令和２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 3 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 …… 1-7
1.2.3　ニアフィールド性能の総合評価技術開発 …… 1-10
1.2.4　ニアフィールドシステム評価確証技術開発の 5 か年計画 …… 1-11
参考文献 …… 1-14

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 5 か年の計画 …… 2-1
2.1.1　目的 …… 2-1
2.1.2　5 か年の計画 …… 2-1
2.2　オーバーパックの腐食挙動評価 …… 2-2
2.2.1　背景と目的 …… 2-2
2.2.2　実施内容 …… 2-3
2.2.3　これまでの成果と今後の課題 …… 2-36
2.3　緩衝材の変質挙動 …… 2-38
2.3.1　炭素鋼-緩衝材境界領域における緩衝材の変質 …… 2-38
(1) 背景と目的 …… 2-38
(2) 実施内容 …… 2-39
(3) これまでの成果と今後の課題 …… 2-55
2.3.2　セメンテーションによる緩衝材特性の変化 …… 2-56
(1) 背景と目的 …… 2-56
(2) 実施内容 …… 2-57
(3) これまでの成果と今後の課題 …… 2-89
2.4　ニアフィールド THMC 連成挙動評価 …… 2-90
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 …… 2-91
(1) 背景と目的 …… 2-91
(2) 実施内容 …… 2-92
(3) これまでの成果と今後の課題 …… 2-104
2.4.2　ニアフィールド長期力学解析コード開発 …… 2-106
(1) 背景と目的 …… 2-106
(2) 実施内容 …… 2-107
(3) これまでの成果と今後の課題 …… 2-128
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 …… 2-129
(1) 背景と目的 …… 2-129

(2) 実施内容 ……2-129
(3) これまでの成果と今後の課題 ……2-133
2.5 母岩中アルカリプルーム反応輸送挙動評価 ……2-134
2.5.1 グラウチング施工事例を対象とした調査・分析 ……2-134
(1) 背景と目的 ……2-134
(2) 実施内容 ……2-135
(3) これまでの成果と今後の課題 ……2-139
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 ……2-140
(1) 背景と目的 ……2-140
(2) 実施内容 ……2-142
(3) これまでの成果と今後の課題 ……2-148
2.6 流出現象等を考慮した緩衝材の健全性評価 ……2-150
2.6.1 背景と目的 ……2-150
2.6.2 実施内容 ……2-152
(1) 流出を抑制する工学的対策の具体化 ……2-152
(2) 緩衝材の飽和プロセスを対象とした解析的な評価方法の検討 ……2-195
参考文献 ……2-223

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 5 か年の計画 ……3-1
3.1.1 目的 ……3-1
3.1.2 5 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 これまでの成果と今後の課題 ……3-43
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 ……3-46
3.3.1 背景と目的 ……3-46
3.3.2 実施内容 ……3-47
3.3.3 これまでの成果と今後の課題 ……3-86
3.4 有機物・微生物の影響評価技術の開発 ……3-89
3.4.1 有機物影響評価技術の開発 ……3-89
(1) 背景と目的 ……3-89
(2) 実施内容 ……3-89
(3) 核種-有機物-岩石三元系における核種収着モデルの開発 ……3-102
(4) これまでの成果と今後の課題 ……3-104
3.4.2 微生物影響評価技術の開発 ……3-105
(1) 背景と目的 ……3-105
(2) 実施内容 ……3-106

(3) これまでの成果と今後の課題 ……3-120
参考文献 ……3-122

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 5 か年の計画 ……4-1
4.1.1　目的 ……4-1
4.1.2　5 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 ……4-3
4.2.1　背景と目的 ……4-3
4.2.2　実施内容 ……4-4
4.2.3　これまでの成果と今後の課題 ……4-21
4.3　ニアフィールド核種移行評価技術の開発 ……4-22
4.3.1　背景と目的 ……4-22
4.3.2　実施内容 ……4-23
4.3.3　これまでの成果と今後の課題 ……4-30
参考文献 ……4-31

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これまでの 3 か年における主な成果 ……5-1
5.2　おわりに ……5-13

付録
付録 A ……付 A-1
付録 B ……付 B-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 …… 1-13
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 …… 1-13

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（下からの積み上げ段数ごと） …… 2-4
図 2.2-3　開発した雰囲気制御測定セルの模式図 …… 2-5
図 2.2-4　試作した雰囲気制御測定セルの写真（中央部は腐食センサー） …… 2-5
図 2.2-5　オーバーパック腐食試験の模式図 …… 2-6
図 2.2-6　含水比、乾燥密度測定と微生物分析用試料の採取位置 …… 2-7
図 2.2-7　オートクレーブ滅菌後のスキムミルクの変色状況 …… 2-8
図 2.2-8　乾熱滅菌後のスキムミルクの変色状況 …… 2-9
図 2.2-9　緩衝材試料中の DNA 濃度 …… 2-11
図 2.2-10　16S rRNA 遺伝子に基づく緩衝材試料中の微生物群集組成 模擬オーバーパックから 0 cm、1 cm、2 cm 外側の緩衝材試料を解析した結果 2-13
図 2.2-11　16S rRNA 遺伝子に基づく緩衝材試料中の微生物群集組成 模擬オーバーパックから 4 cm、6 cm 外側の緩衝材試料を解析した結果 …… 2-14
図 2.2-12　オーバーパック腐食試験時に注入した地下水中の微生物群集組成 …… 2-14
図 2.2-13　寒天培養法によって培養された緩衝材中の微生物 …… 2-15
図 2.2-14　試験カラムの模式図 …… 2-17
図 2.2-15　腐食試験後の試験片の外観（試験片表面寸法：30×30 mm） …… 2-18
図 2.2-16　腐食試験後の試験片表面の X 線回折結果 …… 2-19
図 2.2-17　腐食速度の経時変化 …… 2-21
図 2.2-18　SSRT 試験片の形状・寸法 …… 2-22
図 2.2-19　SSRT 試験セルの模式図 …… 2-22
図 2.2-20　応力-歪み線図の測定結果 …… 2-24
図 2.2-21　最大応力比（$\sigma_{sol}/\sigma_{oil}$）の NaCl 濃度依存性 …… 2-25
図 2.2-22　破断伸び比（$\varepsilon_{sol}/\varepsilon_{oil}$）の NaCl 濃度依存性 …… 2-25
図 2.2-23　試験後試験片の外観例（温度：50°C　溶液：0.5M $NaHCO_3$+0.1M NaCl） …… 2-27
図 2.2-24　試験後試験片の外観例（温度：80°C　溶液：0.5M $NaHCO_3$+0.1M NaCl） …… 2-28
図 2.2-25　絞り比（$R.A._{sol}$/ $R.A._{oil}$）の NaCl 濃度依存性 …… 2-29
図 2.2-26　SCC 破面率（Iscc）の NaCl 濃度依存性 …… 2-29
図 2.2-27　浸漬試験後の試験片の外観 …… 2-32
図 2.2-28　試験後試験片表面の X 線回折結果 …… 2-33
図 2.2-29　平均腐食速度の経時変化 …… 2-34
図 2.2-30　平均腐食量の経時変化 …… 2-34

図 2.2-31　水素抽出曲線の一例 ……2-35
図 2.2-32　拡散性水素濃度の経時変化 ……2-36
図 2.3-1　比恵遺跡出土鉄製品（福岡市埋蔵文化財センター所蔵品） ……2-40
図 2.3-2　博多遺跡出土鉄製品（福岡市埋蔵文化財センター所蔵品） ……2-41
図 2.3-3　平城京遺跡出土鉄製品（奈良文化財研究所所蔵品）（左）と
鉄製品表面からはく離した腐食生成物層片（右） ……2-41
図 2.3-4　比恵遺跡出土鉄製品断面試料の光学顕微鏡写真 ……2-43
図 2.3-5　比恵遺跡出土鉄製品断面試料の微小部蛍光 X 線分析による
元素マッピング分析結果 ……2-44
図 2.3-6　比恵遺跡出土鉄製品断面試料の顕微ラマン分光分析結果 ……2-45
図 2.3-7　博多遺跡出土鉄製品の X 線 CT 画像
（左：3 次元表示、右：長軸断面の密度分布） ……2-46
図 2.3-8　博多遺跡出土鉄製品（0642_15622_2）の X 線 CT 画像（密度分布） ……2-46
図 2.3-9　博多遺跡出土鉄製品（0642_15622_2）の断面試料のマクロ写真 ……2-47
図 2.3-10　博多遺跡出土鉄製品（0642_15622_2）の光学顕微鏡写真
（図 2.3-9 の黄色枠部分） ……2-47
図 2.3-11　博多遺跡出土鉄製品（0642_15622_2）の SEM 観察・分析箇所
（赤枠部分） ……2-48
図 2.3-12　博多遺跡出土鉄製品（0642_15622_2）の SEM 分析結果 ……2-49
図 2.3-13　博多遺跡出土鉄製品（0642_15622_2）の低倍率 TEM 分析結果 ……2-50
図 2.3-14　博多遺跡出土鉄製品（0642_15622_2）の高倍率 TEM 分析結果 ……2-50
図 2.3-15　平城京遺跡出土鉄製品 5849 剥離片断面試料の光学顕微鏡写真 ……2-51
図 2.3-16　平城京遺跡出土鉄製品 5849 剥離片断面試料の顕微ラマン分光分析結果 ……2-51
図 2.3-17　平城京遺跡出土鉄製品剥離片断面試料の SEM 観察・分析箇所（赤枠部分） …2-52
図 2.3-18　平城京遺跡出土鉄製品剥離片断面試料の SEM 分析結果 ……2-52
図 2.3-19　平城京遺跡出土鉄製品剥離片断面試料の TEM 低倍率分析結果 ……2-53
図 2.3-20　平城京遺跡出土鉄製品剥離片断面試料の TEM 高倍率分析結果 ……2-54
図 2.3-21　緩衝材変質に伴う特性変化の調査結果（透水性・膨潤圧） ……2-58
図 2.3-22　Cryo-SEM 観察用の研磨薄片試料 ……2-63
図 2.3-23　月布ベントナイト原鉱石試料の粉末 X 線回折パターン ……2-64
図 2.3-24　ベントナイト原鉱石（左）及び再構成試料（右）の組織の比較 ……2-66
図 2.3-25　ベントナイト原鉱石に見られるシリカ微粒子 ……2-67
図 2.3-26　原鉱石（1、29、31 番層）及び再構成試料の Cryo-SEM 観察像の比較 ……2-68
図 2.3-27　ベントナイト原鉱石の SEM 像の比較 ……2-69
図 2.3-28　高倍率での Cryo-SEM 観察像の比較 ……2-69
図 2.3-29　ベントナイト原鉱石(a)及び再構成試料(b)の反電子像の
画像解析に基づく空隙分布の比較 ……2-71
図 2.3-30　顕微ラマンスペクトル ……2-71
図 2.3-31　FIB-SEM による加工過程の様子 ……2-73
図 2.3-32　ベントナイト原鉱石（29 番層）の TEM 観察結果 ……2-75
図 2.3-33　ベントナイト原鉱石（29 番層）の高倍率 TEM 観察結果 ……2-76
図 2.3-34　STEM によるシリカ微粒子-モンモリロナイトの境界部分の観察結果 ……2-77
図 2.3-35　月布ベントナイト原鉱石のセメンテーション過程の模式図 ……2-80

図 2.3-36　標準圧密試験装置概略 ……2-82
図 2.3-37　膨潤圧測定結果 ……2-83
図 2.3-38　間隙比と載荷圧の関係 ……2-83
図 2.3-39　実験に使用したベントナイト充填カラムとカラムの内部構造……2-85
図 2.3-40　通水圧 0.03 MPa に設定した加圧装置 ……2-85
図 2.3-41　ベントナイト試料を入れた恒温炉と通水溶液の採取 ……2-85
図 2.3-42　X 線 CT によるベントナイト供試体の内部観察 ……2-87
図 2.3-43　モンモリロナイト 1 mol と玉髄 1 mol に水を加えていった際の溶解挙動
（pH10 固定）……2-88
図 2.4-1　TOUGH2 による排気条件と非排気条件での浸潤解析結果の比較 ……2-97
図 2.4-2　TOUGH2 による浸潤解析結果とそれに基づく温度勾配水分拡散係数の推定 …2-97
図 2.4-3　THAMES における緩衝材の温度勾配水分拡散係数 ……2-98
図 2.4-4　人工バリア性能確認試験の解析評価に用いた解析メッシュモデル ……2-99
図 2.4-5　THM 連成解析における境界条件の設定……2-100
図 2.4-6　緩衝材中の間隙水飽和度に関する計測結果と THM 連成解析結果との比較….2-103
図 2.4-7　比抵抗トモグラフィーから推定された間隙水飽和度の計測結果と
THM 連成解析結果との比較……2-104
図 2.4-8　海水系地下水環境下における緩衝材の水理特性の変化の概念図……2-104
図 2.4-9　温度変化による変形に関する解析機能の計算アルゴリズム……2-108
図 2.4-10　解析メッシュ ……2-109
図 2.4-11　埋戻し前のメッシュ図・境界条件及び岩盤内の初期水圧分布……2-110
図 2.4-12　埋戻し後の坑道内のメッシュ図 ……2-110
図 2.4-13　ガラス固化体の発熱量 ……2-110
図 2.4-14　飽和度の時間変化 ……2-111
図 2.4-15　温度の時間変化 ……2-112
図 2.4-16　再冠水期間における鉛直坑道内空変位の時間変化……2-116
図 2.4-17　再冠水期間における水平坑道内空変位の時間変化……2-117
図 2.4-18　緩衝材の体積ひずみの時間変化 ……2-117
図 2.4-19　再冠水終了後の鉛直坑道内空変位の時間変化
（再冠水終了時を 0 年として表示）……2-118
図 2.4-20　再冠水終了後の水平坑道内空変位の時間変化
（再冠水終了時を 0 年として表示）……2-118
図 2.4-21　岩盤の破壊接近度（再冠水終了時を 0 年として表示） ……2-119
図 2.4-22　膨潤圧試験装置 ……2-121
図 2.4-23　CT 値と湿潤密度の関係 ……2-121
図 2.4-24　試料の締固め方法概要 ……2-122
図 2.4-25　X 線 CT 測定の概念図 ……2-122
図 2.4-26　膨潤圧の経時変化 ……2-123
図 2.4-27　CT 値から換算した湿潤密度分布の時間変化 ……2-123
図 2.4-28　各測定断面での CT 値から換算した湿潤密度の時間変化 ……2-124
図 2.4-29　供試体の平均湿潤密度の時間変化 ……2-125
図 2.4-30　供試体の平均飽和度の時間変化 ……2-125
図 2.4-31　本試験で観測された供試体の状態変遷の模式図 ……2-126

図 2.4-32　膨潤変形試験装置 ……2-127
図 2.4-33　膨潤変形試験中の変位の時間変化 ……2-127
図 2.4-34　組織構造の変化（相対湿度が高い場合） ……2-131
図 2.4-35　組織構造の変化（相対湿度が低い場合） ……2-131
図 2.4-36　水分分布の変化 ……2-132
図 2.4-37　温度、応力、エネルギーの変化（相対湿度が高い場合） ……2-132
図 2.5-1　セメントが使用されたボーリング孔（12MI33 号孔）とコア試料を採取した
ボーリング孔（18MI65 号孔）の位置関係 ……2-136
図 2.5-2　採取したコア試料の一覧表、薄片写真、肉眼及び薄片観察結果 ……2-137
図 2.5-3　岩石薄片の作製位置を示す概念図 ……2-138
図 2.5-4　割れ目表面で認められた極細粒の沈着物の観察結果 ……2-138
図 2.5-5　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 ……2-141
図 2.5-6　反応輸送解析モデル（三次元円筒座標系） ……2-142
図 2.5-7　コンクリート支保の下流側セルにおける亀裂内部地下水の pH 経時変化
の解析結果 ……2-143
図 2.5-8　亀裂内部の地下水の pH、亀裂内間隙率、亀裂内部での二次鉱物の
溶解・沈殿に係る解析結果（透水量係数：10^{-7} m²/s の場合） ……2-144
図 2.5-9　亀裂内部の地下水の pH、亀裂内間隙率、亀裂内部での二次鉱物の
溶解・沈殿に係る解析結果（透水量係数：10^{-10} m²/s の場合） ……2-144
図 2.6-1　処分孔の湧水環境に応じた緩衝材の施工オプション適用のイメージ ……2-152
図 2.6-2　緩衝材の施工オプションの選択における評価項目の例（イメージ） ……2-152
図 2.6-3　幌延 URL 地下 350 m 試験の試験実施場所 ……2-154
図 2.6-4　原位置試験 試験系の概念図 ……2-155
図 2.6-5　土圧計とケーブルの形状の切欠き ……2-156
図 2.6-6　緩衝材ブロック最上面土圧計設置状況 ……2-156
図 2.6-7　緩衝材ブロック上面と底面の土圧計配置 ……2-156
図 2.6-8　試験孔壁面の土圧計配置 ……2-157
図 2.6-9　試験孔壁面の土圧計設置状況 ……2-157
図 2.6-10　水圧計の設置位置 ……2-158
図 2.6-11　フランジ拡張用冶具 ……2-158
図 2.6-12　緩衝材膨出防止措置 ……2-158
図 2.6-13　緩衝材ブロック底面位置の圧力水頭と試験孔からの排水量 ……2-159
図 2.6-14　緩衝材ブロック底面位置の圧力水頭と処分孔からの排水量の
関係イメージ図 ……2-160
図 2.6-15　緩衝材ブロックの上面と底面に設置した土圧計の経時変化 ……2-161
図 2.6-16　試験孔壁面に設置した土圧計の経時変化 ……2-161
図 2.6-17　荷重計の経時変化 ……2-162
図 2.6-18　膨出抑制用鋼製蓋の高さ計測 ……2-162
図 2.6-19　緩衝材ブロックの膨潤によって生じる鉛直方向の力のイメージ図 ……2-164
図 2.6-20　荷重計合計値と緩衝材ブロックの膨潤によって生じる力（参考値） ……2-164
図 2.6-21　緩衝材の総流出量と排水中のベントナイト濃度の経時変化 ……2-165
図 2.6-22　総排水量と排水量の経時変化 ……2-166
図 2.6-23　総排水量と総流出量（平成 31 年度試験結果との比較） ……2-167

図 2.6-24　ベントナイト濃度（平成 31 年度試験結果との比較）……2-168
図 2.6-25　緩衝材ブロックの底面の圧力水頭と排水量
（平成 31 年度試験結果との比較）……2-168
図 2.6-26　注水試験 試験装置概要図……2-169
図 2.6-27　破過発生前後の写真……2-170
図 2.6-28　注水試験 1 日目　計測結果（注水圧と注水流量の経時変化）……2-171
図 2.6-29　注水試験 1 日目　計測結果（注水圧と総排水量の経時変化）……2-171
図 2.6-30　注水試験 2 日目　計測結果（注水圧と注水流量の経時変化）……2-172
図 2.6-31　注水試験 2 日目　計測結果（注水圧と総排水量の経時変化）……2-172
図 2.6-32　注水試験 1 日目　注水圧と試験孔側面の土圧の関係……2-173
図 2.6-33　注水試験 2 日目　注水圧と試験孔側面の土圧の関係……2-173
図 2.6-34　注水試験 2 日目　注水圧とベントナイト濃度の関係……2-174
図 2.6-35　注水試験 2 日目　注水圧と緩衝材の総流出量の関係……2-174
図 2.6-36　注水試験 2 日目　総排水量に対する緩衝材の総流出量と
ベントナイト濃度の関係……2-175
図 2.6-37　流出試験の概要（平成 31 年度 短期試験）……2-176
図 2.6-38　流出試験における緩衝材表面の観察結果……2-176
図 2.6-39　原位置試験と室内試験の総流量と総積算流出量の比較……2-177
図 2.6-40　原位置試験における緩衝材下部の水位（水圧）と排水量の経時変化……2-177
図 2.6-41　ケイ砂充填オプションに関する原位置試験（平成 31 年度実施）試験結果……2-179
図 2.6-42　小型試験装置……2-180
図 2.6-43　小型試験での総流出量と流出濃度……2-180
図 2.6-44　工学規模試験装置……2-181
図 2.6-45　工学規模試験での総流出量と流出濃度……2-181
図 2.6-46　横置き試験装置での流出試験の総流出量と流出濃度……2-181
図 2.6-47　流出量の予測値と試験結果との比較……2-182
図 2.6-48　流出領域と緩衝材領域の断面積（ケイ砂充填時）……2-183
図 2.6-49　ペレット充填による流出試験の水みち形成状況……2-187
図 2.6-50　ペレット充填での総流出量と流出濃度の関係……2-187
図 2.6-51　処分孔の湧水環境に応じた緩衝材の施工オプション適用のイメージ……2-189
図 2.6-52　水位差に対する流出の有無……2-189
図 2.6-53　緩衝材の流出の関する施工オプションの整備に関する検討フロー……2-189
図 2.6-54　閉塞条件の確認試験の試験装置の例（隙間未充填）……2-192
図 2.6-55　試験により整備するデータの概要……2-193
図 2.6-56　排水量増加の原因の調査に関する試験の概要……2-193
図 2.6-57　緩衝材の再冠水プロセスに関する解析手法に関する
段階的な検討のイメージ……2-195
図 2.6-58　軸方向膨潤シミュレーションで対象となるプロセス……2-197
図 2.6-59　側方向膨潤シミュレーションで対象となるプロセス……2-198
図 2.6-60　水分特性曲線……2-200
図 2.6-61　間隙比依存性を考慮した透水係数……2-200
図 2.6-62　軸方向膨潤の供試体高さの変化（飽和後平均乾燥密度 1.6 Mg/m^3）……2-202
図 2.6-63　軸方向の飽和度の変化（飽和後平均乾燥密度 1.6 Mg/m^3）……2-203

図 2.6-64　軸方向の乾燥密度の変化（飽和後平均乾燥密度 1.6 Mg/m³）……2-204
図 2.6-65　軸方向の乾燥密度の分布（飽和後平均乾燥密度 1.6 Mg/m³）……2-205
図 2.6-66　軸方向の軸圧と側圧の変化（飽和後平均乾燥密度 1.6 Mg/m³）……2-206
図 2.6-67　軸方向の飽和度の変化（飽和後平均乾燥密度の違いによる比較）……2-207
図 2.6-68　軸方向の乾燥密度の変化（飽和後平均乾燥密度 1.4 Mg/m³）……2-207
図 2.6-69　軸方向の乾燥密度分布（飽和後平均乾燥密度 1.4 Mg/m³）……2-208
図 2.6-70　軸方向の軸圧と側圧の変化（飽和後平均乾燥密度の違いによる比較）……2-208
図 2.6-71　供試体高さの変化：D20S14_AX_00 ……2-209
図 2.6-72　乾燥密度の変化：D20S14_AX_00 ……2-210
図 2.6-73　乾燥密度の分布：D20S14_AX_00 ……2-210
図 2.6-74　側方向膨潤問題の概念図 ……2-211
図 2.6-75　供試体半径の変化 ……2-211
図 2.6-76　飽和度の変化 ……2-212
図 2.6-77　乾燥密度の変化 ……2-212
図 2.6-78　乾燥密度の分布 ……2-212
図 2.6-79　側圧と軸圧の変化 ……2-213
図 2.6-80　試験装置の概要（断面） ……2-214
図 2.6-81　0-pre：給水量の経時変化 ……2-215
図 2.6-82　0-pre:隙間充填過程における膨潤高さの経時変化 ……2-215
図 2.6-83　0-pre：膨潤圧の経時変化 ……2-216
図 2.6-84　0-pre；解体時の供試体観察 ……2-216
図 2.6-85　0-pre：解体結果 ……2-217
図 2.6-86　給水量の経時変化 ……2-218
図 2.6-87　膨潤高さの経時変化 ……2-218
図 2.6-88　側圧の経時変化 ……2-219
図 2.6-89　膨潤圧の経時変化 ……2-219
図 2.6-90　1-1a：解体結果 ……2-220

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　本課題における三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　結晶質岩中の黒雲母等の形状、サイズ、連結性の評価方法とグリムゼル花崗閃緑岩への適用例 ……3-7
図 3.2-3　拡散試験の対象とした国内結晶質岩試料の外観（上段）と X 線 CT 像の解析結果（中段：拡散面、下段：側面） ……3-8
図 3.2-4　国内結晶質岩試料中の黒雲母の形状評価結果 ……3-9
図 3.2-5　複雑な割れ目性状を有するグリムゼルの花崗閃緑岩コア試料の X 線 CT 分析とトレーサー試験の解析結果 ……3-10
図 3.2-6　ガウジの存在状態を変動させた核種移行解析結果 ……3-11
図 3.2-7　(a)グリムゼル原位置試験場の GAM サイトの割れ目帯と(b)コア採取状況、(c)採取した割れ目試料、(d)収着・拡散試験及びトレーサー試験試料の

加工状況 ……3-12
図 3.2-8　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 ……3-13
図 3.2-9　グリムゼルの大型コア試料の分割試料の X 線 CT 像とその分析結果 ……3-14
図 3.2-10　X 線 CT データ解析による Aperture1 の開口幅分布の評価結果 ……3-15
図 3.2-11　大型コア試験の室内トレーサー試験後の割れ目面のトレーサー分布の分析結果3-16
図 3.2-12　大型コア試験のトレーサー分布（ステップ②）と割れ目開口分布の比較 ……3-16
図 3.2-13　核種移行現象や地質環境の不均質性と長期変遷を反映した
核種移行現象解析モデルの構築・確証のアプローチ ……3-17
図 3.2-14　隆起シナリオにおける核種移行解析で考慮すべきプロセス(a)と 500 m の
割れ目中の核種移行解析体系のグリッド構成(b) ……3-18
図 3.2-15　マトリクス拡散と収着の生じる領域と地下水条件の変遷が Cs の
核種移行解析に及ぼす影響 ……3-19
図 3.2-16　割れ目表層のマトリクス部での間隙率と鉱物変遷の解析結果 ……3-19
図 3.2-17　幌延の泥岩マトリクス中の間隙水の NMR 信号の経時変化 ……3-21
図 3.2-18　第一原理計算により構造最適化したバーミキュライトの構造 ……3-22
図 3.2-19　四面体 Al 置換量と層間距離の関係 ……3-22
図 3.2-20　四面体 Al 置換量と Cs ケミカルシフトの関係 ……3-23
図 3.2-21　Cs と 5 Å 以内に存在する(a)Si、(b)O 及び(c)Al の個数と
ケミカルシフトの関係 ……3-24
図 3.2-22　RW シミュレーションの関連図 ……3-28
図 3.2-23　原位置試験（堆積岩）を模擬したモデル体系 ……3-30
図 3.2-24　Cs の原位置拡散データに対する GoldSim コードによる最適化結果 ……3-30
図 3.2-25　Cs の原位置拡散データに対する PHREEQC コードと最適化ツールを用いた
最適化結果 ……3-31
図 3.2-26　モデル解析で推定された Cs の実効拡散係数の比較 ……3-32
図 3.2-27　各試験孔の Cs の収着分配係数 ……3-32
図 3.2-28　幌延泥岩の割れ目を対象とした原位置トレーサー試験装置の概略図 ……3-33
図 3.2-29　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 3.2-30　試験孔周辺の岩石試料採取・観察結果に基づく割れ目分布 ……3-35
図 3.2-31　試験孔周辺のボーリングコアの割れ目面のトレーサー分析結果 ……3-35
図 3.2-32　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 3.2-33　複数の移行経路とフロー領域・スタグナント領域を考慮した解析モデル ……3-37
図 3.2-34　ウラニンにおける三つの移行経路を考慮した解析モデルを用いた解析結果 ……3-38
図 3.2-35　Mo における三つの移行経路を考慮した解析モデルを用いた解析結果 ……3-39
図 3.2-36　Cs における三つの移行経路を考慮した解析モデルを用いた解析結果 ……3-39
図 3.2-37　非収着性元素及び反応性元素を対象とした解析結果（HDB-1 孔） ……3-42
図 3.2-38　非収着性元素及び反応性元素を対象とした解析結果（HDB-3 孔） ……3-43
図 3.3-1　Na 型モンモリロナイトに対する Fe(II)収着の pH 依存性 ……3-48
図 3.3-2　Na 型モンモリロナイトに対する Fe(II)収着データへの
フィッティング解析の結果 ……3-49
図 3.3-3　Fe 共存下での Nb の K_d（0.5 M NaCl 条件, pH7.2） ……3-50
図 3.3-4　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 ……3-51
図 3.3-5　初期共沈生成物(A)及び熟成後の固相(B)の XRD 測定結果 ……3-53
図 3.3-6　初期共沈物の EXAFS 振動(a)とフーリエ変換スペクトル(b)及び
熟成後試料の EXAFS 振動(c)とフーリエ変換スペクトル(d) ……3-54
図 3.3-7　実験 B-1, A-2, B-2 の熟成試料のマグネタイト粒子の TEM 画像 ……3-55
図 3.3-8　実験 B-1, A-2, B-2 の熟成試料のマグネタイト粒子の走査型透過電子顕微鏡
STEM-HAADF（高角度環状暗視野）画像 ……3-56
図 3.3-9　幌延の泥岩試料（稚内層，SAB2 孔）を対象とした μ-XRF で取得された
Se, Fe, S, Ca の元素マッピングの結果の例 ……3-58
図 3.3-10　幌延の泥岩試料（稚内層，SAB2 孔）の微小領域に対する
Se(a)および Fe (b)の μ-XAFS 分析結果 ……3-58
図 3.3-11　乾燥密度 1.6 Mg/m^3、イオン強度 0.05 M の条件における Na 型及び
Ca 型モンモリロナイト中のデンドリマーコロイド（5.7 nm）の
拡散・ろ過試験データ ……3-60
図 3.3-12　幌延の泥岩とセメントの接触界面の採取位置と分析対象試料の界面の状況 ……3-61
図 3.3-13　EPMA によるセメント-岩石接触界面の主要元素（Ca, Si, Al, Na, Cl）の
マッピング結果 ……3-62
図 3.3-14　EPMA による元素マッピングに基づくセメント-岩石接触界面の
元素濃度プロファイル ……3-63
図 3.3-15　セメント-岩石接触界面の μ-XRD 測定結果 ……3-64
図 3.3-16　セメントと岩石の接触界面付近の SEM/EDS 分析結果 ……3-65
図 3.3-17　セメントと岩石の接触試料のセメント健全部、岩石変質部、岩石健全部の
水銀圧入法で得られた累積間隙径分布の比較 ……3-66
図 3.3-18　セメントと接触した岩石試料の変質部（0~2 mm、2~4 mm）及び健岩部を
対象とした陽イオン交換容量(CEC)、主要・微量元素の分析結果 ……3-67
図 3.3-19　Na 型イライトに対する Eu の収着分配係数の pH 依存性 ……3-69
図 3.3-20　熱力学的収着モデルによる Na 型イライトに対する Eu の収着試験の
再現計算結果 ……3-70
図 3.3-21　Eu を収着させたイライトの積算蛍光スペクトル ……3-71
図 3.3-22　$I_{616\ nm}$ を中心とするピークの時間変化 ……3-72
図 3.3-23　幌延の泥岩に対する Eu の K_d の pH 依存性データ及び加成則による再現結果 ·3-73
図 3.3-24　Na 型イライトに対する U(VI)の K_d の pH 依存性 ……3-74
図 3.3-25　(a) イライトのみ、(b) 大気平衡条件で U(VI)を収着させたイライト(pH7.8)
及び 1 mM DIC 条件で U(VI)を収着させたイライト(pH8.1)の
積算蛍光スペクトル ……3-75
図 3.3-26　NpO_2^+と $NpO_2CO_3^-$の平衡反応速度と破過フラックスの関係 ……3-76
図 3.3-27　Np-237 破過フラックスの実測データとシミュレーション結果の比較 ……3-77
図 3.3-28　Na-モンモリロナイト層間・粒子間間隙混合系の 2 ns にわたる Cl^-の
拡散履歴（a, c）及び CO_3^{2-}の拡散履歴（b, d） ……3-79
図 3.3-29　Na-モンモリロナイト層間・粒子間間隙混合系の 2 ns にわたる Cl^-の
拡散履歴（a, c）及び UO_2^{2+}の拡散履歴（b, d） ……3-80
図 3.3-30　Na-モンモリロナイト層間・粒子間間隙混合系の 2 ns にわたる CO_3^{2-}の
拡散履歴（a, c）及び UO_2^{2+}の拡散履歴（b, d） ……3-80

図 3.3-31　Na-モンモリロナイト層間・粒子間間隙混合系の 2 ns にわたる Cl^-の
拡散履歴（a, c）及び NpO_2^+の拡散履歴（b, d）……3-81
図 3.3-32　Na-モンモリロナイト層間・粒子間間隙混合系の 2 ns にわたる CO_3^{2-}の
拡散履歴（a, c）及び NpO_2^+の拡散履歴（b, d）……3-81
図 3.3-33　Na 型モンモリロナイトの MD 計算結果……3-83
図 3.3-34　水蒸気の水分子がモンモリロナイト層間水に取り込まれて状態変化する際の
自由エネルギー変化を表す概念図……3-85
図 3.3-35　二つの手法によるエネルギー変化の比較……3-85
図 3.3-36　二つの手法による層間含水量の挙動の比較……3-86
図 3.4-1　pH8 における UV/Vis（HFA）と FFF-ICPMS（Zr）検出から取得した
フラクトグラム……3-92
図 3.4-2　pH7 における UV/Vis（HFA）と FFF-ICPMS（Zr）検出から取得した
フラクトグラム……3-92
図 3.4-3　pH5、6、7、8 における HFA に対する Zr^{4+}結合量の Zr^{4+}濃度依存性の
測定値及び NICA-Donnan モデルを用いたフィッティング結果……3-93
図 3.4-4　CE-ICPMS システム概略図……3-97
図 3.4-5　CE-ICPMS から取得した Zr^{4+}のフラクトグラム……3-99
図 3.4-6　Eu の収着の pH 依存性……3-103
図 3.4-7　微生物と元素との相互作用の概念図……3-106
図 3.4-8　幌延 URL における ボーリング孔配置図……3-107
図 3.4-9　地下水中の微生物群集組成の経時変化……3-110
図 3.4-10　地下水中の全鉄及び 2 価鉄イオン濃度の経時変化……3-111
図 3.4-11　地下水の化学的因子と 16S rRNA 遺伝子に基づく微生物群集組成解析結果
による CCA 結果……3-112
図 3.4-12　微生物群集組成の異なる地下水における微生物代謝機能の推定……3-112
図 3.4-13　コロイド収着試験に用いた地下水中の微生物群集組成……3-114
図 3.4-14　深度 140 m（07V140M03 孔），185 m (08E140C01 孔区間 3),
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……3-117
図 3.4-15　深度 185 m 地下水を用いた収着試験過程における
微生物群集組成の経時変化……3-118
図 3.4-16　声問層と稚内層岩石の薄片試料の観察結果……3-120

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　水理・物質輸送－化学反応（Case A）及び力学との連成解析（Case B）
結果の比較……4-9
図 4.2-2　水理・物質輸送－化学反応の連成解析における解析体系……4-11
図 4.2-3　緩衝材及びセメント支保部分の長期的変質挙動に係る連成解析結果（Case1）4-13
図 4.2-4　緩衝材の長期的変質挙動に係る連成解析結果（Case1）……4-14
図 4.2-5　緩衝材及びセメント支保部分の長期的変質挙動に係る連成解析結果（Case2）4-15
図 4.2-6　緩衝材の長期的変質挙動に係る連成解析結果（Case2）……4-16
図 4.2-7　緩衝材の長期的変質挙動に係る連成解析結果（透水係数の経時変化）……4-17
図 4.3-1　核種移行解析モデルの概念図……4-25

図 4.3-2　緩衝材中の単位体積あたりの Cs-135 の存在量の経時変化 ……4-26
図 4.3-3　緩衝材中の単位体積あたりの I-129 の存在量の経時変化 ……4-26
図 4.3-4　緩衝材中での Cs-135 の存在量分布の経時変化と Cs の K_d、
モンモリロナイト残存量及び緩衝材中での構成鉱物の時間変遷との比較 ……4-27

付録

図 B1-1　平成 30 年度モデルの解析メッシュ図 ……付 B-2
図 B1-2　透水係数分布図（鳥瞰図） ……付 B-3
図 B1-3　処分坑道及び処分孔の解析メッシュ（鳥瞰図） ……付 B-3
図 B1-4　裏面排水を想定した浸出面境界の設定位置 ……付 B-4
図 B1-5　定置期間を想定した解析モデルのメッシュ ……付 B-5
図 B1-6　隙間のメッシュと鉛直方向の等価透水係数の計算例 ……付 B-5
図 B1-7　掘削及び埋戻しの工程とそれに対応する解析期間 ……付 B-7
図 B1-8　各解析期間における処分坑道の解析メッシュ図 ……付 B-8
図 B1-9　不飽和浸透特性（岩盤、EDZ、グラウト及び支保工、床版コンクリート） ‥付 B-9
図 B1-10　不飽和浸透特性（埋戻し材及び処分孔と緩衝材間の隙間） ……付 B-10
図 B1-11　境界条件（坑道軸に直交し、処分孔軸を含む断面） ……付 B-12
図 B1-12　処分場スケールモデルの解析結果からニアフィールドスケールモデルの
外周境界に境界条件として与えた圧力水頭（側面：モデル中央の標高での
圧力水頭） ……付 B-13
図 B1-13　解析結果を出力した坑道位置及び処分孔番号 ……付 B-14
図 B1-14　隙間通過流量の算出位置（赤丸位置） ……付 B-15
図 B1-15　平成 30 年度と令和 2 年度（case001）の坑道湧水量の経時変化の比較
（期間 0-2～期間 1、中央坑道） ……付 B-16
図 B1-16　掘削による圧力水頭分布の変化（case001、処分孔 12、期間 0-2） ……付 B-16
図 B1-17　定置による圧力水頭の変化（case001、処分孔 12、期間 1） ……付 B-17
図 B1-18　処分坑道と裏面排水による流量の比較 ……付 B-17
図 B1-19　坑道湧水量の経時変化（期間 0-2～期間 1、中央坑道） ……付 B-18
図 B1-20　EDZ の有無による不飽和領域（圧力水頭）の比較 ……付 B-19
図 B1-21　処分孔と緩衝材の隙間の透水性の違いによる圧力水頭の比較 ……付 B-19
図 B1-22　平成 30 年度と令和 2 年度（case001）の処分孔湧水量の経時変化 ……付 B-20
図 B1-23　期間 1 における処分孔湧水量算出位置 ……付 B-21
図 B1-24　定置前後の実流速分布及び流向の変化 ……付 B-21
図 B1-25　処分孔湧水量の経時変化（期間 0-2～期間 1、中央坑道の処分孔の合計） ‥付 B-22
図 B1-26　EDZ を介した地下水の流れの概念図 ……付 B-22
図 B1-27　処分孔-緩衝材間の間隙の通過流量の経時変化 1
（期間 1～処分施設閉鎖まで、中央坑道） ……付 B-24
図 B1-28　処分孔-緩衝材間の間隙の通過流量の経時変化 2
（期間 1～領域 B 埋戻し後、中央坑道） ……付 B-25
図 B1-29　処分孔-緩衝材間の間隙の通過流量の経時変化 3（期間 1～領域 B 埋戻し後、
中央坑道、最大・最小・平均通過流量の比較） ……付 B-26
図 B1-30　期間 0-2 における圧力の変化（case001、坑道横断方向断面、処分孔 12） ‥付 B-27
図 B1-31　期間 1 における圧力の変化（case001、坑道横断方向断面、処分孔 12） …付 B-27

図 B1-32　期間 2 における圧力の変化（case001、坑道横断方向断面、処分孔 12）　…付 B-28
図 B1-33　EDZ の有無による圧力水頭の比較 ……付 B-29
図 B1-34　処分孔と緩衝材の隙間の透水性の違いによる圧力水頭の比較 ……付 B-30
図 B1-35　地下水流速の経時変化（case001、坑道横断方向、処分孔 12）　……付 B-31
図 B1-36　EDZ の有無による流速分布の比較 ……付 B-33
図 B1-37　処分孔と緩衝材の隙間の透水性の違いによる流速分布の比較 ……付 B-34
図 B2-1　緩衝材界面の流出挙動の観察と流出量測定試験のイメージ ……付 B-36
図 B2-2　吸光度と流出物含有量（流出濃度）の関係 ……付 B-37
図 B2-3　隙間未充填試験 ……付 B-37
図 B2-4　通水圧の経時変化（隙間未充填ケース）　……付 B-38
図 B2-5　総流出量とベントナイト濃度－隙間未充填－ ……付 B-39
図 B2-6　X 線 CT の計測範囲 ……付 B-40
図 B2-7　X 線 CT の計測結果（通水量：0.1 mL/min ケース 1 の試験後）　……付 B-41
図 B2-8　X 線 CT の計測結果（通水量：2.0 mL/min ケース 2 の試験後）　……付 B-41
図 B2-9　X 線 CT の水みち形状計測例（ケース 1）　……付 B-41
図 B2-10　ケイ砂充填の緩衝材界面の流出挙動の観察と流出量測定試験のイメージ:…付 B-43
図 B2-11　ケイ砂充填試験 ……付 B-44
図 B2-12　通水圧の経時変化（ケイ砂充填ケース）　……付 B-44
図 B2-13　ベントナイト濃度と総流出量－ケイ砂充填－ ……付 B-45
図 B2-14　ケース 2：ベントナイト部の洗堀の様子 ……付 B-46
図 B2-15　総流出量とベントナイト濃度の水質の違いによる比較 ……付 B-46
図 B2-16　解体時のブロック分け ……付 B-47
図 B2-17　横置き試験による隙間未充填とケイ砂充填の比較 ……付 B-48
図 B3-1　緩衝材ブロックの外観 ……付 B-50
図 B3-2　緩衝材ブロックの製作フロー（一個あたりの製作フロー）　……付 B-51
図 B3-3　著しいサメ肌状の剥離 ……付 B-52
図 B3-4　X 線 CT 装置内部 ……付 B-56
図 B3-5　供試体を試料ステージに直接置いた場合のイメージ ……付 B-57
図 B3-6　治具を用いた緩衝材ブロックの X 線 CT 撮影状況 ……付 B-57
図 B3-7　X 線 CT 撮影状況 ……付 B-59
図 B3-8　加圧方向の断面画像（左：No.048、中：No.049、右：No.050）　……付 B-60
図 B3-9　加圧方向中央深度断面画像と中央部鉛直断面画像 ……付 B-61
図 B3-10　密度確認用サンプルの採取方法 ……付 B-62
図 B3-11　分割前の採取コア ……付 B-63
図 B3-12　サンプル採取深度と乾燥密度の関係 ……付 B-64
図 B3-13　X 線 CT 撮影状況（No.048、左：コア、右：サンプル）　……付 B-65
図 B3-14　コアの CT 画像 ……付 B-66
図 B3-15　サンプルの CT 画像
（左上：鉛直断面、右上・左下・右下：サンプル中央深度断面）　……付 B-67
図 B3-16　乾燥密度と平均 CT 値（ブロック画像より）の深度分布 ……付 B-69
図 B3-17　乾燥密度と平均 CT 値（ブロック画像より）の関係 ……付 B-69
図 B3-18　乾燥密度と平均 CT 値（コア及びサンプル画像より）の深度分布 ……付 B-71
図 B3-19　乾燥密度と平均 CT 値（コア及びサンプル画像より）の関係 ……付 B-72

図 B3-20　乾燥密度と平均 CT 値（コア及びサンプル画像より）の関係
（同一の図に整理）……付 B-73
図 B3-21　コアの CT 画像に基づく密度分布……付 B-74

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 5 か年の実施スケジュール ……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
表 2.2-1　スキムミルクの各滅菌条件における DNA 濃度 ……2-9
表 2.2-2　汚染評価：スキムミルクやネガティブコントロールから検出される微生物種 ‥2-15
表 2.2-3　浸漬試験条件 ……2-17
表 2.2-4　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 ……2-20
表 2.2-5　SSRT 試験条件 ……2-23
表 2.2-6　腐食試験前後の試験片の重量減量から算出した腐食量および腐食速度 ……2-33
表 2.2-7　水素抽出曲線より求めた拡散性水素濃度 ……2-35
表 2.3-1　研究対象試料 ……2-40
表 2.3-2　画像解析によるベントナイト中の各鉱物相の推定面積比……2-70
表 2.3-3　クライオ状態下でのベントナイト原鉱石中での各鉱物相の推定面積比 ……2-70
表 2.3-4　各試験ケースにおける膨潤指数 ……2-84
表 2.3-5　pH 及び主要溶存元素濃度（mmol/L） ……2-86
表 2.3-6　透水係数の評価（m/s） ……2-86
表 2.4-1　水と空気の移動に着目した時の THAMES と TOUGH2 の支配方程式の比較…2-93
表 2.4-2　人工バリア性能確認試験の解析評価に用いた物性値……2-102
表 2.4-3　解析ケース ……2-109
表 2.4-4　解析パラメータ ……2-111
表 2.4-5　長期力学挙動解析の解析ステップ……2-112
表 2.4-6　緩衝材の解析用物性値 ……2-113
表 2.4-7　セメント系材料の想定仕様 ……2-113
表 2.4-8　セメント系材料の解析用物性値 ……2-114
表 2.4-9　岩盤の解析用物性値（非線形粘弾性体） ……2-115
表 2.4-10　炭素鋼オーバーパック（腐食膨張要素）の解析用物性値……2-115
表 2.4-11　ガラス固化体の解析用物性値 ……2-116
表 2.4-12　膨潤圧試験ケース及び初期条件 ……2-122
表 2.4-13　膨潤変形試験の試験条件 ……2-127
表 2.6-1　緩衝材ブロック仕様 ……2-155
表 2.6-2　膨出抑制用鋼製蓋の高さ計測結果 ……2-163
表 2.6-3　総排水量と総流出量の最終値の比較 ……2-166
表 2.6-4　強制注水条件における流出試験中の時系列 ……2-170
表 2.6-5　流出濃度に関する室内試験結果まとめ ……2-180
表 2.6-6　最大膨潤率と隙間体積比 ……2-184
表 2.6-7　流出量及び最大膨潤率／隙間体積比の算出に使用したパラメータと数値 ……2-184

表 2.6-8　流出厚、流出量及び最大膨潤率/隙間体積比の関係
（上：淡水条件、下：塩水条件）……2-184
表 2.6-9　流出厚、流出量および平均乾燥密度の関係……2-185
表 2.6-10　許容湧水量（試算）……2-185
表 2.6-11　試験前後の緩衝材ブロックの状態と乾燥密度……2-186
表 2.6-12　閉塞条件の確認試験の概要（隙間未充填）……2-191
表 2.6-13　緩衝材流出量の予測モデル整備に向けた試験の概要（ケイ砂充填）……2-192
表 2.6-14　実環境での流出挙動把握試験の概要（ケイ砂充填）……2-193
表 2.6-15　3 年間の試験スケジュール（流出を抑制する工学的対策の具体化）……2-194
表 2.6-16　再冠水プロセスに関する解析的な評価手法の検討に関する実施スケジュール 2-196
表 2.6-17　軸方向膨潤解析の解析条件……2-198
表 2.6-18　側方向膨潤解析の解析条件……2-198
表 2.6-19　不飽和弾塑性構成モデルに関するパラメータ……2-199
表 2.6-20　水分特性曲線モデルおよび透水係数モデルに関するパラメータ……2-199
表 2.6-21　膨潤試験ケース……2-214

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　グリムゼル花崗閃緑岩に含まれる黒雲母等の連続性の評価結果……3-7
表 3.2-2　国内結晶質岩試料中の黒雲母の含有率(%)……3-8
表 3.2-3　層間距離を変化させたバーミキュライトの ^{133}Cs ケミカルシフト……3-23
表 3.2-4　バーミキュライトへの吸着 Cs の NMR 分析の実験値と理論値の比較及び
Cs 周辺構造……3-25
表 3.2-5　クニゲル V1 とケイ砂の混合系をモデル化したシミュレーションの条件設定…3-26
表 3.2-6　クニゲル V1 とガラスビーズの混合系をモデル化したシミュレーションの
条件設定……3-27
表 3.2-7　Cs の原位置拡散データの最適化により導出された拡散・収着パラメータ
の比較……3-31
表 3.2-8　割れ目表面におけるトレーサーの最大検出濃度……3-36
表 3.2-9　解析モデルのパラメータ……3-37
表 3.2-10　トレーサーの実効拡散係数および分配係数……3-38
表 3.2-11　イオン交換反応に関わる選択定数……3-41
表 3.2-12　境界条件及び物質移行パラメータに係る条件設定……3-41
表 3.3-1　得られた収着モデルパラメータ……3-49
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 及び Fe・Se 濃度 3-52
表 3.4-1　FFF-ICPMS 測定に供した試料リスト……3-91
表 3.4-2　HFA への Zr^{4+}結合反応の条件付き平衡定数……3-96
表 3.4-3　条件付き平衡定数の計算に使用したパラメータ……3-96
表 3.4-4　CE-ICPMS の測定に供した試料のリストと測定条件……3-97
表 3.4-5　HHA への Zr^{4+}結合反応の条件付き平衡定数……3-99
表 3.4-6　HFA 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……3-101
表 3.4 7　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……3-101

表 3.4 8　収着試験の条件 ……3-103
表 3.4 9　地下水中のコロイド濃度（平均値）とバイオコロイド濃度……3-114

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　緩衝材に期待される機能に関わる指標・基準（スウェーデンの例） ……4-5
表 4.2-2　緩衝材に期待される機能に関わる指標・基準（スイスの例） ……4-6
表 4.2-3　解析ツール間で受け渡されるパラメータの種類……4-7
表 4.2-4　本サブタスクで関係する解析コードの検証・確証に関わる現状……4-10
表 4.2-5　水理・物質輸送－化学反応の連成解析における解析ケース……4-12
表 4.3-1　緩衝材の長期的変質に伴う状態変遷を考慮した核種移行パラメータの設定 ……4-24

付録

表 B1-1　解析期間 ……付 B-6
表 B1-2　解析ケース一覧 ……付 B-8
表 B1-3　物性値一覧（基本ケース） ……付 B-9
表 B1-4　処分孔と緩衝材間の隙間及び埋戻し材の初期条件……付 B-11
表 B1-5　最大隙間通過流量の比較 ……付 B-23
表 B2-1　横置き試験・隙間未充填試験ケース ……付 B-36
表 B2-2　横置き試験・ケイ砂充填試験ケース ……付 B-43
表 B2-3　ケイ砂充填での流出試験解体結果（ベントナイトの分布） ……付 B-48
表 B3-1　緩衝材ブロックの仕様 ……付 B-50
表 B3-2　緩衝材ブロック製作における品質管理項目 ……付 B-53
表 B3-3　初期密度に関するデータ取得に用いた緩衝材ブロック一覧……付 B-54
表 B3-4　X 線 CT「ScanXmate-RD300WSSS900」の主要諸元 ……付 B-56
表 B3-5　撮影条件一覧 ……付 B-58
表 B3-6　サンプル採取深度と高さ ……付 B-63
表 B3-7　密度確認用サンプルの測定結果一覧 ……付 B-64
表 B3-8　ブロック CT 画像から得られたサンプル採取位置の平均 CT 値と
　　サンプルの乾燥密度 ……付 B-68
表 B3-9　サンプル位置ごとの乾燥密度実測値と
　　コア／サンプル CT 画像から得られた平均 CT 値 ……付 B-70

1. 緒言

1.1 本事業の背景と目的

本事業は、令和 2 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～令和 4 年度）」（以下、「全体計画」という）が策定されている（経済産業省, 2020a）。

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；2020）。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, 2021）。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）を実施することとした。

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相互にフィードバックさせる（図 1.2-1 参照）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, 2021）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）や処分システム工学確証技術開発（原子力環境整備促進・資金管理センター, 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の 2 組織が共同で実施した。それぞれの組織が主として担当する箇所を図 1.2-1 に示す。また、外部の専門家・有識者などで構成される委員会を設置し、本事業の実施に関する計画、実施方法、成果などに関する審議・検討を実施（年間 3 回）し、本事業の実施に反映させることとした。令和 2 年度は、平成 30 年度から令和 4 年度の 5 か年計画で実施している本事業の 3 年目にあたるため、第 3 回委員会に併せて事業の進捗を中間的に評価するための審議・検討を行った。この中間評価の審議・検討の結果（付録 A 参照）を踏まえて、令和 3 年度以降に実施すべき課題を検討した。

なお、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, 2018b；経済産業省, 2020b）。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 年度から令和 4 年度の 5 か年の実施計画、平成 30 年度から 31 年度の 2 か年の成果、令和 2 年度の実施計画の概要を以下に記す。

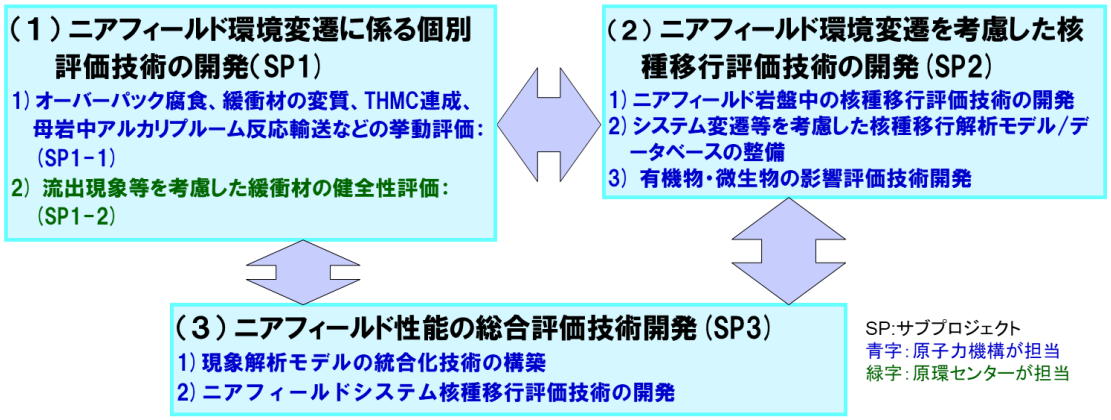


図 1.2-1　本事業で実施する「ニアフィールドシステム評価確証技術開発」の枠組みの概念図

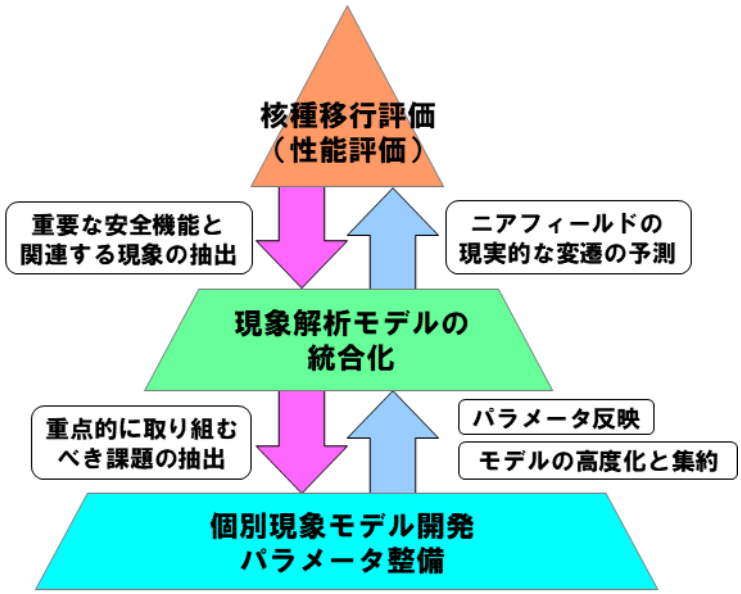
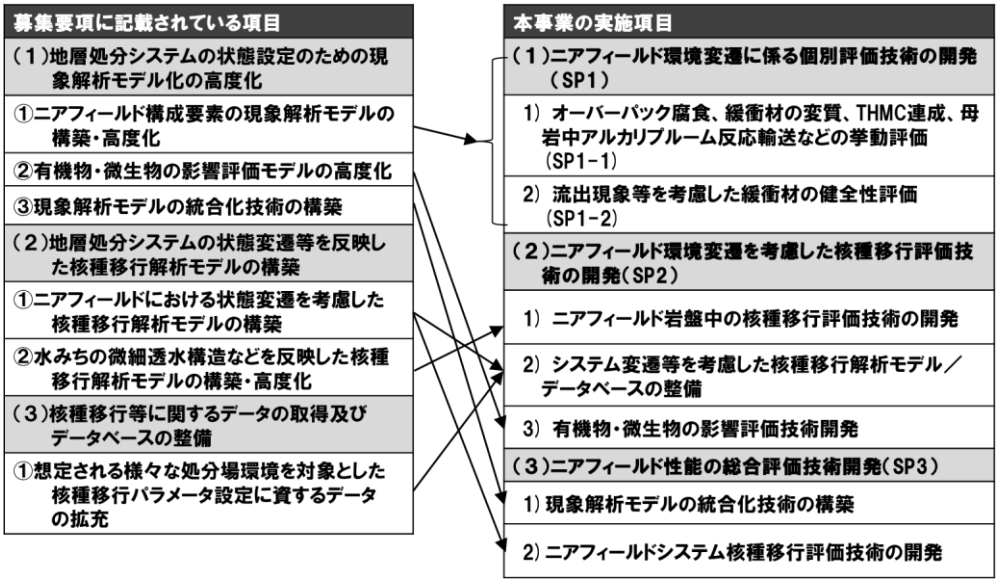


図 1.2-2　ニアフィールド性能の総合評価技術開発に向けたアプローチ概念図
（個別現象モデル開発・パラメータ整備からのボトムアップによる現象解析モデルの統合化・核種移行評価と、その評価結果に基づくフィードバックの概念図）

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評価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、これまでに、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 100℃を超える条件も含めた 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、以下の五つのサブタスクを実施している。

(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～31 年度は THMC 条件を制御しつつ広範な条件で全面腐食速度、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し、

環境条件による腐食挙動への影響などに関するデータを取得した。また、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、原位置試験施工後の過渡期における緩衝材の環境条件に関するデータなどに基づいて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などを推定した。

令和 2 年度～4 年度は、原位置試験試料の詳細な分析や過渡期を想定した条件での室内試験を行う。また、従来の想定を超える環境を含む広範な条件での室内試験を行う。これらの分析結果やデータに基づき、過渡状態～長期的な環境変遷における腐食挙動とメカニズムを推定し、従来の腐食モデルの適用性を確認するとともに、現実的な腐食進展挙動を推定するモデルを例示する計画である。

令和 2 年度は、THMC に係る個別の因子の変遷が腐食に与える影響だけでなく複数の因子が複合的に作用した場合の腐食への影響を把握するため、広範な条件における室内試験の長期データを取得するとともに、複合的な要因（地下水中成分の組合せなど）の関与する環境での応力腐食割れや局部腐食挙動などに関するデータを取得し、これらの知見に基づいて実際の環境条件の変化に対する腐食挙動の変化を推定した。また、原位置試験で使用した腐食センサーの分析手法の検討や緩衝材の分析を進め、模擬 OP や腐食センサー周辺の環境条件に関するデータを拡充した。

(2) 緩衝材の変質挙動評価

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、平成 30 年度～31 年度は、幌延深地層研究所での原位置試験試料及び月布鉱山の鉄接触原鉱石の調査の結果から圧縮ベントナイト中の鉄腐食生成物は、Mn や Ca とともに炭酸塩で存在すること（原位置試験試料）、マグネタイトなどの酸化物/水酸化物で存在すること（月布原鉱石試料）などを確認し、その結果から両試料とも、モンモリロナイトの変質により生成すると推測される鉱物は観察されず、モンモリロナイトの他鉱物への変質はないと推測された。

令和 2 年度～4 年度は、ナチュラルアナログ事例の試料の調査として、鉄遺物に接触している土壌中に含まれる粘土鉱物の変質状態の分析を行い、炭素鋼－緩衝材境界領域におけるバリア間相互作用のメカニズムに関する知見の拡充、変質挙動評価モデルの信頼性向上を目指す。

令和 2 年度は、低酸素条件で長期的に埋蔵していた可能性の高い土壌が付着した状態の鉄遺物を選定し、X 線回折法、電子顕微鏡などを利用した土壌中に含まれる粘土鉱物の変質状態の分析に着手した。

セメンテーションによる緩衝材の変質に関して、平成 30 年度～31 年度は、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、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は、再構成試料に比較して膨潤圧は低下、剛性は増加、透水性は変化しない可能性を示唆する結果を得た。そして、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・分析に着手した。

令和 2 年度～4 年度は、原鉱石及び再構成試料などを用いた膨潤圧試験などの室内試験やそれらの試料の観察・分析データの蓄積により、セメンテーション状態と基本特性の関係の理解を進めるとともに、セメンテーションが緩衝材の基本特性へ与える影響を整理する。

令和 2 年度は、光学顕微鏡、電子顕微鏡、X 線 CT などを用いて、月布鉱山の原鉱石及びその再構成試料のセメンテーション状態（原因物質の特定を含む）や膨潤性の違いを観察した。また、月布鉱山産ベントナイト原鉱石及び再構成試料を対象とした圧密試験を平成 31 年度に継続して実施し、セメンテーションが剛性へ与える影響を把握した。さらに、セメンテーションの原因物質の溶解などに伴うセメンテーション状態の経時的な変化を観察するため、複数年にわたる長期の膨潤圧試験を開始した。

(3) ニアフィールドTHMC連成挙動評価

過渡期の THMC 現象解析モデルの妥当性確認に関して、平成 30 年度～31 年度は、FEBEX プロジェクトにおける原位置試験での約 18 年間の計測データを活用した再現解析の実施により、幌延人工バリア試験などと比較してより長期の計測データに対しても温度、相対湿度、全応力などの THM 連成挙動を概ね再現できることを確認した。また、幌延オーバーパック腐食試験の THC 連成解析を実施し、計測された緩衝材の間隙水 pH と pe との比較を通じて、連成解析モデルによる間隙水化学に関する再現性を把握した。

令和 2 年度～4 年度は、多様な地質環境条件に応じて適切に THMC 連成挙動を再現できる現象解析モデルの構築を目的として、塩水環境での浸潤挙動の計測データが取得されている幌延人工バリア性能確認試験などを対象に、既存の再現解析では考慮されていなかった間隙水の水質に応じた透水性の変化を考慮した連成解析モデルによる浸潤挙動などの再現性の検証や課題の抽出を行う予定である。

令和 2 年度は、蒸留水条件や幌延地下水条件での緩衝材の透水係数を解析ケースとした幌延人工バリア性能確認試験の THM 連成解析を実施し、地下水条件により変化する緩衝材の透水係数の設定値の違いが浸潤挙動へ与える影響を検討した。

ニアフィールドにおける長期力学挙動評価に関して、平成 30 年度～31 年度は、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た。それにより、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を行うことで過渡期を対象とした緩衝材中の力学挙動モデルの違いが長期力学挙動に与える影響を評価した。また、過渡期の緩衝材の力学モデルの検証や更なる高度化に向けて、X 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するためデータ取得を開始した。

令和 2 年度～4 年度は、熱－水理連成解析の結果を用いて、処分施設の変形に関わる評価を、過渡期から長期まで一貫して評価するための技術の高度化を図るとともに、過渡期の緩衝材の力学モデルの検証や更なる高度化に向けて、X 線 CT 測定を利用した膨潤圧試験や温度を制御した膨潤圧試験などにより、不飽和時の力学挙動や力学特性の温度依存性に関するデータを拡充し、その現象理解を進める。

令和 2 年度は、廃棄体の発熱による構成材料の熱膨張や熱収縮などの力学挙動を考慮した解析評価できるように長期力学解析コードの拡張を行い、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た。解析結果から、新規に導入した熱影響の機能が処分施設の力学及び水理的な状態変遷並びに緩衝材の応力緩衝性の評価結果に与える影響を検討した。そして、湿潤密度の違う供試体に対する X 線 CT 測定により、CT 値から湿潤密度への換算式を構築し、平成 31 年度から計測してきたデータを改めて分析した。また、平成 31 年度とは反対面からの給水などの試験条件を変更した X 線 CT 測定による膨潤圧試験を実施し、膨潤挙動の現象理解に向けたデータ拡充を図った。

(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について、平成 30 年度～31 年度は地下施設でのグラウチング施工事例を対象に、瑞浪超深地層研究所のグラウチング施工箇所から試料を採取して岩盤やグラウト材の状況などを分析するとともに地下水モニタリングデータの分析により、地下水通水によりグラウト材（セメント材）中にカルサイトが形成されることによりセメント内部の溶脱や変質が抑制されるといった透水性・水質の長期的な変遷に関する知見を得た。また、支保工に

由来するアルカリプルームがニアフィールド岩盤の物質輸送特性に及ぼす影響に着目して反応輸送解析モデルを構築して感度解析を行い、岩盤の物質輸送特性がセメント影響によって変化する範囲や程度を把握した。さらに、この解析結果の分析などを通じて、支保工などのセメント系材料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。

令和 2 年度～4 年度は、地下施設でのグラウチング施工事例などを対象とした試験、分析を進めてグラウト材（セメント材）に由来するアルカリによる岩盤の変質や亀裂内での鉱物学的反応などの現象を把握し、アルカリプルームの反応輸送解析モデルの高度化を図る予定である。

令和 2 年度は、瑞浪超深地層研究所の地下坑道においてセメント充填されたボーリング孔近傍で採取された亀裂を含むコア試料の観察を行うとともに、反応輸送解析モデルを用いた感度解析により亀裂内の溶液条件・空隙率・二次鉱物の溶解沈殿も考慮した分析を進めた。

(5) 流出現象等を考慮した緩衝材の健全性評価

緩衝材の流出現象については、平成 30 年度～31 年度は現象把握と工学的対策効果の検証を目的とした地下坑道における原位置試験とそれを補完する室内試験を実施し、竪置きブロック方式を対象とした短期的な試験により、工学的対策オプション（処分孔の孔壁と緩衝材の隙間にケイ砂を充填する対策）が緩衝材の流出量を低減させる効果があることを確認した。また、許容される初期の緩衝材の流出量を考慮した、飽和に至る迄の期間における緩衝材の状態変遷挙動の評価技術の整備に向けて、段階的な開発の最初のステップとして緩衝材の膨潤による隙間の閉塞挙動を評価するための力学解析手法の構築に向けた検討を行った。

令和 2 年度～4 年度は、処分孔の環境条件に対して柔軟な技術選択ができる複数の施工オプション（隙間未充填、ケイ砂充填、ペレット充填、原位置締固めなど）の整備を念頭に置き、各オプションに関する緩衝材の流出特性を処分孔の湧水条件との関係から整理し、将来の処分場の実環境に応じて柔軟に施工オプションを選択できる基盤情報を整理する。また、再冠水後（飽和後）の緩衝材の乾燥密度分布などを予測するための流出を考慮した解析手法の検討を、段階的に進める予定である。

令和 2 年度は、隙間未充填オプションの緩衝材流出挙動の把握のために、原位置の自然湧水による長期の流出試験、及び埋め戻し後の周辺岩盤の水位回復を想定した流出挙動の参考データの取得を目的とした強制注水試験を実施した。隙間未充填とケイ砂充填のオプションに関して、これまでの成果を整理し考察を加えることによって、施工オプションごとの適用範囲を評価する指標案を設定し、評価指標に関する定量的なデータ取得するための室内試験を計画した。また、現象理解を進め、評価指標の適用性を確認することを目的とする原位置試験計画を策定した。再冠水後（飽和後）の緩衝材の状態予測を行うための解析手法については、供試体サイズでの浸潤、膨潤挙動に関わるパラメータについて検討するとともに、検証データを取得するための試験を行った。

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。具体的には以下の三つのサブタスクを実施している。

(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～31 年度は、結晶質岩及び堆積岩を対象として、国内外の地下研究施設などの岩石を用いて、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、それらに基づく核種移行モデルの開発を進めてきた。

令和 2 年度～4 年度は、引き続き国内外の地下研究施設などの岩石を用いて、割れ目部とマトリクス部の不均質性とその核種移行への影響との関係をより詳細に把握するための室内トレーサー試験などのデータを拡充しつつ、実際の地質環境の特徴やその長期変遷を考慮可能な核種移行モデルを構築する予定である。

令和 2 年度は、これまで対象としてきた結晶質岩及び堆積岩について、割れ目部とマトリクス部の不均質性とその核種移行への影響との関係をより詳細に把握するための室内トレーサー試験や岩石の不均質性に関する分析データを拡充し、マトリクス部の間隙構造や鉱物分布などの不均質性が核種移行挙動に与える影響を適切に扱うことが可能な核種移行モデル構築手法を開発するとともに、より大きな空間スケールでの評価や地質環境の長期変遷を考慮した評価に拡張するための解析手法の開発を行った。

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～31 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、モデルの適用性を検討した。

令和 2 年度～4 年度は、上記の室内トレーサー試験結果などをもとに改良したモデル・解析手法を、より大きな空間・時間スケールを対象に得られた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適用することを通じて、核種移行モデルやそのモデルを用いた解析手法の妥当性を確認する。

令和 2 年度は、これまでの試験や調査で得られた割れ目などを対象とした原位置トレーサー試験結果を対象にモデルの適用性評価を進めるとともに、より大きな空間・時間スケールを対象に得られたナチュラルトレーサーデータなどへ適用するための事例調査と試解析を行った。

(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～31 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; 2020）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、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やコロイドの移行データを取得した。そして、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の構築を進めてきた。

令和 2 年度～4 年度は、想定される変質条件により近い条件や多様な変質条件における室内試験や、実際の深部地下環境から採取した岩石試料などを用いた天然事例研究によるデータ拡充と現象理解を進め、これらのデータをもとに、鉄やセメントが共存する状況下での緩衝材や岩石中の核種移行への影響メカニズムを把握するとともに、鉄及びセメント共存による核種移行への影響評価手法を提示する計画である。

令和 2 年度は、鉄共存の影響評価手法の構築に向けて、鉄(II)と核種の収着競合データをより多様な核種と条件で拡充し、収着モデルの整備を進めるとともに、鉄(II)鉱物へのセレンの取り込み挙動に係るデータを室内試験と幌延の岩石を用いた事例研究によって拡充し、鉄とセレンの相互作用メカニズムの解明を進めた。また、セメント共存の影響評価手法の構築に向けて、ベントナイト中のコロイド移行・ろ過データを、高密度条件や異なるコロイドサイズ条件で拡充するとともに、幌延の泥岩-セメント接触試料の分析データの拡充と二次鉱物中の微量元素分析や室内試験によって核種との相互作用に係る知見を得た。

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～31 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抽出したうえで、国内の深部地下環境の岩石やその構成鉱物を対象に、室内試験による核種の収着・拡散データの取得を実施した。さらに、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。

令和 2 年度～4 年度は、これまでに重要課題として選定した核種と環境条件を対象に、炭酸濃度の条件などを変動させた環境条件での収着・拡散データを拡充するとともに、先端的な収着形態分析技術や分子動力学計算などの計算科学技術を適用したメカニズムの解明を進め、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計画である。

令和 2 年度は、幌延の岩石やその構成鉱物を対象に、高炭酸条件でのアメリシウム、ウラン、ネプツニウムなど核種の収着･拡散データを取得するとともに、先端的な分析技術（TRLFS など）や計算科学技術による高炭酸条件下での核種移行メカニズムに関する知見を拡充し、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の改良を行った。

(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。

有機物影響評価については、平成 30 年度～31 年度はデータ拡充の必要がある IV 価核種として Zr(IV)を選定し、幌延の深部地下水から分離・精製した腐植物質との流動場分画(FFF)-ICPMS 法による錯生成データの取得と、その妥当性を確認するためのキャピラリー電気泳動(CE)-ICPMS 法の整備を進めた。

令和 2 年度～4 年度は、天然有機物-核種二元系モデルを高度化するために、IV 価核種と天然有機物の錯生成データの拡充を進めるとともに、幌延深地層研究センターで採取した地下水や岩石を用いた天然有機物-核種-岩石三元系の核種収着データを室内試験から取得し、得られたデータセットに基づき三元系モデルを提示する予定である。

令和 2 年度は、FFF-ICPMS による Zr(IV)との錯生成データの拡充と、CE-ICPMS による天然有機物-核種二元系モデルパラメータの評価を行った。また、核種-有機物-岩石三元系モデルの開発に向けて、室内試験による核種収着データ取得方法を検討した。

微生物影響評価について、平成 30 年度～31 年度は希土類元素をアクチニドのアナログ元素として、堆積岩地下水中のバイオコロイドへの収着分配係数に関わるデータを取得した。また、堆積岩環境におけるバイオフィルムの形成領域とその存在量・代謝及び金属元素の濃集などについてデータを取得した。

令和 2 年度～4 年度は、地下環境に存在する主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を拡充し、微生物の核種移行への影響評価手法を提示する。また、これらの成果を踏まえてパラメータを整備し、微生物影響を考慮した核種移行解析に反映する。

令和 2 年度は、幌延の地下研究施設を活用し、データの信頼性向上に向けて、水質条件の異なる堆積岩地下水中の微生物への希土類元素の収着分配係数に関わるデータの拡充と現象理解を進めた。また、地下微生物の代謝を考慮した核種との相互作用に関するデータを取得した。

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している。

(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～31 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。そして、緩衝材の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を対象とする感度解析を行うと共に、この結果に基づき現象解析モデルの統合化技術の構築に向けた課題を抽出した。また、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。

令和 2 年度～4 年度は、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の検討を行うこととし、H-M-C（水理-力学-化学）の連成解析を行い、サブタスク「ニアフィールドシステム核種移行評価技術の開発」の核種移行解析の結果も参考としつつ、緩衝材に期待される機能に影響を及ぼし得る安全上の重要な課題を抽出する予定である。

令和 2 年度は、評価システムのプロトタイプを用いたニアフィールドの時間的・空間的な状態変遷の解析として、H-M-C の連成と H-C（水理-化学）の連成による緩衝材の長期変質挙動に関わる感度解析を行い、M（力学）との連成の有無による H（水理）や C（化学）への影響と程度の評価や、緩衝材の長期的変質と緩衝材に期待される機能の変化との関係の整理方法の検討などを進めた。

(2) ニアフィールドシステム核種移行評価技術の開発

前述のサブタスク「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、平成 30 年度～31 年度は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を構築し、これに基づき「現象解析モデルの統合化技術の構築」で開発した「評価システムのプロトタイプ」を利用した核種移行解析モデルを構築して試行的な核種移行解析を実施した。さらに、その試行結果に基づき、緩衝材の長期的な状態の変遷が核種移行に及ぼす影響を定量的に評価するために必要な技術的課題を抽出し、それらの対処方策を提案した。

令和 2 年度～4 年度は、緩衝材に期待される機能が維持／喪失される条件を反映した核種移行解析を行い、坑道外部への核種の移行が促進される状態に至る化学的や水理学的条件などの抽出などにより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計画である。

令和 2 年度は、評価システムのプロトタイプを用いた連成解析で得られた緩衝材の変質に関わる場の状態変遷を考慮して、核種移行パラメータを設定するための考え方や設定方法を検討した。そして、その方法に基づき設定した核種移行パラメータを用いた核種移行解析により、緩衝材の変質程度の違いによる核種の移行遅延への影響を二次元で可視化する手法を整備した。

1.2.4 ニアフィールドシステム評価確証技術開発の 5 か年計画

平成 30 年度から令和 4 年度の 5 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、サブタスクで実施する技術開発の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、個々の成果は図 1.2-4 に示すようにサブタスク間の連成などによる集約・統合や核種移行評価手法と連携することにより、ニアフィールド性能を総合的に評価するための統合化に向けた技術開発を目指すものである。

表 1.2-2　ニアフィールドシステム評価確証技術開発の 5 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				令和2年度				令和3年度				令和4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	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	第1四半期	第2四半期	第3四半期	第4四半期
全体工程	▼契約		報告書作成▼提出		▼契約		報告書作成▼提出		▼契約		報告書作成▼提出		▼契約		報告書作成▼提出		▼契約		報告書作成▼提出	
(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**	調査・開発計画の設定			取りまとめ				取りまとめ	計画策定			取りまとめ				取りまとめ				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、腐食モデル		原位置試験試料分析、適用性確認		原位置試験試料分析，広範な条件での室内試験データ拡充				室内試験，広範な環境条件等での室内試験データ拡充				室内試験データ拡充、腐食モデルへの反映			
	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の分析，ナチュラルアナログ事例調査				評価モデルへの反映，緩衝材基本特性への影響整理			
	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				解析条件の設定，原位置試験のTHM解析，解析コード高度化				解析条件の設定，原位置試験のTHM解析，解析コード高度化				原位置試験のTHM解析，解析コード高度化，取りまとめ			
	グラウト材−岩盤接触部の試料を用いた試験・分析								原位置試料データ拡充、反応輸送解析に必要なデータ整理											
	岩盤中の反応性物質の移行等に関する検討事例の調査				アルカリプルーム反応輸送モデルの検討				他分野での類似事例調査、反応輸送モデルによる感度解析				瑞浪の亀裂特性情報を参考に、単一亀裂を対象にアルカリプルームの進展評価							
5)流出現象等を考慮した緩衝材の健全性評価 **(1)流出を抑制する工学的対策の具体化** **①原位置試験** **②室内試験** **(2)緩衝材の飽和プロセスを対象とした解析的な評価方法の検討**	試験環境の整備・環境計測				地下での効果確認試験				準備	地下での流出挙動確認試験（隙間未充填）			湧水量変化の水理試験	ケイ砂充填の流出挙動確認試験			施工オプション毎の検証のための流出試験			
	工学的対策効果の確認試験・再冠水挙動試験				原位置試験の予備試験・挙動把握のためのデータの取得				試験パラメータの整理				各施工オプションの評価指標に関する試験				各施工オプションの評価指標に関する試験			
	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				要素試験等の実施				スケールアップのための解析手法の検討				実スケールの緩衝材の密度分布の予測			
	●遠心模型試験				適用範囲の精査・妥当性確認浸潤試験				試験体サイズの妥当性検討のための試験データ取得				試験データ取得と解析の検証							
									二次元体系への拡張、課題等に関する検討											
(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**	調査・開発計画の設定			取りまとめ				取りまとめ	計画策定			取りまとめ				取りまとめ				取りまとめ
	海外地下研究施設の結晶質岩のマトリクス部/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				海外地下研究施設の結晶質岩のマトリクス部/割れ目部の不均質性を考慮したモデル高度化				国内外の結晶質岩・堆積岩のマトリクス部/割れ目部のデータ取得と不均質性・環境変遷を考慮したモデル開発				結晶質岩・堆積岩のマトリクス部/割れ目部の不均質性・環境変遷に着目したデータ拡充とモデル高度化				結晶質岩・堆積岩の実際の地質環境の特徴やその長期変遷を考慮可能な核種移行モデルの構築			
	堆積岩（泥岩）のマトリクス部/割れ目部における不均質性に着目した室内試験とモデル開発				堆積岩（泥岩）のマトリクス部/割れ目部を対象とした不均質性に着目した室内試験データ拡充とモデル高度化，原位置試験結果への適用による妥当性確認				国内外の結晶質岩・堆積岩における原位置試験データを活用した核種移行解析モデルの適用性の評価				結晶質岩・堆積岩における原位置試験データや天然事例データを活用した核種移行解析モデルの適用性の評価				結晶質岩・堆積岩の原位置試験や天然事例データを活用した核種移行解析モデルの妥当性確認結果と課題の提示			
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	オーバーパック−緩衝材，セメント−緩衝材・岩石の相互作用に関する状態変遷の設定（条件・課題）																			
	鉄影響（鉄と核種の競合収着，共沈現象等），セメント影響（変質等の収着影響）に関するデータの取得				鉄影響（鉄と核種の競合収着，共沈現象等），セメント影響（変質等の収着影響）に関するデータの拡充				鉄と核種との競合収着，鉄鉱物と核種との取り込み現象に関する室内試験・天然事例調査による現象解明				鉄と核種との競合収着，鉄鉱物と核種との取り込み現象に関する室内試験・天然事例調査の拡充とモデル開発				鉄共存が核種移行に及ぼす影響評価手法の構築と評価事例・課題の提示			
	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				セメント共存下でのベントナイトのコロイド移行・ろ過データ，岩石変質と核種移行に関するデータの取得と現象解明				セメント共存下でのベントナイトのコロイド移行・ろ過データ，岩石変質と核種移行に関するデータの拡充とモデル開発				セメント共存が核種移行に及ぼす影響評価手法の構築と評価事例・課題の提示			
3)有機物・微生物の影響評価技術の開発	IV核種と天然有機物との錯生物データ取得				錯生物データ取得とモデル高度化・パラメータ整備				IV核種と天然有機物との錯生成データ取得とパラメータ整備								天然有機物−核種二元系モデルのパラメータ整備と高度化			
	核種−有機物−岩三元系モデル開発の文献調査・課題提出				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				三元系での核種収着データ取得方法の検討				三元系での核種収着データ取得				三元系での核種収着データ取得とモデル検討			
	地下微生物による核種収着や取り込み等のデータの取得				地下微生物による核種収着や取り込み等データの拡充，影響評価パラメータの整備と核種移行解析への反映				地下微生物への希土類元素の収着分配係数データの拡充								核種移行影響解析のためのデータ整備			
									微生物と核種との相互作用データの取得								相互作用データ取得，影響評価モデルの構築			
(3)ニアフィールド性能の総合評価技術開発（SP3） **サブタスク 1)：現象解析モデルの統合化技術の構築**	計画検討・予備検討			取りまとめ				取りまとめ				取りまとめ				取りまとめ				取りまとめ
	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，安全上の重要課題の抽出・対処方策の検討				プロトタイプを用いた緩衝材長期変質挙動の状態変遷に係る詳細解析				プロトタイプで用いる解析モデルの妥当性確認のための試行				妥当性を確認したモデルによる緩衝材の長期変質挙動の状態変遷に係る再解析・課題整理			
	解析システムプロトタイプの構築																			
サブタスク 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				核種移行モデルの構築，サブタスク1で構築したプロトタイプシステムによる解析結果を踏まえた試解析				サブタスク1による状態変遷に係る解析結果を反映した核種移行パラメータの設定方法の検討，試解析				緩衝材の変質が核種移行遅延効果に与える影響を評価するための手法の検討				緩衝材の変質が核種移行遅延効果に与える影響を評価するための手法の整備に向けた課題整理			
	最新知見の整理・フレームワークの構築																			

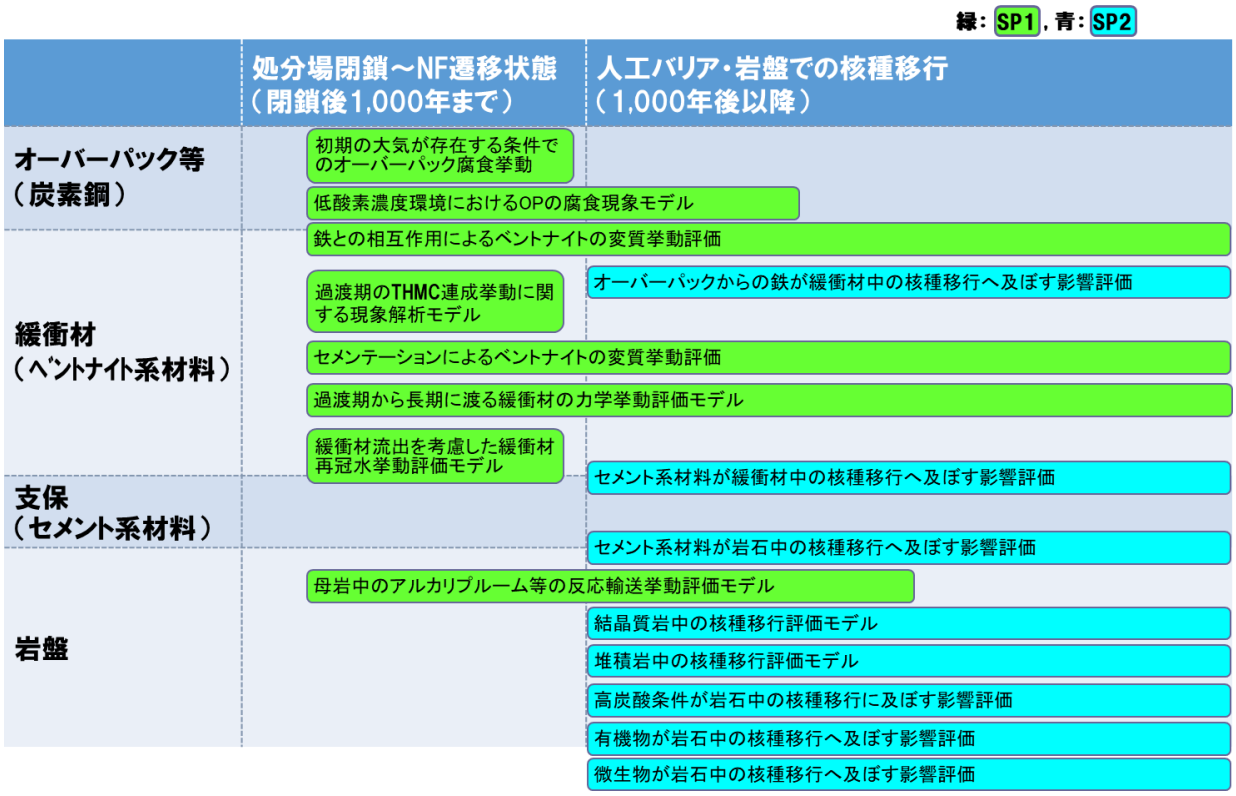


図 1.2-3　ニアフィールドシステム評価確証技術開発のサブタスクマップ

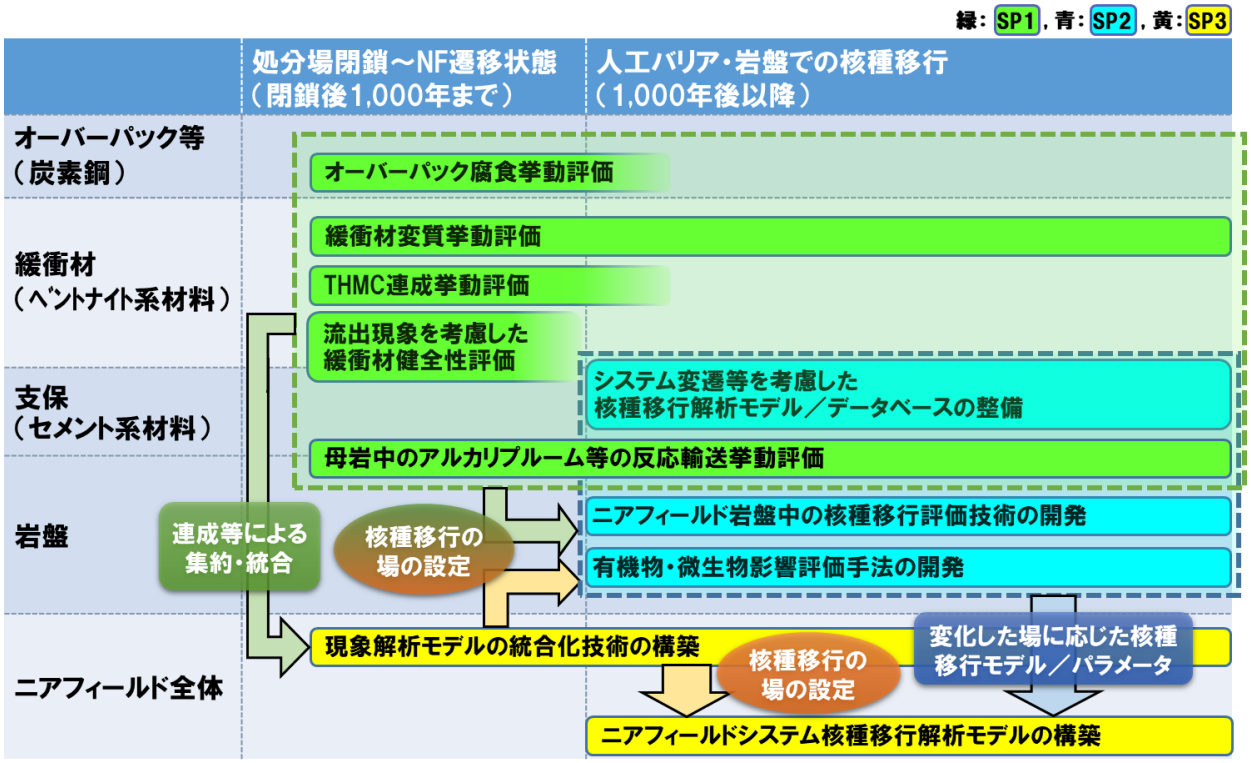


図 1.2-4　ニアフィールドシステム評価確証技術開発のサブプロジェクト相関図

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－, NUMO-TR-20-03, 2021.

原子力環境整備促進・資金管理センター, 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 平成25年度～平成29年度の取りまとめ報告書, 262p., 2018.

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.

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 ＴＲＵ廃棄物処理・処分に関する技術開発報告書, 441p., 2020.

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 （2021年3月12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, 2018b. https://www.enecho.meti.go.jp/appli/public_offer/1804/180413b/ （2021年3月12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～令和4年度）, 59p., 2020a. https://www.meti.go.jp/shingikai/energy_environment/chiso_shobun/pdf/20200331_001.pdf （2021年3月12日最終閲覧）.

経済産業省, 令和2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）」に係る企画競争について, 2020b. https://www.enecho.meti.go.jp/appli/public_offer/2002/200211b/ （2021年3月12日最終閲覧）.

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.

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, 404p., 2020.

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 5 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 5 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するとともに、100°C を超える条件を含む諸条件で取得された既往のデータを活用し、既往の現象解析モデルの妥当性確認や、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, 2015a）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, 2014 ; 2015b ; 2016 ; 2017 ; 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環境条件（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（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、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, 2014 ; 2015b ; 2016 ; 2017 ; 2018）で開始した広範な環境条件での室内試験を継続し、炭酸ガス環境における浸漬期間 1 年の腐食データを取得した（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（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, 2020）。また、広範な環境条件での室内試験として、炭酸ガス環境における浸漬期間 3 年の腐食データを取得するとともに、炭酸塩環境での応力腐食割れ感受性に関する腐食データを取得した（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, 2020）。

令和 2 年度は模擬オーバーパックや腐食センサー周辺の環境条件と腐食メカニズムをより詳細に明らかにするため、幌延 URL にて実施された原位置試験に使用された腐食センサー表面の腐食生成物の分析手法の開発および微生物活性挙動の調査による緩衝材中の環境条件の評価を実施した。また、広範な環境条件での室内試験として、高 NaCl 濃度環境での浸漬試験データ、塩化物イオンを添加した炭酸塩溶液条件での応力腐食割れ試験データを取得するとともに、先行事業「沿岸部処分システム高度化開発」（産業技術総合研究所ほか, 2017 ; 2018 ; 2019）で開始した沿岸部を想定した地下水条件での浸漬試験データを取得した。

2.2.2 実施内容

(1) 原位置試験試料の調査、分析

幌延 URL の 350 m 試験坑道において、処分孔へ定置後の初期の緩衝材が再飽和に至る期間における炭素鋼オーバーパックの腐食挙動を把握することを目的として平成 26 年 11 月 12 日よりオーバーパック腐食試験が開始され、オーバーパックの腐食や緩衝材中の環境条件に関するモニタリングが実施されてきた。オーバーパック腐食試験の状況と模式図を図 2.2-1 に示す。オーバーパック腐食試験は平成 30 年 5 月に終了し、その後、平成 30 年 5 月から 6 月にかけて試験体の模擬オーバーパックと緩衝材に加えて周辺のコンクリートと一部の岩石の取り出しが行われた。本事業では、取り出された試験体を利用して緩衝材中の環境条件とオーバーパックの腐食状況に関する調査が行われた（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; 2020）。

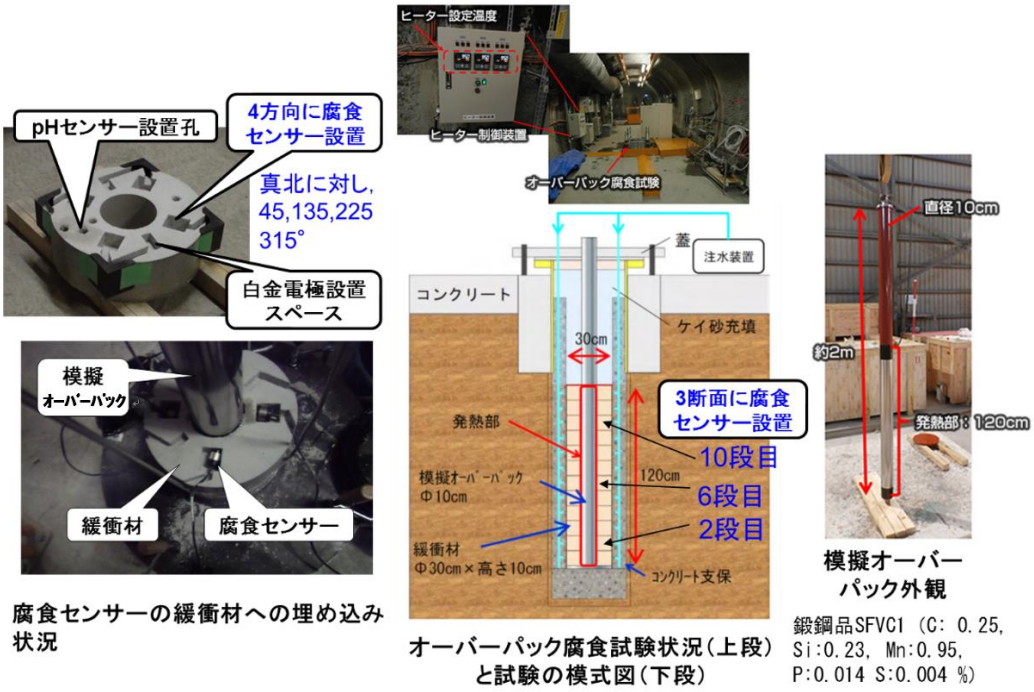


図 2.2-1　オーバーパック腐食試験の状況と試験の模式図

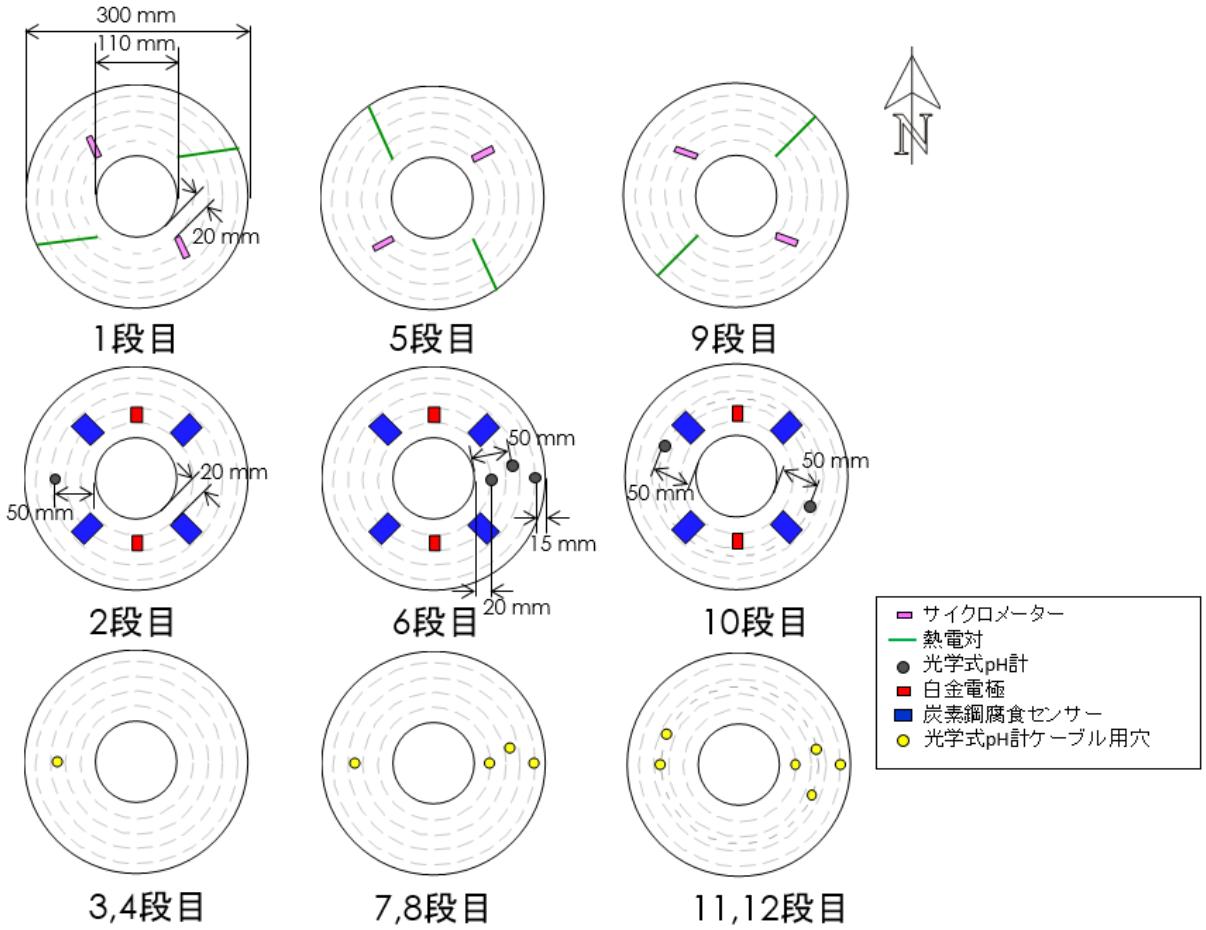


図 2.2-2　各緩衝材ブロック中の各種センサー類の設置状況（下からの積み上げ段数ごと）

1) 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（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 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、シデライト（$FeCO_3$）に加え、マグネタイト（Fe_3O_4）、ゲーサイト（α-FeOOH）に帰属するとみられる分析結果が得られた（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, 2020）。平成 31 年度までの腐食センサー表面の腐食生成物の分析は、純正オプション品として販売されている雰囲気制御測定セルに腐食センサーが入らないため、腐食生成物を削り取る、あるいは、センサーを切断して小さくするという方法で実施してきた。しかし、これらの方法では、腐食生成物を削る際に地金を傷つける、またはセンサー切断時に基準面が失われることなどにより XRD 測定またはラマン分光分析を実施後に腐食深さの測定ができなくなっていた。そこで、令和 2 年度は、腐食センサー表面の腐食生成物を非破壊かつ雰囲気制御下で分析するための手法の開発を行った。

① 雰囲気制御測定セルの製作

図 2.2-3 及び図 2.2-4 に開発した雰囲気制御測定セルの模式図及び写真をそれぞれ示す。雰囲気制御測定セルは 2 つのプラ容器（ポリプロピレン製）を組み合わせて製作した。雰囲気制御測

定セルの上部は、X 線が透過するようにドーム型のプラ容器を切断してカプトン®膜を貼り付けた窓を設けた。カプトン®膜は XRD 測定装置の純正オプション品として販売されている雰囲気制御測定セルにも使用されており、XRD 測定に影響を与えない材料である。

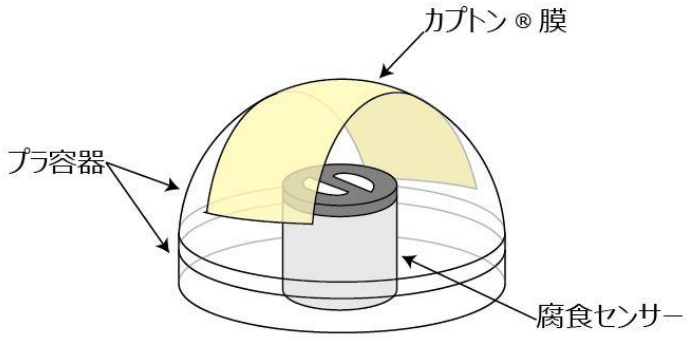


図 2.2-3　開発した雰囲気制御測定セルの模式図

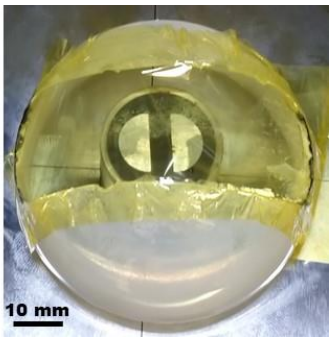


図 2.2-4　試作した雰囲気制御測定セルの写真（中央部は腐食センサー）

② XRD の試測定及び気密性の確認

製作した雰囲気制御測定セルを用いてテスト測定を行った。試料には未使用の腐食センサーを使用した。比較のため雰囲気制御測定セルを使用しない測定も実施した。雰囲気制御測定セルの有無にかかわらず、Feの明瞭なピークが現れていることが確認できた。したがって、製作した雰囲気制御測定セルを用いてXRD測定が問題なく行えることが確認できた。

製作した雰囲気制御測定セルの気密性を確認するため、気密性確認試験を実施した。雰囲気制御測定セル内に酸素吸収剤に付属のインジケーターを入れ、色が変化するかを確認した。その結果、XRDの測定時間内にはインジケーターの変色は認められなかった。よって、少なくともXRD測定中は雰囲気制御測定セル内は大気中よりも低い酸素濃度を保つことができることがわかった。

以上の結果から、製作した雰囲気制御測定セルを用いれば、雰囲気制御下で腐食センサー表面の腐食生成物のXRDによる非破壊分析を実施できると考えられる。分析は、令和3年度以降に実施する予定である。

2) 微生物

模擬オーバーパック周囲の環境状態について、腐食反応に関与する要因を把握するために、緩衝材中の微生物活性挙動の評価を実施した。平成 31 年度までに、微生物の現存量及び種組成に関するデータ取得を行うために、緩衝材内部及び模擬オーバーパック表面の試料を採取した（図 2.2-5、図 2.2-6）。模擬オーバーパック近傍から外側にかけて緩衝材中の微生物生菌数を計数する

ために、好気性菌及び嫌気性菌を対象として、寒天培養法による分析を行った。その結果、好気性生菌微生物は模擬オーバーパック近傍を含め、ほぼすべての試料中で検出された。原位置試験の施工の過程で模擬オーバーパックと緩衝材の間にケイ砂が大量に混入していたことから、ベントナイトと比較すると粒子の粗いケイ砂が水みちとなって、模擬オーバーパック近傍に地下水とともに多くの微生物が混入したものと推察された。原位置環境においてオーバーパックの腐食挙動に及ぼす微生物影響を評価することは、人工バリアの長期的健全性を評価する上で重要であり、検出された微生物が腐食反応に関与していたか否かについて明らかにする必要がある。したがって、令和 2 年度は、培養法に依存しない分子生物学的手法を用いた微生物分析を実施し、緩衝材中から検出された微生物が模擬オーバーパックの腐食挙動に及ぼす影響について考察した。

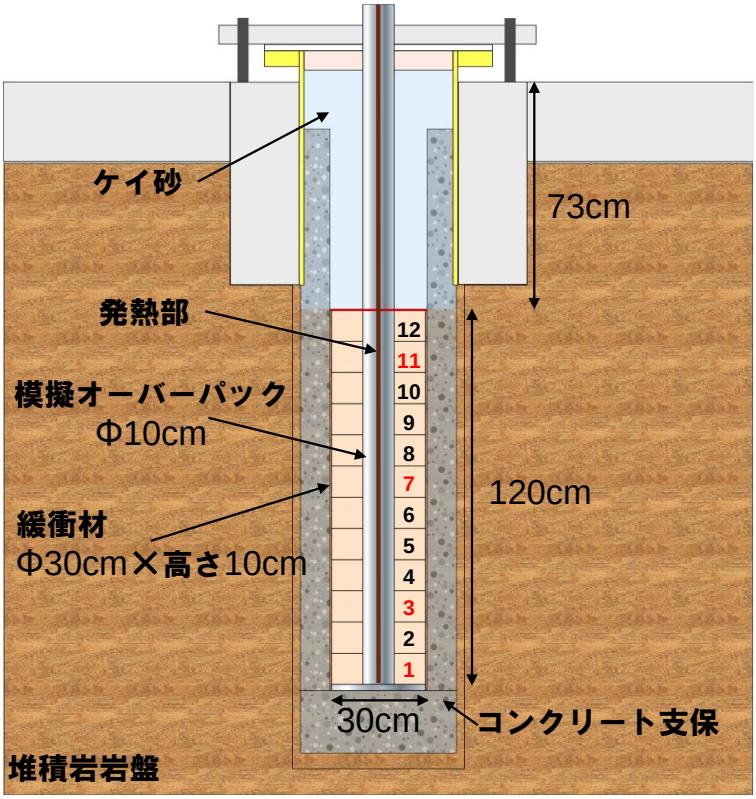


図 2.2-5　オーバーパック腐食試験の模式図
赤字の段の緩衝材試料を微生物分析に供した

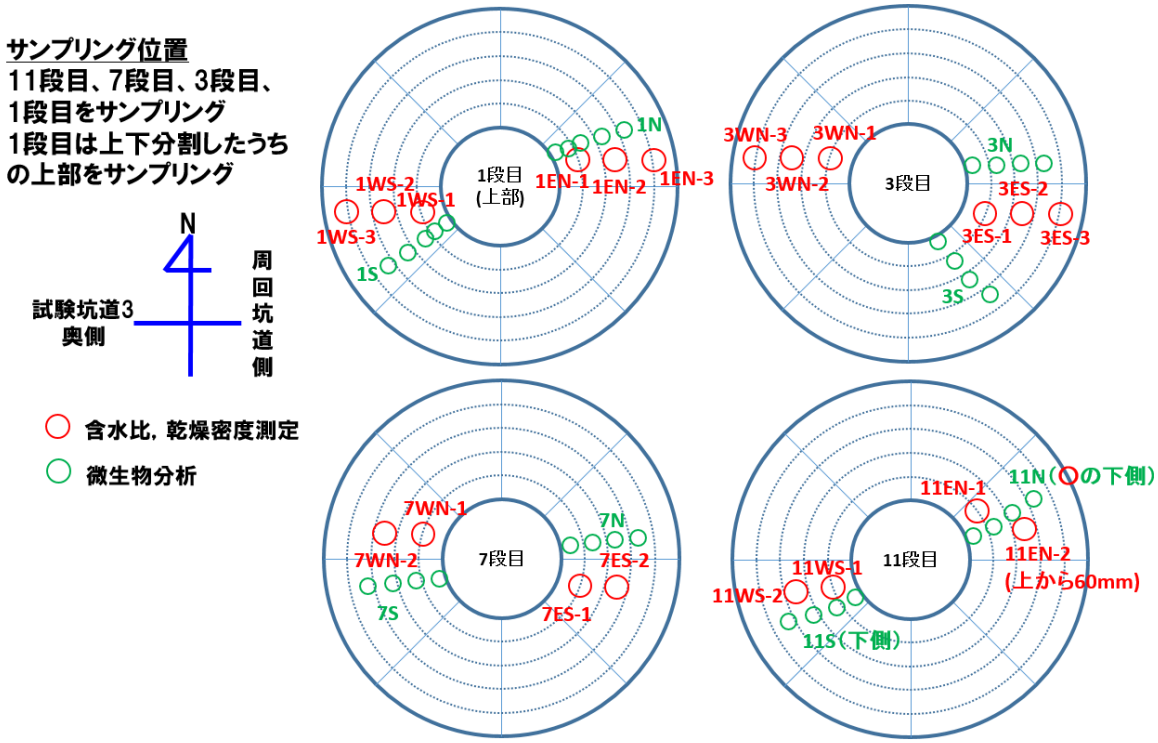


図 2.2-6　含水比、乾燥密度測定と微生物分析用試料の採取位置

平成 31 年度までに実施した生菌計数のための寒天培養法は、試料中に存在する生きた微生物の数を簡易的に計数し、概要を把握する方法としては有用である。また、国内外で公表されている既存の微生物腐食に関わる文献では、寒天培養法を用いた生菌計数データが多数報告されている（例えば、Stroes-Gascoyne et al., 2010）。そのため本研究で取得されたデータを既存の文献値と比較し、室内試験や原位置環境下におけるクニゲル V1 を用いた緩衝材の微生物抑制能力を評価することは非常に重要である。しかしながら、検出される微生物種や量は培養条件に依存することや、環境中の 99%以上の微生物は培養できないこと（Amann et al., 1995）などを考慮すると、培養法だけでなく、培養法に依存しない手法を用いた微生物の現存量及び代謝機能に関するデータ取得を行う必要がある。本研究では、培養法に依存しない手法のうち、分子生物学的手法を適用した解析をおこなった。具体的には、緩衝材試料に存在する全 DNA を抽出し、DNA 濃度を測定するとともに、DNA 中の 16S rRNA 遺伝子を対象とした微生物種の解析をおこない、検出された種組成を基に代謝反応を推定した。緩衝材試料を対象とした DNA 解析を行うにあたり、緩衝材にはベントナイトが含まれており、粘土は DNA やタンパク質などを含め様々な物質を吸着する働きがある（Cai et al., 2006；Khanna and Stotzky, 1992）ことから、粘土からの DNA 抽出は地下水中の微生物などを対象とした DNA 抽出法とは異なる手法を用いる必要がある。DNA は粘土中のモンモリロナイトなどのケイ酸塩鉱物に、負に帯電した表面の静電力により吸着していると考えられている（Cai et al., 2006；Feuillie et al., 2013）。そこで、本研究では、Hurt Jr et al.（2014）を参照してスキムミルクを用いた DNA 抽出法を適用し、緩衝材試料から全 DNA の抽出を試みた。スキムミルクは、分子表面に多くのリン酸化セリン残基を有する主成分のカゼインが、ケイ酸塩鉱物表面の活性アルミニウムをブロックすることにより、抽出効率の向上をもたらすと考えられている（宮口ほか, 2019）。しかしながら、未滅菌のスキムミルクはそれ自体に大量の微生物 DNA が含まれていることから（Ikeda et al., 2008）、DNA 抽出にスキム

ミルクを用いるにあたり、スキムミルクを滅菌する必要があるが、スキムミルクはタンパク質であることから高温下で変性してしまい、抽出効率が低下してしまう。土壌などの生物量が多い試料を対象とした解析を行う場合には、スキムミルク由来の微生物を考慮しなくても良い場合があるが、緩衝材中の微生物の DNA 濃度は高くないと予測されることから、緩衝材由来の DNA を対象として信頼できる分析を行うためには、DNA 抽出からシーケンス解析を通してコンタミネーション評価を含めた厳密な注意を払う必要があった。本研究では、DNA 抽出に用いるスキムミルクに対して、オートクレーブ滅菌ではスキムミルクの変質が認められたため（図 2.2-7）、間欠滅菌を施した。間欠滅菌とは、加熱滅菌を繰り返して滅菌する方法のことであり、滅菌対象とするものがオートクレーブ滅菌による高温下で変性を起こす恐れのある場合に行われる方法である。加熱滅菌を繰り返し行う理由としては、加熱のみでは死滅しない休眠中の芽胞が、加熱により活性化されることにより常温保存の間に発芽する場合を想定して、加熱・常温保存を繰り返し行うことにより、滅菌対象物中の微生物をできるだけ滅菌するためである。ただし、嫌気性菌などは大気環境下にて発芽しないと考えられるため、完全滅菌ではないことを想定してその後の処理を行う必要がある。複数の条件下（図 2.2-8、表 2.2-1）でスキムミルクの滅菌を試みた結果、抽出 DNA 濃度は間欠滅菌 100°C 30 分を 3 回繰り返した後、UV に 3 時間照射した条件にて最も変質の程度が小さくかつ抽出 DNA 濃度が最も低い結果が得られた（表 2.2-1）。そこで本研究では、スキムミルクに対して間欠滅菌を、100°C で 30 分加熱した後一晩放置する工程を 3 回繰り返した後、UV 殺菌を 3 時間おこなったものを緩衝材の DNA 抽出に用いた。

図 2.2-7　オートクレーブ滅菌後のスキムミルクの変色状況
オートクレーブ滅菌処理後のスキムミルクは、すべてボトルの底で凝固しており、
未滅菌のものと比較すると著しく変色・変質していた。

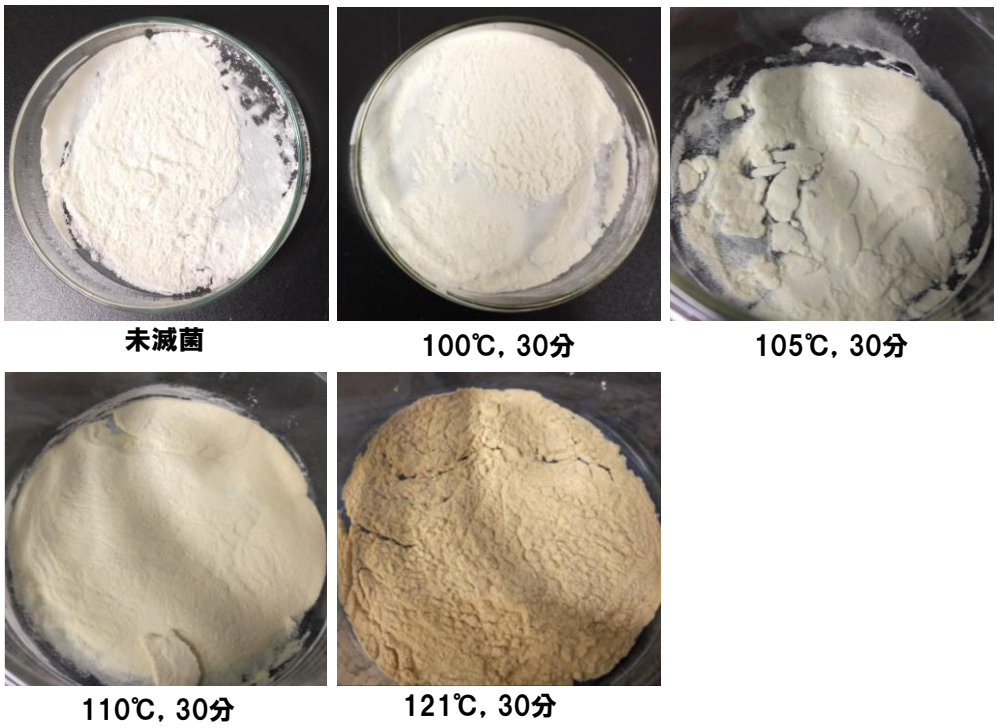


図 2.2-8　乾熱滅菌後のスキムミルクの変色状況

105°C、110°C、121°C における乾熱滅菌（無蒸気）処理後のスキムミルクは、ボトルの底で凝固しており、未滅菌のものと比較すると変色・変質していた。100°C にて 1 時間の乾熱滅菌も実施したが（写真なし）、121°C にて 30 分滅菌時と同様の褐色変質が認められた。

表 2-2-1　スキムミルクの各滅菌条件における DNA 濃度

			抽出DNA濃度(μg/g)	
			ベントナイト　有	ベントナイト　無
スキムミルク	有	滅菌なし	-	0.126
		①UV照射：5時間	0.164	0.117
		②間欠滅菌 100℃, 30分×3回, UV照射：2時間	0.145	0.173
		③間欠滅菌 100℃, 30分×3回, UV照射：3時間	0.118	0.056
	無	―	0.044	0.019

滅菌スキムミルクを用いて抽出した DNA に対して、微生物の 16S rRNA 遺伝子をターゲットとした PCR を行い、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。

その結果、DNA はすべての緩衝材試料から検出され、シーケンス解析結果から、すべての試料中から配列データが取得できた。各緩衝材試料中の DNA 濃度を図 2.2-9 に示す。模擬オーバーパックに近接する領域から採取された 1 段目、7 段目、11 段目の緩衝材試料（1S_0cm、7S_0cm、11S_0cm）では、他の試料と比較して著しく高い DNA 濃度が検出された。その他の試料においても、DNA が検出されていることから、緩衝材中には一定量の微生物が存在していたことが示唆された。ただし、多くの緩衝材試料中の DNA 濃度は、滅菌済みのスキムミルクの濃度と同程度であることから（図 2.2-9）、緩衝材中の微生物現存量は多くないことが推察される。この DNA 濃度と、培養法によって得られた生菌数の結果（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）は、相関を示さなかった。一般的に、環境中の 99%以上の微生物は、培養されていない微生物であることが知られている。本研究で生菌計数に用いた培地は一種類であり、すべての生菌数を検出できていない可能性もある。一方で、培養法に依存しない DNA 解析手法では、培養法で検出できていない微生物についても検出できているものと考えられる。また、培養法によって検出された生菌数の中には、高温下の圧密された緩衝材中では増殖できずに休眠状態あるいは芽胞を形成して存在していた微生物が、培養液中で環境条件の好転により増殖可能になったものも存在すると考えられる。したがって、培養法による生菌数と培養法に依存しない分子生物学的手法による DNA 濃度は、必ずしも相関しない可能性がある。高温状態である模擬オーバーパック近傍から離れるにしたがって、高乾燥密度の条件下においては緩衝材中の微生物密度は低下することが予測されたが、各緩衝材試料の DNA 濃度の結果から、緩衝材試料中に不均一な密度で微生物が存在していたことが示唆された。この要因として、原位置試験施工時に緩衝材上部に設置したケイ砂が緩衝材と模擬オーバーパックの隙間に入り込み、それに伴い空隙が生じたことで地下水とともに微生物が混入したことが考えられる。

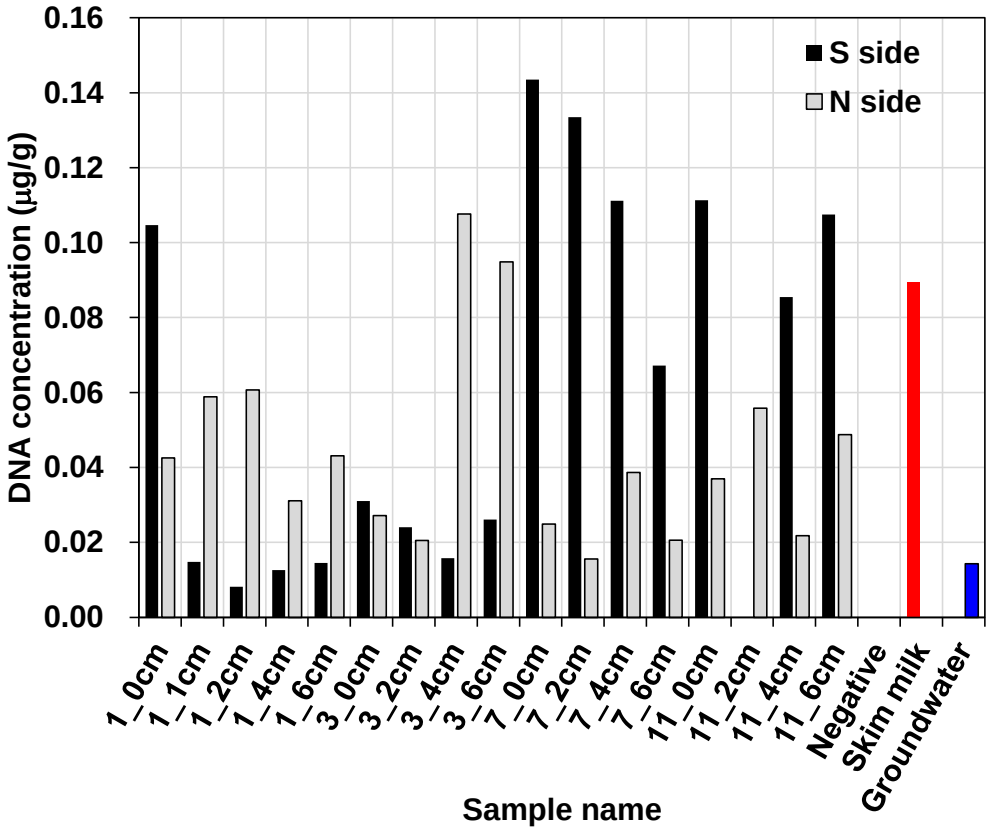


図 2.2-9　緩衝材試料中の DNA 濃度

ネガティブコントロールにおいては、DNA は検出下限以下であった。滅菌スキムミルク（100°C、30 分を 3 回実施後、UV に 3 時間照射）からは緩衝材試料と同程度の DNA 濃度が検出された。地下水試料の DNA 濃度の単位は μg/L。

緩衝材中の DNA 解析の結果から、緩衝材内部には複数種の微生物が存在しており、特にケイ砂が混入していた模擬オーバーパックと緩衝材の接触部においては、硫酸還元菌、鉄酸化菌、硫黄酸化菌などの腐食反応に関与する可能性のある微生物が優占種として検出された（図 2.2-10、図 2.2-11）。一方で、模擬オーバーパックから離れた領域の緩衝材中では、*Actinobacteria* は *Firmicutes* 門に属する微生物の割合が増加する傾向が認められた。これらの門に属する微生物は、貧栄養状態などの極限環境でも生き延びることができる種や、環境条件が悪化すると芽胞を形成して休眠状態にはいる種などが含まれている。そのため、高温・高乾燥密度・低水分活性・貧栄養などの条件下における緩衝材中では、生存・増殖できる微生物種は限られてくると推察される。また、緩衝材試料名 1N_4 cm においては、微生物種が全く検出されなかったことから（図 2.2-11）、期待される緩衝材の性能が長期にわたって担保されれば、微生物活性は抑制できると考えられる。オーバーパック腐食試験時に緩衝材に注入した地下水中の微生物群集組成を解析したところ、緩衝材試料と比較すると非常に多様な微生物種組成を示していたことから（図 2.2-12）、緩衝材内部での微生物活性はある程度抑制されていると推察される。寒天培養法にて好気性従属栄養性条件下で培養されたコロニー（図 2.2-13）について、16S rRNA 遺伝子を対象とした解析を実施したところ、*Alphaproteobacteria* に属する *Methylobacterium*（相同性：98.6%）、*Firmicutes* に属する *Geobacillus stearothermophilus* strain ST-YPD（相同性：98.9%）、*Betaproteobacteria* に属する *Methylophilales*（相同性：97.8%）に近縁な種であることが示され、検出されたいずれの微生物も腐食反応に関与する可能性は低いと考えられた。

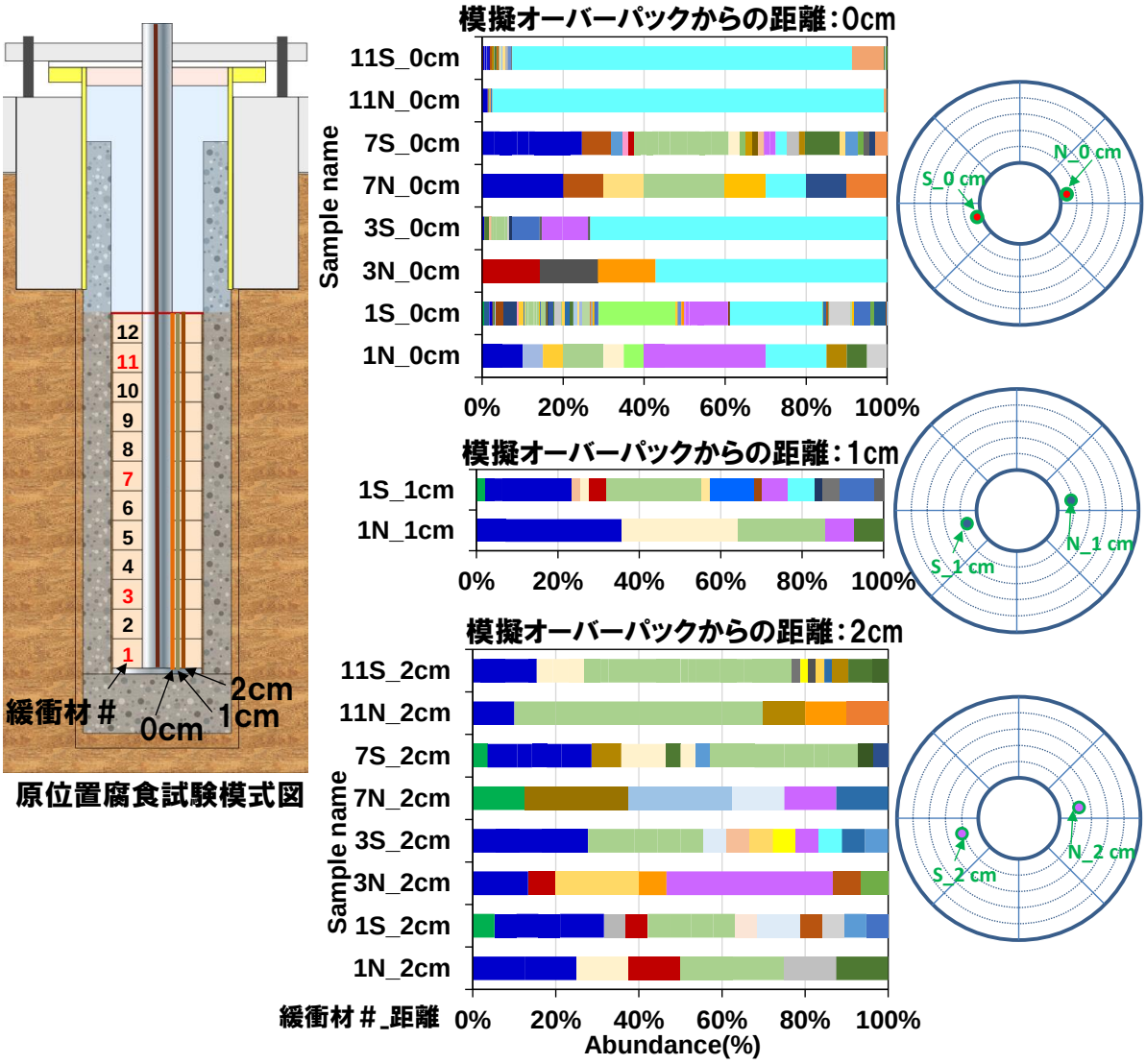
模擬オーバーパックから離れた領域においても、一部の緩衝材試料中からは、硫酸還元反応を行う種が属する *Deltaproteobacteria* が検出されており、緩衝材の施工時における不均一性によって微生物活性の抑制状態が異なる可能性が示唆された。また、*Firmicutes* の中には、硫酸還元を行う微生物種も分類されていることや、既知の硫酸還元菌が分類されている *Deltaproteobabcteria* などの系統群以外にも硫酸還元能力を有する微生物の存在が明らかになっていること（Anantharaman et al., 2018）を考慮すると、緩衝材内部の微生物活性をできる限り抑制するための乾燥密度などの条件や均一な緩衝材施工が重要になると考えられる。なお、DNA 解析によって検出された微生物が緩衝材試料由来であることを確認するために、ネガティブコントロールとして緩衝材試料を含まない系において滅菌済/未滅菌スキムミルクやスキムミルクを含まない試薬のみの系についても、同様の手順にて DNA 抽出、PCR 増幅、16S rRNA 遺伝子の解析を実施した。その結果、緩衝材試料を含まないスキムミルクやネガティブコントロールの系からは、表 2.2-2 のような微生物種が検出されており、これらの種は緩衝材試料中の微生物種組成から除外して評価を行っている。

しかしながら、緩衝材内部から様々な微生物が検出されている一方で、これまでの原位置試験に関わる一連の分析結果から、模擬オーバーパック表面で検出された腐食生成物は、鉄酸化物であることが明らかになっていることから、今回の原位置試験において検出された腐食生成物や腐食反応には、微生物腐食が関与している可能性は極めて低いと推察される。オーバーパック中心に設置されたヒーターにより模擬オーバーパック近傍が 90°C 以上の高温になることから、約 5 年間の原位置試験実施中では、酸素が消費された後及び緩衝材飽和後は、好気性及び嫌気性菌は緩衝材内部で増殖せずに休眠状態であった可能性が高い。

オーバーパック周辺の温度は経時的に低下することが予測されており、温度の低下とともに微生物が増殖可能な環境に近づくことが懸念される。微生物増殖を抑制する要因として、温度・乾燥密度・膨潤圧・水分活性など複数の条件が考えられるため、処分環境において長期的なスケールで微生物増殖が十分に抑えられていることを示すデータを蓄積する必要があると考えられる。

そこで、緩衝材内部の長期的な微生物活性挙動を評価するために、地質学的に古い年代であり（12～16 Ma）、様々な物理・化学特性を有する月布鉱山のベントナイト原鉱石を対象とした微生物分析について、微生物の存在に関する評価を試行的に実施した。その結果、月布鉱山のベントナイト原鉱石中の微生物密度は低く、予察的な DNA 解析結果から、検出される微生物種は芽胞形成種などに限定されるという予察的な結果が示された。

緩衝材内部の長期的な微生物活性挙動を評価するために、今後も引き続き月布ベントナイト原鉱石などを用いて、様々な条件下におけるベントナイト中の微生物活性や存在種などに関する情報を拡充し、微生物腐食影響を低減させるための評価を行う必要がある。



- ***Deltaproteobacteria*, *Desulfovibrio*, etc.; 硫黄還元**
- ***Betaproteobacteria*, *Thiobacillus*; 鉄/硫黄の酸化還元が属する**
- ***Betaproteobacteria*, *Rhodocyclaceae*, 鉄/硫黄酸化菌が属する**
- ***Gammaproteobacteria*, *Sulfurivermis fontis*; 硫黄酸化**
- ***Firmicutes*; 発酵菌，芽胞を形成する種が属する**
- ***Actinobacteria*; 貧栄養・低水分等極限環境で生存できる種が属する**
- ***Methanobacteria*, *Methanomicrobia*; メタン生成菌**

図 2.2-10　16S rRNA 遺伝子に基づく緩衝材試料中の微生物群集組成
模擬オーバーパックから 0 cm、1 cm、2 cm 外側の緩衝材試料を解析した結果

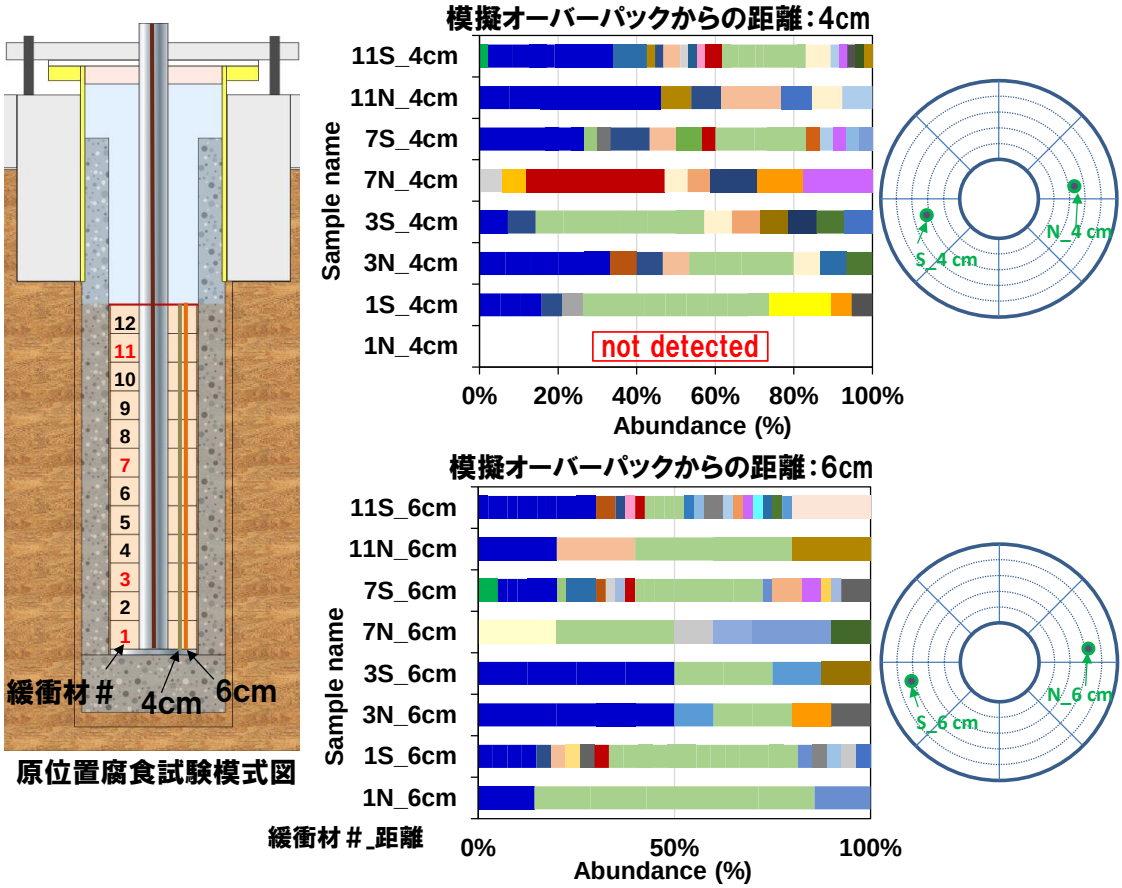


図 2.2-11　16S rRNA 遺伝子に基づく緩衝材試料中の微生物群集組成
模擬オーバーパックから 4 cm、6 cm 外側の緩衝材試料を解析した結果

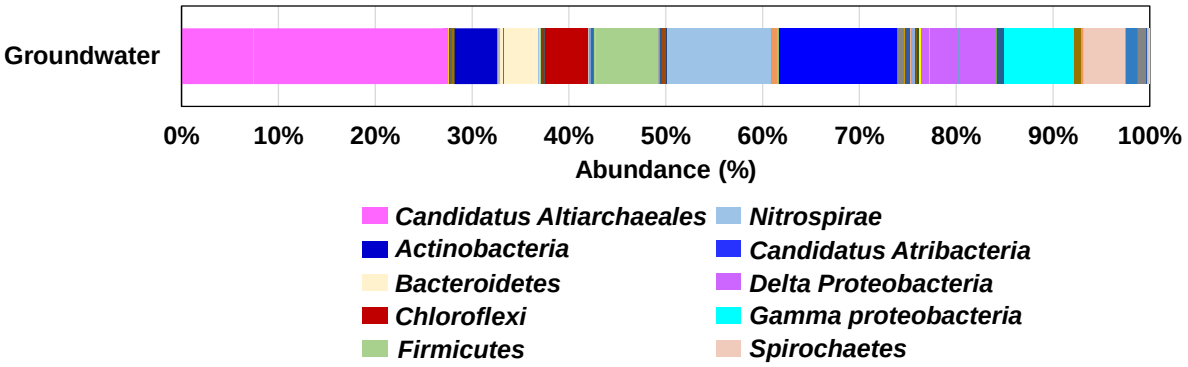


図 2.2-12　オーバーパック腐食試験時に注入した地下水中の微生物群集組成

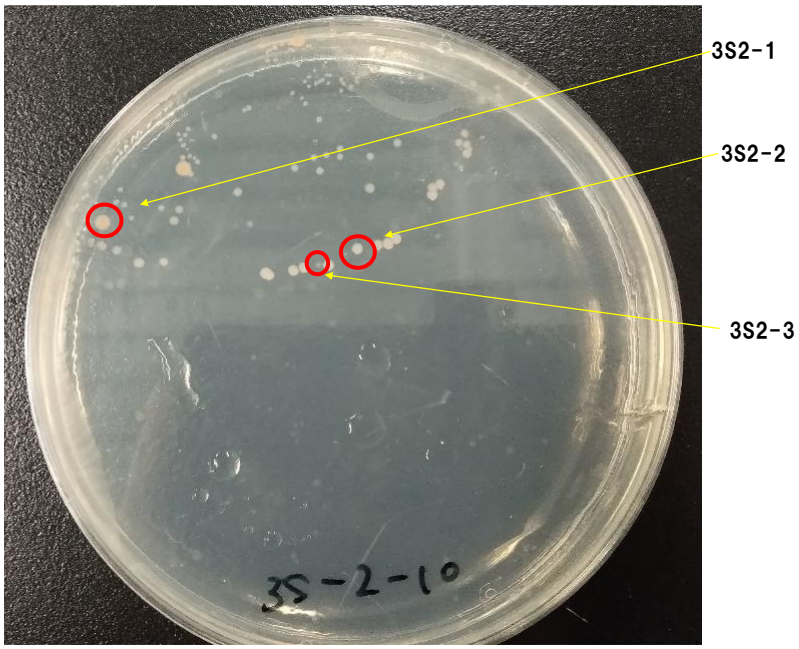


図 2.2-13　寒天培養法によって培養された緩衝材中の微生物
赤丸で示したコロニーについて、DNA 解析を実施した

表 2.2-2　汚染評価：スキムミルクやネガティブコントロールから検出される微生物種

#	生物分類群	未滅菌 スキムミルク	滅菌済 スキムミルク1	滅菌済 スキムミルク2	Negative control 1	Negative control 2
1	Bacteria,Firmicutes,Bacilli,Bacillales,Bacillaceae,Geobacillus	36.22	36.17	35.42	2.60	0.93
2	Bacteria,[Thermi],Deinococci,Thermales,Thermaceae,Thermus	34.84	28.83	24.41	5.19	0.00
3	Bacteria,Firmicutes,Bacilli,Lactobacillales,Streptococcaceae,Streptococcus	16.26	21.02	24.95	3.90	0.00
4	Bacteria,Firmicutes,Bacilli,Bacillales,Bacillaceae,Anoxybacillus	5.12	6.18	5.89	1.30	0.00
5	Bacteria;Other;Other;Other;Other;Other	4.13	3.41	4.32	67.53	87.96
6	Bacteria,Firmicutes,Bacilli,Bacillales,Bacillaceae;Other	0.81	2.09	1.61	1.30	0.00
7	Bacteria,Proteobacteria,Gammaproteobacteria,Pseudomonadales,Moraxellaceae,Acinetobacter	0.55	0.60	0.43	0.00	0.00
8	Bacteria,Firmicutes,Bacilli,Lactobacillales,Streptococcaceae,Lactococcus	0.43	0.36	0.43	0.00	0.00
9	Bacteria,Firmicutes,Bacilli,Bacillales;Other;Other	0.29	0.30	0.42	0.00	0.00
10	Unclassified;Other;Other;Other;Other;Other	0.25	0.12	0.20	6.49	0.93
11	Bacteria,Firmicutes,Bacilli;Other;Other;Other	0.21	0.10	0.22	0.00	0.93
12	Bacteria,Firmicutes,Clostridia,Clostridiales,Clostridiaceae,Clostridium	0.04	0.10	0.06	0.00	0.00
13	Bacteria,Proteobacteria,Gammaproteobacteria,Pseudomonadales,Pseudomonadaceae,Pseudomonas	0.13	0.08	0.18	0.00	0.00
14	Bacteria,Proteobacteria,Gammaproteobacteria,Enterobacteriales,Enterobacteriaceae,Escherichia	0.09	0.06	0.06	0.00	0.00
15	Bacteria,Proteobacteria,Gammaproteobacteria,Pseudomonadales,Pseudomonadaceae;Other	0.08	0.06	0.06	0.00	0.00
16	Bacteria,Firmicutes,Bacilli,Bacillales,Bacillaceae,Bacillus	0.05	0.06	0.03	0.00	0.00
17	Bacteria,[Thermi],Deinococci,Thermales,Thermaceae;Other	0.01	0.04	0.10	0.00	0.00
18	Bacteria,Proteobacteria;Other;Other;Other;Other	0.03	0.04	0.03	0.00	1.85
19	Bacteria,Proteobacteria,Gammaproteobacteria,Enterobacteriales,Enterobacteriaceae;Other	0.08	0.04	0.01	0.00	0.00
20	Bacteria,Firmicutes,Clostridia,Clostridiales;Other;Other	0.00	0.04	0.00	0.00	0.00
21	Bacteria,Proteobacteria,Gammaproteobacteria,Enterobacteriales,Enterobacteriaceae,Yersinia	0.00	0.04	0.00	0.00	0.00
22	Bacteria,Firmicutes,Clostridia,Clostridiales,Peptostreptococcaceae;Other	0.01	0.02	0.06	0.00	0.00
23	Bacteria,Firmicutes,Clostridia,Clostridiales,[Mogibacteriaceae],	0.01	0.02	0.01	0.00	0.00
24	Bacteria,Firmicutes,Bacilli,Lactobacillales;Other;Other	0.02	0.02	0.01	0.00	4.63
25	Bacteria,Actinobacteria,Actinobacteria,Actinomycetales,Jonesiaceae,Jonesia	0.00	0.02	0.00	0.00	0.00

(2) 広範な環境条件での室内試験

先行事業「先進的地層処分概念・性能評価技術高度化開発」（日本原子力研究開発機構, 2013a）において、地震活動による地下水水質の変動を想定し、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。この整理結果を踏まえ、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, 2014；2015b；2016；2017；2018）において、高塩濃度環境、高温水環境、酸性水環境、炭酸ガス環境を含む広範な環境条件での腐食試験が行われ、腐食データが取得された。

広範な環境条件における浸漬試験は長期試験を含めて継続して実施してきており、炭酸ガス環境を対象に、平成 30 年度は浸漬期間 1 年、平成 31 年度は浸漬期間 3 年の腐食データをそれぞれ本事業において取得した（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；2020）。令和 2 年度は、高 NaCl 濃度環境を対象に浸漬期間 1 年及び 3 年の腐食データを取得した。

また、炭酸塩環境での応力腐食割れ感受性について、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する、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、平成 31 年度は炭酸塩溶液に塩化物イオンまたは硫酸イオンを添加した条件において代表的な電位条件での予察的なデータを取得した（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, 2020）。これら化学種の添加により、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が変化する可能性があるため、令和 2 年度は炭酸塩溶液に塩化物イオンを添加した条件において、より幅広い電位条件でのデータを取得した。

さらに、先行事業「沿岸部処分システム高度化開発」（産業技術総合研究所ほか, 2017；2018；2019）において、沿岸部を想定した地下水条件での低酸素濃度下における腐食速度と水素吸収挙動を把握することを目的とした浸漬試験が行われ、浸漬期間 1 年の腐食データが取得された。沿岸部を想定した地下水条件での低酸素濃度下の浸漬試験は継続して実施してきており、令和 2 年度は浸漬期間 3 年の腐食データを取得した。

以下では、高 NaCl 濃度環境での浸漬試験、塩化物イオンを添加した炭酸塩環境での応力腐食割れ試験、低酸素濃度下における浸漬試験の成果について示す。

1) NaCl 環境での浸漬試験

① 試験方法の概要

図 2.2-14 に示すように、チタン製のカラム内に炭素鋼試験片と緩衝材（ケイ砂混合ベントナイト）を入れ、緩衝材が所定の密度になるように圧縮成型した。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（日本原子力研究開発機構, 2018）に準じ、以下のとおりとした。

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

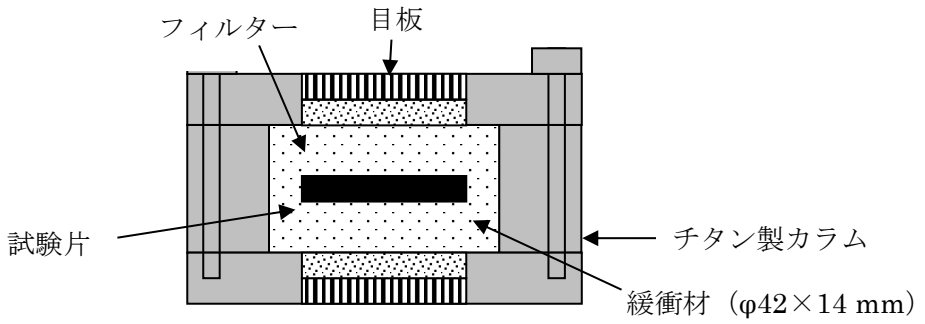


図 2.2-14　試験カラムの模式図

③ 試験条件

試験溶液には、各濃度に調整した NaCl 溶液を用いた。試験条件を表 2.2-3 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:70 wt%ベントナイト（クニゲル®V1）＋30 wt%ケイ砂
・ 乾燥密度:1.6 Mg/m^3

表 2.2-3　浸漬試験条件

試験溶液	温度 (°C)	pH (試験前室温での値)	浸漬期間 (days)
0.56 mol/L NaCl	80	7.14 7.10	30、90 365、1,095
5 mol/L NaCl	80	6.68 6.10	30、90 365、1,095
飽和 NaCl （360 g/L = 6.16 mol/L）	80	6.58 5.89	30、90 365、1,095

⑤ 試験手順

試験片を、緩衝材とともに図 2.2-14 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。試験期間は、30 日間、90 日間、365 日間及び 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、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、X 線回折（XRD）により腐食生成物を分析した。

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 2.2-15 に示す。30 日の試験ではあまり変化が見られないが、試験期間が進むにつれて黒色または灰色の皮膜が形成されており、脱スケール後は均一な全面腐食が観察された。1,095 日間浸漬後の X 線回折による腐食生成物皮膜の分析結果を図 2.2-16 に示す。いずれの濃度条件でも腐食生成物として、シデライト（$FeCO_3$）が同定された。

また、NaCl 濃度が高い条件ほど明瞭なピークが観察された。

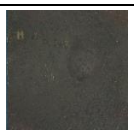
溶液	期間 (days)	脱スケール前	脱スケール後
0.56mol/L NaCl	30		
	90		
	365		
	1,095		
5mol/L NaCl	30		
	90		
	365		
	1,095		
飽和 NaCl （360g/L= 6.16mol/L）	30		
	90		
	365		
	1,095		

図 2.2-15　腐食試験後の試験片の外観（試験片表面寸法:30×30 mm）

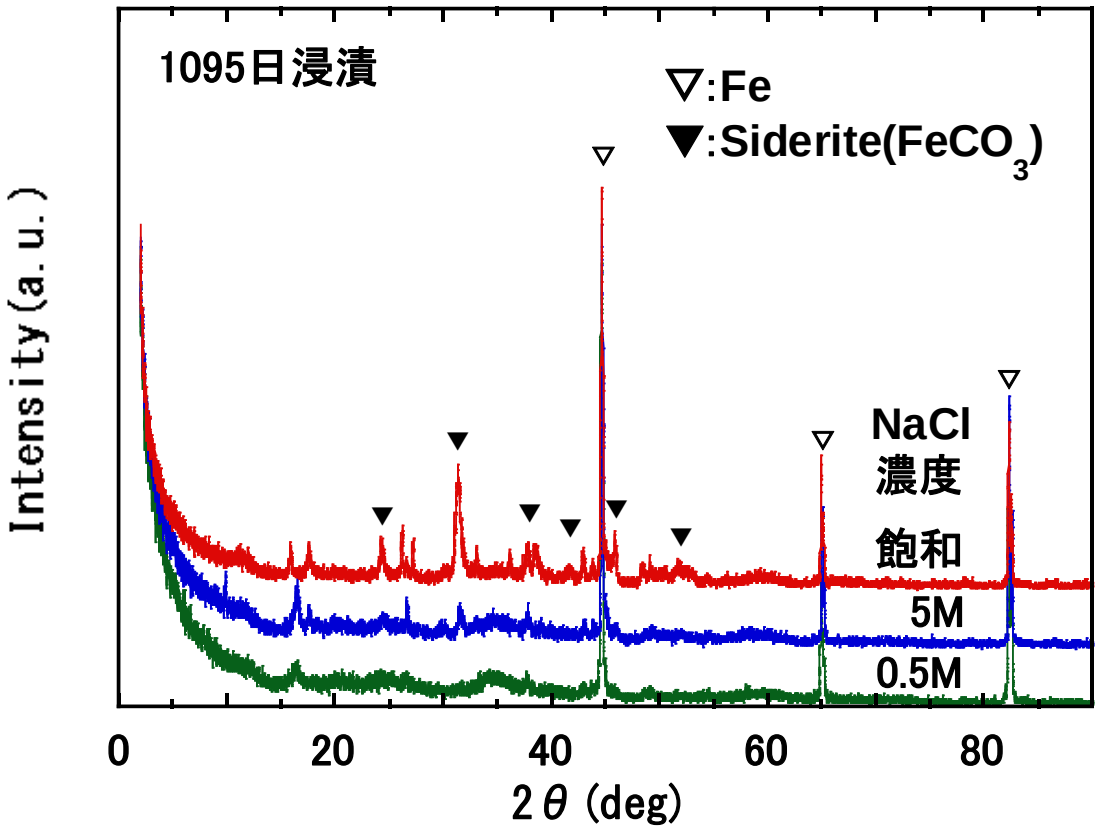


図 2.2-16　腐食試験後の試験片表面の X 線回折結果

(b) 腐食量測定結果

腐食試験前後の試験片の重量の減少から算出した平均腐食量を表 2.2-4 に示す。また、腐食速度の経時変化を図 2.2-17 に示す。90 日までは NaCl 濃度が高いほど腐食速度が大きい傾向が見られるが、365 日以降はどの NaCl 濃度条件でも腐食速度は同様の値を示した。したがって、海水相当以上の高 NaCl 濃度条件では、緩衝材共存下での腐食速度に対する NaCl 濃度の影響は時間とともに低下すると考えられる。周囲の地下水が入れ替わる（流動する）場合について考察する。地下水が入れ替わる場合、腐食で消費される CO_3^{2-}などのイオンが供給され続けると考えられる。過去に人工海水及び人工海水を希釈した溶液を用いて行った腐食試験（産業技術総合研究所ほか, 2019）を実施しており、その結果、緩衝材共存下では人工海水の希釈倍数に関係なく炭素鋼の腐食速度はほとんど同様の値であることがわかっている。また、上述の通り、海水相当以上の高 NaCl 濃度条件においても緩衝材共存下では腐食速度に対する NaCl 濃度の影響は時間とともに低下すると考えられる。これらの結果から、地下水の入れ替わりがある場合も、緩衝材中での炭素鋼の腐食速度への影響は小さいと考えられる。

表 2.2-4　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

溶液	期間 (days)	腐食量 (mm)	腐食速度 (mm/y)
0.56 mol/L NaCl	30	4.58×10^{-2}	3.77×10^{-3}
	30	4.34×10^{-2}	3.57×10^{-3}
	30	4.14×10^{-2}	3.40×10^{-3}
	90	2.47×10^{-2}	6.10×10^{-3}
	90	2.45×10^{-2}	6.05×10^{-3}
	90	2.50×10^{-2}	6.17×10^{-3}
	365	1.26×10^{-2}	1.26×10^{-2}
	365	1.21×10^{-2}	1.21×10^{-2}
	365	1.28×10^{-2}	1.28×10^{-2}
	1,095	1.29×10^{-2}	4.30×10^{-3}
	1,095	1.32×10^{-2}	4.40×10^{-3}
	1,095	1.26×10^{-2}	4.20×10^{-3}
5 mol/L NaCl	30	4.66×10^{-2}	3.83×10^{-3}
	30	4.72×10^{-2}	3.88×10^{-3}
	30	4.74×10^{-2}	3.89×10^{-3}
	90	2.31×10^{-2}	5.70×10^{-3}
	90	2.54×10^{-2}	6.26×10^{-3}
	90	2.60×10^{-2}	6.40×10^{-3}
	365	9.39×10^{-3}	9.39×10^{-3}
	365	9.96×10^{-3}	9.96×10^{-3}
	365	1.02×10^{-2}	1.02×10^{-2}
	1,095	9.64×10^{-3}	3.21×10^{-3}
	1,095	1.29×10^{-2}	4.28×10^{-3}
	1,095	1.02×10^{-2}	3.41×10^{-3}
飽和 NaCl（360 g/L = 6.16 mol/L）	30	4.88×10^{-2}	4.01×10^{-3}
	30	4.54×10^{-2}	3.73×10^{-3}
	30	4.99×10^{-2}	4.10×10^{-3}
	90	2.39×10^{-2}	5.90×10^{-3}
	90	2.08×10^{-2}	5.14×10^{-3}
	90	2.23×10^{-2}	5.49×10^{-3}
	365	1.27×10^{-2}	1.27×10^{-2}
	365	8.00×10^{-3}	8.00×10^{-3}
	365	9.11×10^{-3}	9.11×10^{-3}
	1,095	1.39×10^{-2}	4.65×10^{-3}
	1,095	1.23×10^{-2}	4.09×10^{-3}
	1,095	1.24×10^{-2}	4.12×10^{-3}

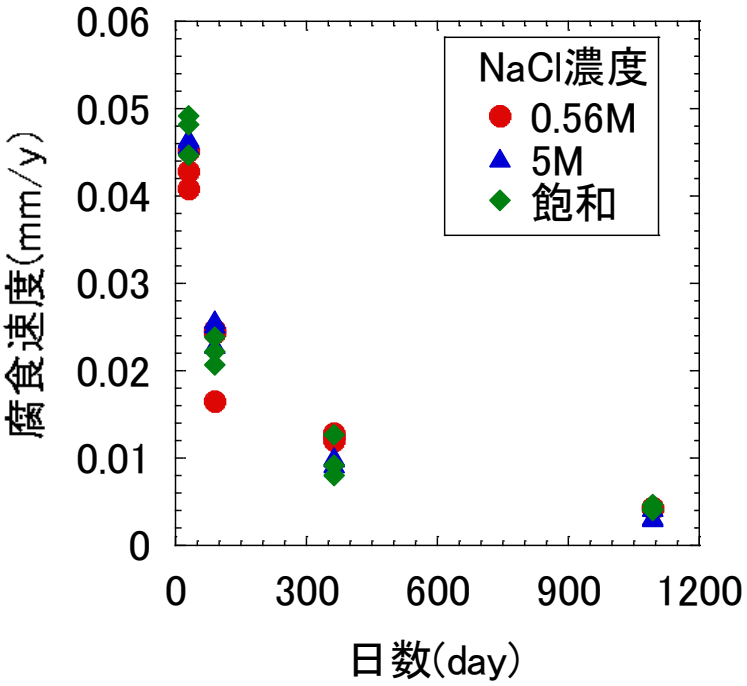


図 2.2-17　腐食速度の経時変化

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 2.2-18 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 2.2-19 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 0.2～50 mM 程度とされている（原子力発電環境整備機構, 2021）。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、塩化物イオンや硫化物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）。平成 31 年度は、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、硫化物イオンを添加した炭酸塩溶液を用いて特定の電位条件で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。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塩化物イオン、硫化物イオンの添加や濃度によって変化する可能性があるため、令和 2 年度は、塩化物イオンを添加した炭酸塩溶液を用いてより幅広い電位

条件でのデータを取得した。試験溶液には、0.5 M の $NaHCO_3$ 水溶液を用い、試験条件として設定した濃度となるように NaCl を添加した。温度は 50°C または 80°C とした。試験電位は先行事業で実施した、50°C 及び 80°C の 0.5M $NaHCO_3$ 水溶液中での SSRT 試験で、応力腐食割れ感受性が高くなった電位を基準（日本原子力研究開発機構, 2018）として、±50 mV 程度の電位範囲とした。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 SSRT 試験も実施した。SSRT 試験条件を表 2.2-5 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、試験温度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。

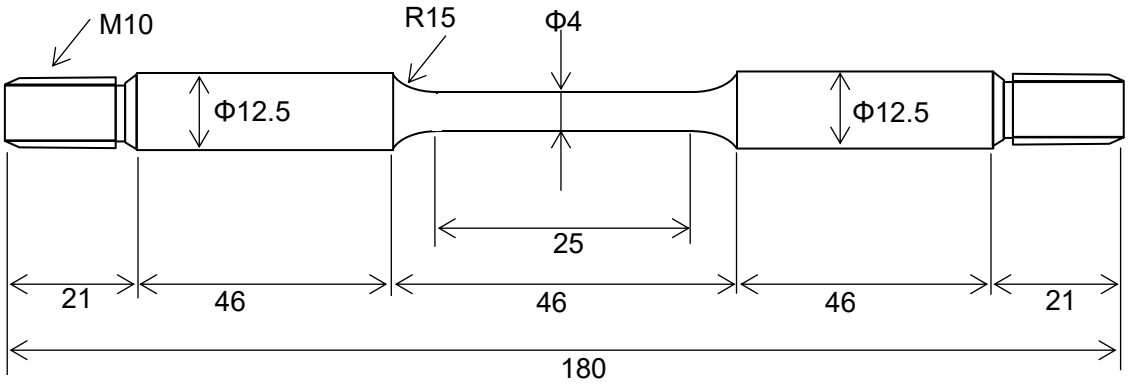


図 2.2-18　SSRT 試験片の形状・寸法

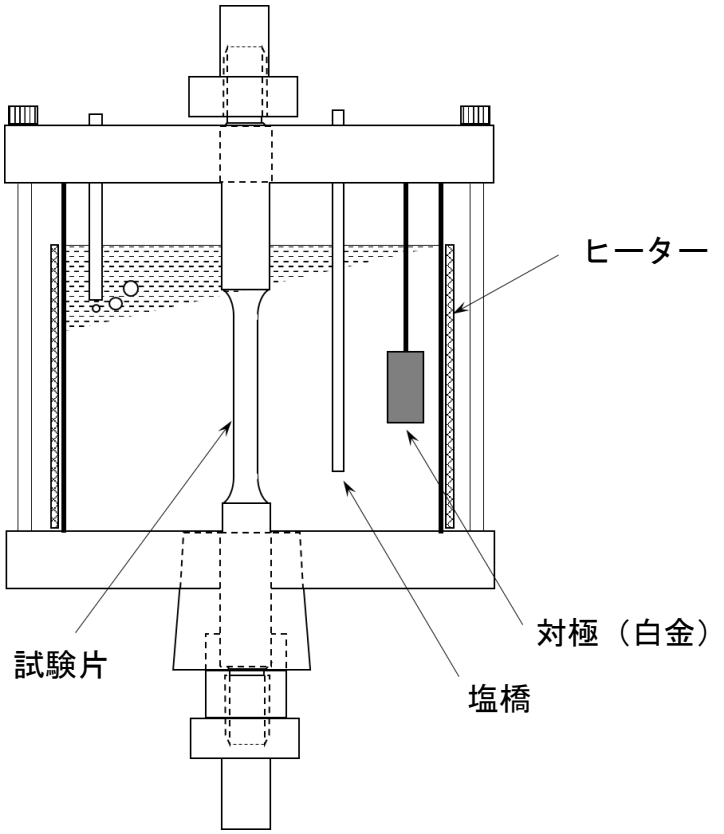


図 2.2-19　SSRT 試験セルの模式図

表2.2-5　SSRT試験条件

$NaHCO_3$	NaCl	温度(°C)	電位(mV vs. SSE)
0.5M	0 M	50	-600,-625,-650,-667,-675
		80	-650,-675,-700,-725
	0.01 M	50	-600,-625,-650,-667,-675
		80	-675,-700,-725,-750
	0.1 M	50	-600,-625,-650,-667,-675
		80	-675,-700,-725,-750
シリコーンオイル		50	-
		80	-

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 2.2-20 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 濃度依存性を図 2.2-21、破断ひずみ比の NaCl 濃度依存性を図 2.2-22 に示す。図中の＊は、平成 29 年度に製作した同一規格（SM400B）の試験片を使用して取得したデータを示している。また、比較のため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）も図中に示した。

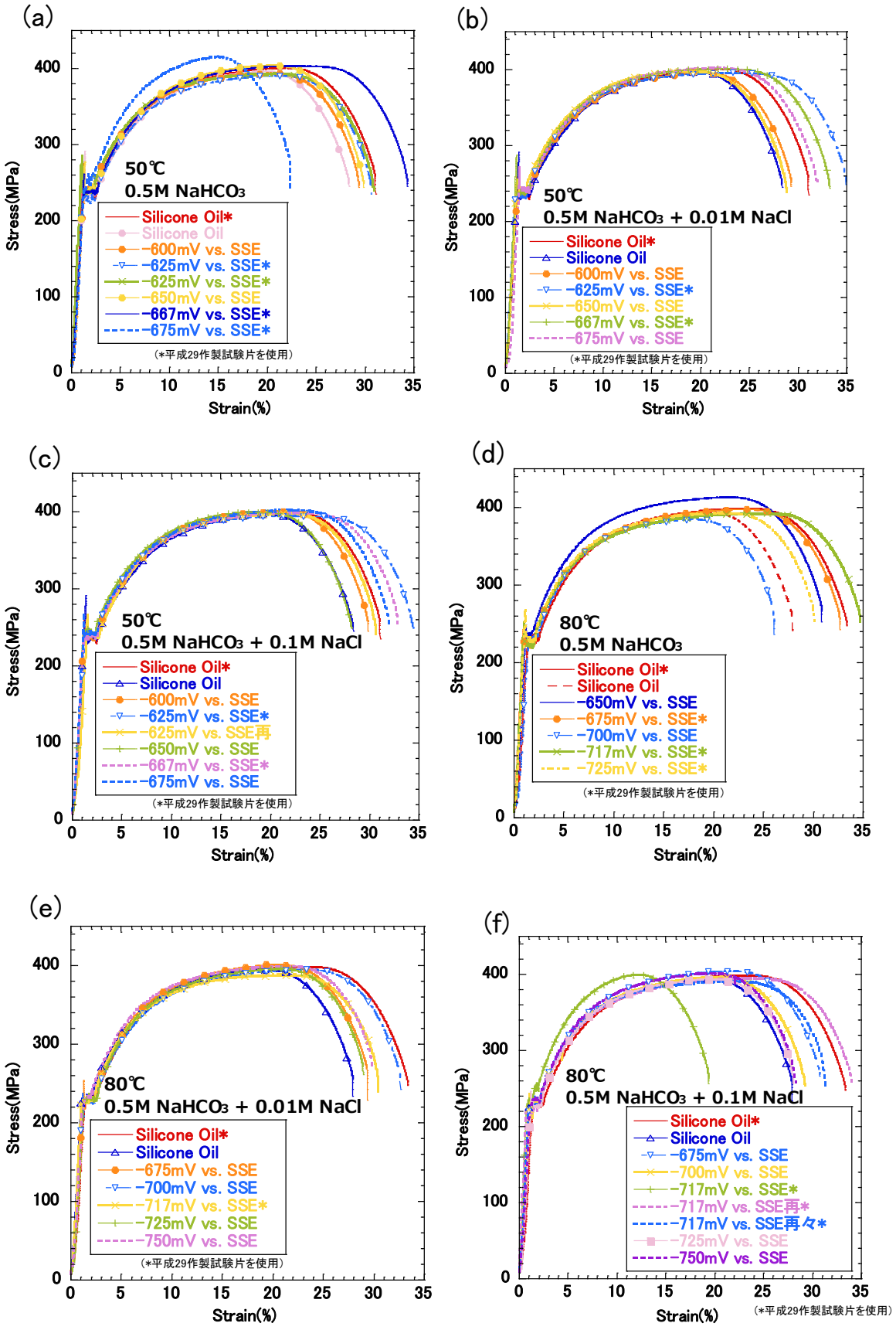


図 2.2-20　応力-歪み線図の測定結果

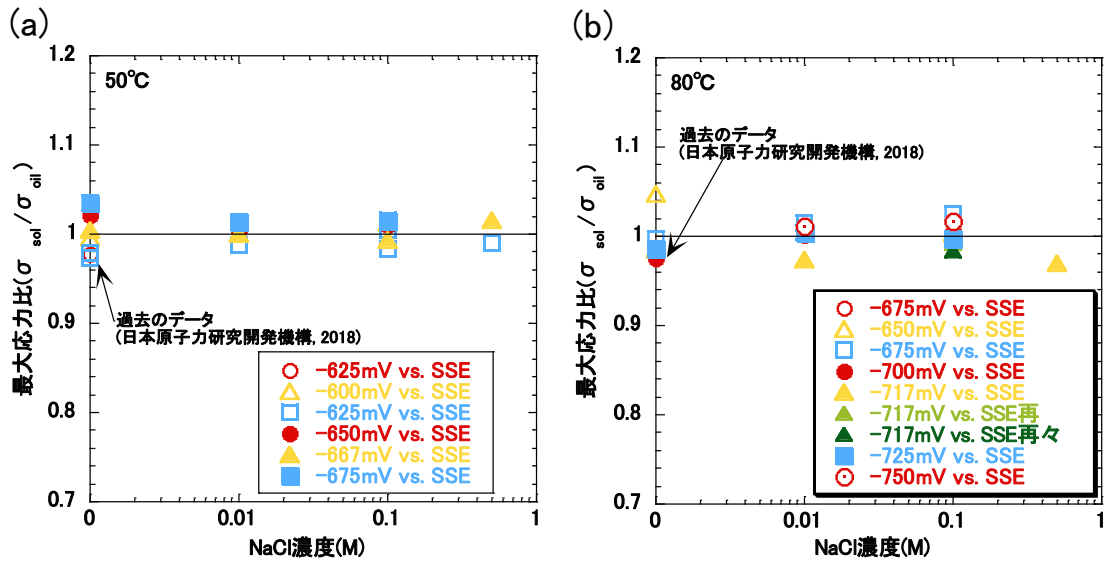


図 2.2-21　最大応力比（$\sigma_{sol}/\sigma_{oil}$）の NaCl 濃度依存性

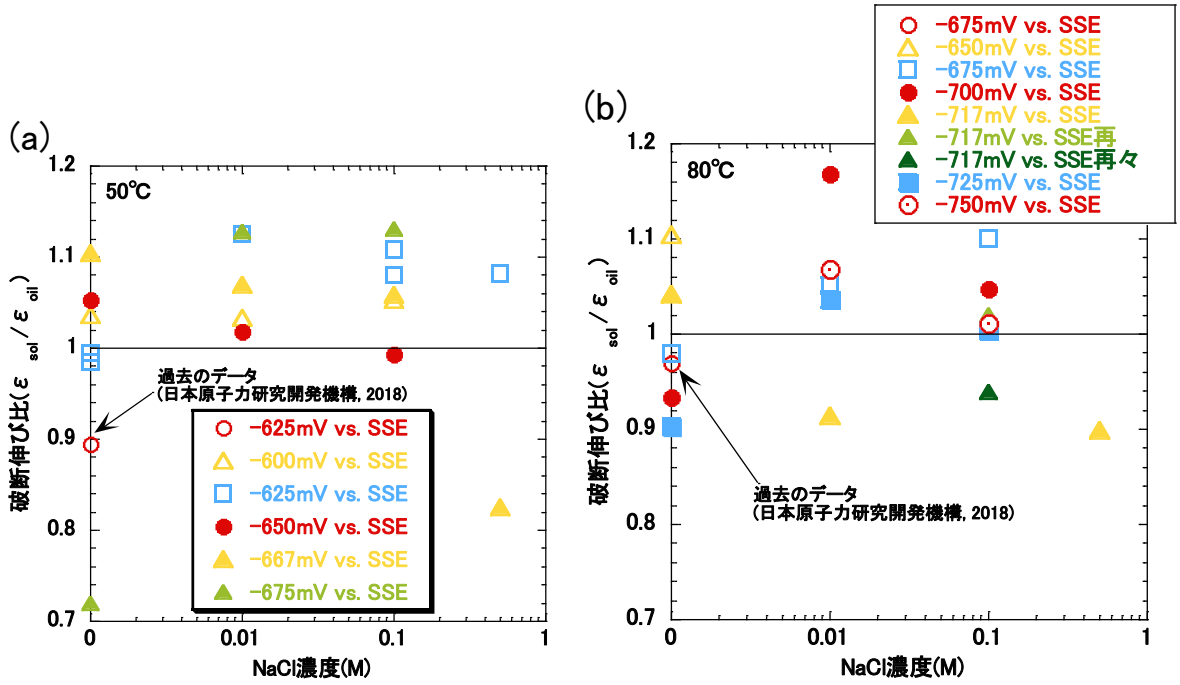


図 2.2-22　破断伸び比（$\varepsilon_{sol}/\varepsilon_{oil}$）の NaCl 濃度依存性

最大応力比は NaCl 濃度及び電位条件によらず 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 NaCl を添加した場合に比較的大きい値を示し、80°C では-717 mV vs. SSE で破断ひずみ比が小さい値となったが、濃度依存性及び電位依存性は明瞭ではない。

今回得られたデータ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。また、同ロットの試験片を用いても結果にはばらつきがある（例えば、80°C、NaCl 0.1 M、-717 mV vs. SSE）ため、材料以外の要因が存在する可能性がある。

次に試験片の外観を図 2.2-23 及び図 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。ここで、破面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。

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

$$I_{SCC} = Sscc/S_1 \quad (2.2\text{-}2)$$

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 濃度依存性を図 2.2-25 に示す。どちらの温度条件でも、NaCl 濃度が大きくなると絞り比が低下する傾向がみられた電位条件と、絞り比が増加する傾向がみられた電位条件が存在した。50°C の場合､NaCl を添加しない条件より NaCl を添加した条件の絞り比が小さくなった電位は、-650 mV vs. SSE であった。80°C では、NaCl を添加した場合-717 mV vs. SSE で絞り比が小さい値となった。

次に SCC 破面率の NaCl 濃度依存性を図 2.2-26 に示す。50°C では、NaCl の添加の有無にかかわらず、調査したすべての電位領域で応力腐食割れが観察され、破面率の最大値に大きな差はなかった。80°C では、NaCl を添加した場合、-717 mV vs. SSE で破面率が大きくなっており、この結果は、平成 31 年度の破面率の値（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, 2020）と同程度であった。どちらの温度条件でも、NaCl を添加した場合破面率が最大となる電位は NaCl を添加しない場合の電位よりも低い値となる傾向がみられた。一方、濃度依存性は明確ではなかった。

絞り比、SCC 破面率の結果を過去のデータ（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, 2020）と比較すると、50°C の NaCl 濃度 0 M 及び 80°C の NaCl 濃度 0.01 M ではほぼ同程度の結果が得られている。一方、80°C の NaCl 濃度 0 M では応力腐食割れが発生した電位や絞り比の値に差がみられるなど、同じ試験条件でも結果のばらつきがあった。NaCl の添加による応力腐食割れ感受性の増減は、同条件での結果のばらつきと比べて小さいことから、影響は顕著ではないと考えられる。

以上のように、破断ひずみ比、絞り比、SCC 破面率では NaCl を添加することで、応力腐食割れ感受性が最大となる電位が添加しない場合よりも低下する兆候を示唆する結果も得られているが、NaCl を添加しない条件での比較から、テータのばらつきに対して NaCl の添加による影響は小さく、令和 2 年度の試験条件の範囲では、NaCl 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。

今後は、より広い電位条件でのデータを拡充し、NaCl の共存による応力腐食割れ感受性への影響について評価を行う必要がある。また、塩化物イオン以外の炭素鋼の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（硫化物イオンなど）が応力腐食割れ感受性に与える影響についても検討を行う。

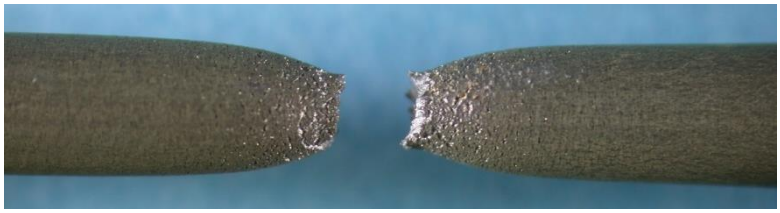
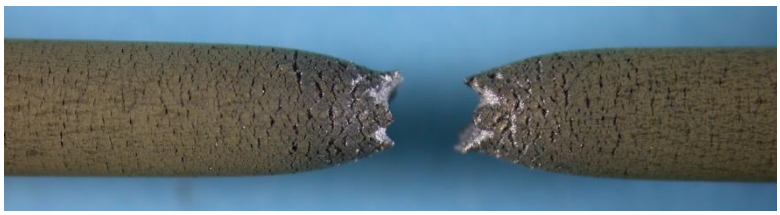
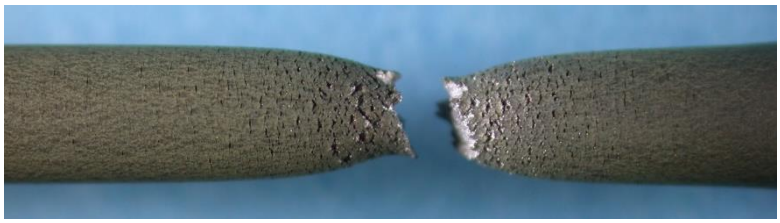
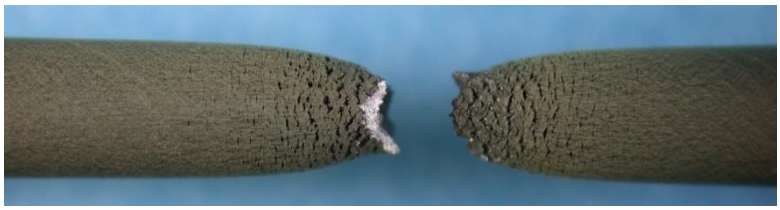
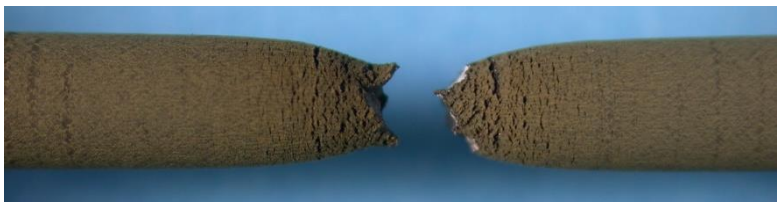
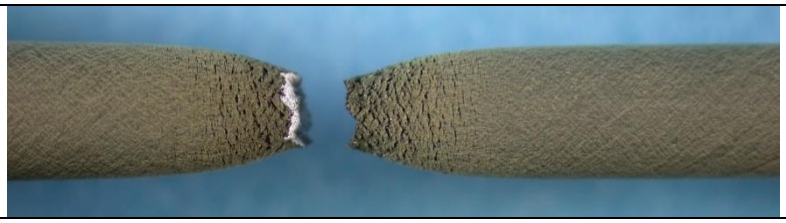
-600mV vs. SSE	
-625mV vs. SSE	
-625mV vs. SSE再	
-650mV vs. SSE	
-667mV vs. SSE	
-675mV vs. SSE	

図2.2-23　試験後試験片の外観例（温度：50°C　溶液：0.5M $NaHCO_3$+0.1M NaCl）

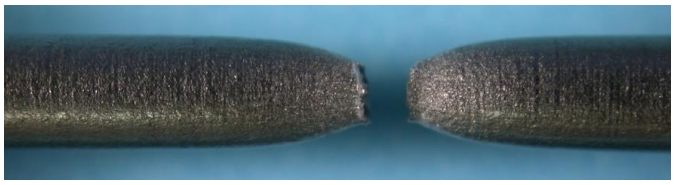
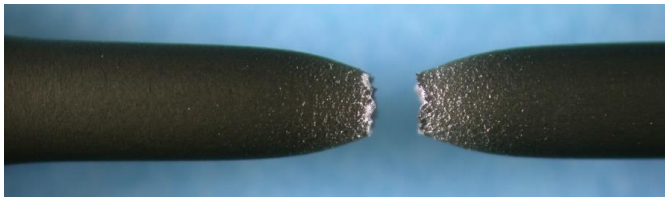
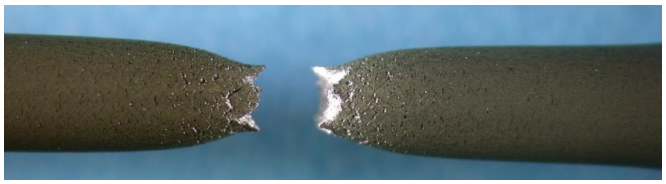
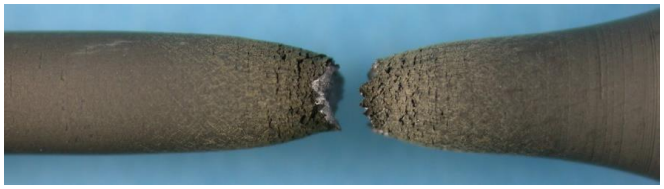
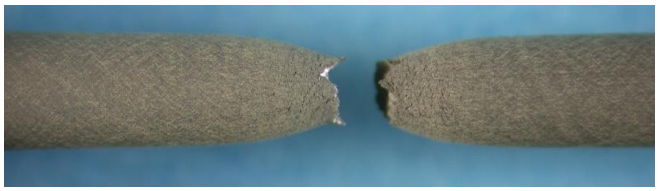
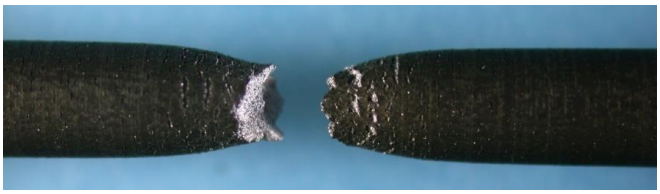
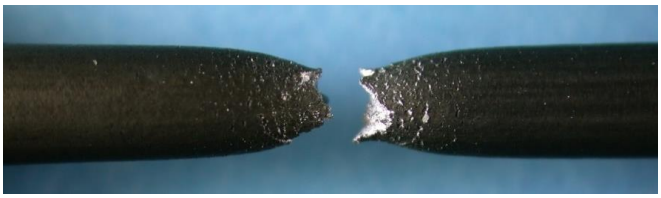
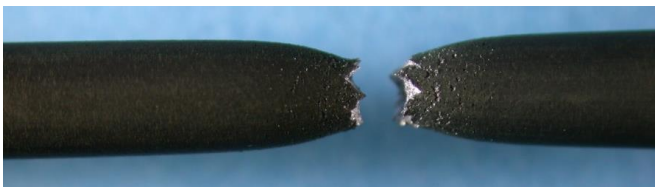
Silicone Oil	
-675mV vs. SSE	
-700mV vs. SSE	
-717mV vs. SSE	
-717mV vs. SSE再	
-717mV vs. SSE再々	
-725mV vs. SSE	
-750mV vs. SSE	

図 2.2-24　試験後試験片の外観例（温度：80°C　溶液：0.5M $NaHCO_3$+0.1M NaCl）

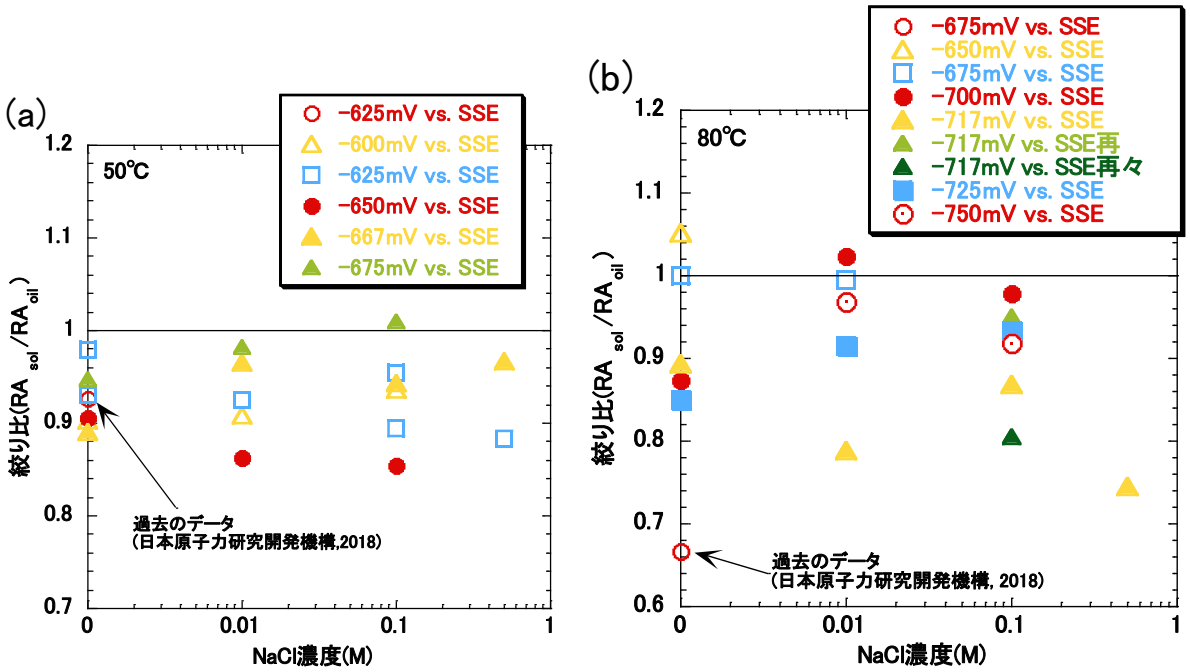


図 2.2-25　絞り比（R.A.sol/ R.A.oil）の NaCl 濃度依存性

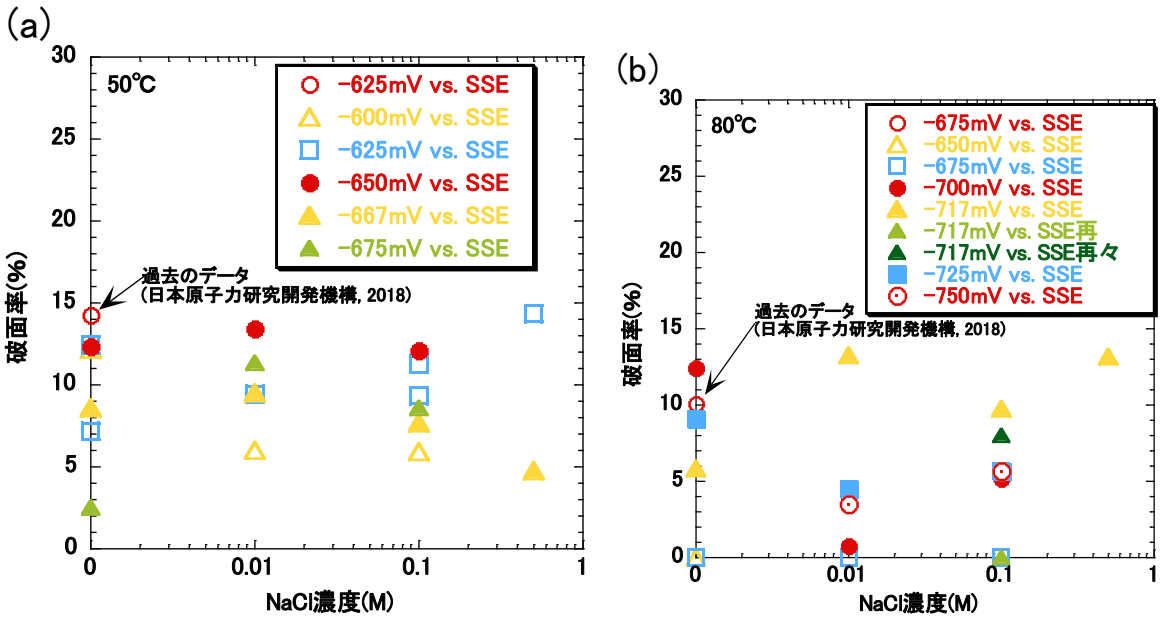


図 2.2-26　SCC 破面率（Iscc）の NaCl 濃度依存性

3) 低酸素濃度下での腐食と水素吸収挙動

① 試験方法

炭素鋼試験片には、溶接構造用圧延鋼材（JIS G 3106）SM400Bを用い、材料を寸法30×30×2 mmの大きさに切り出し、表面はエメリー＃800の湿式研磨にて仕上げた。

試験溶液には人工海水（ASTM D1141-98準拠）及び人工海水を10、100、1,000倍希釈した溶液を用いた。試験温度は既往の例（谷口ほか, 2010a；Kobayashi et al., 2011）に準じて80°C、試験期間は1,095日間とした。1条件あたりの試験数（n数）はn=3とした。

図2.2-14に示すように、チタン製のカラム内に炭素鋼試験片と緩衝材（30 wt%ケイ砂混合ベントナイト）を入れ、緩衝材が所定の密度（1.6 Mg/m^3）になるように圧縮成型した。試験溶液を窒素雰囲気のグローブボックス中（気相部酸素濃度1 ppm以下）で24時間以上ボックス内のガスを試験溶液に通気することにより溶存酸素を除去した。

その溶液と試験片をテフロン製の容器に入れ、これを80°Cに設定した恒温槽内に静置した。浸漬期間経過後に試験片を取り出し、腐食生成物を除去した後に重量を測定し、試験前後の試験片重量の差から平均腐食量を算出した。腐食生成物分析用の試験片については取り出し後直ちにX線回折測定用の雰囲気制御セルに入れ、セル内を窒素ガスで置換した後に分析を行った。水素吸収量については、昇温脱離法により水素抽出曲線を求め、拡散性水素の放出が完了する温度（約250°C）以下までの放出水素量として求めた。測定条件を以下に示す。

・水素分析：API-MS法
・温度範囲：室温～600°C
・昇温速度：12°C /min
・雰囲気（キャリアガス）：Ar

② 試験結果と考察

試験後の試験片の外観を図2.2-27に示す。いずれの条件でも黒色の皮膜がほぼ均一に形成されていたが、100倍、1,000倍での外観に見られるように、一部は解体時に皮膜が緩衝材とともにはがれて金属素地が露出したものもあった。試験片の表面をX線回折による分析を行った結果を図2.2-28に示す。人工海水で従来の結果（谷口ほか, 2010b）と同様にシデライト（$FeCO_3$）が同定されたが、希釈した条件ではいずれもFeのピークと弱いブロードなピークが観察されたのみであった。

次に、重量法により得られた平均腐食速度を表 2.2-6 に示す。また、平均腐食速度の希釈倍数依存性を図 2.2-29 に、平均腐食量の経時変化を図 2.2-30 に示す。これらの図には平成 30 年度までに得られた値（産業技術総合研究所ほか, 2019）もプロットした。図 2.2-30 には平均腐食量（Y）を時間（t）に対してべき乗則（$Y=A\,t^B$　A、B：係数）でフィッティングして得られた近似式も示した。図 2.2-29 より、365 日までは人工海水（希釈なし）の腐食速度が比較的大きく、希釈倍数が 10～1,000 倍ではほぼ同様の値を示したが、1,095 日では希釈倍数 10 倍の腐食速度が希釈倍数 100 倍及び 1,000 倍よりもわずかに大きくなった。希釈倍数 100 倍及び 1,000 倍の腐食速度の値はほぼ同じ値となった。

平均腐食速度に及ぼす塩濃度の影響については、人工海水～100 倍までは希釈倍数が大きくなるほど腐食速度は小さくなったが、100 倍以上の希釈では希釈倍数による影響は見られなかった。人工海水～100 倍希釈において腐食速度の濃度依存性が現れている可能性がある。図 2.2-30 中に示したべき乗則での近似結果においても皮膜の保護性に関連した値である B 値（値が小さいほど皮膜の保護性は大きい）は人工海水、10 倍希釈でやや大きく、100 倍以上の希釈倍数ではほぼ同

様の値を示した。したがって、現時点までのデータに基づくと緩衝材共存下では人工海水～希釈度 100 倍までは、希釈することで腐食速度が抑制されるが、100 倍以上に希釈した場合、腐食速度への影響は小さいと考えられる。希釈による皮膜の形成挙動と腐食抑制への影響やそのメカニズムについては、今回の試験の範囲では人工海水以外では腐食生成物の構成成分が同定されていないことなどから明らかではない。今後より長期データの取得と表面に形成される皮膜組成や性状の変化などを踏まえてより詳細に検討する必要がある。

次に、水素抽出曲線の一例として希釈倍率 1,000 倍での結果を図 2.2-31 に示す。この曲線より約 250°C までに放出された水素量を拡散性水素とみなして求めた水素濃度を表 2.2-7 に示す。図 2.2-32 に拡散性水素濃度の経時変化を示す。図 2.2-32 には平成 30 年度までに得られた値（産業技術総合研究所ほか, 2019）もプロットした。今回得られた拡散性水素濃度の値はいずれも約 0.03 ppm 以下であり、希釈倍数及び浸漬期間による依存性も見られなかった。また、脆化が問題となる濃度（ppm オーダー以上）（Okada, 1977）よりも十分小さいことがわかった。

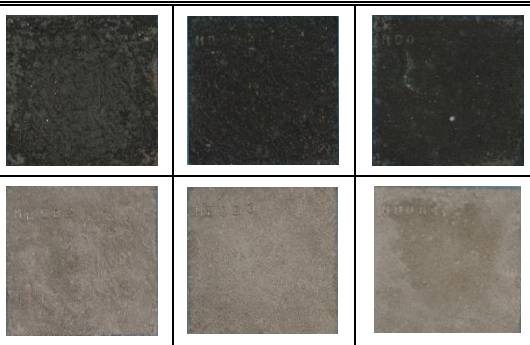
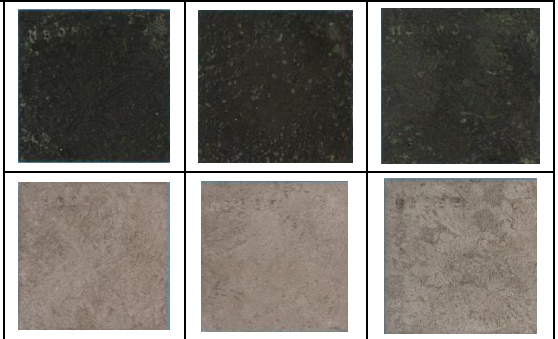
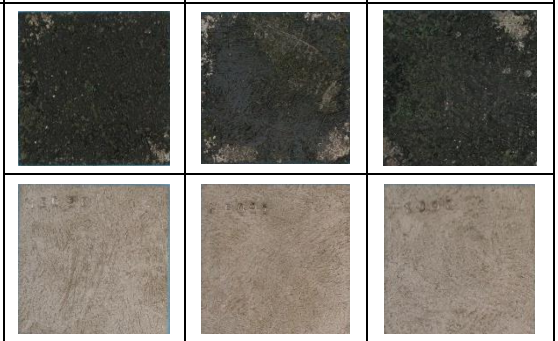
溶液	期間 (days)	上段：脱スケール前 下段：脱スケール後
人工海水	1,095	
人工海水 10 倍希釈	1,095	
人工海水 100 倍希釈	1,095	
人工海水 1,000 倍希釈	1,095	

図 2.2-27　浸漬試験後の試験片の外観

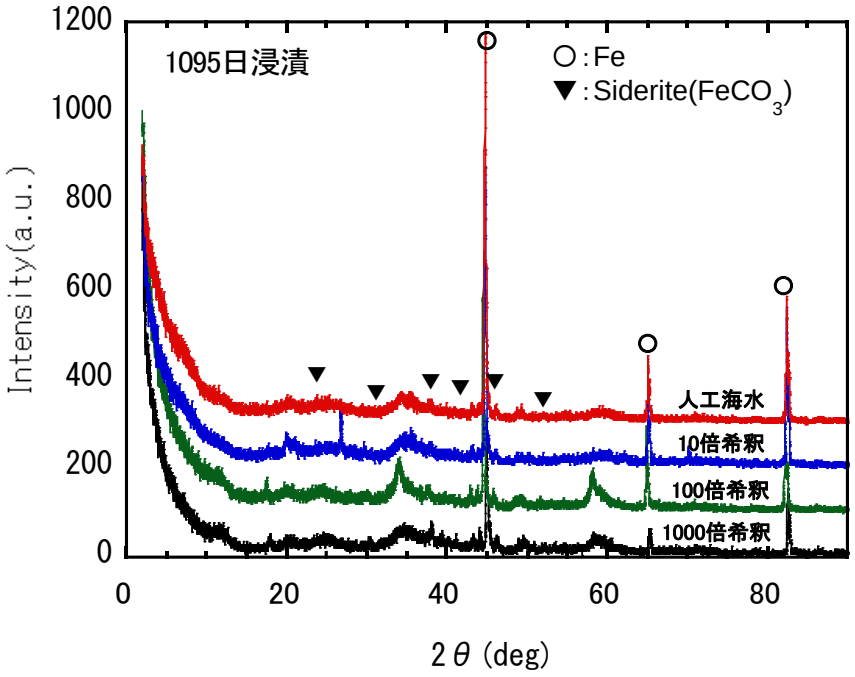


図 2.2-28　試験後試験片表面の X 線回折結果

表 2.2-6　腐食試験前後の試験片の重量減量から算出した腐食量及び腐食速度

溶液	期間 (days)	腐食量 (mm)	腐食速度 (mm/y)
人工海水（希釈なし）	1,095	2.47×10^{-2}	8.24×10^{-3}
		2.58×10^{-2}	8.60×10^{-3}
		2.51×10^{-2}	8.36×10^{-3}
10 倍希釈	1,095	1.63×10^{-2}	5.45×10^{-3}
		1.69×10^{-2}	5.64×10^{-3}
		1.60×10^{-2}	5.35×10^{-3}
100 倍希釈	1,095	1.39×10^{-2}	4.62×10^{-3}
		1.34×10^{-2}	4.47×10^{-3}
		1.41×10^{-2}	4.71×10^{-3}
1,000 倍希釈	1,095	1.45×10^{-2}	4.84×10^{-3}
		1.42×10^{-2}	4.75×10^{-3}
		1.44×10^{-2}	4.81×10^{-3}

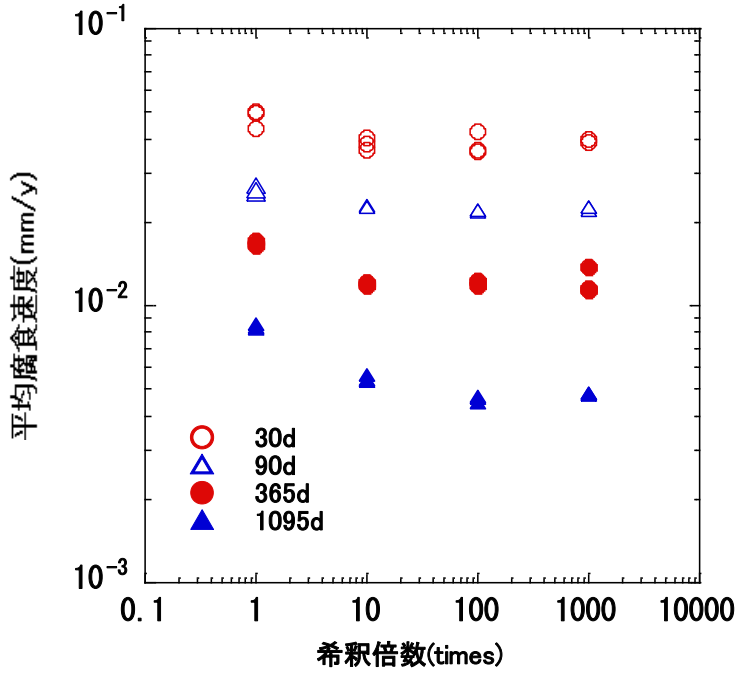


図 2.2-29　平均腐食速度の経時変化

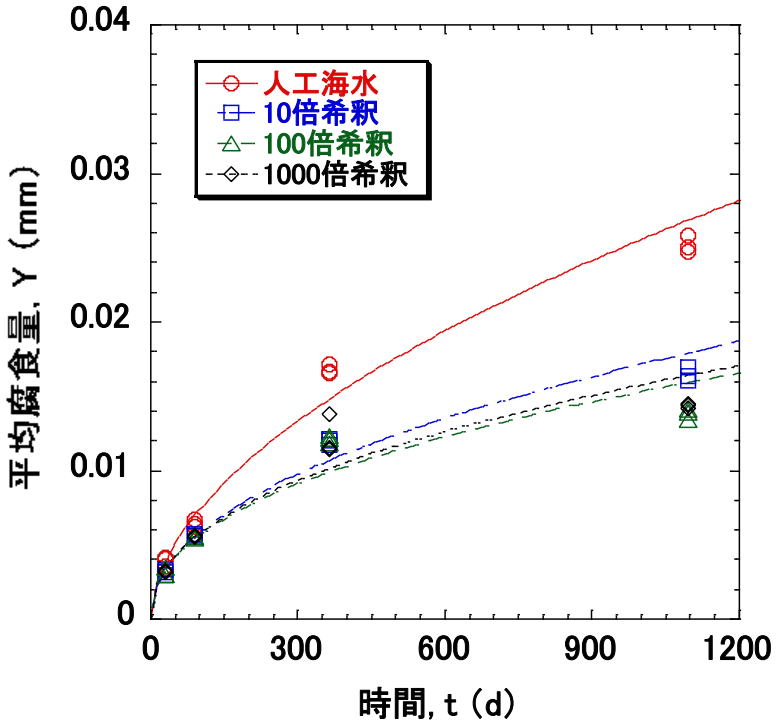


図 2.2-30　平均腐食量の経時変化

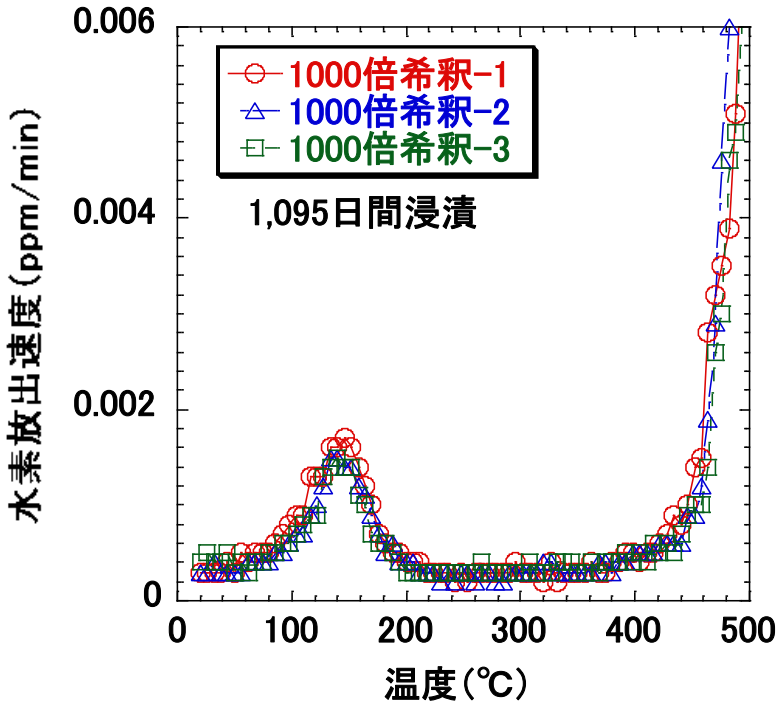


図 2.2-31　水素抽出曲線の一例

表 2.2-7　水素抽出曲線より求めた拡散性水素濃度

溶液	期間 (days)	拡散性水素濃度 (ppm)
人工海水（希釈なし）	1,095	0.0095
		0.0150
		0.0210
10 倍希釈	1,095	0.0120
		0.0240
		0.0110
100 倍希釈	1,095	0.0084
		0.0085
		0.0076
1,000 倍希釈	1,095	0.0140
		0.0120
		0.0120

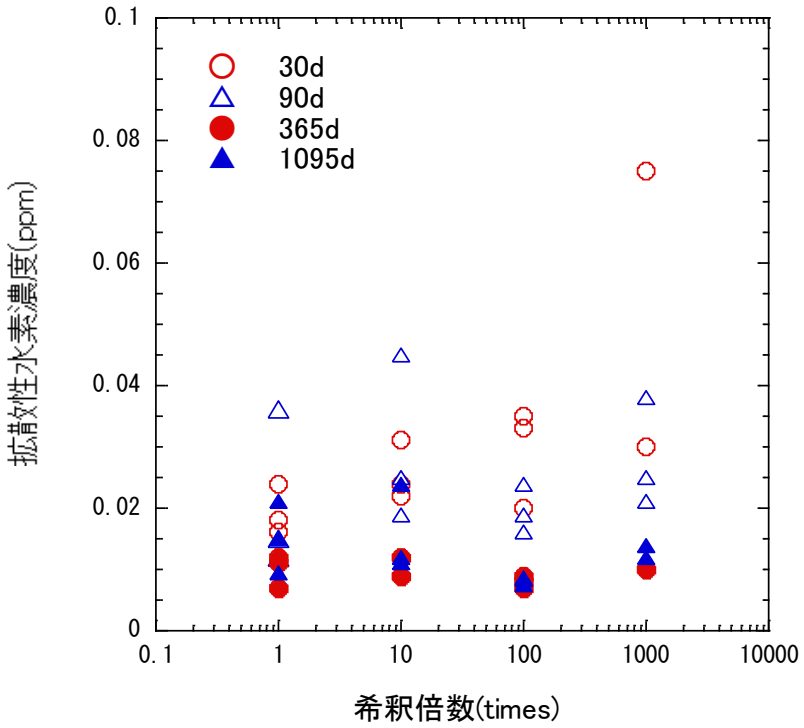


図 2.2-32　拡散性水素濃度の経時変化

2.2.3 これまで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の調査、分析として、令和 2 年度は、幌延 URL にて実施された原位置試験における環境条件と腐食メカニズムをより詳細に明らかにするため、腐食センサー表面の腐食生成物の分析手法の開発および微生物活性挙動の調査による緩衝材中の環境条件の評価を実施した。腐食生成物の分析手法の開発については、雰囲気制御下かつ非破壊で腐食センサー表面の腐食生成物の分析を実施することができる測定セルを製作することができた。微生物活性挙動の調査については、詳細な微生物分析により緩衝材中に存在する微生物種や密度の情報を取得し、ケイ砂が混入していた模擬オーバーパックと緩衝材の接触部に腐食反応に関与する可能性のある微生物を検出したが、模擬オーバーパック表面で確認している腐食生成物が鉄酸化物であることから、微生物反応は寄与していないと推察した。

幌延 URL の原位置試験試料を対象とした平成 30 年度～令和 2 年度までの 3 か年の調査により、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。また、微生物活性挙動の調査については、緩衝材中に存在する微生物種や密度の情報を取得し、模擬オーバーパックと緩衝材の接触部において腐食反応に関与する可能性のある微生物を検出したが、模擬オーバーパック表面の腐食状態との関係から微生物反応は寄与していないと推察した。

今後、原位置試験で使用した腐食センサーや緩衝材の分析データを拡充し、模擬オーバーパックや腐食センサー周辺の環境条件と腐食メカニズムをより詳細に明らかにする。また、工学規模や実規模で生じうる環境の不均一性や腐食の局在化について、室内試験での再現等により現象の理解を進める。また、微生物活性挙動の調査については、緩衝材内部のより長期的な微生物活性挙動の評価を進める。具体的には、月布鉱山のベントナイト原鉱石などを用いて、様々な条件下

におけるベントナイト中の微生物活性や存在種などに関する情報を拡充する。

広範な環境条件での室内試験として、令和 2 年度は、高 NaCl 濃度環境における浸漬試験、塩化物イオンを添加した炭酸塩環境での応力腐食割れ試験、沿岸部を想定した地下水条件での低酸素濃度下の浸漬試験を実施した。高 NaCl 濃度環境における浸漬試験では、浸漬期間 1 年及び 3 年の腐食データを取得し、初期の腐食速度は NaCl 濃度が高いほど大きいが、経時的に濃度による腐食速度の違いは小さくなり、長期的には同様の腐食速度となることを確認した。塩化物イオンを添加した炭酸塩環境での応力腐食割れ試験では、塩化物イオン共存により特定の電位で応力腐食割れ感受性が高くなる兆候が示唆されたが、過去のデータ及び塩化物イオンを添加しない条件での結果との比較から、塩化物イオンの影響は顕著ではないと推察した。沿岸部を想定した地下水条件での低酸素濃度下の浸漬試験では、浸漬期間 3 年の腐食データを取得した。その結果、拡散性水素濃度の値については、人工海水の希釈倍数及び試験期間による依存性はなく、いずれの条件下でも水素脆化が問題となる濃度よりも十分小さいことを確認した。また、平均腐食速度に及ぼす塩濃度の影響については、希釈なし～希釈倍数 100 倍までは希釈することで腐食速度が低下することを確認した。

平成 30 年度～令和 2 年度までの 3 か年で、広範な環境条件での室内試験については、炭酸ガス環境、高 NaCl 濃度環境、沿岸部を想定した地下水条件のそれぞれで浸漬期間 3 年までの腐食データを取得し、これらの環境条件の影響が長期的には緩和される傾向を確認した。また、炭酸塩環境での応力腐食割れ感受性については、炭酸塩溶液に塩化物イオンまたは硫酸イオンを添加した条件における予察的データを取得し、共存イオンの影響が顕著ではないことを確認した。

今後は、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, 2014 ; 2015b ; 2016 ; 2017 ; 2018）や先行事業「沿岸部処分システム高度化開発」（産業技術総合研究所ほか, 2017 ; 2018 ; 2019）で開始した浸漬試験を継続し、長期腐食データを取得する。また、複合的な要因（地下水中成分の組合せ等）の関与する環境での応力腐食割れや局部腐食挙動等に関するデータをより広範な条件（電位、濃度との組合せ等）で取得し、腐食への環境条件の影響に関する知見を拡充する。得られた腐食データを活用し、既往の評価モデルの適用性の確認を行うとともに、適宜評価モデルの高度化を進める。なお、広範な環境条件における浸漬試験は、一部の試験条件において現時点で最長 10 年の試験期間としており、次期フェーズ後半に浸漬期間 10 年までの腐食データを取得する見込みである。

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より発現するため、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;2020）。

令和 2 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, 2016）。

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、圧縮ベントナイト中での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, 2013b）。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 31 年度までの調査においては、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と、ナチュラルアナログ事例に関する調査として、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（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；2020）。その結果、EPMA 観察、μ-XRD 分析、TEM 観察などを実施したものの、いずれの試料についてもモンモリロナイトの変質は観察されなかった。また、学術論文などについての文献調査を実施した結果、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。令和 2 年度の調査においては、金属鉄との接触期間がより長期であるナチュラルアナログ事例の試料を対象として調査を進めることとした。対象とした試料は、弥生時代から江戸時代の遺跡より出土した鉄遺物製品とした。これらの鉄遺物は、本調査における評価対象であるベントナイトと接触していた試料ではないものの、長期にわたって土壌と接触していた遺物である。そのため、土壌の変質状態を観察することにより、金属鉄が変質した際に、長期にわたって周辺に及ぼす影響を評価することが可能であると考えられる。令和 2 年度の調査においては、光学顕微鏡観察、X 線 CT 分析、微小部蛍光X線分析、顕微ラマン分光分析、走査型電子顕微鏡分析、透過型電子顕微鏡分析により、鉄遺物の変質環境の推定と、生成している鉱物などの同定を行った。

(2) 実施内容

1) 研究対象試料

対象とした試料は、福岡県福岡市の比恵（ひえ）遺跡から出土した板状鉄製品 2 点、同市の博多遺跡から出土した釘などの鉄製品 5 点、奈良県奈良市の平城京遺跡から出土した袋状鉄斧 1 点である。比恵遺跡及び博多遺跡の試料は土壌粒子を含有する腐食生成物が付着した状態の鉄製品、平城京遺跡の試料は袋状鉄斧表面からはく離した土壌粒子を含有する腐食生成物層片である。表 2.3-1、図 2.3-1、図 2.3-2 及び図 2.3-3 に研究対象試料のリスト及び試料の外観を示す。なお、比恵遺跡及び博多遺跡の試料は、いずれも福岡市埋蔵文化財センターの所蔵品である。

表 2.3-1　研究対象試料

試料番号	鉄製品名	遺跡名	時代	関連資料
HIE057	板状鉄製品	比恵遺跡	弥生中期後半～中期末	福岡市教育委員会（1997）
HIE125	板状鉄製品	比恵遺跡	弥生中期末～後期初頭	福岡市教育委員会（2014）
9505_21671	不明	博多遺跡	17～18 世紀	福岡市教育委員会（1998）
0642_15552	釘	博多遺跡	12～13 世紀	福岡市教育委員会（2008）
0642_15622_1	釘	博多遺跡	12～13 世紀	福岡市教育委員会（2008）
0642_15622_2	釘	博多遺跡	12～13 世紀	福岡市教育委員会（2008）
1221_60153	鉄板	博多遺跡	17 世紀以降	福岡市教育委員会（2015）
5849 剥離片	袋状鉄斧	平城京遺跡	奈良時代	奈良文化財研究所（2012）

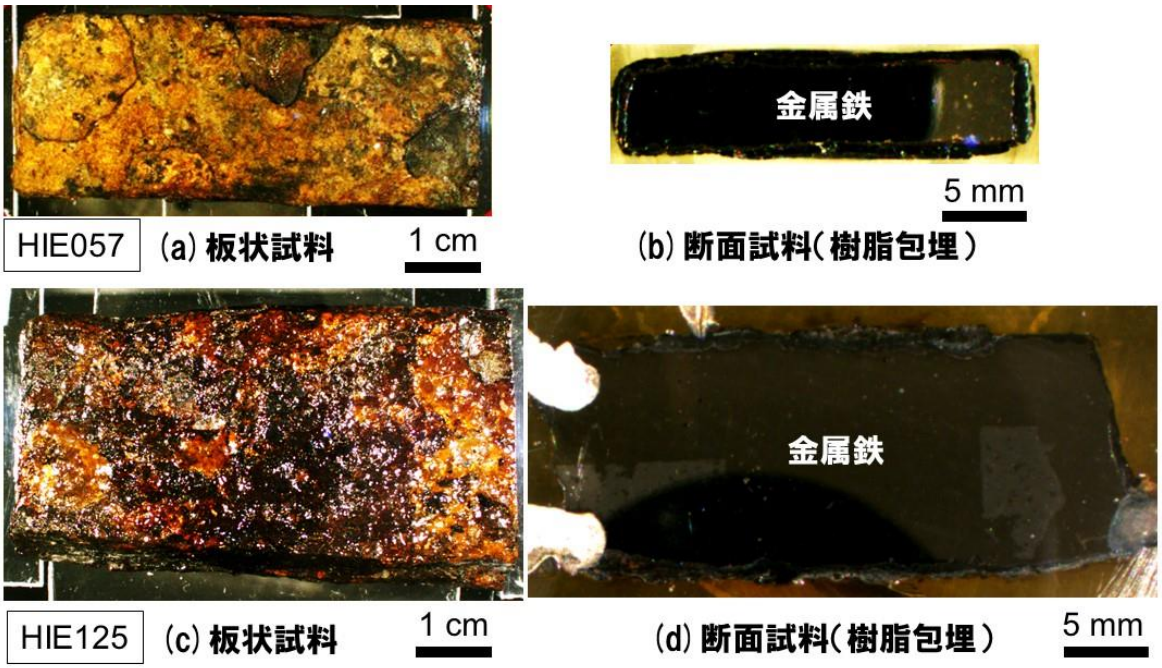


図 2.3-1　比恵遺跡出土鉄製品（福岡市埋蔵文化財センター所蔵品）
(a)HIE057 板状試料、(b)HIE057 断面試料、(c)HIE125 板状試料、(d)HIE125 断面試料
（右の断面試料は金属鉄が露出しており、1～2 mm 厚程度の腐食生成物層が
外周部に確認できる）

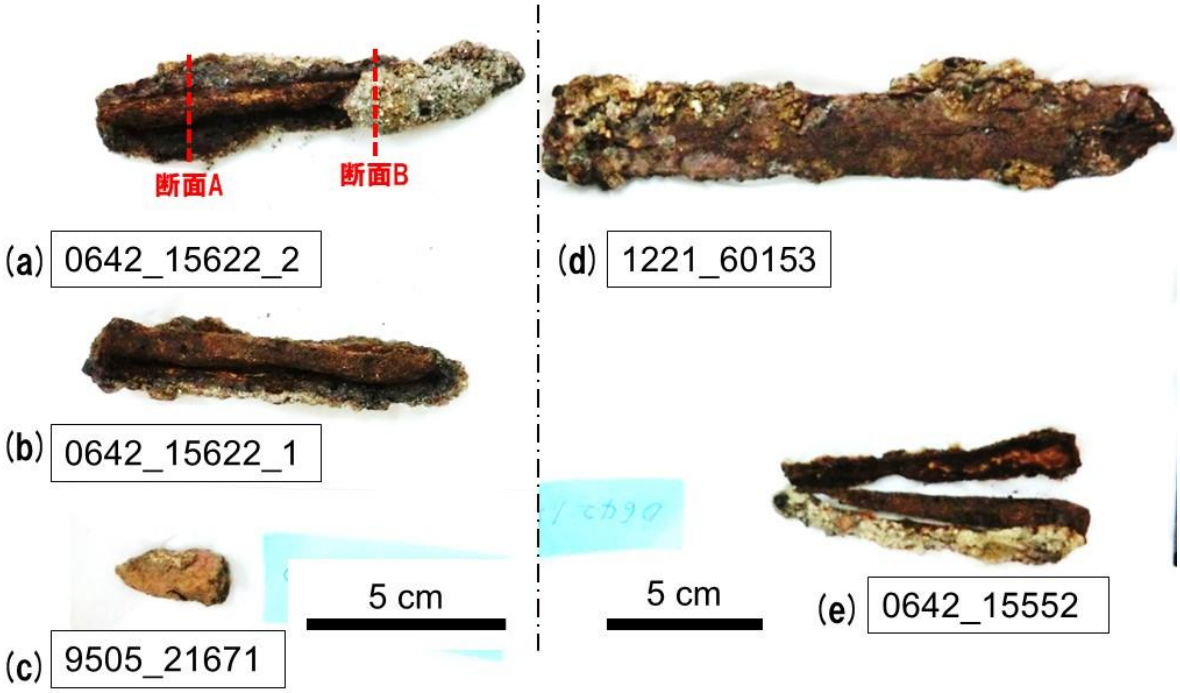


図 2.3-2　博多遺跡出土鉄製品（福岡市埋蔵文化財センター所蔵品）
(a)0642_15622_2、(b)0642_15622_1、(c)9505_21671、(d)1221_60153、(e)0642_15552
（福岡市埋蔵文化財センターが実施した透過 X 線分析により金属鉄の存在が確認されている）

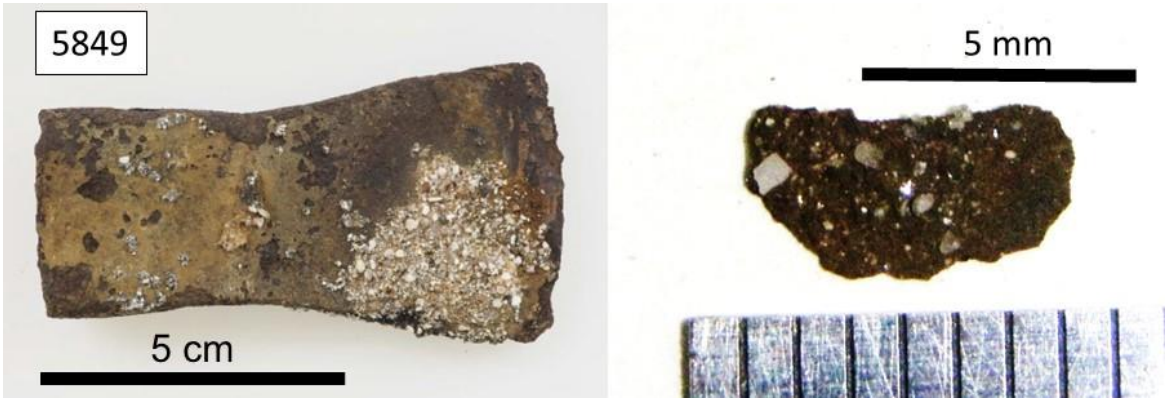


図 2.3-3　平城京遺跡出土鉄製品（奈良文化財研究所所蔵品）（左）と鉄製品表面から
はく離した腐食生成物層片（右）
（奈良文化財研究所が実施した X 線 CT 分析により鉄斧内部に
金属鉄の残存が確認されている）

2) 分析方法

① 光学顕微鏡観察

HIE057 及び HIE125 の断面試料、0642_15622_2 から作製した断面試料（図 2.3-2 の断面 A 付近）、5849 剥離片から作製した断面試料のそれぞれについて、光学顕微鏡（Leica DM2500）を用いて腐食生成物層の観察を行った。光学系は同軸落射照明方式とした。HIE057 及び HIE125 の断面試料については、金属鉄を除く領域を観察の対象とした。

② X 線 CT 分析

博多遺跡出土製品 5 点それぞれについて、土壌の被覆状態及び土壌の密度分布を把握するため、医療用 X 線 CT 装置（キヤノンメディカルシステムズ株式会社製 Alexion TSX-033A）を用いた分析を実施した。測定条件は、管電圧 135 kV、管電流 100 mA、スキャン時間 1 秒、スライス厚 1 mm、画像画素数 512×512 である。

③ 微小部蛍光 X 線分析

HIE057 及び HIE125 の板状試料、断面試料のそれぞれについて、腐食生成物層内のケイ酸塩鉱物の分布状態を把握するため、微小部 X 線分析装置（株式会社堀場製作所製 XGT-9000）を用いた蛍光 X 線元素マッピングを行った。まず、管電圧 15 kV、管電流 550 μA、X 線照射径 100 μm の条件で試料全体の分析を行って Si などの分布箇所を把握したのち、管電圧 15 kV、管電流 1,000 μA、X 線照射径 10 μm で Si などが検出された箇所を対象に詳細分析を行った。分析はいずれも真空条件とした。

④ 顕微ラマン分光分析

HIE057 及び HIE125 の断面試料について、微小部蛍光 X 線分析によって確認された Si などの分布箇所を対象に顕微ラマン分光装置（Thermo Fisher Scientific 社製 DXR2）を用いた分析を行い、ケイ酸塩鉱物の変質の有無を確認した。また、HIE057 及び HIE125 の断面試料、0642_15622_2 から作製した断面試料、5842 剥離片から作製した断面試料のそれぞれについて、腐食生成物層内の腐食生成物を同定するため、同装置を用いた分析を行った。測定条件については、対物レンズは 10 倍または 50 倍、励起レーザーは 532 nm、グレーティングは 532 nm 用、スリットは 50 μm とした。腐食生成物の変質を防止するため、照射出力は 1.0 mW 以下とした。スペクトルの解析には CrystalSleuth（Laetsch and Downs, 2006）を用いた。

⑤ 走査型電子顕微鏡分析

0642_15622_2 から作製した断面試料（図 2.3-2 の断面 A 付近）、5842 剥離片から作製した断面試料のそれぞれについて、腐食生成物層内のケイ酸塩鉱物の分布状態を把握するため、走査型電子顕微鏡（日立ハイテクノロジーズ製 SU3500II）を用い、加速電圧 15 kV にて反射電子像の撮影及びエネルギー分散型 X 線分光（EDS）による組成分析（マッピング分析）を実施した。

⑥ 透過型電子顕微鏡分析

0642_15622_2 から作製した断面試料、5842 剥離片から作製した断面試料のそれぞれについて、走査型電子顕微鏡分析によって Si などの分布が確認された箇所を対象に、集束イオンビーム（FIB）装置（日立ハイテクサイエンス製 MI4050）及び冷却装置（Gatan 社製窒素冷却モジュール C1001）を用いて薄膜切片試料を作製した。作成した薄膜切片試料について、透過型電子顕微鏡（日本電子製 JEM-F200 及び JEM-2100）を用いた分析を行い、ケイ酸塩鉱物の変質の有無を確認した。薄膜切片試料作製時の加速電圧は 30 kV、ステージ温度は約-100°C である。また、TEM 分析時の加速電圧は 200 kV、取得データは明視野像、電子回折像、元素組成（マッピング分析、点分析、線分析）である。

3) 分析結果

① 比恵遺跡出土鉄製品

(a) 光学顕微鏡観察

HIE057 及び HIE125 の断面試料の光学顕微鏡写真を、それぞれ図 2.3-4(a)及び図 2.3-4(b)に示す。図中の黄色枠で示した範囲は、顕微ラマン分光装置で分析したエリアである。いずれの試料も 1～2 mm 程度の幅の腐食生成物層が周縁部に存在する。腐食生成物層は遺物形状に沿った層状の構造を示すが、HIE057 に比べて HIE125 の層状の構造はやや不明瞭である。また、HIE057 は、金属鉄面に対して垂直方向のクラックが腐食生成物層内に観察される。

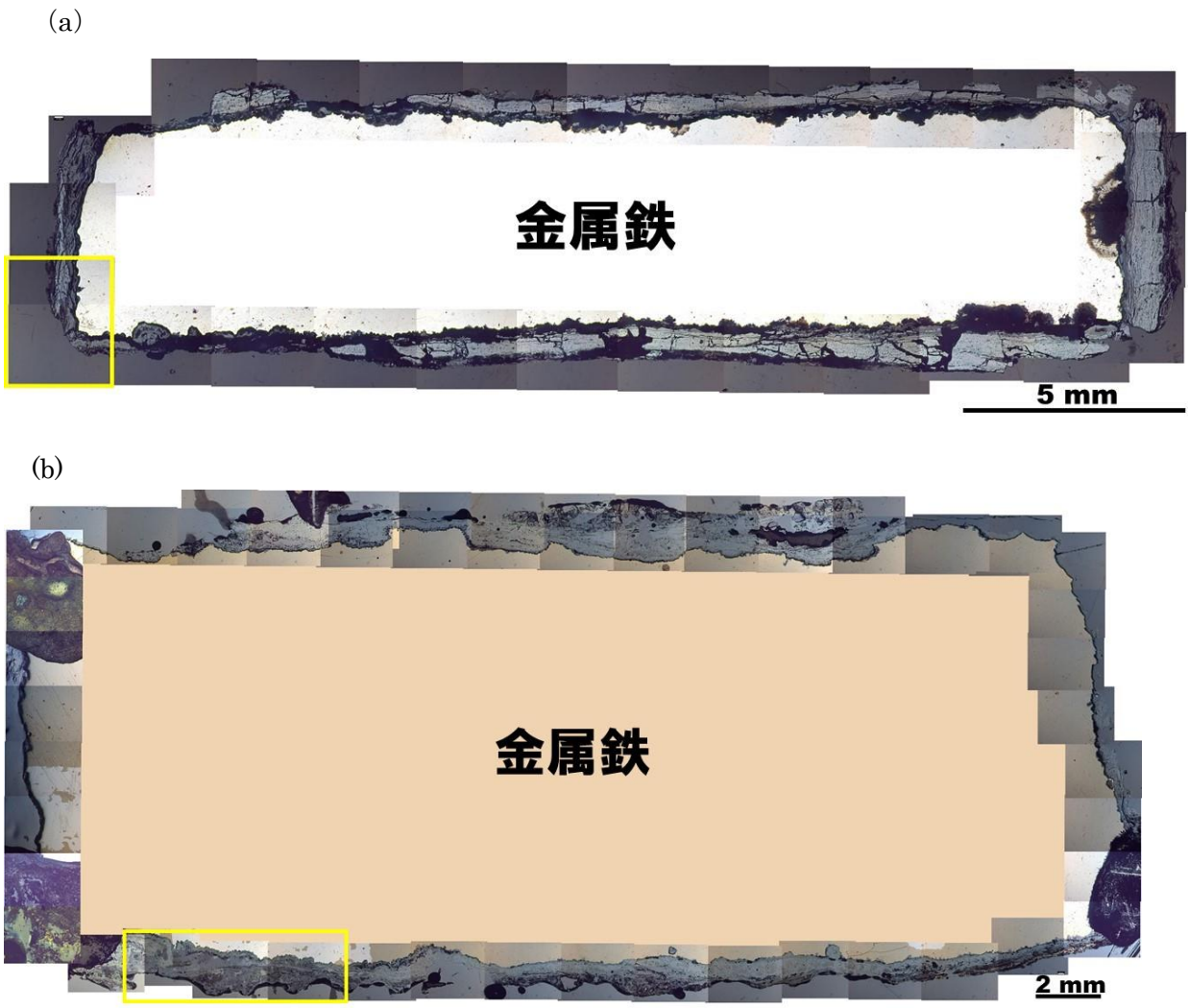


図 2.3-4　比恵遺跡出土鉄製品断面試料の光学顕微鏡写真
(a)HIE057、(b)HIE125
（黄色枠は顕微ラマン分析エリア）

(b) 微小部蛍光 X 線分析

HIE057 及び HIE125 の断面試料の微小部蛍光 X 線分析による元素マッピング分析結果（Fe、Si、Al）を図 2.3-5 に示す。どちらの試料についても、金属鉄断面の周辺部に Si 及び Al が検出されている箇所が確認できる。この部分は、鉄腐食生成物層内に含まれている土壌成分と推測される。

