパターンに着目した感度解析を行い、ニアフィールド複合現象の評価手法を例示すると共に、この解析結果に基づき評価システムの高度化に向けた課題を抽出した。

今後は、過渡期の状態の変化や岩盤との相互作用などによる影響も考慮しつつ、緩衝材の長期変遷挙動の結果として緩衝材に期待される機能が維持／喪失される条件を定量化できるようにするためにプロトタイプの機能を拡張していくことが必要と考えられる。

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、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。そして、その整理結果に基づき、「現象解析モデルの統合化技術の構築」の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、核種移行解析と複合現象評価との間のデータの受け渡し構造を具体化して、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手法を構築すると共に、試行的な核種移行解析を実施することを通じて、複合現象の評価を核種移行に反映する手法を例示した。

今後は、このような起こり得る場の状態の変化を反映した核種移行解析の結果からバリアの閉じ込め性能がどの程度期待できるかを定量化・可視化することなどにより、性能評価においてこのような核種移行解析の結果を活用する手法を構築することが必要と考えられる。

5.2 おわりに

本報告書は、平成31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。

付録 A

排水量増加の要因分析に関する解析の詳細

(本編 2.6 項に付す)

原位置試験の緩衝材ブロックと孔壁の隙間にケイ砂を充填したケース 1 の流出試験において、試験期間中に排水量が増加する現象が生じた。本現象の要因を分析・検討するため、緩衝材の膨潤圧が試験孔壁に作用した場合の、孔壁部分のひずみ、応力状態についての数値解析を実施した。本文中には概要を述べているが、ここでは、解析条件と結果について詳細を示す。

(a)　解析条件

a) 解析コード

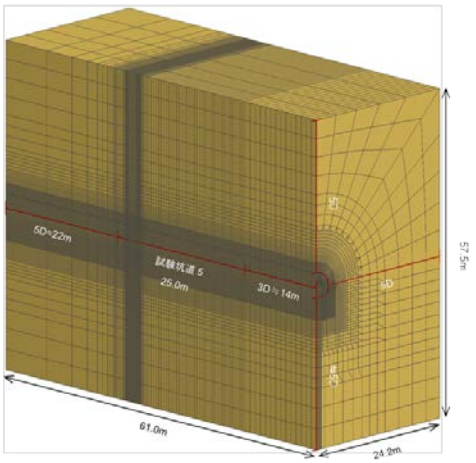
三次元有限差分コード FLAC3D ver.5.01

b) 解析メッシュ

解析メッシュの全体図、解析メッシュの試験孔を含む坑道近傍の拡大図、試験孔周辺の拡大図を図 A-1～図 A-2 に示す。本検討では，試験坑道 5 から分岐した枝坑、および今回の解析の対象である試験孔 2 の両隣に施工された試験孔 1 と試験孔 3 については、モデル化していない。メッシュの規模は、検討対象である試験孔周辺に境界の影響が及ばないように、以下とした。

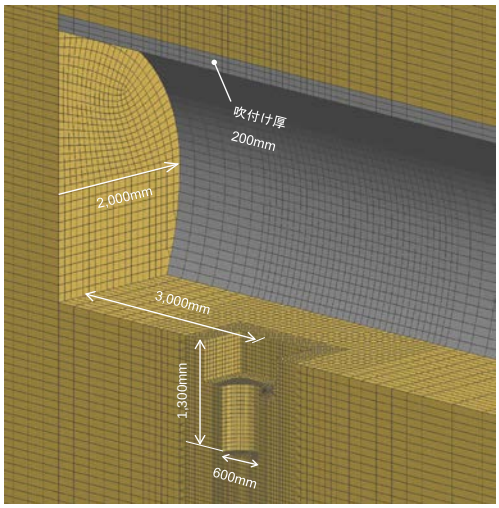
- 坑道断面の径方向　　空洞壁面より 5D（D：試験坑道 5 の掘削径 4.4 m）程度
- 坑道軸方向　　妻部から奥は 5D
  掘削部は試験坑道坑口から 3D 程度

解析モデルは坑道断面方向に対称であるため、解析メッシュは 1/2 モデルとした。また、モデル化する支保部材は、吹付けコンクリートと鋼製支保工の 2 部材のみとし、ロックボルトは実施設計に準拠して割愛した。支保部材を表す要素として、吹付けコンクリートはソリッド要素、鋼製支保工はビーム要素でモデル化した。なお、路盤コンクリートはモデル化しなかった。境界条件は、解析メッシュ境界面の法線方向変位を拘束した。

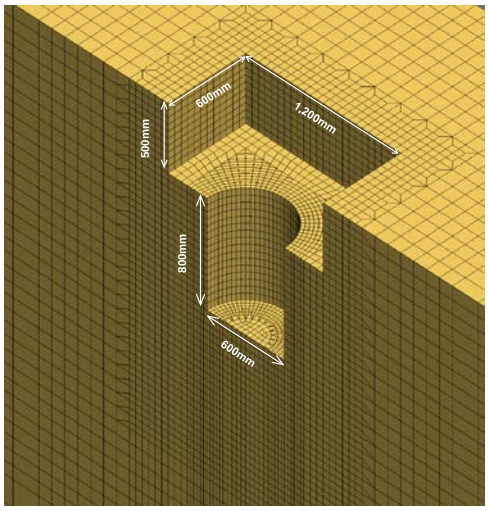


全体

図 A-1　解析メッシュ（1/2）



a) 解析対象部拡大図



b) 試験孔 2 拡大図

図 A-2　解析メッシュ（2/2）

c) 物性値

① 初期応力

350 m 坑道の初期応力は、試験坑道 5 の坑道軸方向が東西方向となるように設定した。表 A-1 に設定した初期応力の諸元を示す。

表 A-1　解析用：深度 350 m の初期応力

深度 (m)	鉛直応力 S_v (kN/m²)	水平応力 S_h (kN/m²)	
		東西方向	南北方向
350	5,359	S_v×1.3 (6,967)	S_v×0.9 (4,823)

② 岩盤物性値

試験坑道 5 の岩盤等級は、試験坑道 5 の施工時の切羽観察結果から、CM-M(Hr)を採用した。

岩盤物性値は表 A-2 に示す実施設計に用いた各岩盤等級の値を採用した。岩盤のモデル化は Mohr-Coulomb の破壊規準に従う弾完全塑性体とし，塑性流動則には非関連流れ則を使用した。

表 A-2　解析用：岩盤物性値（森岡ら，2006）

岩盤等級	弾性係数 (MPa)	ポアソン比	単位体積重量 (kN/m³)	粘着力 (MPa)	内部摩擦角 (deg.)	引張強度 (MPa)
CM-M(Hr)	1,350	0.186	18.5	1.6	25	0.50

③ 支保工物性値

支保部材の物性値を表 A-3 に示す。支保部材は弾性体としてモデル化した。なお、実際の施工期間において、試験坑道 5 の施工完了から試験孔を掘削するまでにかなりの施工休止期間があったため、吹付けコンクリートの弾性係数については、弱材齢の場合と硬化後の場合の 2 種類を設定した。解析に際し、試験坑道 5 の施工（支保設置まで）が終了するまでは弱材齢の値を使用し、試験孔の掘削直前に硬化後の値に変更した。また、試験孔内（実際のコンクリートピットも含む）は無支保とした。

表 A-3　解析用：支保工物性値

	鋼製支保工	吹付けコンクリート	
規格・仕様	H-150 (SS400)	t=20 cm、(f'_{ck}=36 N/mm²)	
弾性係数(kN/mm²)	210	弱材齢	硬化後（28d）
		6	29.6
ポアソン比	0.3	0.2	
断面積(m²)	39.65×10^{-4}	―	
断面二次モーメント(m⁴)	$1{,}620\times10^{-8}$	―	
要素種別	ビーム要素	ソリッド要素	

d) 解析ステップ

解析ステップを図 A-3 に示す。

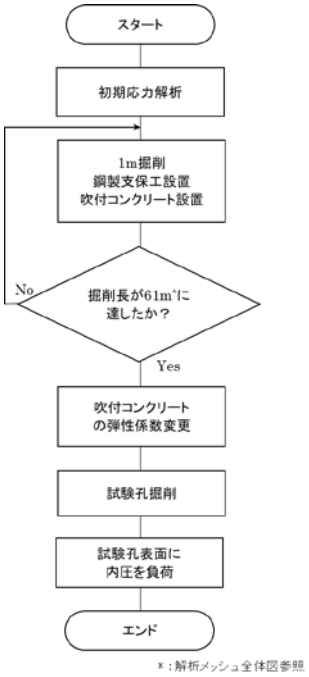


図 A-3　解析ステップ

e) 解析ケース

解析は表 A-4 に示す 2 ケースを実施した。ケース 1 の流出試験（ケイ砂充填）の結果より、鉛直方向の膨潤圧の最大値が 3 MPa であったことから、解析ケース 1 では、すべての方向の土圧を 3 MPa とした。一方、解析ケース 2 は、鉛直方向の土圧は 3 MPa、水平方向の土圧は 0.8 MPa とした。

