高レベル放射性廃棄物等の 地層処分に関する技術開発事業

ニアフィールドシステム評価確証 技術開発

平成30年度~令和4年度 取りまとめ報告書

令和5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

| 1.2 プロジェクト構成と実施概要 |
|--|
| 1.3 本報告書の構成 |
| 参考文献 |
| |
| 第2章 ニアフィールド環境変遷に係る個別評価技術の開発 |
| 2.1 目的と5か年の計画 |
| 2.2 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 実施成果 |
| 2.2.3 5か年の成果と今後の課題 |
| 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) 実施成果 |
| (3) 5 か年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) 実施成果 |
| (3) 5 か年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) 実施成果 |
| (3) 5 か年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) 実施成果 |
| (3) 5 か年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 |
| (1) 背景と目的 |
| (2) 実施成果 |
| (3) 5 か年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) |)実施成果 ···································· | 54 |
|-----|--|----|
| (3) |)5か年の成果と今後の課題 | 56 |
| 2.5 | 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- | 57 |
| (1) |)背景と目的 | 57 |
| (2) |)実施成果 ······2- | 57 |
| (3) |)5か年の成果と今後の課題 | 60 |
| 2.6 | 流出現象等を考慮した緩衝材の健全性評価 | 62 |
| 2.6 | 6.1 課題設定の考え方 | 62 |
| 2.6 | 6.2 実施内容 | 63 |
| (1) |) 流出を抑制する工学的対策の具体化 | 63 |
| (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 | 75 |
| 2.6 | 6.3 5 か年の成果と今後の課題 ···································· | 83 |
| 参考 | 文献 | 85 |

第3章 ニアフィールド環境変遷を考慮した核種移行評価技術の開発

| 3.1 目的と5か年の計画 | 3-1 |
|--|--------------|
| 3.1.1 目的 | 3 - 1 |
| 3.1.2 サブタスクの構成と実施概要 | |
| (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 | |
| 3.2.1 背景と目的 | |
| 3.2.2 主要な成果 | |
| (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 | 3-14 |
| 3.2.3 5か年の成果と今後の課題 | 3-26 |
| 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 | 3-28 |
| 3.3.1 背景と目的 | 3-28 |
| (1) オーバーパック等から生じる鉄共存が緩衝材や岩石中の核種移行へ及ぼす影響の | 評 |
| 価 | 3-28 |
| (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 | 3-28 |
| (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 | 3-28 |
| 3.3.2 主要な成果 | 3-29 |
| (1) オーバーパック等から生じる鉄共存が緩衝材の核種移行へ及ぼす影響評価技術の | 開 |
| 発 | 3-29 |
| (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 | 3-35 |
| (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技術の開発 | 3-39 |
| 3.3.3 5か年の成果と今後の課題 | 3-45 |

| 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) 5か年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) 5か年の成果と今後の課題 | |
| 参考文献 | |

第4章 ニアフィールド性能の総合評価技術開発

| 4.1 | 目白 | りとアプローチ | 4-1 |
|-----|-----|-------------------------------------|--------------|
| 4.2 | 現象 | 象解析モデルの統合化技術の構築 | 4-1 |
| 4.2 | 2.1 | 現象解析モデルの統合化技術開発で対象とする課題の選定 | 4-1 |
| 4.2 | 2.2 | 現象解析モデルの統合化のためのプロトタイプシステムの開発 | 4-2 |
| 4.2 | 2.3 | プロトタイプシステムの検証・確証に関わる現状の整理 | 4-5 |
| 4.2 | 2.4 | プロトタイプシステムを用いた検証に関わる検討 | 4 - 6 |
| (1) |) べ | ンチマーク解析 | 4 - 6 |
| (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 | 4-7 |
| (3) |) メ | ッシュサイズが解析結果に与える影響に係る検討 | 4-7 |
| 4.2 | 2.5 | 水理・物質輸送-化学反応の連成に関わる複合現象を対象にした統合化技術の | |
| | | 信頼性向上に関わる検討 | 4-8 |
| 4.2 | 2.6 | 統合化評価から個別現象評価へのフィードバックに関わる検討 | 4-9 |
| 4.2 | 2.7 | 統合化評価に関わる最新の動向・現状を踏まえた課題の整理 | 4-10 |
| 4.2 | 2.8 | まとめ | 4-11 |
| 4.3 | ニフ | アフィールド核種移行評価技術の開発 | 4-13 |
| 4.3 | 3.1 | 緩衝材における状態変遷を考慮した核種移行解析技術の構築 | 4-13 |
| 4.3 | 3.2 | 緩衝材における状態変遷を考慮した核種移行パラメータ設定手法の検討 | 4-13 |
| 4.3 | 3.3 | 緩衝材の状態変遷を踏まえた核種移行解析を通じた | |
| | | 個別現象評価等へのフィードバック | 4-17 |
| 4.3 | 3.4 | 性能評価への反映を念頭にした核種移行モデルの簡略化の | |
| | | 妥当性確認のための試行 | 4-18 |
| 4.3 | 3.5 | 統合化評価を踏まえた核種移行評価技術に関わる最新の動向・ | |
| | | 現象を踏まえた課題の整理 | 4-20 |
| 4. | 3.6 | まとめ | 4-20 |
| 参考 | 文献 | <u>,</u> | 4-22 |
| | | | |
| 第5章 | 章 斧 | 結言 | 5-1 |

図目次

第1章 緒言

| 図 1.2-1 | 本事業で実施する「ニアフィールドシステム評価確証技術開発」の |
|--------------------|--|
| | 枠組みの概念図 |
| 図 1.2-2 | ニアフィールド性能の総合評価技術開発に向けたアプローチ概念図1-3 |
| 図 1.2-3 | ニアフィールドシステム評価確証技術開発のサブプロジェクト相関図1-3 |
| 第2章 二 | 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 | 緩衝材ブロック 2、6、10 段目における各種センサーの設置状況 |
| 図 2.2-3 | 緩衝材ブロック 6 段目の pH と Ept の測定結果 |
| 図 2.2-4 | 模擬オーバーパックの腐食深さ測定結果2-4 |
| imes 2.2-5 | 不均一腐食メカニズム |
| 図 2.2-6 | 模擬オーバーパック腐食データの極値統計解析によるオーバーパック |
| | 最大腐食深さ Pmaxの推定値と既往の室内試験データ解析結果および |
| | 酸素による全面腐食深さ評価式の比較 |
| 図 2.2-7 | 断面試料の走査型電子顕微鏡分析結果および顕微ラマン分光分析 |
| | に基づく推定 |
| 図 2.2-8 | 微生物群集組成と緩衝材の物理化学因子を用いた正準対応分析結果2-9 |
| 図 2.2-9 | 地層処分システムの人工バリア性能における微生物影響評価フロー2-10 |
| 図 2.2-10 | 広範な条件で実施した浸漬試験における腐食量の経時変化のまとめ2-12 |
| 図 2.2-11 | 温度変遷条件での浸漬試験の腐食速度と温度の関係 |
| 図 2.2-12 | 破面率に及ぼす NaCl および Na2SO4 電位依存性 |
| 図 2.2-13 | アノード分極曲線測定結果の例 |
| 図 2.2-14 | 高炭酸ガス、希釈人工海水における絞り比の電位依存性 |
| 図 2.2-15 | 酸性水中における最大応力比、破断ひずみ比、絞り比の pH 依存性2-18 |
| 図 2.3-1 | 緩衝材ブロック(5 段目)からの試料採取位置(左)と |
| | 模擬オーバーパック表面からの試料の採取時の状況(右) |
| 図 2.3-2 | 緩衝材ブロック(5 段目)から採取した試料の EMPA 分析結果2-23 |
| 図 2.3-3 | 模擬オーバーパック表面から採取した試料の EMPA 分析結果2-23 |
| 图 2.3-4 | 緩衝材ブロック(5 段目)から採取した試料の µ-XRD 分析結果2-24 |
| $	extstyle{2.3-5}$ | 緩衝材ブロック(5 段目)から採取した試料の TEM 分析結果2-24 |
| 図 2.3-6 | 鉄釘 0642_15622_2 の写真 |
| 図 2.3-7 | 鉄釘 0642_15622_2 の断面試料の写真(a)と同一箇所の X 線 CT 画像(b)2-26 |
| 図 2.3-8 | 袋状鉄斧 No.5849 から剥離した腐食生成物層片 |
| 図 2.3-9 | 腐食生成物層片断面試料の SEM 分析結果 |
| 図 2.3-10 | 腐食生成物層片断面試料の光学顕微鏡写真 |
| 図 2.3-11 | FIB 切片の TEM 分析結果 |
| 🗵 2.3-12 | 各断面試料の高倍率 SEM 分析による反射電子像と元素合成画像2-29 |
| 🗵 2.3-13 | 試験温度 50 °C の条件の断面試料の TEM 分析結果 |
| 図 2.3-14 | 原鉱石に見られるシリカ微粒子 |
| 図 2.3-15 | Cryo-SEM 観察像の比較 |

| 図 2.3-16 | 31 番層原鉱石の TEM 観察結果 |
|--------------------|--|
| 図 2.3-17 | 番層間での鉱物組成・空隙率の比較 |
| 図 2.3-18 | 原鉱石含有シリカ粒子の CL 分析結果 |
| 図 2.3-19 | 基本特性の測定結果 |
| 図 2.3-20 | 間隙比と載荷圧の関係 |
| 図 2.3-21 | 長期膨潤圧試験における膨潤圧の経時変化 |
| 図 2.3-22 | 原鉱石(長期膨潤圧試験後)の TEM 観察結果 |
| 図 2.4-1 | オーバーパック腐食試験の THMC 連成解析結果 |
| 図 2.4-2 | 緩衝材の温度勾配水分拡散係数 |
| 図 2.4-3 | 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2-43 |
| 図 2.4-4 | Couplysの概略と本事業において高度化したスキーム |
| 図 2.4-5 | Couplys による人工バリア性能確認試験の再現解析結果(1,580 日後)2-44 |
| 図 2.4-6 | 緩衝材中の間隙水飽和度に関する計測結果と TH および THC 連成解析結果 |
| | との比較 |
| 図 2.4-7 | MACBECE で取り扱う主な力学現象 |
| 図 2.4-8 | 緩衝材の変位の経時変化 |
| 図 2.4-9 | 緩衝材の膨潤圧と温度の関係 |
| 図 2.4-10 | 間隙比と載荷圧関係(青:22 °C、黒:50 °C、赤:80 °C) |
| 図 2.4-11 | 粗視化 MD 法の基本概念 |
| 図 2.4-12 | 圧縮に伴う凝集挙動(組織構造変化)の粗視化 MD モデルでの |
| | シミュレーション結果 ···································· |
| 図 2.4-13 | 粗視化 MD モデルでの解析結果と含水系粘土の組織構造を特徴づける |
| | 物理量との関係 |
| 図 2.4-14 | 粗視化 MD モデルでの解析で得られる組織構造を特徴づける物理量の評価例…2-53 |
| 図 2.4-15 | 相対湿度を指定して行った Na 型モンモリロナイトの膨潤シミュレーション |
| | による粘土層間距離の頻度分布の計算結果例 |
| 図 2.5-1 | グラウチングに伴うグラウト材と岩盤との相互作用メカニズムの |
| | 変遷に係る概念モデル |
| $\boxtimes 2.5$ -2 | アルカリプルームの影響範囲に応じて異なる連成解析手法を適用する概念2-58 |
| 図 2.5-3 | コンクリート支保の下流側セルにおける亀裂内部地下水の pH 経時変化の |
| | 解析結果 |
| 図 2.5-4 | 亀裂の状態変遷に影響を与える主なプロセスの概念2-59 |
| $	extsf{X}$ 2.5-5 | 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 |
| 図 2.6-1 | 流出量評価モデルの理想的な開発手順 |
| 図 2.6-2 | 2 つの隙間処理オプションにおける緩衝材の流出挙動(想定)2-68 |
| 図 2.6-3 | 流出挙動の変化を示す変曲点T _a ···································· |
| 図 2.6-4 | 室内要素試験装置の概念と要求される機能 |
| $	extstyle{2.6-5}$ | 緩衝材の流出挙動を表現できるベースモデル(相関式)のイメージ2-70 |
| 図 2.6-6 | 緩衝材流出特性の評価例 |
| | (隙間処理技術オプションの適用範囲の評価イメージ) |
| 図 2.6-7 | 原位置実規模 1/4 スケール試験の概要図 |
| | (ケイ砂充填オプション:長期試験) |

| 义 | 2.6-8 | スケール効果を考慮した流出量評価モデルと |
|----------|--------------------|---|
| | | 原位置実規模 1/4 スケール試験の比較 |
| 义 | 2.6-9 | 解析領域の段階的な拡張 |
| 义 | 2.6-10 | 解析の対象となるプロセスの概念図 |
| 义 | 2.6-11 | 解析結果 |
| 义 | 2.6-12 | 小型試験セル試験による膨潤量・膨潤圧試験の結果 |
| 义 | 2.6-13 | 軸圧(黒線)と側圧の経時変化 |
| 义 | 2.6-14 | 各パラメータでの乾燥密度分布(平衡時) |
| 义 | 2.6-15 | 解析ケース W2 の解析結果(パラメータ調整後) |
| 义 | 2.6-16 | 解析で得られた乾燥密度分布の経時変化(パラメータ見直し後)2-80 |
| 义 | 2.6 - 17 | 二次元解析モデルの概要 |
| 义 | 2.6-18 | 二次元解析結果:外側面の側圧変化(ケース 0) |
| 义 | 2.6-19 | 摩擦を考慮した境界条件 |
| 义 | 2.6-20 | 各ケースの緩衝材外側面における側圧の経時変化 |
| 义 | 2.6-21 | 各ケースの緩衝材の乾燥密度の分布と原位置試験結果との比較 |
| 义 | 2.6-22 | 内側面および外側面における側圧の経時変化 |
| tata - | | |
| 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 |
| 凶 | 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 |
| 凶 | 3.1-2 | 本課題における3つのサブタスクとそれらの関係3-2 |
| 凶 | 3.2-1 | 活品貿岩と堆積岩のマトリクス部と割れ自部を対象とした優数の室内試験や原 |
| 5.0 | 0.0.0 | 位直試験等を組合せた核種移行研究とフローナ |
| ß | 3.2-2 | 小均貨場モアル解析で設定しに黒雲母分布モアル(上段)と拡散解析結果の場 |
| | | イオン、 医イオン、 甲性粒子の比較 (下段): 黒雲母宮有率(a)7.5%, (b)15%, |
| | 0 0 0 | (c/30% 3-4 指版 3-4 指版 5-4 次世 3-4 次世 3-4 |
| 凶 | ə.2 ⁻ ə | 酸粧な割れ日性仏を有するクリムビルのコノ試杯のドレーリー試験の評価:(a) 割わ日携先の証価支法 (4)割わ日間口幅の証価 (2)細たたデル (4)細た法用 |
| | | 割40日傳垣の評価方法、(0)割40日開口幅の評価、(C)時例モアル、(0)時例福米 と実測データとの比較 |
| N | 29-1 | こ 美側 / 一 / こ の 比較 |
| 凶 | 0.2^{-4} | (a) クリムビル原位直執映物の執映対象剖れて市と執杆抹取位直、(b) 人生 ア計判の採取出現 (a) 室内トレーサー計論の概合図 (d) 室内トレーサー計 |
| | | アドローク にほう (u) |
| V | 3 9-5 | 一次で行られた10回/ ク \mathbf{Y} 線 CT や FPMA 分析に L ス割れ日本の不均質性の評価結里 \cdot (a) Y 線 CT に |
| | 0.2 0 | K K K K K K K K K K |
| | | ロ幅とガウジを埴率の分布評価 |
| V | 3 2-6 | 室内トレーサー試験後の主経路割れ目表面上の収差性トレーサーの濃度分布 3-9 |
| | 3.2.0 | グリムゼルの岩石割れ日の核種移行モデルの概念図(a)と室内トレーサー試験の |
| | 0.2 1 | 最適化結果・(b)I (c)Cs および Ni |
| 汊 | 3 2-8 | GoldSimの不確実性解析手法を適用した割れ目中核種移行に及ぼす重要因子の |
| | 0.2 0 | 分析結果: (a)GoldSim の不確実性解析フロー. (b)パラメータ相関の散布 |
| | | 図、(c)偏順位相関係数 |
| 汊 | 3.2-9 | 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 |
| <u>г</u> | | デルの構築・確証のアプローチ |
| 义 | 3.2-10 | 地質環境の環境変遷とそれに伴う核種移行特性の変化を取り扱う核種移行モ |

図 3.2-11 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)、500 m の割れ 目中の核種移行解析体系(b)、環境変遷を考慮した条件下での複数のモデル (精緻、中間、簡易モデル)による Cs の核種移行解析結果 : (c) SRHP⇒ 図 3.2-12 幌延の泥岩(稚内層)を対象とした間隙特性分析結果((a)-(b):ナノX線CT 像と間隙分布、(c) SEM による反射電子像、(d) 水銀圧入法による細孔径分 図 3.2-13 幌延泥岩マトリクス中の間隙サイズ分布(a)とCs、HTO、Iの実効拡散係数の 図 3.2-14 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: (a) HTO シミュレーション(赤)、Kato et al.(1999b)の HTO 実測データ (青)。(b)Cs イオン(赤)、I イオン(青)、HTO(黒)。緑実線は、サイト・ 図 3.2-15 第一原理計算と機械学習を組み合わせた評価(逆解析)で得られたモンモリ ロナイト表面上の Cs 位置: (a) ケミカルシフトが 0.7534 ppm、(b) ケミカル 図 3.2-16 幌延 URL の 350 m 調査坑道におけるマトリクス部を対象とした原位置拡散 試験の結果:(a) 原位置拡散試験の試験体系、(b) 試験後試料の濃度分布取 得状況、(c) GoldSim コードおよび(d) PHREEQC コードによる解析結果 ……3-19 図 3.2-17 幌延の泥岩中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 ……3-20 図 3.2-18 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 図 3.2-19 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) 図 3.2-20 間隙水圧差を補正したウラニンの最適化結果: (a) パルスソース試験、(b) コ 図 3.2-21 ウラニンで最適化されたモデル・パラメータに基づく Moの解析結果: (a)パ 図 3.2-22 ウラニンで最適化されたモデル・パラメータに基づく Csの解析結果: (a)コ ンスタントソース試験、(b)割れ目表面の濃度分布 …………………………………………3-23 図 3.2-23 本事業で評価を実施した幌延 URL の 350 m 調査坑道における原位置トレー サー試験、原位置拡散試験および室内試験で取得された物質移行パラメータ イオン交換反応に関わるパラメータの不確実性を考慮した解析結果(HDB-1 図 3.2-24 図 3.3-1 Fe(II)が種々の元素のモンモリロナイトに対する収着に与える影響の評価:(a) Fe(II)共存下でのNi, Pb, EuのKa, (b) Fe(II)がNiの収着に及ぼす影響と収 図 3.3-2 鉄酸化物鉱物による Se 取り込み試験により生成した固相の分析結果の例:(a) X線分析による鉄酸化物鉱物による Se 取り込みメカニズムの評価, (b) 熱力

| 义 | 3.3-3 | 生成した固相の表面分析による評価と推定された構造 : (a) X 線分析による硫 |
|---|-----------------|--|
| | | 化鉄鉱物の Se 取り込みメカニズムの評価, (b) 計算科学的手法による Se を取 |
| | | り込んだマッキナワイトの構造の推定 |
| 义 | 3.3 - 4 | 種々の分析手法を組み合わせた幌延の堆積岩中の Se の構造と取り込みメカニ |
| | | ズムの推定手法の概要 |
| 义 | 3.3 - 5 | (1) 乾燥密度 1.2 Mg/m ³ の Na 型ベントナイト中の 7.2 nm および(2) 5.7 nm |
| | | のデンドリマーコロイドの拡散試験データと解析結果 : (a) 高濃度側の濃度 |
| | | 減衰と低濃度側の破過データ, (b) 試験後のベントナイト中の濃度分布3-36 |
| 义 | 3.3 - 6 | 泥岩—OPC 接触界面の分析結果:(a) 対象試料全体の写真と EPMA による Ca |
| | | マップ, (b) EPMA の高分解能の Ca マップと深度方向 Ca 分布, (c) LA- |
| | | ICPMS による Ca・Sr マップ, (d) SEM/EDS による Ca マップと二次鉱物の |
| | | 同定 |
| 义 | 3.3-7 | カルサイトに取り込まれた微量元素の測定例 : (a) 幌延 URL から採取したカ |
| | | ルサイト中の REE 分配パターン, (b) μ-XRF 測定による元素マッピング結果 …3-39 |
| 义 | 3.3-8 | 熱力学的収着モデルと表面分析手法を組み合わせた収着メカニズムの推定例: |
| | | (a) 炭酸共存下でのイライトに対する U(VI)の収着の TRLFS-PARAFAC 解析 |
| | | 結果, (b) 収着モデルと PARAFAC 解析による表面化学種の DIC 濃度依存性 |
| | | 解析の比較 |
| 义 | 3.3-9 | 炭酸共存下での幌延の泥岩に対する U(VI)の Kaと CA モデルによる再現結果 …3-41 |
| 义 | 3.3-10 | 古典 MD 計算によるモンモリロナイト層間へのアクチニド元素の炭酸錯体の |
| | | アクセス性評価の例:Np(V) |
| 义 | 3.3 - 11 | PHREEQC を用いた核種移行解析・不確実性評価 : (a) Np(V)の複数の化学種 |
| | | が混在する条件での透過拡散試験結果の PHREEQC Transport 解析, (b) |
| | | Np(V)の収着・拡散挙動に関するパラメータの不確実性解析 |
| 义 | 3.4-1 | HHA に対する Zr ⁴⁺ 結合量の Zr ⁴⁺ 濃度依存性と NICA-Donnan モデルフィッテ |
| | | イング結果 |
| 义 | 3.4-2 | CE-ICPMS から導出した Zr ⁴⁺ の HHA に対する結合量に対する NICA- |
| | | Donnan モデルフィッティング結果(左)低親和性サイトのみ考慮(右)低 |
| _ | | 親和性サイトと高親和性サイトを考慮 |
| 凶 | 3.4-3 | HHA について構築した LFER·································· |
| 凶 | 3.4-4 | Euの収着の炭酸濃度依存性 |
| 凶 | 3.4-5 | 微生物と元素との相互作用の概念図 |
| 凶 | 3.4-6 | URL における ボーリング 孔配置図 |
| 凶 | 3.4-7 | れ径 0.2 μm フィルター 5 液中の希土類元素濃度の残存率の経時変化。全コロ |
| | | イド;地ト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)140 m 地下水 |
| | | の全コロイドの存在ト; 無濾過浴液. (b) 140 m 地下水の無機/有機コロイドの |
| | | 存在下; $0.2 \mu m$ フィルター濾過溶液. (c) $185 m$ 地下水の全コロイドの存在 |
| | | 下; 無源 適 浴 液. (d) 185m 地下水の 無機/ 有機 コロイドの 仔仕下; $0.2 \mu m$ フィ |
| | | ルター 濾 回谷彼. (e)250 m 地下水の 全コロイドの 存住ト; 無 濾 週 谷液. (f) |
| | | 250 m 地下水の 無機/ 有機 コロイトの 仔仕ト; 0.2μ m フィルター 濾過 溶液. |
| | | (g)350 m 地下水の全コロイドの存在下; 無濾過溶液 |

| 义 | 3.4-8 | 深度 140 m (07V140M03 孔)、185 m (08E140C01 孔区間 3)、250 m |
|----|--------|--|
| | | (09V250M02 孔)、350 m (13350C01 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 28 日後 |
| 义 | 3.4-9 | 地下水中の微生物群集組成の経時変化 (a) 08E140C01 孔、(b) 07V140M03 |
| | | 孔、(c) 09V250M02 孔、(d) 13350C01 孔 |
| 义 | 3.4-10 | 声問層及び稚内層の岩石コア試料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、声問層では岩石粒子周辺や空隙に細 |
| | | 胞が分布する様子が観察された。稚内層では亀裂を充填するように微生物細 |
| | | 胞が観察された。 |
| 义 | 3.4-11 | コロイドが核種移行に及ぼす影響に関する評価手法フローの例3-65 |
| 汊 | 3.4-12 | バイオフィルムが核種移行に及ぼす影響に関する評価手法フローの例3-66 |
| 义 | 3.4-13 | 各解析ケースの総線量の比較 |
| | | |
| 第4 | 章 二 | アフィールド環境変遷を考慮した核種移行評価技術の開発 |
| 义 | 4.2-1 | ニアフィールド性能の総合評価技術開発に向けたアプローチの概念図4-1 |
| 义 | 4.2-2 | 現象解析モデルに関わるプロトタイプシステムの概要4-3 |
| 义 | 4.2-3 | 水理・物質輸送-化学反応(Case A)及び力学との連成解析(Case B) |
| | | 結果の比較 |
| 叉 | 4.2-4 | 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) |
| | | |
| 义 | 4.2-5 | 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4-7 |
| 义 | 4.2-6 | 石英の溶解・沈殿反応または石英の溶解反応のみを考慮した場合の |
| | | 緩衝材中における構成鉱物の比較4-9 |
| 义 | 4.2-7 | 緩衝材の変質に伴う透水係数分布の比較4-10 |
| 叉 | 4.3-1 | 緩衝材中での Cs-135 の存在量分布の経時変化と Cs の Kd、 |
| | | モンモリロナイト残存量及び緩衝材中での構成鉱物の時間変遷との比較4-15 |
| 义 | 4.3-2 | 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4-16 |
| 义 | 4.3-3 | 緩衝材中の間隙水の pH 変化と Kd の経時変化の比較4-16 |
| 义 | 4.3-4 | 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4-17 |
| 义 | 4.3-5 | Cs 及び Ni を対象にした緩衝材の状態変遷を踏まえた核種移行解析結果4-19 |

第1章 緒言

| 1-4 |
|-----|
| |

第2章 ニアフィールド環境変遷に係る個別評価技術の開発

| 表 2.2-1 | 各種分析により同定された腐食センサー近傍の腐食生成物と Fe の浸透程度 …2-6 |
|---------|---|
| 表 2.2-2 | 微生物腐食の原因となる可能性のある事象と現段階での判断およびその根拠…2-10 |
| 表 2.2-3 | 広範な環境条件における浸漬試験の実施内容 |
| 表 2.2-4 | 広範な条件で実施した浸漬試験における腐食生成物分析結果のまとめ2-13 |
| 表 2.2-5 | 広範な環境条件における応力腐食割れ試験の実施内容 |
| 表 2.3-1 | 研究対象試料 |
| 表 2.3-2 | 炭素鋼試験片に接触していたベントナイト試料の分析結果まとめ2-30 |
| 表 2.3-3 | シリカ微粒子の粒径の比較 |
| 表 2.6-1 | レベル放射性廃棄物の地層処分における縦置きブロック型式に関する |
| | 隙間処理施工技術オプションの特徴の整理 |
| 表 2.6-2 | 隙間処理技術オプションの選択における評価項目および判断指標(案):2-66 |
| 表 2.6-3 | 補正係数が有する保守性・安全性評価に関する定性評価の観点2-70 |
| 表 2.6-4 | 方法論の適用性の確認結果(総括) |
| | |

第3章 ニアフィールド環境変遷を考慮した核種移行評価技術の開発

| 表 3.2-1 国 | 目内の結晶質岩を対象とした X 線 CT 画像、各種分析に基づく黒雲母等の特性 | |
|-----------|--|---|
| Ī | 評価結果 | 5 |
| 表 3.4-1 H | IHA 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 |
| 表 3.4-2 L | FER より推定された NICA-Donnan モデルパラメータ |) |
| 表 3.4-3 本 | <調査において設定された評価対象核種の有機物への分配係数(Kd_DOM)3-51 | 1 |
| 表 3.4-4 各 | ☆深度における地下水中のコロイド濃度と微生物密度 | 3 |

第4章 ニアフィールド性能の総合評価技術開発

| 表 4.2-1 | 複合現象解析モデルの統合化技術開発で重点的に取り組むべき課題4-2 |
|---------|---------------------------------------|
| 表 4.2-2 | 複合現象解析モデルの検証・確証に関わる現状4-5 |
| 表 4.2-3 | 海外専門家によるレビューコメントとそれに対する回答及び今後の対応案 4-8 |
| 表 4.3-1 | 緩衝材の状態変遷を踏まえた核種移行パラメータ設定方法 |
| | (Cs 及び I の場合)4-14 |
| 表 4.3-2 | 緩衝材の状態変遷を踏まえた核種移行パラメータ設定方法 |
| | (Ni 及び Sn の場合) |
| 表 4.3-3 | 精緻・中間モデルによる核種移行パラメータの設定方法の概略4-19 |

1.1 本事業の背景と目的

本事業は、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、 平成30年度から令和4年度の5か年にわたり実施したものである。

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。また、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。
- サイトの諸特性が不均質に分布する地質環境の特徴に応じた評価。
- ・ 保守的な仮定の確認や、過度な保守性を排除した評価。
- 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。

このような背景を踏まえ、本事業では、人工バリアとその設置などにより影響を受けると考え られる人工バリア近傍の岩盤とを合わせた領域(以下、[ニアフィールド]という)を対象として、

「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 環境の長期変遷とそれを踏まえた核種移行を評価可能な技術開発を行うことを目的とする。

1.2 プロジェクト構成と実施概要

本事業では、実際のサイトにおける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とそれを踏まえた核種移行を 評価可能な技術開発を実現するため、図1.2-1に示す三つのサブプロジェクトを設定して進めた。

- 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。各サブプ ロジェクトで実施する技術開発が対象とする領域と時間との関係を図1.2・3に示す。各サブプロジ ェクトや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。



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



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

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。

1.3 本報告書の構成

本報告書は、平成30年度から令和4年度の5か年に実施した本プロジェクトの成果を要約し取り まとめたものであり、全部で5章から構成される。第2章から第4章では、以下のように、1.2で示 した三つの各サブプロジェクトの成果を要約する。

- ・ 第2章 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
- ・ 第3章 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
- 第4章 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

第5章では、本事業全体としての成果を総括する。なお、各サブプロジェクトの詳細な成果については、5か年の各年度の成果報告書(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, 2019; 2020; 2021; 2022; 2023)を参照頂きたい。

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.

- 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.
- 日本原子力研究開発機構,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,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,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,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,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,2022.
- 日本原子力研究開発機構,原子力環境整備促進・資金管理センター,令和4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,2023.

