令和3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4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
1.2	実旅	計画
1.	2.1	ニアフィールド環境変遷に係る個別評価技術の開発
1.	2.2	ニアフィールド環境変遷を考慮した核種移行評価技術の開発1-7
1.	2.3	ニアフィールド性能の総合評価技術開発1-9
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1-10
参考	文献	1-13

第2章	ニアフィ	ィール	ド環境変遷に	係ろ	個別評価持	ち術の開る
- 另 - 4 早	-1/1	$-\nu$	ト垛児没麿に	ホン	间方杆侧巧	て1小 Vノ用・

2.1 目的と5か年の計画
2.1.1 目的
2.1.2 5か年の計画
2.2 オーバーパックの腐食挙動評価
2.2.1 背景と目的
2.2.2 実施内容
(1) 原位置試験試料等の調査、分析 ······2-3
(2) 広範な環境条件での室内試験
2.2.3 これまでの成果と今後の課題
(1) 原位置試験試料等の調査・分析
(2) 広範な環境条件での室内試験
2.3 緩衝材の変質挙動評価
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
(2) 実施内容
(3) これまでの成果と今後の課題
2.3.2 セメンテーションによる緩衝材の変質
(1) 背景と目的
(2) 実施内容
(3) これまでの成果と今後の課題
2.4 ニアフィールド THMC 連成挙動評価
2.4.1 過渡期の THM 連成挙動に関する現象解析モデル開発
(1) 背景と目的
(2) 実施内容
(3) これまでの成果と今後の課題
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

(2) 実施内容
(3) これまでの成果と今後の課題
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2-13
(1) 背景と目的
(2) 実施内容
(3) これまでの成果と今後の課題
 2.5 母岩中アルカリプルーム反応輸送挙動評価
2.5.1 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
(1) 背景と目的
(2) 実施内容
(3) これまでの成果と今後の課題
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2-14
(1) 背景と目的
(2) 実施内容
(3) これまでの成果と今後の課題
2.6 流出現象等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
(2) 目的
2.6.2 実施内容
(1) 流出を抑制する工学的対策の具体化
(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
2.6.3 これまでの成果と今後の課題
(1) 流出を抑制する工学的対策の具体化
(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
参考文献

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	
3.1.1 目的	3-1
3.1.2 5か年の計画	
(1) ニアフィールド岩盤中の核種移行評価技術の開発	
(2) システム変遷等を考慮した核種移行解析モデル/データベースの開発	
(3) 有機物・微生物の影響評価技術の開発	
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	
(1) 結晶質岩中の核種移行評価技術の開発	
(2) 堆積岩中の核種移行評価技術の開発	

3.2.3 これまでの成果と今後の課題	
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	
(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	
(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	
(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	
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	
(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3-71
(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	
3.3.3 これまでの成果と今後の課題	
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	
(2) 実施内容	
(3) 核種 ・ 有機物 ・ 岩三元系における核種収着モデルの開発	
(4) これまでの成果と今後の課題	
3.4.2 微生物影響評価技術の開発	
(1) 背景と目的	
(2) 実施内容	
(3) これまでの成果と今後の課題	
参考文献	3-151

第4里 ニノノイールト件能の総合評価技術開	第4章	章 ニアフィ	レール	ド性能の総	合評	価技術	開
-----------------------	-----	--------	-----	-------	----	-----	---

4.1 目的と5か年の計画····································	ŀ- 1
4.1.1 目的	ŀ- 1
4.1.2 5 か年の計画 ····································	ŀ- 1
4.2 現象解析モデルの統合化技術の構築	1-2
4.2.1 背景と目的	1-2
4.2.2 実施内容	1-3
(1) 水理・物質輸送 ・ 化学反応の連成解析コードの検証に関わる検討4	1- 3
(2) 水理・物質輸送 ・ 化学反応の連成解析コードを用いたモデルの	
確証・信頼性向上に関わる検討4-	17
4.2.3 これまでの成果と今後の課題4-2	23
4.3 ニアフィールド核種移行評価技術の開発	24
4.3.1 背景と目的	24
4.3.2 実施内容	25
(1) 核種移行解析におけるメッシュ依存性に関わる予察的検討4-	25
(2) 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-	26

(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手法及び解析結果4-30
(4) 他のサブプロジェクト (SP) との連携の観点からの情報整理4·3
(5) SP3 から他のサブプロジェクト(SP)へフィードバックを図るためのフロー案の検討4·3
4.3.3 これまでの成果と今後の課題4.30
参考文献 ······4·37

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4か年における主な成果5-1
5.2	おわりに

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
第2章 ニン	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
図 2.2-2	各緩衝材ブロック中の各種センサー類の設置状況
図 2.2-3	腐食センサーの炭素鋼電極表面に付着していた腐食生成物のX線回折結果2-5
図 2.2-4	腐食センサーの設置位置と同定された腐食生成物
図 2.2-5	釜石鉱山で実施された粘土充填・熱負荷試験の
	模式図と解体時の観察された状態
図 2.2-6	横置き・PEM 方式で想定される不均一状態(その 1)
図 2.2-7	横置き・PEM 方式で想定される不均一状態(その 2)
図 2.2-8	竪置き・ブロック方式で想定される不均一状態
図 2.2-9	月布ベントナイト鉱山から採取した原鉱石の写真
図 2.2-10	月布ベントナイト原鉱石の細孔径分布測定結果
図 2.2-11	月布ベントナイト原鉱石試料中の好気性生菌数
図 2.2-12	原鉱石、市販ベントナイト、緩衝材ブロックなどから抽出した DNA 濃度2-14
図 2.2-13	16S rRNA 遺伝子に基づく原鉱石、市販ベントナイト、
	緩衝材ブロック内の微生物群集組成
図 2.2-14	チタン製カラムの模式図
図 2.2-15	気密容器の外観図
図 2.2-16	腐食試験後の試験片の外観
図 2.2-17	試験後試験片のX線回折結果
図 2.2-18	平均腐食量の経時変化
図 2.2-19	腐食速度に及ぼす温度の影響
図 2.2-20	水素抽出曲線の測定結果
図 2.2-21	長期水素吸収試験結果
図 2.2-22	試験後試験片の外観
図 2.2-23	段階的に温度を変化させた試験後試料の外観
図 2.2-24	試験片表面のラマン分光分析結果
図 2.2-25	腐食速度と温度の関係
図 2.3-1	比恵遺跡出土鉄製品
図 2.3-2	平城宮跡出土鉄製品
図 2.3-3	比恵遺跡における炭素鋼プローブ腐食速度測定状況
図 2.3-4	平城宮跡鉄斧出土地点近傍の地下水組成による Eh-pH 図
$ extsf{X}$ 2.3-5	比恵遺跡から出土した板状鉄製品表面の錆層の二値化像
図 2.3-6	平城宮跡出土鉄斧の剥離片断面試料 SEM 分析結果
	(赤枠部が高倍率観察領域)
図 2.3-7	平城宮跡出土鉄斧の剥離片断面試料 SEM 分析結果
	(中央の粒子が Mg 含有粒子)

図 2.3-8	層状ケイ酸塩鉱物周辺の TEM 分析結果
図 2.3-9	分析に供したベントナイト試料の外観写真2·39
図 2.3-10	各試料の光学顕微鏡写真
図 2.3-11	各試料の微小部蛍光 X 線分析による元素マッピング分析結果と
	Fe 強度プロファイル
図 2.3-12	各試料の透過X線強度マッピング分析結果と強度プロファイル
図 2.3-13	腐食センサー接触試料の SEM 分析結果
図 2.3-14	試料 B の SEM 分析結果
図 2.3-15	試料 D の SEM 分析結果
図 2.3-16	腐食センサー接触試料の高倍率 SEM 分析による反射電子像と元素合成画像 …2-45
図 2.3-17	試料 B の高倍率 SEM 分析による反射電子像と元素合成画像
図 2.3-18	試料 D の高倍率 SEM 分析による反射電子像と元素合成画像
図 2.3-19	試料 B の TEM 分析結果
図 2.3-20	試料 D の TEM 分析結果
図 2.3-21	ベントナイト原鉱石及び再構成試料の典型的組織
図 2.3-22	画像解析による空隙・鉱物組成の定量方法のフローチャート2-57
図 2.3-23	輝度ヒストグラムの閾値設定
図 2.3-24	各鉱物の識別1:輝度による分離
図 2.3-25	各ベントナイト原鉱石・再構成試料の SEM 組成像の輝度ヒストグラム2-61
図 2.3-26	各鉱物の識別2:サイズによる分離
図 2.3-27	各鉱物の識別3:形状による分離
図 2.3-28	熱履歴を受けたベントナイト供試体の SEM 反射電子像
図 2.3-29	KV1-0-1H(乾燥前飽和度約 100 %から加熱乾燥)の元素分布
図 2.3-30	KV1-1-1H(乾燥前飽和度約 20 %から加熱乾燥)の元素分布
図 2.3-31	1番層原鉱石の微細組織
図 2.3-32	1番層原鉱石の元素分布
図 2.3-33	31 番層原鉱石の微細組織
図 2.3-34	31 番層原鉱石の元素分布
図 2.3-35	29 番層再構成試料の微細組織
図 2.3-36	観察用ベントナイト試料の前処理方法の流れ
図 2.3-37	樹脂置換試料
図 2.3-38	樹脂置換ベントナイト試料の TEM 観察結果
図 2.3-39	膨潤状態の観察
図 2.3-40	累積画像数に応じた空隙率の推移
図 2.3-41	番層間での鉱物組成・空隙率の比較
図 2.3-42	膨潤圧の経時変化
図 2.3-43	透水係数の時間変化
図 2.3-44	粉末 XRD パターン
図 2.3-45	粘土鉱物 060 反射付近の XRD パターン
図 2.3-46	定方位試料(クニゲル V1)の湿度制御による底面反射の変化2-87
図 2.3-47	湿度変化に伴う通水実験試料の底面間隔の変化
図 2.3-48	安定相図(70℃)(a)Si-H ₂ O 系及び(b)Mg-Si-H ₂ O 系と
	アウトプット溶液データ

図 2.4-1	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	2-94
図 2.4-2	試験装置概略図	2-95
図 2.4-3	浸潤時間と浸潤量の関係	2-96
図 2.4-4	浸潤距離と含水比の関係	2-97
図 2.4-5	1.49 %NaCl 水溶液条件における含水比分布の時間変化	2-97
図 2.4-6	NaCl 濃度と固有透過度の関係	2-99
図 2.4-7	緩衝材の浸潤試験を対象とした浸潤量の再現解析結果	2-101
図 2.4-8	同一浸潤量での間隙水飽和度分布の比較	2-102
図 2.4-9	緩衝材の浸潤試験を対象とした水分分布の再現解析結果	2-102
図 2.4-10	鉛直方向断面の解析メッシュ	2-106
図 2.4-11	水平方向断面の解析メッシュ	2-106
図 2.4-12	境界条件	2-107
図 2.4-13	埋め戻し材の全応力の経時変化	······2-111
図 2.4-14	鉛直断面での緩衝材の全応力の経時変化	2-112
図 2.4-15	CASE1-1の体積ひずみ分布と偏差ひずみ分布	2-113
図 2.4-16	鉛直断面での緩衝材の変位の経時変化	······2-114
図 2.4-17	水平断面での緩衝材の全応力の経時変化・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-115
図 2.4-18	膨潤圧の経時変化	2-119
図 2.4-19	湿潤密度分布の経時変化	2-120
図 2.4-20	湿潤密度の平均値の経時変化	······2-121
図 2.4-21	飽和度の平均値の経時変化	······2-121
図 2.4-22	供試体高さごとの湿潤密度の時間変化	2-123
図 2.4-23	膨潤圧試験のメッシュ図	······2-124
図 2.4-24	標準圧密試験及び圧密非排水三軸圧縮(CU)試験の再現解析結果…	2-125
図 2.4-25	THAMES による解析結果	2-126
図 2.4-26	MACBECE による膨潤圧の経時変化	2-127
図 2.4-27	湿潤密度分布の時間変化の比較	2-128
図 2.4-28	要素1の湿潤密度の時間変化	2-128
図 2.4-29	要素ごとの体積ひずみの時間変化	2-129
図 2.4-30	緩衝材の膨潤圧測定に用いた試験セルの概略図	2-130
図 2.4-31	caseAの膨潤圧の時間変化	······2-132
図 2.4-32	caseBの膨潤圧の時間変化	······2-133
図 2.4-33	caseC (C-01、C-02) 及び caseD (D-01) の膨潤圧の時間変化	······2-133
図 2.4-34	caseEの膨潤圧の時間変化	······2-134
図 2.4-35	caseFの膨潤圧の時間変化	······2-134
図 2.4-36	caseG の膨潤圧の時間変化	2-135
図 2.4-37	温度と膨潤圧の関係	2-136
図 2.4-38	温度制御が可能な水槽を用いた圧密試験装置	2-136
図 2.4-39	水和エネルギーモデル	2-139
図 2.4-40	振動成分を加えた水和エネルギーモデルを用いた解析結果例	
	化学ポテンシャル(µ)による膨潤状態の違い	2-140
図 2.4-41	振動成分を加えた水和エネルギーモデルを用いた解析結果例	
	化学ポテンシャル (μ) による粘土含水系の組織構造の違い	2-140

$\boxtimes 2.5$ -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	2-144
図 2.5-2	岩石薄片の作成位置を示す概念図	2-145
図 2.5-3	採取したコア試料の一覧表、偏光顕微鏡写真、X 線分析顕微鏡による	
	Ca マッピングの結果、及び観察結果のまとめ	2-146
図 2.5-4	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	2-150
図 2.5-5	亀裂の状態変遷に影響を与える主なプロセスの概念	2-151
図 2.5-6	亀裂を含む岩盤の状態変遷解析における解析体系の概念図	2-152
図 2.5-7	亀裂表面からの距離に応じた岩盤マトリクス中での間隙率及び	
	構成鉱物の体積割合の変化・・・・・・	2-156
図 2.5-8	岩盤マトリクス中の間隙水の pH 及び主要元素の濃度分布(4.8 年後)	2-157
図 2.5-9	亀裂の透水性及び亀裂中を入れ替わった水の量(回数)の経時変化	2-157
図 2.5-10	岩盤マトリクス中の間隙率の経時変化	2-158
図 2.5-11	亀裂の開口が継続する/閉塞に向かう場合の条件の概略整理	2-158
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	2-162
図 2.6-2	水位差に対する流出の有無	······2 - 164
図 2.6-3	原位置試験における緩衝材の流出挙動	2-168
図 2.6-4	水頭差制御流出試験の装置概要・・・・・	2-169
図 2.6-5	水頭差制御流出試験の試験状況	2-169
図 2.6-6	水頭差制御流出試験の定点撮影	2-171
図 2.6-7	ケースによる膨潤挙動の相違	2-171
図 2.6-8	排水流量及び膨潤圧の経時変化・・・・・	2-174
図 2.6-9	流出量と流出濃度の経時変化	2-175
図 2.6-10	ベントナイト流出量(乾燥質量)と総流量の関係	2-176
図 2.6-11	閉塞日数と膨潤圧を感知するまでに要した日数	
	及び閉塞時の膨潤圧との関係	2-177
図 2.6-12	解体結果	2-178
🗵 2.6-13	膨潤挙動確認試験の試験器及び試験状況	2-181
図 2.6-14	測定時の状態	2-181
図 2.6-15	GV 値による密度の検量線	······2 - 183
図 2.6-16	X線CTのグレースケール画像	2-184
図 2.6-17	X 線 CT による乾燥密度分布画像(DW200519)	2-184
図 2.6-18	DW200519の乾燥密度変化の推移	2-185
図 2.6-19	X線CTによる乾燥密度分布の比較(8時間後)	2-186
図 2.6-20	流出試験の装置概要・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-187
図 2.6-21	流出試験の定点撮影・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2-188
図 2.6-22	ケイ砂を充填したケースの水頭差制御試験及び流量制御試験結果	2-189
図 2.6-23	ケイ砂を充填したケースの膨潤圧と流量の経時変化	2-190
図 2.6-24	ケイ砂を充填したケースの流出量と流出濃度の経時変化	2-190
図 2.6-25	充填したケイ砂の解体状況(水位差一定ケース)	2-191
図 2.6-26	ケイ砂除去後の供試体上端面の状況(水位差一定ケース)	2-192
図 2.6-27	充填したケイ砂の解体状況(流量制御ケース)	2-192
図 2.6-28	ケイ砂除去後の供試体上端面の状況(流量制御ケース)	2-192

🗵 2.6-29	X線CTのグレースケール画像(DW20SS16)
図 2.6-30	X線CTによる乾燥密度分布画像(DW20SS16)
図 2.6-31	平成 31 年度 地下での流出試験(隙間ケイ砂オプション)
	緩衝材流出濃度と排水流量の経時変化
図 2.6-32	平成 31 年度 地下での流出試験(隙間ケイ砂オプション)
	側面土圧と排水流量の経時変化
🗵 2.6-33	平成 31 年度 地下での流出試験(隙間ケイ砂オプション)
	側面土圧と孔内湧水量の関係
図 2.6-34	実施場所(左)及び加圧試験の試験系概念図(右)
図 2.6-35	孔壁面の観察結果(試験孔 1)
図 2.6-36	孔壁面の観察結果(試験孔 2)
図 2.6-37	加圧試験ケース
図 2.6-38	パッカーの設置
図 2.6-39	土圧計の設置状況
図 2.6-40	ケイ砂の充填状況(左)及びケイ砂の流出抑制対策(右)
図 2.6-41	加圧試験装置の配置概念図
図 2.6-42	平均湧水量及び平均拡張圧算出の概念図
図 2.6-43	パッカー拡張圧に対する土圧の経時変化(ケース 2)
図 2.6-44	パッカー拡張圧に対する土圧の経時変化(ケース 5)
図 2.6-45	試験孔 2 P-Q グラフ (ケース1から3)
図 2.6-46	試験孔1 P-Q グラフ (ケース4から6)
図 2.6-47	試験孔2 ケース1のP-Q グラフと
	平成 31 年度の地下での流出試験結果との比較
図 2.6-48	亀裂の開口による湧水量増加の考察(試験孔2周辺の環境)2-207
図 2.6-49	ケイ砂充填オプション試験系概念図
図 2.6-50	土圧計配置図(左)、緩衝材ブロック最上面の土圧計設置状況(右)2-210
図 2.6-51	土圧計設置位置(側面図)
図 2.6-52	試験開始前の地下水位
図 2.6-53	試験体定置状況 ····································
図 2.6-54	小型セルの概要
$\boxtimes 2.6-55$	工学規模流出試験セル
図 2.6-56	総通水量と流出量の関係
$\boxtimes 2.6-57$	原位置ペレット充填による流出試験の試験設備
図 2.6-58	ペレット充填装置 プロトタイプ
図 2.6-59	緩衝材ブロックの設置手順
図 2.6-60	室内試験による緩衝材流出量
図 2.6-61	緩衝材の飽和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…2-222
図 2.6-62	小型セル試験の結果
図 2.6-63	小型セル試験に関する解析結果
図 2.6-64	一次元自由膨潤・要素応答シミュレーションの結果
図 2.6-65	解析結果(パラメータ調整後):膨潤量と軸圧の変化
図 2.6-66	解析結果(パラメータ調整後)
図 2.6-67	試験装置の概要(断面)

図 2.6-68	ケース 1-1b の膨潤圧の経時変化	2-230
図 2.6-69	ケース 1-1c の膨潤圧の経時変化	2-230
図 2.6-70	ケース 1-2 の膨潤圧の経時変化	2-230
図 2.6-71	ケース 2 の膨潤圧の経時変化	2-230
図 2.6-72	ケース 2-1 の膨潤圧の経時変化	······2 - 231
🗵 2.6-73	ケース 2-2 の膨潤圧の経時変化	······2 - 231
図 2.6-74	ケース 3 の膨潤圧の経時変化	······2 - 231
図 2.6-75	ケース 1-1c 解体時の供試体観察	2-232
図 2.6-76	ケース 1-1a 及びケース 1-1c の解体結果	2-233
図 2.6-77	原位置試験 試験系の概略図	2-233
図 2.6-78	一次元・二次元解析モデルの概念図	2-235
図 2.6-79	一次元解析モデルの概要	2-236
図 2.6-80	一次元解析:サクション分布変化	2-240
図 2.6-81	一次元解析:飽和度分布変化	2-240
図 2.6-82	一次元解析:乾燥密度分布変化	2-240
図 2.6-83	一次元解析:軸圧分布変化	······2 - 241
図 2.6-84	一次元解析:側圧分布変化	······2 - 241
$ extstyle{2.6-85}$	一次元解析:周圧分布変化	······2 - 241
図 2.6-86	一次元解析:代表点における乾燥密度変化	2-242
図 2.6-87	一次元解析:代表点における軸圧変化	2-242
図 2.6-88	一次元解析:代表点における側圧変化	2-242
図 2.6-89	一次元解析:代表点における周圧変化	2-242
図 2.6-90	一次元解析(透水係数の影響):サクション分布変化	······2 - 244
図 2.6-91	一次元解析(透水係数の影響):飽和度分布変化	······2 - 244
図 2.6-92	一次元解析(透水係数の影響):乾燥密度分布変化	······2-244
図 2.6-93	一次元解析(透水係数の影響):軸圧分布変化	2-245
図 2.6-94	一次元解析(透水係数の影響):側圧分布変化	2-245
$ extsf{X}$ 2.6-95	一次元解析(透水係数の影響):周圧分布変化	2-245
図 2.6-96	一次元解析(透水係数の影響):代表点における乾燥密度変化	2-246
図 2.6-97	一次元解析(透水係数の影響):代表点における軸圧変化	2-246
図 2.6-98	一次元解析(透水係数の影響):代表点における側圧変化	2-246
図 2.6-99	一次元解析(透水係数の影響):代表点における周圧変化	2-246
図 2.6-100	二次元解析モデルの概要	2-248
図 2.6-101	二次元解析結果:飽和度分布変化	2-249
図 2.6-102	二次元解析結果:軸圧分布変化	2-249
図 2.6-103	二次元解析結果:側圧分布変化	2-250
図 2.6-104	二次元解析結果:上面・底面の土圧測定位置における軸圧変化	2-250
図 2.6-105	二次元解析結果:外側面の土圧測定位置における側圧変化	2-251

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
义	3.2-2	偏光顕微鏡観察による国内岩石の鉱物組成等の分析結果
义	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)
义	3.2-4	X線CT画像解析による黒雲母配向度の評価手法の概念図3-9
义	3.2-5	国内岩石試料の黒雲母の配向度解析の結果
义	3.2-6	国内岩石を対象としたトレーサー拡散試験および解析結果
义	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試料採取位置、
		(b)コア採取状況、(c)採取した割れ目試料、
		(d)収着・拡散試験およびトレーサー試験試料の加工状況3-13
义	3.2-8	(a)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、
		(b) 試験装置・試料設置状況、(c) トレーサー試験で得られた破過データ3-15
义	3.2-9	X線CT画像解析による分岐割れ目の抽出とその形状の解析結果·································
义	3.2-10) 割れ目表面から採取した粉末試料の SEM/EDS による分析結果3-17
义	3.2-11	グリムゼル花崗閃緑岩の割れ目部を対象にした薄片試料の反射電子像3-17
义	3.2-12	2 グリムゼルの岩石割れ目部(スライス 4)の X 線 CT 画像解析による
		割れ目中のガウジ充填率の評価:
		(a) 割れ目内のガウジ充填率と CT 画像の比較、
		(b)割れ目内のガウジ充填率分布
义	3.2-13	3 トレーサー濃度分布取得方法
义	3.2-14	4 室内トレーサー試験後の割れ目表面上のトレーサー濃度(molg ⁻¹)分布3-20
义	3.2-15	5 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3·21
义	3.2-16	; 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)3-22
义	3.2-17	7 環境変遷を考慮した核種移行解析における
		(a)地下水塩濃度(Cl 濃度)および収着分配係数の変化、
		(b)考慮した解析ケースの設定
义	3.2-18	3 環境変遷を考慮した核種移行解析のケース①とケース②の比較:
		(a)解析結果の比較、(b)Kaモデルと不可逆モデルの差異に関する概念図3-24
义	3.2-19) 環境変遷を考慮した核種移行解析のケース①とケース③ · ⑤の比較··································
义	3.2-20) T_2 - T_2 パルスシーケンス
义	3.2-21	幌延泥岩試料中の水の T2-T2 測定から得られた二次元データと
		<i>T</i> 2- <i>T</i> 2相関スペクトル: (a) 交換時間 τ _m =30µs の測定結果、
		(b) 交換時間 zm =200 µs の測定結果
义	3.2-22	2 機械学習モデルから予測された ¹³³ Cs ケミカルシフトの値(縦軸)
		と GIPAW 第一原理計算から得られた値(横軸)の相関関係3-29
义	3.2-23	3 逆解析で得られた Cs 位置。(a)ケミカルシフトが 0.7534 ppm の場合、
		(b)ケミカルシフトが-65.41 ppm の場合
叉	3.2- 24	↓ クニゲル V1 と間隙ゼロのケイ砂混合系(複合体)の鉱物配置の可視化図。
		(a)ケイ砂の体積分率が 0.12 の場合、
		(b) ケイ砂の体積分率が 0.65 の場合
义	3.2-25	5 RW シミュレーションによる幾何学的因子Gのケイ砂体積分率Rsand依存性。

xi

		Cs+イオン(赤色ダイヤ)、I-イオン(青色三角)、
		HTO(黒丸)およびサイト・パーコレーション理論曲線(緑色実線)3-34
汊	3.2-26	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3-37
义	3.2-27	割れ目中の核種移行評価の平行平板モデル概念図および支配方程式3-38
义	3.2-28	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
义	3.2-29	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
义	3.2-30	GoldSim 解析における注入孔側から揚水孔側の流量と
		複数移行経路の取り扱い
义	3.2 - 31	フロー・スタグナント領域を考慮したモデルの感度解析結果
义	3.2-32	幌延 URL の割れ目中の原位置トレーサー試験結果へのパラメータの
		最適化結果
义	3.2-33	ウラニンのパルス試験とコンスタント試験の最適値を用いて
		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
义	3.2-34	ウラニンのパルス試験とコンスタント試験の最適値を用いて
		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)割れ目表面の濃度分布
义	3.2 - 35	反応性元素を対象とした解析結果(HDB-1孔)
义	3.2-36	反応性元素を対象とした解析結果(HDB-3孔)
义	3.3-1	収着競合試験の結果. pH 6.5, [Ni, Pb, Eu] = 1 µM, [Fe] = 0, 1,
		10 µM, I = 0.5 M (NaCl), $R_{\rm SL}$ = 1 g/L. · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·
义	3.3-2	Se(VI)および Se(IV)のモンモリロナイトおよびカオリナイトへの
		吸着率の時間変化
义	3.3-3	モンモリロナイトおよびカオリナイトに吸着された Se(IV)の
		Se K 吸収端 XANES (pH = 4.5)
义	3.3-4	モンモリロナイトおよびカオリナイトに吸着された Se(IV)の Se
		K吸収端 EXAFS 振動(A)およびフーリエ変換スペクトル(B) (pH = 4.5)3-57
义	3.3 - 5	Se(VI)および Se(IV)の吸着前後の還元処理したモンモリロナイト中の構造中
		FeのK吸収端XANESとフィッティングから得られたFe(II):Fe(III)比3-58
义	3.3-6	還元処理したモンモリロナイトに吸着された Se(VI)や
		Se(IV)の K 吸収端 XANES
义	3.3-7	Se(IV)の Fe(II)鉱物への共沈・取り込み試験の方法
义	3.3-8	固相の XRD 測定結果. (a): 初期固相, (b): エージング固相3-63
义	3.3-9	試験 F-2 のエージングした固相の TEM 画像(a)および EDS 分析結果(b)3-63
义	3.3-10	試験 F-1 のエージングした固相の TEM 画像(a, c)および
		EDS 分析結果(b, d). CuKa のピークはグリッドに由来
义	3.3-11	試験 E-2 のエージングした固相の TEM 画像(a, c)および
		EDS 分析結果(b, d). SiKa および CuKa のピークは Si(Li)EDS 検出器
		とグリッドに由来 ····································

図 3.3-12 固相の Seの Kエッジの XANES スペクトル.

		(a): 初期固相, (b): エージング固相
义	3.3-13	分析対象とした試料を採取したボーリング孔および深度3-67
义	3.3-14	幌延の泥岩試料で μ-XRF 分析で取得された Se, Fe, S, Ca の
		元素マッピングの結果の例:(a) 声問層の試料、(b) 稚内層の試料·······3-68
义	$3.3 \cdot 15$	幌延の泥岩試料で Se の濃集が確認された部分の μ-XAFS 測定結果··································
义	3.3-16	稚内層の試料の Se 濃集スポットの EXAFS 振動とフーリエ変換スペクトル.
		黒線は測定結果,赤線はフィッティング結果を示す
义	$3.3 \cdot 17$	イオン強度 0.05 M および 0.5M の条件における乾燥密度 1.6 Mg/m³の
		Na 型および Ca 型ベント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)高濃度側および低濃度側の
		デンドリマー濃度変化、(b)試験後のベントナイト中のデンドリマー濃度分布 ··3-73
义	3.3-18	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3-74
义	$3.3 \cdot 19$	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(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
义	3.3-20	セメント - 岩石接触試料(4 試料)の X 線 CT 分析結果と EPMA
		による主要元素(Ca, Si, Al)のマッピング結果(OPC-泥岩①,
		HFSC-泥岩①は令和2年度に分析した試料)
义	3.3 - 21	OPC および HFSC と泥岩との接触界面の高解像度での EPMA 分析結果:
		密着部での Ca 濃度と Ca/Si 比の分布,隙間部の Ca 濃度分布3-77
义	3.3-22	OPC および HFSC と泥岩との接触界面の SEM/EDS 分析結果3-78
义	3.3 - 23	セメントと接触した岩石試料の変質部(0~2 mm、2~4 mm)および
		健岩部を対象とした主要・微量元素の分析結果:OPC との接触岩石の
		主要元素濃度(a)と微量元素濃度(b)および HFSC との接触岩石の
		主要元素濃度(c)と微量元素濃度(d)
义	3.3 - 24	カルサイト試料の分配係数の試料間と元素間の比較
义	3.3 - 25	カルサイト中の元素の分配係数とイオン半径との関係
义	3.3-26	Euを収着させたイライトから得られた蛍光スペクトル
义	3.3 - 27	図 3.3-26 の試料の 616 nm 付近のピークの蛍光寿命プロットと
		フィッティング解析結果
义	3.3 - 28	イライトとモンモリロナイトの混合試料および幌延の泥岩に対する
		Eu 収着の pH および DIC 濃度依存性と加成則による再現計算結果3-87
义	3.3 - 29	U(VI)を収着させたイライトから得られた蛍光スペクトル
义	3.3-30	図 3.3-24 の試料の蛍光寿命プロット
义	3.3-31	イライトに対する U(VI)収着の pH および DIC 濃度依存性と再現計算結果3-89
义	3.3-32	U(VI)を収着させたイライトから得られた蛍光スペクトル
义	3.3-33	幌延の泥岩に対する U(VI)収着の pH および DIC 濃度依存性と
		加成則モデルによる再現計算結果
义	3.3-34	縮ベントナイト中の Np-237 の拡散試験結果:
		(a) 減衰曲線、(b) 破過曲線、(c) Np(V)濃度の深度プロファイル.
		プロット:実測データ、実線:シミュレーションによるフィッティング結果 ··3-92
义	$3.3 \cdot 35$	初期状態として層間内に Na+が 32 個、層間外には Na+が 8 個および

Cl-が 8 個共存する系(Case1)の 10 ns にわたる溶存イオンの層間内

		における個数履歴
义	3.3-36	初期状態として層間内に Na+が 32 個、層間外には Na+が 8 個および
		CO3 ²⁻ が 4 個共存する系(Case2)の 10 ns にわたる溶存イオンの
		層間内における個数履歴
义	3.3-37	初期状態として層間内に Na+が 32 個、層間外には UO2 ²⁺ が
		8 個および Cl-が 16 個共存する系(Case3)の 10 ns にわたる
		溶存イオンの層間内における個数履歴
义	3.3-38	初期状態として層間内に Na+が 32 個、層間外には UO2 ²⁺ が
		8 個および CO3 ²⁻ が 8 個共存する系(Case4)の 10 ns にわたる
		溶存イオンの層間内における個数履歴
义	3.3-39	{130}エッジ表面の構造モデル。(a)モンモリロナイト層を横側から見た図、
		(b) 八面体シートを上側から見た図。各図の左右側がエッジ表面に当たる。
		原子の色は、白色が水素、赤色が酸素、黄色がナトリウム、青色が珪素、
		水色がアルミニウム、茶色がマグネシウム3-100
义	3.3-40	モンモリロナイト・エッジ表面の八面体陽イオンサイトに
		Fe ³⁺ が置換した場合の、エッジ表面構造の変化を示す模式図3-102
义	3.3-41	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)3-102
义	3.3-42	Na 型モンモリロナイト(a)および Cs 型モンモリロナイト(b)を例に、
		対イオンの水和数(赤線)と層間内への水蒸気吸着量(青線)の
		相対湿度依存性
义	3.3-43	層電荷=0.5 e/(unit cell)、層間含水量が n = 15/(unit cell)の
		Na 型モンモリロナイト(a)および Cs 型モンモリロナイト(b)の
		層間間隙における、水分子(青線)および対イオン(赤線)の密度分布3-105
义	3.4-1	pH6における (a) HHA/EDTA、(b) Eu ³⁺ /EDTA、
		(c) Eu ³⁺ /HHA/EDTA 共存試料の UV/Vis(HHA)と
		ICP-MS(Eu)検出から取得したフラクトグラム3-112
义	3.4-2	pH7における(a)HHA/EDTA、(b)Eu ³⁺ /EDTA、
		(c) Eu ³⁺ /HHA/EDTA 共存試料の UV/Vis(HHA)と
		ICP-MS(Eu)検出から取得したフラクトグラム3-113
义	3.4-3	pH 6、7 における HHA に対する Eu ³⁺ 結合量の Eu ³⁺ 濃度依存性
		$C_{\rm EDTA} = 0.25 \ \mu M \cdots 3-114$
义	3.4-4	CE-ICPMS システム概略図
义	3.4-5	Eu 定量注入時のフラクトグラム
図	3.4-6	CE-ICPMS から取得した Eu ³⁺ のフラクトグラム3-119
义	3.4-7	pH 6、7 における HHA に対する Eu ³⁺ 結合量への
		NICA-Donnan モデルによるフィッティングの結果 (<i>C</i> _{EDTA} = 0.25 µM)3-121
凶	3.4-8	Euの収着の炭酸濃度依存性
図	3.4-9	微生物と元素との相互作用の概念図
図	3.4-10	幌 URL における ボーリング孔配置図
図	3.4-11	深度 185 m (08E140C01 孔区間 3)から採取した地下水を対象とした
		コロイド収着試験における希土類元素濃度の経時変化3-131

図 3.4-12	2 孔径 0.2 μm フィルターろ液中の希土類元素濃度の残存率の経時変化3-133
図 3.4-13	3 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
図 3.4-14	。 微生物細胞表面で生じている元素との相互作用の概念図·3-136
図 3.4-15	・ 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3-138
図 3.4-16	6 08-E140-C01 号孔の区間 1 (深度 214 m) から採取した
	地下水の蛍光顕微鏡像
図 3.4-17	′ 08-E140-C01 号孔の区間 3(深度 185 m)から採取した地下水の
	FE-SEM 観察像(a,b,d,f,h,I,j)および EDS 分析結果(c, e, g, k).
	(c) b のオレンジ領域の分析結果、(e) d のオレンジ領域の分析結果,
	(g)fのオレンジ領域の分析結果,(k)jのオレンジ領域の分析結果3-140
図 3.4-18	3 深度 185 m 地下水中に優占する <i>Syntrophus</i> と
	メタン生成菌, Betaproteobacteria の関係性
図 3.4-19) 稚内層の岩石コア試料の亀裂内部にて観察された微生物細胞
図 3.4-20) 深度 351.3-525.15 mbgl の稚内層の岩石薄片試料における
	蛍光顕微鏡観察像(左上)と同領域の FE-SEM 観察による
	反射電子像(右上)
kaka , -tra	
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
图 4.2-1	コンクリートと粘土質母石(粘土噌)の相互作用に関わる解析体系4-5
凶 4.2-2	ヘンデマーク解析による結果
<u>w</u> 40.9	(pH 及び1 オン父換反応に関与する元素濃度の比較)4-6 ベンエー A留ににトス対用
凶 4.2-3	ハンデマーク脾(による結果)(人の二害)) (人) (人) (人) (人) (人) (人) (人) (人) (人) (
W 4 9 4	$(1 \land \checkmark \checkmark)$ (1 $\land \checkmark \land $
凶 4.2 ⁻ 4	QFAUを用いて異なる熱力子ケータを用いた場合の脾性症未の比較4-8 路空堂性能の仮字が物质な動気の敏振法用に長えて影響な検討すてための
凶 4.2-0	一般に吊扒思り仮たか物員移動寺の胜竹和木に子える影響を使討りるための 報任体系
₩ 4 9-6	脾切 [示
区 4.2 0 図 <i>4</i> .2-7	協力で化化価単成素、それ述及しTeと同原牛の肉尿 410 協定党仕能を仮定した解析における開始率亦化の設定の概今回
区 4.2 7 図 1 2-8	擬定市状態を仮定した解析による物質移行率への影響を把握するための
叉 4 2-9	今和2年度の解析におけろ解析体系及びセメント支保工と接する
	緩衝材部分の間隙率の経時変化 ····································
叉 4 2-10	各時間断面での最大タイムステップの変化(会和2年度の解析結果を対象)・4-13
図 1.2 10 図 4 2-11	メッシュサイズ及び反応比表面積を変えた解析ケースの設定4-14
図 4 2-12	メッシュサイズ及び反応比表面積を変えた場合の鉱物変遷に関わる
⊠ 4.2-13	異なるメッシュサイズを設定した場合のコンクリート
	 粘土層相互作用に伴う鉱物変遷の解析結果4-16
⊠ 4.2-14	メッシュサイズ及び反応比表面積を変えた場合の鉱物変遷に関わる
	感度解析結果

図 4.2-15	Tourunemire におけるコンクリートと泥岩の接触面付近を対象にした
	鉱物学的調査の結果
図 4.2-16	緩衝材の長期変質に関わる水理・物質輸送-化学反応の連成解析により
	得られた結果(緩衝材中の構成鉱物の時間変遷)の例4-21
図 4.3-1	QPAC-RNTによる核種移行解析で用いた異なるメッシュサイズ設定4-25
図 4.3-2	QPAC-RNT を用いた異なるメッシュサイズ設定による核種移行解析
	結果の比較
図 4.3-3	核種移行解析モデルの概念図4-30
図 4.3-4	緩衝材中の Ni-59 及び Sn-126 の存在量分布とモンモリロナイト残存量の
	経時変化
図 4.3-5	緩衝材中の間隙水の pH 変化と Kd の経時変化の比較4-31
図 4.3-6	緩衝材中の単位体積あたりの核種の存在量及びモンモリロナイト
	残存量の比較
図 4.3-7	ニアフィールドの複合現象を対象とした状態変遷を踏まえた
	核種移行解析の評価フローの案4-35

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
第2章 二7	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	腐食センサー表面の腐食生成物から同定された腐食生成物2-6
表 2.2-2	月布ベントナイト原鉱石の試料リスト
表 2.2-3	月布ベントナイト原鉱石試料の物理的特性
表 2.2-4	試験片の重量減量から算出した平均腐食量及び平均腐食速度2-19
表 2.2-5	拡散性水素濃度の測定結果
表 2.2-6	試験条件
表 2.2-7	試験片の重量減量から算出した平均腐食深さ及び平均腐食速度2-26
表 2.3-1	研究対象試料
表 2.3-2	平城宮跡鉄斧出土地点近傍の観測井地下水データ
表 2.3-3	熱履歴ベントナイト試料の一覧
表 2.3-4	各鉱物・空隙の面積 %(原鉱石)
表 2.3-5	注水溶液の pH 及び溶存元素濃度
表 2.3-6	アウトプット溶液の pH 及び溶存元素濃度
表 2.4-1	試験条件
表 2.4-2	一次元の浸潤試験を対象とした緩衝材の解析物性値
表 2.4-3	解析ケース
表 2.4-4	解析ステップ
表 2.4-5	緩衝材の解析用物性値
表 2.4-6	埋め戻し材の解析用物性値
表 2.4-7	支保工・路盤(セメント系材料)の解析用物性値
表 2.4-8	オーバーパック・ヒーターの解析用物性値
表 2.4-9	充填砂の解析用物性値
表 2.4-10	ジョイント要素の解析用物性値
表 2.4-11	解析ケース
表 2.4-12	MACBECE の三次元化に向けた改良手順
表 2.4-13	膨潤圧試験ケース及び初期条件
表 2.4-14	解析に用いた物性値
表 2.4-15	解析ケース
表 2.4-16	緩衝材の膨潤圧測定の試験条件
表 2.5-1	岩盤中の初期溶液及び高 pH 溶液として濃度固定とした溶液組成2-153
表 2.5-2	Maquarin の未変質岩の鉱物組成及び間隙率
表 2.6-1	緩衝材の施工オプションの選択における評価項目の例
表 2.6-2	各施工オプションの緩衝材の流出に関する判断指標(案)
表 2.6-3	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)2-167
表 2.6-4	水頭差制御流出試験のケース
表 2.6-5	水頭差制御流出試験の結果
表 2.6-6	供試体上端面のケイ砂分布状況及び観察結果

表	2.6-7	隙間未充填オプションの流出試験結果における水位差、	
		流量と閉塞条件の関係	30
表	2.6-8	X線CT計測の設定	31
表	2.6-9	X線CTを用いた膨潤挙動の確認試験ケース一覧	32
表	2.6-10	水頭差と流量をパラメータとした流出試験ケース	37
表	2.6 - 11	パッカーの仕様) 8
表	2.6 - 12	加圧試験ケースごとの目的) 9
表	2.6 - 13	これまでの地下での流出試験の試験ケース)7
表	2.6-14	緩衝材ブロックの仕様)8
表	2.6 - 15	試験前後の緩衝材ブロックの状態と乾燥密度	16
表	2.6 - 16	緩衝材の飽和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	23
表	2.6 - 17	不飽和弾塑性構成モデルに関するパラメータ	24
表	2.6 - 18	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2-22	25
表	2.6 - 19	試験ケース	29
表	2.6 - 20	岩盤の材料パラメータ(線形弾性モデルと透水係数)	36
表	2.6 - 21	一次元解析の要素分割数	37
表	2.6-22	各解析ケースにおける透水係数モデルに関するパラメータ2-24	43
表	2.6 - 23	各解析ケースにおける時間増分、ステップ数及び期間	43
第3	章 二	アフィールド環境変遷を考慮した核種移行評価技術の開発	
表	3.2 - 1	拡散試験結果の解析により得られた拡散および収着特性	12
表	3.2-2	イオン系の核種移行を対象にクニゲル V1 と間隙ゼロの	
		ケイ砂混合系(複合体)をモデル化した RW シミュレーションの	
		条件設定および解析結果	32
表	3.2 - 3	HTO の核種移行を対象にクニゲル V1 と間隙を有する	
		ケイ砂混合系(複合体)をモデル化した RW シミュレーションの条件設定3-5	35
表	3.2-4	HTO の核種移行を対象にクニゲル V1 と間隙を有する	
		ケイ砂混合系(複合体)をモデル化した RW シミュレーションの解析結果3-5	36
表	3.2-5	パルスソース試験の解析モデルにおける最適化パラメータ	43
表	3.2-6	コンスタントソース試験の解析モデルにおける最適化パラメータ3-4	43
表	3.2-7	パルス・コンスタントソース試験による投入量に対する回収量の割合3-4	43
表	3.2-8	原位置および室内拡散試験データに基づくトレーサーの	
		実効拡散係数および分配係数の設定値	14
表	3.2-9	イオン交換反応に関わる選択定数	17
表	3.2-10	境界条件および物質移行パラメータに係る条件設定	17
表	3.3-1	モンモリロナイトおよびカオリナイトに吸着された Se(IV)	
		および Se(IV)溶液の EXAFS パラメータ	58
表	3.3-2	試験条件の概要	32
表	3.3-3	固相に取り込まれた Se の割合	32
表	3.3-4	パイライトの結晶構造を基に計算したパイライト中のSを	
		Se に置換した理論上の単散乱経路	39
表	3.3-5	稚内層の試料の Se 濃集スポットの EXAFS スペクトルのフィッティング結果 …3-7	70

表	3.3-6	Euの蛍光寿命プロットのフィッティング解析結果
表	3.3-7	U(VI)の蛍光寿命プロットのフィッティング解析結果
表	3.3-8	Fe イオンを置換する八面体サイトの位置
表	3.3-9	イオンの特性データ
表	3.4-1	FFF-ICPMS 測定に供した試料リスト
表	3.4-2	HHA への Eu ³⁺ 結合反応の条件付き平衡定数
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
表	3.4-4	CE-ICPMS の測定に供した試料のリストと測定条件3-118
表	3.4-5	HHA への Zr ⁴⁺ 結合反応の条件付き平衡定数
表	3.4-6	HHA に対する Eu ³⁺ 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3-121
表	3.4-7	収着試験の条件
表	3.4-8	非線形最小二乗フィッティングに使用した定数
表	3.4-9	非線形最小二乗フィッティングで求められた平衡定数
表	3.4-10	08-E140-C01 号孔の区間 3(深度 185 m)から採取した地下水中の
		微量元素濃度
表	3.4-11	観察・分析対象とした稚内層の岩石薄片試料における
		FE-SEM の組成分析による Si と Al の元素重量比の結果
表	3.4-12	幌延 URL の深度 350 m における岩石試料の DNA 濃度
第4	章 二	アフィールド性能の総合評価技術開発
表	4.2-1	擬定常状態を仮定した解析において設定された解析ケース4-11
表	4.2-2	Tourunemire におけるコンクリートと泥岩の接触面近傍における
		鉱物学的な違いや間隙率の変化の観測結果と解析結果との比較4-18
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 Cs と I の
		核種移行パラメータの設定4-27
表	4.3-2	緩衝材の長期的変質に伴う状態変遷を考慮した Ni と Sn の
		核種移行パラメータの設定4-29
表	4.3-3	SP1 及び SP2 の成果の SP3 への反映に向けた情報整理の案4-34

xix

1.1 本事業の背景と目的

本事業は、令和3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、これまで原子力を利用してきた結果、現在、約19,000 tonの使用済燃料が存 在している(経済産業省,2021)。これは原子力の利用に伴い確実に発生するものであり、将来世 代に負担を先送りしないよう、現世代の責任として、その対策を確実に進める必要がある。高レ ベル放射性廃棄物の地層処分事業は、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年度から令和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; 2021)。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(以下、[ニアフィールド]という)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。

- サブプロジェクト1(SP1):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2(SP2):SP1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3 (SP3) : SP1とSP2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

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。

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 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。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,2018; 経済産業省,2020b)。本事業の実施に際しては、(1)から(3)の枠組みを、図1.2-1に示したサブプ ロジェクト(SP1、SP2及びSP3)に再編して実施することとした(表1.2-1参照)。

これら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 度から令和2年度までの3か年の成果、令和3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(廃棄体定置後のT:熱、H:水理、M:応力、C: 化学の状態が大きく変化する期間)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 °Cを超える条件も含めたTHMC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等についてのTHMCの観点からのデータ

取得について、平成30年度から令和2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等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等に関するデータを取得した。また、幌延の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を対象とした分析により、模擬オーバーパック表面の不均一な 腐食のメカニズム等を推定するとともに、腐食センサー表面の腐食生成物種及び緩衝材中の微生 物種を把握した。さらに、緩衝材のTHMC条件がオーバーパックの腐食挙動に与える影響や原位 置試験等に関する腐食データを活用した腐食進展等に関するモデルの妥当性の検証等を行い、既 往のモデルは広範なTHMC条件や工学的スケールでの腐食現象等を包含した評価が可能であるこ となどを示した。

令和3年度は、THMCに係る個別の因子の変遷の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のより広範な条件での室内試験、原位置試験試料の分析等を実施した。また、過渡期から長期にわたる環境条件の変遷を考慮した腐食進展等に関するモデルの構築に向けて、腐食試験データ等に基づいて腐食モデルに反映すべき現象や影響因子の抽出等を実施した。

(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等に関して、平成30年度から令和2年度 は、原位置試験試料やナチュラルアナログ事例サイトより採取した試料の分析等を実施し、緩衝 材構成鉱物の変質状態について確認した。また、緩衝材の膨潤、透水性、剛性等のHM連成挙動と それらに及ぼす緩衝材変質(C)の影響等に関するデータ取得に向けた室内試験、原位置試験及びナ チュラルアナログ研究等を実施し、セメンテーションにより膨潤性が低下し、剛性が増加する可 能性を示唆する知見などの成果を得た。

令和3年度は、炭素鋼・圧縮ベントナイト相互作用に関して、考古学的鉄製品に付着していた 土壌や原位置試験試料の分析等を令和2年度に継続して実施した。また、セメンテーションによる 緩衝材基本特性の変化に関するデータ取得に向けて、セメンテーションの原因物質の溶解等に伴 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、膨潤圧の長期的な変化等に関するデー タを取得した。

(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年度から令和2年度は、FEBEX プロジェクトにおける原位置での約18年間の計測データ、幌延オーバーパック腐食試験データ、 幌延人工バリア性能確認試験データを用いた緩衝材のTHMやTHC連成挙動に関する現象解析モ デルの適用性を評価するとともに、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とし て、特にオーバーパック近傍の飽和度の経時変化に与える影響が大きいことを示した。

令和3年度は、様々な塩濃度や密度条件における浸潤挙動に関する室内試験データ取得に着手し、 塩水条件における現象解析モデルの妥当性を得られたデータとの比較により検討した。

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年度から令和2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、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の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した。

令和3年度は、幌延人工バリア性能確認試験で取得されたデータを活用し、原位置試験等の実規

模かつ複合的な試験体系における緩衝材の力学挙動に着目した時のMACBECEによる解析結果の再現性の確認を行い、過渡期の解析機能の高度化に向けた更なる課題の抽出を行った。また、 X線CT測定による膨潤圧試験中の供試体内部の観察によるデータ取得を、令和2年度に継続して 実施した。

(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・分析等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年度から令和2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やセメント充填された ボーリング孔周辺から試料を採取して岩盤やグラウト材の状況等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取得した。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た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 の分析等を通じて、支保工等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3年度は、瑞浪超深地層研究所の坑道より採取された試料の分析を継続し、アルカリプル ームの影響に関するデータ取得を進めた。また、坑道スケールでの単一亀裂を対象に反応輸送解 析モデルを用いた感度解析を行い、支保工やグラウトに由来するアルカリプルームにより、亀裂 の状態変遷に影響が生じる条件についての解析的な検討を行った。

(5) 流出現象等を考慮した緩衝材の健全性評価

堅置きブロック方式に関する緩衝材の流出現象については、平成30年度から令和2年度は処分 孔の環境条件に対して柔軟に選択できる施工オプションの整備を目的として、地下坑道における 原位置試験と室内試験を実施した。処分孔の孔壁と緩衝材の隙間をそのままにしておく「隙間未 充填オプション」では、実環境である原位置試験の結果から、隙間が閉塞して流出が止まる湧水 環境条件があり得ることが確認され、本オプションの適用範囲を定量的に示して行くための今後 の研究方針を具体化し、処分孔と周辺岩盤の水頭差等による評価に資するデータの拡充を目指す こととした。隙間にケイ砂を充填する「ケイ砂充填オプション」では、これまでの原位置試験や 室内試験によって緩衝材の流出量を低減させる効果があることが確認された。但し、これらの試 験から湧水量の増加傾向などの意図せぬ挙動も把握された。本オプションについては、このよう な課題に対処しつつ、緩衝材の流出量のより確からしい評価に資するデータの取得が必要である。 また、緩衝材が飽和に至るまでの期間において許容される緩衝材の流出量を考慮した緩衝材の状 態変遷挙動の評価技術に関する段階的な開発整備については、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及び試験体サイズでの検証に向け た試験データの取得等を進めた。

令和3年度は、隙間未充填及びケイ砂充填による各施工オプションの適用範囲や現象理解に関し て室内試験によりデータを取得するとともに、ケイ砂充填オプションに関する課題解決(湧水量 増加傾向の原因究明など)と緩衝材流出挙動の定量データの取得に向けた原位置試験を実施した。 併せて、ペレット充填等の他の施工オプションに関する条件設定等を整理した。さらに、試験体 サイズでの隙間充填プロセスの試験データにより解析手法の妥当性の検討、材料パラメータの見 直し並びに実規模スケールでの二次元体系化への解析手法の拡張を検討し、過渡期における緩衝 材の変遷挙動を予測評価するための力学解析手法の高度化を進めた。

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

水みちの微細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、 マトリクス部の間隙構造や鉱物分布等の不均質性を反映することが可能な核種移行解析モデルを 開発するとともに、構築した核種移行解析モデルの妥当性を確認することが求められている。

核種移行モデルの開発について、平成30年度から令和2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等の岩石を用いて、割れ目部及びそのマトリクス部との相互作用に重 点を置き、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、複数のスケールでの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3年度は、これまで対象としてきた結晶質岩及び堆積岩に加え、異なる特性を有する岩石試 料を対象として、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するととも に、それらのデータを用いた解析モデルによる評価を通じて割れ目部とマトリクス部の間隙構造 や鉱物分布等の不均質性や多様性が核種移行挙動に与える影響を検討した。また、それらの不均 質性や多様性を適切に扱うことが可能な核種移行モデルの構築を進めるとともに、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を改良した。

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年度から令和2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等を活用し、モデルの 適用性を検討した。

令和3年度は、これまでの試験や調査で得られた割れ目等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と妥当性確認を進めるとともに、より大きな空間・時間スケール や地質環境の長期変遷の影響を考慮した核種移行解析の適用性を検討するためのナチュラルトレ ーサーデータ等の事例調査と解析評価を実施した。

(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、緩衝材等が変質した場合の基礎データが取得されてきた。そこで、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の変遷を設定した上で、その設定に 応じた条件において変質した緩衝材中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、変質した材料を対象とした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。

ニアフィールドの状態変遷を想定した条件での核種移行データ取得とモデル構築について、平 成30年度から令和2年度は鉄製オーバーパックと緩衝材、セメント系材料と緩衝材及び岩石との 相互作用が核種移行に及ぼす影響評価において重要な課題として、鉄と核種の競合収着や共沈に よる影響、セメント影響下での緩衝材中のコロイドろ過機能への影響、セメント共存下での岩石 変質による核種移行への影響を抽出した上で、それぞれの条件での室内試験や原位置試料分析を 行い、鉄やセメント共存が核種移行へ及ぼす影響に係る現象理解と影響評価モデルの構築を進め てきた。

令和3年度は、鉄共存の影響評価手法の構築に向けて、2価鉄と核種の収着競合データを、収着 競合が想定される2価の核種を中心により多様な条件で拡充し、収着モデルの整備を進めるととも に、Fe(II)鉱物へのセレン等の酸化還元に鋭敏な元素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分析によって拡充し、環境条件に応じた鉄とセレンの相互作用メカニズ ムを解明する。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、コロイドの移行とろ過の境界条件の把握を念頭に、高密度条件や異なるコ ロイドサイズ条件で取得した。さらに、幌延の泥岩・セメント接触試料の界面領域の鉱物や間隙 等の分析データを取得するとともに、岩石側に生じる二次鉱物中の微量元素分析や室内試験によ ってセメント共存による核種移行への影響に係るデータを取得した。そして、これらのバリア材 の相互作用が核種移行挙動に及ぼす影響を反映した核種移行モデルやパラメータ構築に向けて、 解析手法の調査と試解析を行った。

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。本事業では、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、 岩石への収着・拡散データ、溶解度設定に係る熱力学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年度から令和2年度は、実際の深部環境で考慮すべき高炭酸濃度等の地下水条 件範囲、及びその条件で炭酸錯体等の影響が顕在化する核種を抽出したうえで、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進めた。

令和3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Am(III)やEu(III)、U(VI)、 Np(V)等核種の収着・拡散データを取得するとともに、先端的な分析技術(TRLFS等)や計算科 学技術を適用して、高炭酸条件下での収着形態などの核種移行メカニズムを解明し、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、影響評価モデルの構築に資することを目的として、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等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、その他の主要な微生物についても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、平成30年度から令和2年度はデータ拡充の必要がある4価の核種として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錯生成データを流動場分 画法(FFF-ICPMS)とキャピラリー電気泳動法(CE-ICPMS)によって取得し、有機物影響評価モデ

ルパラメータの検討を進めた。また、有機物 · 核種 · 岩石三元系のデータ取得のためのEu(III) の収着試験に着手した。

令和3年度は、有機物影響評価モデルを高度化するために、CE-ICPMS法の定量性を向上させる ためのデータ取得・評価手法を改良し、Zr(IV)との錯生成データの拡充と妥当性を確認した。ま た、有機物 · 核種 · 岩石三元系モデルの開発に向けて、室内試験によるEu(III)の収着試験を令 和2年度に継続して行い、得られたデータから反応の可逆性等について検討するとともに加成則モ デルの適用性を確認した。

微生物影響評価について、平成30年度から令和2年度は希土類元素をアクチニドのアナログ元 素として、水質条件の異なる堆積岩地下水中の全コロイドおよび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・代謝および金属元素の濃集等についてデータを取得した。さらに、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取得に着手した。

令和3年度は、幌延の地下研究施設を活用し、坑道の掘削影響領域から離れた領域に分布する堆 積岩地下水中のバイオコロイド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評価について、Se等を対象にデ ータを取得した。さらに、実際の地下環境における有機物や微生物による核種移行への影響評価 手法の適用性を確認するため、幌延の地下研究施設を活用した原位置試験によるデータ拡充を進 めた。

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

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、ニアフィールドに注目し、これま でに、様々な現象解析モデルを統一したプラットフォームを整備し、複合現象を解析することが 可能なシステムが構築されてきた。ここでは、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。さらに、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について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年度から令和2年度は複数のプロセス を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、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 パターン等を対象とする感度解析を行うとともに、変質に伴う緩衝材に期待される機能への影響 を評価するための手法検討に着手した。また、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を整理した。

令和3年度は、評価システムのプロトタイプで用いられている水理・物質輸送 · 化学反応等の 解析モデルの妥当性確認を進めた。

(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の構築について、平成30 年度から令和2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 受け渡し等のフレームワークを整備し、これに基づき「現象解析モデルの統合化技術の構築」で 構築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、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3年度は、「現象解析モデルの統合化技術の構築」で構築した評価システムのプロトタイプ を活用した検討により、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 に向けた課題の整理を進めた。

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が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

		平成	30年月	£	平成31年度			令和2年度				令和3年度				令和4年度				
ニアフィールドシステ ム評価確証技術開発	第1 四	第2 四	第3 四	第4 四	第1 四	第2 四	第3 四	第4 四	第1 四	第2 四	第3 四	第4 四	第1 四	第2 四	第3 四	第4 四	第1 四	第2 四	第3 四	第4 四
	単期	単期	単期	単期	判	単期	判	判	単期	単期	単期	単期	単期	単期	単期	単期	単期	単期	単期	単期
全体工程	•	契約	執	3告書作成 提出▼	▼契約		報台	告書作成 ◆提出▼	▼契約		報	告書作成 ◆ # # ◆ 提出▼	▼契約		報	告書作成 ◆日本 提出▼	▼契約		報	告書作成 ◆提出▼
(1)ニアフィールド	調査·開 ◀	発計画の	·設定 ▶	取りまとめ				取りまとめ	計画策定	2		取りまとめ				取りまとめ ◆── ▶				取りまとめ
環境支遷に除る個別評価技術の開発	室内腐	食試験	原位置	猒験試料	室内試	験データ	7拡充. 腐	食モデル	原位置	試験試	料分析.	広範な	室内討	【験.広筆	節な環境	条件等で	_幸	内試験:	ドータ拡き	充 腐食
(SP1) 1)オーバーパックの腐	のサン ●	プリング	、分析	- Nel ∧ ∠tr	原位置試験試料分析適用性確認				条件での室内試験データ拡充								モデルへの反映			¥/≝±+
良学動評価 2) 緩衝材の変質挙動	かっここへの エア330((WARD) かれ) ナチュラルアナログ事例調査				チュラルアナログ事例調査				・ルマロロスレ モビヨス(数30,0400分析) チュラルアナログ事例調査				・ 本品屋及び エバ34(数84-40)万代 チュラルアナログ事例調査				,。;;iiii 基本1	き性への	影響整理	
##100 3) ニアフィールドTHMC 連成券動評価	力学考 析モラ	挙動に関 ドルのお	引する室 (良	内試験, 解 ┣	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			
4) 母岩中アルカリプ ルーム反応輸送業	グラウ - ゴ ゅ	ト材ー岩	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			
動評価	ち協等に	関する	検討事例	夏の移行 列の調査	アルカリフルーム反応 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				リーブ	いたの 电 パルーム(の進展評	神ど多ろ	に、単一電設を対象にアルカリ			10735
5)流出現象等を考慮 した緩衝材の健全性	試験	環境の	整備・環	遺計測	地下での効果確認試験				地下での流出 挙動確認試験 準備 (昭間まを1章)				湧水量変化 ケイ砂充填の流 の水理試験 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			手の検 試験
評価 (1)流出を抑制するエ		工学的	→ 対策効	●	▲ 原位置試験の予備試験・挙動				↓ 試験パラメータの整理				▲ ▲ ▲ ▲ ▲ ▲ ▲ ▲ ▲ ▲ ▲ ▲ ▲ ▲ ▲ ▲ ▲ ▲ ▲				● 各施工オプションの評価			→評価
学的対策の具体化		武験・	円芯水: ◆		把握のためのデータの取得					¥ ⊷	素試験等	の実施	指標に関する試験 ◆							
2)緩衝材の飽和プロ ヤスを対象とした解		部原	■不時の を変化の	解析	•	中心/ 力学角	R手動に 降析手法(x) y る の検討 ┣	。 の)	験体り* ための証 モー	1人の安: 式験デー:	∃11£1便討 匀取得 ┣	スワー の解 ◀	ールフッ 析手法の	りのため D検討 ➡		<u>実</u> 入5 の密加 ◆	夏分布の	予測	
析的な評価方法の 検討	•	遠心模 型試験	· ●	用範囲のキ	i査·妥≧	当性確認 ◀	浸潤試験	¢ ►		二次 課題 ◀	:元体系^ 等(こ関す	への拡張、 ⁻ る検討 ▶	試験分	≓一夕取 ◆──	得と解析	の検証 ▶				
(2)ニアフィールド 三倍変速を考虑	調査·開	発計画の	設定	取りまとめ				取りまとめ	計画策定	Z		取りまとめ				取りまとめ				取りまとめ
環境支援を考慮し た核種移行評価 井街の問題	 海	外地下研	►	結晶質岩の	, 海外	地下研究:	施設の結晶	ていたい 質岩の	国内外	の結晶質	岩·堆積岩	マ トリクス	結晶第	ŧ岩·堆積:	岩のマトリク	へ部/割	結晶質	[岩· 堆積者	の実際のカ	し質環境の
	マト を対	リクス部, す象としたう	/割れ目部 室内試験と	の不均質性 モデル開発 ▶	⊽⊦リ? ▲	ウス部/割 考慮した=	1目部の不対 Eデル高度(均質性を 化 ●	部/割 環	れ目部のラ 竟変遷を考	ドータ取得と ś慮したモデ	:不均質性・ ル開発 ▶	れ目音 した	Bの 不均質 データ拡き	「性・環境変 充とモデル。	遷に着目 高度化 ┣		やその 長 核種移行	朝変遷を考! モデルの構	意可能な 築 ●
1) ニアフィールト岩 盤中の核種移行	堆積岩 におけ	(泥岩)の る不均質	マトリクス) 性に着目し	部/割れ目部 ,た室内試験	堆積岩(を対象と 試験デ・	泥岩)のマ (した不均) ータ拡充と まま。の 通	トリクス部/ 質性に着目し モデル高度	割れ目部 した室内 化,原位	国内外 位置試	の結晶質: 験データを	岩・堆積岩 を活用した材	こおける原 核種移行解	結晶質 - 5	岩・堆積岩 や天然事 & 注解がエ	における原 例データを注	(位置試験デ 舌用した 日始の 評価	結晶質	岩・堆積岩 ータを活用	の原位置記 した核種移	鎌や天然 行解析モ 豊の場志
		-	5 70 18190			аж: (0) <u>и</u>	alli co o X		·	10,000	199011001		-12×1±1:	91174+VIC		• • •	4	/ X = 11 HE	80+0 /\CBK	
2)システム変遷寺 を考慮した核種	3	オーバー/ ・緩衝材・ る状態変;	(ックー緩後) 岩石の相互 遷の設定(前材,セメント 互作用に関す 条件・課題																
移行解析モデル /データベース	鉄県 現象	● 影響(鉄ど 象等),セン	核種の競さ (ント影響(▶ 合収着、共沈 変質等の収	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)			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・ 王なぁ(別の本)ことを現象範囲				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・ 正式電の調査のサカンデゴリ 調察				鉄共存が核種移行に及ぼす影響評価 そけの堪称となびまり、課題の場合			影響評価	
の整備	^え 高炭酸湯	F影響)に ◀ ● 使地下オ	関するテー	-900取得 ● 岩石中の核	• ● ● ● ●	に関する	テータの拡 :条件での岩	元 	天然 モ メント	(事例調査 共存下で)	による現象 のペントナ・	『解明 → 1トのコロイ	天然- モメント	事例調査の - 共存下で) 拡充とモテ のベントナ-	*ル開発 ┣ 小のコロイ	手法 ⁰ ● セ.	D 構築と評	価事例 課題 が核種移行	随の提示 ▶ に及ぼす
	種移行デ の理解:	ータの拡テ こ基づく核 【●	充,核種移 種移行モ:	行メカニズム デルの理解 ▶	種移行テ ムの理解	ギータの 拡 剤に基づく相	充, 核種移行 を種移行モデ	テメカニズ [•] ルの構築 ▶	ド移行 行に開	・ろ過デー 関するデー	タ、岩石変 タの取得と	買と核種移 現象解明 ▶	ド移行 行に関	・ろ過デー するデー	タ、岩石変) 9の 拡充とも	買と核種移 =デル開発 ▶	₩ •	響評価手) 課	もの構築と言題の提示	評価事例· ▶
3) 有機物・微生物 の影響評価技術		IV核 筆	(種と天然) 着生物デー	有機物との ・タ取得	ŦŤ	錯生物デ ル高度化	・ ータ取得と ・ パラメータ	整備		Iv	/核種と天然	《有機物との	諸生成デ	ータ取得と	バラメータ書	登備	天然	(有機物-村 パラメータ	核種二元 系(2整備と高度	デルの 化
の開発		核種−有精 開発の:	幾物−岩三 文献調査・	元孫モデル 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	主物による	核種収着や	地下徴きみ等デー	主物による - タの 拡充	核種収着や 影響評価/	取り込	-		地下微:	生物への希	上類元素の	り収着分離	民係数データ	7の拡充	核種科	8行影響解	析のための	データ整備
		40.070	み夺りナー	- 54U IX (4	\$00 ∰	順 こ 作灸 相里 作	クイ丁 用牛 ヤイベ へい	→				微生物と核	重との相互	瓦作用デー	夕の取得	,	相互作	■用データ の	2得,影響計)構築	平価モデル ▶
(3)ニアフィールド	▲ 計画材	 _{倹討・} 予	·備 :	◆ → 取りまとめ			IJ	∢ → なりまとめ			取	↓ → りまとめ			Т.	↓ → マりまとめ			取	りまとめ
術開発(SP3)	検討 研究開	検討 ← → 研究開発アプローチの提案			解析システムプロトタイプの				↓ プロトタイプを用いた緩衝材長			→ プロトタイプで用いる解析モデ				◆妥当性を確認したモデルによ			→ ル(こよ	
サブタスク 1): 現象解析モデルの		角2	▲ 析シスラ	-	抽出	<i>虱王</i> 工 対処方	∽ 里安課 方策の検	討	刑変算 詳細解	€芋勤の ¥析	小瓜沒道	i⊂1#©	ルの ³ 行	6当性確	自認のたる	のの試	る緩御 状態 整理	町材の長 変遷(こ係	:明変質剤 (る再解析	≌動の f・課題
統合化技術の構築		g.	イプの構	·築																
サフタスク 2) : ニアフィールドシステ	▲ 計画検	→ 討·予	備検討		▲ 核種種	多行モデ	ルの構築	▶ き、サブ	↓ サブタ	スク1(こ	よる状態	→ 変遷に	▲ 緩衝	材の変質	ぽが核種種	➡ 移行遅	▲ 緩衝	材の変質	「が核種利	➡ 多行遅
ム核種移行評価技術 の開発		↓ 是¥i	知見の	▶ 2011	タスク システ キ キャ	1で構築 -ム(こよ)	したプロ る解析結:	トタイプ 果を踏	係る解 移行/ 検⇒+	斜結果 ペラメータ 試解だ	を反映し えの設定:	た核種 方法の	延効! るため	果に与え りの手法	る影響を の検討	評価す	延効: るため	果に与え わの手法 整理	る影響を の整備に	評価す こ向けた
		取初 一人	ワークの	LE +±・ノレ)構築	エスパ	_ 高飞,用半个开			1 (突討、	动、两牛竹丁							;未走]	定理		

禄: SP1,青: SP2

	処分場閉鎖~NF遷移状態 (閉鎖後1,000年まで)	人エバリア・岩盤での核種移行 (1,000年後以降)								
オーバーパック等	初期の大気が存在する条件で のオーバーパック腐食挙動									
(炭素鋼)	低酸素濃度環境におけるOPの	。 食食現象モデル								
	鉄との相互作用によるベントナイ	トの変質挙動評価								
	過渡期のTHMC連成挙動に関	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								
經衝材	する現象解析モデル									
(ヘントナイト系材料)	セメンテーションによるベントナイ	トの変質挙動評価								
	過渡期から長期に渡る緩衝材の	過渡期から長期に渡る緩衝材の力学挙動評価モデル								
	緩衝材流出を考慮した緩衝材									
士伊	再冠水挙動評価モデル	セメント系材料が緩衝材中の核種移行へ及ぼす影響評価								
又休 (セメント系材料)										
		セメント系材料が岩石中の核種移行へ及ぼす影響評価								
	母岩中のアルカリプルーム等の	豆応輸送挙動評価モデル								
<u>山山</u> <u></u>		結晶質岩中の核種移行評価モデル								
石盛		堆積岩中の核種移行評価モデル								
		高炭酸条件が岩石中の核種移行に及ぼす影響評価								
		有機物が岩石中の核種移行へ及ぼす影響評価								
		微生物が岩石中の核種移行へ及ぼす影響評価								

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.
- 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,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,2018.

https://www.enecho.meti.go.jp/appli/public_offer/1804/180413b/ (2022年3月23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 (2022年3月23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/ (2022年3月23日最終閲覧). 経済産業省,エネルギー基本計画, 128p., 2021.

- https://www.enecho.meti.go.jp/category/others/basic_plan/pdf/20211022_01.pdf(2022年3月23 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.
- 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,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, 533p., 2021.

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(2.2節)
- ・ 緩衝材の変質挙動(2.3節)
- ・ ニアフィールドTHMC連成挙動(2.4節)
- ・ 母岩中アルカリプルーム反応輸送挙動(2.5節)
- ・ 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(2.6節)

2.1.25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 ℃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,2018a) などで抽出された課題である力学的挙動の解析手法の高度化などに取り組む。母岩中アルカリプ ルーム反応輸送挙動については、地下施設の試料や原位置試験データなどを活用して、セメント ー岩石相互作用の理解を進めるとともに、その知見を活用して先行事業「セメント材料影響評価 技術高度化開発」(日本原子力研究開発機構,2015b)などで構築された亀裂性岩盤におけるセメ ントと岩石との反応・物質輸送モデルなどをベースにニアフィールド母岩を対象としたアルカリ プルーム反応輸送挙動評価手法の高度化を図る。

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

2.2 オーバーパックの腐食挙動

2.2.1 背景と目的

オーバーパック周囲の環境条件は時間とともに変化し、それに伴ってオーバーパックの腐食挙 動も変化すると考えられる。特に、処分場閉鎖後初期の過渡状態では温度、緩衝材飽和度、緩衝 材の間隙水水質、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;2015a;2016a;2017;2018a)では過渡状態にお ける腐食モニタリングのための腐食センサーを開発し、幌延深地層研究センターの地下研究施設 (以下、[幌延URL]という)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、緩衝材再冠水から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を理解するためには、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;2015a;2016a;2017;2018a) 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及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。

令和3年度は、原位置試験試料等の分析として、幌延URLにて実施された原位置試験で使用した 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、腐食センサー表 面の腐食生成物の分析を実施するとともに、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、過渡期で想定される不均一状態の洗い出しを行った。また、緩衝材内部の長 期的な微生物活性挙動を評価するため、月布ベントナイト原鉱石、市販ベントナイト試料、幌延 URLの原位置オーバーパック腐食試験で使用した膨潤前の緩衝材ブロック試料(未試験)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た。広範な 環境条件での室内試験としては、温度変遷環境での浸漬試験データを取得するとともに、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, 2015a; 2018a)で開始した高 温水環境を想定した条件での浸漬試験データを取得した。

2.2.2 実施内容

(1) 原位置試験試料等の調査、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45、135、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45° 及び225°の方向に設置されていた腐食センサーの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(FeCO₃)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135°の方向に設置されていた腐食センサーを 対象にX線回折と顕微ラマン分光分析を実施し、シデライトに加え、マグネタイト(Fe3O₄)、ゲ ーサイト(α-FeOOH)に帰属するとみられる分析結果を得た(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3年度は、環境条件の空間的な違いの把握に役立てるため、2段目と10段目の135°の方向に 設置されていた腐食センサーの表面に生成した腐食生成物をX線回折により分析した。

① 分析結果

2段目及び10段目の135°のセンサー表面に生成した腐食生成物のX線回折による分析結果を図 2.2-3に、2段目の腐食センサーから同定された腐食生成物を図2.2-4に示す。2段目、10段目ともに 135°方向に設置されていた腐食センサーの表面ではアカガネイト(8-FeOOH)、ゲータイト及び マグネタイトが腐食生成物として検出され、平成30年度に分析した2段目と10段目の45°及び 225°方向及び平成31年度に分析した6段目135°方向に設置されていた各腐食センサーの表面に 検出されたシデライト(FeCO₃)は検出されなかった。表2.2-1にこれまでに各腐食センサー表面 に検出された腐食生成物を示す。

2) 考察

分析した腐食センサーの表面に検出されたアカガネイトは塩素を含む環境で生成する鉄水酸化 鉱物であり、考古学的鉄製品や原位置試験試料の腐食生成物としても観察されることがある (Réguer et al., 2007;松井, 2009;柳田, 2018; Hadi et al., 2019; Necib et al., 2017)。また、 アカガネイトはpH8以上では溶解し、ゲーサイトとして再沈殿することが知られている(高谷ほ か, 2013)。シデライトは2価鉄、マグネタイトは2価/3価の混合、アカガネイト及びゲーサイトは 3価鉄の腐食生成物であることから、2段目及び10段目の135°方向の腐食センサー近傍は比較的酸 化性の酸化還元環境やpHの変化を伴う溶解と沈殿反応を経た可能性がある。表2.2·1に示したよ うに、同じ段数の緩衝材ブロックから回収された腐食センサーであっても埋め込まれていた方向 によって腐食生成物の種類が異なっていたり、同じ方向であっても段数の違いによって腐食生成 物の種類が異なる場合があることから、緩衝材内の腐食に影響を及ぼす環境条件も位置によって 異なっていた可能性がある。今後、他の腐食センサーについても腐食生成物の分析を行うととも に、原位置で測定された分極抵抗値の経時変化の比較などの調査を行い、緩衝材中の位置による 腐食挙動の違いを確認する。



図 2.2-3 腐食センサーの炭素鋼電極表面に付着していた腐食生成物のX線回折結果



図 2.2-4 腐食センサーの設置位置と同定された腐食生成物

	45 °	135 °	225 °	315 °
10段目	シデライト	<u>アカガネイト</u>	シデライト	未実施
	(粉末XRD)	マグネタイト	(粉末XRD)	
		(非破壊XRD)		
6段目	未実施	シデライト	未実施	未実施
		ゲーサイト		
		マグネタイト		
		(顕微ラマン)		
2段目	シデライト	アカガネイト	シデライト	未実施
	(粉末XRD)	マグネタイト	(粉末XRD)	
		(非破壊XRD)		

表 2.2-1 腐食センサー表面の腐食生成物から同定された腐食生成物 (下線部は令和3年度実施)

2) 処分環境の多様な不均一性を考慮した室内試験に関する検討

緩衝材が再冠水して飽和に達した後は、溶存酸素が残存していたとしても、緩衝材中での溶存 酸素の移行が制限されるため、オーバーパックの腐食への影響は無視できるほど小さいことが確 認されている(Honda et al., 1995)。一方、緩衝材の飽和に至るまでの過渡的な期間においては 緩衝材中の水分分布の不均一により溶存酸素の供給量に違いが生じ、腐食が不均一になる可能性 がある。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; 2015a; 2016a; 2017; 2018a) では同事業で開発した腐食センサーを用いて不飽和緩衝材中における炭素 鋼の腐食モニタリング試験を実施し、水分分布の不均一に起因する腐食の局在化などを把握した。 また、平成8年度から岩手県釜石市の釜石鉱山における「粘土充填・熱負荷試験」で使用された炭 素鋼製のヒーターの腐食状態の調査結果、緩衝材の打ち継ぎ面部に接触していたヒーター表面の 選択的な腐食が観察されたこと、緩衝材の打ち継ぎ面にヒーター表面の腐食によって生成したゲ ータイトが観察されたことが報告されている(図2.2.5)(炭山, 1999)。ヒーター表面の選択的 な腐食の原因としては、緩衝材の打ち継ぎ面接触部とその他の部分の水分分布の不均一が考えら れる。このような緩衝材の「境界」は現時点で想定されている「横置き・PEM方式」、「竪置き・ ブロック方式」のいずれにおいても存在しており、不均一な腐食を引き起こす可能性がある。ま た、緩衝材が飽和すると緩衝材の境界は消失することが期待されているが、釜石鉱山の原位置試 験で観察されたようなゲータイト等の腐食生成物が沈殿すると緩衝材の境界が消失せず、緩衝材 飽和後も残存し、水みちや核種移行の経路となる可能性もある。

令和3年度は、「横置き・PEM方式」、「竪置き・ブロック方式」のそれぞれについて、緩衝材 への地下水の浸潤過程で考えられる不均一について洗い出しを行った。



図 2.2-5 釜石鉱山で実施された粘土充填・熱負荷試験の模式図と解体時の観察された状態 (写真は炭山(1999)より転載)

(1) 横置き・PEM方式

PEM (Prefabricated Engineered Barrier System Module) 方式はガラス固化体、オーバーパ ック、緩衝材で構成された人工バリアを地上で一体的に組み立て、そのまま地下施設に搬送定置 する概念であり、Apted (1997) やToyota and McKinley (1998) などによって提案されたもの である。現在検討されているPEM容器の組み立て方法の設計オプションとしては、一体型容器、 鋼殻リング方式、横割り容器などがある (原子力環境整備促進・資金管理センター, 2011)。NUMO の包括的術報告書 (原子力発電環境整備機構, 2021) では試作実績がある鋼殻リング方式が検討 対象とされていることから、この方式を対象に不均一の洗い出しを行うこととした。

鋼殻リング方式の試作例(原子力環境整備促進・資金管理センター,2011)では縦割りのPEM容 器内で粉末状緩衝材をランマを用いて締固め、中央部にオーバーパックを挿入する孔があるリン グブロック状(ドーナツ状)の圧縮された緩衝材が鋼殻リングと密着した状態で形成される。こ れを積み重ねた状態で中央部の孔にオーバーパックを挿入するが、搬送時のオーバーパックと緩 衝材の衝突により緩衝材が損傷する可能性があることからオーバーパックと緩衝材のすきま(20 mm幅)にはベントナイトペレットが充填されることが想定されている。また、鋼殻リング間には すきまが存在し、ここから地下水が緩衝材中に浸入することが想定されている。

以上を前提として場合、図2.2-6に示したように緩衝材リングブロック間、オーバーパックと緩 衝材のすきまに充填されるベントナイトペレットの粒界などの「境界」がオーバーパック近傍に 存在することとなり、境界部とその周辺部で水分分布に違いが生じた場合、オーバーパック表面 が不均一に腐食する可能性がある。緩衝材性能に関するABMプロジェクト (Alternative Buffer Material Project)では一部の条件で使用されたペレット状のベントナイトの粒界に腐食生成物が 生成していることが確認されている (Wersin et al., 2021)。また、図2.2-7に示したようにケイ 砂粒子を含む緩衝材にランマによる振動が与えられた場合、バグノルド効果 (Bagnold, 1954)に よって粗粒なケイ砂粒子が上方に移動することで逆級化構造を形成し、透水性の差異によって水 分分布の違いを生じる可能性がある。



図 2.2-6 横置き・PEM方式で想定される不均一状態(その1)



図 2.2-7 横置き・PEM方式で想定される不均一状態(その2)

② 竪置き・ブロック方式

堅置き・ブロック方式では、地上施設で製作したブロックを地下施設に搬送して円筒状に積み 重ねたのち、中央部の孔にオーバーパックを挿入する。ブロックの方式としては、円環扇形ブロ ックを積み重ねる方式と、一体となった円筒形ブロックの方式があり、前者については積層する ブロック上下面の境界だけではなく扇形の径方向の側面にも境界が存在し、後者については一体 型であるため緩衝材中には境界が存在しない。また、PEM方式のように搬送時のオーバーパッ クと緩衝材の衝突による破損がないため、オーバーパックと緩衝材のすきま(20 mm幅)にはべ ントナイトペレットを充填することは想定されていない。このすきまは、緩衝材外周部の浸潤に 伴い閉塞すると考えられるが、外周部の浸潤状態に不均一がある場合、部分的に閉塞しない状態 となる可能性はある。図2.2-8はこの状態を模式的に示したものであり単純化している。

令和4年度は、これらの不均一状態を模擬したオーバーパック腐食試験方法について検討を行う。



図 2.2-8 竪置き・ブロック方式で想定される不均一状態

3) ベントナイト中の微生物活性に関するデータ取得

地下の原位置環境に設置された緩衝材中の微生物活性挙動が模擬オーバーパックの腐食反応に 及ぼす影響を評価するために、令和2年度までに、幌延URLの350m試験坑道において実施したオ ーバーパック腐食試験の微生物調査を実施してきた。腐食試験に用いた材料中の微生物の現存量 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、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の生菌数を寒天培養法によ り分析した。また、培養法に依存しない分子生物学的手法を用いたDNA解析により、緩衝材中の 微生物量及び種組成に関するデータを取得した。その結果、原位置腐食試験中に90℃程度の高温 環境であった模擬オーバーパック近傍を含め、ほぼすべての試料から微生物が検出され、硫酸還 元菌等の腐食に影響を及ぼす可能性のある微生物種も優占種として検出された。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、鉄酸化物やシデライトであることが明らかになっていることから、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硫酸還元菌等の微生物腐食が関与している可能性は極めて低い と推察された。緩衝材試料中からは、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画法を形成して休眠状態になる種などが多く検出されたことから、試 験過程の緩衝材内部は微生物増殖に適していなかったことが示唆された。原位置試験中は、模擬 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以上の高温と なり、緩衝材飽和後は住処としての空間や栄養塩の供給が制限されることにより、微生物は緩衝 材内部で低活性状態か休眠状態であった可能性が高い。しかしながら、実際の処分環境下では、 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、緩衝材内部 の温度・乾燥密度・膨潤圧・水分活性など複数の条件が考えられる。そのため、処分環境におい て、様々な条件下かつ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 を蓄積することが重要であると考えられる。

令和3年度は、様々な条件下における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る(12・16 Ma)月布ベントナイト鉱山の原鉱石等を用いて、微生物現 存量や種組成などのデータを拡充するための分析を実施した。また、月布ベントナイト鉱山から 産出された市販のベントナイトについても微生物分析を実施した。

① 分析対象としたベントナイト試料

ベントナイト原鉱石(以下、[原鉱石]という)試料は、山形県大江町月布ベントナイト鉱山(ク ニマイン(株))梅野木田鉱床のベントナイト層のうち、原鉱石中のモンモリロナイト含有量が 異なるとされている1番層、29番層及び31番層の3層から2019年に採取した。29番層及び31番層の 原鉱石は、クニゲルV1の原料として使用されているものであり、また1番層はこれらの2層よりも モンモリロナイト含有率が小さいとされているものである。

原鉱石は、採取作業に伴う土着由来外の微生物の汚染影響を極力排除するため、ボーリング掘 削ではなく、坑道壁面からハンマーやドライバドリルを用いて、坑道壁面の表面に露出した大気 に直接接触していた部分を除去した後、坑道壁面の内側部分から30・40 cm大の原鉱塊として採 取した。採取した原鉱塊は、乾燥及び外部からの微生物汚染を極力防ぐために、ストレッチフィ ルムで念入りに梱包し、冷蔵にて実験室に運搬した。採取後ただちに冷蔵運搬された試料は、採 取翌日に各分析に供するためにサブサンプリングを行った。微生物分析試料採取時には、人為的 な汚染を防ぐために、ゴム手袋を着用して作業を行い、オートクレーブ滅菌済みのタガネ、スパ チュラ、ミクロスパーテルを用いて原鉱塊を解体した。坑道壁面に露出していた影響や人為的汚 染の影響を排除するため、原鉱塊表面を除去し、人為的汚染が生じていないと思われる内側から 試料を採取して各分析に供した。全菌数、16SrRNA遺伝子解析及び寒天培養用による生菌計数に 供するために、各試料複数箇所の領域から試料を採取し、その後の分析に応じて前処理した後、 分析に供するまで冷凍及び冷蔵保存した。

分析対象とした原鉱石試料のリスト及び写真を表2.2-1、図2.2-1にそれぞれ示す。試料1、29-C、 29-3については、原鉱塊全体が比較的均質な状態であったが、試料31については、原鉱塊の中に 二次鉱物の脈などが認められたことから、これらの不均質な部分は試験対象から除外した。また、 製品化されている市販ベントナイト、クニゲルV1 (Lot no. 304464)、クニピアF(Lot no. F6G111; 以下、[クニピアF-1]という、Lot no. F0K091;以下、[クニピアF-2]という)及び幌延URLの原 位置オーバーパック腐食試験で使用した膨潤前の緩衝材ブロック(以下、[緩衝材ブロック]とい う)は参考試料とし、原鉱石試料と同様に微生物分析を実施した。

試料名	層	坑道位置	ベントナイト性 状	坑道掘削時期	坑道開放期間	モンモリロナイト 含有量 ¹ (%)	メチレンブルー 吸着量 ¹ mmol/100 g
1	1番層	中央	Na型	2000年	19年	28	42
29-1C	29番層	北側	Na型	2013年10月	6年6カ月	34-36	52-54
29-3	29番層	南側	Na型	2019年4月	1カ月	34-36	52-54
31	31 番層	北側	Na型	2018年8月	8カ月	38-48	58-72

表 2.2-2 月布ベントナイト原鉱石の試料リスト

1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)参照



図 2.2-9 月布ベントナイト鉱山から採取した原鉱石の写真 (a) 試料1、(b) 試料1の半割、(c) 試料29-1C半割、(d) 試料29-3、(d) 試料31、(f) 試料31の一 部の不均質な領域、(g) 試料31の一部の不均質な領域. 二次鉱物の脈が認められた.

② 月布ベントナイト原鉱石試料の物理的特性分析

原鉱石試料中の微生物生息環境を評価するために、空隙率、細孔径分布に関する分析をおこなった。全空隙率の測定には、試料を30mm角の大きさに加工し、寸法を計測した。1試料あたりの ばらつきを評価するために、加工・計測は1試料につき3か所で実施した。寸法計測後、105 ℃で 乾燥し、重量を計測した。また、乾燥試料を粉砕し、真密度を測定した。寸法、乾燥重量及び真密 度測定の結果から全空隙率を算出した。細孔径分布の測定には、試料を5mm角程度に加工し、水 銀圧入法により細孔径分布及び空隙率を測定した。細孔径分布測定には水銀圧入式ポロシメータ (micromeritics社製、AutoPore IV 9520)を使用し、真空乾燥した5mm角程度の小片試料の0.003 - 300 µm範囲の細孔径分布、累積空隙率(≒全空隙率)の他、乾燥密度、真密度を取得した。

各測定項目の結果を表2.2-3に示す。水銀圧入法により得られた空隙径分布の特徴としては、試料1では分布の変曲点が空隙直径で約0.3 mm以下にて確認され(図2.2-10a)、試料29-1Cでは約2 mm以下の比較的大径側で確認された(図2.2-10b)。試料31では、主要な空隙分布が約0.1 mm以下で確認される一方で、約4 mm以上の大径側にも空隙分布が確認された(図2.2-10c)。乾燥重量、真密度、試料体積から産出した全空隙率と水銀圧入法で求めた全空隙率とを比較すると、試料1は両測定法で約24 vol%、試料29-1Cで約34 vol%と同等の値を示したが、試料31ではそれぞれ約35 vol%と24 vol%と、異なる値を示した。試料31は他の試料と比較して含水率が高かったために、試料乾燥時の乾燥収縮の影響を受けている可能性もあるが、月布鉱山の31番層から採取した鉱石に関する既存の報告は、水銀圧入法と同等の値を示していることや、同試料が採取された層はモンモリロナイト含有量が比較的高いこと、また、主要な細孔径が比較的小さいことから、空隙率も比較的低い可能性がある。

今北 南(1/)			乾燥密度 (g/cm ³)			真密度 (g/cm ³)			空隙率(%)					
試料名	3小:	₽(%)	重量・体	積計算	水銀	E入法	重量·体	착積計算	水銀	E入法	重量·体	착積計算	水銀日	E入法
	平均値	標準偏差	平均値	標準偏差	平均値	標準偏差	平均値	標準偏差	平均値	標準偏差	平均値	標準偏差	平均値	標準偏差
1	7.9	0.1	1.91	0.01	1.92	0.01	2.52	0.01	2.52	0.01	24.2	0.15	23.7	0.66
29-1C	12.1	0.03	1.63	0.01	1.66	0.01	2.50	0.02	2.53	0.02	34.7	0.61	34.4	0.44
29-3	15.4	0.5	1.66	0.00	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.
31	18.3	0.2	1.70	0.01	1.98	0.02	2.61	0.02	2.62	0.01	35.0	0.48	24.3	0.73

表 2.2-3 月布ベントナイト原鉱石試料の物理的特性

n.d.; no data



図 2.2-10 月布ベントナイト原鉱石の細孔径分布測定結果

③ 月布ベントナイト原鉱石試料等の微生物分析

生菌計数については、原鉱石中の好気性菌及び嫌気性菌を対象として培養を行った。サブ試料 採取後直ちに試料を滅菌水に希釈し、1倍、10倍、100倍の希釈率にてR2A寒天培地に100 mlずつ 塗布し、25 °Cにて1か月間培養し、定期的に寒天培地に形成されたコロニー数を計数した。その 結果、好気性生菌微生物は、試料1及び試料29·3のみで検出され、試料29·1C及び試料31では検出 されなかった(図2.2·11)。また、嫌気性菌については、1か月の培養期間において、すべての試 料にて全く検出されなかった。



図 2.2-11 月布ベントナイト原鉱石試料中の好気性生菌数

令和2年度までに検討したDNA抽出法を用いて、原鉱石試料、市販ベントナイト及び幌延URL における原位置OP試験で使用した膨潤前の緩衝材ブロック試料からDNAを抽出した。抽出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 配列データを取得できたが、抽出されたDNA量は非常に低濃度であることが示された(図2.2-12)。 今回DNA解析を試みた8試料(原鉱石4試料、市販ベントナイト3試料、緩衝材ブロック1試料)に ついて、いずれの試料からもDNAは抽出することができたが、その濃度は、ベントナイト中の粘 土物質へのDNA吸着のブロッキング剤として添加したスキムミルク中のDNA濃度と大きな差が ないことから、各試料中のDNA濃度が非常に低い状態であったことを示す結果となった。DNA抽 出を行った試料のうち、原鉱石の試料29-1C及び試料31と市販ベントナイトであるクニピアFから は、比較的高い濃度のDNAが検出された。令和2年度までに実施した幌延URLにおける原位置オ ーバーパック腐食試験の緩衝材試料について、試験開始前の初期値を把握するために、原位置試 験に用いた膨潤前の緩衝材ブロックについて、令和3年度に分析を実施したが、DNAが非常に低 濃度であったことが確認された。また、原位置試験が実施された深度350 mの坑道底盤から採取 した珪質泥岩についても、非常に低濃度であることが確認された。一方で、微生物腐食を評価す るために室内で実施した浸漬試験(日本原子力研究開発機構,2018a)のDNA抽出結果を参照した ところ、本研究と比較して数倍から数十倍の濃度が検出されていた。微生物腐食評価のための室 内試験では、微生物増殖を促進させるために浸漬液中に栄養塩等を添加しているため、微生物が 増殖しやすい環境であったことや、緩衝材の乾燥密度が1.0 g/cm³と比較的高密度ではなかったこ とから、緩衝材内部での微生物量は多かったと予想されるが、その条件下でも炭素鋼片の腐食は 比較的抑制されていることが報告されている。したがって、本研究で対象とした原位置オーバー パック腐食試験、原鉱石における微生物の生息は、極めて抑制されていると考えられる。



図 2.2-12 原鉱石、市販ベントナイト、緩衝材ブロックなどから抽出したDNA濃度

対象試料中のDNA解析の結果から、原鉱石の試料内部には複数種の微生物が存在していたが、 多様性は高くないことが明らかになった(図2.2-13)。優占種として、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、高乾燥密度・低水分活性・貧栄養などの生息に は厳しい条件下でも生き延びることができる種が優占的に生息していると推測された。一方で、 硫酸還元反応を行う種が属する Deltaproteobacteriaや硫酸還元を行う Firmicutes 門の微生物も 検出されており、また、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、これらの種の活性が高い場合には、腐食に影響を及ぼす可能性があるが、 抽出されたDNA濃度からは、微生物活性は極めて低いことが推察されることから、乾燥密度など の緩衝材施工条件が機能していれば、超長期的に微生物活性を抑制することができると推察され た。市販のベントナイト材料として、粉末状のクニゲルV1及びクニピアFの微生物群集について 解析した結果、原鉱石と比較して多様性が高いことが示された(図2.2-13)。この理由として、原 鉱石を製品化する過程や保存の過程において、微生物が混入したと考えられる。高レベル放射性 廃棄物の地層処分では、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)。原鉱石を製品化 する過程や保存の過程での微生物の混入は実際の地層処分の工程においても起こることが予想さ れるが、一方で、緩衝材ブロック中の微生物組成は、極めて多様性が低く、貧栄養状態等の極限 環境でも生き延びることができる*Actinobacteria*門に属する種が60%の割合で存在することが明 らかになった(図2.2-13)。したがって、原鉱石からベントナイトを製品化する過程で微生物が混 入した場合でも、高密度の緩衝材ブロックにした段階で微生物増殖は抑制できると考えられる。

本研究で得られた成果は、超長期におけるベントナイト中の微生物活性挙動を評価する上で、 ナチュラルアナログ的な観点から非常に重要な知見となる。緩衝材中での微生物活性を抑制する 条件として、高乾燥密度、低水分量、低空隙率及び細孔径等が重要であるが、それらの条件が長 期的に維持されていれば、微生物活性も長期にわたって抑制することができると考えられる。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。



図 2.2-13 16S rRNA遺伝子に基づく原鉱石、市販ベントナイト、 緩衝材ブロック内の微生物群集組成

(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;2015a; 2016a;2017;2018a)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。

令和3年度は、高温水環境を対象とした長期腐食試験を実施し、腐食量、水素濃度などの腐食デ 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。

令和3年度は、温度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 するため、試験期間中に温度を変更する浸漬試験を開始した。そのうち、以下では令和3年度中に 得られた浸漬期間180日のデータについて述べる。

1) 高温水環境下における長期腐食試験

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形した。図2.2-15に示す気密容器に人工海水(ASTM D1141-98準拠)とチタン製のカラムを浸漬し、所定の温度に設定した恒温槽内に静置して試験を実施した。

2 試験片

試験片は、従来の条件に準じて以下のとおりとした。

- ・炭素鋼材質: JIS G 3106 SM400B
- ・試験片形状:浸漬試験用30×30×2 mm、水素試験用30×10×2 mm
- ・表面仕上げ:エメリー#800湿式研磨

③ 緩衝材

緩衝材は、従来の条件に準じて以下のとおりとした。

- ・組成: 30 wt%ベントナイト (クニゲルV1) +30 wt%ケイ砂混
- ・密度:1.6 Mg/m³

④ 試験手順

チタン製のカラム内に炭素鋼試験片と緩衝材を入れ、緩衝材が所定の密度になるように圧縮成型した。試験溶液は窒素雰囲気のグローブボックス中(気相部酸素濃度1ppm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。気密容器にチタン製のカラムと試験溶液を入れて恒温槽に所定の期間静置した。恒温槽の設定温度は50、80、120及び160℃、試験期間は1,825日間(5年間)とした。

5 試験結果と考察

(a) 試験片の外観

腐食試験後の試験片の外観を図2.2-16に示す。試験片表面には灰色から黒色の皮膜が形成して いた。一部茶色に見えるものは取り出しの際に大気中で酸化したものと考えられる。脱スケール 後の外観から表面はほぼ均一な全面腐食であり腐食の局在化は見られなかった。

(b) 腐食生成物の分析

X線回折結果を図2.2-17に示す。従来の結果(谷口ほか,2010)と同様に主な腐食生成物として シデライト(FeCO₃)が、160°Cではマグネタイト(Fe₃O₄)が同定された。

(c) 腐食量測定結果

腐食試験前後の試験片の重量減少から算出した平均腐食量と平均腐食速度を表2.2-4に示す。平 均腐食速度は平均腐食量を試験期間で除した値である。また、平均腐食量の経時変化を図2.2-18 に、腐食速度に及ぼす温度の影響を図2.2-19示す。従来の結果(日本原子力研究開発機構, 2018a) と同様に、腐食量は概ね温度が高いほど大きな値になった。

(d) 水素濃度分析

次に、水素抽出曲線の一例を図2.2・20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2.2-5に、長期水素吸収試験結果を図2.2・21に示す。 従来の結果(谷口ほか,2012)と同様に温度が高いほど水素量は小さくなる傾向がみられた。ま た、今回得られた拡散性水素濃度の値で最も高い値でも約0.04 ppm以下であり、これは脆化が問 題となる濃度(約1 ppm以上)(Okada, 1977)よりも十分小さいことから腐食に伴う水素吸収に よる脆化は問題にならないと考えられる。



図 2.2-14 チタン製カラムの模式図



図 2.2-15 気密容器の外観図

溶液	期間 (day)	温度 (°C)	上段:脱スケール前 下段:脱スケール後
人丁海水	1 825	50	PP403
	1,020		MH-UL H402 H403
人工海水	1,825	80	
			MH4.
八工伊小	1,820	120	
人工海水	1,825	160	

図 2.2-16 腐食試験後の試験片の外観



図 2.2-17 試験後試験片のX線回折結果

波涛	期間	温度	腐食量	腐食速度
俗攸	(day)	(°C)	(mm)	(mm/y)
			2.08×10^{-2}	4.17×10^{-3}
人工海水	1,825	50	1.70×10^{-2}	3.40×10^{-3}
			$1.86 imes 10^{-2}$	3.72×10^{-3}
	1,825	80	$1.99 imes 10^{-2}$	3.97×10^{-3}
人工海水			$2.18 imes 10^{-2}$	4.36×10^{-3}
			2.29×10^{-2}	4.59×10^{-3}
		120	2.11×10^{-2}	4.22×10^{-3}
人工海水	1,825		2.77×10^{-2}	$5.55 imes 10^{-3}$
			$1.90 imes 10^{-2}$	3.79×10^{-3}
人工海水			8.87×10^{-2}	1.77×10^{-2}
	1,825	160	$9.35 imes 10^{-2}$	1.87×10^{-2}
			8.50×10^{-2}	1.70×10^{-2}

表 2.2-4 試験片の重量減量から算出した平均腐食量及び平均腐食速度



水素放出速度 (ppm/min)



A

150

200

0 8

100

温度(℃)

) 300 温度(℃)

(2) 80 °C

400

500

600

200

ç



波法	期間	温度	拡散性水素濃度
俗攸	(day)	(°C)	(ppm)
			0.039
人工海水	1,825	50	0.020
			0.032
			0.019
人工海水	1,825	80	0.008
			0.020
			0.009
人工海水	1,825	120	0.014
			0.013
			0.005
人工海水	1,825	160	0.009
			0.012

表 2.2-5 拡散性水素濃度の測定結果



2) 温度を変遷させた浸漬試験

低酸素環境では温度の違いが腐食挙動に与える影響が大きく、これまでの研究で、温度と腐食 量の関係がある程度明らかになり、低温条件では皮膜による保護性が低下する傾向がわかってき た(谷口ほか,2010)。しかし、従来の研究の試験条件は試験期間を通して温度が一定で、試験期 間の途中で温度を変化させた場合の腐食挙動の研究は行われていない。実際の地層処分の環境で は、ガラス固化体からの発熱は徐々に低下していくと予測されるので、連続的な温度変化を伴う 系での腐食挙動を明らかにする必要がある。そこで、試験の途中で温度を変化させ、腐食モニタ リング試験及び浸漬試験によって、温度の変化が腐食挙動に与える影響を調査する。80から95°C の高温状態から温度を低下させた場合に腐食量が変化するかどうかについてのデータを取得する ことを目的に、温度を変化させる時期や温度などの条件について複数の組み合わせの試験を行う。 令和3年度は、予備試験として試験期間180日の試験を実施した。

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形した。ガラス容器に人工海水(ASTM D1141-98準拠)とチタン製のカラムを浸漬し、所定の温度が保たれるようヒーターで加熱しながら試験を実施した。試験中は窒素ガスを吹き込んだ。

2 試験片

試験片には、炭素鋼 (JIS G 3106 SM400B)を使用し、大きさは30×30×2 mmとした。表面 はエメリー紙#800番まで湿式研磨し、アルミナペースト(粒径0.05 μm)を用いたバフ研磨で鏡 面に仕上げた。

3 緩衝材

緩衝材にはベントナイト(クニゲルV1)とケイ砂の混合体を使用した。既往の緩衝材仕様(核 燃料サイクル開発機構,1999a)に準じて、ケイ砂の混合率、乾燥密度はそれぞれ30 wt%,1.6 g/cm³ とした。

④ 試験手順

チタン製のカラム内に炭素鋼試験片と緩衝材を入れ、緩衝材が所定の密度になるように圧縮成型した。試験溶液は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。ガラス容器にチタン製のカラムと試験溶液を入れて所定の温度が保たれるようヒーターで加熱しながら所定の期間静置した。試験期間は180日間とし、温度は90日目に変更した。比較のため、一部の試験条件で約1°C/日の低下率で段階的に温度を低下させる試験も実施した。試験条件を表2.2.6に示す。

雰囲気	試験溶液	試験期間	温度(°C)		C)
				\rightarrow	95
			95	\rightarrow	80
	人工海水	180日		\rightarrow	65 *
				\rightarrow	50*
窒素				\rightarrow	35 *
			80	\rightarrow	80
				\rightarrow	65
				\rightarrow	50 *
				\rightarrow	35*

表 2.2-6 試験条件

*:段階的に温度を下げる試験も実施

試験結果と考察

(a) 試験片の外観と腐食生成物

試験後の試験片の外観を図2.2-22及び図2.2-23に示す。初期温度が95℃の試験片表面にはほぼ 均一な黒色の腐食生成物が生成し、初期温度が80℃の試験片表面には黒から灰色及び褐色の腐食 生成物が不均一に生成していた。外観上は、1)の図2.2-16の結果と概ね類似していた。

(b) 腐食生成物の分析

ラマン分光分析の結果の一部を図2.2-24に示す。腐食生成物として主に炭酸塩(シデライト: FeCO₃)が検出された。80°Cの試験片ではFe₃O₄の可能性がある成分が検出された。その他、Green rustやFeを含む硫化物の可能性のある成分が検出された。

(c) 重量測定結果

腐食試験前後の試験片の重量減少から算出した平均腐食量と平均腐食速度を表2.2-7に示す。平 均腐食速度は平均腐食量を試験期間で除した値である。図2.2-25に平均腐食速度と最終温度をパ ラメータとしてプロットした。初期温度が高いほど、最終温度が高いほど腐食速度は大きくなる 傾向が見られた。段階的に温度を低下させた場合、1日で温度を低下させた場合と比べて、初期温 度95 °Cでは腐食速度は低下し、初期温度80 °Cでは腐食速度は増加した。

温度 (°C)		外観	
95→95			
95→80			
95→65			
95→50			
95→35			
80→80			
80→65			
80→50	0		NBH TH
80→35			

図 2.2-22 試験後試験片の外観

温度 (°C)	外観	
95→65		
95→50		
95→35		
80→50		
80→35		

図 2.2-23 段階的に温度を変化させた試験後試料の外観



図 2.2-24 試験片表面のラマン分光分析結果

温度	平均腐食深さ	平均腐食速度
(°C)	(mm)	(mm/y)
95	1.10×10^{-2}	2.22×10^{-2}
	1.11×10 ⁻²	2.23×10^{-2}
95→80	1.03×10^{-2}	2.09×10 ⁻²
	0.973×10^{-2}	1.96×10^{-2}
$95 \rightarrow 65$	1.01×10^{-2}	2.03×10^{-2}
	1.08×10^{-2}	2.17×10^{-2}
$95 \rightarrow 65$	0.861×10^{-2}	1.75×10^{-2}
(段階的に降温)	0.942×10^{-2}	1.91×10^{-2}
$95 \rightarrow 50$	$1.05 imes 10^{-2}$	2.11×10^{-2}
	0.961×10^{-2}	$1.93 imes 10^{-2}$
$95 \rightarrow 50$	0.871×10^{-2}	1.77×10^{-2}
(段階的に降温)	0.895×10^{-2}	1.82×10^{-2}
$95 \rightarrow 35$	0.948×10^{-2}	1.90×10^{-2}
	0.9496×10^{-2}	1.90×10^{-2}
$95 \rightarrow 35$	0.922×10^{-2}	1.87×10^{-2}
(段階的に降温)	0.932×10^{-2}	1.89×10^{-2}
80	1.04×10^{-2}	2.10×10^{-2}
	1.06×10^{-2}	2.13×10^{-2}
$80 \rightarrow 65$	0.849×10^{-2}	1.71×10^{-2}
	0.775×10^{-2}	$1.56 imes 10^{-2}$
$80 \rightarrow 50$	0.703×10^{-2}	1.41×10^{-2}
	0.721×10^{-2}	1.45×10^{-2}
$80 \rightarrow 50$	0.769×10^{-2}	1.56×10^{-2}
(段階的に降温)	0.796×10^{-2}	1.61×10^{-2}
$80 \rightarrow 35$	0.665×10^{-2}	1.33×10^{-2}
	0.661×10^{-2}	1.33×10^{-2}
$80 \rightarrow 35$	0.698×10^{-2}	1.41×10^{-2}
(段階的に降温)	0.725×10^{-2}	1.47×10^{-2}

表 2.2-7 試験片の重量減量から算出した平均腐食深さ及び平均腐食速度



2.2.3 これまでの成果と今後の課題

本タスクでは、原位置試験試料等の調査・分析として、緩衝材中に埋設した腐食センサーの調 査、処分環境の多様な不均一性を考慮した室内試験に関する検討及びベントナイト中の微生物活 性に関するデータ取得を進めるとともに、広範な環境条件での室内試験を実施した。以下にそれ ぞれのこれまでの成果と今後の課題を示す。

(1) 原位置試験試料等の調査・分析

1) 緩衝材中に埋設した腐食センサーの調査

令和3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の空間的な違いの把握に 役立てるため、緩衝材の2段目と10段目の135°の方向に設置されていた腐食センサーの表面に生 成した腐食生成物をX線回折により分析した。令和2年度までに取得されたデータと比較した結果、 腐食センサーが設置された位置によって検出される腐食生成物の種類が異なり、緩衝材内の腐食 に影響を及ぼす環境条件が位置によって異なっていた可能性が示唆された。

幌延 URL の原位置試験試料を対象とした平成 30 年度から令和 3 年度までの 4 か年の調査によ り、模擬オーバーパックの腐食状況や各種のセンサーによって取得した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。

令和4年度は、他の腐食センサーについても腐食生成物の分析を行うとともに、原位置で測定された分極抵抗値の経時変化の比較などの調査を行い、緩衝材中の位置による腐食挙動の違いを評価し、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の把握に資する。

2) 処分環境の多様な不均一性を考慮した室内試験に関する検討

令和3年度は、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、「横置

き・PEM 方式」、「堅置き・ブロック方式」を対象に、過渡期で想定される不均一状態のうち、 緩衝材への地下水の浸潤過程で想定される不均一状態に関する洗い出しを行った。その結果、緩 衝材ブロック間、オーバーパックと緩衝材のすきまに充填されるベントナイトペレットの粒界な どの「境界」がオーバーパック近傍に存在し、境界部とその周辺部で水分分布の不均一が生じる 可能性が示唆された。

令和4年度は、想定される不均一状態がオーバーパックの腐食の局在化に影響するかを確認することを目的とし、不均一を模擬した試験方法の調査・検討を行う。

3) ベントナイト中の微生物活性に関するデータ取得

令和3年度は、様々な条件下における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る月布ベントナイト鉱山の原鉱石、同原鉱石を原料とする市販ベントナ イト(粉末状のクニゲルV1及びクニピアF)、幌延URLにおける原位置試験の緩衝材ブロック

(未試験試料)を用いて、微生物現存量や種組成などのデータを拡充するための分析を実施した。 対象試料中の DNA 解析の結果から、原鉱石及び緩衝材ブロックの試料内部には複数種の微生物 が存在していたが多様性は高くないこと、市販のベントナイトの微生物群集は原鉱石と比較して 多様性が高く微生物が混入した可能性があること、高密度の緩衝材ブロックに加工することによ り微生物増殖が抑制できる可能性があることがわかった。

微生物活性挙動に関する平成 30 年度から令和 3 年度までの 4 か年の調査により、幌延 URL の 原位置試験の模擬オーバーパックと緩衝材の接触部においては、硫酸還元菌などの腐食反応に関 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 反応は腐食に寄与しておらず温度条件などにより微生物増殖が抑制されていたこと、微生物活性 を抑制する条件として高乾燥密度、低水分量、低空隙率等が重要であることを示唆する知見を拡 充することができた。

令和4年度は、様々な条件のベントナイト中の微生物活性や存在種、微生物活性を抑制する条件などに関する知見を拡充し、地層処分環境における緩衝材内部の長期的な微生物活性挙動の評価に資する。

(2) 広範な環境条件での室内試験

令和3年度は、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,2015a; 2018a)で開始した高温水環境下の長期腐食試験において試験期間5年のデータを取得するとと もに、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 得するため、温度変遷条件での浸漬試験を実施し試験期間180日(90日まで初期温度を維持)の データを取得した。その結果、高温水環境下の長期腐食試験において、温度が高いほど平均腐食 量は大きい一方で拡散性水素濃度は小さく、いずれの温度条件でも水素脆化が問題となる濃度で はないことが確認された。また、温度変遷条件での浸漬試験において、初期温度又は試験終了時 の温度が高いほど試験期間中の平均腐食速度が大きくなる傾向があること、所定温度(試験終了 時の温度)まで短時間(1日間)で低下させた場合、90日間かけて段階的に降温させた場合と較 べて、初期温度95 ℃の条件では平均腐食速度は高く、初期温度80 ℃の条件では平均腐食速度 が低い傾向があることが確認された。

広範な環境条件での室内試験については、平成30年度から令和3年度までの4か年で、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するとともに、 高温水環境下の長期腐食試験により浸漬期間5年までの腐食データを取得し、水素脆化が問題と なる可能性が低いことを示唆する結果を得た。また、温度変遷条件での浸漬試験に着手し、処分 環境の温度変化による腐食挙動への影響に関するデータを取得した。

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;2015a; 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するとともに、実施した高温水環境下の長期腐食 試験及び温度変遷条件での浸漬試験における腐食速度と腐食生成物種の関係を整理する。また、 温度変遷条件での浸漬試験については1年以上の試験期間の試験を開始する。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図る。

2.3 緩衝材の変質挙動評価

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;2021)。

令和3年度は、後述するこれらの変質挙動に関する課題の解決に向けた調査検討としてそれぞれ 「炭素鋼・緩衝材境界領域における緩衝材の変質」(2.3.1項)及び「セメンテーションによる緩衝 材特性の変化」(2.3.2項)を実施した。

2.3.1 炭素鋼 - 緩衝材境界領域における緩衝材の変質

(1)背景と目的

高レベル放射性廃棄物の地層処分においては、ガラス固化体はオーバーパックに封入され、その周囲に緩衝材が配置される。オーバーパックは、地下水との接触により腐食して厚さが減少し、 一定期間後に破損することが想定されている。その過程において、オーバーパックの腐食反応に 起因する緩衝材の変質が起こる可能性があり、これまでの研究により、オーバーパックの候補材 料である炭素鋼と、緩衝材として用いられるベントナイトの相互作用により、ベントナイトの主 要構成鉱物であるモンモリロナイトが他の鉱物へ変質することが報告されている(例えば、 Guillaume et al., 2004)。一方で、鉄との反応によるモンモリロナイトの変質は、溶液中で鉄粉 とモンモリロナイトを分散させて反応させるバッチ系の試験においては観察されているが、実際 の処分場と同様の条件である圧縮ベントナイトが炭素鋼と接触する試験においては、顕著な変質 が観察された報告例はない。このことは、実際の処分環境においてモンモリロナイトの変質が広 範に及ぶ可能性が低いことを示唆する結果である(例えば、日本原子力研究開発機構, 2016a)。

炭素鋼との相互作用に伴うベントナイトの変質は、オーバーパックが1,000年以上の長期にわた って圧縮ベントナイト中に残存し、腐食が継続することを想定して評価を行う必要がある。この ような長期の変質挙動の評価を行う上では、短期の変質試験の結果を外挿することにより長期の 変質挙動を予測することは、予測結果の不確実性が大きくなることから、確度の高い評価が難し い。そのため、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,2013a)。この評価モデルにおいては、オーバーパックの腐食によるFe²⁺の生成、移行、Fe²⁺ 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。

令和2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ベントナイト試料と、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 イト試料及び考古学的鉄製品に付着していた土壌の分析を行った(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;2021)。その結果、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。

令和3年度は、令和2年度に調査して選定した長期間土壌中に埋蔵されていた鉄遺物(弥生時代 中期から後期の板状鉄製品及び奈良時代の鉄斧)に関する調査を継続して埋蔵環境条件や付着し ていた土壌中のケイ酸塩鉱物粒子の変質状態に関するデータを拡充するとともに、幌延深地層研 究センターで実施した原位置試験において使用した腐食センサー(炭素鋼製)表面近傍のベント ナイト試料及び2.2節で報告した「高温水環境下における長期腐食試験」において炭素鋼試験片に 接触していたベントナイト試料の変質状態を電子顕微鏡等で分析した。

(2) 実施内容

1) 考古学的製品の調査・分析

① 調査・分析試料及び調査・分析手法

(a) 調査・分析試料

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、奈良県奈良市の平城宮跡から出土した袋状鉄斧1点である。比恵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、平城宮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及び図2.3-2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。

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)
5849 剥離片	袋状鉄斧	平城宮跡	奈良時代	奈良文化財研究所(2012)