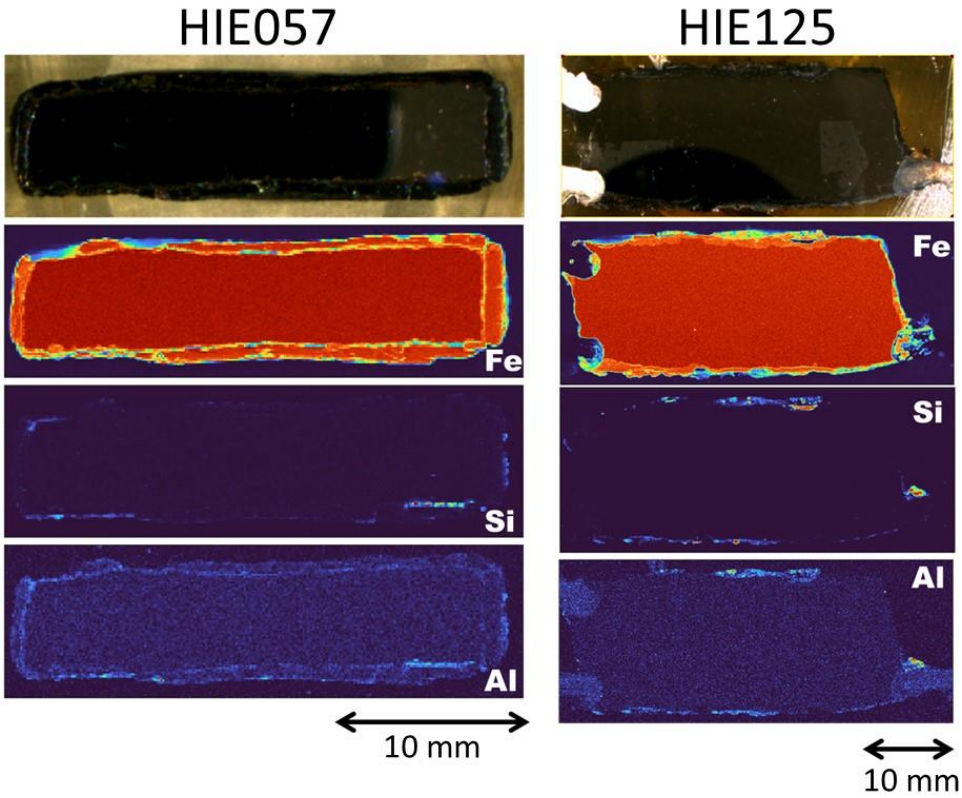
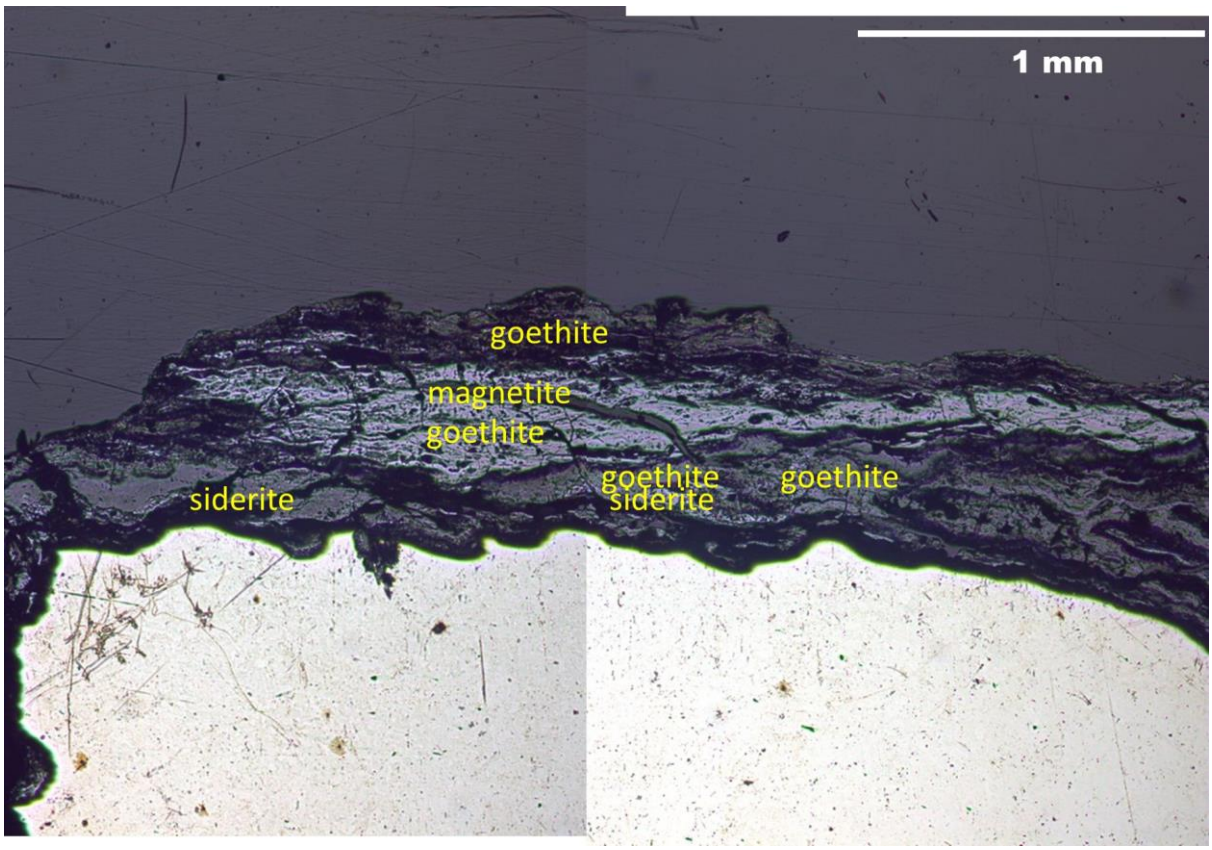


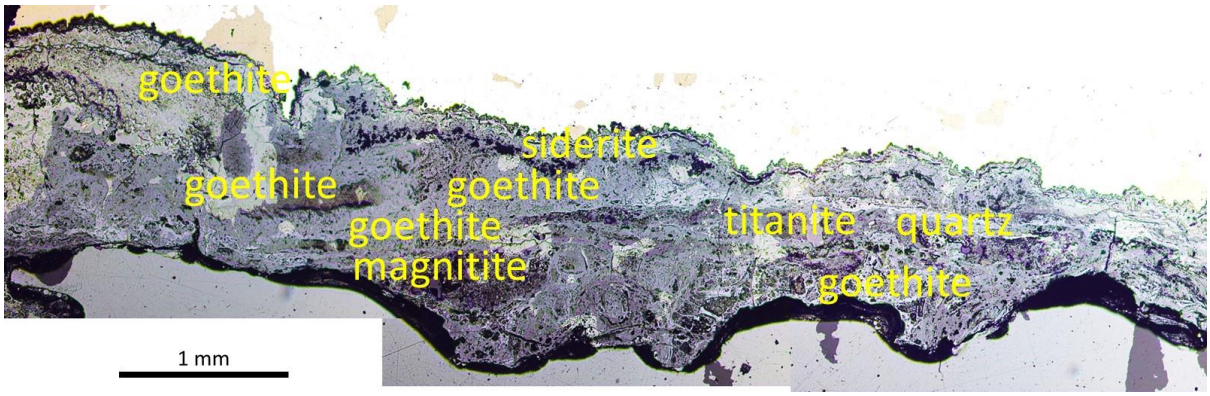
図 2.3-5　比恵遺跡出土鉄製品断面試料の微小部蛍光 X 線分析による元素マッピング分析結果

(c) 顕微ラマン分光分析

(b)で実施した微小部蛍光 X 線分析において、土壌成分である Si、Al が検出された場所などについて、顕微ラマン分光分析により含有鉱物の推定を行った。図 2.3-6(a)に HIE057 断面試料の顕微ラマン分光分析結果を、図 2.3-6(b)に HIE125 断面試料の結果を示す。顕微ラマン分光分析は、HIE057 試料については 5 箇所、HIE125 試料については 3 箇所実施した。図 2.3-6(a)及び図 2.3-6(b)には、分析を行った箇所のうち代表的な 1 箇所について示した。顕微ラマン分光分析の結果より、鉄遺物表面の腐食生成物は、シデライト、マグネタイト、ゲータイトが含まれていることが確認された。シデライト及びマグネタイトは低酸素環境で生成する腐食生成物であるのに対し、ゲータイトは酸化性環境で生成する腐食生成物である。この結果は、本鉄遺物周囲の腐食生成物層には、酸化性環境で腐食した領域と、低酸素環境で腐食した領域が存在することを示唆している。一方、土壌成分としては石英などが確認されている。



(a) HIE057（分析エリアの位置は図 2.3-4(a)参照）



(b) HIE125（分析エリアの位置は図 2.3-4(b)参照）

図 2.3-6　比恵遺跡出土鉄製品断面試料の顕微ラマン分光分析結果

② 博多遺跡出土鉄製品

(a) X 線 CT 分析

図 2.3-7 に、博多遺跡出土鉄製品の X 線 CT 画像を示す。左側の三次元画像は、輝度が高いほど高密度の領域であることを示す。右側の密度分布画像は暖色部分が高密度の領域であり、赤色の領域は金属鉄である。9505_21671 は付着している土壌が薄く、画像では土壌領域を識別できない。0642_15622_1 は土壌部分のみの画像である。その他の試料については、鉄製品と土壌部分の間に空間が認められる。密度分布に着目すると、9505_21671 を除く試料では、鉄近傍で高

密度化しており、鉄腐食生成物の沈殿によるセメンテーションが生じていることが確認できる。図 2.3-8 には、0642_15622_2 の断面 A 及び断面 B（図 2.3-2 参照）の密度分布を示す。図 2.3-8 の画像においても、鉄近傍で高密度化した領域が確認できる。

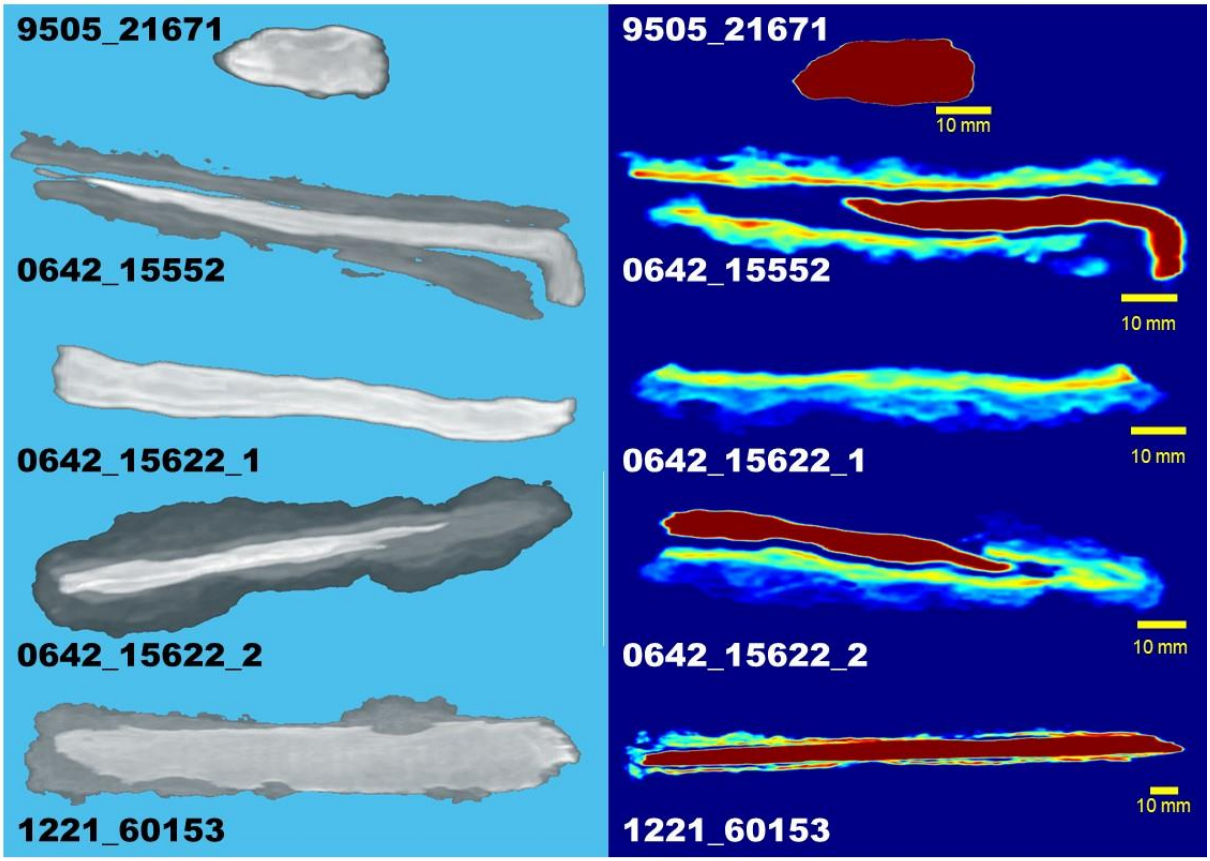


図 2.3-7　博多遺跡出土鉄製品の X 線 CT 画像（左：三次元表示、右：長軸断面の密度分布）

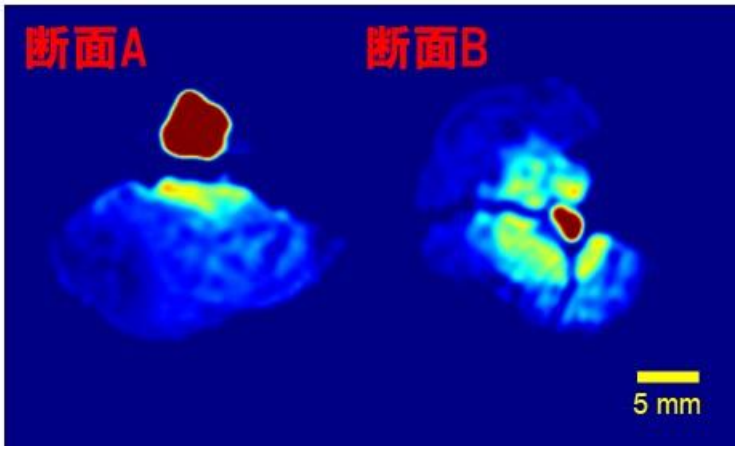


図 2.3-8　博多遺跡出土鉄製品（0642_15622_2）の X 線 CT 画像（密度分布）

(b) 光学顕微鏡観察

図 2.3-9 に 0642_15622_2 から作製した断面試料（断面 A 付近）のマクロ写真を示す。左側から金属鉄、空間、黄褐色の領域、黒色の領域、茶褐色の領域が観察される。茶褐色の領域には径

数ミリ程度の石英などの土壌粒子が認められるが、黄褐色の領域及び黒色の領域には土壌粒子は認められない。黒色の領域は図 2.3-8 の断面 A における黄色から黄緑色の領域に対応する。図 2.3-10 はマクロ写真の黄色枠のエリアの光学顕微鏡写真である。茶褐色の領域に対応する部分のみ土壌粒子が認められる。

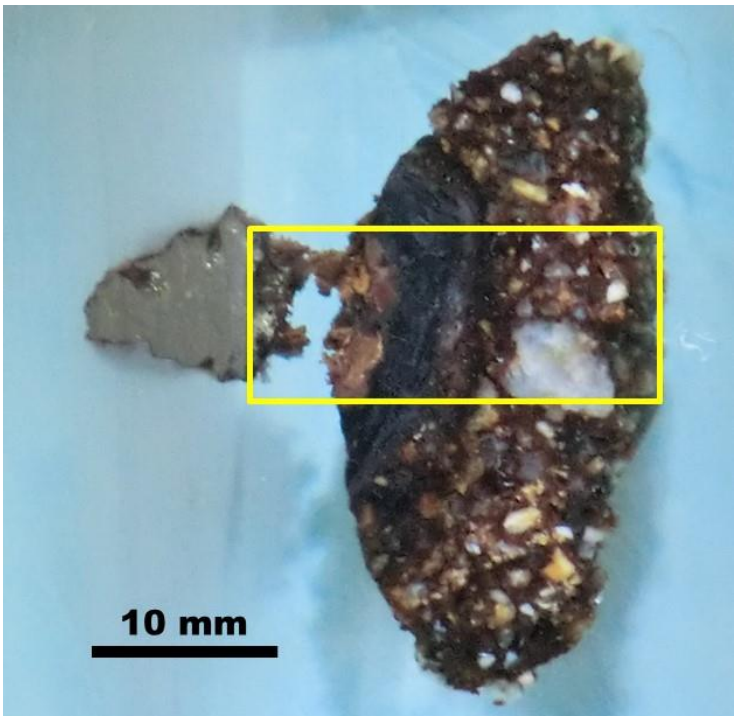


図 2.3-9　博多遺跡出土鉄製品（0642_15622_2）の断面試料のマクロ写真

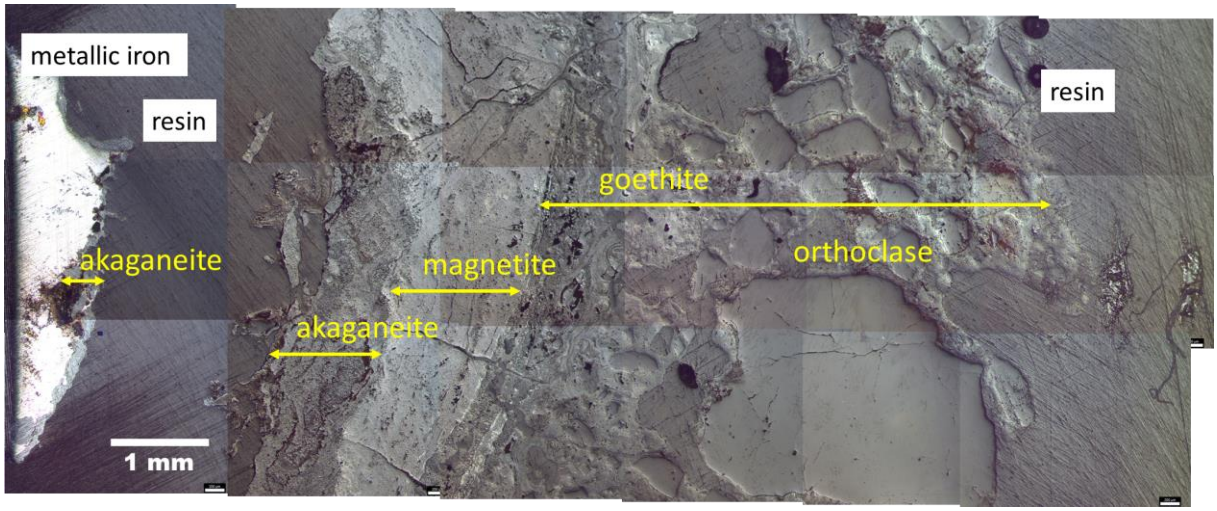


図 2.3-10　博多遺跡出土鉄製品（0642_15622_2）の光学顕微鏡写真（図 2.3-9 の黄色枠部分）

(c) 顕微ラマン分光分析

光学顕微鏡写真で示す部分について顕微ラマン分光分析を行い、含有鉱物の推定を行った。その結果を、図 2.3-10 の光学顕微鏡写真に合わせて示す。分析の結果、金属鉄に近い領域からアカガネイト、マグネタイト、ゲータイトの順に層状の構造を形成していることが確認できる。本試料中にも、アカガネイトとゲータイトの存在により示唆される酸化性環境で腐食した領域と、マ

グネタイトの存在により示唆される低酸素環境で腐食したと領域が存在している。土壌成分については、正長石の粒子が含まれていることが確認できる。

(d) 走査型電子顕微鏡分析

図 2.3-11 に、走査型電子顕微鏡（SEM）による観察・分析を行った試料の光学顕微鏡写真を示す。この試料は、図 2.3-9 に光学顕微鏡写真を示す試料の近傍に位置しており、その断面を加工・調製し、観察用試料としたものである。試料全体は図 2.3-11 左上の写真に示す形状をしており、その写真内の白枠部分について拡大したものが、図 2.3-11 右に示す写真である。SEM による観察・分析は、図 2.3-11 右に示す同軸落射照明像の赤枠範囲を対象に実施した。

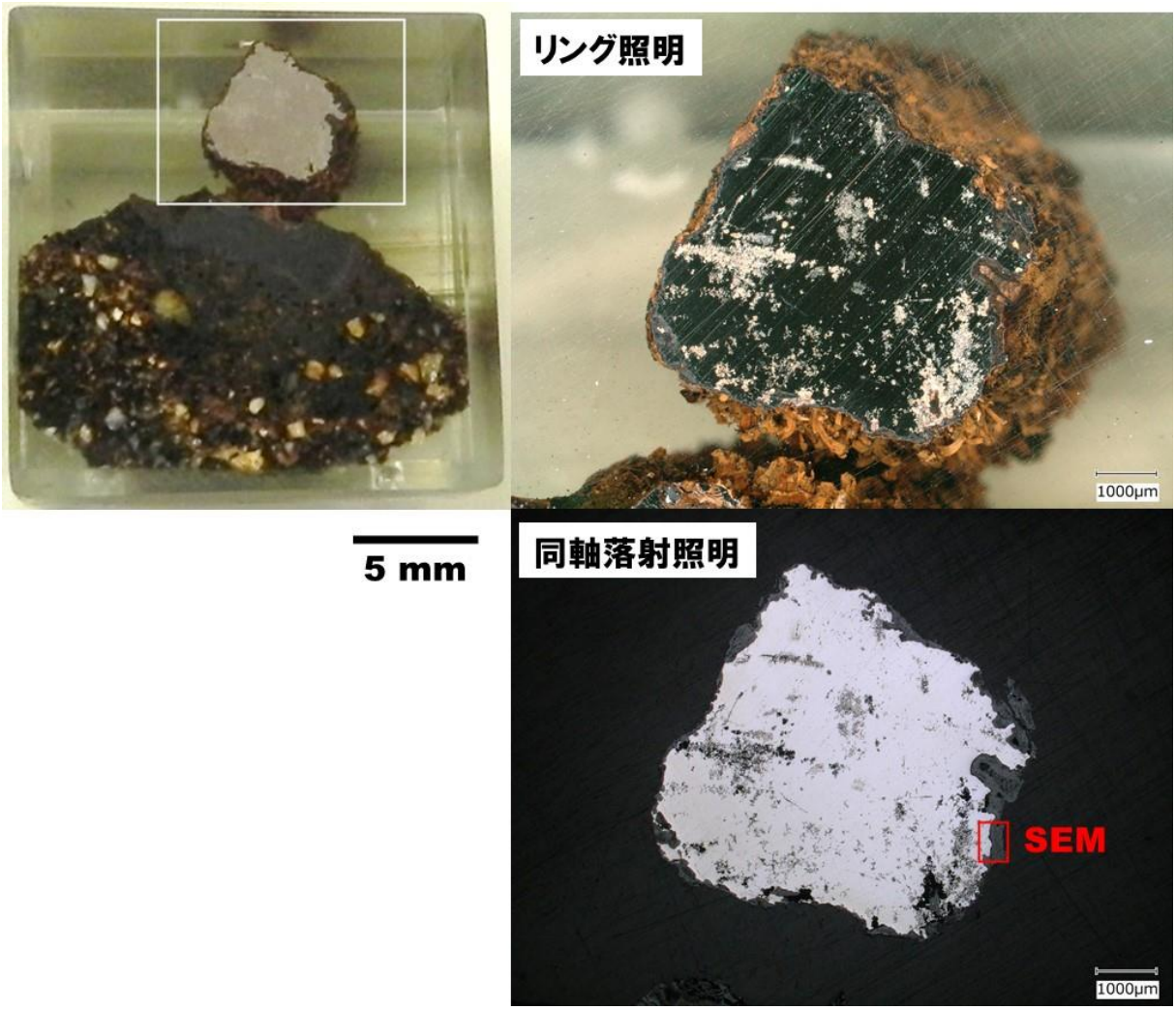


図 2.3-11　博多遺跡出土鉄製品（0642_15622_2）の SEM 観察・分析箇所（赤枠部分）

図 2.3-12 に、SEM 観察により取得した反射電子像（BSE）と、EDS による元素マッピング結果を示す。反射電子像内の輝度の高い白い領域は金属鉄、灰色の領域は腐食生成物層である。腐食生成物層内には、Si や Al の濃度の高い部分が存在し、この部分はケイ酸塩鉱物と推測される。また、Cl が検出されている領域は、腐食生成物としてアカガネイトが存在する領域に対応すると考えられる。

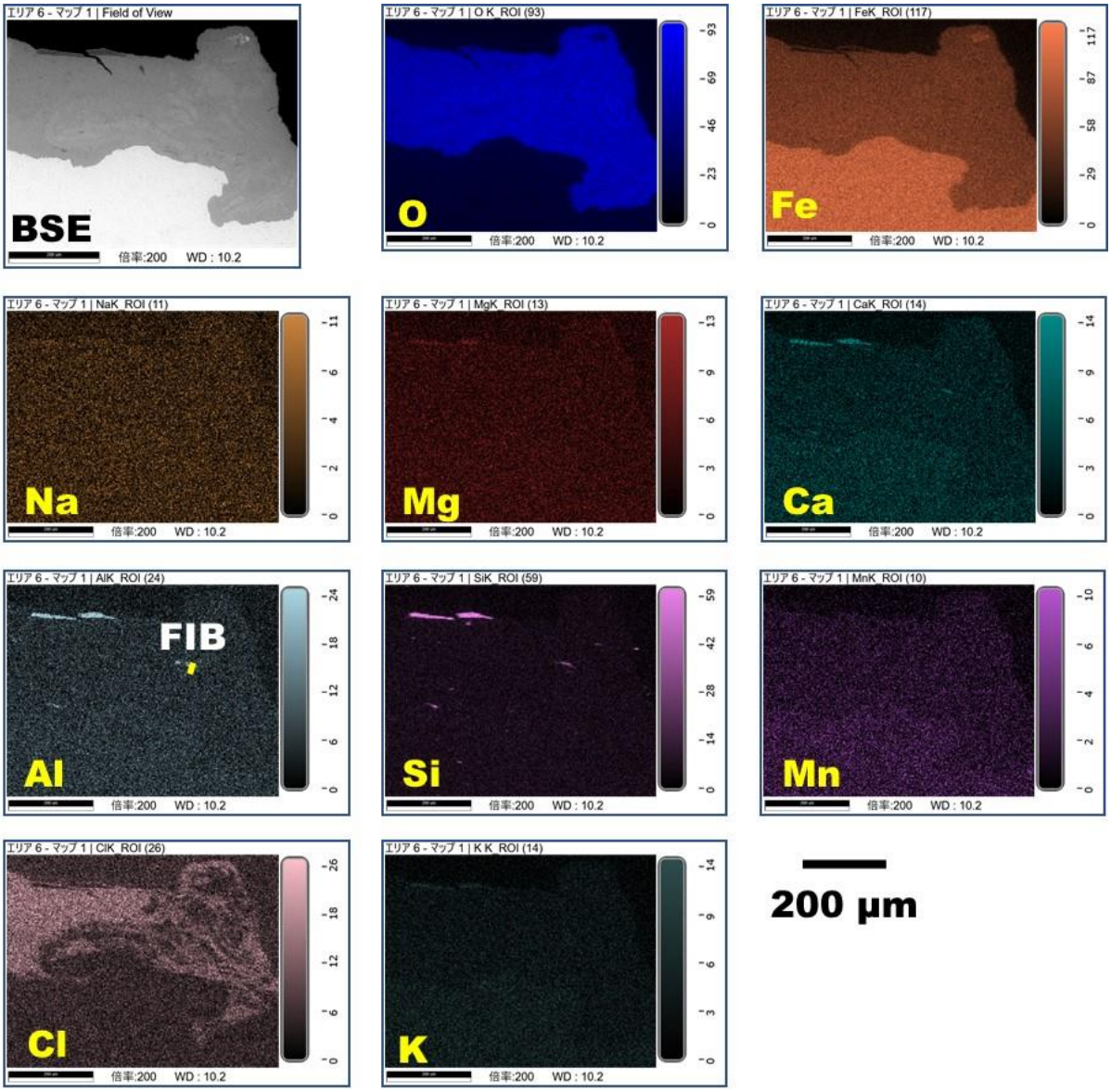


図 2.3-12　博多遺跡出土鉄製品（0642_15622_2）の SEM 分析結果

(e) 透過型電子顕微鏡観察・分析

(d)の SEM 観察・分析を行った試料より、FIB 装置を用いて薄膜切片試料を作製し、透過型電子顕微鏡（TEM）観察に供した。薄膜切片試料を採取した部分は、図 2.3-12 中の Al マッピング像に示す黄色線の箇所（FIB と記載）である。この部分は、鉄腐食生成物中に取り込まれたケイ酸塩鉱物を含む箇所である。図 2.3-13 及び図 2.3-14 に、TEM 分析の結果を示す。図 2.3-13 に示す EDS マッピング結果の緑色（Fe）の領域は腐食生成物、赤色（Si）と水色（Al）の混在している領域はケイ酸塩鉱物と推測される部分である。図 2.3-14 の明視野像は、図 2.3-13 の明視野像の赤枠の領域の高倍画像であり、電子回折像と EDS 点分析結果は、この明視野像のうちケイ酸塩鉱物と考えられる部分（赤い点の箇所）を分析したものである。分析の結果、電子回折像はハローパターンを示しており、鉱物を特定することはできなかった。また、EDS 点分析では Si、Al、K、Ca、Fe が検出され、Fe を含有していることが確認された（Cu は切片用 Cu メッシュ由来である）。この粒子はアカガネイトと考えられる Cl を含有する鉄腐食生成物と接しているものの、この粒子に含まれる Fe が粒子の外側から侵入したものかどうかは現時点では不明である。

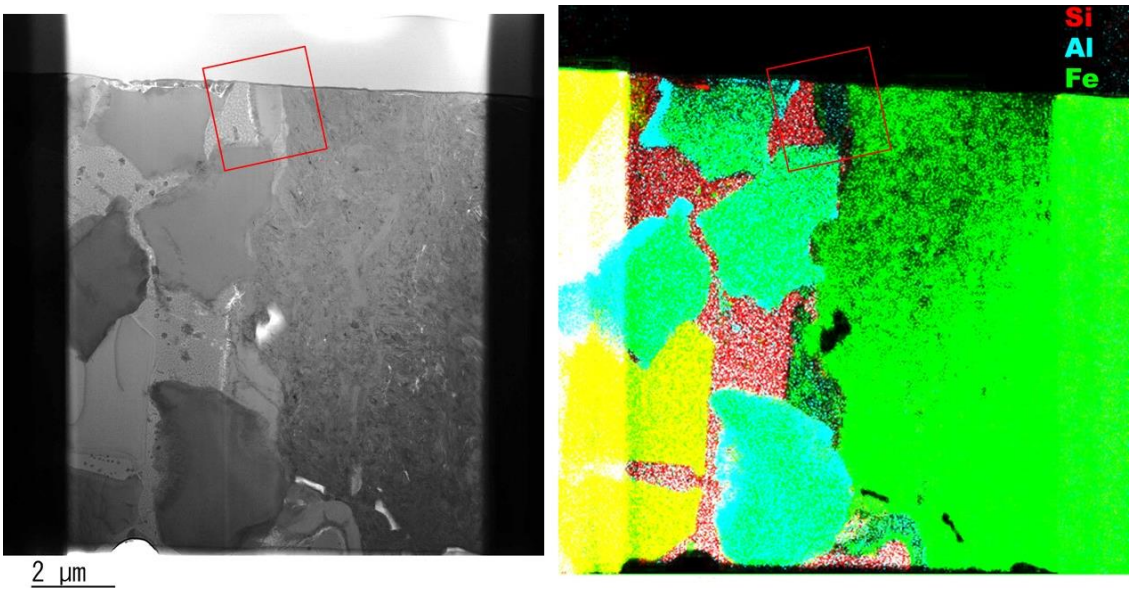


図 2.3-13　博多遺跡出土鉄製品（0642_15622_2）の低倍率 TEM 分析結果
（左：明視野像、右：EDS による Si、Al、Fe マッピング結果）

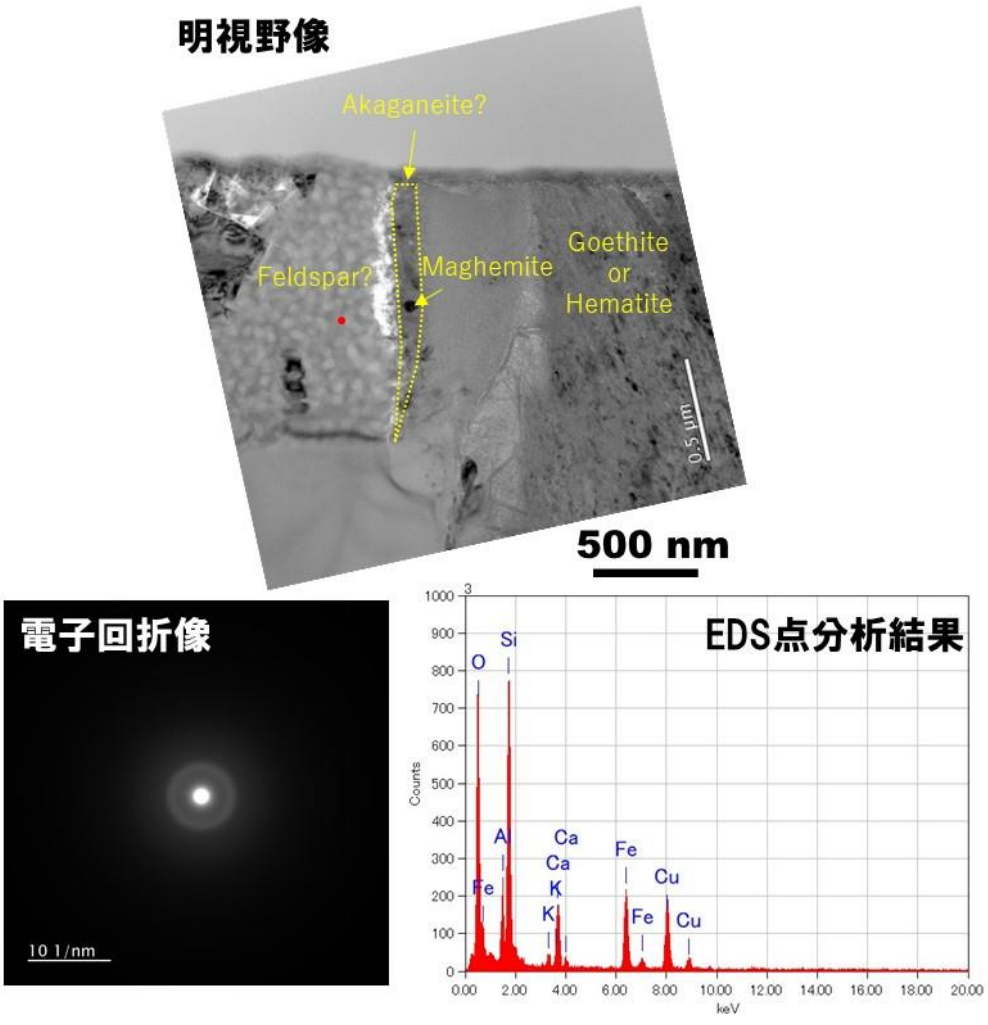


図 2.3-14　博多遺跡出土鉄製品（0642_15622_2）の高倍率 TEM 分析結果
（上：明視野像、左下：電子回折像、右下：EDS 点分析結果）

③ 平城京遺跡出土鉄製品

(a) 光学顕微鏡観察

図 2.3-15 に 5849 剥離片から作製した断面試料の光学顕微鏡写真を示す。下が鉄斧側、上が土壌側である。二層の構造が認められ、下から厚さ 100 µm 未満の土壌粒子を含まない層、厚さ 200～500 µm 程度の土壌粒子を含む層である。

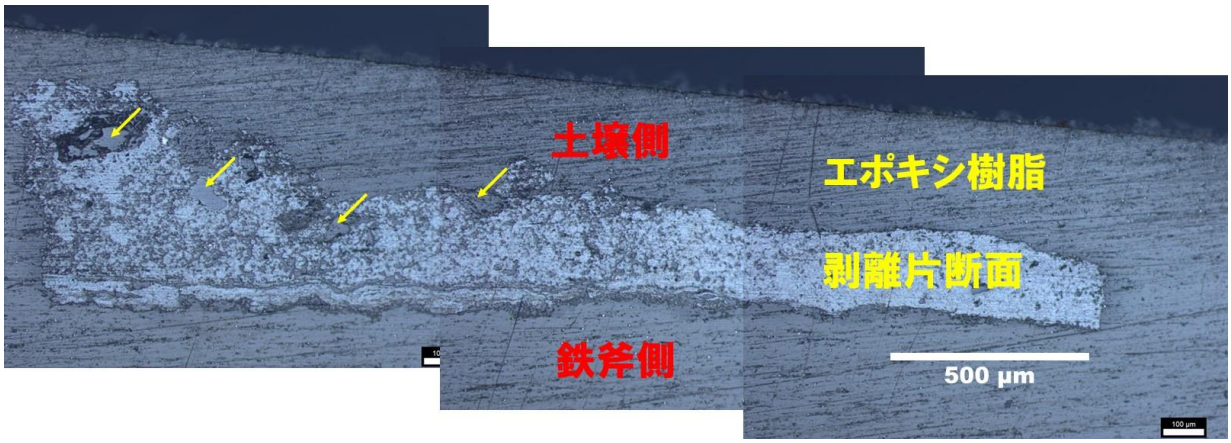


図 2.3-15　平城京遺跡出土鉄製品 5849 剥離片断面試料の光学顕微鏡写真（矢印部は土壌粒子）

(b) 顕微ラマン分光分析

図 2.3-16 に 5849 剥離片の顕微ラマン分光分析の結果を示す。試料中の鉄腐食生成物として、鉄斧に近い層及び上部の土壌粒子を含む層の両層においてシデライトが検出されており、低酸素環境で腐食したことが示唆される。また、試料中に含まれる土壌粒子として、正長石、石英、灰長石、グリュネル閃石が確認されている。

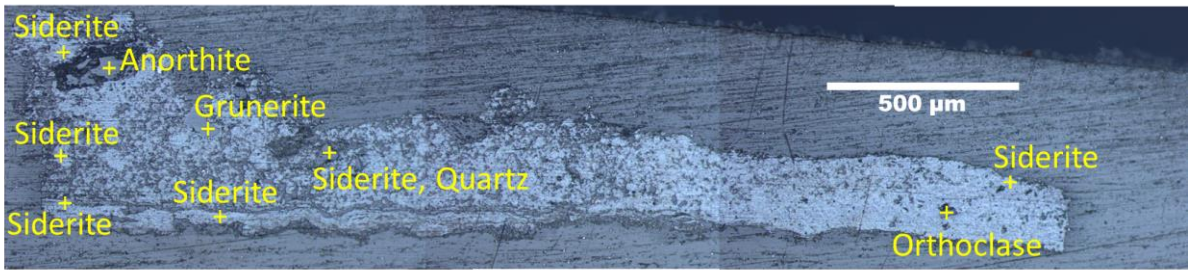


図 2.3-16　平城京遺跡出土鉄製品 5849 剥離片断面試料の顕微ラマン分光分析結果

(c) 走査型電子顕微鏡分析

走査型電子顕微鏡（SEM）による観察・分析は、図 2.3-17 に示す同軸落射照明像の赤枠範囲を対象に実施した。この試料は、図 2.3-15 の試料の近傍の断面を加工・調製し、試料としたものであり、下が鉄斧側、上が土壌側である。図 2.3-18 には、SEM 観察・分析により取得した反射電子像と EDS 分析結果を示した。腐食生成物層内には、Si や Al を含有するケイ酸塩鉱物と推測される部分が存在することが確認できる。

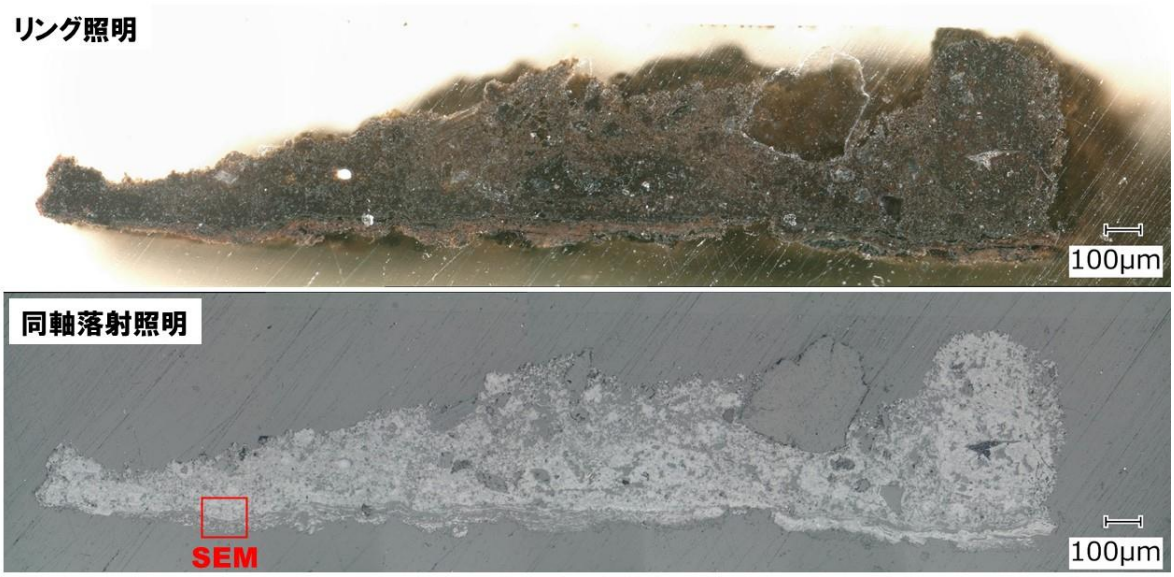


図 2.3-17　平城京遺跡出土鉄製品剥離片断面試料の SEM 観察・分析箇所（赤枠部分）

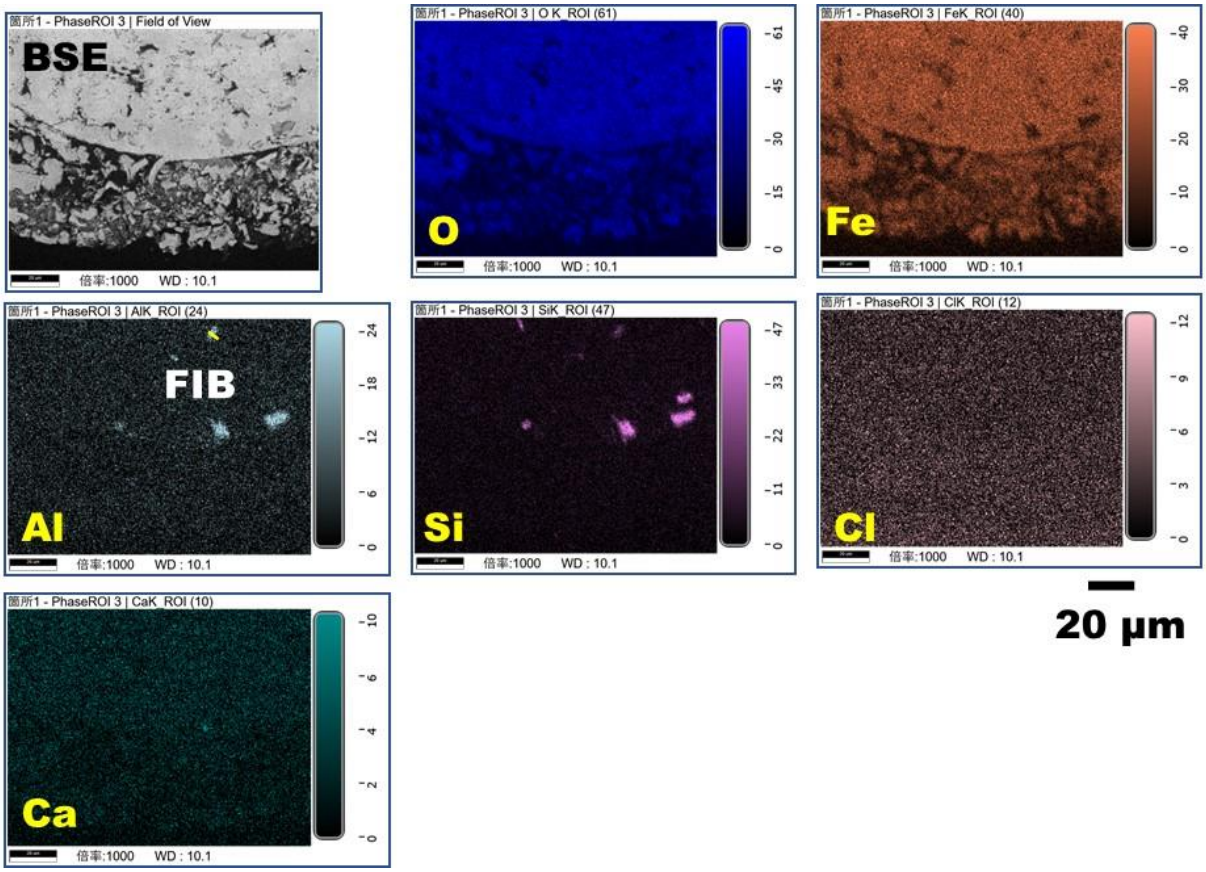


図 2.3-18　平城京遺跡出土鉄製品剥離片断面試料の SEM 分析結果

(d) 透過型電子顕微鏡分析

(c)の SEM 観察・分析を行った試料より、鉄腐食生成物中に取り込まれたケイ酸塩鉱物を含む箇所について、FIB 装置を用いて薄膜切片試料を作製し、透過型電子顕微鏡（TEM）観察に供した。薄膜切片試料を採取した部分は、図 2.3-18 中の Al マッピング像に示す黄色線の箇所（FIB

と記載）である。図 2.3-19 及び図 2.3-20 に TEM 分析結果を示す。図 2.3-19 の EDS マッピング像の緑色（Fe）の領域は腐食生成物、赤色の領域は Si と Al に富む領域であり、ケイ酸塩鉱物と推測される部分である。確認されたケイ酸塩鉱物を含む図 2.3-19 の明視野像の赤枠の領域について、TEM 分析を行った結果を図 2.3-20 に示す。図 2.3-20 の左上が図 2.3-19 の赤枠の領域の高倍画像であり、その高倍画像中の赤枠をさらに拡大したものが図 2.3-20 右上の明視野像である。図 2.3-20 の左下に示す電子回折像は、右上の明視野像に赤色の点で示す箇所の分析結果、右下の EDS 線分析結果は、右上の明視野像の AB 間の分析結果である。

図 2.3-20 の左上及び右上の明視野像で確認されるように、ケイ酸塩鉱物の内部に線状のパターンが見られ、伸長にへき開が認められる。また、図 2.3-20 左下の電子回折像は、d 値 9 Å に対応する間隔で直線的に配列する回折スポットが観察され、この特徴から層状ケイ酸塩鉱物であることが示唆される。図 2.3-20 右下の EDS 線分析結果によると、へき開の認められる幅 50 nm の範囲（赤点線の範囲）では Fe 濃度は低く、その両側のそれぞれ 50 nm 程度の範囲に Si、Al、Fe が混合している領域が存在する。これは、層状ケイ酸塩鉱物の外周部には Fe の影響を受けた領域が存在するものの、その内部は Fe の影響を受けておらず、元のケイ酸塩鉱物から変化していないことを示唆する結果である。この結果は、金属鉄遺物の腐食により、周囲の土壌中に含まれるケイ酸塩鉱物が変質したことを示していると考えられる。

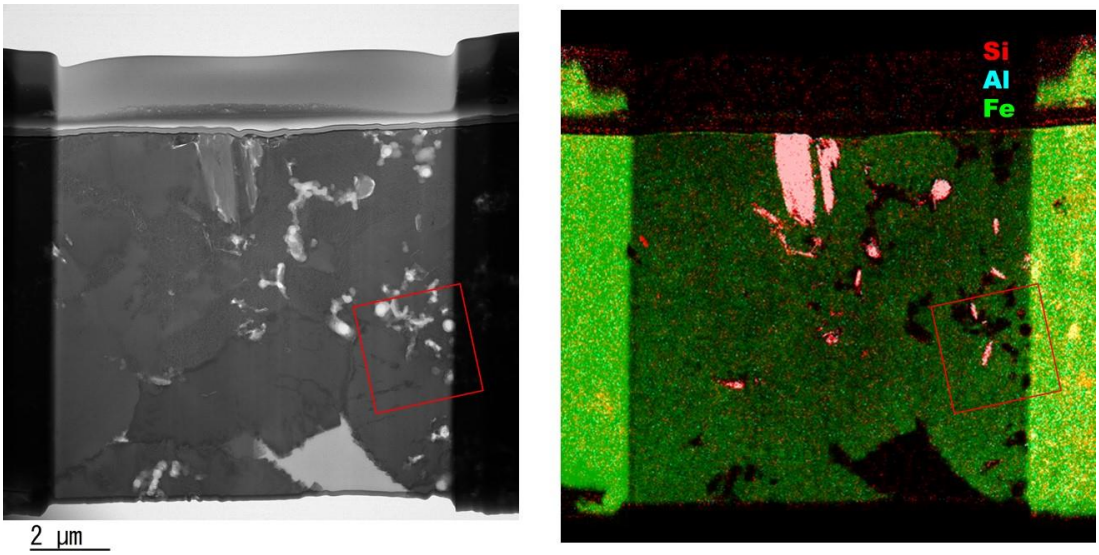


図 2.3-19　平城京遺跡出土鉄製品剥離片断面試料の低倍率 TEM 分析結果
（左：明視野像、右：EDS による Si、Al、Fe マッピング結果）

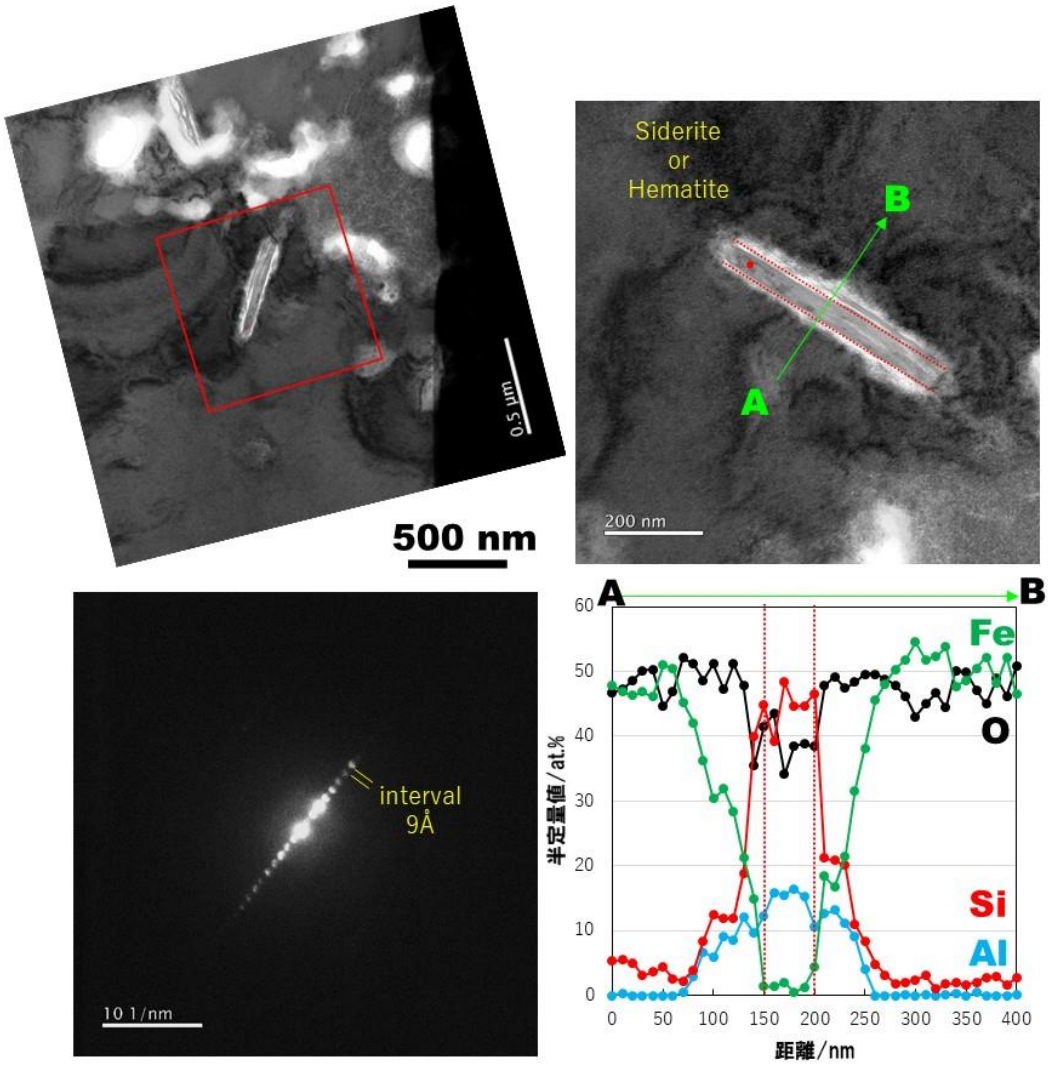


図 2.3-20　平城京遺跡出土鉄製品剥離片断面試料の高倍率 TEM 分析結果
（左上＆右上：明視野像、左下：電子回折像、右下：EDS 線分析結果）

4) 腐食生成物によるセメンテーションについて

いずれの試料においても、腐食生成物が石英などの土壌由来の鉱物を混入して生成している状態が観察された。このような領域は土壌中から出土した考古学的鉄製品で観察されている（Bellot-Gurlet et al., 2009；松井, 2009；Neff et al., 2010）。Bellot-Gurlet et al.（2009）の整理では、埋蔵環境への酸素の影響の程度が大きい場合、ゲータイトが土壌由来の鉱物の間隙を充填する状態で沈殿する傾向がある。博多遺跡出土鉄製品（0642_15622_2）の場合は、土壌粒子の間隙を埋める形でゲータイトが生成し、X 線 CT 分析により高密度化していることが確認されており、酸素の影響が大きいケースに該当する。

次節 2.3.2 の(2)1)に示すように、ゲータイトなどの鉄水酸化物などによるセメンテーションは室内試験や原位置試験でも観察されている。Hadi et al.（2019）は、スイスのグリムゼル試験場で 18 年間実施された FEBEX 原位置試験のヒーター（ライナーは炭素鋼）と接触していた緩衝材を分析し、数 cm の幅でゲータイトを主な腐食生成物とする変色域が存在することを報告している。これは閉鎖系の試験ではなかったため、長期的に酸素の影響を受けたことが原因と考えられている。Hadi et al.（2019）は変色域のベントナイトの特性の変化を報告していな

いが、腐食生成物によるセメンテーションが生じたベントナイトは膨潤圧や透水性が変化する可能性があり、閉鎖後に処分環境に存在する酸素の影響によってどの程度の腐食生成物によるセメンテーションが生じうるか、またセメンテーションによりどのような特性が変化するのかを評価する必要があると考える。

5) アカガネイトについて

アカガネイト（β-FeOOH：赤金鉱）は塩素の存在する環境で生成する鉄水酸化鉱物であり、考古学的鉄製品においても観察される（Réguer et al., 2007；松井, 2009；柳田, 2018）。考古学的鉄製品の場合、埋蔵中に金属鉄と腐食生成物層の境界部に集積した塩化鉄（I）（$FeCl_2$）や塩基性塩化鉄（β-$Fe_2(OH)_3Cl$）が出土後の保管時に高湿度環境にさらされると潮解し、水膜を生成して腐食を引き起こす（Réguer et al., 2007；柳田, 2018）。この状態で腐食が進行するとアカガネイトが生成し、遺物の崩壊に進展する場合がある。アカガネイトは出土後に大気の影響を受けることで生成するという考えもあるが、金属鉄と腐食生成物層の間の酸素濃度によっては埋蔵された状態でも生成しうるとされている（Réguer et al., 2007）。博多遺跡出土鉄製品については、出土後大気雰囲気で保存されていた状態であったため、出土後に生成した可能性がある。

アカガネイトは、グリムゼル試験場で 18 年間実施された FEBEX 原位置試験（Hadi et al., 2019）やモンテリ岩盤研究所で 7 年間実施された鉄腐食試験（Necib et al., 2017）、フランスで 6 年間実施された室内試験（Schlegel et al., 2019）においても検出されている。Schlegel et al.（2019）は、アカガネイトが検出されたのは数か月の試験のみであり、その後の試験試料では検出されておらず、酸素の影響を受ける時期に観察される一時的な腐食生成物であるとしている。Schlegel et al.（2019）は 7 か月の試料以外では Cl の元素マッピングデータを示していないため、塩基性塩化鉄を含めて塩素の濃集が金属鉄と腐食生成物層の界面で生じていないのかは不明である。界面部における塩素の濃集が酸素の影響を受ける時期に限定されるのか、還元雰囲気においても濃集が持続し、オーバーパックや緩衝材に何らかの影響を及ぼしうるのか検討が必要と考える。

(3) これまでの成果と今後の課題

令和 2 年度の調査においては、金属鉄と土壌が長期間にわたって接触したナチュラルアナログ事例の試料として、弥生時代から江戸時代の遺跡より出土した鉄遺物に付着していた土壌の分析を行った。その結果、鉄遺物周辺に生成している鉄腐食生成物として、Fe の価数の異なる複数の鉱物が同定され、酸化性環境で腐食した領域と、低酸素環境で腐食した領域が存在することが確認された。一部の試料では、ゲータイトの沈殿による土壌のセメンテーションや金属鉄極近傍におけるアカガネイトの生成が確認された。また、鉄腐食生成物層内に包含されているケイ酸塩鉱物について分析を行った結果、鉱物粒子周辺部に Si、Al、Fe が混在し、金属鉄遺物の腐食反応によりケイ酸塩鉱物粒子が変質したと推測される領域が確認された。

平成 30 年度～令和 2 年度までの 3 か年の調査により、幌延深地層研究センターで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ベントナイト試料及び月布鉱山の支保工と接触していたベントナイト試料についてはいずれもモンモリロナイトの変質が認められないこと、考古学的鉄製品に付着していた土壌については腐食生成物によるセメンテーションが生じていることや一部のケイ酸塩鉱物粒子は鉄成分による変質が生じたと推測される領域が存在することが確認できた。

今後、これらのナチュラルアナログ試料などを対象とした詳細な分析の継続により、金属鉄の腐食が周辺環境に及ぼす影響や、それに伴う土壌中の鉱物の変質メカニズムなどを明らかにし、

処分環境で生じうる緩衝材の変質メカニズムの理解に資する知見を拡充するとともに、変質挙動評価モデルに組み込む必要のあるプロセスの抽出などを行う必要がある。

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・凝縮の過程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）を対象として、膨潤圧や透水係数などの基本特性の測定を行ってきた（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；2020）。セメンテーションの影響は粉砕などの処理により取り除くことができることが報告されており（伊藤ほか, 2017）、原鉱石との比較によりセメンテーションによる基本特性などへの影響を観察することができると考えられる。再構成試料の膨潤圧は、圧縮ベントナイトに対して取得されてきた経験式と同等の値を示すが、一部の原鉱石の膨潤圧は経験式よりも小さくなる傾向があり、有効モンモリロナイト密度が大きくなれば、その傾向が顕著にな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、本事業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、本事業の傾向と整合的であった。一方、透水係数は、原鉱石、再構成試料とも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。さらに、平成 31 年度は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を検討するため、29 番層の原鉱石と再構成試料を用いた標準圧密試験を開始し、セメンテーションにより剛性が高くなる可能性を示唆する成果を得た。また、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や、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。

令和 2 年度は、処分環境でどのようなセメンテーションが生じ、それが緩衝材の機能にどのような影響を及ぼしうるのかを把握するため、ベントナイトのセメンテーション及びケミカルエロージョンに関するナチュラルアナログ研究及び実験的研究による既存成果を調査するとともに、平成 31 年度より開始した電子顕微鏡などを用いた原鉱石のセメンテーション状態の観察、セメンテーションに関する実験的研究手法の検討を継続して実施した。また、標準圧密試験を平成 31 年度から継続して行い、試験後試料の乾燥密度測定などを行い、剛性への影響の理解を進めた。さらに、セメンテーションの原因物質の溶解などに伴うセメンテーション状態の経時的な変化を観察するため、原鉱石と再構成試料を対象とした複数年程度の長期の膨潤圧試験を開始した。

(2) 実施内容

1) ベントナイトのセメンテーションなどに関する既往研究成果の調査

① セメンテーション

ベントナイトの長期性能劣化として、ベントナイトの変質シナリオが議論されてきた（核燃料サイクル開発機構, 1999b；Laine and Karttunen, 2010；SKB, 2010；Leupin et al., 2014）。我が国においてもベントナイトの変質のシナリオとして、(1) スメクタイトのイオン型の変化、(2) スメクタイトの結晶化学的変化を伴う変化、(3) 鉱物学的な変化などにともなう圧縮状態での二次的な変化が挙げられ、それらの現象の発生要因や発生による緩衝材性能への影響については原子力安全研究協会（2003）によってまとめられている。本事業で対象としているセメンテーション（cementation）は、ベントナイトの変質シナリオの一つであり、上記（3）に該当する。

地質学・堆積学の分野では、軟らかい堆積物が長い時間をかけて硬い堆積岩に変化する作用を石化作用（lithification）、堆積物が石化作用の間に受ける物理的・化学的過程を続成作用（diagenesis）と呼び、セメンテーションは続成作用の化学的過程の一つとされている（都城・久城, 1972；青柳・下田, 1991；陶野, 1991）。堆積直後の堆積物は非常に軟らかく、これは堆積物を構成する固体粒子の間に間隙がたくさんあり、その間隙に水が入っていることによる。堆積物は、上に積み重なってくる堆積物により上載荷重が増加すると、粒子同士の間隔が詰まり、脱水する。これは続成作用の物理的過程であり、圧密（compaction）と呼ばれる。セメンテーションの過程では、既存の粒子の間隙に沈殿した新しい物質が粒子同士をつなぐことで堆積物は固結（consolidation）し、岩石へと変化する（都城・久城, 1972）。

ベントナイトは、火山活動により噴出した火山灰などの火山砕屑物が、海底などに堆積した後に続成作用や熱水変質作用などを経て生成したものであり、本事業の研究対象の一つである山形県月布鉱山のベントナイトの成因は続成作用とされている（小林・伊藤, 1992；伊藤ほか, 1999）。したがって、月布鉱山のベントナイト原鉱石はセメンテーションにより固結した粘土岩であるが、セメンテーションの影響は粉砕などの処理により取り除くことができることが報告されている（伊藤ほか, 2017）。

高レベル放射性廃棄物の地層処分では、ベントナイト原鉱石を粉砕などの処理をして得た製品を高密度に圧縮成型したものを緩衝材として利用することが考えられている（原子力発電環境整備機構, 2011）。上述の通り、緩衝材に用いられるベントナイトは粉砕などの処理によりセメンテーションの影響が除去されたものであるが、ガラス固化体からの熱の影響やオーバーパックとの相互作用など、処分環境で想定される様々な現象により再びセメンテーションすることが想定される。ベントナイトがセメンテーションした場合、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、すなわち負の影響を及ぼすことが懸念されているが（核燃料サイクル開発機構, 1999b）、ベントナイト構成粒子の間隙における沈殿の生成により閉塞（clogging）する場合は物質移行が抑制され、正の影響を及ぼすことも期待できる（Pusch, 1993；Yong et al., 2010）。しかしながら、ベントナイトの他の変質シナリオに比べ、セメンテーションそのものの生起条件や緩衝材の性能に与える影響（正・負どちらの影響も）の理解は十分ではない。

そこで、ここではベントナイトのセメンテーションに関する既往研究成果をレビューし、現状での理解や課題について整理する。ベントナイトのセメンテーションは、非晶質シリカなどのケイ酸の沈殿によるもの、硫酸塩や炭酸塩の沈殿によるもの、鉄水酸化物などの沈殿によるものなどに分類されることから、セメンテーションの種類で区分してまとめる。

(a) 高温の熱履歴によるシリカセメンテーション

高温条件におけるケイ酸の沈殿によるセメンテーション（シリカセメンテーション）は、随伴

鉱物の溶解、モンモリロナイトのイライト化やバイデライト化に伴って放出されたケイ酸が、モンモリロナイトのエッジ部分に沈殿することによって引き起こされるとされている（Gray, 1993；原子力安全研究協会, 2003；柴田ほか, 2004）。ケイ酸がエッジ部分に沈殿することでモンモリロナイトのシートが膠着し、層間の膨潤が妨げられることで、膨潤圧、透水係数、クリープ特性など、緩衝材の特性が変化すると考えられている。

このタイプのセメンテーションは、スウェーデンの Kinnekule 鉱床などの天然ベントナイト鉱床を対象としたナチュラルアナログの事例（Pusch and Madsen, 1995）、Stripa 国際プロジェクトとして実施された原位置緩衝材加熱試験（Pusch et al., 1992）、チェコで実施された実規模試験（鉄に富むモンモリロナイトを使用）（Pusch et al., 2007；2010）などにおいて確認されており、セメンテーションによる膨潤圧の低下や透水係数の増加が報告されている。

Wersin et al.（2007）は、既存のナチュラルアナログ研究結果と実験結果を調査し、110°C 未満では著しいセメンテーションが生じないこと、130°C 程度でわずかなセメンテーションが生じる可能性があること、150°C 程度で著しいセメンテーションが生じる可能性があることを報告している。また、日本原子力研究開発機構（2009）は、Wersin et al.（2007）の調査結果を参考に、高温の熱履歴がある緩衝材のデータを調査し、高温条件での緩衝材の変質に伴う特性の変化を図 2.3-21 のように整理している。この図により、150°C 程度の温度履歴のある試料は透水係数が 2 桁程度増加し、膨潤圧が 50%程度減少する傾向が認められる。

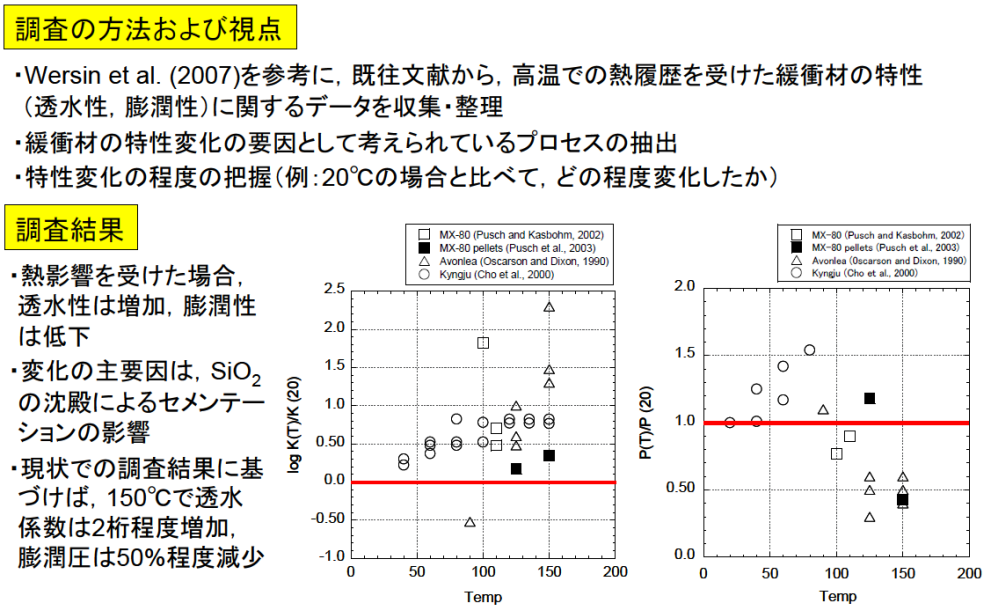


図 2.3-21　緩衝材変質に伴う特性変化の調査結果（透水性・膨潤圧）
（日本原子力研究開発機構, 2009）

(b) 熱蒸気によって溶解した物質の沈殿によるセメンテーション

高温条件における緩衝材のセメンテーションとしては、熱蒸気による影響によるものが報告されている（Wilson and Bond, 2016）。上述の高温の熱履歴によるシリカセメンテーションの事例のうち原位置試験や実規模試験には熱蒸気の影響によるものが含まれるものがあると考えられるが、ここでは実験室で熱蒸気を用いた試験について記載する。Couture（1985）は、150～250°C の高温水蒸気に晒された粉末状ベントナイトの膨潤性（膨潤力に対応）が低下したと報告している。Oscarson and Dixon（1989）も 110°C 以上の温度条件で蒸気に接触させた非圧密ベントナイトについて同様な結果を得ており、メタリン酸塩を添加し超音波分散すると膨潤したと報告し

ている。Oscarson et al.（1990）は圧密ベントナイトを用いた実験も行い、90～150°C の条件では膨潤圧への著しい影響が観察されないと報告している。Pusch（2000）は 90～110°C の条件でベントナイトへの高温水蒸気の影響を調査し、水蒸気がシリカの溶解と沈殿を引き起こすとした。また、水和速度や膨潤圧は未処理のベントナイトと同じオーダーであるが、微細構造の恒久的な変質により透水係数が 10%増加したことを報告している。Pusch et al.（2003）は圧密ベントナイトを対象に、110°C、125°C、150°C の条件で高温水蒸気の影響を調査し、150°C では膨潤圧が著しく低下することを確認するとともに、透過型電子顕微鏡などを用いた観察によりモンモリロナイトの凝集とシリカの沈殿が生じていることを確認している。Leupin et al.（2014）は、クニゲル V1 及び MX-80 を含む計 9 種類のベントナイトを対象に、150°C 及び 200°C の温度条件で高温水蒸気の影響を調査し、膨潤性（膨潤力）に著しい影響は認められないと報告している。

(c) 硫酸塩や炭酸塩の沈殿によるセメンテーション

緩衝材内に温度勾配がある場合、随伴鉱物（石膏や方解石など）や地下水から供給された硫酸塩や炭酸塩が高温領域で沈殿し、セメンテーション物質になる可能性がある（Pusch, 1993；Wersin et al., 2007）。この現象は、Stripa 国際プロジェクトや LOT（Long Term Test of Buffer Materials）プロジェクト、FEBEX（Full-scale Engineered Barriers Experiment）プロジェクト、キャニスタ回収試験（CRT：Canister Retrieval Test）でも観察されている（Pusch et al., 1992；Karnland et al., 2000；ENRESA, 2006；Dueck et al., 2011）。逆行溶解度（retrograde solubility）の性質を示す硫酸塩や炭酸塩の沈殿反応は可逆であるので、このセメンテーション物質は冷却後に溶解するとされている（Wersin et al., 2007）。Arthur and Zhou（2005）は、モデル解析により冷却後のこれらのセメンテーション物質の可逆的な溶解が十分ではないとし、このセメンテーションの影響を無視できるのかは不明としている。

また、自然環境では炭酸塩の沈殿によって生成した球状コンクリーションが海底の堆積した細粒～泥質の堆積物中に産出することが知られており（吉田, 2019）、山形県月布鉱山のベントナイト層中からも直径数センチから数十センチの球状コンクリーションが確認されている。吉田ほか（2019）は、月布鉱山の球状コンクリーション中の炭素同位体比が有機炭素成分由来を示唆し、海底堆積物中に産出する球状コンクリーションと同じく生物起源の炭素が関係している可能性を報告している。化石海水などの炭酸濃度の高い地下水が存在する場合、セメント系材料の周辺部で炭酸塩の沈殿によるセメンテーション（コンクリーション）が生じる可能性がある。

(d) 鉄水酸化物や鉄オキシ水酸化物などの沈殿によるセメンテーション

鉄含有鉱物の溶解やオーバーパックの腐食によって放出された鉄イオンが鉄水酸化物や鉄オキシ水酸化物などとして沈殿し、セメンテーション物質になる可能性がある（Pusch, 2001）。出光（1994）は還元条件で炭素鋼試料と緩衝材を接触させた試験を行い、腐食生成物が拡散した領域で緩衝材が硬化し、膨潤性を失ったことを報告している。チェコで実施された実規模試験（鉄に富むモンモリロナイトを使用）において、モンモリロナイトの溶解によって放出された鉄が沈殿し、膨潤圧の低下や透水係数の増加が生じたと報告されている（Pusch et al., 2007；2010）。Carlson et al.（2007）は圧縮ベントナイト（MX-80）にクーポン状又はワイヤ状の鉄を埋め込んだ反応試験を行い、試験後の鉄表面に磁鉄鉱や針鉄鉱が存在すること、透水係数が増加したことを報告しているが、セメンテーションの影響であるか否かについては触れていない。Hadi et al.（2019）は、スイスのグリムゼル試験場で 18 年間実施された FEBEX 原位置試験のヒーター（ライナーは炭素鋼）と接触していた緩衝材を分析し、数 cm の幅でゲータイトを主な腐食生成物とする変色域が存在することを報告しているが、緩衝材の特性の変化の有無については言及していない。また、Kumpulainen et al.（2010）は、圧縮ベントナイト（MX-80）に炭素鋼の試験片を埋め込

み、室温で約 8 年間反応させる試験を行い、試験片近傍で鉄によるセメンテーションが生じていること、わずかながら透水係数が増加したことを報告している。一方、腐食生成物などの沈殿により緩衝材の間隙が閉塞する可能性がシミュレーションによって予測されているが（Bildstein et al., 2006；Savage et al., 2010）、これら実験的に取得されている透水係数の傾向に矛盾する。

(e) セメント-ベントナイト相互作用によるセメンテーション

セメント-ベントナイト相互作用によりセメント由来の Ca がベントナイト領域で方解石やケイ酸カルシウム（C-S-H）として沈殿し（久保ほか, 1998）、セメンテーションを引き起こす可能性がある。モル体積の大きい C-S-H が沈殿する場合、ベントナイトの間隙率が減少するため、ベントナイトの透水性が低下する可能性がある（原子力発電環境整備機構, 2004）。

② ケミカルエロージョン

ベントナイトの浸食（エロージョン）とは、人工バリアとして設置されたベントナイトが、地下水によって人工バリア外に流出することを指す。ベントナイトの浸食は、さまざまな物理的及び化学的プロセスによって引き起こされる可能性があり、ベントナイトの膨潤、ベントナイト懸濁液内でのコロイドの形成と分散、そして地下水の移流によるせん断の結果として起こると考えられている（例えば、菅野・松本, 1997）。ベントナイトの膨潤やコロイドの形成は、層間陽イオンの種類や相互作用する溶液の組成やイオン強度に影響されるので、ベントナイトの浸食に影響するプロセスの中でも化学的浸食作用（ケミカルエロージョン）が注目されている。ベントナイトの化学的浸食作用に関しては、実験的に検討されている（例えば、Schatz et al., 2013）。実験的研究に基づき、地下水中の陽イオンの総電荷当量が 4 mM を超える場合では、ベントナイトの浸食は発生しないものとされており（Reijonen and Marcos, 2017）、北欧では地層処分においてこれを好ましい化学的条件の一つとしている（SKB, 2011；POSIVA, 2012）。

天然に産するベントナイト鉱石は、様々な化学的条件で存在していることが予想されるが、化学浸食に関するナチュラルアナログ研究は少ない。Reijonen and Marcos（2017）がまとめたものを以下に示す。

Kuno et al.（2002）は、月布ベントナイト鉱山の坑道で湧出する地下水を採水し、地下水及びコロイド組成について調査を行った。採水地点の地下深度が増加するにつれ、地下水のイオン強度が増加する傾向が確認された。また、浮遊成分は採水地点によって存在量の顕著な相違が認められたが、採水、静置後はいずれも数 mg/L 程度しか存在しなかった。イオン強度がおよそ 0.01 より大きいこれらの地下水中では、ベントナイトに起因するコロイドは安定には存在しにくいと結論付けている。基本的に、月布ベントナイト鉱山で湧出する地下水のイオン強度は高く、イオン強度が低い場合の化学浸食に関する情報は得られないが、貴重な天然事例の紹介であると感じる。

Reijonen and Marcos（2017）は、上記月布ベントナイト鉱山以外にも、スメクタイトを含む岩石や断層粘土にも浸食が認められない天然事例を紹介している。フィンランドの Hyrkkölä では、現在でも水が浸入してきている亀裂に充填されるスメクタイトが、周辺で採取された地下水の陽イオンの総電荷当量が 4 mM 以下であるにもかかわらず浸食された形跡がないことを示している。

スウェーデンの Forsmark でも、様々な深さの岩石に存在する亀裂には石灰石やスメクタイトの充填物が確認されるが、溶解や浸食を示す形跡が認められないことから、その地域での氷河変遷の履歴を経ても、スメクタイトは浸食されていない証拠となると解釈されている（Arthur and Savage, 2012）。フィンランドの Olkiluoto でも同様に、どの深度においても亀裂充填物として

スメクタイトが保存されていることを示している（Reijonen and Marcos, 2017）。これらのサイトの地下水組成とその変遷については詳しく調べられており（POSIVA, 2013）、その変遷過程で広い塩分範囲を取ることが知られているが、それにも関わらずスメクタイトが浸食されていないことは、地下水組成が変化しても長期間スメクタイトの浸食がなかったことの証拠となるとされている。しかしながら、なぜ、スメクタイトがそのような希薄溶液中で長い間存在し続けたのかに関する解釈はなされておらず、さらなる研究が必要であると主張されている。

その他にも Reijonen and Alexander（2015）は、様々な国の処分場候補地や関連する地質が広がる地域において、亀裂充填物や堆積岩中にスメクタイトが長期間保持されていて、それらの証拠自身がスメクタイトの化学浸食が処分場環境では困難であること示しており、“self-analogue”であると主張している（例えば、スウェーデンの Oskarshamn、フィンランドの Hästholmen、Kivetty、Romuvaara、カナダの Bruce など）。

上記の、長期間にわたりスメクタイトが保持されている天然事例は、Reijonen and Alexander (2015) が主張するように、特に処分場候補地における場合は“self-analogue”としてスメクタイトの化学浸食が処分場環境では困難であること示しており、セーフティーケース構築のための重要なデータと成り得ると考えられる。ただし、水ー鉱物相互作用を経て生成した亀裂充填物中に含まれるスメクタイト、続成作用を経た堆積岩中のスメクタイト、そしてベントナイト鉱床中の原鉱石に含まれるスメクタイトであっても、すべて程度の差に違いがあるにせよセメンテーションの影響を被っているスメクタイトである。これは、人工バリア内に設置予定の圧縮ベントナイト中にあるスメクタイトと明らかに存在状態が異なる。したがって、上記の天然事例をセーフティーケース構築のための重要な材料として有効にするためには、以下の項目を明らかにする必要があり、本事業で展開している研究が十分その一部を可能にするものと考えている。そして、実験的に得られている「地下水中の陽イオンの総電荷当量が 4 mM 以下である場合では、ベントナイトの化学浸食の可能性がある」という指標の有効性も評価できることになる。

1. 天然に存在する「長期間保持されているスメクタイト」のセメンテーションの有無
2. 天然に存在する「長期間保持されているスメクタイト」のセメンテーションの状態や空間分布
3. 圧縮ベントナイトが同様なセメンテーションを被った場合の基本特性の変化の可能性（ポジティブ、ネガティブそれぞれの視点で評価）
4. 圧縮ベントナイトのセメンテーション状態の時間的、空間的変遷

2) 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

① 試料及び分析手法

(a) 試料

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（10 Ma 程度）の硬質頁岩中に互層状に夾在する火山ガラス質の凝灰岩が続成的に変質したものであるとされ、31 層のベントナイト層が確認されている（小林・伊藤, 1992）。本事業では、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低いとされる 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た後に、粉砕前の原鉱石の乾燥密度（1、29、31

番層原鉱石それぞれ 1.83、1.64、1.90 g/cm^3)となるように圧縮・成型したものである。成型後の再構成試料のサイズは直径約 20 mm、高さ約 10 mm である。

顕微鏡観察に供する1番層、29 番層、31 番層の原鉱石・再構成試料の鏡面研磨薄片は乾式研磨法(大和田ほか, 2014)にて作製した。再構成試料については樹脂包埋後に、円柱の底面を垂直に二分する断面を観察できるように作製した。

(b) 粉末 X 線回折

原鉱石試料(1 番層、29 番層、31 番層)をハンマーで粗砕し、メノウ乳鉢でより細かく粉砕した。粉砕時には少量のエタノールを用いて湿式粉砕を行うことで試料の均質化を図り、乾燥後の凝集塊を軽く乾式粉砕して XRD 測定に供した。

測定には、リガク製 X 線回折装置(MiniFlex)を用いた。測定条件について、X 線管球は Co、電圧・電流は 40 kV 及び 15 mA、スキャンステップは 0.02 °/min、走査範囲は 3～90 °、スリット条件は DS:0.5°、SS:開放、RS:開放とした。粉末試料をガラス製ホルダーに詰め、不定方位法で測定した。

(c) 走査型電子顕微鏡（SEM）による観察

鏡面研磨薄片の表面に導電性を確保するために炭素コーティングを施した上で、走査型電子顕微鏡（SEM）による微細構造の観察を行った。SEM 観察には JSM-IT200（JEOL）を用い、加速電圧 15 kV、動作距離 10.8 mm にて二次電子像・反射電子像の撮影及びエネルギー分散型 X 線分光（EDS）による組成分析を実施した。

また一部の撮影像に対しては、組成像上の輝度の違いから各鉱物相及び空隙の量比を簡易的に推定した。画像解析には ImageJ を用いた。撮影象を 256 階調のグレースケールとし、目視で確認できる各鉱物相の領域に一致するように閾値を設定して、4 段階に区分した。

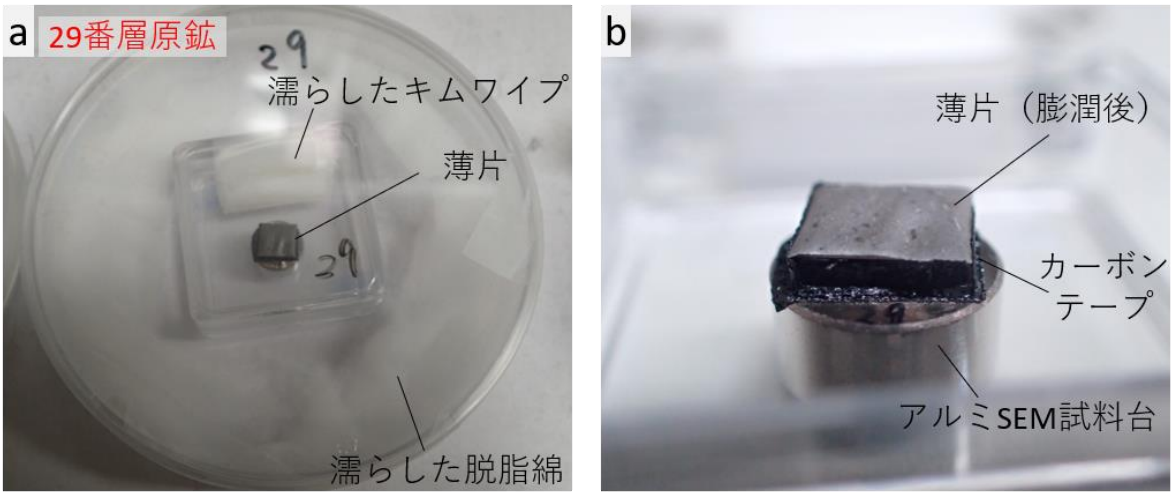
(d) 低温走査型電子顕微鏡（Cryo-SEM）

通常の SEM 観察では真空下でモンモリロナイトが脱水された状態で観察することになることから、膨潤したモンモリロナイトによる本来のベントナイト試料の組織を観察出来ていないことが懸念される。そこで、原鉱石及び再構成試料について十分に膨潤した状態での組織観察を行う為に、Cryo-SEM での観察も実施した。Cryo-SEM では試料を液体窒素によって急速凍結し、凍結状態を保ったまま SEM による観察が可能である。1、29、31 番層の原鉱石及び 29 番層の再構成試料の計 4 試料を観察対象とし、通常の SEM 観察でも用いる鏡面研磨薄片を約 5 mm×5 mm の面積に細かく切断した。膨潤したベントナイトを Cryo-SEM で観察するために試料に求められる条件は、1）十分に膨潤しつつ、かつ試料表面に水膜が張らないこと、2）低温でも試料台との十分な接着が保たれること、3）膨潤前に付与した導電性が膨潤・凍結後も十分に保たれることの 3 点である。そこでまず、鏡面研磨薄片の四方全てをカーボンテープで囲った上でアルミ製 SEM 試料台に固定し、試料台ごと濡らしたキムワイプ及び脱脂綿と共にシャーレ内に封入・密閉させた（図 2.3-22(a)）。これにより、カーボンテープによる補強によって導電性を確保しつつ、かつその後液体窒素に投入する際に薄片試料が剥離するのを防いだ。正確な値は分からないものの、シャーレ内の相対湿度をほぼ 100%に近い形で保つことが出来たと考えられる。密閉後、一晩の間に原鉱石・再構成試料ともに、平滑だった鏡面研磨薄片の表面が膨潤することで波打った表面に変化している様子が肉眼で確認できる（図 2.3-22(b)）。

観察直前にシャーレの密閉を解き、液体窒素による冷却を行った。この際、液体窒素は真空引きすることで液体からシャーベット状の、いわゆるスラッシュ窒素にした状態にて薄片試料と接触させた。これは通常の液体窒素と接触させた場合と比べて、蒸発した窒素による空気の層が試

料と液体窒素の間で形成されにくい。接触時の試料の冷却速度を高く保つことで、試料内での氷の結晶成長を防ぎつつアモルファス化し、氷の成長による試料の組織へのダメージを防ぐことができる。凍結した試料は霜の発生を防ぐために、大気に暴露せずに凍結容器から SEM の試料前室に移動させた。

Cryo-SEM での観察は、JSM-6701F（日本電子）を用いて、-180°C にて加速電圧 15 kV、照射電流量 1.0×10^{-10} A にて実施した。



(a)シャーレ内に薄片を封入・密閉させた状態　(b)膨潤により波打った薄片表面の様子

図 2.3-22　Cryo-SEM 観察用の研磨薄片試料

(e) 顕微ラマン分光

後述の SEM 観察で見られる微細な SiO_2 鉱物の相同定のために顕微ラマン分光装置（XploRA、Horiba）を用いた。測定条件について、対物レンズは×100、グレーティングは 1800（450-850 nm 用）、電極電圧は 4.53 mW、レーザー光源は 532 nm、スリットは 100 µm 共焦点ホールは 100 µm とした。顕微ラマン分光装置に備え付けの光学顕微鏡では数 µm の大きさの粒子の位置を正確に狙うことが困難だったので、1 µm ステップでのマッピング測定を行い、収集した計 1,400 点のスペクトルから典型的なスペクトルに分類した。

(f) 集束イオンビーム走査電子顕微鏡（FIB-SEM）

SEM 観察で見られるシリカ微粒子とモンモリロナイトの界面や空隙構造を TEM で観察するための薄膜試料を収束イオンビーム（FIB）によって作製した。また TEM 用試料の作製と並行して、加工途中における SEM 像を繰り返し撮影することでベントナイトの微細構造の三次元的な観察も試みた。

加工の対象としたのは 29 番層の原鉱石で、Cryo-SEM での観察に利用したものと同様の鏡面研磨薄片試料を利用した。JIB-4600F/HKD（日本電子）を用い、加工には加速電圧 30 kV の Ga イオンビーム（仕上げ加工のみ 5 kV）、観察には加速電圧 15 kV の電子ビームを利用した。なお、加工中のビーム損傷を防ぐために、加工部分の表面にはタングステンの薄膜を形成した。

FIB-SEM での三次元観察においては FIB よる試料の加工と SEM による写真撮影を繰り返し行うが、その際に撮影される写真のコントラストが安定していることや加工位置が時間とともにズレないようにドリフト補正が正常に機能することが求められる。今回の加工時では反射電子像のコントラストが安定しなかったため、二次電子像のみの撮影に注力した。

(g) 透過型電子顕微鏡（TEM）及び走査型透過電子顕微鏡（STEM）

FIB-SEM によってシリカ微粒子とモンモリロナイト界面を含む超薄切片をピンポイントで作製した後、微細組織及び各鉱物の化学組成を透過型電子顕微鏡（TEM）及び走査透過型電子顕微鏡（STEM）によって調べた。TEM による観察は JEM-2010（日本電子）を用いて加速電圧 200 kV にて使用した。画像は中間マウント CCD カメラ DV300V（Gatan）もしくはボトムマウント CCD カメラ MultiScan Camera Model 794（Gatan）で記録した。制限視野電子回折像を含む画像の処理は DigitalMicrograph（Gatan）及び EDA（小暮, 2015）を用いて行った。STEM による観察は超高圧電子顕微鏡研究室にて Titan^3 G2 60-300（FEI）を用いて加速電圧 60 kV にて実施した。特性 X 線マップは解析ソフトウエア velox（FEI）で処理・出力を行った。

② 分析結果

(a) 粉末 X 線回折分析

3 つの原鉱石試料（1 番層、29 番層、31 番層）の粉末 X 線回折パターンからはモンモリロナイト、石英、長石、黄鉄鉱が共通して確認される（図 2.3-23）。3 つの原鉱石間の違いとして、1 番層でのみ黒雲母と方沸石が見られること、29 番層でのみモルデン沸石が見られることが挙げられる。

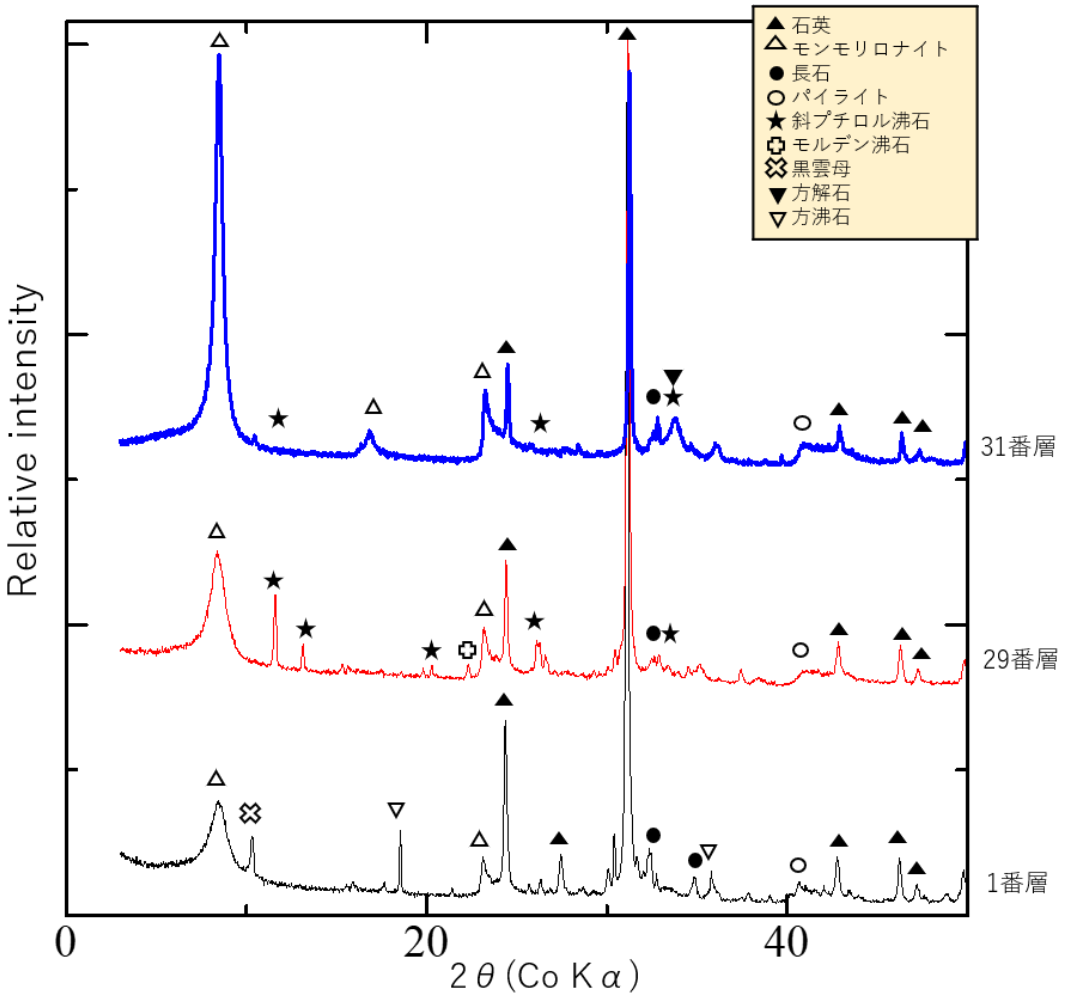


図 2.3-23　月布ベントナイト原鉱石試料の粉末 X 線回折パターン

(b) SEM による観察結果

原鉱石及び再構成試料の鏡面研磨薄片を SEM で観察した時の組成像を図 2.3-24 に示す。EDS による組成分析から鉱物の同定を行うと粉末 X 線回折パターンで見られた各層の主要構成鉱物と一致することが確認された。1 番層の原鉱石では石英や黒雲母の粒子が観察され、モンモリロナイトはそれら鉱物粒子の間隙を埋めるように分布していた。1 番層は原鉱石の粒径が、再構成試料の粒径の基準値である 63 μm よりも細かいものも多いため、原鉱石と再構成試料の粒子分布状態の差は少々わかりにくい（図 2.3-24 a、b）。29 番層の原鉱石はモンモリロナイトが石英や長石などの鉱物の間を脈状に分布し、比較的大きい空隙中に斜プチロル沸石が密集している様子が確認できる一方で、再構成試料では粉砕の影響により特徴的な脈状の組織が無くなっている（図 2.3-24c、d）。31 番層は、まず原鉱石の写真から石英や黄鉄鉱などの鉱物粒子の粒径が大きいことがわかるが、再構成試料にするとそれらが粉砕の影響により細かくなっている（図 2.3-24e、f）。

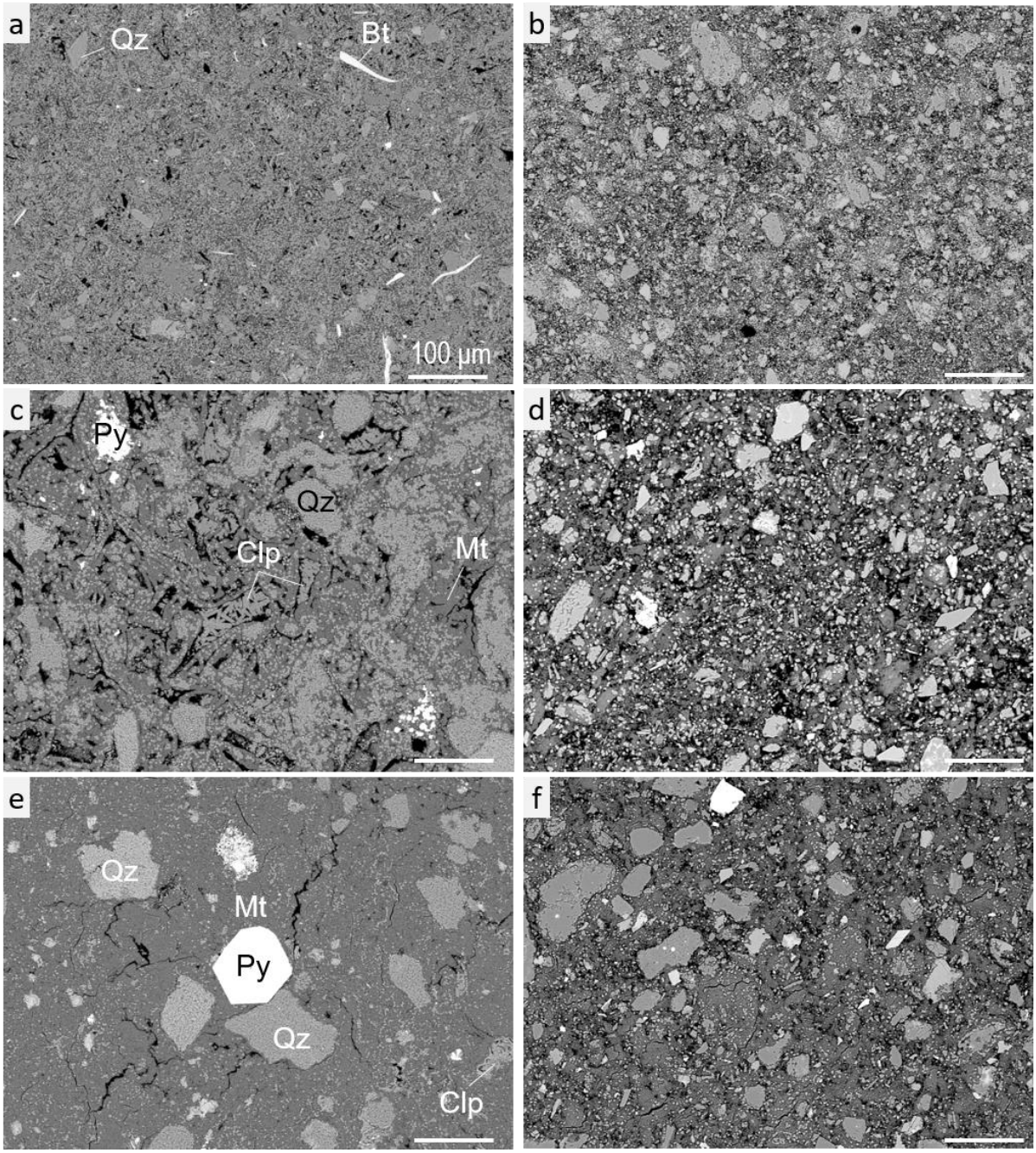


図 2.3-24　ベントナイト原鉱石（左）及び再構成試料（右）の組織の比較
(a)、(b)は 1 番層、(c)、(d)は 29 番層、(e)、(f)は 31 番層、スケールバー：100 μm、Qz：石英、Mt：モンモリロナイト、Clp：斜プチロル沸石、Py：黄鉄鉱、Bt：黒雲母

より高倍率で観察すると輝度が高く粒径が数 μm の大きさの微細なシリカ粒子が 3 つ全ての原鉱石に含まれていることが分かる（図 2.3-25）。1 番層に関しては微細なシリカ鉱物と方沸石の粒径がほぼ同じで見分けがつきにくいが、EDS 分析によりどちらの存在も確認された。29 番層原鉱石はモンモリロナイトが脈状に分布する点が特徴だが、シリカ微粒子も脈に沿って分布する傾向が見られた。このシリカ微粒子の量は 1 番層が最も多く、次いで 29 番層、31 番層で最も少ない傾向を示した。

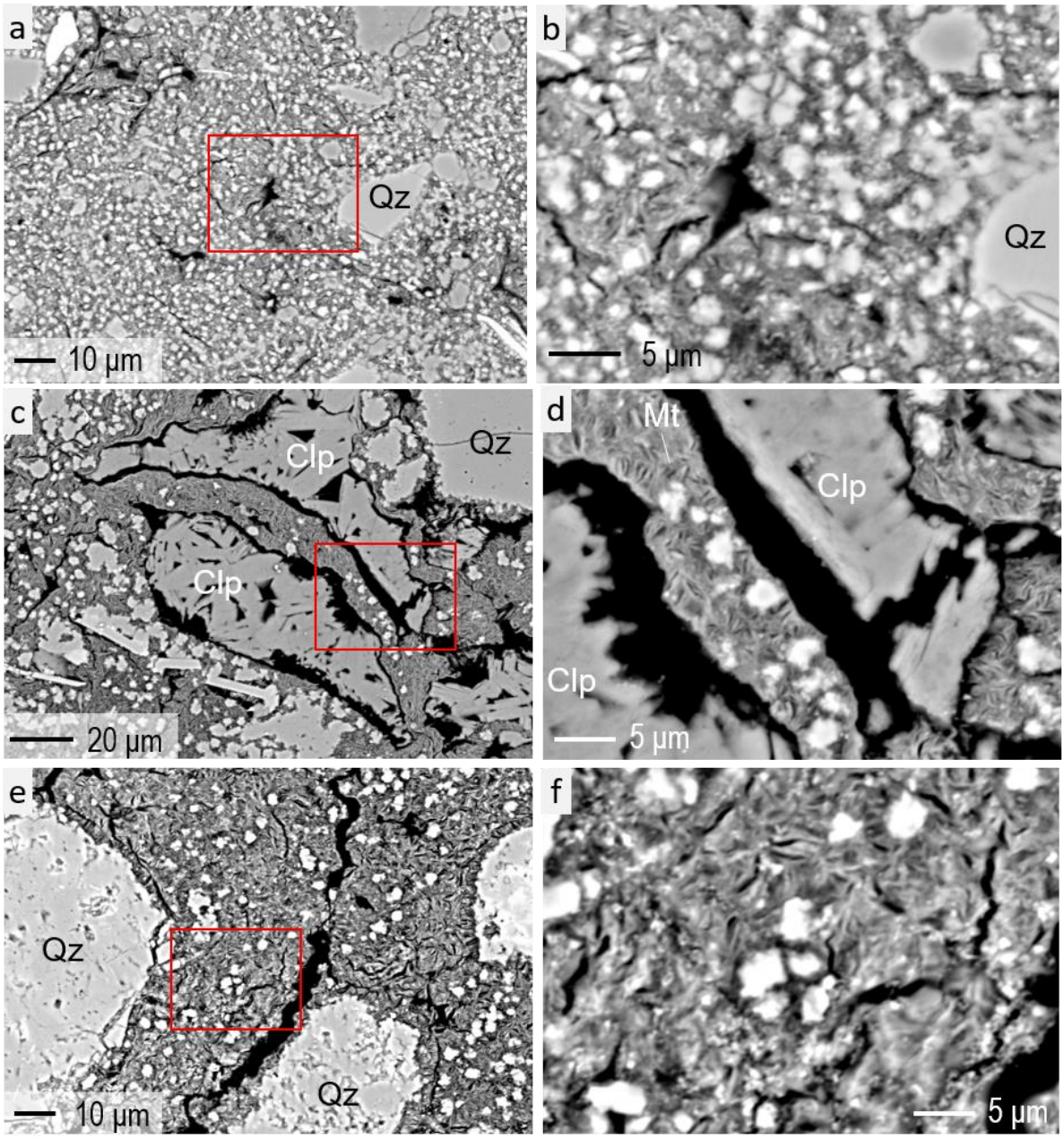


図 2.3-25　ベントナイト原鉱石に見られるシリカ微粒子
(a)、(b)は 1 番層、(c)、(d)は 29 番層、(e)、(f)は 31 番層、右図は左図中の赤枠内の拡大像

(c) Cryo-SEM による観察結果

Cryo-SEM による組成像（倍率 200 及び 500）を比較した結果を図 2.3-26 に示す。3 つの原鉱石試料（1、29、31 番層）の全てにおいて、通常の SEM で見られた岩石組織とほぼ同様の組織が観察されたが、クライオ状態下と真空下での SEM 像を比較すると（図 2.3-27）、Cryo-SEM 像では空隙に相当するコントラストの暗い部分の面積が減少する傾向が認められる。さらに、29 番層及び 31 番層の原鉱石試料はより高倍率で観察すると（図 2.3-28）、モンモリロナイトが凝集している部分でモンモリロナイトの劈開に沿った隙間が確認できる（図 2.3-28(b)及び図 2.3-28(c)）。したがって、原鉱石試料では、ある程度の膨潤は確認できるものの、間隙が完全に埋まるほどの膨張は起こっていないと考えられる。1 番層についてはシリカ微粒子及び方沸石の粒子が多く、

一方でモンモリロナイトのみが集まっている部分が少ないため、間隙の埋まり具合が完全か否かは明瞭には確認できなかった。

29 番層の再構成試料については、包埋時の樹脂が浸透して暗いコントラストを示す部分とモンモリロナイトのみが凝集している中程度のコントラストを示す部分、石英や斜プチロル沸石の粒子に相当する明るいコントラストを示す部分の 3 領域に分かれている。モンモリロナイト凝集部分では原鉱石に見られるような粘土鉱物の劈開に沿った空隙は見られず、隙間が完全に埋まるようにモンモリロナイトが膨張していると考えられる。

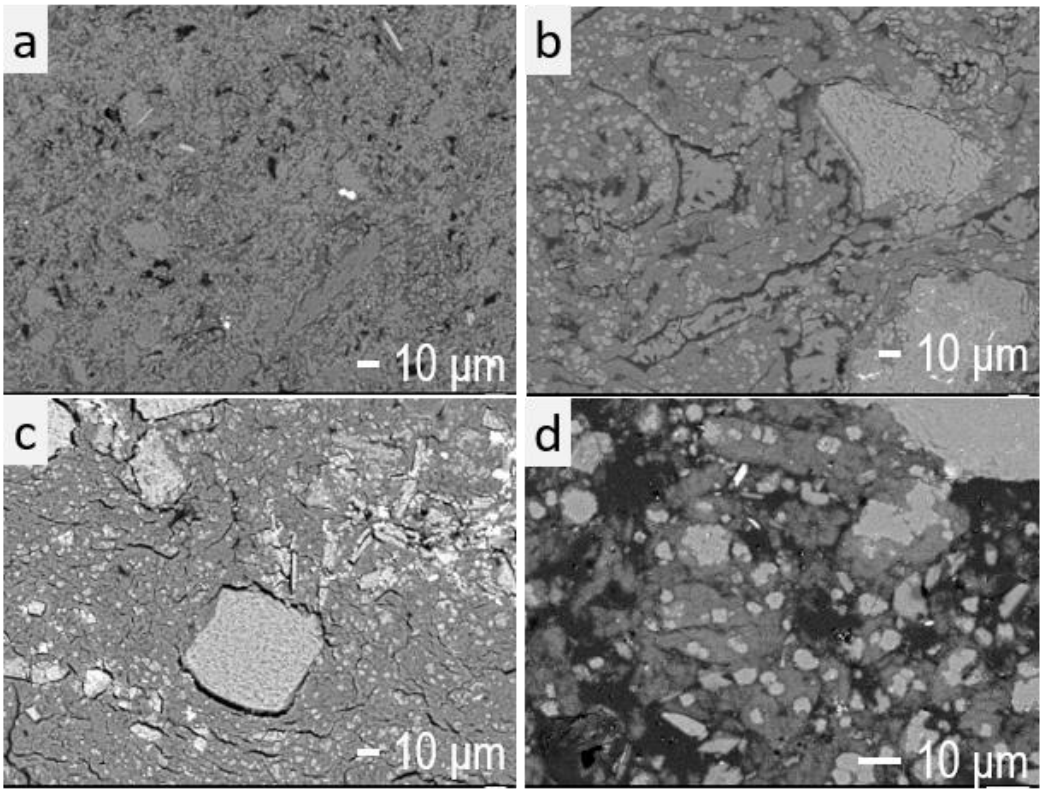


図 2.3-26　原鉱石（1、29、31 番層）及び再構成試料の Cryo-SEM 観察像の比較
(a) 1 番層原鉱石、(b) 29 番層原鉱石、(c) 31 番層原鉱石、(d) 29 番層再構成試料

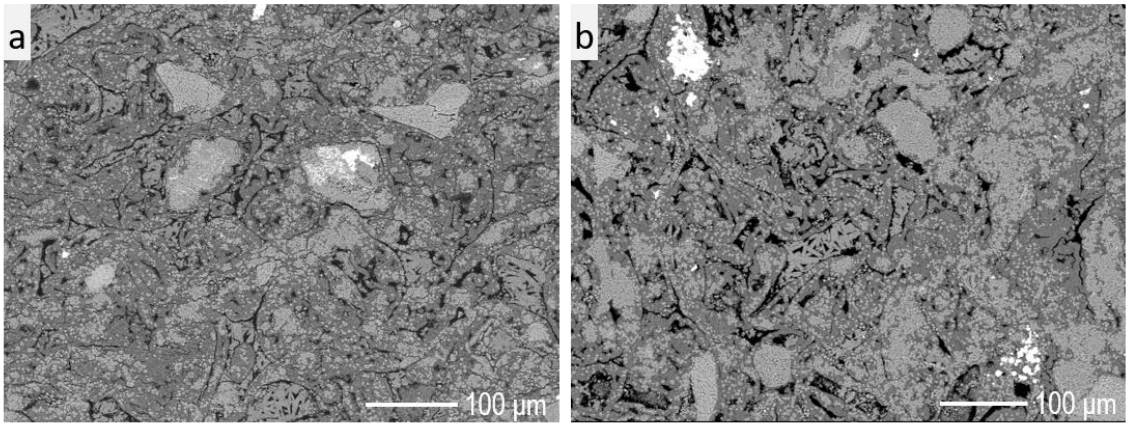


図 2.3-27　ベントナイト原鉱石の SEM 像の比較
(a)はクライオ状態、(b)は真空状態

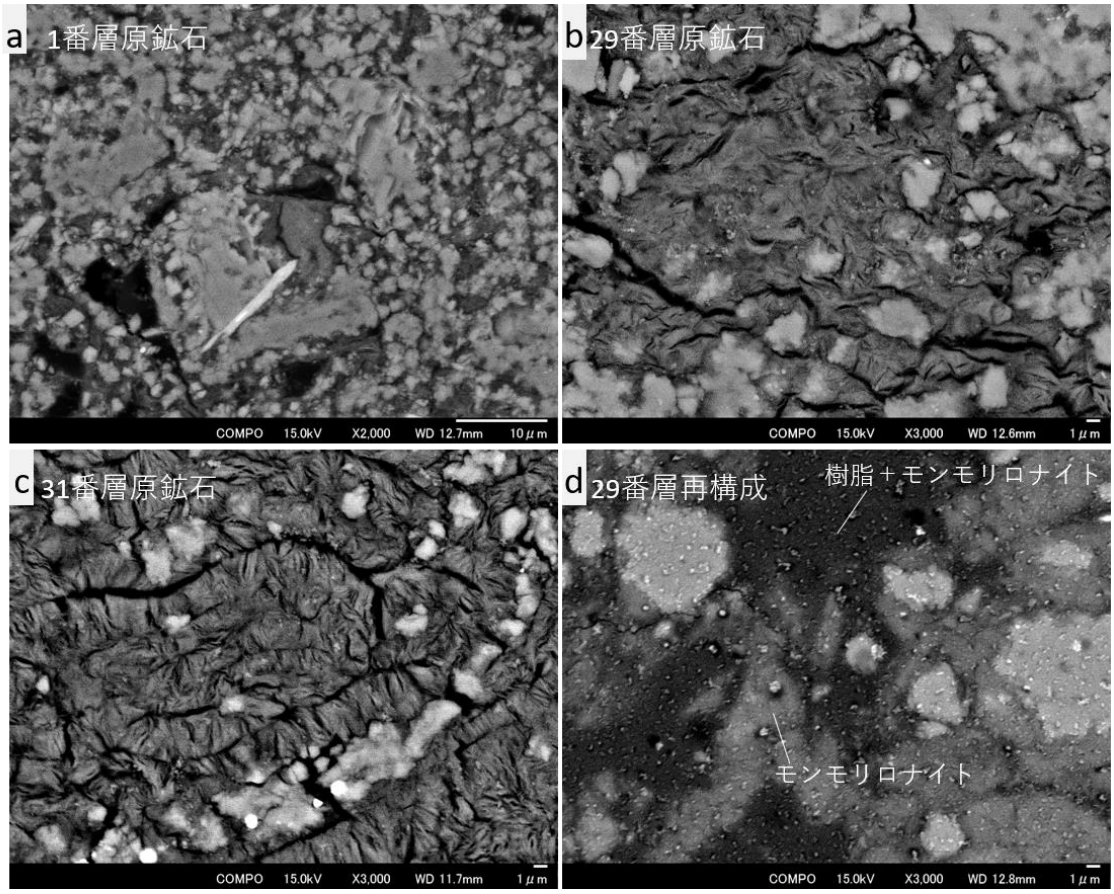


図 2.3-28　高倍率での Cryo-SEM 観察像の比較
(a) 1 番層原鉱石、(b) 29 番層原鉱石、(c) 31 番層原鉱石、(d) 29 番層再構成試料

(d) SEM 画像解析による各鉱物相の面積比推定

SEM の組成像上では輝度の違いを利用して暗い方から、①空隙、②モンモリロナイト、③石英・長石・沸石、④黄鉄鉱や黒雲母、の 4 種類の領域を識別することができる。そこで簡易的な定量方法として画像解析に基づく各層に含まれる構成鉱物･空隙の面積比推定を行った(表 2.3-2)。

29、31 番層は 200 倍の倍率で、1 番層は粒子が細かく 200 倍では判別が難しいため 500 倍の倍率で 10 枚ずつ撮影した組成像を用いて画像解析し、10 回分の平均と標準偏差を表に示している。

通常、SEM 像の画像解析と同様の手法にて Cryo-SEM での撮影象の解析を行った結果を表 2.3-3 に示す。モンモリロナイトの占める面積比が 1 番層、29 番層、31 番層の順に増加する点など、大まかな傾向は真空下での観察結果と一致する。空隙が占める面積比も真空下とクライオ状態下で比較すると、1 番層について 5.44 から 4.00%、29 番層について 9.70 から 5.26、31 番層について 6.94 から 3.78%となり、図 2.3-28 での比較した結果と同様に減少する傾向が認められる。ただし、黄鉄鉱や黒雲母に相当する④の面積比は SEM 像からの推定値と比べて低い結果となっている点や②③の推定値の誤差が大きい点なども確認される。

表 2.3-2　画像解析によるベントナイト中の各鉱物相の推定面積比

原鉱石（面積比 %）	1 番層（n=10）	29 番層（n=10）	31 番層（n=10）
①空隙	5.44 ± 0.96	9.7 ± 2.20	6.94 ± 0.46
②モンモリロナイト	35.18 ± 1.12	52.24 ± 2.43	63.00 ± 1.50
③石英・長石・沸石	48.03 ± 0.81	31.08 ± 3.79	22.50 ± 1.49
④黄鉄鉱など	11.35 ± 1.22	6.98 ± 0.96	7.56 ± 0.65

再構成試料	1 番層（n=10）	29 番層（n=10）	31 番層（n=10）
①空隙	4.55 ± 0.60	9.91 ± 0.86	6.82 ± 2.23
②モンモリロナイト	50.27 ± 1.09	61.83 ± 2.61	67.10 ± 3.47
③石英・長石・沸石	39.23 ± 1.2	24.82 ± 1.87	22.90 ± 3.05
④黄鉄鉱など	5.95 ± 0.25	3.44 ± 0.29	2.95 ± 1.53

表 2.3-3　クライオ状態下でのベントナイト原鉱石中での各鉱物相の推定面積比

原鉱石（面積比 %）	1 番層（n=4）	29 番層（n=4）	31 番層（n=4）
①空隙	4.00 ± 1.17	5.26 ± 0.49	3.78 ± 0.46
②モンモリロナイト	44.91 ± 3.99	53.89 ± 2.76	57.17 ± 1.50
③石英・長石・沸石	49.92 ± 5.21	41.41 ± 2.61	36.37 ± 1.49
④黄鉄鉱など	1.56 ± 0.68	0.91 ± 0.76	2.68 ± 0.65

また合計の空隙の量は原鉱石と再構成試料の間でほとんど変化がない一方で、二値化処理によって抽出された空隙の分布には大きな違いが観察される。図 2.3-29 では 31 番層のベントナイト原鉱石と再構成試料から抽出した空隙の分布（黒い部分）を比較している。原鉱石では亀裂に沿うように空隙が広がる部分とほとんど空隙の存在しない部分が不均質に分布しているが、再構成試料では細かな空隙がより全体に散在している。

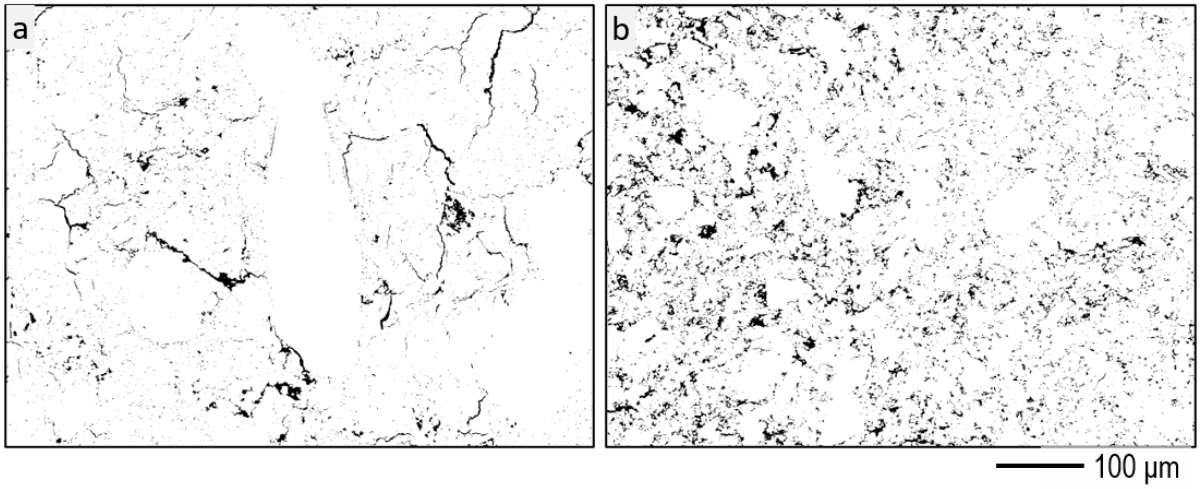


図 2.3-29　反射電子像の画像解析に基づく空隙分布の比較
(a)ベントナイト原鉱石、(b)再構成試料

(e) 顕微ラマン分光によるシリカ微粒子の同定

29 番層の原鉱石に含まれている SiO_2 微粒子及びその周囲のモンモリロナイトを含む領域でマッピング測定を行った結果、2 種類のラマンスペクトルが得られた（図 2.3-30）。

一つは 465 cm^{-1} に鋭いピークを示すもので、SiO_2 の多形の中でも石英に相当する（Kingma and Hemley, 1994）。もう一つは 200 と 287、430、710 cm^{-1} にピークを持つもので、モンモリロナイトに相当すると考えられる（Kloprogge, 2017）。ただし便宜上、火山灰起源の粗大な石英の粒子と区別するために、以降の文中でもシリカ微粒子と記載する。

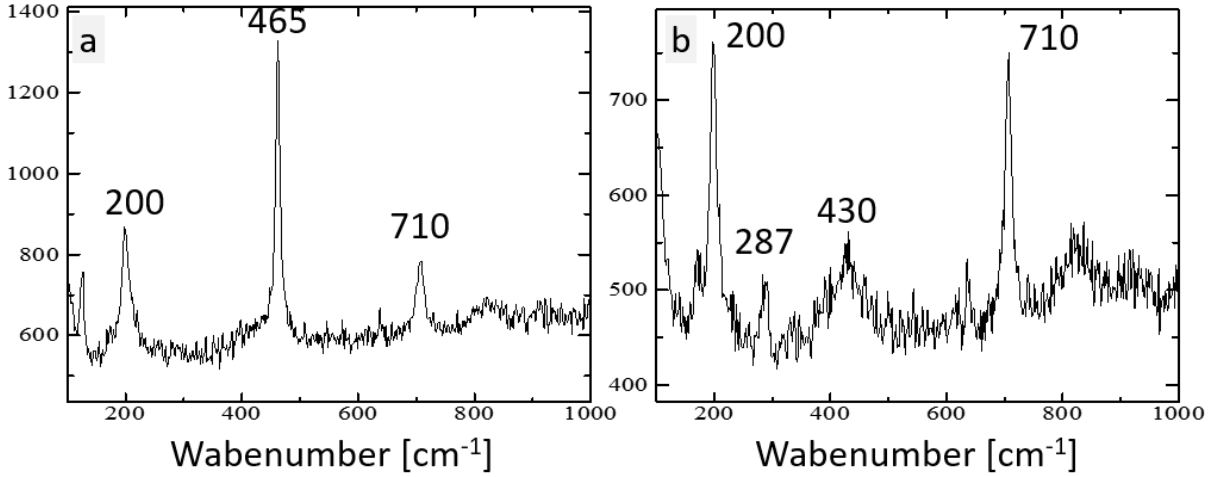


図 2.3-30　顕微ラマンスペクトル
(a) SiO_2 の多形の中でも石英に相当するもの、(b)はモンモリロナイトに相当するもの

(f) FIB-SEM による観察結果

29 番層原鉱石中で、脈状に分布しているモンモリロナイトとそのモンモリロナイトに埋まっているシリカ微粒子、斜プチロル沸石の 3 相にまたがる部分を切り出すように加工を行った（図 2.3-

31(a)、(b))。6.4 μm の厚さの板状に切り出した試料を TEM 観察用グリッド（Omniprobe、Cu 製、LO17）の先端に取り付け（図 2.3-31(c)）、手前側から FIB で徐々に削りつつ、SEM により二次電子像を取得した。グリッドとの接着面からの厚さを計測することで加工範囲の微調整を行った。抜粋した二次電子像を図 2.3-31(c)から図 2.3-31(g)に試料厚と併せて示す。また、連続撮影の終了後に、最終厚 150 nm 程度まで薄く加工して TEM 観察用薄膜とした。

図 2.3-31 では元々のモンモリロナイト脈と隣接する脈との境界及びモンモリロナイト脈と斜プチロル沸石との境界をそれぞれ青矢印、赤矢印で示している。青矢印の下部ではモンモリロナイト粒子の端部と端部が接合する、いわゆるカードハウス構造が複数のスライス像上で確認される（特に試料厚 4.4 μm 時の青矢印部分で明瞭）。それと比較して、薄膜中央のシリカ微粒子周辺に分布しているモンモリロナイトは粒子の底面が平行に並んだ密な組織を呈する。

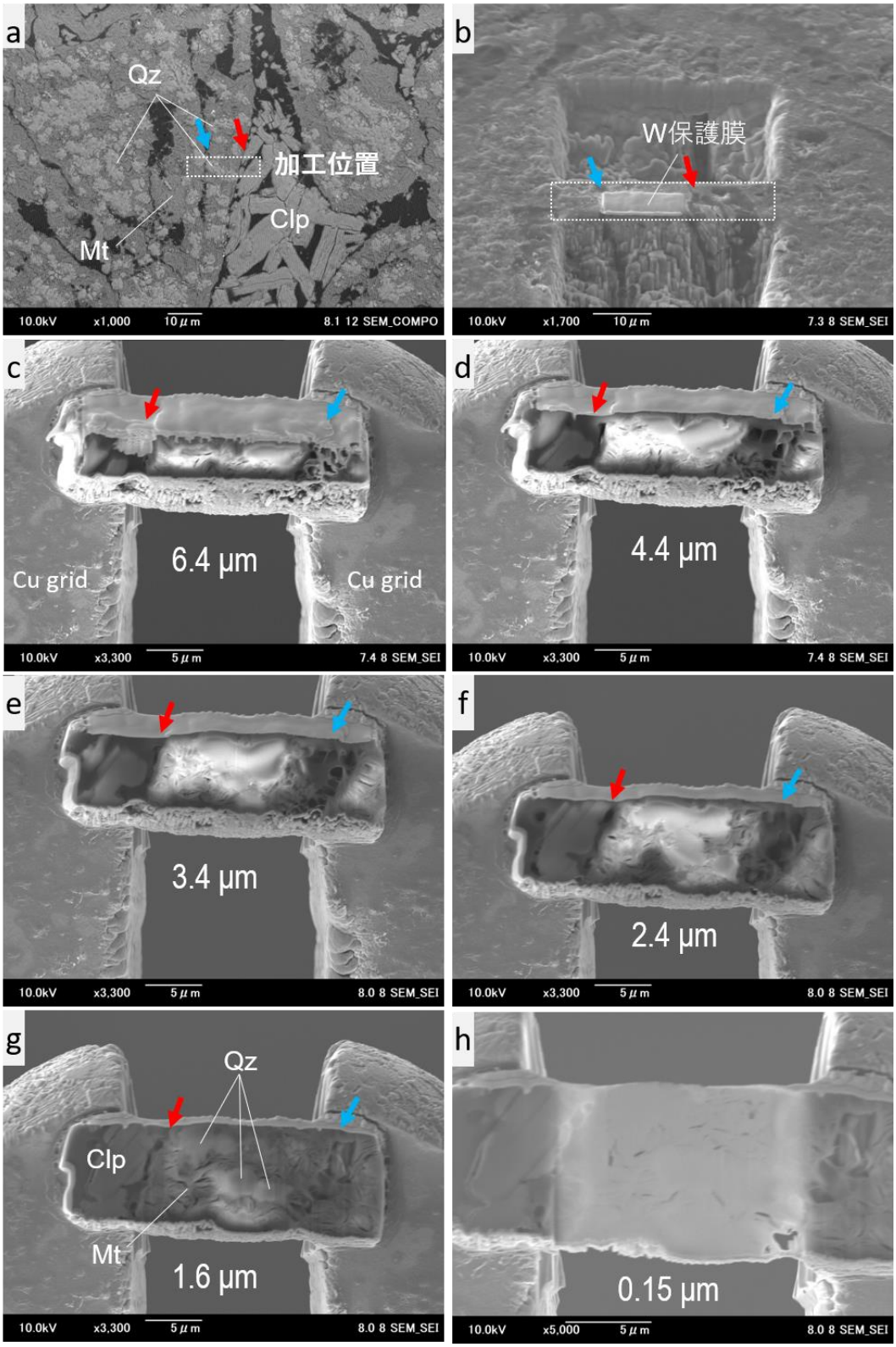


図 2.3-31　FIB-SEM による加工過程の様子

(a)試料加工位置（破線の範囲）の反射電子像、(b)試料加工位置の二次電子像、(c)～(g)FIB で試料を切削加工する過程における二次電子像、(h)TEM 観察用薄膜の二次電子像、

Qz: 石英、Mt：モンモリロナイト、Clp：斜プチロル沸石、

青矢印：隣接する脈との境界、赤矢印：斜プチロル沸石との境界

(g) TEM 及び STEM によるベントナイト微細構造の観察結果

薄膜全体を映す TEM の明視野像（図 2.3-32）では、シリカ微粒子に相当する 1 μm 程度の大きさの等粒状物質と間を埋めている層状物質の 2 つの物質が観察される。この 2 つの部分からそれぞれ制限視野電子回折（SAED）及び特性 X 線スペクトルを得ると（図 2.3-32(b)）、前者は低温型石英だと判断され顕微ラマン分光の結果とも整合的であり、後者はモンモリロナイトだと判断される。モンモリロナイトは数百 nm 幅の束状に積層した状態をとり、それぞれの束が湾曲しながら薄膜全体ではランダムな方向に分布している。束状になった部分（図 2.3-32(b)の白い点線で丸く囲んだ部分）から得た SAED パターンが約 10 Å の積層方向の周期性を示しており、脱水して層間が縮んだスメクタイトの底面間隔に対応する。

より高倍率で観察した結果を図 2.3-33 に示す。シリカ微粒子とモンモリロナイトの境界面は不明瞭なもの（図 2.3-33(a)）と明瞭なもの（図 2.3-33(b)）の両方が観察される。不明瞭な方では層状のモンモリロナイトの底面ではなく端面がシリカ微粒子との境界面に接している部分が見られる。また、束状になっているモンモリロナイトの隙間に空隙を埋める物質が点在する様子も観察される（図 2.3-33(c)）。

次に、シリカ微粒子―モンモリロナイトの境界面及び空隙を埋めている物質をより詳細に調べるために STEM による組成分析を行った。図 2.3-34(a)に示す HAADF 像の赤枠部分（図 2.3-34(a)に対応する箇所）の元素マッピングを実施し（図 2.3-34(c)）、さらにモンモリロナイトからシリカ微粒子に至る直線上の Si と Al の濃度プロファイルも併せて示す（図 2.3-34(d)）。元素マップからもモンモリロナイトの端面がシリカ微粒子に直接接する組織であることが確認できる。比較対象として、よりシリカ微粒子―モンモリロナイトの境界面が明瞭な部分でも同様の元素マッピングと線分析を行った（図 2.3-34(e)-(g)）。不明瞭な境界（図 2.3-34(d)）での Si と Al の濃度プロファイルを見ると、測線上の約 300 nm の距離をかけてモンモリロナイトからシリカ微粒子の組成に漸移している。一方で、明瞭な境界（図 2.3-34(g)）での Si、Al のプロファイルではより短い距離で組成が変わっていることが確認できる。また、図 2.3-34(f)の元素マップからはモンモリロナイトの束の間に炭素が分布している様子が見られる。

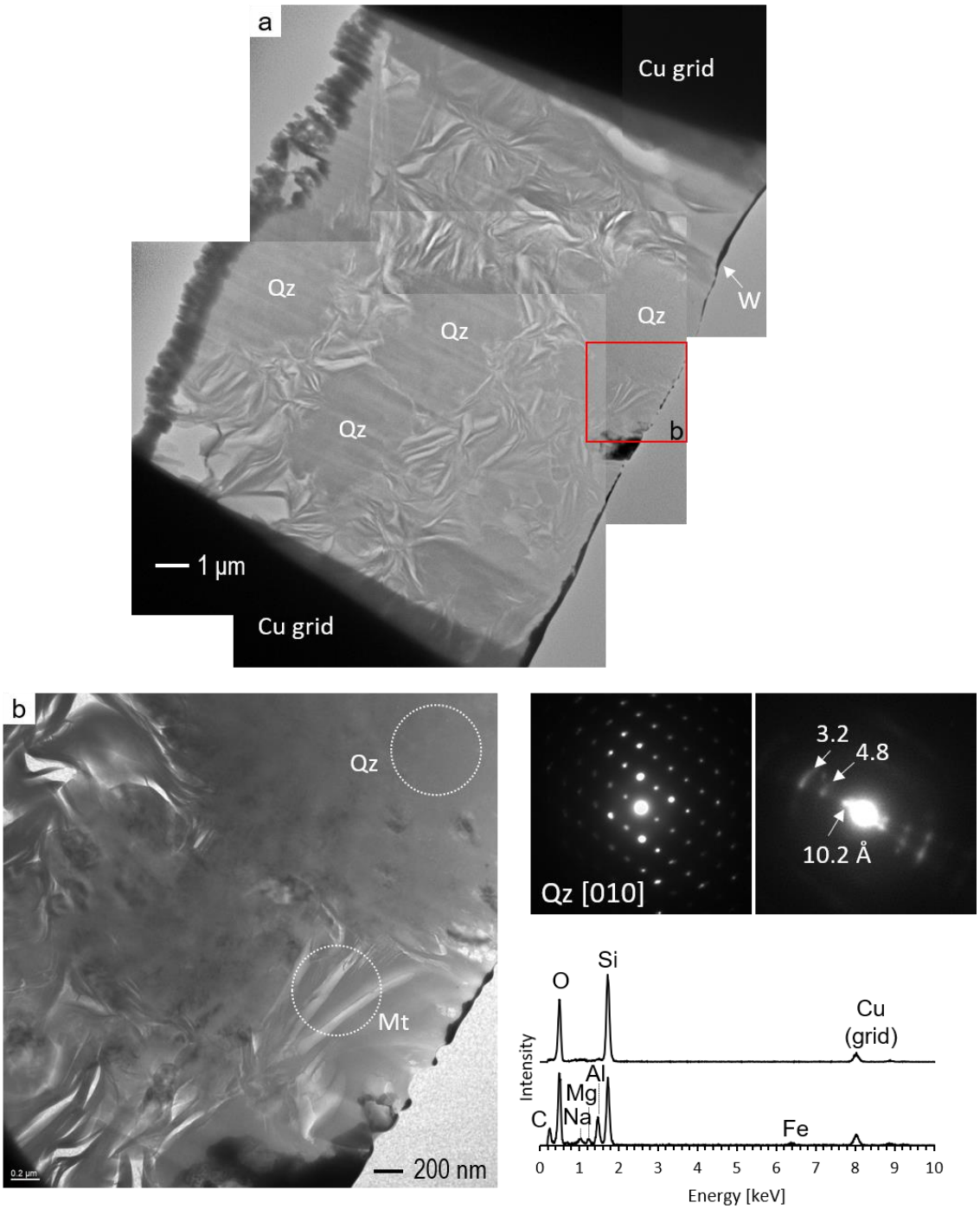


図 2.3-32　ベントナイト原鉱石（29 番層）の TEM 観察結果
(a)薄膜全体の明視野像、(b)シリカ微粒子及びモンモリロナイトの制限視野電子回折像と特性 X 線スペクトル、Qz: 石英、Mt：モンモリロナイト、W：タングステン保護膜

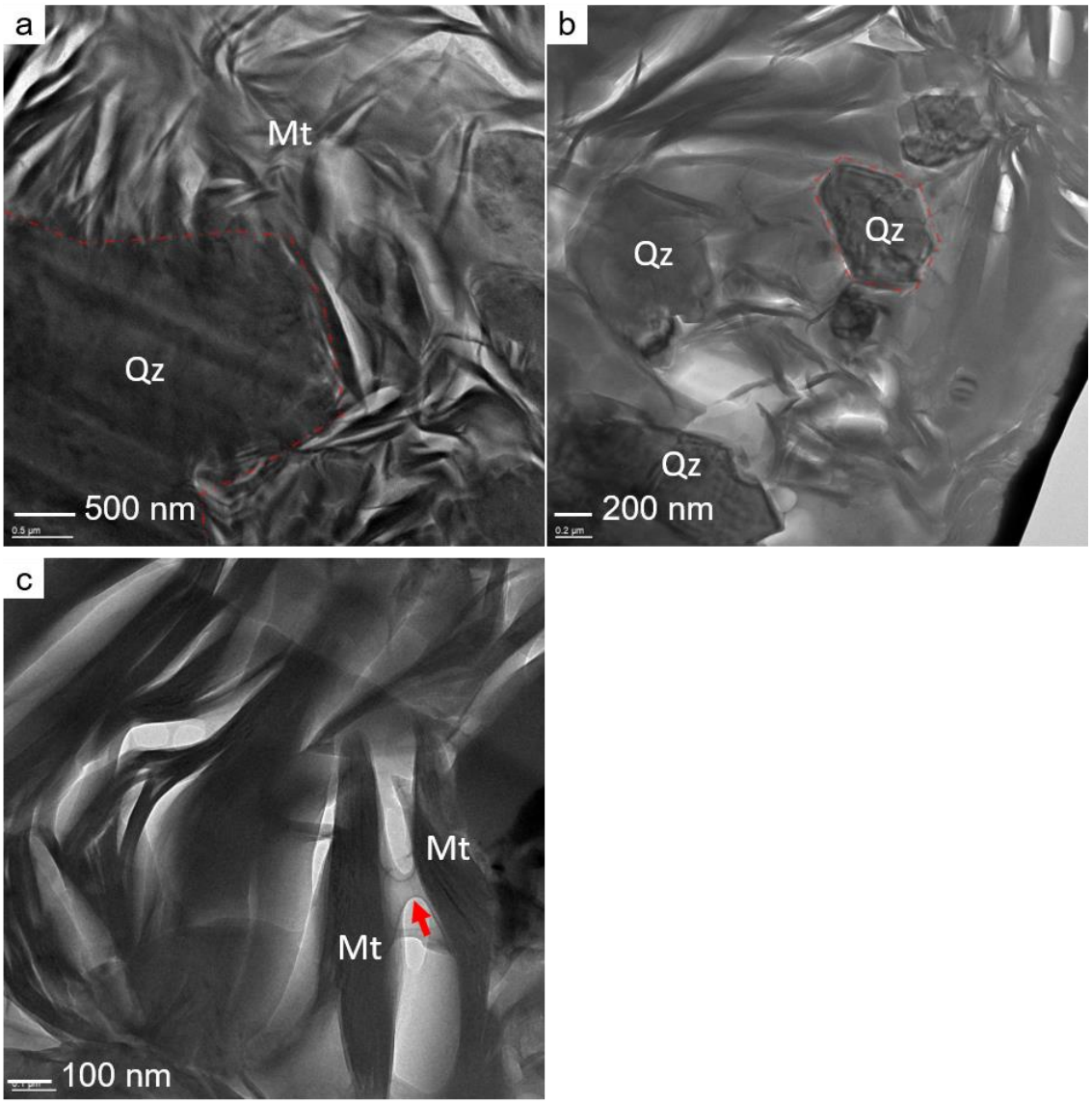


図 2.3-33　ベントナイト原鉱石（29 番層）の高倍率 TEM 観察結果
(a)シリカ微粒子-モンモリロナイトの境界（境界が不明瞭）、(b)シリカ微粒子-モンモリロナイトの境界（境界が明瞭）、(c)束状のモンモリロナイトの間に点在する物質（赤矢印）

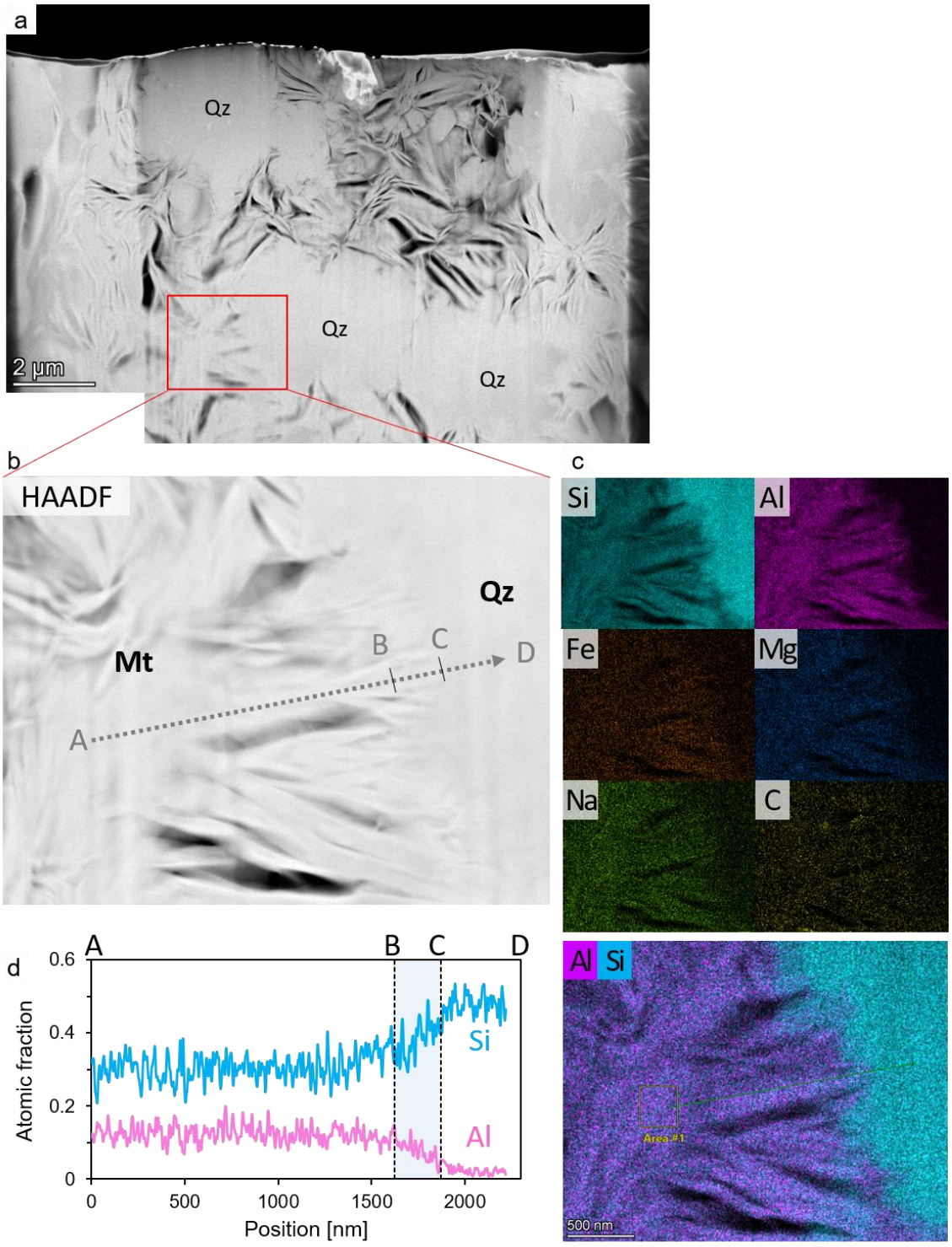


図 2.3-34　STEM によるシリカ微粒子-モンモリロナイトの境界部分の観察結果
(a)試料全体の HAADF 像、(b)境界部分の HAADF 像、
(c)境界部分の元素マップ、(d)Si と Al の濃度プロファイル

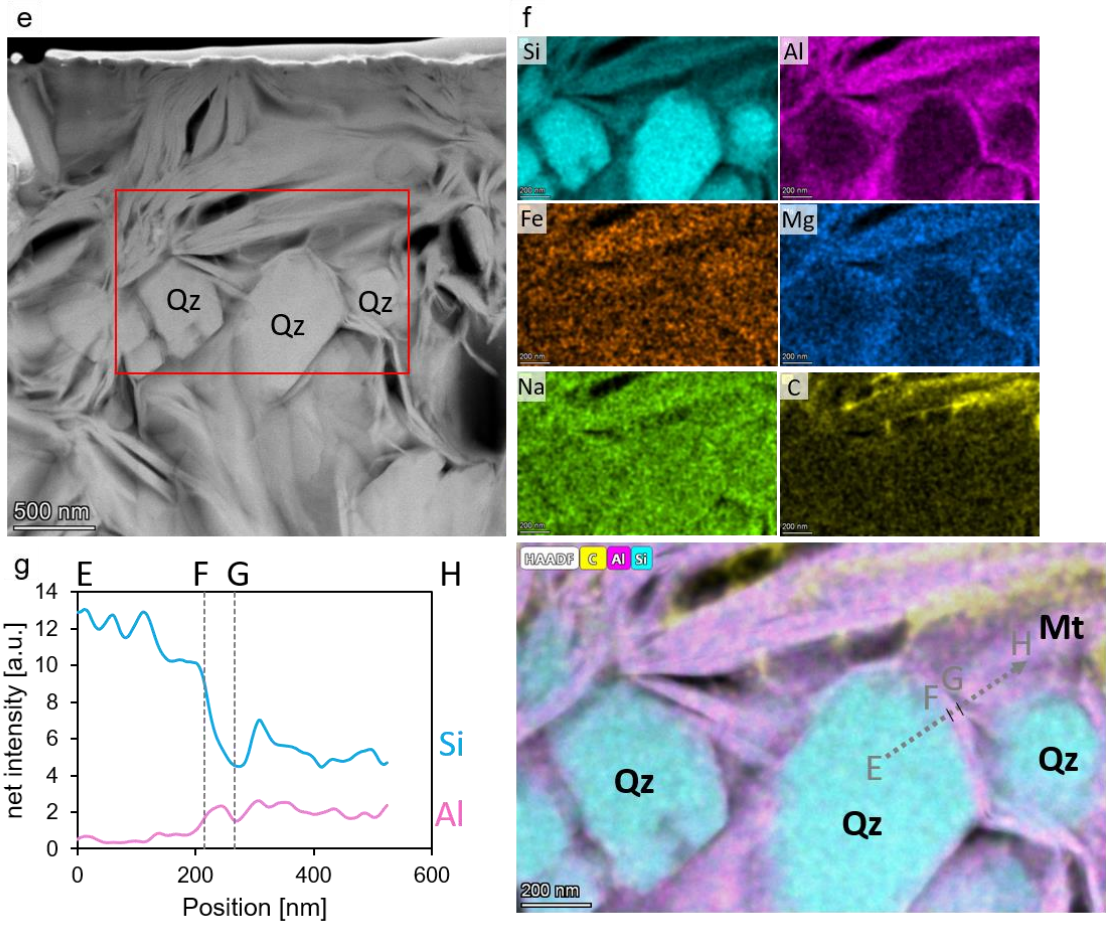


図 2.3-34　STEM によるシリカ微粒子-モンモリロナイトの境界部分の観察結果(続き)
(e)マッピング範囲を含む HAADF 像、(f)元素マップ、(g)Si と Al の濃度プロファイル

③ 考察

(a) セメンテーション物質について

29 番層の原鉱石と再構成試料の比較写真を見てみると、原鉱石の方は石英や沸石の間を縫うように、モンモリロナイトが脈状に分布していることがわかった。またその脈中にはシリカ微粒子が並んでいる。31 番層も同じように砕屑性の石英粒子の間を埋めているのはモンモリロナイト自身とシリカ微粒子である。1 番層ではモンモリロナイトに対するシリカ微粒子の相対量が増えており、加えて方沸石も形成されている。したがって、火山灰砕屑物を出発物質とする月布ベントナイトを固結した岩石たらしめているセメンテーション物質は、隙間を充填するように形成されたモンモリロナイトとシリカ微粒子の二つであり、加えて 1 番層では方沸石も寄与している。

さらに、TEM や STEM を用いてより細かなスケールで観察したところ、モンモリロナイトの層状粒子が数百 nm 幅の束になった組織やモンモリロナイト粒子の端部がシリカ微粒子と接合している組織が見られた。前者に関連して、STEM 分析の結果では、束に沿って炭素が濃集している様子が確認された。乾燥した月布産ベントナイト（クニゲル V1）に含まれる有機炭素量はおよそ 0.31 wt%だと言われている（吉川ほか, 1995）。試料作製における包埋時の樹脂が浸透した可能性が現時点では否定できないものの、モンモリロナイトを束状につなぎとめている物質の候補としてシリカ以外に有機物の可能性も検証する必要がある。後者に関してはスウェーデンの Kinnekulle 鉱床における先行研究にて報告されたモンモリロナイトの端部に Si に富んだ析出物

が発見されたものに類似している（Pusch, 1993）。このようなナノスケールで観察される物質がモンモリロナイト粒子周囲に固着することで、膨潤したベントナイト原鉱石を Cryo-SEM で観察した際に十分には膨らまずに隙間が残る結果を生じさせていることが予想される。

(b) ベントナイト原鉱石が示すセメンテーションのプロセス

粉砕する前のベントナイトが本来有している岩石組織を詳細に観察している先行事例はこれまでにほとんど存在しない。令和 2 年度に実施した組織観察からは、月布鉱山の中でもベントナイトの層同士でその組織が大きく差が存在することが示された。SEM 観察及び画像解析の結果から、年代が古い、つまりより高い続成作用を被ったベントナイトほどモンモリロナイトの量が減っていくと考えられる。これはメチレンブルー吸着法で定量された有効モンモリロナイト密度の結果（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）と整合的である。また SEM 画像も考慮すると微細なシリカ鉱物は逆に増えていっていること、各層の構成鉱物については、斜プチロル沸石が方沸石に変化していることがわかった。このことよりベントナイト中の微細なシリカ鉱物のでき方は以下の 3 通りが考えられる。

（1）火山ガラス→モンモリロナイトの過程で SiO_2 が余剰分として出てきた。
（2）斜プチロル沸石→方沸石の過程で SiO_2 が余剰分として出てきた。
（3）モンモリロナイトのバイデライト化反応の過程で Si が余剰分として出てきた。

（1）については一般的な珪長質の火山ガラスに含まれている元素は、主に Si と O が圧倒的に多く、その他少量の Na や Al、K が含まれる。モンモリロナイトの化学式は $(Na, Ca)_{0.33}(Al, Mg)_2Si_4O_{10}(OH)_2 \cdot nH_2O$ であり、火山ガラスに海水が入ってくることにより生成される。火山ガラスがモンモリロナイトに変質する際に、火山ガラスに含まれていた SiO_2 は余るので、この余剰分の SiO_2 が微細なシリカ鉱物として析出するというものである。

（2）については、以下の反応式のように

$(Na_2, K_2)[Al_2Si_4O_{20}] \cdot 7H_2O$（斜プチロル沸石）$+ 2Na^+$

$\rightarrow Na_2[Al_2Si_4O_{12}] \cdot 2H_2O$（方沸石）$+ 4SiO_2 + 5H_2O + 2(Na^+, K^+)$

$(Na_2, Ca)[Al_2Si_{10}O_{24}] \cdot 8H_2O$（モルデン沸石）$+ 2Na^+$

$\rightarrow Na_2[Al_2Si_{10}O_{12}] \cdot 2H_2O$（方沸石）$+ 6SiO_2 + 6H_2O + (2Na^+, Ca^{2+})$

続成作用が進むにつれて上のような沸石相の変化が起こるとされており（水谷ほか, 1987）、これは 31 番層、29 番層に斜プチロル沸石があるのに 1 番層には無いことと整合性がある。

（3）については、モンモリロナイトの四面体シートを構成している SiO_4 四面体が一部 Al に同型置換する、すなわちバイデライト化する過程において余った SiO_2 が析出するというものである。反応式を下記に示す。

$(Na, Ca_{0.5})_{0.33}(Al_{1.67}Mg_{0.33})_2Si_4O_{10}(OH)_2 \cdot nH_2O$（モンモリロナイト）$+ 0.66Al$

$\rightarrow (Na, Ca_{0.5})_{0.33}Al_2[Si_{3.67}Al_{0.33}]_4O_{10}(OH)_2 \cdot nH_2O$（バイデライト）$+ 0.33Si + 0.33Mg$

Sato et al.（1996）では、スメクタイトのイライト化が起こる以前の初期続成作用においてバイデライト化が起こることが指摘されており、実際に横山ほか（2004）によれば月布ベントナイト 29 番層ではバイデライト成分（四面体置換）が認められている。したがってモンモリロナイトのバイデライト化反応も微細なシリカ鉱物析出の要因となっていることが考えられる。

（1）（2）（3）をまとめて考えると、ベントナイトが生成される反応の時に（1）が起こり微細なシリカ鉱物が析出し、ベントナイトが生成したあと続成作用が進んでいく中で（2）と（3）が起こり微細なシリカ鉱物の量が増加するというプロセスが推測される。ここまでの結果と考察か

らセメンテーションの流れは以下の様に進むのではないかと考えた。

①火山活動により噴出した火山灰などの火山砕屑物が、急冷し火山ガラス(SiO_2・Na・Al・K)と大きい鉱物(石英・長石・パイライトなど…)がある状態に、水が加わることで火山ガラスのふちがゼオライト（モルデン沸石$(Na_2, Ca)[Al_2Si_{10}O_{24}]\cdot 8H_2O$・斜プチロル沸石（$(Na_2, K_2)[Al_2Si_4O_{20}]\cdot 7H_2O$）に変わり、固結することでガラス質凝灰岩になる。

②①の後または①と同時進行的に Mg を含む海水が加わることで、火山ガラスがモンモリロナイト($(Na, Ca)_{0.33}(Al, Mg)_2Si_4O_{10}(OH)_2\cdot nH_2O$)に変質し、余った Si が SiO_2に富んだ微細鉱物に変化する。生成したモンモリロナイトと SiO_2が沸石と石英の間などを埋めていく事でベントナイトになる。

③ベントナイトになった後も続成作用が進むと同時にシリカ鉱物などの析出によるセメンテーションも進行し、斜プチロル沸石が方沸石に変質する。また、モンモリロナイトの一部がバイデライトに変化していく。2 つの変質に伴い微細なシリカ鉱物の量が増えていき、また続成作用の進行に伴い徐々に鉱物の粒径が小さくなっていくため、空隙率が下がる。

上記のセメンテーションの過程を図で表すと（図 2.3-35）のようになる。

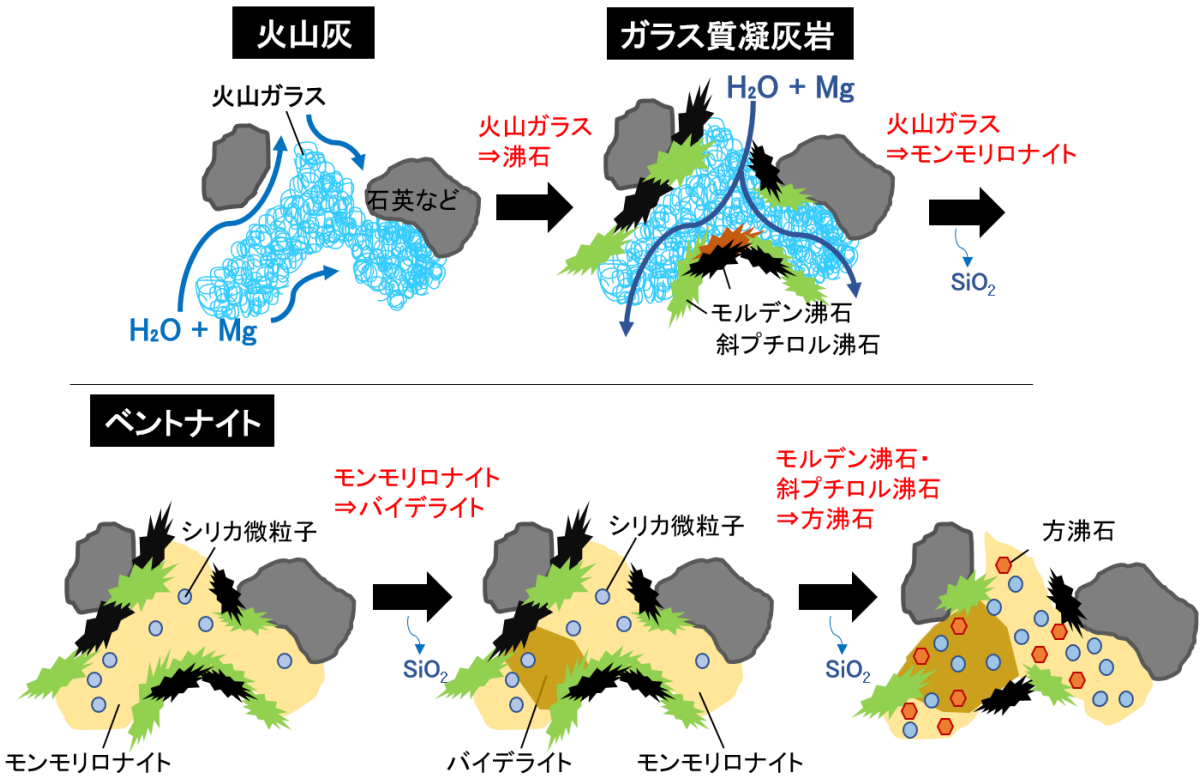


図 2.3-35　月布ベントナイト原鉱石のセメンテーション過程の模式図

(c) 原鉱石-再構成試料間の膨潤圧差を生む要因について

FIB-SEM での観察では、29 番層原鉱石中でモンモリロナイトがカードハウス状の構造を示している部分と粒子同士が底面を揃えて配向し束なっている部分の両方が見られる。前者は恐らく脈状に分布する空隙と直接接していた部分のモンモリロナイトで自由膨張するために必要な空間が広がっていると考えられる。SEM 観察及び画像解析の結果でもベントナイト原鉱石中での空隙は亀裂状あるいは脈状に分布していることが示されている。そのような原鉱石試料では膨張し

やすい場所に存在しているモンモリロナイト粒子と膨張するための空間が確保できないモンモリロナイト粒子の両方が不均質に分布していると思われる。それに対して再構成試料では細かな空隙が試料全体により均質に分布しているので、試料の多くの場所でモンモリロナイトが膨潤しやすい状況になっていると考えられる。再構成試料は原鉱石の乾燥密度と同様になるように作製しているため、両者はバルクでの間隙率には大きな差はないと考えられるが、間隙の分布については原鉱石と再構成試料の間で大きな違いが見られた。原鉱石と再構成試料の間で膨潤圧に差が見られるにも関わらず、透水係数には大きな差がない理由としてバルクでの間隙率が変わらない点が挙げられる。

また、TEM/STEM によって微細組織を観察した結果、モンモリロナイト端面がシリカ微粒子に直接接する組織が見られた。このシリカ微粒子は顕微ラマン分光と制限視野電子回折像から低温型石英だと判断されるが、その形状から砕屑性の石英ではなく、続成作用の進行に従って析出したアモルファスシリカが結晶化したものである可能性が挙げられる。モンモリロナイトの端面がシリカ粒子と接合していると、端面から層間への水の供給は制限され、なおかつ接している部分での自由膨張が制限されると考えられる。このようなモンモリロナイト粒子の周りに存在する物質も原鉱石の膨潤性を低下させている要因と考えられる。

(d) 今後の課題

月布ベントナイト原鉱石及び再構成試料を対象として、含まれている各鉱物種の量比の推定を SEM 画像の解析という簡易的な手法で行った。ただし、この方法では砕屑性の石英粒子とシリカ微粒子、沸石をそれぞれ区別して定量することが出来ないため、それらの鉱物種ごとに定量していく方法を確立する必要がある。モンモリロナイトのみの定量に関してはメチレンブルー吸着法による推定（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）が有効である。それ以外の鉱物の量比については、リートベルト法や標準添加法を用いた粉末 X 線回折分析からのアプローチが必要と考えられる。

また、天然の原鉱石からセメンテーションのプロセスを明らかにする上で重要となるのは、モンモリロナイトを始め、各鉱物が形成された年代や前後関係を明確にすることである。月布ベントナイトについては、伊藤ほか（1999）によるジルコンのフィッショントラック年代測定や全岩の K-Ar 年代測定に基づき、ベントナイトの材料となった筈の火山灰の噴出時期が推定されているが、火山灰が堆積した後、続成作用を経てベントナイトになる過程やベントナイトになった後に各鉱物種がどれくらいの期間を経て形成したものであるかは不明のままである。今後は組織観察・鉱物学的分析に加えて、年代を推定するために同位体による分析なども実施していく必要があると思われる。

3) 月布鉱山産ベントナイト原鉱石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、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を行った。令和 2 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、平成 31 年度から実施している標準圧密試験を継続して行い、試験後試料の乾燥密度測定などを実施することにより、剛性への影響の理解を進めた。さらに、セメンテーションの原因物質の溶解などに伴うセメンテーション状態の経時的な変化を観察するため、原鉱石と再構成試料を対象とした複数年程度の長期の膨潤圧試験を開始した。

① 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、剛性への影響を検討するため、原鉱

石と再構成試料に対する標準圧密試験を実施し、両者の違いを分析した。月布鉱山の 29 番層の原鉱石を対象に、原鉱石及び再構成試料それぞれ 3 試料に対して標準圧密試験を実施した。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 2.3-36 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図 2.3-36 に示すような通水条件で蒸留水を給水し、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った。平成 31 年度では、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。令和 2 年度は残りのステップを実施した。

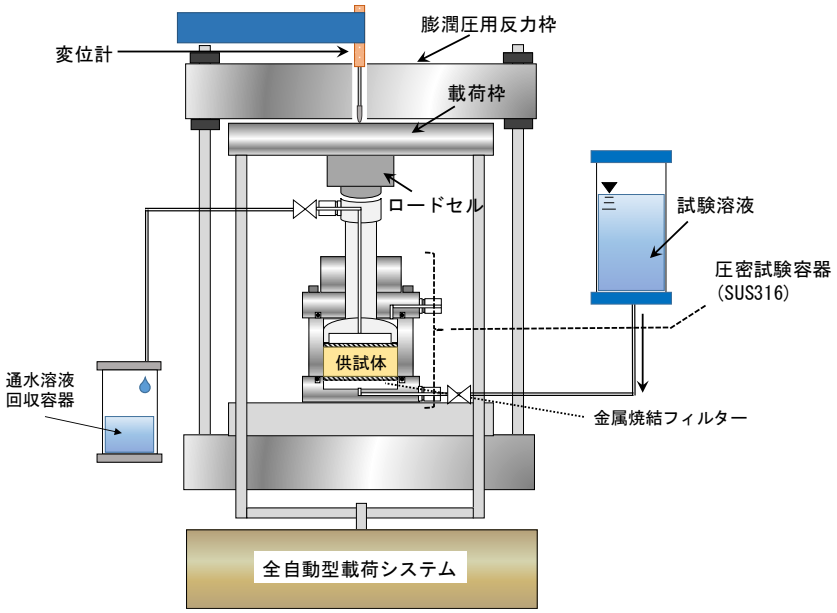
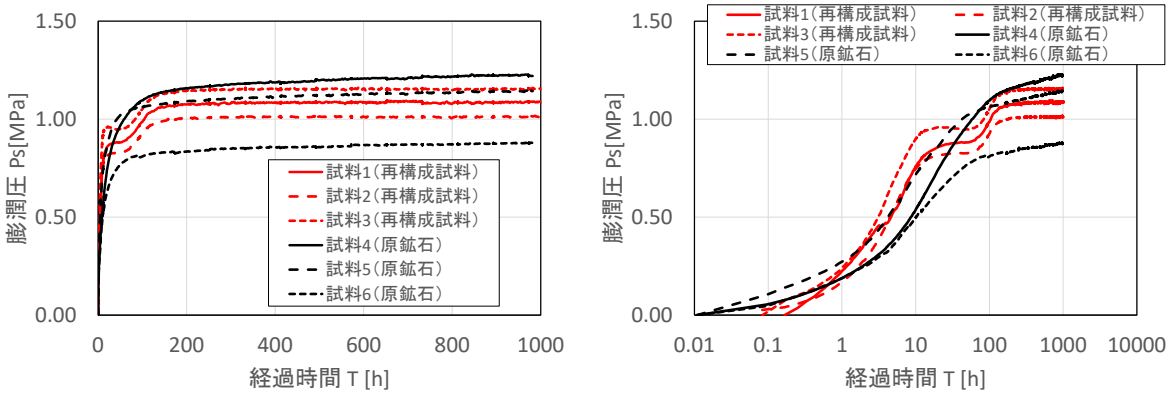


図 2.3-36　標準圧密試験装置概略

まず、平成 31 年度実施した膨潤圧測定過程の結果を図 2.3-37 に示す。今回用いた試料の膨潤圧は概ね 1.0 MPa であった。また、200 時間程度で再構成試料の膨潤圧の上昇はほとんど生じなくなっているのに対し、原鉱石の膨潤圧はなだらかに上昇を続けていることがわかる。このことから、セメンテーションの原因物質の溶解に伴うセメンテーション状態の経時的な変化が生じている可能性が考えられ、長期的にはセメンテーション状態が解消される可能性がある。そのため、原鉱石と再構成試料を対象とした複数年程度の膨潤圧試験を実施し、より長期の計測データに基づく両者の違いを分析する必要がある。続いて、間隙比と載荷圧の関係を図 2.3-38 に示す。なお、間隙比は試験後試料の炉乾燥による含水比などの測定結果を基に求めた。また、図中の正規圧密線は、1.5 MPa~19.6 MPa の載荷荷重での再構成試料の試験データに対して最小二乗法により求めた。膨潤圧測定段階の間隙比は、原鉱石の方が小さいことがわかる。載荷過程では、試料 4 と試料 6 は正規圧密線よりも右側に圧縮線が存在しており、一般的なセメンテーションした土質材料の挙動と同様の傾向が表れている。このことから、本事業で用いている原鉱石は、土質力学的な観点からはセメンテーションしている材料であることがいえるとともに、セメンテーションにより剛性が増加していることを確認した。また、除荷開始時（載荷終了時）の状態は、試料 4 が正規圧密線から最も離れていることから、除荷時においては試料 4 が最もセメンテーションの影

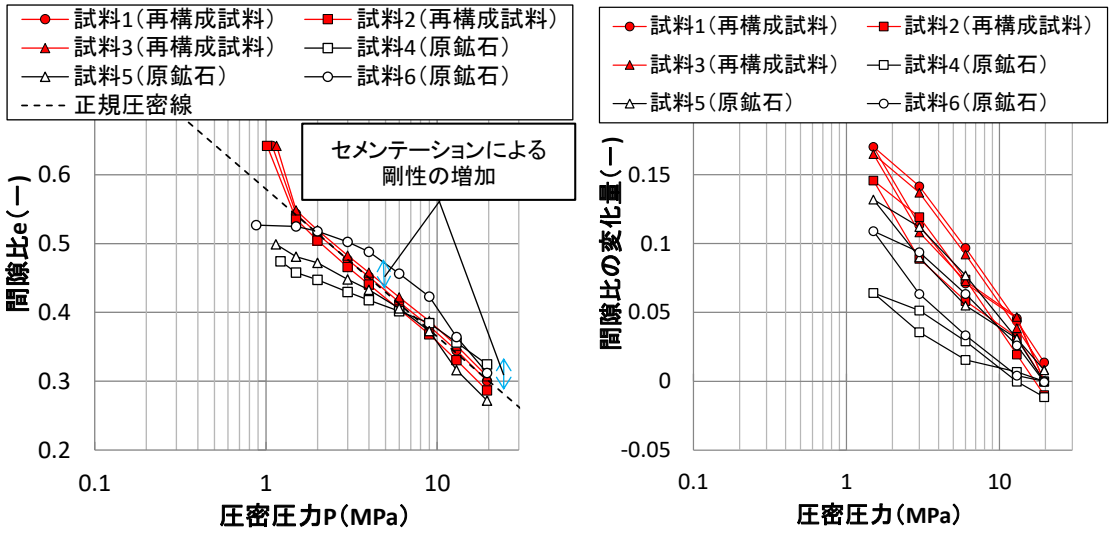
響を受けている状態と考えられる。続いて、除荷・再載荷時の挙動から、原鉱石の除荷時の膨潤変形量は再構成試料と比較して小さくなっており、最もセメンテーションの影響を受けていると考えられた試料 4 ほど膨潤変形量が小さくなっている。膨潤指数を表 2.3-4 に示す。なお、膨潤指数は、除荷開始時及び除荷終了時の 2 点から求めた。原鉱石の膨潤指数は再構成試料の膨潤指数と比較して小さくなり、試料 4 では半分以下となっている。以上の標準圧密試験の結果から、セメンテーションにより圧密に対する剛性が大きく、除荷による膨潤変形量が小さくなる可能性を示唆する結果を得た。



（a）線形目盛で表示　　（b）対数目盛で表示

図 2.3-37　膨潤圧測定結果

（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, 2020）



（a）載荷過程　　（b）除荷・再載荷過程

図 2.3-38　間隙比と載荷圧の関係

表 2.3-4　各試験ケースにおける膨潤指数

試験ケース	膨潤指数
試料 1（再構成試料）	0.066
試料 2（再構成試料）	0.057
試料 3（再構成試料）	0.064
試料 4（原鉱石）	0.025
試料 5（原鉱石）	0.051
試料 6（原鉱石）	0.042

② 複数年程度の膨潤圧試験

上述の標準圧密試験における膨潤圧測定過程において、蒸留水を通水させることによって原鉱石の膨潤圧はなだらかに上昇を続ける傾向が確認された。そこで、セメンテーションの原因物質の溶解などに伴うセメンテーション状態の経時的な変化を観察するため、原鉱石と再構成試料を対象とした複数年程度の長期の膨潤圧試験を開始した。月布鉱山の 29 番層の原鉱石を対象に、原鉱石及び再構成試料それぞれ 3 試料に対して膨潤圧試験を実施した。なお、原鉱石試料はダイヤモンドビットを用いて円柱状にコア抜きすることで供試体を作製した。令和 3 年度以降、長期的な膨潤圧変化における原鉱石と再構成試料の差異を分析していく予定である。

4) 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

①試料・実験方法

ベントナイトの構成鉱物が一部溶解し、二次鉱物が形成されることでセメント化される様子を再現するため、圧縮ベントナイトの通水実験を実施した。

本実験で使用したベントナイト試料は「クニゲル®V1」（クニミネ工業株式会社）である。鉱物組成に関しては一般的に、スメクタイト46–49 wt%、石英・玉髄29–38 wt%、斜長石2.7–5 wt%、方解石2.1–2.6 wt%、苦灰石2–2.8 wt%、方沸石3–3.5 wt%、黄鉄鉱0.5–0.7 wt%であると認識されている（伊藤ほか, 1994）。またスメクタイトは主としてNa型モンモリロナイトである。

ベントナイト試料を乾燥密度0.3 Mg/m^{3}となるようにアクリル製カラム（内径20 mm・長さ30 mm）に充填した（図2.3-39）。実際に施工が検討されているベントナイトの乾燥密度（~1.6 Mg/m^3）よりも低く設定したのは、通水を容易にすることで短期間での反応の進行を観察可能とするためである。供試体は実験前にイオン交換水に浸し、真空デシケーター内で3週間脱気させることでベントナイトを膨潤させた。70°Cの恒温炉にカラムを入れ、0.07 mmol/Lの水酸化マグネシウム水溶液を通水圧0.03 MPaのもとで加圧装置からチューブを伝って50日間通水した（図2.3-40）。この通水圧はカラムの中で水みちが発生しないことを考慮して設定した。カラムを通水した後の溶液は常温常圧の窒素雰囲気条件下で採取した（図2.3-41）。

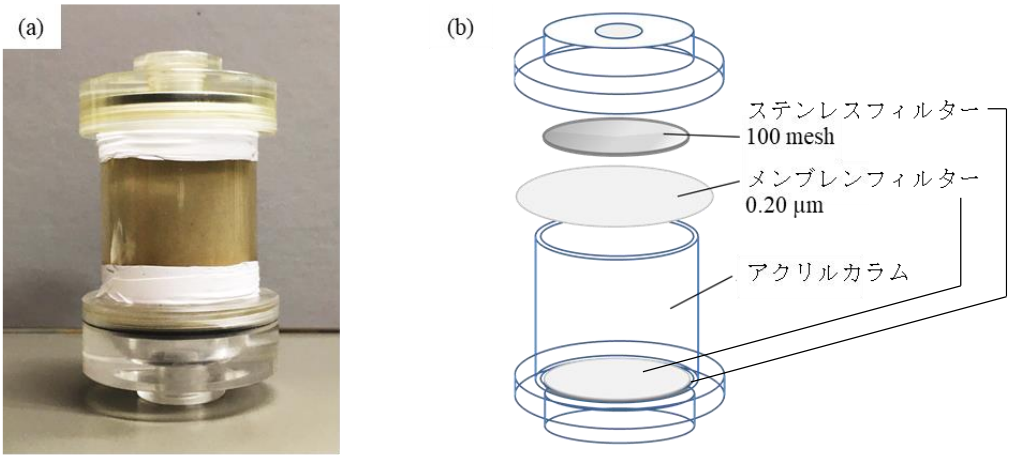


図 2.3-39　実験に使用したベントナイト充填カラムとカラムの内部構造
(a)充填カラム、(b)充填カラム内部構造

図 2.3-40　通水圧 0.03 MPa に設定した加圧装置

図 2.3-41　ベントナイト試料を入れた恒温炉と通水溶液の採取

② 分析手法

アウトプット溶液は、実験開始から15日後、30日後、50日後の計3回分析のために取り出し、pH及び主要溶存元素濃度の測定を行った。pH測定では堀場製作所製のpH電極（9625-10D）及びpHメータ（LAQUAct D-74）を用いた。試料の測定前に、堀場製作所製pH7とpH9標準液を用いた校正を行った。主要溶存元素の濃度測定のためには、アウトプット溶液を超純水で20倍に希釈して1 vol%の硝酸（硝酸1.38特級、関東化学）を加え、島津製作所製のICPE-9000を用いた。標準液（ICP multi-element standard solution IV、Merck KGaA; Silicon Standard Solution、富

士フィルム和光純薬）から検量線を引くことで試料中の元素濃度を評価した。

固相に対しては、15日後、30日後、50日後に通水実験を一時的に中断し、マイクロフォーカスX線CT装置（TOSCANER-31300μC³、 東芝ITコントロールシステム）内でカラムを垂直に立たせ非破壊での供試体の内部観察を行った。コーンビーム法、管電圧90 kV、管電流89 μA、スライス厚0.01 mm、スライスピッチ0.01 mm、1画素のサイズ~5 μmで測定し、通水期間の違いで供試体の同一断面でのCT画像にどのような差異が生まれるのかを観察した。

③ 分析結果

溶液分析の結果を表2.3-5に示す。pHに関しては、アウトプット溶液はインプット溶液と比べて1以上減少していた。溶存元素はNa、K、Siがドミナントであり、Mg、Ca、Alは低濃度であった。Mgの濃度については、アウトプット溶液はインプット溶液よりも濃度が低下していた。

表 2.3-5　pH 及び主要溶存元素濃度（mmol/L）

溶液試料	$pH_{25℃}$	Na	K	Mg	Ca	Fe	Al	Si
インプット $Mg(OH)_2$ aq	10.04	*nm*	*nm*	0.07	*nm*	*nm*	*nm*	*nm*
アウトプット 15 日後	8.99	8.78	0.67	0.015	0.021	*nd* < 0.0001	0.016	0.48
アウトプット 30 日後	8.84	7.17	3.20	0.014	0.018	0.0018	0.040	0.57
アウトプット 50 日後	8.80	5.17	0.08	0.005	0.014	*nd* < 0.0001	*nd* < 0.006	0.62

※ *nm*: not measured、 *nd*: not detected

また透水係数 k（m/s）をダルシ—則 $Q/A = k\Delta P/\Delta L$ より評価した（表 2.3-6）。ここで、Q は流量（m^3/s）、A はカラムの断面積（m^2）、ΔP は水頭差（m）、ΔL は試料の通水方向における長さ（m）である。流量 Q は、アウトプット溶液の質量を計測し、密度 1 g/cm^3 と仮定して通水した体積を導き、さらに通水時間で除することで計算した。ここではカラムからの通水溶液を回収しているボトルまでを繋ぐチューブ内の体積は考慮していない。透水係数は、時間とともにやや増加しているものの、オーダーはいずれも 10^{-10} であり大きな差は得られなかった。

表 2.3-6　透水係数の評価（m/s）

溶液試料	透水係数
アウトプット 15 日後	1.29×10^{-10}
アウトプット 30 日後	1.76×10^{-10}
アウトプット 50 日後	2.61×10^{-10}

溶液のモニタリングに並行して、X線CTで固相の状態の経過観察を行った。図2.3-42(a)、(b)、(c)、(d)はそれぞれ、実験前、実験開始日から15日後、30日後、50日後のベントナイトカラムの一断面を内部観察した結果である。画像の全体に広がっている黒い部分はモンモリロナイト（膨潤

して密度が小さくなった鉱物）を示し、散見される白い粒子はモンモリロナイト以外の鉱物（石英・玉髄など）を示している。測定する際の微量なスキャン位置のずれにより、それぞれの断面は全く同じ断面ではなく多少のずれがあるものの、黄色で示した領域は、図2.3-42(a)、(b)、(c)、(d)のどれでも同様の分布形状をしているため、供試体の同一断面をトレースすることができていると考える。ここでは4断面図の間での差異を3点記述する：①図2.3-42 (a)で「△」でマークされた粒子は実験前には存在していたが15日後以降には存在していない。②図2.3-42(b)で「□」でマークされた粒子は実験15日後の断面にのみ存在する。③図2.3-42(b)、(c)、(d)で「○」でマークされた粒子は実験前の状態を示す図2.3-42(a)には存在していない。この考察を次のセクションで行った。

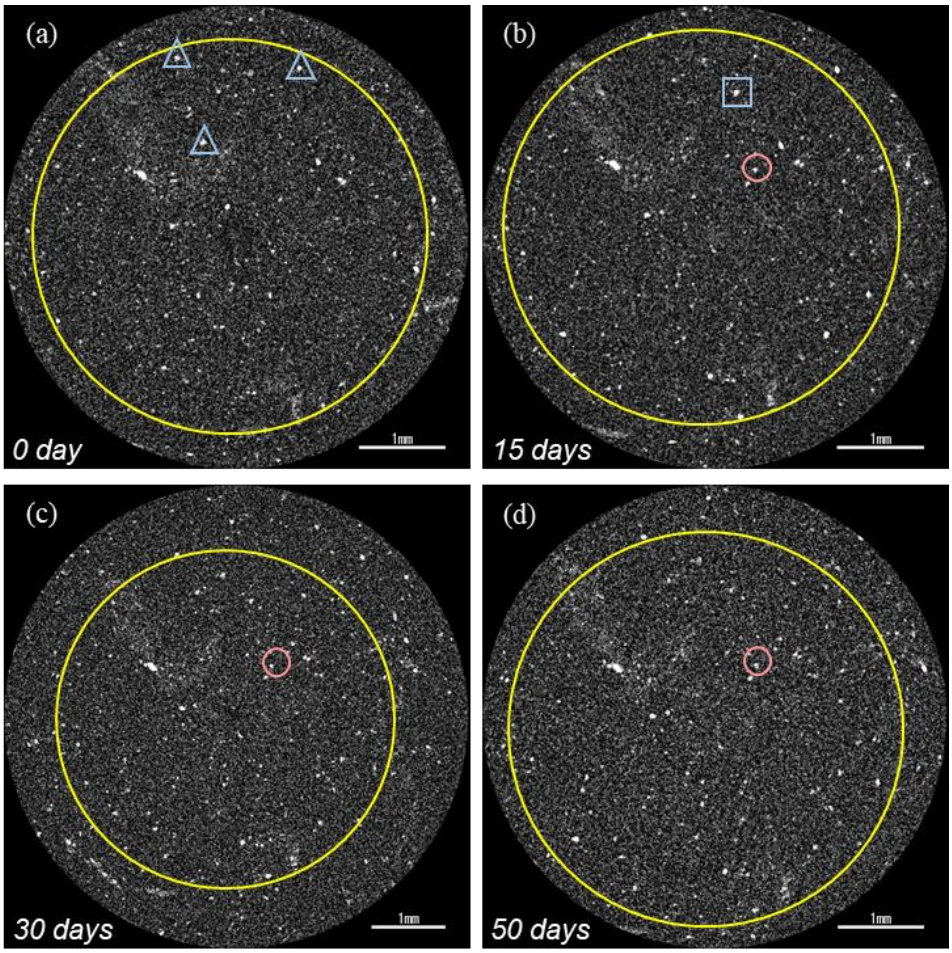


図 2.3-42　X 線 CT によるベントナイト供試体の内部観察
(a)0day、(b) 15days、(c) 30days、(d) 50days

④ 考察

(a) ベントナイト構成鉱物の溶解について

本ベントナイト試料は主としてモンモリロナイトとシリカ鉱物（石英・玉髄）から構成される。アウトプット溶液の溶存Al濃度が小さい（表2.3-5）ことからベントナイトの溶解量よりもシリカ鉱物の溶解量の方が大きいことが考えられる。その確認のため、熱力学データベースThermoddem（Blanc et al., 2012）とモデリングソフトThe Geochemist's Workbench（Bethke et al., 2019）を用いて、モンモリロナイトと玉髄の溶解挙動を評価した（図2.3-43）。ここでは、

モンモリロナイトと玉髄がそれぞれ1 mol存在している状態を仮定して、pH10条件下で溶解させるための水を加えていった際の各鉱物の存在量を平衡論に基づいて計算した。結果として玉髄の溶解量の方が大きくなることが定性的に確認でき、pH10条件下ではモンモリロナイトと玉髄の溶解度には大きな差があることがわかる。

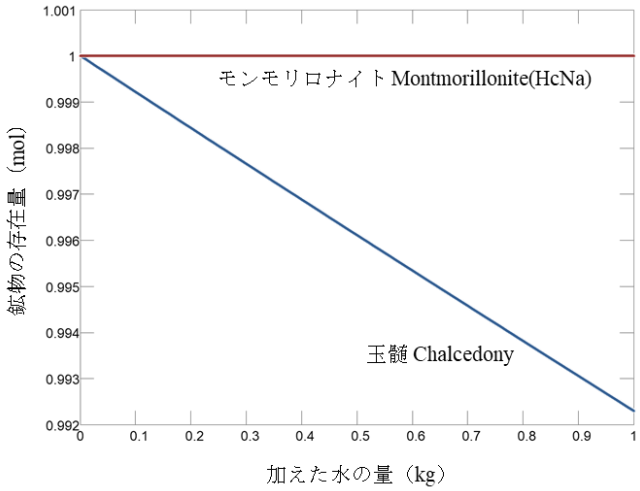


図 2.3-43　モンモリロナイト 1 mol と玉髄 1 mol に水を加えていった際の溶解挙動（pH10 固定）

溶液分析よりシリカ鉱物の溶解が示唆されたが、それはX線CTの結果と整合的である。図2.3-42(a)で「△」でマークされた粒子が実験前には存在していたが15日後以降には存在していないこと（①）は、シリカ鉱物が通水によって溶解したためであると考えられる。また、図2.3-42(b)で「□」でマークされた粒子が実験15日後の断面にのみ存在すること（②）も同様であると考えられる。「□」でマークされた粒子は、実験前の供試体の図2.3-42(a)で示されるベントナイト供試体の断面では確認されていなかったが、その断面よりも一つ隣のスキャン画像からは同じ位置に確認できていた。故に、通水に伴って「□」でマークされた粒子が上下方向にわずかに移動したことが考えられる。従って、「□」でマークされた粒子は実験前にも存在し、実験開始から15日経っても確認されたが、30日後以降には溶解によって確認できなくなったと言える。

(b) 二次鉱物の形成について

溶液分析の結果からは、アウトプット溶液の溶存 Mg 濃度がインプット溶液よりも小さいことがわかる（表 2.3-4）。実験初期に採取したアウトプット溶液は、実験前にベントナイトをカラム内でイオン交換水を用いて膨潤された際の間隙水の影響を大きく含むため、実験後期（31 日目から 50 日目の間）に採取したアウトプット溶液の組成から議論するなら、溶存 Mg 濃度は 0.005 mmol/L である。これはインプット溶液の溶存 Mg 濃度の 10 分の 1 以下であり、供給した Mg の 90%以上が固体中にトラップされた考えることができる。固定先としては、二次的に形成した Mg 含有鉱物もしくは Na 型モンモリロナイトのイオン交換が考えられる。ただ、シリカ鉱物の溶解に伴い、溶存 Si 濃度が大きいため、平成 31 年度に実施したバッチ式変質実験の結果（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, 2020）のように、Na 型モンモリロナイトのイオン交換よりも Mg と Si からの二次鉱物の形成の方が Mg の主な固定先である可能性が考えられる。

図 2.3-42(b)、(c)、(d)で「○」でマークされた粒子は実験前の状態を示す図 2.3-42(a)には存在

していないこと（③）から、「○」でマークされた粒子は二次的に生成したものであると認識できるかもしれない。実際に中林（2014）は水酸化ナトリウム水溶液を同じく乾燥密度 0.3 Mg/m^3 のベントナイトカラムに通水圧 0.03 MPa で通水し、一次鉱物の溶解だけでなく二次鉱物の形成をも CT 画像で白く見える粒子の変化から確認できている。しかしながら、本実験において二次的に生成した鉱物の産状は「○」でマークされた粒子のような形態なのかは更なる分析を行って検討していく必要がある。Mg があるところに濃集されているのではなく、断面に均質に分布していることも考えられる。

⑤ 今後の方策

今後は、X線CT以外にも固相分析を行っていく必要がある。通水方向に直交する方向で供試体を切断していくつかに分けて、X線回折分析や断面のSEM観察・元素マッピング分析を行い、二次的に形成された鉱物の同定と産状理解を進めていく必要がある。また実験方法の再検討（実験期間や、インプット溶液の組成、カラムのサイズなどについて）も行っていく予定である。

(3) これまでの成果と今後の課題

令和 2 年度は、ベントナイトのセメンテーションなどに関する既往研究成果の調査、セメンテーションの影響を受けていると推察される月布鉱山産ベントナイト原鉱石の観察、月布鉱山産ベントナイト原鉱石及びその再構成試料を対象とした基本特性データの取得、セメンテーションに関する実験的研究手法の検討を実施した。

既往研究の調査では、処分環境で想定される各種のセメンテーション及びベントナイトのケミカルエロージョンに関連する既往研究成果をレビューし、現状での理解や課題について整理することができた。

月布鉱山産ベントナイト原鉱石の観察では、原鉱石及び再構成試料の岩石組織及び微細構造を種々の電子顕微鏡法を用いて観察し、シリカ微粒子とモンモリロナイトの接着や不均質な空隙構造など、膨潤性の低下の要因と考えられる原鉱石のセメンテーションの状態を確認することができた。

基本特性データの取得では、原鉱石及びその再構成試料を対象に膨潤圧・透水試験・標準圧密試験を実施し、再構成試料と較べて原鉱石の膨潤圧が減少し、剛性が増加する傾向を示すものの、透水性の変化が認められないことを確認することができた。また、標準圧密試験における膨潤圧測定過程において、原鉱石の膨潤圧はなだらかに上昇を続ける傾向が確認された。このことは原鉱石のセメンテーション状態が長期的には解消される可能性を示唆する。

セメンテーションに関する実験的研究手法の検討においては、セメンテーションを模擬する $Mg(OH)_2$ 溶液通水実験を実施し、ベントナイト中のシリカ鉱物の溶解に伴い放出される Si と Mg イオンと反応によりベントナイト間隙中の二次鉱物の生成を示唆する結果を得ることができた。

平成 30 年度～令和 2 年度までの 3 か年の検討により、月布鉱山産ベントナイト原鉱石などの基本特性データを蓄積するとともに、膨潤性低下などの要因と考えられる月布鉱山産ベントナイト原鉱石のセメンテーションの状態を詳細に把握することができた。また、通水実験によるセメンテーションに関する実験的研究手法のプロトタイプを開発することができた。

今後は、セメンテーション状態の経時的な変化を観察するため、原鉱石及び再構成試料を対象とした複数年程度の長期の膨潤圧試験を実施する。また、月布鉱山の原鉱石などの分析を継続しセメンテーションのプロセスを明らかにするとともに、$Mg(OH)_2$ 溶液通水実験におけるセメンテーション状態の観察・分析、実験方法の改良を進める。

2.4 ニアフィールド THMC 連成挙動評価

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、過渡期の THMC 連成挙動に関する現象解析モデル開発として、平成 30 年度及び平成 31 年度においては、FEBEX プロジェクトにおける原位置試験を対象に、THAMES による THM 連成解析を実施した（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 ; 2020)。そして、緩衝材への地下水の浸潤が進んだ約 19 年間の試験期間の評価を通じて、水理挙動を再現するためには、温度勾配によって生じる水分移動を表すパラメータが間隙水飽和度に依存して変化する影響を考慮する必要があることを明らかとした。さらに、幌延深地層研究計画におけるオーバーパック腐食試験を対象として、Couplys による THMC 連成解析を実施し、廃棄体を模擬したヒーターの発熱と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評価を実施した。ここでは、原位置において計測されている緩衝材の間隙水の pH や pe との比較を通じた THMC 連成モデルの適切性の確認を行い、間隙水の pH については、スメクタイトの酸・塩基反応によって、また、pe については、緩衝材中に含有する黄鉄鉱が初期間隙中に存在する酸素を消費する反応を考慮することで、それぞれの変遷を再現可能であることを確認した。令和 2 年度は、より多様な地質環境条件に応じた THMC 連成挙動を再現できる現象解析モデルの構築を目指し、幌延深地層研究計画における人工バリア性能確認試験で得られている計測データを活用して、幌延地下水に対して得られている緩衝材の固有透過度と蒸留水に対する固有透過度を用いた場合の浸潤挙動の違いについて分析を行った。この中では、平成 31 年度までに実施してきた FEBEX プロジェクトにおける原位置試験を対象とした THM 連成解析による再現解析によって抽出された課題を踏まえ、THAMES における緩衝材中の温度勾配による水分移動を表現するモデルについて検討を実施した。これらの実施内容と成果については 2.4.1 項で述べる。

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、ニアフィールド長期力学解析コードの開発を行ってきた。平成 30 年度及び平成 31 年度は、過渡期の緩衝材の飽和度変化に伴う力学的な状態変化を解析する機能を MACBECE に追加し、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（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 ; 2020)。令和 2 年度は、MACBECE の更なる改良として、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できる機能を MACBECE に追加した。さらに、過渡期の緩衝材の力学モデルの高度化に向けて、平成 31 年度は、X 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。令和 2 年度は、湿潤密度の違う供試体に対する X 線 CT 測定により、CT 値から湿潤密度への換算式を構築し、平成 31 年度に取得したデータの再整理を行った。さらに、平成 31 年度とは反対面からの給水条件での膨潤圧試験を実施し、膨潤挙動の現象理解を進めた。これらの実施内容と成果については 2.4.2 項で述べる。

一方、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モデルの開発を行ってきた。平成 30 年度以降、指定された温度と圧力で圧縮したときに生じる粘土含水系の凝集挙動の評価（組織構造モデルの作成）、及び得られた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 年度までに、メソ MD 法で得られる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。令和 2 年度は、手法の拡張として、粘土含水系の組織形成シミュレーションにおいて水分量を変化させることができるように、水和エネルギーと水分量の関係をモデル化しメソ MD モデルへの組み込みを行った。これらの実施内容と成果については 2.4.3 項で述べる。

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。このような過渡期におけるニアフィールド環境の把握を始めとして、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て、熱－水－応力（THM）連成解析コード（以下、THAMES という）（Ohnishi et al., 1985）、さらに、THAMES に地球化学解析コードの PHREEQC（Parkhurst, 1999）を連成させた熱－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；2013b；2014；2015b）。このような過渡期の THMC 連成挙動の評価技術を開発することで、過渡期の THMC 挙動を評価する際に、どの現象を連成として評価しなければならないのかを明らかにし、過渡期の THMC 連成挙動を支配する現象を抽出することも可能となる。例えば、鈴木・高山（2020）は、緩衝材の力学挙動が熱や水理挙動に及ぼす影響に着目して THAMES の高度化を行い、緩衝材の膨出などの力学挙動が緩衝材の最高温度や緩衝材の再冠水時間へ及ぼす影響は小さいことなどを明らかにしている。

このような背景のもと、本事業では、過渡的な期間におけるニアフィールド環境の状態変遷を適切に評価するための技術開発とその評価技術の確証を目的とし、その一環として、これまでに開発した連成解析モデルにより原位置における人工バリア試験を対象とした再現解析を進めてきた。そして、原位置での計測結果との比較を通じて、連成解析モデルの適切性の確認を行うとともに、連成解析モデルやパラメータの整備及び課題の抽出を行う。

平成30年度及び平成31年度においては、より長期の計測データを活用した連成解析モデルの適切性の確認を目的として、FEBEX（Full scale Engineered Barriers Experiment）プロジェクトにおける原位置試験（ENRESA, 2000）を対象に、THAMESによるTHM連成解析を実施した。そして、緩衝材への地下水の浸潤が進んだ約19年間の試験期間の評価を通じて、より長期的な水理挙動を再現するためには、温度勾配によって生じる水分移動を表すパラメータが間隙水飽和度に依存して変化する効果を考慮する必要があることを明らかにした。そして、このTHM連成解析モデルが、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；2020）。また、幌延深地層研究計画におけるオーバーパック腐食試験（中山, 2018）を対象として、CouplysによるTHMC連成解析を実施し、廃棄体を模擬したヒーターの発熱と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評価を実施

した。そして、コンクリート支保の影響を受けた海水系地下水が浸潤する緩衝材の間隙水組成や酸化還元電位の変遷などオーバーパックの腐食評価に必要となる情報を取得した。さらに、原位置において計測されている緩衝材の間隙水のpHやpeとの比較を通じたTHMC連成モデルの適切性の確認を行っており、間隙水のpHについては、スメクタイトの酸・塩基反応によって、また、peについては、緩衝材中に含有する黄鉄鉱が初期間隙中に存在する酸素を消費する反応を考慮することで、それぞれの変遷を再現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 ; 2020）。他方、本原位置試験においては、緩衝材の間隙水飽和度の変化に関する計測データが取得されていないため、浸潤挙動に対する連成解析モデルの適切性の確認が出来ていない。一般的に、ベントナイトの透水性はイオン強度などの間隙水組成の影響を受けると考えられることから、海水系地下水条件での緩衝材の浸潤挙動を適切に評価する連成解析モデルの確立が課題となっている。

令和 2 年度は、より多様な地質環境条件に応じた THMC 連成挙動を再現できる現象解析モデルの構築を目的として、海水系地下水環境下での緩衝材の浸潤挙動に対する連成解析モデルの適用性の検討に着手した。緩衝材の固有透過度はイオン強度依存性を持つため、海水系地下水環境下における緩衝材の水理特性は、初期に存在する間隙水と浸潤して来る海水系地下水とが混合することで間隙水組成が変化し、その間隙水組成に基づき変化すると考える。このような間隙水組成の変化に基づく透水性の変化は、緩衝材の浸潤挙動に大きな影響を与える可能性が考えられることから、海水系地下水環境下での緩衝材の浸潤挙動を評価する際には、このような現象を考慮しなければならない可能性がある。令和 2 年度の検討では、幌延深地層研究計画における人工バリア性能確認試験で得られている計測データを活用して、蒸留水条件や幌延地下水条件での緩衝材の固有透過度を解析ケースとした幌延人工バリア性能確認試験の THM 連成解析を実施し、まずは、固有透過度のイオン強度依存性が浸潤挙動へ与える影響を把握した。この中では、平成 31 年度までに実施してきた FEBEX プロジェクトにおける原位置試験を対象とした THM 連成解析による再現解析によって抽出された課題を踏まえ、THAMES における緩衝材中の温度勾配による水分移動を表現するモデルの間隙水飽和度依存性について検討を実施した。具体的には、気液二相流解析コードの TOUGH2（Pruess, 1991）を用いて、気相の流れと水蒸気量の勾配によって生じる水蒸気の移動を含む温度勾配条件下における浸潤挙動評価を行い、得られた浸潤プロファイルに基づいて THAMES における温度勾配によって生じる水分移動を表すパラメータの設定を行った。

(2) 実施内容

1) TOUGH2 による温度勾配水分拡散係数の設定

① 概要と目的

THAMES では、不飽和状態の緩衝材中の水分移動は、ダルシー則に加えて温度勾配により水分移動が生じるようにモデル化を行っている。

$$\mathbf{F}^{w} = -k_r k_w \nabla h - D_T \nabla T \qquad (2.4\text{-}1)$$

ここで、$\mathbf{F}^{w}$：流量フラックス、k_r：比透水係数、k_w：透水係数、h：全水頭、D_T：温度勾配水分拡散係数、T：温度である。この温度勾配による水分移動は、液状水及び水蒸気として移動するものの総和であるが、水蒸気としての移動が支配的であると考えられている。一般的に、液相水は温度や間隙水飽和度などの変化に応じて水蒸気へと状態変化し、水蒸気は気相の流れや水蒸気量の勾配により移動すると考えられている。THAMES ではこのような複雑な水蒸気の移動を上記

の右辺第二項のように単純化しており、この温度勾配水分拡散係数D_Tは間隙水飽和度や温度の関数としてモデル化されている。これまで、温度勾配水分拡散係数のモデルのパラメータ値の推定には、まず温度勾配条件下における圧縮ベントナイト中の水分移動量を実験により把握し、その後 THAMES による解析を行うことにより、試験結果を再現できようなパラメータ値を推定するという手法が用いられてきた。しかしながら、温度勾配水分拡散係数の間隙水飽和度や温度依存性を調べるためには、数多くの室内試験を実施する必要があるとともに、高温条件などでは境界条件を制御することが難しく、試験の実施そのものが困難な場合も想定される。このようなことから、温度勾配水分拡散係数を間隙水飽和度や温度の関数とせずに、一定値として解析を実施することがほとんどであった。しかしながら、平成 31 年度実施した FEBEX 試験での長期計測データを活用した THAMES の適用性確認に関する検討を通じて、温度勾配水分拡散係数を一定値とした場合には浸潤挙動の再現性が低くなることが確認されているなど、温度勾配水分拡散係数は過渡期の緩衝材の再冠水挙動を評価する上で重要なパラメータと考える。そこで本検討では、水蒸気の発生や気相の移動を考慮できる解析コード（TOUGH2）との比較を通じて温度勾配水分拡散係数の間隙水飽和度と温度依存性を考慮したモデルのパラメータ値の推定を行った。実験データによる検証が求められるものの、過渡期の緩衝材の再冠水挙動の評価において多くの実績のある TOUGH2 を用いることにより、数多くの室内試験を必要とせずに温度勾配水分拡散係数のパラメータ値の推定が可能となり、例えば試験の実施が困難な 100°C 超のような条件での温度勾配水分拡散係数の推定にも適用できる可能性がある。

TOUGH2 は、水蒸気の発生や気相の移動を考慮できる解析コードであり、水と空気の移動に着目した時の THAMES と TOUGH2 の支配方程式の比較を表 2.4-1 に示す。

表 2.4-1　水と空気の移動に着目した時の THAMES と TOUGH2 の支配方程式の比較

構成関係		THAMES	TOUGH2
水	流れ	$\boldsymbol{F^w} = -k\frac{k_r\rho_l}{\mu_l}\nabla h - D_T\nabla T$	$\mathbf{F}^w = \mathbf{F}_l^w\|_{adv} + \mathbf{F}_g^w\|_{adv} + \mathbf{F}_g^w\|_{dis}$ $= -k\frac{k_r\rho_l}{\mu_l}(\nabla P_l - \rho_l\mathbf{g}) - X_g^w k\frac{k_{rg}\rho_g}{\mu_g}(\nabla P_g - \rho_g\mathbf{g}) - \rho_g\overline{\mathbf{D}_g^w}\nabla X_g^w$
	蒸発/凝縮	非考慮	$P_v(T, S_l) = f_{VPL}(T, S_l)\cdot P_{sat}(T)$ …Kelvin's equation $P_v(T, S_l)V_g = nRT$ … 状態方程式
空気	流れ	非考慮	$\mathbf{F}^a = \mathbf{F}_g^a\|_{adv} + \mathbf{F}_l^a\|_{adv} + \mathbf{F}_l^a\|_{dis}$ $= -k\frac{k_{rg}\rho_g}{\mu_g}(\nabla P_g - \rho_g\mathbf{g}) - X_l^a k\frac{k_r\rho_l}{\mu_l}(\nabla P_l - \rho_l\mathbf{g}) - \rho_l\overline{\mathbf{D}_l^a}\nabla X_l^a$
	溶解/気化	非考慮	$P_a = K_h x_l^a$ … Henry's equation $P_a V_g = nRT$ … 状態方程式
水／空気	気相圧	P_g=大気圧	$P_g = P_a + P_v$
	保水性	$P_g - P_l = -P_0\left([(S_l - S_{lr})/(S_{ls} - S_{lr})]^{-1/m} - 1\right)^{1-m}$ … van Genuchten モデル （ほかのモデルも使用可能）	$P_g - P_l = -P_0\left([(S_l - S_{lr})/(S_{ls} - S_{lr})]^{-1/m} - 1\right)^{1-m}$ … van Genuchten モデル （ほかのモデルも使用可能）

両者の主な特徴を以下にまとめる。

- THAMES では温度勾配により水分移動が生じる。一方、TOUGH2 では水の蒸発・凝縮を解析可能であり、水蒸気は理想気体として取り扱い、拡散と気相空気の流れにより移動する。TOUGH2 は空気の溶解・気化を解析可能であり、気相空気は理想気体として取り扱い、気相空気はダルシー則、溶存空気は拡散と液相水の流れにより移動する。
- THAMES では気相圧力P_gは常に大気圧一定としている。TOUGH2 では気相圧力P_gは空気圧P_aと蒸気圧P_vの足し合わせで表現される。

液相水は温度や間隙水飽和度などの変化に応じて水蒸気へと状態変化し、水蒸気は気相の流れや水蒸気量の勾配により移動すると考えられるが、TOUGH2 ではこれらの挙動をモデル化しているのに対し、THAMES ではこの複雑な水蒸気の挙動を温度勾配による水分移動として単純化して評価している。TOUGH2 は DECOVALEX プロジェクトなどを通じて、諸外国において過渡期の再冠水挙動に対しての適用性の検討が進められ、多くの適用実績を有する解析コードであるが（例えば、Gens et al., 2021）、TOUGH2 と THAMES を用いた一次元の温度勾配浸潤挙動の解析結果の比較による温度勾配水分拡散係数のパラメータ値の推定を行った結果を以下に示す。

② 温度勾配条件での浸潤解析条件

(a) 解析モデル

THAMES と TOUGH2 を用いた一次元の温度勾配浸潤挙動の解析結果の比較により、幌延人工バリア性能確認試験の緩衝材を対象とした温度勾配水分拡散係数のパラメータ値の推定を行った。まずは、温度勾配条件下での浸潤挙動を TOUGH2 により解析し、TOUGH2 により得られた供試体内の間隙水飽和度変化を再現できるような温度勾配水分拡散係数のパラメータ値を THAMES により求めた。THAMES と TOUGH2 の解析モデルは、緩衝材のみを対象とした長さ 70cm の一次元の解析領域を、140 個の要素で分割した。緩衝材外側の温度を 30°C として、内側の温度を 30°C、50°C、70°C、90°C のそれぞれの条件で、緩衝材外側から水が浸潤する条件で解析を実施した。さらに、TOUGH2 では、浸潤挙動におよぼす間隙空気の影響を把握するため、内側を排気境界とした場合と、非排気境界とした場合について評価を行った。

(b) 解析物性値

a. 水理特性

クニゲル®V1 にケイ砂を 30 wt%混合した緩衝材（以下、30 wt%ケイ砂混合体という）の蒸留水に対する固有透過度κ（m²）は、有効粘土乾燥密度ρ_b（Mg/m³）との関係において次式が得られている（松本ほか, 1997）。

$$\kappa = exp(-42.100 + 1.1447\rho_b - 2.123\rho_b^2) \quad (2.4\text{-}2)$$

$$\rho_b = \frac{\rho_d(100-R_s)}{100-\rho_d\frac{R_s}{\rho_s}} \quad (2.4\text{-}3)$$

ここで、ρ_d：乾燥密度（Mg/m³）、R_s：ケイ砂混合率（%）、ρ_s：ケイ砂の土粒子密度（Mg/m³）であり、2.64 Mg/m³（核燃料サイクル開発機構, 1999a）である．固有透過度とは、透水係数を用いて以下の式で表されるものである。

$$k_w = \kappa\frac{\rho g}{\mu} \quad (2.4\text{-}4)$$

ここで、ρ：透過溶液の密度（Mg/m^3）、g：重力加速度（m/s^2）、μ：透過溶液の粘性係数（Pa･s）である。固有透過度は、多孔質体の透水性を評価する際に用いられる概念であり、粒径分布、粒子の形状､屈曲度､空隙率などの多孔質体自身の構造特性に由来する透過抵抗を表すものである。ベントナイトの場合、イオン強度に応じて膨潤特性が変化することにより骨格構造が変化するため、固有透過度はイオン強度依存性を持つものと考えられる。

水分特性曲線は､次式に示す van Genuchten モデル（van Genuchten, 1980）により設定した。

$$S_e = \frac{\theta - \theta_r}{\theta_s - \theta} = [1 + |\alpha\psi|^n]^{-m} \qquad m = 1 - \frac{1}{n} \tag{2.4-5}$$

ここで、S_eは有効間隙水飽和度（-）、ψはサクション（mH_2O）である。飽和時の体積含水率$\theta_S = 0.329$、最小体積含水率$\theta_r = 0.000$、αと nはフィッティングパラメータである。また、緩衝材の水分特性曲線は、以下のような式で表されることがわかっており（鈴木・高山, 2020）、式（式 2.4-4）のαと nは式（式 2.4-5）との比較により推定された 5.00×10^{-3}m^{-1}、1.38 を用いた（大野ほか, 2019）。

$$S_r = 0.9675 {n_e}^{-1.77} \psi^{-0.371} \tag{2.4-6}$$

比透水係数k_r（-）は、間隙水飽和度S_r（-）の関数として、Corey モデル（Corey, 1954）の指数部分を変数としたモデルによって、FEBEX や人工バリア性能確認試験の緩衝材に対して設定された次式を用いた（ENRESA, 2000；日本原子力研究開発機構, 2018）。

$$k_r = {S_r}^3 \tag{2.4-7}$$

TOUGH2で使用する比透気係数k_{rg}は、圧縮ベントナイトに対して取得された比透気係数のデータ（棚井ほか, 1996）に基づき、Fatt and Klikoff（1959）のモデルを用いた。

$$k_{rg} = [1 - S_r]^3 \tag{2.4-8}$$

TOUGH2での溶存空気と水蒸気の拡散係数については、平成24年度の実規模スケールにおける二相流現象の予察的解析（日本原子力研究開発機構, 2013b）に用いられた値に準じ、水蒸気の拡散係数は5×10^{-5}（m^2/s）、溶存空気の拡散係数は2×10^{-9}（m^2/s）とした。

THAMESにおける温度勾配水分拡散係数については、平成31年度までに実施してきたFEBEXプロジェクトにおける原位置試験の再現解析結果に基づき間隙水飽和度依存性を考慮し（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；2020）、低水分領域と高水分領域で水蒸気の移動が小さくなるBorgessonらのモデル（Börgesson and Hernelind, 1999）に準じて次式を用いた。

$$\begin{aligned} &D_T = D_{Tb} \quad 0.3 \le S_r \le 0.4 \\ &D_T = D_{Tb} \cdot cos^a\left(\frac{S_r - 0.4}{0.6}\frac{\pi}{2}\right) \quad S_r \ge 0.4 \\ &D_T = D_{Tb} \cdot sin^b\left(\frac{S_r}{0.3}\frac{\pi}{2}\right) \quad S_r \le 0.3 \end{aligned} \tag{2.4-9}$$

ここで、D_Tは温度勾配水分拡散係数（m²/sK）、D_{Tb}は間隙水飽和度が0.3～0.4における温度勾配水分移動係数（m²/sK）、a及びbはそれぞれ高水分領域と低水分領域においてD_Tの低下量を決定するパラメータである。さらに、次式により温度勾配水分拡散係数の温度依存性を考慮した。

$$D_T = D_{Tb} \times \exp\left(\alpha_T \times (T - T_0)\right) \quad (2.4\text{-}10)$$

ここで、Tは現在温度（°C）、T_0は基準温度（°C）、α_Tはパラメータである。これら、温度勾配による水分移動に関わるパラメータは、前述したTOUGH2による浸潤解析結果をフィッティングにより再現するものとした。

b. 熱物性

30 wt%ケイ砂混合体の熱伝導率λ（W/mK）は、乾燥密度ρ_d（Mg/m³）と含水比ω（%）の関数として次式が得られている（鈴木・高山, 2020）。

$$\lambda = -2.01 + 7.56 \times 10^{-2}\omega - 7.00 \times 10^{-4}\omega^2 + 1.56\rho_d \quad (2.4\text{-}11)$$

また、比熱c（kJ/kgK）については、密度依存性が確認できないことから、含水比ω（%）の関数として次式が得られている（菊池・棚井, 2003）。

$$c = \frac{67.32 + 4.18\omega}{100 + \omega} \quad (2.4\text{-}12)$$

③ 解析結果

まず、間隙空気が浸潤挙動に与える影響を把握するため、内側を排気境界とした場合と非排気境界とした場合の解析結果を比較したものを図 2.4-1 に示す。図は、内側の温度の境界条件を 30°C とした場合と 90°C とした場合の緩衝材内側の解析結果である。30°C の条件では、間隙水飽和度が約 80%まではほとんど差異はないが、80%以上では、封入された空気の影響によって非排気条件では浸潤がやや遅くなっている。90°C の条件においては、排気条件の方が乾燥による間隙水飽和度の低下量がやや大きくなっており、非排気条件と比較するとその後の間隙水飽和度の上昇が遅くなっている。間隙水飽和度が 90%よりも大きい領域においては、封入された空気の影響によって非排気条件では飽和度の上昇が遅くなり、排気条件の方が飽和度の上昇が早くなっている。

後述の人工バリア性能確認試験の解析で対象とした期間は平成 27 年 1 月から平成 30 年 3 月までの約 1,200 日間であり、このような期間における間隙空気が浸潤挙動に与える影響については、間隙空気の排気・非排気条件の違いにより緩衝材内側の間隙水飽和度の低下量に差異が生じる可能性が考えられる。しかしながら、図 2.4-1 に示した結果によれば、緩衝材内側の間隙水飽和度の下限値における排気・非排気条件の違いによる差異は数%以下であることから、後述の人工バリア性能確認試験の解析結果に与える間隙空気の影響は小さいものと考えられた。また、幌延人工バリア性能確認試験では、緩衝材内側において間隙圧の大きな上昇が確認されていないことから、緩衝材内側の間隙空気は地下水の浸潤に伴い領域の外側へ抜けている可能性が指摘されている（雑賀, 2020）。そのため、内側を排気境界とした場合の TOUGH2 の解析結果を用いて THAMES での温度勾配水分拡散係数のパラメータ値を推定した。

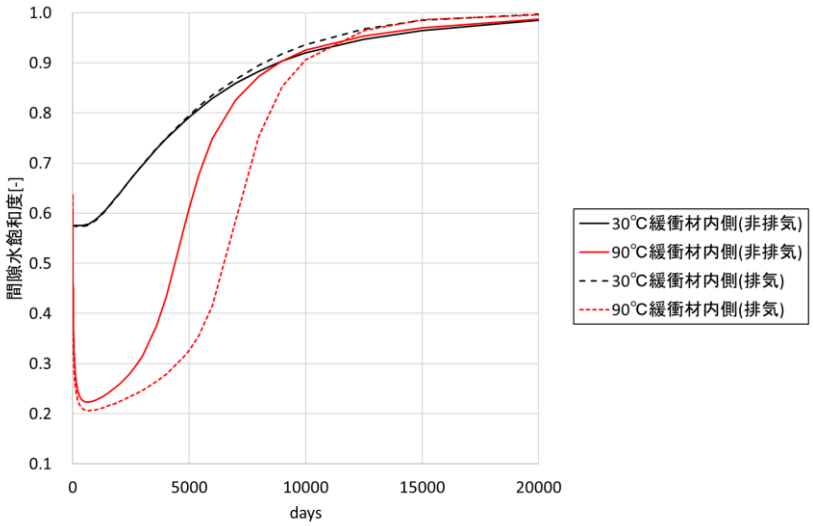


図 2.4-1　TOUGH2 による排気条件と非排気条件での浸潤解析結果の比較

温度勾配条件下における浸潤挙動の解析結果として、THAMES と排気条件での TOUGH2 の間隙水飽和度の時間変化を図 2.4-2 に示す。図中の点付きの曲線は TOUGH2、点なしの曲線は THAMES による解析結果である。出力点は、解析モデルの高温側に設定される緩衝材内側、浸潤面の緩衝材外側及び緩衝材の中央である。緩衝材内側では、温度勾配による水分移動によって一時的に水分が低下し、また、温度が高い程、乾燥が促進する結果となっている。そして、TOUGH2 によって得られた解析結果を再現するための温度勾配水分移動に関わるパラメータ値は、D_{Tv}=3.00×10^{-12} m^2/sK、a = 2.5、b = 10.0、α_T = 0.02、T_0 = 30°C であった。これより、THAMES における温度勾配水分拡散係数の間隙水飽和度及び温度との関係は図 2.4-3 のようになる。

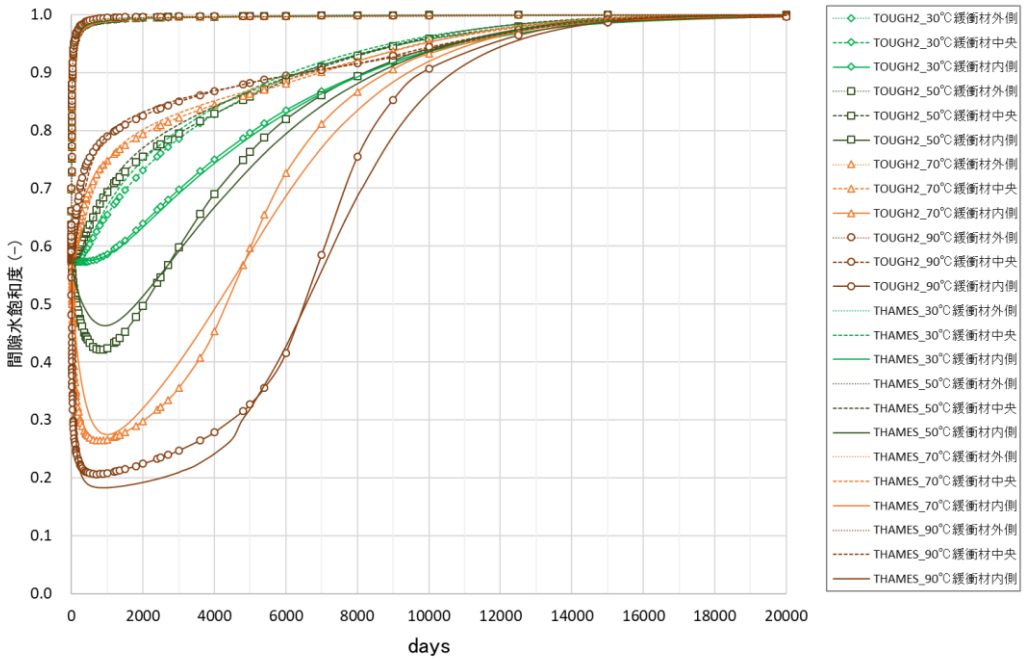


図 2.4-2　TOUGH2 による浸潤解析結果とそれに基づく温度勾配水分拡散係数の推定

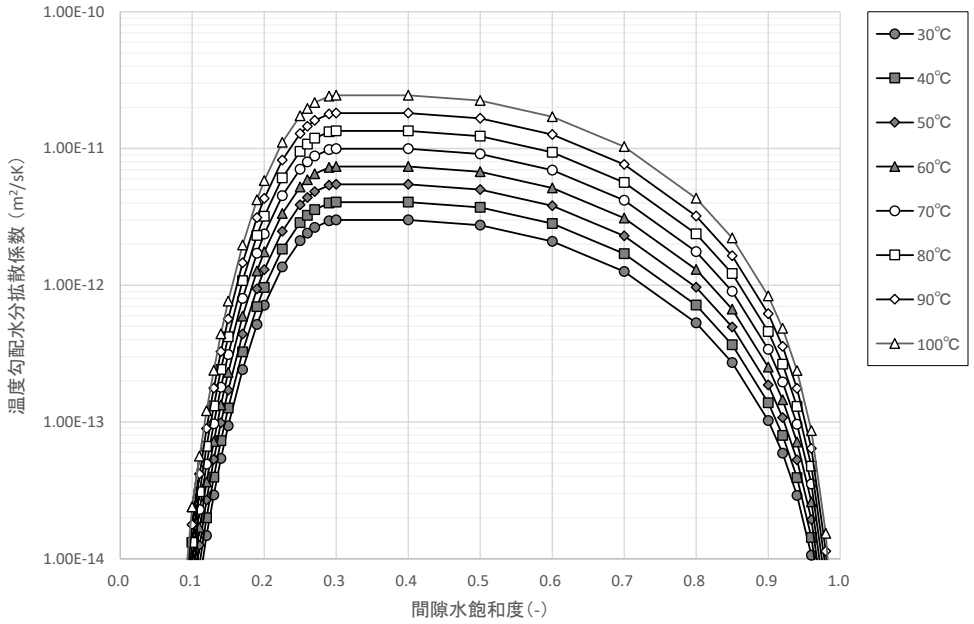


図 2.4-3　THAMES における緩衝材の温度勾配水分拡散係数

2) THM 連成解析モデルによる人工バリア性能確認試験の再現解析

① 概要と目的

幌延深地層研究計画における人工バリア性能確認試験は、平成 27 年 1 月に廃棄体を模擬したヒーターの加熱を開始し、オーバーパックを模擬した金属容器の表面温度を 90°C 程度に保つ熱負荷試験が実施されている。ヒーターの加熱開始から平成 28 年 4 月 1 日までの約 440 日間を対象とした THM 連成解析として、緩衝材の密度変化が及ぼす熱特性、水理特性及び力学特性への影響を考慮できるように THAMES の高度化を平成 29 年度に実施した。そして、緩衝材が膨潤し埋め戻し材側へ膨出することによる密度変化と、それにともなう緩衝材中の温度や浸潤挙動に及ぼす影響を把握した（日本原子力研究開発機構, 2018）。その結果、緩衝材の膨出量が小さく緩衝材の密度低下も僅かであったことから、緩衝材の密度変化が温度や浸潤挙動に及ぼす影響は小さいことを明らかにした。また、緩衝材の浸潤挙動の評価については、計測値を再現したものの、海水系の幌延地下水が浸潤する人工バリア性能確認試験に対して、蒸留水に対する固有透過度を用いていることから、海水系地下水環境下における緩衝材の浸潤挙動を適切に評価できていない可能性がある。一般的に、ベントナイトの透水性はイオン強度などの間隙水組成の影響を受けることが知られており、海水系地下水条件においては、地下水の浸潤とともに緩衝材の間隙水組成が変化し、透水性は変化していくものと考えられる。

このような背景のもと、令和 2 年度は、幌延深地層研究計画における人工バリア性能確認試験で得られている計測データを活用して、蒸留水条件や幌延地下水条件での緩衝材の固有透過度を解析ケースとした幌延人工バリア性能確認試験の THM 連成解析を実施し、固有透過度のイオン強度依存性が浸潤挙動へ与える影響を把握した。ここでは、上述した気液二相流解析コードの TOUGH2 による温度勾配条件下での浸潤解析を通じて設定した温度勾配水分拡散係数を用いた。

② 解析条件

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構成する廃棄体を模擬したヒーター、オーバーパックを模擬した金属製の容器、緩衝材、緩衝材と岩盤の隙間に充填した砂層、埋戻し

材、支保コンクリート、路盤、コンクリートプラグ及び岩盤について、30,910 節点、27,453 要素でモデル化した（図 2.4-4 参照）。モデル化の範囲は、温度に対して境界の影響が生じないように廃棄体を模擬したヒーターから 25 m 以上を確保した。熱的な境界条件として、モデル上下の両面及び背面は、初期温度での固定境界、モデル前面及び左右の両面は断熱境界とした。

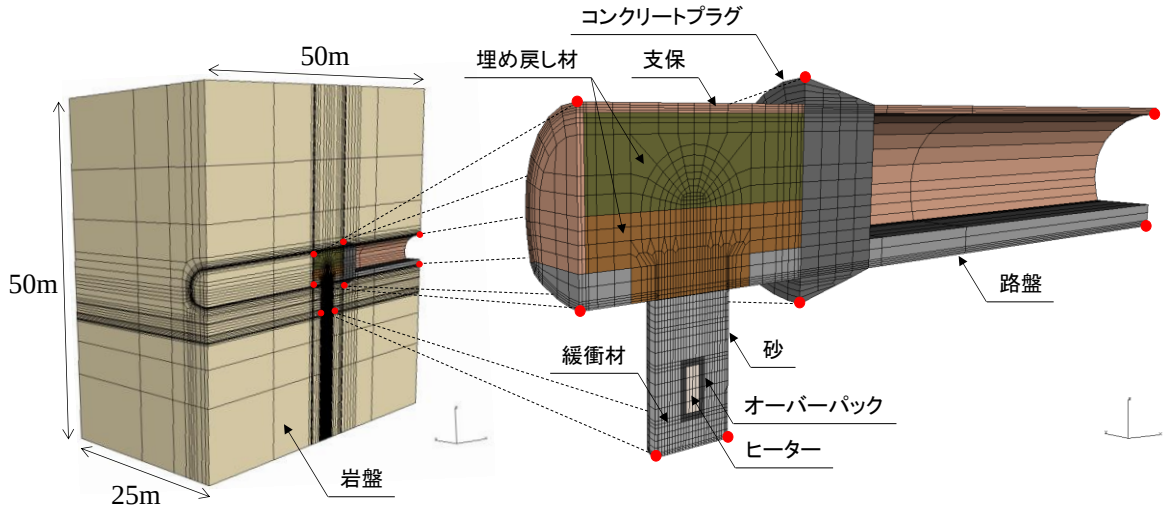
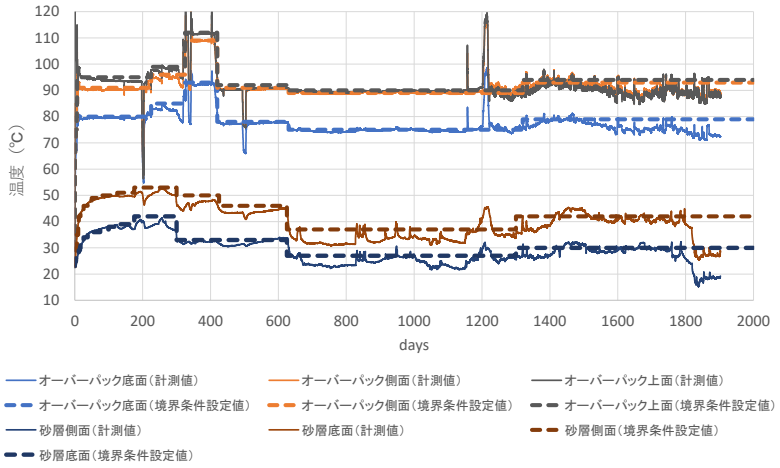
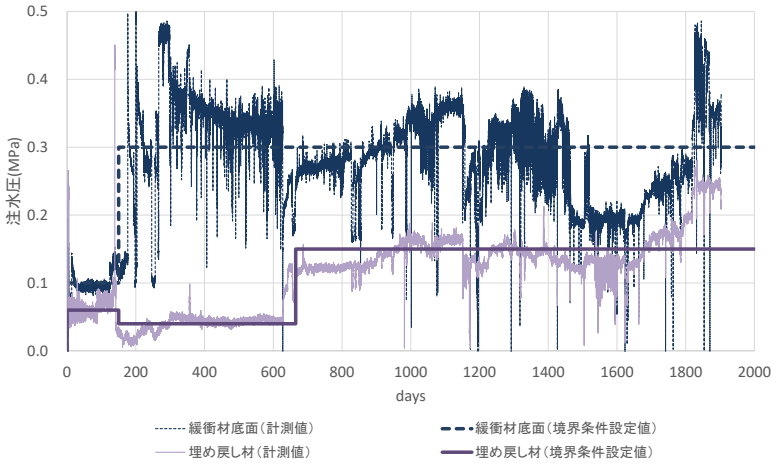