表 A-4　解析ケース

	壁面内圧（MPa）	底盤内圧（MPa）
解析ケース 1	3.0	3.0
解析ケース 2	0.8	3.0

また、解析時に土圧を負荷した状況、すなわち試験孔 2 の表面にベントナイトブロックの膨潤よる内圧を負荷した状況を図 A-4 に示す。

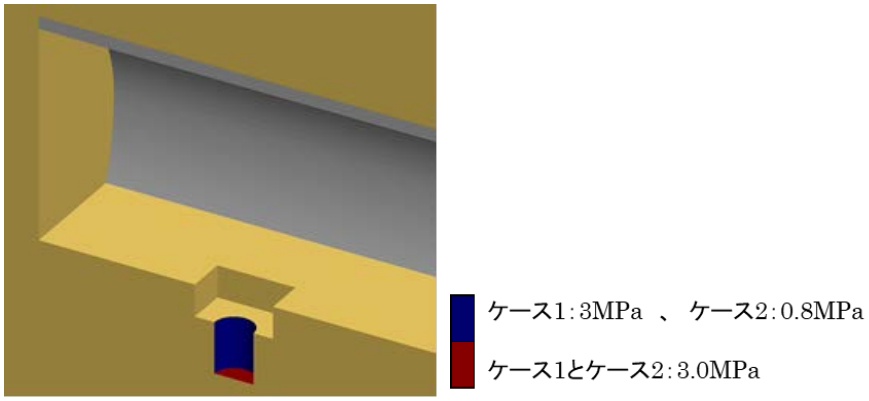


図 A-4　解析状況（試験孔壁面に内圧負荷）

(b)解析結果

解析結果の各値は、試験孔内に内圧を負荷させたことにより発生した増分の値である。

a) 最大せん断ひずみ

ケース 1 では､試験孔の壁面全体に約 0.4%の最大せん断ひずみが発生していることがわかる。また、孔口部が最大値で 048%であった。

ケース 2 では試験孔の壁面全体に最大せん断ひずみは 0.1%程度であった。最大値は底盤部で 0.35%であった。

b) 変形量

最大値は両ケースとも底盤に発生しており、ケース 1 の場合は 0.81 mm、ケース 2 の場合は 0.94 mm となった。また、変形する方向も等しく、外側に変位した。なお、ケース 1 の場合は孔口部でも変形量が 0.7 mm と比較的大きい値となった。

c) 周方向応力

試験孔壁面に着目すると、両ケースとも引張り応力が発生していた。その最大値は、ケース 1 で 2.4 MPa、ケース 2 では 0.65 MPa であった。

d) 半径方向応力

試験孔壁面に着目すると、両ケースとも圧縮応力が発生していた。その最大値は、ケース 1 では 3.0 MPa、ケース 2 では 0.80 MPa と負荷された内圧であった。影響範囲を確認すると、ケース 1 の場合は孔壁から約 50 cm、ケース 2 の場合は孔壁から約 20 cm と狭い範囲であった。

e) 鉛直方向応力

試験孔底盤に着目すると、両ケースとも圧縮応力が発生しており、最大値が 3.0 MPa と、負荷された内圧であった｡影響範囲を確認すると､どちらの場合も底盤から約 50 cm の範囲であった。また、底盤から上方 10 cm までには引張応力が発生していた。

上記の解析結果のうち最大せん断ひずみ分布を図 A-5 に示す。なお、妻部、または坑道（空洞）の影響を把握するために、のように表示方向を変えて両者を比較した。その結果、どちらの影響もみられず、同じ傾向を示した。

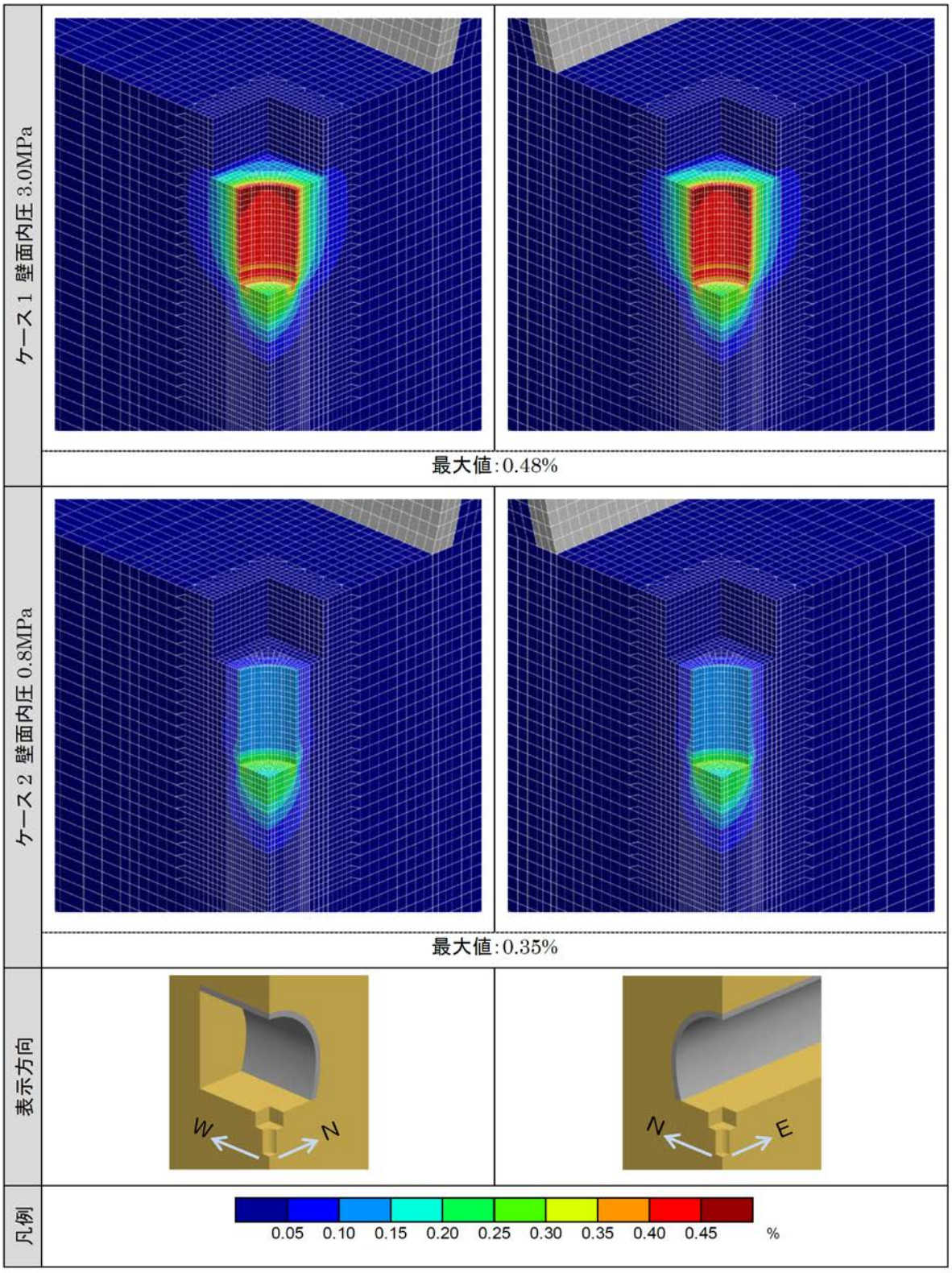


図 A-5　最大せん断ひずみ分布（内圧負荷後の増分）：再掲

(c)　排水量増加の要因分析の検討

a) 最大せん断ひずみの検討

試験孔壁面の安定性の評価について、一般的なトンネル掘削における切羽の安定性を評価する場合と同様に、最大せん断ひずみによって行うこととした。今回、解析に使用した物性値から、桜井ら（1988）が提案している限界ひずみ、および限界せん断ひずみを求め、解析結果における最大せん断ひずみの値と比較した。指標とした限界ひずみの算出式を以下に示す。

上限値：$\log\varepsilon_0 = -0.25\log E - 1.10$

中央値：$\log\varepsilon_0 = -0.25\log E - 1.47$

下限値：$\log\varepsilon_0 = -0.25\log E - 1.84$

ε_0は限界ひずみ、E は解析に用いた弾性係数を示す。

桜井ら（1988）によると、上限値を超えると「崩壊領域」、中央値～上限値は「不安定領域」、中央値～下限値は「やや不安定領域」、下限値以下は「安定領域」と定義されている。

以下に、限界せん断ひずみの算出式を示す。

$\gamma_0 = (1+\nu) \times \varepsilon_0$

γ_0は限界せん断ひずみ、νは解析に用いたポアソン比、ε_0は解析に用いた弾性係数を示す。

表 A-5 に解析に使用した物性値と、上記の式より求めた限界せん断ひずみを示す。

表 A-5　限界せん断ひずみ

岩盤等級	弾性係数（MPa）	ポアソン比	限界せん断ひずみ（%）		
			上限値	中央値	下限値
CM-M（Hr）	1,350	0.186	1.55	0.66	0.28

図 A-5 に示した解析結果より、最大せん断ひずみの最大値は、ケース 1 の場合 0.48%、ケース 2 の場合は 0.35%であった。これらは、限界せん断ひずみの指標の「中央値～下限値」の範囲にあり、孔壁の安定性評価では「やや不安定」と評価されることが確認できた。一方、孔壁全体の最大せん断ひずみはケース 1 の場合は 0.4%、ケース 2 の場合は 0.1%であり、孔壁の安定性評価では、ケース 1 の場合は「やや不安定」、ケース 2 の場合は下限値以下のため「安定」領域と評価されることが確認できる。

b) 孔壁に発生した応力の検討

幌延 URL 深度 350 m で採取したコアで実施した力学試験結果を表 A-6 に示す。前述した周方向応力の解析結果より、試験孔表面の周方向に発生した最大応力は、ケース 1 は 2.4 MPa の引張応力、ケース 2 は 0.65 MPa の引張り応力であった。一方、試験の場である孔口から深度約 50 cm の位置での応力はいずれも引張応力で、その値はケース 1 では約 2 MPa、ケース 2 では約 1 MPa であった。表 A-6 の圧裂引張強さの値と比較すると、両ケースとも若干不安定であることが確認できる。

半径方向応力および鉛直方向応力の解析結果より、孔壁に発生した最大応力は、ケース 1 では半径方向応力 3.0 MPa、鉛直方向で 3.0 MPa の圧縮応力（いずれも負荷した応力）、ケース 2 では半径方向応力 0.8 MPa、鉛直方向で 3.0 MPa の圧縮応力（いずれも負荷した応力）であった。これより、孔壁に発生した圧縮応力は一軸圧縮強さと比較して小さい値であり、孔壁が破壊する可能性はほとんどないと考えられる。

表 A-6　コアによる力学試験結果（青柳ら，2015）

深度	一軸圧縮強さ平均値（MPa）	圧裂引張強さ平均値（MPa）
350 m	26.6	2.4
標準偏差（MPa）	8.7	0.8

参考文献

青柳和平, 櫻井彰孝, 丹生屋純夫, 延深地層研究センターの 350 m ポンプ座における初期地圧測定, JAEA-Data/Code2015-010, 2015.