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

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性がある。そのため、人工バリアの長 期挙動評価や環境変遷を評価する技術の開発とその評価の妥当性確認が重要となる。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。

本章では、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した。

- ・ 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)
- ・ 緩衝材の流出現象およびその後の再冠水プロセスにおける挙動(2.6節)

上記の項目のうち、オーバーパックの腐食と緩衝材の変質については、緩衝材が再冠水-飽和に 至る過渡期と飽和後の長期的な期間を対象に、THMC(T:熱、H:水理、M:応力、C:化学) の変遷やそれによる影響などの観点からデータを取得するとともに、100 °Cを超える条件を含む 諸条件で取得された既往のデータを活用し、既往の現象解析モデルの妥当性確認や、現象解析モ デルの改良、高度化を行った。THMCの変遷については、これまで開発されてきた連成解析モデ ルを用いて過渡状態などでの挙動を解析し、原位置試験データなどを活用してモデルの適用性や 妥当性を検討するとともに、先行事業「処分システム評価確証技術開発」(日本原子力研究開発 機構, 2018)などで抽出された課題である力学的挙動の解析手法の高度化などに取り組んだ。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った。

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 健全性評価を実施した。

2.2 オーバーパックの腐食挙動評価

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;2016;2017;2018)では過渡状態におけ る腐食モニタリングのための腐食センサーを開発し、幌延深地層研究センターの地下研究施設(以 下、[幌延URL]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、 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)および先行事業「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)では、それぞれ広範な環境条件(成分濃度、pH、温度など)や沿岸部を想定した地 下水条件において、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。

このような背景のもと、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 を対象に、模擬オーバーパック(ガラス固化体の発熱を模擬するヒーターを内蔵した炭素鋼製の 円柱)および腐食センサー(模擬オーバーパック周囲に施工した緩衝材中に埋め込み、電気化学 的手法により腐食データを取得)の腐食状況や緩衝材中の環境条件、緩衝材の微生物活性に関す る調査を行った。また、温度や水質などの環境条件による腐食への影響に関する知見の拡充を目 的として、先行事業「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)および先行事業「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)で開始した室内試験を継続し、浸漬試験については8種類の環境条件、 応力腐食割れ試験については4種類の環境条件の腐食データを取得した。

2.2.2 実施成果

(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; 2022; 2023)。



1) 緩衝材中の環境条件

水分飽和度について、2.4節に示すCouplysによるTHMC連成解析の結果(図2.4-1)によると、 緩衝材内部の中央(模擬オーバーパック表面から50 mmの付近)では試験開始から100日程度で 飽和度が約0.9以上に達している。THMC連成解析の結果では、模擬オーバーパック表面近傍の緩 衝材の水分飽和度は試験期間を通じて約0.6以下となっているが、試験終了後に実施したサンプリ ング試料の水分測定結果(日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2019)によれば、緩衝材の飽和度は全体的に0.9程度であることが確認されており、実際には THMC連成の結果よりも速やかに地下水が緩衝材中に浸潤した可能性がある。また、試験期間中 に腐食センサーを用いて行われた腐食モニタリングでは、試験開始から約80日で電気化学的な計 測が可能となる程度まで地下水が浸潤したと推定されている(谷口・中山,2018)。これらのこと から、試験開始から遅くとも100日間程度経過した時点で、緩衝材内部にある程度の水が浸潤して いたと推察される。

緩衝材間隙水のpHと酸化還元性については、緩衝材中に埋め込まれた光学式pH計と白金電極 により測定を行った(図2.2-2)。図2.2-3には、pHと白金電極電位Eptの計測結果の代表例として 6段目の測定結果を示した。図中の「内」「中」「外」はそれぞれ模擬オーバーパック表面近傍、 表面から50 mmの中央付近、支保近傍を示している。pHは試験開始後上昇し、約300日以降は約 8.5 - 9の範囲で概ね一定となった。酸化還元電位は経時的に還元性に向かい、400 - 500日でほぼ 一定となった。pH(6段目外の計測結果)と酸化還元電位(6段目180°の計測結果をpeに換算し たもの)はTHMC連成解析の結果(図2.4-1)とも概ね一致している。既報の腐食センサーによる 腐食速度のモニタリング結果(谷口・中山,2018)では、初期には数10 µm/yと比較的酸化性環境 での代表的な腐食速度を示すが、腐食速度は時間とともに低下して試験開始後数100日以降は中 性から弱アルカリ性での低酸素濃度環境での代表的な腐食速度である数µm/y程度になることが 示されており、環境条件の測定結果はこれと概ね整合する。



図2.2-2 緩衝材ブロック2、6、10段目における各種センサーの設置状況



図2.2-3 緩衝材ブロック6段目のpHとEptの測定結果

2) 模擬オーバーパックの腐食

図2.2・4に模擬オーバーパックの腐食深さの計測結果(日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター,2019より作成)を示す。この図より、模擬オーバーパックの腐食は不均一であり、中央部および上部と比較して下部の腐食量が大きいことがわかる。また、緩衝材上方に充填されていたケイ砂が、模擬オーバーパックと緩衝材のすきま(約5 mm幅)に流れ込んだ状態となっており、ケイ砂の混入量は下部のほうが多いことが確認されている。観察された不均一な腐食のメカニズムとしては、図2.2・5に示すようにアノードとカソードの場所的な分離によるもの(マクロセル腐食)と全面腐食速度の場所による違いが考えられるが、ケイ砂の混入量の多い場所ほど酸素による全面腐食が促進されると考えると実際に観察された腐食状況と整合する。



(青い領域は腐食生成物が残存した凸部)

図2.2-6は、模擬オーバーパック腐食データの極値統計解析により求めた実機サイズのオーバー パックの最大腐食深さPmaxの推定値と酸素による全面腐食に関する既往の評価式(Taniguchi et al., 2011)を比較したものである。図には幌延の地下水条件で実施された酸素を含む系での室内試 験結果(Taniguchi et al., 2011)も示した。上段、中段、下段ともに既往の評価式を下回っており、 既往のモデルによる評価が今回のような不均一腐食の事例に対しても保守的であることが確認さ れた。ただし、極値統計解析に用いた腐食深さのデータは除去できなかった腐食生成物が残存し た状態での概略的な値であり、解析も予察的に実施したものであることに留意する必要がある。



図2.2-6 模擬オーバーパック腐食データの極値統計解析によるオーバーパック最大腐食深さ Pmaxの推定値と既往の室内試験データ解析結果および酸素による全面腐食深さ評価式の比較

3) 緩衝材中に埋設した腐食センサーの調査

図2.2-2に示したように、緩衝材ブロックの2、6、10段目のそれぞれにおいて、真北(0°)に対し て時計回りで45°、135°、225°、315°の方向に腐食センサーが設置されていた。この腐食センサ ーは平成25年度(日本原子力研究開発機構, 2014)に開発されたものであり、幌延URLにおける 人工バリア性能確認試験とオーバーパック腐食試験の腐食モニタリングに適用された。オーバー パック腐食試験では、腐食センサーを用いた交流インピーダンス測定を行い、液抵抗と分極抵抗 (腐食速度の逆数に比例)の経時変化を観察した(谷口・中山、2018;中山ほか、2020)。分極抵 抗から腐食電流への換算係数を20 mVと仮定すると、80日後の値の腐食速度は約6-60 μm/y、約 300日以降の腐食速度は低酸素濃度環境で代表的な約1-5 µm/yに相当する値であった(谷口・中 山,2018;中山ほか,2020)。このような腐食速度の経時的な低下は、腐食センサー近傍の酸素濃 度の低下や腐食生成物からなる皮膜の形成により腐食反応が抑制されたことを示唆する。腐食セ ンサー近傍の腐食生成物について、図2.2-7に示すように、腐食センサーを緩衝材に包まれた状態 で切断して断面試料(2段目315°、10段目315°の試料のみ)を作製し、走査型電子顕微鏡と顕微 ラマン分光分析を用いて分析を行ったところ、腐食生成物は試料極側(炭素鋼)から、概ねマグ ネタイト、硫化鉄、シデライトの順で分布していると推定できた。表2.2-1には、腐食センサー表 面から削りとった腐食生成物の粉末試料を用いたX線回折分析(PXRD)、試料極を直接分析したX 線回折分析(DXRD)、顕微ラマン分光分析(Raman)のそれぞれで同定した腐食生成物の名称 (Fe²⁺ を含む腐食生成物は緑色、Fe³⁺のみを含む腐食生成物は赤色の文字で表示)および緩衝材中のFe の浸透の程度を示した。Feの浸透の程度は、Fe成分が腐食センサー近傍に留まっている場合は 「小」、Fe成分が緩衝材中に数ミリ程度浸透している場合は「大」とした。浸透の程度と腐食セ ンサーの設置方位の関係は認められない。表2.2-1から、概ね腐食生成物の種類は一致しているこ と、いずれの腐食センサーについても低酸素濃度環境で生成するシデライトが検出されているこ とがわかる。シデライトの検出は腐食センサーのモニタリングデータから推定した腐食速度の経 時変化と整合する。



図2.2-7 断面試料の走査型電子顕微鏡分析結果および顕微ラマン分光分析に基づく推定

| | 45 ° | 135 ° | 225 [°] | 315 ° |
|----|--|--|---|---|
| 10 | [PXRD]Gth/Sd [DXRD]Gth/Mag/Sd/Aka [Raman]Gth/Mag/Sd [Fe浸透]小 | [PXRD]N/A [DXRD] <mark>Gth/Mag/Aka</mark> [Raman]N/A [Fe浸透]不明 | [PXRD]Gth/Mag/Sd [DXRD]Gth/Mag [Raman]Gth/Mag/Sd [Fe浸透]大 | [PXRD]N/A [DXRD]N/A [Raman]Gth/Mag/Sd [Fe浸透]小 |
| 6 | [PXRD]Gth/Mag/Sd [DXRD]Sd [Raman]Gth/Mag/Sd [Fe浸透]小 | [PXRD]Gth/Mag [DXRD]Mag/Sd [Raman]Gth/Mag/Sd [Fe浸透]小 | [PXRD]Sd [DXRD]Sd [Raman]Gth/Mag/Sd [Fe浸透]小 | [PXRD]Gth [DXRD]Gth/Mag/Sd/Aka [Raman]Gth/Mag/Sd [Fe浸透]大 |
| 2 | [PXRD]Gth/Sd [DXRD]Gth/Mag/Sd/Aka [Raman]Gth/Mag/Sd/Lep [Fe浸透]小 | [PXRD]N/A [DXRD]Gth/Mag/Aka [Raman]N/A [Fe浸透]大 | [PXRD]Sd [DXRD]N/A [Raman]N/A [Fe浸透]大 | [PXRD]N/A [DXRD]N/A [Raman]Mag/Sd [Fe浸透]小 |

表2.2-1 各種分析により同定された腐食センサー近傍の腐食生成物とFeの浸透程度

Gth:ゲータイト、Mag:マグネタイト、Sd:シデライト、Aka:アカガネイト、Lep:レピドクロサイト

4) 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の微生物活性挙動が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、幌延URLの350 m試験坑道において原位置オーバーパック腐食試験の微 生物調査を実施し、腐食試験から採取した緩衝材中の微生物の現存量および種組成に関するデー タを取得した。その結果、オーバーパック腐食試験中に90°C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 と芽胞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℃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 状態であったと推察された。一方で、緩衝材中には多くの微生物生菌数が不均一に高密度で検出 されたことから、その要因について考察するため、施工時のケイ砂混入率や有効モンモリロナイ ト密度との関係を検討し、多変量解析手法の一つである正準対応分析(Canonical Correspondence Analysis: CCA)を用いて、微生物群集組成と生菌数・DNA濃度・乾燥密度・有効モンモリロナイ ト密度、水分量等の環境要因の関係について解析を行った。その結果、緩衝材中の各試料は、「地 下水混入グループ」「地下水混入+増殖グループ」「ケイ砂混入グループ」の3つのグループに区 分されることが明らかになった(図2.2-8)。「地下水混入グループ」は有効モンモリロナイト密 度と相関性を示しており、この領域では緩衝材中への地下水の侵入に伴い地下水中の微生物の混 入が認められるが、それらの増殖は有意ではないと推察された。一方で、ケイ砂混合率・乾燥密 度・生菌数との相関関係が高い領域では、地下水中の微生物の混入に加えて、酸素を用いた代謝 を行う微生物、発酵菌などが緩衝材内部で有意に増殖した痕跡が認められた。本試験では、施工 の過程でケイ砂が不均一に混入しているため、乾燥密度と有効モンモリロナイト密度は必ずしも 相関関係を有しておらず、実測値として取得した乾燥密度は緩衝材の不均一性を十分に反映して いない可能性がある。したがって、本解析結果は、実規模環境では、緩衝材の不均一性が生じて いる場合や膨潤過程において、好気性の微生物や発酵性の微生物が緩衝材内部で増殖する可能性 を示唆している。このような実規模環境下では、微生物抑制の指標として乾燥密度のみを用いた 検討は十分でない可能性が高い。したがって、実規模スケールを対象とした環境下における緩衝 材中の微生物活性抑制因子としては、乾燥密度ではなく、有効モンモリロナイト密度を用いる方 がより現実的で信頼性が高い評価が得られる可能性が示唆された。

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およびクニピアF)、幌延URLにおける原位置試験の緩衝材ブロック(試験使用前 の試料)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。その 結果、対象試料中のDNA解析の結果から、原鉱石およ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低く、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できた。さらに、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示された。これらの原 鉱石を対象とした調査結果から、高乾燥密度条件下では、超長期的な時間スケールにおいて、微 生物活性が抑制されている可能性が示された。

本事業で得られた成果およびこれまでの知見を踏まえて、地層処分システムの人工バリア性能 に及ぼす微生物影響評価フローを作成した(図2.2-9)。評価フローには、King (2009)による処分 環境における微生物腐食の可能性に関する検討結果を一部参照し、緩衝材中および岩盤中の微生 物挙動に関わる現象を追記した。また、作成した評価フローに基づき、現段階で微生物腐食の原 因となる可能性のある事象を抽出し、それらの事象について現段階での判断およびその根拠を取 りまとめた(表2.2-2)。これらの図表から、微生物は、人工バリア設置時に緩衝材等の人工バリ ア材料から持ち込まれるとともに、緩衝材の膨潤過程において岩盤側から地下水の流入とともに 地下環境に生息していた微生物が侵入する可能性があるものの、緩衝材膨潤後、緩衝材に期待さ れた機能が十分に発揮されることにより、微生物活性は抑制されると示唆される。また、本研究 で実施した原位置試験における緩衝材中の微生物調査結果から、多くの好気性菌が検出されてい ることからも、膨潤過程で侵入した酸素は、微生物反応によっても消費されることが示唆された。 すなわち、地層処分システムの人工バリア性能に及ぼす微生物影響は、緩衝材膨潤過程において 緩衝材内部に侵入した微生物の働きにより酸素が速やかに消費され、還元環境回復の促進が期待 できるという点で、悪影響のみではなくポジティブな影響も想定される。一方で、施工の不均一 性などの観点から人工バリアの施工条件が十分に満たされていない場合や、緩衝材の膨潤過程に おいては、微生物による緩衝材中の移行、活性化、金属容器腐食に対して有意なレベルの腐食性 代謝産物の生成が可能になると推測される。硫酸還元菌等の腐食に寄与する可能性のある微生物 も侵入・増殖する可能性があり、緩衝材の膨潤の速さおよび均一な施工が微生物影響を低減させ る上で極めて重要であると考えられる。また、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、施工の不均一性に伴い微生物が生息可能な空隙サ イズが存在する場合には、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。

オーバーパック表面においてバイオフィルムが形成されることによる直接的な金属腐食の可能 性については、60°C以上の高温環境下では、バイオフィルムは形成されることができないとの報 告がある(Else et al., 2003)。高温環境下では、微生物の増殖自体が妨げられるだけでなく、バイ オフィルム形成時に生成される細胞外高分子物質(Exopolysaccharides: EPS)の生成が妨げられ ることが報告されている(Norwood and Gilmour, 2001; Perrot et al., 1998)。すなわち、EPSはバ イオフィルム形成初期に固体に接着するだけでなく、固体表面への強固な固定化にも重要な役割 を果たしているが、EPSが生成されないことで、バイオフィルムが形成されなくなると考えられ る。実際、本研究で実施した原位置腐食試験においてもオーバーパック表面試料から微生物は検 出されていない。また、既存の金属腐食に関わる原位置試験においても、金属表面において微生 物は検出されなかったことが報告されている(Aoki et al., 2010; Stroes-Gascoyne et al., 2002)。 したがって、高温環境下では、オーバーパック表面におけるバイオフィルムによる微生物腐食の 影響は考えにくいと推定される。

国内外における室内試験や原位置試験に関わる知見に加えて、本研究で取得した地下環境にお ける原位置オーバーパック腐食試験、ベントナイト鉱山の原鉱石を対象とした調査から、長期的 な時間スケールにおいても、期待される緩衝材の機能が十分に発揮されている環境下では、緩衝 材中の微生物活性は抑制されうると考えられる。しかしながら、現段階の知見では、環境条件に よって不確実性が残されているのが現状である。長期にわたって処分容器に及ぼす微生物腐食影 響を除外できることを示すためには、実際の地下環境や処分環境を模擬した様々な条件下かつ長 期的なスケールで、緩衝材の不均一性や空隙サイズの知見と併せて、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。



図2.2-8 微生物群集組成と緩衝材の物理化学因子を用いた正準対応分析結果



(King, 2009を一部参照)

表2.2-2 微生物腐食の原因となる可能性のある事象と現段階での判断およびその根拠

| | 微生物腐食の原因となる可能性のある事象 | 現段階での判断と根拠 | 文献 |
|---|--------------------------------|--|--------------------|
| 1 | 緩衝材中の微生物の移行 | 人工バリアの施工条件が満たされていない場合は,移行できる。 ・緩衝材中のDNA濃度は著しく低いことが示されたが,空隙サイ ズ,有効モンモリロナイト密度,生菌数等の関係から,大きい空隙 が存在する可能性のある領域では,生存能力を有する微生物が検出 されている。 | 本事業 |
| 2 | 緩衝材内部の微生物の活性化 | 人工バリアの施工条件が満たされていない場合は、活性化できる。 ・緩衝材中のDNA濃度は著しく低いことが示されたが、空隙サイ ズ、有効モンモリロナイト密度、生菌数等の関係から、大きい空隙 が存在する可能性のある領域では、生存能力を有する微生物が検出 されている。 | 本事業 |
| 3 | 緩衝材内部の微生物による有意量の腐食性代謝 産物の生成 | 人工バリアの施工条件が満たされれば、微生物が増殖可能な空隙サ イズが限られるため、硫酸還元等の腐食に関わる反応は生じない。 ・硫酸還元菌に近縁な種は検出されているが、腐食生成物として硫 化鉱物が検出されていないことから、硫酸還元反応は有意なレベル で生じていなかったと推察される。 | 本事業 |
| 4 | オーバーパック表面における微生物の活性化 | 60℃以上の高温環境下では,バイオフィルムは形成されない。 | Else et al. (2003) |

(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;2016; 2017;2018)において、高塩濃度環境、高温水環境、酸性水環境、炭酸ガス環境を含む広範な環 境条件での腐食試験が行われ、腐食データが取得された。また、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 水条件として人工海水および人工海水の希釈水を用いた腐食試験が行われた。

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、本事業で は試験期間5年の高温水環境下の長期浸漬試験、試験期間3年の沿岸部を想定した地下水条件の浸 漬試験、酸性水条件の浸漬試験、高炭酸塩条件の浸漬試験、高硫酸塩条件の浸漬試験、高塩化物 の浸漬試験、温度の連続的な変化に関する浸漬試験により腐食データを取得した。

広範な環境条件における応力腐食割れ試験については、炭酸塩環境、高炭酸ガス環境、沿岸部 を想定した地下水条件(人工海水を希釈)、酸性水環境のそれぞれにおいて応力腐食割れ試験を 実施し、応力腐食割れ感受性を評価した。

1) 広範な環境条件における浸漬試験

表2.2-3に広範な環境条件における浸漬試験の実施内容、図2.2-10および図2.2-11に浸漬試験の 結果、表2.2-4に腐食生成物分析結果のまとめを示す。

| 環境条件 | 実施内容 |
|-------|---|
| 高温水 | 人工海水を使用し、30, 40, 50, 80, 120, 160 °C で5年間実施。水素吸収挙動も評価【令和3年度報告】 |
| 沿岸地下水 | 人工海水およびその希釈水(10,100,1,000 倍希釈)を使用し、80 ℃ で3年間実施【令和2年度報告】 |
| 酸性水 | HClまたは H ₂ SO ₄ を添加した 0.56 M NaCl溶液 (pH1, 2, 3)を使用し、80 ℃ で 3 年間実施【平成 26, 29 年度報告】 |
| 高炭酸塩 | 0.1, 0.2, 0.5M NaHCO3溶液を使用し、80 °C で 3 年間実施【令和 4 年度報告】 |
| 炭酸ガス | 炭酸ガス(5,50,100%)を吹込んだ0.56 M NaCl 溶液を使用し、80°C で3年間実施【平成30,31年度報告】 |
| 高硫酸塩 | 0.06, 0.6 M, 飽和 Na ₂ SO₄溶液を使用し、80 °C で 3 年間実施【令和 4 年度報告】 |
| 高塩化物 | 0 56, 5M, 飽和 NaCl 溶液を使用し、80 ℃ で 3 年間実施【令和 2 年度報告】 |
| 温度変遷 | 人工海水を使用し、95°Cまたは80°Cで加熱した後、90日目以降に35,50,65,80,95°Cとして90日間(開始後計180 |
| | 日)実施。一部試験は1°C/日の降温速度で段階的に温度を低下。【令和3年度報告】 |

表2.2-3 広範な環境条件における浸漬試験の実施内容



図2.2-10 広範な条件で実施した浸漬試験における腐食量の経時変化のまとめ



図 2.2-11 温度変遷条件での浸漬試験の腐食速度と温度の関係

| 環境条件 | 試験溶液 | 試験温度 | 試験期間(日) | | | | |
|-------|---|------|---------|-------|---------|---------|------|
| | | (°C) | 30 | 90 | 365 | 1095 | 1825 |
| | 人工海水 | 50 | ? | ? | Sd | Sd | Sd |
| 古泪水 | 人工海水 | 80 | Sd | Sd | Sd | Sd | Sd |
| 同価小 | 人工海水 | 120 | | | Sd | Sd | Sd |
| | 人工海水 | 160 | | | Sd, Mag | Mag | Mag |
| | 人工海水, 10 倍 | 80 | Sd | Sd | Sd? | ? | |
| 沿岸地下水 | 人工海水, 100 倍 | 80 | Sd | Sd | ? | Mag, ? | |
| | 人工海水, 1000 倍 | 80 | Sd, ? | ? | Sd | Mag, ? | |
| | H ₂ SO ₄ , pH1 | 80 | Sd | Sd | Sd | Sd | |
| 酸性水 | H ₂ SO ₄ , pH2 | 80 | Sd | Sd | ? | С | |
| | H ₂ SO ₄ , pH3 | 80 | Sd | Sd | ? | C | |
| | HCI, pH1 | 80 | Sd | Sd | ? | Sd | |
| 酸性水 | HCI, pH2 | 80 | Sd | ? | Sd | C | |
| | HCI, pH3 | 80 | ? | ? | ? | C | |
| | NaHCO3, 0.1M | 80 | Sd | Sd | Sd | Sd, Mag | |
| 高炭酸塩 | NaHCO ₃ , 0.2M | 80 | ? | Sd | Sd | С | |
| | NaHCO ₃ , 0.5M | 80 | Sd | Sd | Sd | Sd, Mag | |
| | 炭酸ガス, 5% | 80 | Sd | Sd | Sd | Sd | |
| 炭酸ガス | 炭酸ガス, 50% | 80 | Sd | Sd | Sd | Sd | |
| | 炭酸ガス, 100% | 80 | Sd | Sd | Sd | Sd | |
| | Na ₂ SO ₄ , 0.06M | 80 | Sd? | ? | ? | Sd? | |
| 高硫酸塩 | Na_2SO_4 , 0.6M | 80 | Sd | ? | Sd | Sd | |
| | Na ₂ SO ₄ , 飽和 | 80 | Sd | Sd, ? | Sd | Sd | |
| | NaCl, 0.56M | 80 | Sd | ? | ? | C | |
| 高塩化物 | NaCl, 5M | 80 | Sd | Sd | ? | Sd | |
| | NaCl, 飽和 | 80 | Sd | Sd | Sd | Sd | |

| 表 2.2-4 | 広範な条件で実施した浸漬試験における腐食生成物分析結果のまとめ |
|---------|---------------------------------|

Sd: siderite, Mag: magnetite, C:粘土分, ?: Unknown

高温水の影響を把握するために実施した温度をパラメータとした浸漬試験では、温度の増加に 伴い腐食量が増加する傾向が認められる(図 2.2-10(a))。また、海水起源の地下水の希釈の影響 を把握するために実施した人工海水の希釈率をパラメータとした浸漬試験では、人工海水と較べ て 10 倍以上の希釈率で希釈した条件で腐食量が減少する傾向が認められる(図 2.2-10(b))。酸 性水の影響については、硫酸や塩酸を用いて pH をパラメータとした浸漬試験を実施した。この 条件では、pH の低下(酸性化)に伴い、腐食量が増加する傾向が認められる(図 2.2-10(c)(d))。 炭酸系化学種の影響については、炭酸水素ナトリウム濃度や炭酸ガス濃度をパラメータとした浸 漬試験を実施した。いずれも濃度の増加に伴う腐食量の減少の傾向が認められるが、炭酸ガス濃 度と較べて炭酸水素イオン濃度の変化の影響が大きい(図 2.2-10(e)(f))。硫酸塩と塩化物塩の影 響については、硫酸ナトリウムと塩化ナトリウムの濃度をパラメータとした浸漬試験を実施した。 いずれも強酸と強塩基の塩であるが、濃度増加の影響は硫酸ナトリウム水溶液の条件のみで確認 された。上述の通り、硫酸ナトリウム水溶液の条件では、緩衝材中の硫酸カルシウム鉱物の沈殿 の生成の有無がシデライトの保護性に影響し、このことが塩化ナトリウム水溶液の条件との違い を生じさせている可能性がある(図 2.2-10(g)(h))。

図 2.2-11 には、温度変遷条件での浸漬試験における平均腐食速度と試験終了時の温度の関係を示した。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。試験開始後 90 日の時点で所定温度(試験終了時の温度)に変更した条件は、段階的に降温させた条件に較べ、初期温度 95 °C の条件では平均腐食速度は高く、初期温度 80 °C の条件では平均腐食速度が低い傾向がある。

このように、試験条件の変動に伴い、腐食量や腐食速度が増加するケースがある。温度をパラ メータとした試験の160°Cの条件やpHをパラメータとした試験のpH1の条件では、試験期間中の 腐食量が図中に示した既往の腐食モデルによる腐食量を上回っている。しかしながら、いずれの 条件についても、両対数のグラフにおける腐食量の経時変化の傾きが1以下であり、これは腐食速 度が経時的に低下することを意味する。また、多くの条件で傾きが0.5以下であり、腐食に寄与す る物質の皮膜内の拡散以外の機構あるいは拡散係数の時間的な変化など複数の腐食抑制要因が関 与している可能性がある。この詳細なメカニズムの解明は今後の課題である。表2.2・4に示したよ うに、浸漬試験後のX線回折分析において、高温水条件や酸性水条件を含むいずれの条件でも腐食 生成物としてシデライトが検出されている。谷口ほか (2010)は10年に及ぶ緩衝材共存系の長期の 浸漬試験を実施し、炭素鋼試験片表面にシデライトが生成する場合は腐食反応が抑制されること を報告している。本研究の浸漬試験においても、緩衝材中で炭素鋼試験片表面にシデライトが生 成し、腐食反応が抑制されていることが示唆される。シデライトの生成には溶存炭酸物質の供給 が不可欠であるため、処分環境における溶存炭酸物質の長期的なフラックスの評価が必要である。 また、溶存炭酸物質のフラックスやシデライトの保護性の観点から、Caの挙動に関するデータ取 得も必要である。

2) 広範な環境条件における応力腐食割れ試験

表2.2-5に広範な環境条件における応力腐食割れ試験(slow strain rate technique : SSRT)の実施内容を示した。

| 環境条件 | 実施内容 | | |
|-------|--|--|--|
| 炭酸塩 | 0.5 M NaHCO₃溶液に NaCl または Na₂SO₄を添加し、50 または 80 °C の条件で実施 | | |
| | 【平成 31,令和 2,4 年度報告】 | | |
| 炭酸ガス | 炭酸ガス (0, 5, 30, 100%)を吹込んだ 0.56 M NaCl 溶液を使用し、80 °C の条件で実施【令和4年度報告】 | | |
| 沿岸地下水 | 人工海水の希釈水(10, 1,000 倍希釈)を使用し、80 °C で実施【令和4年度報告】 | | |
| 酸性水 | H ₂ SO ₄ を添加した 0.56 M NaCl 溶液 (pH1.5, 2, 3)を使用し、80 °C で実施【令和 4 年度報告】 | | |

表2.2-5 広範な環境条件における応力腐食割れ試験の実施内容

① 炭酸塩環境における応力腐食割れ試験

炭酸塩環境での応力腐食割れ(Stress Corrosion Cracking: SCC)感受性について、炭素鋼の不 働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働態化を阻害する、または不働 態皮膜を破壊する作用を有する化学種に着目し、0.5 M炭酸水素ナトリウム溶液をベースに、NaCl 濃度をパラメータとした条件およびNa₂SO₄濃度をパラメータとした条件での低ひずみ速度法に よるSSRT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;2021;2023)。破面率に及ぼすNaClおよびNa₂SO₄の電位依存性は図2.2-12に示すとおり であり、いずれの溶液、温度においても破面率は15 %程度に収まっており、NaClおよびNa₂SO₄ 濃度の影響は見られない。破面率の上限は塩の種類、濃度、温度に関わらす変化が見られないこ とがわかったが、一方で破面率がゼロ以上になるSCC感受性を示す電位の範囲が80 °Cより50 °C において広いという結果になった。アノード分極曲線をとって調べた結果の例を図2.2-13に示す。 活性溶解のピークに着目してみると、80 °Cより50 °Cでピークの幅が広く不働態化に時間を要し ており、50 °Cで感受性を示す電位の幅が広い一因と考えられる。

以上より、応力腐食割れが生じる炭酸塩溶液中にNaClおよびNa₂SO₄を添加した場合、塩の種類、濃度、温度に関わらず、SCC感受性は変化が見られなかった。しかし、80°Cより50°CでSCC 感受性を示す電位の幅は広く、より広範な温度条件で試験を行い、SCC感受性がどのように変化 するか調査する必要がある。



② 高炭酸ガス環境、希釈人工海水環境、酸性水環境における応力腐食割れ感受性

高炭酸ガス環境、希釈人工海水環境、酸性水環境における応力腐食割れ感受性を調べる目的で SSRT試験を実施した結果、いずれの条件においても水素脆化によると思われる割れ感受性が認 められた(日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター,2023)。水素脆化 割れ感受性を反映する指標を絞り比として図2.2-14に高炭酸ガス、希釈人工海水の電位依存性を、 図2.2-15に酸性水のpH依存性を示す。いずれも水素脆化感受性が認められたものの、緩衝材共存 条件では高炭酸ガスの濃度、人工海水の希釈倍率の影響は顕著ではないことがわかった。酸性水 環境においても絞り比は人工海水と比較して大きく変わるものではなかった。

以上より、高炭酸ガス環境、希釈人工海水環境、酸性水環境において水素脆化によると思われ る割れ感受性が認められたが、炭酸ガス濃度、人工海水の希釈倍率、pHによる影響は顕著ではな く、水素吸収量や腐食速度を調査した上記の浸漬試験の結果と同様に緩衝材によるpH緩衝作用が 影響していると考えられる。





図2.2-15 酸性水中における最大応力比、破断ひずみ比、絞り比のpH依存性 (緩衝材あり 自然電位)

2.2.3 5か年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 査およ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5か年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) 緩衝材中の環境条件と模擬オーバーパックおよび腐食センサーの腐食状態の調査

過渡期の炭素鋼オーバーパックの腐食挙動の把握を目的に幌延URLの350 m試験坑道において 実施されたオーバーパック腐食試験を対象に、平成30年度から令和4年度までの5か年の調査により、緩衝材中の環境条件と模擬オーバーパックおよび腐食センサーの腐食状態に関する調査を行った。

緩衝材中環境条件や腐食センサーの腐食状態の調査結果に基づくと、過渡期においても、炭素 鋼の極近傍は比較的短期間で低酸素濃度環境となり、その環境条件に応じた腐食速度(数µm/y) での腐食、シデライトの生成を想定することができるといえる。一方、炭素鋼から数ミリ程度離 れた位置にはゲータイトが検出された。また、オーバーパック腐食試験では、ケイ砂混入により 模擬オーバーパックと緩衝材の境界領域に不均一状態が形成され、酸素供給量の違いによるとみ られる不均一な腐食が観察された。不均一な腐食は釜石鉱山において実施された粘土充填・熱負 荷試験においても観察されている。過渡期に生じるこのような腐食の状態が、オーバーパックの 長期腐食や緩衝材基本特性、核種移行に与える影響などの現象把握は、SP3において検討された 「処分場閉鎖後過渡期から閉鎖後長期に想定されるシナリオ」(日本原子力研究開発機構・原子

力環境整備促進・資金管理センター,2023)の整備をさらに進めるためにも重要である。特に、オ ーバーパックと緩衝材の境界領域における環境条件の不均一性に起因した腐食挙動など過渡期の 状態変遷が、SP3における統合化評価で対象とする長期挙動に影響を与える可能性がある。今後、 過渡期に生じる状態変遷については、過渡期~長期の挙動にどのような影響を及ぼしうるかを更 に詳細に検討する必要がある。

2) ベントナイト中の微生物活性に関するデータ取得

微生物活性挙動に関する平成30年度から令和4年度までの5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。地下環境における原位置オーバーパック腐食試験やベントナイト鉱山の原鉱石を対象と した調査から、長期的な時間スケールにおいても、高乾燥密度条件など期待される緩衝材の機能 が十分に発揮されている環境下では、緩衝材中の微生物活性は抑制されうることを明らかにした。 令和4年度には取得データの多変量解析を実施し、原位置環境のような実規模を対象とした環境下 における緩衝材中の微生物抑制因子として、有効モンモリロナイト密度が重要であることを確認 した。微生物増殖の抑制が期待できる有効モンモリロナイト密度は1.4 g/cm³程度であるという知 見があるが、ケイ砂30%が混合したクニゲルV1の場合、乾燥密度にして1.95g/cm³程度となる。 緩衝材中の生菌数と乾燥密度、有効モンモリロナイト密度の関係を調査した結果、乾燥密度1.6 g/cm³ (有効モンモリロナイト密度1.0 g/cm³) を超える条件においても生菌数のバックグラウンド 値を上回る試料があること、ケイ砂の混入率が高い緩衝材中では特に生菌数が高いことを確認し た。以上の結果は、乾燥密度を指標とした場合は1.6 g/cm³程度の値は抑制には十分ではない可能 性があり、不均一な施工や緩衝材の膨潤速度が微生物増殖の重要な要因の一つとなりえることを 示唆する。長期にわたって処分容器に及ぼす微生物腐食影響を除外できることを示すためには、 今後、日本において使用が検討されているベントナイト材料を対象に、実際の地下環境や処分環 境を模擬した様々な条件下かつ長期的なスケールで、緩衝材の不均一性や空隙サイズ等の知見と ともに、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。