図2.4-4　人工バリア性能確認試験の解析評価に用いた解析メッシュモデル

また、オーバーパックを模擬した金属容器の表面及び緩衝材と岩盤の隙間に充填した砂層の温度は、計測値（図 2.4-5(a)参照）に整合させるように設定した。このような温度の変動は、試験装置の設定温度の変更や、緩衝材及び埋め戻し材の浸潤を促進させるために実施した注水の影響によるものである。初期条件としての温度は全領域で 23°C とした。水理的な境界条件としては、モデル上下の両面及び背面は初期の地下水位での固定境界、モデル前面及び左右の両面は不透水境界とした。また、緩衝材の底面及び埋戻し材中に設置されている注水管からの注水を模擬するために、注水菅位置に相当する節点には図 2.4-5(b)に示す水圧を与えた。



（a）温度



（b）注水圧

図2.4-5　THM連成解析における境界条件の設定

水理に関する初期条件として、岩盤については、原位置での地下水位の計測結果に基づき人工バリア性能確認試験が実施されている地表面から-350 m の全水頭を 22 mH_2O とした。支保コンクリート、路盤、コンクリートプラグ及び砂層の圧力水頭は、飽和を仮定し 0 mH_2O、緩衝材と埋め戻し材については、初期の水分量に応じた値として水分特性曲線に基づき、それぞれ、-770 mH_2O、-156 mH_2O とした。力学的境界条件は、岩盤、砂層、支保、路盤及びコンクリートプラグの節点変位を固定し、それ以外の節点については非拘束として、緩衝材及び埋め戻し材の膨潤による応力変形を考慮した。

解析に用いた物性値のうち、岩盤については、HDB-6 孔の岩石コアの室内試験結果（山本ほか, 2005）や、原位置での透水試験結果（太田ほか, 2007）に基づき、深度から物性値を推定する木村ら（木村ほか, 2010）の手法に従い、人工バリア性能確認試験が実施されている地表面から-350 m の物性値を設定した。

支保コンクリート、路盤及びコンクリートプラグは同一のものと仮定し、第 2 次 TRU レポート（電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構, 2005）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、間隙率及び真密度及び固有透過度を設定した。また、熱物性値はコンクリート標準示方書（土木学会, 2007）に基づき設定した。

埋戻し材については、下側半分が原位置での転圧による締固め施工（乾燥密度1.2 Mg/m³)、上側半分が金型を用いて圧縮成形した埋め戻し材のブロック（乾燥密度1.4 Mg/m³）を積み重ねる方法で施工されており、それぞれの密度に応じた物性値を与えた（日本原子力研究開発機構, 2018)。

試験孔に設置される緩衝材ブロックの乾燥密度は 1.8±0.1 Mg/m³ であるが（中山ほか, 2016)、地下水の浸潤によって膨潤し、ブロック間のすき間や緩衝材と岩盤の間に充填された砂の層に侵入し密度の低下が生じると考えられる。しかしながら、このような現象を THAMES での連成解析で考慮することができないため、ここでは、緩衝材ブロックの設計時における目標の乾燥密度である 1.8 Mg/m³ を初期密度とした。

緩衝材の変形係数については、人工バリア性能確認試験で計測された変位を再現する値として次式を用いた（鈴木・高山, 2020)。

$$E_{50} = \frac{2}{3}\left(-6.00 \times 10^{-5} e^{6.64\rho_d}(S_r - 100) + 7.58\rho_d - 6.84\right) \quad (2.4\text{-}13)$$

ここで、E_{50}は変形係数(MPa)、S_rは間隙水飽和度（%)、ρ_dは乾燥密度（Mg/m³)である。

緩衝材が飽和した状態で発生する膨潤圧σ(MPa)は、乾燥密度ρ_d(Mg/m³)の関数として次式で与えた。間隙水飽和度と膨潤圧の関係については、浸潤にともなう膨潤圧の時間変化に関する計測結果を対象として、THAMES を用いた再現解析による検討が行われており（操上, 2003)、これより、膨潤圧が間隙水飽和度に比例するモデルの再現性が良いことから、初期の間隙水飽和度から飽和する間で膨潤圧が線形的に増加すると仮定した。

$$\sigma = 4.20 \times 10^{-3} e^{3.14\rho_d} \quad (2.4\text{-}14)$$

また、式（2.4-2）で示した蒸留水に対する固有透過度を用いた場合と合わせて、次式に示す幌延地下水に対する固有透過度（菊池・棚井, 2005）を用いた場合についても評価を行い、固有透過度の違いが浸潤挙動に及ぼす影響ついて把握するとともに、人工バリア性能確認試験で得られた計測結果との比較を行った。

$$\kappa = exp(-41.466 + 4.316\rho_b - 4.069\rho_b^2) \quad (2.4\text{-}15)$$

緩衝材の物性については、緩衝材が埋め戻し材側へ膨出することによる密度変化が及ぼす温度や浸潤挙動への影響を考慮し、式（2.4-2）と式（2.4-15）の固有透過度、式（2.4-11）の熱伝導率、式（2.4-13）の変形係数及び式（2.4-14）の膨潤圧については密度依存性を考慮した。

また、ここで示した以外の物性値については、DECOVALEX において本原位置試験を対象としたベンチマーク解析で用いられた値に準じた（Sugita et al., 2016)。

以上、解析物性値を整理して表 2.4-2 に示す。

表2.4-2　人工バリア性能確認試験の解析評価に用いた物性値

パラメータ	単位	岩盤	支保 路盤 プラグ	埋戻し材 （下側）	埋戻し材 （上側）	緩衝材	オーバーパックを模擬した金属容器
真密度	Mg/m^3	2.454	2.620	2.593	2.593	2.680	7.800
初期乾燥密度	Mg/m^3	1.354	2.280	1.200	1.400	1.800	−
初期空隙率	−	0.448	0.130	0.538	0.460	0.328	−
初期間隙水飽和度	−	1.00	1.00	0.91	0.91	0.576	−
変形係数	MPa	−	−	0.1	3.0	式(2.4−13)	2.0×10^5
ポアソン比	−	−	−	0.4	0.4	0.3	0.3
熱伝導率	W/mK	1.23	2.56	$0.339+0.0297\omega$ ω：含水比(%)		式(2.4−11)	53.0
比熱	kJ/kgK	1.27	1.05	$(40.0+4.18\omega)/(100+\omega)$ ω：含水比(%)		式(2.4−12)	0.46
固有透過度	m^2	1.33×10^{-15}	9.10×10^{-18}	3.00×10^{-18}	1.76×10^{-19}	式（2.4−2） または 式（2.4−15）	−
飽和膨潤圧	MPa	−	−	0.1	1.0	式（2.4−14）	−

③ 解析結果

人工バリア性能確認試験における緩衝材中の浸潤挙動に関する THM 連成解析結果を、緩衝材中に設置された水分計によって計測された間隙水飽和度の時間変化と比較して図 2.4-6 に示す。図中には、緩衝材の固有透過度として、幌延地下水に対する値を用いた場合と、蒸留水に対する値を用いた場合の解析結果を合わせて示している。計測値は、緩衝材中に設置したサイクロメータによって得られた値であり、計測されるサクションを、式（2.4-4）で与えられる水分特性曲線を介して間隙水飽和度に変換している。計測点は、緩衝材外周部の 3 ヵ所であり、センサー番号は PS003、PS006 及び PS009 である。なお、サイクロメータは、緩衝材中に計 9 台が設置されているが、計測値が得られたものは、ここで示した緩衝材外周部に設置された 3 台であった。解析結果と比較する期間は、廃棄体を模擬したヒーターによる熱負荷を開始した平成 27 年 1 月から平成 30 年 3 月までの約 1,200 日間である（中山ほか, 2019a）。緩衝材の固有透過度として幌延地下水に対する値を用いた場合の解析結果は、蒸留水に対する値を用いた場合に比べて間隙水飽和度の上昇が速くなっている。しかしながら、緩衝材外側では、固有透過度の設定値の違いによる浸潤挙動の解析結果の差異は小さく、両者ともに計測値と整合的な結果となっている。

次に、緩衝材の間隙水飽和度の分布に関して、比抵抗トモグラフィーによる飽和度分布の計測結果と THM 連成解析結果を比較して図 2.4-7 に示す。図 2.4-7(a)で示した計測結果は、緩衝材の水平断面における間隙水飽和度コンターの時間変化を示しており、中心の白い部分は、オーバーパックを模擬した金属容器である（中山ほか, 2019b）。図 2.4-7(b)の解析結果は、緩衝材の中間深度における緩衝材外周部とオーバーパックを模擬した金属容器の近傍及びその中間の位置での間隙水飽和度の時間変化であり、緩衝材の固有透過度として幌延地下水及び蒸留水に対する値を用いた場合を比較して示している。比抵抗トモグラフィー計測によって得られた間隙飽和度のコンター図からは、緩衝材外周部では地下水の浸潤によって間隙水飽和度が上昇しているのに対し、オーバーパックを模擬した金属容器近傍では間隙水飽和度が 0.25 程度まで低下し、その水分分布の状態が 1,000 日間は維持されている様子が読み取れる。一方、解析結果のうち緩衝材内側に

おいて、幌延地下水に対する固有透過度を用いた場合には、間隙水飽和度が 0.3 程度まで低下した後、すぐさま上昇に転じるのに対して、蒸留水に対する固有透過度を用いた場合は、間隙水飽和度が 0.25 程度まで低下した後の上昇は緩やかなものとなっている。このように、岩盤に近い緩衝材外周部では、緩衝材の固有透過度によって浸潤挙動の解析結果に大きな違いは生じないが、緩衝材の内側の浸潤挙動は大きく異なる結果となっている。そして、緩衝材の固有透過度として蒸留水に対する値を用いた場合の解析結果は、比抵抗トモグラフィーによる飽和度分布の計測結果と整合的な結果となっている。

これは、温度勾配による水分の移動によって地下水の浸潤が抑制されるオーバーパック近傍においては、緩衝材の透水性へ及ぼす海水系地下水組成の影響が小さいためと考えられ、間隙が地下水で飽和した状態で計測された固有透過度を、廃棄体の発熱により乾燥し間隙水飽和度が低下した状態の不飽和領域まで適用することが適切でないことを示すものである。図 2.4-8 に示すように、海水系地下水環境下における緩衝材の水理特性については、初期に存在する間隙水を蒸留水と仮定する場合、浸潤して来る地下水と蒸留水とが混合することで間隙水組成が変化し、その間隙水組成に基づき設定される必要があると考えられる。このようなことから、海水系地下水環境下における緩衝材の浸潤挙動評価は、水理解析と物質移動解析及び地球化学解析とを連成させることで緩衝材中に浸潤してくる地下水と間隙水との混合に加えてイオン交換反応や鉱物の溶解沈殿などの地球化学反応を考慮した間隙水組成の計算を行い、間隙水組成に応じた水理物性値を用いて浸潤挙動の計算を行う THC 連成解析手法が必要になると考えられる。

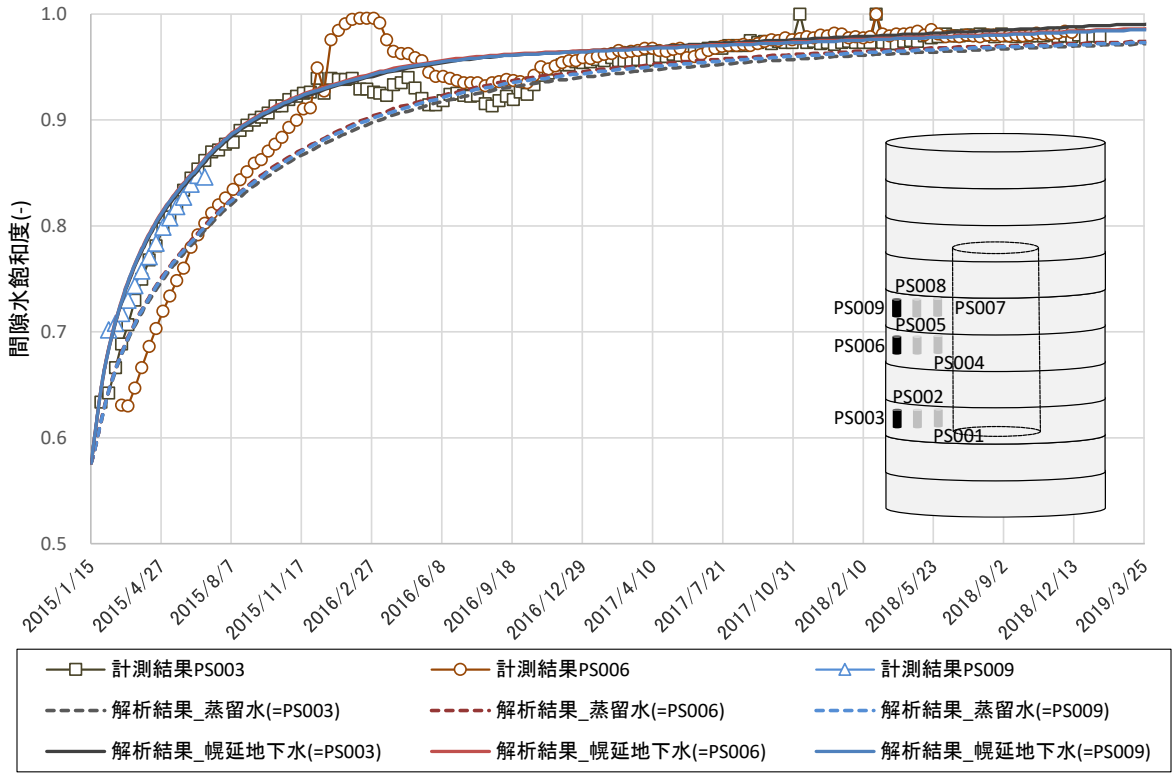
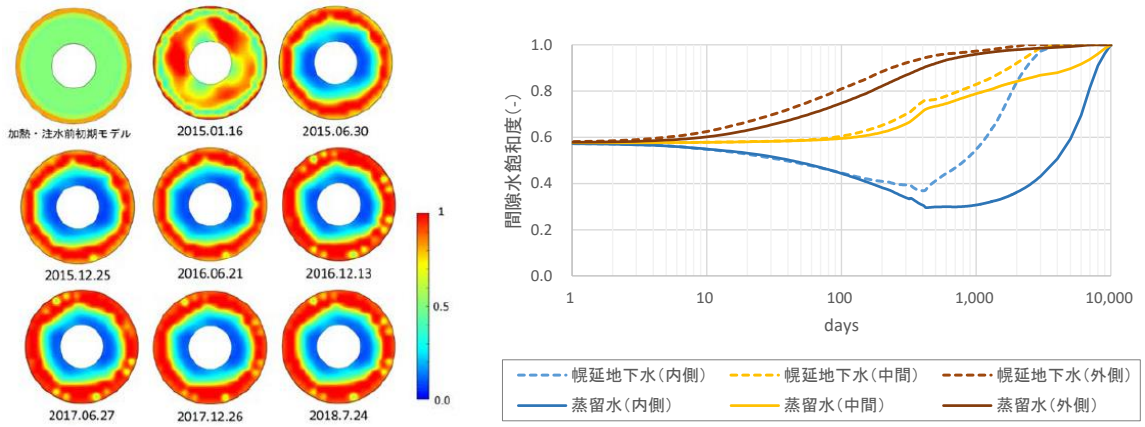


図 2.4-6　緩衝材中の間隙水飽和度に関する計測結果と THM 連成解析結果との比較



（a）比抵抗トモグラフィーの計測結果（中山ほか（2019b），図 4.1.1.5-7, p.51）　（b）THM 連成解析結果（緩衝材の中間深度において）

図 2.4-7　比抵抗トモグラフィーから推定された間隙水飽和度の計測結果と THM 連成解析結果との比較

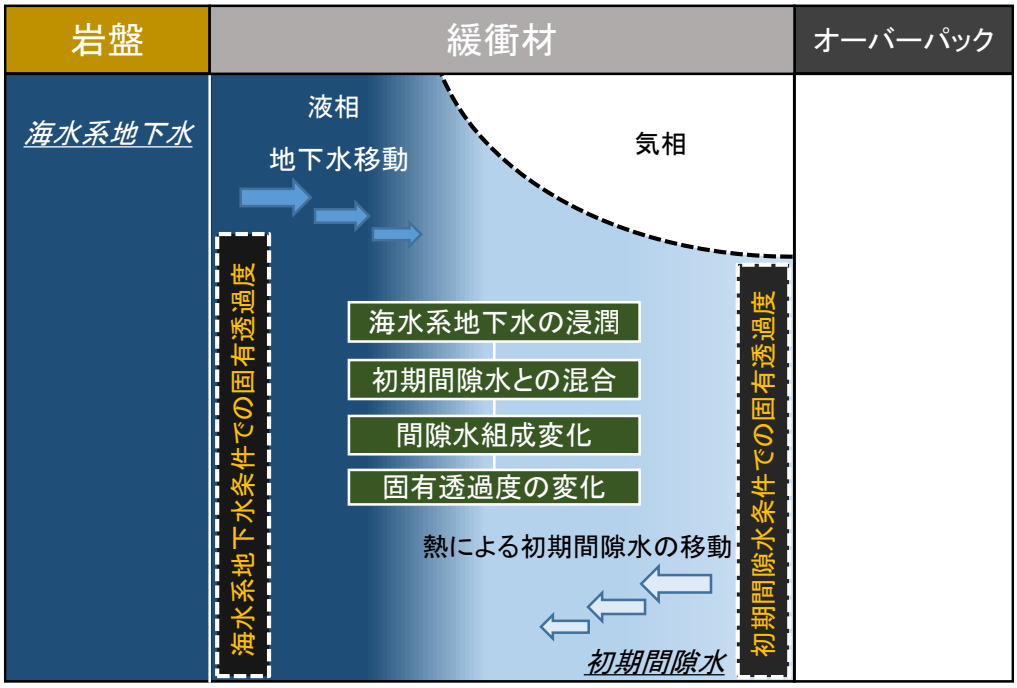


図 2.4-8　海水系地下水環境下における緩衝材の水理特性の変化の概念図

(3) これまでの成果と今後の課題

令和2年度は、海水系地下水条件での浸潤挙動を対象とした連成解析モデルの適用性の確認が課題として考えられたため、より多様な地質環境条件に応じたTHMC連成挙動を再現できる現象解析モデルの構築を目的として、海水系地下水環境下での緩衝材の浸潤挙動に対する連成解析モデルの適用性の検討に着手した。具体的には、幌延深地層研究計画における人工バリア性能確認試験で得られている計測データを活用して、蒸留水条件や幌延地下水条件での緩衝材の固有透過度を解析ケースとした幌延人工バリア性能確認試験のTHM連成解析を実施し、固有透過度のイオン強度依存性が浸潤挙動へ与える影響を把握した。この中では、平成31年度までに実施してきた

FEBEXプロジェクトにおける原位置試験を対象としたTHM連成解析による再現解析によって抽出された課題を踏まえ、THAMESにおける温度勾配水分拡散係数の間隙水飽和度や温度依存性に関するパラメータ値の設定を行った。ここでは、間隙空気の挙動に着目した検討も併せて実施し、緩衝材内側の間隙水飽和度の下限値における排気・非排気条件の違いによる差異は数%以下であったことから、人工バリア性能確認試験の解析結果に与える間隙空気の影響は小さい可能性を示唆する結果を得た。そして、間隙水飽和度及び温度依存性を考慮した温度勾配水分拡散係数を用いて、蒸留水条件や幌延地下水条件での緩衝材の固有透過度を解析ケースとした幌延人工バリア性能確認試験のTHM連成解析を実施し、固有透過度のイオン強度依存性が浸潤挙動へ与える影響を把握した。その結果、緩衝材外側においては、固有透過度のイオン強度依存性の影響は小さく、計測結果とも整合的であった。しかしながら、幌延地下水に対して得られている緩衝材の固有透過度を用いた場合には、オーバーパック近傍の緩衝材中の浸潤挙動を再現することができず、蒸留水に対する固有透過度を用いた場合に整合的な結果であった。海水系地下水環境下における緩衝材の水理特性については、初期に存在する間隙水と浸潤して来る地下水とが混合することで間隙水組成が変化し、その間隙水組成に基づき設定される必要があると考えられる。このようなことから、海水系地下水環境下における緩衝材の浸潤挙動評価は、水理解析と地球化学解析とを連成させることで緩衝材中に浸潤してくる地下水と間隙水との混合に加えてイオン交換反応や鉱物の溶解沈殿などの地球化学反応を考慮した間隙水組成の計算を行い、間隙水組成に応じた水理物性値を用いて浸透流の計算を行うTHC連成解析手法が必要になると考えられる。

平成30年度から令和2年度の検討で、FEBEXプロジェクトにおける原位置試験、幌延深地層研究計画におけるオーバーパック腐食試験や幌延人工バリア性能確認試験の計測データを活用したTHMC連成解析モデルの適用性の検討を進めるとともに、より長期的な水理挙動を再現するためには、温度勾配によって生じる水分移動を表すパラメータが間隙水飽和度に依存して変化する効果を考慮する必要があるなどの課題の抽出とその対応方針を示した。

今後は、海水系地下水環境下における緩衝材の浸潤挙動を適切に評価するための技術開発を目的とし、広範囲なNaCl濃度の溶液を用いた室内試験レベルでの浸潤試験を実施し、水理特性のNaCl濃度依存性（あるいはイオン強度）について把握するとともに、評価モデルやパラメータを整備する。そして、幌延人工バリア性能確認試験の計測データを活用し、CouplysをもいたTHC連成解析による評価を通じて、海水系地下水環境下における緩衝材の浸潤挙動評価手法の確立を図る予定である。

2.4.2 ニアフィールド長期力学解析コード開発

(1) 背景と目的

地層処分システムを対象とする従来の安全評価では、保守的に簡略化されたモデルや保守的設定に基づくパラメータが用いられてきた。今後の処分サイト選定段階における安全評価には、実際のサイトの地質環境条件などを反映することに加え、様々な処分概念や設計オプション間の比較、サイト間の優劣などが、より具体性をもって検討されると考えられる。従来の保守的な評価モデルではサイト間やデザイン間の相違を定量的に表現することができず、より現実に即した挙動を評価する手法が必要となる可能性がある。地層処分対象となる放射性廃棄物のうち、例えば、TRU 廃棄物の地層処分システムの場合は、周辺岩盤、支保工、緩衝材として使用されるベントナイト系材料、廃棄体や坑道内部の埋戻し材として使用されるセメント系材料などの複合的な材料で構成される。これらの材料間で多様な相互作用が生じ、これらが相互に影響しあいながら処分場の状態は変遷していくと考えられる。この現象は、変質の促進あるいは抑制の正負のフィードバックループを内包する非線形の連成現象であるとされる（電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構, 2005）。このような化学・力学・物質輸送の連成及び材料間の相互作用がもたらす非線形現象を評価するための複合現象評価技術の開発が進められている（例えば、Benbow et al., 2020）。

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）。このような処分施設の状態変遷評価から得られる場の密度や透水性分布の変遷などの情報は、核種移行挙動を評価する際に用いることができる。さらに、既往の緩衝材の設計検討では、岩盤クリープや金属の腐食膨張などの各材料の力学的な相互作用を考慮した力学解析により緩衝材の応力緩衝性の評価が実施されてきたが、このような検討にも MACBECE を適用することで、緩衝材の応力緩衝性を評価することも可能と考えられる。

しかしながら、MACBECE は過渡期における処分施設構成材料の温度や飽和度の時空間変化によって生じる力学挙動を解析することができず、処分施設の各材料及び周辺岩盤の力学的な相互作用を過渡期における力学・変形挙動を考慮した長期までの一貫した評価ができないという課題を有していた。また、これまでの緩衝材の設計検討における緩衝材の応力緩衝性の評価（例えば、日本原子力研究開発機構, 2018）では、過渡期の力学挙動を考慮した評価とはなっておらず、過渡期の力学挙動が緩衝材の応力緩衝性の評価結果に与える影響は明らかにされていない。

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、過渡期の緩衝材の飽和度変化に伴う力学的な状態変化を解析する機能を MACBECE に追加した（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、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（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, 2020）。その結果、再冠水時の緩衝材の飽和度分布の時間変遷の考慮の有無が長期的な坑道内空変位に与える影響が小さいことや、支保工のひび割れ発生個所

に違いが生じることにより支保工の透水係数分布に違いが生じることを明らかにした。令和 2 年度は、MACBECE の更なる改良として、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できる機能を MACBECE に追加した。追加した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、温度変化に伴う構成材料の熱膨張や熱収縮挙動が処分施設の力学的な状態変遷や緩衝材の応力緩衝性の評価結果に与える影響を分析した。さらに、過渡期の緩衝材の不均質な飽和度分布の進展に伴う力学挙動の理解や力学モデルの検証データの取得と高度化に向けて、平成 31 年度は、X 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。令和 2 年度は、湿潤密度の違う供試体に対する X 線 CT 測定により、CT 値から湿潤密度への換算式を構築し、平成 31 年度に取得したデータの再整理を行った。さらに、平成 31 年度とは反対面からの給水条件での膨潤圧試験を実施し、膨潤挙動の現象理解を進めた。

(2) 実施内容

1) ニアフィールドの長期力学挙動解析

① 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できる機能の追加

廃棄体の発熱によって生じる処分施設構成材料の温度変化に伴う熱膨張や熱収縮などの変形を解析できるように長期力学解析コードの拡張を実施した。具体的には、セメント系材料と金属材料及びガラス固化体に対して、線膨張係数を入力パラメータとする熱弾性体の構成式を導入し、図 2.4-9 に示すように、外部の MACBECE 以外の熱/水理連成解析コードで計算された温度分布の時間変遷を読み込み、温度変化によって生じる力学挙動を解析する機能を追加した。なお、全節点固定条件で温度変化を与える 1 要素解析及び応力一定条件で温度変化を与える 1 要素解析を行い、温度変化により生じる応力変化や変形挙動の解析結果と理論値を比較することにより追加した機能が正しく動作することを確認している。また、温度変化が緩衝材の力学特性に与える影響を実験的に調べた事例がいくつか報告されているものの（鈴木・藤田, 1999 ; Kanazawa et al., 2020）、データ数は少なく、力学モデルの構築に必要な試験データは十分ではないため、緩衝材の力学特性の温度依存性については MACBECE には導入していない。今後は、温度変化が緩衝材の力学特性に与える影響に関する試験データの蓄積と、それに基づく力学モデルの構築が求められる。緩衝材の力学モデルは、主に圧密特性とせん断特性から構成されるため、特にこれらの特性に与える温度影響に関する試験データを蓄積していくことが重要と考える。

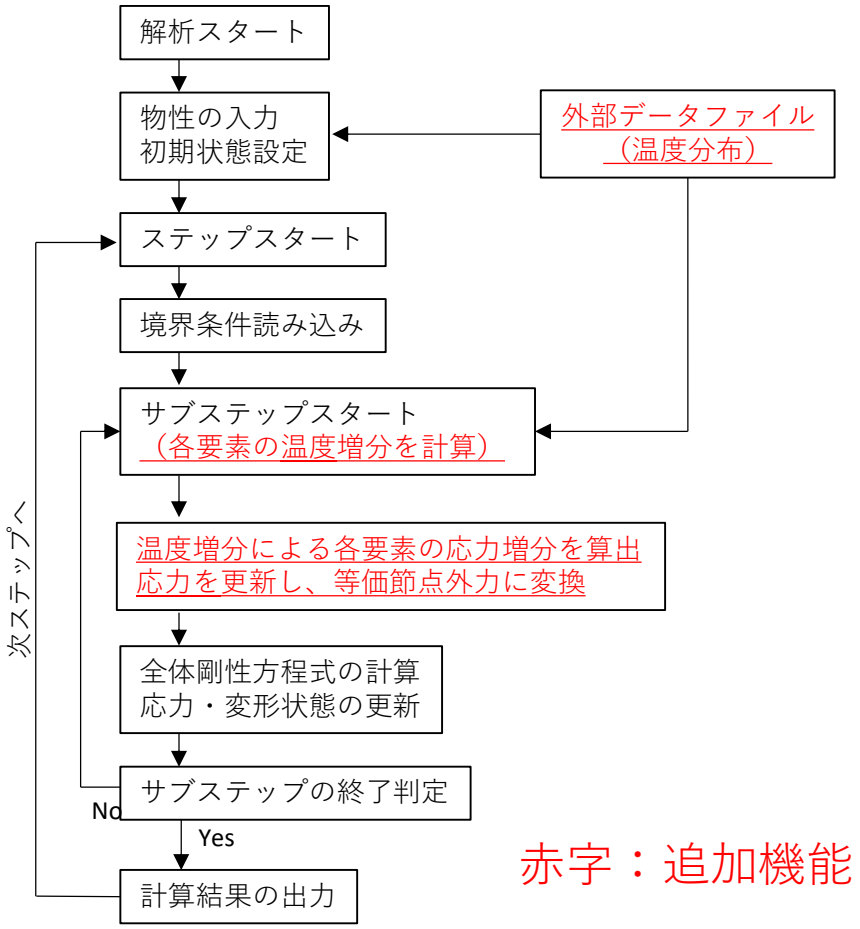
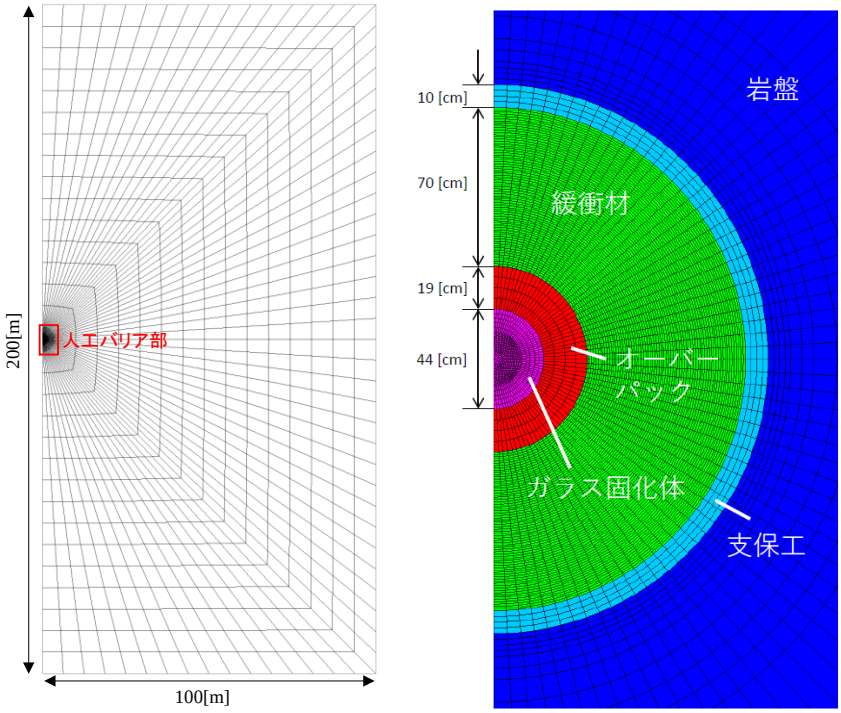


図 2.4-9　温度変化による変形に関する解析機能の計算アルゴリズム

② ニアフィールドの長期力学解析の概要

追加した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、温度変化に伴う構成材料の熱膨張や熱収縮挙動が処分施設の力学的な状態変遷や緩衝材の応力緩衝性の評価結果に与える影響を分析した。解析体系は、平成 31 年度と同様に、軟岩、深度 500 m、横置き方式などを想定し、図 2.4-10 に示す二次元断面とした。解析は、表 2.4-3 に示すように、施設の温度分布の時間変遷を考慮する場合としない場合について行った。施設の温度の時空間変遷や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、その解析結果を用いた。また、化学的変遷については、平成 31 年度と同様に、緩衝材全域が飽和する 50 年から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）人工バリア部拡大図

図2.4-10　解析メッシュ

表2.4-3　解析ケース

期間	過渡期		長期
材料	支保工、オーバーパック、ガラス固化体	緩衝材	緩衝材、支保工
設定条件	温度変化	飽和度変化	化学変遷
Case1	考慮しない	THAMES による解析結果	一様分布、線形に変化
Case2	THAMES による解析結果	THAMES による解析結果	一様分布、線形に変化

③ 熱–水連成解析による過渡期の施設の温度分布と緩衝材の飽和度分布の時間変遷の取得

過渡期の施設の温度と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 2.4-11 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（鈴木ほか, 2012）を参考に、処分坑道径の 11 倍とした。

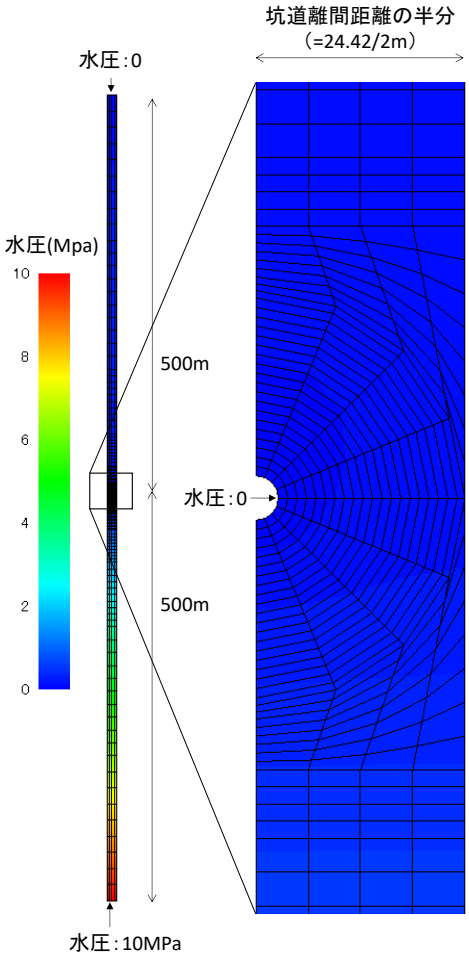
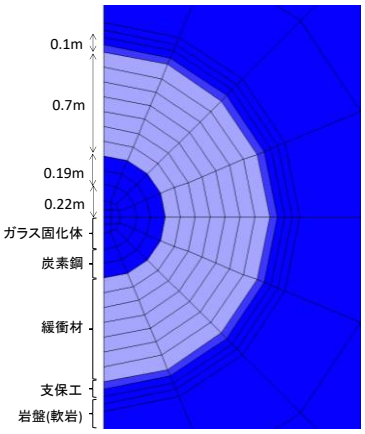


図 2.4-11　埋戻し前のメッシュ図・境界条件及び岩盤内の初期水圧分布

図 2.4-12 に埋戻し後の坑道内のメッシュ図、図 2.4-13 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 2.4-13 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 2.4-4 に各材料のパラメータをまとめる。解析期間は 1,000 年とした。



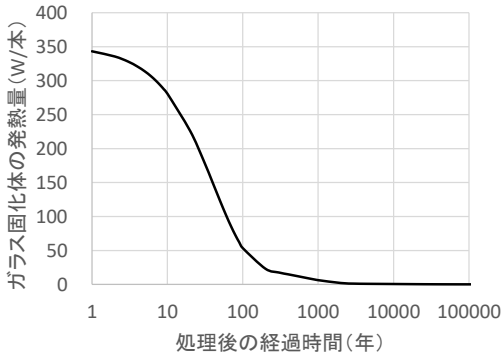


図 2.4-12　埋戻し後の坑道内のメッシュ図　　図 2.4-13　ガラス固化体の発熱量

表 2.4-4　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	[m^2]	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	[m^2/(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 2.4-14 に、温度分布の時間変化を図 2.4-15 に示す。緩衝材全域が飽和するのは約 50 年であった。一方、温度分布は 50 年では定常状態に至っていないが、1,000 年経過時には施設の温度は 40°C 以下に下がり、ほぼ定常状態となった。これらの計算結果を、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た。

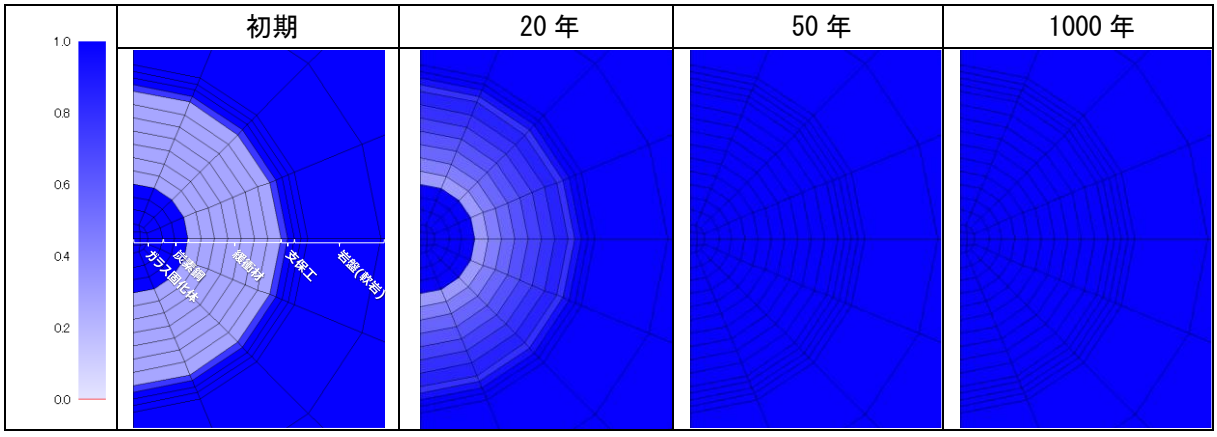


図 2.4-14　飽和度の時間変化

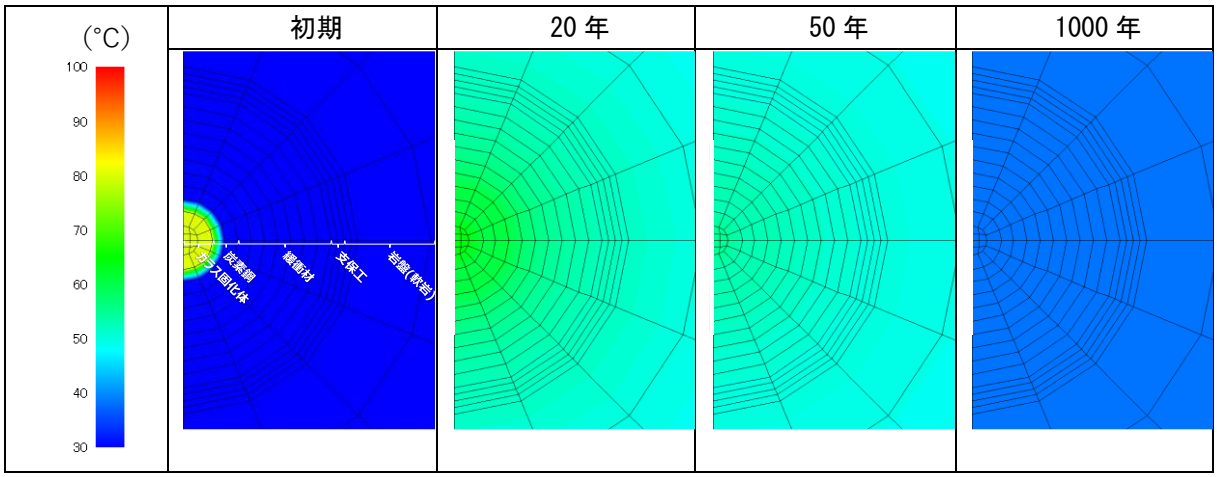


図 2.4-15　温度の時間変化

④ 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 2.4-5 に示す。緩衝材の物性値を表 2.4-6 に、支保工の想定仕様を表 2.4-7 に、解析用物性値を表 2.4-8 に、岩盤の解析用物性値を表 2.4-9 に、炭素鋼オーバーパック（腐食膨張要素）の解析物性値を表 2.4-10 に、ガラス固化体の物性を表 2.4-11 に示す。線膨張係数以外の物性値は平成 31 年度の解析で用いたものと同様である。

表 2.4-5　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、炭素鋼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
7	長期力学挙動解析	緩衝材及びセメント系材料の化学変遷指標を考慮

表 2.4-6　緩衝材の解析用物性値

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 2.4-7　セメント系材料の想定仕様

材料	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%）	67 vol%	13%	2.62	43

表 2.4-8　セメント系材料の解析用物性値

パラメータ	値
単位体積重量 γ_t [kN/m^3]	24.1※1
初期ヤング率 E_0 [MPa]	3.04×10^4※2
ポアソン比 ν [降伏前]	0.20※3
[降伏後]	0.45※4
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※5
初期内部摩擦角 ϕ [deg.]	0※5
初期圧縮強度 σ_{c0} [MPa]	43
最小圧縮強度 $\sigma_{c\,min}$ [MPa]	0.43※6
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※7
初期引張強度 σ_{t0} [MPa]	4.3※8
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※9
水の動粘性係数 [m^2/s]	1.0×10^{-6}※10
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
線膨張係数 [K^{-1}]	11.0×10^{-6}※11

※1：真密度及び間隙率から飽和状態の値として算出した。

※2：第 2 次 TRU レポート（電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構, 2005）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]（2002a）を参考に設定した。

※4：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。

※5：第 2 次 TRU レポートを参考に、初期内部摩擦角は 0[deg.]、初期粘着力は一軸圧縮強度の 1/2 とした。

※6：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 ; 戸井田ほか, 2005）。ここでは、保守性を加味して 1/100 残存するとした（奥津ほか, 2005）。

※7：真密度及びコンクリートに占める体積割合から求めた。

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

※9：十分に小さい値である 1/100 を使用した。

※10：国立天文台編：理科年表（2016）を参考に設定した。

※11：金津 (1998)を参考に設定した。

表 2.4-9　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：第 2 次取りまとめ（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 2.4-10　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
線膨張係数 [K^{-1}]	11.0×10^{-6}※3
※1　腐食膨張速度 $\gamma=(\beta-1)\times\alpha=(3.2-1.0)\times\alpha$ [mm/year] ※2　腐食ひずみ速度　$\Delta\varepsilon=\Delta\varepsilon_x=\Delta\varepsilon_y=\gamma/h=\gamma/(0.19\times10^6)$ ※3　日本機械学会（2014）と金津 (1998) を参考に設定した。	

表 2.4-11　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}※1
ポアソン比 ν [-]	0.3※1
密度 ρ [t/m^3]	2.8※1
線膨張係数 [K^{-1}]	8.8×10^{-6}※2
※1　核燃料サイクル開発機構（1999a）を参考に設定した。 ※2　大内ほか（1997）を参考に設定した。	

⑤ 処分施設を対象とする長期力学解析結果

まず、緩衝材全域が飽和する 50 年までの解析結果を比較した。解析結果の一例として、図 2.4-16 に鉛直方向の坑道内空変位の時間変化、図 2.4-17 に水平方向の坑道内空変位の時間変化を示す。鉛直坑道内空変位は圧縮方向への変位を示し、水平坑道内空変位は膨張方向に変位した後圧縮方向に変位するなど、異方的な挙動を示しているが、これは岩盤の初期応力の異方性に起因するものであると考えられる。また、CASE1 と CASE2 を比較すると、変位の推移の傾向は同じであるが、絶対値には差異が見られる。しかしながら、その差異はいずれも 1 mm 以下の微小なものであり、炭素鋼厚さや坑道内空変位に与える温度による変形挙動の影響は小さいことがわかる。図 2.4-18 に緩衝材の体積ひずみの時間変化を示す。両ケースともに、再冠水による外側の飽和度の上昇に伴い、外側の緩衝材が膨潤し、内側の緩衝材が圧縮される。さらに浸潤が進むと、内側の緩衝材が膨潤し、外側の緩衝材が膨潤される挙動を示しており、両ケースの結果に大きな差異は認められない。

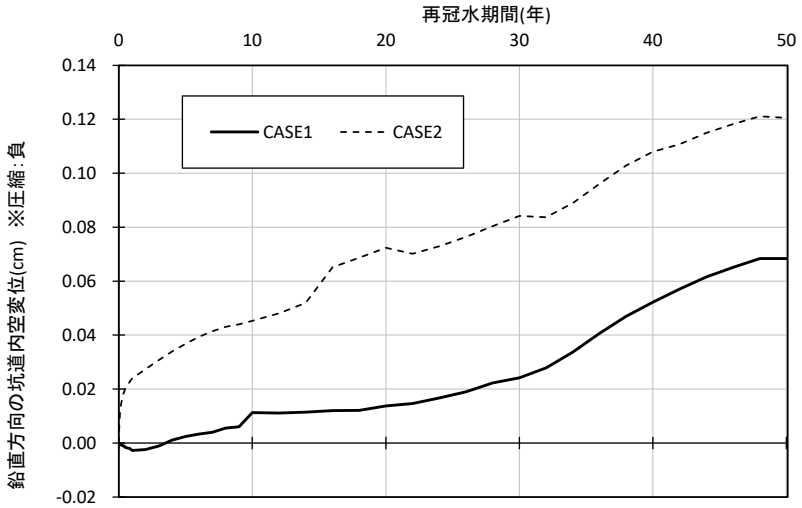


図 2.4-16　再冠水期間における鉛直坑道内空変位の時間変化

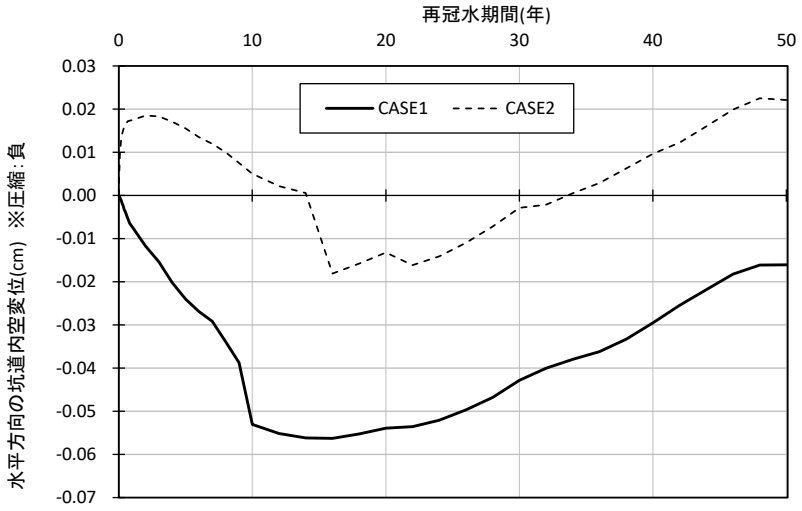


図 2.4-17　再冠水期間における水平坑道内空変位の時間変化

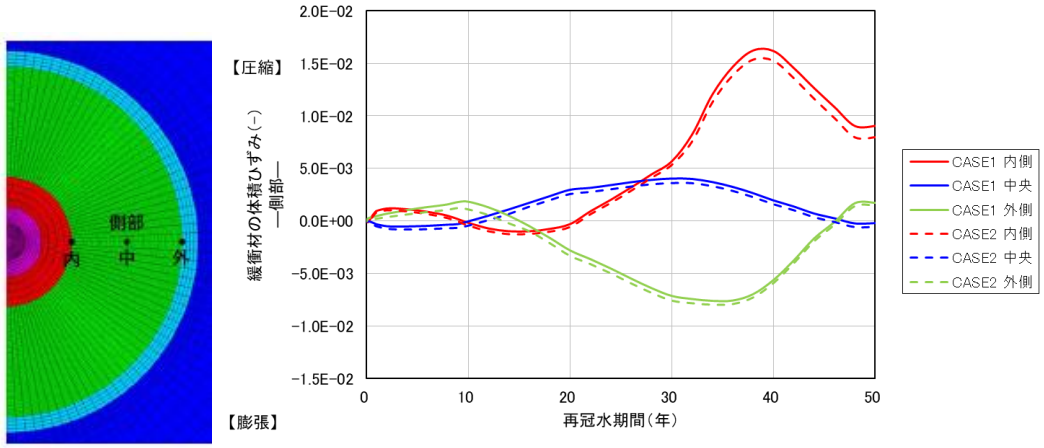


図 2.4-18　緩衝材の体積ひずみの時間変化

続いて、再冠水終了後から 10 万年後までの解析結果を比較した。解析結果の一例として、図 2.4-19、図 2.4-20 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、その時の変位を 0 として表示している。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。温度による変形を考慮した場合としない場合での変位の差異は 1 cm 以下であった。さらに、温度変化に伴う構成材料の熱膨張や熱収縮挙動が緩衝材の応力緩衝性の評価結果に与える影響を分析した。緩衝材の応力緩衝性の評価は、処分容器に対する応力緩衝性、岩盤に対する応力緩衝性について評価した。まず処分容器に対する応力緩衝性については、緩衝材から処分容器に作用する荷重は緩衝材の最大主応力の最大値以下となることから、緩衝材の最大主応力の最大値を求め、処分容器が破壊に至る可能性があるかを推察した。ここで、緩衝材の最大主応力の最大値については、緩衝材中の水圧が位置によって大きく変わらないと考えられることから、緩衝材の最大有効主応力の最大値に処分深度の水圧を考慮する簡便な方法により求めた。緩衝材の最大主応力の最大値は、炭素鋼処分容器の容器寿命時（1,000 年を想定）において確認した。その結果、CASE1 及び CASE2 ともに 5.88 MPa であった。第 2 次取りまとめ（核燃料サイクル開発機構, 1999a）においては、オーバーパックに作用する外圧として軟岩系データセット

の場合は 6.8 MPa を想定し耐圧厚さを計算しているが、今回得られた値はそれ以下であるため、処分容器は機械的に破壊しないと評価された。さらに、温度変化に伴う構成材料の熱膨張や熱収縮挙動が処分容器に対する応力緩衝性の評価結果に大きな影響を及ぼすものではないことが推測される。

岩盤に対する応力緩衝性の評価については、評価期間における岩盤の破壊接近度を評価して岩盤の破壊が発生するかを確認した。ここで、破壊接近度とは応力状態が破壊状態にどの程度近いか表す指標であり、1.0 で破壊状態にあることを示す。図 2.4-21 に岩盤の破壊接近度を示す。岩盤の破壊接近度は掘削時に坑道近辺で 0.9 程度まで大きくなっているが、その後の期間において低下しており、破壊に至らないことから、緩衝材の応力緩衝性が発揮されているものと考えられる。また、Case1 と Case2 での評価結果にほとんど差異は認められず、温度変化に伴う構成材料の熱膨張や熱収縮挙動が緩衝材の応力緩衝性の評価結果に与える影響は小さいことがわかる。

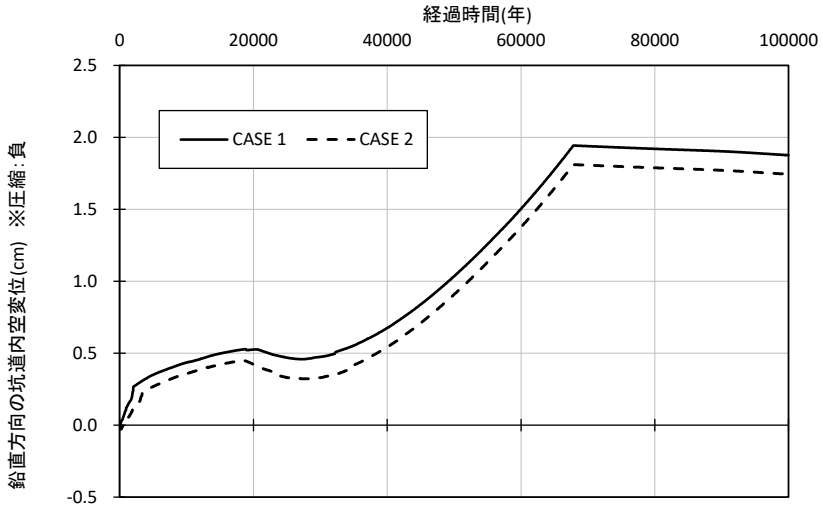


図 2.4-19　再冠水終了後の鉛直坑道内空変位の時間変化（再冠水終了時を 0 年として表示）

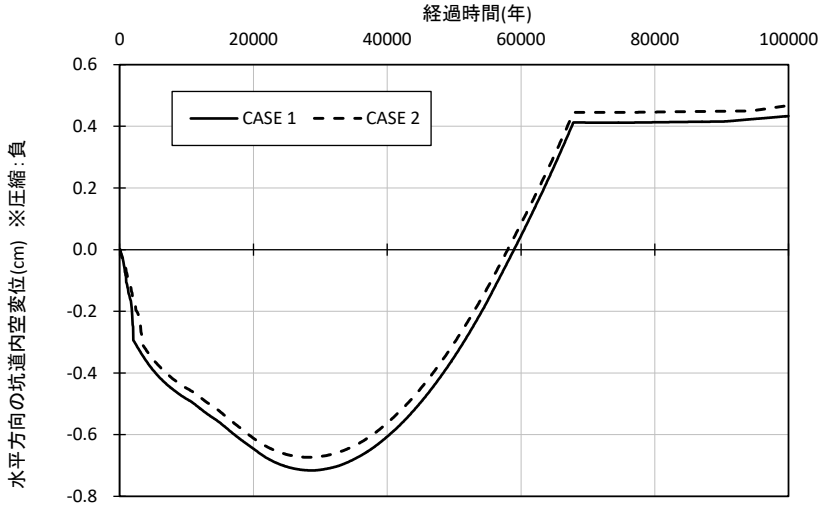


図 2.4-20　再冠水終了後の水平坑道内空変位の時間変化（再冠水終了時を 0 年として表示）

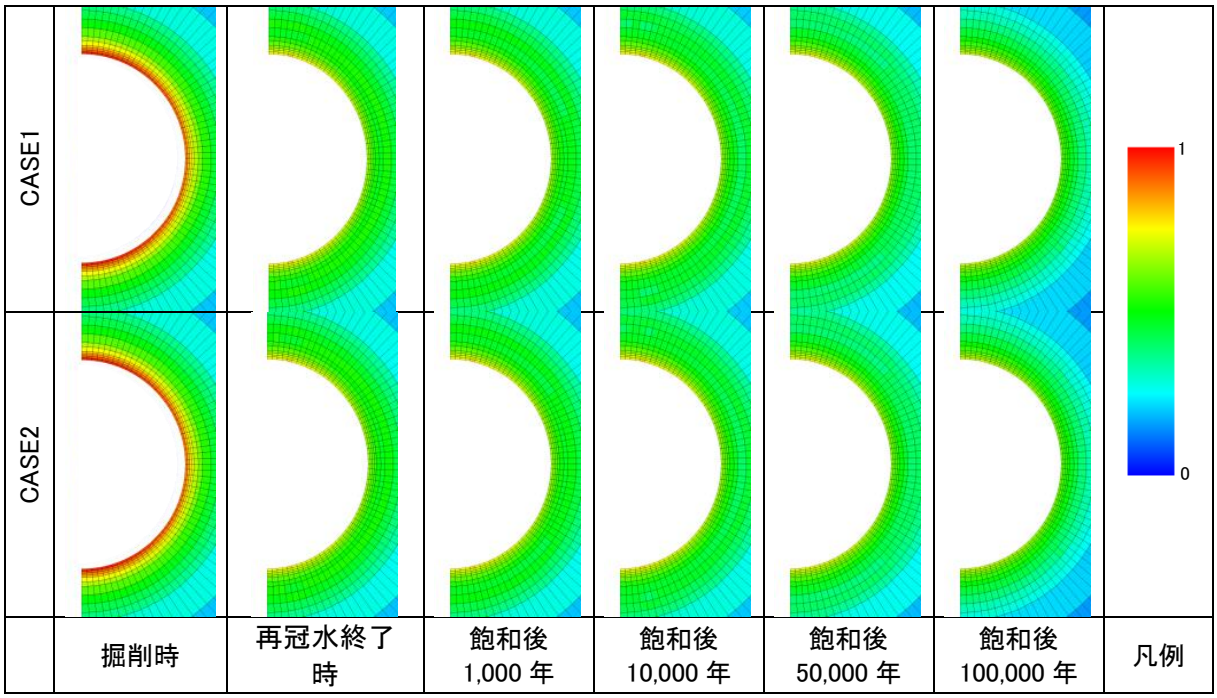


図 2.4-21　岩盤の破壊接近度（再冠水終了時を 0 年として表示）

令和 2 年度は、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挙動を解析できる機能を MACBECE に追加し、機能の効果を検証するため、処分施設の長期力学解析の実施により、温度変化に伴う構成材料の熱膨張や熱収縮挙動が処分施設の力学的な状態変遷や緩衝材の応力緩衝性の評価結果に与える影響を分析した。その結果、温度変化に伴う力学挙動は、処分施設の長期の力学的な状態変遷や緩衝材の応力緩衝性の評価結果に影響を与えることが確認されたが、その影響は小さいことが明らかとなった。今後は、室内試験や原位置試験などを活用し、MACBECE に新たに導入した機能の妥当性の検証が求められる。さらに、温度依存性を考慮した緩衝材の力学モデルの導入に向け、緩衝材の力学特性に与える温度依存性に関する試験データの蓄積と、それに基づく力学モデルの構築が求められる。緩衝材の力学モデルは、主に圧密特性とせん断特性から構成されるため、特にこれらの特性に与える温度影響に関する試験データを蓄積していくことが重要と考える。

2) X 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

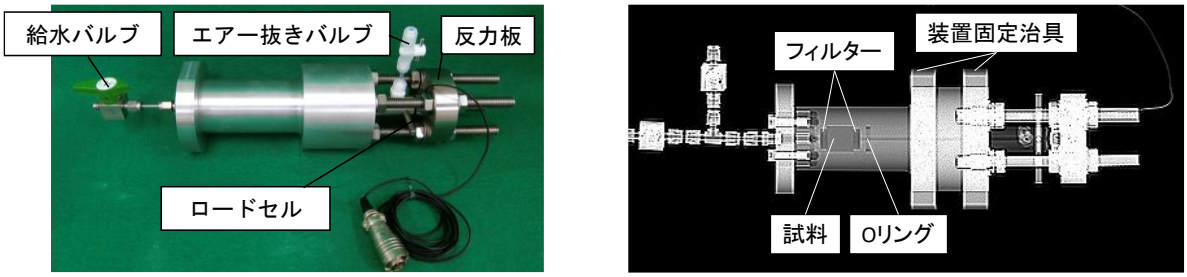
これまで、放射性廃棄物の地層処分における緩衝材に用いるベントナイトの膨潤特性を把握するために膨潤圧試験が実施されてきた（例えば、鈴木・藤田, 1999）。膨潤圧試験は、締め固めた不飽和状態のベントナイトに対して体積を拘束した状態で給水し、発生する膨潤圧を計測する試験である。膨潤圧は、給水開始後の時間経過とともに単調に増加する場合や、一度増加した後に減少する場合など試験条件によって様々である。試験条件と膨潤圧の経時変化の形状の関係を整理した事例は見当たらなかったが、例えば、鈴木・藤田（1999）や渡邊・田中（2016）の試験データでは、同一乾燥密度でも初期含水比の違いによって膨潤圧の経時変化の形状が異なることが示されている。また、前述のベントナイト原鉱石と再構成試料を用いた標準圧密試験の膨潤圧測定過程のデータでは、原鉱石では単調に膨潤圧が増加しているのに対し、再構成試料は一度大きく増加した後なだらかになり、その後再度大きく増加する形状を示しているなど、セメンテーションの有無によっても膨潤圧の経時変化の形状が異なる可能性が示唆されている。しかしながら、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は明らかにされておらず、このような膨潤圧の経時変化の形状の違いが生じる原因は明らかではない。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検証に資するデータを取得することを目的に、X 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理解を進めている。平成 31 年度は、供試体を作製する際に生じた初期密度分布の高い領域からの浸潤による膨潤圧試験中の X 線 CT 測定を行った（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, 2020）。令和 2 年度は、CT 値と湿潤密度の関係を把握し、平成 31 年度の試験データを湿潤密度で再整理を行った。さらに、平成 31 年度の試験の再現性確認を目的として、平成 31 年度と同様の条件に対して試験を行うとともに、初期密度分布の低い側から浸潤した場合についても試験を実施した。これにより、飽和に至るまでの過程で一度膨潤圧が低下する原因は、供試体内部で吸水圧縮挙動が生じているためであることが明らかとなった。さらに、吸水時に圧縮挙動が生じることを他の観点からも確認するため、種々の荷重条件に対して膨潤変形試験を実施した。

② CT 値と湿潤密度との関係

X 線 CT 測定により得られる CT 値は、物体の X 線吸収の程度を示す数値であり、ベントナイトの湿潤密度と相関関係がある。本研究で用いる試料及び試験装置を用いた場合の CT 値と湿潤密度の関係式を構築するため、乾燥密度や含水比をパラメータとして複数の供試体を作製し、図 2.4-22 に示す膨潤圧試験装置内に供試体を入れた状態で X 線 CT 測定を実施した結果を図 2.4-23 に示す。また、後述の膨潤圧試験における CASE1-1 から CASE2-2 の試験開始時と試験終了時における湿潤密度と CT 値の関係も図 2.4-23 に示している。図 2.4-23 から、本試験条件でも CT 値は湿潤密度 ρ_t[Mg/m^3]と相関関係があることがわかる。CT 値と湿潤密度が 1.3～2.0 Mg/m^3 において線形関係にあると仮定し、これらのデータから最小二乗法によりフィッティング関数を求めると以下のようになった。以降の膨潤圧試験中の X 線 CT 測定結果に対しては、この式を用いて CT 値から湿潤密度に変換を行った。なお、図中には、すべてのデータが±2σ 以内に収まるように標準誤差（＝9.5）を設定した場合の関数も示している。

CT 値＝808ρ_t － 388　　(2.4-16)



（a）装置写真　　（b）X 線透過画像

図 2.4-22　膨潤圧試験装置

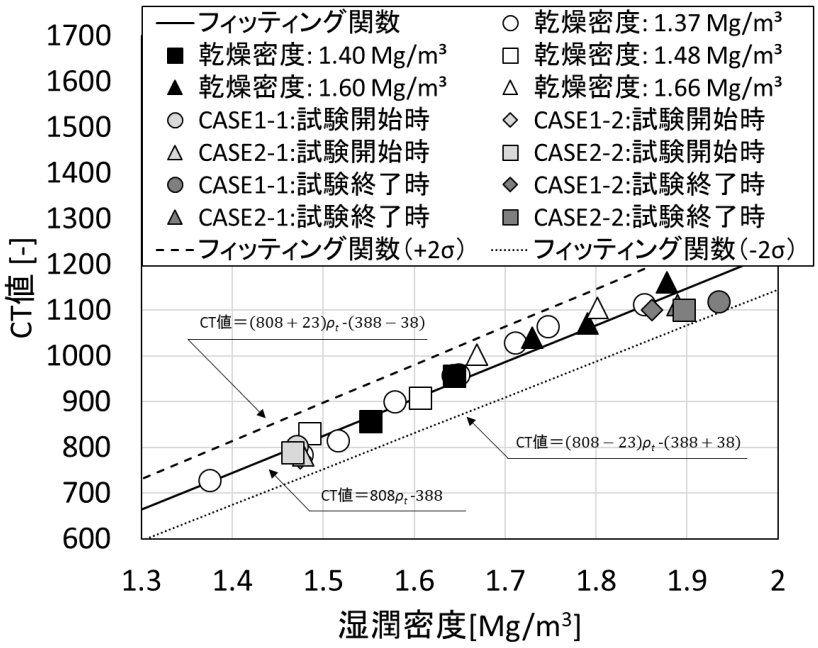


図 2.4-23　CT 値と湿潤密度の関係

③ X 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、X 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/m³、初期含水比は自然含水比（約 8%）、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 2.4-22 に示した膨潤圧試験装置のうち、試験容器の材質はアルミ、フィルターの材質はプラスチックとした。

膨潤圧試験では、まず図 2.4-24 に示すように、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 X 線 CT 測定を行った。X 線 CT 測定は、図 2.4-25 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。試験ケースを表 2.4-12 に示す。締め固めて作製した供試体は、圧縮面に近いほど密度が高くなる傾向があったため、圧縮面側から給水した場合を CASE1、その逆側から給水した場合を CASE2 とした。なお、CASE1-1 は平成 31 年度に実施したケース（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, 2020）であり、令和 2 年度に構築した CT 値から湿潤密度への換算式を基にデータの再整理を行った。

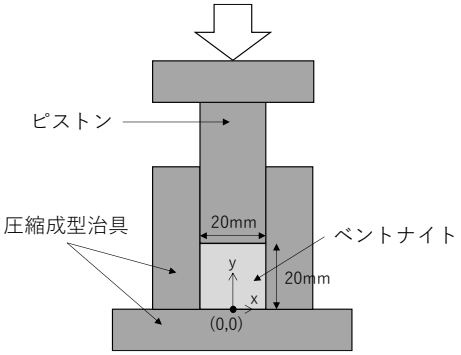


図 2.4-24　試料の締固め方法概要

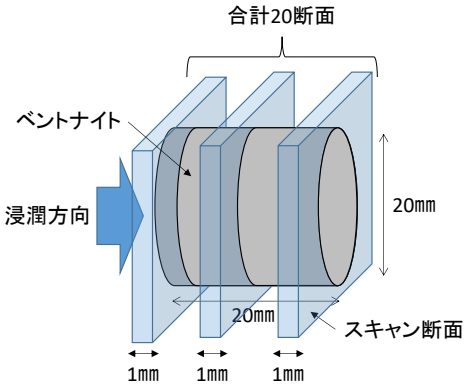


図 2.4-25　X 線 CT 測定の概念図

表 2.4-12　膨潤圧試験ケース及び初期条件

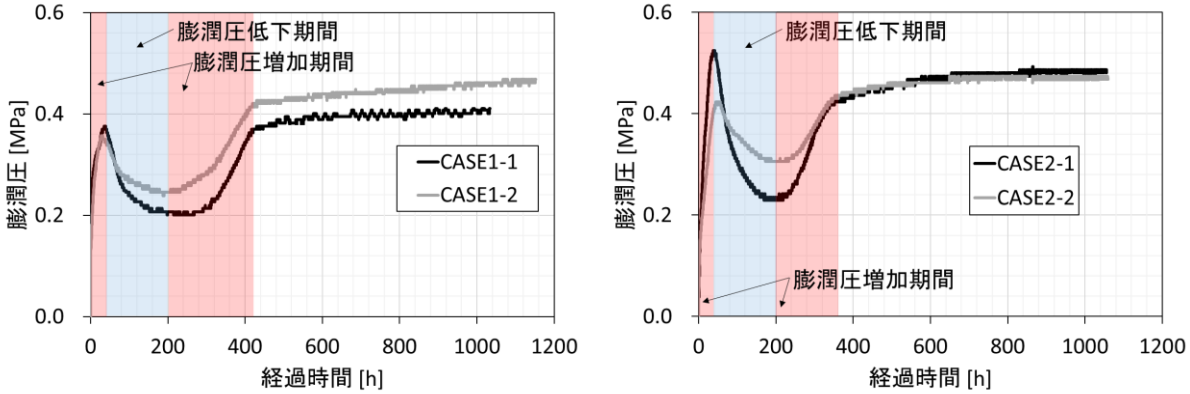
試験ケース	給水面（mm）	初期含水比（%）	乾燥密度（Mg/m³）	備考
CASE1-1	y=20	8.50	1.356	平成 31 年度実施済（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2020）
CASE 1-2	y=20	8.30	1.362	
CASE 2-1	y=0	8.33	1.364	
CASE 2-2	y=0	8.10	1.357	

膨潤圧の経時変化を図 2.4-26 に、湿潤密度分布の時間変遷を図 2.4-27 に、各断面での湿潤密度の時間変化を図 2.4-28 に示す。なお、供試体両端は、供試体に接しているフィルターの影響を受けて他の断面と比べて CT 値が極端に小さくなったため、これらの図には示していない。CASE1 と CASE2 の膨潤圧を比較すると、生じる膨潤圧の絶対値や膨潤圧の変化の形状は類似している。膨潤圧は、まず 0.40 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。膨潤圧の低下が見られた期間はおよそ 40 時間～200 時間であり、図中ではその期間を青くし、膨潤圧の増加が見られた期間を赤く示している。また、400 時間程度で膨潤圧の変化はほとんどなくなっている。湿潤密度分布の時間変化や各測定断面での湿潤密度の時間変化から、時間の経過に伴い浸潤面から徐々に湿潤密度が上昇していることから、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 時間以降は湿潤密度の変化もほとんどなくなっている。

また、図 2.4-28 の浸潤面付近である CASE1 での y=18.5 mm、CASE2 での y=1.5 mm における湿潤密度の時間変化を見ると、試験開始後に湿潤密度が増加した後一度低下し、その後再度湿潤密度が増加している。これらの断面は浸潤面に近いため、最初の湿潤密度の増加は水の浸潤によるものが支配的であり、比較的初期に飽和に達したと考えられる。そのため、その後の湿潤密度の低下と増加は、飽和度 100%条件下での乾燥密度の低下と増加が生じていることを意味している。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、この湿潤密度の変化と図 2.4-26 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。

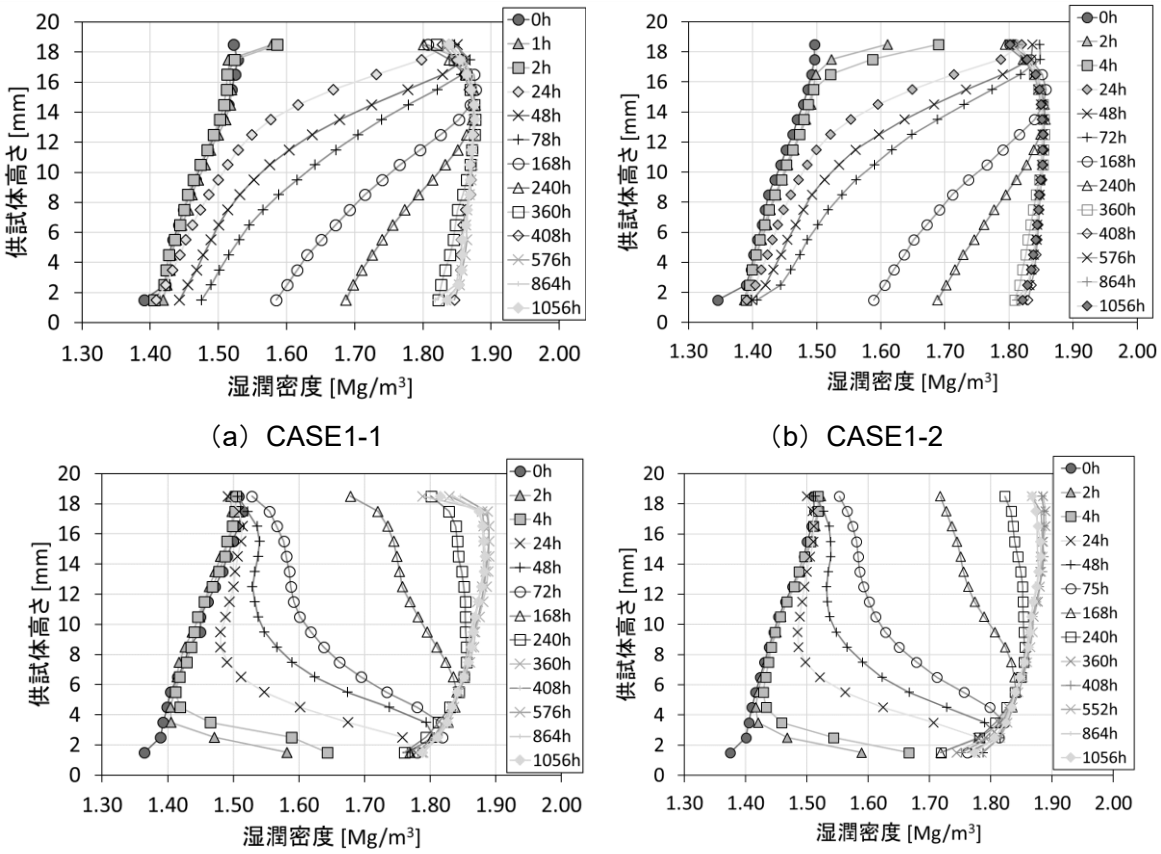
また、供試体全体としての体積は一定であるため、浸潤面付近以外の領域では逆の変形が生じていることとなる。つまり、浸潤面付近の領域が飽和して膨潤圧が高くなった状態でさらに水の

浸潤が進むと、浸潤面付近以外の領域では含水比の増加と乾燥密度の増加（コラプス）が生じていることになる。その影響により浸潤面付近の乾燥密度が低下し、膨潤圧も低下していく。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。



（a）CASE1　　（b）CASE2

図 2.4-26　膨潤圧の経時変化



（a）CASE1-1　　（b）CASE1-2

（c）CASE2-1　　（d）CASE2-2

図 2.4-27　CT 値から換算した湿潤密度分布の時間変化

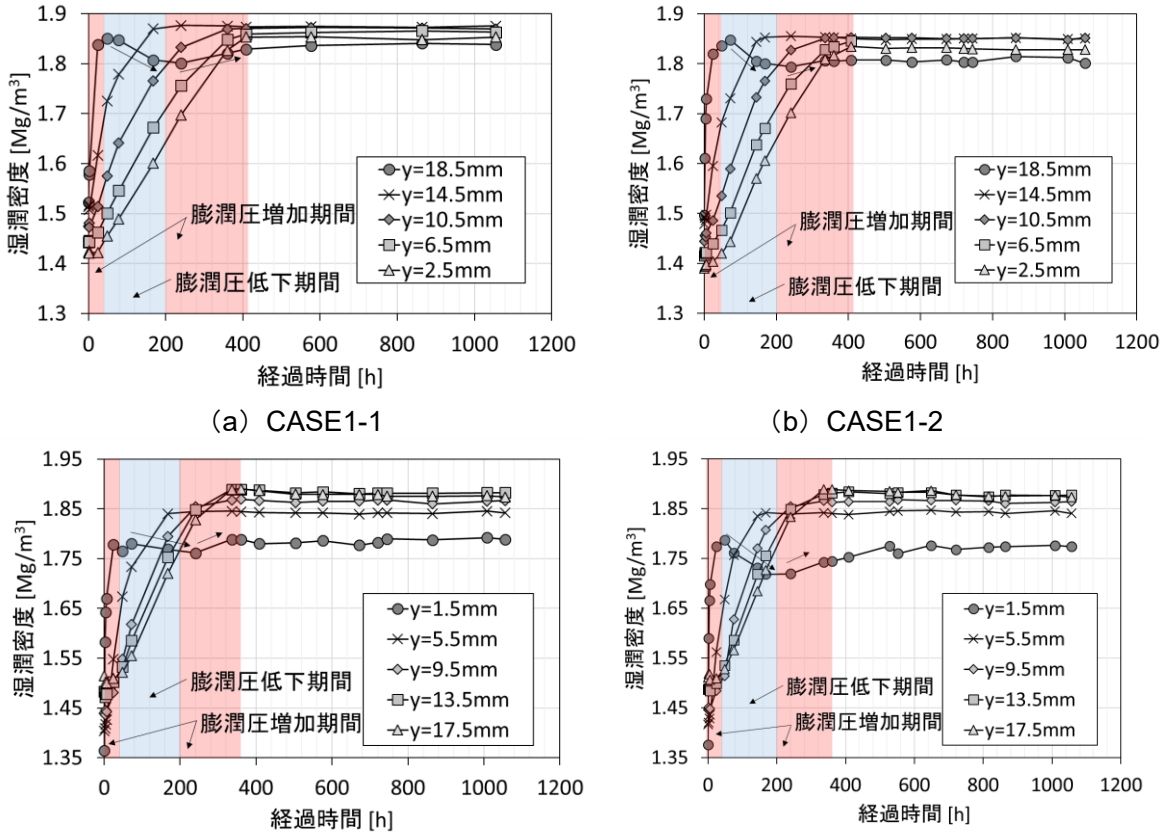


図 2.4-28　各測定断面での CT 値から換算した湿潤密度の時間変化

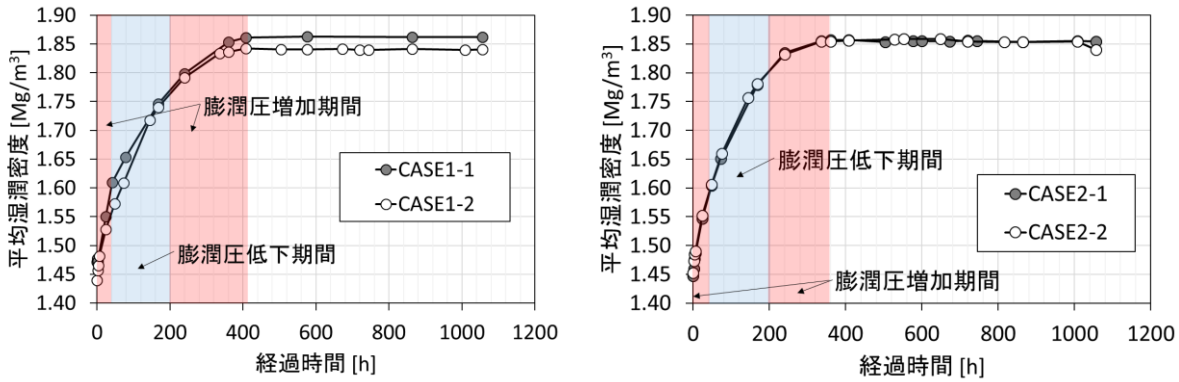
図 2.4-29 及び図 2.4-30 に端面を除いた全断面での湿潤密度の平均値と飽和度の平均値の経時変化を示す。なお、飽和度の平均値は、湿潤密度の平均値と供試体全体の平均的な乾燥密度を用いて算出した。時間の経過とともに湿潤密度と飽和度は単調に増加しているのが確認できる。また、供試体全体での飽和度が 40～50%程度から 80～90%程度に増加する期間において膨潤圧の低下が生じ、400 時間程度で供試体が飽和に至っていることがわかる。この供試体全域が飽和した時間と、膨潤圧がほとんど変化しなくなる時間は概ね一致している。最後に、本研究で実施した膨潤圧試験で観測された供試体の状態変遷の模式図を図 2.4-31 にまとめる。

本研究では、X 線 CT 測定を用いて膨潤圧試験中の供試体内部の観察を行った結果、膨潤圧の変化と供試体内部の湿潤密度分布の変化を把握することができた。特に、飽和に至るまでの過程で一度膨潤圧が低下する原因は、供試体内部で吸水圧縮挙動が生じているためであることが明らかとなった。吸水圧縮挙動はコラプスと呼ばれ、不飽和土の特徴的な力学挙動として考えられている。不飽和土の弾塑性構成モデルでは降伏曲面の拡大・縮小を制御するパラメータにサクションや含水状態に関する物理量を用いることによって吸水圧縮挙動を表現している。MACBECE に導入されているような不飽和土の弾塑性構成モデル開発で用いられてきたようなアプローチに基づく力学モデルを用いることが過渡期の緩衝材の力学挙動を評価するためには重要となる可能性が示唆される。

また、一般的に、コラプスは粒子接点に存在するメニスカスにより生じる粒子間力が浸水により消失することが原因と考えられているが（地盤工学会, 2004）、ベントナイト原鉱石の場合、メニスカスにより生じている粒子間力が浸水により消失したとしても、セメンテーションにより粒子間が固結された状態にあるため、コラプスが生じず、前述のように膨潤圧が単調に増加した可

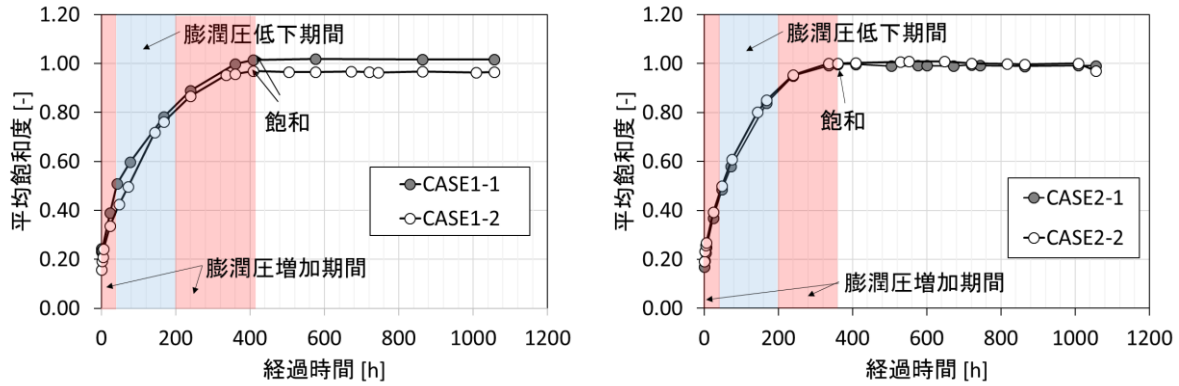
能性が考えられる。

鈴木・藤田（1999）や渡邊・田中（2016）の試験データでは、同一乾燥密度でも初期含水比の違いによって膨潤圧の経時変化の形状が異なることが示されているため、今後は、初期含水比の異なる条件などに対しても試験を行い、給水開始後の時間経過とともに膨潤圧が単調に増加する場合などの膨潤圧の経時変化の形状が異なる場合についてのデータを取得していく予定である。さらに、得られた膨潤圧と供試体内部の状態変遷の試験データは、連成解析コードの検証・高度化のためのデータとして活用していきたい。



（a）CASE1　　（b）CASE2

図 2.4-29　供試体の平均湿潤密度の時間変化



（a）CASE1　　（b）CASE2

図 2.4-30　供試体の平均飽和度の時間変化

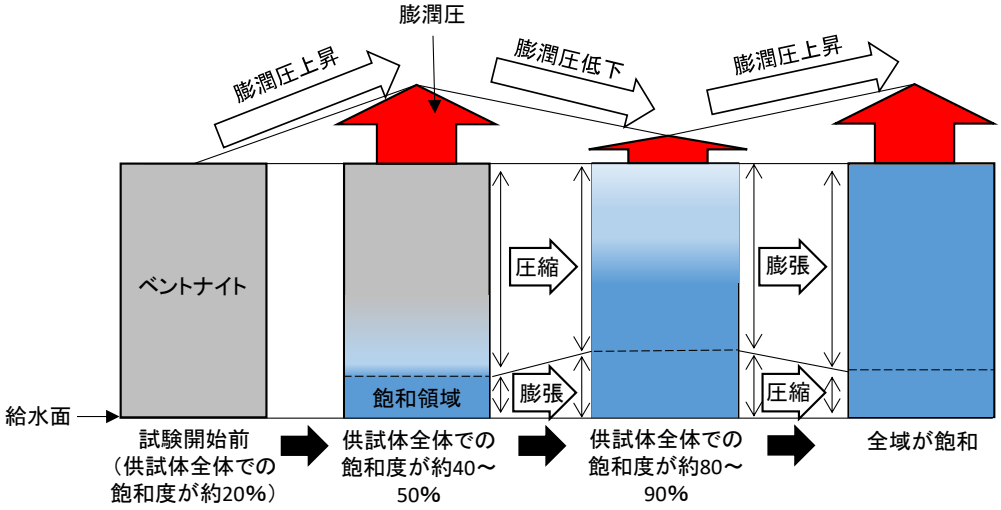


図 2.4-31　本試験で観測された供試体の状態変遷の模式図

続いて、吸水時に圧縮挙動が生じることを他の観点からも確認するため、種々の荷重条件に対して膨潤変形試験を実施した。図 2.4-32 に膨潤変形試験装置の概略図を示す。膨潤変形試験は、圧縮成型したベントナイト供試体に荷重を載荷し、その状態で水を浸潤させ、その際に生じる変位量と時間の関係を把握するものである。本試験では、上述の膨潤圧試験と同様、試験試料はクニゲル®V1、供試体の乾燥密度は 1.36 Mg/m^3、初期含水比は自然含水比（約 8%）、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。試験条件は、表 2.4-13 に示すように 3 種類の荷重条件に対して、供試体の初期湿潤密度分布における湿潤密度の高い側及び低い側から給水を行った。ここで、0.4 MPa は上述の膨潤圧試験における飽和時の膨潤圧と同等の条件であり、0.25 MPa は膨潤圧の低下時の下限値と同等の条件、1.0 MPa は膨潤圧よりも大きな荷重条件となっている。また、試験期間は膨潤圧試験と同様に 1,000 時間程度とした。

図 2.4-33 に各試験ケースにおける変位の時間変化を示す。圧縮を正として表示している。なお、図中では前述の膨潤圧試験において膨潤圧の低下が見られた期間である 40 時間～200 時間を青く表示し、膨潤圧の大きな増加が見られた期間を赤く表示している。約 1,000 時間後の変位量は、膨潤圧より大きい荷重条件（CASE A-3-1、CASE A-3-2、CASE B-3-1、CASE B-3-2）では圧縮を示し、膨潤圧より小さい荷重条件（CASE A-1-1、CASE A-1-2、CASE B-1-1、CASE B-1-2）では膨潤を示し、膨潤圧と同程度の荷重条件（CASE A-2-1、CASE B-2-1）ではほとんど変位が生じない結果となっている。しかしながら、試験開始後 40 時間から 200 時間において、ほとんどのケースで圧縮挙動を示し、その圧縮量は載荷圧が大きいケースほど大きい傾向がある。また、CASE B-1-1 及び CASE B-1-2 では、この期間において変位がほとんど生じていないため、これ以下の荷重条件では吸水圧縮挙動が生じずに膨潤挙動のみが生じるものと推測される。

以上より、膨潤圧試験での膨潤圧低下期間では膨潤圧が約 0.40 MPa から約 0.25 MPa まで低下したが、この荷重範囲において吸水圧縮挙動が生じることを膨潤変形試験で確認し、また、膨潤変形試験において吸水圧縮挙動が確認された期間と、膨潤圧試験での膨潤圧低下期間は概ね一致していることから、膨潤圧試験での膨潤圧の低下挙動は吸水圧縮挙動によるものであることが確認できた。

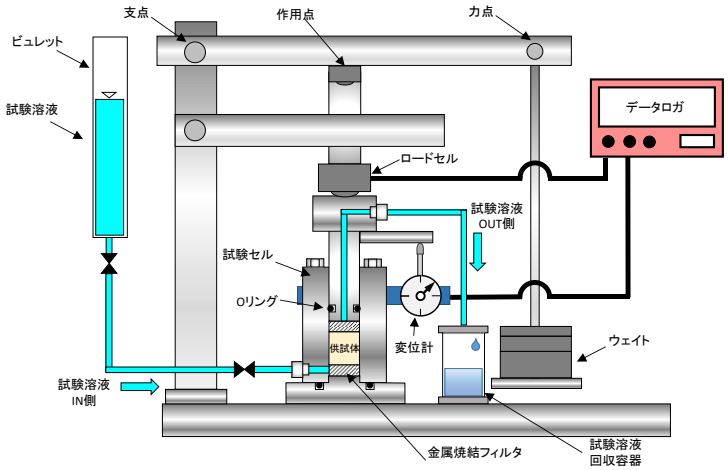
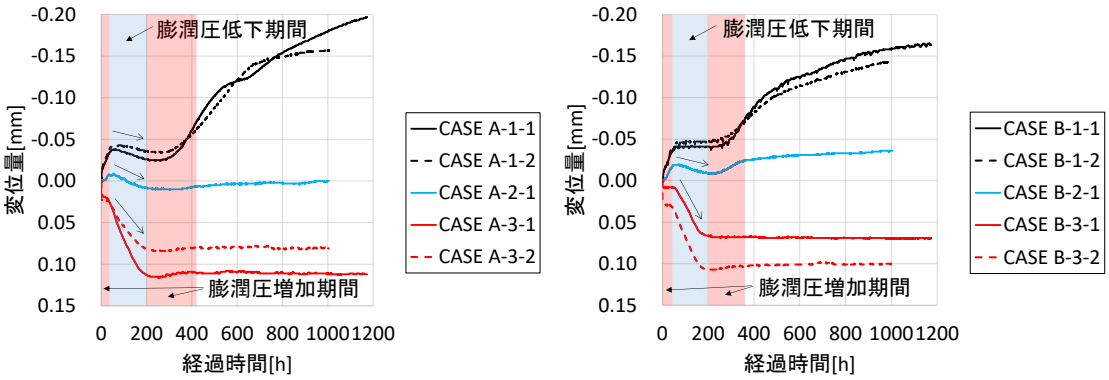


図 2.4-32　膨潤変形試験装置

表 2.4-13　膨潤変形試験の試験条件

試験ケース	荷重(MPa)	初期含水比(%)	初期乾燥密度(Mg/m³)	給水面
CASE A-1-1	0.25	8.33	1.361	初期密度の高い側
CASE A-1-2	0.25	8.30	1.369	初期密度の高い側
CASE A-2-1	0.40	8.30	1.364	初期密度の高い側
CASE A-3-1	1.00	8.33	1.359	初期密度の高い側
CASE A-3-2	1.00	8.30	1.359	初期密度の高い側
CASE B-1-1	0.25	8.33	1.361	初期密度の低い側
CASE B-1-2	0.25	8.30	1.364	初期密度の低い側
CASE B-2-1	0.40	8.30	1.369	初期密度の低い側
CASE B-3-1	1.00	8.33	1.359	初期密度の低い側
CASE B-3-2	1.00	8.30	1.366	初期密度の低い側



（a）CASE A　　（b）CASE B

図 2.4-33　膨潤変形試験中の変位の時間変化

(3) これまでの成果と今後の課題

令和 2 年度は、MACBECE の更なる改良として、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できる機能を MACBECE に追加した。追加した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、温度変化に伴う構成材料の熱膨張や熱収縮挙動が処分施設の力学的な状態変遷や緩衝材の応力緩衝性の評価結果に与える影響を分析した。深度 500 m、横置き方式、軟岩を想定した長期力学挙動解析の結果、過渡期の力学挙動が処分施設の長期的な力学挙動に与える影響が小さいことを示唆する結果を得た。平成 30 年度から令和 2 年度の検討により、処分施設の各材料及び周辺岩盤との力学的相互作用を過渡期から長期まで一貫して評価できる解析システムを構築することができた。しかしながら、緩衝材の力学特性の温度依存性については MACBECE に導入できていない。今後は、緩衝材の力学特性に与える温度依存性に関する試験データの蓄積と、それに基づく力学モデルの構築が求められる。緩衝材の力学モデルは、主に圧密特性とせん断特性から構成されるため、特にこれらの特性に与える温度影響に関する試験データを蓄積していくことが重要と考える。また、MACBECE に新たに導入した機能については、室内試験や原位置試験などを活用した妥当性の検証が求められる。

さらに、過渡期の緩衝材の不均質な飽和度分布の進展に伴う力学挙動の理解や力学モデルの検証に向けて、令和 2 年度は、湿潤密度の違う供試体に対する X 線 CT 測定により、CT 値から湿潤密度への換算式を構築し、平成 31 年度に取得したデータの再整理を行った。平成 30 年度から令和 2 年度の検討により、浸潤面付近の湿潤密度の変化から、供試体内部で吸水圧縮挙動（コラプス）が生じていることが観測され、これにより膨潤圧が一度低下する現象が生じていることが明らかとなった。ベントナイトの不飽和時の力学挙動を精緻に表現するためには、このような挙動を表現可能であることが求められる。今後は、給水開始後の時間経過とともに膨潤圧が単調に増加する場合などの膨潤圧の経時変化の形状が異なる場合についてのデータを取得することを目的に、初期含水比の異なる条件などに対しても試験を行っていく予定である。

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」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 モデルについてのこれまでの取り組みでは、まず、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。また、メソ MD モデルで得られた粘土含水系の組織構造モデルを用いて間隙構造の変形解析や微視的な間隙構造の特性を反映した物質の拡散解析を試行し、微視的多孔質構造を考慮したマクロ量としての弾性係数や拡散係数の評価が可能であることの見通しを得た（日本原子力研究開発機構, 2018)。さらに、メソ MD モデル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 モデル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（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 ; 2020)。しかしながら、これまでのメソ MD モデルでは間隙の水分量は一定と仮定しているため、膨潤や膨潤圧の発生、系が平衡状態にあるときに保持される水分量をシミュレーションによって求めることはできなかった。そこで令和 2 年度は、 粘土含水系に水分の出入りがある場合にも対応できるように手法の拡張を行う。これにより、系外から水分を浸透させることで膨潤や膨潤圧を発生させることなどができるようになる。

このような手法の開発は、メソ MD モデル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 モデルが実測可能なマクロ量をどの程度再現できるかなどの検証を経て、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

本研究での、粘土含水系に水分の出入りがある場合にも対応できるようにするためのメソMDモデルでの拡張では、全エネルギーの式において、従来のモデルに含まれていた粗視化粒子間相互作用のエネルギー（U_{LJ}）に加えて、水分の分布や量に関するエネルギーとして、水分子と粘土分子の水和による相互作用のエネルギー（U_{hyd}）（以下、「水和エネルギー」とする）及び水分量の増減によって変化するエネルギー（U_N）を考慮する（式（2.4-17））。なお、U_Nは、式（2.4-18）のように水分子の総数Nに比例するエネルギーで、その比例係数μは、通常、化学ポテンシャルと呼ばれる。なお、化学ポテンシャルμは、粘土含水系が置かれた環境の相対湿度に関係する量

で、μが小さいほど相対湿度が高い場合を、μが大きいほど相対湿度が低い場合を表現することができる。

$$E = U_{LJ} + U_{hyd} + U_N \quad (2.4\text{-}17)$$

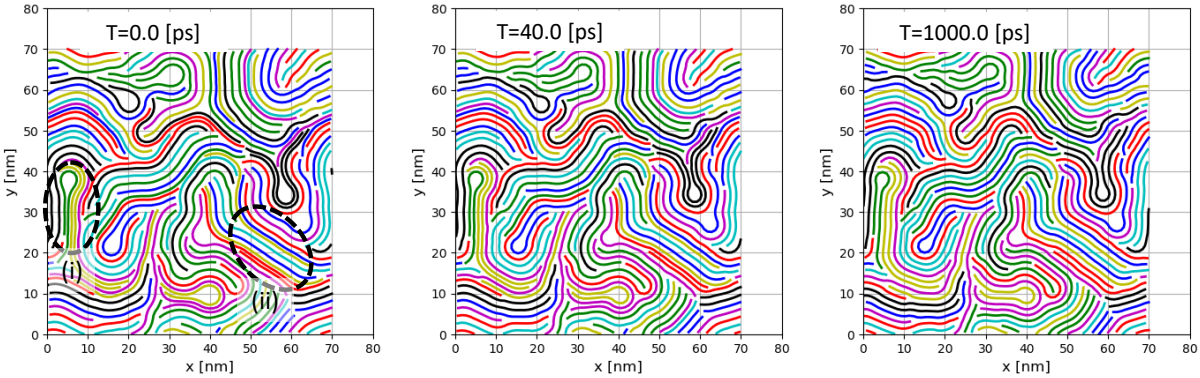
$$U_N = \mu N \quad (2.4\text{-}18)$$

ここで拡張を行ったメソMDモデルでは、粗視化粒子の運動方程式に基づく計算（U_{LJ}）を行う途上で、水分の移動について、粘土分子への水和エネルギー（U_{hyd}）と水分量に比例したエネルギー（U_N）の評価を繰り返すことで、より安定な水分量と水分配置を探索する。

以下に、水分量変化を許容した新しいメソMDモデルによるシミュレーションの結果を示す。具体的には、まず、乾燥密度が1.6 Mg/m^{3}程度のモデルを、メソMDモデルでのランダムに配置した粘土分子の圧縮凝集（水分量一定の条件）によって作成する。次に、そのモデルを初期モデルとして、水分の出入りを許す条件で平衡化する。平衡化は、指定された温度T、体積V、化学ポテンシャルμにおいて行い、このシミュレーションを相対湿度が高い場合と相対湿度が低い場合に相当する化学ポテンシャルμについて行った。

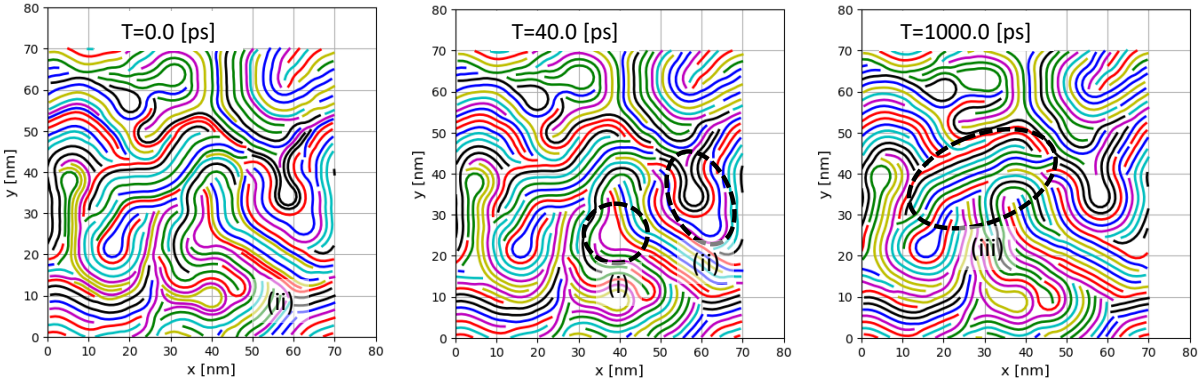
このような水分の出入りを許す条件での緩和シミュレーションの結果、同一の初期モデルから緩和を開始しても、化学ポテンシャルによって吸水と排水のいずれも生じうることが示された。たとえば、組織構造については、相対湿度が高い場合（図2.4-34）には、積層した粘土層間の距離が緩和の結果として初期状態より大きくなり、同時に層間距離が均一化する様子が見られる。例えば、図2.4-34(a)において(i)と(ii)の破線で囲んだ箇所では、当初は層間距離にばらつきが見られるが、吸水により最終的に層間距離がほぼ一様になっている。また、粘土分子が折りたたまれて出来た空隙部分も、水分の増加に伴い、その大きさは次第に小さくなっている。一方、相対湿度が低い場合（図2.4-35）には、一部の水分が排出されることで空隙が増加する方向へ組織構造が変化している。詳しくみれば、水分量の減少によって生まれたスペースを使って粘土分子が若干移動することで、屈曲が解消される箇所（図2.4-35(c)の(iii)の箇所）や、空洞が消失や統合する様子（それぞれ、図2.4-35（(b)の(i)と(ii)の箇所）が示されている。ただし、排水量はあまり大きくないために、粘土分子の相対的な配置や分子の屈曲状況の変化は劇的なものではない。

さらに、緩和前後での水分の分布状況についても調べることもでき（図2.4-36）、水分量は当初大きく偏った状態にあるが、緩和後は概ね均等に配分さることが示されている。また、吸水が生じる場合には膨潤圧が発生し、 排水が生じる場合には応力が減じることもシミュレーションでき、相対湿度が高く吸水する場合の例（図2.4-37）では、直応力分（σ11、σ22）は増加した後一定値に至っている。



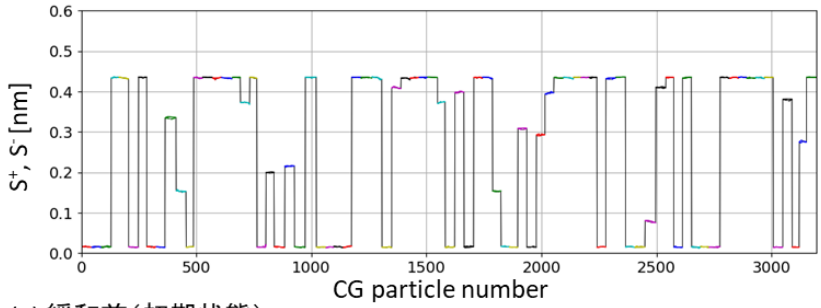
(a) 計算時間　t=0.0 [ps]　(b) 計算時間　t=40.0 [ps]　(c) 計算時間　t=1000.0 [ps]

図 2.4-34　組織構造の変化（相対湿度が高い場合）

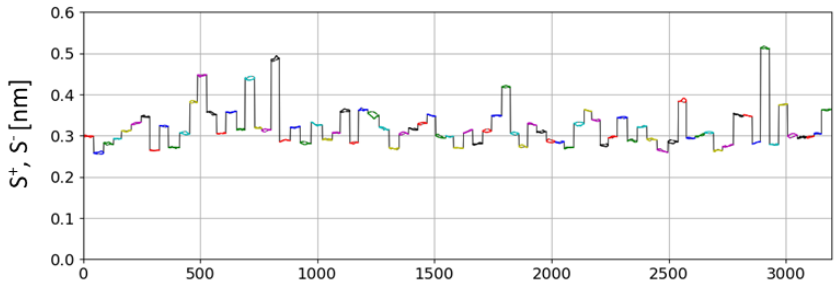


(a) 計算時間　t=0.0 [ps]　(b) 計算時間　t=40.0 [ps]　(c) 計算時間　t=1000.0 [ps]

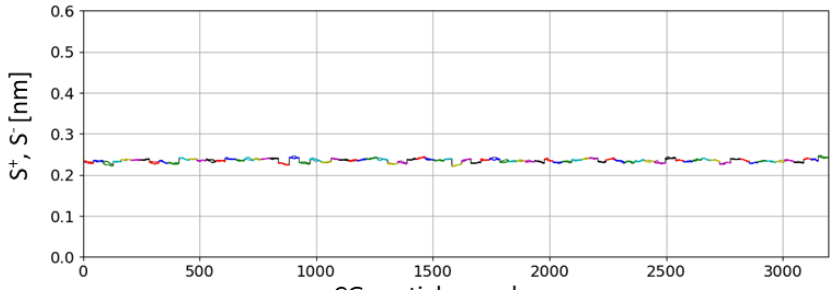
図 2.4-35　組織構造の変化（相対湿度が低い場合）



(a) 緩和前（初期状態）

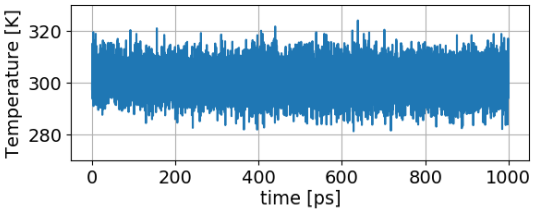


(b) 相対湿度が高い場合

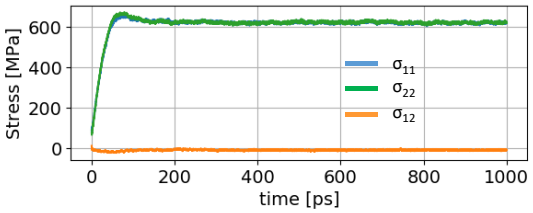


(c) 相対湿度が低い場合

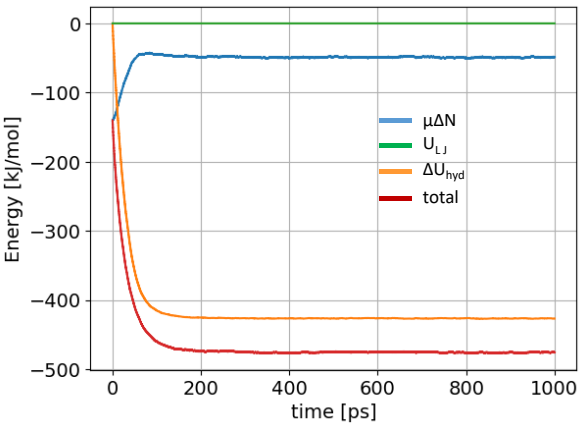
図 2.4-36　水分分布の変化



(a) 温度



(b) 応力



(c) エネルギーの変化

図 2.4-37　温度、応力、エネルギーの変化（相対湿度が高い場合）

(3) これまでの成果と今後の課題

粗視化メソスケール分子動力学（メソ MD）モデルの開発について、令和 2 年度は、粘土含水系の組織形成シミュレーションにおいて水分量を変化させることができるように、水和エネルギーと水分量の関係をモデル化しメソ MD モデルへの組み込みを行った。この方法で定積、定温かつ指定された化学ポテンシャルの下で粘土含水系の緩和シミュレーションを行ったところ、相対湿度が高い場合に相当する条件では吸水による膨潤圧が発生し、相対湿度が低い場合に相当する条件では排水により圧力の低下と組織構造の変化が生じることが確認された。

平成 30 年度から平成 31 年度までに開発してきたメソ MD 法による、指定された温度と圧力で圧縮したときに生じる粘土含水系の凝集挙動の評価（組織構造モデルの作成）、及び得られた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）あるいは粘土分子の平均的な積層数や層間距離などの定量的な評価に加えて、令和 2 年度の改良を行ったことにより、メソ MD 法を用いて所定の温度や体積、化学ポテンシャルの下で粘土が保持できる水分量を求めること、すなわち、環境の変化によってどのように吸脱水が生じるかを調べることが可能となった。このことから、本モデルは粘土の膨潤や不飽和浸透問題の解析にも有用となることが期待される。

今後の課題としては、水和エネルギーのモデルについて、水和エネルギーが水分量に対して単調に変化するなどの現段階での簡便な取扱いに対して、実現象を再現できるようなモデルの詳細化を行うことが挙げられる。たとえば、ナトリウム型モンモリロナイトは相対湿度に対して階段状の膨潤曲線を示すことから、これを再現するような水和エネルギーモデルの開発などが必要となる。

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・分析を実施し、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, 2016；2017；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；2020）。しかしながら、グラウチングは解放された坑道の周囲に施工されており、坑道に向かう地下水の流れが卓越するため、地下水とセメント系材料が反応してアルカリ性の地下水が形成されたとしても坑道に湧出し､岩盤側へは拡がらない可能性が高い｡そこで、令和 2 年度はボーリング孔掘削時にセメントが使用されたボーリング孔周囲の岩石試料を採取し、アルカリプルームの痕跡の有無を調査した。

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（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, 2020）。令和 2 年度は、平成 31 年度に構築した反応輸送解析モデルを用いて、坑道近傍スケールでの単一の亀裂を対象とした状態変遷の知見を拡充するための感度解析を継続すると共に、CO_2 地下貯蔵などの他分野における類似検討事例に係る文献調査を行い、本検討における今後の進め方や方向性の見直し・整理を行った。

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たが、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）。

既往の研究では、原位置におけるセメント系グラウト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その概念モデルの構築を行ってきた。例えば、深度 300 m 研究アクセス坑道における研究では、施工後約 3 年のグラウト材が炭酸化しつつあることが確認されている（日本原子力研究開発機構, 2016）。また、施工後約 3 年と約 7 年が経過したグラウト材コア試料の観察の結果、グラウト材は施工後、比較的早い時期から炭酸化が進行している可能性があることや、坑道を開放している段階ではグラウト材が周辺岩盤へ化学的影響を及ぼす可能性は小さいと考えられた（日本原子力研究開発機構, 2017）。さらに、平成 31 年度には、施工後約 11 年が経過したグラウト材ー岩盤接触部から試料を採取・分析した。その結果、グラウト材については、試料（グラウチング施工位置の違い）によって炭酸化の有無が異なることが判明したが、いずれの試料においても岩盤中にはグラウト材の影響とみられる変質は認められていない（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, 2020）。また、平成 30 年度には、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目的として、既存試料を用いた通水箇所及びそのグラウト材及び岩盤の変遷を把握する通水試験実施し、方解石（$CaCO_3$）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）。

以上のように、グラウチング施工箇所を対象とした事例研究では、グラウト材の炭酸化は確認されたが、セメント系材料による岩盤の変質などは確認されていない。そこで、令和 2 年度はボーリング孔掘削時にセメント系材料が使用されたボーリング孔を対象として、その周辺岩盤中でアルカリプルームの痕跡を調査した。

(2) 実施内容

1) 研究対象のボーリング孔の概要

研究対象としたボーリング孔は、瑞浪超深地層研究所深度 500 m 研究アクセス北坑道 57 m ボーリング西横坑から掘削された 12MI33 号孔である。同孔は坑道掘削前の地下水圧、水質を把握するため、坑道の掘削予定位置から約 5 m 離れた位置に掘削されたもので、掘削長 107 m である（黒岩ほか, 2015）。同孔の掘削に当たっては、孔口から深度 42.56 m までは孔径 123 mm で掘削し、その後、内径 102.3 mm のケーシングパイプを挿入し、パイプと孔壁の隙間をセメントで充填してパイプを固定した。その後、深度 107 m まで孔径 98.4 mm で掘削された（黒岩ほか, 2015）。セメント充填時には、ケーシングパイプの最深部にパッカーを設置し、その奥側にセメントを圧力約 4.5 MPa（原位置の地下水圧よりも約 0.5 MPa 高い圧力）で送り込み、奥側から孔口に向かってパイプと孔壁の隙間にセメントを流し込んだ。

掘削後、パッカーにより孔全体を 6 区間に分割し、各々の区間の水圧と水質のモニタリングが行われた（林田ほか, 2018）。モニタリング区間のうち、最も孔口側の区間 6 はケーシングパイプが設置され、パイプ固定のためにセメントが使用された区間に当たる。区間 6 では、500 m 研究アクセス北坑道の最奥部（冠水坑道及びその入り口に設置された止水壁）を建設後、少なくとも約 2 年間にわたって pH が 11 を超えていた（林田ほか, 2018）。深度 500 m 研究アクセス北坑道周辺でのモニタリングデータ（林田ほか, 2018）に基づくと、深度 500 m の地下水の pH は約 9 であることから、区間 6 の地下水の pH は、ケーシングパイプの固定に用いたセメントとの反応により上昇したと考えられる。

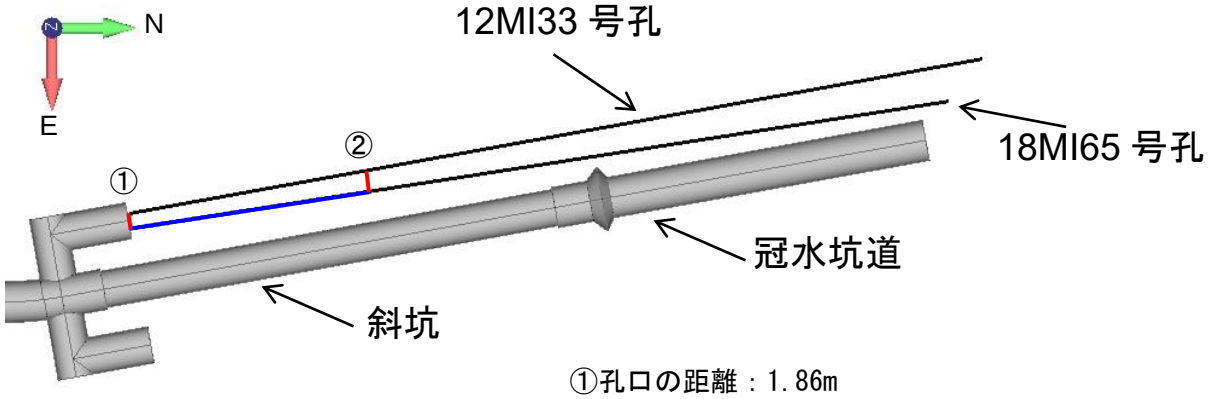
なお、冠水坑道では、坑道を地下水で満たすことによる環境変化を調査する再冠水試験が実施されたが（松岡・濱, 2020）、区間 6 では再冠水試験の実施期間中に pH が 11 以上から約 9.5 に低下した（林田ほか, 2018）。前述のとおり、深度 500 m の地下水の pH は約 9 であることから、12MI33 号孔の区間 6 の地下水は、再冠水試験に伴う地下水圧の回復（上昇）の影響を受け、周

囲の岩盤中の地下水に置き換えられたと考えられる。

2) 岩石試料の採取と観察

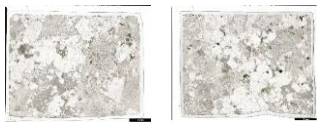
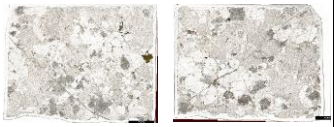
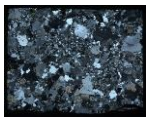
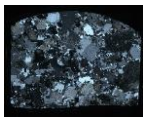
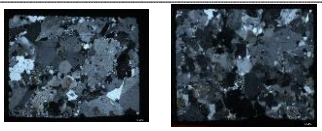
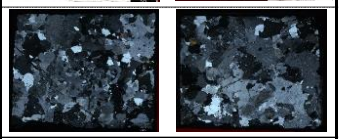
12MI33 号孔の区間 6 では、pH が 11 を超す状態が約 2 年間、継続したことから、セメント由来の高アルカリ性の地下水が周辺岩盤へ浸透し、区間 6 の周辺にアルカリプルームを形成していた可能性が考えられ、さらにそのような地下水によって岩盤中で変質や二次鉱物の形成が生じた可能性もある。

12MI33 号孔の近傍では、平成 30 年度に 18MI65 号孔が掘削された（同孔は経済産業省委託事業「岩盤中地下水流動評価技術高度化開発」により掘削された；日本原子力研究開発機構・電力中央研究所, 2019)。18MI65 号孔は、12MI33 号孔から約 2m 離れた位置から掘削され、12MI33 号孔と掘削方位はほぼ同じであるものの、下向き傾斜角が若干大きいため、深度が深くなるにしたがって両孔の離間距離は大きくなっていく。本研究では、18MI65 号孔の 24.15～30.1 m の深度で試料を採取したが、深度 30 m の位置では、18MI65 号孔と 12MI33 号孔の離間距離は 3.7 m 程度である（図 2.5-1 の②の黒塗りの位置。離間距離は黒塗り上に赤線で示した長さとなる)。そこで、18MI65 号孔掘削時のコア記載（日本原子力研究開発機構・電力中央研究所, 2019）で割れ目充填物として炭酸塩鉱物の存在が認められた割れ目を対象にしてコア観察を実施した。その結果、結晶度が低く、天然の炭酸塩鉱物とは判定できなかったきわめて薄い炭酸塩鉱物が表面に張り付いた割れ目が認められたため、こうした割れ目表面を含むコア試料を 7 試料採取した。採取した試料の一覧と肉眼観察結果を図 2.5-2 にまとめた。



①孔口の距離：1.86m
②18MI65 号孔の深度 30m 地点の距離：3.70m

図 2.5-1　セメントが使用されたボーリング孔（12MI33 号孔）とコア試料を採取したボーリング孔（18MI65 号孔）の位置関係

試料名	24.15m-1	24.15m-2	25.15m	26.9m
試料写真				
偏光顕微鏡写真 オープンニコル (OP)				
クロスニコル (CR) (画像の横幅が約3cm)				
記載	表面に炭酸塩鉱物の沈着物あり。 鏡下では斜長石の変質が強いが，空隙は粘土鉱物で充填されている。 鏡下では厚さ1mm以下の極細粒の沈着物が認められるが，炭酸塩鉱物は確認されなかった。	表面に炭酸塩鉱物の沈着物あり。 鏡下では厚さ1mm以下の極細粒の沈着物が認められる。 局所的に炭酸塩鉱物の可能性がある鉱物が生成している。	表面に炭酸塩鉱物の沈着物あり。 鏡下では割れ目表面を覆う薄い沈着物が認められる。ごくわずかに炭酸塩鉱物の可能性がある鉱物が生成している箇所がある。	表面にごくわずかな炭酸塩鉱物の沈着物あり。 鏡下では，局所的に沈着物の薄層が認められる。部分的に炭酸塩鉱物の可能性がある鉱物が生成している。

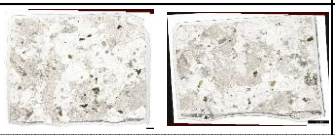
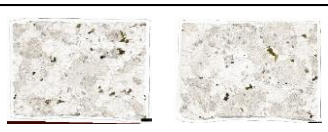
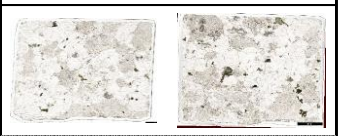
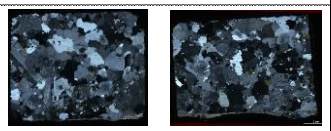
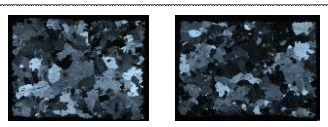
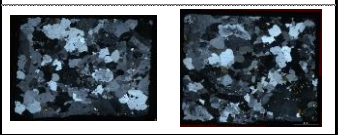
試料名	28.9m	30.1m浅部面	30.1m深部面
試料写真			
偏光顕微鏡写真 オープンニコル (OP)			
クロスニコル (CR)			
記載	表面に炭酸塩鉱物の沈着物あり。 鏡下では厚さ1mm以下の極細粒の沈着物が比較的広範囲に認められる（CR画像の下側）。他の試料と比較すると，比較的厚いこと，観察範囲全体に分布し，かつ微小割れ目を充填していること，石英粒子を含むことから，天然の炭酸塩鉱物であると考えられる。	表面に炭酸塩鉱物の沈着物あり。 鏡下ではごく薄い沈着物が認められ，部分的に炭酸塩鉱物の可能性がある鉱物が生成している。比較的広範囲に分布する。	表面に炭酸塩鉱物の沈着物あり。浅部面の反対側の面。 鏡下ではごく薄い極細粒の沈着物が割れ目表面を覆って分布することが確認される。部分的に炭酸塩鉱物の可能性がある鉱物が生成している。

図 2.5-2　採取したコア試料の一覧表、薄片写真、肉眼及び薄片観察結果

採取した試料を用いて岩石薄片を作製した。岩石薄片の作製に当たっては、図 2.5-3 に示すように、割れ目表面の沈着物を可能な限り含むように割れ目の鉛直に薄片を作製した。薄片作製に際しては、岩石を切断する必要があるが、その際に沈着物の剥離を避けるため、あらかじめ割れ

目表面を樹脂で固め、その後に岩石を切断した。薄片は、付着物の拡がりを考慮し、1 試料につき 1～2 枚を作製した。

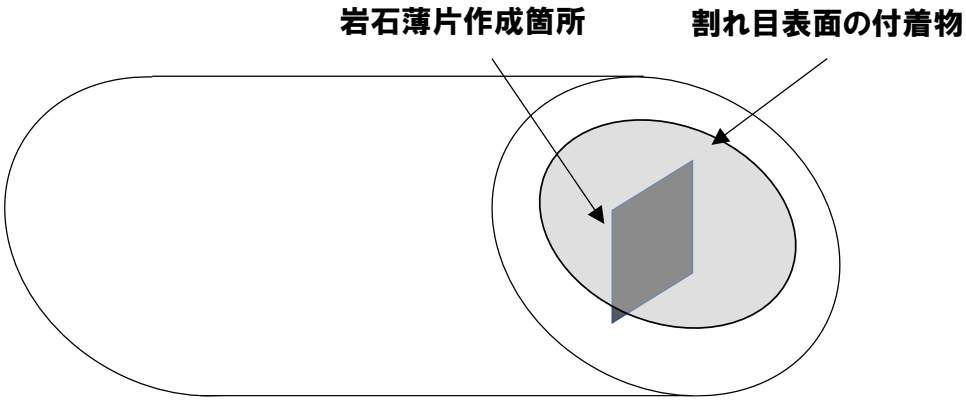


図 2.5-3　岩石薄片の作製位置を示す概念図

作製した薄片を偏光顕微鏡で観察した。薄片写真（オープンニコル及びクロスニコル）を図 2.5-2 に示す。観察の結果、いくつかの試料では、割れ目表面にごく細粒の沈着物が認められた。沈着物の大部分はセメント系の物質と推定されるが、28.9 m と 30.1 m の試料では炭酸塩鉱物と推定される細粒物も確認された（図 2.5-4）。しかしながら、割れ目表面から離れた母岩中では、空隙を埋める炭酸塩鉱物などは本観察では確認されなかった。

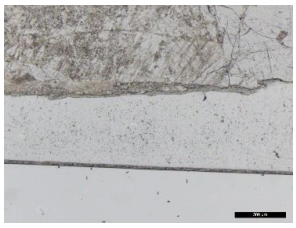
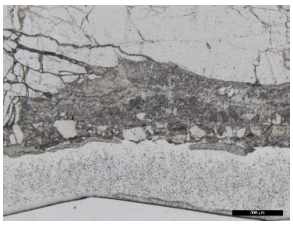
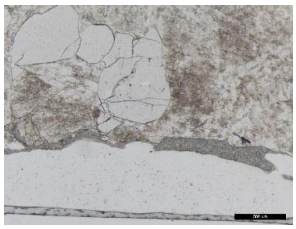
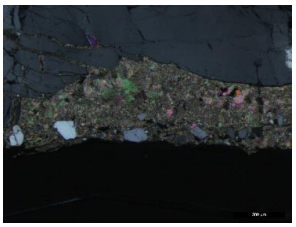
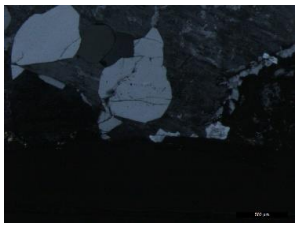
試料名	25.15m	28.9m	30.1m浅部面
偏光顕微鏡写真 オープンニコル （OP）			
クロスニコル （CR） （画像の横幅が約12mm）			
記載	極細粒の沈着物（OP画像中央の暗灰色の薄層）の一部で炭酸塩鉱物と思われる鉱物が確認される（CRの画像中央部）。	割れ目表面全体に炭酸塩鉱物と思われる鉱物が分布する。天然の脈と推定される。	極細粒の沈着物（OP画像中央下部の暗灰色の薄層）が確認される。炭酸塩鉱物等は確認されない。

図 2.5-4　割れ目表面で認められた極細粒の沈着物

3) 観察結果の解釈

観察の結果、割れ目表面においてセメント系の物質の可能性が考えられる沈着物が確認された。30.1 m の試料では、セメント系の物質と推定される沈着物が割れ目表面に広く分布することが確

認された。この沈着物の成因として、①セメント注入時にセメントが割れ目に侵入して形成されたもの、②セメントに起因するアルカリプルームによって形成されたものの 2 つが考えられる。①については、セメントの注入圧は原位置の地下水の水圧よりも高く設定されており、透水性の良い割れ目や開口幅の大きい割れ目にセメントが侵入した可能性がある。この場合にはセメントが割れ目開口部全体を閉塞するか、仮に割れ目表面に付着する場合には広範囲に沈着し、その分布は連続性があると考えられる。30.1 m の試料で確認された沈着物はこれら特徴を有しており、セメント注入時に割れ目に侵入したセメントであると推定される。一方、他の試料で確認された沈着物は、薄層として局所的に分布するのみであり、①の特徴とは一致しない。このため、12MI33 号孔で使用されたセメントに起因するアルカリプルームによって形成された可能性が考えられるが、薄片作製時に使用した樹脂に含まれる物質である可能性も否定できない。

今回観察した試料のうち、26.9 m、28.9 m と 30.1 m の試料では炭酸塩鉱物と思われる細粒物が認められた。このうち、28.9 m の試料で認められた炭酸塩鉱物は割れ目表面に広く分布しており、他の試料に比べて厚みがあることから、天然の炭酸塩鉱物脈と推定される。これまでに、瑞浪超深地層研究所で実施されたボーリングコアで確認された割れ目を充填する炭酸塩鉱物として、細粒で板状の方解石と粗粒で C 軸方向に伸長した自形の方解石の 2 種類がある（石橋ほか, 2014; Ishibashi et al., 2016）。このうち、細粒の方解石は比較的高温の熱水活動に関連して形成されたと考えられている。このタイプの方解石は Ca に富む斜長石の変質に伴って放出された Ca を原材料として形成されたと考えられているが、緑泥石や絹雲母などの粘土鉱物を伴うことが多いとされている。一方で、粗粒の方解石は花崗岩固結以降の海水侵入（花崗岩の上位に分布する瑞浪層群堆積）時に塩水が地下深部に浸透したことに伴って形成されたと考えられている（石橋ほか, 2014 ; Ishibashi et al., 2016）。今回、確認された炭酸塩鉱物は細粒であるものの粘土鉱物を随伴しないことから、熱水活動に関連して形成されたものではなく、12MI33 号孔で使用されたセメントが炭酸に富む地下水と接触したことによって形成された可能性が考えられる。

(3) これまでの成果と今後の課題

令和 2 年度に実施した割れ目表面の観察では、成因は不明であるものの、沈着物が確認された。しかしながら、割れ目表面から離れた母岩中では炭酸塩鉱物などの二次鉱物の形成は確認されず、ボーリング孔で使用されたセメントに起因するアルカリプルームの痕跡を確認することはできなかった。このことは、仮にプルームが形成されていたとしても、少なくとも数年という短期間では母岩には浸透しなかったことを示す。この要因として、瑞浪超深地層研究所深度 500 m 研究アクセス北坑道周辺での花崗岩の空隙率は 1%程度（最大 1.5% ; 桑原ほか, 2015）と比較的小さいことが挙げられる。また、花崗岩中の割れ目に沿う簡易的な物質移行解析（西尾ほか, 2020）によると、物質が花崗岩中の割れ目を移流で移動する場合、母岩への拡散は 1 万年では数 m の深さまで及ぶ可能性があるが、短期間ではほとんど生じないことを指摘している。したがって、空隙率の小さい花崗岩では、仮にアルカリプルームが形成されるとしても、その影響は短期的には透水性の良い割れ目沿いに限定されるが、長期的には割れ目周辺の母岩まで影響が及ぶ可能性は否定できない。

平成 30 年度～令和 2 年度までの 3 か年の検討により、地下施設でのグラウト施工事例を活用し、原位置から採取したグラウト材－花崗岩接触部の試料を用い、セメント系材料が岩盤へ与える影響やそのプロセスの理解に関する試験・分析を実施した。その成果として、グラウト材と花崗岩の境界部において、方解石の析出が確認されると共に、原位置におけるグラウト材の変質状態は試料採取箇所により異なることも明らかになった。

令和 2 年度の検討で確認された炭酸塩鉱物を伴う沈着物は、セメント注入時に割れ目に侵入し

たセメントである可能性や天然の鉱物、樹脂に含まれる物質である可能性もあり、アルカリプルームによって形成されたものと断定することはできなかった。このため、今後は微細な沈着物を電子顕微鏡で観察してその成因を追求するとともに、炭酸塩鉱物に対しては化学組成を明らかにし、瑞浪超深地層研究所で確認されている方解石の化学組成との比較を行うことにより、セメントに由来するものであるかどうかを確認していく必要がある。あわせて、母岩を対象に電子顕微鏡観察を行い、鉱物の溶解や二次鉱物の生成の有無を確認していく必要がある。

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した 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, 2015b）。

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（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）。このような解析モデルの概念図を図 2.5-5 に示す。

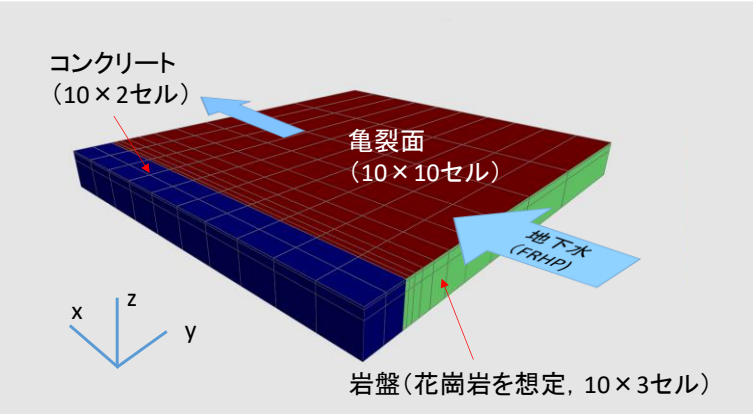


図 2.5-5　亀裂を二次元平行平板と仮定した準三次元モデルの概念
（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2019）

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（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, 2020）。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。令和 2 年度は、平成 31 年度に実施した感度解析の中からアルカリプルームの影響の拡がりが異なる 2 つのケースを選定し、各々のケースに対する反応輸送解析の結果を再分析した。また、平成 31 年度の解析では、いずれのケースでも岩盤亀裂に隣接するコンクリート支

保との境界において、二次鉱物の沈殿により間隙率が著しく低下（1%）し、亀裂中へのアルカリ供給が抑制された。令和 2 年度の解析では、間隙率が低下してもアルカリ供給が継続することを仮定し、解析条件を見直すと共に、亀裂中でのアルカリプルームの影響の違いの有無を調べた。さらに、反応輸送解析モデルを用いた岩盤状態変遷の評価に関して、地層処分以外の他分野における類似検討事例に係る文献調査を行い、モデル開発の今後の方向性についても整理した。

(2) 実施内容

1) 支保工からのアルカリの影響の拡がりに係る要因を考察するための感度解析

① 解析モデル及び解析条件の概要

令和 2 年度の解析は、基本的に平成 31 年度に実施した感度解析で用いた解析モデルや解析条件を参考に実施した。解析モデルの概要を図 2.5-6 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及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、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、化学ー物質輸送と水理の連成解析における適用例の多い 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 2.5-6 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 は 10 m とし、この距離の範囲内で、透水量係数の違いがアルカリプルームの影響の拡がりに与える要因を考察するための感度解析を実施した。亀裂の開口幅については、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 2.5-6 に示すモデルの外周を水頭固定境界条件とした。また、図 2.5-6 の外周の上流側の弧 AC 上では、降水系高 pH 型地下水（以下、「FRHP」と称す）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。さらに、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日本原子力研究開発機構（2015b）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。

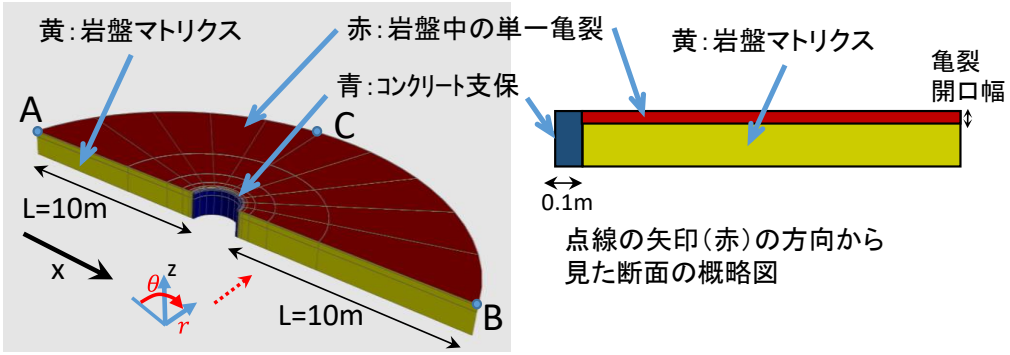


図 2.5-6　反応輸送解析モデル（三次元円筒座標系）

平成 31 年度に実施した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、動水勾配及び岩盤亀裂の透水量係数をパラメータとした感度解析により、亀裂中でのアルカリプルームの影響の拡がりの違いは、岩盤中の亀裂を流れる地下水の流量の違いにより顕著に異なることが示唆された。このため、令和 2 年度の解析は、平成 31 年度に実施した感度解析における解析条件のうち、二次鉱物の沈殿速度を反応速度式の 1 倍、動水勾配を 0.01 とし、透水量係数を 10^{-7} m^2/s 及び 10^{-10} m^2/s とした 2 ケースを設定し、これらの解析ケースでの結果を比較・分析し、平成 31

年度の解析結果と合わせて考察について補完した。

② 解析結果及び考察

図 2.5-7 に平成 31 年度に実施した感度解析により得られた透水量係数の違いによる亀裂中でのアルカリプルームの影響の違いの例を示す（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, 2020）。岩盤亀裂中での透水量係数が 10^{-10} m²/s と相対的に小さい場合（亀裂中での地下水の流量が少ない場合）、坑道閉鎖・再冠水後、1,000 年程度経過後もコンクリート支保の下流側 10 m 程度の領域は、pH 11 程度のアルカリ溶液が分布すると推定された。一方、岩盤亀裂中での透水量係数が 10^{-7} m²/s と相対的に大きい場合（亀裂中での地下水の流量が多い場合）、比較的速やかにコンクリート支保由来のアルカリ溶液の影響は低減され、1,000 年程度経過後には、初期の地下水と同程度の pH に回復することが推定された。このような解析結果の違いについて、平成 31 年度の考察では、亀裂中での透水量係数の違いにより、コンクリート支保由来のアルカリ溶液の地下水による希釈割合が異なるため、亀裂中でのアルカリプルームの影響範囲が異なった可能性を示唆した（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, 2020）。

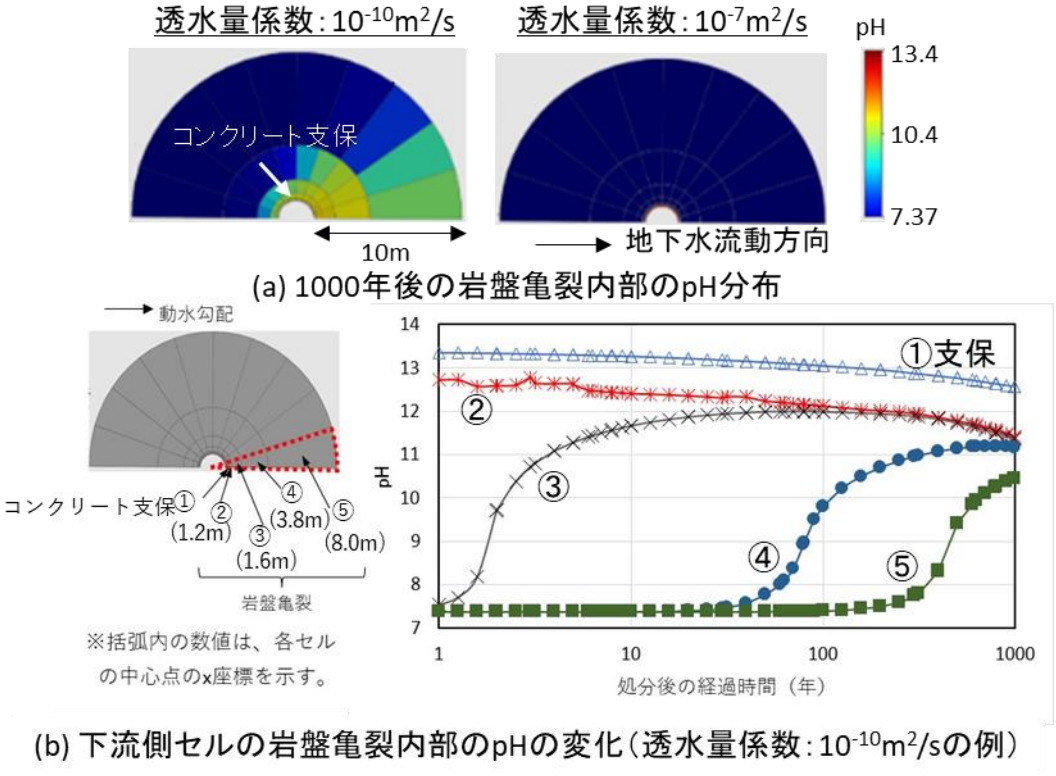


図 2.5-7　コンクリート支保の下流側セルにおける亀裂内部地下水の pH 経時変化の解析結果 (a) 1000 年後の岩盤亀裂内部の pH 分布、(b)下流側セルの岩盤亀裂内部の pH の変化（透水量係数：10^{-10}m²/s の例）（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2020）

令和 2 年度は、図 2.5-7 に示した解析ケースを対象に、岩盤中の亀裂内部地下水の pH、亀裂内間隙率（porosity）及び岩盤中の亀裂内部での二次鉱物の溶解・沈殿に関わる解析結果を整理し、亀裂中でのアルカリプルームの影響範囲の要因を分析した。図 2.5-8 に透水量係数が 10^{-7} m²/s の場合を対象に、岩盤中の亀裂内部における各情報に係る解析結果を示す。なお、図 2.5-8 に示した①～⑤の位置関係は、図 2.5-7 の場合と同様である。まず、亀裂内部地下水の pH の経時変化を見ると、コンクリート支保由来のアルカリ溶液による pH 上昇の影響（ここでは、初期に仮定した地下水の pH

よりも高い状態を意味する）は、比較的狭い範囲に限定され、50 年程度経過後には、コンクリート支保から 2 m 以内の岩盤に留まった。また、亀裂内間隙率については、平成 31 年度と同様にコンクリート支保と岩盤の境界で著しく低下するが、岩盤中亀裂内部においては、コンクリート支保から 2 m 程度の場所で、50 年以降、初期の間隙率に対して 4 割程度低下した。亀裂内間隙率は、コンクリート支保の下流側 10 m の範囲内において、1,000 年程度の期間内に閉塞が生じることは無く、下流側に行くほど間隙率の低下は抑制されていた。次に、亀裂内部での二次鉱物の溶解･沈殿に係る解析結果を見てみると、コンクリート支保から 2 m 程度の場所に位置するコンクリート支保と岩盤の境界における支保側の部分では、10 年以内に少量の C-S-H ゲル（C/S 比＝1.45～1.25）の沈殿・溶解が生じ、その後、再度、C/S 比が 1.15～0.95 の C-S-H ゲルが沈殿する。また、同時期に少量の方解石の沈殿も生じる。一方、コンクリート支保と岩盤の境界における岩盤側の部分では、50 年程度経過後、方解石の沈殿が比較的多く生じる。

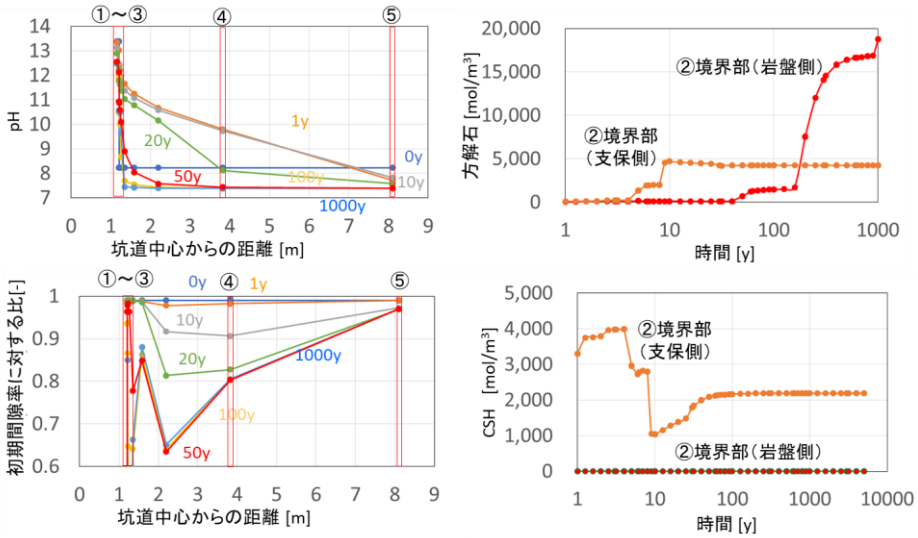


図 2.5-8　亀裂内部の地下水の pH、亀裂内間隙率、亀裂内部での二次鉱物の溶解・沈殿に係る解析結果（透水量係数：10^{-7} m^2/s の場合）

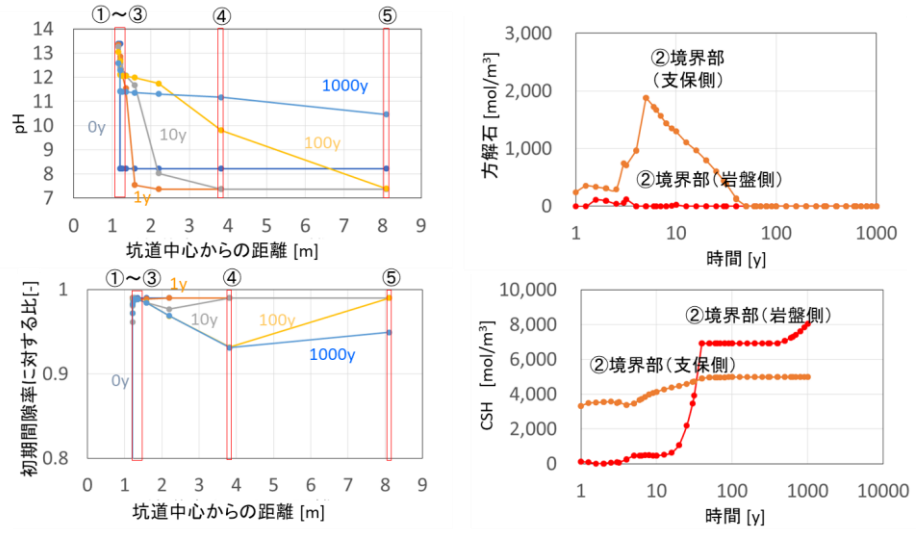


図 2.5-9　亀裂内部の地下水の pH、亀裂内間隙率、亀裂内部での二次鉱物の溶解・沈殿に係る解析結果（透水量係数：10^{-10} m^2/s の場合）

図 2.5-9 に透水量係数が 10^{-10} m²/s の場合を対象に、岩盤中の亀裂内部における各情報に係る解析結果を示す。図 2.5-8 の場合と同様、図 2.5-9 に示した①～⑤の位置関係は、図 2.5-7 の場合と同じである。亀裂内部地下水の pH の経時変化を見ると、コンクリート支保由来のアルカリ溶液による pH 上昇の影響（ここでは、初期に仮定した地下水の pH よりも高い状態を意味する）は、比較的広い範囲に拡がり、1,000 年程度経過後には、コンクリート支保から 8 m 以上の岩盤にまで及ぶ。また、亀裂内間隙率については、平成 31 年度の結果と同様にコンクリート支保と岩盤の境界で著しく低下するが、透水量係数が 10^{-7} m²/s の場合と比べると、解析領域内における亀裂内間隙率の低下は小さく、1 割程度の低下に留まる。このため、透水量係数が 10^{-10} m²/s の場合と同様、1,000 年程度の期間内に閉塞が生じることは無く、時間の経過と共に間隙率が低下する領域がコンクリート支保の下流側に拡がる傾向が認められる。次に、亀裂内部での二次鉱物の溶解･沈殿に係る解析結果を見てみると、コンクリート支保から 2 m 程度の場所に位置するコンクリート支保と岩盤の境界における支保側の部分では、10 年以内に少量の方解石が沈殿するものの、その後、溶解する。また、方解石の溶解と対照的に C-S-H ゲル（C/S 比＝0.95）の沈殿が継続する。一方、コンクリート支保と岩盤の境界における岩盤側の部分では、10 年程度経過後、C-S-H ゲル（C/S 比＝0.85）の沈殿が比較的多く生じる。

上述した結果をもとに、岩盤亀裂中での透水量係数が相対的に大きい・小さい場合における亀裂内部での二次鉱物の溶解･沈殿について、簡略化して整理すると、透水量係数が 10^{-7} m²/s の場合、コンクリート支保と岩盤の境界における岩盤側の部分で方解石が沈殿するのに対し、透水量係数が 10^{-10} m²/s の場合、C-S-H ゲルが沈殿する。亀裂中でのアルカリプルームの影響範囲の違いに関わる平成 31 年度の考察（亀裂中での透水量係数の違いにより、コンクリート支保由来のアルカリ溶液の地下水による希釈割合が異なること）を併せて考えると、相対的に透水量係数が大きく亀裂内流量が多いケースでは、亀裂中への地下水由来の炭酸成分（HCO_3^-）の供給が多くなり、方解石が沈殿することでコンクリート支保由来のアルカリ溶液による亀裂中地下水の pH 上昇を緩衝したことが示唆される。一方、相対的に透水量係数が小さく亀裂内流量が少ないケースでは、亀裂中への地下水由来の炭酸成分の供給も少なく、方解石が沈殿し難いため、亀裂中地下水の pH が高い状態が維持され、C/S 比の高い C-S-H ゲルが沈殿したと推察される。なお、このような考察は、二次鉱物の溶解・沈殿が亀裂内地下水の pH 変化に与える影響を仮定したものであるが、このような仮定の妥当性については、別途確認が必要である。妥当性確認にあたっては、解析体系を模擬した室内試験により、溶液側と固相側の変化を観測するような方法が考えられるが、例えば、図 2.5-8 や図 2.5-9 に示されるように、固相側の変化を確認するには、亀裂内の流速や炭酸濃度を精度良く制御しながら数年～数十年の期間を対象とした試験が必要となる可能性がある。このため、まず、亀裂開口幅や流量をパラメータとした予測解析により、仮定の妥当性確認を行う上で適切な試験条件を検討することが必要である。

2) 他分野における類似検討事例に係る文献調査

① 岩盤状態変遷プロセスの評価に関する他分野における最新知見などの整理

高レベル放射性廃棄物の地層処分の場合、処分場の建設に伴い使用されるセメント系材料由来の高 pH 溶液による岩盤の状態変遷の評価が重要になる。一方、CO_2 の地下貯蔵に関わる研究分野では、例えば、地下貯蔵後に CO_2 を含んだ水（酸性水）がセメントなどの材料で閉塞されたボーリング孔や母岩（苦灰石や方解石のような炭酸塩鉱物を主とする岩石）中に発達した亀裂から漏れ出すことが懸念されている。このため、亀裂を含むセメントや母岩に酸性水を注入した場合のセメントや岩盤の状態変遷を評価するための室内試験やモデル開発が行われている（例えば、

Brunet et al., 2016；Deng et al., 2018)。高レベル放射性廃棄物の地層処分におけるセメント系材料による周辺岩盤への影響評価では、高 pH 溶液による岩盤の状態変遷において、亀裂周辺岩盤中の鉱物の溶解及び亀裂中での二次鉱物の沈殿・溶解に伴い、亀裂の開口幅が拡がるのか、あるいは亀裂が閉塞するのかにより、物質移行を促進もしくは遅延する両ケースが想定される。そのため、岩盤状態変遷プロセスを定量的に評価するための知見（どのような水理学的・地球化学的条件の場合、亀裂開口幅の拡大・亀裂の閉塞が生じるのか）の整理が求められている。同様な観点での知見の整理は、CO_2 の地下貯蔵に関わる研究でも共通する重要な検討事項である。ここでは、Brunet et al.（2016）の例をもとに、亀裂を含むセメント中に酸性水を注入した場合の亀裂の状態変遷（開口幅や亀裂中での流量の変化）に関わる室内試験とモデル計算により得られた知見について整理した。

室内試験としては、亀裂を含むセメントコア（長さ 234 mm）を用い、21°C・13.7 MPa の封圧条件で 1.5 mol/L の溶存 CO_2 を含む水をセメントに注入した。試験系の圧力勾配は、13.8 kPa から段階的に 344 kPa へと変化させ、58 時間の通水試験を行った。試験では、圧力勾配を変化させて行ったが、結果的には、10 時間以降は単位時間あたりの流量に顕著な差は無かった。試験後の亀裂壁面を μXRD により分析したところ、方解石の沈殿が確認された。モデル計算では、水理・物質輸送－化学反応の解析コードとして、CrunchFlow（Steefel et al., 2015）を用い、亀裂の開口幅・単位時間あたりの流量を変えた感度解析を 250 ケース行い、セメントの透水性が時間と共にどのように変化するかを推定した。感度解析の結果、初期の透水性よりも高くなるケースでは、透水性の増加は 5～8 倍程度であった。一方、初期の透水性よりも低くなるケースでは、透水性の低下は、1～2 桁程度の幅があり、透水性が増加する場合に比べると不確実性の大きい結果となった。なお、多くのケースでは、透水性が増加あるいは低下のどちらかの方向に単調に変化するが、幾つかのケースでは、初期に透水性が増加した後、低下するといった複雑な挙動を示す場合もあった。また、解析結果をもとに、亀裂中での水の滞留時間（τ：初期の亀裂中体積を流速で除すことで算出）と亀裂の開口幅（b）との関係について整理し、他の研究者らが行った室内試験の結果とも比較し、亀裂開口幅の拡大・亀裂の閉塞が生じる条件を推定した。さらに、推定された条件に基づき、亀裂を含むセメントコアに酸性水が注入された場合に亀裂の閉塞が生じ得る上で必要となる亀裂中での水の滞留時間について、亀裂の開口幅をもとに評価するため、下式に示されるような経験式を提示した。

$$\tau_c = 9.8 \times 10^{-4} \times b^2 + 0.254 \times b \qquad (2.4\text{-}18)$$

上述したように、Brunet et al.（2016）の例では、亀裂を含むセメントコアに酸性水が注入された場合の岩盤状態変遷プロセスを定量的に評価するための知見（ここでは、亀裂開口幅の拡大・亀裂の閉塞が生じる水理学的条件）が整理されている。これらは、透水性の変化が単調に変化する場合を想定した際の経験式であり、感度解析で示されたような透水性の変化が複雑な場合への適用には課題があるものの、このような検討事例や知見の整理方法については、高 pH 溶液による岩盤の状態変遷プロセス定量的に評価する上でも参考になると考えられる。

② 準三次元反応輸送モデルが具備すべき要件の具体化に関わる情報の整理

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のため、本事業では図 2.5-6 に示すような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の開発を進めている（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)。同様なモデル開発は、CO_2 の地下貯蔵に関わる研究分野でも進められており、ここでは、Deng et al.

（2016）をもとに、準三次元（2.5 次元）反応輸送モデルが具備すべき要件の具体化を図る上で重要となる情報を整理した。また、単一亀裂を対象とした反応輸送モデルによる評価において、岩盤を構成する鉱物の不均質性が亀裂中の流速（流量）や二次鉱物の溶解・沈殿に与える影響についての概念的な考え方について、Deng et al.（2018）をもとにまとめた。

亀裂性岩盤を対象にした反応輸送モデルの開発では、これまでに二次元を対象とし、亀裂表面における変質の空間変化の評価が行われてきた例が多い（例えば、Elkhoury et al., 2013；Yasuhara and Elsworth, 2006）。一方、これら二次元での反応輸送モデルでは、亀裂と岩盤マトリクス間での物質輸送は考慮されておらず、また亀裂表面に生じる変質層による物質輸送への影響も考慮されない。また、亀裂表面の形状は、亀裂面内の水の流れ（流速・流量）に局所的に影響し、亀裂中での物質輸送に変化を与え、亀裂の閉塞をもたらす可能性もある。これらのことから、亀裂面内及び岩盤マトリクスの両者を対象に、亀裂とマトリクス間で生じる物質輸送を考慮可能な三次元の反応輸送モデルの開発が望まれている。しかしながら、三次元モデルの開発では、対象とする亀裂面の次元（領域の広さ）に対し、亀裂の開口部は非常に小さく、細かいメッシュの設定が要求され、結果として多数のグリッドセルが必要となり、計算コストが増大する。このため、現状では、三次元反応輸送モデルの開発例は少ない。このような現状を踏まえ、Deng et al.（2018）は、二次元と三次元モデル間のギャップを繋ぐモデルとして、準三次元（2.5 次元）の反応輸送モデルの開発を行った。Deng らが開発した 2.5 次元の連続体を想定した反応輸送モデルで考慮された現象及び要素を整理すると以下のようになる。

・亀裂表面での移流・分散に関する現象：この現象を考慮するにあたって、既往の二次元モデルでは考慮されていない亀裂の透水性に影響を与える亀裂表面の空間的な変化に関わる要素を付加（亀裂表面の凹凸は、亀裂内での水の流速・流量・物質輸送に影響し、亀裂の閉塞とも関係するため）
・亀裂表面に垂直な方向での拡散に関する現象：岩盤マトリクスにおける構成鉱物の不均質性に関わる要素を付加（反応性の異なる複数の鉱物を考慮）。また、亀裂表面に生じる変質層とそれに伴う物質輸送の変化に関わる要素を付加

上述した Deng らが開発した 2.5 次反応輸送モデルと本事業で開発を進めている準三次元反応輸送モデルを比較すると、以下の要素については、本事業における準三次元反応輸送モデルでは具備されていない。

・亀裂表面の空間的な変化に関わる要素
・岩盤マトリクスにおける構成鉱物の不均質性に関わる要素

これらの要素は、高 pH 溶液による岩盤の状態変遷において、亀裂周辺岩盤中の鉱物の溶解及び亀裂中での二次鉱物の沈殿・溶解に伴い、亀裂の開口幅が拡がるのか、あるいは亀裂が閉塞するのかといった挙動との関連も強いため、今後のモデル改良にあたり留意すべき点であると考えられる。一方、これらの要素は、対象とするスケールが小さい場合、現実的な評価という観点では重要性は高いと思われるが、スケールが大きくなった場合、これらの要素の影響を解析評価にどこまで反映できるかは疑問がある。この場合、小さいスケールを対象に、これら両要素を考慮した場合と考慮しない場合での比較を行い、影響の傾向（亀裂開口幅の拡大が促進されるのか、あるいは亀裂閉塞が促進されるのか）を把握し、大きなスケールを対象とした場合には、これら要素を考慮しない単純なモデルでの評価に影響の傾向を加味して評価するなどの代替案の検討も

必要になる可能性がある。その場合、スケール効果の評価も併せて行うことが重要である。

次に、上述した準三次元反応輸送モデルで具備すべき要件の 2 つ目の要素と関係するが、岩盤を構成する鉱物の不均質性が亀裂中の流速（流量）や二次鉱物の溶解・沈殿に与える影響についての概念的な考え方（Deng et al., 2018）を基に整理する。岩盤の構成鉱物が 1 種類という母岩は稀であり、ほとんどの場合、複数の鉱物から構成されている。鉱物と水との反応性は、鉱物の種類により異なる。このため、高 pH 溶液による岩盤の状態変遷の評価にあたり、反応輸送モデルを用いる場合、鉱物種の違いによる反応性の違いによる影響も考慮する必要がある。Deng らは、炭酸塩鉱物を主とする母岩に酸性溶液を通水した場合を例に、母岩を構成する鉱物種の違いにより、反応－輸送プロセスへのフィードバックがどのように異なるかを概念的にまとめた（Deng et al., 2018）。まず、複数の鉱物からなる母岩を対象とし、母岩マトリクス中に速い反応性の鉱物が少量しか存在しない場合、母岩中の亀裂部の溶解形態や亀裂中の流速（流量）の変化は、母岩中に含まれる遅い反応性の鉱物の溶解に支配される。この場合も亀裂表面に変質層が生成されるが、変質層は残存し、母岩マトリクス中の速い反応性の鉱物の溶解を抑制するか、または次第に変質層が溶解していくことが想定される。一方、母岩マトリクス中に速い反応性の鉱物が多量に存在する場合、母岩中の亀裂部の溶解形態や亀裂中の流速（流量）の変化は、母岩中に含まれる速い反応性の鉱物の溶解に支配される。また、亀裂表面に生成する変質層は、亀裂中の水の流れにより剥離することも想定され、亀裂の幾何形状は変質層の厚さにより支配される。このように、岩盤を構成する鉱物の反応性の違いや不均質性（量の違い）により、反応－輸送プロセスへのフィードバックが異なる可能性があることも留意すべきである。

(3) これまでの成果と今後の課題

令和 2 年度は、平成 31 年度に実施した解析体系や解析条件を参考に、透水量係数の違いがアルカリプルームの影響の拡がりに与える要因を考察するための感度解析を行った。その結果、亀裂中でのアルカリプルームの影響範囲の違いは、コンクリート支保由来のアルカリ溶液と地下水の混合における希釈割合の違いに加え、二次鉱物の溶解・沈殿による影響の違いも要因である可能性が示唆された。また、このような要因を解析及び試験により検討していく上で有効な知見を収集するため、地層処分以外の他分野における類似した先行事例に係る文献調査も行い、今後のモデル開発の方向性について整理した。

平成 30 年度～令和 2 年度までの 3 か年の検討により、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、コンクリート支保との相互作用による岩盤特性変化のプロセスを整理し、坑道近傍スケールにおけるアルカリプルームの影響範囲を確認するための準三次元の反応輸送解析モデルを構築した。また、準三次元モデルを用いた試解析を行い、坑道近傍スケールの水質変化や局所的な間隙率低下などの状態変化が生じる要因を分析し、亀裂中の地下水流量・高 pH 溶液と地下水との混合（希釈）割合・二次鉱物の沈殿の相互関係が影響していることを推察した。さらに、アルカリプルームの影響範囲に応じた評価手法の概念（スケールに応じた解析モデル連結方法）も提示した。

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における主要な課題は、既往の研究例でも整理されているように、物質移行を促進もしくは遅延する両ケースに対し、その影響を定量的に評価するために必要な知見が不十分な点である。今後は、このような課題に対して、令和 2 年度に行った文献調査で得られた知見も活用し、単一亀裂を対象にコンクリート支保の劣化に伴う高 pH 溶液の時間変遷を踏まえ、亀裂の透水性変化が生じる条件（開口幅・流速）を数値解析により定量的に評価するための検討を進める必要がある。また、瑞浪の原位置試験試料の観測結果に基づく概念モデルや上記の数値解析結果をもとに、瑞浪超深地層研究所で観測された

結果の解釈を行うと共に、坑道閉鎖後の長期における時間変遷を考慮した場合に想定される現象・プロセスについても整理することも必要である。

2.6 流出現象を考慮した緩衝材の健全性評価

2.6.1 背景と目的

(1) 背景

緩衝材には、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比に調整される。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比 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、緩衝材内に初期の段階で生じる密度分布の幅に応じて最終的に不均質な密度となる可能性が示されている(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。

竪置きブロック方式の場合には、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（湧水）に伴う緩衝材の流出の可能性が懸念されている（原子力発電環境整備機構, 2021)。緩衝材の流出は、湧水が緩衝材ブロックに浸潤して処分孔の孔壁との隙間を膨潤により自己シールするまでの間、及び自己シールに至らずに水みち（パイピング）が残存（或いは新たに発生）し、水みちを介して湧水が孔外に排出される一連の過程で発生する。なお、緩衝材ブロック施行時の孔壁との隙間は、NUMO の包括的術報告書（以下、NUMO-SC と称する：原子力発電環境整備機構, 2021）では 40 mm と設定されている。

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（以下、期間 1 とする）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、その後に処分坑道内の水位が回復するまでの期間（以下、期間 2 とする）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。期間 2 を経て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）への湧水は少なくなると想定される。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量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約 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。

平成 30～31 年度には、竪置きブロック方式を対象とした期間 1 における緩衝材の流出に対する工学的な対策の 1 つとして、ケイ砂を孔壁と緩衝材ブロックの隙間に充填する方法（ケイ砂充填オプション）を抽出するとともに、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。同様に、幌延 URL の地下実環境において、期間 1 を対象とした自然湧水条件で、ケイ砂充填オプションと隙間未充填オプションの双方に関する原位置試験を実施した。その結果、隙間未充填オプションでは定置後の初期の緩衝材流出量が多くなることや、ケイ砂充填オプションでは緩衝材の流出濃度が低く維持されるといった傾向が、両者の比較結果から窺うことができた。なお、このような工学的対策の具体化においてケイ砂充填オプションに着目している理由には、緩衝材ブロックと孔壁との隙間を一様に地下水が流動するように単純化し、緩衝材の流出挙動の評価を容易にすることに加え、ブロック界面からの浸潤環境を均一化するなどの効果が期待できることにある。このような緩衝材の流出に関する試験などに加え、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た。平成 31 年度までの検討から、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導入することにより、解析によってベントナイト緩衝材の力学応答を表現できる可能性が示されている。以上のような成果から、今後の課題として以下のことが挙げられた。

- 緩衝材流出に係る現象把握と定量的な把握のための室内試験を行うとともに、地下環境において、地下水環境の影響による流出挙動の変化を把握するための原位置試験を行い、確認する必要がある。
- 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、多次元化や実規模スケールを解析対象とできるモデル体系の構築やパラメータ値の設定手法を整備していく必要がある。

(2) 目的

竪置きブロック方式を対象とした緩衝材の流出挙動については、ブロックと孔壁間の隙間の処理に関して現時点で考え得る施工オプションを念頭に置き（隙間未充填、ケイ砂充填、ペレット充填、原位置締固め）、各オプションに関する緩衝材の流出特性を処分孔の環境条件（湧水量や地下水組成）との関係から整理し、将来の処分場の実環境に応じて柔軟に施工オプションが選択できるように基盤情報を整理する（図 2.6-1）。緩衝材の施工オプションの選択は、必ずしも緩衝材の流出挙動のみで決まるものではなく、図 2.6-2 に例示するような多様な評価項目に対する優劣などの比較評価（項目間の重要度にも留意）を経て技術選択が行われる。本事業では、上述した施工オプションを念頭に、適用可能な環境条件に関して緩衝材の流出特性の観点からアプローチする。

また、緩衝材の再冠水プロセスに関する解析手法については、緩衝材の流出現象を考慮した飽和に至る期間の緩衝材の乾燥密度分布などの状態を予測評価する手法を高度化し、閉鎖後長期の性能評価における初期条件（初期状態）をより確からしく評価できることを目指す。

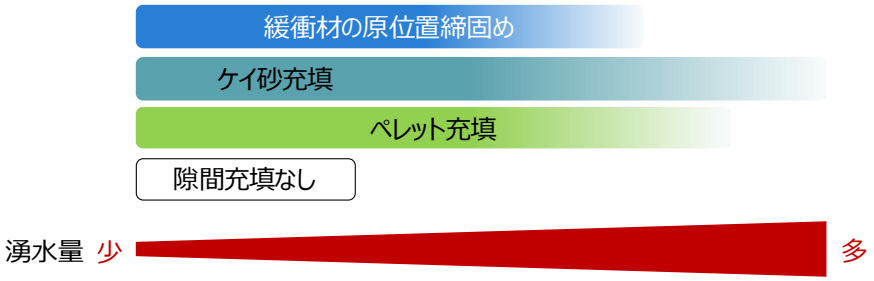


図 2.6-1　処分孔の湧水環境に応じた緩衝材の施工オプション適用のイメージ

緩衝材施工技術オプションの選択・評価における評価項目			緩衝材施工技術オプション（技術選択肢）																	
項目	小項目	細目	処分孔竪置き										処分坑道横置き・PEM方式							
			ブロック			ペレット		転圧		吹付け		密閉PEM				隙間ありPEM				
			未充填	ケイ砂	ペレット															
適用可能な環境条件	施工対象形状																			
	施工環境	湧水、湿度																		
要件への適用性	施工密度	達成密度、密度分布																		
	品質保証・管理のし易さ	施工プロセス管理																		
	技術実証性	現状レベル																		
作業安全性	放射線安全	地上/地下、被ばく環境																		
	一般作業安全	地上/地下																		
操業手順との親和性	搬入出	装置・機材、材料																		
	付随作業	孔壁間処理																		
	後続作業の負荷	処分坑道埋め戻し																		
	その他	流出抑制、膨出抑制																		
性能評価(施工後の状態変遷)の確からしさ		境界/界面の制御性																		
閉鎖時の性能確認のし易さ		モニタリング依存度																		
1体(1孔)あたりの作業時間																				
費用見通し	オペレータ要員数																			
	装置・機材																			
	その他	準備工事・付帯設備、材料ロス																		
将来の技術・装置の拡張性	遠隔化																			
	自動化																			
閉鎖後長期の安全性		核種移行																		

本事業の検討対象

図 2.6-2　緩衝材の施工オプションの選択における評価項目の例（イメージ）

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) 実施概要

令和 2 年度は、試験によるデータ取得とともに、令和 2 年度までの検討成果の整理を行い、各施工オプションの評価方法や試験方法の見直しを行った。令和 2 年度の実施内容を以下に示す。

○原位置試験

原位置試験において、未充填オプションに関する期間 1 を想定した自然湧水環境下での緩衝材の流出挙動を把握するための試験を実施した。令和 2 年度は、平成 31 年度までに実施した隙間未充填オプションに関する予備試験（短期試験）を踏まえ、土圧、排水量、ベントナイト濃度、水頭の計測精度を高め、4 か月間の試験とした（2.6.2 項 (1) 2）に実施内容を示す）。この試験に

よって、隙間が膨潤によって自己シールされ、上部に湧水が排出されなくなる（閉塞した）ことが確認された。閉塞は試験開始後 1.5 か月に達成され、その後、試験孔上部への排水は見られなかった。4 か月の自然湧水環境下での試験の後に、期間 2 の流出挙動の考えるための参考として、強制注水試験（試験孔内への強制注水により水圧や水量を増加させた試験）を行った。また、埋め戻し後の処分孔近傍の地下水流動についての水理解析を行い、水圧、流量の増加の可能性についての参考とした（付録 B の 1.に実施内容を示す）。強制注水試験は、処分坑道の埋め戻し後の環境を完全に模擬することはできないが、期間 2 の流出挙動を想定するうえで参考となる知見を得ることを目的とした（2.6.2 項 (1) 2)）。

令和 2 年度の原位置試験により得られた隙間未充填オプションに関する流出挙動の特性を踏まえ、隙間未充填オプションに関する今後の実施方針や試験計画に、必要な見直を加えて具体化した。

○各施工オプションの検討成果の整理

得られた原位置試験の結果とこれまでの成果の整理により、各施工オプションに関する評価方法の適切性などの検討を行い、必要な見直しを行いつつ更新した。隙間未充填オプションについては、処分孔の環境条件（湧水量や地下水組成など）との関係から本オプションの適用範囲を検討する（2.6.2 項 (1) 3) ①）こととし、ケイ砂充填オプションについては、緩衝材流出量を見積もることができる可能性があるため、NUMO-SC の付属書 4-56 の評価方法に倣い、流出の許容量から処分孔の許容湧水量の算出を試みた（2.6.2 項 (1) 3) ②）。ペレット充填オプションについては、これまでに得られている試験結果などから、ペレットの原位置での施工性並びに流出挙動や抑制効果について整理した（2.6.2 項(1) 3) ③）。

○今後の研究計画の策定

上記の整理を踏まえ、施工オプションを選択評価するための評価指標、並びに指標などの定量化に向けて必要となる試験方法の検討を行い、環境要因が制御された系による定量データの取得するための室内試験、及び原位置試験の実施計画を策定した（2.6.2 項 (1) 4) ）。

● 隙間未充填オプション

当該オプションの適用範囲の具体化や評価手法の信頼性を向上させるために、抽出した評価指標（例えば、処分孔の内外水頭差、処分孔内湧水量といった現場で把握できるパラメータ）と流出挙動の関係についての定量的なデータを取得する（室内試験）。得られたデータや知見に基づき、水みちを含む緩衝材の界面での流出挙動に関する現象の説明性の向上を図る。原位置試験では、隙間未充填オプションについて、令和 2 年度に実施した試験条件と処分孔内湧水量が異なる条件（より湧水量が多い条件）で試験を実施し、本オプションの適用性を確認計画とした。

● ケイ砂充填オプション

ケイ砂充填オプションの流出抑制効果の適用性の確認（平成 31 年度の短期試験で確認された抑制効果の長期的な継続性の確認など）、及び抑制効果が発揮されることの理論的説明に資するための室内試験に今後取り組む。この様な方針に沿った試験への着手に先立ち、平成 31 年度の試験結果（ケイ砂充填オプションに関して示唆された懸念）を踏まえ、以下の内容を念頭に原位置試験に取り組む。

・平成 31 年度の短期試験で確認された試験中の湧水量の増加の原因を究明するための原位置圧力試験などを先行させる。

・その上で、短期試験で得られた緩衝材の流出濃度が低く維持される状態の継続性などについて確認する（必要に応じて湧水量のより多い条件も加味した試験を計画する）。

● ペレット充填オプション

ペレット充填オプションについては、ベントナイトペレットの仕様からの検討が必要なことから机上検討から進める。

以上のような試験計画を立案するにあたり、使用する試験装置、試験条件の設定のために予察試験を実施した（付録 B の 2.に実施内容を示す）。室内試験を行うために、膨潤挙動が明瞭に観察できる横置き試験装置を使って、設定すべき流量範囲、水質などについて試験データを取得した。試験は定量注水で行ったが、膨潤による隙間の閉塞挙動には流量の影響が大きいこと、ケイ砂充填のケースでは流量の影響が小さく、水質の影響も大きくなく、イオン交換水を用いることで保守的な評価となることなどの結果が得られている。

なお、原位置試験では、定置後の緩衝材の膨出挙動の把握に資することを目的として、緩衝材が膨潤することで生じる上部方向（試験坑道側）への力についても計測する。

以上の検討を経て、令和 2 年度を含めた 3 年間の実施計画（年度スケジュール）として整理した（2.6.2 項(1) 4) ⑥に示す）。

2) 原位置試験

原位置試験は、自然湧水環境での流出現象を把握することを目的に幌延 URL 地下 350 m 試験坑道 5 内に設置した試験孔 2 を用いた（図 2.6-3）。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で試験を実施した。

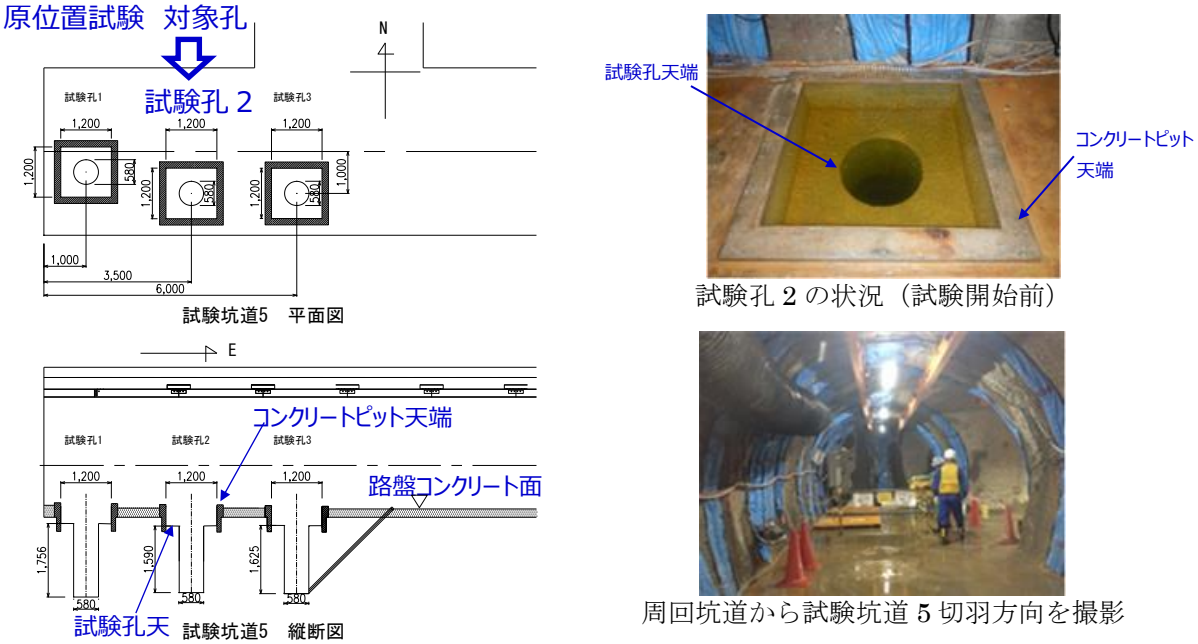


図 2.6-3　幌延 URL 地下 350 m 試験の試験実施場所

① 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（製作方法は、付録 B の 3.に示す）。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

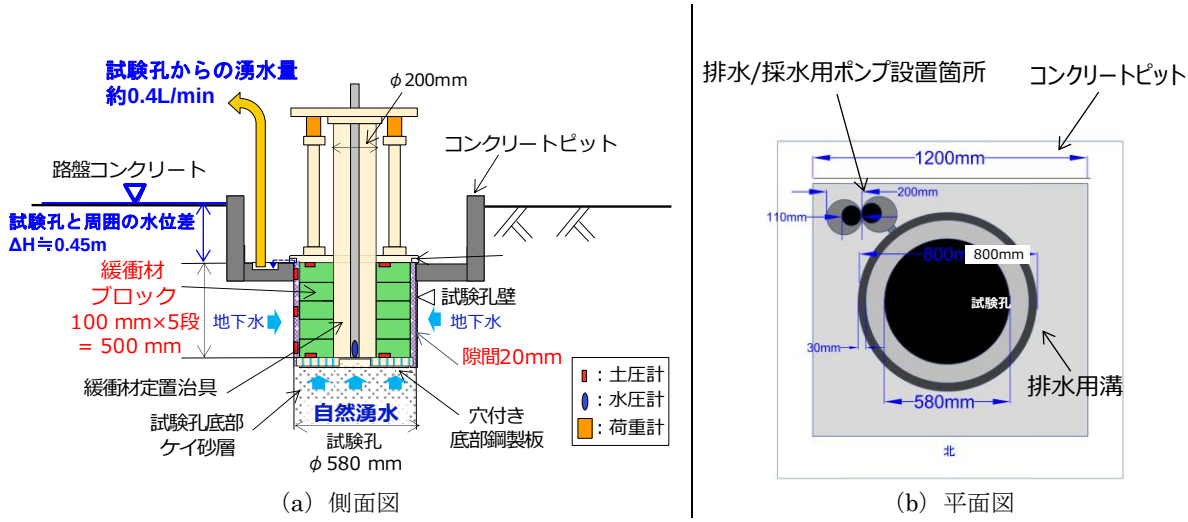
し緩衝材が湧水の浸潤により膨潤した場合に 1.60 Mg/m³ となるように、1.92 Mg/m³ と設定した。せ製造したブロックの乾燥密度分布の有無を確認するために、X 線 CT での計測を試みた（付録 B の 3.に実施内容を示す）。CT 値で見る限り、密度はほぼ均一であるという結果が得られたが、製品管理として CT 測定を使うためには、さらに検討が必要である。

表 2.6-1　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/m³
	膨潤時	1.60 Mg/m³（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 計40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	

② 試験装置

原位置試験における試験装置の概要図を図 2.6-4 に示す。試験孔は深さを 55 cm（試験装置の高さ）にするために、4 号ケイ砂で埋め戻して深さを調整した。また、試験孔からの湧水量は計測した結果、約 0.4 L/min であった。試験孔周囲の地下水位は隣接する試験孔 1 と試験孔 3 の水位より、コンクリートピット底面から約 45 cm 上に位置していることがわかった。



（a）側面図　　（b）平面図

図 2.6-4　原位置試験 試験系の概念図

③ 計測機器

(a) 土圧計

緩衝材ブロックの膨潤圧力を計測するために緩衝材ブロック上面（鋼製蓋の裏面との接触面）、底面と処分孔壁面に土圧計（東京測器：KDE-2MPa）を設置した。緩衝材ブロック上面と底面には土圧計とケーブルの形状に切欠きを設け、土圧計と緩衝材及び定置治具との均等な接触を促し

た（図 2.6-5、図 2.6-6）。緩衝材ブロック上面には、半径方向に対して内・中・外部に各 1 台の計 3 台を設置し、緩衝材ブロックの底面に、半径方向に対して内・外部に各 1 台の計 2 台を設置した（図 2.6-7）。複数の土圧計を同一ブロックに設置すると互いに干渉し、適切な計測ができなくなる可能性があるため、土圧計は各ブロックにつき 1 台とした。

図 2.6-5　土圧計とケーブルの形状の切欠き

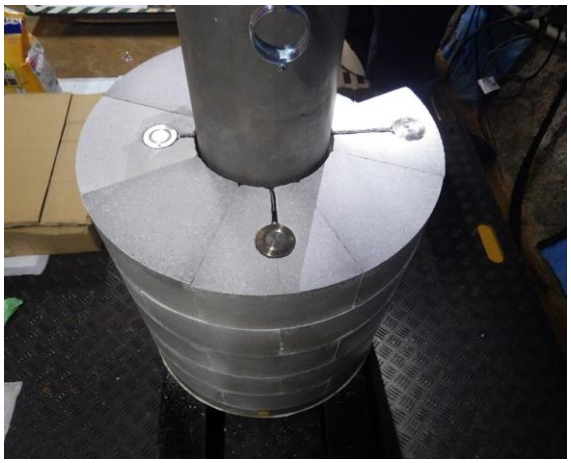


図 2.6-6　緩衝材ブロック最上面土圧計設置状況

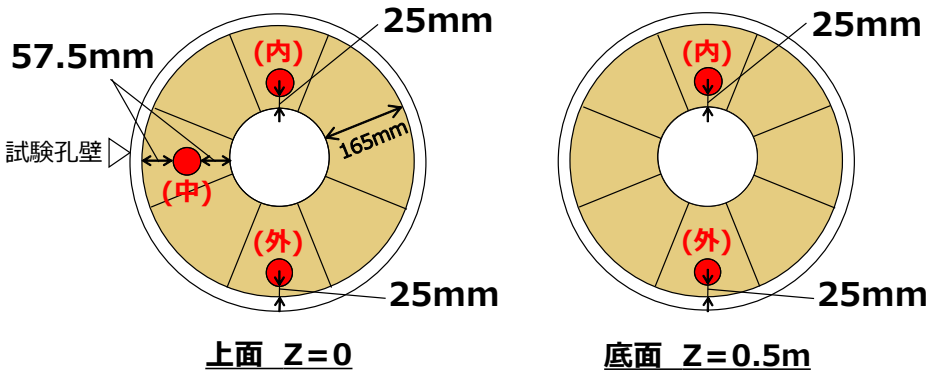


図 2.6-7　緩衝材ブロック上面と底面の土圧計配置

試験孔壁面に設置する土圧計の配線はステンレスの保護管に通し、設置時の擦れやベントナイトの膨潤による断線を防止した。また、土圧計本体は試験孔壁面に急結材を用いて固定し受圧面を安定させた。設置個所は、緩衝材ブロック上面からの距離 Z = 0.05 m、Z = 0.25 m、Z = 0.45 m の位置に計 3 点設置した（図 2.6-8、図 2.6-9）。

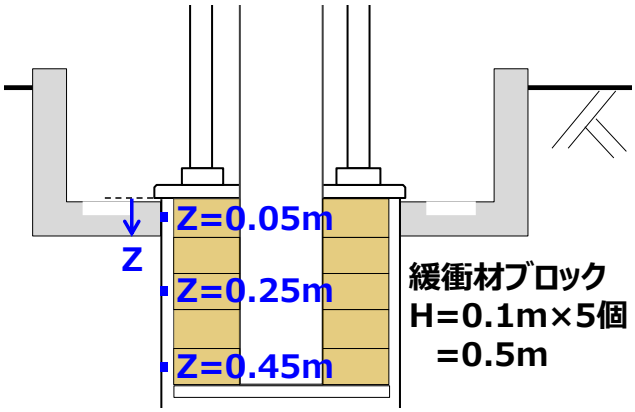


図 2.6-8　試験孔壁面の土圧計配置

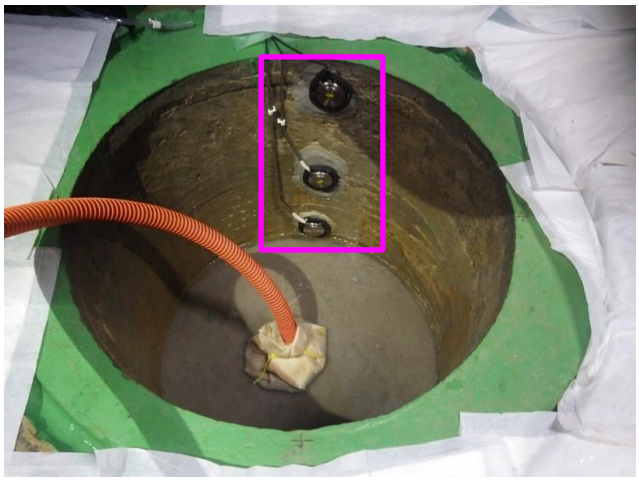


図 2.6-9　試験孔壁面の土圧計設置状況

(b) 水圧計、積算流量計

試験装置の中央に位置する円筒内に水圧計（オサシテクノス：DS-1）を設置した。これにより緩衝材ブロック底面の位置の圧力水頭を計測した。試験孔からの湧水は吸光分度分析のため定期的に一部採水され他は積算流量計（KEYENCE：FD-M5AT）を通過して排水される。

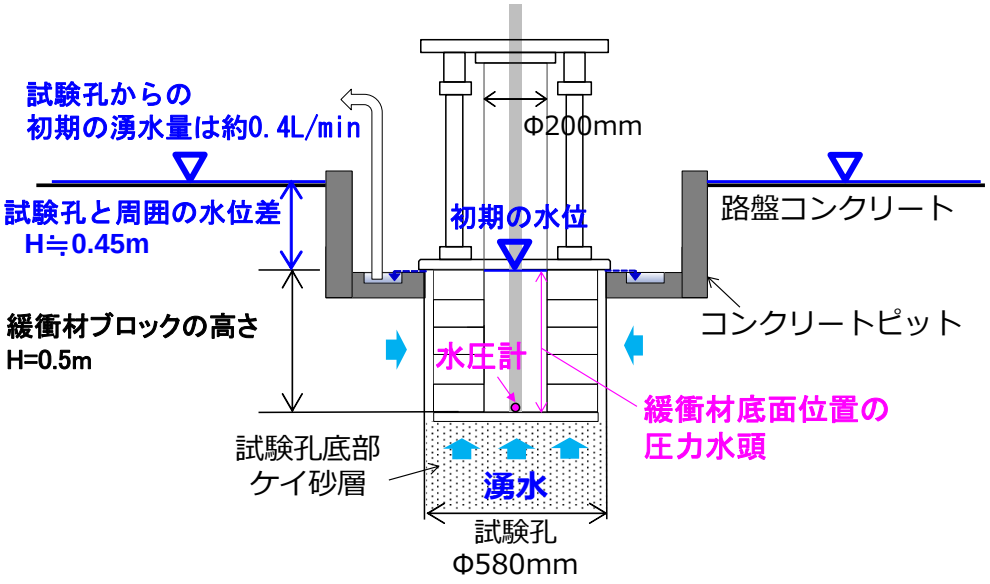


図 2.6-10　水圧計の設置位置

(c) 荷重計

緩衝材ブロックの膨出を防止するための膨出抑制用鋼製蓋を図 2.6-11、図 2.6-12 に示すように固定した。膨出抑制用鋼製蓋は 4 つのジャッキとフランジで抑えつけられており、それぞれのジャッキとフランジの間に荷重計（東京測器：CLP-NB-200kNB）を設置し膨出抑制用鋼製蓋に作用する鉛直方向の力を計測した。

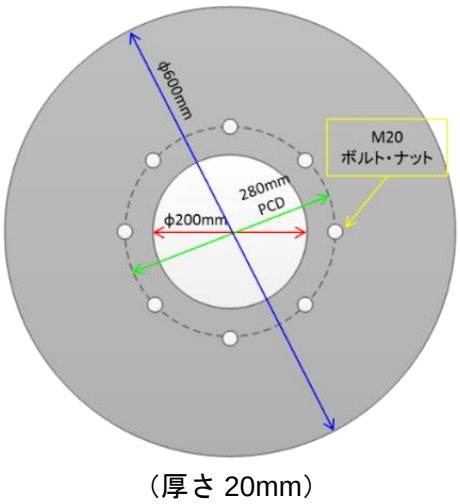


図 2.6-11　フランジ拡張用冶具

図 2.6-12　緩衝材膨出防止措置

(d) 吸光度分析

吸光度分析においては、「株式会社 島津製作所製 紫外可視分光光度計 UVmini-1240」及び「株式会社 エスエムテー製 超音波分散機 UH-50」を用いた。UVmini-1240 は波長範囲が 190～1,100 nm と広く、不確定な物質が混入している地下水の測定において有効である。

④ 試験結果と考察

(a) 緩衝材ブロック底面位置の圧力水頭と試験孔からの排水量

緩衝材ブロック底面位置の圧力水頭と試験孔からの排水量を図 2.6-13 に示す。試験開始直後の緩衝材ブロックと試験孔壁面との隙間が緩衝材で閉塞されていない時は、試験孔からの排水量は試験孔の当初の湧水量（約 0.4 L/min）と同等であり時間経過とともに（浸潤・膨潤が進むにつれ）徐々に湧水量が減少していく。また、初期の圧力水頭は、緩衝材ブロック上面の位置から排水されているため緩衝材ブロック底面位置の圧力水頭は緩衝材ブロックの高さ（0.5 m）と等しくなっている。試験開始直後の緩衝材ブロック底面位置の圧力水頭が約 0.45 m と緩衝材ブロックの高さよりも 0.05 m 程度小さい理由は、水圧計のセンサー位置が緩衝材ブロック底面より 0.05 m 程度高いためである。

同図から、緩衝材ブロック底面位置の圧力水頭と試験孔からの排水量は相関があることがわかる。これは、緩衝材ブロックと試験孔壁面との隙間が緩衝材で閉塞されることで排水量が低下すると緩衝材ブロック底面位置の圧力水頭は試験孔周囲の地下水位（緩衝材ブロック底面から上に約 0.95 m）と釣り合うように上昇し、逆に緩衝材ブロック周囲の地下水が排水される（排水量が大きい）と緩衝材ブロック周囲の圧力水頭は低下するためである。そのため、排水量がほぼ 0 となった経過時間 48 日での緩衝材ブロック底面位置の圧力水頭は約 0.91 m、水圧計のセンサー位置に起因する計測誤差 0.05 m を考慮すると試験孔周囲の地下水位とほぼ等しい値となった。緩衝材ブロック底面位置の圧力水頭と処分孔からの排水量の関係を図 2.6-14 に概念的に示す。

試験開始から緩衝材ブロック底面位置の圧力水頭は徐々に上昇しているが、経過時間が約 6、9、13 日のとき急激に増加したのち急低下している。これは緩衝材の膨潤によって隙間が充填され、隙間の断面積が小さくなったことにより、緩衝材ブロック周囲の水圧が上昇し、それによって試験孔壁面と膨潤した緩衝材ブロックの界面で流路の拡張が起こったためであると考えられる。13 日以降は水圧の上下は見られず、圧力水頭は 0.9 m に収束している。これは、緩衝材が膨潤して隙間を埋めた後、さらに内側が膨潤することにより孔壁付近の密度が高くなったため、水頭差による流路の再拡張が起こらなくなったためと考えられる。そのため、流路は徐々に狭まり、48 日で完全に排水量はゼロとなり、閉塞に至った。

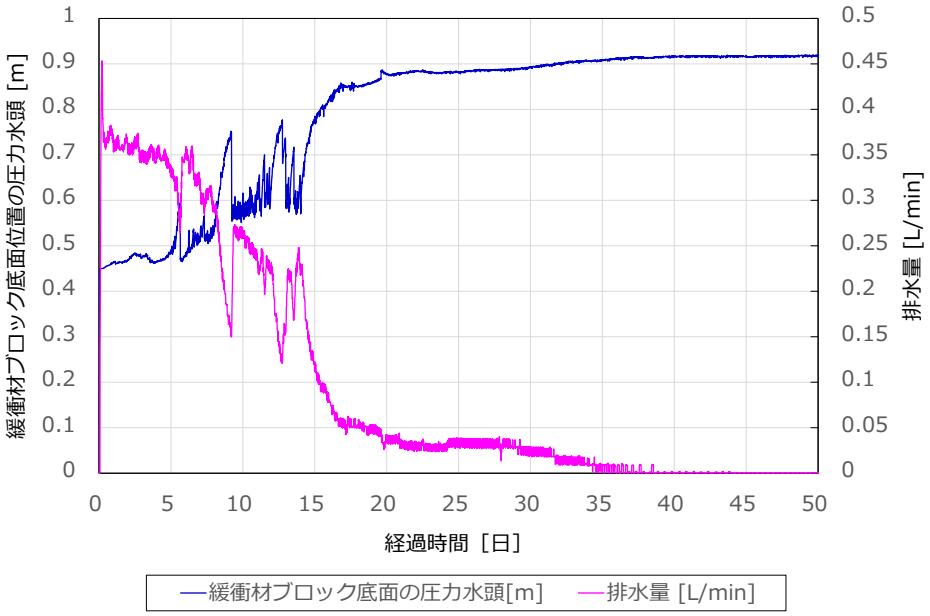


図 2.6-13　緩衝材ブロック底面位置の圧力水頭と試験孔からの排水量

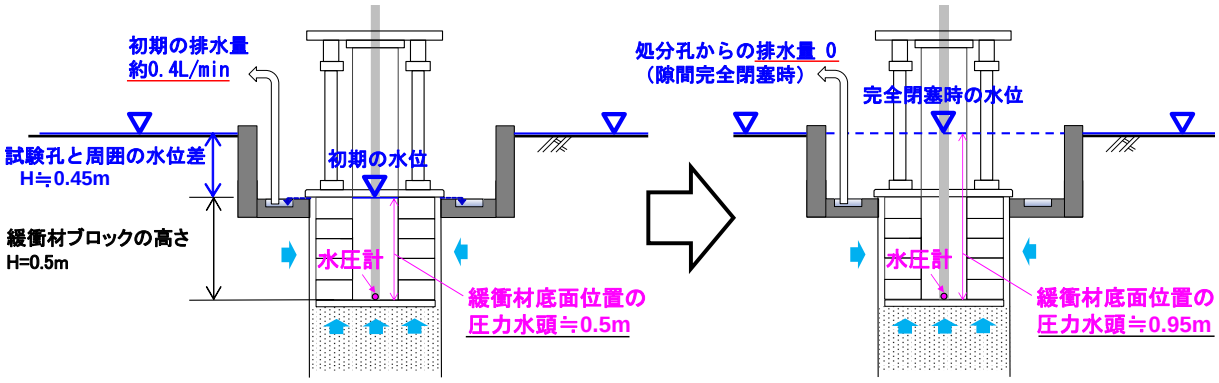


図 2.6-14　緩衝材ブロック底面位置の圧力水頭と処分孔からの排水量の関係イメージ図

(b) 緩衝材ブロックの膨潤によって生じる圧力

緩衝材ブロック上面と底面に設置した土圧計の経時変化を図 2.6-15 に、試験孔壁面に設置した土圧計の経時変化を図 2.6-16 に示す。緩衝材ブロック底面に設置した土圧計の計測結果を見ると最大値は同程度であるが、外側に設置した土圧計の方が最大値に到達する時間が短く、最大値到達直後は急激に低下し経過時間が 50 日を過ぎたあたりから緩やかに低下している。内側の土圧計も概ね同様の傾向にあるが、最大値到達以降は緩やかにほぼ一定の傾きで低下している。経過時間が約 120 日のとき、内側の土圧計は外側の土圧計よりも 1.5 倍程度大きい。本試験はケイ砂を用いて試験孔の深さを調整しており、緩衝材ブロック底面は一様に地下水が浸潤するが試験期間中の緩衝材ブロック底面に生じる圧力は一様ではないことがわかった。

緩衝材ブロック上面には膨出抑制用鋼製蓋が設置されており、地下水は緩衝材ブロック側面から浸潤する。緩衝材ブロック上面に設置した土圧計の計測値は底面に設置した土圧計の計測値よりも全体的に小さく、反応し始めるまでに要する時間が長い。外側に設置した土圧計から反応していることからも緩衝材内側方向に徐々に浸潤面が移動していることがわかる。外側に設置した土圧計の計測値が経過時間 70 日あたりから徐々に低下しているのは、試験孔壁と緩衝材ブロックの隙間が完全に閉塞することで排水量が 0 になったため、緩衝材ブロック上面付近が乾燥したことが影響した可能性がある。

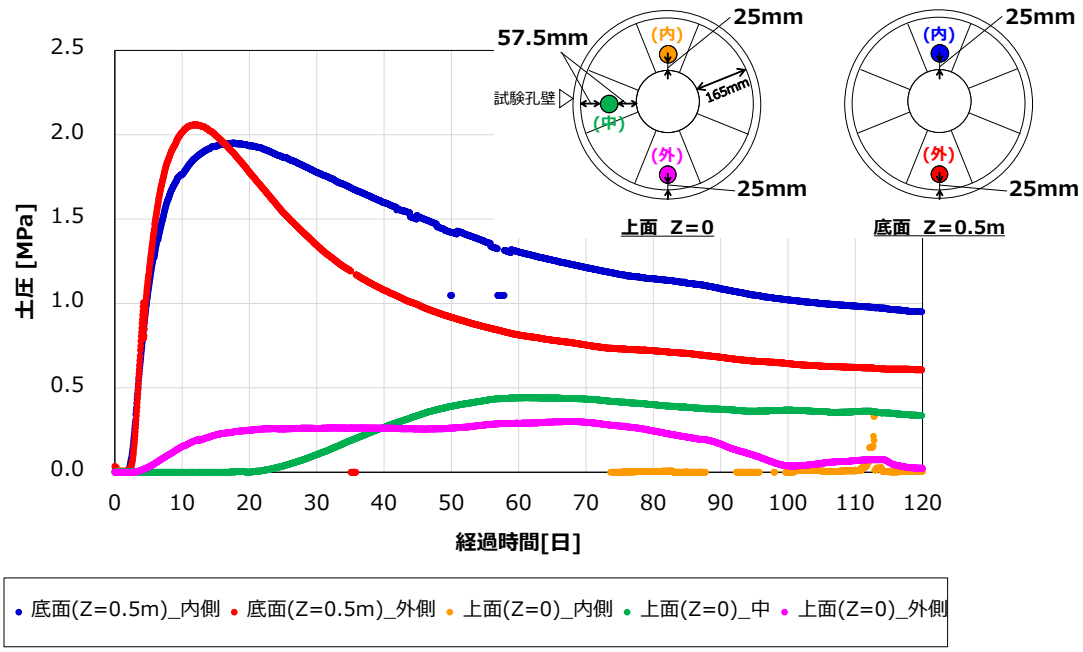


図 2.6-15　緩衝材ブロックの上面と底面に設置した土圧計の経時変化

試験孔壁面に設置した土圧計の計測値はどれもある一定値まで増加し、それ以降はほぼ一定のとなった。緩衝材ブロック上面から 0.05 m の位置に設置した土圧計は他の 2 つと比較して最大値が小さく経過時間が 70 日を過ぎたあたりから徐々に低下している。これは前述した緩衝材ブロック上面に設置した土圧計と同様の理由である。緩衝材ブロック上面から 0.25 m と 0.45 m の位置に設置した土圧計を比較すると 0.25 m に設置した土圧計の方が最大値は大きい。この傾向は平成 31 年度の原位置試験の結果と同様である。この原因としては、鉛直方向に拘束されていることなどが挙げられるが明確にはなっていない。

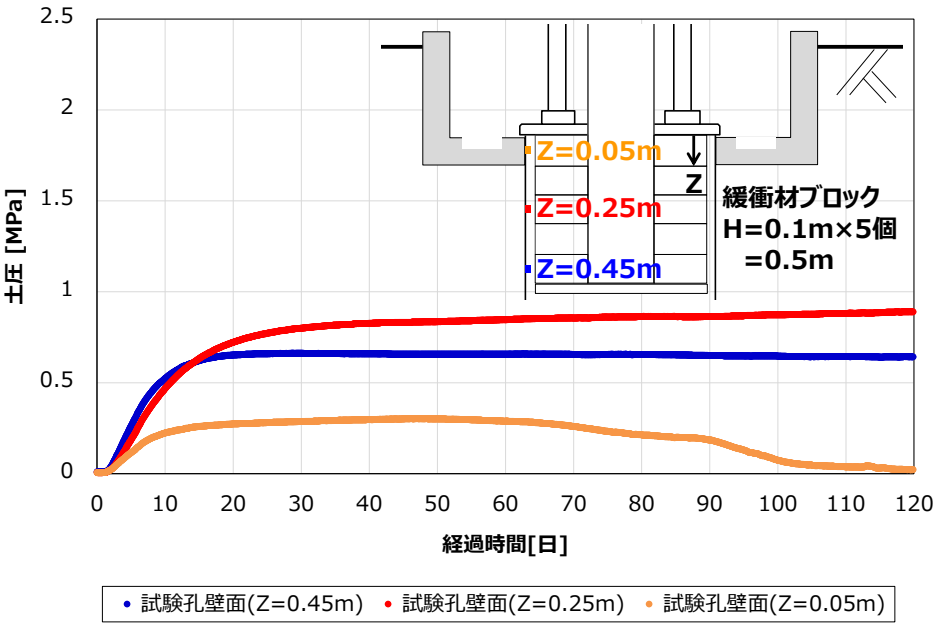


図 2.6-16　試験孔壁面に設置した土圧計の経時変化

(c) 緩衝材ブロックが膨出する力

緩衝材上面に膨出抑制用鋼製蓋を設置し、4 つのジャッキとフランジで抑えつけるように固定している（図 2.6-11、図 2.6-12）。それぞれのジャッキとフランジの間に荷重計を設け膨出抑制用鋼製蓋に作用する鉛直方向の力を計測した。荷重計の計測結果を図 2.6-17 に示す。荷重が均等に分散するようにジャッキと荷重計は 4 方向に均等に配置したが、荷重計 No.4 の値は他の荷重計の値の 1.2 倍程度となった。これより、緩衝材ブロックが傾いていることが懸念されたが、膨出抑制用鋼製蓋の高さを確認すると、それぞれ差は 1 mm 程度でありほぼ水平であった（図 2.6-18、表 2.6-2）。

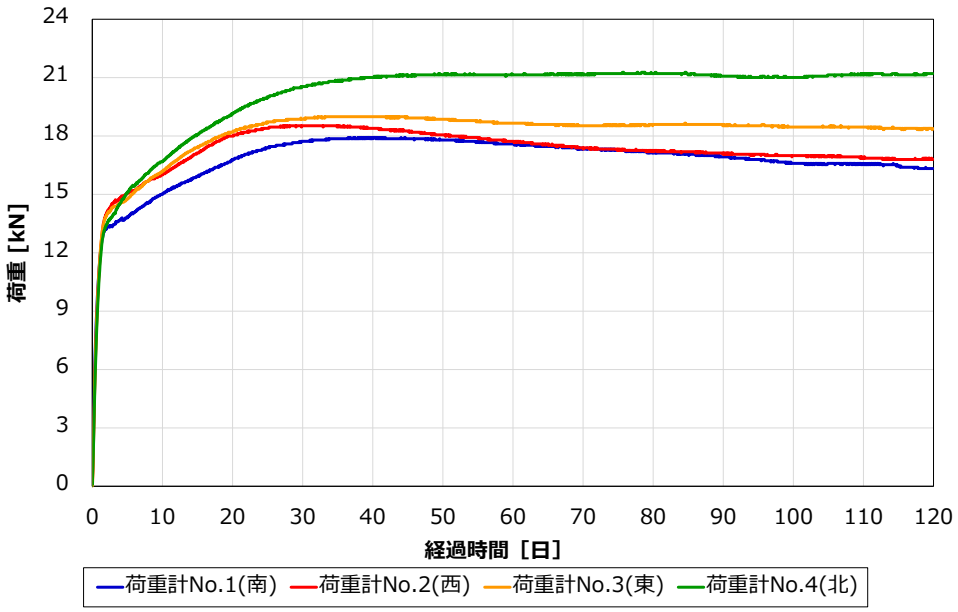


図 2.6-17　荷重計の経時変化

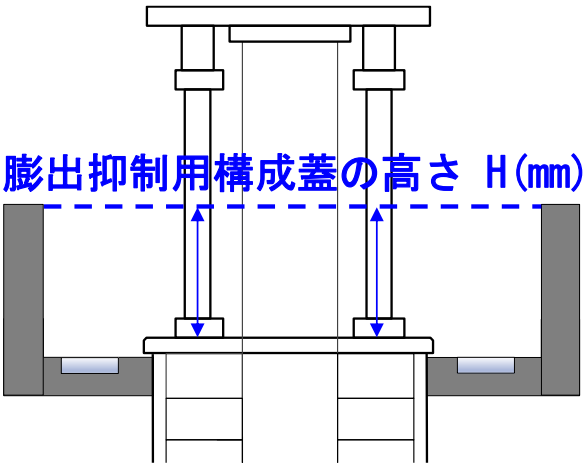


図 2.6-18　膨出抑制用鋼製蓋の高さ計測
（表 2.6-2 で計測している高さ）

表 2.6-2　膨出抑制用鋼製蓋の高さ計測結果

測定日時	No.1（南）	No.2（西）	No.3（東）	No.4（北）
2020.10.13 12:07 (試験装置設置)	451	449	452	449
2020.10.14 09:32	447	447	448	446
2020.10.16 14:10	447	447	447	446
2020.10.20 15:45	447	447	447	446
2020.10.28 15:50	447	447	447	446

緩衝材ブロックが膨出する力は、緩衝材ブロックの膨潤によって生じる力に起因するものと考えられる。試験孔内で緩衝材ブロックが膨潤した際に生じる鉛直方向の力のイメージ図を図 2.6-19 に示す。緩衝材ブロック底面が膨潤すると鉛直方向の力が生じる。緩衝材ブロック側面が膨潤すると水平方向の力が生じ、試験孔壁、試験装置（緩衝材ブロックの外側と内側）との間に緩衝材ブロックが膨出する力に抵抗するように下方向の摩擦力が生じる。これに緩衝材ブロックの自重を加えた合計が膨出する力（荷重計の合計値）であると考えられる。緩衝材ブロックの底面、側面に生じている圧力は一様ではないため、今回の測定データだけでは緩衝材ブロックの底面、側面に生じる力を正確に求めることはできないが、参考のために緩衝材ブロック底面と試験孔壁に設定した土圧計で計測されたそれぞれの圧力に緩衝材ブロックの底面積（0.23 m^2）と側面積（外側と内側の合計 1.22 m^2）を掛けて力に変換し、荷重計の合計値と比較したものを図 2.6-20 に示す。荷重計は試験開始直後から値が上昇しており、緩衝材ブロック底面の土圧計が約 2 日後から上昇し始めるのは緩衝材ブロック底面に切欠きを設けて（図 2.6-5）土圧計が設置されており、緩衝材ブロックと土圧計の接触面（高さ方向の位置は土圧計上側）と緩衝材ブロック底面（高さ方向の位置は土圧計下側）で膨潤し始める時間に差があるためである。荷重計の最大合計値は 76 kN であり、緩衝材ブロック底面で生じる力はそれの倍以上であることが推測される。緩衝材ブロック側面に生じる力は中心高さ（底面から 25 cm）の位置で最も大きく、緩衝材ブロック底面で生じる力よりも大きいと推測される。ただし、本試験では、緩衝材ブロックの内側を φ200 mm のパイプが貫通するような試験装置になっているため緩衝材ブロックの内側でも摩擦力が生じるが、実際の処分孔縦置き定置方式では摩擦力が生じるのは緩衝材ブロックの外側のみである。そのため、本試験では緩衝材ブロック底面の膨出する力に対し摩擦力が大きく、実際よりも緩衝材ブロックが膨出する力は小さくなる条件となっている。

荷重計合計値は試験開始から 44 日後に最大となり（76.4 kN）、それ以降は減少傾向にあり 120 日後には 72.7 kN となったものの、この傾きは小さい。これに対し緩衝材ブロック底面に生じる力は 120 日後には最大値の 0.25～0.5 倍程度まで低下した。側面（Z = 0.25 m）の圧力は 120 日後まで増加し続けておりこれらの相関については明確になっておらず、緩衝材の膨出について正確に把握するためには、今後、更に検討を進める必要がある。

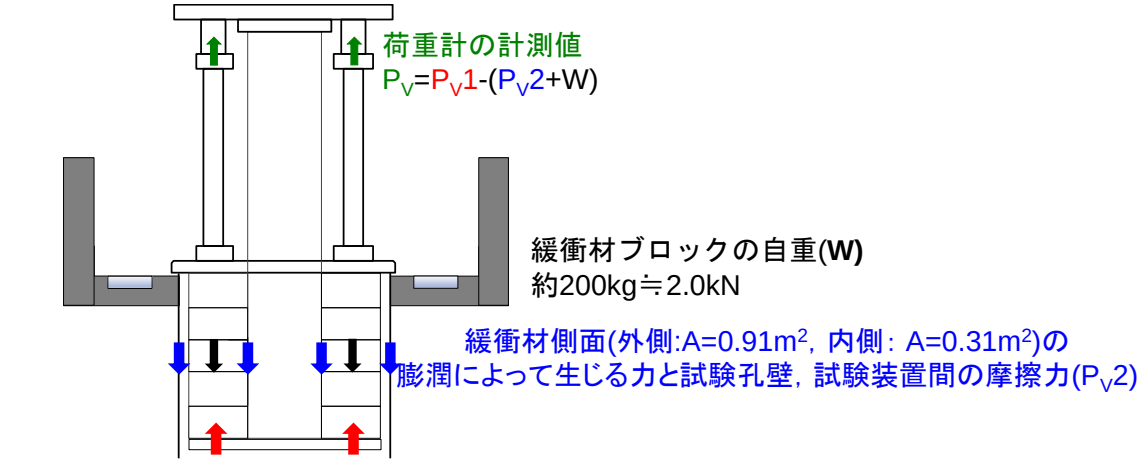


図 2.6-19　緩衝材ブロックの膨潤によって生じる鉛直方向の力のイメージ図

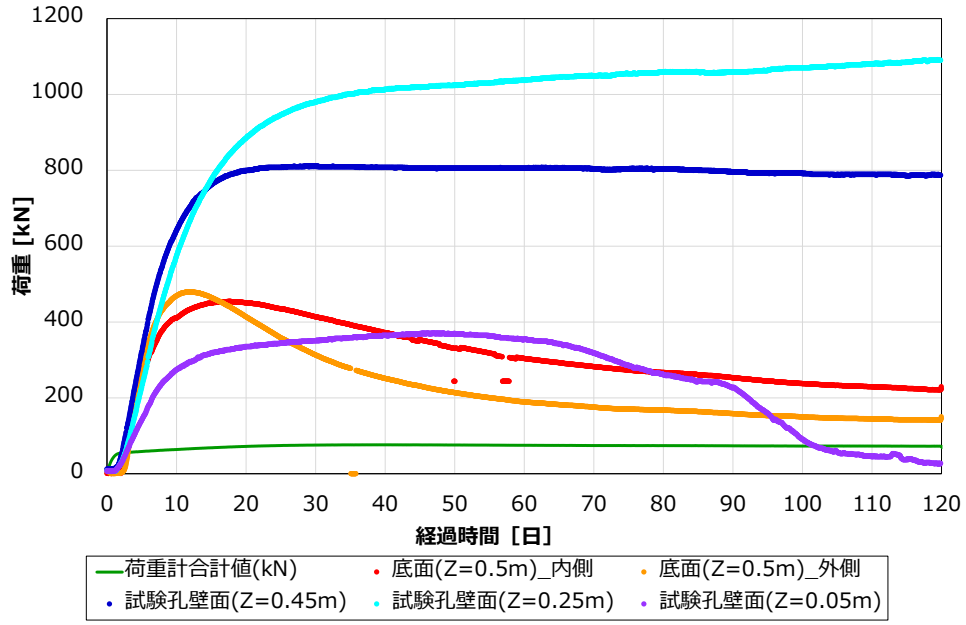


図 2.6-20　荷重計合計値と緩衝材ブロックの膨潤によって生じる力（参考値）

(d) 緩衝材の総流出量

緩衝材の総流出量と排水中のベントナイト濃度の経時変化を図 2.6-21 に、総排水量と排水量の経時変化図 2.6-22 に示す。ここで示す緩衝材の総流出量は式 2.6-1 より求めた。

$$M_s = \sum_{i=1}^{n} C_i Q_i \Delta t_i \qquad (2.6\text{-}1)$$

ここで、Δt_i は排水の採水間隔（min）であり、C_i は採水中のベントナイト濃度（mg/L）、Q_i は採水間隔中の排水量（L/min）である。採水間隔は、試験開始から 3 時間は 10 分ごと、それから 30 日間は 240 分ごと、それ以降は 480 分ごととした。試験開始から 48 日以降は排水量が 0 となり採水できなくなったため計測していない。総流出量は試験開始から 15 日以降はほぼ一定となっている。これは、緩衝材ブロックと試験孔の隙間が縮小することで、ベントナイト濃度、排水

量がともに低下したためである。排水量の経時変化を見ると試験開始から 13.8 日までは試験孔壁と緩衝材の隙間で流路の縮小と拡張を繰り返しながら徐々に流量は低下しており、13.8 日までの緩衝材の総流出量は最終的な総流出量の 97%を占める。このことから、隙間未充填オプションで閉塞する場合、緩衝材の流出量については、流路の縮小と拡張を繰り返す期間（排水量が大きい期間）での評価が重要であると考えられる。また、完全に閉塞（排水量が 0）したのは試験開始から 48 日後であったが、排水量が 0.05 L/min 以下となった期間（試験開始から 20 日以降）ではベントナイト濃度がほぼ 0 となっているため流出量も増加しない。処分孔に対して隙間未充填オプションの適用性を確認するときに、閉塞するか否かが判断指標の一つになると考えられるが、完全に閉塞（排水量が 0）しなくても緩衝材の流出が顕著な量でなければ（本試験における 20 日以降のベントナイト濃度がほぼ 0 の状態）、適用できる可能性がある。ただし、平成 31 年度の原位置試験結果では排水量が 0.05 L/min 以下であってもベントナイト濃度は 100 mg/L と今年度とは異なる挙動を示している。この原因は地下水の水質が一定ではないことなどが挙げられるが、明確になっておらず低濃度の計測精度については今後の課題の一つであり室内試験も含めた低濃度の計測精度やバックグラウンド濃度の影響について検証が必要である。

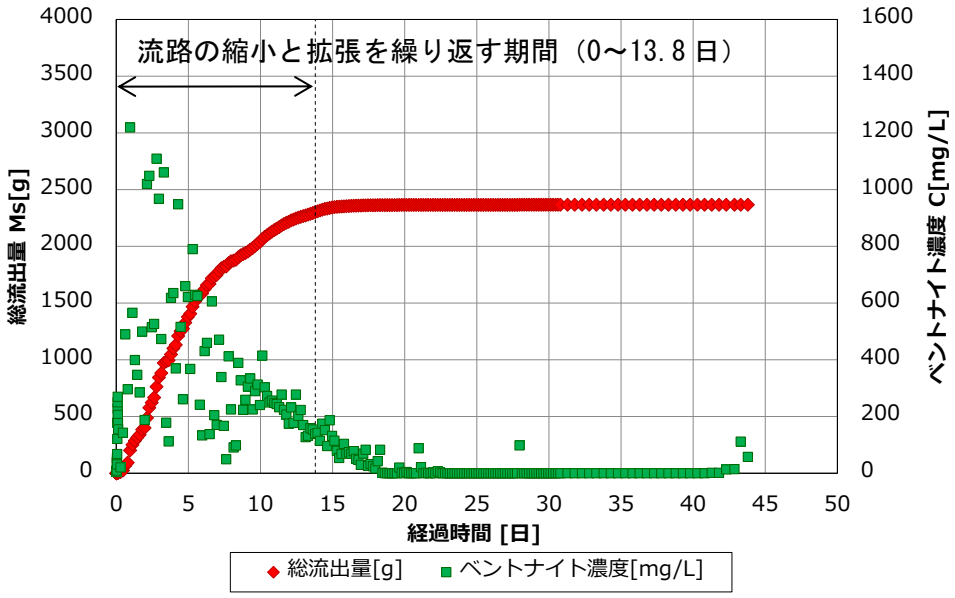


図 2.6-21　緩衝材の総流出量と排水中のベントナイト濃度の経時変化

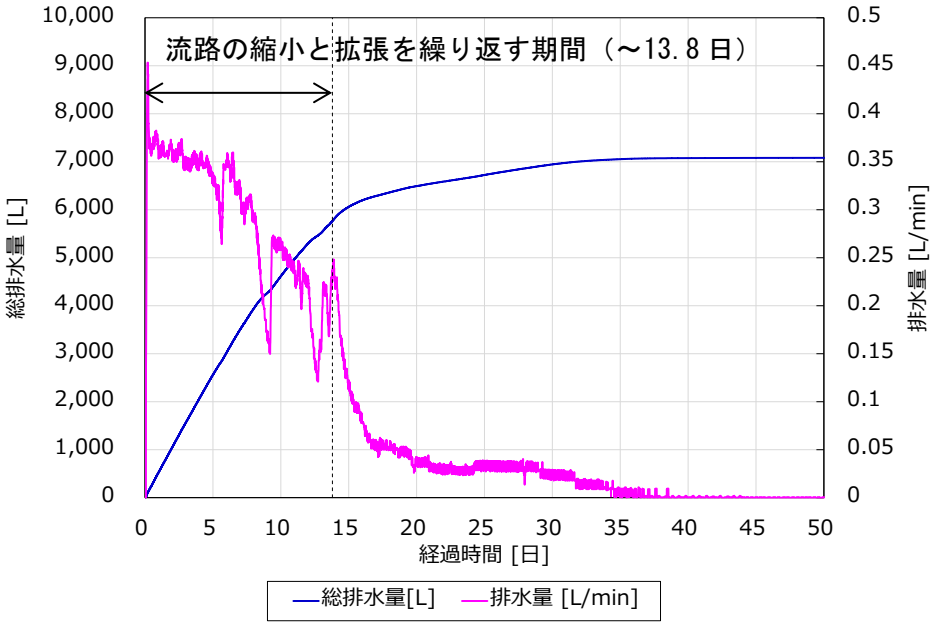


図 2.6-22　総排水量と排水量の経時変化

総排水量と総流出量を平成31年度に実施した原位置試験の結果と比較したものを図2.6-23に、最終値を比較したものを表 2.6-3 に示す。平成 31 年度と令和 2 年度の試験で条件が大きく異なるのは緩衝材ブロックの高さである（平成 31 年度は 0.1 m×8 段= 0.8 m、今年度は 0.1 m×5 段 = 0.5 m）。総排水量がほぼ同程度となっているのは、本試験は試験孔の深さを透水性の高いケイ砂で埋め戻して調整した後に緩衝材ブロックを設置しているためである。緩衝材ブロックの下側にケイ砂がなく、緩衝材ブロックの高さと処分孔の深さがほぼ等しい場合、処分孔からの排水量は緩衝材ブロックの高さに応じて増加すると考えられる。

表 2.6-3　総排水量と総流出量の最終値の比較

試験実施年度	総排水量 [L]	総流出量 [g]	緩衝材ブロックの高さ [m]
平成 31 年	7444	3325	0.800
令和 2 年（今年度）	7079	2453	0.500
比率（H31/R2）	1.05	1.36	1.60

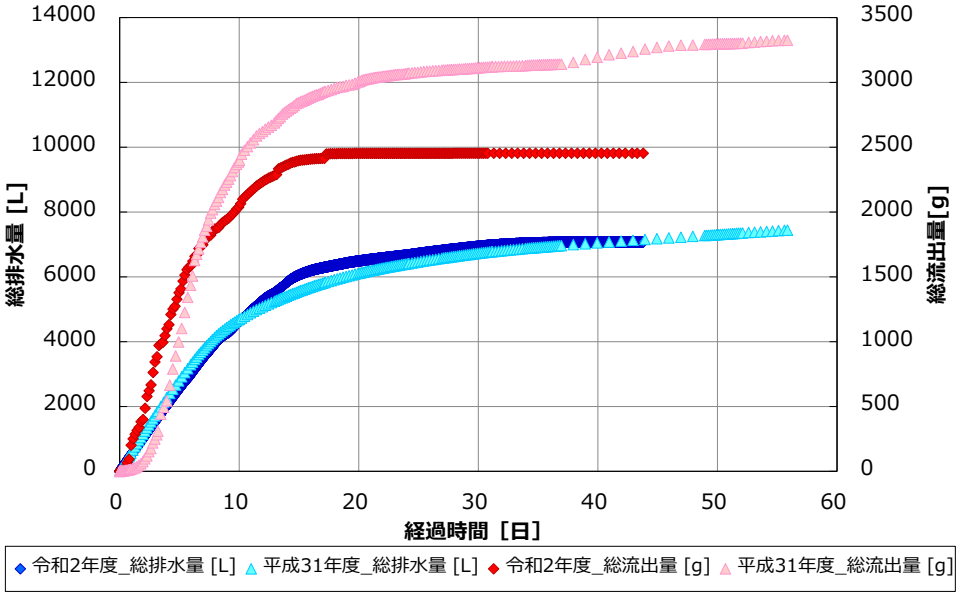


図 2.6-23　総排水量と総流出量（平成 31 年度試験結果との比較）

総流出量を比較すると、平成 31 年度は令和 2 年度の 1.36 倍大きい。図 2.6-24 にベントナイト濃度を比較した図を、図 2.6-25 に緩衝材ブロック底面の圧力水頭と排水量を比較した図を示す。排水量は同程度であるが、ベントナイト濃度は平成 31 年度の方が全体的に高い。総流出量は式 2.6-1 によって計算されているため、平成 31 年度の総流出量が令和 2 年度のより大きい主な原因は、ベントナイト濃度の差であることがわかる。平成 31 年度は令和 2 年度よりも緩衝材ブロックの側面積が 1.6 倍大きく排水される地下水との接触面が増えたことで、流出量が増加したと考えられるがスケール効果については他の条件とも合わせて定量的な説明ができるように検討する必要がある。

令和 2 年度は緩衝材ブロック底面の圧力水頭が 0.5～0.8 m のとき流路の縮小と拡張を繰り返すような挙動が見られるが、平成 31 年度の試験では見られない。これは、平成 31 年度は緩衝材ブロック底面の圧力水頭は初期状態で 0.8 m（緩衝材ブロックの高さ相当）が影響しているように考えられる。しかし、隙間は地下水で満たされており限界動水勾配を考えるときのように静水圧を考えた場合、隙間を流れる水の駆動力は緩衝材ブロックの高さに関わらず試験孔周囲との水位差となるため緩衝材ブロック高さの影響は小さいとも考えられる。未充填オプションの閉塞条件については、適用性を判断する際に重要な指標となり、次年度以降より室内試験で検証を行う予定である。

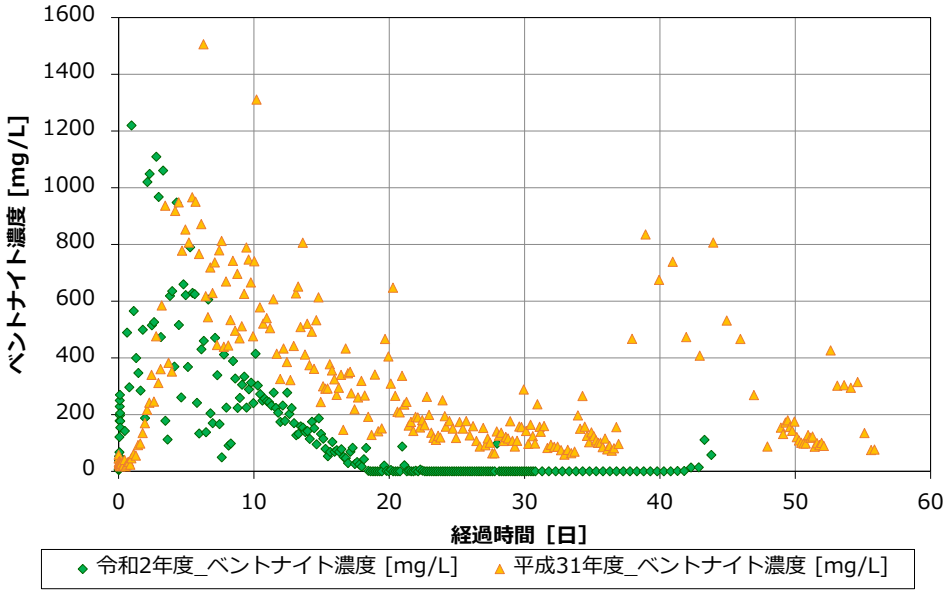


図 2.6-24　ベントナイト濃度（平成 31 年度試験結果との比較）

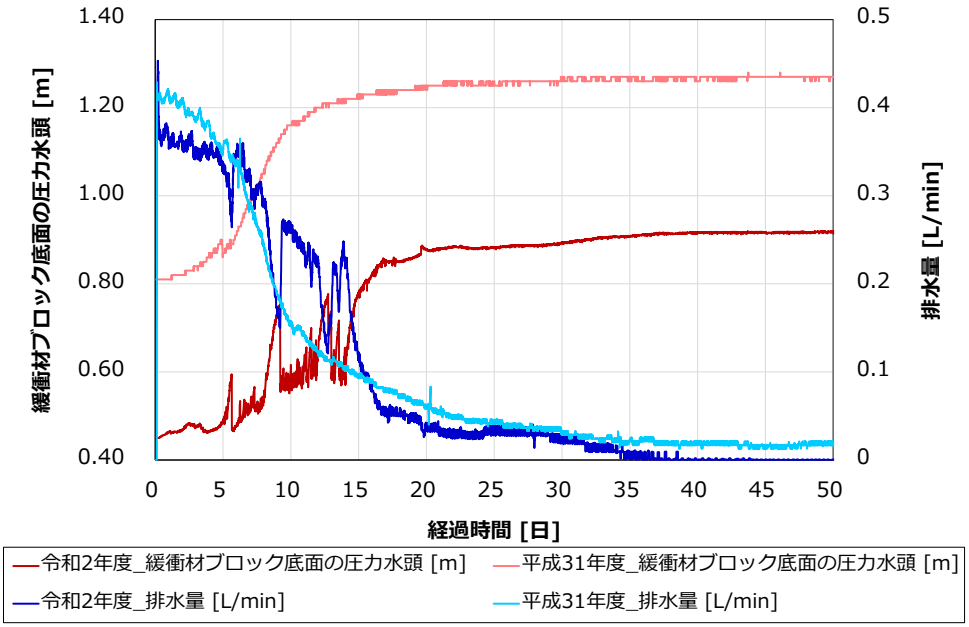


図 2.6-25　緩衝材ブロックの底面の圧力水頭と排水量（平成 31 年度試験結果との比較）

⑤ 注水試験

自然湧水条件による試験開始から 120 日後に、強制注水条件による流出試験を実施した。これは、処分坑道埋め戻し後に周囲の地下水が上昇したときを想定している。現在の処分場の設計案では緩衝材の上部には埋め戻し材が充填されるがその影響はないものとする。