森岡博之, 尾留川剛, 村川史朗, 菅原健太郎, 小林隆志, 幌延深地層研究計画における地下研究坑道の支保設計, 第 35 回岩盤力学に関するシンポジウム講演論文集, pp. 69-74, 2006.

桜井春輔, 足立紀尚, 都市トンネルにおける NATM, 鹿島出版会, 1988.

付録 B

工学規模試験

(本編 2.6 項に付す)

工学規模試験は、小型試験と原位置試験の結果の評価を行う上で補完的に定量的なデータを取得することを目的として行った。原位置での試験では試験後の供試体の形状を維持したまま回収することが難しく、試験後の密度計測の精度が低いため、原位置とほぼ同じサイズの工学規模試験において試験後の密度分布を詳細に測定した。また、この試験は小型試験と同じ素材のセルを用いているため、小型試験との比較によりスケールによる影響についても検討することも意図している。さらに、圧力の測定も、原位置より精緻に測定することができるため、得られたデータは原位置の圧力測定方法の妥当性の確認、試験条件の違いによる膨潤圧の発現の考察に資することができると考えられる。

報告書 2.6.2(1)3) 工学規模試験の節では、試験方法と試験後の密度分布の測定結果を示した。本文に示した試験結果の以外の部分の内容を以下に示す。

(a)試験結果と考察

a) ケイ砂充填ケース

ケイ砂は、供試体とセルの間の隙間に空中落下によって充填した。充填した部分の乾燥密度は、1.584 Mg/m^3であった。

図 B-1 には、送水量と送水圧の経時変化の経時変化を示す。送水は底部の多孔質体を通して行われており、底板全体から供給されている。送水圧は 7 kPa 程度であり、圧力の変動は 1～15 kPa にとどまっていた。水はケイ砂部分を流れていることが推察される。

図B-2 a)には、底部に設置したロードセルの値の経時変化を示す。供試体中央と1/4径の位置に設置したロードセルの値は概ね同じであり、最終値は500 kPa程度であった。一方、外縁に設置したロードセルで試験終了時に計測された値は 841 kPaであった。未充填のケースでは底部の膨潤圧は外縁部が最も低かったのに対し、ケイ砂充填の場合に底部の外縁部の膨潤圧が最も大きいのは、ケイ砂の充填により膨潤による側部への体積膨張が抑えられ、乾燥密度が高い状態で浸潤したためと考えられる。

図B-2 b)に示した供試体上部に設置したロードセルの値の経時変化では、外縁に設置したロードセルしか膨潤圧を感知していないことがわかる。最大値は751 kPaであった。これは、供試体の上面は外縁部しか浸潤しておらず、浸潤した部分の膨潤圧だけが発現しためである。

さらに、図B-3には供試体の側面に設置した土圧計の値の経時変化を示す。土圧計の値は、供試体の中央高さが最も大きく、最終的な値は 871 kPaであった。ケイ砂の充填が密実であることにより、乾燥密度が低下しなかったことと、緩衝材の膨潤圧を損失なく土圧計に伝播させたことによると考えられる。上中下の土圧計の値は、異なる挙動を示したが、この理由が緩衝材の膨潤圧の発現の違いによるものか、湾曲した面での測定のために起こった差かは判断できなかった。

本試験のセルの設計耐圧は1 MPaであり、土圧計の値が設計耐圧の90%に迫る傾向を示したことと、試験結果の傾向が概ね明確となったため、試験は3週間程度で完了した。しかし、計測された圧力に関する値は、次節で示す未充填の場合と比較すると試験時間が短かったにも関わらず大きかった。このことは、乾燥密度が高く保たれていることに起因すると考えられる。

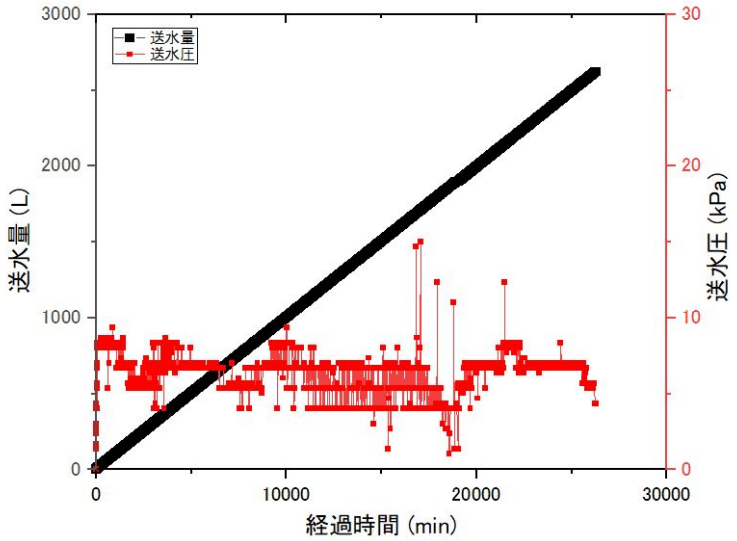
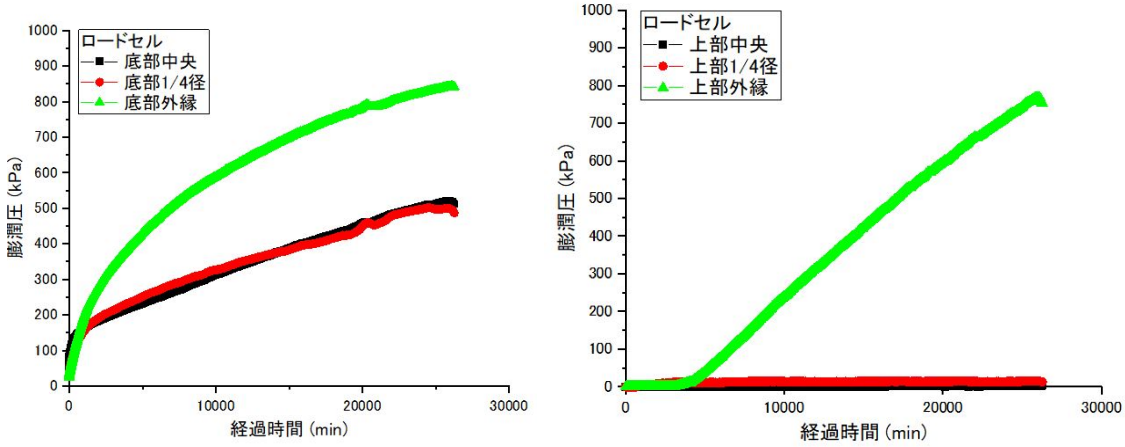


図 B-1　送水量と送水圧の経時変化



a）底部　　b）上部

図 B-2　試験中の圧力の経時変化（ロードセルにより測定）

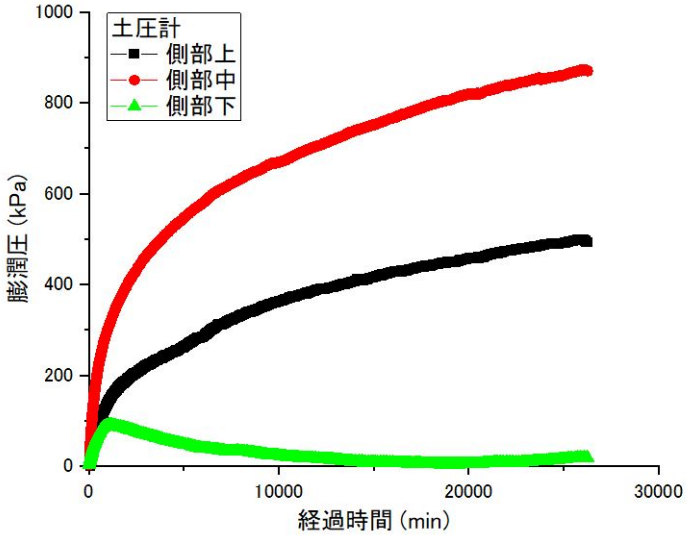


図 B-3　側部の圧力の経時変化（土圧計により測定）

図 B-4 には、排水の状況を示す。写真でわかるように初期の排水は赤褐色に着色しており、時間の経過（総送水量の増加）に伴って徐々に薄くなった。静置すると沈殿することにより上澄みが透明になったため、ケイ砂由来の細粒分により着色したと考えられる。ベントナイトの濃度を測定するためには、排水のベントナイトの分散状態が均一であることを担保することが必要である。そのため、上澄み、あるいはろ過後の液を測定に用いることはできず、直接ケイ砂細粒分による着色を排除することはできなかった。

a）小型セル（ケイ砂のみ:10~4140min）

b）工学規模流出試験(10～26215 min)

図 B-4　工学規模流出試験（3 号ケイ砂充填）の排水状況

ケイ砂層から流出する細粒分の影響を確認するために、本文中の図 2.6-5 a)に示した小型セルに同じ 3 号ケイ砂のみを充填して、工学規模と同じ流量（100 mL/min）で送水した際の排水の吸光度を測定した。その結果、着色している排水は吸光度が高く、ベントナイト濃度の定量値に影響を与えていることがわかった。