(2) 広範な環境条件での室内試験

1) 広範な環境条件における浸漬試験

広範な環境条件での浸漬試験については、平成30年度から令和4年度までの5か年で、試験期間 5年の高温水環境下の長期浸漬試験、試験期間3年の沿岸部を想定した地下水条件の浸漬試験、酸 性水条件の浸漬試験、高炭酸塩条件の浸漬試験、高硫酸塩条件の浸漬試験、高塩化物の浸漬試験 を実施し、いずれの条件においても、保護的な腐食生成物であるシデライトの生成により腐食反 応が抑制され、現行の腐食モデルが適用可能であることを確認した。また、水素吸収試験は高温 水環境下および沿岸地下水条件にて実施し、いずれの条件でも水素脆化が問題となる濃度ではな いことを確認した。これらの結果は、既往の腐食モデルを用いた評価結果の妥当性を示すもので ある。一方で、腐食反応の抑制には腐食に寄与する物質のシデライト内の拡散など複数の腐食抑 制要因が関与している可能性がある。また、処分環境におけるシデライトの生成には溶存炭酸物 質が供給される必要がある。このような、シデライト生成やその腐食抑制要因などメカニズムの 理解は、オーバーパック腐食量評価の信頼性向上にとって重要な課題となる。

また、一部試験条件(高温水環境160 °C、高炭酸塩条件など)の長期の試験において、腐食生 成物の変化(シデライト→マグネタイト)と腐食速度の増加の兆候を確認した。これらは、腐食 生成物による腐食反応抑制効果に関連する可能性があり、長期データの拡充と腐食生成物の種類 や性状(間隙率等)、それらの変遷など現象理解、モデル化が必要である。なお、高温水環境の試 験データは、100 °Cを超える条件を対象とした腐食挙動評価において検討すべき2つの課題;1)不 飽和(沸騰)条件、2)飽和条件「処分システム化学影響評価高度化開発-6ヵ年研究成果の取りま とめー」(日本原子力研究開発機構, 2013c)のうちの、2)に対する成果である。1)については沸騰による水の蒸発・成分の析出、温度低下に伴う水の凝縮、析出成分の再溶解など複雑な現象、 環境条件を整理する必要があり、解決すべき課題のひとつとして残っている。

2) 広範な環境条件における応力腐食割れ試験

広範な環境条件での応力腐食割れ試験については、平成 30 年度から令和 4 年度までの 5 か年 で、炭酸塩環境、高炭酸ガス環境、沿岸部を想定した地下水条件(人工海水を希釈)、酸性水環境 のそれぞれ SSRT 試験を実施し、緩衝材が共存する条件では炭酸塩濃度、炭酸ガス濃度、人工海 水の希釈倍率、酸性水のpHに対する応力腐食割れ感受性の変化は顕著ではないことを確認した。

2.3 緩衝材の変質挙動

多重バリアシステムにおける人工バリアのひとつである緩衝材は、廃棄体への地下水の接触と 核種の移行を抑制するために、低透水性、自己シール性(膨潤性)、地下水に対する化学的緩衝 性能、核種の収着能力、応力緩衝性などの多くの機能が期待されており、これらの機能が長期に わたって健全に保持されることが要求される。緩衝材に期待されている機能は、主要構成鉱物で あるモンモリロナイトの特性により発現するため、モンモリロナイトの結晶化学的変化(例えば イライト化や鉄サポナイト化)や二次鉱物の沈殿(例えばシリカセメンテーション)、モンモリ ロナイトのイオン型の変化などといった変質が生じた場合、機能の低下などの影響を被る可能性 がある。

このような緩衝材の変質がその機能に与える影響などの理解に資するため、これまでに結晶化 学的変化について室内試験、原位置試験試料、考古学的鉄製品付着土壌等を対象に鉄-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;2022;2023)。

2.3.1 炭素鋼-緩衝材境界領域における緩衝材の変質

(1) 背景と目的

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

炭素鋼との相互作用に伴うベントナイトの変質は、オーバーパックが1,000年以上の長期にわた って圧縮ベントナイト中に残存し、腐食が継続することを想定して評価を行う必要がある。この ような長期の変質挙動の評価を行う上では、短期の変質試験の結果を外挿することにより長期の 変質挙動を予測することは、予測結果の不確実性が大きくなることから、確度の高い評価が難し い。そのため、圧縮ベントナイト中での炭素鋼との相互作用によるベントナイトの変質メカニズ ムを理解し、圧縮ベントナイトの長期的な変質挙動を定量的に評価するためのモデルを構築する ことが必要である。

このような背景を踏まえ、実験的に得られた知見などに基づいて、圧縮ベントナイトの長期的 な変質挙動の定量的評価に向けたモデルが提案されてきている(例えば、日本原子力研究開発機 構,2013b)。この評価モデルにおいては、オーバーパックの腐食による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、原位置試験や考古学鉄製品接触土壌、室内試験試 料の分析により、変質状態の詳細を把握するとともに、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った。

(2) 実施内容

1) 原位置試験試料の調査・分析

幌延URLの350 m試験坑道において実施されたオーバーパック腐食試験では、深さ約160 cmの 試験孔にヒーターを内蔵した炭素鋼製の直径10 cmの模擬オーバーパックが設置され、その周囲 に外径30 cm、内径10 cm、厚さ10 cmの円筒型圧縮成型ベントナイトブロックが12段配置された (図2.2-1)。原位置試験の実施期間中は、コンクリート支保内部へ試験坑道付近より採取した地 下水が供給されており、ヒーターの温度は95 °Cに維持されていた。オーバーパック腐食試験は平 成26年11月12日より開始され、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。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、5段目(下部から40・50 cmの位置)の緩衝材ブロックが模擬オーバーパックに 接触していた箇所の試料と模擬オーバーパックに付着していた試料をそれぞれ採取・加工し、分 析に供した(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)。



図2.3-1 緩衝材ブロック(5段目)からの試料採取位置(左)と 模擬オーバーパック表面からの試料の採取時の状況(右)

緩衝材ブロックから採取した試料、模擬オーバーパック表面から採取した試料を電子線マイク ロアナライザ(EPMA)により分析した結果をそれぞれ図2.3-2、図2.3・3に示した。いずれの試料も Caの濃度が高い部分では、FeおよびMnの濃度も高くなっていることが確認できる。一方で、こ のCa、Fe、Mnの濃度の高い部分では、Si、Alの濃度が低く、局所的にはSi、Alがほとんど含まれ ていない領域が存在することも確認できる。このことから、Ca、Fe、Mnの濃度が高い部分では、 これらの元素が粘土鉱物の結晶構造中や層間イオンとして取り込まれた形で存在しているのでは なく、別の鉱物として存在していることが示唆される。


図2.3-2 緩衝材ブロック(5段目)から採取した試料のEMPA分析結果



図2.3-3 模擬オーバーパック表面から採取した試料のEMPA分析結果

図2.3-4に、緩衝材ブロックから採取した試料に対して実施したµ-XRD分析により得られた回折 パターンを示した。図中の画像は、µ-XRD測定を行った部分の画像である。分析結果より、回折 線パターン中にはシデライト(FeCO₃)のピークが確認され、模擬オーバーパックとの接触界面に おいてシデライトを形成するFeが存在することが確認された。一方で、鉄共存下でモンモリロナ イトの変質鉱物として生成すると予測されるサポナイト、緑泥石、バーチェリンのピークは観察 されなかった。図2.3-2および図2.3-3のEPMA分析結果を踏まえると、Fe、Ca、Mnを含有する炭 酸塩鉱物を構成していることが示唆される。



図2.3-4 緩衝材ブロック(5段目)から採取した試料のµ-XRD分析結果

図2.3・5には、緩衝材ブロックから採取した試料から抽出したモンモリロナイトを対象に透過型 電子顕微鏡(TEM)で観察した結果を示した。モンモリロナイトは、模擬オーバーパック接触面付 近と接触面から6mm程度離れた箇所から抽出し、TEM分析試料とした。図2.3・5(a)の接触面付近 の試料と図2.3・5(b)の接触面から離れた位置の試料のTEM画像を比較すると、接触面付近の試料 ではフレーク状のモンモリロナイト粒子の形状が明瞭に観察され、モンモリロナイトの粒子サイ ズが細粒化している傾向が見られたのに対し、接触面から離れた位置の試料ではそのような傾向 は見られなかった。一方で、これらの試料に対してEDSマッピング分析や電子回折による分析を 実施したものの、モンモリロナイトの変質により生成すると考えられる鉱物は同定されず、モン モリロナイトの他鉱物への変質は確認できなかった。



図2.3-5 緩衝材ブロック(5段目)から採取した試料のTEM分析結果 (a)模擬オーバーパック接触面付近、(b)接触面から6 mm程度離れた位置

2) 考古学的鉄製品接触土壌試料の調査・分析

表2.3・1には研究対象試料のリストを示した。令和2年度の調査では福岡県比恵遺跡、博多遺跡の試料、奈良県平城宮跡の袋状鉄斧、令和3年度の調査では福岡県比恵遺跡の試料(継続)、奈良 県平城宮跡の袋状鉄斧(継続)、令和4年度の調査では奈良県平城宮跡の鉄釘を対象とした(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;2022;2023)。これらの試 料の埋蔵環境は、出土時の状況から酸化的な条件、低酸素の条件であったと推定でき、以下には 酸化的な埋蔵環境から出土した製品、低酸素の埋蔵環境から出土した製品に分けて結果の一部を 示す。

| 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 | 弥生中期後半から中期末 | 福岡市教育委員会(1997) |
| HIE125 | 板状鉄製品 | 比恵遺跡 | 弥生中期末から後期初頭 | 福岡市教育委員会(2014) |
| 9505_21671 | 不明 | 博多遺跡 | 17 - 18 世紀 | 福岡市教育委員会(1998) |
| 0642_15552 | 釘 | 博多遺跡 | 12 - 13 世紀 | 福岡市教育委員会(2008) |
| 0642_15622_1 | 釘 | 博多遺跡 | 12 - 13 世紀 | 福岡市教育委員会(2008) |
| 0642_15622_2 | 釘 | 博多遺跡 | 12 - 13 世紀 | 福岡市教育委員会(2008) |
| 1221_60153 | 鉄板 | 博多遺跡 | 17 世紀以降 | 福岡市教育委員会(2015) |
| 5849 剥離片 | 袋状鉄斧 | 平城宮跡 | 奈良時代 | 奈良文化財研究所(2012) |
| 4103 剥離片 | 鉄釘 | 平城宮跡 | 8 - 19 世紀 | 奈良国立文化財研究所(1993) |

表 2.3-1 研究対象試料

① 酸化的な埋蔵環境から出土した製品

酸化的な埋蔵環境から出土した製品のうち、博多遺跡群から出土した鉄釘(0642_15622_2)の調 査・分析結果を示す。博多遺跡群は那珂川と御笠川に挟まれた南北1.6km、東西0.8kmの範囲の 博多湾岸に沿って形成された古砂丘上に立地する大規模遺跡である。鉄釘0642_15622_2は、福岡 県福岡市博多遺跡群の165次調査で出土した鉄釘の一つであり、図2.3・6に示すように固結した砂 質土壌に被覆されていた。出土時の現地表面からの深度は約3mであり、地下水面より1m上位で あったことが確認されている。図2.3・7は断面試料の写真(a)と切断前に撮影した同一箇所のX線CT 画像(b)である。断面試料の写真には顕微ラマン分光分析により同定した腐食生成物名を付記した。 鉄釘側から土壌側に向かってアカガネイト、マグネタイト、ゲータイトの順で腐食生成物が検出 され、最外部のゲータイトは酸化的な埋蔵環境であったことを示唆する。マグネタイトは鉄釘(角 釘)の輪郭を維持し鉄釘を置換する状態で分布しているのに対し、ゲータイトは土壌粒子の間隙 に沈殿する状態で分布しており、セメンテーションを起こしている。



図2.3-6 鉄釘0642_15622_2の写真 (断面試料は破線部から採取した)



図2.3-7 鉄釘0642 15622 2の断面試料の写真(a)と同一箇所のX線CT画像(b)

令和4年度に調査を行った奈良県奈良市の平城宮跡から出土した「平城宮東区朝堂院出土鉄釘 No.4103」の表面からはく離した腐食生成物層片も同一の腐食生成物の層状構造が確認されてお 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,2023)、酸化的な埋蔵環 境に特徴的な構造であることが示唆される。FEBEX原位置試験では、炭素鋼製ヒーター(表面温 度100 °C)と接触させていた緩衝材内にゲータイトが検出されており、酸素の影響を受けたこと が原因とされている(Hadi et al., 2019)。Yoshida et al. (2006)は、酸化条件で泥質堆積物中に生 成した鉄水酸化鉱物のノジュールが還元状態の環境中においても約30万年間保存されたことを報 告している。これらのことは、処分場閉鎖後初期に生じた腐食生成物の沈殿によるセメンテーシ ョンが酸素消費後の閉鎖後長期においても残存する可能性を示唆する。腐食生成物の沈殿による セメンテーションが生じた緩衝材は、モデル解析で推定された間隙率の低下により変質に寄与す る物質の移行が抑制され、それにより鉱物学的変質が抑制される可能性もある。閉鎖後初期に 存在する酸素の影響によってどの程度のセメンテーションが生じうるか、緩衝材特性がどのよう に変化するのか、閉鎖後長期の段階でも影響が残存するかなどの評価が求められる。

② 低酸素の埋蔵環境から出土した製品

対象とした試料は、奈良県奈良市の平城宮跡から出土した袋状鉄斧No.5849(奈良文化財研究 所所蔵品)から剥離した腐食生成物層片である(図2.3・8)。鉄斧は奈良時代の井戸の遺構の最下 部から出土しており、埋蔵深度は地下3mであった。年代は8世紀であり、鉄斧表面には厚さ1mm 程度の砂混じりのシルトが付着していた。鉄斧からはく離した土壌粒子混じりの腐食生成物層片 の状態について、光学顕微鏡、顕微ラマン分光分析、走査型電子顕微鏡、透過型電子顕微鏡を用 いて観察・分析した。



図2.3-8 袋状鉄斧No.5849から剥離した腐食生成物層片



図2.3-9 腐食生成物層片断面試料のSEM分析結果(赤枠部よりTEM用FIB切片を採取)



図2.3-10 腐食生成物層片断面試料の光学顕微鏡写真(ラマン分析結果を付記)

図2.3-9のSEM分析結果に示されるように、腐食生成物層片は大半が腐食生成物で構成されるものの、SiやAl等からなる土壌鉱物が含有されている。赤い四角の領域内には層状ケイ酸塩鉱物粒子が確認されたことから、FIB切片を作製しTEM分析に供した。図2.3-10は顕微ラマン分光分析による腐食生成物の同定結果であり、シデライトが検出された。

FIB切片のTEM分析結果を図2.3-11に示す。電子回折およびEDS分析の結果、BF像内の層状ケイ酸塩鉱物周辺の領域はシデライト、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、Fe成分との反応縁のような箇所は確認されなかった。



図2.3-11 FIB切片のTEM分析結果(明視野像と元素マッピング)

3) 長期腐食試験試料の調査・分析

2.2.2項で報告した高温水環境を対象とした長期腐食試験(試験期間:5年、温度:50、80、120、 160°C)において炭素鋼試験片に接触していた圧縮ベントナイト試料について、炭素鋼試験片との接触面に直交する方向の断面試料を4点作製し、電子顕微鏡等を用いた分析に供した。

図2.3-12は各断面試料の炭素鋼試験片との接触面近傍領域の走査型電子顕微鏡観察結果である。 画像の左側が炭素鋼との接触面側である。元素マッピング画像の水色の領域はシリカ鉱物(石英 又は玉髄)、紫色の領域はモンモリロナイト、緑色の領域は腐食生成物(シデライト又はマグネ タイト)である。シリカ鉱物やモンモリロナイトが腐食生成物に囲まれるなどセメンテーション された状態となっている箇所も確認できる。各断面試料の赤線の箇所からFIB切片を作製しTEM 分析に供した。ここでは50°Cの分析結果のみ示す。他の温度条件の試料の結果については、令和 3年度報告書(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, 2023) および令 和4年度報告書(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, 2023) を参照 されたい。

図2.3-13は 試験温度50°Cの条件の断面試料のTEM分析結果である。電子回折分析により、元 素合成画像(図2.3-13b)の明るい緑色の領域(HAADF像:図2.3-13aで輝度の高い領域)はシデ ライト、水色の領域はシリカ鉱物、赤色の領域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であることが確認されたことか ら、モンモリロナイトの層間陽イオンがFeに変化している可能性などが考えられる(図2.3-13d)。 元素合成画像において、シデライト近傍に暗い緑色の領域があるが、電子回折分析ではハローパ ターン(非晶質)、EDS分析ではFeとSiを含有することが確認された(図2.3-13c)。本報告では、 この物質を「Fe、Si含有非晶質物質」と称することとする。Fe、Si含有非晶質物質は、モンモリ ロナイト由来のAlを含有しないことからモンモリロナイトの変質物質ではないと考える。



図2.3-12 各断面試料の高倍率SEM分析による反射電子像と元素合成画像 (水色:Si、赤色:AI、緑色:Fe、青色:Mg、黄色:Cl)



図2.3-13 試験温度50°Cの条件の断面試料のTEM分析結果

(a: HAADF像 b: 元素合成画像(水: Si、赤: Al、緑: Fe)、c: 1のEDS分析結果と電子回折 像、d: 2の電子回折像)

表2.3-2は、同様な方法で各断面試料を分析した結果を整理したものである。このうち、X線回 折分析 (XRD)による腐食生成物の判定は炭素鋼試験片表面の分析結果である(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,2022)。試験温度160°Cの試料のみ、マグネタ イトが検出されているが、2.2節の表2.2-4に示されるように、試験期間1年の試料では試験温度 160 °Cの条件においてもシデライトが検出されている。炭酸化学種の枯渇したことで、腐食生成 物の種類の変化が生じた可能性がある。また、シデライトの溶解度は負の温度依存性を示すこと から(例えば、Sun et al.(2009))、温度の上昇に伴い緩衝材間隙中のFe²⁺イオン濃度は低下する。 モンモリロナイトの層間陽イオンの変化やFe、Si含有非晶質物質の有無は、シデライトの溶解度 の温度依存性に関連づけられる可能性がある。

| 腐食試験試料分析結果 (セメンテーション領域) | | 試験温度(°C) | | | | 和今祖書 |
|----------------------------|-------|----------|------------|-----|-----|-----------------|
| | | 50 | 80 | 120 | 160 | TILETRIC |
| モンモリロナイ トの底面間隔 | ~10 Å | | \bigcirc | * | 0 | 電子回折 |
| | ~15 Å | 0 | \bigcirc | * | | |
| Fe、Si含有非晶質物質 | | 0 | 0 | _ | | 電子回折 組成・TEM像 |
| 腐食生成物 | | | Sd | | Mag | 電子回折 組成・XRD |

表2.3-2 炭素鋼試験片に接触していたベントナイト試料の分析結果まとめ

Sd:シデライト、Mag:マグネタイト、-:検出されず、※:非晶質化

以上のように、長期腐食試験試料において、5年間炭素鋼試験片に接触していたベントナイト試料は、炭素鋼試験片との接触面近傍で腐食生成物によるセメンテーションが生じているもののモンモリロナイトが非膨潤性粘土鉱物に変質するといった状態は確認できなかった。試験温度50、80°Cの条件の試料については、モンモリロナイトの層間が15Å程度となっていることからFe型化している可能性がある。また、これらの温度条件の試料ではFe、Si含有非晶質物質が検出されたがその成因等の詳細は不明である。

(3) 5か年の成果と今後の課題

原位置試験試料、考古学的鉄製品接触土壌試料、長期腐食試験試料を対象とした平成30年度か ら令和4年度までの5か年の検討により、炭素鋼・緩衝材境界領域における緩衝材の変質状態の詳細 を把握することができた。いずれの試料においても、モンモリロナイト(考古学的鉄製品接触土 壌試料については層状ケイ酸塩鉱物)が非膨潤性鉱物などの他の鉱物に変質するといった状態は 確認できなかった。考古学的鉄製品接触土壌試料、長期腐食試験試料については、腐食生成物の 沈殿により土壌又はベントナイトのセメンテーションする状態が確認された。また、長期腐食試 験試料のうち、50、80 ℃の温度条件の試料については、モンモリロナイトのFe型化やFe、Siを含 有する非晶質物質の生成が確認された。この状態についてはシデライトの溶解度の温度依存性の 影響を受けている可能性がある。

今後は、試験期間20年を超える長期の炭素鋼接触試料を対象とした詳細な分析等により、炭素 鋼と緩衝材の相互作用に関する知見を拡充するとともに、シデライトの生成挙動と緩衝材の変質 状態の関係を明らかにする必要がある。また、鉄影響による緩衝材のセメンテーションが緩衝材 の基本特性に与える影響は著しいものではないと推定されるが、緩衝材中のシデライトや非晶質 物質の沈殿、モンモリロナイトのFe型化は核種移行に影響する可能性があり、統合化評価で対象 とする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のシナリオ構築に向け、知見の拡充が求められる。

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。そこで、原鉱石等を対象と したセメンテーション状態の分析や諸特性の評価を行った。

(2) 実施成果

1) 原鉱石のセメンテーション状態の観察

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番層の原鉱石および原鉱 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)を対象に、走各種の電子顕微鏡等を用いて観察し、セメンテーションの原因物質であ るシリカ鉱物の種類とその分布等に関するデータの取得により、セメント物質の特徴や生成環境 について推定を行った。

走査型電子顕微鏡による観察

図2.3-14には走査型電子顕微鏡(SEM)による原鉱石の分析結果を示した。輝度が高く粒径が数 µmの大きさの微細なシリカ粒子が3つ全ての原鉱石に含まれていることが分かる。1番層に関して は微細なシリカ鉱物と方沸石の粒径がほぼ同じで見分けがつきにくいが、EDS分析によりどちら の存在も確認された。29番層原鉱石はモンモリロナイトが脈状に分布する点が特徴だが、シリカ 微粒子も脈に沿って分布する傾向が見られた。このシリカ微粒子の量は1番層が最も多く、次いで 29番層、31番層で最も少ない傾向を示した。



図2.3-14 原鉱石に見られるシリカ微粒子 (a)、(b)は1番層、(c)、(d)は29番層、(e)、(f)は31番層、右図は左図中の赤枠内の拡大像

図2.3-15には低温走査型電子顕微鏡(Cryo-SEM)による原鉱石および再構成試料の分析結果を 示した。通常のSEM観察では真空下でモンモリロナイトが脱水された状態で観察することになる ことから、モンモリロナイトが膨潤した状態の試料の組織を観察することはできないが、Cryo-SEMでは膨潤後の試料を液体窒素によって急速凍結し、凍結状態を保ったままSEMによる観察が 可能である。1、29、31番層の原鉱石および29番層の再構成試料の計4試料を観察対象とした。29 番層および31番層の原鉱石は、モンモリロナイトの劈開に沿った隙間が確認できる(図2.3-28(b) および図2.3-28(c))。1番層についてはシリカ微粒子および方沸石の粒子が多く、一方でモンモリ ロナイトのみが集まっている部分が少ないため、間隙の埋まり具合が完全か否かは明瞭には確認 できなかった(図2.3-28(a))。29番層の再構成試料については、29番層および31番層の原鉱石に 見られるような劈開に沿った空隙は見られないことから、膨潤により隙間が完全に埋まっている 状態であると考えられる。したがって、原鉱石では、ある程度の膨潤は確認できるものの、間隙 が完全に埋まるほどの膨潤は起こっていないと考えられる。



図 2.3-15 Cryo-SEM 観察像の比較 (a) 1 番層原鉱石、(b) 29 番層原鉱石、(c) 31 番層原鉱石、(d) 29 番層再構成試料

② 透過型電子顕微鏡による観察

原鉱石と再構成試料の微細構造を透過型電子顕微鏡(TEM)により観察し、比較した。図2.3-16 は31番層の観察結果である。図からモンモリロナイト(Mnt)の端面がシリカ微粒子(Qz)に接合し ている状態がわかる。同様な組織は1番層、29番層においても観察された。一方、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状態であることが確 認された。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。 この観察結果を踏まえると、シリカ微粒子とモンモリロナイト端面の接合がセメンテーション状 態の原因であることが示唆される。



図 2.3-16 31 番層原鉱石の TEM 観察結果

③ 画像解析に基づく空隙・鉱物組成の定量法の開発

SEMおよびTEMの観察結果より、原鉱石に含まれるシリカ微粒子がセメンテーションの原因物 質の一つであると考えられ、セメンテーションの程度やその変化はシリカ微粒子の量比に相関す る可能性がある。SEMの反射電子像(組成象)を用いた画像解析により試料中の空隙、鉱物組成 を定量する方法を開発した(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;2022)。図2.3-17はこの手法を用いて原鉱石に占める空隙・鉱物の割合の層ごとの変化を 可視化したものである。31番層から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可能性がある。



図2.3-17 番層間での鉱物組成・空隙率の比較

④ カソードルミネッセンス(CL)法によるシリカ微粒子の起源の推定

原鉱石には粒径から数µmの球状のシリカ(SiO₂)粒子がモンモリロナイトと共に産する様子が 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; 2022)。このシリカ粒子の起源を推定するために、カソードルミネッセンス(CL)法による観察を 行った。図2.3-18は原鉱石の反射電子像、シリカ粒子のCLスペクトル、シリカ粒子のCL重心位置 を三角ダイアグラム上にプロットしたものである。Boggs et al. (2002)は火山岩・深成岩・変成岩・ 熱水変質を被った岩石中の石英のCLスペクトルを比較し、火山岩・深成岩と一部の熱水変質由来 の石英では青波長域の強度が高く、変成岩の変成温度の低いものでは赤波長域の強度が高くなる 傾向を報告している。この知見を踏まえると、粗粒の石英は火山灰由来、シリカ微粒子は続成作 用由来であると推定できる。



図2.3-18 原鉱石含有シリカ粒子のCL分析結果

2) 原鉱石および再構成試料を対象とした基本特性データの取得

原鉱石および再構成試料を対象として、各種基本特性の測定を行った(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,2019;2020;2021;2022;2023)。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)、 再構成試料と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。

① 膨潤圧および透水係数

図2.3-19に基本特性の測定結果として、膨潤圧および透水係数と有効モンモリロナイト密度の 関係を示す(日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター,2019)。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(菊池ほか,2005)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、本事業の結果と整合的であった。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 しない可能性がある。



図2.3-19 基本特性の測定結果

2 応力緩衝性

図2.3-20に標準圧密試験により得られた間隙比と載荷圧の関係を示す。載荷過程では、試料4と 試料6は正規圧密線よりも右側に圧縮線が存在しており、一般的なセメンテーションした土質材料 の挙動と同様の傾向が表れている。続いて、除荷・再載荷時の挙動から、原鉱石の除荷時の膨潤 変形量は再構成試料と比較して小さくなった。これらのことから、セメンテーションにより圧密 に対する剛性が大きく、除荷による膨潤変形量が小さくなる可能性を示唆する結果を得た(日本 原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2021)。



③ 長期膨潤圧試験

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長期の膨潤圧試験を実施した。原鉱石および再構成試料 の一部について試験期間10,000時間経過後に試験を終了し、セメンテーション状態の観察を実施 した。

図2.3-21に原鉱石と再構成試料の膨潤圧の経時変化を示す。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。図中に示した試料のうち、原鉱石のNo.3と再構成試料のNo.3がセメンテーション状態の観察を行った試料である。



図2.3-21 長期膨潤圧試験における膨潤圧の経時変化

長期膨潤圧試験において原鉱石の膨潤圧の経時的な増加がセメンテーションの原因物質である シリカ微粒子の溶解によるものである場合、電子顕微鏡観察により試験前後試料の組織の違いが 確認できる可能性がある。本事業で開発した画像解析に基づく空隙・鉱物組成の定量法とTEMに

より組織の比較を試みた。

表2.3-3は画像解析を用いて、試験前の原鉱石、試験後の原鉱石、試験後の再構成試料のそれぞ れに含有されるシリカ微粒子の粒径を計測した結果を整理したものである。平均値・中央値とも に、原鉱石(試験前)>原鉱石(試験後)>再構成(試験後)となる傾向が確認される。ただし、 平均値については凝集体として少数存在するシリカ微粒子によって大きめの値が出るようにバイ アスがかかる点を考慮しなければならない。中央値については、試験後の原鉱石は試験前と比べ て、ほぼ変わらない、もしくは僅かに減少したと判断される。

| 表2.3-3 シリカ | | | | | |
|------------|--------------|--------------|--------------|--|--|
| | 原鉱石 (試験前) | 原鉱石 (試験後) | 再構成 (試験後) | | |
| Ν | 1906 | 3570 | 3349 | | |
| 最小値 | 0.602 | 0.601 | 0.601 | | |
| 平均值 | 3.195 | 2.702 | 2.608 | | |
| 中央値 | 2.603 | 2.580 | 1.825 | | |
| 最大値 | 60.640 | 47.708 | 37.498 | | |

ᆞᇿᆂᄲᄢᆂᄀᇑᅶᄸᇑᇿᆂ

上述の通り、TEMを用いた観察により、原鉱石に含まれるモンモリロナイト粒子端面がシリカ 微粒子に接合する特徴的な組織が観察されており、原鉱石の膨潤圧低下の要因である可能性があ る。この組織が長期膨潤圧試験後において変化しているのかを確認するため、長期膨潤圧試験後 の原鉱石の一部をFIBで切り出し、シリカ微粒子とモンモリロナイトの微細組織をTEMで観察し た(図2.3-22)。図からわかるように、長期膨潤圧試験後においてもモンモリロナイト粒子端面と シリカ微粒子が接合する組織が観察できる。TEMを用いた観察ではセメンテーションの解消を示 唆する状態は確認できなかった。



図 2.3-22 原鉱石(長期膨潤圧試験後)の TEM 観察結果

(3) 5か年の成果と今後の課題

山形県月布鉱山のベントナイト原鉱石およびその再構成試料を対象に、走査型電子顕微鏡、透 過型電子顕微鏡を用いた詳細な観察を実施し、モンモリロナイト粒子端面とシリカ微粒子が接合 している状態など、セメンテーションの状態を示す組織、その原因物質を特定するとともに、走 査型電子顕微鏡の反射電子像(組成像)の画像解析による試料中の空隙・鉱物組成定量法の開発、 カソードルミネセンス法を利用したシリカ粒子の起源の推定を行うことができた。また、原鉱石 および再構成試料を対象とした各種基本特性試験を行い、再構成試料と比較して原鉱石の膨潤圧 は低い値を示すものの透水係数には違いが認められないこと、原鉱石は圧密に対する剛性が大き く、除荷による膨潤変形量が小さい傾向があることを確認した。長期の膨潤圧試験において、原 鉱石の膨潤圧は経時的な増加を示し、長期的にはセメンテーションの原因物質であるシリカ微粒 子の溶解により基本特性への影響が低下する可能性が示唆されたが、透過型電子顕微鏡等を用い た観察では組織の変化を確認することはできなかった。

今後は、統合化評価で対象とする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 のシナリオ構築に向け、鉄セメンテーション、シリカセメンテーション、熱影響に伴う可溶性塩 によるセメンテーションを対象に、セメンテーションの状態を模擬した試料を作製するための試 験方法を確立し、これらのセメンテーションによる緩衝材基本特性への影響の把握等を行う必要 がある。

2.4 ニアフィールド THMC 連成挙動評価

ニアフィールドはオーバーパック、緩衝材、セメント系材料などの人工バリアと、人工バリア の設置により影響を受けると考えられる人工バリア近傍の岩盤など複数の材料から構成されてお り、それらの劣化・変質や材料間の相互作用などにより環境条件は時間とともに変化し、バリア 構成要素の安全機能や核種移行挙動への影響を与える可能がある。そのため、人工バリアの長期 挙動評価や環境変遷を評価する技術の開発とその評価の妥当性確認が重要となる。