(a) 試験装置

試験装置の概要を図 2.6-26 に示す。荷重計、土圧計、積算流量計は自然湧水条件による流出試験時から継続使用したが、水圧計については 20 m まで測定できるもの（オサシテクノス：DS-1）に変更した。

注水試験では、およそ 5～10 kPa の範囲で段階的に注水圧を昇圧させて、破過が生じる注水圧を確認した。注水圧は緩衝材底面の設置した水圧計で計測した。これは、自然湧水条件で計測していた緩衝材底面位置の圧力水頭に相当するものである。

低い圧力、少量の流量での制御が必要となる注水の初期は、コンプレッサ、レギュレータ、チャンバータンクを用いた注水とし、その後、モーノポンプ、圧力調整弁を用いた注水へ切り替えを行った。注水には、汲み上げた地下水をローリータンク（1200 L＝600 L/個×2 個）に貯水し用いた。

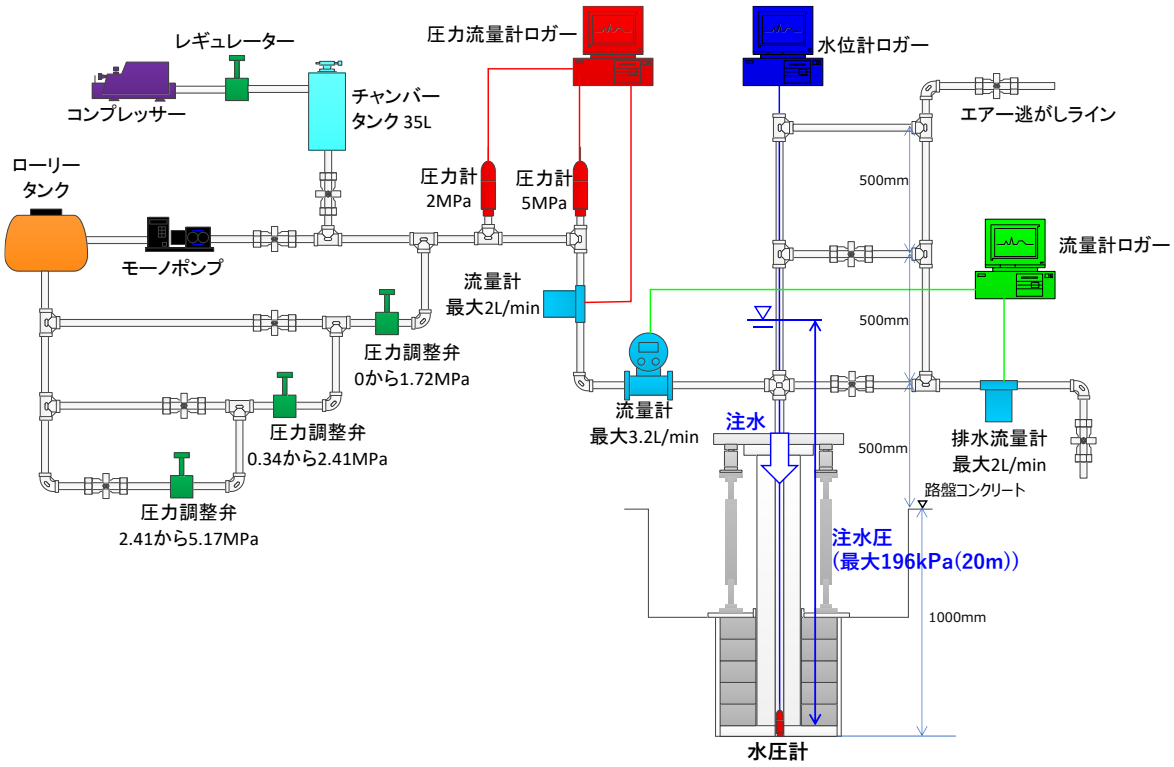


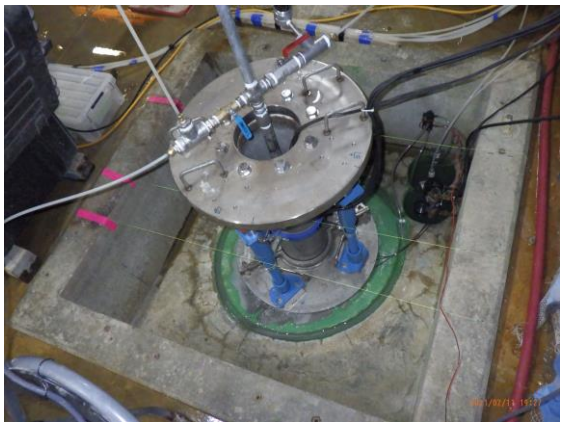
図 2.6-26　注水試験 試験装置概要図

(b) 試験結果

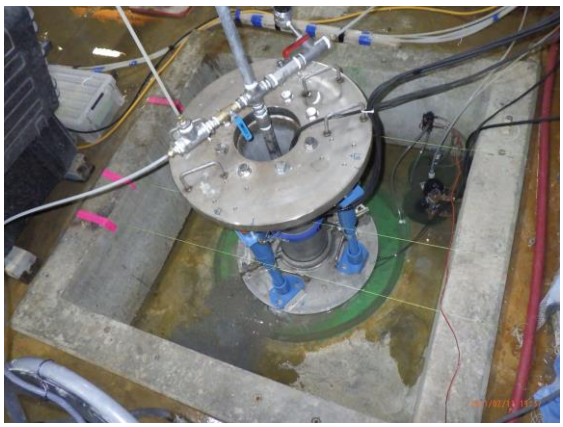
注水試験は 2 日間実施した。強制注水条件における流出試験中のイベントに関する時系列を表 2.6-4 に示す。1 日目の注水試験では、注水圧を段階的に昇圧し、注水圧 70 kPa（注水流量約 3.3 L/min）への昇圧時に若干の注水圧の低下（約 5 kPa の低下）や、試験孔からの僅かな湧水（瞬時排水量 1～2 mL/min）を確認したものの、最大 90 kPa（注水流量約 4.3 L/min）までの注水において、明確な破過を示すデータが取得できなかったことから、翌日に継続して注水試験を実施した。2 日目の注水試験では、注水圧 90 kPa の注水圧（注水流量約 4.3 L/min）の条件時に、大きな注水圧の低下（約 80 kPa）が生じ、ケイ砂の噴出を伴う試験体底面から上面まで貫通する破過の発生を確認した（図 2.6-27）。注水試験 1 日目の計測結果（注水圧と総排水量の経時変化）を図 2.6-28、図 2.6-29 に、注水試験 2 日目の計測結果を図 2.6-30、図 2.6-31 に示す。

表 2.6-4　強制注水条件における流出試験中の時系列

イベント	日時	備考
①注水試験開始（1 日目）	2 月 10 日　10 時 00 分	
②注水圧 70 kPa への昇圧）	2 月 10 日　13 時 55 分	注水流量 3.3 L/min 昇圧後、約 5kPa の注水圧の低下が一時的に生じたが、その後注水圧回復
③注水圧 90 kPa への昇圧	2 月 10 日　14 時 41 分	注水流量 4.3 L/min
④配管組替作業	2 月 10 日　15 時 00 分	作業に伴う注水停止の際、試験孔 2 から、僅かな湧水（瞬時排水量約 1～2 mL/min）を確認
⑤注水試験終了（1 日目）	2 月 10 日　16 時 50 分	注水圧を徐々にさげ、注水なしの状態（自然湧水状態）として、作業終了
⑥注水試験開始（2 日目）	2 月 11 日　10 時 00 分	
⑦破過発生	2 月 11 日　19 時 35 分	注水圧 91 kPa（注水流量 4.6 L/min）の条件で、ケイ砂の噴出を伴う試験体底面から上面まで貫通する破過発生
⑧注水試験終了（2 日目）	2 月 12 日　9 時 00 分	



破過発生直前（2 月 11 日　19 時 27 分）



破過発生直後（2 月 11 日　19 時 37 分）

図 2.6-27　破過発生前後の写真

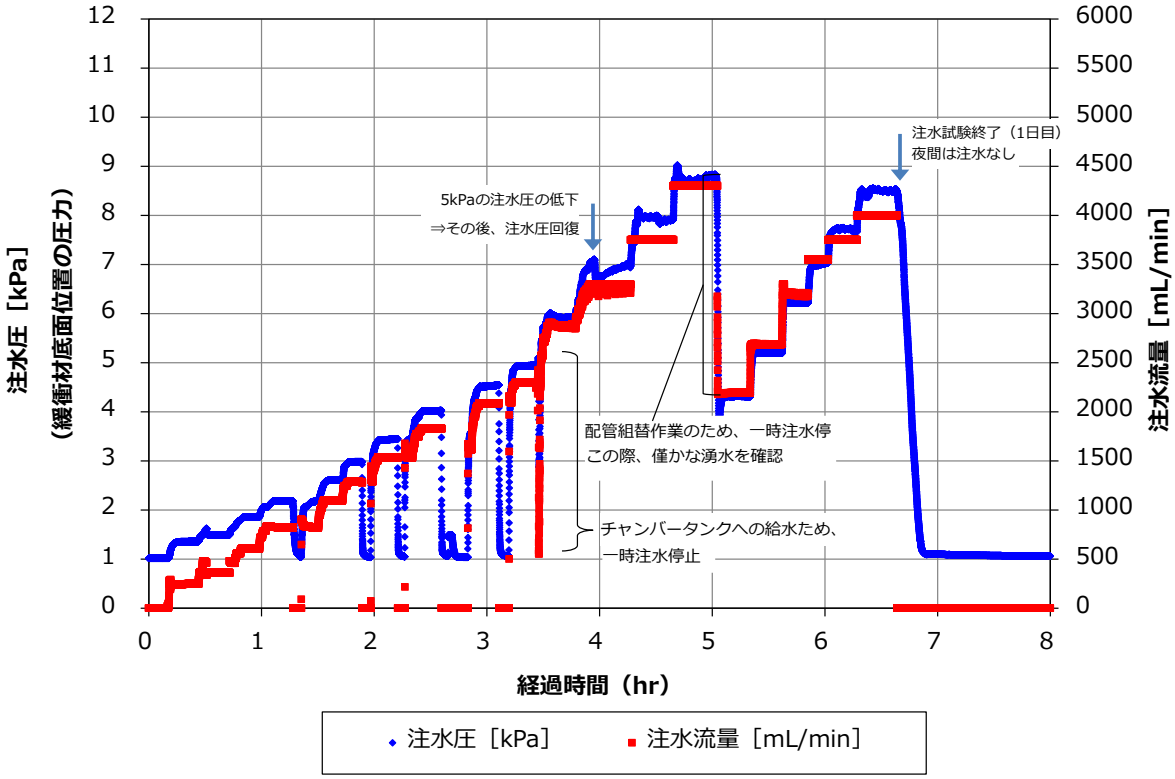


図 2.6-28　注水試験 1 日目　計測結果（注水圧と注水流量の経時変化）

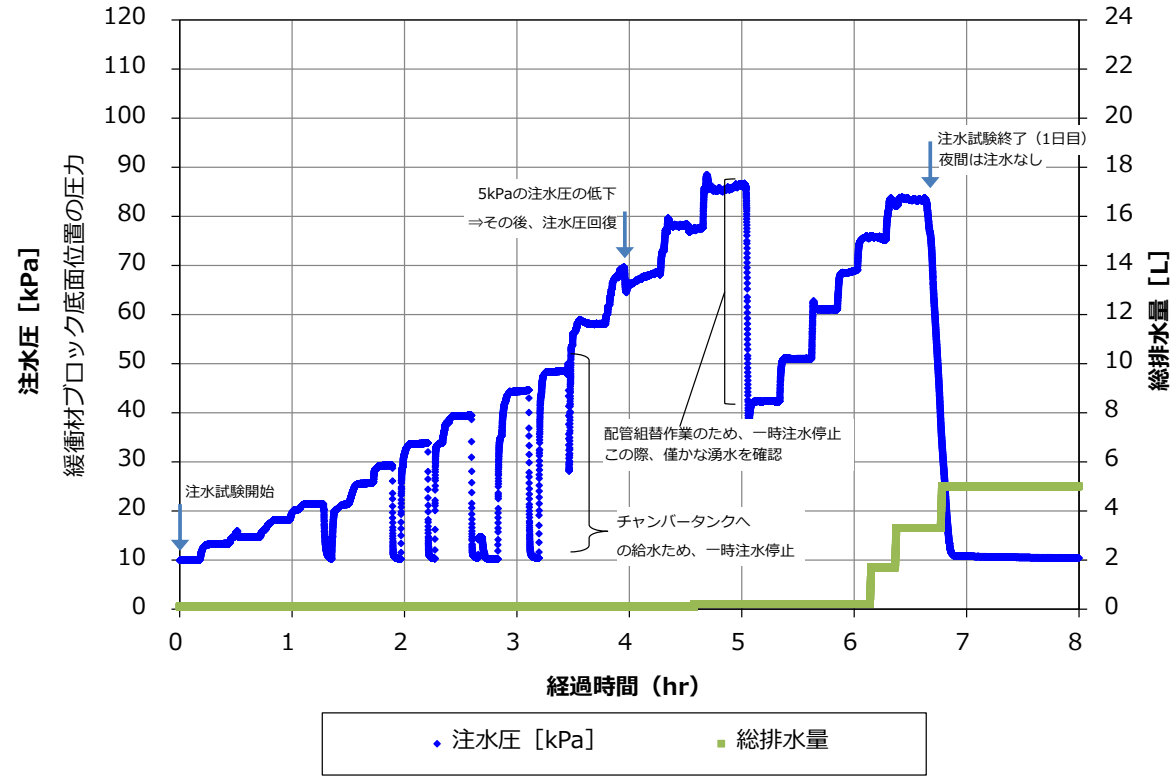


図 2.6-29　注水試験 1 日目　計測結果（注水圧と総排水量の経時変化）

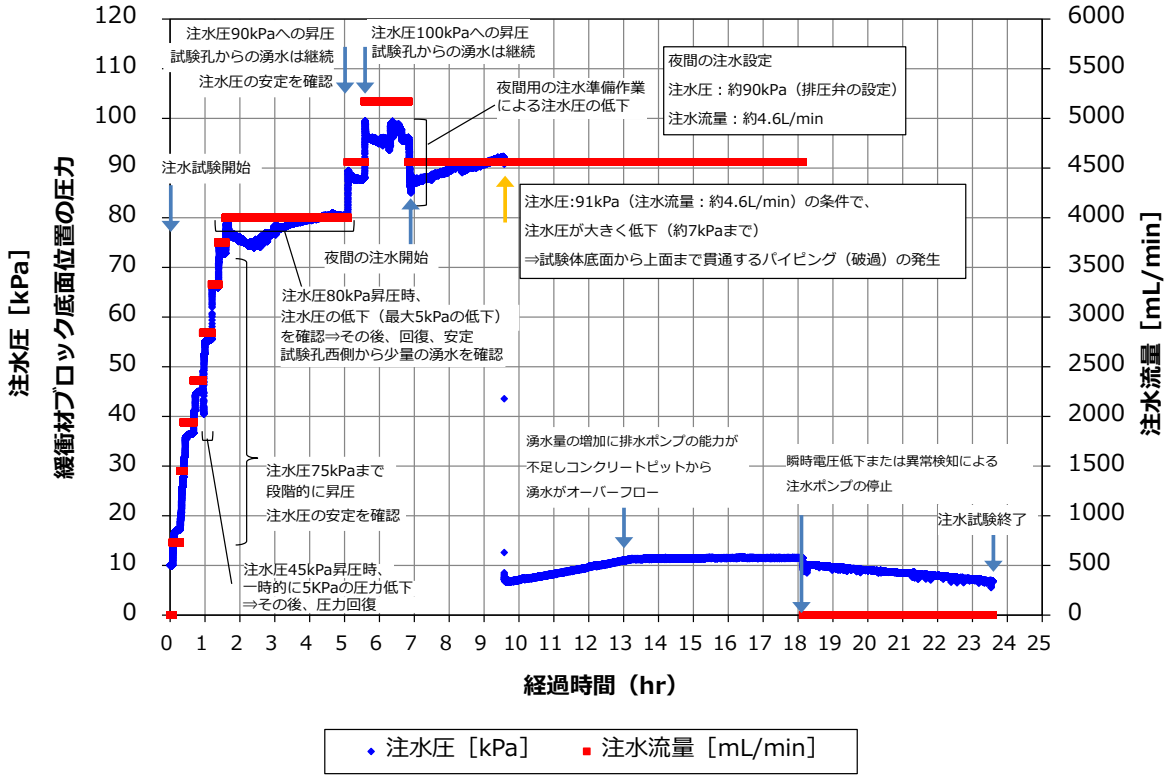


図 2.6-30　注水試験 2 日目　計測結果（注水圧と注水流量の経時変化）

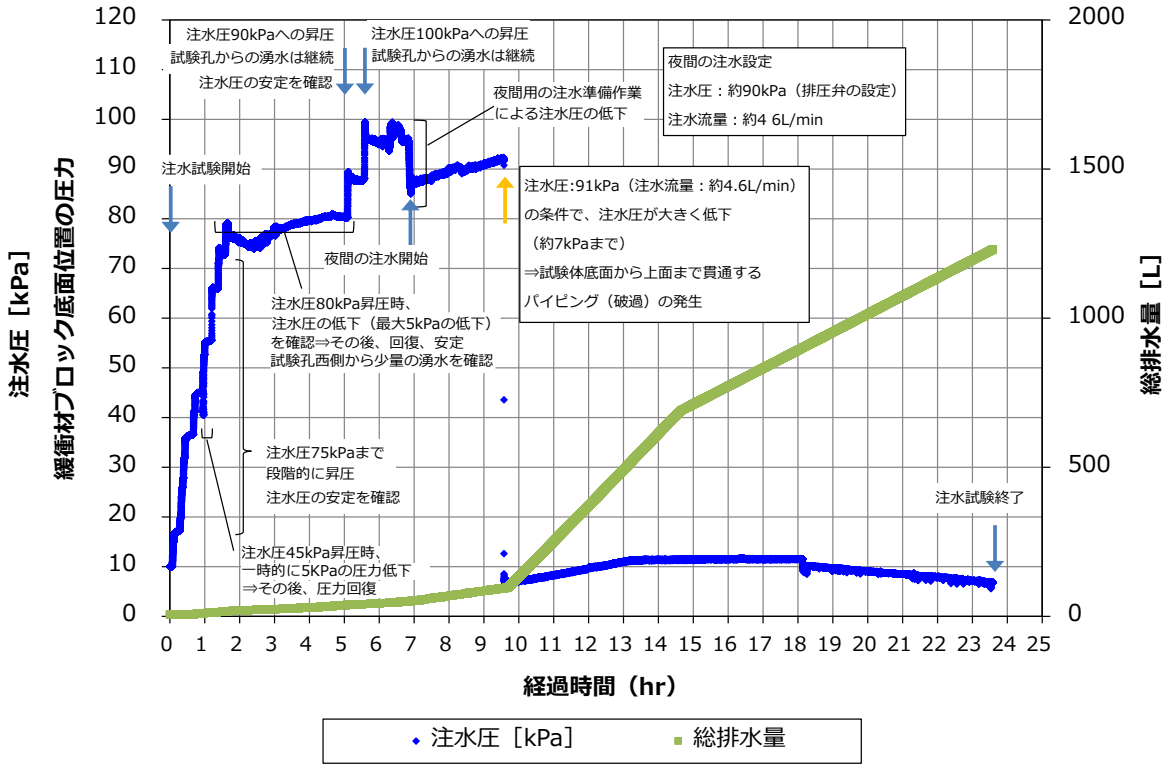


図 2.6-31　注水試験 2 日目　計測結果（注水圧と総排水量の経時変化）

(c) 注水試験中の試験孔側面の土圧

自然湧水条件による流出試験（120 日）の終了時に、試験孔側面に設置した土圧計による土圧計のうち 3 段目（中段）の土圧は 0.9 MPa であった。同土圧について、1 日目の注水試験中に緩やかに低下し、1 日目の注水試験終了時には約 0.8 MPa となった（図 2.6-32）。2 日目の注水試験では、約 90 kPa（0.09 MPa）の注水圧（注水流量 4.6 L/min）の注水条件にて、明確な破過を確認した。この際、3 段目（中段）の土圧は 0.77 MPa から 0.74 MPa へ、5 段目（最下段）の土圧は 0.59 MPa から 0.52 MPa へ瞬間的に減少した。

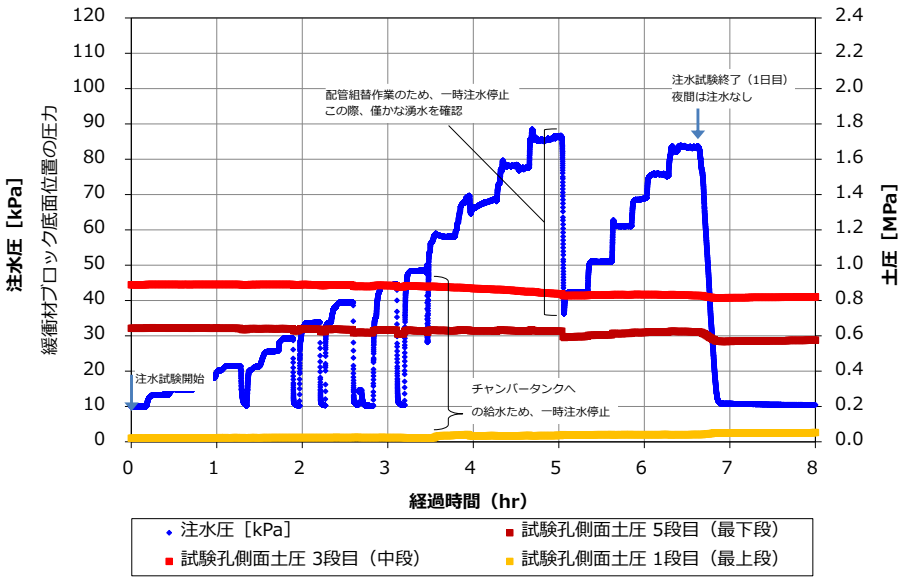


図 2.6-32　注水試験 1 日目　注水圧と試験孔側面の土圧の関係

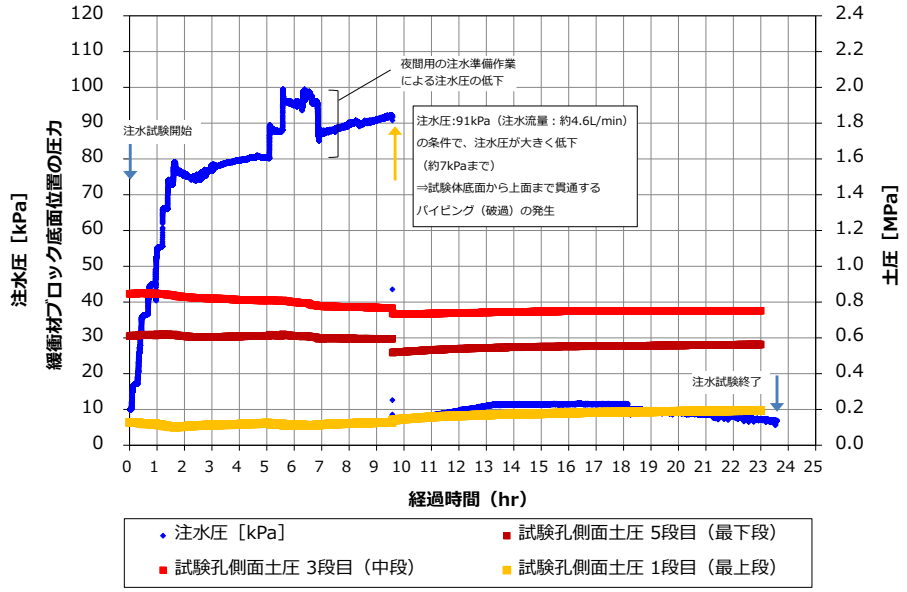


図 2.6-33　注水試験 2 日目　注水圧と試験孔側面の土圧の関係

(d) 注水試験中のベントナイト濃度、総流出量

明確な破過が発生した注水試験 2 日目に着目して試験中の注水圧とベントナイト濃度の経時変化を図 2.6-34 に、注水圧と緩衝材の総流出量の経時変化を図 2.6-35 に、注水試験中の総排水量に対する緩衝材の総流出量とベントナイト濃度の関係を図 2.6-36 にそれぞれ示す。

破過が生じる前はバラツキを有しながらもベントナイト濃度が増加、破過後はベントナイト濃度が低下する結果となった。総流出量については、破過発生後の湧水量の増加に伴い急増する結果となった。

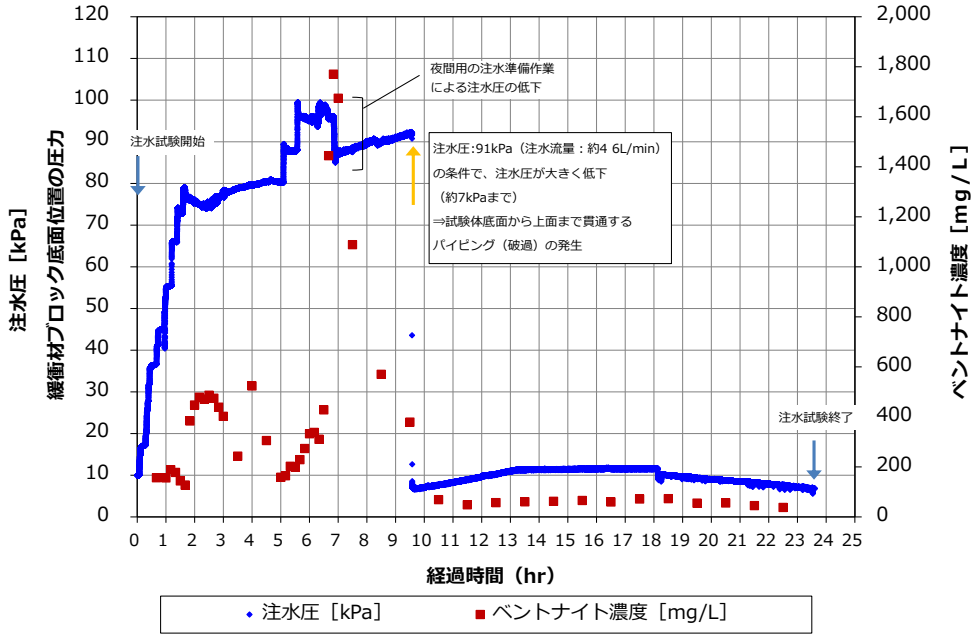


図 2.6-34　注水試験 2 日目　注水圧とベントナイト濃度の関係

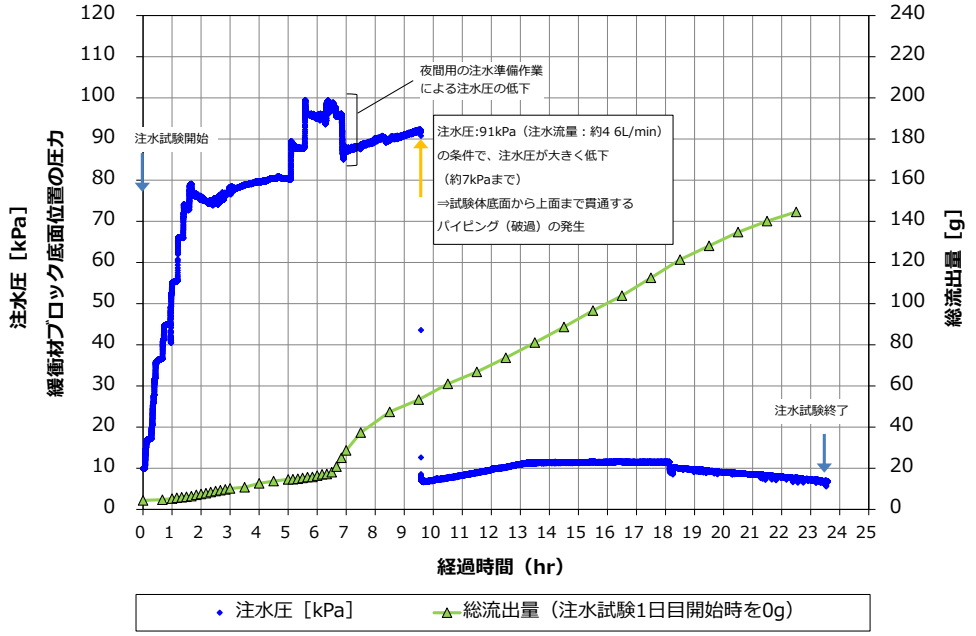


図 2.6-35　注水試験 2 日目　注水圧と緩衝材の総流出量の関係

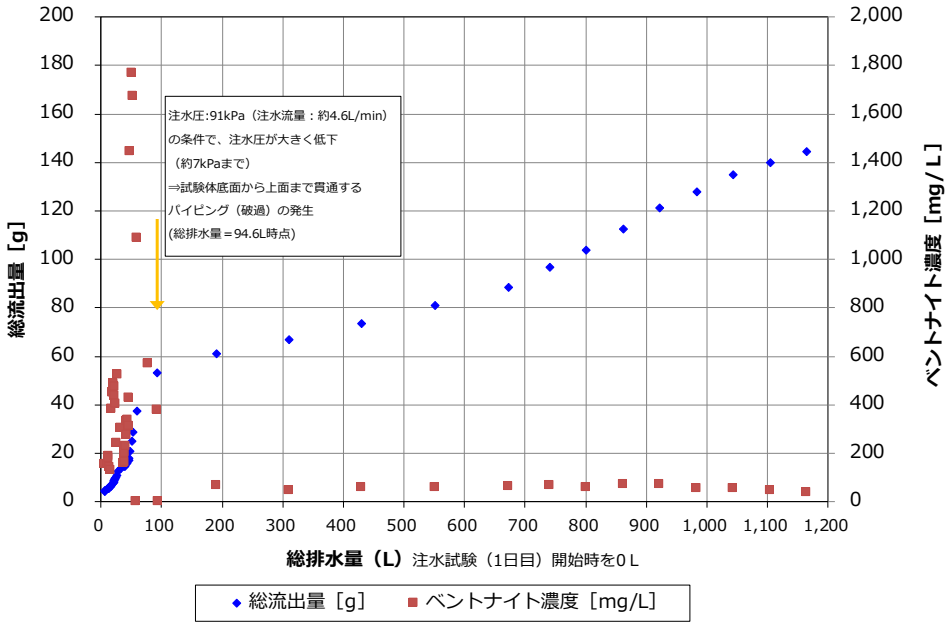


図 2.6-36　注水試験 2 日目　総排水量に対する緩衝材の総流出量とベントナイト濃度の関係

(e) 注水試験のまとめ

120 日間の自然湧水条件での流出試験の後に実施した強制注水条件による注水試験では、約 90 kPa（9.2 m）の注水圧（注水流量 4.6 L/min）の条件にて、注水圧の低下が生じ、ケイ砂の噴出を伴う試験体底面から上面まで貫通する破過の発生を確認した。ただし、注水試験 1 日目の注水圧 70 kPa への昇圧時に約 5 kPa の注水圧の低下、注水試験 2 日目の注水圧 45 kPa 昇圧時に約 5 kPa の注水圧の低下、80 kPa への昇圧時に約 5 kPa の注水圧の低下などが確認されたことから、注水試験 1 日目の注水圧 70 kPa（注水流量 3.3 L/min）の時点で破過が開始された可能性がある。

本試験条件では、定置から 120 日経過し緩衝材ブロックが膨潤し緩衝材ブロック側面に最大で 1 MPa 程度の圧力が生じていても、周囲との水位差が 7～9 m 程度以上になれば破過することがわかった。処分坑道の埋戻し材には緩衝材の流出を抑制する効果が期待されているが、その効果については検証されておらず、今後、抑制効果の検証に向けた更なる取組が望まれる。

3) 各施工オプションのこれまでの検討成果の整理

今後 3 年間の計画の策定を目的として、これまでの隙間未充填とケイ砂充填に、施工方法の選択の柔軟性を高めるためにペレット充填を加え、これらの 3 つの施工オプションのこれまでの成果を整理し、評価手法や評価指標に関する検討を行った。

① 隙間未充填オプション

(a) 原位置試験

隙間未充填オプションにおける平成 31 年度の期間 1 を対象とした短期の流出試験の概要図を図 2.6-37 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, 2020）。平成 31 年度の試験条件は、緩衝材の高さ以外は前項で示した令和 2 年度と同様である。短期試験（平成 31 年度）では、2 か月の試験期間内に排水が減少し、少量（20 mL/min 程度）の排水が

継続した。他方、前項で示した長期試験（令和 2 年度）では、試験開始後 1 か月半で排水が完全に停止した。

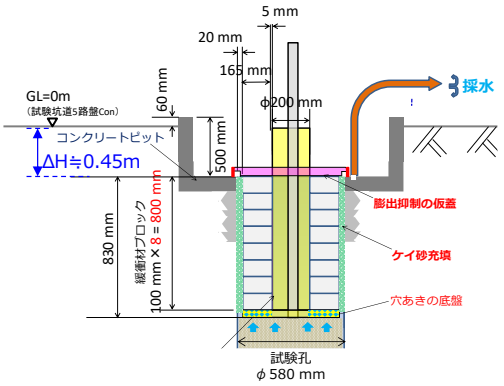


図 2.6-37　流出試験の概要（平成 31 年度 短期試験）

隙間未充填の 2 回の原位置試験は、概ね同様な挙動を示したが、水みちが閉塞するか否かの違いがあった。いずれの試験も試験開始時の湧水量は 400～450 mL/min である。周辺岩盤との水頭差は同等であるが両者の試験体の高さが異なるため、隙間の閉塞後の緩衝材下面にかかる水圧は、高さ方向に供試体が大きい短期試験の方が大きい。図 2.6-38 に示すこれまでの流出試験における残存した水みちの観察結果（原子力環境整備促進・資金管理センター, 2015；2016）によれば、供試体の表面の水みちは屈曲し、これは孔壁の凹凸や供試体（緩衝材ブロック）の不均一性などの影響によるものと考えられる。

以上の点から緩衝材の流出や水みちの閉塞は、地下水の湧水量や水圧などの様々な環境条件や緩衝材の製造品質（例えば密度の均一性など）や処分孔への施工状態、緩衝材の膨潤挙動や表面の状態などが関連する現象であり、水みちの形状には不確実性が大きいことから、これらの要因の流出挙動への影響や関連を定量的に把握して処分孔ごとの流出量を確からしく評価するには多くの課題が想定される。例えば、緩衝材の表面の状態（浸潤・膨潤の進展とともに変化する界面の乾燥密度）は、界面の湧水の流れの状態との関係から、ある程度の影響や相関性があると推察されることから、これらを把握することができれば、流出量の評価のモデル化や評価手法の信頼性の向上に役立つものと考えられる。ただし、そのようなモデルは一定の製造品質や施工品質を前提としたうえで適用できるものとなる。

(a) 原位置試験(強制注水試験)を終えた供試体(平成 27 年度)　　(b) 室内試験における水みち観察結果 (平成 26 年度)

図 2.6-38　流出試験における緩衝材表面の観察結果
（原子力環境整備促進･資金管理センター, 2015；2016）

(b) 評価方法の検討

緩衝材の流出量の定量的な評価手法は、平成 29 年度までの室内試験による検討においては、SKB の検討事例を参考に、緩衝材の総流出量（Ms）と総流量（Mw）の関係をべき乗（Ms＝αMw^β）でモデル化した（原子力環境整備促進・資金管理センター, 2018b）。この式を用いて NUMO-SC においても緩衝材流出の評価がなされている（原子力発電環境整備機構, 2021）。室内試験に基づくべき乗モデルでは、β = 0.85 であり、水みち形成後に徐々に流出量が減少する現象がスケールの影響がなく再現するとしている。図 2.6-39 に室内試験結果のべき乗則による評価と隙間未充填における原位置流出試験結果を合わせて示す。同図によれば、平成 31 年度の Mw が 3,000 L 程度、令和 2 年度の Mw が 1,500 L 程度までの区間の流出量の変化は、べき乗則モデルの様に両対数の図において直線とはならない。この区間では、試験孔壁面の土圧が発生していないため、緩衝材が隙間へ膨潤する過程にあり、べき乗則モデルで前提となる水みちを伴う流出とは挙動が異なったと考えられる（パイピングを伴わない流出過程）。水みちを伴う流出に移行した後は、原位置試験においても流出挙動はべき乗則で近似できる（パイピングによる流出過程）。また、原位置試験では水みちが閉塞し、排水（流出）が停止しており、流出が継続することを前提としたべき乗モデルのみでの流出量の評価はできない（この場合、緩衝材の流出量を過大に評価してしまう）。加えて、図 2.6-40 に示す原位置試験における排水量の経時変化によれば、排水量が徐々に減少し、室内試験における一定流量での試験と条件が異なる。

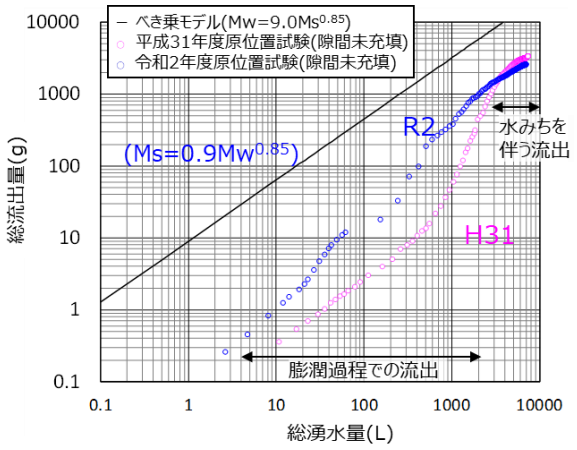


図 2.6-39　原位置試験と室内試験の総流量と総積算流出量の比較

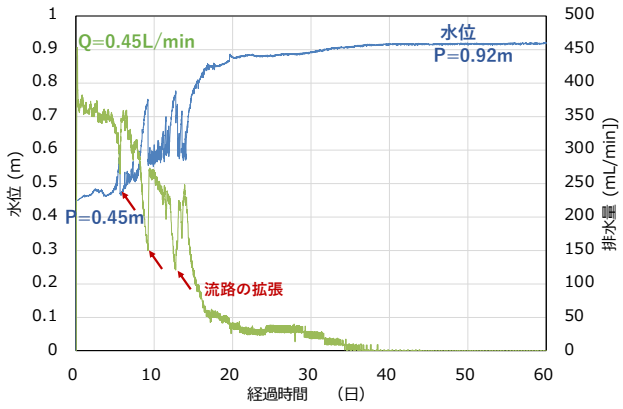


図 2.6-40　原位置試験における緩衝材下部の水位（水圧）と排水量の経時変化
（隙間未充填令和 2 年度：図 2.6-13 再掲）

以上のことから、室内試験（強制注水試験）に基づいたべき乗則モデルを隙間未充填オプションの原位置試験に適用する（流出量評価を行う）には、原位置の環境の違いや評価の不確実性が大きいと考えられ、隙間未充填オプションにおける緩衝材流出の評価方法の見直しが必要と考えられる。

評価方法の見直しに向けて、隙間未充填オプションにおいて“水みちが閉塞する条件”について、以下のように考察した。

・室内試験は一定流量での流出量を測定しているが、原位置試験では図 2.6-40 に示したように、排水量が増減を繰り返して徐々に低下したことから、隙間が充填される過程で発生した水みちが収縮と拡張を繰り返しながら、徐々に細くなり閉塞したものと考えられる。
・原位置での水みちでの地下水の流れは、試験孔周辺の地下水の水位と緩衝材上部の排水位置の水位差が駆動力となると共に、岩盤の透水性などによる湧水量の大小により決まると考えられる。加えて、緩衝材の膨潤による隙間を閉塞する量が流出により損失する量を上回り、また、膨潤圧が水圧を上回るなどによって水みちの閉塞するものと考えられる。
・以上のことから、水みちが閉塞する判断材料（指標）として、処分孔と周辺岩盤の地下水の水位差、加えて湧水量、緩衝材の膨潤挙動に関わる水質などの影響を定量的に計測することにより、緩衝材の流出が停止するか否かを評価できる可能性がある。これらの指標は、原位置で測定可能なパラメータであり、将来の操業段階において管理することができる。

隙間未充填オプションに関するこれまでの検討から得られた知見を以下にまとめる。

・原位置の流出挙動や水みちの閉塞には湧水の挙動や緩衝材の膨潤挙動、表面の状態などの様々な要因が関連している。
・緩衝材表面の乾燥密度の状態は流出のメカニズムの理解には重要であり、流出量評価のモデル化に有益な情報になると考えられる。
・原位置での湧水による流出は、流量一定の室内試験による流出のモデルのみでは表現できない。
・隙間未充填オプションの流出量評価は、緩衝材の膨潤過程の流出量をべき乗モデル以外の方法で評価することが必要である。
・湧水の駆動力は水位差であるため、岩盤との水位差は流出挙動主要な因子と考えられ、流出の停止（隙間の閉塞）は水位差で判断できる可能性がある（ただし、湧水量や水質の影響も関連させる必要がある）。

② ケイ砂充填オプション

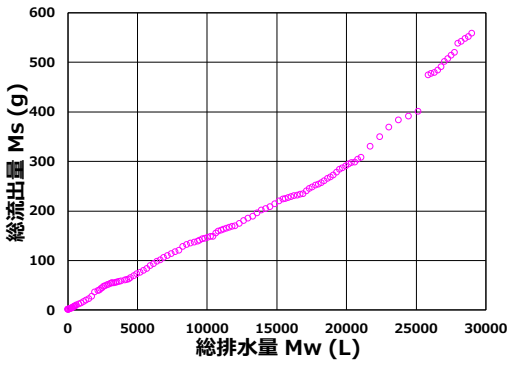
(a) 原位置試験（平成 31 年度実施）

ケイ砂充填オプションの原位置試験は、隙間未充填オプションと同じ試験孔 2 で実施した。緩衝材は隙間未充填と同じものを用い、試験孔の壁面と緩衝材の隙間（平均 20 mm）には 3 号ケイ砂を充填した。本試験より得られた知見を以下にまとめる。

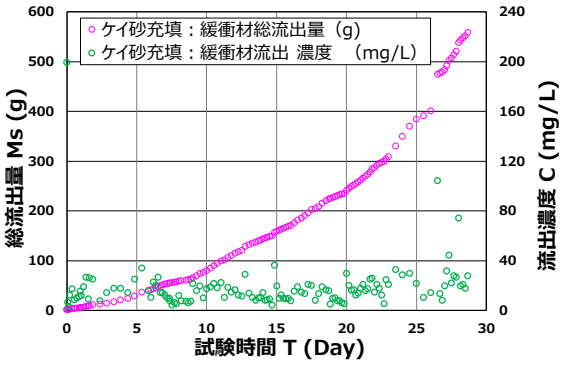
・緩衝材の総流出量 Ms は総流量 Mw に比例して増加する傾向にある。（図 2.6-41(a)）
・流出濃度は経過時間、流量の変化に関わらず低い水準（0～40 mg/L）で推移した。試験開始直後に流出濃度が約 200 mg/L となっているのはケイ砂内の細粒分の影響によるものであると考えられる。また、試験時間 25～30 日の間で 40 mg/L を超えた結果が 3 点見られ、濃度上昇の原因は明らかではないが、原位置地下水の濁度の変化に起因してバックグラウンドが高くなり、吸光光度計による計測値が高くなったことにより、流出濃度が高くなった可能性

がある。（図 2.6-41-(b)）

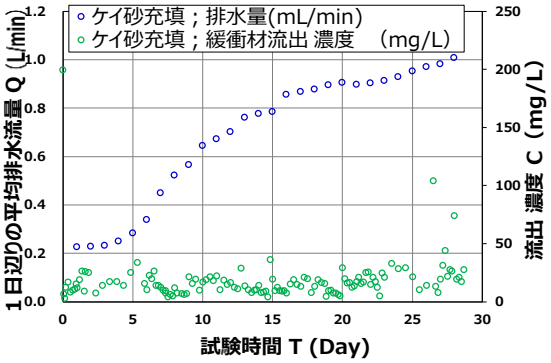
・試験開始前は試験孔からの排水量は 0.3~0.4 L/min、試験開始直後は 0.2 L/min まで低下したが、時間経過に伴い排水量は増加し、試験開始から約 30 日後には約 1.0 L/min となった。この湧水量増加の原因については明らかになっていないが、緩衝材の膨潤圧の上昇に伴い周辺岩盤がひずみ、透水係数が大きくなったことや試験孔 2 に固有となる特性（孔の上部にセメンチング処理が施されていることなど）などが原因となっている可能性がある（図 2.6-41-(c)、(d)）。



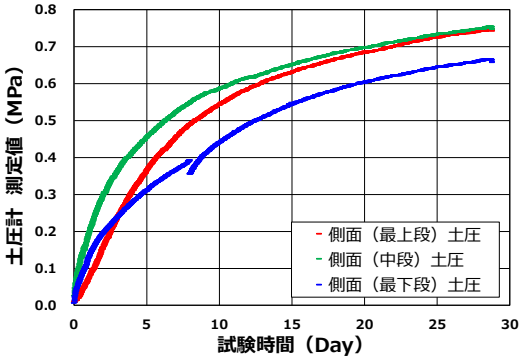
(a) 総流出量 Ms と総流量 Mw の相関図



(b) 総流出量 Ms と流出濃度 C の経時変化



(c) 流量 Q と流出濃度 C の経時変化



(d) 側面に設置した土圧計の経時変化

図 2.6-41　ケイ砂充填オプションに関する原位置試験（平成 31 年度実施）試験結果

(b) 室内試験

令和 2 年度までに実施したケイ砂充填オプションを対象とした室内試験から流出濃度に関する知見を表 2.6-5 にまとめた。各試験の概要は(i)～(iii)に示す。

供試体のサイズ、通水液との接触面積などによって、流出濃度は異なっていると考えられるが、いずれの試験においても流出挙動が定常的となっている期間には、流出濃度は低く、概ね一定で推移した。

表 2.6-5　流出濃度に関する室内試験結果まとめ

試験 （実施年度）	供試体寸法 (mm)	隙間 (mm)	流量 (L/min)	流速* (m/sec)	水質	ケイ砂 号数	最大 流出濃度 (mg/L)	平均 流出濃度 (mg/L)
小型試験 (H31)	φ100×50	5	0.014	1.4×10^{-4}	幌延模擬 地下水	3 号、5 号、 3 号+5 号 の混合	8.53	1.71
工学規模試験 (H31)	φ500×600	20	0.1	4.9×10^{-5}	幌延模擬 地下水	3 号	256	48.7
横置き試験 (R2)	100L×20H ×10W	20	0.002	1.7×10^{-4}	イオン交換水 Na Cl 水溶液	3 号+5 号 の混合	149	29.6

*原位置試験：試験孔の湧水量が 0.4 L/min で緩衝材と孔壁の隙間を流れる地下水の流速は 1.9×10^{-4} m/sec
実規模：処分孔の湧水量が 0.83 L/min（新第三紀堆積岩類の許容湧水量）で緩衝材と孔壁の隙間を流れる地下水の流速は 5.0×10^{-5} m/sec

(i) 小型試験による流出量の確認（平成 31 年度実施）

小型試験装置（図 2.6-42）により、隙間にケイ砂を充填する効果の有無を確認する試験を実施した。通水液は幌延模擬地下水を用い、0.014 L/min で定量注水した。供試体とセルの隙間は 5 mm とし、ケイ砂の粒度の影響も確認するため、隙間に充填するケイ砂は 3 号、5 号、3+5 号の 3 種を用いた。試験結果を図 2.6-43 に示す。流出濃度はどのケースでも 10 mg/L 以下で推移しており、隙間充填したケイ砂の粒度が流出濃度に与える影響は小さかった。

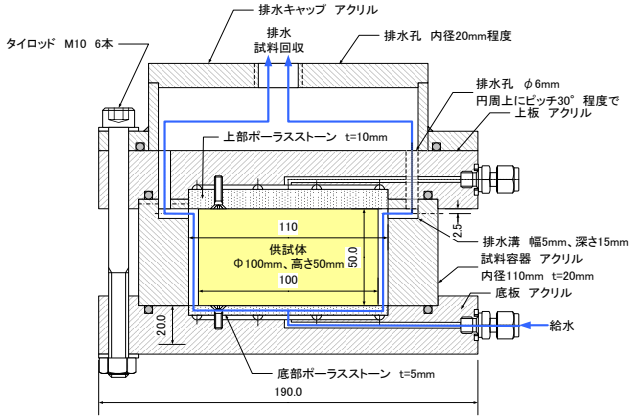


図 2.6-42　小型試験装置

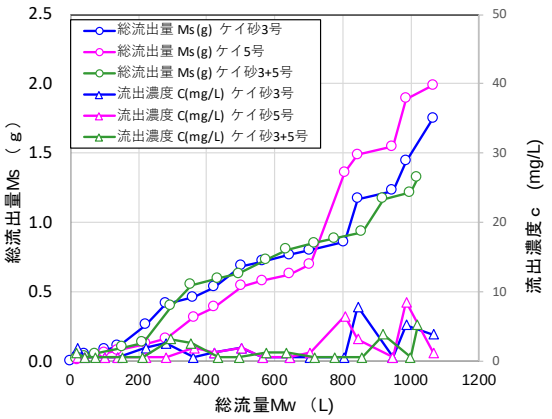


図 2.6-43　小型試験での総流出量と流出濃度

(ii) 工学規模試験によるケイ砂充填試験（平成 31 年度実施）

原位置試験とほぼ同等のスケールの試験装置（図 2.6-44）を用い、試験を行った。供試体のサイズは φ500 mm×H 600 mm であり、供試体とセルの隙間は原位置と同様に 20 mm である。通水液は幌延模擬地下水とし、0.1 L/min で定量通水した。供試体ブロックの乾燥密度は、1.875 Mg/m^3 であり、隙間に充填するケイ砂は 3 号を使用した。

試験結果を図 2.6-45 に示す。試験開始直後に原位置試験同様に流出濃度が大きかったのは通水開始直後にケイ砂の細粒分が流出した影響によるものと考えられる。

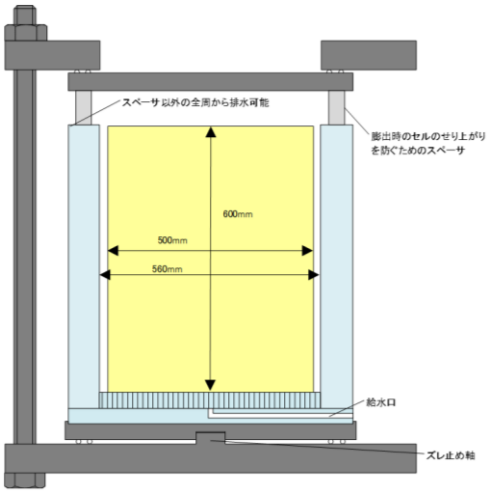


図 2.6-44　工学規模試験装置

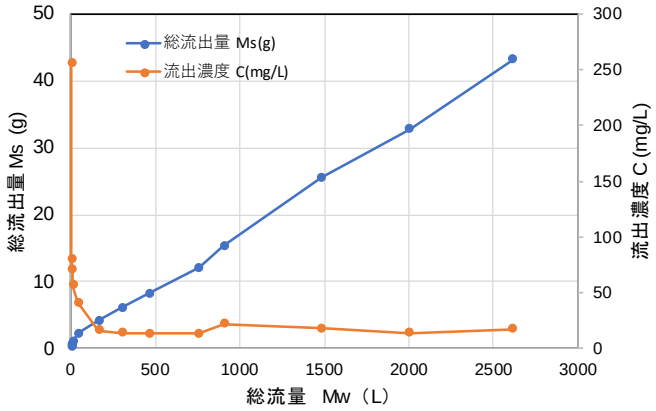
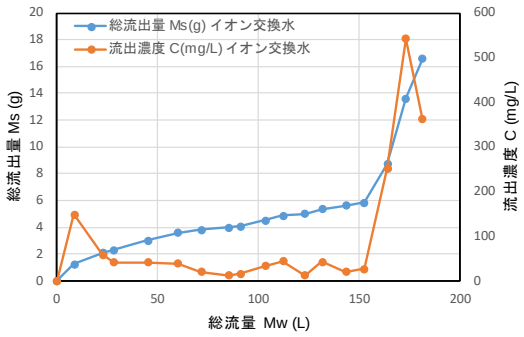


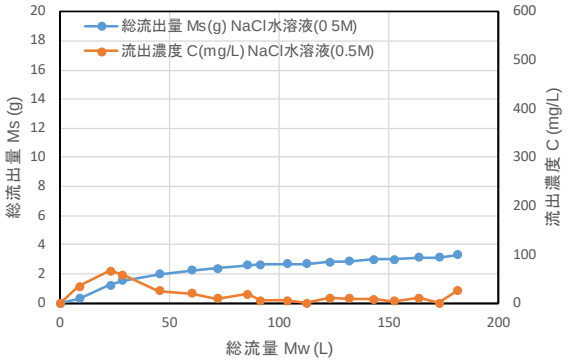
図 2.6-45　工学規模試験での総流出量と流出濃度

(iii) 横置き試験装置での流出試験（令和 2 年度）

令和 2 年度に実施した横置き試験装置での流出試験については付録 B の 2.に詳細を示す。本試験では、一定流量（0.002 L/min）でイオン交換水と NaCl 水溶液（0.5 M）の 2 種類の水質の液を通水し、緩衝材の流出濃度を計測した。図 2.6-46 に総流量に対する総流出量を示す。(a)のイオン交換水を用いた試験では、総流量が 150 L（約 60 日間経過）となった後に濃度が急上昇した。これは供試体端部と試験装置の境界部で生じた乱流の影響により、供試体が局所的に洗堀されたためである（付録 B の 2.を参照されたい）。この現象は試験装置に起因するものであるため、平均濃度、最大濃度は 150 L までの範囲を対象とした。



(a) イオン交換水



(b) NaCl 水溶液（0.5M）

図 2.6-46　横置き試験装置での流出試験の総流出量と流出濃度

(c) 評価方法の検討

ケイ砂充填オプションの評価方法として、NUMO-SC の付属書 4-56 に記載されている「パイピング現象による緩衝材の流出現象の評価」(以後、NUMO-SC 付属書 4-56 とする）を適用し、予測される評価期間中の許容流出量を検討した。

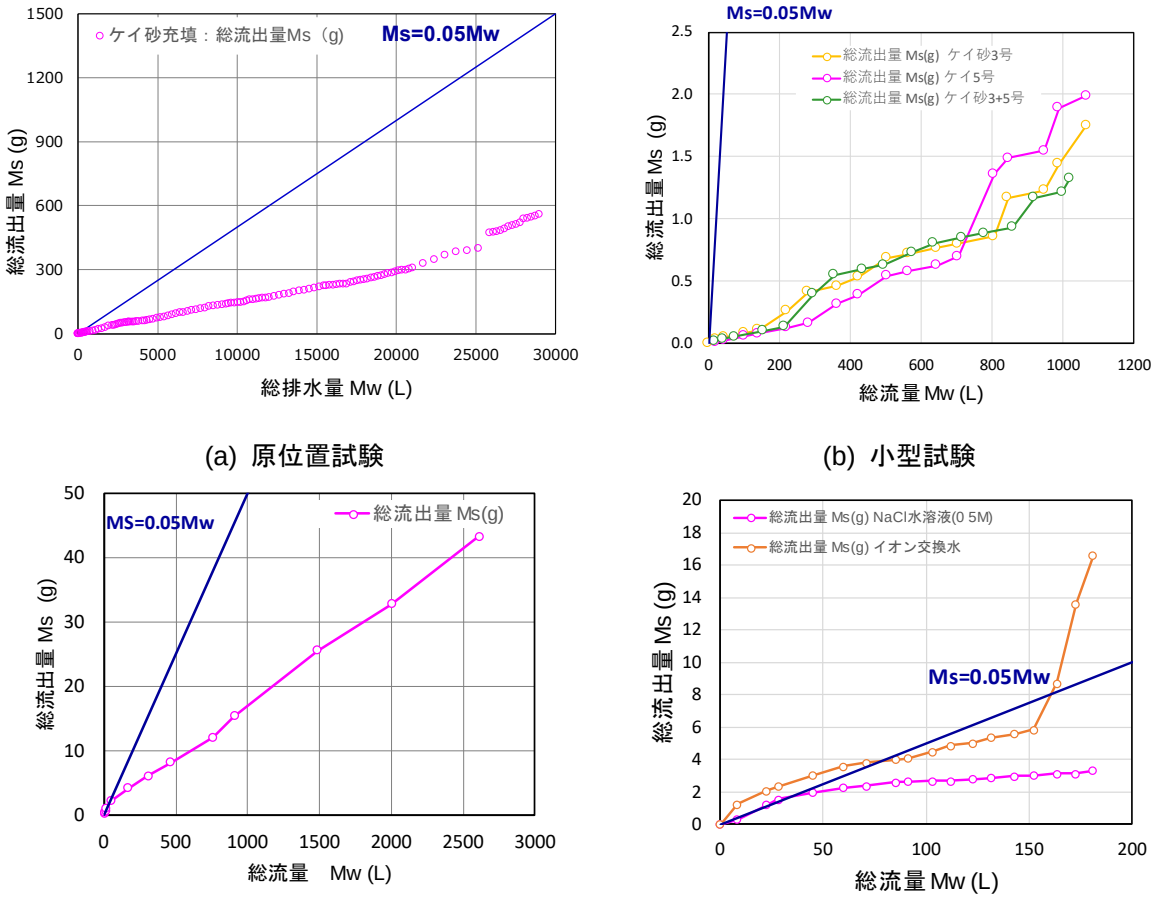
(i) 緩衝材総流出量の予測

平成 31 年～令和 2 年度の室内試験及び原位置試験の成果から、定量精度などに課題は残るも

ののケイ砂充填オプションの流出現象については、流出濃度は 0～50 mg/L 程度で推移する傾向にあることが確認できた（図 2.6-47）。流出濃度 C（mg/L）を評価期間中に一定と仮定すれば、緩衝材の総流出 Ms（mg）は総流量 Mw（L）から以下の式で求められる。

$$M_s = C\sum_{i=1}^{n} Q_i \Delta t_i = CM_w \qquad (2.6\text{-}2)$$

ここで Q_i は期間 i の流量（L/min）、Δt_i は期間 i の間隔（min）である。流出濃度は既往の試験結果を参考にここでは $C = C_{max}$ = 50 mg/L とした。以下に原位置試験と室内試験の試験結果と式 2.6-2 で計算した流出量を比較した。これより予測した流出量が保守的になっていることを確認した。



(a) 原位置試験　　(b) 小型試験

(c) 工学規模試験　　(d) 横置き試験

図 2.6-47　流出量の予測値と試験結果との比較

(ii) 許容流出量の設定

NUMO-SC 付属書 4-56 を参照しつつ、本試験の条件に沿って必要な調整を行い、ケイ砂充填オプションに関する緩衝材流出量（許容流出量）の評価を試みた。NUMO-SC 付属書 4-56 を変更する必要があると考えられる箇所を以下に示す。

・塩水環境での流出も考慮する。

・パイピング現象発生時の隙間領域と緩衝材領域の関係をケイ砂充填オプションの状況に応じ

たものに変更する。
・処分孔からの湧水量に増加の可能性を考慮する。

(iii) 対象とする緩衝材の領域

NUMO-SC 付属書 4-56 では、隙間が充填されていない時に、流出による影響を受ける領域を、流出（パイピング）によって緩衝材が損失して生じる隙間領域（緩衝材の水平断面の円周部分においてレンズ状の形を仮定：NUMO-SC 付属書 4-56 の図 3 参照）の断面積 S_e（m²）と隙間を閉塞するために膨潤することで密度が低下する範囲（隙間領域を含む扇形）の断面積 S_b（m²）と考えている。

一方、隙間にケイ砂が充填されている場合、緩衝材は全周から均一に流出すると考えることができ、密度が低下する範囲は全断面とすれば S_e（m²）と S_b（m²）を対象とすることになり、パイピング現象による緩衝材流出量 m_s（g）は以下のようにモデル化できる。

$$S_b = \{(r - r')^2 - r_{op}^2\}\pi \quad (2.6\text{-}3)$$

$$S_e = \{r^2 - (r - r')^2\}\pi = (2rr' - r'^2)\pi \quad (2.6\text{-}4)$$

$$m_s = S_e \times \rho_{int} \times H_b \times (1 - R_s) \times C_m \quad (2.6\text{-}5)$$

ここで、
S_b：緩衝材領域の断面積（m²）、S_e：隙間領域の断面積（m²）、r: 緩衝材の半径（m）、
r': 流出によって削られる緩衝材の厚さ(流出厚)（m）、r_{op}: 緩衝材の半径（m）、
ρ_{int}：初期の乾燥密度（Mg/m³）、H_b：緩衝材高さ（m）、R_s：ケイ砂混合率（−）
C_m：モンモリロナイト含有率（−）

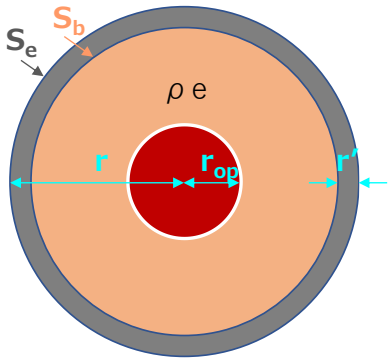


図 2.6-48　流出領域と緩衝材領域の断面積（ケイ砂充填時）

(iv) 自己シール性を確保できる流出量の設定

表 2.6-6、表 2.6-7 を用いて流出によって削られる緩衝材の厚さ（以後、流出厚とする）から流出量及び最大膨潤率／隙間体積比を求めた（表 2.6-8）。これより、緩衝材の自己シール性を確保できる（$\varepsilon/\theta \geqq 2$ となる）、処分孔 1 本当たりの流出量は、淡水条件では 2.28 Mg（r'= 0.16 m）、塩水条件で 0.17 Mg（r'= 0.011 m）と算出された。

表 2.6-6　最大膨潤率と隙間体積比

	淡水	塩水	参考
緩衝材の最大膨潤率 e (%)	176	5	NUMO-SC 付属書 4-56 図 4
水みちが形成された時の間隙体積比 q (%)	$\theta = \frac{S_e}{S_b - S_e} \times 100$		NUMO-SC 付属書 4-56 式(7)
最大膨潤率/隙間体積比 e/q (-)	$\frac{\varepsilon}{\theta} = \frac{\varepsilon(r^2 + 2r'^2 - 4rr' - r_{OP}^2)}{2rr' - r'^2}$		NUMO-SC 付属書 4-56 式(8) 式 2.6-3 式 2.6-4

表 2.6-7　流出量及び最大膨潤率／隙間体積比の算出に使用したパラメータと数値
（NUMO-SC 付属書 4-56 から引用）

名称	記号	単位	数値	備考
初期緩衝材密度	r_{ini}	Mg/m^3	1.6	緩衝材仕様
処分孔の半径	r_b	m	1.11	緩衝材仕様
オーバーパック半径	r_{op}	m	0.41	オーバーパック仕様
人工バリア高さ	H_b	m	4.15	緩衝材仕様
ケイ砂混合率	R_s	-	0.3	付属書 4-15（NUMO-SC）
ケイ砂の土粒子密度	r_s	Mg/m^3	2.64	佐藤ほか（1990）
モンモリロナイト含有率	C_m	-	0.48	電事連･JNC（2005）

表 2.6-8　流出厚、流出量及び最大膨潤率/隙間体積比の関係
（上：淡水条件、下：塩水条件）

流出厚（r'[m]）	緩衝材流出量（m_s [Mg]）	最大膨潤率/隙間体積比（e/q [-]）
0.10	1.46	5.11
0.15	2.13	2.38
0.20	2.76	1.01

流出厚（r'[m]）	緩衝材流出量（m_s [Mg]）	最大膨潤率/隙間体積比（e/q [-]）
0.010	0.152	2.25
0.011	0.167	2.04
0.012	0.182	1.86

(v) その他の設計を確保できる流出量の設定

基本的な設計要件に対する緩衝材の仕様範囲は、NUMO-SC の付属書 4-56 より、淡水条件の下限として「コロイドろ過能を有する下限（有効粘土密度が 0.8 Mg/m^3 以上（平均乾燥が 1.0 Mg/m^3 以上））」とする。塩水の場合は、「自己修復性を有する下限（有効粘土密度が 1.18 Mg/m^3 以上（平均乾燥が 1.42 Mg/m^3 以上）（NUMO-SC 付属書 4-15 参考））」とする。

図 2.6-48 で示した領域を対象とした、局所的な領域の密度（平均乾燥密度）の変化は以下の式で表すことができる（NUMO-SC 付属書 4-56 の式(8)）。

$$\rho_e = \rho_{int} \times \left(1 - \frac{S_e}{S_b}\right) \qquad (2.6\text{-}6)$$

上式と表 2.6-7 を用いて流出厚、流出量及び最大膨潤率/隙間体積比を求めた（表 2.6-9）。これより、淡水条件では、コロイドろ過能を確保できる（ρ_e≧1.0 Mg/m^3）処分孔 1 本当たりの流出量は 1.95 Mg（r'= 0.14 m）、塩水条件では自己修復性を確保できる（ρ_e≧1.42 Mg/m^3）処分孔 1 本当たりの流出量を 0.723 Mg（r'= 0.048 m）と算出された。

表 2.6-9　流出厚、流出量及び平均乾燥密度の関係（上：淡水条件、下：塩水条件）

流出厚（r'[m]）	緩衝材流出量（m_s[Mg]）	平均乾燥密度(r_e[Mg/m^3])
0.1	1.45	1.19
0.15	2.13	0.919
0.2	2.78	0.58

流出厚（r'[m]）	緩衝材流出量（m_s [Mg]）	平均乾燥密度(r_e[Mg/m^3])
0.01	0.152	1.57
0.05	0.75	1.41
0.1	1.46	1.19

(vi) 淡水条件と塩水条件それぞれの許容流量の設定

前述した検討結果に基づき、緩衝材が流出した際に緩衝材の設計要件を全て確保するために許容できる処分孔 1 本当たりの緩衝材の質量を以下のように設定する。

・淡水条件：1.95 Mg（コロイドろ過能を確保できる下限値より）
・塩水条件：0.17 Mg（自己シール性を確保できる下限値より）

(vii) 許容湧水量の設定

許容湧水量を設定するために前項で設定した許容流出量と式 2.6-2 から処分孔 1 本当たりの湧水の総流量の上限値を求める。

・淡水条件：$1.95\times10^9 / 50 = 3.9\times10^7$（L）
・塩水条件：$0.17\times10^9 / 50 = 3.4\times10^6$（L）

これらを岩種ごとの評価期間で総流量と処分孔からの湧水量の最終的な増分率（γ）で割ると許容湧水量は表 2.6-10 に示す値となる。

ここで、処分孔からの湧水量の最終的な増分率 γ は初期の処分孔からの湧水量が増加する可能性を考慮したものである。原位置試験ではケイ砂充填時には初期の湧水量よりも約 5 倍まで増加しており、この場合、γ＝5とすれば保守的に評価される。ただし、湧水量が増加する原因や評価方法の検証が必要である。

表 2.6-10　許容湧水量（試算）

岩種	深成岩 （評価期間 299 日）	新第三紀堆積岩類 （評価期間 284 日）	先新第三紀堆積岩類 （評価期間 459 日）
淡水条件の湧水量 (L/min)	90.6/γ	95.4/γ	59.0/γ
塩水条件の湧水量 (L/min)	7.90/γ	8.31/γ	5.14/γ

ケイ砂充填オプションに関するこれまでの検討から、評価方法に関して得られた知見を以下にまとめる。

・流出濃度は、湧水量の増加にかかわらず低い濃度を維持する。総流出量を定量的に予測できる可能性があり、それにより NUMO-SC の評価手法にならって許容湧水量で評価ができる可能性がある。
・原位置試験では、湧水量が徐々に増加する傾向を示した。原因は今後確認する必要があるが、

増分率を設定することにより、許容湧水量を評価することを考えた。

・表 2.6-10 に示した許容湧水量は、現時点までの試験の結果による試算である。これによれば、NUMO-SC で示されている許容湧水量に比べ、より大きい湧水が許容される結果となった。これは、ケイ砂充填による流出量の抑制と流出挙動が隙間未充填の場合と異なることにより、許容流出量の算出方法が変わったためであると考えらえる。この値については、今後試験を重ね、精査する必要がある。

③ ペレット充填オプション

(a) 原位置試験

ペレット充填オプションの原位置試験は、幌延 URL 地下 350 m の試験坑道 5 における試験孔 3 で実施された（原子力環境整備促進･資金管理センター, 2018b）。湧水条件は自然湧水（約 0.4 L/min）、及び定量注水（0.1 L/min）である。緩衝材ブロックは隙間未充填の原位置試験と同様であり、ペレットはベントナイト 100%の φ4 mm と φ0.3 mm の球形のものを質量比 1：1 で混合して用いた。

ペレットの隙間への投入は試験孔の湧水をポンプでくみ出しながら行ったが、孔壁が濡れているため、投入直後に浸潤と膨潤が起こり、自然落下での投入の際に孔壁に接触してその場に留まることや、ペレットがすぐに膨潤してかさ密度が増加するなどの理由から、投入量は隙間に均質に充填した場合の 57wt%となった。そのため、湧水環境でのペレットの充填施工は、施工時の膨潤を抑え、均等に充填するための施工方法を考える必要がある。また、ペレットについても粒径、形状の設定や表面加工したペレットを使って膨潤を遅らせるなどの方策もあり得るため、多様な仕様バリエーションから適切に仕様を設定する必要がある。

緩衝材の流出抑制効果は、試験後の緩衝材の含水比と乾燥密度によれば、表 2.6-11 に示すように、ペレットを充填した場合、隙間未充填の場合と比較して水が緩衝材ブロック内への浸潤を抑制する効果がある。緩衝材の飽和と流出はペレット部で先行して起こり、ペレットが緩衝材ブロックの流出を抑制するという結論が得られている。

表 2.6-11　試験前後の緩衝材ブロックの状態と乾燥密度
（原子力環境整備促進･資金管理センター, 2018b）

<table>
<tr><td rowspan="2" colspan="2">緩衝材ブロック
(上から 3 段目)</td><td></td><td>孔壁と試験体の隙間</td><td colspan="3">緩衝材ブロック部</td></tr>
<tr><td>孔壁からの距離</td><td>2 cm</td><td>2 cm</td><td>1 cm</td><td>残り（≒13.5 cm）</td></tr>
<tr><td rowspan="2" colspan="2">試験前</td><td>緩衝材
[状態]</td><td>隙間又は
ベントナイト
ペレット</td><td colspan="3">緩衝材
[Dry]</td></tr>
<tr><td>乾燥密度</td><td></td><td colspan="3">1.9 Mg/m^3</td></tr>
<tr><td rowspan="4">試験後</td><td rowspan="2">Case4</td><td>緩衝材
[状態]</td><td>ベントナイト
ペレット
[Wet]</td><td>ベントナイト
ペレット
[Wet]</td><td colspan="2">緩衝材
[Dry]</td></tr>
<tr><td>乾燥密度</td><td>1.6 Mg/m^3</td><td>1.5 Mg/m^3</td><td colspan="2">1.8 Mg/m^3</td></tr>
<tr><td rowspan="2">Case3</td><td>緩衝材
[状態]</td><td colspan="2">緩衝材
[Wet]</td><td>緩衝材
[Dry]</td></tr>
<tr><td>乾燥密度</td><td>1.5 Mg/m^3</td><td colspan="2">1.7 Mg/m^3</td><td>1.7 Mg/m^3</td></tr>
</table>

注）[Dry]は含水比 20%以下

(b) 室内試験

原位置試験と同規模（工学規模）なペレット充填オプションに関する室内試験によって、流出挙動が確認されている（原子力環境整備促進･資金管理センター, 2017）。

ここで使用されているセルは、φ500×600 mm。供試体とセルの間の隙間は 30 mm のリング状であった。通水流量は 0.1 L/min で、イオン交換水を用いた。隙間に最大粒径 20 mm 程度のペレットを均質に充填し、ペレット部の乾燥密度は 1.469 Mg/m^3 であった。

注水開始後初期から発生した水みちは、不規則に様々な箇所に移動したが、最終的には、給水箇所から上向きに最短距離の排水箇所に向かって形成された（図 2.6-49 参照）。また、水みちは非常に細く、注水圧は隙間未充填の試験に比較して高めであった。

図 2.6-50 には、総流量と総流出量の関係を示す。図には同じ試験装置での隙間未充填オプションも併せて示している。また、既往の小型セルにペレットのみを充填したケース、及び隙間未充填の流出試験で得られた総流量と総流出量の関係の近似線も図中に示した。隙間にペレットを充填した場合は、未充填の場合に比べて隙間の容積が小さいために、少ない注水量でペレットからの流出が始まったが、浸潤する水の量が多く排水が得られるまでの注水量が多くなり、プロットは右にシフトし、流出量も多くなったと考えられる。総流出量と総注水量の関係においてはペレット充填オプションの勾配の方が緩くなっており、原位置での施工性に課題はあるものの、長期的には緩衝材の流出抑制対策として期待できる可能性が示唆された。

図 2.6-49　ペレット充填による流出試験の水みち形成状況（原子力環境整備促進･資金管理センター, 2017）

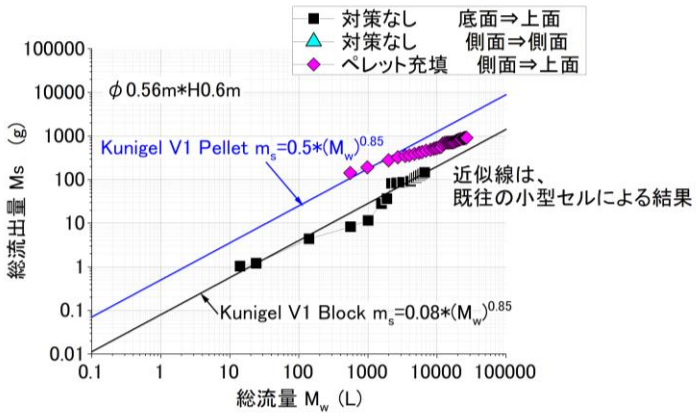


図 2.6-50　ペレット充填での総流出量と流出濃度の関係（原子力環境整備促進･資金管理センター, 2017）

ペレット充填オプションに関するこれまでの検討から得られた知見を以下にまとめる。

- 試験孔の孔壁が湧水により濡れている場合は、隙間へのペレットの均質な充填は難しく、施工面での改善が必要である。
- 湧水により隙間に充填したベントナイトペレットが先行して浸潤し、緩衝材ブロックの浸潤及び流出が抑制される（ペレットは流出する）と考えられる。
- ペレットを隙間に充填した場合の室内試験における注水量に対する流出量は、隙間未充填オプションと比較すると初期に多いが長期的には少ない傾向であり、流出抑制効果が期待できる可能性がある。

(c) SKB の知見

SKB の竪置きブロック方式の緩衝材の定置方法は、隙間にペレットを充填するものである。ペレットが充填された場合の流出について、SKB ではこれまでに多数の流出試験が実施されてきた（Sandén et al., 2008 など）。これらの試験では異なる材料、流量及び流動長さが使用されているが、いずれの試験も水平方向の流動を対象とするものであった。最新の追加試験が、主としてペレット充填中の定置孔において鉛直方向に起こる流出をシミュレーションする目的で実施されている（Sandén and Börgesson, 2010）。これらの試験に基づき、指数関数的な流出のモデルが提案されている（Sandén et al., 2008；Sandén and Börgesson, 2010）。

SKB にこれらの試験についてのヒアリングをし、以下のような回答を得た。

“処分孔からの流出、また場合によってはある程度までプラグを通じて外部に至る流出は、かなりの程度までその流出を引き起こす水の総量の関数である。湧水量が多く水圧も高い環境下では、その水はまず、相当量の水が緩衝材ブロックに吸収される前に、充填されたペレット内の間隙を満たすことになる。これは、定置後初期の状態では、ブロックの非常に低い透水係数によってブロックに水が浸潤する速度が制限されており、ペレット充填部には水の流動抵抗が存在していないためである。したがって、充填されたペレットの間隙の容積は重要なパラメータの一つである。ブロック内の空隙も関連性の高いパラメータとして挙げることができ、坑道内への総流入量が比較的少ない場合、ブロック内の空隙を無視することはできない。”

SKB の知見は、ペレット充填の場合に、べき乗モデルでの評価ができる可能性があることを示唆しおり、また、ペレットの選定、充填方法には、間隙をできるだけ小さくすることが条件として加えられることが明白である。

4) 令和 3～4 年度の研究計画の策定

隙間未充填オプションに関するこれまでの検討成果の整理で述べたように、一定流量の室内試験結果によるべき乗則モデルによる原位置試験の流出量の定量評価には不確実な点があることから、評価手法の見直しあるいは別の評価指標を導入する必要性が示された。

そこで、本事業では流出対策に関する施工オプション（隙間未充填、ケイ砂充填、ペレット充填）について、処分孔の湧水などの環境条件に応じて施工オプションを選択できるように適用範囲の判断に資する流出特性に関する情報を整備することとし、令和 3～4 年度の研究計画を策定した。

① 緩衝材の流出現象に留意した施工オプション整備の考え方

これまでの試験結果の整理により、施工オプションごとに流出挙動が異なることが明らかとなった。そのため、単一の評価方法を適用するのではなく、湧水に対する施工オプションごとの挙動及び適用範囲を明らかにして整理することによって、施工方法の選択に資する情報を整備する。

施工オプションの例と処分孔の環境条件に応じたオプション選択のイメージを図 2.6-51（図 2.6-1 再掲）に示す。施工オプションの選択は、流出以外の観点も踏まえて総合的に行われるべきものと考えられるが、ここでは、流出に対する対策を観点として、処分孔で測定可能な湧水量、処分坑道と周辺の水位差、水質などの情報に基づいた選択ができるように評価指標と適用範囲を整備する。水位に対しての流出の有無を図 2.6-52 に示す。水位が処分坑道の底盤以下にあれば、緩衝材は処分孔から外には持ち出されず、処分孔内の緩衝材の量が減らないため、流出はないと判断される。しかし、水位が底盤よりも上にある場合に湧水は処分孔外に排水されるため、排水に含まれる緩衝材は処分孔外に運ばれ、緩衝材の量が減少する。ただし、水位が底盤より高い場合において、水位差と膨潤性（膨潤圧、膨潤量など）との関係によって隙間充填後の排水の停止、

流出の停止に至る場合もあることが本年度の原位置試験で明らかとなっている。また、膨潤性能は水質にも影響を受ける。そのため、水位差、水質は評価指標の重要な要素と考えられる。

なお、施工オプションの整備にあたっては、流出を考えるべき期間において、最悪のシナリオを考慮した施工オプションの成立性、可能な限り施工の手間を省いた実現性のある施工、及び湧水量など地下環境に即した施工などに留意をして進めるものとする。また、例えばケイ砂充填オプションの閉鎖後長期の安全評価における影響などは、施工オプションの選択における総合的な評価を行う上で重要な項目であるため、流出対策としての成立性などの見通しが得られれば、安全評価面での影響などの確認も進めていくものとする。

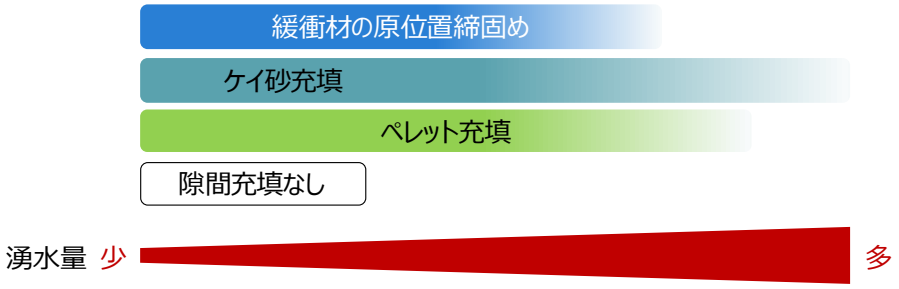


図 2.6-51　処分孔の湧水環境に応じた緩衝材の施工オプション適用のイメージ（図 2.6-1 再掲）

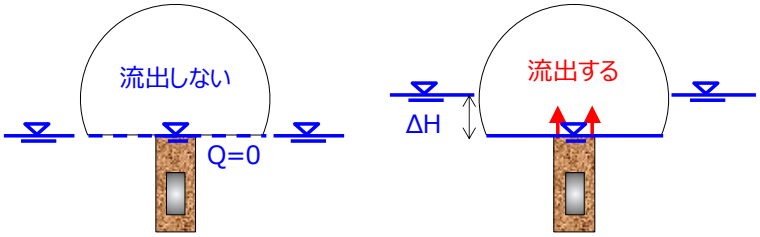


図 2.6-52　水位差に対する流出の有無

② 施工オプション整備の検討フロー

緩衝材の施工オプションに関する整備の検討フローを図 2.6-53 に示す。隙間未充填オプションを優先して整備することとし、ケイ砂充填オプションについてもこれまでの成果により評価指標案を整備し、ペレット充填は、ペレットの仕様や施工性などの明確化及び評価指標に関する机上検討から進めるものとする。

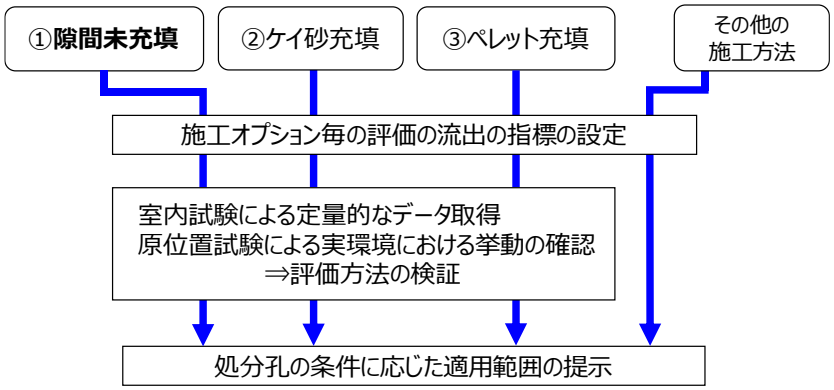


図 2.6-53　緩衝材の流出の関する施工オプションの整備に関する検討フロー

③ 施工オプション選択のための評価指標案の設定

(a) 隙間未充填オプション

隙間未充填オプションは、処分孔と周辺岩盤の水位差が駆動力となる湧水に対して緩衝材が膨潤し、水みちを閉塞すれば、施工オプションとして十分に適用可能と考えられる。よって、処分孔の周辺岩盤との水頭差などの環境条件を評価指標とし、水みちが閉塞可能な条件を設定し、オプションの選択の可否を判断する。なお、水みちが閉塞するまでの緩衝材の流出量が、許容流出量以下であることが必要であるため、何らかの方法により確認するものとする。水みちの閉塞に関連するパラメータはこれまでの検討から以下のものが関連すると考えられることから、優先順位を設けて影響を確認し評価手法に加えていくものとする。

・処分坑道と坑道周辺の水位差（水頭差）
・流水量（処分孔壁からの流量、岩盤の透水性）
・水質（イオン強度）
・緩衝材密度
・処分孔壁面の形状
・隙間幅、供試体高さ（スケール）

(b) ケイ砂充填オプション

ケイ砂充填オプションは、これまでの成果の整理により、緩衝材の流出濃度は、流量に関わらずある程度の低い状態を維持することが明らかになっている。よって、緩衝材の流出上限濃度を設定し、“流出上限濃度と評価期間の湧水量との積” などにより算定する緩衝材流出量を評価指標として許容流出量を下回ることでオプション選択の可否を判断する。

(c) ペレット充填オプション

ペレット充填オプションの評価指標は、今後、ペレットの仕様設定及び施工性改善の見通しを確認しつつ、流出挙動の現象理解に基づき評価指標の策定を進める。ペレットの流出挙動は、隙間未充填の緩衝材と類似した評価が可能と考えられるが、ペレットの流出によって緩衝材の流出が抑制されることから、ペレットの流出量のみで評価するか、ブロック部の流出も許容するかなど、評価の考え方に関する検討から着手する必要がある。

④ 目標と課題の設定と方策

(a) 隙間未充填オプション

隙間未充填オプションの検討の目標は、水みちが閉塞する条件と主な環境要因（水位差、湧水量、水質など）との関連の把握、評価指標の提示とした。閉塞条件の定量的な把握を課題として、室内試験により進める。ジェネリックな環境での評価手法の整備を考慮し、まずイオン交換水で定量的に把握して評価方法や指標の枠組みを示すこととする。加えて、評価指標の提示に向けて、評価指標の妥当性の確認のための実環境での流出挙動の現象把握（自然湧水及び強制注水）、及び緩衝材表面での水みちの残存（或いは形成）や流出挙動の現象理解を課題とした室内試験を実施するものとする。

また、本オプションの選択に係る評価において、閉塞するまでの緩衝材の流出量の確認が必要であるが、これまでの試験結果によれば、流出量の確からしい定量評価（流出量のモデル化）には課題が多い。そのため、水みちの閉塞条件及び現象理解などの試験で流出量の測定などを行い、得られた現象論的な試験データから定量的な解釈を試みる。

(b) ケイ砂充填オプション

ケイ砂充填オプションの検討の目標は、流出量評価の基盤となる情報を整備し、許容流出量を設定する評価手法の提示とする。流出濃度を低く維持できる湧水量の範囲を定量的に把握することを課題とし、室内試験を主体として取り組む。実環境（原位置）においても流出濃度を比較的低く維持する現象の継続性の確認が必要であり、併せて、施工オプションとしての成立性を明確にするために、平成 31 年度の原位置試験で課題となった湧水量の増加に関して原因調査を行い、緩衝材乾燥密度（膨潤圧）の影響確認などの原位置試験を計画して実施するものとする。その際、期間 1 を対象とした試験に加え、期間 2 を想定した湧水量が増加した場合の緩衝材の流出濃度の変化を把握するための注水試験も実施する。加えて、流出抑制効果と評価方法の妥当性の確認のために、緩衝材表面や隙間に充填したケイ砂内での流出挙動を室内試験で把握する。

(c) ペレット充填オプション

ペレット充填オプションに関する目標は、ペレットの仕様の提示、施工性及び流出挙動の把握、評価指標の策定とする。そのためには、まず、湧水環境下（孔壁が湿潤している状態）におけるペレットの均質な充填のための仕様の選定、施工方法の具体化が必要である。これらの検討に基づき、施工性、流出挙動の把握と評価指標案の適用性確認や、原位置での施工性確認、流出挙動の現象理解を進めることが必要である。

⑤ 試験計画の概要

(a) 隙間未充填オプション

(i) 閉塞条件の確認試験（室内試験）

孔内湧水が止まる（水みちが閉塞する）条件を把握することを目的に、室内試験でデータ取得し、定量的な情報を整備することとする。水みちの閉塞に関連するパラメータは前述の評価指標の設定で述べた通り多数想定されるが、原位置で測定可能なパラメータである水位差と流量を優先的な試験パラメータとして、室内試験と原位置のスケールの差にも留意しつつ試験データを取得し、水みちの閉塞の評価方法を明らかにする。各パラメータの試験概要を表 2.6-12 に、水位差を考慮した試験方法を図 2.6-54 に例示する。

表 2.6-12　閉塞条件の確認試験の概要（隙間未充填）

パラメータ	試験概要
水位差	・閉塞する閾値となる水位差を把握する。 ・閉塞までの流出量が許容される範囲であるか見積もれるように、閾値となる水位差での流出量を確認する。
流量（湧水量）	・水位差による閉塞に対し、流量の影響を把握する。
スケール（流路長）	・試験系のスケール（流路長さ、全体縮尺スケール、緩衝材径方向深さなど）をパラメータとした試験から閉塞条件（水位差）のスケール依存性を確認し、実規模での流出評価方法へ反映する。

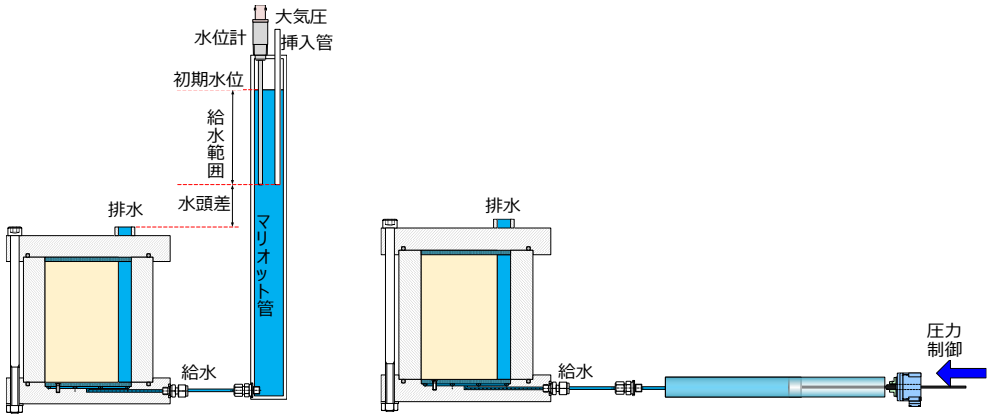


図 2.6-54　閉塞条件の確認試験の試験装置の例（隙間未充填）

(ii) 実環境での流出挙動把握試験（原位置試験）

幌延 URL の試験孔に模擬緩衝材ブロックを定置して実環境での隙間未充填での流出挙動を把握することとする。緩衝材の流出量の経時変化の挙動について、湧水量（排水量）、周辺水位、緩衝材下部での水頭、緩衝材の膨潤圧などの関連を確認しつつ流出試験を実施する。令和 3 年度は、これまでの原位置試験よりもさらに湧水が多い環境での試験を実施する予定である。自然湧水による試験の後に、期間 2 を想定した注水試験も実施し、周辺岩盤の水位の上昇とそれに伴う湧水量が増加した場合における流出挙動に関する参考情報を得る。

(iii) 流出挙動の現象把握試験（室内試験）

緩衝材の表面及び隙間での流出に関わる挙動を把握することを目的として、可視化したセルなどを用いた流出試験を実施する。膨潤による密度変化、流出が起こる界面の密度を、X 線 CT などを用いて測定して現象理解を進める。

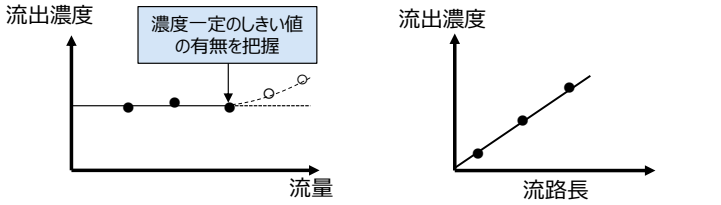
(b) ケイ砂充填オプション

(i) 緩衝材流出量の予測モデル整備に向けた試験（室内試験）

ケイ砂充填オプションにおける流出量評価の構築にあたり、流出濃度が低く維持される湧水量の範囲を把握することを目的とし、室内試験でのデータ取得により定量的な情報を整備する。試験のパラメータと概要を表 2.6-13 に示す。流量を主なパラメータとし、原位置及び実規模の評価を考慮して、スケールの影響についても把握する。本試験により整備するデータの概要を図 2.6-55 に示す。

表 2.6-13　緩衝材流出量の予測モデル整備に向けた試験の概要（ケイ砂充填）

パラメータ	試験概要
流量	・試験方法は閉塞確認試験（前頁）と同系統で行う。 ・流出濃度と流出濃度が流量に依存しない（低い濃度を維持する）閾値を把握する。
スケール（流路長）	・（隙間未充填オプションと同様）
（水質）	・令和 2 年度の試験で通水液が塩水の場合の方が、流出量が少なくなることを確認。淡水（イオン交換水）を主に今後の試験は行う。



流出濃度と流量の関係　　**流出濃度に関するスケール効果**

図 2.6-55　試験により整備するデータの概要

(ii) 湧水量の増加に関する原因の調査

平成 31 年度のケイ砂充填オプションの原位置試験で湧水量が増加した原因について調査するための試験を実施する。緩衝材の膨潤により試験孔周辺の岩盤へ圧力がかかり、透水性が変化したことにより湧水量が増加した可能性があるため、図 2.6-56 に示すように、パッカーなどの圧力を変えて試験孔から岩盤へ載荷し、湧水量の変化を確認するなどの試験を実施する。

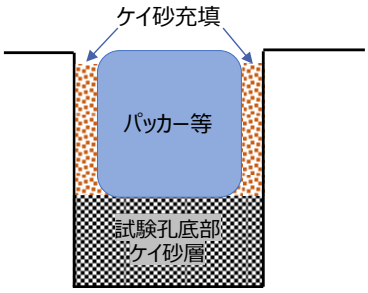


図 2.6-56　排水量増加の原因の調査に関する試験の概要

(iii) 実環境での流出挙動把握試験（原位置試験）

上記の湧水量の増加に関する原因の調査結果を踏まえ、ケイ砂充填オプションについて、長期的に流出濃度が低く推移するか否かの確認、施工オプションとしての有効性及び現象理解を目的として、幌延 URL の試験孔で長期的な流出試験を実施する。なお、隙間未充填オプションと同様に平成 31 年度の原位置試験よりも湧水量の多い試験孔での実施を検討する。試験計画の概要を表 2.6-14 に示す。

また、試験の実施により湧水量の増加原因が緩衝材の膨潤圧による岩盤への影響と確認された場合は、緩衝材ブロックの乾燥密度を 1.6 Mg/m³（平成 31 年度は 1.9 Mg/m³）で試験を実施し、膨潤圧を下げた場合の挙動を確認するとともに、緩衝材の密度を下げることによる合理化の可能性についても検討する。さらに、自然湧水による試験の後に、期間 1 及び 2 の湧水量増加による適用範囲の傾向を確認するために注水による試験も実施する。

表 2.6-14　実環境での流出挙動把握試験の概要（ケイ砂充填）

パラメータ	試験概要
流出濃度	・流出濃度の測定精度を上げ、低濃度で概ね一定となっていることを確認 ・強制注水試験で流量を大きくした際に流出濃度に与える影響確認
排水量 水位差	・ケイ砂充填時の排水量、水位差の挙動を確認する ・総流出量と総流量（総排水量）の把握
土圧	・膨出挙動に関するデータの取得

(iv) 流出挙動の現象把握試験（室内試験）

緩衝材の表面及びケイ砂充填部における流出挙動を把握することを目的として、可視化したセルなどを用いた流出試験を実施する。なお、前記 (i) の室内試験と兼ねた試験として進めるなど、効率的に試験を進める。

(c) ペレット充填オプション

これまでのペレット充填による流出抑制に関する結果と課題をもとに、ペレットの仕様や施工方法の改善策の検討、並びに緩衝材の流出抑制効果の確認を行う。

検討手順としては、最初にペレットの仕様（粒度、コーティング有無など）を整理し、室内試験による施工性などの確認や事業者ニーズなども把握したうえで試験計画を立案する。

(d) 膨出対策の検討

処分孔に定置した緩衝材が地下水による浸潤に伴い膨潤し、処分孔から上部の処分坑道側へ膨出する懸念がある。今後の膨出対策の検討に資するために、(a)の(ii)項及び(b)の(iii)の原位置での流出試験において処分坑道側への緩衝材の膨潤圧を計測する。計測方法は図 2.6-12 に示したように、試験装置上部に荷重計を設置し、流出試験の期間に計測を実施する。

⑥ 実施スケジュール

緩衝材の流出に関する施工オプション整備に向けた令和 2～4 年度の 3 年間の試験スケジュールを表 2.6-15 に整理する。

表 2.6-15　3 年間の試験スケジュール（流出を抑制する工学的対策の具体化）

	令和２年度	令和３年度	令和４年度
①隙間未充填オプション	**[室内]** ・流出挙動の影響要因現象把握試験 **[原位置]** ・実環境での流出挙動把握試験(長期・強制注水・膨出)	**[室内]** ●閉塞条件の確認試験 ●流出挙動の現象把握試験 **[原位置]** ●実環境での流出挙動把握試験（湧水量の影響・強制注水・膨出）	**[室内]** ●閉塞条件の確認試験 ●流出挙動の現象把握試験 **[原位置]** ----→
②ケイ砂充填オプション	**[室内]** ・流出挙動の影響要因・現象把握試験	**[室内]** ●緩衝材流出量の予測モデル整備に向けた試験 ●流出挙動の現象把握試験 **[原位置]** ●湧水量の増加原因の確認試験	**[室内]** ●緩衝材流出量の予測モデル整備に向けた試験 ●流出挙動の現象把握試験 **[原位置]** （湧水量増加の確認試験、室内試験の成果を鑑み実施を検討）
③ペレット充填オプション	－	**[机上検討]** ●ペレットの仕様選定の検討	(ペレット充填の施工性/流出挙動確認試験)

(2) 緩衝材の飽和プロセスを対象とした解析的な評価方法の検討

1) 実施概要

本検討に関する成果と課題の概略は、2.6.1 項(1)背景で示した。以下に平成 31 年度までに抽出した課題を示す。

・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。

・平成 31 年度の解析で得られた結果は、これまでの室内試験結果の膨潤速度を再現できていない。より現実的な評価を行うためには、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、調整可能なパラメータを適切に選択・調整しつつ解析手法の高度化を図る必要がある。

これらの課題に基づき、実規模スケールでの地下水の緩衝材への浸潤に伴う緩衝材の膨潤による孔壁との隙間の充填、その後の再冠水完了までの緩衝材内の応力再分配と乾燥密度変化を予測する解析手法に関して、図 2.6-57 に示すように検討・開発を段階的に進める。

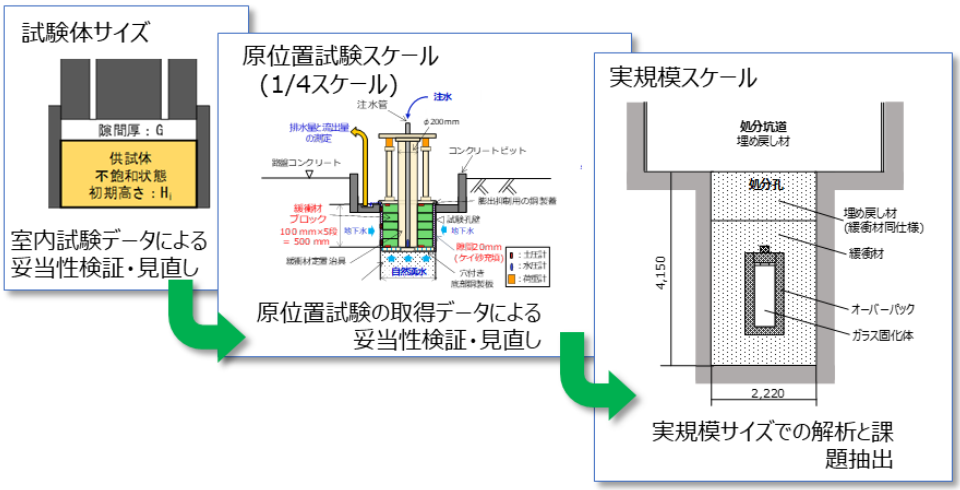


図 2.6-57　緩衝材の再冠水プロセスに関する解析手法に関する段階的な検討のイメージ

令和 2 年度から令和 4 年度までの 3 年間で行う、図 2.6-57 の各段階における検討の内容は以下のとおりである。表 2.6-16 に実施スケジュールを示す。令和 2 年度は、試験体サイズ（小型セル）での検討の各項目について実施した。なお、小型セルの試験データを用いた解析手法の妥当性の確認は、試験を継続実施中であるため、令和 2 年度は解析を先行的に実施した。

➢ 試験体サイズを対象とした検討

・浸潤速度に関わるパラメータの検討

・小型セル試験体での隙間膨潤、応力平衡状態までの検証データの取得(円柱高さ方向膨潤)

・小型セル試験体による試験データを使用した解析手法の妥当性の確認及び見直し

・円柱側方への膨潤に関する解析手法の課題確認（二次元体系への拡張のための検討）

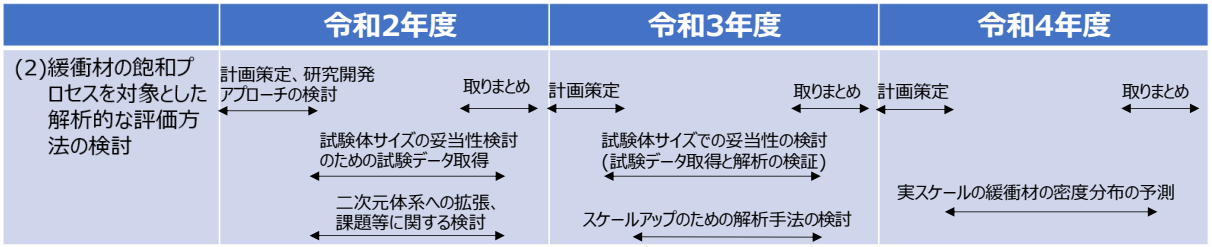
➢ 原位置試験スケールでの検討

・緩衝材流出の原位置試験スケールでの解析

・原位置試験データによる解析の妥当性確認及び見直し
・三次元体系への拡張のための課題の抽出

➢ 実規模試験スケールでの予測
・原位置スケールで検討した解析手法による実規模スケールでの乾燥密度分布の予測
・実規模スケールの解析手法の信頼積向上のための課題の抽出

表 2.6-16　再冠水プロセスに関する解析的な評価手法の検討に関する実施スケジュール



2) 小型セル試験での検証に向けた力学解析手法の検討

本検討では、緩衝材と孔壁との間に隙間が存在するような状況を想定し、再冠水過程で地下水の浸潤があったとき、緩衝材が飽和化を伴いながら膨潤し、隙間を充填していく過程について、力学解析による状態の予測を行う。隙間が充填された後も、緩衝材が不飽和状態であれば地下水はさらに浸潤し、緩衝材が飽和化し緩衝材内部の応力が釣り合うまで状態変化は継続すると考えられる。また、緩衝材の全体が飽和化し、全体の体積が一定になったとしても、緩衝材内の動水勾配が消滅し静水圧状態に至るまで緩衝材の内部で間隙水の移動が発生し、乾燥密度分布の変化は起こりうる。本検討では、このような緩衝材の状態変化を解析的に定量評価するための手法を提示することを目的とする。また、その手法を用いて緩衝材の状態変遷シミュレーションを実施し、得られた結果から状態量や膨潤圧の分布性状が変化するメカニズムを説明することもできると考えられる。

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ており、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。

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には、有限要素解析コード DACSAR（Iizuka, et al., 1987；原子力環境整備促進･資金管理センター, 2020）を用いた。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、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。

① 解析対象

解析の対象とするのは、室内試験で検証データを取得中（次項(2)2) 小型セル試験の検証データの取得）の試験体系である。室内試験の供試体は、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：2.65 Mg/m^3）

を用いており、静的に締固められた不飽和ベントナイト供試体の膨潤・飽和化過程の挙動に関するデータ取得を令和 2 年度の本事業で実施している。その試験については次項で述べる。この室内試験条件に則した軸方向膨潤・隙間充填・飽和化過程のシミュレーションを実施した。今後得られる室内試験の結果と比較・照合を行う。さらに、試験が実施される軸方向膨潤問題のシミュレーションに加えて、円筒供試体の側面に隙間を設ける側方向膨潤問題のシミュレーションも実施した。

② 解析条件及び材料パラメータ

図 2.6-58 に、シミュレーションの対象となるプロセスの概念図を示す。初期には、ベントナイト供試体は不飽和状態にあり、上部に隙間が設けられた状態とする。設けられた隙間に蒸留水が供給されるが、その際、背圧は作用せず、水圧はゼロとなるものとする。供試体高さ方向の体積ひずみの積分、あるいは解析的には、高さ方向に分割した有限要素の体積ひずみの総和によって、供試体の高さが変化することになり、隙間を充填してゆくことになる。隙間が充填された後も供試体内部での間隙水の移動は起こり得るため、解析では、膨潤過程における変形と、乾燥密度や応力分布を追跡する。

軸方向膨潤・隙間充填・飽和化過程シミュレーションの解析条件を表 2.6-17 にまとめる。いずれのケースも、ベントナイト供試体の初期寸法は、直径 40 mm、高さ 20 mm である。初期には均一な状態にあるとし、初期乾燥密度は 2.0 Mg/m^3、初期含水比は 10%である。軸方向膨潤解析では、このようなベントナイト供試体に対して、供試体上面から吸水させる。また、吸水により膨潤して閉塞する隙間を上部に設定する。隙間を充填したときの平均乾燥密度が 1.6 Mg/m^3 になるよう、5.0 mm の隙間を設けたケース、隙間充填時の平均乾燥密度が 1.4 Mg/m^3 になるように、8.6 mm の隙間を設けたケースを設定した。この 2 つのケースでは、隙間を供試体が充填した後、供試体の高さ・体積が一定条件の下で平衡状態に至るまでを解析する。これに加え、隙間を段階的に付与するケースも設定した。このケースでは、まず、5.0 mm の隙間に膨潤し、隙間充填後の平衡状態を得た後、さらに 3.6 mm の隙間を供試体上部に設けてさらに膨潤させて隙間充填後の最終の平衡状態を得る。最終的な平均乾燥密度は 1.4 Mg/m^3 である。これによって、異なる膨潤履歴を受けることによって最終の平衡膨潤圧や内部の状態にどの程度の違いがでるかを比較する。

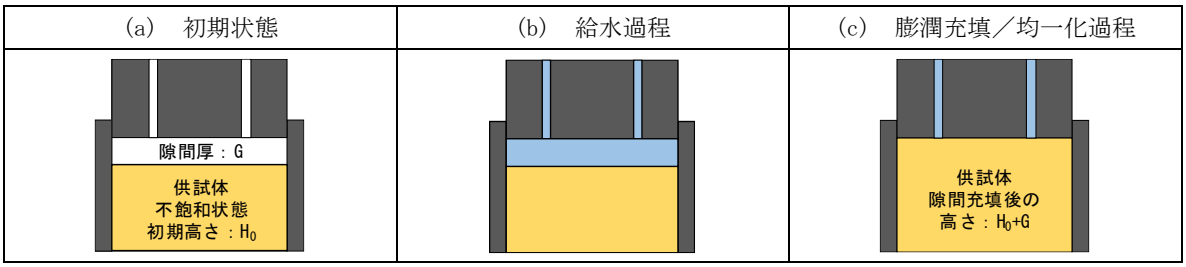


図 2.6-58　軸方向膨潤シミュレーションで対象となるプロセス

表 2.6-17　軸方向膨潤解析の解析条件

解析ケース名	供試体 直径 D (mm)	初期 高さ H_0 (mm)	初期 含水比 w (%)	初期 乾燥密度 ρ_{di} (Mg/m^3)	隙間 厚さ G (mm)	膨潤後 供試体高さ H_s (mm)	膨潤後 乾燥密度 ρ_{ds} (Mg/m^3)
D20U16_AX	40	20	10	2.0	5.0	25.0	1.6
D20U14_AX					8.6	28.6	1.4
D20S14_AX					一次：5.0 二次：3.6	一次：25.0 二次：28.6	一次：1.6 二次：1.4

側方向膨潤･隙間充填･飽和化過程シミュレーションの対象となるプロセスの概念図を図 2.6-59 に示す。供試体の高さを固定し、供試体は側部に設けられた隙間を充填する。充填後にはその隙間分だけ半径が増すことになる。図では、軸方向膨潤と同じ試験器で側方向膨潤のイメージを描いているが、解析で想定する理想的な側方膨潤は供試体の上下面が非排水境界、側面が吸水境界である。側方膨潤問題での解析では、平衡状態に至るまでの過程において、供試体半径方向の乾燥密度や側方応力の分布を追跡する。

側方向膨潤・隙間充填・飽和化過程シミュレーションの解析条件を表 2.6-18 にまとめる。試験容器の内径を 40 mm と設定し、隙間充填後の平均乾燥密度が 1.6 Mg/m^3 となる解析ケースと 1.4 Mg/m^3 になる解析ケースを設けた。

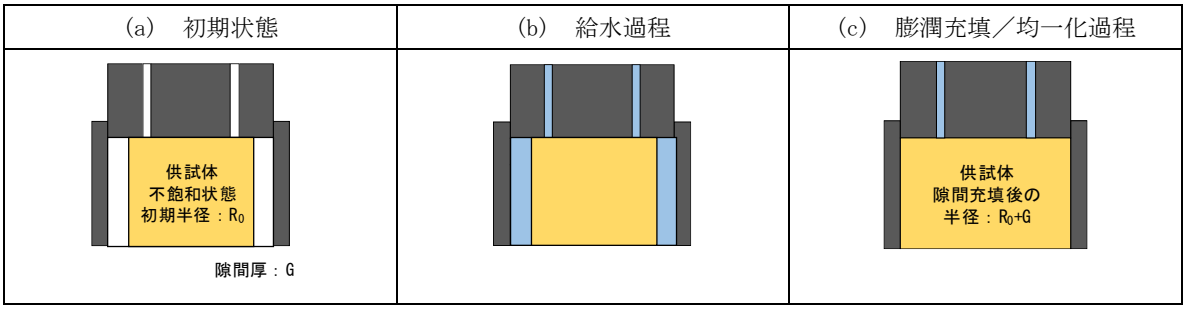


図 2.6-59　側方向膨潤シミュレーションで対象となるプロセス

表 2.6-18　側方向膨潤解析の解析条件

解析ケース名	供試体 高さ H (mm)	初期 半径 R0 (mm)	初期 含水比 w (%)	初期 乾燥密度 ρ_{di} (Mg/m^3)	隙間 厚さ G (mm)	膨潤後 供試体半径 R_s (mm)	膨潤後 乾燥密度 ρ_{ds} (Mg/m^3)
D20U16_RD	25	17.89	10	2.0	2.11	20.0	1.6
D20U14_RD	25	16.73	10	2.0	3.27	20.0	1.4

解析に用いる不飽和弾塑性構成モデルに関するパラメータ一覧を表 2.6-19 に示す。注釈「※1」が付くパラメータは、対象材料が飽和状態にあるときの力学挙動の記述に必要なパラメータであり、一次元圧密試験･非排水せん断試験の結果から同定される。材料が不飽和状態にあるときは、さらに注釈「※2」が付くパラメータが必要になる。これらは、注釈※1 のパラメータを同定した上で、対象材料に対する膨潤圧試験の結果から同定される。解析の対象材料であるケイ砂 30%混合クニゲル®V1 については、平成 31 年度にこれらのパラメータを同定しているため、同じパラメータを用いる。

解析に用いる水分特性曲線モデル及び透水係数モデルに関するパラメータを表 2.6-20 に示す。パラメータセット 00 は、平成 31 年度の解析で用いたものと同様である。平成 31 年度の解析で

は、不飽和ベントナイト供試体の膨潤過程における膨潤速度が遅い傾向が見られた。検証の対象となる試験結果がまだ出ていないため、予測した膨潤速度の妥当性を現時点で言及できないが、パラメータの感度を確認しておくことは可能であり、そのような知見は、試験結果が得られた時にパラメータをキャリブレーションする際に有益である。したがって、本研究では、表 2.6-21 に示すように、パラメータセット 00 に対して、水分特性曲線モデルに関するパラメータを変更したセット W1 及び W2、透水係数モデルに関するパラメータを変更したセット H1 及び H2 を設けた。

表 2.6-19　不飽和弾塑性構成モデルに関するパラメータ

名称	記号	単位	数値
限界応力比※1	$\bar{M}$	－	0.63
圧縮指数※1	λ	－	0.14
膨潤指数（飽和状態）※1	$\bar{\kappa}$	－	0.028
有効ポアソン比※1	ν'	－	0.40
正規圧密曲線の基準圧※1	p'_{ref}	MPa	0.84
基準圧に対応する間隙比※1	e_{ref}	－	0.643
塑性膨潤パラメータ※1	ζ	－	0.45
不飽和モデルパラメータ※2	α	－	6.37
不飽和モデルパラメータ※2	θ	－	0.65
不飽和モデルパラメータ※2	l	－	2.23

※1 飽和状態の挙動の記述に必要なパラメータであり、一次元圧密試験・非排水せん断試験の結果から同定。
※2 不飽和状態の挙動の記述に必要なパラメータであり、「※1」のパラメータ群を同定した上で、膨潤圧試験の結果から同定。

表 2.6-20　水分特性曲線モデル及び透水係数モデルに関するパラメータ

名称	記号	単位	パラメータセット				
			00※2	W1	W2	H1	H2
水分特性曲線パラメータ※1	A	－	-1.40	-1.80	-3.00	-1.40	-1.40
水分特性曲線パラメータ	B	－	1.12	2.05	4.85	1.12	1.12
残留飽和度	S_{r0}	－	0.10	0.10	0.10	0.10	0.10
基準間隙比	e_{k}	－	0.368	0.368	0.368	0.368	0.368
基準間隙比に対応する透水係数	k_0	m/s	1.18e-13	1.18e-13	1.18e-13	1.18e-13	1.18e-13
透水係数の間隙比依存性の程度を表すパラメータ	λ_{k}	－	2.15	2.15	2.15	3.00	5.00

※1　サクションの単位を MPa としたときの値を記入している。※2　パラメータセット_00 は、平成 31 年度のものと同様。各パラメータセットと 00 セットと比較して、ハッチングしたパラメータについて感度を確認する。

パラメータセット 00、W1、W2 によって描かれる水分特性曲線を図 2.6-60 示す。図には、ケイ砂 30%混合クニゲル®V1 に対して実施された保水性試験の結果（鈴木ほか, 1999）をプロットで併記している。パラメータセット 00 は、幅広い飽和度状態で保水性試験の結果をフィッティングするためにパラメータを同定したが、解析で対象とするのは比較的高飽和度状態であり、実際に解析で想定する不飽和ベントナイトの初期飽和度は 74.3 %である。この飽和度を起点として飽和化することを解析することから、高飽和度領域の試験結果をフィッティングできるパラメー

タセットを選択することが妥当である。そのため、図からパラメータセット W2 がより試験結果に則していることがわかる。さらにパラメータセット W1 を加え、水分特性の評価が境界値問題としての不飽和ベントナイト供試体の膨潤特性に及ぼす影響を比較・検討する。

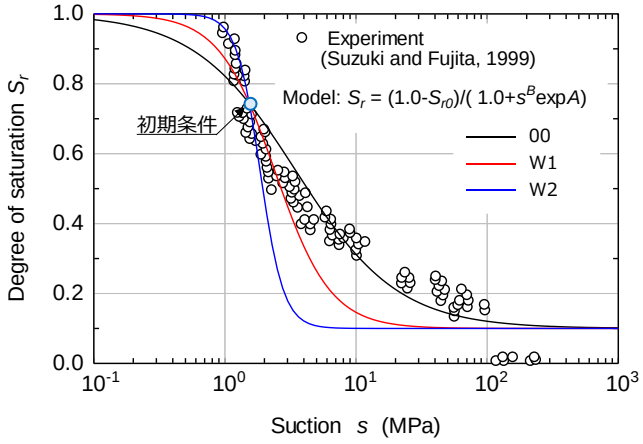


図 2.6-60　水分特性曲線

パラメータセット 00、H1、H2 によって描かれる間隙比と透水係数の関係を図 2.6-61 に示す。図には、ケイ砂 30%混合クニゲル®V1 に対して実施された透水試験の結果（鈴木ほか, 1992；松本ほか, 1997）をプロットで併記している。試験結果では、間隙比の増加に伴って透水係数も増加し、両対数をとったときに概ね線形の関係となっている。3 つのパラメータセットの中でセット 00 が最も試験結果と近いが、セット H1、H2 は、透水係数に対する間隙比依存性をより大きく考えたときに、膨潤応答がどのように変化するかを検討する。

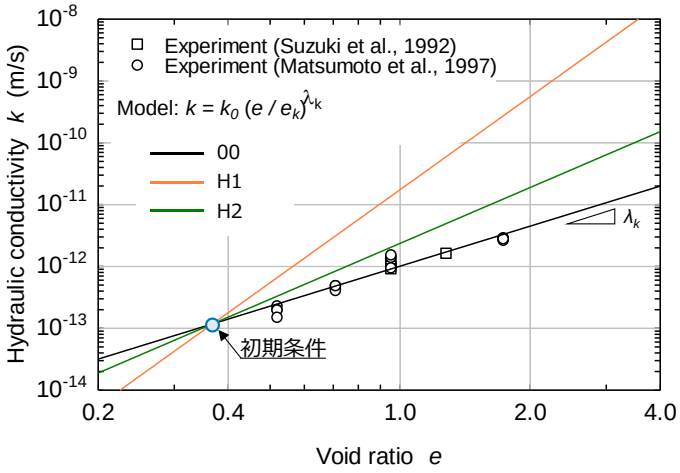


図 2.6-61　間隙比依存性を考慮した透水係数

③ 軸方向膨潤解析結果

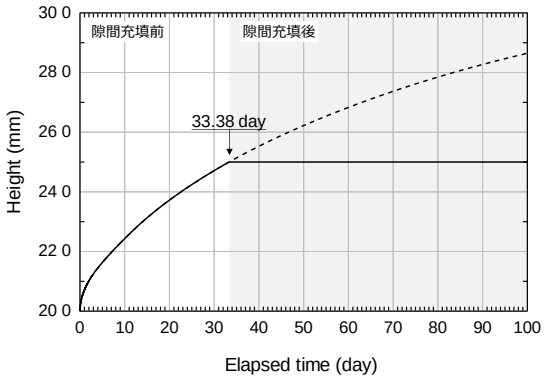
(a) 隙間充填後の平均乾燥密度 1.6 Mg/m³ の結果

供試体初期乾燥密度 2.0 Mg/m³ の軸方向膨潤（D20U16_AX シリーズ）の供試体高さの変化を図 2.6-62 に示す。隙間を充填までの時間は、パラメータセット 00 を用いたケースで 33.38 日となっており、最も長い。これに対して、W1、W2 を用いたケースはそれぞれ 23.08 日、19.36 日

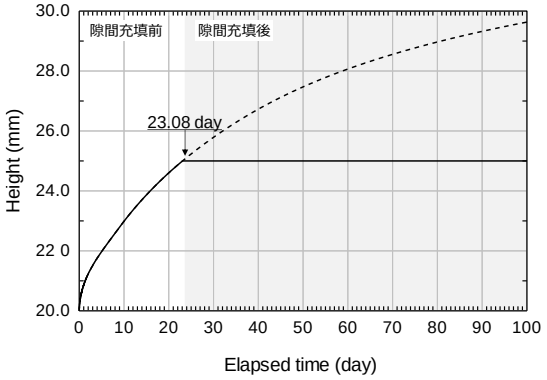
とであり、水分特性曲線に関するパラメータを高飽和度状態の保水性を高めるものにすることによって、供試体の膨潤速度が大きくなり充填時間が短くなる傾向となった。一方、透水係数の間隙比依存性を大きく設定した H1、H2 では、充填時間がそれぞれ 16.71 日、2.71 日であり、大きく設定するほど、供試体の膨潤速度が大きくなり充填時間が短くなった。

これらの結果より、保水性が高まること、また、透水係数の間隙比依存性が大きいほど、供試体の膨潤速度が速くなることが分かった。

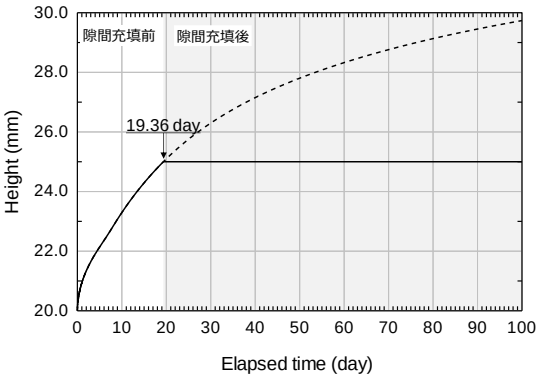
図 2.6-62 に、各ケースの各抽出点における飽和度の変化を示す。これ以降、図で示す抽出点は、初期状態の位置である。吸水面に近い位置から順（緑→青→赤）に飽和度が単調に増加する傾向は、全てのケースにおいて共通する。また、保水性が高まるほど（パラメータ W1、W2）、また、透水係数の間隙比依存性が大きいほど（パラメータ H1、H2）、各位置での飽和度は早く増加した。下端面から 5 mm 位置（赤：3 点の内では吸水面から最も離れた位置）での充填時における飽和度に注目すると、W1、W2 では、ほとんど飽和状態（$S_r = 1.0$）に至っているのに対し、H1、H2 では、飽和に至っておらず、保水性の高まりによってより内部まで飽和化していることが分かる。保水性が高い＝水分特性曲線が急勾配であるため、僅かなサクション低下によって飽和度が大きく増加し、より内部への浸透が進行しやすくなると考えられる。



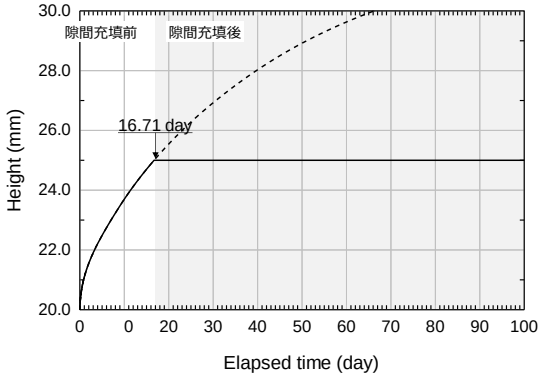
(a) D20U16_AX_00



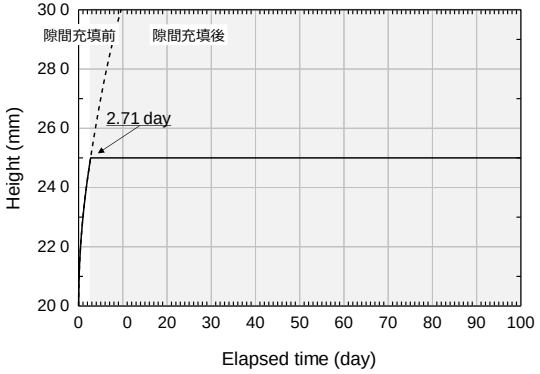
(b) D20U16_AX_W1



(c) D20U16_AX_W2



(d) D20U16_AX_H1



(e) D20U16_AX_H2

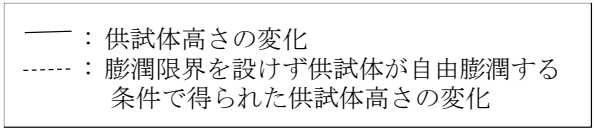
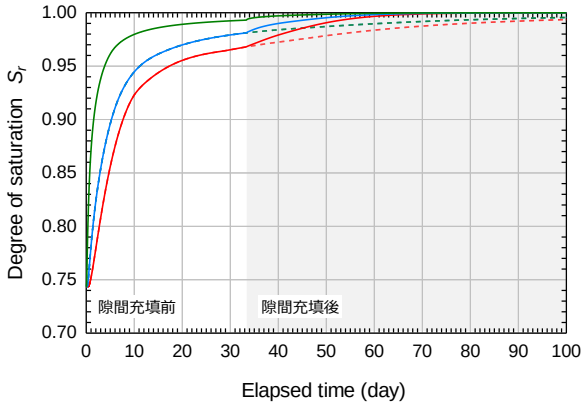
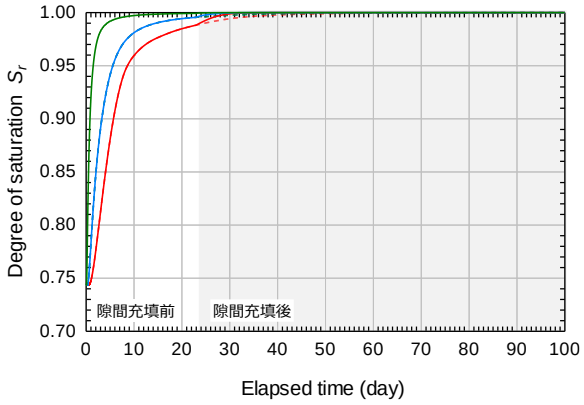


図 2.6-62　軸方向膨潤の供試体高さの変化（飽和後平均乾燥密度 1.6 Mg/m^3）

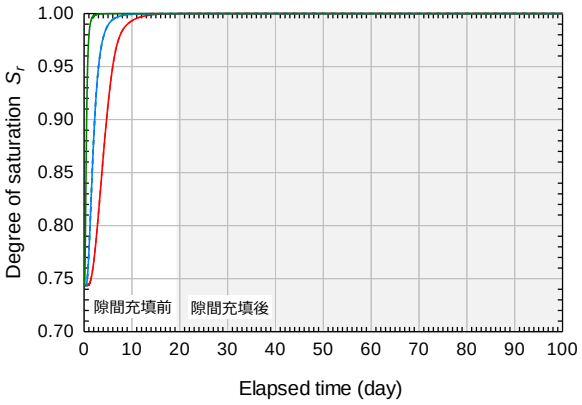
※：ケース名「D20U16_AX」の後に記す「_00」は、その解析ケースで用いているパラメータセットを表している（表 2.6-20 参照）。



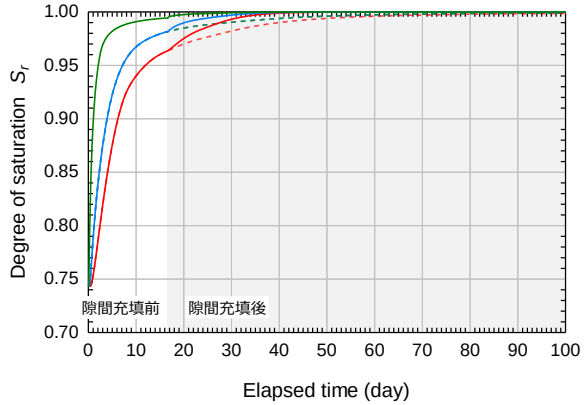
(a) D20U16_AX_00



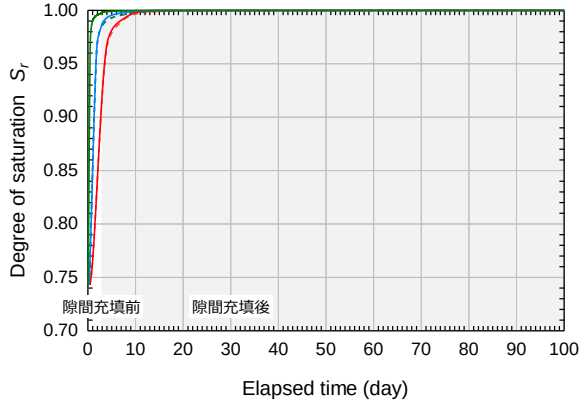
(b) D20U16_AX_W1



(c) D20U16_AX_W2



(d) D20U16_AX_H1



(e) D20U16_AX_H2

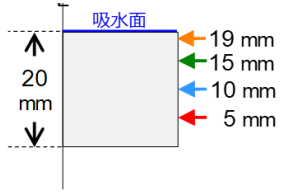


図 2.6-63 軸方向の飽和度の変化（飽和後平均乾燥密度 1.6 Mg/m^3）

次に、供試体内の乾燥密度の変化を図 2.6-64 に示す。隙間を充填するまでは、いずれのケースにおいても、吸水面に近い位置から順に乾燥密度が低下（膨潤）しているが、ケースによって、膨潤が卓越する位置が異なっていた。保水性が高いと、下部も膨潤し、不均一が軽減されるような膨潤変形分布になる。一方、透水係数の間隙比依存性が大きくなると、上部の膨潤が卓越し、より不均一な膨潤変形分布となった。

隙間充填後の乾燥密度の変化は図 2.6-65 に示した例のように、いずれのケースにおいても、供試体の上部で再圧密が生じている。一方、供試体の下部は継続して膨潤している。隙間膨潤過程で生じた供試体中の乾燥密度が不均一であったものが隙間充填後均一化する方向であるが、平衡状態に至っても乾燥密度の差が完全に解消されることはなく不均一であり、各ケースで大きく差はなかった。これは、平衡状態に至った供試体内の乾燥密度の差は、本解析でも設けたパラメータセットの相違の範囲内では大きな違いは現れないことを示す。このことは、図 2.6-65 に示す供試体高さ方向の平衡状態の乾燥密度分布（青色の分布）からも確認できる。平衡状態の供試体内の乾燥密度分布は供試体の上から低密度領域、遷移領域、高密度領域に分けることができる。また、低密度領域と高密度領域はそれぞれ乾燥密度一定の厚みをもって形成された。一方、これら 3 領域が供試体内に占める割合は、パラメータセットの影響を受けて変化した。このような密度分布の性状の違いは、パラメータの違いが遠因ではあるが、隙間充填時の密度分布の影響を大きく受けているように推察された。

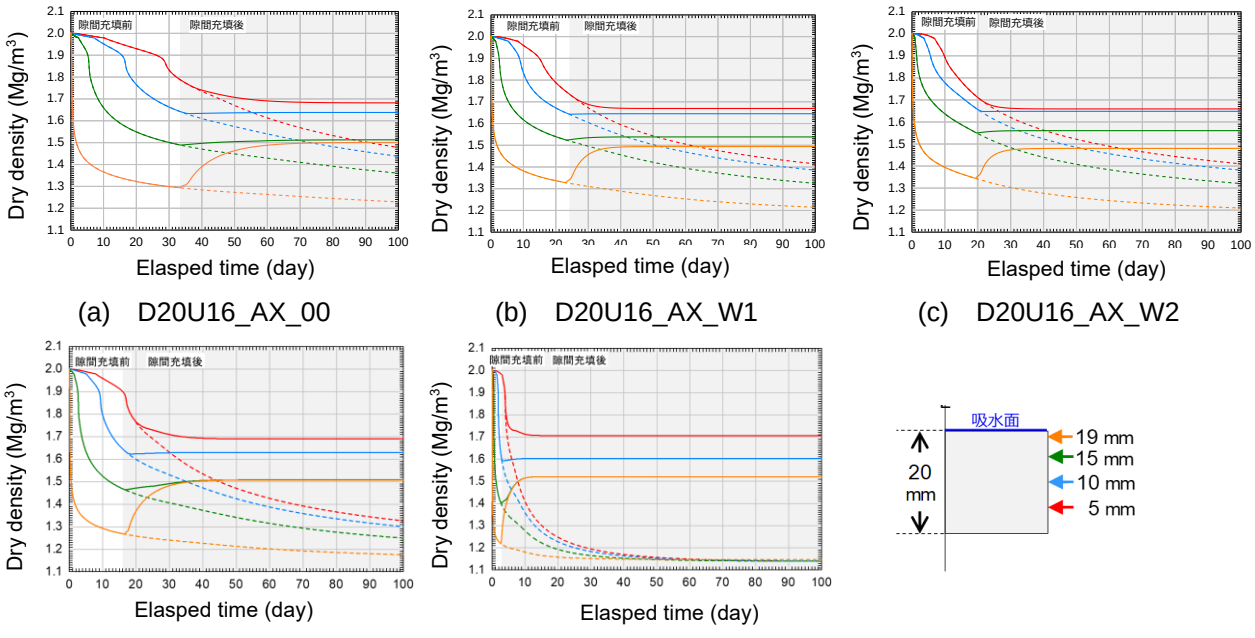


図 2.6-64　軸方向の乾燥密度の変化（飽和後平均乾燥密度 1.6 Mg/m^3）

※：グラフ中、白の期間は隙間充填前、灰色の部分は隙間充填後

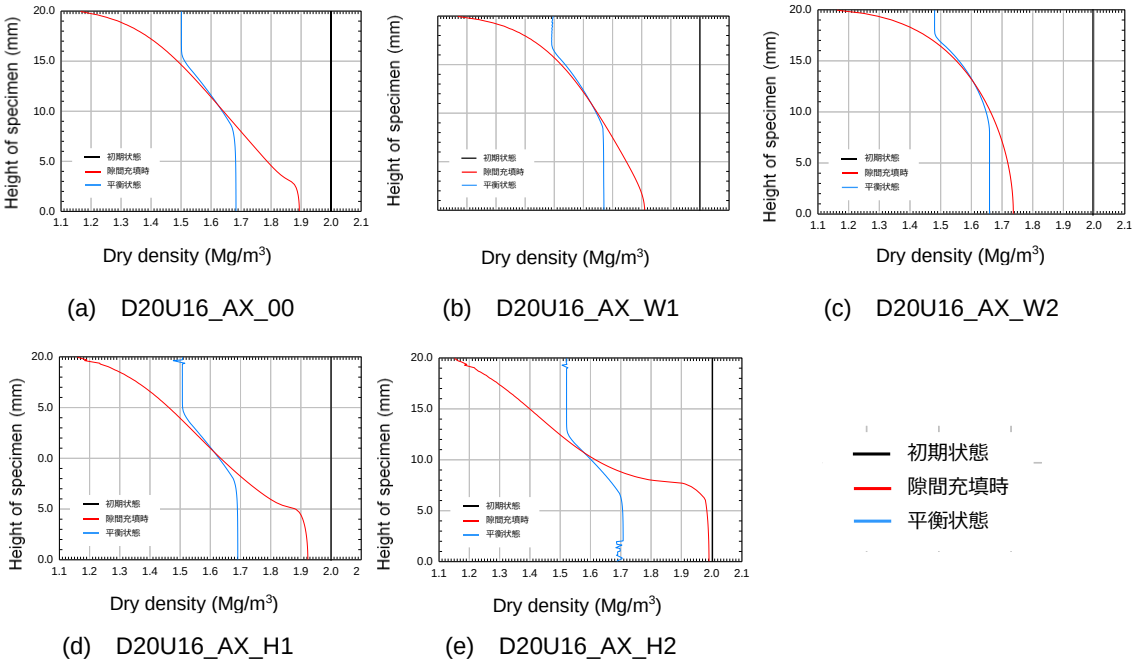


図 2.6-65　軸方向の乾燥密度の分布（飽和後平均乾燥密度 1.6 Mg/m^3）

図 2.6-66 は、各抽出点における側圧の変化を示している。図には、高さ方向に常に一様な軸圧の変化も黒実線で示している。いずれのケースも、隙間充填過程において、吸水面に近い順に側圧が急激に増加し、位置に依らず同じピーク値を経て減少に転じている。ただし、(e)に見られるように、側圧ピーク値の発現が隙間充填後に遅れて現れる場合（図中の赤）は、発生した軸圧分だけピーク値が大きくなる。このような側圧のピーク値の増減は、軸圧がゼロである隙間充填過程における飽和化の程度（飽和度の増加）と密接に関連する。

隙間充填後には、一度減少した側圧が回復し、平衡値に至る。乾燥密度と同様、側圧の平衡値も供試体内の高さ方向で異なる。いずれのケースにおいても、乾燥密度が低い供試体上部で側圧の平衡値は相対的に小さく、乾燥密度が高い供試体下部で相対的に大きくなる。いずれの平均乾燥密度も 1.6 Mg/m^3 であるが、水分特性や透水性に関するパラメータセットの違いに起因して、乾燥密度や平衡膨潤圧（側圧と軸圧の平衡値）の分布が変化することが解析結果から示唆される。

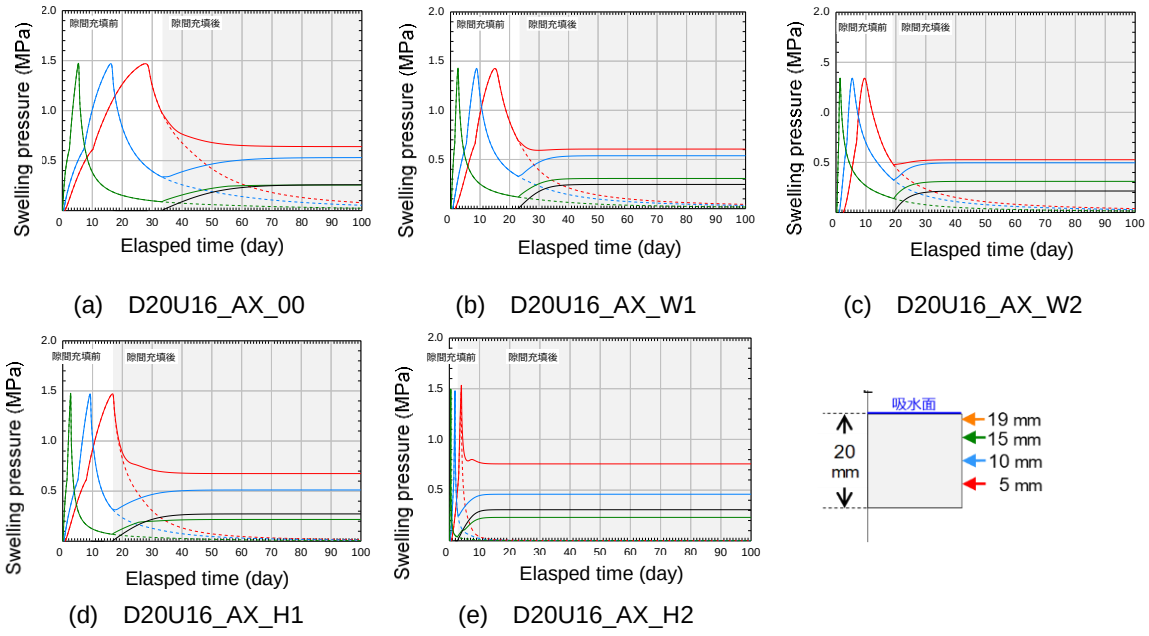


図 2.6-66　軸方向の軸圧と側圧の変化（飽和後平均乾燥密度 1.6 Mg/m³）

※：グラフ中、白の期間は隙間充填前、灰色の部分は隙間充填後

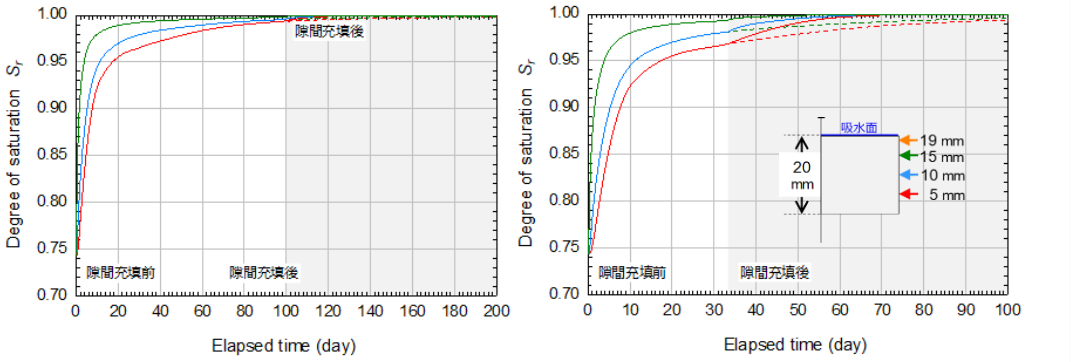
(b) 隙間充填後の平均乾燥密度 1.4 Mg/m³ の結果

供試体初期乾燥密度 2.0 Mg/m³、隙間充填後の平均乾燥密度 1.4 Mg/m³ のケースは、前項(a)の解析よりも隙間を大きく設定したものであり、供試体の膨潤がより進んだ状況で隙間が充填される。結果は、隙間充填後の平均乾燥密度 1.6 Mg/m³（前項(a)）と大きく異なる結果のみを示す。

隙間を充填するために要する時間は、パラメータセット 00 を用いたケースで 98.85 日、パラメータセット W1、W2 では、それぞれ 71.08 日、66.14 日となった。パラメータセット H1、H2 では、充填時間は 46.15 日、7.23 日でありさらに充填時間は短くなった。

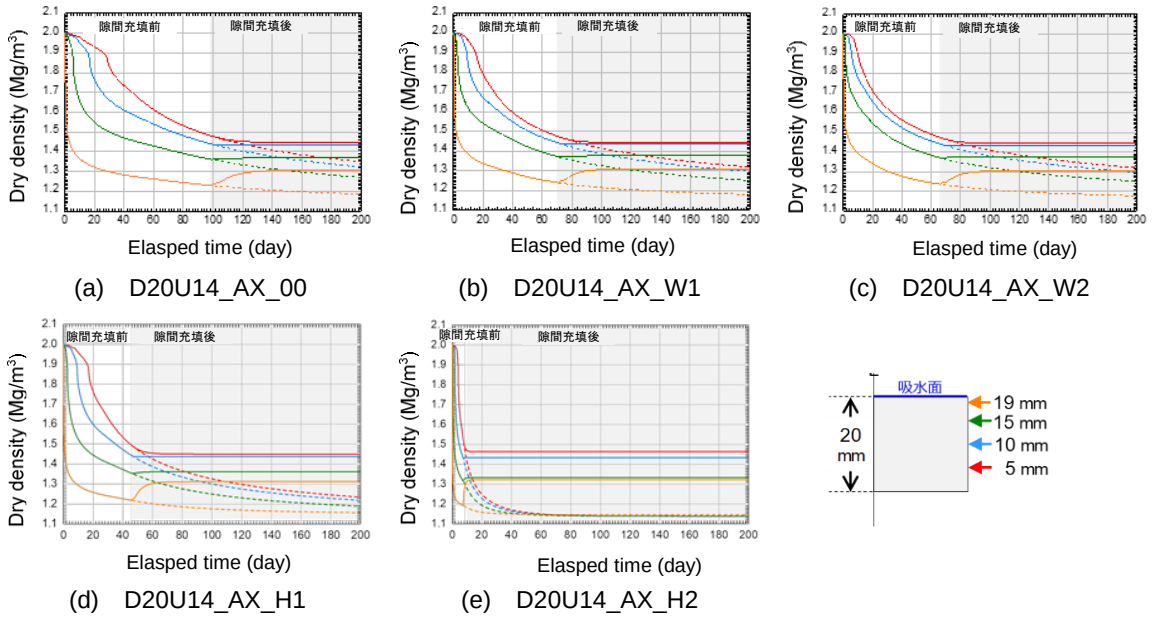
飽和度の変化は、保水性が高まるほど（W1、W2）、また、透水係数の間隙比依存性が大きいほど（H1、H2）、各位置での飽和度が早く増加する傾向は、前項(a)同様である。隙間幅が大きいことにより、隙間充填する時点で全ての位置において飽和度がほとんど 1.0 に至っている。パラメータセット 00 について、平均乾燥密度 1.6 Mg/m³ と 1.4 Mg/m³ の比較を図 2.6-67 に示す。

図 2.6-68 に、乾燥密度の変化を示す。前項①では、隙間充填時（平均乾燥密度 1.6 Mg/m³ 到達時）の乾燥密度分布にケースごとの違いが見られたが、本シリーズでは、隙間充填時（平均乾燥密度 1.4 Mg/m³ 到達時）の乾燥密度分布に違いがほとんど見られなかった。自由膨潤が進行すればするほど､パラメータセットの違いによる供試体内部性状の違いは解消されることがわかった。図 2.6-69 に供試体高さ方向の乾燥密度分布（隙間充填時と平衡状態）を示す。隙間充填後の平衡状態における密度分布についても同様に分布の差が少なくなっていた。



(a) D20U14_AX_00（平均乾燥密度 1.4Mg/m³）　(b) D20U16_AX_00（平均乾燥密度 1.6Mg/m³）

図 2.6-67　軸方向の飽和度の変化（飽和後平均乾燥密度の違いによる比較）



(a) D20U14_AX_00　(b) D20U14_AX_W1　(c) D20U14_AX_W2

(d) D20U14_AX_H1　(e) D20U14_AX_H2

図 2.6-68　軸方向の乾燥密度の変化（飽和後平均乾燥密度 1.4 Mg/m³）

※：グラフ中、白の期間は隙間充填前、灰色の部分は隙間充填後

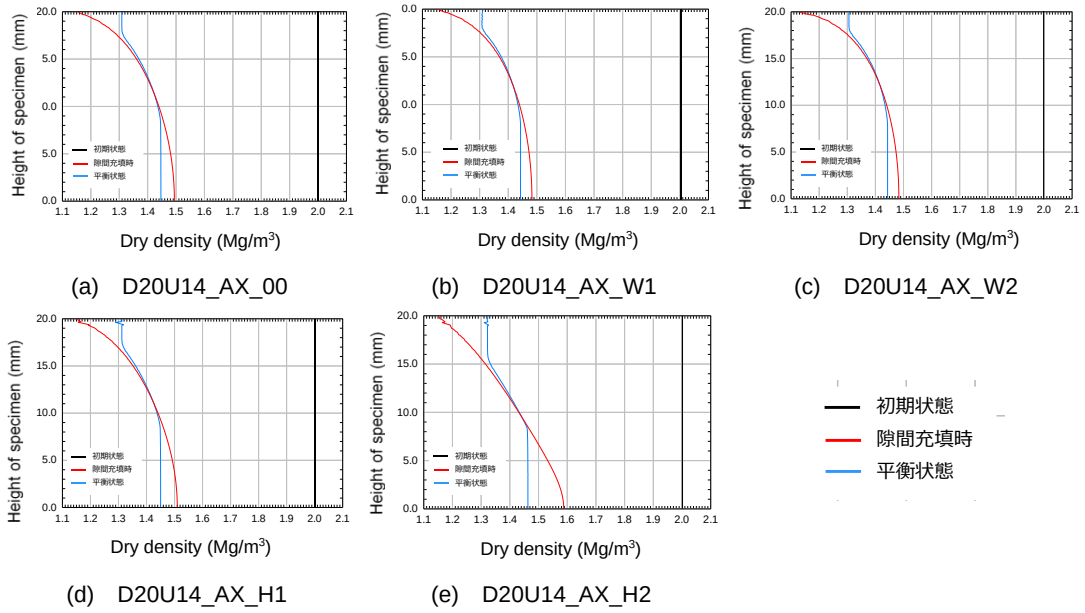
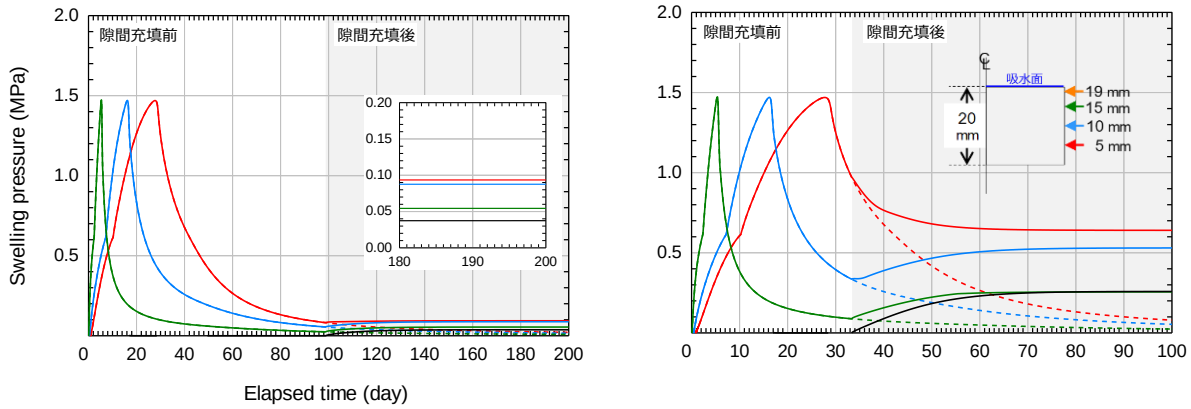


図 2.6-69　軸方向の乾燥密度分布（飽和後平均乾燥密度 1.4 Mg/m³）

図 2.6-70 に平均乾燥密度 1.4 Mg/m³ と平均乾燥密度 1.6 Mg/m³ の側圧の変化の比較を示す。平均乾燥密度 1.4 Mg/m³ の側圧は、ピーク値に至った後、いずれのケースでも急激に減少し、隙間充填時（平均乾燥密度 1.4 Mg/m³ 到達時）には 0.1 MPa を下回るまでに減少した。隙間充填以降、側圧はやはり回復するものの、回復の程度も僅かであり、平均乾燥密度 1.6 Mg/m³ の場合の再圧縮の挙動とは異なっていた。図中、側圧の平衡状態での値を拡大して図示したが、高さ方向の側圧の違いが残存していることが確認できるが、ピーク値に比べて極めて小さい。



(a) D20U14_AX_00
(膨潤後平均乾燥密度 1.4 Mg/m³)

(b)D20U16_AX_00
(膨潤後平均乾燥密度 1.6 Mg/m³)

図 2.6-70　軸方向の軸圧と側圧の変化（飽和後平均乾燥密度の違いによる比較）

(c) 一次隙間充填後の平均乾燥密度 1.6 Mg/m³、二次隙間充填後の平均乾燥密度 1.4 Mg/m³ の結果

前述の(a)項で示した平均乾燥密度が 1.6 Mg/m³ に達した各ケースで平衡状態が得られた後に、さらに隙間を付与することで供試体を膨潤させ、平均乾燥密度が 1.4 Mg/m³ に至るまでの二次膨潤過程と、平衡状態に至るまでの過程をシミュレーションした。二次膨潤・隙間充填後の平均乾燥密度は前項(b)のシリーズと同じであるが、平衡状態に至る履歴の影響を考察する。

図 2.6-71 に、パラメータセット 00 の供試体高さの変化を示す。図中には、一次膨潤（平均乾燥密度が 2.0 Mg/m³ から 1.6 Mg/m³ に減少する過程）と二次膨潤（平均乾燥密度が 1.6 Mg/m³ から 1.4 Mg/m³ に減少する過程）に要する時間を併記している。これらの和を隙間充填に要するトータルの時間として考えると、33.38＋59.19＝92.57 日となり、段階を設けずスムーズに平均乾燥密度が 2.0 Mg/m³ から 1.4 Mg/m³ へと減少するケース（98.85 日）と比べると、トータルの時間が短縮している。いずれのケースにおいても、このような時間短縮を確認できた。また、供試体高さが 25.0 mm からの膨潤速度（高さの変化率）は段階を設けずに膨潤するパターン（破線）の勾配に対して、段階を設けたパターン（実践）の二次膨潤開始時の勾配が急になっていることが分かる。膨潤速度が速くなる主たる要因は、供試体高さが 25.0 mm の時の供試体内の動水勾配であると考えられる。

隙間を充填する過程は、本研究の連成解析による設定では、負の間隙水圧が消散（ゼロへと増加）し有効応力が減少する過程と説明できる。有効応力の減少が膨潤変形をもたらす。破線のプロセスでは、時刻 0 時点では供試体に均一に分布していたサクション分の負の間隙水圧が、供試体の上面のみゼロとなる水頭条件を課され、時間の経過に伴って負の間隙水圧が消散していく。供試体高さが 25.0 mm にあるときは、間隙水圧は消散の途中であり、動水勾配も小さくなっているため、供試体への水の流入速度も小さくなり、膨潤速度も低下しつつある状態にある。一方、実線のプロセスでは、一次膨潤で間隙水圧がゼロになる平衡状態に至った後、再度、隙間が設けられるため、軸圧が瞬時に解放されて供試体内の間隙水圧が一様に低下する。これによって負の間隙水圧消散の振出しに戻されたことになる。そのため、二次膨潤の開始時に水の流入速度と膨潤速度が大きくなったと考えられる。

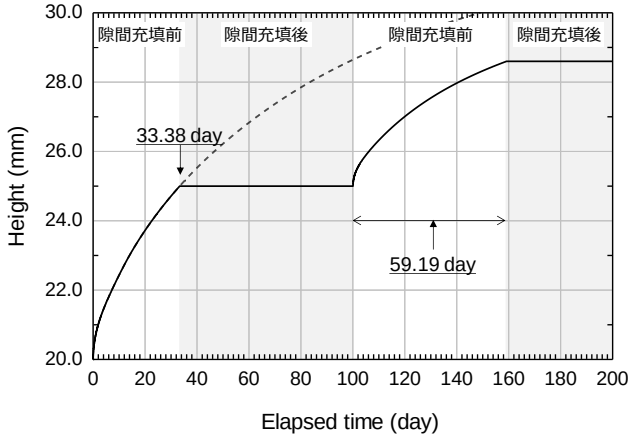


図 2.6-71　供試体高さの変化：D20S14_AX_00

飽和度は、いずれのケースにおいても一次膨潤から平衡状態に至る過程において、それぞれの位置で飽和状態に達していた。図 2.6-72 は、パラメータセット 00 の各抽出点における乾燥密度の変化である。二次膨潤が始まってから全ての位置において再び膨潤が始まり、再度の隙間充填

に至っている。二次膨潤過程から隙間充填、再度の平衡状態に至るまでの各位置における乾燥密度の変化は、基本的にどのケースにおいても、供試体の吸水面近傍で膨潤後に再圧密、供試体の下部で継続的な膨潤をしていたが、供試体中央部では二回目の平衡状態に向かう過程で、僅かに膨潤するだけであった。この傾向は、図 2.6-73 の乾燥密度の等時分布からも読み取ることができる。緑の二回目の隙間充填時と、黄の二回目の平衡状態の分布の差が小さい。他のケースにおいてもその程度は異なるが、分布の差は小さかった。二次平衡状態に至ったときの乾燥密度分布（黄）を見ると、前項(a)、(b)のシリーズでは、吸水面近傍に乾燥密度がほぼ一定の低密度領域、吸水面から離れた下部に高密度領域、そして、中間に遷移領域が見られたが、図 2.6-73 に示したケースでは、密度一定の領域がほとんどなかった。この分布は、D20S14_AX_W2 のケースでも見られたが、どのような条件を満たすときこのような密度分布が形成されるか特定できていないが、段階的に隙間を設けたことによる影響の一つに挙げることができる。さらに、もう一つ重要な点として、吸水面近傍の乾燥密度の変化が挙げられる。直観的には、供試体の平均乾燥密度が低い状態（緑：二次隙間充填時、平均乾燥密度 1.4 Mg/m³）にあるときの吸水面近傍の乾燥密度は、より平均乾燥密度が高い状態（赤：一次隙間充填時、平均乾燥密度 1.6Mg/m³）のそれよりも低くなると思われるが、図 2.6-73 では乾燥密度が高かった。二次膨潤の前に一度、再圧密される履歴があったことの影響であると思われる。先に述べた一次膨潤のみのケースでは見られない傾向であるため、やはり、何らかの条件が成立したが故の結果であると推察される。

側圧と軸圧の変化は、平衡状態の平均乾燥密度は 1.4 Mg/m³ であり、同じパラメータセットが用いられた前項②のシリーズのそれぞれのケースの平衡値と顕著な違いは見られなかった。

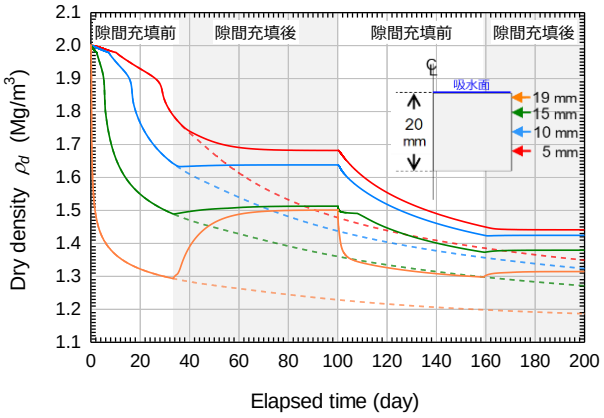


図 2.6-72　乾燥密度の変化：D20S14_AX_00

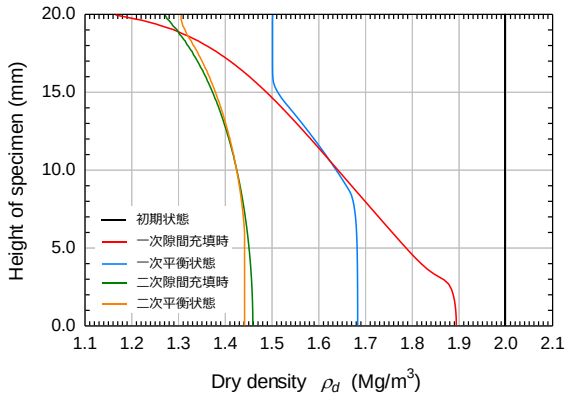


図 2.6-73　乾燥密度の分布：D20S14_AX_00

④ 側方向膨潤解析結果

側方向膨潤シミュレーションは、2 ケース：解析ケース R20U16_RD_W2（初期供試体半径：R_0 = 17.89 mm、膨潤後供試体半径：R_s = 20.0 mm）、解析ケース R20U14_RD_W2（初期供試体半径：R_0 = 16.73 mm、膨潤後供試体半径：R_s = 20.0 mm）を実施した。平均乾燥密度はいずれのケースも初期に 2.0 Mg/m³ であり、隙間充填後にはそれぞれ 1.6 Mg/m³、1.4 Mg/m³ に至る。側方膨潤では、図 2.6-74 に示すように、供試体の高さが一定の下、供試体の側面から吸水し、半径（供試体内の半径方向の位置）のみが変化する事象を解析する。円筒座標系の軸対称問題なので、解析対象は図に示すような断面となる。半径方向のある区間を考えるとき、区間幅は同じであっても、その位置が中心軸から離れるほど、区間が占める体積は大きくなることを考慮する。

供試体半径の変化を図 2.6-75 に示す。前項と同様に膨潤限界を設けず供試体が自由膨潤する条件で得られた供試体半径の変化を破線で示した。実線と破線の分岐点が、供試体が隙間を充填した時点を示している。解析ケース R20U16_RD_W2 では隙間 2.11 mm を充填するために要する時間が 4.00 日、解析ケース R20U14_RD_W2 では隙間 3.27 mm を充填するために要する時間が 9.10 日である。

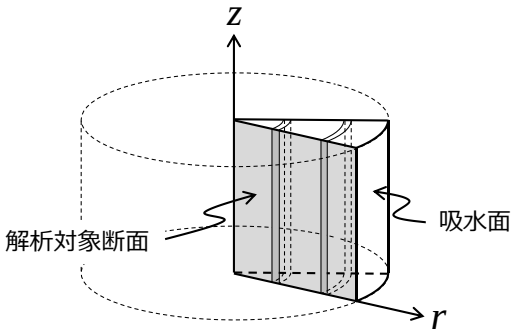
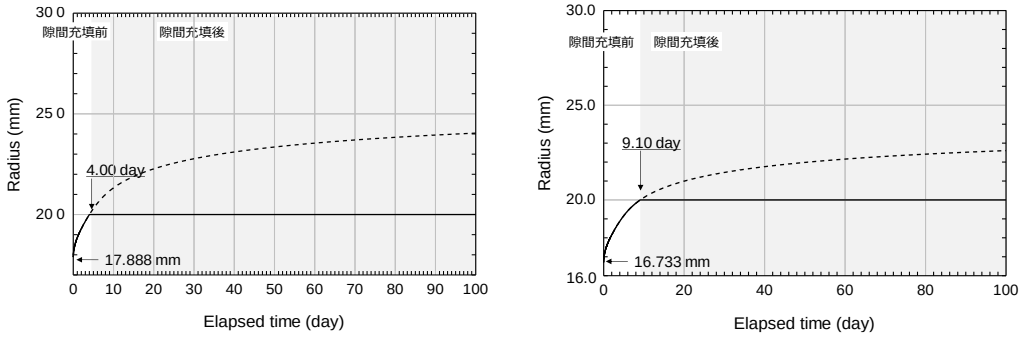


図 2.6-74　側方向膨潤問題の概念図

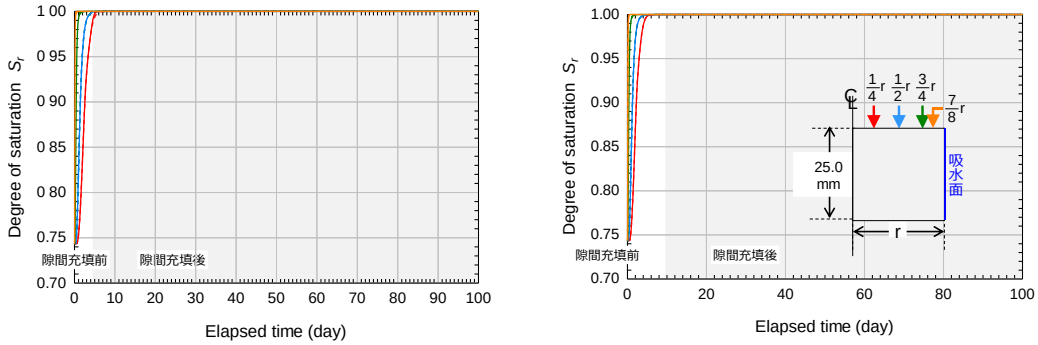


(a) D20U16_RD_W2　　(b) D20U14_RD_W2

図 2.6-75　供試体半径の変化

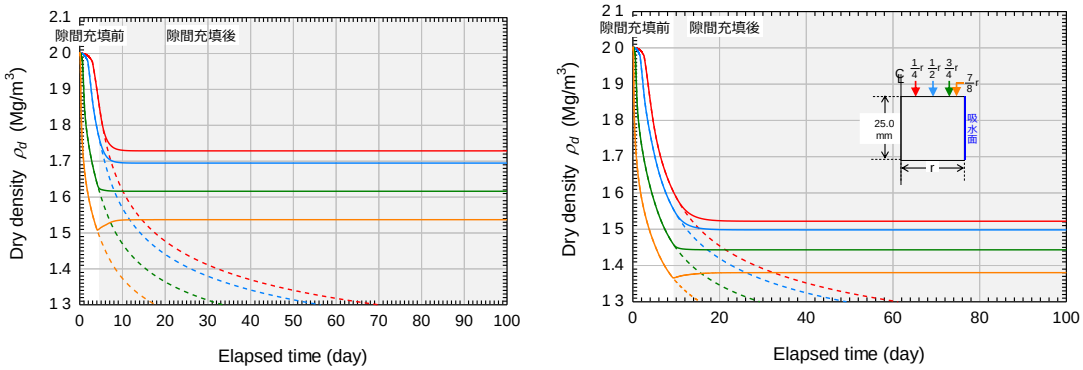
図 2.6-76 に、各解析ケースの抽出点における飽和度の変化を示す。抽出点は、初期状態の中心軸からの位置である（R は初期半径）。供試体側面（吸水面）に近い位置（橙）から順に飽和度が増加し、隙間充填時には全ての位置においてほぼ飽和状態に達していることを確認できる。

図 2.6-77 は、各解析ケースの抽出点における乾燥密度の変化である。供試体側面に近い位置（橙）から膨潤し、次いで、緑、青、赤と、供試体内部が膨潤する。充填後は、軸方向問題と同様、側面近傍が再圧密し、供試体内部では膨潤が継続する。側方向問題でも、平衡状態の乾燥密度の半径方向の不均一は残存している。吸水面に近い橙色の位置のみが、供試体の平均乾燥密度より小さい乾燥密度となっており、視覚的には緩い領域が狭いように見えるが、中心軸から離れる程、その位置（微小区間）が占める体積が大きいためである。図 2.6-78 に示す各ケースの乾燥密度の等時分布からも同様の傾向が見られる。



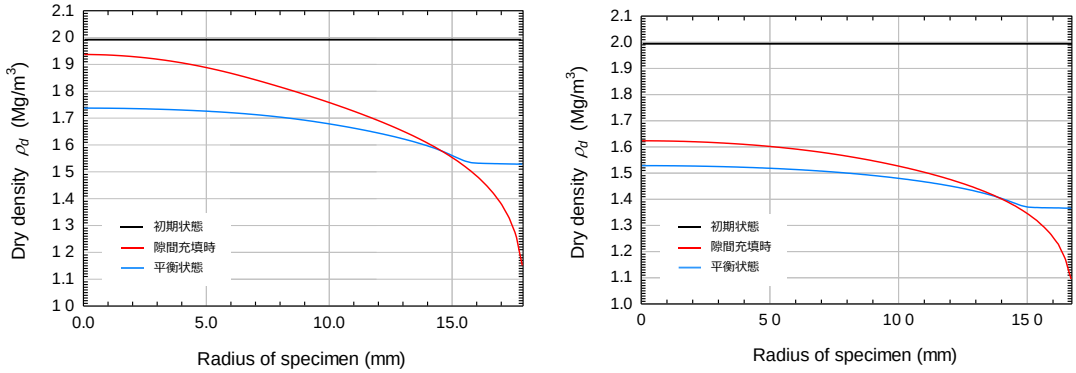
(a) D20U16_RD_W2　　(b) D20U14_RD_W2

図 2.6-76　飽和度の変化



(a) D20U16_RD_W2　　(b) D20U14_RD_W2

図 2.6-77　乾燥密度の変化

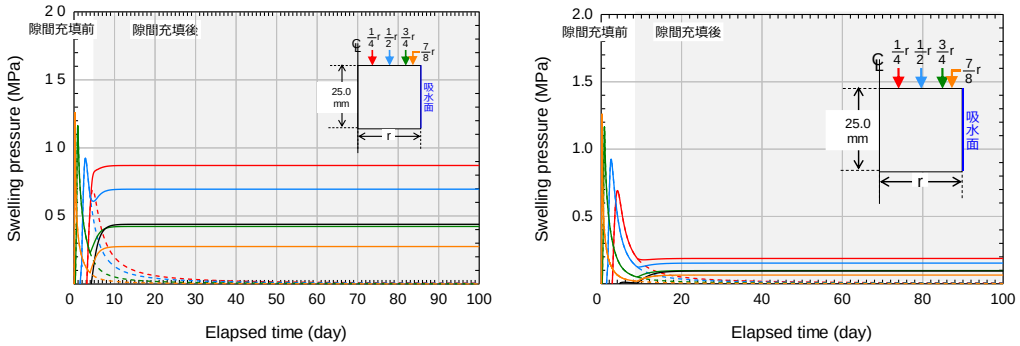


(a) D20U16_RD_W2　　(b) D20U14_RD_W2

図 2.6-78　乾燥密度の分布

図 2.6-79 に、各ケースの軸圧と側圧（黒）の変化を示す。半径方向の抽出点での軸圧の変化に注目すると、隙間充填過程（あるいは、破線で示す自由膨潤過程）において発生する軸圧のピーク値が位置によって異なることが分かる。軸圧のピーク値は、吸水面近傍が最も大きく、中心に近づくほど小さくなる。軸方向膨潤の場合、高さ方向に側圧ピークの発現の時間的ずれはあったものの、側圧のピーク値は同一であった。ところが、側方向膨潤の場合は、軸圧のピーク発現に時間的ずれがあるばかりでなく、半径方向にピーク値が異なる結果となる。隙間充填後の平衡状態の軸圧は、供試体の側面（吸水面）に近いほど、その値が小さく、半径方向に不均一に分布す

る。図 2.6-79(a)（解析ケース R20U16_RD_W2）では、隙間膨潤後に、自由膨潤のピーク値を上回る値までに軸圧が達する位置を確認できる（赤：供試体の中心軸に近い）。膨潤が十分でなければ、言い換えると、供試体の初期寸法に対して隙間が小さい場合には、解析結果としてこのような応答が現れることがあると考えられる。



(a) D20U16_RD_W2　　(b) D20U14_RD_W2

図 2.6-79　側圧と軸圧の変化

3) 小型セル試験による検証データの取得

再冠水過程におけるベントナイト緩衝材の隙間膨潤に係る力学解析手法の検討にあたり、前項 1）で述べた力学解析の妥当性の確認のための小型セル試験を実施した。隙間に緩衝材が充填し、緩衝材内の応力状態が平衡に至る過程や乾燥密度分布に関するデータを小型供試体により取得した。

① 試験条件

試験ケースを表 2.6-21 に示す。試験のケースは、前項「1) 小型セル試験での検証に向けた力学解析手法の検討」で解析の対象として示されているものである。解析は一次元で行われるが、試験は円筒形の試験体を用いている。ケース 0-pre は、本試験を実施する前に、上部から下部への浸潤が軸方向に均等に進むかどうかの確認のために行い、解体して浸潤の経過を観察した。

ケース 1-1a,b,c は膨潤後の平均乾燥密度 1.6 Mg/m³ になる条件（前項の解析条件）で、途中の過程を得るために同じ条件の試験を実施し、試験終了時間が異なる試験として設定した。試験の終了判断の目安は飽和度 100%になるための注水を終えた時点、側圧が一定（定常）となった時点、さらには、測定される側圧が一定となってから一定期間を置いたものの 3 点とした。ケース 1-2 は一旦 1.6 Mg/m³ になり平衡に達した状態で、さらに隙間を付与して 1.4 Mg/m³ まで膨潤させる。ケース 2 ははじめから膨潤後の平均乾燥密度 1.4 Mg/m³ まで膨潤させるものとした。ケース 3 は、前節で検討している施工オプションの一つである隙間へのケイ砂充填オプションのモデルケースとして、飽和後の乾燥密度分布を得、隙間未充填オプションのモデル（ケース 1～2）の場合と比較するために設定した。

試験に使用する材料は、クニゲル V1 とケイ砂を質量比 7：3 に混合したものであり、前節で試験に用いた材料と同じである。試料は円柱状とし、初期乾燥密度 2.0 Mg/m³ に締め固めた。締め固めは、仕上がり層厚 5 mm×4 層となるように圧縮し、層境は目粗しをして 20 mm の供試体を得た。

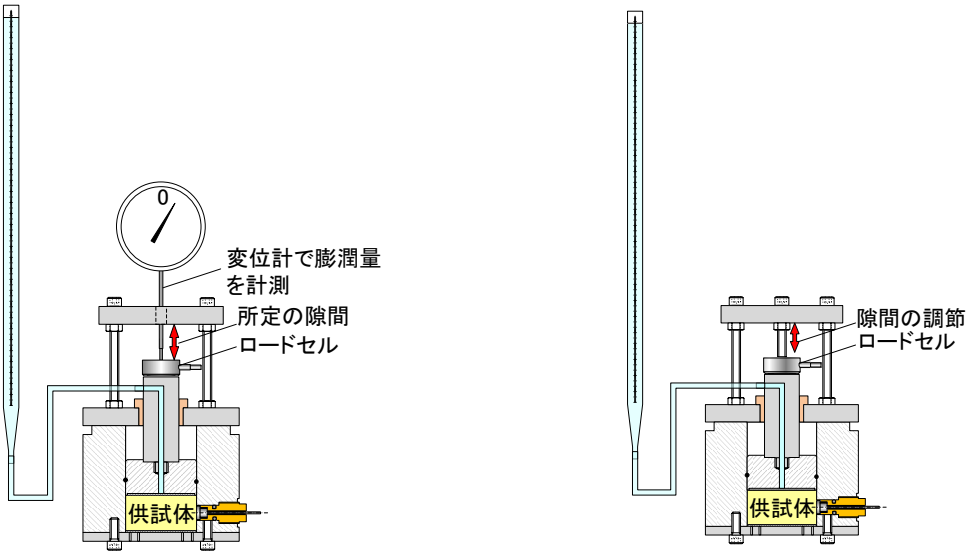
表 2.6-21　膨潤試験ケース

ケース名	初期直径 Φ	初期高さ H_0	初期含水比 w	初期乾燥密度 ρ_{d0}	空隙体積 Va	膨潤後乾燥密度 ρ_d	GAP高さ ΔH	膨潤後高さ H	GAP容積	給水方法	終了判断
	(mm)	(mm)	(%)	(Mg/m^3)	(mL)	(Mg/m^3)	(mm)	(mm)	(mL)		
0-pre	40	20	10	2.0	1.49	1.6	+5.0	25	6.28	供試体上部のGAPを水で満たす	試験時間
1-1 a											飽和度 [1]
1.1 b											側圧 [2]
1-1 c											側圧 [3]
1-2						1.6→1.4	+5.0→+3.6	25→28.6	6.28→4.52		飽和度 [1]
2						1.4	+8.6	28.6	10.8		飽和度 [1]
3				1.6	6.22	—	ケイ砂充填	20	砂の乾燥密度次第		飽和度 [1]

[1] 空隙体積と同量の給水量で定義、[2] 側圧が定常となった時点で終了、[3] 期間は協議の下で決定
数値は供試体初期高さ 20mm、ベントナイトの土粒子密度を 2.7Mg/m^3 とした場合の概略値

② 試験装置

試験装置の概要を図 2.6-80 に示す。試験開始時にはピストン上部にケースごとに所定の隙間となるように体積拘束版をセットした装置（図 2.6-80(a)）を用い、供試体が所定の量まで膨潤する過程（以降、膨潤過程と呼ぶ）を計測した。所定量まで膨潤するまでの間、体積拘束板の中央に空けたボルト用の穴から変位計を挿入し、膨潤高さ（供試体の上面の位置）の経時変化を計測した。膨潤量が所定の値に達した時点で変位計を取り外し、変位計を撤去して、体積拘束用のボルトでピストン上部のロードセルを固定して膨潤圧試験に移行した。膨潤圧測定のために変位計を取り外した試験装置の概要を図 2.6-80(b)に示す。上部で発生する膨潤圧の経時変化（以降、膨潤圧過程と呼ぶ）は前節で検討している解析の検証データとなる。なお、本試験では、供試体の側部にあたる部分に土圧計を設置し、通水開始直後からの側圧の変化も計測した。



(a) 膨潤過程の試験装置　　(b) 膨潤圧過程の試験装置

図 2.6-80　試験装置の概要（断面）

③ 予察試験（ケース：0-pre）の結果

(a) 給水量の経時変化

図 2.6-81 に膨潤過程の累積給水量の経時変化を示す。図には、膨潤過程と膨潤圧過程を併せて示した。試験開始直後は供試体への水の浸潤量が多く、給水量が急激に増加したが、給水速度が徐々に低下し、累積給水量の増加の勾配は緩やかになった。これは、供試体上面に飽和領域が形成されて、供試体への吸水量が低下したためだと考えられる。供試体の間隙率と隙間の容積から、供試体が飽和するのに必要な給水量は 7.77 mL と算出されるが、供試体が膨潤して所定の高さになる期間に給水した量は飽和に必要な給水量を超えていた。

隙間を充填してからの給水量は飽和給水量を超えているが、膨潤圧過程でも給水量が増加し続けた。膨潤過程では給水量の経時変化は曲線であり、徐々に給水速度は小さくなっていたが、膨潤圧過程では給水量は単調増加であった。このことから、膨潤過程における給水量は膨潤に消費される給水量と蒸発した水分が合算されており、膨潤圧過程における給水量は不飽和領域の飽和化と蒸発散に消費される量となっていると考えられる。

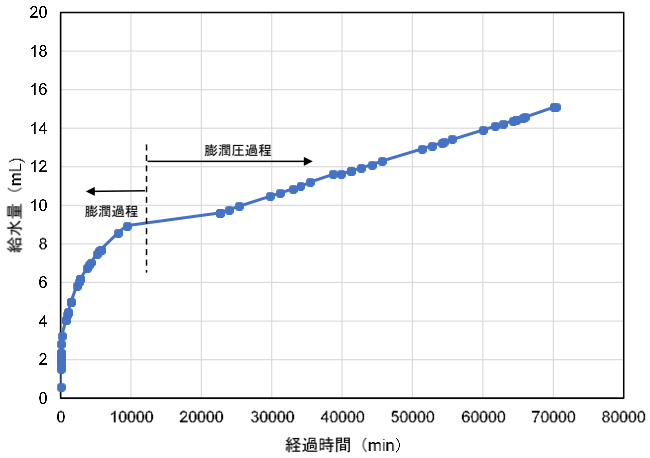


図 2.6-81　0-pre：給水量の経時変化

(b) 膨潤高さ

図 2.6-82 は、膨潤過程における膨潤高さの経時変化を示す。膨潤高さの経時変化の傾向も、給水量の経時変化と類似していることから、浸潤した水は供試体を飽和するよりも膨潤に消費されている可能性が高いと考えられる。5 mm の高さに達するまでに約 7 日間を要した。

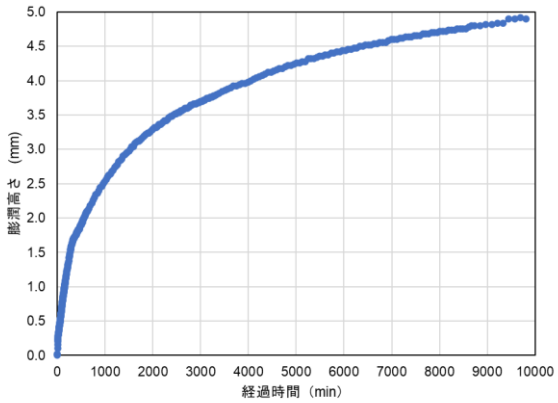


図 2.6-82　0-pre:隙間充填過程における膨潤高さの経時変化

(c) 膨潤圧の経時変化

図 2.6-83 に膨潤圧の経時変化を示す。前述のように、試験開始後 7 日目に膨潤高さが 5 mm に達し、体積拘束したため、膨潤圧が発生している。膨潤圧は定常に至っていない。これは、膨潤圧を増加させるポテンシャルを未だ有しているためだと考えられる。前述のように給水した水が蒸発散した可能性もあり、不飽和な領域が残存している可能性が示唆される。

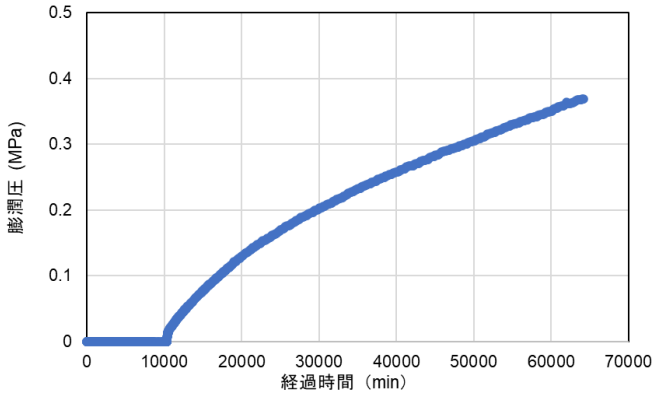


図 2.6-83　0-pre：膨潤圧の経時変化

(d) 解体結果

解体は、膨潤率試験で用いたセルから押し出した部分だけを超音波カッターで切る（削る）ことにより、解体による供試体の乱れを極力排除した。

図 2.6-84 には解体時の供試体の状況を示す。給水面近傍では、膨潤によって断面が滑らかで、排水面に近づくにしたがって不飽和状態となり、断面の色が白っぽく変化している状況が観察された。排水面は、セルの底面の孔の位置に合わせて乾燥している状況が見られ、排水側の孔からの蒸発散があったことが裏付けられた。

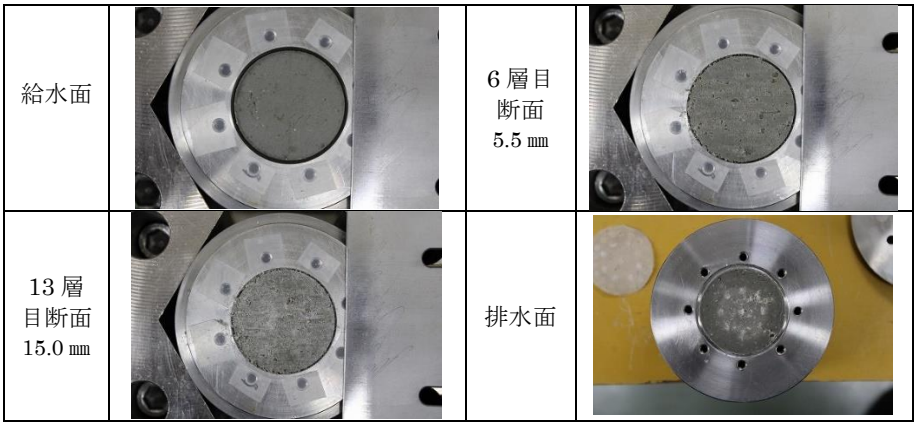
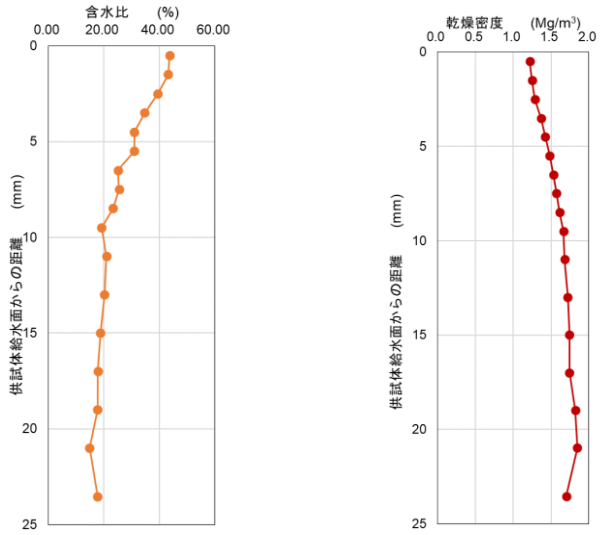


図 2.6-84　0-pre；解体時の供試体観察

含水比と乾燥密度の分布を図 2.6-85 に示す。給水側の含水比が 43.6%であるのに対して排水（気）側は 17.7%であった。給水面から 10 mm までの含水比の遷移が著しく、10 mm 以深では含水比は概ね均一であった。乾燥密度は、給水面側では 1.22 Mg/m³ で、排水（気）側では 1.70 Mg/m³ であった。含水比と同様に給水面から 10 mm までの乾燥密度の遷移が著しく、10 mm 以

深では変化が少なかった。このことから、給水面から 10 mm 程度までが膨潤変形が著しく、それ以深では蒸発散が生じて飽和が進展しなかった可能性が有ることが確かめられた。

今回の試験によって、供試体上部からの浸潤は不均一な経路が生じず、一次元的に進むことは確認できたが、蒸発による影響があることから、以降の試験においては、排水（気）側の相対湿度を高くするなどの対策を行って試験を実施した。



(a) 含水比分布　　(b) 乾燥密度分布

図 2.6-85　0-pre：解体結果

④ 本試験（ケース 1～3）

前述の予察試験の結果を踏まえて、表 2.6-21 に示したケース 1 からケース 3 までの 6 ケースの試験を実施した。供試体の作成などは予察試験と同様であり、試験装置は、側圧が計測できるものを使用した。予備試験と同様に、供試体を試験装置内で作製した後、反力板の中央に設けた体積拘束用のボルト穴に変位計を差し込んで、膨潤量試験を実施した。膨潤量が 5 mm（ケース 2 は 8.6 mm）となるまで膨潤量試験を実施し、その後、変位計を撤去して、体積拘束用のボルトでピストン上部のロードセルを固定して膨潤圧試験に移行した。

(a) 給水量の経時変化

図 2.6-86 に膨潤過程の給水量の経時変化を示す。試験開始直後は、供試体への水の浸潤が進み、給水量が急激に増加したが、給水速度は徐々に低下した。これは、供試体上面に飽和領域が形成されて、供試体への吸水量が低下したためだと考えられる。上部にケイ砂を充填したケース 3 においても給水量の経時変化に差は見られなかった。予備試験で、蒸発の影響があることが示唆されたため、底部からの蒸発散を防ぐために試験セルをビニールで覆い、その中に水を含ませた不織布を設置した。これによって、膨潤圧過程に移行してからの給水量は少なくなった。

給水は隙間充填後も続いており、不飽和な領域が残存していると考えられた。

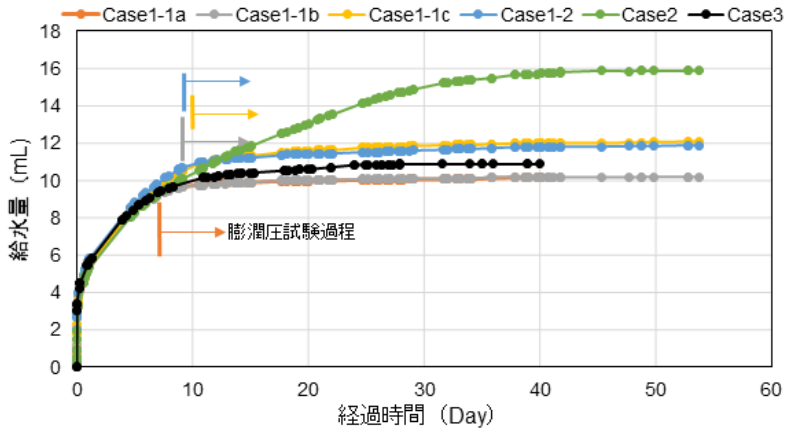


図 2.6-86　給水量の経時変化

(b) 膨潤高さ

図 2.6-87 には、膨潤高さの経時変化を示す。図から、膨潤高さの経時変化の傾向も、給水量の経時変化と類似しており、浸潤した水は空隙を飽和するよりも膨潤に消費されているものと考えられる。ケース 1-1a の場合、予察試験と同様に、約 7 日間で 5 mm の膨潤高さとなった。さらに、ケース 1-1b とケース 1-2 は約 9 日間、ケース 1-1c は約 10 日間を要した。

また、ケース 2 はまだ隙間が充填されるに至っていない。ケース 3 はケイ砂が上部に充填されているため、膨潤高さは計測していない。

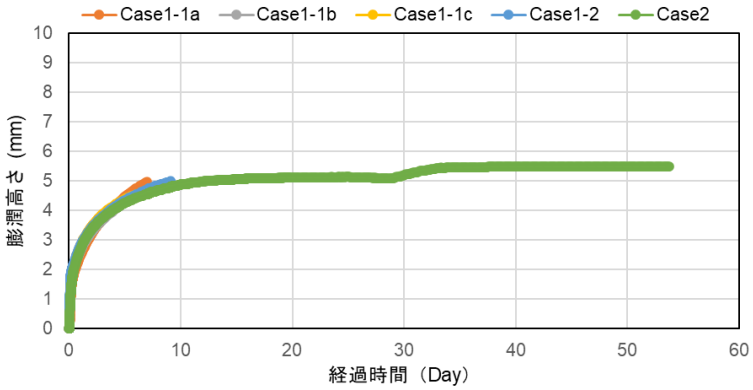


図 2.6-87　膨潤高さの経時変化

(c) 側圧の変化

図 2.6-88 には、膨潤過程の側圧の経時変化を示す。図には、膨潤過程と膨潤圧過程を併せて示している。全てのケースで給水開始から 2 日間で側圧が急増し、最大で 3 MPa 程度まで到達した。その後、膨潤圧は漸減して 1 MPa 弱に至っている。これは、試験開始直後は供試体の初期乾燥密度（2.0 Mg/m^3）に相当する膨潤圧が発生するため、非常に大きな膨潤圧となるが、膨潤過程で乾燥密度低下が進むと、その膨潤圧も低下することになるためだと考えられる。

また、膨潤過程から体積拘束して膨潤圧が発生する期間に移行する過程で側圧に特段の変化は見られなかったが、ケース 1-1c において側圧の経時変化の勾配が変動している。ケース 3 のケイ砂が充填されているケースでは、側圧のピークの圧力は他のケースに比べて約 1/3 であった。この差については、今後解析を行いながら、考察を進める。試験は継続中である。

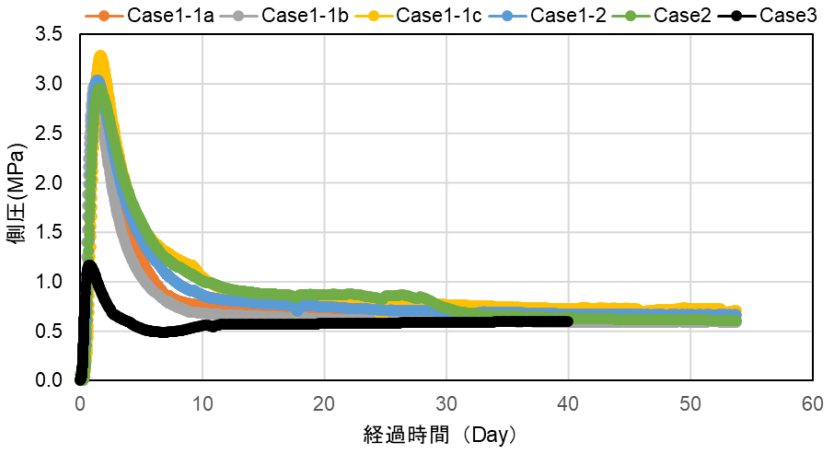


図 2.6-88　側圧の経時変化

(d) 膨潤圧の経時変化

図 2.6-89 に膨潤圧の経時変化を示す。図は、図 2.6-88 に示した側圧の経時変化と時間を合わせるために、膨潤過程も含む経過時間で表している。各ケースで隙間充填後に膨潤圧が発生している。まだ定常に至っていないが、図 2.6-88 に示した給水量の経時変化に見られるように、膨潤圧が発生した期間にはほとんど給水されていない。このことから、供試体は飽和しており、隙間充填期間に発生した乾燥密度の不均一状態が解消される過程で、供試体内部で間隙水の移動が発生しているものと考えられる。また、ケース 2 は、隙間が充填されていないため、軸方向の圧力はまだ発生していない。

ケース 3 は、膨潤過程がないため、給水開始直後から急激に軸方向の膨潤圧が増加している。一方、ケース 3 以外のケースは、初期に乾燥密度が 2.0 Mg/m³ であるが、膨潤圧過程の開始時点での平均乾燥密度は、ケース 3 と同じ 1.6 Mg/m³ である。しかしながら、軸方向の膨潤圧の経時変化がケース 3 と比べて緩慢であることから、ケース 3 以外のケースでは、膨潤圧過程に入った直後には膨潤過程に起因する乾燥密度分布が残っており、給水面側の乾燥密度が低い状態となっていると考えられる。

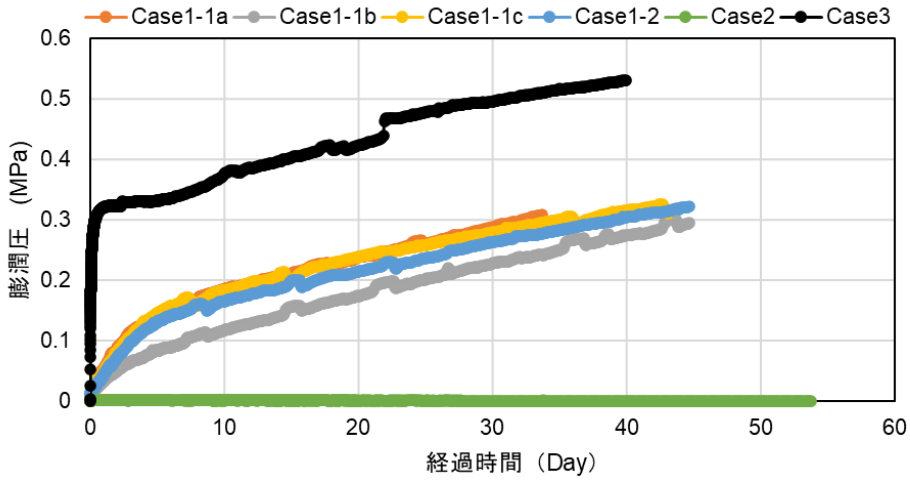


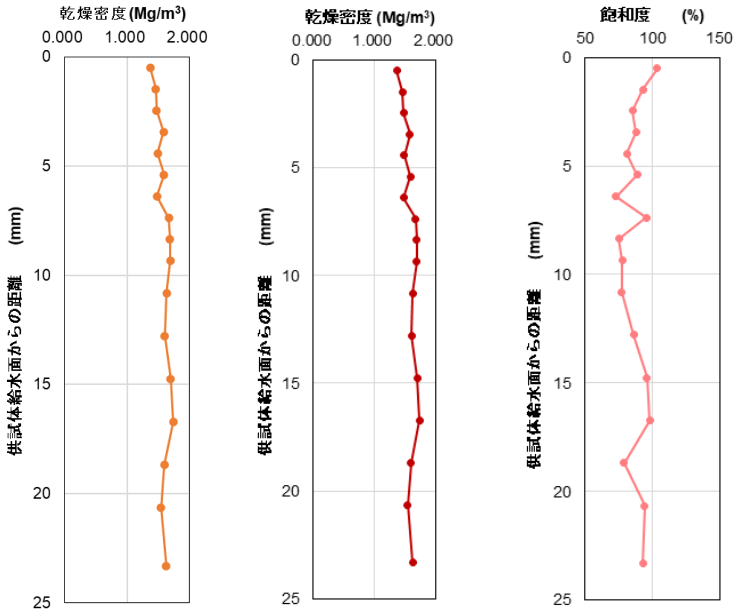
図 2.6-89　膨潤圧の経時変化

(e) 解体結果

本試験のうち、ケース 1-1a は、飽和に達すると予測される量の水が給水された時点で終了とするケースである。ケース 1-1a の試験は、給水量が飽和給水量である 10 mL を超えて、給水量もほぼ定常（給水量の増分値がゼロ）となり、側圧も定常状態となった。軸方向の膨潤圧は定常に至っていないが、飽和していると見なせたため、この時点で解体することとした。

予備試験と同じように、試験器から変位を測りながら押し出し、給水面から 1 層目は 0.5 mm、その下 10 mm までは約 1.0 mm、それより下は約 2.0 mm の厚さに切り分けた。給水面近傍では、膨潤によってベントナイトの含有量が多いため断面が滑らかであり、供試体中心部でケイ砂の影響により、断面の色が給水面より白く見えた。予備試験で見られたような排水側の乾燥は見られなかった。

カットして得られた試料の含水比と乾燥密度、さらに飽和度の分布を図 2.6-90 に示す。図から、給水側の含水比が 37.19%と大きいが、それ以外は全体的に均一であることが分かる。さらに、乾燥密度は概ね均一である。ただし、全体の平均的な飽和度は 88.5%であり、供試体中心部の飽和度が低いという結果となった。給水量は試験系の空隙を満たすだけの量 10 mL を超えているが、供試体の飽和度が 100%とはならなかった。予備試験の結果を踏まえて膨潤過程において乾燥対策を施したが、改善は見られたものの不十分であり、膨潤過程において蒸発した影響と考えられる。これを踏まえて、これ以降に解体する試験ケースについては、十分に給水してから実施する必要がある。



(a) 含水比分布　(b) 乾燥密度分布　(c) 飽和度分布

図 2.6-90　1-1a：解体結果

4) まとめと今後の課題

① 小型セル試験での検証に向けた力学解析手法の検討

令和 2 年度は、本業務で実施されている小型セル試験の試験条件に則した不飽和ベントナイト供試体の軸方向膨潤・隙間充填・飽和化過程のシミュレーションを実施した。また、試験は予定されていないものの、緩衝材が側方向に膨潤し、孔壁との間の隙間を充填する側方膨潤に対して

も理解を深めることが重要との認識から、不飽和ベントナイト供試体の側方向膨潤・隙間充填・飽和化過程のシミュレーションも併せて実施した。

軸方向膨潤シミュレーションでは、不飽和ベントナイト供試体の膨潤速度に影響を及ぼし得る因子として、水分特性曲線モデルに関するパラメータ及び透水係数モデルに関するパラメータに焦点を当て、これらのパラメータの違いが不飽和ベントナイト供試体の膨潤過程・飽和化過程の性状変化に及ぼす影響を解析結果から検討した。その結果、保水性が高くなるようなパラメータ、あるいは、透水係数の間隙比依存性が大きくなるようなパラメータを設定することにより、不飽和ベントナイトの供試体の膨潤速度が、概して早くなることがわかった。ただし、供試体内部の膨潤領域は異なる。保水性が高くなると、吸水面から水が浸透しやすくなり、供試体のより広い領域が膨潤することによって、より膨潤が早くなる。これに対して、透水係数の間隙比依存性が大きくなると、吸水面に近い領域の膨潤が促され、供試体の部分的な膨潤によって供試体の膨潤が早まった。供試体が隙間を充填し、その後、平衡状態に至ると、上記の膨潤領域の違いが要因となって、供試体内部の乾燥密度の分布に違いが現れることとなる。平衡状態の供試体内の乾燥密度分布は、供試体の吸水面に近い側から低密度領域、遷移領域、高密度領域に大別することができるが、保水性が高い場合は低密度領域が相対的に狭くなり、透水係数の間隙比依存性が大きくなる場合は、低密度領域が相対的に広くなることがわかった。今年度の検討により、パラメータの影響について把握した。

また、軸方向膨潤シミュレーションでは、段階的に隙間が付与されることによる膨潤履歴の違いによって、ベントナイト供試体の最終平衡状態における平衡膨潤圧や供試体内部の分布性状に現れる相違についても検討した。このような膨潤履歴の違いによって、最終の平均乾燥密度が同じであったとしても、乾燥密度の分布性状には違いが生じることが解析結果から示された。全ての解析ケースが該当するわけではないが、段階的な膨潤を経ることによって、最終平衡状態における乾燥密度分布に明瞭な低密度一定領域・高密度一定領域が現れず、供試体の高さ方向になだらかに乾燥密度が変化する分布の形成が見られた。どのような条件によって、このような乾燥密度分布が形成するかは、本研究で実施した解析ケースのみからは特定することができなす、今後の検討課題である。また、②項で示した実施中の小型セル試験の結果を検証データとすることにより、最適化が図れると考える。

軸方向膨潤でのシミュレーションの結果、側方向膨潤の大きな違いとして挙げられるのが、膨潤過程において拘束面に作用する応力（軸方向膨潤では側圧、側方向膨潤では軸圧）の発生形態である。軸方向膨潤における側圧、側方向膨潤における軸圧は、供試体の膨潤過程において増減し、ピーク値が得られる。軸方向膨潤においては、供試体の高さ方向に側圧ピークの発現の時間的ずれはあるものの、側圧のピーク値は位置に依らず同一であった。ところが、側方向膨潤の場合は、軸圧のピーク発現に時間的ずれがあるばかりでなく、半径方向にピーク値が異なる結果となった。吸水面から遠い程、このピーク値が小さくなる。現状では、この違いが現れる明快な説明を与えることができないが、高さが変わる膨潤と半径が変わる膨潤は同等でないことが示唆された。

これまでに、一次元で小型セルを対象とした隙間充填、及びその後の平衡状態に至るまでの過程について、シミュレーションした。これにより、隙間の充填過程での適切なパラメータ設定についての知見が得られている。同じスケールでの試験が実施されているため、試験の結果を待って現象を再現するシミュレーションを行い、さらに解析手法を適切なものとする予定である。また、今後、二次元、及びスケールアップしたシミュレーションのために、試験から得られる計測値をもとに継続的に検討を進める。

② 小型セル試験による力学解析の検証データの取得

試験の実施に先立ち、実施する試験の給水方法、手順などの妥当性や試験後の供試体の状態を把握するために予察試験を実施した。その結果、上部から下部に浸潤させる方法でも、一次元的に飽和が進むことが分かった。ただし、試験を通じて給水された量が、供試体の飽和給水量を大きく上回ったことから、底面からの蒸発散の影響が示唆された。

解体の結果、排水面に近づくにしたがって不飽和状態となり、断面の色は白味がかっている状況が観察された。この排水側の孔からの蒸発散により、給水量と供試体の空隙体積と膨潤体積の和が整合しなかったものと考えられたため、本試験では底面からの蒸発散対策が重要であることが分かった。

本試験では、隙間 5 mm のケースであるケース 1-1a は 7 日、1-1b と 1-2 は 9 日、1-1c は 10 日程度で隙間が充填された。体積拘束され、膨潤圧発生の過程に入ったケースにおいては、給水量がほぼゼロとなった。側圧の経時変化は給水開始から 2 日間で側圧が急増して、最大で 3 MPa 程度まで到達した。その後、側圧は漸減して 1 MPa 弱に至っている。試験開始直後は供試体の初期乾燥密度（2.0 Mg/m^3）に相当する膨潤圧が側部で発生するため、非常に大きな側圧となるが、膨潤過程で乾燥密度低下が進むことにより、側圧は低下したと考えられる。体積拘束後には、給水はほとんどなされていない状態で上部の膨潤圧が発生している。体積拘束後、乾燥密度の不均一状態が解消される過程で、供試体内部で間隙水の移動が発生しているものと考えられる。膨潤圧の経時変化が緩慢であることから、隙間充填に起因する乾燥密度分布が残っており、給水面側の乾燥密度が低い状態となっていることが予想される。

試験はまだ平衡状態に達しておらず、継続中のケースもある。今後、終了した試験を対象として、上述①で検討している隙間充填過程の解析手法を用いて再現解析などを行い、モデル、及びパラメータの妥当性を検討し、解析手法の高度化を進める。

参考文献

Amann, R.I., Ludwig, W. and Schleifer KH., Phylogenetic identification and in situ detection of individual microbial cells without cultivation, Microbiol. Rev., 59, 143-169, 1995.

Anantharaman, K., Hausmann, B., Jungbluth, S.P., Kantor, R.S., Lavy, A., Warren, L.A., Rappé, M.S., Pester, M., Loy, A., Thomas, B.C. and Banfield, J.F., Expanded diversity of microbial groups that shape the dissimilatory sulfur cycle, The ISME Journal, 12, pp.1715-1728, 2018.

青柳宏一, 下田右, 泥質堆積物および泥質岩における続成作用, 粘土科学, 31, 23-31, 1991.

Arthur R. and Zhou W., Reactive-transport model of buffer cementation, SKI Report 2005:59, Swedish Nuclear Power Inspectorate, Stockholm, Sweden, 2005.

Arthur, R. and Savage, D., Equilibrium constraints on buffer erosion based on the chemistry and chemical evolution of glacial meltwaters, Proceedings of the 5th International Meeting on Clays in Natural and Engineered Barriers for Radioactive Waste Confinement, 22-25 October 2012, Montpellier, France, pp.306-307, 2012.

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.

Bellot-Gurlet, L., Neff, D., Reguer, S., Monnier, J., Saheb, M. and Dillmann P., Raman studies of corrosion layers formed on archaeological irons in various media. J. Nano Res., vol. 8, pp.147-156, 2009.

Benbow, S. J., Kawama, D., Takase, H., Shimizu, H., Oda, C., Hirano, F., Takayama, Y., Mihara, M. and Honda, A., A Coupled Modelling Simulator for Near-Field Processes in Cement Engineered Barrier Systems for Radioactive Waste Disposal, Crystals, vol. 10, No.767, 2020.

Bethke, C. M., Farrell. B., and Yeakel, S., The Geochemist's Workbench version 12. Aqueous Solutions LLC, 2019.

Bildstein, O., Trotignon, L., Perronnet, M., and Jullien, M., Modelling iron-clay interactions in deep geological disposal conditions, Physics and Chemistry of the Earth, Parts A/B/C, 31, pp.618-625, 2006.

Blanc, P., Lassin, A., Piantone, P., Azaroual, M., Jacquemet, N., Fabbri, A., and Gaucher, E. C., Thermoddem: A geochemical database focused on low temperature water/rock interactions and waste materials., Applied Geochemistry, 27, pp.2107-2116, 2012.

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.

Brunet, J-P., Li, L., Karpyn, Z.T. and Huerta, N. J., Cement fracture opening or self-sealing: Critical residence time unifies diverging observations under geological carbone

sequestration conditions, International Journal of Greenhouse Gas Control, vol. 47, pp.25-37, 2016.

Cai, P., Huang, Q., Zhang, X., Chen, H., Adsorption of DNA on clay minerals and various colloidal particles from an Alfisol. Soil Biology and Biochemistry, Vol. 38, pp.471-476, 2006.

Carlson, L., Karnland, O., Oversby, V. M., Rance, A. P., Smart, N. R., Snellman, M., Vahanen, M. and Werme, L.O., Experimental studies of the interactions between anaerobically corroding iron and bentonite, Physics and Chemitrsy of the Earth, vol. 32, pp.334-345, 2007.

Corey, A. T., The interrelation between gas and oil relative permeabilities, Producers Monthly, vol.19, pp38-41, 1954.

Couture, R.A., Steam rapidly reduces the swelling capacity of bentonite, Nature, vol. 318, pp.50-52, 1985.

Deng, H., Molins, S., Steefel C., DePaolo, D., Voltolini, M., Yang, L. and Ajo-Franklin, J., A 2.5D reactive transport model for fracture alteration simulation, Environmental Science & Technology, vol. 50, pp.7564-7571, 2016.

Deng, H., Steefel C., Molins, S. and DePaolo, D., Fracture evolution in multimineral systems: The role of mineral composition, flow rate, and fracture aperture heterogeneity, ACS Earth and Space Chemistry, vol. 2, pp.112-124, 2018.

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］, 2002a.

土木学会, コンクリート標準示方書［ダムコンクリート編］, 2002b.

土木学会, コンクリート標準示方書, 2007.

Dueck, A., Johannesson, L.E., Kristensson, O. and Olsson, S., Report on hydro-mechanical and chemical-mineralogical analyses of the bentonite buffer in Canister Retrieval Test, SKB TR-11-07, Svensk Kärnbränslehantering AB, 2011.

Elkhoury, J. E., Ameli, P., Detwiler, R. L., Dissolution and deformation in fractured carbonates caused by flow of CO2-rich brine under reservoir condition, International Journal of Greenhouse Gas Control, 16(1), S203-S215, 2013.

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

ENRESA, FEBEX Project. Final Report. Post-mortem bentonite analysis. Enresa publicación técnica 05-1/2006, 2006.

Fatt, I. and W.A. Klikoff., Effect of Fractional Wettability on Multiphase Flow Through Porous Media, AIME Transactions, vol. 216, 1959.

Feuillie, C., Daniel, I., Michot, LJ., Pedreira-Segade, U., Adsorption of nucleotides onto Fe-Mg-Al rich swelling clays. Geochimica et Cosmochimica Acta, vol.120, pp.97-108, 2013.

福岡市教育委員会, 比恵遺跡群（24）, 福岡市埋蔵文化財発掘調査報告書第530集, 1997.

福岡市教育委員会, 博多（61）, 福岡市埋蔵文化財発掘調査報告書第556集, 1998.

福岡市教育委員会, 博多（123）, 福岡市埋蔵文化財発掘調査報告書第 993 集, 2008.

福岡市教育委員会, 比恵（66）, 福岡市埋蔵文化財発掘調査報告書第 1237 集, 2014.

福岡市教育委員会, 博多（148）, 福岡市埋蔵文化財発掘調査報告書第 1266 集, 2015.

原子力安全研究協会, 緩衝材の長期安定性評価に関する調査研究および技術レビュー, JNC TJ 8400 2003-005, 118p, 2003.
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 2 分冊)－人工バリア品質／健全性評価手法の構築－緩衝材, 2016.
原子力環境整備促進・資金管理センター, 平成 28 年度地層処分技術調査等事業 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, 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 平成 25 年度～平成 29 年度の取りまとめ報告書, 2018b.
原子力発電環境整備機構, 高レベル放射性廃棄物地層処分の技術と安全性, NUMO-TR-04-01, 2004.
原子力発電環境整備機構, 地層処分事業の安全確保(2010 年度版)－確かな技術による安全な地層処分の実現のために－, NUMO-TR-11-01, 2011.
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－, NUMO-TR-20-03, 2021.
Gens, A., Alcoverro, J., Radim, B., Hasal, M., Michalec, Z., Takayama, Y., Lee, C., Lee, J., Kim, G. Y., Kuo, C. W., Kuo, W. J., Lin, C. Y., HM and THM interactions in bentonite engineered barriers for nuclear waste disposal, International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences, vol. 137, 2021.
Gray, M.N., OECD/NEA International Stripa Project, overview volume 3, engineered barriers. Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co. (SKB), Stockholm, 1993.
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, vol. 39, pp.17-34, 2004.
Hadi, J., Wersin, P., Serneels, V. and Greneche, J-M., Eighteen years of steel–bentonite interaction in the FEBEX in situ test at the Grimsel Test Site in Switzerland. Clays and Clay Minerals, vol. 67, pp.111-131, 2019.
林田一貴, 加藤利弘, 久保田満, 村上裕晃, 天野由記, 岩月輝希, 坑道閉鎖試験に基づく坑道掘削・閉鎖時の化学環境変化プロセスの考察, 地球化学, vol. 52, No.1, pp.55-71, 2018.
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.
Hurt Jr, R. A., Robeson, M. S., Shakya, M., Moberly, J. G., Vishnivetskaya, T. A., Gu, B., and Elias, D. A., Improved yield of high molecular weight DNA coincides with increased microbial diversity access from iron oxide cemented sub-surface clay environments. PLOS one, 9, e102826, 2014.
出光一哉, 鉄共存系緩衝材中でのウランの拡散挙動, 放射性廃棄物研究, vol. 1, pp.43-52, 1994.

Iizuka, A. and Ohta, H., A determination procedure of input parameters in elasto-plastic finite element analysis, Soils and Foundations, vol. 27, No.3, pp.71-87, 1987.

Ikeda, S., Tsurumaru, H., Wakai, S., Noritake, C., Fujishiro, K., Akasaka and M., Ando, K., Evaluation of the effects of different additives in improving the DNA extraction yield and quality from andosol, Microbes and Environments., vol. 23, pp.159-166, 2008.

Ishibashi, M., Yoshida, H., Sasao, E. and Yuguchi, T., Long term behavior of hydrogeological structures associated with faulting; An Example from the deep crystalline rock in the Mizunami URL, Central Japan, Engineering Geology, vol. 208, pp.114-127, 2016.

石橋正祐紀, 安藤友美, 笹尾英嗣, 湯口貴史, 西本昌司, 吉田英一, 深部結晶質岩における割れ目の形成・充填過程と透水性割れ目の地質学的特徴－土岐花崗岩を例としてー, 応用地質, vol. 55, No.4, pp.156-165, 2014.

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.

伊藤雅和, 石井卓, 中島均, 平田征弥, ベントナイトの成因・生成環境に関する一考察-国内4鉱床の比較-, 粘土科学, vol. 38, pp.181-187, 1999.

伊藤雅和, 岡本真由美, 鈴木啓三, 柴田雅博, 佐々木康雄, ベントナイトの鉱物組成分析, 日本原子力学会誌, vol. 36, pp.1055-1058, 1994.

地盤工学会, 不飽和地盤の挙動と評価, 2004.

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.

Kanazawa, S. Kobayashi, S., Ichikawa, N., Yanai, M. and Ishiyama, K., The swelling behaviour of bentonite buffer material considering the effect of temperature, International Journal of GEOMATE, vol. 19, Issue 74, pp.216-221, 2020.

金津努, 鉄筋とコンクリートの熱膨張係数差に起因する内部応力の評価, 土木学会論文集, No. 585/V-38, pp.113-125, 1998.

菅野毅, 松本一浩, ベントナイト緩衝材の流出特性の評価（1）, PNC TN8410 97-313, 1997.

Karnland, O., Sandén, T., Johannesson, L-E., Eriksen, T. E, Jansson, M., Wold, S., Pedersen, K., Motamedi, M. and Rosborg, B., Long term test of buffer material. Final report on the pilot parcels, SKB TR-00-22, Svensk Kärnbränslehantering AB, 2000.

Khanna, M. and Stotzky, G., Transformation of Bacillus subtilis by DNA bound on montmorillonite and effect of DNase on the transforming ability of bound DNA, Applied Environmental Microbiology, vol. 58, pp.1930-1939, 1992.

菊池広人, 棚井憲治, 緩衝材の熱物性測定試験（III）, 面熱源法による緩衝材熱物性の取得, JNC TN8430 2003-009, 2003.

菊池広人, 棚井憲治, 幌延地下水を用いた緩衝材・埋め戻し材の基本特性試験, JNC TN8430 2004-005, 2005.

木村誠, 九石正美, 藤田朝雄, 中間茂雄, 鈴木英明, 緩衝材中の化学影響評価に向けた熱－水－応力－化学連成解析モデルの開発, JAEA-Research 2010-034, 2010.

Kingma, K. J., and Hemley, R. J., Raman spectroscopic study of microcrystalline silica, American Mineralogist, vol. 79, pp.269-273, 1994.

Kloprogge, J. T., Raman spectroscopy of clay minerals, Developments in Clay Science. vol. 8., pp.150-199, 2017.

Kobayashi, M., Yokoyama, Y., Takahashi, R., Asano, H., Taniguchi, N. and Naito, M., Long term integrity of overpack closure weld for HLW geological disposal Part 2- corrosion properties under anaerobic conditions, Corrosion Engineering, Science and Technology, vol. 46, pp.212-216, 2011.

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, vol. 31, pp.222-230, 1992.

小暮敏博, 電子回折の幾何学とその計算法 Geometry of electron diffraction and its calculation, 顕微鏡, vol. 50, pp.6-10, 2015.

国立天文台編, 理科年表 平成29年, 2016.

久保博, 黒木泰貴, 三原守弘, ベントナイト系緩衝材のコンクリート間隙水による長期変質の基礎研究, 地盤工学会誌, 第 46 巻, 第 10 号, pp.31-34, 1998.

Kumpulainen, S., Carlsson, T., Muurinen, A., Kiviranta, L., Svensson, D., Sasamoto, H., Yui, M., Wersin, P., and Rosch, D., Long-term alteration of bentonite in the presence of metallic iron, SKB Report R-10-52, Stockholm, Sweden, 2010.

Kuno, Y., Kamei, G and Ohtani, H., Natural colloids in groundwater from a bentonite mine – correlation between colloid generation and groundwater chemistry, MRS Proceedings, 713, JJ8.4.1-JJ8.4.8. 2002.

操上広志, 地盤における熱-水-応力連成現象のモデル化に関する研究, 京都大学, 博士論文, 162p, 2003.

黒岩弘, 川本康司, 山田信人, 笹尾英嗣, 超深地層研究所計画 瑞浪超深地層研究所 研究坑道におけるボーリングデータ集(12MI27 号孔～14MI51 号孔), JAEA-Data/Code 2015-003, 2015.

桑原和道, 佐藤稔紀, 真田祐幸, 高山裕介, 超深地層研究所計画（岩盤力学に関する調査研究）深度 500m における岩盤力学調査, JAEA-Research 2015-005, 2015.

Laetsch, T. and Downs, R., Software for Identification and Refinement of Cell Parameters from Powder Diffraction Data of Minerals Using the RRUFF Project and American Mineralogist Crystal Structure Databases, 19th General Meeting of the International Mineralogical Association, Kobe, Japan, vol. 23, p. e28, 2006.

Laine, H. and Karttunen, P., Long-term stability of bentonite. A literature review, Long-Term Stability of Bentonite, Working Report 2010-53. Posiva Oy, Eurajoki, 2010.

Leupin, O.X., Birgersson, M., Karnland, O., Korkeakoski, P., Mäderm U.K., Sellin, P. and Wersin, P., Montmorillonite stability under nearfield conditions, Nagra Tech. Rep. NTB 14-12, 2014.

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.

松井敏也, 出土鉄製品の保存と対応, 同成社, 2009.

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.

松岡稔幸, 濱克宏（編）, 超深地層研究計画における調査研究－必須の課題に関する研究成果報告書, JAEA-Research 2019-012, 2020.

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.
宮口一, 中原弘明, 杉田律子, 土壌中細胞外DNAの抽出における市販キットの性能評価, 法科学技術, vol. 24, pp.63-72, 2019.
都城秋穂, 久城育夫, 岩石学 II －岩石の性質と分類－, 共立全書, 共立出版, 1972.
水谷伸治郎, 斎藤靖二, 勘米良亀齢, 日本の堆積岩, 岩波書店, 1987.
中林亮, Evaluation of bentonite/hyperalkaline-fluids interaction in compacted system by X-ray computed tomography, 北海道大学大学院工学院学位論文（博士）, 第11467号, 2014.
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.
中山雅, 大野宏和, 中山真理子, 小林正人, 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29年度）, JAEA-Data/Code-2019-003, 2019a.
中山雅, 雑賀 敦, 木村駿, 望月陽人, 青柳和平, 大野宏和, 宮川和也, 武田匡樹, 早野明, 松岡稔幸, 櫻井彰孝, 宮良信勝, 石井英一, 杉田裕, 笹本広, 棚井憲治, 佐藤稔紀, 大澤英昭, 北山彩水, 谷口直樹, 幌延深地層研究計画における地下施設での調査研究段階（第3段階：必須の課題2015－2019年度）研究成果報告書, JAEA-Research 2019-013, 2019b.
中山雅, 松崎達二, 丹生屋純夫, 幌延深地層研究計画における人工バリア性能確認試験, －大口径掘削機の開発, 模擬オーバーパック, 緩衝材および埋め戻し材の製作－, JAEA-Research 2016-010, 2016.
奈良文化財研究所, 左京三条一坊一・二坪の調査－第 478・486・488 次, 奈良文化財研究所紀要, 2012.
Necib, S., Diomidis, N., Keech, P. and Nakayama, M., Corrosion of carbon steel in clay environments relevant to radioactive waste geological disposals, Mont Terri rock laboratory (Switzerland). Swiss Journal of Geosciences, vol. 110, pp.329-342, 2017.
Neff, D., Saheb, M., Monnier, J., Perrin, S., Descostes, M., L'Hostis, V., Crusset, D., Millard, A. and Dillmann, P., A review of the archaeological analogue approaches to predict the long-term corrosion behaviour of carbon steel overpack and reinforced concrete structures in the French disposal systems, Journal of Nuclear Materials, vol. 402, pp.196-205, 2010.
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 高レベル放射性廃棄物処分関連先進的地層処分概念・性能評価技術高度化開発 －巨大地震・津波を含む想定外事象への対応－報告書 平成25年3月, 2013a.
日本原子力研究開発機構, 平成24年度 地層処分技術調査等事業 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, 2013b.
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 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, 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, 電力中央研究所, 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 岩盤中地下水流動評価技術高度化開発報告書 平成 31 年 3 月, 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, 2020.
日本機械学会, 発電用原子力設備規格溶接規格（2011 年追補版）, JSME S NB1-2011, 2014.
日本コンクリート工学協会, コンクリート便覧［第二版］, 1996.
西尾和久, 清水麻由子, 弥富洋介, 濱克宏（編）, 「令和元年度 東濃地科学センター 地層科学研究情報・意見交換会」資料集, JAEA-Review 2020-013, 2020.
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.
Ohnishi, Y., Shibata, H. and Kobayashi, A., Development of finite element code for the analysis of coupled Thermo-Hydro-Mechanical behaviors of a saturated-unsaturated medium, Proc. of Int. Symp. on Coupled Process Affecting the Performance of a Nuclear Waste Repository, Berkeley, pp.263-268, 1985.
大野宏和, 高山裕介, 中山雅, 幌延 URL における人工バリアの性能確認試験; 熱-水-応力連成解析検討, 日本原子力学会 2019 年春の大会予稿集, 2019.
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.

大内仁, 間野正, 五十嵐寛, 河村和廣, 山田一夫, 鈴木猛, 捧賢一, 小田倉誠美, 関克巳, 示差熱分析（DTA）による廃棄物ガラスの転移温度測定 －高放射性廃液固化研究報告書－, PNC-TN8410 97-044, 1997.

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.

Okada, H., Stress Corrosion Cracking and Hydrogen Cracking of Structural Steels, Stress Corrosion Cracking and Hydrogen Embrittlement of Iron Base Alloys, Unieux-Firminy, France, 12-16 June,1973. pp.124-134, 1977.

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.

Oscarson, D.W. and Dixon, D.A., The effect of steam on montmorillonite, Applied Clay Science, vol. 4, pp.279-292, 1989.

Oscarson, D.W., Dixon, D.A., and Gray, M.N., Effect of heating unsaturated bentonite on the swelling and hydraulic properties of subsequently saturated clay, Proceedings of the Annual Confernece and 1st Biennial Environmental Speviality Conference of the Canadian Soviety of Civil Engineering, Hamilton, Ontario, II-1, pp.312-323, 1990.

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.

POSIVA, Safety Case for the Disposal of Spent Nuclear Fuel at Olkiluoto – Performance Assessment 2012. Posiva 2012-04. Posiva Oy, Eurajoki, Finland, 2012.

Pruess, K., TOUGH2 – A General- purpose numerical simulator for multiphase fluid and heat flow, LBL20700 Lawrence Berkeley National Laboratory, 1991.

Pusch, R. and Madsen, F. T., Aspects of the illitization of the Kinnekulle bentonites, Clays and Clay Minerals, vol. 43, pp.133-140, 1995.

Pusch, R., Bluemling, P. and Johnson, L., Performance of strongly compressed MX-80 pellets under repository-like conditions, Applied Clay Science, vol. 23, pp.239-244, 2003.

Pusch, R., Evolution of models for conversion of smectite to non-expandable minerals, SKB TR 93-33, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co (SKB), Stockholm, Sweden, 1993.

Pusch, R., Karnland, O., Lajudie, A. and Atabek, R., Hydrothermal field test with French candidate clay embedding steel heater in the Stripa mine, SKB TR 93-02, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co., Stockholm, Sweden, 1992.