ケイ砂充填ケースの試験で着色がなくなってからは、ベントナイトの濃度が吸光度によって計測されると思われるが、着色がなくなってからの吸光度は低いため、流出量は低かったと考えら

れる。初期の流出量について、補正によって算出する等も考えられるが、全く同じ条件での補正のための試験ができないため、ベントナイトの流出量を得ることはできなかった。

b) 隙間未充填のケース

図 B-5 に、送水量と送水圧の経時変化の経時変化を示す。試験中の送水圧は 10 kPa 程度で推移しており、大きな変動はなかった。送水圧が低いことから、膨潤によるシールはされずに水が流れ続けており、流出現象が継続的に発生していることが推察される。

試験状況の写真を図 B-6 に示す。蒸留水での試験の場合、側部の膨潤は水平方向に進むが、幌延地下水を浸潤させたこの試験においては、送水液が供試体に接した直後から表面からある程度凝集して大きな塊となったものが下に落ちていく様子が見られ、それが積もったことにより隙間が底部から閉塞されていった。西側の状況の写真には下から溜まっているためにその上端を線としてみることができる。

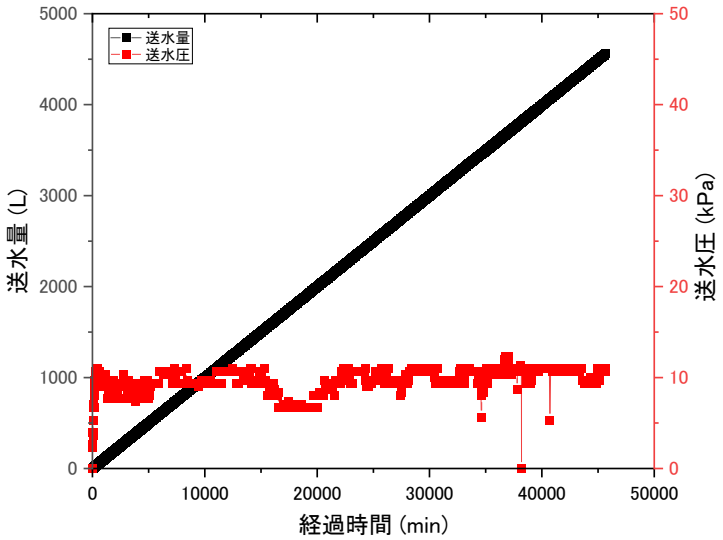
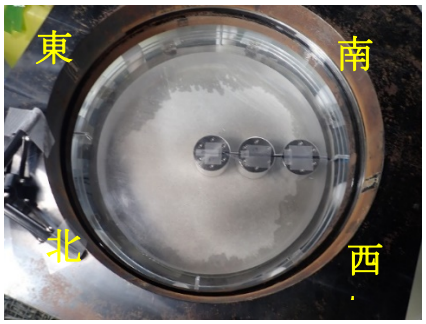
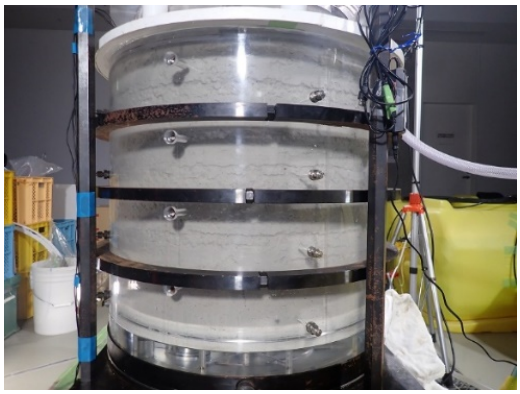


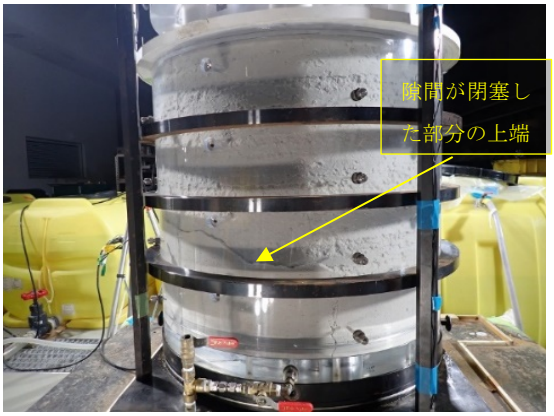
図 B-5　送水量と送水圧の経時変化



天端面の状況



側面の状況（南側）



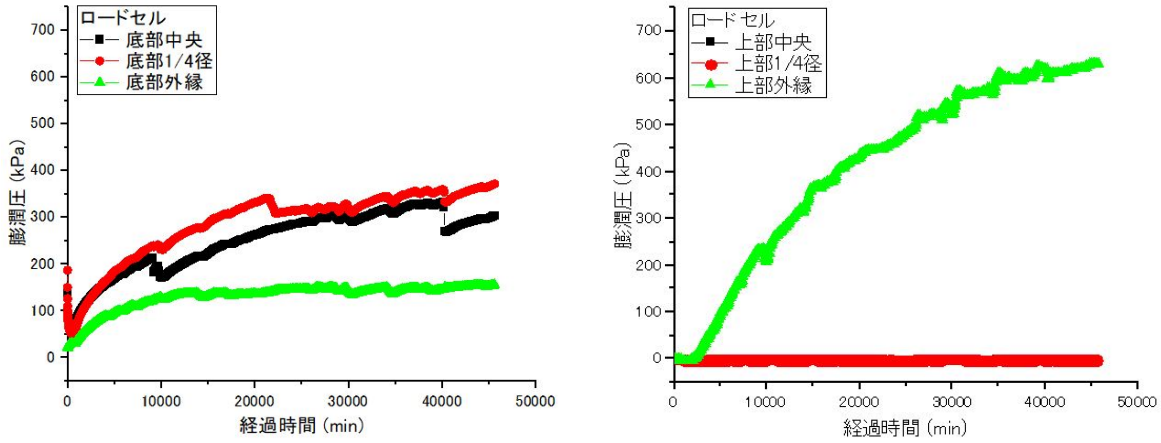
側面の状況（西側）

図 B-6　未充填ケースの試験状況

図B-7 a)には、底部に設置したロードセルと上部に設置したロードセルの値の経時変化を示す。底部の圧力に供試体中央と1/4径の位置に設置したロードセルの値は概ね同じであり、試験終了時には350 kPa程度であった。送水が供試体底面ほぼ全面からなされているため、底部は全面に水が浸潤したことを示していると考えられる。一方、外縁に設置したロードセルは150 kPa弱であった。供試体外縁部は、供試体周囲の隙間方向に体積膨張して乾燥密度が低下したため、圧力が低かったと推察される。

これに対して、図B-7 b)に示した供試体上部に設置したロードセルの値の経時変化では、外縁に設置したロードセルのみが膨潤圧を感知しており、その値は試験終了時に600 kPa程度であった。これは、供試体の上面は外縁部しか浸潤しておらず、外縁部しか膨潤していないためである。

さらに、図B-8には、供試体の側面に設置した土圧計の値の経時変化を示す。土圧計の値は、最大でも30 kPa 弱であった。これは、膨潤圧の異方性や膨潤してセルの内壁まで達した部分の乾燥密度が低いこと、さらには送水した幌延地下水を模擬した溶液のイオン強度による膨潤性能の低下の影響によるものと考えられる。本文で述べたように、供試体の解体時点で供試体側部の乾燥密度は低かった。なお、供試体中央に設置した土圧計が、一旦、負圧になっているが、これは地下水の送水による浮力の作用や供試体の接触が均一でなく、偏圧が作用した可能性が、理由として考えられる。



a）底部　　b）上部

図 B-7　試験中の圧力の経時変化（ロードセルにより測定）

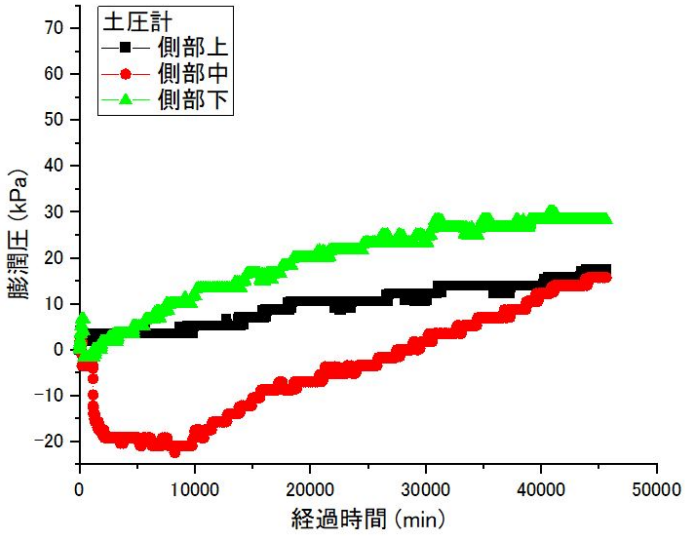


図 B-8　側部の圧力の経時変化（土圧計により測定）

総送水量と緩衝材の流出量と濃度の関係を図 B-9 に示す。排水中の緩衝材濃度は一定になっていない。これは、隙間の閉塞される過程で観察されたように、ある程度の大きさで凝集したものがひと塊で排出されていることが原因である可能性がある。図 B-10 には、既往の工学規模試験との比較を示す。本試験の結果は、既往の試験よりも緩衝材の流出量が少なかった。既往の試験は蓋に切り欠きがなく、隙間が 30 mm であったため、形状が異なり、その影響がある可能性がある。また、既往の試験は蒸留水を用いての試験であり、本試験では幌延地下水の模擬水を用いているため、液性の違いも大きいと考えられる。