表 2.3-1 研究対象試料



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(b)(d)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 平城宮跡出土鉄製品(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。)

(b) 環境条件に関する調査・情報収集

福岡県福岡市の比恵遺跡については、板状鉄製品2点のそれぞれが出土した地点を含む調査地区の発掘調査が既に終了しており、現地調査が不可能であった。そのため、令和3年に発掘調査が実施されていた比恵遺跡内の別調査地区(福岡市立春住小学校運動場内)において分極抵抗法を用いた腐食速度を測定した。測定には、Rohrback Cosasco Systems社製のポータブル腐食速度測定

器(Corrater Aquamate)及び同社製土壌腐食速度測定用炭素鋼プローブ(P/N 850-K03005)を 用いた。この腐食速度は、腐食生成物皮膜の影響のない状態での腐食速度(初期腐食速度)に相 当する。

奈良県奈良市の平城宮跡についても、袋状鉄斧が出土した地点の発掘調査が既に終了しており、 現地調査が不可能であった。そのため、奈良文化財研究所柳田明進博士より提供頂いた平城宮跡 の地下水データ(奈良国立文化財研究所,1979)から出土地点近傍の観測井のデータを抽出し、整 理した。

(c) 腐食層厚の計測

福岡県福岡市の比恵遺跡から出土した板状鉄製品2点(HIE057及びHIE125)については、令和 2年度に取得した微小部蛍光X線分析によるFeのマッピング分析結果(日本原子力研究開発機構・ 原子力環境整備促進・資金管理センター, 2021)を二値化処理し、腐食層厚を計測した。

(d) 走查型電子顕微鏡分析

令和2年度に作製した奈良県奈良市の平城宮跡から出土した鉄斧(5842)の剥離片の断面試料について、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(日本電子株式会社製 JSM-7200F)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。観察倍率は170倍(低倍率)、1,200倍(高倍率) とし、170倍で取得した画像は、剥離片断面全体が観察できるよう、汎用的な画像解析ソフトウェアであるImageJ (Schneider et al., 2012)を用いた連結処理による加工を行った。

(e) 透過型電子顕微鏡分析

令和2年度に作製した奈良県奈良市の平城宮跡から出土した鉄斧(5842)の剥離片の断面試料について、集束イオンビーム(FIB)装置(日立ハイテクノロジー社製NB5000)及び冷却装置(日立ハイテクノロジー社製雰囲気遮断冷却ホルダー)を用いて薄膜切片試料を作製した。作製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・2100F)を用いた観察・分析を行い、モンモリロナイト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10・40 kV、ステージ温度は約・130 ℃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。

2 調査・分析結果

(a) 環境条件に関する調査・情報収集

比恵遺跡にて実施した炭素鋼プローブを用いた腐食速度の測定状況を図2.3-3に示す。腐食 速度は炭素鋼プローブの先端を発掘現場の法面に20 cm以上突き刺して計測した。計測箇所 は板状鉄製品HIE125の出土時の調査を担当した福岡市埋蔵文化財センター松尾奈緒子文化 財主事に立ち合いのもと、HIE125が埋蔵されていた土壌に類似した粘土質の地層を選定した。 計測は2回行い、1回目が133 μm/y、2回目が76 μm/yであった。

平城宮跡の地下水データから抽出した鉄斧出土地点近傍の観測井のデータ及び地下水デー タから作成したEh-pH図をそれぞれ表2.3-2及び図2.3-4に示す。地下水のpHは6-7程度であ るので、アルカリ度は全て重炭酸イオンに由来するとした。



図 2.3-3 比恵遺跡における炭素鋼プローブ腐食速度測定状況

2.5-2 千残古助	以斤山土地京	処方の航烈开			
井戸 No.		7	8	17	18
測定日		1975/3/17	1976/3/31	1975/3/18	1976/3/31
Temp	°C	12.6	11.8	10.2	12.9
EC	µS/cm	348	354	288	234
pH(比色法)		6.2	6.4	6.5	6.4
pH (pH 計)		6.69	6.50	6.71	6.50
Eh	mV	175	169	177	198
アルカリ度	mEq/L	3.075	2.861	1.875	1.955
Fe ²⁺	mg/L	50.3	47.5	45.5	16.2
NH_{4} +	mg/L	0.54	0.84	1.07	0.47
Cl	mg/L	30.6	17.59	28	3.8
$\mathrm{SO}_{4^{2^{-}}}$	mg/L	28.9	30.6	20.7	20.8
NO ₃ -	mg/L	0.03	0.04	0.02	0.02
Na+	mg/L	33.6	26.2	21.6	10
K+	mg/L	2.36	2.5	2.71	0.95
Ca ²⁺	mg/L	15.91	17.7	8.08	23.25
Mg^{2+}	mg/L	4.86	4.92	3.61	4.99
${ m SiO}_2$	mg/L	36.2	26	46	16

表 2.3-2 平城宮跡鉄斧出土地点近傍の観測井地下水データ (奈良国立文化財研究所, 1979)



図 2.3-4 平城宮跡鉄斧出土地点近傍の地下水組成によるEh-pH図 (赤枠はシデライト安定領域)

図2.3・4に示される通り、鉄斧出土地点近傍の地下水が低Eh条件にある場合にはシデライト (FeCO₃)が安定に存在しうる組成となることがわかる。令和2年度に実施した分析により鉄斧表 面から採取した剥離土壌中には腐食生成物としてシデライトが検出されていることから、腐食に より鉄斧近傍の間隙水のEhが低下し、鉄斧近傍にシデライトが生成したことが推定される。

(b) 腐食層厚の計測

図2.3-5には福岡県福岡市の比恵遺跡から出土した板状鉄製品2点(HIE057及びHIE125)の錆 層を二値化した図を示す。錆層厚は0.2-2.8 mmであり、埋蔵期間である2,000年間の平均的な腐 食速度を求めると0.1-1.4 µm/yとなる。この値は、比恵遺跡にて計測した炭素鋼プローブを用い た腐食速度と較べて二桁程度低い。同様な腐食速度の差異は大阪府八尾市の大竹西遺跡から出土 した鉄剣 (Mitsui et al., 2012) や鳥取県鳥取市の良田中道遺跡から出土した袋状鉄斧(三ツ井, 2015)でも認められており、板状鉄製品表面に生成した腐食生成物が腐食反応を抑制していた可 能性がある。



図 2.3-5 比恵遺跡から出土した板状鉄製品表面の錆層の二値化像(赤矢印は層厚測定の例)

(c) 走查型電子顕微鏡分析

奈良県奈良市の平城宮跡から出土した鉄斧(5842)の剥離片の断面試料について、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(Fe、Si、Al、Ca、Na、K、 Mg、Cl、S)を図2.3-6に示す。剥離片はシデライトが主であり、ケイ酸塩鉱物が散在している。 鉄斧との接触面は下側であり、Sの濃度が高い。Mgの濃度が高い箇所を目安に層状ケイ酸塩鉱物 と推定される粒子を3つ特定し、高倍率観察を行った(図2.3-6の反射電子像内の赤枠で囲まれた 箇所)。高倍率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(緑 色:Fe、水色:Si、赤色:Al、青色:Mgの合成画像)の結果を図2.3-7に示す。いずれの粒子もシ デライトに囲まれた状態で存在する。3つの粒子のうち赤枠箇所1の粒子は層状ケイ酸塩鉱物に特 徴的な劈開を有することからこの粒子について、透過型電子顕微鏡による詳細観察・分析を行う こととした。FIB薄膜切片作製位置を図2.3-7の1の反射電子像内に示す。



図 2.3-6 平城宮跡出土鉄斧の剥離片断面試料SEM分析結果(赤枠部が高倍率観察領域)



図 2.3-7 平城宮跡出土鉄斧の剥離片断面試料SEM分析結果(中央の粒子がMg含有粒子)

(d) 透過型電子顕微鏡分析

図2.3-7の箇所1に観察された層状ケイ酸塩鉱物周辺のTEM分析結果を図2.3-8に示す。電子回折 及びEDS分析の結果、BF像内の層状ケイ酸塩鉱物周辺の領域(黄点1)はシデライト、層状ケイ 酸塩鉱物(黄点2)は風化(バーミキュライト化)した黒雲母であることが示唆された。シデライ トと層状ケイ酸塩鉱物の境界は明瞭であり、反応縁のような箇所は確認されなかった。



図 2.3-8 層状ケイ酸塩鉱物周辺のTEM分析結果

(a:BF像、b:元素合成画像(水:Si、赤:Al、緑:Fe、青:Mg)、c:1の電子回折像、d:2の電子回折像)

2) 腐食試験試料から採取した炭素鋼接触ベントナイトの分析

① 分析試料及び分析手法

(a) 分析試料

分析試料は、幌延オーバーパック腐食試験で使用された腐食センター(平成30年度に分析・報告した2段目45°方向に埋められていた腐食センサー)に接触していたベントナイト試料及び2.2.2項で報告した「高温水環境下における長期腐食試験」において炭素鋼試験片に接触していたベントナイト試料である。図2.3・9にそれぞれのベントナイト試料の外観写真を示す。炭素鋼試験片に接触していたベントナイト試料である。図2.3・9にそれぞれのベントナイト試料の外観写真を示す。炭素鋼試験片に接触していたベントナイト試料については、試験温度50°C、80°C、120°C、160°Cの試料を本報告ではそれぞれ試料A、試料B、試料C、試料Dと称する。電子顕微鏡観察等に供するため、腐食センサー接触試料については図中の赤破線部、試料A、試料B、試料C、試料Dについては炭素鋼

試験片との接触面(30×30 mm)に直交する断面で試料をそれぞれ切断し、研磨時に水を使わない乾式研磨法(特許第5633078号「乾式研磨法による脆弱試料薄片の作製法」)にて厚さ約3 mmの厚片を作製した。



図 2.3-9 分析に供したベントナイト試料の外観写真

(b) 微小部蛍光X線分析

腐食センサー接触試料及び試料A、B、C、Dについて、Fe等の濃度分布を把握するため、微小 部蛍光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。管電圧30 kV、管電流1,000 µA、X線照射径15 µmとし、分析はいずれも真空条件とした。接 触面近傍の密度変化を把握するため、透過X線像を同時に取得した。
(c) 走查型電子顕微鏡分析

試料B及びDについて、Fe等の濃度分布を把握するため、走査型電子顕微鏡(日本電子株式会社 製JSM-7200F)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。なお、観察面はイオンミリング装置(日 立ハイテクノロジー社製IM-3000)を用い、加速電圧6 - 20 kVの条件で平滑加工処理を施した。 観察倍率は170倍(低倍率)、1,200倍(高倍率)とし、170倍で取得した画像は、汎用的な画像解 析ソフトウェアであるImageJ (Schneider et al., 2012)を用いた連結処理を行い、深さ方向(接 触面から離れる方向)の濃度分布の把握等に利用した。

(d) 透過型電子顕微鏡分析

試料B及びDについて、集束イオンビーム(FIB)装置(日立ハイテクノロジー社製NB5000) 及び冷却装置(日立ハイテクノロジー社製雰囲気遮断冷却ホルダー)を用いて薄膜切片試料を 作製した。作製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・2100F)を用 いた観察・分析を行い、モンモリロナイト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10・40 kV、ステージ温度は約・130°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。

2 分析結果

(a) 微小部蛍光X線分析

腐食センサー接触試料及び試料A、B、C、Dのそれぞれの光学顕微鏡写真を図2.3-10、微小部蛍 光X線分析による元素マッピング分析結果(Cl、Si、Al、Fe、Mgの合成画像)を図2.3-11、透過 X線像を図2.3-12に示す。図2.3-11内の大きさ数百µm程度の水色の粒子はケイ砂(石英)である。 接触触面近傍のFe濃度が高い領域で、透過X線強度が低い(密度が高い)こと、腐食センサー接触 試料はFe濃度の高い範囲が接触界面近傍に限られること、試料A、B、C、Dについては温度が高 いほどFe濃度の高い範囲が広いことが両図から読み取れる。また、腐食センサー接触試料、試料 A及びDについては炭素鋼との接触界面にCl濃度が高い箇所が認められる。



10 mm



図 2.3-10 各試料の光学顕微鏡写真 (赤三角で挟まれる部分が接触面、赤枠部が微小部蛍光X線分析領域)



図 2.3-11 各試料の微小部蛍光X線分析による元素マッピング分析結果とFe強度プロファイル (黄:Cl、水:Si、赤:Al、緑:Fe、青:Mg、赤線:Fe強度、黄色枠:SEM観察範囲)



図 2.3-12 各試料の透過X線強度マッピング分析結果と強度プロファイル(黄色線)

(b) 走查型電子顕微鏡分析

図2.3-13、図2.3-14及び図2.3-15に、SEM観察により取得した腐食センサー接触試料、試料B、 Dの反射電子像(BSE)と、EDSによる元素マッピング結果(Fe、Si、Al)を示す。各試料の高 倍率観察箇所(図2.3-13、図2.3-14及び図2.3-15の赤枠で囲まれた箇所1-4)の反射電子像(BSE) と、EDSによる元素マッピング結果(Fe、Si、Al、Cl、Mg強度を合成)を図2.3-16、図2.3-17及 び図2.3-18に示す。腐食センサー接触試料、試料B、Dは、それぞれ接触面から100µm程度、200 µm程度まで腐食生成物が分布する状態が確認された。また、いずれも接触面近傍にClの分布が確 認された。腐食生成物の分布領域の広い試料B及び試料Dについては透過型電子顕微鏡による観察 を行うこととした。FIB薄膜切片作製位置を図2.3-17から図2.3-18の反射電子像内に示す。



図 2.3-13 腐食センサー接触試料のSEM分析結果(赤枠部が高倍率観察領域、黒い背景は分析範 囲外)



図 2.3-14 試料BのSEM分析結果(赤枠部が高倍率観察領域、赤い背景は分析範囲外)



図 2.3-15 試料DのSEM分析結果(赤枠部が高倍率観察領域)



図 2.3-16 腐食センサー接触試料の高倍率SEM分析による反射電子像と元素合成画像 (水色:Si、赤色:Al、緑色:Fe、青色:Mg、黄色:Cl)



図 2.3-17 試料Bの高倍率SEM分析による反射電子像と元素合成画像 (水色:Si、赤色:Al、緑色:Fe、青色:Mg、黄色:Cl)



図 2.3-18 試料Dの高倍率SEM分析による反射電子像と元素合成画像 (水色:Si、赤色:AI、緑色:Fe、青色:Mg、黄色:Cl)

(c) 透過型電子顕微鏡分析

試料B及び試料DのTEM分析結果をそれぞれ図2.3-19及び図2.3-20に示す。図の左側が炭素鋼試験片との接触面側である。

試料Bについて、電子回折分析により、図2.3-19の緑色の領域はシデライト、黄色の領域にはア カガネイト、水色の領域にはモンモリロナイトが分布していることが確認された。モンモリロナ イトの電子回折像からd(001)を求めると15 Å又は10 Åの2種類が存在することが確認された。前 者(15Å)については層間陽イオンがFeに変化している可能性などが考えられる。それぞれの電 子回折像の例を図2.3-19c及び図2.3-19dに示す。

試料Dについて、電子回折分析により、図2.3-20の緑色の領域はモンモリロナイト、黄色の領域 にはアカガネイト、水色の領域にはシリカ鉱物(石英)が分布していることが確認された。モン モリロナイトの電子回折像からd(001)を求めると試料Bと異なり10 Åのみの1種類が存在するこ とが確認された。電子回折像の例を図2.3-20c及び図2.3-20dに示す。



図 2.3-19 試料BのTEM分析結果

(a:BF像、b:元素合成画像(水:Si、赤:Al、緑:Fe、黄:Cl)、c:1の電子回折像、d:2 の電子回折像)



図 2.3-20 試料DのTEM分析結果

(a:BF像、b:元素合成画像(水:Si、赤:AI、緑:Fe、黄:Cl)、c:1の電子回折像、d:2 の電子回折像)

(3) これまでの成果と今後の課題

令和3年度は、令和2年度に調査し選定した長期間土壤中に埋蔵されていた鉄遺物(弥生時代 中期から後期の板状鉄製品及び奈良時代の鉄斧)に関する調査を継続して埋蔵環境条件や付着し ていた土壤中のケイ酸塩鉱物粒子の変質状態に関するデータを拡充するとともに、幌延深地層研 究センターで実施した3年間の原位置試験において使用した腐食センサー(炭素鋼製)表面近傍 のベントナイト試料及び2.2節で報告した試験期間5年間の「高温水環境下における長期腐食試 験」において炭素鋼試験片に接触していたベントナイト試料の変質状態を電子顕微鏡等で分析し た。その結果、弥生時代の板状鉄製品については表面の腐食生成物が腐食を抑制していた可能性 があること、奈良時代の鉄斧については腐食生成物としてシデライトが生成し得る地下水が存在 する環境に埋蔵されていたこと、鉄斧に付着していた土壌中の層状ケイ酸塩鉱物とシデライトの 界面領域の分析では層状ケイ酸塩鉱物に明瞭な変質が認められないことがわかった。また、腐食 センサー接触試料、炭素鋼試験片接触試料は、それぞれ接触面から100 µm 程度、200 µm 程度ま で腐食生成物が緩衝材中に分布する状態が確認され、炭素鋼試験片接触試料については、緩衝材 中のモンモリロナイトと腐食生成物(シデライト)の界面で明瞭な変質が認められないものの一 部のモンモリロナイトについては Fe 型化を示唆するデータが得られた。

平成 30 年度から令和 3 年度までの 4 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他の鉱物への変質が認めら 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、試験期間 5 年間の「高温水環境下における長期腐食試験」から採取したベン トナイト試料についてはモンモリロナイトの他の鉱物への変質が認められないものの、モンモリ ロナイトの Fe 型化を示唆する領域が炭素鋼試験片との界面近傍に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や環境条件の調査の継続 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 どを明らかにするとともに、「高温水環境下における長期腐食試験」から採取したベントナイト 試料についてはモンモリロナイトのFe型化の範囲や程度を詳細に分析し、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。

2.3.2 セメンテーションによる緩衝材の変質

(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(以下、[再構成試料]という)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 ョンの影響は粉砕等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等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等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等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。

令和3年度は、月布鉱山産ベントナイト原鉱石で確認されたシリカ鉱物によるセメンテーション に着目した既存研究成果を調査するとともに、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、その再構成試料及び熱履歴を受けたベントナイト試料の電子 顕微鏡による観察、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。

(2) 実施内容

1) ベントナイトのセメンテーション等に関する既往研究成果の調査

令和2年度までの月布鉱山産ベントナイト原鉱石の観察により、モンモリロナイトの特性に影響 しているセメンテーション物質としてシリカ鉱物(非晶質シリカ、石英など)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,2020;2021)。シリカ鉱物 によるセメンテーションとしては堆積岩(主に砂岩)の石英セメンテーションに関する研究成果 が多数報告されている。セメンテーションのメカニズム、時空間分布及び透水性の変化の観点で 参考になる知見を取得することを目的とし、堆積岩の石英によるセメンテーション(以下、[石英 セメンテーション]という)に関する既存成果を調査した。

① 石英セメンテーションとは

石英セメンテーションは深部に埋没した石英質砂岩に広く認められる続成作用であり、同タイ プの石油・天然ガス貯留層における間隙率低下の主要因として重要である。McBride (1989) は、 石油及び天然ガスの探査・掘削の業界で長年興味を抱かれていた砂岩中の石英セメンテーション について、既往研究の調査からその埋没深度と生成温度の関係を整理し、主には埋没深度1,000 -2,000 mかつ50 °C以上の温度で生じているが、浅地層の20 °C程度の条件で生じたとする報告が あることを紹介している。また、McBride (1989) によると石英セメントの量を制御する主な因 子は、系全体や間隙水の化学組成、流体の量や経路、滞留時間とされている。砂岩における石英 セメンテーションの潜在的なシリカソースとしては、生物由来のシリカ、長石の溶解、粘土鉱物 の変質、砕屑性石英粒子接触部の圧力溶解などが挙げられている(Worden and Morad, 2000)。

② 石英セメンテーションに関する地球化学モデリング

Bjørlykke and Egeberg (1993) は、北海の堆積盆やGulf湾の砂岩で認められる石英セメンテー ションのシリカソースや石灰石セメンテーションとの関係に関して移流拡散モデルによって検討 している。そのモデリングの結果によると、石英セメンテーションのシリカは遠方からの移流に よる砂岩層への供給ではなく、セメンテーションが生起する場所の近傍からの供給であり、温度 や圧力以外にもセメンテーションによって充填される砂岩の内部構造や鉱物組成 (シリカの多形、 非晶質シリカやオパール-CTなど) によっても影響されることが示されている。

Wangen (1999) も石英質砂岩のセメンテーションは、シリカソースをスタイロライト(上記の圧力溶解によって生じる不規則な粒界面) での石英の溶解によるものであると仮定してモデル化している。主なシリカソースがスタイロライトにおける溶解によるものであるという事実は、 Bjørlykke and Egeberg (1993) や数多くの研究で実施された薄片観察からも支持されている。シリカソースを1つに仮定することにより、セメンテーションのプロセスを時間と温度の関数として解析し、間隙率の深度変化を表現することが可能となった。別のシリカソースを仮定した場合の結論はこのシミュレーションとは大きく異なると考えるが、セメンテーションによって間隙率が減少する現象を表現できるモデルがここで確立されたことの重要性は大きい。

Oelkers et al. (2000) は、上述した2つのモデリング研究を引き継ぎ、石英質砂岩中の石英セ メントの量と分布を、時間と温度/深度の関数として計算している。この研究でも、石英セメント の供給源は、砂岩中の雲母や粘土粒近傍のスタイロライトの石英表面であり、移流による砂岩内 外へのシリカの輸送量は無視できると仮定している。この研究では、計算に用いる有効表面積な どのパラメータを最適化した場合のみ実測値とよく一致しており、解析におけるチューニングが 必要であることも判明した。

③ 石英セメンテーションの天然事例研究とそれによる物性変化の理解

Weber and Ricken (2005) は石油・天然ガス貯留層に関連した堆積盆における砂岩の続成作用 ではなく、河川における砂岩・粘土・シルト岩の堆積サイクルによる続成作用を対象としている。 堆積年代は250 Ma程度でかなり時間の長い期間の続成作用であり、流体包有物から判定した均質 化温度は115 - 120 °C程度と、堆積盆における砂岩の続成作用と比べても相対的に高温の履歴を 有している。この研究の興味深い点は、岩石の薄片試料のポイントカウンティング法という古典 的な手法ながら、河川堆積物の堆積から続成作用を経た現在までの堆積物の構造が定量的に示し ている点である。精緻な顕微鏡観察の結果から、石英粒界の溶解、長石の変質、粘土・シルト岩、 基底塩水などがシリカソースであることを明らかにしている。

Molenaar et al. (2007) は、バルト海盆のカンブリア紀の砂岩の石油貯留槽としての評価の一 環としての石英や方解石セメンテーションを調査した。この研究で調べた石英片岩は石英によっ て大きく固着されており、その程度が貯留層の特性を支配していた。また、埋没深度に関連する 一般的な物理的条件や全体的な化学的条件以外の要因(堆積層に固有の砕屑物組成、堆積構造、 貯留層構造などの局所的な条件)が、石英セメンテーションのプロセスに局所的に影響を与え、 石英セメントの位置や量を制御していることが示されている。上述した論文等でも、石英セメン テーションは局所的な環境の違いを反映してその量やセメンテーションメカニズムが異なること が指摘されていて、すべての論文で岩石試料の薄片観察と定量化の重要性が強調されている。

Bjørlykke (2014) は、堆積盆における埋没深度に応じた岩石特性の予測は非常に困難で、関連 する様々な学問分野を統合する必要があることを強調している。地表付近の堆積物は、地下水の 流れ、拡散、蒸発により、開放的な地球化学システムの中にあり、鉱物の溶解や溶解した成分の 輸送によって、その組成が変化する可能性がある。深度が深くなり地表水の到達点よりも下にな ると、間隙水の移動性と溶液中の固体を輸送する能力は極めて低くなる。間隙水は徐々に存在す る鉱物と平衡に近づき、間隙水の濃度勾配や溶液中の固体の移流・拡散輸送の可能性を減少させ る。したがって、堆積盆のある深さでの間隙率や地震速度などの岩石特性の予測は、埋没の歴史 (有効応力と温度)に基づいて行わなければならないが、堆積物の主要な鉱物学的組成と構造も 同様に重要であり、鉱物の溶解や溶解した成分の輸送、間隙水の濃度勾配や溶液中の固体の移流・ 拡散輸送を評価していく必要があると述べている。

④ まとめ

令和3年度は、セメンテーションのメカニズム、時空間分布や透水性の変化の観点で参考になる 知見を取得することを目的とし、堆積岩の石英セメンテーションに関する既存成果を調査した。 堆積岩中の石英によるセメンテーションは、石油や天然ガスの貯留層の評価の観点から重要視さ れているためか、深度が深く(温度が比較的高い)比較的長い続成作用の過程で生成されたもの を扱っている場合が多いが、McBride(1989)が紹介しているように、常温条件でも石英セメン テーションは生じる可能性がある。石油や天然ガスの貯留層の場合は、石英セメンテーションの シリカソースとなるのは、石英、長石、粘土鉱物の溶解・変質であり、速度論的な観点では温度 や時間の因子が重要となる。一方、溶存シリカが供給される環境においては、シリカの沈殿と変 質が卓越する事象なので、地層処分場のように比較的低温な条件においても短時間でシリカセメ ンテーションが生じる可能性がある。

今後は、地層処分のニアフィールド条件における緩衝材間隙水組成としてどの程度の溶存シリ カ濃度が想定でき、緩衝材間隙で沈殿反応を支配する相が何か、また地層処分の評価期間でどの ように変化していくのかを明らかにする必要があると考える。また、調査で示されたように、石 英セメンテーションは局所的な環境の違いを反映してその量やセメンテーションメカニズムが異 なるので、様々な条件での実験を行うとともに、実験前後の緩衝材の構造観察、一次鉱物、二次 鉱物の定量化が重要となる。

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) 原鉱石及び再構成試料

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番層のベント ナイト層が確認されている(伊藤ほか,1999)。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小さいとされる1番層から採取した原鉱石を 使用し、各番層について原鉱石試料と再構成試料を作製している。

原鉱石試料は、原鉱石内部の土粒子構造の変化をできるだけ抑えられるように、月布鉱山の坑 道壁面から比較的大きなブロックとして採取したものである。再構成試料は、粒径が63 µm未満 の粒子が90%となるように粉砕機を用いて原鉱石を微細に粉砕した後に、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 Mg/m³)に合わせて圧縮・成形したもので ある。成形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を研磨時に水 を使わない乾式研磨法にて作製した。「②(c)樹脂置換試料の観察」で詳しく述べるが、基本的に は試料の周囲からエポキシ樹脂を含侵し補強した上で、乾式研磨を行っている。一方、「画像解 析による鉱物の定量方法の高度化」においては、樹脂を試料内部に浸透させない状態で作製した 試料を観察に供した。

(b) 熱履歴ベントナイト試料

オーバーパック界面に近い位置の緩衝材では廃棄体からの熱によって、間隙水が蒸発、溶存成 分の濃度が高まることで塩や硫酸塩が析出することが想定されている。そうした加熱によって生 じるセメンテーションを模擬した試料として、初期飽和度及び加熱乾燥の有無が異なる試料を観 察に供した(表2.3-1)。これらは直径20 mm、高さ20 mmの円柱状に成型されたもので、円柱を 輪切りする面を研磨面とする鏡面研磨薄片を作製した。脆く崩れやすい性質(特に加熱乾燥を経 ていない試料)のため、エポキシ樹脂を含侵して補強した上で、乾式研磨による薄片作製を行っ た。

使用した 原料	試料名*	乾燥前 含水比	乾燥後 含水比	乾燥前 質量	直径	高さ	体積	湿潤 密度	実乾燥密度 (乾燥前)	目標 乾燥密度	乾燥前 飽和度
		%	%	g	mm	mm	cm ³	g/cm ³	g/cm ³	g/cm ³	%
クニゲル V1	KV1-1-1H	7.538	0.000	9.198	19.95	20.29	6.34	1.45	1.35	1.36	20.31
	KV1-1-2H	7.881	0.000	9.217	19.95	20.10	6.29	1.47	1.36	1.36	21.58
	KV1-1-3H	7.847	0.000	9.196	19.96	20.03	6.27	1.47	1.36	1.36	21.53
	KV1-1-4	7.841		9.189	19.94	20.05	6.26	1.47	1.36	1.36	21.50
	KV1-1-5	7.841		9.227	19.94	20.06	6.27	1.47	1.37	1.36	21.65
	KV1-1-6	7.841		9.227	19.96	20.08	6.28	1.47	1.36	1.36	21.55
	KV1-0-1H	38.970	0.000	11.710	20.00	20.13	6.33	1.85	1.33	1.36	102.48
*最後に「H」が付く試料は恒温槽で飽和度0%まで乾燥したものである。											

表 2.3-1 熱履歴ベントナイト試料の一覧

(c) 走査型電子顕微鏡による観察

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15kV、動作距離10.8mm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や粒子のサイズ・形状に基づいて空隙・ 鉱物組成の定量を行った。画像解析には汎用的な画像解析ソフトウェアであるImageJ(Schneider et al., 2012)を用いた。詳しい方法については後述する。

(d) FIB及びTEM (STEM) による微細構造観察

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用試料の作成と並行して、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(JEOL)を用い、加工には加速電圧30kVのGaイオン ビーム(仕上げ加工のみ5kV)、観察には加速電圧15kV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成した後、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(JEOL)またはJEM-2100F(JEOL)を用いて、加速電圧200 kVにて使用した。STEMによる分析はTitan³ 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ェアvelox(FEI)で処理・出力を行った。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。

② 分析結果

(a) 画像解析に基づく空隙・鉱物組成の定量方法の高度化

ベントナイト原鉱石及び再構成試料のSEM組成像から、いくつか典型的な組織の例を図2.3-1に

示す。構成鉱物は主に石英や長石、モンモリロナイト、黄鉄鉱、斜プチロル沸石で、他にも高倍 率で観察すると数µmからサブミクロンサイズのシリカ微粒子が観察される。また、方解石も散見 され、1番層においては方沸石や黒雲母も確認されている。一方、空隙部分も暗いコントラストと して分布をみることが出来る。令和2年度の報告(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,2021)では、こうしたSEM組成像の輝度に閾値を設けることで、(1)空隙、(2) モンモリロナイト、(3)モンモリロナイト以外のシリケート鉱物(石英・長石・沸石類)、(4)黄鉄 鉱・方解石・黒雲母の4つに画像を分離し、面積割合を計算することで、原鉱石の堆積層間あるい は原鉱石と再構成試料間での空隙・鉱物組成の比較を行った。

このアプローチにおける問題点として、(A)モンモリロナイトを除く主なシリケート鉱物である 石英や長石、沸石は輝度が似通っているために個別に定量ができないこと、(B)SEM組成像が撮影 できる範囲はベントナイト試料のごく一部に限られるため、不均質性の影響が除外できないこと、 (C)輝度の閾値設定を目視に頼っており、再現性や客観性に欠けること、の3点が挙げられた。特 に、(A)は成因が異なることが推測される粗大な石英粒子とシリカ微粒子を分けて定量化できない ということに意味しており、各試料中のセメント物質の量を推定し、物性試験の結果との比較を 行う上で、解決が必須の課題である。



図 2.3-1 ベントナイト原鉱石及び再構成試料の典型的組織 31番層の原鉱石 (a) 及び再構成試料 (b) の組織の比較。29番層原鉱石 (c) とその一部拡大図 (d)。白矢印でシリカ微粒子をいくつか指す。Qz: 石英、Mnt: モンモリロナイト、Clp: 斜プチロ ル沸石、Py: 黄鉄鉱、Bt: 黒雲母

ここで、図2.3-1のSEM組成像に再度着目すると、例えば石英と斜プチロル沸石は同程度の輝度 であるものの、その形状の差から両者を見分けることは容易である。また、粗大な石英粒子とシ リカ微粒子はサイズの違いから見分けることが出来る。そこで、輝度による分離方法に加えて、 粒子のサイズや形状にも着目した分離方法を組み合わせ、問題点(A)の改善を図った。併せて、問 題点(B)については、画像処理を1枚ずつ行う方式から、複数枚の画像に対して同時に処理を行う 方式にすることで解析に用いる画像数を増やし不均質性の低減を図ること、問題点(C)については、 より再現性のある閾値設定を検討する方針とした。画像解析による空隙・鉱物組成の定量方法を 図2.3-2のフローチャート(29・31番層の場合を例示)に示す。



図 2.3-2 画像解析による29・31番層の空隙・鉱物組成の定量方法のフローチャート (▼は作業フロー、矢印は出力される定量値の種類)

まず入力するSEM組成像の撮影方法に関して、29・31番層で空隙・モンモリロナイト・黄鉄鉱・ 方解石は200倍、長石・石英は500倍、斜プチロル沸石・モルデン沸石は2,000倍で撮影した。1番 層は粒径が原鉱石、再構成試料ともに小さかったため、空隙・モンモリロナイト・黄鉄鉱・方解 石・黒雲母は500倍、長石・石英は1,000倍で撮影した。ただし、方沸石に関しては2,500倍で撮影 し、コントラストを方沸石とシリカ微粒子の間で差ができるように上げて撮影した。対象によっ て倍率を変えた理由としては、後述の形状認識のプロセスで高倍率の方が認識を容易にできる一 方で、試料の不均一性を排除するためには低倍率であるほうが効率的であるため、対象鉱物のサ イズ・形状に応じて最適な倍率が異なるからである。また、同一試料から複数枚の画像を取得す る際は、コントラストを変化させずに撮影することで、後の画像処理をまとめて行う簡略化が可 能となり、作業効率の向上と撮影枚数の増加に伴う不均質性による影響を低減することが可能と なった。これは撮影条件が同じであれば、同組成の鉱物の反射電子コントラストは一定と見なせ ることによる。 撮影したSEM組成像(tiff形式)は、以降ImageJ上で処理していくが、各対象試料の画像は複数枚の連続したスタック画像として処理する。画像形式を8bit、256階調のグレースケール画像とした。グレースケール画像の輝度ヒストグラムは図2.3-3のaまたはbのようになる。ヒストグラム中の①から④のピークはそれぞれ、空隙、モンモリロナイト、モンモリロナイト以外のシリケート鉱物(石英や長石、沸石)、黄鉄鉱・方解石からの寄与を反映している。



図2.3-3 輝度ヒストグラムの閾値設定

まず、輝度の最も低い部分(図2.3-3aの矢印①)に相当する空隙については、以下の手法に沿っ て画像の輝度に閾値を設けて分離した。輝度のヒストグラムに対して平滑化処理を行った上で一 次微分をとり、極小値・極大値をリストアップする。もし、ヒストグラムが十分滑らかに推移し ていれば、輝度0-50付近に存在する極小点が一意に定まるので、この閾値以下の輝度の部分を空 隙として分離することができる。ただし、実際には極小値が範囲内に複数見つかる場合が存在す る(図2.3-3c)。この場合は、各極小値の間にある極大値の平滑化された面積の中での最大値を y_{max} 、その輝度を x_{max} とし、閾値付近で $y_{k-1} < y_{max} \leq y_k$ となる2点 y_p (k = pのとき)、 y_q (k = qのとき)を求める。これは極大値 x_{max} での接線との交点となり、これらにより囲まれた部分を 半分にするy軸に平行な線分のx座標を閾値 x_i とし、以下の式(2.3-1)のように定義される。

$$(y_{max} - y_p) + (y_{max} - y_{p+1}) + \cdots + (y_{max} - y_{i-1})$$

$$\leq \frac{(y_{max} - y_p) + (y_{max} - y_{p+1}) + \cdots + (y_{max} - y_{q-1}) + (y_{max} - y_q)}{2}$$

$$\leq (y_{max} - y_i) + (y_{max} - y_{i+1}) + \cdots + (y_{max} - y_{q-1}) + (y_{max} - y_q)$$
(2.3-1)

これは複数の極小値がある際にそれぞれの面積の少なさを考慮し、閾値としての定義を明確に するために行われた作業であり、これによって定義された空隙とモンモリロナイトとの境界とな る閾値以下の領域の面積を空隙の面積割合とした。

次にモンモリロナイト部分の分離に関しては、1、31番層原鉱石、1、29、31番層再構成試料で は、モンモリロナイトとシリケート鉱物の間の極小値を閾値とした(図2.3-3a)。先に求めた空隙 とモンモリロナイトとの間の閾値から、今回求めたモンモリロナイトとシリケート鉱物の閾値ま での範囲をモンモリロナイトからの輝度と見なした。しかし、29番層原鉱石のヒストグラムのよ うに極小値が存在せず、変曲点のみ見られる場合も見られた(図2.3-3b)。この場合は輝度ヒスト グラムの二次微分から変曲点を求め、これを閾値と見なした。

つづいて、方解石と黄鉄鉱、黒雲母(1番層のみ)の分離を行う。これらの鉱物はモンモリロナ イト以外のシリケート鉱物よりも高輝度の範囲に分布している。輝度ヒストグラムを見ると、輝 度255に一局集中しているが、それよりも低い輝度にも含まれており、これとシリケート鉱物との 間の閾値の設定が必要となる。スタックした画像全体から作製した輝度ヒストグラム上には明瞭 な変曲点や極小点は見られない一方で、方解石や黄鉄鉱の占める割合がスタック内の他の画像と 比べて高い画像のみから作製した輝度ヒストグラム上では極小点が確認される。これは、方解石 や黄鉄鉱が試料全体に広く分布している石英やモンモリロナイト、空隙などと比べて、視野の一 部に局所的に分布していることを反映していると考えられる。ただし、29番層原鉱石のみ、極小 点が見られる画像がスタック内に確認出来なかった。そこで、画像の中でも方解石・黄鉄鉱が集 まっている範囲のみでヒストグラムを作製し、極小点を確認した。こうして、スタック内の一部 の画像あるいは、さらにその一部から読み取った極小点を閾値とし、スタック全体に適応した。 この閾値以上の輝度を持つ範囲を方解石・黄鉄鉱・黒雲母の占める面積として算出した。

輝度に基づく分離作業の最後に、1番層にのみ存在する方沸石の分離について説明する。方沸石 は石英やシリカ微粒子などとのコントラストの差が僅かなため、ヒストグラム上では判別できず、 かつ粒子のサイズ・形状がシリカ微粒子と似ているため、分離が難しい。そのため、上記の空隙 やモンモリロナイト、方解石・黄鉄鉱・黒雲母を識別するために撮影した画像とは別に、豊富席 が方解石・黄鉄鉱・黒雲母と同じ輝度帯に含まれるように極端にコントラストを調整した画像を 撮影し、そのスタック画像の輝度ヒストグラムに見られる変曲点を閾値とする、方解石・黄鉄鉱・ 黒雲母・方沸石を併せた面積割合として算出した。

図2.3-4に、例として29番層原鉱石試料から、輝度に基づいて分離した空隙、モンモリロナイト、 方解石・黄鉄鉱の領域を示す。また、各ベントナイト原鉱石及び再構成試料のスタック画像から 作製した輝度ヒストグラムを図2.3-5に比較している。



図 2.3-4 各鉱物の識別1:輝度による分離 (a) 29番層原鉱石のSEM反射電子像(倍率200倍)。画像から(b)空隙、(c)モンモリロナイト、 (d) 黄鉄鉱・方解石をそれぞれ輝度によって抽出し、黒塗りで表示。



図 2.3-5 各ベントナイト原鉱石・再構成試料のSEM組成像の輝度ヒストグラム 256階調の輝度のヒストグラム。横軸が輝度(0-255)、縦軸が頻度。29、31番層原鉱石・再 構成試料については倍率200倍、1番層原鉱石・再構成試料については倍率500倍の画像を20枚合 計して作製。

次に、輝度による分離の後に残った、モンモリロナイト以外のシリケート鉱物を含む部分についてサイズや形状の違いに基づく分離作業を行う。ここでは形状の違いを表す指標として円形度に着目した。円形度は以下の式(2.3-2)のように定義される。

画像から輪郭を抽出したある粒子の面積と周囲長から計算される円形度は、粒子が真円の時に 1の値となり、粒子形状が複雑化し周囲長が大きくなるにつれて値が小さくなる。

実際の作業では、まずモンモリロナイト以外のシリケート鉱物部分のみを二値化して抜き出す ように閾値を設定した画像にImageJの粒子解析の機能を適用し、シリケート鉱物を粒子別に分離 した。輪郭抽出された各粒子はそれぞれサイズ(面積)や周囲長などが計測される。ここからサ イズが大きく、かつ円に近い形状をとっている石英・長石(図2.3-6)と、柱状粒子が放射状に集 合した形状を持つ斜プチロル沸石を分けた(図2.3-7)。



図 2.3-6 各鉱物の識別2:サイズによる分離

(a) 29番層原鉱石のSEM反射電子像(倍率500倍)。(b) 抽出された粗大な長石及び石英の粒子 (黒塗り部分)。



図 2.3-7 各鉱物の識別3:形状による分離

(a) 29番層原鉱石のSEM反射電子像(倍率2,000倍)。(b)輝度からケイ酸塩鉱物(石英・長石・ 斜プチロル沸石など)を含む範囲のみを分離し、さらに(c)サイズ及び円形度から斜プチロル沸 石部分の領域を分離した。 この円形度とサイズの違いによって斜プチロル沸石については面積割合を求めることができた。 しかしながら石英と長石に関しては形状が似通っていたため、石英・長石を合わせての定量結果 となった。さらにこの円形度とサイズの違いを利用して1番層の黄鉄鉱・黒雲母・方沸石の二値化 画像から方沸石のみの割合も求めた。

29番層に僅かに含まれるモルデン沸石に関しては、特徴的な毛状の外形をとるため目視では組 成像上で識別することが可能だが、その形状に由来し輝度の範囲が広く形状の認識が困難であっ た。ただし、上述の通り出現頻度が非常に少ないことから、シリケート鉱物の範囲のみを二値化 した後に、手動で分離し、割合を求める方法をとった。

最後に、定量が必要な対象である、セメンテーションによって生成されたと考えられるシリカ 微粒子の分離を行った。シリカ微粒子は輝度の範囲が広く、輪郭抽出のために二値化する際に繋 がってしまう箇所が多いため、円形度での識別が困難だった。そこで、直接識別するのではなく、 シリカ微粒子以外の鉱物及び空隙の定量を行い、全体から求めた割合の合計を引くことにより間 接的にシリカ微粒子の割合を求めた。

上記の方法に沿って定量した空隙及び各鉱物の面積割合を表2.3-2に示す。表にはスタックされた複数の画像間での平均値と標準偏差を示している。ただし、シリカ微粒子に関しては全体から引いて求めた割合であるため、他の面積割合の標準偏差の合計として示した。

	<u>а матул</u> т	小小 0.	四伯		ш.п.				
原鉱石 (単位はすべて面積 %)		層	29番層			31番層			
空隙	1.2	±	0.3	8.2	±	0.9	4.9	±	0.9
モンモリロナイト	45.9	±	0.9	49.8	±	2.4	53.3	±	4.5
シリカ微粒子	43.2	±	7.6	30.4	±	9.0	25.1	±	15.2
長石・石英	5.2	±	5.2	2.1	±	3.0	8.4	±	5.0
斜プチロル沸石		-		6.3	±	4.0	4.2	±	7.2
モルデン沸石		-		0.4	±	0.4		-	
方沸石	3.9	±	0.6		-			-	
黄鉄鉱・方解石・黒雲母	0.6	±	0.6	1.3	±	1.3	4.1	±	1.6

表 2.3-2 各鉱物・空隙の面積 % (原鉱石)

(b) 熱履歴を受けたベントナイト試料の観察

表2.3-1に示した熱履歴ベントナイト試料のうち、3試料(KV1-0-1H、KV1-1-1H、KV1-1-4)に ついてSEM観察を行い、比較した(図2.3-8)。併せて、加熱乾燥を行った2試料の元素分布を図 2.3-9及び図2.3-10に示す。乾燥前の飽和度100%から加熱乾燥させた試料であるKV1-0-1Hが比較 的均質な見た目を呈するのに対し、初期飽和度20%の2試料KV1-1-1HとKV1-1-4は、加熱の有無 に関わらず、モンモリロナイトが密な部分が50µm程度の大きさの団粒となった見た目を呈する。 飽和度20%の試料で見られる団粒上の組織は試料中での水が通りやすさの不均質性を反映してい る可能性を示唆する。一方で、もともと想定していた加熱乾燥に伴う塩や硫酸塩の析出は認めら れない結果となった。NaやCa、Cl、Sの元素分布に着目しても、これらの元素はクニゲルV1に元々 含まれている黄鉄鉱や方解石の分布と一致しており、加熱によって生じる新しい鉱物相は確認出 来なかった。令和4年度は、乾燥に伴う緩衝材中の可溶性塩の濃縮を報告している既往の研究事例 (例えば、藤田ほか, 2007)を参考に方法を再検討する。



図 2.3-8 熱履歴を受けたベントナイト供試体のSEM反射電子像 左列:倍率200倍、右列:倍率500倍。(a、b) KV1-0-1H、(c、d) KV1-1-1H、(e、f) KV1-1-4。



— 100 µm

図 2.3-9 KV1-0-1H(乾燥前飽和度約100%から加熱乾燥)の元素分布



— 50 µm

図 2.3-10 KV1-1-1H(乾燥前飽和度約20%から加熱乾燥)の元素分布

(c) 原鉱石及び再構成試料の微細構造の観察

令和2年度は、29番層原鉱石の微細構造をTEM・STEMで観察し、微細な石英とモンモリロナ イト端面が接合する様子が観察された(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,2021)。令和3年度は、29番層以外の原鉱石においても観察を行って原鉱石に共通して 見られる特徴を明らかにするとともに、再構成試料との比較を行った。

まず、1番層原鉱石の観察結果及び元素分布を図2.3-11と図2.3-12に示す。1番層は29、31番層 と比較して構成鉱物の粒径が細かいことがSEM観察でも観察されているが、TEM観察でも同様に シリカ微粒子や方沸石、カリ長石、黒雲母の粒子が混在する隙間にモンモリロナイトが分布する 組織が観察される。シリカ微粒子の形状は自形性の強い単結晶の粒子の他に、粒子がクラスター 状に集合したもの、不定形のものが観察される。制限視野電子回折像からシリカ微粒子の多形を 識別することが出来、低温型石英の粒子が確認される一方で、アモルファスシリカも同時に確認 される。アモルファスシリカについては不定形の凝集体となっており、モンモリロナイト端面と 接合する組織が観察される(図2.3-11c)。

31番層では1番層と異なり長石・沸石の粒子はほとんど見られず、シリカ微粒子とモンモリロナイト、少量の黄鉄鉱で構成されている(図2.3-13と図2.3-14)。こちらで観察されるシリカ微粒子は石英のみであったが、不定形の石英微粒子とモンモリロナイトと接合する組織が見られる点は1番層と同様である。また、明視野像上で石英の微粒子内部にコントラストのムラがある点や、制限視野電子回折像上で回折点が割れている点が確認されることから、粒子内部に結晶方位が少しずつズレた部分が存在していることが分かる。

令和2年度の29番層原鉱石の観察と併せて、これら原鉱石中で見られるシリカ微粒子に共通す る特徴として以下の点が挙げられる:(i)自形性の強い粒子とは別に、不定形の石英またはアモル ファスシリカの粒子が存在している、(ii)この不定形の石英またはアモルファスシリカと、モンモ リロナイト粒子の端面が接合している組織を持つ、(iii)不定形の石英微粒子は粒子内で結晶方位の 僅かにズレた部分が集合している。

一方、比較対象として、29番層再構成試料についてもFIBで薄膜を形成し、TEMによる観察を 行った(図2.3-15)。こちらの試料の観察では、樹脂が粒子間によく浸透しており、樹脂中にモン モリロナイト粒子がバラバラに分散している様子が見られる。モンモリロナイト同士は積層して 凝集体となっているが、その端面に他の鉱物が接合した組織は見られなかった。



図 2.3-11 1番層原鉱石の微細組織

(a) 薄膜試料全体のTEM明視野像。(b) 各鉱物相の産状。(c) モンモリロナイトと石英、アモル ファスシリカが共存する産状。白矢印はモンモリロナイト端面とアモルファスシリカが接合して いる箇所を指す。(d及びe) 石英とアモルファスシリカのそれぞれからのSAED像。Kfd:カリ長石、 Qz:石英、Ams:アモルファスシリカ、Bt:黒雲母、Mnt:モンモリロナイト、Anc:方沸石。



図 2.3-12 1番層原鉱石の元素分布



図 2.3-13 31番層原鉱石の微細組織

(a) 薄膜試料全体のTEM明視野像。(b) モンモリロナイト (Mnt) と微細な石英 (Qz、白点線枠) が接合する組織。(c及びd) 微細な石英粒子からの制限視野電子回折像。コントラストを反転した 像と回折点の一つを拡大した像を併せて表示。



図 2.3-14 31番層原鉱石の元素分布





(d) 樹脂置換試料の観察

ここまでのSEM観察あるいはTEM・STEMによる微細構造の観察では、ベントナイトの鏡面研 磨薄片やさらに薄片上からFIBで切り出した薄膜を用いてきた。通常、ベントナイト試料を乾式研 磨する際には、試料の補強の為に用いたエポキシ樹脂を含侵して硬化させた上で研磨を行う。観 察時に、この含侵させたエポキシ樹脂が粒子間に疎らに浸透している様子が見られる場合がある (図2.3-12や図2.3-14)。この樹脂浸透の不均質性が組織に影響を及ぼすことが懸念されるため、 令和3年度の分析にあたっては、樹脂を浸透させない試料や、逆に完全に樹脂を浸透させた試料の

作製を並行して行った。これらのベントナイト試料を薄片化する際の作業過程について図2.3-16 にまとめる。

図2.3-16には三つの作製方法が並記されており、それぞれ含侵法、非含侵法、樹脂置換法と記載 している。熱履歴ベントナイト試料や微細構造の観察に供したのは含侵法で作製したものに相当 し、エポキシ樹脂を周囲から含侵させることで十分な強度にしてから研磨を行っている。一方、 画像解析による空隙・鉱物組成の定量化のための観察には、高粘性のシアノボンドで周囲を覆っ て補強しつつも、内部には樹脂を浸透させない状態で研磨した試料を用いた。含侵法・非含侵法 で作製した試料では、モンモリロナイトが真空下で脱水・収縮することが予想される。

これらの試料と異なり、モンモリロナイトが膨潤した状態での組織観察が行えないか検討する ために、水で膨潤したベントナイト試料中の水をエタノール、プロピレンオキシド、樹脂に段階 的に置換する手法を採用した試料を作製した。段階置換の方法については、生物系の試料作製で 採用されている手法を踏襲した(Bozzola, 2007)が、海洋堆積物の観察などでも同様の手法での 観察例がある(Uramoto et al., 2014)。



図 2.3-16 観察用ベントナイト試料の前処理方法の流れ

樹脂置換法で作製した29番層の原鉱石及び再構成試料をSEMで観察すると、原鉱石と再構成試料での見た目は非常に類似していることが分かる(図2.3-17)。空隙がほとんど埋まることで、29番層の原鉱石に見られるような亀裂状の空隙やモンモリロナイトが脈状に分布する組織(図2.3-1)が見えなくなったため、空隙が均質に分布する再構成試料との違いが判別しにくくなっている。 さらに、薄片の一部をFIBにより切り出しTEM観察を行った(図2.3-18及び図2.3-19)。

薄膜中でのモンモリロナイトの分布をみると、これまで含侵法で観察した際に見られた組織と 比べてモンモリロナイトがばらけた状態で分散している様子が見られる(図2.3・18)。格子縞から モンモリロナイトは15.5・15.8 Åの底面間隔を示すため、層間に樹脂に満たされ膨潤した状態と なっていると考えられる。ただし、モンモリロナイトの分散状態から判断するに、SEMでの観察 で空隙が埋まっていたのは、モンモリロナイトの層間が10 Åから15・16 Åに拡大したためという よりは、拘束圧をかけない状態で膨潤させたためモンモリロナイトが無限膨潤し、剥離した粒子 間が大きく広がった状態で樹脂で固定化されたからだと考えられる。



図 2.3-17 樹脂置換試料(左:原鉱石、右:再構成試料) 倍率は上段から順に40倍、200倍、1,000倍、3,000倍。


図 2.3-18 樹脂置換ベントナイト試料のTEM観察結果 左列:原鉱石、右列:再構成試料。(a及びb)FIB薄膜試料の全体像。(cからf)樹脂中に分散して いるモンモリロナイトの分布。



図 2.3-19 膨潤状態の観察

③ 考察

(a) 空隙及び鉱物組成の定量化方法

まず、画像解析に基づく空隙及び鉱物組成の定量化手法に関して、令和3年度に用いた手法は令和2年度と比べて、i)不均質性の低減化、ii)解析の効率化、iii)再現性の点で向上したと考えられる。 さらに、形状認識の一つである円形度によって、似通った組成で異なる形状をもつ鉱物を分類しての定量が可能となった。

i)の不均質性の低減については、SEMで画像を取得する際にコントラストを変えずに撮影をす ることで複数枚(今回は20枚程度)の画像のコントラストを統一した。これらの画像をスタック として解析に用いることで、不均質性を低減できたと考えられる。一例として、29番層再構成試 料から抜き出した空隙部分の面積率の累計画像数に応じた変化を示す(図2.3-20)。これは各SEM 画像から算出される空隙率(面積割合)を複数枚で平均した際に、累積枚数の増加に伴って平均 値がある一定の値に収束する様子を示している。



図 2.3-20 累積画像数に応じた空隙率の推移

29番層再構成試料のSEM画像中から抽出した空隙の面積%について、複数枚の画像から平均 面積%を算出し、累積枚数の増加による平均値の収束の様子を図示した。

ii)の解析の効率化については、スタックされた複数枚の画像の同時処理と、スクリプトの活用 によって図られた。

iii)再現性の向上に関しては視覚に基づく閾値設定ではなく、極小点、変曲点を利用することで 得られた輝度ヒストグラムに対して一意に定まる閾値を採用することで図られた。画像取得後の 閾値による二値化処理に関しては再現性の高いものだと考えられる。しかし、画像を取得する際 のSEMの操作、特にフォーカスとコントラストの調整については撮影者に依存する点が否めない。 フォーカスがぼやけた画像は鉱物同士の境界が曖昧となり定量結果にも大きく影響を及ぼす。ま た、コントラストに関してはフォーカスよりも撮影者での個人差が表れやすいと考えられ、撮り 方によって輝度ヒストグラムの形が大きく変わり、極小点が存在するべきところに変曲点が表示 される、もしくは極小点が確認されないといった可能性が考えられる。これを防ぐためにはコン トラストを数値として撮影時に設定・取得できることが理想的だと考えられる。

形状認識は、輝度が似通っている異なる鉱物を識別・分離する妥当な方法だと考えられる。そ

して形状の特徴を数値化する方法である円形度とサイズの違いを用いることで、似通った形状の 異なる鉱物の分類が可能になっただけでなく、研究目的上、重要な対象であるシリカ微粒子の定 量が可能になったことが最大の改善点である。一方で、モルデン沸石のベントナイトに占める割 合は手動で塗りつぶすことで求めている点、シリカ微粒子は全体から引くという間接的手法で求 めている点などが改良すべき点として挙げられる。これらに対しては、二値化前の画像に対する より最適なフィルタリングや輪郭抽出の方法を模索することで改善が見込まれる。

形状に着目した鉱物の分離とは異なる手法として、特性X線スペクトルによるマッピングと鉱 物判定を組み合わせたQEMSCANのような手法が挙げられる。こちはら砂岩中での緑泥石による セメンテーションでの活用で効力を発揮している(Worden et al., 2020)。石英などの珪長質な 粒子に対して緑泥石のようなFe、Mgで特徴付けが容易な場合ではQEMSCANのアプローチは非 常に有効だと考えられる一方で、ベントナイト原鉱石のように構成鉱物のほとんどがSiに富む、 化学組成の差に乏しい試料においては、マッピングに長時間要することが予想される。したがっ て、ベントナイト試料に対しては、形状やサイズに着目して識別する手法の方が一次情報の取得 効率において秀でていると言える。

次に、この手法を用いて得られた結果について論ずる。ベントナイト原鉱石に占める空隙・鉱 物の割合の層ごとの変化をグラフにすることで可視化した(図2.3-21)。その結果からセメンテー ションが最も進んでいないとされる31番層から最も進んでいるとされる1番層にかけてシリカ微 粒子の占める割合が増えていることが分かる。このことから、シリカ微粒子のベントナイトに占 める割合がセメンテーションの進行度の一つの指標になるのではないかと考えられる。



図 2.3-21 番層間での鉱物組成・空隙率の比較

そして、この手法により求められたモンモリロナイトの結果についてはモンモリロナイトの占 める割合が31、29、1番層の順で多いという令和2年度の観察結果と一致し、また平成30年度ニア フィールド評価確証技術開発(日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2019)で報告されているモンモリロナイト含有率と同じ傾向を示す。 空隙の定量結果に関しては相関性がみられなかったが、29、31、1番層の順に原鉱石・再構成試料ともに大きな割合を占めることが分かった。29番層が大きな割合を占めた理由として、周辺に 空隙を多く含む斜プチロル沸石の占める割合が大きいことに起因すると考えられる。そして1番 層が一番小さな割合であったのは、1番層が最も粒子が細かいことから粒子の細かさに起因してい ると考えられる。

(b) 原鉱石及び再構成試料に見られる微細構造

令和2年度に観察した29番層原鉱石で見られた、モンモリロナイト端面とシリカが接合する組織は1番層、31番層のいずれの原鉱石でも観察された。再構成試料ではモンモリロナイト粒子が他の鉱物粒子とはバラバラな状態で存在している様子が見られたことから、粉砕される過程でモンモリロナイトと周囲との接合がほぐされた結果と解釈される。端面がシリカによって被覆されることで層間への水の浸透や自由な膨潤が阻まれ、膨潤圧低下に繋がっていることが示唆される点は、令和2年度の観察結果からの推定と変わらない。

ベントナイト中に見られるシリカ微粒子と類似した存在については、海底下の泥質岩の続成過 程においても報告がされている(Thyberg et al., 2010)。鎖状あるいは小さなクラスター状のシ リカ微粒子は、泥質岩中でのシリカの低い移動性と閉鎖系に近い続成作用環境によって形成され たもので、石英の形成速度が十分に遅いために粒径の大きい石英の形成が抑制されていることを 反映していると考えられる。このシリカ微粒子のSiの供給源としては、モンモリロナイトのバイ デライト化に伴う余剰分のSi、沸石相の変化(斜プチロル沸石から方沸石への変化)に伴う余剰 分のSi、火山灰からベントナイトが生成される過程において火山ガラスから溶脱したSiなどが考 えられる。

シリカ微粒子の成因を推定する上で、Siの供給メカニズムと併せて調べる必要があるのは、多 形の定量的理解と、火山砕屑物由来のものと自生のものを見分ける方法だと考えられる。前者に ついては、令和2年度に顕微ラマンによる分析を実施し、粗粒な石英については可能であるものの、 シリカ微粒子をピンポイントで分析するのは難しいことが分かっている。その他の方法としては、 TEMでの電子回折像取得をスキャンしながら行う回折マップの手法や、SEM中で電子後方散乱回 折を使った手法などが候補に上がる。後者については、例えば堆積物中で観察されるシリカセメ ンテーションをカソードルミネッセンスによって砕屑性のものと埋没後の環境で自生したものを 区別する手法がThyberg et al. (2010) やJiu et al. (2020) などの先行研究で用いられている。

④ まとめ

ベントナイトの鏡面研磨薄片から取得したSEM組成像を基にした、画像解析による鉱物・空隙 の定量方法については、輝度のみで分類した令和2年度の方法と比べると、作業効率や閾値設定の 再現性、識別できる鉱物種の増加という点で高度化が達成された。同手法を用いると、ベントナ イト原鉱石のセメンテーションに寄与していると考えられるシリカ微粒子及びモンモリロナイト の量比を試料間で比較することが出来る。シリカ微粒子は31、29、1番層の順に増加する傾向で、 モンモリロナイトは逆の傾向を示した。すなわち、より高い続成作用を経験していると考えられ る1番層の方が、よりモンモリロナイトに対するシリカ微粒子の相対的な量が増加していると言え る。

熱履歴を受けたベントナイト試料の観察では、間隙水の濃縮による二次鉱物の生成は確認され なかった。試料作製方法に関して再検討が求められる。

微細構造の観察では、令和2年度の分と併せて、1、29、31番層の原鉱石全てでモンモリロナイ ト端面とシリカ微粒子が接合する組織が見られた。また、シリカの多形を調べると、低温型石英 だけでなく、アモルファスシリカの混在も確認された。今後、シリカ微粒子の多形の量比や、そ の成因についての理解が求められる。一方で、再構成試料についてはモンモリロナイト粒子と他 の鉱物粒子がばらけた組織を呈し、セメンテーションの解消が示唆される。

異なる観察用研磨薄片の作製方法について整理し、樹脂包埋の前処理の違いによる観察像の比 較を行った。原鉱石と再構成試料の組織の違いは膨潤していない状態において明瞭に確認できる 一方で、膨潤状態を保った状態で樹脂置換した試料では両者の区別が難しいことが分かった。セ メンテーションは、完全に膨潤させた状態よりも、乾燥から膨潤に至る過渡的な状態において最 も明瞭に差が表れる可能性が考えられる。

3) 原鉱石試料及び再構成試料を対象とした基本特性データの取得

本項目では、ベントナイト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3年度は、セメンテーションの原因物質の溶解等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、令和2年度から開始している原鉱石と再構成試料を対象とした複数年程度の長期の 膨潤圧試験を継続した。試験は、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ている。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ている。また、試験に使用した原鉱石の塊のうち、供試 体に使用した箇所の近くにおける乾燥密度を別途測定すると1.72 Mg/m³であったことから、再構 成試料の乾燥密度は1.72 Mg/m³としている。図2.3-22に膨潤圧の経時変化を示す。再構成試料と 原鉱石の膨潤圧は、初期において大きく上昇し、その後、再構成試料の膨潤圧はなだらかに低下、 もしくは、ほとんど変化がないのに対し、原鉱石の膨潤圧はなだらかに増加を続けている。

令和4年度は、セメンテーションの原因物質の溶解等に伴うセメンテーション状態の経時的な変 化を試験後試料を用いて観察する予定である。



図 2.3-22 膨潤圧の経時変化

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・実験手法

ベントナイトの構成鉱物の溶解と二次鉱物の形成によるセメンテーションを再現するため、令 和2年度よりベントナイトの通水実験を実施してきた。Na型ベントナイトであるクニゲルV1(ク ニミネ工業株式会社)を乾燥密度0.3 Mg/m³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、70 °Cの恒温炉内で加圧装置(通水圧0.03 MPa)からチューブを伝って50日 間通水した。実験設計の詳細は令和2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,2021)を参照されたい。注水溶液には、Mgを溶存させ、それがベントナイ トを構成するシリカ鉱物の溶解によって間隙水中に供給されるSiと沈殿し、マグネシウムシリケ ートの形成によって間隙を充填されることを想定した。一般的に、Mgはモンモリロナイトやドロ マイトといったベントナイト構成鉱物に含まれる元素であるために、ベントナイト間隙水中でも 溶存イオンとして存在している。さらに海水系地下水がベントナイトバリアを浸食するシナリオ を想定すれば、ベントナイトバリアの間隙水中ではMgは主要な元素となりうる。実際に、ベント ナイトの中でマグネシウムシリケートが形成されることは室内実験や原位置試験から実証されて いる(Ramirez et al., 2002; Mäder et al., 2017)。

令和2年度と令和3年度の実験では、注水溶液の条件に違いがある(表2.3・3)。令和2年度は、 Mg(OH)2水溶液を用いたが、固相であるMg(OH)2(s)の飽和水溶液であってもpHは11を超えるこ とはない。シリカ鉱物は高アルカリ条件で溶解しやすい性質を持つため、令和3年度ではNa+イオ ン(NaOH試薬)を注水溶液に加え、pHがより高い条件での実験を実施した。モンモリロナイト の溶解には大きく影響しないように、pHを11.5付近に設定した。しかし一方で、pHを高くすれば Mg(OH)2(s)の溶解度が低くなり溶存できるMgの濃度が小さくなる。そのため、SO4²イオンを加 えることで、Mg²⁺に代わってMgSO4(aq)が主要なMg溶存種となり、Mg(OH)2(s)の溶解度が大き く上がることを抑制した。

	pН	Na	Mg	${ m SO}_4$
令和3年度インプット	11.56	1007	0.002	500
令和2年度インプット	10.04	-	0.07	-

表 2.3-3 注水溶液のpH及び溶存元素濃度(mmol/L)

(a) 溶液分析(令和3年度通水実験試料)

令和3年度の通水実験における排水溶液の分析方法は、令和2年度の通水実験と同様である。ア ウトプット溶液は、常温常圧の窒素雰囲気のデシケーター内にボトルを用意して採取し、実験開 始から15日後、30日後及び50日後の計3回、ボトルを入れ換えて、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、測定前にはpH 7とpH 9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際は、 アウトプット溶液を超純水で希釈した上で1 vol%の硝酸を加え、株式会社島津製作所製のICPE-9000を用いた誘導結合プラズマ発光分析を実施した。標準液(ICP multi-element standard solution IV, Merck KGaA; Silicon Standard Solution, 富士フィルム和光純薬株式会社)から検 量線を引くことで試料の濃度を評価した。

(b) 固体分析(令和2年度と令和3年度通水実験試料)

通水実験前後のベントナイトに対して、X線回折(XRD)分析を実施した。令和2年度はXRD分 析を実施していなかったため、本報告書では令和2年度の通水実験試料及び令和3年度の通水実験 試料の両方に対するXRD分析結果を記載する。Cu管球を有するX線回折装置(RINT-2100、株式 会社リガク)を用い、管電圧・電流は30 kV・20 mAとした。試験前後のベントナイト試料をメノ ウ乳鉢で粉砕し、2・70°20をスキャンスピード1°/minのもと測定した(不定方位法)。また、 遠心分離機で水ひを行って得た0.2・2µmサイズ粒子(粘土フラクション)10 mgとイオン交換水 300 µLを加えて作製した懸濁液をスライドガラスに塗布し、2・40°20をスキャンスピード 1°/minのもと測定した(定方位法)。定方位測定の際は、精密湿度供給装置(SRG-1R、神栄テ クノロジー株式会社)を用いて、ゴニオメーター内を相対湿度(RH)0、10、20、30、40、50、 60、70及び80%に制御した。RH0%条件での測定は乾燥空気をゴニオメーターに当てて半日(12 時間以上)後、それ以外のRH条件での測定は湿度制御した空気を当てて30分後に開始した。

2) 分析結果

(a) 溶液分析

令和3年度の通水実験におけるアウトプット溶液の水pH及び主要溶存元素濃度を表2.3-4に示 す(令和2年度の結果も比較のために記載している)。令和3年度はインプット溶液のpHが11.65 であるのに対しアウトプット溶液のpHは8程度であり、著しいpH減少を確認した。令和3年度実 験のMg濃度に関しては、インプットよりも濃度が大きくなっていた。Fe及びAlに関しては検出限 界以下であった。

		pН	Na	K	Mg	Ca	Si
令和3年度	アウトプット 15日後	8.05	261	1.42	1.17	9.59	0.31
	アウトプット 30日後	8.10	535	2.05	1.02	11.6	0.34
	アウトプット 50日後	8.24	639	2.65	0.432	4.61	0.37
令和2年	アウトプット 15日後	8.99	8.78	0.67	0.015	0.021	0.48
	アウトプット 30日後	8.84	7.17	3.20	0.014	0.018	0.57
度	アウトプット 50日後	8.80	5.17	0.08	0.005	0.014	0.62

表 2.3-4 アウトプット溶液のpH及び溶存元素濃度(mmol/L)

また令和2年度の報告と同様に、令和3年度の実験においても、透水係数k (m/s) を式(2.3-3)で示されるダルシー則により評価した:

$$\frac{Q}{A} = k \times \frac{\Delta P}{\Delta L} \tag{2.3-3}$$

ここで、Qは流量(m³/s)、Aはカラムの断面積(m²)、 ΔP は水頭差(m)、 ΔL は試料の通水

方向における高さ(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1g/cm³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アウ トプット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。図2.3・23に 算出した透水係数の結果を示す。令和3年度の実験では、令和2年度と同様に通水時間とともに透 水係数が大きくなっていったが、全体的に令和2年度よりも透水係数が大きい値を示した。また、 令和2年度の50日間の実験では通水時間と透水係数には線形的な関係性があったところ、令和3年 度の50日間の実験では30日までは透水係数は大きく上昇したが、30日から50日の間では透水係数 に大きな変化が認められなかった。



図 2.3-23 透水係数の時間変化

(b) 固体分析

図2.4-2に令和2年度及び令和3年度の実験試料及びクニゲルV1に対する不定方位法でのXRDパ ターンを示す。伊藤ら(1994)の報告を参考にピーク帰属を行った。実験試料の鉱物組成に関し ては、クニゲルV1から特に大きな変化は見られなかったが、令和3年度の実験試料のXRDパター ンには硫酸ナトリウムのピークを確認した。図2.3-25は、図2.3-24のXRDパターンにおいて粘土 鉱物の060反射が見られる58-65°20の範囲を拡大したものであるが、モンモリロナイト(2八面 体型Al粘土鉱物)以外の粘土鉱物のピークは認められなかった。





一方、定方位法での測定からはモンモリロナイトの底面反射を評価することができた。一般的 に、モンモリロナイトは膨潤性を有することから、モンモリロナイトの底面間隔は大気のRHに応 じて変化する。図2.3・26はこの度の測定におけるクニゲルV1の底面反射の変化を示している(RH 10、30、50及び70%の結果は図中では省略した)が、通水実験後の試料に対しても同様にRHに よるピークシフトを確認した。これらのピーク位置から評価した底面間隔は図2.3・27に示してい る。通水実験のカラムにおいて上流サイド・下流サイドの間で膨潤挙動に大きな変化はなかった。 令和3年度通水実験試料は、Sato et al. (1992)やFerrage et al. (2005)で報告されているよう な、層間にNaを有するモンモリロナイトと類似した特徴を示した。令和2年度の通水実験試料は、 層間にNaを有するモンモリロナイトと層間にMgを有するモンモリロナイトの中間的な特徴を示 した。



図 2.3-26 定方位試料(クニゲルV1)の湿度制御による底面反射の変化



図 2.3-27 湿度変化に伴う通水実験試料の底面間隔の変化

③ 考察

令和2年度の通水実験では、ベントナイトのセメンテーションを示す透水係数の低下は確認する ことができなかった。令和2年度での報告では、X線CT観察から一次鉱物の溶解を確認し、部分的 に二次鉱物の形成を示唆するデータが得られたが、透水係数は通水時間とともに上がっているこ と(図2.3・23)から二次鉱物形成によるベントナイトの空隙の充填が顕著に見られたとは結論づ けがたい。令和2年度の試料に対してXRD分析を実施したところ、NaモンモリロナイトのMg型化 が起こっていることが判明した(図2.3・27)。クニゲルV1を構成する全てのNaモンモリロナイト がMg型化されたとは考えられないが、インプット溶液中の溶存Mgがモンモリロナイトのイオン 交換として消費されたことは明確である。一般的にMg²⁺イオンはNa⁺イオンに対する層間への交 換侵入力が大きい一方、MgモンモリロナイトはNaモンモリロナイトと比べると膨潤しにくい特 性がある。以上の理由から、令和2年度の実験では透水係数が次第に大きくなっていったことが考 えられる。

また、令和3年度の通水実験においても、セメンテーションは明確に確認できなかった。透水係 数は令和2年度の通水実験よりも高く、時間経過に伴って透水係数が上昇する速度も速かった(図 2.3-23)。令和3年度の実験の方が、インプット溶液のイオン強度が大きい(表2.3-3)ため、モン モリロナイト粒子の周囲に広がる電気二重層が薄くなり、粒子同士が凝集しやすくなってベント ナイトが収縮してしまったことが考えられる。一方でモンモリロナイトのMg型化は確認されてい ないため(図2.3-27)、透水係数が増大する原因は令和2年度と令和3年度で異なることが考察で きる。なお、粉末XRDパターンからは、芒硝石のピークが確認できたが、これは通水実験後にベ ントナイト試料を乾燥する過程で析出したことが大いに想定され、これが実験中にベントナイト の間隙を埋めるように形成されたとは考えられにくい。

以上の両実験において、実験開始前に生成を想定していたマグネシウムシリケートは、実際に は観察することができなかった。70°Cという実験条件は、鉱物形成にとっては地質学的に低温で あるため、ここで生成しうるマグネシウムシリケートはタルクや蛇紋石などの一般的な結晶質鉱 物ではなく、マグネシウムシリケートハイドレート(MSH)であると考えられる。MSHは低結晶 性であるものの、35°付近や60°(3八面体型Mg粘土鉱物の060反射に類似する位置)付近にピー クを示すことが知られている(Roosz et al., 2015)。しかしながら、実験試料の粉末XRDパター ンでは、(石英のピークと重なってしまったことも考えられるが)MSHのピークを確認すること ができなかった(図2.3-24、図2.3-25)。

ここで、The Geochemist's Workbenchソフトウェア及びThermoddemデータベースを用いて、 アウトプット溶液の溶存元素濃度を活量に換算し、溶液の化学組成がどの鉱物によって規定され ているのかを検証した。手順は以下の通りである:

- ・ 表2.3・4に示す陽イオン濃度、シリカ濃度及びpH(25 ℃)データから、チャージバランスを SO4²・イオンで考慮しながら、温度を70 ℃に上昇させた場合のpHを評価した。
- pH (70°C) と表2.3-4に示す陽イオン濃度・シリカ濃度から70°Cにおける溶存種の活量を評価した。

溶存種の活量を図2.3-28に示す安定相図へプロットした。

令和2年度の実験及び令和3年度の実験でpHは異なるものの、ともにSi-H₂O系の安定相図への 実験データのプロット結果(図2.3-28a)から石英の溶解によって溶液の化学組成が規定されてい ることが示唆された。また、Mg-Si-H₂O系の安定相図(図2.3-28b)では、実験データはMSHの安 定領域からは大きく離れており、不飽和であった。この熱力学的安定相図からはMSHの形成には、 pHもしくはMg活量の値を大きくすることが必要であると考えられる。しかし、より高いpHでの 実験では、Mgの溶存量は小さくなり、さらにモンモリロナイトが溶解しやすくなるという面もあ るため、同様な通水実験においてMSHによるベントナイトのセメンテーションを実現できるどう かは疑わしい。逆に、インプット溶液のMg濃度を高くすれば、pHは下がり、シリカ鉱物の溶解 (間隙水中への溶存シリカの供給)が促進されない。従って、このような通水実験を通してMSH でセメンテーションされたベントナイトカラムを作製することは困難である可能性がある。令和 2年度の報告にあった、X線CT観察での二次鉱物の正体は不明であるが、もしもそれがMSHであ るならば、ベントナイトカラム内に一部局所的にMSHに対して過飽和な場所ができていたことや、 MSHの不均質核形成が起こっていたことが推測できる。

本検討はセメンテーションが生じる可能性評価にむけた実験的研究手法の開発が目的であり、 ベントナイトのセメンテーションが生じる試料を作製するための今後の方策としては、別の物質 (カルシウムシリケートハイドレートなど他のシリケート物質)の沈殿形成を試みることが必要 であると考える。なお、ケイ酸塩ではなく、塩化物や硫酸塩の鉱物形成によるセメンテーション は現実的に難しい面が推察される。令和3年度実験試料のXRDパターンでピークが見られた芒硝 石に関して飽和指数 (SI)を求めたところ、15日後、30日後、50日後でそれぞれ SI=-2.9、-2.2、 -2.1であった。すなわち、70 °C条件下ではSI < 0のため不飽和であり、沈殿形成できない条件で あった。塩化物や硫酸塩の形成のためには、インプット溶液のCl-イオンやSO4²イオン濃度を非常 に高くすることが必要となるが、本実験と同じようなベントナイト乾燥密度・通水圧でカラム実 験を行えば、令和3年度の実験結果と同じようにベントナイトの収縮が起こってしまう可能性が考 えられる。



図 2.3-28 安定相図(70°C) (a)Si-H₂O系及び(b)Mg-Si-H₂O系とアウトプット溶液データ

(3) これまでの成果と今後の課題

令和3年度は、ベントナイトのセメンテーション等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、その再構成試料及び熱履 歴を受けたベントナイト試料の電子顕微鏡による観察、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。

電子顕微鏡を用いた月布鉱山産ベントナイト原鉱石及びその再構成試料の観察では、その一環 として走査型電子顕微鏡で取得した反射電子像の画像解析手法の高度化により、セメンテーショ ンの結果生じると考えられるシリカ微粒子を含め、鉱物組成・間隙の定量化方法を改善した。ま た、透過型電子顕微鏡を用いた詳細観察・分析を実施し、原鉱石には共通してモンモリロナイト とシリカが接合する組織があること、再構成試料には接合する組織が存在しないことが確認でき た。熱履歴を受けたベントナイト試料の観察では、令和3年度に実施した浸潤試料の加熱乾燥処理 では石膏などの可溶性塩が生成されず、処理方法を改善する必要があることが分かった。

基本特性データの取得では、セメンテーションの原因物質の溶解等に伴うセメンテーション状態の経時的な変化に伴う基本特性の変化を観察するための原鉱石及びその再構成試料を対象とした長期膨潤圧試験を継続し、原鉱石と再構成試料の膨潤圧はそれぞれなだらかに増加、低下するという反対の傾向を示すことが確認できた。

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、化学反応に伴う二次鉱物として マグネシウムシリケートハイドレート(MSH)の析出によるセメンテーションを再現するため、 マグネシウム添加溶液による通水試験を行った。MSHの析出を促進させる目的で令和2年度より 高いpH条件とするなどの改良を図ったがセメンテーションを再現することはできなかった。

平成30年度から令和3年度までの4か年の検討により、膨潤性低下等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原因と考えられるモンモリロナイトとシリカの接 合などの状態を詳細に把握するとともに、セメンテーションの原因物質と考えられるシリカ微粒 子などの含有量を定量化する方法を開発することができた。また、長期膨潤圧試験によりセメン テーション状態の経時的な変化を示唆する結果を得ることができた。

今後は、令和3年度に開発した画像解析手法の活用により、長期膨潤圧試験前後の試料のシリカ 微粒子の含有量を比較し、セメンテーションの原因物質の溶解等に伴うセメンテーション状態の 経時的な変化について考察を行う。また、熱履歴の影響については、既往研究を参考に可溶性塩 の析出によるセメンテーションの再現を試みる。セメンテーションに関する実験的研究手法の検 討については、MSHとは異なる二次鉱物の析出を対象に改善を図る。

2-90

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 (廃棄体定置後の THMC 状態が大きく変化する期間)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 の違いを把握し、特にオーバーパック近傍の飽和度の経時変化に与える影響が大きいことなどを 示した(日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2021)。

令和3年度は、海水系地下水条件での浸潤挙動の評価手法の構築に向けて、塩分濃度の違う試 験溶液を用いた浸潤試験を行い、供試体内部の含水比分布などの時間変遷を取得することで、塩 濃度に応じた浸潤挙動の違いの把握を行った。試験により取得したデータと、間隙水の塩濃度変 化に伴う透水係数の変化を考慮した連成解析コード Couplys による解析結果を比較することによ り、解析手法の妥当性の検証と高度化を行った。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(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3年度は、幌延人工バリア性能確認試験で得られている再冠水時の応力や変位に関する計 測データを活用し、原位置試験などの実規模かつ複合的な試験体系における緩衝材の力学挙動に 着目した時の MACBECE による解析結果の再現性の確認を行い、過渡期の解析機能の高度化に 向けた更なる課題の抽出を行った。

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。

令和3年度は、膨潤圧の経時変化と供試体内部の状態変遷との関連性の更なる理解を進めるため、初期含水比の異なる条件でのX線CT測定を伴う膨潤圧試験を行い、膨潤圧が単調に増加する場合のデータ取得を行った。また、MACBECEに導入できていない過渡期の緩衝材の力学特性の温度依存性を考慮できる力学モデルの構築に向け、温度を制御した膨潤圧試験に着手し、緩衝材の力学特性の温度依存性に関するデータ取得と、それによる現象理解を進めた。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一つとして、 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(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、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(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、2021)。しかしながら、令和2年度 のモデルでは、粘土分子表面への水和挙動を特徴付ける水和エネルギーが水和量の増加に対して 単調減少すると仮定して計算を行っているが、このような単調な水和エネルギーモデルは、層間 イオン種に応じたモンモリロナイトの複雑な膨潤挙動(例えば、Na型モンモリロナイトでは相対 湿度(化学ポテンシャルと関係)に対して離散的な膨潤状態をとる)を再現するためには十分で なく、いくつかの極値をもつような非単調な水和エネルギーモデルが必要となる。

そのため、令和3年度は、そのようなより複雑な水和エネルギーモデルの開発に着手した。具体 的には、より複雑な水和エネルギーモデルの開発に向けて、水和エネルギーの局所的な変動が膨 潤挙動に与える影響を調べることを目的に、令和2年度までの単調に変化する水和エネルギー関数 に振動成分を加えたより複雑なモデルを用いた解析を試行した。

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)を連成させた熱ー水 ー応力-化学(THMC)連成解析コード(以下、[Couplys]という)の開発が進められてきた(日 本原子力研究開発機構, 2008; 2009; 2010; 2011; 2012; 2013; 2014; 2015a)。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、連成挙動として扱うべき現象を明らかに 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ものである。

平成30年度及び平成31年度においては、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、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、間隙水の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することを確認した(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)。

令和2年度は、FEBEXプロジェクトにおける原位置試験の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モデルの検討を行った。具体的に は、気液二相流解析コードのTOUGH2(Pruess, 1991)を用いて、廃棄体の発熱を想定した人工 バリア体系での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緩衝材の浸潤挙 動評価を行った。そして、得られた浸潤プロファイルを再現可能とするモデルとして、温度及び 間隙水飽和度依存性を考慮した温度勾配による水分移動モデルの設定を行った(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,2021)。また、THAMESの検証解析として、 幌延深地層研究計画における人工バリア性能確認試験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、海水系地下水環境に対する連成解析モデルの適用性の確認を行った。その結果、 緩衝材の透水特性として、幌延地下水に対して得られている値を用いた場合においても、計測デ ータを適切に再現することができなかった(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,2021)。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 とが知られている。図2.4.-1に示すように、海水系地下水が浸潤する緩衝材の間隙水組成に応じて透水 性などの水理特性も変化すると考えられ、海水系地下水の影響は、岩盤に近い緩衝材の外側で大 きく、浸潤が進まない緩衝材内部では小さいと推察される。

このようなことから、令和3年度においては、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解析手法を確立することを目的として、海水系地下水の浸潤を想定した室 内試験レベルでの浸潤試験を実施した。そして、緩衝材の浸潤挙動に及ぼす浸潤溶液中のNaCl濃 度の影響を把握した。さらに、試験で得られた浸潤挙動を評価するための解析手法として、 Couplysによる水理解析と地球化学解析との連成解析手法を用いた。そして、緩衝材中に初期に存 在する間隙水と浸潤溶液とが混合して形成される間隙水組成と、それに依存して変化する透水特 性の影響を考慮した評価を実施した。これらを通じて、海水系地下水環境下における緩衝材の浸 潤挙動評価モデルの検討を行った。



図 2.4-1 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) 実施内容

1) 海水系地下水の浸潤を想定した緩衝材の浸潤試験

① 概要と目的

本検討では、前述のような浸潤溶液と間隙水の混合が浸潤挙動に与える影響を評価するための 試験データを取得することを目的として、乾燥密度が一定の圧縮ベントナイト試料を対象に、浸 潤溶液の塩化ナトリウム濃度を変えた複数の浸潤試験を実施し、浸潤時間と浸潤量の関係及び一 定時間後の浸潤距離毎の含水比データを取得した。

試験条件·試験手順

表 2.4・1 に試験条件を示す。供試体となる圧縮ベントナイト試料の材料は、クニゲル V1、ケイ 砂 3 号、ケイ砂 5 号を重量比 7:1.5:1.5 で混合したものであり、乾燥密度は 1.8 Mg/m³ とした。 供試体のサイズは直径 50 mm、高さ 50 mm とした。また、浸潤溶液には、蒸留水、1.29 %NaCl 水溶液、1.49 %NaCl 水溶液、2.62 %NaCl 水溶液及び極端な地質環境条件を想定した例として 10.85 %NaCl 水溶液を用いた。なお、1.29 %NaCl 水溶液や 1.49 %NaCl 水溶液は幌延地下水相 当、2.62 %NaCl 水溶液は海水相当の NaCl 濃度である。

材料の割合	クニゲル V1:70%、ケイ砂3号:15%、ケイ砂5号:15%
ベントナイトの	約8%
初期含水比	
乾燥密度	1.8 Mg/m^3
直径	50 mm
高さ	50 mm
浸潤溶液	蒸留水、1.29 %NaCl 水溶液、1.49 %NaCl 水溶液、2.62 %NaCl 水溶液、
	10.85 %NaCl 水溶液

表 2.4-1 試験条件



図 2.4-2 試験装置概略図

図 2.4-2 に試験装置概略図を示す。試験で使用する圧縮ベントナイト試料は、汎用の圧縮試験 機を用いて試験セル内に一方向から圧縮して作製した。ベントナイト試料を一方向から圧縮した 場合、作製した圧縮ベントナイト試料には密度分布に偏りが生じることが確認されている(鈴木・ 藤田, 1999)。このため、本試験では密度分布の偏りを低減するために、まず10 mmの厚さにな るように圧縮成型する。その後、上からさらに試料を投入して圧縮し、10 mmの厚さを追加する。 10 mm ごとにこれを繰り返すことで厚さ 50 mm の供試体を作製した。その後、図 2.4-2 に示し たように体積を固定した状態で供試体下端から給水を行いながら、ビュレットの目盛りの変化を 記録することにより、浸潤時間と浸潤量の関係を把握した。

試験溶液として蒸留水、1.29 %NaCl 水溶液、2.62 %NaCl 水溶液、10.85 % NaCl 水溶液を用 いたケースでは、浸潤量が約 11 cm³となった時点で浸潤試験を終了し、供試体を汎用の圧縮試験 機を用いて 10 mm 毎に試験セルから押し出し、スライスした供試体の含水比を測定することで、 一定時間経過後の含水比分布を取得した。また、1.49 %NaCl 水溶液条件においては、別途 4 試 料作製し、1、4、11 及び 21 日経過後の含水比分布も取得した。

③ 試験結果

各浸潤溶液での浸潤時間と浸潤量の関係を図 2.4-3 に示す。浸潤溶液の塩化ナトリウム濃度が 高いほど浸潤速度が速くなっている。これは、飽和透水係数と同じ傾向である。長谷川(2004) は、蒸留水及び各濃度の塩化ナトリウム水溶液の浸潤量は浸潤時間の 1/2 乗と比例関係となるこ とを報告しており、浸潤時間と浸潤量の関係は不飽和浸潤挙動を拡散現象として取り扱うことで 評価可能であるとしている。本試験で得られた浸潤量と浸潤時間の関係はこのような既往の研究 と整合的であった。

各浸潤溶液での浸潤面からの距離と含水比の関係を図 2.4-4 に示す。浸潤溶液が蒸留水及び幌 延地下水相当の場合には、含水比分布は下に凸の分布となっており、含水比分布も不飽和浸潤挙 動を拡散現象として取り扱うことで評価可能であると考えられる。これに対して、浸潤溶液が海 水相当の場合には若干上に凸の分布となる傾向が見られ、浸潤溶液が 10.85%NaCl 水溶液の場合 には、明確に上に凸の傾向が見られる。このため、塩化ナトリウム濃度が高い条件では、不飽和 浸潤挙動を拡散現象として取り扱った場合、浸潤時間と浸潤量の関係は評価可能であるが、含水 比分布を再現することは困難である可能性が示唆される。浸潤溶液の塩化ナトリウム濃度が高い 場合に含水比分布が上に凸となる原因として、浸潤溶液による間隙水中の塩濃度の増加により供 試体中の透水性が変化していることが挙げられる。濃度の高い塩化ナトリウム水溶液が浸潤した 領域は透水性が高くなり、浸潤が促進されることで注入側の含水比が高くなったためであると考 えられる。後述のような NaCl 濃度依存性を考慮したダルシー則であれば、このような現象を再 現することが可能と考える。

続いて、図 2.4-5 に 1.49 %NaCl 水溶液条件における含水比分布の時間変化を示す。時間の経 過とともに浸潤面から含水比の増加が生じていることが確認できる。



図 2.4-3 浸潤時間と浸潤量の関係



図 2.4-4 浸潤距離と含水比の関係





2) 浸潤試験結果に基づく浸潤挙動解析評価

① 概要と目的

前項で示した緩衝材の浸潤挙動を把握するための浸潤試験結果に基づき、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連成解析モデルの検討を行った。解析では、 浸潤試験の浸潤溶液として、蒸留水、幌延地下水相当の NaCl 濃度の溶液及び海水相当の NaCl 濃 度の三つの条件で得られた浸潤試験結果を対象に、Couplys によって水理解析と地球化学解析と を連成させた再現解析を実施し、浸潤試験結果との比較を通じて解析モデル及び解析パラメータ の設定を行った。

2 解析条件

ここでは、THMC連成解析モデルのCouplysを用いて、等温条件で実施された浸潤試験に対し て、熱及び応力変形の影響を考慮せずに、水理・地球化学の連成解析として実施した。なお、緩衝 材中における間隙水と含有鉱物との反応やイオン交換反応などの水-鉱物反応については、浸潤 時間が最長でも3週間程度と短いことから考慮しないものとし、間隙水中のNa及びClの移行のみを対象とした。

解析メッシュは、浸潤面から鉛直方向への一次元のみの流れを考慮することとし、これを要素数100でモデル化した。境界条件として、浸潤試験の浸潤溶液の条件に合わせて浸潤面要素のNaCl 濃度を拘束した。

本解析で用いた物性値を表2.4-2に示す。このうち、緩衝材のサクション Ψ (mH₂O)と体積含水 率 θ (-)との関係を表す水分特性曲線については、van Genuchtenモデル (van Genuchten, 1980) を用いた。また、物質移行パラメータについては、第2次とりまとめにおける安全評価に用いた値 とした(核燃料サイクル開発機構, 1999b)。

本評価では、緩衝材の透水特性として固有透過度の NaCl 濃度依存性を考慮するため、図 2.4-6 を用いた。図中のプロットは実験室レベルでの透水試験によって得られた値であり、透過させる 溶液として、左から蒸留水、幌延地下水相当の NaCl 濃度及び人工海水相当の NaCl 濃度に対し て得られた固有透過度である(松本ほか, 1997; 菊池, 棚井, 2005; 菊池ほか, 2003)。そして、透 過溶液中の NaCl 濃度と固有透過度の関係を指数関数で近似すると次式となり、図中の直線のよ うになる。

$$\kappa = 1.376 \times 10^{-20} exp(1.035c) \tag{2.4-1}$$

ここで、 κ :固有透過度(m²)、c:透過溶液中のNaCl濃度(wt%)である。なお、固有透過度 とは、多孔質媒体の透過抵抗を表すものであり、透水係数との関係は式(2.4·2)で表される。

$$k_w = \frac{\kappa \rho_w g}{\mu} \tag{2.4-2}$$

ここで、 k_w :透水係数 (m/s)、 ρ_w :透過溶液の密度 (Mg/m³)、g:重力加速度 (m/s²)、 μ :透 過溶液の粘性係数 (Pa·s) である。これより、式(2.4-1)の固有透過度を透水係数で表すことができ る。

飽和・不飽和浸透流解析におけるダルシー則は次式である。

$$v = k_w kr \,\frac{\Delta H}{\Delta x} \tag{2.4-3}$$

ここで、 $v: ダルシー流速、kr: 比透水係数、<math>\Delta H/\Delta x: 2$ 水頭勾配である。そして、透水係数 k_w を、式(2.4-1)及び式(2.4-2)で設定することで、透水係数の NaCl 濃度依存性を考慮することができる。

また、後述のように、これらの式を用いた場合、実測値に比べて解析結果は浸潤速度を早く評価してしまったことから、不飽和時の水理特性である比透水係数や水分特性曲線も NaCl 濃度依存性を有する可能性が考えられた。しかしながら、特に比透水係数は室内試験から直接推定することが難しいため、これらの NaCl 濃度依存性を室内試験から直接モデル化することは困難と考えた。そこで本検討では、式(2.4-3)を以下のように拡張することで不飽和時の水理特性の NaCl 濃度依存性を考慮することとし、不飽和状態では浸潤挙動に与える NaCl 濃度の影響が小さくなるようにモデル化した。

$$\kappa = 1.376 \times 10^{-20} exp(1.035c \times S_r^{A_c})$$
(2.4-4)

ここで、S_r:間隙水飽和度、A_e:塩水条件での浸潤試験の再現解析から決定するフィッティン グパラメータであり、本検討では12.0を用いた。なお、上式は飽和状態では、式(2.4-1)に帰着す る。

2-98



図 2.4-6 NaCl濃度と固有透過度の関係

真密度	Mg/m^3	2.64
乾燥密度	Mg/m^3	1.60
空隙率	-	0.403
初期間隙水飽和度	-	0.3
水分特性曲線 (vGモデル)*1	-	$S_e = \frac{\theta - \theta_r}{\theta_s - \theta} = [1 + \alpha \Psi ^n]^{-m} \mathbf{m} = 1 - \frac{1}{n}$ $\theta_s = 0.403, \theta_r = 0, \alpha = 0.012, n = 1.4^{*2}$
実効拡散係数*3	m²/s	3.0×10^{-10}
縦分散長*3	m	0.01
*1 : van Genuchten	(1980)	

表 2.4-2 一次元の浸潤試験を対象とした緩衝材の解析物性値

*2:日本原子力研究開発機構(2018b)

*3:核燃料サイクル開発機構(1999b)

前項で示した浸潤試験の再現解析として、以下の4ケースについて実施した。

caseAは、水理解析であり、一般的な飽和・不飽和浸透流解析である。この場合の固有透過度は 間隙水組成に依存せずに一定値となる。固有透過度は、表2.4-3に示した通りであり、式(2.4-1)に 基づき、浸潤溶液中のNaCl濃度として、それぞれ0%、1.29 wt%及び2.62 wt%とした。

caseBは、水理解析と地球化学解析を連成させており、式(2.4-3)で示したダルシー則に、式(2.4-1)で示した固有透過度のNaCl濃度依存性を考慮したものである。間隙水中のNaCl濃度は、初期に 含有する間隙水と浸潤水が混合した値として計算され、それに基づき固有透過度が設定されるこ とになる。

caseCは、式(2.4-4)に示すように不飽和時の水理特性のNaCl濃度依存性も考慮した。さらに、 caseDとして、1.49%NaCl水溶液条件に対する浸潤試験の再現解析として、caseCと同様不飽和

時の水理特性の NaCl 濃度依存性も考慮した解析を行った。

以上、解析ケースを整理し表2.4-3に示す。なお、人工海水以上の塩濃度の濃い条件では、固有 透過度の試験データは十分に取得されていないことから、10.85 %NaCl水溶液については解析を 実施していない。

解析ケース	解析手法	試験溶液	固有透過度
caseA	Н	蒸留水	$1.38 \times 10^{-20} \text{ m}^2$
		1.29 %NaCl水溶液	$5.23 \times 10^{-20} \text{ m}^2$
		2.62 %NaCl水溶液	$2.07 \times 10^{-19} \text{ m}^2$
caseB	HC連成	蒸留水	式(2.4-1)
		1.29 %NaCl水溶液	
		2.62 %NaCl水溶液	
caseC	HC連成	蒸留水	式(2.4-4)
		1.29 %NaCl水溶液	
		2.62 %NaCl水溶液	
caseD	HC連成	1.49 %NaCl水溶液	式(2.4-4)

表 2.4-3 解析ケース

H:水理解析、C:地球化学解析

③ 解析結果

浸潤試験によって得られた供試体中へ浸潤量の時間変化を、caseAからCの解析結果と比較して図 2.4-7に示す。図中の横軸は、浸潤時間の平方根である。図 2.4-7(a)で示した蒸留水の場合については、間隙水中の NaCl 濃度による透水特性の変化が生じないため、caseA、B及び C ともに同じ結果となる。なお、実測値よりも解析結果の方が僅かながら浸潤速度が遅い結果となっているが、これは、固有透過度の設定において、図 2.4-6 に示すように、透水試験で得られている実測値よりも、式(2.4-1)の近似式から設定される値が小さいためである。

図 2.4-7(b)及び(c)に示す幌延地下水相当及び海水相当の NaCl 濃度の溶液を浸潤させた場合の caseA の解析結果は、実測値に比べて浸潤が速くなっている。caseA は一般的な飽和・不飽和浸 透流解析であり、固有透過度は間隙水組成によって変化しない計算である。実測値との乖離は、 計算で用いられる固有透過度が大き過ぎるためである。すなわち、浸潤面に近く間隙水が浸潤水 で満たされた部分と、浸潤面から遠く浸潤水が到達していないような部分で同じ固有透過度を与 えられることが適切でないことを示すものである。これは、令和2年度に実施した幌延深地層計 画における人工バリア性能確認試験を対象とした解析評価と同様に、計測データを再現できなか った要因の一つと考えられる。caseB は、間隙水中の NaCl 濃度に応じて透水特性を変化させた HC 連成解析の場合である。caseB の場合でも、実測値に比べて解析結果は大きくなっており、こ れは、不飽和時の水理特性も間隙水組成の影響を受けることを示している。caseC は、固有透過 度が NaCl 濃度に依存して変化するのに加えて、不飽和時の水理特性の NaCl 濃度依存性も考慮 したケースである。caseC のモデルにより、実測値を再現する解析結果が得られた。



図 2.4-7 緩衝材の浸潤試験を対象とした浸潤量の再現解析結果

図 2.4-8 は、浸潤量が 8 cm³ での caseC の間隙水飽和度分布を比較した図である。試験溶液の 塩濃度の増加とともに分布の形状が下に凸から上に凸の形状に変化していく傾向を解析でも再現



図 2.4-8 同一浸潤量での間隙水飽和度分布の比較

図 2.4-9 は、caseD の解析結果であり、間隙水飽和度の分布を 1.49 %NaCl 水溶液条件に対す る浸潤試験結果と比較したものである。これらは、幌延地下水相当の NaCl 濃度の浸潤溶液に対 するものであり、解析結果は浸潤試験結果をよく再現している。



図 2.4-9 緩衝材の浸潤試験を対象とした水分分布の再現解析結果

(3) これまでの成果と今後の課題

令和3年度は、これまでに開発を進めてきたTHMC連成解析モデルを多様な地質環境条件に対応できるようにするため、海水系地下水環境下での緩衝材の浸潤挙動を評価可能とするモデルの 構築に着手した。そして、緩衝材中への海水系地下水の浸潤を想定した室内試験レベルでの浸潤 試験を実施するとともに、得られた浸潤挙動を再現可能とする連成解析モデルの設定を行った。 浸潤試験では、様々な濃度のNaCl溶液を緩衝材試料に浸潤させ、浸潤量や水分分布を測定した。 その結果、塩水条件でも浸潤量は浸潤時間の1/2乗と比例関係となることや、濃度の増加に伴い含 水比分布の形状が下に凸から上に凸の形状に変化していくことを明らかにした。

このような浸潤試験を対象として、不飽和浸透流解析と地球化学解析との連成モデルにより評価を実施した。このモデルでは、初期に存在する間隙水と浸潤水が混合して形成される間隙組成を計算し、それによる水理特性の変化を考慮した。そして、従来からの不飽和浸透流解析である透水係数が間隙水飽和度によって変化する一般的な浸透流モデルに加えて、不飽和時の水理特性のNaCl濃度依存性も考慮することによって浸潤試験の結果を再現することが可能となった。

平成30年度から令和3年度までの4か年においては、FEBEXプロジェクトや幌延深地層研究計 画に基づく原位置試験で得られた計測データとの比較を通じて、THM連成解析モデルが廃棄体縦 置き方式とともに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。また、THMC連成解析モデルでは、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の評価を行い、計測されている 間隙水のpHやpeと整合することを確認した。そして、これら原位置試験の解析評価を通じて、廃 棄体からの発熱によって緩衝材が乾燥する現象を再現するための温度勾配によって生じる水分移 動を評価可能とするモデルの設定を行った。また、海水系地下水環境下での緩衝材の浸潤挙動に ついては、一般的な浸透流解析を扱うTHM連成解析モデルでは適切に再現ことができないことが 明らかとなった。この要因としては、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、海水系地下水組成の影響が小さいため、幌延地下水に対し て得られた透水特性を浸潤過程にある緩衝材全領域に対して一定値で与えることが適切ではない ものと考えられた。このようなことから、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される知見に基づき、緩衝材の間隙水組成に応じた水理特性の変化を考慮で きるように、水理解析と地球化学解析を連成させた評価モデルの構築に着手した。そして、室内 試験レベルの浸潤試験を通じて、初期に存在する間隙水と浸潤溶液とが混合して形成される間隙 水組成とそれに依存して変化する水理特性の影響を考慮した連成モデルを構築した。本手法では、 浸潤する溶液中のNaCl濃度が海水程度までの浸潤挙動を再現することを可能とした。

今後は、令和2年度までに構築した廃棄体の発熱にともなう温度勾配によって生じる水分移動を 評価するための温度と間隙水飽和度の依存性を考慮した温度勾配水分移動モデルと、令和3年度に 構築した海水系地下水の浸潤挙動を評価可能とするための間隙水組成に基づく透水特性の変化を 考慮した浸透流モデルをTHMC連成解析モデルに反映する。そして、幌延深地層研究計画におけ る人工バリア性能確認試験の再現解析を実施し、緩衝材の浸潤挙動に関する計測データとの比較 を通じて、海水系地下水環境下における評価モデルの適切性を確認する予定である。それにより、 海水系地下水や降水系地下水などのサイトの地下水水質の違いに応じたニアフィールド環境の状 態変遷の違いなどを適切に評価可能となり、過渡期のTHMC連成解析モデル開発の目的である安全 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などに資する評価技術として整備されることが期待される。

2.4.2 ニアフィールド長期力学解析コード開発

(1) 背景と目的

地層処分システムを対象とする従来の安全評価では、保守的に簡略化されたモデルや保守的設定に基づくパラメータが用いられてきた。今後の処分サイト選定段階における安全評価には、実際のサイトの地質環境条件などを反映することに加え、様々な処分概念や設計オプション間の比較、サイト間の優劣などが、より具体性をもって検討されると考えられる。従来の保守的な評価モデルではサイト間やデザイン間の相違を定量的に表現することができず、より現実に即した挙動を評価する手法が必要となる可能性がある。地層処分対象となる放射性廃棄物のうち、例えば、TRU 廃棄物の地層処分システムの場合は、周辺岩盤、支保工、緩衝材として使用されるベントナイト系材料、廃棄体や坑道内部の埋め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,2018b)。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,2018b)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(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,2021)。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(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、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(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,2021)。

令和3年度は、幌延人工バリア性能確認試験で得られている再冠水時の応力や変位に関する計 測データを活用し、MACBECEに追加した機能のうち原位置試験などの実規模で複合的な試験体 系における緩衝材の力学挙動に着目した時の妥当性の検証と、過渡期の解析機能の高度化に向け た更なる課題の抽出を行った。また、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、初期含水比の異なる条件でのX線 CT測定を伴う膨潤圧試験を行い、膨潤圧が単調に増加する場合のデータを取得し、膨潤圧の経時 変化と供試体内部の状態変遷との関連性の更なる理解を進めた。さらに、MACBECEに導入でき ていない過渡期の緩衝材の力学特性の温度依存性を考慮できる力学モデルの構築に向け、温度を 制御した膨潤圧試験を実施し、緩衝材の力学特性の温度依存性に関するデータ取得と、それによ る現象理解を進めた。

(2) 実施内容

1) 幌延人工バリア性能確認試験を対象とした解析

① 解析条件

幌延人工バリア性能確認試験で得られている緩衝材及び埋め戻し材の再冠水時の応力や変位に 関する計測データ(中山ほか,2019a)を活用し、構築した過渡期の解析機能の妥当性の検証と更 なる課題抽出を行った。解析体系は、図 2.4-10 のように、鉛直方向の二次元断面とした。また、 MACBECE は二次元の平面歪条件を仮定した解析コードであるが、本解析対象は三次元で扱わな ければ妥当な解析結果が得られない可能性が考えられる。特に、原位置試験で確認されている緩 衝材外側の全応力が大きく、内側が小さくなる傾向は、鉛直方向の二次元断面を対象とした場合 には再現することが困難と考えられた。そこで、図 2.4-10 中に示したヒーターの中心高さにおけ る水平方向の二次元断面に対する解析を実施し、鉛直方向断面と水平方向断面での応力分布や密 度分布などの解析結果の比較などにより、二次元鉛直方向の平面歪条件として計算することによ って生じる課題を整理した。図 2.4-11 に解析に使用した水平方向断面のメッシュ図を示す。

解析ステップを表 2.4-4 に、境界条件を図 2.4-12 に示す。緩衝材、埋め戻し材、支保工・路盤、 オーバーパック・ヒーター、砂、ジョイント要素の物性値を表 2.4-5、表 2.4-6、表 2.4-7、表 2.4-8、表 2.4-9、表 2.4-10 に示す。MACBECE の解析に必要な飽和度や温度分布の時間変化は、既 往の研究(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, 2021)における THAMES を用いた解析結果のうち、蒸留水条件で得られた固有透過度を用いた場合の結果を用いた。

また、解析ケースを表 2.4-11 にまとめる。CASE1 として、緩衝材の乾燥密度 1.8 Mg/m³の設 定値に対して、鉛直断面と水平断面について解析を実施した。また、実際の緩衝材ブロックは、 設定乾燥密度より大きくなるように制作され、その平均乾燥密度は 1.839 Mg/m³(中山ほか, 2016) であったことから、Case2 として、緩衝材の初期乾燥密度を 1.839 Mg/m³とした解析も実施した。 さらに、水平断面を対象とした解析については、原位置試験で確認されているような緩衝材外側 と内側での全応力差に影響を与えるパラメータとしてポアソン比に着目して、CASE1-2 と比較し てより等方的に膨潤が生じるケースとして、ポアソン比を 0.333 及び 0.4 に変更した CASE 3 と CASE 4 を実施した。



図 2.4-10 鉛直方向断面の解析メッシュ



図 2.4-11 水平方向断面の解析メッシュ

ステップ	内容	備考		
	要素発生・初期状態・境界条	全材料を同時に配置(岩盤掘削により地圧が十分		
1	件の設定(温度・飽和度デー	に解放されてから支保や緩衝材を施工した状況を		
	タの初期値の読み込み)	想定)		
		鉛直断面の解析時には各材料の自重を載荷する。		
2	初期応力状態	また、自重載荷時のみ砂と外部の境界をローラー		
		条件とする。		
3	変位クリア			
	注水・加熱の開始(温度・飽	解析期間は1,200日。計測結果と比較する土圧デ		
4	和度データの時系列データの	ータについてはこの段階での初期値を0とし、そ		
	読み込み開始)	の後の変化を把握する。		

表 2.4-4 解析ステップ



図 2.4-12 境界条件

	入力パラメータ	単位	入力値	備考		
λ	圧縮指数	-	0.125	※ 1		
κ_0	膨潤指数(飽和度 Sr=0 の時)		0.043	*2		
$\kappa_{\rm sat}$	膨潤指数(飽和度 Sr=1 の時)	-	0.09	※ 1		
l	膨潤指数の飽和度依存性パラメータ	-	1.8	*2		
М	限界応力比	-	0.63	₩1		
v'	ポアソン比	-	0.1	₩1		
p'ref	正規圧密線の基準有効応力	MPa	1.0	※ 1		
e _{ref}	正規圧密線の基準間隙比	-	0.620	₩1		
а	Se hardening model パラメータ	-	35	*3		
n	Se hardening model パラメータ	-	1.3	*3		
Sra	最小(残留)飽和度		0	₩4		
Srf	最大飽和度	-	1	₩4		
va	van Genuchten モデルパラメータ	m ⁻¹	5.0×10^{-2}	₩4		
vm	van Genuchten モデルパラメータ	-	0.275	₩4		
vn	van Genuchten モデルパラメータ	-	1.38	₩4		
₩1:	高山・菊池(2020)					
₩2:∦	彭潤圧試験の要素シミュレーションによ	り、膨潤	王試験(鈴オ	≿・藤田, 1999)		
の結果	を再現する値を設定					
₩3:∦	帝固め試験(千々松ほか, 1999)を参考し	こ設定				
₩4:	※4: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(2021)で					
用いら	用いられた水分特性曲線を使用。ただし、今井ほか(2012)に基づき、マトリック					
サクシ	ョンはトータルサクションより 10 倍程	度小さい	と仮定し、い	va は 10 倍した値		
を使用	0					

表 2.4-5 緩衝材の解析用物性値

マナジョイータ		出任	入	世史				
	入川ハノメータ	中位	上部埋め戻し材	下部埋め戻し材	佣石			
γt	単位体積重量	kN/m ³	17.823	16.551				
$ ho_{ m d0}$	初期乾燥密度	Mg/m ³	1.4	1.2	₩1			
G_s	土粒子比重	-	2.593	2.593	₩2			
Ε	弹性係数	MPa	17.967	3.933	₩3			
V	ポアソン比	-	0.400	0.400	₩4			
※1:中山ほか (2016)								
$\&2: \exists$	※2: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(2021)							

表 2.4-6 埋め戻し材の解析用物性値

※3:一軸圧縮試験結果(杉田ほか, 2020)での E50 の平均値

※4:核燃料サイクル開発機構(1999b)

	入力パラメータ	単位	入力値	備考
γt	単位体積重量	kN/m ³	24.1	※ 1
W/C	水セメント比	%	45	*2
	骨材率	Vol%	67	₩2
Ε	ヤング率	MPa	3.04×10^{4}	*2
V	ポアソン比	-	0.2	*3
σ _c	圧縮強度	MPa	43	₩2
σ_{t0}	引張強度	MPa	4.3	₩4
CFE	ひび割れ後の剛性低下率	-	1/100	₩5
α_{TH}	線膨張係数	K ⁻¹	11.0×10^{-6}	₩6
₩1:,	真密度(2.62 Mg/m ³)及び間	隙率(13%)から飽和状態の	直として算出した。
2:1	電気事業連合会・核燃料サイ	クル開発機構	毒 (2005)	
※3:コンクリート標準示方書[構造性能照査編](土木学会, 2002)				
₩4:	コンクリート標準示方書[ダム	コンクリー	ト編](土木学会, 2	002)
3.5:-	十分に小さい値である 1/100	を使用		

表 2.4-7 支保工・路盤(セメント系材料)の解析用物性値

※6:金津(1998)

表 2.4-8 オーバーパック・ヒーターの解析用物性値

	入力パラメータ	単位	入力値	備考
γt	単位体積重量	kN/m ³	76.44	※ 1
Ε	ヤング率	MPa	2.0×10^{5}	₩1
V	ポアソン比	-	0.3	₩1
α_{TH}	線膨張係数	$K^{\cdot 1}$	1.64×10^{-6}	※ 1
₩1:	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(2021)

表 2.4-9 充填砂の解析用物性値

	入力パラメータ	単位	入力値	備考		
γt	単位体積重量	kN/m ³	18.054	₩1		
G_s	土粒子比重	-	2.51	st 2		
$ ho_{ m d0}$	初期乾燥密度	Mg/m ³	1.4	≈ 2		
Ε	ヤング率	MPa	2.0×10^{5}	₩1		
V	ポアソン比	-	0.3	₩1		
α_{TH}	線膨張係数	K^{-1}	1.33×10^{-5}	≈ 2		
₩1:	道路橋示方書・同解説 I	V下部構造編(日本道路協会,2	017)を参考に以下		
の式で	ご算出した。					
	$E = 2800N (kN/m^2)$					
	ただし、N=20と仮定した。					
іі №2 :	日本原子力研究開発機構	(2018b)				

入力パラメータ	単位	入力値	備考		
せん断バネ定数	MPa/m	1.0×10^{5}	剛な設定		
垂直バネ定数	MPa/m	1.0×10^{5}	剛な設定		
引張強度	MPa	0			
せん断破壊時剛性逓減率	-	0.001			
引張破壞時剛性逓減率	-	0.001			
粘着力	MPa	0			
摩擦角(砂 - 緩衝材)	deg	16.6	₩1		
摩擦角(支保工 - 上部埋め戻し材)	deg	18.1	₩2		
摩擦角(支保・路盤 - 下部埋め戻し材)	deg	18.1	₩2		
摩擦角(岩盤 - 埋め戻し材)	deg	27.1	₩3		
※1:道路橋示方書(日本道路協会, 2017)の「	土と土又は	岩と岩」に	従い決定。		
ただし、緩衝材の限界応力比から設定。					
※2:道路橋示方書(日本道路協会, 2017)の「	土とコンク	リート」に	従い決定。		
ただし、埋め戻し材の内部摩擦角は、ベントナィ	トの内部暦	≤擦角(並河	「ほか, 1997)		
と礫質土の内部摩擦角(日本道路協会, 2017)を混合割合4:6に基づき計算。					
※3:路橋示方書(日本道路協会, 2017)の「土と土又は岩と岩」に従い決定。					
ただし、埋め戻し材の内部摩擦角は、ベントナイトの内部摩擦角(並河ほか,1997)					
と礫質土の内部摩擦角(日本道路協会, 2017)を	を混合割合	4:6に基づ	ジ き計算。		

表 2.4-10 ジョイント要素の解析用物性値(各材料間共通)

ケース	対象断面	緩衝材の初期乾燥密度(Mg/m ³)	緩衝材のポアソン比
CASE 1-1	鉛直断面	1.800	0.1
CASE 1-2	水平断面	1.800	0.1
CASE 2-1	鉛直断面	1.839	0.1
CASE 2-2	水平断面	1.839	0.1
CASE 3	水平断面	1.800	0.333
CASE 4	水平断面	1.800	0.4

表 2.4-11 解析ケース

3 解析結果

鉛直断面を対象とした解析結果のうち、埋め戻し材の全応力の経時変化を実測値と比較した図 を図 2.4-13 に示す。埋め戻し材の全応力の解析結果は、計測値と同様に、時間の経過とともにな だらかに上昇している。これは、緩衝材の膨出挙動により埋め戻し材が圧縮されたことにより生 じていると考える。しかしながら、計測値で確認される約 600 日以降に大きく増加する現象を再 現できていない。試験においては、600 日以降に注水圧を増加しており、計測値におけるこの増 加は、埋め戻し材内の水圧が上昇したことに起因すると考えられる。MACBECE では、水圧を取 り込む機能がないため、このような現象が再現できていない。



図 2.4-13 埋め戻し材の全応力の経時変化

鉛直断面を対象とした解析結果のうち、緩衝材の全応力の経時変化を実測値と比較した結果を 図 2.4-14 に示す。時間の経過とともに全応力が増加する現象を解析でも表現することができてい る。緩衝材外側に位置している Section-11の TPWL001、Section-9の TP013、Section-1の TP005、 Section-0の TP002 は生じる鉛直全応力を過大に評価しているものの、それ以外については概ね 計測値と解析値は近い値を示している。計測値と解析値の乖離が特に大きい Section-11の TPWL001 では、計測値はほとんど鉛直全応力が増加していない。そのため、緩衝材の変形が拘 束されずに埋め戻し材への膨出が生じたものと考えられる。一方、解析では、鉛直全応力の増加 が見られることから、埋め戻し材への膨出量を過少に評価している可能性が考えられる。木村ほ か(2019)は、緩衝材と埋め戻し材の境界部に設置してある膨出センサーの計測結果から緩衝材 の膨出挙動を推定し、膨出の形状は緩衝材中央にて下に凸の形状を示し、緩衝材外周部が中心部 よりも 300 mm 程度膨出しているという推定結果を報告している。一方、解析における緩衝材外 周部での膨出量は、CASE1-1、CASE2-1 でそれぞれ最大 21.1 mm、24.0 mm であったことから、 膨出量を過少に評価していることがわかる。それにより TPWL001 などの緩衝材外側での鉛直方 向の全応力の解析値は計測値よりも大きくなる傾向が生じているものと考えられる。