Pusch, R., Kasbohm, J. and Thao, H.T.M., Chemical stability of montmorillonite buffer clay under repository-like conditions - A synthesis of relevant experimental data, Applied Clay Science, vol. 47, pp.113-119, 2010.

Pusch, R., Kasbohm, J., Pacovsky, J. and Cechova, Z., Are all smectite clays suitable as "buffers"?, Physics and Chemistry of the Earth, Parts A/B/C, vol. 32, pp.116-122, 2007.

Pusch, R., On the effect of hot water vapor on MX-80 clay, SKB Tech. Rep. TR-00-16. SKB Svensk Kärnbränslehantering AB, Stockholm, Sweden, 2000.

Pusch, R., The Buffer and Backfill Handbook Part 2: Materials and techniques, SKB Technical Report TR-02-12, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co (SKB), Stockholm, Sweden, 2001.

Quintessa Ltd., QPAC: Quintessa's General-Purpose Modelling Software, QRS-QPAC-11, 2013.

Réguer, S., Dillmann, P. and Mirambet, F., Buried iron archaeological artefacts: Corrosion mechanisms related to the presence of Cl-containing phases, Corrosion Science, vol. 49, pp.2726-2774, 2007.

Reijonen, H.M. and Alexander, W.R., Bentonite analogue research related to geological disposal of radioactive waste: current status and future outlook, Swiss Journal of Geosciences, vol. 108, pp.101-110, 2015.

Reijonen, H.M. and Marcos, N., Chemical erosion of the bentonite buffer: do we observe it in nature?, Geological Society, London, Special Publications, vol. 443, pp.307-317, 2017.

雑賀敦, 幌延深地層研究計画 平成 30 年度調査研究成果報告, JAEA-Review 2019-018, 2020.

産業技術総合研究所, 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, 電力中央研究所, 平成28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沿岸部処分システム高度化開発, 2017.

産業技術総合研究所, 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, 電力中央研究所, 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沿岸部処分システム高度化開発, 2018.

産業技術総合研究所, 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, 電力中央研究所, 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 沿岸部処分システム高度化開発 平成27年度～平成30年度 取りまとめ報告書, 2019.

Sandén, T., Börgesson, L., Dueck, A., Goudarzi, R. and Lönnqvist, M., Deep repository-Engineered barrier system. Erosion and sealing processes in tunnel backfill materials investigated in laboratory, SKB R-08-135, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co., 2008.

Sandén, T. and Börgesson, L., Early effects of water inflow into a deposition hole. Laboratory tests results, SKB R-10-70, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co., 2010.

Sato, T., Murakami, T., and Watanabe, T., Change in layer charge of smectites and smectite layers in illite/smectite during diagenetic alteration, Clays and Clay Minerals, vol. 44, pp.460-469, 1996.

Savage, D., Watson, C., Benbow, S., and Wilson, J., Modelling iron-bentonite interactions, Applied Clay Science, vol.47, pp.91-98, 2010.

Schatz, T., Kanerva, N., Martikainen, J., Sane, P. and Koskinen, K., Buffer erosion in dilute groundwater, Posiva WR-2012-44. Posiva Oy, Eurajoki, Finland, 2013.

Schlegel, M.L., Martin, F., Fenart, M., Blanc, C., Varlet, J., Foy, E., Prêt, D. and Trcera, N., Corrosion at the carbon steel-clay compact interface at 90°C: Insight into short- and long-term corrosion aspects, Corrosion Science, vol. 152, pp.31-44, 2019.

柴田雅博, 笹本広, 神徳敬, 油井三和, 緩衝材の長期安定性評価技術の現状, JNC TN8400 2004-010, 2004.

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, Applied Geochemistry, vol. 18, pp.1555-1571, 2003.

Steefel, C. I., Appelo, C. A. J., Arora, B., Jacques, D., Kalbacher, T., Kolditz, O., Lagneau, V., Lichtner, P. C., Mayer, K. U., Meeussen, J. C. L., Molins, S., Moulton, D., Shao, H., Šimůnek, J., Spycher, N., Yabusaki, S. B. and Yeh, G. T., Reactive transport codes for subsurface environmental simulation, Computational Geosciences, vol. 19, pp.445-478, 2015.

Steefel, C. I. and Lichtner, P. C., Diffusion and reaction in rock matrix bordering a hyperalkaline fluid-filled fracture, Geochimica et Cosmochimica Acta, vol. 58, pp.3595-3612, 1994.

Stroes-Gascoyne, S., Hamon, C.J., Maak, P. and Russell, S., The effects of the physical properties of highly compacted smectitic clay (bentonite) on the culturability of indigenous microorganisms, Applied Clay Science, vol. 47, p155-162, 2010.

Sugita, Y., Kwon, S., Lee, C., Massmann, J., Pan, P-Z. and Rutovist, J., DECOVALEX-2015 project Task B2 final report, KTH Architecture and the Built Environment, 89p, 2016.

鈴木英明, 藤田朝雄, 緩衝材の膨潤特性, 核燃料サイクル開発機構報告書, JNC-TN8400 99-038, 1999.

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, vol. 19, No.2, pp.39-50, 2012.

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, 高山裕介, ニアフィールドにおける過渡期の熱－水－応力連成挙動に及ぼす緩衝材の密度変化の影響評価（受託研究）, JAEA-Research 2020-015, 2020.

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.

棚井憲治, 菅野毅, Christophe Galle., 圧縮ベントナイトの水素ガス移行特性評価, PNC-TN8410 96-289, 1996.

谷口直樹, 川崎学, 内藤守正, 低酸素濃度下での模擬地下水の飽和した圧縮ベントナイト中における炭素鋼の腐食挙動, 材料と環境, vol. 59, pp.418-429, 2010b.

谷口直樹, 山口真, 内藤守正, 人工海水中における炭素鋼の腐食挙動に及ぼすγ線照射の影響, 第57回材料と環境討論会講演集, pp.57-61, 2010a.

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.

陶野郁雄, 圧密現象と続成作用, 応用地質, vol. 32, pp.78-88, 1991.

van Genuchten, M. Th., A closed-form equation for predicting hydraulic of unsaturated soils, Soil Science Society American Journal, vol. 44, pp.892-898, 1980.

渡邊保貴, 田中幸久, 締固め時の含水比に着目した微小変位制御によるベントナイトの膨潤特性試験, 土木学会第 71 回年次学術講演会講演概要集, CS13-030, pp.59-60, 2016.

Wersin, P., Johnson, L. and McKinley, I., Performance of the bentonite barrier at temperatures beyond 100ºC: A critical review, Physics and Chemistry of the Earth, vol. 32, pp.780-788, 2007.

Wilson, J. and Bond, A., Impact of Elevated Temperatures on Bentonite Buffers, QRS-1384Q-R3, RWM Report, 2016.

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.

柳田明進, 埋蔵環境下における金属製遺物の腐食に関する研究, 京都大学, 博士論文, 2018.

Yasuhara, H. and Elsworth, D., A numerical model simulating reactive transport and evolution of fracture permeability, International Jorunal of Numerical Analytical Methods in Geomechanics, 30, pp.1039-1062, 2006.

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.

Yokoyama, Y., Mitsui, H., Takahashi, R., Asano, H., Taniguchi, N. and Naito, M., Corrosion behavior of weld zone of carbon steel overpack for HLW geological disposal, Materials Research Society symposia proceedings, vol. 1124, pp. 463-471, 2009.

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.

Yong, R. N., Pusch, R. and Nakano, M., Containment of high-level radioactive and hazardous solid wastes with clay barriers, Spon Press, London, New York, 2010.

吉田英一, 球状コンクリーションの科学, 近未来社, 2019.

吉田英一, 大江俊昭, 伊藤雅和, ベントナイト鉱床中の炭酸カルシウム球状コンクリーションの産状と応用－ベントナイトの長期挙動アナログとして－, 令和元年度日本応用地質学会研究発表会要旨集, pp.3-4, 2019.

吉川英樹, 川上泰, 福永栄, 岡野誠司, 藤木喜市, 本谷益良, 朝野英一, 地層処分システムにおける微生物の影響について（2）－微生物の栄養源と透過性について－, 原子力バックエンド研究, vol. 1, pp.213-230, 1995.

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5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、システムの安全性を評価するとともに、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。

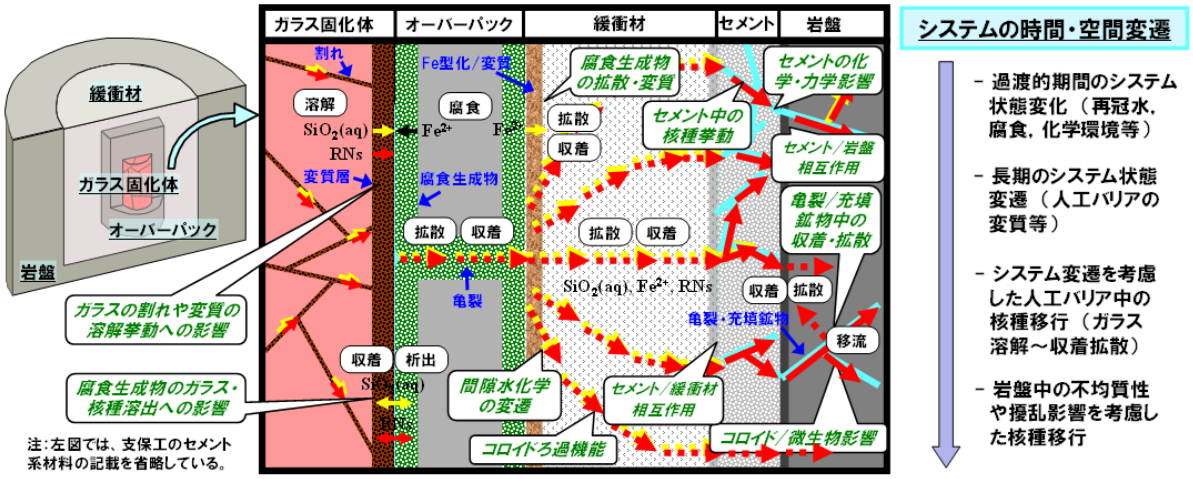


図3.1-1　ニアフィールドのシステム変遷と核種移行評価に係る課題例

3.1.2 5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に示す三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。三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等の岩石試料を用いて、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、現象解析モデルを核種移行評価へ適用するための方法論と今後の課題を提示する。

(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、核種-天然有機物-岩石の三元系の評価の基礎となるデータのうち、核種-有機物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。これらの成果を踏まえ、有機物影響を考慮した核種移行評価に向けた課題と今後の研究アプローチを提示する。

天然に存在する主要な微生物のデータ取得については、核種移行に及ぼす微生物影響評価モデルを構築し、パラメータを整備するため、これまで未評価の微生物を対象に、核種移行への影響の観点から文献調査を行い、研究課題の抽出とその重要度分類を行う。そのうえで、重要な微生

物を対象に、微生物による核種の収着や微生物の代謝による核種の取り込み等の重要な現象に関するデータを取得し、これらの核種移行への影響メカニズムを把握する。さらに、これらの成果と、これまでの感度解析等において重要と評価されたモデル・パラメータとの関係性を明らかにし、微生物影響を考慮した核種移行解析に反映する。

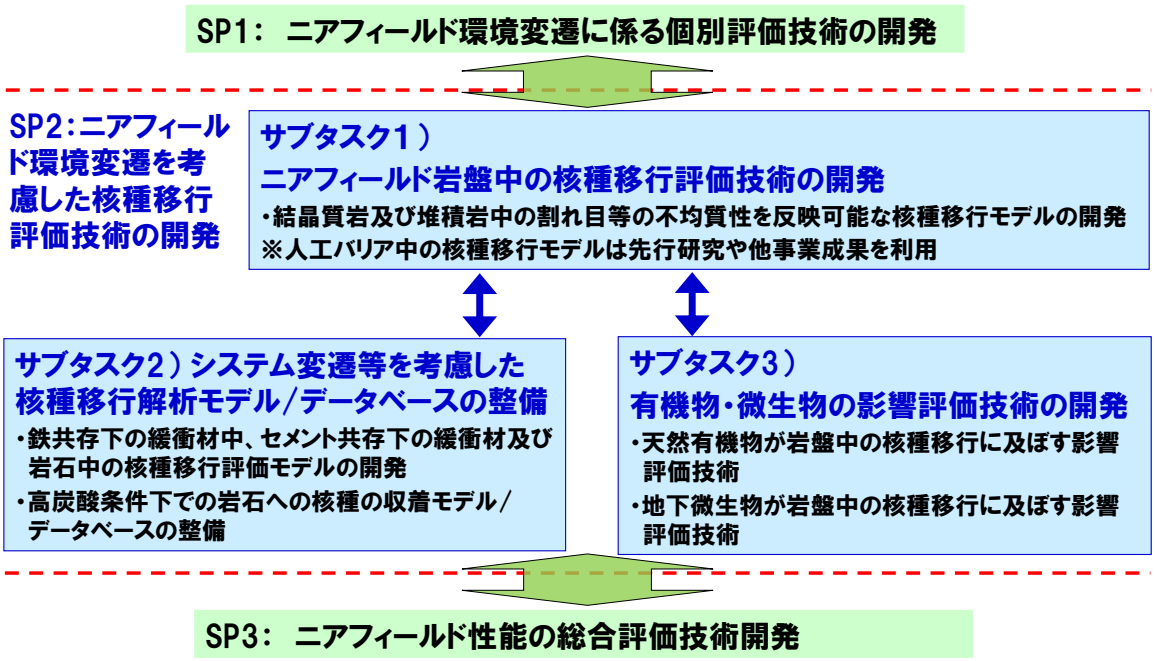


図3.1-2　本課題における三つのサブタスクとそれらの関係

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ためには、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、様々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。そのため、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、今後の実際の地質環境を対象とした評価への展開を念頭に、実際の地質環境の特性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といった視点を含む評価確証の方法論を検討しておくことが重要な課題となる。

本サブタスクでは、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及び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く物質移動は拡散によって支配されることから、マトリクス部の収着・拡散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等の海外の花崗岩等を、堆積岩として幌延の泥岩を主たる対象とし、さらに国内岩石へと対象を拡充しつつ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、重要となる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する。また、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31年度までに、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; 2020）。

まず、結晶質岩については、これまでにスイスの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核種移行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した。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した。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の調査・検討を進めた。

堆積岩系については、幌延の泥岩を対象として、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核磁気共鳴（NMR）法による分析により把握し、それらを反映したモデルの高度化を進めた。そして、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った。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た。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。

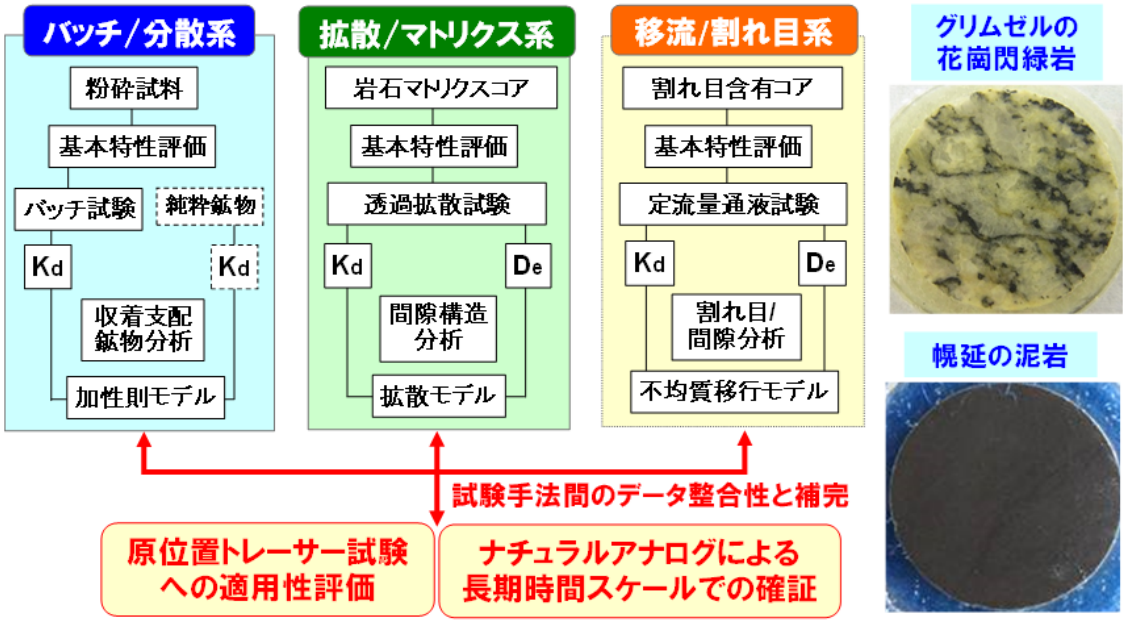


図3.2-1　結晶質岩と堆積岩のマトリクス部と割れ目部を対象とした複数の室内試験や原位置試験等を組合せた核種移行研究アプローチ

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31年度までの取り組みを踏まえ、令和2年度は以下のような取り組みを進めた。

結晶質岩については、これまでにスイスのグリムゼル等の国外の結晶質岩を対象に構築してきたマトリクス部の不均質性を考慮した核種移行モデルの国内の結晶質岩への適用性を検討するため、国内の結晶質岩の標準岩石試料から研究対象を選定したうえで、黒雲母等の鉱物分布の不均質性の分析データ及び複数のトレーサーの拡散データを取得した。また、平成30年度から31年度にかけて実施してきた、グリムゼルの原位置から採取した20cm程度の大型の割れ目試料を対象に、室内トレーサー試験後の割れ目の開口部やガウジ部等の不均質性を解析評価するとともに、試験後の割れ目表面近傍のトレーサー濃度分布の分析データを取得し、移行経路の把握を進めた。さらに、これまでの結晶質岩のマトリクス部と割れ目部の不均質性とその核種移行への影響に関する知見を反映しつつ、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の検討を進めるとともに、今後の高度化や確証に向けた課題とアプローチを提示した。

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及び核種の収着・拡散メカニズムを把握するための室内試験・分析データを拡充するとともに、それらを反映したモデルの高度化検討を進めた。また、これまでに幌延深地層研究センターの地下調査坑道で実施してきた、マトリクス部を対象とした原位置拡散試験、及び割れ目を対象とした原位置トレーサー試験の結果を対象に解析を行い、実際の地質環境の特徴を反映したモデルの改良と妥当性の確認を進めた。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を試行するとともに、これまでに検討してきた非反応性トレーサーの解析結果との比較評価を進めた。

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、スイスの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・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2019; 2020）。

令和2年度は、国内岩石を対象としたX線CT分析とその画像解析により、黒雲母の連結性や配向性の定量評価を試みるとともに、同試料を対象とした透過拡散試験による陽イオン、陰イオン及び中性粒子の拡散データの取得に着手した。黒雲母の連結性や配向性の定量評価については、平成31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; 2020）。しかし、この手法では葉理方向に沿った断面画像の粒子しか識別できないため、断面に対して垂直方向への連結性が評価できず、粒子の連結性を過小評価していた可能性がある。令和2年度は、上記課題を踏まえ、雲母粒子の連結性や配向性を三次元的に評価し、平成31年度までの従来方法との比較検討を行った。

具体的な評価手順としては、図3.2-2に示すように、①従来と同様の方法でX線CT像の黒雲母に対応した輝度領域を抽出し、②抽出した領域（ボクセル）から個々の雲母粒子を識別するため、各ボクセル同士の繋がりを識別する。ここでは、立方体ボクセルの面が隣のボクセル面と接している場合、それらのボクセルは連結され、一つの粒子として認識される。③各粒子の体積や形状から、雲母の含有量と粒子径を決定する。粒子径については、④粒子形状を楕円近似し、その長短軸で評価する。

これらの手法を用いて評価したグリムゼル花崗閃緑岩（直径：20 mm、長さ：22 mm）の適用例を図3.2-2(a) - (c)にそれぞれ示す。また、表3.2-1に同試料の従来方法による評価結果との比較を示す。従来の方法と比較すると、粒子数が多く、長軸及び短軸共により高い値が得られた。粒子数の増加は、1枚の二次元の画像として解析するよりも、三次元ボリュームとした方が解析対象の範囲が広くなるためである。また、長軸及び短軸が従来法より高い値を示しているのは、三次

元方向の粒子の連結性を評価できたためであり、今回の結果から、グリムゼル花崗閃緑岩試料では1cm程度の比較的に連結性の高い粒子が存在することが分かった。このように連結性が高い粒子は、陽イオンや陰イオンの拡散挙動に大きく影響することが考えられるため、三次元解析手法による黒雲母評価が妥当であると思われる。粒子配向度については、三次元画像上で比較的配向方向が揃っている雲母粒子を抽出し、その粒子長軸方向により決定している。しかしながら、この手法では抽出する雲母粒子に任意性があるため、今後、例えばフーリエ変換を用いた画像解析技術によって、すべての粒子の配向角度に関する情報を抽出し、そのデータを統計的に処理する手法などにより、定量的な評価手法の妥当性を確認していく必要がある。

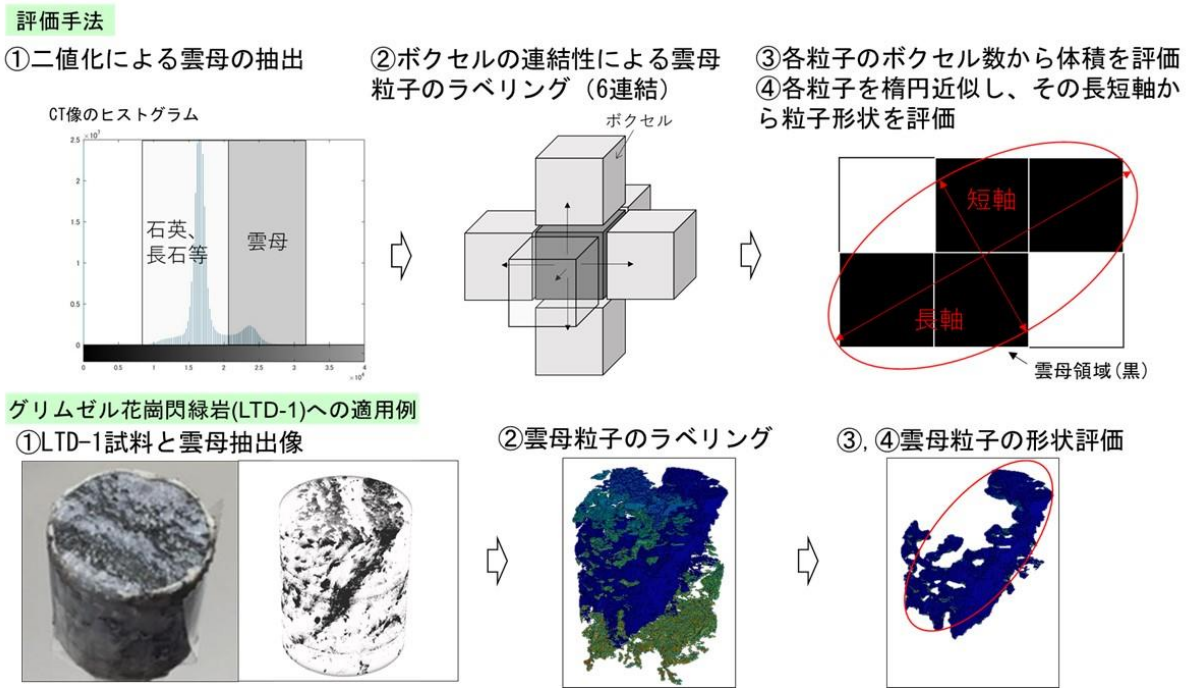


図3.2-2　結晶質岩中の黒雲母等の形状、サイズ、連結性の評価方法とグリムゼル花崗閃緑岩への適用例

表3.2-1　グリムゼル花崗閃緑岩に含まれる黒雲母等の連続性の評価結果

解析手法	黒雲母等含有率(%)	粒子数	配向性傾斜角(°)	短軸(mm)	長軸(mm)
従来方法	4.1-14.4	870-1225	24.4	0.161-0.181	0.263-0.307
三次元解析	12.1	4099	30	0.023-12.1	0.25-18.6

上記手法を国内の岩石試料に適用し、岩石中に含まれる黒雲母の含有率及び連結性の評価を実施した。国内の岩石には、黒雲母等鉱物の含有率や異方性のバリエーションに着目して、花崗岩（茨城県笠間市稲田産）、花崗閃緑岩（山梨県甲州市塩山）、片麻状花崗閃緑岩（愛知県幡豆町東幡豆）の三種類を標準岩石から選定した。図3.2-3の各岩石の写真から、花崗岩、花崗閃緑岩、片麻状花崗閃緑岩の順に、黒雲母と想定される黒色の領域が多いことが観察される。これらの試料を対象に、マイクロX線CT装置（METOROTOM 800）を用いて、X線CT像を測定し、三次元解

析手法によって黒雲母粒子の評価を行った。図3.2-3に示すCT像から抽出した雲母の空間分布では、写真で観察されたように、花崗岩では雲母の粒子が小さく、花崗閃緑岩では花崗岩よりも小さいが多量の粒子が存在し、片麻状花崗閃緑岩では他二つの岩石より比較的大きい粒子が観測された。さらにこの分布から黒雲母含有量と粒子形状の評価を行った。各岩石の雲母の含有率は花崗岩、花崗閃緑岩、片麻状花崗閃緑岩の順に多かった（表3.2-2）。また、図3.2-4に示す粒子径と粒子数及び体積比の関係から、花崗岩と花崗閃緑岩は数mm程度の粒子が体積比として多いのに対し、片麻状花崗閃緑岩は数十mm程度の大きな粒子がその体積比のほとんどを占め、粒子の連結性が高いことが分かった。これらの結果から、今回選定した三種類の岩石の黒雲母の含有率、サイズ、連結性等の特徴を定量的に評価可能であることを確認できた。

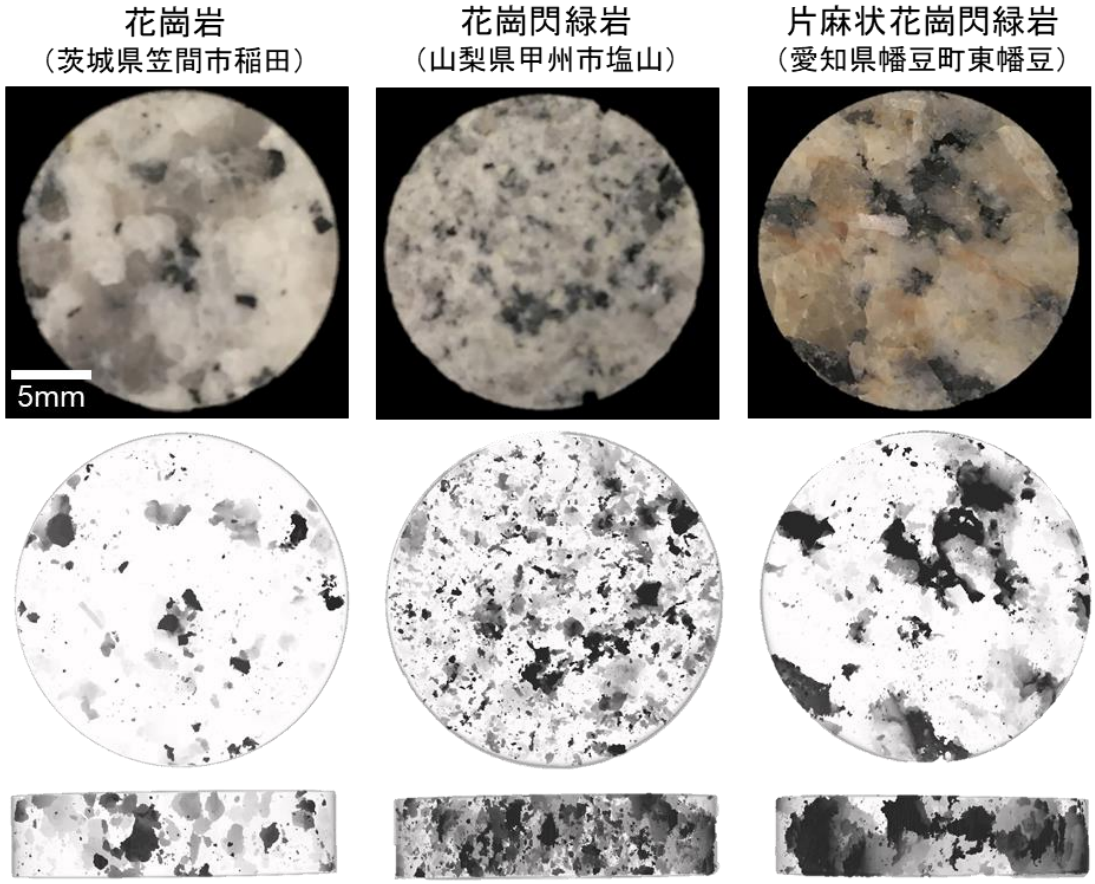


図3.2-3　拡散試験の対象とした国内結晶質岩試料の外観（上段）とX線CT像の解析結果（中段：拡散面、下段：側面）

表3.2-2　国内結晶質岩試料中の黒雲母の含有率(%)

岩石試料	花崗岩	花崗閃緑岩	片麻状花崗閃緑岩
黒雲母	3.9-5.5	8.8-10.3	15.2-17

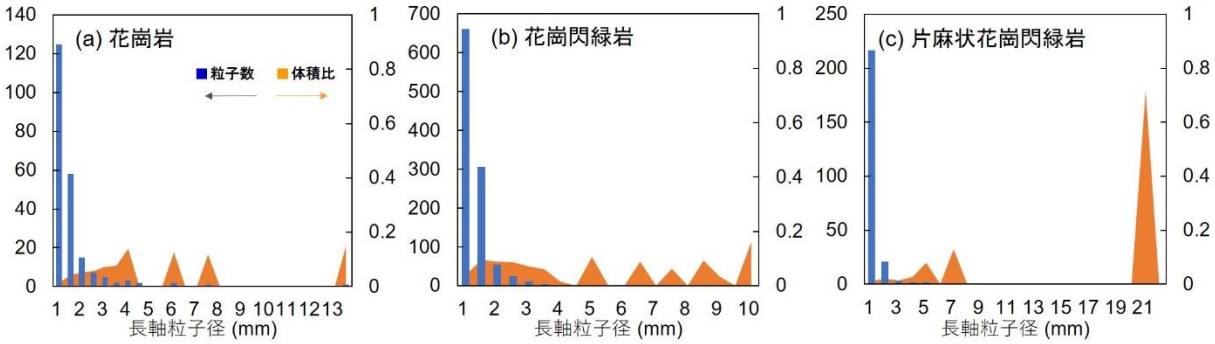


図3.2-4　国内結晶質岩試料中の黒雲母の形状評価結果

②　結晶質岩マトリクス中の核種拡散挙動の評価

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と陽イオン及び陰イオン核種の拡散挙動の関係を明らかにするため、上記の国内岩石を対象に透過拡散試験による拡散データの取得を試みた。透過拡散試験では、ディスク状の黒雲母片麻岩（直径2 cm、長さ0.5 cm）試料を用いて、放射性元素（HTO、$^{22}Na^{+}$、$^{125}I^{-}$）をトレーサーとした循環型透過拡散試験に着手した。それぞれのトレーサーの破過の立ち上がりまでを確認することができた状況であり、今後試験を継続し、十分な破過データの取得と実効拡散係数の導出を行うとともに、上記のような岩石マトリクス部の黒雲母等鉱物の不均質性を考慮したモデルの適用性を検討していく。

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た、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収着・拡散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割れ目特性をも有する小規模な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を進めてきた（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; 2020）。

①　小規模なコアを用いた室内試験によるモデルの高度化

最初のステップとして、図3.2-5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、先行事業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を行い、平成31年度に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への改良を試みた。

トレーサー試験に用いたグリムゼルコア試料は、図3.2-5 (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像を図3.2-5(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、図3.2-5(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。

このようなX線CT分析結果の解析から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。モデル概念としては、図3.2-5(c)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。上記に記した① - ③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、Csを対象に図3.2-5(d)に示す。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となることを確認した（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, 2020）。

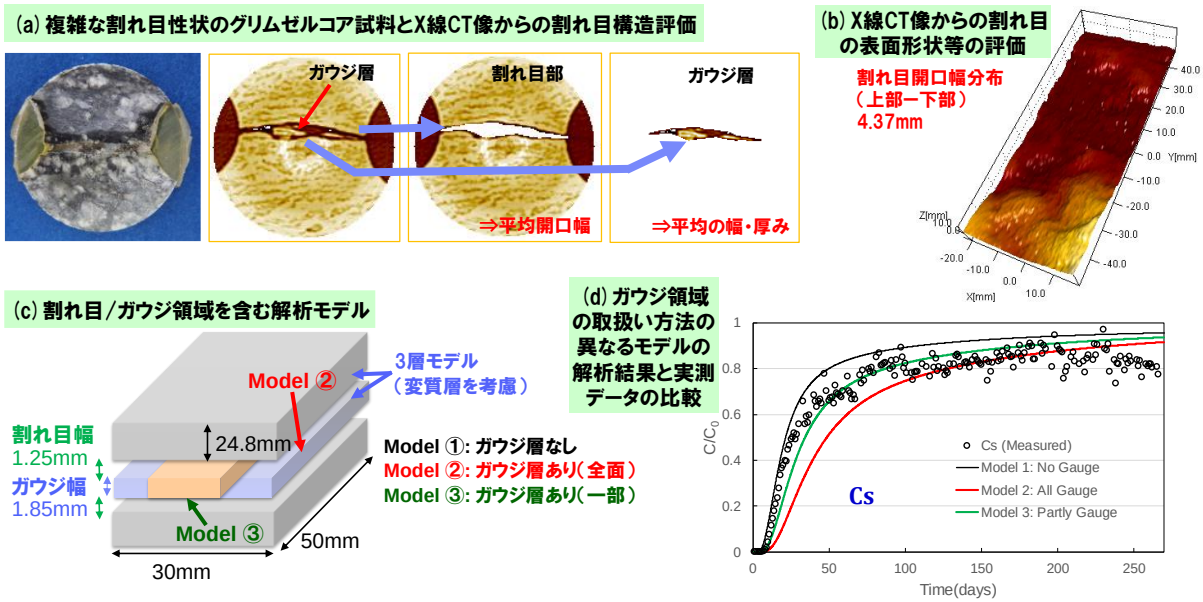


図3.2-5　複雑な割れ目性状を有するグリムゼルの花崗閃緑岩コア試料のX線CT分析とトレーサー試験の解析結果：(a)割れ目構造の評価方法、(b)割れ目開口幅の評価、(c)解析モデル、(d)解析結果と実測データとの比較

上記に示したように、割れ目中に存在するガウジ層の不均質な分布の定量評価結果を反映することで、室内トレーサー試験の結果をある程度再現できた。このようなガウジの存在状況を踏まえた現実的な核種移行モデルを、その取扱いの簡略化も含めて、核種移行解析への反映方策を検討するため、令和2年度は、ガウジ領域の存在状態が変わることによって、核種移行解析の結果がどのように影響されるかの検討を行った。図3.2-5(c)に示した実際の観察結果を反映したガウジモデルを基準に、ガウジ層の存在範囲や存在位置を図3.2-6(a)に示した五つの存在状況を仮定して解

析を行った。なお、すべてのモデルで同じ流量・流速とした。

これら五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3.2-6(b)に示す。五つのモデル化結果を比較すると、大きく二つのグループに分けることができ、モデル④と⑤は基準となるモデル①とほとんど変化がなく、モデル②と③は遅延効果が同程度低下し、破過曲線の立ち上がりが早くなった。これらのことから、ガウジ領域が割れ目中の流れに沿って前方と後方に位置するという位置関係より、ガウジ層と流路の接触面積が重要な因子であることが確認できた。今後、このようなガウジ層の影響が試料スケールによってどう変化するかについても同様の解析を行うとともに、割れ目中に存在するガウジ層の影響を核種移行モデルに反映する方法について検討していく。

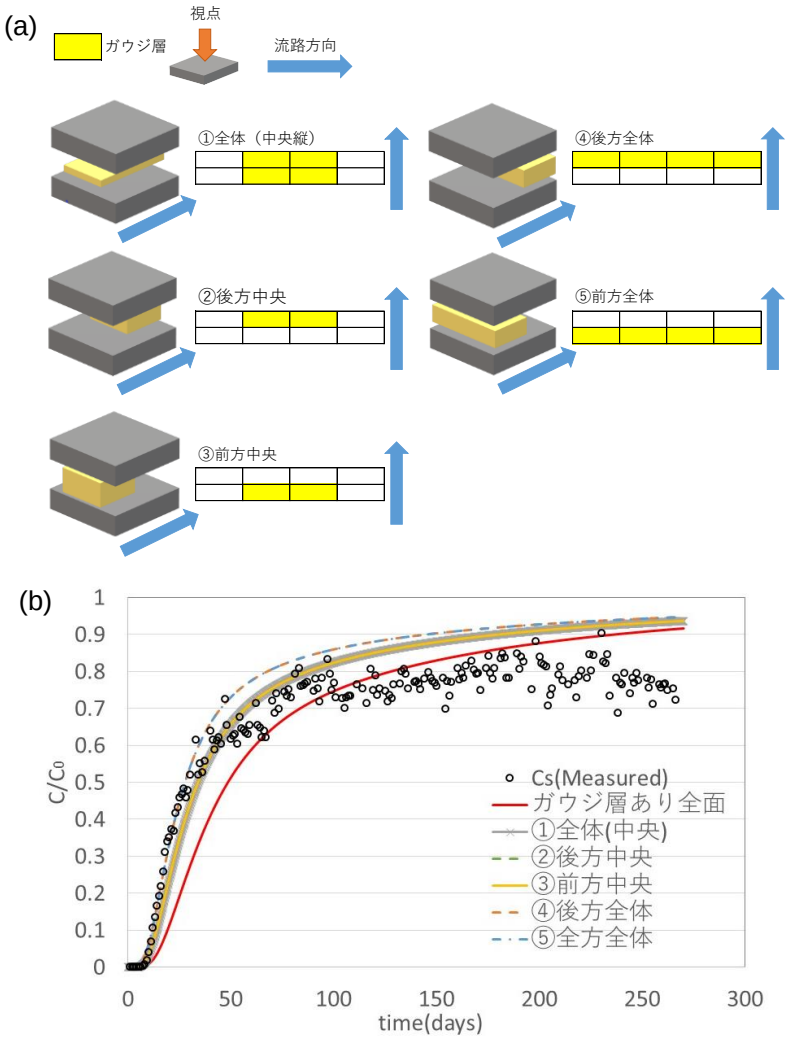


図3.2-6　ガウジの存在状態を変動させた核種移行解析結果：(a)ガウジの存在状態の設定、(b)ガウジの存在状態を変動させた解析結果の変化

②　大型のコア試料を用いた室内試験によるモデルの高度化

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目指した研究を進めてきた。平成30年度には、図3.2-7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・加工し、予察的なX線CT分析や収着・拡散試験を実施した（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）。

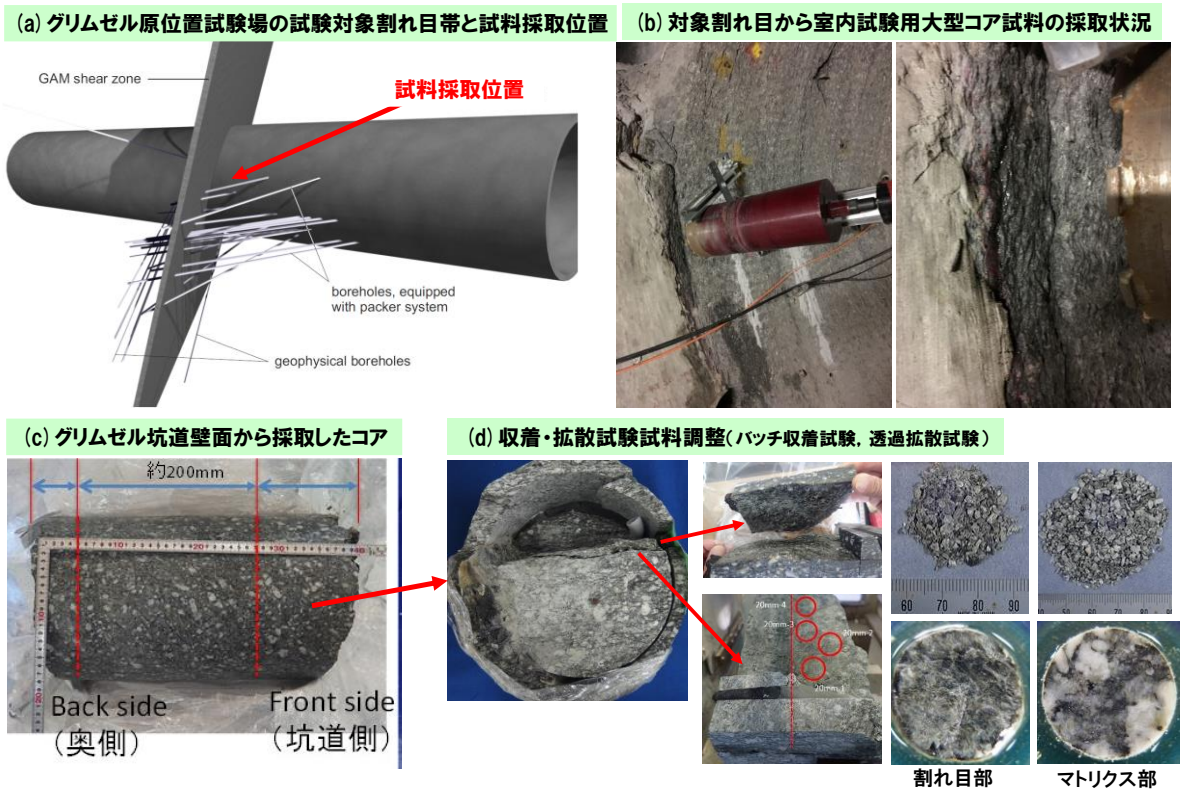


図3.2-7　(a)グリムゼル原位置試験場のGAMサイトの割れ目帯と(b)コア採取状況、(c)採取した割れ目試料、(d)収着・拡散試験及びトレーサー試験試料の加工状況

平成31年度には、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、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によって拡散・収着データを取得した。得られた実効拡散係数は、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傾向が確認された。また、収着分配係数はEu > Ni > Cs > Seの傾向性を示したほか、粒径サイズが大きくなるほど分配係数が低下する傾向や、割れ目部の方がマトリクス部に比べて分配係数がやや大きくなる傾向が確認された。これらの傾向は、グリムゼル岩を用いた先行試験（Tachi et al., 2018）と概ね同様の傾向であった。

さらに、図3.2-8に示すように、約20cmの大型コア試料を用いた室内トレーサー試験を行い、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）の破過デー

タを取得した。非収着性のIについては数日のうちに破過し、低収着性のSeでは非収着性の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の結果は、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、この原因を含めたモデル解釈の必要性を確認した。

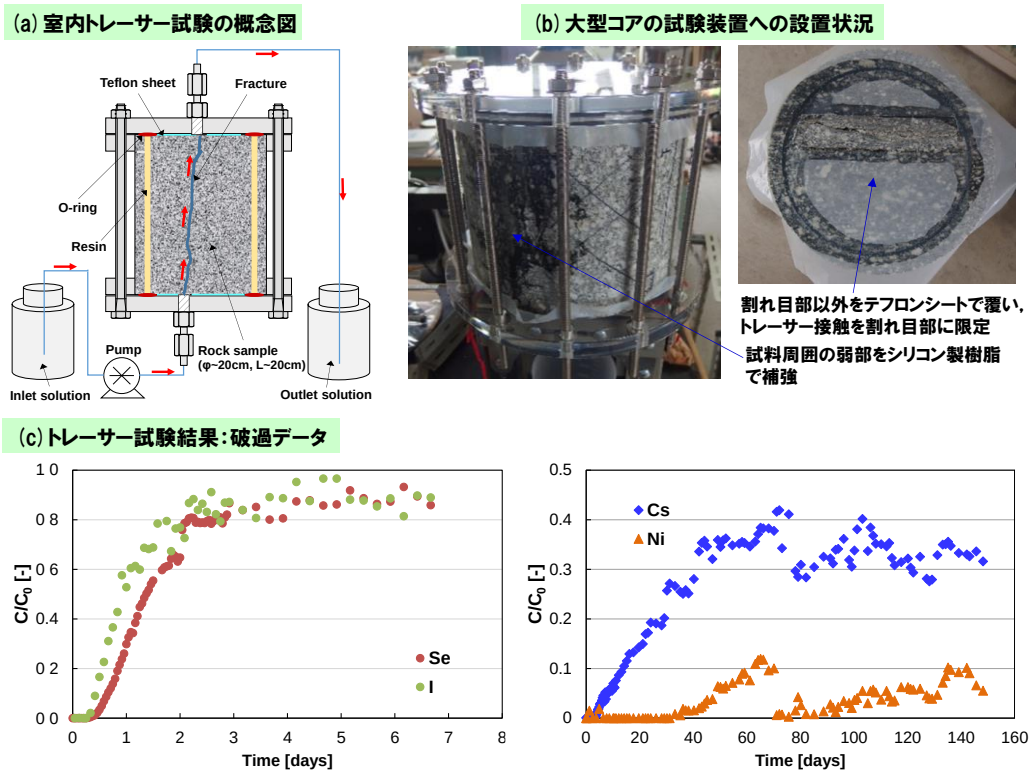


図3.2-8　グリムゼルの大型コア試料を用いた室内トレーサー試験の概念図(a)、試験装置・試料設置状況(b)、トレーサー試験で得られた破過データ(c)

令和2年度は、これまでに実施したトレーサー試験結果の解釈を目指して、試験に用いた大型コア試料の割れ目からマトリクスにかけての不均質性を把握するためのX線CT分析データの解析・評価を行うとともに、トレーサー試験後の割れ目表面のトレーサー濃度分布を取得し、これらの情報を踏まえた解析検討を進めた。

X線CTによる割れ目構造の評価では、トレーサー試験後の割れ目を含んだグリムゼルの大型コア試料を四分割し、分割した試料を対象としてX線CT装置（Toshiba, TOSCANER 3000）を用いてX線CT像を取得した。図3.2-9(a)に示すCT像から、試料全体を通じて連続した二つの割れ目が観察された。これらの割れ目のうちのAperture1に対応する割れ目の開口が卓越していることから、Aperture1を対象に、X線CT像の解析によってその開口幅と連続性等を定量評価した。具体的には、上記X線CT装置により取得したCT像を、岩石部分と割れ目部分（空気）のCT値の違いを利

用した二値化処理することよって、割れ目部分を抽出した。抽出したAperture1の断面と割れ目を上方から俯瞰した面を図3.2-9(b)に示す。割れ目面の所々に空白が存在するのは、その位置の割れ目部が閉塞しているか、もしくは、解像度よりはるかに小さい開口幅の割れ目であることを意味する。図3.2-9(b)の割れ目面の俯瞰図より、Slice1は割れ目が複数に分岐・結合を繰り返した複雑な構造であるのに対し、Slice4では流れ方向に対して1枚の連続した割れ目構造であることが観察された。また、Slice1とSlice4の開口幅のヒストグラムを比較すると、Slice1では1 mmもしくはそれ以下の開口幅がほとんどであるが、Slice4では1 - 2 mm程度にピークが見られる。これらの分析結果から、Slice4の割れ目は開口幅が比較的広く、連続性があるが、Slice1の割れ目は開口幅が小さく、割れ目の連続性が低いより不均質な構造であると考えられる。

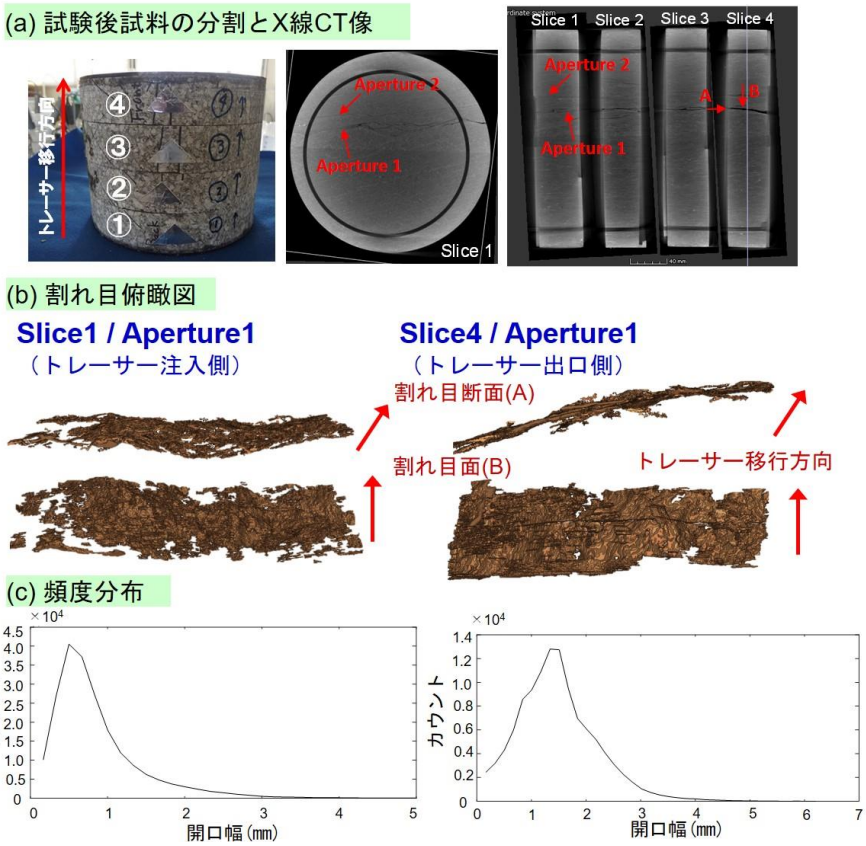


図3.2-9　グリムゼルの大型コア試料の分割試料のX線CT像とその分析結果

上記したように、Aperture1内でも位置によって開口幅が異なり、開口部が連続している領域と不連続な領域がある。開口幅とその連続性は流路を把握するための重要な情報であり、Aperture1全体を通して、流れ方向と関連付けた開口部の連続性に関する検討が必要である。そこで、Aperture1のSlice1 - 4の開口幅の分布を評価した（図3.2-10）。評価手順としては、Aperture1に対応した割れ目の画像の二値化処理後、その画像内の割れ目に対し垂直方向における割れ目間の距離を算出した。この操作をSlice1 - 4までのすべてのCT画像に適用し、それらのデータを積層することによって、Aperture1を一枚の平板と想定した場合の開口幅の平面分布を取得した。図3.2-10の開口幅分布から、割れ目全体を通して、その開口幅が1 - 5 mm程度であることが確認された。また、Slice1及び2では中央付近の開口幅が比較的広いが、Slice4では端の開口幅が広い。このような開口幅の分布は、流れの卓越する経路や迂回経路の存在を示唆する。

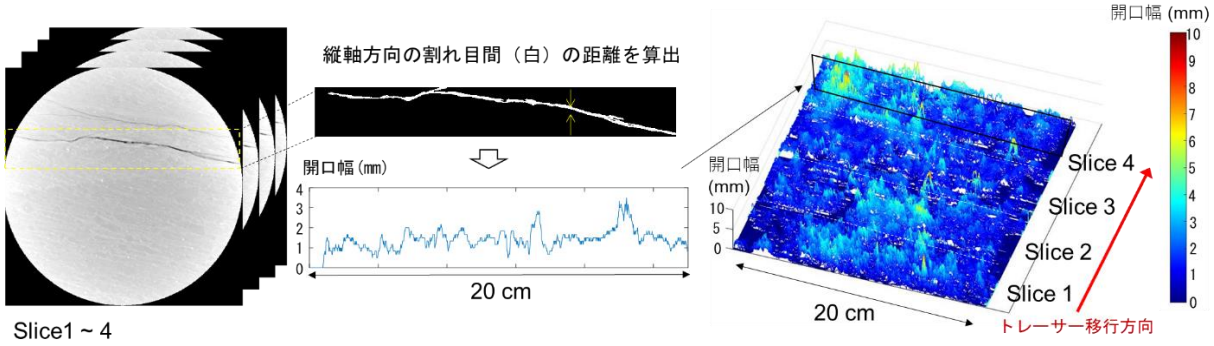


図3.2-10　X線CTデータ解析によるAperture1の開口幅分布の評価結果

割れ目面からマトリクスにかけてのトレーサー元素の分布状況の分析については、先行研究で検討してきた手法（Tachi et al., 2018）を適用し、①割れ目表面部に存在する充填鉱物粒子の位置情報とトレーサー濃度との関係の把握、②上流から下流にかけてエリアごとの微細充填物のトレーサー濃度分析、③割れ目面からマトリクス内部への研削によるトレーサー深度分布の取得の三つの方法（ステップ）で進めた。ここでは、図3.2-9(a)に示した試料のうち、Slice1のAperture1を対象に分析した結果を図3.2-11に例示する。図3.2-11(b) - (d)におけるCsの濃度分布を比較すると、いずれの方法で得られた結果でもCsは流れの方向に向かって右側の濃度が高くなっており、中央付近から左側にかけて濃度が低下していく傾向が確認できる。また、複数の方法で得られたCsの濃度も概ね整合的な濃度レベルとなっていることが確認できた。さらに、図3.2-11 (c)のステップ②ではNi及びEuの結果も比較しているが、NiとEuもCsと同様の分布を示しており、また、Cs > Ni > Euの濃度の大小関係も妥当な結果が確認できた。これらの結果より、ここで適用した手法により十分な精度で濃度分布が取得できていることが確認された。

さらに、ステップ②で得られたSlice1 - 4のAperture1の割れ目表面のCs、Ni、Euの濃度分布を、上記X線CT分析から得られた割れ目の開口幅分布とあわせて図3.2-12に示す。Aperture1の割れ目表面のトレーサー濃度分布の移行方向に沿った変化をみると、入り口付近（Slice1）では中央から右側にかけてトレーサーが分布しているのに対し、そのあとのSlice2及びSlice3では、移行方向に向かって右側を選択的に移行しており、さらに出口付近（Slice4）では中央から右側にかけてトレーサー濃度が高くなっていることが確認できる。これらのAperture1の割れ目表面上のトレーサー分布と、割れ目の開口幅の分布の傾向との間に明瞭な相関は確認できない。一方で、各Slice面のトレーサー分布をみてみると、Cs > Ni > Euの濃度の大小関係が確認できたほか、各面でトレーサー濃度が高い選択的な流れが生じている部分（フロー領域）と、周辺に拡散等によってトレーサーが広がっている部分（スタグナント領域）が存在していることが確認できる。さらに、Slice1よりSlice2のトレーサー濃度が高くなっていることから、上記のX線CTの解析からも入り口付近の割れ目の分布が複雑であることが確認されていることも踏まえれば、観察した割れ目面以外もトレーサーの移行経路となっていたことが推察される。

今後、X線CTデータの解析によって割れ目の開口幅や連続性、ガウジの分布状態等の定量的な評価を検討するとともに、試料全体にわたるトレーサーの濃度分布のデータを拡充することで、主要な移行経路の把握を試みる。さらに、これらの情報を反映した核種移行解析モデルの改良と実測された破過データ等への適用性評価を進めていく予定である。

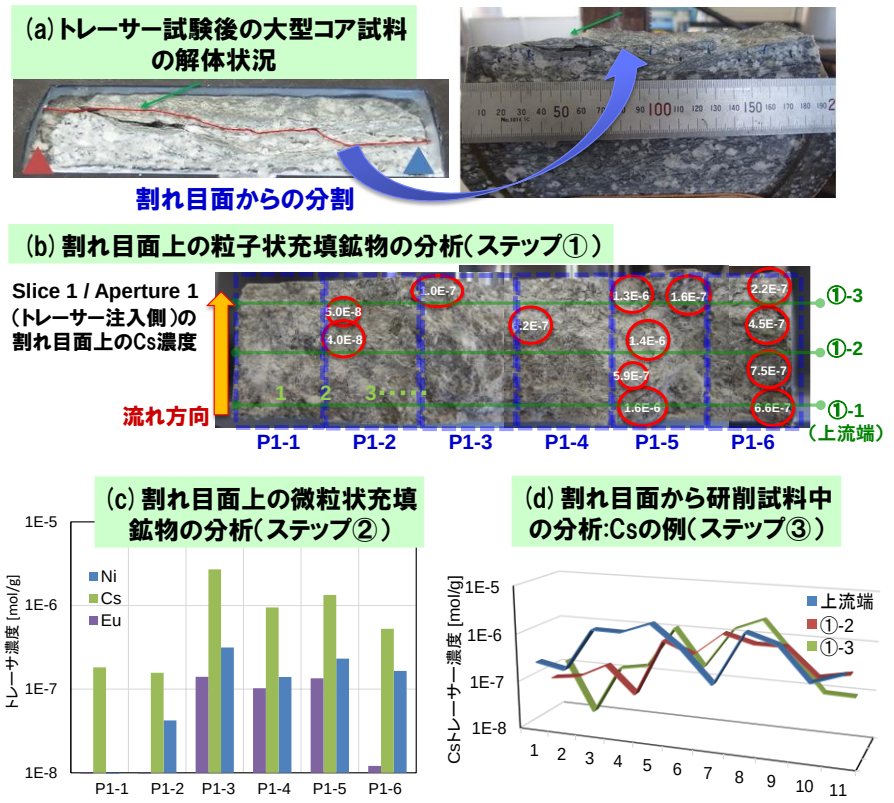


図3.2-11　大型コア試験の室内トレーサー試験後の割れ目面のトレーサー分布の分析結果

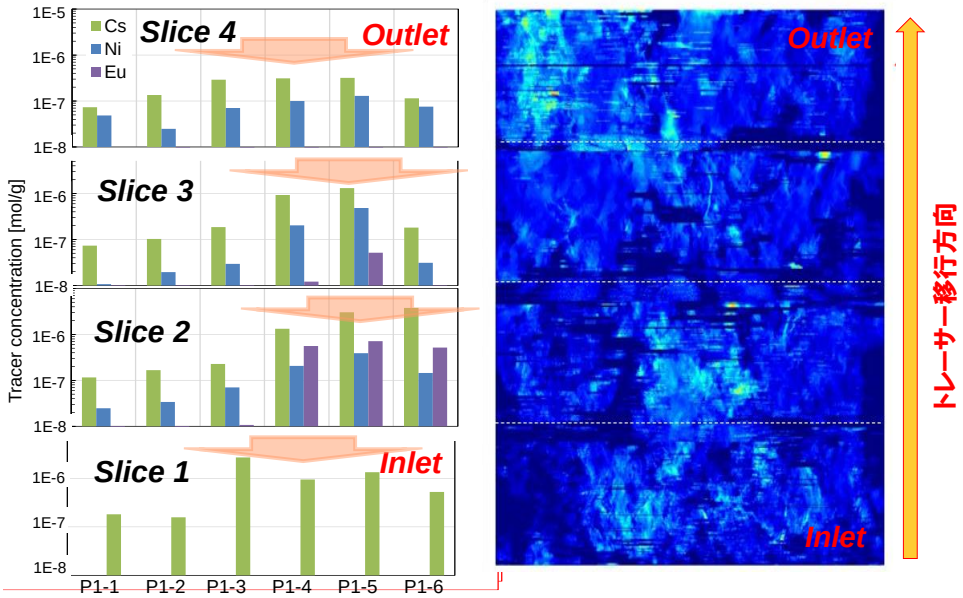


図3.2-12　大型コア試験のトレーサー分布（ステップ②）と割れ目開口分布の比較

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。これらの成果をもとに、核種移行現象のより精緻な取り扱いや、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

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。平成31年度までに、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を検討するとともに、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を実施してきた（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, 2020）。令和2年度は、このような解析手法の構築と確証のアプローチを整理するとともに、これまでに検討してきた解析手法を改良しつつ、隆起シナリオを事例に、環境変遷に伴う解析評価を試行した。

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確証のアプローチを図3.2-13に示す。このアプローチの主たる部分は、上記や先行研究で取り組んできた割れ目等の不均質性や収着メカニムの影響に加え、地下水化学や酸化還元環境の変遷とそれらに伴う鉱物の溶解・沈殿の考慮といった地質環境の長期変遷の影響、空間的なアップスケールの影響をより精緻に取り扱うことが可能な核種移行解析手法を検討することである。これらの高度化要素を組み込んだ核種移行モデルを構築しつつ、感度解析や環境変遷を考慮した試解析など実施することにより、考慮すべき影響の大きい重要な因子と環境変遷やスケールの影響を把握する。さらに、核種移行評価への影響度の大きい重要なプロセスを性能評価へ反映していく観点から、それらの簡易な取り扱いの方策を検討するとともに、精緻化モデルとの比較によってその有効性を確認していく必要がある。また、後述するナチュラルトレーサーを用いた解析のような天然事例評価によって、精緻な核種移行モデルや地質環境の長期変遷の取り扱いについての妥当性を確認していく取り組みについても検討していくことが重要である。

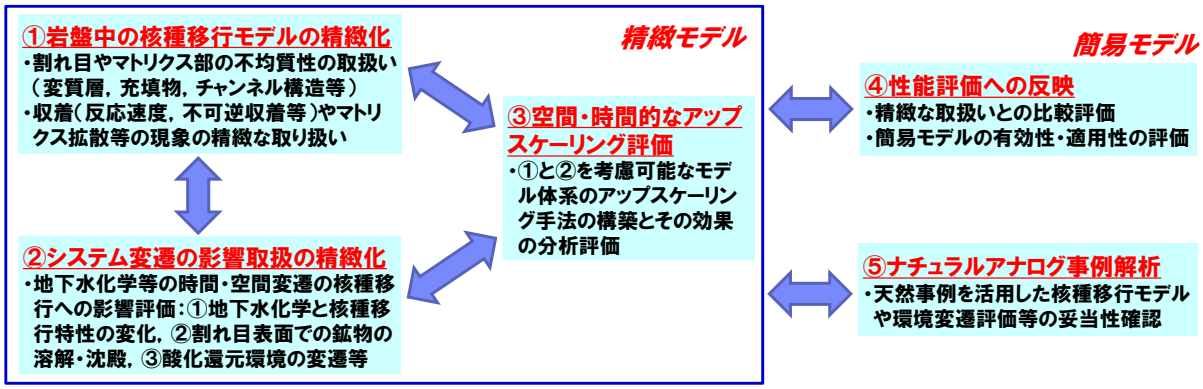


図3.2-13　核種移行現象や地質環境の不均質性と長期変遷を反映した核種移行現象解析モデルの構築・確証のアプローチ

上記の精緻モデルの構築に向けた検討として、ここでは、平成31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大きなスケールの岩石を対象とした解析手法を用いて、地質環境の変遷に伴うプロセスを考慮した解析手法の検討を実施した。地質環境の長期変遷としては、先行事業から検討を進めてきた隆起シナリオを事例に検討を行った。

隆起シナリオについては、これまでに図3.2-14(a)に示すように、わが国の結晶質岩の隆起に付随する地質環境変遷とその核種移行への影響プロセスを整理しており（日本原子力研究開発機構, 2018）、隆起に伴う地質環境変遷により、地下水の組成や酸化還元条件の変化の影響を考慮した核種移行解析を検討する必要がある。核種移行解析には、平成31年度までに検討してきた、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）を使用し、より大きなスケールとして500mの割れ目を対象に構築してきた解析手法（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, 2020）を用いた。解析体系は図3.2-14(b)に示すように、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（5 cm）を5セル、残りの未変質マトリクス部（95 cm）を19セルで表現した。また、割れ目面に平行な方向（500 m）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31年度に実施した比較評価結果（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, 2020）を踏まえ，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二次元モデルによって解析を行った。

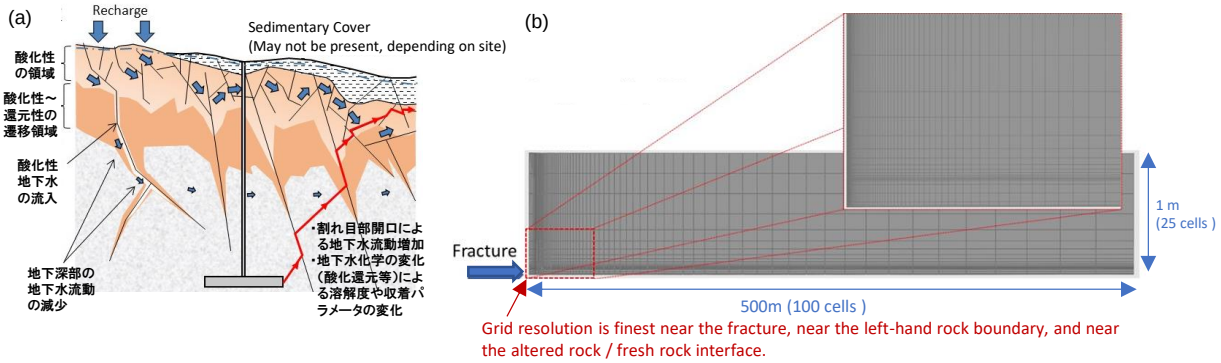


図3.2-14　隆起シナリオにおける核種移行解析で考慮すべきプロセス(a)と500mの割れ目中の核種移行解析体系のグリッド構成(b)

ここでは、核種としてCsを対象に、マトリクスの拡散と収着挙動に及ぼす割れ目近傍の不均質性の影響と、環境条件変遷を想定した場の変遷の影響に関する解析を試みた。割れ目表面の不均質性の影響については、マトリクス拡散を考慮しないCase1、割れ目表面近傍の5 cmの変質層でのマトリクス拡散を考慮するCase2、及び1 mのマトリクス全領域での拡散を考慮するCase3を検討し、それぞれ収着を考慮しない場合（Case1-1，2-1及び3-1）と収着をK_dモデル（線形、可逆）で考慮する場合（1-2，2-2及び3-2）を設定した。Csの実効拡散係数D_eと収着分配係数K_dは、変質層において高い値をとることになるが、Yoshida et al. (2009)のデータをもとにそれぞれの値を設定した（変質層のD_e＝4.0×10^{-12} m^2/s，K_d＝0.182 m^3/kg，未変質岩のD_e＝5.5×10^{-13} m^2/s，K_d＝0.135 m^3/kg）。環境変遷の影響を評価する観点から、ここでは1万年まではCs濃度10^{-5} Mの海水系地下水（SRHP）を流入させ、1万年以降はCs濃度10^{-8} Mの降水系地下水（FRHP）を流入させる条件で解析を行った。

これらの解析Caseで得られた500 mの割れ目出口での地下水中のCs濃度の経時変化を図3.2-15に示す。この結果からマトリクス拡散のみを考慮し、収着を考慮しないCaseでは、Case 1-1，2-1，3-1とマトリクス拡散を考慮する領域が大きいほど、マトリクス拡散による遅延が増加する傾向が明瞭に確認できる。一方で、1万年以降の地下水組成とCs濃度の変化によって、いずれのCaseでもCs濃度は10^{-8} Mに近づくが、その変化の差異は明瞭ではない。収着をK_dモデル（線形，可逆）で考慮したCaseにおいては、割れ目の表面のみの収着を考慮した場合（Case2-1）においても顕著な遅延が確認され、収着が生じる領域が5 cm（Case2-2）と1 m（Case3-2）とした場合には10万年まで破過は認められない結果となり、いずれも妥当な傾向が確認された。

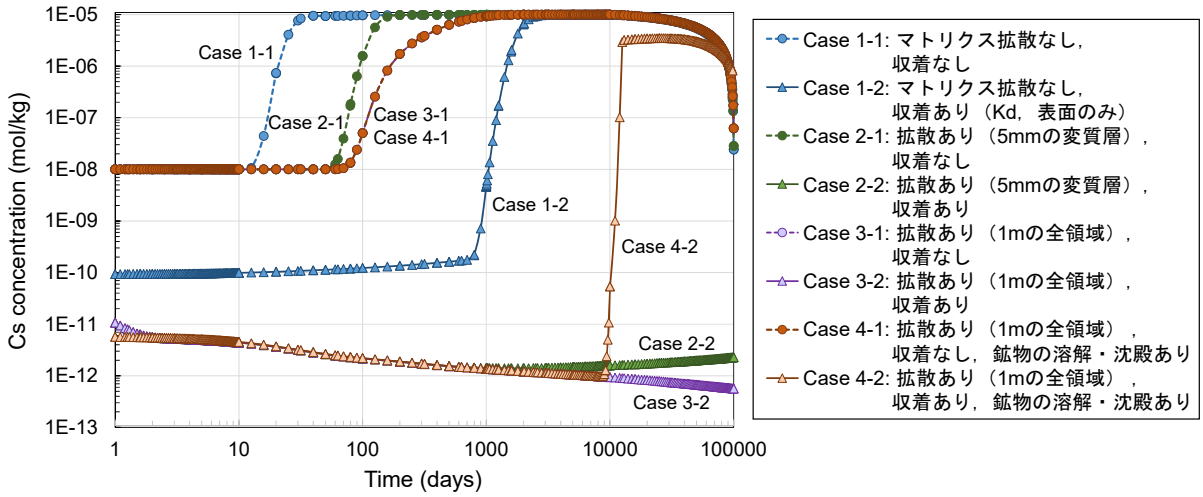


図3.2-15　マトリクス拡散と収着の生じる領域と地下水条件の変遷がCsの核種移行解析に及ぼす影響（500 mの割れ目出口におけるCsの液中濃度の経時変化）

さらに環境変遷に伴う鉱物の溶解・沈殿反応の取扱いを予察的に検討するため、各セルでの鉱物の溶解・沈殿反応及び反応速度を考慮して、その結果生じるマトリクス部の間隙率と実効拡散係数の低下を考慮した解析を試みた。ここで、鉱物の溶解・沈殿反応は、Savage et al. (2020)と同様の手法（Tansition State Theory）に基づき評価した。図3.2-16(a)に示すように、割れ目表層のセル中の間隙率は、割れ目の入り口側から沈殿物によって閉塞されていくことが確認できる。図3.2-16(b)に示すように、これらの間隙の閉塞は、この計算条件においては、カルサイトの寄与が最も大きいと評価された。ここで仮定したモデルと地下水条件においては、1万年程度で割れ目表層のマトリクス部の間隙が閉塞されることになり、図3.2-15のCase 4-2として示すように、マトリクス拡散が抑制されて、Csの破過が生じることが確認される。ここでの解析は、上記の図3.2-13に示したアプローチと図3.2-14に示したモデル体系に従って、割れ目周辺の不均質性や地質環境の長期変遷の取扱いの方法論を予察的に検討したものである。今後、様々な高度化要素を組み込んだ核種移行モデルを構築するとともに、モデルやパラメータを含む評価手法と結果の妥当性を確認しつつ、感度解析や環境変遷を考慮した試解析など実施することにより、考慮すべき影響の大きい重要な因子、環境変遷やスケールの影響を把握していく必要がある。

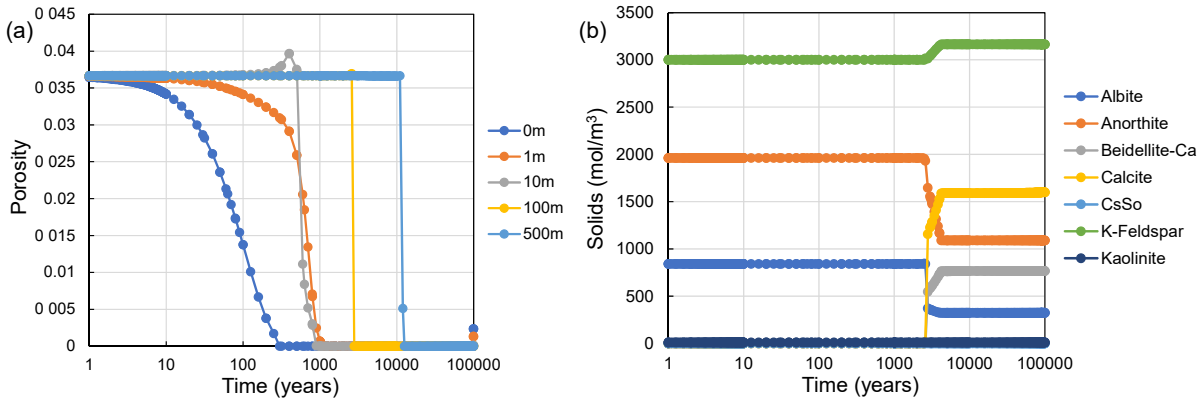


図3.2-16　割れ目表層のマトリクス部での間隙率と鉱物変遷の解析結果：(a)割れ目隣接マトリクスセル中の間隙率の経時変化、(b)上流から100m地点での割れ目隣接マトリクス中の鉱物変遷

(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間隙特性評価

これまでに先行事業及び本事業（日本原子力研究開発機構, 2013; 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; 2020）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）。幌延の泥岩マトリクス中の核種移行モデルの高度化と確証に向けて、不均質な間隙特性やその核種収着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している。ここでは、核種移行モデルの高度化や原位置でのモデルの確証における課題も踏まえ、核磁気共鳴（NMR）法を用いた分析により、幌延の泥岩の間隙特性評価を行った。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り、NMR信号の緩和時間（T_2）が間隙の比表面積に依存することから異なるサイズの間隙中の水を区別して評価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; 2021）。また、NMR信号は観測するH_2O量に比例するため、水そのものの物質移動を直接観察することが可能である（例えば、Ohkubo et al., 2008; 2016; 2021）。このような観点から、幌延の泥岩中の間隙構造と水の拡散特性を関連付けた評価を目的とし、NMRの分析試験を平成31年度から継続して行ってきた。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:8.2 mm、長さ:28 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、イオン交換水への浸漬による含水過程の^{1}H 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; 2020）。

NMRセルに入れた円柱状の泥岩試料の底面と上面をイオン交換水と接触させた。これにより接触面から水が試料中へ徐々に拡散し、岩石中の水が増加することでNMR信号が変化する。図3.2-17に岩石試料をイオン交換水に浸漬して得られたT_2分布を示す。全てのサンプルで 10^{-4}から10^{-2} secに二つのT_2ピークをもつ水と10^{-1} sec付近に強度の小さいピークが観測された。各T_2分布のスケールは等しいので、ピーク面積が岩石に含まれる水の絶対量に相当する。このことから、イオン交換水への浸漬時間が長くなるにつれて、岩石に水が浸入し、信号強度が増加していることがわかる。また、10^{-1} secの小さいピークは、NMRセルと岩石の隙間に存在する水によるものと考えられる。10^{-4}から10^{-2} secに観測された二つのピークの分布は、岩石中の間隙を充填した水に相当し、その間隙サイズ分布に対応する。この二つのピークは、浸漬時間の経過に従って、同程度に強度が増加し、60 min程度でほぼ変化しなくなったことから、岩石中への水の拡散は、60 min程で飽和したと考えられる。この結果より、岩石中への水の拡散は、間隙サイズに依存せずほぼ均等に起こると考えられる。

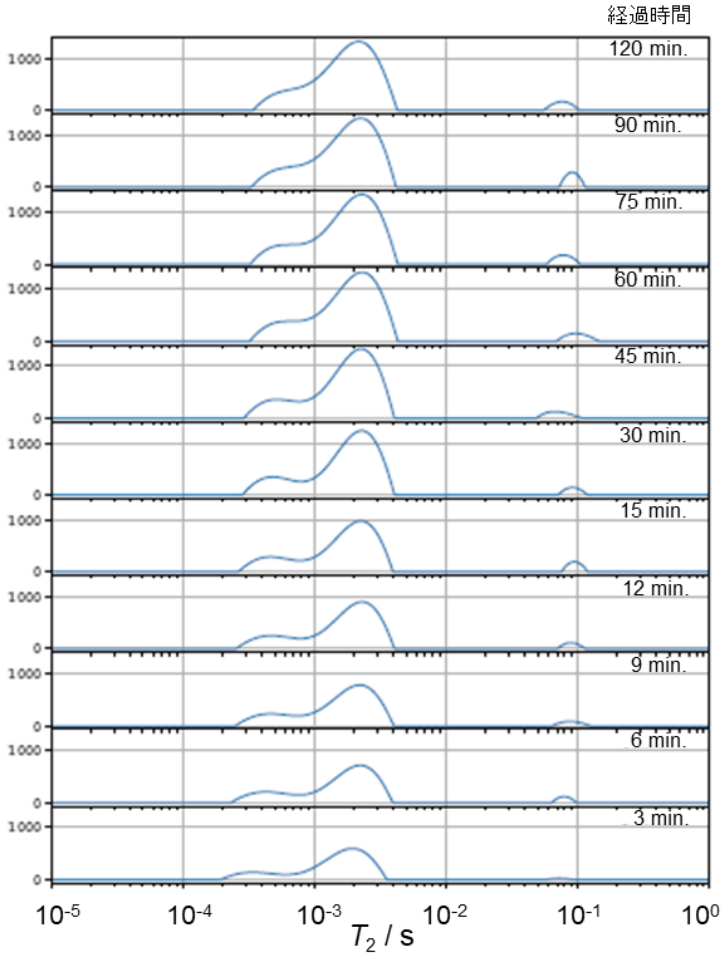


図3.2-17　幌延の泥岩マトリクス中の間隙水のNMR 信号の経時変化

② 粘土鉱物へのCs等核種の収着機構の評価

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）。先行研究において、モンモリロナイト及びイライトに対するCsの吸着形態について、NMR(^{133}Cs)スペクトルの取得と、第一原理計算による理論的なスペクトル計算とを組み合わせた評価手法を構築し、四面体層のAl置換量がCsケミカルシフトに影響することを明らかにしてきた（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; 2020）。令和2年度は、バーミキュライトを対象に、四面体Al置換量を変化させた条件で、第一原理計算によるCsの吸着構造評価を行い、その吸着構造と^{133}Csケミカルシフトの関係を定量的に結びつけ、^{133}Cs NMRスペクトルからCsの吸着構造の評価を試みた。

第一原理計算によって最適化されたバーミキュライトの四面体層とCsを四面体層上部および下部方向から可視化した一例を図3.2-18に示す。各Csの位置に着目すると、すべてのCsは四面体層の六員環間隙の中心に位置する。Csがこのような六員環間隙の中心に位置することは広域X線吸収微細構造（EXAFS）などによる実験からも報告されている（Nakano et al., 2003）。以上の結果から、第一原理計算によって実際のCs吸着バーミキュライトの構造の特徴を再現できたと考えられる。

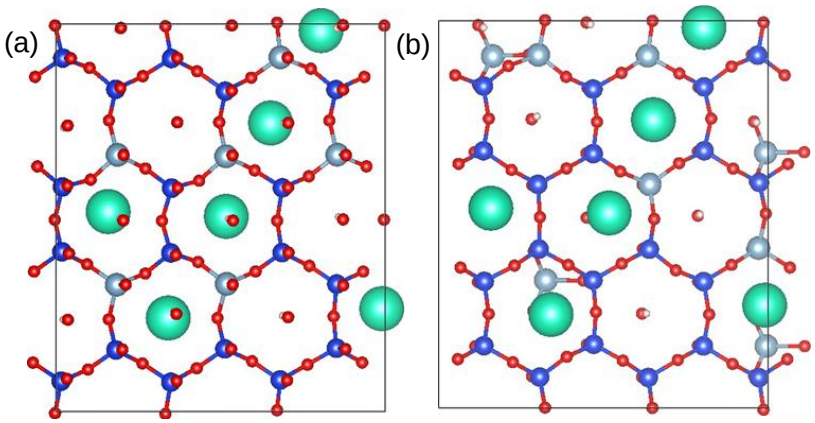


図3.2-18　第一原理計算により構造最適化したバーミキュライトの構造：(a) Csを四面体層の上側および(b)下側から可視化した例

構造最適化によって得られたCs吸着バーミキュライトの構造をもとに、Gauge-including projector augmented wave（GIPAW）（Pickard et al., 2001）計算により^{133}Csケミカルシフト（σiso）の理論値を求めた。四面体層のAl置換量と層間距離及びAl置換量とケミカルシフトの関係を図3.2-19と図3.2-20に示す。図3.2-19より、四面体Al置換量の増加により層間距離は置換量5個程度まで増加し、その後ほぼ一定になっている。また、図3.2-20より、四面体Al置換量とケミカルシフトの変化でも置換量5個程度まではケミカルシフトの値が減少しその後増加している。これらの結果から、四面体Al置換量5個までは層間距離の増加による影響をうけケミカルシフトの値が減少し、その後その他の影響が層間距離の影響より大きくなりケミカルシフトの値が増加すると考えられる。

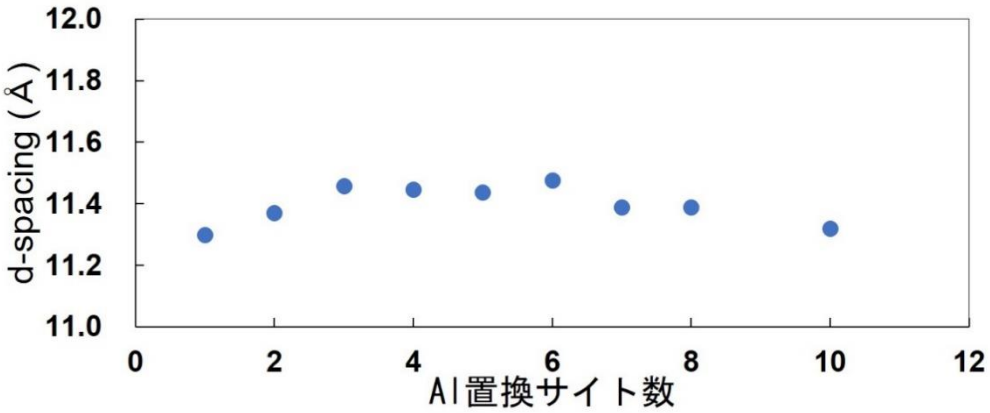


図3.2-19　四面体Al置換量と層間距離の関係

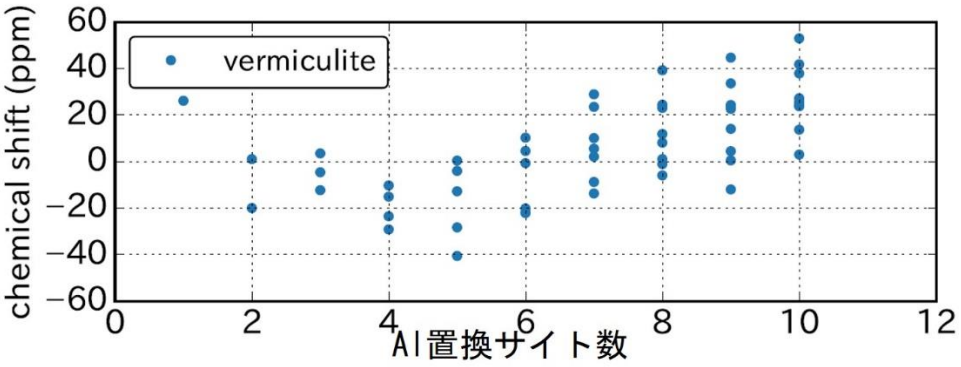


図3.2-20　四面体Al置換量とCsケミカルシフトの関係

^{133}Csケミカルシフトと層間距離の関係を調べるため、層間距離を変化させたバーミキュライトの構造を作成した。表3.2-3に層間距離を変化させたバーミキュライトの^{133}Csケミカルシフトの計算結果を示す。表3.2-3より、層間との距離が大きくなるほどケミカルシフトの値は小さくなる傾向が確認された。これは層間距離が増加に伴い、Csと上下どちらか一方の層の四面体層との相互作用が働くようになり、Csがより強固に表面に吸着するためと考えられる。

表3.2-3　層間距離を変化させたバーミキュライトの^{133}Csケミカルシフト
（z：最適化した層間距離）

層間距離（Å）	^{133}Csケミカルシフト(ppm)		
z - 0.3	72.4	95.9	90.2
z	0.3	9.8	7.0
z + 0.3	−48.5	−50.3	−50.6
z + 0.5	−71.3	−79.1	−78.1
z + 1.0	−105.3	-124.0	−120.3
z + 3.0	−130.2	-160.4	−152.9
z + 6.0	−248.5	-261.4	−260.5

Csが吸着する六員環間隙を構成するSiOおよびAlとCsとの距離とケミカルシフトとの関係を評価Csを中心として半径5 Å以内に存在するSiO及びAl原子数とCsケミカルシフトの関係を図3.2-21に示す。図3.2-21より、SiおよびOの個数とケミカルシフトの間に相関は見られないが、Alの個数が増加するとともにケミカルシフトの値が増加する傾向が見られた。これは、CsとAlとの間にクーロン相互作用が働くことによりCs周辺の電子密度が、周辺Alがないときに比べ小さくなりケミカルシフトの値が増加すると考えられる。

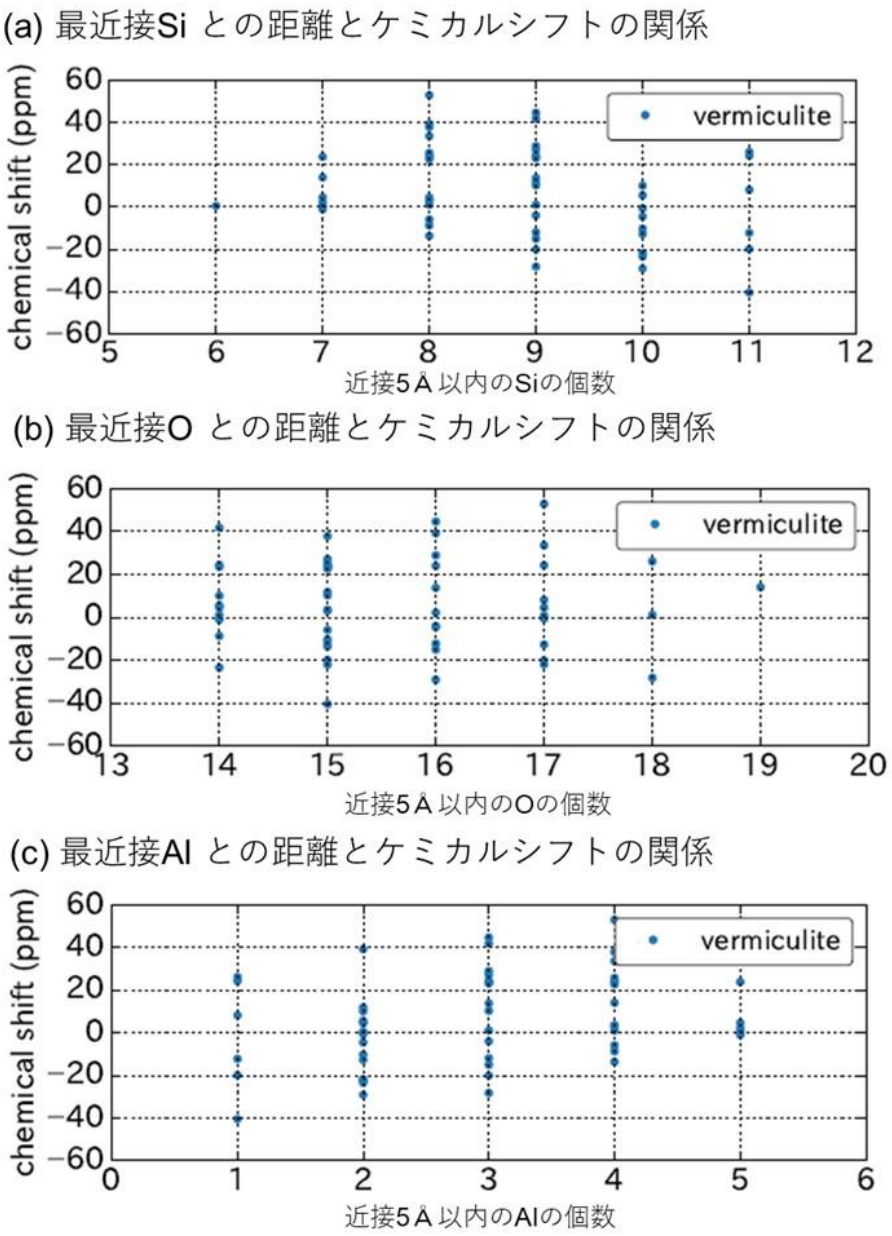


図3.2-21　Csと5 Å以内に存在する(a)Si、(b)O及び(c)Alの個数とケミカルシフトの関係

以上の結果から、Alを多く含む六員環間隙では^{133}Csケミカルシフトは低磁場側へシフトし、Csと層間の距離が大きいほど高磁場側へシフトすることがわかった。この結果を用いて先行研究で報告されているケミカルシフトのピークと本研究で計算したNMRケミカルシフトを比較しCs吸着構造評価を行なった。先行研究では、バーミキュライトの^{133}Csスペクトル上には、三つのピーク（50ppm, -24ppm, -113ppm）が確認されている（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）。この実測データに対して、第一原理計算で得られたケミカルシフトを帰属した結果と近接Alの距離及び数を表3.2-4に示す。この結果から50 ppm付近および-24 ppm付近のピークは粘土層から2 – 2.2 Å程度離れて、周辺Alが前者では3 – 4個程度存在し、後者では2個ほど存在する状態で吸着したCsに対応すると考えられる。また、-113 ppm付近のピークは表3.2-3より層間が1.0 Å開いたサイトに吸着したCsと考えられる。

表3.2-4　バーミキュライトへの吸着CsのNMR分析の実験値と理論値の比較及びCs周辺構造

実験値 (ppm)	計算値 (ppm)	六員環との距離（Å）	Alとの距離 (Å)	六員環に含まれるAl個数
50	53.0	1.93	4.07	4
	44.7	2.19	4.15	3
	41.8	2.18	4.12	3
−24	−23.5	2.20	4.14	2
	−22.1	2.18	4.18	2
	−21.9	2.18	4.07	2

③　幌延の泥岩マトリクス中の核種移行モデルの開発

本節では幌延の泥岩中の拡散モデルを開発するため、これまで圧縮ベントナイト中の収着・拡散モデルとして開発を進めてきた統合収着拡散（Integrated Sorption and Diffusion, ISD）モデル（日本原子力研究開発機構, 2018）の泥岩への適用可能性について検討する。ISDモデルは、核種の熱力学データや粘土鉱物の特性等に基づいて、ベントナイト中の間隙水化学・収着分配係数・拡散係数を、整合性のある考え方のもとにモデル化する手法である。拡散モデルは、均質な間隙構造を仮定した帯電平行平板と点電荷イオンとの静電的相互作用に電気二重層理論を適用してモデル化するものである。ISDモデルはこのようにシンプルなモデルではあるが、圧縮ベントナイト中の様々な陽イオン・陰イオン・中性化学種に対して、実効拡散係数（D_e）を幅広く再現することを確認するとともに、複数の化学種が混在する系や多重間隙構造を有する系に対しても適用できるようにモデルの高度化を進めてきた（日本原子力研究開発機構, 2013; 2016; 2018）。

ISDモデルを適用した幌延の泥岩中の拡散モデルの一つとして、泥岩に含まれている粘土鉱物中の核種拡散移行にISD拡散モデルを適用し、その他の鉱物は単に移行を阻害する構造物とみなしてその影響を幾何学的因子に取り込むモデルを検討している。その際、核種の移行経路となる粘土鉱物と移行の障害となる他の鉱物をランダムに分布して構造モデルを作成し、その構造のなかで核種をランダムウォーク（Random Walk, 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、花崗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）。平成31年度は試解析として、クニゲルV1とケイ砂を様々な比率で混合した供試体の構造をモデル化し、シミュレーション解析の結果と実測データを比較してモデルの適用性を確認した（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, 2020）。そこで令和2年度は、構造モデル・ケイ砂混合割合などのバリエーションを増やして解析データを拡充するとともに、浸透理論（小田垣, 1993）の知見を踏まえて、シミュレーションによる解析結果と実測データの整合性に関する考察を行った。

Kato et al.(1999b)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＝0.05 - 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。本シミュレーション解析では、Kato et al.(1999b)におけるクニゲルV1とケイ砂の混合系をモデル化するため、次のように設定した。

・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

さらにクニゲルV1とガラスビーズの混合系をモデル化するため、次の3種類を設定した。
・1×1×1セルの構造を1ユニットとして、解析体系全体を200×200×200ユニットで構成
・4×4×4セルの構造を1ユニットとして、解析体系全体を50×50×50ユニットで構成
・8×8×8セルの構造を1ユニットとして、解析体系全体を25×25×25ユニットで構成

各ユニットは、次のような2種類のいずれかとする。
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。

実測のクニゲルV1とケイ砂の混合系をモデル化した場合の計算条件を、Kato et al.（1999b）に基づいて表3.2-5のように設定した。緩衝材（クニゲルV1+ケイ砂混合材）の乾燥密度（$\rho_{\mathrm{b}}^{\mathrm{buff}}$）を一定（＝1600 kg/m³）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3.2-5のように変化する。ただし、ベントナイトの真密度（$\rho_{\mathrm{s}}^{\mathrm{bent}}$）とケイ砂の真密度（$\rho_{\mathrm{s}}^{\mathrm{sand}}$）をそれぞれ2700 kg/m³（鈴木ほか, 1992）、2670 kg/m³（Kato et al., 1999a）として算出した。

表3.2-5　クニゲルV1とケイ砂の混合系をモデル化したシミュレーションの条件設定

ユニットセルのサイズ	ベントナイトの質量分率 [−]	ベントナイトの体積分率 [−]	ベントナイトの乾燥密度 [kg/m³]	ベントナイトの間隙率 [−]	ベントナイト中の実効拡散係数 [10^{-9}m²/s]	ケイ砂の質量分率 [−]	ケイ砂の体積分率 [−]	緩衝材の乾燥密度 [kg/m³]	緩衝材の間隙率 [−]	実効拡散係数 [10^{-9}m²/s]	
										RWシミュレーション	実測データ
2×2×2	0.1	0.460	348	0.871	0.971	0.9	0.540	1600	0.401	0.205	0.279
	0.2	0.520	616	0.772	0.624	0.8	0.480		0.401	0.184	0.217
	0.3	0.580	828	0.693	0.439	0.7	0.420		0.402	0.157	0.192
	0.4	0.640	1000	0.630	0.330	0.6	0.360		0.403	0.144	0.155
	0.5	0.700	1143	0.577	0.260	0.5	0.300		0.404	0.135	0.154
	0.6	0.760	1263	0.532	0.213	0.4	0.240		0.404	0.128	0.138
	0.8	0.880	1455	0.461	0.156	0.2	0.120		0.406	0.126	0.130
	1.0	1.000	1600	0.407	0.122	0.0	0.000		0.407	0.129	0.118

次に、実測のクニゲルV1とガラスビーズの混合系をモデル化した場合の計算条件を、Kato et al.(1999b)に基づいて表3.2-6のように設定した。この場合、緩衝材とはクニゲルV1とガラスビーズの混合材を意味する。$\rho_{\mathrm{b}}^{\mathrm{bent}}$を一定（＝1000 kg/m³）に保ちつつ$\alpha_{\mathrm{bent}}$を変化させていくケースは、ユニットセルのサイズをすべて4×4×4セルに統一する。一方、粒子サイズの影響を評価する解析ケースでは、ユニットセルのサイズ以外はすべて同じ条件に設定している。なお浸透理論との比較を見るため、R_{sand}が0.6～0.8のケースをクニゲルV1とガラスビーズの混合系に追加した。またベントナイト中の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(3.2-1)を用いて算出した。

$$D_{\mathrm{e}}^{\mathrm{bent}} = 1.727 \times \exp\left(-1.655 \times \rho_{\mathrm{b}}^{\mathrm{bent}}\right), \quad 0.5 \leq \rho_{\mathrm{b}}^{\mathrm{bent}} \leq 2.0 \tag{3.2-1}$$

ベントナイトの質量分率が0.6（体積分率は0.76）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）を三次元的に配置した計算体系の断面イメージ図を、図3.2-22(a)に示す。図3.2-22(a)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。拡散粒子（本解析ではHTO）の初期位置として端面：$0 \leq \mathrm{X} \leq 20, \mathrm{Y} = 0, 0 \leq \mathrm{Z} \leq 20$に配置し、反対側の端面：$0 \leq \mathrm{X} \leq 20, \mathrm{Y} = 20, 0 \leq \mathrm{Z} \leq 20$から体系外に移行する際の移行率（flux）を算出する。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、一次元拡散方程式の解析解とのフィッティングにより評価した。

表3.2-6　クニゲルV1とガラスビーズの混合系をモデル化したシミュレーションの条件設定

ユニットセルのサイズ	ベントナイトの質量分率 [−]	ベントナイトの体積分率 [−]	ベントナイトの乾燥密度 [kg/m^3]	ベントナイトの間隙率 [−]	ベントナイト中の実効拡散係数 [10^{-9}m^2/s]	ケイ砂の質量分率 [−]	ケイ砂の体積分率 [−]	緩衝材の乾燥密度 [kg/m^3]	緩衝材の間隙率 [−]	実効拡散係数 [10^{-9}m^2/s]	
										RWシミュレーション	実測データ
	1.000	1.000				0.000	0.000	1000	0.630	0.344	—
	0.855	0.940				0.145	0.060	1100	0.592	0.308	0.279
	0.631	0.820				0.369	0.180	1300	0.516	0.235	0.240
	0.467	0.700				0.533	0.300	1500	0.441	0.170	0.197
	0.341	0.580				0.659	0.420	1700	0.365	0.118	0.164
4×4×4	0.289	0.520	1000	0.630	0.330	0.711	0.480	1800	0.327	0.091	0.116
	0.242	0.460				0.758	0.540	1900	0.289	0.067	0.091
	0.200	0.400				0.800	0.600	2000	0.252	0.049	—
	0.168	0.350				0.832	0.650	2083	0.220	0.035	—
	0.138	0.300				0.862	0.700	2166	0.189	0.000	—
	0.086	0.200				0.914	0.800	2333	0.126	0.000	—
1×1×1										0.191	0.203
4×4×4	0.2	0.520	616	0.772	0.624	0.8	0.480	1600	0.401	0.175	0.221
8×8×8										0.168	0.205

上記解析条件によるRWシミュレーションから得られた実効拡散係数とKato et al.(1995)の実測データを、表3.2-5及び表3.2-6の右端の欄に記載した。両者を比較すると、個々のデータの定量的一致は十分とは言えないが、ケイ砂混合の体積分率R_{sand}に対する変化の傾向が整合的であることがわかる。また、粒子サイズの依存性についても、統計が十分ではないが顕著な影響は見られない。緩衝材中の実効拡散係数（$D_{\mathrm{e}}^{\mathrm{buff}}$）をベントナイト中の実効拡散係数（$D_{\mathrm{e}}^{\mathrm{bent}}$）で規格化することで供試体の幾何学的因子$G$（$= D_{\mathrm{e}}^{\mathrm{buff}}/D_{\mathrm{e}}^{\mathrm{bent}}$）を定義し、ケイ砂混合の体積分率$R_{\mathrm{sand}}$をパラメータとした幾何学的因子$G$の変動を図3.2-22(b)に示した。幾何学的因子GのR_{sand}依存性を、

$$G(R_{\mathrm{sand}}) = 1 - aR_{\mathrm{sand}} \tag{3.2-2}$$

の関数形でフィッティングしたところ、PartridgeコードによるRWシミュレーションの結果から$a \simeq 1.48$（$R^2 = 0.988$）の値が得られた。一方、Kato et al.(1999b)による実測データを用いた場合は$a \simeq 1.36$（$R^2 = 0.979$）であり、おおむね整合的な結果であった。図3.2-22 (b)の緑の実線は、サイト・パーコレーションの理論曲線を表し、単純立方格子の場合の浸透閾値は$R_{\mathrm{sand}} \simeq 0.688$である（Xu et al., 2014）。この場合のフィッティング・パラメータは$a \simeq 1.45$であり、RWシミュレ

ーションの結果と定量的によく一致する。本解析で対象とした拡散試験のRWシミュレーションによるモデル化は、粒子の拡散可能なクニゲルユニットが供試体の入出両面間で浸透する（粒子の拡散経路として流入面から流出面まで繋がる）確率が、クニゲルユニットの体積割合に対してどのように変化するかを見ていることになり、これはサイト・パーコレーションのシミュレーションに相当するものである。実測データの結果とシミュレーション・モデルが比較的よく整合することは、泥岩中の拡散モデルとして適切であることを裏付けていると言える。シミュレーションの結果と実測データとの系統的な相違については、供試体構造のモデル化の問題が考えられる。本解析では、ケイ砂ユニットはすべて間隙率をゼロとし、粒子はユニット内を全く拡散しないものとしてモデル化したが、実際にはケイ砂自体にも構造があり、ケイ砂の表面近傍では粒子の拡散に若干寄与していると考えるのが妥当である。したがって実測データの再現性の観点からは、ケイ砂ユニットのモデルの高度化が一つの課題である。また、浸透理論の臨界点近傍における実測データの挙動を把握することも重要である。Kato et al.(1999b)で実施された拡散試験のうちケイ砂の体積分率が最大のケースは$R_{\mathrm{sand}} = 0.54$である。同じサイズの球状粒子を最密状態でランダムに配置した場合の充填率は、約0.637になることが知られている（Scott and Kilgour, 1969）。したがって、ケイ砂混合系にしてもあるいはガラスビーズ混合系にしても、臨界点付近の供試体を作成することは原理的に困難である。その意味でも、このような極限状態を現出し、粒子の拡散過程を評価するRWシミュレーションは、現象をより深く理解するうえで極めて有効な手法であると言える。

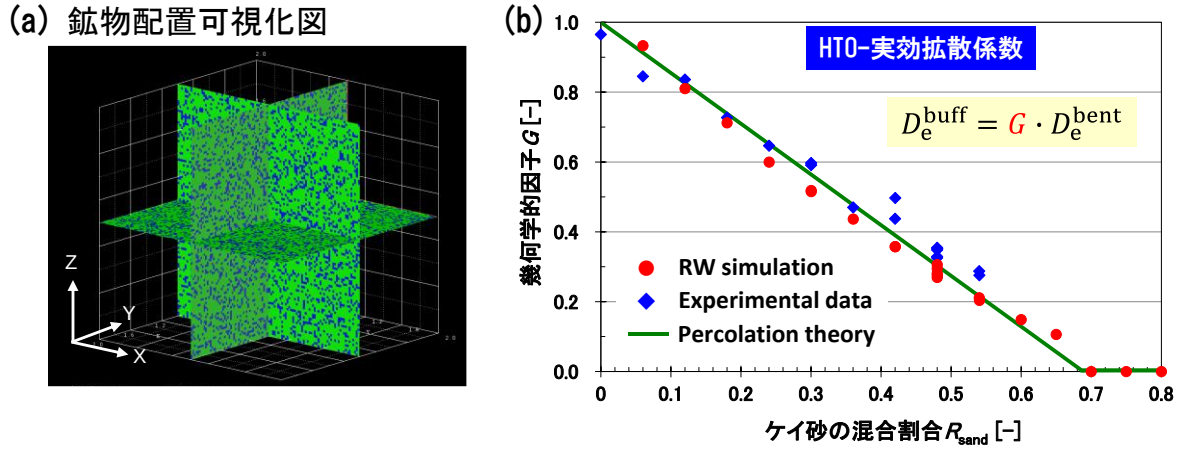


図3.2-22　RWシミュレーションの関連図：(a)鉱物配置可視化図：ベントナイトの質量分率が0.6（体積分率は0.76）の場合の計算体系、 (b)幾何学的因子Gのケイ砂体積分率R_{sand}依存性。RWシミュレーションのデータ（赤プロット）、拡散試験の実測データ（青プロット）及びサイト・パーコレーション理論曲線（緑線）

幌延の泥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評価するためRWシミュレーションを適用した。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.(1999b)で得られた実測データとの整合性が示されるとともに、浸透理論の知見を踏まえて考察することにより、現象理解に資する結果が得られた。今後の課題としては、①ベントナイト及びケイ砂の構造を反映したシミュレーション・モデルの高度化、②荷電粒子を対象としたシミュレーション解析、などを実施して、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、幌延の泥岩への拡張について検討を進めることとする。

④ 幌延の泥岩マトリクス中の核種移行モデルの原位置試験データによる確証

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の350 m調査坑道で実施してきた原位置拡散試験と連携することによって、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確認を進めてきた。具体的には、幌延の地下350 m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年度には、地下水の塩濃度条件に着目して幌延の350 m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実施し、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、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, 2020）。令和2年度は、一昨年度取得した塩濃度が異なる条件で取得したCsの原位置拡散データを対象に、最適化手法を適用した解析評価を行うとともに、拡散・収着モデルの適用性を検討した。

これまでに多様な環境条件での原位置拡散試験手法と拡散モデルの適用性を確認する観点から、地下水の塩濃度条件に着目して幌延の350 m坑道で実施された原位置拡散試験を対象に、試験後に採取されたオーバーコア試料の内部プロファイルの取得、及び原位置試験の解析評価を実施してきた（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）。ここでは、先行事業（日本原子力研究開発機構, 2018）で実施した成果も含め、幌延の深度350 m調査坑道における模擬地下水（塩濃度0.23 M）を用いたD05孔の試験、塩濃度をより高濃度に変化させたD09孔（4%海水相当の塩濃度の模擬地下水）及びD06孔（10%海水相当の塩濃度）で取得されたCsのデータを対象に、より詳細な解析検討を実施した。ここで，これらの原位置拡散試験における塩濃度の調整には、D05孔の試験に使用した模擬地下水に対し、NaとClイオンの濃度のみを変動させて高塩濃度条件に調整する方法が採用された。解析評価は、これまでに用いてきたGoldSimコード（ver. 10.1; GoldSim Technology Group, 2010）の最適化手法を適用することによって拡散・収着パラメータの最適値を導出した。さらに、これまでに開発してきた粘土鉱物を主体とした収着モデルを組み込んだ地球化学コードPHREEQC（Parkhurst et al., 2013）を用いたフィッティングを実施し、導出されたパラメータ値の妥当性を検討した。

(a) GoldSimを用いた核種移行モデルの適用性評価

GoldSim、PHREEQCともに、原位置試験の円筒形を模擬したモデル化を行った。図3.2-23にモデル体系を示す。GoldSimではモデル化する範囲を一次元円筒座標系で0.2 mとし、メッシュを試験孔との接触面から等比数列に基づき設定を行った。岩石の物質移行特性は対象範囲内で均質とし、一定の拡散・収着特性となるよう設定した。GoldSimによるフィッティングは、原位置拡散試験の循環模擬地下水中のCsの濃度減衰データと、試験後に取得した周辺岩石中のCsの濃度分布データを対象とした。岩石中の濃度分布に関しては、循環模擬地下水からのCsトレーサーの減少濃度が、全て周辺岩石へ拡散・収着したと仮定して、マスバランスを補正したデータを用いた。

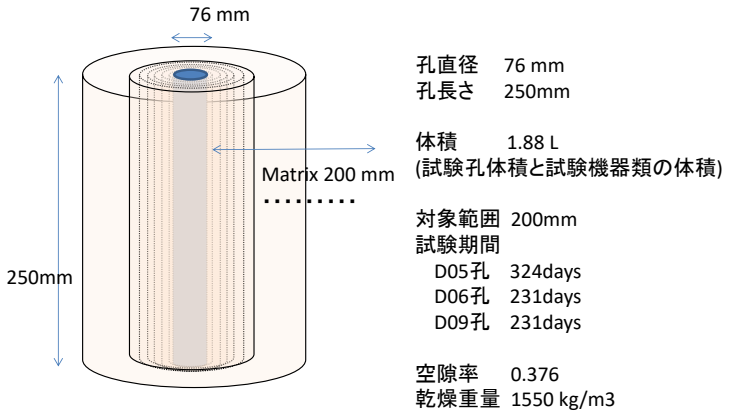


図3.2-23　原位置試験（堆積岩）を模擬したモデル体系

GoldSimコードのフィッティングで得られたCsのトレーサー減衰データと岩石中のトレーサー濃度分布を、実測データとともに図3.2-24の(a)、(b)にそれぞれ示す。トレーサー減衰データや岩石中の濃度分布のいずれにおいても、塩濃度の異なるD05孔、D06孔、及びD09孔でのデータを解析結果は実測データを再現できている。図3.2-24 (a)に示すトレーサー減衰曲線は、塩濃度増加とともに、濃度減衰が低下する傾向が、図3.2-24 (b)に示す濃度プロファイルは地下水塩濃度の増加に伴い、岩石中のCs濃度は低下し、より深くまで拡散する傾向が確認された。

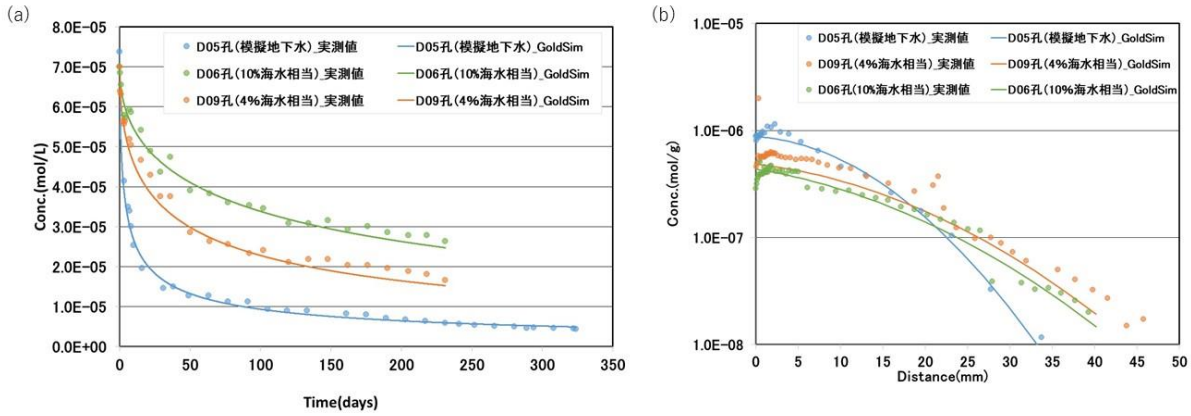


図3.2-24　Csの原位置拡散データに対するGoldSimコードによる最適化結果：(a)トレーサー減衰データ、(b)岩石中のトレーサー濃度分布

(b) PHREEQCを用いた核種移行モデルの適用性評価

GoldSimと同様の解析体系で、PHREEQCを用いた核種移行解析とパラメータの最適化評価を行った。PHREEQCのTransport計算では、多成分の平衡計算と移行計算が可能であり、イオン交換や表面錯体モデルの取扱いも可能である。ここでは、先行研究で適用性を検討してきた幌延の泥岩中の粘土鉱物（イライトとスメクタイト）によって核種収着が支配されることを仮定した粘土ベースモデル（Tachi et al., 2011）を適用し、実効拡散係数をパラメータに最適化評価を実施した。この先行研究でのモデル化検討において、幌延の泥岩に対するCsの収着分配係数の塩濃度及びCs濃度依存性が、イライトとスメクタイトのイオン交換モデルとそれぞれの岩石中の含有率を考慮することで再現可能なことが示されている（Tachi et al., 2011）。PHREEQCの移行計算結果から、パラメータの最適解をPHREEQCの反復計算によって探索する手法を構築して、最適化評価を行った。

PHREEQCコードと最適化ツールを組み合わせて得られたCsのトレーサー減衰データと岩石中のトレーサー濃度分布を、実測データとともに図3.2-25の(a)、(b)にそれぞれ示す。GoldSimコードの最適化結果と同様に、濃度の異なるD05孔、D06孔、及びD09孔でのトレーサー減衰データや岩石中の濃度分布データを概ね再現可能なことが確認された。図3.2-25(a)に示すトレーサー減衰曲線は、塩濃度増加とともに、濃度減衰が低下する傾向が明瞭に確認され、図3.2-25(b)に示す岩石中のCs濃度分布も表面から離れた深い部分で、実測との若干の乖離がみられるが、全体的には塩濃度による変化の傾向を再現できていると考えられる。

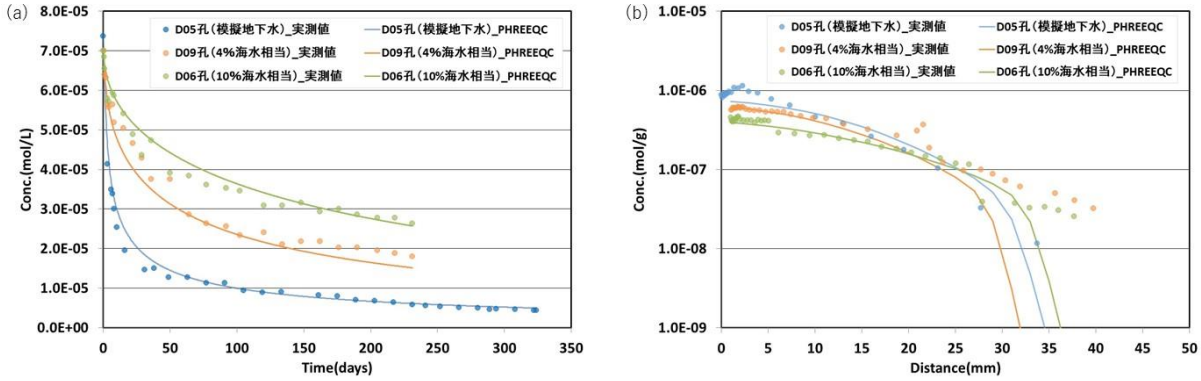


図3.2-25　Csの原位置拡散データに対するPHREEQCコードと最適化ツールを用いた最適化結果：(a)トレーサー減衰データ、(b)岩石中のトレーサー濃度分布

(c) 各計算コードによる評価結果と塩濃度依存性の比較

GoldSimとPHREEQCコードの最適化評価によって得られた各塩濃度条件での試験における拡散・収着パラメータを表3.2-7に示す。GoldSimの最適化の結果から、試験孔内の塩濃度が高くなることで、陽イオンであるCs^+の実効拡散係数(D_e)は小さくなり、収着分配係数(K_d)も小さくなる結果が得られた。同様に、PHREEQCにおいても塩濃度が高くなることで、実効拡散係数が小さくなる傾向を確認できた。各コードの最適化によって得られた実効拡散係数の塩濃度依存性を図3.2-26に示す。実効拡散係数の値は、両コードの最適値に若干の差異があるものの，比較的近い値が導出され、また、塩濃度に対する依存性も整合する結果が得られた。

表3.2-7　Csの原位置拡散データの最適化により導出された拡散・収着パラメータの比較

試験孔	塩濃度	GoldSim		PHREEQC
		D_e(m²/s)	K_d(m³/kg)	D_e(m²/s)
D05孔	0.65%	6.72E-10	0.1780	8.06E-10
D09孔	4%	4.03E-10	0.0334	3.32E-10
D06孔	10%	2.27E-10	0.0194	2.21E-10

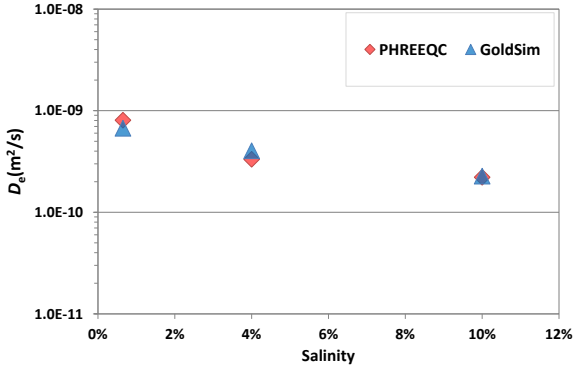


図3.2-26　モデル解析で推定されたCsの実効拡散係数の比較

GoldSimとPHREEQCコードによる解析と最適化評価では、最適化手法のみならず、採用しているモデルにも違いがあるため、単純な比較を行うことは適さない。ここでは、両コードで採用した解析モデルにおいて、収着モデルの取扱いが異なる点に着目して、解析結果の分析を試みた。GoldSimコードでは、条件によらず一定の収着分配係数モデルを適用している。またPHREEQCでは、上記の通り、イライトとスメクタイトのイオン交換反応モデルを適用している。

各試験孔のCsの収着分配係数の岩石内部の深度分布を図3.2-27に示す。GoldSimは、深さ方向に対して岩石中の収着分配係数が一定になるのに対して、PHREEQCでは、イオン交換モデルを使用しているため、より深い位置（液相中の濃度が低い個所）でより高い収着分配係数となり、この傾向がモデルで適切に表現されていることが確認できる。今後、これまでに取得した原位置トレーサー拡散試験データに対する同様の最適化検討を行うとともに、室内試験データやモデル化との比較分析によって、室内と原位置条件での核種移行パラメータの整合性や関係性、収着・拡散モデルの適用性などについて評価を進めていく。

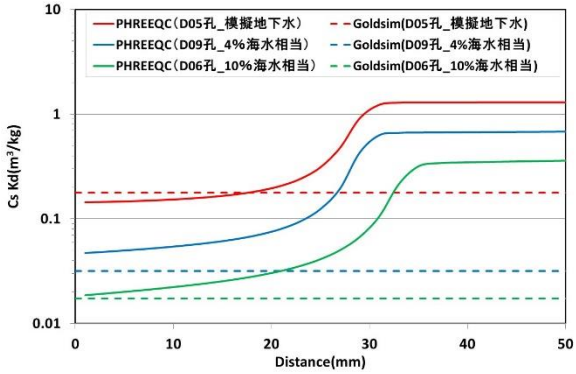


図3.2-27　各試験孔のCsの収着分配係数
（PHREEQCのK_dは固相(mol/g)/液相(mol/kg)から算出値）

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; 2020）。令和2年度は、これまでの解析の結果と課題を踏まえつつ、

トレーサー試験後の周辺部から採取したコア分析の結果から割れ目の分布やトレーサー（Cs）の分布状況から複雑な移行経路を推察するとともに、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3.2-28に示すような複数の割れ目が存在する割れ目帯領域を対象に、2本の試錐孔を利用した孔間方式で実施された（武田ほか, 2017）。注水孔及び揚水孔は孔径約10 cm、約1 mの離間距離であり、坑道壁面から約2～3 m付近にパッカーを設置して試験区間を形成し（試験区間：注水孔 30 cm、揚水孔 60 cm）、注入孔（40 mL/min）から揚水孔に一定流量（30 mL/min）で多様なトレーサー（Cs, Co, Mo, I, 重水, ウラニン）を含んだ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）。

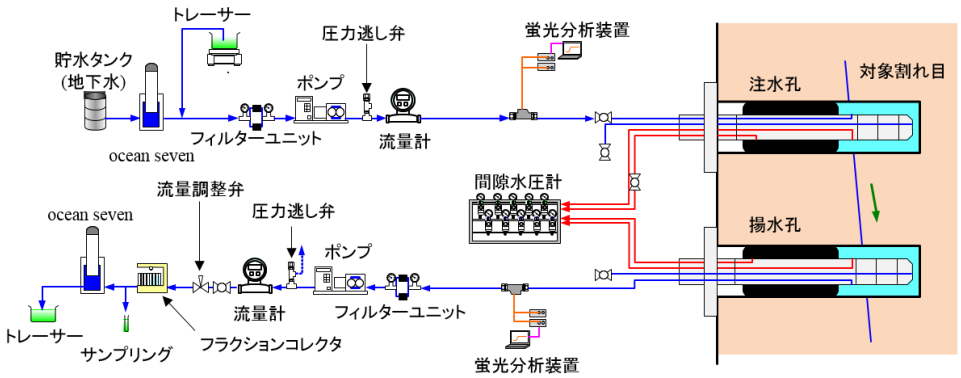


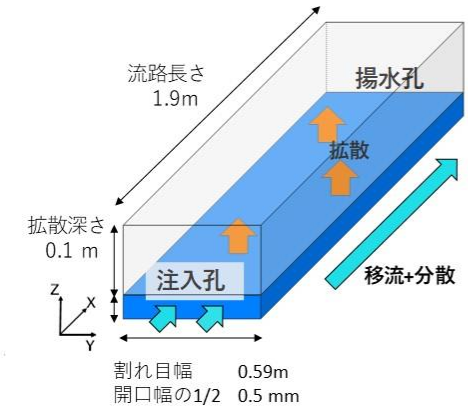
図3.2-28　幌延泥岩の割れ目を対象とした原位置トレーサー試験装置の概略図

②　原位置トレーサー試験結果のモデル解析

(a) モデル解析のアプローチ

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（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、主たる移行経路となりうる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。これまでの解析検討においては、最初のステップとして、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（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）。さらに、割れ目表面のトレーサーの分析結果から、複雑な移行経路が示唆されたことを踏まえて、二つ移行経路を介した移行や、フロー領域とスタグナント領域の存在を考慮した解析を試みてきた（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, 2020）。ここで、基本となる解析体系は、図 3.2-29 に示すモデル概念、支配方程式と初期・境界条件に基づくものであり、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を比較する方法で実施してきた。これまでの解析結果では、いずれのモデルにおいても、コンスタントソースの試験結果を再現することはできるものの、パルスソースの試験結果を同じパラメータでは十分に再現できなかった（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; 2020)。



割れ目中の核種移行に関する支配方程式(Goldsim Pipe Pathway)

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} = -\left[\left(\frac{Q}{A}\right)\frac{\partial C_i}{\partial x} - \left(\frac{AD_w + \alpha Q}{A}\right)\frac{\partial^2 C_i}{\partial x^2}\right] - \frac{1}{A}D_e P \frac{\partial C_i^m}{\partial z}\bigg|_{z=0}$$

マトリクス中の核種移行に関する支配方程式

$$\frac{\partial C_i^m}{\partial t} = \frac{D_e}{\theta R_i^m}\frac{\partial^2 C_i^m}{\partial z^2} + \left(\frac{D_e}{\theta A^m R_i^m}\right)\frac{\partial A^m}{\partial z}\frac{\partial C_i^m}{\partial z}, (R_i^m = 1 + \frac{\rho K_d}{\theta})$$

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 $\frac{\partial C_i^m}{\partial z}\big|_{z=d} = 0\ (z=d)$

Q	：割れ目中の流量	m^3/sec	P	：割れ目表面から垂直方向への距離	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	：割れ目の断面積の半分（割れ目の開口幅の半分×割れ目幅）	m^2	θ	：空隙率	-
			R_i^m	：マトリクス中の遅延係数	-
D_w	：自由水中の拡散係数	m^2/sec	A^m	：拡散領域/割れ目の長さ	M
a	：縦方向の分散長	M	ρ	：マトリクスの乾燥密度	Kg/m^3
D_e	：マトリクス中の実効拡散係数	m^2/sec	K_d	：収着分配係数	m^3/Kg
P	：割れ目の周囲長の半分（開口部の横幅の長さ）	m			

図3.2-29　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

これまでの解析の課題を踏まえ、ここでは、これまでに取得してきたトレーサー試験後の割れ目の分布やトレーサー（Cs）の分布状況の分析結果から複雑な移行経路を推察するとともに、複数の移行経路及び不均質な流れ場等を考慮した核種移行モデルによる解析及びその結果の実測データとの比較を行うことによって、改良したモデルやパラメータの妥当性について検討を行った。

(b) 移行経路の推定

今回の割れ目帯領域を対象とした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る。試験後に試験箇所周辺岩盤をボーリング掘削し（図3.2-30(a)）、採取した岩石試料に含まれる割れ目の位置情報と走向・傾斜から、試験箇所周辺の割れ目の分布状況を検討した。なお、割れ目の走向・傾斜は岩石試料に認められる層理面の走向・傾斜に基づき定方位化し、目視観察にて判読を行った。図3.2-30 (b)に示すように、試験孔としたS-30及びS-31の周辺、孔間にはせん断割れ目、引張割れ目及び両者の性質を有するハイブリッド割れ目が複雑に分布していることがわかる。また、注水孔（S-31）と揚水孔（S-30）の試験区間にはそれぞれ断層が確認されるものの、試験区間のほぼ直線上に位置するSW-43やSW-34に断層は確認されていないことから、試験区間内の断層は同一面上で連続していないことが推定される。図3.2-30(b)に示す試験孔周辺に掘削したボーリング孔で確認した割れ目表面のトレーサー濃度を分析した結果を図3.2-31に示すとともに、割れ目表面のトレーサー濃度のうち、検出最大濃度を表3.2-8に示す。

図3.2-31(a)から、注水孔（S-31）や揚水孔（S-30）に比較的近い孔（SW-33、SW-42、SW-43、SW-46、SW-47、SW49）に分布する多様な割れ目（せん断、引張、ハイブリッド）でトレーサーが検出された。注水孔（S-31）の周辺では、注水孔（S-31）に出現する断層との直線距離がほぼ等しい位置に分布する割れ目における最大検出濃度が2桁程度異なることから、注入されたトレーサーは注水孔及び揚水孔間に分布する複数の割れ目のうち、選択的な経路（割れ目）を介して、移行している可能性が示唆される。これらの結果から、本トレーサー試験で注入されたトレーサ

ーは注入孔及び揚水孔間に分布する異なる断層の周囲に分布するせん断割れ目やハイブリッド割れ目を介し、複数の経路を移行していることが推定される（図3.2-32）。また，図3.2-31(b)に示すように、試験後の採取したコア中の割れ目表面のCs濃度の分析結果からは，明瞭な濃度の濃淡が認められる。このことは、不均質なトレーサーの移行が生じていることを示すものであり、フロー・スタグナント領域を考慮する必要性が確認された。

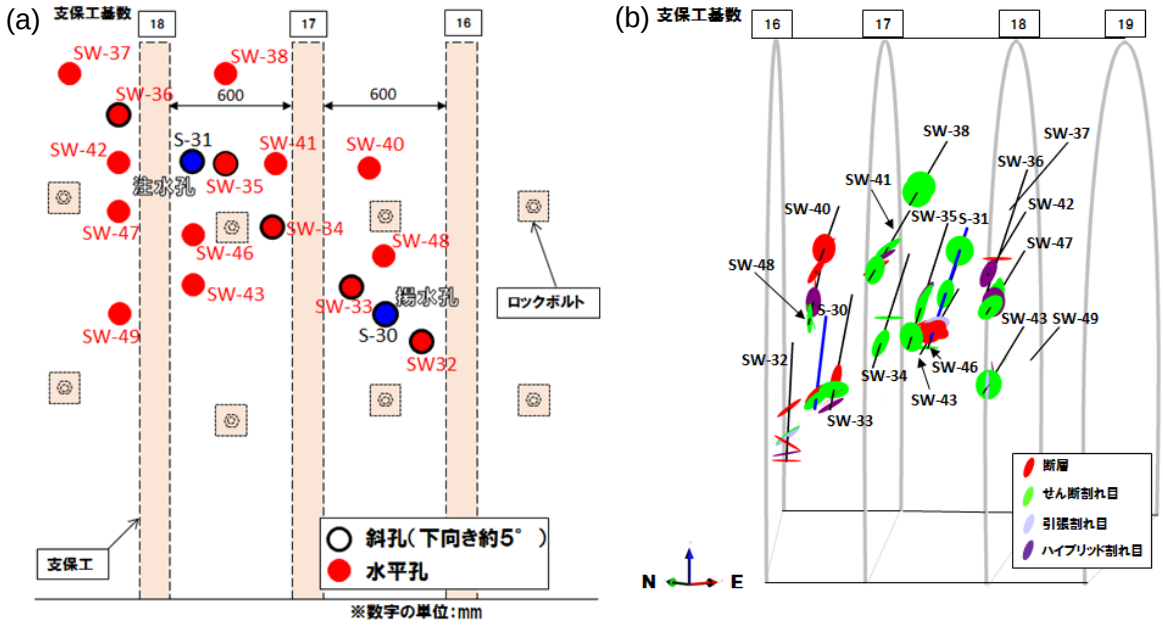


図3.2-30　試験孔周辺の岩石試料採取・観察結果に基づく割れ目分布：(a)試験孔周辺のコア採取位置（ボーリング孔番号）、(b)割れ目の分布と分類

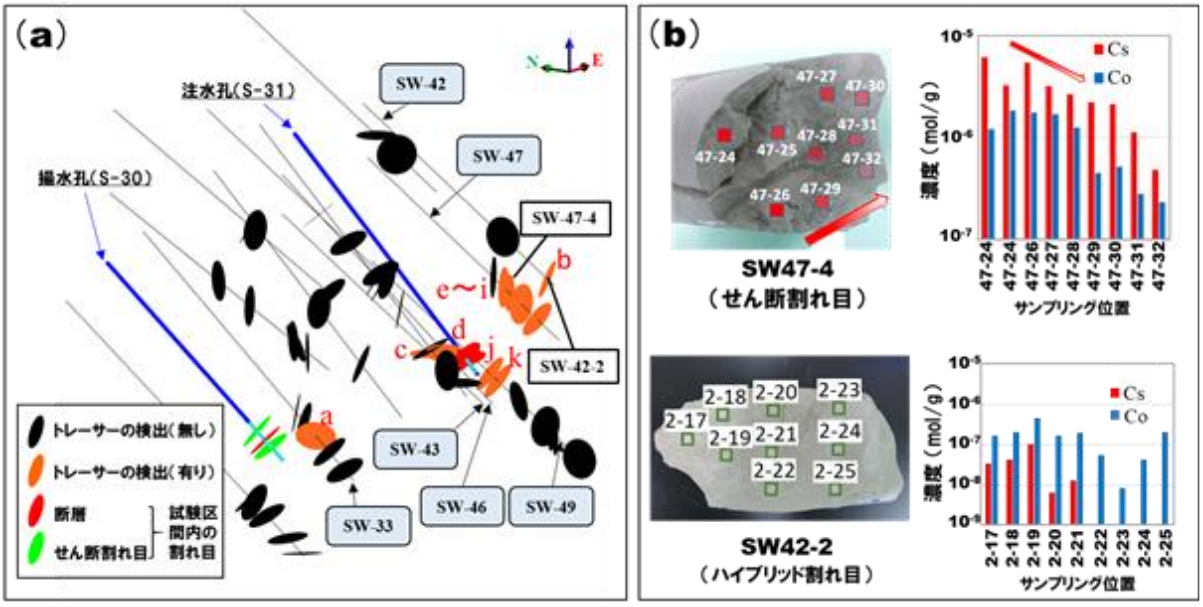


図3.2-31　試験孔周辺のボーリングコアの割れ目面のトレーサー分析結果：(a)トレーサーの移行に関与した割れ目分布、(b)割れ目表面のトレーサー濃度分析結果の一例

表3.2-8　割れ目表面におけるトレーサーの最大検出濃度

孔名	No.	割れ目タイプ	深度(mabh)	検出最大濃度	
				Cs(mol/g)	Co(mol/g)
SW-33	a	せん断	3.34	4.68E-08	6.11E-07
SW-42	b	ハイブリッド	3.95	1.06E-07	4.60E-07
SW-43	c	断層	3.14	2.38E-07	3.89E-07
SW-46	d	断層	3.5	7.48E-06	2.39E-06
SW47	e	引張	2.92	6.15E-08	4.52E-07
	f	せん断	3	4.19E-06	1.53E-06
	g	せん断	3.1	6.08E-06	1.82E-06
	h	ハイブリッド	3.3	7.56E-06	2.29E-06
	i	せん断	3.64	4.49E-08	2.76E-07
	j	ハイブリッド	2.7	2.75E-07	2.25E-07
SW49	k	ハイブリッド	3.15	3.92E-07	2.77E-07

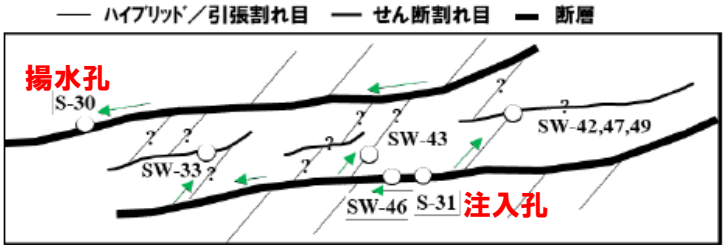


図3.2-32　割れ目のトレーサー試験における割れ目やトレーサー分布に基づく移行経路の推定

(c) 複数の移行経路とフロー領域・スタグナント領域を考慮した解析

上記(b)で検討したように、ここで対象とした割れ目帯領域でのトレーサー試験では、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、割れ目内をトレーサーが不均質に移行（フロー領域・スタグナント領域）している可能性が示唆された。このことを踏まえ、複数の移行経路とフロー・スタグナント領域を考慮したモデルを検討することとして、平成31年度にその検討に着手した（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, 2020）。

平成31年度の解析検討では、パルス試験のピーク傾向を一つの移行経路で再現しつつ、もう一つの移行経路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、パルス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らなかった。令和2年度は平成31年度に検討した複数の移行経路とフロー領域・スタグナント領域を考慮したモデル化手法を適用しつつ、三つの移行経路を仮定したモデル解析を行い、パルスソースとコンスタントソース、複数のトレーサーの実測データを再現できるか検討を行った。

平成31年度に検討した複数の移行経路とフロー領域・スタグナント領域を考慮したモデルの概念を図3.2-33に示す。複数の移行経路を考慮したモデルは、図3.2-33(a)に示すように、一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複数設定し、それぞれの流路長さ、割れ目幅及び開口幅の六つの条件を変動させる。一方で、割れ目内にフロー領域・スタグナント領域を考慮したモデルでは、図3.2-33(b)に示すように、フロー領域の移流・分散に加え、フロー領域からスタグナント領域への拡散と、マトリクス拡散を考慮する。なお解析評価には、GoldSimコード（ver. 10.1; GoldSim Technology Group, 2010）を用いることとする。平成31年度の解析検討において、ウラニンやMoといった非収着性トレーサーの場合には、スタグナント領域の存在による影響は顕著とはならないが、収着性トレーサーのCsの場合には破過曲線にもその影響は顕在化することが確認された。このことから、複数の移行経路と、フロー・スタグナント領域の双方を組み合わせたモデルを基本として解析を進めた。

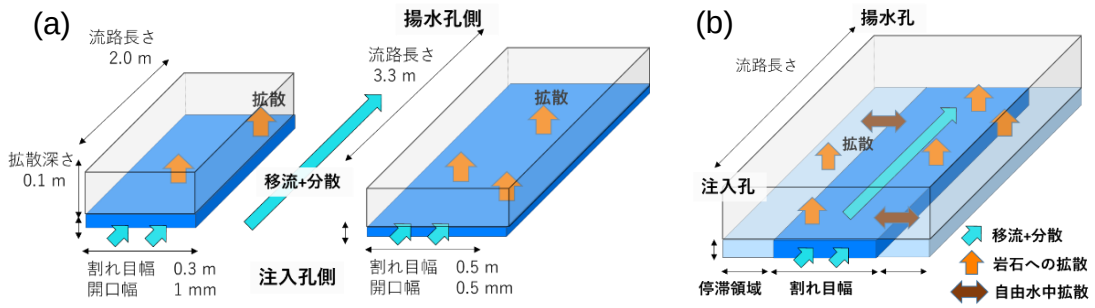


図3.2-33　複数の移行経路とフロー領域・スタグナント領域を考慮した解析モデル：(a) 複数の移行経路、(b)フロー領域・スタグナント領域

平成31年度に検討した二つの移行経路とフロー領域・スタグナント領域を考慮したモデルでは実測データを十分には再現できなかったことに加え、パルスソース試験で実測されたウラニンの破過曲線において、三つのピークが確認されていることを踏まえ、ここでは、三つの移行経路とフロー領域・スタグナント領域を考慮したモデルの適用性を検討した。三つの移行経路の流路長さと割れ目幅を変動させることによって、パルスソース試験で得られたウラニンの破過曲線の再現可能なモデルパラメータを推定した。

非収着性トレーサーであるウラニンは、流路長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。一方で、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、パルスソース試験のウラニンの破過データの全体の傾向性や第2、第3ピークの位置などを再現可能な三つの移行経路の条件の探索を行った。その結果として得られた三つの移行経路のパラメータを表3.2-9に、パルスソース試験におけるウラニンの破過データの解析結果を実測データとともに図3.2-34(a)に示す。メインピークを比較的短い移行経路の経路1で再現しつつ、残り二つのより距離の長い二つの移行経路（経路2及び3）で破過曲線のテール部をある程度表現可能であることが確認できた。しかしながら、パルスソース試験とコンスタントソース試験での移行経路や流れ場が変化しないこと仮定して、コンスタンソース試験のウラニンの破過データを解析した結果（図3.2-34(b)）は、実測データの傾向性と乖離が確認され、経路2及び3の寄与が過大評価となっていると推定された。

表3.2-9　解析モデルのパラメータ

パラメータ	経路1	経路2	経路3
流路の長さ（mm）	1800	5000	6000
割れ目の幅(透水幅)　（mm）	500	585	200
割れ目の開口幅（mm）	0.6	0.5	0.5
割れ目中への流量（mL/min）	17.33	16.90	5.78
流速（m/hr）	3.47	3.47	3.47

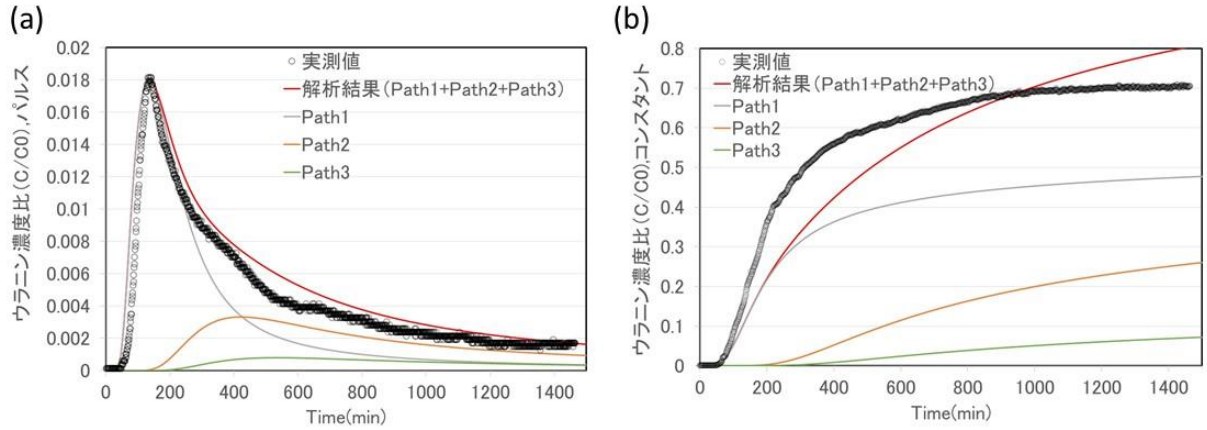


図3.2-34　ウラニンにおける三つの移行経路を考慮した解析モデルを用いた解析結果：(a)パルス試験の破過曲線、(b)コンスタント試験の破過曲線

次に、ウラニンのパルスソース試験で調整した三つの移行経路のパラメータを適用して、他のトレーサーの試験結果の評価を試みた。まず、非収着性の陰イオントレーサーであるモリブデンの試験結果への適用結果を図3.2-35に示す。幌延URLの泥岩（稚内層）の先行研究で得られた中性（水分子）と陰イオン（ヨウ素等）の実効拡散係数の関係から推定したモリブデンの実効拡散係数（表3.2-10）を用いて解析した結果は、図3.2-35(a)に示すように、パルスソース試験で得られたモリブデンの破過データを概ね表現できることが確認された。しかしながら、図3.2-35(b)に示すように、コンスタントソース試験の破過データについては、ウラニンの場合に類似した破過曲線の形状の乖離が認められた。

一方で、Csのコンスタントソースについては、モリブデンの場合と同様の室内試験での実測データをもとにCsの実効拡散係数を設定した。収着分配係数については、先行研究で確認されているCs濃度依存性（Tachi et al., 2011）を考慮して、収着分配係数を変動させ、解析を実施した。解析の結果、図3.2-36(a)に示すように、収着分配係数を室内試験データに基づく値に対して、Cs濃度が高濃度条件である点を考慮して0.35倍とした場合に、実測データをある程度再現できることが確認された。なお、破過曲線の解析と実測との乖離は、上記で示したウラニンやモリブデンの調査結果と同様である。さらに、このモデルパラメータでの解析で得られた割れ目表面のトレーサー濃度と、上記に示した分析結果との比較では、図3.2-36(b)に示すように、実測データは解析結果の上限と下限の間に分布することが確認できた。

本解析で検討した三つ移行経路とフロー・スタグナント領域を考慮したモデルによって、パルスソース及びコンスタントソース試験で得られたウラニン、モリブデン及び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。しかしながら、コンスタントソースの実測データの形状は解析結果と乖離しており、より現実的な解析モデルとパラメータの最適化の検討を継続し、上記の割れ目分布や移行経路の推定結果とあわせて、モデルの妥当性を確認していく必要がある。

表3.2-10　トレーサーの実効拡散係数および分配係数

トレーサー	D_e(m²/s)	K_d(m³/kg)
ウラニン	4.80E-10	0
Mo	2.00E-10	0
Cs	9.50E-10	0.0266 0.00931(K_d*0.35)

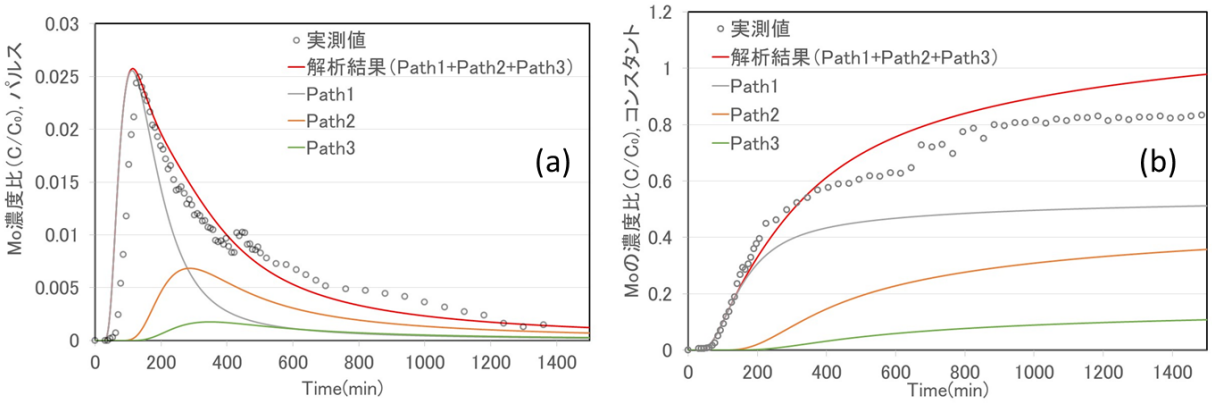


図3.2-35　Moにおける三つの移行経路を考慮した解析モデルを用いた解析結果：(a)パルス試験の破過曲線、(b)コンスタント試験の破過曲線

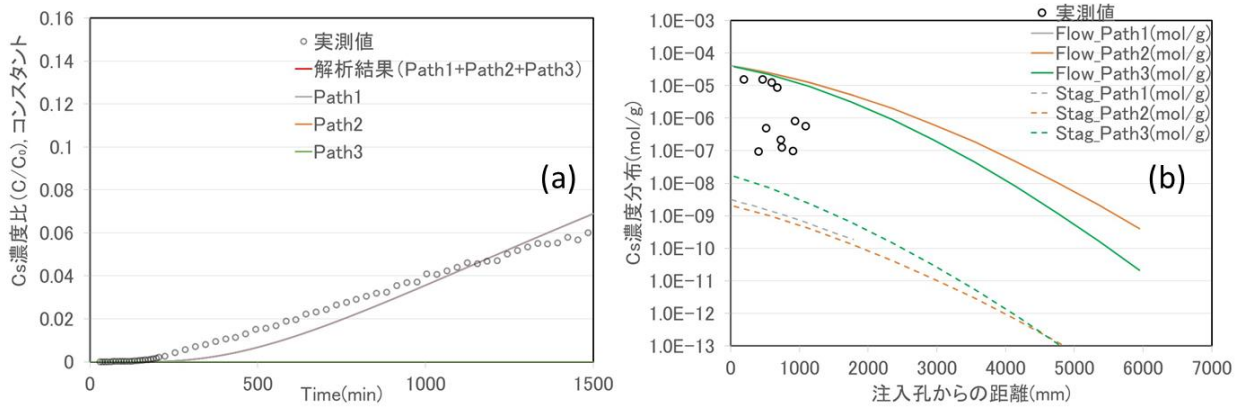


図3.2-36　Csにおける三つの移行経路を考慮した解析モデルを用いた解析結果：(a)コンスタント試験の破過曲線、(b)濃度分布

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。これまで幌延の堆積岩を一例に、地下水（間隙水）中に含まれる非収着性（弱収着性）の元素濃度プロファイル（ナチュラルトレーサープロファイル；以下「NTプロファイル」と略す）を基に、NTプロファイルの形成過程の解釈を試み、主要な物質移行プロセスの検討を進めてきた（日本原子力研究開発機構，2018）。検討にあたっては、幌延深地層研究計画における地上からの調査研究段階（第1段階）で掘削されたボーリング孔（HDB-1孔 - HDB-11孔）のうち、NTプロファイルが相対的に明瞭であること、大曲断層や褶曲軸から比較的離れた場所に位置していること（水理地質構造が相対的に単純と想定されること）、埋没・続成作用の過程におけるシリカ鉱物の相変化と脱水により深部地下水のCl濃度の希釈が概ね解釈可能であること及びNTプロファイルの形状が相互に異なることを条件に対象とするボーリング孔（HDB-1孔及びHDB-3孔）を選定した（日本原子力研究開発機構，2016）。検討の結果、両孔で認められるNTプロファイルは、移流・拡散を基本とした物質移行プロセスでの解釈が適当であること、HDB-3孔はHDB-1孔に比べると移流の影響は小さいこと等が示唆された（日本原子力研究開発機構，2018）。なお、NTプロファイルの

解釈における不確実性の大きいパラメータとして、移流速度及び移流・拡散期間が抽出され、これらを主なパラメータとしたbounding analysis（保守的に境界条件を見積もった解析）では、実測されたNTプロファイルと比較的良い整合を示す解析結果が幾つかの条件設定の組み合わせで得られた（日本原子力研究開発機構，2018）。このことは、幌延の堆積岩を対象に移流・拡散を基本とした物質移行モデルにより最適な条件を導出するには、非収着性元素の濃度プロファイルの解釈だけでは不十分であることを示唆する。このため、本検討では、非収着性元素の濃度プロファイルに加え、反応性元素の濃度プロファイルの解釈も併せて行うことで、条件の絞りこみに繋がるような検討が可能かどうかを試行する。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（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、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共に、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（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，2020）。令和2年度は、これまでの検討で整理した概念モデルで考慮する反応・プロセスをもとに、それらを取り込んだ解析モデルにより、反応性元素の濃度プロファイルを対象に移流・拡散に化学反応を加えた解析を行った。

① 解析対象としたボーリング孔及びデータ

解析対象としたボーリング孔は、非収着性元素の濃度プロファイルの解釈を試みた場合と同様に、HDB-1孔及びHDB-3孔である。両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。このうち、岩石コアから抽出された間隙水データの信頼性については平成31年度の検討により、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）の影響により、水質が変化していることが推察された（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，2020）。このため、幌延の地下施設周辺における地上からのボーリング孔（HDB-1孔及びHDB-3孔以外の他のボーリング孔も含む）で得られたpumped waterのデータをもとに、各反応性元素とClとの関係をべき乗則による回帰直線として求め、その関係に基づき、HDB-1孔及びHDB-3孔の間隙水データを補正した（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，2020）。本年度の検討では、平成31年度の検討により補正された反応性元素の濃度プロファイルを実測値の濃度プロファイルとして考慮した。

② 概念モデルで考慮した反応・プロセスに係る条件設定

幌延の地下水水質形成に関わる概念としては、大局的に見た場合、浅層に分布する降水系地下水と深層に分布する海水系地下水の混合であると考えられている（例えば、Yamamoto et al., 2005）。地下水中の成分としては、単に異なる地下水の混合で濃度を概略的に評価可能な元素（例えば、Cl）と単純に混合だけでは濃度の評価が困難と考えられる元素（反応性元素）に分けられる。また、地下水のpHや酸化還元電位（Eh）も鉱物－水反応により支配される（緩衝される）と考えられ、異なる地下水の混合だけでは評価が困難であり、鉱物－水反応を基本とした幌延の地下水水質形成に関わる検討も行われている（Yamamoto et al., 2005; Hama et al., 2007; Sasamoto

et al., 2007; 岩月ほか, 2009; Sasamoto et al., 2011）。これらを踏まえ、平成30年度には、反応性元素の濃度プロファイルを解釈するための概念モデルで考慮すべき反応・プロセスが整理された（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）。これらを簡単に整理すると以下の通りである。反応性元素のうち、Na、K、Ca及びMgについては、Yamamoto et al.（2005）での検討例を参考に、幌延の堆積岩中に含まれるスメクタイト等の粘土鉱物によるイオン交換反応を考慮した（イオン交換反応に係る選択定数については、表3.2-11に示す）。地下水のpHに関しては、令和2年度の検討では、Yamamoto et al.（2005）の例と同様に、H^+とNa^+のイオン交換反応によるpH支配の仮定を考慮した。反応性元素であるSO_4及び地下水のEhに関しては、令和2年度の検討では暫定的に黄鉄鉱と地下水との平衡反応による支配を仮定した。

表3.2-11　イオン交換反応に関わる選択定数

反応式	選択係数	参考とした文献等
$Na^+ + 0.5{>}X_2\text{-}Ca = 0.5\ Ca^{2+} + {>}X\text{-}Na$	$K_{Na/Ca} = 0.091$	Yamamoto et al.（2005）
$Na^+ + 0.5{>}X_2\text{-}Mg = 0.5\ Mg^{2+} + {>}X\text{-}Na$	$K_{Na/Mg} = 0.35$	Yamamoto et al.（2005）
$Na^+ + {>}X\text{-}K = H^+ + {>}X\text{-}Na$	$K_{Na/K} = 0.889$	Yamamoto et al.（2005）
$Na^+ + {>}X\text{-}H = H^+ + {>}X\text{-}Na$	$K_{Na/H} = 3.1E\text{-}6$	Appelo（1994）

③　境界条件及び物質移行パラメータに係る条件設定

令和2年度の検討において、HDB-1孔及びHDB-3孔を対象に行った物質移行解析における境界条件及び物質移行パラメータの条件設定を表3.2-12に示す。これらの条件設定は、平成28年度及び平成29年度に実施したHDB-1孔及びHDB-3孔を対象とした非収着性元素の濃度プロファイルの解釈を試みた場合と基本的に同様である（日本原子力研究開発機構, 2017；2018）。なお、解析コードとしては、Geochemist's Workbench：GWB（Bethke, 2008）のX1tモジュールを用いた。

表3.2-12　境界条件及び物質移行パラメータに係る条件設定

パラメータ	設定値（幅）	設定（仮定）にあたり参考とした文献等
Cl^-濃度（ppm）	地表側（上側）境界の値としては、河川水の値を設定。岩盤側（下側）境界の値としては、HDB-1孔の深部における現在のCl^-濃度（10,000）、HDB-3孔の深部における現在のCl^-濃度（13,000）を設定。	Mazurek et al.（2009） 國丸ほか（2007）
δD・$\delta^{18}O$（‰）	地表側（上側）境界の値としては、現在の地表水の値を設定。 岩盤側（下側）境界の値としては、HDB-1孔深部の現在の地下水の値を設定。	國丸ほか（2007）
拡散係数（m^2/s）	Cl^-：稚内層中でのI^-の実効拡散係数（De）と声問層の空隙率（0.6）をもとに、声問層のDeを仮定（1.6×10^{-10}を設定）。また、陰イオン拡散間隙としては、0.3と仮定。 δD・$\delta^{18}O$：CLAYTRACプロジェクトでの設定例等を参考に仮定（1.98×10^{-10}・1.28×10^{-10}）。拡散間隙は、空隙率と同様と仮定。	Tachi et al.（2011） Mazurek et al.（2009）
移流速度（m/s）	下方向への移流速度として、3.17×10^{-12}（約0.1 mm/y）～3.17×10^{-13}（約0.01 mm/y）を設定（仮定）。	Karasaki et al.（2011） Mazurek et al.（2009）
期間（時間）	幌延の地下施設周辺における古水理地質学的変遷に関わる情報を参考に、物質移行プロセスが生じた期間の最大値として、1Ma程度を仮定。	新里ほか（2007） 岩月ほか（2009）

④　解析結果

図3.2-37にHDB-1孔を対象とした場合の解析結果と実測値（間隙水データは補正値）の比較を示す。同図には、非収着性元素の例としてCl及びδDに対する比較、反応性元素の例としてNa, K, Ca及びMgに対する比較とともに、NTの移流・拡散期間を1Ma, 0.5Ma及び0.2Maとした場合の解析結果についても示す。

解析結果と実測値を比較すると、移流・拡散期間を1Maと仮定した場合、非収着性元素に加え、反応性元素のうちNa及びKについては、解析結果と実測値の整合性は比較的良い。一方で反応性元素のうちCa及びMgについては、移流・拡散期間を1Maと仮定すると、実測値よりも濃度を過少評価する傾向が見られる。Ca及びMgに関しては、粘土鉱物によるイオン交換反応に加え、炭酸塩鉱物の溶解反応による寄与も考えられる。幌延の深部の堆積岩中には、微量ながら方解石や菱鉄鉱が普遍的に存在しており（岩月ほか，2009; Sasamoto et al., 2011）、今後、これら鉱物と水との反応も考慮したモデルでの試行も必要である。また、HDB-1孔の場合、ペクレ数を算出すると10程度となり、移流の影響が効いていることが推察される。これまでに実施した非収着性元素を対象にしたNTプロファイルの解釈において、不確実性の大きいパラメータとして、移流速度及び移流・拡散期間が抽出された（日本原子力研究開発機構，2018）。移流・拡散期間の仮定に係る不確実性の観点で解析結果と実測値の比較結果を見てみると、反応性元素を含めた場合、浅層の部分での濃度プロファイルは、移流・拡散期間を0.5Maと仮定すると1.0Maの場合よりも整合性が改善されるようにも見える。現状では不明確ではあるものの、これまでの非収着性元素のみでの検討に加え、反応性元素も含めた検討を進めることで、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に対し、条件の絞りこみに繋がるような示唆が得られる可能性がある。

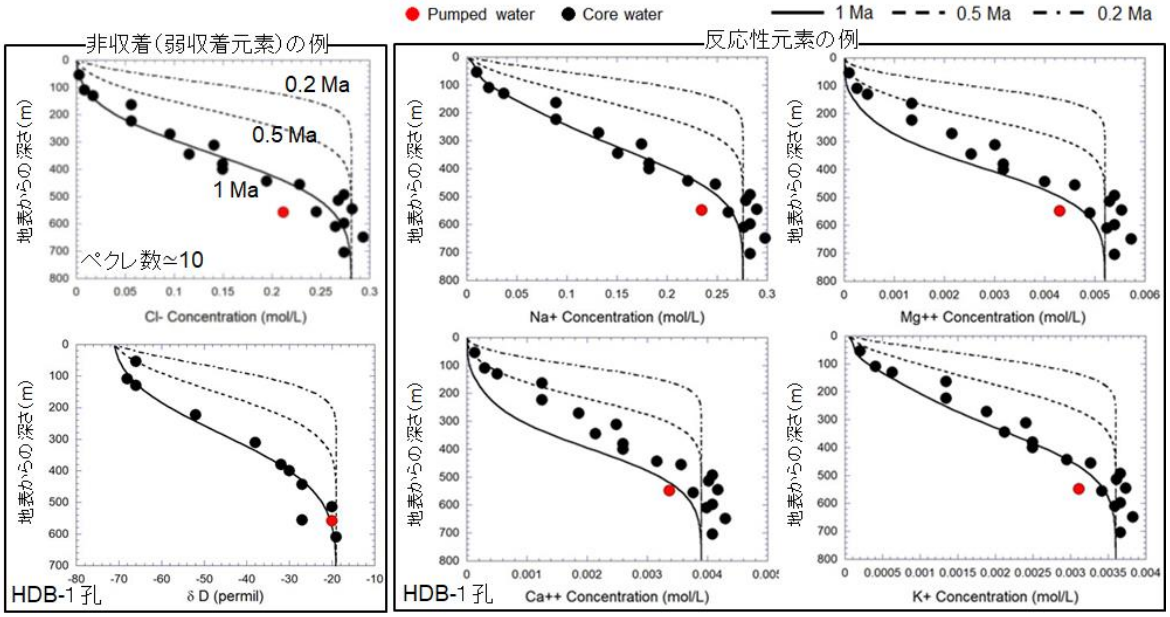


図3.2-37　非収着性元素及び反応性元素を対象とした解析結果（HDB-1孔）

図3.2-38にHDB-3孔を対象とした場合の解析結果と実測値（間隙水データは補正値）の比較を示す。比較対象として例示した非収着性元素及び反応性元素は、HDB-1孔の場合と同様である。また、移流・拡散期間のパラメータについても、HDB-1孔の場合と同様である。なお、HDB-3孔の実測データのバラツキは、HDB-1孔に比べて大きく、解析結果と比較するにはやや困難な点があるものの、概略的には、Clを除けば、移流・拡散期間を0.2 - 0.5Maと仮定した場合、解析結果

と実測値の整合性は比較的良いように見える。移流・拡散期間を1Maと仮定すると、実測値よりも濃度を過少評価する傾向が見られる。HDB-3孔の場合、ペクレ数を算出すると1未満となり、拡散が支配的であると推察される。

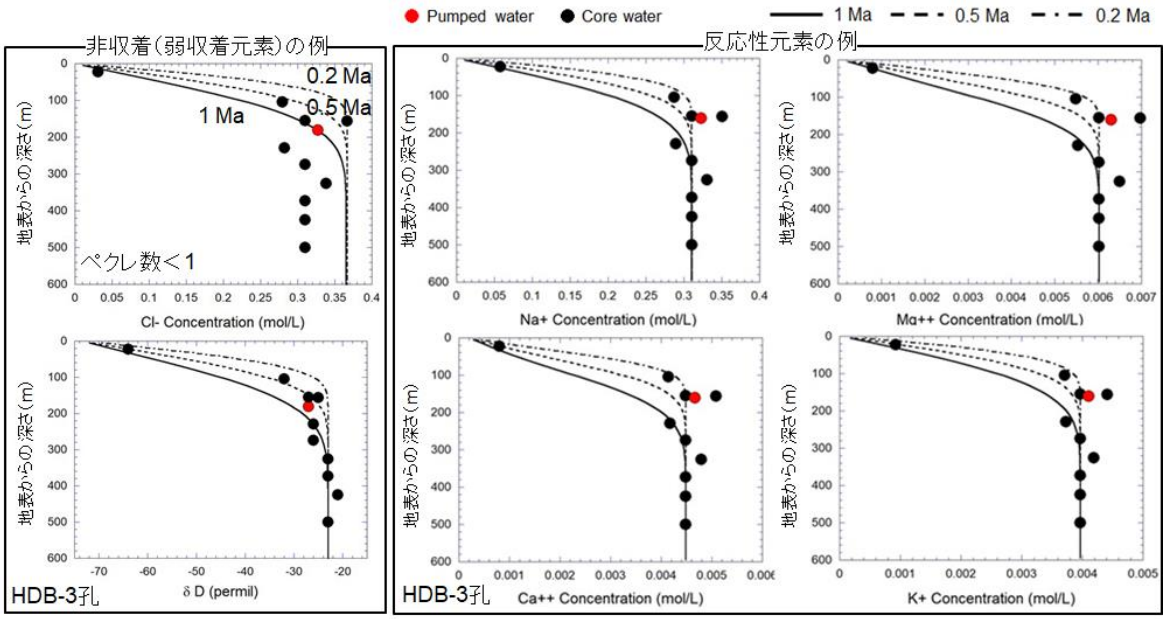


図3.2-38　非収着性元素及び反応性元素を対象とした解析結果（HDB-3孔）

⑤　これまでの成果と今後の課題

NTプロファイルの形状が異なるHDB-1孔とHDB-3孔を対象に、非収着性元素に加え、反応性元素も含めた深度方向での濃度プロファイルの解釈を試みた。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にイオン交換反応等の化学反応を加味することで、概ね濃度プロファイルの形状変化が近似可能となった。

HDB-1孔とHDB-3孔は、それほど離れた場所には位置していないものの、NTプロファイルの形状は異なり、物質移行プロセスも移流の影響度合いの違いが示唆される。両孔におけるNTプロファイルの解釈にあたり、同一の移流・拡散期間を仮定することで、解析結果と実測値を整合的に解釈できれば、本手法での適用性の限界を踏まえつつ、これまでに進めてきた手法の有効性を示せる可能性がある。一方、実際の地下環境では、地下水は地形の影響を受けた動水勾配により流動しており、本検討で考慮しているような単純な鉛直方向の流れだけでなく、三次元の流れの場にある。このため、他事業において別途実施されている幌延地域を対象とした地下水流動と物質移動を含めた三次元的な体系での解析・評価（日本原子力研究開発機構・電力中央研究所, 2020）による結果が得られた段階で、それらの結果との照合により、本事業で検討した単純化された手法の適用性やその限界について整理することも必要である。このような整理を通じて、今後、実施主体が行う段階的な処分事業において本手法がどの段階でどの様な観点で有効に利用可能かを整理することも重要である。

3.2.3 これまで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、これまでに主に海外のURLの岩石試料を用いて、マトリクス部及び割れ目部の核種移行データの取得とモデルの構築を進めてきた。結晶質岩中のマトリクス部については、平成31年度までに、スイス・グリムゼルやフィンランド・オンカロの結晶質岩を対象に、核種移行に支配的な影響を及ぼす黒雲母などの層状ケイ酸塩鉱物の配向性、粒子サイズ及び連続性を、X線CTデータから半定量～定量評価する手法を構築した。さらに、拡散試験で得られた実測データの傾向性との比較によりその妥当性を確認するとともに、黒雲母などが核種の拡散に及ぼす影響について、黒雲母などの含有率や配向性のみではなく、そのサイズや連続性も重要な要素であることを明らかにしてきた。令和2年度は、海外の岩石試料を対象に進めてきた試験分析とモデル化手法の国内岩石への適用性を確認するため、黒雲母などの鉱物の含有率や異方性のバリエーションに着目して、国内の3種類の岩石標準試料を選定し、X線CT分析によって黒雲母などの層状ケイ酸塩鉱物の含有率、粒子のサイズや連続性などの特徴を把握するとともに、透過拡散試験による拡散データ取得に着手した。今後は、得られたデータをもとに、黒雲母などの含有率、サイズ、連続性などの特徴と核種移行特性（陽イオン加速・陰イオン排除）との関係を把握し、これまでに構築してきたモデル化手法の国内岩石を含む多様な結晶質岩への適用性を検討していく予定である。

結晶質岩の割れ目部については、平成31年度までに、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。令和2年度は、大型の岩石コア試料中の室内トレーサー試験後試料を対象としたX線CT分析により、割れ目の分布や連続性などの移行経路を把握するための定量的な情報を得た。また、室内トレーサー試験後の大型岩石コア試料を割れ目面から解体し、複数の手法で採取した試料中のトレーサー濃度を分析した。その結果、収着性のCs、Ni、Euについて、トレーサー濃度や収着性に応じた濃度分布を示すことを確認することができ、そのトレーサー濃度分布から、割れ目中の不均質な移行経路と、スタグナント部への拡散が生じている可能性などを確認した。今後は、試料全体にわたるトレーサー濃度分布の把握より、支配的な移行経路を推定するとともに、X線CTなどで得られた割れ目特性の情報などを反映した解析評価を行い、これまでに段階的に構築してきたモデルを改良しつつ破過データの解釈を試みる予定である。

さらに、上記のマトリクス部と割れ目部を対象とした研究成果を反映した結晶質岩を対象とした核種移行評価技術の開発について、平成31年度までに、割れ目などの不均質性の影響や収着メカニズムの影響に加え、地質環境の長期変遷の影響などをより精緻に取り扱うことが可能な核種移行解析手法の調査を進めてきた。令和2年度は、割れ目などの不均質性の影響や収着メカニズムの影響、地質環境の長期変遷の影響や空間的なアップスケールの影響などを考慮した核種移行解析手法の構築に向けたアプローチを整理したうえで、一部の高度化要素を対象にその解析手法の検討を進めた。今後は、多様な高度化要素を考慮した核種移行解析手法を構築するとともに、考慮すべき影響の大きい重要な因子を把握するための感度解析や、環境変遷を考慮した試解析として各要素の影響度や重要度の分析評価を行うとともに、天然事例などを活用した確証評価を進め、性能評価に反映すべき重要なプロセスの抽出とその反映方策を提示する予定である。

堆積岩については、幌延 URL の泥岩試料（稚内層）を対象に、原位置試験や室内試験を組み合わせて、マトリクス部及び割れ目部の核種移行データの取得とモデルの構築を進めてきた。マトリクス部については、平成 31 年度までに、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てきた。令和 2 年度は、NMR による間隙評価や核種移行モデルの適用性評価を実施するとともに、これまでに取得した塩濃度の異なる条件でのマトリクス部の原位置拡散試験結果を対象に、GoldSim と PHREEQC コードによる解析評価を実施し、得られた結果や既往室内試験データとの比較により、導出パラメータの妥当性を確認した。今後は、幌延の泥岩マトリクス中の核種移行モデルの鉱物・間隙特性を反映したモデルの改良と、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、平成 31 年度までに、幌延 URL で実施した割れ目中トレーサー試験を対象に、試験後の割れ目試料の分析や、複数の移行経路や不均質な流れ場を考慮したモデルの適用性の確認を進めてきた。令和 2 年度は、これまでに取得してきた割れ目の分布や特徴、割れ目表面の Cs などのトレーサーの分布状況の情報から、複数の移行経路と、フロー領域・スタグナント領域を考慮したモデル概念を構築するとともに、非収着性のウラニンのパルス・コンスタントソースを対象に、3 経路モデルを構築した。さらに、Mo と Cs データに対して、トレーサーによって変化する拡散・収着パラメータのみを調整することで、一連の実測データの傾向性を概ね再現可能なことを確認した。今後は、パルス・コンスタントソース試験の複数のトレーサー試験の一連の結果を対象に更なる最適化の検討を行い、得られたパラメータ値の室内試験などとの比較によって、モデルやパラメータの妥当性を確認していく。

さらに、幌延 URL 付近の地表から地下深部に形成されたナチュラルトレーサーの濃度分布を対象に、地層スケールでの長期的な物質移行プロセスの理解を深めるため、地質環境の長期変遷を考慮したモデル解析を検討してきた。平成 31 年度までに、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てきた。令和 2 年度は、非反応性元素と反応性元素の双方を対象にした解析を実施し、非反応性元素を対象にした解釈の場合と同様のモデルパラメータを用いて、トレーサーの種類やボーリング孔間（HDB-1 孔と 3 孔）で一部差異があるものの、反応性元素の挙動も概ね解釈可能なことを確認した。今後は、反応性トレーサーのうち Ca や Mg の差異に対する炭酸塩鉱物の反応の寄与の可能性や、評価対象のボーリング孔間の地質学的変遷の差異の影響などの課題について検討を進めていく予定である。

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、セメント系材料及び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の技術を構築し、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。

本サブタスクでは、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及び(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、その環境において核種移行への影響が生じるプロセスを抽出し、その影響の評価に向けた研究課題とアプローチを設定した（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）。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セレン等の核種が取り込まれる共沈現象等に着目した室内試験や天然事例調査を行う。得られたデータをもとに、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課題とアプローチを設定した（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）。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して室内試験を行う。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等の核種移行プロセスに及ぼす影響に着目した室内試験や原位置試料調査を行う。得られたデータをもとに、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た研究に取り組む。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、本事業で取り組む課題とアプローチを設定した（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）。具体的には、炭酸濃度条件を制御した岩石や構成鉱物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とともに、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では、緩衝材における収着反応を支配するモンモリロナイトに対するFe(II)の収着と、Fe(II)共存条件におけるCs、Ni及びEuの収着分配係数（K_d）を取得し、収着挙動の評価を行ってきた（日本原子力研究開発機構, 2018）。先行事業ではpH8付近においてK_dを取得し、それに基づいてFeに対する選択定数の導出を行った。しかしながら、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評価試験においても想定されているとおり、圧縮ベントナイト間隙水中のpHは炭素鋼の腐食反応にともなって上昇すると考えられる。そのため、より高いpH領域までFe(II)と放射性核種の競合収着を定量的に評価するための実測値を拡充する必要がある。

モンモリロナイトのエッジサイトには、金属イオンに対する親和性が高く容量が小さい収着サイト（strongサイト）と親和性が低く容量が大きいサイト（weakサイト）があることが知られている（Bradbury and Baeyens, 1997）。平成31年度は、pH8-12においてFe(II)がstrongサイトに収着する条件と、strongサイトが飽和してweakサイトにも収着する濃度条件においてAmの収着競合試験を実施した（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, 2020）。その結果、AmのK_dはFe濃度の影響を受けておらず、両者の収着に強い競合がないことが確認された。しかしながら、Fe(II)のK_dのpH依存性は取得しておらず、競合収着を定量的に評価する上で必要となるFe(II)の各収着サイトに対する収着パラメータの導出はできていない。

令和2年度は、Fe(II)が競合収着に与える影響を熱力学的収着モデルを用いて評価するために必要な収着パラメータの導出を目的として、モンモリロナイトに対するFe(II)収着試験を実施した。加えて、平成31年度に引き続き競合収着に関する実測値を拡充するため、Nbを対象としてFe(II)

共存下での収着試験を実施した。

② モンモリロナイトに対するFe(II)収着挙動の評価

収着試験は窒素雰囲気グローブボックス内で行った。固相にはカルサイトを除去した後にNa型に調整したモンモリロナイトを使用し、固液比は2 g/Lとした。液相は溶存ガスをN_2で置換した超純水で調製した0.25または0.5 M NaClとし、還元状態を維持するために亜ジチオン酸ナトリウムを添加した。亜ジチオン酸ナトリウムの濃度は、Fe(II)の収着挙動に及ぼす影響を確認するため、5または10 mMの2条件とした。液相のpHは、亜ジチオン酸ナトリウムが還元力を維持できるpH8以上とし、pH12付近を上限とした。トレーサーにはFe-59を使用し、Fe(II)がstrongサイトに支配的に収着する条件である初期濃度1×10^{-6} M(低Fe条件)と、strongサイトが飽和してweakサイトにも収着する条件である初期濃度1×10^{-4} M(高Fe条件)において行った。試験期間は3日から28日とし、試験期間終了後、遠心分離を行って上澄みを採取し、上澄み液中のFe-59濃度をγ線スペクトロメトリーで測定することによりFe濃度を決定し、K_dを算出した。

図3.3-1にモンモリロナイトに対するFe(II)の収着試験結果を示す。初期pHを8、9、10、11及び12となるように調製したものの、pH8、9に調整したものは7.5程度まで低下していた。このpH領域ではK_dのばらつきが大きく、亜ジチオン酸ナトリウムの濃度がK_dに与える影響は不明瞭だった。高Fe条件でも、低Fe条件に比べて明瞭なK_dの低下は見られなかった。

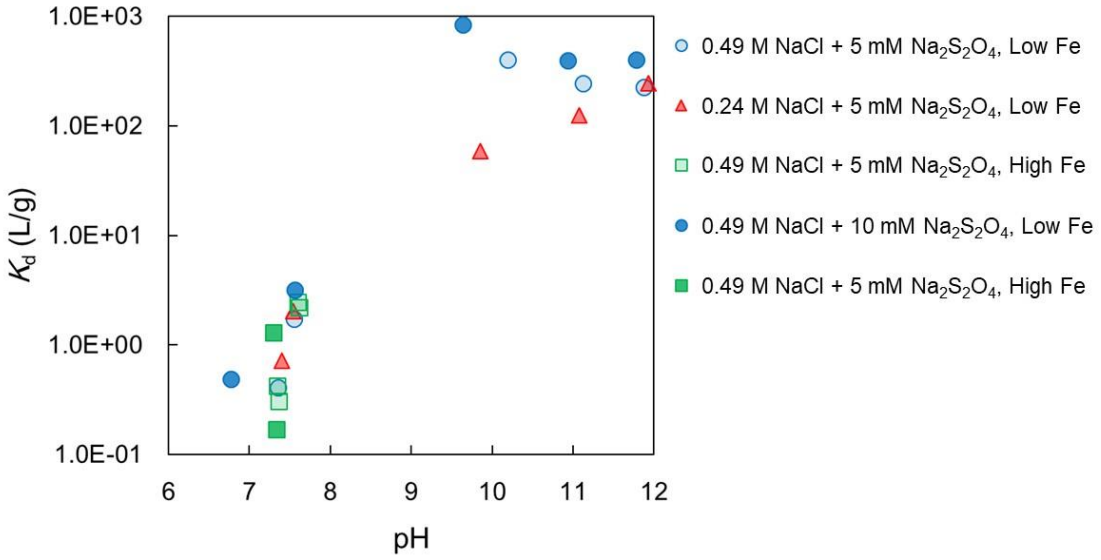


図3.3-1 Na型モンモリロナイトに対するFe(II)収着のpH依存性

熱力学的収着モデルとして2SPNE SC/CEモデル（Bradbury and Baeyens, 2005a）を採用し、フィッティング解析により収着パラメータを導出した。このとき、今回の試験条件では高イオン強度であることから底面サイトへのイオン交換反応による収着は無視できるため、エッジサイトへの表面錯体反応のみを考慮した。フィッティング解析では、はじめに低Fe濃度条件におけるデータからstrongサイト（≡S^SOH）に対する錯生成定数を求めた。このとき、イオン強度及び亜ジチオン酸ナトリウム濃度の影響は無視できるとした。次に、strongサイトが飽和してweakサイトへの収着が生じる高Fe濃度条件におけるデータからweakサイト（≡S^{W1}OH）に対する錯生成定数を求めた。フィッティング解析の結果を図3.3-2、得られた収着パラメータを表3.3-1に示す。Ni等の他の遷移金属元素で報告されているように（Bradbury and Baeyens, 1997, 2005a）、高pH

領域では加水分解種の収着を考慮することで結果を概ね再現することができている。しかしながら、今回取得したK_dはばらつきが大きく、また、pH8 - pH 10の領域での分配係数も取得できていないため、今後より信頼性の高い収着パラメータを導出するためデータの拡充を行う予定である。

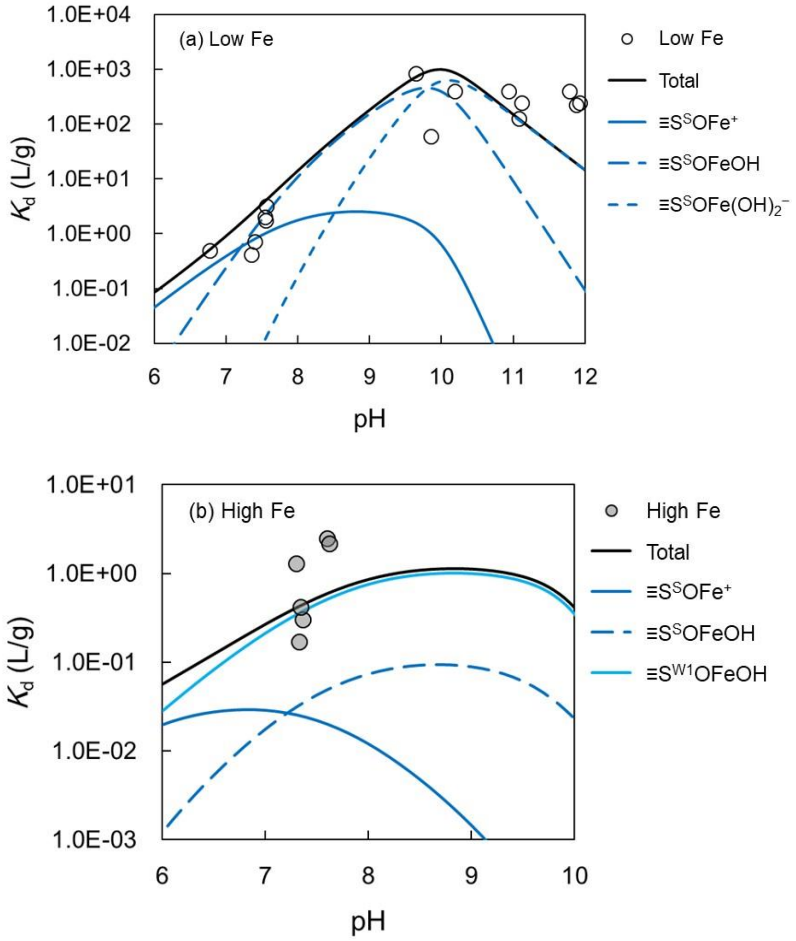


図3.3-2　Na型モンモリロナイトに対するFe(II)収着データへのフィッティング解析の結果
(a) 低Fe条件、(b) 高Fe条件

表3.3-1　得られた収着モデルパラメータ

表面化学種	log K	
	Strongサイト	Weakサイト
≡SOFe$^+$	−1.0	−2.5
≡SOFeOH	−8.2	−
≡SOFe(OH)$_2^-$	−18.0	−

③　鉄共存下でのモンモリロナイトに対するNb収着挙動の評価

Fe(II)との競合収着に関する実測値を拡充するため、Nbを対象としてFe(II)共存下での収着試験を実施した。収着試験は、窒素雰囲気グローブボックス内で行った。固相にはカルサイトを除去した後にNa型に調整したモンモリロナイトを使用し、固液比は2 g/Lとした。液相は脱気水で調

製した0.5 M NaClとし、還元状態を維持するために亜ジチオン酸ナトリウムを5 mM添加した。液相のpHは8に調整した。共存するFe(II)の濃度は、strongサイトが飽和する条件である初期濃度1×10^{-4} Mと、Fe(II)が共存しない条件の2条件で実施した。トレーサーとして非放射性のNbを使用し、初期濃度1×10^{-6} Mとなるように添加した。試験期間は3日から14日とし、試験期間終了後、遠心分離を行って上澄みを採取し、上澄み液中のNbの濃度をICP-MSで測定し、K_dを算出した。図3.3-3にFe(II)共存下でのNbのK_dを示す。Fe(II)共存下でのNbのK_dは、Fe(II)非共存下でのK_dと比較してやや高かった。この理由は不明であるが、Fe(II)との競合収着によるNbの分配係数の低下は起こらないものと推測された。

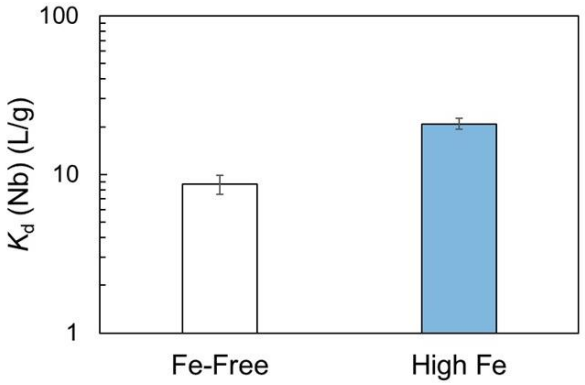


図3.3-3　Fe共存下でのNbのK_d（0.5 M NaCl条件, pH7.2）

2) 鉄(II)鉱物へのSe(−II)の収着・取り込み挙動の評価

①　背景と目的

高レベル放射性廃棄物に含まれる^{79}Seは半減期が長く、さらにK_dが小さいことから線量評価に寄与する可能性が高いと考えられており、地層処分の安全評価において重要な核種の一つとなっている。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り込み等の相互作用によるSeの遅延効果については、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・取り込み反応としては、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・還元反応が考えられる。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・取り込み挙動の解明が重要となる。Se(IV)の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いる（Diener and Neumann, 2011; Finck et al., 2012）。このような鉱物中への取り込み反応は、鉱物表面への収着反応と比較して、より安定的にSeを取り込み・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・取り込み挙動と、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試験とXRDやXAFS等の分析手法の適用によってメカニズムの解明に取り組んできた。令和2年度は、平成31年度までに取り組んできたアプローチを踏襲しつつ、FeとSeの反応と固相変遷時のpHの影響を把握するため、異なるpH条件でのデータを取得するとともに、従来の分析手法に加えて透過電子顕微鏡（TEM）分析を行った。これらの結果をもとに、Fe固相の生成と熟成過程及び異なるpH条件におけるSeの収着・取り込み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3.3-4に示す。共沈・収着試験は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）は溶存ガスをN_2で置換した超純水にモール塩（$(NH_4)_2Fe_2(SO_4)_2 \cdot 6H_2O$）を溶解することで調製し、Se(−II)溶液（0.01 M）は0.1 MヒドラジンにNa_2Seを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-1）。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-1）。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、90°Cの恒温槽で7日間反応させた。令和2年度は、これらの試験条件に加えて、実験A-1の反応溶液をpH 12程度に調整して熟成させる実験（実験A-2）、実験B-1の反応溶液をpH8程度に調整して熟成させる実験（実験B-2）を実施した。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の化学種を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。さらに、平成31年度までの試験条件を含むすべての試験試料を対象にTEM分析を実施した。

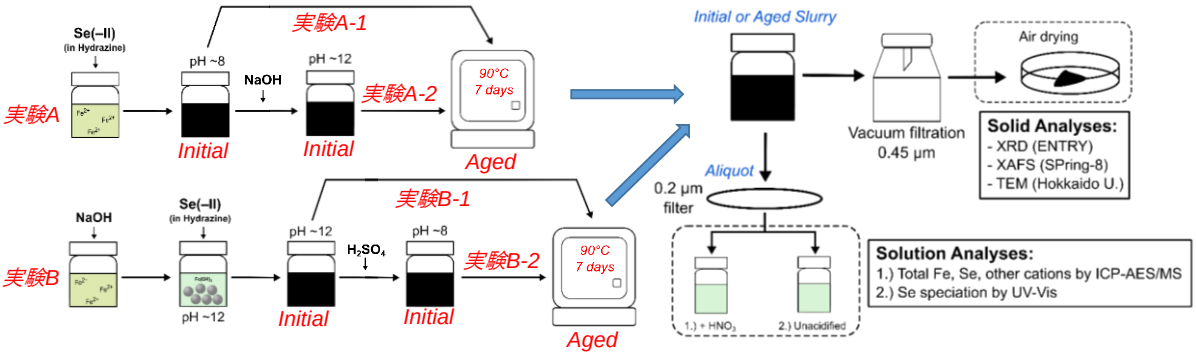


図3.3-4　Fe(II)鉱物とSe(−II)の相互作用メカニズム解明のための収着・共沈実験フロー

③ 試験結果と考察

溶液分析の結果（表 3.3-2）から、全て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 日間の固相熟成後の Se の挙動は実験間で異なる傾向となった。実験 A-1 では、液相中 Se(–II)濃度がさらに低下し、Se(–II)が固相に安定に取り込まれることが確認された。一方、実験 B-1 では液相中 Se(–II)濃度が顕著に増加する傾向が観察されたが、最初に収着された Se(–II)の約 20%がまだ固相側に存在し、Se(–II)が少なくとも部分的に保持されていることが確認された。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。pH を変化させた実験 A-2 及び B-2 における Se 濃度の変化は、それぞれ pH 条件が近い実験 B-1 及び A-1 の変化と同様の結果を示した。

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及びFe・Se濃度

Expt.	After addition of Na_2Se (initial state)				After heating at 90°C (7 days)			
	pH	Eh (mV)	Fe (mM)	Se (mM)	pH	Eh (mV)	Fe (mM)	Se (mM)
A-1	7.88(16)	−420(20)	4.87(13)	0.016(2)	6.51(2)	19.5(4)	1.37(8)	0.0050(2)
B-1	11.92(1)	−461(45)	0.004(3)	0.0014(2)	11.95(1)	−533(2)	0.0049(2)	0.80(2)
A-2	11.92(1)	−560(70)	0.004(1)	0.008(1)	12.05(1)	−574(1)	0.0005(1)	0.79(1)
B-2	8.13(3)	−465(7)	2.77(3)	0.005(1)	7.39(6)	−262(4)	0.02(1)	0.005(1)

初期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3.3-5）からは、いずれの実験条件においても、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。一方で、熟成後の試料では結晶性の固相の生成を示す明瞭なピークが確認された。実験A-1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た。その一方で、熟成後の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が観察された。それ以外の3条件の実験では、初期の生成固相では$Fe(OH)_2$等に対応するブロードな低強度のピークが確認できた。一方、熟成に伴っていずれの条件でもマグネタイトの生成が確認され、Seを含む結晶性の固相の生成は確認されなかった。

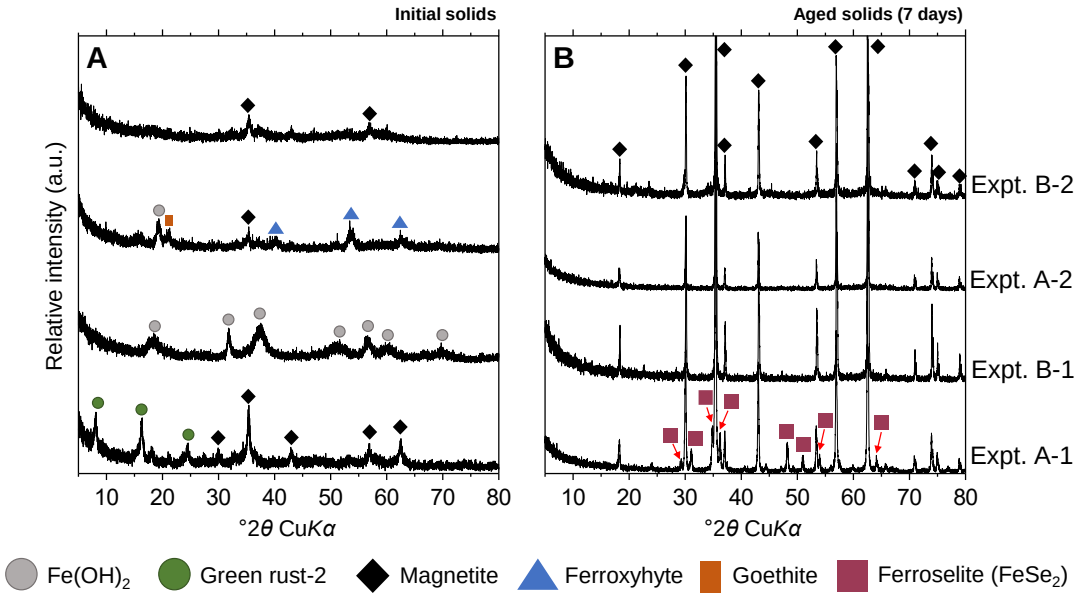


図3.3-5　初期共沈生成物(A)及び熟成後の固相(B)のXRD測定結果

初期共沈生成物のEXAFSスペクトル（図3.3-6）は、全ての条件で同様のスペクトルを示した。フーリエ変換スペクトル（図3.3-6 (b)）の2.0 Å付近の最初のピークは，約2.4 ÅのFe原子に適合させることができる。すべての実験からのフーリエ変換スペクトルの特徴間の明らかな類似性にもかかわらず、EXAFSフィッティングからはSe局所環境の微妙な違いが確認された。実験A-1, A-2及びB-2では，約3.9 ÅのSe原子，及び約4.1 ÅのFe原子で最適化可能であった。対照的に、実験B-1のスペクトルは3.4 Å及び4.0 ÅのSe原子によって最適化された。

フィッティングの結果を様々なセレン化鉄から計算された結晶学的値と比較し、Seの局所構造を検討した。六方晶FeSeを除き、ほとんどのセレン化鉄は約2.4 ÅのSe-Fe結合距離を示した。Fe原子の第一配位圏を超えた原子については、すべての実験で約3.9 - 4.0 ÅのSe原子は正方晶FeSeのSe-Se距離と一致した。実験A-1、A-2及びB-2で確認された約4.1 ÅのFe原子は、$FeSe_2$のSe-Fe距離と一致した。また、実験B-1で確認された約3.4 Åのより短い距離のSe原子は、Fe_3Se_4のSe-Se距離と一致することが確認された。この距離は実験A-2及びB-2でも観察されたが、これらの実験ではこの相がSeのごく一部を構成していることが示唆された。これらの結果から、初期共沈生成物が複数のセレン化鉄で構成されていたことが確認された。

熟成後のEXAFS分析結果からは、Seが完全に保持されている実験A-1とB-2では初期共沈生成物の結果と比較して大幅に異なるEXAFS振動とフーリエ変換スペクトルを示し、Seの周囲の局所構造が高度に秩序化されていることが確認された。初期共沈固相と同様に、約2.0 Åの顕著なピークは約2.4 Åの原子間距離の第一配位圏のFe原子に適合できる。3.0 Åを超える新しいピークに加え、熟成後のA-1試料では約2.5 Åでピークの肩が確認でき、XRDで同定されたフェロセライトの構造的特徴と一致することが確認された。実験B-2のスペクトルからは、> 3.0 Åのフーリエ変換スペクトルではA-1に類似した結果が得られたものの、2.5 Å付近の肩が確認できないことから、Seの主要な形態がFe_3Se_4であることが示唆された。実験B-1及びA-2では熟成中のSeの脱離が生じたために固相中のSe濃度が低下し、EXAFS分析結果の不確実性は大きいものの、どちらの実験でも保持されたSeがセレン化鉄のような相の形であった可能性が示唆される。

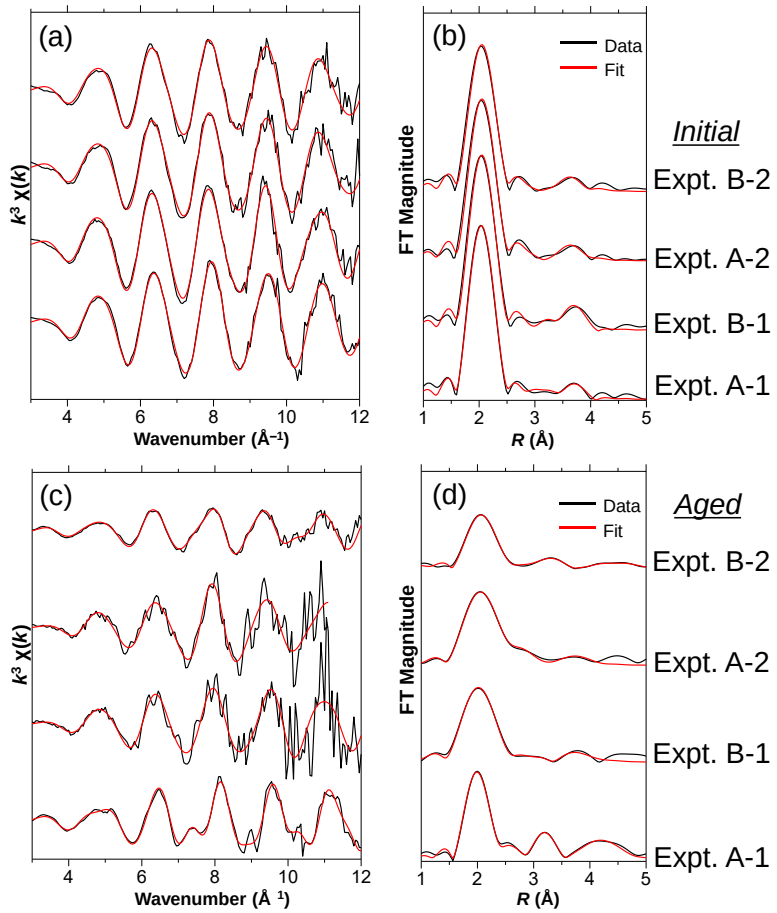


図3.3-6　初期共沈物のEXAFS振動(a)とフーリエ変換スペクトル(b)及び熟成後試料のEXAFS振動(c)とフーリエ変換スペクトル(d)

さらに、熟成後の固相（実験B-1、A-2及びB-2）を対象に、固相に保持されたSeの形態を特定するためのTEM分析を実施した。実験B-1のマグネタイト結晶のTEM画像（図3.3-7(a)、(b)）からは、マグネタイト表面にSeを含む半球状のナノ粒子が存在し、ナノ粒子の結晶面はマグネタイトの結晶面に平行に形成されていることが確認できる。サイズが約25 nmのこれらのナノ粒子の高分解能TEM画像では約3.1 Åの格子縞が確認され、これは正方晶FeSeの（101）面と一致した。実験A-2ではOに乏しく、Fe及びSeに富む棒状または板状の結晶の凝集体がマグネタイト結晶に沿って観察されたが、実験B-1で観察されたナノ粒子とは異なり、これらの結晶の配向はマグネタイト結晶とは無関係であった（図3.3-7 (d)-(f)）。これらの結晶から得られた制限視野電子回折（SAED）パターン（図3.3-7(e)）は、正方晶FeSe及びFe_3Se_4を含む複数のセレン化鉄相に対応した特徴を含む多結晶パターンを示した。

実験B-1とA-2で得られた走査型透過電子顕微鏡（STEM-EDS）マップ（図3.3-8）からも、マグネタイト結晶のエッジに沿ってSeが高い濃度で分布していることが確認された。マグネタイト結晶の内部で測定された ＜ 0.1wt%のSe濃度と比較して、エッジに沿ったSeの濃度は約2.5 - 3.5 wt%の範囲にあった。実験B-1における局所的なSe蓄積を伴う結晶エッジのイメージング（図3.3-8(d)）は、図3.3-7 (a)で見られたような表面析出物の明らかな証拠がない滑らかな表面を示したものの、まだら状になっていることが確認された。実験A-2では、Seに富むマグネタイト結晶の頂点は粗い表面を示し、エッジに沿った構造変化を示唆している。これは、エッジに沿ったSeの部分

的な取り込みから生じる結晶変形に起因する可能性がある。よって、STEM観察から、高pHでの鉄固相の変遷過程においてSeの二つの取り込みプロセスが存在する可能性が示唆された。

実験B-2の熟成後の固相は球状のマグネタイト粒子で構成されることが確認された（図3.3-7(g)）。マグネタイトに沿って観察された、Oに乏しくFe及びSeに富む板状結晶の凝集体は実験A-2で観察されたものと類似していた（図3.3-7 (d)-(e)）。実験B-2のSAED分析（図3.3-7 (h)）からは、これらの相が正方晶FeSe、Fe_3Se_4、Fe_7Se_8などのセレン化鉄相の混合物で構成されていることが確認された。STEM-EDSマップ（図3.3-8(j)）は、Seがマグネタイト粒子の表面に集中しており、セレン化鉄の結晶がマグネタイト粒子の周囲を覆っていることを示している。熟成後の固相には，このようにSe固相が存在するものの、これらがXRDの結果（図3.3-5）において検出されておらず、セレン化鉄のピークがマグネタイトのピークによってマスクされている可能性が考えられる。

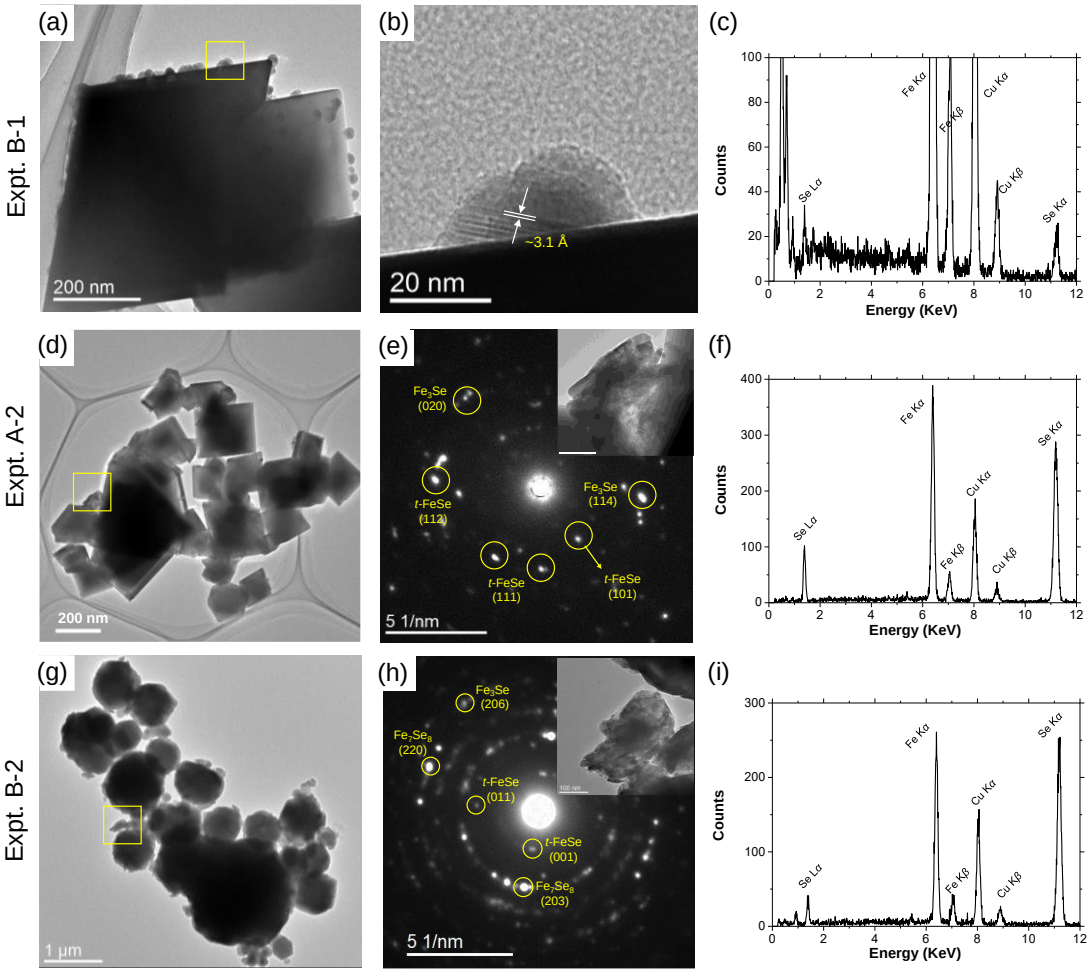


図3.3-7　実験B-1, A-2, B-2の熟成試料のマグネタイト粒子のTEM画像。それぞれ左側（a, d, g）は高分解能TEM画像，中央（b, e, h）は制限視野電子回折（SAED）パターン，右側（c, f, i）はHRTEM画像の黄色のボックスでマークされた領域から取得されたエネルギー分散型X線分光スペクトル（EDS）。中央のSAEDパターンの挿入画像は、黄色のボックスでマークされた領域の高倍率画像。

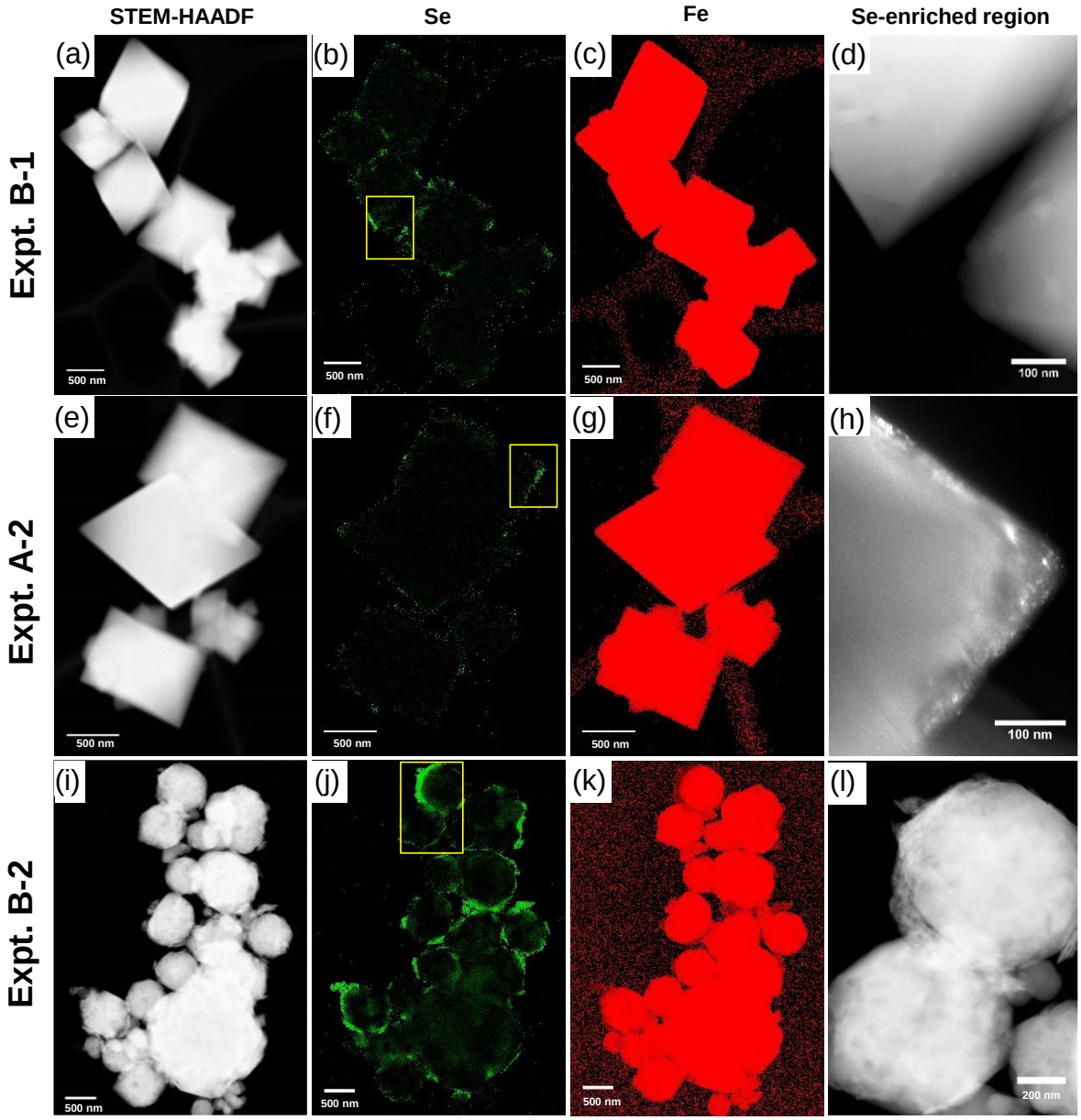


図3.3-8　実験B-1, A-2, B-2の熟成試料のマグネタイト粒子の走査型透過電子顕微鏡STEM-HAADF（高角度環状暗視野）画像。中央b, f, jはSe，c, g, kはFeの分布に対応する定量的STEM-EDSマップ。高倍率のHAADF画像（d, h, l）は、SeのEDSマップの黄色のボックスでマークされた局所的なSe濃縮の領域に対応。

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・取り込み現象について、様々な分析データを根拠として組み合わせてメカニズムの理解を深めることができた。今後、一連の結果をもとに、実際の処分環境でのFe鉱物の生成・変遷時のSeの取り込みプロセスを整理するとともに、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と連携しつつ、核種移行モデルへの反映方策を検討していく。

④ 岩石中のFe鉱物とSeの相互作用に関する調査

上記室内試験により、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。天然環境中でのSeの移行・保持挙動に着目した研究としては、主に鉱山のずりや頁岩からの溶出挙動に関する分析が行われている。これらの研究では、腐植物質やケロジェンなどの有機物、パイライトやFe(III)水和物による保持が報告されている（例えば、Kulp and Pratt, 2004; Oram et al.,2008; Hendry et al., 2015）。しかし、これらのSeの移行・保持挙動に関する既往の研究は酸化的環境を対象とした調査研究が多く、深度数百m以深の還元的環境を対象とした研究は多くない。深部地下環境中のSeの移行挙動については、ベルギーのBoom Clayを対象とした詳細な検討が行われている（De Canniére et al., 2010）。しかしながら、Boom Clay中ではSeはパイライトに濃集することが確認されているが、パイライト中のSeの価数に関する分析結果は報告されていない。

本事業では平成31年度に引き続き、深部地下環境中における長期的なFeとSeの相互作用を理解するために、幌延の泥岩を対象としたSeの存在形態に着目した分析を実施した。令和2年度は、地下深部の泥岩（稚内層）試料に対してX線マイクロビーム分析（μ-XRF、μ-XAFS)を実施し、Se濃集部における共存元素及びSeの化学形態の評価を試みた。ここでは幌延深地層研究センター周辺で実施されたボーリング調査で得られた稚内層の岩石コア試料（SAB2孔；深度約350 m）を分析の対象とした。岩石試料から樹脂埋設、両面研磨により厚さ50 μmに調整された薄片試料を対象に、X線マイクロビーム分析を高エネルギー加速器研究機構のPhoton Factoryのビームライン BL-4Aにおいて実施した。μ-XRFでは、FeとSe以外の元素として、SやCaなどの元素分布を取得した。

μ-XRF分析による元素のマッピング結果では、いずれの試料においてもSeがFe及びSと共にスポット的に濃集していることが確認された（図3.3-9）。幌延の泥岩中の主要な鉄鉱物としてパイライトが含有されていることが報告されており（平賀・石井, 2007）、Seはパイライトに濃集していることが考えられる。パイライト中でのSeの化学形態を調べるためにμ-XAFS分析を実施した結果、IV価及びVI価の標準試料のスペクトルに比べ、低エネルギー側にSeの吸収端が見られ、還元態で存在することが確認された（図3.3-10）。Seの還元態としては、0価、−I価、−II価が考えられるが、吸収端・ポストエッジの形状から、0価または−I価で存在するものと推察される。0価及び−I価が支配的な形態であることは、平成31年度に得られた逐次抽出試験・バルクに対するXAFS分析の結果（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, 2020）と一致する。本分析結果から、①Seがパイライトと固溶体を形成して沈殿している状態と②金属態Se(0)や$FeSe_2$が単体の鉱物として、パイライト部に存在する可能性が考えられる。しかしながら、Seの局所構造について明らかにするためにEXAFS領域に関する分析を実施したが、含有されるSe濃度が微量であり、構造に関する情報を得ることはできなかった。一方で、逐次抽出試験では、Se(0)と$FeSe_2$の含有率について評価することも可能であるため、二つの分析手法を組み合わせることでSeの価数について詳細に評価できる可能性がある（Qin et al., 2017）。

これらの成果を踏まえ、今後は、深度等の異なる幌延の泥岩試料を対象にμ-XRF及びμ-XAFSデータ、平成31年度に予察的に実施した逐次抽出試験データを拡充することによって、パイライト中のSeの存在形態に関する詳細な検討を行う予定である。また、深部地下環境におけるFeとSeの相互作用について理解するためには、地下水中のセレンの化学形態の同定が重要である。稚内層

の地下水のpHとEh条件では、SeはHSe⁻とFeSe₂の平衡状態にあるため、溶存種はHSe⁻と想定されるが、地下水中では熱力学計算で考慮されていない有機態のSeとして溶存する可能性も考えられる。このため、HPLC-ICP-MS等を用いた溶液中のSeの形態分析を実施し、岩石-地下水間のFeとSeの相互作用についても検討を行う必要がある。

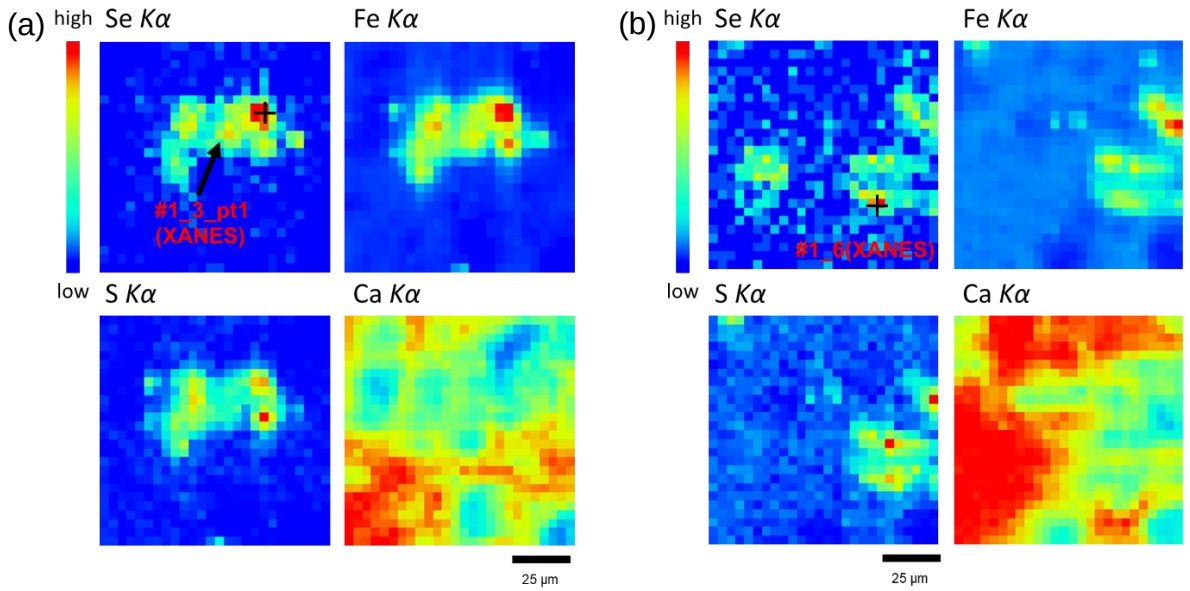


図3.3-9　幌延の泥岩試料（稚内層，SAB2孔）を対象としたμ-XRFで取得されたSe, Fe, S, Caの元素マッピングの結果の例：(a)分析領域1、(b)分析領域2

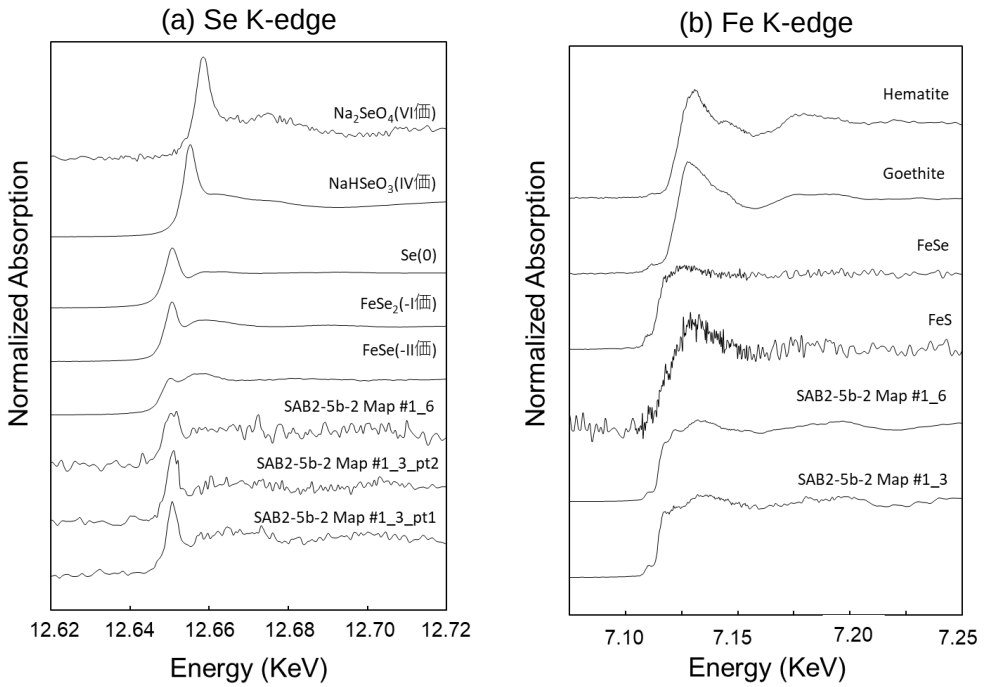


図3.3-10　幌延の泥岩試料（稚内層，SAB2孔）の微小領域に対するSe (a)およびFe (b)のμ-XAFS分析結果

(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年度の検討において、セメントと反応した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、鉱物変質及び間隙特性の変化と、その核種移行への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（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）。そのうち、セメント系材料の共存が緩衝材に及ぼす影響としては、セメントから生じる高Ca濃度の間隙水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がCa型へと変化し、これに伴い緩衝材の間隙特性が変化し、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課題として抽出した。緩衝材であ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ろ過機能を有し、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ろ過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ろ過機能に及ぼす影響を評価しておくことは、コロイドろ過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、本事業において、乾燥密度や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・ろ過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; 2020）。その結果、乾燥密度1.2 Mg/m^{3}以下の条件では、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。また、コロイドの破過データから計算されるベントナイト中を透過可能なコロイドの濃度分布と、実際に観察されたコロイドの全濃度分布データの差異から、ベントナイト中でろ過されたコロイドの割合（ろ過率）を定量評価する手法を構築してきた。令和2年度は、これまでの結果を踏まえて、平成31年度から開始したCa型及びNa型ベントナイトのより高い乾燥密度条件1.6 Mg/m^{3}での試験を継続し、コロイドの拡散・ろ過データを取得した。

令和2年度は、乾燥密度1.6 Mg/m^{3}のNa型とCa型ベントナイトを対象に、間隙水塩濃度が異なる条件でのコロイド移行試験を実施した。試験に供するデンドリマーとして、平成31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）を使用した。拡散・ろ過試験は、これまでと同様の手法である循環型の透過拡散試験セルを用いて行った。ベントナイトとしてNa型ベントナイト（クニピアF®：クニミネ工業製）及び層間陽イオンをCa型に置換したCa型ベントナイトを使用した。Na型ベントナイトの試験では0.05と0.5 Mに調整したNaCl溶液を試験溶液とし、Ca型ベントナイトでは0.0167と0.167 M$CaCl_2$溶液を試験溶液とした。試験溶液はpH8程度に調整し、溶液の量は高濃度側を250 ml、低濃度側を15 mlとした。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ごとにサンプリングし、TOCを測定した。試験終了後、拡散セルを解体

し、ベントナイトをスライスした。スライス片を1 M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計でベントナイト中のデンドリマーの濃度を測定した。

低塩濃度であるイオン強度で0.05 M（Caの場合は0.0167 M）の条件で得られた高濃度側及び低濃度側のデンドリマーの濃度変化を図3.3-11 (a)に示す。Na型とCa型のいずれの試料においても、200日以上にわたって低濃度側溶液中で有意なデンドリマーの破過は確認できなかった。これまでに実施してきた乾燥密度0.8及び1.2 Mg/m^{3}の条件では、Na型とCa型モンモリロナイトのいずれのイオン強度条件においても、1か月以内に低濃度側からデンドリマーが検出され、そのあと徐々にデンドリマー濃度が上昇していく傾向が確認されている（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）。このことから、乾燥密度1.6 Mg/m^3, イオン強度0.05Mの条件では、Na型とCa型モンモリロナイトのいずれにおいても、5.7 nmのデンドリマーコロイドが完全にろ過されていると推察された。このことを確認するため、200日以降経過した試験試料中のデンドリマーの濃度分布を取得し、図3.3-11(b)に示すような結果を得た。Na型とCa型のモンモリロナイト中で観察されたデンドリマー濃度分布は、高濃度側から急激に減少し、2-4 mm程度まで確認できたものの、それ以降は有意な濃度が確認できなかった。この濃度分布からも、これらの条件では5.7 nmのデンドリマーコロイドが完全にろ過されていることが確認された。なお、この2-4 mm程度までの濃度分布は、それぞれの条件下で5.7nmのコロイドがこの程度の深さまではアクセス可能であることを示すものである。

今後は、現在継続実施中の乾燥密度1.6 Mg/m^3、イオン強度0.5 Mの条件や、異なるサイズのデンドリマーコロイドを用いた拡散・ろ過データを取得するとともに、これまでの一連の取得データの解析結果をもとに、コロイドの拡散特性とモンモリロナイトの間隙特性との関係や、コロイドろ過機能の発現条件を評価していく予定である。

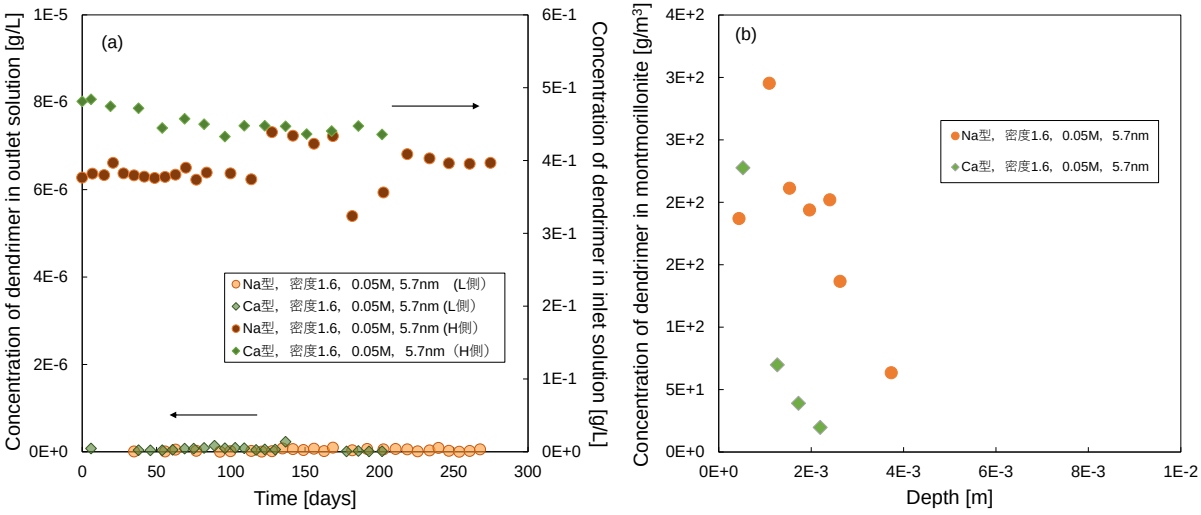


図3.3-11　乾燥密度1.6 Mg/m^3，イオン強度0.05 Mの条件におけるNa型及びCa型モンモリロナイト中のデンドリマーコロイド（5.7 nm）の拡散・ろ過試験データ：(a)高濃度側及び低濃度側のデンドリマー濃度変化、(b)試験後のモンモリロナイト中のデンドリマー濃度分布

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

地層処分における支保工やグラウト材として使用されるセメント系材料がニアフィールド岩盤に及ぼす影響については、セメントの影響によって高pH・高Ca濃度の地下水・間隙水の拡がりと、岩石構成鉱物の溶解や二次鉱物の沈殿等による岩盤変質が生じることが想定される。この周辺岩

盤の溶解や変質によって、岩石中の間隙構造や鉱物の収着特性に変化をもたらし、地下水組成の変化とあわせて、核種移行挙動に影響を及ぼすこととなる。さらに、割れ目とマトリクスからなる岩盤においては、高アルカリプルームの拡がりや、二次鉱物の生成による割れ目の閉塞、割れ目表面に二次鉱物が沈殿することに伴うマトリクス拡散や収着の抑制といったより複雑な影響プロセスも考慮する必要が生じる。本タスクでは、幌延の泥岩を主たる研究対象として選定し、セメント系材料の共存により生じる岩石の変質や核種移行特性の変化に関する分析試験、収着等の核種移行特性への影響評価に必要なデータやモデルの調査を進めてきた。

幌延の泥岩試料へのセメント共存影響を評価するため、平成31年度までに、幌延URLの140 m坑道から採取された泥岩（声問層）と普通ポルトランドセメント（OPC）及び低アルカリ性セメント（HFSC）の接触試料、及び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種類を対象として、EPMAやSEM等を用い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（図3.2-12参照）。これまでの分析結果から、セメント側から岩石側へのCaの移行や、二次鉱物の生成が界面付近で観察され、その変質がOPCの方が顕著であることなどが確認された。

令和2年度は、140 mの泥岩（声問層）とOPC及びHFSCの接触試料に対象を絞り、界面部分の変質状況をEPMA，SEM及びXRDを用いてより詳細に把握するとともに、界面近傍の間隙率や交換性陽イオン等の特性変化を把握することとした。

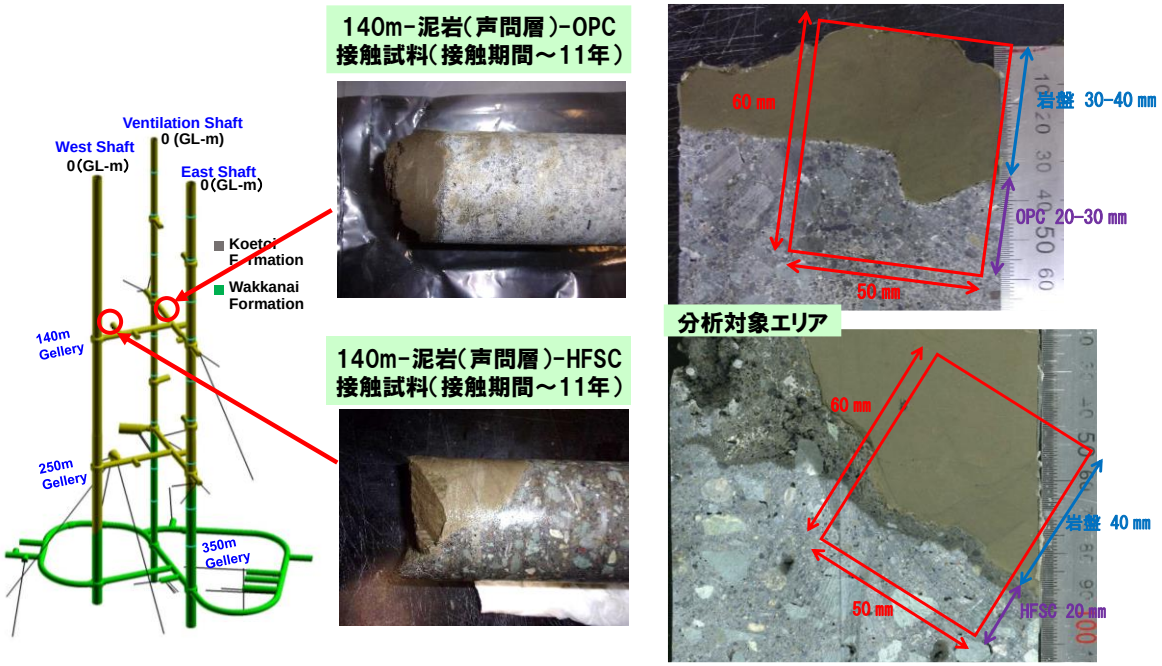


図3.3-12　幌延の泥岩とセメントの接触界面の採取位置と分析対象試料の界面の状況

はじめに、OPC及びHFSCと泥岩との接触界面付近のEPMA分析結果を示す。試料の採取位置と分析対象試料の状況を図3.3-12に示す。測定対象としたセメントと岩石の接触界面は岩盤に吹付けられたコンクリートの接触面であるため、平滑な面となっていない。コンクリートと岩盤の相互作用によってそれぞれに含まれる元素が移動する場合、接触する界面と直行する方向に移動すると考えられることから、接触面が測定面に対して直交するように試料を加工して測定を実施した。OPC及びHFSCと岩石の接触界面付近の主要元素のマッピングを図3.3-13に、同図中のCaマップの赤枠内の元素濃度の平均濃度を接触界面に垂直な方向に対してプロットした元素濃度プロファイルを図3.3-14に示す。