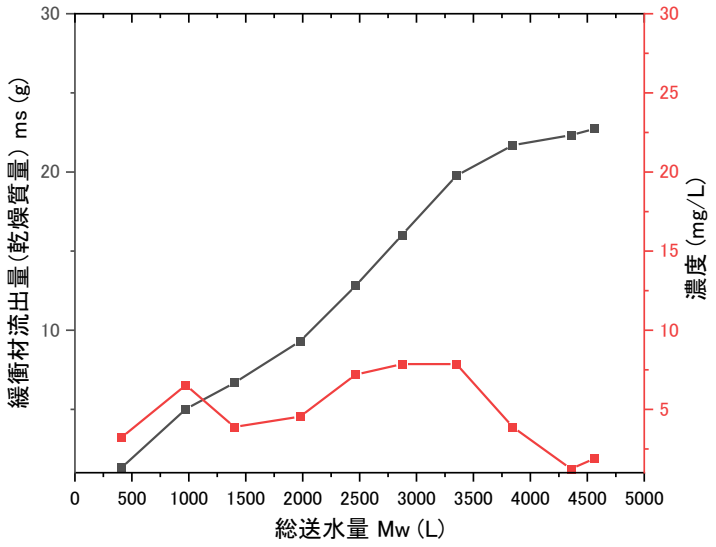


図 B-9　総送水量と緩衝材流出量・濃度の関係

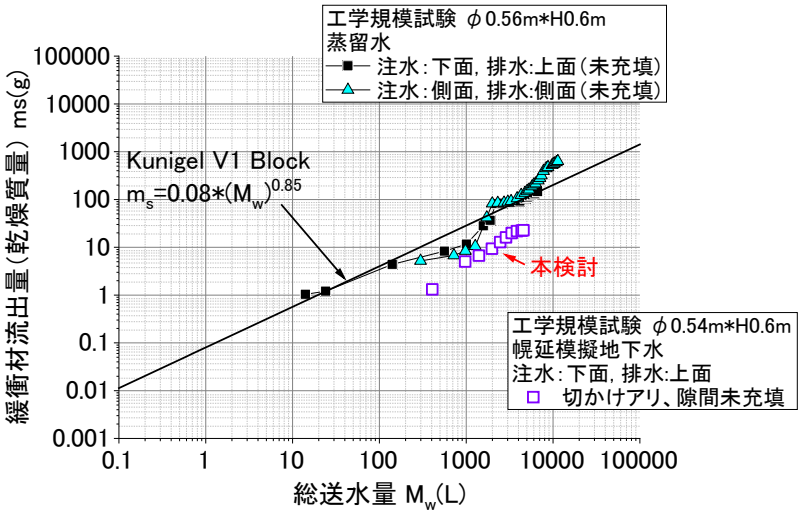


図 B-10　既往の結果との比較
（原子力環境整備促進・資金管理センター, 2018 を基に作成）

参考文献

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 処分システム工学確証技術開発（第 2 分冊）－人工バリア品質／健全性評価手法の構築－緩衝材, 2018

付録 C

力学解析手法の検討

(本編 2.6 項に付す)

ここでは、本編 2.6.2(2)の 1)力学解析手法の検討における、下記の内容について詳細に記載する。

・解析手法に関する解析コードについて
・解析条件の(c)材料パラメータについて
・解析結果のうち浸潤速度に関する解析的視点での考察

(a)解析コード（本編 2.6.2(2) 1) ①解析手法）

a) 不飽和土／水連成有限要素解析コード

本研究にて実施する、ベントナイト緩衝材の隙間充填と均一化過程のシミュレーションでは、有限要素解析コード DACSAR が用いられる。DACSAR は、Iizuka and Ohta（1987）に端を発する有限要素解析コード群の総称であり、解析対象となる材料の構成モデルの高度化・充実化、多物理現象の考慮、ならびに、数値解析手法の高度化など、様々な形で更新されている。本研究で用いるコードは、この解析コード群の一つである DACSAR-I（Takeyama et al., 2015）をベースとしつつも、不飽和状態にあるベントナイト緩衝材の力学特性を表現するためのアップデートを施したものである。

不飽和状態にある地盤材料を解析対象とするとき、地盤材料は固相・液相・気相の多相混合体からなる連続体としてモデル化され、地盤材料の変形とその間隙に存在する間隙流体の運動が有限要素法によって近似的に求解されることになる。地盤の間隙に液体と気体が 2 相間隙流体として混在する不飽和状態を考え、間隙が間隙水で満たされる飽和状態への変遷も連続的に記述される場の支配方程式、および、有限要素離散化の手続きは、金澤ら（2008）に記される通りあり、多相混合体に作用する応力のつり合い条件、固相と液相に関する連続条件、および、固相と気相に関する連続条件が場の支配方程式の素地となる。ここに多相混合体の材料モデルを課し、有限要素法によって解析対象領域を空間離散化することによって、混合体の変位と 2 相の間隙流体の圧力（間隙水圧および間隙空気圧）を未知数とする全体剛性方程式が形成される。さらに、対象とする問題に応じて、適切な初期条件と境界条件を課すことにより、解くべき全体剛性方程式が立式され、時々刻々と変化する状態が数値解析的に得られることになる。

有限要素法によって空間的に分割された有限要素の各積分点における応答は、不飽和地盤材料の場合、土骨格の変形を記述するための構成モデル、各間隙流体の運動を記述するダルシー則、ならびに、マトリックサクションと飽和度を関連付ける水分特性モデルに支配される。次節以降に、本研究で用いるモデルについて詳述するが、本研究で実施するシミュレーションでは、ベントナイト緩衝材の不飽和状態を扱いつつも、緩衝材内の全ての物質点における間隙空気圧が常に大気圧と等しいとする完全排気条件を仮定している。このことにより、領域全体にわたって間隙空気圧は既知量として扱われ､その勾配も生じないため､間隙空気の運動を記述するダルシー則、ならびに、透気係数は、解析的に定義する必要がなくなる。解析対象とするベントナイト緩衝材について、透気係数を決定することが容易でなかったことに起因する仮定であり、あくまで解析上の簡素化であるが、解析上、過剰間隙空気圧がベントナイト緩衝材内に生じえず、サクションの消散が促されやすい結果となることに留意する必要がある。

b) ダルシー則および透水係数モデル

前述のように、間隙空気については完全排気条件を仮定するため、ダルシー則を考慮すべきは間隙水のみとなる。ダルシー則における透水係数は、地盤材料が不飽和状態にある場合、乾燥密度（間隙比）や飽和度に依存することが知られている（例えば、Komine, 2008）。

本研究では、平成 30 年度の解析でも用いた乾燥密度（間隙比）依存性を考慮した透水係数モデ

ル（Börgesson et al., 1995）を採用する。このモデルでは、透水係数は次式のように表される。

$$k = k_0\left(\frac{e}{e_0}\right)^{\lambda_k} \qquad \text{(C-1)}$$

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、λ_k は材料パラメータである。式(C-1)は、飽和状態（S_r =1）における透水係数を与える。本来、飽和度の減少（S_r <1）に応じて透水係数を低減する効果を導入することが好ましく、不飽和透水係数を計算するための相対透水係数（例えば、Mualem, 1976）を導入する余地があるが、シミュレーションで対象とする材料について、乾燥密度（間隙比）依存性と同時に飽和度依存性を同定するための実験事実が見当たらないため、本研究では、解析上、不飽和状態にあっても式(C-1)に則り透水性が定まるものとした。シミュレーションに用いるパラメータの具体的な値については次章で説明する。

c) 水分特性曲線モデル

地盤材料の保水性を示す水分特性曲線は、飽和度（あるいは体積含水率）とサクションの関係で与えられる。本研究で扱うサクションはマトリックサクションであり、浸透圧がもたらすオスモティックサクションの影響は考慮されない。しかしながら、ベントナイト材料のように高い保水性を持つ地盤材料について、乾湿の繰返しに対する挙動を含め、幅広い範囲での含水状態について水分特性曲線を詳らかにすることは簡単ではない。特に、低含水状態ではマトリックサクションを直接計測することは叶わないため、サイクロメータ法で計測されるトータルサクションの内、マトリックサクションが占める割合を同定することは原理的に困難である。したがって、解析に用いる水分特性曲線は理論上、飽和度とマトリックサクションの関係であるが、曲線の決定には一定の仮定が必要となる。

本研究で用いる水分特性曲線モデルは、杉井・宇野（1997）によるロジスティック曲線モデルであり、次式のように与えられる。

$$S_e = \frac{S_r - S_{r0}}{1 - S_{r0}} = \frac{1}{1 + s^B \exp(A)} \qquad \text{(C-2)}$$

ここで、s はマトリックサクション、$S_e = S_e(S_r)$ は有効飽和度、A および B は水分特性曲線の形状を定まる材料パラメータ、S_{r0} は残留飽和度であり、理論上、サクションを無限に作用させたときの飽和度の収束値を意味する。また、マトリックサクション s は、間隙空気圧 p_a と間隙水圧 p_w の差として次式のように与えられる。

$$s = p_a - p_w \qquad \text{(C-3)}$$

前述のように、過剰間隙空気圧が発生しないものとし、間隙空気圧が常に大気圧と等しいとする仮定をおく場合は、マトリックサクションは間隙水圧の負値（$s = -p_w$）となる。

一般に、地盤材料は同一のサクションに対して飽和度が一意に定まらない。すなわち、あるサクション値に至るまでの履歴によって異なる飽和度（水分量）を持つことになる、ヒステリシスと呼ばれる性質があることが知られているが、前述のように、ベントナイト材料について乾湿の繰返し挙動が明らかになっているわけでなく、その把握のための試験には相当の時間を要することが想像される。また、本研究で実施するシミュレーションは、マトリックサクションの減少に伴う、吸水応答が支配的な問題を扱うため、乾湿の繰返しはほとんど生じえず、ヒステリシスを解析に考慮したとしても解析結果に影響を及ぼすとは考え難い。したがって、本研究では、式(C-2)に示される単一ロジスティック曲線によって水分特性曲線が描かれるものとした。

d) 緩衝材の不飽和状態の応答を記述する弾塑性構成モデル

飽和状態にあるベントナイト緩衝材をシミュレーション対象とした平成 30 年度の研究では、弾塑性構成モデルの一つである修正カムクレイモデルに, 塑性膨潤の効果（Amerashinghe and Kraft, 1983）を導入した構成モデルを用いた。不飽和状態からの変遷を考慮する平成 31 年度の研究に用いる構成モデルは、材料が飽和状態に至ったときに、平成 30 年度の研究で用いたモデルに帰着するよう拡張されている。