一方、Section-5 では、水平方向の全応力が計測されており、計測値は緩衝材外側の方が大きく、 緩衝材内側の方が小さい傾向があるが、解析ではこの傾向を再現できていない。これは、鉛直方 向の二次元断面を解析対象とした場合、水平方向で力の釣り合いが保たれるためである。


図 2.4-14 鉛直断面での緩衝材の全応力の経時変化

図 2.4-15 に CASE1-1 の変形図、体積ひずみ分布、偏差ひずみ分布を示す。変形図から、埋め 戻し材への緩衝材の膨出が生じているのが確認できる。体積ひずみ分布をみると、ヒーター近傍 の緩衝材は圧縮し、外側の緩衝材は膨張を示している。また、緩衝材と埋め戻し材の接触面にお ける外側の埋め戻し材部分において 6%程度の偏差ひずみが発生している。この箇所において、 実際にはせん断による塑性変形が発生している可能性が考えられるが、本解析では埋め戻し材に 線形弾性体を適用しているため、せん断によって生じる塑性変形を考慮することができていない。 このことが膨出量を過少に評価した要因の一つと考えられる。



鉛直断面を対象とした解析結果のうち、緩衝材の変位の経時変化を実測値と比較した結果を図 2.4-16に示す。解析結果は時間の経過とともに緩衝材が膨らむ挙動を再現することができている。 また、初期乾燥密度の大きい CASE2-1 の方が CASE1-1 よりも大きな変位量が生じている。図中 には比較として既往の THAMES を用いた解析結果(中山ほか, 2019b)も示している。既往の研 究(中山ほか, 2019b)では計測値と解析結果が大きく乖離することが報告されているが, MACBECE による解析では,課題とされてきた変位の再現性が大きく向上することが確認でき た。しかしながら、MACBECE による解析結果は実測値よりもやや小さな値となっている。これ については、緩衝材の埋め戻し材への膨出を過少に評価してしまっているため、上方への変位が 抑制されてしまった可能性や、現在考慮することができていない力学特性の温度依存性の影響に よるものなどが原因として考えられる。



続いて、水平断面を解析対象とした場合の Section-5 での全応力の経時変化を計測値と比較し た結果を図 2.4-17 に示す。鉛直断面を対象とした解析では再現できていなかった、緩衝材外側の 方が大きく、内側の方が小さくなる傾向が再現できている。このような緩衝材外側の全応力が大 きく、内側が小さくなる傾向は FEBEX においても確認されており、アーチ効果による可能性が 報告されている(Alberdi et. al., 2000)。水平断面を対象とした解析の場合、アーチ効果により円 周方向に力の釣り合いが保たれるため、外側と内側で圧力差が生じる現象を再現することができ たと考える。また、外側と内側での圧力差に影響を与える因子としてポアソン比に着目し、CASE1-2と比較して、より等方的に膨潤が生じると仮定した CASE3 及び CASE4 では、外側と内側での 圧力差が小さくなっている。このことから、原位置における緩衝材では異方的な膨潤が生じてお り、それにより、外側と内側で圧力差が大きくなっていると考えられる。CASE1-2 や CASE2-2 ではこのような異方的な膨潤挙動を表現することができているが、外側では解析での全応力は計 測値と比較するとやや小さく、内側ではやや大きくなっている。これらの水平断面の解析では、 鉛直方向への変位の影響や、緩衝材の力学特性の温度依存性を考慮できていないため、今後、 MACBECE の三次元化や、温度依存性を考慮した構成モデルの構築と導入を行うことで、このよ うな計測値と解析値の差異はさらに小さくなり、評価結果の信頼性が向上する可能性が考えられ る。

そこで、MACBECE の三次元化に向け、プログラムの修正項目の抽出と、高速ソルバーや並列 計算手法などの計算速度を向上させるための方法について調査を実施し、以下に示す三つの観点 からプログラム修正項目を抽出した。



図 2.4-17 水平断面での緩衝材の全応力の経時変化

(a) MACBECE を三次元に拡張する場合の各材料の構成モデルの課題の抽出

現状の MACBECE は二次元を対象としたものであるため、MACBECE の三次元化にあたり、応 力 - ひずみ関係マトリクスなどの記述を三次元に拡張する必要がある。さらに、セメント系材料 の化学変遷による強度劣化計算や腐食膨張要素の腐食率の計算などの MACBECE に固有の構成モ デルについては三次元化に伴って解析結果が変化する可能性があるため、三次元化に伴いモデル の修正が必要となる。それ以外の構成モデルに関しては、すでに三次元の応力状態を対象とした モデルとなっていることから、三次元化は容易であると考えらえる。

(b) FEM プログラムの基本構造を三次元化し、高速化及び並列化を実装するための改良点や留意 点、課題などの整理

MACBECE の FEM プログラムとしての基本構造の三次元化については、i)現状の配列やルー プ数を増加させる作業とii)三次元ソリッド要素と三次元に対応した応力境界条件を新たに追加す る作業が必要となる。また、三次元化された MACBECE により、比較的小さい領域を低解像度で 解析する場合、Windows ベースのワークステーション環境下で高速ソルバーを導入したプログラ ムを利用することが効率的である。それに対し、大規模領域を高解像度で解析する場合、スーパ ーコンピュータにより、Linux ベースの環境で、高速ソルバーに加え領域分割による並列計算を 導入したプログラムを利用する必要がある。以上から、MACBECE の三次元化に伴い、i)高速ソ ルバーの導入と、ii)領域分割による並列計算の導入を段階的に進めていくことがよいと考えられ た。

(c) 入力ファイルや出力ファイル、ポスト処理プログラムを三次元に拡張する場合の課題の抽出 とその対処法の整理

MACBECEの入力ファイルはテキスト形式で記載されており、入力パラメータを各構成材料に 応じた三次元の成分に拡張し、メッシュ構造についても三次元ソリッド要素のような三次元構造 を表現できる形に拡張する必要がある。また、領域分割を伴う並列計算を実装する場合には、現 状のシリアル計算のための入力ファイルを読み込み、領域分割数に応じてモデルデータと境界条 件データを分割する前処理ツールを開発する必要がある。

解析結果の出力については、現在の MACBECE では解析結果をまとめてデータファイルとし て保存し、市販のソフトウェアである「MicroAVS」を使用して可視化している。MicroAVS は三 次元での可視化に対応しているため、ポスト処理プログラムを三次元のフォーマットでの出力に 対応させることで、三次元での解析結果の可視化が可能となる。しかしながら、MicroAVS で時 系列データを読み込む場合、全ての解析ステップのデータを一つにまとめたファイルとなる。そ のため、三次元の大規模解析で時系列データを出力して可視化する場合には可視化用のファイル サイズが膨大になり、処理時間が長くなる、またはメモリの消費が大きくなる可能性がある。そ のような場合、同等の機能を持つオープンソースの可視化ソフトウェアである「ParaView」を使 用することも可能である。解析結果を時系列順に個別の連番ファイルとして出力しておくことに より、ParaView で読み込むことができる。ステップ毎のファイルサイズは小さくなるため、高速 に処理することができると考えられる。

以上の結果、MACBECE を三次元化するための改良手順を表 2.4-12 のように整理した。

段階	内容
第1段階	・ 使用している構成モデル・応力解放機能などを三次元解
MACBECE の三次元化	析に対応できるよう修正する。
	・ 配列宣言やループの回し方など、FEM プログラムとし
	ての基本構造を三次元化する。
	・ 三次元モデルの入出力に対応するため、6面体一次要素
	などの三次元ソリッド要素を新たに導入する。
第2段階	・ 高速ソルバーの導入を行うことで行列解法の高速化を行
MACBECE の高速化	う。
	・ 導入した高速ソルバーに応じて、最適なインターフェー
	ス処理(行列やベクトルの格納)を行う。
第3段階	 スーパーコンピュータによる大規模解析に対応できるよ
MACBECE の並列化	うに、領域分割による並列化を実装する。
	・ 並列計算用の入力データを作成するための前処理ツール
	の開発を行う。
第4段階	・ 改良した三次元版 MACBECE を用い処分施設を対象と
三次元版 MACBECE の検証	した検証解析を行い、解析精度や効率を検証する。

表 2.4-12 MACBECE の三次元化に向けた改良手順

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。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。

本検討では、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(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,2021)。

令和3年度は、初期含水比の異なる条件での膨潤圧試験中のX線CT測定を行い、膨潤圧が単 調に増加する場合における膨潤圧の経時変化と供試体内部の状態変遷との関連性を把握した。さ らに、MACBECEを用いた膨潤圧試験の解析により、供試体内部での吸水圧縮挙動が膨潤圧の経 時変化に与える影響を把握した。

2 X線 CT 測定による供試体内部の観察

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 1.36 Mg/m³、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。平成 31 年度及び令和 2 年度は、初期含水比が約 8 %の条件で試験を実施し、令和 3 年度は、それよりも初期含水比が大きい約 17 %と約 26 %に対して実施した。試験手法は令和 2 年度までと同様に、まずベントナイトを圧縮成型治具内で目標の乾燥密度まで締め固めた後、圧縮成型治具から供試体を取り出す。取り出した供試体を膨潤圧試験装置に入れる。その後浸潤を開始し、発生する膨潤圧を測定しながら適宜 X線 CT 測定を行った。X線 CT 測定は、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2.4-13 に示す。CASE1 及び CASE2 は平成 31 年度及び令和 2 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; 2021)である。令和 3 年度に実

施した CASE3 及び CASE4 では、供試体作製時にピストンと接していた圧縮面(y=20 mm)の 逆側の面(y=0 mm)から給水を行った。

試験	浸潤面	初期含水比	乾燥密度	進去
ケース	(mm)	(%)	(Mg/m ³)	佣石
CASE1-1	y=20	8.50	1.356	平成 31 年度実施(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	今和9年時宇坛(日本臣子力研究開発機構,臣
CASE 2-1	y=0	8.33	1.364	□ 〒和 2 平皮 天施(口 平原丁 刀 切 九 開 光 機構・原 二 九 晋 倍 軟 借 仮 准 , 迩 今 笹 理 セ ンター 9091)
CASE 2-2	y=0	8.10	1.357	了刀垛境釜脯促進"貝並自理ビング",2021)
CASE3-1	y=0	16.80	1.358	令和3年度実施
CASE3-2	y=0	16.47	1.361	令和3年度実施
CASE 4-1	y=0	25.68	1.333	令和3年度実施
CASE 4-2	y=0	25.03	1.347	令和3年度実施

表 2.4-13 膨潤圧試験ケース及び初期条件

膨潤圧試験により得られた膨潤圧の経時変化を図 2.4-18 に示す。CASE1、2(初期含水比:約8%)及び CASE3(初期含水比:約17%)では、比較的初期に膨潤圧が増加した後に膨潤圧が低下し、再度膨潤圧が増加している。この膨潤圧の低下が見られた期間を図中では青く示している。 また、CASE3は、CASE1、2と比較すると膨潤圧の低下量がやや小さい。一方、初期含水比が約26%の CASE4では概ね単調に膨潤圧が増加しており、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わかる。最終的な膨潤圧は約0.3から0.5 MPa 程度であり、顕著な初期含水比依存性は認められない。

湿潤密度分布の時間変化を図 2.4-19 に示す。湿潤密度は、以下に示す CT 値と湿潤密度 ρ_t [Mg/m³]の関係(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, 2021)から求めた。

(2.4-5)

なお、供試体に接しているフィルターの影響により供試体端面の CT 値は極端に小さくなった ため、図には示していない。給水開始時の初期状態では、いずれのケースでも、締め固め時にピ ストンと接していた圧縮面(y=20 mm)の近くの湿潤密度が高くなっている。時間の経過に伴い 浸潤面から徐々に湿潤密度が増加していることから、水が浸潤しているものと考えられる。また、 初期含水比が約 8%のケースのうち、CASE1 は 約 400 時間、CASE2 は 約 360 時間、初期含水 比が約 17 %の CASE3 では約 400 時間、初期含水比が約 26 %の CASE4 では約 264 時間以降は 湿潤密度の変化はほとんどなくなっている。

続いて、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図 2.4-20 及 び図 2.4-21 に示す。なお、湿潤密度の平均値は、各断面での CT 値の平均値から式(2.4-5)により 各断面での湿潤密度を求め、端面を除いた全断面でのそれらの平均値とした。また、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。いずれのケース でも、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。初期含水比 が約 8 %の CASE1 及び CASE2 では、供試体全体での飽和度が 40 から 50 %程度から 80 から 90 %程度に増加する期間において膨潤圧の低下が生じ、350 から 400 時間程度で供試体が飽和に 至っている。初期含水比約 17 %の CASE3 では、供試体全体での飽和度が 70 %程度から 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。一方、初期含水比約26%のCASE4では、300時間程度で飽和に至っている。



図 2.4-18 膨潤圧の経時変化



図 2.4-19 湿潤密度分布の経時変化







図 2.4-21 飽和度の平均値の経時変化

続いて、供試体の高さごとの湿潤密度の時間変化を図 2.4-22 に示す。膨潤圧の低下が見られた CASE1、2、3における浸潤面に近い断面(CASE1では y=18.5 mm、CASE2 及び 3 では y=1.5 mm)での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。浸潤面に近い断面での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。湿潤密度の低下については、飽和 度や乾燥密度の低下によって生じていることとなるが、浸潤の進展に伴い飽和度が低下すること は考えにくいため、乾燥密度の低下によって生じていると考えられる。また、その後の湿潤密度 の再増加については、十分に時間が経過した段階で生じていることから、飽和度の増加によるも のではなく乾燥密度の増加によるものと推測される。試験期間を通じて、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 の領域では体積圧縮が生じていることになる。それにより浸潤面付近の乾燥密度及び湿潤密度が 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及び湿潤密度が再度増加し、膨潤圧も再度増加 したことになる。また、浸潤面付近における湿潤密度の一時的な低下量は、CASE1や CASE2と 比較すると CASE3 は小さい傾向がある。つまり、CASE1 や CASE2 と比較すると、CASE3 は 供試体内部での吸水圧縮による変形量は小さい可能性が示唆され、それにより、図 2.4-18 に示し たように CASE3 の膨潤圧の低下量は CASE1、2 と比較すると小さくなったと考えられる。

一方、膨潤圧が単調に増加した CASE4 での y=1.5 mm では概ね単調に湿潤密度は増加しており、CASE1 から 3 で見られたような供試体内部の給水圧縮挙動によって生じると考えられる湿潤密度の低下は見られない。

これらのことから、吸水圧縮による変形量の大きさが膨潤圧の経時変化に与えることが示唆さ れた。すなわち、膨潤圧試験において供試体内部での吸水圧縮による変形量が大きいほど膨潤圧 の低下量が大きく、吸水圧縮による変形量が小さいほど膨潤圧の低下量は小さくなる、もしくは 単調に増加するものと推測される。さらに、同一の乾燥密度条件においては、初期含水比が低い ほど、吸水圧縮による変形量が大きくなる可能性が示唆された。



図 2.4-22 供試体高さごとの湿潤密度の時間変化

③ 供試体内部での吸水圧縮挙動が膨潤圧の経時変化に与える影響の解析的検討

ここでは、上記で示されたような供試体内部での吸水圧縮挙動が膨潤圧の経時変化に与える影響を解析的に把握した。具体的には、MACBECEにおける緩衝材のパラメータのうち、室内試験から直接推定することが難しい膨潤指数の飽和度依存性に関するパラメータ値を複数設定し、上記の CASE2-2 を対象とした解析を実施した。得られた解析結果のうち、膨潤圧が一度低下する場合や膨潤圧が単調に増加する場合などの代表的ないくつかの解析ケースを抽出し、膨潤圧の経時変化に与える供試体内部での吸水圧縮挙動の影響を分析した。

図 2.4-23 に解析に用いた MACBECE のメッシュ図と境界条件を示す。供試体を 20 要素で分割し、上端及び下端を変位固定境界、側方をスライド境界とした。また、MACBECE の解析での 飽和度分布の時間変化の情報は、THAMES による浸潤解析により得られたものを用いた。



図 2.4-23 膨潤圧試験のメッシュ図

解析に用いた物性値を表 2.4-14 に示す。飽和時のパラメータである Å、Ksat、M、V、 eref、 pref は、図 2.4-24 に示すように、標準圧密試験(高山ほか, 2019)及び圧密非排水三軸圧縮試験(並 河ほか, 1997)の再現解析により設定した。また、不飽和時の正規圧密線の移動量を規定するパラ メータ a、n は、小林ほか(2007)の等飽和度線を参考に設定した。水分特性曲線のパラメータ は、鈴木・藤田(1999)の測定結果から設定した。また、鈴木・藤田(1999)の測定結果はトー タルサクションであるが、MACBECE で使用するサクションはマトリックサクションである。ト ータルサクションはマトリックサクションと比較して 10 倍程度大きいことが報告(今井ほか, 2012)されていることから、MACBECE で使用する va は 10 倍したものを用いた。固有透過度 は松本ほか(1997)の経験式を用いて、要素ごとの乾燥密度に応じた値を設定した。比透水係数 は、CASE2-2 の供試体への浸潤量を再現するものとして、*S*³を用いた。

パラメータ	値	使用する解析コード
圧縮指数, <i>λ</i>	0.212	MACBECE
膨潤指数(飽和度 Sr=1 の時), K _{sat}	0.171	MACBECE
限界応力比, M	0.58	MACBECE
ポアソン比, v	0.1	MACBECE
NCLの基準間隙比, eref	0.95	MACBECE
NCLの基準有効応力, pref (MPa)	1	MACBECE
Se-Hardning モデルパラメータ, a	80	MACBECE
Se-Hardning モデルパラメータ, n	1.8	MACBECE
Van Genuchten モデルパラメータ, <i>va</i> (m ⁻¹)	0.11/0.011	MACBECE/THAMES
Van Genuchten モデルパラメータ, vn	1.4	MACBECE, THAMES
土粒子密度, Gs	2.7	MACBECE, THAMES
固有透過度, K (m²)	$K = \exp(-42.1 + 1.15\rho_d \cdot 2.12\rho_d^2)$	THAMES
比透水係数	S_r^3	THAMES





室内試験から直接推定することが難しい、式(2.4-6)に示す膨潤指数の飽和度依存性に関するパラメータ値については、表 2.4-15 に示すように複数設定し、解析を行った。

$$\kappa = \kappa_0 - (\kappa_0 - \kappa_{sat}) S_r^l$$

(2.4-6)

24	/31 1/1 /	•••
解析ケース	K 0	1
CASE A	0.0001	1.0
CASE B	0.0001	2.0
CASE C	0.0001	0.5
CASE D	0.0700	1.0
CASE E	0.0700	2.0
CASE F	0.0700	0.5
CASE G	0.0100	1.0
CASE H	0.0100	2.0
CASE I	0.0100	0.5

表 2.4-15 解析ケース

まず、THAMES による浸潤解析により取得した供試体の平均飽和度の時間変化と供試体内部の飽和度分布の時間変化を図2.4・24 に示す。供試体の平均飽和度は実験結果と概ね一致しており、 浸潤面付近(y=0 mm)から徐々に飽和度が上昇しているのが確認できる。



図 2.4-25 THAMES による解析結果

MACBECE による解析結果のうち、各ケースの膨潤圧の経時変化を図 2.4-26 に示す。各ケースを、膨潤圧の一時的な低下が見られたケースと、膨潤圧が増加した後に一度ながらかになりその後再度増加したケース、膨潤圧が単調に増加したケースに分類し、それぞれ赤線、青線、緑線でしめしている。膨潤圧の一時的な低下が見られたケースは CASE A、CASE B、CASE C、CASE G、CASE H、CASE I であり、膨潤圧が増加した後に一度ながらかになりその後再度増加したケースは CASE D、CASE F、膨潤圧が単調に増加したケースは CASE E である。



図 2.4-26 MACBECE による 膨潤圧の経時変化

これら三つのうち、代表的なものとしてそれぞれ CASE A、CASE D、CASE E の解析結果を 図 2.4-27、28、29 に示す。図 2.4-27 は湿潤密度分布の時間変化、図 2.4-28 は浸潤面と接してい る要素1の湿潤密度の時間変化、図2.4-29は要素ごとの体積ひずみの時間変化、である。湿潤密 度分布の時間変化を見ると、ケースごとに大きな違いは見られない。また、実験結果と比較する と各ケースともに概ね一致しているが、75hや168hでの結果では、浸潤面に近い領域では湿潤 密度を過少に評価し、浸潤面と反対側の領域では湿潤密度を過大に評価しているなど、分布の形 状に若干の差異が見られる。このことから、浸潤解析において、浸潤面付近の飽和度増加を過少 に評価し、浸潤面と反対側の領域における飽和度増加を過大に評価していると考えられる。図 2.4-28 に示す浸潤面と接している要素1の湿潤密度の時間変化では、膨潤圧の低下が生じた CASEA において、上述の実験結果で見られたような湿潤密度の一時的な低下が見られる。図 2.4-29 の要 素ごとの体積ひずみの時間変化では、膨潤圧の低下が見られた期間である 50 h から 200 h 程度に おいて、CASEAでは供試体中央の要素11と浸潤面と反対側の要素19において圧縮が生じ、そ れにより浸潤面付近の要素 2 では膨張が生じている。CASE D では、要素 11 では圧縮が生じて いるのに対し、要素 19 では膨張が生じている。一方、膨潤圧が単調に増加した CASE E では、 要素 11 及び要素 19 ともに膨張を示し、要素 2 では圧縮を示している。これらのことから、浸潤 面付近以外の領域(供試体中央及び浸潤面と反対側の領域)において吸水圧縮挙動が生じた場合 には膨潤圧の低下が生じ、浸潤面付近以外の領域において局所的な吸水圧縮と吸水膨潤が混在す る場合には、膨潤圧の変化が小さくなり、浸潤面付近以外の領域において吸水膨潤挙動が生じて いる場合には単調に膨潤圧が増加することが示唆された。このような吸水圧縮挙動の大きさと膨 潤圧の経時変化との関係は、傾向は前述の実験で得られた傾向とも整合的であった。







図 2.4-28 要素1の湿潤密度の時間変化



④ まとめ

令和3年度は、初期含水比の異なる条件での膨潤圧試験中のX線CT測定を行い、膨潤圧が単 調に増加する場合における膨潤圧の経時変化と供試体内部の状態変遷との関連性を把握した。こ れらの実験と解析結果から、吸水圧縮による変形量の大きさが膨潤圧の経時変化に与えることが 示唆され、膨潤圧試験において供試体内部での吸水圧縮による変形量が大きいほど膨潤圧の低下 量が大きく、吸水圧縮による変形量が小さいほど膨潤圧の低下量は小さくなる、もしくは単調に 増加することが推測された。さらに、MACBECEを用いた膨潤圧試験の解析からも同様の傾向が 確認され、吸水圧縮による変形量が大きい場合には膨潤圧の低下が生じ、吸水圧縮による変形量 が小さいほど膨潤圧の低下量は小さくなる、もしくは単調に増加する現象を表現できることが確 認された。

3) 温度を制御した膨潤圧試験

① 背景と目的

過渡期における緩衝材の力学特性の温度依存性を考慮できる力学モデルの構築に向け、膨潤圧の温度依存性を把握する必要がある。令和3年度においては、水の浸潤にともなって発生する膨潤 圧の温度依存性に関するデータの拡充を目的として、温度を制御した条件で膨潤圧の測定を実施 した。

② 試験方法

試験は、体積を拘束した不飽和状態の圧縮ベントナイトに蒸留水を浸潤させ、所定の温度条件下で発生する応力(以下、[膨潤圧]という)を測定した。圧縮ベントナイト(以下、[試料]という)の膨潤圧を測定するための試験セルを図 2.4-30 に示す。



図 2.4-30 緩衝材の膨潤圧測定に用いた試験セルの概略図

この試験セルはステンレス製であり、試料の形状を変化させずに、試料下部より蒸留水を浸潤 させ、試料上部のロードセルによって発生する膨潤圧を計測する構造となっている。試料は、ク ニミネ工業製の Na 型ベントナイトのクニゲル V1 (含水比:約0.08)、3 号ケイ砂及び5 号ケイ 砂を、乾燥重量比0.7:0.15:0.15 で混合し、これを、直径2 cm、高さ1 cm、乾燥密度1.6 Mg/m³ に圧縮成形して作製した。試料の初期の間隙水飽和度は約0.3 である。試験セルは、110 °C まで 昇温可能な恒温槽内に設置し、試料に1 mの圧力水頭で蒸留水を供給するための給水タンクと接 続した。温度や給水条件などについては、以下の7 ケースについて実施した。

- caseA: 25°Cの条件で試料に蒸留水を浸潤させ、膨潤圧が定常となった後に 60°C、さらに 90°C と段階的に昇温する
- ・ caseB:試験温度は一定とし、60 ℃の温度条件下にある試料に対して蒸留水を浸潤さ
- ・ caseC: 浸潤水として脱気した蒸留水を用いるとともに浸潤開始前の試験セルの真空引きを 実施し、試験セル内の空気を排除した後、60°Cの温度条件下で蒸留水を浸潤させる
- caseD:浸潤水として脱気した蒸留水を用いるとともに浸潤開始前の試験セルの真空引きを 実施し、試験セル内の空気を排除した後、60°Cの温度条件下で蒸留水を浸潤させる試料中 への浸潤が十分に進むことを目的として、0.05 MPaの圧力で蒸留水を加圧して供給する

- ・ caseE:温度条件を 90 ℃ とし、それ以外は caseD と同様とする
- ・ caseF: 温度条件を 70 ℃ とし、それ以外は caseD と同様とする
- caseG: 90 °Cの条件で試料に蒸留水を浸潤させ、膨潤圧が定常となった後に25 °C に温度を 低下させる。浸潤水として脱気した蒸留水を用いるとともに浸潤開始前の試験セルの真空引 きを実施する。また、0.05 MPaの圧力で蒸留水を加圧して供給する 試験条件を表 2.4-16 に示す。

寸法		直径20 mm、高さ10 mm	
乾燥密度		1.6 Mg/m ³	
初期間隙水飽和度		約0.3	
試験水		蒸留水	
	caseA	$25 \ ^\circ \mathrm{C} \rightarrow 60 \ ^\circ \mathrm{C} \rightarrow 90 \ ^\circ \mathrm{C}$	
試験温度	caseB、C、D	60 °C	
	caseE	90 °C	
	caseF	70 °C	
	caseG	$90 \ ^\circ \mathrm{C} \rightarrow 25 \ ^\circ \mathrm{C}$	
	caseA、B	3	
試験数	caseC	2	
	caseD	1	
	caseE	3	
	caseF	3	
	caseG	3	

表 2.4-16 緩衝材の膨潤圧測定の試験条件

③ 試験結果

caseAの膨潤圧の時間変化を図2.4・31に示す。本試験は、25 °Cの条件で浸潤を開始し、圧力の 計測値が定常になったと見られた後に60 °C、さらに90 °Cと段階的に昇温させている。その結果、 温度を上昇させる度に膨潤圧は増加した。試料への浸潤が進んだ状態での温度上昇は、間隙水の 熱膨張により圧力が増加し、ベントナイトの極めて低い透水性のため間隙水の排水が進まないこ とによって圧力が高く保たれている可能性もある。図中に示すように、60 °Cや90 °Cに温度を上 昇させた際に一時的に応力が0.2 MPa程度増加し、その後は僅かながら低下し続けており、これ は試料からの排水が進行中であることを示しているとも考えられる。温度を90 °Cとした後、試料 番号A・01については、0.8 MPa以上の値で推移したが、A・03及びA・03の膨潤圧は、急激に低下し た。各試料の水分測定を行ったところ、A・01の間隙水飽和度については飽和状態であったが、A・ 02とA・03の間隙水飽和度は0.8程度と不飽和な状態であった。このことから、膨潤圧の低下は、試 料中の水分が減少したことによって生じたものと考えられる。この原因としては、試験温度90 °C の条件では、試験セルの気密が保たれなかったことや、温度を上昇させた際に発生する気泡によ って配管内にエア溜りが形成され、それによって浸潤水の供給が途絶えた可能性がある。

caseBの膨潤圧の時間変化を図 2.4-32 に示す。caseB は 60 °C の温度条件下で浸潤させた場合 である。試験開始後、膨潤圧が増加したが、試験途中で膨潤圧の低下が見られた。これは、caseA でも確認されたように、飽和度の低下によるものであると推測された。このうち、試料番号 B-02 と B-03 については、浸潤水を供給している配管内にエア溜りが観察されたため、試験途中で配管

内のエア抜きと試験セル内の真空引き及び浸潤水の脱気を実施した。その結果、B-02とB-03は 膨潤圧が大きく増加した。試験後の供試体は、B-02とB-03は飽和状態であったが、B-01は不飽 和状態であった。

上記のようなことから、これより後に実施したcaseC、Dでは、浸潤水として脱気した蒸留水を 用いるとともに浸潤開始前の試験セルの真空引きを実施し試験セル内の空気を排除した。さらに、 上述したように浸潤水を供給する配管内にエア溜りが発生し、一定の圧力水頭条件での水の供給 ができない可能性があるため、caseDでは0.05MPaの圧力で蒸留水を加圧して供給する方法の試 験で実施した。図2.4-33は、caseC、Dでの膨潤圧の時間変化であり、60°Cの温度条件下で浸潤さ せた場合である。これより、定常になったと見られる膨潤圧の値は、caseCで約0.65 MPa、caseD で約0.55 MPaあった。図2.4-34は、caseEでの膨潤圧の時間変化であり、90°Cの温度条件下で浸 潤させた場合である。これより、定常になったと見られる膨潤圧は、0.85から0.9 MPa程度であ り、caseAにおける90°Cでの膨潤圧の値と同等の値であった。図2.4-35は、caseFでの膨潤圧の時 間変化であり、70°Cの温度条件下で定常になったと見られる膨潤圧は、0.8から0.95 MPaであっ た。図2.4-36は、caseGでの膨潤圧の時間変化である。本試験は90°Cの条件で浸潤を開始し、膨 潤圧が定常になったと見られた後に25°Cに温度を低下させている。その結果、90°Cの時の膨潤 圧は約0.8 MPa、25°Cの時の膨潤圧は約0.6 MPaとなり、温度を低下させることにより膨潤圧は 減少した。なお、caseCからcaseGの各試料については、試験終了後の水分量測定結果から飽和状 態であることを確認している。



図 2.4-31 caseAの膨潤圧の時間変化



図 2.4-33 caseC (C-01、C-02) 及びcaseD (D-01) の膨潤圧の時間変化



2 - 134



図2.4-37に、飽和状態が確認された試験ケースにおける温度と膨潤圧の関係を示す。今回の試験では、温度が高いほど膨潤圧が大きくなる傾向が見られた。ただし、60°Cの条件で得られた膨潤圧については、前述したように試験の途中で浸潤水を供給する配管内のエア抜きや試験セルの真空引きの実施、あるいは浸潤水を加圧して試料に供給するなど、これらの操作が計測値に影響を及ぼしている可能性がある。

これまで、緩衝材の膨潤圧と温度の関係を実験的に調べた事例がいくつか報告されているが、 温度が高くなると膨潤圧が低下するとした結果や(例えば、横山・田中,2012;鈴木・藤田,1999)、 これとは反対に、温度とともに膨潤圧も増加するとした結果もある(例えば、児玉ほか,2004;佐 藤ほか,2016)。緩衝材の膨潤圧が温度によって変化する要因としては、浸透圧の上昇による水和 反応の増加や電気二重層理論におけるデバイ長さの増加などの影響だとする推察や(武藤ほか, 2018)、変形係数の変化や熱膨張など力学的なプロセスによる影響も考えられ、これらの現象が同 時に生じている可能性もある。一方で、排水・非排水条件、試料形状や初期の水分量、試験装置 の構造などによって結果が異なる可能性もある。このようなことから、試験手法の影響をクリア にしつつ、膨潤圧の温度依存性に関するデータを拡充していくとともに、現象理解を促進させる ためのアプローチとして、緩衝材の圧密特性、変形係数や膨潤ひずみなどの温度依存性に関する データの蓄積が必要である。

また、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。そこで、まずは圧 密特性の温度依存性の試験データ取得に向け、温度制御が可能な圧密試験装置の検討を行った。 圧密試験装置は、試験機のサイズが大きく、前述の膨潤圧試験のように恒温槽内で実施すること が困難と考えられた。例えば、佐藤ほか(2016)は、水の温度を制御できる水槽を用いた膨潤量 試験装置を製作し、水の温度を制御した水槽内で膨潤量試験を実施している。このような方法で あれば、温度を制御した状態で圧密試験を実施することが可能と考えられたため、図 2.4-38 に示 すように、温度制御が可能な水槽を用いた圧密試験装置を構築した。今後、圧密特性の温度依存 性に関する試験データの取得を進めていく予定である。



図 2.4-37 温度と膨潤圧の関係



(3) これまでの成果と今後の課題

令和3年度は、幌延人工バリア性能確認試験で得られている再冠水時の応力や変位に関する計 測データを活用し、MACBECEに追加した機能の原位置試験などの実規模で複合的な試験体系に おける緩衝材の力学挙動に着目した時の妥当性の検証と、過渡期の解析機能の高度化に向けた更 なる課題の抽出を行った。その結果、緩衝材内での全応力の増加や、膨潤変形の発生などの挙動 が MACBECE でも再現できることが確認された。しかしながら、緩衝材の埋め戻し材への膨出 挙動を過少に評価することや、鉛直断面を対象とした場合には、アーチ効果による応力状態を表 現することができないといった課題が抽出された。そのため、MACBECE の三次元化、埋め戻し 材内の塑性変形の考慮、緩衝材の力学特性の温度依存性の考慮などが必要と考えられた。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、初期含水比の異なる条件でのX線CT測定を伴う膨潤圧試験を行い、膨 潤圧が単調に増加する場合のデータを取得し、膨潤圧の経時変化と供試体内部の状態変遷との関 連性の更なる理解を進めた。また、MACBECE に導入できていない過渡期の緩衝材の力学特性の 温度依存性を考慮できる力学モデルの構築に向け、温度を制御した膨潤圧試験を実施し、緩衝材 の力学特性の温度依存性に関するデータ取得と、それによる現象理解を進めた。

平成 30 年度から令和 3 年度の 4 年間の検討により、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し、幌延人工バリア性 能確認試験データを活用した妥当性の検証と更なる課題を抽出することができた。今後は、 MACBECE の三次元化、埋め戻し材内の塑性変形の考慮、緩衝材の力学特性の温度依存性の考慮 などの改良が必要と考えられた。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に向けて、膨潤圧試験中の供試体のX線CT測定により、膨潤 圧の経時変化に与える供試体内の給水圧縮挙動の影響を把握した。さらに、MACBECEによる膨 潤圧試験の解析により、供試体内部での吸水圧縮挙動が膨潤圧の経時変化に与える影響を解析的 に把握した。その結果、膨潤圧試験において供試体内部での吸水圧縮による変形量が大きいほど 膨潤圧の低下量が大きく、吸水圧縮による変形量が小さいほど膨潤圧の低下量は小さくなる、も しくは単調に増加するものと推測された。また、MACBECEに導入できていない過渡期の緩衝材 の力学特性の温度依存性を考慮できる力学モデルの構築に向け、温度を制御した膨潤圧試験を実 施し、緩衝材の力学特性の温度依存性に関するデータ取得と、それによる現象理解を進めた。

今後は、更なる膨潤圧の温度依存性に関するデータ取得の他に、緩衝材の圧密特性の温度依存 性に関するデータの取得などを進める必要がある。これらを進めることにより、過渡期から長期 までのニアフィールドの力学挙動をより現実に即して評価する手法が構築され、従来の保守的な 評価モデルでは困難であったサイト間やデザイン間の相違を定量的に表現する技術として整備さ れることが期待される。

2.4.3 緩衝材挙動に関するナノスケールシミュレーションモデルの構築

(1) 背景と目的

本項では、過渡期の緩衝材の応力変化や密度変化などの力学挙動、それに伴う透水性や核種移 行に関係する特性の変化などの理解や関連するデータ取得に向けてのアプローチの検討の一つと 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、メソスケール粗視化分子動力学(以下、[粗視化 MD]という)モデルの開発を行う。

粗視化 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。

粘土含水系の粗視化 MD モデルについての過年度の取り組みでは、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、粗視化 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・原子力環境整備促進・資金管理 センター,2018)。さらに、粗視化 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、粗視化 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、これまでの粗視化 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年度以降、粘土含水系に水分 の出入りがある場合にも対応し、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するための手法の拡張を進めてきた。

このような手法の開発は、粗視化 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、粗視化 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

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粗視化MDモデルでの 拡張について、令和2年度までに、粘土含水系の微視的多孔質構造を考慮した変形や吸水膨潤挙動 の解析を、ひずみあるいは応力制御下で実施することのできる粗視化MDプログラムの開発を進 め、粘土含水系モデルが環境との間で水分をやり取りして吸排水が生じるシミュレーションにつ いて、化学ポテンシャル(その逆数が環境の湿度の高低に相当)一定条件での計算までが可能と なり、設定した化学ポテンシャルに応じた吸排水や膨潤圧がシミュレーションにより発生するこ とを確認することができた(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、 2021)。ただし、令和2年度のモデルでは、粘土分子表面への水和挙動を特徴付ける水和エネルギーが水和量の増加に対して単調減少することを仮定した過度に単純なモデルを用いていた。このような水和エネルギーモデルは、層間イオン種に応じたモンモリロナイトの多様な膨潤挙動(例えば、Na型モンモリロナイトでは、相対湿度に対して0層から3層水分子層までは離散的に膨潤状態が変化する、一方Ca型モンモリロナイトでは、1層から2層膨潤への切り替わりはあまり明確でない)を再現するためには十分でない。

そこで、令和3年度は、今後、実際に観測される膨潤挙動を粗視化 MD で再現することを目指 し、より現実的な水和エネルギーモデルの開発に着手した。具体的には、より現実的な水和エネ ルギーモデル開発に向け、水和エネルギーを水分量の関数としてみた際の局所的な関数形状が膨 潤挙動に与える影響を粗視化 MD 解析で調べるために、令和2年度の研究で用いた単調に変化す るモデルに振動成分を加えたモデル(図2.4-39)を用いた解析により、水和エネルギーの局所的 な変動により膨潤挙動がどのように変化するかを調べた。その結果、膨潤状態が令和2年度のモ デルのように相対湿度(化学ポテンシャルに関係)に対して必ずしも連続的に変化せず、水和エ ネルギーの極大点を避けるように離散的な膨潤状態を選択するメカニズムが働き、これまでより も Na 型モンモリロナイトの膨潤挙動に近い結果を得ることができた。



図 2.4-39 水和エネルギーモデル (i)振動モデル(令和3年度に新たに検討)、(ii)単調モデル(令和2年度の検討で使用)

図 2.4-40 は、温度、体積、化学ポテンシャル一定の条件で平衡化を行った結果の例であり、横 軸が水和水量を、縦軸がその頻度を合わし、(a)は計算開始時に設定した初期状態の膨潤状態を、 (b)から(d)は最終的に求められた膨潤状態を示している。(b)から(d)に向けて化学ポテンシャル(µ) を大きくしており、これは環境の相対湿度を低下させたことに相当する。(c)と(d)のあいだでは膨 潤状態の分布が二つのピークに分離し、(d)ではそれらの中間的な膨潤状態が選択されない不連続 な推移を示している。また、図 2.4-41 は、図 2.4-40 と同じ解析で得られる粘土含水系の組織構造 を表す。化学ポテンシャルの値が小さい(a)が外部の湿度がより高い状況に相当し、化学ポテンシ ャルの値が大きい(b)が外部の湿度がより低い状況に相当する。ここでは(a)、(b)いずれのケースで も初期状態からは排水が進んでいる。膨潤状態は、初期状態では全て二層膨潤状態にあった粘土 分子が、排水によって層間距離が小さくなり、(a)のケースでは、層間距離はどの部分でもほぼ同 じという意味で均質な膨潤状態となっている。一方、(b)では、層間距離が、0.12 nm と 0.2 nm 程 度のものに分かれ、この中間状態(0.15 nm 近辺)を取るものは非常に少ない。これは、水和エ ネルギーの極大点を避けるように層間距離が決定されることを示している。また、(a)と(b)を比べ ると、(a)には見られない粘土層外の空隙が(b)では矢印の箇所に現れている。このような空隙が生 じるともに、破線で囲われた部分では、(b)において(a)よりも積層間隔が狭い箇所が集中して現れている。図 2.4-38 の(d)で見られた水和水層厚さの頻度分布はこのような組織構造の差を端的に示したものである。



図 2.4-40 振動成分を加えた水和エネルギーモデルを用いた解析結果例: 化学ポテンシャル(µ)による膨潤状態の違い



図 2.4-41 振動成分を加えた水和エネルギーモデルを用いた解析結果例: 化学ポテンシャル(µ)による粘土含水系の組織構造の違い

(3) これまでの成果と今後の課題

メソスケール粗視化分子動力学(粗視化MD)モデルの開発の一環として、粘土含水系の組織形 成シミュレーションにおいて、水和エネルギーと水分量の関係をモデル化し、吸排水による組織 構造の変化を扱うことができるような粗視化MDモデルの拡張を行った。その際、水和エネルギー モデルとして、令和2年度の研究で用いた単調に変化するモデルに対して、令和3年度はそれに振 動成分を加えた水和エネルギーモデルを設定し膨潤状態の解析を行った。その結果、粘土含水系 は水和エネルギーの極大点を避けるように離散的に膨潤状態を選択し、これまでよりもNa型モン モリロナイトの近い結果を示すことが分かった。このことは、実験で観測されない膨潤状態を水 和エネルギー関数の極大点と対応させることで、より現実的な粘土含水系のモデル化が可能とな ることを示唆しており、水和エネルギーモデルの精密化や最適化を進めていくための有用な知見 と言える。

粗視化MDモデルの開発に関しては、平成30年度までに、ランダムに配置した粘土分子群を圧縮して凝集させることで、指定した温度、圧力における粘土含水系の組織構造モデルが得られるようになった。また、平成31年度からは、粗視化MD計算で得た組織構造に対するX線回折パターンや粘土分子の動径分布関数を数値的に求め、粘土分子の積層数や層間距離分布を評価して組織構造の特徴を調べることで、実測値との比較に向けての検討を進めてきた。これらの成果を踏まえ、令和2年度から令和3年度には、粘土含水系の吸水や排水による組織構造変化を扱うことができるようモデルの高度化を進め、モンモリロナイトの重要な性質の一つである膨潤挙動のシミュレーションを行うための準備が整いつつあり、より実用的な粘土含水系のモデル化に向けての課題も得られてきている。

今後は、層間イオン種に応じたモンモリロナイトの多様な膨潤挙動を扱うことを可能とすべく、 水和エネルギーモデルの関数形とモデルパラメータをイオン種に応じて適切に設定する方法につ いての検討を進める。これにより、本研究の目的である、粘土含水系の組織構造の特徴を、温度、 圧力、水分量に応じて評価することのできる粗視化MDモデルが提示できると考える。そのために は、水和エネルギー関数の形状と膨潤挙動の関係をより詳細に調べ、候補となる関数形やパラメ ータ範囲を絞り込むことが今後の課題となる。その際、全原子分子動力学計算でこれまで明らか にされている粘土層間水の挙動を水和エネルギーモデルに反映することや、設定した水和エネル ギーモデルがどのような膨潤曲線やX線回折パターンを与えるかを調べることが有効であると考 えられる。

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、セメント系材料由来による高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。

令和3年度はこの岩石試料の詳細観察を実施し、鉱物の形成・溶解の有無を調査し、アルカ リプルームの影響を検討した。

また、支保工やグラウト材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。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、CO2地下貯蔵等の他分野における 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。

令和3年度は、これまでに開発してきた解析手法を用い、一次元の単純な系を対象とし、アルカ リプルームによる岩盤の状態変遷プロセス(物質移行の促進もしくは遅延に影響を与えるプロセ ス)の定量的評価に資する上で重要となる知見(例えば、亀裂の開口が継続する/閉塞に向かう 場合の条件の概略等)について解析的な検討を行った。

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

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500m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,2016a)。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(CaCO₃)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

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、アルカリプルームの 痕跡を調査するため、その周辺岩盤中で岩石試料を採取し、岩石薄片を作成して顕微鏡観察を行 った。その結果、岩盤中の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 確認されたが、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(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,2021)。

令和3年度は、令和2年度に作成した岩石薄片の電子顕微鏡観察及びX線分析顕微鏡観察を実施 し、沈着物の性状からその成因を分析するとともに、鉱物の溶解などの有無を調査し、アルカリ プルームによる変質等への影響を検討した。

(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。 ボーリング孔全体の掘削後、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、深度500m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を超えていたことが確認されている(林田ほか, 2018)。深度500m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500m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500m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。

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から30.1mの深度 で試料を採取したが、深度30mの位置では、18MI65号孔と12MI33号孔の離間距離は3.7m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)。本事業 では、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、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(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,2021)。



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

(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, 2021)

2) 岩石試料の観察

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2.5-2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 から2枚を作製した(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,2021)。



(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, 2021)

令和2年度には作成した薄片の偏光顕微鏡観察を行った。その結果、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。また、28.9 mと30.1 mの2試料では炭酸塩鉱物と推定 される細粒物も確認された。沈着物の大部分はセメント系の物質と推定されたが、割れ目表面を 覆った樹脂や天然の物質である可能性も考えられた。そこで、令和3年度には、偏光顕微鏡観察に 加えて、電子顕微鏡観察及び電子顕微鏡に搭載されたエネルギー分散型X線分析装置(EDS)を用 いた局所の化学分析、走査型X線分析顕微鏡(SXAM)を用いた元素マッピングを実施した。これ らの結果を図2.5-3にまとめた。

3) 観察結果の解釈

顕微鏡観察及び化学分析において、偏光顕微鏡(オープンニコル)下で暗灰色から黒色を呈し、 SXAMでCaが認められる(EDSではCaとO、Siが検出される)薄層をセメント系物質と推定した。 また、偏光顕微鏡のクロスニコルで高い干渉色を示す鉱物を炭酸塩鉱物(方解石と推定される) とした。オープンニコルで灰色を呈し、SXAMでCaが認められない物は、割れ目表面を覆った樹 脂であった(EDSではCとOが検出され、Caは検出されない)。この判定基準に基づくと、26.9 m を除く試料でセメント系物質の可能性がある沈着物及び炭酸塩鉱物が確認された(図2.5-3)。な お、28.9 mの試料では、炭酸塩鉱物が割れ目表面を広く覆っており、他の試料に比べて厚みがあ ること、顕微鏡下では微小割れ目を充填し、石英粒子を含むことから天然の炭酸塩鉱物(方解石) 脈と推定した(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,2021)。同様 な天然の脈と考えられるものは、24.15 mの試料でも認められた。これ以外の試料では、ごく薄い セメント系物質と推定される薄層及び炭酸塩鉱物の薄層が割れ目表面に局所的に分布する(図 2.5-3)。

セメント系物質と推定される薄層の成因として、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二つが 考えられる(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,2021)。令和2年 度の検討ではその成因を十分に明らかにすることはできなかった。令和3年度の検討では、セメン ト系物質と推定される物質は炭酸塩鉱物を伴うことが多いことが明らかになった。

最近、Yuguchi et al. (2022) は瑞浪超深地層研究所の深度500m付近の花崗岩中に存在する方

解石を記載し、レンズ状方解石(黒雲母中に産出)、粒状方解石(変質した斜長石中に産出)、粒間方解石(鉱物の結晶粒界に産出)、割れ目充填方解石の四つの産状を識別した。このうち、割れ目充填方解石は花崗岩中に発達する微小な割れ目を充填する方解石であり、今回、観察した炭酸塩鉱物の産状はYuguchi et al. (2022)で報告されたものとは異なる。

試料名	24.15m-1	24.15m-2	25.15m	26. 9m
試料写真		5)		
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)				
X線分析顕微鏡に よるCaマッピング				
観察結果	肉眼観察では割れ 目表のられたで、薄内 ごく一部として、 では割れ目セメン ト系が着いた。 ためいた。 たき れるただ。 たき やいる。	肉眼観察で沈た。薄荷 認知した。 していた。 していた。 していた。 していた。 していた。 していた。 していた。 していた。 していた。 したいでのいた。 したいた。 したいでのいでのいた。 したいでのいでのいた。 したいでのいでのいでのいでのいでのいでのいでのいでのいでのいでのいでのいでのいでのい	肉眼観察では割れ目表面に沈着物が詰 められた。薄片では割れ目表面のごく 一部にセメント系材料と推定される沈 着物が確認された。沈着物の一部は 酸化している。	8 肉眼観察では割れ目表面に沈着物が認 められたが、薄片では沈着物などは確 記されなかった。
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)		1 1		
クロスニコル (CR)				

図 2.5-3 採取したコア試料の一覧表、偏光顕微鏡写真、X線分析顕微鏡による Caマッピングの結果及び観察結果のまとめ

酸化している。

A 197.9

肉眼観察では割れ目表面に沈着物が認

められた。薄片では割れ目表面のごく

着物が確認された。沈着物の一部は炭

部にセメント系材料と推定される沈

石

and the s

肉眼観察では割れ目表面に炭酸塩鉱物

が認められた。薄片では全体を炭酸塩 鉱物脈が覆うこと、炭酸塩鉱物として

比較的粗粒な物と細粒な物とが存在す

ることが確認された。他の試料と比較すると、この炭酸塩鉱物の層は比較的厚いこと、想象範囲全体に分布し、か

英粒子を含むことから, 天然の炭酸塩

つ微小割れ目を充填していること、

鉱物であると判断される。

^(画像の横幅が約3cm) X線分析顕微鏡に よるCaマッピング

観察結果

酸化している。

肉眼観察では割れ目表面に沈着物が認

められた。薄片では割れ目表面のごく 一部にセメント系材料と推定される沈

着物が確認された。沈着物の一部は炭

また、従来、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種類が報告 されてきた(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おり、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、観察し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いと考えられる。また、武田 ほか(2012)では、先行研究の引用で、CO2あるいは炭酸塩水の存在下ではセメントは容易に炭 酸塩化するとしている。これらの点に加えて、割れ目表面を薄層が覆うという産状を勘案すると、 今回、観察した炭酸塩鉱物は、12MI33号孔でのセメント注入時にセメントが割れ目に侵入して薄 層を形成し、その後、セメントが炭酸に富む原位置の地下水と接触したことによって形成された ものと考えられる。

なお、これまでの観察では、割れ目沿い及び割れ目周辺母岩中での鉱物の溶解や二次鉱物の生 成といったアルカリプルームの影響の痕跡は確認されていない。

(3) これまでの成果と今後の課題

令和3年度は、令和2年度に採取した割れ目表面の沈着物を対象として、電子顕微鏡観察、電子 顕微鏡に搭載されたエネルギー分散型X線分析装置(EDS)を用いた局所分析、走査型X線分析顕 微鏡(SXAM)を用いた元素マッピングを行った結果、セメント系物質と推定される沈着物と炭 酸塩鉱物が確認された。この結果と令和2年度に実施した沈着物の肉眼観察及び偏光顕微鏡観察結 果とを合わせると、この炭酸塩鉱物はセメント系材料の炭酸化によって形成されたと考えられ、 セメント系物質はボーリング孔掘削作業時のセメント注入時にセメントが割れ目に侵入して形成 されたと考えられた。この一方で、割れ目沿い及び割れ目周辺母岩中での鉱物の溶解や二次鉱物 の生成といったアルカリプルームの痕跡は確認されなかった。花崗岩中におけるアルカリプルー ムの影響については、室内試験あるいは数値解析の結果が報告されている。例えば、大和田ほか (2000) は粉砕した花崗閃緑岩2 gに対して試験溶液2,000 gを使用した浸漬試験を行い、板状及 び針状の析出物を確認している。また、加藤ほか(2000)は粉砕した花崗閃緑岩を使用したカラ ム試験を行い、カルサイトやC·S·H系化合物の析出を確認している。数値解析においては、電気事 業連合会・核燃料サイクル開発機構(2005)は1万年後に岩盤中に二次鉱物としてクリノタイロラ イトが生成することを報告している。今回の観察でアルカリプルームの影響が認められなかった 理由としては、仮にアルカリプルームが形成されていたとしても、反応時間(セメント注入から 試料採取したボーリング孔掘削までの期間) が5年程度と短かったこと、ボーリング孔で観測され たpHは11程度と高アルカリプルームで想定されるpHよりも低かったことなどが考えられる。さ らには、令和2年度の報告書でも述べたように、瑞浪超深地層研究所深度500m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も影響 した可能性がある。なお、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、母岩への拡散は短期間ではほとんど生じ ないが、1万年では数mの深さまで及ぶ可能性があるとされている。したがって、今回の観察にお いてはアルカリプルームの影響が認められなかったものの、長期的には割れ目周辺の母岩にアル カリプルームの影響が及ぶ可能性を否定するものではないことに注意が必要である。

平成30年度から令和3年度までの4年間の検討により、地下施設でのグラウト施工及びボーリン
グ孔のセメンチングを事例として活用し、原位置から採取したグラウト材・花崗岩接触部の試料 や割れ目表面の沈着物を用い、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は、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、セメント系材料が使用されたボーリング孔近傍の割れ目沿い及び割れ目周辺母岩中では鉱物 の溶解や二次鉱物の生成といったアルカリプルームの痕跡は確認されなかったことが明らかにな った。

本課題においては、地下水水質を踏まえたアルカリプルーム反応輸送挙動評価モデルへの知見 の提供を目的として、室内試験データ拡充による概念モデルの妥当性の確認や原位置データの拡 充に取り組んできた。これまでに、セメント系材料が岩盤に与える影響について、グラウト施工 及びボーリング孔のセメンチングを事例として検討してきた。これらの検討によって得られた知 見は、今後アルカリ影響に係るシナリオの検討や影響評価モデルによる解析を行う際、対象とす る時間や条件に応じて、適宜、シナリオの見直しやモデルによる解析方法に反映されることが期 待される。

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,1999a)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,2015)。しかし ながら、このことは、岩盤中の亀裂を表す一次元チャンネルと、その周辺の岩盤マトリクスから 構成される二重空隙モデルによる解析結果に基づくものであり、二次元的な「面」である亀裂が 分布し、三次元のネットワーク上の移行経路が想定される現実の三次元の岩盤を対象に、坑道近 傍数m程度の領域にセメント影響が留まるとする、上記の想定が妥当であるかについては確認さ れていなかった。

そこで、平成30年度は、亀裂面の二次元的な広がりがアルカリプルームの反応輸送挙動に及ぼ す影響を把握することを目的として、岩盤中の単一亀裂を二次元平行平板でモデル化した準三次 元モデルを構築して、亀裂内部を流れる地下水とコンクリートとの反応輸送解析を行った。この ような解析モデルの概念図を図2.5-4に示す。



図 2.5-4 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の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示唆を得た。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・二次鉱物の沈殿などによる地下水流動場の変化の影響を考 慮したモデルで解析評価を行う必要が生じる可能性がある。このような解析検討を通じて、セメ ント影響の及ぶ範囲や程度を把握することは重要である。平成31年度は、上記に示した平成30年 度の試解析の結果などを参考にしつつ、処分孔の支保工とそれに交差する単一の亀裂を対象とし た反応輸送解析モデルを構築し、支保工からのアルカリの影響が処分孔近傍に留まるか否かの条 件を把握することを目的とする感度解析を行った。また、この結果の分析などを通じて、支保工 やグラウト材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二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。令和2年度までの検討により、岩盤中での核種移行評価の観点で重要となる状態変遷 プロセス(物質移行の促進もしくは遅延に影響を与えるプロセス)への影響が大きい現象や要因 (例えば、岩盤マトリクスの溶解、 亀裂中での二次鉱物の溶解・ 沈殿、 亀裂中での 透水量係数の 大小等)が抽出され、それらの相互関係に伴う状態変遷の違いを把握するための解析手法を整備

した。

そこで、令和3年度は、これまでの解析で着目してきたプロセスを考慮しつつ、一次元の単純な 系を対象とし、アルカリプルームによる岩盤の状態変遷プロセス(物質移行の促進もしくは遅延 に影響を与えるプロセス)の定量的評価に資する上で重要となる知見を抽出するための解析的な 検討を行った。

(2) 実施内容

アルカリプルームによる岩盤の状態変遷に係る反応輸送解析にあたり、結晶質岩盤を対象とした反応輸送解析で対象となる主なプロセスについて、先行事業で収集された知見等を参考に整理した。また、令和3年度の検討では、一次元の単純な系を対象にした解析のため、解析コードとしては、市販のコードで地球化学の分野で幅広く利用されているGeochemist's Workbench (GWB)のX2tモジュール (Bethke, 2008)を用いることした。なお、X2tモジュールの利用にあたっては、解析コードを用いた適切な解析ができているかを確認するため、アルカリプルームによる亀裂を含む岩盤の状態変遷解析が行われた既往文献 (Steefel and Lichtner, 1998)を対象に模擬的な再現解析も併せて行った。

1) 反応輸送解析で対象となる主なプロセス

アルカリプルームによる岩盤の状態変遷において、結晶質岩中の亀裂の状態変遷に影響を与えると考えられる主なプロセスについて、日本原子力研究開発機構(2015)で収集された知見等に 基づき整理した(図2.5-5)。



支保工やグラウト材に由来するアルカリプルームが亀裂中を移流により移行(プロセス1)し、 高pH溶液の流入に伴い岩石マトリクスを構成する鉱物の溶解と溶解に伴う溶質の拡散が生じる (プロセス2)と想定される。また、岩石マトリクスから拡散により移行した溶質は、岩石マトリ クス及び亀裂中において二次鉱物として沈殿する(プロセス3)ことが予想される。上述したよう な主に三つのプロセスの速度論的なバランスにより、亀裂の開口が継続し、物質移行が促進され るのか、もしくは亀裂が閉塞に向かい物質移行が遅延されるのかが影響されると考えられる。こ れらの三つのプロセスの相互関係に基づき、亀裂の開口(物質移行の促進)が継続する/閉塞(物 質移行の遅延)に向かう場合の条件について解析的な検討を試みた。

2) 解析方法

図2.5-5で整理したプロセスに着目し、Steefel and Lichtner (1998) により、アルカリプルームによる亀裂を含む岩盤の状態変遷解析が行われた解析例を対象に、X2tモジュールを用いた模擬的なベンチマーク計算を行った。なお、今回の解析では、Steefel and Lichtner (1998) と全く

同一の解析条件ではなく、解析結果の傾向が一致するかどうかを確認することを主目的としたため、 模擬的なベンチマークと称した。

① 解析体系

図2.5-6に亀裂を含む岩盤の状態変遷解析における解析体系の概念図を示す。この図は、Steefel and Lichtner (1998)がMaquarinの粘土質バイオマイクライト(石灰質岩)を対象に、岩盤中の 亀裂に高pHの地下水が流入した場合のアルカリプルームによる岩盤への変質影響を評価する際 に用いられた概念図を基にしている。岩盤マトリクス部は、均一で透水性が低く、物質移行は拡 散支配であり、一方、亀裂部は透水性が高く、移流支配であると想定する。亀裂入口と出口間で の動水勾配は一定で、亀裂中での流れは定常状態であり、溶質の拡散・分散は亀裂中での地下水 の混合に伴い生じると仮定する。



図 2.5-6 亀裂を含む岩盤の状態変遷解析における解析体系の概念図 (Steefel and Lichtner, 1998を基に改変)

② 解析条件及び解析ケース

図2.5-6に示した解析体系において、境界条件として二つの異なる条件を設定した。一つは、一 次元の解析体系において、境界条件として亀裂表面での濃度を固定する場合で、この場合は亀裂 中での流れは無い状態を想定する。もう一つは、境界条件として亀裂入口での濃度を固定する場 合で、この場合は亀裂入口で濃度固定された溶液が亀裂中を移流により流れる状態を想定する。 なお両条件において、亀裂表面から10 mmの深さをゼロフラックスの境界とした。このように異 なる境界条件を設定し、解析ケースとしては、前者をCase1、後者をCase2とした。

3 解析上の設定

各々の解析ケースにおける解析上の設定を以下にまとめる。Case1の場合、亀裂表面から岩盤マ トリクスに向けて10mmの長さを22のノード(要素)に分割した。そのうち、亀裂表面に近い側 の15要素については、0.2mmの長さとし、残りの7要素は1mmの長さとした。なお、各要素の幅 及び高さは1mmである。一方、Case2の場合、亀裂長さは1m、亀裂開口幅は約0.2mmとした。 開口幅の設定については、Steefel and Lichtner (1998)によるMaquarinを対象とした変質解析 での設定値に準拠した。亀裂中での流速は、1,000 m/yとし、亀裂中の水は約6日で置き換わる想 定とした。岩盤マトリクス中の要素分割は、10分割とし、各要素の長さは1mmとした。なお、各 要素の幅及び高さは、Case1と同様に1mmである。

④ 解析で用いたデータ及び解析上での仮定等

今回の解析で用いたデータ及び解析上での仮定等は、一部のパラメータを除き、基本的にSteefel and Lichtner (1998)の解析例に準拠したものを用いた。以下に個々のパラメータ及び解析上で

の仮定等について整理した。

(a) 透水性

亀裂の透水性は、Snow (1968) による三乗則に従い、亀裂表面が滑らかな平行平板亀裂を想定し、下式を用いた。

$$\kappa = \frac{\phi_f b^2}{12} \tag{2.5-1}$$

ここで、*k*は固有浸透率、φ_fは亀裂間隙率、bは亀裂開口幅に相当する。亀裂間隙率は、単位体 積中に含まれる亀裂中の空隙の体積割合であり、亀裂密度(下式におけるn)が与えられた場合、

$$\phi_f = nb \tag{2.5-2}$$

により求められる。今回の解析で用いたGWBのX2tモジュールでは、間隙率と透水性の関係については、下式に示す経験式(Bethke and Yeakel, 2015)が用いられている。

$$\log \kappa_x = A\phi + B + \sum_m A_m X_m, \tag{2.5-3}$$

ここで、 k_x は流動方向(x)での固有浸透率、 ϕ は間隙率、A、B及びAmは経験的な係数、Xmは 鉱物mの体積分率に相当する。今回の解析では、A及びBの値としては、デフォルト値として与え られているA=15、B=-5の値を各々用い、鉱物種との関係については考慮しなかった。式(2.5-3)は、 単一亀裂に対して適用し、亀裂及び岩盤マトリクスの初期の間隙率は、各々、1及び0.3として設 定した。解析では、鉱物の溶解沈殿に伴い間隙率が変化するが、間隙率の変化に伴う透水性の変 化は、式(2.5-3)に基づき換算された。

(b) 拡散係数

今回の解析では、全ての溶質種について同一の拡散係数 (3.0×10⁻¹² m²/s) を用いた。この値は、 Chamber et al. (1998) がMaquarinの未変質岩を用いて測定された際の拡散係数を参考に設定した。

(c) 溶液条件

岩盤中の初期溶液及び高pH溶液として濃度固定とした溶液組成を表2.5-1に示す。

	Concentration (mol/L)					
	岩盤中の初期溶液組成	濃度固定とした溶液組成				
Total Al ³⁺	4.07 × 10 ⁻⁸	9.23 × 10 ⁻⁹				
Total K⁺	6.95 × 10 ⁻⁵	5.07 × 10 ⁻⁴				
Total Na⁺	5.87 × 10 ⁻⁴	2.03 × 10 ⁻³				
Total Ca ²⁺	7.59 × 10 ⁻⁴	2.01 × 10 ⁻²				
Total Mg ²⁺	5.61 × 10 ⁻⁴	2.34 × 10 ⁻⁸				
Total SiO ₂ (aq)	1.81 × 10 ⁻⁴	1.15 × 10 ⁻⁶				
Total CO ₂	2.57 × 10 ⁻³	1.00 × 10 ⁻⁶				
Total SO ₄ ²⁻	1.06 × 10 ⁻⁴	3.01 × 10 ⁻³				
Total Cl ⁻	5.88 × 10 ⁻⁴	2.04 × 10 ⁻³				
pH	7.75	12.39				
T (°C)	25	25				

表 2.5-1	岩盤中の初期溶液及び高pH溶液として濃度固定とした溶液組成
---------	-------------------------------

岩盤中の初期溶液は、Shao et al. (2013)の例を参考に、Maquarinの未変質岩とpHが中性の 純水との平衡を仮定して導出した。高pH溶液として濃度固定とした溶液組成(Case1では亀裂表 面、Case2では亀裂入口での濃度固定とした溶液組成)は、pHが中性のNa-HCO3型の地下水とポ ルトランダイトを平衡にさせた後、Maquarinで実測された高pH溶液中のSO4²濃度を近似するた め、黄鉄鉱を酸化させて導出した。

(d) 鉱物組成

Steefel and Lichtner (1998) を参照し、Maquarinの未変質岩の鉱物組成及び間隙率を表2.5-2 にまとめた。表2.5-2において、その他とした鉱物は、構成鉱物種が同定されていない鉱物の割合 であり、今回の解析では反応には寄与しないものと仮定し、取り扱った。また、高pH溶液と未変 質岩との反応に伴い、二次鉱物が生成するが、今回の解析では、Steefel and Lichtner (1998) で 考慮された二次鉱物(エトリンガイド、CSH鉱物:ヒレブランド石・フォシャグ石・トバモライ ト-14 Å)を同様に考慮した。なお、Steefel and Lichtner (1998)の解析結果と比較するため、 これら二次鉱物の平衡定数 (log K)の値は、Steefel and Lichtner (1998)が用いた値と同一の 値を用いた。

構成鉱物及び間隙率	体積分率(%)
方解石	49.0
カオリナイト	3.5
玉髄	3.5
白雲母	1.4
その他	12.6
間隙率	30.0

表 2.5-2 Maquarinの未変質岩の鉱物組成及び間隙率 (Steefel and Lichtner, 1998の情報をもとに簡略化)

(e) 速度論

高pH溶液と岩石中の構成鉱物との反応に伴い、未変質岩中の鉱物の溶解が生じる。鉱物の溶解 については、下記に示す鉱物の溶解速度に関わる速度式を用いた。

$$r_{s} = -A_{s} \left\{ \sum_{l=1}^{N_{ts}} k_{ls} \left(\prod_{i=1}^{N_{c}+N_{x}} a_{i}^{p_{il}^{s}} \right) \right\} \left[1 - \frac{Q_{s}}{K_{s}} \right]$$
(2.5-4)

ここで、rsは岩石中の鉱物の溶解速度、Asは反応する鉱物の表面積、kisはl番目の反応の溶解速 度定数、p^s_{il} は、i番目の溶液種の活量に対するl番目の反応の次数、Qsは活量積、Ksは溶解度積に 相とする。今回の解析では、式(2.5-4)は岩石マトリクス中の初生鉱物の溶解に対して用いた。

また、式(2.5-4)における鉱物の表面積に関しては、Steefel and Lichtner (1998)では、下記に示す経験式を用い、表面積の時間変化が考慮されている。

$$A_{s}(t) = A_{s}^{o} \left(\frac{\phi(t)}{\phi_{o}}\right)^{2/3}$$
(2.5-5)

ここで、A_s(t)は時間tにおける表面積、A_s⁰及び φ⁰は初期の表面積及び間隙率に相当する。今回の解析でも、式(2.5-5)を用い、高pH溶液と鉱物の反応に伴う鉱物の表面積の時間変化を考慮した評価を行った。なお、二次鉱物の沈殿については、今回の解析では速度論的な取扱いは行わず、

Steefel and Lichtner (1998) の場合と同様に、二次鉱物の沈殿は遅い反応である初生鉱物の溶解 速度に律速されると仮定し、溶液組成がある二次鉱物の溶解度積に対して過飽和になった場合、 瞬時に沈殿が生じるとの仮定の基に解析を行った。なお、二次鉱物の沈殿速度に影響を及ぼす要 因については、知見が乏しいのが現状ではあるが、Steefel and Lichtner (1998) らも指摘してい る様に、亀裂の開口/閉塞の進展を評価する上で重要な因子になり得ると想定される。

(f) 化学反応と物質移行の連成

亀裂及び岩盤マトリクスにおける水の流れや溶質の移行は、間隙率を介して計算される。この 場合の間隙率は、下式により求められる。

$$\phi = 1 - \sum_{s=1}^{N_s} \phi_s \tag{2.5-6}$$

ここで、 ϕ_s はN_s種の鉱物中におけるs番目の鉱物の体積割合に相当する。また、物質輸送と化学反応は、下式により連成される。

$$\frac{\partial \phi_s}{\partial t} = \bar{V}_s r_s, \tag{2.5-7}$$

ここで、*V*_sはs番目の鉱物のモル体積、r_sは式(2.5-4)により与えられる鉱物の溶解速度である。 X2tモジュールでは、高pH溶液と岩石(鉱物)との化学反応に伴う亀裂及び岩盤マトリクス中で 生じる間隙率・透水性の変化と物質輸送の変化を逐次取り込みながら解析が行われる。

3) 解析結果

X2tモジュールを用いて境界条件として二つの異なる条件を設定した解析ケース(Case1及び Case2)に対する解析結果を以下にまとめる。

1 Case1

図2.5-7にCase1の解析結果として、亀裂表面からの距離に応じた岩盤マトリクス中での間隙率 及び構成鉱物の体積割合の変化を示す。図2.5-7の結果は、反応開始後、4.8年後の結果である。解 析の結果、高pH溶液と岩盤マトリクス中の初生鉱物との反応に伴い生じた二次鉱物(エトリンガ イトが主で、その他にCSH鉱物でヒレブランド石を少量含む)の沈殿により、岩盤マトリクスの 初期間隙(間隙率0.3)が閉塞された(なお、今回の解析では、間隙率が0.022となった場合に解析 が停止し、この時の間隙率を間隙の閉塞状態とみなした)。二次鉱物に含まれるAlやSiは、岩盤 マトリクス中の初生鉱物であるカオリナイト、玉髄及び白雲母の溶解に由来し、これらの元素が 初生鉱物から溶出し、亀裂表面に向かって拡散で移行し、沈殿したと解釈される。なお、亀裂の 表面付近で沈殿した二次鉱物は、エトリンガイト及びヒレブランド石であり、その他にフォシャ グ石及びトバモライト-14Åの沈殿も生じたが、これらは亀裂表面から離れた部分で極少量の沈殿 であり、間隙率への影響は小さい。今回の解析により推定された亀裂表面から岩盤マトリクス側 への二次鉱物の沈殿種の分布(亀裂表面付近にエトリンガイト及びヒレブランド石が沈殿し、岩 盤マトリクス側に向かいフォシャグ石、トバモライト-14Åが沈殿)は、Steefel and Lichtner (1998) による解析結果とも整合した。ちなみに、岩盤マトリクス中には方解石が多量に含まれているが、 高pH溶液として濃度固定とした溶液組成は、方解石との平衡を仮定して設定されているため、反 応には寄与していない。今回の解析では、4.8年後に亀裂表面から0.6 mmの深さの岩盤マトリク スの間隙が閉塞するため、それ以降は岩盤マトリクスの変質は生じない。



図 2.5-7 亀裂表面からの距離に応じた岩盤マトリクス中での間隙率及び 構成鉱物の体積割合の変化

前述したように、今回の解析では模擬的なベンチマークと位置づけ、Steefel and Lichtner (1998) による先行事例との比較を試みた。その結果、例えば、高pH溶液と岩盤マトリクスとの反応に伴 い生じる二次鉱物の沈殿種の分布は、Steefel and Lichtner (1998) による解析結果と整合してお り、X2tモジュールを用いた解析手法は、概ね妥当であると考えられる。一方、岩盤マトリクスの 間隙が閉塞する時期や深さ(Steefel and Lichtnerらの結果では、50年後に亀裂表面から2.7 mm の深さで生じた)は、今回の解析結果とは異なった。このような違いが生じた主な要因としては、 解析で設定した初生鉱物の反応比表面積の違い(今回の解析では、Steefel and Lichtnerらが設定 した値の5倍の値を用いた)や使用した熱力学データベースの違い等が挙げられる。なお、反応比 表面積については、Steefel and Lichtner (1998) と同様の設定をもとに試解析を行ったが計算に 要する時間の関係から、より反応が進行し易い条件での解析に見直した。ちなみに、Steefel and Lichtner (1998) では、解析コードとしてGIMRT (Steefel and Yabusaki, 1996) が用いられて おり、反応輸送解析においてglobal implicit或いはone-stepアプローチが用いられている。一方、 X2tモジュールではoperator-spilittingアプローチが用いられており、このような解析アプローチ に違いがある点についても留意しておく必要がある。

図2.5-8には、岩盤マトリクス中の間隙が閉塞した4.8年後の時点における岩盤マトリクス中の 間隙水のpH及び主要元素の濃度分布を示す。pHは、亀裂表面から10 mmの深さの岩盤マトリク ス中にわたり、11.5を超える高pH条件である。また、亀裂表面から0.6 mmの深さまではAl濃度が 急減に増加しており、初生鉱物であるカオリナイトや白雲母の速度論的な溶解に起因するものと 考えられる。岩盤マトリクス中の間隙水において、このようなpH及びAl濃度条件の変化により、 エトリンガイトに対して過飽和な条件となり、沈殿が生じ、間隙の閉塞に寄与したと推察される。 また、エトリンガイトの沈殿量が最も多くなった0.6 mmの位置では、硫酸濃度も2桁程度減少し ているのが判る。一方、カオリナイト、玉髄及び白雲母の速度論的な溶解で増加したSiは、間隙 水中のCaと共に、エトリンガイトや他のCSH鉱物の沈殿により消費され、Si濃度の増加は抑制さ れ、Ca濃度は減少したと推察される。ちなみに、図2.5-8に示した岩盤マトリクス中の間隙水のpH 及び主要元素の濃度分布は、Shao et al. (2013) による類似した解析結果と定性的に比較するこ とも可能である。Shao et al. (2013) の例では、Maquarinを対象にCase 1と同様な境界条件の設 定のもと解析が行われ、結果として、亀裂表面近傍の岩盤マトリクス中の間隙水におけるAl及び Si濃度の急増や高pH条件 (pH>11) が示されており、今回の解析結果と調和的である。



図 2.5-8 岩盤マトリクス中の間隙水のpH及び主要元素の濃度分布(4.8年後)

2 Case2

図2.5-9にCase2の解析結果として、亀裂の透水性及び亀裂中を入れ替わった水の量(回数)の 経時変化を示す。図2.5-9より、亀裂の透水性が時間の経過と共に小さくなることが判る。これは、 亀裂中に二次鉱物として沈殿するエトリンガイト及び少量のヒレブランド石による影響である。 これらの二次鉱物は、岩盤マトリクス中の初生鉱物であるカオリナイト、玉髄及び白雲母の溶解 により生じたAl及びSiが岩盤マトリクス中を拡散で移行し、亀裂に流入後、亀裂中の水と混合す ることで沈殿する。亀裂中での二次鉱物の沈殿に伴い、約6年後には亀裂の透水性は顕著に低下し、 その後は亀裂中で入れ替われる水の量(入れ替わる回数)も極端に低下し、最終的には、亀裂中 での流れがほぼ停止する。

図2.5-10には、岩盤マトリクス中の間隙率の経時変化を亀裂表面の距離に応じて整理した結果 を示す。なお、図2.5-10の凡例に示した値は、解析上の設定における各要素の中心の位置を意味す る。図2.5-10より、エトリンガイト及び少量のヒレブランド石の沈殿に伴う岩盤マトリクス中の 間隙率の低下は、亀裂表面から2.5 mmの範囲内で生じていることが判る。なお、約6年後は、間 隙率の変化はほとんど生じておらず、Case1の場合とは異なり、岩盤マトリクス中の間隙率は閉塞 しない。



図 2.5-9 亀裂の透水性及び亀裂中を入れ替わった水の量(回数)の経時変化



図 2.5-10 岩盤マトリクス中の間隙率の経時変化(亀裂表面からの距離に応じて整理)

以上述べたようなCase1及びCase2を例にした解析条件(境界条件)の違いよる解析結果の違い を踏まえ、アルカリプルームによる岩盤の状態変遷プロセスの定量的評価に資する上で重要とな る亀裂の開口(物質移行の促進)が継続する/閉塞(物質移行の遅延)に向かう場合の条件を概 略的に整理した(図2.5-11)。



図 2.5-11 亀裂の開口が継続する/閉塞に向かう場合の条件の概略整理

まず、Case1の条件で示されるように亀裂中での高pH溶液の移行が非常に遅い場合、岩盤マト リクス構成する構成鉱物が溶解し、亀裂側に拡散で移行すると共に二次鉱物として沈殿が生じる。 これに伴い、岩盤マトリクスの間隙が閉塞する可能性が高くなり、亀裂の閉塞は生じ難くなるこ とが想定される。

次に、Case2の条件で示されるように亀裂中で高pH溶液の移行が生じる場合、岩盤マトリクスの構成鉱物が溶解し、亀裂側に拡散で移行すると共に二次鉱物として沈殿し、亀裂表面近傍での 岩盤マトリクスの間隙率は低下するものの間隙が閉塞する可能性は小さくなる。一方、岩盤マト リクスから移行した溶質が亀裂に流入し、亀裂中の水と混合することで二次鉱物が沈殿し、亀裂 が閉塞する可能性が高くなると想定される。

上述したようなアルカリプルームによる岩盤の状態変遷プロセスの違いは、核種の移行遅延効果の観点で整理すると、以下のような違いとしても整理される。すなわち、Case1のように亀裂中

での移流速度が非常に遅い場合、マトリクス拡散による核種の移行遅延効果が大きいと考えられ るが、アルカリプルームの影響により亀裂表面付近の岩盤マトリクスの間隙が閉塞されることで、 マトリクス拡散による核種の移行遅延効果が抑制される可能性が懸念される。また、これに伴い、 緩慢ではあるがアルカリプルームの下流側への影響が次第に拡がっていく可能性も危惧される。 一方、Case2のように亀裂中での移流速度が相対的に速い場合、マトリクス拡散による核種の移行 遅延効果は小さいと考えられるが、アルカリプルームの影響により亀裂中に二次鉱物が生成し、 亀裂の透水性が低下することで核種の移行遅延効果が大きくなることが期待される。なお、岩盤 マトリクスでは、Case1と同様に二次鉱物の沈殿により間隙率が低下するためマトリクス拡散の 効果は低下すると予想されるが、Case1とは異なり、間隙が閉塞する可能性は低く、一定程度の移 行遅延効果は期待できると考えられる。

(3) これまでの成果と今後の課題

令和3年度は、これまでに開発・整備した解析手法を用い、一次元の単純な系を対象とし、アル カリプルームによる岩盤の状態変遷プロセス(物質移行の促進もしくは遅延に影響を与えるプロ セス)の定量的評価に資する上で重要となる知見を抽出するため、亀裂の状態変遷に影響を与え ると考えられる三つ主要なプロセス(アルカリプルームが亀裂中を移流により移行するプロセス、 高pH溶液の流入に伴い岩石マトリクスを構成する鉱物の溶解と溶解に伴う溶質の拡散が生じる プロセス、岩石マトリクス及び亀裂中において二次鉱物が沈殿するプロセス)に着目し、解析的 な検討を行った。その結果を基に、亀裂の開口(物質移行の促進)が継続する/閉塞(物質移行 の遅延)に向かう場合の条件を概略的に整理した。

平成30年度から令和3年度までの4年間の検討により、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 ことを推察すると共に、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。さらに、アルカリプルームによる岩盤の状態変遷プロセス の定量的評価に資するための解析方法を検討し、亀裂の開口/閉塞に影響を与える条件も概略的 に把握した。

今後は、令和3年度に利用した解析コードの適用性確認の一環として、花崗岩試料を用いた高pH 溶液の通水による人工単一亀裂の透水性と開口幅の変化に係る室内試験結果を対象にした再現解 析を行う。また、適用性が確認された解析コードを基に、令和3年度に実施したCase2での解析例 を参考に、亀裂中での流速や開口幅を主なパラメータとした反応輸送解析に関わる感度解析を行 い、初期の課題として設定されていた亀裂の開口(物質移行の促進)が継続する/閉塞(物質移 行の遅延)に向かう場合の条件の定量化に向けた検討も進める予定である。このような試みによ り、影響が顕在化する場合または影響の顕在化の可能性が低い場合等、アルカリプルームによる 岩盤の状態変遷に関わるシナリオ構築にも役立つと考えられる。

2.6 流出現象等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、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り、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。このような再冠水過程における緩衝材の不均一な密度分布は、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り、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唆されている(原子力環境整備促進・資金管理 センター,2018など)。緩衝材に期待する性能が長期的に発揮するには、緩衝材の飽和後の密度 の分布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く予 測評価することは性能評価の不確実性の低減に繋がる。

堅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、原子力発電環境整備機構の包括的術報告書(以 下、[NUMO-SC]という:原子力発電環境整備機構, 2021)では 40 mm と設定されている。

堅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]という)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]という)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(施工方法)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標 とする。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 年度から 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(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)。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、緩衝材の飽和 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。以上のような成果を踏まえ、今後取り組むべき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、実際の地下環境 (地下水環境)における流出挙動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。
- ・緩衝材の飽和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

堅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、ベント ナイトペレット充填(以下、[ペレット]という)、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評価方法の枠組みなどの基盤情報を整備することを目的とする (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、表 2.6-1 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、緩衝 材の流出特性の観点からアプローチする。

また、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することを 目的として、許容可能な緩衝材の流出量を考慮した緩衝材の飽和に至る期間の過渡的な変化(乾 燥密度分布などの状態)を予測評価する解析的な手法を開発する。



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

表 2.6-1 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)

評価項目	隙間未充填 (ケーシング/遮水シート設置オプション)	ベントナイトペレット充填	ケイ砂充填
緩衝材流出量に基づく 適用可能な施工環境 (処分孔内湧水環 境)【研究課題】	 (③) ⊕室内試験による湧水量による評価方法が整備されている (NUMO-SC 付属書4-56) 【流出量評価の不確実性低減に加え、流出停止条件など環境に応じた評価方法の充実(検討中)】 	(②) ④隙間未充填よりも湧水の多い環境に適用できる可能性あり。 評価は隙間未充填と同様にできる可能性あり【適用できる環 境の明確化(評価方法案の検討中)】	(①) ④比較的湧水量の多い環境に適用できる可能性がある【適用 できる環境の明確化、湧水量による流出量の評価方法の構 築(検討中)】
緩衝材流出量の確から しい定量評価の実現性 【今後の研究課題】	(③) ●諸外国で室内試験に基づく評価手法が提示されている【室内 試験と原位置の整合性(検討中)】	 (②)(③に近いレベル) (②)(③に近いレベル) (③)(③に近いマベル) (○)(○)(○)(○)(○)(○)(○)(○)(○)(○)(○)(○)(○)((①) 田緩衝材の流出濃度と湧水量の積で評価できる可能性(検討中)
膨出特性 【研究課 題】	 (③) ○膨出の抑制対策の整備が必要【膨出量の評価方法を整備し 工学的対策を検討】※原位置試験で膨出挙動を確認、課 題等の整理中。孔壁との摩擦力で膨出量が低減される見込 有。 	(②) ⊖同左	(①) ⊖同左
施工性	① ① ① ① ① ① ① ② ⑦ <th>③ ○狭隘部のぬれた孔壁では要求精度の施工性に課題</th> <th> ② (①に近い) ●隙間4cmのぬれた孔壁でも施工性に大きな課題なし </th>	③ ○狭隘部のぬれた孔壁では要求精度の施工性に課題	 ② (①に近い) ●隙間4cmのぬれた孔壁でも施工性に大きな課題なし
過渡期の力学的安定 性(自立・直立性、ポ ジション維持性)	 ③ ○支持材なし(自己シールまで隙間が存在) 	② ⊖不均一な湧水場所に伴うペレットの偏膨潤が影響する可能 性	 ① ●ケイ砂が緩衝材を支持
施工品質の要求レベル (軽いほど良い)	 ② ○緩衝材/OPの自立/直立性維持のため、高度な施工品質を 要する(底盤水平加工、処分孔真円掘削/定置) ○隙間への異物混入が許されない(孔壁落盤や緩衝材欠落 など) 	③ ○充填ペレットの密度・粒径管理、充填仕上げ密度などの高度 な施工品質管理を要する(隙間未充填と同様に底盤水平 加工は必要)	 ① ●ケイ砂充填のみなら、施工品質管理の負荷小(隙間未充填 と同様に底盤水平加工は必要)
閉鎖認可に係る性能 確認(過渡期の確からしい性能評価)のし易 さ	 ③ ○隙間への異物混入が許されない(孔壁落盤や緩衝材欠落など) ○緩衝材外周からの一様な湧水供給を保証できない(緩衝材の偏膨潤を誘発する可能性) 	 ②(③に近い) ⊖緩衝材外周からの一様な湧水供給を保証できない(ペレットの偏膨潤⇒緩衝材の偏膨潤を誘発する可能性) 	 ① ①緩衝材は体積拘束される ①緩衝材外周は一様な湧水供給環境
長期の性能評価・安全 評価の初期条件(緩 衝材の再冠水時の状 態)の予測評価の確か らしさ	 ③ ○緩衝材周りの湧水供給環境の違いや偏膨潤の発生などにより、過渡期の性能評価に不確かさが存在 	 ② ○左記と同様に性能評価の確からしさに課題 ●安全評価の面では、流出量を差し引いてもペレット充填分の ベントナイト増量が期待できる 	 (安全評価技術の知見による支援が必要) (金全評価技術の知見による支援が必要) (金属) (金属
原位置測定・モニタリン グの必要性(簡略化で きるほど良い)	 ③ ○上記の施工品質や性能確認の懸念から、原位置での現物 測定/確認やモニタリングが要求される可能性 	 ②(③に近い) ⊖(左記同様) 	 ① ①施工品質の要求レベルが低く、緩衝材周りの湧水環境が一様なので、原位置測定等が簡略化できる可能性
経済性	① ⊕充填材料・装置及び作業が不要	 ③ ○ペレット製造費+要求精度達成のための装置導入など 	 ② (①に近い) ④汎用装置で十分

※項目、内容は、研究開発成果等をもとに見直しを行う。表内の丸数字(優:①>②>③:劣)は、各評価項目における3つのオプションの優位性を現時点の暫定的な定量評価によって順位付けしたものであり、不確性の残る点は確認して信頼性を高めていく必要がある。

2.6.2 実施内容

(1) 流出を抑制する工学的対策の具体化

1) 実施概要

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、流出量に関する単一の評価方法を適用するのではなく、施工オプションごとに 処分孔の湧水環境に対する挙動や適用範囲を明らかにして流出量の評価方法を整理することによって、施工オプションの選択に資する情報を整備する。

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(表 2.6-1 参照)、本事業では、まずは流出特性に着目して、原位置で測定可能な処分孔内湧 水量、孔内湧水の駆動力となる処分孔と周辺岩盤との水位差や水質などの情報に基づき、適切な 施工オプションの選択ができるように評価指標と適用範囲を整備する。処分孔内外の水位差によ る処分孔上部からの排水(及び緩衝材の流出)の関係を図 2.6-2 に模式的に示す。水位が処分坑 道の底盤以下にあれば、処分孔内湧水の底盤からの排水はなく緩衝材の流出もない。しかし、水 位が底盤よりも上にある場合に孔内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 処分孔外に運ばれる(緩衝材の流出)。ただし、水位が底盤より高い場合であっても、孔内湧水 の駆動力となる水位差をキャンセルするような流路抵抗があれば孔内湧水は止まる。流路抵抗は、 緩衝材の施工後に時間変化する緩衝材の浸潤・膨潤に伴う隙間の閉塞の程度やそれに伴う孔内湧 水量等に依存するが、隙間充填後に排水が停止し、それに伴って緩衝材流出が停止に至る場合も あることが令和2年度の原位置試験(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,2021)で明らかとなっている。また、緩衝材の膨潤性能は水質の影響も受けるため、水位 差、孔内湧水量ならびに水質は評価指標の設定において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、流出を考慮すべき期間におけるより厳しい条件を 想定した施工オプションの成立性、可能な限り施工作業の負荷を軽減できる実現性のある施工方 法及び湧水量など地下環境に適応可能な施工方法などに留意をして進める。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の重要な評価項目であるため、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 2.6-2 水位差に対する流出の有無

② 施エオプション選択のための判断指標案の設定

令和2年度に策定した、各施工オプションにおける、緩衝材の流出に関わる判断指標の案(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,2021)を表 2.6-2に示し、以下に詳細を記載する。

オプション	施工オプション選 択における判断指 標 (案)	指標に対する考え方(案)
①隙間未充填	 処分孔周辺岩 盤との水頭差 処分孔内湧水 量 ⇒緩衝材流出 量の確認 	 ・定置後に孔内湧水が止まる(隙間が閉塞する)水頭差で 判断^(※) ・閉塞までの期間における緩衝材流出量を確認 ※安全側の判断指標 ⇒評価期間は有限期間なので、完全に閉塞しなくて も要件を満たすことも検討(隙間閉塞後に継続する 流出に関するべき乗モデルの適用性)
②ケイ砂充填	処分孔内湧水量 ⇒緩衝材流出量 の確認	 任意期間における許容緩衝材流出量で判断 (流出量=流出濃度×湧水量)、 またはべき乗モデルの適用 流出量予測の適用範囲を確認
③ペレット充填	検討中	 指標の考え方は令和3から4年度に検討 より安全側の判断指標として、ブロックからの流出が無い水頭差で判断することが考えられる(ペレットの流出は緩衝材に期待する機能に直接的な影響はない)

表 2.6-2 各施エオプションの緩衝材の流出に関する判断指標(案)

(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 潤して隙間を閉塞すれば、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て、水みちが閉塞可能な条件を設定してオ プション選択の可否を判断する。この場合、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、その間の流出量に関する定量的な評価方法も必要となる。 また、水みちが完全に閉塞しない場合でも(流出が継続する場合でも)、緩衝材の機能に有意な 影響を与えない程度の流出であれば、施工オプションとして成立する可能性もあることに留意が 必要である。

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)
- ・ 湧水量(処分孔壁からの流量、岩盤の透水性)
- ・水質(イオン強度)
- ・ 隙間幅、供試体高さ(スケール)
- · 緩衝材密度
- ・ 処分孔壁面の形状

(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、湧水量が一定であれば、 積算湧水量に比例して緩衝材の流出量が増加するなどの挙動が予想されることから、このような 流出挙動を示す湧水量の範囲(試験により確認)にあるか、また、流出量(流出量の算定方法は 検討し構築)が許容流出量を下回るかを評価指標として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

現時点でペレットに対する要求性能や仕様は定まっていない。ペレット充填オプションの評価 指標を設定するには、濡れた孔壁の隙間への施工時の充填性にも留意しつつ、ペレットの仕様や 施工方法等と併せて検討を進める必要がある。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そのものの流出が抑制される 可能性もあることから、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。

③ 目標、課題の設定及び方策

(a) 隙間未充填オプション

隙間未充填オプションの検討では、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)との関連の把握及び評価指標の提示を目標とする。閉塞条件の定量的な把握及びその 間の緩衝材流出量の定量的な評価方法(流出量評価モデル)の構築を目的とした室内試験を実施 する。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、実環境での流出 挙動の現象把握に係る原位置試験結果(自然湧水及び強制注水:令和2年までに4か月程度の長 期試験を実施済)(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,2021)を 踏まえて、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・モデル化を課題 とした室内試験を実施する。

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では、流出量評価の基盤となる情報を整備し、環境条件に応じた 流出量の定量的な評価値と許容流出量の比較を可能とする評価手法の提示を目標とする。流出濃 度を低く維持できる湧水量の範囲の把握やモデル化に資する定量情報の取得を目的とした室内試 験に取り組む。また、実環境(原位置)において、流出濃度を比較的低く維持する現象の継続性 の確認が必要であることから、原位置試験にも取り組む。その際、施工オプションとしての成立 性の観点から、平成 31 年度の原位置試験(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)で課題となった湧水量の増加現象に関する原因調査のために、緩衝材の浸 潤に伴う膨潤圧の影響把握のための原位置試験も実施する。

(c) ペレット充填オプション

ペレット充填オプションの検討では、設定するペレットの仕様に基づき、その施工性及び流出 挙動の把握、流出に関する評価指標の策定を最終的な目標とする。そのためには、まず、湧水環 境下(孔壁が湿潤している状態)において均質な充填施工が可能なペレットの仕様の設定や施工 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に関する試験計画を策定する。

④ 実施スケジュール(令和2から4年度)

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から4年度の3年間の試験スケジュ

ールを表 2.6-3 に示す。

	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	[室内試験] ・流出挙動の影響要 因現象把握試験 [原位置試験] ・実環境での流出挙 動把握試験(長期・ 強制注水・膨出)	[室内試験] ●閉塞条件の確認試験 (+流出挙動の現象把握試験)	[室内試験] ●閉塞条件の確認試験 (+流出挙動の現象把握試験)
②ケイ砂充填 オプション	[室内試験] ・流出挙動の影響要 因・現象把握試験	 「室内試験」 ●緩衝材流出量の予測手法整備に向けた試験 (+流出挙動の現象把握試験) 「原位置試験」 ●湧水量の増加原因の確認試験 ●実環境での流出挙動把握試験 – (長期・膨出) 	 「室内試験」 ●緩衝材流出量の予測手法整備に向けた試験(+流出挙動の現象把握試験) 「原位置試験」 ●実環境での流出挙動 把握試験(長期・膨出)
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)

表 2.6-3 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)

⑤ 令和3年度の実施内容

令和3年度は、隙間未充填オプション及びケイ砂充填オプションについて、室内試験により流 出現象を確認しつつ、定量的なデータを取得して評価方法を検討し、表2.6-2に示した評価指標 やその設定の考え方の適切性について考察した。さらにケイ砂充填オプションについて、原位置 試験により、湧水量増加の原因把握のための試験・分析を行うとともに、長期(5か月程度)の流 出試験を開始した(令和4年に継続して実施する予定)。ペレット充填オプションは、湧水のあ る(湿潤)環境での隙間へのペレットの充填工法に関する課題の整理や対策及び流出に関する判 断指標案をそれぞれ検討し今後の課題の抽出をした。

2) 隙間未充填オプション

① 室内流出試験による閉塞条件と流出量評価に関する検討

先に示した施工オプション毎の技術選択の判断指標(水位差、湧水量、水質など)及びその適 用範囲等も含めた評価手法の提示に向け、緩衝材と岩盤との隙間が閉塞し、流出が止まる条件及 びその間の緩衝材の流出挙動の定量的な把握を目的とした流出試験を実施した。試験では、隙間 に試験水を送水することにより、緩衝材は流出と同時に浸潤に伴い膨潤し、条件によっては、隙 間が閉塞し、流出が止まる。ここでは、隙間未充填の施工オプションの判断指標として提案した 隙間閉塞条件となる水頭差と湧水量(流量)をパラメータとし、隙間閉塞し流出が止まる条件を 明らかにするとともに、隙間充填前後における流出挙動に着目した。今回の試験方法は学会等に よって標準化されたものではなく、また、小規模な要素試験装置であるがために試験装置や試料 の設定が流出という挙動に大きく影響を及ぼす可能性があることから、信頼性の高いデータを取 得するためには、必要に応じた試験方法の改善や同条件で複数回のデータ取得が望まれる。本年 度は、全ての試験ケースについて1回データを取得し、結果に基づき、以降必要に応じ試験方法 の改善を図りつつ、データの拡充を実施していくこととした。また、隙間内の緩衝材の膨潤挙動 を単純化するため、試験水の流れが横方向で緩衝材への浸潤及び膨潤が縦方向となる形態で実施 した。さらに、水質による影響を取り除くため、試験水としてイオン交換水を用いた。

隙間充填前後の流出挙動に関しては、これまでの原位置試験で隙間が充填される前後で流出量 が変化する傾向を確認している(図 2.6-3)(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;2021)。図 2.6-3に示すように、ブロック界面が孔壁に到達した時点を 変曲点とし、変曲点より前における緩衝材の膨潤過程(T₁)及び変曲点より後の水みち形成後の過 程(T₂)に分けて流出挙動の分析を試み、これまでに提案されている強制注水試験に基づくべき乗 則のモデル(過度に過大評価する可能性のあるモデル)の適正化に向けて、より実環境に近い条 件(定圧条件)による室内試験結果を踏まえて分析・考察した。



図 2.6-3 原位置試験における緩衝材の流出挙動(平成 31 年度及び令和2年度)

(a) 試験方法

図 2.6-4 及び図 2.6-5 に水頭差制御流出試験の装置概要及び試験状況をそれぞれ示す。本事業 では、山形県産の Na 型ベントナイト (クニゲル V1) に対して SiO₂割合が高いマレーシア産の ケイ砂 3 号とオーストラリア産のケイ砂 5 号を 7:1.5:1.5 の割合で混合したケイ砂 30 wt%混合ベ ントナイトを使用した。水頭差は水柱で固定し、試験中は各スタンドパイプからオーバーフロー するように給水を行った。初期流量はニードルバルブを使用して制御し、供試体の膨潤により流 路が閉塞に向かうことによって変化する流量は TOF 流量計で計測した。所定の時間間隔で採水 した排水の吸光度を計測し、事前に取得した供試体濃度(ベントナイト濃度)との相関関係及び 排水流量から累積流出量を算出した。本試験では、湧水の無い状態が 24 時間続いた場合に系が 閉塞したと判断して試験を終了した。また、閉塞が確認できない場合には、流量が減少して定常 に至った段階で閉塞しないと判断して試験を終了した。表 2.6-4 に水頭差制御流出試験のケース を示す。表中の凡例の HOQ Δ は水頭差O m (0.5 は 05 と表す。)、流量 Δ mL/min であるこ とを示している。初期流量には、幌延における原位置流出試験の試験規模(実規模の 1/4)と実際の 処分場規模(実規模)のときの換算流量も示している。なお、H05Q10 と H2Q10 のケースに関 しては、試験中に流出物が得られなかったため流出挙動(ベントナイト濃度の経時変化)の再現 性確認のための試験を実施した。このケースは H05Q10-2 と H2Q10-2 と記す。







図 2.6-5 水頭差制御流出試験の試験状況

ケース名	隙間 (mm)	多孔質 板の透 水係数 (m/s)	初期乾燥 密度 (Mg/m ³)	初期含 水比 (%)	水頭差 (m)	初期流量 (mL/min) (カッコ内は原位置試験(実規模 1/4) と実規模への換算流量)	試験順	備考
H05Q1					0.5		1	
H1Q1					1	1 (90、680)	3	
H2Q1					2		1	 試験期間は最長 2 ヶ
H05Q10					0.5		5	月 ・ 初期給水流量けっ〜
H05Q10-2				10	0.5		6	ドルバルブで制御
H1Q10	20	10^{-5}	1.9	(飽和度	1	10 (880, 6850)	1	 ・ 24 時間、湧水が無 い場合に系が閉塞し
H2Q10				64 %)	2		5	たと判断
H2Q10-2					2		6	 閉塞あるいは流量が 定営に至った時点で
H05Q20					0.5		2	試験を終了
H1Q20					1	20 (1760、13700)	4	
H2Q20					2		2	

表 2.6-4 水頭差制御流出試験のケース

(b) 試験結果

図 2.6-6 に、隙間が物理的に閉塞して流出が止まったケース(H2Q1)と閉塞せずに流出が継続 したケース(H1Q10)の試験終了時(解体直前)の状況を示す。隙間が閉塞して流出が止まった ケース(H2Q1)に対して、閉塞せずに流出が止まらなかったケース(H1Q10)では、膨潤部の上 面(セルと膨潤した緩衝材の界面)にケイ砂が集積しているのが目視観察できた。他のケース (H05Q20、H1Q1、H2Q20)でも同様に閉塞しなかったケースや閉塞するまでに時間を要したケ ースでは膨潤部の上面(セルと膨潤した緩衝材の界面)にケイ砂が集積していた。これは、その 部分のベントナイトが流出しケイ砂のみの状態になり、膨潤性がなくなったため隙間が埋まらず、 流出が止まらなかったためであることが言える。詳細については試験後の供試体の解体結果とし て後述する。また、ほとんどのケースで膨潤挙動が供試体上面の中央部分の膨潤が先行する凸型 で膨潤しているのに対して、H1Q20、H05Q10、H2Q10は上流と下流の両端面の膨潤が先行する 凹型で膨潤していることが分かった(図 2.6-7)。凹型で膨潤した原因としては、後述の解体結果 から、供試体とセルの隙間に水が選択的に浸潤したことなどが考えられる。また、後に詳述する ように、H1Q20は閉塞が非常に速かったケースであり、他の2ケースは流出現象が他のケースと は異なることから、膨潤して下流側が先行してシールされることで閉塞や流出現象に影響を及ぼ した可能性がある。したがって、今後、試験水の流れが横方向で緩衝材への浸潤及び膨潤が縦方 向となる形態で試験を実施する際には、このような現象が起きうることに留意する必要がある。



ケイ砂の集積



(b) 凹型例(H2Q10の例) 図 2.6-7 ケースによる膨潤挙動の相違

図 2.6-8 に排水流量及び膨潤圧の経時変化を示す。各試験ケースにおいて、試験開始から排水 流量が低下していることが分かる。膨潤圧の発出時間(土圧計が膨潤圧を感知した時間)までに 流量が減少するのは、隙間の断面積が膨潤によって減少するためだと考えられる。その減少割合 は、流量が小さいケースで大きく、流量が大きいケースでは小さい傾向がある。また、膨潤圧が 発揮されるタイミングで流量の低下割合が変化するケースと変化しないケースが存在することが 分かる。これは、土圧計が設置されているのが上端面の中央部であり、閉塞が土圧計の位置以外 の場所で発生すると流量の経時変化と膨潤圧の経時変化が必ずしも一致しない場合があるためで ある。さらに、隙間にベントナイトが存在することが想定される膨潤圧の発出後は、流量の減少 割合(勾配)は発出前よりも小さくなるものの、条件によっては止水するケースがあることが分 かる。閉塞時の膨潤圧は 100 kPa から 150 kPa であった。これは 10 m から 15 m 水頭に相当し、 隙間が閉塞する場合、水頭差に比べて 4 から 30 倍の膨潤圧が発揮される必要があるという結果 となった。H2Q10 の再現性確認試験の結果において、膨潤圧が負値を示しているが、これは膨潤 によって狭隘になった水みちに水が流れることでベルヌーイ効果によって土圧計に引張力が作用 した可能性もあるが、土圧計を含む試験装置等や試料の設定に伴う他の試験ケースとの不整合の 可能性も否定出来ない。H05Q10 の再現性確認においても流量の経時変化の再現性は概ね確認で きたが、膨潤圧の発生時期が異なっており、水みちが狭隘になった後の隙間の充填に至る状態に おいてはバラつきが大きい可能性がある。これらのことから、多様なパラメータに依存する流出 挙動に対して要素試験スケールの試験では試験装置や試料にシビアな設定が要求されることから、 信頼性向上のためには必要に応じた試験方法の改善や同条件で複数回のデータ取得が望まれる。

図 2.6-9 には、排水中のベントナイト濃度と流出流量と濃度から算出した累積流出量の経時変 化を示す。図から、各ケースとも、試験開始から5から10日目で排水中のベントナイト濃度のピ ークがあり、その後は低いベントナイト濃度が継続している。さらに、全てのケースでベントナ イト濃度のピーク以降は低い値で推移していることが分かる。このベントナイト濃度のピーク位 置と膨潤圧を感知した時点(ブロック界面が孔壁に到達するタイミング=変曲点)は、多少の前 後があるものの概ね一致している。このことから、緩衝材が自由膨潤中の表面が低乾燥密度の状 態で流速が増加すると排水中のベントナイト濃度が高まり、緩衝材が膨潤してセルの上面に到達 し(膨潤圧を感知した時点)、膨潤による圧密で乾燥密度の増加や水みちの形成による水と緩衝 材の接触面積の低下などにより排水中のベントナイト濃度が低下するものと考えられる。累積流 出量は、排水中のベントナイト濃度のピークが比較的高いケースよりも、流量が大きく、閉塞ま での時間が長いケースにおいて大きくなる傾向を示している。再現性を確認した H05Q10 と H2Q10 では、先行して実施したケースでは試験の前半では排水中のベントナイトを検出できず、 後半にベントナイト濃度が増加して H2Q10 はそのまま閉塞したが、H05Q10 は最後まで完全に 閉塞しなかった。一方、再現性を確認したケースでは、他のケースと同様に、前半に排水中のベ ントナイト濃度のピークがあり、その後は排水中にベントナイトはほとんど検出されなかった。 このため、前半に実施したケースにおいて排水中のベントナイトを低下させる要因があったもの と考えられる。その要因の一つとして、図 2.6-7 に示したように膨潤挙動が凹型であったことが 挙げられる。供試体は全てのケースで同様に、セル内で締め固めて作製している。その一方で、 膨潤挙動などの違いで試験結果に大きな違いが発生する可能性があることが窺える。このため、 同条件での再現性の確認のための試験を実施する必要性が示唆される。

図 2.6-10 に参考までに、前フェイズで試みた整理方法であるベントナイトの総流出量と総流量 の変化を示す。図中には、変曲点(土圧計が膨潤圧を感知した総流量の前後の計測点)を青丸(〇) で囲んでいる。同図から、全てのケースで両対数平面において同一の勾配の直線関係を示した後、 流出量が定常に至っている。この直線は、既往の研究で得られている直線(べき乗モデル)より も大きめの勾配であることから、この期間は前述した比較的短期である T₁期間内における流出量 及び流量の双方が多い期間である。反面、変曲点以降の T₂の期間は、勾配はより小さなものとな っている。また、本試験期間では完全に閉塞しなかった H1Q10、H05Q20、H2Q20 は既往の緩 衝材の総流出量と総流量の関係に沿って変化していることが分かる。その他のケースは、既往の 研究のベントナイトブロックの総流出量と総流量の関係と比較して、H2Q1 と H05Q1 で係数が 10 倍大きく、H1Q20 で係数が約 1/50 倍という結果となった。以上を総括すると、緩衝材の総流 出量と総流量の関係は、土圧計が膨潤圧を感知した総流量の前後(図中の〇)付近でその勾配が 変化する。その裏付けとして図 2.6-10 に整理したように、隙間をベントナイトが充填する時点 (変曲点)とその前後(T₁ と T₂)で排水中のベントナイト濃度が変化することを室内試験より確 認している。今後、隙間未充填オプションの流出量の評価手法を検討していくにあたり、これま での流量制御流出試験によるべき乗側の式と比較すると、**T**1の流出挙動は、緩衝材の流出濃度が 高く、大きな傾きを持つ傾向があること、**T**2の流出挙動は、水頭差制御流出試験では、傾きが小 さい傾向があることから、これらの点に着目して分析と整理を進める必要がある。



2 - 174





図 2.6-10 ベントナイト流出量(乾燥質量)と総流量の関係

表 2.6-5 に水頭差制御流出試験の閉塞結果を示す。表には閉塞に要した日数、総流出量及びその時の膨潤圧も併せて示す。また、図 2.6-11 には、閉塞日数と膨潤圧を感知するのに要する日数が反び閉塞時の膨潤圧の関係を示す。図から、膨潤圧を感知するのに要する日数が長いと閉塞しないことが分かる。膨潤圧の経時変化は試験時間に対して増加傾向であるため、閉塞日数が大きいほど閉塞時の膨潤圧は大きくなるが、膨潤圧が大きくても閉塞していない。このことから、閉塞の条件として、水みちにケイ砂の集積がなければ通水初期に膨潤部が早期に水みちをシールすることが分かる。この際、膨潤圧は、最低でも通水圧の4倍程度で良いことが分かる。逆に、水みちのシールまでに時間を要したケースは、水みちにケイ砂が集積し、膨潤圧が増加してもケイ砂により完全に閉塞されない傾向があるものと考えられる。なお、H05Q10-2、H2Q10-2 は、流出挙動(ベントナイト濃度の経時変化)の再現性を確認する試験のため、閉塞の確認は実施しなかった。

ケース	水頭美	初期流量	閉寒	閉塞に	閉塞時の	閉塞直前	閉塞直前の透	閉塞時の	総流
<i>A</i>	八頭庄		山田	要した	総流量	の流速	水係数	膨潤圧	出量
泊	(m)	(mL/min)	1/1/2	日数	(L)	(mL/min)	(mL/min)	(kPa)	(g)
H05Q1	0.5		0	40.9	21.3	1.4×10^{-5}	2.38×10^{-10}	131.8	4.703
H1Q1	1	1	0	7.3	5.04	$1.4 imes 10^{\cdot 1}$	$1.14 imes10^{-6}$	54.4	0.148
H2Q1	2		0	26.9	3.71	1.8×10^{-3}	$7.50\times10^{\text{-}7}$	104.2	2.194
H05Q10	0.5		\bigtriangleup	50.0	153.73	$9.3 imes10^{\cdot1}$	$1.54\times10^{\text{-}5}$	2.79	139.8
H1Q10	1	10	\bigtriangleup	79.0	276.4	2.2×10^{-2}	1.81×10^{-7}	139.8	1.634
H2Q10	2		0	34.1	273.3	$2.2 imes 10^{-1}$	$9.31 \times 10^{\text{-7}}$	70.3	0.096
H05Q20	0.5		\bigtriangleup	58.8	681.9	$1.2 imes10^{0}$	$5.18 imes10^{-6}$	129.6	30.311
H1Q20	1	20	0	5.5	110.8	$7.0 imes 10^{\cdot 4}$	$5.83 imes10^{-9}$	38.6	0.086
H2Q20	2		×	58.8	1230.5	$5.7 imes10^{ m o}$	$2.38 \times 10^{\text{-}5}$	149.6	12.938

表 2.6-5 水頭差制御流出試験の結果

○:閉塞、△:概ね閉塞、×閉塞せず



図 2.6-11 閉塞日数と膨潤圧を感知するまでに要した日数及び閉塞時の膨潤圧との関係

図 2.6-12 に、試験後の供試体の解体結果を示す。また、表 2.6-6 に、供試体上端面のケイ砂分 布状況及び観察結果を示す。閉塞が確認されたケースではベントナイト層が存在しているが、閉 塞されなかったケースでは水みちの痕跡にケイ砂が堆積した状態になっている。解体によって得 られた乾燥密度と含水比の結果から、水みち近傍では含水比が高く、乾燥密度が低いことが分か った。目視では乾燥していた最下部でも含水比が 1 から 2 %程度増加し、乾燥密度が 0.06 から 0.09 Mg/m³ 程度低下していることから供試体内にも水が浸透し供試体全体が膨潤していること が分かった。



(a) H05Q1

(b)H1Q1



(d) H05Q10

砂堆積部

41

(g) H05Q10-2

.