図3.3-13の上段のCaのマップに示されているようにOPCコンクリートのCa濃度は高く、岩石側のCa濃度は非常に低くなっている。岩石側はSi、Al、Fe、Mg、Na及びKが主な構成元素となっている。岩石側には亀裂が存在し、一部の亀裂に沿ってNa及びClの濃集が確認でき、これらの亀裂がセメント成分の移行経路になっていた可能性があると考えられる。OPCと岩石は密着しており、EPMA測定の対象領域では界面に大きな剥離はない。OPCと岩石の界面では、硬化セメントのCaが溶脱したと考えられるCaの低濃度層の存在が確認できる。一方、Clは界面からセメント側に濃度の高い領域が存在している。図3.3-14の上段の濃度プロファイルより、OPC側ではCa濃度の低下が生じており、Si及びAl濃度のわずかな上昇が観察された。界面近傍の岩石側ではCa濃度の上昇とSi濃度及びAl濃度のわずかな低下が確認できる。さらに、界面近傍のセメント側でS濃度の著しい増加が確認できる。セメント側のCl濃度は界面近傍の濃度では低いが、界面から約2 mm内部から濃度の高い領域が存在しており、界面から30 mmまで徐々に濃度が低くなっていることが確認できる。岩盤側では界面近傍でわずかにK濃度が低下している傾向が確認できるが、セメント側で濃度上昇が確認されたS及びClについては濃度変化を生じていない。Clは広い領域で界面からセメント内部に向かう濃度勾配が明確に存在している。岩盤のS及びCl濃度に比べてコンクリート界面での濃度が高くなっていることから、地下水から供給されたS及びClがコンクリートに固定されたために界面から内部に向かう濃度勾配が生じたと推察される。

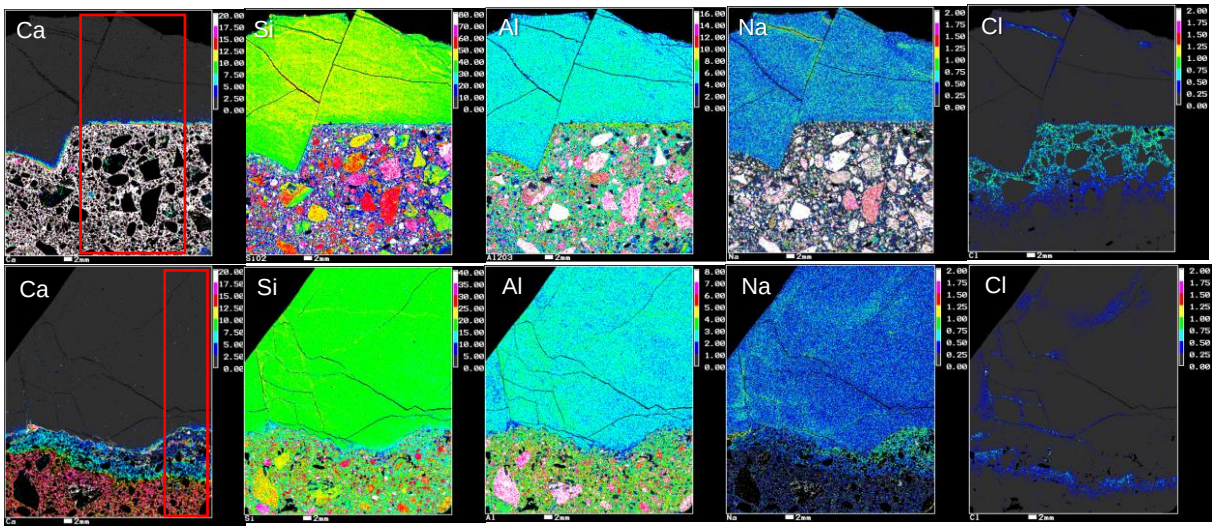


図3.3-13　EPMAによるセメント-岩石接触界面の主要元素（Ca, Si, Al, Na, Cl）のマッピング結果（上段：OPC接触試料、下段：HFSC接触試料）

図3.3-14の下段に示したHFSCと岩石の接触界面でも、OPCと同様に硬化セメントのCaが溶脱したと考えられるCaの低濃度層の存在が確認でき、その領域はOPCに比べて広くなっている。図3.3-14の下段に示すように、HFSCと岩石の境界面近傍のセメント側では広い範囲（10 mm程度）でCa濃度の著しい低下が生じており、Si及びAl濃度は界面に向かってわずかに低下する傾向が観察された。界面近傍の岩盤側ではCa濃度の上昇とSi濃度のわずかな低下が確認できる。また、セメントのCa濃度低下部より離れた領域でS濃度の著しい増加が確認できる。セメント側のCl濃度はS濃度の分布に近く、Ca濃度の低下領域の先から数mm程度の領域で濃度の上昇が確認できる。また、Naは界面近傍からCa濃度の低下している領域で濃度の上昇が確認できる。岩盤側では界面近傍でわずかにK濃度が低下している傾向が確認できるが、セメント側で濃度上昇が確認されたS及びClについては濃度変化を生じていない。HFSCのCaの溶脱領域ではS及びClを固定できる固

相（水和物）が存在していないため、Caが溶脱していない領域で濃度上昇が確認されたと推察される。HFSCコンクリートと接触していた岩盤には特徴的な濃度の変化は観察されなかった。

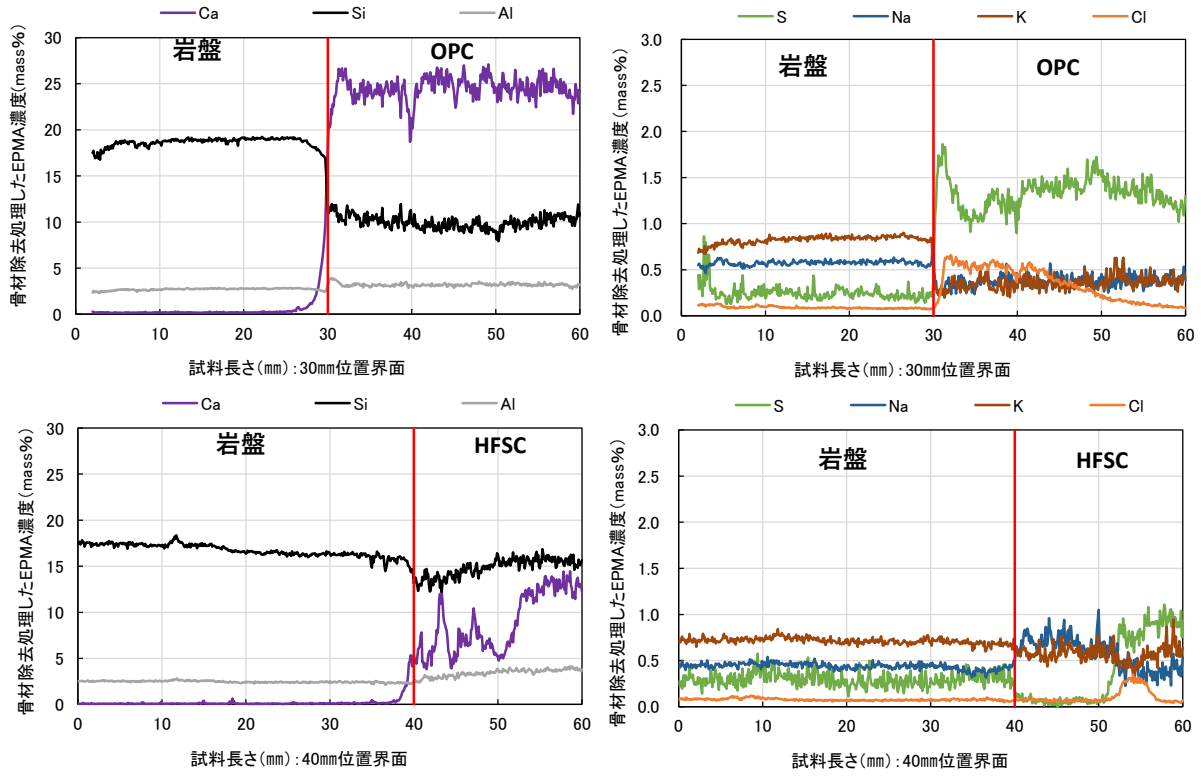


図3.3-14　EPMAによる元素マッピングに基づくセメント-岩石接触界面の元素濃度プロファイル
（図3.3-13のCaマップの赤枠の平均，中央の赤い線はセメントと岩石の境界面の位置）
上段：OPC接触試料、下段：HFSC接触試料

OPC及びHFSCと岩石の接触界面付近から採取した試料のμ-XRD測定結果を図3.3-15に示す。OPCと岩石の接触試料のセメント側界面付近ではセメント水和物のピークは確認されず、骨材に由来する石英及び長石が確認された。OPC側の界面から4.1 mm離れた領域ではセメント水和物としてヘミカーボネートや骨材に由来する石英が確認された。OPCの健全部ではセメント水和物としてポルトランダイト及びモノカーボネート、骨材に由来する雲母が確認された。岩石側界面付近ではセメントから溶解したCaと地下水の炭酸との反応で沈殿したカルサイトが確認されたほか、岩盤の構成鉱物である長石が確認された。界面から0.6 mmの位置においても同様にセメントから溶解したCaと地下水の炭酸との反応で沈殿したカルサイトが確認された。界面から6.5 mm離れた健全部では、岩盤の構成鉱物である石英、長石、クリストバライト、モンモリロナイト及びイライトが確認された。

HFSCと岩石の接触試料のセメント側界面付近では、セメントのCaと地下水の炭酸との反応で沈殿したカルサイトや、骨材に由来する石英及び長石が確認された。界面から3.7 mm離れた領域ではセメントのCaと地下水の炭酸との反応で沈殿したアラゴナイトが確認され、骨材に由来するピークは確認されていない。HFSCコンクリートの健全部ではセメント水和物としてC-S-H及びエトリンガイト、骨材に由来する石英及び緑泥石が確認された。岩石側界面付近ではセメントから溶解したCaと地下水の炭酸との反応で沈殿したカルサイト及びバテライトが確認された。界面から0.7 mmの位置においても同様にセメントから溶解したCaと地下水の炭酸との反応で沈殿し

たカルサイトが確認され、骨材に由来する石英及びイライトが確認された。界面から10.1 mm離れた健全部では、岩盤の構成鉱物である石英、長石、クリストバライト、モンモリロナイト及びイライトが確認された。

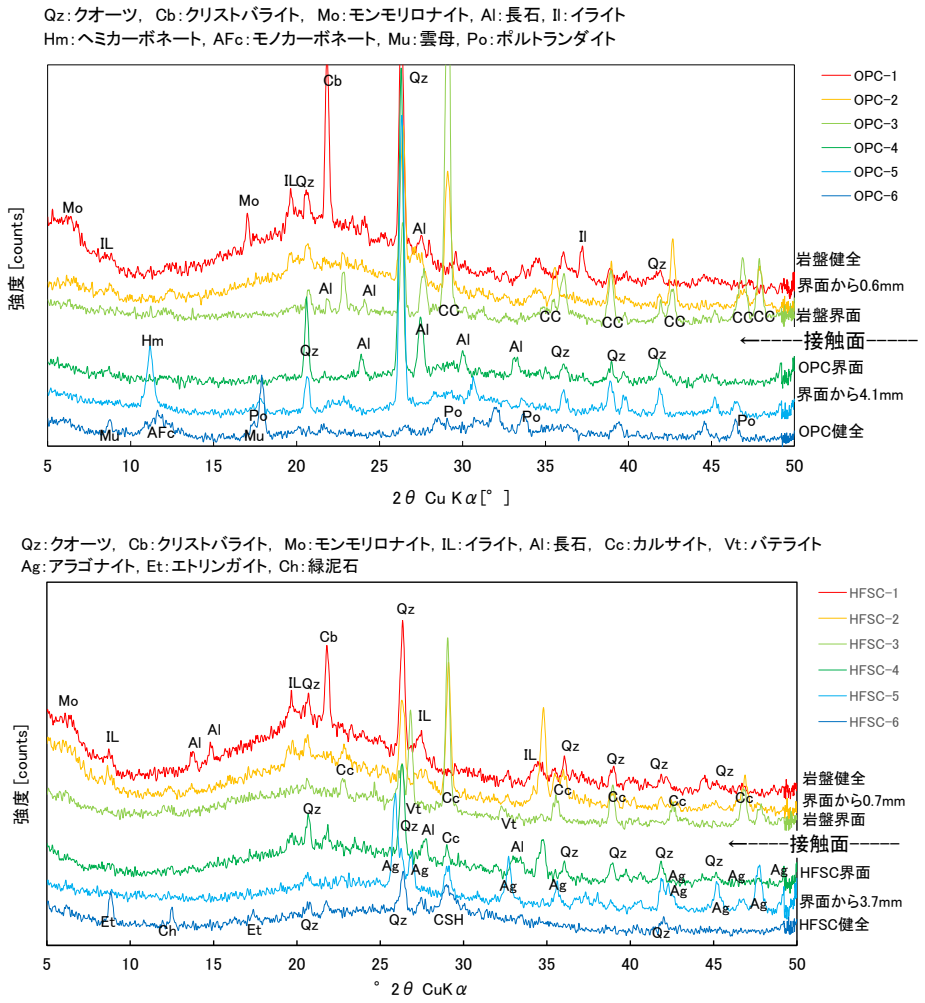


図3.3-15　セメント-岩石接触界面のμ-XRD測定結果
上段：OPC接触試料、下段：HFSC接触試料

次に、OPC及びHFSCと岩石の接触界面付近のSEM/EDSの分析結果を図3.3-16に示す。図3.3-16(a)に示すOPCと岩石との接触界面には、30 μm程度の厚さの炭酸カルシウム層が確認された。炭酸カルシウム層を挟んだコンクリート側では水酸化カルシウムが観察されたことから、炭酸カルシウム層近傍においてもCaの溶脱による変質はそれほど進んでいないと考えられる。一方、図3.3-16(b)-(c)に示すEDSのスペクトルからは、岩盤側では、炭酸カルシウム層から離れた場所においてC-S-HやC-A-S-Hと考えられる二次鉱物が生成していることが確認された。また、界面近傍のモンモリロナイトは、健全部で観察されたモンモリロナイトよりもCa濃度が高くなっていた。次に、図3.3-16(d)に示すHFSCと岩石の接触界面のSEM/EDS分析結果からは、境界部の炭酸カルシウム層の近傍の岩盤側の少し離れた箇所においてC-S-Hが生成しているのが確認された。また、炭酸カルシム層のコンクリート側では、未水和のフライアッシュ粒子およびC-S-H等が観察された。EDS分析結果からは、OPCコンクリートのC-S-Hに比べ、Ca/Siモル比（以下、Ca/Si）が低いC-S-Hであると推定された。また、接触界面近傍の岩石側において、岩石中の亀裂部分を充填す

るように炭酸カルシウムが生成していることが確認された（図3.3-16(e), (f)）。

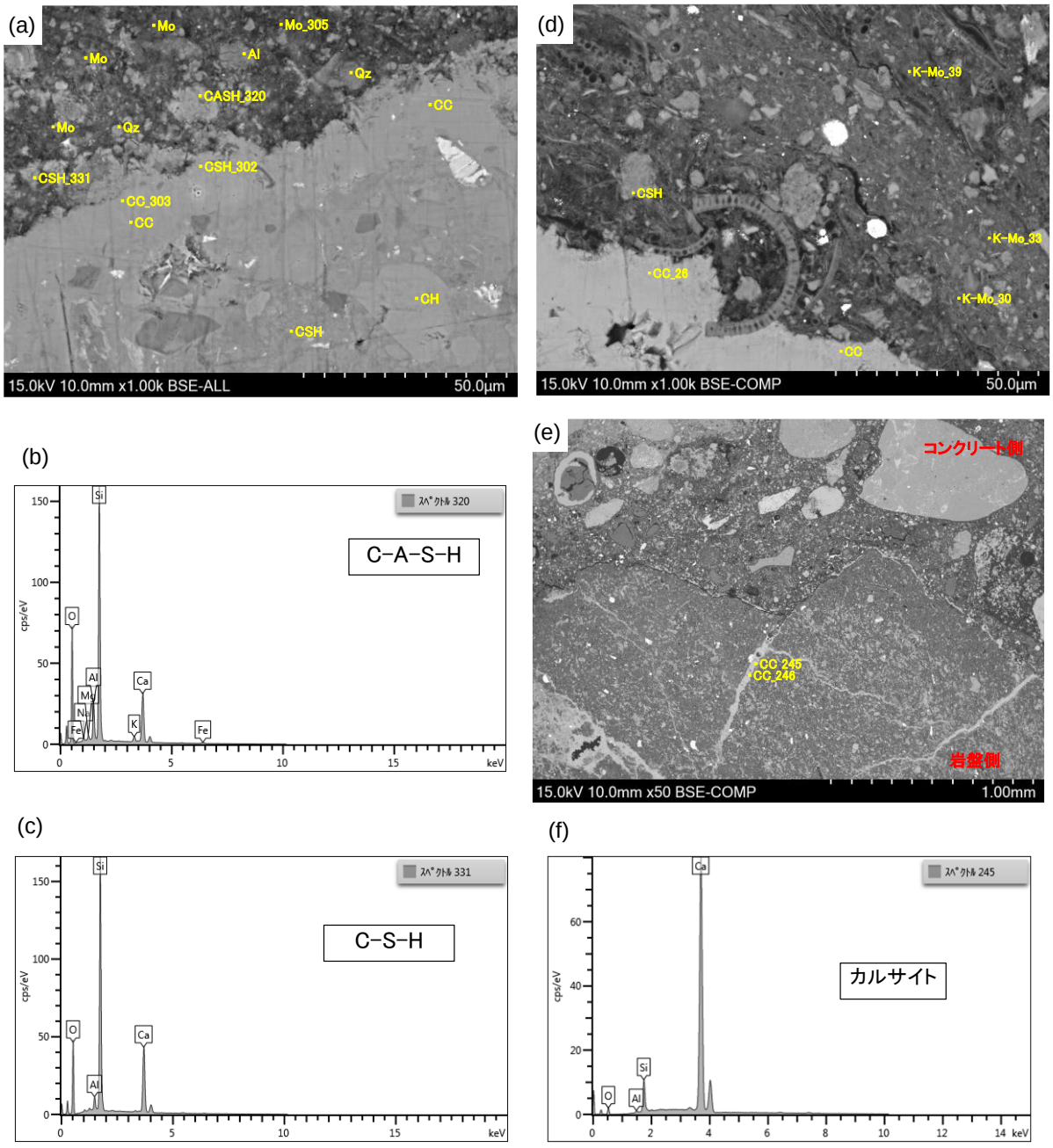


図3.3-16　セメントと岩石の接触界面付近のSEM/EDS分析結果：(a)-(c)はOPCとの接触界面、(d)-(f)はHFSCとの接触界面

さらに、接触界面付近の岩石の変質が核種移行に及ぼす影響を検討するため、間隙率、陽イオン交換容量及び主要・微量元素の分析を接触面近傍から健岩部にかけて行うことにより、これらの特性の変化を把握した。

間隙率の測定結果の例として、OPC及びHFSCコンクリートと岩石の接触試料のセメント健全部、岩石変質部（セメントとの接触界面の岩石）及び岩石健全部を対象に、水銀圧入法で取得された累積間隙径分布を図3.3-17に示す。OPCモルタル部分の間隙率は8.7%、HFSCモルタル部分の間隙率は6.9%と評価され、HFSCの方が間隙率は低く、間隙径も小さいことが確認された。一

方で、岩石部分の間隙率は、OPCとの接触岩石の健全部で53.7%、変質部で51.0%、HFSCとの接触岩石の健全部で55.9%、変質部で50.2%と、いずれの試料でも変質領域で間隙率が低下している状況が確認できた。

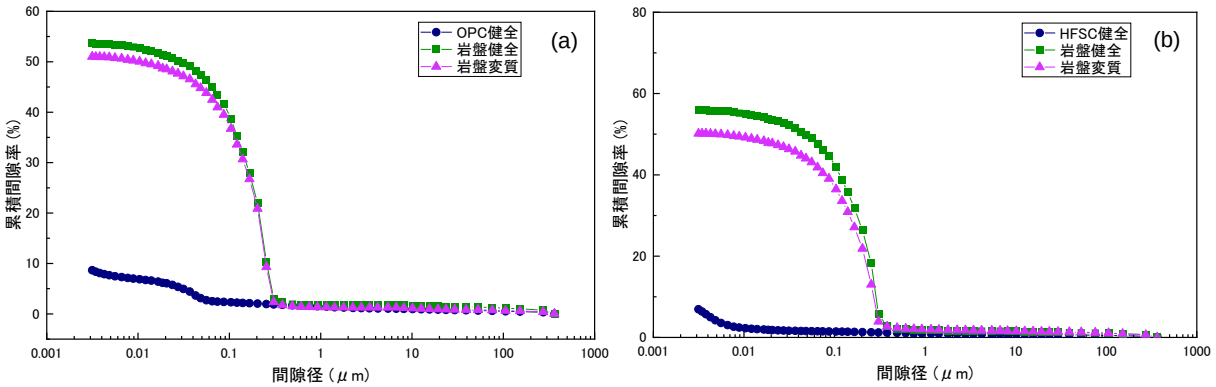


図3.3-17　セメントと岩石の接触試料のセメント健全部、岩石変質部、岩石健全部の水銀圧入法で得られた累積間隙径分布の比較：(a)OPCと岩石の接触試料、(b)HFSCと岩石の接触試料

次に、接触界面付近の変質岩石（0 - 2 mm，2 - 4 mm）と健全岩石を対象とした陽イオン交換容量（CEC）の測定結果を図3.3-18(a)、(d)に示す。CECの総量は、HFSC接触試料の岩石健全部を除きほぼ同じであること、一方で、Na^+及びMg^{2+}はコンクリートの種類によらず界面から離れるに従って濃度が高くなり、Ca^{2+}は界面から離れるにしたがって濃度が低くなることが確認された。このことから、コンクリートのセメント水和物から供給されるCa^{2+}と岩石のNa^+とのイオン交換反応によって、岩石の交換性陽イオンはコンクリートに近いほどCa^{2+}濃度が高く、Na^+濃度が低くなる傾向を示したと考えられる。

さらに、岩石中に生成した二次鉱物とそこに含まれる微量成分を把握するため、CEC分析に用いた試料を対象に、塩酸溶液で溶解したのち、溶解液中の主要・微量元素濃度をICP-MS及びICP-AESで測定した。また、接触界面近傍から試料を採取し、ICP-MSによる微量成分の測定を実施した。図3.3-18(b)及び(e)に示す主要元素の分析からは、セメントとの接触界面でCa濃度が高く、接触界面からの距離に応じてCa濃度が低下しており、上記のEPMAと同様の傾向が確認された。一方、同図(c)及び(f)に示す微量元素の分布からは、Sr, Ba及びZnの2価金属元素が二次鉱物に取り込まれている可能性があること、二次鉱物の生成と微量元素の取り込みはOPCとの接触試料でより顕著であることが確認された。

今後、さらに分析データを拡充しつつ、取得された一連の分析結果から、接触界面でのセメントと岩石の変質プロセス、それに伴う核種移行への影響プロセスを検討するとともに、他の分析手法の適用や天然岩石試料中のカルサイトの分析、及び解析的な検討などを進めていく計画である。

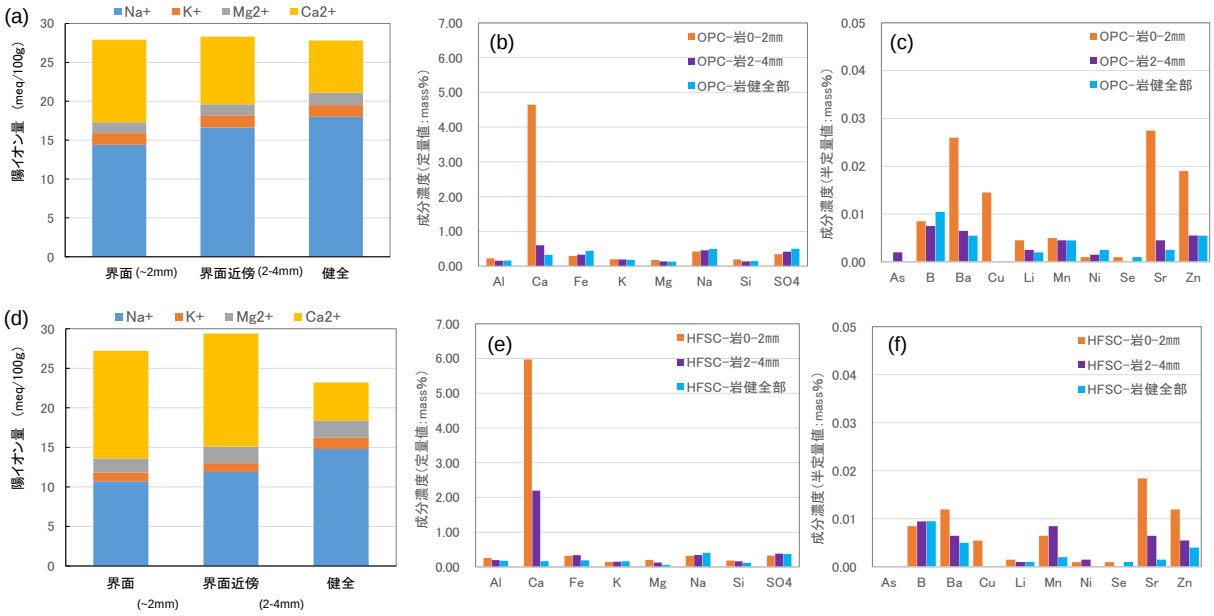


図3.3-18　セメントと接触した岩石試料の変質部（0~2 mm、2~4 mm）及び健岩部を対象とした陽イオン交換容量(CEC)、主要・微量元素の分析結果：OPCとの接触岩石のCEC(a)、主要元素濃度(b)と微量元素濃度(c)及びHFSCとの接触岩石のCEC(d)、主要元素濃度(e)と微量元素濃度(f)

(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高い炭酸濃度条件が長期にわたり継続する可能性がある。炭酸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、アクチニド等の表面錯体反応によって収着する核種の収着分配係数は低下することが知られている（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、特に還元性の条件や炭酸濃度を変動させた条件での収着・拡散データの取得やモデル化の報告事例は非常に少ない。原子力発電環境整備機構が公表した包括的技術報告書（原子力発電環境整備機構, 2021）においても、高炭酸濃度の影響評価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により、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収着・拡散データを取得するとともに、既往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

本事業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31年度までに、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ほか、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モデルの適用性評価を試みた。これらの成果を踏まえ、令和2年度は、Eu(III)とU(VI)を対象として、炭酸共存下でのイライトへの収着データを取得し、収着モデルの検討を行うとともに、時間分解型レーザー誘起蛍光分光分析（TRLFS）による収着形態の把握を試みた。

(a) Eu(III)の収着

平成30年度及び平成31年度では炭酸共存下でのイライトに対するAmのK_dを取得してきたが、炭酸の存在によりK_dは低下するもののばらつきが大きく、明瞭な炭酸濃度依存性を確認することはできなかった（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; 2020）。また、固相に対する元素の収着形態の直接観察にはXAFSやTRLFS等の分光学的分析手法が不可欠であるが、放射性元素であるAmを用いた試験では得られる固相濃度が低くなることや放射性物質であることから測定において制約が生じる。そこで令和2年度は、Amの化学アナログとして広く用いられているEuの安定同位体を用いてばらつきの小さいK_dを取得する方法を確立するとともに、TRLFS測定により収着形態の観察を行った。

予備試験を行って試験溶液中のDIC濃度をTOC計により調べた結果、ほぼ設定通りの値を維持できており、トレーサー溶液（pH 4）の添加による脱炭酸の影響は無視できると考えられた。また、トレーサーの容器収着の有無を調べた結果、炭酸を加えない条件では固相が存在しない場合に添加量の最大40%程度の容器収着が確認された。しかしながら、固相が存在する場合には容器収着はほとんど起こっていなかった。一方、炭酸を加えた条件（5 mM DIC以上）では固相の有無にかかわらず容器収着はほとんど起こっていなかった。これらのことから、平成31年度までに行ったイライトに対するAmの収着試験においてもDIC濃度は設定値を維持できており、容器収着の影響も無視できると考えられるため、溶液中に存在する固相量がK_dのばらつきに影響を及ぼすと予想された。平成31年度は不純物除去処理及び粒径調整を行ったイライトを0.1 M NaClに懸濁させたものをストック懸濁液として使用したが、十分に分散せず、分取時に含まれている固相量にばらつきが生じていた可能性がある。そのため、令和2年度は蒸留水に懸濁させることで十分に分散させた。その他の手順はこれまでと同様に行い（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; 2020）、溶液中のEu濃度の測定にはICP-MSを用いた。

図3.3-19にイライトに対するEuの収着分配係数のpH依存性を示す。K_dの繰り返し(n = 3)間の

ばらつきは非常に小さかった。令和2年度に用いた手法により非放射性のEuを対象にばらつきの小さいK_dを取得できることが確認できた。得られたK_dは明瞭な炭酸濃度依存性を示した。また、K_dはpH 9–10付近で極小となりその後pHとともに上昇しており、その傾向はThで得られた結果（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; 2020）と同様であった。

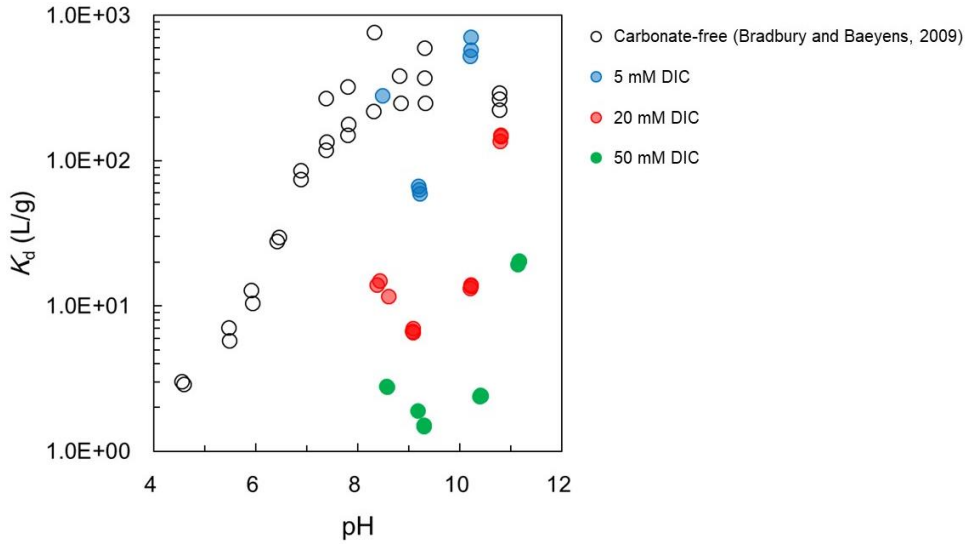


図3.3-19　Na型イライトに対するEuの収着分配係数のpH依存性（比較として炭酸非共存下の試験結果(Bradbury and Baeyens, 2009)も示す）

図3.3-20に熱力学的収着モデル（2SPNE SC/CEモデル; Bradbury and Baeyens, 2005）による収着エッジの再現計算結果を示す。なお、熱力学データはJAEA-TDB (Kitamura, 2019)に収録されているAmの値を用いた。炭酸共存下におけるpH10以下の領域では、炭酸イオンが一つ配位した表面化学種（$\equiv S^sOEuCO_3$）を仮定すると結果をよく再現できた。なお、炭酸イオンが二つ配位した表面化学種（$\equiv S^sOEu(CO_3)_2^{2-}$）を追加して仮定した場合、再現性の大きな変化は見られなかった。K_dのpH10以上の領域での上昇は加水分解種の収着した表面化学種（$\equiv S^sOEu(OH)_2$）によると予想された。この表面化学種の違いはTRLFS測定により評価できる可能性がある。

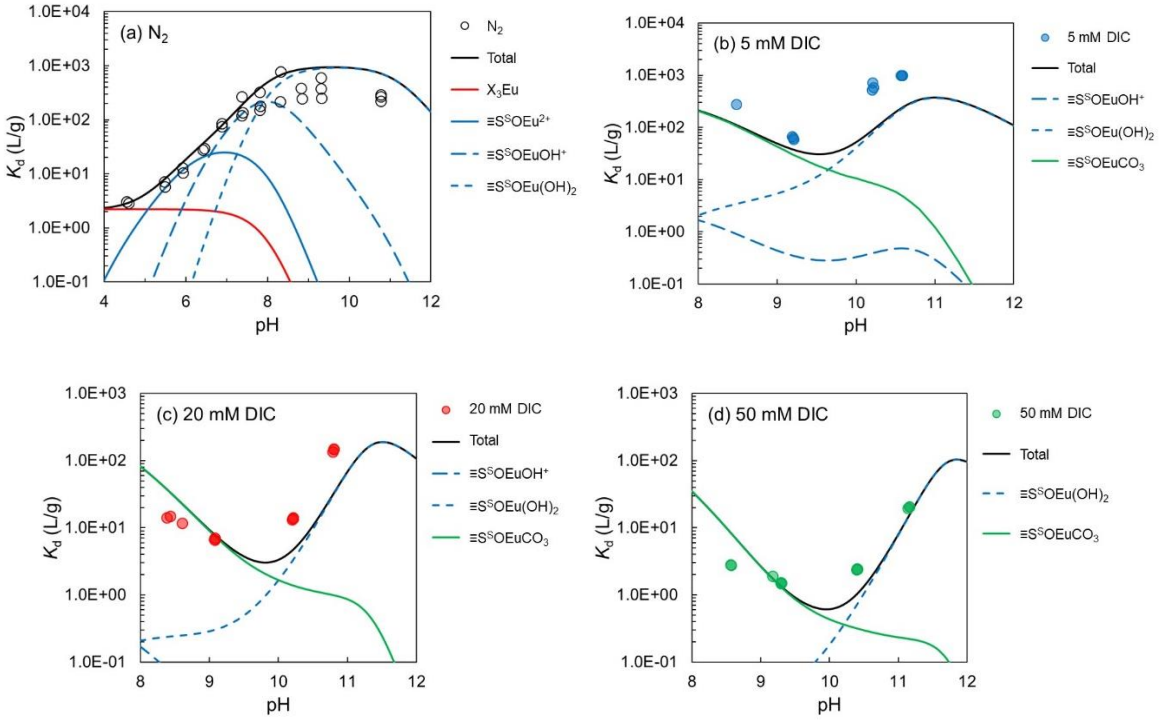


図3.3-20　熱力学的収着モデルによるNa型イライトに対するEuの収着試験の再現計算結果：(a) 炭酸非共存(N_2雰囲気)条件、(b) 5 mM DIC条件、(c) 20 mM DIC条件、(d) 50 mM DIC条件

TRLFS測定は試料にレーザー光を照射し、放出された蛍光から対象となる原子の配位状態に関する情報を得る手法である。Euの場合、394 nmのレーザー光を照射すると4f軌道上の電子が$^5L_6$に励起された後に内部転換等によってエネルギーの一部を放出して$^5D_0$に到達する。その後、$^5D_0$から^7F_j (j = 0–4)へ脱励起する際に蛍光が放出される（Plancque et al., 2003）。この時の蛍光スペクトルの主要なピークとして592 nm付近のものが挙げられる。これは$^5D_0 \rightarrow {}^7F_1$遷移に由来し、対称性に対する感度はない。このピークで規格化することでスペクトルの比較が可能である。もう一つの主要なピークとして616 nm付近のものが挙げられる。これは$^5D_0 \rightarrow {}^7F_2$遷移に由来し、対称性の変化、すなわち錯体形成に対して感度がある。鉱物に収着したEuから得られた蛍光スペクトルの616 nmにおけるピークの強度$I_{616\ nm}$が592 nmにおけるピークの強度$I_{592\ nm}$よりも大きい場合、Euの原子の対称性が低下しており、Euの第一配位圏に水分子以外のイオンが存在している、すなわち表面水酸基と内圏錯体を形成していると判断することができる(Takahashi et al., 1998)。

発生した蛍光の強度は時間経過に伴って指数関数的に減少する。蛍光寿命Tは蛍光強度が1/e倍になるのに要する時間と定義される。蛍光強度を時間分解してプロットし、フィッティングからその傾きを求めることでTを求めることができる。Kimura and Choppin (1994)によれば、Eu原子に配位しているH_2O分子の数N_{H2O}とT(μs)は以下の関係にある。

$$N_{H_2O} = \frac{1.07 \times 10^3}{T} - 0.62 \qquad (3.3\text{-}1)$$

溶液中でEu^{3+}は九つの水分子を配位している(Takahashi et al., 1998; Plancque et al., 2003)。Eu^{3+}が加水分解して$EuOH^{2+}$となると蛍光寿命は長くなり、Kim et al. (2018)の測定では水分子の配位数は7.6 ± 0.5個であると評価された。一方、炭酸イオン（CO_3^{2-})は2座の配位子であるため、

一つ配位するごとに水分子は二つ減ると考えられる（Plancque et al., 2003）。スメクタイトにEuを収着させた試験では、不活性ガス下（pH7.2）での水分子の配位数は5.1±0.6個、大気平衡下(pH7.1)での配位数は2.6±0.3個であったと報告されており（Stumpf et al., 2002）、炭酸共存下では炭酸イオンの配位により水分子の個数が減ったと考えられる。Marques Fernandes et al. (2016)によるモンモリロナイトにCmを収着させた試験においても、炭酸共存下（pH 9.2, DIC 7.4 mM）での水の配位数は炭酸非共存下（pH8）での配位数よりも少ないと評価されている。

TRLFS測定用試料の調製条件はDIC濃度を20 mM、pHを9.3及び10.9とした。固相中Eu濃度を高くして十分な蛍光強度を得るため、初期濃度は図3.3-20の試験の20倍の値とした。バッチ収着試験により固相にEuを収着させた後、遠心分離により可能な限り液相を除去してペースト状の固相を回収し、測定用アクリルホルダーに充填した。十分に乾燥させた後、石英カバーをセットして測定用試料とした。測定は室温で行い、励起用のレーザーにはTi:サファイアレーザーの第二高調波を394 nmに変換したものを用いた。積算蛍光スペクトルは4000 μs間の測定から得た。時間分解蛍光スペクトルはレーザー照射後100 μs後を起点として100 μsずつ21回の測定から得た。

図3.3-21に積算蛍光スペクトルを示す。積算蛍光スペクトルでは$I_{592\ nm}$よりも$I_{616\ nm}$が大きく、内圏錯体を形成していることが確認された。しかしながら、両者で$I_{616\ nm}$の大きさに差は見られなかった。

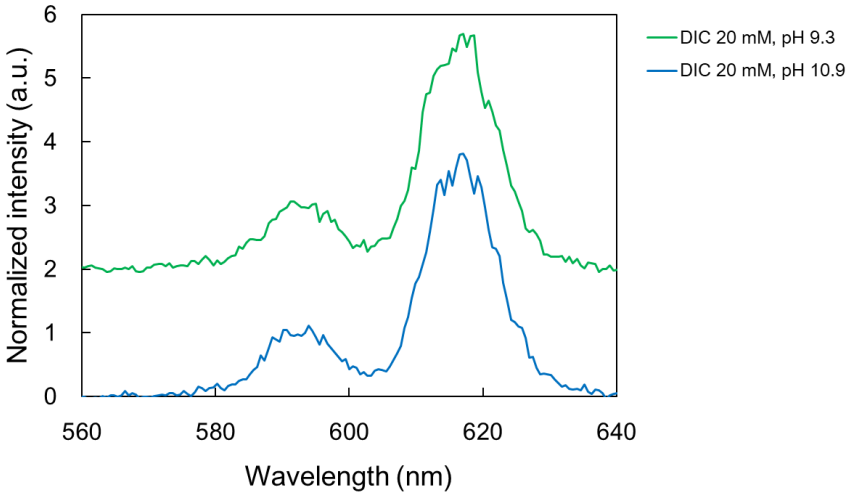


図3.3-21　Euを収着させたイライトの積算蛍光スペクトル

図3.3-22に$I_{616\ nm}$を中心とするピークの時間変化を示す。両者とも蛍光寿命は数100 μs程度までの急激な減衰と、それ以降の緩やかな減衰に分かれている。フィッティング解析の結果、pH 9.3、pH10.9ともに急激な減衰におけるTは217 μsであり、水分子の数は4.3個であると計算された。また、緩やかな減衰におけるTはpH 9.3とpH10.9で値に開きがあるものの、両者とも水分子の数は0個であると計算された。熱力学的収着モデルによる再現計算（図3.3-20(c)）ではpH 9.3及び10.9における支配的な表面化学種はそれぞれ炭酸三元錯体及び水酸化物錯体である。しかしながら、今回の結果からはその差を見出すことはできなかった。ただし、今回は100 μsごとの測定であるため、急激な減衰部分のフィッティングでは誤差が大きいと考えられ、正確な評価にはより細かく時間分解を行ったデータを取得する必要がある。今後、TRLFS測定用試料の調製条件及び測定条件の見直しを行い、熱力学的収着モデルとの比較評価を行う予定である。

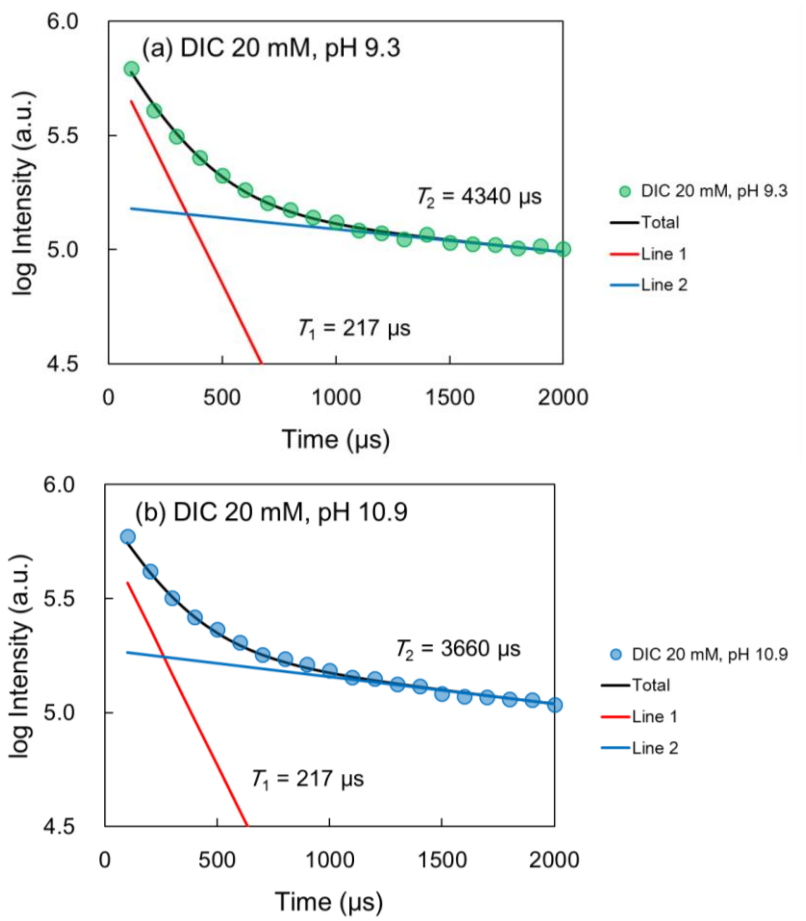


図3.3-22　$I_{616\,nm}$を中心とするピークの時間変化：(a) 20 mM DIC・pH 9.3条件、(b) 20 mM DIC・pH 10.9条件　図中の赤線及び青線はそれぞれの蛍光寿命を持つ化学種の寄与、黒線は全体のフィッティング結果を示す

モンモリロナイトに対してもイライトと同様にEuの収着試験を行い、熱力学的収着モデルにより収着パラメータを取得した。また、幌延の泥岩（稚内層）に対してもEuの収着試験を行い、イライト及びモンモリロナイトの収着パラメータを用いて加成則によりK_dを再現できるかどうか検討を行った。図3.3-23に幌延の泥岩に対するEuの収着データのpH依存性と加成則モデルによる再現結果を示す。DIC濃度20 mM及び50 mMともに過小評価となった。加成則では幌延の泥岩における収着はイライト及びモンモリロナイトが支配し、それぞれの含有率は10%及び16% (Tachi et al., 2011)としている。本結果は他に考慮すべき鉱物や収着メカニズムがある可能性を示唆しており、今後、データを拡充して収着モデルと実測値との乖離の原因を検討する予定である。

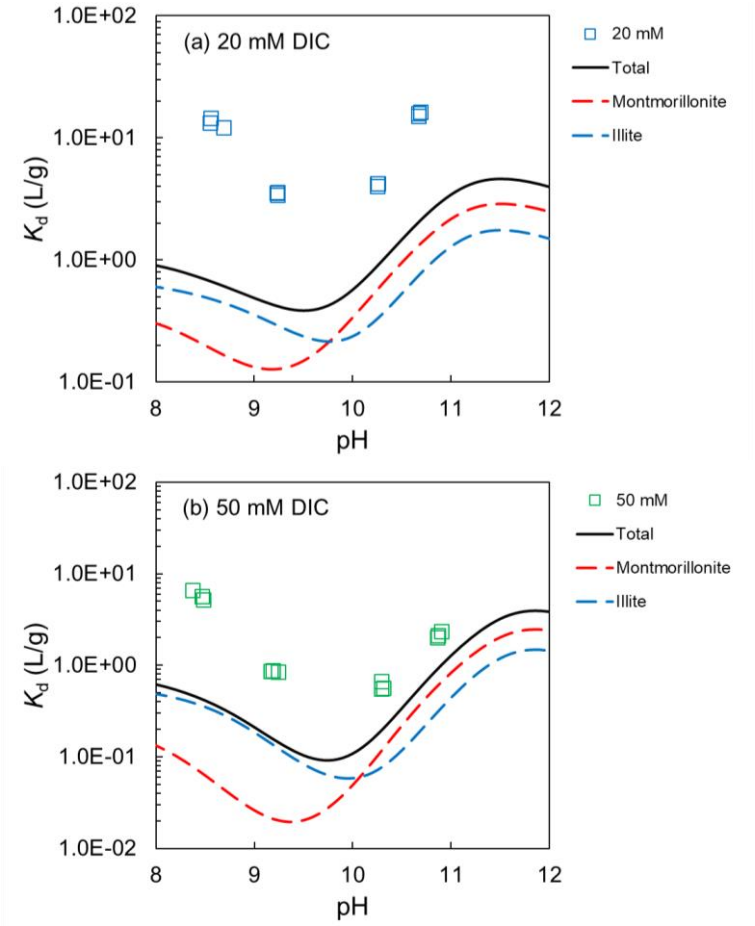


図3.3-23　幌延の泥岩に対するEuのK_dのpH依存性データ及び加成則による再現結果：(a) 20 mM DIC条件、(b) 50 mM DIC条件

(b) U(VI)の収着

Euと同様に、バッチ収着試験により炭酸共存下でのイライトに対するU(VI)のK_dを取得するとともに収着形態の観察を行った。Uの収着形態の観察には極低温TRLFS（LT-TRLFS）測定を用いた。極低温（通常10 K前後を指す）に試料を冷却することにより、紫外線照射時にUから放出される蛍光の発光強度を増大させるだけでなく、温度によるスペクトルの広がりを小さくすることができるため、波長分解能を高めることができる。LT-TRLFS測定はUに対して非常に感度の高い測定手法であるため、固相中に不純物として含まれるUを除去する必要がある。試験には上記のEu収着試験で用いた精製イライトをさらに250 mM $NaHCO_3$ （pH10）で3回洗浄した後、脱イオン水で洗浄して余剰塩を除去したものを使用した。溶液中のU濃度の測定にはICP-MSを用いた。

図3.3-24にイライトに対するU(VI)のK_dのpH依存性を示す。本試験では固液比を2.5及び50 g/Lの条件で行っているが、両者にK_dの差は見られなかった。上記のEuと同様に、得られたK_dは明瞭な炭酸濃度依存性を示し、K_dはpH9–10付近で極小となりその後pHとともに上昇していた。また、Euと比較すると炭酸による影響が大きく、DIC濃度が1 mMと10 mMのものではK_dに2桁以上の差がある。なお、炭酸濃度計による測定から、DIC濃度は設定値を維持できていることを確認している。

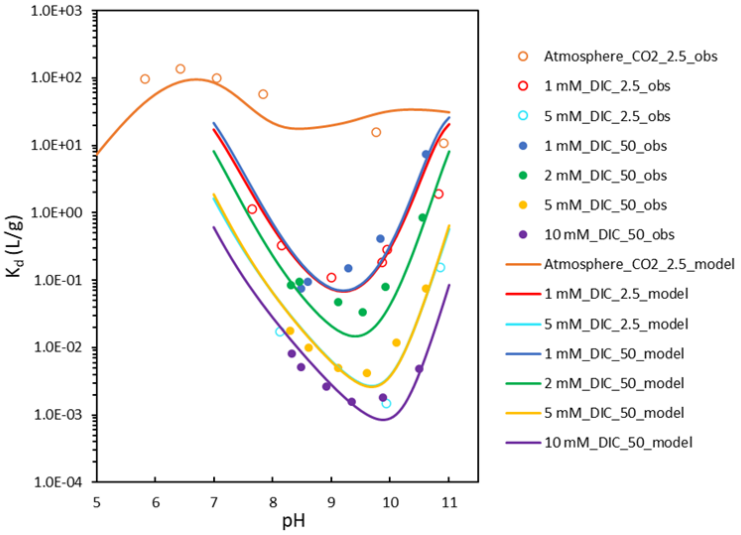


図3.3-24　Na型イライトに対するU(VI)のK_dのpH依存性

図3.3-24に熱力学的収着モデルによるK_dのpH依存性の再現計算結果を示す。上記のEuと同様に、炭酸イオンが配位した表面化学種（$\equiv S^sOUO_2CO_3^-$）を仮定すると結果をよく再現できた。さらに、モンモリロナイトを用いた類似の報告（Marques Fernandes et al., 2012）と同様に、炭酸イオンが二つ配位した表面化学種（$\equiv S^sOUO_2(CO_3)_2^{3-}$）を追加して仮定すると結果の再現性が向上した。

LT-TRLFS測定用試料の調製条件はU(VI)を収着させていないイライト、大気平衡条件でU(VI)を収着させたイライト（pH7.8）及び1 mM DIC条件でU(VI)を収着させたイライト（pH8.1）とした。バッチ収着試験によりU(VI)を収着させた後、遠心分離により可能な限り液相を除去してペースト状の固相を回収し、凍結乾燥させた。測定用銅ホルダーに充填した後、石英カバーをセットして測定用試料とした。LT-TRLFS測定はギフォード・マクマホン型冷凍機を用いて試料を3.5 K以下に冷却して行った。平成31年度に行った予察的試験の結果（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, 2020）から、励起用のレーザーにはNd:YAGの第二高調波を360 nmに変換したものを用いた。積算蛍光スペクトルは0 – 4200 μs間の測定から得た。

図3.3-25に積算蛍光スペクトルを示す。イライトの精製操作を注意深く行ったにもかかわらず、イライトのみの試料においてもU由来のブロードなピークが確認された。これはイライトに強力に収着しているUが存在することを示唆しており、イライトの構造中に含まれている可能性もある。大気平衡条件でUを収着させたイライトのスペクトルはイライトのみのものとは異なる形状をしており、収着したU由来であると考えられる。熱力学的収着モデルによる再現計算では、$\equiv S^sOUO_2CO_3^-$及び$\equiv S^sOUO_2(OH)_2^-$が支配的な表面化学種であると予想される。一方、1 mM DIC条件でUを収着させたイライトのスペクトルの形状は先に示した二つとは異なっている。熱力学的収着モデルによる再現計算では、$\equiv S^sOUO_2CO_3^-$及び$\equiv S^sOUO_2(CO_3)_2^{3-}$が支配的な表面化学種であると予想される。スペクトルの形状はこれらの表面化学種の構成とその割合を反映していると考えられ、今後、ピークの帰属の推定を行い、熱力学的収着モデルによる表面化学種の予測の妥当性を確認する予定である。

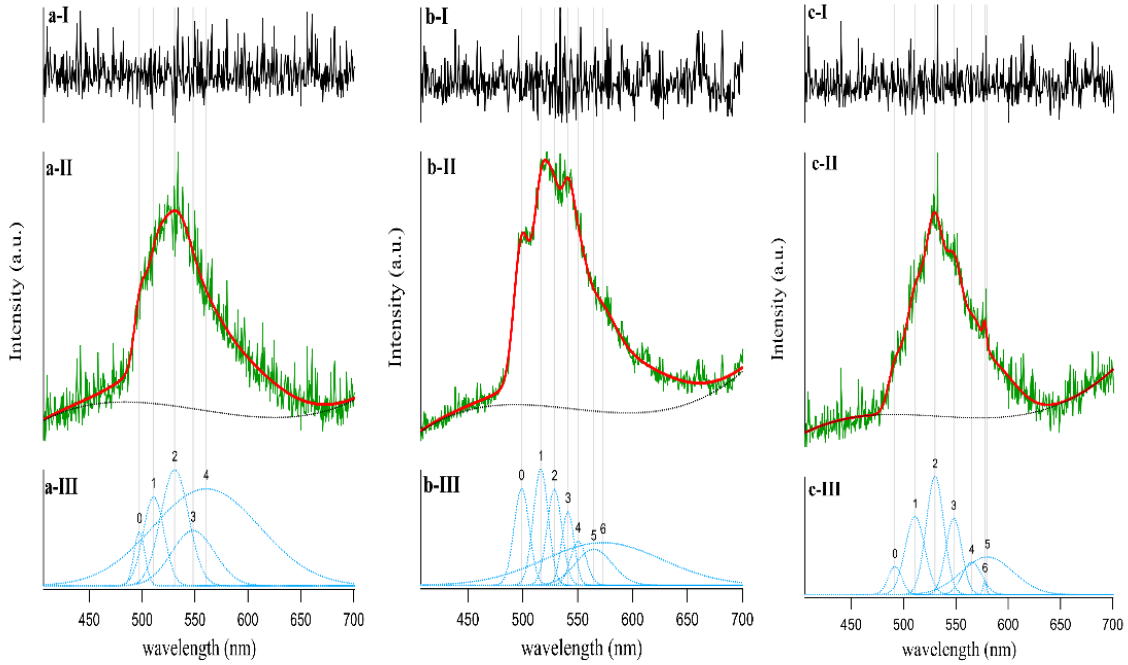


図3.3-25　(a) イライトのみ、(b) 大気平衡条件でU(VI)を収着させたイライト(pH7.8)及び(c) 1 mM DIC条件でU(VI)を収着させたイライト(pH8.1)の積算蛍光スペクトル．上段は残余プロット、中段は観測スペクトル(緑線)及びフィッティング結果(赤線)、下段はピーク分離結果を示す

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 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

多価イオンとなる核種の場合、処分環境において複数の加水分解種が存在するとともに、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状況が生じる。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(V)は、炭酸イオン共存下では水溶液中で主にNpO_2^+、$NpO_2CO_3^-$及び$NpO_2(CO_3)_2^{3-}$の化学種として存在する。これらの溶存化学種のうち、炭酸イオン濃度が1×10^{-4} mol/L程度以下ではNpO_2^+が支配的となるのに対し、炭酸イオン濃度が1×10^{-4} - 1×10^{-1} mol/Lにおいては、NpO_2^+、$NpO_2CO_3^-$及び$NpO_2(CO_3)_2^{3-}$の三つの溶存化学種が共存する条件となる。そのため、圧縮ベントナイトや堆積岩の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$NpO_2(CO_3)_2^{3-}$の各化学種の存在割合が異なる条件で拡散試験を実施することが可能である。このような背景から、平成31年度は、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)の減衰・破過データ及び試験後のベントナイト中の濃度プロファイルを取得し、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。しかしながら、NpO_2^+と$NpO_2CO_3^-$が混在する条件において、単純に各化学種の拡散係数を足し合わせた解析では破過データを再現することができなかった。この原因として、NpO_2^+と$NpO_2CO_3^-$の平衡反応速度が影響していると考えられる。例えば、NpO_2^+のような収着性核種と$NpO_2CO_3^-$の非収着性核種が混在する場合、各化学種間の平衡反応速度が拡散速度に対して十分速ければ、図3.3-26 (a)に示すようにNpO_2^+の拡散挙動に依存した破過フラックス（Np全量）が得られる。反対に、平衡反応速度が遅ければ、図3.3-26(b)に示すようにNpO_2^+と$NpO_2CO_3^-$はそれぞれ独立して拡散し、各化学種のフラックスを合わせた結果となる。このような観点から、令和2年度はNp錯体の拡散・収着・平衡反応を考慮した数値シミュレーションを行い、実験データとの回帰分析によって、化学種間の平衡反応速度による拡散挙動への影響を評価した。

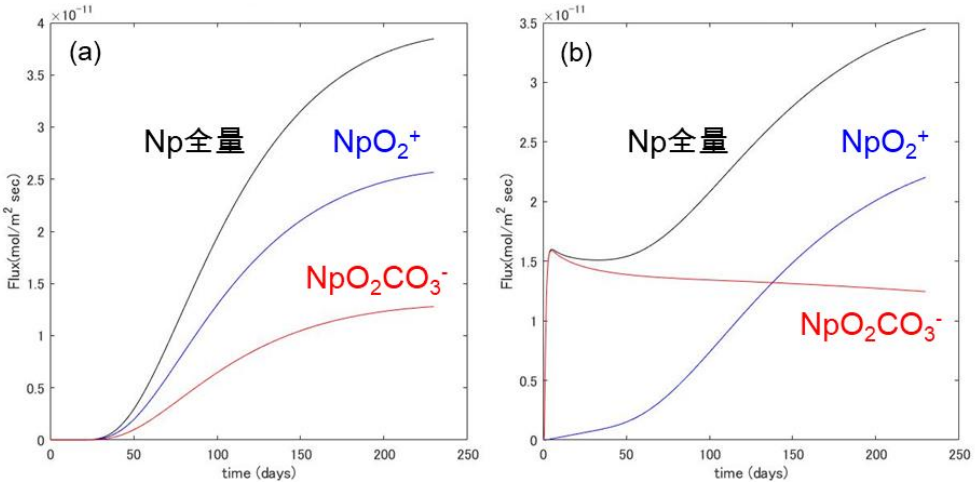


図3.3-26　NpO_2^+と$NpO_2CO_3^-$の平衡反応速度と破過フラックスの関係：(a) 平衡反応速度が速い場合、(b) 平衡反応速度が遅い場合

解析対象とする試験データには、平成31年度に実施した炭酸イオン濃度5×10^{-3} mol/Lの条件下での圧縮Na型ベントナイト（直径: 2 cm、長さ: 0.5 cm）を対象としたNp-237の透過拡散試験結果を用いた。この試験条件におけるNpO_2^+/ $NpO_2CO_3^-$比は0.83であり、わずかにNpO_2^+より$NpO_2CO_3^-$の割合が大きい。また、数値シミュレーションでは、一次元のFickの拡散方程式に基づき、分配係数による収着項とNpO_2^+と$NpO_2CO_3^-$の2化学種間の平衡速度式による平衡項を反映し、Npの破過フラックスを評価した。パラメータとして、平成31年度に取得したNpO_2^+および$NpO_2CO_3^-$の実効拡散係数（NpO_2^+：$D_e = 4.2\times10^{-11}$ m²/s、$NpO_2CO_3^-$：$D_e = 1.9\times10^{-11}$ m²/s）と分配係数（NpO_2^+: $K_d = 0.35$ m³/kg、$NpO_2CO_3^-$: $K_d = 0$ m³/kg）、及びバルク希釈溶液中のNpO_2^+と炭酸錯体の平衡速度定数（$k = 6.0\times10^3$ s^{-1}）を用いた（Newcomb et al., 2018）。図3.3-27に平成31年度の拡散試験による実測データ（白抜丸）と数値シミュレーション結果（破線）を示す。シミュレーション結果と実測データを比較すると、シミュレーション結果ではフラックスの立ち上がりが遅く、特に50日以降までの実測データの傾向性を再現できていない。一方、実測データでは、110日以前とそれ以降でデータの傾向性が大きく異なり、二重のフラックスを示している。110日以前では50日以降からフラックスがほぼ一定値を示し、定常状態になっているが、110日以降から再度その値が増加している。この結果から、この試験条件では主に二つの化学種が存在することを示しており、PHREEQCによる熱力学計算からNpO_2^+と$NpO_2CO_3^-$であると考えられる。さらに、これらの化学種はそれぞれ異なる破過挙動を示し、図3.3-26(b)に示したようにそれぞれが独立して拡散しているように見える。そこで、NpO_2^+より$NpO_2CO_3^-$のD_eとK_dは同様の条件で、NpO_2^+と炭酸錯体の平衡速度定数を実測データにフィッティングさせる回帰分析を行った。その計算結果を図3.3-27（黒線）、また、NpO_2^+と$NpO_2CO_3^-$の破過フラックスもそれぞれ青線と赤線で示した。Np全量の破過フラックスは、定量的に実測データを再現できてはいないが、二重のフラックスの傾向性は再現することができた。また、回帰分析により求めた平衡速度定数は2.6×10^{-5} s^{-1}であり、バルク中の値と比較するとかなり小さく、その平衡速度が遅いことを示した。この原因としては、ベントナイト表面上の負電荷によって間隙水中のNpO_2^+と炭酸イオン（CO_3^-）の分布に偏りが生じ、分子同士の衝突確率が低下するため、その平衡速度も低下したと考えられる。もしくは、層間のように非常に狭い空間において、炭酸錯体の形成が制限されることによって、巨視的には平衡が保たれている状態でNpO_2^+と$NpO_2CO_3^-$がそれぞれ別の経路を通って拡散した

結果、平衡速度が遅くなった可能性も考えられる。今後、上記した原因を追究するため、ベントナイト固液比を増加させることによって、静電的影響の増加による平衡速度の変化を観測するため、乾燥密度を変化させた場合の試験を実施していく予定である。また、層間への炭酸イオンやNp炭酸錯体の拡散の制限についても、以下に示す分子動力学計算を用いて検討していく。

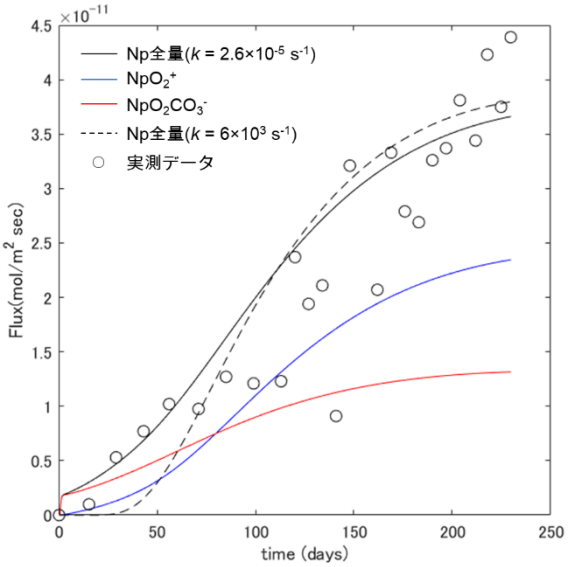


図3.3-27　Np-237破過フラックスの実測データとシミュレーション結果の比較（シミュレーションではNpO_2^+と$NpO_2CO_3^-$の破過フラックスをそれぞれ計算し、それらを合わせた結果としてNp全量を示している）

②　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－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。これまでの事業では、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てきた（日本原子力研究開発機構, 2017）。また、より現実的な間隙構造における核種の挙動を評価するため、層間間隙及び粒子間間隙が共存するスーパーセルを試作し、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試みた（日本原子力研究開発機構, 2018）。これらの成果を踏まえ、2層水和状態の層間間隙を含むスーパーセルで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）。さらに、層間がより膨潤した状態（3層及び4層水和状態）のスーパーセルを試作して、炭酸イオンの共存下でのアクチニド核種の挙動について試解析を実施した（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, 2020）。

令和2年度は、これまでの成果を踏まえ、層間が3層あるいは4層水和状態にある場合のスーパーセルで長時間シミュレーションを実施し、ウラニルイオン及びネプツニルイオンを対象に、炭酸共存下における拡散挙動への影響について評価を試みた。

計算対象は平成31年度と同様に、以下のように設定した。

・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、平成31年度の報告書（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, 2020）を参照されたい。

図3.3-28は、初期状態として3層水和層間に対イオンのNa^+が存在し、粒子間間隙にはNa^+とCl^-が共存する系での2 nsにわたるCl^-の拡散履歴（図3.3-28(a)）及び粒子間間隙にNa^+とCO_3^{2-}が共存する系でのCO_3^{2-}の拡散履歴（図3.3-28 (b)）、4層水和層間に対イオンNa^+が存在し、粒子間間隙にはNa^+とCl^-が共存する系でのCl^-の拡散履歴（図3.3-28(c)）及び粒子間間隙にNa^+とCO_3^{2-}が共存する系でのCO_3^{2-}の拡散履歴（図3.3-28 (d)）を示す。なお、MD計算の運動方程式を解く際の1 time-stepは、0.4 fsに設定した。したがって、2 nsは5×10^6 time-stepに相当する。図3.3-28(a),(c)を見ると、4層水和状態ではCl^-の一部が層間へ拡散移行していることがわかる。これは、層間幅の拡張により陰イオン排除の傾向が低下した可能性が考えられる。一方、図3.3-28 (b)、(d)を見ると、イオン半径が同程度（Cl^-は0.181 nm、CO_3^{2-}は0.178 nm、Marcus, 1997）でCO_3^{2-}の方が陰イオンの価数が高いにもかかわらず、3層水和状態でもCO_3^{2-}が層間へ拡散移行している例が見られる。これは、Na^+の拡散挙動を解析した結果、CO_3^{2-}がNa^+と錯体を形成し、中性化して移行していることが確認された。なお、図3.3-28 (c)に見られるCl^-の層間への移行ではこのような中性化は確認されず、単独での移行と考えられる。

図3.3-29は、初期状態として3層水和層間に対イオンのNa^+が存在し、粒子間間隙にはUO_2^{2+}とCl^-が共存する系での2 nsにわたるCl^-の拡散履歴（図3.3-29 (a)）及びUO_2^{2+}の拡散履歴（図3.3-29 (b)）、4層水和層間に対イオンのNa^+が存在し、粒子間間隙にはUO_2^{2+}とCl^-が共存する系でのCl^-の拡散履歴（図3.3-29 (c)）及びUO_2^{2+}の拡散履歴（図3.3-29 (d)）を示す。図3.3-29 (b),(d)を見ると、UO_2^{2+}の層間への拡散移行が確認できる。これは層間のNa^+とのイオン交換による移行であり、この傾向は2層水和層間の場合でも確認されている（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）。2層水和状態の層間幅は0.9 nm程度あり、イオン半径0.28 nm（Marcus, 1997）のUO_2^{2+}の移行には影響ないものと考えられる。なお、図3.3-29(a),(c)ではCl^-の層間への移行が見られるが、図3.3-28 (c)の場合と同様に、Na^+やUO_2^{2+}と錯体を形成して移行したものではなく単独での移行である。

図3.3-30は、初期状態として3層水和層間に対イオンのNa^+が存在し、粒子間間隙にはUO_2^{2+}とCO_3^{2-}が共存する系での2 nsにわたるCO_3^{2-}の拡散履歴（図3.3-30 (a)）及びUO_2^{2+}の拡散履歴（図3.3-30 (b)）、4層水和層間に対イオンのNa^+が存在し、粒子間間隙にはUO_2^{2+}とCO_3^{2-}が共存する系でのCO_3^{2-}の拡散履歴（図3.3-30 (c)）及びUO_2^{2+}の拡散履歴（図3.3-30 (d)）を示す。図3.3-30 (a)に見られるCO_3^{2-}の層間への移行は、UO_2^{2+}の挙動解析（図3.3-30 (b)参照）から、UO_2^{2+}との錯体形成により中性化して移行していることが確認された。

図3.3-31は、初期状態として3層水和層間に対イオンのNa^+が存在し、粒子間間隙にはNpO_2^+とCl^-が共存する系での2 nsにわたるCl^-の拡散履歴（図3.3-31 (a)）及びNpO_2^+の拡散履歴（図3.3-31 (b)）、4層水和層間に対イオンのNa^+が存在し、粒子間間隙にはNpO_2^+とCl^-が共存する系でのCl^-の拡散履歴（図3.3-31 (c)）及びNpO_2^+の拡散履歴（図3.3-31 (d)）を示す。図3.3-31 (b),(d)に見られるNpO_2^+の層間への移行は、図3.3-29のUO_2^{2+}の場合と同様に、層間Na^+とのイオン交換による移行である。

NpO_2^+とCl^-は粒子間間隙では錯体形成が確認されているが、錯体として層間への移行は確認されておらず、図3.3-31 (c)に見られるCl^-の移行は単独のものである。

図3.3-32は、初期状態として3層水和層間に対イオンのNa^+が存在し、粒子間間隙にはNpO_2^+とCO_3^{2-}が共存する系での2 nsにわたるCO_3^{2-}の拡散履歴（図3.3-32 (a)）及びNpO_2^+の拡散履歴（図3.3-32 (b)）、4層水和層間に対イオンのNa^+が存在し、粒子間間隙にはNpO_2^+とCO_3^{2-}が共存する系でのCO_3^{2-}の拡散履歴（図3.3-32 (c)）及びNpO_2^+の拡散履歴（図3.3-32 (d)）を示す。NpO_2^+とCO_3^{2-}との錯体形成は粒子間間隙では確認されているが、錯体として層間への移行は確認されていない。

今回の解析を俯瞰して見ると、陰イオンの価数が高いCO_3^{2-}はCl^-に比べて陽イオンと錯体を形成しやすく、層間へも錯体の形で移行していた。一方、Cl^-の場合は粒子間間隙で錯体を形成することはあるが、錯体の形で層間へ移行するCaseは本解析では見られず、もっぱら単独で移行していた。CO_3^{2-}とCl^-は有効イオン半径がほぼ同じなので、この移行挙動の相違はイオンの価数と錯形成に係るポテンシャルに起因するものと思われる。また同じアクチニド核種のUO_2^{2+}とNpO_2^+については、イオンの価数に違いはあるが、その拡散挙動は同様の傾向を示し、顕著な相違は本解析からは確認できなかった。

本解析では平成31年度に引き続き、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古典MD計算を実施し、層間間隙へのイオンのアクセス性に関する知見を得ることができた。特に各解析Caseの計算時間（ステップ数）を2 nsまで継続でき（平成31年度は0.8 ns）、各イオンの拡散履歴の明示が可能となった。しかしながら、系が熱力学的平衡状態に達しているかどうかはいまだ不明であり、明白な判定基準を検討する必要がある。また現状では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）が十分ではなく、今後の課題である。

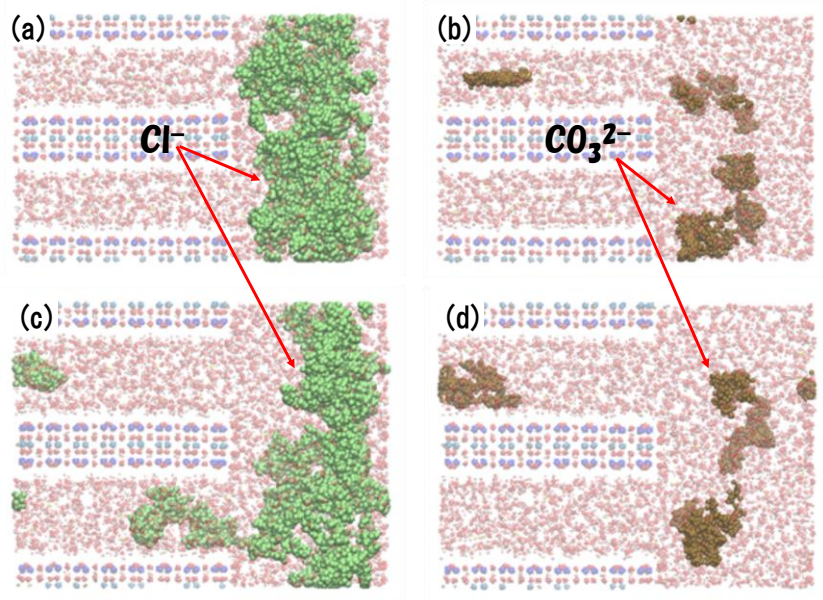


図3.3-28　Na-モンモリロナイト層間・粒子間間隙混合系の2 nsにわたるCl^-の拡散履歴（a, c）及びCO_3^{2-}の拡散履歴（b, d）：(a)初期状態は3層水和層間＋間隙水（Na^++Cl^-）、(b)初期状態は3層水和層間＋間隙水（Na^++CO_3^{2-}）、(c)初期状態は4層水和層間＋間隙水（Na^++Cl^-）、(d)初期状態は4層水和層間＋間隙水（Na^++CO_3^{2-}）。イオンの色は、緑色：Cl^-、茶色：CO_3^{2-}

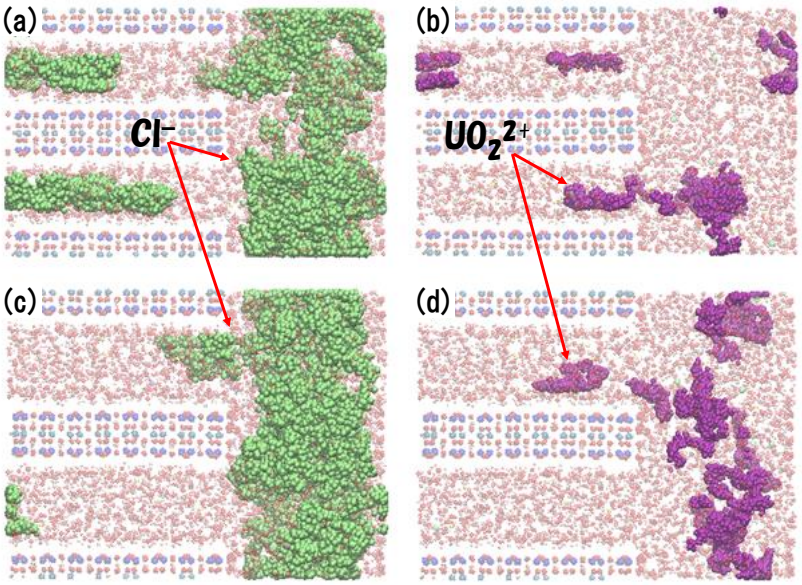


図3.3-29　Na-モンモリロナイト層間・粒子間間隙混合系の2 nsにわたるCl^-の拡散履歴（a, c）及びUO_2^{2+}の拡散履歴（b, d）：(a, b)初期状態は3層水和層間＋間隙水（UO_2^{2+}+Cl^-）、(c, d)初期状態は4層水和層間＋間隙水（UO_2^{2+}+Cl^-）。イオンの色は、緑色：Cl^-、紫色：UO_2^{2+}

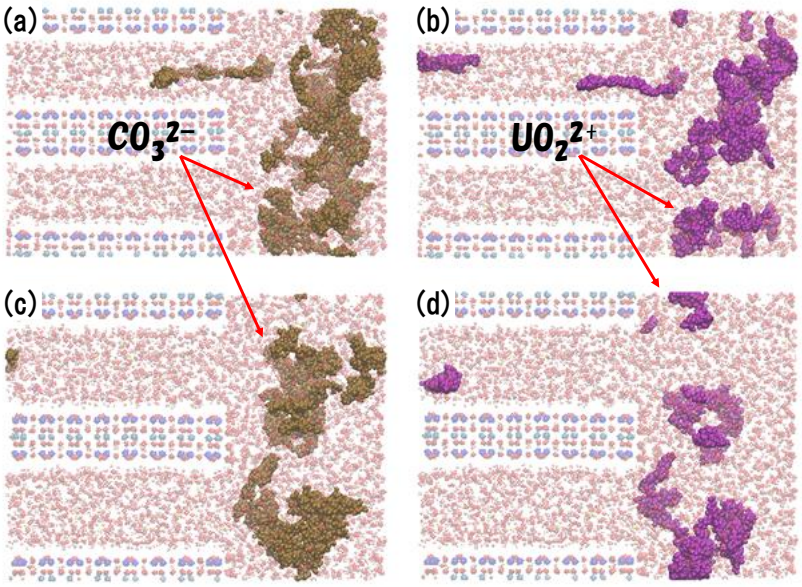


図3.3-30　Na-モンモリロナイト層間・粒子間間隙混合系の2 nsにわたるCO_3^{2-}の拡散履歴（a, c）及びUO_2^{2+}の拡散履歴（b, d）：(a, b)初期状態は3層水和層間＋間隙水（UO_2^{2+}+CO_3^{2-}）、(c, d)初期状態は4層水和層間＋間隙水（UO_2^{2+}+CO_3^{2-}）。イオンの色は、茶色：CO_3^{2-}、紫色：UO_2^{2+}

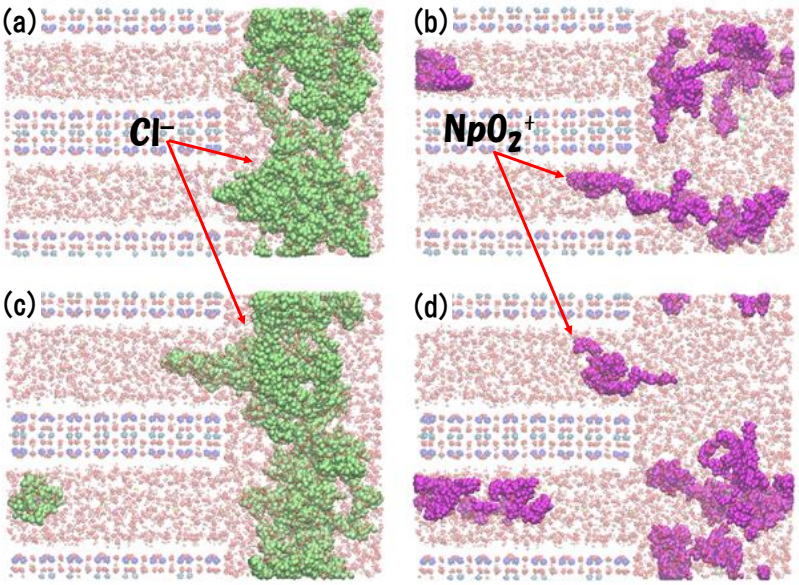


図3.3-31　Na-モンモリロナイト層間・粒子間間隙混合系の2 nsにわたるCl^-の拡散履歴（a, c）及びNpO_2^+の拡散履歴（b, d）：(a, b)初期状態は3層水和層間＋間隙水（NpO_2^++Cl^-）、(c, d)初期状態は4層水和層間＋間隙水（NpO_2^++Cl^-）。イオンの色は、緑色：Cl^-、薄紫色：NpO_2^+

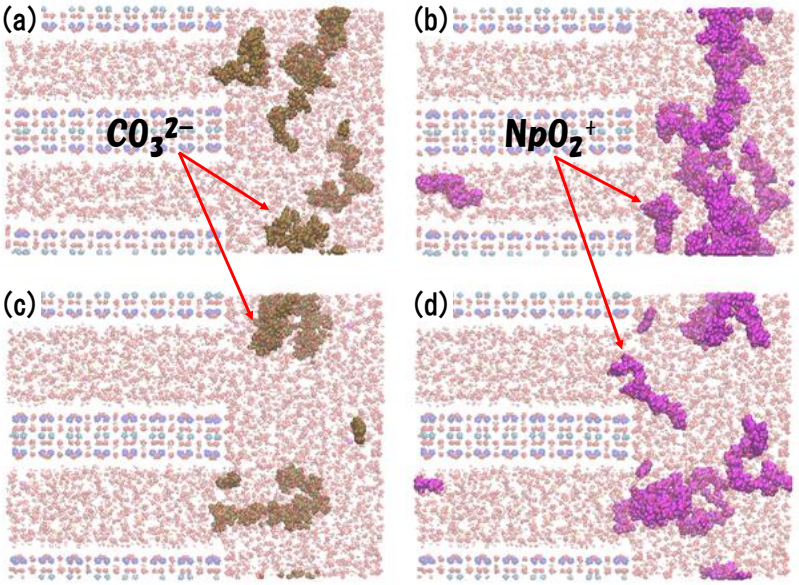


図3.3-32　Na-モンモリロナイト層間・粒子間間隙混合系の2 nsにわたるCO_3^{2-}の拡散履歴（a, c）及びNpO_2^+の拡散履歴（b, d）：(a, b)初期状態は3層水和層間＋間隙水（NpO_2^++CO_3^{2-}）、(c, d)初期状態は4層水和層間＋間隙水（NpO_2^++CO_3^{2-}）。イオンの色は、茶色：CO_3^{2-}、薄紫色：NpO_2^+

③　第一原理電子状態計算によるモンモリロナイト・エッジ表面への核種吸着挙動の評価

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について報告する。

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。平成31年度は、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した。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アンサンブル法を採用した（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, 2020）。一般に粘土鉱物への陽イオンの吸着においては、低pHではベーサル面が、中性～高pHではエッジ表面が主要な吸着場となると考えられている。そのため国内外におけるこれまでの研究では、中性や塩基性の条件を仮定したうえで、エッジ表面へのNi, ZnやFeなどの吸着挙動について分子シミュレーションで研究されている。そこで令和2年度は、最新の研究成果をいくつか調査し、今後の研究方針について検討した。

Zhang et al. (2019)は、2:1型フィロケイ酸塩鉱物を対象に、エッジ表面に吸着したNi^{+}の結晶への取り込まれ方を議論し、二つの反応経路について検討している。反応経路①は$Ni(OH)_2$の八面体シートが成長し、その後シートの上下にSiO_4四面体シートが成長するモデルであり、反応経路②は$Ni(OH)_2$とSiO_4シートが同時に成長するモデルである。解析の結果、これら二つの反応経路のうち、反応経路②すなわち八面体と四面体シートが同時に成長する反応の方が熱力学的により好ましいことがわかった。このような解析は、粘土鉱物の結晶成長に伴い、どのように放射性元素の陽イオンが固定されるかを議論するのに有用な手法である。熱力学的な安定性を議論するためには自由エネルギーの算出が最も直接的であり、この研究では第一原理MD計算を用いて、平均力ポテンシャルから自由エネルギーを算出している。具体的には、反応経路を考慮して、適当と思われる原子間内部座標を拘束条件として計算を実施している。計算対象とするエッジ表面は作成が容易な{010}であり、それ以外の表面の計算は行っていない。層電荷は0.25 eとし、層間対イオンにはLi^{+}を用いて計算負荷を下げている。

Kéri et al. (2020)は、溶液中のモンモリロナイトのエッジ表面に液中のFe^{2+}が吸着し、それが酸化されてFe^{3+}に変化する現象等の基礎的知見を得るため、Feイオンの安定構造と吸着エネルギーを調べている。モンモリロナイトのエッジ表面として{110}と{010}を対象に、強く吸着するサイトと弱く吸着するサイトについて第一原理MD計算を実施し､得られたエッジ構造をEXAFS（広域X線吸収微細構造）による分析結果と比較している。この研究では、まず第一原理計算を行い、結晶内とエッジ表面についてFeの安定サイトを探索している。全エネルギーの比較から明確な安定サイトの情報が得られたのは{110}表面のFe^{3+}の場合だけであり、それ以外では明確なサイト間のエネルギー差は得られていない。またエッジ表面へのFe吸着については、まず古典MD計算で安定な初期構造を探索し、さらに第一原理MD計算を実施して安定な吸着構造を求めている。このような方法は、エッジへの吸着構造を求める際には有効な方法である。しかしながら、この文献で定義されている鉱物構造モデルは層電荷がないパイロフィライトであり、これとモンモリロナイトを対象としたEXAFSの結果と比較するのは、若干無理があると思われる。

これらの先行研究から、第一原理MD計算を用いた核種吸着挙動に関する解析の方針としては、①これまでの研究で対象とした4種類のモンモリロナイト・エッジ表面に対して、古典MD計算で安定構造を求める、②得られた初期安定構造に対して第一原理MD計算を実施し、量子論を考慮したより安定なエッジ構造を求める、③PMF（Potential of mean force）法を用いて、イオン吸着の自由エネルギーを計算する。扱う価電子がd電子までであれば、Kéri et al. (2020)で使われてい

るDFT+U法で問題ないが、価電子としてf電子を扱う場合には検討が必要である。

④　古典MD計算を用いたモンモリロナイト-層間水間の相互作用の解明

バリア材の主成分をなすモンモリロナイトは負の層電荷をもつ層状鉱物であり、層間間隙は対イオン、間隙水及び鉱物表面（ベーサル面）の相互作用の場となって、緩衝材の膨潤挙動や間隙特性を支配する。したがって、多様な環境条件下における緩衝材中の間隙構造や核種移行挙動を評価するうえで、層間間隙の膨潤メカニズムや層間水の物性を理解することは極めて重要である。古典MD計算によるこれまでの研究から、結晶膨潤の範囲ではXRD分析により測定されたモンモリロナイト底面間隔（Basal spacing）とおおむね整合的であることが示され（図3.3-33 (a)参照）、層間への水分子の浸入による相互作用エンタルピー（Immersion enthalpy）や層間間隙の水分子や対イオンの充填率（Packing fraction）に従って底面間隔が変化することなどが明らかになってきた（Yotsuji et al., 2021）。MD解析の一例として、層電荷0.5 $e/(Si_4O_{10})$のNa型モンモリロナイトの膨潤挙動を図3.3-33に示す。横軸は層間間隙の含水量であり、この系では層間のNaイオン0.5個に対して水分子がn個存在する。図3.3-33 (a)は含水量の関数としての底面間隔（黒線）と浸入エンタルピー（赤線）、図3.3-33 (b)は層間充填率（黒線）と対イオンの水和数（赤線）を示している。図3.3-33中の実測データは、Morodome and Kawamura (2009)から引用した。このMD計算は298.15 K・0.1 MPaのNTPアンサンブルによるシミュレーションであり、系の熱力学的安定性の指標となるのは、厳密にはエンタルピーではなくギブス自由エネルギーである。しかしながら、一般にMD計算では系のエントロピー（したがって自由エネルギー）を計算するためには原子数のスケール・計算時間のスケールともに膨大になり、現実的ではない（Yoshii et al., 2006）。バルク溶液のイオンの水和自由エネルギーを見ると、イオンにより多少ばらつきはあるが、水和自由エネルギーの9割以上は水和エンタルピーが占めており、エントロピーの寄与は少ない（Marcus, 1997）。この事実を踏まえ、MD計算の解析でも評価が困難な自由エネルギーではなく、比較的計算が容易な相互作用エンタルピーで議論してきた。そこで本報告では、系の自由エネルギーを評価するための現実的な手法を検討し、従来のエンタルピーによる評価と比較してその有効性を確認した。

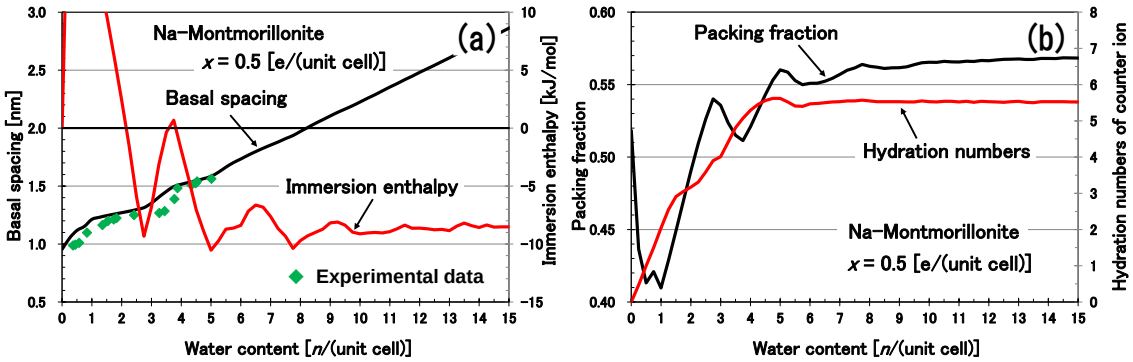


図3.3-33　Na型モンモリロナイトのMD計算結果：(a)層間含水量の関数としての底面間隔（黒線）と浸入エンタルピー（赤線）、(b)層間含水量の関数としての層間充填率（黒線）と対イオンの水和数（赤線）。MD計算結果はYotsuji et al. (2021)より、実測データはMorodome and Kawamura (2009)より

状態変化にともなう水分子の自由エネルギー変化をMD計算から求める方法として熱力学的積分法（Frenkel and Smit, 2002）がある。本報告ではYoshii et al. (2006)の方法を採用し、古典MD

計算プログラムであるMXDTRICL（平尾・河村, 1994）に導入した。この手法では水分子が徐々に状態変化（例えば理想気体から粘土層間、理想気体から液体など）するように、追加する水分子とそれ以外の水分子との相互作用を仮想的パラメータλで調節し（$\lambda = 0$: 相互作用無し、$\lambda = 1$: 通常の相互作用）、その自由エネルギーの変化をλで積分して反応後の自由エネルギー変化ΔG_{sim}を求める。いまN個の水分子の系に$N+1$番目の水分子を理想気体から移行することを考える。あるλに対して、移行後の系の全ポテンシャルエネルギー$U(\lambda)$を式(3.3-2)で表す。

$$U(\lambda) = U_N + f(\lambda) \cdot V_{N+1} \tag{3.3-2}$$

ここでU_NはN分子系の全ポテンシャルエネルギー、V_{N+1}は$N+1$番目の水分子とそれ以外のN個の水分子との相互作用エネルギーを表す。また$f(\lambda)$は、$f(0) = 0$、$f(1) = 1$を満たす$0 \leq \lambda \leq 1$の適当な単調増加関数である。このとき、N分子系に新たに水分子が一つ追加されたときの自由エネルギー変化$\Delta G_{\mathrm{sim}}(N)$は、式(3.3-3)で計算できる。

$$\Delta G_{\mathrm{sim}}(N) = \int_0^1 \mathrm{d}\lambda \left\langle \frac{\partial U(\lambda)}{\partial \lambda} \right\rangle_\lambda = \int_0^1 \mathrm{d}\lambda f'(\lambda) \langle V_{N+1} \rangle_\lambda \tag{3.3-3}$$

ここで$\langle \cdots \rangle_\lambda$は、パラメータが$\lambda$の値をとるときのアンサンブル平均である。

一般にMD計算から得られる自由エネルギー変化には、分子内振動の量子効果や環境に応じた分子内分極の効果などが含まれない。そこで、これらの無視されたエネルギーを補正項ΔG_{corr}として取り入れる必要がある。補正項の計算値は水分子のモデルにより異なるが（Horn et al., 2005）、本解析で用いた河村モデル（Kumagai et al., 1996）の場合は標準状態（298.15 K・0.1 MPa）で計算すると$\Delta G_{\mathrm{corr}}^{\circ} = -1.3209$ kcal/molになる。これらの方法を用いると、水分子数n（ユニットセル当たりの分子数）の状態から1分子増加した状態への変化に伴う系の自由エネルギー変化は次式で評価できる。

$$\Delta G^{\circ}(n) = \Delta G_{\mathrm{sim}}^{\circ}(n) + \Delta G_{\mathrm{corr}}^{\circ} \tag{3.3-4}$$

$$\Delta G(n, R_{\mathrm{H}}) = \Delta G^{\circ}(n) - RT\ln(R_{\mathrm{H}}) - RT\ln(p_{\mathrm{sat}}/p_0) \tag{3.3-5}$$

ここで$\Delta G_{\mathrm{sim}}^{\circ}(n)$は標準状態で計算した式(3.3-3)の値、$R$は気体定数、$T$は温度、$R_{\mathrm{H}}$は相対湿度、$p_{\mathrm{sat}}$は298.15 Kにおける飽和水蒸気圧、$p_0$は標準気圧である。$\Delta G^{\circ}(n)$は標準状態の自由エネルギー変化であり、任意の相対湿度における自由エネルギー変化は式(3.3-4)で与えられる。さらに、水分子数nの状態における系の自由エネルギーは、$G(n, R_{\mathrm{H}})$をnで積分して算出される。

$$G(n, R_{\mathrm{H}}) = \int_0^n \mathrm{d}\tau \Delta G(\tau, R_{\mathrm{H}}) \tag{3.3-6}$$

モンモリロナイト層間の膨潤における層間水の自由エネルギー変化は、図3.3-34のような概念図で考えることができる。今回のMD計算では気体状態の相互作用を無視しており、またモンモリロナイト自体の自由エネルギー変化についても無視している。量子補正については、水の蒸発に伴う自由エネルギー変化の計算の際に得られた補正項$\Delta G_{\mathrm{corr}}^{\circ}$を用いた。

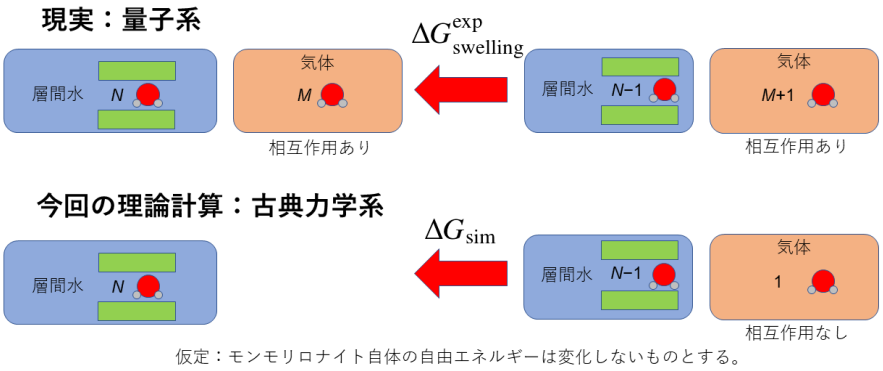


図3.3-34　水蒸気の水分子がモンモリロナイト層間水に取り込まれて状態変化する際の自由エネルギー変化を表す概念図（今回のMD計算では気体状態の相互作用を無視し、またモンモリロナイト自体の自由エネルギー変化も無視した）

令和2年度は、層電荷0.5 $e/(Si_4O_{10})$のCa型モンモリロナイトについて、膨潤に伴う自由エネルギー変化の相対湿度依存性$G(n, R_H)$を計算した。式(3.3-6)の積分において$G(0, R_H) = 0$とした場合の自由エネルギーの変動を図3.3-35(a)に示す。この図において$G < 0$ならば層間に水がある状態が安定、$G > 0$ならば層間に水は無い状態が安定となる。相対湿度R_Hを10%から90%まで離散的に変化させ、自由エネルギー曲線を表示した。R_H = 10%では計算した水分子数のすべての領域で$G > 0$であり、層間に水が入ると熱力学的に不安定になることを示す。R_H > 15%では$G < 0$の領域が存在し、Gの最小値から熱力学的に安定となる層間の水分子数が算出できる。同じ条件で、従来のエンタルピー計算により評価した浸入エンタルピーを図3.3-35 (b)に示す。この評価では、層間水を液体状態として扱っているため、図3.3-35(a)の自由エネルギー曲線のうちR_H = 100%の系が対応する。両者を比較すると、相似した形状であることが確認できる。

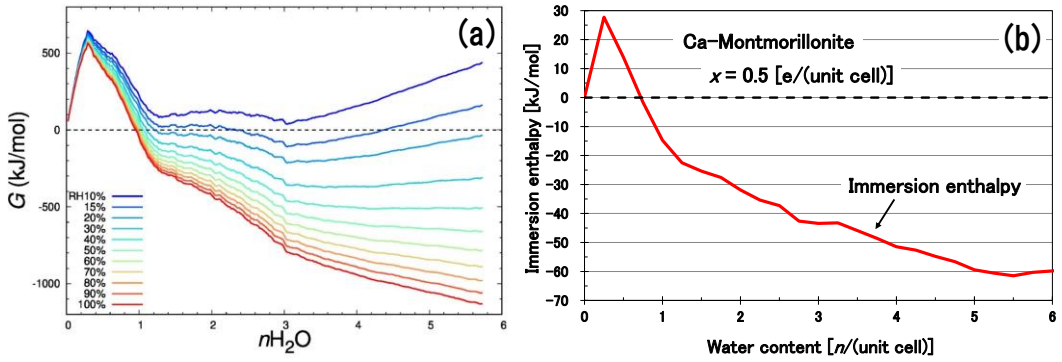


図3.3-35　二つの手法によるエネルギー変化の比較：(a)層電荷0.5 $e/(Si_4O_{10})$のCa型モンモリロナイトについて層間水の増加に伴う自由エネルギーの変化。熱力学的積分法により算出、(b) 同じ条件で従来のエンタルピー計算により評価した浸入エンタルピー（データはYotsuji et al. (2021)より）

また、各R_Hにおける自由エネルギー曲線の最小値から熱力学的に安定な水分子数を求めると、R_Hをパラメータとした層間含水量の変動を評価することができる。そのデータを、図3.3-36(a)にプロットした。一方、従来のMD計算で得られた結果に実測データの情報を取り入れることで、層間含水量の相対湿度依存性を評価できる。すなわち、水蒸気吸着試験から得られた吸着等温線

（50°Cに設定し、相対湿度を制御して取得; Yotsuji et al., 2021）と、湿度制御のもとでX線回折により得られた膨潤曲線（Morodome and Kawamura, 2009）から、水蒸気吸着量をパラメータとした底面間隔が得られ、さらに従来のMD計算で得られた底面間隔の層間含水量依存性を援用することにより、相対湿度をパラメータとした層間含水量を算出できる。その結果を、図3.3-36(b)に示した（Yotsuji et al., 2021）。両者を比較すると、R_H = 10%くらいから相対湿度とともに層間含水量が増大し、R_H = 50%くらいで含水量が飽和する傾向がよく一致しており、本解析のMD計算で得られた膨潤挙動と調和的であることが確認できる。これらの検討により、熱力学的積分法を用いたMDシミュレーションによる自由エネルギー計算は、膨潤挙動を評価する手法として適用可能であるものと考えられる。また、従来のMD計算から比較的容易に得られる浸入エンタルピーの挙動と、本解析で得られた自由エネルギーの挙動が整合的であることから、膨潤挙動を解析するうえで自由エネルギーの代用として浸入エンタルピーを用いることの一つの根拠が得られたと言える。

今後の課題として、本解析手法がNa型モンモリロナイトなど他のイオン型に適用可能であるか検証が必要である。また、層間水の少ない状態では水やイオンの安定位置が局所安定になっている可能性があるため、高温でのMD計算を行うなど、安定配置の探索が必要となる。

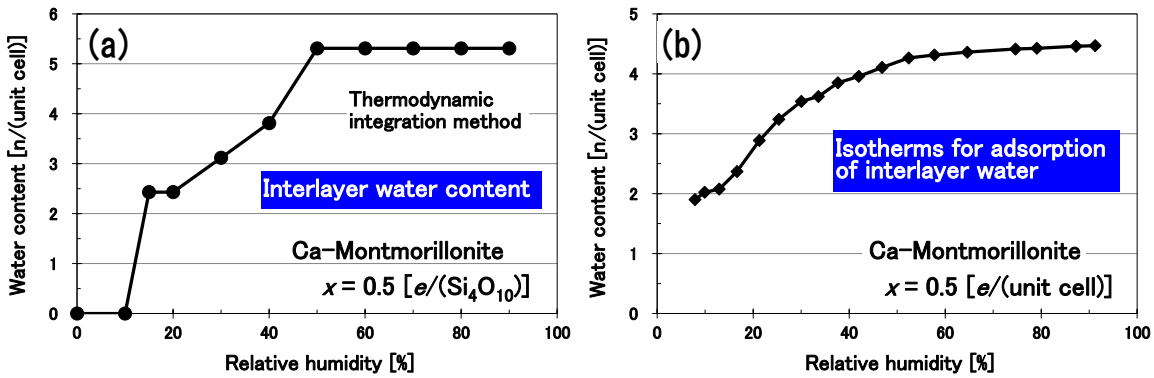


図 3.3-36　二つの手法による層間含水量の挙動の比較：(a)自由エネルギー曲線の最小値から得られた層間含水量の相対湿度依存性、(b)実測データと従来の MD 計算の結果から得られた層間含水量（データは Yotsuji et al. (2021)より）

3.3.3 これまで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。

ニアフィールドの状態変遷のうち、鉄製オーバーパックと緩衝材との反応による核種移行影響に関する課題として、鉄共存による核種収着競合の影響、鉄鉱物への核種の取り込みの影響という、核種移行評価をそれぞれ促進あるいは低減させる効果をもつ現象を抽出して、研究を進めてきた。このうち緩衝材における鉄と核種の収着競合については、平成31年度までに、共存Fe(II)濃度が異なる条件でのモンモリロナイトへのNiやAmの収着データを取得し、鉄と価数が同じであるNi(II)では収着競合が生じる一方、Am(III)の場合には収着競合が顕在化しないことなどを確認してきた。令和2年度は、収着競合の基本データとなるFe(II)の収着モデルの信頼性の向上のため、pH 7 - 12の範囲でモンモリロナイトに対するFe(II)の収着分配係数を取得し、収着モデルにより

Fe(II)の分配係数のpH依存性をモデル化し、Fe(II)の表面錯体パラメータを導出した。さらに、Fe(II)非共存下とFe(II)によりモンモリロナイト中の収着サイト（Strongサイト）が飽和する条件となるFe(II)共存下（1×10^{-4} mol/dm^3）でNb(V)の収着分配係数を測定し（pH 7付近）、収着競合の影響を評価した。その結果、Fe(II)との収着競合によるNb(V)の収着分配係数の変化は小さく、収着競合の影響は限定的であることを確認した。今後は、これまでに対象としてきたFeや核種を含め、異なる核種や条件での収着競合に関するデータの拡充とモデル評価を行い、Fe(II)と核種の競合収着評価手法と適用事例及び今後の課題を提示する。

オーバーパックの腐食に伴って生成するFe(II)鉱物への核種の取り込みについては、還元環境でのFe(II)鉱物へのSe(−II)の取り込みに着目し、平成31年度までに試験手法・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の取り込み、保持及び脱離挙動を、XAFSやSEM分析などにより把握したほか、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。令和2年度は、これまでに実施してきた2種類のFe(II)とSe(−II)の相互作用試験に対して、相互に異なるpH条件へ変遷・熟成させて試験・分析を実施し、XRD、XAFSの分析に加え、TEM/STEMの分析を行い、XRDやSEMでは確認できなかったナノスケールのセレン化鉄の析出状況の詳細を把握した。さらに、実際の深部地下環境下における岩石中のFe鉱物とSeの相互作用について検討するため、幌延URLから採取した泥岩（稚内層）を対象としたX線マイクロビーム分析（μ-XRF、μ-XAFS）を実施し、μ-XRFで取得された元素マッピングからは、微粒のパイライト（径数10 μm程度)へのSeが濃集していることを確認した。一方で、XANES分析からはSeが0価または−I価で存在する可能性が示唆されたものの、Seの局所構造を把握するためのEXAFS領域の解析は、Se濃度が低いため困難であり、この点については今後の課題となった。今後は、Fe(II)へのSe(−II)の取り込み挙動に関する室内試験については、XAFSやTEM分析など分析データを拡充するとともに、これまでに取得してきた一連のデータをもとに、Fe(II)鉱物へのSe(−II)の取り込みメカニズムを解明していく。さらに、幌延の岩石中のFe鉱物とSeの相互作用に係る分析データの拡充を進め、環境条件の変遷の影響等を含め、鉄鉱物へのSeの取り込み現象の評価結果及び今後の課題を取りまとめていく予定である。

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ろ過機能への影響については、平成31年度までに、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てきた。令和2年度は、圧縮ベントナイト中のコロイドろ過機能の発現条件を確認するため、より高密度条件（乾燥密度1.6 Mg/m^3）のNa型及びCa型モンモリロナイト中のデンドリマーコロイド（5.7 nm）の拡散・ろ過試験を継続し、0.05 Mの低塩濃度条件下では、Na型とCa型のいずれの試料でも200日以上の期間、下流側でのコロイドの破過は確認されなかった。内部プロファイルを取得した結果、これらの高密度・低塩濃度の条件においては、狭隘間隙のサイズと連続性によってコロイドが完全にろ過されていることを確認した。今後は、高密度条件でのコロイドの移行・ろ過データ取得を継続するとともに、粒径サイズの異なる条件でのデータを拡充し、これまでに取得された一連のデータをもとに、環境条件とコロイド移行・ろ過特性の関係性を明らかにしていく予定である。

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URLにおける泥岩とセメント系材料の原位置での接触試料を対象として選定し、平成31年度までに、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（OPC）や低アルカリセメント（HFSC））や接触期間（5年 - 10年程度）の差異に着目した変質状況等の予察的な分析を進めてきた。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。令和2年度は、幌延の

泥岩-セメント接触界面の変質状況や物質移行への影響を把握するため、幌延URLの140 m坑道から採取したOPC及びHFSCと泥岩（声問層）との接触界面を、EPMA，XRD及びSEMなどで分析し、OPCとHFSCと接触した接触界面付近の岩石の分析から、岩石側で数mm程度の変質が生じていること、OPCと接触界面において、より高いCa濃度や二次鉱物の生成が生じていることなどを確認した。さらに、接触界面からの距離に応じた間隙率、陽イオン交換容量及び主要・微量元素の濃度を把握し、接触界面付近の変質状況や核種移行への影響を検討するうえで有益な知見を得ることができた。今後は、接触界面付近の二次鉱物の生成状況や、岩石側の間隙率、陽イオン交換容量及び主要・微量元素などのデータを拡充するとともに、二次鉱物への微量元素の取り込みメカニズムについて調査を行い、接触界面の変質状況とその核種移行への影響を評価していく予定である。

地下水中の高炭酸濃度が核種移行に及ぼす影響評価技術の開発については、高炭酸条件下での核種収着モデルとデータベースの整備に向けて、平成31年度までにイライトや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、高炭酸条件における三元系の表面錯体形成の可能性や、複数の粘土鉱物の加成則に基づく収着モデルの泥岩への適用性を検討してきた。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(V)の拡散データを取得し、その結果に対して複数の化学種の共存を考慮した収着・拡散モデルの適用性を検討した。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収着・拡散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った。令和2年度は、イライトや幌延の泥岩へのEu(III)及びU(VI)の炭酸共存下での収着データを取得し、これまでに取得したTh(IV)に類似した炭酸及びpH依存性を確認するとともに、収着モデルにより再現計算を実施し、炭酸を含む表面三元錯体の存在を推定した。また、イライトへEu(III)及びU(VI)を収着させた試料を対象にTRLFSの予察分析を行い、特にU(VI)では低濃度でも測定できる極低温（LT）TRLFSを適用し、炭酸濃度やpHの変化に伴うスペクトル形状の変化を確認した。また、炭酸共存下の複数の化学種が共存する系でのNp(V)の拡散データのモデルによる評価を検討するとともに、分子動力学（MD）計算を用いて粘土層間間隙と層間外間隙の境界領域でのウラニル・ネプツニルイオン及びそれらの炭酸錯体のアクセス性を評価した。MDの評価結果より、2層水和層間では、陽イオンのウラニルは層間にイオン交換によりアクセス可能で、陰イオンの炭酸イオン、中性のウラニル-炭酸錯体はアクセスできないことが示された。また、3層水和層間では、中性のウラニル-炭酸錯体が層間に侵入可能なことなどを確認した。今後は、Eu(III)及びU(VI)のイライト及び幌延の泥岩への収着データとTRLFSによる分析データを拡充し、それらの結果をもとに、炭酸共存下の収着メカニズムを把握し、収着モデルによる高炭酸条件下での収着挙動の定量的な評価手法を構築する予定である。また、層間幅やウラニル・ネプツニル炭酸錯体の電荷の影響などを確認するためのMD計算を拡充するとともに、その知見を反映した核種拡散モデルの構築と実測データへの適用性評価を実施する予定である。

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機構, 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。平成30年度は、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うとともに、有機物錯体の回収率の高い手法の必要性を明らかにした。また、文献調査を通して、核種-有機物二元系モデルの加成則や各二元系における反応の瞬時・可逆性に係わる現状と課題を整理し、核種-有機物-岩石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、新たにキャピラリー電気泳動（CE）-質量分析（ICPMS）法を整備し、IV価核種と天然有機物との錯生成についてデータを取得するとともに、三元系モデル構築のために、有機物の錯生成・解離反応機構を検討した。

令和2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を行った。また、得られた錯生成データを用いて、NICA-Donnanモデルパラメータを導出し、有機物影響評価モデルを高度化した。さらに、核種-有機物-岩石三元系モデルの開発に向けて、Eu-天然有機物-幌延深部堆積岩を用いたバッチ試験を行い、予察的なデータを取得した。

(2) 実施内容

1) 核種と天然有機物との錯生成モデルの開発

有機物影響を考慮した性能評価の実施に当たっては、多様な地下水条件での核種と腐植物質との錯生成を高い信頼性をもって評価する必要がある。式(3.4-1)で表されるNICA-Donnanモデルは、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た。

$$Q_i = \frac{n_{i1}}{n_{H1}} \cdot Q_{max1,H} \cdot \frac{\left(\tilde{K}_{i1}C_i\right)^{n_{i1}}}{\sum_i \left(\tilde{K}_{i1}C_i\right)^{n_{i1}}} \cdot \frac{\left[\sum_i \left(\tilde{K}_{i1}C_i\right)^{n_{i1}}\right]^{p_1}}{1+\left[\sum_i \left(\tilde{K}_{i1}C_i\right)^{n_{i1}}\right]^{p_1}} + \frac{n_{i2}}{n_{H2}} \cdot Q_{max2,H} \cdot \frac{\left(\tilde{K}_{i2}C_i\right)^{n_{i2}}}{\sum_i \left(\tilde{K}_{i2}C_i\right)^{n_{i2}}} \cdot \frac{\left[\sum_i \left(\tilde{K}_{i2}C_i\right)^{n_{i2}}\right]^{p_2}}{1+\left[\sum_i \left(\tilde{K}_{i2}C_i\right)^{n_{i2}}\right]^{p_2}} \quad (3.4\text{-}1)$$

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 流動場分画法によるZr(IV)と地下水中の溶存腐植物質との錯生成データの取得

平成31年度までに、流動場分画法（flow-field flow fractionation, FlFFF）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、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Zr(IV)との錯生成データをpH5とpH6、HHAに関してはpH8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。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、pH5やpH6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、式(3.4-1)における水酸基を意味するサイト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る。そのため、HFAに関しても水酸基が錯生成に寄与できるようになり、幌延深部地下水条件や処分環境として考慮すべき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。令和2年度は、FFF-ICPMS法を用いてHFAとZr(IV)との錯生成データをpH7、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。

表3.4-1にFFF -ICPMSに供した試料のリストを、図3.4-1に、pH8における（a）HFA/EDTA、（b）Zr^{4+}/EDTA及び（c）Zr^{4+}/HFA/EDTAのUV/Vis (HFA)とICP-MS (Zr)検出から取得したフラクトグラムを、図3.4-2に、pH7における (a) HFA/EDTA、(b) Zr^{4+}/EDTA及び (c) Zr^{4+}/HFA/EDTAのUV/Vis (HFA)とICP-MS (Zr)検出から取得したフラクトグラムを示す。分画ステップ開始直後からHFAの流出が開始していることから、HFA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、加水分解種及び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-HFA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HFAの回収率はpH8において29%程度、pH7にお

いて31%程度であり、先行事業におけるHHAの回収率（pH8: 48%）よりも有意に小さい。これはHFAの方が分子サイズは小さく、FlFFFの底面のメンブレンを通過する画分が大きいことを意味している。なお、この傾向はこれまでの同様の実験で中性以下のpHでも見られているものである。Zr^{4+}/EDTA試料のFFF-ICPMSフラクトグラム図3.4-1(b)を見てみると、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（0.9%のZr^{4+}に相当、表3.4-1）。このことから、Zr^{4+}/EDTA錯体がICP-MS測定開始前の段階で膜から排出され、HFA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。また、EDTA濃度を0.50 μMとしたことで、$Zr(OH)_4(s)$の微粒子と思われるピークは見られず、沈殿形成が抑制されており、FFF-ICPMS法により、pH8におけるHFAに対するZr^{4+}結合量評価が行えるものと考えられる。同様に図3.4-2から、pH7においても同程度のHFAの分画が実現できていることから、pH7におけるZr^{4+}結合量評価も行えると考えられる。また、図3.4-1、図3.4-2(c)から、HFAに結合したZr^{4+}のフラクトグラムのピーク位置、形状はHFA自体のフラクトグラムと同様であり、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、HFAのサイズ（構造）があまり変化しないことがわかった。

表3.4-1　FFF-ICPMS測定に供した試料リスト

No.	HFA 濃度 (mg/L)	Zr^{4+} 濃度 (μM)	pH	HFA 回収率 (%)	Zr^{4+} 回収率 (%)	Zr^{4+}結合量 (mmol/Kg HHA)	Zr^{4+} 結合割合 (%)
シリーズ 10，pH 8.05 ± 0.05							
10-1	20.3	0	8.04	32.8	-	-	-
10-2	0	0.110	8.03	-	0.9	-	-
10-3	20.3	0.110	8.07	26.8	12.4	2.49	46.0
10-4	20.3	0.055	8.10	26.5	9.8	1.00	36.8
10-5	20.3	0.022	7.99	29.4	17.2	0.63	24.8
シリーズ 11，pH 6.97 ± 0.05							
11-1	20.3	0	7.00	30.5	-		
11-2	0	0.110	6.96	-	1.7		
11-3	20.3	0.110	6.93	29.9	7.8	1.45	26.7
11-4	20.3	0.055	7.05	31.1	10.9	0.95	35.2
11-5	20.3	0.022	6.92	31.4	13.9	0.48	44.1

全ての試料は 5 mM $NaClO_4$，および，0.50 μM EDTA を含む.

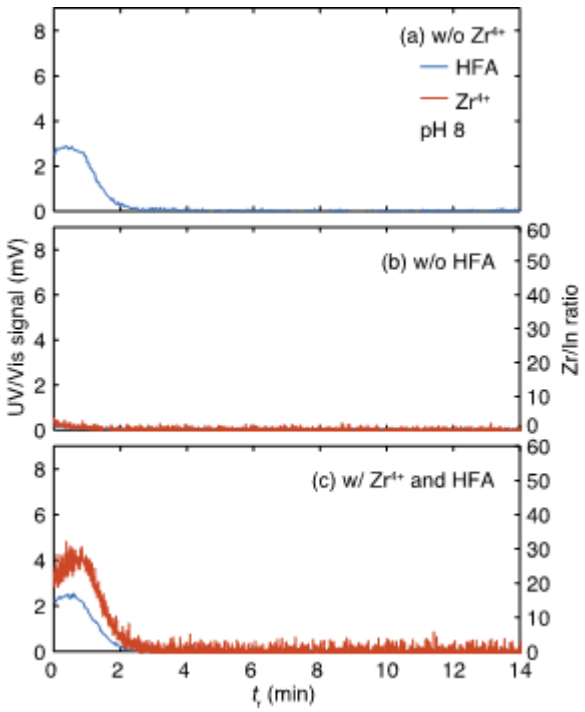


図3.4-1　pH8におけるUV/Vis (HFA)とFFF-ICPMS (Zr)検出から取得したフラクトグラム（a）HFA/EDTA、（b）Zr^{4+}/EDTA、（c）Zr^{4+}/HFA/EDTA共存試料

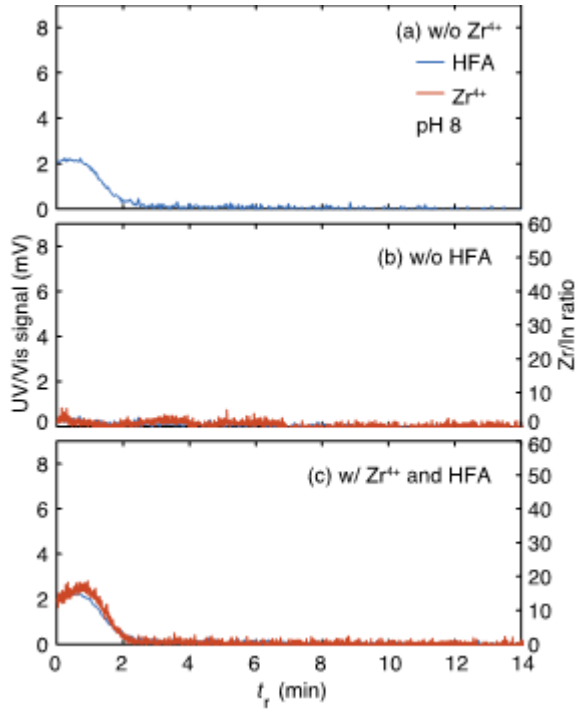


図3.4-2　pH7におけるUV/Vis (HFA)とFFF-ICPMS (Zr)検出から取得したフラクトグラム（a）HFA/EDTA、（b）Zr^{4+}/EDTA、（c）Zr^{4+}/HFA/EDTA共存試料

次に、pH8、7 における HFA への Zr^{4+}の結合量を評価する。HFA への Zr^{4+}の結合量を $B_{Zr\text{-}HFA}$(mol/kg)、全 Zr^{4+}濃度を $C_{T,Zr}$、全 HFA 濃度を $C_{T,HFA}$ とすると、前述したようにフラクトグラムに Zr-EDTA 錯体は現れてこないことから、以下の式が成り立つ。

$$B_{Zr-HFA}C_{T,HFA} = f_{Zr}C_{T,Zr} + (1 - f_{HFA})C_{T,HFA}B_{Zr-HFA} \quad (3.4\text{-}2)$$

ここで、f_{HFA}、f_{Zr}は、それぞれ、HFA、Zr^{4+}の回収率である。式(3.4-2)より、$B_{Zr\text{-}HFA}$は

$$B_{Zr-HFA} = \frac{f_{Zr}}{f_{HFA}}\frac{C_{T,Zr}}{C_{T,HFA}} \quad (3.4\text{-}3)$$

と表される。このようにして、FFF-ICPMS による Zr^{4+}と HFA の回収率から計算された $B_{Zr\text{-}HFA}$ 及び、HFA に結合した Zr^{4+}の割合を表 3.4-1 に示す。pH8、7 ともに Zr^{4+}濃度（$C_{T,Zr}$）の増加に伴い、Zr^{4+}結合量は増加している。一方で、Zr^{4+}結合割合は、pH8 では $C_{T,Zr}$ とともに増加するのに対して、pH7 では減少した。一般的に、化学的に不均質な HFA の場合、結合に寄与する官能基と金属イオンの間の親和性の分布によって、金属イオン濃度の増加に伴って結合割合は増加するものと考えられる。したがって、pH8 で見られた挙動は Zr^{4+}の HFA への結合に加えて、EDTA との錯生成の程度が変化したことによるものと考えられた。pH8、7 における Zr^{4+}の結合量を先行研究で取得した pH5、6 における結合量と比較した結果を図 3.4-3 に示す。この図から、Zr^{4+}結合量が Zr^{4+}濃度に従って増加しており、また、pH 依存性は比較的小さく、pH5 における結合量が若干大きいことがわかる。このような pH に対する依存性は一般的な腐植物質への金属イオンの結合量の pH 依存性と異なっており、pH の低下、つまり H^+の競合の増加とともに Zr^{4+}の結合量が増加することを意味している。本実験では、液相中における Zr^{4+}の加水分解と沈殿を抑制するため、EDTA を共存させているが、EDTA と HFA に対する Zr^{4+}の結合の pH 依存性の相違により、このような見かけ上の pH 依存性が生じたものと考えられる。

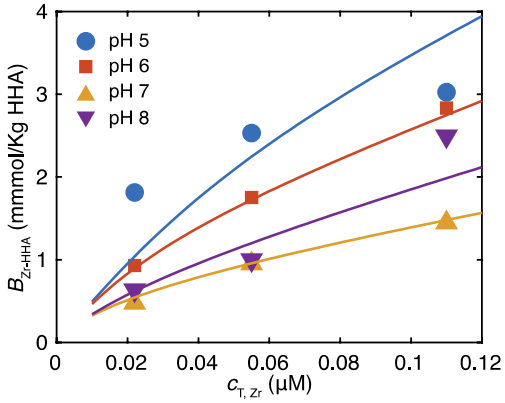


図3.4-3　pH5、6、7、8におけるHFAに対するZr^{4+}結合量のZr^{4+}濃度依存性の測定値及びNICA-Donnanモデルを用いたフィッティング結果（実線）C_{EDTA} = 0.25 (pH5、6)、0.50 (pH7、8) μM

FFF-ICPMS法により取得したZrとHFAとの錯生成データを用いて、Zr^{4+}とHFAとの条件付き平衡定数（K_c）を算出した。K_cはZr^{4+}がHFA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、以下の式(3.4-4)で定義される。

$$Zr^{4+} + HFA^{-} = ZrHFA^{3+} \quad \text{において} \quad K_c = \frac{[ZrHFA^{3+}]}{[Zr^{4+}][HFA^{-}]} \tag{3.4-4}$$

Zr^{4+}、HFA及びEDTAが存在する系において、Zr-EDTA錯体とZr-HFA錯体との交換反応の平衡定数（K_{exch}）は以下の式(3.4-5)で定義される。

$$ZrEDTA^{0} + HFA^{-} = ZrHFA^{3+} + EDTA^{4-} \quad \text{において} \quad K_{exch} = \frac{[ZrHFA^{3+}][EDTA^{4-}]}{[ZrEDTA^{0}][HFA^{-}]} \tag{3.4-5}$$

また、Zr^{4+}とEDTAとの錯生成の平衡定数（$\log K_{ZrEDTA} = 29.25$, Morel et al., 1993）は以下の式(3.4-6)で定義される。

$$Zr^{4+} + EDTA^{4-} = ZrEDTA^{0} \quad \text{において} \quad K_{ZrEDTA} = \frac{[ZrEDTA^{0}]}{[Zr^{4+}][EDTA^{4-}]} \tag{3.4-6}$$

ここで、$[ZrHFA^{3+}]$、$[ZrEDTA^{0}]$はそれぞれZr-HFA錯体（$ZrHFA^{3+}$）、Zr-EDTA錯体（$ZrEDTA^{0}$）の活量であり、式(3.4-2)の$B_{Zr\text{-}HFA}$より

$$[ZrHFA^{3+}] = f_{ZrHFA} B_{Zr-HFA} C_{T,HFA} \tag{3.4-7}$$

$$[ZrEDTA^{0}] = C_{T,Zr} - [ZrHFA^{3+}]/f_{ZrHFA} \tag{3.4-8}$$

となる。ここで、f_{ZrHFA}はZr-HFA錯体の活量係数である。また、$[EDTA^{4-}]$、$[HFA^{-}]$はフリーのEDTA、HFAカルボキシル基サイトの活量であり、それぞれ、

$$[HFA^{-}] = f_{HFA} \frac{C_{T,HFA-carb} - [ZrHFA^{3+}]/f_{ZrHFA}}{1 + K_{H,HFA}[H^{+}]} \tag{3.4-9}$$

$$[EDTA^{4-}] = f_{EDTA} \alpha \left(C_{T,EDTA} - [ZrEDTA^{0}] \right) \tag{3.4-10}$$

$$\alpha = \frac{1}{1 + \sum_{i=1}^{4} [H^{+}]^{i} \beta_{Hi}} \tag{3.4-11}$$

と表される。ここで、$C_{T,\ HFA\text{-}carb}$はカルボキシル基換算したHFA濃度であり、HFAのカルボキシ

ル基サイト密度$Q_{max1,H}$ = 5.64 eq/kg (Saito et al., 2015)から、$C_{T,\,HFA\text{-}carb} = C_{T,\,HFA} \times Q_{max1,H}$となる。また、$K_{H,\,HFA}$は1:1の単純な錯生成を仮定した場合のHFAのプロトン結合反応の平衡定数であり、HFAに対しては、H^+に対するカルボキシル基型サイトの化学的不均質性が小さく、また、同サイトに関するNICA-Donnanモデルのnパラメータ（結合反応の化学量論比に対応）も1に近いことから、$K_{H,\,HFA}$としてNICA-Donnanモデルの平衡定数をそのまま用いることが妥当である。さらに、$[H^+]$はプロトンの活量（$[H^+] = 10^{-pH}$）、$\beta_{H,i}$はi段階目のEDTA^{4-}へのH^+結合反応の平衡定数（Baalousha et al., 2006）、そして、f_{HFA}、f_{EDTA}はそれぞれHFA$^-$、EDTA^{4-}の活量係数である。最終的に、HFAへのZr^{4+}の結合反応の条件付き平衡定数は、Zr^{4+}とEDTAの錯生成の平衡定数を用いて、

$$\log K_c = \log K_{exch} + \log K_{ZrEDTA} \tag{3.4-12}$$

となる。

Zr^{4+}結合量から上記の計算で得られた、pH7、8におけるZr-EDTA錯体とZr-HFA錯体の交換反応の平衡定数（log K_{exch}）及びHFAに対するZr^{4+}結合反応の条件付き平衡定数（log K_c）を表3.4-2にまとめた。比較のために、平成30年度に取得したpH5と6における同値を掲載している。また、本計算に使用したパラメータを表3.4-3に示す。log K_cの値はpHの増加、Zr^{4+}濃度の減少に伴って、おおむね増加している。上述したように、Zr^{4+}の結合量はpHの減少とともにpH5から8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の増加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見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HFAの結合サイトへのH^+の競合とHFA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、一般的に見られる傾向と合致している。一方、先行研究（Saito et al., 2015）より、HFAのカルボキシル基サイトは表層環境由来の腐植物質の場合と異なり化学的に均質であり（$p_1 \fallingdotseq 1$）、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3.4-2　HFAへのZr^{4+}結合反応の条件付き平衡定数

$C_{T,Zr}$ (μM)	[COOH]/[Zr]モル比[i]	$\log K_{exch}$	$\log K_c$
pH 5			
0.110	1026	−5.03	24.2
0.055	2051	−3.89	25.4
pH 6			
0.110	1026	−5.10	24.1
0.055	2051	−4.81	24.4
0.022	5127	−4.26	25.0
pH 7			
0.110	1026	−5.13	24.1
0.055	2051	−4.91	24.3
0.022	5127	−4.72	24.5
pH 8			
0.110	1026	−4.73	24.5
0.055	2051	−4.88	24.4
0.022	5127	−4.47	24.8

i. NICA-Donnan パラメータ（Loeb et al., 1961）より計算される HFA のカルボキシル基型サイトのモル濃度と Zr 濃度の比

表3.4-3　条件付き平衡定数の計算に使用したパラメータ

$K_{H,HFA}$	3.63	Saito et al., 2015
$\log\beta_{H1}$	10.24	Baalousha et al., 2006
$\log\beta_{H2}$	16.25	Baalousha et al., 2006
$\log\beta_{H3}$	19.05	Baalousha et al., 2006
$\log\beta_{H4}$	21.54	Baalousha et al., 2006
$\log K_{ZrEDTA}$	29.25	Wahlund et al., 1987
$\log\beta_{OH1}$ ($ZrOH^{3+}$)	12.2	Litzen et al., 1993
$\log\beta_{OH2}$ ($Zr(OH)_2^{2+}$)	23.0	Litzen et al., 1993
$\log\beta_{OH3}$ ($Zr(OH)_3^{+}$)	32.7	Litzen et al., 1993
$\log\beta_{OH4}$ ($Zr(OH)_4^{0}$)	39.1	Litzen et al., 1993

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31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）を整備し、予察的な錯生成データの取得を行った（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, 2020）。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、HHA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、HHA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。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(3.4-12)を使用した。

本事業で使用したCE-ICPMSシステムの概略を図3.4-4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、測定ごと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。本試験に供した試料と測定条件のリストを表3.4-4に示す。

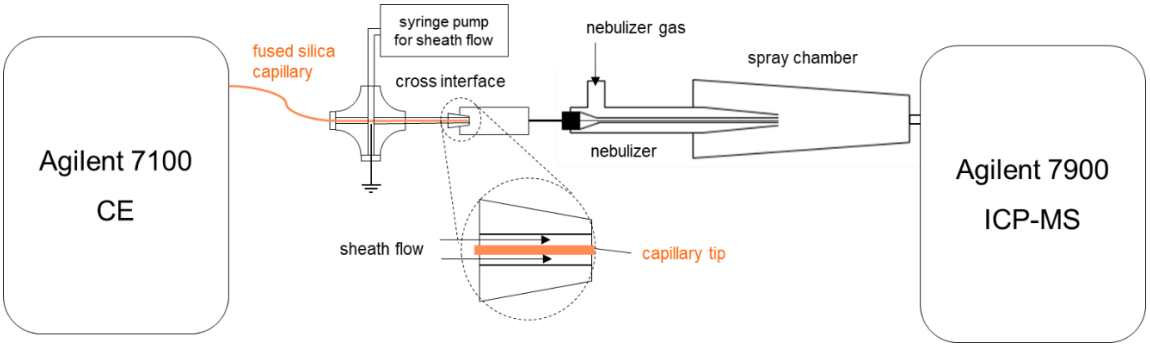


図3.4-4　CE-ICPMSシステム概略図

表3.4-4　CE-ICPMSの測定に供した試料のリストと測定条件

No.	HHA 濃度 (mg/L)	Zr^{4+} 濃度 (µM)	pH	EDTA 濃度 (µM)	印加電圧 (kV)	キャピラリー負圧 (mbar)	キャピラリー長 (cm)
シリーズ1, pH 5							
1-1	10		5.01				
1-2	20	0.110	5.03	0.3	15	0	65
1-3	30		5.06				
シリーズ2, pH 6							
2-1	10		5.96				
2-2	20	0.110	5.92	0.3	15	0	65
2-3	30		5.90				
シリーズ3, pH 7							
3-1	30	0.055	6.93	0.5	25	-30	80

図 3.4-5 に pH5、6、7 における HHA の有無による Zr^{4+}フラクトグラムの変化を示す。図 3.4-5 において、フラクトグラムのはじめに現れるシャープなピークは、Zr^{4+}の検量線におけるピーク位置と一致することから、Zr-EDTA 錯体のものと判断できる。また、HHA は広範な分子量分布を持つために Zr-HHA 錯体のサイズが一様ではないこと、熱力学計算から本試験系における Zr の加水分解種の存在量が極めて少ないことから、それ以降のピークは Zr-HHA 錯体のピークであり、HHA の存在によって、Zr-EDTA 錯体から Zr-HHA 錯体への交換反応が起こっていることが確認できる。また、図 3.4-5 では pH5 と比較して pH 6 のほうがキャピラリーからの Zr 錯体の排出が遅くなり、pH7 では測定条件を変更しなければ Zr-EDTA 錯体と Zr-HHA 錯体を分離することができなかった。この pH 依存性はキャピラリー内部での電荷のバランスが変化することによるものと考えられる。本事業ではフューズドシリカキャピラリーを使用しており、電気泳動時、キャピラリー壁面は負に帯電している。ここに、一定のイオン強度を持つ緩衝液が充填されると、系内の陽イオン（Na^+）がさやのように壁面を覆い、試料と壁面の相互作用が小さくなるが、系の pH が高くなると、このさやの厚さが薄くなり、分離の効率が低下するものと考えられる。このフラクトグラムのピーク面積から、Zr^{4+}の EDTA、HHA に対する結合量を導出し、式(3.4-12)から見かけの錯生成定数を導出した結果を、平成 31 年度に FFF-ICPMS によって導出した結果とともに表 3.4-5 にまとめた。CE-ICPMS によって導出した見かけの錯生成定数は、FFF-ICPMS によって導出した結果と同じく、pH の増加、Zr^{4+}の官能基に対する割合の減少とともに増加するという、金属イオンの腐植物質への結合反応において一般的に見られる傾向と合致しており、CE-ICPMS システムが腐植物質の錯生成定数の導出に有用であることが示された。また、CE-ICPMS と FFF-ICPMS の結果を比較すると値は概ね一致しているものの、pH 6 においては CE-ICPMS から導出したものの方が大きい傾向がある。一方で、CE-ICPMS においてはサンプルの導入量を補正するために Cs を添加する内標準法を採用したが、HHA を添加した系におけるフラクトグラムの積分値が、検量線における Zr の積分値と一致しないという課題が明らかになった。今後、図 3.4-4 の CE-ICPMS システムを試料の定量注入が可能なように改良し、より定量性を向上させた系で Zr^{4+}と HHA の錯生成データを拡充していく必要がある。

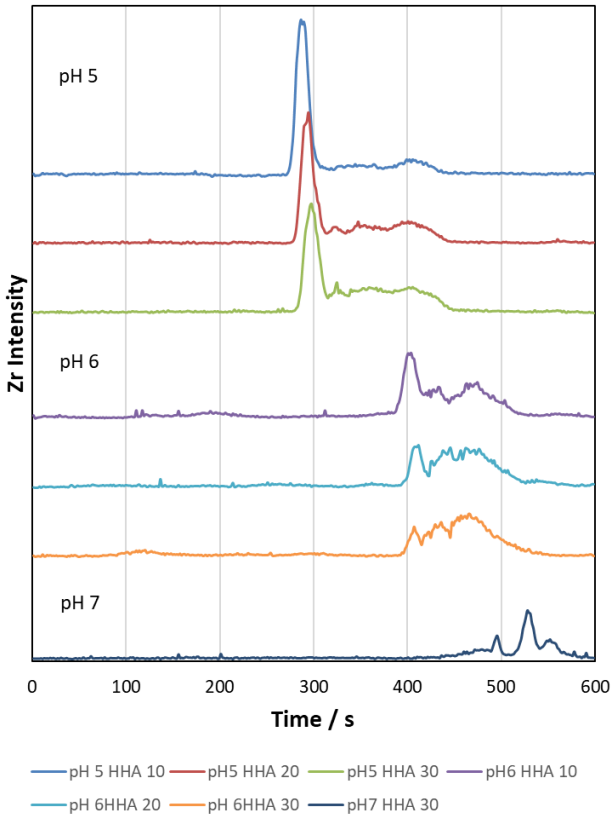


図3.4-5　CE-ICPMSから取得したZr^{4+}のフラクトグラム

表3.4-5　HHAへのZr^{4+}結合反応の条件付き平衡定数

	$C_{T,\,Zr}$ (μM)	[COOH]/[Zr]モル比	$\log K_{exch}$	$\log K_c$
FFF-ICPMS ※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, 2020	pH 5 (C_T.EDTA = 0.25 μM)			
	0.110	796	-8.89	20.4
	0.055	1593	-8.79	20.5
	0.022	3982	-8.41	20.8
	pH 6 (C_T.EDTA = 0.25 μM)			
	0.110	796	-7.3	21.9
	0.055	1593	-7.2	22.1
	0.022	3982	-6.2	23.0
	pH 8 (C_T.EDTA = 0.50 μM)			
	0.110	1026	-4.57	24.7
	0.055	2051	-4.81	24.4
	0.022	3982	-4.26	25.0
CE-ICPMS	pH 5 (C_T.EDTA = 0.30 μM)			
		325	-8.97	20.27
	0.110	651	-8.83	20.42
		976	-8.79	20.46
	pH 6 (C_T.EDTA = 0.30 μM)			
		325	-6.56	22.69
	0.110	651	-6.35	22.90
		976	-6.52	22.72
	pH 7 (C_T.EDTA = 0.50 μM)			
	0.055	1952	-5.20	24.04

③ Zr(IV)と地下水中の溶存腐植物質との錯生成データへのNICA-Donnanモデルの当てはめ

FFF-ICPMS法を用いて得られたHFA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3.4-3に、最適化されたNICA-Donnanモデルのパラメータを表3.4-6に示す。このフィッティングでは、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（$\log\beta_{OH1} - \log\beta_{OH4}$）も考慮した。図3.4-2よりモデルがHFA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おり、より幅広いpH範囲で適用可能なNICA-Donnanモデルのパラメータセットを得ることが出来た。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HFA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HFA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0.22、水酸基型サイトで0.59と、前者ではCu^{2+}と比べて小さい値、後者では大きい値となった。先行研究（Saito et al., 2015）におけるH^+及びCu^{2+}の結合等温線の評価から、HFAのカルボキシル基サイトは化学的に均質で、Cu^{2+}の結合が1:1の反応であると結論付けられている。表3.4-7の結果は、多価の金属イオンの結合におけるHFA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。また、FFFにおけるHFAの回収率はpH7、8でも30%程度であり、式(3.4-2)、式(3.4-3)に基づく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HFA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評価するために、三次元蛍光分析（3D-EEM）法等の測定手法から導出したZr^{4+}とHFA、HHAの見かけの錯生成定数やNICA-Donnanモデルパラメータとの比較が重要になると思われる。また、図3.4-3フィッティングでは、Zr^{4+}がHFAカルボキシル基サイト、及び水酸基型サイトへZr^{4+}として結合することを仮定している。上述したように、Zr^{4+}は低pHにおいても容易に加水分解する。負に帯電したHFA近傍でのOH^-の活量はバルク溶液中に比べて小さく、これらのpHにおけるDonnan電位（pH5で−85.4 mV、pH 6で−108.3 mV、pH8で−139.6 mV）より、近傍のpHは1から2桁単位程小さいと計算される。つまり、HFAのサイト周辺においてZr^{4+}の加水分解は抑制されるが、その点を考慮しても、Zr^{4+}が低次の加水種としてHFAに結合している可能性は否定できない。今後、加水分解生成物としてのZr^{4+}と腐植物質への結合の可能性を検討し、必要に応じてNICA-Donnanモデルに反映していく必要がある。また、平成31年度に取得した、HHAに対するZr^{4+}の結合データから決定したNICA-Donnanモデルのパラメータを表3.4-7に示す。HFAの結果と比較すると、低親和性のカルボキシル基型サイトに対する生成定数$\log K_1$が小さいものの、その他のパラメータに対しては同程度の値となった。HHA及びHFAに対するH^+、Cu^{2+}の結合のパラメータはほぼ同等であることを考えると、Zr^{4+}に対して見られたカルボキシル基型に対する生成定数の違いの原因は不明である。しかし、HHAと比較するとHFAのフィッティング結果ではモデルの適合性が悪い（R^2 = 0.925: HFA、0.985: HHA）事から、結果の再現性も含めて今後さらなる検討が必要である。

表3.4-6　HFA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)	0.87			
	Site 1 (low-affinity)		Site 2 (high-affinity)	
$Q_{max,\ H}$ (i)	5.64		4.09	
p (i)	1		0.270	
Ion specific parameters				
	$\log \tilde{K}_1$	n_1	$\log \tilde{K}_2$	n_2
H^{+} (i)	3.63	1	10.48	1
Cu^{2+} (i)	1.16	1	15.05	0.29
Zr^{4+} (ii, iii)	9.37 (5)	0.22 (0.2)	22.16 (1)	0.59 (0.3)

i. Loeb et al., 1961
ii. This study. $R^2 = 0.9250$.
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。

表3.4-7　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 (low-affinity)		Site 2 (high-affinity)	
$Q_{max,\ H}$ i	4.38		4.44	
p i	1		0.355	
Ion specific parameters				
	$log\tilde{K}_1$	n_1	$log\tilde{K}_2$	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)	0.570.2)

i. Loeb et al., 1961
ii. 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、2020
$R^2 = 0.9854$.
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

CE-ICPMS法を用いて得られたHHAへのZr^{4+}の結合量データに対して、NICA-Donnanモデルのフィッティングを試みたが、計算が収束せず、モデルパラメータを導出することは出来なかった。この要因として、上述したZr濃度の定量性の問題に加えて、FFF-ICPMSの測定条件よりも[COOH]/[Zr]モル比の幅が小さいことが挙げられる。また、フラクトグラムをピークの重ね合わ

せと解釈して解析を行うことも必要になると思われる。今後、NICA-Donnanモデルのパラメータを整備するために、CE-ICPMSシステムを改良して定量性の向上を図るとともに、より幅広な測定条件で錯生成データを取得する。あわせて、HHAに加えて分子量既知の有機酸を用いたデータの検証を進めていく必要がある。

(3) 核種-有機物-岩石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。定量評価には、核種-天然有機物-岩石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ていない。そこで、核種-天然有機物-岩石三元系における核種の収着モデルの開発に向けて、核種-岩石、核種-天然有機物、天然有機物-岩石の二元系モデルの加成則アプローチが検討されている（Joseph et al., 2011; 2013; Seida et al., 2010; 日本原子力研究開発機構, 2013）。このアプローチは、独立した複数の二元系モデルを足し合わせることで、岩石への核種の収着量を算出する手法であり、既存の二元系モデルやパラメータを用いることによって簡易に多元系モデルに展開できる可能性がある。このアプローチは、それぞれの二元系相互作用が他の二元系相互作用に影響しないことと、それぞれの反応が可逆的であることを前提に成立する。例えば、上記三種類の二元系から成ると仮定した三元系の加成則アプローチが成立するためには、天然有機物の存在による岩石への核種の収脱着性の変化、岩石の存在による天然有機物と核種との錯生成能の変化及び核種の存在による岩石への天然有機物の収脱着性の変化が生じないこと、そして天然有機物や岩石に不可逆に吸着する核種の割合が十分小さいことが前提となる。加成則アプローチによって三元系モデルを構築するためには、以上の前提が成り立つ条件や、三元系モデルの構築に必要となる二元系の反応を明らかにする必要がある。地層処分が行われる実際の深部地下環境においては、岩石に含まれる多様な鉱物、天然に存在する多様な有機物及び地下水に含まれる多様な成分が核種の収着に影響すると考えられる。したがって、加成則アプローチを用いた地下環境における三元系収着のモデル化においては、深部地下環境により近い条件における三元系収着試験から有機物の影響を検討することが必要となる。これまでに日本原子力研究開発機構は、幌延URLの堆積岩及び有機物を用いたEuの三元系収着試験を行って加成則アプローチによるモデル化を検討しており（日本原子力研究開発機構, 2013）、三元系収着モデル構築における加成則アプローチの有用性や適用可能性の高さが示されている。堆積岩を母岩とする地下水には比較的高濃度の炭酸イオンが溶け込んでおり、幌延URLにおける地下水中の炭酸イオン濃度は10^{-2} mol dm^{-3}のオーダーとなる（宮川ら, 2020）。炭酸イオンも核種と錯形成して収着挙動に影響することから（Marques Fernandes et al., 2008; 2016）、収着に対する有機物の影響は、炭酸イオンとの競合や相互作用によって干渉される可能性がある。しかし、三元系収着の加成則アプローチによるモデル化を検討した試験（日本原子力研究開発機構, 2013）に用いられた水相条件は、幌延深部地下水とは炭酸イオン成分が大きく異なっており、実際の地下水に近い条件におけるモデルの適用性を評価する必要がある。本事業では、核種の収着挙動に大きな影響を及ぼす炭酸イオンに着目し、幌延深部地下水と同程度の炭酸イオンが共存した系での、核種の収着に対する有機物影響評価についての予察的なデータの取得を行った。有機物影響に干渉する可能性のある成分が複数含まれている実地下水を用いた核種の収着は、かなり複雑な反応となることが予想されるため、幌延深部地下水の炭酸濃度を模擬した水相を使用した。岩石には、幌延URLの深度350 m地点で採取された堆積岩（稚内層）を用い、有機物には、同地点の有機物を用いる前に、物理的及び化学的性質がよく調べられている、国際腐植物質学会（IHSS）のLeonardite標準フミン酸（LHA）を用いた。また、核種には、高レベル放射性廃棄物に含まれるアクチノイドのアナログ元素としてEu(III)を用いた。

収着試験は、表3.4-8に示した条件に従いバッチ法により大気下で実施した。堆積岩としては、粉砕して75 μm以下に分画化したものを用いた。炭酸濃度は$NaHCO_3$及びNa_2CO_3を加えて調整し、これらの添加比率を変えることでpH調整を行った。固相分離は孔径0.45 μmのメンブレンフィルターを用いたろ過により行った。収着平衡後のEu濃度はICP-MSを用いて測定し、収着分配係数（K_d）を計算した。

表3.4-8　収着試験の条件

Eu初期濃度/ mol dm^{-3}	6.5×10^{-7}
LHA濃度/ mg dm^{-3}	10, 50
NaCl濃度/ mol dm^{-3}	4.0×10^{-1}
全炭酸濃度/ mol dm^{-3}	2.0×10^{-2}
pH	8–11
固液比/ g dm^{-3}	1.0
遠沈管材質	テフロン

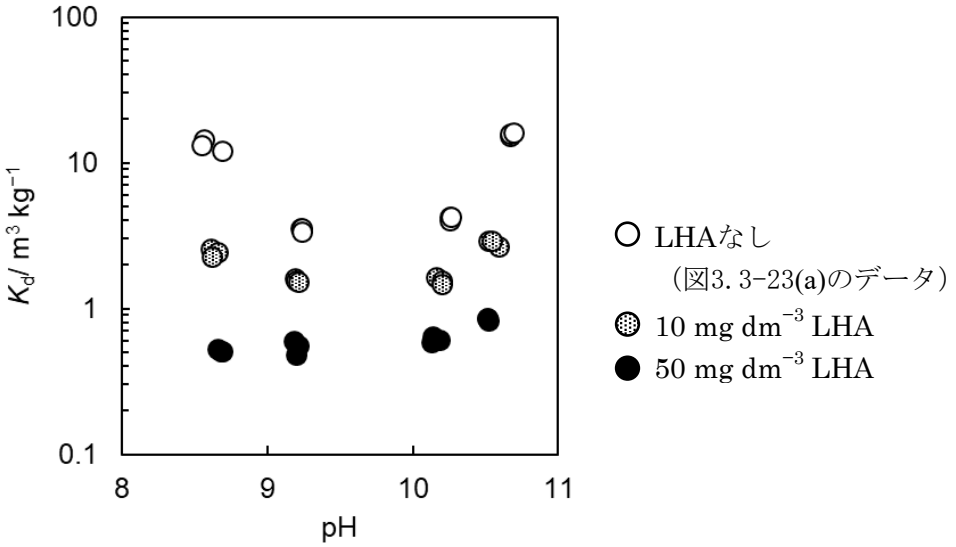


図3.4-6　Euの収着のpH依存性

図3.4-6にEuの堆積岩に対する収着分配係数を示す。LHAなしの系のデータには、同一条件の試験である図3.3-23(a)のデータを用いた。LHAなしの系において、K_dの値はpHの上昇に伴いおおよそpH 9までは減少し、その後pH10以上で増加し始めている。炭酸共存下においては、Eu-炭酸錯体も収着化学種の一つである可能性が報告されている（Marques Fernandes et al., 2008; 2016）。したがって、このようなK_dの挙動は、pH8-9ではpHの上昇に伴って収着可能なEu-炭酸錯体の化学種が変化することで減少し、pH10以上では収着化学種となるEuの加水分解種が増加するためであると考えられた。炭酸に加えてLHAが含まれている系では、今回試験を実施した全pH範囲において、K_dの値はLHAなしの系よりも低くなっており、本試験のように高濃度の炭酸が含まれる場合にもLHAによる岩石への核種の収着低減効果が見られた。これは、岩石に収着しないEu-LHA錯体が形成されることによって、収着化学種であるEu-炭酸錯体やEuの加水分解種が減少したことに起因すると考えられた。しかしながら、炭酸共存下におけるEu-HA錯体を含むEuのスペシエーションは、pH10以上ではEu-HA錯体がほとんど形成されない計算になっており

（Tan et al., 2008; Singh et al., 2009）、pH10以上の条件でのLHAによる収着低減効果の理由を説明できない。HAの結合は、低pH条件ではカルボキシル基の寄与が支配的である一方で、pH7-8以上の高pH条件では、HAの結合に水酸基が寄与するようになり、その寄与はpHの上昇とともに大きくなる。カルボキシル基と水酸基の両方の寄与を考慮したHAの錯生成定数が整備されてきているものの、既往研究におけるHA錯体を含む核種のスペシエーションはカルボキシル基のみを考慮して行われたものが多いことから、既往研究におけるpH7以上のスペシエーションは、pHが上昇するにつれて実際の系との乖離が大きくなっていると考えられる。したがって、HAによる収着低減効果は、核種とHAとの錯形成によると考えられることから、深部地下水条件のようにpH7以上となる系の三元系収着のモデル化においては、Eu-HA錯体を含む核種のスペシエーションに用いるHAの結合モデルや化学種の検討など、Eu濃度の計算方法に最適化が必要となると考えられる。

本試験では、実際の地下環境条件に近い高炭酸濃度においても、岩石への核種の収着に対するLHAの影響は小さくなく、核種-有機物-岩石三元系収着モデルの開発の必要性が示唆された。さらに、Eu-HA-岩石三元系収着において、高pH条件では既存のEuのスペシエーションとHAによる岩石へのEuの収着低減効果との間に整合性が見られなかったことから、加成則アプローチによる収着のモデル化の検討と共に、水相中の化学種の組成や収着反応の機構の詳細についても検討を進めることが望まれる。今後は、まず取得した三元系収着データへの加成則モデルの適用性の評価に着手する予定である。

(4) これまでの成果と今後の課題

令和2年度は、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法により、Zr^{4+}と幌延深部地下水フミン酸の錯生成データを取得してNICA-Donnanモデルパラメータの導出を試みた。また、炭酸イオン濃度に着目して、Eu(III)-LHA-幌延深部堆積岩を用いたバッチ試験を行い、三元系モデルを構築するための予察的なデータを取得した。

これまでの3か年で、IV価核種-有機物二元系モデルの高度化に向けたデータの取得とパラメータの整備、信頼性向上のための課題抽出を行うとともに、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-岩石三元系での核種収着モデルの開発については、文献調査から課題を抽出し、三元系モデルを構築するためのデータの取得を進めた。

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、特に中性付近のpH領域での錯生成データをCE-ICPMS法から拡充していく必要がある。さらに、FFF-ICPMS法の妥当性を多角的に検証していくために、Eu(III)と幌延深部地下水フミン酸との錯生成データを取得し、3D-EEM法などの測定手法から導出した錯生成データとの比較を行うことが必要である。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も継続して進めていく。核種-有機物-岩石三元系の核種収着モデルの開発に向けては、バッチ試験によるデータの拡充と、加成則アプローチの適用性確認を行い、現実的に適用可能な三元系モデルの構築を進めていく。

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及び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; 2015）、微生物影響評価の不確実性を低減させるためには、地下環境を対象とした影響評価手法の開発と様々な環境から取得した知見の拡充が求められている。特に微生物は、「生きて活動している」というその性質上、室内試験における評価だけでなく、天然の地下環境を対象とした評価手法の確立やデータの取得が必要である。処分場閉鎖後の酸化還元状態の回復促進については、スウェーデンのThe Äspö Hard Rock Laboratory (Äspö HRL)、日本では幌延深地層研究センター地下施設（以下、幌延URL）、瑞浪超深地層研究所地下施設を対象とした原位置試験及び室内試験が行われており、酸化還元状態が擾乱を受けた場合でも、岩石-地下水-微生物の相互作用によって速やかに酸素が消費され（Kotelnikova & Pedersen, 1999）、還元環境が回復することが示されている（Amano et al., 2012; 林田ほか, 2018; 日本原子力研究開発機構, 2010）。処分システムにおける金属容器の腐食への微生物影響については、多くの原位置試験が実施されており（Masurat et al., 2010; Stroes-Gascoyne et al., 2010）、現在も日本を含む世界各国で影響評価が進められている。核種の移行への微生物影響については、カナダ原子力公社の地下研究施設やÄspö HRLにおいて花崗岩環境下のバイオフィルムを対象とした原位置試験等が報告されているが（Vandergraaf et al., 1997; Anderson and Pedersen, 2003; Anderson et al., 2006）、天然環境における核種と微生物の相互作用を理解する上で十分な知見があるとは言い難い。

そこで本事業では、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3.4-7）。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）及び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（バイオコロイド）か付着性（バイオフィルム）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31年度までに、幌延の地下研究施設を活用し、水質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、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について考察した。令和2年度は、堆積岩地下環境における微生物種の空間分布及び地下施設建設過程における種組成の変化に関するモニタリング結果を取りまとめ、バイオフィルム形成領域の広がりやゲノム解析手法を用いた主要な代謝機構の空間分布について解析評価を行った。さらに、平成31年度に引き続き、水質だけでなく微生物特性が異なる地下水試料を対象として、微生物を含むコロイドへの元素収着に関するデータを継続して取得し、収着分配係数に関わるデータの拡充

と収着メカニズムについて考察した。

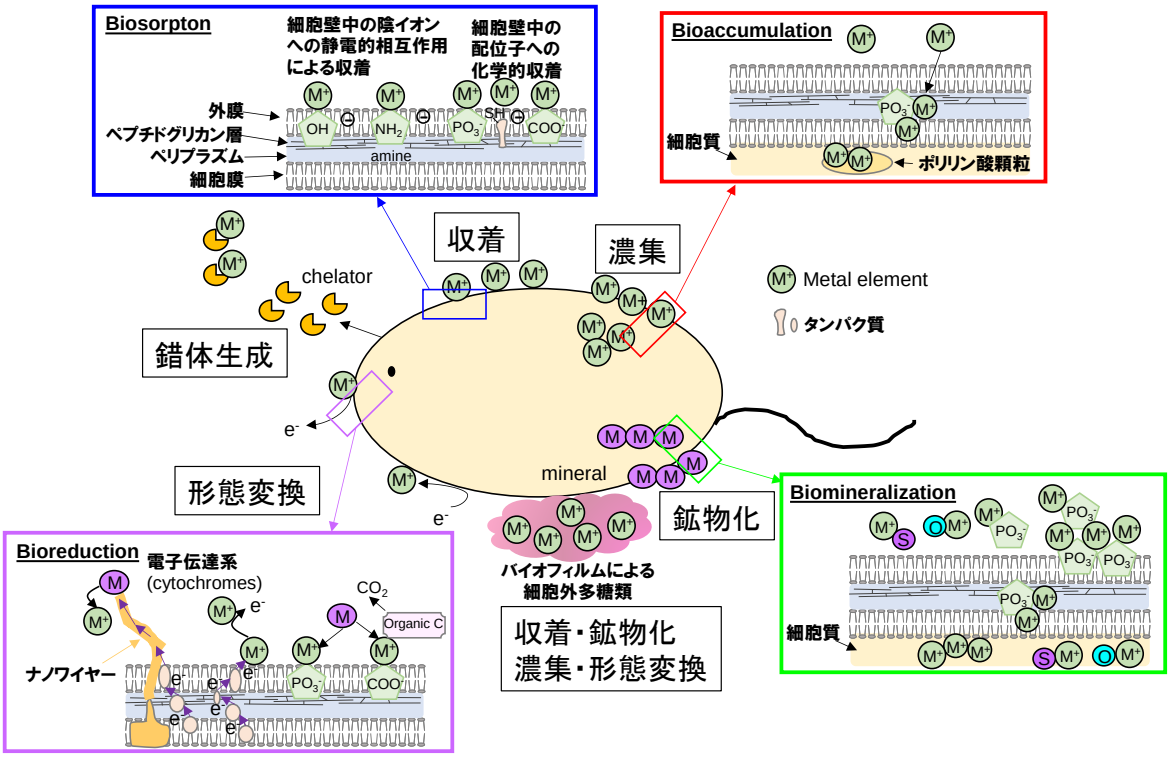


図3.4-7　微生物と元素との相互作用の概念図

(2) 実施内容

平成31年度までに実施した、微生物と核種との相互作用反応に関する現象モデル開発と重要課題の整理を踏まえて、地下環境におけるバイオフィルムを含む微生物の生息形態に関する調査手法の確立と、バイオフィルム及びバイオコロイドへの収着・濃集・取込等の核種と微生物の相互作用現象を把握するために、以下の試験を継続して実施した。

1) 地下施設建設後の地下環境における微生物種の空間分布と経時変化に関する評価

大規模な地下施設の建設により、施設周辺の地下環境は岩盤の力学・水理・地球化学的な擾乱を受ける。周辺の水理・地球化学状態の変化に伴い、微生物特性も影響を受けると考えられる。地下施設建設に伴う地下環境の擾乱の程度を把握するために、建設過程における周辺の地下水の水圧・水質モニタリングが実施されている（例えば、福田ほか, 2020; 宮川ほか, 2020）。微生物は、酸化還元状態の変化に鋭敏に反応し、地下施設建設過程において坑道周辺で活性化して地下水の水質形成に影響を及ぼす可能性がある。また、微生物種組成や代謝機能の変化は、長期的に核種移行挙動に影響を及ぼす可能性があるため、微生物特性の変化についてもデータを取得してきた。平成31年度までに、幌延URL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（図3.4-8）。地下水の採取深度は次に示す。08-E140-C01孔（以下、08E140C01）区間1: 209-69-218.17 m (mbgl; m below ground level; 中間深度; 214 m)、区間3: 175.13-194.2 m（中間深度; 185 m）、区間5: 157.55-167.86 m（中間深度; 163 m）、07-V140-M03孔（以下、07V140M03）：140 m、09-V250-M02孔（以下、09V250M02）：250 m、13-350-C01孔（以下、13350C01）：350 m。令

和2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。

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。

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1000 bp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（Wrighton et al., 2012）、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。また、微生物種の空間的分布を評価するために、16S rRNA遺伝子に加えて、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。

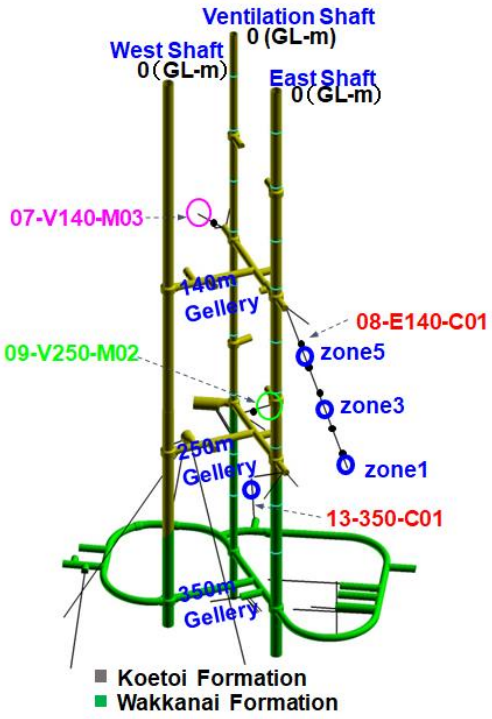


図 3.4-8　幌延URLにおける
ボーリング孔配置図

その結果、各ボーリング孔における微生物群集構成種は、経時的に変化をしており、特に08E140C01孔の区間5（深度163 m）及び区間1（深度214 m）、09V250M02孔（深度250 m）では、微生物群集種が5年間で著しく変化していることが示された。一方で、深度140 m、185 m及び350 mにおいては、その構成種の割合には変化が認められるものの、構成種はほとんど変化していないことが示された（図3.4-9）。水質については、Na、Clなどの一般成分はボーリング孔掘削後からほとんど変化が見られないことから、変化する要因として、微生物の代謝に関わる酸化

還元状態、pHなどが関係していると推測された。微生物分析のための試料採取時に、採取直後に分析した鉄濃度のモニタリング結果から、採水区間によって鉄濃度の安定性に差があることが認められており（図3.4-10）、鉄濃度とそこに存在する微生物の鉄利用能が関係している可能性も考えられる。そこで、微生物種組成の変化と環境要因の関係を考察するために、正準対応分析（Canonical Correspondence Analysis: CCA）を、フリーの統計解析ソフトRを用いて行った。CCAは、生態系内の生物種組成と環境要因との関係をわかりやすく解析することを目的に開発された、多変量解析手法である。幌延URLにおけるモニタリング結果に加えて、環境要因をより明確にするために他の地下環境微生物の調査結果も追加して解析を行った。解析に加えた調査場所は、岐阜県瑞浪市の瑞浪超深地層研究所地下施設において採取した地下水（渡辺ほか, 2018）、米国ユタ州のクリスタルガイザーの深部地下水（Probst et al., 2018）及び米国コロラド州のRifleの浅部地下水（Anantharaman, et al., 2016）である。解析には、微生物群集組成の他、塩化物イオン、鉄イオン、硫化物イオン、硫酸イオン、重炭酸イオン及びpHを環境パラメータとして用いた。CCAによる多変量解析の結果、各解析試料はサイトごとにグルーピングできることから、それぞれのサイト・採取場所に特有の微生物構成になっていることがわかる（図3.4-11）。また、幌延URLの微生物群集は、①坑道壁面近傍（20 mまで）、②坑道壁面から離れた領域（-25 mまで）及び③坑道壁面からより離れた領域の三つにグルーピングされた。また、①は重炭酸イオン濃度、③は鉄濃度が化学的因子として関与している可能性が示唆された。一方で、メタゲノム解析によって得られたゲノム情報をもとに推定した代謝反応結果からは、各地下水試料中の微生物群種組成に大きな違いがあるにも関わらず、代表的な代謝反応は非常に類似しており、幌延の地下環境においては炭素固定、硫酸還元、水素生成・酸化及び発酵反応が主に生じていることが示された（図3.4-12）。この知見は、微生物種組成が空間的に異なり、不均一な分布を示している場合でも、地層や地球化学特性が比較的均一である場合には、代謝反応の観点からは均一とみなした評価を行うことができる可能性を示しており、地層処分における微生物影響を評価する上で非常に有用な知見であると考える。

微生物種の経時変化に関する解析結果から、バイオフィルムの形成領域の空間的な広がりについて推察した。幌延地下環境において優占するCandidatus Altiarchaeales（以下、SM1）は、バイオフィルムを形成する種として知られているため、SM1の検出領域ではバイオフィルムが形成されているものと推測される。SM1が優占して検出されているのは、07-V140-M03孔、09-V250-M02孔及び13-350-C01孔で、採水区間が坑道壁面近傍であり、壁面からの距離が約20 mの領域であった（図3.4-9(b)、(c)、(d)）。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3.4-9）。一方で、令和2年度に実施した、微生物の空間分布に関するより詳細な解析結果から、坑道壁面から20 m以上離れた領域においても、SM1の割合が徐々に増加していることが明らかになった。この現象は、深度140 mから掘削された掘削長100 mのボーリング孔（08E140C01孔）で確認されており、坑道に比較的近い採水区間（坑道壁面からの水平距離: 16-25 m）において顕著に生じていることが明らかになった。水質モニタリングの結果からは、Na^+などの一般成分や酸化還元電位などに変化が認められないことから、地下施設建設に伴う坑道周辺の脱ガスによるpHや炭酸分圧の変化などが要因として考えられる。これまでの顕微鏡観察では、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は、観察例が非常に限られていた。この要因として、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、タンパク質及び脂質

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; 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。したがって、SM1が広域に渡って検出されてきた要因として、坑道周辺の水圧低下に伴う脱ガスにより炭酸分圧が変化し、SM1の増殖に適した炭酸ガス濃度の環境が広がっているものと考えられる。今後も地下施設建設・施設維持の期間の長さに応じて、周辺水圧が低下し脱ガスが生じることで、バイオフィルム形成領域が拡大すると予測される。

微生物は酸化還元状態に鋭敏に反応することから、微生物代謝に伴う酸化還元反応により、その領域に存在する微生物種は変化するが、結果的に微生物代謝反応により酸化還元状態が還元的に保持されていると推察される。ニアフィールド領域や坑道周辺の岩盤は、長期的に天然バリア機能を保持することが期待されているが、地下施設建設の影響により、核種移行の場がどの程度変化するのか、あるいは元の状態に回復するのかについて、長期的な視点も含めて評価する必要がある。また、これまでに観測されている現象が幌延の地下環境に特有のものであるのか、あるいは一般的な事象であるのかについても評価を進めるべきと考える。バイオフィルム形成領域や微生物代謝の変化について、今後もデータを取得し、地下施設建設の影響を評価していく必要がある。

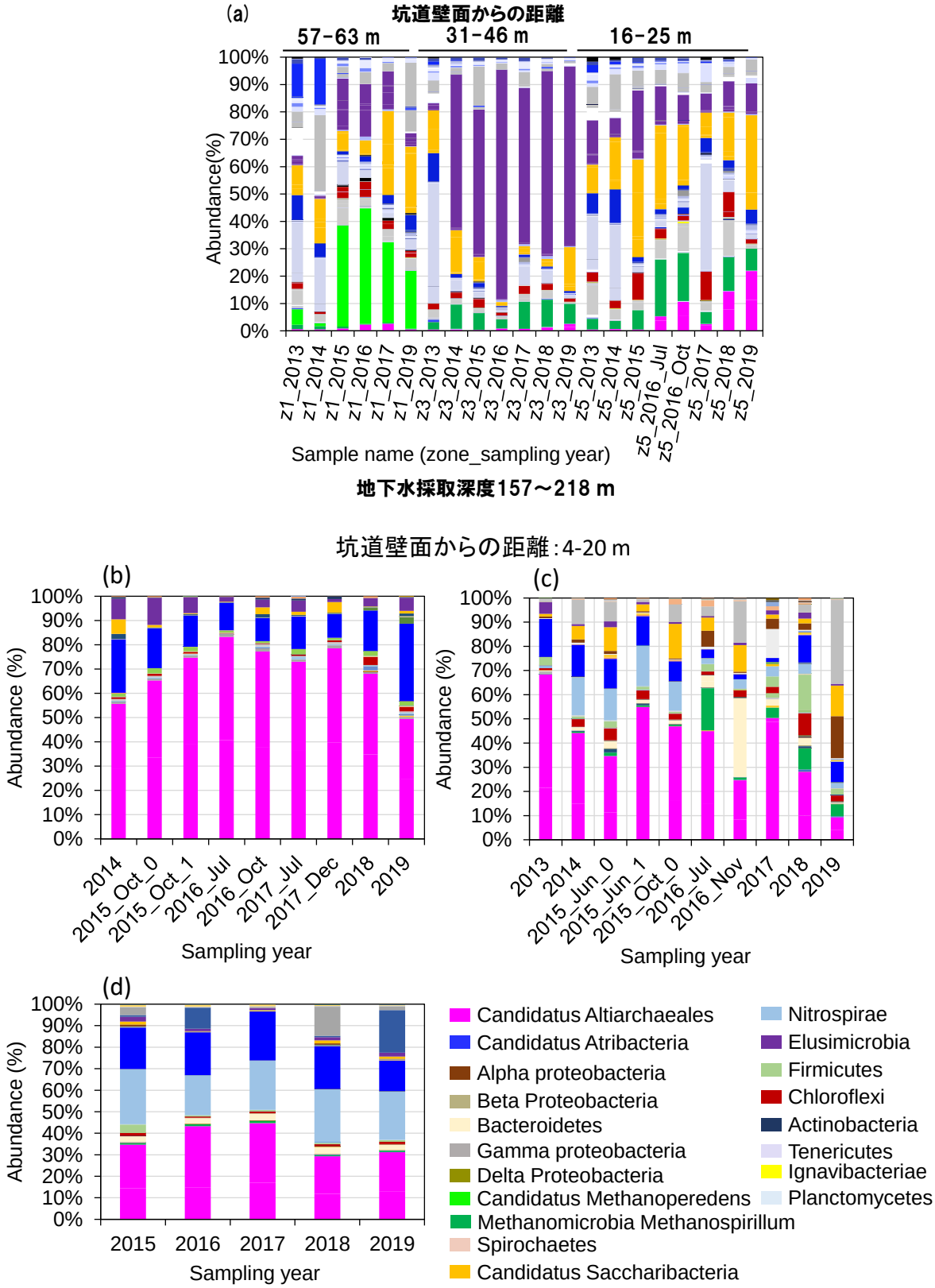


図3.4-9　地下水中の微生物群集組成の経時変化　(a) 08E140C01孔、(b) 07V140M03孔、(c) 09V250M02孔、(d) 13350C01孔

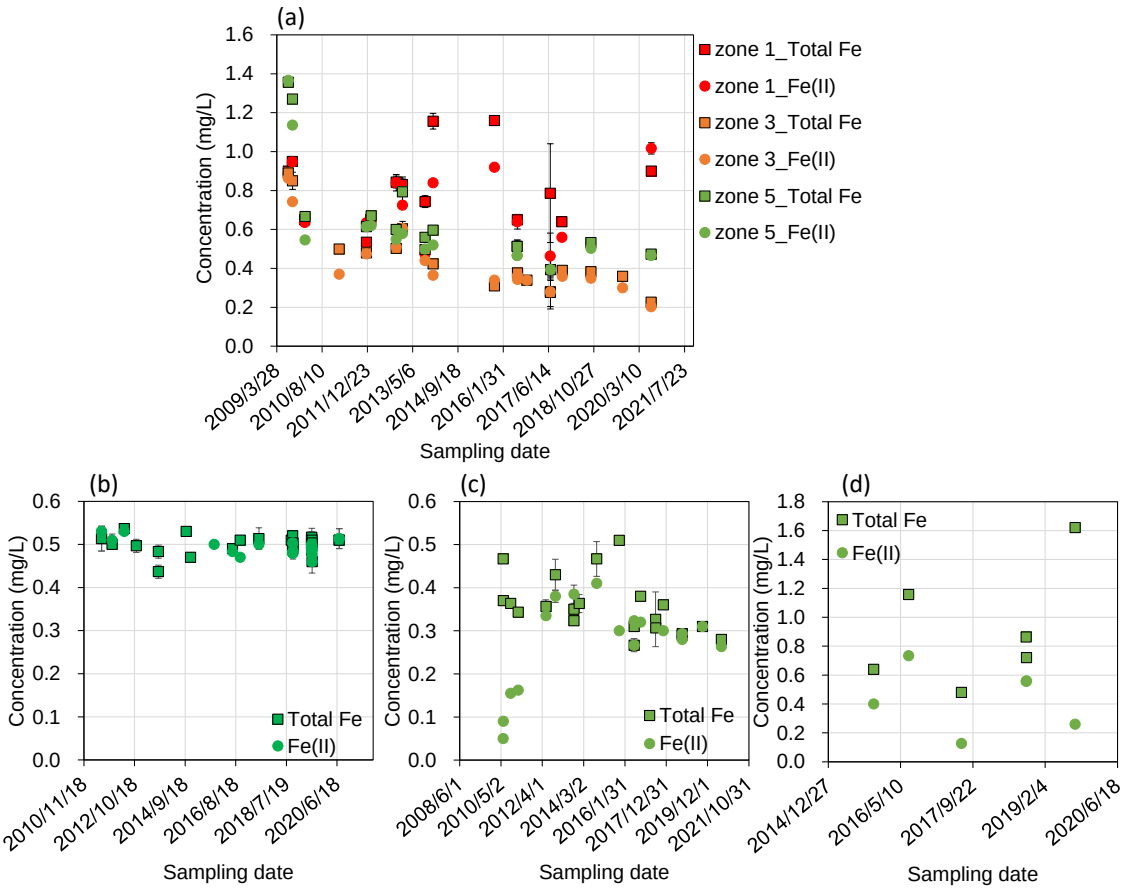


図3.4-10　地下水中の全鉄及び2価鉄イオン濃度の経時変化　(a) 08E140C01孔、(b) 07V140M03孔、(c) 09V250M02孔、(d) 13-350C01孔

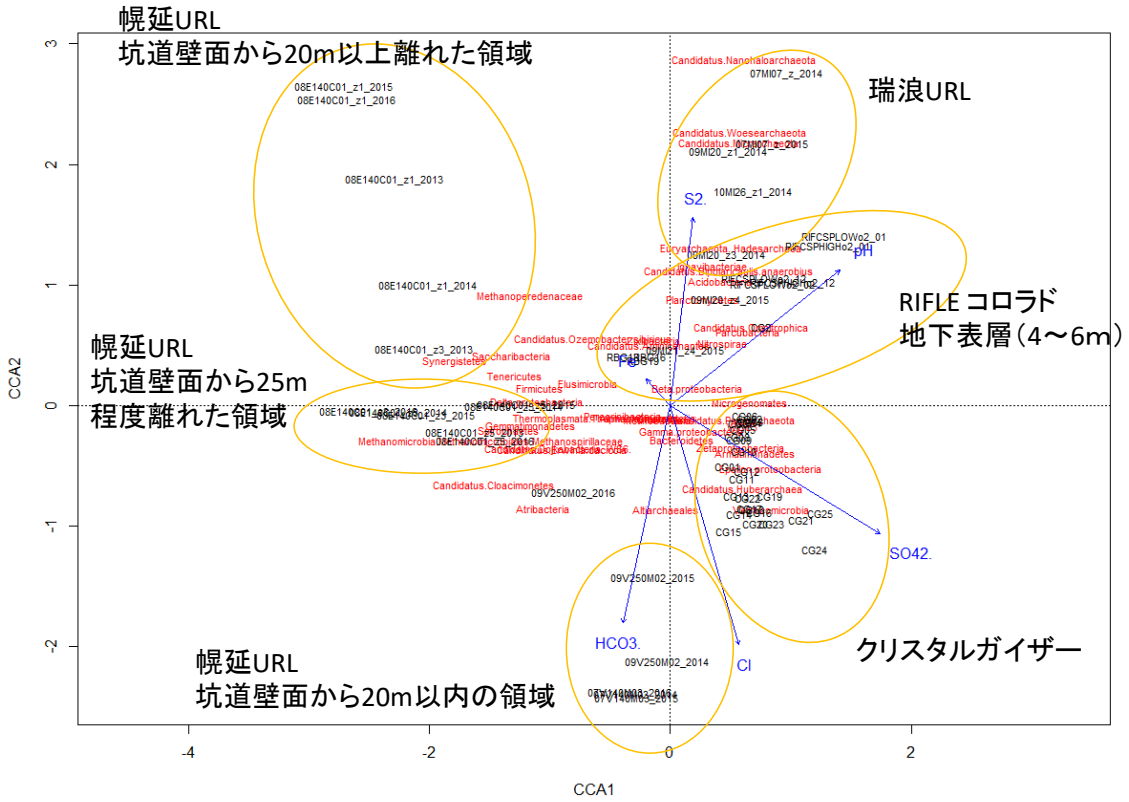


図3.4-11　地下水の化学的因子と16S rRNA遺伝子に基づく微生物群集組成解析結果によるCCA結果

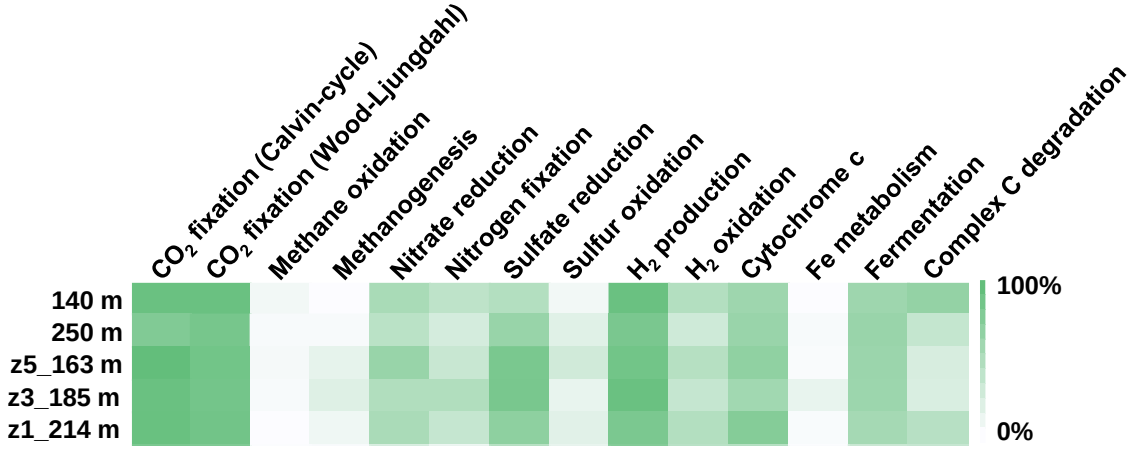


図3.4-12　微生物群集組成の異なる地下水における微生物代謝機能の推定

2) 地下水中の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懸念される。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及び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）。しかしながら、地下水中のコロイドの密度やコロイドへの元素の収着分配係数に関する情報は、試料採取時の陸上由来物質の汚染や調査技術的な問題から、ほとんど知見がなく、核種移行解析に資するためのデータが不足していた。そこで、平成31年度までに、幌延URLの深度140 m及び250 mのボーリング孔地下水（図 3.4-8）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・バイオコロイドの密度及び全コロイド・バイオコロイドへの元素の分配係数についてデータを取得した（日本原子力研究開発機構, 2017; 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; 2020）。これらの地下水試料は、地下施設の坑道壁面近傍（坑道壁面から4 m-20 mの領域）に分布しており、地下施設建設の影響を受けた地下水・微生物特性に変化していると考えられる。地下施設建設周辺の地下水中の水質及び微生物群集組成のモニタリング結果から、坑道壁面近傍では、バイオフィルム形成種として知られる古細菌SM1が優占することが明らかになっているが、坑道から比較的離れた領域から採取した地下水中では、*Deltaproteobacteria*など硫黄代謝に関連する可能性のある微生物種や嫌気的メタン酸化を行う菌が優占することが明らかになっている。既存の知見から、これらの微生物は、金属の代謝に関連する可能性がある。そこで令和2年度は、地下施設建設による地球化学状態の擾乱影響が比較的小さく、これまでと微生物特性の異なる地下水試料を対象として（図3.4-13、表3.4-9）、全コロイド（無機・有機・バイオコロイド）への核種の収着特性データを取得した。

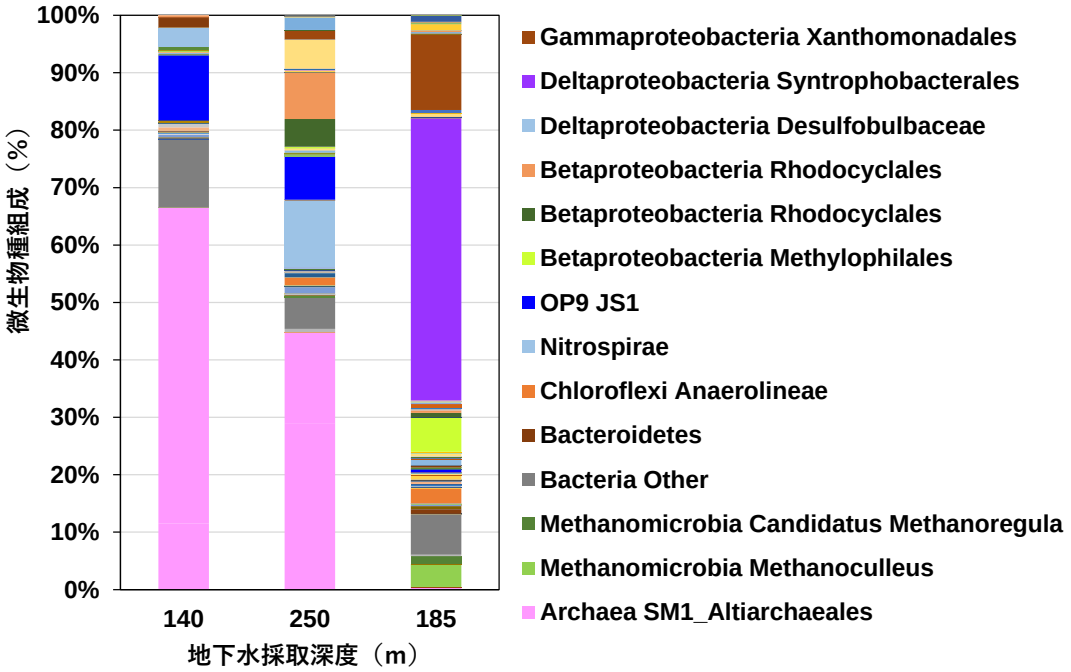


図3.4-13　コロイド収着試験に用いた地下水中の微生物群集組成

表3.4-9　地下水中のコロイド濃度（平均値）とバイオコロイド濃度

ボーリング孔	採取深度 (GL-m)	コロイド重量：0.2 μmサイズ (mg/L)	微生物コロイド密度 (cells/L)	微生物コロイド密度 (mg/L)	全コロイド重量に対する微生物コロイドの割合（%）	無機コロイド密度（全コロイド重量－微生物コロイド）(mg/L)
07-V140-M03	140	0.608 (±0.05)	1.67×10^8 (±0.1)	0.05	8.2	0.558
08E140C01_z3	185	0.547 (±0.35)	0.88×10^8 (±0.003)	0.03	5.5	0.517
09-V250-M02	250	0.091 (±0.06)	0.69×10^8 (±0.07)	0.02	22.0	0.071
13-350-C01	350	1.660 (±1.02)	0.29×10^8 (±0.15)	0.01	0.6	1.156

幌延URLの140 m坑道から掘削されたボーリング孔（08-E140-C01孔）の採水区間3（深度175.13-194.2 m; 以下、中間深度185 mを記載）にて、耐圧ステンレス容器に地下水を採取した。耐圧ステンレス容器は、使用前にあらかじめ0.1 M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。試験では、無機・有機コロイドとバイオコロイドを区別せず、pH還元条件及び水質条件等の化学条件をできるだけ原位置に近い条件下で実施した。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及び亜セレン酸ナトリウムを初期濃度約10 ppbになるように地下水中に添加し、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、希土類元素及び亜セレン酸ナトリウム添加直後から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及びセレン濃度を分析し、地下水中の全コロイド、すなわち無機・有機・バイオコロイドへの希土類元素の分配係数を算出した（図3.4-14）。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185 mの地下水については0.547 mg/L、深度250 mの地下水については0.091 mg/Lを用いた。なおセレンのコロイドへの分配係数については、セレン濃度の分析値の信頼性を再検証する必要性があることから、令和2年度は算出していない。取得した分配係数結果から、どの地下水試料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分配係数は低下した（図3.4-14）。収着試験開始7日後の値を見ると、深度185 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3.53 - 5.39の範囲（Ceを除く）で値が得られた。これまでの結果から、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）、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の範囲で得られており、深度140 m及び250 mと微生物種組成の特性が異なる深度185 mの地下水中のコロイドについても、希土類元素の収着分配挙動は比較的同様の傾向を示していることが示された。また、時間の経過とともに分配係数がやや高くなる傾向を示した。この傾向は、深度185 mの地下水試料において他の地下水試料より顕著に認められ、特にEu、Gd、Tb、Dyの中希土類元素でより高くなる傾向が確認された。これまでの結果から、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たことから、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。しかしながら、バイオコロイドへの収着分配傾向の経時的な変化は顕著には認められなかった。今回、微生物特性の異なる185 mの地下水試料において、収着分配係数の経時的変化がこれまでと異なる傾向を示した要因として、微生物が関与している可能性がある。本収着試験において、溶液中の微生物群集組成の経時変化に関する評価を行うために、16 S rRNA遺伝子解析を実施し、データを取得した。その結果、希土類元素及び亜セレン酸ナトリウムを添加した試験系では、元素無添加の系では検出されなかった*Betaproteobacteria*綱に属する*Aquabacteria*に系統学的に近縁な種が有意に検出された（相同性: 98.9%、図3.4-15）。この種は重金属耐性微生物研究の過程で単離された菌であることから、本試験において増殖が認められた種についても、希土類元素あるいはセレンなどの元素を利用する代謝機構を有する可能性がある。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、ヒドロキシル基及び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3.4-7; 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185 m及び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。一方で、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、これらの地下水中において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がある。本試験で算出された全コロイド、無機コロイド及び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（Tanaka et al., 2010）と概ね近似している（図3.4-14 (a)）。単離株を用いた試験（Tanaka et al., 2010）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（図3.4-14 (a), Tanaka et al., 2010）。図3.4-14(a)に参照データとして追記したTanaka et al. (2010)のデータは、pH 6.91の条件下で100 ppbの濃度で希土類元素を添加して取得されたものであり、本試験で取得されたデータは地下水のpH7.5の条件下で10 ppbを添加濃度としている。また、試験に用いた溶液条件も異なることから、各試験データの厳密な比較を行うことは難しいが、少なくとも希土類元素のコロイドへの収着分配パターンや分配係数の傾向性については参照できると考える。Takahashi et al. (2010)では、微生物の細胞表面に希土類元素が高濃度に濃縮する現象を報告しており、そのメカニズムがバクテリアの細胞壁に含まれるリン酸基との結合によるものであることを明らかにしている。したがって、Tanaka et al. (2010)で報告されている収着分配係数が、地下水中のコロイドを対象とした本試験結果と比較してやや高い値を示す理由として、地下水中のバイオコロイドの割合が0.6 - 22%であるのに対して、Tanaka et al. (2010)の収着試験はバイオコロイドのみを対象としたものであるため、微生物表面に存在するリン酸基に希土類元素が濃集したことで、収着分配係数が高い値を示していることが要因として考えられる。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。したがって、様々な地下水化学状態において、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。

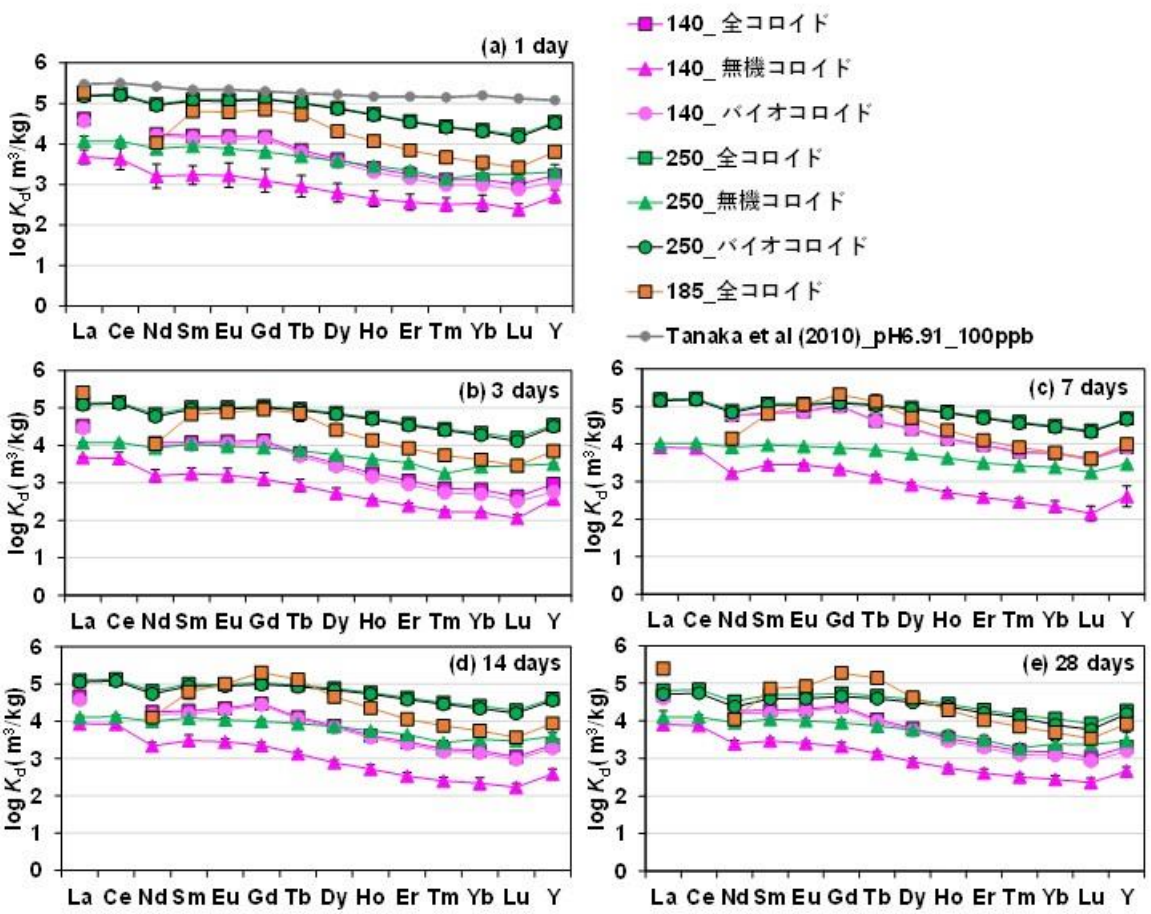


図3.4-14　深度140 m (07V140M03孔)、185 m (08E140C01孔区間3)、250 m (09V250M02孔)に分布する地下水中のコロイドへの希土類元素の分配係数の経時変化。全コロイド; 地下水中に存在する全コロイド（無機/有機コロイド）。無機コロイド; γ線滅菌処理を施して微生物を死活させた地下水中のコロイド（無機及び生きたバイオコロイドを除く有機コロイド）。バイオコロイド; 全コロイドの分配係数から無機コロイドの分配係数を減算したもの。(a) 収着試験1日後、(b) 収着試験3日後、(c) 収着試験7日後、(d) 収着試験14日後、(e) 収着試験28日後。

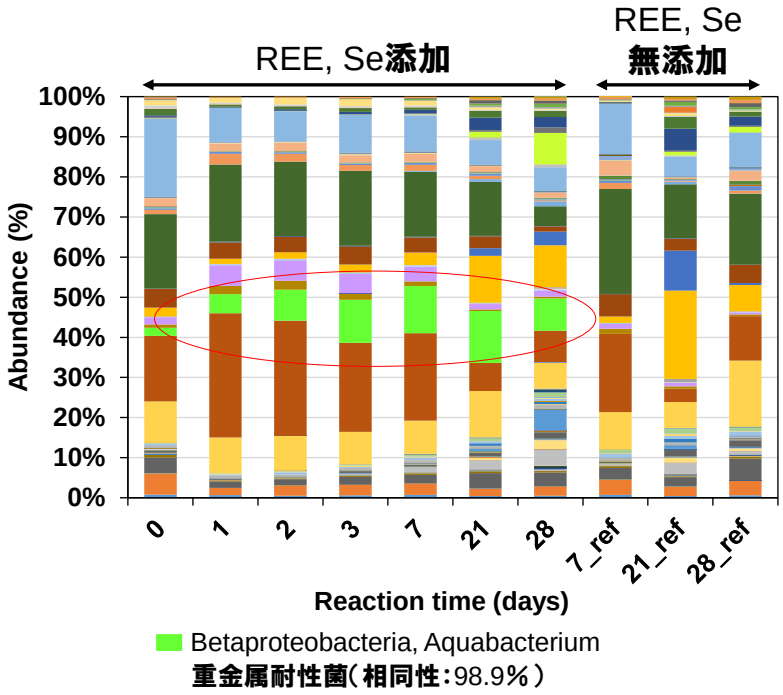


図3.4-15　深度185 m地下水を用いた収着試験過程における微生物群集組成の経時変化

3) 地下環境の堆積岩内部における微生物分布特性とその元素との相互作用に関する評価

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、無機イオン及び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）、地下の岩石内部における微生物の分布特性とその存在形態、それらの元素との相互作用に関する評価は、微生物が核種移行に及ぼす影響を評価する上で重要な知見となる。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におい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; 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; 2020）。幌延URLの地下坑道壁面近傍に分布する地下水中で、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SM1に近縁な種であり、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。また、微生物のメタゲノム解析により取得されたゲノム情報を用いて、バイオフィルム形成に関連する遺伝子の空間分布に関する調査を行ったところ、地下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が示唆された。しかしながら、これまでのバイオフィルム調査やメタゲノム解析、顕微鏡観察及び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）で形成されているが、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。しかしながら、堆積岩内部における微生物分布やバイオフィルム形成についての知見は間接的な分析結果から推察されるものであり、技術的な難易度や汚染の観点から、岩石内部の微生物分布について直接的に可視化した証拠はこれまでに得られていなかった。

近年、海洋地殻の玄武岩から微生物細胞の観察に成功した研究成果が公表され（Sueoka et al., 2019; Suzuki et al., 2020）、岩石内部の微生物観察・分析手法が開発されたことを受けて、令和2年度は、堆積岩内部における微生物の分布特性を明らかにするために、幌延URLの周辺で実施されたボーリング調査によって採取された岩石試料を対象として分析評価を行った。分析には、冷凍にて保存されていたHDB-11号孔の岩石コア試料のうち、深度63.1 m - 63.15 mの声問層の試料と、深度942.1 m - 942.2 mの稚内層の試料を用いた。観察及び分析に用いる薄片試料作製にあたっては、海洋地殻の玄武岩から微生物細胞の検出に成功した手法を用いた（Sueoka et al., 2019; Suzuki et al., 2020）。作製した薄片試料をDNA染色剤であるSYBR-Green Iで染色し、蛍光顕微鏡にて観察した結果、声問層試料では細胞が間隙を充填する様子が観察された（図3.4-16）。一方で、稚内層試料では、亀裂内部に高密度に微生物細胞が分布する様子が観察された。同深度の岩石試料を別途薄片加工した試料を対象として、レーザーアブレーションICP-MSを用いた微量元素マッピングに関する分析を予察的に実施した。Si、Al、Mgの元素マッピング結果から、稚内層試料の亀裂周辺では粘土鉱物が分布していることが推察された。蛍光顕微鏡観察像では、亀裂内部に微生物細胞がほぼ普遍的に検出されていたことから、粘土鉱物に微生物が密着して分布している可能性が示唆された。粘土鉱物が存在するところに微生物が後から付着したのか、あるいは微生物が粘土鉱物を形成したのかについては、現時点では明らかではないが、微生物がスメクタイトを形成する現象が報告されていることから（Hama et al., 2008）、後者の可能性も考えられる。亀裂を含まない領域では、声問層試料及び稚内層試料の元素分布は類似していたが、稚内層試料の亀裂部分周辺においては、粘土鉱物とCs、Uなどの元素の濃集部が一致する結果も予察的に取得できた。今後、分析対象とする深度や分析箇所を追加し、本結果の妥当性や代表性について確認を進め、天然地下環境における岩石中の微生物と元素の相互作用メカニズムや長期的な物質移行挙動を評価するためのモデル開発をおこなう予定である。

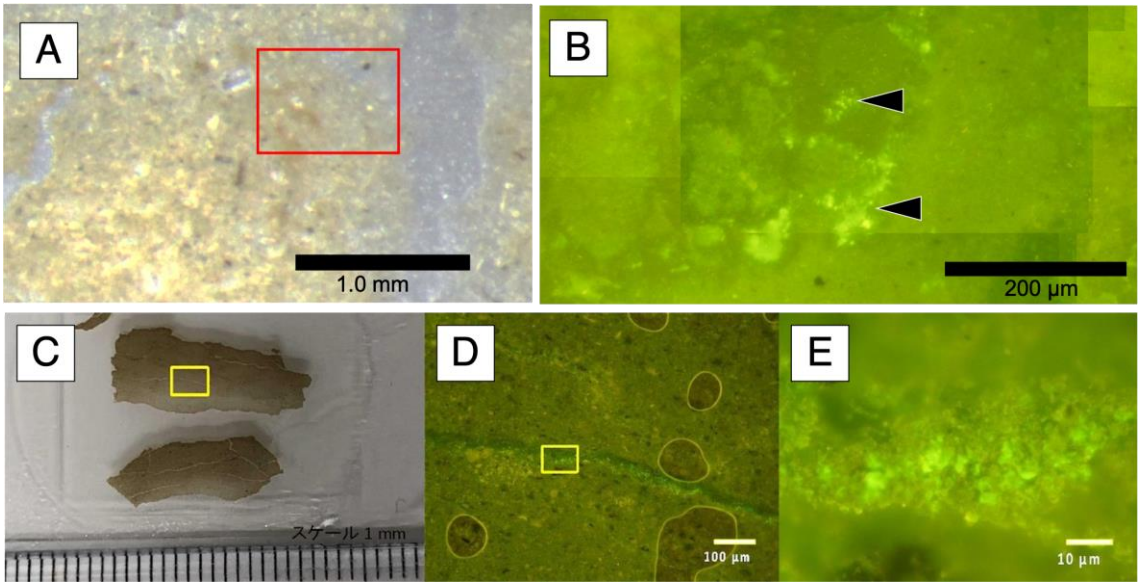


図3.4-16　声問層と稚内層岩石の薄片試料の観察結果。(A) 深度63.1-63.15 mの声問層岩石薄片試料の実体顕微鏡写真。(B) Aの赤枠中において蛍光顕微鏡により観察された微生物細胞。(C) 深度942.1-942.2 mの稚内層岩石薄片試料の実体顕微鏡写真。(D) Cの黄色枠中において蛍光顕微鏡により観察された亀裂内の微生物。(E) Dの黄色枠内の拡大図

(3) これまでの成果と今後の課題

令和2年度は、堆積岩地下環境における微生物種の空間分布及び地下施設建設過程における種組成の変化に関するモニタリング結果を取りまとめ、バイオフィルム形成領域の広がりやゲノム解析手法を用いた主要な代謝機構の空間分布について解析評価を行った。さらに、平成31年度に引き続き、水質だけでなく微生物特性が異なる地下水試料を対象として、微生物を含むコロイドへの元素収着に関するデータを継続して取得し、収着分配係数に関わるデータの拡充と収着メカニズムについて考察した。

これまでの3か年で、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、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。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

Amano, Y., Iwatsuki, T. and Naganuma, T. Characteristics of naturally grown biofilms in deep groundwaters and their heavy metal sorption property in a deep subsurface environment, Geomicrobiology Journal, Vol. 34, pp. 769-783, 2017.

Amano, Y., Sasao, E., Niizato, T. and Iwatsuki, T., Redox buffer capacity in water-rock-microbe interaction systems in subsurface environment, Geomicrobiology Journal, Vol. 29, pp. 628-639, 2012.

Anantharaman, K., Brown, C.T., Hug, L.A., Sharon, I., Castelle, C.J., Probst, A.J., Thomas, B.C., Singh, A., Wilkins, M.J., Karaoz, U., Brodie, E.L., Williams, K.H., Hubbard, S.S. and Banfield, J.F., Thousands of microbial genomes shed light on interconnected biogeochemical processes in an aquifer system. Nature Communications, Vol. 7, 13219, 2016.

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.

Appelo, C. A. J., Cation and proton exchange, pH variations, and carbonate reactions in a freshening aquifer. Water Resources Research, Vol. 30 (10), pp. 2793-2805, 1994.

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.

Baalousha, M., Kammer, F.V.D., Motelica-Heino, M., Baborowski, M., Hofmeister, C. and Le Coustumer, P., Size-based speciation of natural colloidal particles by flow field flow fractionation, inductively coupled plasma-mass spectroscopy, and transmission electron microscopy/X-ray energy dispersive spectroscopy: Colloids-trace element interaction, Environmental Science & Technology, Vol. 40(7), pp. 2156-2162, 2006.

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 ferrihydrite-hematite recrystallization, Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol. 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., A mechanistic description of Ni and Zn Sorption on Na-montmorillonite Part II: Modelling. Journal of Contaminant Hydrology, Vol. 27, pp. 223-248, 1997.

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, 2009.

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.

De Canniére, P., Maes, A., Williams, S., Bruggeman, C., Beauwens, T., Maes, N. and Cowper, M., Behaviour of selenium in Boom Clay, External Report SCK・CEN-ER-120 10/PDC/P-9, 2010.

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.

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. 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.

Frenkel, D. and Smit, B., Understanding molecular simulation from algorithms to applications (2nd ed.), Academic Press, San Diego, 2002.
福田健二, 渡辺勇輔, 村上裕晃, 天野由記, 青才大介, 原直弘, 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－（2019年度）, JAEA-Data/Code 2020-012, 2020.
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－, NUMO-TR-20-03,2021.
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.
Hama, K., Bateman, K., Coombs, P., Hards, V.L., Milodowski, A.E., West, J.M., Wetton, P.D., Yoshida, H. and Aoki, K., Influence of bacteria on rock-water interaction and clay mineral formation in subsurface granitic environments, Clay Minerals, Vol. 36, pp. 599-613, 2001.
林田一貴, 加藤利弘, 久保田満, 村上裕晃, 天野由記, 岩月輝希, 坑道閉鎖試験に基づく坑道掘削・閉鎖時の化学環境変化プロセスの考察, 地球化学, Vol. 52, pp. 55-71, 2018.
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.
平賀正人, 石井英一, 幌延深地層研究計画(第1段階)において採取されたボーリングコアの鉱物組成・全岩化学組成および地表ガスの化学組成, JAEA-Data/Code 2007-022.
平尾一之, 河村雄行, パソコンによる材料設計, 裳華房, 東京, 1994.
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.
Horn, H.W., Swope, W.C. and Pitera, J.W., Characterization of the TIP4P-Ew water model: Vapor pressure and boiling Point, Journal of Chemistry and Physics, Vol. 123, 194504, 2005.
Ibaraki, M. and Sudicky, E.A., Colloid-facilitated contaminant transport in discretely fractured porous media: 1. Numerical formulation and sensitivity analysis, Water Resources Research, Vol. 31(12), pp. 2945-2960, 1995.
Iida, Y., Barr, L., Yamaguchi, T. and Hemmi, K., Sorption behavior of thorium onto montmorillonite and illite, 原子力バックエンド研究, Vol. 23(1), pp. 3-8, 2016.
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.

岩月輝希, 石井英一, 新里忠史, 北海道幌延地域における深部地球化学環境の長期変遷シナリオの構築, 地学雑誌, Vol. 118(4), pp. 700-716, 2009.

Jägevall, S., Rabe, L. and Pedersen, K., Abundance and diversity of biofilms in natural and artificial aquifers of the Äspö Hard Rock Laboratory, Sweden, Microbial Ecology, Vol. 61, pp. 410-422, 2011.

Joseph, C., Schmeide, K., Sachs, S., Brendler, V., Geipel, G. and Bernhard, G., Sorption of uranium(VI) onto Opalinus clay in the absence and presence of humic acid in Opalinus clay pore water, Chemical Geology, Vol. 284, pp. 240-250, 2011.

Joseph, C., Stockmann, M., Schmeide, K., Sachs, S., Brendler, V. and Bernhard, G., Sorption of U(IV) onto Opalinus clay: Effects of pH and humic acid, Applied Geochemistry, Vol. 36, pp. 104-117, 2013.

核燃料サイクル開発機構, わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性, 地層処分研究開発第2次取りまとめ, 分冊3, JNC TN1400 99-023, 1999.

Kato, H., Muroi, M., Yamada, N., Ishida, H. and Sato, H., Estimation of Effective Diffusivity in Compacted Bentonite, Materials Research Society Symposium Proceedings, Vol. 353, pp. 277-284, 1995.

Kato, H., Nakazawa, T., Ueta, S. Muroi, M., Yasutomi, I. and Fujihara, H., Effective Diffusivities of Iodine, Chlorine, and Carbon in Bentonite Buffer Material, Materials Research Society Symposium Proceedings, Vol. 556, pp.687-694, 1999a.

Kato, H., Nakazawa, T., Ueta, S. and Yato, T., Measurements of effective diffusivities of tritiated water in sand-mixed bentonite, Proceedings of the 7th International Conference on Radioactive Waste Management and Environmental Remediation, Nagoya, Japan, 1999b.

Karasaki, K., Ito, K., Wu, Y., Shimo, M., Sawada, A., Maekawa, K. and Hatanaka, K., Uncertainty reduction of hydrologic models using data from surface-based investigation, Journal of Hydrology, Vol. 403, pp. 49-57, 2011.

Kéri, A., Dähn, R., Marques Fernandes, M., Scheinost, A.C., Krack, M. and Churakov, S.V., Iron Adsorption on Clays Inferred from Atomistic Simulations and X-Ray Absorption Spectroscopy, Environ. Sci. Technol., Vol. 54, pp. 11886-11893, 2020.

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, Vol. 397, pp. 56-59, 1999.

Kim, H.K., Choi, S., Jung, E.C., Cho, H.R., Yun, J.I. and Cha, W., TRLFS study of hydrolyzed E(III) species, Journal of Luminescence, Vol. 202, pp. 469-474, 2018.

Kimura, T. and Choppin, G.R., Luminescence study on determination of the hydration number of Cm, Journal of Alloys Compounds, Vol. 214, pp. 313-317, 1994.

Kinniburch, D.G., Milne, C.J., Pinheiro, J.P., Filius, J., Koopal, L.K. and van Riemsdijk, W.H., Metal ion binding by humic acid: Application of the NICA-Donnan model, Environmental Science & Technology, Vol. 30, pp. 1687-1698, 1996.

Kitamura, A., Update of thermodynamic data for zirconium and those for isosaccharinate,

tentative selection of thermodynamic data for ternary M^{2+}-UO_2^{2+}-CO_3^{2-} system and integration with JAEA's thermodynamic database, JAEA-Data/Code 2018-012, 2019.

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.

Kotelnikova, S., Pedersen, K., The Microbe-REX project. Microbial O_2 consumption in the Äspö tunnel. SKB Technical Report TR-99-17. 1999.

Kulp, T.R. and Pratt, L.M., Speciation and weathering of selenium in upper cretaceous chalk and shale from South Dakota and Wyoming, USA, Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol. 68, pp. 3687-3701, 2004.

Kumagai, N., Kawamura, K. and Yokokawa, T., An interatomic potential model for H_2O: Applications to water and ice polymorphs, Molecular Simulation, Vol. 12, pp. 177-186, 1996.

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, 河川水及び降水の水質分析, JAEA-Data/Code 2007-015, 2007.

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, JAEA-Research 2009-071, 2009.

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.

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.

Litzen, A., Separation speed, retention, and dispersion in asymmetrical flow field-flow fractionation as functions of channel dimensions and flow rates, Analitical Chemistry, Vol. 65(4), pp. 461-470, 1993.

Loeb, A.L., Wiersema, P.H. and Overbeek, J.T.G., The electrical double layer around a spherical colloidal particle, M.I.T. Press, Cambridge, Massachusetts, 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.

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.
Marschall, P. and Lunati, I., GAM - Gas migration experiments in a heterogeneous shear zone of the Grimsel Test Site, Nagra Technical Report 03-11, 2006.
Masurat, P., Eriksson, S., and Pedersen, K., Microbial sulfide production in compacted Wyoming bentonite MX-80 under in situ conditions relevant to a repository for high-level radioactive waste, Applied Clay Science, Vol. 47, pp. 58-64, 2010.
Matsunaga, T., Nagao, S., Ueno, T., Takeda, S., Amano, H. and Tkachenko, Y., Association of dissolved radionuclides released by the Chernobyl accident with colloidal materials in surface water, Applied Geochemistry, Vol. 19. pp. 1581-1599, 2004.
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, 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.
宮川和也, 女澤徹也, 望月陽人, 笹本広, 幌延深地層研究計画で得られた地下水の水質データ（2017年度～2019年度）, JAEA-Data/Code 2020-001, 2020.
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, Vol. 316, pp. 1600-1603, 2007.
Morodome, S. and Kawamura, K., Swelling behavior of Na- and Ca-montmorillonite up to 150ºC by in situ X-ray diffraction experiments, Clays and Clay Minerals, Vol. 57, pp. 150-160, 2009.
村上拓馬, 笹本広, 水野崇, 希土類元素・トリウム及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, Vol. 50, pp. 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.
Nakano, M., Kawamura, K., Ichikawa, Y., Local structural information of cs in smectite hydrates by means of an EXAFS study and molecular dynamics simulations, Applied Clay Science, Vol.23, pp. 15-23, 2003.

Naveau A., Monteil-Rivera F., Guillon E. and Dumonceau J., Interactions of aqueous selenium (−II) and (IV) with metallic sulfide surfaces, Environmental Science & Technology, Vol. 41, pp. 5376-5382, 2007.

Newcomb, K., Tiwari, S. P., Rai, N. and Maginn, E. J., A molecular dynamics investigation of actinyl-ligand speciation in aqueous solution, Phys. Chem. Chem. Phys., Vol. 20, pp.15753-15763, 2018.

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.

新里忠史, 舟木泰智, 安江健一, 北海道北部,幌延地域における後期鮮新世以降の古地理と地質構造発達史, 地質学雑誌, Vol. 113(Supplement), pp. 119-135, 2007.

日本原子力研究開発機構, 平成24年度 地層処分技術調査等事業 高レベル放射性廃棄物処分関連処分システム化学影響高度化開発, 2010.

日本原子力研究開発機構, 平成24年度 地層処分技術調査等事業 高レベル放射性廃棄物処分関連処分システム化学影響高度化開発, 2013.

日本原子力研究開発機構, 平成25年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発報告書 平成26年3月, 2014.

日本原子力研究開発機構, 平成26年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発報告書 平成27年3月, 2015.

日本原子力研究開発機構, 平成27年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発報告書 平成28年3月, 2016.

日本原子力研究開発機構, 平成28年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発報告書 平成29年3月, 2017.

日本原子力研究開発機構, 平成29年度 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.

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 令和2年3月, 2020.

日本原子力研究開発機構・電力中央研究所, 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 岩盤中地下水流動評価技術高度化開発報告書 令和2年3月, 2020.

小田垣孝, パーコレーションの科学, 裳華房, 東京, 1993.

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, Applied Clay Science, Vol. 123, pp.148-155, 2016.

Ohkubo, T., Yamazaki, A., Fukatsu, Y., Tachi, Y., Pore distribution of compacted Ca-montmorillonite using NMR relaxometry and cryoporometry: Comparison with Na-montmorillonite, Microporous and Mesoporous Materials, Vol. 313, 110841, 2021.

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.
Oram, L.L., Strawn, D.G., Marcus, M.A., Fakra, S.C. and Möller, G., Macro- and microscale investigation of selenium speciation in Blackfoot River, Idaho sediments, Environmental Science & Technology, Vol. 42, pp. 6830-6836, 2008.
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., Description of input and examples for PHREEQC version 3 - A computer program for speciation, batch-reaction, one-dimensional transport, and inverse geochemical calculations, U.S. Geological Survey, Water-resources investigations report, 2013.
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, Environmental Science & Technology, Vol. 24, pp. 228-234, 1990.
Pickard, C. J., Mauri, F., All-electron magnetic response with pseudopotentials: NMR chemical shifts, Physical Review B, Vol. 63, pp. 245101-245115, 2001.
Plancque, G., Moulin, V., Toulhoat, P. and Moulin, C., Europium speciation by time-resolved laser-induced fluorescence, Analytica Chimica Acta, Vol. 478, pp. 11-22, 2003.
Pourret, O., Davranche, M., Gruau, G. and Dia, A., Competition between humic acid and carbonates for rare earth elements complexation, Journal of Colloid and Interface Science, Vol. 305, pp. 25-31, 2007.
Probst, A.J., Ladd, B., Jarett, J.K., Geller-McGrath, D.E., Sieber, C.M.K., Emerson, J.B., Anantharaman, K., Thomas, B.C., Malmstrom, R.R., Stieglmeier, M., Klingl, A., Woyke, T., Ryan, M.C., Banfield, J.F., Differential depth distribution of microbial function and putative symbionts through sediment-hosted aquifers in the deep terrestrial subsurface. Nature Microbiology, Vol. 3, pp. 328-336, 2018.
Qin, H.-B., Zhu, J.-M., Lin, Z.-Q., Xu, W.-P., Tan, D.-C., Zheng, L.-R. and Takahashi, Y., Selenium speciation in seleniferous agricultural soils under different cropping systems using sequential extraction and X-ray absorption spectroscopy, Environmental Pollution, Vol. 225, pp. 361-369, 2017.
Quintessa, QPAC: Quintessa's general-purpose modelling software, QRS-QPAC-11, (http://www.quintessa.org/qpac-overview-report.pdf), 2013.
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 Cosmochimica 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.
Sasamoto, H., Yui, M., Hama, K., A preliminary interpretation of groundwater chemistry in the Horonobe area, Japan. In: Water-rock interaction (Bullen and Wang, eds.), Taylor and Francis Group, London, U.K, 2007.
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., Wilson, J., Benbow, S., Sasamoto, H., Oda, C., Walker, C., Kawama, D., Tachi, Y., Using natural systems evidence to test models of transformation of montmorillonite, Applied Clay Science, Vol. 195, 105741, 2020.
Scheinost, A.C. and Charlet, L., Selenite reduction by mackinawite, magnetite and siderite: XAS characterization of nanosized redox products, Environmental Science & Technology, Vol. 42, pp. 1984-1989, 2008.
Scott, G.D. and Kilgour, D.M., The density of random close packing of spheres, Journal of Physics D: Applied Physics, Vol. 2, pp. 863-866, 1969.
Seida, Y., Terashima, M., Tachi, Y., Iijima, K., Nakazawa, T., Yamada, M. and Yui, M., Sorption and diffusion of Eu in sedimentary rock in the presence of humic substances, Radiochimica Acta, Vol. 98, pp. 703-709, 2010.
Singh, B.K., Jain, A., Kumar, S., Tomar, B. S., Tomar, R., Manchanda, V. K. and Ramanathan, S., Role of magnetite and humic acid in radionuclide migration in the environment, Journal of Contaminant Hydrology, Vol. 106, pp. 144-149, 2009.
Stern, J.C., Foustoukos, D.I., Sonke, J.E. and Salters, V.J.M., Humic acid complexation of Th, Hf and Zr in ligand competition experiments: Metal loading and pH effects, Chemical Geology, Vol. 363, pp. 241-249, 2014.
Stoodley, P., Sauer, K., Davies, D.G. and Costerton, J.W., Biofilms as complex differentiated communities, Annual Review of Microbiology, Vol. 56, pp. 187-209, 2002.
Stroes-Gascoyne, S., Microbial occurrence in bentonite-based buffer, backfill and sealing materials from large-scale experiments at AECL's Underground Research Laboratory, Applied Clay Science, 47, pp. 36-42, 2010
Stumpf, T., Bauer, A., Coppin, F., Fanghänel, T. and Kim, J.I., Inner-sphere, outer-sphere and ternary surface complexes: A TRLFS study of the sorption process of Eu(III) onto smectite and kaolinite, Radiochimica Acta, Vol. 90, pp. 345-349, 2002.
Sueoka, Y., Yamashita, S., Kouduka, M. and Suzuki, Y., Deep microbial colonization in saponite-bearing fractures in aged basaltic crust: Implications for subsurface life on Mars, Frontiers in Microbiology, Vol. 10, 2793, 2019
鈴木英明, 柴田雅博, 山形順二, 広瀬郁郎, 寺門一馬, 緩衝材の特性試験（I）, PNC TN8410 92-057, 1992.

Suzuki, Y., Yamashita, S., Kouduka, M., Ao, Y., Mukai, H., Mitsunobu, S., Kagi, H., D'Hondt, S., Inagaki, F., Morono, Y., Hoshino, T., Tomioka, N. and Ito, M., Deep microbial proliferation at the basalt interface in 33.5–104 million-year-old oceanic crust, Nature Communications Biology, Vol. 3(1), pp. 1-9, 2020.

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, Y., Ito, T., Akagi, Y., Satoh, H. and Martin, A.J., Effects of fine-scales surface 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, Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol. 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., Kimura, T., Kato, Y., Minami, Y. and Tominaga, T., Characterization of Eu(III) species on silica and montmorillonite by laser-induced fluorescence spectroscopy, Radiochimica Acta, Vol. 82, pp. 227-232, 1998.

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)泥岩中の割れ目及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.

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, Journal of MMIJ, Vol. 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, Vol. 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.

Tan, X.L., Wang, X.K., Geckeis, H. and T. Rabung, Sorption of Eu(III) on humic acid or fulvic acid bound to hydrous alumina studied by SEM-EDS, XPS, TRLFS, and batch techniques, Environment Science & Technology, Vol. 42, pp. 6532-6537, 2008.

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, Journal of Nuclear Science and Technology, Vol. 57, pp. 380-387, 2020.

Thurman, E.M., Organic geochemistry of natural waters, Springer Netherland, 1985.

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.

Wahlund, K.G., Giddings, J.C., Properties of an asymmetrical flow field-flow fractionation channel having one permeable wall, Analytical Chemistry, Vol. 59(9), pp. 1332-1339, 1987.

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, 2018.

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, Vol. 337, pp. 1661-1665, 2012.

Xu, X., Wang, J., Lv, J.-P. and Deng, Y., Simultaneous analysis of three-dimensional percolation models, Frontiers of Physics, Vol. 9, pp. 113-119, 2014.

Yamamoto, H., Shimo, M., Fujiwara, Y., Kunimaru, T., Xu, T. and Laakshoharju, M., Long-term geochemical transport simulation to evaluate ambient chemical conditions at Horonobe URL site, Japan, Paper number H11D-1293, American Geophysical Union Fall Meeting, 2005.

Yoshida, H., Relation between U-series nuclide migration and microstructural properties of sedimentary rocks, Applied Geochemistry, Vol. 9, pp. 479-490, 1994.

Yoshida, H,, Metcalfe, R., Seida, Y., Takahashi, H., Kikuchi, T., Retardation capacity of altered

granitic rock distributed along fractured and faulted zones in the orogenic belt of Japan. Eng. Geol., Vol. 106, pp. 116–122, 2009.

Yoshii, N., Iwahashi, K. and Okazaki, S., A molecular dynamics study of free energy of micelle formation for sodium dodecyl sulfate in water and its size distribution, The Journal of Chemical Physics, Vol. 124, 184901, 2006.

Yotsuji, K., Tachi, Y., Sakuma, H. and Kawamura, K., Effect of interlayer cations on montmorillonite swelling: Comparison between molecular dynamic simulations and experiments, Applied Clay Science, Vol. 204, 106034, 2021.

Zhang, C., Liu, X., Lu, X., Meijer, E. J. and Wang, R., Understanding the heterogeneous nucleation of heavy metal phyllosilicates on clay edges with first-principles molecular dynamics, Environmental Science & Technology, Vol. 53, pp. 13704-13712, 2019.