不飽和状態への拡張にあたっては、まず、飽和状態（$S_r = 1.0$）における Terzaghi の有効応力の原理を内包する有効応力[1]を定義する必要がある。本研究で用いる有効応力テンソル $\boldsymbol{\sigma}'$ は、Bishop 型の有効応力であり、次式で与えられる。

$$\boldsymbol{\sigma}' = \boldsymbol{\sigma}^{\mathrm{net}} + \chi s \boldsymbol{1} \tag{C-4}$$

ここで、$\boldsymbol{\sigma}^{\mathrm{net}}$ はネット応力テンソル[2]、s はマトリックサクションである。この内、ネット応力テンソルは次式のように全応力テンソルと間隙空気圧の差として定義される。

$$\boldsymbol{\sigma}^{\mathrm{net}} = \boldsymbol{\sigma} - p_a \boldsymbol{1} \tag{C-5}$$

間隙空気圧が常に大気圧と等しいとする仮定（$p_a = 0$）をおく場合は、ネット応力は全応力と等価になる。一方、式(C-4)中の変数 χ は、有効応力へのマトリックサクションの寄与率を表すものであり、一般に、飽和度やサクションなどの関数として記述される。本研究では、変数 χ に対して有効飽和度 S_e を採用し、構成モデルを記述する。

弾塑性構成モデルの記述にあたっては、弾性域の拡大／縮小、すなわち、硬化／軟化が、塑性体積ひずみの増減に因って生じるとする硬化特性に加えて、飽和度の減少／増加によっても生じるとする Se-hardening モデル（大野ら, 2008）の考え方を採用している。弾性域を規定する降伏曲面は、有効応力空間の原点を通らない楕円形で定義され、降伏関数は次式で表される。

$$f = f\left(p', q, p_c', p_s'\right) = \frac{q^2}{\tilde{M}^2} + \left(p' - p_c'\right)\left(p' - p_s'\right) = 0 \tag{C-6}$$

ここで、$\tilde{M}$は降伏曲面の楕円率を規定する材料パラメータである。また、p'：平均有効応力、q：偏差応力であり、それぞれ次のように定義される。

$$p' = \frac{1}{3}\mathrm{tr}\left(\boldsymbol{\sigma}'\right),\quad q = \sqrt{\frac{3}{2}}\|\boldsymbol{s}\|;\quad \boldsymbol{s} = \boldsymbol{\sigma}' - p\boldsymbol{1} \tag{C-7}$$

p_c' と p_s'は、降伏曲面の大きさを規定する変数であり、それぞれ圧密・除荷による降伏応力に相当する。いずれも、塑性体積ひずみ ε_v^p と有効飽和度 S_e を硬化パラメータとする関数であり、次式で表される。

$$p_c' = p_c'\left(\varepsilon_v^p, S_e\right) = \overline{p}_c'\left(\varepsilon_v^p\right)\exp\left[\left(\beta\left(S_e\right) - 1\right)\ln\frac{1+\zeta}{\theta+\zeta}\right] \tag{C-8}$$

$$p_s' = p_s'\left(\varepsilon_v^p, S_e\right) = \overline{p}_s'\left(\varepsilon_v^p\right)\exp\left[\left(\beta\left(S_e\right) - 1\right)\ln\frac{\zeta}{\theta+\zeta}\right] \tag{C-9}$$

---

[1] 時に、不飽和状態における構成モデルを記述するための応力を「骨格応力」と呼称する場合もあるが、本報告書では「有効応力」と称する。

[2] 基底応力とも呼ばれる。

ここで、βは硬化／軟化に対する有効飽和度の寄与を表す変数であり、飽和状態（$S_e=1$）において$\beta=1$となり、式(C-8)と式(C-9)の右辺、指数関数の項が 1 になるように次式のように定式化されている。

$$\beta=\beta(S_e)=\alpha\left(1-S_e^{\,l}\right)+1 \qquad \text{(C-10)}$$

θ、α、lは不飽和状態に関連する材料パラメータであり、この内、α、lが不飽和状態における弾性域の大きさを制御するパラメータである。不飽和状態における弾性域は、飽和状態の弾性域を包含するように拡大するが、θがその位置を定めるパラメータとなる。また、任意の不飽和状態における膨潤指数κは、変数βの関数として次式で書くことができる。

$$\kappa=\kappa(S_e)=\frac{\bar{\kappa}}{\beta(S_e)} \qquad \text{(C-11)}$$

ただし、$\bar{\kappa}$は飽和状態における膨潤指数である。一方、$\bar{p}_c'$と$\bar{p}_s'$は硬化／軟化に対する塑性体積ひずみの寄与を表す変数であり、次式で与えられる。

$$\frac{\bar{p}_c'}{\bar{p}_{c0}'}=\frac{\bar{p}_s'}{\bar{p}_{s0}'}=\exp\left(\frac{1+e_{c0}}{\lambda-\kappa}\varepsilon_v^p\right) \qquad \text{(C-12)}$$

ここで、λは圧縮指数、e_{c0}は基準間隙比、$\bar{p}_{c0}'$と$\bar{p}_{s0}'$は、それぞれ$\bar{p}_c'$と$\bar{p}_s'$の初期値である。

(b)材料パラメータ（本編 2.6.2(2) 1) ③解析条件）

既往の報告（原子力環境整備促進･資金管理センター, 2012）における 3-66 頁、表 3.7.2-2 に記載の実験ケース UpH-B）を参考に、解析対象とする材料をケイ砂 30%混合クニゲル V1（土粒子密度：2.736 Mg/m³。クニゲル V1 の土粒子密度：2.773 Mg/m³、ケイ砂の土粒子密度：2.65 Mg/m³）とする。この章では、この材料に対して過去に実施された力学試験、透水試験、保水性試験などを参考に定めたパラメータを説明する。

a) 透水係数モデルに関するパラメータ

平成 30 年度の解析と同じく、透水係数モデルに関するパラメータは、解析対象となるケイ砂 30%混合クニゲル V1 に対して実施されている透水試験の結果（鈴木ら, 1992；松本ら, 1997）を参考に決定する。**図 C-1** は、試験結果として得られている透水係数を間隙比に対してプロットしたものであり、間隙比の減少に伴って透水係数が小さくなる傾向にあることが分かる。

(a) (ii)に説明した透水係数モデルの基準間隙比e_0を 0.539 とおくと、$k_0=2.68\times10^{-13}(\mathrm{m/s})$、$\lambda_k=2.15$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にする。なお、基準間隙比$e_0=0.539$は、次の章で示す幾つかの解析ケースの初期間隙比の一つを採用していることを付記する。

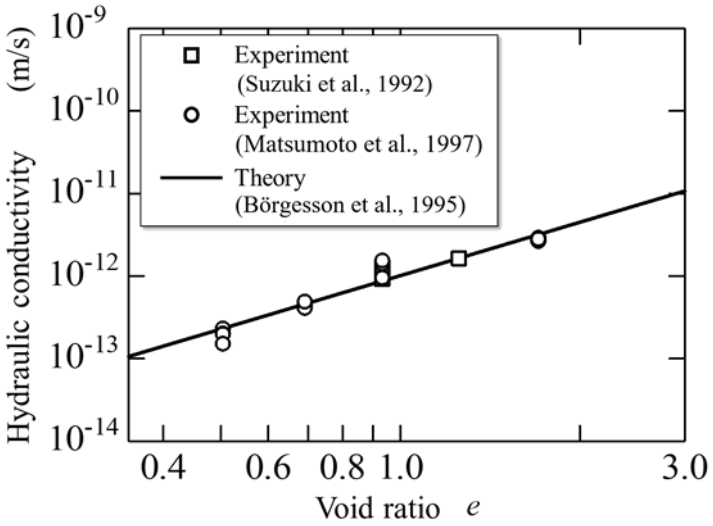


図 C-1　透水係数の間隙比依存性（鈴木ら, 1992 ; 松本ら, 1997）

b) 水分特性曲線モデルに関するパラメータ

水分特性曲線モデルに関するパラメータは、解析対象材料に対して実施されている保水性試験の結果（鈴木ら, 1999）を参考に決定する。図 C-2 は、サイクロメータ法により得られた含水比と化学ポテンシャルの関係を、飽和度とサクションの関係に変換してプロットしたものである。含水比を飽和度に換算するにあたっては、試験条件である乾燥密度 1.60 Mg/m³を用いている。

(a) c)に説明した水分特性曲線モデルのパラメータを $A=-1.40$ 、$B=1.12$ 、$S_{r0}=0.10$ とすれば、図中の曲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、これらを採用することにする。ただし、化学ポテンシャルからマトリックポテンシャルを分離せず、等価と読み替えているため、ある飽和度に対するマトリックサクションを過大に評価した水分特性曲線を解析に用いることになることには注意が必要である。また、どのような乾燥密度であっても、乾燥密度 1.60 Mg/m³に対して得られた水分特性曲線を用いるため、水分特性の乾燥密度依存性は解析上、考慮されないことにも留意が必要である。