(e) H1Q10



(h) H2Q10-2



(j) H1Q20 図 2.6-12 解体結果

ケーマタ	閉塞	塞 ケイ砂の分布状況※		状況※	胡妶灶里			
クーハ石	八 ⁷ 状況 上流 中流 下流		下流	戰奈和不				
H05Q1	C	×	×	C	 ・ベントナイトが流出した後に堆積したケイ砂が下流に流されたものと推察。 した側が生に閉塞してるの後に中冻側が閉塞したすのと推察。 			
mooqi	0			0	・上流側が先に闭塞してての後に中流側が闭塞したものと推禁。			
H1Q1	0	×	×	0	 ・ペントナイトが流出した後に堆積したケイ砂かト流に流されたものと推察。 ・上流側が先に閉塞してその後に中流側が閉塞したものと推察。 			
H2Q1	0	0	0	×	 ・閉塞部の下流側で水みちの痕跡にケイ砂が堆積した状態筋状になっており、 上流から下流まで水みちが一旦形成された後に膨潤によって閉塞されたものと推察。 			
H05Q10	\bigtriangleup	×	×	\bigtriangleup	 ・上流側にはケイ砂は見られず、下流側のメッシュ近傍にケイ砂が僅かに堆積 している。 			
H05Q10-2		0	0	0	・閉塞前に解体したところ、全体的にケイ砂が多かった。			
H1Q10	\bigtriangleup	0	0	0	・上流側よりも下流側のケイ砂は堆積層厚が厚い。			
H2Q10	0	×	×	×	・全体的にほとんどケイ砂は確認できなかった。			
H2Q10-2	_	0	0	0	・閉塞前に解体したところ、全体的にケイ砂が多かった。			
H05Q20	\bigtriangleup	0	0	0	・上流側よりも下流側のケイ砂の堆積層厚が厚い。			
H1Q20	0	×	×	×	・全体的にほとんどケイ砂は確認できなかった。			
H2Q20	×	0	0	0	・上流側よりも下流側のケイ砂の堆積層厚が厚い。			

表 2.6-6 供試体上端面のケイ砂分布状況及び観察結果

※:×:少ない、観察できない、○多い

以上の流出試験の結果より、水位差と流量との閉塞条件の関係について表 2.6-7 に示す。流量 が 1 mL/min の場合は、いずれの水頭差においても閉塞した(1箇所でもケイ砂の集積がなけれ ば閉塞)。流量が 10 及び 20 mL/min は、閉塞した条件はあるものの、必ずしも水位差が小さい 程閉塞しやすくはなく、水みち内のケイ砂の集積による閉塞への影響があり、閉塞条件の閾値は 明確ではない。ケイ砂の集積は、隙間の向きが水平であるために起こりやすい可能性がある。隙 間が垂直方向の処分孔では、ケイ砂は隙間の下部へ堆積することが考えられるため、ケイ砂の集 積は起こりにくく閉塞しやすい可能性がある。また、閉塞条件への室内流出試験と実規模の隙間 のスケールの違いは、試験結果によれば 1 箇所でも閉塞すれば地下水の流れは停止することか ら、影響は少ないと考えられる。今後、隙間未充填オプションに関する閉塞条件の評価方法の検 討にあたっては、垂直方向の隙間における閉塞へのケイ砂の影響について再現性(ばらつきの影 響)も踏まえた把握、加えて、原位置試験の結果との整合性(スケールの影響)の確認を行い、 水位差や流量等の判断指標と閉塞条件の関連について検討を進めていく必要がある。

			水	、 位 差 (n	換算流量(ml/min)			
		0.5	1.0 2.0		原位置試験	実規模		
	閉寒狀況※1		0	0	0	(天观候 1/4/		
流	1	ケイ砂の集積 ^{*2}	[×][×][O]	[×][×][O]	[0][0][×]	90	680	
量	量	閉塞状況	\bigtriangleup	\bigtriangleup	0	000	0.050	
$\widehat{\mathrm{mL}}$ ¹⁰	10	ケイ砂の集積	$[\times][\times][\triangle]$	[0][0][0]	$[\times][\times][\times]$	880	6,850	
/min	20	閉塞状況	\bigtriangleup	0	×	1 700	19.700	
)	20	ケイ砂の集積	[0][0][0]	$[\times][\times][\times]$	[0][0][0]	1,760	13,700	

表 2.6-7 隙間未充填オプションの流出試験結果における水位差、流量と閉塞条件の関係

※1:○:閉塞、△:閉塞せず(少量の排水あり流出なし、2か月間で試験終了)、×:閉塞せず (排水減少2か月間で試験終了)、※2:[]内は、左から順に上流、中流及び下流に分割して観察し た結果、×:水みち内にケイ砂の集積少ない、なし、○:水みち内にケイ砂の集積が多い

X線CTによる隙間充填過程の分析

これまでの検討で、緩衝材の流出現象には、緩衝材と岩盤の隙間を緩衝材が膨潤することによって充填する過程で湧水に接する緩衝材の密度が大きく影響することが分かっている。水みちの形成及び流出の有無は、緩衝材の膨潤過程における緩衝材密度と隙間を流れる湧水のせん断力との関係に左右される。閉塞条件の解釈を補完する情報を得るために、ここではまず、緩衝材の膨 潤過程における緩衝材密度を把握することとし、X線CT装置を用いた膨潤挙動確認試験を実施した。なお、本検討から得た緩衝材密度のデータは、後述する「(2)緩衝材の飽和プロセスを対象とした解析的な評価手法の検討」の検証用データとしても活用する。

本試験は静的な条件での膨潤挙動を把握するものである。前述した通水試験では隙間膨潤(密 度分布)過程を試験中に測かることができないため、補完的にこの静的な試験で隙間膨潤(密度 分布)の時間変化の挙動を把握することを目的とする。膨潤表面(緩衝材ブロック界面)から緩 衝材が持ち去られる通水条件下での流出過程では、静的な試験結果をより長時間かけて追従して いくと想定される。

令和3年度のX線CTによる膨潤過程の測定は、密度の測定手法として妥当な結果が得られる かどうかを確認するとともに、静的膨潤のプロセスを把握し、流出メカニズムを考える上で考慮 すべきベントナイトの乾燥密度の範囲を得ることを目的とした。

(a) 試験方法

図 2.6-13 に試験装置概要及び試験状況示す。試験装置には、X 線 CT 装置で膨潤挙動中の供試体(ケイ砂 30 wt%混合ベントナイト)の密度分布を確認でき、隙間の大きさを制御できる樹脂製のシリンジを用いた。注水はシリンジの先端部から行い、供試体の浸潤に伴い間隙から排出される空気は、液相中に気泡が発生する都度、注水によって除去した。また、シリンジ内の体積が変化しないように塩ビ製の拘束板で拘束した(図 2.6-13b))。

供試体の乾燥密度及び湿潤密度の計測には、X線 CT 装置(島津製作所製 inspeXio-SMX-225CTS)を使用した。計測時の設定を表 2.6-8 に示す。計測の設定は予察試験と検量線計測時に調整した条件をもとに決定した。図 2.6-14 に示すように、シリンジは、X線 CT 計測時は治具から取り外すが、計測後は再度拘束治具に設置して注水後 28 日目まで計測を行った。

密度の計測は飽和した状態を仮定しており、検量線は飽和した状態で作成したため不飽和な部 分の密度は計測対象とはしていない。そのため、飽和に至っていない部分の密度の精度は低いが、 流出に係る膨潤の先端部は飽和していると仮定して X線 CT の計測値を採用する。密度の値を得 るために、計測後に密度に応じたグレースケール画像より特定の領域の平均グレースケールバリ ュー値(以下、[GV 値]という)をソフトウェアで取得して、検量線によって乾燥密度分布に変換 した。ベントナイト部分とケイ砂部分は明確に区別して観察可能であり、検量線はベントナイト 成分のみで取得していることから、ベントナイト部分乾燥密度の計測値とした。

	A 2.00 A		
管電圧	200 kV	ビュー数	600
管電流	70 μΑ	アベレージ数	2×1
Voxel Size	0.0246 m/voxel	画像サイズ	$2,048 \times 2,048$ pixcel

表 2.6-8 X線CT計測の設定



a) 試験器 b) 試験器を拘束した状態 図 2.6-13 膨潤挙動確認試験の試験器及び試験状況



図 2.6-14 測定時の状態

試験ケースを表 2.6-9 に示す。ケース名は DW:イオン交換水、SW:0.5 M NaCl 水溶液を表し、 それに続く数字はサイズを表す(例えば、DW201019 は浸潤液がイオン交換水、供試体厚さが 20 mm、隙間幅が 10 mm、供試体乾燥密度が 1.9 Mg/m³のケースを表す)。計測間隔は試験開始直 前、隙間を半分閉塞、隙間閉塞直前、閉塞後十分に時間経過した後とし、予察試験から得られた 膨潤量 d(mm)と膨潤時間 T(時間)の関係、 $d = 1.625\sqrt{T}$ を用いて、測定の時間の目安を示した。 ベントナイトの初期飽和度は 40%と設定したため、初期含水比は乾燥密度 1.9 Mg/m³の場合には 6.2%、1.6 Mg/m³の場合には 10%とした。また、隙間にケイ砂を充填したケースについても表 2.6-8 に示しているが、結果は、3)ケイ砂充填オプションの項に示す。

なお、NaCl 水溶液のケースは、試験中に目視観察したところ給水直後の膨潤がイオン交換水の ケースより早く、予察試験から得られた膨潤量と膨潤時間の関係が適用できなかった。これは、 NaCl 水溶液のケースは浸潤と膨潤の速さがイオン交換水とは異なり、浸潤が速いため膨潤に寄 与するベントナイト量が多く、膨潤が速かったことによると考えられる。そのため、NaCl 水溶液 ケースの計測のタイミングは試験中に目視観察により膨潤が隙間の約半分まで達した時点とした。 また、隙間が閉塞後十分に時間経過した後の計測時間は、試験開始から 28 日後とした。

ケース名	液種	供試体 高さ (mm)	隙間幅	乾燥密度	X 線 CT による計測間隔 ¹⁾				
			(mm)	(Mg/m ³)	1	2 (膨潤過程) ²⁾	3 (閉塞直後)	4 (閉塞後)	
DW200519			5	1.0		0,1H,2H,4H,8H	48H		
DW201019		20	10	1.9		8H	48H		
DW201016	イオン		10	$1.6^{1)}$		8H	48H	l	
DW400519	交換水		5	1.9	給水	2H	8H		
DW401019		40	10			8H	48H	00D	
DW401016			10	1.6	直前	8H	48H	28D	
SW201019	NaCl	20	10	1.9	1111	3.67H	48H		
SW401019	0.5M	40	10	1.9		$2.67 \mathrm{H}$	48H		
DW20SS16 ^{**}	イオン 交換水	20	ケイ砂 充填	1.6		8H	48H		

表 2.6-9 X線 CT を用いた膨潤挙動の確認試験ケース一覧

¹⁾ 2 以降は水を入れてからの時間を示す。(H:時間、D:日)
 ²⁾ 隙間の半分程度膨潤した時点を目安とした(膨潤量の目視観察によって対応)
 ※:ケイ砂充填のケース、次項にて結果を示す。

(b) 検量線の取得

X線 CT 装置を用いて膨潤過程における緩衝材の密度を計測するためには、X線 CT 装置から 得られる GV 値と供試体の乾燥密度や湿潤密度との相関関係(検量線)を事前に取得する必要が ある。そこで、本試験と同じシリンジに乾燥密度や湿潤密度が既知な均質な供試体(ベントナイ トスラリー)を封入し、検量線を取得した。供試体は空隙を完全に除去できていない場合もある ため、X線 CT 測定によって空隙体積を計測し、密度の算出の際に補正した。また、ブランク試 料は、シリンジに水を入れたものとした。

図 2.6-15 に検量線を示す。図には、乾燥密度、湿潤密度、両方と GV 値との関係を示した。ど ちらも線形関係であったが、乾燥密度と湿潤密度で一致せず、検量線は含水比(飽和度)の影響 を受けること明らかである。本試験では、膨潤領域の乾燥密度分布を取得することを目的として いるため、膨潤領域の飽和度は 100 %であると仮定して、膨潤領域にのみ検量線を適用して乾燥 密度分布を算出することとした。また、NaCl 水溶液を湿潤させた場合もイオン交換水の場合と飽 和密度は大きく異ならず、溶液の違いが GV 値に及ぼす影響は小さいと考えられるため、NaCl 水 溶液のケースに関しても、この検量線を適用した。



図 2.6-15 GV 値による密度の検量線

(c) 試験結果

X線 CT 装置による測定結果の例として、ケース DW200519(供試体高さ:20 mm、隙間幅: 5 mm、乾燥密度:1.9 Mg/m³)の画像を図 2.6-16 に示す。図 2.6-16 には、注水 1 時間後のグレ ースケール画像を示す。ベントナイト供試体中のベントナイト、ケイ砂の粒子、隙間に充填され た水及び空隙がはっきりと区別できる画像が得られた。図 2.6-17 には、グレースケール画像の GV 値と乾燥密度の関係(検量線)によって得られた乾燥密度の分布を経過時間毎に示す。注水後 2 から 4 時間後の間で隙間が閉塞した。途中、間隙の空気が排出されたために液相中に気泡が見 られたが、8 時間後には気泡はなくなっている。隙間部分に液相を注入したことにより、液相の部 分は緑色となり、供試体の界面の部分は黄色を呈しており、時間が経つに伴い、黄色の範囲が広 がっていく様子が見て取れるが、界面は明確には見えなかった。4 時間後は目視では液相部分が 残っていたが、図 2.6-17 では液相と膨潤した固相の境目は明確ではない。図 2.6-16 でもポーラ スストーンの界面が明確にはなっておらず、シリンジの外側にはグレーの部分が見られることか ら、この測定ではハローが見られ、計測値に影響を与えていると考えられる。

図 2.6-18 には、経時変化を示す。グラフの右に対象となる状態を添付した。密度は、供試体が ケイ砂を含んでいるため、バラつきが大きいため、全体の約半分(画像を示した部分)の平均値 を用いて示した。隙間部分は、10 mm から 15 mm の範囲である。注水前のグラフでは、隙間の 上下に密度値があり、ベントナイトが膨潤した密度の低い部分があるように見えるが、試験前の 状態であるため隙間は水のみである状態であるため、これは上記のグレースケール画像にも見ら れたハローの影響であると考えられる。よって、その後の時間経過毎のデータにもハローの影響 があると考えられる。それを考慮して隙間の密度分布を見ると、注水後 4 時間の最も低い密度が 膨潤の先端部分の密度と捉えることができ、その値は、0.45 Mg/m³であった。


(a)水平断面 (b) 垂直断面 図 2.6-16 X線CTのグレースケール画像(DW200519の注水1時間後)



(a) 給水直前



(e) 4 時間後



(f) 8 時間後











(g) 48 時間後 図 2.6-17 X線CTによる乾燥密度分布画像(DW200519)

(h) 28 日後



図 2.6-18 DW200519の乾燥密度変化の推移

この他のケースについては、給水直前、膨潤途中、閉塞後、28 日後の4回の計測を行った。図 2.6-19 には、膨潤途中の注水8時間後の各試験の乾燥密度分布を示す。上述のDW200519と同 様の膨潤状態が見られた。隙間が10mmのケースでは、途中に気泡の発生が見られた。また、隙 間が広いことにより膨潤範囲が大きく、密度低下の範囲が広いことがわかる。

下段の NaCl 水溶液のケースは、目視観察で隙間の半分以上まで膨潤が達したと確認できた 2.67 時間と 3.67 時間経過時点の結果である。今回の測定によって、NaCl 水溶液のケースの方が イオン交換水のケースに比べて膨潤が早く、隙間が充填されるのが早いことが観測された。密度 分布でも NaCl 水溶液のケースの方が深部まで密度低下していることから、浸潤が速く、より大 きな領域で膨潤しているために隙間を閉塞するのが速かったことが推測される。

28日後の各ケースの乾燥密度分布では、全てのケースで密度の均質化に向けた変化が落ち着き つつあるが、隙間領域の乾燥密度はまだ小さいことが読み取れた(過去の試験から得られた知見 では、応力均衡で変化が落ち着き、密度差が残存する可能性が示唆されている)。イオン交換水 のケースでは、膨潤に寄与している領域が小さいため、膨潤後の乾燥密度分布に対して、供試体 高さの影響が小さく、隙間の大きさの影響が大きかった。それに対し、NaCl 水溶液のケースでは、 より大きな領域で膨潤しているために膨潤後の乾燥密度分布が、供試体高さが大きい SW401019 の方が SW201019 よりも均質であることが読み取れた。

今回の試験は、静水状態での試験であったが、膨潤表面のおおよその密度を計測することがで きた。今後、流水状態における流出時の膨潤表面あるいは水みちの表面密度を明らかにできる X 線 CT 測定ができることが期待される。



図 2.6-19 X線 CT による乾燥密度分布の比較(8時間後)

3) ケイ砂充填オプション

① 室内流出試験による閉塞条件と流出量評価に関する検討

これまでの検討により、緩衝材と岩盤との隙間にケイ砂を充填した場合、隙間未充填の場合と 比べて緩衝材の流出量が少なく、流量が大きくなってもベントナイト流出濃度が低く維持される という結果が得られている。ここでは、緩衝材と岩盤との隙間にケイ砂を充填したときのベント ナイト流出濃度と流量の関係を検討するため、令和3年度は、これまでの流出試験と同様な一定 流量の流量制御流出試験と、原位置での湧水環境を模擬した水位差一定の水頭差制御流出試験を 行い、両者の挙動を比較しつつ流量をパラメータとした緩衝材の流出量評価に向けた分析を実施 した。

(a) 試験方法

図 2.6-20 に試験系の概要図を示す。また、表 2.6-10 に水頭差と流量をパラメータとした流出 試験ケースの一覧を示す。



図 2.6-20 流出試験の装置概要

表 2.6-10 水頭差と流量をパラメータとした流出試験ケース

ケース名	隙間 (mm)	多孔質 板の透 水係数 (m/s)	供試体初期 乾燥密度 (Mg/m ³)	供試体初期 含水比(%)	水頭差 (m)	初期流量 (mL/min)	備考	
H1Q10S					1	10	 ・ 試験期間は最長 2 ヶ月 ・ 流量はニードルバルブで制御 ・ 24 時間、湧水が無い場合に系が 	
FC10-50	20 ケイ砂 充填	10.2	1.9	10 (飽和度 64%)	流出濃度 段階的 10→20→;	が増加するまで に流量を増加 30→40→50→60	 24 時間、(あへが無い場合に示が 閉塞したと判断 閉塞あるいは流量が定常に至っ た時点で試験を終了 流出試験の流量を原位置試験 (実規模 1/4 スケール)に同一流 速になるように換算した流量 (L/min)は、0.88→1.76→2.64→ 3.52→4.4→5.28、同じく実規模 は 6.85→13.7→20.55→28.4→ 34.25→41.1 	

(b) 試験結果

図 2.6-21 に流出試験の各段階の定点撮影状況を示す。試験開始から解体直前まで水頭差や流量 の違いで膨潤状況の相違は見られなかった。試験中、充填したケイ砂内にベントナイトが膨潤し 浸入している。水頭差制御のケースでは、試験中に充填したケイ砂内にベントナイトが膨潤浸入 している状況が分かる。特に下流部の膨潤浸入が顕著である。一方、流量制御のケースでは、試 験開始から 40 mL/min の流速までは水頭差制御のケースと大きな差異は見られなかったが、40 mL/min から 50 mL/min まで増加させたところ、充填したケイ砂(青く着色されたカラーサンド) が流出した緩衝材により白っぽく濁り膨潤浸入した緩衝材も流出している状況がわかる。60 mL/min でも流出によって充填したケイ砂が白く濁る状況は継続した。



図 2.6-21 流出試験の定点撮影

図 2.6-22 にケイ砂を充填したケースの水頭差制御試験及び流量制御試験結果を示す。図にはケ イ砂充填をしていない H1Q10 の流量の経時変化も示す。水頭差制御試験の場合、ケイ砂を充填 していないケースに比べて、ケイ砂充填ケースの流量の低下が早いことが分かる。これは、水頭 差制御でケイ砂を充填している場合、充填したケイ砂によって流路が保持されるものの、ケイ砂 充填領域における流路抵抗に加え、緩衝材が膨潤浸入しても流出し難いことや流出してもケイ砂 によって目詰まりすることなどの影響で流量が低下した可能性がある。また、流量(流速)の低 下と共に緩衝材の膨潤浸入が促進され、流量低下が急峻化することも考えられる。流量は一定の 割合で低下し、試験開始から10日目ごろには流量計の計測限界である1mL/min以下となった。 一方、流量制御流出試験では、図 2.6-9 に示したケイ砂を充填しない場合、排水中のベントナイ ト濃度のピークが1週間から10日になることから、ケイ砂充填した場合でも、流出濃度の定常状 態が1週間継続した場合に流出量が増加しないと判断し、給水側の流量を段階的に増加させた。 図から、流量を増加させると通水圧も増加しており、10 mL/min から 40 mL/min まではその増 加割合が流量と同等であることから、ケイ砂を充填した箇所の透水性が支配的であり、膨潤浸入 の影響はほとんど変化していない可能性がある。しかしながら、50 mL/min に流量を増加させた 場合、通水圧が急激に増加している。この際、ケイ砂を充填した箇所に膨潤浸入したベントナイ トの状態も大きく変化していることから、ケイ砂を充填した箇所で膨潤したベントナイトが移動

することにより、部分的な目詰まりなどが発生したことにより通水圧が上昇したものと考えられる。この傾向は 60 mL/min でも同様であった。



図 2.6-22 ケイ砂を充填したケースの水頭差制御試験及び流量制御試験結果

図 2.6-23 に膨潤圧と流量の経時変化を示す。水頭差一定条件の場合、膨潤圧の増加に従って流量が低下した。膨潤圧は最大で 963.5 kPa となったが、これは充填したケイ砂が供試体を体積拘束する際の反力であり、供試体表面の低乾燥密度のベントナイトのズリせん断強度が 30 kPa 程度であることから(後藤・清水,1966)、緩衝材が拡散(無限膨潤)と移流によってケイ砂内に侵入するだけでなく、ケイ砂の間隙に膨潤したベントナイトが圧入されて流路が狭まったことも一因として考えられる。

一方、流量制御ケースでは、通水期間中の膨潤圧が漸増する傾向を示さず、流量一定期間に膨 潤圧が増減している。特に、40 mL/min から 50 mL/min に流量を増加させた付近で急激な膨潤 圧の低下が発生している。これらの要因として、充填したケイ砂の間隙に膨潤浸入した緩衝材の 流出などに伴う充填砂の骨格構造の変化などが要因と考えられる。また、流量の増加に連動して 膨潤圧(全応力の土圧)も増加していることから、流速を増加させることによって充填したケイ 砂の間隙水圧が増加していることが分かる。さらに、流量を 60 mL/min に増加させるとさらに膨 潤圧は低下傾向を示した。このことから充填したケイ砂内を流れる水による緩衝材流出の閾値は、 本試験条件の場合、50 mL/min 程度であると考えられる。

なお、この期間に排水中のベントナイト濃度は検出されておらず、排水中のベントナイト濃度 は非常に低く維持されている可能性が考えられた。そこで、排水を 500 から 1,000 mL の排水を 10 mL になるまで蒸発させて吸光度を計測し、ベントナイト濃度を割り戻して算出したところ、 50 mL/min の 5 日目で 7.52 mg/L、6 日目で 8.49 mg/L、7 日目で 5.53 mg/L であった。

前述の様に、ケイ砂を充填していないケースでは排水中のベントナイト濃度が水みちの閉塞前 後で変化することが分かった。一方、ケイ砂を充填しているケースの場合は、本試験のように流 量を変化させた範囲内では、ケイ砂領域が流路(水みち)として保持されているため、非常に低 いベントナイト濃度の排水が継続的に流出していることが窺える。このことを確かめるために、 流量を 60 mL/min に増加させた日の 24 時間分の排水の全量(86.4 L)を貯留して、排水中のベ ントナイト濃度の 1 日分の平均値を取得した。採取した排水は目視ではほぼ透明であったが、十 分に攪拌して 1 Lを採水して 10 mL になるまで蒸発させて吸光度を計測し、ベントナイト濃度を 割り戻して算出した。その結果、排水のベントナイト濃度は 16.09mg/L であり、終了直前の 1 日 は 2.85 mg/L であった。このことから、ケイ砂を充填したケースの場合、流量を増加させた直後の排水はベントナイト濃度が高いものの、ケイ砂を充填しないケースと比較して、低いベントナイト濃度で継続的に流出していることが分かった。



図 2.6-24 には、ケイ砂を充填したケースの流出量と流出濃度の経時変化を示す。流量制御のケースでは給水量も併せて示している。同図から、図 2.6-9 に示したケイ砂を充填していないケースに比べて流出濃度が低いことが分かる。水頭差一定条件下では、充填したケイ砂による膨潤抑制によって流速増加を抑制する効果と充填したケイ砂の間隙への緩衝材の膨潤浸入による流速低下の効果が相俟って流出物がほとんど検出されないまま、流量が低下したため、累積の流出物もほとんどないという結果となった。一方、流量制御の場合、流速を増加させた各段階で若干の流出物の増加がみられた。さらに、流量を 50 mL/min や 60 mL/min に増加させた段階では排水のベントナイト濃度が瞬間的に濃くなる部分が断続的に発現していることが分かる。このことから、本試験条件の場合、50 mL/min 以上で排水中のベントナイト濃度が増加する可能性がある。



(c) 解体結果

ケイ砂を充填しない流出試験の解体結果から、流路にケイ砂が堆積すると完全に閉塞するには 時間が掛かることが明らかとなった。そのため、ケイ砂を充填した流出試験では、流量が低下し ても完全に閉塞するには時間を要することに加え、排水中のベントナイト濃度が吸光度計で計測 できないレベルであったことから、そのような状態になった時点で試験を停止して解体すること

とした。解体に当たっては、充填したケイ砂内に入り込んだベントナイトの状態を出来るだけ詳 細に把握するために、試験完了後すぐにセル自体を凍結して、凍結状態のままで解体した。

図 2.6-25 に水位差一定としたケースにおけるケイ砂領域の解体状況を示す。解体中のケイ砂の 断面から、緩衝材と充填したケイ砂の界面(セルの上端面から20mm)から最大で5mm 程度の 膨潤浸入がみられる(給水側から100mm)。特に、セル前面のアクリル面との界面からの膨潤浸 入が顕著である。また、給水側から175mmの付近では、断面が他の箇所と比べて白濁しており、 上流から流出した緩衝材が溜まっている可能性が有る。図 2.6-26 にケイ砂除去後の供試体上端面 の写真を示す。充填したケイ砂に膨潤浸入した箇所を取り除くと密実な緩衝材であった。緩衝材 はほとんど流出せずに密実な状態を保っていることが分かる。

流量制御のケースでは、10 mL/min から 60 mL/min まで段階的に流量を増加させた。流量が 50 mL/min 以上で流出量の増加や膨潤圧の低下が観測されたことから更なる流出量の増加が生じ るかどうかを確認するために、流量を 60 mL/min まで増加させて流出試験を 1 週間程度行った 後に解体を行った。図 2.6-27 に充填したケイ砂の解体状況を示す。ほぼ全領域でアクリル面やセ ルの背面と充填したケイ砂の界面に沿って膨潤浸入が見られた。さらに、断面の所々に白濁した ケイ砂が存在しているのが分かる。特に給水側から150mmの断面では、断面の中央にベントナ イトの塊が混入しているのが観察された。前述の定点撮影の結果では、流量を50mL/minに増加 した段階でケイ砂を充填した箇所が白濁しており、充填したケイ砂の中に緩衝材が膨潤浸入して 下流側に流されたものと考えられる。ケイ砂除去後の供試体上端面の状況を図 2.6-28 に示す。充 填したケイ砂に膨潤浸入した箇所を取り除くと密実な緩衝材であった。上述した水位差一定とし たケースと同様に、緩衝材はほとんど流出せずに密実な状態を保っていることが分かる。



- (a) 給水側から 25 mm
- (b) 給水側から 50 mm
- (c) 給水側から 100 mm



(d) 給水側から 125 mm





(e) 給水側から 150 mm (f) 給水側から 175 mm 図 2.6-25 充填したケイ砂の解体状況(水位差一定ケース)



(b) 中央部 (a) 上流側 (c) 下流側 図 2.6-26 ケイ砂除去後の供試体上端面の状況(水位差一定ケース)



- (a) 給水側から 25 mm
- (b) 給水側から 50 mm



(d) 給水側から 125 mm







(e) 給水側から 150 mm (f) 給水側から 175 mm 図 2.6-27 充填したケイ砂の解体状況(流量制御ケース)



図 2.6-28 ケイ砂除去後の供試体上端面の状況(流量制御ケース)

(a) 上流側

(b) 下流側

以上にように、段階的に流量を増加させた流量制御流出試験により、ケイ砂充填オプションで は比較的ベントナイトの流出濃度が低く推移すること、さらに流出量が低濃度で維持できる可能 性のある上限の閾値が 50 mL/min 程度であることを概略的に把握した。この閾値に相当する流量 は、実規模スケールに換算すると34.25 L/min(流速が同じになる様に流量を換算)である。この 程度の湧水量までであれば、低いベントナイト濃度で継続的に流出することを前提とした流出量 評価モデルを構築することで、流出量の評価ができる可能性がある。令和2年度の検討で試算し たケイ砂充填オプションの許容湧水量は淡水で 59 から 95 L/min、塩水で 5.1 から 8.3 L/min で

あり(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, 2021)、NUMO-SCの 付属書 4-56 における隙間未充填オプションの許容湧水量(0.51 から 0.83 L/min)と比較しても ケイ砂充填オプションの適用範囲は広いことが考えられる。また、実際の湧水の挙動を模擬した 水頭差制御流出試験により、隙間に充填したケイ砂の間隙にベントナイトが侵入し流量が低下す るという、これまでの流量制御の試験とは異なる挙動を確認した。今後は、ケイ砂充填オプショ ンの流出試験についても、ベントナイトの流出量の水頭差・流量の依存性について水頭差制御流 出試験により把握し、原位置での長期の流出試験の結果等と比較しつつ流出量の評価手法を検討 する必要がある。

2 X線CTによる 膨潤状態の 分析

図 2.6-29 には、ケイ砂充填ケース DW20SS16 のケースの X 線 CT グレースケール画像を示 す。図に示すように、8時間後の画像では、ベントナイトの膨潤部がケイ砂の間隙を充填している 状況が見られたが、空隙が残存していた。48時間後には隙間のベントナイトの乾燥密度が増加し ている様子がみられるが、その後28日まではほとんど変化が見られず、28日後もケイ砂部には 空隙が存在していた。

図 2.6-30 に乾燥密度分布を示す。ケイ砂の充填により体積拘束されているため、注水後の供試 体のベントナイト部分の乾燥密度は 1.35 Mg/m³(緩衝材のバルクの乾燥密度で 1.6 Mg/m³相当) 程度で概ね一定であった。一方、ケイ砂の間隙の色が徐々に暖色に変化していることから、ケイ 砂の間隙にベントナイトが膨潤浸入していることがわかる。今回の試験は28日間であったが、時 間の経過に伴い、ケイ砂の間隙はベントナイトにより充填され、透水性が低くなると想定される。

以上の結果より、緩衝材周辺の水位回復後に地下水流動が停滞した状態になれば、ケイ砂充填 部の間隙はベントナイトにより充填され、透水性が低くなることが期待できる。



(a) 給水直前







(b) 8 時間後 (c) 48 時間後 (d) 28 日後 図 2.6-29 X線CTのグレースケール画像(DW20SS16) (上段:水平断面、下段:垂直断面)



(b) 注水後 6 時間 (c) 注水後 46 時間 (d) 注水後 26 日 図 2.6-30 X線 CT による乾燥密度分布画像(DW20SS16) (上段:水平断面、下段:垂直断面)

③ 原位置試験における湧水量増加原因の把握

ケイ砂充填オプションの原位置試験は平成31年度に1か月程度の短期試験(予備試験)を実施 しており、試験経過に伴い緩衝材の流出量が低濃度で推移すること(図 2.6-31)が確認された(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)。一方、試験孔からの排 水流量が経時的に増加する現象が確認され(図 2.6-31)、孔壁面に作用する圧力と排水量の正の 相関関係(図 2.6-33)から、緩衝材の膨潤で試験孔周辺の岩盤へ圧力伝播したことが原因である と推定された。流出試験の方法やデータの取り扱い、ケイ砂充填オプションの隙間処理方法とし ての適用性の観点から、このような挙動の影響を確認する必要があるため、湧水量の増加現象の 原因を調査することとした。具体的には以下の点を確認することとした。

- ・ 膨潤圧が岩盤へ圧力伝播することによる湧水量の増加であるか
 緩衝材ブロックの膨潤を模擬した直径 540 mm のパッカーを用いて加圧試験を実施し、平成31 年度の試験結果の再現性を確認する。
- ・ 平成31年度に流出試験を実施した試験孔周辺固有の事象であるか
 平成31年度の流出試験で使用した試験孔2に加え、隣接する試験孔1においてもパッカーを用いて加圧試験を実施し、湧水量変化を比較する。



図 2.6-31 平成 31 年度 地下での流出試験 (隙間ケイ砂オプション)緩衝材流出濃度と 排水流量の経時変化



図 2.6-32 平成 31 年度 地下での流出試験 (隙間ケイ砂オプション)側面土圧と排水流 量の経時変化



(a) 実施場所及び試験系の概念図

加圧試験は、幌延 URL の深度 350 m の試験坑道 5 に設けられた 3 本の試験孔のうち、試験孔 1 及び 2 で実施した。図 2.6-34 に実施場所及び加圧試験の試験系概念図を示す。加圧試験時に孔 壁面へ作用する圧力を測定するため、パッカーと岩盤孔壁の隙間に土圧計を設置し、隙間にはケ イ砂を充填した。



図 2.6-34 実施場所(左)及び加圧試験の試験系概念図(右)

(b) 孔壁面観察

孔壁面の亀裂分布及び湧水の状況を確認するため、360°撮影対応カメラ(RICOH: THETA SC) で試験孔1及び2の孔壁面観察を実施した。

壁面で確認される湧水箇所及び湧水の程度を目視確認し、孔壁面の展開画像に示した(図 2.6-35、図 2.6-36)。湧水の程度は、「滲み出し・湧水少量・湧水多量」の3段階で評価した。

試験孔1

原子力環境整備促進・資金管理センター(2014a)では試験孔1の亀裂観察を実施しており、孔 口から・1.0mは様々な方向と傾斜をもつ構造性の亀裂が密集し、それ以深は、孔口・1.0m付近の 断層を境に亀裂密度が低下することが確認されている。本観察では目立った開口亀裂は無く、孔 壁面からの湧水は孔口・0.5m以深で全面に滲出していた。孔口・1.0m付近には角礫状の破砕部が 確認され、それは原子力環境整備促進・資金管理センター(2014a)の断層部分と整合する。断層 を境界に上部は軟質、下部は硬質の傾向が認められた。

試験孔2

原子力環境整備促進・資金管理センター(2014a)では試験孔2の亀裂観察(孔口-0.0から-0.8m)を実施しており、東傾斜の亀裂が同方向に分布していることが確認されている。孔口-0.0から0.85mの孔壁面はモルタル補修しており(原子力環境整備促進・資金管理センター,2016)、目立った孔壁面の凹凸は無い。本観察では局所的に孔壁面から湧水していることを確認し、モルタルが一部剥離して露出した亀裂から湧き出していた。



図 2.6-35 孔壁面の観察結果(試験孔 1)



図 2.6-36 孔壁面の観察結果(試験孔 2)

(c) 緩衝材ブロックの膨潤を模擬したパッカーの製作

緩衝材ブロックの膨潤を模擬するためのパッカーの条件は以下の通りである。パッカーの仕様 を表 2.6-11 に示す。

- ・ 直径 540 mm の緩衝材ブロックが有する膨潤圧に相当する圧力を孔壁面へ均等に加圧
- ・ 0.10 MPa 刻みで圧力制御
- ・ 試験区間を 40 cm、80 cm として加圧

項目	規格・仕様等	備考
試験区間長 40 cm(80 cm*)月	月 大口径パッカー	
パッカー径(収縮時)	$\varphi 540 \text{ mm}$	
パッカーラバー長	460 mm (860 mm ^{**})	有効長 400 mm(800 mm [※])
パッカー全長	572 mm (972mm ^{**})	上下端部 40 mm × 2 + パッカーラバー長 460 mm + 上下端 ボルト 16 mm × 2 = 572 mm (上下端部 40 mm × 2 + パッカーラバー長 860 mm + 上下 端ボルト 16 mm × 2 = 962 mm [*])
最大拡張圧 (パッカー径 φ580mm 時)	2.0 MPa	0.1 MPa 毎に加圧可能
中央管	$\phi~50~\mathrm{mm}$	ケーブルグランド取付け用ネジ付き、水位計用孔
重量	約 150 kg (約 180 kg ^{*)})	

表 2.6-11 パッカーの仕様

※試験区間長 80cm のパッカー設計値

(d) 加圧試験

(i) 試験ケース及び目的

試験孔1及び2において、図 2.6-37 に示す試験ケースを設定して、表 2.6-12 に示す試験目的 に沿って加圧試験を実施した。



図 2.6-37 加圧試験ケース(左:フロー図、右:試験位置図)

ケース名	パッカ 試験孔の	ワー設置深度 9孔口を 0.00m	試験目的			
ケース1	0.04	0.90 m	平成 31 年度の試験結果(孔内湧水量増加)の再現性確認			
ケース2	-0.44	0.90 m				
ケース3	-0.04	0.50 m	試験孔2の孔内湧水量増加に対する加圧領域の影響確認			
ケース4	-1.14	1.60 m				
ケース5	-0.39	0.85 m	1 孔内湧水量増加が試験孔 2 特有の現象であるか否かを他孔(試験			
ケース6	-0.04	0.50 m	□ 1.1) で確認			

表 2.6-12 加圧試験ケースごとの目的

(ii) 試験準備

・ 積算流量計の設置

試験孔内から湧出する地下水は、コンクリートピット底盤の排水用の溝を経由し、釜場へ流下 させる(図 2.6-34)。釜場には採水用のポンプを設置し、フロートスイッチを用いた水位制御に より採水した地下水量(孔内湧水量)を積算流量計(KEYENCE: FD-M5AYP)で計測した。

(iii) パッカーの設置

・<u>試験孔内の排水</u> 排水ポンプを用いて、試験孔内の地下水を排水した。

・ <u>ケイ砂の充填(パッカー下部)</u>

各試験ケースで、パッカーを所定の深度に設置するために、試験孔内(試験孔底からパッカー 下部までの区間)にケイ砂(3号 瑞浪産)を充填した。

パッカーの定置

坑道内に設置した吊り具を使用してパッカーを揚重し、試験孔直上までパッカーを運搬した。 その後、孔壁面とパッカーの隙間は2cm程度となるように、パッカーを所定位置に定置した(図 2.6-38)。



設置状況(試験区間長 80 cm) 設置 図 2.6-38 パッカーの設置



設置状況(試験区間長 40 cm) の設置

土圧計の設置

土圧計(東京測器: KDA-2MPA)は、試験区間長 40 cm の場合は試験区間上部から 20 cm、試 験区間長 80 cm の場合は試験区間上部から 20 cm、60 cm の深度で、東西南北ごとに設置した(図 2.6-39)。土圧計の固定は、コンクリートピット底盤から吊り下げる方法とし、土圧計のケーブル のたわみ防止及び保護を目的に SUS 管を保護管として使用した。

・ ケイ砂の充填

パッカーと孔壁の隙間にケイ砂(3号 瑞浪産)を充填した(図 2.6-40)。隙間ヘケイ砂を充填 する際、局所的な充填のバラツキ(土圧計の下部領域等の未充填)を減らすため、パッカーの拡 張/収縮による馴染みや、計測機器等の損傷に留意しながら突き棒でケイ砂を押し込めた。



・ ケイ砂の流動抑制用の鋼板蓋の設置

ケイ砂の充填後、パッカーの拡張に伴ってケイ砂が上方へ流動するのを抑制するため、パッカーと試験孔壁の隙間を覆う鋼板蓋を設置した。鋼板蓋は、コンクリートピット天端にボルト固定した H 鋼材と鋼製蓋の間にパイプサポートを設置して固定した(図 2.6-39)。





ケイ砂の充填状況 ケイ砂の流動抑制用の鋼板設置状況 図 2.6-40 ケイ砂の充填状況(左)及びケイ砂の流出抑制対策(右)

計測機器等の配線

各種計測機器(水位計、圧力計、土圧計、積算流量計)、パッカー拡張機材、データ収録装置の ケーブルを配線した(図 2.6-41)。





(e) 試験結果及び考察

(i) 平均湧水量及び平均拡張圧の算出方法

平均湧水量は、各加圧段階の圧力維持期間において、期間後半(次段階への加圧を行う直前) の排水ポンプの作動間隔3回分の湧水量の平均値とした(図 2.6-42)。これは圧力の変更に伴う 一時的な孔内湧水量の変化の影響を除去し、各加圧段階における安定した孔内湧水量を算出する ためである。平均拡張圧は、上述の3回の排水ポンプ作動時のパッカー拡張圧の平均値とした。 ただし、孔内湧水量が早期に安定した場合など、排水ポンプを3回作動しなった場合については、 排水ポンプの作動間隔2回分または1回分を平均湧水量及び平均拡張圧の算出に利用することと した。

以後、平均処理をした孔内湧水量及びパッカー拡張圧を「平均湧水量」または「平均拡張圧」、 加圧目標値を維持している加圧過程の各段階を「加圧ステップ」、経時変化図などにおいて、平 均処理をしていない孔内湧水量、パッカー拡張圧を指す場合は、単に「湧水量」、「拡張圧」という。



(ii) 孔壁とパッカーの隙間に設置した土圧計の値

平成 31 年度及び令和 2 年度の緩衝材流出試験では、孔壁と緩衝材の隙間に設置した土圧計で 緩衝材ブロックの膨潤よる孔壁面を加圧する圧力を測定した(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; 2021)。本試験では、緩衝材ブロックの膨潤圧をパッカ 一拡張圧で模擬しているため、緩衝材の膨潤圧相当の圧力は既知であり、どの程度孔壁面に圧力 伝播するのか比較検証することが可能である。

ー例として、加圧試験のケース2(試験孔2/中部)とケース5(試験孔1/中部)の結果を図2.6-43、図2.6-44に示す。



図 2.6-43 パッカー拡張圧に対する土圧の経時変化 (ケース 2)



図 2.6-44 パッカー拡張圧に対する土圧の経時変化(ケース 5)

ケース2(試験孔 2/中部)では、平均拡張圧(緩衝材ブロックの膨潤圧相当)に対して土圧は概 ね一致した。一方ケース5(試験孔 1/中部)では、平均拡張圧に対して土圧のずれが生じた。ケー ス5の土圧(東側、西側の土圧)のバラツキは、土圧計の受圧面の向きに大きく影響されている と考えられ、以下の2点が原因として推定される。

- ・ 孔壁面の凹凸によるケイ砂の未充填箇所が存在し、パッカー拡張による隙間体積の収縮でケイ 砂が流動したタイミングで土圧計の受圧面の向きが変化した。
- パッカー拡張によって隙間充填されたケイ砂が上方へ押し上げられ、鋼板の隙間(東西方向に 設けられた土圧計ケーブルの切欠部:図 2.6-40)からケイ砂が流出したタイミングで土圧計の 受圧面の向きが変化した。

したがって、パッカー拡張によるケイ砂流動を抑制させる対策として、孔壁面の凹凸を低減及 びケイ砂の流出口となる鋼板の隙間(切欠部)の最小化を図り、ケイ砂充填の施工品質を確保す ることで、土圧計のバラツキは抑制されると考えられる。

図 2.6-43 の結果より、隙間をケイ砂で充填したオプションでは、土圧計の設置が適切であれば、 平均拡張圧(緩衝材ブロックの膨潤圧相当)は土圧計と概ね同値であり、圧力損失はほとんど生 じないことから、孔壁面を加圧する圧力については、平均拡張圧で整理することとした。

(iii) 平均拡張圧に対する平均湧水量の変化:ケース1から3(試験孔2)

試験孔2を対象に加圧試験を実施した結果(試験ケース1から3)について、平均拡張圧と平 均湧水量の関係として整理したグラフ(以下、[P-Qグラフ]という)を図2.6-44に示す。凡例 に示される試験名末尾の丸数字(①②③④)は、試験回数を示す。



- ケース 1_①からケース 1_④(試験孔 2: 平成 31 年度の緩衝材流出試験区間を加圧)
 - ・ケース 1_①からケース 1_③は、ある圧力下における湧水量の安定を目的に 0.1 MPa/時間で 昇圧データを取得した。降圧データは、圧力値 0.7、0.5、0.3 MPa 時に取得した(ケース 1_ ③)。
 - ・ケース 1_④は1日で加圧から減圧過程までのデータを取得する試験ケースとし、加圧過程は 0.1 MPa/0.5 時間、降圧過程は圧力値 0.7、0.5、0.3、0.2 MPa 時に 0.5 時間で取得した。
 - ・加圧ステップ 0.4 MPa 付近で湧水量が増加傾向を示し、1.0 MPa まで線形増加した。
 - ·P-Q グラフは加圧過程と減圧過程で軌跡が異なり、ループ形状を示した。
 - ・P-Q グラフにおける湧水量増加の傾きの傾向は再現性があるが、試験回数を重ねるごとに初 期湧水量の増加及び低い圧力で湧水量が増加する傾向を示した。
- ケース2(試験孔2:対象孔壁の中部区間を加圧)
 - ・ケース2は1日で加圧から減圧過程までのデータを取得する試験ケースとし、加圧過程は0.1 MPa/0.5 時間、降圧過程は圧力値0.7、0.4、0.2 MPa 時に0.5 時間で取得した。
 - ・加圧ステップ 0.3 MPa 付近で、湧水量が増加傾向を示した。P-Q グラフは加圧過程と減圧過 程で軌跡が異なり、ループ形状を示した。
- ケース3①からケース3②(試験孔2: 対象孔壁の上部区間を加圧)
 - ・ケース 3_①からケース 3_②は 1 日で加圧から減圧過程までのデータを取得する試験ケース
 とし、加圧過程は 0.1 MPa/0.5 時間、降圧過程(ケース 3_②)は圧力値 0.8、0.5 MPa 時に
 0.5 時間で取得した。
 - ・加圧ステップ 0.6 MPa 以降で湧水量が増加傾向を示した。湧水量の増加傾向を示した圧力は、 ケース1及びケース2の結果(約0.4 MPa)と比較して0.2 MPa 程度高い。P-Q グラフは加 圧過程と減圧過程で軌跡が異なり、ループ形状を示した(ケース3_①)。
 - ・P-Qグラフにおける湧水量増加の傾きは、ケース1及びケース2と比較して緩やかであった。
 - ・ケース 3_②は 0.6 MPa まで徐々に加圧した後、0.1 MPa/0.5 時間で最大 1.30 MPa まで加圧 過程のデータを取得した。P-Q グラフにおける湧水量増加の傾きは、加圧ステップ 0.6 MPa 以降も概ね同様であった。

(iv) 平均拡張圧に対する平均湧水量の変化:ケース4から6(試験孔1)

試験孔1を対象に加圧試験を実施した結果(試験ケース4から6)について、P-Qグラフを図 2.6-46に示す。凡例に示される試験名末尾の丸数字(①②③④)は、試験回数を示す。



図 2.6-46 試験孔1 P-Q グラフ (ケース4から6)

- ケース 4_①からケース 4_③(試験孔 1:対象孔壁の下部区間を加圧)
 - ・ケース 4_①からケース 4_③は 1 日で加圧から減圧過程までのデータを取得する試験ケースとし、加圧過程は 0.1 MPa/0.5 時間、降圧過程(ケース 4_③)は圧力値 0.7、0.4 MPa 時に0.5 時間で取得した。
 - ・ケース 4_①からケース 4_③のいずれも、加圧に対する湧水量の増加は認められず、傾きはゼロであった。P-Q グラフは加圧過程と減圧過程で同じ軌跡を描いた。
- ケース5①からケース5②(試験孔1:対象孔壁の中部区間を加圧)
 - ・ケース 5_①からケース 5_②は 1 日で加圧から減圧過程までのデータを取得する試験ケース とし、加圧過程は 0.1 MPa/0.5 時間、降圧過程(ケース 5_②)は圧力値 0.7、0.5、0.3 MPa 時に 0.25 時間で取得した。
 - ・ケース 5_①からケース 5_②のいずれも、加圧に対する湧水量の増加は認められず、傾きはゼロであった。P-Q グラフは加圧過程と減圧過程で同じ軌跡を描いた。
- ケース6(試験孔1:対象孔壁の上部区間を加圧)
 - ・ケース6は1日で加圧から減圧過程までのデータを取得する試験ケースとし、加圧過程は0.1 MPa/0.5時間、降圧過程は圧力値0.7、0.5、0.3 MPa時に0.25時間で取得した。
 - ・加圧に対する湧水量の増加は認められず、傾きはゼロであった。P-Q グラフは加圧過程と減 圧過程で同じ軌跡を描いた。

(v) 湧水量増加現象の再現性の確認(平成 31 年度の地下での流出試験結果との比較)

試験孔2で実施したケース1の加圧条件では、加圧ステップ0.3 MPaから0.4 MPaで湧水量の増加が確認され、加圧ステップ0.7 MPaの際に平均湧水量が約800 mL/minから1,100 mL/min となる結果を得た。平成31年度の地下での流出試験では、膨潤圧(孔壁面に設置した土圧計の値) が0.4 MPaから0.5 MPa程度の際に湧水量の増加が生じ、膨潤圧0.7 MPaの際に孔内湧水量が 約 900 mL/min となる結果を得ている。土圧計の値は土圧計設置(受圧面の向き)の正確さに大 きく依存することが考えられるが(図 2.6-43、図 2.6-44)、P-Q グラフの傾きの傾向で比較すれ ば、平成 31 年度の地下での流出試験の結果を再現していると考えられる(図 2.6-47)。



図 2.6-47 試験孔 2 ケース 1 の P-Q グラフと平成 31 年度の地下での流出試験結果との比較

(vi) 孔壁面への加圧による湧水量増加のメカニズム

試験孔1及び2における加圧試験で得られた知見を以下に示す。

- ・ パッカー拡張圧による孔壁面への加圧で孔内の湧水量が増加したのは試験孔2のみであった。
- ・ 試験孔 2 で孔内の湧水量が最も増加したのは、湧水亀裂を直接加圧した試験ケースであった。
- ・ 試験孔2で湧水亀裂の近傍を加圧する試験ケースであっても、孔内の湧水量は増加した。
- 試験孔1では、壁面から全面に滲出するように湧水していた。湧水箇所を加圧しても、孔内湧 水量は不変であった。

以上の結果及び平成 31 年度の地下での流出試験の結果を踏まえると、試験孔 2 の孔内の湧水 量が増加する現象は、孔壁面の加圧に起因すると考えられる。孔壁面の加圧で孔壁にひずみが生 じて亀裂が僅かに開口したことが主原因と推定されるが、1 MPa 程度の加圧で圧力伝播する領域 は試験孔近傍に限定される。すなわち、亀裂が開口する範囲は、試験孔近傍に限定される。試験 孔 1 で加圧試験を実施しても孔内の湧水量は増加しなかったことを踏まえると、開口した亀裂の 直近に地下水の供給源が存在していることが推定される(図 2.6-48)。したがって、湧水の増加 現象は、試験孔 2 に固有の現象で、試験孔 2 の周囲の亀裂や環境特性(地下水の供給源となり得 る路盤コンクリート直下の掘削ズリ敷き均し領域との連結性等)が影響していると考えられる。

以上のことから、緩衝材の膨潤圧に伴い湧水量が増加する現象は、特定の孔で発生する可能性 のある固有の現象と考えられる。実処分環境でも、このような現象にも留意が必要ではあるもの の、処分孔内の定置深度が試験孔2よりも更に深いことを想定すれば、地下水の供給源となり得 る領域との連結の可能性は更に低くなると想定される。



図 2.6-48 亀裂の開口による湧水量増加の考察(試験孔2周辺の環境)

④ 原位置試験による長期的な流出挙動の把握

堅置き・ブロック方式を対象とした緩衝材の流出現象の把握、ならびに複数の施工オプションの成立性、流出抑制効果を確認することを目的に、堅置き・ブロック方式での施工上、最も緩衝材の流出が懸念される箇所(孔壁と緩衝材との隙間)に着目し、工学規模の原位置試験(地下での流出試験)を平成31年度及び令和2年度に実施している(日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター,2020;2021)(表 2.6-13)。

表 2.6-13 これまでの地下での流出試験の試験ケース

隙間施工オプション	短期試験	長期試験	備考
隙間未充填オプション	実施済(約2ヶ月)	実施済(約4ヶ月)	試験孔2で実施
ケイ砂充填オプション	実施済(約1ヶ月)	未実施	試験孔2で実施

地下での原位置流出試験として、緩衝材の定置直後から処分坑道の埋め戻しが実施されるまで の期間を念頭に、自然湧水条件下で隙間未充填オプションとケイ砂充填オプションを対象とした 上表に示す試験を実施し、以下のような知見を得た。

- 隙間未充填オプションでは、緩衝材ブロック定置後の初期の緩衝材流出量が多くなるものの、
 長期試験では、緩衝材の膨潤により隙間が閉塞され、緩衝材の流出が抑止される条件があり得ることが確認された。
- 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ことが確認された。ただし、 緩衝材の膨潤による孔壁への加圧により、孔内湧水量が増加する現象が生じた。また、前述した3)①や3)②の室内試験(水頭差制御における流出試験)から、隙間に充填したケイ砂の隙間 にベントナイトが侵入して流量が低下する現象が確認され、長期的には隙間が物理的に閉塞し て緩衝材の流出が停止する可能性があることが示唆された。

ケイ砂充填オプションに関する長期試験は未実施であるため(表 2.6-2)、緩衝材の流出濃度が

低く維持される効果の継続性やケイ砂の隙間へのベントナイトの侵入、それに伴う閉塞挙動等を 原位置で確認することを目的として試験を実施した。併せて、短期試験で生じた緩衝材の膨潤に よる孔壁への加圧により孔内湧水量が増加する現象についても長期的な変化及び湧水量増加の上 限の有無を確認する。また、得られた結果は室内試験に基づき検討している流出量の評価手法の 妥当性の検討としても用いる。ケイ砂充填オプションの試験は、これまでの試験との比較のため に試験孔2で行うこととして、長期試験を開始した。本試験は令和4年度も継続する予定である。

(a) 緩衝材ブロック

原位置試験で使用する緩衝材ブロックは、令和2年度の地下での流出試験で使用した緩衝材ブ ロックと同じとし、表2.6-14に示す仕様で静的な圧縮による方法で製作した。緩衝材ブロックの 製作時の乾燥密度は、緩衝材と孔壁の隙間(20mm)に対し緩衝材が地下水の浸潤によって1.60 Mg/m³となるように、1.92 Mg/m³と設定した。

百 井 約 乃 78	Na 型ベントナイト 70 wt%(クニゲル V1)					
尿材料及い	+ケイ砂 30 wt%(日陶連原料(株)3 号 15 wt%+					
凹口一百	日陶連原料(株)5号15wt%)					
苏 揭 密 庄	製作時	1.92 Mg/m^{3}				
轮,除名 皮	膨潤時	1.60 Mg/m ³ (緩衝材と孔壁との隙間 20 mm 膨潤時)				
製造時	11.15% (製作した緩衝材ブロックの平均含水比)					
含水比	(目標含水比;10.5%±2%以内)					
形中し粉星	ドーナツの8分割型の扇型ブロック					
心仏と数里	計 40 個					
-+-\v+-	外径 0.54 m、内径 0.21 m、厚さ 0.10 m					
112	(1 段あたり、これを8分割)					
重量	5.1 kg/ブロック					

表 2.6-14 緩衝材ブロックの仕様

(b) 試験装置

原位置試験におけるケイ砂充填オプションの試験系概念図を図 2.6-49 に示す。本試験系は、高 さ(厚さ)10 cm の緩衝材ブロックを5段積み上げており、緩衝材ブロックの最上面がコンクリ ートピット底盤面と合うように3号ケイ砂を試験孔に充填して調整した。緩衝材ブロック上部の 試験孔の孔口には膨出抑制用鋼製蓋を設置し、ジャッキとフランジで固定し、試験体の体積を拘 束した。



図 2.6-49 ケイ砂充填オプション試験系概念図

(c) 計測装置

(i) 土圧計

緩衝材ブロックの膨潤圧力を計測するため、土圧計(東京測器:KDE・2MPa)を複数設置した。 設置位置を図 2.6-50 及び図 2.6-51 に示す。数量は、緩衝材ブロック最上面及び最下面の内外部 に各1個、側面(周方向)の中部・下部に各4個(東西南北)、上部に2個(南北)である。最 上面及び最下面の土圧計は、予め緩衝材ブロックの表面を土圧計とコードが緩衝材の表面と同じ 高さで埋め込めるようにブロックをくり抜いて凹みを作ってはめ込んだ。凹みの隙間部分は、緩 衝材ブロックと同じ材料で充填した(図 2.6-49 右図参照)。側面の土圧計は、試験孔の壁面に沿 って設置した。



図 2.6-50 土圧計配置図(左)、緩衝材ブロック最上面の土圧計設置状況(右)



図 2.6-51 土圧計設置位置(側面図)

(ii) 荷重計

試験装置上部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測定した。ここで得られた荷重は、膨出抑制のため に必要な対策を検討する際のデータとして活用できるものである。

(iii) 水位計

試験装置の中央管には水位計(オサシテクノス:DS-1)を設置し、試験期間中の水位変化をモ ニタリングした。水位計の設置位置は、試験装置の中央管の最下部とした。試験坑道 5 周辺の地 下水位は、試験孔1及び2の定常水位より路盤コンクリート面と判断される。試験開始前の初期 水位は、コンクリートピット底盤に設置されている釜場からポンプアップされているためコンク リートピット底盤面である。そのため、試験開始前の試験孔と周囲の水位差は0.45 m である(図 2.6-52)。



図 2.6-52 試験開始前の地下水位

(iv) 積算流量計

試験孔から排出される地下水は採水用釜場に溜まるようにして、釜場に設置したフロートスイ ッチでポンプを稼働させて釜場からの排水を行い、排水量を計測した(図 2.6-49)。釜場からの 排水時、任意の間隔で吸光度分析用に一部採取され、それ以外は積算流量計(KEYENCE: FD-M5AT)を通過して排水されるようにした。

(v) 吸光度分析

試験孔から流出するベントナイト濃度は、採水した試料の吸光度分析を実施し、検量線法によって計測した。吸光度分析には、紫外可視分光光度計(島津製作所:UVmini-1240)を用いた。

地下水試料には地下水由来の濁りが含まれており、試料中に分散するベントナイトによる吸光 度に影響を与えることが懸念された。そのため、原位置の地下水について吸光スペクトルを取り、 地下水由来の濁りの影響がない 600 nm の波長を用いて定量分析した。

(d) 試験体の定置

定置治具の上に緩衝材ブロック(8個/段×5段)を積み上げた後、坑道内に設置した吊り具を 用いて孔内へ試験体を定置した。試験体の定置手順は、以下の通りである。

- 試験孔2の地下水を排水処理ポンプで排水し、定置作業中も排水を継続して試験体が冠水しないようにする。
- ・ 緩衝材ブロック(8個/段×5段)を積み上げた定置治具を吊り上げ、試験孔2の中央部になる よう調整しながら下ろして定置する。定置後は、定置治具の中央管にチューブを通し、試験孔 の地下水の排水を継続する(図 2.6-53)。
- ・ 緩衝材ブロックと孔壁の隙間に側面の膨潤圧力を測定する土圧計を設置する。土圧計の設置と 並行して、隙間にケイ砂(3号)を充填する(図 2.6-53)。
- ・ 試験体上部に膨出抑制用の鋼製蓋を設置し、その上からジャッキとフランジで抑える。
- ・ 定置治具の中央管の最下部に水位計を設置する(図 2.6-53)。
- ・ 土圧計及び水位計の計測を開始した後、定置治具の中央管からの排水を停止し、試験開始とする。
- 試験孔からの地下水が湧出し、釜場に地下水が溜まり次第、任意の時間に手動で採水する。
- ・ 採水用釜場に設置したフロートスイッチ、積算流量計及び自動採水装置を稼働させ、採水及び 積算流量の自動計測を開始する。

原位置試験のデータは継続的に取得中である。試験は約5か月間実施する予定であり、データ を取得しながら、流出挙動について平成31年度のケイ砂充填オプションの短期試験で見られた 緩衝材の流出濃度が低く維持されることの継続性、緩衝材の膨潤による孔壁への加圧による孔内 湧水量が増加する現象の有無及び継続性について確認する。また、ケイ砂の隙間へのベントナイ トの侵入やそれに伴う閉塞挙動等の観点からも考察を進める。



緩衝材ブロック積み上げ状況

試験体定置状況





隙間にケイ砂充填後

試験開始直後

図 2.6-53 試験体定置状況

4) ペレット充填オプション

① 隙間にペレットを充填する施工に関する机上検討(文献調査)

堅置きブロック方式による緩衝材の定置において生じる、緩衝材と孔壁の隙間の充填方法の一つとして、ペレットによる充填があげられる。ペレットによる充填は、これまでも施工方法の一つとして取り上げられ検討されており、スウェーデン核燃料・廃棄物管理会社(以下、[SKB]という)の人工バリアの設計ではペレットによる隙間充填が採用されている。SKBは、以下のような目的でペレット充填を行うとしている。

- 最終的に飽和膨潤した緩衝材ブロック全体の乾燥密度を高める。
 隙間の閉塞を緩衝材ブロックの膨潤量だけでなく、ペレットの体積及びその膨潤量で補完することを期待、処分孔全体でみたとき、緩衝材の乾燥密度を高く維持することが可能
- 処分孔掘削後の応力再配分による岩盤の剥離を充填したペレットで抑制する。
 処分孔掘削による応力再配分により、空洞部分(孔内部分)へ岩盤が張り出し、剥離しようとする力に対して、ペレットが力学的な支持材となって抑制することを期待
- 処分孔内に流入する地下水を速やかに吸水させ、水位上昇の遅延を図る。
 処分孔底面や壁面から流入する地下水をペレットで吸水させて、処分孔内の水位上昇の遅延
 効果を期待

廃棄体が保有する熱を岩盤へ放熱させるための熱伝導体としての役割を担う。

著しく乾燥した処分孔では、熱伝導率が低い空気が隙間に滞留して廃棄体からの放熱を妨げ る可能性があるため、ペレット充填によって隙間の熱伝導率を向上させることを期待

ペレット充填によりこうした目的を達成できると考えられるが、緩衝材の流出への影響に関す る知見は十分でないことから、SKBでは室内試験(流出試験)による知見の拡充が進められてき た(SKB, 2006; 2009 など)。わが国の基盤研究としても、クニゲル V1 を材料としたペレット充 填オプションに関する流出試験が着手された(原子力環境整備促進・資金管理センター, 2011)。 その後、多様な隙間処理技術オプションの開発に資する多様な条件による流出試験が行われる中 で、ペレットを対象とした試験も実施されている(原子力環境整備促進・資金管理センター, 2015; 2017 など)。以下にペレットを対象とした流出試験に関して得られている知見を概観し、緩衝材 流出に対する影響と課題を整理する。

(a) 原環センターで行われたペレット充填オプションによる流出試験からの効果や課題の整理 (i) 小型セルによる流出試験(原子力環境整備促進・資金管理センター, 2015)

ペレット充填方式を模擬した流出試験を図 2.6-54 に示すような小型セルを用いて行った。ペレ ットの大きさ、大小ペレットの混合、ブロックを模した圧縮ベントナイトとの共存での試験を行 っている。また、通水液は、イオン交換水、0.5 M の NaCl 水溶液と CaCl₂水溶液、模擬幌延地 下水を用いた。通水は、流量一定で流量もパラメータとして行い、通水圧を測定した。 得られた結果を以下に示す。

- ブロックを模擬した圧縮ベントナイトを、100 mmの内径のセルに隙間を5 mm設けた試験と 比較して、同じセルにペレットのみを充填した試験の方が流出量、流出率は小さかった。これ は、同じ流量で比べた場合、間隙を通る水の速さはペレットの方が遅いためと考えられた。
- ブロックとペレット併用したケースでは、ペレット側に水みちが形成された。
- ペレット充填の場合には、短時間の試験では試験後も内部が乾燥したままの状態が見られ、流 出現象は非常に局所的な現象であった
- 大小ペレットを混合して充填したケースでは、イオン交換水を通水した試験で水みちが閉塞 (通水圧が3 MPa に到達)した。不飽和状態の試験体に通水した場合、ペレットは表面積が 大きいため、試験初期に通水量よりもベントナイトへの浸潤量が大きいことにより閉塞される 可能性も考えられる。
- ・ 上記と同じ条件で NaCl 水溶液、CaCl₂水溶液、模擬幌延地下水を通水した場合には、通水圧 は低くなり、破過を繰り返して閉塞されなかった。



図 2.6-54 小型セルの概要

(ii) 工学規模の試験セルによる流出試験(原子力環境整備促進・資金管理センター, 2016)

内径 560 mm×高さ 600 mm のセルに対して、直径 500 mm×高さ 600 mm の圧縮ベントナイ ト供試体を設置して、セルとブロックの隙間 30 mm にペレットを充填して流出試験を実施した。 ペレットの充填はできるだけ密度を高めるように行い、ペレット充填した部分の乾燥密度の平均 値は 1.469 Mg/m³とした。通水は 0.1 L/min の一定流量で行い、通水方向は、側面下部に設置し た注水口から試験体上部とした。



図 2.6-55 工学規模流出試験セル

以下に得られた結果を示す。

- 工学規模のセルにおいては、隙間の閉塞に至る傾向は見られず、水みちを介して継続的に緩衝 材が流出した。
- ・ 通水圧は通水開始直後に 500 kPa 程度まで増加したが、その後漸減して 30 kPa 程度で推移した。通水圧は水みちの径に依存していると考えられ、通水圧が 500 kPa の時は非常に細く、その後拡張して通水圧も低下した。
- ・ 試験は約180日間行われたが、水みち周辺のみが膨潤し、他の部分は試験開始数日後の状態から乾燥していることが観察された。ペレット充填の場合、水みちが生じた後は、流出現象は局

所的に起こっていたことがわかる。

- 上記に伴い、試験後の飽和は未充填の場合に比べて低かった。
- ペレット充填のケースは、隙間未充填のケースに比べて、スタート直後の流出量は多いが、そ の後の総通水量と累積の緩衝材流出量の関係の勾配は緩かった(図 2.6-56)。図中に示した既 往の結果(小型セルでの試験結果)よりも勾配は緩く、ペレットを充填した場合には試験規模 により結果が異なり、試験体がスケールアップしたことにより、勾配が緩くなっていることか ら、流出量が抑制される傾向があることが示唆された。



図 2.6-56 総通水量と流出量の関係

(iii) 原位置での流出試験(原子力環境整備促進・資金管理センター, 2017)

幌延 URL の深度 350 m の試験坑道 5 において、隙間にペレットを充填し、流出挙動を計測し た。本試験は、平成 28 年度に実施しており、試験孔 3 (図 2.6-34 参照)を使用して試験孔底部 に設けた注水口から一定量注水を行って流出挙動を計測した。図 2.6-57 に試験設備の概要を示 す。孔壁と緩衝材模擬ブロックの間の隙間は約2cmであり、ブロック定置後にペレットを挿入し た。挿入したペレットはベントナイト 100%であり、密度を高めるために、4mm 径と 0.3mm 径 を重量比1:1で混合したものを用いた。

ペレットの挿入は、自然落下とし、鉄製ライナーを孔壁に設置した上で挿入した後、ビニール ホースで製作した漏斗を用いた投入に切り替えるなど、現場で状況に応じて工夫をしながら挿入 した。しかし、注水孔からの排水を行っていたものの、上部からの湧水によるペレットの膨潤の 進行が早く、投入できたペレットの重量は、隙間に均一に充填した場合の57%であった。ただし、 上下フランジ間への侵入も多くあったため、実質的に隙間に充填されていたペレットはさらに少 ないと考えられる。

本原位置試験では、ペレットの隙間を流れた地下水が試験孔上部に滞留する地下水と混合する 等により精度を確保した採水ができていないため、流出量の定量的な評価はしていない。地下水 の浸潤や緩衝材の膨潤の指標となる土圧の変化によれば、ペレットの吸水・膨潤が早いために試 験開始直後から土圧が上昇し、隙間未充填ケースよりも土圧の発生は早かったが、その後はペレ ットの存在が緩衝材ブロック本体の吸水・膨潤を妨げたことにより、それ以降の土圧の上昇を抑 制したと考えられた。



図 2.6-57 原位置ペレット充填による流出試験の試験設備

表 2.6-15 に試験終了後の緩衝材ブロックを孔壁からの距離ごとに採取し、乾燥密度を測定した。土圧の発生にも見られたように、ペレットがあることにより、水の緩衝材ブロック内への浸 潤を抑制する効果があることがわかった。飽和と流出はペレット部で先行して起こったことが確 認でき、また、ペレット充填部の施工密度は低かったにも関わらず、隙間部分の乾燥密度は高く なっており、ペレットが緩衝材の密度低下を緩和し、緩衝材機能の低下を抑制できることがわか った。

		<u> 孔壁からの</u> 距離	2 cm	2 cm	1 cm	残り (≒13.5 cm)	
試験前		緩衝材	緩衝材 隙間又は		ブロック		
		[状態]	ペレット	[Dry]			
		乾燥密度		1.9 Mg/m ³			
	ペレッ	緩衝材	ベントナイト	ベントナイト	ブロック		
試験後	ト充填	[状態]	[Wet]	[Wet]	[Dry]		
	ケース	乾燥密度	1.6 Mg/m ³	1.5 Mg/m ³	1.8 Mg/m ³		
	隙間未	緩衝材	ベントナイト			ブロック	
	充填ケ	[状態]	[Wet]			[Dry]	
	ース	乾燥密度	1.5 Mg/m ³	1.5 Mg/m ³ 1.7 Mg/m ³		1.7 Mg/m ³	

表 2.6-15 試験前後の緩衝材ブロックの状態と乾燥密度

注)[Dry]は含水比 20 %以下

(iv) 原位置試験結果のまとめと課題

竪置きブロック方式による定置において生じる隙間へのペレットの充填に関して、平成 28 年 度に行った流出試験について上記のように整理した。規模や環境の異なる幾つかの試験の結果、 流出挙動に関しては、隙間未充填のケースと類似した傾向を示す結果が得られている。一方で、 浸潤や密度分布については、ペレットを入れたことにより明らかな違いが見られた。以下にペレ ット充填による効果(利点)を示す。

- ペレット部が先行して膨潤するため、ブロック部の浸潤は遅くなる。
- ペレット部の充填密度が低くても、ブロック部の膨潤により速やかに密度は上昇する。
- 緩衝材界面の密度はペレットがあることにより、ある程度保たれ、低密度であるための表面の 削剥は起きにくいものと考えられる。
- ペレット部が先行して流出するため、ブロック部の流出を遅延させることができ、許容される 流出量となるまでの時間を稼ぐことができる(緩衝材の機能を守れる時間を長くできる)。

こうしたペレット充填による利点に対し、原位置での試験において施工性に課題があることが 明らかとなった。これは、室内試験では予め試験体をセットしてから注水するのに対し、原位置 では湧水がある状況のなかで緩衝材を定置するために起きる課題である。原位置での定置の際に は孔内は排水され、排水機構を稼働したまま定置を行うと考えられる。しかし、湧水が常時ある 地質環境であれば、孔壁は湿潤状態であり、ペレットは定置後即座に水に接する。ブロックより も密度が低く、表面積が大きいペレットは膨潤が早く、充填とともに膨潤してブリッジ等が生じ る可能性もある。そのため、ペレットをコーティングする、水分に触れないあるいは触れてもブ リッジしないような施工方法を採るといった対策を検討する必要がある。

(b) ペレット充填の施工方法

上述したように、緩衝材の流出に対してペレットは利点がある一方で、日本の湧水量が多い地 下環境では施工方法に課題がある。ここでは、SKBのペレット施工方法を参照して、わが国で一 般的に想定される地質環境を念頭に置いた施工方法について検討する。

(i) SKB のペレット充填の施工方法

SKBは、孔壁と緩衝材ブロックの隙間にペレットを充填させる機器開発を進めており、施工の 効率性が上がる機器仕様を検討している。図 2.6-58 は、令和3年度時点におけるペレット充填装 置のプロトタイプである。施工の効率性向上として、装置内に充填させたペレットを隙間へ全て 排出させ、装置へのペレット充填回数を低減させることを課題として挙げており、図 2.6-58 に示 すようなゴムシートをテント状に設置させて勾配を与える機構を検討し、実証試験を実施してい る。

SKBは、ペレット充填施工を含む緩衝材の設置を図 2.6-59 に示すような工程で検討している。 以下に設置手順を示す。

- 緩衝材設置装置の真空リフティングを用いて緩衝材ブロックを処分孔の孔底へ定置させる。
- キャニスタ上部の高さまで緩衝材ブロックを設置した後、キャニスタを処分孔内へ設置する。
- キャニスタ上部に緩衝材ブロックを設置する。
- 処分孔の最上部まで緩衝材ブロックを設置した後、ペレット充填装置を処分孔の上部へ定置して、岩盤と緩衝材ブロックの隙間へペレットを均等に充填する。



図 2.6-58 ペレット充填装置 プロトタイプ



図 2.6-59 緩衝材ブロックの設置手順 1:処分孔の掘削、2:廃棄体周辺ブロックの定置、3:廃棄体の導入、4:上部ブロックの定置、 5:ブロックと孔壁の隙間へのペレットの充填

SKBでは、製造施工管理プロセスの簡素化の観点から、緩衝材と母岩の隙間に充填するペレットと処分坑道の埋め戻し材として使用するペレットは同じタイプ(直径 6 mm の押出ペレット)で統一することとしている。ただし、ベントナイトペレットの吸水性は、ペレットの含水率に大きく依存すると考えられており、Sandén and Jensen (2017)は、含水率の高いペレットでは、

ゆっくりと水を吸収し、後の湿潤パターンに影響を及ぼすことを室内試験で確認している。また、 ペレットの大きさは、水がペレットの中心に到達するまでの時間に影響を与えるパラメータであ る可能性がある。Lundgren and Johannesson (2020) は、ペレットの表面積と隙間の体積の比 とペレットの吸水挙動について、同じ含水率に調整した枕型のペレット(15.8 mm×15 mm×7 mm)と押出ペレット(直径 6 mm)で比較検証し、両者に相違が無いことを確認している。

以上より、低透水性の岩盤で処分孔及び処分坑道への地下水流入量が少ない地下環境を有する フォルスマルク処分候補地では、図 2.6-59 に示すような施工工程やペレットの含水率を調整する ことで、施工を可能にしている。

(ii) わが国で一般的に想定される地下環境でのペレット充填方法

国内の地質環境下でペレット充填の適用を考える場合、スウェーデンの地質環境とは地下の処 分坑道内の湧水量が大きく異なる可能性があることに留意が必要である。

平成 28 年度のペレット充填オプションを適用した原位置試験では、ペレット全体の乾燥密度 を高めることを目的にペレット粒径を小径とした(原子力環境整備促進・資金管理センター, 2017)。しかし、地下水との接触面積が増加したことで施工途中に詰まりが生じ、密度を高めた 充填及び均等な充填ができずに課題が残った。施工の解決策として、ペレットに講じる方法とし て、a)湧水量に対するペレット粒径の適用性を確認、b)ペレットの膨潤を遅効させる材料の適用等 が考えられる。b)に関しては、例えば、ペレットの表面がコーティングされており、水質に関わら ず膨潤の遅効性をもつ材料が挙げられる。また、施工の手順としての対策も考えられるが、その 際には施工終了までにペレットに水が触れないような防水シートのようなカバーを使用して充填 後は撤去することで充填を可能にする、という方法も考えられる。以上のような対策を踏まえて、 湧水環境下におけるペレット充填の適用性や施工性を確認する必要がある。

② ペレットの流出量評価方法の検討

SKBは、ベントナイト系の人工バリアと天然バリアの界面の透水性評価として、緩衝材と母岩の隙間に充填したペレットのパイピング現象について研究している。亀裂からの湧水は、ペレットの膨潤圧数百 kPa に対して水圧が数 MPa と想定され、止水されずに孔内へ流入すると仮定している。そのため、パイピング現象によるベントナイト成分の流出は、処分坑道を埋め戻してプラグ設置して処分坑道への地下水流動が無くなるまでの期間における安全評価上の懸念の一つと捉えられている。

Börgesson and Sandén (2006) は、ベントナイトの膨潤によって水みちが閉塞する場合の流量 及び水圧を探ることを目的とした室内要素試験を実施している。直径 5 cm、長さ 10 cm の円柱型 のサンプル容器にベントナイトブロック試料を設置し、試料中心(軸)部に直径 2 から 4 mm の 隙間を予め設けた試験系である。一方向から強制注水させたときにサンプル容器内から排水され る流量と内圧を経時的に測定し、隙間の直径(2、4 mm)、塩分濃度(0、1%)、供試体長、流 量(0.0001 から 10 L/min)、水圧(0 から 19 kPa)をパラメータとして検討した。0.001 L/min を超える流量、または 4 kPa を超える水圧下では閉塞には至らず、流量及び水圧(孔内水位)制 御の必要性を述べている。

Sandén and Börgesson (2008) では、直径 10 cm アクリルパイプ内にペレットのみを充填さ せ、流量(0.001、0.01、0.1、1 L/min)、塩分濃度(0、1、3.5%)及び供試体長(0.2、0.5、1、 2.5 m)をパラメータとしたパイピングの形成条件を整理している。いずれの試験ケースにおいて もパイピングを形成するが、ベントナイト成分の流出量の観点で整理すると、流量が小さいかつ 供試体長(移行経路)が長いほど、流出速度は一貫して低く推移している。これは、水とペレッ
トが接触する速度や水の輸送経路の抵抗(ペレットの膨潤による詰まりや接触抵抗等)が影響し ていると考えられる。本試験結果をペレットの累積流出量と累積排水量の両対数グラフでプロッ トすると、傾き1以下の直線近似で整理されることが分かり、Sandén and Börgesson (2008)や Sandén and Börgesson (2010)では、式(2.6·1)で示されるべき乗モデルを提案している。ここに、 Ms は流出したベントナイトの累積重量(g)、Mw は排水した地下水の累積重量(g)、 β (=0.02 か ら 2.0) はある排出した地下水の累積重量の流出レベルで定義されるパラメータ、 α (=0.65) は 線形相関の傾きで定義されるパラメータを示す。

$$M_s = \alpha M_w^{\ \beta} \tag{2.6-1}$$

スウェーデンの処分候補地(フォルスマルク)は、低透水性の岩盤で処分孔及び処分坑道への 地下水流入量が少ない地下環境であり、SKBは処分坑道埋め戻しまでの期間において、処分孔か らの湧水量は最大 0.1 L/min と設定している。この値はベントナイトの膨潤によって生じる膨出 現象(膨出量 1 cm)を根拠としている(Sandén and Börgesson, 2008)。フォルスマルクでは、 湧水量 0.001 L/min を下回ることがモデル解析により予想されており(Joyces et al., 2013)、 0.001 L/min を基準に処分孔を wet(湧水量が多い孔)と dry(湧水量が少ない孔)に区分するこ とが実規模試験及びモデリングで検討されている。処分孔からの湧水量は、緩衝材及び埋め戻し 材を施工する上で重要なパラメータであり、区分された処分孔に応じた施工手順が検討されてい る。

それに対し、国内の処分概念(原子力発電環境整備機構,2021)では、緩衝材設置から処分坑道 を埋め戻すまでの施工に要する期間を284日(新第三紀堆積岩類)と想定しており、この期間に 緩衝材の流出によって損失する量を、緩衝材の性能を維持するために許容される量以内にするた めに、新第三紀堆積岩類では許容される湧水量(以下、[許容湧水量]という。)を0.83 L/min と 設定している。この許容湧水量は隙間未充填のケースを想定しているため、ペレット充填は緩衝 材の流出で損失する量に裕度を与えることとなる。したがって、ペレット充填における許容湧水 量は、0.83 L/min より大きく設定できると考えられる。ただし、許容湧水量を増加させる場合、 流路断面積は不変で隙間を流れる流速が増加するため、緩衝材の流出が流速パラメータにどの程 度影響を受けるのか検討する必要がある。

ペレット充填の室内試験の結果を含め、べき乗モデルでまとめたグラフを図 2.6-60 に示す(原 子力環境整備促進・資金管理センター,2018 など)。ペレット充填のケースは(図 2.6-60 の Kunigel V1 pellet のケース)流量一定下で実施しており、グラフの傾き β = 0.85 で近似される。これは、 緩衝材ブロックと同様の流出挙動を示す。ペレット充填で流量一定下のケースにおいて、長期的 に試験を実施していないため確証はないが、Börgesson and Sandén (2006)を例にとっても水み ちを閉塞する可能性は低く、ある流速を維持した状態で流出が継続することが想定され、その場 合にはべき乗モデルで評価できると考えられる。

流出挙動のうち、新第三紀堆積岩類を母岩とする地下環境下においては、周辺岩盤と孔内の水 位差は小さい可能性があり、ある水位差で水みちが閉塞する可能性もある。したがって、水位差 一定下の室内試験についても実施し、閉塞境界を把握することも一課題として挙げられる。



図 2.6-60 室内試験による緩衝材流出量

(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

ここでの解析モデルの開発に向けた検討では、不飽和から飽和に至る過程におけるベントナイ ト材料の膨潤による隙間の閉塞プロセスとそれに伴う密度分布の変化に関して、緩衝材と孔壁と の間に隙間が存在するような状況(例えば竪置きブロック方式における施工時に生じるブロック 界面と壁面との隙間など)を念頭に置き、再冠水過程における緩衝材への地下水の浸潤に伴う膨 潤及び隙間の充填過程について、力学解析による状態の予測評価を可能とする解析手法の構築目 指す。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 和化して緩衝材内部の応力が釣り合うまで状態変化が継続すると考えられる。

平成 31 年度までに得られた成果と課題について、既出の 2.6.1 (1)に背景として概略整理してい るが、以下に平成 31 年度までに抽出した課題について整理する。

- 緩衝材の再冠水過程における乾燥密度分布の変化は、膨潤、浸潤の挙動が複合的に起こる現象 を扱うこととなり、膨潤速度及び浸潤速度は初期の乾燥密度や隙間幅、緩衝材の厚さ、応力の 方向などの影響を受ける。実規模の緩衝材に対するこのような変化を、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、予測評価手法の構築に 向けて、解析体系の多次元化や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で得られた膨潤速度を十分に再現
 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と比
 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。

以上の課題認識に基づき、令和2年度から令和4年度に、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 度変化を実規模スケールで予測する解析手法の高度化開発について、図2.6-61に示すような検 討・開発を段階的に進めている。



図 2.6-61 緩衝材の飽和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

図 2.6-61 に概略的に示した段階的な開発を念頭においた令和 2 年度から令和 4 年度までの実施スケジュールを表 2.6-16 に示す。

令和2年度は、試験体サイズ(小型セル)を対象とした検討を実施した。令和3年度は、小型 セル試験体サイズの試験を継続し、解析の妥当性や材料パラメータの設定に資するデータの取得 を実施し、試験体サイズを対象とした解析手法の適用における材料パラメータの見直しを進める とともに、原位置試験スケールへの拡張に向けて、原位置での条件を考慮した解析手法や二次元 体系化に係る検討を実施した。

- 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)
 - ・材料パラメータの見直し
- ・ 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(原位置の条件を考慮した解析、二次元への拡張)
 - ・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 緩衝材の飽和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

令和2年度	令和3年度	令和4年度
計画策定、研究開発 アプローチの検討	計画策定	計画策定 ◆──→ ₩ ◆──→
二次元体系への拡張、 課題等に関する検討 ◆	スケールアップのための解析手法の検討 ◀━━━━▶	スケールアップのための解析手法の検討 モニー・ 実スケールの緩衝材の密度分布の予測

2) 小型セル試験での検証及び材料パラメータの見直し

① 小型セル試験結果による解析手法の見直し

令和2年度に、小型セル試験のサイズを対象として、緩衝材の飽和プロセスに関する解析手法の検討を実施し、不飽和ベントナイト供試体の上部に隙間を設けた小型セル内に給水することにより、供試体が上部(軸方向)に膨潤し隙間を充填する過程、さらに、隙間充填後の平衡状態に至るまでの過程を解析結果により示した(日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター,2021)。

令和3年度は、解析手法に関して、令和2年度までに実施した小型セル試験による検証データ を使用して、材料パラメータの見直しを実施した。なお、前記(1)に整理した令和3年度に得られ たX線CTによる隙間充填過程の分析で得られた試験データなどは、令和4年度以降の解析手法 の高度化に活用していくものとする。

後述する令和3年度に実施した小型セル試験の結果のうち、1-1cの膨潤圧を図2.6-65に示す。 軸圧は、供試体が隙間を充填・閉塞した時点(給水開始から9.9日後)から発生し始め、約0.5 MPaまで単調増加した。一方、側圧は、吸水直後から急激に上昇し、供試体が隙間を充填する自 由膨潤過程において最大値である3.27 MPaまで至り、その後、急減した。さらなる時間の経過 に伴い、減少は緩やかになり、約0.7 MPaの残留値(≒平衡膨潤圧)に至った。同様の条件で実 施された他のケースについても、側圧の最大値は約3 MPa が計測された。

ここで、本検討の解析には、有限要素解析コード DACSAR (Iizuka, et al., 1987;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。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 状態にある緩衝材の力学特性を表現するための改良を施したものである。具体的には、この解析 コードでは、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、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)の膨潤 挙動を要素応答としてうまく再現できる。

図 2.6-62 の試験結果と同様の境界条件での解析を令和 2 年度に実施した。解析に使用した不 飽和弾塑性構成モデルに関するパラメータを表 2.6-17 に示す。



図 2.6-62 小型セル試験の結果(Case 1-1c, 軸圧:黒線, 側圧:赤線)

to the	記号	単位	調整前の数値	調整後の数値
~ ~ ~ ~ ~ ~ ~ ~ ~ ~ ~ ~ ~ ~ ~ ~ ~ ~ ~			(図 2.6-63の解析条件)	(図 2.6-66の解析条件)
限界応力比	\overline{M}		0.63	同左
圧縮指数	λ	_	0.14	同左
膨潤指数 (飽和状態)	$\overline{\kappa}$		0.028	同左
有効ポアソン比	ν'		0.40	0.20
正規圧密曲線の基準圧	$p'_{ m ref}$	MPa	0.84	同左
基準圧に対応する間隙比	$e_{\rm ref}$		0.643	同左
塑性膨潤パラメータ	ζ		0.45	同左
不飽和モデルパラメータ	α		6.37	10.0
不飽和モデルパラメータ	θ		0.65	0.80
不飽和モデルパラメータ	l		2.23	5.00

表 2.6-17 不飽和弾塑性構成モデルに関するパラメータ

解析に使用した水分特性曲線は、式(2.6-2)に示した杉井・宇野(1997)によるロジスティック 曲線モデルを、透水係数は、式(2.6-3)に示した乾燥密度(間隙比)依存性を考慮した透水係数モデ ル(Börgesson et al., 1995)によるものである。これらのモデルに関するパラメータを表 2.6-18 に示す。

$$S_{\rm e} = \frac{S_{\rm r} - S_{\rm r0}}{1 - S_{\rm r0}} = \frac{1}{1 + s^B \exp(A)}$$
(2.6-2)

なお、Seは有効飽和度、s はマトリックサクションである。

$$k = k_0 \left(\frac{e}{e_k}\right)^{\lambda_k} \tag{2.6-3}$$

名称	記号	単位	パラメータ
水分特性曲線パラメータ*1	A	—	-3.00
水分特性曲線パラメータ	В	—	4.85
残留飽和度	$S_{ m r0}$	—	0.10
基準間隙比	e_{k}	—	0.368
基準間隙比に対応する透水係数	k_0	m/s	1.18e-13
透水係数の間隙比依存性の程度	2		0.15
を表すパラメータ	∕′k	_	2.15

表 2.6-18 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

※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

解析結果を図 2.6-63 に示す。なお、試験では供試体の高さ中央の一点で側圧が計測されたが、 高さ方向に等間隔で 6 点の位置での側圧を解析結果として示している。図 2.6-61 に示す試験結果 と比べると、①側圧の最大値が 1.3 MPa であり小さい、②軸圧が発生し始める時点が給水開始か ら約 19 日後であり、隙間の充填に要する供試体の膨潤スピードが遅い、という相違点が挙げられ る。



図 2.6-63 小型セル試験に関する解析結果(1-1c)

また、吸水初期には、吸水面に近い側から順に側圧が上昇しており、最大値を迎える時間には タイムラグがあるが、供試体の中央付近では最大値を迎える時刻がおおよそ4から8日であり、 室内試験で側圧最大が計測される時刻(約2日)と比べると、応答が鈍い傾向がある。これらの 相違点のうち、自由膨潤過程において発現する最大側圧について、試験結果との整合性を担保し た上で、次の原位置試験のシミュレーションを実施するために、弾塑性構成モデルのパラメータ のキャリブレーションを図った。

表 2.6-18 に整理したモデルパラメータのうち、透水係数モデルと水分特性曲線に関わるパラメ ータはそれぞれ、対象材料である緩衝材に対する透水試験(鈴木ほか,1992;松本ほか,1997)と 保水性試験(鈴木ほか,1999)の結果から同定されている。また、弾塑性構成モデルのパラメータ のうち、飽和状態における圧密特性やせん断特性に関係するパラメータのほとんどは、同材料に 対する力学試験の結果(高治ほか,1999)を参考に同定している。そのため、これらのパラメータ には設定根拠があることから、不飽和状態の力学応答に関連するパラメータである $_{\alpha}$, θ ,lの3 つとポアソン比v'を調整することとした。パラメータ $_{\alpha}$, θ ,lは、解析対象となる緩衝材に対する 膨潤圧試験で計測される膨潤圧を要素応答として表現できるように定めていたが、体積一定条件 で発生する膨潤圧を等方圧であると見做した上で同定されたパラメータであった。前節で述べた 側圧は、一次元的な膨潤変形を伴いながら発生するものであり、隙間が充填されるまでは軸圧(上 載圧)がないことからベントナイト供試体の応力状態が異方的であることも明らかである。また、 一次元膨潤過程における有効応力経路はポアソン比にも依存する。室内試験において側圧の計測 結果が得られたことによって、これらパラメータを調整する必要性が生まれた(調整することが 可能となった)。

パラメータは、まず、一次元自由膨潤を要素応答として扱い、膨潤過程で生じる側圧応答に注 目したパラメータの感度解析を実施することにより調整した。感度解析の結果から、室内試験で 計測される側圧の最大値(約3 MPa)が得られるようにパラメータセットを抽出した上で、その パラメータセットを用いた境界値問題としての膨潤試験シミュレーションを実施し、その妥当性 を検証した。感度解析で考慮した各パラメータの範囲は、 $0 <_{\alpha} \le 20, 0 < \theta \le 1, 0 < l \le 10, 0.2 \le v' \le 0.6$ である。この範囲内で各パラメータをランダムに変化させた感度解析から抽出されたパラメ ータセットを用いた一次元自由膨潤・要素応答シミュレーションの結果を図 2.6-64 に示す。調整 後のパラメータを表 2.6-17 に示す。

シミュレーションでは初期状態(乾燥密度:1.6 Mg/m³,含水比:10%,飽和度:74.3%)に対応するサクションを水分特性曲線から同定し(初期サクション:1.54 MPa)、一次元条件の下、サクションを0 MPa まで除荷する履歴を与えている。水分特性曲線に関連するパラメータは変えていないため、サクション除荷に伴う飽和度の上昇は、パラメータ調整の前後で同一である(図 2.6・64(a))。一方、パラメータの調整によって、一次元自由膨潤過程で発生する側圧はより大きく(最大側圧:約3.1 MPa)なっており、室内試験の計測値と同等の値が得られている。また、使用する構成モデルは、最大側圧が発生する時期と間隙比が著しく上昇し始める時期がほとんど一致する挙動を示すが、パラメータの調整によって、飽和度がより高い状態になってからこの時期が現れることになる。



図 2.6-64 一次元自由膨潤・要素応答シミュレーションの結果 サクション減圧に対する(a)飽和,(b)側圧,(c)間隙比の変化

調整後のパラメータを用いて実施した一次元隙間膨潤試験シミュレーションの再解析結果を図 2.6-65 及び図 2.6-66 にそれぞれ示す。パラメータ調整の結果、隙間充填に至るまでの自由膨潤過 程において発生する側圧が大きくなり、最大側圧が室内試験の計測値と同等に得られている。ま た、ある高さの側圧が最大に達する時刻もパラメータ調整前に比べると、より早期になっている ことも確認できる。一方、軸圧が発生し始める時刻、すなわち、ベントナイト供試体が 5 mm の 隙間を充填するために要する時間は、パラメータ調整前よりも若干長くなっている。応答の緩急 についてのキャリブレーションは透水係数モデルのパラメータを変更することで可能であるが、 根拠が不明確となることから、今後の課題と位置付けた。



図 2.6-65 解析結果(パラメータ調整後):膨潤量と軸圧の変化





② 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緩衝材の隙間膨潤に係る力学解析手法の検討にあたり、力学解析手法の妥 当性の確認やパラメータの見直しを目的として、膨潤によって隙間に緩衝材が充填したのち緩衝 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取得するため試験体サイズの 試験を実施した。

(a) 試験条件

各試験ケースを表 2.6-19 に示す。試験体サイズを対象とした検討の一次元解析体系に合わせて、 試験は円筒形の試験体を用いて軸方向の浸潤と膨潤を対象とした。本試験を実施する前に膨潤挙 動を確認する目的でケース 0-pre として予察試験を行った。

ケース 1-1a、1-1b、1-1c は、いずれも初期乾燥密度 2.0 Mg/m³の試料が膨潤し、隙間充填した 後の平均乾燥密度が 1.6 Mg/m³になる条件であるが、平衡に至る過程の応力状態や乾燥密度分布 に関するデータを段階的に取得することを目的としているため、試験終了の判断がそれぞれ異な る。ケース 1-1a は平衡に至る途中の乾燥密度の分布を調べるため飽和度が 100%になるための注 水を終えた時点を試験終了とし、ケース 1-1b と 1-1c は共に平衡状態に至った時点で試験終了と するが、ケース 1-1c はその途中経過の内部状態を確認するため一定期間を経た時点で終了し、残 るケース 1-1b は平衡に至ったとみなされるまでそのまま継続した。

ケース 1-2 は、平均乾燥密度 1.6 Mg/m³まで膨潤させ平衡に達したのち、さらに隙間を付与し て平均乾燥密度 1.4 Mg/m³まで膨潤させることで、緩衝材ブロックが孔壁まで膨潤し、その後さ らに流出によってできた水みちに再膨潤するような挙動を想定している。ただし、後述するケー ス 2 の試験状況から所定の膨潤量に達する前に膨潤が停止することが懸念されたため、平均乾燥 密度 1.5 Mg/m³まで膨潤させることに変更し継続した。

ケース2は、当初は隙間充填後の平均乾燥密度が1.4 Mg/m³となるまで膨潤させる設定であったが、目標の膨潤量8.6 mm に対して5.2 mm までしか膨潤せず停止したため試験を終了した。

ケース 2-1 とケース 2-2 は、上載圧の負荷が試料の膨潤挙動に与える影響を確認するために令 和 3 年度から新たに開始したケースで、共に平均乾燥密度が 1.5 Mg/m³となるまで膨潤させる試 験であるが、ケース 2-1 は変位計測のためのピストンを押し上げながら膨潤するため、その分の 負荷が上載圧として発生するのに対し、ケース 2-2 は隙間充填後の平均乾燥密度が 1.5 Mg/m³と なるように予め隙間を設けておき、その隙間が充填されるまでは上記のような上載圧の負荷はな く自由膨潤となる。

ケース3は、既出(1)の工学的対策の具体化において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、隙間未充填オプションのモデル(ケース 1から2)の場合と比較するために令和2年度から継続している試験である。

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、円柱状の試料 を初期乾燥密度 2.0 Mg/m³に締め固め、仕上がり層厚 5 mm×4 層となるように圧縮し層境は目 粗しを実施した

初期	初期	初期	初期	空隙	膨潤後	隙間	膨潤	隙間	膨潤過程	給水	令和 2
直径	高さ	含水	乾燥	体積	乾燥	高さ	後	容積	の上載荷	方法	年度か
		比	密度		密度		高さ		重(変位		らの試
Φ	H_0	w	$\rho_{\rm d0}$	Va	ρd	$\Delta \mathrm{H}$	Н		計側)の		験状況
(mm)	(mm)	(%)	(Mg/m ³)	(mL)	(Mg/m ³)	(mm)	(mm)	(mL)	有無		
									有		終了
					1.0	150	05	C 99	有		終了
					1.6	+5.0	25	6.28	有		継続
				1.40					有	/++ 3 +}/+-	終了
			2.0	1.49	$1.6 \rightarrow$	$+5.0 \rightarrow$	$25 \rightarrow$	6.28	去、毎	田田田	如此变击
10	20	10		(0.46)	1.5	+1.7	26.7	$\rightarrow 2.14$	有→無	上部の	州丕形元
40	20	(12)			1.4	+8.6	28.6	10.8	有	原间を 水で溝	終了
					1 5	0.7	00.7	0.49	有	小し個	継続
					1.5	6.7	26.7	8.42	無	70.9	継続
			1.6	6.22 (5.41)	_	ケイ砂 充填	20	砂 の 乾 燥 密 度 次 第	(ピスト ン固定)		継続
	初期 直径 (mm) 40	初期 直径 Φ Ho (mm) (mm) 40 20	 初期 初期 高当 合水 比 中 Ho w (mm) (%) 	初期 初期 初期 初期 初期 直径 高さ 含水 乾燥 Φ Ho w ρ d0 (mm) (mm) (%) (Mg/m ³) 40 20 10 2.0 10 12 1.6	初期 初期 初期 初期 初期 空隙 直径 高さ 含水 乾燥 体積 Φ Ho w ρ do Va (mm) (mm) (%) (Mg/m3) (mL) 40 20 10 2.0 1.49 10 12) 1.6 6.22	初期 初期 初期 初期 空隙 膨潤後 直径 高さ 含水 乾燥 体積 乾燥 Φ Ho w ρdo Va ρd (mm) (mm) (%) (Mg/m³) (mL) (Mg/m³) 40 20 10 1.49 1.6 1.10 1.20 1.49 1.6 1.5 1.4 1.5 1.4 1.5 1.4 1.5 1.4 1.5 1.6 6.22 -	初期 初期 初期 初期 初期 空隙 膨潤後 隙間 直径 高さ 含水 乾燥 体積 乾燥 高さ Φ Ho w ρ_{d0} Va ρ_{d} Δ H (mm) (mm) (%) (Mg/m³) (mL) (Mg/m³) (mm) 40 20 10 1.6 +5.0 1.6 +5.0 1.0 1.2 2.0 1.49 1.6 +5.0 1.40 1.6 +5.0 1.5 +1.7 1.4 +8.6 1.5 6.7 1.6 6.22 - γ γ 1.6 6.22 - γ γ 1.6 5.41 - γ γ			初期 初期 初期 初期 空隙 膨潤後 隙間 膨潤 隙間 膨潤 隙間 膨潤 隙間 膨潤 隙間 膨潤 隙間 膨潤 空隙 乾燥 応燥 応息 穴 応 高さ 次 容積 の上載荷 Φ Ho w ρ do Va ρ d Δ H H H multiple σ f	初期 初期 初期 初期 空隙 膨潤後 隙間 膨潤 隙間 隙間 膨潤過程 隙間 膨潤過程 穴間 膨潤過程 穴間 膨潤過程 穴面 方法 Φ Ho W ρ_{d0} Va ρ_d Δ H H a $0 \pm \overline{a} + \overline{b} + b$

表 2.6-19 試験ケース

(b) 試験装置

試験装置の概要を図 2.6-67 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 2.6-67(a))を用い、供試体が所定の量まで膨潤する 過程(以下、[膨潤過程]という)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(試験体の上面の位置)の経時変化を計測 した(以下、[膨潤量試験]という)。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を測定する試 験に移行した(以下、[膨潤圧試験]という)。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 2.6-67(b)に示す。上部で発生する膨潤圧(軸圧)の経時変化(以下、[膨潤圧過程]と いう)は前節で検討している解析の検証データとなる。また、試験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。

なお、前述のように、ケイ砂の充填や隙間を固定する条件のケースでは、膨潤量試験を経ずに 最初から膨潤圧試験を行っている。





(a)膨潤過程の試験装置

(b)膨潤圧過程の試験装置

図 2.6-67 試験装置の概要(断面)

(c) 試験結果

図 2.6-68 及び図 2.6-69 にケース 1-1b 及びケース 1-1c の試験開始から約 375 日までの膨潤圧 の経時変化を示す。同一条件下での試験であるため双方とも同じような膨潤傾向であるが、ケー ス 1-1b では 150 日手前で軸圧が側圧を上回りその後も上昇を続け、側圧と一定の間隔を保ちつ つ定常に至るような挙動に対し、ケース 1-1c では 200 日手前で軸圧が側圧を上回るが、250 日を 過ぎたあたりから軸圧に追従するように側圧も上昇し、ほぼ同じ値で定常に至るような挙動を示 している。



図 2.6-70 にケース 1-2 の試験開始から 378 日までの膨潤圧の経時変化を示す。このケースは 第一段階として平均乾燥密度 1.6 Mg/m³まで膨潤させ平衡に至ったとみなされたのち、試験開始 から 264 日後に第二段階としてさらに空隙を設け平均乾燥密度 1.5 Mg/m³まで膨潤させている。 このケースもケース 1-1c と同様に、第一段階で軸圧の上昇に伴い側圧が追従するような挙動が表 れているが、第二段階では側圧は一旦急減したのち追従前の定常値まで回復し留まっている。今 後、軸圧が上昇し側圧に追いついたときに第一段階と同様な挙動になるのか、解析上の現象の取 り扱いのために確認していく必要がある。

図 2.6-71 にケース 2 の試験開始から 267 日までの膨潤圧の経時変化を示す。側圧は初期に 3 MPa 程のピークが表れたのち急減して 0.6 MPa あたりで定常に至っている。前述のように所定の膨潤量に達することなく膨潤が停止したため軸圧は発生していないが、側圧の膨潤挙動は他のケース同様の挙動を示している。



図 2.6-72 と図 2.6-73 にケース 2-1 及びケース 2-2 の試験開始から 78 日までの膨潤圧の経時 変化を示す。膨潤量試験過程を経た上載圧のあるケース 2-1 は他のケースと同様の膨潤挙動であ るが、初期に所定の隙間を設けた上載圧のないケース 2-2 では前者に比べ側圧のピーク値が低く、 その後急減する様子も緩やかであり上載圧の有無によって初期の発現挙動に差異があることが示 された。



図 2.6-72 ケース 2-1 の膨潤圧の経時変化 図 2.6-73 ケース 2-2 の膨潤圧の経時変化

図 2.6-74 にケース 3 の試験開始から 365 日までの膨潤圧の経時変化を示す。隙間にケイ砂を 充填したケースにため、他のケースとは初期のピークの発現挙動が異なるが、現時点では側圧に 関しては定常に至っているとみなされるが軸圧は上昇を続けている状態である。



図 2.6-74 ケース3の膨潤圧の経時変化

(d) 供試体の解体結果

図 2.6-75 にケース 1-1c の解体時の供試体観察を示す。解体は膨潤圧試験に用いたセルから押 し出した部分を超音波カッターで切る(削る)ことによって行われ、供試体の給水面から排水面 まで全部で 17 層の断面を観察した。給水面近傍である 1 層目(給水面より 0.489 mm の断面) は膨潤によって断面が滑らかであり、途中の 6 層目(給水面より 5.378 mm の断面)及び 12 層 目(給水面より 12.708 mm の断面)、排水面近傍である 17 層目(給水面より 23.251 mm の断 面)においても十分に飽和している状況が観察された。なお、切断面の所々に見える空隙は超音 波カッターで切る(削る)際に取り除いたケイ砂の跡である。



(a)給水面

(b)1 層目断面

(c)6 層目断面

(f)排水面



(d)12 層目断面

(e)17 層目断面 図 2.6-75 ケース 1-1c 解体時の供試体観察

図 2.6-76 に、解体結果から得られる含水比と乾燥密度、さらに飽和度の分布を示す。参考として、令和2年度に実施したケース1-1aの分布も記した。この図から、ケース1-1cはケース1-1aのように給水側の含水比が大きく排水側が小さいというような傾向はみられず、均一化が進んでいることが分かる。さらに、乾燥密度は給水側の方が小さくなる傾向を示しているものの、ケース1-1aよりは均一化が進んでいる。飽和度も計算上、概ね100%を超えており、十分に飽和しているという結果となった。なお、飽和度が100%を超えるのは、ベントナイトの土粒子密度を計測する際に、ベントナイトに含まれるパイライトなどの可溶な随伴鉱物が溶解するために、その土粒子密度を過小評価しているためではないかと考えられる。



本試験によって、令和2年度よりも長期の膨潤圧過程のデータや、供試体の解体結果から乾燥 密度や飽和度の分布に関するデータを得た。今後、これらのデータをもとにした解析結果との比 較から抽出された課題を整理し、必要に応じて力学解析の材料パラメータの設定を見直すことで、 より高度な解析手法の構築を進める必要がある。

3) 実規模 1/4 スケールに拡張した解析手法の検討

① 解析対象及び解析体系

小型試験体スケールで、2)までに材料パラメータの見直しをした解析手法について、令和2年 度に幌延URLの地下350mで実施した、緩衝材の原位置における流出試験(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,2021)のスケール(実規模の1/4スケール)に 拡張して検討を実施した。解析の体系や境界条件は、原位置の流出試験(図2.6-77)に基づき設 定して検討した。



原位置の流出試験の緩衝材は、試験孔内に充填したケイ砂の上に設置され、8分割×5段(高さ 500 mm)のブロックからなる。緩衝材の水平断面は、ドーナツ状であり、その内側面は円柱形の 治具に接する。緩衝材ブロック設置時の緩衝材の外側面と孔壁の間に 20 mm の隙間がある。緩衝 材の上面に、緩衝材の膨出を防止するために鋼製の蓋を設置した。地下水は、岩盤あるいは緩衝 材下部のケイ砂層から自然湧水し、湧水の一部は緩衝材に浸透し、残りは上蓋の周辺から排水さ れ、コンクリートピット部でポンプアップした。自然湧水を緩衝材が吸水し膨潤すると、孔壁と 緩衝材の隙間は充填され、緩衝材の外側面と孔壁が接触する。つまり、排水面の高さは緩衝材上 面の高さとほとんど一致する。また、湧水が継続的にあるためには、動水勾配をもたらす水頭差 が必要である。湧水量の確認試験の結果(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, 2021)によると、孔内の湧水はその水位が路盤コンクリート表面と同じ高さに至る まで継続している。このことから、岩盤側の水位は路盤コンクリート表面と同じ高さにあり、排 水面との水位差は 0.45 m と推察される。

緩衝材上面・底面・孔壁には土圧計を、緩衝材の上部の蓋を固定する治具には荷重計をそれぞれ設置して緩衝材の膨潤圧が計測された。また、円柱形治具の中心は空洞になっており、緩衝材 底面位置の水頭を空洞内の水面高さから計測がされた。

以上の原位置試験における試験条件、試験孔や地下水の流れを境界条件として、緩衝材への地下水の浸潤とそれに伴う膨潤等の挙動のシミュレーションの検討を実施した。検討にあたり試験体系が軸対称であることを仮定し、一次元ならびに二次元解析を段階的に実施する。図 2.6-78 に 円筒一次元ならびに円筒二次元解析モデルの概念図を示す。

一次元解析では、緩衝材、隙間、岩盤(中心軸から近い順)を解析対象とした。岩盤からの湧水 によって隙間に地下水が満たされ、緩衝材が外側面より地下水を吸水する過程を解析対象とし、 緩衝材内の浸透や変形は、主に水平方向にのみ生じると仮定した。吸水過程は2つのフェイズに 大別される。第1のフェイズは、緩衝材が半径方向に膨潤して20mmの隙間を充填するまでで あり、この間、緩衝材の外側面における水頭は0mm(排水面を基準高さとする)に維持される。 また、岩盤の外側面(図中の右端)の水頭は500mm、内側面(図中では左端)の水頭は0mmに 維持する。すなわち、隙間が充填するまでは、岩盤内の動水勾配は常に一定であり、中心軸に向 かう方向に地下水が定常的に流れる状況を想定する。第2のフェイズは、緩衝材によって隙間が 充填された後の期間である。この間、緩衝材と岩盤の界面からの排水はないものとし、岩盤から 湧いた地下水はすべて緩衝材に浸透すると仮定する。緩衝材が飽和し、全域の水頭が500mmと なる平衡状態までを解析する。

二次元解析モデルは、ケイ砂層が無いモデルであり、鉛直方向の解析領域は緩衝材の高さ 500 mm と設定している。吸水過程の第1フェイズは、ほとんど一次元解析と同様であるが、オプシ ョンとして緩衝材上面・底面の試験装置との摩擦を考える場合は、緩衝材の側方変位が高さ方向 に不均一に発生し得る。側方変位が高さによって異なるということは乾燥密度も高さ方向に不均 一になっているはずであり、これによって、隙間充填後、緩衝材の外側面における側圧に不均一 分布が形成される可能性もある。吸水過程の第2フェイズでは、緩衝材と岩盤の界面の下端点で は非排水とするが、上端点は排水面が緩衝材の上面と同じ位置になるような排水条件とする(緩 衝材の流出と関連する孔壁と緩衝材の接触付近の水みちは、まず考慮しないで検討する)。この 水理境界条件によって、緩衝材ないし岩盤内に上向きの地下水流れが生じ、鉛直方向の不均一分 布が形成されることが考えられる。一方、モデル2は、ケイ砂面を介した緩衝材底面からの地下 水の浸透を考慮するものであり、緩衝材内の上向きの地下水流れを許容するモデルとなっている。



図 2.6-78 一次元・二次元解析モデルの概念図

令和2年度の原位置の流出試験結果(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,2021)によると、緩衝材の上下面で計測される土圧(軸圧)に差があること、また、緩 衝材の側面で計測される土圧(側圧)が高さによって異なること等、緩衝材内を浸透する地下水 の上下方向の流れに起因する不均一性の現れや緩衝材とその周辺材料との界面の摩擦の影響を示 唆する計測結果が示されている。このような複雑な挙動の主因を特定についても、解析条件を上 述の様に段階的に複雑化することで検討することとした。

一次元解析による検討

(a) 解析条件及び材料パラメータ

図 2.6-79 に一次元解析モデルを示す。軸対称条件の下、半径方向の変位のみを許容し、緩衝材 の左端(中心軸に近い側の端点)及び岩盤の右端(中心軸から遠い側の端点)を変位固定とする。 緩衝材の厚さは、緩衝材ブロックの寸法より 170 mm とした。岩盤の厚さは、岩盤内の動水勾配 の大きさに影響を与える。単位時間あたりの湧水量と岩盤の透水係数から、一次元解析における 妥当な厚さを同定することが一般的であるが、この解析では、1,000 mm とした。緩衝材と岩盤 は、9節点アイソパラメトリック四角形要素を用い、水平方向に領域を分割する(分割要素数は後 述)。緩衝材と岩盤の間にはジョイント要素を設け、その初期厚さは隙間相当の 20 mm とした。

緩衝材の初期水頭は、初期飽和度に相当するサクションを水分特性曲線から算出し、それを水 頭換算した値を設定する。一方、岩盤の初期水頭は、内側を0m、外側を0.5mとした。湧水の 開始は、緩衝材の外側の端点における水頭を上昇させることで模擬した。端点の水頭は、緩衝材 の初期サクション相当の初期値から排水面における水頭である0mまで、1日の時間をかけて上 昇するように設定した。自由膨潤の過程では、隙間に面する要素の有効応力が減少することにな る。有効応力の値が小さくなればなるほど、増分解析におけるステップあたりのサクション増分 が小さくなるように時間増分を設定しなければ、稀に計算が破綻することがある。また、計算の 破綻を招かない時間増分は、同じ領域を対象とした解析であっても要素分割数や透水係数によっ て異なる。本検討の解析では、どのケースにおいても、基本となる時間増分設定によって計算を 行い、途中で計算が破綻するようであれば、より細かい時間増分を再設定し計算をやり直すとい うトライアンドエラーを繰り返した。したがって、計算が破綻することなく得られた解析解を解 析結果として示すことになるが、その解がどの程度の数値誤差を含んでいるかは未知であり、最 終的に設定された時間増分が最適であるかどうかの検証も不十分であることに注意しなければな らない。各ケースで設定した1ステップあたりの時間増分は、ベントナイト緩衝材外周(右端) での水頭上昇過程(1日)では0.001日(1,000ステップ)、その後の放置過程(1,400日)では 0.00093日(1,500,000ステップ)とした。

緩衝材の材料モデルは、2)の検討で使用したモデルに基づき、弾塑性構成モデル、透水係数モ デル、水分特性モデルからなる。弾塑性構成モデルの材料パラメータは、2)の調整後の値(表 2.6-17)を用いた。透水係数モデル、水分特性モデルのパラメータ値は、2)の表 2.6-18 の値を用いた。 岩盤は、線形弾性体としてモデル化した。解析に用いた岩盤に関するパラメータは表 2.6-20 に示 す、令和2年度に設定した値を用いた(日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理 センター, 2021)。ジョイント要素は、隙間が2.0 mm に狭まるまでは、無視できる程度の剛性と し、緩衝材の膨潤に抵抗しないものとした。隙間が0.0 から2.0 mm にあるときは、その剛性を 1.0×10⁶ kPa/mmとし、0.0 mm になったとき、ジョイント両面の節点の相対変位が生じないよ う設定した。緩衝材の初期状態は、乾燥密度が1.92 Mg/m³、含水比が10.5%とした。これに対 応する初期飽和度は72%であり、水分特性を介して、初期サクションは1.8 MPa と定まる。



図 2.6-79 一次元解析モデルの概要

名称	記号	単位	値
ヤング率	Ε	MPa	$3.50 imes10^3$
有効ポアソン比	V'	_	0.30
透水係数	K	_	$3.0 imes 10^{-6}$

表 2.6-20 岩盤の材料パラメータ(線形弾性モデルと透水係数)

(b) 緩衝材の状態変化の把握と有限要素分割数依存性の検討

ー次元解析では、湧水開始から隙間の閉塞、平衡状態に至るまでの緩衝材の状態変化を解析的 に把握すると同時に、解析コストの低減の観点から、対象とする問題についてどの程度まで有限 要素の分割数を少なくすることが可能かを検討した。解析のケースは、要素分割数を変えた同じ 境界条件の4ケースの解析結果を示す。4ケースの名称、ならびに、要素分割数を表 2.6-21 に示 す。

ケース名称	緩衝材	隙間	岩盤
	四角形要素数	ジョイント要素数	四角形要素数
B50R50	50	1	50
B40R30	40	1	30
B30R20	30	1	20
B30R05	30	1	5

表 2.6-21 一次元解析の要素分割数

図 2.6-80 から図 2.6-85 に、緩衝材の飽和度、乾燥密度、軸圧(上下方向)、側圧(半径方向) 及び周圧(円周方向)の分布の経時変化を、代表点における諸量の経時変化を図 2.6-86 から図 2.6-89 をそれぞれ示す。要素分割数により解析結果は概ね同じ傾向を示している。先ず、解析の 結果を、ケース B50R50 により以下に説明し、分割数の影響の詳細については後に詳しく述べる。

隙間が閉塞するまでの緩衝材の挙動は、先ず、地下水の浸透によって、サクションが外側面に 近い側(図の右側)から先行して低下する(図 2.6-80 の(a))。これに対応して、外側面に近い側 から飽和度が上昇する(図 2.6-81 の(a))。湧水の浸透により緩衝材の全体が完全に飽和化するま でに 400 日程度を要している。緩衝材の膨潤による 20 mm の隙間の閉塞は、飽和化の途上であ る。ジョイント要素が剛性を発揮し、緩衝材の外側面に表面力が作用し始めるタイミング、すな わち、隙間が 2.0 mm にまで狭まった時点を隙間閉塞と定義すれば、給水開始から 55.2 日経過し た時点となる。乾燥密度の分布変化は(図 2.6-82 の(a))、隙間充填に至った時点で緩衝材の外側 面の近傍が著しく膨潤し、0.2 Mg/m³まで低下している。

隙間閉塞後の緩衝材の挙動は、緩衝材の内側が飽和化しながら緩やかに膨潤するため、外側面 近傍では乾燥密度が回復し再圧密される。再圧密により、平衡状態に至るまでに外側面近傍の乾 燥密度は1.75 Mg/m³まで回復している。平衡状態の乾燥密度分布は、不均一が残存しており、緩 衝材の外側面のやや内側の領域が比較的低密度である。内側はほとんど均一な状態にあり、乾燥 密度は1.70 Mg/m³程度に収束している。なお、分布図を見ると、面的には大部分が平均乾燥密度 1.60 Mg/m³を上回る乾燥密度にあるが、半径距離が大きい程、比例して円周が大きくなるので、 乾燥密度を体積積分して全体積で除すれば、正確に1.60 Mg/m³となる。

次に、地下水の浸透に伴って発生する膨潤圧(軸圧、側圧、周圧)に関しては、軸圧と周圧が飽 和度の上昇に伴って上昇し、飽和度がほぼ100%に至った時点で最大値に達している(図 2.6-81 の(a)、図 2.6-83の(a)、図 2.6-85の(a))。軸圧と周圧は、周圧の方が小さい値を保ちながらも、 ほぼ同じ増減の傾向である。軸圧と周圧が最大となった後、いずれも減少するが、隙間の閉塞に よって増加に転じ、平衡膨潤圧に至る。緩衝材全体が平衡状態に至ると、緩衝材の内側から約 30 mm 付近の軸圧が最大となる。一方、周圧最大となる領域は緩衝材内側面近傍であり、注目する 主応力によって平衡時に最大値が現れる領域に違いがあることが分かる。

浸潤により飽和度がほぼ 100%となる位置で、膨潤方向に直交する方向の膨潤圧(軸圧、周圧) に最大値が現れる応答は、2)の②の軸方向の膨潤でも確認される。ただし、軸圧 と周圧 の最大 値は内側になるほど小さくなっている(図 2.6-87の(a)、図 2.6-89の(a))。このように、位置(半 径座標)によって発生する膨潤圧の大きさが変わる応答は、浸透方向に直交する断面積が半径座 標によって変化する側方向膨潤に特有の傾向であり、浸透方向に直交する断面積が不変である軸 方向の膨潤との相違点である。

また、側方膨潤では、ゼロとなるひずみ成分は軸方向ひずみのみあり、側方向ひずみが発生し つつ、周方向ひずみも発生する。3つの主ひずみの大きさが異なり、膨張が側方>周方向>軸方向 (=0)のという関係が概ね成り立つことから、変形を拘束するために発生する軸圧が最も大きいという大小関係になると説明できる。

原位置試験においては、軸圧としての土圧は緩衝材の上面と底面で計測されている。計測され た底面土圧は、約 2.0 MPa まで土圧が上昇し、その後、0.5 から 1.0 MPa (値は、土圧計が設置 された半径方向の位置にも依る)まで減少しており、図 2.6-87 の(a)に見られる軸圧 の発生は、 上面よりも底面の土圧の応答に近い。しかしながら、試験における土圧の最大値の発現は、試験 開始から約 10 から 20 日が経過した頃であり、解析結果として現れる軸圧の応答は極めて緩慢で ある。

膨潤方向に一致する応力成分である側圧 は、上述の軸圧 と周圧 とは全く異なる変化を示して いる(図 2.6-84 の(a)、図 2.6-88 の(a))。隙間が完全に閉塞するまでは、緩衝材の外側の側圧 は ゼロを維持するが、内側では負の側圧が生じている。緩衝材の外側が膨潤し半径方向外向きに変 位することに伴って、緩衝材内側には半径方向に引張り応力が作用する。内側面に位置する節点 は半径方向の変位が固定されているため、緩衝材と内壁の境界となる面に非ゼロの垂直応力が発 生することはあり得るが、仮に、この変位拘束が無ければ、ここで発生した負圧をキャンセルす るために緩衝材内側面は半径方向外向きに変位することが予想される。つまり、緩衝材の内側に 存在する円柱形治具、あるいは、実際の地層処分であれば廃棄体との間に、一時的でありながら も、新たな隙間が形成されることが解析結果から示唆される。図 2.6-84 の(a)に示すように、外周 に存在していた隙間が閉塞すると、緩衝材の内側にも正の側圧、すなわち、膨潤を拘束するため の膨潤圧が発生している。緩衝材が半径方向の外向きに膨らむことができなくなれば、内向きに 膨らむしかなく、それすら叶わなければ、膨潤圧が発生する。内側面の変位拘束が無いと考える と、緩衝材の内側に隙間が発生し得ることを指摘したが、外側の隙間が閉塞されれば、次いで、 内側の隙間も閉塞すると予想される。