4. ニアフィールド性能の総合評価技術開発

4.1 目的と 5 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時間的・空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 5 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した。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」（日本原子力研究開発機構, 2012a ; 2013a ; 2014a ; 2015a）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, 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した。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を提案した。令和 2 年度は、平成 31 年度までに開発されたプロトタイプの解析ツールを用い、緩衝材の長期的変質挙動の予測の観点から複数の解析ケースを設定し、緩衝材に期待される機能に影響を及ぼし得る状態変遷を評価するための解析例を提示すると共に、得られた解析結果の妥当性確認を進めていく上での基礎的な検討に着手する。令和 3 年度以降は、プロトタイプの評価システムで用いられている水理・物質輸送－化学反応などの解析モデルの妥当性確認を進める予定である。

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した。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した。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した。令和 2 年度は、サブタスク 1 で実施した緩衝材の長期的変質挙動に関わる水理・物質輸送－化学反応の連成解析結果を対象に、緩衝材の変質状態の時間変遷を踏まえた核種移行評価を行うための核種移行パラメータの設定方法を検討し、予察的な解析を実施した。令和 3 年度以降は、緩衝材の変質が核種の移行遅延効果に与える影響を評価する手法の整備に向けた課題整理を進める。

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」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。

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。

令和 2 年度は、緩衝材に期待される機能が発揮されるか否かを評価することを想定した場合、国内外において、どのような指標や基準が考えられているかを文献調査に基づき整理した。また、プロトタイプの解析ツールを用い、緩衝材の長期的変質挙動の予測の観点から複数のケースを対象に解析を実施した。さらに、緩衝材の長期的変質挙動に関わる連成解析結果の妥当性確認を進

めていく上での方針や、閉鎖後長期の状態変遷の解析に反映すべき閉鎖後過渡期の状態変遷に関わる情報についても整理した。本節ではこの検討の成果を示す。

4.2.2 実施内容

(1) 緩衝材に期待される機能に関わる指標や基準に係る事例調査

地層処分システムでは、多重バリアによって生活環境と放射性物質との距離を保つ「隔離」及び放射性物質の大部分を廃棄物周辺に長期間閉じ込める「閉鎖後閉じ込め」という二つの基本概念から成る。この二つの基本概念に基づく地層処分システムの安全機能並びに地層処分システムを構成するバリア構成要素との関係については、例えば、NUMO が示す安全確保戦略の中で整理されている（原子力発電環境整備機構, 2011）。その中で、人工バリアの構成要素の一つである緩衝材については、「閉鎖後閉じ込め」の基本概念の中で、「放射性物質の移行抑制」という安全機能を定めている。また、NUMO の安全確保戦略では、バリア構成の各要素についての技術要件として、「基本的なバリア性能の確保」、「長期健全性の維持」及び「工学的実現性の確保」の三つの観点で整理している。このうち、緩衝材の安全機能である「放射性物質の移行抑制」に係る技術要件は、「基本的なバリア性能の確保」の中で整理され、具体的には、移流による移行抑制という機能に対して「低透水性」、コロイド移行の防止という機能に対して「コロイドろ過能」、収着による放射性物質の移行遅延という機能に対して「収着性」を挙げている。このような技術要件に対して、それらがどの程度満足されれば緩衝材の安全機能が維持され得るかを判断するため、欧州各国における地層処分の実施主体では、各国で想定されている地質環境特性や処分場の設計・施工条件なども踏まえつつ、定量的な基準が検討されている（PEBS, 2012）。ここでは、高レベル放射性廃棄物の地層処分における対象母岩として、結晶質岩を想定しているスウェーデン、粘土質堆積岩を想定しているスイスを例に、各々の国で検討されている緩衝材に期待されている機能や、機能が発現されるための基準の例について整理する。

1) スウェーデンの例

スウェーデンにおける処分の実施主体であるスウェーデン核燃料･廃棄物管理会社（以下、「SKB」という）では、サイト選定や評価にあたり、地層処分の長期安全性と処分場の設計・施工の観点からの要求事項及び好ましい条件に関わる検討や、要求事項及び好ましい条件に適合する地質環境や人工バリア材に関わるパラメータ（指標）や基準についての検討がなされている（原子力発電環境整備機構・日本原子力研究開発機構, 2012 ; Ström et al., 1999）。このような検討は、SR-Site などの安全評価においても活用されてきた（SKB, 2011）。ここでは、具体例の一つとして KBS-3H におけるレファレンスデザインを対象にした場合の緩衝材に期待されている機能に関わる指標と基準（Gribi et al., 2008）について整理した。

緩衝材に期待されている機能に関わる指標や基準の設定にあたっては、まず、処分システムのデザイン（横置き・スーパーコンテナ）、緩衝材の候補材である MX-80 の初期特性（形状・大きさ・初期含水率・初期乾燥密度・飽和密度など）、緩衝材の構成鉱物と間隙水化学に関する情報の整理が行われた。その後、緩衝材に期待されている機能へ影響を及ぼす主な現象として、緩衝材の流出・再配分、緩衝材の鉱物学的変質、緩衝材の凍結の三つの観点から、これらの現象の発生に伴う緩衝材が有する特性への変化について整理が行われた。例えば、パイピング・浸食により緩衝材の流出・再配分が生じた場合、膨潤圧の低下・透水性の増加・密度の低下を生じさせる。また、緩衝材の鉱物学的変質は、可塑性の低下・膨潤圧の低下・自己修復性の低下が生じさせ、緩衝材の凍結は、膨潤圧の低下・収着性の低下を生じさせる可能性もある。このような検討を踏まえ、緩衝材に期待されている機能に関わる指標として、透水係数（緩衝材全体）、膨潤圧（坑道

壁面部及び緩衝材全体）、飽和密度（コロイド移行抑制・キャニスターの破損抑制）、鉱物組成及び最低温度を抽出し、各々の指標に対する基準を SR-Can（SKB, 2006）で定められた値を基に表 4.2-1（Gribi et al., 2008）のように整理した。

表 4.2-1　緩衝材に期待される機能に関わる指標・基準（スウェーデンの例）

緩衝材に期待される機能に関わる指標		指標に対する基準	期待される役割
透水性	（緩衝材全体）	$< 10^{-12}$ m/s	移流支配の回避
膨潤圧	（坑道壁面部）	> 1 MPa	密着性、自己シール性担保
	（緩衝材全体）	> 2 MPa	顕著な微生物活動の抑制
		> 0.2 MPa ※1	キャニスターの沈降防止
飽和密度		> 1.65 Mg/m^3	コロイド移行抑制
		< 2.02 Mg/m^3	岩盤せん断に対するキャニスターの保護
鉱物組成		透水性に顕著な影響を与えない（温度、鉄・セメント影響を含む）	可塑性・膨潤性・自己修復性低下抑制
最低温度		> -5℃	凍結防止

※1）竪置きの KBS-3V を対象として検討された基準であるが、横置きの KBS-3H にも適用され得る基準（横置きの方が竪置きに比べて、緩衝材へのキャニスターの重みの影響は低減されるため、KBS-3H の方がより安全側を見た基準となる）。

2) スイスの例

スイスにおける処分の実施主体である放射性廃棄物管理共同組合（以下、「NAGRA」という）では、Opalinus 粘土層を対象とし、深度 600 m～900 m 程度を想定した処分場の建設が考えられている。キャニスターは、鉄または銅製の材料で、緩衝材としては飽和密度で 1.9 Mg/m^3 の仕様が想定されている。母岩として想定されている Opalinus 粘土層は、透水係数が 10^{-13} m/s より小さく、非常に低透水の岩石である。このような地質環境及び人工バリアの組み合わせに基づき、処分場に期待されている安全機能としては、生活圏からの廃棄物の物理的隔離、安全評価で求められる 100 万年程度の時間スケールでの安定性、放射性核種の閉じ込め・移行遅延性、放射性核種の低浸出率が挙げられている。これらの機能は、全て、緩衝材に期待される機能とも関係することから、機能に関わる指標と各々の指標に対する基準として、表 4.2-2 に示すような整理がなされている（PEBS, 2012）。なお、表 4.2-2 で示された指標や基準については、2012 年の段階では検討中での情報と記されており、NAGRA によるその後の検討を通じて、基準値の変更や具体的基準の設定などの見直しがされている可能性があることに留意する必要がある。

表 4.2-2　緩衝材に期待される機能に関わる指標・基準（スイスの例）

緩衝材に期待される機能に関わる指標	指標に対する基準	期待される役割
透水性	$< 10^{-11}$ m/s	拡散支配
収着性	具体的基準値は無し （高収着性が望ましい）	核種の移行遅延
飽和密度	> 1.65 Mg/m^3	コロイド移行抑制
膨潤圧 飽和密度	0.6 MPa $< P_S <$ 最小主応力 > 1.75 Mg/m^3	坑道の力学的安定性、EDZ の拡大抑制
膨潤圧	0.2 MPa $< P_S <$ 最小主応力	キャニスターの保護・沈降防止
ガス移行性	具体的基準値は無し （最小主応力よりも小さい）	透水性に影響を及ぼさずにガスが移行
微生物腐食	具体的基準値は無し （密度を高くする）	キャニスターの腐食速度の低減
鉱物変化	具体的基準値は無し	緩衝材機能の長期維持
温度環境	0.4 W/m·K $< T_C <$ 2 W/m·K （1,500 Wの発熱量に対して）	キャニスター・緩衝材・岩石への温度制限

緩衝材については、各国で想定している人工バリアの仕様が異なるため、基準については一様に定められるものではないものの、指標によってはほぼ共通した基準が考えられているものもある。なお、表 4.2-1 や表 4.2-2 に示された定量的な基準は、各指標に対応する基準が満足されないと、該当する緩衝材に期待される機能が喪失または直ちに顕著な低下を意味するものではなく、むしろ、このような基準を満足している限り、緩衝材に期待されている機能に好ましくない影響を与える可能性のあるプロセスを除外し得るという意味を持つ（原子力発電環境整備機構・日本原子力研究開発機構, 2012）。このため、本項(2)で述べる緩衝材の長期的変質挙動の予測に関わる解析結果を基に、緩衝材に期待される機能との関係について議論する際には、上述した点に留意する必要がある。

(2) 緩衝材の長期的変質挙動に関わる連成解析

1) 水理・物質輸送－化学反応及び力学との連成解析

ニアフィールドを対象とした複合現象で、緩衝材に期待される安全機能や核種移行への影響が大きい現象として優先して取り組む課題である「緩衝材の長期変遷挙動の予測」に対し、平成 31 年度までに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た感度解析を行った（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, 2020）。感度解析では、コンクリート支保やオーバーパックと緩衝材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手法を検討した（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, 2020）。また、コンクリート支保やオーバーパックと緩衝材との相互作用を対象に、水理・物質輸送－化学反応と水理・物質輸送－化学反応－力学の連成解析結果の比較を行い、緩衝材の変

形や膨潤などの力学的な影響が水理・物質輸送や化学反応の特性に与える影響の考察なども行った（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, 2020）。このような複数の現象を対象とした連成解析においては、より現実的な評価の観点では、網羅的に連成現象を取り込んだモデルの開発が必要となる。一方、現象間によっては相互作用の影響が小さい連成現象もあり得る。そのような場合、複合現象を対象とした連成解析にあたり、簡略化や単純化を図れる要素となり得る可能性もある。網羅的に連成現象を取り込んだ現実性の高い評価モデルの開発は、このような可能性を検討する上でも重要となる。本サブタスクでは、緩衝材の長期的変質挙動の評価にあたり、水理・物質輸送－化学反応－力学の連成解析が可能なプロトタイプの解析コードを開発中であり、網羅的に連成現象を取り込んだモデルには至っていない可能性がある。このため、令和 2 年度は暫定的な試みとして、平成 31 年度と同様にコンクリート支保やオーバーパックと緩衝材との相互作用を対象とし、力学解析の考慮の有無による水理・物質輸送や化学反応の特性に与える影響について分析し、本サブタスクで対象とする連成解析における力学的な影響の度合いについて予察的な評価を行った。

平成 31 年度までに開発した評価システムのプロトタイプでは、水理・物質輸送－化学反応の連成解析コードとして QPAC（Quintessa Ltd., 2013）、力学解析コードとして 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）を用い、これらの解析コード間でのパラメータの受け渡しにより、水理・物質輸送－力学－化学反応の連成解析を行った（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, 2020）。QPAC 及び MACBECE の解析コード間で受け渡されるパラメータは、表 4.2-3 の通りである。

表 4.2-3　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（2020）を改変）

No.	From	To	概要	交換パラメータ
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
2	QPAC	MACBECE	QPAC の出力（鉄腐食セル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	• 鉄腐食生成物による体積膨張速度
3	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

QPAC と MACBECE との間では、QPAC による水理・物質輸送－化学反応解析により求められたパラメータ（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）を基に、MACBECE により剛性・強度・膨潤性などの力学特性を算出し、力学解析が行われる。その結果算出される緩衝材の体積ひずみの情報を基に、力学的な変形を考慮した間隙率に換算され、QPAC による水理・物質輸送－化学反応解析に反映される。また、オーバーパックの腐食に伴う鉄腐食生成物による膨張の影響を考慮する場合、QPAC で解析された鉄腐食生成物による体積膨張速度を MACBECE に受渡し、MACBECE で緩衝材の体積ひずみの変化を解析する。

令和 2 年度の解析は、平成 31 年度に実施された水理・物質輸送－化学反応及び力学の連成による感度解析ケース（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, 2020）の

うち、解析パラメータとして、セメント支保のひび割れの開口幅を 1 mm、動水勾配を 0.01、モンモリロナイトの反応比表面積を 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を 50%にしたケースを対象とし、力学との連成（オーバーパックの腐食膨張に伴い緩衝材が圧密される影響を考慮）の有無による水理・物質輸送や化学反応の特性に与える影響について分析した。図 4.2-1 に連成解析結果の比較を示す。なお、図 4.2-1 において、Case A は水理・物質輸送－化学反応解析、Case B は水理・物質輸送－化学反応に力学解析を連成させたケースである。図 4.2-1 には、水理・物質輸送及び化学反応の特性に関わるパラメータの例として、間隙率及びモンモリロナイト残存量の経時変化の解析結果を示した。また、力学との連成を考慮したケースでは、緩衝材中の体積ひずみの経時変化に係る解析結果についても併せて示した。間隙率の変化について比較すると、力学との連成の有無に依らず、5 万年を過ぎる辺りからコンクリート支保のひび割れと接する緩衝材の外側部分において、間隙率の低下が認められる。力学との連成の有無による違いは小さいものの、連成を考慮した場合の方が 10%程度、間隙率の低下割合が小さくなった。また、モンモリロナイト残存量の変化について比較すると、変化の傾向は間隙率の場合と類似しているが、時間的にはより早い段階から残存量の顕著な変化が認められる。また、モンモリロナイト残存量の変化は、オーバーパックと接する緩衝材の内側部分及びコンクリート支保のひび割れと接する緩衝材の外側部分の両方で認められる。間隙率の場合と同様、力学との連成の有無による違いは小さいものの、連成を考慮した場合の方が 5%程度、残存量の低下割合が小さくなった。なお、力学解析により推定された緩衝材の体積ひずみの変化の傾向も間隙率やモンモリロナイト残存量の変化と調和的であり、時間の経過と伴にひずみが大きくなる領域がオーバーパックと接する緩衝材の内側部分から外側部分に向かい拡がった。しかしながら、緩衝材の体積ひずみは、最も大きくなったオーバーパックと接する緩衝材の内側部分でも、最大で 6%程度であった。このため、今回の解析ケースでは、オーバーパックの腐食膨張に伴う緩衝材へひずみ応力の影響が小さかったため、力学との連成の有無による水理・物質輸送や化学反応の特性に与える影響も小さかったと考えられる。一方、このような結果を前述したような連成解析における簡略化・単純化の観点で見てみると、今回のようなケースであれば、力学との連成の必要性は低いとも考えられる。今回試行したような連成解析は、複合現象により相互に与える影響の有無に係る知見を整理する上でも重要であると考えられる。いずれにしても、このような考察を深めていくためには、連成解析で用いられる解析コードの検証・確証が十分に確認されていることが前提となる。

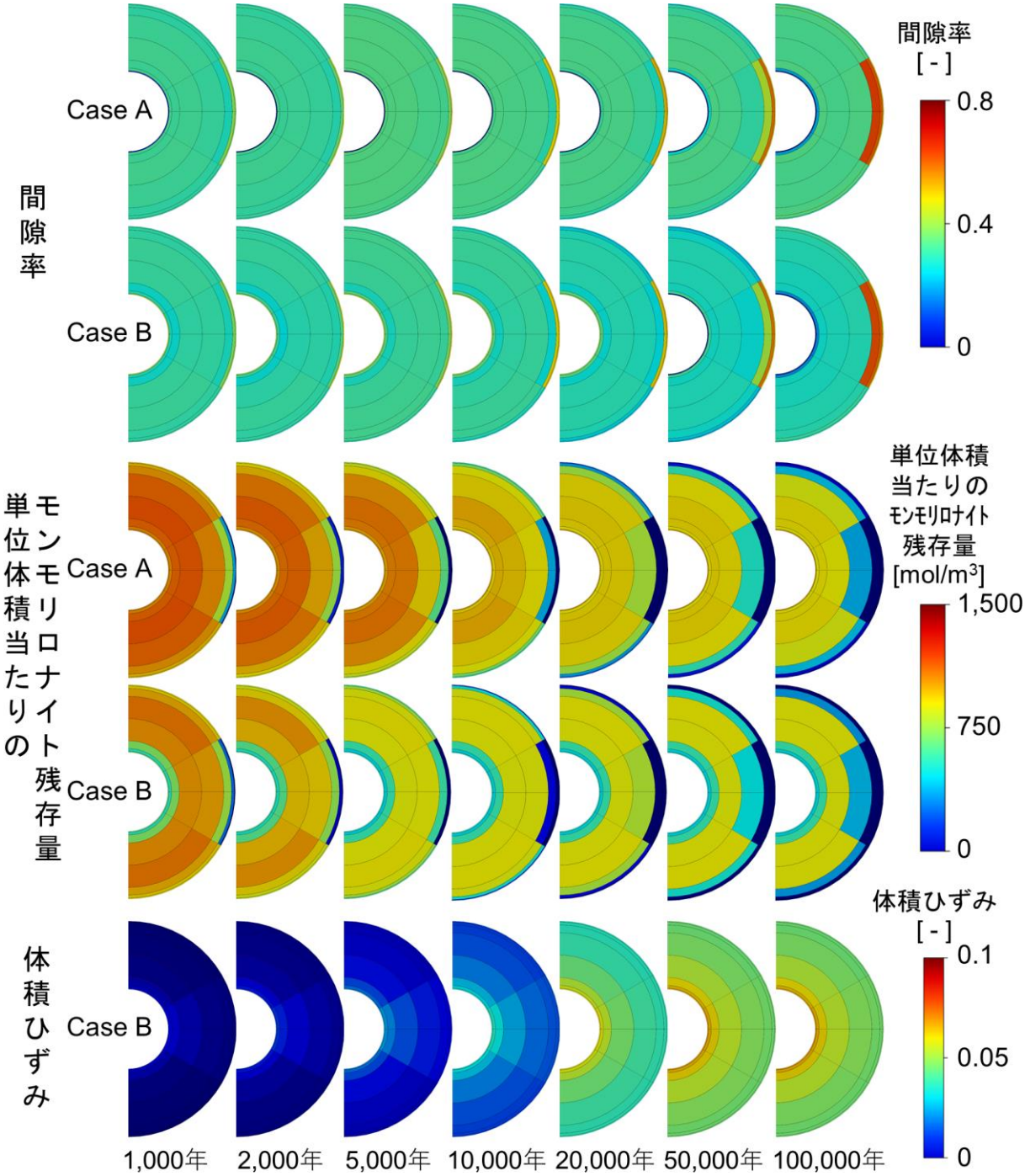


図 4.2-1　水理・物質輸送－化学反応（Case A）及び力学との連成解析（Case B）結果の比較

2) 本サブタスクで利用する連成解析コードの検証・確証に関わる現状

連成解析コードを用いて解析・評価を行う場合、解析結果の信頼性や妥当性を担保する上で、各々の解析コードの検証事例やどのような現象を対象とした確証事例があるかを把握しておくことが重要である。そこで、緩衝材の長期変質挙動の評価にあたり、評価対象となるバリア材の種類またはバリア材料間での相互作用、評価対象となる個別現象または連成現象を軸に、本サブタスクで関係する解析コードの検証・確証に関わる現状を表 4.2-4 に整理した。なお、表 4.2-4 中で黄色のハッチ箇所は、本事業において検証などの検討を予定している事例に相当する。

表 4.2-4　本サブタスクで関係する解析コードの検証・確証に関わる現状

材料 / 連成	セメント	ベントナイト	鉄ーベントナイト	セメントーベントナイト
水理・物質輸送ー化学	・検証※1 されたコード（QPAC）を用いた確証※2 例あり 【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, 2014a；2015a）	・検証※1 されたコード（QPAC）を用いた確証※2 例あり 【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, 2014a；2015a）	・検討中（QPAC） ・モデル開発例あり 【処分システム化学影響評価高度化開発】（日本原子力研究開発機構, 2012b；2013b） ・確証※2 用データ取得中（SP1：ナチュラルアナログとしての考古学的遺物の調査）	・検証※1 されたコード（QPAC）を用いた確証※2 例あり 【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, 2015a） ・TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発でも確証※2 中
力学	・検証※1 されたコード（MACBECE）を用いた確証※2 例あり 【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, 2014a）	・検証※1 されたコード（MACBECE）を用いた確証※2 例あり （奥津ほか, 2004）	・検討中（MACBECE）	・検討中（MACBECE）
水理・物質輸送ー化学ー力学	未検討	・検討中（QPAC＋MACBECE） ・現象理解及びデータ取得中（SP1：シリカセメンテーション）	・検討中（QPAC＋MACBECE） ・モデル開発中（SP3）	・検討中（QPAC＋MACBECE） ・モデル開発中（SP3）

※1) 数値モデル解とシミュレーション解の照合のように、数値モデル化して得られた結果が適切であるかどうか確認することを、ここでは「検証」という。
※2) 適切なデータ・パラメータを用いて、現象（室内試験や原位置試験データなど）に対して適切な数値シミュレーションが行われているかどうか確認することを、ここでは「確証」という。

表 4.2-4 に示されるように、コンクリート支保や緩衝材単独のケースに対しては、水理・物質輸送ー化学反応及び力学解析に対して、各々、QPAC 及び MACBECE による確証事例があるものの、バリア材料間での相互作用に係るケースでは、モデルの開発段階や解析コードを用いた確証段階のものが含まれる。特に、力学解析に関して、バリア材料間での相互作用を対象とした場合での確証や水理・物質輸送ー化学反応との連成を考慮した場合の確証については、検討段階のケースが多い。このため、本サブタスクまたは本事業における他のサブプロジェクトにおいて、表 4.2-4 に示される検討中のケースに関わるデータ取得やモデル開発が進められている。このような現状を鑑みると、平成 31 年度までに開発した評価システムのプロトタイプでは、バリア材料間での相互作用を対象に、力学解析を含めた連成解析結果の信頼性や妥当性を十分に判断可能なレベルには至っていない可能性がある。

一方、本サブタスクで取り組む課題である「緩衝材の長期変遷挙動の予測」に関しては、閉鎖後長期の緩衝材を対象とした場合に不確実性の大きいと考えられる現象として、コンクリート支保と緩衝材及びオーバーパックと緩衝材の相互作用が想定されている（例えば、原子力発電環境整備機構・日本原子力研究開発機構, 2012）。これら相互作用に伴う影響が大きい連成現象としては、国内外での先行事例による評価では、主に水理・物質輸送ー化学反応に着目した場合が多い（Gaucher et al., 2004；Wersin and Birgersson, 2014；小田ほか, 2013）。また、表 4.2-4 における解析コードの検証・確証に関わる現状を踏まえると、上述したようなバリア材料間の相互作

用に係る水理・物質輸送－化学反応の連成解析でも、現状では検証・確証に関して部分的に不十分な点もある。このため、本サブタスクにおいては、まず、緩衝材の長期的変質挙動に関わる連成解析として、水理・物質輸送－化学反応に重点をおき、力学を含めた連成解析のための評価システムの改良は、水理・物質輸送－化学反応に係る連成解析の妥当性確認に概ね目途がついた段階で、再度取り組みを検討することとした。

3) 水理・物質輸送－化学反応の連成解析を対象とした解析結果の詳細分析

本項(2)の 2)で述べた検討方針に基づき、平成 31 年度までに開発した評価システムのプロトタイプにおける水理・物質輸送－化学反応に係る連成解析コード（QPAC）を用いて、今後、連成解析の妥当性確認を進めていくにあたり、まず、解析結果の詳細を把握することとした。緩衝材の長期的変質挙動に関わる水理・物質輸送－化学反応の感度解析は、平成 31 年度にも実施しており（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, 2020）、令和 2 年度は、平成 31 年度の感度解析における解析ケースの設定を参考にしつつ、緩衝材の長期的変質挙動への影響が大きいと想定されたパラメータ（バリア材料間の境界部において相互作用に伴い生じる変質部での拡散係数及びセメント支保由来の高 pH 溶液による緩衝材の変質に伴い生成する二次鉱物種の組み合わせ）を変えた複数の感度解析を行った。ここでは、図 4.2-2 に示すような解析体系に基づき実施した二つの解析ケース（表 4.2-5 の Case 1：相対的に緩衝材への変質影響の小さい場合、Case 2：相対的に緩衝材への変質影響の大きい場合）を例に、水理・物質輸送－化学反応の連例解析結果の詳細について述べる。これらのケースは、いずれもセメント支保での割れの影響は考慮していない。なお、本サブタスクにより得られる緩衝材中の時間的・空間的変遷に係る情報は、サブタスク 2 における核種移行評価に反映されるため、解析結果の整理にあたっては、核種移行パラメータ設定にあたり重要となる因子（緩衝材間隙水の pH・イオン強度、緩衝材中の単位体積当たりのモンモリロナイト残存量、間隙率及び構成鉱物）に着目して行った。

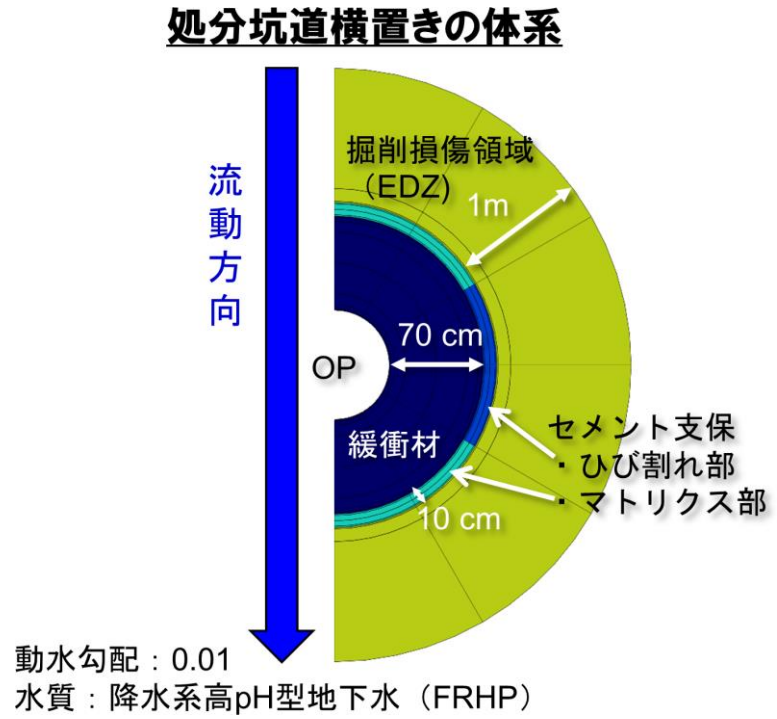


図 4.2-2　水理・物質輸送－化学反応の連成解析における解析体系

表 4.2-5　水理・物質輸送－化学反応の連成解析における解析ケース

解析ケース	境界部（変質層）の拡散係数（m^2/s）※1	セメント影響による変質に伴い生成を仮定した二次鉱物（沸石）種※2	備考
Case 1	10^{-12}	K＋Na＞Ca 系での準安定相（phillipsite, clinoptilolite）	相対的に緩衝材への変質影響の小さいケース
Case 2	10^{-10}	K＋Na＞Ca 系での準安定相（phillipsite, clinoptilolite） Ca＞K＋Na 系での準安定相（Heulandite）	相対的に緩衝材への変質影響の大きいケース

※1) Case 1 は、変質層の拡散係数が未変質の緩衝材よりも 2 桁程度小さいと仮定した場合。Case 2 は、変質層の拡散係数が未変質の緩衝材と同程度と仮定した場合。

※2) 小田ほか（2005）によるセメント－緩衝材相互作用に伴う鉱物学的長期変遷シナリオを参考にしつつ、今回は準安定相の組み合わせで異なるケースを設定。Case 1 は、K＋Ma＞Ca 系での主な準安定相のみを考慮した場合。Case 2 は、Case 1 の場合に加え、Ca>K+Na 系での準安定相も考慮した場合。

①　Case 1 の結果

図 4.2-3 に Case 1 における緩衝材の長期的変質挙動に係る連成解析の結果として、間隙水の pH・イオン強度、緩衝材中の単位体積当たりのモンモリロナイト残存量及び間隙率の経時変化を示す。なお、間隙水の pH・イオン強度については、緩衝材と接するセメント支保部分の経時変化についても併せて示した。間隙水の pH は、セメント支保部分では、初期に 13 程度であった pH は、時間と伴に低下し、1 万年経過後には 11.5 程度まで低下した。緩衝材部分では、初期に 8.5 程度であった pH は、セメント支保及びオーバーパック近傍で上昇し、次第に緩衝材の内側にも pH の上昇した領域が拡がった。pH の変化が生じた範囲は、セメント支保に接する緩衝材部分でおよそ 20 cm 程度、オーバーパック近傍でおよそ 10 cm 程度であった。なお、今回の解析結果には 10 万年後の pH の変化は、明示していない（10 万年経過後、セメント支保と岩盤との境界が閉塞し、緩衝材及びセメント支保部分の間隙水の pH が一律に 10.5 程度に変化した。ここで、閉塞とは、境界部の間隙率が 0.1 未満になった状態を意味する）。今回の解析では、セメント支保と岩盤との境界部は、閉塞後の物質輸送は考慮しておらず、その影響が pH の解析値にも影響し、時間の経過と共に低下していた pH が再度上昇に転じた可能性が示唆された。このような pH の上昇により、それまで緩衝材とセメント支保の境界部で低下していた間隙率が 10 万年後に再び増加する結果になったと推察された。同様な影響は、他のパラメータにも波及していると考えられることから、10 万年後の解析結果については、今回は参考値として扱うこととした。次に、間隙水のイオン強度は、セメント支保部分では、初期に 0.5 程度であったが、時間と共に低下し、1 万年経過後には 0.01 程度まで低下した。緩衝材部分でも、イオン強度は時間と共に低下するが、低下の度合いは、セメント支保やオーバーパックとの接触部付近で大きい。イオン強度の変化が生じた範囲は、pH の変化が生じた範囲とほぼ同様であった。また、緩衝材中の単位体積当たりのモンモリロナイト残存量や間隙率の変化も上述した他のパラメータと同様の範囲で変化し、時間の経過と共に低下した。

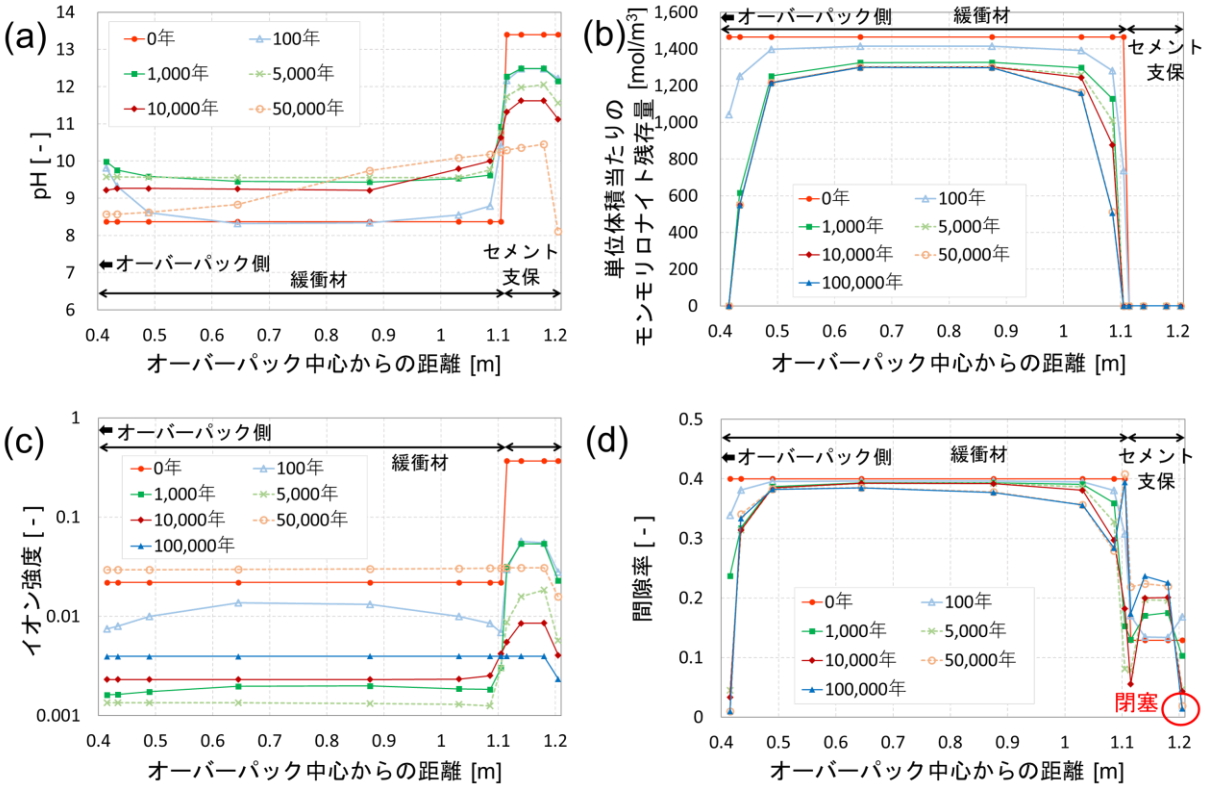


図 4.2-3　緩衝材及びセメント支保部分の長期的変質挙動に係る連成解析結果（Case1）
(a)間隙水の pH、(b)単位体積当たりのモンモリロナイト残存量、
(c)イオン強度、(d)間隙率

図 4.2-4 に、Case 1 における連成解析の結果として、緩衝材及びセメント支保部分の構成鉱物の時間変遷を示す。セメント支保部分では、普通ポルトランドセメント（OPC）の水和物として含まれていたポルトランダイト（$Ca(OH)_2$）は 1,000 年程度で溶解・消失し、C-S-H ゲルは時間と共に C/S 比が低下し、トバモライト様の C/S 比（0.83）に変化した。また、水和物として存在していたモノサルフェートは、セメントの溶脱が進行するに伴い、エトリンガイトに変遷した。さらに、5 万年以降には、方解石や Mg 質の粘土鉱物の一種であるセピオライトの生成も推定された。また、緩衝材部分では、モンモリロナイトのイオン型の変化が生じ、Ca 型モンモリロナイトが卓越した。随伴鉱物である玉髄は、5,000 年程度までに溶解・消失した。主な二次鉱物では、生成を仮定した沸石類であるフィリップサイトに加え、セピオライトの生成も推定された。さらに、オーバーパック近傍の緩衝材部分では、菱鉄鉱や磁鉄鉱に加え、Fe を含有する蛇紋石族の粘土鉱物の一種であるバーチェリンの生成も推定された。

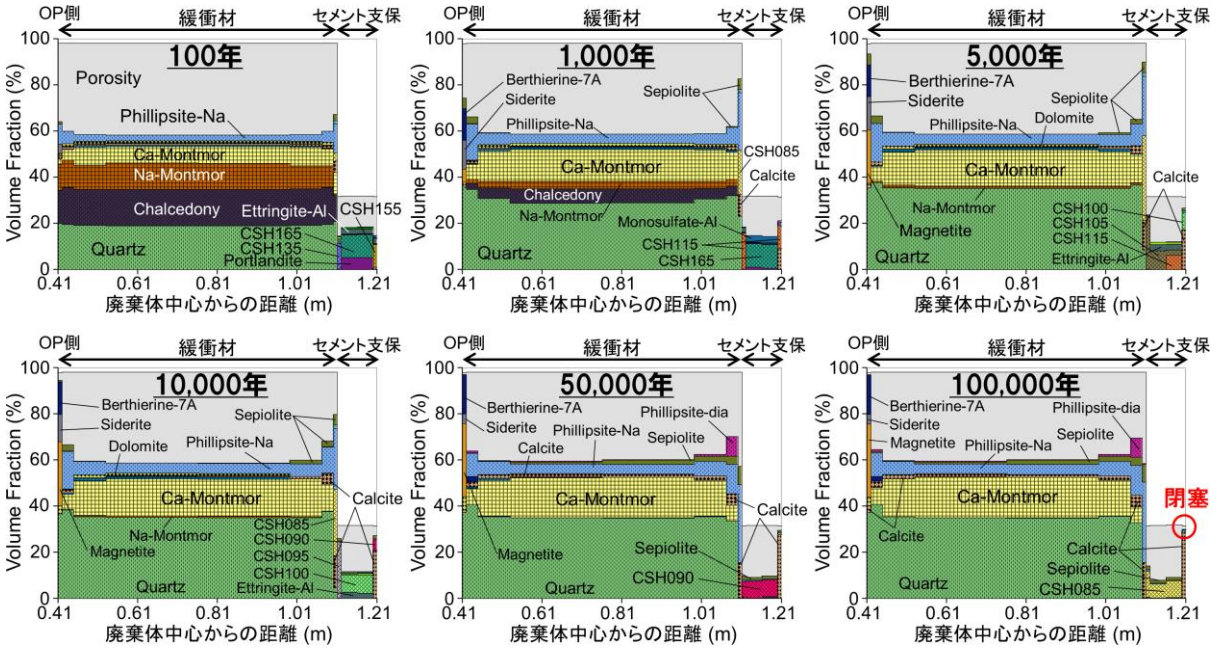


図 4.2-4　緩衝材の長期的変質挙動に係る連成解析結果
（Case 1：緩衝材及びセメント支保部分の構成鉱物）

② Case 2 の結果

図 4.2-5 に Case 2 における緩衝材の長期的変質挙動に係る連成解析の結果として、間隙水の pH・イオン強度、緩衝材中の単位体積当たりのモンモリロナイト残存量及び間隙率の経時変化を示す。なお、Case 1 の場合と同様、間隙水の pH・イオン強度については、緩衝材と接するセメント支保部分の経時変化についても併せて示した。

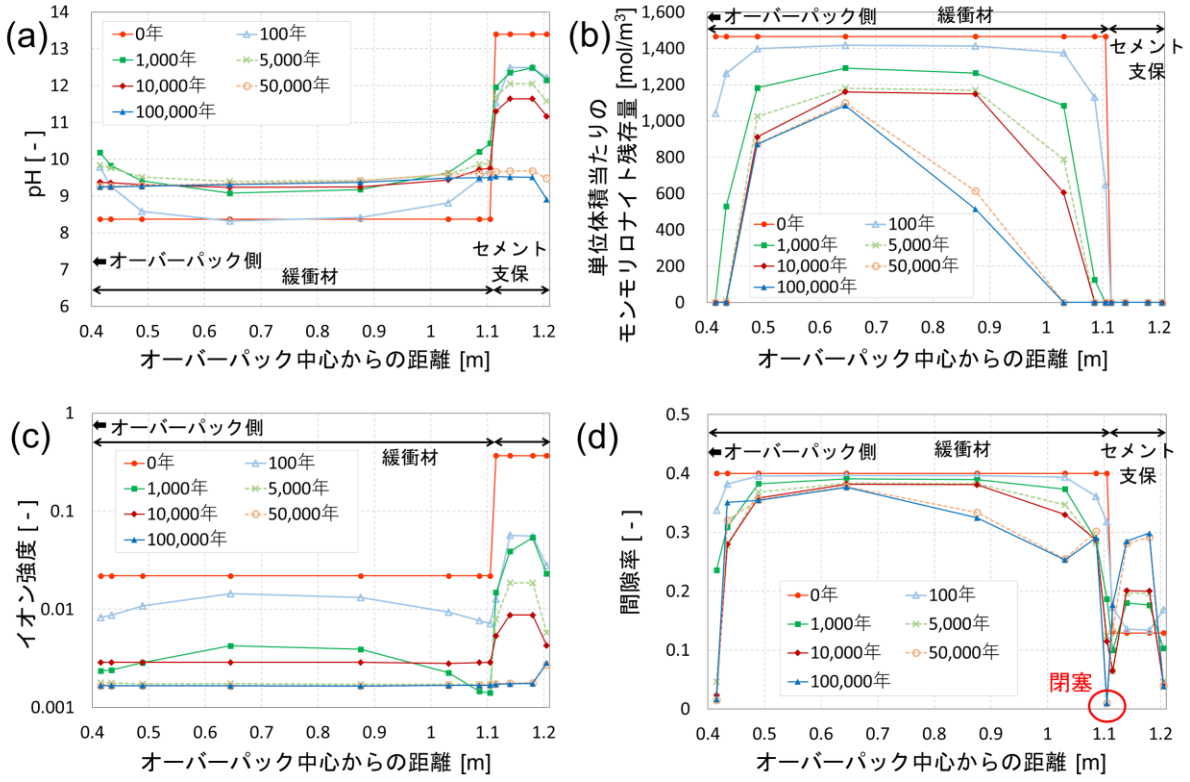


図 4.2-5 緩衝材及びセメント支保部分の長期的変質挙動に係る連成解析結果（Case2）
(a)間隙水の pH、(b)単位体積当たりのモンモリロナイト残存量、
(c)イオン強度、(d)間隙率

間隙水の pH の経時変化は、セメント支保部分及び緩衝材部分において、基本的に Case 1 の場合と同様な傾向を示す。なお、Case 2 の場合、10 万年経過後もセメント支保と岩盤との境界で閉塞が生じておらず、そのため pH の変化は、1 万年経過後よりも全体的にやや pH が低下した分布を示した。また、pH の変化が生じた範囲は、Case 1 の場合と同様、セメント支保に接する緩衝材部分で概ね 20 cm 程度、オーバーパック近傍で概ね 10 cm 程度であった。次に、間隙水のイオン強度の経時変化も、基本的に Case 1 の場合と同様な傾向を示し、イオン強度の変化が生じた範囲は、pH の変化が生じた範囲とほぼ同様であった。一方、緩衝材中の単位体積当たりのモンモリロナイト残存量や間隙率の経時変化については、1,000 年以降、Case 1 よりも変化の程度が大きくなった。例えば、単位体積当たりのモンモリロナイト残存量は、1 万年経過にはセメント支保との接触部から 20 cm 程度、10 万年経過後には 45 cm 程度まで顕著な変化が生じた。間隙率についても、単位体積当たりのモンモリロナイト残存量の経時変化と同様な傾向が認められた。

図 4.2-6 に、Case 2 における連成解析の結果として、緩衝材及びセメント支保部分の構成鉱物の時間変遷を示す。

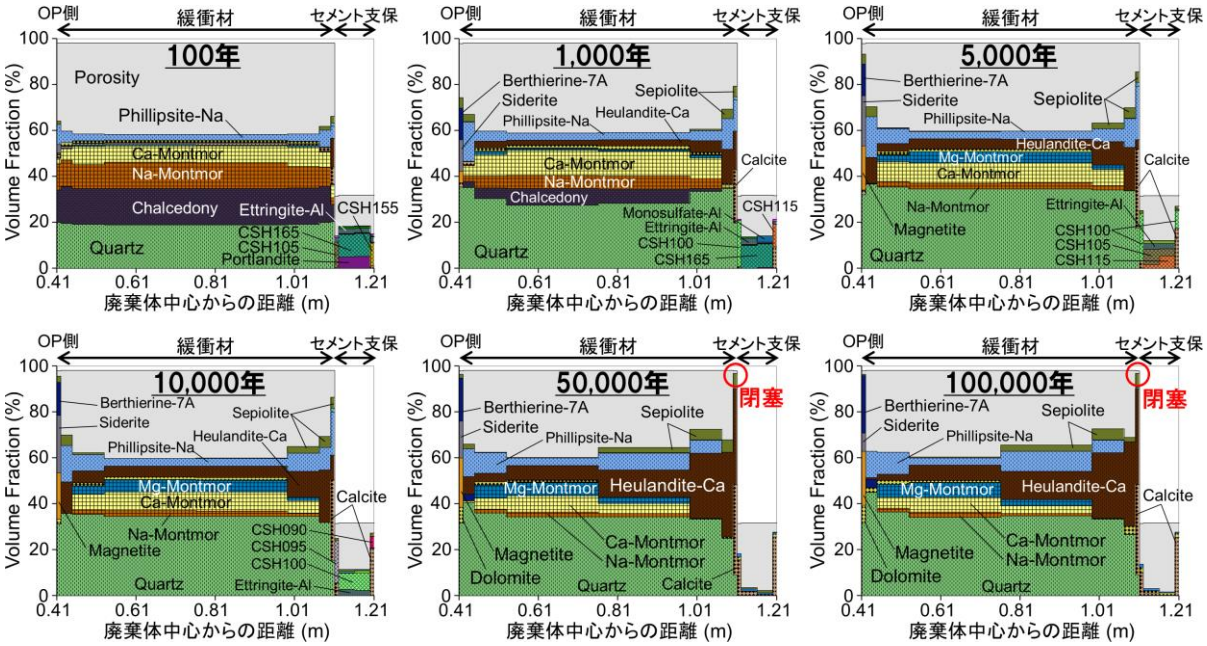


図 4.2-6　緩衝材の長期的変質挙動に係る連成解析結果
（Case 2：緩衝材及びセメント支保部分の構成鉱物）

セメント支保部分、緩衝材部分及びオーバーパック近傍の緩衝材部分における構成鉱物の時間変遷の傾向は、基本的に Case 1 の場合と同様である。ただし、緩衝材部分では、二次鉱物として生成を仮定した沸石類にヒューランダイトを加えたことで、ポルトランダイトが消失した 1,000 年後辺りから、フィリップサイトと共に生成した。その後、時間の経過と共にヒューランダイトの生成量が増加した。このため、5 万年以降には、セメント支保と緩衝材の境界部が閉塞した。構成鉱物の時間変遷において、Case 1 と主に異なる点は、ヒューランダイトの生成に伴う緩衝材中での構成鉱物種の違いである。なお、ヒューランダイトの生成及びその後の時間変遷は、図 4.2-5 における緩衝材中の単位体積当たりのモンモリロナイト残存量や間隙率の経時変化の傾向とほぼ一致している。

図 4.2-4 及び図 4.2-6 に示した構成鉱物の時間変遷は、図 4.2-3 及び図 4.2-5 に整理した間隙水の水質や間隙率の変遷とも関連する。例えば Case 1 では、二次鉱物として生成を仮定したフィリップサイトは、セメント支保などの影響に伴う間隙水の pH 上昇と関連し、それに伴い、初期に緩衝材中に存在したモンモリロナイトが減少し、単位体積当たりのモンモリロナイト残存量が低下したと考えられる。また、二次鉱物の沈殿により、溶液中の溶存成分が減少するため、イオン強度が低下すると共に、間隙率も低下したと推察される。このため、緩衝材の長期的変質挙動の評価にあたっては、構成鉱物の鉱物学的変遷が重要になる。一方、鉱物の溶解・沈殿は、熱力学及び速度論の両側面からの検討が必要であり、連成解析で推定された緩衝材及びセメント支保部分の構成鉱物種の時空間的変遷の妥当性を評価するのは、容易ではない。このため、複数の反応経路とそれらの組み合わせにより緩衝材の鉱物学的長期変遷シナリオを作成し、それらに基づく連成解析により、鉱物学的変遷の不確実性を考慮した評価手法が提案されている（小田ほか, 2005）。令和 2 年度は、セメント支保と緩衝材との相互作用に関しては、小田ほか（2005）により提案された手法を参考に、緩衝材の鉱物学的長期変遷シナリオの一部を部分的に試行したに過ぎない。また、オーバーパックと緩衝材との相互作用に関しては、単に一例を試行しただけである。今後は、セメント支保と緩衝材及びオーバーパックと緩衝材との相互作用に関わる鉱物学的

長期変遷シナリオを整理し、シナリオの不確実性を考慮した連成解析を進めて行くことが重要である。さらに、シナリオの整理にあたっては、小田ほか（2005）の知見をベースに、対象とする相互作用に関わる室内・原位置試験やナチュラルアナログなどによる最新の知見を加えて、考慮すべき鉱物種や組み合わせの妥当性を確認していくことも必要である。例えば、令和 2 年度の連成解析では、セメント支保及び緩衝材部分に Mg 質の粘土鉱物の一種であるセピオライトの生成が推定されたが、小田ほか（2005）による鉱物学的変遷の中では、Mg 系の鉱物はシナリオ上、考慮されていない。このような解析結果の妥当性を確認するために、解析で生成が推定された鉱物種について、実際に生成可能性があるかどうかを一つ一つ確認していくことが重要である。

4) 緩衝材の変質と緩衝材に期待される機能の変化に係る評価例

本項(2)の 3)では、平成 31 年度までに開発した評価システムのプロトタイプにおける水理・物質輸送－化学反応に係る連成解析コード（QPAC）を用いて、緩衝材の長期的変質挙動に関わる連成解析の詳細な結果を示した。解析結果の妥当性については、次年度以降、継続して検討を進めていく必要があるが、ここでは緩衝材の長期的変質と本項(1)で述べたような緩衝材に期待される機能の変化との関係をどのような形で評価可能かを検討した。検討にあたっては、緩衝材に期待される機能として「低透水性」を一例とし、QPAC を用いた連成解析により推定される緩衝材の透水係数の値を用い、緩衝材の長期的変質に伴う透水係数の経時変化を可視化する方法を試行した。図 4.2-7 に Case 1 及び Case 2 を対象にした緩衝材の長期変質挙動に関わる解析結果で得られた透水係数の経時変化を示す。なお、Case 1 の 10 万年後の結果については、本項(2)の 3)の①でも述べたように参考値として扱った。

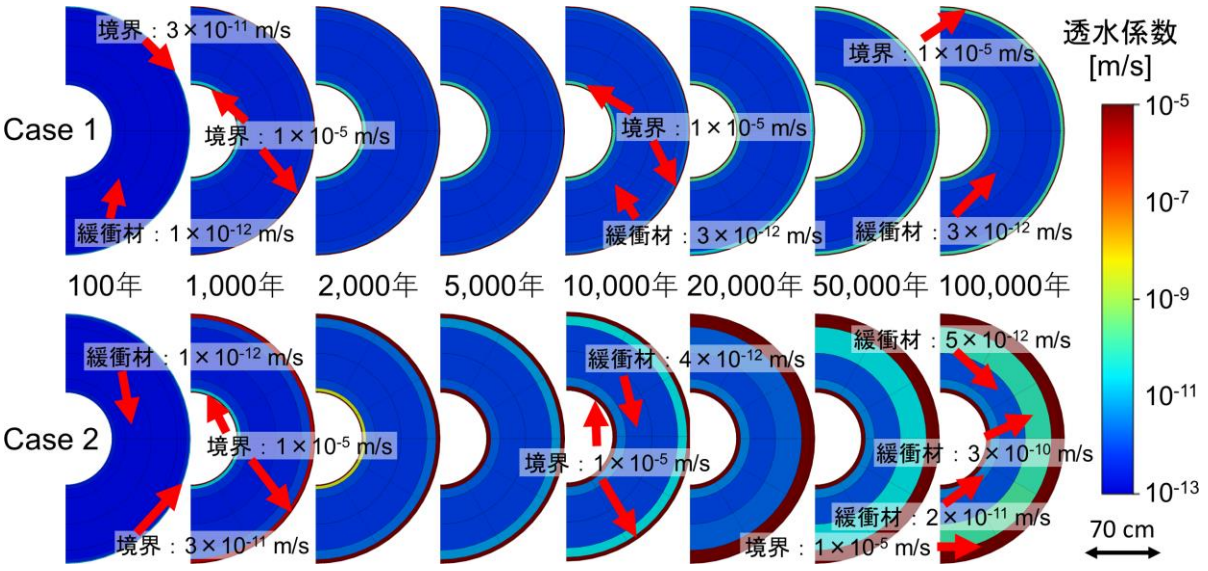


図 4.2-7　緩衝材の長期的変質挙動に係る連成解析結果（透水係数の経時変化）

相対的に変質影響の小さい Case 1 では、透水係数に顕著な変化（変質前の初期の透水係数が 10^{-12} m/s のオーダーに対し、変質に伴い 10^{-5} m/s のオーダーに変化）が生じた箇所は、セメント支保及びオーバーパックと緩衝材との境界付近のみであった。一方、相対的に変質影響の大きい Case 2 では、透水係数に顕著な変化が生じた箇所は、2 万年以降でセメント支保から 10 cm 程度の緩衝材の領域及びオーバーパックと接する緩衝材の近傍（1 cm 程度）となった。今回の試行では、緩衝材部分の透水係数は、伊藤・三原（2005）により報じられた関係式（主に緩衝材中の Na

型モンモリロナイトの残存量や間隙率との関係に基づく経験式）を用いている。このため、Na 型モンモリロナイトが消失すると透水係数は著しく低下すると見積もられる。一方、本項(2)の 3)で示した緩衝材中の構成鉱物の時間変遷に関わる解析結果では、モンモリロナイトの溶解に伴い、二次鉱物として沸石類の生成が推定されている。生成する沸石類の種類によっては、モンモリロナイトのような粘土鉱物と同様に膨潤性を有する沸石類もあると考えられるため、緩衝材の変質に伴う透水係数の変化を評価する場合は、変質に伴い生成する二次鉱物の種類も考慮して評価することも必要である。また、上述したように間隙率の変化や透水性の変化に基づき水理場を評価する際には、擬定常状態を仮定した評価を行っており、このような仮定に基づき評価された水理場が擬定常状態を仮定しない場合と比べて、その影響を無視し得るかどうかについても確認することが重要である。

このように現状では、緩衝材の長期的な変質を考慮した場合の透水係数の評価には、現実的な変質鉱物を想定した場合の透水係数の設定や擬定常状態の仮定による透水係数への影響など、今後確認すべき課題があるものの、図 4.2-6 に示すように緩衝材中のどの部分で透水係数が時間の経過と共に、どの程度変化するかの概要を把握できる。このように、緩衝材に期待される機能の変化を可視化できれば、別途、地質環境特性や処分場の設計・施工条件なども踏まえつつ、地層処分の実施主体が緩衝材に期待されている機能が発現されるための基準を設定した場合、設定された基準と照らし合わせることで、どのような条件やプロセスが重なると緩衝材に期待されている機能に好ましくない影響が生じる可能性があるかを推測する際にも役立つと考えられる。

(3) 水理・物質輸送－化学反応の連成解析結果の妥当性確認の進め方の検討

本項(2)の 3)では、平成 31 年度までに開発した評価システムのプロトタイプを用いた水理・物質輸送－化学反応に係る連成解析結果の詳細についてまとめたが、このような解析結果が対象とする時空間における変遷として適切な変化を表現しているかどうかを確認することが重要である。そのためには、短期から長期にわたる室内試験、原位置試験、ナチュラルアナログによるセメント－ベントナイト及び鉄－ベントナイト相互作用に関わる情報が必要になる。例えば、セメント－ベントナイト相互作用に関しては、これまでに様々な時空間スケールでの変質事例に関わる調査・解析が行われており、それらの検討を通じ、セメント由来の高 pH 溶液を受けた緩衝材（または泥質岩）中での溶液及び構成鉱物の一般的な変遷として、以下のような知見が得られている（Savage, 2011）。

・溶液組成の変化の傾向：セメントから離れるにつれて、pH 及び Na・K・Ca 濃度が低下。一方、Al・Si 濃度は、セメントから離れるにつれて上昇。
・構成鉱物の変化の傾向：セメントに近い所では、C-(A)-S-H が生成。セメントから離れた所には、沸石類、層状珪酸塩鉱物（イライトなど）、長石（カリ長石など）、炭酸塩などが生成。

なお、フランスのトルネミア地域のトンネルでの調査事例では、数十年～百年程度の接触期間にも関わらず、セメントと接していた泥質岩中に安定相であるカリ長石の生成が報じられている（Tineseau et al., 2006）。しかしながら、この事例は、泥質岩中に元々カリ長石の微結晶が存在し、それらが結晶化した可能性があり、高 pH 溶液の影響に伴い新たに沈殿した二次鉱物とは生成プロセスが異なる可能性があることも指摘されている（Savage, 2011）。また、間隙率の変化については、高 pH 溶液による緩衝材への変質影響の程度が進展するにつれ、間隙率が低下する傾向が認められる。特に、Ca 成分を含む溶液との反応では、間隙の閉塞が生じやすい傾向もある。

一方、Ca 成分に乏しい溶液との反応では、間隙率の低下が生じない場合もある。さらに、温度の影響によっても溶液組成・構成鉱物及び間隙率の変化の傾向も変わる可能性があるため、熱力学及び速度論的な観点での考察も踏まえて、連成解析で推定された結果の妥当性について議論することも必要である。このように、文献で報じられた現象や知見を参考に、連成解析で推定された結果の適切性を判断する際には、セメントーベントナイト及び鉄ーベントナイト相互作用に関して、熱力学や速度論に精通した高度の専門知識を有した専門家によるチェック及びレビューが有効であると考えられる。

また、水理・物質輸送ー化学反応に係る連成解析の妥当性確認として、セメントーベントナイト及び鉄ーベントナイト相互作用に関わる長期変質挙動に関わる既往の解析例を対象に、それらの再現解析を試みる方法も挙げられる。その際には、二次鉱物の溶解・沈殿挙動の評価を熱力学的に取り扱う場合や熱力学と速度論を組み合わせて取り扱い場合の比較も含めた検討を行うことが重要である。例えば、Marty et al.（2009）では、セメントーベントナイト相互作用に関わる長期変質挙動の評価にあたり、部分平衡を仮定した熱力学的な評価と共に、二次鉱物の溶解・沈殿の速度論（モンモリロナイトの溶解速度、沈殿の可能性が高い固相として選定された幾つかの鉱物に対する溶解・沈殿速度）を考慮した評価も行い、結果の比較や考察を行っている。速度論的評価の場合、解析で設定するメッシュサイズを変えて（セメントーベントナイトの境界付近でのメッシュサイズを 10 cm、1 cm 及び 1 mm）、溶解・沈殿速度と拡散速度のバランスにより、間隙の閉塞が生じる時間の違いを比較した。比較の結果、モンモリロナイトの溶解が速い場合、セメントーベントナイトの境界付近での二次鉱物の溶解･沈殿が比較的速やかに平衡状態に達し（拡散により物質移行が遅いことも影響）、間隙が閉塞する傾向があった。一方、モンモリロナイトの溶解が遅い場合、平衡状態に達するまでに時間を要し、間隙が閉塞するまでの時間が長くなった。このように、セメントーベントナイトの境界付近における間隙の閉塞に要するまでの時間は、溶解速度の低下（反応比表面積の減少）と共に増加する傾向が見られた。間隙が閉塞すると物質移行が抑制され、緩衝材の変質も抑制されるため、長期変質挙動に関わる評価では重要な意味を持つものの、Marty et al. (2009) の検討でも示されているように、メッシュサイズにも依存する。また、間隙の閉塞に至るまでの時間だけでなく、その間で生じる二次鉱物の生成に関わる反応経路にも影響した（Marty et al., 2009）。このように、水理・物質輸送ー化学反応に係る連成解析の妥当性確認にあたっては、解析条件や仮定における不確実性とそれらが解析結果に及ぼす影響に関わる分析・解釈を併せて行い、妥当性の確認が概ね可能な部分と現状では不確実性が伴う部分を整理することも必要であると考えられる。

(4) 閉鎖後長期の状態変遷に反映すべき閉鎖後過渡期の状態変遷に関わる情報整理

本項(2)で述べた水理・物質輸送－化学反応－力学に関わる連成解析は、処分場閉鎖後初期の過渡期における高温・不飽和・酸化性雰囲気での状態変遷が終了し、その後の地温・飽和・還元性雰囲気での長期的な状態変遷を対象としている。このため、過渡期の状態変遷がその後の長期的な状態変遷に及ぼす影響については考慮しておらず、閉鎖後長期の状態変遷を評価するにあたり不確実性が伴う。そこで、閉鎖後過渡期において想定される現象とその不確実性について、既往の検討例（原子力発電環境整備機構・日本原子力研究開発機構, 2012）について調査し、閉鎖後長期の状態変遷に反映すべき情報を整理した。

まず、閉鎖後過渡期と閉鎖後長期の時間区分について整理した。原子力発電環境整備機構・日本原子力研究開発機構（2012）における検討例では、以下のように区分されている。

・閉鎖後過渡期：廃棄体発熱による温度上昇及び緩衝材全体が再冠水するまでの坑道閉鎖後の過渡的期間
・閉鎖後長期：　緩衝材全体が再冠水した後、多重バリア性能に期待する期間

上記のうち、閉鎖後過渡期において緩衝材の状態変遷に顕著な影響を及ぼす可能性のある現象とその不確実性は、以下の通りである（原子力発電環境整備機構・日本原子力研究開発機構, 2012）。

- **パイピング及び浸食とそれに伴う不確実性**

  不飽和状態の緩衝材に局所的に周辺からの地下水の浸入がある場合、緩衝材中に水みちが形成される現象（パイピング）が発生する可能性がある。パイピングが生じた場合、緩衝材中の水みちに沿って緩衝材の浸食が生じ、緩衝材の密度低下や、密度低下に伴う膨潤圧の低下・透水性の上昇といった不確実性を伴う。

- **随伴鉱物などの溶解・沈殿とそれに伴う不確実性**

  過渡期には、温度勾配下において、熱－水－応力－化学の連成現象が生じ、緩衝材中に含まれる随伴鉱物や可溶性塩などが地下水の浸入に伴い、溶解・沈殿すると想定される。その場合、緩衝材中に沈殿した二次鉱物により、部分的にセメンテーションが発生する可能性がある。セメンテーションが生じた場合、緩衝材の透水性の変化や膨潤性の低下などの不確実性を伴う。

閉鎖後過渡期において、上述したような現象が発生した場合の緩衝材に及ぼす影響を整理すると、緩衝材の密度低下、膨潤圧の低下及び透水性の上昇が挙げられる。閉鎖後長期の状態変遷を評価する際には、閉鎖後過渡期におけるこれらの不確実性がどの程度になるかを把握し、長期の状態変遷に反映すべきであると考えられる。SP1 においては、ニアフィールド THMC 連成挙動評価や流出現象などを考慮した緩衝材の健全性評価が行われており、これらの評価から導き出される不確実性を SP3 で実施する緩衝材の長期的変質挙動における初期状態の不確実性として適切に反映することが必要になる。

4.2.3 これまでの成果と今後の課題

令和 2 年度は、平成 31 年度までに開発したプロトタイプの評価システムを用いて、水理・物質輸送－化学反応－力学及び水理・物質輸送－化学反応を連成させた緩衝材の長期変質挙動に関わる感度解析を行い、力学解析の連成の有無による水理・物質輸送及び化学反応への影響と程度、差が生じる要因などを確認した。このような検討を通じ、連成解析における簡略化・単純化への反映を念頭に、連成解析で用いる解析コードの検証・確証に関わる現状を整理した。その結果を踏まえ、水理・物質輸送－化学反応による連成解析結果の妥当性確認を行う上で必要となる解析結果の詳細に係る分析を行うと共に、今後の妥当性確認の進め方について整理した。加えて、緩衝材の長期的変質と緩衝材に期待される機能の変化との関係の整理方法の試行や、閉鎖後長期の状態変遷の解析に反映すべき閉鎖後過渡期の状態変遷に関わる情報についても整理した。

平成 30 年度～令和 2 年度までの 3 か年の検討により、ニアフィールドを対象とした複合現象評価のためのシステム開発にあたり、トップダウンとボトムアップの双方の視点から検討するアプローチに基づき、システム開発で着目すべき評価課題を選定する手法を提示した。また、選定された課題「緩衝材の長期的変質挙動の予測」の評価にあたり重要となる複合現象（コンクリート支保及びオーバーパックとの化学－力学相互作用による緩衝材の状態変化）を対象にシステムの開発を行い、プロトタイプの評価システムを構築した。なお、力学を含めた連成解析のための評価システムの改良は、令和 2 年度で一旦保留とし、水理・物質輸送－化学反応に係る連成解析の妥当性確認に概ね目途がついた段階で、再度取り組みを検討することとした。

今後は、令和 2 年度に整理した水理・物質輸送－化学反応に係る連成解析の妥当性確認の進め方に基づき、プロトタイプの評価システムを用いた連成解析結果の妥当性を確認していくことが課題である。

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」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（サブタスク 1）で示したニアフィールド複合現象評価システムを用い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。

令和 2 年度は、サブタスク 1 における連成解析で得られた緩衝材の変質に関わる状態変遷を考慮し、核種移行パラメータを設定するための方法を SP2 と連携しつつ行った。また、設定した核種移行パラメータを基に核種移行解析を行い、緩衝材の変質程度の違いが核種の移行遅延に及ぼす影響について考察した。さらに、このような核種移行解析の結果を活用して性能評価を行うための課題を整理した。本節ではこの検討の成果を示す。

4.3.2 実施内容

(1) 緩衝材の変質に関わる状態変遷を考慮した核種移行パラメータの設定方法の検討

4.2.2 項(2)の 3)で述べた水理・物質輸送－化学反応に係る解析コード（QPAC）を用いた緩衝材の長期的変質挙動に係る連成解析結果を基に、緩衝材の長期的変質に伴う状態変遷を考慮し、核種移行解析を行うにあたり、核種移行パラメータの設定方法について検討した。具体的には、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を進めている SP2 と連携しながら、核種移行パラメータをサブタスク 1 での連成解析から得られた場の情報を反映させたパラメータ値に変換するための方法を整理した。令和 2 年度に実施した核種移行解析において対象とした核種は、陽イオンとして Cs、陰イオンとして I を選定した。各々の核種に対して設定した核種移行パラメータを表 4.3-1 にまとめた。以下に、各々のパラメータ設定にあたっての考え方や設定方法について説明する。

緩衝材である圧縮ベントナイト中の核種の拡散・収着挙動については、これまでに多様な核種と環境条件を対象に実測データが取得され、それらのデータをもとに拡散・収着パラメータの環境条件による変動を予測評価することが可能なモデルが構築されている（Tachi et al., 2014a；2014b）。さらに、これらの知見を含む国内外の最新のデータに基づき、ベントナイト中の拡散・収着パラメータの設定手法の構築や、実際のパラメータ設定が検討されている（原子力発電環境整備機構・日本原子力研究開発機構, 2012；日本原子力研究開発機構, 2015c；原子力発電環境整備機構, 2021）。ここでは、これらの先行成果や SP2 の成果をもとに、上記の解析で得られた緩衝材の長期的変質に伴う状態変遷を考慮し、それの変遷と対応付けた核種移行パラメータの設定手法を検討した。環境条件に応じた核種移行パラメータを設定するためには、状態変遷に応じた緩衝材の間隙水化学や固相の変遷が、核種の化学種や収着・拡散に及ぼす影響を踏まえる必要がある。

緩衝材中の核種の拡散・収着挙動は、ベントナイトの主成分であるモンモリロナイトによって支配される。緩衝材の核種の拡散は、主にモンモリロナイトの表面との静電的な相互作用により影響を受け、間隙水中での核種の支配化学種の電荷と、間隙水の塩濃度が拡散挙動を評価するうえで重要な要素となる。一方で、核種の収着は、モンモリロナイトのベーサル面（層間）での陽イオン交換反応と、エッジ面の表面錯体反応によって生じ、核種の支配化学種の電荷や反応性に加え、競合するイオンや配位子の濃度、pH や塩濃度が重要な影響因子となる。これらの緩衝材の拡散・収着メカニズムを踏まえ、固相の変遷については、モンモリロナイトを中心に検討することが適切である。ここでは、初期の Na 型モンモリロナイトから、Ca 型モンモリロナイトへの変化、さらにはモンモリロナイトが溶解して二次鉱物として変質する 3 つの状態に分けて設定し、それらの混在する状況は、それぞれの特性の平均的な取扱いによって検討することとした。一方で、間隙水の液相の変化は、アクチニドなどの様々な配位子と錯形成する核種の場合には pH や炭酸濃度などの影響を考慮する必要があるが、ここで対象とする Cs と I はそのような錯形成を考慮する必要がなく、モンモリロナイト表面の静電的な相互作用と共存イオンとの競合反応が主たる影響因子となる。このことから、液性条件については、塩濃度（イオン強度）の変化と関連付けた拡散・収着パラメータの設定手法を検討した。

まず、初期状態の Na 型モンモリロナイトへの Cs や I の実効拡散係数（D_e）のデータは多数の報告例があり、Cs はイオン強度の増加とともに減少し、I では逆にイオン強度の増加とともに増加する傾向を示す。ここでは、上記の先行研究で整理された Cs 及び I のD_eデータのイオン強度依存性に基づく実験式を参考に、表 4.3-1 に示す換算式を設定した。また、収着分配係数（K_d）については、Cs については陽イオン交換の競合のために、イオン強度とともに減少することから、上記の先行研究で整理された Cs のK_dデータのイオン強度依存性に基づく実験式を参考に、

表 4.3-1 に示す換算式を設定した。なお、I については$K_d = 0$に設定した。Ca 型モンモリロナイトについては、先行研究で Cs と I のD_e及びK_dのイオン強度依存性が取得されており、層間陽イオンが 2 価の Ca イオンに変化することによって静電的な相互作用が弱まる結果として、そのイオン強度依存性は Na 型と比較して軽減される（日本原子力研究開発機構, 2018）。これらの Cs 及び I のD_eデータ、Cs のK_dデータのイオン強度依存性を参考に、表 4.3-1 に示す換算式を設定した。なお、Mg や Fe 型化による拡散・収着パラメータも、Cs 及び I への影響に関しては同様に扱うことが可能と考えられる。さらに、モンモリロナイトの溶解に伴う変質鉱物として想定されるゼオライトや非膨潤性鉱物においては、モンモリロナイトのような静電的な相互作用は考慮する必要がなく、間隙率と関連付けてD_eを Archie's law を用いて設定することが適切と考えられる（Hirono et al., 2008）。ここでは、ベントナイトにケイ砂を 90%まで混合した系での水のD_eデータ（Kato et al., 1999）を参考に、表 4.3-1 のように設定した。ゼオライトなどの変質鉱物に対しても収着が生じることが期待でき、実際にこのような変質鉱物へのK_dを設定した事例（Bradbury and Baeyens, 2004；三原, 2006）もあるが、ここでは、Cs と I に対して$K_d = 0$と仮定した。

表 4.3-1　緩衝材の長期的変質に伴う状態変遷を考慮した核種移行パラメータの設定

構成鉱物	Cs（陽イオン）		I（陰イオン）	
	D_e (m^2/s)	K_d (m^3/kg)	D_e (m^2/s)	K_d (m^3/kg)
モンモリロナイト	**イオン強度（IS）依存性を考慮**			
Na 型 モンモリロナイト	・換算式※1： $5.4 \times 10^{-10} \cdot IS^{-0.55}$ ・初期値（$IS = 0.026$）： 4.0×10^{-9}	・換算式※1： $1.6 \times 10^{-2} \cdot IS^{-0.7}$ ・初期値（$IS = 0.026$）： 2.1×10^{-1}	・換算式※1： $1.3 \times 10^{-10} \cdot IS^{0.50}$ ・初期値（$IS = 0.026$）： 2.1×10^{-11}	0
Ca 型、Mg 型、Fe 型 モンモリロナイト	・換算式※2： $4.7 \times 10^{-10} \cdot IS^{-0.40}$ ・初期値（$IS = 0.026$）： 2.0×10^{-9}	・換算式※2： $8.0 \times 10^{-3} \cdot IS^{-0.35}$ ・初期値（$IS = 0.026$）： 0.029	・換算式※2： $3.0 \times 10^{-10} \cdot IS^{0.10}$ ・初期値（$IS = 0.026$）： 2.1×10^{-10}	0
モンモリロナイト以外	**間隙率（P）依存性を考慮**			
変質鉱物 （ゼオライト、 非膨潤性鉱物など）	・換算式※3： $2.0 \times 10^{-9} \cdot P^{2.0}$ ・初期値（$P = 0.4$）： 3×10^{-10}	0※4	・換算式※3： $2.0 \times 10^{-9} \cdot P^{2.0}$ ・初期値（$P = 0.4$）： 3×10^{-10}	0

※1）ケイ砂混合率 30%、乾燥密度 1.6 Mg/m^3 のベントナイトの実測データによる実験式。
※2）ケイ砂混合率 30%、乾燥密度 1.6 Mg/m^3 のベントナイトの実測データの傾向より概算して得られた経験式。
※3）ケイ砂混合率 90%、陽イオン加速・陰イオン排除効果なし、間隙率依存性は Archie's law に従う場合の式。
※4）ゼオライトはモンモリロナイトと同程度の$K_d = 0.1$であると期待できるが、ここでは 0 と仮定した。

上述したような換算式を用い、サブタスク 1 で行った緩衝材の長期的変質挙動に係る連成解析結果をもとに、各解析メッシュにおける構成鉱物の情報を反映させて、Cs 及び I のD_eやK_dを算出した。その際、各メッシュにおける構成鉱物の体積または重量の割合に応じ、平均的なD_eやK_dを算出するため、令和 2 年度の解析では、それぞれ、以下の 1)、2)で示す方法を用いた。

1) 平均的な実効拡散係数

メッシュ内での鉱物の体積割合に基づき、下式(4.3-1)により、平均的な実効拡散係数D_e^{ave}として算出した。

$$\frac{1}{D_e^{ave}} = \frac{v^{\mathrm{Na}}}{D_e^{\mathrm{Na}}} + \frac{v^{\mathrm{Ca}}}{D_e^{\mathrm{Ca}}} + \frac{v^{others}}{D_e^{others}} \tag{4.3-1}$$

ここで、vはメッシュ内での鉱物の体積割合を表し、添字の Na は Na 型モンモリロナイト、Ca は Ca 型モンモリロナイト、*others* はモンモリロナイト以外の鉱物（二次鉱物であるゼオライトなど）を表すものとする。

2) 平均的な収着分配係数

メッシュ内での鉱物の重量割合に基づき、下式(4.3-2)により、平均的なK_d^{ave}として算出した。

$$K_d^{ave} = w^{\mathrm{Na}} \cdot K_d^{\mathrm{Na}} + w^{\mathrm{Ca}} \cdot K_d^{\mathrm{Ca}} + w^{others} \cdot K_d^{others} \tag{4.3-2}$$

ここで、wはメッシュ内での鉱物の重量割合を表し、添字はD_eと同様にモンモリロナイトのイオン型や鉱物の種類を表すものとする。

(2) 緩衝材の変質に関わる状態変遷を反映した核種移行解析手法

緩衝材の変質に関わる状態変遷を反映した核種移行解析にあたっては、平成 31 年度までに開発した解析ツール（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, 2020）を用いて行った。解析方法は、基本的に平成 31 年度と同様であり、サブタスク 1 における複合現象を対象とした連成解析結果により求められた地球化学的・水理学的な場の状態変遷に関わる情報を基に、本項(1)で設定した核種移行パラメータの換算式を用い、核種ごとにパラメータ値の時空間的な変遷を算出して核種移行解析を行った。核種移行解析モデルの概念も平成 31 年度と同様であり、図 4.3-1 に示すように、ガラス固化体から放出した核種は、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。また、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。

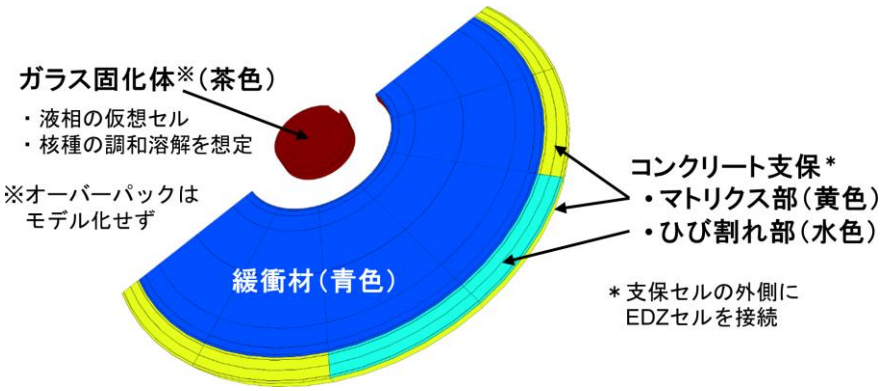


図 4.3-1　核種移行解析モデルの概念図

(3) 緩衝材の変質に関わる状態変遷を反映した核種移行解析結果

本項(1)で設定した核種移行パラメータを用いて緩衝材の変質に関わる状態変遷を反映した核種移行解析の結果を図 4.3-2 及び図 4.3-3 に示す。なお、これらの図において、例えば、1,000 年後の結果は、オーバーパック破損後、核種の放出が生じてから 1,000 年後の状態を示しており、処分場閉鎖後から 1,000 年後の結果ではない。

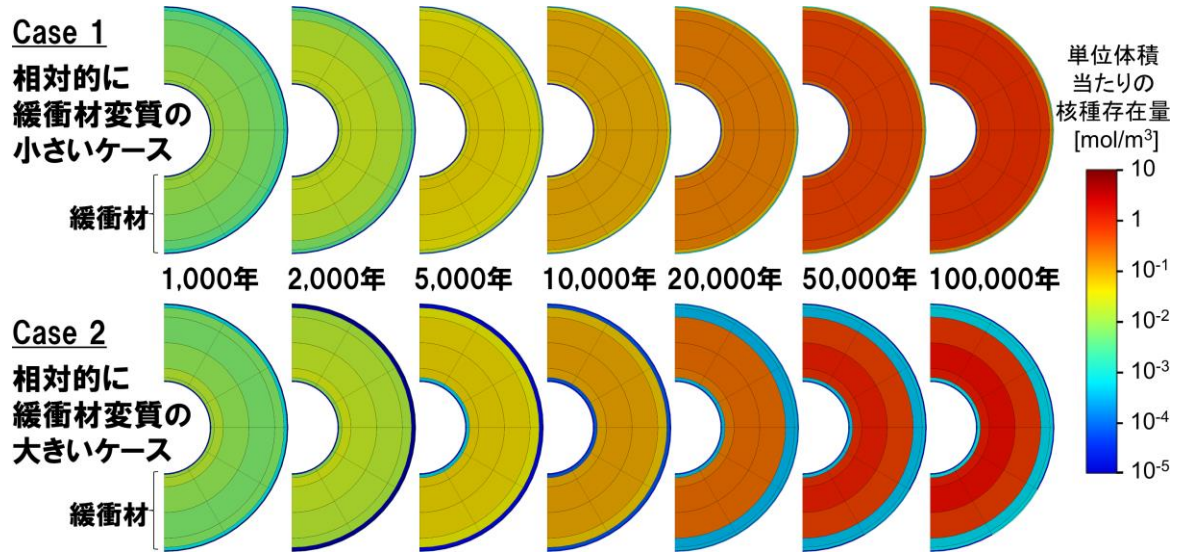


図 4.3-2　緩衝材中の単位体積あたりの Cs-135 の存在量の経時変化

図 4.3-3　緩衝材中の単位体積あたりの I-129 の存在量の経時変化

なお、図 4.3-2 は Cs-135 に対する解析結果、図 4.3-3 は I-129 に対する解析であり、各々の解析結果では、緩衝材中の単位体積当たりの核種の存在量（mol/m³）として表示した。ただし、緩衝材部分の解析にあたり設定したメッシュの大きさは、緩衝材の部位により異なる（例えば、オーバーパックやセメント支保と接する部分では、それ以外の部分に比べると細かいメッシュが切られている）。このため、対象となるメッシュ部分の核種の存在量を平均化して表示した場合、メッシュの大きさの違いによる核種の存在量への影響も含まれていると考えられるため、ここでは、核種の存在量の相対的な大小を比較するための分布として利用した。また、Case 1 の 10 万年後の結果については、4.2.2 項(2)の 3)で述べたように参考値として扱った。

Case 1 及び Case 2 における緩衝材中での Cs-135 の存在量を比較すると、相対的に変質影響の小さい Case 1 の方が緩衝材中での存在量が大きい領域が広いことがわかる（図 4.3-2）。また、相対的に変質影響の大きい Case 2 を見ると、緩衝材中での Cs-135 の存在量の分布に差があり、オーバーパックと接する緩衝材内側及びセメント支保と接する緩衝材外側では、緩衝材中心部に比べると存在量が少ないこともわかる（図 4.3-2 の下図）。一方、Case 1 及び Case 2 における

緩衝材中での I-129 の存在量を比較すると、両ケースにおける緩衝材材中での存在量に顕著な違いは認められない（図 4.3-3）。そこで、Case 1 及び Case 2 における緩衝材中での Cs-135 の存在量分布の違いについて考察するため、緩衝材中での存在量分布に顕著な違いが認められた Case 2 を対象に、Cs-135 の存在量分布と緩衝材中でのK_d及びモンモリロナイト残存量の経時変化を比較した（図 4.3-4 の(a)）。また、これらに加え緩衝材中での構成鉱物の時間変遷（図 4.3-4 の(b)）も踏まえ、緩衝材中での Cs-135 の存在量分布の違いについて考察した。

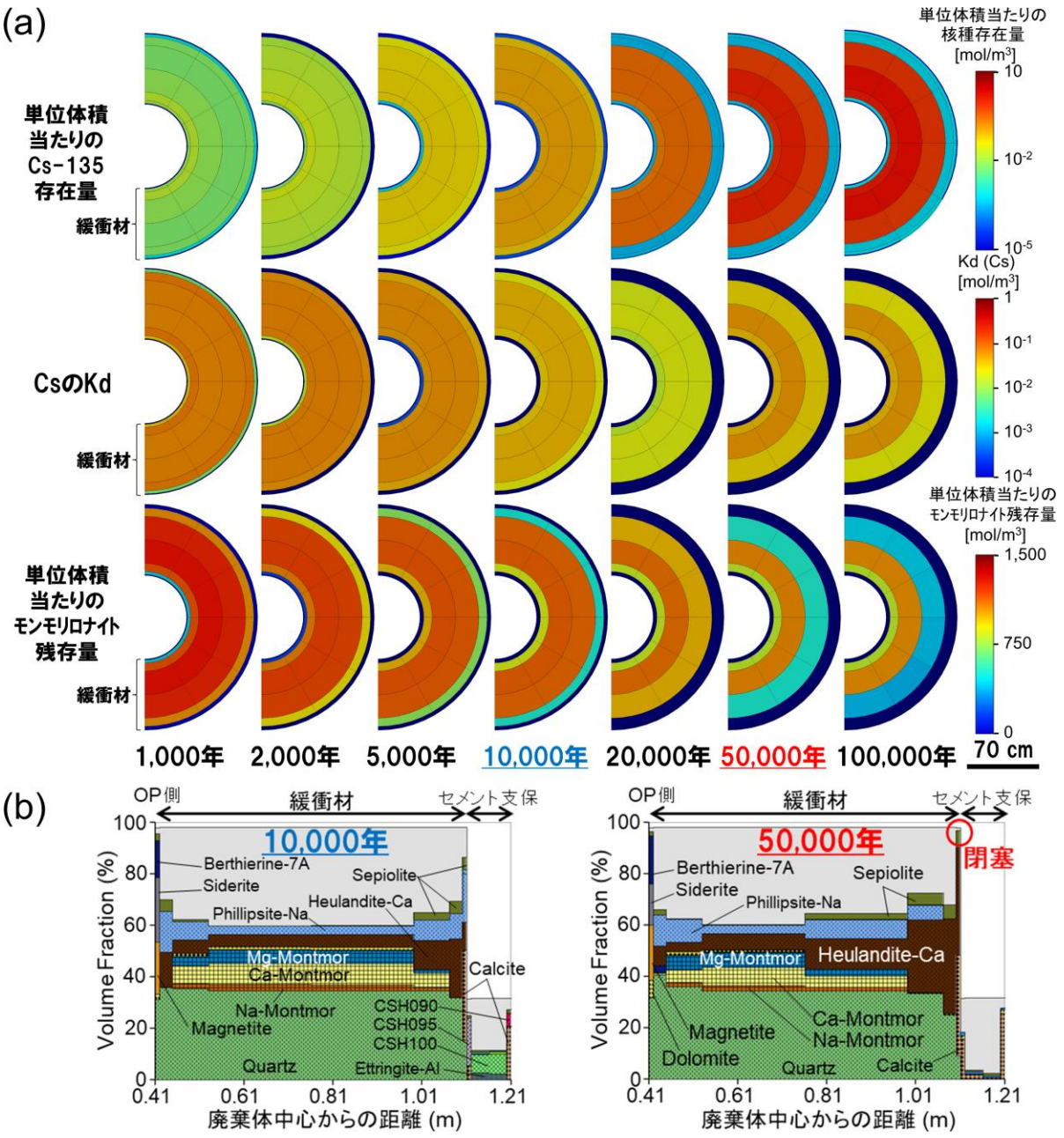


図 4.3-4　緩衝材中での Cs-135 の存在量分布の経時変化と Cs の K_d、モンモリロナイト残存量及び緩衝材中での構成鉱物の時間変遷との比較

（a）緩衝材中での単位体積当たりの Cs-135 の存在量、Cs の K_d 及び単位体積当たりのモンモリロナイト残存量の経時変化（b）緩衝材中での構成鉱物の核種放出開始後 1 万年及び 5 万年経過時点でのスナップショット

Cs-135 の存在量分布の経時変化は、緩衝材中でのK_d及びモンモリロナイト残存量の経時変化と類似しており、Cs-135 の存在量の低い部分は、K_dが低く、モンモリロナイト残存量の低い部分に相当する。本項の(1)で述べたように、Cs のK_dはイオン強度、モンモリロナイトのイオン型の変化や単位体積当たりのモンモリロナイト残存量と関係するパラメータである。Case 2 の解析結果では、緩衝材中での間隙水のイオン強度の分布は、緩衝材中で大きな差は認められない（図 4.2-5）。モンモリロナイトは、イオン型は初期の Na 型から Ca 型または Mg 型に変化し、残存量は時間の経過と共に減少する。一方、モンモリロナイトの減少に伴い、二次鉱物として沸石類（フィリップサイト、ヒューランダイト）や Mg 質の粘土鉱物（セピオライト）が生成する（図 4.3-4 の(b)）。本項の(1)で述べたように、今回は沸石などの二次鉱物については、$K_d = 0$と仮定している。このため、Cs-135 の存在量分布の経時変化は、主に緩衝材の変質に伴う場の状態変遷（緩衝材中の構成鉱物の変化）を反映した Cs のK_d変化に依存し、変化したと推察される。なお、核種の移行遅延には、D_eも影響するが、今回、$K_d = 0$を仮定した I-129 の解析結果で示されたように、I-129 の存在量分布には顕著な違いは認められなかった（図 4.3-3）。このことから、今回の解析ケースでは、緩衝材の変質に伴う場の状態変遷を考慮しても、D_eによる核種の移行遅延への影響は、K_dよりも小さかったことが示唆される。ちなみに、Case 2 の解析では、5 万年以降に緩衝材とセメント支保との境界が閉塞するが、今回の解析では閉塞後も境界部での物質輸送が継続（拡散による核種移行が継続）すると仮定した場合の結果である。

上述したような令和 2 年度に実施した核種移行解析では、室内試験などで得られたデータをもとに場の状態変遷を考慮した核種移行パラメータを設定し易い、単純な核種を対象に実施した。一方、核種によっては、pH の変化に伴い主要な化学種が変化しK_dやD_eが異なるものや、他の共存イオンとの競合によりK_dが変化するものもある。今後は、より複雑なパラメータ設定が必要となる核種についても、設定方法を検討することも必要である。また、SP2 における現象理解に関わる室内・天然事例の調査研究により核種の移行遅延メカニズムが把握されつつある、セレンの鉄（II）鉱物へ取り込みといったK_dとは異なる取扱いで評価すべき核種についても、今後、評価方法について検討を進めることも重要である。

なお、SP3 で取り組んでいるニアフィールドの状態変遷を考慮した核種移行評価技術の開発については、諸外国においても先行して類似した検討が進められている。例えば、Silva et al.（2017）では、フランスにおける処分の実施主体であるフランス放射性廃棄物管理機関（以下、「ANDRA」という）が処分場の候補母岩として想定している Callovo-Oxfordian（COx）粘土層を対象に、人工バリア及び周辺母岩のニアフィールドにおける反応輸送解析を行い、その結果を踏まえた核種移行解析が行われている。Silva et al.（2017）による解析例では、U、Th、Pu、Cs 及び Ni の移行遅延は、COx 粘土層中の化学反応（表面錯体、イオン交換及び溶解・沈殿）による影響が大きい結果となった。ANDRA が想定している人工バリア仕様には緩衝材が含まれていないため、粘土層が緩衝材と同様な機能を果たしていると考えられる。SP3 における場の状態変遷を踏まえた核種移行パラメータの設定や核種移行解析を進めていく際には、このような諸外国における類似例の結果も参考にしつつ、解析結果の解釈や評価を進めて行くことも必要である。

(4) 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

1.2 節の実施計画で述べたように、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し得るための技術基盤としての活用が期待される。このような反映先を念頭にした場合、性能評

価手法の高度化の目標の一つとして、実際のサイトで想定される隆起・侵食や海水準変動などの地質環境の長期的変遷や人工バリアの変質劣化やこれに伴う岩盤中の亀裂近傍の変質（セメント系材料由来のアルカリ成分による影響など）が核種移行へ与える影響を考慮可能な現実的なモデルと評価手法の開発が挙げられる。このうち、SP3 で主に取り組んでいる人工バリアの変質劣化などのニアフィールドの環境変遷を考慮した核種移行解析手法の高度化を進めていく上での方針について整理した。

ニアフィールドの環境変遷としては、人工バリアやセメント支保工などの処分施設構成要素間の相互作用による変質・劣化、セメント支保と岩盤との相互作用に伴う岩盤中の亀裂の変質や地下水組成の変化が三次元の空間において、時間と共に変化することを想定する必要がある。例えば、亀裂性媒体を対象とした三次元の核種移行解析を想定する場合、セメント系材料由来のアルカリ成分による岩盤の変質影響を核種移行解析に随時反映することが必要になる。しかしながら、Molinero et al.（2016）の例に示されるように、亀裂性媒体を対象とした水理場の解析では、水理学的に等価な不均質連続体としてモデル化される場合が多く、透水性亀裂の不均質性を考慮したセメント由来のアルカリ成分（水酸基や Ca など）の影響が評価されていない。また、亀裂性媒体では、移流支配となる亀裂部と拡散支配となるマトリクス部でのセメント影響も顕著に異なると予想されるが、セメント影響により亀裂部が二次鉱物で閉塞した場合の地下水流動への影響も考慮されていない。このように、ニアフィールドで想定される複数の現象・プロセスを統合したモデルを構築し、より現実的な核種移行評価を行うには、諸外国での先行事例を鑑みても、現状では解決すべき課題が多い。このため、ニアフィールドの環境変遷を考慮した核種移行解析手法の高度化にあたっては、構成要素あるいは構成要素間での相互作用ごとに場の長期的変遷や核種移行解析を行い、各々の解析間の整合を取りつつ、統合化するような手法の構築を目指していくのが適当であると考えられる。

また、上述したようなニアフィールドの環境変遷を露わに表現できるように核種移行解析手法を高度化し、それを活用することで性能評価を高度化させていくには、地層処分事業の段階や用途あるいはステークホルダーに応じた様々なニーズに対応して、常に最先端の知見を反映した評価が行えるようにする視点も重要となる。そのため、これらのニーズを抽出・整理するとともに、前述のニアフィールドの空間的・時間的な変遷を評価するための研究開発の成果、さらにはより幅広い分野で開発されている先進的な技術なども含めて、研究開発の各段階で利用可能な最新の技術や情報などをこれらのニーズに即した形で効果的に活用できる手法を整備することが重要になると考えられる。また、利用可能な技術や情報などが不十分な課題についても、その段階で可能な最善の処置ができる手法を整備することなども重要である。

例えば、これまで本事業で開発を進めてきたニアフィールド複合現象モデルにより現象解析を行い、その結果に基づいた核種移行解析を通じてニアフィールドの性能評価を行う場合、地質環境モデルにより表現された不均質性や、地質・地表環境の長期変遷に関する情報をインプットとして反映する際には、以下に示す要件を満たす必要がある。

・岩盤の不均質性に関する要件：人工バリア周辺の岩盤の不均質性（特に透水性割れ目の分布など）とその影響（人工バリアの不均質な変質や期待される機能の劣化の程度の位置依存性など）を表現可能であること。
・地質環境の長期変遷に関する要件：処分坑道周辺の地質環境条件の長期的変遷（地下水水質の変化など）とその影響を表現可能であること。

そして、この二つの要件の具体的な中身は、地層処分事業の段階に応じて変わってくると考え

られる。例えば、概要調査段階では、概略的な核種移行解析により精密調査地区選定に向けた候補サイト間の比較が行われるのに対して、精密調査段階では、基本レイアウトの決定に向けて候補サイト内での最適な処分場位置や深度の選択及びパネルレイアウトで避けるべき大規模な構造などの抽出が求められる。そのため、後者の方が、より高い解像度で不均質性を表現することが必要になると考えられる。また、精密調査段階においては、岩盤の不均質性や廃棄体定置・人工バリア施工状況を考慮した（位置に依存した）過渡期の挙動と、人工バリア材の変質・劣化挙動及びこれらの相互作用に関する長期的ニアフィールド環境変遷モデルを過酷な条件におけるストレステストを想定した評価を行うことなどにより、廃棄体の定置を避けるべき条件の具体化やそのために必要な閉鎖後モニタリングにおける確認事項の抽出などが求められる可能性も考えられる。

以上述べたように、どの事業段階のどのようなニーズを満たすための性能評価の高度化を進めるのかを念頭に置いて、モデル開発及びその結果を反映した性能評価手法の高度化を効率的に進めていくことが今後重要である。

4.3.3 これまでの成果と今後の課題

令和 2 年度は、SP2 とも連携し、サブタスク 1 における連成解析で得られた緩衝材の変質に関わる状態変遷（イオン強度、間隙率、構成鉱物など）を考慮し、核種移行パラメータを設定するための考え方や設定方法を検討した。また、核種移行パラメータを設定し、緩衝材の変質程度の違いによる核種の移行遅延への影響について解析結果に基づき考察した。さらに、このような核種移行解析の結果を活用して性能評価を行うための課題を整理した。

平成 30 年度～令和 2 年度までの 3 か年の検討により、ニアフィールドの状態変遷に関わる解析結果を反映しつつ、核種移行評価が可能なプラットフォームを利用し、核種移行解析の試行可能なシステムを開発した。また、単純な核種を対象とした場合の状態変遷を踏まえた核種移行パラメータの設定方法を検討し、核種移行解析を行うことで、緩衝材の変質程度の違いによる核種の移行遅延への影響を二次元で可視化する手法を整備した。

今後は、緩衝材の変質に関わる状態変遷踏まえて多様な核種を対象とした場合の核種移行パラメータの設定方法について検討を進めると共に、緩衝材の変質が核種の移行遅延効果に与える影響を評価する手法の整備に向けて課題を整理する必要がある。

参考文献

Bradbury, M.H. and Baeyens, B., Project Opalinus Clay, Sorption Data Bases for Opalinus Clay Influenced by a high pH Plume, PSI Bericht No. 04-07 and Nagra Technical Report NTB 03-12, 2004.

Gaucher, E.C., Blanc, P., Matray, J-M. and Michau N., Modeling diffusion of an alkaline plume in a clay barrier, Applied Geochemistry, Vol.19(10), pp.1505-1515, 2004.

原子力発電環境整備機構, 地層処分事業の安全確保（2010 年度版）－確かな技術による安全な地層処分の実現のため－, NUMO-TR-11-01, 2011.

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－, NUMO-TR-20-03, 2021.

原子力発電環境整備機構・日本原子力研究開発機構, 概要調査段階における設計・性能評価手法の高度化, －NUMO-JAEA 共同研究報告書（2011 年度）－, NUMO-TR-12-03, 2012.

Gribi, P., Johnson, L., Suter, D., Smith, P., Pastina, B. and Snellman, M., Safety assessment for a KBS-3H spent nuclear fuel repository at Olkiluoto, Process Report, SKB R-08-36, 2008.

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.

Hirono, T., Nakashima, S., Spiers, C.J., Measurements of ionic diffusivity in various rock samples: Low diffusivity through nanoscale pores, International Journal of Rock Mechanics & Mining Science, Vol. 45, pp.450-459, 2008.

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.

Kato, H., Nakazawa, T., Ueta, S. and Yato, T., Measurements of Effective Diffusivities of Tritiated Water in Sand-mixed Bentonite, Proceedings of the 7th International Conference on Radioactive Waste Management and Environmental Remediation (ASEM 1999), Nagoya, Japan, 1999.

Marty, C.M. N., Tournassat, C., Burnol A., Giffaut, E. and Gaucher C.E., Influence of reaction kinetics and mesh refinement on the numerical modeling of concrete/clay interactions, Journal of Hydrology, 364, pp.58-72, 2009.

三原守弘, TRU 廃棄物処分システムの安全評価における核種移行データセット, JAEA-Review 2006-011, 2006.

三原守弘, 平野史生, 高山裕介, 京川裕之, 大野進太郎, TRU 廃棄物地層処分施設の化学的変遷を考慮した長期力学挙動解析コードの開発, 原子力バックエンド研究, Vol.24, No.1, pp.15-26, 2017.

三原守弘, 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.

Molinero, J., Trinchero, P., Manuel de Vries, L., Ebrahimi, H. and Svensson, U., The BRIDGE project, Development, testing and application of a high performance computing framework for reactive transport modelling in crystalline rocks (iDP), SKB R-15-17, 2016.

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, 2012a.

日本原子力研究開発機構, 平成 23 年度 地層処分技術調査等事業 高レベル放射性廃棄物処分関連 処分システム化学環境影響評価高度化開発 報告書, 平成 24 年 3 月, 2012b.
日本原子力研究開発機構, 平成 24 年度 地層処分技術調査等事業 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, 2013a.
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 高レベル放射性廃棄物処分関連 処分システム化学環境影響評価高度化開発 報告書, 平成 25 年 3 月, 2013b.
日本原子力研究開発機構, 平成 25 年度 地層処分技術調査等事業 セメント材料影響評価技術高度化開発報告書, 平成 26 年 3 月, 2014a.
日本原子力研究開発機構, 平成 25 年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発報告書, 平成 26 年 3 月, 2014b.
日本原子力研究開発機構, 平成 26 年度 地層処分技術調査等事業 セメント材料影響評価技術高度化開発報告書, 平成 27 年 3 月, 2015a.
日本原子力研究開発機構, 平成 26 年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発報告書, 平成 27 年 3 月, 2015b.
日本原子力研究開発機構, わが国における使用済燃料の地層処分システムに関する概括的評価－直接処分第 1 次取りまとめ, JAEA-Research 2015-016, 2015c.
日本原子力研究開発機構, 平成 27 年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発報告書, 平成 28 年 3 月, 2016.
日本原子力研究開発機構, 平成 28 年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発報告書, 平成 29 年 3 月, 2017.
日本原子力研究開発機構, 平成 29 年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 処分システム評価確証技術開発報告書, 平成 30 年 3 月, 2018.
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, 令和元年 3 月, 2020.
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, 田口勝則, 畔柳幹雄, 田部井和人, 佐原史浩, 村上武志, 江崎太一, 日野博之, 高瀬博康, 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 III, JNC TN8400 2003-086, 2004.
PEBS, The early evolution of the EBS in safety assessment, A PEBS WP1 Report, 2012.
Quintessa Ltd., QPAC: Quintessa's General-Purpose Modelling Software, QRS-QPAC-11, 2013.
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.
Silva, O., Pekala, M., Garcia, D., Molinero, J., Grive, M., Cochepin, B., Munier, I. and Trenty, L., Modeling of geochemical evolution and reactive transport of radionuclides in the near-field of a disposal cell for high-level vitrified waste in the Callovo-Oxfordian claystone, Abstract of Migration 2017, September 10-15, Barcelona Spain, pp.476-477, 2017.
SKB, Long-term safety for KBS-3 repositories at Forsmark and Laxemar – a first evaluation, Main Report of the SR-Can project, SKB TR-06-09, 2006.

SKB, Long-term safety for the final repository for spent nuclear fuel at Forsmark, Main report of the SR-Site project, SKB TR-11-01, 2011.

Ström, A., Almén, K.-E., Andersson, J., Ericsson, L. O. and Svemar, C., Geoscientific evaluation factors and criteria for siting and site evaluation. Progress report, SKB R-99-07, 1999.

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. J. Nucl. Sci. Technol. 51, pp.1177-1190, 2014a.

Tachi, Y., Yotsuji, K., Suyama, T. and Ochs, M., Integrated sorption and diffusion model for bentonite. Part 2: Porewater chemistry, sorption and diffusion modeling in compacted systems. J. Nucl. Sci. Technol. 51, pp.1191-1204, 2014b.

Tinseau, E., Bartier, D., Hassouta, L., Devol-Brown, I. and Stammose, D., Mineralogical characterization of the Tournemire argillite after in situ reaction with concretes, Waste Management, 26(7), pp.789-800, 2006.

Wersin, P. and Birgersson, M., Reactive transport modelling of iron-bentonite interactionwithin the KBS-3H disposal concept – the Olkiluoto site as case study. Geological Society, London Special Publication 400, pp.237-250, 2014.

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これまでの 3 か年における主な成果

本事業において、平成 30 年度～令和 2 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、以下の五つのサブタスクを実施した。

<u>オーバーパックの腐食挙動評価</u>

・ 原位置試験試料の調査、分析

これまで、幌延 URL で実施されたオーバーパック腐食試験で用いられた炭素鋼試料と緩衝材の観察・分析を行うとともに、モニタリングデータや THMC 連成解析結果を活用して模擬オーバーパックや緩衝材中に設置されていた腐食センサー周辺の環境条件の変遷（酸化性→低酸素濃度）と腐食メカニズム（腐食速度が場所によって異なった）を概略的に推察した。

令和 2 年度は、腐食センサーが設置されていた場所の違いによる腐食挙動に与える影響の有無を確認するために、平成 31 年度までに分析した腐食センサーとは異なる場所に設置されていた腐食センサーを対象とした X 線回折による分析手法の検討を進めた。

今後は、原位置試験で使用した腐食センサーや緩衝材の分析データを拡充し、模擬オーバーパックや腐食センサー周辺の環境条件と腐食メカニズムをより詳細に明らかにする。また、工学規模や実規模で生じうる環境の不均一性や腐食の局在化について室内試験での再現などにより現象の理解を進め、過渡状態での腐食モデル構築に資する。

また、模擬オーバーパック周囲の環境条件を分析する手法の一つとして、緩衝材中の微生物分析を平成 30 年度から継続して実施している。これまで、緩衝材中にケイ砂の流入とともに腐食反応に関与する微生物が不均一に混入していたことを確認した。

令和 2 年度は、原位置試験緩衝材中の微生物群集組成解析に向けて、スキムミルクを用いた DNA 抽出手法を整備し、DNA 解析を実施した。その結果、模擬オーバーパック近傍の緩衝材試料中においても、高濃度の微生物 DNA が検出されたことから、比較的高密度で微生物が存在したことが示唆された。オーバーパック腐食試験施工時にケイ砂とともに微生物が地下水などから混入し、死滅せずに存在していたと考えられる。腐食反応に関与する可能性のある硫酸還元菌、鉄／硫黄酸化還元菌などが検出された。しかしながら、模擬オーバーパック表面の腐食生成物が鉄酸化物であったことから、今回の原位置試験の腐食生成物は微生物腐食に由来しないと推察される。

今後は、月布ベントナイト原鉱石などを用いて、様々なベントナイト条件下における微生物現存量や種組成などのデータを拡充し、オーバーパック腐食に影響を及ぼす緩衝材内部の長期的な微生物活性挙動を評価する。

・ 広範な環境条件での室内試験

これまでに、腐食性の高い環境条件を想定し、炭酸ガス吹込み下での緩衝材中における炭素鋼の腐食挙動に関する長期データを取得し、高炭酸ガス環境での腐食抑制などを確認した。また、炭酸塩と塩化物の共存下などの複数の因子が関与する環境における応力腐食割れ感受性に関する予察的データを取得し、顕著な影響がないことを確認した。

令和 2 年度は、NaCl 濃度を変化させた条件での長期浸漬試験のデータを取得し、高塩濃度条件では初期の腐食速度は大きいが、経時的に海水相当の濃度条件の場合と同程度まで低下したことを確認した。また、塩化物イオンを添加した炭酸塩溶液条件での応力腐食割れ試験を実施し、炭素鋼の応力腐食割れ感受性に及ぼす塩化物イオンの影響が顕著ではないことを示唆するデータを取得した。さらに、人工海水の濃度を変化させた長期水素吸収試験データを取得した。その結果、これまでに取得された試験期間 3 年までのデータでは、拡散性水素濃度の値は、水素脆化が問題となる濃度ではないことを確認した。

今後は酸性環境などの従来の想定を超える環境での長期データを取得するとともに、複合的な要因（地下水中成分の組合せなど）の関与する環境での応力腐食割れや局部腐食挙動などに関するデータをより広範な条件（電位、濃度との組合せなど）で取得する。また、温度（高→低）など環境条件の連続的な変化に対する腐食挙動の応答に関するデータを取得する。これらの知見に基づいて実際の環境条件の変化に対する腐食挙動の変化を推定する。

緩衝材の変質挙動評価

・ 炭素鋼-緩衝材境界領域における緩衝材の変質

これまでに、幌延 URL でのオーバーパック腐食試験における模擬オーバーパック近傍の緩衝材や、月布鉱山で採取された鉄に接触していた原鉱石の分析を進めてきた。その結果、模擬オーバーパック近傍の圧縮ベントナイト中の鉄腐食生成物は、Mn や Ca とともに炭酸塩で存在すること、月布鉱山の原鉱石試料ではマグネタイトなどの酸化物／水酸化物で存在することなどを確認した。両試料とも、モンモリロナイトの変質により生成すると推測される鉱物は観察されず、モンモリロナイトの他鉱物への変質はないと推測された。

令和 2 年度は、長期的に土壌中に埋蔵されていた鉄遺物のうち、土壌が付着した状態の鉄遺物を対象とした各種分析から土壌中の密度や腐食生成物の分布を把握するとともに、土壌中に含まれる粘土鉱物の変質の有無について調査した。鉄釘試料について、X 線 CT 分析結果から土壌の密度分布を評価したところ、鉄釘近傍で密度が増加している状態を確認した。また、断面試料の顕微ラマン分析により、鉄側から赤金鉱、マグネタイト及びゲータイトが層状に分布していることを確認した。鉄斧試料については、表面から剥離した腐食生成物層の断面試料の顕微ラマン分析を行い、腐食生成物が主としてシデライトであることを確認した。また、シデライト中にケイ酸塩鉱物粒子が散在している状態が観察された。いずれの試料についても、これまでのところ鉄の影響によるモンモリロナイトなどの変質の兆候は確認できていない。

今後は、原位置試験試料及びナチュラルアナログ試料などを対象に、電子顕微鏡などを用いた変質状態に関する観察・分析を継続し、実際の処分環境で生じうる緩衝材の変質メカニズムの理解に資するデータの取得、変質挙動評価モデルに組み込む必要のあるプロセスの抽出などを行う。

・ セメンテーションによる緩衝材の変質

緩衝材のセメンテーションが緩衝材基本特性に与える影響などの理解を目的として、これまで原鉱石及び再構成試料の室内試験結果を比較し、セメンテーションの影響を受けていると考えられる原鉱石と再構成試料の透水性に大きな違いは見られないものの、原鉱石は再構成試料に比べて膨潤圧が低下する傾向を示すデータを得た。

令和 2 年度は、原鉱石及び再構成試料の室内試験結果を継続して実施し、セメンテーションの影響を受けていると考えられる原鉱石は剛性が増加する傾向を示すデータを得た。また、電子顕微鏡などを用いて原鉱石及びその再構成試料の分析を継続して実施した。その結果、隙間

を充填しているのはモンモリロナイト自身と微細なシリカであり、1 番層、29 番層及び 31 番層の原鉱石の比較から、より高い続成作用を被ったと考えられる原鉱石でシリカ微粒子の量が増加する傾向が認められた。そして、そのシリカ微粒子とモンモリロナイトの接着によってモンモリロナイトの膨潤が阻害されることや、粒子が比較的均質に分布している再構成試料と較べてモンモリロナイトの塊や空隙が不均質に分布している原鉱石は水とモンモリロナイトが十分に接触しないことでモンモリロナイトの膨潤が抑制されることにより、再構成試料との膨潤圧差が生じている可能性があることなどを考察した。さらに、セメンテーションを模擬する通水試験を実施し、ベントナイト起源の Si と通水溶液の Mg の反応による二次鉱物の生成を示唆する結果を得た。

今後は、セメンテーションの原因物質の溶解などに伴うセメンテーション状態の経時的な変化を観察するため、原鉱石及び再構成試料を対象とした複数年程度の長期の膨潤圧試験を継続して実施する。また、月布鉱山の原鉱石などの分析を継続しセメンテーションのプロセスを明らかにするとともに通水試験により生じたセメンテーション状態の観察・分析、試験方法の改良を進める予定である。

ニアフィールド THMC 連成挙動評価

・ 過渡期の THMC 連成挙動に関する現象解析モデル開発

過渡期の THMC 連成挙動に関する現象解析モデルの開発と妥当性確認を目的として、これまで FEBEX プロジェクトにおける原位置試験での約 18 年間の計測データを活用した再現解析の実施により、幌延人工バリア試験などと比較してより長期の計測データに対しても温度、相対湿度、全応力などの THM 連成挙動を概ね再現できることを確認してきた。また、幌延オーバーパック腐食試験の THC 連成解析を実施し、計測された緩衝材の間隙水 pH と pe との比較を通じて、連成解析モデルによる間隙水化学に関する再現性を把握した。

令和 2 年度は、蒸留水と幌延地下水条件での緩衝材の固有透過度を解析ケースとした幌延人工バリア性能確認試験の THM 連成解析を実施し、固有透過度のイオン強度依存性が浸潤挙動へ与える影響を検討した。その結果、緩衝材外側では、固有透過度の設定値の違いによる浸潤挙動の解析結果の差異は小さく、両者ともに計測値と整合的な結果となった。一方で、緩衝材内側に近づくほど両者の差異は大きくなり、幌延地下水条件での固有透過度を設定した場合には緩衝材内側での飽和度上昇が生じた。人工バリア性能確認試験の計測結果からは、緩衝材内側での飽和度の上昇は確認されておらず、幌延地下水条件での固有透過度を設定した場合には、不飽和領域においては実際よりも高い透水性を持つため、飽和度の上昇を早く評価してしまうことが明らかとなった。

今後は、室内試験による塩濃度に応じた浸潤挙動の違いの把握と、それに基づき、間隙水の水質に応じた透水性の変化を考慮した THMC 連成解析モデルの構築を行う。構築したモデルは、幌延人工バリア性能確認試験で得られている浸潤挙動に関する計測データを活用してその妥当性の確認を行う予定である。

・ ニアフィールド長期力学解析コード開発

ニアフィールド長期力学解析コード MACBECE の開発の一環として、これまで、飽和度分布の時間変化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の追加を行ってきた。これにより、処分施設の各材料及び周辺岩盤の力学的な相互作用について再冠水時から長期までの一貫した評価が可能となった。また、過渡期の飽和度が不均質に分布する緩衝材の力学モデルの検証や更なる高度化に向けて、X 線 CT 測定による膨潤圧試験中の供試体内部の浸潤状態

などの観察を行い、膨潤圧の変化と供試体内部の状態変化の関係の分析を進めてきた。

令和 2 年度は、廃棄体の発熱による構成材料の熱膨張や熱収縮などの力学挙動を解析できるように MACBECE のさらなる拡張を進めた。そして新たな機能を活用して、処分施設の長期力学解析を実施し、温度変化による変形を考慮することによる力学挙動への影響の有無を確認した。その結果、鉛直内空変位での差異は数 mm 程度であるなど、温度変化による変形が処分施設の長期的な力学挙動に与える影響は小さいことが明らかとなった。そして、過渡期の飽和度が不均質に分布する緩衝材の状態変化については、CT 値から湿潤密度への換算式を構築し、これまで取得してきたデータの再整理を行った。さらに、平成 31 年度に実施した給水面とは反対の面からの給水条件での X 線 CT 測定による膨潤圧試験を実施し、膨潤挙動の現象理解を進めた。浸潤面付近の湿潤密度の変化から、供試体内部で吸水圧縮挙動（コラプス）が生じていることが観測され、これにより膨潤圧が一度低下する現象が生じていることが明らかとなった。これらの結果から、再冠水時の緩衝材の力学挙動を精緻に表現するためには、MACBECE に導入されているような膨潤とコラプスが再現できる力学モデルを用いることが重要となる可能性が示唆された。

今後は、緩衝材の力学特性に与える温度依存性に関する試験データの蓄積と、それに基づく力学モデルの構築が求められ、MACBECE に新たに導入した機能については、室内試験や原位置試験などを活用した妥当性の検証が求められる。また、緩衝材の膨潤挙動について今後は、給水開始後の時間経過とともに膨潤圧が単調に増加する場合などの膨潤圧の経時変化の形状が異なる場合についてのデータを取得することを目的に、初期含水比の異なる条件などに対しても試験を行っていく予定である。

・ 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

粗視化メソスケール分子動力学（メソ MD）モデルの開発について、これまでに、メソ MD 法で得られる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、その試行解析を行ってきた。

令和 2 年度は、手法の拡張として、粘土含水系の組織形成シミュレーションにおいて水分量を変化させることができるように、水和エネルギーと水分量の関係をモデル化しメソ MD モデルへの組み込みを行った。このような方法で定積、定温かつ指定された化学ポテンシャルの下で粘土含水系の緩和シミュレーションを行ったところ、相対湿度が高い場合に相当する条件では吸水による膨潤圧が発生し、相対湿度が低い場合に相当する条件では排水により圧力の低下と組織構造の変化が生じることが確認された。以上の結果は、本手法を用いて所定の温度や体積、化学ポテンシャルの下で粘土が保持できる水分量を求められることを意味する。

今後は、水和エネルギーのモデルについて、現段階での水和エネルギーが水分量に対して単調に変化するなどの簡便な取扱いに対して、実現象を再現できるようなモデルの詳細化を行うことなどの課題解決に向けた検討を実施する予定である。

<u>母岩中アルカリプルーム反応輸送挙動評価</u>

・ グラウチング施工事例を対象とした調査・分析

セメント系材料が岩盤へ与える影響を理解することを目的に、これまで、瑞浪超深地層研究所の地下坑道周辺で実施されたグラウト周辺の岩石試料を対象とした分析や室内通水試験などを実施した。その結果、室内通水試験試料及び原位置試料とも、亀裂内のグラウトと岩石マトリクス部の境界部にカルサイトの析出が確認されたが、マトリクス部での鉱物変質などは観察されなかった。また、原位置試料のグラウト材の変質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。

令和 2 年度は、瑞浪超深地層研究所の地下坑道においてセメント充填されたボーリング孔近傍で採取された亀裂を含むコア試料を観察した。光学（偏光）顕微鏡観察の結果、亀裂表面において沈着物（一部は炭酸塩鉱物の可能性あり）が確認された。しかし、亀裂表面から離れた岩石マトリクス中では炭酸塩鉱物などの二次鉱物の形成は光学顕微鏡スケールでは確認されなかった。

今後は電子顕微鏡観察によって沈着物の成因や二次鉱物の生成の有無を確認し、アルカリプルームの有無を確認するとともに、空隙率の変化が生じていないかを確認していく予定である。

・ 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

亀裂性岩盤を対象に岩盤中のアルカリプルームの反応輸送モデルを構築することを目的に、これまでに、セメントとの相互作用による岩盤特性変化のプロセスを整理し、坑道近傍スケールにおけるアルカリプルームの影響範囲を確認するための、準三次元の反応輸送解析モデルの構築を進めてきた。そして、準三次元モデルを用いた試解析により、坑道近傍スケールの水質変化や局所的な間隙率低下などの状態変化などを例示するとともに、アルカリプルームの影響範囲に応じた評価手法の概念（スケールに応じた解析モデル連結方法）を提案した。

令和 2 年度は、亀裂の透水量係数の大小がコンクリート支保の下流側への高 pH 溶液の拡がりが与える影響を分析するために、平成 31 年度までに実施してきた解析ケースを見直し、亀裂内の溶液条件・空隙率・二次鉱物の溶解沈殿も考慮した分析を進めた。その結果、相対的に亀裂内の地下水流量が多い場合には地下水由来の HCO_3^- の供給が多くなり方解石が沈殿して pH を緩衝し、流量が少ない場合には HCO_3^- の供給が少なくなり方解石が沈殿し難くて pH の高い状態が維持され、結果として CSH が沈殿する傾向があることを示した。

今後は、瑞浪超深地層研究所の事例を参考にして、単一亀裂を対象にコンクリートから供給される高 pH 溶液の時間変遷が、亀裂中の二次鉱物の沈殿や溶解などによる透水性変化に与える影響とそれが生じる条件（開口幅・流速）などについて検討を進めていく予定である。

<u>流出現象などを考慮した緩衝材の健全性評価</u>

・ 流出を抑制する工学的対策の具体化

竪置きブロック方式に関する緩衝材の流出への工学的対策に関して、これまでに、ケイ砂を孔壁と緩衝材ブロックの隙間に充填する方法や隙間未充填の場合について、室内試験や、幌延 URL の地下環境での自然湧水条件において原位置試験を行い、流出の抑制効果や現象の把握を行った。ケイ砂を充填した場合には、緩衝材の流出濃度が低く推移し、流出が抑制されることを把握した。隙間未充填の場合は原位置の試験により定置後初期に流出量が多いことなどの流出挙動を把握し、実環境で現象を把握した。

令和 2 年度は、工学的対策の整備のために室内試験と原位置試験により検討を進めるとともに、令和 2 年度～4 年度の 3 年間で、処分孔の環境条件に対して柔軟な技術選択ができる、緩衝材の流出対策に関する複数の施工オプションの整備を行うための計画を立案した。隙間未充填及びケイ砂充填の施工オプションにペレット充填を加えて三つの施工オプションに関して、施工オプション選択のための評価指標案をそれぞれ策定して検討を進める予定である。隙間未充填オプションに関しては、令和 2 年度の原位置試験において水みちが閉塞し流出がとまることを確認した。これを基に周辺岩盤との水位差や湧水量などの処分孔で計測可能なパラメータによる水みちの閉塞条件に基づく評価指標の枠組の策定を目標とし、室内試験での定量的な把握と、原位置試験での現象理解と確認を行う。ケイ砂充填オプションについては、室内試験及

び原位置試験の結果では緩衝材の流出が大きく変動せずに低濃度で推移したことから、べき乗則などにより流出量を予測できる可能性があると考える。この流出量予測結果と許容流出量により適用範囲を判断する方法の構築を目標として、流出濃度の湧水量依存性などの定量的なデータを室内試験で取得して検討を進める。原位置では、平成 31 年度に課題となった湧水量増加要因などの確認を行った上で、流出挙動の把握についても今後計画を検討することとした。ペレット充填オプションに関しては、まず、湧水環境での施工時の充填性などの課題を踏まえたペレット仕様の選定、評価指標案の策定が必要であることから、これらの机上での検討を進める。

・ 緩衝材の飽和プロセスを対象とした解析的な評価方法の検討

緩衝材の孔壁の隙間への膨潤を想定した試験について、これまで、吸水膨潤による緩衝材の大きな変形と密度変化を、飽和状態にて解析手法を検討してきた。そして、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緩衝材の再冠水プロセスの力学応答を表現できる可能性を示した。緩衝材が不飽和な状態からの解析を実施した結果、隙間部の密度が低いまま定常状態に至るという結果を示した。これにより、上部からの吸水により下部が遅れて膨潤して上部を圧密する際に、膨潤と圧密の変形の不可逆性により密度分布に不均一が残存すると考えられる。

令和 2 年度は、二次元化などの解析手法の整備に向けて、浸潤速度と膨潤速度のパラメータ値設定方法、軸方向膨潤と側方への膨潤挙動の評価上の課題、などについて検討するとともに、モデルの検証に必要な室内での小型セル試験手法を整備し、試験に着手した。

今後は、小型セル試験を継続して実施するとともに、得られたデータを対象モデルの検証を進める。さらに、原位置試験スケールを対象とした解析手法の拡張について検討する予定である。

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、以下の三つのサブタスクを実施した。

<u>ニアフィールド岩盤中の核種移行評価技術の開発</u>

・ 結晶質岩中の核種移行評価技術の開発

結晶質岩中のマトリクス部のモデル化については、これまで、スイス・グリムゼルの花崗閃緑岩を対象に、核種移行に支配的な影響を及ぼす黒雲母などの層状ケイ酸塩鉱物の配向性、粒子サイズ及び連続性を、X 線 CT データから半定量～定量評価する手法を構築し、マトリクス部の鉱物分布などの不均質性を反映可能な核種移行解析手法を構築した。さらに、拡散試験で得られた実測データの傾向性との比較によりその妥当性を確認した。同様の手法をフィンランド・オンカロの片麻岩などに適用し、その結果黒雲母などの高い含有率と強い配向性を確認する一方で、粒子サイズが小さく、連続性も低い特徴を有することを確認した。そして、黒雲母などが核種の拡散に及ぼす影響について、黒雲母などの含有率や配向性のみではなく、そのサイズや連続性も重要な要素であることを明らかにした。

令和 2 年度は、海外の岩石試料を対象に進めてきた試験分析～モデル化手法の国内岩石への適用性を確認するため、黒雲母などの鉱物の含有率や異方性のバリエーションに着目して、国内の 3 種類の岩石標準試料を選定し、X 線 CT 分析などの黒雲母などの層状ケイ酸塩鉱物の含

有率、粒子のサイズや連続性などの特徴を把握、中性の HTO/HDO、陽イオンの Na/Cs、陰イオンの Cl/I を対象に透過拡散試験などに着手した。

今後は、得られたデータをもとに、黒雲母などの含有率、サイズ、連続性などの特徴と核種移行特性（陽イオン加速・陰イオン排除）との関係を把握し、これまでに構築してきたモデル化手法の適用性を検討していく予定である。

結晶質岩中の割れ目部のモデル化については、これまでに、グリムゼルの岩石割れ目部における室内トレーサー試験データの取得と、割れ目内のガウジ層の性状の X 線 CT などの分析から、割れ目内のガウジ分布の複雑な特徴を反映したモデル化手法を提示してきた。また、実際の原位置トレーサー試験（1 m 程度のスケール）によるモデル確証に向けて、グリムゼルの原位置試験対象割れ目から直径 20 cm 程度の大型の岩石コア試料を用いて、割れ目性状の分析（X 線 CT など）や多様なトレーサー（重水、Se、Cs、Ni 及び Eu）を用いた室内トレーサー試験などの各種室内試験を実施してきた。そして、室内トレーサー試験の結果から、先行研究と整合的な移行遅延の傾向（I<Se<Cs<Ni）などを確認した。

令和 2 年度は、大型の岩石コア試料中の室内トレーサー試験後試料を対象とした X 線 CT 分析により、割れ目の分布や連続性などの移行経路を把握するための定量的な情報を得た。また、室内トレーサー試験後の大型岩石コア試料を割れ目面から解体し、複数の手法で採取した試料中のトレーサー濃度を分析した。その結果、収着性の Cs、Ni 及び Eu について、トレーサー濃度や収着性に応じた濃度分布を示すことを確認することができ、そのトレーサー濃度分布から、割れ目中の不均質な移行経路と、スタグナント部への拡散が生じている可能性を確認した。

今後は、試料全体にわたるトレーサー濃度分布の把握より、支配的な移行経路を推定するとともに、X 線 CT などで得られた割れ目特性の情報などを反映した解析評価を行い、破過データの解釈を試みる予定である。

結晶質岩を対象とした核種移行メカニズムの理解、地質環境の不均質性や長期変遷を反映した核種移行現象解析モデルの構築・確証のアプローチの検討として、これまでに、割れ目などの不均質性の影響や収着メカニズムの影響に加え、地質環境の長期変遷の影響や空間的なアップスケールの影響をより精緻に取り扱うことが可能な核種移行解析手法の構築を進めてきた。

令和 2 年度は、核種移行解析で考慮すべき影響の大きい重要な因子を把握するための感度解析や、環境変遷を考慮した試解析として各要素の影響度や重要度の分析評価を行うとともに、地質環境の長期変遷の事例として、隆起シナリオを対象に、環境変遷が核種移行に及ぼす影響解析を行った。

今後は、評価手法の改良と天然事例などを活用した確証評価を進め、性能評価に反映すべき重要なプロセスの抽出とその反映方策を提示する予定である。

・ 堆積岩中の核種移行評価技術の開発

マトリクス部のモデル化については、これまでに、幌延の泥岩を対象に、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試験や NMR 分析により把握し、それに基づく改良モデルを提示してきた。そして、幌延 URL で実施した間隙水中の塩濃度や層理面への異方性に着目したマトリクス部の原位置拡散試験を対象に、試験後の岩石試料分析と解析評価から、これらの拡散への影響を原位置条件で確認した。割れ目部のモデル化については、幌延 URL で実施した割れ目中トレーサー試験を対象に、試験後の割れ目試料の分析や、複数の移行経路や不均質な流れ場を考慮したモデルの適用性の確認を進めた。さらに、幌延 URL における長期環境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、反応性トレーサーの解析に向けた既存データの評価・補正を実施した。

令和 2 年度は、マトリクス部のモデル化について、層理面に起因する異方性を把握するための原位置拡散試料の分析や、NMR による間隙評価や核種移行モデルの適用性評価を実施するとともに、これまでに取得した塩濃度の異なる条件でのマトリクス部の原位置拡散試験結果を対象に、GoldSim と PHREEQC コードによる拡散・収着パラメータの最適値を評価した。得られた結果や既往室内試験データとの比較より、導出パラメータの妥当性を確認した。割れ目部のモデル化については、これまでに取得してきた割れ目の分布や特徴、割れ目表面の Cs などのトレーサーの分布状況の情報から、複数の移行経路と、フロー領域・スタグナント領域を考慮したモデル概念を構築し、非収着性のウラニンのパルス・コンスタントソースを対象に、3 経路モデルの適用性と課題を検討した。そして、ウラニンデータ（パルス・コンスタントソース）を対象に、三つの移行経路の条件・パラメータを最適化したうえで、Mo と Cs データに対して、トレーサーによって変化する拡散・収着パラメータのみを調整することで、一連の実測データの傾向性を概ね再現可能なことを確認した。

今後は、それぞれのトレーサーの最適化で得られたパラメータ値の比較や、室内試験などとの比較によって、モデルやパラメータの妥当性を確認していく。

幌延 URL 付近の地表から地下深部に形成されたナチュラルトレーサーの濃度分布を対象に、地層スケールでの長期的な物質移行プロセスの理解を深めるため、これまで、地質環境の長期変遷を考慮したモデル解析を検討してきた。

令和 2 年度は、非収着性元素に加え、反応性元素も対象に加えるため、平成 31 年度までに補正評価した反応性元素の濃度プロファイルのデータセットに対し、解析評価を実施した。その結果、非収着元素を対象にした解釈の場合と同様のモデルパラメータを用いて、トレーサーの種類やボーリング孔間（HDB-1 孔と HDB-3 孔）で一部差異があるものの、反応性元素の挙動も非収着性元素と同様の解釈が可能なことを確認した。

今後は、反応性トレーサーのうち Ca や Mg の差異については、カルサイトやシデライトなどの炭酸塩鉱物の反応の寄与の可能性を検討する。また、両ボーリング孔間で移流の寄与の差異（HDB-1 孔で移流の影響が大きい）や、両ボーリング孔付近が同様の地質学的変遷を有しているという仮定の妥当性を検討する。さらに、三次元的な地下水流動の影響により、トレーサー分布がどのような影響を受けるのかについても検討を行う。

<u>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</u>

・ 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評価技術の開発

ニアフィールドの状態変遷のうち、鉄製オーバーパックと緩衝材との反応による核種移行影響に関する課題として、鉄共存による核種収着競合の影響、鉄鉱物への核種の取込みの影響を抽出した。鉄による収着競合については、これまでに、共存 Fe(II)濃度が異なる条件でのモンモリロナイトへの Am の収着データを取得し、Ni(II)では収着競合が生じる一方、Am(III)の場合には収着競合が顕在化しないことを確認した。また、Fe(II)鉱物への Se(-II)の取込み挙動について、試験手法・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、保持及び脱離挙動を、XAFS や SEM 分析などにより把握したほか、幌延の泥岩中の Fe 鉱物への Se の取込みに関する検討に着手した。

令和 2 年度は、鉄と核種の競合収着評価について、pH が 7～12 の範囲でモンモリロナイトに対する Fe(II)の分配係数を取得した。そして、モンモリロナイト中の 2 種のエッジサイトへの収着を仮定した収着モデルにより Fe(II)の分配係数の pH 依存性をモデル化し、各サイトに対する Fe(II)の表面錯体パラメータを導出した。さらに、Fe(II)非共存下と Fe(II)によりモンモリロナイト中の収着サイト（Strong site）が飽和する条件となる Fe(II)共存下（1×10^{-4} mol/dm^3）

で Nb(V)の収着分配係数を測定し（pH7 付近）、収着競合の影響を評価した。その結果、Fe(II)との収着競合による Nb(V)の分配係数の変化は小さく、収着競合の影響は限定的であることが示された。

鉄鉱物への Se(-II)の取込挙動については、これまでに実施してきた 2 種類の Fe と Se(-II)の相互作用試験に対して、相互に異なる pH 条件へ変遷・熟成させた試験・分析を実施し、XRD、XAFS の分析に加え、TEM/STEM の分析を行い、XRD や SEM では確認できなかったナノスケールのセレン化鉄の析出状況の詳細を把握した。さらに、実際の深部地下環境下における岩石中の Fe 鉱物と Se の相互作用について検討するため、幌延 URL から採取した泥岩（稚内層）を対象とした X 線マイクロビーム分析（μ-XRF、μ-XAFS）を実施した。その結果、μ-XRF で取得された元素マッピングからは、微粒の黄鉄鉱（径数 10 μm 程度)への Se が濃集していることを確認した。また、XANES 分析からは Se が 0 価または-1 価で存在する可能性が示唆されたが、Se の局所構造を把握するための EXAFS 領域の解析は、Se 濃度が低いため困難であった。

今後は、収着競合については、異なる核種や条件でのデータの拡充とモデル評価を行い、Fe(II)と核種の競合収着評価手法を構築する。鉄鉱物への Se(-II)の取込挙動については、XAFS や TEM 分析などの一連のデータをもとに、Fe と Se の相互作用プロセス、環境条件の変遷の影響を含めて鉄鉱物への Se(-II)の取込み現象の評価結果を取りまとめていく予定である。

・ セメント系材料の共存が緩衝材や岩石中の核種移行へ及ぼす影響の評価技術の開発

セメント共存の緩衝材への影響評価については、これまでに、圧縮ベントナイト中のコロイドろ過機能への影響に関し、より高密度条件（乾燥密度 1.6 Mg/m^3）でのデンドリマーコロイドの拡散試験を継続して実施してきている。これまでの 5.7 nm のサイズに対し、サイズの異なる 7.2 nm のデンドリマーを用いて拡散データを取得し、コロイドサイズに対応した実効拡散係数の傾向から試験の妥当性を確認した。さらに、濃度プロファイルを含めた解釈からコロイドの実効拡散係数に加えて、ろ過率を評価する手法を提案してきた。

令和 2 年度は、圧縮ベントナイト中のコロイドろ過機能の発現条件を確認するため、より高密度条件（乾燥密度 1.6 Mg/m^3）の Na 型及び Ca 型モンモリロナイト中のデンドリマーコロイド（5.7 nm)の拡散・ろ過試験を継続し、0.05 M の低塩濃度条件下では、Na 型と Ca 型のいずれの試料でも 200 日以上の期間、下流側での破過は確認されなかった。内部プロファイルを取得した結果、狭隘間隙のサイズと連続性によってコロイドがろ過されていることを確認できた。

今後は、高密度条件での透過・ろ過データ取得を継続するとともに、粒径サイズの異なる条件でのデータを拡充し、環境条件とコロイド移行・ろ過特性の関係性を明らかにしていく予定である。

セメント共存による岩石への影響評価については、これまでに、幌延の泥岩-セメント接触試料を対象に、セメント種類（OPC : 普通ポルトランドセメント、HFSC : 低アルカリセメント）や接触期間（5 年～10 年）の異なる試料の EPMA、μ-XRD、SEM などの分析から接触界面付近の変質状況などの調査を進めてきた。その結果、接触界面近傍の泥岩間隙中で二次鉱物（CSH、カルサイトなど）が生成しており、OPC では岩石側への Ca 供給と二次鉱物生成が顕著で、HFSC では界面部分に緻密なカルサイト層が生成していることを確認した。そして、カルサイトや CSH などの二次鉱物に対する核種の収着データや取り込みメカニズムなどに関する既存情報を調査し、今後の研究課題を抽出した。

令和 2 年度は、幌延の泥岩-セメント接触界面の変質状況や物質移行への影響を詳細に把握するため、幌延 URL の 140 m 坑道から採取した OPC 及び HFSC と岩石（声問層）との接触界

面を、EPMA、XRD、SEM などで分析した。その結果、HFSC 接触界面の分析から、岩石側で 2 mm 程度、セメント側で 10 数 mm 程度の変質状況を確認した。OPC 接触界面では、岩石側でのより高い Ca 濃度を、SEM でも二次鉱物の生成を確認することができた。

今後は、SEM や XRD 分析による二次鉱物の生成状況の確認や、岩石側の CEC、間隙率及び主要・微量元素の分布データを拡充する。また、二次鉱物への微量元素の取込みメカニズムについて調査を行い、接触界面の変質状況とその物質移行への影響（収着特性の変化など）を評価していく予定である。

・ 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

高炭酸条件下での収着モデル開発については、これまでに、イライト・スメクタイト及び幌延の泥岩を対象に Th(IV)の収着データを取得し、高炭酸条件における三元系の表面錯体形成の可能性や、複数の粘土鉱物の加成則に基づく収着モデルの泥岩への適用性を検討してきた。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(V)の拡散データを取得し、その結果に対して複数の化学種の共存を考慮した収着・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、今後の核種移行評価モデルの構築への反映に向けたアプローチと課題を提示した。

令和 2 年度は、イライトへの Eu(III)及び U(VI)の炭酸共存下での収着データを取得し、平成 31 年度までに取得した Th(IV)と類似の炭酸及び pH 依存性を確認した。さらに、収着モデルにより再現計算を実施し、炭酸を含む表面三元錯体の存在を推定した。また、イライトへ Eu(III)及び U(VI)を収着させた試料を TRLFS により測定し、収着構造の分光学的観察を実施。特に U(VI)では低濃度でも測定できる極低温（LT）TRLFS を適用し、炭酸濃度や pH の変化に伴うスペクトル形状の変化を確認した。分子動力学（MD）計算を用いて粘土層間間隙と層間外間隙の境界領域での炭酸イオン及びウラニル・ネプツニルイオンのアクセス性を評価した。その結果、2 層水和層間では、陽イオンのウラニルは層間にイオン交換によりアクセス可能で、陰イオンの炭酸イオン、中性のウラニル-炭酸錯体はアクセスできないことが示された。また、3 層水和層間では、中性のウラニル-炭酸錯体（陽イオンの Na-炭酸錯体）が、層間に侵入可能なことを確認した。ただし、炭酸イオン単独での層間への侵入は観測されなかった。

今後は、Eu(III)及び U(VI)のイライト及び幌延の泥岩への収着データと TRLFS による分析データを拡充し、それらの結果をもとに、炭酸共存下の収着メカニズムを把握し、収着モデルによる評価手法を検討する。また、層間幅やウラニル・ネプツニル炭酸錯体の電荷の影響などを確認するための MD 計算を拡充するとともに、その知見を反映した核種拡散モデルの構築と実測データへの適用性確認を実施する予定である。

<u>有機物・微生物の影響評価技術の開発</u>

・ 有機物影響評価技術の開発

天然有機物と IV 価核種の錯生成データを拡充するため、これまでに、流動場分画(FFF)-ICPMS 法により、幌延深部地下水中のフミン酸・フルボ酸と Zr(IV)の錯生成データを取得し、NICA-Donnan モデルの適用性を評価した。そして、低分子量の有機物錯体の回収率が低いという課題を解決するために、キャピラリー電気泳動(CE)-ICPMS によるデータ取得の必要性を明らかにし、同装置を導入して予察的な試験を行った。また、核種-天然有機物-岩石三元系における核種収着モデルの開発に向けて、二元系モデルの加成則アプローチと反応の瞬時・可逆性について文献調査を行い、課題を抽出した。特に、核種との錯生成における瞬時・可逆性の確

認及び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必要であることを明らかにし、幌延深部地下水を用いた予察的なデータの取得を行った。

令和 2 年度は、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 法により、Zr^{4+}と幌延深部地下水フミン酸の錯生成データを取得して NICA-Donnan モデルパラメータを整備した。また、炭酸イオン濃度に着目して、Eu(III)-LHA-幌延深部堆積岩を用いたバッチ試験を行い、三元系モデルを構築するための予察的なデータを取得した。

今後は、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、特に中性付近の pH 領域での錯生成データを CE-ICPMS 法から拡充していく必要がある。さらに、FFF-ICPMS 法の妥当性を多角的に検証していくために、Eu(III)と幌延深部地下水フミン酸との錯生成データを取得し、三次元蛍光分析（3D-EEM）などの測定手法から導出した錯生成データとの比較を行うことが必要である。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も継続して進めていく。核種-有機物-三元系の核種収着モデルの開発に向けては、バッチ試験によるデータの拡充と、加成則アプローチの適用性確認を行い、現実的に適用可能な三元系モデルの構築を進めていく予定である。

・ 微生物影響評価技術の開発

これまでに、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拡充するため、水質条件の異なる地下水条件として、幌延 URL の地下水試料（深度 140 m、250 m）のγ線滅菌処理試料を用いて、無機・有機/バイオコロイドへの希土類元素（アクチニド元素のアナログ）の収着特性に関するデータを取得した。また、堆積岩環境でのバイオフィルムの形成領域に関する調査を行い、微生物現存量、種組成の経時変化に関するデータを取得し、堆積岩岩盤内部にバイオフィルムが形成されていることを確認した。そして、バイオフィルム分画に濃集する重金属元素濃度に関するデータを取得し、核種移行解析に資するためのパラメータを拡充するとともに、ゲノム解析により一部のバイオフィルム形成種の代謝機構に関する情報を取得し、バイオフィルムへの核種収着のメカニズムについて考察した。さらに、幌延の地下環境における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。

令和 2 年度は、地下微生物の DNA 解析、顕微鏡観察及び菌計数の結果から、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 の領域に優占して分布すること、地下施設建設期間の経過とともに、坑道壁面から離れた領域においてもバイオフィルムの形成が徐々に拡大してくることを示した。微生物種組成は空間的に不均一であり、多様性を有しているが、微生物の主要な代謝反応は空間的に大きな差が認められず、炭酸固定・水素代謝・硫酸還元・発酵などが主要な代謝反応であることを確認した。また、堆積岩内部における微生物分布を明らかにするために、地層の異なる岩石試料について蛍光顕微鏡観察及び元素マッピング分析を実施し、微生物と元素の分布データ取得に着手した。その結果から、岩石中の空隙率が高い声問層では、微生物細胞が空隙を充填するように分布し、空隙率が低い稚内層深部では、亀裂内部に高密度で細胞が分布する様子が観察され、地下施設建設過程における微生物分析データを基に、バイオフィルム形成領域の概念モデルを検討した。さらに、幌延 URL の地下水試料（深度 185 m）について、全コロイド（無機・有機・バイオコロイド）の存在下において希土類元素・Se

の収着試験を実施した。その結果、全コロイドへの希土類元素（アクチニド元素のアナログ）の分配係数は、$\log K_d$(m³/kg)として 3.5～5.4 の範囲で取得され、希土類元素の収着パターンは他の地下水試料や文献値と同様の傾向を示し、希土類元素・Se 添加系では、一部の微生物増殖が活性化されることが示された。

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、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。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、以下の二つのサブタスクを実施した。

現象解析モデルの統合化技術の構築

これまでに、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ともに、このアプローチに基づき、「緩衝材の長期変遷挙動の予測」を対象とした評価システムのプロトタイプの構築を進めてきた。そして、こ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、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。

令和 2 年度は、プロトタイプを用いた緩衝材の長期的変質挙動の予測の観点から複数のケースを対象とした感度解析を継続して実施した。H-M-C（水理-力学-化学）及び H-C（水理-化学）を連成させた緩衝材の長期変質挙動に関わる感度解析を行い、M（力学）との連成の有無による H（水理）及び C（化学）への影響と程度、差が生じる要因を確認した。そして、緩衝材の長期変質挙動に関わる感度解析の結果を基に、緩衝材に期待される機能が維持／喪失される可能性がある領域を把握するための方法を試行した。さらに、解析結果をもとに、緩衝材に期待される機能が発揮されるか否かを評価することを想定した場合、国内外において、どのような指標や基準が考えられているかを文献調査に基づき整理した。また、緩衝材の長期的変質挙動に関わる連成解析結果の妥当性確認を進めていくための情報や、閉鎖後長期の状態変遷の解析に反映すべき閉鎖後過渡期の状態変遷に関わる情報についても整理した。

今後は、連成解析における相互作用の大きいと予想される H-C の連成現象を対象に、プロトタイプシステムを用いた解析手法・解析結果の妥当性確認の一環として、既往の類似した H-C

連成研究事例を対象とした再現解析を実施していく予定である。

ニアフィールドシステム核種移行評価技術の開発

これまでに、ニアフィールド複合現象評価システムを用いて得られ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として、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、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解析のフレームワークを構築した。そして、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とともに、その試行結果に基づいた課題とそれらの対処方策を提案した。

令和 2 年度は、SP2 とも連携し、ニアフィールド複合現象評価システムの連成解析で得られた緩衝材の変質に関わる場の状態変遷（イオン強度、間隙率、構成鉱物など）を考慮し、核種移行パラメータを設定するための方法を検討した。そして、その方法に基づき設定した核種移行パラメータを用いた核種移行解析により、緩衝材の変質程度の違いによる核種の移行遅延への影響を二次元で可視化する手法を整備した。また、核種移行解析結果を分析し、緩衝材中での核種の残存量の時間変化は、構成鉱物や間隙率の時間変化を考慮した核種移行パラメータの時間変化を適切に反映した結果になっていることを確認した。

今後は、緩衝材の変質が核種の移行遅延効果に与える影響を評価する手法の整備に向け、ニアフィールドの環境変遷に応じた核種移行モデルやパラメータ設定手法の検討を継続し、得られた成果と安全上の課題の整理を進めていく予定である。

上述のように、本事業では、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の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個々の現象の評価（SP1）、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（SP2）などを進めてきた。そして、ニアフィールド性能を総合的に評価する技術開発（SP3）として、コンクリート支保やオーバーパックとの相互作用による緩衝材の長期的変質挙動に着目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構築と、その結果を核種移行解析モデルへ反映する手法の検討といった、個別現象を対象とした研究間の連携とシステムへの統合に向けた技術開発を進めてきた。

今後は、プロトタイプを活用した複合現象評価と、それによって評価される状態変遷が核種移行に与える影響の評価などの検討を通じて、ニアフィールドにおける複合現象を統合的に評価するためのシステム構築に向けた課題の整理を進める。また、プロトタイプで対象としたコンクリート支保やオーバーパックとの相互作用だけではなく、上述の SP1 や SP2 で対象となっている個別課題の SP3 への反映や、SP3 の検討結果から SP1 や SP2 へのフィードバックなどの相互の連携について具体的な方法を検討し、連携に向けて解決すべき課題の整理を進めていく予定である。

5.2 おわりに

本報告書は、令和 2 年度高レベル放射性廃棄物など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

中間評価報告書

1. 概要

令和 3 年 2 月 24 日、国内専門家（7 名）を招聘し、本事業の平成 30 年度からの令和 2 年度までの成果や進捗と今後の方針についてレビューを行うための中間評価を実施した。

本報告書は、中間評価としてのコメントを取りまとめたものである。

2. 日時・場所

日時：令和 3 年 2 月 24 日（水）9:30～17:00

開催方式：Web 会議形式

3. 中間評価コメント

国内専門家から書面での、事業全体と各サブプロジェクトに対して、それぞれ以下の観点でコメントを頂いた。事業全体に対して頂いたコメントを本付録 A の 3.1 節に、各サブプロジェクトに対して頂いたコメントを本付録 A の 3.2 節に記す。

事業全体

①評価される点

・事業の目的に照らしてこれまでの研究内容とその成果の妥当性

・残された課題や今後 2 か年の実施計画の妥当性などについて

②その他の課題

・今後 2 か年、もしくは次のフェーズで取り組むべき新たな課題について

③その他のコメント・ご意見

サブプロジェクト。

①評価される点

・これまでの進捗状況について

・今後 2 か年の計画とその見通しについて

②その他の課題

・今後 2 か年、もしくは次のフェーズで取り組むべき課題について

（その他のコメント、ご意見）

3.1 事業全体

① 評価される点

- 地層処分事業の観点から全般的に着実に成果が挙げられていると存じます。今後 2 か年の実施計画につきましても、今後さらに進められる各タスクの連携及びそれらの統合を考慮し、妥当なものと思います。
- 個別 SP については、着実に成果が積み上がっていると言える。一方、そこで得られた新知見をどのように統合し、安全評価への反映させるのか、反映自体は NUMO が行うとしても、そのための道筋をしめてして頂きたい。
- 本事業は、NUMO の最新のセーフティーケース（包括的技術報告書）で示されているニアフィールドの環境変遷の理解に関わる技術的ニーズと整合的であり、必要な技術開発が実施されている。また、実際の地質環境や処分環境を模擬した室内試験を活用した貴重なデータが多数得られており、これまでの技術開発の進め方、実施方法は適切であると考えられる。
- 多岐に渡って高度に難題な課題に対して、着実に進捗している。

・ ニアフィールドシステムのバリア性能の理解のために必要と考えられて取り組まれている事業の目的は適切に設定されており、それぞれの SP で解決が困難な課題が多いにもかかわらず、多くの有益な成果が得られていると考えられる。また、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重要な現象が対象とされていると考えられる。また、今後 2 年間で有効な成果が得られるよう、エネ庁や NUMO と綿密に打ち合わせを行い、内容や計画が適切なものに変更が加えられていることも評価できる。
・ 個別現象の理解を深めるための知見が広範かつ多岐にわたって蓄積され、なおかつ、事業の目的の一つである、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も着実に進められている。5 か年の全体計画も、前年度の課題などを踏まえつつ必要に応じて軌道修正が図られており、大きな問題なく遂行されている。

② その他の課題
・ 新たな課題を整理することも重要と考えます。この期間ですべてはできませんので、その方向性を示すことも処分事業に係る大きな成果となると存じます。前述のように各タスクとの連携及びその整理･統合を今後さらに進め、積極的な成果の公表をお願いしたいと思います。
・ 事業で整備したモデル、コードの検証に継続的に取り組んで頂きたい。例えば、コードを公開し、処分分野や他分野での研究への適用を促すことで、多方面での検証や改善に繋げるという戦略を検討しても良いのではないか。
・ 本事業は、ニアフィールドで生じると思われる様々な現象を対象としており、関連する学術分野は多岐にわたる。このため最終的な取りまとめにおいては、本事業で得られる知見を事業や規制で利用できる形に体系化するとともに、SP3 での統合化を軸として俯瞰的な総括が望まれる。また、成果については適切な時期に海外の専門家からのピアレビューを受けることが望ましい。
・ 限られたリソースで最大限の成果を得るためにも、本事業のテーマ間でより密接に連携するとともに、個別現象理解の成果を統合化し性能評価の観点でその影響を分析することが必要である。この連携は SP 間といった大きな枠組みではなく個別のテーマごとに進め、性能評価のシナリオ、モデル、データのどこに反映するのかを意識しつつ各種試験・評価を行うことでより強固なテーマ間の連携を図ることが望ましい。さらに、統合化により達成される複合現象評価を通じて、性能評価の不確実性を低減させるべく個別現象理解の研究へフィードバックを行い、性能評価の信頼性向上を図っていくことが望まれる。
・ 一方で、実施内容が極めて多岐に渡っているがため、それぞれのタスクの関係が分かりにくい部分もある。
・ 個別タスクが最終的にどのような位置づけで行われ、最終的にどこに反映されるのか、また各タスク間の関連も示したようなプロジェクト全体の連関図のようなものがあると分かりやすいと思われる。
・ 上述のように、本事業では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が対象とされており、重要な課題とされている相互作用のいくつかで大きな成果が得られているように感じる。ただし、ニアフィールドシステム内の要素と要素間を取り扱った要素還元的な理解を目指したものがほとんどで、システム論的な理解には至っていないのが現状のように考える。今後 2 年間でニアフィールドのバリア機能をシステムとして考えるためのプラットフォーム形成のために何が必要なのかを、トライアルをしながら見極めていただきたいと考える。
・ 現象解析モデルの統合化技術の構築は、複数のモデル（あるいは複数の解析コード）を統合・

連成させるためのシステム・プラットホームを整備・構築する課題としても、将来取り組んでいただきたい。

③ その他のコメント・ご意見

- 個別業務の中には外注案件が含まれ、サブプロジェクトの担当者は専門外の部分も多くあるかと思うが、可能な限りフォローしていただくことをお願いしたい。
- 分野間の連携のための意見交換などはどの程度の頻度で行っているのか？関係者での打ち合わせを密に行っていくことで、各タスクでの実施すべきことや課題がより明確になってくるのではないか？　また、これにより有益なアイデアが出てくることも期待される。
- 今後の課題に対する目標設定は、評価指標も併せてできるだけ具体的に定量化していただきたい。例えば、「データの拡充」などの定性的な目標は達成度レベルが曖昧で、評価側も評価がし難い。また、評価を行う上での評価指標とともに設定いただけると実施側も目標が明確になり、かつ評価側も適切な評価が可能になると考える。検討をお願いしたい。
- 本プロジェクトは内容が多岐に渡っており、内容も学問的に高度であるが、このような内容も一般の方に理解していただくことが必要となることがあると思われる。難しい内容だが、分かりやすい説明の工夫も検討していただきたい。
- SP1 の全体計画に書かれている「100℃を超える条件を含む諸条件で取得する」ようなことが記載されているが、事業で調べられている内容を見ると、それに相当するデータ取得は一部に限られている。したがって、記載内容と内容が不一致であるように考えられる。この「100℃を超える条件」でのニアフィールドシステムの理解も必要な事であると思われるが、本事業の重要性は要素間の相互作用とニアフィールドシステム論的理解だと思われるので、この記述は再考いただきたい。

3.2 各サブプロジェクト

(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 評価される点

- 模擬オーバーパック近傍の緩衝材試料中においても、高濃度の微生物 DNA が検出されたことは、本事業の大きな成果の一つとなります。
- 緩衝材のセメンテーションによる変質では、シリカ微粒子の役割も確認されつつあり、今後の研究の進展が期待されます。
- NaCl 濃度を変化させた長期腐食試験、緩衝材の THMC 現象の評価、母岩中アルカリプルーム反応輸送挙動評価についても着実に成果が得られています。
- これらを含め進捗状況は妥当なものであり、引き続き現時点での今後 2 か年の計画に従って実施していくことが望まれます。
- サブタスク 1)～4)において、確実に、知見が蓄積されている。特に、「対象とする広範な条件と炭素鋼の腐食への影響の可能性を整理した表」にあるような取りまとめは全体像が分かり易くて良いので、他のサブタスクにも是非展開して頂きたい。
- ニアフィールドアプローチを採用している我が国では、人工バリア定置後のニアフィールドにおける過渡現象を含む環境が主要な安全機能の初期条件となるため、これらの現象理解と信頼性向上が重要である。本 SP ではこのうち特に重要なプロセスと考えられるオーバーパックの腐食、緩衝材変質、THMC 連成挙動、母岩中アルカリプルーム挙動のそれぞれについて、評価手法の高度化を進めるための試験/評価が適切に設定・実施されており、5 か年の全体計画及び過去 3 年間の進捗は概ね妥当であると考える。

・ 多岐に渡る課題に関して、詳細な検討がなされており、着実な進展が見られる。
・ 当初の目的に沿って進捗している。
・ 今後の 2 か年での予定通りの実施が期待される。
・ ニアフィールド環境変遷で重要となる課題が適切に抽出され、それを解決するために実験的な検討だけでなくナチュラルアナログや考古学アナログ的な検討も含まれていることが評価できる。今後は、SP3 で整備されたプラットフォームを利用して、モデルやデータベースの検証にも用いられるようなデータ取得に務めていただきたいと考える。
・ 「オーバーパックの腐食挙動評価」について、室内試験で対象とする広範な条件を明確にされ、各条件で目的に適ったデータと知見を蓄積されており、適切に成果として纏められている。
・ 「緩衝材の変質挙動評価」について、原鉱石と再構成試料の力学特性の違いに関する、膨潤圧・圧密試験から非常に興味深い結果が得られている。膨潤圧を比較する際に、間隙比など、実験条件の違いを明示するなど、相違点を明確にしていただきたい。
・ 「ニアフィールド THMC 連成挙動評価」について、普通、「膨潤圧試験＝体積一定」という認識であるが、膨潤圧の発生機構に体積変化が関与しているとの知見がエックス線 CT 測定の計測結果として得られたことは、ベントナイトの膨潤挙動を理解する上でも、力学モデルが具備すべき要件を明らかにする上でも、非常に有益である。

・ 本タスクの進捗及び今後 2 か年の計画は妥当であり、関係機関との方向性の入念な議論を経て、その見通しが得られていると思います。特に、原位置試験でのケイ砂充填の場合の湧水量の増大については、この現象の理解が重要であり、今後においても、原位置の特徴を考慮したオプションとしてその適用範囲を示すことを念頭に置くものとしており、妥当な方針と考えます。
・ 個々の実施項目について、試験、検討が進められており、また、「許容湧水量の試算例」にあるように、許容される湧水量が計算されており、実際の施工時に直結する成果がでている。
・ 本技術開発は、原位置試験などを活用した試行錯誤的要素が強い反面、限られた時間・リソースでの成果が求められるため、実施主体や発注元のエネ庁のニーズを踏まえることが重要である。その意味で、試験計画の見直しがなされているものの、関係機関との連携やこれまでの知見を踏まえた事業展開が適切に図られていると考える。
・ 各検討が詳細に行われ、着実な進展が見られる。
・ 原位置における隙間充填の有無による流出挙動の違いが経験的に明らかにされてきている。
・ 今後も計画通りに進められることを期待したい。
・ 現位置や模擬実験など、様々な設定や条件、サイズで緩衝材の流出や飽和現象を理解しようと数多くの検討がなされていることは評価できる。
・ 「流出を抑制する工学的対策の具体化」について、令和 2 年度実施の長期試験は、明確な境界条件の設定の下、排水量・流出量に加えて、鉛直・水平土圧など充実したデータが取得されている。平成 31 年度の原位置短期試験の結果を踏まえて、より信頼性の高いデータの拡充が図られている。令和 2 年度と同様の境界条件（特に緩衝材の上部抑え）の設定の下、ケイ砂充填ケースを実施し、その成立性を改めて検討する価値は十分あると考えられる。

② その他の課題
・ 緩衝材試料中の微生物分析結果から、好気性生菌はほぼすべての試料において高密度で検出され、嫌気性菌は全く検出されなかった知見を、処分場の時間変遷のどこに適用できるのか

を整理することが望まれます。

- NaCl 濃度を変化させた長期腐食試験は 3 年間に亘る腐食速度の確認は貴重なものですが、腐食生成物の生成については、周囲の地下水の入れ替え（流動）を考慮した場合にはどのようになるのかも、追加実験までは不要ですが、考察を加える必要があるかと思います。
- 緩衝材の THMC 現象の評価について、どの現象を連成（非線形）として評価しなければならないのか（固定できる条件（変数）の有無）を整理することにより、支配する現象をより明確に説明できるようになると存じます。
- 母岩中アルカリプルーム反応輸送挙動評価におけるグラウトと花崗岩の境界部でのカルサイトの生成について、炭酸成分の供給について室内試験と原位置の場の違いと併せて整理する必要があると思います。
- サブタスク 1)、2)について、今後メカニズムの理解とモデル化を進めていくということであるが、今回の事業の中で、何をどこまでモデル化していくのか、明確にしていく必要がある。特に、サブタスク 3)との関係で、THMC への組み込みと長期予測への反映をどのように進めていくのかという展望があると良い。
- 微生物の腐食への影響は、試験期間の中で影響が無いというところだと思います。一方、実際の処分環境での現実的な評価に繋げるという点では、この知見をどのように反映していくのか、あるいは、そのために何が今後ひつようとなるのかという点が必要だと思います。
- 「対象とする広範な条件と炭素鋼の腐食への影響の可能性の表」で示されている多様な環境条件での腐食速度の一覧については、OP のみ条件を広げても全体性能評価に反映することは困難である。優先順位を考慮するとともに、対象とする条件でのデータ取得は他のパラメータも含めて体系的に取り組むことが望ましい。
- オーバーパック腐食に関する原位置試験において、同一金属が異なる環境にまたがって腐食したにもかかわらず、マクロセル腐食が生じなかったことを踏まえ、腐食生成物の形態やその分布を調べることにより、腐食メカニズムの解明とその生起条件を整理することが望ましい（室内試験だけでなく、酸素の拡散や OP 周辺における地下水/鉱物反応を考慮した解析的検討も必要）。
- 母岩中アルカリプルーム挙動評価において、準三次元を想定した反応輸送解析を可能とする技術が整備されたことは評価に値する。今後はより長期の反応輸送解析を行い、二次鉱物が核種移行挙動に与える影響や岩盤側のアルカリ影響による移行特性の変化を評価し、SP3 とより密接な連携が図られることを期待する。
- 「緩衝材の変質挙動評価の平成 30 年度～平成 31 年度の実施内容と成果の中」で原鉱石と再構成試料の透水係数に変化がないことが記述されているが、「月布鉱山産ベントナイト原鉱石と再構成試料の膨潤圧の経時変化の比較」の膨潤圧のグラフでは原鉱石は少しずつ上昇している。原鉱石の透水試験については、今後、さらに膨潤圧が一定となり、より飽和に近い段階の試料でも実施するとよいと考える。
- 人工的な圧縮ベントナイト試料が原鉱石のような物質に変化する可能性についてメカニズムとともに示されることは重要であり、今後の成果を期待したい。
- 固有透過度の定義を明確にするべきではないか？
- 亀裂沿いのアルカリプルームの移行と二次鉱物の形成についての検討を進めていただきたい。
- 「3 か年の成果、今後の計画のまとめ」で示されている今後の課題設定は適切なものと考えられるので、残り 2 年間でできるものと次のフェーズに持ち越すものを整理していただきたい。また、「対象とする広範な条件と炭素鋼の腐食への影響の可能性」で示されたまとめ方は重要だと考えるので、他の構成要素でも同じような整理ができないか考えていただきたい

と感じる。

- 「オーバーパックの腐食挙動評価」について、腐食モデルの適用性確認あるいは高度化へのフィードバックを期待したい。
- 「緩衝材の変質挙動評価」について、セメンテーションを模擬する通水実験を通して得られる知見に期待したい。セメンテーションの促進が可能となれば、セメンテーションの発達過程における緩衝材の力学挙動あるいは力学特性変化の評価に繋がると考えられる。
- 「ニアフィールド THMC 連成挙動評価」について、エックス線 CT 測定を伴う膨潤圧試験を異なる含水比条件についても行うことによって、膨潤圧の発生機構と供試体内部の挙動との関連性の理解がさらに深まることに期待したい。

- ベントナイトの流出の低減については、異なるスケールでの実験場を活用して、多面的に現象の理解を進めることにより、その適用性を現場の施工性を含め検討することが重要になると思います。
- 本検討項目は、施工時、閉鎖後から再冠水までの二つの期間で重要な項目であると思われるが、個々の成果、検討結果、あるいは、今後の計画がどちらに対するものなのか分かり難いので、きちんと明記しておく必要がある。
- 緩衝材と母岩の隙間の取り扱いに関するオプションの整理において、ペレット充填を対象とすることは妥当である。また、それぞれの隙間対策の特性を多面的な指標で整理することがこの技術開発の重要な成果になると考える。指標の例としては、「処分孔の湧水環境に応じた緩衝材の施工オプション適用のイメージ図」に示されているイメージに加え、地質環境の多様性、施工性、コスト、長期安全性への影響、再取り出し性などが考えられる。
- 今回の原位置試験の地質環境では、間隙未充填であっても坑道路盤面までの再冠水は 1.5 ヶ月～2 ヶ月程度と比較的早い結果が得られている。この程度の期間での再冠水であれば流出量は懸念されるほどの量ではないと考えられる。仮にそうだとすると、問題は、更に顕著な（透水性が高い）水みちが存在する場合の対応ではないかと考える。今後は、より湧水量が多い水みちが交差するようなピットにおいて、間隙充填／未充填での原位置試験を行うことが必要ではないか？
- また、併せてピット掘削時の水みち検出技術や水みちを含む NF の地質環境特性の評価技術やピット棄却の基準設定に関する方法論も検討することが必要ではないか？
- 今後は取得したデータより、2 年後に緩衝材の流出や飽和を理解するためにどのようなモデルを立てて検証していくのかを意識して整理していただきたい。また、流出を抑制する工学的対策の具体化に関しては、NUMO と打ち合わせを重ねて検討事項が焙り出されているようであるが、抽出された工学的対策がなぜ有力なのか、その他の対策は考えられないのかを説明する必要があると思う。また、工学的対策の採用の可否判断のため、その工学的対策のニアフィールドシステムへの長期影響も考慮いただきたいと考える。
- 「緩衝材の飽和プロセスを対象とした解析的な評価方法の検討」について、室内試験で側圧が計測されていることにより、より多角的な視点から解析モデルの妥当性を検討できる点が評価できる。一方で、室内試験に先行して解析が実施されているため、室内試験結果の取得後にはキャリブレーション（再解析）を実施し、解析の精度を向上する余地もあると思われる。
- 「流出を抑制する工学的対策の具体化」について、室内試験による系統的なデータの取得と実環境に近い原位置試験での挙動確認を併せて、施工オプションごとの適用範囲の提示に期待したい。また、パイピングや流出などの現象を評価するモデルの整備に期待したい。また、

取得される試験データとの照合によって、モデルの高度化が望まれる。

(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 評価される点

- ニアフィールド岩盤中の核種移行評価技術の開発について、着実に成果を挙げていると存じます。特に、収着性に関連して、Ca や Mg の差異については、Calcite や Siderite などの炭酸塩鉱物の反応の寄与に言及することも今後の計画に入れていており、妥当なものと考えております。
- 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について、鉄鉱物への Se(-II)の取込挙動について、パイライトへの Se の取込、保持、脱離挙動を、XAFS や SEM 分析などにより把握したことは大きな成果の一つとなると思います。また、セメント共存の緩衝材への影響評価についてはコロイドのろ過されていることを確認されたことも高く評価されます。さらに、セメント共存による岩石中の核種移行影響評価においても、泥岩-セメント接触界面での二次鉱物の生成などの変質状況を把握し、今後のそれら二次鉱物への微量元素の取り込みに関する知見に繋がる優れた成果と存じます。他方、イライトへ Eu(III)及び U(VI)を収着させた試料の TRLFS 測定では、炭酸濃度・pH の変化に伴うスペクトル形状の変化を確認できており、今後の解析に期待を致します。
- 有機物・微生物の影響評価技術の開発について、核種-有機物-岩石三元系モデルの開発に向けた収着試験に向けて、二元系について着実に成果を得ています。他方、微生物についても、メタゲノム解析が進み、坑道周辺のバイオフィルムの形成に関する知見を得ており、有機物、微生物についての検討も着実に成果を積み上げていると存じます。
- 上述を含め、進捗状況は適切であり、今後 2 か年の計画とその見通しは妥当なものと思います。
- 非常に多用な対象、プロセスについて、外部との共同研究を利用しながら、進められていると思います。特に、「核種移行現象や地質環境の不均質性と長期変遷を反映した核種移行現象解析モデルの構築・確証のアプローチの図」のように、性能評価への反映を意識して研究を進められているのは、評価できます。
- 実際の地質環境の特徴やニアフィールドの長期環境変遷を考慮した核種移行モデル開発を行うために、国内の地下研究施設や海外の情報なども活用し、個別現象理解やデータベース開発が進められており着実な成果が認められる。
- 着実かつ詳細な進捗が伺える。
- 単一割れ目から複雑な割れ目を対象とした水理-物質移行について取り扱っており、引き続き精緻化に向けて検討を進めていただきたい。
- 核種移行の現実的な理解のために包括的に課題が抽出され、着実に成果が挙げられているように考える。今後の計画でも必要な課題が抽出されていると考えられるが、今後 2 年間の計画なのか、その後も続く計画なのかはっきりしていないものが多いので、それらがわかるように明示していただきたい。

② その他の課題

- ニアフィールド岩盤中の核種移行評価技術の開発について、「500m のスケールの割れ目を対象とした解析モデル体系図」の計算グリッドの妥当性を把握する方法（グリッドに依存しない数値解の一意性の確認に加え、数値解が解いている収支式をどの程度満足かするかを定量化するなど）の整理が必要であること、また、「幌延 URL の割れ目中の原位置トレーサー

試験解析結果」のフィッティングについては、まだ最適化がなされていないように思いましたので、引き続きの検討が望まれます。また、セメント共存による岩石中の核種移行影響評価において、泥岩-セメント接触界面での二次鉱物について、CSH などの Ca/Si 比なども重要な情報もあろうかと存じます。

- 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について、前述のように、TRLFS 測定の解析についての進展を期待いたします。
- 有機物・微生物の影響評価技術の開発について、核種-有機物-岩石三元系モデルにどのようにこれまで成果を活かしていくかアプローチの方向性を整理する必要があるように思われます。
- 結晶質岩、堆積岩どちらも、亀裂と周囲のマトリクスを考慮した flow stagnant モデルで減少の説明と性能評価に向けた粗視化、アプスケーリングを行っていこうというところだと思います。一方、結晶質岩では雲母に着目したモデル化、堆積岩ではイオン交換を取り込んだ一次元の reactive transport ということで、個々の対象に着目したモデル化がされています。これらは今後、flow stagnant モデルに統合していくということでしょうか。
- 岩石マトリクスの評価で、主に、X 線 CT を多用されていますが、空間分解の点で、flow stagnant モデルの構築に必要な場のモデル化に対して十分な情報が得られているのでしょうか。
- 有機物、微生物影響については、幌延の精緻化に陥らないよう、サイトが決まった後に、何をどのように進めていくべきかという点を忘れずに進めて下さい。
- 実際の地質環境を対象とした評価技術を整備するためには、原位置試験から得られたミクロスケールの精緻なモデルを全体システムへ反映させるための体系的なアップスケーリングの手法を構築する必要がある。そのためには、精緻なモデル（例えば、フロー・スタグナントモデル）における重要なプロセスを感度解析などで分析するとともに、これに基づく新第三紀堆積岩の特徴を踏まえた物質移行モデル（性能評価への反映）について検討する必要がある。
- プレート収束境界で世界的にも有数な変動帯にある日本列島に特有な岩盤や割れ目特性が存在することが考えられる。亀裂のバリエーションを増やすことで、サイトスペシフィックな段階にも適用可能な水理-物質移行モデルを準備していくことを期待したい。
- 結晶質岩、堆積岩中の亀裂のバリエーションの拡充と類型化、さらにそれぞれの水理-物質移行モデルの検討を今後期待したい。
- また、日本列島の主要な基盤を形成する付加体の検討は是非進めていただきたい。特に Se などの安全評価上鍵を握る核種の挙動を理解するための重要な成果が得られていると考えるが、それらを核種移行評価、安全評価でどのように取り扱っていこうとしているのか、2 年後に方針を示していただきたいと思う。

(3) ニアフィールド性能の総合評価技術開発

① 評価される点

- サブタスク 1)について、現象解析モデルの統合化技術の構築における、プロトタイプを用いた緩衝材の長期的変質挙動に係る感度解析では、OP の腐食膨張に伴い、緩衝材がコンクリート支保側に圧密され、コンクリート支保／緩衝材との境界付近における間隙率の低下を定量的に確認していると存じます。これらは、サブタスク 2 における核種移行評価に関連しており、核種移行パラメータの設定にあたり重要となる因子として、pH、イオン強度、モンモリロナイト残存率、間隙率及び構成鉱物の分布の変遷を抽出し、それらの挙動を、解析を通じて整理しており、議論の有用な知見となると思います。
- サブタスク 2)について、ニアフィールドシステム核種移行評価技術の開発において、NF 複

合現象評価から核種移行解析に受け渡す状態変遷パラメータを整理され、今後の検討の元となる成果と存じます。また、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とともに、SP2 とも連携しながら緩衝材の変質を考慮した核種移行パラメータを設定するための方法論の検討をされ、計画に対応する進捗となっていると存じます。

- 上述のサブタスク 1)及び 2)の検討の方向性については既に関連機関とも議論されながら進めており、そのことも個別の成果を整理・統合化する視点から評価できます。これらを踏まえ、進捗状況並びに今後の計画や見通しは、現状において、妥当なものと考えます。
- 新規のモデル開発をやめて、検証に注力されると理解しました。是非、THMC や統合化の課題を抽出し、次につなげて行ければと思います。
- ニアフィールドの環境変遷に関する諸プロセスの統合化を効果的に進めるために、安全機能に着目したグローバルな感度解析とこれに基づく重要なプロセスの絞り込みが行われており、効率的に事業が進められている。
- 難しい課題であるが着実な進捗が伺える。
- 事業の途中で一度立ち止まって内容を精査されたこと、整備されたプラットフォームの有効性や限界を他の SP とのインターラクションを通して検討しようとされたことは、本事業全体の成果の価値を高めるために重要なステップだったように感じる。再整理された今後 2 年の検討に大いなる期待をしている。
- ニアフィールド複合現象を評価するための解析手法が開発され、連成解析を通してその妥当性が検証されている点が評価できる。

② その他の課題

- 現象解析モデルの統合化技術の構築について、これまで整理したプロトタイプを用い、緩衝材の長期的変質挙動の評価を対象とし、今後、緩衝材機能に影響を及ぼす状態変遷の更なる抽出に期待いたします。また、本解析ではセメント支保部分において C-S-H の生成（時間と共に Ca/Si 比が低下）、エトリガイトや方解石などの生成を確認しており、これは一例となりますが、タスク 2 とのこれまで以上の連携が望まれます。なお、連成解析について、間隙率の変化、透水性の変化など、方程式を解く観点からは擬定常状態近似をしておりますので、そのような近似の影響が状況変遷の評価に大きな影響がないことを確認することも重要と思います。
- ニアフィールドシステム核種移行評価技術の開発において、強連成として取り扱うべきこととそうでない（擬定常を近似できるような弱連成）との仕分けが重要になるかと存じますので、引き続き検討をお願いしたいと存じます。なお、やや要素個別的ですが、鉱物の割合（体積または重量）に応じた平均的なD_eやK_dを設定し、核種移行解析に反映する必要があることに同感です。K_dが算術平均すると、空間的分布を詳細に考慮した場合より保守的な結果が得られるという報告もありますので、本検討を補強することとなると存じます。
- 感度解析から得られた知見（トップダウン的な検討）をさらに有効活用するために、抽出された安全機能に関連するプロセスを網羅的に抽出し（ボトムアップ的な検討）、ニアフィールド性能の統合化のためのシナリオ検討に反映することが望ましい。
- 緩衝材とセメントの反応輸送解析において、メッシュの大きさが結果に与える影響について検討する必要がある。モンモリロナイト残存率の低い領域が緩衝材中で広く分布している結果は、メッシュ設定が影響している可能性がある。
- セメントと緩衝材の相互作用に加えて、セメントと岩盤の相互作用についても統合化の対象

とすることが望ましい。本来地層処分システムは多重のバリアが相互補完的に機能するものであり、この関係を把握するためにも内側への影響だけでなく外側についても検討対象とすることが重要である（限られたリソースでの検討ですので、この今後 2 か年で対応が難しい場合には課題として目出ししておくことも必要）。

- 透水係数から間隙率への換算（をやっているとすると）は、現実には間隙率から一般に公開されている式に基づく透水係数への換算結果と実測値の透水係数は整合しないことも多い。この部分には課題があるので慎重に進める必要があるのではないか。
- モデルの妥当性については、何を以て妥当性が確認できたとするのかを予め示しておくことが必要と考える。
- 解析システムの将来予測結果の信頼性の向上のための技術開発に期待したい。
- 本 SP を担当する JAEA は、NUMO が安全評価をするためのツールを整備する主要研究機関として重要な役割を果たしてきて、解析のプラットフォーム、モデルやデータベースを整備してきた。今後 2 年間は、他の SP で得られている現象理解のためにそれらを使い検証していただきたいと考えるとともに、それらを通して課題の焙り出しを行って、次フェーズでの取り組む課題を適切に設定できるものとしていただきたい。次フェーズは、精密調査に入る前の重要な時期になると思われるので。
- 「現象解析モデルの統合化技術の構築」について、SP1「ニアフィールド THMC 連成挙動評価」や SP3・サブタスク「ニアフィールドシステム核種移行評価技術の開発」との区別が明瞭ではないように見受けられる（対象とする時間スケール・現象が異なることは理解できる）。長期的（次フェーズ？）には、様々なモデルを統合・連成させるためのシステム・プラットホームを整備する技術の開発に期待したい。

以　上

付録 B

流出現象を考慮した緩衝材の健全性評価（2.6 節）に関わる試験と解析

＜付録 B の構成＞

付録 B は 2.6 節の「流出現象を考慮した緩衝材の健全性評価」に関連して実施した内容のうち、本文に示した検討の補助的なものとして実施したものをまとめたものである。付録 B の構成と概要を以下に示す。

1. 再冠水期間の地下水流動の検討

緩衝材流出が起こる 2 つの期間において、地下坑道、及び処分孔への地下水の流入（湧水状況）を水理解析によって予測することを試みた。実際の処分場を想定したモデルを使って、「期間 1：定置直後から埋戻しまで」と「期間 2：埋戻し後の再冠水まで」の地下水流動を解析的に予測した。2.6 節で述べたように、原位置の自然湧水環境下での試験は期間 1 を想定したものであり、期間 2 における流出の可能性に関しては強制注水による試験を行った。ここで示す解析はその参考データであり、定量的な意味を持つものではない。解析により、埋め戻し直後に、水位の上昇による湧水量増加傾向が見られた。また、埋め戻し後早期に流動は収束に向かい、比較的短期間で処分孔周辺に向かう地下水の流れが少なくなるという結果が得られた。

2. 横置き試験装置による予備試験

2.6 節では、令和 2 年度から令和 4 年度までの研究計画について述べている。流出現象に関する室内試験についても、流出現象の理解と流出の評価方法を構築するための試験計画を立てている。令和 2 年度の室内試験では、そのための装置の適用性、試験条件の範囲などの情報を得るための予備試験を実施した。隙間未充填の場合は、通水量の違いにより膨潤速度に大きな差がないこと、ケイ砂充填の場合はケイ砂の間隙にベントナイトが上流側にも進入していくことがわかった。また、試験後に X 線 CT 撮影によって、水みちが観察でき、断面積が計測できること、ベントナイトに混合されているケイ砂の流出後の偏在が確認できることなどがわかった。得られた試験結果は、来年度の試験条件の設定などに寄与するものである。

3. 緩衝材ブロックの品質に関するデータ取得

原位置試験で用いる緩衝材ブロックは、本試験のために設計・製作して使用している。このブロックは平成 26 年度から同じサイズで製作されており、製作方法について改良を重ねてきている。令和 2 年度に使用したブロックの製作方法を示すと共に、品質を管理する方法として X 線 CT 撮影の適用性について検討した結果を示す。X 線 CT 値からは密度分布はほとんど見られなかった。また、ブロックの密度（湿潤密度）の計測方法としては構成材料ごとの CT 値と密度の相関確認などに検討余地を残すものの、コアサイズ以下の被写体寸法においては CT 画像に基づく密度測定、分布推定ができる可能性が示された。

1. 再冠水期間の地下水流動の検討

1.1 湧水環境予測評価モデルの作成

1.1.1 概要

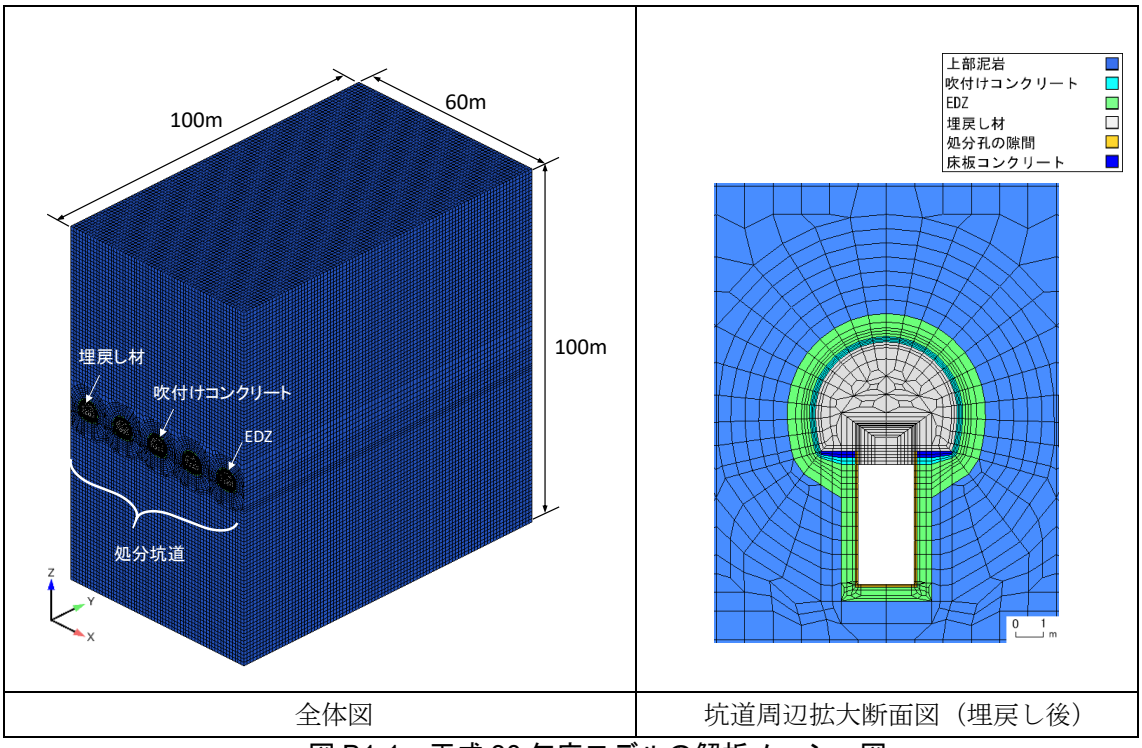
処分坑道埋戻し後の処分孔の湧水状況を予測・評価するための水理解析モデルを構築した。解析モデルのベースには平成 30 年度沿岸部処分システム高度化開発（産業技術総合研究所ほか, 2018）で検討した（以下、平成 30 年度検討と記す。）「ニアフィールドスケールモデル」（以下、平成 30 年度モデルと記す。）を用いた。平成 30 年度モデルに対し、坑道及び処分孔周辺の湧水環境をより適切に表現できるようにするため、以下のような修正を加えた（以下、このモデルを令和 2 年度モデルと記す。）。

・裏面排水のモデル化
・定置期間のモデル化

1.1.2 作成手法

(1) 平成 30 年度モデル

平成 30 年度モデルは、平成 30 年度検討において作成した(a)広域、(b)処分場及び(c)ニアフィールドの 3 つのスケールの三次元解析モデルのうち、「(c)ニアフィールドスケールモデル」を指す。これらの解析モデルは、新第三紀堆積岩類、パネル型、竪置き・ブロック方式を検討の対象としている。また、亀裂の透水性を等価不均質多孔質媒体としてメッシュの透水性に反映させている。また、平成 30 年度モデルであるニアフィールドスケールモデルは処分場スケールモデルの処分場の中央の 5 坑道をモデル化している。平成 30 年度モデルのうち緩衝材がない場合の解析メッシュ図を図 B1-1、透水係数分布図を図 B1-2、処分坑道及び処分孔の解析メッシュを図 B1-3 に示す。



全体図	坑道周辺拡大断面図（埋戻し後）

図 B1-1　平成 30 年度モデルの解析メッシュ図

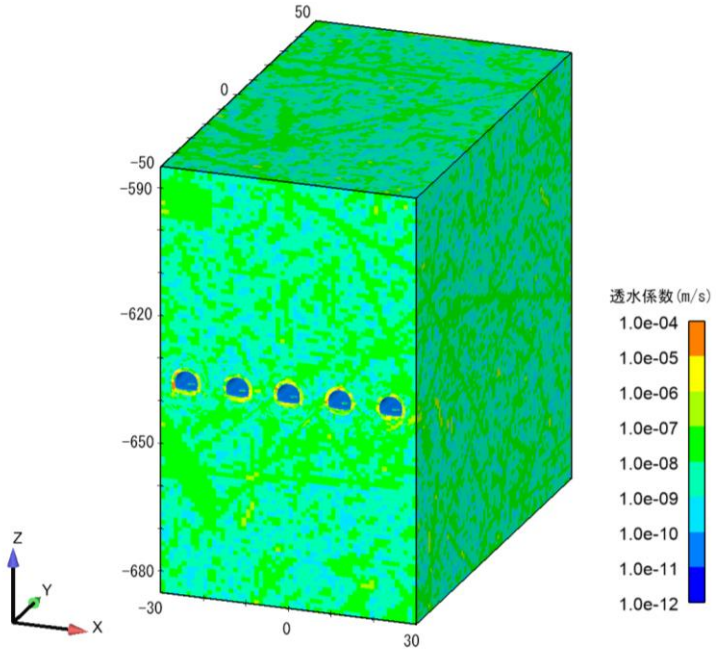
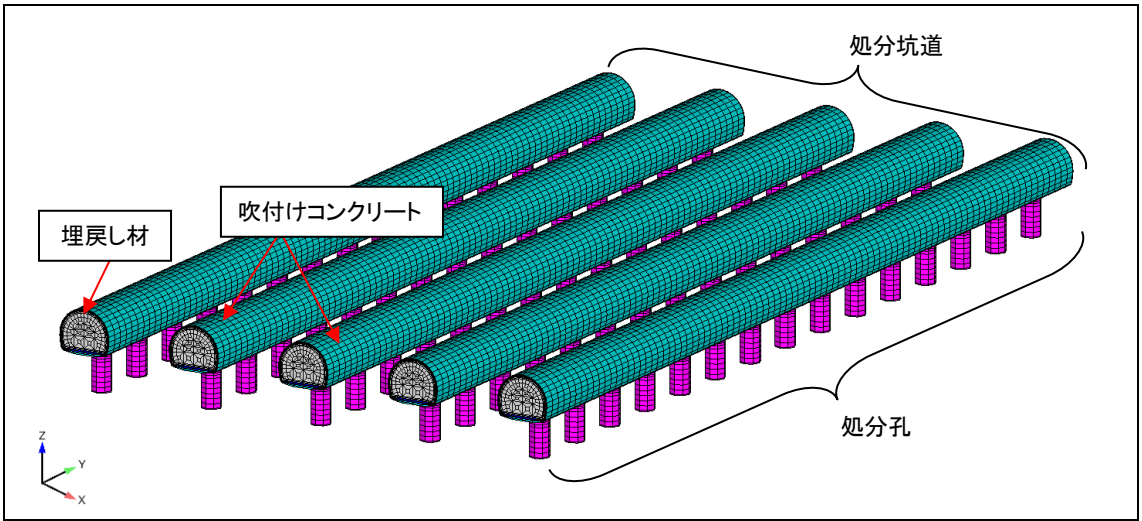
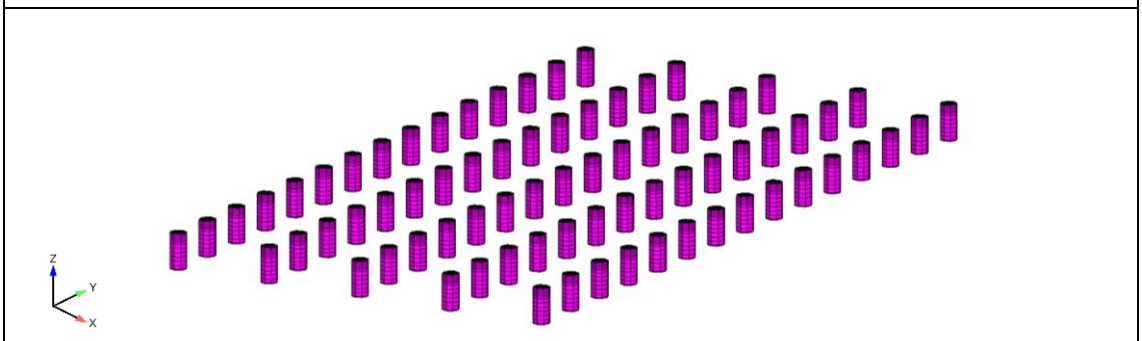


図 B1-2　透水係数分布図（鳥瞰図）



(a)処分坑道及び処分孔



(b)処分孔

図 B1-3　処分坑道及び処分孔の解析メッシュ（鳥瞰図）

(2) 令和 2 年度モデル

1) 裏面排水のモデル化

埋戻し前後の地下水流動場に与える条件をより正確に反映するために、本検討では平成 30 年度モデルに追加で裏面排水を設定した。裏面排水に関しては様々な工法が考えられるが、ここでは次のように考え、モデル化した。竪置き・ブロック方式は処分孔が坑道床面の中央にあるため、坑道湧水は坑道側溝へと排水される。また、裏面排水工から側溝部分までの透水性は大きく、排水口部分は大気圧相当になると考えられる。そこで、坑道の天端から側溝にかけて、支保工（吹付けコンクリート）と岩盤の境界節点に大気圧相当の浸出面境界を設定することにより、裏面排水を表現した。図 B1-4 に浸出面境界として設定した節点の位置を示す。

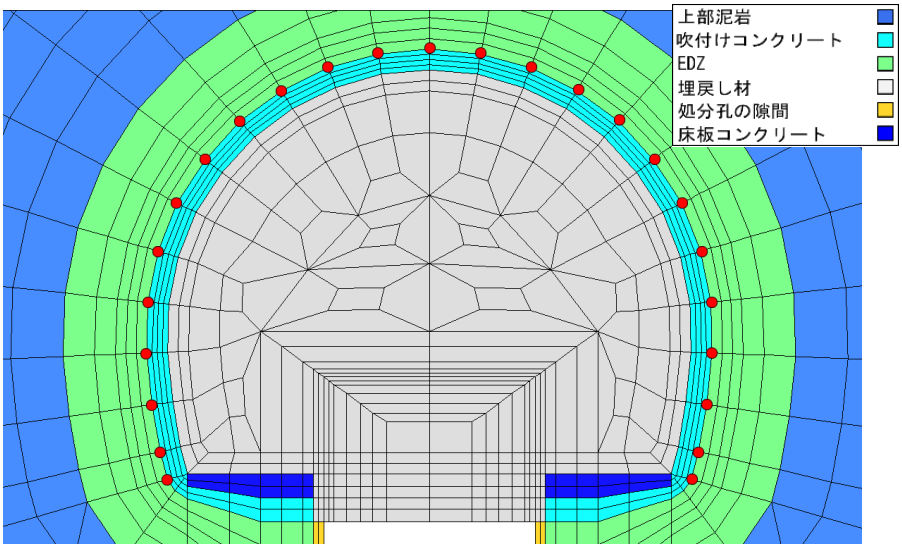
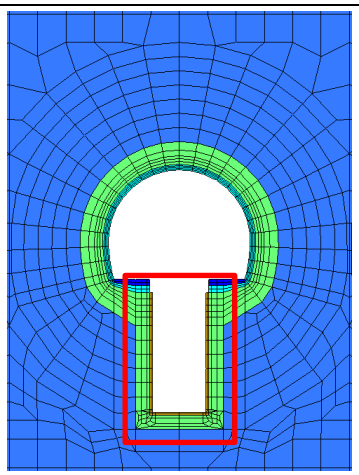
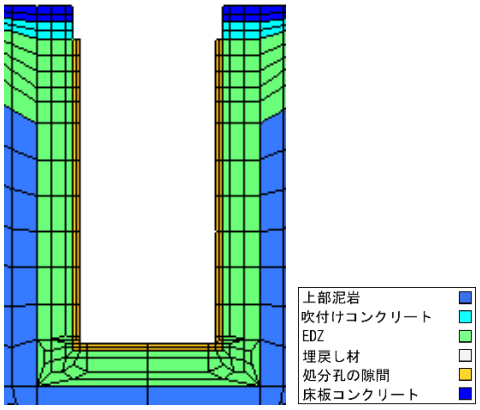


図 B1-4　裏面排水を想定した浸出面境界の設定位置
（坑道部分のメッシュ拡大図、赤丸位置）

2) 定置期間のモデル化

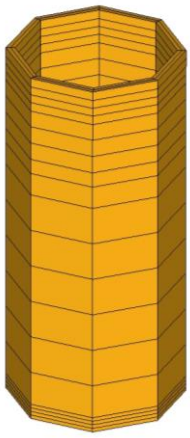
本検討は前年度検討で同時に行うと仮定した定置と埋戻しの工程を分けて考え、埋戻しに先行する定置期間を設けた。この期間の検討を可能にするため、掘削時のモデルに処分孔と緩衝材間の隙間（以降、隙間という）の要素を追加することにより、定置期間を想定した解析モデルを作成した。また、隙間については、その幅、充填材及び緩衝材の膨潤といった透水性に影響を及ぼす要因を検討するために、透水性を変更可能にした。定置期間を想定して新たに作成した解析メッシュの坑道周辺の拡大図を図 B1-5 に示す。なお、隙間の透水性は、平成 30 年度モデルと同様に、等価透水係数の考え方に基づいて算出した。鉛直方向の透水係数の計算例を図 B1-6 に示す。

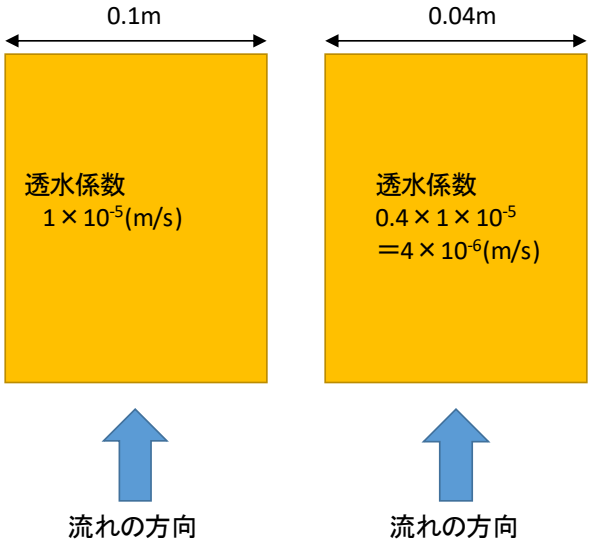




坑道周辺拡大	処分孔部分拡大（左図赤枠）

図 B1-5　定置期間を想定した解析モデルのメッシュ





処分孔と緩衝材間の隙間 （0.1 m ; 平成 30 年モデルと同一）	0.1 m の隙間幅を 0.04 m 相当とする場合の 等価透水係数の設定方法

図 B1-6　隙間のメッシュと鉛直方向の等価透水係数の計算例

1.2 湧水環境予測評価解析の実施

1.2.1 概要

湧水環境予測評価解析は、前述した湧水環境予測評価モデルを用いて「1 定置直後から埋戻しまで」、及び「2 埋戻し後の再冠水まで」の 2 つの期間を想定し、それぞれの期間における解析を実施した。そして、その結果から処分孔の湧水環境の経時変化に係る情報として整備した。

1.2.2 解析コード

地下水流動の解析コードには、Dtransu-3D・EL（西垣ほか, 1995）を用いた。Dtransu-3D・EL は、西垣誠氏（岡山大学名誉教授）、株式会社ダイヤコンサルタント及び三菱マテリアル株式会社が共同で開発した、有限要素法に基づく解析コードであり、定常・非定常の三次元飽和・不飽和浸透流及び溶質の移流分散解析が可能である。本コードの浸透流解析の部分は、京都大学で

開発され、日本国内で十分な使用実績を持つ UNSAF-3D（赤井ほか, 1977）と同じアルゴリズムで作成されている。

本コードの飽和・不飽和非定常浸透流の支配方程式は、運動方程式及び連続の式から導かれ、次式で表される。

$$\frac{\partial}{\partial x_i}\left(k_r k_{ij}\left(\frac{\partial(\psi + x_3)}{\partial x_j}\right)\right) + q = (\alpha S_s + C_s)\frac{\partial \psi}{\partial t}$$

ここで、x_i $(i = 1 \ldots 3)$：三次元直交座標、ψ：圧力水頭、$k_r(\psi)$：比透水係数、k_{ij}：飽和透水テンソル、q：単位体積あたりの流出入量（流入時 $q > 0$）、S_s：比貯留係数、$C_s(\psi)$：比水分容量、α：{不飽和領域で 0、飽和領域で 1}、t：時間である。

1.2.3 解析期間の設定

本検討の解析は、中央 5 本の坑道掘削から施設閉鎖までを、表 B1-1 に示す 3 期間に分けて実施した。同表で、期間 0-2 は定置前の坑道及び処分孔が開放されている期間、期間 1 は定置後の坑道が埋め戻されていない期間、そして、期間 2 は坑道が埋め戻された後の期間である。平成 30 年度検討では定置と埋戻しを同時と仮定していたが、本検討では、定置直後から埋戻しまでの期間についても適切に評価するため解析期間を分割した。図 B1-7 に解析上で仮定した工程とそれに対応する解析期間を示す。また、各解析期間における坑道周辺の解析メッシュ図を図 B1-8 に示す。

表 B1-1　解析期間

解析期間	主要坑道掘削開始からの期間			備考
期間 0-2	6.3 年	～	12.22 年	中央 5 本の坑道掘削～定置前まで
期間 1	12.22 年	～	12.96 年	中央 5 本の坑道の定置から埋戻し前まで
期間 2	12.96 年	～	60 年	中央 5 本の坑道の埋戻しから 主要坑道埋戻しまで

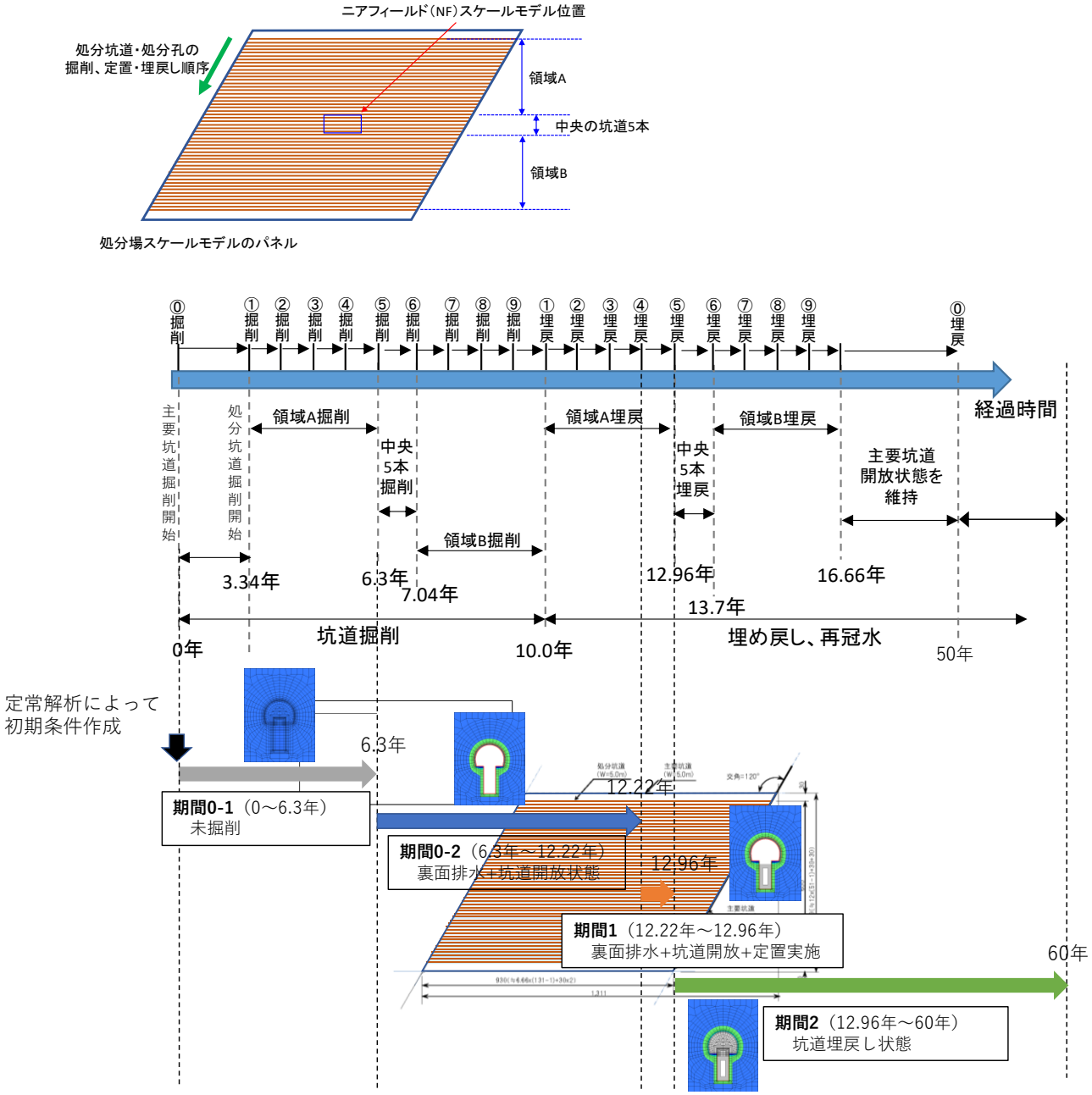


図 B1-7　掘削及び埋戻しの工程とそれに対応する解析期間

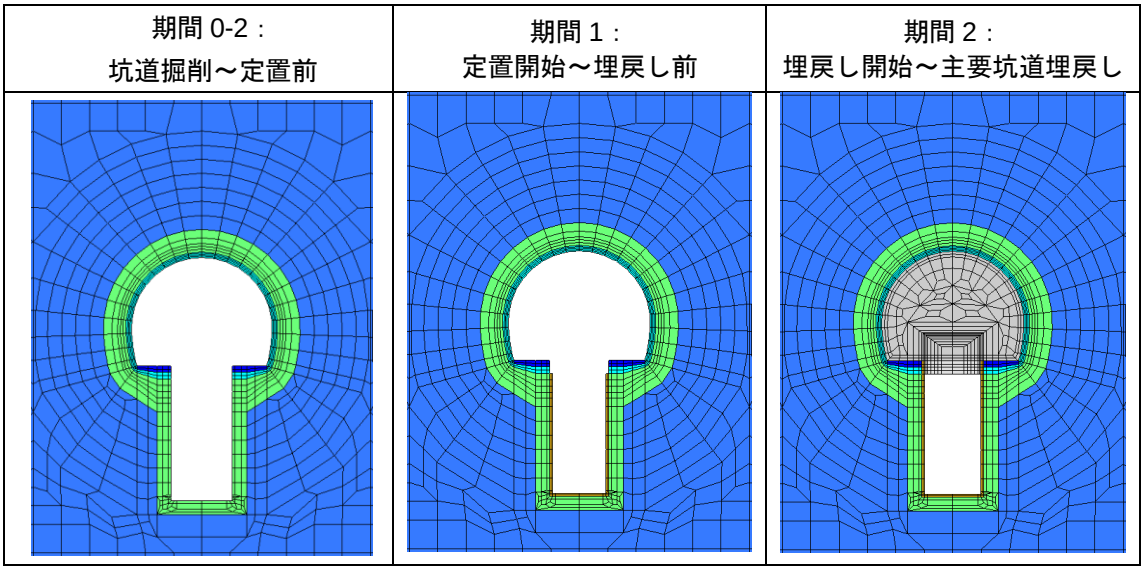


図 B1-8　各解析期間における処分坑道の解析メッシュ図

1.2.4 解析ケースの設定

解析ケースは、処分坑道埋戻し後に想定される処分孔からの湧水量の幅を把握するという観点から、次節 1.2.5 において設定した物性値を基本とし、隙間通過流量への影響が大きいと推察される隙間の透水性や EDZ の有無、埋戻し材の透水性を変えることにより、表 B1-2 のように設定した。

表 B1-2　解析ケース一覧

ケース名	透水係数（m/s）		EDZの設定	備考
	処分孔-緩衝材間の隙間	埋戻し材		
case001	1.00E-05	1.00E-08	あり	基本ケース 処分孔-緩衝材間の隙間は砂質土相当
case002	1.00E-12	1.00E-08	あり	処分孔-緩衝材間の隙間は緩衝材相当
case003	1.00E-05	1.00E-08	なし	EDZを考慮していないケース
case004	1.00E-05	1.00E-05	あり	埋戻し材を砂質土相当

1.2.5 解析条件

(1) 解析物性値

解析物性値は、平成 30 年度検討における case005（埋戻し前、埋戻し材を粘性土相当、緩衝材と処分孔間の隙間を砂質土相当としたケース）及び case005-b3（case005 の埋戻し後）を基本ケースとした。メッシュの各材料の飽和透水係数、間隙率、比貯留係数一覧を表 B1-3 に示す。また、各材料の不飽和浸透特性を図 B1-9、図 B1-10 に示す。なお、緩衝材は低透水性であり、ほとんど地下水は流れないと想定されることから、不透水境界としてモデル化した。隙間の幅は 0.04 m とし、前掲図 B1-6 の考え方に基づき等価透水係数として設定した。

表 B1-3　物性値一覧（基本ケース）

材料区分	飽和透水係数（m/s）	間隙率	比貯留係数（1/m H_2O）	備考
岩盤（基質部）	3.00E−10	0.25	3.16E−06	
岩盤（割れ目部）	3.11E−09	0.25	3.16E−06	割れ目部のみの対数平均値
支保工（吹付けコンクリート）	5.02E−11	0.19	1.38E−06	
EDZ	岩盤の100倍	0.25	8.44E−06	
床版コンクリート	5.02E−11	0.20	1.38E−06	
緩衝材−処分孔間の空隙部（処分孔の隙間）	1.00E−05	0.20	1.00E−04	砂質土相当
埋戻し材	1.00E−08	0.33	5.00E−04	

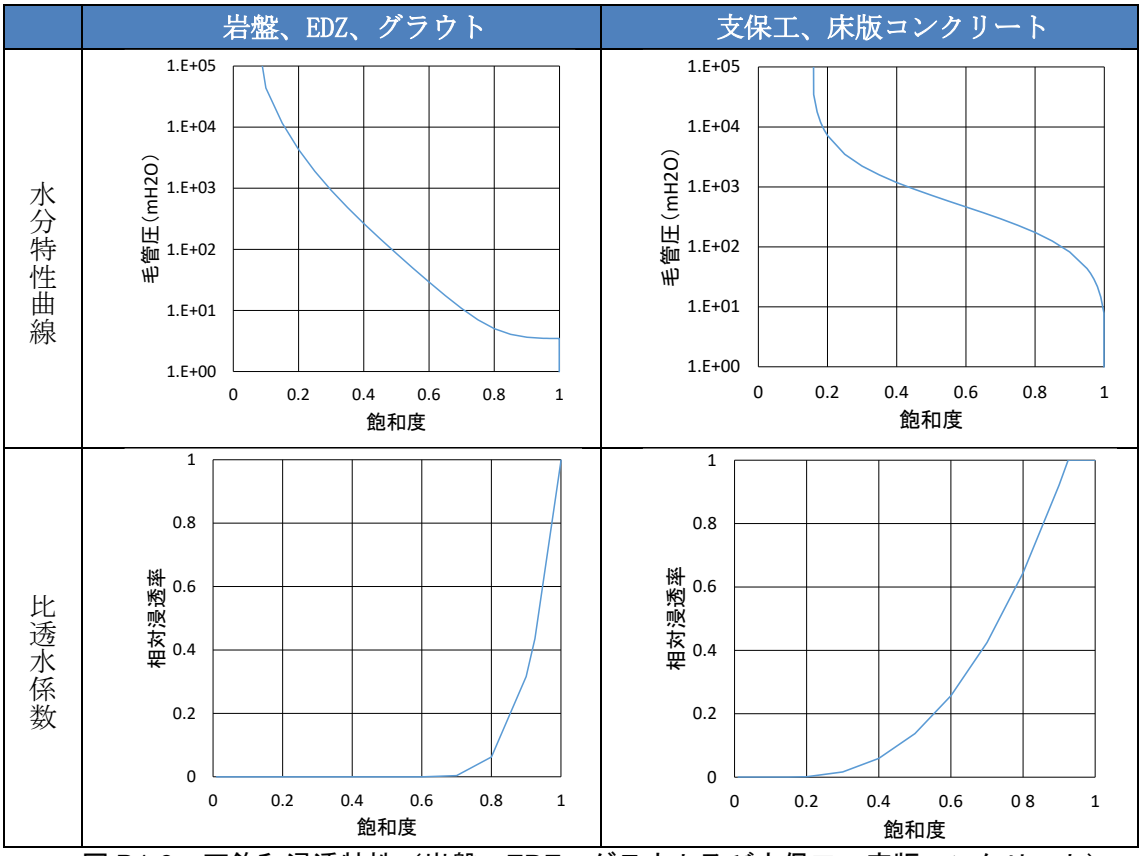


図 B1-9　不飽和浸透特性（岩盤、EDZ、グラウト及び支保工、床版コンクリート）

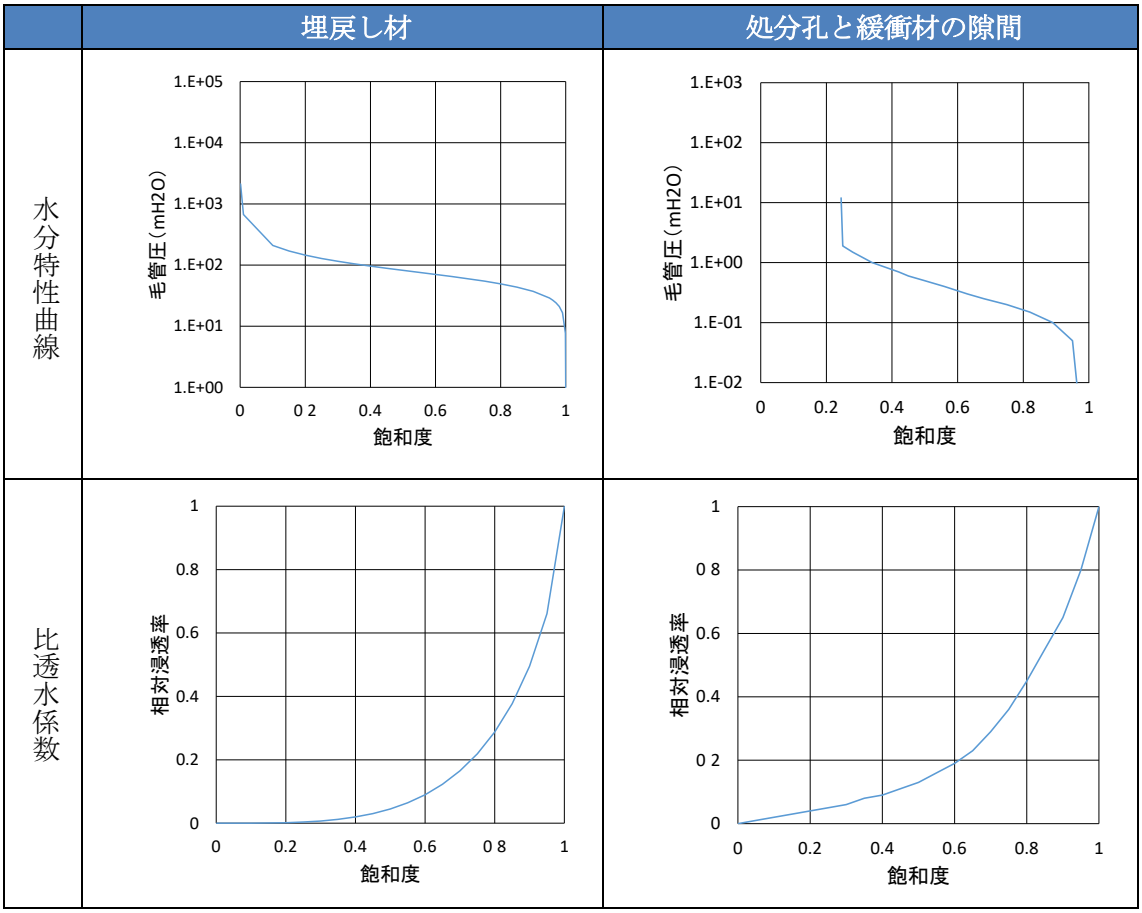


図 B1-10　不飽和浸透特性（埋戻し材及び処分孔と緩衝材間の隙間）

(2) 初期条件

各期間の初期条件は、前掲表 B1-1 の時系列における直前の解析期間の終了時の状態として設定した。期間 0-2 の初期条件は、平成 30 年度検討における期間 0-1 の終了時の状態とした。同様に期間 1、期間 2 については、それぞれ令和 2 年度モデルの解析により得られた期間 0-2、期間 1 の最終状態を初期状態として設定した。ただし、期間 1 における隙間、期間 2 における埋戻し材は、それぞれその前の段階のモデルに追加される材料となるため、何らかの初期条件を設定する必要性がある。本検討では、期間 1 の初期において隙間は飽和と仮定し、初期圧力水頭は 0 とした。また、期間 2 における埋戻し材の初期状態は、case001～case003 については、初期飽和度を 0.75 とし、粘性土の水分特性曲線から初期圧力水頭を設定とした。case004 については、埋戻し材を砂質土とした場合の水分特性曲線において設定値のある最小容水量相当の圧力とした。隙間及び埋戻し材それぞれに設定した初期条件を表 B1-4 に示す。

表 B1-4　処分孔と緩衝材間の隙間及び埋戻し材の初期条件

材料区分	対象ケース	初期圧力水頭（m）	初期飽和度
処分孔と緩衝材間の隙間（期間 1）	全てのケース	0.0	1.000
埋戻し材（期間 2）	case001 case002 case003	−54.5	0.750
	case004	−12.0	0.245

(3) 境界条件

境界条件のうち、モデル外周部分は平成 30 年度モデルと同様とし、坑道軸方向に平行な側面（上下面も含む）に、処分場スケールモデルの解析結果から得られた圧力水頭を、経時変化を考慮して設定した。坑道軸に直交する方向の側面は不透水境界とした。処分坑道及び処分孔壁面（期間 1 における緩衝材定置部は除く）は浸出面境界とした。また、前述したように掘削・定置期間における裏面排水は支保工と岩盤の間に浸出面境界としてモデル化した。図 B1-11 に令和 2 年度モデルに設定した境界条件を、図 B1-12 に処分場スケールモデルから令和 2 年度モデルに与えた境界条件（圧力水頭）を示す。

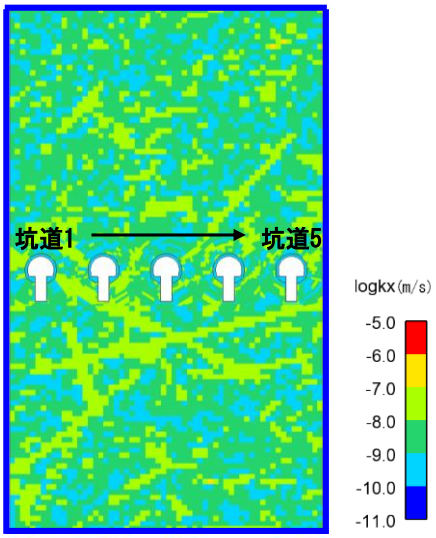
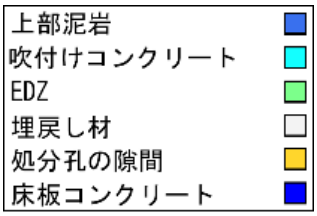
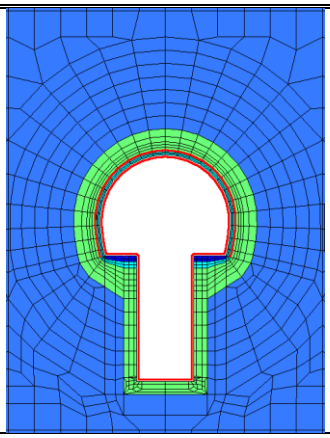
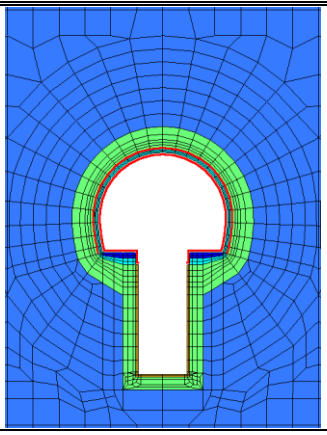
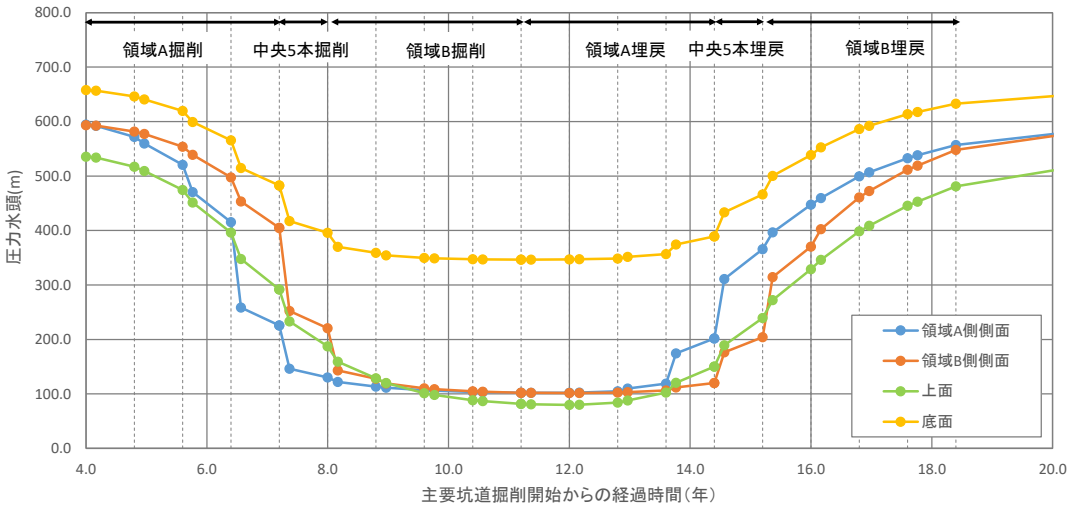
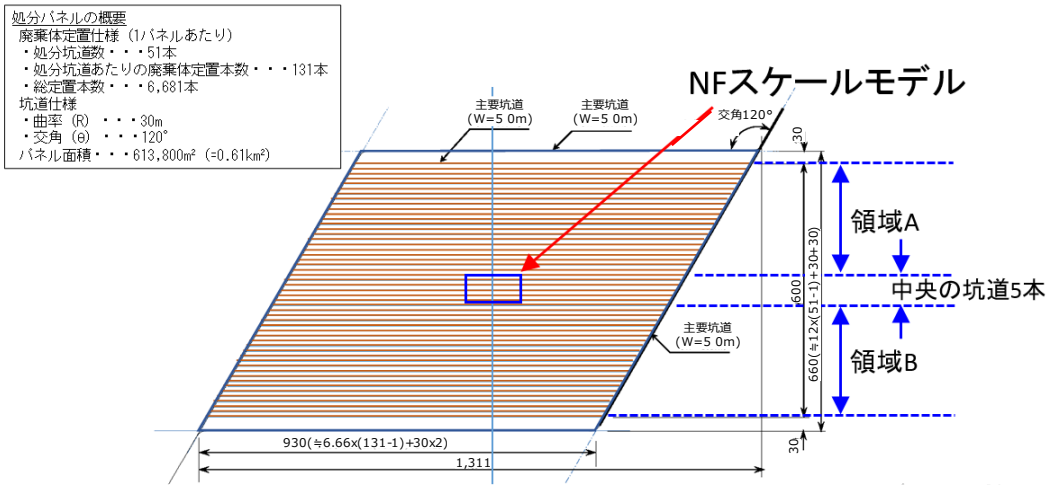
<table>
<tr><td rowspan="2">全体図</td><td> 
</td><td> 
</td></tr>
<tr><td>坑道横断方向断面
（青線：処分場スケールモデルから設定された水頭固定境界、透水係数分布図）</td><td>処分坑道周辺の材料区分</td></tr>
<tr><td rowspan="2">処分坑道周辺拡大図</td><td>  </td><td>  </td></tr>
<tr><td>期間 0-2：掘削期間
（赤線：浸出面境界）</td><td>期間 1：定置期間
（赤線：浸出面境界）</td></tr>
</table>

図 B1-11　境界条件（坑道軸に直交し、処分孔軸を含む断面）



NF スケールモデルに境界条件として与えた圧力水頭

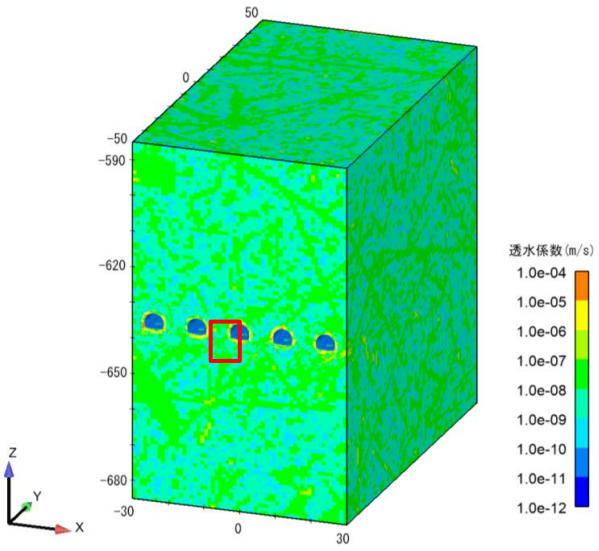


パネルにおける NF スケールモデルの位置と各領域の位置関係

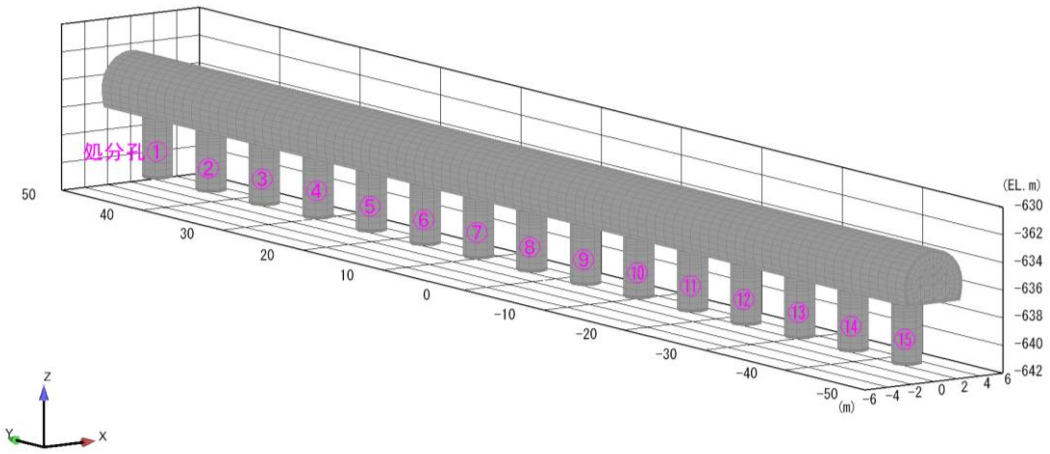
図 B1-12　処分場スケールモデルの解析結果からニアフィールドスケールモデルの外周境界に境界条件として与えた圧力水頭（側面：モデル中央の標高での圧力水頭）

1.2.6 結果の整理方法

解析結果は、坑道湧水量、処分孔湧水量並びに隙間の流量、圧力及び実流速について整理を行った。ニアフィールドスケールモデルには 5 本の坑道があるが、このうちモデル周面の境界条件の影響が比較的小さいと考えられる中央の坑道について着目して整理を行った。解析モデルにおける中央坑道の位置を図 B1-13 に示す。隙間の流量（以降、隙間通過流量という）は、図 B1-14 に赤丸で示した位置の要素重心でのダルシー流速の鉛直成分に通過断面積を掛けることで算出した。

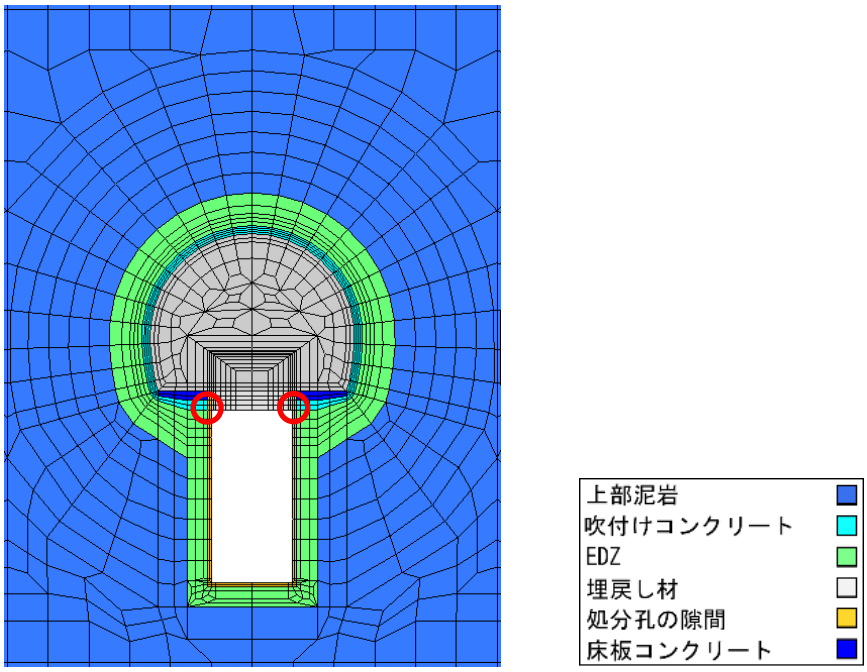


解析モデル鳥瞰図（透水係数分布図）

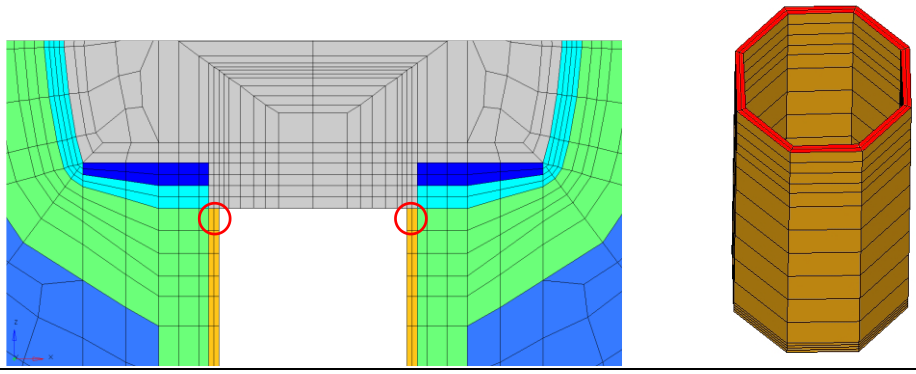


処分孔番号

図 B1-13　解析結果を出力した坑道位置及び処分孔番号



(a)坑道周辺



左図：(a)拡大図、右図：隙間における通過流量算出断面位置（赤色部分）

図 B1-14　隙間通過流量の算出位置（赤丸位置）

1.2.7 解析結果

(1) 坑道湧水量

1) 全体的な傾向と平成 30 年度モデルとの比較

定置開始から埋戻し前までの期間 1 を設けたことによる坑道湧水量への影響を調べるため、期間 0-2（坑道掘削～定置前）から期間 1 にかけての、平成 30 年度モデル（case005）と令和 2 年度の基本ケース（case001）の坑道湧水量の比較を行った結果を図 B1-15 に示す。期間 0-2 において両ケースの坑道湧水量に大きな差はない。坑道湧水量は掘削直後に多く発生するが、その後徐々に減少し掘削後 1 年程度でほとんど生じなくなっている。これは、図 B1-16 に示す坑道周辺の圧力水頭の変化から分かるように。坑道から地下水が湧出することによって、坑道周辺に不飽和領域が徐々に形成されるためと考えられる。その後は、図 B1-17 に示すように、定置に伴って処分孔に近い坑道下部の圧力が上昇する。このことによって不飽和領域が狭くなり、その結果坑道湧水量が増加している。一方、平成 30 年度の検討（産業技術総合研究所ほか, 2018）では定置は次の期間 2 において埋戻しと同時に行われることから、期間 1 における坑道湧水量は継続してほぼゼロとなっている。