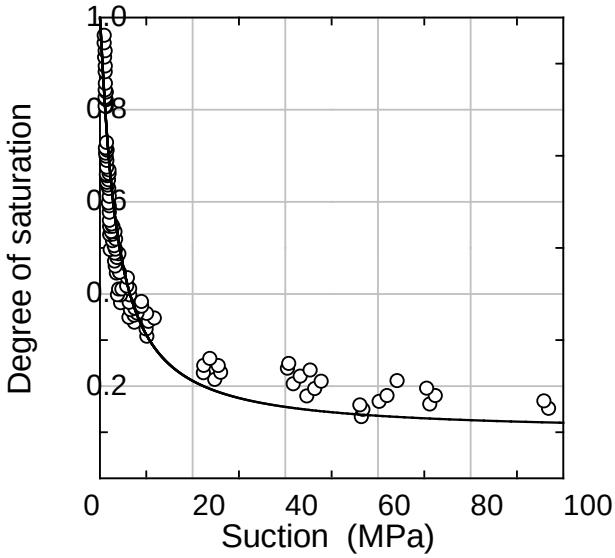


図 C-2　水分特性曲線（鈴木ら, 1999）

c) 弾塑性構成モデルに関するパラメータ

弾塑性構成モデルパラメータの内、対象材料が飽和状態にあるときの力学試験結果に基づいて決定されるものは、表 C-1 に示すように、平成 30 年度の解析と同様のパラメータセットを用いる。これらは、一次元圧密試験と非排水せん断試験の両方を表現できるよう、思考錯誤的に選定し、決定したパラメータセットである。このパラメータセットを用いて実施した一次元圧密試験の要素シミュレーションの結果を図 C-3 に示す。参照する試験は、高治・鈴木（1999）によるものであり、載荷・除荷・再載荷過程における鉛直有効応力 σ'_v と間隙比 e の変化を比較している。試験結果を見ると、載荷過程の圧密曲線が広範囲の応力レベルでは、$e-\ln\sigma'_v$ 平面上であっても直線でなく、下に凸の曲線となっている。このような傾向が表れることは、小林ら（2007）でも指摘されている。つまり、$e-\ln\sigma'_v$ 平面上において正規圧密曲線を直線近似するモデル化は、広範囲な応力レベルにおける圧密応答を表現できるほどには、一般性を帯びていないことになるが、本研究で実施する解析の初期状態付近（おおよそ間隙比：0.5～0.7）で発揮される圧縮性・膨潤性が満足されるように、圧縮指数 λ と塑性膨潤パラメータ ζ を同定した。その結果、高圧下に至ると、シミュレーションは実測に対して、より高密度な間隙状態を予測することになっている。また、再載荷過程において、シミュレーションは実測に対して、より硬い（圧縮性が小さい）結果を与えており、過度に大きな除荷／再載荷ループを予測することになっている。膨潤指数 κ は、除荷過程の初期勾配を表現できるよう $\kappa=0.028$ と定めているが、再載荷過程の勾配を過小に評価することになっている。

同様に、表 C-1 に記すパラメータセットを用いて実施した非排水圧縮せん断試験の要素シミュレーション結果を図 C-4（有効応力経路）と図 C-5（応力－ひずみ関係）に示す。参照試験は、一次元圧密試験と同じく、高治・鈴木（1999）によるものである。設定したパラメータセットにより、異なる複数の初期有効拘束圧に対する非排水せん断挙動を表現できていることが分かる。

表 C-1　飽和状態にあるときの力学試験に基づき決定されるパラメータセット

パラメータ名	記号	数値
限界応力比	$\bar{M}$	0.63
圧縮指数	λ	0.14
膨潤指数	$\bar{\kappa}$	0.028
ポアソン比	ν'	0.40
塑性膨潤パラメータ	ζ	0.45

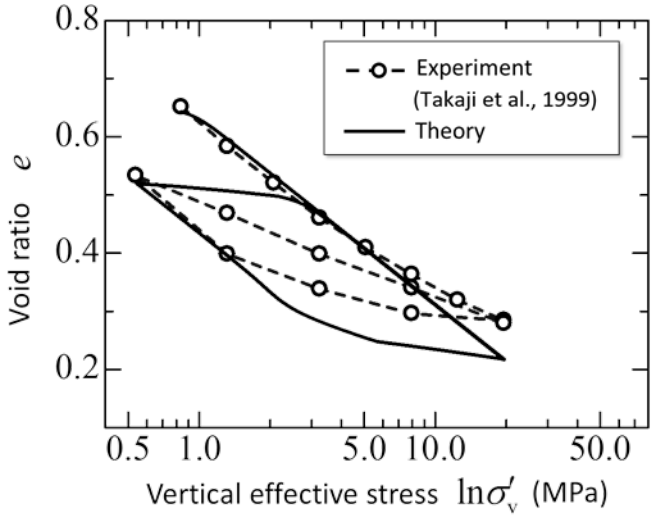


図 C-3　一次元圧密試験（高治・鈴木, 1999）の要素シミュレーション

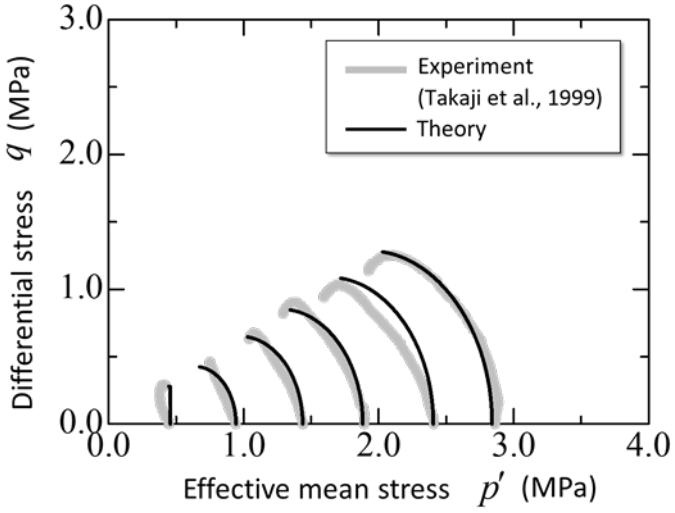


図 C-4　非排水圧縮せん断試験（高治・鈴木, 1999）の要素シミュレーション：有効応力経路

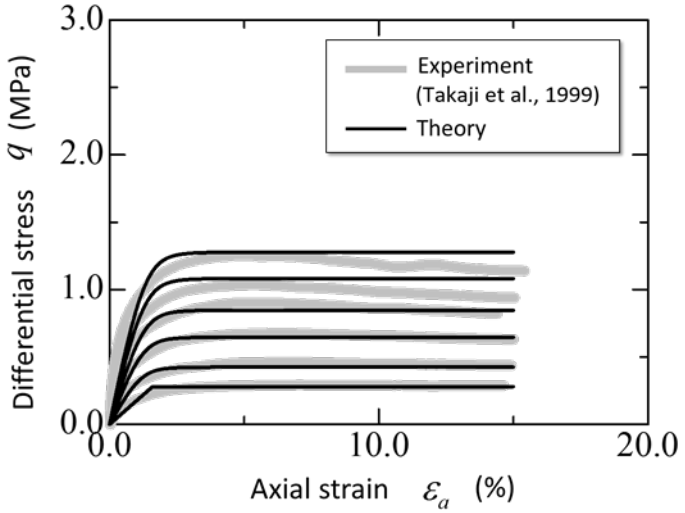


図 C-5 非排水圧縮せん断試験（高治・鈴木, 1999）の要素シミュレーション：応力－ひずみ関係

表 D-1 に含まれない、不飽和状態に関わる材料パラメータ θ、α、l は、飽和度変化を伴う試験、例えば、膨潤圧試験や膨潤変形試験のシミュレーションを実施し、試行錯誤的に決定することも可能である。一方、膨潤圧試験を体積一定の要素試験と見做し、飽和化に至るまでの応力変化が等方応力条件を維持すると仮定すると、弾塑性構成モデルの理論解として、不飽和状態にあるときの初期平均有効応力 p'_{i} と飽和後の平衡膨潤圧 p_{swel} の関係式が次のように得られる。

$$g=\alpha\left(1-S_{\mathrm{e,i}}{}^{l}\right)-\frac{1}{h-\ln\left(\theta+\zeta\right)}\ln\frac{p'_{\mathrm{i}}}{p_{\mathrm{swel}}}=0; \tag{C-13}$$

$$h=\ln\left(1+\zeta\right)+\frac{\lambda}{\lambda-\bar{\kappa}}\left(\ln\frac{p_{\mathrm{swel}}}{p'_{\mathrm{ref}}}-\frac{e_{\mathrm{ref}}-e_{\mathrm{i}}}{\lambda}\right) \tag{C-14}$$

ただし、e_{i}、$S_{\mathrm{e,i}}$ はそれぞれ膨潤圧試験における初期間隙比と有効飽和度である。初期状態が既知であり、パラメータも全て分かっていれば、式(C-13)を解くことにより、構成モデルが予測する平衡膨潤圧 p_{swel} を理論的に得ることができるわけであるが、3 つのパラメータ θ、α、l が未知であるときは、これらを決定するために式(C-14)を用いることもできる。まず、対象材料について異なる 3 つの初期条件に対する膨潤圧試験が実施されており、それぞれの試験結果として平衡膨潤圧が得られていれば、試験条件ごとに式(C-13)を立式することができる。こうして得られた 3 式は、パラメータ θ、α、l についての連立方程式であり、これを解くことにより、少なくとも 3 つの初期条件に対する平衡膨潤圧の予測を保証するパラメータ θ、α、l が決定されることになる。本研究では、ケイ砂 30%混合クニゲル V1 に対して実施されている膨潤圧試験の結果から 3 つの試験条件と平衡膨潤圧を選定し、上記の手順に従ってこれらパラメータを決定した。選定した試験条件と平衡膨潤圧は、文献（鈴木ら, 1999）の表 3.1.8 に纏められた結果の内、