このような背景のもと、過渡期(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、FEBEX プロジェクトにおける原位置試験や幌延 深地層研究計画における人工バリア性能確認試験等で得られている計測データ等を活用して、 THMC連成挙動に関する現象解析モデルの妥当性の検証と高度化を実施した。これらの実施内容 と成果については 2.4.1 項で述べる。

さらに、処分施設の各材料および周辺岩盤との力学的相互作用を過渡期から長期まで一貫して 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 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)および化学的作用(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、熱ー水ー応力(THM)連成解析コード(以下、THAMES という)(Ohnishi et al., 1985)、 さらに、THAMES に物質移行解析コードの Dtransu (Nishigaki et al., 2001)および地球化学解 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(例えば、日本原子力研究開発機構, 2008; 2009; 2010; 2011; 2012; 2013b; 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 熱や水理挙動に及ぼす影響に着目して THAMES の高度化を行い、緩衝材の膨出などの力学挙動 が緩衝材の最高温度や緩衝材の再冠水時間へ及ぼす影響は小さいことなどを明らかにしている。

このような背景のもと、本事業では、過渡的な期間におけるニアフィールド環境の状態変遷を 適切に評価するための技術開発とその評価技術の確証を目的とし、その一環として、これまでに 開発した連成解析モデルにより原位置における人工バリア試験を対象とした再現解析を進めた。 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および課題の抽出を行った。

(2) 実施成果

平成30年度から令和4年度の5か年を通して、FEBEX(Full scale Engineered Barriers Experiment)プロジェクトにおける原位置試験、幌延深地層研究計画におけるオーバーパック腐 食試験(中山,2018)および人工バリア性能確認試験を対象として、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および課題の抽出を行った。

FEBEXプロジェクトにおける原位置試験(ENRESA, 2000)を対象としたTHAMESによる THM連成解析では、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)。

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)を対象としたCouplysによるTHMC連成解析では、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は、スメクタイトの酸・塩基反応によって、また、間隙水のpe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(図2.4-1参照)(日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター,2019;2020)。



幌延深地層研究計画における人工バリア性能確認試験を対象とした解析では、まず、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、温度およ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(図2.4-2参照)(日本原子力研究開発機構・ 原子力環境整備促進・資金管理センター, 2021)。



図 2.4-2 緩衝材の温度勾配水分拡散係数

上記の温度勾配による水分移動モデルを用いた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THM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2.4-3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は、初期に存在する間 隙水と浸潤した地下水とが混合して形成される。そして、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た。

そのため、図 2.4-3 に示したような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。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(日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2022)。



図 2.4-3 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

そして、令和2年度に設定した温度勾配による緩衝材中の水分移動評価モデル(日本原子力研究 開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター,2021)および令和3年度に設定した海水系地 下水環境下における緩衝材の間隙水組成が透水特性に及ぼす影響を考慮した浸潤挙動評価モデル (日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター,2022)をCouplysに反映し た。Couplysの概要と本事業において高度化したスキームを図2.4-4に示す。



図2.4-4 Couplysの概略と本事業において高度化したスキーム

本連成解析モデルの適切性を確認するために、原子力機構が幌延深地層研究計画において実施 している人工バリア性能確認試験を対象としたTHC連成解析を実施した(図2.4-5参照)。解析で は、緩衝材の浸潤挙動に着目し、廃棄体を模擬したヒーターの発熱により温度勾配が形成された 条件下における海水系地下水の浸潤と緩衝材の間隙水組成とともに変化する水理特性に与える影響を考慮した。そして、人工バリア性能確認試験で得られている緩衝材の浸潤挙動に関する計測 データとTHC連成解析結果を比較した結果、廃棄体を模擬したヒーターの温度を上昇させてから 1,600日後までの間で、原位置で得られている緩衝材の浸潤挙動に関する計測結果と整合的な評価 結果を得ることができた(図2.4-6参照)。これによって、廃棄体の発熱によってオーバーパック 近傍で緩衝材が乾燥する現象と、海水の1/2程度のNaCl濃度の地下水が浸潤する緩衝材の浸潤挙 動を評価可能であることを確認した(日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理セ ンター, 2023)。





図2.4-6 緩衝材中の間隙水飽和度に関する計測結果とTHおよびTHC連成解析結果との比較 (解析ケース1:蒸留水条件での固有透過度を設定したTH連成解析、解析ケース2:幌延地下水 条件での固有透過度を設定したTH連成解析、解析ケース3:THC連成解析)

(3)5か年の成果と今後の課題

平成30年度から令和4年度までの5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。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した。 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。

今後は、THMC連成解析モデルの適用性の確認として、廃棄体の温度がピークに達した後に人 エバリアの温度が低下していく過程を含めたより長期のニアフィールド環境の評価が可能かどう かを確認する。このため、幌延深地層研究計画の人工バリア性能確認試験で実施されている廃棄 体を模擬したヒーターの温度を低下させていく冷却過程を含めた期間を対象として再現解析を実 施し、計測結果との比較を通じてモデルの適切性を確認していく予定である。そして、解析モデ ルの信頼性を向上していくため、国際共同研究DECOVALEXなどを活用し、原位置試験などを対 象とした予測解析や再現解析を実施し、各国とのモデルや解析結果との比較を通じて適切性を確 認するとともに検証事例を蓄積して行く必要がある。また、図2.4-4で示したように、現状の Couplysは、力学特性と地球化学特性との相互作用が考慮されていないため、応力変形が間隙水化 学(あるいは、間隙水化学が応力変形)に及ぼす影響を評価できない。ニアフィールドで生じる 現象を連成挙動として扱うべきかどうかを把握するためには、力学解析と地球化学解析との間や、 力学解析側から熱解析および水理解析側へ解析結果を提供するスキームを追加し、THMC連成解 析モデルを構築していくことが望まれる。また、2015年1月から実施された人工バリア性能確認試 験では、一時的に100℃を超えた温度環境となっているが(中山ほか, 2019)、このような高温条 件での物性値やモデルが整備されていないため再現解析の中で考慮することができなかった。こ のようなことから、緩衝材の温度が100°Cを超えた条件下でのTHMC連成解析モデルの適用性の 確認を始めとして物性値の取得やモデル開発も必要となってくる。他方、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解析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と、これらの情報が反 映される評価技術体系の整備として、SP3で実施しているような複合現象評価における過渡期の 状態変遷の評価技術への反映も課題となる。

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・物質輸送の連成およ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、化学および物質輸送と連携して処分施設の力学 挙動を評価する技術が必要となる。このような背景のもと、長期力学挙動解析コード MACBECE (Mechanical Analysis considering Chemical transition of BEntonite and CEment materials)の 開発が進められてきた。これまで、岩盤クリープ、緩衝材の変質に伴う膨潤圧の低下、セメント 系材料における Ca 溶出による剛性・強度の低下とそれによるひずみ軟化挙動、金属の腐食膨張 などによりセメント系材料に割れが発生する現象などを考慮できるように開発を行ってきた(例 えば、三原ほか,2010;平野ほか,2016;日本原子力研究開発機構,2018)。このような処分施設の 状態変遷評価から得られる場の密度や透水性分布の変遷などの情報は、核種移行挙動を評価する 際に用いることができる。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、処分施設の各材料およ 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。

このような背景のもと、処分施設の各材料および周辺岩盤との力学的相互作用を過渡期から長 期まで一貫して評価できる解析システムの構築を目的として、過渡期のニアフィールドの力学的 な状態変化を解析する機能を MACBECE に追加し、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過渡期の解析機能の妥当性の確認を行った。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、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。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 た膨潤圧試験や圧密試験を実施し、緩衝材の力学特性の温度依存性に関するデータ取得、それに よる現象理解を進めた。

(2) 実施成果

処分施設の各材料および周辺岩盤との力学的相互作用を過渡期から長期まで一貫して評価でき る解析システムの構築を目的として、平成 30 年度に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)。さらに、MACBECEの更なる改良として、令和2年度に廃棄 体の発熱による処分施設の温度変化に伴うセメント材料と金属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,2021)。図 2.4-7 に MACBECE で取り扱う主な力学現象を示す。図中の過渡期の部分 が平成 30 年度および令和2年度に新たに追加された機能である。これにより、処分施設の各材料 および周辺岩盤との力学的相互作用を過渡期から長期まで一貫して評価できる解析システムが構 築された。

| 期間 | MACBECEで取り扱う 主な力学現象 | 化学反応解析 | 過渡期のTHC 連成解析 |
|----------------|---|--|-------------------|
| 処分施設 建設·操業時 | ・岩盤の掘削による応力変化 ・支保工による岩盤の支持 | | |
| 過渡期 | ・緩衝材の力学挙動 ・セメント/金属材料の熱膨張 | | ┘・飽和度分布 ┘・温度分布 |
| 長期 | ・岩盤クリープ ・金属の腐食膨張 ・変質によるセメント系材料の 強度・剛性変化 ・セメント系材料のひび割れ ・変質による緩衝材の膨潤性 の低下 | 〕・セメントの溶脱 〕・スメクタイト部分 密度, 交換性ナトリ ウム率変化 | |

図 2.4-7 MACBECE で取り扱う主な力学現象

過渡期の解析機能の効果を検証するため、平成31年度には、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および周辺岩盤の 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および水理的な状態変遷に与える影響を 分析した。その結果、再冠水時の緩衝材の飽和度分布の時間変遷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(日本原子力研究開発機構・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。既往の研究(中山ほか、 2020) 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(図 2.4-8)。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していることや、MACBECE は二次元の平 面歪条件で解析を行っているため、三次元的な形状に起因する応力分布を適切に評価できていな いこと等が課題として抽出された(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,2022)。そのため、令和4年度は、令和3年度に課題として抽出された緩衝材の埋め戻し 材への膨出挙動をより適切に評価するため、埋め戻し材のモデル化の違いや緩衝材と砂間のジョ イント要素の物性値の違いが緩衝材の膨出挙動に与える影響を検討した。その結果、埋め戻し材 のモデルの見直しや、緩衝材と砂間のジョイント要素の物性値の見直しにより、令和3年度の解 析結果と比較して、より現実的に膨出挙動を再現することができた。特に、緩衝材と砂間のジョ

イント要素の物性値を小さく設定することで、膨出量が大きく増加し、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推定されているような、緩衝材中央にて下に凸 となる膨出の形状を示すことがわかった。しかしながら、依然として膨出量を過少に評価してい る可能性が考えられた。MACBECEでは、二次元の平面歪条件で解析を行っているため、三次元 的な形状に起因する応力分布を適切に評価できておらず、それが変形挙動の解析結果にも影響を 及ぼしていると考えられた。また、緩衝材の力学挙動は温度の影響を受けるが、現状の MACBECE では、力学挙動の温度依存性を考慮できていない。これらを考慮していくことにより、より適切 なニアフィールドの力学挙動の評価が可能となると考えられた。



図 2.4-8 緩衝材の変位の経時変化

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、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。その結果、膨潤圧試験中にしばし ば観測される膨潤圧の低下挙動は、供試体内部の吸水圧縮挙動によって生じていることを明らか にした(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;高山・ 菊池,2021)。さらに、膨潤圧が単調に増加する場合や一度低下する場合に対する試験データの比 較により、供試体内での吸水圧縮挙動の発生の有無やその大小が膨潤圧変化のパターンに影響を 及ぼすこと等を明らかにした(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、 2022;高山ほか, 2022)。さらに、MACBECEを用いて、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、供試体内での吸水圧縮挙動の発生の有 無やその大小と膨潤圧変化のパターンの関係について、解析においても実験で得られた傾向と整 合的な結果が得られた(日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター、2022)。 吸水圧縮挙動はコラプスと呼ばれ、従来から不飽和土の特徴的な力学挙動として考えられてきた。 MACBECE に導入されているような不飽和土の弾塑性構成モデルでは降伏曲面の拡大・縮小を制御 するパラメータにサクションや含水状態に関する物理量を用いることによって吸水圧縮挙動を表 現している。過渡期の緩衝材の力学挙動を評価するためには、このような不飽和土の弾塑性構成 モデル開発で用いられてきたようなアプローチに基づく力学モデルを用いることが重要となるこ とが示唆された。

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、緩衝材の力学特性の温度依存性に関する基礎的な知見の取得を進めた。 具体的には、乾燥密度 1.6 Mg/m³および乾燥密度 1.8 Mg/m³条件での緩衝材に対する温度を制御 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を行った。その結果、図 2.4-9 に示すように、温度の増加に伴い膨潤圧が増加する傾向が確認された(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, 2022; 2023)。



 \Box 1.6Mg/m³ \odot 1.8Mg/m³



また、緩衝材やカオリナイトを用いて温度を制御した圧密試験を実施した。その結果、いずれの材料においても、温度増加に伴い間隙比・載荷圧関係が下方に移動することを確認した(図 2.4-10)。これらのことから、ベントナイトの力学特性の温度依存性の傾向は、カオリナイトのような非膨潤性粘土と同様の傾向を示す可能性を示唆する結果を得た(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, 2023)。



(a) 緩衝材(b) カオリナイト図 2.4-10 間隙比と載荷圧関係(青:22 °C、黒:50 °C、赤:80 °C)

(3)5か年の成果と今後の課題

平成 30 年度から令和4年度の5年間の検討により、処分施設の各材料および周辺岩盤との力 学的相互作用を過渡期から長期まで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。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や圧密試験を実施し、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、MACBECE の三次元化や、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。載荷圧一定条件下で温度変 化を与える試験等を行い、温度変化によって生じるベントナイトの変形特性等を把握していくこ とが重要である。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。また、本 項で開発した、2.4.1項での過渡期の現象解析モデルと連携した力学挙動の解析システムは、SP3 で実施しているような複合現象評価における過渡期から長期にわたるニアフィールドの力学的な 状態変遷の評価技術として反映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問題の自 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。

5 か年の計画では、粗視化 MD モデルについて、そ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(例えば、粘土分子の平均的な積層数や層間距離など)として定量的に評価する手法の開発などを進めるとともに、粗視化 MD モデルを粘土含水系に水分の出入りがある場合にも対応させ、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により、様々な条件に対して粘土含水系の吸水膨潤段階での組織構造の特徴の評価ができるように手法の拡張を行うこととした(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; 2020; 2021; 2022; 2023)。

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およ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) 実施成果

粘土含水系の粗視化 MD モデルについての取り組みでは、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(図 2.4-11)で表し(Morodome, 2009)、 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(図2.4-12)。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に向けた見通しを得た(図2.4-13、図2.4-14)。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(木本ほか、 2020)、粗視化 MD モデル結果の組織構造から 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。 しかしながら、ここまでの粗視化 MD モデルでは間隙の水分量は一定と仮定しているため、粘土 含水系に水分の出入りがある場合の膨潤や膨潤圧の発生や、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、系外から水分を供給することで膨潤や膨潤圧を発 生させることにより、様々な条件に対して粘土含水系の吸水膨潤段階での組織構造の特徴の評価 ができるようにするための手法の拡張を進めてきた。その結果、令和3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を実現し、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上発生することを確認することができた。そのうえでさらに、 粘土水系への水分の出入りを制御するために必要となる、粘土分子表面への水和挙動を特徴付け る水和エネルギーのモデルをより現実的なものとしていくために、令和4年度は、Na型モンモリ ロナイトのX線回折試験で実際に観測された膨潤挙動を反映した水和エネルギーモデルを作成し、 吸水膨潤の粗視化 MD シミュレーションを行った。加えて、これまでのシミュレーションでは、 実験では制御が難しい化学ポテンシャル(その逆数が環境の湿度の高低に相当)を指定した組織 構造の計算は可能であったが、実験で制御可能な相対湿度を指定した計算までは行えなかったこ とに対して、特定の相対湿度を指定した計算が実施できるように手法の改良を行った。その結果、 Na 型モンモリロナイトの吸水膨潤段階での組織構造についての、観測事実に基づいた組織構造 の計算が実施できるようになった。相対湿度を指定して行った Na 型モンモリロナイトの膨潤シ ミュレーションにより得られた組織構造における粘土層間距離の結果を図 2.4-15 に示す。図 2.4-15 に示した相対湿度 50 %と 75 %での層間距離は、それぞれ XRD 試験で観測される層間距離で ある約12.5 Åと15.5 Åと近い値であることがわかる。このことから、令和4年度までに構築し てきた粗視化 MD モデルと水和エネルギーモデルにより、Na 型モンモリロナイトの実際に観察 される膨潤挙動が一部再現できることを確認した。

(3)5か年の成果と今後の課題

粗視化MDモデルの開発に関して、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4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 よう水和エネルギーの取扱いを中心に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基盤の準備ができた。

本研究により、粗視化 MD 法による粘土含水系の組織構造形成シミュレーションを、特定の粘 土鉱物を対象に、温度や湿度、圧力、体積などを指定して実施することが可能となった。これは、 XRD 試験をはじめとする、実験で指定される条件を設定した粗視化 MD シミュレーションが可 能となったことを意味する。従って、例えば XRD 実験と粗視化 MD シミュレーションが可 命成した回折パターンを比較する等の方法で、粗視化 MD モデルの検証を行うことや、逆に XRD 実験結果の解釈に粗視化 MD シミュレーションを利用することも可能と言える。一方、モデルパ ラメータの最適化や計算効率の向上は今後も継続的に改良が必要な課題である。また、より広範 な条件での組織構造解析を行うためには、Na 型以外のモンモリロナイトや層間イオンの組成に 応じた水和エネルギーのモデル化も必要となる。これらの課題を解決することは、種々の温度、 湿度、圧力下で、層間イオン種に応じた膨潤圧や膨潤量、積層数や層間距離などのマクロ物性、 さらには変形、熱や物質輸送などに関するパラメータを数値解析で予測する技術の開発につなが ることが期待され、本研究の成果は、これらの発展的研究の基盤になると考えられる。





図2.4-12 圧縮に伴う凝集挙動(組織構造変化)の粗視化MDモデルでのシミュレーション結果 例(粘土分子数:80、粗視化粒子数:3,194、平均粒径(標準偏差):40 (10)[nm])



図2.4-13 粗視化MDモデルでの解析結果と含水系粘土の組織構造を特徴づける物理量との関係



図2.4-14 粗視化MDモデルでの解析で得られる組織構造を特徴づける物理量の評価例



図2.4-15 相対湿度を指定して行った Na 型モンモリロナイトの膨潤シミュレーションによる粘 土層間距離の頻度分布の計算結果例

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。

セメント系材料が周辺岩盤へ与える影響やそのプロセスを理解するための研究としては、先行 事業(処分システム評価確証技術開発)において、東濃地科学センター瑞浪超深地層研究所での グラウチング施工箇所を対象にしたグラウト材・岩盤の変遷を把握するための調査・分析が行わ れ、グラウト影響に関する概念モデルが構築された(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)。本事業では、 先行事業での成果を踏まえつつ、同様に瑞浪超深地層研究所を活用し、坑道から離れた動水勾配 の小さい条件下で、岩盤の亀裂中にセメント材料が存在した場合を対象に、セメント材料が周辺 岩盤に与える影響(岩盤の変質や亀裂の開口・閉塞状況)を把握するための調査・分析を進めた。

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 って生じる固相およ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 の開発やアルカリプルームによる岩盤の状態変遷プロセスの評価手法の検討も行った。

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

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および評価 のため、深度500 mまでの立坑と水平坑道を整備したが、坑道掘削にあたって湧水抑制対策のた め、普通ポルトランドセメント(OPC)をグラウト材として注入したグラウチング施工を実施して いる箇所があった(見掛ほか,2010)。また、ボーリング孔掘削時には、ケーシングを固定するた めにセメント系材料が使用されることがある。セメント系材料が周辺岩盤へ与える影響やそのプ ロセスは未解明であるため、瑞浪超深地層研究所で使用されたセメント系材料は実際の地下環境 におけるセメント系材料の影響を検討する貴重な事例となり得る。

このため、これら材料を活用しつつ室内試験を組み合わせることにより、原位置におけるセメ ント系材料の変遷とアルカリプルームの周辺岩盤への影響についての理解と共にこれらの概念モ デルの構築を目的とした。

(2) 実施成果

瑞浪超深地層研究所で実施されたグラウチング施工に関しては、先行事業によって、深度300m 研究アクセス坑道において、施工後約3年と約7年経過したグラウト材コア試料の採取・観察によ

り、グラウト材は早い時期から炭酸化が進行している可能性や、坑道を解放している段階ではグ ラウト材による周辺岩盤への化学的影響が生じ難い可能性があることが考えられた(日本原子力 研究開発機構, 2016; 2017)。本事業においては、施工後11年経過した原位置から試料を採取し て表面観察による岩盤やグラウト材の状況などを把握した。その結果、天然環境中で11年経過し た岩盤中のグラウト材においては、未水和のセメントクリンカが残存しかつ炭酸化によって生成 した方解石が認められないケースと炭酸化によって生成した方解石が認められるケースがあるこ とが確認された。しかし、いずれのケースでもグラウト材の影響とみられる変質が岩盤側に認め られなかった。前者については、未水和のセメントクリンカの残存は水和に必要となる水分の供 給、すなわち地下水との接触が不十分であったことを意味する。また、後者については、方解石 が観察されていることから、HCO。を含む地下水がグラウト材に接触し、反応したことを意味す る。このことから、地下水との接触の有無が今回観察されたグラウト材の変質状態の違いに関係 していると考えられた。また、プレグラウチング施工後7年後に採取したグラウト材と岩盤接触部 の試料の薄片観察結果(日本原子力研究開発機構,2017)と比較して、グラウト材や方解石の性状 に大きな差は認められなかった。これらの点より、プレグラウチング施工後初期の段階でグラウ ト材のポルトランダイトの溶脱や方解石への変質の発生後は、その状態が維持されていると考え られた。なお、この状況は坑道が開放されて地下水の流動勾配がある状態で、坑道掘削が深部に 進んだ後、坑道が存在した状態が5年程度継続されたことに伴って浅部と深部の地下水が混合され た条件での結果であることに留意する必要があるとされた(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)。

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年度からは ボーリング孔掘削時にケーシングパイプを固定するためにセメントが使用されたボーリング孔を 対象とした調査を行った。具体的には、ボーリング孔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い、周辺岩盤でのアルカリプルームの痕跡を調査した。その結果、 セメント注入後、数日後に採取された試料では、セメント系材料と推定される物質からなる厚さ 1 mm以下の薄層が確認された。EDS分析により、Caはまだら状に分布することが明らかになっ た。また、セメント系材料の表面(地下水と接する箇所)には、炭酸塩鉱物の薄層が確認された。 この結果、セメントと地下水の接触時間は数日程度であるものの、そのような短期間にセメント からCaが溶脱して炭酸塩鉱物が形成されたものと考えられた(日本原子力研究開発機構・原子力 環境整備促進・資金管理センター, 2023)。

また、セメント注入の約6年後に周辺岩盤から採取された試料では、セメント系物質を検出でき なかったが、いくつかの試料では、電子顕微鏡観察によりセメントと推定される物質と類似した 産状が確認された。これら試料では、わずかにCaが検出された。また、花崗岩が細かく破砕され た産状が認められた(日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター,2023)。 日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター (2020)によれば、地下坑道掘 削前に施工されたグラウト材と花崗岩の間に花崗岩起源の砕屑粒子が多量に含まれる領域が認め られることがあるとされ、これはグラウト材注入時に周囲の岩石を破壊しながらグラウト材が侵 入したことによるものと考えられる。仮に、本事業で観察した破砕されたような産状が同様のメ カニズムで形成されると考えると、ケーシングパイプ固定のためのセメント注入時に、セメント が周辺の岩石を破壊しながら割れ目に侵入した可能性が考えられる。この場合、破砕された領域 の外側(割れ目側)にはセメントが存在することが期待されるが、セメント材は観察されなかっ た。このことは、セメントが沈着しなかったか、あるいは一旦、沈着したセメントが地下水との 接触で溶脱したことを示すと考えられる。なお、これまでの観察では、岩盤中に鉱物の溶解や二 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, 2022; 2023)。

さらに、グラウト材と岩盤について地下環境におけるセメント系材料の変遷およびセメントと 岩石の相互作用の把握を目的として、セメント硬化体と岩盤の供試体の間に地下水を通水する試 験を実施した(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)。通水 後の供試体から、通水側から約5 mm付近の箇所から薄片を作製して、偏光顕微鏡観察と電子顕微 鏡による表面分析を行った結果。セメントと岩石の通水側には炭酸塩鉱物の析出が認められた。 この試験は通水する供試体をArパージした状態として大気中のCO2の影響を排除して実施したた め。炭酸塩鉱物形成には下記反応が想定された。

$\begin{array}{rcl} Ca(OH)_2 \rightarrow & Ca^{2+}+2OH^{\cdot} \\ Ca^{2+}+OH^{\cdot}+HCO_3^{\cdot} \rightarrow & CaCO_3+H_2O \end{array}$

また、通水後の水質分析結果から、上記の反応は通水後4日までに起こった後、方解石の層が形成されることで地下水とセメントとの接触が遮断され、セメント内部の溶脱や変質が抑制されたと考えられた(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)。

上記の観察結果および通水試験の結果に基づいて、セメント系材料と岩盤との相互作用について、グラウチングを例とした概念モデルを図2.5-1に示す。



図2.5-1 グラウチングに伴うグラウト材と岩盤との相互作用メカニズムの変遷に係る概念モデ ル(日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2019)

(3) 5か年の成果と今後の課題

平成30年度から令和4年度までの5年間の検討により、セメント系材料が岩盤に与える影響やそのプロセスの理解においては、瑞浪超深地層研究所においてグラウチングおよびボーリング孔でのケーシングパイプの固定に使用されたセメント材料を事例として、実際の地下環境におけるセメント系材料の変遷およびセメント系材料が周辺岩盤へ与える影響を評価するとともに、セメン

ト硬化体と岩盤の供試体の間に地下水を通水する試験を行った。この結果、グラウト材などのセ メント系材料と花崗岩の境界部においては方解石の析出が確認され、方解石はセメント系材料と 地下水が接触し始めて数日以内に形成される可能性が示され、この知見をセメント系材料と岩盤 との相互作用メカニズムの変遷に係る概念モデルを構築した。

本事業においては、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 充に取り組み、セメント系材料が岩盤に与える影響について、グラウト施工およびボーリング孔 のセメンチングを事例として検討した。この検討によって得られたセメント系材料の溶解とそれ に続く方解石の形成という反応が極めて短期間に起こるという知見は、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、解析結果の妥当性確認において活用されるこ とが期待される。

なお、本事業において検討対象としてきたセメント系材料が使用されたグラウチング施工箇所 やボーリング孔近傍の割れ目沿いおよび割れ目周辺母岩中では、母岩を構成する鉱物の溶解や二 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。ただし、この結果は長期的 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く、今後、 セメント系材料が使用されてからの時間がより長期の事例や、より多量のセメントが使用された 事例などでの検討が必要であると考えられる。

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 の固相および液相(地下水および岩石中の間隙水)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お よ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、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。

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の具体化や、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することを目的とした。

(2) 実施成果

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,2015a)。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。このため本事業では、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、構築した準三次元のモデルを用いた試解析の結果などを参考にしつつ、処 分孔の支保工とそれに交差する単一の亀裂を対象とした反応輸送解析モデルを構築し、支保工か らのアルカリの影響が処分孔近傍に留まるか否かの条件を把握することを目的とする感度解析を 行った(日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター,2020)。さらに、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(図2.5・2)。

上記の研究アプローチに基づき、坑道近傍のスケールを対象に単一亀裂に対するアルカリプル 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(日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター,2021)。その 結果、図2.5-3に示す様に透水量係数の違いによる単一亀裂中でのアルカリプルームの影響の違い を評価することができた(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, 2020)。例えば、岩盤亀裂中での透水量係数が10⁻¹⁰ m²/sと相対的に小さい場合(亀裂中での地下 水の流量が少ない場合)、坑道閉鎖・再冠水後、1,000年程度経過後もコンクリート支保の下流側 10 m程度の領域は、pH11程度のアルカリ溶液が分布すると推定された。一方、岩盤亀裂中での透 水量係数が10⁻⁷ m²/sと相対的に大きい場合(亀裂中での地下水の流量が多い場合)、比較的速や かにコンクリート支保由来のアルカリ溶液の影響は低減され、1,000年程度経過後には、初期の地 下水と同程度のpHに回復することが推定された。このような解析結果の違いについては、亀裂中 での透水量係数の違いにより、コンクリート支保由来のアルカリ溶液の地下水による希釈割合が 異なるため、亀裂中でのアルカリプルームの影響範囲が異なった可能性が示唆された(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,2020)。



図2.5-2 アルカリプルームの影響範囲に応じて異なる連成解析手法を適用する概念 (日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2020)


(b) 下流側セルの岩盤亀裂内部のpHの変化(透水量係数:10⁻¹⁰m²/sの例)

図2.5-3 コンクリート支保の下流側セルにおける亀裂内部地下水のpH経時変化の解析結果 (a)1000年後の岩盤亀裂内部のpH分布 (b)下流側セルの岩盤亀裂内部のpHの変化(透水量係数:10⁻¹⁰m²/sの例)(日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター,2020)

上述した準三次元モデルによるアルカリプルームの影響範囲に関わる定性的な評価に加え、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、一次元の単純な系を対象に した解析的な検討も行った(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, 2022)。検討にあたっては、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(図 2.5-4: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、岩石マトリクスおよ 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、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2.5-5)。



図2.5-5 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 (日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2022)

上述したような亀裂の開口が継続/閉塞に向かう条件の違いは、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、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、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、亀裂中での移流速 度が非常に遅い場合と同様に、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、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。

さらに、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,2023)。その結果、亀裂部における 透水性や間隙比の変化に影響を与える二次鉱物(C-S-Hゲル相)の生成については、室内試験結果 を概ね再現可能であったが、二次鉱物の生成量やそれに影響される透水性や間隙比の変化の定量 性には課題が示された。この課題に対して取り組む上で、花崗岩マトリクス部で想定する反応に 寄与する鉱物種の見直し(例えば、黒雲母の溶解も考慮する等)や反応比表面積の扱い方の見直 し等が必要であることも整理した。

(3) 5か年の成果と今後の課題

平成30年度から令和4年度までの5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を概略的 に整理した。加えて、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試み ると共に、モデル解析による試験結果の再現性をさらに向上する上で必要な課題を抽出した。こ の課題に取り組むことにより、亀裂の開口/閉塞に向かう場合の条件の定量化に向けた探索的解 析も可能になることが示唆された。

今後は、モデル解析による試験結果の再現性をさらに向上させ、花崗岩中の亀裂に高pH溶液を 通水した場合の亀裂の開口/閉塞に向かう場合の条件を定量化するための探索的解析を試行し、 定量化のための検討方法や検討事例の具体化を図ることが重要である。このような具体例が示さ れれば、実際の地質環境で得られた情報(例えば、瑞浪の結晶質岩で得られた岩石・鉱物データ、 地下水データ、亀裂情報等)に基づいた評価も可能となる。また、具体例に基づく評価結果は、 アルカリプルームによる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。さらに、構 築されたシナリオは、SP3での研究対象とされているニアフィールド性能の総合評価技術開発に おいて、今後、ニアフィールド岩盤を含めた環境変遷評価や核種移行評価を行う際のシナリオ設 定への反映も期待される。

2.6 流出現象等を考慮した緩衝材の健全性評価

2.6.1 課題設定の考え方

(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。処分場の性能評価における緩衝 材の初期状態は、飽和で密度が均一とされているものの、施工後の地下水の浸潤過程を経て飽和 に至るまでに、緩衝材の状態は緩衝材ブロックの製造品質や施工品質の影響を受け、また、緩衝 材と処分孔壁面との隙間からの地下水の浸潤および膨潤による隙間の閉塞など、不均質な環境の 影響も受ける。このような再冠水過程における局所的な膨潤による変形やそれに起因する緩衝材 の不均質な密度分布は、既往の研究によれば飽和に至る過程で均質化に向かうことが期待される が、飽和後の緩衝材の密度分布が残存する可能性がある。

緩衝材の密度分布の残存は、必ずしも処分施設の長期の安全性に影響するとは限らないが、そのような影響の程度を評価するためには、飽和過程における緩衝材の状態変遷を把握し、飽和後の緩衝材の密度分布を確からしく評価することが重要である。