隙間の閉塞と膨潤圧の発生開始について説明を加える。乾燥密度の時間変化を見ると(図 2.6-86の(a))、給水開始から55.2日後に、緩衝材の最も外側にある位置(内側面から170 mm)での乾燥密度が増加に転じている。幾何学的にはこの時点が隙間閉塞と言えるが、乾燥密度が非常に低く(0.2 Mg/m³)、ある程度、密度が回復するまで、有効応力も全応力も非常に低いままであり、給水開始から55.2日が経過しても、しばらくは外側面の側圧はほとんどゼロである(図 2.6-88の(a))。有意に側圧が発生し始めるのは、ジョイント要素が完全に閉塞するのと同時であり、給水開始から約550日と判断される。原位置試験において計測される側壁で計測される土圧の変化は、試験開始から数日で発生し始め、土圧計の設置高さにも依るが、約50日も経過すれば、0.6から1.0 MPaの値に達している。軸圧と同様、側圧の変化を見ても、解析結果の応答は極めて緩慢である。

有限要素の分割数の依存性について述べる。ここで設けた分割数であれば、諸量の分布やその 時間的変化など、大域的にはほとんど差異がない。しかしながら、局所的には幾つかの挙動につ いて分割数依存性がある。例えば、外側面近傍の乾燥密度変化であり、要素のサイズが大きくな ると、自由膨潤過程において、外側面近傍の乾燥密度低下量が小さく(膨潤変形が小さく)、膨 潤速度も緩慢になることが確認できる(図 2.6-86)。これにより、緩衝材の側面での半径外向き 方向の変位速度も鈍くなり、隙間閉塞までより長い時間を要している。外側面近傍は、給水開始 直後に軸圧と周圧が急激に上昇するものの、即座に低下し、継続する自由膨潤過程では有効応力 がゼロに近づいていく状態が続く。この有効応力の低下が膨潤をもたらすことになるのだが、こ の膨潤領域は狭い。つまり、隙間の充填を担っているのは、緩衝材の外側面近傍の僅かな領域で ある。また、膨潤領域と未膨潤領域の間の変遷領域も狭く、変位勾配が急である。このような局 所領域や遷移領域をカバーできる程度の要素サイズが必要であるが、それよりも要素サイズが大 きくなると、徐々に応力や変形を均して評価してしまうため、有効応力低下と膨潤変形を過小に 算出する解析結果が得られているものと考えられる。よって、本解析の要素分割は、緩衝材の半 径方向を均等幅に採る必要は必ずしもなく、外側面に近い領域の要素の幅を狭く設定すれば良い。



- 次元解析:サクション分布変化 図 2.6-80



図 2.6-81 一次元解析: 飽和度分布変化







図 2.6-89 一次元解析:代表点における周圧変化

(c) 透水係数の影響に関する検討

(b)の解析結果において、現状の解析モデル、あるいは、材料パラメータでは、原位置試験に比べて、非常に緩慢な応答となった。解析対象としている問題においては、時間的変化を大きく支配するパラメータは透水係数であることから、ここでは、どの程度の透水係数パラメータを設定すれば原位置試験での時間的変化に整合的であるかを試行的に検討した。

表 2.6-22 に各解析ケースのパラメータを示す。ここでは、(b)の B30R05 に対して、透水係数 が 2 倍となる B30R05K02 と 10 倍となる B60R05K10 を設けた。透水係数モデルは、間隙比に 依存して透水係数値が変化するため、ko の設定を変更した。なお、緩衝材の要素分割数は、 B60R05K10 のみ、解析の収束性を考慮し 60 に変更した。各解析ケースの時間増分、ステップ数 及び期間を表 2.6-23 に示す。

ケーフタ	基準間隙比	基準間隙比に対応する	間隙比依存性
ケース名	e_{k}	透水係数 k ₀ (m/s)	パラメータれ
B30R05	0.368	$1.18 imes 10^{-13}$	2.15
B30R05K02	0.368	$2.36 imes 10^{-13}$	2.15
B60R05K10	0.368	$1.18 imes 10^{-13}$	2.15

表 2.6-22 各解析ケースにおける透水係数モデルに関するパラメータ

	水頭上昇過程			放置過程			
ケース名	時間増分	フニップ教	期間	時間増分	フニップ米	期間	
	(日)	ステツノ毅	(日)	(日)	ヘチッノ数	(日)	
B30R05	0.001	1,000	1.0	0.00093	1,500,000	1,400	
B30R05K02	0.001	1,000	1.0	0.00025	2,800,000	700	
B60R05K10	0.00025	4,000	1.0	0.00017	1,950,000	325	

表 2.6-23 各解析ケースにおける時間増分、ステップ数及び期間

緩衝材内の分布変化を図 2.6-90 から図 2.6-95、代表点における諸量の経時変化を図 2.6-96 から図 2.6-99 に示す。(b)の透水係数 1 倍のケースは全ての図で、吸水開始から 1,400 日までの時間スケールであるが、透水係数の大きさに反比例して、B30R05K02 では 700 日まで、ケース B60R05K10 では 140 日までのスケールで図示している。前節の B30R05 と比べると、諸量の変化は B30R05K02 でおおよそ 2 倍速、B60R05K10 でおおよそ 10 倍となっている。これらの結果 から類推すると、原位置で計測される軸圧(緩衝材の底面での土圧)の最大値が発現する時刻を 得ようとすれば、透水係数をおおよそ 20 倍に採ればよいと考えられ、浸潤速度に 20 倍の違いが ある。室内試験スケールと原位置スケールの透水係数が同等であるのか等、さらなる検討を要す る。





図 2.6-91 一次元解析(透水係数の影響): 飽和度分布変化







図 2.6-93 一次元解析 (透水係数の影響):軸圧分布変化



図 2.6-94 一次元解析(透水係数の影響):側圧分布変化





(d) 今後の課題の整理

(b)及び(c)の一次元の解析結果より、これまでに小型試験体サイズで構築した解析手法にて、原 位置試験の膨潤圧等の挙動を概ね再現することができた。本検討から得られた成果や課題を以下 に示す。

- 解析結果の緩衝材の内側(実規模におけるオーバーパック側)に引張応力が発生した。緩衝材の内側を固定境界としたことが原因と考えられ、今後、解析条件に考慮する必要がある。
- 緩衝材の要素分割数依存性について確認した結果、隙間周辺の挙動が分割数によって異なることが分った。要素幅が大きいほど、変化は均される傾向であることから、今後、要素分割は、隙間付近の要素の幅を小さくするなどの配慮が必要と考えられる。
- 解析結果は、原位置試験結果よりも現象の進行速度が緩慢であり、透水係数の設定に換算すれば、20倍程度の違いがあった。小型供試体スケールと原位置試験スケールの透水係数の違い等を分析し、考慮すべき現象や解析条件の設定等を検討する必要がある。
- 透水係数を大きくした場合に、元の透水係数での解析結果を同じ精度で得るには、要素分割数 を大きくする必要がある。今後の二次元の解析手法の検討では、以上に示した課題について相 互の関係も考慮し、現象の再現性を確認しながら進める必要がある。
- 地下水の浸透による緩衝材の膨潤に伴い、隙間の充填が進むが、緩衝材が拘束される方向には 膨潤圧が発生する。緩衝材の外周に隙間があり、隙間から地下水が浸透する竪置きブロック方 式の体系を模擬した一次元の解析結果によれば、緩衝材が側方向へ膨潤し隙間を充填するが、 この間に生じる軸方向の膨潤圧と周方向の膨潤圧は同じではない。加えて、隙間が充填される と、側方向の膨潤圧も発生し、挙動は複雑である。また、これらの大小関係は、緩衝材の寸法 や形状に依存することが予想される。緩衝材の乾燥密度が、平衡状態となった時の分布の説明 性は、それに至る履歴が大きく影響することから、これらの膨潤圧や変形挙動を理解しつつ、 実規模サイズの解析手法の検討や、様々な処分方式への解析手法の適用などを進める必要があ ると考えられる。

③二次元解析による解析手法の検討

(a) 解析条件

①で概説した二次元解析について解析を実施した。ここでの二次元解析では、緩衝材の上面・ 底面・内側面・外側面(隙間充填後)の摩擦は考慮しない。そのため、隙間が充填されるまでの吸水過程の第一フェイズは、一次元解析と全く同じ条件での解析となる。一方、隙間充填後の吸水 過程の第二フェイズは、緩衝材上縁からの排水を許容するため、緩衝材ないし岩盤内に上向きの 地下水流れが発生し、半径方向だけでなく鉛直方向にも乾燥密度や飽和度の不均一分布が形成し 得る。

図 2.6-100 に二次元解析モデルを示す。軸対称条件の下、緩衝材の内側面及び岩盤の外側面に ついては、上下端以外、鉛直方向の変位を許容する。また、緩衝材と岩盤の上面・底面に沿う変 位は、緩衝材の左端及び岩盤の右端を除き、半径方向の変位を許容する。緩衝材と岩盤は、9 節点 アイソパラメトリック四角形要素を用い、緩衝材を 150 要素(半径方向 30 要素で等分割、鉛直 方向 5 要素で等分割)、岩盤を 25 方向 5 要素で等分割、鉛直方向 5 要素で等分割)で要素分割 している。緩衝材と岩盤の間にはジョイント要素を設け、その初期厚さは隙間相当の 20 mm とし た。緩衝材の初期乾燥密度は、原位置試験の想定と同じく、1.92 Mg/m³ である。20 mm の隙間を 充填すると、緩衝材全体としての平均乾燥密度は 1.60 Mg/m³になる。初期含水比は 11.15%であり、これに対応する初期飽和度は 72%、水分特性を介して、初期サクションは 1.8 MPa と定まる。



図 2.6-100 二次元解析モデルの概要

緩衝材の初期水頭は、一次元解析と同様に設定する。岩盤の初期水頭は、隙間に面する内側面 を0m、外側を0.5mとし、初期から半径方向に線形な水頭分布があることを仮定した。湧水の 開始は、緩衝材の外側の端点における水頭を上昇させることで模擬した。端点の水頭は、緩衝材 の初期サクション相当の初期値から排水面における水頭である0mまで、1日の時間をかけて上 昇するように設定した。緩衝材の膨潤によって隙間が閉塞した後、一次元解析においては、隙間 があった位置からのさらなる排水は許容せず、緩衝材と岩盤の接触面での水頭は同値の未知数と して扱った。二次元解析においても、緩衝材上縁以外の接触面では、上記と同様、同じ高さの節 点における水頭を同値の未知数として扱うこととするが、上縁の節点のみ、排水が継続して許容 される様、水頭値を0mに保つ。

緩衝材、岩盤、ジョイント要素、それぞれについて用いるモデル、パラメータは②の一次元解 析の条件と同じである。

(b) 解析結果

緩衝材への地下水浸透開始から100、200、400、800及び1,000日経過後の飽和度の分布を図 2.6-101に示す。緩衝材の外側面からの地下水浸透により、外側から徐々に飽和度が高くなり、 400日経過すると、緩衝材の内側までがおおよそ飽和状態に至っていることがわかる。200日経 過時には隙間が閉塞しており、4.3節に示した一次元解析と同様の結果が得られている。



図 2.6-101 は地下水浸透開始から 100、200、400、800 及び 1,000 日経過後の軸圧の分布であ る。緩衝材の内側に高飽和度領域が広がると、その最前線で軸圧が顕著に上昇し、約 1.9 MPa の 高圧帯が形成されることが分かる。このような傾向は、やはり、一次元解析と同様であり、帯は 幅が広がりつつ緩衝材内側へと移動している。隙間が閉塞してから後は、緩衝材の内側面よりや や内部(右側)に高圧帯が残留している。この高圧帯の形成は一次元解析でも見られたが、ここ に示す二次元解析の結果では高圧帯の中でも上面に近い程、軸圧が低下する傾向が見られる。こ の解析では自重を無視しているため、同じ半径位置における軸圧の値が高さ方向に変化する理由 は、現時点では見当たらないことから、この結果の妥当性は議論の余地がある。





図 2.6-103 は地下水浸透開始から 100、200、400、800 及び 1,000 日経過後の側圧の分布であ る。隙間を閉塞するために緩衝材が外向き(右向き)に膨潤する過程においては、一次元解析と 同様、緩衝材の内側に負の側圧が発生している。隙間閉塞後は、緩衝材全体の体積が拘束された 状態で膨潤圧が発生するため、初段階で内部に発生した負圧も徐々に解消し、やがて正圧に転じ た後、最終的には緩衝材全域にわたって約 0.8 MPa にまで至っている。側圧が高まるスピードは、 解析結果では緩衝材の下部ほど早いが、原位置試験では中心部、底部、上部の順であった。この 理由については、今後検討が必要である。



原位置試験で土圧計が設置されている位置での、軸圧あるいは側圧の変化に注目する。図 2.6-104 は緩衝材上面及び底面の土圧計測位置における軸圧の変化である。緩衝材の外側面からの地 下水の浸透に伴って、外側に近い部分から軸圧が上昇し、内側がそれに追従するが、軸圧の最大 値はどの位置でも約 1.9 MPa である。最大値を迎えてから後は、どの位置も平衡値まで軸圧は低 下するが、平衡値は緩衝材の内外で異なっており、内側ほど高い平衡値(内側から 25 mm の位置 で約 1.5 MPa)、外側ほど低い平衡値(外側から 25 mm の位置で約 0.4 MPa)となっている。 上面と底面の同じ半径位置での軸圧は、やや差があるものの、原位置試験で確認されるような顕 著な違いは見られず、側面摩擦の影響を考慮する必要性があることを示唆している。また、一次 元解析と同じく、軸圧の変化が原位置試験と比べると極めて緩慢であり、再現性について検討の 余地が残る。



図 2.6-104 二次元解析結果:上面・底面の土圧測定位置における軸圧変化

図 2.6-105 は緩衝材外側面の土圧計測位置における側圧の変化である。隙間が閉塞する 200 日 後あたりから側圧が上昇し始め、どの位置でも概ね単調増加した後、平衡値に至っている。平衡 値は、位置が高いほど小さくなっており、下から 0.05 m の位置で約 1.0 MPa であるのに対し、 下から 0.45 m の位置では約 0.5 MPa に留まっている。



図 2.6-105 二次元解析結果:外側面の土圧測定位置における側圧変化

以上の結果の通り、二次元の解析結果は、一次元の解析結果と同様な挙動を示す反面、軸圧が 上部と下部で違いが生じる点、側圧は下部が上部より大きく原位置試験の傾向と異なる点、加え て原位置試験と比べて挙動が緩慢である点をそれぞれ確認した。今後、これらの理由や改良点を 抽出し、解析手法の改良を行う必要がある。

2.6.3 これまでの成果と今後の課題

(1) 流出を抑制する工学的対策の具体化

堅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、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との関係から整理することで、将来の処分場の実環境に応じて柔軟に施 エオプションが選択できるように評価方法の枠組みなどの基盤情報を整備することを目的に検討 を実施した。隙間未充填オプション及びケイ砂充填オプションについては、令和2年度までの試 験結果をもとに判断指標案を策定し、評価の方法論(判断指標の設定を含む評価方法や適用範囲 等の枠組)を示すために、判断指標に関する室内試験による定量的な把握及び原位置試験による 実環境における現象理解等により評価指標やその設定の考え方の適切性について考察して、令和 4年度の取りまとめ(評価方法の枠組みなどの基盤情報の整備)に向けた今後の課題を抽出した。 ペレット充填オプションは、令和4年度にオプション整備に向けた検討課題をとりまとめるため に、令和3年度に湧水のある(湿潤)環境での隙間へのペレットの充填工法に関する課題の整理 や対策及び流出に関する判断指標案とその課題をそれぞれ検討した。以下に、各オプションの成 果と令和4年度の取りまとめに向けた課題を示す。

① 隙間未充填オプション

令和3年度は、隙間未充填オプションの緩衝材の流出の停止に関する隙間の物理的な閉塞条件 や流出量評価に資する情報を、原位置で取得できるパラメータ(処分孔内外水頭差、孔内湧水量) をもとに判断するための方法や指標を開発するために、水頭差と流量をパラメータとした水頭差 制御の室内流出試験を実施して、これらの関係の把握を試みた。試験では、物理的な閉塞の有無 を確認するとともに、流出量の評価手法の構築に向けて緩衝材ブロックの界面が孔壁に到達する 時点(変曲点)を境とした前後(T₁と T₂)の流出挙動について確認した。その結果、水位差や流 量の違いによる閉塞の有無の傾向は、必ずしも水位差が小さいほど閉塞しやすいわけではなく、 隙間(水みち内)へのケイ砂の集積による閉塞への影響などが確認され、閉塞条件の閾値は明確 ではない。その理由として、

- ケイ砂の集積は、隙間の向きが水平であるために起こりやすい可能性があり、隙間が垂直方向の処分孔では、ケイ砂は隙間の下部へ堆積することが考えられるため、ケイ砂の集積は起こりにくく閉塞しやすい可能性がある。
- 閉塞条件への室内流出試験と実規模の隙間のスケールの違いは、試験結果によれば1箇所でも 閉塞すれば地下水の流れは停止することから、閉塞の有無の観点では影響は少ないと考えられ る。

といったことが本年度の限られた試験ケースの結果から窺うことができるが、弱部を流れる水の 動きに伴う緩衝材の流出という現象に対して、要素試験という小型の試験装置や試料の設定など に対する感度が高いことにも留意が必要である。今後の検討では、垂直方向の隙間における閉塞 へのケイ砂の影響や試験結果のばらつきの影響などの把握、試験点数の追加による信頼性の向上 及び実環境である原位置試験の結果との整合性(スケールの影響)の確認が課題である。

緩衝材の流出量評価に関して、ブロックが孔壁に到達した時点(変曲点)とその前後(T₁とT₂) で排水量や排水中のベントナイト濃度が変化することを室内試験により確認した。これまでの流 量制御流出試験によるべき乗側の式と比較すると、T₁の期間では、緩衝材の流出濃度が高く、大 きな傾きを持つ傾向があるもののその期間(T₁)は限定的であること、T₂では、水頭差制御流出 試験では傾きが小さい傾向がある。今後の検討では、これらに着目した緩衝材の流出量のモデル 化に取り組む。

上記の評価方法の整備にあたり、緩衝材の流出挙動の解釈を補完するための情報を得るために、 流水のない静的な隙間膨潤過程のX線CTによる経時的な状態変化(界面等の密度変化)を把握 した。既知の乾燥密度の緩衝材で検量線を整備することにより、膨潤過程の密度変化を計測(定 量化)することができ、変曲点到達段階における界面近傍の乾燥密度は約0.45 Mg/m³であること が分かった。今後の検討では、計測結果に含まれる水のハローの影響の考慮や、流出過程での緩 衝材の状態を把握するための通水環境での隙間膨潤過程の測定が課題である。

② ケイ砂充填オプション

令和3年度は、ケイ砂充填オプションにおける評価指標である流出量の評価方法に関して、流 出量の評価が可能と考えられる流出濃度が比較的低く維持される孔内湧水量(流量)の範囲や流 出挙動を確認するための室内流出試験を実施した。流量制御流出試験で段階的に流量を増加させ、 比較的ベントナイトの流出濃度が低く推移し、流量が 50 mL/min 程度まで低濃度を維持できる可 能性があることがわかり、この流量は、実規模に換算して 34.25 L/min である。この程度の湧水 量までであれば、低いベントナイト濃度で継続的に流出することを前提とした流出量評価モデル を構築できる可能性があり、令和2年度に試算したケイ砂充填オプションの許容湧水量(淡水で 59から 95 L/min、塩水で 5.1から 8.3 L/min)、NUMO-SC の付属書 4-56 における隙間未充填 オプションの許容湧水量(0.51から0.83 L/min)と比較するとケイ砂充填オプションの適用範囲 は広いことが考えられる。また、実際の湧水の挙動を模擬した水頭差制御流出試験により、隙間 に充填したケイ砂の間隙にベントナイトが侵入し流量が低下するという、これまでの流量制御の 試験とは異なる挙動を確認した。今後の検討では、ケイ砂充填オプションの流出試験についても、 ベントナイトの流出量の水頭差・流量の依存性について水頭差制御流出試験により把握し、原位 置での長期の流出試験の結果等と比較しつつ流出量の評価手法を検討することが課題である。加 えて、流出挙動に関する解釈を補完するために実施した X 線 CT での計測では、通水の無い条件 でケイ砂の間隙中にベントナイトが膨潤により進入していく過程が観察できた。今後の検討では、

通水環境におけるケイ砂の間隙中の緩衝材の状態把握が課題である。

平成 31 年度のケイ砂充填の原位置試験における孔壁での土圧の上昇に伴う湧水量の増加現象 に関して、流出試験の方法やデータの取り扱い、ケイ砂充填オプションの隙間処理方法としての 適用性を確認する必要があることから、大型パッカーを使った原位置試験孔での加圧試験により、 原因を確認した。その結果、加圧により湧水量の増加挙動を再現し、流出試験中の湧水量の増加 は緩衝材の膨潤圧によるものであり、流出を実施した試験孔の孔口付近における固有の現象であ ることが考えられた。これにより、流出試験結果は湧水増加を加味して利用可能なことを確認し た。一方で、処分坑道の底盤施工方法や処分孔環境によってはケイ砂充填オプションの導入が孔 口付近の湧水増加を伴う可能性も示唆され、そのような現象への対応策の抽出も課題である。

室内試験に基づく流出量の評価手法の適用性(室内試験との現象の整合性)の確認やスケール 効果の確認、室内試験へのフィードバック等を目的として、ケイ砂充填オプションに関する長期 の原位置流出試験を開始した。流出試験は、令和4年度に継続してデータを取得し、流量の低下 (ベントナイトのケイ砂部への侵入)や流出量の推移を確認し評価方法に反映する。

③ ペレット充填オプション

令和3年度は、ペレット充填オプションについて、これまでの検討において抽出された湿潤環 境での施工方法の改善策と流出量評価方法について検討し、今後、試験等により検討が必要な課 題を抽出した。

施工方法の改善策として、ペレット粒径や膨潤を遅効させるペレット表面のコーティング等、 また、施工終了までに防水シートのようなカバーを使用して充填後は撤去する方法も考えられ、 これらの湧水環境下におけるペレット充填への効果や施工方法の改善策の効果の確認等を課題と して抽出した。

ペレット充填における流出量評価方法は、隙間未充填オプションと同様に水みちを形成する流 出挙動であるため、べき乗側による評価がこれまでに適用されている。新第三紀堆積岩類を母岩 とする地下環境下においては、周辺岩盤と孔内の水位差は小さく水みちが閉塞する可能性もあり、 水位差や流量をパラメータとした評価方法の適用性の検討を課題として抽出した。

(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

緩衝材の飽和プロセスに関する解析手法について、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部の応力 再分配と乾燥密度変化を対象とし、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 確からしく評価することを目的とし、試験体サイズから段階的にスケールアップ等の拡張を行う 開発計画のもとで検討を進めている。

これまでに、試験体サイズの解析モデルで解析手法を構築し、令和3年度は試験結果による検 証、材料パラメータの見直しを実施した。実規模1/4スケール(原位置流出試験相当)のサイズ へ解析手法を拡張するため、原位置試験の試験系や試験孔周辺の水理環境等をモデルに考慮して 解析を実施し、原位置試験の結果との比較等により課題の抽出をした。その結果、緩衝材内側の 力学的な境界条件の設定や現象の進行速度が試験よりも解析では緩慢なこと、膨潤圧の発現が原 位置試験と異なること、孔壁と緩衝材の摩擦の考慮の必要性等の課題を抽出した。令和4年度の 実規模スケールの解析手法の構築に関する取りまとめに向けて、これらの課題に関わる検討や流 出現象の考慮に関する検討を進める。緩衝材の流出挙動を含めたこれらの検討成果は、SP3で検 討している過渡期の状態変遷を考慮した長期の評価手法の開発における、より確からしい緩衝材 の初期状態の設定に役立つものと考えられる。

- Alberdi, J., Barcala, JM., Campos, R., Cuevas, AM., Fernandez, E., FEBEX project: full-scale engineered barriers experiment for a deep geological repository for high level radioactive waste in crystalline host rock. Final report, ENRESA, 1/2000, 2000.
- 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.
- Apted, M.J., A Modest Proposal: A Robust, Cost-Effective Design for High-Level Waste Packages, Proc. of MRS'97, Switzerland, October, 1997.
- Bagnold, R. A., Experiments on a gravity-free dispersion of large solid spheres in a Newtonian fluid under shear. Proc. R. Soc. Lond. A 225, pp. 49-63, 1954.
- 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.
- 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., Geochemical and biogeochemical reaction modeling. Cambridge University Press, New York, NY, 2008.
- Bethke, C.M. and Yeakel, S., Reactive transport modeling Guide. Aqueous Solutions, LLC, Champaign, Illinois, 2015.
- Bjørlykke, K., Relationships between depositional environments, burial history and rock properties. Some principal aspects of diagenetic process in sedimentary basins, Sedimentary Geology, 301, 1-14, 2014.
- Bjørlykke, K. and Egeberg, P.K., Quartz cementation in sedimentary basins, AAPG Bulletin, 77, 1538-1548, 1993.
- Börgesson, L., Johannesson, L. E., Sanden, T. and Hernelind, J., Modelling of the physical behavior of water saturated clay barriers. Laboratory tests, material models and finite element application, SKB TR-95-20, Svensk Kärnbränslehantering AB, 1995.
- Börgesson, L., Sandén, T, Piping and erosion in buffer and backfill materials Current knowledge, SKB Report R-06-80, 2006.
- Bozolla, J.J., Conventional specimen preparation technique for Transmission Electron Microscopy of Cultured Cells. In J. Kuo (Ed.), Electron microscopy: methods and protocols, pp.1-20, New York, Springer, 2007.
- Chambers, A.V., Haworth, A., Ilett, D., Linklater, C.M., and Tweed, C.J., Geochemical

modeling: Performance assessment issues. In: Maqarin Natural Analogue Study: Phase III (J.A.T. Smellie, ed.). SKB Technical Report TR 98-04, Stockholm, Sweden, 1998.

千々松正和,杉田裕,雨宮清,緩衝材の製作・施工技術に関する検討,JNC TN 8400 99-035,1999 電気事業連合会,核燃料サイクル開発機構,TRU廃棄物処分技術検討書,一第2次TRU廃棄物処分

研究開発取りまとめー, JNC TY1400 2005-013, FEPC TRU-TR2-2005-02, 2005.

土木学会, コンクリート標準示方書 [構造性能照査編], 2002.

土木学会, コンクリート標準示方書 [ダムコンクリート編], 2002.

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

- Ferrage, E., Lanson, B., Sakharov, B.A., Drits, V.A., Investigation of smectite hydration properties by modeling experimental X-ray diffraction patterns: Part I: Montmorillonite hydration properties. American Mineralogist 90, 1358-1374, 2005.
- 藤田朝雄,谷口直樹,松井裕哉,棚井憲治,西村繭果,小林保之,平本正行,前川恵輔,澤田淳,牧 野仁史,笹本広,吉川英樹,柴田雅博,若杉圭一郎,濱克宏,操上広志,國丸貴紀,石井英一, 竹内竜史,中野勝志,太田久仁雄,瀬尾俊弘,宮原要,内藤守正,油井三和,幌延深地層研究 計画における地上からの調査研究段階(第1段階)研究成果報告書 分冊「地層処分研究開 発」,JAEA-Research 2007-045, 2007.
- 原子力環境整備促進・資金管理センター, 平成22年度 地層処分技術調査等委託費 高レベル放射 性廃棄物処分関連 処分システム工学要素技術高度化開発報告書(第2分冊)-人工バリア品 質評価技術の開発-(2/2), 2011.
- 原子力環境整備促進・資金管理センター, 平成25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1分冊)-人工バリア品質/健全性評価手法の構築-オーバーパッ ク,2014a.
- 原子力環境整備促進・資金管理センター,平成25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,2014b.
- 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-,2021.
- 後藤廉平,清水清.ベントナイトゲルのずり弾性率とすべり破壊強度との関係,材料, No.15,Vol.152, pp.21-24, 1966.
- Guillaume, D., Neaman, A., Cathelineau, M., Mosser-Ruck, R., Peiffert, C., Abdelmoula, M., Dubessy, J., Villiéras, F. and Michau, N., Experimental study of the transformation of smectite at 80 and 300 °C in the presence of Fe oxides, Clay Minerals, 39, pp.17-34, 2004.
- 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.

- 長谷川琢磨,ベントナイトの透水・浸潤特性への海水影響,電力中央研究所報告,N04005,2004.
- 林田一貴,加藤利弘,久保田満,村上裕晃,天野由記,岩月輝希,坑道閉鎖試験に基づく坑道掘削・ 閉鎖時の化学環境変化プロセスの考察,地球化学,52(1), pp.55-71, 2018.
- 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.
- Honda, A., Taniguchi, N., Ishikawa, H., Hoch, A.R., Porter, F.M. and Sharland, S.M., A Modelling Study for Long-Term Life Prediction of Carbon Steel Overpack for Geological Isolation of High-Level Radioactive Waste, Proceedings of International Symposium on Plant Aging and Life Predictions of Corrodible Structures, pp.217-227, 1995.
- 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.
- 今井久, 九石正美, 鈴木英明, 藤田朝雄, 山下亮, 飽和過程における緩衝材の水分特性曲線推定の 試み, 土木学会第67回年次学術講演会, CS13-002, 2012.
- 伊藤大知,小峯秀雄,諸留章二,関ロ高志,三浦玄太,ベントナイト原鉱石の膨潤圧特性から観た 緩衝材における膠結作用の定量評価の試み,第52回地盤工学会研究発表会,2017.
- 伊藤雅和, 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, 36, 1055-1058, 1994.
- 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, 38(3), 181-187, 1999.
- 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-,応用地質,vol. 55, No.4, pp.156-165, 2014.
- 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.
- Jiu, B., Huang, W., & Li, Y., An approach for quantitative analysis of cementation in sandstone based on cathodoluminescence and MATLAB algorithms. Journal of Petroleum Science and Engineering, 186, 106724, 2020.
- Joyces S, Swan D, Hartley L, Calculation of open repository inflows for Forsmark. SKB R-13-21, 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2 地層処分の工学技術, JNC TN1400 99-022, 1999a.
- 核燃料サイクル開発機構,わが国における高レベル放射性廃棄物 地層処分の技術的信頼性 –地 層処分研究開発第2次取りまとめ-分冊3 地層処分システムの安全評価, JNC TN1400 99-023, 1999b.
- 金津努,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.
- 加藤大生, 佐藤光吉, 大和田仁, 三原守弘, 大井貴夫, セメント系材料の浸出液の地質媒体への影響評価-大型カラム試験設備を用いた高 pH プルームの岩盤への影響試験-, JNC TN8430 2000-008, 2000.

菊池広人,棚井憲治,松本一浩,緩衝材の飽和透水特性-II,海水性地下水が緩衝材の透水性に及 ぼす影響,核燃料サイクル開発機構報告書,JNC TN8430 2003-002, 2003.

菊池広人,棚井憲治,幌延地下水を用いた緩衝材・埋め戻し材の基本特性試験,核燃料サイクル開 発機構報告書,JNC TN8430 2004-005, 2005.

- 木村駿,中山雅,木野田君公,棚井憲治,丹生屋純夫,志村友行,深谷正明,人工バリア性能確認 試験における緩衝材膨出センサーを用いた膨出量評価,日本原子力学会2019年秋の大会, 3A10,2019.
- 児玉潤, 足立格一郎, 田邉亮, 鈴木絵理子, 山元茂弘, ベントナイト・珪砂混合試料の高温環境下 での膨潤特性, 土木学会論文集 No.764/Ⅲ-67, pp.319-328, 2004.
- 小林一三, 戸井田克, 笹倉剛, 太田秀樹, 等含水比線と等飽和度線を用いた締固めベントナイトの 圧縮 膨潤挙動の解釈, 土木学会論文集, vol.63, No.4, 2007.
- 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.
- Lundgren, C., Johannesson, L.-E., Optimering av buffertpellets för KBS-3. Laboratorieförsök på fyra olika pellets. SKB R-19-25, 2020 (in Swedish).
- Mäder, U., Jenni, A., Lerouge, C., Gaboreau, S., Miyoshi, S., Kimura, Y., Cloet, V., Fukaya, M., Claret, F., Otake, T., Shibata, M., Lothenbach, B., 5-year chemico-physical evolution of concrete-claystone interfaces, Mont Terri rock laboratory (Switzerland). Swiss Journal of Geosciences 110, 307-327, 2017.
- 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, 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.
- McBride, E.F. Quartz cement in sandstones: A review. Earth-Sci. Rev. 26, 69-112, 1989.
- 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, S., Fujii, A., Higuchi, M. and Nishimura, K., Long-Term Corrosion of 2,000-Year-Old Ancient Iron Sword, Materials Research Society Symposium Proceedings 1475, pp. 545-550, 2012.
- 三ツ井誠一郎,鳥取市良田中道遺跡出土袋状鉄斧の埋蔵環境と腐食,一般国道9号(鳥取西道路)の 改築に伴う埋蔵文化財発掘調査報告書,17;良田中道遺跡, pp. 221-230, 2015.
- Molenaar, N., Cyziene, J. and Sliaupa, S., Quartz cementation mechanisms and porosity variation in Baltic Cambrian sandstones, Sedimentary Geology, 195. 135-159, 2007.
- 三沢俊平, 鉄鋼の湿食形態と腐食生成物, 日本金属学会会報, vol.24, No.3, pp.201-210, 1985.
- 武藤尚樹, 金澤伸一, 市川希, 温度変化を考慮したベントナイトの膨潤圧の計測について, 2018年 秋の大会, 原子力学会, 2018.
- 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.

- 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.
- 並河努, 菅野毅, 石川博久, 石黒勝彦, 緩衝材のせん断特性1, PNC TN8410 97-074, 1997.
- 奈良国立文化財研究所, 奈良国立文化財研究所学報 36, 平城宮整備調查報告 1, 奈良国立文化財 研究所, 1979.
- 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.
- 日本道路協会, 道路橋示方書・同解説 IV下部構造編, 2017.
- 日本原子力研究開発機構, 平成19年度 地層処分技術調査等事業 処分システム化学影響評価高度 化開発報告書 平成20年3月, 2008.
- 日本原子力研究開発機構, 平成20年度 地層処分技術調査等事業 処分システム化学影響評価高度 化開発報告書 平成21年3月, 2009.
- 日本原子力研究開発機構, 平成21年度 地層処分技術調査等事業 処分システム化学影響評価高度 化開発報告書 平成22年3月, 2010.
- 日本原子力研究開発機構, 平成22年度 地層処分技術調査等事業 処分システム化学影響評価高度 化開発報告書 平成23年3月, 2011.
- 日本原子力研究開発機構, 平成23年度 地層処分技術調査等事業 処分システム化学影響評価高度 化開発報告書 平成24年3月, 2012.
- 日本原子力研究開発機構, 平成24年度 地層処分技術調査等事業 処分システム化学影響評価高度 化開発報告書 平成25年3月, 2013.
- 日本原子力研究開発機構, 平成25年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発 報告書 平成26年3月, 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, 2015a.
- 日本原子力研究開発機構, 平成26年度 地層処分技術調査等事業 セメント材料影響評価技術高度 化開発報告書 平成27年3月, 2015b.
- 日本原子力研究開発機構, 平成27年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発 報告書 平成28年3月, 2016a.
- 日本原子力研究開発機構, 幌延深地層研究計画における人工バリア性能確認試験ー計測データ集 (平成 27 年度), JAEA-Data/Code 2016-005, 2016b.
- 日本原子力研究開発機構, 平成28年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発 報告書 平成29年3月, 2017.
- 日本原子力研究開発機構,平成29年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 直接処分等代替処分技術開発報告書 平成30年3月,2018a.

- 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, 2018b.
- 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,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,2021.
- Oelkers, E.H., Bjùrkum, P.A., Walderhaug, O., Nadeau, P.H., Murphy, W.M., Making diagenesis obey thermodynamics and kinetics: the case of quartz cementation in sandstones from offshore mid-Norway, Applied Geochem. 15, 295-309, 2000.
- 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.
- 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.
- 大和田仁, 三原守弘, 黒木泰貴, 有本邦重, アルカリ溶液中での花崗岩の変質挙動, JNC TN8400 2000-027, 2000.
- Pruess, K., TOUGH2 A General- purpose numerical simulator for multiphase fluid and heat flow, LBL20700 Lawrence Berkeley National Laboratory, 1991.
- Ramirez, S., Cuevas, J., Vigil, R., Leguey, S., Hydrothermal alteration of "La Serrata" bentonite (Almeria, Spain) by alkaline solutions. Applied Clay Science 21, 257-269, 2002.
- 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.
- Roosz, C., Grangeon, S., Blanc, P., Montouillout, V., Lothenbach, B., Henocq, P., Giffaut, E., Vieillard, P., Gaboreau, S., Crystal structure of magnesium silicate hydrates (M-S-H): The relation with 2:1 Mg-Si phyllosilicates. Cement and Concrete Research 73, 228-237, 2015.
- Sandén, T. and Börgesson, L., Deep repository-engineered barrier system. Piping and erosion in tunnel backfill Laboratory tests to understand processes during early water uptake, SKB Report R-06-72, 2008.
- Sandén, T., Börgesson, L., Early effects of water inflow into a deposition hole. Laboratory tests results, SKB R-10-70, 2010.
- Sandén T, Jensen V, Pellet optimization influence of fine material. KBP1011 Water handling during backfill installation. SKB R-16-15, Svensk Kärnbränslehantering AB (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 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.
- 佐藤文啓, 金澤伸一, 林久資, 高山裕介, 温度変化によるベントナイトの膨潤特性, 土木学会第71 回学術講演会(平成28年9月), 2016.
- Sato, T., Watanabe, T., Otsuka, R., Effects of layer charge, charge location, and energy change on expansion properties of dioctahedral smectites., Clays and Clay Minerals. 40, 103-113, 1992.
- Schneider, C. A., Rasband, W. S., & Eliceiri, K. W., NIH Image to ImageJ: 25 years of image analysis., Nature methods, 9(7), 671-675, 2012.
- Shao, H., Kosakowski, G., Berner, U., Kulik, D.A., Mäder, U., and Kolditz, O., Reactive transport modeling of the clogging process at Maqarin natural analogue site. Physics and Chemistry of the Earth, 64, 21-31, 2013.
- SKB, Piping and erosion in buffer and backfill materials, R-06-80, 2006.
- SKB, Mechanisms and models for bentonite erosion, TR-09-35, 2009.
- Snow, D.T., Rock fracture spacings, openings, and porosities. Journal of the Soil Mechanics and Foundations Divisions, 94, 73-91, 1968.
- Soler, J. M., Reactive transport modeling of the interaction between a high-pH plume and a fractured marl: the case of Wellenberg, Appl. Geochem., 18, pp.1555-1571, 2003.
- Steefel, C. I. and Lichtner, P. C., Diffusion and reaction in rock matrix bordering a hyperalkaline fluid-filled fracture, Geochim. Cosmochim. Acta, 58, pp.3595-3612, 1994.
- Steefel, C.I. and Lichtner, P.C., Multicomponent reactive transport in discrete fractures. II. Infiltration of hyperalkaline groundwater at Maqarin, Jordan, a natural analogue site. Journal of Hydrology, 209, 200-224, 1998.
- 杉井俊夫, 宇野尚雄, 新しい水分特性曲線のモデル化について, 土木学会・第50回年次学術講演会 概要集, pp. 130-131, 1997.
- 杉田裕, 菊池広人, 星野笑美子, 幌延深地層研究計画で得られた掘削土を用いた埋め戻し材の特 性試験(受託研究), JAEA-Data/Code 2020-017, 2020.
- 炭山守男, 土壌埋設鋼材の長期腐食挙動に関する研究(XI), JNC-TJ8400 99-042, 1999.
- 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,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.
- 高治一彦, 鈴木英明. 緩衝材の静的力学特性, 核燃料サイクル開発機構報告書, JNC-TN840099-041, 1999.
- 高谷哲, 中村士郎, 山本貴士, 宮川豊章, 土木学会論文集E2(材料・コンクリート構造), Vol.69, No.2, 154-165, 2013.
- 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.

- 高山裕介, 菊池広人, 山本陽一, 後藤考裕, 緩衝材の長期圧密挙動に関する検討(その3) クニゲル ®V1とカオリナイトの基本特性の比較, 土木学会第74回年次学術講演会, 2019.
- 高山裕介, 菊池広人, 塩水条件での緩衝材の力学挙動に対する弾塑性構成モデルの適用性に関す る研究, 原子力バックエンド研究 vol.27, No.1, 2020.
- 武田聖司,西村優基,宗像雅広,澤口拓磨,木村英雄,TRU廃棄物の地層処分における高アルカリ 性地下水の広がりに関する地球化学・物質移行解析による検討,原子力バックエンド研究, Vo.19, No.2, pp.23-38, 2012.
- 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, No. 11, pp.418-429, 2010.
- 谷口直樹, 鈴木宏幸, 川崎学, 九石正美, 渡邊正敏, 建石剛, 低酸素濃度下のベントナイト中にお ける炭素鋼の腐食におよぼす温度の影響, 第59回材料と環境討論会講演集, A-103, 2012.
- Thyberg, B., Jahren, J., Winje, T., Bjørlykke, K., Faleide, J. I., & Marcussen, Ø., Quartz cementation in Late Cretaceous mudstones, northern North Sea: Changes in rock properties due to dissolution of smectite and precipitation of micro-quartz crystals. Marine and Petroleum Geology, 27(8), 1752-1764, 2010.
- Toyota, M. and Mckinley, I.G., Optimization of the Engineered Barrier System, Fabrication and Emplacement for Vitrified HLW of IHLM'98, Las Vegas, 1998.
- Uramoto, G. I., Morono, Y., Uematsu, K., & Inagaki, F., An improved sample preparation method for imaging microstructures of fine-grained marine sediment using microfocus Xray computed tomography and scanning electron microscopy., Limnology and Oceanography., Methods, 12, 469-483, 2014.
- van Genuchten, M. Th., A closed-form equation for predicting hydraulic of unsaturated soils, Soil Science Society American Journal 44, pp.892-898, 1980.
- Wangen, M., Modelling quartz cementation of quartzose sandstones, Basin Research 11, 113-126, 1999.
- 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.
- Weber, J. and Ricken, W, Quartz cementation and related sedimentary architecture of the Triassic Solling Formation, Reinhardswald Basin, Germany, Sedimentary Geology 175, 459-477, 2005.
- Wersin, P., Johnson, L. and McKinley, I., Performance of the bentonite barrier at temperatures beyond 100°C: A critical review, Physics and Chemistry of the Earth, vol. 32, pp.780-788, 2007.
- Worden, R. H. and Morad, S., Quartz Cementation in Sandstones; International Association of Sedimentologists, Special Publication, Blackwell Science: Oxford, UK, 2000.
- Worden, R. H., Utley, J. E., Butcher, A. R., Griffiths, J., Wooldridge, L. J., & Lawan, A. Y., Improved imaging and analysis of chlorite in reservoirs and modern day analogues., new insights for reservoir quality and provenance. Geological Society, London, Special Publications, 484(1), 189-204, 2020.
- 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.
- 横山信吾,田中幸久,イオン交換水で飽和したベントナイト系材料の透水性と膨潤特性に及ぼす

熱影響に関する実験的検討,電力中央研究所報告,平成24年度4月,2012.

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等によ り影響を受け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、およ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3つのサブタスクを設定し、相互に連 携させつつ核種移行評価技術の開発を進める。3つのサブタスクの計画の概要を以下に示す。

(1) ニアフィールド岩盤中の核種移行評価技術の開発

核種移行モデルの開発については、結晶質岩およ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 部およ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およびマト 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およ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およ 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、およ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3価・4価核種のうち、データ拡充の必要がある4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。



SP3: ニアフィールド性能の総合評価技術開発

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 ロイドの影響等、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および地 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、原位置試験および天 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; 2018a)において、結晶質岩およ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

図 3.1-2 本課題における3つのサブタスクとそれらの関係

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。このような課題および先行事業の成果(日本原子力研究開発機構,2018a)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。

令和2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; 2021)。

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URLから採取した花崗閃緑岩 マトリクス部を対象に、鉱物や間隙の不均質性を考慮した核種移行モデルを構築してきた。さら に、構築してきた手法およびモデルの国内岩石への適用性を評価するため、国内標準岩石の黒雲 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るとともに、室内試験による拡散デー タの取得に着手した。また、グリムゼルの岩石割れ目部を対象に、平成30年度から31年度にかけ て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、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拡充した。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。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、令和2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評価の改良を進めた。

3-4



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、上記のような令和2年度までの取り組みを踏まえ、令和 3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、国内の標準岩石試料を対象にして、黒雲母等の鉱物分布の不均質性の分析データおよび複数 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20 cm程度の大型の割れ目試料を対象にした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X線CT等の分析結果から評価するとともに、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改良 を進めるとともに、アップスケーリングと不確実性の評価に向けた解析手法の検討に着手した。

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およ 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、割れ目部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手法 の改良と適用性評価を行い、実際の地質環境の特徴を反映したモデルの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手法の改良と、その適用性評価を進めた。

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

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、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、およ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, 2018a; 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等が拡散挙動へ及 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)。さらに、構築してきた不均質場モデルの国内結晶質岩への適用性を評価するため、 黒雲母花崗岩(茨城県笠間市稲田)、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)の三種類の標準岩石の黒雲母等の鉱物分布の不均質性の評価および拡散データ の取得に着手した(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, 2021)。 令和3年度は、令和2年度に引き続き、これらの国内の岩石の鉱物や間隙の不均質性および拡散特 性を評価するため、偏光顕微鏡観察等により、岩石中の構成鉱物の同定および組織観察を行うと ともに、X線CTデータの画像解析による黒雲母分布の不均質性評価を進めた。また、透過拡散試 験による拡散データを取得し、陽イオンおよび陰イオンの拡散挙動を評価した。

① 結晶質岩マトリクス中の鉱物分布の不均質性評価

結晶質岩の黒雲母等の構成鉱物の同定および定量評価からそれらの不均質性を評価するため、 黒雲母花崗岩(茨城県笠間市稲田)、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)の標準岩石を対象に、偏光顕微鏡観察を実施した。

偏光顕微鏡による各岩石の薄片試料(厚さ20 μm)の観察結果と観察から推定された主成分鉱物の推定結果を図3.2・2に示す。単ニコルは薄片試料を透過光で観察した結果を示し、直交ニコル は単ニコルと同じ視野において偏光板をさらに差し込むことで、鉱物の種類による異なる複屈折 が干渉色として表現された結果を示している。いずれの岩石も石英、斜長石またはアルカリ長石 および黒雲母が主成分鉱物であることが推定された。片麻状花崗閃緑岩では、石英・斜長石に富 む部分と、黒雲母・角閃石に富む部分が層状に繰り返す片麻状組織が観察された。花崗閃緑岩で は、黒雲母の多くは緑泥石に変質しており、斜長石も部分的に方解石に変質していることが観察 された。これらの観察結果から、片麻状花崗閃緑岩では、その黒雲母の層状構造による拡散の異 方性が想定される。また、花崗閃緑岩では、X線CTの画像解析から評価した黒雲母含有量(10% 程度)は緑泥石を含んだ分析結果であるため、その含有量を過大評価していた可能性がある。黒 雲母の核種移行への影響を評価する観点から、今後、解析評価手法の更なる改良を進めていく必要がある。

試料名	主成分鉱物	単ニコル	直交ニコル
黒雲母花崗岩	石英(Qtz) アルカリ長石 (Afs) 斜長石(PI) 黒雲母(Bt):一部 が緑泥石化(ChI)		Als Qtz Ats Qtz Ats Qtz
花崗閃緑岩	石英(Qtz) 斜長石(P1) アルカリ長石 (Afs) 黒雲母(Bt):大部 分が緑泥石化 (Ch1)		RECONSTRUCTION OF CONTRACT OF
片麻状花崗閃緑岩	石英(Qtz) 斜長石(P1) 黒雲母(Bt) 角閃石(Hb1)		

図 3.2-2 偏光顕微鏡観察による国内岩石の鉱物組成等の分析結果

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花崗閃緑岩を対象とした拡散試験から、結晶質岩中に含まれる黒雲母は、その他の鉱物より間隙率が比較的高く、その表面に形成される負電荷による静電相互作用により、間隙水中に陽イオンおよび陰イオンとして存在する核種の拡散挙動への影響が示唆されている(Tachi et al., 2015)。結晶質岩中の黒雲母は、結晶質岩中に数マイクロから数十ミリメートル程度のサイズで分布しており、一定の方向に配向している場合、または無秩序に分布している場合がある。これらから、結晶質岩中の黒雲母の不均質性と核種の拡散挙動の関係を評価するためには、黒雲母の形状や分布を空間的に把握することが重要である。そこで、X線が黒雲母に比較的高い割合で含まれている鉄元素に感度があることを利用し、X線CT測定により、その形状や空間分布を取得することを着想した。令和2年度までに、国内の標準岩石を対象に、X線CT測定を実施し、三次元画像データの解析から結晶質岩中の黒雲母を識別し、そのサイズおよび含有率を評価してきた(図3.2-3)。しかし、黒雲母粒子の長軸方向の偏り度合いを表す配向度については、画像の目視による推定にとどまり、定量的な評価が十分ではなかった。



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)

令和3年度は、X線CT画像から黒雲母領域を抽出した二値画像をフーリエ変換した後、そのデー タを統計的に処理し、黒雲母の配向度を評価した。この解析において、二次元画像を取り扱う観 点から、特定の一方向から観察した際の配向性の評価になることに留意しつつ、黒雲母が比較的 連続している面の方向のX線CT画像を選択して評価を行った。具体的な解析手順としては、図3.2-4に示すように、X線CT画像から黒雲母とその他の領域を二値化した画像を二次元の高速フーリ エ変換を行い、各周波数成分のパワーを表す対数パワースペクトルを取得する。座標原点を中心 にパワースペクトルの強度を角度方向に抽出し、その値を平均することにより、画像の方向性を 示す角度分布を取得する。以上の操作を試料断面から奥行き方向の複数のX線CT画像に適用し、 取得した角度分布の平均値を計算する。平均化された分布を楕円近似することにより、短軸と長 軸の比から配向度を評価し、楕円の長軸方向の傾きから配向角度を評価する(Enomae et al., 2006)。配向度は1より小さくなるほど、黒雲母の配向度が高いことを示す。配向角度については、 実際の黒雲母の配向方向に対して直交する方向に評価されることから、楕円の長軸角度が90°以下 の場合は90°を加え、楕円の長軸角度が90°以上の場合は90°を差し引いた値を黒雲母の配向角度と した。図3.2-4では、先行事業において解析を進めてきたグリムゼル原位置試験場から採取した花 崗閃緑岩試料を対象に、上記配向度解析した結果を示す。グリムゼル試料のX線CT画像において、 試料断面上に黒雲母(左図中の黒色領域)が一定の方向に連続して配向している様子が観察され る。同様の傾向は、黒雲母(中央図中の白色領域)を抽出した二値画像でも見られ、黒雲母の傾 斜角度に対して90°方向に強い強度を持つパワースペクトルが取得された。パワースペクトルの平 均強度プロットでは、プロットが楕円によって近似されたことが確認できる。配向角度115.9°は、

黒雲母領域を抽出した二値画像からみられる黒雲母の連続した分布の方向と一致する。また、配向度0.61は1より小さく、配向していることを示すが、相対的な評価のため他の岩石試料との比較評価が必要となる。



図 3.2-4 X線CT画像解析による黒雲母配向度の評価手法の概念図

国内岩石試料の解析に用いたX線CT画像および黒雲母の粒子を抽出した二値画像と配向度解析 の結果を図3.2-5に示す。国内岩石の配向度の値は、グリムゼル花崗閃緑岩の値と比較して低いこ とから、今回選定した国内の岩石試料では黒雲母の配向度は比較的低いことが分かった。国内の 岩石試料だけでその配向度を比較すると、黒雲母花崗岩、片麻状花崗閃緑岩、花崗閃緑岩の順に その配向性が高いことが示された。黒雲母花崗岩では、二値画像からも黒雲母がランダムな分布 が確認でき、解析結果と整合する。片麻状花崗閃緑岩では、連続した黒雲母がX線CT画像および 偏光顕微鏡からも見られており、黒雲母花崗岩より配向性が高いと推定できる。一方で、花崗閃 緑岩では、解析結果から、片麻状花崗閃緑岩より配向性が高いことが示されたが、X線CT画像よ では特定の方向への雲母の連結や配向は見られなかった。これは、二値画像の中央右下に確認さ れる比較的大きな形状の黒雲母の存在に影響されたものと考えられる。いずれの試料も1 cm程度 を対象にした局所的な解析結果であるため、岩石の性状をより把握するためには、複数の検体を 対象に解析を実施し、評価検討する必要があると思われる。また、今回の画像解析では、二次元 画像を対象に行っている観点から、特定の一方向から観察した時の配向性を評価しているにすぎ ないため、観察角度によらない配向性を評価するためには、今後、三次元データを対象にしたフ ーリエ変換および楕円球による近似解析が必要である。

これまで開発してきた一連の画像解析手法により、結晶質岩中の黒雲母の形状(粒子数、粒子 径等)や配向度を評価することが可能であり、多種類の岩石に適用の可能性が示された。さらに、 瑞浪超深地層研究所から採取された花崗岩試料を対象に本手法を適用性の検討にも着手をしてお り、今後、解析手法のさらなる適用性の検証と複数の結晶質岩を対象に取得してきた拡散データ の解釈を検討していく予定である。



図 3.2-5 国内岩石試料の黒雲母の配向度解析の結果

② 結晶質岩マトリクス中の核種拡散挙動の評価

結晶質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およ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(直径2 cm、長さ0.5 cm)に加工した黒雲母花崗岩、 花崗閃緑岩および片麻状花崗閃緑岩試料を模擬地下水に真空含水させた後、放射性元素(HTOお よび²²Na+、初期濃度300 Bq mL⁻¹)または非放射性元素(I-、初期濃度1×10⁻⁴ mol L⁻¹)をトレー サーとして試料中に拡散させた。 模擬地下水は、原子力発電環境整備機構の包括的技術報告書(原 子力発電環境整備機構, 2021)で報告されている深成岩類のモデル水質を参考に、Na+: 1.0×10-2 mol L⁻¹、Ca²⁺: 1.0×10⁻⁴ mol L⁻¹、K⁺: 1.0×10⁻⁴ mol L⁻¹、Cl⁻: 1.0×10⁻² mol L⁻¹となるように調製 した。拡散試験中、高濃度側溶液および低濃度側溶液を定期的に採取し、採取溶液中のトレーサ 一濃度を測定することにより、高濃度側溶液中のトレーサー濃度の経時変化(減衰曲線)および 低濃度側溶液中のトレーサー濃度の経時変化(破過曲線)を取得した。また、拡散試験終了後、 試料の断面を研削し、研削した粉末試料中に含まれるトレーサー濃度を測定することにより、岩 石内部のトレーサー濃度の深度プロファイルを取得した。各試料のトレーサーの減衰曲線、破過 曲線、深度プロファイルを図3.2-6に示す。減衰曲線について、黒雲母花崗岩、花崗閃緑岩および 片麻状花崗閃緑岩のいずれの試料においても、HTOと²²Na⁺のデータはほぼ一定の濃度であり、プ ロットもばらつきが小さい。一方で、I-の減衰曲線では、プロットのばらつきがHTOおよび22Na+ のデータと比較して大きく、その精度の向上や誤差の評価を含めた検討が必要である。破過曲線 については、いずれの試料においても、試験期間中、一定の増加率で上昇しているが、トレーサ ーの種類により増加率の違いが確認された。²²Na⁺の深度プロファイルについて、黒雲母花崗岩で は、²²Na+濃度がトレーサー溶液側(深度0mm)から破過溶液側(深度5mm)にかけて直線的に

減少しており、²²Na+の拡散が概ね定常に達していることが確認された。一方で、花崗閃緑岩およ び片麻状花崗閃緑岩の²²Na+の深度プロファイルでは、深度0-0.5 mm程度でその濃度が急激に低 下し、0.5 mm以降では黒雲母花崗岩のプロファイルと同程度の濃度および減少傾向を示した。こ れは、加工の際に生じる擾乱による黒雲母粒子の表面積の増加の影響である可能性が高く、先行 研究においてスイスのグリムゼル花崗閃緑岩を対象とした拡散試験でも観測されている。グリム ゼル花崗閃緑岩は黒雲母含有率がおよそ10-15%程度と比較的高く、同程度の黒雲母含有率を有 する花崗閃緑岩および片麻状花崗閃緑岩でもこの擾乱影響がみられたと考えられる。

拡散試験における岩石試料中のトレーサーの拡散は、一次元の拡散方程式により以下の式で表 せる。

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \frac{D_e}{\varepsilon + K_d \cdot \rho} \frac{\partial^2 c}{\partial x^2}$$
(3.2-1)

ここで、cはトレーサー濃度(mol L⁻¹)、tは時間(s)、 D_e は実効拡散係数(m² s⁻¹)、 K_d は分配係数 (m³ kg⁻¹)、εは試料の間隙率(·)、ρは岩石試料の乾燥密度(kg m⁻³)、xは距離(m)を表す。式(3.2-1)の 理論解によるフィッティングによって(Tachi et al., 2015)、各トレーサーの実効拡散係数およ び分配係数を求めた。実効拡散係数および分配係数、計算に用いた間隙率および乾燥密度を表 3.2-1に示す。岩石試料の間隙率および乾燥密度は水銀圧入法により評価した値を用いた。表3.2-1より、黒雲母花崗岩および花崗閃緑岩のHTOの実効拡散係数は22Na+より高いものの、HTOと ²²Na+の実効拡散係数の比は、自由水中の水分子およびNa+の拡散係数(2.27×10-9 m² s-1と1.33 ×10⁻⁹ m² s⁻¹、25 ℃)の比とほぼ一致する。一方で、片麻状花崗閃緑岩では、²²Na⁺の実効拡散 係数はHTOよりわずかに高い。片麻状花崗閃緑岩の黒雲母含有量が高いことから、先行事業でグ リムゼル花崗閃緑岩を対象とした拡散試験でも報告されている、鉱物表面の負電荷の静電相互作 用の影響による陽イオン加速と考えられる(Tachi et al., 2015)。一方で、すべての試料におい て、I-の実効拡散係数はHTOおよびNa+より低い値を示した。これは、陽イオン加速に対して、負 電荷の鉱物表面から陰イオンが排除されることにより、その間隙中の陰イオンのフラックスが HTOや陽イオンと比較して低くなった結果(陰イオン排除効果)であると考えられる。しかしな がら、花崗閃緑岩と黒雲母花崗岩において、陰イオン排除効果が見られたにも関わらず、陽イオ ン加速効果が見られなかった理由は不明であり、これらの効果が黒雲母含有量のみに依存しない ことが示唆された。今後、黒雲母含有量だけではなく、その配向度や形状等と陽イオンおよび陰 イオンの拡散挙動との関係性の理解とモデル化の検討を試みる。



試料名	核種	間隙率(%)	D _e (m²/s)	<i>K</i> _d (m³/kg)
	HTO		1.91 × 10 ⁻¹²	
黒雲母花崗岩	Ι-	1.27	1.30 × 10 ⁻¹²	
	²² Na+		9.97 × 10 ⁻¹³	1.10 × 10 ⁻⁴
	HTO		1.32 × 10 ⁻¹²	
片麻状花崗閃緑岩	Ι-	2.01	7.00 × 10 ⁻¹³	
	²² Na+		1.73 × 10 ⁻¹²	7.98 × 10 ⁻⁵
	HTO		2.72 × 10 ⁻¹²	
花崗閃緑岩	Ι-	1.45	1.30 × 10 ⁻¹²	
	²² Na⁺		2.03 × 10 ⁻¹²	2.56 × 10 ⁻⁴

表 3.2-1 拡散試験結果の解析により得られた拡散および収着特性

2) 結晶質岩の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、割れ目部を含むコア試料中の室内トレーサー試験および収着・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, 2018a; Tachi et al., 2018)。先行事業では比較的単純な割れ目特性を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; 2021)。

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

然の割れ目の構造の不均質性をより大き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部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・拡散試験に着手した(日本原子力研究開発機構・原 子力環境整備促進・資金管理センター, 2019)。



図 3.2-7 (a)グリムゼル原位置試験場の試験対象割れ目帯と試料採取位置、(b)対象割れ目から 室内試験用大型コア試料の採取状況、(c)採取したグリムゼル坑道壁面から採取したコア、(d)収 着・拡散試験試料調整

平成31年度は、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およびEu)を対象とした透過拡散試験およ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)と概ね整合する傾向であった。さらに、図3.2-8に示すように、約20 cm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および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。

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。その結果、収着性のCs、Niおよび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、スタグナント領域への拡散が生じている可能性等を確認した。

令和3年度は、令和2年度に引き続き、グリムゼル花崗閃緑岩の大型のコア試料を対象に、その 割れ目構造の定量評価を目的として、X線CT画像解析および走査電子顕微鏡(SEM)分析による表 面性状評価により、割れ目の連続性および分岐経路やガウジの評価を実施した。また、同様の試 料を対象に、割れ目中のトレーサー移行経路を把握するため、トレーサー試験後の割れ目表面の トレーサー濃度分布のデータ拡充を進めた。



図 3.2-8 (a) 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、(b)大型コアの 試験装置への設置状況、(c) トレーサー試験で得られた破過データ

① 結晶質岩中の割れ目構造の評価

令和2年度までに、グリムゼル花崗閃緑岩の大型コア試料を対象に、そのX線CT画像の解析により、割れ目の不均質構造を評価してきた。具体的には、割れ目開口領域と岩石領域のCT値の差を利用して、割れ目開口部の領域を抽出し、割れ目の開口幅を評価した。令和3年度は、X線CTデータを対象とした画像解析を令和2年度に継続して行い、抽出した割れ目の連続性の評価および割れ目内の充填鉱物(ガウジ)の分布の評価方法を検討した。

グリムゼル花崗閃緑岩試料(直径20 cm、長さ20 cm程度)のX線CT測定では、測定可能な試料 サイズが装置により制限されたため、4つに分割して(スライス1・4)、それぞれのスライスを対 象に測定を実施した。図3.2・9にスライス1の前断面のX線CT画像およびスライス1・4の側面から の円柱中央付近の横断面のX線CT画像を示す。スライス1の前断面のX線CT画像では、試料の中央 付近において、試料を横断する複数の亀裂が観察された。しかし、トレーサー移行試験を行った 際、対象とする割れ目以外はシリコンシートで養生したため、図3.2・9のX線CT画像および写真に 示す主経路および分岐経路を解析の対象とした。横断面のX線CT画像および令和2年度に評価し た割れ目の開口幅分布から、主経路はスライス1・4まで連続していることが確認された。一方で、 横断面のスライス画像および実際のコア試料の観察の結果、スライス1・2にかけて主経路から分 岐した割れ目が確認され、スライス2で主経路に合流していることが確認された。令和2年度に提 案した画像解析による開口幅分布の評価手法を用いて取得した分岐割れ目の開口幅分布を図3.2-9に示す。しかしながら、ほとんどの分岐割れ目の開口幅は0.5 mm以下と推定され、X線CT画像 の解像度では、その開口幅を正確に定量評価することは困難であり、その精度に課題が残った。 以上から、分岐割れ目はその開口幅が主経路と比較して狭いが、主経路に繋がる連続した割れ目 であることから、トレーサーの移行経路となった可能性がある。今後、分岐割れ目を対象に、割 れ目表面のガウジおよび粉末試料のトレーサー濃度の分析により、分岐割れ目が移行経路となっ ていたかどうかを確認する予定である。



図 3.2-9 X線CT画像解析による分岐割れ目の抽出とその形状の解析結果

割れ目内の移行経路となるチャンネル構造を把握する上で、割れ目内の充填物(ガウジ)の量 やその空間的な分布を評価することは重要である。そこで、トレーサー移行試験後のグリムゼル 花崗閃緑岩試料を対象に、割れ目の表面上に堆積しているガウジのSEM観察を実施した。さらに、 X線CT画像の解析により、割れ目全体のガウジ充填率の分布を評価した。

グリムゼル花崗閃緑岩試料の割れ目部の表面には数mm程度の大きさの粉末および数cm程度の 岩石片が観察された。スライス1の割れ目から採取した粉末試料のSEM観察およびエネルギー分 散型X線分析(EDS)の分析結果を図3.2-10に示す。図3.2-10より、その粉末はバーミキュライトま たは雲母や長石等のグリムゼル花崗閃緑岩の構成成分又はその変質鉱物であると推定された。こ れまでの実施した割れ目を含む薄片試料のEPMA測定による反射電子像からも、同様の鉱物が割 れ目中に充填している様子が観察されていることから(図3.2-11)、割れ目中には数mm - 数cm スケールの岩石由来の破片および粒子が存在し、それらが充填された割れ目中に広く分布してい ることが確認された。



図 3.2-10 割れ目表面から採取した粉末試料のSEM/EDSによる分析結果



図 3.2-11 グリムゼル花崗閃緑岩の割れ目部を対象にした薄片試料の反射電子像

EPMA測定およびSEM観察による割れ目中の充填鉱物の分析結果から、グリムゼル花崗閃緑岩の割れ目部には形状や種類の異なる複数の充填鉱物が不均質に存在することが分かった。これらの不均質性による流路チャンネルへの影響を評価するため、X線CT画像の解析により試料全体の

充填鉱物の量や分布の評価方法について検討した。具体的には、上記試料のうちスライス4のX線 CT画像から抽出した割れ目領域を対象に、割れ目中のCT値(間隙であればCT値は0)を平均した 値をマトリクス部のCT値で規格化することにより、割れ目内のガウジ充填率を評価した。評価の 一例を図3.2-12 (a)に示す。図3.2-12 (a)より、充填率が1の割れ目部には、ガウジにより、その間 隙のほとんどが閉塞されていることがX線CT画像との対比から確認される。一方で、充填率1未満 の割れ目では、割れ目内の間隙が確認され、割れ目のX線CT像とも一致する。割れ目中のガウジ 充填率の分布を図3.2-12(b)に示す。割れ目の中央付近ではガウジ充填率が低いことから、この領 域が流路として卓越していた可能性が考えられる。しかし、割れ目の端付近では充填率が1以上の 値が得られており、マトリクス部より高いCT値を示した。取得したほぼすべてのX線CT画像にお いて、試料の中心部より試料端部のCT値が比較的高くなっていたことから、試料端部のX線CT画 像はX線CT測定時のビームハードニング等のアーティファクトの影響があると考えられる。した がって、割れ目両端については、その解析結果の精度は低いと考えられ、X線CT画像のアーティ ファクト補正または評価手法の改善の必要がある。今後、この手法を他のスライスの割れ目部に も適用し、割れ目全体のガウジの充填率を評価するとともに、開口幅分布や分岐経路、および後 に示す割れ目表面のトレーサー濃度分布の結果との総合的な評価から、移行経路の推定を進めて いく。





② 結晶質岩割れ目中のトレーサー移行挙動評価

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、図3.2-13に 示す先行研究で検討してきた手法を適用した(Tachi et al., 2018)。この手法では、(i)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、(ii)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、(iii)割れ目面からマトリクス内部への研削に よるトレーサー深度分布の取得の3つの方法(ステップ)により、割れ目表面上のトレーサー濃度 分布を取得する。令和2年度までに、上記手順の(i)および(ii)の割れ目表面から採取した充填鉱物 粒子および粉末中のトレーサー濃度分析評価から、粉末採取位置と粉末中のトレーサー濃度の対 応により割れ目中のトレーサー濃度分布を評価した。令和3年度は、より詳細なトレーサー濃度分 布を取得するため、上記手順の(iii)の手法を用いて、割れ目表面研削および研削試料中のトレーサー濃度測定を実施した。

グリムゼル花崗閃緑岩試料の割れ目表面の研削による、割れ目中のトレーサー濃度分布の結果 を図3.2-14に示す。トレーサー濃度分布は、研削した試料の位置と研削試料中に含まれるトレー サー濃度を対応させることにより評価した。低収着性のSeについて、スライス1-4の割れ目全体 に分布していることが観測された。一方で、より収着性の高いCs、NiおよびEuでは、トレーサー 試験の上流に近いスライス1ほどそれらの濃度が高く、下流側のスライス4にかけて濃度の減少が 確認された。さらに、それらの分布では割れ目の中央付近から右側にかけて濃度が高い。この結 果は、令和2年度までに取得した上記手順(i)や(ii)で得られたトレーサー濃度分布とも一致する。 これらの結果から、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)の存在が示唆される。今 後、割れ目表面のトレーサー濃度分布およびX線CTによる割れ目構造の情報に基づき、トレーサ ーの移行経路の把握を進め、移行モデルの構築と実測データの解析により、割れ目中の核種移行 挙動の解明を進めていく。



図 3.2-13 トレーサー濃度分布取得方法



図 3.2-14 室内トレーサー試験後の割れ目表面上のトレーサー濃度(mol g⁻¹)分布

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。令和2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、岩石割れ目を対 象とした核種移行解析手法を構築し、大きなスケールまでの解析を可能とする解析手法の拡張を 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;2021)。 令和3年度は、これまでに構築してきた核種移行解析手法を用いて、割れ目部の不均質性や収着現 象のより精緻な取扱いに加え、地質環境の長期変遷の影響を考慮した核種移行解析によって、そ れらの核種移行への影響度を評価する。

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、これまでに図3.2-15に示すように整理してきた(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,2021)。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 境変遷を考慮した解析等を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としてや がたいたいて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 3.2-15 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

より精緻なモデルの構築に向けた検討として、ここでは、令和2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大きなスケール の割れ目を含む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 解析検討を実施した。地質環境の長期変遷としては、多様な環境変遷の要素を含む事例として、 先行事業から検討を進めてきた結晶質岩における隆起シナリオを考慮した核種移行を対象に検討 を行った。

隆起シナリオについては、これまでに図3.2-16(a)に示すように、わが国の結晶質岩の隆起プロ セスにおいて想定され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,2018a)、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500 m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3.2-16(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。 令和2年度には、このモデルを用いて、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 性の影響や、環境条件変遷を想定した解析を検討した。令和3年度は、さらに収着モデルの取り扱 いや、より多様な環境条件変遷を想定した解析を試行し、それらの解析の妥当性やそれらの変遷 が核種移行に及ぼす影響の重要度等について検討した。



図 3.2-16 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)

解析の対象とする核種としては、令和2年度と同様にCsを選定し、環境変遷に伴う収着特性の変 化の取り扱いに着目した解析を実施した。モデル体系は、上記の通りであり、ここでは割れ目表 面近傍の5 cmの変質層と、残りの95 cmの未変質領域の全ての領域でマトリクス拡散および収着 が生じることを仮定した解析結果を示す。想定する環境変遷としては、1万年までは高濃度Cs(10-5 M)を含む地下水を流入させ、1万年以降は低濃度のCs(10-8M)を含む組成の異なる地下水を流 入させ、2万年までに割れ目中の地下水が完全に入れ替わる条件で解析を行った(図3.2-17(a)参 照)。この地下水組成の変化については、海水系地下水(SRHP)から降水系地下水(FRHP)へ の変化に加え、その逆の変化も設定し、双方の比較を検討した。また、環境変遷に伴うKaの変化 を考慮する場合と、考慮しない場合との比較も実施した。さらに、環境変遷による核種移行影響 に係る考慮すべきプロセスとして、鉱物の溶解・沈殿反応の影響や、その反応時に核種が不可逆 的に取り込まれる影響等が考えられる。鉱物の溶解・沈殿の影響に伴う間隙率の変化の影響につ いては、令和2年度に検討しており、ここでは、不可逆収着の取り扱いについて検討を行うことと した。不可逆収着モデルでは、収着と脱離の双方の反応において反応速度を考慮し、収着の反応 速度を極端に速く、脱離の反応速度を極端に遅くすることで表現した。なお、Csの実効拡散係数 Deは、変質層において高い値をとることになり、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=4.0×10⁻¹²m²/s,未変質岩のD_e=5.5×10⁻¹³m²/s)。一方、Csの収 着分配係数Kaは、変質層において高い値をとることや、低塩濃度条件において高い値をとること を踏まえ、先行研究等のデータをもとにそれぞれの値を設定した(降水系での変質層のKa=0.135 m³/kg, 未変質岩のKa=0.005m³/kg, 海水系での変質層のKa=0.05 m³/kg, 未変質岩のKa= 0.001m³/kg)。この収着分配係数Kaの変化は、地下水組成の時空間的変遷に応じて、徐々に変化

をさせることがより現実的ではあるが、ここでは、図3.2-17(a)に示すように、Cl濃度0.1mol/kgを 閾値に2つの設定値間で変化させる方法を採用した。これらのプロセスを考慮した解析事例として、 ここでは図3.2-17(b)に示す5ケースの解析結果を示す。



図 3.2-17 環境変遷を考慮した核種移行解析における(a)地下水塩濃度(Cl濃度)および収着分 配係数の変化、(b)考慮した解析ケースの設定

最初に、地下水条件として海水系から降水系への変遷を考慮し、この変化に伴って収着分配係数を変化させないケース①とケース②の解析結果を、図 3.2-18 で比較する。ケース①は Ka モデル、ケース②は不可逆モデルであり、同図(a)の解析結果を、同図(b)に示す収着の取り扱いの違いによる影響の概念図とあわせて説明する。同図(a)には、右上図に示すように、解析体系のうち割れ目から 15cm の領域を対象に、液相中の Cs 濃度の時空間変化をコンター図で、また、割れ目内の液相中の Cs 濃度の変化をグラフで示した。1万年(10ka)時点では、地下水組成の変化が生じないため、収着の取り扱いの違いも含めて、ケース①と②で差異は生じないが、それ以降の地下水組成の変化によって徐々に違いが生じていることが確認できる。同図(b)の概念図とあわせてみることで、低濃度 Cs を含む地下水が流入するようになると、Ka モデルでは収着していた Cs が脱離して割れ目内に拡散し、さらに割れ目内を移行していく状況が確認できる。さらに、Ka モデルでは割れ目内を Cs がより高濃度で移行し、このためマトリクス領域の Cs 濃度も高くなる傾向が確認できる。他方、不可逆モデルではマトリクス部、割れ目内の双方で、Cs 濃度が相対的に低い濃度で広がっていく状況が確認できる。これらの結果より、不可逆収着を適切に表現できていると考えられる。



図 3.2-18 環境変遷を考慮した核種移行解析のケース①とケース②の比較:(a)解析結果の比 較、(b)Kdモデルと不可逆モデルの差異に関する概念図

さらに、地下水組成の変遷に応じて収着分配係数を変化させた解析ケース③・⑤の結果を、ケ ース①の結果とあわせて、図 3.2-19 に示す。海水系から降水系に変化させ、その変化に伴う Ka の変化を考慮しないケース①と、考慮するケース③を比較すると、地下水組成の変化に伴う Ka の変化を考慮しないケース①と、考慮するケース③を比較すると、地下水組成の変化に伴う Ka の変化を考慮しないケース①と、考慮するケース③を比較すると、地下水組成の変化に伴う Ka の変化を考慮する2 万年以降の解析結果において、ケース③では Ka が増加することに伴い液相 中の Cs 濃度の拡がりが抑制されていることが確認できる。また、環境変遷に伴う Ka の変化を考 慮する条件で、Kaモデルと不可逆モデルの結果を、ケース③と④で比較した場合、図 3.2-19 に示 した傾向と同様の傾向が確認できる。上記ケース②とは異なり、地下水変遷に応じて収着データ を変化させているが、環境変遷に伴い Ka が増加する条件となっているため、不可逆モデルの影響 はケース②と比較し、それほど顕在化していない。さらに、海水系から降水系に変化させて、そ の変化に伴う Ka の変化を考慮したケース③に対し、地下水の変遷を逆に降水系から海水系に変化 させたケース⑤とを比較した。地下水変遷が生じる前の1万年時点では、降水系条件で Ka が高 い値となるケース⑤の方が、Cs の拡がりは抑制されているが、2万年以降では、海水系への変遷 とそれに伴う Ka の低下によって、ケース⑤の方がより広い範囲に Cs が拡がっていく状況が確認 できる。

以上のように、地下水組成の変遷や鉱物の溶解・沈殿反応が核種収着に及ぼす影響を考慮する ことによって、隆起シナリオ等の地質環境の長期変遷を考慮したより現実的な核種移行解析の手 法を構築することができた。今後は、これらの地質環境の変遷と核種移行への影響プロセスをよ り精緻に取り扱うための手法の改良と解析事例の拡充を進め、その結果をもとに核種移行に及ぼ す影響が大きいプロセスの抽出を行う。さらに、これらの精緻な解析と、簡易な解析との結果の 比較を行うことにより、性能評価への反映方策を検討していく計画である。



図 3.2-19 環境変遷を考慮した核種移行解析のケース①とケース③ - ⑤の比較

(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

先行事業および本事業(日本原子力研究開発機構, 2013; 2018a;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; 2021)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、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(縦緩和時間Tiおよび横緩和時間T2)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H₂O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、幌延の泥岩の間隙構造の評価を目的とし、NMRの分析試験 を継続して行ってきた(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; 2021)。令和2年度までの成果から、泥岩間隙中には異なる緩和時間を持つ水が少なくとも 2種類以上存在し、それぞれ含有粘土鉱物の層間中の水および鉱物粒子の間隙中の水に対応するこ

とが示唆された。令和3年度は、これらの異なる緩和時間を持つ水分子の交換速度に着目したNMR 分析を実施することにより、間隙の連続性およびそれらの間隙中の水分子の運動性を評価した。

試料には、幌延深地層研究センターの地下350 mにある研究坑道からに採取した泥岩試料(直径:8.2 mm、長さ:28 mm)を用いた。泥岩試料は、減圧下にて蒸留水に浸漬させることにより含水させた後、¹H NMR測定を行った。¹H NMR測定においては、水分子がある間隙から間隙サイズの異なる別の間隙に移動するような分子運動を観測することが可能な T₂- T₂パルスシーケンスを用いた。T₂- T₂パルスシーケンスのダイアグラムを図3.2-20に示す。このパルスシーケンスでは、 Tmで隔てた2つのCarr-Purcell-Meiboom-Gill(CPMG)測定(Carr and Purcell, 1954)を連続して行い、Tm間に起こるスピンの化学交換を観測する。最初のCPMGでn回のエコー信号を生成し、磁化をTmだけz軸に保持し、次のCPMGでm回のエコー信号を観測する。ここで、Tmは交換時間と呼ばれる。Tmの間に水分子が間隙からサイズの異なる別の間隙に移動するような分子運動を起こった場合、間接観測軸のT₂でエンコードされた磁化は、直接観測軸でエンコードされたT2と異なるCPMG信号となる。これにより、間隙から間隙への水分子の交換の有無を直接評価できる。



図 3.2-20 T_2 - T_2 パルスシーケンス

*T*₂-*T*₂測定から得られた二次元データと*T*₂-*T*₂相関スペクトルを図3.2-21に示す。図3.2-21の上 段と下段は、交換時間*τ*_mを30 µsと200 µsとして測定した結果をそれぞれ示している。(*T*₂, *T*₂) -10×10⁻² sおよび・10×10⁻¹ sの領域に小さなピークが観測されるが、これらピークは二次元逆 ラプラス処理によるアーティファクトと考えられる。*T*₂-*T*₂で観測される二次元相関スペクトル で観測されるクロスピークは、対角線上の自己交換ピークのみしか観測されなかった。この結果 から、幌延泥岩の間隙中の水では、間隙間の水分子の交換現象は観測されず、均質な間隙構造を 持つことが示唆された。



図 3.2-21 幌延泥岩試料中の水のT₂-T₂測定から得られた二次元データとT₂-T₂相関スペクトル: (a) 交換時間T_m =30µsの測定結果、(b) 交換時間T_m =200 µsの測定結果

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、モンモリロナイトおよびイライトに対するCsの吸着形態について、NMR(¹³³Cs)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; 2021)。さらに、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¹³³Csケミカルシフトの関係を定量的に結びつけ、¹³³Cs NMRスペクトルからCsの吸着構造の評価を試みてきた(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, 2021)。令和3年度は、第一原理計算による¹³³Cs NMRケミカルシフトの理論計算および機械学習を利用した新しい構造解析方法を構築し、機械学 習モデルを用いることで、実験的に観測されているCs型モンモリロナイトの¹³³Cs NMRケミカル シフトから吸着構造を逆解析することによって、Cs吸着構造を評価した。

第一原理計算を実施する粘土構造モデルは、2八面体型(Di-smect)および3八面体型(Tri-smect) のスメクタイト構造に基づき、置換量および置換サイトを様々に変動させて3種類の構造系列(Dismect1、Di-smect2、Tri-smect)を作成した。Di-smect1系列は、層電荷を固定したうえで、八面 体シートでの置換: $Al^{3+} \rightarrow Mg^{2+}$ および四面体シートでの置換: $Si^{4+} \rightarrow Al^{3+}$ を同時に、かつ系統 的に変化させて、7種類の構造を作成した。D-smect2系列は、四面体シートでの置換は行わず、八 面体シートでの置換: $Al^{3+} \rightarrow Mg^{2+}$ のみを系統的に実施して、9種類の構造を作成した。Tri-smect 系列は、八面体シートでの置換: $Mg^{2+} \rightarrow Al^{3+}$ の個数を一定数で固定したうえで、四面体シート での置換: $Si^{4+} \rightarrow Al^{3+}$ を系統的に変化させて、9種類の構造を作成した。

まず、作成した構造モデルから、ClayFF力場(Cygan et al., 2004)を用いて300 Kで古典MD 計算を実行し、各構造モデルの平衡構造を得た。次に、古典MD計算で得られた平衡構造に対して 第一原理計算を適用し、構造最適化を行った。第一原理計算は、Quantum Espresso 6.5 (Giannozzi et al., 2009; 2017)により実施した。¹³³Csのケミカルシフトは、最適化した構造に対してQuantum Espresso 6.5のQE-gipaw モジュールを用いたGIPAW計算(Pickard and Mauri, 2001)により 実施した。さらに、GIPAW計算で得られた¹³³Csのケミカルシフトを、Csに近接した原子配置か ら予測する機械学習モデルを構築した。一般に、数百原子からなる系のGIPAW計算は、第一原理 計算による構造最適化計算まで含めると、最近のCPUを使った200コア程度の並列計算でも、少 なくとも50時間程度を必要とする。機械学習モデルを構築することで、計算コストの高い第一原 理計算によるケミカルシフト計算を容易に予測できれば、様々なサイトのケミカルシフトを瞬時 に得ることができる。

機械学習による手法を適用する際、分子構造を表現する様々な特徴量の作成法がこれまでに提 案されてきたが、本事業ではケミカルシフトを予測する機械学習モデルで高い精度が報告されて いるSOAP(Bartók et al., 2013)により特徴量を作成した。SOAPは、注目するCsからカットオ フ距離内にある原子種の座標を、球面調和関数および動径分布関数で展開して、特徴量を作成す る手法である。球面調和関数の次数、動径分布関数の関数形、およびカットオフ距離は、問題に 応じて適切に最適化する必要がある。教師データと収集したデータのデータ数は100程度である ため、機械学習モデルにはペナルティ項を含む単純な線形モデル(Ridge回帰)を適用した。また、 過学習を避けてモデルを作成するために、まずデータを訓練用データとテスト用データに4:1の割 合で分割し、さらに訓練用データを8個のデータ群に分割して、そのうちの7個のデータ群で訓練 し残りの1個のデータ群で検証するという交差検証を行った。本事業で実施した機械学習では、 SOAPで特徴量を生成する際に用いるカットオフ距離(rcut)、SOAPで使用する球面調和関数の 次数 (nmax) 、およびRidge回帰のsmoothingパラメータ (α) の3種類のハイパーパラメータを 設定する必要がある。機械学習を効率的に遂行するためには、これら3種のハイパーパラメータを 最適な値に設定することが望まれる。ここでは、訓練用のデータ群と検証用のデータ群を入れ替 えながら学習を行い、検証用データの二乗平均誤差を求めた。データ群を入れ替えることで7個の 二乗平均誤差が得られるため、この平均値を最小化するように3種のハイパーパラメータを最適化 した。最適化されたハイパーパラメータに基づいて機械学習モデルを作成し、機械学習を用いて 原子配置の構造データからその構造に対応した¹³³Csケミカルシフトの予測値を評価した。機械学 習により得られた予測値とGIPAW第一原理計算で得られた値の関係を、図3.2-22に示す。図中に は、構築したモデルの予測精度のスコアである決定係数(R²)、二乗平均誤差(MSE)および二乗平 均平方根誤差(RMSE)を、訓練用データと検証用データそれぞれについて記載した。訓練用デー タおよび検証用データともに予測精度のスコアは同程度であり、過学習のない機械学習モデルが 構築されていることが確認できる。



図 3.2-22 機械学習モデルから予測された¹³³Csケミカルシフトの値(縦軸)とGIPAW第一原理 計算から得られた値(横軸)の相関関係。機械学習モデルの予測精度(R², MSE, RMSE)を、 図中に記載した

次に構築した機械学習モデルを利用して、¹³³CsケミカルシフトからCsの吸着構造を予測する逆 解析を試みた。逆解析は、層構造の情報と¹³³Csケミカルシフトを入力データとして与え、入力し たケミカルシフトを与える原子座標を出力する解析である。入力として与える¹³³Csケミカルシフ トは、モンモリロナイトのCs吸着試験で報告されている0.7534 ppmおよび-65.41 ppmとした

(Ohkubo et al., 2018)。層構造は、分析試料の組成と近い構造であるDi-smect1系列のものを用 いた。ケミカルシフトが0.7534 ppmの場合(a)と-65.41 ppmの場合(b)に対応するCsの位置を、 図3.2-23に示す。Csの座標は1個ずつ最適化しているため、Cs・Cs間の相互作用は考慮していな い。図3.2-23において、ほぼ同位置に存在するCs(Cs4aとCs3a、およびCs1bとCs1b)は、最適化 する座標領域の境界付近に存在している。逆解析により評価されたCsの座標は、ベーサル面六員 環の中央付近に位置することが確認できる。


図 3.2-23 逆解析で得られたCs位置: (a)ケミカルシフトが0.7534 ppmの場合、(b)ケミカルシ フトが-65.41 ppmの場合

粘土鉱物に吸着したCsは、さまざまな¹³³Cs NMRケミカルシフトを示す。実験的に観測した ¹³³Cs NMRスペクトルからスメクタイト表面へのCs吸着構造を推定するため、第一原理計算によ る¹³³Cs NMRケミカルシフトの理論計算と機械学習を利用した新しい構造解析手法を構築した。 機械学習のための教師データは、層組成の異なる2八面体型および3八面体型スメクタイトを分子 動力学計算で作成し、GIPAW第一原理計算により生成した。教師データに基づいて、Ridge回帰 による機械学習モデルを構築した。これにより、原子配置の構造データから¹³³Cs NMRケミカル シフトを高速に計算できるようになった。さらに機械学習モデルを利用して、実験的に観測され た¹³³Cs NMRケミカルシフトのデータから、原子配置の構造を推定する逆解析を行った。実験的 に観測されているCs型モンモリロナイトの¹³³Cs NMRケミカルシフトから、Cs吸着構造を逆解析 で評価したところ、Csの吸着サイトはベーサル面上の六員環の中央付近にあることが推定された。

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, 2018a)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アプローチである。特に拡散モデルは、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*₆)を幅広く再 現することが確認されるとともに、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が進められてきた(日本原子力研究開発機構, 2013; 2016; 2018a)。 ISDモデルを適用した幌延の泥岩中の拡散モデルの1つとして、泥岩に含まれているモンモリロ ナイト等の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、モンモリロナイトを主成分とするベントナイト(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、HTOを対象としたシミュレーション解析の結果と実測データ

(Kato et al., 1999b)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)。さらに令和2年度は、構造モデル・ケイ砂混合割合等の 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、HTOを対象としたRW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(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, 2021)。令和 3年度は、令和2年度に実施したRWシミュレーションと同様の「クニゲルV1と間隙ゼロのケイ砂 混合系」の構造に対して、2種類のイオン(Cs+,I⁻)を対象にISD拡散モデルで評価したクニゲル V1中の実効拡散係数を入力値として与え、RWシミュレーションにより混合系の実効拡散係数を 計算してモデルの適用性を検証する。さらに、複数の鉱物が混在する不均質な岩石系における拡 散係数の平均化処方を検討するため、間隙率の異なる二種類の鉱物(クニゲルV1と間隙を有する ケイ砂)が混在する系を想定して、2種類の鉱物ユニットをランダムに配置して構造をモデル化し、 RWシミュレーションにより全体の実効拡散係数を評価する。

RWシミュレーション解析における岩石の構造モデルは、令和2年度と同様にKato et al. (1999b) のクニゲルV1とケイ砂混合系をモデル化するため、2×2×2セルの構造を1ユニットとして、解析体 系全体を100×100×100ユニットで構成した。また、イオン系のシミュレーションに対しては「ク ニゲルV1と間隙ゼロのケイ砂混合系(複合体)」とし、各ユニットは、次のような2種類のいずれ かとする。

- ・ <u>クニゲルユニット</u>: 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
- ・ <u>ケイ砂ユニット</u>: 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

媒体の計算条件は、HTOを対象とした令和2年度の設定と同じ条件とする(表3.2-2)。クニゲルV1の真密度 (ρ_s^{bent}) およびケイ砂の真密度 (ρ_s^{sand}) を、それぞれ2700 kg/m³ (鈴木ほか, 1992)、 2670 kg/m³ (Kato et al., 1999a) とし、ケイ砂の体積分率 (R_{sand}) およびクニゲルV1の乾燥密度 (ρ_b^{bent}) を設定条件として与えたときの、クニゲルV1の体積分率 (R_{bent})、クニゲルV1の間隙率 ($\varepsilon_{\text{bent}}$)、複合体 (クニゲルV1と間隙ゼロのケイ砂混合材)の乾燥密度 (ρ_b^{mix}) および複合体の 間隙率 (ε_{mix}) は、次式で算出される。

$$R_{\text{bent}} = 1 - R_{\text{sand}} \tag{3.2-2}$$

$$\varepsilon_{\text{bent}} = 1 - \rho_{\text{b}}^{\text{bent}} / \rho_{\text{s}}^{\text{bent}} \tag{3.2-3}$$

$$\rho_{\rm b}^{\rm mix} = R_{\rm bent} \cdot \rho_{\rm b}^{\rm bent} + R_{\rm sand} \cdot \rho_{\rm s}^{\rm sand} \tag{3.2-4}$$

$$\varepsilon_{\rm mix} = R_{\rm bent} \cdot \varepsilon_{\rm bent}$$
 (3.2-5)

ケイ砂の体 積分率 [-]	クニゲルV1 の乾燥密度	クニゲルV1 の体積分率	クニゲルV1 の間隙率 [-]	複合体の乾 燥密度	複合体の間 隙率 [-]	クニゲルV1中のイン 係数 [m ² /s](イオン [mol/L]としてISDモ	オンの実効拡散 レ強度=0.01 Eデルで算出)	複合体中のイオン [m ² /s](RWシミュレ	の実効拡散係数 マーション)
	[kg/m ⁻]	[-]		[kg/m]		Cs⁺	I	Cs⁺	I_
0.000	1600	1.000	0.407	1600	0.407	1.023E-08	1.251E-12	1.10E-08	1.28E-12
0.120	1455	0.880	0.461	1600	0.406	1.006E-08	2.095E-12	8.60E-09	1.77E-12
0.240	1263	0.760	0.532	1600	0.404	9.816E-09	4.176E-12	6.20E-09	2.77E-12
0.300	1143	0.700	0.577	1600	0.404	9.621E-09	6.512E-12	5.20E-09	3.50E-12
0.360	1000	0.640	0.630	1600	0.403	9.280E-09	1.127E-11	4.10E-09	5.20E-12
0.420	828	0.580	0.693	1600	0.402	8.674E-09	2.275E-11	3.20E-09	8.18E-12
0.480	616	0.520	0.772	1600	0.401	7.504E-09	5.979E-11	2.10E-09	1.75E-11
0.540	348	0.460	0.871	1600	0.401	5.244E-09	2.672E-10	1.20E-09	5.69E-11
0.600	1000	0.400	0.630	2000	0.252	9.283E-09	1.127E-11	1.40E-09	1.59E-12
0.650	1000	0.350	0.630	2083	0.220	9.283E-09	1.127E-11	1.00E-09	1.24E-12
0.700	1000	0.300	0.630	2166	0.189	9.283E-09	1.127E-11	0.00E+00	0.00E+00
0.800	1000	0.200	0.630	2333	0.126	9.283E-09	1.127E-11	0.00E+00	0.00E+00

表 3.2-2 イオン系の核種移行を対象にクニゲルV1と間隙ゼロのケイ砂混合系(複合体)をモデ ル化したRWシミュレーションの条件設定および解析結果

一方、RWシミュレーションの入力値となるクニゲルV1中のCs+およびI-の実効拡散係数は、間隙中のイオン強度をすべてのケースで0.01 mol/(dm)³と想定し、各ケースで設定したクニゲルV1の乾燥密度に従ってISDモデルで算出した(表3.2-2の7-8列目)。なおISDモデルの計算で必要となるクニゲルV1中のHTOの実効拡散係数は、Kato et al.(1995)で得られた実測データを基に、 クニゲルV1の乾燥密度の関数として指数関数で最適化した次のような実験式を用いて算出した。

$$D_{\rm e}^{\rm bent} = 1.727 \times \exp(-1.655 \times \rho_{\rm b}^{\rm bent}), \qquad 0.5 \le \rho_{\rm b}^{\rm bent} \le 2.0$$
 (3.2-6)

2 種類の構成ユニット(クニゲルおよびケイ砂ユニット)を 3 次元的に配置した計算体系の断面イメージ図を、図 3.2-24 に示す。例として、ケイ砂の体積分率が 0.12 の場合を図 3.2-24(a)に、 0.65 の場合を図 3.2-24(b)に示した。図 3.2-24 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。 拡散粒子の初期位置として端面: $0 \le X \le 20, Y = 0, 0 \le Z \le 20$ に配置し、反対側の端面: $0 \le X \le 20, Y = 20, 0 \le Z \le 20$ 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。



図 3.2-24 クニゲルV1と間隙ゼロのケイ砂混合系(複合体)の鉱物配置の可視化図。(a)ケイ砂の体積分率が0.12の場合、(b)ケイ砂の体積分率が0.65の場合。クニゲルユニットは緑色、ケイ 砂ユニットは青色で配色している

以上の解析条件によるRWシミュレーションから得られた実効拡散係数を、表3.2-2の9列目(Cs⁺) および10列目(I⁻)に記載した。令和2年度のHTOの場合と同様に、複合系中の実効拡散係数 (D_e^{mix})をベントナイト中の実効拡散係数(D_e^{bent})で規格化することで複合体の幾何学的因子G(= D_e^{buff}/D_e^{bent})を定義し、ケイ砂の体積分率 R_{sand} をパラメータとした幾何学的因子Gの変動を 図3.2-25に示した。赤色ダイヤのプロットはCs⁺を、青色三角のプロットはI⁻を表す。参考として 令和2年度実施したHTOの結果を、黒丸でプロットした。幾何学的因子Gの R_{sand} 依存性を、

$$G(R_{\text{sand}}) = a \cdot R_{\text{sand}} + b \tag{3.2-7}$$

の関数形でフィッティングすると、Cs⁺では $a \simeq -1.484$ ($R^2 = 0.986$)、I⁻では $a \simeq -1.447$ ($R^2 = 0.993$)、HTOでは $a \simeq -1.429$ ($R^2 = 0.984$)となった。図3.2-25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 $R^*_{sand} \simeq 0.68839$ 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 $a \simeq -1.45266$ であり、RWシミュレーションの結果と定量的によく一致していることが確認できる。ちなみに、令和2年度実施したKato et al. (1999b)によるHTOの実測データの場合は $a \simeq -1.36$ ($R^2 = 0.979$)であり、おおむね整合的な結果であった(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, 2021)。



図 3.2-25 RWシミュレーションによる幾何学的因子Gのケイ砂体積分率R_{sand}依存性。Cs⁺イオン(赤色ダイヤ)、Γイオン(青色三角)、HTO(黒丸)およびサイト・パーコレーション理論 曲線(緑色実線)

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端面間で破過する(拡散経路として端から端まで繋がる)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。HTOの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。ただし、令和3年度に実施したRWシミュレーションの結果からは、複合 体の幾何学的因子Gはトレーサーの種類に関係なく、クニゲルV1とケイ砂の配合率だけに依存す ることが確認できたが、実際の泥岩については、イオンをトレーサーとした実測データによって 検証する必要がある。また本解析の結果として図3.2-25のプロットを見ると、ケイ砂の混合割合 が高くなるに従ってトレーサーの種類に関係なく重なっていく傾向が確認できる。これは、Cs+、 I-およびHTOのRWシミュレーションにおいて、鉱物配置が同じ複合体を用いた可能性が考えら れる。ケイ砂の混合割合が高くなると、パーコレートする拡散パスの存在確率が減少し、複合体 固有の特性が顕著に現れることになる。したがって、トレーサーの種類が異なっても鉱物配置が 同じならば、その特性が幾何学的因子に顕著に反映すると思われる。そこで今後の課題の一つと しては、ケイ砂混合割合が同じ条件でも鉱物配置が異なる複数の複合体を作成してRWシミュレ ーションを実施し、複合体に対しても十分な統計を取ること、さらにトレーサーごとに複合体の 独立性を保つことが挙げられる。特に浸透閾値近傍ではデータのゆらぎが大きくなるため、統計 は十分に取る必要がある。

次に、複数の鉱物が混在する不均質な岩石系における核種拡散移行のモデル化を検討するため、 間隙率の異なる2種類の鉱物(クニゲルV1と間隙を有するケイ砂)が混在する複合体を想定して、 2種類の鉱物ユニットをランダムに配置して構造をモデル化し、RWシミュレーションにより複合 体におけるHTOの実効拡散係数を評価した。岩石の構造モデルは、これまでと同様に2×2×2セル の構造を1ユニットとして、解析体系全体を100×100×100ユニットで構成する。また、実効拡散係 数の異なる2種類の鉱物をランダムに配置した複合体の実効拡散係数が、混合割合をパラメータと して如何に平均化されるかを確認するため、複合体の間隙率が系統的かつなるべく広範囲になる ように条件設定した。解析ケースの一覧を、表3.2・3に示す。複合体の間隙率をなるべく広範囲に 設定するため、上側6ケースと下側6ケースでクニゲルV1およびケイ砂の乾燥密度を、それぞれ異 なる値に設定している。クニゲルV1の真密度 ($\rho_s^{\text{bent}} = 2700 \text{ kg/m}^3$)、ケイ砂の真密度 ($\rho_s^{\text{sand}} = 2670 \text{ kg/m}^3$)、クニゲルV1の乾燥密度 (ρ_b^{bent})、ケイ砂の乾燥密度 (ρ_b^{sand})、およびケイ砂の体積分率 (R_{sand})が与えられたときの、ケイ砂の間隙率 ($\varepsilon_{\text{sand}}$)、複合体の乾燥密度 (ρ_b^{mix})および複合体の間隙率 (ε_{mix})は、次式で算出される。

$$\varepsilon_{\rm sand} = 1 - \rho_{\rm b}^{\rm sand} / \rho_{\rm s}^{\rm sand} \tag{3.2-8}$$

$$\rho_{\rm b}^{\rm mix} = R_{\rm bent} \cdot \rho_{\rm b}^{\rm bent} + R_{\rm sand} \cdot \rho_{\rm b}^{\rm sand}$$
(3.2-9)

$$\varepsilon_{\text{mix}} = R_{\text{bent}} \cdot \varepsilon_{\text{bent}} + R_{\text{sand}} \cdot \varepsilon_{\text{sand}}$$
(3.2-10)

なお、クニゲルV1の体積分率 (R_{bent}) およびクニゲルV1の間隙率 (ε_{bent}) は、それぞれ式(3.2-2)および式(3.2-3)と同じである。また、クニゲルV1中のHTOの実効拡散係数 ($D_{e,HTO}^{bent}$) は式(3.2-6)と同じ式で評価した。一方、ケイ砂中のHTOの実効拡散係数 ($D_{e,HTO}^{sand}$) については適当な情報が ないので、クニゲルV1の場合を参考にケイ砂の乾燥密度の指数関数として設定した。

表 3.2-3 HTOの核種移行を対象にクニゲルV1と間隙を有するケイ砂混合系(複合体)をモデル 化したRWシミュレーションの条件設定

ケイ砂の体 積分率 [–]	クニゲルV1 の体積分率 [-]	ケイ砂の乾 燥密度 [kg/m ³]	クニゲルV1 の乾燥密度 [kg/m ³]	ケイ砂の間 隙率 [–]	クニゲルV1 の間隙率 [−]	複合体の乾 燥密度 [kg/m ³]	複合体の間 隙率 [−]	ケイ砂中のHTO の実効拡散係数 [m ² /s]	クニゲルV1中の HTOの実効拡散 係数 [m ² /s]				
0.000	1.000					1400	0.481						
0.200	0.800			1400 0.025	0 0.025		1640	0.390					
0.400	0.600	2600	1400			0.025	0.025	0.025	0.401	1880	0.299	3.043E-12	1.702E-10
0.600	0.400	2000	1400						0.481	2120	0.207		
0.800	0.200												
1.000	0.000						2600	0.025					
0.000	1.000					1200	0.556						
0.200	0.800					1000	0.629						
0.400	0.600	200	1200	00 0.925	0.556	800	0.703	4 4025-09	2 2705-10				
0.600	0.400	200	1200		0.550	600	0.777	4.493E-08	2.370E-10				
0.800	0.200					400	0.851						
1.000	0.000					200	0.925						

上記解析条件のもとでRWシミュレーションにより得られた実効拡散係数($D_{e,HTO}^{mix}$)を、表3.2-4に示す。表中の5列目がRWシミュレーションの結果である。表中の6 - 9列目は、クニゲルV1中の実効拡散係数($D_{e,HTO}^{bent}$)とケイ砂中の実効拡散係数($D_{e,HTO}^{sand}$)を、それぞれの体積分率(R_{bent} および R_{sand})を重みとして平均化処理した実効拡散係数であり、ここでは代表的なものとして算術平均($\tilde{D}_{e,HTO}^{mix(1)}$)、調和平均($\tilde{D}_{e,HTO}^{mix(2)}$)、対数算術平均($\tilde{D}_{e,HTO}^{mix(3)}$)、および対数調和平均($\tilde{D}_{e,HTO}^{mix(4)}$)を記載した。それぞれの平均値は、次式で定義して算出した。

$$\widetilde{D}_{e,HTO}^{\min(1)} = R_{bent} \cdot D_{e,HTO}^{bent} + R_{sand} \cdot D_{e,HTO}^{sand}$$
(3.2-11)

$$\widetilde{D}_{e,\text{HTO}}^{\text{mix}(2)} = (R_{\text{bent}}/D_{e,\text{HTO}}^{\text{bent}} + R_{\text{sand}}/D_{e,\text{HTO}}^{\text{sand}})^{-1}$$
(3.2-12)

$$\widetilde{D}_{e,\text{HTO}}^{\text{mix}(3)} = \exp[R_{\text{bent}} \cdot \ln(D_{e,\text{HTO}}^{\text{bent}}) + R_{\text{sand}} \cdot \ln(D_{e,\text{HTO}}^{\text{sand}})]$$
(3.2-13)

$$\widetilde{D}_{e,\text{HTO}}^{\text{mix}(4)} = \exp[\{R_{\text{bent}}/\ln(D_{e,\text{HTO}}^{\text{bent}}) + R_{\text{sand}}/\ln(D_{e,\text{HTO}}^{\text{sand}})\}^{-1}]$$
(3.2-14)

それぞれの平均化処方で得られた平均値をRWシミュレーションにより得られた実効拡散係数 (D_{e,HTO})と比較すると、複合体の間隙率(表3.2·3参照)に対する変化の傾向はどれも同じだが、 各平均化処方の特徴を反映して定量的には微妙に異なる。そこで、各平均値とRWシミュレーショ ンで得られた値との間でピアソンの積率相関係数(中西ほか,2004)を計算した。その結果、算術 平均は0.969、調和平均は0.777、対数算術平均は0.933、対数調和平均は0.959となった。調和平 均以外は何れも同程度の相関関係を示すことが確認でき、本解析の結果のみからでは適切な平均 化処方を判断することができない。クニゲルV1およびケイ砂中の実効拡散係数は入力値であるた め、平均化処方によって計算した値には誤差はない。したがって、RWシミュレーションにより得 られたデータの精度を向上させることが、適切な平均化処方を判断するうえで重要であると思わ れる。

ケイ砂の体 積分率 [-]	クニゲルV1 の体積分率	ケイ砂中のHTO の実効拡散係数	クニゲルV1中の HTOの実効拡散	複合体中のHTO の実効拡散係数 [m ² /s](RWシミュ	ケイ砂中の実効拡 体積分率を重みと	散係数とクニゲルい して平均化処理した	/1中の実効拡散係 _実効拡散係数 [m	数を、それぞれの ²/s]
	[-]	[m²/s]	1条蚁 [m⁻/s]	レーション)	算術平均	調和平均	対数算術平均	対数調和平均
0.000	1.000			1.72E-10	1.702E-10	1.702E-10	1.702E-10	1.702E-10
0.200	0.800			1.19E-10	1.368E-10	1.420E-11	7.612E-11	8.419E-11
0.400	0.600	20425-12	1 7025-10	6.72E-11	1.033E-10	7.409E-12	3.404E-11	3.978E-11
0.600	0.400	3.043E-12	1.702E-10	3.07E-11	6.991E-11	5.012E-12	1.522E-11	1.788E-11
0.800	0.200			9.64E-12	3.648E-11	3.787E-12	6.806E-12	7.606E-12
1.000	0.000			2.55E-12	3.043E-12	3.043E-12	3.043E-12	3.043E-12
0.000	1.000			2.46E-10	2.370E-10	2.370E-10	2.370E-10	2.370E-10
0.200	0.800			1.55E-09	9.176E-09	2.959E-10	6.766E-10	8.644E-10
0.400	0.600	4 4025 09	2 270E 10	7.95E-09	1.812E-08	3.936E-10	1.931E-09	2.733E-09
0.600	0.400	4.493E-00	2.370E-10	1.90E-08	2.705E-08	5.879E-10	5.514E-09	7.662E-09
0.800	0.200			3.27E-08	3.599E-08	1.161E-09	1.574E-08	1.939E-08
1.000	0.000			4.71E-08	4.493E-08	4.493E-08	4.493E-08	4.493E-08
				相関係数	0.969	0.777	0.933	0.959

表 3.2-4 HTOの核種移行を対象にクニゲルV1と間隙を有するケイ砂混合系(複合体)をモデル 化したRWシミュレーションの解析結果

幌延の泥岩中の拡散モデルの一つとして検討を進めている本解析モデルの適用性を検証するため、「クニゲルV1と間隙ゼロのケイ砂混合系」の複合体を対象に、令和2年度に実施したHTOの RWシミュレーションに加え、2種類のイオン(Cs+,I-)に対してRWシミュレーションを実施した。その結果、クニゲルV1中の実効拡散係数が異なるトレーサーに対しても、パーコレーション 理論との整合性が保たれることが確認された。また、複数の鉱物が混在する不均質な岩石系における拡散係数の平均化処方を検討するため、間隙率の異なる2種類の鉱物(クニゲルV1と間隙を 有するケイ砂)が混在する複合体を想定して、RWシミュレーションにより全体の実効拡散係数を 評価した。クニゲルV1およびケイ砂中のHTOの実効拡散係数から如何なる平均化処方により複合体の実効拡散係数が算出できるかについて、現段階では適切な手法の判断は困難であった。今後 の課題としては、実際の泥岩中でのイオンをトレーサーとした実測データを対象として本解析モ デルの適用性を検証すること、またケイ砂混合割合が同じ条件下でも鉱物配置が異なる複数の複 合体を作成してRWシミュレーションを実施し、複合体に対しても十分な統計を取ること等が挙 げられる。

2) 堆積岩割れ目中の核種移行モデルの開発

これまでに、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を対象として、原位置試験をサポートする室内試験・分析データ (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;2021)。令和3年度は、これまでに得られた解析の結果と課題を踏まえ つつ、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さらなる改良とその 適用性について検討した。

① 幌延の泥岩割れ目中の原位置トレーサー試験の概要

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3.2-26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)。注水孔および揚水孔は孔径約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、重水およびウラニン)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 およびウラニン)。





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

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21間で実施された が、注水孔側の割れ目の分布状況や開口幅、注水孔およ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等のトレーサーの 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 の分析結果をもとに、2 つまたは3 つの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;2021)。ここで、基本となる解析体系は、図 3.2・27 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 CellPathway オブジェクトを用いた解析を行い、パルスソースおよびコンスタントソー スで得られた非収着性のウラニンと Mo および収着性の Cs の破過データ、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、これらの3 種のトレーサーの 破過データの全体の傾向性を概ね再現することはできるものの、特にパルスソースとコンスタン ト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い等が課題であった(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;2021)。



(b)移行経路の推定

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 た試験であり、令和2年度までに、試験箇所周辺のボーリング掘削時のコア観察等の情報から割れ 目の分布状況を推定してきた(図3.2・28(a))。試験孔としたS・30およびS・31の周辺、孔間にはせ ん断割れ目、引張割れ目および両者の性質を有する割れ目が複雑に分布しており、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た。図3.2・28(a)に示したトレーサーが検出され た割れ目の分布状況から、トレーサーは注水孔およ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た。また、図3.2・28(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 3.2-28 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

(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方法

上記(b)に示したように、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,2020;2021)。平成31年度の解析検討では、パルス試験のピ ーク傾向を1つの移行経路で再現しつつ、もう1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。令和2年度は、3つの移行経路とフロー領域・スタグナント領域 を考慮したモデル解析を検討したが、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。

これまでに検討してき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移行経路 のモデル概念を図3.2・29に示す。複数の移行経路を考慮したモデルは、図3.2・29(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、割れ目幅および開口幅の6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・29(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。これま で、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 析を進めてきた。



図 3.2-29 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

また、解析においては、トレーサー試験において注入孔からの注水量が40 mL/minであるのに 対し、揚水孔からの揚水量を30 mL/minに設定されていることを考慮する必要がある。これらの 取り扱いと複数の移行経路の取り扱いの概念図を図3.2-30に示す。ここでは注入量と揚水量の差 10 mL/minを差し引いたうえで、残りの30 mL/minを、複数の移行経路にそれぞれの移行経路の 割れ目開口面積に応じて割り振る方法とした。それぞれの移行経路からの流量とトレーサー濃度 から、揚水孔における揚水中のトレーサー濃度を評価した。なお、複数経路に対しての破過曲線 をグラフ上に記載する際には、経路ごとの濃度比はそれぞれの流量比に応じた曲線として表現す ることとする。



図 3.2-30 GoldSim解析における注入孔側から揚水孔側の流量と、複数移行経路の取り扱い

令和3年度は、これまでのモデル化手法を踏まえた3つの移行経路を考慮したモデル解析を継続 した。具体的には、流路の長さや割れ目幅および開口幅等のパラメータを変動させた感度解析を 行ったうえで、重要なパラメータを選定した。そのうえで、これらの重要なパラメータを変動さ せた解析を行い、実測データとの比較によって最適化を行う手法を適用して、最適なパラメータ の導出を試みた。さらに、パルスソース・コンスタントソース両方で実測されたトレーサーの投 入量に対する回収率との比較や、移行特性の異なる複数のトレーサーの実測データへの再現性の 検討を含めた解析結果の妥当性検討を行った。

(d) 解析結果と考察

上記の解析手法に基づき実施した3つの移行経路とフロー・スタグナント領域を組み合わせたモ デルによる感度解析の結果を図3.2·31に示す。ここでは、これまでの解析で変動させた割れ目の 経路長、割れ目の経路幅、割れ目開口幅を対象にパルスソース・コンスタントソース両方で最適 化した結果を対象に、パラメータを変動させる方法で行った。また同図では、より精度の高い最 適化が行えるかを検討するため、割れ目の経路長、割れ目の経路幅、割れ目開口幅に加え、新た に分散長も変動パラメータとして追加して、感度解析を行った。

これらの結果より、パルスソースとコンスタントソースのいずれの結果に対しても、割れ目の 経路長と経路幅が破過曲線の立ち上がりに最も大きく影響を与え、割れ目開口幅の影響は相対的 に小さく、さらに分散長の影響は非常に小さい結果となった。一方で、スタグナント領域の有無 の効果についても確認したが、収着性のトレーサーについては影響が顕在化すると考えられるが、 非収着性のウラニンについてはその影響は顕著ではないことが確認された。





図 3.2-31 フロー・スタグナント領域を考慮したモデルの感度解析結果

この結果を踏まえ、3つの移行経路とフロー・スタグナント領域を組み合わせたモデルによる最 適化解析を実施した。まずは、非収着性のトレーサーであるウラニンのパルスソースおよびコン スタントソースの破過データを対象として、割れ目の経路長、割れ目の経路幅、割れ目開口幅を パラメータに最適化を試みた。

ここで、パラメータの最適化については、GoldSimに付属する「Optimization機能」を用いて 検討した。Optimization機能では、目的関数(最小化または最大化したい特定の関数)、オプシ ョンの制約(満たすべき条件)、および1つ以上の最適化対象変数(モデル内の変数で変動可能な 値)を指定する。次に、GoldSimはモデル計算を複数回実行して、各最適化変数の値の組み合わ せの選択を系統的に行う。これにより、GoldSimは指定された制約を満たしながら目的関数を最 適化(最小化または最大化)することが可能である。目的関数はコンスタンスソース試験、およ びパルスソース試験の破過曲線に対する実測値との残差二乗和とする。そして最適化対象変数は、 割れ目の経路長、割れ目の経路幅および割れ目開口幅の3つのパラメータとした。

パルスソースおよびコンスタントソースのそれぞれのウラニンの破過データに対する最適化結 果を図3.2・32に、また、それぞれの最適化で得られた3つの移行経路パラメータを表3.2・5および表 3.2・6に示す。最適化によって、パルスソースとコンスタンスソース、それぞれでより実測結果に 近い解析結果を得ることができたが、同じパラメータでパルスソースとコンスタントソースの双 方の結果を再現することはできなかった。最適化により得られた破過曲線とパラメータ値を比較 してみると、パルスソースとコンスタントソースで、注入孔と揚水孔の区間長よりも長い1.4・1.7 m程度の移行距離をメインパスとし、2・6 mの範囲の移行距離の残り2本の移行経路によって解 釈された。また、割れ目の開口幅は0.4・1.3 mm程度の最適化結果が得られ、これらの最適化パラ メータも現実的に想定されうる範囲の値となった。



図 3.2-32 幌延URLの割れ目中の原位置トレーサー試験結果へのパラメータの最適化結果

パルス最適化	1経路目	2経路目	3経路目
流路長(mm)	1700	3021.47	4589.61
割れ目幅(mm)	330.271	520.279	236.333
開口幅(mm)	1.28811	0.495821	0.969836

表 3.2-5 パルスソース試験の解析モデルにおける最適化パラメータ

表 3.2-6 コンスタントソース試験の解析モデルにおける最適化パラメータ

コンスタント最適化	1経路目	2経路目	3経路目
流路長(mm)	1365.99	2033.79	5957.78
割れ目幅(mm)	286.272	321.937	412.554
開口幅(mm)	1.28129	1.0999	0.369911