初期含水比：7%、乾燥密度：2.00 Mg/m³、平衡膨潤圧：4.21 MPa
初期含水比：7%、乾燥密度：1.80 Mg/m³、平衡膨潤圧：1.71 MPa
初期含水比：6%、乾燥密度：1.61 Mg/m³、平衡膨潤圧：0.54 MPa

である。なお、式(13)に代入すべき初期有効応力 p'_{i} は、膨潤圧試験の初期状態においてベントナイト供試体に拘束圧は作用していない（全応力ゼロ）と仮定し、さらに、初期飽和度に対応する

マトリックサクションを水分特性曲線から同定したうえで、有効応力式に従って算出している。

この結果、パラメータは、$\theta = 0.65$、$\alpha = 6.37$、$l = 2.23$のように決定された。

(c) 浸潤速度に関する解析的視点での考察（本編 2.6.2(2) 1) ④解析結果）

本解析結果における緩衝材の浸潤により 5 mm の膨潤で隙間を充填する時間は、既往の試験結果（解析体系の供試体寸法より多きいため浸潤深さを換算）と比較をすると、多くの時間を要していた。同様の寸法で同じ材料に対する試験が未実施であるため、この時間が妥当であるかどうかは結論をつけがたいが、仮に、シミュレーションが遅い膨潤速度を予測しているとしたときに、解析条件の何を見直せばよいかについて考察した。

本研究のように、隙間膨潤過程にある供試体の膨潤を境界値問題と捉えるとき、供試体全体としての膨潤速度の緩急は複合的な要因に左右される。まず一つに、透水係数の大きさである。ここで実施しているシミュレーションにおいて、透水係数は、マトリックサクション、すなわち、負の過剰間隙水圧の消散速度を支配することになる。透水係数が大きければ、サクションの消散が早くなり、吸水面に近い側から早期の有効応力低下が促されることになり、膨潤が進行しやすくなる。この視点からは、透水係数モデル、あるいは、そのパラメータを見直すことが候補として考えられる。しかしながら、膨潤速度を早めるという目的に対して、この見直しによる効果はそれほど望めない。この解析で用いている透水係数モデルは、(b) b)で示すように乾燥密度依存性を考慮したものであり、関連するパラメータは(c) a)のように実験事実に基づいて決定されている。実験事実に基づく以上、これを変更するための積極的な理由は見当たらない。では、本解析で考慮していない飽和度依存性を考慮するとどうなるか。現状は、乾燥密度が同じであれば、飽和状態の透水係数を不飽和状態に対しても用いている。透水係数への飽和度依存性を考慮すると、一般的には、不飽和状態においてより小さな透水係数を持つことになり、ひいては、本解析のサクション消散よりも緩慢になると想像される。恣意性を排除すれば、透水係数モデルの見直しは、ポジティブに作用しそうにない。

サクション消散による有効応力低下があるとき、膨潤が生じやすいかどうかは、本解析で用いている弾塑性構成モデルの場合、弾塑性状態にあるかどうかで決まる。例え、有効応力低下（除荷）があったとしても、弾性状態を持続するような状況にあれば、弾性膨潤として軽微なものとなる。供試体内の大部分がこのような状況にあれば、局所的な弾性膨潤の累積として現れる供試体の膨潤量もやはり小さくなる。図 C-6 は、Case 3 における供試体内の所定の高さ（供試体下面から 9、18、27、36 mm）における間隙比変化と有効応力経路を示している。いずれの位置でも、初期状態から有効応力が低下し、吸水面に近い供試体上部から順に除荷降伏した後に、大きな塑性膨潤を呈する。この累積が供試体の膨潤量となるが、供試体全体としての膨潤が遅いという見方からすれば、除荷降伏するまでの応力範囲が大きく、相当のサクション消散がなければ、除荷降伏が起こらないという状況になっている。この範囲を予め狭めるためには、初期有効応力がより小さく与えられれば良く、結局、水分特性曲線を見直さなければならないという話に行き着く。初期平均有効応力は、初期のマトリックサクションと有効飽和度の積から算出されるが、試験条件として飽和度が与えられるとき、マトリックサクションも有効飽和度も、解析で用いる水分特性曲線を満足するように定まるからである。(c) b)にも述べたように、蒸気圧法によって得られた化学ポテンシャルからマトリックポテンシャルを分離し、ある飽和度に対するマトリックサクションが本解析のそれよりも小さくなるような水分特性曲線を定めることで、結果的に、初期有効応力を小さくすることはできる。ただし、マトリックポテンシャルを分離する方法論は現状、思い当たらない。また、水分特性曲線を見直し、初期有効応力も変更されるとなると、膨潤圧試験の結果を用いて決定される弾塑性構成モデルのパラメータθ、α、lも修正されることになる（(b)

c) 参照)。これらの修正は、不飽和状態における弾性域の大きさにも影響を与えることに注意しなければならない。

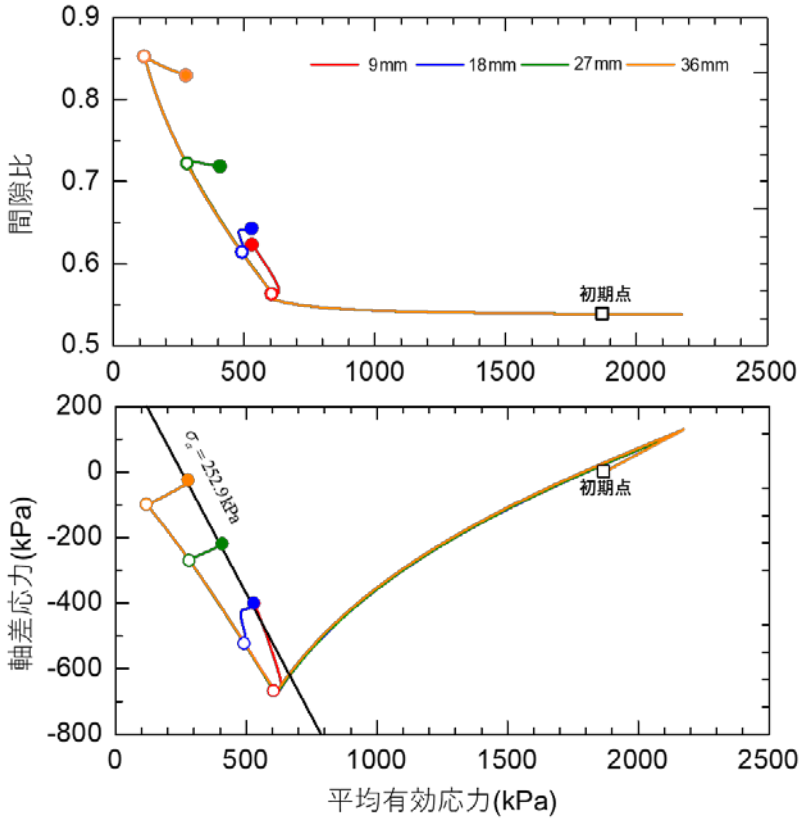


図 C-6　供試体内の所定の高さにおける間隙比変化および有効応力経路

参考文献

Amerashinghe, S. F. and Kraft, L. M. Application of a cam-clay model to overconsolidated clay. International Journal for Numerical and Analytical Methods in Geomechanics 7, pp. 173-186, 1983.

Börgesson, L., Johannesson, L. E., Sanden, T. and Hernelind, J., Modelling of the physical behavior of water saturated clay barriers. Laboratory tests, material models and finite element application, SKB TR-95-20, Svensk Kärnbränslehantering AB, 1995.

原子力環境整備促進・資金管理センター, 平成 23 年度地層処分技術調査等事業 高レベル放射性廃棄物処分関連 処分システム工学要素技術高度化開発 報告書（第 2 分冊）－人工バリア品質評価技術の開発－（2/2）, 平成 24 年 3 月, 2012.

Iizuka, A. and Ohta, H., A determination procedure of input parameters in elasto-plastic finite element analysis, Soils and Foundations 27 (3), pp. 71-87, 1987.

金澤伸一, 橘 伸也, 河井克之, 大野進太郎, 飯塚 敦, 土/水連成有限要素解析手法における空間離散化手法の検討, 応用力学論文集, 土木学会, Vol. 11, pp. 331-338, 2008.

小林一三, 戸井田克, 笹倉 剛, 太田秀樹, 等含水比線と等飽和度線を用いた締固めベントナイトの圧縮・膨潤挙動の解釈. 土木学会論文集, 63, No.4, 1065-1078, 2007.

Komine, H., Theoretical equations on hydraulic conductivities of bentonite-based buffer and backfill for underground disposal of radioactive wastes, Journal of Geotechnical and Geoenvironmental Engineering 134 (4), pp. 497-508, 2008.

松本一浩, 菅野 毅, 藤田朝雄, 鈴木英明, 緩衝材の飽和透水特性, 動力炉・核燃料開発事業団報告書, PNC-TN8410 97-296, 1997.

Mualem, Y., A new model for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated porous media, Water Resour. Res. 12, pp. 513-522, 1976.

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, 63(4) , pp. 1132-1141, 2007.

杉井俊夫, 宇野尚雄, 新しい水分特性曲線のモデル化について, 土木学会・第 50 回年次学術講演会概要集, pp. 130-131, 1997.

鈴木英明, 柴田雅博, 山形順二, 広瀬郁朗, 寺門一馬, 緩衝材の特性試験(I), 動力炉・核燃料開発事業団報告書, PNC-TN8410 92-057, 1992.

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.

高治一彦, 鈴木英明, 緩衝材の静的力学特性, 核燃料サイクル開発機構報告書, JNC TN8400 99-041, 1999.

Takeyama, T., Tachibana, S. and Furukawa, A., A finite element method to describe the cyclic behavior of saturated soil, International Journal of Material Science and Engineering 2 (1), pp. 20-25, 2015.