堅置き・ブロック方式の場合には、定置から再冠水完了までの過渡期に緩衝材の密度に影響を 与える要因の1つとして、定置後の処分孔内への局所的な地下水の流入(湧水)によって発生す るパイピング現象による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;SKB,2008)。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、および自己シールに至らずにパイプ状の水みちが形成さ れて残存し、あるいは新しく形成し、水みちを介して湧水が処分孔外に排出される一連の過程で 発生する。緩衝材の流出が進行すると、緩衝材の平均的な密度が低下し、期待している機能が損 なわれることが懸念される。そのため、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。更 に、湧水量が多い地下環境でも緩衝材の流出を抑制できる工学的な対策工法を準備し、多様な地 下環境条件への適用性を高めることで、掘削した処分孔の利用効率を高めることができる。

以上の背景を踏まえ、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挙動の変化)を予測評価するための解析手法の構築を目標 とすることとした。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文献や試験により取得することとした。

(2) 本事業の課題の設定

本事業では、竪置き・ブロック方式を対象とした「緩衝材の流出挙動」について、緩衝材ブロ ックと孔壁との隙間の処理に関して、現時点で考え得る緩衝材の施工技術オプション(隙間未充 填、ケイ砂充填、ペレット充填、原位置締固め)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し、実際の処分場の操業に際し、処分孔の実環境 に応じて柔軟かつ迅速な施工技術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 情報を整備した。緩衝材の施工技術オプションの選択では、後述する表 2.6-1 に例示するような 多様な評価項目に対する特徴などの比較評価が行われることを想定している。本事業では、上記 の施工技術オプションの選択を念頭に、緩衝材の流出特性について検討を進めた。

また、緩衝材の状態変遷を踏まえ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、土質系材料を対象とした既存の力学モデルをベースに、 緩衝材の隙間充填や飽和過程初期の流出(許容される流出量)を考慮した緩衝材の乾燥密度の状 態変遷に関する解析手法を開発することとした。

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)研究方針(研究アプローチ)

堅置き・ブロック方式の隙間処理技術オプションの選択における緩衝材の流出特性に関する基 盤情報の整備の一環として、緩衝材流出特性の評価手法の整備に向けて、これまでの研究成果や NUMO-SCに示された事業者の考え方に留意して、本フェーズでは以下を本課題に関する研究開 発の基本方針として取り組むこととした。

- 処分孔の環境条件に応じた柔軟かつ適切な工学的判断(技術オプションの比較評価による選 択)を可能とする複数の隙間処理技術オプションを開発・整備する。
- オプションの選択(比較評価)を支援する定量的な判断指標の設定に資する緩衝材の流出量 評価モデルを地下原位置の実環境に即した現実的な環境条件を念頭に置いた試験に基づき 開発する。同モデルの開発では、流出挙動を詳細かつ厳格に表現することを指向するのでは なく、操業中に現位置で得られる限定的なパラメータ値やブロック等の製造・施工品質のバ ラツキ等に留意した工学的な判断を行うための評価モデルを指向する。
- 処分孔の利用率の向上に寄与する幅広い処分孔湧水環境への柔軟な適用に留意して、本事業では、①隙間未充填、②ケイ砂充填、③ペレット充填の3つの隙間処理技術オプションを先行検討対象として取り組む。
- 研究段階である本事業では、「幌延URL」への適用を例題として、緩衝材流出量評価モデル を含む緩衝材流出特性の評価手法(方法論)を開発する。
 ※方法論を開発することで、精密調査段階以降に事業者(NUMO)が開発された手法に沿っ て候補サイトの地下水環境等に即した流出量評価モデルを迅速かつ合理的に整備し適用 することができる。
- 研究/実事業ともに、原位置や工学/実規模スケールでの多数のパラメータ試験の実施は困 難であることから、室内要素試験を主体とした方法で評価できる手法の開発を指向する。

2) 緩衝材流出特性の評価手法(方法論)の整備結果

緩衝材流出特性の評価手法(方法論)の整備に先立ち、上述した竪置きブロック方式の隙間処 理技術オプションの選択において評価すべき項目(最適化の評価項目)を網羅的に整理した。緩 衝材流出特性は網羅的な評価項目の1つである。

その上で、緩衝材流出特性の評価手法(方法論)の整備に向けて、緩衝材の流出量評価のため の評価項目と判断指標の検討を行い、実際に判断するための定量値を提供するための流出量評価 モデルの開発・整備手順を整理した。

① 隙間処理技術オプションの最適化における評価項目(案)の整備

堅置き・ブロック方式における隙間処理技術オプションには、ケーシングや防水シートの設置 あるいは孔内湧水抑制のためのグラウトや水抜き孔の施工など、多様な対策を想定し得る。更に、 ブロック方式以外の原位置施工方式も想定し得る(転圧や吹き付け施工方式など)。

本事業では、実事業における放射線防護や施工手順(作業負荷)の最小化の観点から、前述した3つの隙間処理技術オプションを先行検討対象として、緩衝材の流出挙動に着目して研究に取り 組むこととしているが、将来の実事業において適用する技術オプションの選択(最適化)におい て考慮すべき事項(評価項目)について、主に"工学的な観点"から包括的な整理を行い、併せて 3つのオプションの特徴に関する定性的な整理を試みた1。

整理結果を表2.6-1に示す。これらの評価項目は、今後の議論の「たたき台」として整理したも のであり、今後の更なる議論あるいは新たなオプションの追加に応じて適宜見直される。また、 将来の技術選択の際には、安全規制要件や地域等の事業関係者の要請等にも留意した評価項目間 の重み付け(weighting factor)が必要となるが、本事業では設定していない。3つのオプションの評 価項目ごとに対する特徴の定性的な整理については、現時点におけるエキスパート・ジャッジで はあるものの、有望なオプションの絞り込みや個別オプションを最適化する際の課題を具体化す ることが可能であり、技術オプションの開発初期段階における有益な情報を提供することが期待 できる。これらは現時点では定性的であるが、将来の技術選択を支援する定量的な技術情報とし て整備(開発)を進めていく必要がある。

¹ 本事業において設置した外部有識者で構成される委員会および事業者の意見交換等を経て整理を進めた。

表2.6-1 高レベル放射性廃棄物の地層処分における縦置きブロック型式に関する隙間処理施工技術オプションの特徴の整理

| 評価項目 | | 隙間未充填 | | ペレット充填(ベントナイトペレット) | |
|---|---|--|--|--|---|
| 施工性 | | ・隙間充填作業が無い。 | | ・隙間の湿潤した孔壁にはペレットが着きやすく、ペレットの充填量の 不足や不均一が発生する可能性(隙間幅 2cm での試験結果回より)。 施工方法やペレットの改良が必要。 ・ペレットの製造や施工の設備、手順や品質管理方法の整備が必要。 | ・ケイ砂を隙間に流し返 で流し込む等)で湿 ・施工手順によってはか ・施工手順や品質管理 |
| 施工品質の 管理・保証 | ・品質確保のための要求 水準 ・施工品質の管理・保証 のし易さ(負荷) | ・緩衝材とオーバーパックの直立性の維持や自己シールの均質性のための処分孔底面の水平加工、孔壁の寸法精度や、隙間への異物混入の回避に関して、処分孔の条件によっては品質確保のための要求水準が高く、施工品質の管理・保証への負荷が大きい可能性。 | | ・ペレットの密度・粒径管理、充填の密度等の製造・施工に関して品質 確保のための要求水準は高く、処分孔の条件によっては施工品質の管 理・保証への負荷が大きい可能性(隙間未充填と同様に処分孔底面の 水平加工が必要)。 | ・ケイ砂充填の施工性を 理・保証の負荷は小 必要)。 |
| | ・隙間充填材料の供給、 代替性 | ・なし | | ・ペレット製造や施工の品質管理方法の整備が必要。 | ・ケイ砂は、ペレット。 |
| 緩衝材の 流出特性 | ・流出量評価の確からし さ(評価方法の有無、 評価のし易さ、予測精 度) | ・パイピング(piping)回による流出量の評価方法が、SKBの室内試験回に 基づき NUMO-SC^[4](付属書 4-56)に提示されている。 ・エロージョン(erosion)回を含めた湧水量や水位差を中心とした実環境 条件に基づいた定水位の室内要素試験による流出量の評価手法の方法 論が示され、試験方法の改善や現象理解を進めることにより評価方法 が構築できる可能性がある。 ・孔壁の亀裂に緩衝材が侵入(extrusion)し浸食されることによる流出は 室内試験結果回によれば限定的。 | | ・パイピングによる流出量の評価方法が、SKBの室内試験に基づき NUMO-SCに提示されている(隙間未充填と同様な評価方法)。 ・エロージョンによる流出を含めた評価手法は未充填の評価方法を使用 できる可能性(界面の状況/挙動は室内試験結果回によれば、未充填 オプションに近い可能性)。 ・孔壁の亀裂へ緩衝材が侵入し、浸食されることによる流出は、隙間未 充填と同様に限定的。 | ・室内試験結果より緩循 純化モデルで評価で ・緩衝材からの流出が隙 ・実環境条件(水位や液量が示され、試験法 能性がある。 ・孔壁の亀裂に緩衝材が 抑制される可能性。 |
| | ・適用可能な孔内湧水環 境 | ・パイピングによる流出量の予測と許容流出量から許容湧水量の算出により適用範囲の評価が可能(NUMO-SC 付属書 4-56)。 ・パイピングにエロージョンを加え、湧水量や水位差を中心とした環境条件を考慮した定水位の室内要素試験が示され、これによる流出挙動の評価により適用可能な孔内湧水環境を明確にできる可能性がある。 | | ・ペレットの充填により、処分孔内のベントナイト量が増加し、緩衝材への流出の影響を低減でき、隙間未充填よりも湧水の多い環境に適用できる可能性。 ・隙間未充填の定水位の室内要素試験や評価方法を適用して、ペレット充填の適用可能な孔内湧水環境を明確にできる可能性がある。 | ・原位置試験^{IBI}によれば も湧水量の多い環境 ・定水位の室内要素試験 を明確にできる可能 |
| 緩衝材の 膨出特性 | ・膨出量評価の確からし さ ・膨出量抑制効果 ・追加対策工の必要性 | ・原位置流出により緩衝材の上方への膨潤による変位や荷重を確認。膨 出挙動の現象理解とそれに基づく膨出量評価方法の整備、工学的対策 の整備が必要。 | | ・同左(膨出評価方法と工学的対策の整備) | ・同左(膨出評価方法と) |
| | ·力学的安定性 (直立性、変位量) | ・緩衝材は、膨潤による自己シールにより支持される。 ・隙間が自己シールされるまで支持材がない。 ・孔壁の亀裂からの湧水等による緩衝材の不均一な浸潤による偏膨潤の可能性により、緩衝材の均一な支持に不確実性がある可能性。 | | ・ペレットの膨潤による隙間の充填により、緩衝材の自己シールの効果が、隙間未充填よりも高まる可能性。 ・孔壁の亀裂からの湧水等による不均一な浸潤によるペレットの偏膨潤の可能性により、緩衝材の均一な支持に不確実性がある可能性。 | ・充填したケイ砂により ・ケイ砂を介した緩衝 支持が均一になる可 |
| 性能確認の | ·伝熱特性 | ・緩衝材の膨潤による隙間の自己シールにより熱伝達性を確保。 ・自己シールの速度によって熱伝導性に不確実性。 | | ・隙間のシールまでは、充填したペレットによる熱伝達性が期待できる。 | ・ケイ砂よる熱達性性が |
| し易さ | ・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) | ・孔壁の亀裂からの湧水等による緩衝材への不均一な浸潤による偏膨潤 により、部分的に乾燥密度が低下する可能性。予め偏膨潤の有無や程 度を把握し、それに応じた適用範囲、評価方法及び対策等の整備がな ければ原位置モニタリングが必須となる可能性。 | | ・同左(偏膨潤による乾燥密度の低下等) | ・隙間のケイ砂を介して い可能性。予め浸潤 があり、原位置モニ |
| 不確実性 の管理の し易さ | ・埋戻し材施工迄の状態 予測のし易さ ・処分場の再冠水までの 過渡価のし易さ(長期の性能評価のし易さ(長期の性能評価のし易さ) が期の機能評価に引きたし が期の機能部価に引きたし がの分場閉鎖後長期の性 能評価における不確 能の管理のし易さ | ・隙間への孔壁落盤や緩衝材の欠落が起こる可能性。 ・緩衝材外周からの一様な湧水供給とならず、偏膨潤の発生: り、処分場の再冠水までの過渡期の性能評価に不確かさが 能性。 ・隙間への緩衝材の膨潤に伴い乾燥密度の不均質が起こるが、 衡下で長期的な均質化の程度を評価しておく必要性。 ・自己シール部分の緩衝材の乾燥密度などの状態が均一となえの性能評価では管理しやすい。 | などによ 存在する可 、膨潤圧均 れば、長期 | ・隙間未充填と同様に緩衝材の乾燥密度の不均質の発生やその後の均質 化が起こるが、ペレットにより初期の不均一さが緩和される可能性。 ・緩衝材外周からの一様な湧水供給とならず、ペレットと緩衝材の偏膨 潤が起こり、再冠水までの過渡期の性能評価に不確かさが存在する可 能性。 ・閉鎖後長期の性能評価の面では、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の効果が期待できる可能性。 | ・隙間にケイ砂が充填す 低下は抑制される可 ・緩衝材がケイ砂の間隙 ・緩衝材あケイ砂の間隙 ・緩衝材がケイ砂の間隙 低下し、径方向の不い)。 ・ケイ砂の間隙への緩衝 や閉鎖後長期の性能 |
| 回収可能性 | | ・開発中の回収技術の適用に課題は想定されない(塩水による緩衝材除 去システム、ウォータージェット) ^{[9], [10]} 。 | | ・同左。 | ・同左。 |
| 経済性 | | ・充填材料・装置及び作業が不要。 | | ・ペレット製造費及び製造・施工のための装置や運用費が必要。 | ・簡便な施工装置で対応 |
| 注水、水、水、水、水、水、水、水、水、水、水、水、水、水、水、水、水、水、水、 | 和4年度高レベル放射性原 確証技術開発)において、 緩衝材の隙間処理技術オフ 最適化)する手法を参考に したものである。 後の知見の拡充、技術の近 る湧水(流量や水圧)、水質 して、遠隔自動化、作業 条件ややケーシング、遮水3 軟な技術選択の支援も可能 単位で異なるオプションを | C 献 | マテム工学確証技術開発 して流れる地下水により d erosion in tunnel bacl 適切なサイトの選定に向け こでは隙間が緩衝材です 1997 マテム工学確証技術開発 ベル放射性廃棄物等の地層 シル放射性廃棄物等の地層 | | |

ケイ砂充填

込む等の簡易な設備や方法(四方から均等に同時にや水中 潤した孔壁であっても施工できる可能性。 ケイ砂の充填が不十分な箇所ができる可能性がある。 方法の整備が必要。

を踏まえると、品質確保のための要求水準は低く、品質管 さい可能性(隙間未充填と同様に処分孔底面の水平加工は

よりも供給や代替が容易 (産地などの選択肢は多い)。

新材の流出するベントナイトの濃度と湧水量の積などの単 きる可能性⁽⁸⁾。 隙間に充填したケイ砂により抑制される可能性。

勇水量等)を考慮した定水位の室内要素試験に基づく流出 の改善や現象理解を進めることで評価手法が構築できる可

が侵入し浸食されることによる流出は、隙間未充填よりも

ば、隙間未充填と比較して流出量は少なく、隙間未充填より に適用できる可能性。 験に基づく流出量の評価により、適用可能な坑内湧水環境 性がある。

工学的対策の整備)

り緩衝材が支持される。 材の均一な浸潤により、緩衝材は偏膨潤がおこりにくく、 *能性。

が期待できる (熱伝導度は概ね一定)。

て湧水が緩衝材の表面へ一様に浸潤し偏膨潤が起こりにく |・膨潤挙動や密度分布の程度等を把握・予測できる可能性 タリングを省略できる可能性。

することにより緩衝材の隙間へ膨潤は抑制され乾燥密度の 能性。

隙に入り込み充填して地下水の流路が減少する可能性。 寛が一様で緩衝材の偏膨潤による径方向の乾燥密度の不均 再冠水までの過渡期の性能評価の不確実性が少ない可能

隙に入り込むことで、緩衝材ブロックの外周の乾燥密度が :均一が発生する可能性(隙間未充填に比べて影響は少な

動材の充填の程度に不確実性があり、再冠水までの過渡期 評価に不確かさが存在する可能性。

芯出来る可能性。

発報告書(第2分冊)-人工バリア品質/健全性評価手法の構

り緩衝材が浸食される現象 kfill, SKB, R-06-72, 2008 けたセーフティケースの構築-, NUMO-TR-20-03, 2021

充填するまで(パイピングが起こる前まで)の間に発生する。

発報告書(第2分冊)-人工バリア品質/健全性評価手法の構

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

発)報告書,2015 層処分に関する技術開発事業回収可能性技術高度化開発報告書,

緩衝材の流出量評価のための判断指標案の設定

緩衝材ブロック界面(孔壁との間)での流出挙動は、緩衝材の成分や密度、初期含水比などの 材料組成、地下水組成や粘性などの水質や孔内湧水の位置・分布、緩衝材ブロック界面の流速な どの孔内湧水環境、処分孔壁面の形状や緩衝材ブロック界面の形状などの幾何形状などの多様な 影響要因、更に緩衝材の表面での浸潤・膨潤に伴う状態変化など、緩衝材流出の抑制および促進 に寄与する多様な挙動や要因の複合的な現象である。

緩衝材の流出挙動に影響を及ぼすこれらの要因や因子の全てを考慮した精緻な評価手法(モデ ル化など)を構築できることが理想であるが、本事業の開発方針(操業時に取得可能なパラメー タに基づき処分孔環境に応じて適切なオプションを選択できるようにしておく)を踏まえ、「処 分孔内外水頭差」と「処分孔内湧水量」を評価項目(評価パラメータ)として設定し、3つの隙間 処理技術オプションに関する判断指標の設定に関する考え方を、その前提として想定した施工性 と緩衝材の流出挙動とともに表2.6-2に整理した。

| + | | 想定される施工性と緩衝材の流出挙動 | 緩衝材の流出に関する最適化評価項目と判断指標(案) | |
|---------|---|--|--|--|
| オリンヨノ | 施工性 | ブロック界面における緩衝材流出挙動(想定) | 評価項目 | 判断指標の設定に関する考え方 |
| ①酿間未充填 | 施工作業なし 19時間充填までの 自立性(安定性) (こ留意) | 期待する挙動:緩衝材の膨潤により隙間をシールして 乳内湧水(緩衝材応洗出)を止める(=閉塞) 想定される緩衝材施正後のプロセス √浸潤進行に伴いブロック界面が引整に迫り壁面に到達 ⇒ 自由界面から懸濁化した緩衝材が流出 *壁面到達後、孔内湧水環境に応じて以下の挙動 >更なる浸潤に伴い、膨潤圧が増加して閉塞 > 男面の低密度の緩衝材が流出 > アコロック界面で緩衝材(細粒分)がケイ砂領域 (間隙)を介して流出 ※ケイ砂領域を緩衝材がシールして閉塞する可能性あり | 【評価バラメータ】 | ● 任意期間における緩衝材流出量で判断 (許容可能な量か否か) |
| ②ケイ砂充填 | 充填性の懸念を 低減させる施工 方法(手順管理)の確立 期待する挙動:処分孔内外の水頭差が維持する環境下 において、取えてケイ砂領域を介して孔内湧水を移動 (流出)させる 想定される緩徹材施工後のプロセス √浸潤の進行に伴い体積拘束条件下で膨潤圧は増加 ブロック界面で緩循材(微細分)がケイ砂領域 (空隙)を介して流出 ※ケイ砂領域を緩衝材がシールして閉塞する可能性あり | | 処分れ周辺石盤との水頭差 処分れ内湧水量 処分れ内湧水量 緩街杭流出量が許容量以下であることを確認 | |
| ③ペレット充填 | ・浸潤・狭隘環境 (こおける緩衝材 ベレットの施工 品質に課題 | 期待する挙動:ペレット(および緩衝材)の膨潤により 隙間をシールして孔内湧水(緩衝材の流出)を止める (三閉塞) 想定される緩衝材施工後のブロセス ※ 上記のの緩衝材界面の挙動をペレットで代用すること で、緩衝材ブロックそのものの流出を抑制する | | ● ベレットの充填量を除き、任意期間における緩 衝材流出量で判断(許容可能な量か否か) |

表2.6-2 隙間処理技術オプションの選択における評価項目および判断指標(案)

③ 各種試験に基づく流出量評価モデルの開発・整備手順

(a) 研究段階における方法論の開発手順と実事業への適用方法

緩衝材の流出量評価モデルの開発においては、表2.6・2に示した緩衝材の流出に影響を及ぼす影響要因から操業時に原位置で取得が可能と想定されるパラメータ(評価項目)として、以下の i から iii の3つを流出評価モデルの入力パラメータとする。

i. 処分孔内外水頭差 H: 底盤高さを基準とした水頭 [m]または[Pa]

ii. 処分孔内湧水量 Q_w : 処分孔内湧水量 [l/min]

iii. 緩衝材の流出が懸念される期間 t: 緩衝材の定置直後〜処分坑道埋め戻しの施工完了迄 上記のiとiiは、表2.6・2に示した緩衝材の流出挙動の評価項目(操業時に原位置で取得可能な パラメータ)、iiiは今後のNUMOの詳細設計(作業工程の設計)により具体化される。

実事業の施工オプションの選択における比較評価での活用を念頭に、緩衝材の流出量評価モデルは時間の関数*M_{RFNT}(t, H, Q)*として表現する。緩衝材ブロック界面での緩衝材のせん断や移送は、

界面を流れる湧水の流速 v [m/s]に依存するが、流速分布を把握することは困難であるため、モデル化する際は、処分孔口の流速を処分孔内湧水量 Q_w として整理を試みた。

現在の研究段階において利用可能な研究施設インフラの活用を前提とした、緩衝材の流出量評価モデルの理想的な開発手順は以下の通りとなる(図2.6-1)。

- Step1:室内要素試験によるベースモデルの構築
- Step2:室内工学規模(中規模)スケール試験によるスケール効果を考慮したベースモデルの 拡張
- Step3:室内要素試験による実環境効果(水質等)を考慮したベースモデルの拡張
- Step4:室内工学規模(中規模)スケール試験によるスケール効果および実環境効果(水質等) を考慮したベースモデルの拡張(以下「拡張モデル」という。)
- Step5:原位置工学規模(中規模)スケール試験によるスケール効果および実環境効果(水質、 幾何形状等)を考慮した拡張モデルの補正
- Step6: 原位置工学規模(中規模)スケール試験結果と Step1からStep5で整備した拡張モデル を比較し、Step1で整備するベースモデルの拡張性/適用性を検証することにより、実 事業(精密調査段階以降)への適用性の確認へ展開する。

研究段階において、利用可能な研究施設インフラを用いて、要素試験スケールから工学規模/ 実規模へのスケールアップ、単純系から複合系(実環境)への拡大適用を進める。

研究段階において上記手順で流出量評価モデルの構築方法(方法論)を開発しておくことで、 図 2.6-1 に示すように、実事業では(精密調査段階以降)、本手法に沿って候補サイトの地下水環 境等に即した流出量評価モデルを迅速かつ合理的に整備することができる。





図2.6-1 流出量評価モデルの理想的な開発手順

(b) 室内要素試験によるベースモデルの開発方法

本事業で緩衝材流出特性の評価手法の開発対象とした2つの隙間処理オプション(隙間未充填、 ケイ砂充填)の流出挙動について、過年度に実施した各種試験等から窺える挙動として図2.6-2の ように想定した。ケイ砂充填オプションは、ケイ砂の充填領域を優先的に水が流れることを意図 したものであるが(ケイ砂充填部がハイドロゲージとなり緩衝材の流出を抑制する)、過年度に 実施した室内要素試験の結果や後述する原位置実規模1/4 スケール試験の結果を踏まえ、ケイ砂 の充填領域に緩衝材が侵入して閉塞(自己シール)する可能性にも留意する。

図 2.6・2 に示す変曲点(T_a)は、図 2.6・3 に示す令和 3 年度に予備的に実施した隙間未充填オプ ションに関する室内要素試験結果を例とすれば、緩衝材ブロックの界面が隙間を膨潤して孔壁に 接するタイミング(圧力計が反応するタイミング)であり、その後に緩衝材の流出量が収束に向 かい始めるタイミングである。このように、ベースモデルは、実規模スケールの緩衝材界面(ブ ロック界面と孔壁の間の隙間)を切り出した微小領域の挙動を表現する。同モデルの開発におい て入力値となる室内要素試験には、前述した 2 つのパラメータ(処分孔内外水頭差、処分孔内湧 水量)の制御が可能な機構が必要となる(本フェーズで整備・利用した室内要素試験を図 2.6・4 に 示す)。

以上のような室内要素試験によって、

○ 緩衝材ブロックの界面が孔壁に到達するタイミング(変曲点)

○ T₁における流出挙動/流出量(変曲点の前)

○ T₂における流出挙動/流出量(変曲点の後)

の情報を得る。得られた情報に基づき、図 2.6-5 に示すような緩衝材の流出挙動を表現できるベ ースモデル(相関式)を構築する。累積流出量の経時変化を1つの相関式で表現するか、幾つか の領域に分割して各領域で相関式を整備するかは、各オプションの流出挙動(各種の要素試験結 果)を踏まえて判断すべきである。また、変曲点を有する挙動については、そのタイミングにつ いても影響因子との関連性や相関性を模索することが望まれる。



図2.6-2 2つの隙間処理オプションにおける緩衝材の流出挙動(想定)



図2.6-3 流出挙動の変化を示す変曲点T_a



- 2つのパラメータ(H:処分孔内外水頭差、 Q_w:処分孔内湧水量)を制御。
- ・ Hは試験期間内で一定(定圧試験)、実処分 環境においても処分坑道単位の作業期間中 に大きな変化はないと想定。
- Qw(試験開始時の初期値)は、個々の実処分
 孔周辺の母岩固有の透水性を加味した孔内
 湧水量を表現。
- 水頭差が孔内湧水の駆動力。隙間(緩衝材界面)の物理的閉塞あるいは流路抵抗が水頭差をキャンセルすれば、孔内湧水(緩衝材流出)が止まる現象を模擬。試験系からの排水に含まれる緩衝材の量を経時的に測定。併せて、孔壁側に設置した圧力計(アクリル板を介した側方からの観察)で緩衝材による隙間閉塞状況を把握。

図2.6-4 室内要素試験装置の概念と要求される機能



図2.6-5 緩衝材の流出挙動を表現できるベースモデル(相関式)のイメージ

(c) スケールアップ方法および実環境への拡張方法

室内要素試験に基づいて構築されたベースモデルは、工学規模あるいは実規模、更に実環境への適用を念頭に拡張する。ベースモデルがイオン交換水を用いた室内要素試験に基づくものであれば、原位置地下水環境への補正も必要となる。各種試験をとおしてのベースモデルの拡張において、考慮すべき要素(補正係数)を挙げ、これらの効果が保守性や安全性に与える影響を定性評価する観点を表 2.6-3 に示す。

| 実環境の影響補正 | | | | | | |
|---------------------------|---|--|--|--|--|--|
| 要素 | 補正係数が有する保守性/安全性(定性評価) | | | | | |
| | 補正値 <i>C_wは真値を表現しうる適値(と期待)</i> | | | | | |
| 水質補正 | ● 地下水組成は緩衝材の浸潤・膨潤・崩壊挙動に大きく影響する。 | | | | | |
| (<i>C</i> _w) | ● 補正値の信頼性確保には、多様なパラメータ条件による室内要素試験(原位置地下水) | | | | | |
| | の試験点数を増やす必要がある。 | | | | | |
| 樂何形狀補正 | 補正値 C_G は安全側に働く | | | | | |
| | ● 前フェーズの成果(原子力環境整備促進・資金管理センター,2018b)として、孔壁に凹 | | | | | |
| | 凸(不陸)がある場合に、緩衝材の流出量が抑制される傾向が把握されている。 | | | | | |
| | 補正値 C_g の保守性は不明 | | | | | |
| | ● 小型試験装置のため、単純な竪・横装置の結果の比で補正することに懸念、且つ、次の | | | | | |
| 重力補正 | ような安全側/非安全側の双方の効果が想定される。 | | | | | |
| | 流出促進効果:竪方向であれば下部に重力落下するはずの緩衝材が流出してしまう、 | | | | | |
| (C_g) | ケイ砂が試験系内に留まり流路を維持する(止水しない)。 | | | | | |
| | 流出抑制効果:竪方向であれば下部に重力落下するはずの界面から、崩壊する緩衝材 | | | | | |
| | が塊状となって試験系内に留まり、流路抵抗が増加する。 | | | | | |
| 階間幅補正 | 補正値 C_{gap} は真値を表現しうる適値 | | | | | |
| | ● 補正値の信頼性確保には、多様なパラメータ条件による室内要素試験(隙間幅4 cm)の | | | | | |
| (C _{gap}) | 試験点数を増やす必要がある。 | | | | | |
| | 補正値Csは安全側に働く | | | | | |
| スケール効果 | ● 孔内の湧水は全て孔底から浸入して、ブロック界面(周面)全体に上方へ向かう水流が発 | | | | | |
| | 生する環境を前提とする。 | | | | | |
| (\mathbf{U}_{S}) | ● ただし、上記の可能性は低く、壁面の多孔質部や亀裂を介して孔内へ湧水するのであれ | | | | | |
| | ば、下方に緩衝材の流出に寄与しないブロック界面が存在する。 | | | | | |

表2.6-3 補正係数が有する保守性・安全性評価に関する定性評価の観点

④ 流出量評価モデルに基づく緩衝材流出特性の評価方法(案)

前述までの手順で構築された流出量評価モデルに基づく "緩衝材流出特性の評価方法"の実事 業への適用例として、処分孔の利用判断および隙間処理オプションの選択評価例について、以下 に例示する。図2.6-6に示すように、緩衝材の流出量評価モデルを用いて2つのパラメータ(処分孔 内外水頭差、処分孔内湧水量)の組合せ毎に得られた各グリッドの算出結果(T₂期間までの緩衝 材の流出量)を等高線で整理し(図2.6-6の青線)、緩衝材の設計仕様から導かれる「許容流出量」 を重ね合わせることで(図2.6-6のオレンジ線)、個々の処分孔の湧水環境に対して適用可能な隙 間処理技術オプションを判断する。流出量評価モデルの入力となるT₂期間は、設計する作業プロ セスから導出される処分坑道の埋戻しの完了までの時間となる(NUMO-SCでは、緩衝材施工か ら処分坑道の埋め戻しの完了までの期間で評価。深成岩類:299日、新第三紀堆積岩類:284日)。 図2.6-6の等高線から、以下のような判断が可能となる。

- オレンジ線の範囲内にある処分孔環境(水頭差と孔内湧水量の組合せ)であれば当該オプシ ョンが適用できる。
- ある処分孔環境(水頭差と孔内湧水量の組合せ)が、いずれのオプションでもオレンジ線の 範囲外にあれば、その処分孔の利用は避ける、あるいは施工オプションの導入(ケーシング や防水シートの導入)といった判断ができる。



図2.6-6 緩衝材流出特性の評価例(隙間処理技術オプションの適用範囲の評価イメージ)

他の評価例として、適用する隙間施工技術オプションを与条件とすれば、緩衝材の設計仕様か ら導かれる「許容流出量」に至る時間(T2期間)を流出量評価モデルから逆算できる。詳細設計 される処分坑道単位での操業手順が、要求される時間(T2期間)に収まるか否かを確認すること で、必要となる操業技術の開発課題(高度化/迅速化)の抽出、あるいは操業手順や詳細設計(処 分坑道あたりの処分孔数など)の見直しの可否などの評価に利用できる。

3) 方法論の適用性の確認(流出量評価モデルの開発と原位置への適用性の確認)

本事業における確認方法と手順

理想的な開発手順を用いて流出量評価モデルを開発する場合、要素試験の点数を十分に確保し、 候補サイトの地下水の水質および緩衝材の仕様等を固定して実施することが望ましい。しかし、 現段階では候補サイトが決まっておらず、与条件として与えられる緩衝材ブロックなどの設計仕 様や原位置での測定が可能なサイト依存パラメータ、原位置で把握可能な変動パラメータなどは 現在の研究段階では全て未知である。そのため、本事業では、それらのパラメータを仮設定した 上でモデル開発を試行し、モデル整備の方法論としての適用性を確認した。

本事業では、室内要素試験および幌延URLの深度350 m試験坑道5に設けられた既存の試験孔 (実規模の約1/4スケール)を用いた原位置工学規模(中規模)スケール試験(以下、[原位置実 規模1/4スケール試験]という)を実施し、方法論の適用性を確認するため、室内要素試験および 原位置実規模1/4スケール試験の役割分担として以下を念頭に置いた。