しかしながら、パルスソースとコンスタントソースのウラニンの破過データの双方を再現する ことは難しく、この原因を検討するため、実測データが取得されているトレーサーの投入量に対 する回収量の割合(回収率)を評価した。それぞれの最適化解析で得られた回収率と実測された 回収率を表3.2-7に比較する。パルスソースとコンスタントデータに基づく最適化で得られた回収 率は、それぞれの実測値と比較的整合する結果を示したものの、パルスソースの方がより良い一 致が得られ、コンスタントソースの方は若干過小評価の傾向を示した。この差異の原因として、 パルスソースからコンスタントソースへの試験の切り替えにおいて、3つの移行経路の流れのバラ ンスが若干変化したこと等が考えられるが、この点については今後更なる検討が必要である。

解析值	回収率(パルス)(%)	回収率(コンスタント)(%)
パルス最適化	49.36	34.24
コンスタント最適化	55.64	43.29
実測値	49.79	45.89

表 3.2-7 パルス・コンスタントソース試験による投入量に対する回収量の割合

次に、上記で得られた非収着性のウラニンのパルスおよびコンスタントソースでの最適化結果 の妥当性の確認や更なる改良の方向性の検討を行うため、これまでにも解析検討の対象としてき た非収着性の陰イオントレーサーであるモリブデン(Mo)と、収着性トレーサーであるセシウム (Cs)の試験データに対してモデルパラメータの適用性を確認した。ここでは、上記のパルスソ ースとコンスタントソースのそれぞれのウラニンの試験結果の最適化によって得られたパラメー タと、これまでの原位置および室内拡散試験で得られた拡散・収着データに基づく推定値とを組 み合わせた解析を行い、実測データとの比較を行った。Moのパルスソースとコンスタントソース のそれぞれの実測データと解析結果の比較を図3.2-33に示す。幌延の泥岩(稚内層)の先行研究で 得られた中性の水分子(重水またはトリチウム水)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Moの実効拡散係数(表3.2-8)を用いて解析した結果は、図3.2-33に示すように、 パルスソースおよびコンスタントソースの双方で、それぞれの試験方法でのウラニンの最適化パ ラメータを用いた場合に実測データを良好に再現できることが確認された。一方で、異なる試験 方法におけるウラニンデータに対し最適化されたパラメータを用いた場合には、実測データの乖 離が確認された。その乖離の傾向性はウラニンの場合に類似し、また、乖離の程度はウラニンよりも低減している。これらの傾向は、陰イオンのMoの方が、ウラニンよりも泥岩マトリクス中の 実効拡散係数が低いため、マトリクス拡散による遅延効果が低減されることと整合的である。

表 3.2-8 原位置および室内拡散試験データに基づくトレーサーの実効拡散係数および分配係数

の設定値				
トレーサー	$D_{ m e}({ m m^2/s})$	$K_{\rm d}({ m m}^3/{ m kg})$		
ウラニン	4.80E-10	0		
Mo	2.00E-10	0		
Cs	9.50E-10	0.0266		



図 3.2-33 ウラニンのパルス試験とコンスタント試験の最適値を用いてMoにおける3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

一方で、Csのコンスタントソースの破過データを対象に、Moの場合と同様に、原位置および室 内拡散試験で実測されたデータをもとにCsの実効拡散係数と収着分配係数を設定し(表3.2-8)、 解析を行った。その結果は図3.2-34(a)に示すように、Moの場合と同様にコンスタントソースでの ウラニンの最適化パラメータを用いた場合、コンスタントソースで得られたCsの破過データを良 好に再現できることが確認された。また、パルスソースのウラニンデータの最適化により得られ たパラメータを用いた場合には実測データの乖離が確認され、その乖離の傾向性もMoの場合と同 様に整合的な結果となった。さらに、これらのコンスタントおよびパルスソースの最適化結果を 用いたCs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3.2-34(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。

上記の検討の結果、3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とパラメータ の最適化手法とを組み合わせることで、パルスソースおよびコンスタントソース試験で得られた ウラニンの破過データから3つの移行経路の最適なパラメータを導出し、パルスソースおよびコ ンスタントソースのそれぞれで得られたパラメータによって、非収着性のMoおよび収着性のCs の破過曲線の傾向性を再現できることを確認した。しかしながら、パルスソースとコンスタント ソースの双方の結果を同じパラメータで再現することはできず、更なるモデルの改良を検討する とともに、パルスとコンスタントソースの試験で流れ場の条件等に何らかの差異が生じていた可 能性とその原因について検討していく。



図 3.2-34 ウラニンのパルス試験とコンスタント試験の最適値を用いてCsにおける3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)割れ目表面の 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 幌延の泥岩を一例に、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]という)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,2018a)。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孔から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および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孔および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, 2018a)。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、移流速度および移流・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,2018a)。このことは、幌延の堆積岩を対象に移流・ 拡散を基本とした鉛直方向の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孔およびHDB-3孔における反応性元素 (Na、K、Ca、MgおよびSO4) 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、 粘土鉱物によるイオン交換反応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(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, 2021)。令和3年度は、イオン交換反応に加え、炭酸塩鉱物による寄 与として方解石の溶解・沈殿反応を考慮した場合の反応性元素の濃度プロファイルへの影響を把 握するための解析を実施した。

① 解析対象としたボーリング孔およびデータ

解析対象としたボーリング孔は、令和2年度の検討に引き続き、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孔および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孔および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孔および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)。令和3年度の検討でも、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; 2011; 岩月ほか, 2009)。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および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3.2-9に示す)。地下水のpHに関しては、令和2年度 の検討と同様に、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 Sの溶存化学種としてのSO4および地下水のEhに関しても、令和2年度の検討と同様に暫定的に黄 鉄鉱と地下水との平衡反応による支配を仮定した。

反応式	選択係数	参考とした文献等
Na ⁺ + 0.5>X ₂ -Ca = 0.5 Ca ²⁺ + >X-Na	K _{Na/Ca} = 0.091	Yamamoto et al.(2005)
Na ⁺ + 0.5>X ₂ -Mg = 0.5 Mg ²⁺ + >X-Na	K _{Na/Mg} = 0.35	Yamamoto et al.(2005)
Na⁺ + >X-K = H⁺ + >X-Na	K _{Na/K} = 0.889	Yamamoto et al.(2005)
Na⁺ + >X-H = H⁺ + >X-Na	K _{Na/H} = 3.1E-6	Appelo(1994)

表 3.2-9 イオン交換反応に関わる選択定数

令和3年度は、イオン交換反応に加え、炭酸塩鉱物による寄与として方解石の溶解・沈殿反応を 考慮し、反応性元素の濃度プロファイルへの影響を把握するため、反応・プロセスに係る条件設 定として、以下のケースを設定した。

- Case 1: イオン交換反応(Na、K、CaおよびMgを考慮)
- Case 2: イオン交換反応(Na、K、CaおよびMgを考慮)に加え、方解石の溶解・沈殿反応 を考慮
- ・ Case 3: 方解石の溶解・沈殿反応(イオン交換反応は、NaおよびKのみを考慮)

③ 境界条件および物質移行パラメータに係る条件設定

令和3年度の検討において、HDB-1孔およびHDB-3孔を対象とした物質移行解析における境界 条件および物質移行パラメータの条件設定は、令和2年度と同様である(表3.2-10)。これらの条 件設定は、平成28年度および平成29年度に実施したHDB-1孔および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に準拠した(日本原子力研究開発機構, 2017; 2018a)。なお、解析コードとしては、令和2年度と同様にGeochemist's Workbench: GWB (Bethke, 2008)のX1tモジュールを用いた。

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CI- 濃度(10,000)、HDB-3孔の深部における現在のCI-濃度 (13,000)を設定。	Mazurek et al.(2009) 國丸ほか(2007)
δD•δ ¹⁸ Ο (‰)	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 (m²/s)	CI-: 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・δ 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)

表 3.2-10 境界条件および物質移行パラメータに係る条件設定

④ 解析結果

図3.2-35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。なお、令和2年度に実施した物質移行解析の結果、移流・拡散による移動に要する期間を1Ma と仮定した場合、非収着性元素に加え、反応性元素のうちの一部(NaおよびK)についても解析 結果と実測値の整合性が良かったため、令和3年度も移流・拡散期間を1Maと仮定した解析を行っ た。解析の結果、Case 1は、他の解析ケースと比べると、いずれの反応性元素についても相対的 に解析結果と実測値の整合性が劣り、実測値よりも濃度を過少評価する傾向が見られた。Case 2 では、反応性元素のうちNaおよびKについては、相対的に深度の浅い部分における解析結果と実 測値の整合性が他の解析ケースよりも良い傾向が認められた。一方、Case 2でも、CaおよびMgに ついては、相対的に深度の浅い部分においは実測値よりも濃度を過少評価する傾向が見られた。 Case 3では、CaおよびMgについて、相対的に深度の浅い部分における解析結果と実測値の整合 性が他の解析ケースよりも良くなった。しかしながら、NaおよびKについては、Case 1と同様の 傾向となった。これらの解析結果を鑑みると、2価の陽イオンであるCaおよびMgの実測値に対す る再現性は、炭酸塩鉱物である方解石の溶解・沈殿に強く影響されていることが示唆される。Case 3では、CaおよびMgのイオン交換反応を考慮していないため、1価の陽イオンであるNaおよびK の固相への取り込みが過大に評価され、地下水中の濃度を過少評価したと推定される。これらの ことから、反応性元素の深度プロファイルを対象に解析による実測値の再現性をさらに向上する ためには、イオン交換反応に係るパラメータ(陽イオン交換容量や選択係数)の不確実性を考慮 した評価が必要になると考えられる。



図3.2-36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。HDB-3孔の例では、Case 1 - Case 3のいずれのケースでも、地表から100 - 200m程度の浅

部における解析結果と実測値の差異が明瞭に認められた。方解石の溶解・沈殿の考慮の有無によるCaおよびMgの実測値に対する再現性の向上は、HDB-1孔の場合と基本的に同様であった。なお、今回の解析では、HDB-1孔と同様に移流・拡散期間として1Maを仮定した場合について例示した。一方、令和2年度に行った移流・拡散期間をパラメータとした解析により、HDB-3孔の場合、より短い移流・拡散期間を仮定した方が浅部における解析結果と実測値の差異が小さくなることも示唆されており(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,2021)、移流・拡散期間の不確実性も加えた評価も必要になると考えられる。



図 3.2-36 反応性元素を対象とした解析結果(HDB-3孔)

⑤ まとめ

幌延の地下研究施設周辺を対象に、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 度分布について、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、反応性元素を対象とした解 析に向けて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、HDB-1および HDB-3孔を対象に、非反応性元素と反応性元素の双方を考慮した解析を実施し、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反応性元素の濃度分布の解釈をイオン 交換反応の寄与を中心に検討した。令和3年度は、イオン交換反応に加え、炭酸塩鉱物の寄与と して方解石の溶解・沈殿による影響を把握するための補完的な解析を行い、地下水中のCaおよ びMgの実測値に対する再現性の向上に関わる検討を行った。今後は、これまでの解析で用いら れたモデルパラメータのうち、モデル解析による実測値の再現性向上への寄与が大きいと推定さ れるパラメータ等を中心に、不確実性を考慮した解析についても検討を進めていく予定である。

3.2.3 これまでの成果と今後の課題

本タスクでは、結晶質岩および堆積岩を対象に、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、原位置試験および天然事例 評価等を通じた高度化と適用性評価を進めた。

結晶質岩中のマトリクス部については、令和3年度に、核種移行に支配的な影響を及ぼす黒雲母 等の層状ケイ酸塩鉱物の配向性、粒子サイズおよび連続性を、X線CTデータから定量評価する手 法について更なる改良を進め、スイスグリムゼルと3種の国内標準岩石を対象にその適用性を確認 した。さらに、国内標準岩石を対象に拡散データを取得し、黒雲母の含有量や配向性等の特徴に 応じた拡散における陽イオン加速と陰イオン排除の効果を確認した。これまでの4年間で進めてき た、海外URLの岩石試料や国内の標準岩石試料を用いた試験分析によって、結晶質岩マトリクス 部の鉱物や間隙分布の特徴と、その核種移行特性との関係が把握できつつある。今後は、瑞浪超 深地層研究所から採取された花崗岩試料を対象に加えてデータを拡充し、国内外の複数の結晶質 岩を対象に取得してきたデータを含めて、黒雲母等の含有率、サイズ、連続性等の特徴と核種移 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 法の多様な結晶質岩への適用性を確認していく予定である。

結晶質岩の割れ目部については、令和3年度に、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大型の割れ目試料を対象に、これまでに実施してきた室内トレーサー 試験の解釈に向けて、トレーサー試験後の岩石試料を対象としたX線CTデータの解析および割れ 目表面近傍のトレーサー濃度分析を継続した。具体的には、割れ目開口部におけるガウジの充填 率の空間分布をX線CT解析により定量評価したほか、試料全体にわたる割れ目表面のトレーサー 濃度分布を取得し、割れ目の分布や連続性等の移行経路を把握するための定量的な情報を得た。 これまでの4年間で、グリムゼルの岩石割れ目部を対象に、割れ目部の不均質性とその核種移行へ の影響評価を、より複雑でより大きなスケールへと段階的に進展させてきた。今後は、これまで に検討したグリムゼルの大型コアを対象に、割れ目開口幅およびガウジ充填率の空間分布を総合 的に分析評価することに加え、試料全体にわたるトレーサー濃度分布データの更なる拡充を進め、 一連の分析データをもとに支配的な移行経路の推定や割れ目特性の詳細情報等を反映した解析評 価を行い、これまでに段階的に構築してきたモデルの妥当性を確認していく予定である。

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高度化に向けて、令和3年度は、地質環境の長期変遷が核種移行に及ぼす影響をより現実的に評価するため、地下水組成の変遷とそれに伴う核種収着特性の変化、鉱物の溶 解・沈殿に伴う間隙率の変化、鉱物への核種の不可逆収着の効果等を考慮可能な核種移行解析手 法を構築し、その妥当性を確認した。これまでの4年間の検討を通じて、割れ目等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等を考 慮した核種移行解析手法を構築するためのアプローチを提案し、それに沿った解析検討を進めて きた。今後は、これらの地質環境の変遷と核種移行への影響プロセスをより精緻に取り扱うため の手法の改良と解析事例の拡充を進め、その結果をもとに核種移行に及ぼす影響が大きいプロセ スの抽出を行う。さらに、これらの精緻な解析と、簡易な解析との結果の比較を行うことにより、 性能評価への反映方策を検討していく計画である。

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、マトリクス部およ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、令和3年度は、鉱物や間隙の不均質性やその核種移行への影響を把握するための分析試験と解析検討を実施した。具体的には、幌延の泥岩試料を対象に、異なる緩和時間を持つ水分子の交換速度に着目したNMR分析を実施することにより、間隙の連続性およびそれら

の間隙中の水分子の運動性を評価したほか、幌延の泥岩中の粘土鉱物へのCsの収着メカニズムを 解明するため、第一原理計算による¹³³Cs NMRケミカルシフトの理論計算と機械学習を組み合わ せた新しい構造解析手法を構築した。また、幌延の泥岩中の鉱物・間隙の不均質性を考慮した拡 散モデルを構築するため、粘土鉱物と他の鉱物をランダムに分布して構造モデル中において核種 をランダムウォークさせて核種移行をシミュレーションする手法の適用性評価を進めた。これま での4年間で、幌延の泥岩マトリクス部の鉱物・間隙の不均質性とその核種移行への影響に関する 個別現象を多面的に把握したほか、原位置拡散試験の解析・解釈を進展させた。今後は、これら の一連の個別研究成果を踏まえて、幌延の泥岩マトリクス中の核種移行モデルの鉱物・間隙特性 の不均質性を考慮したモデルの構築と、原位置拡散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、令和3年度に、幌延URLで実施した割れ目中トレーサー試験を対象に、 複数の移行経路や不均質な流れ場を考慮したモデルの適用性の確認を進めた。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等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もとに、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とした解析手法の更なる改良を進めた。その結果、3つの移行 経路とフロー・スタグナント領域を考慮したモデルとパラメータの最適化手法とを組み合わせる ことで、パルスソースおよびコンスタントソース試験で得られたウラニンの破過データから3つ の移行経路の最適なパラメータを導出し、パルスソースおよびコンスタントソースのそれぞれで 得られたパラメータによって、非収着性の Mo および収着性のCs の破過曲線の傾向性を再現で きることを確認した。これまでの4年間の検討で、割れ目部を対象とした原位置トレーサー試験 を対象に、室内試験・分析データの取得とそれを反映した原位置試験結果の解釈に取り組み、複 数の移行経路や不均質な流れ場等を考慮した核種移行モデルの改良とその適用性を提示してきた。 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等との比較によって、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進めてきた。令和3年度は、反応性トレーサーのうち Ca や Mg に対す るモデル解析と実測データとの差異の原因を検討するため、これまでの粘土鉱物のイオン交換反 応に加え、炭酸塩鉱物の反応を考慮したモデル解析を試み、実測値に対する再現性が改善される 見通しを得た。これまでの4年間の非反応性元素と反応性元素の双方を対象にした解析から、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、反応性元素の挙動も概 ね解釈可能なことを確認したほか、更なる検討課題を抽出した。今後は、これまでの解析で用い られたモデルパラメータのうち、モデル解析による実測値の再現性向上への寄与が大きいと推定 されるパラメータ等を中心に、不確実性を考慮した解析についても検討を進め、一連の成果の取 りまとめを進めていく予定である。

3-51

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、セメント系材料およ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,2018a)や2章に示したニアフィールド長期変遷評価に 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および(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,2018a)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生成する鉄鉱物にセレン等の核種が取り込まれる共沈・酸化 還元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,2018a)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分析を行う。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、およ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 物中における核種の収着・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とそれを反映したモデルの開発に取り組む。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) 鉄腐食生成物による放射性核種の収着影響に関する検討

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およびEuの収着分配係数(Ka)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,2018a)。先行事業ではpH8付近においてKa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。

Fe(II)の収着に寄与するモンモリロナイト結晶端面の収着サイト(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)。このこと を考慮し、pH 8からpH12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Ka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。また、pH 7付近において、 Fe(II)共存下でのNbの収着試験を実施し、NbについてもFe(II)との競合収着によるKaの低下が起 こらないことを確認した。一方、Fe(II)のモンモリロナイトへの収着については、pH 8 - 12にお いてFe(II)のKaのpH依存性を取得し、strongサイトへの錯生成定数を算出した。しかしながら、 試験前後でのpH変化やKaのばらつきが大きく、信頼性の高いKa値を得ることが課題となってい る。 令和3年度の検討では、Fe(II)と金属イオンとの競合収着をさらに検討するため、Fe(II)と同じ2 価の金属イオンであるPbを対象とし、Fe(II)共存下での収着試験によりFe(II)との競合収着について検討を行った。また、比較のため同条件でNi、Euについても試験を実施し、競合収着挙動について検討した。

Fe(II)共存下でのPb収着試験では、令和2年度の検討において使用した還元剤である亜ジチオン酸ナトリウムにより、PbSO4が生成して沈殿する可能性があることから、還元剤を添加せずに実施した。試験溶液のpHは6.5とし、Fe濃度は0、1および10 μMとした。この条件においては、還元剤を添加しない場合でも、Fe(II)が安定して溶存することを予備試験により確認している。試験溶液は、イオン交換反応によるPbの収着量を低下させ、エッジサイトへの金属イオンの収着が支配的となるように支持電解質溶液をイオン強度*I*=0.5 MのNaCl溶液とした。収着競合を評価する元素として、2価の金属元素であるPbおよびNi、3価の元素であるEuを選定し、各元素の濃度は1μMとした。固相はモンモリロナイトとし、固液比は1g/Lとした。

図3.3-1に収着試験の結果を示す。FeおよびNiの試験においては、これらの元素をトレーサーと して添加しない条件においても、固相より溶出したFeおよびNiが溶液中にバックグラウンドとし て存在しており、その濃度はそれぞれ3.7×10⁻⁷、8.3×10⁻⁸ Mであった。一方、溶液中のPbおよび Euの濃度は、検出下限値以下であった。これらの結果より、NiのKaは、試験後の溶液中のNi濃度 から、バックグラウンドとして存在する濃度を差し引いて算出した。図3.3・1に示すように、Niの KaはFe濃度の上昇に伴って低下しており、Niの収着量がFeとの競合により低下することが確認さ れた。一方、PbはNiと同じ2価の金属イオンであるものの、KaにFe濃度への依存性は見られなか った。EuのKaについても、Fe濃度の影響は見られなかった。また、Feの収着については、Feを 添加した条件では収着平衡時のFe濃度がバックグラウンド濃度と同程度であったことから、Kaを 算出することはできなかった。



図 3.3-1 収着競合試験の結果. pH 6.5, [Ni, Pb, Eu] = 1 µM, [Fe] = 0, 1, 10 µM, / = 0.5 M (NaCl), R_{SL}= 1 g/L.

本試験においては、Fe(II)とPbの競合収着は起こらないと推測される結果が得られた。Pbの競 合収着に関しては、Marques Fernandes and Baeyens (2019)においても報告されており、2価の 金属元素であるNi、CoおよびZnとPbとの競合収着に関する試験により、濃度によってはPbと2価 の金属元素の収着競合が見られたものの、その挙動は収着モデルから予想されるものとは異なっていたことが報告されている。一方、本試験では、Fe(II)とNiの収着が競合することが観察されている。これらの結果からは、Fe(II)とNiは収着メカニズムが類似しているため競合収着が起こるのに対し、Pbはこれらの元素と収着メカニズムが異なるため競合しないと解釈することが可能である。このことから、Fe(II)とPbの競合収着はほとんど起こらないと推測される。

2) 粘土鉱物の構造中のFelcよる酸化還元反応の評価

オーバーパックから生じる鉄共存が緩衝材中の核種移行に及ぼす影響として、上記1)のモンモ リロナイトのエッジサイトでの鉄と核種との収着競合に加えて、モンモリロナイトの構造中に含 まれる鉄の酸化還元状態が変化して核種収着挙動が変化する可能性が考えられる。モンモリロナ イト(Stucki et al., 1984; Lee et al., 2006; Hofstetter et al., 2006; Gorski et al., 2012a; 2012b, 2013)や同じスメクタイトグループのノントロナイト(Komadel et al., 1995; Jaisi et al., 2008; Ilgen et al., 2012; 2017; Gorski et al., 2012a; 2012b; 2013)の構造中のFeは比較的容易に酸化還 元反応の影響を受けることが知られている。モンモリロナイトの構造中のFeが他の元素と酸化還 元反応を起こしたと考えられる例として、Crの6価から3価への還元(Joe-Wong et al., 2017)やSe の-2価から0価への酸化(Sugiura et al., 2020)の例が報告されている。ここでは、モンモリロナイ トの構造中のFeの酸化還元状態とSeの収着挙動との関係を把握するための試験分析を実施した。

モンモリロナイト (クニピアF) 0.50 gおよびカオリナイト0.50 gをそれぞれ超純水50 mLに懸 濁し、NaClを用いてイオン強度を0.010 M、0.050 Mあるいは0.10 M に調製した。500 mg/Lの Na₂SeO₃およびNa₂SeO₄ストック溶液を調製し、その濃度がそれぞれ200 µg/Lおよび100 µg/Lと なるように懸濁液に添加した。NaOHおよびHCl溶液を用いてpH調整した後、懸濁液を攪拌し、 所定の反応期間後にろ過によって溶液を回収した。回収した溶液を2% HNO₃で希釈し、誘導結合 プラズマ質量分析計(Agilent ICP-MS7700s) を用いてSe濃度を測定した。

ー部のモンモリロナイト試料はLee et al. (2006)の手法を用いて構造中のFeの還元処理を行った。モンモリロナイト200 mgに超純水を100 mL加え、100 mLの緩衝液(1.2 Mクエン酸ナトリウム:1 M炭酸水素ナトリウム=2:1(v/v))を加えた。超純水は嫌気チャンバー内(Coy社製;アルゴン:水素=97%:3%;酸素分圧5 ppm以下)で24時間以上バブリングを行い、酸素を除去した。この溶液を70°C、1200 rpmで攪拌した後、亜ジチオン酸ナトリウムを1 g加え、4時間以上 攪拌し続けた。還元処理の後、フィルター(filter size: 0.5 µm, PTFE, Advantec)でろ過し、5 mMの塩化ナトリウム溶液1 mLで3度洗浄し、乾燥して吸着実験に用いた。

粘土鉱物中のSeの化学種は、得られた試料を超純水で洗浄した後に、高エネルギー加速器研究 機構Photon FactoryのBL-12Cで測定したSeのK吸収端のXAFS分析により決定した。Seの価数は Na2SeO4、Na2SeO3およびそれぞれの溶液試料等を端成分に用いたXANES分析より決定した。

図3.3-2に収着試験の結果を示す。Se(VI)の吸着量はSe(IV)のものよりも低かった。Se(IV)の収 着反応は48時間で平衡に達していた。Se(IV)では吸着のイオン強度依存性も調べた。モンモリロ ナイトでは吸着率はイオン強度に依存しなかったが、カオリナイトでは0.10 Mで吸着率が減少し た。これは、モンモリロナイトでは外圏錯体が主要な吸着種であるが、カオリナイトでは内圏錯 体が一部生成している可能性がある。外圏錯体が主であった場合、pH 4.5で端面の一部のOH基が OH₂+となったサイトに外圏錯体として吸着された可能性がある。ただし、同様のサイトはモンモ リロナイトにも存在するので、割合は低いが内圏錯体が生成している可能性はあるとみられる。



図 3.3-2 Se(VI)およびSe(IV)のモンモリロナイトおよびカオリナイトへの吸着率の時間変化

Se(VI)およびSe(IV)がカオリナイトとモンモリロナイトに吸着された場合の吸着種が初期の価数と同様の価数で吸着されているかどうかを調べた。図3.3-3にXANESスペクトルを示す。Se(IV)は収着後も4価の状態を保っていることが分かった。一方、Se(VI)では吸着量が少なく有意なスペクトルが得られなかった。また、EXAFSスペクトルを図3.3-4に示す。吸着率の低いSe(VI)が吸着されたモンモリロナイトやカオリナイトの系では測定は困難であった。Se(IV)が吸着された試料のEXAFSスペクトルを図3.3-4、理論計算ソフトFEFFを用いたパラメータによりフィッティングさせた結果を表3.3-1に示す。吸着されたSeの化学種はSe(IV)の溶液試料の構造パラメータと同様であり、4価を保ったまま外圏錯体として吸着されていることが分かった。



図 3.3-3 モンモリロナイトおよびカオリナイトに吸着されたSe(IV)のSe K吸収端XANES (pH = 4.5)



図 3.3-4 モンモリロナイトおよびカオリナイトに吸着されたSe(IV)のSe K吸収端EXAFS振動 (A)およびフーリエ変換スペクトル(B) (pH = 4.5)

表 3.3-1 モンモリロナイトおよびカオリナイトに吸着されたSe(IV)およびSe(IV)溶液のEXAFS パラメータ

Sample	Shell	CN	R (Å)	$\Delta E_0 (eV)$	σ^2 (Å ²)	R factor
Se(IV) solution	Se-O	2.6(3)	1.68(1)	7(2)	0.003(1)	0.03
Se(IV) on montmorillonite	Se-O	2.8(3)	1.69(2)	9(2)	0.002(1)	0.11
Se(IV) on kaolinite	Se-O	2.8(4)	1.68(1)	7(2)	0.002(1)	0.51

CN: coordination number; R: interatomic distance; ΔE_0 : threshold E_0 shift; σ^2 : Debye-Waller factor.

The uncertainties in the last digit are reported in parentheses.

図3.3-5に還元処理をした試料にSe(VI)やSe(IV)を吸着させたもののXANESスペクトルを示す。 わずかにFe(II)の割合が減少したようにもみえるが、これらは誤差の範囲であり、ほぼ初期の Fe(II)の割合を保ってSeは吸着されたものとみられる。これは、吸着されたSeのモル濃度に比べ てモンモリロナイト中のFeの濃度は十分に高く、吸着されたSeがFeの価数に与える影響は小さい ためと考えられる。図3.3-6に還元処理したモンモリロナイトに吸着させたSeの吸着種のK吸収端 XANESスペクトルを示す。Se(VI)を添加した場合(Se6-Mon-pH2およびSe6-Mon-pH10)、Se(VI) の還元は見られなかった。これは、いずれのpHにおいてもSe(VI)は還元モンモリロナイトが存在 している系でも還元されないことが分かった。一方、Se(IV)を添加した系では、pH2(Se4-MonpH2)の場合に顕著な還元がみられ、ほぼ全てSe(0)に還元されていたが、pH10(Se4-Mon-pH10) ではSe(0)に還元された割合はフィッティングの結果から50%程度であった。比較として、Se(IV) 溶液に溶存Fe²⁺を共存した系(Se4-Fe²⁺)でも同様の分析を行ったが、Se(0)への還元は見られな かった。以上より、pHが低く、Se(IV)が還元モンモリロナイトの端面とより強く相互作用する場 合に、Se(IV)のSe(0)への還元が起きることが示唆される。



図 3.3-5 Se(VI)およびSe(IV)の吸着前後の還元処理したモンモリロナイト中の構造中FeのK吸 収端XANESとフィッティングから得られたFe²⁺:Fe³⁺比



図 3.3-6 還元処理したモンモリロナイトに吸着されたSe(VI)やSe(IV)のK吸収端XANES

Se(VI)やSe(IV)はFe(II)/Fetotalが20%程度のクニピアFには還元されなかった。モンモリロナイ ト中のFe(II)/Fetotal比は、その系での平衡なEhに依存して変化することが分かっている(Gorski et al., 2013)。その報告に基づくと、未処理のクニピアFはEh = 0.1 V程度の酸化還元状態と平衡な 状態にあると考えられる。この場合、SeはSe(0)が安定な条件となるが、そのような還元は見られ なかった。これは、Seがこれら粘土鉱物に対して主に外圏錯体を形成して存在しており、電子移 動が起きにくいためであると考えられる。一方、還元処理したモンモリロナイトの場合、Se(VI) ではpH 2と10のいずれでも還元は見られなかった。次にSe(IV)では、pH 2の場合でSe(0)に完全 に還元され、pH 10では50 %程度のSeが還元されていた。このときのモンモリロナイトの Fe(II)/Fetotal比は76-80%程度であり(図3.3-5)、これと平衡なEhはpH7.5で-0.1-0.2V程度で ある。この場合、粘土鉱物と十分に平衡な状態にあれば、SeはS(0)で安定になると推定される。 しかし、Se(VI)はモンモリロナイトとの相互作用が弱く、そのような還元は生じない。Se(IV)で は、図3.3-2からも分かる通り、一部のSe(IV)はモンモリロナイトに吸着されるため、このような 還元が生じたと考えられる。また、pH10では吸着Seの還元率は50%程度であり、pH2の場合よ り小さい。ここで得られたXANESスペクトルはpH2とpH10のいずれの場合でも、実際に吸着さ れたSe化学種を分析していると考えられるため、pH 10で還元が弱いのはpH 2ではわずかに内圏 錯体が生じているためではないかと考えられる。

ここで重要なのは、還元処理したモンモリロナイトでのみ還元が生じていることにある。Latta et al. (2017)は、端面での電荷移動は、端面付近でのFe(II)の割合が高い場合に生じるとしており、 十分な還元処理を経ていない場合、モンモリロナイトの端面での還元は起きにくいと考えられる。 一方で、もしSeが層間で還元される場合には、Fe(II)/Fetotal比が小さくても層間に吸着されたイオンは還元されることが予想される。

以上のことから、モンモリロナイト等の粘土鉱物に対する吸着によるSeの還元挙動は、Seのモ ンモリロナイト等の粘土鉱物に対する吸着挙動に大きく依存することが分かる。Seの還元挙動は Seの表層環境や地下環境での挙動に大きな影響を与える。特に、図3.3-6に示したFe²⁺/Se系で還元 がみられなかったことは、構造中のFeが還元された粘土鉱物がSeの還元を促進していることを意 味していると考えられ、今後さらに検討を要するものの、その還元には粘土鉱物端面への内圏錯 体の形成が重要な過程として考えられる。このようなSeの還元反応は、長期に地下水に露出され た粘土鉱物で構造中のFe(III)がFe(II)に還元された場合に起きる可能性があり、地質環境の長期 変遷を考慮したより現実的な核種移行評価を検討するうえで重要になる可能性がある。

3) Fe(II)鉱物へのSeの収着・取り込み挙動の評価

高レベル放射性廃棄物に含まれる⁷⁹Seは半減期が長く、さらに収着分配係数が小さいことから 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-2 価(Se²⁻)、酸化性環境では4価(SeO₃²⁻)または6価(SeO₄²⁻)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、Fe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)。Fe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、Fe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)₂O₄)が長期間にわたって安定に存在する Fe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)および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、SeO₃²⁻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、Fe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、SとSeの化学的類似性から、処分環境におい てSeはパイライト(FeS₂)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を取込・保持する可能性が期待できる。

令和2年度までに、結晶性の低い水酸化Fe(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各種分析手法の適用によって、そのメカニズムを解明することを 目指して試験を行った。FeとSeの反応と固相変遷時のpHの影響を把握するため、異なる手順と条 件で実施した試料を対象に、透過電子顕微鏡(TEM)分析を行った。その結果、ナノサイズのセレ ン化鉄粒子がSeの主要な取り込みホストであることが確認された。また、高pH条件ではセレン化 鉄粒子に加えてマグネタイト結晶のエッジ部分にSeが取り込まれていることが確認された。令和 3年度は、Se(-II)の挙動と比較するため、Se(IV)を用いて同様の試験・分析を実施するとともに、 これまでのSe(-II)の試験・分析で得られた結果との比較を行う。

固相試料調製方法と試験条件の概要をそれぞれ図3.3-7、表3.3-2に示す。方法は、令和2年度ま でにSe(-II)を用いて行った試験に準じる。機器分析以外の操作は雰囲気制御グローブボックス内 で行った。試験EはSe(IV)溶液をFe(II)溶液に添加する共沈試験であり、Se(IV)濃度を10 mM、 Fe(II)濃度を10 mMとした。Se(IV)を添加した後のpHは8であった(試験E-1)。試験E-2は試験E-1 と同様の手順を行った後に1 M NaOHを加えてpHを12とした。試験FはFe(II)溶液に1 M NaOH を加えてpHを12として水酸化Fe(II)の沈殿を生成させた後にSe(IV)溶液を添加する収着試験であ り、試験Eと同様にSe(IV)濃度を10 mM、Fe(II)濃度を10 mMとした(試験F-1)。試験F-2は試験F-1と同様の手順を行った後に1 M H₂SO₄を添加してpHを8とした。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。反応期間終了後、孔径0.45 μmの濾紙を用 いて吸引濾過を行い、風乾させたものを分析用試料とした。

溶液中のSeおよびFe濃度は島津製作所製のICP-AES (ICPE-9100)を用いて測定した。XRD測 定はリガク製のRINT2000を用いて行い、試料はグローブボックス中でホルダーに充填した。Se のXAS分析はSPring-8のBL14B1およびBL22XUで行った。TEM観察は日本電子製のJEM-2010UHRを用いて行い、加速電圧は200 kVとした。固相の同定は制限視野電子線回折(SAED)に より行った。TEMには点化学分析のためにSi(Li)エネルギー分散型分光半導体検出器が装備され ている。分析試料はカーボンフィルム支持体を備えた銅製のグリッド上に最小限の粉末試料を堆 積することによって調製した。



3-61

Expt.	Description	Initial observations	Initial expt.
A-1	Se(-II) added to aqueous		~8.0
A-2	Fe(II) solution at pH 4.2	Black particles precipitated; pH increased to ~8.0	~12.0*
B-1	Se(-II) added to Fe(OH) ₂	*** . 4: 4 /	~12.0
B-2	suspension at pH ${\sim}12$	whitish/greenish suspension turned black; no pH change	$\sim 8.0^{\dagger}$
E-1	Se(IV) added to aqueous	pH increased to ${\sim}7.6$ but no precipitation. Precipitation	~8.0
E-2	Fe(II) solution at pH 4.2	only occurred after pH was increased to ${\sim}8.0$	~12*
F-1	Se(IV) added to Fe(OH) ₂	*** *	~12.0
F-2	suspension at pH ${\sim}12$	whitish/greenish suspension furfied black; no pH change	$\sim 8.0^{\dagger}$

表 3.3-2 試験条件の概要(試験A, Bは令和2年度までに実施)

試験E-1では、Se(IV)溶液をpH 4.3のFe(II)溶液に加えたところ、pHが7.6程度に上昇した。しかしながら、沈殿生成は確認されなかった。これは、溶液中のFe(II)がSe(IV)を還元しなかったことを示す。pHを8.1程度にすると、ただちに黒色粒子が沈殿した。表3.3・3に溶液から固相に取り込まれたSeの割合を示す。溶液分析の結果、溶液から99%程度のSeが取り除かれており、この結果は試験A-1と同様であった。しかしながら試験E・2の結果は試験A-2のものとは異なり、溶液のpHを12まで上昇させると、溶液中にSeが放出された。試験F・1では、Fe(OH)₂による初期のSeの取り込みは試験B-1ほど顕著ではなかった。しかしながら、試験F・2 では、pHを8程度に低下させると、溶液からほとんどのSeが取り除かれていた。Se(-II)の試験では、エージングにより中性条件(試験A-1、B-1)ではSeは完全に固相に保持され、アルカリ条件(A-2、B-2)では一部が液相に放出された。

Experiment	% Uptake			
Experiment	Initial	Aged		
E-1	99.6*	99.3±0.1		
E-2	92±1	77±3		
F-1	68±8	57.2 [¶]		
F-2	99.7*	99.2		

表 3.3-3 固相に取り込まれたSeの割合

平均±標準偏差,*:標準偏差<0.1, ¶:繰り返しデータなし

図3.3-8に固相のXRD測定結果を示す。Se(IV)の試験(E, F)から得られた初期固相は、Fe(II)また はFe(OH)₂と反応させたにもかかわらず、すべてマグネタイトのピークを示した。Se(-II)の試験 (A、B)とは異なり、中性条件での試験(E-1、F-2)では鉄セレン化物および金属Seのピークが確認 された。これは、Se(IV)がただちに-2価または0価に還元されたことを示す。エージングを行った 固相では、マグネタイトのピークは鋭くなり、強度も増加した。中性条件での試験(A-1、F-2)では フェロセライトおよびFe₃Se₄のピークが確認され、Se(0)のピークは確認できなくなった。試験F-2で得られたエージングを行った固相のTEM観察結果から、SeおよびFeに富む大きな結晶性の粒 子が確認された(図3.3-9)。アルカリ条件の試験では、試験F-1で得られた固相のみで鉄セレン化物 の存在が確認された。TEM観察の結果から、Feに富む平らな粒子と中空の棒状の粒子が確認され、 Seが共存することが確認された(図3.3-10)。同様の粒子は試験E-2で得られた固相でも確認されたが、XRD測定では鉄セレン化物のピークは確認されなかった(図3.3-11)。



図 3.3-8 固相のXRD測定結果. (A):初期固相, (B):エージング固相



図 3.3-9 試験F-2のエージングした固相のTEM画像(A)およびEDS分析結果(B)



図 3.3-10 試験F-1のエージングした固相のTEM画像(A, C)およびEDS分析結果(B, D). CuKαの ピークはグリッドに由来



図 3.3-11 試験E-2のエージングした固相のTEM画像(A, C)およびEDS分析結果(B, D). SiKαおよ びCuKαのピークはSi(Li)EDS検出器とグリッドに由来

図3.3-12に固相のSeのKエッジのXANESスペクトルを示す。初期固相のXANESスペクトルは、

亜セレン酸(Se(IV))とは異なる特徴を示している。試料では亜セレン酸ナトリウムよりも低いエネ ルギー位置にホワイトラインのピークがあり、Se(IV)が還元されていることを強く示している。 試験E・1で得られた固相のスペクトルは金属Se(Se(0))と似ており、試験E・1ではSeが4価から0価に 還元されたことを示している。この結果はXRD測定の結果と一致する。pHを8に調整した試験E・ 2で得られた固相はFeSeと類似のスペクトルを示し、pHが上昇するとよりSeが還元されることを 示唆している。試験F・1から得られた固相もFeSeと類似のスペクトルを示し、高pHでのFe(OH)2 との反応はただちにSeを4価から-2価に還元したことを示している。興味深いことに、pHを8に 低下させた試験F・2で得られた固相のスペクトルはSe(0)に近いものとなっていた。これは、pHが 低下するとSe(-II)の一部は再度酸化することを示唆している。これらの結果はXRD測定で得られ たものと整合的であり、金属セレンおよび鉄セレン化物相の存在を示している。試験E・1から得 られたエージング固相のスペクトルは初期固相のものと同様の結果を示した。一方、試験F・2で得 られた固相のスペクトルはSe(0)のものと似ていた。アルカリ条件で得られた固相はわずかなホワ イトラインの強度の増加を示し、Seの酸化状態がFeSeとSe(0)の中間であることを示している。



図 3.3-12 固相のSeのKエッジのXANESスペクトル. (A): 初期固相, (B): エージング固相

Se(-II)の試験結果と同様に、溶存態のFe²⁺と共沈するか固相のFe(OH)₂と相互作用するかどう かにかかわらず、Se(IV)は中性付近条件下でほぼ完全に固定化された。主な固定メカニズムは、 鉄セレン化物(Se(-II)試験)および元素状セレン(Se(IV)試験)の沈殿であると考えられる。後 者の反応では酸化還元反応が関与している。最初の固定化反応は急速で、いずれの実験でも、溶 液中に存在する溶存Seはほぼすべて取り除かれた。Se(-II)およびSe(IV)の両試験において、pHを 上げてもSeの保持にすぐには影響しないことから、最初に沈殿したセレン化物相はアルカリ性条 件下で安定である可能性が示唆された。Se(IV)の実験では、pHの上昇により0価のセレンから-2 価へさらに還元された。2つの試験間の最も大きな違いはアルカリ条件下で観察された。Fe(OH)₂ との相互作用によるSe(IV)の最初の取り込みはSe(-II)と比較して低かった。SeはFe(OH)₂との相 互作用により還元的にセレン化鉄相として沈殿したため、低い取り込みは不完全なSe(IV)の還元
によるものである可能性が示唆された。Se(IV)の還元が主にFe(OH)₂表面のFe(II)と吸着した Se(IV)の間の電子移動によって起こると仮定すると、高pHではアニオン吸着が少なくなるために 不完全な還元となると説明できる可能性がある。注目すべきこととして、Se(-II)試験よりもSe(IV) 試験の方が、90 ℃のエージング後に固体中に保持されたSeの割合が大きいことが挙げられる。 Se(IV)実験でより高いSe保持率が得られた理由は現在のところ不明であるが、これは追加の保持 メカニズムが発生した可能性を示唆している。

4) 幌延の泥岩中のFe鉱物とSeとの相互作用

上記室内試験により、地層処分環境においてSe(-II)はFe(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、Fe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。

令和2年度に実施したFe(II)鉱物へのSeの収着・取り込み挙動の評価試験の結果より、オーバー パック周辺のような比較的Fe濃度が高い環境においてSe(-II)はFe(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Seの 保持・脱離挙動に係るメカニズムを明らかにした。このような共沈反応によるSeの収着はパイラ イトやマッキワナイト等の他のFe鉱物でも確認されている(Diener and Neumann, 2011; Finck et al., 2012)。特に、Fe(II)鉱物であるパイライトはベントナイトや母岩中に存在し、深部地下環 境における地下水の酸化還元電位に対する主要な緩衝鉱物である(岩月ほか, 2009)。また、オー バーパックの腐食に伴う地下水中のFe濃度の上昇によってパイライトの沈殿や結晶成長は促進さ れると想定される。このような環境において、パイライトの溶解・再沈殿が生じる際、地下水中 に溶存しているSeが共沈反応によって保持される可能性が考えられる。

室内試験で示されたFe鉱物によるSeの共沈反応を地層処分の安全評価において考慮するため には、実際の天然環境におけるSeの収着挙動について理解する必要がある。岩盤中に含まれるパ イライトやシデライト等の二次鉱物は沈殿する際に地下水中に含まれる微量元素を共沈反応によ って取り込んでいる可能性があるため、これらの鉱物に含まれるセレンの存在形態を分析するこ とで天然環境におけるSeの共沈メカニズムを明らかにできる可能性がある。特に、海成層の岩層 に含まれる二次鉱物は海水由来のSeを共沈反応によって保持している可能性がある。岩石中のSe の存在形態に関する研究として、頁岩や鉱山のズリからの溶出挙動に着目したものが多数実施さ れており、腐植物質やケロジェン等の有機物およびパイライトやFe(III)水酸化物等の鉱物による 保持が報告されている(Kulp an Pratt, 2004; Ryser et al., 2005; Oram et al., 2008; Hendry et al., 2015)。一方、地層処分で想定される地下深部環境におけるSeの存在形態に関する研究は少なく、 地層処分環境におけるSeの収着挙動を理解するためには地下深部環境中の存在固相や存在形態を 明らかにする必要がある。

以上の背景から、本事業では幌延地域の堆積岩を対象として深部地下環境中におけるFeとの相 互作用に着目したSeの存在形態分析を継続して実施している。令和2年度の分析結果によって、堆 積岩中において、Seが還元的な化学形態としてパイライトに濃集している可能性が示された。令 和3年度は、岩層の違いによる存在形態の違いを明らかにするために声問層および稚内層の2つの 岩層を対象としてSeの存在固相・存在形態に着目したマイクロX線分析(µ-XRFおよびµ-XAFS)を 実施した。 試料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から得られたコアおよび地下 施設の調査坑道の掘削から得られたコアを用いた(図3.3-13)。幌延地域では下位より新第三系の増 幌層、稚内層、声問層、新第三系から第四系の勇知層、第四系の更別層および更新世末から完新 世の堆積物が分布している。ここでは、地下施設周辺の岩相である稚内層と声問層を対象に分析 を実施した。珪質泥岩である稚内層は声問層の埋没続成過程で生成された層準と考えられ、オパ ールAの続成生成物であるオパールCTを含み、間隙率は40%程度である。一方、珪藻質泥岩であ る声問層はオパールCTを含まず、間隙率は60%程度と高く、多孔質で比較的軟質な岩相である (太田ほか,2007)。また、上位の声問層では隆起浸食の過程において天水が浸透しているため、 稚内層に比べて地下水中の塩濃度が相対的に低くなっている(石井ほか,2007)。令和3年度の分 析では声問層から3試料、稚内層から6試料を対象として選定した。コア試料は、掘削水の影響を 受けていると考えられる領域をトリミングした後、厚さが50μmとなるように両面研磨によって 薄片を作製し、マイクロX線分析に供した。マイクロX線分析は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およびBL・15Aにて実施した。マイクロX線分析ではFeとSe 以外の元素としてSやCa等の元素分布も同時に取得した。



図 3.3-13 分析対象とした試料を採取したボーリング孔および深度

μ-XRF 分析による元素マッピングの結果の例を図 3.3-14 に示す。声問層・稚内層の試料とも に Se は Fe および S とともにスポット的に存在していた。Se がスポット的に存在している箇所 に対して μ-XAFS 分析を行った結果、Se の K 吸収端は金属 Se(Se(0))とフェロセライト(FeSe₂) の吸収端と同じエネルギー位置において確認され、試料中で Se が 0 価あるいは-1 価の還元的な 状態で存在していることが確認された。ただし、測定点毎にピーク位置がわずかに異なっている ことから、0 および-1 価以外の価数が微量に含まれている可能性がある。Se の濃集しているス ポットに対して Fe の μ-XAFS 分析を実施した結果、多くのスポットにおいてパイライトの標準 試料と類似したスペクトルが得られた(図 3.3-15)。一部のスポット(HDB11-25_pt2)ではシデ ライトの標準試料と類似したスペクトルが得られたが、元素マッピングの結果ではSも同一のスポットに存在しており、X線のマイクロビーム径(5μm×5μm)の範囲内にパイライトとシデラ イトが共存していると考えられる。



図 3.3-14 幌延の泥岩試料でµ-XRF分析で取得されたSe, Fe, S, Caの元素マッピングの結果 の例:(a)声問層の試料、(b)稚内層の試料



図 3.3-15 幌延の泥岩試料でSeの濃集が確認された部分のµ-XAFS測定結果 (a) Se、(b) Fe

Se が存在している状態の局所的な構造を明らかにするために、稚内層の試料の Se が比較的高 濃度に濃集しているスポットに対して、EXAFS 領域の繰り返し測定を実施した。4回の繰り返し 測定により得られた結果を積算することで、ノイズの少ない EXAFS スペクトルを得ることがで きた。 得られた EXAFS スペクトルを XAFS 解析ソフトウェアパッケージ DEMETER ver.0.9.26 に含まれる Athena および Artemis(Ravel and Newville, 2005)を用いて解析を行った。はじめに、 Se 濃集スポットから得られた EXAFS スペクトルと標準試料として測定した Se(0) および FeSe2 の EXAFS スペクトルを比較したが、EXAFS 振動の周期が一致せず、稚内層の試料中の Se は、 Se(0) や FeSe2のような純粋な Se 鉱物とは異なる局所構造を持つことが示唆された。そこで、純 粋な Se 鉱物以外では Se がパイライト中の S と置換して存在する例も報告されている (Matamoros-Veloza et al., 2014; Manceau et al., 2020)ことから、パイライトの結晶構造パラメ ータ(Bayliss, 1977)を基に求めた理論上の EXAFS スペクトルを用いてフィッティングを行った。 理論上の EXAFS スペクトルの導出では、Artemis に含まれる Atoms および FEFF6 を用いた。 まず、パイライトの結晶構造パラメータの吸収元素をSからSeに置換して、理論上のSeの局所 構造(配位元素、原子間距離、配位数)を導出した(表 3.3-4)。導出した理論上の局所構造を基 に、それぞれの散乱経路に対応した後方散乱強度および位相シフト計算し、フィッティングに用 いた。上記で求めた理論上の配位数を固定値とし、原子間距離・配位数を変数としてフィッティ ングを実施した結果、表 3.3-4 に示す 5 つの単散乱経路を用いて、測定結果をフィッティングす ることができた(図 3.3-16)。フィッティング結果を表 3.3-5 に示す。局所構造(配位元素・原子 間距離)と理論上の局所構造を比較すると、配位元素および原子間距離ともに、概ね一致してい る。一方で、Seの最近傍元素であるSとの結合(Se-S)と2番目の近傍元素であるFeとの結合 (Se-Fe) について、Se 濃集スポットにおける結晶構造の方が、理論計算によって求められた結 晶構造に比べ、原子間距離が長い。これは、Se の原子半径が Se より大きいため、それぞれの結 合距離が長くなったと考えられる。以上の解析結果より、幌延の泥岩中では Se はパイライト中の Sと一部置換した形で岩盤中に保持されていると推定される。

Atom Pair	Degeneracy	Rref(Å)
Se - S	1	2.156
Se - Fe	3	2.264
Se - S	6	3.078
Se - S	6	3.321
Se - Fe	3	3.445

表 3.3-4 パイライトの結晶構造を基に計算したパイライト中のSをSeに置換した理論上の単散 乱経路(Bayliss, 1977).



図 3.3-16 稚内層の試料のSe濃集スポットのEXAFS振動とフーリエ変換スペクトル. 黒線は測 定結果,赤線はフィッティング結果を示す

表 3.3-5	稚内層の試料のSe濃集スポッ	トのEXAFSスペク	トルのフィ	(ッティング結果
---------	----------------	------------	-------	----------

Atom Pair	CN	Degeneracy	σ^2	\mathbf{X}^2	R -Factor
Se - S	1+	$2.23 {\pm} 0.02$	$0.004 \pm 0.001^*$	13.8	0.011
Se - Fe	3+	$2.29 {\pm} 0.01$	$0.004 \pm 0.001^*$		
Se - S	6+	3.06 ± 0.01	$0.008 {\pm} 0.002$		
Se - S	6+	3.32 ± 0.02	$0.009 {\pm} 0.003$		
Se - Fe	3+	$3.47 {\pm} 0.02$	$0.006 {\pm} 0.002$		

*co-varied due to closeness in distance; †fixed to known crystallographic values

声問層・稚内層の試料間でSeの存在固相や存在形態(価数)に違いはなく、どちらの岩層においてもSeは還元的な化学形態で存在していることが明らかになった。幌延の地下環境ではパイライトの含有量に深度依存性はなく(平賀・石井,2008)、また、μ-XRF分析においてパイライト以外の鉱物へのSeの濃集がほとんど確認されなかったことから、声問層・稚内層ともにパイライトへの取り込み反応がSeの支配的な保持メカニズムであると考えられる。

甲斐・前川(2008)は、幌延地域ではフランボイダル(木苺)状のパイライトが広く分布していることを報告している。フランボイダルパイライトの生成には硫酸還元反応等の微生物プロセスの関与が報告されているため(Wilkin and Barnes, 1997)、パイライトによるSeの共沈反応において微生物反応が重要な役割を担う可能性が考えられる。今後、Sの同位体分析等を行うことで微

生物反応の関与の有無を評価できる可能性がある。

今回の調査により、幌延の地下深部環境ではパイライトの共沈反応によってSeが保持されていることが示された。今後、パイライトによるSeの共沈反応への微生物反応の寄与について明らかにするとともに、Seを結晶構造に含むパイライトを熱力学データとして核種移行モデルに組み込むことが、長期スケールでの核種移行モデルの構築において重要である。そのためには、幌延の地下水中の溶存Seに関するデータ(濃度や化学形態)を取得し、Seを固溶するパイライトが存在する系におけるSeの溶解度や化学形態を明らかにする必要がある。また、地層処分の安全評価上重要と位置付けられている他の元素について、地下環境中の収着形態を明らかにすることで、核種移行モデルの更なる高度化に結び付けられる可能性がある。

(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、鉱物変質およ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 and Eriksen, 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必要がある。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,2018a)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、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;2021)。その結果、乾燥密度1.2 Mg/m³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3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型およびNa型ベントナイトのより高い乾燥密度条件1.6 Mg/m³での試験を継続し、コロイドの拡散・ろ過データを取得するとともに、コロイドサイズの 影響を把握するため、異なるデンドリマーコロイドを用いた拡散・ろ過試験に着手した。

最初に、乾燥密度1.6 Mg/m³のNa型およびCa型ベントナイトを対象に、間隙水塩濃度が異なる

条件で実施してきたコロイド拡散・ろ過試験の結果を報告する。試験に供したデンドリマーは、 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) で、サイズは5.7 nm (Generation 4.5、分 子量 26,252) のものを用いた。拡散・ろ過試験は、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) および層間陽イオンをCa型に置換したCa型ベントナイトを使用し、こ れまでと同様の循環型の透過拡散試験セルを用いて試験を実施した。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の CaCl₂溶液を試験溶液とした。試験溶液はpH 8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全有機体炭素(Total Organic Carbon: TOC)計(TOC-Lcph:島津製作所製) 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。

令和3年度に追加で取得した、乾燥密度1.6 Mg/m³のNa型およびCa型ベントナイト中の高イオ ン強度条件(0.5 M)での試験結果を、令和2年度に報告した低イオン強度条件(0.05 M)での結果と あわせて図3.3-17に示す。同図(a)に示す低濃度側溶液中のデンドリマー濃度(フラックス)の経 時変化からは、Na型とCa型ベントナイトの2種類のイオン強度の異なる条件のいずれにおいても、 200日以上にわたって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および1.2 Mg/m³の条件では、Na型とCa型ベント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、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/m³のNa型とCa型ベントナイトの場合、イオン強度によ らず、いずれの条件においても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日程度あるいはそれ以上の拡散期間終了後の試験試料中のデ ンドリマーの濃度分布を取得し、図3.3-17(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、高濃度側から徐々に減少し、2-6 mm程度まで デンドリマーが移行しているものの、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、異なる条件で得られた濃度プロファイルを比較すると、Ca型ベントナイトの方が、 より深くまでデンドリマーが移行しており、Ca型の方が5.7 nmのコロイドがアクセス可能な粒子 間隙が連続して存在していることが示唆された。

これまでの結果から、5.7 nmのサイズのデンドリマーコロイドを用いた場合、Na型とCa型ベ ントナイトの差異、間隙水イオン強度の差異によらず、乾燥密度1.2 Mg/m³の条件では破過し、乾 燥密度1.6 Mg/m³では完全にろ過されることが確認された。この破過とろ過の境界条件のより詳 細な把握と、多様なサイズを有するコロイドの移行・ろ過挙動の評価を念頭に、異なるサイズの デンドリマーコロイドを用いた拡散・ろ過データ取得に着手した。具体的には、乾燥密度1.2 Mg/m³ の条件では、これまでに5.7 nmのデンドリマーが全て破過していることを踏まえ、より大きな8.8 nmのデンドリマーを用いた試験を行い、一方で、乾燥密度1.6 Mg/m³の条件では、これまでに5.7 nmのデンドリマーが全てろ過されていることを踏まえ、より小さな1.9 nmのデンドリマーを用 いた試験を行うこととした。これまでのところ、これらの異なるサイズのデンドリマーの破過は 認められておらず、引き続き試験を継続する予定である。今後は、この異なるサイズのデンドリ マーコロイドの試験結果も含め、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 3.3-17 イオン強度0.05 Mおよび0.5Mの条件における乾燥密度1.6 Mg/m³のNa型およびCa型 ベント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)高濃度側およ び低濃度側のデンドリマー濃度変化、(b)試験後のベント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下でのニアフィールド岩盤中の核種移行特性の評価

① 原位置におけるセメントと岩盤の接触界面の分析評価

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や高Ca濃度の地下水や間隙水の拡がり 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、核種移行挙動への影響が生じることとなる。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、令和2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(Ordinary Portland Cement: OPC) および低アルカリ性セメント(Highly Fly ash Silica fume Cement: HFSC)の接触試料(図3.3-18) を対象として、岩石とセメントの接触界面での変質状態の分析を電子線マイクロアナライザー (Electron Prove Micro Analyzer: EPMA)、走査型電子顕微鏡(Scanning Electron Microscope: SEM)およびX線回折(X-Ray Diffraction: XRD)装置を用いて行うとともに、界面近傍の間隙率、 交換性陽イオン、主要・微量元素の分布等を各種分析により把握した。取得されたEPMAによる 界面付近の主要元素の分布(図3.3-19)を比較した結果、OPCとHFSCのセメントの種類に応じ て、接触界面付近の変質状況に特徴的な差異が生じていることが確認された。

例えば、図3.3-19上段に示すOPCの接触界面では、OPC側ではCa濃度の低下が生じており、Si およびAl濃度のわずかな上昇が観察されたほか、岩石側ではCa濃度の上昇とSiおよびAl濃度のわ ずかな低下が確認された。図3.3-19下段に示したHFSCと岩石の接触界面でも、OPCと同様にセ 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、Siおよび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。また、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された。さらに、OPCとHFSCのそれぞ れでセメント側でのSやClの特徴的な分布が観察された。SEM/エネルギー分散型X線分光法 (Energy Dispersion X-ray spectroscopy: EDS)分析、陽イオン交換容量(Cation Exchange Capacity: CEC)や主要・微量元素の分析結果から、OPCとHFSCでの間隙水のpHや元素組成の差 異によって、主要元素の分布、二次次鉱物の生成状況、CEC等に違いが生じたものと推定した。



図 3.3-18 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



図 3.3-19 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(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

令和3年度は、上記のような令和2年度までに観察されたOPCとHFSCの界面近傍での変質状況 の特徴的な差異を、より詳細に把握することに加え、試料の代表性や分析の再現性等を確認する 観点から、140 mの泥岩(声問層)とOPCおよびHFSCとが接触した複数の試料を対象に分析デー タを拡充した。また、界面近傍での二次鉱物への核種の取り込みを検討する観点から、微量元素 分析データの取得を試みた。さらに、二次鉱物の一つである炭酸塩のカルサイトへの核種の取り 込み現象を把握するため、幌延岩石中に含まれるカルサイト中の微量元素の取り込みデータの取 得・評価を試みた。

はじめに、セメントと泥岩との接触界面付近の分析結果の代表性と再現性を確認するため、令 和2年度に分析対象とした140m坑道での泥岩(声問層)とOPCおよびHFSCの接触界面試料の採 取場所の近傍から採取した別のコア試料に対するEPMA分析により得られた主要元素マップを図 3.3-19に比較する。図中の左側に示すように、X線CT (Computed Tomography)測定によって、セ メントと岩石の界面部の接触状態等を確認し、その結果を踏まえて試料加工を行ったうえで、令 和2年度と同様な条件でEPMA分析を実施した。EPMA分析は、日本電子製JXA-8100を用い、加 速電圧15 kV、試料電流50 nA、プローブ径 50 µm、ピクセルサイズ100 µmの条件で、50 mm角 以上の広域領域を対象に元素マッピングを取得した。OPCおよびHFSCと泥岩の接触試料のそれ ぞれ2試料で得られたCa、Si、Alの元素マップを図3.3-20に示す。OPCとHFSCとの接触試料のそれ ぞれ2試料で得られたCa、Si、Alの元素マップを図3.3-20に示す。OPCとHFSCとの接触試料のそ れぞれで、2つの試料界面の元素分布が類似していることが確認できる。図中の上段に示すOPCと の接触界面では、セメント側の骨材の分布に差異が認められるものの、接触界面の岩石側にCaの 移行が明瞭に確認できる。一方、図中の下段に示すHFSCとの接触界面では、界面のセメント側で のCaの溶脱状況と、岩石側へのCaの移行状況が明瞭に確認できる。

3-75



図 3.3-20 セメント - 岩石接触試料(4試料)のX線CT分析結果とEPMAによる主要元素(Ca, Si, Al)のマッピング結果(OPC-泥岩①, HFSC-泥岩①は令和2年度に分析した試料)

上記のように、OPCとHFSCとの接触界面のそれぞれ2試料を対象としたEPMAの分析結果から、 試料の代表性が確認できたことを踏まえて、令和2年度の分析対象としたOPCとHFSCとの接触界 面の試料①を対象に、それぞれ接触界面周辺のより高解像度での元素マッピングを取得した。 EPMA分析条件は、加速電圧および試料電流は上記と同様とし、プローブ径を3µm、ピクセルサ イズを5µmに変更し、3 mm角程度の領域で元素マッピングを取得した。また、接触界面におい てセメントと泥岩が密着した状態と、隙間がある状態が確認されたため、これらの差異に着目し て分析を実施した。OPCおよびHFSCと泥岩の接触界面における密着領域と隙間領域のEPMAに よる主要元素マップを図3.3・21に示す。図中の上段に示すOPCと泥岩の接触界面の密着領域では、 岩石側にCaの拡がりがより明瞭に確認されたほか、Ca/Si比でみると0.75・1.25の範囲となってい る部分はC-S(-A)-Hが生成していると推定される。一方で、OPCと泥岩の接触界面の隙間領域では、 界面にカルサイトの沈殿が生成しており、それより奥側の岩石領域へのCaの拡がりは密着領域と 比較してほとんど確認できない。下段に示すHFSCと泥岩の接触界面でも、密着領域と隙間領域 の差異は、OPCの場合に類似した状況が確認された。OPCとHFSCの接触界面の状況を比較する と、令和2年度に考察したように、OPCの方が界面付近で二次鉱物がより多く生成しており、HFSC の場合にはイオン交換がより顕著であり、結果的に広い範囲に拡がっている状況が確認できた。



図 3.3-21 OPCおよびHFSCと泥岩との接触界面の高解像度でのEPMA分析結果:密着部での Ca濃度とCa/Si比の分布,隙間部のCa濃度分布

次に、OPCおよびHFSCと泥岩の接触界面における密着領域を対象に、界面近傍の二次鉱物を 含む変質状況を把握するためのSEM/EDS分析を実施した。SEMは日立ハイテクノロジー社製 SU-5000を、EDSはオックスフォード・インスツルメンツ社製X-Maxを用いた。図3.3-22の上段 に示すOPCと泥岩の接触界面の密着領域では、岩石側には界面付近にカルサイトが主に存在し、 岩石内部にもCSHが分布している状況が確認できた。図3.3-22の下段に示すHFSCと泥岩の接触 界面でも、SEM/EDSで得られた観察結果は、OPCの場合と同様に、接触界面の岩石側にはカルサ イトやCSHが確認された。密着領域と隙間領域の差異が確認された。図中にはそれぞれスポット AのSEM/EDS分析結果を例示したが、それ以外のやや界面から離れたスポットでもCSHが析出し ている状況が確認された。一方で、OPCおよびHFSCと泥岩の接触試料の隙間領域では、界面隙 間部のセメント側と岩石側の双方にカルサイトが析出し、岩石側へのCSHの析出もほとんど確認 することができず、上記の図3.3-20に示したEPMAの観察結果と整合する状態が確認された。





図 3.3-22 OPCおよびHFSCと泥岩との接触界面のSEM/EDS分析結果

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、令和2年度と同様の接触界面近傍の岩石中に含まれる主要・微量元素の測定を行った。OPCおよびHFSCと泥岩との接触界面から2mmまで、2-4mmまで、界面から離れた泥岩の粉末試料を採取し、塩酸溶液で溶解したのち、溶解液中の主要・微量元素濃度を誘導結合プラズマ質量分析(Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry: ICP-MS)装置または誘導結合プラズマ発光分析(Inductively Coupled Plasma-Atomic Emission Spectrometry: ICP-AES)装置で測定した。その結果は図3.3-23に示すように、令和2年度と同様な元素濃度分布が確認された。図3.3-23(a)および(c)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(b)および(d)に示す微量元素の分布からは、Ba、Sr、ZnおよびMn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との接触試料で若干であるが多くなっていることが確認された。

今後、令和3年度に予察分析を試行したレーザーアブレーション(LA-) ICP-MS等の新たな分 析技術の適用により、二次鉱物への微量元素の取り込み現象の更なる解明を進めるとともに、こ れまでに検討してきたセメントと岩石との接触解明の変質状況についての地球化学・物質移行 モデルによる解釈を進め、一連の成果を取りまとめる計画である。



図 3.3-23 セメントと接触した岩石試料の変質部(0-2mm、2-4mm)および健岩部を対象 とした主要・微量元素の分析結果: OPCとの接触岩石の主要元素濃度(a)と微量元素濃度(b)およ びHFSCとの接触岩石の主要元素濃度(c)と微量元素濃度(d)

② 地下深部におけるカルサイトへの微量元素の取り込み挙動の評価

上記のセメントと泥岩の原位置での接触試料の分析評価で確認されたように、接触界面から岩 石中に生成するケイ酸カルシウム水和物(Calcium-Silicate-Hydrate: CSH)やカルサイト等の二次 鉱物が核種の取り込みによる移行遅延に寄与する可能性がある。このうち、カルサイト(CaCO₃) は岩石中に一般的に産出する鉱物であり、重元素や希土類元素、アクチニド元素、オキソ酸陰イ オン等の様々な元素をその結晶構造中に取り込むことが知られている(Rimstidt et al., 1998; Curti, 1999; Elzinga et al., 2002; Heberling et al., 2014; Zhang et al., 2020)。また、岩石中に含 まれるカルサイト中の微量元素を含む化学組成は、カルサイトが沈殿した地下水の化学的環境、 すなわち化学組成やpH、酸化還元状態等を反映していると考えられ、実際の地質環境を対象とし た地球化学環境の推定にも有益な情報を与えると期待される(Wallin and Peterman, 1999; Tanaka et al., 2009)。ここでは、実際の深部地質環境中におけるカルサイト中の微量元素の取り 込み状態やカルサイトが沈殿した地下水化学環境の検討に資することを目的として、幌延深地層 研究センターの地下深部から採取された岩石コアに含まれる天然カルサイトを対象として、微量 元素分析を行った。

上記(1)の幌延の泥岩中の鉄鉱物とセレンの相互作用研究において対象とした、幌延URLでのボ ーリング孔岩石コアから採取したカルサイトを分析対象とした。約290 - 610mの深度のボーリン グコアの稚内層(珪質泥岩)中の割れ目で発達していたカルサイト脈から採取したものであり、 合計12のカルサイト試料を分析対象とした。カルサイト試料は岡井(1998)と Poulton and Canfield (2005)の方法に従って酸分解した。具体的には、粉末化したカルサイト試料を、pH 4.5 に調整した酢酸-酢酸アンモニウム緩衝溶液中で24時間かけて25°Cで分解し、フィルターでろ過 した後、120°Cで乾固、さらに硝酸による溶解と乾固を繰り返し、最終的には2%硝酸ベースの溶液に調整した。これらの溶液を対象に、鉄、マンガン、マグネシウム、ストロンチウム等の主要元素濃度はICP-AESを用いて、希土類元素等の微量元素濃度はICP-MSによって定量した。

カルサイト試料の主要元素濃度、希土類元素等の微量元素濃度の測定結果をもとに、カルサイトへの元素分配挙動の評価を試みた。カルサイト等への元素の取り込み挙動については、従来よりカルサイト・水溶液間の分配係数(Ame)を用いて、式(3.3-1)に示すようにカルサイト中と地下水中の元素とカルシウムの濃度比から評価されるのが一般的である(Doerner and Hoskins, 1925; Curti, 1999)。

$$\lambda_{\rm Me} = ([Me]/[Ca])_{\rm calcite} / ([Me]/[Ca])_{\rm gw}$$
(3.3-1)

ここで、地下水中の元素濃度比は、それぞれのカルサイト試料を採取した場所の地下水中の値 を用いることが理想的である。しかしながら、そのような地下水中の微量元素を含めた分析デー タは限られているため、ここでは幌延URLの深度350 mの調査坑道周辺の調査孔(13-350-C01) から採取された地下水中の主要・微量元素濃度データ(笹本ほか, 2015)を用いて評価を試みた。

上記の式(3.3-1)により分配係数を評価した結果を図3.3-24に示す。試料採取位置によって分配 係数の値に差異はあるものの、全体的な傾向性は類似する結果を示した。アルカリ金属のNaは最 も低い分配係数を示した。また、アルカリ土類金属はMg, SrおよびBaの順に明瞭な増加傾向を示 し、MgとSrでは分配係数が1を下回る一方、Baは1を超える値を示した。2価遷移金属であるMn とFeについては、いずれの試料でも分配係数が1を上回る結果となった。希土類元素はCeで1を超 える高い値を示したが、それ以外の元素は1を下回り、特にEuで低い値を示すことが確認された。 Uについては、0.1以下の低い値となった。

カルサイトへの微量元素の取り込みは、従来より元素のサイズや電荷との関係性が検討されて おり(Curti, 1999)、ここでも各元素のカルサイトへの分配係数とイオン半径(Shannon, 1976; Marcus, 1997)との相関を図3.3・25で確認した。アルカリ土類金属のMg、SrおよびBa、2価遷移 金属のFe、Mn、希土類元素のYb、Er、YおよびCeのそれぞれの元素間で、イオン半径と分配係 数の相関が確認できる。これらの関係性はCurti (1999)の先行研究における評価とも整合的であ り、今回のカルサイトへ多様な元素の分配係数の評価結果の妥当性を確認できる。



図 3.3-25 カルサイト中の元素の分配係数とイオン半径との関係

(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) 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

わが国の地下水環境には溶存炭酸濃度が比較的高い地下水が存在するため、ベントナイト間隙 水中の炭酸濃度が長期にわたり高濃度で継続する可能性がある。炭酸錯体を形成する核種の場合、 その形成によって岩石やベントナイト中の収着・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ている。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 分配係数の低下の影響により、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・拡散への寄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る。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。

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、粘土鉱物のイライトとモンモリ ロナ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、イライトおよびモンモリロナイトへの炭酸共存下での収着データが必 要となる。モンモリロナイトを用いた先行研究によれば、3価のランタニド・アクチニド元素のモ ンモリロナイトに対する収着において、時間分解型レーザー蛍光分光分析(Time-Resolved Laser Fluorescence Spectroscopy: TRLFS)や広域X線吸収端微細構造(Extended X-ray Absorption Fine Structure: EXAFS)分析等の分光学的観察から炭酸イオンを配位した状態で粘土鉱物と表面錯体 を形成(炭酸三元錯体)することが示唆されている(Marques Fernandes et al., 2008; 2016)。一方、 U(VI)についても炭酸三元錯体形成を同様の手法で確認する試みがなされているが、EXAFSでは 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、炭酸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、Th(IV)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、これまでAm(III)/Eu(III)、 Th(IV)およびU(VI)を対象として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て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 3年度はEu(III)とU(VI)を対象としてTRLFSによる収着形態の分析と幌延の泥岩に対する収着の 再現における課題の検討を行った。

Euを用いた収着試験

令和2年度はAmの化学アナログであるEuの安定同位体を用いたバッチ収着試験を行い、ばらつきの小さいKaを取得する方法を確立した。また、バッチ収着試験後の固相を回収し、TRLFSによ

る収着形態の観察を行った。しかしながら、固相中Eu濃度が低いために蛍光スペクトルからpHや DIC濃度による収着形態の違いを評価することはできなかった。

令和3年度は固相中Eu濃度を高くして蛍光スペクトルを取得し、収着形態の評価を行った。バ ッチ収着試験により固相にEuを収着させた。初期濃度を0.3 mM、固液比(*R*_{SL})を10 g/Lとし、pH は8・11の4条件、炭酸(Dissolved Inorganic Carbon: DIC)濃度は0または20 mMの2条件とした。 バッチ収着試験後、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。バルクとして存在する水分子がクエンチャーとなって蛍光の信 号強度が低下するのを防ぐため、固相を雰囲気制御グローブボックス中で乾燥させた。+分に乾 燥させた後、石英カバーをセットしてTRLFS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。時間分解測 定により得られた蛍光寿命プロットから、以下のKimura and Choppin (1994)の式(3.3-2)を用い てEu原子に配位している水分子の個数*N*_{H20}を求めた。

$$N_{\rm H_2O} = \frac{1.07 \times 10^3}{\tau} - 0.62 \tag{3.3-2}$$

ここで、*t*は蛍光寿命(µs)である。

図3.3・26に蛍光スペクトルを示す。592 nm付近のピークは5D→7FI遷移に由来し、対称性に対 する感度はない。一方、616 nm付近のピークは5D→7FI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(Plancque et al., 2003)。そのため、592 nm付近のピークで規格化 してスペクトルを比較した。DIC=0 mMの系ではpHの上昇とともに616 nm付近のピークが上昇 した。一方、DIC=20 mMの系ではpH11において616 nmのピークの上昇がみられた。しかしな がら、炭酸の有無でスペクトル形状の明瞭な違いはみられなかった。図3.3・27に616 nm付近のピ ークの蛍光寿命プロットを示す。縦軸を蛍光強度の常用対数とした、横軸を時間とした片対数グ ラフにおいて、DIC=0 mMの系では蛍光寿命は直線ではなく曲線を示した。これは単一成分では なく複数成分からなることを示している。そこで、以下の式(3.3・3)を用いてフィッティング解析 を行った。

$$F = f_1 \exp(-t/\tau_1) + f_2 \exp(-t/\tau_2) + BG$$
(3.3-3)

ここで、Fは蛍光スペクトルの強度、fは成分iの構成割合、tは時間、BGはバックグラウンド強度 である。表3.3・6にフィッティング結果を示す。DIC = 0 mMの系では蛍光寿命が短い($n \approx 50$)成 分1と長い($n \approx 180$)成分2が確認された。式(3.3・2)を用いて蛍光寿命の短い成分の水分子の個数を 計算すると、Euの配位数9を超える値となった。これを説明する一つの可能性として、Euの濃度 が比較的高いためにEuがポリマーを形成したことが考えられる。蛍光寿命の長い成分の水分子の 個数は約5・6個だった。DIC = 20 mMの系では単一成分で表すことができ、pH 8・10ではDIC = 0 mMの系のものと比較して蛍光寿命が長く、水分子の個数も少なかった。これは、DIC = 20 mM の系ではEuに炭酸イオンが配位してDIC =0 mMの系よりも多くの水分子が除かれたからである と考えられる。pH 11では蛍光寿命はDIC = 0 mMの系のものと同程度の値だった($\tau \approx 180$)。これ は、令和2年度に行った表面錯体モデリングにおいてpH 11付近では炭酸共存条件においても水酸 化物三元錯体が支配的となる予測と整合的である。既往の報告では、水分子は水酸化物イオンで 置換されると1個、炭酸イオンで置換されると2個取り除かれる傾向があることが確認されている (Kim et al., 1994; Plancque et al., 2003; Kim et al., 2018)。今後、XAFS測定も行って炭酸共存 下でのEuの収着構造に関する情報を取得し、表面錯体モデリングの予測結果の妥当性を確認する。



図 3.3-26 Euを収着させたイライトから得られた蛍光スペクトル. [Eu] = 0.3 mM, / = 0.5 M (NaCl), R_{SL} = 10 g/L.



図 3.3-27 図3.3-26の試料の616 nm付近のピークの蛍光寿命プロットとフィッティング解析結果.

Condition			Fraction (-	-)	Life time ((us)	n(H2O)	
Eu conc. (M)	DIC (M)	pН	f1	f2	τ1	τ2	n(H2O), 1	n(H2O), 2
3.0E-04	0	8	0.4	0.6	50	150	(20.8)	6.5
		9	0.65	0.35	60	180	(17.2)	5.3
		10	0.7	0.3	50	170	(20.8)	5.7
		11	0.6	0.4	50	185	(20.8)	5.2
	20	8	1	-	500	-	1.5	-
		9	1	-	480	-	1.6	-
		10	1	-	430	-	1.9	-
		11	1	-	180	-	5.3	-

表 3.3-6 Euの蛍光寿命プロットのフィッティング解析結果.

令和2年度は幌延の泥岩に対するEu収着試験を実施し、加成則の適用可能性を検討した。その 結果、加成則ではKaのpHおよびDIC依存性の傾向を再現できるものの、値は過小評価となること が確認された。令和3年度はイライトとモンモリロナイトを混合したもの(混合試料)を用いて収 着試験を行い、幌延の泥岩を用いた場合との結果の比較および加成則の適用可能性を検討した。 幌延の泥岩中のイライトおよびモンモリロナイトの存在割合はそれぞれ10、16 wt%(Tachi et al., 2011)と報告されており、混合試料では懸濁液中のイライトとモンモリロナイト量がそれぞれ0.1、 0.16 g/Lとなるように混合した。幌延の泥岩を用いた収着試験では固液比を1 g/Lとしているため、 混合試料を用いたもののKaは0.74 g/LのEuの収着に寄与しない固相が存在すると仮定して算出し た。表面錯体モデルには2SPNE SC/CEモデル(Bradbury and Baeyens, 2005, 2009)を用いた。 ライトおよびモンモリロナイトの収着パラメータは令和2年度に得られたものを用いた。

得られたKaおよび再現計算結果を図3.3-28に示す。混合試料のKaは幌延の泥岩のものよりも低く、特にpH8-9で乖離が大きかった。また、加成則による再現計算は混合試料のKaの値と傾向を良好に再現することができた。したがって、幌延の泥岩に対するEuの収着を再現できなかったのは、幌延の泥岩中のイライトとモンモリロナイトの割合が実際にはより大きいことや、イライトとモンモリロナイト以外にEuの収着に有意に寄与する鉱物が存在することが考えられる。



図 3.3-28 イライトとモンモリロナイトの混合試料および幌延の泥岩に対するEu収着のpHおよびDIC濃度依存性と加成則による再現計算結果. [Eu] = 0.4 µM, / = 0.5 M (NaCl), R_{SL} = 1 g/L. 混合 試料の実際の固液比は0.26 g/Lであるが、幌延の泥岩と比較するために0.74 g/LのEuの収着に寄 与しない固相が存在すると仮定して算出.

U(VI)を用いた収着試験

令和2年度はイライトに対するU(VI)のバッチ収着試験を行い、表面錯体モデルを用いて K_{d} の再 現計算を行った。その結果、2種類の炭酸三元錯体(≡S^SOUO₂CO₃-および≡S^SOUO₂(CO₃)₂³⁻)仮定 すると収着試験の結果を再現できることが確認された。また、極低温(Low Temperature: LT-)TRLFS測定を行い、スペクトル形状の違いが表面錯体モデルで予想される表面化学種の違い を反映している可能性を確認した。

表面化学種の詳細な分析のため、令和3年度は多様な条件でLT-TRLFS測定を行った。LT-TRLFS測定はHeコンプレッサーユニットを搭載した吸引クライオスタットを用いて3.3 Kの温度 条件で行った。励起用のレーザーにはNd: YAGレーザーの第二高調波を360 nmに変換したものを 用いた。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。そのため、U収着試験には上記のEu収着試験で用いた精 製イライトをさらに250 mM NaHCO₃ (pH 10)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。

図3.3-29に初期U(VI)濃度を1 μ M、固液比を50 g/L、pHを8.5としてDIC濃度を変化させた試料 の蛍光スペクトルを示す。535 nm付近にピークがみられたが、固相中U(VI)濃度が低いためにス ペクトルのS/N比は低く、条件間でスペクトル形状の比較をすることはできなかった。また、図 3.3-30にこのピークにおける蛍光寿命プロットを示す。いずれの条件においても蛍光寿命プロッ トは曲線を示した。Euの場合と同様にフィッティング解析を行った結果を表3.3-7に示す。蛍光寿 命プロットは蛍光寿命の短い($n \approx 18 \ \mu s$)成分1と蛍光寿命の長い($n \approx 115 \ \mu s$)成分2に分けること ができた。これは表面錯体モデルで2種類の表面化学種が予測されたことと整合的である。



図 3.3-29 U(VI)を収着させたイライトから得られた蛍光スペクトル. [U(VI)] = 1 µM, / = 0.1 M (NaCI), R_{SL} = 50 g/L.



図 3.3-30 図3.3-24の試料の蛍光寿命プロット

Sample		f_1		$ au_1$ ((µs)			f_2		$ au_2$	(µs)	
with DIC, pH \sim 8	.5											
2 mM DIC	0.62	±	0.03	20	±	2	0.38	±	0.02	118	±	6
5 mM DIC	0.73	±	0.09	17	±	3	0.27	±	0.03	115	±	12
10 mM DIC	0.72	±	0.08	18	±	4	0.28	±	0.05	102	±	15

表 3.3-7 U(VI)の蛍光寿命プロットのフィッティング解析結果.

収着データの拡充およびS/N比の高い蛍光スペクトルを得ることを目的として、初期U(VI)濃度 を10μMとした試験を行った。KaのpHおよびDIC依存性を図3.3-31に示す。また、令和2年度に得 られた収着パラメータを用いて再現計算を行った結果を図3.3-31中に線で示す。表面錯体モデル は実験データを再現することができたが、収着データをある程度過小評価しており、それはpH 9.5 付近でより顕著であった。今後、初期U(VI)濃度にかかわらず実験データを再現することができる ように収着パラメータの見直しを行う予定である。



図 3.3-31 イライトに対するU(VI)収着のpHおよびDIC濃度依存性と再現計算結果. [U(VI)] = 10 µM, / = 0.1 M (NaCI), R_{SL} = 50 g/L.

図3.3-32に初期U(VI)濃度10µMで調製した試料の蛍光スペクトルを示す。洗浄を行ったにもか かわらず、U(VI)を収着させていないイライトでもバックグラウンドとして存在するUが検出され た。しかしながら、U(VI)を収着させた試料のスペクトル形状は収着させていない試料のものとは 明らかに異なっており、配位環境が異なるUが存在することが示唆された。初期U(VI)濃度を高く して試料を調製することで固相中U(VI)濃度を高くすることができ、S/N比の高い蛍光スペクトル を得ることができた。初期U(VI)濃度を1µMとして調製した試料ではスペクトル形状は不明瞭だ ったが、595 nm付近に明瞭なピークが確認された。また、520 nm付近に大きなピークと540 nm 付近にショルダーが確認された。これらは既往の報告(Troyer et al., 2016)で炭酸共存条件(大気 平衡)において取得された蛍光スペクトルと似た形状であることが確認された。pHおよびDIC濃 度の変化に伴って表面化学種が変化することは表面錯体モデリングの結果と整合的である。今後、 PARAFAC解析を行って表面化学種を詳しく解析する予定である。



図 3.3-32 U(VI)を収着させたイライトから得られた蛍光スペクトル. [U(VI)] = 10 µM, / = 0.1 M (NaCl), R_{SL} = 50 g/L.

(a): 規格化したスペクトル, (b): 規格化したスペクトルからバックグラウンド処理を行ったスペ クトル

令和3年度は、幌延の泥岩に対するU(VI)のバッチ収着試験を行った。図3.3-33にKaのpHおよび DIC濃度依存性を示す。DIC濃度を固定した場合、Ka値はpH7-9で徐々に減少し、その後pHの 上昇に伴って増加した。また、DIC濃度の上昇に伴ってKa値が低下しており、Euと同様の傾向が みられた。加成則モデルの適用可能性を検討するため、Euの場合と同様にイライトとモンモリロ ナイトの存在量をそれぞれ10,16wt%(Tachi et al., 2011)と仮定して再現計算を行った。イライト の収着パラメータは令和2年度に得られた値、モンモリロナイトの収着パラメータはMarques Fernandes et al. (2012)の報告値を用いた。モデリングの結果を図3.3-33中の線で示す。Euと比 較すると乖離は小さいものの、加成則モデルはpH9からpH10の範囲でやや過小評価となった。 今後、イライトとモンモリロナイトを用いた混合収着試験を行い、結果の比較を行う予定である。



図 3.3-33 幌延の泥岩に対するU(VI)収着のpHおよびDIC濃度依存性と加成則モデルによる再現 計算結果. [U(VI)] = 1 µM, / = 0.1 M (NaCI), R_{SL}= 10 g/L.

2) 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

圧縮ベントナイトのバリア性能を評価するため、トレーサーを用いた透過拡散試験から取得される実効拡散係数(D_o)および収着分配係数(K_d)は核種の移行度を表す重要なパラメータである。しかしながら、対象とされてきた核種はCs+やI-等の1価の陽イオンまたは陰イオンがほとんどである(Tachi and Yotsuji, 2014; Glaus et al., 2011; Fukatsu et al., 2021)。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と考えられる。 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、 炭酸共存下では水溶液中で主にNpO₂+、NpO₂CO₃-およびNpO₂(CO₃)₂3-として存在する。これらの溶存化学種のうち、DIC濃度が0.1 mM程度以下ではNpO₂+が支配的となるのに対し、DIC濃度 が0.1 - 100 mM程度ではNpO₂+に加えてNpO₂CO₃-およびNpO₂(CO₃)₂3-の3種の溶存化学種が共存する条件となる。そのため、圧縮ベントナイトの間隙水中のDIC濃度を制御することにより、3 種の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、これまでに圧縮Na型ベントナイトを対象とした透過拡散試験を実施し、 炭酸共存下におけるNp(V)の減衰・破過データおよび試験後のベントナイト中の濃度プロファイ ルを取得することで、炭酸濃度の上昇に伴って圧縮ベントナイト中でのNp(V)の収着量が低下す る傾向が確認されている(Tachi et al., 2010;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)。これは、DIC濃度の上昇によってNp(V)の主な溶存化学種が NpO₂CO₃-およびNpO₂(CO₃)₂³⁻となることによって収着性のNpO₂+の割合が低下したためと考え られた。また、NpO₂+とNpO₂CO₃-が混在する炭酸イオン濃度条件の破過データにおいて、試験開 始後100日および200日程度で一定値を示す二重フラックスが確認された。二重フラックスの成分 をNpO₂+とNpO₂CO₃-がそれぞれ別の経路を拡散している可能性が示唆された(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,2021)。令和3年度は、平成31年 度に実施したDIC濃度の異なるNp-237の透過拡散試験結果を対象に、令和2年度で示した解析手 法を用いて平衡反応によるNpO₂+とNpO₂CO₃-の存在割合の変化と拡散および収着を考慮したシ ミュレーションを行い、圧縮Na型ベントナイト中のNp(V)拡散挙動の評価を試みた。

平成31年度に実施したNp(V)の透過拡散試験では、雰囲気制御グローブボックス内において、 乾燥密度800kgm⁻³の圧縮Na型ベントナイト試料(直径2 cm、長さ0.5 cm)を対象に、ナトリウ ム濃度が0.5 mol L⁻¹、DIC濃度が5×10⁻⁴、5×10⁻³、または5×10⁻² mol L⁻¹となるよう調整した 試験溶液を用いて、試料片側に初期濃度約90 Bq mL⁻¹のNp⁻237を含んだ試験溶液(高濃度側溶 液)、逆側にNp⁻237を含まない試験溶液(低濃度側溶液)を試料に接触させ、拡散試験を実施し た。両側の試験溶液を定期的に採取し、高濃度側溶液のNp⁻237濃度変化(減衰曲線)および低濃 度側溶液のNp⁻237濃度変化(破過曲線)を取得した。さらに、拡散試験終了後、試料をおよそ0.5 mm間隔でスライスし、スライス試料中のNp⁻237濃度の測定することにより、試料中のNp⁻237濃 度の深度プロファイルを取得した。減衰曲線、破過曲線およびNp⁻237濃度の深度プロファイルを 図3.3-34(プロット)に示した。

Fickの拡散方程式に基づき、各化学種の平衡反応、拡散および収着をシミュレーションし、実 測データにフィッティングすることで、NpO2+とNpO2CO3⁻の実効拡散係数D₀および分配係数Ka を評価した。結果を図3.3-34 (実線) に示す。シミュレーションでは、減衰曲線において試験開始 直後に見られるNp(V)濃度の急激な減少を装置への収着と仮定し、高濃度側溶液中のNp(V)初期濃 度には試験系全体の物質収支から求めた値を用いた。また、NpO₂CO₃-を非収着性とし、NpO₂+の みの収着を仮定した。拡散および収着に伴い変化するNpO₂+とNpO₂CO₃-の存在割合は、 PHREEQCおよびNEA-TDBに基づくデータベースを用いて、各試料中のNpO₂+/NpO₂CO₃-比が 0.83 (DIC濃度5×10⁻⁴ mol L⁻¹) 、0.053 (DIC濃度5×10⁻³ mol L⁻¹) 、0.005 (DIC濃度5×10⁻² $mol L^{-1}$)となるように補正した。フィッティングにより決定したNpO₂+とNpO₂CO₃-の D_e は4.2× $10^{-11} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ 、 $1.9 \times 10^{-11} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ 、 $\text{NpO}_2^+ \mathcal{O} K_d$ は $0.26 \text{ m}^3 \text{ kg}^{-1}$ (DIC濃度 $5 \times 10^{-4} \text{ mol } \text{L}^{-1}$)、 1.0 m^3 kg^{-1} (DIC濃度5×10⁻³ mol L⁻¹) 、2.3 m³ kg⁻¹ (DIC濃度5×10⁻² mol L⁻¹) である。NpO₂+の K_d は、NpO₂+/NpO₂CO₃-比が低くなるのに伴い、増加傾向を示した。NpO₂+量に対する K_d の依存性 は、Na型モンモリロナイトに対するNpO2+収着等温曲線で報告されており(Nagasaki et al., 2000)、 NpO₂+/NpO₂CO₃-比に対するK₄の傾向性と一致するが、今後、より定量的な議論を含めた検討が 必要である。また、NpO₂+のD₆は、これまでに報告されたNpO₂+のD₆(3.7×10⁻¹¹ m² s⁻¹)と近い 値を示した(Tachi et al., 2010)。この結果から、複数化学種で存在するNp(V)の拡散挙動は、各化 学種単体の拡散とその存在割合のみで表現できることが示唆された。



図 3.3-34 圧縮ベントナイト中のNp-237の拡散試験結果:(a) 減衰曲線、(b) 破過曲線、(c) Np(V)濃度の深度プロファイル. プロット:実測データ、実線:シミュレーションによるフィッ ティング結果

3) 高炭酸条件での核種移行現象についての計算科学手法による評価

① 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 ロナイトと水溶液の共存系を対象に、古典分子動力学(Molecular Dynamics: MD)計算を用いてア クチニド核種の収着・拡散挙動を定量的に評価することは重要な課題である。これまでの研究で は、アクチニド核種としてウラニルイオン(UO2²⁺)およびネプツニルイオン(NpO2⁺)を対象に、モ ンモリロナイト層間における拡散挙動を評価した(日本原子力研究開発機構,2017)。また、より 現実的な間隙構造における核種の挙動を評価するため、層間間隙およ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検討するとともに、炭酸イオン (CO₃²⁻)の存在を考慮してCO₃²⁻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,2018a)。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等につ 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3層または4層水和状態のスーパーセルを作製して、CO32-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、UO22+およびNpO2+を対象に、層間が3層または4層水 和状態にある場合のスーパーセルで2 nsまでのシミュレーションを実施し、溶存イオンの拡散履 歴を観察することで、炭酸共存下における拡散挙動への影響について評価した。

令和3年度はこれまでの成果を踏まえて、UO₂²⁺および炭酸錯体等を対象に、2、3または4層水 和状態のスーパーセルで10 nsまでの長時間シミュレーションを実施し、イオンの層間間隙への侵 入履歴を評価することにより、系が平衡状態に達したと判断し得る時間スケールについて検討し た。また、5層水和状態のスーパーセルも作製し、イオンの拡散挙動に及ぼす層間幅の影響につい て、さらなるデータの拡充を試みた。

令和2年度までの計算体系を踏まえ、スーパーセルは粘土層とその層間間隙、および粘土層のエ ッジ表面に接する粒子間間隙で構成した。層間間隙(以下、[層間内])には層間間隙水(以下、 [層間水])が、また粒子間間隙(以下、[層間外])には粒子間間隙水(以下、[間隙水])が 存在する。粘土鉱物は、式(3.3-4)に示す層電荷0.33のNa型モンモリロナイトとした。

$Na_{1/3} \cdot (Al_{5/3}Mg_{1/3})Si_4O_{10}(OH)_2 \cdot nH_2O$ (3.3-4)

ここで、*n*は層電荷の電荷バランス補償するために存在する層間のNaイオン1個に対して3*n*個の水分子が層間に存在することを表しており、n = 5.0、7.5、10.0および12.5は、それぞれ2、3、4および5層水和状態に相当する。間隙水 - 層間水共存系の計算は温度298.15 Kの*NVT*アンサンブルで実施した。間隙水に接するエッジ表面は $\{010\}$ 面を想定し(Rotenberg et al., 2007)、エッジ表面に現れるSi⁴⁺, Al³⁺およびMg²⁺には、それぞれOH-基、OH-基とH₂OおよびH₂Oを計算初期に付加した。また、エッジ表面に付加するOH-基の個数を調整することにより、系全体の電荷バランスを取った。

図3.3-35は、初期状態として層間内に対イオンのNa+が32個存在し、層間外にはNa+とCl-がそれぞれ8個ずつ共存する系(Case1)の10 nsにわたる溶存イオンのシミュレーション履歴を評価したものである。縦軸は層間内に存在する各イオンの個数、横軸はMDシミュレーションの計算ステップ数を示す。本解析では、MD計算の運動方程式を解く際の1 time-stepを0.4 fsに設定しているため、2.5×10⁷ time-stepの計算は10 ns間のシミュレーションに相当する。計算初期に対イオンとして層間内に存在していたNa+をNain、層間外に存在していたNa+をNaoutで表す。いずれの水

和状態でも時間の経過とともに、NainとNaoutが拡散によって交換し合い、初期の時間帯には平衡 状態に向かって遷移していることが確認できる。しかしながら、平衡状態に達してからの挙動は 水和状態により顕著に異なるようである。本解析ケースの計算体系では、初期状態としてNa+が層 間内に32個、層間外に8個存在する。したがって、完全にイオンが混ざり合った状態(平衡状態) において、理想的には層間内に(25.6·Nain+6.4·Naout)個、層間外に(6.4·Nain+1.6·Naout)個のNa+が 存在することが期待される。また、後ほど言及するように、層間内のNa+の合計数(緑のプロット) が図のように何らかの理由により25個程度で推移することを考慮すると、平衡状態において層間 内には(20·Nain+5·Naout)個程度、層間外には(12·Nain+3·Naout)個程度のNa+が存在することが期待 される。これを考慮すると、層間の水和数が増大するに従って平衡に達するまでの時間が短くな る傾向が確認できる。しかしながら、その後の層間内におけるNainおよびNaoutの個数の挙動は、 いずれの水和数の場合も安定していない。その原因として、イオンの個数に関する統計が十分で ないことや、シミュレーション時間が十分でないこと等が考えられる。一方で、Cl-の挙動を観察 すると、2、3層水和状態では層間幅が比較的狭く、陰イオン排除の影響が強くなるために層間内 への侵入は確認されないが、4、5層水和状態になると層間内への侵入が確認できる。層間内にお けるNa+の合計数の挙動を観察すると、層電荷との電荷バランスから考えて、Cl-が層間内に侵入 していない状況では合計数が32個の辺りでゆらぐと推測できるが、10 nsのシミュレーション時間 を見る限り、明らかに少ない量(25個程度)で推移していることが確認できる。Na型モンモリロ ナイト等の膨潤性粘土鉱物で観測されている浸透膨潤についてそのメカニズムを考えると、膨潤 初期の層間幅が比較的狭い状況では層間内と層間外とでイオン濃度に差があるために浸透圧が発 生し、その圧力を低減させるように層間内に水分子が浸入して層間を押し広げる(須藤談話会, 2000)。しかしながら、本解析は体積が一定値を取るように設定したシミュレーションであり、 計算体系内の水分子の個数も一定である。したがって、層間内と層間外とでイオン濃度差が生じ ていたとしても、水分子を増加させて層間幅を広げることはできない。そのため、層間内から層 間外へとイオンが移動することにより、電荷中性条件と浸透圧が競合するバランスで平衡が保た れている可能性が考えられる。これについては、さらに定量的な検証が必要である。



図 3.3-35 初期状態として層間内にNa⁺が32個、層間外にはNa⁺が8個およびCl⁻が8個共存する 系(Case1)の10 nsにわたる溶存イオンの層間内における個数履歴。青、緑、茶および紫のプ ロットはそれぞれNa_{in}、Na_{out}、Na_{in}とNa_{out}の合計およびCl⁻の個数履歴を示す (a) 2層水和状態、(b) 3層水和状態、(c) 4層水和状態、(d) 5層水和状態

図3.3・36は、初期状態として層間内に対イオンのNainが32個存在し、層間外にはNaoutが8個、 CO₃²⁻が4個共存する系(Case2)の10 nsにわたる溶存イオンのシミュレーション履歴を評価した図 である。NainとNaoutの合計数は25程度で推移し、Case1の場合と概ね整合的であるが、陰イオン の挙動を見ると、3層水和状態でもCO₃²⁻が層間内へ侵入している。これは、令和2年度の報告書で 言及したように(日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター,2021)、CO₃²⁻ がNa⁺と錯体を形成し、中性化して移行したためである。このことは、図3.3・31の3層および4層水 和状態において、CO₃²⁻の層間内での存在数が増えている時間帯ではNainとNaoutの合計数も増え ており、高い相関を示していることからも確認できる。ちなみに、Case1で見られるCl-の層間内 への侵入では、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3.3-37は、初期状態として層間内に対イオンのNa+が32個存在し、層間外にはUO₂²⁺が8個、 Cl-が16個共存する系(Case3)の10 nsにわたる溶存イオンのシミュレーション履歴を評価した図 である。平衡状態において、層間内への陰イオンの侵入を無視すると、層間内の陽イオンの個数 は(21.3·Na_{in}+5.3·UO₂²⁺)個になることが期待される。また、Case1と同様にI価陽イオンが25程度 で推移する場合、(16.7·Na_{in}+4.2·UO₂²⁺)個程度になることが期待される。図3.3-32を見ると、UO₂²⁺ の存在数が若干多めに現れているが、Cl-の層間内への侵入を考慮すると概ね整合的であると言え る。



図 3.3-37 初期状態として層間内にNa⁺が32個、層間外にはUO₂²⁺が8個およびCl⁻が16個共存する系(Case3)の10 nsにわたる溶存イオンの層間内における個数履歴。青、茶および紫のプロットはそれぞれNa⁺、UO₂²⁺およびCl⁻の個数履歴を示す(a) 2層水和状態、(b) 3層水和状態、(c) 4層水和状態、(d) 5層水和状態

図3.3-38は、初期状態として層間内に対イオンのNa+が32個存在し、層間外にはUO₂²⁺が8個、CO₃²⁻が8個共存する系(Case4)の10 nsにわたる溶存イオンのシミュレーション履歴を評価した 図である。層間内への陰イオンの侵入を無視した場合、平衡状態における層間内での理想的な陽 イオンの個数はCase3の場合と同じである。層間内のNa+と層間外のUO₂²⁺との交換がCase3の場 合に比べて起こりにくいことが確認できる。これは、令和2年度の解析結果の検討を踏まえると(日 本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター,2021)、UO₂²⁺とCO₃²⁻は錯体を 形成しやすく、層間外においてクラスター化している可能性がある。そのため、サイズ的に層間 内へは侵入しづらくなり、たとえ小さいサイズの炭酸錯体として侵入しても電気的に中性化して いるため、Na+との交換には寄与しないものと考えられる。



 図 3.3-38 初期状態として層間内にNa⁺が32個、層間外にはUO₂²⁺が8個およびCO₃²⁻が8個共存 する系(Case4)の10 nsにわたる溶存イオンの層間内における個数履歴。青、茶および紫のプ ロットはそれぞれNa⁺、UO₂²⁺およびCO₃²⁻の個数履歴を示す

 (a) 2層水和状態、(b) 3層水和状態、(c) 4層水和状態、(d) 5層水和状態

令和2年度のUO₂²⁺に関する解析結果と令和3年度の評価解析を俯瞰すると、陰イオンの価数が 高いCO₃²⁻はCl-に比べて陽イオンと錯体を形成しやすく、層間内へも錯体の形で侵入している。 一方、Cl-の場合は層間外で錯体を形成することはあるが、錯体の形で層間内へ侵入している事例 はほとんど確認できず、もっぱら単独で移行していた。CO₃²⁻とCl-は有効イオン半径が同程度 (Cl-: 0.181 nm, CO₃^{2-:} 0.178 nm; Marcus, 1997)のため、この移行挙動の相違はイオンの価数 と錯形成に関するポテンシャルに起因すると思われる。令和3年度は令和2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 ケースの計算時間(ステップ数)を10 nsまでのデータを拡充することができ(令和2年度は2 ns まで)、各イオンの層間内での滞在履歴の明示が可能となった。さらに、層間間隙の水和状態と して5層水和まで拡張し、アクセス性に関する間隙幅の影響についての理解を深めることができた。 また、系が熱力学的平衡状態に達しているかの判定基準についても検討の余地はあるが、層間内 外の陽イオンの交換の観点から一つの指標を得ることができた。しかしながら、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 価数等に関する依存性の定量的評価)については十分ではなく、今後の課題である。

② 第一原理電子状態計算によるモンモリロナイト・エッジ表面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1つであり、その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。これまでの解析において、モン モリロナイトの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計算を用いて作製し、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 吸着は、低pHではベーサル面、中pHから高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等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。令和 2年度に実施した文献調査うち、Kéri et al. (2020)は、溶液中の粘土鉱物のエッジ表面に液中の Fe²⁺が吸着し、それが酸化されてFe³⁺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。しかしながら、この文献で定義されている鉱物構造モデ ルは層電荷をもたないパイロフィライトであったため、その計算結果とモンモリロナイトを対象 としたEXAFSの結果との比較には問題があった(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, 2021)。そこで、令和3年度は、Kéri et al. (2020)で用いられている計算手法 を参考とし、モンモリロナイトのエッジ表面におけるFeイオンの吸着およびそれに伴うモンモリ ロナイトの構造変化について考察した。

Fe等の3d電子を含む強相関電子系を扱う場合には、密度汎関数理論(Density Functional Theory: DFT)の交換相関汎関数としてよく用いられるLDAやGGAでは電子状態を適切に記述できないことが知られている。特に、バンドギャップや強磁性・反強磁性の安定性の再現には問題がある。この問題を解決するため、いくつかの手法が提案されているが、本事業ではモンモリロナイトを対象としており、扱う原子・電子数が多いため、計算負荷の低いDFT+U法(Anisimov et al., 1991; Cococcioni and de Gironcoli, 2005)を用いることとした。DFT計算に使用した擬ポテンシャルは次の特徴を持つ。

- ・Scalar relativistic:軽い元素の相対論効果の大部分を説明できる
- ・RRKJ: 少ないカットオフで高い精度を示す。Sakuma et al. (2017)でも採用
- ・Ultrasoft:ノルム保存条件を課さないことで、より少ない平面波基底で計算ができる
- ・GGA-PBE:一般化勾配近似の一つ。Sakuma et al. (2017)でも採用

Cococcioni and de Gironcoli (2005)の手法を用いてU値を決定し(U = 4.0 eV)、ノントロナイト およびモンモリロナイトの構造最適化に適用して、格子定数の実測データと比較することにより、 計算手法の有効性を検証した。計算プログラムにはQuantum ESPRESSO v6.8 (Giannozzi et al., 2009; 2017)を使用した。

水溶液中のFeイオンはモンモリロナイトのエッジ表面の八面体サイトもしくは層間間隙に吸着 すると考えられる。ここでは、エッジ表面の八面体サイトに取り込まれた場合の安定構造につい て調査した。このような構造モデルでの解析により、モンモリロナイトがFeイオンの影響を受け て変質し、Feイオンによる同型置換が起きた際の核種移行への影響についての知見を得ることが できる。Fe²⁺がエッジ表面で酸化されてFe³⁺に変化することも想定されるため、Fe²⁺およびFe³⁺が エッジ表面の八面体サイトで置換している種々のバリエーションを考慮した。エッジ表面の構造 モデルについては、層間陽イオンが安定的に吸着すると考えられる{130}および{010}面(Sakuma et al., 2017)を対象とした。

はじめに、{130}面を対象とした解析の構造モデルを図3.3-39に示す。図3.3-39(a)はモンモリロ ナイト層を横側から見たイメージ図であり、図3.3-39(b)は八面体シートだけを抜き出して上側か ら見たイメージ図である。それぞれの図の左右側がエッジ表面に当たる。本解析では八面体サイ トにおいてFeイオンが同型置換するものとし、エッジ表面に露出した2個のMgイオン(図3.3-39 (b)の1と4)および2個のAlイオン(図3.3-39(b)の2と3)を2つのFeイオンで置換することとした。 置換のバリエーションを表 3.3-8に示す。電気的中性条件を保つため、Mg²⁺に対してはFe²⁺が置 換し、Al³⁺に対してはFe³⁺が置換するものとした。



図 3.3-39 {130}エッジ表面の構造モデル。 (a) モンモリロナイト層を横側から見た図、(b) 八 面体シートを上側から見た図。各図の左右側がエッジ表面に当たる。原子の色は、白色が水素、 赤色が酸素、黄色がナトリウム、青色が珪素、水色がアルミニウム、茶色がマグネシウム

表 3.3-8 Feイオンを置換する八面体サイトの位置。括弧内の数字は、図3.3-39(b)における置換 サイトを示す

Case0	Case1	Case2	Case3	Case4
置換なし	$\begin{array}{l} \mathrm{Al}^{3+}(2) \rightarrow \mathrm{Fe}^{3+} \\ \mathrm{Al}^{3+}(3) \rightarrow \mathrm{Fe}^{3+} \end{array}$	$Mg^{2+}(1) \rightarrow Fe^{2+}$ $Mg^{2+}(4) \rightarrow Fe^{2+}$	$Mg^{2+}(1) \rightarrow Fe^{2+}$ $Al^{3+}(3) \rightarrow Fe^{3+}$	$Mg^{2+}(4) \rightarrow Fe^{2+}$ $Al^{3+}(2) \rightarrow Fe^{3+}$

表3.3-8に示した解析ケースで第一原理MD計算を実施して構造を最適化した結果、八面体サイトのFeイオンへの置換により、エッジ表面近傍の酸素原子と水素原子の安定位置が、置換を行っていないケース(Case0)と比較して、変化することが確認された。モンモリロナイトの構造の変化は主にエッジ表面のみで起きており、結晶内部にはほとんど影響がなかった。また、Al³⁺をFe³⁺に置換した場合では明らかな違いが確認された。すなわち、Case1のようにエッジ表面のAl³⁺をFe³⁺に置換すると、四面体シートとの間に位置する酸素原子と水素

原子が図3.3-39(a)の上下方向に移動している。一方、Case2のようにMg²⁺をFe²⁺で置換した場合 には、酸素原子と水素原子はエッジ表面から離れる方向(垂直)に移動し、四面体シートへの影 響はほとんどない。エッジ表面の両側での変化はほぼ独立に起きており、影響を及ぼし合わない ことはCase3およびCase4の結果からも確認された。

{130}面の場合と同様に、{010}面の構造最適化を実施した。{130}面の場合の解析結果から、Fe イオンの置換によって結晶内部のバルク構造には影響を与えず、両側のエッジ表面でほぼ独立に 議論できることがわかったため、{010}面の場合もこの独立性が成立することを仮定し、本解析で は表3.3-8のCase1およびCase2の解析ケースのみを実施した。解析の結果から、構造変化は主に エッジ表面のみで起きており、結晶内部への影響がほとんどないことが確認された。また、{130} 面の場合と同様に、Case1の場合は四面体シートとの間に位置する酸素原子と水素原子が上下方 向に移動し、Case2の場合は酸素原子と水素原子はエッジ表面から離れる方向(垂直)に移動する ことが確認された。

以上より、{130}面および{010}面におけるFeイオンの置換に起因したモンモリロナイトのエッジ表面の構造変化についてまとめると、Al³⁺の位置で置換した場合は隣接する四面体シートを上下に押し広げるような構造変化が起き、一方で、Mg²⁺の位置で置換した場合は隣接する四面体シートの構造に与える影響はほとんどない。このことは、Feイオンと置換される金属陽イオンのイオン半径の相違に起因したものであると解釈できる。すなわち、2八面体構造では八面体シートのすべての陽イオンサイトを2価陽イオンが占めており、Mg²⁺とFe²⁺のイオン半径が同程度であるため(Mg^{2+:}0.078 nm, Fe^{2+:}0.072 nm; Marcus, 1997)、近似した構造を取ることができる。一方、2八面体構造は3価陽イオンが八面体シートの2/3の陽イオンサイトを占めており、空所のサイトはAl³⁺のサイトとは異なる形状をとる。これは、Al³⁺のイオン半径(0.053 nm; Marcus, 1997)がMg²⁺やFe²⁺よりも小さいことに起因すると考えられる。このAlイオンのサイトをFe³⁺が置換した場合、Fe³⁺のイオン半径(0.065 nm; Marcus, 1997)はAl³⁺よりも有意に大きいため、より3八面体シートの構造に近づくことが予想される。この3八面体シートにおける構造変化が、酸素を共有している四面体シートの構造に影響を与えているものと考えられる。

今回の解析から、モンモリロナイトのエッジ表面の八面体陽イオンサイトにFeイオンが取り込まれた場合について、以下の結論が得られた。(i)Fe²⁺がエッジ表面の八面体陽イオンサイトに取り込まれた場合、エッジ表面の構造にはほとんど影響はない。(ii)Fe³⁺が八面体サイトに取り込まれた場合、あるいは取り込まれていたFe²⁺が酸化してFe³⁺に変化した場合、Al³⁺よりもFe³⁺のイオン半径が有意に大きいため、四面体シートがより平坦な構造に変化し、層間間隙への入口近傍が狭まることが推察される(図3.3-40)。今後の課題としては、(i)このようなエッジ表面の構造変化が核種移行に及ぼす影響や、(ii)Feイオンが陽イオンサイトに取り込まれるまでの反応過程・吸着形態等について、検討する必要である。



図 3.3-40 モンモリロナイト・エッジ表面の八面体陽イオンサイトにFe³⁺が置換した場合の、 エッジ表面構造の変化を示す模式図
③ 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

バリア材の主成分である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、間隙水および鉱物表面(ベーサル面)の相互作用の場となって、緩衝材の膨潤挙動を支 配する。したがって、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計算を用いた膨潤挙動に関す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とMD計算の結果は概ね整合的であることが示さ れ(図3.3・41)、層間への水分子の浸入による相互作用エンタルピーや層間間隙の水分子や対イオ ンの充填率に従って底面間隔が変化すること等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/(unit cell)のNa型モンモリロナイトの膨潤挙動を図3.3・41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。図中の実測データはMorodome and Kawamura (2009)から引用した。なお、本解析で実施 したMDシミュレーションはすべて、標準状態(298.15 K, 0.1 MPa)における等温・等圧のNTP アンサンブルで計算した。



図 3.3-41 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)より引用

Yotsuji et al. (2021)では、5種類の単一イオン型モンモリロナイト(Na型、K型、Cs型、Ca型 およびSr型)を対象に、分析試験による水蒸気吸着量の実測データとMD計算の結果を用いること で、全水蒸気吸着量を層間内への吸着量と層間外への吸着量に分離し、相対湿度をパラメータと して評価した。さらに、層間内への吸着量については、相対湿度の全領域にわたって層間対イオ ンの水和数ときわめて高い相関関係をもつことを示し、膨潤挙動の層間対イオン種による相違は、 対イオンの層間における水和数が主要な支配因子であること等を明らかにした。Na型およびCs型 の場合を例に、相対湿度をパラメータとした層間内への吸着量および対イオンの水和数の変化を 比較した図を図3.3-42に示す。イオン水和数の相対湿度依存性(赤線)は、MD計算で解析したイ オン水和数の層間含水量依存性(図3.3-41(b))と層間内への水蒸気吸着量の相対湿度依存性から 評価した。イオン水和数の変化に連動して層間内への水蒸気吸着量が変化している様子が顕著に 現れていることが確認できる。なお、他のイオン型の場合も同様な結果が得られた。これまでの 研究を踏まえ、令和3年度は、層間内における対イオンの水和数がイオンのどのような特性パラメ ータに支配されているかについて検討した。



数(赤線)と層間内への水蒸気吸着量(青線)の相対湿度依存性。データはYotsuji et al.(2021) より引用

層間内におけるイオン水和特性の要因を探るため、まずはバルク溶液中におけるイオン水和に 寄与するイオンの特性について考察した。バルク溶液におけるイオンの水和に寄与する因子とし て、まずイオンの水和自由エネルギーが考えられる。イオン水和数に関する文献(Ohtaki and Radnai, 1993; Marcus, 1997)を見ると、XRD測定や計算機シミュレーション等に用いられる手法、 また評価対象となる水和領域の定義等に非常に大きなばらつきがあり、水和自由エネルギーとの 相関分析を実施するうえで定量的な評価が意図的となってしまうおそれがある。そこで、ここで は本MD計算で得られた水和数を用いることにする。その際、水和数はイオンを中心とした水分子 の動径分布関数をイオンの中心から第一極小値まで積分して算出しており、水和領域の定義とし ては第一水和圏に相当する。5種類のイオン(Na+、K+、Cs+、Ca²⁺およびSr²⁺)についてMD計算で 得られたバルク溶液中の水和数を表3.3-9の列(4)に示す。なお、得られた水和数はOhtaki and Radnai (1993)のシミュレーションによる結果とも調和的である。また、水和自由エネルギーのデ ータはMarcus (1997)の値を用いた(表3.3-9の列(1))。水和力(水和自由エネルギー)が強いイ オンほど水和数が多くなると想定されるが、これら5種類のイオンについて水和自由エネルギーと バルク溶液中の水和数を比べると、単調な大小関係は成立していないことがわかる。そこで、比 較的イオン半径が大きいCs+の水和数が大きいことを考慮し、イオンの体積も水和数を決定する要 因の一つと考えることとした。イオンの水和が電荷と双極子との相互作用の効果だけでなく、本 来水分子が存在していた領域に有限の体積を持ったイオンが現れることによってその領域から排 除された水分子がイオンの周囲に配位する効果も考慮する必要があることを考えると、電荷・双極 子間相互作用の指標としての水和自由エネルギーと、水分子の排除効果の指標としてのイオン体 積を、水和数を決定する因子と考えることは妥当であると思われる。実際、本MD計算で得られた 水和数は、注目するイオンの周囲に存在する第一水和圏の水分子の個数をカウントしたものであ り、双極子モーメントをもつ水分子の向きまで考慮した配位数にはなっていない。