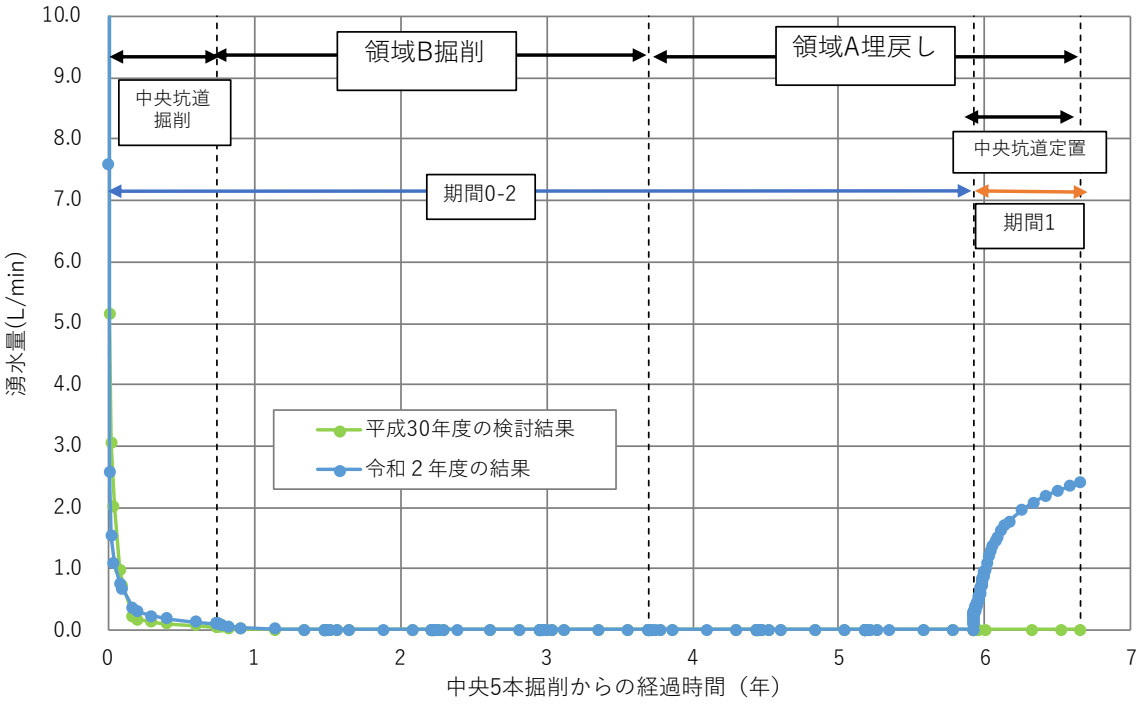
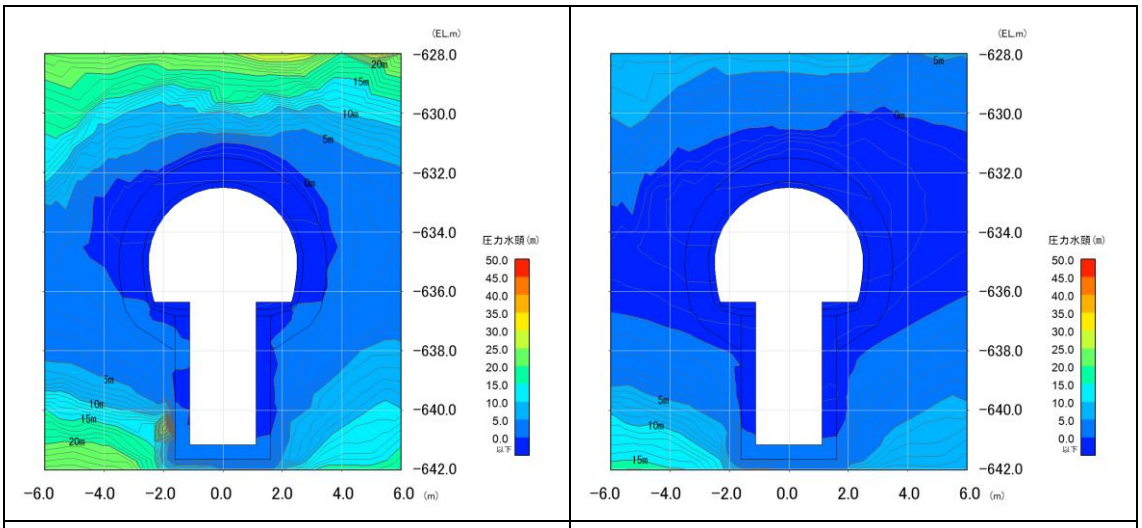


図 B1-15　平成 30 年度と令和 2 年度（case001）の坑道湧水量の経時変化の比較
（期間 0-2～期間 1、中央坑道）



1 週間後	5.92 年後

図 B1-16　掘削による圧力水頭分布の変化（case001、処分孔 12、期間 0-2）

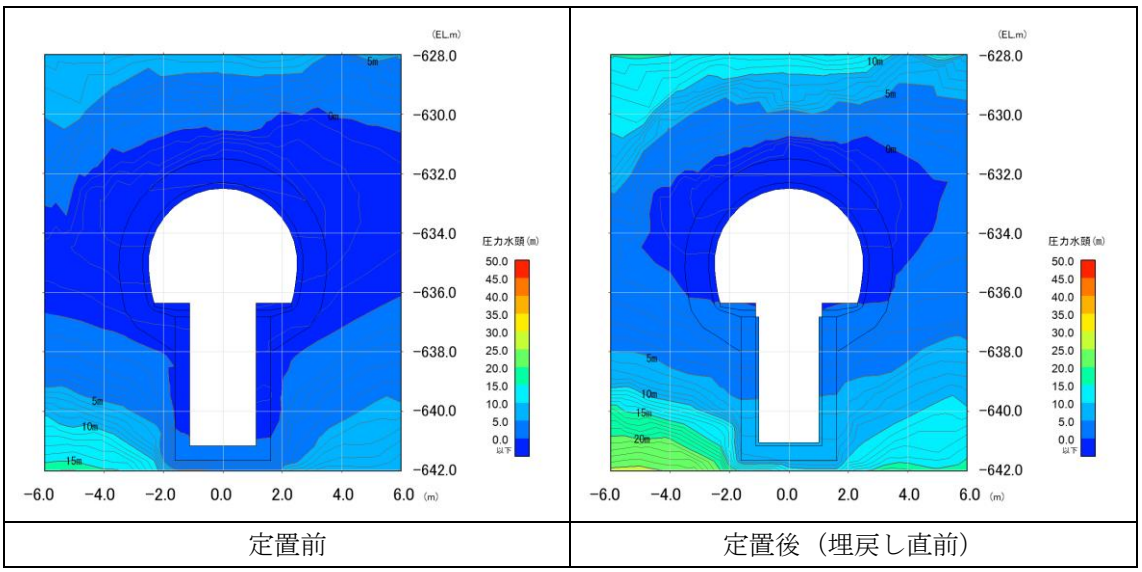


図 B1-17　定置による圧力水頭の変化（case001、処分孔 12、期間 1）

2) 裏面排水と坑道湧水量の比較

case001 の期間 0-2（坑道掘削～定置前）と期間 1（定置開始～埋戻し前）について、坑道壁面からの湧水量と裏面排水による排水量を比較した結果を図 B1-18 に示す。坑道からの湧水は掘削直後にほとんど生じなくなる。一方裏面排水も掘削直後には多く排水されるが、徐々に少なくなり 1 年程度でほとんど排水されなくなる。期間 1 においても坑道湧水量は変わらないが、定置に伴って排水量は増加している。また、前掲図 B1-15 より、双方を合わせた流量が平成 30 年度の結果（産業技術総合研究所ほか, 2018）と変わらないことが確認できる事から、坑道湧水量となっていたものが、令和 2 年度では裏面排水として排水されていることが分かる。よって裏面排水の追加は坑道の全体的な湧水量への影響は小さいと考えられる。

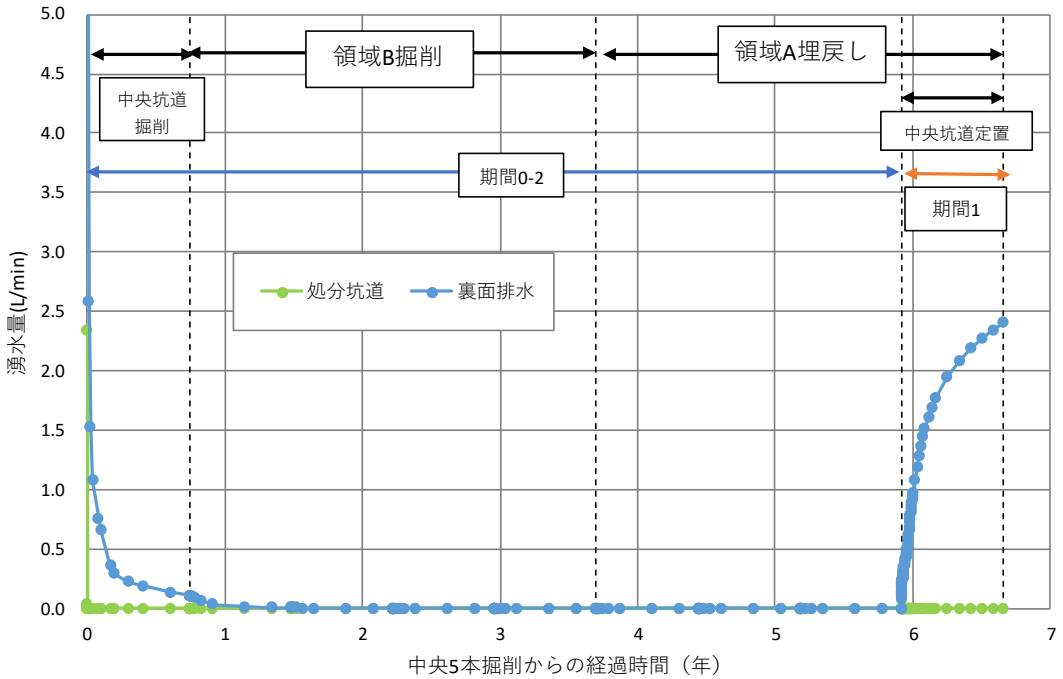


図 B1-18　処分坑道と裏面排水による流量の比較
（case001、期間 0-2～期間 1、中央坑道）

3) 各ケースの坑道湧水量の比較

期間 0-2（坑道掘削開始～定置前）から期間 1（定置開始～埋戻し開始前）における各ケースの坑道湧水量の変化を図 B1-19 に示す。図 B1-20 に EDZ の有無による圧力水頭分布図の比較を示す。図 B1-21 に隙間の透水性の違いによる圧力水頭分布の比較を示す。

① 期間 0-2（坑道掘削開始～定置前）

坑道湧水量は EDZ の有無によって大きく変わり、EDZ があるケース（case001、case002、case004）では、坑道周辺の不飽和領域の形成に伴ってほとんど生じなくなる。一方、EDZ がないケース（case003）では、1.5～2.0（L/min）程度の一定湧水量に落ち着いている。これは EDZ があるケースでは不飽和領域が形成されているのに対して、EDZ がないケースでは不飽和領域がほとんど生じないためと考えられる。この不飽和領域が小さくなる要因は、EDZ がないケースでは坑道周辺の透水性の差が小さくなり、EDZ 領域において飽和状態で圧力の釣り合いが取れるようになったためと考えられる。

② 期間 1（定置開始～埋戻し開始前）

坑道湧水量を EDZ の有無で比較すると、EDZ がない case003 は EDZ がある case001 よりも多くなっている。これは図 B1-20 から分かるように、case003 は不飽和領域が坑道周辺にほとんど生じないこと並びに坑道周辺の圧力が高いためと考えられる。隙間の透水性の違いによって比較すると、坑道湧水量は case002＞case001 となり、期間 0-2 の湧水量と逆の傾向となる。これは case002 の隙間の透水性が低いため、処分孔湧水量が case001 と比較すると少なくなり、その分の湧水量の一部が処分坑道に回り込むことによって坑道湧水量が多くなっていると考えられる（図 B1-21）。

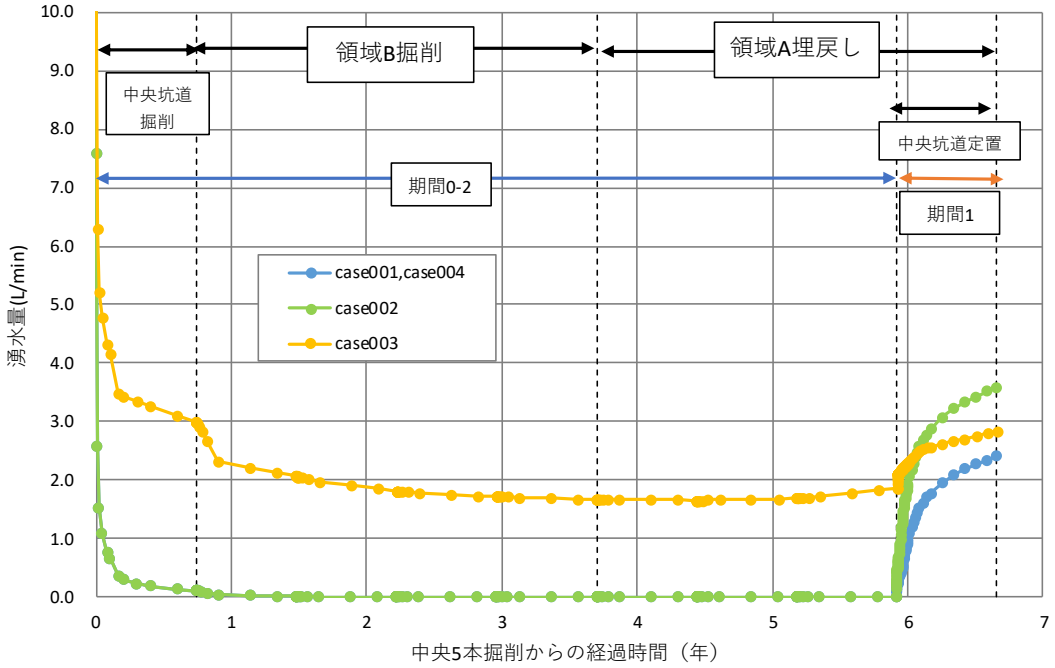


図 B1-19　坑道湧水量の経時変化（期間 0-2～期間 1、中央坑道）

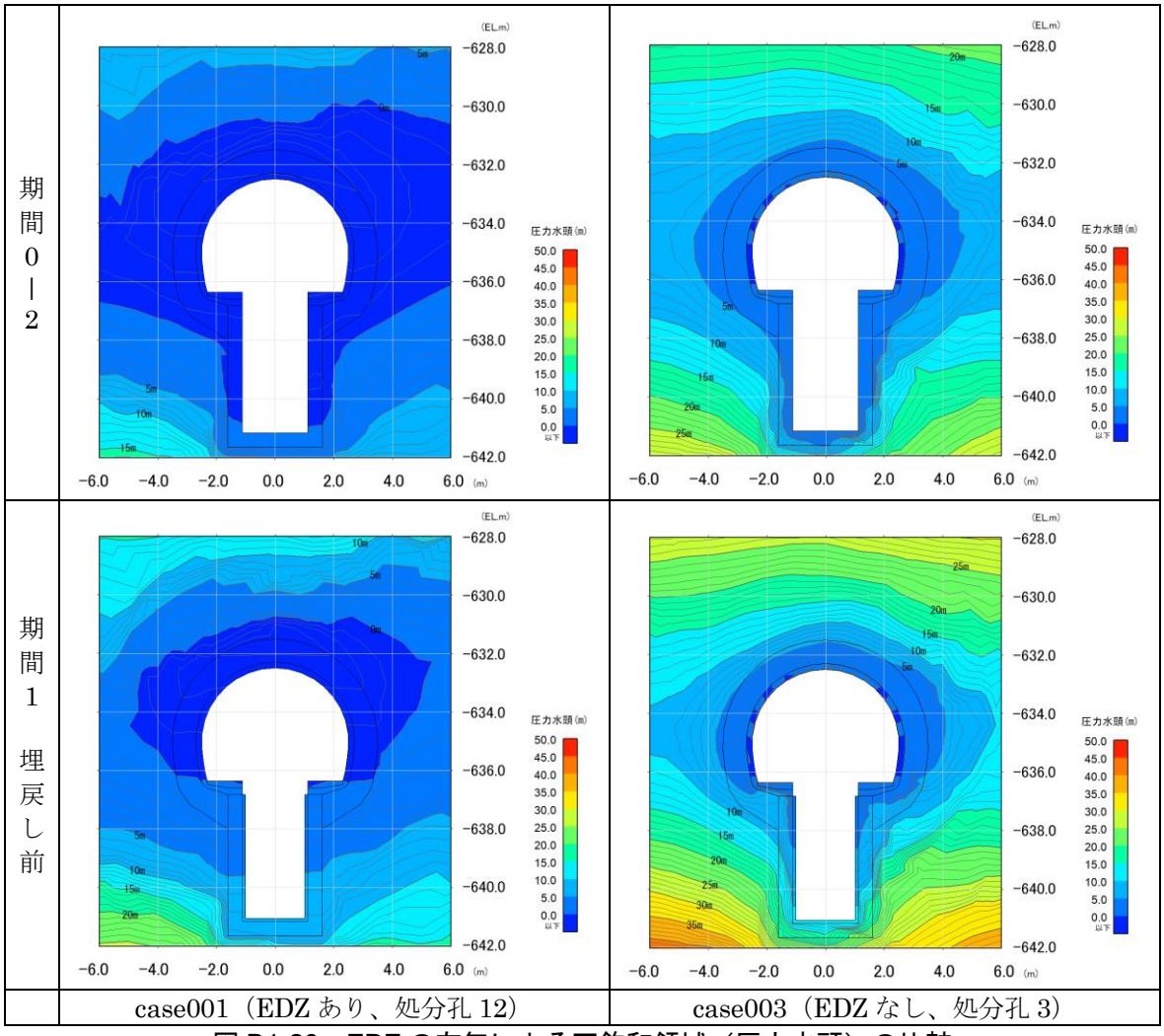


図 B1-20　EDZ の有無による不飽和領域（圧力水頭）の比較

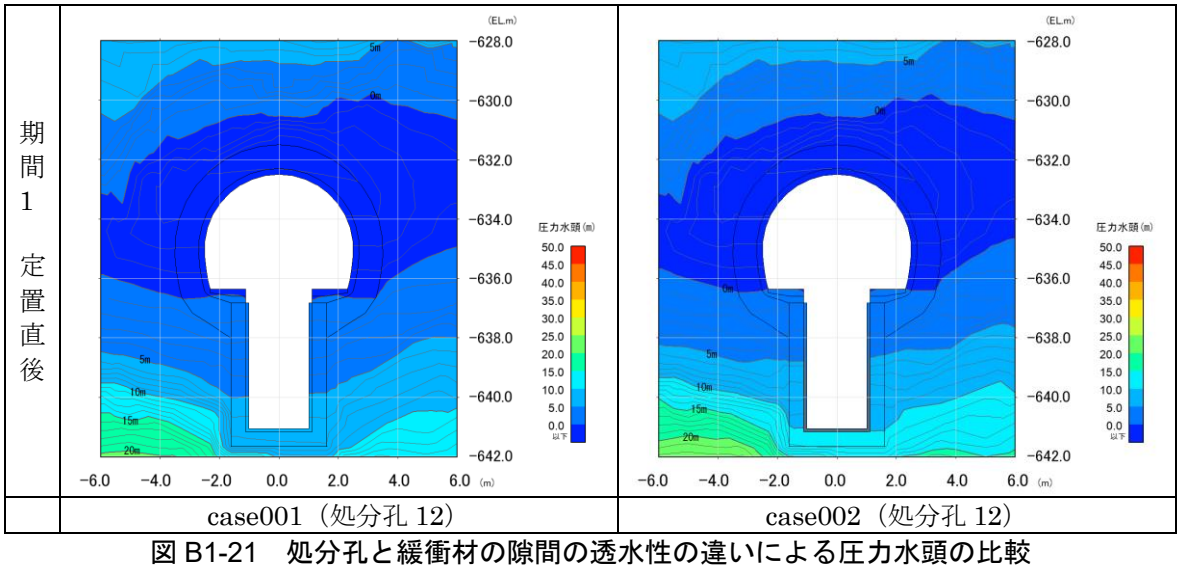


図 B1-21　処分孔と緩衝材の隙間の透水性の違いによる圧力水頭の比較

(2) 処分孔湧水量

1) 全体的な傾向と平成 30 年度モデルとの比較

期間 0-2（坑道掘削開始～定置前）から期間 1（定置開始～埋戻し開始前）における平成 30 年度の結果と令和 2 年度の結果（case001）の比較を図 B1-22 に示す。また、令和 2 年度の期間 1 での処分孔湧出量算出位置を図 B1-23 に示す。全体的な傾向としては、期間 0-2 では処分孔湧水量は坑道湧水量と同様に掘削直後に多く生じるが、周辺圧力の低下に伴って一定量に落ち着く傾向となる。両者の結果を比較すると、令和 2 年度の湧水量は掘削直後～隣接坑道掘削の間はやや少ない傾向となっているが、それ以降は大きな差異がない結果となっている。次に期間 1 に着目すると、令和 2 年度の検討では定置によって処分孔が塞がれてしまうため、処分孔湧水は一時的にほとんど生じなくなる。その後時間の経過とともにこれまで処分孔湧水量として湧出していた地下水の一部が処分孔の上部から湧出していると考えられる（図 B1-24）。また、この減少した処分孔湧水量の一部は隙間通過流量や坑道湧水量となっていると考えられる。

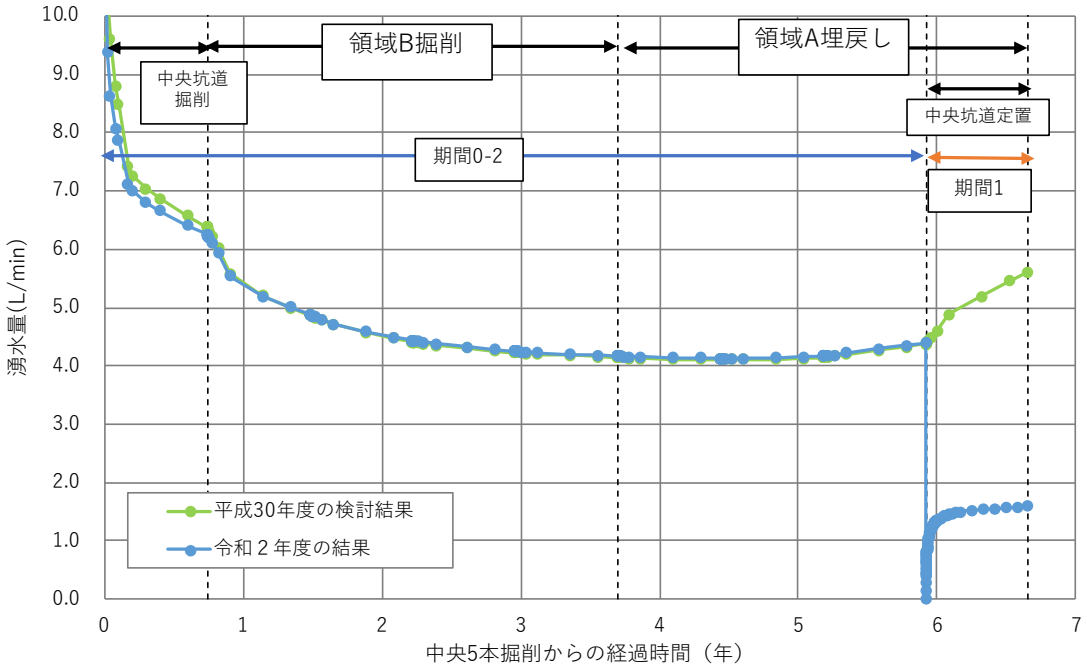
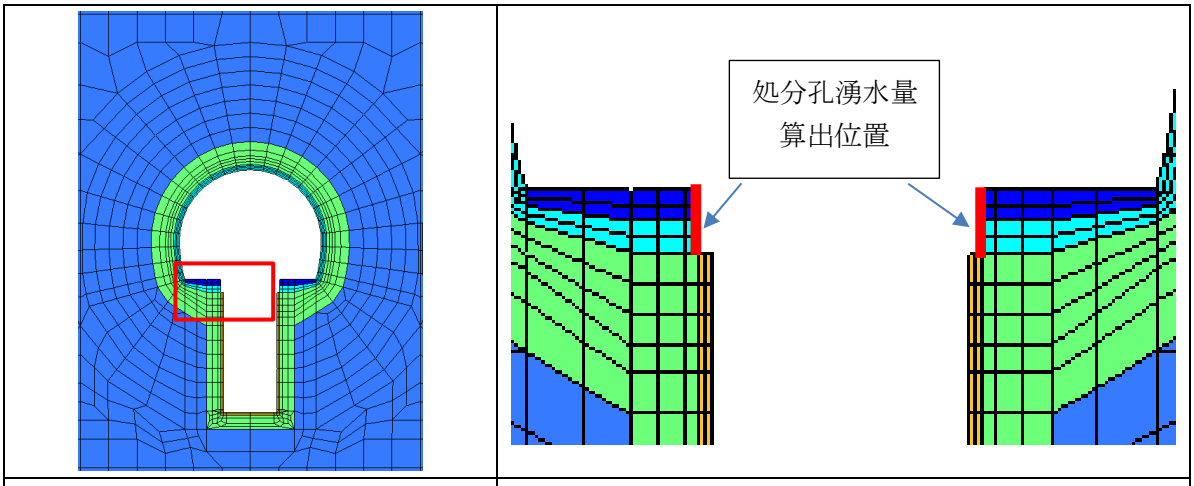
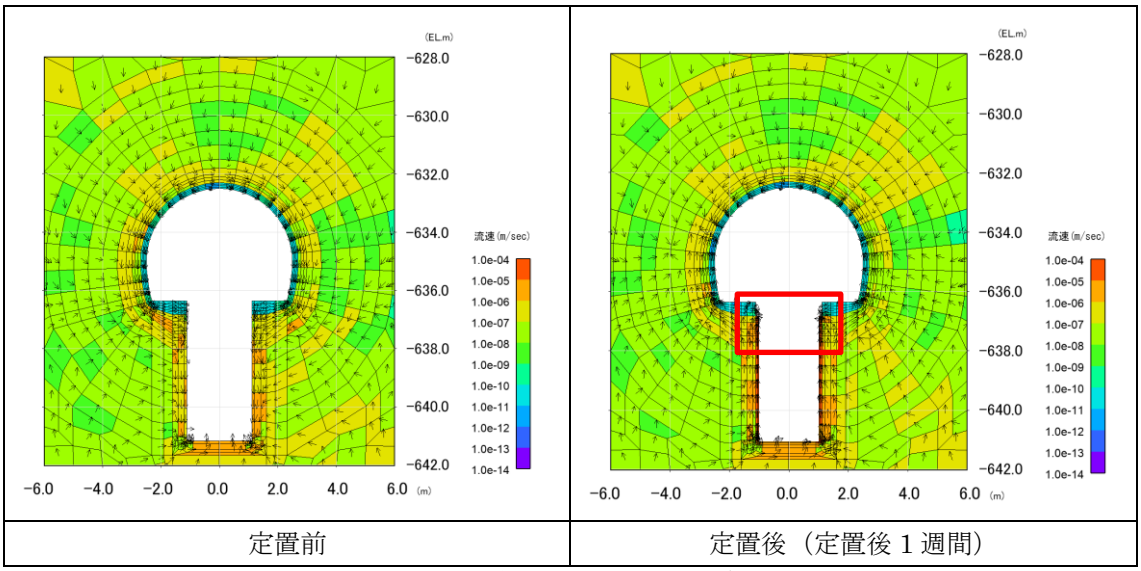


図 B1-22　平成 30 年度と令和 2 年度（case001）の処分孔湧水量の経時変化（期間 0-2～期間 1、中央坑道の処分孔の合計）



処分坑道周辺のメッシュ図	左図赤枠部分拡大図

図 B1-23　期間 1 における処分孔湧水量算出位置



定置前	定置後（定置後 1 週間）

図 B1-24　定置前後の実流速分布及び流向の変化
（赤枠の処分孔上部から流出、case001、処分孔 12）

2) 各ケースの処分孔湧水量の比較

期間 0-2（坑道掘削開始～定置前）から期間 1（定置開始～埋戻し開始前）における、各ケースの処分孔湧水量の経時変化を図 B1-25 に示す。隙間の透水性が異なるケース（case001、case002）について、処分孔湧水量を比較すると、期間 0-2 においては変わらないが、期間 1 において低透水のケース（case002）の方が多くなっている。これは隙間通過流量が減少し、その一部が処分孔及び処分坑道に向かったため（前掲図 B1-19）と考えられる。EDZ の有無が異なるケース（case001、case003）を比較すると、期間 0-2 の処分孔湧水量が大きく異なり、EDZ があるケース（case001）の方がより処分孔湧水量は多くなっている。一方、期間 1 においては EDZ がないケース（case003）の方が湧水量は少なくなっている。これは、処分孔周辺に EDZ がなく透水性が小さいためと考えられる（図 B1-26）。

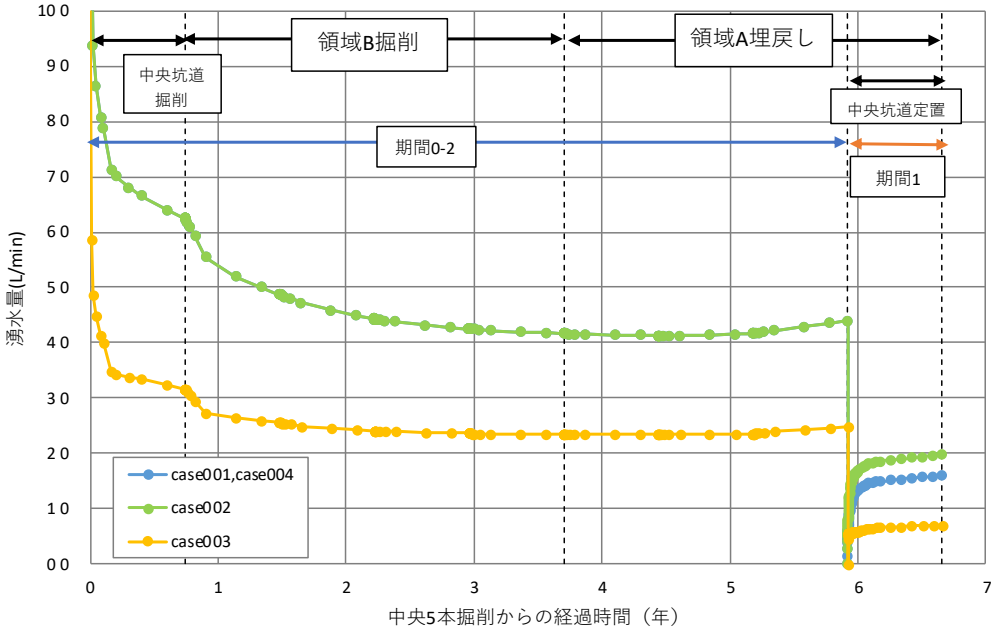
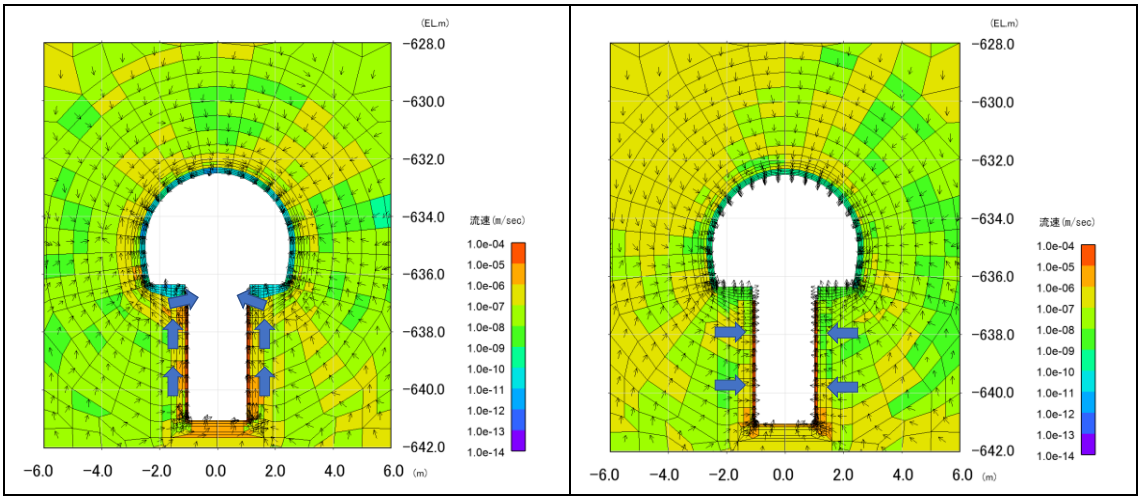


図 B1-25　処分孔湧水量の経時変化（期間 0-2～期間 1、中央坑道の処分孔の合計）



case001（EDZ あり、処分孔 12）	case003（EDZ なし、処分孔 3）

図 B1-26　EDZ を介した地下水の流れの概念図
（青矢印：EDZ 領域の流れのイメージ、背景：実流速分布及び流向図）

(3) 処分孔と緩衝材間の隙間の通過流量及び圧力

1) 処分孔に流れる最大湧水量

各解析ケースについて、中央の坑道に位置する 15 本の処分孔を対象に、期間 1（定置開始～埋戻し開始前）から期間 2（埋戻し開始～主要坑道埋戻し）における隙間通過流量を算出した。各解析ケースの最大隙間通過流量を表 B 1-5 に示す。また隙間通過流量のうち、定置開始～主要坑道埋戻しまでを図 B1-27 に、定置開始から 2 年後までを図 B1-28 に、同様の期間で最大・最小・平均の通過流量を比較した結果を図 B1-29 に示す。

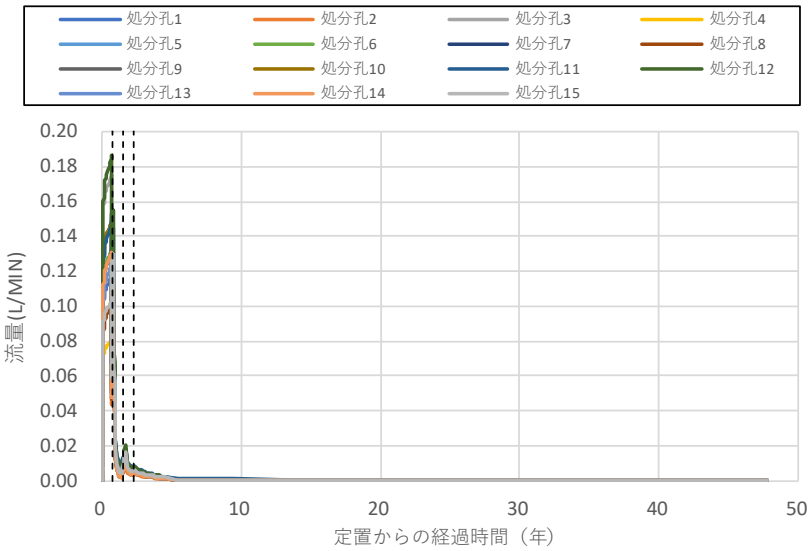
期間 1 では、定置以降、隙間通過流量は徐々に多くなり、埋戻し直前に最も多い通過流量となっている。期間 2 においては、埋戻し材の透水性により結果が異なり、粘性土相当（case001、case002、case003）の場合は、一旦減少した後、埋戻しから約 20 日前後に極大となる傾向を示す。その後は急激に減少するが、隣接坑道の埋戻し（定置開始から 1.48 年後）の影響によって一時的に隙間通過流量が増加する。一方、砂質土相当（case004）の場合は、埋戻し直後から増加し

続け、同様に埋戻しから約 20 日前後に極大となる傾向を示す。

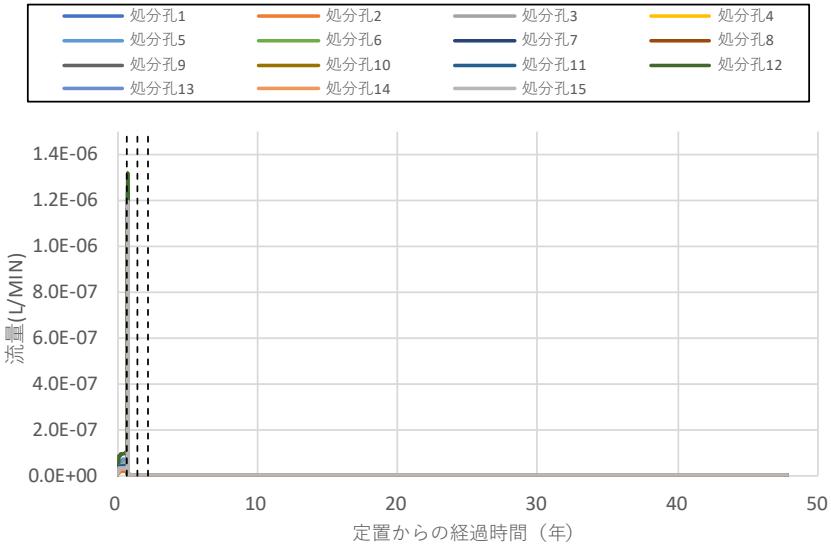
各解析ケースについて、隙間通過流量の最大値を比較すると、case001 及び case003 においては、一部の処分孔に当てはまらないものもあるものの、平均的には期間 1＞期間 2 となり、case002 も埋戻し直後の瞬間的な流量の変化を除けば同様の傾向となる。一方、case004 の隙間流量の最大値は逆に期間 2＞期間 1 となる。これは埋戻し材の透水性が他のケースと比較すると高く、坑道湧水に対する蓋としての機能を発揮できなかったためと考えられる。

表 B1-5　最大隙間通過流量の比較

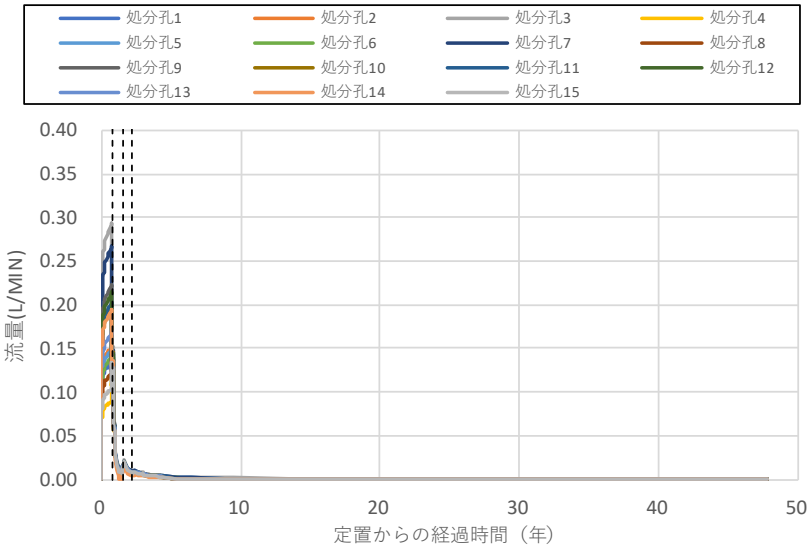
ケース	期間	最大湧水量(L/min)
case001	定置前（期間 2）	1.9E-1
case002	定置後（期間 1）	1.3E-6
case003	定置前（期間 2）	2.9E-1
case004	定置後（期間 1）	1.1E+0



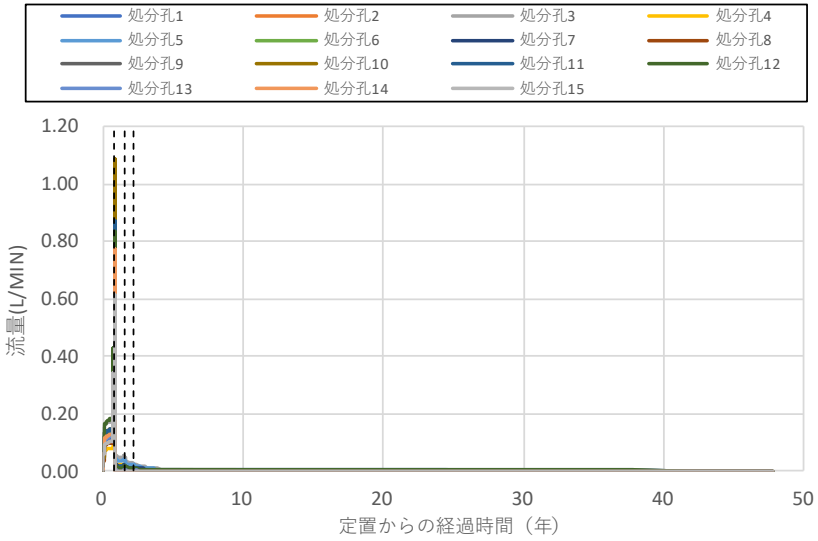
case001（基本ケース、隙間の透水係数：砂質土相当）



case002（隙間の透水係数：緩衝材相当）

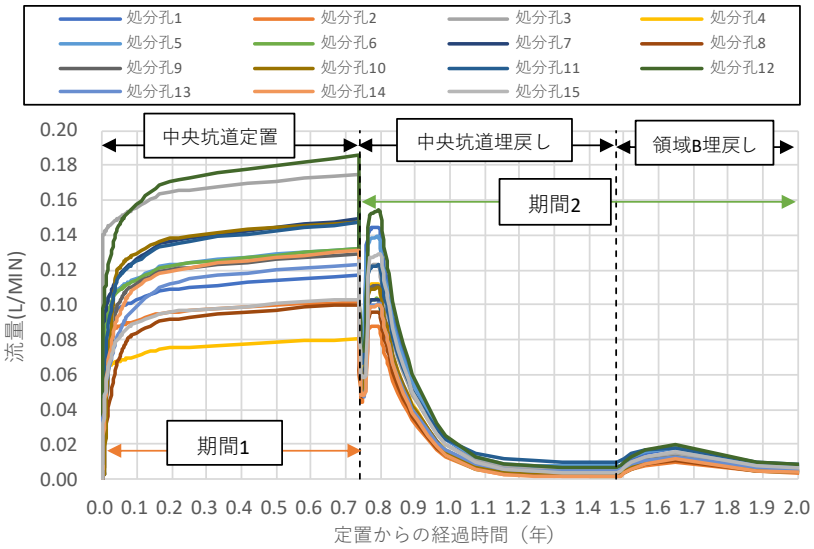


case003（EDZ なし）

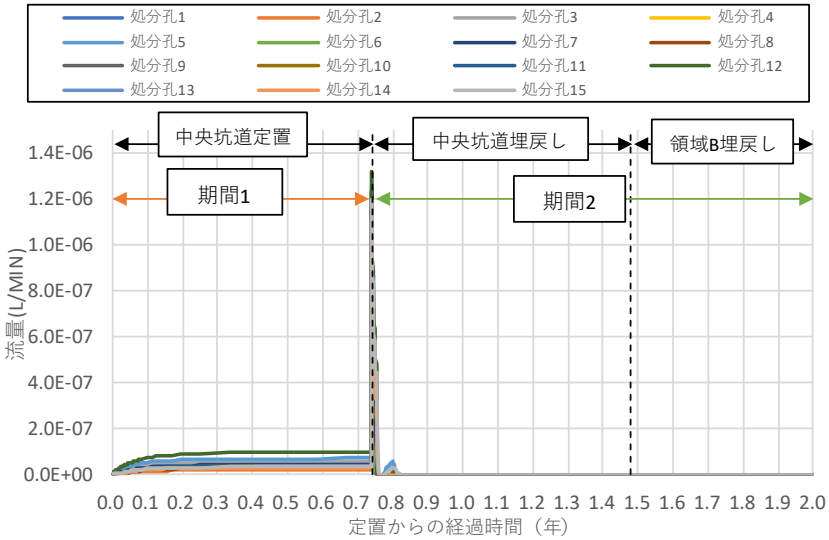


case004(埋戻し材の透水係数：砂質土相当)

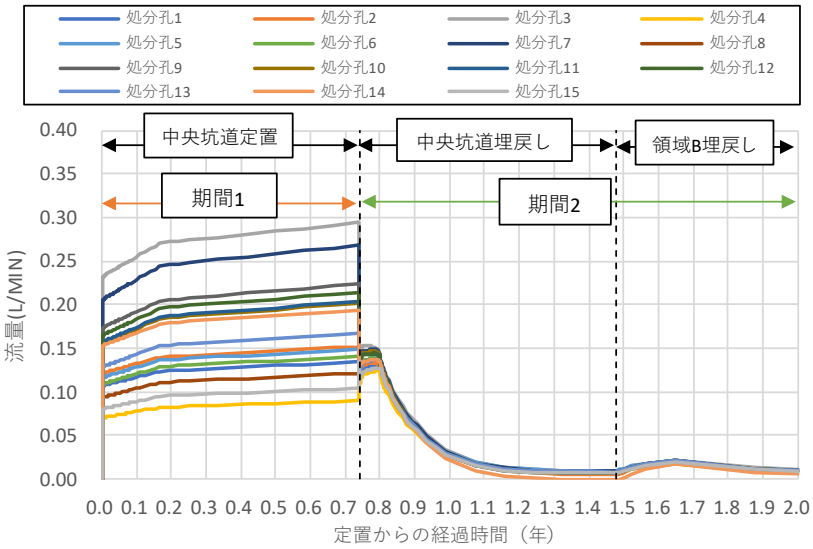
図 B1-27　処分孔-緩衝材間の間隙の通過流量の経時変化 1（期間 1～処分施設閉鎖まで、中央坑道）



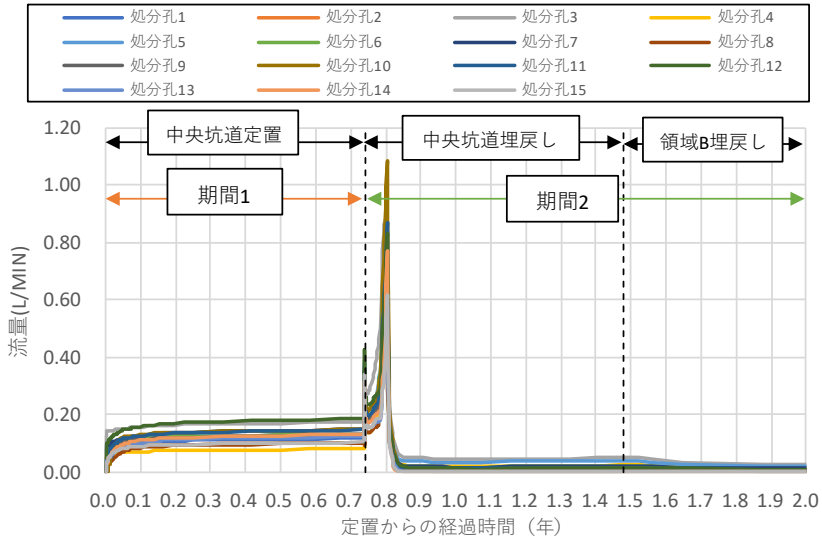
case001（基本ケース、隙間の透水係数：砂質土相当）



case002（隙間の透水係数：緩衝材相当）

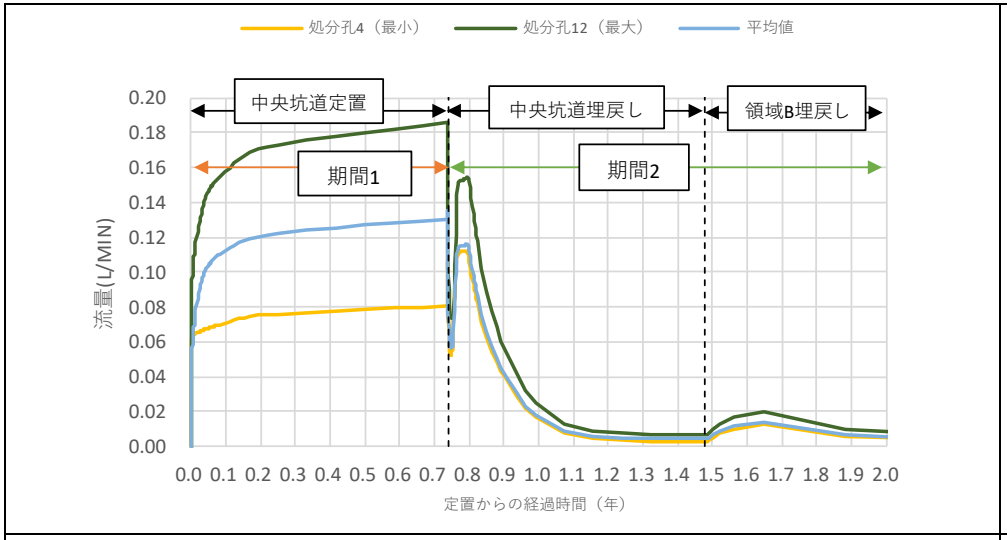


case003（EDZ なし）

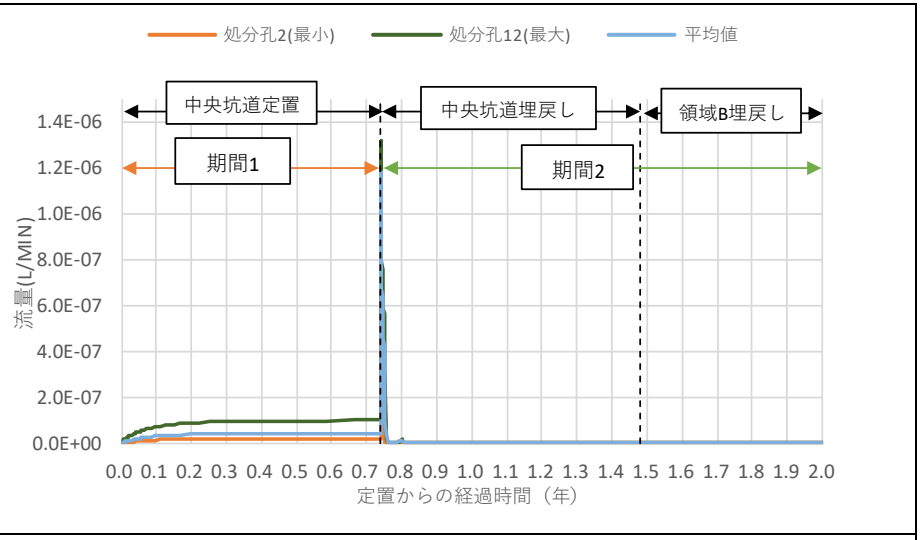


case004(埋戻し材の透水係数：砂質土相当)

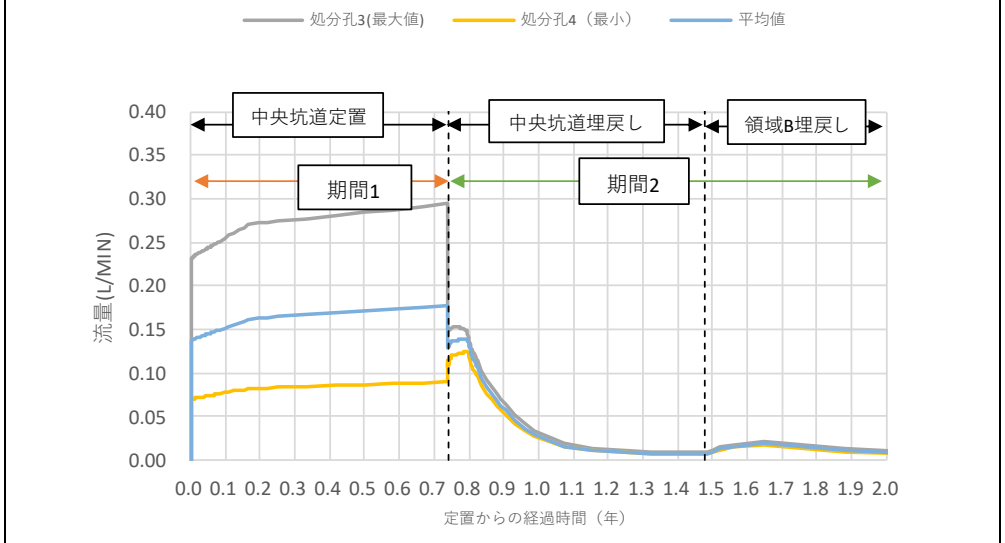
図 B1-28　処分孔-緩衝材間の間隙の通過流量の経時変化 2（期間 1～領域 B 埋戻し後、中央坑道）



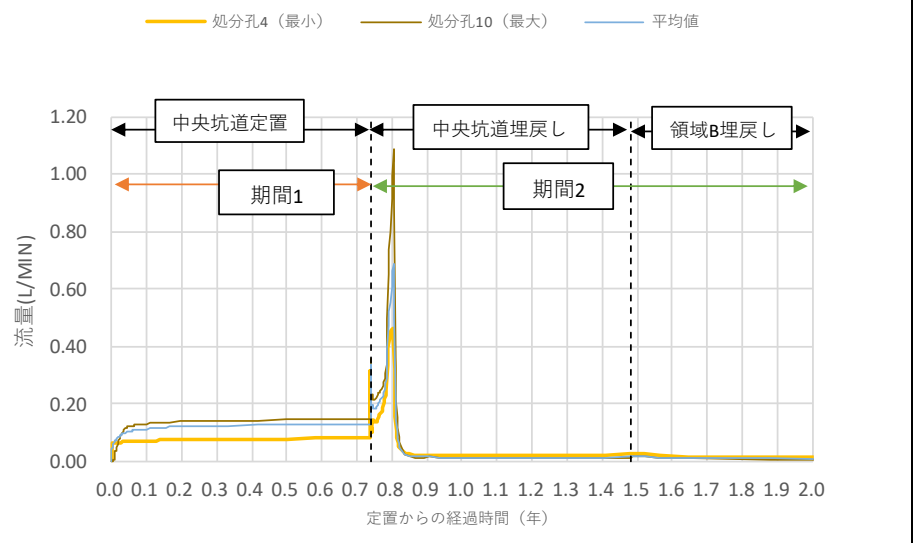
case001（基本ケース、隙間の透水係数：砂質土相当）



case002（隙間の透水係数：緩衝材相当）



case003（EDZ なし）



case004(埋戻し材の透水係数：砂質土相当)

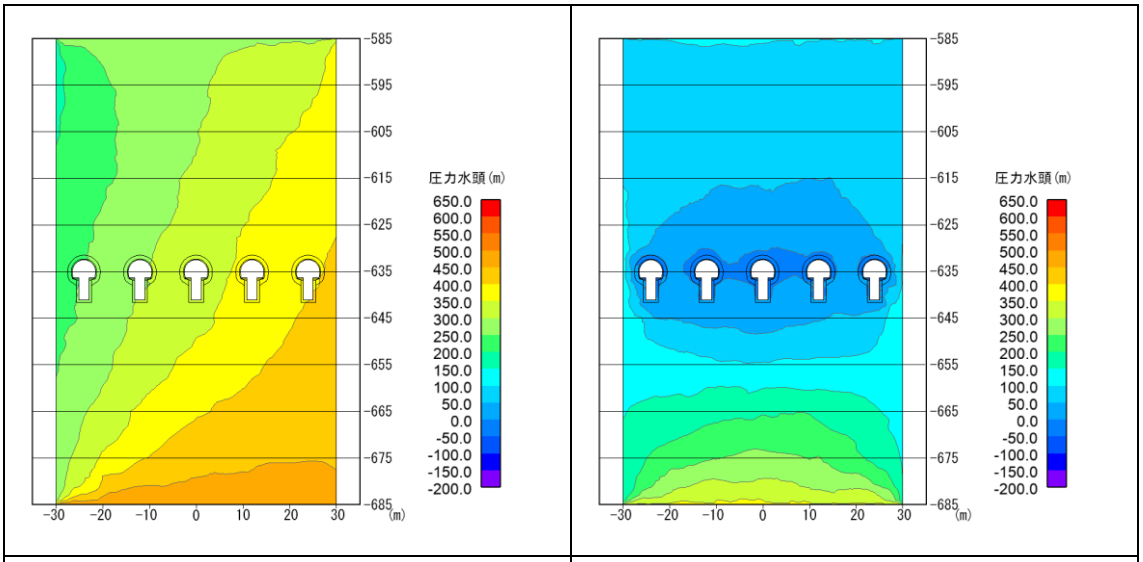
図 B1-29　処分孔-緩衝材間の間隙の通過流量の経時変化 3（期間 1～領域 B 埋戻し後、中央坑道、最大・最小・平均通過流量の比較）

2) 緩衝材ブロック表面での水圧分布

緩衝材ブロック表面での水圧分布として、各期間における各ケースの圧力水頭分布について整理を行った。

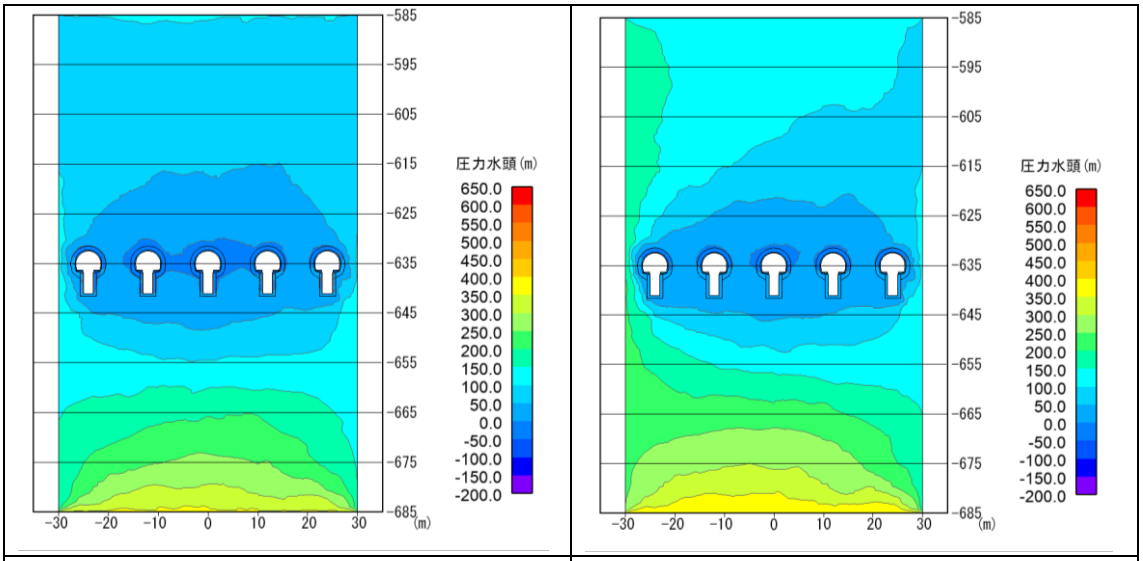
① 全体的な傾向

いずれのケースにおいても期間 0-2（坑道掘削～定置前）では圧力が低下する傾向がみられる（図 B1-30）。期間 1（定置開始～埋戻し前）は、隣接坑道の埋戻し及び定置に伴って処分孔から湧水が生じ難くなることから処分孔より深い領域の岩盤では圧力が上昇し、処分坑道より浅い領域の岩盤では継続的に圧力が低下している（図 B1-31）。期間 2（埋戻し開始～主要坑道埋戻し）は、埋戻しに伴って徐々に圧力が回復し、最終的には処分坑道周辺はほぼ静水圧状態となっている（図 B1-32）。



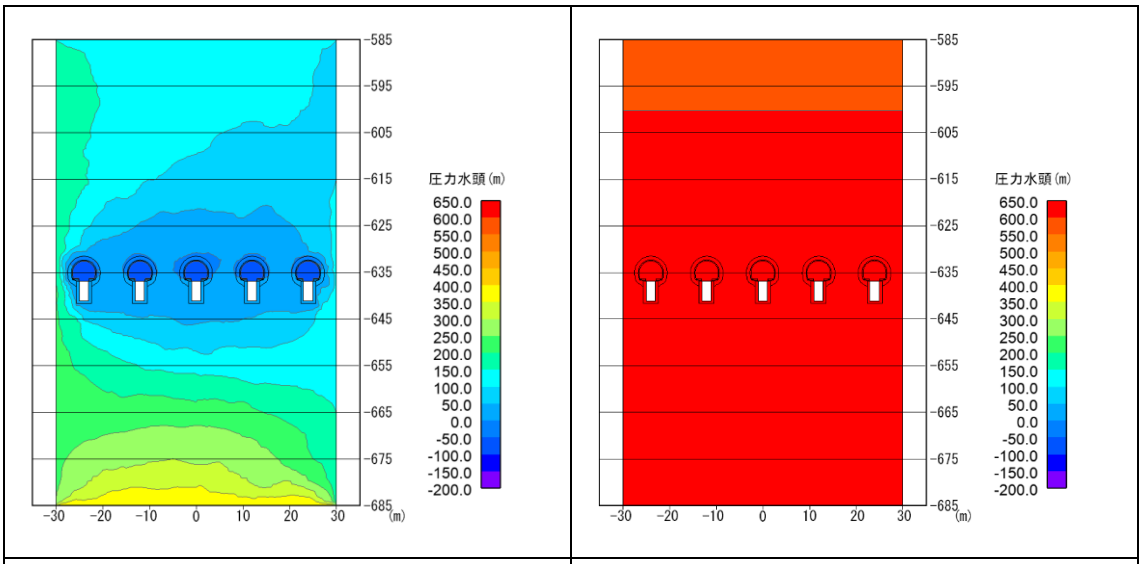
坑道掘削開始時	定置開始前

図 B1-30　期間 0-2 における圧力の変化（case001、坑道横断方向断面、処分孔 12）



定置開始時	埋戻し開始前

図 B1-31　期間 1 における圧力の変化（case001、坑道横断方向断面、処分孔 12）



埋戻し開始時	主要坑道埋戻し時

図 B1-32　期間 2 における圧力の変化（case001、坑道横断方向断面、処分孔 12）

② 処分坑道周辺

EDZ の有無に着目した圧力水頭の比較結果を図 B1-33 に示す。期間 0-2 及び期間 1 において EDZ があるケース（case001、case002、case004）は坑道周辺に不飽和領域が形成されている。期間 0-2 は、処分坑道及び処分孔で不飽和領域が形成され、期間 1 は定置で処分孔が埋まることによって、処分孔周りの不飽和領域が消散し処分坑道周りのみに不飽和領域が形成されている。その後、処分坑道の埋戻しによる圧力の回復によって徐々に不飽和領域が縮小し、約 1 か月程度でなくなる。ただし、EDZ がないケース（case003）は、坑道壁面と裏面排水の間の領域においてのみ不飽和領域が形成され、EDZ があるケースと比較すると坑道周辺の水位が高い状態となっている。埋戻した坑道部分の不飽和領域は同様に 1 か月程度でなくなっている。

また、隙間の透水性の違いに着目した圧力水頭の比較結果を図 B1-34 に示す。隙間を砂質土相当の透水性としたケース（case001、case002）は、周辺の岩盤相当の水圧となっているが、隙間を緩衝材相当の透水性としたケースでは水圧の変化が周辺の岩盤よりもやや遅くなり、一時的ではあるが、期間 1 では周辺の岩盤よりやや高い水圧、期間 2 では周辺岩盤よりやや低い水圧に維持されている。また、周辺岩盤は処分孔湧水量や隙間通過流量が少ない影響で水圧が高くなっている。

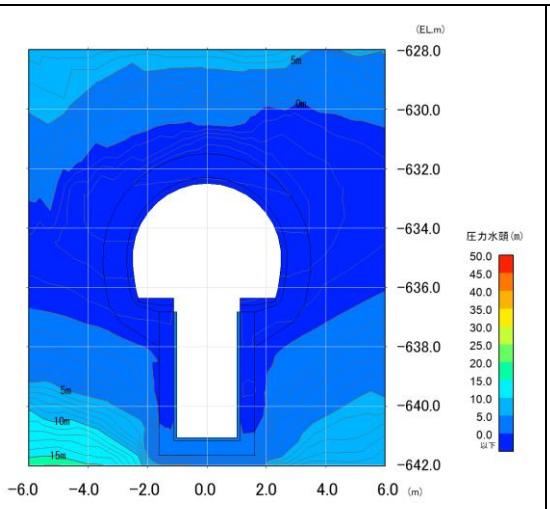
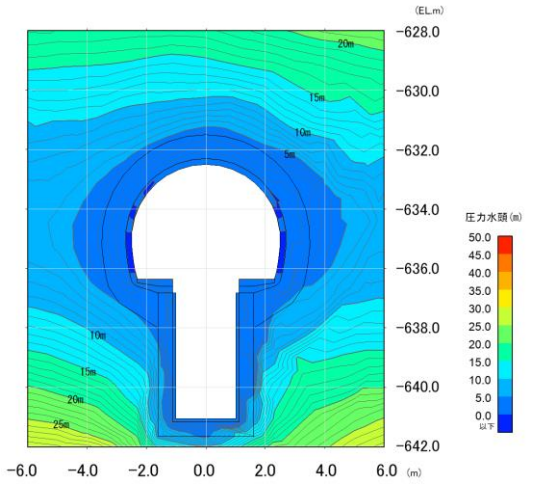
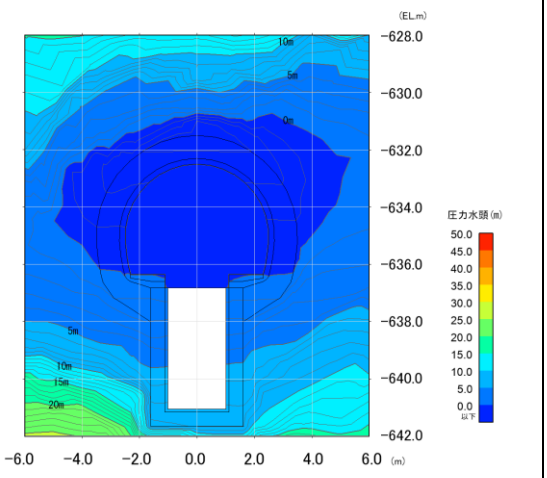
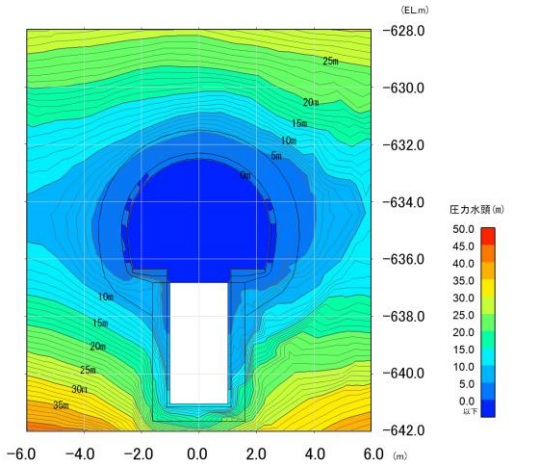
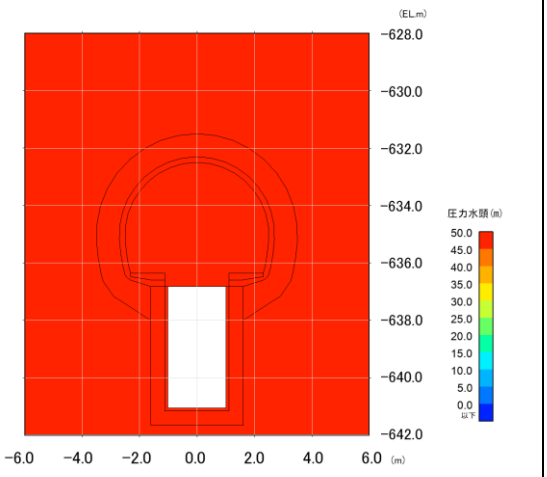
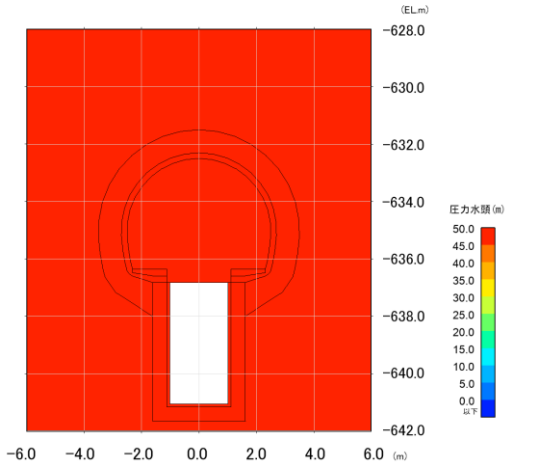
定置開始時		
埋戻し開始時		
埋戻し開始1か月後		
	case001（処分孔 12）	case003（処分孔 3）

図 B1-33　EDZ の有無による圧力水頭の比較

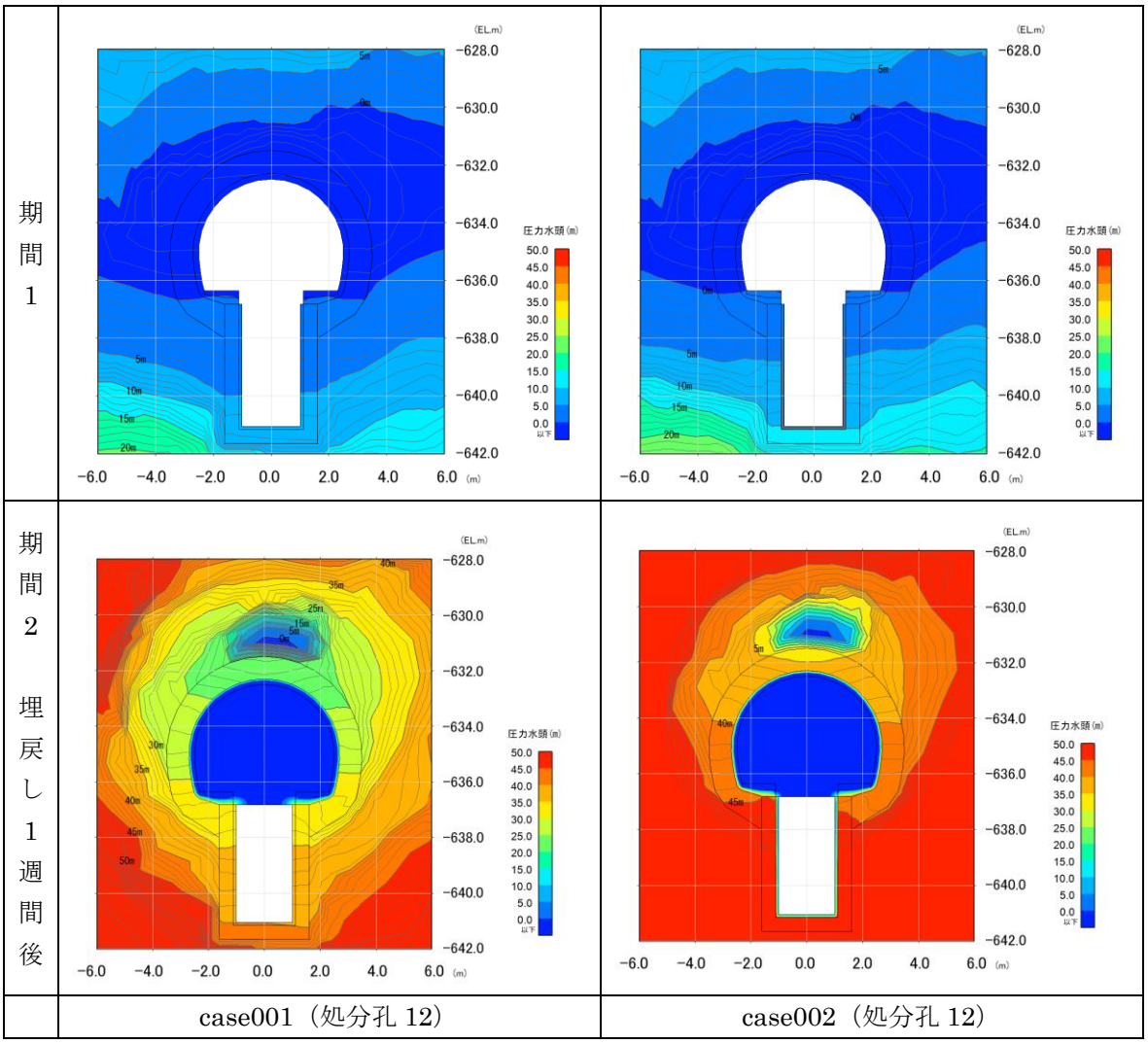


図 B1-34　処分孔と緩衝材の隙間の透水性の違いによる圧力水頭の比較

3) 処分孔内の流速分布

処分孔内の流速分布として、各ケースの実流速分布を整理した。

① 全体的な傾向

いずれのケースにおいても期間 1（定置開始～埋戻し前）は時間の経過に伴って坑道周辺の流速がやや大きくなる傾向となっている。期間 2（埋戻し開始～主要坑道埋戻し）は、坑道の埋戻しにより地下水が湧出する場所がなくなったことによって、徐々に流速が低下し、最終的（主要坑道埋戻し時）には 1E-9（m/s）以下の非常に小さな流速となっている（図 B1-35）。

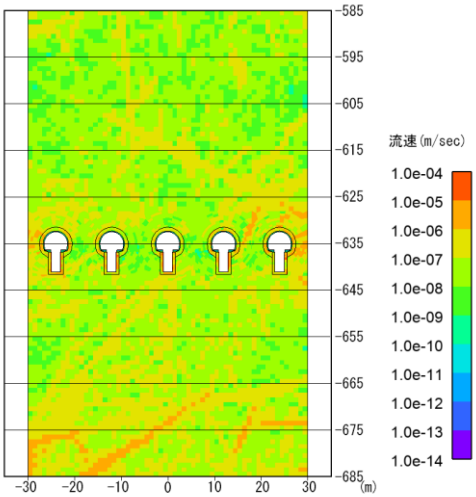
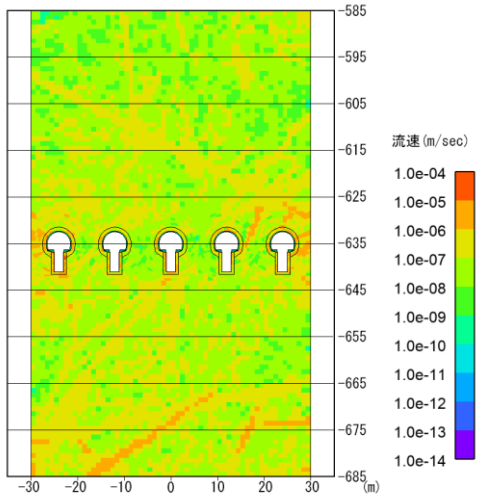
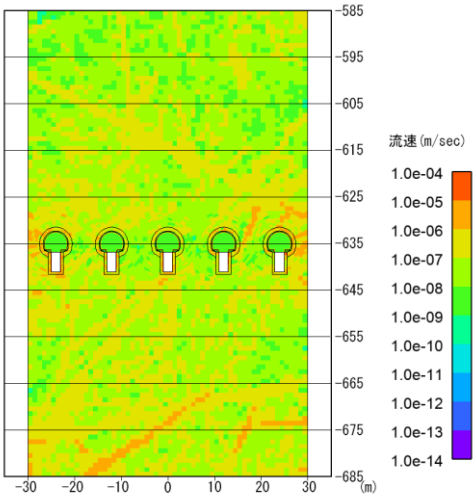
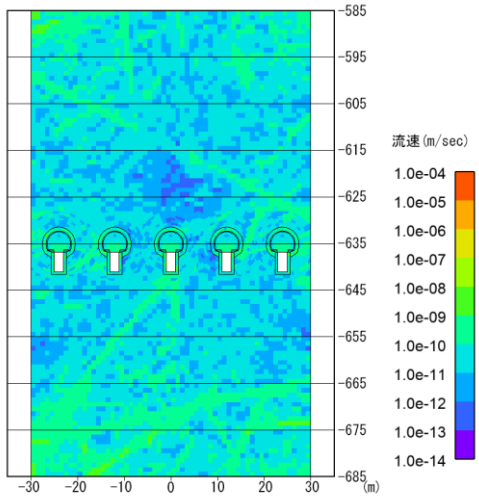
<table>
<tr><td rowspan="2">期
間
1</td><td> 
</td><td> 
</td></tr>
<tr><td>定置開始時</td><td>埋戻し開始前</td></tr>
<tr><td rowspan="2">期
間
2</td><td> 
</td><td> 
</td></tr>
<tr><td>埋戻し開始時</td><td>主要坑道埋戻し前</td></tr>
</table>

図 B1-35　地下水流速の経時変化（case001、坑道横断方向、処分孔 12）

② 処分坑道周辺

EDZ の有無に着目して地下水流速を整理した結果を図 B1-36 に示す。EDZ があるケースは期間 1 において、処分孔周辺の EDZ で比較的大きな流速が生じており、時間の経過に従って坑道周辺全体の流速が徐々に大きくなっている。期間 2 では、埋戻し直後から処分坑道周辺の EDZ で流速が大きくなり、1 週間程度で最も流速が大きくなる。これは埋戻し材の不飽和領域及び埋戻し後の周辺岩盤の水圧の上昇によって高い動水勾配が形成されるためと考えられる。その後隣接坑道の埋戻し（埋戻し開始から 0.74 年後）によって若干流速が大きくなる時期はあるが、基本的には流速は徐々に小さくなる傾向となっている。EDZ がないケースは、隙間を除くと特徴的な流速は生じていない。期間 2 では、隙間から埋戻し材の底部にかけて比較的大きな流速が生じ、1 週間程度で最も流速が大きくなり、その後徐々に流速は小さくなっている。この領域は EDZ があるケース（case001）も同様であり、EDZ 部分を除けば全体的な傾向は類似している。

また隙間の透水性の違いに着目して地下水流速を整理した結果を図 B1-37 に示す。透水性を砂質土相当としたケース（case001、case003、case004）は EDZ と同様に周辺岩盤と比較して大きな流速となっている。一方透水性を緩衝材相当としたケース（case002）では、周辺岩盤と比較してもかなり小さい流速となっており、透水性に応じた流速となっている。

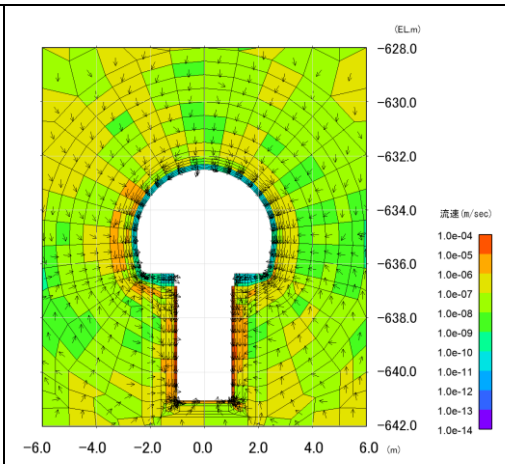
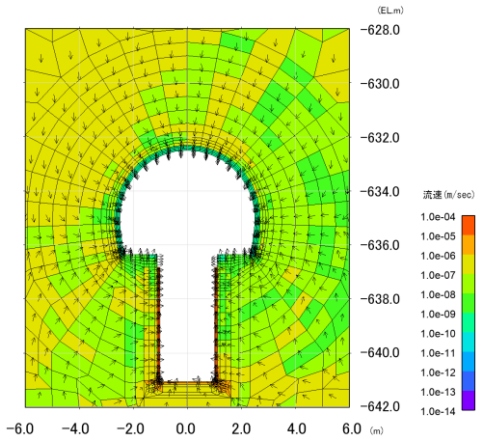
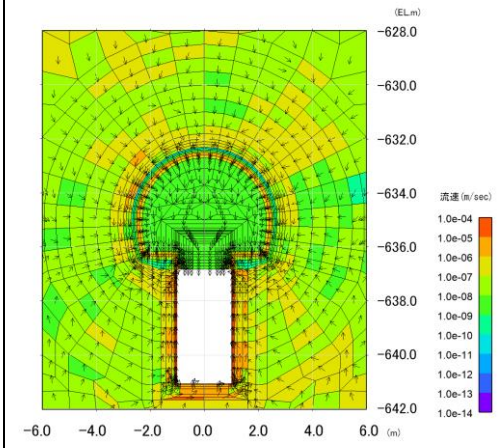
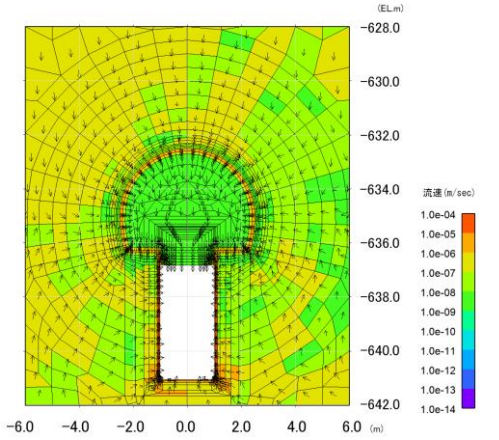
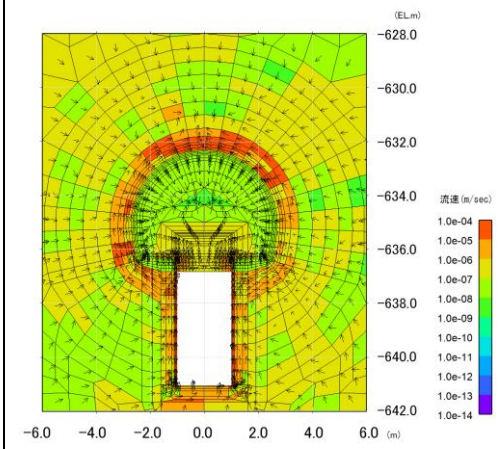
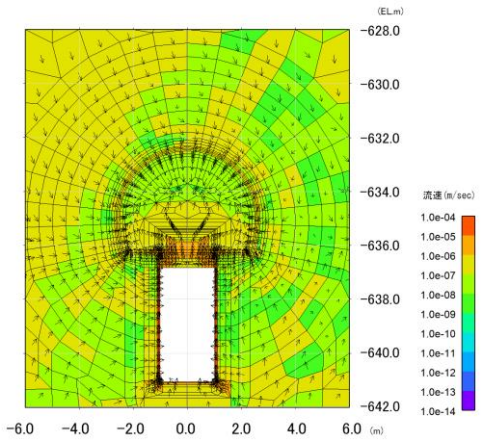
定置開始時		
埋戻し開始時		
埋戻し開始1週間後		
	case001（EDZ あり、処分孔 12）	case003（EDZ なし、処分孔 3）

図 B1-36　EDZ の有無による流速分布の比較

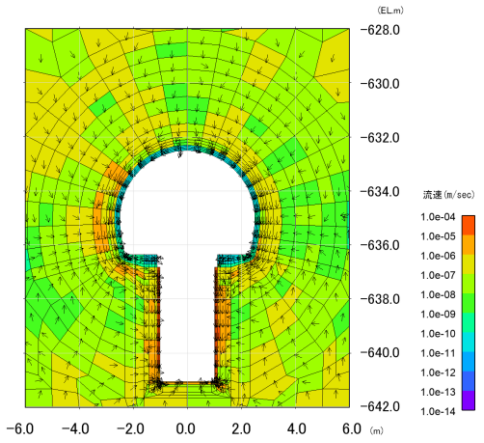
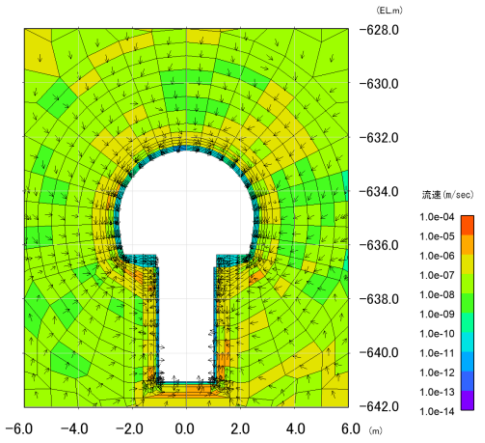
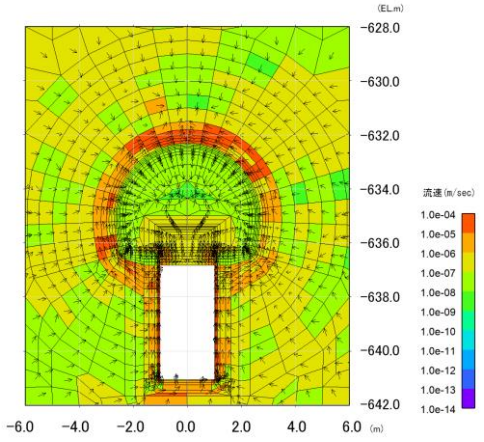
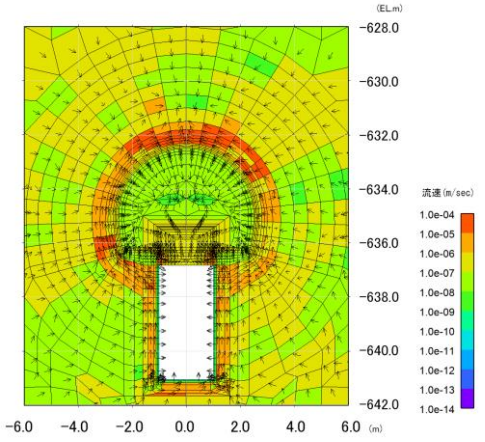
期間1		
期間2		
	case001（砂質土相当、処分孔 12）	case002（緩衝材相当、処分孔 12）

図 B1-37　処分孔と緩衝材の隙間の透水性の違いによる流速分布の比較

1.2.8 解析結果まとめ

解析結果のうち、隙間通過流量に着目して取りまとめた。

① 基本ケース（case001）における全体的な傾向

期間 1（定置開始～埋戻し前）では、隣接坑道の埋戻し及び処分孔が定置によって塞がれたことによる圧力の上昇に伴って、隙間通過流量は定置後から徐々に上昇し、埋戻し直前に最大値となった。次に期間 2（埋戻し開始～主要坑道埋戻し）では、埋戻し直後に処分孔が塞がれる影響で通過流量が少なくなった後、周辺岩盤の圧力の上昇に伴って徐々に通過流量が増え、埋戻し後 20 日程度で通過流量が最大となった。その後、隣接坑道の埋戻しなどによる境界条件の影響によって、一時的に通過流量が上昇することはあるが、基本的に徐々に減少する傾向となっている。また、期間 1 と期間 2 の隙間通過流量を比較すると、隙間通過流量は処分孔によって逆転するものもみられるが、基本的に埋戻し前＞埋戻し後となる。これは埋戻し材が処分坑道の蓋として機能し地下水の流入を緩慢にしているためと考えられる。

② 隙間の透水性の違いについて（case001、case002 の比較）

隙間の透水係数を緩衝材相当と低くした場合 case002 は、case001 と比較すると隙間の透水係数が小さいため流速が低下し、隙間通過流量はほとんど生じなくなる。一方、坑道・処分孔湧水

量（処分孔上部への湧水量）は期間 1 では周辺岩盤の圧力の上昇に伴ってやや多くなる傾向となった。

③ EDZ の有無による比較（case001、case003 の比較）

隙間通過流量を EDZ の有無で比較すると、EDZ があるケースの方がより隙間通過流量が多くなる傾向となっている。この要因としては坑道周辺の水圧が挙げられる。case003 は EDZ が処分孔周辺にないため、期間 1 では EDZ を通って処分孔の上部に回り込む湧水量は少なくなり、処分孔の周辺圧力が高くなっている。期間 2 の埋戻し直後の期間においてもこの傾向は続いており、このことによって逆に隙間通過流量は多くなっていると考えられる。

④ 埋戻し材の透水性の違いによる比較（case001、case004 の比較）

埋戻し材の透水性を砂質土相当とした場合は、case001 で隙間からの地下水が処分坑道に流入する際の蓋の機能を果たしていた埋戻し材の透水性が大きくなっているため、隙間通過流量は case001 と比較して大きくなっている。

期間 2 では試験坑道埋戻しに伴い処分坑道周囲の地下水位（水圧）が上昇した時、処分坑道内への動水勾配が大きくなる。そのため、緩衝材と試験孔壁の隙間と埋戻し土の透水係数によっては埋戻し前より隙間通過流量の最大値が大きくなるケースも確認された。特に亀裂と交差している処分孔は地下水の上昇が顕著に隙間通過流量に反映されるため、埋戻し前より隙間通過流量が増加しやすい傾向にある。ただし、これは一時的なものであり坑道内の浸潤に伴い動水勾配は小さくなるため隙間通過流量も低下する。

また、浸透流解析では再現が難しいが、期間 2 については、水圧、流量の増加により一旦流出が止まり、閉塞した隙間が破過し急激に隙間通過流量が増加することで緩衝材が流出する可能性もある。そのため、期間 2 における緩衝材の流出については、埋め戻し直後の急激な水圧と流量の増加による隙間部の破過の可能性について試験により確認することとした。

2. 横置き試験装置による予備試験

2.1 隙間未充填ケース

平成 31 年度まで流出現象について、隙間が充填され水みちが形成されるまでの流出と、水みちを介しての流出を区別せずに検討してきたが、原位置試験の結果からも隙間未充填での施工を対象とした緩衝材の流出を考える場合には、2 つの流出挙動を踏まえて試験結果を整理する必要があることが明らかとなった。室内試験によってこれら 2 つの流出挙動を検討するにあたり、流量と膨潤、流出挙動の関係を得るための試験を実施した。この試験は、令和 3 年度以降の隙間未充填オプションの適用範囲の確認などの系統的な試験に先立ち、試験装置の適用性、試験条件の設定範囲、計測方法などを得るためのものである。

2.1.1 試験の概要と試験ケース

試験装置を図 B2-1 に示す。イオン交換水の通水量をパラメータとして、砂を充填しない場合の水みちを形成する緩衝材表面の状況の観察と通水圧の計測を行った

使用する供試体は、前述①の原位置試験の供試体と同様にベントナイト（クニゲル V1）に対してケイ砂 3 号とケイ砂 5 号を 7：1.5：1.5 の割合で混合したベントナイト混合土である。図 B2-1 に示すセルに直接材料を撒き出し、静的締固めて作製した。

試験ケースを表 B2-1 に示す。通水量は、原位置試験と同等の流速（1.9×10^{-4} m/sec）を基準として通水量 2.0 mL/min（流速 1.7×10^{-4} m/sec）を設定し、流速を小さくし、静的な膨潤を把握する通水量として 0.1 L/min、通水量が大きく、せん断力が発生する通水量 10 mL/min のけ―スを設定した。試験期間は 2 カ月程度とした。

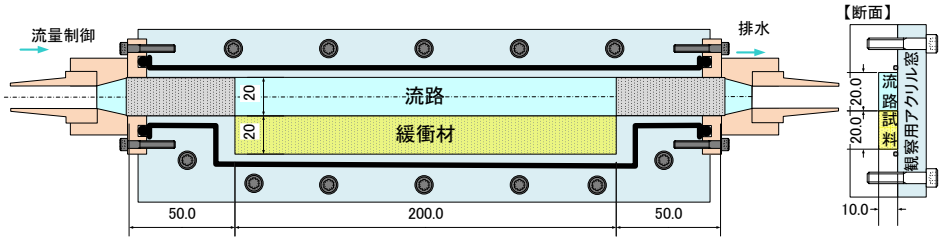


図 B2-1　緩衝材界面の流出挙動の観察と流出量測定試験のイメージ

表 B2-1　横置き試験・隙間未充填試験ケース

ケース No	ベントナイト乾燥密度 Mg/m³	通水量 mL/min	背圧 kPa	通水液	計測項目	備考
1	1.6	0.1	0	イオン交換水	・緩衝材流出量 ・通水圧 ・定点撮影	・試験期間：2ヶ月程度
2		2.0				
3		10				

流出試験は試験装置によって隙間の大きさ、隙間充填物の有無などにより排水が確認されるまでの通水量が異なるため、総流量と流出量の関係を得る場合には排水が得られるまでの通水量が影響する。この影響を避けるため、隙間を通水液で満たしてから流出試験を開始した。

流出量の定量にあたっては、一定期間流出物質を含む排水をタンクに溜め、十分に攪拌した後に約 200 mL 採水して計測に用いた。吸光光度計によって採水液の吸光度を計測し、図 B2-2 に示す検量線を用いて、液中のベントナイト濃度として算出した。排水の流量から全流出量が算出される。

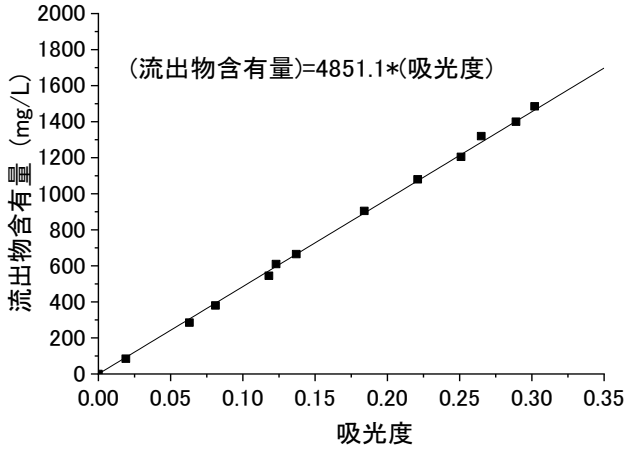


図 B2-2　吸光度と流出物含有量（流出濃度）の関係

2.1.2　試験結果

(1) 膨潤状況の観察と試験の概況

各ケースで試験開始から浸潤と膨潤が進行し、6 日目に目視による浸潤深さは供試体下面（20 mm）まで到達した。図 B2-3(a)に状況写真を示す。通水液は写真の左から右に流れる。膨潤量も 6 日後に概ね 20 mm に達した。通水量 10 mL/min のケースは、0.1 mL/min や 2.0 mL/min のケースに比べ、浸潤速度が遅かったが膨潤量は同等であった。このため、通水量が多い場合には、膨潤部分の乾燥密度が低い可能性がある。上流側は供試体の横から通水液が作用するため流出が激しい箇所が見られた。途中、水みちの発生も確認されたが、膨潤が進むにつれて水みちの形状は観察できなくなった。

10 mL/min で通水したケースは通水圧の上昇が大きく、600 kPa 付近まで上昇した。圧力の上昇を無制限に許すことは現実的ではなく、また、ポンプの設計耐圧、配管の耐圧からも制限を加える必要があるため、通水圧が 400 kPa を上回る場合には、徐々に通水量を減少させることとした。実際には、通水圧の上昇に伴い、10 mL/min から段階的に 5 mL/min→2 mL/min→1 mL/min →0.1 mL/min まで通水量を減少させた。目視観察では、密度の均一化が進んでいることが認められた。

(a) 6 日目

図 B2-3　隙間未充填試験

（上から、通水量：0.1 mL/min ケース 1、2.0 mL/min ケース 2、
10 mL/min→0.1 mL/min ケース 3）

(2) 通水圧の経時変化

通水圧の変化を図 B2-4 に示す。通水量が多いほど通水圧が大きい傾向であった。隙間が膨潤により充填されるに従って流路が狭まり、通水圧が上がったと考えられ、通水量が多いほど通水圧は高くなったと考えられる。ただし、通水量と圧力の増加の割合は一致していなかった。10 mL/min の通水量で始めた試験ケースでは、通水圧が設定した上限まで達した後、通水量を少なくしても通水圧は高止まりし、ケース 2（2.0 mL/min）、ケース 1（0.1 mL/min）と同じ通水量にしても圧力は同程度にはならなかった。このことは、膨潤の履歴、流路、水みちが発生した場合にはその形状などの緩衝材の状態によって作用する水との関係が変化することを示していると考えられる。

ケース 3 の通水圧が上下している原因には、通水量を操作した時の圧力の変化も含まれているが、圧力が上がったことにより、一旦閉塞しかけた隙間あるいは水みち部分が破過する現象による圧力の上下動も含まれている。本試験は流量制御の試験であり排水の確保を前提としたが、水位が一定であることを前提とした圧力制御の試験の場合には、所定の水位が通水圧に相当し、膨潤圧が通水圧を上回る状態になることなどにより、破過は起こらず流路は閉塞すると考えられる。このことは、前述の原位置試験で隙間が閉塞したことで確認されている。

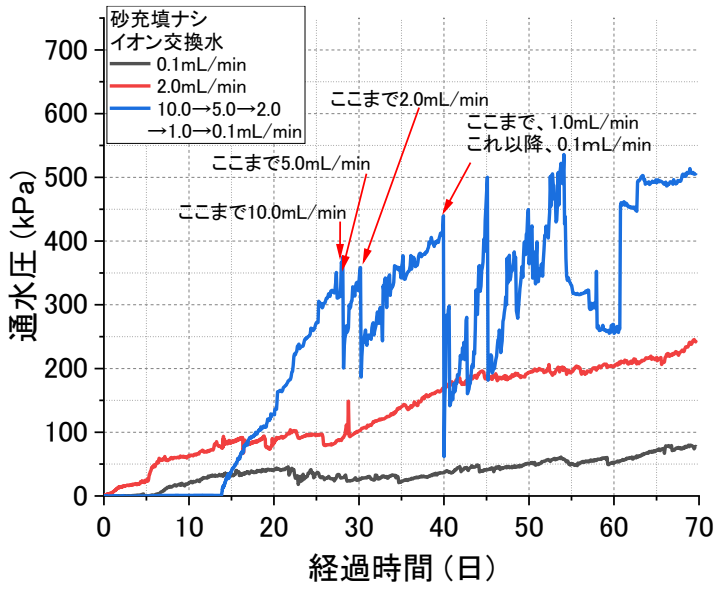


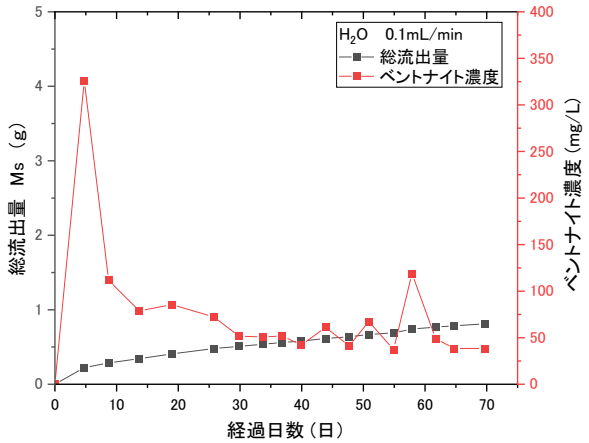
図 B2-4　通水圧の経時変化（隙間未充填ケース）

(3) 流出量の経時変化

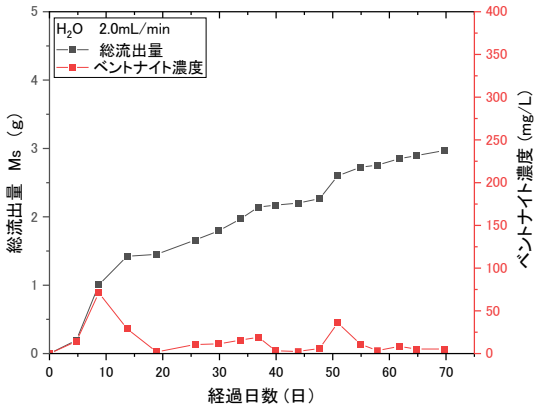
図 B2-5(a)～(c)には、総流出量とベントナイト濃度の経時変化を示す。0.1 mL/min と 2.0 mL/min のケースでは、通水開始から一週間程度は排水に含まれるベントナイトの濃度が高いがその後は減少している。試験開始直後に、流出濃度が高い傾向は、横置きの試験装置での試験に限らず、原位置試験でも見られる傾向である。ベントナイト供試体の表面が乾燥している場合には、ベントナイト粒子が液中に分散しやすいことが初期に流出量が多いことの原因の一つであると考えられる。また、0.1 mL/min のケースの方が液中のベントナイト濃度が高くなっており、流量が少ない場合は表面での水の滞留時間が長いことがベントナイト粒子を分散させる効果をもち、排出される液中に含まれるベントナイト濃度を高めていると考えることができる。通水量を 10

mL/min から段階的に減少させる試験では、排水される水に含まれるベントナイト濃度は低かったが、流量が多いため 10 mL/min での通水期間の流出量が多くなっていた。

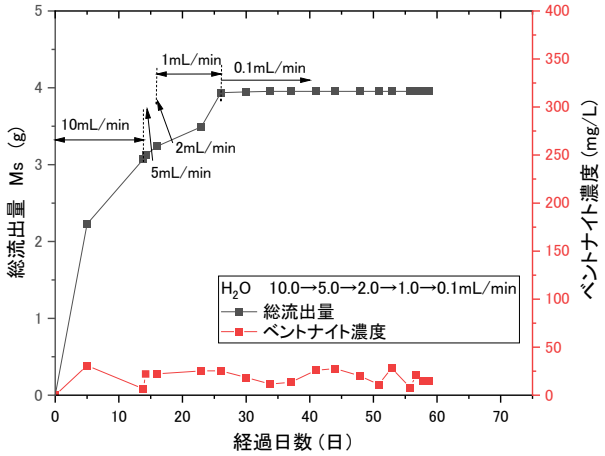
図 B2-5(d)は横軸が通水液の総流量であり、流量と流出量の関係は、通水量 2.0 mL/min で通水したケースと通水量を 10 mL/min から段階的に小さくケースはほぼ同じ結果となった。通水量 0.1 mL/min の場合は、総流量が少ないため総流量が小さい範囲のみで比較すると、通水量 0.1 mL/min の場合の方が、他のケースより液中のベントナイト濃度が高いため流出量が多い。これらの結果は緩衝材定置後、初期の流量が少ない場合、流出量が多い可能性があることを示唆し、総流量、流出が問題となる期間、排水状況などの要因と合わせて考える必要がある。



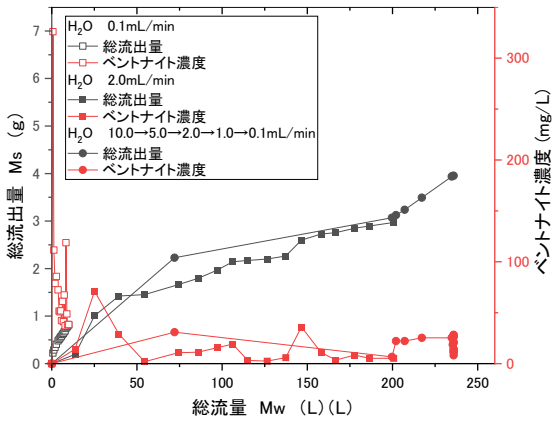
(a)ケース 1　通水量：0.1mL/min



(b)ケース 2　通水量：2.0mL/min



(c)ケース 3　通水量を徐々に減少



(d)総流量での比較

図 B2-5　総流出量とベントナイト濃度－隙間未充填－

(4) X 線 CT による水みち計測

本試験では、アクリル板を通して膨潤の途中で水みちが見られたものの、試験後には目視では水みちの有無を確認することが出来なかった。そこで、試験終了後、X 線 CT 装置を使用して撮影し、供試体の断層画像を取得した。使用した X 線 CT 装置は島津製作所製の inspeXio SMX-225CTS であり、解析プログラムはボリュームグラフィックス株式会社製の VGSTUDIO MAX 3.3 を使用した。X 線 CT 測定の実施に際し、配管を外し、前面のアクリルを留めている

ボルトを樹脂製に付け替えた。付け替えの際には、内部のベントナイト部を乱さぬよう、アクリル板を固定するなどし、ゆるみが生じないようにした。

図 B2-6 には、X 線 CT で計測した範囲を示す。使用した X 線 CT 装置の画素数を有効に使用するために、高さ 50 mm、直径 50 mm の供試体とし、計測範囲は、流れによる乱れの影響が少なかった下流側を対象とした。X 線 CT 計測結果を図 B2-7、及び図 B2-8 に示す。

図 B2-9 は通水量 0.1 mL/min のケース 1 試験後の画像である。図中の①の画像から、上面に水みちが形成されていることがわかった。②の供試体中央の横断面では偏平な水みちの断面が見られた。③では、膨潤部にはケイ砂が少なく、ベントナイト部分が優先的に膨潤変形していることが観察された。図 B2-9 には、0.1 mL/min のケースにおける水みち部分のみを抽出した画像例を示す。水みちの横断面は全体的に偏平であるが一定の形状ではなく、局所的に狭まっている箇所や、水みちが途切れている箇所も見られた。断面の形状は図 B2-9 に示した中央付近で、幅 2.95 mm、高さ 0.25～0.31 mm、断面積 0.71 mm^2 であった。同様の画像をこのほかに 2 か所で取得し、断面積はそれぞれ、0.71 mm^2、0.43 mm^2 が得られた。これらの水みちの断面積から 0.1 mL/min のケースの水みちでの流速は 14.1～23.3 cm/min であると算出された。水みち中の流速を得ることにより水みち周辺のベントナイトに対するせん断応力を得ることができるため、今後、緩衝材表面の乾燥密度が得られれば、せん断応力との関係が得られ、流出挙動の発生のモデルの構築に資することができると考える。

図 B2-8 に示した通水量 2.0 mL/min のケース 2 では、水みちは観察されなかったが、上部にケイ砂が集積されていることが読み取れ、集積したケイ砂部分を水が流れ、水みちが形成されずに水圧も大きくならなかったものと考えられる。通水量を変動させたケース 3 のベントナイト部分の乾燥密度は、3 つのケースの中で最も均一であり、ケイ砂の分布も均等であった。

以上のように X 線 CT 測定によって、水みちの断面積が測定でき、それから算出される流速によってせん断による流出挙動の状態を推察できる可能性があることがわかった。また、流速の違いによって膨潤後の供試体中のケイ砂の分布に違いがあることも示唆された。流速を変えた試験により緩衝材の流出挙動の理解につながると考えられ、試験の途中で X 線 CT による測定を行うことにより、流出挙動を定量的に把握できる可能性があることが確認された。

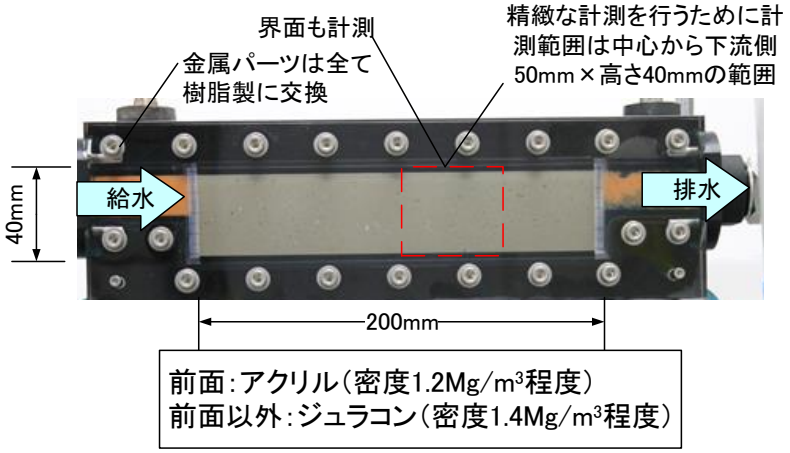


図 B2-6　X 線 CT の計測範囲

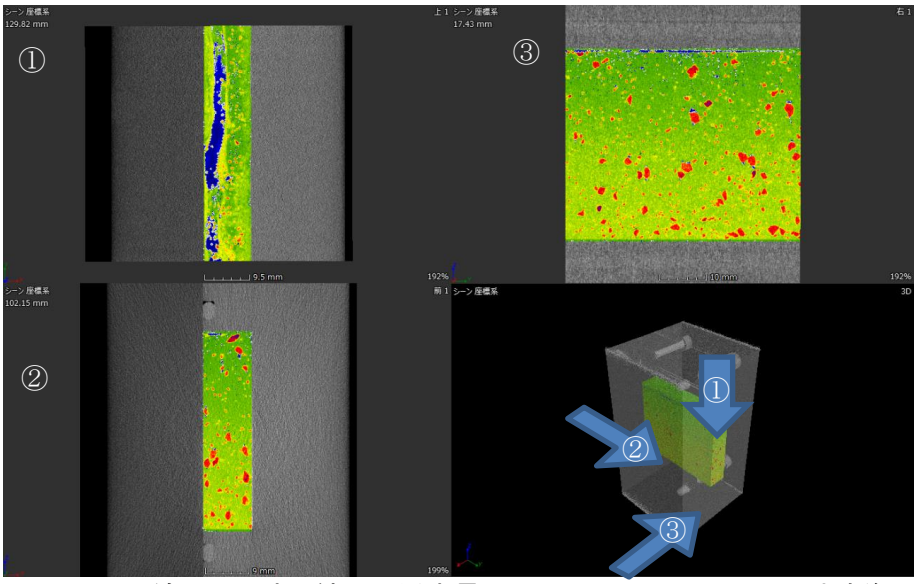


図 B2-7　X 線 CT の計測結果（通水量：0.1 mL/min　ケース 1 の試験後）

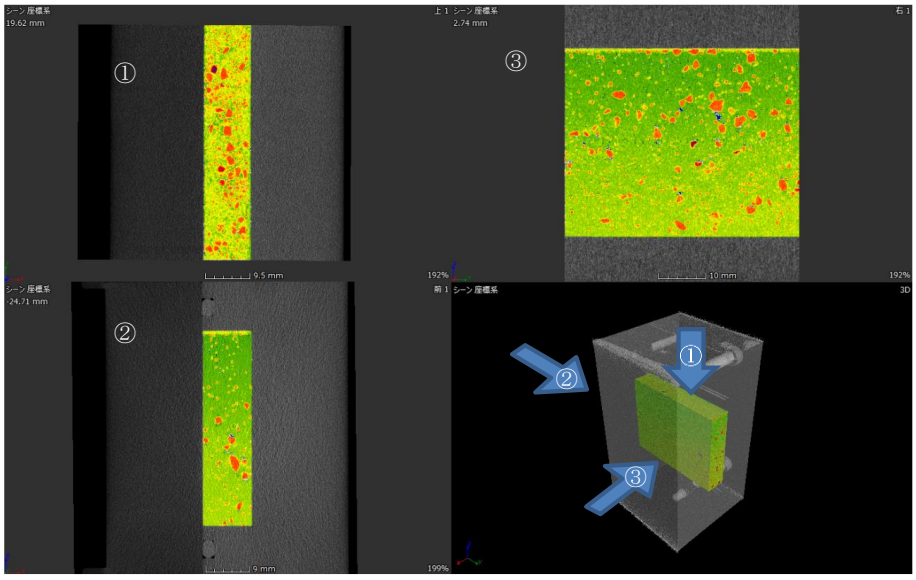


図 B2-8　X 線 CT の計測結果（通水量：2.0 mL/min　ケース 2 の試験後）

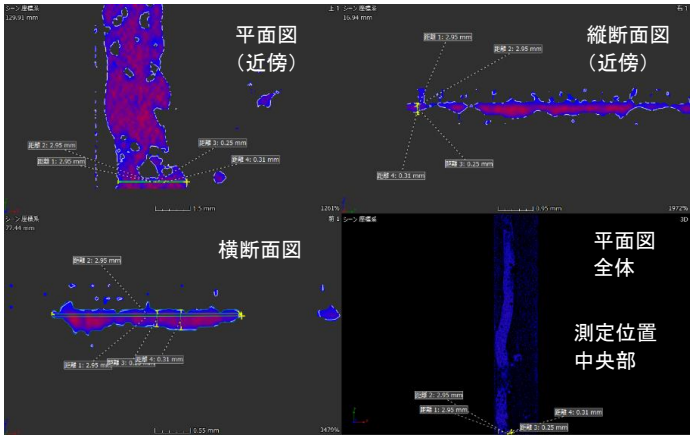


図 B2-9　X 線 CT の水みち形状計測例（ケース 1）

(5) 今後の試験に反映すべき知見

今後は、隙間未充填オプションに関して、評価の指標を定量的に示し、流出挙動を説明できるようにデータ取得を進める。今年度の試験の結果から、今後の試験に関して考慮すべきこととして以下のようなことがわかった。

・膨潤速度は、0.1 mL/min から 10 mL/min の流量の範囲では大きく差が出ない。但し、既往の研究（原子力環境整備・資金管理センター, 2015）では、流量が非常に多い場合には膨潤量よりも流出量が多くなることが分かっているため、試験で設定する通水量には膨潤による隙間の充填に対する流量の影響を考慮する必要がある。

・流量が大きいほど、流路が狭まった時の摩擦による圧力の寄与が大きくなる。

・流量が大きいほど、破過がおきやすいと考えられる。水位一定（水頭差による圧力一定）の試験の場合も流入する量によって流出現象は変化するため、流量をパラメータとした試験も必要となる。

・流量によって、膨潤と浸潤の割合が変化するため、ベントナイトとケイ砂混合の供試体の内部の分布も変化する可能性がある。また、水みちが形成されなくてもケイ砂のみが表面に集積することにより、流路となる可能性もある。

・X 線 CT によって、水みちの形状、及びケイ砂の分布などを見ることができた。さらに流出する界面の乾燥密度を X 線 CT で計測できれば、流出現象の理解がさらに進み、流出現象をモデル化できると思われる。

2.2 ケイ砂充填ケース

ケイ砂充填オプションについては、今年度は原位置での試験は実施していない。室内試験によって、隙間未充填オプションと同様に来年度以降に行う流出抑制効果の適用範囲を確認する試験のために、通水量及び水質のパラメータを設定するための予備的な試験を行った。試験によって以下のような事象を確認することを目的とした。

・ケイ砂充填効果の水質による差の確認

・ケイ砂充填による流出抑制のメカニズムの理解のために検討すべき流量

・ケイ砂充填時のベントナイトのケイ砂の間隙への進入状況

2.2.1 試験の概要と試験ケース

用いた試験装置を図 B2-10 に、試験ケースを表 B2-2 に示す。イオン交換水と 0.5M NaCl 水溶液での試験の比較によって、流出挙動への水質の影響について把握し、流量を少なくしたケースでは、流量の違いによるベントナイトのケイ砂への膨潤進入挙動の差として、拡散が卓越す流量での試験により観察することを目的とした。隙間未充填オプションの試験と同様（2.1(1)項を参照のこと）に、基準となる通水量は原位置の流速と同様となるように 2.0 mL/min とした。

観察の視認性を良くするために充填するケイ砂は着色したもの（カラーサンド）を使用した。ベントナイト供試体は前述の未充填ケースと同様の材料、締固め方法を用いた。横方向の長さは未充填ケースの 1/2 であり、供試体長さより、ケイ砂充填部分を長くした。これは、緩衝材がケイ砂の間隙に進入する挙動を把握することを目的としたため、ケイ砂充填の範囲を広くすることによって、周辺岩盤のダメージゾーン（EDZ）などに緩衝材が拡がることも含めた試験とするためである。流出量の定量方法は、前述の隙間未充填ケースと同様である。

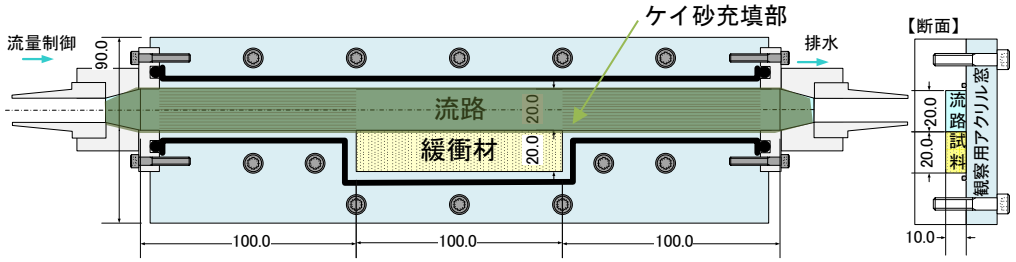


図 B2-10　ケイ砂充填の緩衝材界面の流出挙動の観察と流出量測定試験のイメージ

※：ケイ砂を充填したのは緑色の部分

表 B2-2　横置き試験・ケイ砂充填試験ケース

ケース No	ベントナイト乾燥密度 Mg/m³	ケイ砂充填率※ %	通水量 mL/min	背圧 kPa	水質 (mol/L)	計測項目	備考
1	1.6	60 程度	0.1	0	イオン交換水	・緩衝材流出量 ・通水圧 ・定点撮影 ・砂の充填密度 ・ケイ砂への膨出量	・ 試験期間：2 ヶ月程度
2			2				
3			2		NaCl 0.5M		

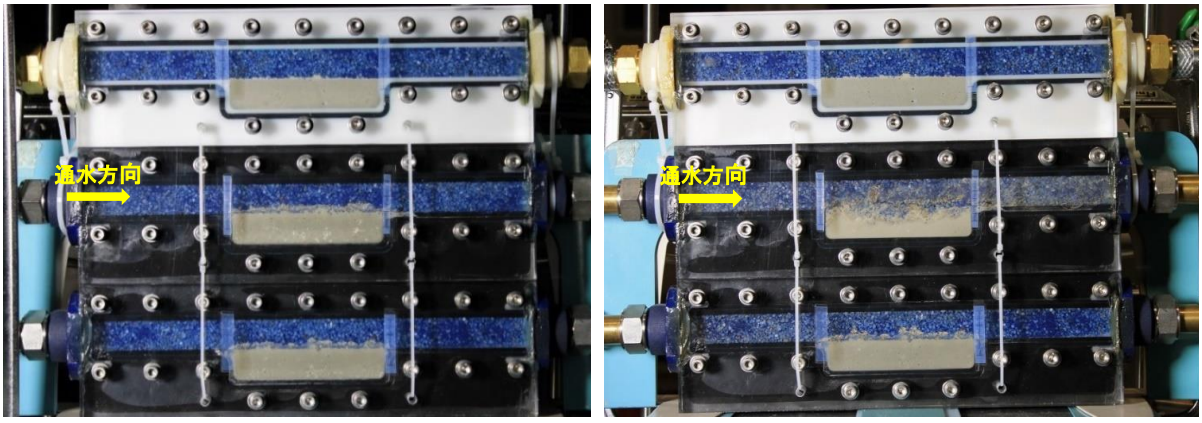
※：充填率はケイ砂の体積/隙間体積

2.2.2 試験結果

(1) ケイ砂の間隙へのベントナイトの進入の観察と試験の概況

図 B2-11(a)には、試験開始から 7 日目の状況写真を示す。イオン交換水（以下、図中には H_2O と記す）を使用したケースは緩衝材部の表面付近が膨潤して、一部がケイ砂に進入していた。通水量が 2.0 mL/min の場合では、膨潤したベントナイトの一部が下流側に流出していることが観察された。

試験開始から 30 日目以降は、イオン交換水を使用し通水量が 2.0 mL/min のケースでは、膨潤したベントナイトがケイ砂の内部に進入している様子が観察できた。その後、ベントナイトの流出によりケイ砂を支えきれなくなり、ケイ砂が緩衝材部へ落ち込み、緩衝材部とケイ砂充填部の境目が曖昧となった。また、ベントナイトが下流側にも広がっていた。図 B2-11(b)に、試験開始から 62 日目（試験終了時）の状況写真を示す。0.1 mL/min のケースでは、下流側よりも、むしろ上流側へのベントナイトが分散により広がっていたが、2.0 mL/min のケースより、ケイ砂部への進入は少なかった。0.5M NaCl 水溶液を使用したケース（以下、図中には NaCl と記す）では緩衝材部へはほとんど進入しておらず、変化しなかった。



(a) 7 日目　　(b) 62 日目

図 B2-11　ケイ砂充填試験
（上から、0.5M NaCl 2.0 mL/min、H_2O 2.0 mL/min、H_2O 0.1 mL/min）
ケース 3　　ケース 2　　ケース 1

(2) 通水圧の経時変化

図 B2-12 には通水圧の経時変化を示す。初期の通水圧は非常に小さかったが、時間経過に伴って、通水圧は増加傾向を示した。これは、緩衝材の膨潤に伴うケイ砂への進入や流出した緩衝材がケイ砂の間隙を閉塞することなどによる止水性能の向上によるものと考えられる。イオン交換水を 2.0 mL/min で通水したケースでは、通水圧は増減を繰り返しながら全体的には増加傾向であるが、55 日を過ぎた辺りで緩衝材の流出に伴うケイ砂の落ち込みなどの大きな変動が発生し、通水圧の激しい増減が生じた。一方、0.1 mL/min のケースでは、通水圧は、多少の増減は見られるものの概ね 5 kPa 以下で推移した。

イオン強度 0.5M NaCl 水溶液を 2.0 mL/min で通水したケースは、多少の増減はあるものの、全体的には通水圧は増加傾向であったが、40 日目付近で通水圧の減少が見られた。この時間の定点撮影からは通水圧の増減過程で大きな変化が見られなかった。ケイ砂の内部でのベントナイトの挙動に起因するものと予想される。その後は、通水圧の増加傾向は緩やかになり、60 日目には概ね 25 kPa で一定となった。

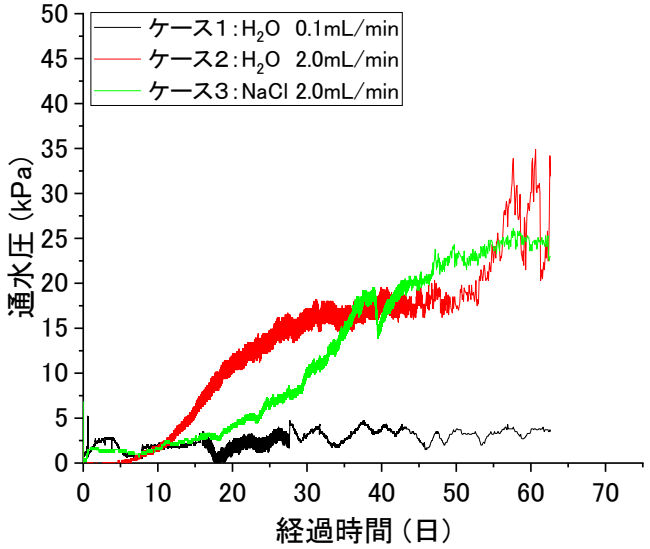
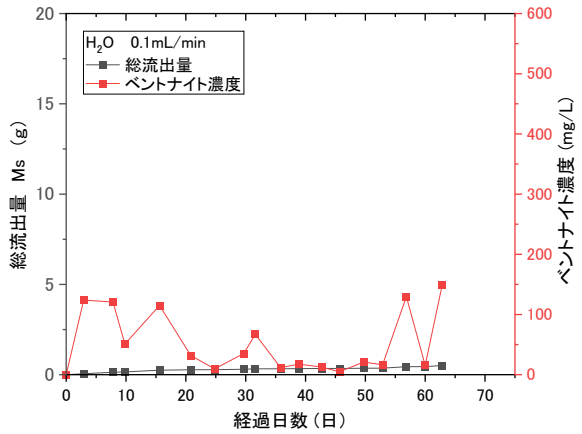


図 B2-12　通水圧の経時変化（ケイ砂充填ケース）

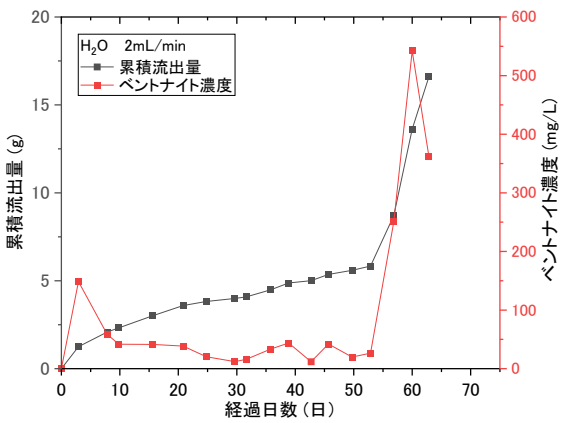
(3) 流出量の経時変化

図 B2-13 に、総流出量と排水中のベントナイト濃度の経時変化を示す。ケース 1（図 B2-13 (a)）のイオン交換水を 0.1 mL/min で通水した場合には、ベントナイト濃度に変化の傾向はみられず、増減を繰り替えした。流量が低いため、ケイ砂部にベントナイトが進入する現象が卓越したことが予想される。ケース 2 の 2.0 mL/min で通水した場合には、開始から 3 日目に濃度のピークが見られ、その後、低い濃度で推移した。この挙動は隙間未充填の場合と同様である。55 日目以降に、急激なベントナイトの濃度の上昇に伴い、流出量が急増した。これは供試体端部と試験装置の境界部で乱流が生じ、供試体が局所的に洗堀されためである。その時点での定点観側による写真を図 B2-14 に示す。これ以降、ベントナイトの流出量が増加したため、供試体部分の強度が低下し、ケイ砂が供試体部に落ち込んだことによりさらに流出量が増加した。この現象は小スケールでの試験条件に起因するものであると考えられるため、他の試験条件との比較の際には、55 日目（通水量：約 150 L）までの結果と比較するものとする。

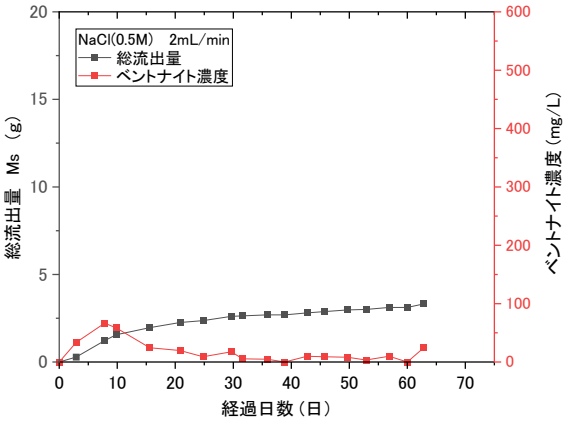
図 B2-13(c)には、0.5M NaCl 水溶液を 2.0 mL/min で通水した場合の経時変化を示す。通水開始から 8 日目に、排水に含まれるベントナイトの濃度がピークを示し、その後低下し、試験期間を通して低い濃度で推移した。



(a) ケース1　H_2O 通水量：0.1 mL/min



(b) ケース 2　H_2O 通水量：2.0 mL/min



(c) ケース 3　NaCl 通水量：2.0 mL/min

図 B2-13　ベントナイト濃度と総流出量－ケイ砂充填－

図 B2-14　ケース 2：ベントナイト部の洗堀の様子

図 B2-15 には、通水量 2.0 mL/min の時のイオン交換水と 0.5M NaCl 水溶液の総流出量とベントナイト濃度の比較を示す。横軸は流量とした。150 L までの推移を比較すると、0.5M NaCl 水溶液の通水ケースの方がイオン交換水の通水ケースに比べて流出量が小さかった。しかし、この差は大きな差ではない。これは、本試験で設定した流量条件では、ケイ砂充填のケースでもベントナイト粒子が分散し、ケイ砂の間隙に侵入することによる流出が生じているためと考えられ、隙間未充填の場合とベントナイト部の挙動がほぼ同じだったためと考えられる。NaCl の 0.5 M のイオン強度による影響により、ベントナイトが水に分散せずに凝集するなどすることにより、流出量が減少することが予想されたが、今回試験で設定した通水量では、影響が小さかったと言える。流量によりイオン強度の影響の度合いが変化する可能性もあるため、確認する必要がある。

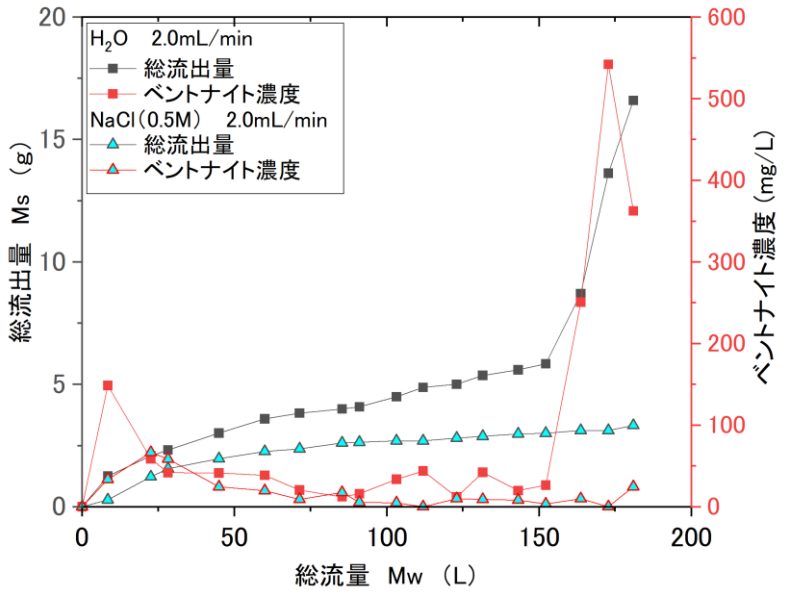


図 B2-15　総流出量とベントナイト濃度の水質の違いによる比較

(4) 試験後の解体結果

ケイ砂充填ケースは 62 日間の流出試験の後に解体して、試験中にベントナイトが充填砂部分に膨潤進入、あるいは流出してケイ砂の空隙に留まっていることが観察されたため、この分布を確認した。形状を保って分布を得るために、試験後のセルを解体する前に凍結させ、解体に伴って充填砂部分が崩れないようにした。図 B2-16 には解体時のブロック分けを示す。ケイ砂充填部は上流部、中央部、下流部の 3 つに分割し、緩衝材部と併せて 4 つの領域に分割した。分割し

て得た部分ごとの試料は、ふるい上で水洗いし、粒径の大きいもの（ケイ砂）と細粒分に分け、ふるい上に残ったものを乾燥して重量を計測した。試験に用いたケイ砂は試験に用いる前に十分に水洗いて細粒分を除いているため、試験後に水洗い法で得られた細粒分は全てベントナイトとした。

表 B2-3 には試験後のベントナイトの分布を試験前の重量に対する割合で示した。ケース 2 は前項で示したように、後半でケイ砂部が緩衝材部に落ち込んだため、流出量が非常に多くなり、緩衝材部に残ったベントナイト量は極端に低くなっていた。試験後の緩衝材部と流出量（ケイ砂中及び排水液中のベントナイト量）の合計は 100%になるべきであるが、解体時にセルや工具などにこびり付いた緩衝材があったため、減少していると考えられる。また、ケース 1 は他のケースよりまた、通水量 0.1 mL/min のケース 1 では、流出量が少ないために、吸光度の計測精度以下の量となり排水液中のベントナイト量の精度が低かった可能性がある。

ケイ砂部に含有されているベントナイト量は、目視では（図 B2-11 参照）イオン交換水を 2.0 mL/min で通水したケース 2 が最も多く、NaCl 溶液を通水したケース 3 は、ケイ砂充填部への進入が少ないように見えたが、水洗い法で得られた量は大きな差は見られなかった。上流部、中央部については 3 つのケースで大きく差はなく、流量の少ないケース 1 のみが下流部の含有量が低かった。ケース 2 は、緩衝材部の量が減ったことにより、ケイ砂が緩衝材部へ落ち込み、ケイ砂充填部の間隙率が変わったことの影響がある可能性は否めないが、その他にもベントナイトの分散状態、粒子の大きさなどが異なっていたこと、観察したセルの前面と内部の状態が異なっていたことなどが影響し、目視と計測値に差があったことが推測される。

いずれにしても、今回の試験ケースにおいては、流量が少ないほどベントナイトのケイ砂充填部への進入量が多くなるなどの傾向は見られず、また、イオン強度が高い NaCl 水溶液を通水した場合に、表面のベントナイトの凝集により、ケイ砂の間隙への進入が少なくなるなどの現象もみられなかった。さらに流量が多い場合にはケイ砂に進入したベントナイトが系外に排出されることにより、ケイ砂中に留まる量が減ることも考えられるが、今後、試験により確認する必要がある。

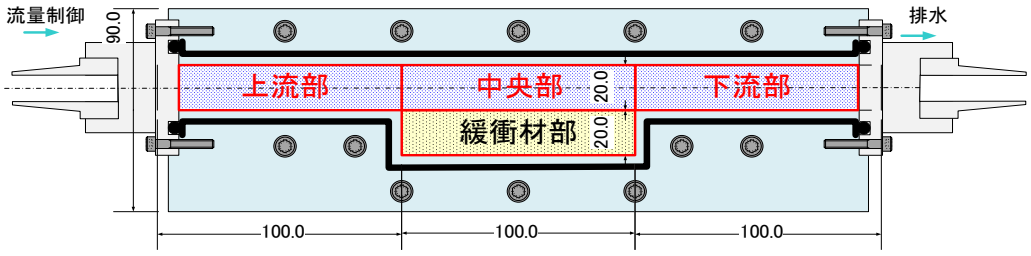


図 B2-16　解体時のブロック分け

表 B2-3　ケイ砂充填での流出試験解体結果（ベントナイトの分布）

		ケース 1	ケース 2	ケース 3
		H_2O (0.1 mL/min)	H_2O (2.0 mL/min)	NaCl (2.0 mL/min)
ケイ砂充填部に進入したベントナイト量（%）	上流部	2.29	2.52	3.06
	中央部	4.59	4.63	4.36
	下流部	1.71	4.36	3.42
	合計	8.59	11.51	10.84
排水液中のベントナイト量（%）		2.29	74.64	14.93
緩衝材部に残ったベントナイト量（%）		80.53	10.16	69.69
合計（%）		91.41	96.31	95.46
参考：作成時のベントナイト量(g)		22.24	22.24	22.24

(5)　ケイ砂充填による流出抑制効果

図 B2-17 に令和 2 年度行った横置き試験装置による隙間未充填の試験とケイ砂充填試験の流出量の比較を示す。令和 2 年度の試験では、ケイ砂充填したケースと隙間未充填のケースでの流出量に大きな差はなかった。平成 30 年度と平成 31 年度に行った小型セルによる試験及び原位置試験ではケイ砂充填により、流出量が抑えられるという結果が得られている。令和 2 年度の横置き試験との違いは、これまでの試験はいずれの場合も緩衝材に接する水は下から上へと流れる環境での流出試験であったこと、ほぼ同じ流速であっても流路長が違うこと、などである。流向の違いによって系外にベントナイトが排出される挙動に差がでることは、既往の報告でも述べられており（原子力環境整備促進・資金管理センター, 2015 など）、影響している可能性がある。また、緩衝材部の形状も本試験が矩形であったのに対し、以前の試験はいずれの場合も円筒状の供試体を用いていた。供試体の形状により、膨潤した際の界面の乾燥密度に差がでる可能性についても考慮が必要である。

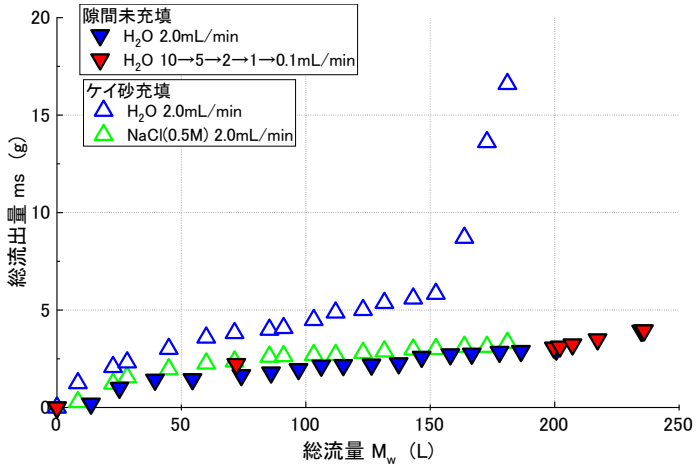


図 B 2-17　横置き試験による隙間未充填とケイ砂充填の比較

(6) 今後の試験に反映すべき知見

横置き試験装置を用いて供試体上部にケイ砂を充填した流出試験の結果により、今後の試験に反映すべき知見を以下に示す。

・水質の違いによるケイ砂充填の効果の程度は、イオン交換水の方が抑制効果は低いものの、大きな差はなかった。また、通水圧の変化、ケイ砂間隙へのベントナイトの進入量も水質によって大きな影響はなかった。今後、ケイ砂充填による試験はイオン交換水によって行うことによって塩水の影響を包含できるため、問題はないと考えられる。
・上部にケイ砂を充填した場合、供試体の流出が進むと供試体の強度が低下し、ケイ砂が供試体部に落ち込む現象が確認された。横置き試験の場合には、供試体の厚さを大きくするなど、試験系特有の現象を避ける方策が必要である。
・今回設定した流量範囲では、ケイ砂の間隙へのベントナイトの進入量は大きく違わなかった。流量がさらに多い範囲での確認は必要であるが、湧水量が減少し、地下水の流れが少なくなり、拡散支配の環境となってもベントナイト粒子が拡散してケイ砂の間隙を閉塞するには時間がかかると思われる。
・ケイ砂充填の効果は、横置き試験では見られなかった。通水の方向により抑制効果が見られなかった可能性もあり、通水方向について試験系の再検討が必要である。

3. 緩衝材ブロックの品質に関するデータ取得

3.1 緩衝材ブロックの製作と品質管理

3.1.1 緩衝材ブロックの仕様

本業務で製作した緩衝材ブロックの仕様を表 B3-1 に示す。材料はベントナイト（クニゲル V1）とケイ砂の重量比 7 : 3 の混合材料であり、外観は図 B3-1 に示すようにドーナツ型の中空円柱を 8 等分した形状である。

表 B3-1　緩衝材ブロックの仕様

（a）緩衝材ブロックの性状に係る仕様

材料（混合土）	ベントナイト（クニゲル V1）70 wt% ＋ ケイ砂 30 wt%（3 号 15 wt%＋5 号 15 wt%）
混合水	水道水
乾燥密度	1.92 Mg/m^3（許容誤差±0.1 Mg/m^3）
含水比	10.5%（許容誤差±2%）

（b）緩衝材ブロックの形状に係る仕様

形状と数量	ドーナツ型の中空円柱を 8 等分した扇型ブロック 88 個（8 個／段×5 段×2 試験分＋予備 8 個）
計画寸法	外径 0.54 m、内径 0.21 m、厚さ 0.10 m のドーナツ型の中空円柱を 8 等分した形状（体積 2,430 cm^3）
計画重量	5.1 kg/ブロック（＝2,430×0.00192×1.105）

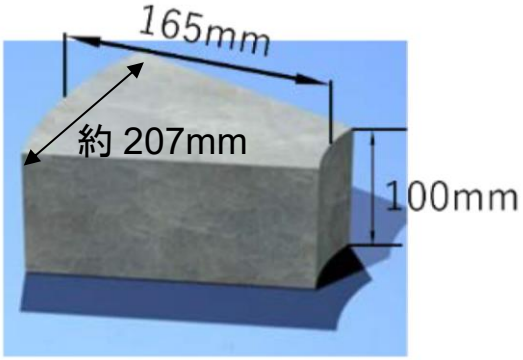
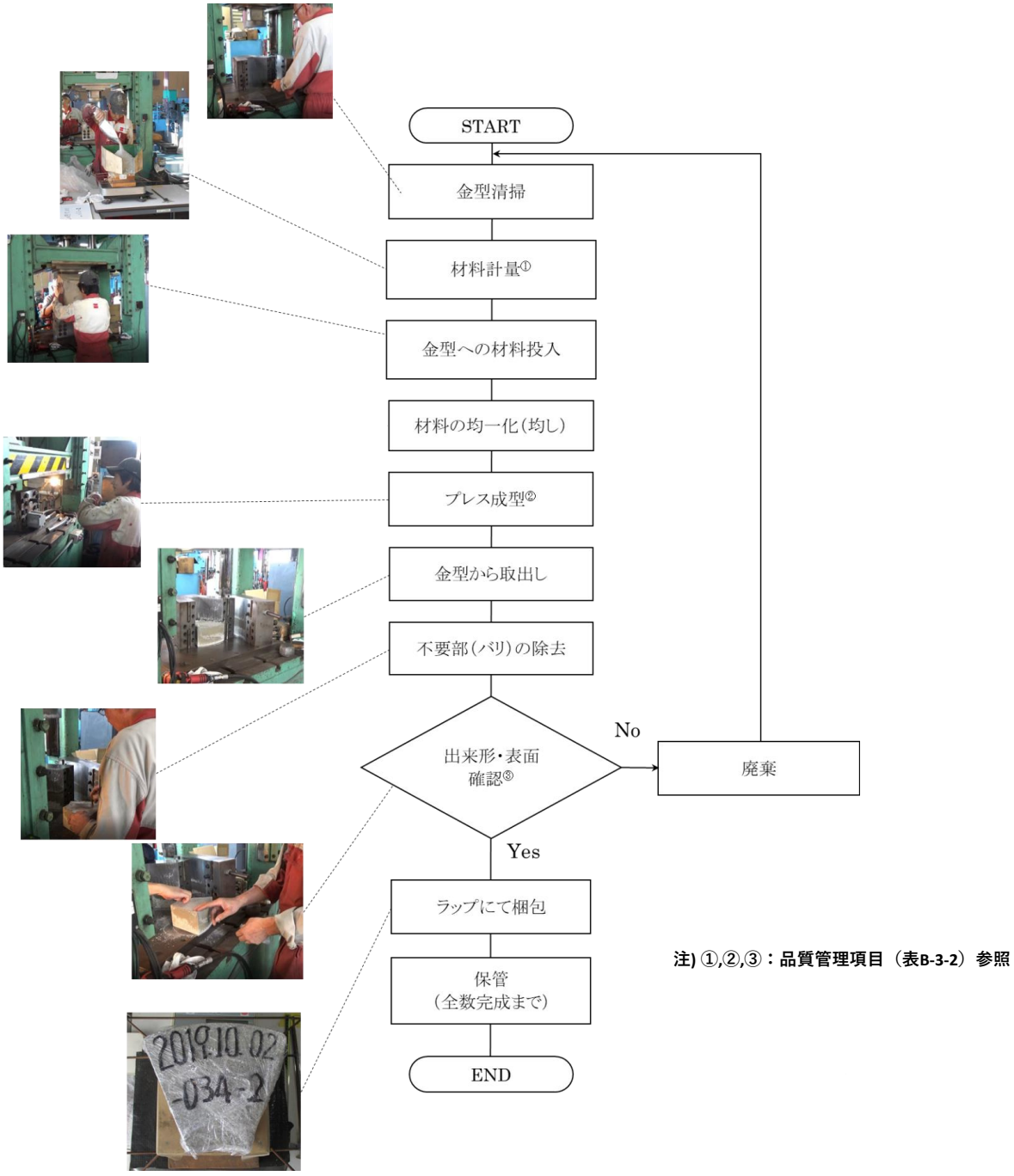


図 B3-1　緩衝材ブロックの外観

3.1.2 緩衝材ブロックの製作方法

緩衝材ブロックの製作フローを図 B3-2 に示す。過年度と同様に、事前に含水比調整したベントナイトーケイ砂混合材料を所定の重量で金型に投入し、一つずつ静的プレスにより製作した。



注) ①,②,③：品質管理項目（表B-3-2）参照

図 B3-2　緩衝材ブロックの製作フロー（一個あたりの製作フロー）

3.1.3 緩衝材ブロックの品質管理方法

各ブロックの製作時の品質管理については、表 B3-2 に管理項目を示すとおり、主に材料投入時の投入量管理と圧縮成型後に脱型してからの出来形管理とした。製作時の各パラメータの設定については本業務の仕様に基づいて設定した。また、管理基準値については、過去の検討（原子力環境整備促進・資金管理センター, 2018b など）におけるバラつきなどを踏まえて設定することとした。これにより、製作した緩衝材ブロックが最終的に目標乾燥密度 1.92 Mg/m^3 を許容誤差±0.1 Mg/m^3 の範囲で達成していることを確認した。なお、緩衝材ブロックの外観について、表面にサメ肌状の剥離（図 B3-3 の赤丸）がみられる場合は、流出状況に影響（水みちの形成に影響）する可能性があるため「不適合」とすることとした。

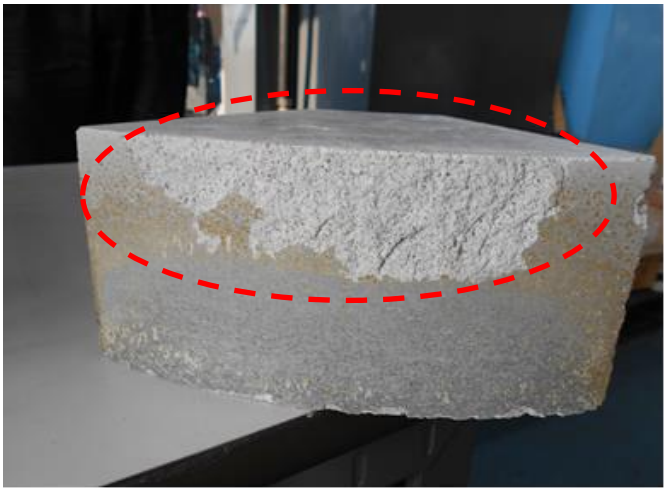
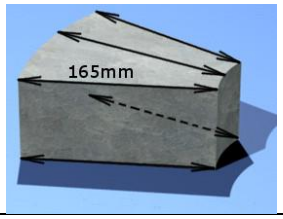
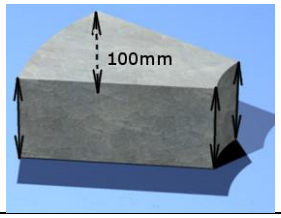


図 B3-3　著しいサメ肌状の剥離

表 B3-2　緩衝材ブロック製作における品質管理項目

項目	時期／方法	設定値／根拠	管理基準値	頻度	フロー図(図 B3-2)
材料投入量	金型への投入前／電子秤にて測定	5.27 kg／過年度の実績（金型への付着分等を考慮した値）	設定投入量 ±1% 5.22～5.32 kg	ブロック1個ごと	①
成型圧力	圧縮時／成型機のゲージ圧力を目視確認	約 33 MPa／過年度の実績（出来形品質に応じて圧力を調整）	設定値どおり		②
圧縮時間	圧縮時／プレス機の設定値	3 min／過年度の実績	設定値どおり		
圧縮保持時間	圧縮保持時／ストップウォッチなどで測定	約 20 min／過年度の実績	設定値どおり		
ブロック寸法	金型から脱型後／写真の位置をノギスにて測定（長さ：5 か所、高さ：4 か所） 	長さ：165 mm、高さ：100 mm／仕様にて規定 	設計値±2 mm 長さ 163～167mm 高さ 98～102 mm		③
ブロック質量	金型から脱型後／電子秤で測定	—	投入量との差を確認		
ブロック外観	金型から脱型後／目視及び写真撮影（正面、右側面、背面、左側面、上面、底面の 6 面）	—	以下がないこと ・ 10 mm以上の欠損、凹凸 ・ 表面が剥離するようなひび割れ ・ 外周部の著しい剥離（図B3-3）		
乾燥密度	金型から脱型後／ブロックの質量、含水比、寸法より乾燥密度を算出	1.92 Mg/m^3／仕様にて規定（膨潤変形後の乾燥密度 1.6 Mg/m^3 を想定した値）	目標値±0.1 Mg/m^3		

3.2 緩衝材ブロックの初期密度に関するデータ取得

地下での流出試験に供する緩衝材ブロックについて、品質の確認を行う手法としての X 線 CT の適用性を検討するために、X 線 CT 撮影による緩衝材ブロック内の乾燥密度分布の推定を試みた。X 線 CT 撮影では、一般的に被写体の密度と相関があるとされる X 線吸収係数の換算値である CT 値の分布が得られる一方で、直接的に乾燥密度の分布を得ることはできない。そのため、本業務では、X 線 CT 撮影により得られる CT 値と乾燥密度の関連付けを「緩衝材ブロックから

採取したコアサンプルの乾燥密度測定」によって行うこととし、緩衝材ブロックに対する検討及び採取サンプルに対する検討を通じて、X 線 CT 撮影を用いた緩衝材ブロック内の乾燥密度分布の推定について検討を行った。

3.2.1 供試体選定

前項で述べた地下での流出試験に供する目的で製作された緩衝材ブロックのうち、任意に選択された 3 個のブロック（No.048～No.050）を初期密度に関するデータ取得に供した。データ取得に先だって測定した各ブロックの寸法・質量の一覧を表 B 3-3 に示す。

表 B3-3　初期密度に関するデータ取得に用いた緩衝材ブロック一覧

名称	寸法[mm]（計測位置は表 B3-2 のブロック寸法欄を参照）			質量 [kg]	乾燥密度 [Mg/m^3]
	測定箇所	長さ	高さ		
2020.09.14－No.048－2	①	166.3	100.5	5.28	1.93
	②	166.3	100.4		
	③	166.2	100.8		
	④	166.0	100.5		
	⑤	166.0	－		
2020.09.17－No.049－2	①	166.3	100.6	5.29	1.94
	②	166.4	100.6		
	③	166.3	100.6		
	④	166.2	100.5		
	⑤	166.1	－		
2020.09.17－No.050－2	①	166.4	100.7	5.30	1.94
	②	166.5	100.5		
	③	166.3	100.6		
	④	166.2	100.7		
	⑤	166.1	－		

3.2.2 緩衝材ブロックの X 線 CT 撮影に関する検討

(1) X 線 CT 撮影の概要

X 線 CT 撮影では、撮影対象となる物体に対して X 線をさまざまな角度から照射し、それぞれの角度における物体透過後の X 線強度（透過により減衰した X 線強度）のデータを X 線検出部で収集する。ある物質に対して、ある方向に X 線を透過させたとき、透過した任意の位置 n（n=1, …, N とする）における X 線吸収係数を μ_n とすると、透過した物質での X 線の吸収は次式で表される。

$$I = I_0 \exp\left\{-x\left(\mu_1 + \mu_2 + \cdots + \mu_N\right)\right\}$$

ここで、I : 物質透過後の X 線の強度（Sv/h など）、I_0 : 入射 X 線強度（Sv/h など）、x : X 線の透過距離（＝物質の厚さ）（m）、μ_n : X 線吸収係数（1/m）である。多方向から取得したデータに基づく連立方程式から μ が求まる。これを装置固有の係数により線形変換したものが出力される CT 値である。すなわち、収集した X 線データを逆解析して再構成することによって、物体内部

の X 線吸収係数の分布を求め、換算された CT 値の大小をグレースケールで表示することで物体内部の CT 値を三次元で描写することができる。

物体内部の X 線吸収係数は、解像度で分割された立方体ごとに求まる。すなわち、1 枚の X 線 CT 画像ファイルのピクセルに入る CT 値は、厚みを考慮した三次元情報（立方体内部の平均 X 線吸収係数より換算された CT 値）を表す。したがって、X 線 CT 画像では「体積（Volume)」と「ピクセル（Pixel)」を掛けた「ボクセル（Voxel)」という言葉が「ピクセル」の代わりに使用される。

(2) 使用装置の概要

上述のとおり、照射した X 線が供試体を透過しなければ、X 線 CT 撮影を行うことは出来ない。一方で、物体を透過する X 線の減衰程度（＝X 線吸収係数）は、X 線の透過距離とともに原子番号が大きい物質や密度が大きい物体を透過する際に大きくなる。したがって、本業務で撮影対象となる緩衝材ブロックのような厚みのある重量物を X 線 CT 撮影する場合には、供試体を透過するだけのエネルギーを持つ高出力 X 線の照射が可能な X 線 CT 装置が必要となる。

以上より、高出力マイクロフォーカス X 線 CT 装置「ScanXmate-RD300WSSS900」を用いた。本装置の主要諸元を表 B3-4 に示す。

(3) 撮影条件

1) 供試体設置

X 線 CT 試験装置内部の様子を図 B3-4 に示す。装置の構成は、中央に試料ステージを配置し、その両側に X 線源と X 線検出部を設けた構造となっている。X 線 CT 撮影は、供試体を試料ステージの中央に置き、その状態でステージを 360° 水平回転させながら、X 線を照射させることで行う。本装置の X 線は光源から四角錐状に面的照射され、一度の X 線 CT 撮影で三次元での CT 画像を取得することが可能である。

表 B3-4　X 線 CT「ScanXmate-RD300WSSS900」の主要諸元

X 線源	
X 線管電圧	20～300 kV　（連続可変）
X 線管電流	0～1000 μA　（連続可変）
最大出力	200 W
X 線焦点寸法	最小 4 μm（チャート分解能）
X 線検出器	
有効入力面視野	418 mm(H)×418 mm(V)
ピクセルピッチ	139 μm　（1×1 ビニング）
画素数	3,008×3,008　（1×1 ビニング）
ステージ	
ワーク直径	400 mm
ワーク高さ	1,000 mm
ワーク最大重量	100 kg
照射ボックス	
外形寸法	W3,250×D3,250×H2,910 mm
重量	19,040 kg

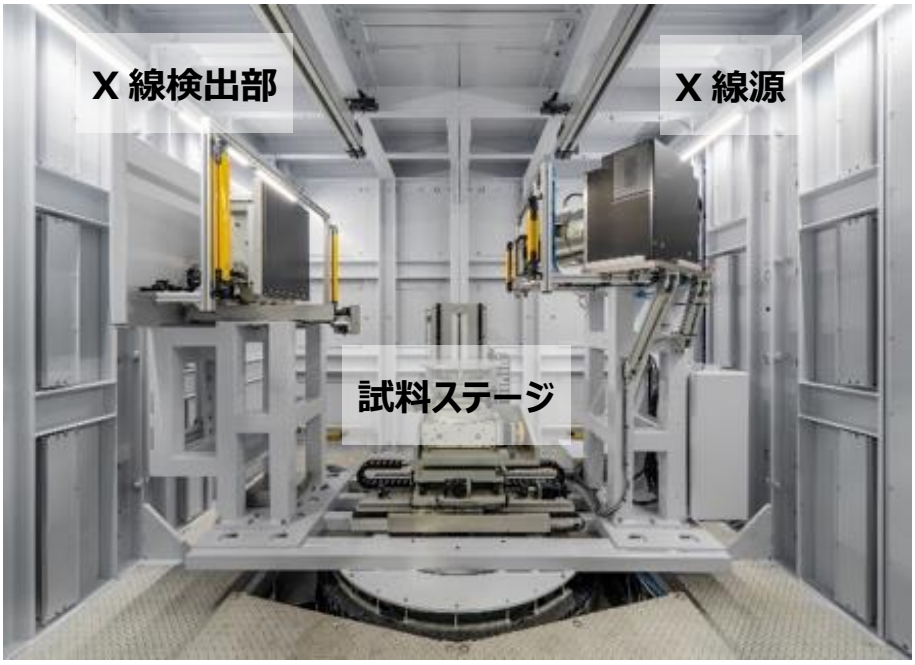


図 B3-4　X 線 CT 装置内部

ここで、供試体を試料ステージに直接設置すると、図 B3-5 に示すように減衰の大きな試料ステージを X 線が透過することとなり、供試体端部で鮮明な CT 画像が得られなくなる。そのため、今回の撮影では、X 線が透過しやすい塩ビ部材で作製した治具を試料ステージ上に設置し、その上に撮影対象である緩衝材ブロックを設置することとした。

また、撮影時の課題や撮影条件の適用性を確認するために、平成 31 年度に作製された緩衝材ブロックを用いて事前に試撮影を行った際、作製時と同様に加圧面が上面に位置するように配置して撮影したところ、試料ステージに平行な面で円錐形の X 線照射形状（コーンビーム）に起因すると思われるノイズが生じ、さらに、X 線透過距離が長くなる部分で CT 画像が不鮮明になる事象が見られた。このノイズは、試料ステージに平行な面や試料辺縁部など、再構成断面内の情報不足に起因する位置ずれなどが生じ、鮮明な画像が得られないことを指す。ここで見られたものは、コーンビーム X 線と多列検出器を用いた CT で見られるノイズで、コーンビームアーチファクトやフェルドカンプアーチファクトと呼ばれる。これらの課題に対しては、試料ステージに平行な面が生じることを避けつつ、透過距離を短くできる配置を検討した結果、緩衝材ブロックを加圧面に対して 90 度回転させた配置で撮影することで上記課題がある程度解決されたことから、本業務では同配置を撮影条件として採用した（図 B3-6 参照）。

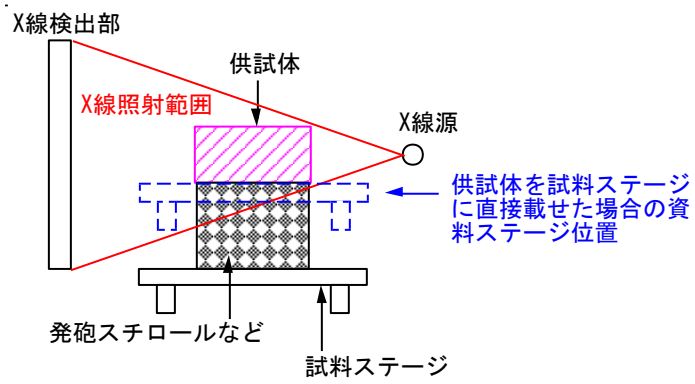


図 B3-5　供試体を試料ステージに直接置いた場合のイメージ

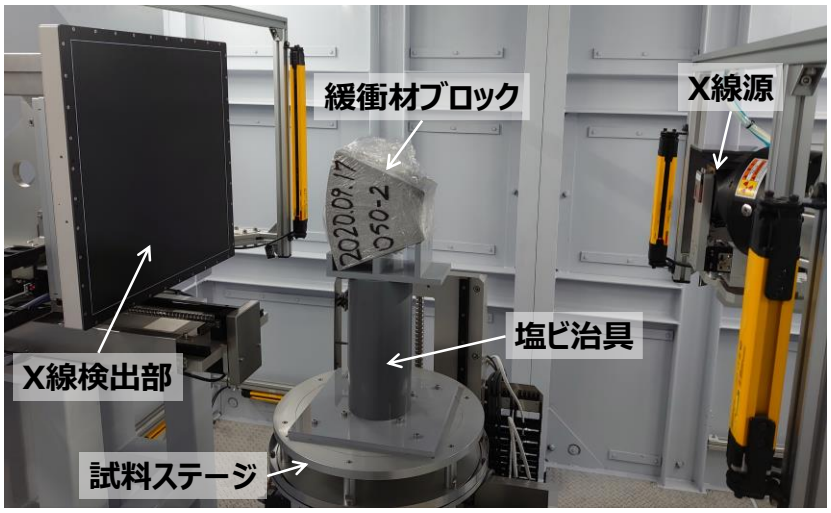


図 B3-6　治具を用いた緩衝材ブロックの X 線 CT 撮影状況

2) X 線管出力・画素数

緩衝材ブロックは最大幅 206.6 mm と通常の土質試験などで扱う試料と比較すると大型で、X 線を透過させるために必要な X 線管出力は高出力になる。高出力での X 線照射では、X 線焦点寸法（X 線の照射される部分のブレ幅）が増大するため、画素数を高く設定したとしても必ずしも解像度の向上は期待できず、逆に出力ファイルサイズの増大による画像解析時のハンドリング効率低下が懸念される。

ここでは、緩衝材ブロックに含まれるケイ砂の粒径を考慮して選定した画素数 1,504×1,504（2×2 ビニング）の条件において、過年度に作製された緩衝材ブロックを用いた試撮影を行い、撮影条件が適切であることを確認した。ただし、試撮影では、緩衝材ブロックに直接 X 線を照射した際に、ビームハードニングによると思われるノイズが生じたため、ノイズ抑制対策として 3 mm 厚の銅板フィルタを X 線照射窓（コリメータ窓）に設置したうえで、高出力条件（300 kV-200 μA）で時間をかけて CT 撮影を行った。ここで、ビームハードミングと呼ばれるノイズは、照射された X 線の低エネルギー成分が被写体透過中に吸収され、照射時に比べて X 線質が相対的に硬くなる（高エネルギーになる）ことで生じるアーチファクト（ノイズ）であり、特定の部位で本来とは異なる CT 値が得られるなどの影響がある。

なお、前述した供試体配置の採用により、供試体寸法が一度に撮影できる画像範囲を超過したため、供試体の Z 軸位置を変えて 2 回の撮影を行ったうえで画像を再構成する、多段撮影を採用することとした。本業務における X 線 CT の撮影条件一覧を表 B3-5 に示す。

表 B3-5　撮影条件一覧

項目	設定値	備考
X 線管電圧	300 kV	最大値
X 線管電流	200 μA	
銅板フィルタ	3.0 mm	ビームハードニング抑制のため
画像マトリックス幅	1,504	Voxel サイズ：153.6^3 μm
画像マトリックス高さ	1,504	
積算レート	1.0 f/sec	1 フレームあたりの撮影時間
多段撮影回数	2	供試体寸法が撮影範囲を超過したため

(4) CT 撮影後の画像処理

各緩衝材ブロックの X 線 CT 撮影状況を図 B3-7 に示す。撮影結果はプロジェクション数と同数の X 線データ（RAW 形式）として出力され、コンピュータによる解析で CT 画像（TIFF 形式）として再構成・出力される。その後、画像処理ソフトで三次元化し、ノイズ除去・コントラスト調整などを経て最終的な X 線 CT 画像を得た。

（a）No.048

（b）No.049

（c）No.050

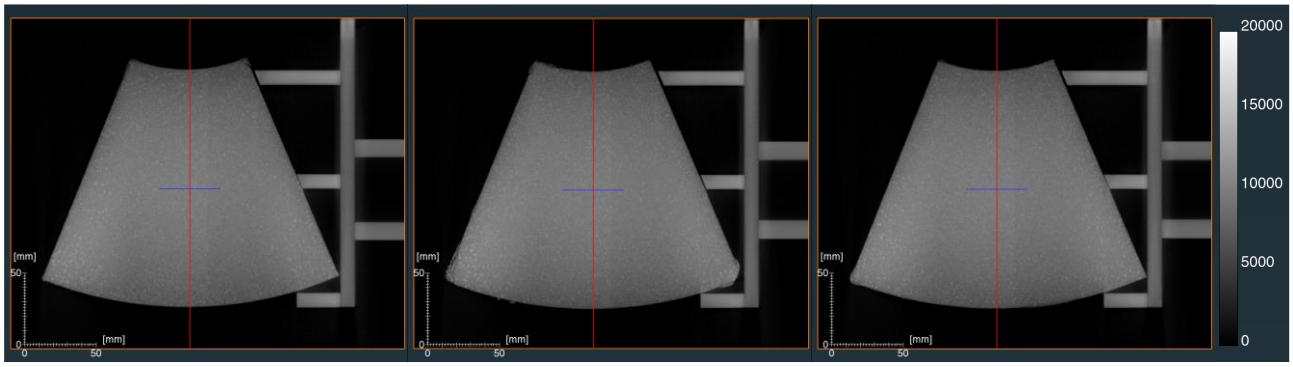
図 B3-7　X 線 CT 撮影状況

(5) 撮影結果

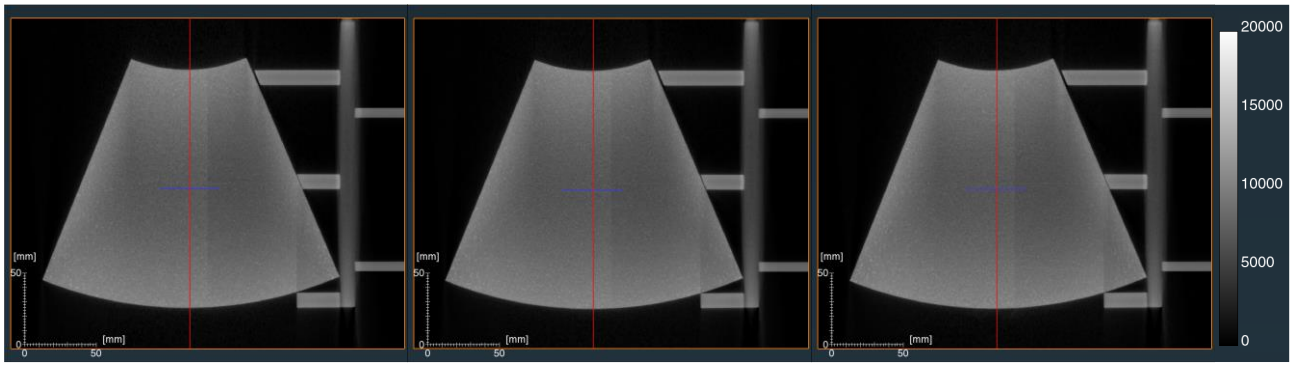
緩衝材ブロック成型時の加圧面（緩衝材ブロック上面）から底面までを加圧方向に 12 分割した 11 種類の断面画像及び中央部の鉛直断面 1 種類、計 12 断面を各緩衝材ブロックで整理した。なお、CT 画像の整理にあたっては、インパルスノイズを除去するためのメディアンフィルタ処理（対象画素の値を周囲の画素の中央値に変換するノイズ除去手法）を行い、CT 値の明示範囲を 0～20,000 にコントラスト調整した。

図 B3-8 に、加圧方向の断面画像として、加圧面近傍・中央深度近傍・底面近傍の 3 断面を抜粋して示す。いずれのブロックも加圧面・底面付近が明るく中央深度で暗いという CT 値の傾向は共通であった。また、全ての断面で X 線光軸（画像上下）方向に線状の筋が複数見られる。中央

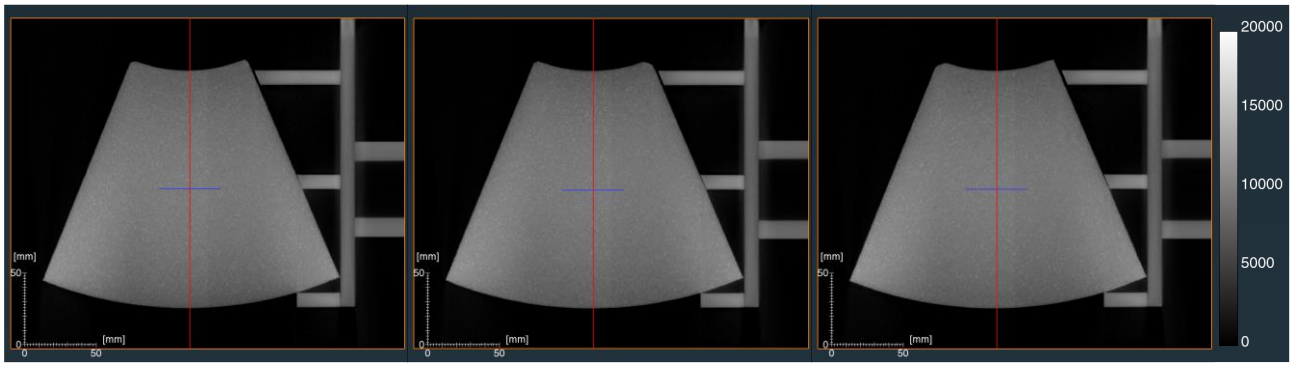
からやや右よりの比較的鮮明な線は多段撮影の境界部で、画像によって程度の差があるものの左右で CT 値の差が生じている。治具周辺に見られるやや不鮮明な線は、治具に起因するノイズと思われる。



（a）加圧面近傍（加圧面から 5 mm 程度の位置）



（b）中央深度近傍（加圧面から 50 mm 程度の位置）



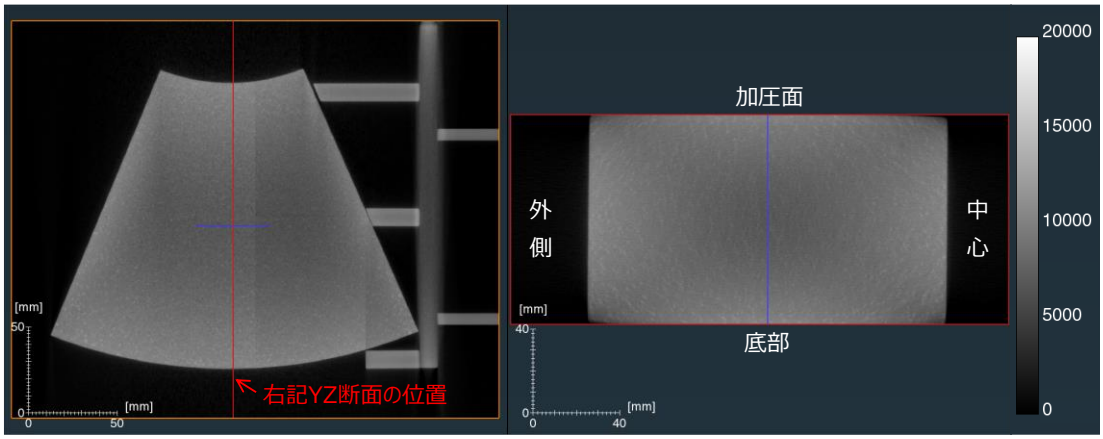
（c）底面近傍（底面から 5 mm 程度の位置）

図 B3-8　加圧方向の断面画像（左：No.048、中：No.049、右：No.050）

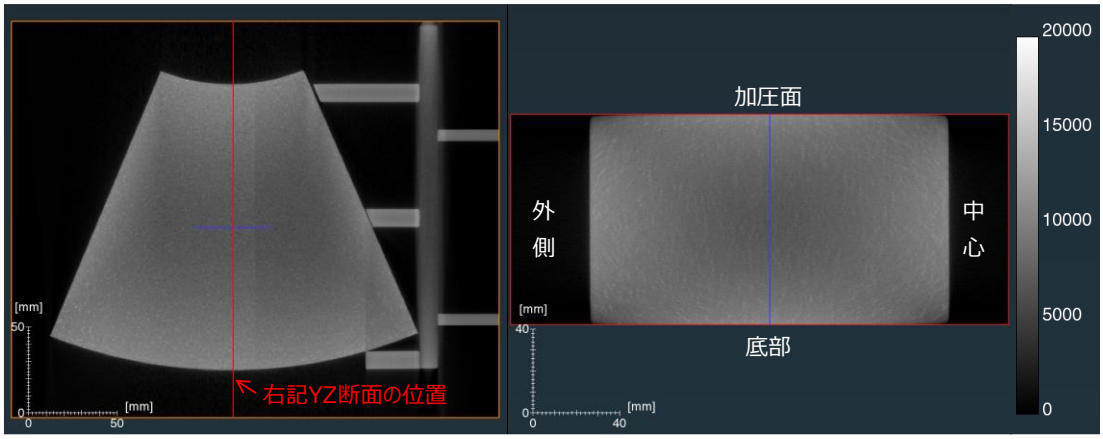
図 B3-9 には、各ブロックの中央部における鉛直断面画像を中央高さの平面断面画像と並べて示す。鉛直断面では、全てのブロックで加圧面・底部・中心側・外側が明るく、斜め十字状に暗い部分があるという共通の傾向が見られた。

本業務の撮影では緩衝材ブロックの CT 画像を一通り取得することができた。一方で、被写体配置の工夫や銅板フィルタの使用などのノイズ抑制対策を講じたものの、幾何学的な濃淡が見ら

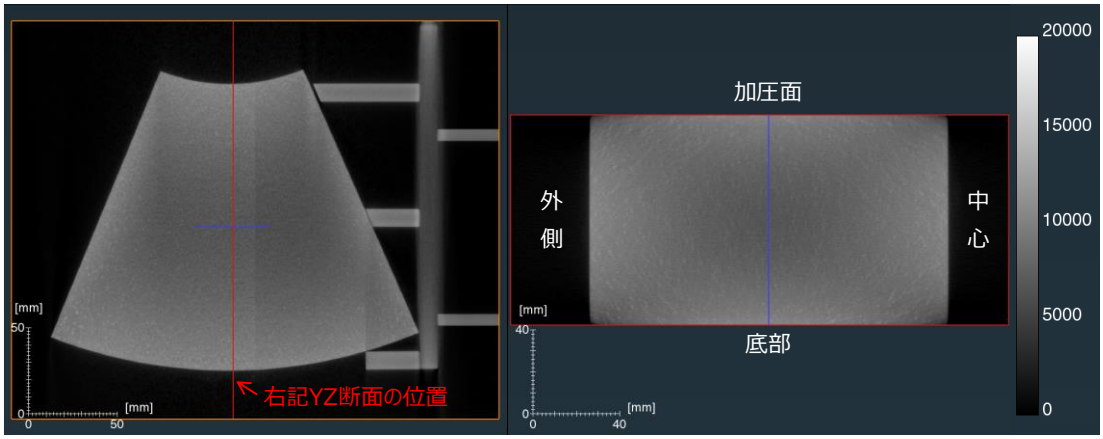
れるなど、CT 画像にノイズを生じている可能性が否定できない結果となった。X 線 CT 画像のノイズ影響については、後述する密度測定結果を交えて、「3.2.4 初期密度の推定に関する考察」において引き続き詳述する。



（a）No.048



（b）No.049



（c）No.050

図 B3-9　加圧方向中央深度断面画像と中央部鉛直断面画像

3.2.3 採取サンプルの X 線 CT 撮影に関する検討

緩衝材ブロックの密度を確認し、X 線 CT 画像で得られた CT 値との相関を確認するため、緩衝材ブロックから密度確認用サンプルを採取し、乾燥密度を測定した。

(1) サンプル採取・整形

密度確認用サンプルの採取にあたっては、平成 31 年度に作製された緩衝材ブロックを用いて試採取を行い、隅部と中央部でそれぞれ図 B3-10 に示す方法で採取可能であることを確認した。

ブロック中央部では、φ40 mm のコアカッターを用いて高さ 100 mm の円筒サンプルを切り出し、含水比測定に必要な質量を満足する寸法（30 cm^3 以上、高さ約 24 mm）に分割して密度確認用サンプルとした。なお、コア採取にあたってはブロックを型枠に入れて周囲を石膏で固め、コアリング中に動かないよう固定したほか、石膏からの吸水が無いようブロックと石膏の接触面はパラフィンで養生した。

なお、本業務では実施しなかったが、コアカッターが使用できないブロック隅部で、金鋸などを用いた手作業による粗切り出しを行ったのち、精密カッターによって一辺 32 mm 程度の立方体状に成型して密度確認用サンプルとすることが可能であることを確認した。

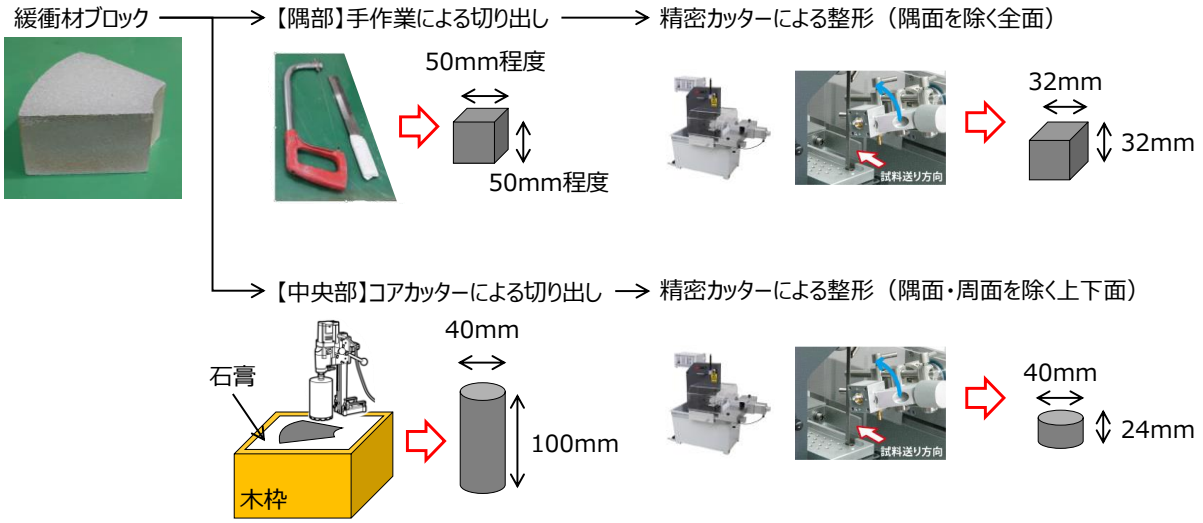


図 B3-10　密度確認用サンプルの採取方法

各緩衝材ブロックの中央部（図 B3-11 参照）でコアを採取し、それらを加圧方向に上部・中央・下部の 3 つに分割して、各ブロックで 3 体、計 9 体のサンプルで乾燥密度を測定した。ただし、コアカッターによるコア採取において加圧面・底部の両端面で多少の角欠けが生じたため、端部を取り除いたうえでコアを分割してサンプルとした。サンプルの採取深度と高さの一覧を表 B3-6 に示す。

（a）No.048　　（b）No.049　　（c）No.050

図 B3-11　分割前の採取コア

表 B3-6　サンプル採取深度と高さ

No.	位置	転圧面からの距離（mm）		サンプル高さ（mm）
		上端	下端	
048	上部	5.80	30.80	25.00
	中央	37.11	62.97	25.86
	下部	69.30	95.76	26.46
049	上部	6.65	31.48	24.83
	中央	37.46	62.45	24.99
	下部	68.77	94.25	25.48
050	上部	6.35	29.96	23.61
	中央	35.62	60.81	25.19
	下部	68.10	92.42	24.32

(2) 乾燥密度測定結果

密度確認用サンプルの乾燥密度は、ノギス法・パラフィン法による湿潤密度測定（JIS A 1225 : 2009）と含水比測定（JIS A 1203 : 2009）の結果から求めた。各サンプルの測定結果一覧を表 B3-7 に、サンプル採取深度と乾燥密度の関係を図 B 3-12 に示す。全 9 サンプルで得られた含水比・乾燥密度の差は小さく、乾燥密度は製作時の許容誤差に対しても狭い範囲に集中する結果となった。No.048 と No.049 で深度方向にわずかな増加傾向が、No.50 で深度方向にわずかな減少傾向が見られるものの、ブロック間での相違や採取位置の違いによる明確な差異はなく、少なくともブロック中央では均一な密度でブロックが製作されていたと言える。

なお、ノギス法で得られた体積はパラフィン法で得られた体積に比べて全体的にやや大きめの値となった。整形後のサンプルにはコアカット面の凹部や端部の角欠けがあり、ノギス法ではこれらを正確に測定できず体積を過大評価したものと考えられることから、本報告書ではパラフィン法の結果を採用することとした。

表 B3-7　密度確認用サンプルの測定結果一覧

No.	位置	湿潤質量 (g)	含水比 (%)	乾燥質量 (g)	ノギス法		パラフィン法	
					体積 (cm^3)	乾燥密度 (Mg/m^3)	体積 (cm^3)	乾燥密度 (Mg/m^3)
048	上部	76.15	7.15	71.07	36.52	1.946	36.26	1.960
	中央	78.46	7.38	73.07	37.78	1.934	37.24	1.962
	下部	82.15	7.47	76.44	38.63	1.979	38.75	1.973
049	上部	75.29	7.65	69.94	36.30	1.927	36.11	1.937
	中央	76.96	7.73	71.43	36.52	1.956	36.47	1.959
	下部	78.70	7.62	73.13	37.24	1.964	36.97	1.978
050	上部	72.43	6.93	67.74	34.56	1.960	34.30	1.975
	中央	76.94	7.43	71.62	36.85	1.943	36.53	1.960
	下部	74.27	7.39	69.16	35.60	1.942	35.50	1.948

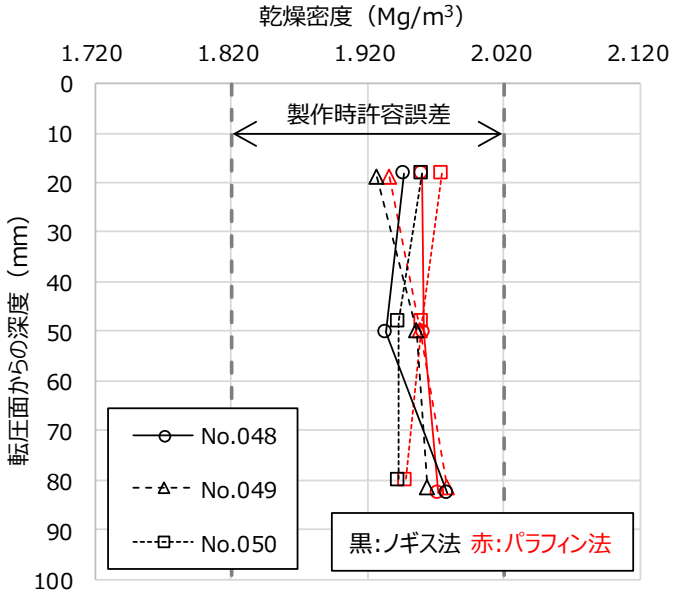


図 B3-12　サンプル採取深度と乾燥密度の関係

(3) 採取サンプルの X 線 CT 撮影

ブロックの状態で撮影された CT 画像にはノイズが生じている可能性が否定できず、正しい CT 値が得られていない懸念があったことから、ここではブロックから採取したコア及びコアを分割・整形して得られたサンプルについても X 線 CT 撮影を行った。

図 B3-13 にコアとサンプルの X 線 CT 撮影状況を示す。ここでは試料ステージ上の治具について専用のものは製作しておらず、コアの場合は試料との接触部分が塩ビ製の円柱状治具を架台として試料ステージの中央に設置して撮影し、サンプルの場合は発泡スチロール製の箱容器を架台として、ブロックごとに 3 個のサンプルを同時に乗せて撮影した。また、コア及びサンプルのいずれも試料サイズが一度に撮影できる画像範囲に収まったことから、緩衝材ブロックで採用した多段撮影は行っていない。それ以外の条件については、緩衝材ブロックの場合と同様として X 線 CT 撮影を行った。

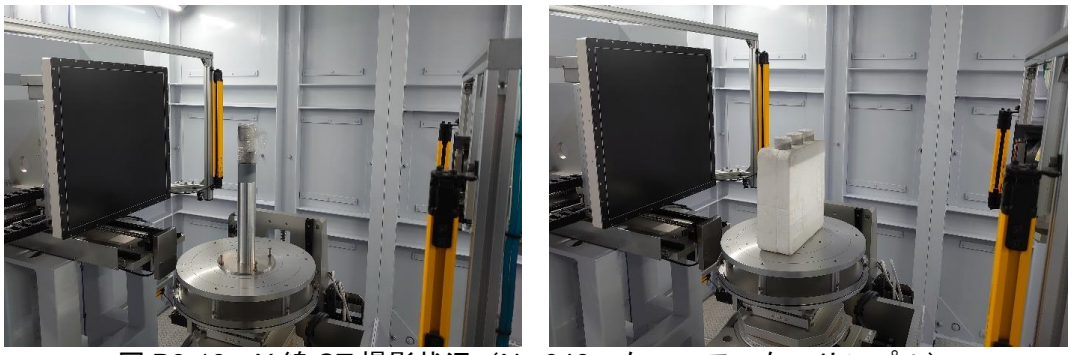
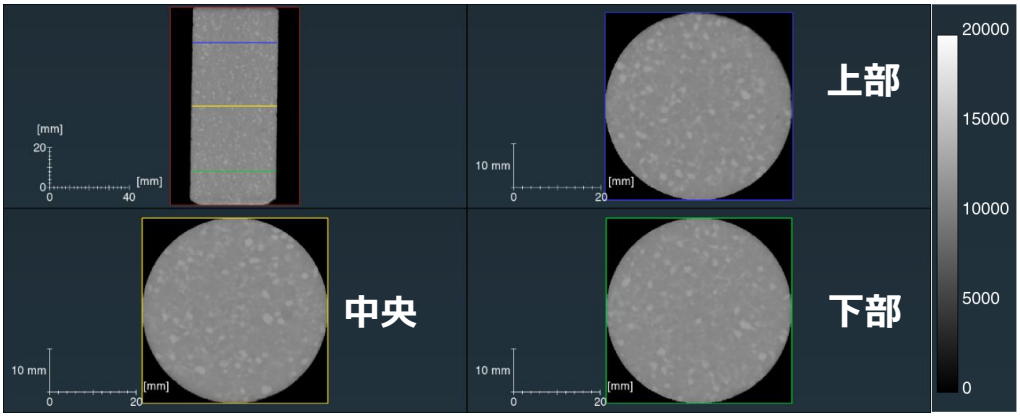
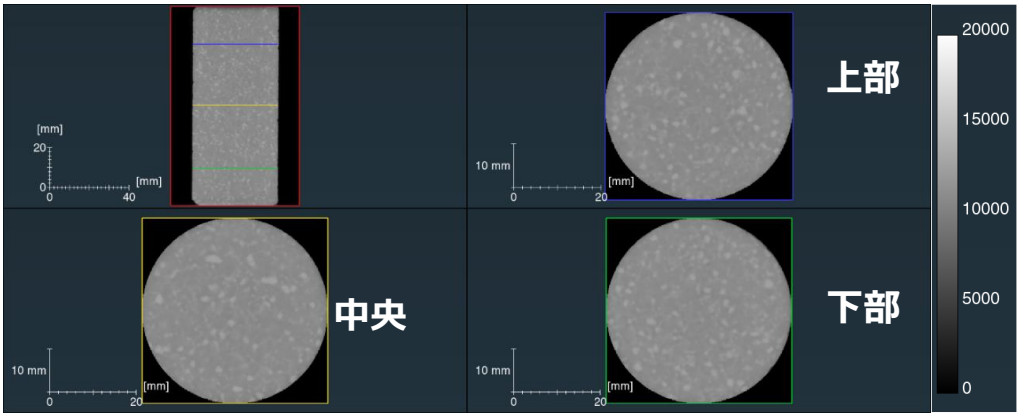


図 B3-13　X 線 CT 撮影状況（No.048、左：コア、右：サンプル）

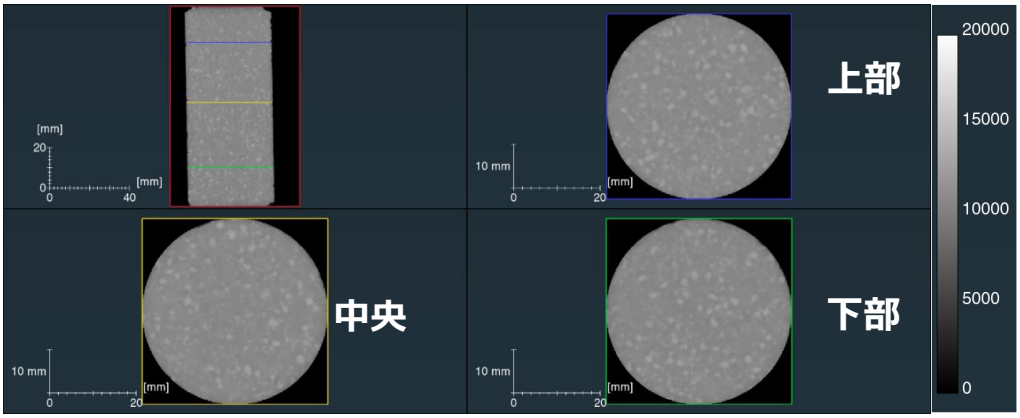
図 B3-14 にコアの CT 画像を、図 B3-15 に分割したサンプルの CT 画像をそれぞれ示す。各コア内で CT 値の偏りは見られず、サンプル採取位置の違いによる CT 値の差異は見られなかった。また、ブロック間での比較においても明確な明度の差は見られなかった。なお、白色の斑点は含有されるケイ砂と見られ、不鮮明ながら緩衝材ブロックの CT 画像にも同種のものが認められた。この点については、密度推定に主眼を置く本業務では踏み込まないものの、含有物の分布状況を調査する手法として X 線 CT の活用性を示唆するものと考えられる。



（a） No.048

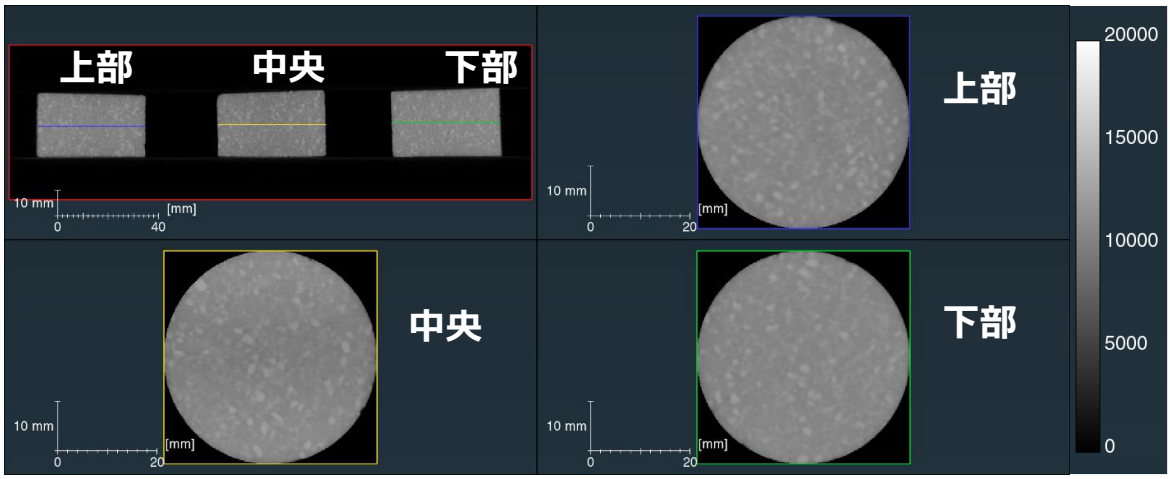


（b） No.049

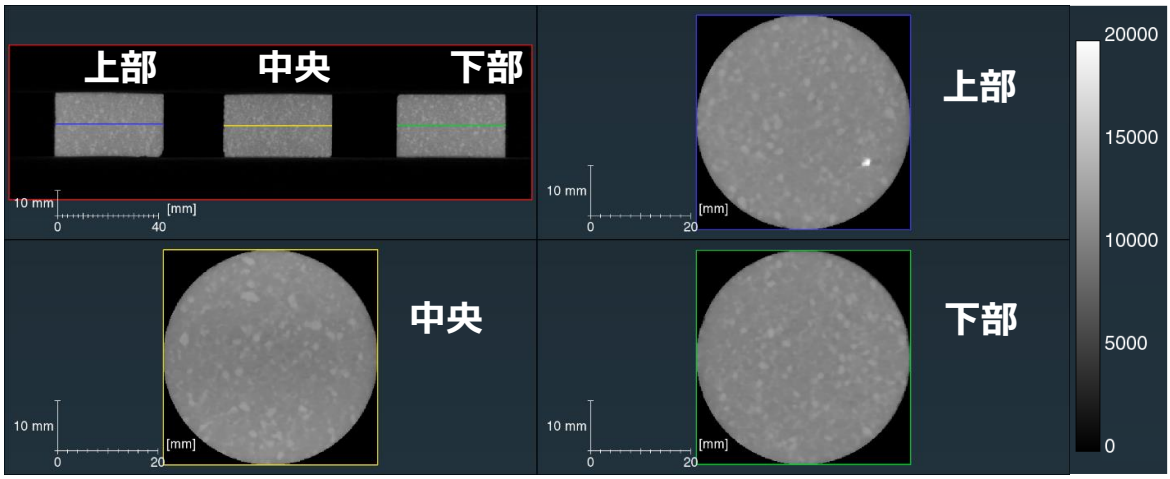


（c） No.050

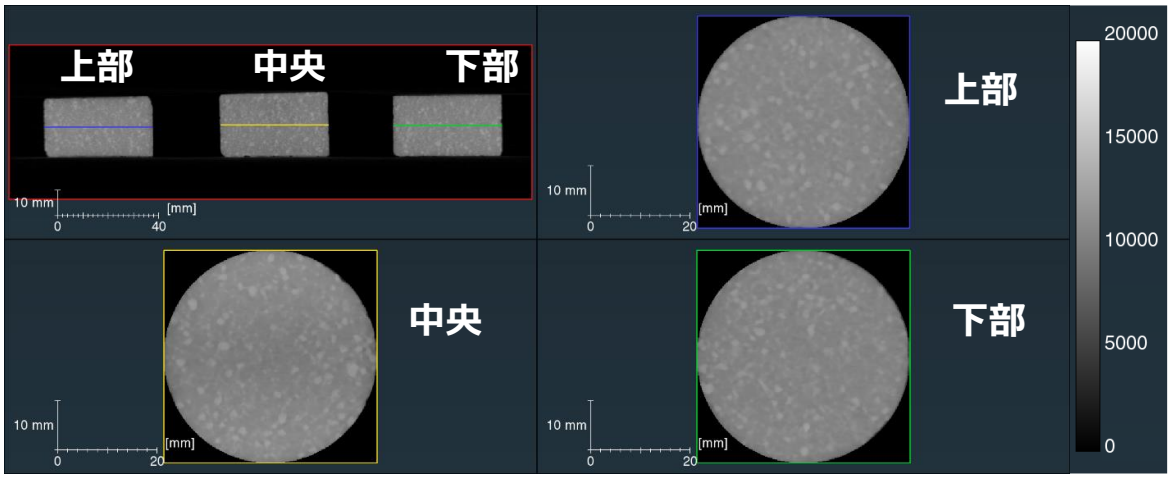
図 B3-14　コアの CT 画像
（左上：鉛直断面、右上・左下・右下：サンプル採取箇所中央深度断面）



（a） No.048



（b） No.049



（c） No.050

図 B3-15　サンプルの CT 画像（左上：鉛直断面、右上・左下・右下：サンプル中央深度断面）

3.2.4 初期密度の推定に関する考察

(1) 緩衝材ブロックの CT 画像を用いた乾燥密度分布の推定について

緩衝材ブロックの撮影で得られた CT 値と乾燥密度の相関を確認するため、緩衝材ブロックの状態での撮影で得られた CT 値のうち、密度確認用サンプルを採取した位置における CT 値を抽出して平均値を求めた。表 B3-8 にサンプル採取位置の平均 CT 値をパラフィン法で測定したサンプルの乾燥密度の実測値と併記する形で示す。また、図 B3-16 には各ブロックにおけるサンプルの乾燥密度とサンプル採取位置の平均 CT 値の深度分布を示す。

サンプル採取位置の平均 CT 値は、全ブロックに共通して上部・下部で 8,000～8,500 程度、中央部では 6,500～7,000 程度の値が得られ、中央部のみ 1,500 程度低い結果となった。一方、乾燥密度については前述の通り、採取位置によらず概ね同程度の値が得られており、中央部のみ低い値となった平均 CT 値の分布傾向とは乖離が見られた。

サンプル採取位置における、ブロックの CT 画像から得られた平均 CT 値と乾燥密度の関係を図 B3-17 に示す。いずれのブロックにおいても平均 CT 値と乾燥密度には明確な相関が見られず、「CT 値と乾燥密度の関連付け」には至らなかった。本結果の範囲では、(5)で述べた通り緩衝材ブロックの CT 画像で見られた濃淡は実際の密度分布を正確に反映しておらず、撮影方法に起因するノイズの影響を受けていると考えられる。すなわち、緩衝材ブロックの X 線 CT 画像を用いた密度分布推定にあたっては、ノイズ影響をさらに抑制できる撮影方法や、CT 画像からノイズを除去するアーチファクト低減処理などを検討する必要があると言える。

表 B3-8　ブロック CT 画像から得られたサンプル採取位置の平均 CT 値とサンプルの乾燥密度

No.	位置	平均 CT 値 ブロック CT から取得	乾燥密度 (Mg/m^3)
048	上部	8,314	1.960
	中央	6,878	1.962
	下部	8,323	1.973
049	上部	8,101	1.937
	中央	6,687	1.959
	下部	8,035	1.978
050	上部	8,196	1.975
	中央	6,724	1.960
	下部	7,987	1.948

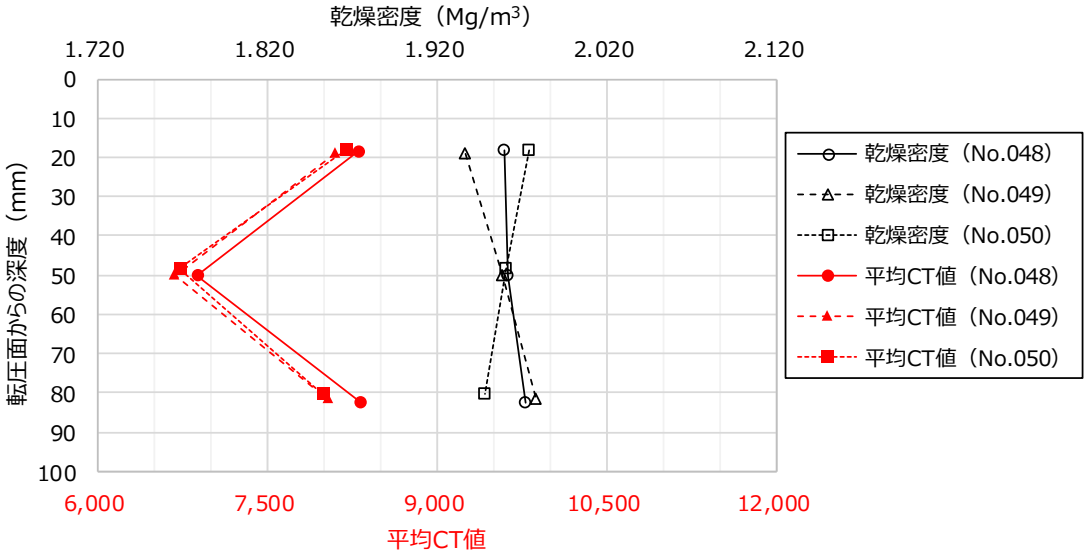


図 B3-16　乾燥密度と平均 CT 値（ブロック画像より）の深度分布
（値はサンプル中央深度にプロット）

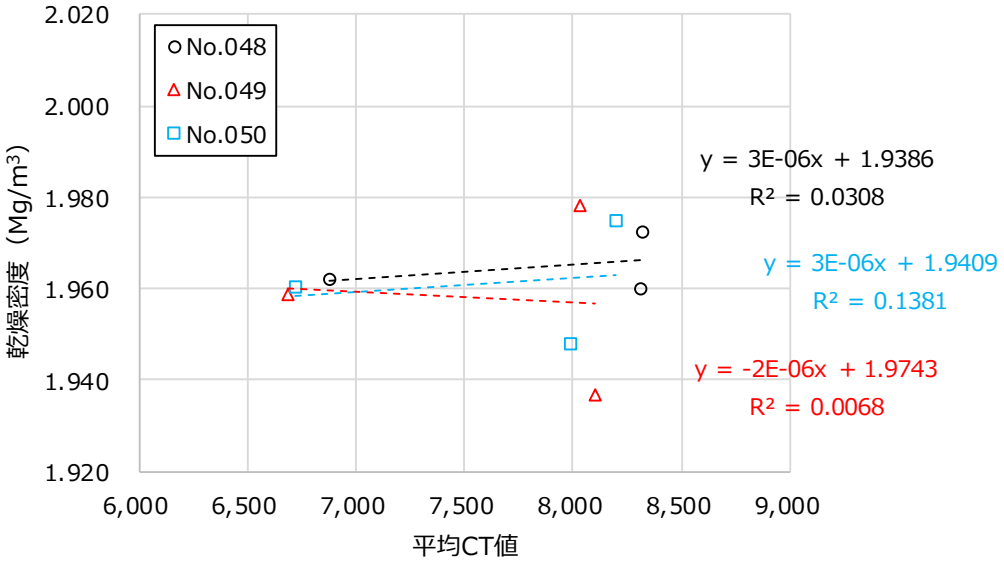


図 B3-17　乾燥密度と平均 CT 値（ブロック画像より）の関係

(2) 採取サンプルの CT 画像を用いた乾燥密度分布の推定について

緩衝材ブロックで得られた CT 値では密度との相関を明確にできなかったため、緩衝材ブロックから採取した分割前のコア及び分割後のサンプルの X 線 CT 撮影で得られた CT 値と乾燥密度の相関を確認することとした。まずは、緩衝材ブロックの場合と同様に、撮影したコアまたはサンプルの CT 画像から密度確認用サンプル採取位置における CT 値を抽出して平均値を求めた。表 B3-9 にサンプル採取位置の平均 CT 値と乾燥密度の実測値の一覧を示す。また、図 B3-18 には各ブロックにおける乾燥密度と平均 CT 値の深度分布を示す。

サンプルに 3 分割する前のコアの CT 画像から抽出した、上部・中部・下部の各サンプル採取位置における平均 CT 値は、対象ブロック・採取位置によらず、いずれも近い値となり、各ブロックにおける最大値と最小値の差はいずれも 200 未満とごくわずかであった。その中で、ブロッ

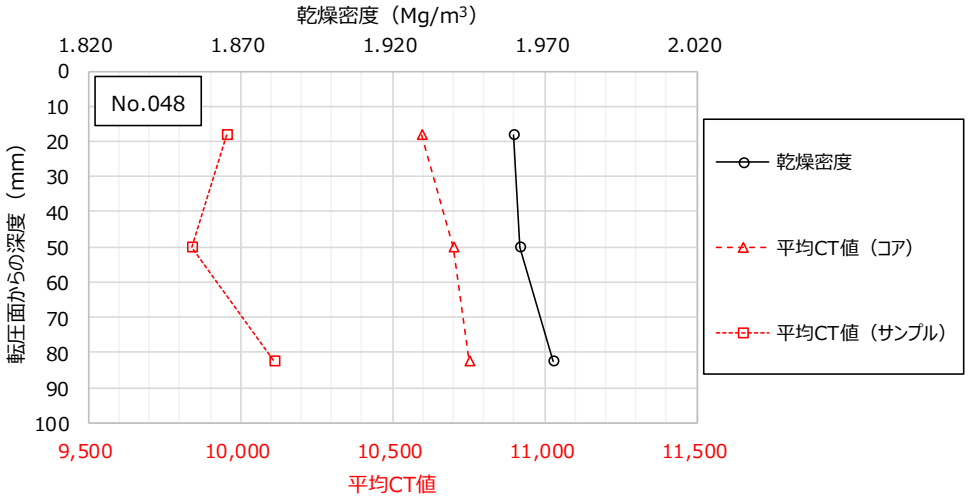
クごとの傾向として、深度方向について No.048・049 では増加する傾向、No.050 では減少する傾向が見られた。これらの傾向は 0 で示した実測の乾燥密度の分布傾向、すなわち各ブロックで確認した乾燥密度がほぼ同程度の値であり、製作時許容誤差（1.92±0.1 Mg/m^3）に対して非常に狭い範囲に集中していたこと、その狭い範囲におけるブロックごとの深度方向の密度の増加・減少の傾向のいずれも一致する結果であった。

一方、3 分割した後の各サンプルの CT 画像から得られた平均 CT 値については、対象ブロック・採取位置によらず、近い値となる傾向ではあったが、コアの場合に比べると最大値と最小値の差が大きくなった（例えば No.049 では 433）。深度方向の増減傾向もコアの場合に比べて乾燥密度との相関が明確でなく、No.049 については乾燥密度とは逆に深度方向に減少する傾向が得られるなど乖離が見られた。

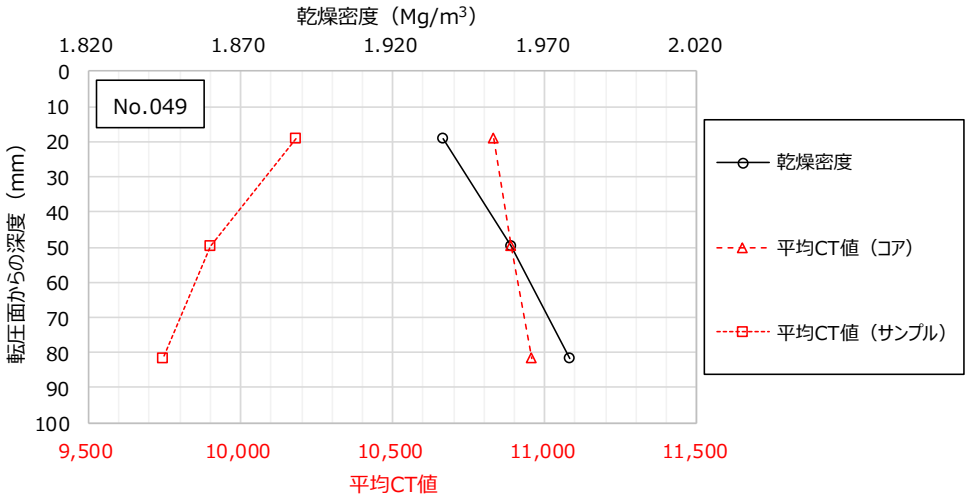
CT 画像から得られたサンプル採取位置の平均 CT 値と乾燥密度の実測値の相関関係について、分割前のコア及び分割後のサンプルのそれぞれについて整理した結果を図 B3-19 に示す。コアの CT 画像から得られた平均 CT 値では、いずれのブロックにおいても乾燥密度と正の相関が確認でき、決定係数も高い値となった。CT 値が高いほど密度が高いという一般的な傾向と合致しており、サンプルの乾燥密度のばらつきが非常に小さいことも考慮すれば、両者の相関は比較的良好と考えられ、実際の乾燥密度を反映した正しい CT 値が得られているものと推察される。一方で、サンプルの CT 画像から得られた平均 CT 値では、No.049 で負の相関となったほか、正の相関が得られた No.048・050 においてもコアの場合に比べて決定係数がやや劣る結果となった。両者の差については正確な要因の特定に至っていないものの、X 線 CT 撮影時の配置の違い（コア：試料ステージ中央に配置、サンプル：3 つを並べて配置）による X 線透過距離の相違などが影響している可能性が考えられる。

表 B3-9　サンプル位置ごとの乾燥密度実測値とコア／サンプル CT 画像から得られた平均 CT 値

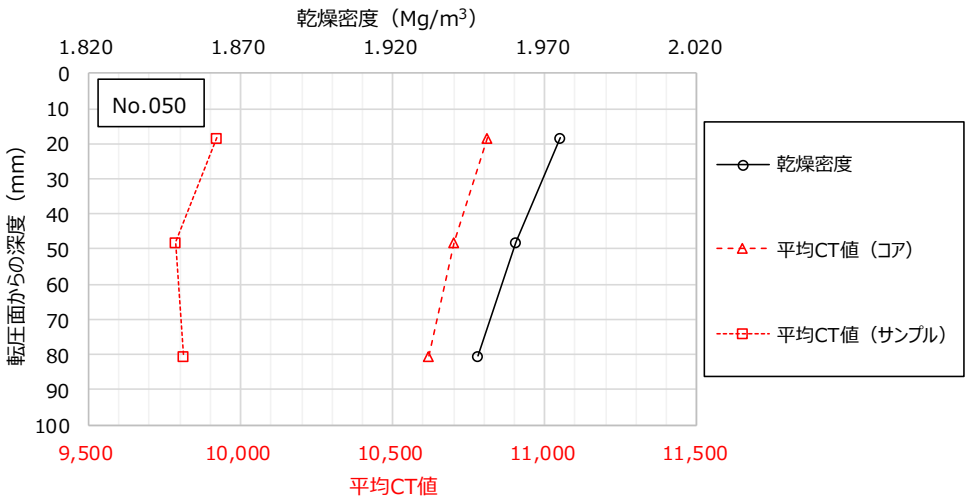
No.	位置	平均 CT 値		乾燥密度 (Mg/m^3)
		コア CT から取得	サンプル CT から取得	
048	上部	10,598	9,955	1.960
	中央	10,697	9,841	1.962
	下部	10,751	10,110	1.973
049	上部	10,831	10,179	1.937
	中央	10,887	9,903	1.959
	下部	10,959	9,746	1.978
050	上部	10,812	9,924	1.975
	中央	10,702	9,785	1.960
	下部	10,617	9,811	1.948



（a）No.048

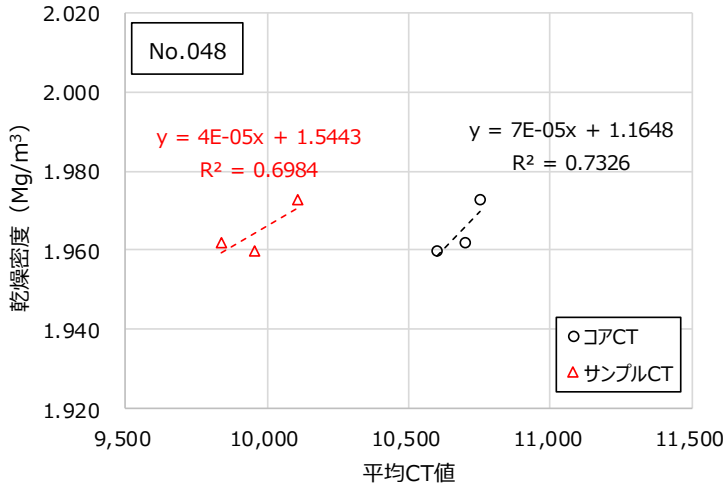


（b）No.049

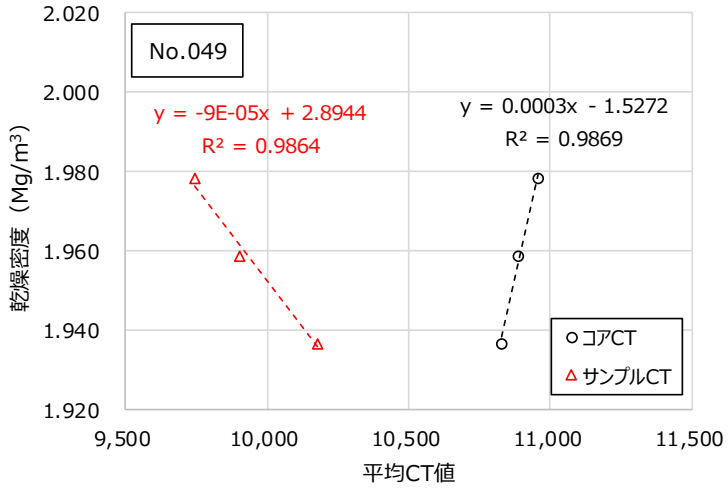


（c）No.050

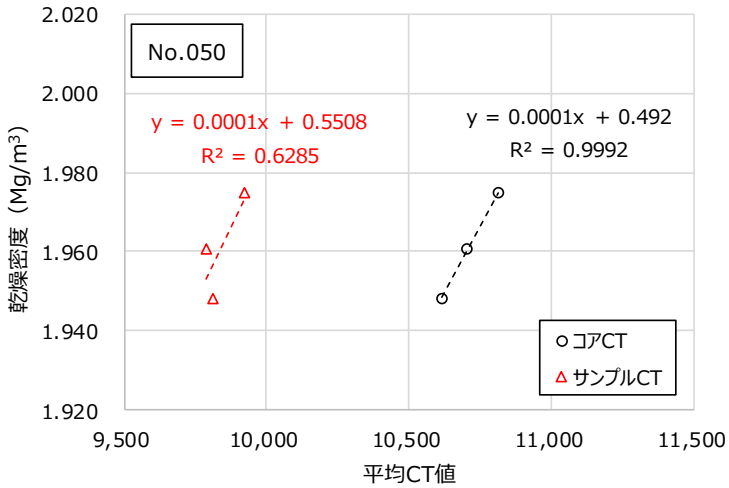
図 B3-18　乾燥密度と平均 CT 値（コア及びサンプル画像より）の深度分布



（a） No.048



（b） No.049



（c） No.050

図 B3-19　乾燥密度と平均 CT 値（コア及びサンプル画像より）の関係

図 B3-20 に図 B3-19 で示した乾燥密度と平均 CT 値の関係を同一の図に整理した結果を示す。本業務では、コア及びサンプルといった被写体の違いによらず、ブロック間で共通した関係を特定することが望ましいが、同図から明らかなように、平均 CT 値と乾燥密度の関係はブロックごとに個別の相関を示す結果となった。

X 線 CT 撮影では、X 線源や検出器などの装置に関連する要因のほか、撮影時の条件・環境、事後のデータ処理方法などによっても測定誤差を生じることが知られており、それらを抑制するための種々のキャリブレーションが行われることが一般的である。今回の検討でも一般的に行われるキャリブレーションを実施したが、結果的に非常に狭い範囲の密度が測定対象であったため、十分な測定精度を確保できなかったと言える。

今回の結果を踏まえた今後の課題としては、現状の撮影方法における再現性の確認と測定精度の把握がまず考えられる。特に CT 値から他の物理量を求めようとする場合には、同一の被写体に複数回撮影を行うなどして得られる CT 画像の再現性を把握し、満足できる精度の範囲で測定を行うことが重要となる。また、測定精度の向上に向けた課題としては、既存のキャリブレーションの精度向上もしくは新たなキャリブレーションの追加適用などが挙げられる。

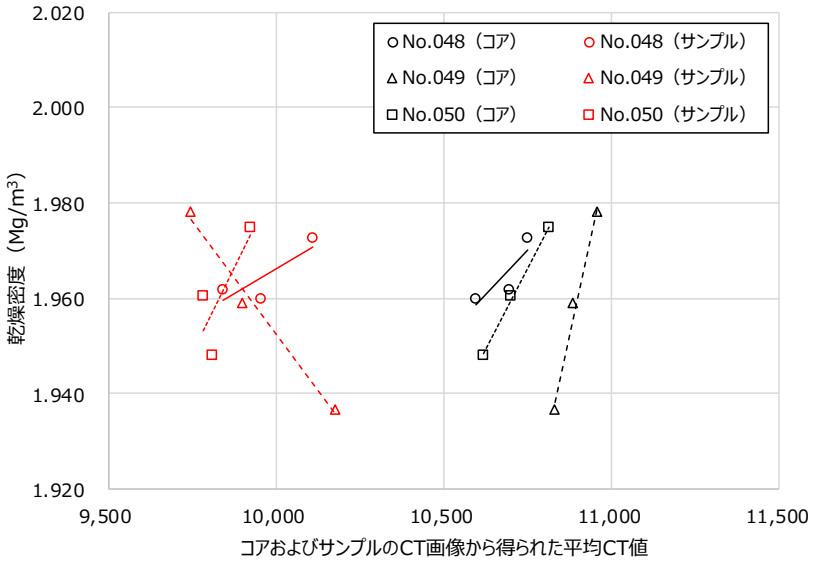


図 B3-20　乾燥密度と平均 CT 値（コア及びサンプル画像より）の関係（同一の図に整理）

最後に、CT 画像を用いた密度分布の推定・描画事例を示す。ここでは、CT 値と乾燥密度の相関が最も良好であった No.050 の分割前コアの CT 画像（図 B3-14 (c)）について、図 B3-19 (c) で確認された平均 CT 値と乾燥密度の相関を用いて CT 値を密度に単純変換し、密度分布として再描画した画像を示す（図 B3-21）。前項(3)採取サンプルの X 線 CT 撮影で言及したケイ砂と見られる斑点部分は、周辺に比べて高密度の材料として描画されているが、数値としては一般的な土粒子の密度 2.6 Mg/m^3 に比べて過小である。要因の一つとして、部分容積効果（肥後ら, 2017）が考えられる。すなわち、単一の Voxel にケイ砂とその他の材料が含まれた箇所では、CT 値・密度ともに平均的な値となるため、一般的な土粒子密度に対して低い値となったと考えられる。

また、CT 値の密度への変換に用いた相関は、複数の物質が混在したバルクとしての平均密度及び平均 CT 値の関係であるが、CT 値を密度に単純変換する場合は、この平均的な CT 値－密度関係と各構成材料の CT 値－密度関係が厳密に一致している必要がある。CT 画像を用いた密度分布

推定にあたっては、構成材料ごとに CT 値と密度の関係を確認し、平均的な CT 値－密度関係との乖離がある場合は必要に応じて補正を行うなどの対応が必要と考えられる。

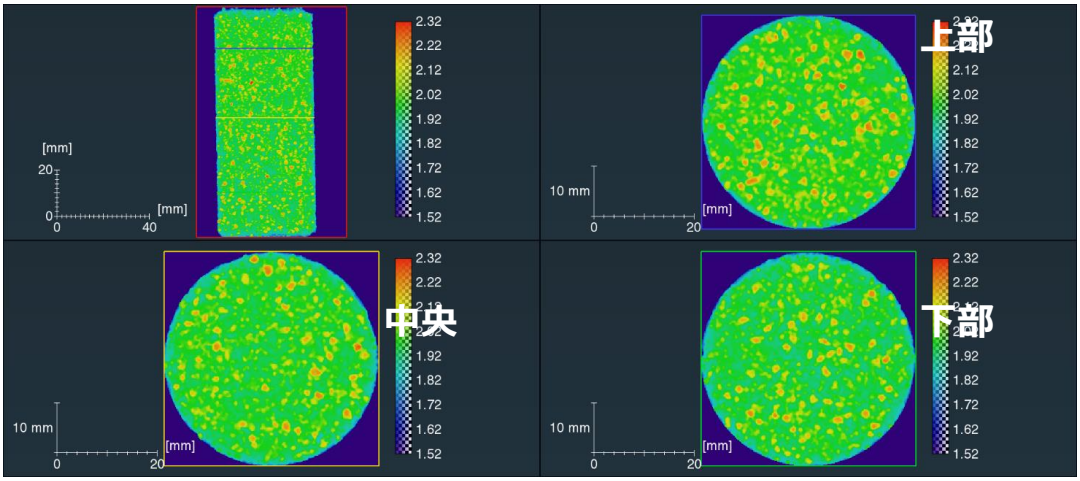


図 B3-21　コアの CT 画像に基づく密度分布
（一例として、No.050 から採取した分割前のコアについて）

(3) まとめ

緩衝材ブロックの品質管理として、初期密度を X 線 CT で計測することの適用性の確認を目的に、緩衝材ブロック及び採取サンプルを対象として計測を実施した。

密度の実測値については、採取サンプルで実測された密度はいずれも近い値であり、少なくとも緩衝材ブロック中央部では加圧方向の密度の偏りがなく、またブロック間においても差異は確認されなかった。これらの結果から、緩衝材ブロックは許容誤差の範囲内で密度の偏りなく製作されているものと判断される。

これに対し、緩衝材ブロックの CT 画像から密度分布を推定する試みについては、CT 画像の取得には成功したもののノイズ影響を十分に排除できず、「CT 値と乾燥密度の関連付け」に足る結果を得られなかったことから密度分布の推定を見送った。ただし、採取コア及びそれを分割したサンプルのように寸法を低減し、ステージ中央に配した被写体の CT 画像ではノイズ影響を抑制することができ、検討の余地は残されているものの「CT 値と乾燥密度の関連付け」によって密度分布を推定することができた。

以下に X 線 CT 撮影による緩衝材ブロックの密度推定における課題に対して、今回の検討で得られた知見と今後の展望を示す。

1) 緩衝材ブロックの X 線 CT 画像の取得

供試体が大型かつ高密度であることから透過 X 線を検出できず CT 画像が得られない懸念があったが、高出力マイクロフォーカス X 線 CT 装置「ScanXmate-RD300WSSS900」を用いた高出力条件（300 kV-200 μA）での撮影により、X 線 CT 画像を得ることができた。今回の検討では着目しなかったが、得られた CT 画像はケイ砂粒子の判別が可能な解像度を満足しており、緩衝材ブロック内部の構成材料の偏りなども評価可能と考えられる。

2) 取得した画像の CT 値がノイズなどの影響

供試体が大型・高密度かつ特異な形状でノイズが発生する懸念があったことから、X 線管出力などの撮影条件や供試体の配置を調整し、さらに 3 mm 厚の銅板フィルタを使用するなどのノイズ抑制対策を

講じたが、結果として密度分布の推定が可能になるレベルまではノイズの影響が解消されなかった。今回生じたノイズはビームハードニングに起因するものが卓越していると考えられが、密度分布の推定に向けては、さらにノイズを抑制する撮影方法や CT 画像からノイズを除去するアーチファクト低減処理などを検討する余地がある。

3) X 線 CT 画像と乾燥密度の相関

緩衝材ブロックの CT 画像から得られた CT 値は、ノイズの影響によって実態の密度を反映したものとならず、乾燥密度との相関を確認するには至らなかった。一方で、緩衝材ブロックから採取した分割前のコア及び分割後のサンプルの CT 画像では、得られた CT 値と乾燥密度に一定の相関が確認された。測定の再現性や測定精度の把握・向上、構成材料ごとの CT 値と密度の相関確認などに検討余地を残すものの、コアサイズ以下の被写体寸法においては CT 画像に基づく密度分布推定ができる可能性が示された。

参考文献

赤井浩一, 大西有三, 西垣誠, 有限要素法による飽和 - 不飽和浸透流の解析, 土木学会論文集, No.264, pp.87-96, 1977.

肥後陽介, 高野大樹, 椋木俊文, X 線 CT から見る土質力学, 2.X 線 CT の概要と研究動向, 地盤工学会誌, Vol. 65, No.10, pp.41-48, 2017.

核燃料サイクル開発機構, TRU廃棄物処分におけるガス発生・移行解析（研究報告）, JNC TN8400 2005-026, 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2 地層処分の工学技術, JNC TN1400 99-22, 1999.

国土技術研究センター, 河川堤防の構造検討の手引き（改訂版）, 2012.

西垣誠, 菱谷智幸, 橋本学, 河野伊一郎, 飽和・不飽和領域における物質移動を伴う密度依存地下水流の数値解析手法に関する研究, 土木学会論文集, No.511, III-30, pp.135-144, 1995.

産業技術総合研究所, 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, 電力中央研究所, 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 沿岸部処分システム高度化開発 報告書, 2019.

杉田裕, 藤田朝雄, 棚井憲治, 長谷川宏, 古市光昭, 奥津一夫, 三浦一彦, 地層処分場における地下施設の埋め戻し, JNC TN8400 99-039, 1999.