- 室内要素試験:単純系かつ評価項目とした設定したパラメータを制御できる試験装置を用いて定量評価が可能なモデルの整備。
- 原位置実規模1/4スケール試験(試験装置を図2.6-7に示す):経時的に変化する可能性のある環境条件の把握には不確実性が含まれるため、得られるデータにも不確実性を含む。そのため、室内試験で整備したモデル表現と原位置試験の挙動との整合性を確認しつつモデルの拡張性について考察。

また、利用可能な研究インフラを用いて、要素試験スケールから工学規模、実規模へのスケー ルアップや、単純系から実環境の複合系への拡大適用については、以下に留意しつつ段階的に進 めた。

- スケールや特徴の異なる室内試験と原位置試験を組み合わせることで、既出の表2.6-3に示した多様なパラメータの一部の影響を排除する(着目した因子の影響を定量化する)。例えば、処分孔壁面の幾何形状の影響を排除した室内試験と原位置試験の差分を分析することで、その影響を定量化する。
- 多量の水を利用する室内要素試験では、原位置の地下水(あるいは模擬地下水)の利用に 量的な制約がある。
- ▶ 緩衝材ブロック界面での流出挙動に関しては、要素試験スケールが微少であるがために、 試験装置の設定や緩衝材(試料)の密度均質性などの感度が高く影響する可能性があり、 一定の試験数(N数)を重ねて信頼性のあるデータを確保する。

以上を踏まえ、本事業では、室内要素試験と原位置実規模1/4スケール試験を組み合わせて図 2.6-1に示す開発手順に従い、緩衝材の流出量評価モデル開発を進めることとした。

Step1 (1*): 室内要素試験によるベースモデルの構築

- Step2(3^{**}):室内要素試験による実環境効果(水質、重力等)を考慮し、拡張モデルへの更新 Step3(5^{**}):原位置実規模1/4スケールへの適用性の確認
 - 原位置実規模1/4スケール試験結果と上記のStep1(およびStep2)で整備した拡 張モデルを比較し、同モデルの拡張性/適用性を確認し、実事業(精密調査段階 以降)へ適用する。
- ※上記のステップ番号の右側括弧内は、既出の理想的な流出量評価モデルの開発手順として 図2.6-1に示したステップ番号である(対比として記載)。



図2.6-7 原位置実規模1/4スケール試験の概要図(ケイ砂充填オプション:長期試験)

② 適用性の確認結果

本フェーズでは、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ついて、限定的な試験の種類や試験点数ではあるが、前記の確認手順として示したStep1からStep3までを実施して、 室内要素試験で得られたベースモデルと幌延URLの深度350 m試験坑道5を利用した原位置実規 模1/4スケール試験との比較検討により方法論の適用性を確認した。

確認の結果、前項2)で整理した緩衝材流出特性の評価手法は、試験点数の制約や要素試験装置 に関する課題があるものの、方法論としての適用性の見通しを得ることができた。他方、ケイ砂 充填オプションおよび隙間未充填オプションの比較の点では、後者に関する室内要素試験の不安 定さや真値を表現できる可能性への懸念なども示唆された。このことは、前項2)①で整理した隙 間処理施工技術オプションの特徴に基づく最適化の観点では、施工品質の管理・保証、緩衝材の流 出特性、不確実性の管理のし易さなどの点で、現時点ではケイ砂充填オプションが相対的に有利 と言える。

以上の取り組みで得られた知見や課題についてStep毎に表2.6-4に総括する。ケイ砂充填オプションと隙間未充填オプションの検討結果の詳細については、令和4年度報告書を参照されたい。

表2.6-4 方法論の適用性の確認結果(総括)

室内要素試験に基づくベースモデルの構築(Step1)

- ケイ砂充填オプションでは、パラメータである水頭差と流量に応じた一定の傾向が概ね1回の試験で得られたことから、流出量評価モデルの整備において試験装置や試料の品質などに対して寛容性のある安定的なオプションであると言える。この要因として、隙間に充填したケイ砂が緩衝材界面の浸潤環境の一様化や緩衝材の体積拘束(細粒分の分離や剥落の抑制)に寄与したことが考えられる。
 一方で、全てのケースで試験開始直後に緩衝材の流出濃度のピークが発現し、この初期の流出が累積流出
- 一方で、全てのケースで試験開始直接に緩倒材の流出濃度のビークが発現し、この初期の流出が素積流出 量の大半を占める結果となった。これは当初想定していなかった挙動であり、その要因として緩衝材界面 から分離・分散する"微細粒分"である可能性が示唆された。この減少は原位置実規模1/4スケール試験では 確認されないことから、装置設定の影響(試験セルの小ささ、出口構造など)の可能性が示唆された。
- 隙間未充填オプションでは、予期せぬ挙動やパラメータの組合せに応じた傾向から外れる試験結果が多数 あり、安定した試験結果を得ることが容易ではなく、試験装置や試料の品質(緩衝材の密度均質性など)に 対して感度が高いことを示唆している。一定の傾向を得るためには、厳格な装置設定や管理ならびに試料 の品質確保などを経たうえで、多数の試験点数が必要となるが、試験点数を増やしても真値に収束しない 可能性もあり(真値のないバラツキのあるオプションである可能性)、また、このような試験で得られる流 出量評価モデルを実事業に適用するには、実事業において、緩衝材ブロックの厳格な品質確保や原位置環 境条件の把握など、過度な要求を強いることとなる。

一方で、今回の室内要素試験で得られた結果(累積流出量の経時変化の傾向)は、当初に意図したとおりで あり、原位置実規模1/4スケール試験の傾向とも整合している。

○ 室内要素試験に基づくベースモデルの整備では、両オプションともに「べき乗関数」によるモデル化が可能である。今回の試行では、2つのパラメータ(初期流量、水頭差)のうち、初期流量を引数とした累積流出量の経時変化がモデル化できた(水頭差は今回の試験条件では累積流出量への感度が低かった)。

室内要素試験による実環境効果を考慮した拡張モデルへの更新(Step2)

- 水質補正は原位置地下水を利用できない研究段階で必要となる情報である。Step1と同じ試験装置により、 幌延模擬地下水を用いた室内要素試験をとおして拡張を試みたが、今回の試験では両オプションともに緩 衝材の流出が検出できず、モデル拡張のための補正係数を得ることができなかった。その要因として、幌 延模擬地下水の利用に伴う"微細粒分"や細粒分の凝集や団粒化が想定された。ただし、原位置実規模1/4ス ケール試験の傾向とは異なるため(原位置では緩衝材の流出が確認されている)、室内要素試験に用いた 装置の構造やスケールに改善すべき課題が残されている可能性がある。
- 重力補正は今回の室内要素試験装置を横置きとしたために必要となる情報である(今回の要素試験のスケ ールが小さいため、堅置きにすると剥離した緩衝材が下部に溜まって流路の閉塞を加速する可能性があっ た)。試験点数に制約があったものの、両オプションともに横置きより竪置きの方が緩衝材の流出量が多 くなる結果が得られ、その理由に関する考察も得られた。

原位置実規模1/4スケールへの適用性の確認(Step3)

- 各オプションについて2つの原位置試験を実施し(短期の予備試験と長期試験)、複合的な原位置の環境 パラメータを単純化した長期試験との比較により流出量評価モデル(ベースモデルの拡張モデル)の適用 性が確認できた。ただし、比較対象の原位置試験が1つの長期試験しかないことに留意が必要である。
- ケイ砂充填オプションでは、流出量評価モデルで発現する累積流出量の初期の立ち上がりが原位置試験と は異なるものの、過大評価する流出量評価モデルは、室内要素試験で顕在化する"微細粒分"や装置設定の 影響(試験セルの小ささ、出口構造など)、原位置試験の試験点数の少なさなどの課題への対処により改 善の可能性がある(図2.6-8)。
- 隙間未充填オプションでは、同オプションを対象としたNUMO-SCに示される評価式の結果との比較も行い、①NUMO評価式、②今回整備した流出量評価モデル、③原位置実規模1/4スケール試験のいずれも累積流出量の経時変化の傾向が一致するとともに、その値は①>②>③の順となり、今回のモデルがより原位置に即した評価を示すという結果を得た。ただし、本オプションのベースとなる室内要素試験(Step1)の結果が真値を表現できていない可能性や将来の実事業に過度な要求を強いる可能性に留意が必要である。



図2.6-8 スケール効果を考慮した流出量評価モデルと原位置実規模1/4スケール試験の比較

4) 緩衝材の膨出挙動の把握に資する情報の取得

緩衝材の流出挙動の把握のために、幌延URLの深度350 m、試験坑道5の試験孔2において5か月 程度の原位置実規模1/4スケール試験を実施した。試験終了後、図2.6-7に示す緩衝材の膨出挙動の 概略を把握するため、ジャッキの取り外し時に緩衝材の膨出を抑制する鋼製蓋と上部フランジの 距離(変位量)を経時的に測定した。鋼製蓋の変位量は、30分間後には収束しており、平均で9 mm の変位量となった。すなわち、緩衝材の高さが約9 mm増加(膨出)したと考えられ、試験孔内に 定置した緩衝材の高さは500 mmであることから、元の高さに対して約2%増加(膨出)したこと となる。したがって、試験孔内に緩衝材を定置した後、緩衝材の膨出抑制対策として蓋を設置す る場合には、蓋の撤去の際に一定量の緩衝材の膨出が生じる可能性が高く、緩衝材の流出検討と ともに膨出量や膨出対策の方法を検討し考慮していく必要があると考えられる。

(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)研究方針(研究アプローチ)

2.6.1項で述べたように、本事業では、力学モデルをベースとした段階的なモデルの高度化を進めており、本フェーズでは多次元化や実規模スケールを解析対象とするモデル体系の構築、パラメータ値の設定手法を整備する。

これまでに、降伏曲面が飽和度に依存して変化するように弾塑性構成モデルを拡張し、不飽和 土の土/水連成問題を取り扱える解析手法を構築した。この解析手法により、室内試験スケール における緩衝材内部の密度分布の不均一性が残留したまま定常状態に至る過程を解析的に再現す ることが可能となった(原子力環境整備促進・資金管理センター, 2018a)。

本フェーズでは、飽和プロセスにおける緩衝材の隙間への膨潤を考慮した密度分布等の状態変 遷を評価できる解析手法の構築を行い、SP3における閉鎖後長期の性能評価の緩衝材の初期状態 に反映し得る情報を提供することを目的とした。具体的には、弾塑性構成モデルに塑性膨潤の概 念を取り込み、それを解析コードに実装することで、膨潤に伴う隙間充填挙動を表現し、乾燥密 度分布等の状態変化を予測する解析的手法を検討した。本検討における段階的な開発アプローチ を以下に示す。

- ・ 数値解析手法や構成モデルの高度化(例えば、Takeyama et al., 2015)がなされており、弾塑 性構成モデルの拡張が可能な土/水連成の有限要素法解析コードDACSAR-Iを用いる。
- ・ 解析領域は図2.6-9に示すように、小型試験体スケールから実規模1/4スケール、さらに実規模 スケールへと段階的に拡張し、解析手法の構築を進める。

小型試験体スケールの検討では、不飽和から飽和に至る過程の緩衝材の膨潤挙動が表現可能な 基礎的な解析モデルを構築する。実規模1/4スケールの検討は、小型試験体スケールで構築した解 析モデルを用いて原位置実規模1/4スケール試験の体系で解析を行い、原位置実規模1/4スケール 試験の実環境で想定される条件を踏まえて解析モデルの拡張を図る。また、実環境で想定される 課題となり得る事項を解析結果と原位置試験結果との比較・検証により抽出する。最後に、実規 模スケール試験の解析では、抽出した課題を踏まえて、実環境の条件を解析モデルに反映し、よ り精度の高い評価が可能な解析モデルの構築を目指す。本年度までに小型試験体スケールの検討 および1/4スケールの検討を実施した。なお、解析の設定や試験の条件の詳細については、令和4 年度報告書2.2.2(2)もしくは各年度の報告書を参照されたい。



図2.6-9 解析領域の段階的な拡張

2)状態予測手法(解析的手法)の開発

① 解析コード・材料パラメータの設定

本検討の解析には、有限要素解析コード群 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)のうちのひとつである DACSAR-I(Takeyama et al., 2015)をベースとした改良版を用いた。これは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が施されている。具体的には、土骨格の変形と間隙水圧の流れを連成 して解く、土/水連成有限要素解析手法を用いており、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ている。 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。これにより、緩衝材に用いられるベントナイト(あるいは、その 混合土)の膨潤挙動を表現する。

② 小型試験体スケールにおける基礎的な解析モデルの構築

(a) 不飽和からの浸潤過程における解析手法の整備(令和2年度)

解析の対象となるプロセスの概念図を図2.6-10に示す。試験体の形状が円柱状であるため、追跡する応答が軸対称問題と仮定し、解析モデルは二次元軸対称モデルとした。

ベントナイト供試体の初期寸法は、直径40 mm、高さ20 mm で均一な状態であると仮定し、初 期乾燥密度は2.0 Mg/m³、初期含水比は10 %とした。また、吸水による膨潤の余裕代として、供 試体の上部には隙間を設け、隙間を充填したときの平均乾燥密度が1.6 Mg/m³ になるように5.0 mmの隙間を設定した。



解析結果を図2.6-11に示す。供試体が膨潤し、上部の隙間を充填するまでに要した時間は、33.38 日であった。隙間充填過程において膨潤が先行した供試体上部(給水面から19 mm)の領域では、 35日以降に乾燥密度が回復し再圧密が生じている。一方、膨潤が遅れた領域である供試体下部で は、隙間充填後に緩やかに定常に向かう挙動であった。緩衝材内部では、隙間膨潤過程で生じた 乾燥密度の不均質な分布は隙間充填後に緩和され均質化に向かうものの、100日後の平衡状態に おいても、完全に解消されることはなかった。



図2.6-11 解析結果

(b) 小型試験体スケール試験による検証データの取得(令和2から4年度)

不飽和からの浸潤過程における解析結果の妥当性を確認するため、小型セル試験による検証デ ータを取得し、解析結果との比較を行った。本試験では、(a)の図2.6-10に示す一連の過程におけ る緩衝材の膨潤による変位、軸圧及び側圧を測定した。小型セル試験の結果を図2.6-12に示す。膨 潤量の経時変化から、既定の高さに達するまでに9日ほど要した。また、膨潤圧の経時変化から、 側圧については、供試体の膨潤に伴いピーク値である3.27 MPaまで急激に上昇し、膨潤圧試験過 程に移行するあたりで0.7 MPaまで急激に降下し落ち着いた。一方、軸圧については、膨潤圧試験 過程に移行した直後から徐々に増加し緩やかな上昇を続けた。



(c) 試験結果による解析結果の検証に基づく材料パラメータの検討

上記の②(a)の解析結果と小型試験体スケールの試験結果を比較すると、側圧のピーク値と供試体の膨潤速度に顕著な差異が見られたことから、材料パラメータを見直した。

(i) 水分特性曲線および透水係数モデルのパラメータセットの検討(令和2年度)

水分特性曲線と透水係数モデルのパラメータを見直した。先の②(a)解析で用いたパラメータセットは、ケイ砂30%混合クニゲルV1に対して実施された保水性試験の結果(鈴木・藤田,1999)に対して幅広い飽和度でフィッティングするように同定したものであったが、この水分特性のパラメータを高飽和度領域において、より保水性試験結果と調和的になるように見直した。また、透水係数モデルについては、透水係数に対する間隙比依存性に関するパラメータの膨潤応答への影響を解析的に把握し、試験結果と整合するパラメータを検討した。

膨潤圧の解析結果(図2.6-13及び図2.6-14)から、水分特性曲線及び乾燥密度分布のそれぞれの パラメータを変更することで、より試験結果に近づいた。透水係数モデルのパラメータは間隙非 依存性を大きくすると試験と解析の膨潤速度がより整合するが、透水試験結果とは乖離が大きく なるため、本設定が妥当と判断した。



図2.6-13 軸圧(黒線)と側圧の経時変化



図2.6-14 各パラメータでの乾燥密度分布(平衡時)

(ii) 不飽和弾塑性構成モデルに関するパラメータの検討(令和3年度)

自由膨潤過程において発現する最大側圧に関して、弾塑性構成モデルのパラメータのうち、不 飽和状態の力学応答に関連するパラメータとポアソン比を見直すこととした。調整後のパラメー タを用いた解析により得られた膨潤圧及び膨潤量の経時変化を図2.6-15に示す。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の最大値が室内試験の計測値と同等となり、、最大に 達する時刻もより早期となった。また、図2.6-16に示すように、緩衝材の乾燥密度分布の不均質が 残存する状態で平衡に至る過程を示すことが出来た。



図2.6-16 解析で得られた乾燥密度分布の経時変化(パラメータ見直し後)

③ 原位置実規模1/4スケール試験の条件を反映した解析手法の整備

(a) 解析対象

小型試験体スケールで検討した解析手法について、2.6.2(1)2)③の幌延 URL の深度350 m で実施した原位置実規模1/4スケール試験へと解析対象を拡張し、実環境の条件を反映した。解析体系および境界条件は、図2.6-7に示す原位置実規模1/4スケール試験の隙間未充填オプションに基づき設定した。

(b) 二次元解析への解析手法の拡張(令和3から4年度)

(iii) 解析モデル

二次元解析の解析モデルは、図 2.6-17 に示す緩衝材、岩盤、ケイ砂層(順に図中の薄灰、白、 クリーム色部分)からなる領域を解析対象とする。軸対称条件の下、緩衝材の上面および底面の 節点はそれぞれ鋼製プレートに接しており、半径方向の変位は許容され、鉛直方向の変位は拘束 される。内側面の節点は、中央の治具との離合はないものとし、鉛直方向の変位は許容され、半 径方向の変位が拘束される。また、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(解析ケース名:ケース 0)。



図2.6-17 二次元解析モデルの概要

(iv) 解析結果

図2.6-18にケース0における緩衝材外側面の側圧の経時変化を解析結果と試験結果を合わせて 示す。解析結果は、試験結果と同様に隙間が閉塞するタイミングで側圧が上昇し始め、単調増加 した後、平衡値に至る傾向となった。また、平衡圧は位置に依らず1.0MPa 程度の値を示してい た。一方で試験結果は、中央部で側圧が最も高く、次いで下部、上部の順となっている。これは、 水平方向の摩擦の影響で、上面および底面において外側面にむかう膨潤が拘束されたためと推察 される。



(d) 摩擦の影響等を反映した境界条件の検討(令和4年度)

(v) 摩擦の条件設定および解析ケース

摩擦が膨潤挙動へ与える影響を定性的に把握し、境界条件の反映方法を検討した。緩衝材の界 面には、ジョイント要素を設け、ジョイントの摩擦特性を与えるパラメータは、ベントナイトに 挟まれた炭素鋼の引き抜き試験(原子力環境整備促進・資金管理センター,2015)の結果から決 定した。本解析は、摩擦を考慮する界面のパターンによって、計3ケースを設けた。各ケースの境 界条件の概要を図2.6-19に示す。ケース1では上下面に、ケース2では内外側面に摩擦を考慮し、 ケース3では全界面について摩擦を考慮するものとした。



図2.6-19 摩擦を考慮した境界条件

(vi) 解析結果

各ケースの緩衝材の外側面における側圧の変化を図2.6-20に示す。摩擦を考慮したケース3では、 原位置試験と同様に中央部に近いほど側圧が大きくなる傾向が見られ、水平および鉛直方向の摩 擦を境界条件として設定する必要性が示された。

また、各ケースの緩衝材の乾燥密度分布の解析結果と原位置試験結果を図2.6-21に示す。摩擦 を考慮していないケース0と摩擦を考慮したケース1から3を比較するとほとんど差異が見られな い。これは、緩衝材の上面と底面で鉛直方向の変位が拘束されており、緩衝材内にほとんど鉛直 変位が生じないため、摩擦の有無にかかわらず同じような状態変化になったと考えられる。また、 原位置試験結果と解析結果を比較すると、原位置試験では、外側面側で1.3~1.7 Mg/m³程度の値 を示した。解析では、各ケースともに外側面側の乾燥密度が1.4 Mg/m³程度で平衡に至り、原位 置試験結果の傾向を概ね再現することができた。



図2.6-20 各ケースの緩衝材外側面における側圧の経時変化



図2.6-21 各ケースの緩衝材の乾燥密度の分布と原位置試験結果との比較

(e) 緩衝材内側面の拘束条件の検討(令和4年度)

原位置試験スケールの解析結果において緩衝材の側面に負圧が発生した。これは、緩衝材が内

側面から離合しない境界条件を設定していたことが原因と考えられた。そこで、緩衝材の治具からの離合を許容し、内側面と緩衝材の間にジョイント要素を設ける境界条件を検討した。

内側面にジョイント要素を設けたケース4と、設けていないケース0の解析により得られた側圧 の経時変化を図2.6-22に示す。ケース0では、内側面側と外側面側のいずれにおいても隙間充填の 期間に負の側圧が発生しているが、内側面からの離合を許容したケース4では負圧は解消されてお り、内側面側の治具からの離合を許容する境界条件が妥当な設定といえる。



2.6.3 5か年の成果と今後の課題

(1) 流出を抑制する工学的対策の具体化

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、緩衝材ブロックと孔壁 との隙間の処理に関する現時点で考え得る緩衝材の施工技術オプションを念頭に置き(ケイ砂充 填、隙間未充填、ペレット充填等)、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、将来の処分場の環境条件に応じて柔軟かつ迅速に施工技術オプ ションの選択を可能とするため、評価手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 を進めた。本フェーズに得られた成果と今後の課題について以下に要約する。

- 将来の実事業において適用する技術オプションの選択(最適化)の際に考慮すべき事項(評価項目)について、主に"工学的な観点"から包括的な整理を行い、3つの隙間処理オプション(ケイ砂充填、隙間未充填、ペレット充填)を先行的に検討の対象とした。これらの特性に関する定性的な整理は、現時点におけるエキスパート・ジャッジに基づく評価であるが、将来の技術選択を支援する客観的、かつ定量的な情報として整備(開発)を進めていく必要がある。
- 緩衝材流出特性の評価手法(方法論)の開発については、設定した研究方針に沿って、将来の実事業への活用を念頭に、処分孔環境に応じて適切なオプションを選択するための判断指標として、操業時に取得可能なパラメータ(処分孔内外水頭差、処分孔内湧水量)を評価項目として設定するとともに、判断指標の設定に関する考え方を整理した。併せて、判断指標

に沿って評価を行う際に必要となる緩衝材の流出量の評価手法の開発手順を方法論として構 築した。

- 更に、上述の方法論の適用性の確認のために、幌延URLの深度350 m試験坑道5の試験孔を用いた原位置実規模1/4スケール試験への適用性について検討を進め、見通しが得られた。
- ○特に、2つのオプション(ケイ砂充填、隙間未充填)に対する具体的なベースモデルの整備と 原位置への拡張をとおして、整備した緩衝材の流出量評価モデルが過度に安全側となる NUMO-SCに示される評価方法よりも適切に評価できる見通しを得た。また、緩衝材流出特 性だけではなく上述した技術オプションの選択(最適化)における幾つかの評価項目につい て、現時点におけるメリットやデメリットを示すことができた。
- 一方、上述した適用性の確認をとおして、緩衝材の流出量評価に影響を及ぼす予期せぬ挙動 (例えば"塩水による微細粒分の団粒化"など)、試験装置に関する改善点、試験点数の拡 充など、手法や方法論としての更なる高度化に向けた課題も具体化した。

(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

不飽和状態から飽和状態に至る過程における緩衝材の力学挙動を表現できるように弾塑性構成 モデルを拡張し、それを土/水連成有限要素解析コード:DACSAR-I(Takeyama et al., 2015)へ 実装することで基礎的な解析モデルを構築した。同モデルをベースとした段階的な開発計画に基 づき、本フェーズ迄に得られた成果と課題について以下に要約する。

- 小型試験体スケールで生起する不飽和から飽和に至る緩衝材の膨潤挙動と乾燥密度分布の変 遷を定量的に評価することが可能となった。
- 実規模1/4スケールに拡張した解析手法の検討では、原位置試験の水理や拘束条件の設定について検討し、緩衝材の界面における摩擦の影響、ならびに、緩衝材の内側面からの離合を考慮した解析手法により、原位置試験で見られた膨潤挙動および乾燥密度分布の傾向を概ね再現することができた。
- 実規模1/4スケールにおける解析では、摩擦が膨潤挙動に与える影響を把握するために、解析 モデルに摩擦の影響を取り入れた。ここでの摩擦に関するパラメータは、膨潤した緩衝材に 挟まれた炭素鋼の引抜試験結果(原子力環境整備促進・資金管理センター,2015)を基に設 定した。しかし、実際の膨潤過程の緩衝材境界面では、膨潤による乾燥密度の変化に伴い摩 擦係数が変動すると推測される。そのため、緩衝材境界面における摩擦が膨潤変形挙動に及 ぼす影響をより確からしく評価するためには、膨潤過程における緩衝材境界面の摩擦に関す る実験データを取得し、摩擦係数として反映する必要がある。このとき、現行のモデルでは 考慮されていない自重の効果を初期条件として設定することで、摩擦の有無による膨潤変形 への影響をより確からしく評価できると考えられる。
- 原位置試験では緩衝材ブロック内部に残留する封入空気が浸潤を妨げていた可能性がある。
 現行の解析モデルは、完全排気条件であり、間隙空気圧は大気圧平衡として扱っている。気
 層圧を考慮することで、より現実的な膨潤挙動の評価につながると考えられる。
- 実規模スケールの実際の処分環境では、緩衝材の隙間充填挙動だけでなく、膨出現象などが 乾燥密度に与える影響が大きくなると考えられる。膨出現象を表現できるように、現行の微 小変形理論に基づく解析コードの膨出挙動を表現するモデルへの適用性について確認する必 要がある。
- 今後、上述の検討をとおして把握された課題を含めて段階的なモデルの高度化開発に取り組むことで、過渡期の緩衝材の状態変遷の確からしい評価や閉鎖後長期の性能評価における初期条件に関する情報提供に繋げていくことが可能となると考えられる。

- Aoki, K., Sugita, Y., Chijimatsu, M., Tazaki, K. Impacts of thermo-hydro-mechanical experiments on the microbial activity in compacted bentonite at the Kamaishi Mine, Northeast Japan. Applied Clay Science, 47, pp.147-154, 2010.
- 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.
- Boggs Jr, S., Kwon, Y. I., Goles, G. G., Rusk, B. G., Krinsley, D., and Seyedolali, A., Is quartz cathodoluminescence color a reliable provenance tool? A quantitative examination. Journal of Sedimentary Research, 72(3), 408-415, 2002.
- 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.
- Else, T.A., Pantle, C.R., Amy, P.S., Boundaries for biofilm formation: Humidity and temperature. Appl. Environ. Microbiol, 69, No.8, pp.5006-5010, 2003.

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

- 福岡市教育委員会, 比恵遺跡群(24), 福岡市埋蔵文化財発掘調査報告書 第530集, 1997.
- 福岡市教育委員会, 博多(61), 福岡市埋蔵文化財発掘調査報告書 第556集, 1998.
- 福岡市教育委員会, 博多(123), 福岡市埋蔵文化財発掘調査報告書 第993集, 2008.
- 福岡市教育委員会, 比恵(66), 福岡市埋蔵文化財発掘調査報告書 第1237集, 2014.
- 福岡市教育委員会, 博多(148), 福岡市埋蔵文化財発掘調査報告書 第1266集, 2015.
- 原子力発電環境整備機構,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.
- 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29年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関す る技術開発事業 処分システム工学確証技術開発(第2分冊) – 人工バリア品質/健全性評価 手法の構築-緩衝材, 2018a.
- 原子力環境整備促進・資金管理センター, 平成29年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関す る技術開発事業 処分システム工学確証技術開発 平成25年度~平成29年度の取りまとめ報 告書, 2018b.
- 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.
- 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.
- 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.
- 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 一地 層処分研究開発第2次取りまとめー分冊3地層処分システムの安全評価, JNC TN1400 99-023, 1999b.
- 伊藤大知,小峯秀雄,諸留章二,関口高志,三浦玄太,ベントナイト原鉱石の膨潤圧特性から観た 緩衝材における膠結作用の定量評価の試み,第52回地盤工学会研究発表会,2017.
- 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.
- 木本和志,河村雄行,牧野仁史:粗視化分子動力学法による水和モンモリロナイトの組織構造シ ミュレーション, Journal of Computer Chemistry, Japan, 19巻, 2号, p.46-49, 2020.
- King, F. 2009. Microbially influenced corrosion of nuclear waste containers. Corrosion, 65, 223-251.
- 松本一浩, 菅野毅, 藤田朝雄, 鈴木英明, 緩衝材の飽和透水特性, 動力炉・核燃料開発事業団報告書, PNC-TN8410 97-296, 1997.
- 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.
- Morodome, S., and Kawamura, K., Swelling behavior of Na- and Ca-montmorilloniteup to 150 °C by in situ X-Ray diffraction experiments, Clays and Clay Minerals, 57, pp.150-160, 2009.
- 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, 2019.
- 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, 2020.
- 奈良文化財研究所, 左京三条一坊一・二坪の調査-第 478・486・488 次, 奈良文化財研究所紀要, 2012.
- 奈良国立文化財研究所, 1992年度平城宮跡発掘調査部発掘調査概報, 1993.

- 日本原子力研究開発機構, 平成24年度 地層処分技術調査等事業 高レベル放射性廃棄物処分関連 先進的地層処分概念・性能評価技術高度化開発 –巨大地震・津波を含む想定外事象への対応 -報告書 平成25年3月, 2013a.
- 日本原子力研究開発機構, 平成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, 2013b.
- 日本原子力研究開発機構,平成24年度 地層処分技術調査等事業 処分システム化学影響評価高度 化開発-6ヵ年研究成果の取りまとめ-平成25年3月,2013c.
- 日本原子力研究開発機構, 平成25年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発 報告書 平成26年3月, 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, 2016.
- 日本原子力研究開発機構, 平成28年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発 報告書 平成29年3月, 2017.
- 日本原子力研究開発機構, 平成29年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 処分システム評価確証技術開発報告書 平成30年3月, 2018.
- 日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 平成30年度 高レベル放射性 廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 ニアフィールドシステム評価確証技術開発報告 書 平成31年3月, 2019.
- 日本原子力研究開発機構,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.
- 日本原子力研究開発機構・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, 2022.

- 日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 令和4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5年3月, 2023.
- Nishigaki, A., Ohshima, S., Nakayama, K., Okada, M., Nagashima, U., Application of molecular orbital calculations to interpret the chlorophyll spectral forms in pea photosystem II, Photochem. Photobiol., 73, pp. 245-248, 2001.
- Norwood, D.E., and Gilmour, A., The differential adherence capabilities of two Listeria monocytogenes strains in monoculture and multispecies biofilms as a function of temperature. Lett. Appl, Microbiol., 33, pp.320-324, 2001.
- 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.
- Parkhurst, D. L., User's Guide to PHREEQC (VERSION2) A Computer Program for Speciation, Batch-Reaction, One-Dimensional Transport, and Inverse Geochemical Calculations, U.S. geological Survey, Water-Resources Investigations Report 99-4259, 1999.
- Perrot, F., Jouenne, T., Feuilloley, M., Vaudry, H., Junter, G.-A., Gel immobilization improves survival of Escherichia coli under temperature stress in nutrient-poor natural water. Water Res., 32, pp.3521-3526, 1998.
- Pruess, K., TOUGH2 A General- purpose numerical simulator for multiphase fluid and heat flow, LBL20700 Lawrence Berkeley National Laboratory, 1991.
- 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.
- SKB, Deep repository-engineered barrier system. Piping and erosion in tunnel backfill. 2-144 Laboratory tests to understand processes during early water uptake. SKB R-06-72, Swedish Nuclear Fuel and Management Co., 2008.
- 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.
- Stroes-Gascoyne, S., Hamon, C.J., Vilks, P., Gierszewski, P. Microbial, redox and organic characteristics of compacted clay-based buffer after 6.5 years of burial at AECL's underground research laboratory. Applied Geochemistry, 17, pp.1287-1303, 2002.