以上の考察から、イオンの水和数は水和自由エネルギーとイオン体積に対してそれぞれ線形に 増加するものと仮定して、イオン水和数を目的変数とする重回帰分析(佐和,1979)を行った。イ オン半径の値は、水和数が本MD計算で得られた値であることとの一貫性を考慮して、MD計算の 入力パラメータの値を採用した。イオン半径と、その値からイオンを球体として算出したイオン 体積の値をそれぞれ表3.3-9の列(2)および列(3)に示す。水和自由エネルギー(表3.3-9の列(1))と イオン体積(表3.3-9の列(3))を説明変数とする重回帰分析の結果、次の回帰式(式(3.3-5))が得 られた。

$$N_{\rm h}^{\rm BW} = -1.740 \times 10^{-3} \cdot \Delta G_{\rm h} + 9.852 \times 10^{-2} \cdot V_{\rm ion} + 4.047 \tag{3.3-5}$$

ここで、パラメータムGhおよびVionはそれぞれイオンの水和自由エネルギーおよび体積であり、 Mh^{BW}は回帰式から得られるイオン水和数の予測値である。表3.3-9の列(1)、(3)のデータを式(3.3-5)の回帰式に代入して得られたイオン水和数の予測値を表3.3-9の列(5)に示す。また、MD計算で 得られた水和数(表3.3-9の列(4))と予測値の相対誤差を表3.3-9の列(6)に示す。いずれのイオン の場合も相対誤差は1%以内の精度であり、再現性は非常に良いことがわかる。実際、回帰式(式 3.3-5)の決定係数 R² は0.9995であり、データ数は少ないが、回帰の精度はきわめて高く、バルク 溶液中のイオン水和数は水和自由エネルギーおよびイオン体積の2つの因子でほぼ説明できると 言える。なお、式(3.3-5)の定数項4.047は、水和力がゼロの点粒子に配位した水分子数を意味する。 XRDによる水の構造解析によると、水の構造は基本的に不規則な4配位構造であること(Bernal and Fowler, 1933)や、常温における最近接分子数は4.4程度であること(Morgan and Warren, 1938; Narten et al., 1967)が知られており、式(3.3-5)の定数項はこれらの知見と整合的である。

Species of counter ion	(1) Hydration free energy [kJ/mol]	(2) Ionic radius [Å]	(3) Ionic volume [Å ³]	(4) Hydration number in aqueous solution	(5) Prediction value from regression equation	(6) Relative error for prediction value	(7) Hydration number in interlayer (n=15)	(8) Rate of outer-sphere complex (n=15)	(9) Prediction value of hydration number in interlayer	(10) Relative error for prediction value
Na^+	-375	1.314	9.503	5.61	5.64	0.46%	5.52	0.959	5.57	0.93%
K^+	-304	1.546	15.478	6.14	6.10	0.64%	5.33	0.681	5.45	2.19%
Cs^+	-258	1.884	28.011	7.24	7.26	0.21%	4.92	0.226	4.77	2.98%
Ca ²⁺	-1515	1.494	13.968	8.05	8.06	0.11%	7.85	0.981	7.98	1.68%
Sr ²⁺	-1386	1.625	17.974	8.24	8.23	0.13%	8.19	0.999	8.22	0.42%

表 3.3-9 イオンの特性データ(Marcus, 1997)およびMD計算で得られた対イオンの水和数。 各項目の内容については、本文を参照のこと

次に、モンモリロナイト層間内の対イオンの水和数を決める要因について考察する。結晶膨潤 の進行過程では、対イオンの水和に寄与する要因を抽出するには不明確な要素が多く存在するた め困難である。そこで、問題を簡単化するため、層間内に十分な水が存在する状態での対イオン の水和数について検討する。層間内に含まれる水分子の量がn=15/(unit cell)の状態においてMD 計算で評価したイオン水和数を表3.3-9の列(7)に示す。バルク溶液中のイオン水和数(表3.3-9の列 (4)参照)とは傾向が異なることが確認できる。層間領域は二次元的に閉じ込められた領域であり、 イオンの特性によってベーサル面近傍に分布しやすいもの(内圏錯体的イオン種)とそうでない もの(外圏錯体的イオン種)が存在し、内圏錯体的なイオン種の場合はバルク溶液中の水和数と 顕著に異なってくるものと推察できる。例として、層間含水量がn=15/(unit cell)の状態のNa型 およびCs型モンモリロナイト層間における対イオンと水分子の密度分布を図3.3-43に示す。Na型 の場合(図3.3-43(a))、ベーサル面とNa+のピーク分布の間に1層分の水分子の層が存在すること が確認でき、Na+は2つの水分子層の間に分布した外圏錯体的な分布状態にある。一方、Cs型の場 合(図3.3-43(b))、Cs+の分布のピークはベーサル面と水分子層の間に存在することが確認でき、 典型的な内圏錯体的な分布状態にあると言える。



図 3.3-43 層電荷=0.5 e/(unit cell)、層間含水量がn = 15/(unit cell)のNa型モンモリロナイト(a)お よびCs型モンモリロナイト(b)の層間間隙における、水分子(青線)および対イオン(赤線)の 密度分布

Na⁺のバルクでの水和数(表3.3⁻9の列(4))が層間間隙においてもほとんど変化しない(表3.3⁻9(7))のに対し、Cs⁺では水和数が顕著に変化しているのは、Cs⁺の内圏錯体的分布が影響しているためであると考えられる。そこで、各イオンに固有の外圏錯体率を定量化するため、本解析ではMD計算で得られた対イオンと水分子の密度分布を用いた。すなわち、向かい合う2つのベーサル面についてそれぞれ最近接の水分布のピーク位置を算出し、そのピーク間に存在する対イオンの個数をカウントして、全イオン数に対するその割合を外圏錯体率と定義する。層間含水量が*n*=15/(unit cell)の状態における各イオン型の外圏錯体率を表3.3⁻9の列(8)に示す。Cs⁺の外圏錯体率は他のイオンに比べて顕著に低いことが定量的に確認できる。一般に、対イオンが内圏錯体的に分布している場合、層電荷とイオンの電荷とが部分的に中性化してイオンの水和力(水和自由エネルギー)が減少するとともに、ベーサル面上のイオン間に静電吸着することにより対イオンが周囲の水分子に及ぼす体積効果も減少すると考えられる。そこで、牽解析ではバルクにおけるイオン水和数の評価式である回帰式(式(3.3⁻5))の水和自由エネルギーおよびイオン体積の項に外圏錯体率が線形かつ同等に作用するものと仮定して、層間中での対イオンの水和数/M^{II}を式(3.3⁻6)で評価した。

$$N_{\rm h}^{\rm IL} = (-1.740 \times 10^{-3} \cdot \Delta G_{\rm h} + 9.852 \times 10^{-2} \cdot V_{\rm ion})R_{\rm O} + 4.047 \tag{3.3-6}$$

ここで、Roは外圏錯体率を表す。この評価式で算出された層間内での対イオンの水和数を表3.3-9 の列(9)、また、MD計算で得られた水和数(表3.3-9の列(7))と予測値(表3.3-9の列(9))との相対 誤差を表3.3-9の列(10)に示す。本解析で定義した外圏錯体率は定量化の一つの候補であり、その 妥当性については十分な検討が必要ではあるが、層間内における対イオン水和数は高い精度で再 現されていると言える。これらの考察により、モンモリロナイト層間内の対イオンの水和数を決 める要因として、対イオンの水和自由エネルギー、イオン体積および層間における外圏錯体率の 3つが主要な決定因子であると推察される。また、その結果として、モンモリロナイト層間の膨潤 挙動もこれら3つの因子が支配しているものと考えられる。

本報告では、「モンモリロナイトの結晶膨潤は層間内への水蒸気吸着量の挙動に支配され、層 間への吸着量は層間対イオンの水和数の変化に連動してふるまう」という先行研究(Yotsuji et al., 2021)の結果を踏まえ、対イオンの水和数を支配するイオンの特性パラメータについて検討した。 バルク溶液中のイオンの水和数を支配するパラメータの検討を踏まえつつ回帰分析を実施した結 果、層間対イオンの水和数は対イオンの水和自由エネルギー、イオン体積および層間における外 圏錯体率の3つが主要因子として整理できることを明らかにした。しかしながら、本解析で実施し た5種類の対イオンのデータだけでは、回帰分析で評価するためのデータ量として十分でない可能 性が懸念される。今後の、多原子イオン等の複雑なイオン種も含め、さらなるデータの拡充を実 施するとともに、評価手法についてもさらに検討を進める必要がある。

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に関 する研究を進めてきた。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、令和3年度にモ ンモリロナイトのエッジサイトにおけるFe(II)とNi, PbおよびEuとの収着競合を評価し、Niの収 着はFe(II)と競合し、PbとEuはほとんど競合しないことを確認した。また、モンモリロナイトの 構造中に含まれるFeの酸化還元反応により核種の収着挙動に影響を与える可能性に着目した試験 に着手し、Se(IV)では一部の条件で0価に還元されていることを確認した。これまでの4年間の検 討を通じて、鉄製オーバーパックの共存が緩衝材中の核種の収着特性に及ぼす複数の影響プロセ スの現象解明を進めてきた。今後は、異なる核種や条件での収着競合や酸化還元影響に関するデ 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および今後の課題 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、これまでに試験手法・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、保持および脱離挙動を多様な分 析技術の適用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分析評価を 進めてきた。これを踏まえ、令和3年度は、Fe(II)鉱物へのSeの取り込みについて、これまでの Se(-II)の試験と同様の手法・条件で、Se(IV)を対象としたデータ取得を行い、一部の試料でSe(IV) からSe(0)への還元が生じていることを確認した。また、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から採取した泥岩を対象としたマイクロ X線分析をより多様な試料に対して実施し、複数の岩層(稚内層・声問層)を含む泥岩試料中で、 微粒のパイライトへSeが濃集していること、Seはパイライト中のSと置換して存在すること等を 確認した。これまでの4年間の検討を通じて、深部地下環境で生じる鉄鉱物へSeが取り込まれる現 象のメカニズムを解明し、実際の地下環境でもそのような現象が生じている根拠を確認してきた。 今後、鉄鉱物とSe(-II)・Se(IV)の相互作用に関する室内試験結果の比較評価や、幌延の泥岩中で の鉄鉱物とSeの相互作用データの拡充を進め、一連の結果をもとに鉄鉱物へのSeの取り込み現象 の解明と性能評価への反映方策を提示する。

セメント共存系での核種移行影響評価のうち、セメント共存による圧縮ベントナイト中のコロ イドろ過機能への影響については、令和3年度に、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/m³)のNa型および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・ろ過試験データを拡充し、Na型とCa型のいずれ の試料でもコロイドが完全にろ過されることを確認した。これまでの4年間の検討を通じて、多様 な密度と塩濃度条件を対象に、デンドリマーコロイド(5.7 nm)の拡散・ろ過データを拡充し、 ろ過機能が発現する条件を明らかにしてきた。今後は、この結果を踏まえ、ろ過機能が発現する 境界条件のより詳細な把握と、多様なサイズを有するコロイドの移行・ろ過挙動の評価を念頭に、 異なるサイズ(8.8および1.9 nm)のデンドリマーコロイドを用いた拡散・ろ過データを拡充する 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。

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、セメントの種類(OPCやHFSC)の差異に 着目した変質状況等の分析を進めてきた。令和3年度は、これまでに観察されたOPCとHFSCの界 面近傍での泥岩の変質状況の特徴的な差異を、より詳細に把握することに加え、試料の代表性や 分析の再現性等を確認する観点から、140mの泥岩(声問層)とOPCおよびHFSCとが接触した複 数の試料を対象に分析データを拡充した。その結果、試料の代表性を確認できた一方で、セメン トと岩石界面の変質状況には不均質性が確認され、密着部では岩石側へ変質が進展しているのに 対し、隙間部では緻密なカルサイト層が形成され、岩石側の変質が抑制されていること等、より 詳細な変質状況を把握することができた。また、界面近傍での二次鉱物への核種の取り込みを検 討する観点から、微量元素分析データを拡充したほか、カルサイト等の二次鉱物への多様な核種 の取り込み現象を把握するため、幌延の泥岩中に含まれるカルサイト中の微量元素の分析評価に 着手し、カルサイト中に含まれる微量元素濃度データと幌延の深部地下水中に含まれる微量元素 濃度データとの比較から分配係数評価を試行した。これまでの4年間において、深部地下環境で10 年以上接触していた、セメントと岩石界面で生じる変質過程を把握するとともに、それらが核種 移行に及ぼす影響の予察的検討を進めてきた。今後は、接触界面付近の二次鉱物の生成状況や微 量元素の取り込み、幌延の泥岩中のカルサイトへの微量元素の取り込みに関するデータ拡充と現 象解明を進めるとともに、これまでに検討してきたセメントと岩石での接触界面での地球化学ー 物質移行モデルによる解釈を進めて、一連の成果を取りまとめる予定である。

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、イライトや幌延の泥岩を対象に高炭酸条件下で の収着試験・分析データの拡充や、モデル化検討を進めてきた。令和3年度は、Eu(III)およびU(VI) の炭酸共存下でのイライトへの収着データを拡充し、TRLFS分析により炭酸濃度やpHの変化に 伴うスペクトル形状の変化から収着形態の情報を得つつ、収着モデルによる解釈を行った。また、 幌延の泥岩に対する収着データの拡充と、加成則による収着データの解釈と課題を提示した。さ らに、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 討したほか、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・ネプツニルイオンおよびそれらの炭酸錯体のアクセス性評価について、これまでよりも広い 層間間隙を対象にした、より長期間のMD計算の結果から、3層水和層間で、中性のウラニル-炭酸 諸体が層間に侵入可能なこと等を確認した。これまでの4年間において、高炭酸条件が核種移行に 及ぼす主要な影響プロセスに着目して、個別現象解明を進めるとともに、その評価モデルを構築 してきた。今後は、Eu(III)およびU(VI)のイライトおよ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等を確認するための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提示する予定であ 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 子との競合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)等、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,2018a)において、3価核種を主な対 象に信頼性の高い錯生成モデルおよ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 献調査および室内試験により、影響が顕在化する可能性の高い4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、既存の手法では測定前に 流出してしまう、低分子量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、二元系モデルの加成則や各二元系における反応の瞬時・可逆性に関わる現状と課 題を整理し、核種・有機物・岩三元系モデルの開発に向けて検討すべき課題を抽出した。平成31年度 は、新たにキャピラリー電気泳動(CE)・質量分析(ICP-MS)法を整備し、4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、CE-ICPMSを用いた4価核種と天然有機物の錯生成 データ拡充を行うとともに、錯生成量の定量的な評価に向けた課題を抽出した。また、核種・有 機物・岩三元系モデルの開発に向けて、Eu・天然有機物・幌延深部堆積岩共存系でのバッチ収 着試験を行い、予察的なデータを取得した。

令和3年度は、錯生成量の定量的評価のためのデータ拡充と、得られたデータから導出した NICA-Donnanモデルパラメータの既報の値との比較検討を実施した。核種 - 有機物 - 岩石三元 系モデルの開発に向けては、バッチ試験結果の解析による炭酸錯体影響の検討に加え、幌延深部 地下環境から採取された天然有機物を使用したバッチ試験を実施した。

(2) 実施内容

1) 核種と天然有機物との錯生成モデルの開発

有機物影響を考慮した性能評価の実施に当たっては、多様な地下水条件での核種と腐植物質との錯生成を高い信頼性をもって評価する必要がある。NICA-Donnanモデル(式(3.4-1))は、金属イオンと腐植物質との相互作用に特徴的な錯生成反応の不均一性(非線形性)と静電相互作用を 考慮することで、熱力学モデルに類似した評価が可能であり(Kinniburgh et al., 1996; 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、低い核種濃度等)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3価・4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、モデルの高度化およびモデルパラメータ の整備を進める。

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

$Q_{ m i}$: 有機物に結合した金属イオンiの濃度 [mol g ⁻¹]
C_1	: 遊離体の金属イオン濃度 [mol dm ⁻³]
$Q_{ m max1,H}$: 結合サイト1の濃度 [meq g ^{·1}]
$Q_{ m max2,H}$: 結合サイト2の濃度 [meq g ^{·1}]
$\log K_{ m i1}$:金属イオンiの結合サイト1に対する親和定数(結合定数)
$\log K_{ m i2}$:金属イオンiの結合サイト2に対する親和定数(結合定数)
nH_1	:H+結合サイト1の不均一パラメータ
$n m H_2$:H+結合サイト2の不均一パラメータ
<i>n</i> _{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
<i>n</i> 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Eu(III)と地下水中の溶存腐植物質との錯生成データの取得

令和2年度までに、流動場分画法(flow-field flow fractionation: FI-FFF)と誘導結合プラズマ 質量分析(ICP-MS)を組み合わせたFFF-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)およびフルボ酸(HFA)とZr (IV)との錯生成データをpH 5、6、8またはHFAに関しては加えてpH 7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。FI-FFFでは、流動場中で分画分子量300 Daの限 外ろ過膜に試料中のコロイドを押し付けることで、連続的なサイズ分画と有機物の金属イオンと の結合量評価を行っている。しかし、天然有機物であるフミン物質は広範な分子量分布を持ち、 特に本事業で対象としている幌延深部地下水中のHHA、HFAといった有機物は、表層土壌中の有 機物と比較して、顕著に小さなサイズと単純有機酸に近い反応機構を持つことが報告されている

(Kimuro et al., 2018)。それゆえに、FI-FFFにおけるHHA、HFAの回収率(ろ過膜を透過せ ず、検出器に到達する有機物の割合)は高くても50%程度であり、NICA-Donnanモデルの結合パ ラメータは検出器に到達する比較的サイズの大きな画分に対して最適化されているため、その信 頼性を検証する必要がある。そこで令和3年度は、時間分解レーザー蛍光法や、溶媒抽出法、三次 元蛍光分析法といった手法で、HHAとの錯生成データの取得が行われているEu(III)を対象と して、FFF-ICPMSによる錯生成データをpH5、6または7の条件下で取得し、NICA-Donnnanモ デルに当てはめてモデルパラメータを導出し、評価手法としての妥当性を検証した。 これまでのFFF-ICPMSの結果から、pH5におけるHHA、HFAでは、いずれもフラクトグラム に有意なEu³⁺のピークは見られなかった。Fl-FFFでは、Eu³⁺の沈殿を避けるために、錯生成の安 定度定数が既知である競合配位子として、EDTAを添加している。HHA、HFA自体のピークは確 認できたことから、このpH条件では、HHAあるいはHFAの錯生成に対するEDTAの錯生成能が 大きすぎ、大部分のEu³⁺がEDTA錯体としてICP-MS測定開始前の段階で装置内からから排出さ れたと考えられる。令和2年度までに実施したZr⁴⁺を対象としたFFF-ICPMSでは、pH5の条件下 でも本手法で錯生成量の評価ができていたことから、Eu³⁺に対しては、競合配位子としてEDTA との1:1の錯生成の安定度定数log β Eu-EDTA = 20.65 (Thakur et al., 2014) より安定度定数の小 さな配位子を選択するべきであることが明らかとなった。

表3.4-1にpH 6、7の条件下で実施したFFF-ICPMSに供した試料のリストを、図3.4-1に、pH 6 における(a) HHA/EDTA、(b) Eu³⁺/EDTA、および(c) Eu³⁺/HHA/EDTAのUV/Vis(HHA) とICP-MS(Eu) 検出から取得したフラクトグラムを、図3.4-2に、pH 7における(a) HHA/EDTA、 (b) Eu³⁺/EDTA、および(c) Eu³⁺/HHA/EDTAのUV/Vis(HHA)とICP-MS(Eu) 検出から取 得したフラクトグラムを示す。分画ステップ開始直後からHHAの流出が開始していることから、 HHAが非常に小さなサイズ分子を含んでいることがわかる。

また、FFF-ICPMS法によるデータ取得では、Euのフリーイオン、加水分解種、Eu-EDTA錯体 はFFFチャンネル内の限外ろ過膜を透過するが、Eu-HHA錯体は透過しないことを前提としてい る。Eu³⁺/EDTA試料のFFF-ICPMSフラクトグラム(図3.4-1(b)および図3.4-2(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、ICPMSによるEu³⁺のシグナルも十 分小さい(0.1% (pH6)、0.7% (pH7)のEu³⁺に相当、表3.4⁻¹)。このことから、Eu³⁺/EDTA 諸体がICPMS測定開始前の段階で膜から排出され、HHAへのEu³⁺の結合量評価に影響を及ぼさ ないことが確認された。一方、令和2年度までに実施してきたZr4+の系では、Zr4+の回収率が30% 程度(pH6)となったことと比較して、Eu³⁺の回収率は顕著に小さい。これはEu³⁺のHHAに対す る錯生成よりもEDTAに対する錯生成が強く、大部分のEuがEu-EDTA錯体として排除されたこ とによるものと考えられる。また、図3.4-1 (c) および図3.4-2 (c) から、HHAに結合したEu³⁺の フラクトグラムのピーク位置はHHAのフラクトグラムと比較して高サイズ側にシフトしており、 形状もよりブロードになっている。この傾向はpH6よりもpH7の方が顕著であることに加え、令 和2年度までに実施してきたZr⁴⁺では確認されていないものである。これは、EDTAによる強い競 合下において、Eu³⁺と錯生成した一部のHHAが負電荷の中和により凝集した、あるいは、Eu³⁺が この条件下で比較的大きなサイズのHHA分子に優先的に錯生成している可能性を示している。加 えて、今回の試験におけるHHAの回収率はpH 6において30%程度、pH 7において45%程度であ り、Zr⁴⁺とHHAを対象とした際の回収率(pH 6:45%程度、pH 7:データなし)(日本原子力研 究開発機構,2018a)よりも小さい傾向にあることから、Eu³⁺とZr⁴⁺の形式電荷の差異等によって、 HHAの負電荷を中和する効果がEu³⁺の方が大きい可能性が示唆された。また、比較的大きなサイ ズのHHAと錯生成したEu³⁺を検出しているとすると、HHA中の錯生成を担う官能基のごく一部 しか観察されていないことを意味するため、結合量評価においては注意が必要である。

No.	HHA 濃度	Eu ³⁺ 濃度	pН	HHA 回収 率	Eu ³⁺ 回収率	Eu ³⁺ 結合量	Eu ³⁺ 結合割 合
	(mg/L)	(µM)		(%)	(%)	(mmol/Kg HHA)	(%)
シリ・	ーズ 13,	溶出液]	oH 6.00				
13-1	20.3	0	5.99	29.5	-	-	-
13-2	0	0.10	5.97	-	0.1	-	-
13-3	20.3	0.10	5.97	30.6	1.1	0.17	3.5
13-4	20.3	0.05	5.97	36.6	6.8	0.46	18.6
13-5	20.3	0.02	5.96	34.1	3.1	0.09	9.2
シリ・	ーズ 14,	溶出液]	oH 6.98				
14-1	20.3	0	7.01	40.4	-	-	-
14-2	0	0.10	7.03	-	0.7	-	-
14-3	20.3	0.10	7.05	45.4	1.6	0.18	3.6
14-4	20.3	0.05	7.01	47.0	1.7	0.09	3.5
14-5	20.3	0.02	6.94	44.3	2.3	0.05	5.2

表 3.4-1 FFF-ICPMS測定に供した試料リスト*

全ての試料は 5 mM NaClO₄,および,0.25 µM EDTA を含む *Eu のフラクトグラムを取得出来なかった pH 5 の試料は割愛



図 3.4-1 pH 6における(a) HHA/EDTA、(b) Eu³⁺/EDTA、(c) Eu³⁺/HHA/EDTA共存試料 のUV/Vis(HHA)とICP-MS(Eu)検出から取得したフラクトグラム



図 3.4-2 pH 7における(a) HHA/EDTA、(b) Eu³⁺/EDTA、(c) Eu³⁺/HHA/EDTA共存試料 のUV/Vis(HHA)とICP-MS(Eu)検出から取得したフラクトグラム

次に、pH 6、7におけるHHAへのEu³⁺の結合量を評価する。HHAへのEu³⁺への結合量を*B*Eu-HHA (mol/Kg)、全Eu³⁺濃度を*C*T, Eu、全HHA濃度を*C*T, HHAとすると、前述したようにフラクトグ ラムにEu-EDTA錯体は現れてこないことから、以下の式が成り立つ。

$$B_{\rm Eu-HHA}C_{\rm T,HHA} = f_{\rm Eu}C_{\rm T,Eu} + (1 - f_{\rm HHA})C_{\rm T,HHA}B_{\rm Eu-HHA}$$
(3.4-2)

ここで、f_{HHA}、f_{Eu}は、それぞれ、HHA、Eu³⁺の回収率である。式(3.4-2)より、B_{Eu-HHA}は、

$$B_{\rm Eu-HHA} = \frac{f_{\rm Eu}}{f_{\rm HHA}} \frac{C_{\rm T,Eu}}{C_{\rm T,HHA}}$$
(3.4-3)

と表される。このようにして、FFF-ICPMSによるEu³⁺とHHA回収率から計算された B_{Eu-HHA} 、および、HHAに結合したEu³⁺の割合を表3.4-1に B_{Eu-HHA} を $O_{\Gamma,Eu}$ に対してプロットしたものを図3.4-3に示す。pH 6、7において、一部の試料を除き、Eu³⁺濃度($O_{\Gamma,Eu}$)の増加に伴い、Eu³⁺結合量は増加している。pH 6、 $O_{\Gamma,Eu}$ =0.05 μ Mの試料(表3.4-1中、試料13-4)において、Eu³⁺の結合量が極端に大きくなっている理由は不明だが、HHAの回収率とEu³⁺の回収率が高くなっていることから、FFFの状態の一時的な変化等、偶発的な原因があるものと考えられる。一般的に、化学的に不均質な天然有機物の場合、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、これらの挙動はEu³⁺のHHA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。このことは、pH7における結合量がpH6のものと比較して小さくなっていることからも見て取れる。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+との競合の増加とともに、Euの結合量が増加することを意味している。本試験では、液相中におけるEu³⁺の加水分解と沈殿を抑制するためにEDTAを共存させているが、EDTAとHHAに対するEu³⁺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思われる。



図 3.4-3 pH 6、7におけるHHAに対するEu³⁺結合量のEu³⁺濃度依存性 C_{EDTA} = 0.25 µM

FFF-ICPMS法により取得したEuとHHAとの錯生成データを用いて、Eu³⁺とHHAとの条件付き平衡定数(*K*_c)を算出した。*K*_cはEu³⁺がHHAのカルボキシル基サイトと1:1で錯生成することを仮定した平衡定数であり、以下の式(3.4-4)で定義される。

$$Eu^{3+} + HHA^{-} = EuHHA^{2+}$$

 $i \subset I \supset V \subset K_c = \frac{[EuHHA^{2+}]}{[Eu^{3+}][HHA^{-}]}$ (3.4-4)

Eu³⁺、HHA、EDTAが存在する系において、**Eu-EDTA**錯体と**Eu-HHA**錯体との交換反応の平 衡定数(*Kexch*)は以下の式(3.4-5)で定義される。

$$EuEDTA^{-} + HHA^{-} = EuHHA^{2+} + EDTA^{4-} \quad \text{(CASV} \quad K_{exch} = \frac{[EuHHA^{2+}][EDTA^{4-}]}{[EuEDTA^{-}][HHA^{-}]} \quad (3.4-5)$$

また、Eu³⁺とEDTAとの錯生成の平衡定数(log*K*_{EuEDTA}= 20.65, Thakur et al., 2014)は以下の 式 (3.4-6) で定義される。

$$Eu^{3+} + EDTA^{4-} = EuEDTA^{-} \quad \text{itsucc} \quad K_{EuEDTA} = \frac{[EuEDTA^{-}]}{[Eu^{3+}][EDTA^{4-}]} \tag{3.4-6}$$

ここで、[EuHHA²⁺]、[EuEDTA⁻]はそれぞれEu-HHA錯体(EuHHA²⁺)、Eu-EDTA錯体 (EuEDTA⁻)の活量であり、式(3.4-2)の*B*_{Eu-HHA}より

$$[EuHHA2+] = f_{EuHHA}B_{Eu-HHA}C_{T,HHA}$$
(3.4-7)

$$[\text{EuEDTA}^-] = C_{\text{T,Eu}} - [\text{EuHHA}^{2+}] / f_{\text{EuHHA}}$$
(3.4-8)

となる。ここで、*f*EuHHAはEu-HHA錯体の活量係数である。また、[EDTA⁴]、[HHA⁻]はフリーのEDTA、HHAカルボキシル基サイトの活量であり、それぞれ、

$$[\text{HHA}^{-}] = f_{\text{HJA}} \frac{C_{\text{T,HHA-carb}} - [\text{EuHHA}^{2+}] / f_{\text{EuHHA}}}{1 + K_{\text{H,HHA}} [\text{H}^{+}]}$$
(3.4-9)

$$[EDTA^{4-}] = f_{EDTA}\alpha (C_{T,EDTA} - [EuEDTA^{-}])$$
(3.4-10)

$$\alpha = \frac{1}{1 + \sum_{i=1}^{4} [\mathrm{H}^+]^i \beta_{\mathrm{H}i}}$$
(3.4-11)

と表される。ここで、 $O_{T, HHA-carb}$ はカルボキシル基換算したHHA濃度であり、HHAのカルボキシ ル基サイト密度 $Q_{max1,H} = 4.38$ eq/Kg (Saito et al., 2015)から、 $C_{T, HHA-carb} = O_{T, HHA} \times Q_{max1,H}$ となる。また、 $K_{H, HHA}$ は1:1の単純な錯生成を仮定した場合のHHAのプロトン結合反応の平衡定数 であり、HHA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、 $K_{H, HHA}$ 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})、 β_{Hi} 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_{HHA} 、 f_{EDTA} はそれぞれHHA⁻、EDTA⁴⁻の活量係数 である。最終的に、HHAへのEu³⁺の結合反応の条件付き平衡定数は、Eu³⁺とEDTAの錯生成の平 衡定数を用いて、

$$\log K_{\rm c} = \log K_{\rm exch} + \log K_{\rm EuEDTA} \tag{3.4-12}$$

となる。

Eu³⁺結合量から上記の計算で得られた、pH6、7におけるEu-EDTA錯体とEu-HHA錯体の交換 反応の平衡定数 (log K_{exch})、および、HHAに対するEu³⁺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。また、本計算に使用したパラメータを表3.4·3に示す。一部の試料を除いて、 log K_c の値はpHの増加およびEu³⁺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、 Eu³⁺の結合量はpHの減少とともにpH6から7の範囲で増加したが、EDTAへのEu³⁺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、Eu³⁺濃度の減少に伴うlog K_c の増加は、カルボキシル基を主 体とするHHAの結合サイトへのH⁺の競合とHHAに対するEu³⁺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、HHA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 ($p_1 = 1$)、また、H+やCu²⁺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、Eu³⁺の結合反応におけるこのような不均質性は、Eu³⁺やZr⁴⁺のような多価イオンに固有のものである可能性がある。

HHAに対するEu³⁺の結合反応の条件付き平衡定数(log K)の値を、令和2年度までに取得した Zr⁴⁺に対するHHA、HFAに対する同様の値と比較すると、10程度小さい。これはEu³⁺に対する HHAの錯生成能が相対的に小さく、本実験条件では、大部分のEu³⁺が競合配位子であるEDTAと 錯生成して存在していることを意味する。

$C_{ m T, Eu}$	[COOH]/[Eu]モル 比 ⁱ	$\log K_{\mathrm{exch}}$	$\log K_{ m c}$
(µM)			
pH 6			
0.10	889	-8.87	11.8
0.05	1778	-7.92	12.7
0.02	4446	-8.24	12.4
pH~7			
0.10	889	-7.61	13.0
0.05	1778	-7.49	13.1
0.02	4446	-7.26	13.4

表 3.4-2 HHAへのEu³⁺結合反応の条件付き平衡定数.

i. NICA-Donnan パラメータ (Saito et al., 2015) より計算される HHA のカルボキシル基型サイトのモ ル濃度と Eu 濃度の比

衣 5.4-5 未什的 2 十侠	上奴の計昇に	を用したハリメータ
$K_{ m H,\ HHA}$	3.63	Saito et al., 2015
$\log\!eta_{ m H1}$	10.24	Morel et al., 1993
$\log\!eta_{ m H2}$	16.25	Morel et al., 1993
$\log\!m{ heta}_{ m H3}$	19.05	Morel et al., 1993
$\log\!m{ heta}_{ m H4}$	21.54	Morel et al., 1993
$\log\!K_{ m EuEDTA}$	20.65	Thakur et al., 2014
$\log m{eta}_{ m OH1}$ (EuOH ²⁺)	6.36	Smith et al., 1989
$\log\!eta_{ m OH2}({ m Eu}({ m OH})_{2}{}^{+})$	12.9	Smith et al., 1989
$\log eta_{ m OH3}$ (Eu(OH) ₃ 0)	18.3	Smith et al., 1989
$\log \beta_{\rm OH4} ({\rm Eu}({\rm OH})_4 \cdot)$	19.8	Smith et al., 1989

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

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

令和2年度までに、4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。 一方で、測定試料はキャピラリーに圧力導入されるため、CE-ICPMSとして微量分析を行う際に はその定量性を向上させる必要がある。そこで令和3年度は、令和2年度までに整備されたCE-ICPMSシステムにレオダイン製インジェクションバルブを適用できるように改良し、HHAと金 属イオンの錯生成データの定量性向上を図った。改良したCE-ICPMSシステムの概略図を図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。定量性を向上させるためのインジェクションバルブを図中のクロ スインターフェースに接続すると、流路が直交したためか全量がICP-MSに導入されなかった。よ って、定量注入時はクロスインターフェースを介さず、インジェクションバルブを直接ネブライ ザーに接続することとした。インジェクションバルブのサンプルループの容量は2ulである。FFF-ICPMS法による結果の比較検討も念頭に置き、HHAとEu³⁺、競合配位子としてEDTAを混合した 系にCEを適用し、Eu³⁺/フミン酸錯体とEu³⁺/EDTA錯体を分離し定量することで、HHAに対する Eu³⁺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Zr⁴⁺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。本試験に供した試料と 測定条件を表3.4-4に示す。



HHA濃度 (mg/L)	Eu ³⁺ 濃度 (µM)	рН	EDTA濃度 (µM)	印加電圧 (kV)
40	0.06	6.02	0.1	-15
注入圧力 (mbar)	注入時間 (秒)	キャピラリー内径 (µm)	キャピラリー長 (cm)	測定時間 (秒)
50	30	50	62	1200

表 3.4-4 CE-ICPMSの測定に供した試料のリストと測定条件

図 3.4-5 に、Eu 濃度 5 ppb の EuEDTA 溶液を 2µl 定量注入した際の ICPMS のフラクトグラ ムを示す。この結果より、定量注入の再現性が確認されるとともに、本試験系における ICPMS の カウントあたりの Eu の物質量が計算される。また、圧力法によるキャピラリーへのサンプル注 入量 Vinj は下記の式で計算される(北川ほか, 2010)。これらの値を用いることで、キャピラリ ー壁面や電気二重層と相互作用しフラクトグラムに現れてこなかった Eu の影響を排除して見か けの平衡定数を導出した。

$$V_{inj} = \pi r^2 \frac{\Delta P r^2 t_{inj}}{8\eta L} \tag{3.4-13}$$

- r: キャピラリー内径の半径 [m]
- L: キャピラリー長 [m]
- ΔP: 注入圧力 [N·m⁻²]
- t_{inj}: 注入時間 [s]
- η: 粘性率[N•s•m⁻²]





図 3.4・6 に、EDTA、HHA 共存下における Eu³⁺のフラクトグラムを示す。この図において、測 定時間 250 秒付近のシャープなピークが Eu・EDTA のピークと判断される。また、HHA は広範 な分子量分布を持つために Eu・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 Eu の加水分解種の存在量が極めて少ないことから、400 秒から 800 秒付近の比較的ブ ロードなピークは Eu・HHA 錯体のピークであり、HHA の存在によって、Eu・EDTA 錯体から Eu・ HHA 錯体への交換反応が起こっていることが確認できる。それぞれのピークの面積から Eu 錯体 の物質量を計算し、サンプル注入量 V_{nj}を乗ずることで Eu・EDTA、Eu・HHA の濃度を決定した。 式(3.4-12)から見かけの錯生成定数を導出した結果を、FFF・ICPMS、および CE・ICPMS によっ て導出した Zr⁴⁺と HHA の見かけの錯生成定数とともに表 3.4・5 にまとめた。

CE-ICPMS によって導出した Eu³⁺と HHA の見かけの錯生成定数は、同じ pH6 において FFF-ICPMS によって導出した結果よりも、2 桁程度大きな値となった。これは主に Eu-EDTA 錯体と Eu-HHA 錯体の交換反応の平衡定数 (*Kexch*)の差に起因しており、Zr-EDTA と Zr-HHA の交 換反応の平衡定数を比較しても、やはり CE-ICPMS により導出した値が 1 桁程度大きい。これ は、FFF-ICPMS では回収できた一部の HHA 画分と同等の錯生成能を回収できなかった画分に 仮定して平衡定数を評価しているのに対し、CE-ICPMS では導入した HHA のほぼ全量を対象に 平衡定数を評価できている。すなわち、FFF で回収可能な分子量の大きな画分よりも、回収でき ない分子量の小さな画分 (300 Da 未満)の方が高い錯生成能を有していることが考えられる。特 に Eu³⁺については、FFF-ICPMS において比較的大きなサイズの HHA と結合した Eu を検出し ていることから、Zr⁴⁺の場合と比較して CE-ICPMS と FFF-ICPMS による見かけの平衡定数の 差が大きくなったこととも整合的である。これは同時に、一般的な腐植物質によく知られている 高分子電解質効果の寄与が極めて小さいことを意味していると考えられる。

今後、CE-ICPMSによるHHAの錯生成データをEu、Zrを対象にさらに拡充し、NICA-Donnan モデルによるフィッティングから導出したモデルパラメータの比較検討を行うことで、より信頼 性の高い有機物影響評価モデルを構築していく必要がある。



図 3.4-6 CE-ICPMSから取得したEu³⁺のフラクトグラム

	$C_{\mathrm{T, M}}(\mu\mathrm{M})$	[COOH]/[M]モル比	${ m log}K_{ m exch}$	${ m log}K_{ m c}$				
	Eu ³⁺ pH 6	$(C_{\rm T}.{\rm EDTA} = 0.25 \ \mu{ m M}$	(Iv					
	0.10	889	-8.87	11.8				
	0.05	1778	-7.92	12.7				
FFF-ICDMS	0.02	4446	-8.24	12.4				
	Zr ⁴⁺ pH 6	Zr^{4+} pH 6 (C_T .EDTA = 0.25 μ M) *						
	0.110	796	-7.30	21.9				
	0.055	1593	-7.20	22.1				
	0.022	3982	-6.20	23.0				
	Eu ³⁺ pH 6 ($C_{\rm T}$.EDTA = 0.10 μ M)							
	0.06	2177	-6.66	13.99				
CF-ICDMS	Zr^{4+} pH 6 (C_T .EDTA = 0.30 μ M) *							
		325	-6.56	22.69				
	0.110	651	-6.35	22.90				
		976	-6.52	22.72				

表 3.4-5 HHAへのZr⁴⁺結合反応の条件付き平衡定数

*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, 2021

③ Eu (III) 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HHAへのEu³⁺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3.4-7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、FFFの状態の一時的な変化等、偶発的な原因による外れ値と思われる pH 6、 $C_{\Gamma,Eu} = 0.05 \mu$ Mの試料を除いた全データに対して、低親和性サイト(カルボキシル基型 サイト)への結合のみ考慮して行った。NICA-Donnanモデルは、pH 7、 $C_{\Gamma,Eu} = 0.10 \mu$ Mの試料 を除き、おおむねFFF-ICPMSで得られた B_{Eu+HHA} を再現できている。一方、最適化されたlog \tilde{K}_1 の 値は-6.68と小さく、信頼幅も非常に大きいことから、パラメータを十分拘束できていないことが わかる。表3.4-6には溶媒抽出法およびTRLFSによって求めた、HHAに対するEu³⁺の錯生成(結 合)量から得られたNICA-Donnanモデルパラメータを比較のために示した(日本原子力研究開発 機構、2018a)本試験で得られたlog \tilde{K}_1 および n_1 の値は先行研究のものよりも小さい。この結果は、 前述したようにEu³⁺に対するHHAの錯生成能に対して、EDTA錯体の安定度定数が大きく、HHA 錯体が十分形成しなかったことによるものと言える。

今後、FFF-ICPMSによって信頼性の高いEu³⁺とHHAのNICA-Donnanモデルパラメータを決 定するためには、EDTAよりも錯生成能の弱い競合配位子を選定する必要がある。また、Eu³⁺自 体の加水分解は令和2年度に対象としたZr⁴⁺よりも小さく、HHA共存下で沈殿を形成しない可能 性もあることから、競合配位子無しの条件での実験も検討すべきであると思われる。また、CE-ICPMSによる錯生成データの取得も並行して進め、NICA-Donnanモデルパラメータの決定にお ける評価手法の妥当性を確認し、モデルパラメータの信頼性を向上させていく必要がある。



図 3.4-7 pH 6、7におけるHHAに対するEu³⁺結合量へのNICA-Donnanモデルによるフィッティ ングの結果 (*C*_{EDTA} = 0.25 µM)

表 3.4-6 HHAに対するEu³⁺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 param	eter						
Donnan, $b^{(i)}$		0.81					
	Site	1	Site 2				
$Q_{ m max,\ H}$ (i)	4.3	8	4.4	4			
$p^{(\mathrm{i})}$	1		0.5	36			
Ion specific par	rameters						
	$\log ilde{K}_1$	n 1	$\log \tilde{K}_2$	n 2			
H+ (i)	3.74	0.82	10.62	1			
Cu ^{2+ (i)}	1.16	1	15.05	0.29			
$\mathrm{Zr}^{4+\mathrm{(ii)}}$	7.93	0.30	22.80	0.57			
Eu^{3+} , (iii, iv)	-6.68 (23)	0.22(0.3)	-	-			
Eu ^{3+ (V)}	0.95	0.72	11.53	0.41			
i.	Bryan et al	., 1998					
ii.	日本原子力研	研究開発機構・	原子力環境	意整備促進・			
	資金管理セン	ンター, 2020					
iii.	本試験. R ² =	= 0.70					
iv.	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	パラメータの誤	差を表す.				
V.	日本原子力研	研究開発機構,	2018				

(3) 核種 - 有機物 - 岩三元系における核種収着モデルの開発

天然有機物による核種移行への影響を現実的に評価するには、核種の岩石への収着に対する天 然有機物による影響を定量的に評価する必要がある。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3種類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3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および 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ず、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およ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の堆積岩および 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(宮川ほか, 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)に用いられた液相の条件は、幌延の深部地下水とは 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。そこで、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における核種の収着に与える有機物影響評価について 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溶液を 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、物理的 およ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)および幌延URLの深度250m地点の地下水から採取されたHA(HHA)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3.4-7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63µm以下に分画化したものを用いた。炭酸濃度はNaHCO3およびNa2CO3を加えて調整 し、これらの添加比率を変えるあるいはNaOHを添加することでpH調整を行った。固相分離は孔 径0.45µm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(Ka)を計算した。

令和2年度には、HAを含む系においても、EuのKaがpHの増加とともに減少した後、増加に転 じるという複雑な挙動が示され、Euの収着機構が単純ではないことが予想された。この系だけで なく広い条件で成立する収着モデルを確立するために、反応機構を明らかにした上で収着モデル を作成する必要がある。そのため令和3年度は、反応機構に関する情報を得るため、炭酸濃度およ びHA濃度が異なる条件のEuのKaを取得した。

Eu初期濃度/moldm ⁻³	6.5×10^{-7}
	0.9 ~ 10
HA濃度/ mg dm ⁻³	10, 50
イオン強度/ mol dm ⁻³	$2.0 imes 10^{-2}$
全炭酸濃度/ mol dm ⁻³	$5.0 imes 10^{-4}$ - $5.0 imes 10^{-2}$
pH	$9 {\pm} 0.3$
固液比/gdm⁻3	1.0
遠沈管材質	テフロン

表 3.4-7 収着試験の条件





岩石へのEuのKaの炭酸濃度依存性を調べた結果を図3.4・8に示す。HA無添加の系では、炭酸濃 度の増加とともにKaが大きく低下し、HAが共存する系では、HA無添加の系に比べてKaが減少し た。このHA共存時のKaの減少は、HAを添加したことによって水溶液中のEuの化学種として岩石 に収着しにくいHA錯体が支配的になることが原因と考えられた。その効果はHHAよりもLHAの 方が大きく、Euとの錯形成能の違いを反映していると考えられた。HAによるKaの減少効果は炭 酸濃度が高くなるほど低下していることから、炭酸錯体の形成がHA錯体の形成を阻害していると 考えられるが、HHAでは明らかにKaに対し炭酸濃度依存性が認められる一方で、LHAでは一見し てKaに炭酸濃度依存性がほとんど見られなかった。収着モデルおよび反応機構の検討のために、 この系においてHAを添加したことによって起こり得る反応として、Eu・HA錯体の形成、Eu・ CO3・HA錯体の形成およびEu-HA錯体の岩石への収着を想定した収着モデルを作成し、実験値Ka の再現を試みた。

ここで、Eu-HA錯体の錯形成反応を式(3.4-14)で表し、その錯生成定数は式(3.4-15)で表される。

$$Eu^{3+} + HA \rightleftharpoons EuHA$$
 (3.4-14)

$$K_{\rm EuHA} = \frac{[{\rm EuHA}]}{[{\rm Eu}^{3+}][{\rm HA}]}$$
 (3.4-15)

また、Eu-CO3-HA錯体の錯形成反応は式(3.4-16)で表し、その錯生成定数は式(3.4-17)で表される。

$$Eu^{3+} + CO_{3^{2-}} + HA \rightleftharpoons Eu(CO_{3})(HA)$$
(3.4-16)

$$K_{\rm EuCO3HA} = \frac{[\rm Eu(\rm CO_3)(\rm HA)]}{[\rm Eu^{3+}][\rm CO_{3^2}][\rm HA]}$$
(3.4-17)

Eu-HA錯体の岩石への収着は、岩石に収着した**Eu-HA**錯体の濃度を[**EuHA**_{rock}]として式(3.4-18) のように表し、その平衡定数は式(3.4-19)となる。

$$EuHA \rightleftharpoons EuHA_{rock}$$
 (3.4-18)

$$K_{\rm d,EuHA} = \frac{[\rm EuHA_{\rm rock}]}{[\rm EuHA]}$$
(3.4-19)

まず、HA錯体以外のEu化学種の濃度をまとめて次式(3.4·20)のように置換した。Euの化学種としては、Nagra/PSIの熱力学データベースに安定度定数が記載されている化学種を用いた(表3.4-8)。

$$[Eu^{3+}] + [EuCl^{2+}] + [EuCl^{2+}] + [Eu(OH)^{2+}] + [Eu(OH)^{2+}] + [Eu(OH)^{3}] + [Eu(OH)^{4-}] + [Eu(CO^{3})^{+}] + [Eu(CO^{3})^{2-}] = a$$
(3.4-20)

Eu-岩石二元系の収着において、Euの具体的な収着化学種には言及せず、Eu-岩石二元系の収着係数*K*_{0,2}は、岩石に収着したEu濃度を[Eurock,2]として次のように表せる。

$$K_{d,2} = \frac{[Eu_{rock,2}]}{a}$$
 (3.4-21)

Eu-HA・岩石三元系の収着においては、Eu-HA錯体が収着しないとした場合、Euの収着化学種 は二元系と同じであり、液相中の化学種としてEu-HA錯体が加わるので、Eu-HA・岩石三元系の収 着係数*K*d,3は次のように表せる。

$$K_{d,3} = \frac{[Eu_{rock,2}]}{a + [EuHA]}$$
(3.4-22)

ここで、EuCl²⁺、EuCl₂+、Eu(OH)²⁺、Eu(OH)₂+、Eu(OH)₃、Eu(OH)₄-、Eu(CO₃)+およびEu(CO₃)₂-の錯生成定数をそれぞれ*K*_{EuCl,1}、*K*_{EuCl,2}、*K*_{EuOH,1}、*K*_{EuOH,2}、*K*_{EuOH,3}、*K*_{EuOH,4}、*K*_{EuCO3,1}および *K*_{EuCO3,2}とし、炭酸の2段階の酸解離定数および水相中の全炭酸濃度をそれぞれ*K*_{a1}、*K*_{a2}および *C*_{CO3,t}とすると、二元系での水相中のEu化学種濃度の合計aは

$$a = [Eu^{3+}] \left\{ 1 + K_{EuCl,1} [Cl] + K_{EuCl,2} [Cl]^{2} + \frac{K_{EuOH,1}}{[H^{+}]} + \frac{K_{EuOH,2}}{[H^{+}]^{2}} + \frac{K_{EuOH,3}}{[H^{+}]^{3}} + \frac{K_{EuOH,4}}{[H^{+}]^{4}} + K_{EuC03,1} \frac{C_{CO3,t} K_{a1} K_{a2}}{[H^{+}]^{2} + K_{a1} [H^{+}] + K_{a1} K_{a2}} + K_{EuC03,2} \left(\frac{C_{CO3,t} K_{a1} K_{a2}}{[H^{+}]^{2} + K_{a1} [H^{+}] + K_{a1} K_{a2}} \right)^{2} \right\}$$

$$(3.4-23)$$

となることから、水相中のEu化学種濃度を表す係数として新たに a を設定し、

$$a = \frac{a}{[Eu^{3+}]}$$
 (3.4-24)

と置くと、式(3.4-22)は、式(3.4-19)および式(3.4-24)を用いて次のように表せる。

$$K_{\rm d,3} = \frac{K_{\rm d,2} \cdot \alpha}{\alpha + K_{\rm EuHA}[{\rm HA}]}$$
(3.4-25)

岩石に収着しないEu-CO3・HA錯体の形成を考慮した場合、Kd,3は次のように表せる。

$$K_{d,3} = \frac{[Eu_{rock,2}]}{a + [EuHA] + [Eu(CO_3)(HA)]}$$

=
$$\frac{K_{d,2} \cdot a}{a + K_{EuHA}[HA] + K_{EuCO3HA}[HA] \left(\frac{C_{CO3,t} K_{a1}K_{a2}}{[H^+]^2 + K_{a1}[H^+] + K_{a1}K_{a2}}\right)$$
(3.4-26)

Eu-HA錯体の岩石への収着を考慮した場合は、Kd,3は次のように表せる。

$$K_{d,3} = \frac{[Eu_{rock,2}] + [EuHA_{rock}]}{a + [EuHA]} = \frac{K_{d,2} \cdot a + K_{d,EuHA} K_{EuHA} [HA]}{a + K_{EuHA} [HA]}$$
(3.4-27)

Eu-HA錯体の岩石への収着に加えて、**Eu-CO**₃-**HA**錯体の形成を考慮した場合、*K*_{d,3}は次のように 表せる。

$$K_{d,3} = \frac{[Eu_{rock,2}] + [EuHA_{rock}]}{a + [EuHA] + [Eu(CO_3)(HA)]}$$
(3.4-28)



これら式(3.4·25)から式(3.4·28)の収着モデル式に基づき、平衡定数*K*EuHA、*K*EuCO3HAおよび *K*4,EuHAをフィッティングパラメータとして非線形最小二乗フィッティングを行い、実験値の再現 を試みた。フィッティングの結果は図3.4·8に折れ線として示し、計算された平衡定数を表3.4·8に 示す。LHAとHHAの両方とも、Eu-HA錯体とEu-CO3-HA錯体の2種類の錯生成を考慮したモデル では、Eu-HA錯体の収着の有無にかかわらず、実験値の再現性が高かった。Eu-HA錯体の収着に ついては、LHAではHA錯体1種類(Eu-HA錯体)および2種類(Eu-HA錯体およびEu-CO3-HA錯 体)の形成を考慮した両方の場合において実験値の再現性が高かった。一方で、HHAでは2種類 の錯形成を考慮しないと実験値をうまく再現できなかった。また、HHAの錯生成定数の値は、Eu-HA錯体の収着を考慮した場合には約20と算出されたが、これはHAよりも錯生成能が明らかに大 きいEDTAに匹敵するほど大きな値であり、現実的ではない。したがって、HHAに関しては、Eu-HA錯体の収着が起きているとは考えにくい。よって、考えられる三元系での収着機構として、 LHAにおいては、Eu-CO3-HA錯体の生成とEu-HA錯体の収着のどちらかあるいは両方が、HHA においては、Eu-CO3-HA錯体の生成が関与していることが示唆された。

		反応	文献
$\log K_{\mathrm{Cl},1}$	1.1	$Eu^{3+} + Cl^- \rightleftarrows EuCl^{2+}$	Hummel et al., 2002
$\log K_{\mathrm{Cl},2}$	1.5	$Eu^{3+} + 2Cl^- \rightleftarrows EuCl_{2^+}$	Hummel et al., 2002
$\log K_{\rm OH,1}$	-7.64	$\mathrm{Eu^{3+} + H_2O(l)} \rightleftharpoons \mathrm{EuOH^{2+} + H^+}$	Hummel et al., 2002
$\log K_{\rm OH,2}$	-15.1	$\mathrm{Eu^{3+} + 2H_2O(l)} \rightleftharpoons \mathrm{Eu(OH)_{2^+} + 2H^+}$	Hummel et al., 2002
log Koh,3	-23.7	$Eu^{3+} + 3H_2O(1) \rightleftharpoons Eu(OH)_3 + 3H^+$	Hummel et al., 2002
$\log K_{\rm OH,4}$	-36.2	$\mathrm{Eu^{3+}} + 4\mathrm{H_2O(l)} \rightleftharpoons \mathrm{Eu(OH)_{4^-}} + 4\mathrm{H^+}$	Hummel et al., 2002
log <i>K</i> CO3,1	8.1	$Eu^{3+} + CO_{3^{2-}} \rightleftharpoons EuCO_{3^{+}}$	Hummel et al., 2002
$\log K_{\rm CO3,2}$	12.1	$\mathrm{Eu^{3+}} + 2\mathrm{CO_{3^{2-}}} \rightleftharpoons \mathrm{Eu}(\mathrm{CO_{3}})_{2^{-}}$	Hummel et al., 2002
$\log K_{ m a,LHA}$	4.59	$(LHA)(H^+) \rightleftarrows LHA + H^+$	Sonke and Salters, 2006
$\log K_{ m a,HHA}$	4.79	$(\rm HHA)(\rm H^+)\rightleftarrows \rm HHA + \rm H^+$	日本原子力研究開発 機構, 2018a
LHAのカルボキシル 基濃度 /meq g-1	3.15		Sonke and Salters, 2006
HHAのカルボキシル 基濃度 /meq g-1	4.38		日本原子力研究開発 機構, 2018a

表 3.4-8 非線形最小二乗フィッティングに使用した定数

		EuHA		EuHAとEu(CO ₃)(HA)		
		$10 \mathrm{~mg~L^{-1}}$	$50~{ m mg}~{ m L}^{-1}$	$10 \text{ mg } \mathrm{L}^{-1}$	$50~{ m mg}~{ m L}^{-1}$	
LHA	EuHA の収着なし					
	$\log \left(K_{\rm EuHA} / { m M}^{-1} ight)$	10.98 ± 0.11	11.83 ± 0.10	10.82 ± 0.05	11.65 ± 0.06	
	$\log \left(K_{ m EuCO3HA}/ m M^{-2} ight)$	-	-	14.27 ± 0.08	14.55 ± 0.12	
	EuHAの収着あり					
	$\log \left(K_{\rm EuHA} / { m M}^{-1} ight)$	12.07 ± 0.27	12.33 ± 0.02	10.82 ± 0.05	11.65 ± 0.06	
	$\log \left(K_{ m EuCO3HA}/ m M^{-2} ight)$	-	-	14.27 ± 0.08	14.55 ± 0.12	
	$\log \mathit{K}_{ m d,EuHA}$	0.0051	-0.72	-0.088	-0.75	
		± 0.0479	± 0.01	± 0.086	± 0.02	
HHA	EuHA の収着なし					
	$\log\left(K_{ m EuHA}/ m M^{-1} ight)$	-	8.82 ± 0.28	-	8.34 ± 0.22	
	$\log \left(K_{ m EuCO3HA}/ m M^{-2} ight)$	-	-	-	13.06 ± 0.12	
	EuHAの収着あり					
	$\log \left(K_{\rm EuHA} / { m M}^{-1} ight)$	-	9.52 ± 0.01	-	19.02 ± 2.14	
	$\log \left(K_{ m EuCO3HA}/ m M^{-2} ight)$	-	-	-	22.74 ± 2.14	
	$\log \mathit{K}_{\mathrm{d,EuHA}}$	-	0.75 ± 0.01	-	1.12 ± 0.08	

表 3.4-9 非線形最小二乗フィッティングで求められた平衡定数

上記検討において、液相の条件によってはHAによるKaの減少効果が大きいことが示された。今後、その効果を反映したモデルを確立する上で、Eu-HA錯体の収着やEu-CO₃-HA錯体の生成の有無とその定量化等、三元系収着の反応機構の詳細について検討を進める必要がある。

(4) これまでの成果と今後の課題

令和3年度は、FFF-ICPMS法を用いてEu³⁺と幌延深部地下水から分離・精製したフミン酸との 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、定量性を向上させたCE-ICPMS法により、Eu³⁺と幌延深部地下水フミン 酸の錯生成データから、見かけの錯生成定数を導出し、幌延深部地下水フミン酸の錯生成におい て、一般の腐植物質によく知られている高分子電解質効果の寄与が極めて小さい可能性を指摘し た。また、炭酸イオン濃度に着目してEu(III)-HA-幌延深部堆積岩を用いたバッチ試験を行って結 果の解釈を進め、Eu-HA錯体の収着やEu-CO₃-HA錯体の形成が収着機構に関与している可能性を 指摘した。

これまでの4年間で、4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Zr⁴⁺との結合による 幌延深部地下水フミン酸の構造変化や、熱量滴定法によるZr⁴⁺の加水分解反応熱力学量等、Zr⁴⁺と 腐植物質の錯生成反応機構の理解に資するデータの取得を進めた。核種 ・ 有機物 ・ 岩三元系で の核種収着モデルの開発については、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、より信頼性の高い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、分子量の小さな幌延深部地下水フミン酸・フルボ酸について、試料の損 失が少ないCE-ICPMS法による錯生成データを拡充し、これまでに整備されてきたNICA-Donnanモデルパラメータと比較検討し、妥当性の確認を進めていく必要がある。4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・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、現実的に適用可能な三元系モデルの構築に貢献するため、Eu-HA錯体の収着やEu-CO₃・HA錯体の形成の可能性を含めた詳細な反応機構の検討を進めていく。

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 ールドおよび天然バリアには、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; 2005; West et al., 2002)。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および放射性核種の移行等が想定されており(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 Aspö Hard Rock Laboratory (以下、[Aspö HRL] という)、日本では幌延URLや瑞浪超深地層研究所地下施設を対象とした原位置試験および室内試 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 and 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(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, 2021)。 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3.4-9)。微生物と核種を含む元素の相互作用反応としては、①細胞表面 への収着(biosorption)、②濃集(bioaccumulation)、③酸化還元反応による形態変換 (bioreduction/oxidation)および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および地下施設建 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。令和 3年度は、令和2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、 バイオ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。また、微生物代謝が地下水の水質形成に及ぼす影響を 評価するために、地下環境における微生物の空間分布と地下施設建設過程における経時変化につ いてデータを取得し、バイオフィルム形成領域や微生物代謝について評価した。



図 3.4-9 微生物と元素との相互作用の概念図

(2) 実施内容

令和2年度までの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、 バイオフィルムおよ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; 長尾ほか, 2013)。 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)および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および収着の 不可逆性に関係することが示されている(久野・笹本, 2010;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140mおよ び250 mのボーリング孔地下水(図 3.4-10)を対象として、地下水中に存在する無機・有機形態 の全コロイドの密度・バイオコロイドの密度および全コロイド・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; 2018a; 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4mから20m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および 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Candidatus Altiarchaeales(以下、[SM1]という)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等の硫黄 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 の異なる深度185mから採取した地下水試料を対象として(図3.4-11、表3.4-10)、全コロイド(無 機・有機・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。

令和3年度は、深度185mの地下水試料について、地下水中に存在する全コロイドのうち、バイ オコロイドへの核種の収着分配係数データを取得した。

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175.13-194.2m; 以 下、中間深度185mを記載)から、硝酸洗浄・オートクレ ーブ滅菌済みかつArガス置換を施した1 Lデュラン瓶12 本に地下水を採取し、数分間オーバーフローさせた後、酸 素が混入しないようにボトルを直ちに密閉し、脱酸素剤と ともに採取瓶を真空パック保存した。地下水採取容器は、 v線を高線量照射した際に安定性が良く物性が変化しにく い材質であるガラス容器(JIS R3503「ほうけい酸ガラス -1」に相当するDURAN®および黒キャップ(フェノール樹 脂製、パッキンはEPDM)を使用した。その後、線量53.5 -71.8 kGyのγ線滅菌処理をした地下水を、実験室にて、耐 圧ステンレス容器に嫌気的に移し替えて地下水中のコロ イドへの収着試験に供した。耐圧ステンレス容器は、使用 前にあらかじめ硝酸洗浄・オートクレーブ滅菌を施した 後、99.999%アルゴンガスで容器内の空気を置換した後 試験に用いた。試験には、アクチノイドと元素の挙動が類 似しており天然環境中でアクチノイドのアナログ元素と



されている希土類元素を用い、大気に触れないように希土類元素および亜セレン酸ナトリウムを 初期濃度約10 µg L⁻¹になるように γ 線滅菌地下水中に添加し、希土類元素のコロイドへの収着挙 動を評価した。希土類元素の添加には、多元素混合標準液(R-I, R-II, R-III, 和光純薬製)を用い た。これらの他元素混合標準液には硝酸が含まれているが、地下水試料が緩衝作用のある重炭酸 イオンが非常に高いため、標準液の添加によりpHの変化は確認されていない。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および未ろ過液(原液)を採取した。溶液試 料については、Na, K, Ca, Mg, Cl, HCO³, TOC, TIC, Total Fe, Fe²⁺, S²⁻等の一般水質分析を行っ た。希土類元素およびセレンについては、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、希土類元素およ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およびセレン濃度を 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。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⁻¹、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。



図 3.4-11 深度185 m (08E140C01孔区間3)から採取した地下水を対象としたコロイド収着試験 における希土類元素濃度の経時変化。全コロイド;地下水中に存在する全コロイド(無機/有機・ バイオコロイド)。無機/有機コロイド; 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(無機および生きたバイオコロイドを除く有機コロイド)。(a)全コロイド対象の無濾 過溶液、(b)全コロイド対象の孔径0.2 μmフィルターろ液、(c) 無機/有機コロイド対象の無濾過 溶液、(d) 無機/有機コロイド対象の孔径0.2 μmフィルターろ液.

セレンのコロイドへの収着挙動評価については、令和3年度に地下水試料中のセレン濃度の測定 方法について検討試験をおこなった。ICP-MSを用いてセレン濃度を測定する場合、CaやClがス ペクトル干渉するが、幌延地域の地下水中には、CaやClが高濃度で含まれており、これらの干渉 を考慮して濃度を算出する必要がある。特に、本試験で対象とする低濃度のセレンを測定する場 合には、地下水中の成分が干渉して、正しいセレン濃度を取得することができない。多原子イオ ン干渉を除去してデータを取得する方法として、ヘリウムモード(コリジョン)を使用した方法 が有効であることが知られているが、本事業で使用するICP-MSにはコリジョンリアクションモ ードでの測定に対応していない。そこで、検量線に対象試料の地下水を用いることや、希釈倍率 の検討により、高濃度のClやカルシウムを含む溶液についても、セレン濃度を測定できる条件を 検討した。本条件を用いて、次年度にセレンを対象とした収着データを取得する予定である。

地下水中のコロイドを対象とした希土類元素の収着試験結果を図3.4-11, 12, 13に示す。収着試 験過程の試験溶液中の希土類元素濃度を定期的に分析した結果、溶液中の希土類元素濃度は初期 濃度約7・8 µg L⁻¹で添加されており、無濾過の場合においても時間の経過とともに減少する傾向 を示した。投入時の予定濃度としていた10 μg L⁻¹から初期濃度が若干減少する理由としては、採 水容器の満水容量が11.8 Lであるが、対象とした地下水試料中に含まれているメタンおよび炭酸 ガスの影響により、各採水容器で地下水としての採水量に誤差が生じたことや、容器への瞬時収 着等の影響が考えられる。ただし、収着挙動の評価上は、試料採取毎に無濾過の溶液中の濃度と 0.2 mmフィルターろ液の分析値を比較しているため、容器収着の影響については考慮する必要が ないと判断している。全コロイドおよび無機/有機コロイドのいずれの試験においても、軽希土類 元素は添加後速やかにコロイドとともに存在し、重希土類元素は地下水溶液中に残存する傾向を 示すことが明らかになった(図3.4-11)。バイオコロイドを含まない溶液中では、全コロイドを含 む溶液と比較して、溶液に分配される希土類元素濃度が高くなる傾向が認められたことから、バ イオコロイドへの収着影響が寄与しているものと考えられる。無濾過溶液中の希土類元素濃度を 100%として、0.2 µmフィルターろ液中の希土類元素の残存率を算出したところ(図3.4-12)、全 コロイドを対象とした場合には、軽希土類元素は添加直後から数%程度しか溶液中に残存せず、 HoからLuまでの重希土類元素は10-40%程度溶液中に残存することが示された。それに対して、 バイオコロイドを含まない試験溶液においては、LaからEuまでの軽希土類では3-10%程度(Nd を除く)、重希土類については溶液中の残存率が約17 - 76%となり、バイオコロイドが存在する 場合と比較して高い値を示したことから、希土類元素の収着にはバイオコロイドが影響している ことが推察され、軽希土類で収着影響がより顕著になることが明らかになった。いずれの試料中 においても他の軽希土類元素と比較してNd濃度が高い値を示した要因については、現段階で明ら かになっていないが、希土類元素の添加には、初期濃度が同量含まれている標準溶液を用いてい ることから、Ndのみ初期添加濃度が異なることは考えにくい。試験対象とした地下水試料中の希 土類元素濃度測定結果からは、バックグラウンドの濃度は添加した濃度より2桁以上低い値である ことから、バックグラウンド濃度が試験溶液の分析値に影響を与えた可能性も考えにくい。地下 水中に高濃度で含まれているBa等、試験溶液中に共存する元素のスペクトル干渉により、ICP-MS での分析値が高くなっている可能性が考えられる。



図 3.4-12 孔径0.2 μmフィルターろ液中の希土類元素濃度の残存率の経時変化。(a)全コロイド; 地下水中に存在する全コロイド(無機/有機・バイオコロイド)。(b)無機/有機コロイド;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(無機およ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;生きた微生物細胞。

-A 0.1												
S	Cr	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	As	Se	Sr	Zr	Mo	Cd
792	0.609	368	0.217	0.696	2.08	2.09	0.035	0.135	646	0.717	0.179	<0.01
Sn	Cs	W	Pb	Ce	Nd	Sm	Eu	Gd	Lu	Th	U	
<0.1	0.312	0.069	0.034	0.030	0.016	0.0038	< 0.005	0.073	0.0013	0.0051	0.0034	

表 3.4-10 08-E140-C01号孔の区間3(深度185m)から採取した地下水中の微量元素濃度

取得した分配係数結果から、いずれ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、重希土類になるほど分配係数は低下した(図3.4-13)。収 着試験開始7日後の値を見ると、深度185mの地下水では、全コロイドの分配係数はlog Kd (m³/kg) として3.78 - 5.60、バイオコロイドの分配係数はlog Ka (m³/kg)として3.63 - 5.48の範囲で算出さ れ、無機コロイドの分配係数はlog Kd (m³/kg)として2.94 - 4.91の範囲で比較的低い値であった。 これまでの結果から、深度140mの地下水では、全コロイドの分配係数はlog Kd (m³/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 Kd (m³/kg)と して4.47-5.33の範囲で得られており、深度140mおよび250m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・重希土類元素でより高くなる傾向が確認された。バイオコロイドに希土類元素が収 着する要因としては、微生物細胞表面の細胞膜に含まれるリン酸基、カルボキシル基、ヒドロキ シル基およ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3.4-14; 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185mおよび140m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。令和3年度は、同試料中 のCe濃度の分析手法を再検討し、前処理過程で測定試料中の希釈倍率を変更することで、Ce濃度 の分析データを取得することができた(図3.4-11,13)。本試験で算出された全コロイド、無機コ ロイドおよ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 3.4-13 (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3.4-13(a), Tanaka et al., 2010)。図3.4-13(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。本試験で得られたコロイドへの希土類元素の収着パターンは、試験対象とした幌延 URLの地下水中に高濃度の重炭酸イオンが含まれているため、重希土類が炭酸錯体を形成するこ とによって、既存の報告と異なる収着パターンを示したものと考えられる。また、図3.4-11, 12に 示すような、バイオコロイドによる希土類元素の収着挙動影響については、Takahashi et al. (2010)やTanaka et al., (2010)の報告から、レアアースはカルボキシル基(COO) よりもリン酸 基により強く吸着することが明らかにされていることから、本試験においても、図3.4-14で示す ように、微生物細胞表面の細胞壁に多く存在するリン酸基に希土類元素が吸着あるいは濃集する 現象が生じていることが推定される。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 3.4-13 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・バイオコロイド)。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 (無機およ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



図 3.4-14 微生物細胞表面で生じている元素との相互作用の概念図 細胞表面の細胞壁に多く存在するリン酸基が収着・濃集に関与している.

2) 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。令和2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本のボーリ ング孔(08-E140-C01孔,07-V140-M03孔,09-V250-M02孔,13-350-C01孔)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遺伝子解析およびメタゲノム解析を 実施している(図3.4-10)。地下水の採取深度を以下に記す。

- 08-E140-C01孔(以下、[08E140C01]という)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]という):140m、09-V250-M02孔(以下、[09V250M02] という):250m
- 13-350-C01孔(以下、[13350C01]という):350 m

令和3年度も継続して、孔径0.2 μmのメンブレンフィルター(GVWP; Millipore)上に捕集した 微生物細胞を対象として、微生物多様性およ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。

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)および区間1(深度214 m)、09V250M02孔(深度250 m) では、微生物群集種が6年間で著しく変化していることが示された(図3.4-15)。一方で、深度140 m、185mおよび350m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3.4-15)。水質については、Na、Cl等の一般成分はボ 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等が関係していると考えられる。令和2年度に、生態系内の生物種組 成と環境要因との関係を統計学的に解析する手法として、正準対応分析(Canonical Correspondence Analysis: CCA)を実施したところ、深度214 mの地下水試料は、微生物群集組 成と鉄との相関が認められた。令和3年度までの微生物群集組成解析結果から、本採取区間では、 嫌気的メタン酸化菌として知られているCandidatus Methanoperedens (ANME-2d)が優占種と して存在しており、本種はメタゲノム解析結果から、メタン酸化と鉄還元反応を行う種であるこ とが推定されている。本区間の鉄濃度は、採取後の酸化影響を排除するために、微生物分析のた めの試料採取時に、採取直後に現場にて全鉄および2価鉄を分析している。その結果、本区間の鉄 濃度は著しく変動していることが確認されていることから、本区間の微生物群集組成は、鉄濃度 に影響を受けていると考えられる。本区間では、他の区間と異なり、粘土質の粒子を含む地下水 が採取されており、XRDの分析結果からこの粘土粒子はモンモリロナイトを含むことが確認され ている。また、本区間の地下水中の微生物を蛍光顕微鏡で観察すると、ろ紙上に直接捕集される のではなく、地下水中に存在していた鉱物粒子に付着するように存在する様子が確認されたこと

から(図3.4-16)、本区間に存在している微生物(おそらく主にANME-2d)は、モンモリロナイトのような粘土鉱物中に取り込まれた3価鉄を用いた代謝反応を行っていると考えられる。



図 3.4-15 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


図 3.4-16 08-E140-C01号孔の区間1 (深度214 m) から採取した地下水の蛍光顕微鏡像. 孔径0.2 µmフィルターにて地下水1 mlをろ過し、細胞をアクリジンオレンジにて染色. 黄色およ び黄緑色に観察される粒子が微生物細胞、赤色は地下水中の微細粒子. 赤色の鉱物粒子に微生物 細胞が集まっており、フィルター上(黒色部分)にはほとんど微生物粒子が観察されないことか ら、原位置の地下環境でもこれらの微生物種は岩石に付着して生息している可能性が高い。

一方で、深度185mの地下水試料では、微生物群集組成に大きな変化は認められず、優占種とし てDeltaproteobacteria、 Betaproteobacteria、 Methanomicrobiaで構成されていることがしめ された(図3.4-15)。Deltaproteobacteriaは、主に硫酸還元等の硫黄代謝反応をおこなう種が分 類されており、本試料中の56.4%が*Deltaproteobacteria*に属することが明らかになった。採取試 料の走査型電子顕微鏡観察結果から、185 m地下水中からは多くの鉄硫黄鉱物が観察されており (図3.4-17(a, b, c)) その形状は生物由来とされているフランボイダル状であることから、地下水 中で*Deltaproteobacteria*を含む硫酸還元菌により生じた硫酸(あるいは硫黄)還元反応により、 硫化水素が生成され、地下環境中の鉄との相互作用によりパイライトが形成されたものと推察さ れた。Deltaproteobacteriaに属する種を系統分類上の属レベルでみると、全体の55%が Syntrophus属に属する種で占められていることが明らかになった。Syntrophus属は、一般的にグ ラム陰性嫌気性非運動性の桿菌であり、酢酸・ギ酸・二酸化炭素・水素の生成反応に関わる代謝 を行い、水素を消費する微生物と共生することが知られている。本試験で検出されている種は、 既存の培養種との相同性が低いため、新種の可能性が高く、詳細な代謝反応は明らかになってい ない。Methanomicrobiaは、メタン生成をおこなう古細菌であり、本試料中では約3-10%の検出 率であるが、検出されている種に近縁な培養種は、主に水素やギ酸を基質としてメタン生成を行 うことが知られている。そこで、SyntrophusとMethanomicrobiaの構成比に相関性があるか否か を確認したところ、比較的高い相関結果を示した(図3.4-18)。一般的に、群集組成結果において それぞれの種が相関性を高い相関性を示すことは多くなく、もう一種の優占種である Betaproteobacteriaとの相関性は非常に低い結果を示したことから(図3.4-18)、原位置環境にお いてSyntrophusはMethanomicrobiaと共生関係にあり、Syntrophusが生成するギ酸や水素等を 用いて*Methanomicrobia*がメタン生成反応をおこなっている可能性が示唆された。



図 3.4-17 08-E140-C01号孔の区間3(深度185 m)から採取した地下水のFE-SEM観察像 (a,b,d,f,h,l,j) およびEDS分析結果 (c, e, g, k). (c) bのオレンジ領域の分析結果、(e) dのオレンジ 領域の分析結果, (g) fのオレンジ領域の分析結果, (k) jのオレンジ領域の分析結果.

そのほか、優占種として検出されている*Betaproteobacteria*は、その構成比が約3%から15%で あり、系統分類の属レベルでは*Rhodocyclales*に比較的近縁な種が検出されている。*Rhodocyclales* に属する種の中には、鉄酸化反応をおこなうものが報告されているが、本試験で実施した走査型 電子顕微鏡による観察結果から、同試料中に存在する微生物細胞の表面を、球状の鉄のナノ粒子 でびっしり覆われている様子が確認されている。SEM像で観察されたこれらの微生物細胞が、 Betaproteobacteriaに関連するものかどうかは顕微鏡観察結果のみからは判断できないが、この ような細胞は試料中に比較的多く観察されており、地下環境中に鉄のナノ粒子を形成する微生物 が存在することが示された。鉄のナノ粒子は核種を吸着させることにより、核種移行に影響を及 ぼす可能性がある。鉄のナノ粒子で覆われた微生物が運動能力を有しているか否かにより、核種 移行の影響は異なってくると考えられる。今後、ゲノム解析等により、これらの微生物の代謝機 能や生態学的な挙動について評価を進める必要があると考えられる。



図 3.4-18 深度185 m地下水中に優占するSyntrophusとメタン生成菌, Betaproteobacteriaの関係性

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孔および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20mの領域であったが(図3.4-15(b)、(c))、これら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(図3.4-15)。なお、13-350-C01孔については、深度350m坑道における作業工程の都合上、データ追加をしていないため、本報告書では図の掲載を割愛した。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20m以上離れた領域においても、SM1の割合が徐々に増加しており、この現象は、深度140mから掘削された掘削長100mのボーリング孔(08-E140-C01孔)で確認されるとともに、坑道に比較的近い採水区間(坑道壁面からの水平距離:16-25m)におい

て顕著に生じていることが明らかになった(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,2021)。令和3年度に実施した調査結果から、SM1の構成比は前年と比較して大 きく増加していることが確認され、バイオフィルムの形成領域が坑道壁面から離れた領域に拡大 するとともに、その現存量が増加していることが明らかになった(図3.4-15(a)。水質モニタリン グの結果からは、Na+等の一般成分や酸化還元電位等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や炭酸分圧の変化等が要因として考えられる。一方で、坑道 壁面近傍の領域でSM1の減少が認められた要因として、坑道近傍の水圧低下に伴う不飽和領域の 拡大により、栄養塩供給の減少や炭酸ガス濃度の低下が考えられた。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、タンパク質および脂質等を含む)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,2015)、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等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等の低分子有機物は、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等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CO2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CO₂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、岩盤中の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。

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

① 堆積岩内部の顕微鏡観察および微量元素分析

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、無機イオンおよ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; 2018a; 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、顕微鏡観察および菌計数等の 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10mの領域(幌延URL の事例では、約20m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、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、令和2年度から幌延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に着手した。

分析には、冷凍保存された地表からのボーリング岩石コア試料のうち、稚内層から採取された 10 OR-21(HDB10号孔,深度351.3 - 351.4 m)、B10 OR-30(HDB10号孔,深度521.6 - 521.8 m)、B9 OR-25 (HDB9号孔,深度519.7 - 520.0 m)、B11 OR-25(HDB11号孔,深度525.0 - 525.2 m)の4試料 を用いた。

コア試料から薄片を作成するために、LR-White樹脂(London Resin社製)でコア試料を包埋し たブロックを作成した。段階的に濃度の異なる樹脂で岩石試料を浸漬させ、最終的に100%の濃度 の樹脂で満たしたあと、真空デシケーター内でアルゴンガス置換と真空引きを3回繰り返した後、 真空にして48時間50℃の恒温槽内で固化させた。その後、ブロック試料をIsomet精密切断機

(BUEHLER社製)を用いて切断した。切断試料を溶解温度40℃の熱可塑性樹脂を使ってスライ ドグラスに固定した後、厚さ30 µmの薄片に加工した。薄片試料の片面研磨は、#2500番の研磨剤 まで行った。両面研磨は、湿式研磨と乾式研磨を組み合わせた研磨手法にて行った。乾式研磨は 「乾式研磨法による脆弱試料薄片の作成(特許第5633078号)」の手法を用いた。両面研磨は、ダイ ヤモンドペースト1 µmを用いて鏡面仕上げとした。厚さ2 mmの厚切り薄片への加工は、切断し た掘削コアのブロック試料をIsomet精密切断機アイソメットで切断して行った。その際に、厚切 り薄片の表面が、厚さ30 umの薄片の観察する面と対応するようにした。厚さ30 umの薄片中の 微生物細胞を可視化するために、細胞中のDNAの染色を行った。染色には、二重鎖DNAに結合し て強い蛍光を発するSYBR Green IをTEバッファー中で最終濃度の10倍に希釈した溶液を用いた。 40µl の10×SYBR Green Iを薄片上に乗せ、カバーガラスで覆った後、暗所で5分間反応させた。 超純水で洗浄した後、乾燥した薄片に退光防止剤のVectashield (Vector Laboratories社製).で覆 い、蛍光顕微鏡(Olympus BX51,オリンパス社製)を用いて蛍光と可視光で観察した。画像はCCD (Olympus DP71, オリンパス社製) で撮影し、画像取り込みソフトにはLuminaVision (三谷商 事社製)を用いた。厚さ2mmの厚切り薄片中の微生物細胞を可視化のために、厚さ30 µmの薄片 と同様にSYBR Green Iで処理し、細胞中のDNAの染色を行った。観察には、蛍光実体顕微鏡 (M205FA, ライカマイクロシステムズ社製)を用いた。画像は明視野・蛍光観察用カラーカメラ (Leica DFC310 FX, ライカマイクロシステムズ社) で撮影し、画像取り込みにはイメージング ソフトウェアLAS V3.1 (ライカマイクロシステムズ社)用いた。

蛍光顕微鏡で観察した領域について電子顕微鏡を用いて観察するために、100%エタノール中 でVectashieldを取り除き、50℃で乾燥後、一晩真空引きをおこなった。カーボン蒸着を行い、エ ネルギー分散型X線分光装置(Energy-Dispersive X-ray Specto)を用いた分析を行った。その結 果、厚さ30µmの薄片では、亀裂内部の微生物細胞を観察できなかったが、厚さ2mmの厚切り薄 片で微生物細胞の観察に成功した。厚さ2mmの薄片試料では、1000倍スケールでの極小領域を 対象とした蛍光顕微鏡による観察では試料の焦点をあわせることが極めて難しかったため、蛍光 実体顕微鏡(約650倍)を用いたところ、亀裂内部に染色された細胞がびっしりと分布する様子を 観察することができた(図3.4-19)。染色された亀裂は、コア試料の外側部分だけでなく、内側で も観察されていたことから、掘削時の掘削水による汚染由来ではないと考えられる。また、薄片 作成の際にできた人為的な割れ目においては、染色細胞を観察することができなかったことから、



図 3.4-19 稚内層の岩石コア試料の亀裂内部にて観察された微生物細胞. 蛍光緑色に染色され ている部分が微生物細胞であり、亀裂以外の領域では緑色の染色はほとんど観察されない。

蛍光顕微鏡観察を行った稚内層の薄片試料について、FE-SEMによる観察およびEDSによる元 素分析を実施した結果、亀裂のない岩石基質部分では、SiとOに富み、C, Na, Al, Mg等から構成 されていた。一方、亀裂内部の微生物の存在が示唆された領域の反射電子像からは、上記の元素 に加えてCに富む部分が多く、またSiに対して高いAlやMgが検出されたことから、粘土鉱物の存 在が示唆された。また、微生物濃集部の亀裂内部では、FeやSも検出された(図3.4-20)。これら の分析結果から、微生物細胞と粘土鉱物の存在領域に相関性があることが示唆されるとともに、 FeやSに関連する微生物代謝反応が生じていた可能性が考えられた。



図 3.4-20 深度351.3-525.15 mbglの稚内層の岩石薄片試料における蛍光顕微鏡観察像(左上) と同領域のFE-SEM観察による反射電子像(右上) (その1). 下は右上の図で示した点の岩石 基質部(緑丸)および亀裂部(赤丸)のEDSスペクトル。a) HDB-9号孔の深度519.86-519.96 m (B9 OR-25). b) HDB-10号孔の深度351.3-351.4 m.



図 3.4-20 深度351.3-525.15 mbglの稚内層の岩石薄片試料における蛍光顕微鏡観察像(左上) と同領域のFE-SEM観察による反射電子像(右上) (その2). 下は右上の図で示した点の岩石 基質部(緑丸)および亀裂部(赤丸)のEDSスペクトル。c) HDB-10号孔の深度521.6-521.75 m (B10 OR-30). d) HDB-11号孔の深度525-525.15 m (B11 OR-25)

-									
			亀裂部			岩石基質部			
	掘削孔	区間深度(m)		元素重量%			元素重量%		C: / A I
				AI	Si	Э/ AI –	AI	Si	SI/ AI
	HDB-9	519.86-519.96	塩水	4.30	15.74	3.7	5.76	35.89	6.2
	HDB-10	351.3-351.4	淡水	3.58	18.63	5.2	2 .17	25.36	11.7
	HDB-10	521.6-5211.75	淡水	1.15	2 .7 2	2.4	1.80	54.53	30.3
	HDB-11	525-525.15	塩水	6.67	15.18	2.3	3.12	35.5 2	11.4

表 3.4-11 観察・分析対象とした稚内層の岩石薄片試料におけるFE-SEMの組成分析によるSiと Alの元素重量比の結果。

令和2年度に予察的に実施した、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 分析においても、Si, Al, Mgの元素マッピング結果から、Siに対して高いAlやMgが検出されてお り、今回のEDS分析結果と整合するものであったことから、稚内層試料の亀裂内部において微生 物細胞と粘土鉱物の分布が一致していることを補強する結果が得られた。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., 2001)、後者の可能性も考えられる。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。

2) 堆積岩中の微生物現存量および群集組成解析

これまでに実施してきた地下試料中の微生物を対象とした遺伝子解析は、地下水試料を対象と したものであった。岩石内部における微生物の現存量やその種組成から微生物と核種との相互作 用に関する評価を行うために、令和3年度から岩石試料を対象とした微生物の遺伝子解析に着手し た。

遺伝子解析に用いた岩石試料は、幌延URLの深度350 mにおける試験坑道1の底盤から採取した。採取に際しては、水を用いず重機により坑底部を掘削し、ブロック状の堆積岩塊を取得した。 掘削水やボーリング掘削ツールによる汚染のない試料であることから、微生物分析を行う試料と しては非常に品質のよいものだと考えられる。ブロック状の堆積岩塊は、解析のためのDNA抽出 処理を行う直前まで-80℃の超低温冷凍庫にて冷凍保存した。DNA抽出に供する試料は、掘削時 や試料回収時の汚染を極力排除するために、オートクレーブ滅菌済みの鏨・スパチュラ・ピンセ ットやハンマー等を用いて外側部分を除去した後、岩塊の内側を採取した。岩石からのDNA抽出 には、1. 地下水からのDNA抽出に利用しているExtrapを用いた方法、2. ベントナイト等の粘土 を対象としたスキムミルクをブロッキング剤として用いる方法(日本原子力研究開発機構, 2018b)、3. アルカリ抽出法(Kouduka et al., 2012)の3種類の方法を用いた。

それぞれの方法を用いて岩石試料から抽出されたDNA量を表3.4-12に示す。いずれの方法を用いた場合でも、岩石中のDNA濃度は極めて低いことが明らかになった。スキムミルク法による抽出量が比較的多いことが示されたが、この手法はスキムミルク自体に含まれているDNAがバック グラウンド値として含まれており、スキムミルクのみのDNA濃度は0.076-0.089 µg/gとして検出 されていることから、岩石自体のDNA濃度は極めて低いと考えられる。したがって、岩石内部に 存在している微生物の現存量は、多くないことが推察された。

	DNA抽出法	DNA 濃度(µg/g)	標準偏差
1	Extrap	0.008	0.0005
2	スキムミルク法	0.108	0.0019
3	アルカリ抽出法	0.050	0.0043

表 3.4-12 幌延URLの深度350 mにおける岩石試料のDNA濃度

岩石試料中の微生物種を明らかにするために、限られたDNA抽出試料を用いて、16S rRNA遺 伝子を対象としたDNA解析を実施した。PCR反応、シーケンス解析の前処理、次世代シーケンス 解析の条件や方法は、地下水試料を対象とした条件や方法と同じとした。その結果、抽出された DNAからはほとんど微生物種が検出されなかった。その要因として、解析に必要なDNA濃度が十 分に得られていないことや、抽出したDNA試料からFeや腐植物質等のPCR阻害物質が除去されて おらず、PCR反応による対象遺伝子の増幅がうまくなされていない可能性が考えられた。岩石中 の微生物の現存量や代謝反応の評価を行うための基礎情報を取得するために、今後は岩石からの DNA抽出手法を改良していくことが必要であると考える。

(3) これまでの成果と今後の課題

令和3年度は、堆積岩地下水中に存在する天然コロイドへの元素収着特性を評価するために、令 和2年度までに実施した地下水試料と比較して水質・微生物特性が異なる地下水試料を対象として、 生きた微生物細胞を含まない無機/有機コロイドへの元素収着データおよびバイオコロイドに関 するデータを継続して取得し、天然コロイドの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。また、堆積岩地下環境における微生物種の空間分布および地下施設建設 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に 関する評価や鉄・硫黄・メタン等の反応に関わる微生物代謝反応について評価をおこなった。

これまでの4年間で、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および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する種であるSM1を指標としたバイオフィルム形成 領域の評価結果からは、坑道掘削直後は坑道壁面近傍のみで検出されていたが、時間の経過とと もに坑道壁面から離れた領域についてもバイオフィルム形成種の増加が認められた。また、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、坑道近傍の不飽和領域の拡大に伴い坑道掘削から時間が経 過するにつれて減退する一方で、水圧の変化に伴う脱ガスや水質・酸化還元状態の変化により、 坑道近傍から離れた領域にも拡大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挙動の現象論的評価に加えて、セレン等の希土類元素以外 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、バイオコロイドおよ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.
- 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. 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., 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.
- Anisimov, V. I., Zaanen, J. and Andersen, O. K., Band theory and Mott insulators: Hubbard U instead of Stoner I, Physical Review B, Vol. 44, pp. 943-954, 1991.
- 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.
- 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 ²⁴¹Am migration in a sandy aquifer: Column experiments with Gorleben groundwater/sediment systems, Journal of Contaminant Hydrology, Vol. 35, pp. 261-275, 1998.
- 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.
- Bartók, A. P., Kondor, R. and Csányi, G., On representing chemical environments, Physical Review B, Vol. 96, 019902, 2017.
- Bayliss, P. Crystal structure refinement of a weakly anisotropic pyrite cubic model, American Mineralogist, Vol. 62, pp. 1168-1172, 1977.
- Bemedetti, 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.
- Bernal, J. D. and Fowler, R. H., Theory of water and ionic solution, with particular reference to hydrogen and hydroxyl ions, Journal of Chemical Physics, Vol. 1, pp. 515-548, 1933.
- Bethke, C. M., Geochemical and biogeochemical reaction modeling, Cambridge University Press, 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., A mechanistic description of Ni and Zn Sorption on Namontmorillonite Part II: Modelling. Journal of Contaminant Hydrology, Vol. 27, pp. 223-248, 1997.
- Bradbury, M. H. and Baeyens, B., Modelling the sorption of Mn(II), Co(II), Ni(II), Zn(II), Cd(II), Eu(III), Am(III), Sn(IV), Th(IV), Np(V) and U(VI) on montmorillonite: Linear free energy relationships and estimates of surface binding constants for some selected heavy metals and actinides, Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol. 69(4), pp. 875-892, 2005.
- Bradbury, M. H. and Baeyens, B., Sorption modelling on illite. Part II: Actinide sorption and linear free energy relationships, Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol. 73(4), pp. 1004-1013, 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.
- Bryan, N. D., Hesketh, N., Livens, F. R., Tipping, E., and Jones, M. N., Metal ion-humic substance interaction – A thermodynamic study, Journal of the Chemical Society, Faraday Transactions, Vol. 94(1), pp. 95-100, 1998.
- Carr, H. Y. and Purcell, E. M., Effects of diffusion on free precession in nuclear magnetic resonance experiments, Physical Review, Vol. 94, 630, 1954.
- Cococcioni, M. and de Gironcoli, S., Linear response approach to the calculation of the effective interaction parameters in the LDA+U Method, Physical Review B, Vol. 71, 035105, 2005.
- Curti, E., Coprecipitation of radionuclides with calcite: Estimation of partition coefficients based on a review of laboratory investigations and geochemical data, Applied Geochemistry, Vol. 14(4), pp. 433-445, 1999.
- Cygan, R.T., Liang, J. -J., and Kalinichev A. G., Molecular models of hydroxide, oxyhydroxide, and clay phases and the development of a general force field, The Journal of Physical Chemistry B, Vol. 108, pp. 1255-1266, 2004.
- Diener, A. and Neuman, T., Synthesis and incorporation of selenide in pyrite and mackinawite, Radiochimica Acta, Vol. 99, pp. 791-798, 2011.
- Doerner, H. A. and Hoskins, W. M., Co-precipitation of radium and barium sulphates, Journal of the American Chemical Society, Vol. 47, 662-675, 1925.
- Ekendahl, S., Arlinger, J., Ståhl, F. and Pedersen, K., Characterization of attached bacterial populations in deep granitic groundwater from the Stripa research mine with 16S rRNA gene sequencing technique and scanning electron microscopy, Microbiology, Vol. 140, pp. 1575-1583, 1994.
- Elzinga, E. J., Reeder, R. J., Withers, S. H., Peale, R. E., Mason, R. A., Beck, K. M. and Hess, W. P., EXAFS study of rare-earth element coordination in calcite. Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol. 66, pp. 2875-2885, 2002.
- Enomae, T., Han, Y. -H. and Isogai, A., Nondestructive determination of fiber orientation distribution of fiber surface by image analysis, Nordic Pulp and Paper Research Journal, Vol. 21(2), pp. 253-259, 2006.
- Finck, N., Dardenne, K., Bosbach, D. and Geckeis, H., Selenide retention by mackinawite,

Environmental Science & Technology, Vol. 46, pp. 10004-10011, 2012.

- Flemming, H. C. 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, 2001.
- Fukatsu, Y., Yotsuji, K., Ohkubo, T. and Tachi, Y., Diffusion of tritiated water, ¹³⁷Cs⁺, and ¹²⁵I⁻ in compacted Ca-montmorillonite: Experimental and modeling approached, Applied Clay Science, Vol. 211, pp. 106176, 2021.
- 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.
- Giannozzi, P., Andreussi, O., Brumme, T., Bunau, O., Buongiorno Nardelli, M., Calandra, M., Car, R., Cavazzoni, C., Ceresoli, D., Cococcioni, M., Colonna, N., Carnimeo, I., Dal Corso, A., de Gironcoli, S., Delugas, P., DiStasio Jr, R. A., Ferretti, A., Floris, A., Fratesi, G., Fugallo, G., Gebauer, R., Gerstmann, U., Giustino, F., Gorni, T., Jia, J., Kawamura, M., Ko, H.-Y., Kokalj, A., Küçükbenli, E., Lazzeri, M., Marsili, M., Marzari, N., Mauri, F., Nguyen, N. L., Nguyen, H.-V., Otero-de-la-Roza, A., Paulatto, L., Poncé, S., Rocca, D., Sabatini, R., Santra, B., Schlipf, M., Seitsonen, A. P., Smogunov, A., Timrov, I., Thonhauser, T., Umari, P., Vast, N., Wu, X. and Baroni, S., Advanced capabilities for materials modelling with QUANTUM ESPRESSO, Journal of Physics: Condensed Matter, Vol. 29, 465901, 2017.
- Giannozzi, P., Baroni, S., Bonini, N., Calandra, M., Car, R., Cavazzoni, C., Ceresoli, D., Chiarotti, G. L., Cococcioni, M., Dabo, I., Corso, A. D., Gironcoli, S. De, Fabris, S., Fratesi, G., Gebauer, R., Gerstmann, U., Gougoussis, C., Kokalj, A., Lazzeri, M., Martin-samos, L., Marzari, N., Mauri, F., Mazzarello, R., Paolini, S., Pasquarello, A., Paulatto, L., Sbraccia, C., Smogunov, A., Umari, P., Dal Corso, A., de Gironcoli, S., Fabris, S., Fratesi, G., Gebauer, R., Gerstmann, U., Gougoussis, C., Kokalj, A., Lazzeri, M., Martin-samos, L., Marzari, N., Mauri, F., Mazzarello, R., Paolini, S., Pasquarello, A., Paulatto, L., Sbraccia, C., Scandolo, S., Sclauzero, G., Seitsonen, A. P., Smogunov, A., Umari, P. and Wentzcovitch, R. M., QUANTUM ESPRESSO: A modular and open-source software project for quantum simulations of materials, Journal of Physics: Condensed Matter, Vol. 21, 395502, 2009.
- 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.
- Glaus, M. A., Frick, S., Rossé, R. and Van Loon, L. R., Consistent interpretation of the results of through-, out-diffusion and tracer profile analysis for trace anion diffusion in compacted montmorillonite, Journal of Contaminant Hydrology, Vol. 123(1-2), pp. 1-10, 2011.
- GoldSim Technology Group, GoldSim Version 10.1., 2010.

GoldSim Technology Group, GoldSim Version 11.1., 2014.

- Gorski, C. A., Aeschbacher, M., Soltermann, D., Voegelin, A., Baeyens, B., Marques Fernandes, M., Hofstetter, T. B. and Sander, M., Redox properties of structural Fe in clay minerals.
 1. Electrochemical quantification of electron-donating and -accepting capacities of smectites, Environmental Science & Technology, Vol. 46, pp. 9360-9368, 2012a.
- Gorski, C. A., Klüpfel, L. E., Voegelin, A., Sander, M. and Hofstetter, T. B., Redox properties of structural Fe in clay minerals: 3. Relationships between smectite redox and structural properties, Environmental Science & Technology, Vol. 47, pp. 13477-13485, 2013.
- Gorski, C. A., Klüpfel, L., Voegelin, A., Sander, M. and Hofstetter, T. B., Redox properties of structural Fe in clay minerals. 2. Electrochemical and spectroscopic characterization of electron transfer irreversibility in ferruginous smectite, SWa-1, Environmental Science & Technology, Vol. 46, pp. 9369-9377, 2012b.
- 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.
- 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.
- 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.
- Heberling, F., Bosbach, D., Eckhardt, J. D., Fischer, U., Glowacky, J., Haist, M., Kramar, U., Loos, S., Müller, H.S., Neumann, T. and Stelling, J., Reactivity of the calcitewater-interface, from molecular scale processes to geochemical engineering. Applied Geochemistry, Vol. 45, pp. 158-190, 2014.
- 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 & 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, 2008.
- Hofstetter, T. B., Neumann, A. and Schwarzenbach, R. P., Reduction of nitroaromatic compounds by Fe(II) species associated with iron-rich smectites, Environmental Science & Technology, Vol. 40, pp. 235-242, 2006.
- 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.
- Hummel, W., Berner, U., Curti, E., Pearson, F. J. and Thoenen, T., Nagra/PSI Chemical Thermodynamic Database 01/01, Universal publishers, 2002.
- 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.

- Ilgen, A. G., Foster, A. L. and Trainor, T. P., Role of structural Fe in nontronite NAu-1 and dissolved Fe(II) in redox transformations of arsenic and antimony, Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol. 94, pp. 128-145, 2012.
- Ilgen, A. G., Kruichak, J. N., Artyushkova, K., Newville, M. G. and Sun, C., Redox transformations of As and Se at the surfaces of natural and synthetic ferric nontronites: Role of structural and adsorbed Fe(II), Environmental Science & Technology, Vol. 51, pp. 11105-11114, 2017.
- 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.
- 石井英一, 濱克宏, 國丸貴紀, 佐藤治夫, 海成堆積物の地下浅部における天水の浸透に伴う地下水のpH変化, 地質学雑誌, Vol. 113, pp. 41-52, 2007.
- 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.
- Jaisi, D. P., Dong, H. and Morton, J. P., Partitioning of Fe(II) in reduced nontronite (NAu-2) to reactive sites: Reactivity in terms of Tc(VII) reduction, Clays and Clay Minerals, Vol. 56(2), pp. 175-189, 2008.
- Joe-Wong, C., Brown, G. E. and Maher, K., Kinetics and products of chromium(VI) reduction by iron(II/III) bearing clay minerals, Environmental Science & Technology, Vol. 51, pp. 9817-9825, 2017.
- 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.
- 甲斐邦男,前川恵輔,北海道天北地方幌延地域の新第三系珪藻質泥岩中の続成鉱物の分布,日本 地熱学会誌, Vol. 30(3), pp. 205-214, 2008.
- 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.

- 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, 1999b.
- 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, Environmental Science & Technology, 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 Eu(III) species, Journal of Luminescence, Vol. 202, pp. 469-474, 2018.
- Kim, J. I., Klenze, R., Wimmer, H., Runde, W. and Hauser, W., A study of the carbonate complex of Cm^{III} and Eu^{III} by time-resolved laser fluorescence spectroscopy, Journal of Alloys and Compounds, Vol. 214, pp. 333-340, 1994.
- 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.
- Kimuro, S., Kirishima, A., Nagao, S., Saito, T., Amano, Y., Miyakawa, K., Akiyama, D. and Sato, N., Characterization and thermodynamic study of humic acid in deep groundwater at Horonobe, Hokkaido, Japan, Journal of Nuclear Science and Technology, Vol. 55(5), pp. 503-515, 2018.
- Kinniburgh, 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.
- 北川文彦, 大塚浩二, (社)日本分析化学会編, 分析化学実技シリーズ機器分析編11 電気泳動分析, 共立出版, 2010.
- Komadel, P., Madejová, J. and Stucki, J. W., Reduction and reoxidation of nontronite: Questions of reversibility, Clays and Clay Minerals, Vol. 43(1), pp. 105-110, 1995.
- 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. and Pedersen, K., The Microbe-REX project. Microbial O₂ consumption in the Äspö tunnel, SKB Technical Report TR-99-17, 1999.
- Kouduka, M., Suko, T., Morono, Y., Inagaki, F., Ito, K., Suzuki, Y., A new DNA extraction method by controlled alkaline treatments from consolidated subsurface sediments, FEMS Microbiology Letters, Vol. 326, pp. 47-54, 2012.
- 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.

- 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, 2010.
- 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.
- Latta, D. E., Neumann, A., Premaratne, W. A. and Scherer, M. M., Fe(II)-Fe(III) electron transfer in a clay mineral with low Fe content, ACS Earth and Space Chemistry, Vol. 1, pp. 197-208, 2017.
- Lee, K., Kostka, J. E. and Stucki, J. W., Comparisons of structural Fe reduction in smectites by bacteria and dithionite: An infrared spectroscopic study, Clays and Clay Minerals, Vol. 54(2), pp. 195-208, 2006.
- 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.
- 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.
- Manceau, A., Merkulova, M., Mathon, O., Glatzel, P., Murdzek, M., Batanova, V., Simionovici, A., Steinmann, S. N. and Paktunc, D., The mode of incorporation of As(-I) and Se(-I) in natural pyrite revisited, ACS Earth and Space Chemistry, Vol. 4, pp. 379-390, 2020.
- Matamoros-Veloza A., Peacock C.L., Benning L.G., Selenium speciation in framboidal and euhedral pyrites in shales, Environmental Science & Technology, Vol. 48, pp. 8972-8979, 2014.
- Marcus, Y., Ion properties, Marcel Dekker, New York, 1997.
- Marques Fernandes, M. and Baeyens, B., Cation exchange and surface complexation of lead on montmorillonite and illite including competitive adsorption effects, Applied Geochemistry, Vol. 100, pp. 190-202, 2019
- 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.
- Matamoros-Veloza A., Peacock C. L. and Benning L. G., Selenium speciation in framboidal and euhedral pyrites in shales, Environmental Science & Technology, Vol. 48, pp. 8972-8979, 2014.
- 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/MEA Report 6253, 2009.
- 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, 1998a.
- 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, 1998b.
- 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.
- Morel, F. M. M., and Hering, J. G., Principles and applications of aquatic chemistry, John Wiley & Sons, New York, 1993.
- Morgan, J. and Warren, B. E., X-ray analysis of the structure of water, Journal of Chemical Physics, Vol. 6, pp. 666-673, 1938.
- Morodome, S. and Kawamura, K., Swelling behavior of Na- and Ca-montmorillonite up to 150°C by *in situ* X-ray diffraction experiments, Clays and Clay Minerals, Vol. 57, pp. 150-160, 2009.
- 長尾誠也,新堀雄一,田中忠夫,佐々木隆之,斉藤拓巳,桐島陽,吉川英樹,飯島和毅,濱克宏,岩 月輝希,高橋嘉夫,足立泰久,鈴木庸平,渡辺芳夫,放射性廃棄物の地層処分における国内の 地下水コロイド研究の現状と今後の展開,原子力バックエンド研究,Vol.20, pp. 3-14, 2013.
- Nagasaki, S. and Tanaka, S., Sorption equilibrium and kinetics of NpO₂⁺ on dispersed particles of Na-montmorillonite, Radiochimica Acta, Vol. 88, pp. 705-709, 2000.

中西寛子, 岩崎 学, 時岡規夫, 実用統計用語事典, オーム社, 2004.

- Narten, A. H., Danford, M. D. and Levy, H. A., X-ray diffraction study of liquid water in the temperature range 4–200°C, Discussions of the Faraday Society, Vol. 43, pp. 97-107, 1967.
- 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.
- 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. 133, 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, 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, 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, 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, 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, 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, 2018a.
- 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 直接処分等代替処分技術開発報告書,2018b.
- 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, 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, 2020.
- 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, 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, 2021.
- 小田垣孝, パーコレーションの科学, 裳華房, 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., Okamoto, T., Kawamura, K., Guégan, R., Deguchi, K., Oki, S., Shimizu, T., Tachi, Y. and Iwadate, Y., New insights into the Cs adsorption on montmorillonite clay from ¹³³Cs solid-state NMR and density functional theory calculations, Journal of Physical Chemistry A, 122(48), pp.9326–9337, 2018.

- Ohkubo, T., Yamazaki, A., Fukatsu, Y., Tachi, Y., Pore distribution of compacted Camontmorillonite using NMR relaxometry and cryoporometry: Comparison with Namontmorillonite, 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.
- 太田久仁雄, 安部寛信, 山口雄大, 國丸貴紀, 石井英一, 操上広志, 戸村豪治, 柴野一則, 濱克宏, 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 2007-044, 2007.
- Ohtaki, H. and Radnai, T., Structure and dynamics of hydrated ions, Chemical Reviews, Vol. 93, pp. 1157-1204, 1993.
- 岡井貴司,分別溶解/誘導結合プラズマ発光分析法による炭酸岩石標準試料中の炭酸塩態成分の定 量,分析化学, Vol. 47, pp. 455-458, 1998.
- 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.
- 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 Technical Report 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. and 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.
- Poulton, S.W. and Canfield, D.E., Development of a sequential extraction procedure for iron: Implications for iron partitioning in continentally derived particulates, Chemical Geology, Vol. 214, pp. 209-221, 2005.
- 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.
- Quintessa, QPAC: Quintessa's general-purpose modelling software, QRS-QPAC-11, 2013.
- Ravel B. and Newville M., ATHENA, ARTEMIS, HEPHAESTUS: Data analysis for X-ray absorption spectroscopy using IFEFFIT, Journal of Synchrotron Radiation, Vol. 12, pp. 537-541, 2005.
- Rimstidt, J. D., Balog, A. and Webb, J., Distribution of trace elements between carbonate minerals and aqueous solutions, Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol. 62(11), pp.

1851-1863, 1998.

- 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.
- Ryser, A. L., Strawn, D. G., Marcus, M. A., Johnson-Maynard, J. L., Gunter, M.E., Möller, G., Micro-spectroscopic investigation of selenium-bearing minerals from the western US phosphate resource area, Geochemical Transactions, Vol. 6(1), pp. 1-11, 2005.
- 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. and Hama, K., A preliminary interpretation of groundwater chemistry in the Horonobe area, Japan. In: Water-rock interaction (Bullen, T. D. and Wang, Y., eds.), Taylor and Francis Group, 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, 2015.
- 佐和隆光, 回帰分析, 朝倉書店, 1979.
- 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.
- 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.
- Shannon, R. D., Revised effective ionic radii and systematic studies of interatomic distances in halides and chalcogenides, Acta Crystallographica A, Vol. 32, pp. 751-767, 1976.
- Smith, R. M., and Martell, A. E., Critical Stability Constants, Plenum Press, New York, 1989.
- Sonke, J., E. and Salters, V. J. M., Lanthanide-humic substances complexation. I. Experimental evidence for a lanthanide contraction effect, Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol. 70, pp. 1495-1506, 2006.
- 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.

Stucki, J. W., Golden, D. C. and Roth, C. B., Preparation and handling of dithionite-reduced smectite suspensions, Clays and Clay Minerals, Vol. 32(3), pp. 191-197, 1984.

須藤談話会編,粘土科学への招待,三共出版,2000.

- 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.
- Sugiura, Y., Tomura, T., Ishidera, T., Doi, R., Francisco, P. C. M., Shiwaku, H., Matsumura, D., Takahashi, Y. and Tachi, Y., Sorption behavior of selenide on montmorillonite, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol. 324, pp. 615-622, 2020.
- 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., Nakazawa, T., Ochs, M., Yotsuji, K., Suyama, T., Seida, Y., Yamada, N. and Yui, M., Diffusion and sorption of neptunium(V) in compacted montmorillonite: Effects of carbonate and salinity, Radiochimica Acta, Vol. 98, pp. 711-718, 2010.
- Tachi, Y., Ochs, M. and Suyama, T., Integrated sorption and diffusion model for bentonite. Part 1: Clay-water interaction and sorption modeling in dispersed systems, Journal of Nuclear Science and Technology, Vol. 51(10), pp. 1177-1190, 2014.
- Tachi, Y., Suyama, T., Yotsuji, K., Ishii, Y. and Takahashi, H., Clay-based modelling approach for diffusion and sorption in the argillaceous rock from the Horonobe URL: Application for Ni(II), Am(III) and Se(IV), CMS workshop lecture series 21, Chap. 19, pp. 241-250, 2016.
- 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., 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: Claybased modeling approach, Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol. 75, pp. 6742-6759, 2011.
- Takahashi, Y., Chatellier, X., Hattori, K.H., Kato, K. and Fortin, D., Adsorption of rare earth elements onto bacterial cell walls and its implication for REE sorption onto natural microbial mats, Chemical Geology, Vol. 219, pp. 53-67, 2005.
- Takahashi, Y., 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,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.
- 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.
- Tanaka, K., Takahashi, Y. and Shimizu, H., Determination of the host phase of rare earth elements in natural carbonate using X-ray absorption near-edge structure, Geochemical Journal, Vol. 43, 143-149, 2009.
- 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.
- 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.
- Thakur, P., Xiong, Y. L., Borkowski, M., and Choppin, G. R., Improved thermodynamic model for interaction of EDTA with trivalent actinides and lanthanide to ionic strength of 6.60m, Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol. 133, pp. 299-312, 2014.
- Thurman, E. M., Organic geochemistry of natural waters, Springer, 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.
- Troyer, L. D., Maillot, F., Wang, Z., Wang, Z., Mehta, V. S., Giammar, D. E. and Catalano, J. G., Effect of phosphate on U(VI) sorption to montmorillonite: Ternary complexation and precipitation barriers, Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol. 175, pp. 86-99, 2016.
- 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 Technical Report TR-774, COG-96-635-I, 1997.
- Wallin, B. and Peterman, Z., Calcite fracture fillings as indicators of paleohydrology at Laxemar at the Äspö Hard Rock Laboratory, Southern Sweden. Applied Geochemistry, Vol. 14, 953-962, 1999.
- West, J. M., McKinley, I. G. and Stroes-Gascoyne, S., Microbial effects on waste repository materials. In: Interactions of microorganisms with radionuclides (Keith-Roach, M. J. and Livens, F. R., eds.), Elsevier, 2002.
- Wilkin, R. T., Barnes, H. L., Pyrite formation by reactions of iron monosulfides with dissolved inorganic and organic sulfur species, Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol. 61, pp. 4167-4179, 1996.
- 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., Ver Berkmoes, 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., Longterm geochemical transport simulation to evaluate ambient chemical conditions at Horonobe URL site, Japan, American Geophysical Union Fall Meeting, Paper number H11D-1293, 2005.
- Yoshida, H., Metcalfe, R., Seida, Y., Takahashi, H. and Kikuchi, T., Retardation capacity of altered granitic rock distributed along fractured and faulted zones in the orogenic belt of Japan. Engineering Geology., Vol. 106, pp. 116-122, 2009.
- 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, X., Guo, J., Wu, S., Chen, F. and Yang, Y., Divalent heavy metals and uranyl cations incorporated in calcite change its dissolution process. Scientific Reports, Vol. 10, 16864, 2020.