- Sun, W., Nešic, S. and Woollam, R.C., The effect of temperature and ionic strength on iron carbonate (FeCO₃) solubility limit, Corrosion Science, 51, 1273-1276, 2009.
- 鈴木英明,高山裕介,ニアフィールドにおける過渡期の熱-水-応力連成挙動に及ぼす緩衝材の 密度変化の影響評価(受託研究), JAEA-Research 2020-015, 2020.
- Takeyama, T., Tachibana, S. and Furukawa, A., A finite element method to describe the cyclic behavior of saturated soil, International Journal of Material Science and Engineering 2 (1), pp.20-25, 2015.
- 高山裕介,菊池広人,X線CT測定による膨潤圧試験中のベントナイトの吸水圧縮挙動の観察,土 木学会論文集C(地圏工学), vol. 77, No. 3, pp. 302-313. 2021.
- 高山裕介,佐藤大介,菊池広人,膨潤圧試験中のベントナイトの膨潤圧変化に与える吸水圧縮挙動の影響,原子力バックエンド研究, Vol.29, No.2, pp. 101-111, 2022.
- 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.
- Taniguchi, N., Suzuki, H., Kawasaki, M., Naito, M., Kobayashi, M., Takahashi, R., Propagation behaviour of general and localised corrosion of carbon steel in simulated groundwater under aerobic conditions, Corrosion Engineering, Science and Technology, Volume 46, pp.117-123, 2011.
- 谷口直樹,中山雅, IV. 各種環境での電気化学測定-原子力II(地層処分)深部地下環境における 炭素鋼の腐食モニタリングー,材料と環境, vol.67, No.12, pp.487-494, 2018.
- Yoshida, H., Yamamoto, K., Murakami, Y. and Matasuoka, K., Formation of biogenic ironoxide nodules in reducing sediments as an analogue of near-field redox reaction products, Phys. Chem. Earth, 31, pp.593–599, 2006.

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、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した。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した。



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 サブタスクの構成と実施概要

上記目的の達成のため、2章のニアフィールドの環境変遷の成果を踏まえ、4章のニアフィール ド性能の総合評価技術に成果を反映させることを念頭に、3つのサブタスク(図3.1-2)を設定し、 連携をとりつつ核種移行評価技術の開発を進めた。3つのサブタスクの実施概要を以下に示す。

(1) ニアフィールド岩盤中の核種移行評価技術の開発

結晶質岩および堆積岩を対象として、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。国内外の地下研究施設等の岩石試料を用いて、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。これらのデータをもとに、マトリクスや割れ目部の不均質性を反 映した核種移行解析モデルを開発する。原位置トレーサー試験データ等を活用し、開発したモデ ル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

鉄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、ニアフィールドの状態変遷を考慮した核種移行評価技術を開発する。鉄共存影響 については、鉄と核種との競合収着現象や鉄鉱物と核種との共沈現象に関するデータを、室内試 験や天然事例分析により取得する。セメント影響については、セメント共存下における緩衝材や 岩石中の核種やコロイドの移行データを取得する。取得されたデータや現象理解に基づき、鉄や セメント共存下での緩衝材および岩石の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、実際の深部環境で考慮すべき高炭酸濃度 条件下において、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、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・データベースの整備を行う。

(3) 有機物・微生物の影響評価技術の開発

有機物影響については、天然有機物と錯体を形成しやすい3価・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-有機物-岩石三元系モデルの開発に向けたデータ取得 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影響評価手法を構築する。また、 微生物影響については、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、これらの成果をもとに微生物と核種の相互作用モデルやパラメータを整備 し、微生物影響を考慮した核種移行解析に反映する。





図 3.1-2 本課題における3つのサブタスクとそれらの関係

3.2 ニアフィールド岩盤中の核種移行評価技術の開発

3.2.1 背景と目的

ニアフィールド岩盤中の核種移行を評価するためには、岩石中の割れ目や地下水等の特性、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等、 様々な影響要因やその核種移行への影響等を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を踏まえつつ、上記の各種影響等を 適切に考慮できる評価モデルの構築が必要であり、この際、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 いった視点を含めた方法論として整備しておくことが重要となる。

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した。このような技術開発は、先行事業 (日本原子力研究開発機構, 2013a; 2018)においても、結晶質岩および堆積岩のそれぞれを対象 に進めてきている。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 た割れ目やマトリクス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、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。このような双方の岩種の特徴と課題を踏まえ、結晶質岩としてグリムゼルや国内 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、室内試験によるデータ取得とモデル 構築を実施するとともに、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た(図3.2-1)。



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

3.2.2 主要な成果

(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花崗閃緑岩を主たる対象に研 究を進め、特に黒雲母等の形状や分布が核種拡散挙動に及ぼす影響に重要であることが示唆され たことを踏まえ、岩石中の黒雲母等の鉱物や間隙の不均質性の定量化と、不均質性を考慮した拡 散挙動の解析手法の開発を進めてきた(日本原子力研究開発機構,2018)。本事業では、グリムゼ ルの花崗閃緑岩を対象として、不均質場の粒子拡散解析によって、黒雲母等の層状ケイ酸塩鉱物 のサイズや配向性、静電的相互作用などが拡散挙動へ及ぼす影響の把握を試みた。さらに、国内 結晶質岩を対象に、黒雲母等の鉱物分布の不均質性および拡散に関するデータを取得し、これま でに構築してきたモデル等の適用性を検討した。

① 結晶質岩マトリクス中の不均質性を考慮した核種移行モデルの構築

グリムゼルの花崗閃緑岩中の黒雲母等の層状ケイ酸塩鉱物の配向性や連続性が核種拡散挙動に 及ぼす影響を定量評価するため、ランダムウォーク法に基づくPartridgeコードを用いた粒子拡散 解析を実施した。黒雲母含有率や配向性を変化された条件においてモデル解析で得られた実効拡 散係数を図3.2-2に示す。いずれの黒雲母の含有率においても、黒雲母の配向が拡散の方向と平行 の場合に、陽イオン加速と陰イオン排除の効果が顕著に表れており、45°の結果は平行と垂直の中 間的なふるまいとなる。また、黒雲母の含有率が高くなるほど、この効果はより顕著となること が確認できる。これは、黒雲母を平行に配置した場合、黒雲母の層間鉱物において陽イオン加速 の効果が主に拡散方向に引き起こされるのに対し、黒雲母を垂直に配置した場合、黒雲母ユニッ トの層状構造のベーサル面(1 mm×1 mmに設定した面)の不拡散の層によって、移行経路が遮断 される割合が高くなっていることと、評価断面方向に対して直交した方向への経路が増加するた め必要な移行距離が増加するためと考えられる。これらの結果から、黒雲母の含有率と配向性の いずれも陽イオン加速と陰イオン排除効果を含むイオンの拡散挙動に大きな影響を及ぼすことが 確認された。これらの解析結果は、これまでに実測されたグリムゼルの花崗閃緑岩の黒雲母等の 含有率や配向性も考慮すれば、その実効拡散係数データの傾向を概ね再現可能であり、黒雲母等 の含有率、配向性や静電的な相互作用を考慮したモデルの有効性が確認できた。



図3.2-2 不均質場モデル解析で設定した黒雲母分布モデル(上段)と拡散解析結果の陽イオン、 (ki (c) 2000 (c)

② 国内岩石を含む多様な結晶質岩への適用性評価

国内の結晶質岩の黒雲母等の鉱物分布の不均質性と拡散挙動との関係を評価するため、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)、花崗岩(岐阜県瑞浪市)を対象に、X線CT、偏光顕微鏡観察、EPMA分析、水銀圧 入法を実施した(表3.2-1)。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、間隙率は1-2%程度であることに加え、黒雲母等の含有率、連続性および 配向性地等については多様な特徴が確認された。また、これらの岩石試料を対象に、中性化学種 (HTO)、陽イオン (Na+またはCs+)、陰イオン (Cl-またはI-)を用いた透過拡散試験を実施した。 その結果、片麻状花崗閃緑岩では、比較的黒雲母の含有率が高いため、陽イオン加速や陰イオン 排除の効果が明瞭に観察されたものの、国内岩石で得られた傾向は、グリムゼルの花崗閃緑岩で 確認された傾向ほどは顕著ではなかった。本事業において、グリムゼルの花崗閃緑岩に加え、国 内外の多様な結晶質岩中の拡散データを取得した結果、黒雲母等の層状ケイ酸塩鉱物が、陽イオ ン加速や陰イオン排除を含む拡散挙動に重要な役割を果たしていることが確認できたものの、こ れらの効果は、黒雲母等の含有率のみで表現できるような単純な効果ではないと考えられる。今 後、多様な結晶質岩中の拡散挙動の表現するためのより一般化されたモデルを構築していくため には、黒雲母等の含有率や配向性のみではなく、黒雲母等鉱物内の間隙率や粒界間隙の連続性等 もあわせた定量化とモデル化を検討していく必要がある。

| 岩石 | 特徴 |
|--|--|
| 黒雲母花崗岩(茨城県笠間市稲田) 「「「「「「」」」 | 主成分鉱物として石英、アルカリ長石、斜長石、黒雲母を含む。 黒雲母は部分的に緑泥石に変質。間隙率は1.3 %程度。 【黒雲母評価】 含有率:5%程度(緑泥石含む) 粒子サイズ:数mm程度 配向性:ほとんどなし |
| 花崗閃緑岩(山梨県甲州市塩山) デmm | 主成分鉱物として石英、斜長石、アルカリ長石、黒雲母を含む。黒 雲母の多くは緑泥石に変質し、斜長石は部分的に方解石や緑れん 石に変質。間隙率は1.5%程度。 【黒雲母評価】 含有率:10%程度(緑泥石含む) 粒子サイズ:1mm以下がほとんど 配向性:ほとんどなし |
| 片麻状花崗閃緑岩 (愛知県幡豆町東幡豆) | 主成分鉱物として石英、斜長石、黒雲母、角閃石を含む。石英・斜 長石に富む部分と、黒雲母・角閃石などに富む部分が約5 mmの幅 で層状に繰り返す片麻状組織を示す。間隙率は2 %程度。 【黒雲母評価】 含有率:10 %程度 粒子サイズ:5 mm以上がほとんど 配向性:わずかにあり |
| 花崗岩(岐阜県瑞浪市) | 主成分鉱物として石英、アルカリ長石、斜長石、黒雲母を含む。黒 雲母の一部は緑泥石化。間隙率は1%程度。天然の割れ目付近では、 黒雲母含有率が高く(6%程度)、またセリサイト(絹雲母)を確認。 【黒雲母評価】 含有率:1%程度(緑泥石含む) 粒子サイズ:数mm程度 配向性:ほとんどない |

表3.2-1 国内の結晶質岩を対象としたX線CT画像、各種分析に基づく黒雲母等の特性評価結果
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比較的単純な割れ目特性を有する小規模なコア試料を対象に、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, 2018; Tachi et al., 2018)。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、室内試験による データ取得とモデル改良を進めてきた。

①複雑な割れ目特性を有する小規模試料の室内トレーサー試験

本事業での最初のステップとして、複雑な割れ目特性を有する小規模なグリムゼルの割れ目試 料を用いて、多様なトレーサー(HDO:重水,Cs,Se,NiおよびEu)を用いた室内トレーサー試験 と、より複雑な割れ目性状を考慮したモデルの改良を進めた。試験に用いたグリムゼルのコア試 料(割れ目の幅:約30 mm、長さ:50 mm)は、図3.2-3(a)に示すように、割れ目内にガウジ層 を挟み込んだより複雑な形状となっていることが確認できる。X線CT分析で得られた結果に対し、 割れ目面とガウジ領域を識別することによって、割れ目開口幅とガウジ領域の分布形状を定量的 に評価した(図3.2-3(b))。このような評価から得られた割れ目の開口幅、ガウジ領域の幅と厚さ 等を考慮して、図3.2-3(c)に示すように、①ガウジ領域の存在を考慮しないモデル、②割れ目領域 が割れ目全面に存在するモデル、さらに、③ガウジ領域の幅と厚さの定量評価結果を反映したモ デルを構築して解析を実施した。これらの解析結果とトレーサー試験結果を、Csを対象に比較し てみると(図3.2-3(d))、ガウジ領域の効果をより現実的に考慮したモデルによって、実測データ により近い結果が得られることを確認した。



図3.2-3 複雑な割れ目性状を有するグリムゼルのコア試料のトレーサー試験の評価:(a)割れ目 構造の評価方法、(b)割れ目開口幅の評価、(c)解析モデル、(d)解析結果と実測データとの比較

② 複雑な割れ目特性を有する大きな割れ目試料を用いた室内トレーサー試験

割れ目中の核種移行モデルを、原位置条件の割れ目に適用可能なモデルとしていくうえで、天 然の割れ目の不均質性をより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。具体的には、図3.2-4(a)-(b)に示すように、原位置試験トレーサー試験を予定しているグリムゼル原位置試験場の割れ目帯 の坑道壁面から割れ目を中心付近に含む20 cmほどの直径と長さのコア試料を採取し、割れ目周 辺の鉱物・間隙分布等を分析するとともに、収着・拡散試験および室内トレーサー試験を実施し た(図3.2-4(c))。 収着・拡散試験は、移行特性の異なるトレーサー(HDO: 重水, Cs, Se, Niおよ びEu)を対象として実施し、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や、収 着分配係数はEu > Ni > Cs > Seの順となり、割れ目部の方がマトリクス部に比べて分配係数がや や大きくなる傾向など、先行試験(Tachi et al., 2018)と概ね整合する結果が得られた。また、 約20 cmの大型コア試料を用いた室内トレーサー試験では、上記の先行研究や収着・拡散試験と同 様に、トレーサーの移行特性に応じた明瞭な傾向性(遅延の程度: Eu > Ni > Cs > Se > I)が確 認できた(図3.2-4(d))。



図 3.2-4 (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) 大型コア試料の採取状況、(c) 室内トレーサー試験の概念図、(d) 室内トレーサー試験で得られた破過データ

この室内トレーサー試験結果の解釈を目指して、X線CT等の各種分析手法を適用して、試験に 用いた大型コア試料の割れ目周辺部の不均質性の分析・評価を進めた。大型コア試料のX線CT測

定では、測定可能な試料サイズの制約から4つに分割(スライス1・4)して実施し、横断面のX線 CT画像(図3.2-5(a))から、主経路はスライス1-4まで連続していること、スライス1-2にかけ て主経路から分岐した割れ目が存在することが確認された。X線CT像に基づく開口幅分布の評価 から、主経路については、最大5mm程度で、1mm程度にピークをもち、一方、分岐割れ目につ いては、主経路と比較して開口幅が狭いことが確認された(図3.2-5(a))。また、図3.2-5(b)に示す ように、主経路割れ目周辺部のEPMA分析からは、開口部が不均質・不連続に存在している状況 や、割れ目中にガウジが挟み込まれている状況などが確認されたが、割れ目表面近傍が配向した 雲母層と、割れ目表層部には粘土鉱物層が存在している状況は、先行研究で観察された性状(Tachi et al., 2018)と同様であり、先行研究で構築された割れ目表面からマトリクスにかけての層状モデ ルを適用することが可能であると考えられた。このような複雑な割れ目性状を考慮してモデル化 を行うためには、ガウジの不均質な分布を定量的に把握することが重要であり、X線CT画像の解 析により割れ目中のガウジ分布を評価する方法について検討した。その結果を、X線CT像や割れ 目開口幅分布とともに、図3.2-5(c)に示す。これらの図を比較しながら、トレーサー移行方向に沿 って、移行経路の特徴をみてみると、まず、トレーサーの注入側では割れ目が分岐しており、断 面A・Cにかけて分岐割れ目が主経路割れ目につながっていることが確認できる。断面Aを含むス ライス1では、中央よりやや右寄りに、充填率が比較的低い開口割れ目が存在している。スライス 2では、上記の通り、ガウジの充填率が高く、移行経路は中央より右側の狭い範囲に限定される状 況が推定される。スライス3では、ガウジ充填率が高い中央付近を挟んで両側が移行経路となり、 スライス4では中央付近と左側に移行経路となりうるものと推定される。







図 3.2-5 X線CTやEPMA分析による割れ目部の不均質性の評価結果:(a) X線CTによる割れ目の 分岐と開口幅の評価、(b) EPMAによる鉱物分布、(c) 割れ目開口幅とガウジ充填率の分布評価

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、先行研究で 検討してきた手法(Tachi et al., 2018)を適用して、主経路割れ目を対象にデータを取得してきた。 その結果、図3.2-6に示すように、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、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状況が確認された。また、 上記のX線CT等で確認された分岐経路についても、同様の分析によって、主経路と同程度のトレ ーサー濃度が確認され、分岐割れ目がトレーサー移行経路の一つとなりうる可能性が示唆された。



図 3.2-2 室内トレーサー試験後の主経路割れ目表面上の収着性トレーサーの濃度分布

上記の割れ目部周辺の不均質性のX線CT等の分析結果からは、割れ目表層からマトリクスにかけての層状構造、割れ目内のガウジ層の不均質な存在、割れ目の開口幅や開口部の連続性、割れ目の分岐などが重要な要素として抽出された。また、割れ目表面のトレーサー濃度の分析結果からは、割れ目の一部領域を選択的に移行している可能性、流れが卓越した領域と停滞した領域(フロー・スタグナント領域)の寄与や、分岐した割れ目が移行に寄与していることなどが確認された。これらの考慮すべき不均質性に関する要素を考慮して、割れ目中のトレーサー移行の概念モデルとして、図3.2-7(a)に示すような平行平板モデルをベースに様々な要素を組み込んだモデルを解析コードGoldSimのセルモデルで構築して解析を行い、室内トレーサー試験で得られた複数のトレーサーの破過データの再現を試みた。

この概念モデルに基づく感度解析の結果、スタグナント領域の効果については顕著ではないこ とが確認されたことを踏まえ、スタグナント領域の効果を除くモデル要素を組み合わせた最適化 解析によって、室内トレーサー試験で得られた移行特性の異なる複数の元素を対象に、モデルと パラメータの最適化を検討した。まず、非収着性トレーサーであるヨウ素を対象として、移行経 路の特性の推定を試みた。図3.2-7(b)に示すように、20 cmの割れ目幅の1/3の移行経路、2.5 mm の割れ目の開口幅(ガウジ層の両側で全体で5 mm)、5 mmの割れ目表面の変質層(2.5 mmのガ ウジ層)の存在を仮定した場合に、ヨウ素の破過データを比較的良く再現することができた。さ らに、このヨウ素のデータをもとに導出したモデルに対して、Csの拡散・収着特性を適用するこ とで得られたCsの破過挙動は、図3.2-7 (c)(図中点線)に示すように、Csの実測された破過デー タの傾向を概ね再現可能な結果となった。しかしながら、Csの破過データは、70日付近でCs濃度 が減少しており、このような破過濃度の急激な現象とその後の濃度変化は、1つの移行経路では表 現することはできない。ここでは、1つの仮説として、主たる割れ目を移行している状態から、ト レーサー濃度が急激な減少が生じた70日付近で分岐経路が新たにトレーサーに移行経路として加 わることを仮定したモデル解析を試みた。具体的には、分岐した割れ目が移流経路として新たに 加わることを仮定して、この事象が生じた時刻と、2経路目との流量のバランスを最適化したうえ で、さらに、不確実性が大きいと考えられる割れ目表面の変質層とガウジ層のトレーサーの収着・ 拡散特性をパラメータに最適化を試みた。最適化により得られたCsの破過曲線(図3.2-7 (c)の実 線)は、実測データを概ね再現可能な結果が得られた。一方で、Niについては、図3.2-7 (c)に実線 で示すように、Csと比較して、最適化結果と実測データに乖離が確認された。



図 3.2-7 グリムゼルの岩石割れ目の核種移行モデルの概念図(a)と室内トレーサー試験の最適化 結果: (b)I, (c)CsおよびNi

以上のように、グリムゼルの20 cmの大型コアを対象に取得されたトレーサー試験結果に対し、 割れ目周辺の不均質性やトレーサーの移行経路等の分析情報に基づき、それらを反映したより現 実的なモデルの構築と実験データの再現性の検討を行った。その結果、移行特性の異なる複数の トレーサーの実験データを概ね再現可能なモデル・パラメータを導出することができた。しかし ながら、複数の移行経路の関与や、割れ目近傍のトレーサーの移行特性など、実験や観察からは 特定が困難な部分もあり、今後同様の試験データの拡充や分析手法の改良等を通じて、今回提案 したモデルの妥当性を確認していくことが重要である。

③割れ目中の核種移行の不確実性解析

上記②で検討したグリムゼルの大型コアを対象とした割れ目近傍の多様な不均質性要素を考慮 したモデルをもとに、これらの不均質性要素や核種の移行特性が、核種移行に及ぼす影響やその 重要度を分析するため、GoldSimの確率論的解析手法(図3.2-8(a))の適用を試みた。ここでは、 一例として、割れ目表面の変質層とマトリクス部からなる比較的な単純な系を対象に、割れ目中 の地下水の流速、変質層の厚さ、変質層およびマトリクス部の核種の拡散・収着パラメータを変 動させた不確実性解析を、非収着性のIと収着性のCsの2つの核種を対象に実施した。パラメータ セット生成コードであるLHSコード(LHS:Latin Hypercube random Sampling)を用いて、複数 の入力パラメータに対する設定値の範囲と分布形に基づきランダムサンプリングを行い、各サン プリングパラメータに対する核種移行解析を実施して、図3.2-8(b)に例示するようなパラメータ相 関の散布図を取得した。その後、GoldSimに備わる統計解析機能を用いることで、変動させた複数の入力パラメータと割れ目出口の核種の最大濃度比に対する偏順位相関係数(PRCC)の分析評価を行った(図3.2-8(c))。その結果、収着性のIは流速に加え、より深い領域までマトリクス拡散が生じるためにマトリクス部のDeが、最も影響が大きいパラメータとなる一方、収着性のCsについては、流速に加えて、割れ目表層の変質層のKaとDeが影響が大きいパラメータとなることが確認できた。このような不確実性解析手法を適用することによって、様々な割れ目部の不均質性を考慮するとともに、多様な核種移行特性とを組み合わせた不確実性解析を行うことで、割れ目部の多様な不均質性要素や核種移行特性が、核種移行に及ぼす影響度を分析することが可能であり、そのような系統的な分析評価を更に進めていく必要がある。



図 3.2-8 GoldSimの不確実性解析手法を適用した割れ目中核種移行に及ぼす重要因子の分析結果: (a)GoldSimの不確実性解析フロー、(b)パラメータ相関の散布図、(c)偏順位相関係数

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。

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3.2-9に示すように整理してきた。このアプロー チの主たる部分は、割れ目等の不均質性や収着メカニズムの影響に加え、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。これまでに、このアプローチに沿って、主に隆起シナリオを対象として、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、より精緻な核種移行解析手法の検討を進めてきた。さらに、精緻なモデルを 核種移行解析に適切に反映するための方法論を検討するため、図3.2-10に示すように、環境条件 変遷と核種移行現象の取扱いを、精緻なモデルから、中間的なモデル、さらに簡易なモデルへと 段階的に簡略化する手法を用いて、地質環境変遷を考慮した核種移行解析を試行し、それらの解 析手法の有効性評価を進めてきた。



図 3.2-9 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



図 3.2-10 地質環境の環境変遷とそれに伴う核種移行特性の変化を取り扱う核種移行モデルの 検討アプロ—チ:精緻・中間・簡易モデルの関係

隆起シナリオについては、これまでに図3.2-11(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たうえで、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してきた。核種移行解析に は、有限体積法による物質移行シミュレーションが可能なQPACコード(Quintessa, 2013)を使用 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を構築してきた(図 3.2-11(b))。



図 3.2-11 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)、500 mの割れ目中の 核種移行解析体系(b)、環境変遷を考慮した条件下での複数のモデル(精緻、中間、簡易モデ ル)によるCsの核種移行解析結果: (c) SRHP⇒FRHPの変遷、(d) FRHP⇒SRHPの変遷

このモデル体系をベースとした精緻、中間、簡易モデルの比較評価の一例として、地下水環境 の変遷を考慮した割れ目とマトリクス部(5 cmの変質層のみを考慮)からなる系でのCsの核種移 行解析結果(図3.2-11(c)-(d))を示す。ここで想定した環境変遷としては、海水系地下水(SRHP) から降水系地下水(FRHP)へ、逆に降水系地下水(FRHP)から海水系地下水(SRHP)へと、それぞれ 核種移行開始後の1万年 - 5万年にかけて変遷が生じる条件である。Csの収着の取扱いについては、 ここでは黒雲母のベーサル面でのイオン交換反応のみを対象に単純化した1サイトイオン交換モ デルを精緻なモデルとして適用した。一方で、中間モデルは、この1サイトイオン交換モデルで表 現される収着分配係数(Ka)と液相のイオン強度との関係式を設定して、間隙水のイオン強度に応 じてKaへ変動させる方法で解析を行った。さらに、簡易モデルでは、地下水変遷過程の設定した 時間に瞬時にKaを変化させる方法を適用した。2つの地下水変遷パターンに対する複数のモデル による核種移行解析を比較すると、SRHP ⇒ FRHPの変遷パターン(図3.2-11(c))では、精緻モ デルと中間モデルのいずれにおいても、SRHP ⇒ FRHPへの変遷に伴うKaの増加に伴って、概 ね整合的にCs濃度が低下していく傾向が確認できる。一方で、FRHP ⇒ SRHPの変遷パターン (図3.2-11(d))においても、精緻モデルと中間モデルのいずれにおいても、FRHPからSRHPへの 変遷に伴うKaの低下に伴って、生じる時間に差異はあるもののピーク上のCs濃度が双方で確認で きる。さらに、双方の変遷パターンにおける簡易モデルをみると、瞬時にKaを変化させることで、 Cs濃度の変化の方向性や程度は同様に表現できるものの、その変化の傾向を十分に再現すること は難しいといえる。これらの解析結果の比較から、ここで仮定した1サイトのイオン交換反応とい った比較的な単純な収着メカニズムを対象とした場合には、環境変遷に伴うKaの変化を中間モデ ルによって精緻モデルと同様な結果を得ることが可能であり、中間モデルの適用が可能であると いえる。しかしながら、より複雑なモデルを対象とした場合、例えば、複数の表面化学種を仮定 する表面錯体反応などにおいては、上記のような中間モデルの適用が困難になる可能性も想定さ れ、より多様な条件を対象に、同様の評価を検討していくとともに、その結果に基づき精緻モデ ルや中間モデルの適用方策を検討していく必要がある。

(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

先行事業において、粘土鉱物を主成分とする緩衝材ベントナイトを対象として、多様な核種と 環境条件に適用可能な統合収着・拡散(ISD)モデルの開発を進めてきた(Tachi et al., 2014; Tachi and Yotsuji, 2014)。ここで対象とする幌延深地層研究センターの泥岩マトリクス部についても、 この泥岩が20%程度の粘土鉱物を含んでいること、収着・拡散データがベントナイトと同様の静 電的な相互作用の影響を示すことなどを踏まえ、粘土鉱物を主体とした収着・拡散モデルを構築 してきた(Tachi et al., 2011; 2016)。本事業では、このような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、不均質な間隙特性の収着・拡散挙動への影響等をより精緻に評 価していく観点と、原位置において収着・拡散モデルを確証していく観点から研究に取り組んで きた。

① 幌延の泥岩マトリクス中の核種移行モデルの開発

幌延の泥岩マトリクスの鉱物分布や間隙構造評価は、深度350 mや500 m付近の泥岩試料を主たる対象として、先行事業(Tachi et al., 2011;日本原子力研究開発機構, 2013a; 2018)で様々な分析手法を適用して評価を進めてきた。例えば、図3.2-12(a)・(b)に示すナノX線CT分析結果からは、サブµm・µmスケールの比較的大きなサイズの間隙が岩石内部にある程度均質に存在することが確認できる。同図(c)に示すSEM像からも、比較的大きな鉱物粒子の隙間に粘土鉱物を含む鉱物が分布している状況が確認できる。一方で、同図(d)には水銀圧入法で得られた細孔径分布を示しており、岩石中の間隙を100 nm以下のサイズの間隙が支配的であることが確認できる。ここで、1 nm以下の粘土層間間隙は、水銀圧入法では測定できないために推定した値であった。

そこで、本事業において、間隙構造の不均質性の定量評価に有効な手法として、核磁気共鳴法 (Nuclear Magnetic Resonance, NMR)に着目し、幌延泥岩の間隙構造の不均質性の定量評価を評 価し、それらデータのモデルへの反映を検討した。NMRを用いた水分子の緩和時間(*T*₂)の測定に よって、泥岩の層間も含めた間隙幅の分布を定量化した。その結果、粘土鉱物の層間中の水(*T*₂ = 0.001 s)は全体の間隙率の数%であることが分かった。この結果は、上記先行研究の水銀圧入法等 から推定された値(3.5%)とも整合的であった。このNMRを用いて評価された層間間隙の間隙率 と水銀圧入法の結果とをあわせた間隙サイズと体積割合の関係を図3.2-13(a)に示す。

さらに、この間隙サイズ分布とこれまでに構築してきた狭隘間隙中の静電的相互作用を考慮した拡散モデル(図3.2-12(e)・(f))とを組み合わせて、当該岩石中のセシウムイオン(Cs+)、ヨウ素イオン(I-)、トリチウム水(HTO)の実測された実効拡散係数へ適用した結果を図3.2-13(b)に示す。

ここで、対象とする化学種の実効拡散係数は、この間隙分布をISDモデルに適用して、各間隙幅に 対する電気的収れん度を算出し、各間隙の体積割合を重みとした幾何学的因子および電気的収れ ん度を平均化処理することで算出した。ISDモデルは、HTOの実測データに基づいて幾何学的因 子を設定しているため、本解析のような多重間隙モデルにおいても整合的な結果が得られており、 このことは平均化処理が妥当であることを裏付けるものである。またCsイオンおよびIイオンに対 しても、ISDモデルによる計算結果が実測データの電解質濃度に対する傾向をおおむね再現して いることが確認できる。このことから、幌延の泥岩のような多重間隙構造を有する岩石を対象と した系においても、その拡散挙動が主にナノサイズの層間間隙を含めた間隙のサイズと静電相互 作用を考慮することによって評価できることが確認された。



図 3.2-12 幌延の泥岩(稚内層)を対象とした間隙特性分析結果((a)-(b):ナノX線CT像と間隙 分布、(c) SEMによる反射電子像、(d)水銀圧入法による細孔径分布)と拡散モデル概念((e)-(f))



図 3.2-13 幌延泥岩マトリクス中の間隙サイズ分布(a)とCs、HTO、Iの実効拡散係数の実測デー タへの拡散モデルの適用結果(b)

粘土鉱物を含む不均質媒体中の拡散モデルの開発

上記①に示したように、幌延の泥岩マトリクスを対象として、粘土鉱物が主たる物質移行経路 となることを仮定して、ISDモデルと間隙径分布とを組み合わせた拡散モデルの適用性を確認し た。一方で、幌延の泥岩中には、粘土鉱物が20%程度含まれるものの、オパールCTや石英を主成 分としており、これらの鉱物や間隙が物質移行にどう関与しているかを含めた理解が重要である。 これを踏まえ、堆積岩に含まれている粘土鉱物中の核種移行にISD拡散モデルを適用し、その他 の石英等の鉱物に関しては幾何学的な構造因子として影響することを仮定した不均質場の核種移 行モデルの検討を進めた。モデル解析は、核種の移行経路となる粘土鉱物(ベントナイト)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行う。ここでは、先行 事業(日本原子力研究開発機構, 2018)において花崗岩中の不均質場解析に適用してきたPartridge コードを用いて解析を実施した。

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。Kato et al.(1999b)では、クニゲルV1とケイ砂(粒径 ≈0.2 mm)あるいは 球状ガラスビーズ(粒径 =0.05・5.0 mm)を様々な比率で混合した円筒形の供試体(以下、混合 媒体と呼ぶ)中のHTOの実効拡散係数を測定して、その混合率依存性を評価している。実測デー タの傾向を再現するようなモデル化を行う際、モデルの適応限界や物理的背景を認識しておくた め、極端な混合率の領域も含め系統的にRWシミュレーションを行った。混合媒体のモデル化では、 立方体状の計算体系全体を1辺が200の格子に分割し、その最小単位を1セルとする。ケイ砂混合系 を模擬するため、2³セルを1ユニットとして、計算体系全体を100³ユニットで構成した。またガラ スビーズ混合系では、ガラスビーズのサイズに応じて1ユニットを設定し、そのユニットを単位と して計算体系全体を構成した。各ユニットは、物性の異なる2種類の構造物として、①クニゲルユ ニット(すべての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)。②ケイ砂ユニット(すべてのユニットは間隙率を設定し、さらにその間隙率に応じた実効拡散係数を設 定)のいずれかに設定した。粒子の実効拡散係数は、下流側端面における拡散フラックスの 経時変化をプロットして、1次元拡散方程式の解析解とのフィッティングにより算出した。