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。

上述した観点から、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した。さらに、その研究アプローチに沿って、

「緩衝材へのオーバーパックの腐食影響」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 礎的な検討を行った。令和3年度は、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 送ー化学反応の解析モデルの妥当性確認の一環として、本事業で使用する解析コードを用いたべ ンチマーク解析や解析手法の妥当性に関わる検討を実施した。また、解析コードの確証に係る既 往成果の再整理を行うと共に、緩衝材の長期的変質挙動の予測に関わる解析について、海外の専 門家によるレビューを受け、今後の課題を整理した。令和4年度は、安全上の重要な課題の一つと

して、緩衝材変質促進ループの生起が懸念される場合を対象とし、簡易な系での解析等に基づき 生起が懸念される条件を整理する。また、緩衝材の状態変遷評価におけるフィードバックの具体 例についても検討する予定である。

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。また、その試行結果に基づいた課題の抽出及び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 輸送ー化学反応の連成解析結果を基に、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設定の方法論について、イオン強度や間隙率との依存性が大きい 核種を対象に検討し、検討結果を反映した予察的な核種移行解析を実施した。令和3年度は、核種 移行解析の妥当性検討の一環として、メッシュ依存性について予察的な検討を行うと共に、令和 2年度に引き続き、緩衝材の変質状態の時間変遷を踏まえた核種移行パラメータ設定の方法論の検 討を継続して行った。また、SP1や SP2との連携の観点から、今後、連携の具体化を図る際に双 方で必要となる情報の整理案やフィードバックを図るためのフロー案の検討も進めた。令和4年度 は、サブタスク1で実施を予定している緩衝材の状態変遷評価におけるフィードバックを踏まえた 核種移行解析を行い、核種移行への影響について整理する。また、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、核種移行率に影響を及ぼす因子の抽出や他 のサブプロジェクトへのフィードバックが必要な内容についても案を整理する予定である。

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ー物質輸送ー力学連成解析が可能となっ た。このような解析では、4.1.2項で示した「マルチフィジックス性」と「マルチスケール性」を 有する諸現象を統合させることにより解析モデルが構築されている点が特徴的である。

しかしながら、当該システムで対象とする現象は、上記で示したコンクリートのひび割れ・進 展問題に限定されており、ニアフィールドで考慮する必要のある複合現象と、それが安全機能に 与える影響に関する情報の抽出とその分析・整理が十分に行われていない。また、システムで対 象とする現象が変わる場合には、個別現象モデルやそれらの統合・連成の構造なども変わる可能 性があることから、これらを反映したシステムの整備も不十分であると考えられた。

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。

令和3年度は、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・化学反応の解 析モデルの妥当性確認の一環として、本事業で使用する解析コードを用いたベンチマーク解析を 行うと共に、解析手法(擬定常状態の仮定やメッシュサイズ設定)の妥当性に関わる検討も実施 した。また、解析コードの確証に係る既往成果の再整理を行うと共に、令和2年度に実施した緩衝 材の長期的変質挙動の予測に関わる解析結果を一例に、類似した解析実績の経験のある海外の専 門家によるレビューを受け、今後の課題について整理した。本節では、この検討の成果を示す。

4.2.2 実施内容

(1) 水理・物質輸送 - 化学反応の連成解析コードの検証に関わる検討

サブタスク1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・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、令和2年度に は、本事業において開発を進めてきたプロトタイプシステムにおける解析コードの検証・確証に 関わる現状を整理し、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 の連成解析に対して、検証・確証に関して部分的に不十分な点があることも認識された(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, 2021)。このため、サブタスク1に おいては、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(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, 2021)。

上述したような開発方針の見直しを踏まえ、令和3年度は、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 化学反応の解析モデルの妥当性確認の一環として、本事業で使用する解析コードである QPAC (Quintessa Ltd. 2013)を用いたベンチマーク解析を行うと共に、解析手法の妥当性に関わる検討として、擬定常状態の仮定における間隙率の変化が物質移動に与える影響についての検討やメッシュサイズの違いが解析結果に与える影響を把握するための解析的検討も実施した。

1) ベンチマーク解析

本事業においてQPACのベンチマーク解析を行うにあたっては、コンクリート支保と緩衝材ま たはオーバーパックと緩衝材の相互作用に関わる水理・物質輸送 化学反応の連成解析を実施し た解析例が必要になる。このため、ベンチマークに適した例を選定するための文献調査を行った。 その結果、セメント · ベントナイト相互作用に類似した解析例として、コンクリート · 粘土層の 相互作用を対象に複数の解析コードを用いたベンチマーク解析の事例(Marty et al., 2015)が存 在した。この例では、水理・物質輸送 ・ 化学反応の連成解析が取り扱える複数の解析コード (TOUGHREACT、PHREEQC、CRUNCH、HYTEC、ORCHESTRA、MIN3P-THCm) によ り、同一の熱力学データベース(THERMODDEM: Blanc et al., 2012)や速度論データを用い、 コンクリート ・粘土層の相互作用に関わる解析を各々のコードで実施し、その結果を比較するこ とで、解析コードの検証が行われた(Marty et al., 2015)。そこで、本事業におけるQPACを用 いたベンチマーク解析についてもMartyらの例に基づき、コンクリート ・粘土層の相互作用を対 象に、Marty et al. (2015) が行ったベンチマーク解析と同一の解析体系及び解析条件で水理・物 質輸送 · 化学反応の連成解析を行い、Martyらの結果と比較することでQPACの解析コードとし ての検証を行うこととした。なお、本ベンチマーク解析の実施にあたっては、Marty et al. (2015) の場合と同様に、解析コード間での細かな設定方法や解析方法の違いに伴う差異を調べるよりは、 むしろ、できるだけ解析方法や解析条件を同一にし、コンクリート ・粘土層の相互作用に伴い間 隙水のpHや組成及び緩衝材の構成鉱物等の変化が、異なる解析コードでどの程度の違いが生じ得 るのかを確認することを主目的とした。ちなみに、連成解析で対象とする時間については、地層 処分の性能評価で対象となるような数十万年を超えるような期間を対象にしたベンチマーク解析 にはなっておらず、最大で10,000年となっている。

① 解析体系及び解析条件

図4.2-1にベンチマーク解析における解析体系について、Marty et al. (2015)の概念図を模倣 し、作成し直した図を示す。解析体系は、内側にコンクリートプラグ(コンクリート)、外側に粘 土質母岩(粘土層)を配置した一次元円筒座標系の体系である。メッシュの設定は、コンクリー トと粘土層の境界付近のメッシュサイズを細かく設定し、境界から離れるにつれて、メッシュサ イズを粗くする設定がされている。境界付近における最小メッシュサイズは、0.05m (5cm)とな っている。また、境界条件としては、コンクリート内側では閉鎖境界、粘土層外側では濃度固定 境界(粘土層中の間隙水組成で固定)である。

解析条件については、Marty et al. (2015)のベンチマーク解析と比較するため、基本的にMarty et al. (2015)の解析で設定された条件設定を踏襲し、設定した。主な条件設定としては、コンク

リートの組成や間隙水の設定(コンクリート組成としては、CEM Iと呼ばれる普通ポルトランド セメントを想定し、コンクリート中の反応性鉱物である方解石・C-S-H・ハイドロタルサイト・モ ノカーボネートアルミネート・エトリンガイト・カルシウムアルミネート水和物:C₃FH₆との平 衡を仮定して間隙水を計算)、粘土層の組成や間隙水の設定(フランスのANDRAが地層処分の候 補サイトとして調査・研究を進めているカロボ・オックスフォーディアン層:COxを想定し、COx 中の構成鉱物との溶解平衡やイオン交換反応等を考慮した地球化学モデルにより、間隙水組成を 計算)、コンクリート及び粘土層を対象にした拡散係数の設定、熱力学データベースの設定(フ ランスのBRGMが開発したTEHRMODDEM:Blanc et al., 2012)、速度論データの設定(TST: 遷移状態理論に基づく反応速度式で必要なパラメータを鉱物毎に各種の文献から収集・整理され た値であり、主にMarty et al. (2014b)からの引用値を利用)、イオ ン交換定数の設定(イライトとスメクタイトの2つのイオン交換体を想定して導出された選択係数 であり、Gaucher et al. (2009)及びTournassat et al. (2007, 2009)からの引用値を利用)があ る。これらの設定値の詳細については、Marty et al. (2015)にまとめられている。



図4.2-1 コンクリートと粘土質母岩(粘土層)の相互作用に関わる解析体系 (Marty et al., 2015の概念図をもとに作成)

2 解析ケース

ベンチマーク解析における解析ケースは、Marty et al. (2015) に準拠し、以下の3つのケース について行った。各ケースによる違いは、以下の通りである。Case 1は、鉱物の溶解・沈殿反応 を考慮せず、イオン交換反応のみを考慮した単純なケースである。Case 2は、イオン交換反応に 加え、鉱物の溶解・沈殿反応を考慮した複雑なケースであり、反応速度については実験により得 られた速度よりも遅い値を利用するため、反応比表面積を3桁小さい値を採用したケースである。 Case 3は、Case 2のケースを基に反応速度については実験で得られた値をそのまま採用したケー スである。なお、Case 2において、実験で得られた反応速度より遅い反応速度を採用した理由と して、実験で得られた反応速度は、試料を粉砕し、フロースルー式の試験装置で求められた値で あり、天然の岩石(地層)中での反応と比べると反応が加速された系での値と見なされるため、 より反応速度の遅い値も考慮したケース設定がなされている。ちなみに、実験系と天然での溶解 速度の違いについては、多数の研究例があり、例えば長石の溶解速度は、天然の条件から推測さ れる値は実験で得られた値に比べて、2桁から5桁程度遅くなることが示唆されている(例えば、 White and Brantley, 2003) $_{\circ}$

③ 解析結果

上述した解析体系及び解析条件に基づき、Case 1からCase 3の3つの解析ケースを対象に、 QPACを用いてベンチマーク解析を行った。結果として、いずれの解析ケースについても、Marty et al. (2015) が行った複数の解析コードによる解析結果と概ね整合する結果が得られた。ここで は、Case 3を一例に、QPACと他の解析コードによる解析結果の比較の詳細についてまとめる。 なお、以下に示すベンチマーク解析の比較に使用したQPAC以外の複数の解析コードによる解析 結果については、Dr. Nicolas Martyより提供頂いたものを使用し、図を作成した。

図4.2-2にベンチマーク解析による結果として、pH及びイオン交換反応に関与する元素(Na, K, Ca, Mg)濃度の比較を示す。pHに関わるQPACの解析結果は、Marty et al. (2015)による複数の解析コードによる解析結果とほぼ一致している。イオン交換反応に関与する元素についてもQPACによる解析結果は、他の解析結果で推測される濃度の幅に概ね含まれている。なお、K濃度については、解析コードの違いにより、コンクリート側及びコンクリート側に近い粘土層中での濃度にやや違いが生じている。この要因については定かではないが、溶液種の濃度は鉱物組合せと強く相関する(Marty et al., 2015)ため、Kを含む鉱物の溶解・沈殿種の違いが影響している可能性がある。なお、Case 1のイオン交換反応のみの場合はこのような差異は認められていない。



図4.2-2 ベンチマーク解析による結果(pH及びイオン交換反応に関与する元素濃度の比較)

図4.2-3には、ベンチマーク解析の結果として、図4.2-2に示した元素以外の他の元素(Al, S, Si,Cl,Fe, C) 濃度についての比較を示す。なお、Sについては6価のS(主にSO4²)、Cについては4価のC(主にHCO3⁻やCO3²)、Feについては全Feの濃度を各々比較している。これらの元素についても、QPACによる解析結果は、Alを除くと、他の解析コードによる解析結果で推定された 濃度の幅に含まれる結果となった。Alについては、QPACによる解析結果では、コンクリート側でのAl濃度が他の解析結果に比べて高くなっている。Alの差異については、QPACとPHREEQC2 による解析結果をもとに、コンクリート・粘土層の境界付近の鉱物組合せを確認したところ、カルシウムアルミネート水和物の一種であるストラトリンジャイト(Ca2Al2(OH)2・2.5H2O)の生成量がQPACの解析結果の方が少なく、このためAl濃度が他の解析結果に比べて高くなったこと が推察された。なお、複数の解析コードによる解析結果で認められた元素濃度の差異の要因については、各解析コードで用いられる活量補正方法の違い(拡張デバイ・ヒュッケルに準拠した式: PHREEQC2、iPHREEQC2、CRUNCH、TOUGHREACT及びMIN3P-THCm、デービス式: ORCHESTRA、HYTEC及びQPAC)や水理・物質輸送と化学反応の連成解析における解析方法の違い等も挙げられている(Marty et al., 2015)。



図4.2-3 ベンチマーク解析による結果 (イオン交換反応に関与する元素以外の元素濃度の比較。凡例は図4.2-2と同じ)

上述したベンチマーク解析により推定された10,000年後のコンクリート及び粘土層中での構成 鉱物組成について、QPACによる解析結果とMarty et al. (2015)による解析結果を比較した。Dr. Nicolas Martyから提供された鉱物組成に関する情報の図化が困難であったため、文献に記されて いる解析結果の図と比較したところ、QPACによる解析結果は、コンクリート及び粘土層の境界 付近を除けば、他の解析コードによる解析結果と概ね整合した鉱物組成になっていた。一方、境 界付近での鉱物組成には、やや違いが認められた。この要因として、QPACにおいて間隙率がゼロ

(0) になった場合の取扱いがMarty et al. (2015) のベンチマーク解析で使われた他の解析コードと異なるためであると考えられる。QPACでは、水理・物質輸送・化学反応の連成解析により間隙率が低下し、解析上、間隙率が0になると解析が停止する設定になっている。一方、Marty et al. (2015) のベンチマーク解析における他の解析コードでは、コンクリート及び粘土層の境界付近において、二次鉱物の生成に伴い間隙率が低下し、解析上、間隙率が0になっても解析は継続し、さらに二次鉱物が生成し続けることで間隙率が負の値となっている。このような間隙の閉塞

(clogging)の取扱いの違いにより、コンクリート及び粘土層の境界付近での鉱物組成に差が生じたと推定される。なお、間隙の閉塞による解析結果への影響については、3)のメッシュサイズが解析結果に与える影響とも関連する。

以上述べたように、Marty et al. (2015) が行った複数の解析コードによる解析結果とQPACに よる解析結果を比較した結果、セメント(コンクリート) - ベントナイト(粘土層)の相互作用 に伴う重要な変化(間隙水のpHや組成、鉱物学的変化)については、基本的にQPACの解析結果 は他の解析コードと整合していることが確認できた。このことにより、緩衝材の長期変質挙動評 価で考慮されているイオン交換反応、鉱物の溶解・沈殿反応及び反応速度を含めた水理・物質輸送・化学反応の連成解析がQPACを用いて適切に実施されていることを改めて確認した。

上記のベンチマーク解析は、解析コードの検証の観点で行ったものであるが、化学反応解析に おいては使用する熱力学データベースの違いが解析結果に与える影響についても把握しておくこ とが重要になる。そこで、Marty et al. (2015)のベンチマーク解析で用いられたTEHRMODDEM (Blanc et al., 2012)との比較のため、日本原子力研究開発機構が開発・整備を進めている熱力 学データベース (JAEA-TDB GWB20v12.dat: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, 2021)を用いた解析をQPACにより行った。解析は、Case 2を対象に行った。 図4.2-4に5,000年後の鉱物変遷に関わる解析結果の比較を示す。



図4.2-4 QPACを用いて異なる熱力学データを用いた場合の解析結果の比較

結果として、コンクリート及び粘土層の境界付近を含め、主な鉱物種や構成鉱物の分布には大きな違いは認められなかった。一方、モンモリロナイトに代表されるような粘土鉱物については、

イオン型の違い等で差異が認められた。粘土鉱物等のようにデータベースに採用されている鉱物 の化学(組成)式が複雑な鉱物については、データベース間での熱力学データ(例えば、溶解度 積)の値が異なる場合が多いため、どのような組成式の熱力学データが用いられているか、デー タの出典や信頼性等についても確認しておくことも必要である。

2) 擬定常状態の仮定における間隙率の変化が物質移動に与える影響に係る検討

QPACを用いた水理・物質輸送 化学反応の連成解析では、化学反応計算に用いられる数値解 法とその結果に基づき間隙率や透水係数を導出する際の数値解が異なる。例えば、前者のような 化学反応に伴う溶存化学種濃度を計算する場合、後退微分法(BDF:Backward Differential Forumula)と呼ばれる数値解法により、過去の非線形の時間変遷を高次(例えば、6次)の曲線 で近似し、タイムステップを自動で最適化しながら解かれる(Quintessa Ltd., 2013)。一方、後 者の場合、非線形の時間変遷に対し、擬定常状態を仮定し、タイムステップ内での状態変数を一 定と見なして解かれる。なお、後者の場合であっても、タイムステップ内での状態変数に極端な 変化が生じないように細かなタイプステップが取られていれば、擬定常状態を仮定した解析であ っても物質移動等に与える影響は十分に小さいことが予想される。そこで、擬定常状態の仮定が 物質移動等の解析結果に与える影響について簡易な試解析により予察的な検討を行うと共に、令 和2年度に実施された緩衝材の長期変質挙動に関わる解析結果を例にタイムステップ内での間隙 率変化等に極端な変化が生じていなかったかどうかを確認することとした。

① 簡易な試解析による予察的検討

試解析にあたっては、多孔質媒体を対象とし、令和2年度に実施された緩衝材の長期変質挙動に 関わる解析の場合と同様に、物質移行プロセスとしては拡散が支配的な条件を想定した。図4.2-5 に試解析のための解析体系を示す。



図4.2-5 擬定常状態の仮定が物質移動等の解析結果に与える影響を検討するための解析体系

解析体系は、系の長さは1mとし、全体のセル(メッシュ)数は40とした。メッシュの設定は、 解析体系の両端に向かうほどメッシュサイズを小さくし、メッシュサイズの大きさとしては、解 析体系内で0.005m-0.0688mとした。多孔質媒体としては、ここではコンクリートを想定したが、 本解析では解析条件の単純化のため化学反応については考慮していない。また、境界条件として は、上流側はNa濃度0.04 mol/kgで濃度固定とし、下流側は濃度ゼロで固定した。なお、動水勾配 は0.01とした。

本検討にあたり、図4.2-5に示した解析体系において拡散が支配的となる条件を想定するため、 間隙率が変化した場合のコンクリートに対する拡散係数や透水係数の変化を予め試算し、ペクレ 数(Pe)の変化に基づき試解析で考慮する間隙率の範囲を選定した。その際、コンクリートに対 する拡散係数や透水係数の間隙率依存性については、第2次TRU廃棄物処分研究開発とりまとめ 報告書(電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構、2005)で用いられている経験式を適用した。 また、Peの算出にあたり、代表長さは各メッシュサイズの値を用いた。図4.2-6に試算された拡散 係数・実流速及びPeと間隙率の関係を示す。Peについては、最小メッシュ及び最大メッシュサイ ズの場合で各々算出した結果を示してある。本検討では、Peの値をもとにPe<0.1となる範囲での 間隙率として、0.13・0.9の範囲を選定した(下限値である0.13は、コンクリートの初期間隙率に 相当する)。

選定された間隙率の変化の範囲を対象に、解析期間を10年とし、擬定常状態を仮定した間隙率 の変化を設定するにあたり、間隙率の時間変化を複数設定した。図4.2-7に擬定常状態を仮定した 解析における間隙率変化の設定の概念図を示す。擬定常状態を仮定した場合の間隙率の変化は、 図4.2-7に示す様な階段関数により模擬し、本解析では、解析期間10年に対する時間変化の分割数 を3パターン(4分割、16分割及び32分割)設定し、分割数の違いによる物質移行率への影響を確 認した。ここで、時間変化の分割数の大小は、タイムステップの大小を模擬したものである。な お、解析期間として設定した10年を超えた場合は、間隙率は0.9で固定したまま解析を行った。



図4.2-6 試算された拡散係数・実流速及びPeと間隙率の関係



図4.2-7 擬定常状態を仮定した解析における間隙率変化の設定の概念図
解析ケースとしては、表4.2·1に示すように擬定常状態の仮定において物質移動への影響を確認 するため、間隙率と連動して変化するパラメータとして拡散係数及び透水係数の組合せを変えた 複数の場合を設定した。なお、階段関数による分割数の設定において、分割数を∞とした場合は 擬定常状態を仮定しない場合に相当すると考えられることから、このようなパターンも加えた解 析ケースも設定した。

図4.2-8に解析結果を示す。Case 1は、間隙率の変化と拡散係数を連動させた場合の解析結果で ある。間隙率の時間変化の分割数が多くなると擬定常状態を仮定しない場合(分割数を∞)の解 析結果に近づくことが判る。同様な傾向は、Case 2(間隙率の変化と透水係数を連動させた場合) 及びCase 3(間隙率の変化と拡散係数及び透水係数を連動させた場合)の場合にも確認される。 今回行った簡易な体系での試解析の結果から、時間変化の分割数(タイムステップ数)を細かく 取ることで、1分割数内での間隙率の変化に極端な変化が生じることが低減され、同時に物質移動 に影響を与える拡散係数及び透水係数への極端な変化も低減されることから、擬定常状態を仮定 することによる物質移動への影響を十分に小さくすることが可能であると示唆された。

解析 ケース	間隙率と連動させた パラメータ	分割数
Case 1-a	拡散係数	4
Case 1-b	拡散係数	16
Case 1-c	拡散係数	32
Case 1-L	拡散係数	∞(直線)
Case 2-a	透水係数	4
Case 2-b	透水係数	16
Case 2-c	透水係数	32
Case 2-L	透水係数	∞(直線)
Case 3-a	拡散係数・透水係数	4
Case 3-b	拡散係数・透水係数	16
Case 3-c	拡散係数・透水係数	32
Case 3-L	拡散係数・透水係数	∞(直線)

表4.2-1 擬定常状態を仮定した解析において設定された解析ケース



図4.2-8 擬定常状態を仮定した解析による物質移行率への影響を把握するための解析結果

② 令和2年度の解析例を対象にした擬定常状態の確認

令和2年度に実施された緩衝材の長期変質挙動に関わる解析結果を例に、ここでは令和2年度の 解析における解析体系でセメント支保工と接する緩衝材部分の間隙率の経時変化を再確認すると 共に、間隙率の時間変化が相対的に大きくなった時間断面における最大タイムステップを調査し、 タイムステップ内での間隙率変化等に極端な変化が生じていなかったかどうかを確認することと した。図4.2-9に令和2年度の解析における解析体系及びセメント支保工と接する緩衝材部分の間 隙率の経時変化を示す。



図4.2-9 令和2年度の解析における解析体系及びセメント支保工と接する緩衝材部分の間隙率の経時変化

地下水の流動方向とセメント支保工と接する緩衝材部分の位置関係により、間隙率の変化に違いがみられ、上流側のセメント支保工と接する緩衝材部分(図4.2-9内の①)の方が下流側のセメント支保工と接する緩衝材部分(図4.2-9内の⑥)よりも間隙率の変化が大きい。今回、間隙率の時間変化が相対的に大きくなった期間(ここでは、一例として、10,000年から60,000年の期間)を対象に、10,000年毎の時間断面において、セメント支保工の①・⑥の間隙率変化が生じた際の最大のタイムステップがどの程度の時間であったかを調査した。その結果を図4.2-10に示す。各時間断面での最大タイムステップは、1×10⁵から1×10²秒のオーダーであった。



図4.2-10 各時間断面での最大タイムステップの変化(令和2年度の解析結果を対象)

水理・物質輸送 ・ 化学反応の連成解析においては、タイムステップはメッシュサイズに比例し、 空間的な解析能が増えるため解析時間が増加する(Marty et al., 2015)。このため、タイムステ ップとメッシュサイズの関係については、例えば、下記の様なNeumann(ノイマン)クライテリ ア(Rausch et al. 2005)を満たすようなタイムステップが取られていることが一つの制約条件と なる。

$$N_{eu} = \frac{2D_p \Delta t}{\Delta x^2} \le 1 \tag{4.2-1}$$

ここで、Dpは拡散係数、Δxはメッシュサイズ、Δtはタイムステップに相当する。令和2年度の解 析における最小メッシュサイズは0.01m(1cm)であり、拡散係数を10⁻¹⁰ m²/sとした場合、ノイ マンクライテリアを満たす最大タイムステップは、約5×10⁵ 秒となる。前述した令和2年度の QPACを用いた解析における各時間断面での最大タイムステップは、最大でも1×10² 秒オーダー であり、十分に小さいタイムステップが取られていることが判る。これらのことから、QPACにお いて擬定常状態を仮定した解析が行われていても、タイムステップ内での状態変数に極端な変化 が生じないように十分に細かなタイプステップが取られており、物質移動等に与える影響は十分 に小さいと考えられることを確認することができた。

水理・物質輸送 - 化学反応の連成解析におけるメッシュサイズが解析結果に与える影響に係る検討

1)のベンチマーク解析において、コンクリート及び粘土層の境界付近で生じる可能性のある間 隙閉塞の部分でも触れたが、メッシュサイズの設定の違いにより閉塞が生じる時間が異なり、解 析結果が異なる可能性がある。また、反応速度の違いによっても、同様な事象が生じる可能性が ある。これらはいずれも、水理・物質輸送・化学反応の連成解析に伴い、間隙が閉塞(間隙率が 0)になった場合、解析が停止することに起因する。一方、間隙の閉塞が生じなければ、メッシュ サイズ設定の違いが解析結果に与える影響は、基本的に小さいことを確認しておくべきである。 Marty et al. (2009)では、1)のベンチマークと類似した解析体系及び解析条件を対象に、コンク リートー粘土層の相互作用を例にメッシュサイズの設定や反応速度の違いが解析結果に与える影 響について、TOUGHREACT (Xu et al., 2004)を用いた水理・物質輸送・化学反応の連成解析 により検討している。そこで、本事業においても、Marty et al. (2009)の例を参考に、メッシュ サイズや反応速度をパラメータとした感度解析を行うと共に、メッシュサイズ設定の違いが解析 結果に与える影響について、QPACを用いた解析的な検討を行った。

① 解析体系及び解析ケース

解析体系は、Marty et al. (2009) と同様にコンクリート及びCOx粘土層(両方とも間隙率0.15、 拡散係数:10⁻¹⁰ m²/s、長さについては本解析ではMartyらの解析で設定された長さの半分として 各々2.5mに設定)とし、メッシュサイズ及び反応比表面積(反応速度をパラメータとした解析を するため、反応比表面積を変えて設定)についてもMarty et al. (2009) を参考に図4.2-11のよう に設定した。



図4.2-11 メッシュサイズ及び反応比表面積を変えた解析ケースの設定

図4.2・11に示す通り、メッシュサイズについてはコンクリート及び粘土層中を一律に10 cmのメ ッシュに設定した場合、境界付近のメッシュを1 cm及び1 mmと細かくし、境界から離れるにつ れメッシュサイズを大きく設定した場合の3パターンを対象にした。また、反応速度については、 1)のベンチマーク解析における解析ケース設定の部分でも触れた通り、不確実性の大きいパラメ ータの一つであるため、ここでは反応比表面積(A)を10倍から10,000分の1にしたケースを想定 し、反応速度として5桁の幅を考慮し、設定した。なお、解析条件(コンクリートの組成や間隙水 の設定、粘土層の組成や間隙水の設定、熱力学データベースの設定、速度論データの設定等)の 詳細については、1)のベンチマーク解析におけるMarty et al. (2015)の設定に準拠した。

2 解析結果

メッシュサイズ及び反応速度をパラメータとし、コンクリート ・粘土層の相互作用に伴う鉱物 変遷に関わる感度解析を行った結果を図4.2-12に示す。図4.2-12では、縦方向でメッシュサイズの 違い、横方向で反応速度の違いによる解析結果の比較を見る。なお、図4.2-12において、各図の鉱 物変遷は、左方に記載されているイタリックの数値(時間)での結果に相当し、境界部で間隙が 閉塞した時間は、各図の右方に記載されている数値になる。QPACの解析では、間隙が閉塞した時 点での解析結果の出力が困難なため、間隙の閉塞が生じる時間より少し前の時間での解析結果を 示している。



図4.2-12 メッシュサイズ及び反応比表面積を変えた場合の鉱物変遷に関わる感度解析結果

感度解析の結果、メッシュサイズに依らず、反応速度が遅くなると(反応比表面積が小さくな ると) コンクリート・粘土層の境界部における間隙の閉塞に要する時間が長くなることが判る。 また、メッシュサイズが小さい設定の場合の方が相対的に境界部での間隙の閉塞に要する時間が 短くなることも判る。さらに、今回の感度解析の中で最もメッシュサイズが大きく(最小メッシ ュサイズ10cm)、反応比表面積も最も大きい(A×10)ケースでは、反応速度を考慮した速度論 の解析を行っているものの、メッシュ内での反応が平衡に近い状態になっており、他の解析ケー スとは異なる鉱物変遷の結果になったものと推察された。このような結果は、本解析で対象とし た粘土鉱物の溶解・沈殿反応を含む遅い反応系においては、速度論的評価が重要であることを示 唆していると考えられる。なお、QPACを用いた現状での解析では、コンクリート・粘土層の境 界部の間隙が閉塞すると化学反応・物質輸送が停止するため、鉱物変遷の変化も停止する。この ため、閉塞時間の違いにより、各ケースでの鉱物変遷の状態も異なる結果となる。

一方、メッシュサイズの違いが解析結果に与える影響を確認するにあたり、間隙の閉塞が生じ ない条件での比較を行うため、最も反応比表面積が小さい (A/10,000) ケースを対象とし、いず れのメッシュサイズでも閉塞が生じず、なるべく長期の解析結果で比較を行うため、1,000年後の 解析結果を参照した。図4.2-13に異なるメッシュサイズを設定した場合のコンクリート - 粘土層 相互作用に伴う鉱物変遷に関わる解析結果を示す。図4.2-13に示されるように、基本的にメッシ ュサイズの違いによる鉱物変遷等の解析結果に与える影響は小さいと考えられた。



図4.2-13 異なるメッシュサイズを設定した場合のコンクリート - 粘土層相互作用に伴う鉱物変遷 の解析結果(A/10,000, 1000年後)

上述したメッシュサイズ及び反応速度をパラメータとした感度解析の結果をもとに、Marty et al. (2009)を参考にメッシュサイズ及び反応速度(反応比表面積)と間隙の閉塞に要する時間の関係を整理した。整理の結果を図4.2-14に示す。なお、図4.2-14には、反応比表面積を変えたケースとして、A/1及びA/10とした場合の結果の一部も併せて追記した。



図4.2-14 メッシュサイズ及び反応比表面積を変えた場合の鉱物変遷に関わる感度解析結果

図4.2-14より、メッシュサイズが小さいと反応比表面積の違いにより、間隙の閉塞に要するま での時間に3桁以上の違いが生じることが判る。このことは、メッシュサイズが小さいと連成解析 において反応速度が支配的になるためと考えられる。一方、メッシュサイズが大きいと反応比表 面積の違いによる間隙の閉塞に要するまでの時間の差が小さくなる。これは、メッシュサイズが 大きくなるとメッシュ中での物質の移行時間が長くなり、メッシュ内での反応が部分平衡に近づ くため、反応速度の影響が小さくなり、物質移行が支配的になるためと推察される。以上を鑑み ると、水理・物質輸送・化学反応の連成解析において、反応速度を考慮した解析を行う場合、メ ッシュサイズは小さい方が好ましいと考えられる。しかしながら、メッシュサイズが小さくなる と異種材料間における相互作用に伴い、境界部での間隙の閉塞が生じ易くなるため、連成解析に おける不確実性の大きいパラメータの一つである反応速度(反応比表面積)の取扱いが重要にな る。

(2) 水理・物質輸送 - 化学反応の連成解析コードを用いたモデルの確証・信頼性向上に関わる検 討

(1)でも述べた通り、サブタスク1で実施している「緩衝材の長期変遷挙動の予測」では、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を対象とし、モデルや評価手法の妥当性確認を 進めている。これらの相互作用を対象とした評価では、水理・物質輸送・化学反応の連成解析に 関わるモデルや評価手法が用いられ、その妥当性確認の進め方については、令和2年度の事業の中 で検討された(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,2021)。この 検討を通じて、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必要であり、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 報が重要になることや、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・ベン トナイト及び鉄・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ことが整理された(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,2021)。

これを受けて、令和3年度は、ナチュラルアナログ事例を対象にしたモデルの確証に関わる既往 の研究成果に基づき現状や課題を整理すると共に、令和2年度に実施した緩衝材の長期変質に関わ る水理・物質輸送 化学反応の連成解析結果を対象に、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類似した解析・評価を行った経験を有する海外の専門家にレビューを 依頼し、緩衝材の長期変質に関して一般的な変遷として考えられている知見等との比較に基づき コメントを受け、モデルの信頼性向上に向けて、今後見直すべき課題を整理することとした。

1) Tournemireのナチュラルアナログ事例を対象にしたモデルの確証に関わる既往の研究成果の 整理

本事業において水理・物質輸送 化学反応の連成解析に用いられている解析コードである QPAC (Quintessa Ltd. 2013) に関しては、セメント (コンクリート) とベントナイト (泥岩) の相互作用に関連するナチュラルアナログ (Tournemireの事例: Tinseau et al., 2006; Techer et al., 2012) を対象にしたモデルの確証に係る検討が既に行われている (例えば、Watson et al., 2013)。ここでは、Watsonらの例に基づき、QPACを用いた解析により、実際に観測された現象 の解釈がモデルの確証の観点でどの程度まで行われているかを確認すると共に、モデルによる実 現象の再現性の観点での充足性や課題を抽出・整理した。

Tournemireのナチュラルアナログは、industrialアナログとも呼ばれており、ジュラ紀の石灰 岩及び泥岩からなる地層中のトンネル内に、1990年代にボーリング孔が掘削され、セメント及び コンクリートで充填された。その後、15年から20年経過後、コンクリートと泥岩の相互作用に関 わるナチュラルアナログ研究用として試料採取が行われ、詳細な鉱物学的な調査等が行われた

(Tinseau et al., 2006; Techer et al., 2012)。コンクリートと泥岩の接触面付近を対象にした鉱物学的調査の結果について、Watson et al. (2013)の概念図を模倣し、作成し直したものを図4.2-15に示す。なお、接触部の試料が採取されたのは、トンネルの床盤から深さ1.55mの場所であり、飽和状態にあり、トンネル周辺に生じた掘削影響領域の外側に位置するとされている(Watson et al., 2013)。また、試料採取の際のコア径は約20cmで、コアから切り出された断面には、コンクリートと泥岩層の反応に伴う反応フロントが確認されている(Tinseau et al., 2006; De Windt et al., 2008; Techer et al., 2012)。図4.2-15にまとめられているように、コンクリートと泥岩の接触面を境にコンクリート部分及び泥岩部分で以下のような特徴が認められる。



図4.2-15 Tourunemireにおけるコンクリートと泥岩の接触面付近を対象にした鉱物学的調査の結果 (Watson et al., 2013の概念図をもとに作成)

- ・コンクリート部分:コンクリート ・ 泥岩の接触面に向かって、ポルトランダイトの溶解、C-S-H・方解石・エトリンガイトの増加、間隙率の増加
- ・泥岩部分:コンクリートから浸出した高pH溶液による変質の影響を受けた領域が存在し、鉱物 学的な特徴の違いから、3つの領域に区分。接触面から5mm程度の領域では、間隙率が低下

主に、上述したような鉱物学的な違いや間隙率の変化に関わる特徴に着目し、Watson et al. (2013) ではQPACを用いた水理・物質輸送 - 化学反応の連成解析を行い、観測結果との比較が 試みられた。比較の結果を表4.2-2に示す。なお、表4.2-2において、Watson et al. (2013) による 解析結果に関わる記述に下線が引かれた箇所は、Tinseau et al. (2006) による観測結果との相違 が認められた結果に相当する。

			観測結果(Tinseau et al., 2006等)	Watson et al. (2013)
鉱物学的特徴	コンクリート		接触面に向かって、 ・ポルトランダイトの溶解 ・ C-S-H 、方解石及びエトリンガイ トの増加	接触面に向かって、 ・ポルトランダイトの溶解 ・ <u>C-S-Hは、ほぼ一定(増加は予測 されず)</u> ・方解石、エトリンガイトは増加
	接触面		薄い皮殻質の炭酸塩が生成	方解石の沈殿(表面錯体を考慮する と沈殿せず: Case 2)
	泥岩	接触面~ 5mm	・石膏、エトリンガイが生成 ・粘土鉱物、石英が溶解	・ <u>方解石の生成</u> 、石英の溶解(Case 2を除く) ・ <u>トパモライト</u> (C-S-Hの近似物と して) <u>の生成</u> (Base caseを除く)
		5~15 mm	 ・方解石が沈殿 ・粘土様鉱物相、C-S-H及びC-A-S- Hが生成 	 ・方解石の沈殿 ・トパモライトの生成(Base case を除く) ・ハイドロタルサイト等の沈殿
間	コンクリート		接触面に向かって増加	接触面に向かって低下
隙 率 泥岩			接触面近傍(~5mm)で低下	接触面近傍(Base case)、~5 mm で低下(Case 1及び2)
水 質	pН		コンクリートの影響を受けていない 泥岩中の間隙水:pH=7.5程度	コンクリートから離れるにつれ、pH 低下(接触面から350mm付近で、 pH=7.9程度)

表4.2-2 Tourunemireにおけるコンクリートと泥岩の接触面近傍における鉱物学的な違いや 間隙率の変化の観測結果と解析結果との比較

Watson et al. (2013)の解析では、化学反応に係るモデルの違いによる比較も行うため、3つの 解析ケース(Base case: 鉱物の溶解・沈殿反応のみを考慮したケース、Case 1: Base caseにイ オン交換反応も加えて考慮したケース、Case 2: Base caseにイオン交換反応及び表面錯体反応も 加えて考慮したケース)を設定し、各々、観測結果との比較が行われた。

コンクリート部分では、いずれの解析ケースでも接触面に向かってポルトランダイトの溶解が 進むと共に、方解石とエトリンガイトの増加が推測された。このような推測結果は、観測結果で 認められた傾向と一致した。一方、解析ではコンクリート部分でのC-S-Hの量に変化は認められ なかったが、観測結果では接触面に向かってC-S-Hの量も増加しており、相違が認められた。

コンクリートと泥岩の接触面では、観測結果では、薄い皮殻質の炭酸塩(バテライト・アラゴ ナイト・方解石)の生成が確認され、解析でも方解石の沈殿が推測された。但し、Case 2である 表面錯体を考慮した解析では、方解石の沈殿は生じず、観測結果との相違が認められた。

泥岩部分では、まず、接触面から5mm程度の領域において、石膏やエトリンガイトの生成に加 え、初生鉱物として存在していたと考えられる粘土鉱物や石英の溶解が観測された。一方、解析 では、Case 2以外では石英の溶解が推測されたが、石膏の生成は認められず、方解石の生成が生 じた。また、解析では、Base case以外では、CSH鉱物であるトバモライトがC-S-Hの近似物とし て推測された。次に、接触面から5-15mm程度の領域において、方解石の沈殿、粘土様鉱物相や C-S-H及びC-A-S-Hの生成が観測された。一方、解析では、いずれの解析ケースでも方解石及びハ イドロタルサイトの沈殿が推測され、Base case以外ではトバモライトの生成も生じた。このよう に、泥岩部分では、炭酸塩の生成については観測結果と解析で整合するものの、石膏やエトリン ガイトのようなSO4を含む鉱物の生成については、解析では推測されなかった。また、観測結果で は、非晶質物質(ゲル)であるC-S-HやC-A-S-Hが観測されているものの、解析では結晶質である トバモライトの生成が推測されている。これについては、解析で用いた熱力学データにC-A-S-H が含まれていないことやC-S-Hの熱力学データの不確実性に起因すると考えられ、Watsonらはト バモライトをC-S-Hの近似物として取り扱っている(Watson et al., 2013)。この他に、観測結果 では粘土様鉱物相の生成が認められているが、これが解析で推測されたハイドロタルサイトのよ うな層状復水酸化物に近似されるかどうかは不明である。このように、泥岩部分での変化(変質) は複雑であり、観測結果と解析結果で、整合するものと不整合なものが混在する。

間隙率については、コンクリート部分では、観測結果では接触面に向かって間隙率が増加する ものの、解析では接触面に向かって間隙率が低下しており、傾向が異なった。一方、泥岩部分で は、観測結果及び解析結果ともに、接触面近傍で間隙率が低下しており、整合した。

なお、接触面近傍での間隙水のpHについては、観測結果が無いため比較は困難ではあるが、解 析ではコンクリート部分から泥岩側に離れるにつれてpHが低下する様子が推測されており、接触 面から350mm以上離れると、コンクリートの影響を受けていない泥岩中の間隙水のpHに近づく 傾向が示唆されている。このような解析結果に基づくpH変化の傾向は、既往の他の類似事例によ る解析結果の傾向と照らしても概ね妥当であると考えられる。

上述した通り、コンクリート・泥岩の相互作用のナチュラルアナログとして、Tournemireを対象にQPACを用いた水理・物質輸送・化学反応の連成解析によるモデルの確証が行われ、接触面近傍における相互作用の影響を受けた領域での鉱物学的な変化の特徴を解析により推測し、観測結果との比較により、一部不整合な点はあるものの変化の傾向を概ね再現できることが示されている。このような検討を踏まえ、Watson et al. (2013)は、モデルの信頼性をより向上させる上での課題として、二次鉱物として生成するC-S-H及びC-A-S-Hの熱力学データの補強(C-S-Hの熱力学データの信頼性向上やC-A-S-Hの熱力学データの追加)やオストワルド段階則に従う鉱物の結

晶成長に関わるモデル(例えば、バテライト・アラゴナイトから方解石への相転移を考慮したモ デル)の取り込みを挙げている。これらのうち、本事業での取り組みである緩衝材の長期的変質 に関わる状態変遷を踏まえた核種移行解析を念頭にした場合、セメント及びベントナイトの変質 に伴い生じる二次鉱物としての重要性や核種の収着への影響等の観点で、前者の方が優先的に取 り組むべき課題と考えられる。なお、C-A-S-Hは、セメント・ベントナイト相互作用により生じ る可能性の高い二次鉱物の一つである沸石類の前駆物質とも考えられる可能性もあるため、オス トワルド段階則の観点でも重要であると考えられる。

なお、Watsonらの解析では、同心円状の点対称1次元解析体系を用いており、メッシュの設定 は、コンクリート領域(5.5 cm)を46分割、泥岩領域(44.5 cm)を145分割とし、接触面近傍で はメッシュサイズを細かくし、接触面から遠ざかるにつれてメッシュサイズを粗く設定している (Watson et al., 2013)。また、メッシュサイズの最小値は、接触面近傍で0.2 mm、最大値はコ ンクリート部分で2.5 mm、泥岩部分で6.0 mmとなる。Tournemireの例では、反応時間は、最大 で15年であり、反応フロントが認められた領域は、接触面から概ね1cm程度である。Watsonらも 述べているように、水理・物質輸送 化学反応の連成解析において間隙の閉塞が生じる可能性が ある場合、メッシュサイズの設定に留意する必要がある。解析対象とする体系に対し、閉塞可能 性のある場合にメッシュサイズを大きくし過ぎると閉塞が生じず、実際に生じる反応輸送現象を 正確に再現することが困難になり、逆にメッシュサイズを小さくし過ぎると実際に生じる反応輸 送現象を過小評価することになり得る。このため、Watsonらは、接触面近傍とそれ以外の部分で のメッシュサイズを変え(接触面近傍のメッシュサイズを細かく設定)、解析対象とした Tournemireでの事例に対して適切な変質深さや時間(間隙率の低下を考慮)になるようなメッシ ュの設定を検討し、結果として接触面近傍での最小メッシュサイズを0.2mmに設定した。なお、 Watsonらも補足しているが、Tournemireを対象とした解析での対象期間(15年程度)における 拡散現象では、接触面での間隙率の低下に伴い、みかけ上、ほぼ物質移行が停止した状態と近似 した取扱いを行ったが、想定される処分システムの体系や評価期間を考慮する場合、このような 取扱いについては見直す必要があるとしている。(1)の3)のメッシュサイズが解析結果に与える影 響に係る検討の部分でも述べたように、水理・物質輸送 – 化学反応の連成解析における適切なメ ッシュサイズの設定や間隙閉塞に関わる取扱いは、現状では一概に決められるものではなく、対 象とする解析体系や対象期間等も踏まえつつ、ナチュラルアナログによる確証事例での評価方法 等にも留意しながら行うことが必要であると考えられる。

2) モデルの信頼性向上のための海外専門家によるレビュー

令和3年度は、令和2年度に実施した緩衝材の長期変質に関わる水理・物質輸送 · 化学反応の連 成解析結果を対象に、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類似し た解析・評価を行った経験を有する海外の専門家にレビューを依頼し、緩衝材の長期変質に関し て一般的な変遷として考えられている知見等との比較に基づきコメントを受け、今後見直すべき 課題を整理することとした。

今回、レビューを依頼した専門家は、Wilson Science Ltd.社(英国)のDr. James Wilsonであ る。Wilson博士は、鉱物・水反応(鉄・ベントナイト、セメント・ベントナイト、セメント・ 粘土層、セメント変質等を含む)及び核種移行に関わる地球化学モデリングの専門家であり、近 年では、放射性廃棄物の地層処分におけるセメント・泥質岩相互作用に係る主要なプロセスのレ ビューや相互作用評価において残された課題をまとめたレビュー論文(Wilson et al., 2021)を公 表している。今回のレビューでは、セメント・ベントナイト及び鉄・ベントナイト相互作用に伴 う緩衝材の長期変質に関わる水理・物質輸送・化学反応の連成解析において、解析で考慮された プロセスの妥当性、解析で用いたデータ・パラメータ選定の妥当性、想定された二次鉱物の選定 の妥当性、他の類似事例との比較に基づく解析結果の妥当性等の観点でコメントを整理して頂い た。

図4.2-16に令和2年度に実施した緩衝材の長期変質に関わる水理・物質輸送 化学反応の連成 解析により得られた結果(緩衝材中の構成鉱物の時間変遷)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,2021)を示す。なお、図中にはレビューコメントを頂いた 箇所を点線丸印で示してある。



図4.2-16 緩衝材の長期変質に関わる水理・物質輸送-化学反応の連成解析 により得られた結果(緩衝材中の構成鉱物の時間変遷)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,2021)

令和2年度の解析では、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(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, 2021)。図4.2-16に示した解析結果は、これ らの解析のうち、相対的に緩衝材への変質影響の大きい場合のものである。

以下に、主なレビューコメントとコメントに対する回答及び今後の対応方針について記す。

セメント - ベントナイト相互作用

- ・コメント①:初期の随伴鉱物として存在していた玉髄が反応の進行に伴い溶解し、より安定なシリカ相である石英として沈殿している。しかしながら、今回の解析における温度条件(25℃)では、数千年程度で石英が沈殿するのは想定し難い。なお、溶存シリカ濃度は、モンモリロナイト安定性(溶解)にも影響を与えるため、シリカ鉱物の溶解・沈殿には注意が必要である。
- →回答・対応方針:解析で使用した石英の溶解・沈殿速度式の適用条件(pHとの関係)を再確認 する。速度式の適用に不適切な取扱いが無い場合、石英については溶解反応のみを考慮し、沈 殿は考慮しない等の解析上の仮定を設けて再解析を試みる。
- ・コメント②:今回の解析における二次鉱物の長期変遷に関わるシナリオ選定の根拠(生成を仮 定した沸石類の選定理由等)を明確にすべき。例えば、解析条件によっては、SO4アタックによ

るThaumasiteの生成もシナリオとして想定され得る。また、二次鉱物として選定された Sepioliteは、M-S-Hの代替として想定されたと思われるが、M-S-Hの熱力学データが利用可能 であれば考慮した方が良い。

- →回答・対応方針:今回の解析では、小田ほか(2005)による二次鉱物の長期変遷シナリオから、 準安定相の沸石類の生成を仮定したシナリオの一部を対象に試解析を行った。今後は、安定相 も含めた他の鉱物変遷シナリオも想定した解析も検討する。また、小田ほか(2005)のシナリ オは、Na-K-Ca系での想定であり、より複雑な系(Na-K-Ca-Mg/Fe-Cl-SO4等)で想定される鉱 物変遷のシナリオについても、今後、最新の情報や知見を収集・整理した上でシナリオの更新 を図っていくことも必要である。なお、M-S-Hの熱力学データは、別事業で整備中(例えば、 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,2021)であり、今後、デー タの信頼性確認を行った上で熱力学データベースに取り込んでいく計画である。
- ・コメント③:50,000年以降、セメント支保 緩衝材の境界で間隙の閉塞が生じている。この種の連成解析ではよく生じる結果であるが、緩衝材中での間隙の取扱いに不確実性がある。
- →回答・対応方針:今回の解析では、単一間隙を仮定しているが、複数間隙(層間・電気二重層・ 外部間隙)を仮定したモデルによる解析例もあり、後者の例では間隙の閉塞が生じない例も示 されている(Jennie et al., 2017)。他の類似した解析例においても、単一間隙・複数間隙の両 方のアプローチがケースバイケースで用いられている。このため、間隙の取扱いについては、 今後の検討課題と認識はしているものの、本事業の期間内で複数間隙を考慮したモデルの開発 は、時間的な制約の観点から困難なのが現状である。
- ・コメント④:比較的短期(おおよそ100年程度)で、緩衝材の全域にわたり、Na型フィリップ サイトが生じているのは、現実的な解析結果には思えない。
- →回答・対応方針:Na型フィリップサイトの沈殿速度式の適用条件(pHとの関係)を再確認する。 なお、速度式の適用に不適切な取扱いが無いと考えられた場合、類似した既往の解析例で、Na 型フィリップサイトの沈殿を想定した解析が行われていないかどうかも調査する。

鉄 - ベントナイト相互作用

- ・コメント⑤:鉄・ベントナイトの相互作用に伴い生成が想定される二次鉱物として、鉄ケイ酸 塩鉱物や1:1型の鉄含有粘土鉱物より、むしろ、Fe(II)に富んだサポナイトのような2:1型の粘土 鉱物を考慮すべきである。
- →回答・対応方針: 拝承。鉄・ベントナイト相互作用に関わる既往の類似した解析例で想定されている二次鉱物に関わる情報も参考にしつつ、今後、小田ほか(2005)によるセメント・ベントナイト相互作用に伴う二次鉱物の長期変遷シナリオと同様なシナリオの構築も視野に検討を進める。

なお、鉄・ベントナイト相互作用については、二次鉱物の長期変遷シナリオも十分に整備され ていなかったことから、令和2年度の緩衝材変質予測解析では1ケースのみを対象としていたため、 今回のレビューでは、主にセメント・ベントナイト関係のコメントを受けた。

上述したように、今回、海外の専門家のレビューを受けることで、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を対象とした水理・物質輸送 · 化学反応の連成解析にお けるモデルや評価手法の信頼性を向上する上で有用となるコメントが得られた。また、これらコ メントに対する対応方針も併せて整理した。今後は、今回整理した対応方針を基に、モデルや評 価手法の改良を図り、モデルや評価手法の妥当性確認を引き続き進めていく予定である。

4.2.3 これまでの成果と今後の課題

令和3年度は、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 化学反応の解 析モデルの妥当性確認の一環として、本事業で使用する解析コードを用いたベンチマーク解析を 行うと共に、解析手法(擬定常状態の仮定やメッシュサイズ設定)の妥当性に関わる検討も実施 した。また、解析コードの確証に係る既往成果の再整理を行うと共に、令和2年度に実施した緩 衝材の長期的変質挙動の予測に関わる解析結果を一例に、類似した解析実績の経験のある海外の 専門家によるレビューを受け、今後の課題について整理した。

平成 30 年度から令和 3 年度までの 4 年間の検討により、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。令和 3 年度は 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・化学反応の解析モデルの妥当性 確認を中心に検討を進め、モデルや評価手法の信頼性を向上するための課題を抽出した。これら は、プロトタイプシステム開発を通じて示してきた、より現実的な評価に向けた現象解析モデル の統合化の方法論の有効性の確認につながると考えられる。

今後は、令和3年度に抽出された課題を踏まえ、モデルや評価手法の見直しを図り、水理・物 質輸送・化学反応に係る連成解析の妥当性確認を継続すると共に、より信頼性の高い評価結果を 得るための技術の整備を進める。そして、緩衝材の状態変遷評価へのフィードバックの具体例に ついても検討し、SP1で実施されるような個別現象モデル開発・パラメータ整備の観点で必要な 課題についても整理を試みる予定である。

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(サブタスク1)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。

令和3年度は、核種移行解析の妥当性検討の一環として、メッシュ依存性について予察的な検討 を行った。また、緩衝材の変質状態の時間変遷を踏まえた核種移行パラメータ設定の方法論の検 討を継続し、pHへの依存性の大きい核種を対象にした場合の予察的な核種移行解析を行った。さ らに、SP1及びSP2との連携の観点から、SP1及びSP2の成果のSP3への反映に向けた情報整理の 案を作成すると共に、SP3で実施する状態変遷を踏まえた核種移行解析の評価結果を基に、他の SPにフィードバックを図る際のフロー案についても整理した。本節では、これらの検討の成果を 示す。

4.3.2 実施内容

(1) 核種移行解析におけるメッシュ依存性に関わる予察的検討

4.2節における現象解析モデルの統合化技術の構築では、緩衝材の長期変質挙動の予測において メッシュサイズが解析結果に与える影響について検討し、異種材料間における相互作用に伴う間 隙の閉塞が生じなければ、メッシュサイズ設定の違いが解析結果に与える影響は、基本的に小さ いことを確認した(4.2.2項の(1)の3))。場の変遷を踏まえた核種移行解析を行う場合、QPACに よる場の変遷に関わる解析結果(例えば、間隙水のpH、溶液組成、構成鉱物の種類や体積割合等) をQPAC-RNTと呼ばれる解析コードに読み込ませ、核種移行解析が行われる。このため、例えば 令和2年度に実施した場の変遷を踏まえた核種移行解析では、QPACで実施された場の変遷に関わ る解析で用いられたメッシュサイズ設定と同様の設定でQPAC-RNTを用いて解析が行われた(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,2021)。また、令和2年度に実施 されたQPACを用いた場の変遷に係る解析では、異種材料(例えば、オーバーパックと緩衝材)の 境界付近では、小さいメッシュサイズを設定し、境界から離れるにつれ、メッシュサイズを大き くした設定がなされている(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、 2021)。一方、QPAC-RNTにより緩衝材中での核種の濃度分布を評価する場合、メッシュ毎にメ ッシュ内での核種の濃度が平均化されるため、メッシュサイズの設定の違いにより、核種の濃度 分布が変化する可能性も考えられる。そこで、令和2年度に実施された緩衝材の長期変質挙動の予 測に係る解析例(相対的に緩衝材への変質影響の小さいケースであるCase 1を基に境界部(変質 層)の拡散係数を2桁大きくした解析ケース)を対象に、QPAC-RNTにより緩衝材中での核種の 濃度分布を評価する際、メッシュサイズの設定を変えたケースで核種移行解析を行い、解析結果 を比較することで影響の程度を予察的に把握することとした。

図4.3-1にQPAC-RNTによる核種移行解析で用いた異なるメッシュサイズ設定を示す。今回実施した予察的検討では、3つのパターン(パターン1:令和2年度に実施された核種移行解析と同様のメッシュサイズ設定、パターン2:パターン1を基に各メッシュを半分のサイズにしてメッシュの数を2倍に増やしたケース、パターン3:緩衝材中を等間隔の16個のメッシュに分割したケース)を想定し、解析を行った。なお、核種移行解析で対象とした核種は、令和2年度の解析の場合と同様にCs-135である。



図4.3-1 QPAC-RNTによる核種移行解析で用いた異なるメッシュサイズ設定

解析結果を図4.3-2に示す。今回は、予察的検討でもあり、解析結果の比較は核種移行開始後 1,000年程度までの間での比較とした。なお、この時間範囲内では、令和2年度の解析条件では境 界部での間隙の閉塞は生じていない。図4.3-2に示される通り、いずれのメッシュサイズパターン の場合でも緩衝材中でのCs-135の濃度分布には大きな差異は認められなかった。この理由の一つ としては、QPAC-RNTと同様に、QPACによる場の状態変遷における解析においてもメッシュ毎 にメッシュ内での濃度が平均化されているため、QPAC-RNTによる核種移行解析の際にメッシュ を細分化しても、核種移行挙動に与える影響の程度は小さいためと考えられた。今回試みた核種 移行解析におけるメッシュ依存性に係る検討については、場の状態変遷に関わる評価とも併せて 検討すべき課題でもあり、メッシュ設定の妥当性については、場の状態変遷と核種移行を組み合 わせて、また状態変遷、核種移行特性や核種濃度分布の変化が大きく変化する過渡的な状態を対 象とした場合など、さらなる確認が必要と考えられる。また、緩衝材だけでなく、セメント支保 や掘削影響領域を含むニアフィールド岩盤も含めた解析体系でのメッシュサイズ設定の違いによ る解析結果への影響に係る検討も、今後、必要になると考えられる。



図4.3-2 QPAC-RNTを用いた異なるメッシュサイズ設定による核種移行解析結果の比較

(2) 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

サブタスク1における水理・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は、主に間隙水 のイオン強度の影響に着目し、陽イオンとしてCs、陰イオンとしてIを対象としてパラメータ設 定を検討した。令和3年度は、間隙水のpHの影響にも着目し、間隙水条件によって支配化学種 が変化し、それに伴って核種移行特性が複雑に変化する核種を対象に検討を進めた。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を説明し、令和2年度のCsとIのパラメータ 設定結果を確認したうえで、令和3年度の新たな核種を対象としたパラメータ設定内容について 報告する。

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 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、令和2年度に対象とした Cs とIのような核種の 場合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。

これらを踏まえ、令和2年度においては、間隙水化学の影響が比較的単純となる Cs と I を対象 に、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(表 4.3-1)。

楼成幼物	Cs(陽イオン)		I (陰イオン)	
1再193.94170	$D_e (\mathrm{m}^2/\mathrm{s})$	$K_d (m^3/kg)$	$D_e (\mathrm{m}^2/\mathrm{s})$	$K_d (m^3/kg)$
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}: 5.4×10⁻¹⁰·IS^{-0.55} 初期値 (IS = 0.026): 4.0×10⁻⁹ 	 ・換算式^{※1}: 1.6×10⁻²·IS^{-0.7} 初期値(IS = 0.026): 2.1×10⁻¹ 	 ・換算式^{*1}: 1.3×10⁻¹⁰·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}: 4.7×10⁻¹⁰·IS^{-0.40} 初期値 (IS = 0.026): 2.0×10⁻⁹ 	 ・換算式^{※2}: 8.0×10⁻³·IS^{-0.35} 初期値(IS = 0.026): 0.029 	 ・換算式^{*2}: 3.0×10⁻¹⁰·IS^{0.10} 初期値 (IS = 0.026): 2.1×10⁻¹⁰ 	0
モンモリロナイト以外	ト 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} : 2.0×10 ⁻⁹ · $P^{2.0}$ ・初期値 ($P = 0.4$): 3×10^{-10}	0^{*4}	・換算式 ^{**3} : 2.0×10 ⁻⁹ · $P^{2.0}$ ・初期値 ($P = 0.4$): 3×10^{-10}	0

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CsとIの核種移行パラメータの設定 (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, 2021)

※1) ケイ砂混合率 30%、乾燥密度 1.6 Mg/m³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/m³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。

初期状態の Na 型モンモリロナイト中の Cs や I の実効拡散係数(D_e) 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、先行研究で整理された Cs 及び I のDeデータのイオン強度依存性をもとに換算式を 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、先行研究で整理された Cs のKaデータのイオン強度依存 性に基づき換算式を設定した。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_{ρ} 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Deデータ、CsのKdデータのイオン強度依存性を参考に換算式を設定した。なお、MgやFe型 化による拡散・収着パラメータも、Ca型化による変化と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 に設定した。なお、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、 $C_{s} \ge I$ に対して $K_{d} = 0$ 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、以下に示す方法を用いた(日本原子力研究開 発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2021)。

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^{ave}として算出した。

$$\frac{1}{D_e^{ave}} = \frac{v^{\text{Na}}}{D_e^{\text{Na}}} + \frac{v^{\text{Ca}}}{D_e^{\text{Ca}}} + \frac{v^{others}}{D_e^{others}}$$
(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。

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Kaveとして算出した。

$$K_d^{ave} = w^{\operatorname{Na}} \cdot K_d^{\operatorname{Na}} + w^{\operatorname{Ca}} \cdot K_d^{\operatorname{Ca}} + w^{others} \cdot K_d^{others}$$
(4.3-2)

令和3年度の検討では、間隙水のpHの影響にも着目し、間隙水条件によって支配化学種が変化し、それに伴って核種移行特性が複雑に変化する核種を対象に検討を進めることとした。上記の通り、間隙水のpHの変化も影響を考慮する場合、核種によっては、加水分解による化学種の

変化のみならず、炭酸錯体が支配的化学種として形成されるなど、支配化学種が複雑に変化し、 それに伴う拡散・収着特性への影響も複雑化し、Cs と I を対象に検討したような実験式に基づく パラメータ設定は困難となる。このことを踏まえ、今回の検討では、加水分解による化学種変化 が支配的であること、十分な実測データの取得とモデル化検討がなされていること、また、対象 となる pH 条件での支配化学種や収着挙動に特徴的な違いが存在することなどの視点から、Ni と Sn を対象に選定した。

Ni の場合、pH9 程度から pH の上昇とともに、Ni²⁺から水酸化物錯体へと支配化学種が変化していく。実効拡散係数 (D_e) については、この pH に伴う支配化学種の電荷の変化 (陽イオン→中性錯体→陰イオン錯体) に対応して、表 4.3-1 に示した Cs, HTO, Iの換算式を適用することとする (表 4.3-2)。一方で、収着分配係数 (K_a) は、pH の変化に対応した高 pH 条件での K_a データの傾向性と、高 pH 条件における K_a がイオン強度には依存しないことを踏まえて、pH 領域ごとに換算式を設定した (表 4.3-2)。Sn の場合、より低い pH 領域から水酸化物錯体が形成され、高 pH 領域では陰イオン錯体が支配的となる。この pH に応じた支配化学種の変化に対応して、中性領域から pH の上昇に伴い K_d は急激に減少することとなる。これらの pH に応じた化学種の変化、 K_d の変化を踏まえ、Ni の場合と同様の考え方で、pH 領域ごとに D_e 及び K_d の換算式を設定した(表 4.3-2)。Ca 型ベントナイトやゼオライトの変質の影響については、Cs と I の設定の考え方を踏襲した設定とした。

場の設定 (構成要素)	Ni(陽イオン →中性種→陰イオン: pH<9→pH>11)		Sn (中性種→陰イオン: pH<8→pH>8)		HTO(中性種)
(件队女杀)	De (m²/s)	Kd (m³/kg)	De (m²/s)	Kd (m³/kg)	De (m²/s)
Na型モンモリ ロナイト(ケイ 砂30%,密度 1.6 Mg/m ³ の 場合)	 ・pH<9:Csl:準拠した IS依存性換算式を利用 ・pH9~11:HTOI:準拠 (ISI:依らず一定) ・pH>11:II:準拠したIS 依存性換算式を利用 	 ・pH<9:1.11e- 6×EXP(1.9×pH)の 換算式を利用 ・pH9~11:pHIに依ら ず一定=30 ・pH>11: 5.31e+6×EXP(- 1.1×pH)の換算式を 利用 	 ・pH<8:HTOに 準拠(ISIこ依らず 一定) ・pH>8:II:準拠 したIS依存性換 算式を利用 	・pH<8:pHに依 らず一定≒100 ・pH>8: 1.11e+7×EXP(-1.45×pH)の換 算式を利用	・2.8e-10(ISに 依らず一定)
Ca型モンモリ ロナイト(ケイ 砂30%,密度 1.6 Mg/m ³ の 場合) ※Mg, Fe型も Ca型の場合と 同様と仮定	 ・pH<9:Cslこ準拠した IS依存性換算式を利用 ・pH9~11:HTOIこ準拠 (ISIこ依らず一定) ・pH>11:IIこ準拠したIS 依存性換算式を利用 	・Na型の場合と同じ 扱い	 ・pH<8:HTOに 準拠(ISIこ依らず 一定) ・pH>8:IIこ準拠 したIS依存性換 算式を利用 	・Na型の場合と 同じ扱い	・4.0e-10(ISに 依らず一定)
変質鉱物(ゼ オライト、非 膨潤性鉱物 等)	初期状態 •3e-10 (P=0.4) 換算式 •2.0e-9×(P) ^{2.0}	0(Cs及びIの場合と 同様の仮定)	初期状態 •3e-10 (P=0.4) 換算式 •2.0e-9× (P) ^{2.0}	0(Cs及びIの場 合と同様の仮 定)	初期状態 •3e-10 (P=0.4) 換算式 •2.0e-9× (P) ^{2.0}

表4.3-2	緩衝材の長期的変質に	伴う状態変遷を考慮し	.たNiとSnの核種移行。	パラメータの設定
-1X 1.0 L				

IS:イオン強度、P:間隙率

(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手法及び解析結果

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、令和2年度と同様に、 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(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(2)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・3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。



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として、緩衝材中の単位体積あたりのNi-59及びSn-126の存在量の経時変化を示すと共に、併せて単位体積あたりのモンモリロナイト残存量も示した(図4.3-4)。



図4.3-4 緩衝材中のNi-59及びSn-126の存在量分布とモンモリロナイト残存量の経時変化

なお、令和2年度と同様に、これら核種移行解析の結果は、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。また、 図4.3-5には、Ni-59及びSn-126に対する*K*_dの経時変化に加え、緩衝材中の間隙水のpH変化を複数 の時間断面において比較した結果も示す。

令和2年度に実施した緩衝材の長期変質に関わる状態変遷の解析におけるCase 2を対象にした 核種移行解析の結果から、Ni-59及びSn-126のいずれの核種についても緩衝材中での存在量は、比 較的長い期間(例えば、10,000年程度)、緩衝材の内側部分で核種が高濃度で保持されているこ とが判る(図4.3-4)。このような核種移行の遅延効果は、緩衝材中での間隙水のpHが長期にわた り、pH>8のアルカリ性の条件が保持されていることや、そのようなpH条件では、今回の解析で 対象とした核種(Ni-59及びSn-126)の K_d が比較的大きいことを反映しているためと推察される (図4.3-5)。一方、50,000年を超えるような長期における緩衝材中での核種の残存量を見てみる と、緩衝材の内側から拡散で移行した核種の緩衝材の外側部分での遅延効果は、緩衝材の内側部 分に比べて小さいように見える(図4.3-4)。このことは、核種移行解析の対象としたCase 2は相 対的に緩衝材変質の大きいケースであり、緩衝材の外側部分におけるセメント支保工とベントナ イトの相互作用に伴い、モンモリロナイト残存量が比較的少なくなったため、核種移行の遅延効 果が低減されたためと推察される(図4.3-4)。以上述べたように、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は、緩衝材の間隙水のpHやモンモリロナイト残存量の経時変化 といった場の状態変遷と連動しており、本項(2)で設定した核種移行パラメータの換算式を適切 に反映した解析が実施されているものと考えられる。



図4.3-5 緩衝材中の間隙水のPH変化とKGの経時変化の比較 (a)複数の時間断面におけるpHの変化 (b) Ni-59及びSn-126のKdの経時変化

また、本項(2)でも述べた通り、令和2年度は核種移行解析の対象核種として、陽イオンとして Cs、陰イオンとしてIを選定し、場の状態変遷(環境条件の変化)を踏まえた核種移行パラメータ (*D*_eや*K*_d)を設定し、核種移行解析を試行した(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,2021)。これらの核種に対する核種移行パラメータは、環境条件としての塩濃 度(イオン強度)や緩衝材の間隙率との依存性に基づく実験式を基に、緩衝材の長期的変質挙動 に係る連成解析結果から推定された構成鉱物の情報を反映した換算式により、場の状態変遷を踏 まえた*D*_eや*K*_dが導出された(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, 2021)。一方、令和3年度に核種移行解析の対象とした核種(Ni-59及びSn-126)は、環境条件へ の依存性としては、pHによる影響が大きいと考えられる。そこで、令和2年度に実施されたCs-135 及びI-129を対象にした場合と、令和3年度に実施したNi-59及びSn-126を対象にした場合の核種 移行解析結果を比較し、これらの核種を対象とした場合の緩衝材中での核種の移行遅延に影響を 及ぼす因子の検討を予察的に試行した。図4.3・6に令和2年度に実施した緩衝材の長期変質に関わ る状態変遷の解析におけるCase 2を対象とした場合の令和2年度と、令和3年度の核種移行解析結 果の比較を示す。

令和2年度に実施されたCs-135及びI-129の核種移行解析では、これらの核種の緩衝材中での移行遅延は、 D_e よりも K_d が大きいことが示唆され、 K_d は、緩衝材中のモンモリロナイト残存量に大きく影響される(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,2021)。また、令和3年度に実施したNi-59及びSn-126の核種移行解析でも、同様な傾向が認められると共に、 K_d は、緩衝材の間隙水のpHにも大きく影響される。このことから、Case 2を対象とした緩衝材の変質に関わる状態変遷を反映し、これらの核種を対象とした場合には、緩衝材中での核種の移行遅延に影響を及ぼす因子として、モンモリロナイト残存量や間隙水のpHが相対的に影響の大きい因子である可能性が示唆された。今後は、サブタスク1における連成解析において、シナリオの多様性やパラメータ設定の不確実性等を踏まえた緩衝材の変質に関わる状態変遷に関わる解析を行い、それらを対象に、環境条件に対して核種移行パラメータの依存性の異なる複数の核種を対象にした核種移行の感度解析を行うことで、緩衝材の変質に関わるより幅広い状態変遷に対する核種の移行遅延に影響を及ぼす因子の抽出に繋がると考えられる。



図4.3-6 緩衝材中の単位体積あたりの核種の存在量及びモンモリロナイト残存量の比較 (a)Cs-135及びI-129の存在量とモンモリロナイト残存量 (b)Ni-59及びSn-126の存在量とモンモリロナ イト残存量

(4) 他のサブプロジェクト(SP)との連携の観点からの情報整理

サブタスク2では、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、核種移行挙動の評価が行われる。サブタスク1の現象解析モデルの統合化技術の構築 では、SP1で取り組まれている人工バリア及びその周辺岩盤を含むニアフィールドで生じる現象・ プロセスの理解に基づいた個別現象モデル開発やパラメータ整備に係る情報を反映することが重 要である。なお、SP1 では閉鎖後過渡期において緩衝材の状態変遷等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の評価のため、例えばニアフィールド THMC 連成挙動評価や流出 現象等を考慮した緩衝材の健全性評価に関連する検討が行われている。これらの成果を SP3 にお けるサブタスク 1 での評価に反映するには、SP1 での評価から導き出される不確実性を SP3 のサ ブタスク 1 で実施する緩衝材の長期変質挙動における初期状態の不確実性として適切に考慮する ことが必要になる(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, 2021)。 一方、現状では、SP1 及び SP3 の間での連携として、上述したような観点での具体化は図れてい ない。

また、サブタスク2のニアフィールドシステム核種移行評価技術の開発では、サブタスク1で の連成解析を踏まえ、SP2と連携し、緩衝材の長期変質に関わる場の変遷を考慮した核種移行パ ラメータ設定の方法論を検討し、核種移行解析評価への反映を試行している(日本原子力研究開 発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター,2021)。一方、SP1での取り組みとも関連する オーバーパックやセメント支保と緩衝材との相互作用に伴い、緩衝材への変質影響が顕在化し、 モンモリロナイト残存率が顕著に低下するような可能性が想定され得る場合、SP1とSP2との連 携も踏まえた上で核種移行パラメータ設定の方法論を検討することも必要になると考えられる。 この他に、SP2では有機物や微生物による核種移行への影響に関わる検討も進められているがニ アフィールドを対象とした場の状態変遷を考慮した核種移行解析評価との繋がりも整理が不十分 である。

上述したような現状を踏まえ、今後、SP1及びSP2の成果をSP3に反映することを念頭に、SP1 及びSP2で得られる成果の例とそれらをSP3に反映する場合の例について、幾つかの情報をもと に整理を試みた。表4.3・2にSP1及びSP2の成果のSP3への反映に向けた情報整理の案を示す。今 後、本事業のSP1及びSP2により得られた個別課題の成果の統合化を図るためには、表4.3・2に示 した情報等も参考にしつつ、サブタスク1でこれまでに開発してきた統合化技術を活用し、ニアフ ィールドにおける長期的な場の状態変遷を提示すると共に、サブタスク1で提示された状態変遷を 踏まえ、サブタスク2で開発した核種移行評価技術を用いた核種移行評価を行うための情報の整理 を進めていく必要がある。

	SP1及びSP2で得られる成果の例	SP3への反映
SP3-1:現 象解析モ デルの統合 化技術の 開発	 ・過渡期を含むOP腐食のメカニズムの理解、環境因子の違いによる腐食速度への影響把握、既存モデルの妥当性確認 ・過渡期における海水系地下水条件でのTHMC連成解析コード(Couplys)の妥当性確認、力学解析コード(Couplys)の妥当性確認、力学解析コード(MACBECE)の妥当性確認 ・OP腐食及びセメンテーション影響による緩衝材空質への影響の程度・範囲の評価例 ・処分孔における緩衝材活出抑制の工学的対策手法、 緩衝材流出を想定した場合の流出量と緩衝材の 不均一性の評価手法 ・セメント支保による岩盤変質への影響の程度・範囲の評価例 	閉鎖後長期の変遷評価による状態設定への反映 (まずは、1次元のような簡易な体系)を念頭に、 ・OPの不均一腐食も考慮した過渡期を含めたOP腐 食速度(腐食量)の変化の傾向 ・THMC連成解析に基づく過渡期における緩衝材中 の状態変遷(水質、鉱物組成等)や基本特性(透水 性、膨潤性等)変化の傾向 ・OP腐食及びセメンテーション発生可能性の影響を 考慮した場合の緩衝材中の状態変遷や基本特性 の変化の傾向 ・処分場操業・閉鎖時の緩衝材流出量を想定した場 合の緩衝材中の状態変遷や基本特性変化の傾向
SP3-2:二 アフィールド システム核 種移行評 価システム の開発	 ・OP及びセメント系材料による緩衝材や岩石への変 質影響を踏まえた条件での核種移行データの取得、 影響評価モデルの構築 ・岩盤(結晶質岩・堆積岩)を対象に、不均質性や環 境変遷を考慮可能な核種移行解析モデルの構築 ・有機物や微生物による核種移行への影響メカニズムの把握 	閉鎖後長期の人工パリアにおける状態変遷を踏まえ た核種移行評価への反映を念頭に、 ・OP及びセメント系材料による緩衝材への変質影響 (Fe共存、Ca型化等)を考慮した場合の核種移行 パラメータの設定方法 ・ただし、OP及びセメント系材料による緩衝材への変 質影響が顕在化する条件などSP1との連携が必要

表4.3-3 SP1及びSP2の成果のSP3への反映に向けた情報整理の案

(5) SP3から他のサブプロジェクト(SP) ヘフィードバックを図るためのフロー案の検討

前述の(4)とも関連するが、SP3ではSP1及びSP2で得られた成果の統合化を図ることが重要で あると共に、SP3のサブタスク1で実施するニアフィールドの空間的・時間的な変遷に係る解析と それを踏まえてサブタスク2で実施する核種移行評価から、SP1やSP2にフィードバックを図るこ とも必要である。(4)で述べたようなSP1及びSP2で得られた成果のSP3への反映は、ボトムアップ 型での現象解析モデルの統合化アプローチであるが、本項で述べるSP3からSP1及びSP2へのフィ ードバックは、トップダウン型での現象解析モデルの統合化アプローチと捉えることもできる。 令和3年度は、本事業のSP3で実施するニアフィールドの複合現象を対象とした状態変遷を踏まえ た核種移行解析の評価フローの案(重要な安全機能に着目し設定された課題「緩衝材の長期的変 質挙動の予測」を対象にした例:図4.3-7)を基に、他のSPへフィードバックを図ることを念頭に、 フィードバックの例を整理した。



図4.3-7 ニアフィールドの複合現象を対象とした状態変遷を踏まえた核種移行解析の評価フローの案

図4.3-7 に示す通り、SP3では、平成30年度から平成31年度にかけて本事業で優先的に取り組 む課題を選定すると共にシナリオの整理が行われ、それを受けて平成31年度から令和2年度にお いて複合現象を統合化させて評価するための連成解析モデル(複合現象評価システムのプロトタ イプ)の構築と解析モデルを用いた感度解析が行われ、その結果から緩衝材変質の程度を評価す る上で有効な指標(例えば、モンモリロナイトの残存量)用いた解析例を示した。また、令和2年 度からは、緩衝材の変質に関わる解析例を対象に間隙水の水質や間隙率に依存して核種移行パラ メータ(K_dやD_e)が変化する幾つかの核種(Cs, I, Ni及びSn)を例に、SP2と連携しながら場の 変遷を考慮した核種移行パラメータ設定の方法論の検討を行うと共に、得られた核種移行解析結 果を基に、核種移行率に影響を及ぼす因子を抽出するための検討を進めている。このような検討 を通じて、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の課 題を整理することが本検討の目標の一つでもある。

上述したようなSP3で実施する評価フローの中で、他のSPへどのようなフィードバックが図れるかについてその例を検討した。例えば、図4.3-7のフローにおける④において、③で設定したパ

ラメータ値により緩衝材の状態変遷に及ぼす影響を評価した際、②のシナリオの整理で抽出され た緩衝材の変質の促進に関わるフィードバックループの発現により、モンモリロナイトの残存量 が著しく低下する解析結果が得られたとする。このような場合、解析結果の妥当性をどのように して判断すべきかが重要になる。例えば令和2年度の事業の中でも整理されたように、類似した解 析例との比較、ナチュラルアナログ等との比較を通じた確証事例等に基づく知見に基づく判断、 専門家によるレビューに基づく判断等も妥当性を確認する上で有効であると考えられる(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,2021)。ちなみに、4.2.2項の(2)の2) で記したように、令和3年度は、令和2年度に実施した緩衝材の長期変質に関わる水理・物質輸送 ー化学反応の連成解析結果を対象に、海外の専門家によるレビューを受け、解析上の仮定やシナ リオ設定、解析手法(緩衝材中での間隙構造の取扱い)等について、コメント(課題)が抽出され た。これらのコメントは、緩衝材の長期変質挙動の予測における解析結果の妥当性に関わるもの であり、その中には、個別現象モデル開発・パラメータ整備の観点でフィードバックを図ること が必要な課題(溶解・沈殿速度式の適用条件の確認、間隙構造や間隙の閉塞に関わる取扱い)も 含まれる。このような課題は、今後、SP1での検討も含めた形でフィードバックの具体化を進めて 行くことも必要である。

また、図4.3-7 のフローにおける⑥において、核種移行率に影響を及ぼす因子を抽出するための 検討の中で、モンモリロナイトの残存量が著しく低下するような場の変遷が想定されたとした場 合、現在検討を進めている場の変遷を踏まえた核種移行パラメータ設定の方法論の妥当性をどの ように評価すべきかが重要になる。この場合は、前述した例と同様、緩衝材の変質の促進に関わ るフィードバックループの発現の妥当性について、SP1で取り組んでいるような場の状態変遷に 関わる個別現象モデル開発・パラメータ整備の観点でのフィードバックを図ることも必要になる と考えられる。また、核種移行パラメータ設定の方法論の妥当性については、緩衝材の変質影響 が顕在化した状態でのパラメータ設定に必要なデータの取得やモデルの整備等もSP2での取り組 みとしてフィードバックを図ることが必要になるかもしれない。

上記の内容は、SP3から他のSPへのフィードバックを図るとした場合、どのような例やどのようなやり方が考えられるかを試行したものであるが、(4)で述べたSP1及びSP2で得られた成果との連携を進めていく中で、さらに具体化を図っていくことが重要である。

4.3.3 これまでの成果と今後の課題

令和3年度は、核種移行解析の妥当性検討の一環として、メッシュ依存性について予察的な検 討を行うと共に、令和2年度に引き続き、SP2と連携しながら緩衝材の変質状態の時間変遷を踏 まえた核種移行パラメータ設定の方法論の検討を継続して行った。また、他の SP との連携の観 点から、今後、連携の具体化を図る際に双方で必要となる情報の整理案やフィードバックを図る ためのフロー案の検討も進めた。

平成 30 年度から令和 3 年度までの 4 年間の検討により、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、核種移行解析を可能 とする方法論の整備と核種移行解析システムを示した。そしてこれを活用して、環境条件の違い による核種移行パラメータへの依存性が異なる複数の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、緩衝材中での核種の移 行遅延に影響を及ぼす因子についても予察的な検討を試みた。

今後は、サブタスク1で実施を予定している緩衝材の状態変遷評価へのフィードバックを踏ま えた核種移行解析を行い、核種移行への影響について整理する。また、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、核種移行率に影響を及ぼす因子の抽出 に関わる検討を継続すると共に、他の SP へのフィードバックが必要な内容についての整理や、 各 SP の成果の統合化を図る観点で他の SP 成果を SP3 へ反映するため方策についても引き続き 検討する予定である。

参考文献

- 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(10), pp.2107-2116, 2012.
- 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.
- De Windt L., Marsal F., Tinseau E. and Pellegrini D. Reactive transport modeling of geochemical interactions at a concrete/argillite interface, Tournemire site (France). Physics and Chemistry of the Earth, 33, S295-S305, 2008.
- 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.
- Gaucher, E.C., Tournassat, C., Pearson, F.J., Blanc, P., Crouzet, C., Lerouge, C. and Altman, S., A robust model for pore-water chemistry of clayrock, Geochimica. Cosmochimica. Acta, 73(1), pp.6470-6478, 2009.
- 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) ー確かな技術による安全な地 層処分の実現のためー, 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,一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,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,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.
- 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.
- Jenni, A., Gimmi, T., Alt-Epping, P., Mader, U., Cloet, V., Interaction of ordinary Portland cement and Opalinus clay: dual porosity modelling compared to experimental data. Phys. Chem. Earth, Parts A/B/C 99, 22–37, 2017.
- 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, 58-72, 2009.
- Marty, M.C.M., Bildstein, O., Blanc, P., Claret, F., Cochepin, B., Gaucher, E. C., Jacques, D., Latigue, J-E., Liu, S., Mayer, K. U., Meeussen, L.C. J., Munier, I., Pointeau, I., Su,

Danyang. and Steefel, C. I., Benchmarks for multicomponent reactive transport across a cement/clay interface, Computer. Geoscience, DOI 10.117/s 10596-014-9463-6, 2015.

- Marty, N.C.M., Claret, F., Lassin, A., Tremosa, J., Blanc, P., Made, B., Giffaut, E, Cochepin, B. and Tournassat, C., A database of dissolution and precipitation rates for clay -rocks minerals, Applied. Geochemistry, 2014b.
- Marty, N.M., Munier, I., Gaucher, E., Tournassat, C., Gaboreau, S., Vong, C. Giffaut, E., Cochepin,B. and Claret, F., Simulation of cement/clay inteactions: feedback on the increasing complexity of modeling strategies Transp. Porous Med., pp.1-21, 2014a.

Quintessa Ltd., QPAC: Quintessa's General-Purpose Modelling Software, QRS-QPAC-11, 2013.

- Rausch, R., Schafer, W., Therrien, R. and Wagner, C., Solute transport modelling: an introduction to models and solution strategies, Gebr. Borntraeger Verlagsbuchhandlung, Berlin-Stuttgart, 2005.
- 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.
- Techer. I., Bartier D., Boulvais Ph., Tinseau E., Suchorski K., Cabrera J. and Dauze`res A., Tracing interactions between natural argillites and hyper-alkaline fluids from engineered cement paste and concrete: Chemical and isotopic monitoring of a 15-years old deep disposal analogue. Applied Geochemistry, 27, pp.1384-1402, 2012.
- 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.
- Tournassat, C., Gailhanou, H. Crouzet, C., Braibant, G., Gautier, A., Lassin, A., Blanc, P. and Gaucher, E.C., Two cation exchange models for direct and inverse modelling of solution major cation composition in equilibrium with illite surfaces, Geochimica. Cosmochimica. Acta, 71(5), pp.1098-1114 2007.
- Tournassat, C., Gailhanou, H., Crouzet, C., Braibant, G., Gautier, A. and Gaucher, E.C., Cation exchange selectivity coefficient values on smectite and mixed-layer illite/smectite minerals, Soil Science Society of America Journal, 73(3) pp.928-942, 2009.
- Watson, C., Savage, D., Wilson, J., Benbow, S., Walker, C. and Norris, S., The Tournemire Industrial analogue: reactive-transport modelling of a cement-clay interface, Clay minerals, vol.48, pp.167-184, 2013.
- 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.
- White, A.F. and Brantley, S.L., The effect of time on the weathering of silicate minerals: why do weathering rates differ in the laboratory and field?, Chemical Geology. 202 (3-4), 2003.
- Wilson, J., Bateman, K. and Tachi, Y., The impact of cement on argillaceous rocks in radioactive waste disposal systems: A review focusing on key processes and remaining issues, Applied Geochemistry, 130, 104979, 2021.

- Xu, T., Sonnenthal, E., Spycher, N. and Pruess, K., TOUCHREACT user's guide: a simulation program for non-isothermal multiphase reactive geochemical transport in variable saturated geologic media, Lawrence Berkeley National Laboratory, Paper LBNL-55460, 2004.
- 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.
- 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 年9月.
- 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,2021.
- 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 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 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 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.

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4か年における主な成果

本事業において、平成30年度から令和3年度までの4か年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。

オーバーパックの腐食挙動評価

・原位置試験試料等の調査、分析

これまで、幌延URLでの原位置試験における模擬オーバーパックや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る)を概略的に推察した。緩衝材中のpHは弱アルカリ性であることや、経時的に酸化還元性が還元性に変化していたことなどが推定された。また、緩衝材中に存在する微生物種や密度の情報を取得、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。腐食反応に関与する微生物が検出されたが本原位置試験における腐食反応には寄与していないと推察された。

令和3年度は、幌延URL原位置試験で使用した腐食センサーのうち135°方向に設置されたセン サーのXRD測定から腐食生成物種を調査した。その結果、アカガネイトやマグネタイトを検出し た。この結果は、これまでの分析結果(45、225 °方向の他のセンサーではシデライトを確認) と異なり、場所によって環境条件が異なる不均一な状態を呈していた可能性を示唆している。緩 衝材が飽和に至るまでの過渡的な期間においては、緩衝材中の水分が不均一に分布することで溶 存酸素の供給量に違いが生じ、腐食が不均一になる可能性がある。そのため、このような緩衝材 中の水分が不均一な分布が工学規模や実規模で生じる要因として、緩衝材ブロック間や、オーバ ーパックと緩衝材のすきまにベントナイトペレットが充填された場合のペレットの粒界などの、 材料間の「境界」を抽出した。また、期間や条件が限定された原位置試験試料中の微生物活性の データだけではなく、より広範な環境のベントナイト条件下におけるデータの拡充として、月布 ベントナイト鉱山から採取したベントナイト原鉱石の微生物現存量(生菌数)、16SrRNA遺伝子 解析による群集組成解析、乾燥密度、空隙分布等のデータを取得した。その結果、オーバーパッ ク腐食試験に用いられた緩衝材と同様に、原鉱石、緩衝材ブロック中のDNA濃度は、既存の室内 腐食試験等と比べて非常に低く、微生物増殖が抑制されていることが示された。このようなナチ ュラルアナログや原位置試験サンプルなどを対象とした分析は、超長期におけるベントナイト中 の微生物活性挙動を評価する上で、は重要な知見となる。

令和4年度は、他の腐食センサーの腐食生成物や腐食量の分析等を継続し、過渡状態におけるオ ーバーパックの腐食挙動や腐食の局在化に影響を及ぼす環境の不均一性の把握に資するデータ拡 充を進める。また、想定される不均一状態がオーバーパックの腐食の局在化に影響するかを確認 するためのデータ取得に必要な「不均一を模擬した試験方法」の調査・検討を行う。さらに、緩 衝材内部の長期的な微生物活性挙動の評価に向けて、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、微生物が腐食に与える影響が低いと想定される状 態についての分析を進める。

・広範な環境条件での室内試験

これまでに、高炭酸濃度、高塩濃度等の腐食性の高い環境条件を想定した腐食試験を実施し、 長期の腐食試験データを取得した。その結果、いずれの条件においても経時的に腐食速度が低下 することを確認した。また、炭酸塩と塩化物の共存下等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3年度は、広範な環境条件における浸漬試験として高温水環境を対象とした浸漬試験の5年 間の腐食データを取得した。その結果、平均腐食量は温度が高いほど大きいこと、拡散性水素濃 度は温度が高いほど小さく、いずれの温度条件でも水素脆化が問題となる濃度ではないことが確 認された。また、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た め、試験期間途中に温度を変更する(例えば、80 °C→50 °C)浸漬試験の予備試験を実施した。 その結果、平均腐食速度は温度が高いほど大きいこと、温度低下に伴い平均腐食速度が低下する ことが分かった。これにより、保護性の皮膜の生成により、温度履歴にかかわらず、変更後の温 度と同程度の腐食抑制が期待される。

令和4年度は、温度条件及びその変遷と腐食生成物種の関係を整理するとともに、温度を変化さ せる条件のより長期の浸漬試験手法を提案する。

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、炭素鋼・圧縮ベントナイト境界領域におけるバリア間相互作用による鉱物の溶 解・沈殿などの現象とそれによる緩衝材変質などに関するデータの取得を目的として、原位置試 験試料やナチュラルアナログ試料の分析を実施してきた。その結果、緩衝材や土壌中に鉄材料由 来の鉄腐食生成物を確認するとともに、長期間土壌中に埋蔵されていた鉄製品に付着していた土 壌については鉄遺物の腐食に伴って生成した鉱物によるセメンテーションが生じていることを確 認した。また、一部のケイ酸塩鉱物粒子について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。

令和3年度は、平城宮跡出土鉄斧付着土壌、幌延原位置試験(3年間)で使用した腐食センサー に接触していたベントナイト試料、緩衝材中に埋設した炭素鋼試験片の長期浸漬試験(5年間)の 炭素鋼試験片に接触していたベントナイト試料をそれぞれX線分析顕微鏡及び透過型電子顕微鏡 等で観察、分析した。その結果、鉄斧付着土壌については、シデライトからなる腐食生成物中に ケイ酸塩鉱物が散在する状態が確認され、層状ケイ酸塩鉱物とシデライトの界面領域の分析では 層状ケイ酸塩鉱物の明瞭な変質は確認できなかった。腐食センサー接触試料、炭素鋼試験片接触 試料は、それぞれ接触面から100 µm程度、200 µm程度まで腐食生成物が分布する状態が確認さ れた。炭素鋼試験片接触試料については、1 mm程度まで鉄濃度の高い領域が確認された。また、 いずれも接触面近傍に塩素の分布が確認された。炭素鋼試験片接触試料について、モンモリロナ イトとシデライトの界面領域の分析ではモンモリロナイトの明瞭な変質は確認できなかった。

令和4年度は、鉄遺物付着土壌の分析を継続するとともに、室内試験試料について鉄影響による モンモリロナイトのFe型化及びその範囲・程度の分析を試みる。

・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 に、山形県月布鉱山産のベントナイト原鉱石および再構成試料を対象とした膨潤圧・透水試験・ 標準圧密試験を実施し、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 料と較べて膨潤圧が低い傾向を示す等の結果を得た。また、原鉱石および再構成試料の基本特性 の違いの要因を特定するため、電子顕微鏡等を用いた原鉱石の微細組織の観察・分析を実施し、 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・モンモリロナイト分布等によって浸水 時の自由膨張が阻害され、再構成試料との膨潤圧の違いが生じていることが示唆された。

令和3年度は、緩衝材の変質による鉱物量や間隙率の変化を分析する手法開発として、走査型電 子顕微鏡で取得した反射電子像の画像解析手法を高度化し、輝度や形状から鉱物や空隙の存在割 合を定量化する方法を開発した。

令和4年度は、この手法を長期膨潤圧試験の前後状態の試料に適用して、シリカ微粒子の含有量 を比較し、セメンテーションの原因物質の溶解等に伴うセメンテーション状態の経時的な変化に ついて考察を行う。

また、化学反応に伴う二次鉱物の析出や熱影響に伴う可溶性塩の析出によるセメンテーション を再現するための試験手法の構築を進めている。化学反応に伴う二次鉱物の析出については、非 晶質マグネシウムケイ酸塩(MSH)の析出を促進するため、シリカ鉱物が溶解しやすい高いpH条件 などの工夫や、熱影響に伴う可溶性塩の析出については110 ℃で数日間乾燥させた圧縮ベントナ イト試料の観察などを行ったが、いずれもセメンテーションの発現には至らなかった。

令和4年度は、引き続き、化学反応に伴う二次鉱物の析出の条件の検討や、乾燥に伴う緩衝材中 の可溶性塩の析出方法について再検討を行い、セメンテーションによる緩衝材の変質を評価する 方法論を整理する。

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の計測データを活用し、18年程度のより長期の試験データに対しても温度、相対湿度、全 応力等のTHM連成挙動を概ね再現できることが確認できた。また、幌延人工バリア性能確認試験 の計測データを活用した海水系地下水条件での浸潤挙動の評価手法の構築に着手した。まずは蒸 留水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として、特にオーバーパック近傍の飽和度の 経時変化に与える影響が大きいことを示した。

令和3年度は、海水系地下水条件での浸潤挙動の評価手法の構築に向けて、塩濃度の違う試験溶 液を用いた浸潤試験を行い、得られたデータから間隙水の塩濃度変化に伴う透水係数の変化を考 慮した既存モデルに対して、不飽和水理特性の塩濃度依存性の考慮を可能とするようモデルを拡 張した。

令和4年度は、拡張したモデル対象に、幌延人工バリア性能確認試験により取得されたデータを 活用した妥当性の検証を行うことで、海水系地下水条件での浸潤挙動をより高い信頼性で評価可 能な手法を提示する。

・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、MACBECEに 飽和度・温度分布を入力して過渡期の処分施設の力学挙動を解析する機能を追加し、処分施設の 変形を過渡期から長期まで一貫して評価できるようになった。深度500m、横置き、軟岩を想定し た力学解析の結果、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。また、過渡期の緩衝材の力学モデルの検証に向け、X線CT測定による膨 潤圧試験中の浸潤状態等の観察を行い、膨潤圧の変化と供試体内部の状態変化の関係を把握した。 その結果、供試体内部で吸水圧縮挙動が生じていることが観測され、これにより膨潤圧が低下す る現象が生じていることが明らかとなった。

令和3年度は、幌延人工バリア性能確認試験で得られている再冠水時の応力や変位に関する計測 データを活用し、原位置試験等の実規模かつ複合的な試験体系における緩衝材の力学挙動に着目 した時のMACBECEによる解析結果の再現性の確認を行った。その結果、従来から課題とされて いた変位の再現性や、三次元的な形状に起因する応力分布や埋め戻し材への緩衝材の膨出挙動が 適切に評価できていない等の課題が抽出された。また、MACBECEに導入できていない過渡期の 緩衝材の力学特性の温度依存性を考慮できる力学モデルの構築に向け、温度を制御した膨潤圧試 験等に着手し、温度増加により膨潤圧は増加する傾向を示すデータを取得した。さらに、膨潤圧 の経時変化と供試体内部の状態変遷との関連性の更なる理解を進めるため、初期含水比の異なる 条件でのエックス線CT測定を伴う膨潤圧試験を行いった。その結果、初期含水比が高い場合は概 ね単調に膨潤圧が増加し、供試体内部でのコラプスは観測されないなど、コラプスの発生の有無 によって膨潤圧の経時変化のグラフの形状が異なるなどの過渡期の緩衝材力学特性を理解するた めのデータを得た。

令和4年度は、膨潤圧や圧密特性の温度依存性等に関する試験データの取得を継続的に実施し、 過渡期の緩衝材の力学特性の温度依存性を考慮できる力学モデルの構築を進めることで、より信 頼性の高いモデル化手法を提示する。

・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。しかしながら、これまでの粗視化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。そのため、粘土含水系に水分の出入りがある場合 にも対応し、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 にするための手法の拡張を進めてきた。

令和3年度は、より複雑な水和エネルギーモデルの開発に向けて、単調に変化するモデルに振動 成分を加えたモデルを用いた解析を行い、膨潤状態が相対湿度(化学ポテンシャルに関係)に対 して必ずしも連続的に変化せず、水和エネルギーの極大点を避けるように離散的な膨潤状態を選 択するメカニズムが働き、これまでよりもNa型モンモリロナイトの膨潤挙動に近い結果を得るこ とができた。これは、実験的に観測されない膨潤状態を水和エネルギー関数の極大点と対応させ ることで、より現実的なモデル化が可能となることを示唆している。

令和4年度は、設定した水和エネルギーモデルが、実験で得た膨潤曲線やX線回折パターンを再 現するかを検証していくなどの研究アプローチを検討し、粗視化MDモデル結果の妥当性の検証 に資する予定である。

母岩中アルカリプルーム反応輸送挙動評価

・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、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。さらに、セメントが充填されたボーリング孔近 傍から採取された花崗岩試料を用いた光学顕微鏡観察により、亀裂表面には白色の沈着物が確認 されたものの、亀裂表面周辺の岩石中では、沈着物は確認されなかった。

令和3年度は、セメントが充填されたボーリング孔近傍から採取した亀裂を含む岩石試料を対象 に、亀裂表面の沈着物と岩盤中の微小空隙の電子顕微鏡による観察及び元素マッピング等を行い、 セメント系材料由来のアルカリ成分等の影響評価を実施した。その結果、亀裂表面にはセメント 系材料の炭酸化によって形成した炭酸塩鉱物が沈着しているものの、岩石マトリクス部には、鉱 物の溶解や二次鉱物の生成といったアルカリプルームによる変質等の影響の痕跡は確認されなか った。なお、本事業を通じて実施した調査・分析では、アルカリプルームの影響は認められなか ったものの、長期的には亀裂周辺の岩石にアルカリプルームの影響が及ぶ可能性を否定するもの ではないことに注意が必要である。

・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。また、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。そして、反応輸送解析モデル により、坑道近傍スケールでの亀裂中の水質変化や間隙率低下などの状態変化が生じる要因の分 析を進めた。

令和3年度は、単一亀裂を対象にコンクリート支保の劣化に伴い発生する高pH溶液による亀裂 中の水質変化や間隙率低下などの状態変化が生じる要因(地下水流量・岩盤マトリクスの溶解・ 二次鉱物沈殿の相互関係)に着目し、亀裂の状態変遷に影響が生じる条件についての解析的な検 討を進め、亀裂の開口が継続する又は閉塞に向かう場合の条件を概略的に整理した。

令和4年度は、単一亀裂を対象に、岩盤の亀裂中の水質変化や間隙率低下などの状態変化が生じる要因の解析的検討や感度解析を継続し、亀裂の開口が継続する又は閉塞に向かう場合の条件について、開口幅や流速などを主なパラメータとして検討する。

流出現象などを考慮した緩衝材の健全性評価

・流出を抑制する工学的対策の具体化

堅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。そして、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、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 めた。

令和3年度は、隙間未充填、ケイ砂充填について評価指標案に基づいて判断指標や流出量評価の 考え方が適切であるか等を室内試験と原位置試験により検討を継続した。隙間未充填オプション については、定圧条件による室内試験により水位差及び湧水量と流出停止との関連を定性的に把 握し、判断指標となる見通しを得るとともに、流出停止に至る条件の一つとして流路へのケイ砂 の集積の影響を確認した。ケイ砂充填オプションについては、これまでの室内試験や原位置試験 による流出濃度と流量の関係から、定流量条件の室内試験で合理的に流出挙動に係る試験データ を取得できる可能性があることから、両条件による試験に取り組んだ。また、原位置試験にて、 湧水量増加原因が緩衝材の膨潤圧によるものであること確認をし、孔口近傍での挙動であると推 察した。そして、原位置でのより長期の流出に関するデータ取得に向けて、幌延URLでの原位置 試験を開始した。ペレット充填オプションについては、施工性を考慮したベントナイトペレット の仕様や流出量等の評価指標の設定方法に関する机上検討を進め、試験等により検討が必要な課 題を抽出した。

令和4年度は、隙間未充填オプションについては、室内試験により水頭差及び湧水量による閉塞 条件の判断指標とするため、閉塞の有無のばらつき、水質の影響などを確認する。ケイ砂充填オ プションについては、ケイ砂層へのベントナイトの侵入の流出量への影響などを確認し、流出濃 度の流量依存性についてデータを取得するとともに、令和3年度から継続して実施予定の原位置試 験で得られるデータとともに、流出量の評価手法を取りまとめる。ペレット充填オプションにつ いては、今後の技術整備に必要な、施工性や流出量評価に関しての試験等により確認すべき課題 を提示する。

・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、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。また、モデルの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、試験に着手してきた。

令和3年度は、緩衝材の流出現象を考慮した再冠水後の緩衝材の状態(密度分布等)を予測する 手法の構築として、これまでに構築した供試体サイズでの解析手法の材料パラメータを、試験結 果をもとに見直した。そして、実規模1/4スケール(原位置の流出試験相当)のサイズに解析手法 の拡張を検討し、設定の最適化や課題を抽出した。

令和4年度は、実規模1/4スケールを対象とした再冠水までの解析手法の枠組みのうち、境界条件、要素数の設定の最適化や、浸潤速度の設定に関する課題について検討を進め、実規模サイズの解析手法の構築に向け、取りまとめを行う。

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。

ニアフィールド岩盤中の核種移行評価技術の開発

・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、スイスグリムゼル等の海外結晶 質岩を対象に、核種移行への影響が大きい黒雲母等鉱物の配向性、粒子サイズ、連続性をX線CT データから評価し、それらの不均質性を反映した核種移行評価手法の構築を進めてきた。そして これらの手法の国内結晶質岩への適用性を確認するため、3種の国内標準岩石を対象にX線CT分 析や透過拡散試験に着手した。 令和3年度は、X線CT画像の解析により結晶質岩中の黒雲母分布の不均質性を評価する手法の 改良を進めるとともに、3種の国内結晶質岩を対象に、中性化学種(HTO/HDO)、陽イオン(Na/Cs)、 陰イオン(I)の透過拡散データの取得、偏光顕微鏡観察やEPMA測定による構成鉱物の、X線CT像 の解析から黒雲母の配向度等の評価を進めた。

令和4年度は、上記の評価を継続して実施するとともに、この手法を瑞浪URLで採取された花崗 岩試料に適用し、不均質性を考慮したモデル構築手法の国外岩石試料への適用性を検討する。

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等分析から、割れ目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、グリムゼルの大型の岩石コア試料中の室内トレーサー試験から、割れ目特性の不均質性や試験後の割れ目表面のトレーサー分布の分析を進めてきた。

令和3年度は、グリムゼルの大型岩石コア試料の割れ目部とその周辺のX線CT画像の解析により割れ目の分岐経路やガウジ充填率の評価と、試料全体にわたる割れ目表面のトレーサー濃度分 布データを取得した。

令和4年度は、トレーサー濃度分布及び割れ目の形状に基づく支配的な移行経路の推定とそれを 考慮したモデル解析を行い、割れ目部における不均質な移行経路の特徴を考慮したモデル化手法 を提示する。

・核種移行モデルの性能評価解析への反映に関する検討

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・確証については、これまでにそのアプローチを検討してきた。そして、割れ目等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を構築しつつ、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に 着手した。

令和3年度は、地質環境の長期変遷の影響として、地下水組成の変化と、それに伴う収着特性の 変化を考慮した核種移行解析を試行した。そして、環境変遷とKd変化による影響に加え、不可逆 収着モデルの効果、鉱物の溶解・沈殿の効果も考慮可能なモデルを構築し、それらの多様な組み 合わせが核種移行挙動へ与える影響の分析を進めた。

令和4年度は、より現実的な解析手法への改良や、多様なプロセスや条件を組み合わせた解析を 継続し、考慮すべき影響の大きい重要な因子として環境変遷やスケールが核種移行に与える条件 の抽出を進める。

・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の把握を室内試験やNMR分析により進めてきた。また、幌延 URLで実施した間隙水中の塩濃度影響等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、塩濃度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 試料の分析等から、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解析の必要 性を確認した。そして、これらを考慮したモデル概念を構築し、非収着性のウラニンやモリブデ ン、収着性のセシウムのパルス・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提 示した。
令和3年度は、マトリクス部については、幌延の泥岩マトリクスを対象に、鉱物や間隙の不均質 性やその核種移行挙動への影響を把握するためのNMR分析や拡散データ等の拡充やモデルの改 良、原位置拡散試験データへの適用性評価を進めた。割れ目部については、延URLの割れ目中ト レーサー試験データを対象に、3つの移行経路、フロー・スタグナント領域を考慮した解析評価を 継続して実施した。その結果、GoldSimコードの最適化機能を活用し、ウラニンのパルスとコン スタントのそれぞれの破過データに適用し、最適なパラメータを取得するも、双方の結果を同時 に再現することは困難ことが示された。パルスとコンスタントソースでのギャップの原因を検討 するため、トレーサーの投入量に対する回収率を評価した結果、パルスソースの回収率がより良 く再現できていることを確認した。

令和4年度は、パルスからコンスタントにおける差異の原因の検討や回収率を考慮した補正の検 討、パラメータの不確実性等を考慮した解析検討を行う。

・幌延のナチュラルトレーサー評価に関する検討

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 質環境の長期変遷を考慮したモデル解析を進めてきた。これまでに、非収着性元素に加え、反応 性元素も対象として、イオン交換反応等を考慮した解析評価を実施した。その結果、地質環境変 遷モデルや物質移行パラメータに加え、反応性元素のイオン交換反応を考慮することで、複数の 反応性元素の深度プロファイルの再現性や課題を提示した。

令和3年度は、イオン交換のみに加え、イオン交換及び方解石の溶解・沈殿を考慮したケース、 方解石の溶解・沈殿のみを考慮したケースでの解析を実施した。その結果、Na及びKについては、 イオン交換及び方解石の溶解・沈殿を考慮したケースの方が実測値に整合的で、Ca及びMgについ ては、方解石の溶解・沈殿のみの方が実測値に整合的な結果が得られた。

令和4年度は、解析で用いたイオン交換に関わる選択係数やCECの値の不確実性を考慮した解 析を検討する。

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

・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、共存するFe(II)濃度が異なる複数の条件でのモンモリロナイ トへの核種収着データを取得し、Ni(II)は収着競合が生じる一方、Am(III)やNb(V)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、試験手法や試 験条件の異なる複数の試験により得られた初期生成固相から安定固相への変化とSeの取込、保持、 脱離挙動を、XRD、XAFSやSEM/STEM分析等により把握した。さらに、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、X線マイクロビーム分析(μ-XRF、μ-XAFS)によって、 微粒の黄鉄鉱へのSeの濃集状況の確認を進めてきた。

令和3年度は、鉄と核種の競合収着評価について、モンモリロナイトのエッジサイトにFe(II)収 着量が変化する条件で、Ni、Pb、Euとの競合収着試験を実施した。その結果、Fe(II)濃度の上昇 とともにNiのKdが低下し、競合が起こることを確認した。その一方で、PbとEuのKdは低下せず、 Feと収着のメカニズムが異なる可能性が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Se(-II)で実施してきた鉄鉱物への取り込み試験を、Se(IV)を対象に実施した。そして、得られた試料のTEM/EDS測定の結果、Seを含む鉄鉱物の存在を確認するとともに、XRD測定の結果マグネタイトに加えて鉄セレン化物や金属セレ

ンが検出され、Seは4価から-2価または0価に還元されていることが示された。また、XAFS測定の 結果からもSeが還元されていることを確認した。

令和4年度は、収着競合については、試験条件を変更してデータを拡充し、収着モデルによる解 釈などにより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、 Se(IV)の分析データを拡充し、Se(-II)との比較を含め、鉄鉱物へのSeの取り込みメカニズムの評 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

セメント共存による緩衝材への影響評価について、これまでに、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/m³)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・ろ過試験を実施し、高密度条件で はいずれの条件(Na型・Ca型、間隙水塩濃度)でもコロイドが完全にろ過されることを確認して きた。

令和3年度は、これまでに得られた多様な条件(層間陽イオン、乾燥密度、間隙水塩濃度)での 試験結果を踏まえ、コロイドの透過とろ過の境界領域を対象に、異なるコロイドサイズでのコロ イド移行・ろ過データの取得を進めた。

令和4年度は、異なるサイズのデンドリマーコロイドの試験を継続し、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。

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等で分析し、OPC及びHFSC との接触界面での元素濃度分布や変質二次鉱物の生成を確認したほか、間隙特性や陽イオン交換 容量の変化などデータ取得を進めてきた。

令和3年度は、幌延の泥岩(深度140mの声問層)とセメント(OPCとHFSC)との接触界面の 複数試料のEPMA分析により、令和2年度に取得した分析結果と同様の結果を得た。また、接触界 面の変質状況をより詳細に把握するために高解像度(5mm)でのEPMA分析やSEM/EDS分析を実 施した。その結果、セメントと岩石界面の変質状況には不均質性が確認され、密着部では岩石側 へ変質が進展しているのに対し、隙間部では緻密なカルサイト層が形成され、岩石側の変質が抑 制されていることを確認した。また、岩石側の界面付近には二次鉱物が確認され、EPMAや SEM/EDS分析より、Ca/Si比が0.75から1.25のC・S(-A)-Hの生成を確認した。さらに、OPCと HFSCの接触界面を比較した場合、OPCの方が二次鉱物の生成は顕著であることを確認した。

また、カルサイト等の二次鉱物への多様な放射性核種の取り込み現象を把握するため、幌延の 泥岩中に含まれるカルサイト中の微量元素の分析を行った。その結果、カルサイト中に含まれる 微量元素濃度データを取得し、幌延の深部地下水中に含まれる微量元素濃度との比較によって、 分配係数の評価をした。

令和4年度は、地球化学・物質移行モデルによる解析評価とともに、OPCとHFSCとの差異を 含めたセメント・岩石の相互作用による変質現象の把握を進めるとともに、セメント・岩石反 応で生じる二次鉱物への元素の取り込みメカニズムの解明を進める。

・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、イライトや幌延の泥岩へのTh(IV)、 Eu(III)及びU(VI)の炭酸共存下での収着データを取得してきた。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進めてきた。さらに、 得られた収着の炭酸濃度依存性データをもとに、収着モデルにより再現計算を実施し、炭酸を含 む表面三元錯体の収着への寄与を確認したほか、幌延の泥岩への収着の加成則モデルの適用性を 確認した。そして、高炭酸環境の複数の化学種が共存する条件でのNp(V)のモンモリロナイト中の 拡散データ取得を継続するとともに、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。

令和3年度は、炭酸共存下でのイライトへのEu(III)の収着データの拡充、TRLFSによる収着構 造の分析評価を行い、それらの結果をもとに、収着モデルの適用性を評価した。その結果、収着 モデルから、pH9前後では炭酸イオンが配位した表面化学種、pH11前後では水酸化物イオンが配 位した表面化学種が支配的と予測した。TRLFS測定の結果から、pH9の方が蛍光寿命が長く、炭 酸イオンが配位することでEuに配位している水分子が減ったと解釈すると、収着モデルによる予 測と整合していることを確認した。また、幌延の泥岩中のモンモリロナイトとイライトの存在比 で混合した試料でEuの収着データを取得し、その結果を加成則で良好に再現することができた。 幌延の泥岩を用いた試験では、より高いKdを示し、鉱物組成の割合や収着に寄与する鉱物を再検 討する必要があることを確認した。

また、高炭酸条件の支配化学種が異なる条件でのNp(V)のモンモリロナイト中の拡散データ取得と解析評価を継続し、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イオンのアクセス性を評価。長時間計算を実施し、イオン交換平衡の時間スケールを評価した。その結果、ウラニルイオンとClイオン共存系では、ウラニルイオンと層間のNaイオンが4ns程度で交換平衡に達することを、3層水和以上では、Clイオンも単独で層間内へ侵入することを、ウラニルイオンと炭酸イオン共存系では、3層水和以上で、ウラニル・炭酸錯体を形成して層間内に侵入、ウラニル・炭酸錯体は層間外でクラスター化する傾向があることを確認した。

令和4年度は、TRLFSやXAFS測定の結果を基に、収着モデルで予測した表面錯体の妥当性を評価する。また、幌延の泥岩で予測よりも高いKdを示した要因を明らかにし、モデルに反映する。 また、ネプツニル - 炭酸イオン共存系に対してより長い時間を対象としたMD計算を実施すると ともに、層間幅を拡張した系でのMD計算を実施し、層間へのアクセス性を確認する。

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。また、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 置を導入して幌延深部地下水フミン酸とZr(IV)の見かけの錯生成定数を導出した。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ついては、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、未分画の天然有機物に結合した核種の解離反応 機構の解明といった課題を抽出した。また、幌延深部の岩石と、国際腐植物質学会標準フミン酸 (HA)を用いて、Eu(III) · HA · 岩石三元系収着の予察的なデータを取得し、HAによる収着低減を 確認した。

令和3年度は、FFF-ICPMS法を用いてEu³⁺と幌延深部地下水から分離・精製したフミン酸との 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、定量性を向上させたCE-ICPMS法により、Eu³⁺と幌延深部地下水フミン 酸の錯生成データから、見かけの錯生成定数を導出し、幌延深部地下水フミン酸の錯生成において、一般の腐植物質によく知られている高分子電解質効果の寄与が極めて小さい可能性を指摘した。また、炭酸イオン濃度に着目してEu(III) - HA - 幌延深部堆積岩を用いたバッチ試験を行って結果の解釈を進め、Eu - HA錯体の収着やEu - CO₃ - HA錯体の形成が収着機構に関与している可能性を指摘した。

令和4年度は、より信頼性の高い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、分子量の小さな幌延深部地下水フミン酸・フルボ酸について、試料の損失が 少ないCE-ICPMS法による錯生成データを拡充し、これまでに整備されてきたNICA-Donnanモ デルパラメータを比較検討し、妥当性の確認を進めていく。また、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、現実的に適用可能な三元系モ デルの構築に貢献するため、Eu - HA錯体の収着やEu - CO₃ - HA錯体の形成の可能性を含めた詳 細な反応機構の検討を進めていく。

・微生物影響評価技術の開発

これまでに、幌延URLにおける全コロイド(無機/有機)および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3か所の地下水試料(深度140 m、185及び250 m)について、希土類元素(アクチニド元素のアナログ)のコロイドへの収着特性に関するデータ を取得し、核種移行影響評価に資するための収着分配係数のばらつきの程度を把握した。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、種組成の空間分 布、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。さらに、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た。地下微生物の代謝を考慮したセレン等の核種 との相互作用に関するデータ取得に着手した。

令和3年度は、幌延URLにおける水質・微生物組成の異なる深度185 mの地下水試料を対象に、 希土類元素のバイオコロイドへの収着特性データを取得し、logKd (m³/kg)として3.3から5.2の比 較的高い分配係数を確認し、その要因として細胞表面のリン酸基との結合の可能性を指摘した。 また、微生物現存量、種組成の空間分布の経時変化に関するデータ取得結果から、地下施設建設 期間の長期化に伴い、坑道壁面から離れた領域で、バイオフィルムの形成種が前年の調査からさ らに増加している様子が確認され、ニアフィールド環境における化学的変遷の実環境データを拡 充できた。深度185 mに存在する微生物群集について、優占種である硫酸還元菌とメタン生成菌 の共生関係の可能性が示唆され、地下水中からフランボイダル状の黄鉄鉱が確認された。幌延地 下の稚内層における岩石試料中の微生物観察・分析結果から、亀裂内部に粘土鉱物と共存して高 密度の細胞が濃集し、亀裂のないマトリクス部分には細胞が濃集していないという、深部堆積岩 中の微生物分布に関するデータを拡充した。

令和4年度は、地下水のコロイド収着や原位置環境の微生物組成・代謝に関わる観測データを拡 充し、微生物影響を考慮した核種移行解析評価に反映させる予定である。

4章「ニアフィールド性能の総合評価技術開発」では、個別現象モデルを統合してニアフィール ドの空間的・時間的な変遷を解析するシステムの構築と、時間変化を考慮した地質環境モデルや ニアフィールドを対象とした連成解析の結果を核種移行解析モデルへ反映する手法の構築を目的 に、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、「緩衝材の長期変質挙動の 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。また、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。そして、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。さらに、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。

令和3年度は、プロトタイプの評価システムで用いられているH - Cを連成させた解析モデルの 妥当性確認の一環として、本事業で使用する解析コードを用いたベンチマーク解析を行うと共に、 解析手法(擬定常状態の仮定やメッシュサイズ設定)の妥当性に関わる検討も実施した。また、 解析コードの確証に係る既往成果の再整理や、令和2年度に実施した緩衝材の長期的変質挙動の予 測に関わる解析結果を一例に、類似した解析実績の経験のある海外の専門家によるレビューを受 け、今後の課題について整理した。

令和4年度は、令和3年度に抽出された課題を踏まえ、モデルや評価手法の見直しを図り、水理・ 物質輸送・化学反応に係る連成解析の妥当性確認を継続すると共に、より信頼性の高い評価結果 を得るための技術の整備を進める。

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整備、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解析モデルに反映する手法の 概念の整理、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上で必要なモ デルの要件の整理、核種移行解析で必要なインプットパラメータを抽出し、核種移行解析に反映 するプラットフォームの整備を行った。そして、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論を検討した。また、核種移行解析の結果を基に、 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も整備した。

令和3年度は、核種移行解析の妥当性検討の一環として、メッシュ依存性について予察的な検討 を行うと共に、令和2年度に引き続き、緩衝材の変質状態の時間変遷を踏まえた核種移行パラメー タ設定の方法論の検討を継続して行った。また、他のSPとの連携の観点から、今後、連携の具体 化を図る際に双方で必要となる情報の整理案やフィードバックを図るための方法論の検討も進め た。

令和4年度は、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。

5.2 おわりに

本事業では、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のより現実的 な評価を可能とするために必要な技術開発として、状態変遷やそれが核種移行挙動に与える影響 の評価に向けた個別現象についてのモデル開発やパラメータ整備と、複数の現象解析モデルを統 合化するための技術開発を進めている。現象解析モデルの統合化は、ニアフィールド環境の長期 変遷のうち、核種移行解析結果に重大な影響を及ぼすと考えられる現象やその相互作用から優先 的に取り組むことし、その優先課題の抽出からシステム開発に向けた一連の方法を整備するとと もに、令和2年度までに評価システムとしてのプロトタイプを開発してきた。

令和3年度は、個別現象についてのモデル開発・高度化やパラメータ整備を継続して実施すると ともに、令和2年度までに開発したプロトタイプシステムを用いて、既存の解析事例を対象とした ベンチマーク解析や、海外専門家からプロトタイプシステムで用いている解析条件や仮定などの レビューを受けるなど、その妥当性確認を進めた。そして、より信頼性の高い評価結果を得るた めに解決すべき課題を抽出した。これは、プロトタイプシステム開発を通じて示してきたより現 実的な評価に向けた現象解析モデルの統合化の方法論の有効性の確認につながると考えられる。

令和4年度は、個別現象についてのモデル開発・高度化やパラメータ整備を進め、それにより得られた現象解析モデルを評価システムとして統合化し、プロトタイプシステムを高度化するために必要な課題を抽出する。そして、プロトタイプシステムの妥当性確認として、例えば令和3年度に抽出した課題についてその対応策を検討することにより、より信頼性の高い評価結果を得るための技術の整備を進める。

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、それがステークホルダーにとって地層処分システムがより納得のいくものとなるこ との一助になることを期待している。