RWシミュレーションの入力値となるクニゲルV1中のHTO, CsイオンおよびIイオンの実効拡 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。混合媒体の幾何学的因子Gがゼロでない 領域の R_{sand} 依存性を、 $G(R_{sand}) = 1 - a \cdot R_{sand}$ の関数形でフィッティングして、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3.2-14に示した。ここで、幾何学的因子Gは、 混合媒体中の実効拡散係数 D_e^{mix} と、クニゲルV1におけるHTOの実効拡散係数 D_e^{bent} との比(G = D_{a}^{bent} をとることにより評価した。それぞれのイオンに対する傾きaの値は、Csイオンが $a \simeq$ 1.445($R^2 = 0.985$)、Iイオンが $a \simeq 1.444$ ($R^2 = 0.993$)、HTOが $a \simeq 1.479$ ($R^2 = 0.988$)となり整合的 な結果が得られた。また、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、シミュレーションの結果と有意な差は確認できるが、おおむね傾向性は一致した。 図中の緑の実線は、単純立方格子で格子化した場合のサイト・パーコレーションにおける浸透閾 値: R_{sand} ≈ 0.68839(Xu et al., 2014)に基づいて線形近似した理論曲線を表す。この場合の傾きは a ~ 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。 HTOの実測データとRWシミュレーションの結果に現れる有意な相違について、結晶構造の空間 充填率と浸透閾値との関係をもとに検討した。本解析では混合媒体のモデル化として単純立方格 子を採用したが、3次元体系の格子化としては他にもダイヤモンド格子、体心立方格子、面心立方 格子などによる格子化が可能である。これらの3次元格子に対して、先行研究に基づく経験式 (Scott and Kilgour, 1969)より、ランダム系の場合の浸透閾値を算出したところ、約0.75の推定値 を得た。この値は、Kato et al.(1999b)の実測データを線形フィットした場合に幾何学的因子Gが ゼロになるケイ砂体積分率R_{sand}の値(≅ 0.74)と整合する結果である。したがって、実測データと RWシミュレーションの有意な相違は、混合媒体の格子化に起因するものであると推察された。今 後の課題としては、実際の堆積岩に対してイオンをトレーサーとした実測データを対象に本解析 モデルの適用性を検証すること、また鉱物配置が異なる複数の混合媒体を作成してRWシミュレ ーションを実施し、混合媒体に対しても十分な統計を取ること、さらに鉱物サイズの不均質性を 考慮したモデル解析を検討することなどが挙げられる。



図 3.2-14 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:(a) HTO シミュレーション(赤)、Kato et al.(1999b)のHTO実測データ(青)。(b)Csイオン(赤)、Iイ オン(青)、HTO(黒)。緑実線は、サイト・パーコレーションによる理論曲線を表す。

③ 粘土鉱物へのCs等核種の収着機構の評価

幌延の泥岩を含めた堆積岩やベントナイトに含まれる粘土鉱物は核種移行において支配的な役 割を果たし、粘土鉱物の層間間隙や鉱物表面などにおける核種の収着・拡散挙動を理解すること は重要な課題である。ここでは、これらを対象とした計算科学的手法の適用性について検討した。 幌延の泥岩中に含まれる粘土鉱物(モンモリロナイト、イライト、バーミキュライト)がCs等核 種の収着を支配すると考え、先行事業(日本原子力研究開発機構, 2018)において、モンモリロナ イト等の粘土鉱物に対するCsの吸着形態について、NMR(¹³³Cs)法を適用した評価を進めてきた。 本事業では、NMR(¹³³Cs)スペクトルと、第一原理計算による理論的なスペクトル計算および機械 学習とを組み合わせた新しい構造解析手法を構築した。

第一原理計算を実施する粘土構造モデルとしては、2八面体型(Di-smect)および3八面体型(Trismect)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(Di-smect1、Di-smect2、Tri-smect)を作成した。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あと、 Quantum Espresso 6.5(Giannozzi et al., 2009)を用いて第一原理計算を適用し、構造最適化を行 った。¹³³Csのケミカルシフトは、最適化した構造に対してGIPAW計算(Pickard and Mauri, 2001) により評価した。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。機械学習による手法を適用する際、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。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(a)の3種類のハイパーパラメータを設定する必要がある。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、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、そのモデルを用い 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、適切な 機械学習モデルが構築されていることを確認した。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、先行事業で得られた0.7534 ppmおよ びー65.41 ppmとし、それぞれの条件での逆解析で得られたCsの位置を、図3.2-15に示す。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された。この ように、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て、 実験的に観測された¹³³Cs NMRスペクトルから粘土鉱物表面へのCs吸着構造を推定することが可 能となった。



図3.2-15 第一原理計算と機械学習を組み合わせた評価(逆解析)で得られたモンモリロナイト 表面上のCs位置: (a)ケミカルシフトが0.7534 ppm、(b)ケミカルシフトが-65.41 ppmの場合

④ 幌延の泥岩マトリクス中の核種移行モデルの原位置試験による確証

これまでの先行事業において、幌延深地層研究センターの地下350 m調査坑道におけるマトリ クス部を対象とした原位置拡散試験との連携によって、室内と原位置とのデータの整合性評価や モデルの適用性評価等を進めてきた(日本原子力研究開発機構,2018)。本事業では、より多様な 条件での原位置拡散試験手法と拡散モデルの適用性を確認する観点から、地下水の塩濃度条件に 着目して幌延の350 m調査坑道で実施された原位置拡散試験を対象に、これまでと同様の試験後 に採取されたオーバーコア試料の内部プロファイルの取得および原位置試験の解析評価と、それ らのデータをもとに塩濃度が泥岩中の拡散・収着挙動に及ぼす影響を評価した。

幌延URLにおける原位置拡散試験は、図3.2-16(a)に示すような体系での試験であり、先行事業

では原位置条件の模擬地下水(塩濃度0.23 M)を用いて、試験孔D05孔において実施された。本 事業では、これと全く同じ試験体系で異なる塩濃度条件で、D09孔(4%海水相当の塩濃度の模擬 地下水)およびD06孔(10%海水相当の塩濃度)を対象に、試験後の岩石中のトレーサー濃度分 布を取得した(図3.2-16(b))。これら塩濃度が異なる3つの条件の原位置拡散試験で得られた結果 のうち、Csを対象にトレーサー減衰データおよび岩石中の内部プロファイルとそれらの解析結果 を図3.2-16(c) - (d)に示す。ここでの解析は、GoldSimコード、PHREEQCコードの2種類のコード を用いて、原位置試験の円筒形を模擬したモデル体系での最適化解析を行った。図3.2-16(c)の GoldSimコードの最適化で得られたトレーサー減衰データや岩石中の濃度分布の再現解析では、 塩濃度の異なる3つの試験条件でのデータを概ね再現できている。このGoldSimの解析では、拡散・ 収着パラメータを一定の値として取り扱うのに対して、PHREEQCコードでは、多成分の平衡計 算と移行計算が可能であり、イオン交換や表面錯体モデルの取扱いも可能である。ここでは、幌 延の泥岩中の粘土鉱物(イライトとスメクタイト)によって核種収着が支配されることを仮定し た粘土ベースモデルを適用し、実効拡散係数をパラメータに最適化評価を実施した。PHREEQC コードと最適化ツールを組み合わせて得られた結果も、図3.2-16(d)に示すように、GoldSimコー ドの最適化結果と同様に、トレーサー減衰データや岩石中濃度分布データを概ね再現可能なこと が確認された。このように、両コードの最適化結果や得られたパラメータに若干の差異があるも のの、塩濃度に対する依存性を概ね整合的に再現することができ、モデルの適用性も含めて解析 手法の有効性と得られたパラメータの妥当性を確認することができた。



図3.2-16 幌延URLの350 m調査坑道におけるマトリクス部を対象とした原位置拡散試験の結果: (a) 原位置拡散試験の試験体系、(b) 試験後試料の濃度分布取得状況、(c) GoldSimコードおよび(d) PHREEQCコードによる解析結果

2) 堆積岩割れ目中の核種移行モデルの開発

幌延深地層研究センターの350 m調査坑道では割れ目部を対象とした原位置トレーサー試験が

実施されており、先行事業において、原位置試験をサポートする室内試験・分析データの取得を 進めてきた(日本原子力研究開発機構,2018)。本事業では、トレーサー試験後の岩石試料の分析 データを拡充するとともに、一連の取得データをもとに、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を構築・改良しつつ、トレーサー試験の解釈に取り組んだ。

① 幌延URLにおける割れ目中の原位置トレーサー試験の概要

割れ目を対象とした原位置トレーサー試験は、幌延URLの350 m調査坑道において、図3.2-17 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。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)。



図 3.2-17 幌延の泥岩中の割れ目を対象とした原位置トレーサー試験装置の概略図

② 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、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3.2-18(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3.2-18(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、選択的な複数の経 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3.2-18(b)に示すように、試 験後に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、流れが卓越した領 域と停滞した領域(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 3.2-18 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

③ モデル解析の方法

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、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。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出発点に、 様々な不均質性に係る要素を取り入れつつモデルの改良と適用性評価を進めた。具体的には、平 行平板モデルの解析体系をもとに、GoldSim コードの CellPathway オブジェクトを用いた解析 を行い、複数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モデ ル等を構築しつつ、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への適用性評価やパラメータの最 適化を行う方法で進めた。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 3.2-19 に示す。複数の移行経路を考慮したモデルは、 ー次元平行平板モデルの結果を重ね合わせるもので、一方で、フロー領域・スタグナント領域を 考慮したモデルでは、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。



図 3.2-19 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

ー連の取得データや様々なモデルの適用性評価の結果を踏まえて、最終的には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をもとに、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、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。ここで、パルスソースとコンスタントソースの双方を一貫したモデルとパラメータで最適化を行うが、両試験で観測された間隙水圧差(注入孔と揚水孔)の差異を補正するとともに、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によって解析の妥当性を確認した。

④ 解析結果と考察

上記の解析手法に基づき、間隙水圧比率の差異に応じて流速を補正した条件で、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り最適化を行った結果を図3.2-20に示す。 図(a)と(b)に示す非収着性の中性トレーサーであるウラニンの解析では、間隙水圧比率を補正する ことでパルスソースとコンスタントソースの双方の結果を概ね再現できる解析結果を得ることが できた。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1.7 m程度の移行距離を主たる移行経路と し、3-5 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 0.5 - 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。さらに、トレーサーの回収率についても、パルスソースとコンスタントソース の双方で、実測データに近い結果を得ることができた。



図 3.2-20 間隙水圧差を補正したウラニンの最適化結果: (a) パルスソース試験、(b) コンスタ ントソース試験

次に、非収着性ウラニンを最適化されたモデルとパラメータの妥当性を確認するため、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 データに対して適用性を評価した。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3.2-21に示す。幌延の泥岩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 係数を用いて解析した結果は、パルスソースおよびコンスタントソースの双方で、間隙水圧比率 を補正した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。



図 3.2-21 ウラニンで最適化されたモデル・パラメータに基づくMoの解析結果: (a) パルスソ ース試験、(b) コンスタントソース試験

一方、Csにおいては、収着分配係数の不確実性を考慮することで、同様に最適化を行いコンス タントソースの破過データを対象に、実測データと解析結果の比較を行った。その結果、図3.2-22(a)に示す通り、ウラニンとMoと同様により実測値に近い結果を得ることができた。さらに、コ ンスタント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3.2-22(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 最適化手法に加え、間隙水圧比率を補正することでパルスソースおよびコンスタントソースの両 方の破過曲線の傾向性を再現できることを確認した。幌延URLの深部地下環境で得られた複雑な 断層帯を対象とした原位置トレーサー試験を対象とした検討を通じて、複数の移行経路や流れの 不均質性等を考慮したより現実的な物質移行モデルとパラメータの最適化手法を組み合わせたト レーサー試験の解析評価手法を提示することができた。



図 3.2-22 ウラニンで最適化されたモデル・パラメータに基づくCsの解析結果: (a)コンスタン トソース試験、(b)割れ目表面の濃度分布

⑤ 原位置物質移行試験の妥当性の確認

本事業において、堆積岩については、幌延URLの泥岩のマトリクス部と割れ目部の双方を対象 として、室内試験と原位置試験とを組み合わせて、モデルの高度化と適用性評価を進めてきた。 上記1)で示したように、幌延の泥岩に含まれる粘土鉱物の特性や間隙構造を考慮して、幌延の泥 岩マトリクスを対象とした収着・拡散モデルを構築してきた。ここでは、本事業で検討してきた 幌延URLの350 m調査坑道での原位置物質移行試験(マトリクス部の拡散試験、割れ目部のトレーサー試験)で得られたデータを、先行研究を含めた室内試験データやモデル化結果と比較することによって、原位置試験で得られたデータの妥当性を評価した。なお、ここでは、原位置条件を含めて最も信頼性の高いデータが取得できている収着性トレーサーのCsを対象に評価を行った。

原位置・室内試験で得られた実効拡散係数(De)を図3.2-23(a)に示す。先行研究で得られた幌延 URLのHDB-6孔の深度500 m付近の泥岩中の拡散試験の結果から、陽イオンであるCsはHTOの Deよりも高く、塩濃度とともに減少傾向を示し、一方で陰イオンのIではその逆の傾向を示し、粘 土成分の狭隘間隙中の静電的な相互作用がイオンの拡散挙動に支配的な寄与をしていることが確 認されている(Tachi et al., 2011)。この傾向は、幌延の泥岩に含まれる粘土鉱物の特性や間隙構造 を考慮した拡散モデル(図中の実線)で表現可能である。原位置試験で得られたCsの拡散データ も、先行研究と同様に、塩濃度とともに実効拡散係数が低下する傾向が確認された。また、割れ 目部のトレーサー試験で得られた拡散データは、マトリクス部の拡散データより若干高い値とな ったものの概ね整合する結果となった。これらの比較から、350 m調査坑道の泥岩試料を用いた 原位置・室内試験で得られた一連の拡散データは整合的であり、HDB-6孔の500 m付近の試料の 拡散データとの差異も試料の間隙率等の違いから説明されると考えられる。

一方、Csの収着データの間隙水塩濃度やCs濃度に対する依存性とそのモデル化結果を図3.2-23(b)に示す。先行研究で得られた幌延URLのHDB-6孔の深度500m付近の泥岩の収着試験の結果からは、明瞭な塩濃度とCs濃度依存性が確認でき、これらの傾向は泥岩に含まれる主要な粘土鉱物であるスメクタイトとイライトのイオン交換モデルの組合せによって概ね再現されている(Tachi et al., 2011)。原位置試験で得られたCsの収着データも、塩濃度とともに低下する傾向が確認され、これらの傾向は上記先行研究の傾向とも定量的にも整合することが確認された。また、割れ目部のトレーサー試験で得られた収着データは、原位置拡散試験の結果と比較して1桁近く低い値となったが、この差異は、割れ目部のトレーサー試験では、より高いCs濃度での試験であることを考慮すれば妥当な傾向であるといえる。

以上の一連の室内・原位置試験データの比較から、原位置試験で得られたデータの妥当性が評価された。今後、原位置試験の対象とした間隙率や間隙特性を踏まえて、モデルの適用性も確認しつつ、深度に応じた岩石特性と物質移行特性の変化を定量的に把握していくことが重要となる。



図 3.2-23 本事業で評価を実施した幌延URLの350 m調査坑道における原位置トレーサー試験、 原位置拡散試験および室内試験で取得された物質移行パラメータの比較:(a)実効拡散係数、(b) 収着分配係数

3) 幌延のナチュラルトレーサー評価に関する検討

粘土質堆積岩は、透水性が極めて低い拡散バリアとしての性能が期待されており、諸外国でも これら岩石における長期にわたる拡散バリア性能の立証が中心的な課題となっている。これまで 幌延の堆積岩を一例に、地下水(間隙水)中に含まれる非収着性(弱収着性)の元素濃度プロフ ァイル(ナチュラルトレーサープロファイル;以下「NTプロファイル」と略す)をもとに、NTプ ロファイルの形成過程の解釈を試み、主要な物質移行プロセスの検討を進めてきた。

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)により、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。しなしながら、実測値との整合の良いパラメータの条件設定の 絞り込みには至らなかった。このことは、幌延の堆積岩を対象に移流・拡散を基本とした鉛直方 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した。そこで、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 能かどうかを試行した。

試行にあたっては、まず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 法の検討を行った。その後、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。また、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。さ らに、イオン交換反応および炭酸塩の溶解・沈殿反応を対象に、これらの反応をモデル化する際 に用いるパラメータの不確実性を考慮した解析を行い、モデル解析による実測値の再現性向上を 図るための検討を行った。一例として、図3.2-24にHDB-1孔を対象とした場合のイオン交換反応 に関わるパラメータの不確実性を考慮(幌延岩石を対象に得られたイオン交換反応に関わるパラ メータの一例を用いた解析に対し、イオン交換反応に寄与する粘土鉱物としてスメクタイトを主 とした場合のモデルに基づくパラメータやイライトを主とした場合のモデルに基づくパラメータ を不確実性として考慮)した解析結果と実測値(間隙水データは補正値)の比較を示す。結果と して、粘土鉱物に対するイオン交換反応や方解石と菱苦土石を端成分とした炭酸塩鉱物の固溶体 モデルに関わるパラメータの不確実性は、反応性元素の深度方向プロファイルの変化に与える影 響は小さく、実測値の再現性を著しく向上するには至らなかった。なお、イオン交換反応につい ては、粘土鉱物以外にOpalの寄与の可能性も示唆されるため、そのような反応を考慮することに よる反応性元素の深度方向プロファイルへの影響については、課題の一つとして残された。

幌延の地下施設を含む比較的広域な領域を対象にした場合、大局的には、東側から西側への地下水流動が支配的であることが推察されている(太田ほか,2007)。一方、本事業における評価では、各ボーリング孔における鉛直方向での流れ(物質移行)しか考慮されておらず、三次元的な地下水の流動によるNTプロファイルへの影響評価も必要である。また、地質環境の長期変動性を考慮する場合、氷期・間氷期における動水勾配の違いによる陸域部分での地下水流動への影響も示唆される(日本原子力研究開発機構,2016b)。今後、幌延におけるナチュラルトレーサー評価の信頼度を高める上では、現実的な水理場の評価結果も踏まえた検討が重要な課題となる。



図3.2-24 イオン交換反応に関わるパラメータの不確実性を考慮した解析結果(HDB-1孔)

3.2.3 5か年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、スイス・グリムゼルの花崗閃緑岩を対象に、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を開発した。さら に、スウェーデン・エスポやフィンランド・オンカロの海外URLの岩石試料や国内の結晶質岩試 料を用いた試験分析によって、多様な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を把握した。これらの結果から、黒雲母等が核種移行に重要な役割を果たす ことが確認できた一方で、多様な結晶質岩を対象とした核種移行モデルを構築するうえでは、黒 雲母等の含有率のみではなく、黒雲母等の鉱物内の間隙率や粒界間隙の連続性等もあわせた定量 化とモデル化が重要となり、今後はこのような核種移行モデルの一般化に向けた取り組みが課題 となる。

結晶質岩の割れ目部については、複雑な割れ目性状を有する大型のグリムゼルの割れ目試料を 対象に、室内トレーサー試験データを取得するとともに、試験後の岩石試料を対象とした割れ目 近傍の開口部やガウジ充填状況等の不均質性やトレーサー濃度分析を把握した。さらに、これら の情報をもとに、複数の移行経路や割れ目特性を推定しつつ、それらを反映した核種移行モデル の構築とパラメータの最適化解析を行い、複数の特性の異なるトレーサーの移行データを概ね再 現することができた。このように複雑な性状を有する大型の割れ目試料を対象に、核種移行デー タや不均質な割れ目特性の取得手法と、それらデータをもとに核種移行評価モデルの構築手法を 提示することができた。今後は、より多様な割れ目特性を有する試料を用いた室内試験や、より 大きなスケールの原位置試験等によるデータの取得やモデルの適用性評価を通じて、これまで構 築してきたモデルの妥当性を確認していく必要がある。

さらに、上記の個別研究成果をもとに、割れ目等の不均質性や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 等を考慮可能な核種移行解析手法を構築した。特に、性能評価への反映に向け、環境変遷や収着 現象の取り扱いが異なるモデル(精緻・中間・簡易モデル)を比較・分析することによって、性 能評価上で採用すべきモデルやパラメータの考え方などを提示した。今後は、マトリクスから割 れ目部の不均質性、収着等の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 行を評価するために、これまで構築してきた複数のモデルを統合化するとともに、原位置試験や 天然事例への適用性評価を検討していくことが重要である。

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、これまでに把握してきた幌延の泥岩マトリクスの間隙構造を反映した拡 散モデルを構築するとともに、粘土鉱物と他の鉱物の不均質場モデル中の核種移行をランダムウ オーク・シミュレーションで評価する手法や、粘土鉱物中のCsの収着・拡散の詳細メカニズムを 第一原理計算や分子動力学計算により評価する手法を構築した。このように幌延の泥岩マトリク ス部の核種移行特性を多面的に把握したほか、原位置拡散試験と室内試験とを組み合わせて、信 頼性の高い核種移行特性を評価する手法を提示した。今後は、幌延の泥岩マトリクス中の鉱物・ 間隙特性の不均質性を考慮したモデルの妥当性確認や、ここで構築した手法を泥岩とは特徴の異 なる堆積岩へ適用していくための検討が重要となる。

割れ目部については、幌延 URL で実施した割れ目中トレーサー試験を対象に、複数の移行経路 や不均質な流れ場を考慮したモデルの改良を進め、パルスソースとコンスタントソース試験にお ける間隙水圧差の差異に応じて、流速を補正して最適化を行うことにより、移行特性の異なる複 数のトレーサー(ウラニン:非収着・中性、Mo:非収着・陰イオン、Cs:収着・陽イオン)の実 測データを、概ね再現することが可能となった。これまでの検討を通じ、複雑な割れ目を対象と した原位置トレーサー試験結果に対し、複数の移行経路等を考慮したより現実的な物質移行モデ ルとパラメータの最適化手法を組み合わせたトレーサー試験の評価手法を提示することができた。 今後は、より多様な割れ目性状やスケールに対する原位置試験データを拡充し、これまでに構築 してきた評価手法やモデルの更なる改良と妥当性確認を進めていく必要がある。

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手法の改良を行った。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、粘土鉱物のイオン交換反応のより現実的なモデル・ パラメータや、炭酸塩鉱物による共沈反応を反映したモデル解析を試み、モデル解析と実測デー タの差異への影響はイオン交換反応の寄与の方が共沈反応よりも大きいことが予察的に示唆され た。なお、イオン交換反応については、粘土鉱物以外にOpalの寄与の可能性やその影響について も今後検討する必要がある。これまでの検討を通じ、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のアプローチとして、幌延の堆積岩を例に、非収着性および反応性元素の 深度プロファイルの解釈評価手法を構築した。今後は、多様な鉱物・地球化学プロセスや地下水 流動影響なども考慮した評価手法の更なる改良や妥当性確認が課題となる。

3.3 システム変遷等を考慮した核種移行解析モデル/データベースの開発

3.3.1 背景と目的

ニアフィールドシステムの長期的な環境変遷と核種移行を評価するうえでは、ガラス固化体、 オーバーパック、ベントナイト緩衝材および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。このため、 先行事業として実施してきた「処分システム評価確証技術開発」(日本原子力研究開発機構,2018) や2章や4章に示したニアフィールドシステム長期変遷評価に関する成果を活用しつつ、複数のバ リア材の間で生じる相互作用によるニアフィールド環境の変遷や地下水条件等の地質環境の長期 変遷等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とした。本サブタスクでは、(1)オーバーパック等から生じる鉄共存が緩衝 材や岩石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) オーバーパック等から生じる鉄共存が緩衝材や岩石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、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。具体的な課題と しては、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Se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、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の影響 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。具体的な課題として、緩 衝材については、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、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。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 主要な成果

(1) オーバーパック等から生じる鉄共存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

鉄製オーバーパックの腐食によってFe(II)イオンが供給され、緩衝材の間隙水中のFe(II)濃度が 高くなると、放射性核種がベントナイトに対して収着する際にFe(II)と競合し、放射性核種の収着 が抑制される可能性がある。しかしながら、実験によりFe(II)との収着競合を調べた例 (Soltermann et al., 2014)は少なく、収着競合が起こる条件を系統的に評価した報告はない。この ような背景から、先行事業(日本原子力研究開発機構, 2018)から継続して、本事業ではFe(II)が 種々の元素の収着に及ぼす影響を系統的に調べてきた。具体的には、緩衝材中において収着を支 配する粘土鉱物であるモンモリロナイトを対象とし、モンモリロナイトのエッジサイトにFe(II) が収着する溶液条件におけるNi(II), Pb(II), Eu(III), Am(III)およびNb(V)の収着分配係数(Ka)をバ ッチ収着試験により調べた。

バッチ収着試験の結果、Fe(II)と価数が異なるEu(III)、Am(III)およびNb(V)のKaはFe(II)の影響 をほとんど受けておらず、収着競合は顕在化しないことが確認された(図3.3-1(a))。また、2価 の金属元素では、NiのKaはFe(II)共存下では低下していたものの、PbのKaはFe(II)の影響を受け ていなかった。これらの結果から、Fe(II)と化学的性質が類似していると収着競合が起こることが 確認され、化学的性質により収着するサイトが異なるためであると考えられた。Fe(II)の存在が他 の元素の収着に及ぼす影響を定量的に評価するため、幅広い溶液条件においてモンモリロナイト のエッジサイトに対するFe(II)の収着試験を行い、熱力学的収着モデルである2SPNESC/CEモデ ル(Bradbury and Baeyens, 1997; 2005a)を用いて収着パラメータ(錯生成定数)を取得した。こ れにより、Fe(II)の収着挙動を予測することが可能となった。得られた収着パラメータを用いて Fe(II)とNiの収着競合試験の結果の再現を試みたところ、Fe(II)の存在によりNiのKaが低下する 傾向を再現できたものの、収着モデルによる予測値は実測値よりも低くなる傾向がみられた(図 3.3-1(b))。この要因として、2SPNE SC/CEモデルでは考慮できていない、元素に特異的な収着 サイトが存在することが考えられ、より正確に再現するにはより複雑な収着モデルの導入が必要 である可能性が示唆された。しかしながら、複数の粘土鉱物や核種が存在する実際の環境への収 着モデルの適用を考えた場合、パラメータに一貫性と整合性を持たせる観点から、モデルは簡易 的なほうが望ましい。モデルは複雑になると必要となるパラメータの数も増えることから、 2SPNE SC/CEモデルを用いることで、Fe(II)の影響を考慮しつつ、過度に保守的でないKaの予測 が可能となると考えられた。

以上より、Fe(II)の存在がモンモリロナイトのエッジサイトに対する種々の元素の収着に及ぼ す影響を系統的に調べた結果、Fe(II)と化学的性質が似ているNi(II)ではKaの低下がみられたもの の、その他の元素ではKaはほとんど影響を受けないことが確認された。また、Fe(II)と収着競合が 生じるNi(II)であってもKaの低下は最大で1桁程度にとどまっており、これまで本事業の4章にお いて得られてきた緩衝材の間隙水のpHやFe(II)濃度を考慮すると、Fe(II)の収着に対する影響は 限定的であると推測された。





2) 鉄酸化物鉱物によるSeの固定化

高レベル放射性廃棄物に含まれるSe-79は半減期が長く、陰イオンの化学形をとることから粘土 鉱物に収着しにく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。一方で、鉄製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鉄酸化物鉱物は、 Seとの相互作用により移行遅延効果をもたらす可能性が報告されている(例えば、Scheinost and Charlet, 2008)。その効果を地層処分の性能評価に反映させるためには、鉄酸化物鉱物によるSe の取り込みのメカニズムを明らかにする必要がある。地層処分環境ではマグネタイトが長期間に わたって安定に存在する鉄酸化物鉱物として想定されている。そこで、本事業ではマグネタイト の前駆物質の水酸化第一鉄(Fe(OH)₂)を対象とし、Seの取り込み挙動と鉱物相変遷に伴う保持挙動 について、pH条件を変化させることによってSeとFe(II)の反応プロセスを変化させて共沈および 収着試験を行い、得られた固相をX線回折(X-Ray Diffraction; XRD)測定やX線吸収微細構造(Xray Absorption Fine Structure; XAFS)測定、走査型透過X線顕微鏡(Scanning Transmission Electron Microscope; STEM)観察等の種々の表面分析手法を用いて分析を行った(図3.3-2(a))。 さらに、液相の分析を行い、その結果を熱力学的に解釈することにより、鉄製オーバーパックと 緩衝材の界面で生じるSeの取り込み反応を推定した(図3.3-2(b))。







反応させるSeの化学種をSe(-II)とした場合、中性付近のpHでは共沈によりBセレン化鉄(B-FeSe)が生成し、溶液中からSeが迅速かつ効率的に取り除かれた。熱力学計算上、中性付近のpH では8セレン化鉄は広い範囲のSe濃度と様々な鉄腐食生成物と平衡Fe(II)濃度において析出する ことができる。したがって、このような溶液条件の場合、Seはニアフィールド領域で安定に固定 化されることが示唆された。一方、反応させるSeの化学種をSe(IV)とした場合、中性付近のpHで はSe(0)が生成しており、水酸化第一鉄との酸化還元反応により生じたと推定された。水酸化第一 鉄は鉄製オーバーパックの腐食によって生成する最初の相の一つであることから、このような溶 液条件では、Seは0価で沈殿して固定化されると推定された。高pH条件でも、反応させるSeの化 学種をSe(-II)とした場合、Bセレン化鉄が生成して溶液中からSeが迅速かつ効率的に取り除かれ ていた。また、反応させるSeの化学種をSe(IV)とした場合、中性付近のpHで生じたSe(0)よりもさ らに還元されてBセレン化鉄が生成していた。したがって、Seの初期の酸化状態にかかわらず、少 なくともSeの固定化の初期段階はBセレン化鉄が制限することが確認された。しかしながら、熱力 学計算では、Bセレン化鉄の析出に必要なFe(II)濃度は中性付近のpHのものよりも高くなり、Se濃 度が低いとBセレン化鉄として析出できないと考えられた。固相を熟成させると、中性付近のpH ではSe(-II)およびSe(IV)ともにフェロセライト(FeSe2)が生成したことから、フェロセライトが熱 力学的に安定なSeのシンクであり、長期的に保持されると考えられた。一方、高pH条件ではBセ レン化鉄の一部が溶解してSeが放出されるものの、大部分のSeがBセレン化鉄として保持される ことが確認された。

これらの一連の試験により、鉄製オーバーパックと緩衝材の界面で想定される環境条件とその 変遷状態に応じて生じる可能性の高いSeの取り込み現象と安定性を推定することが可能となった。

3) 硫化鉄鉱物によるSeの固定化

Se-79の移行遅延効果をもたらす現象として、2)で挙げた鉄酸化物鉱物による取り込みに加え、 パイライト(FeS₂)やマッキナワイト(FeS)等の鉄硫化物鉱物との相互作用が考えられる。パイライ トは母岩や緩衝材のベントナイト中に含まれ、Seはパイライトとの共沈や収着反応によって迅速 かつ効率的に取り込まれること(例えば、Charlet et al., 2012)や、パイライトの構造中のSと置 換すること(例えば、Matamoros-Veloza et al., 2014)が報告されている。マッキナワイトも構 造中にSeを取り込むことができること(例えば、Finck et al., 2012)が知られているが、先行研 究では最大8日間程度の短い期間の熟成しか行われていないため、Se保持の長期的な挙動は不明 である。これらの背景から、FeおよびS(HS-またはS_n²⁻)に富む環境において鉄硫化物鉱物がSe を取り込むメカニズムと長期的なSeの保持挙動を明らかにすることを目的として、Seの鉄硫化物 鉱物による共沈試験を実施し、生成した固相のXRD測定やXAFS測定による分析を行った(図3.3-3(a))。

共沈試験の結果、Sの化学形にかかわらず、溶液中のSeの大部分が固相に取り込まれ、最大137 日間の長期間の熟成後においてもSeは固相に取り込まれたままであった。XRD測定の結果、生成 した固相は結晶性の低いマッキナワイトであった。固相を熟成させるとマッキナワイトの結晶性 は増加し、反応させるSの化学種をSⁿ²⁻とした場合はパイライトの生成も確認された。固相に取り 込まれたSeの構造をXAFS測定により調べた結果、X線吸収端近傍構造(X-ray Absorption Near Edge Structure; XANES)スペクトルの形状はフェロセライトまたはSe(0)のものと似ており、熟 成後も変化していなかった。また、XRD測定でパイライトの生成が確認された条件では、XANES スペクトルの形状はパイライトの結晶構造中に取り込まれたSeのもの(Matamoros-Veloza et al., 2014)と酷似しており、広域X線吸収微細構造(Extended X-ray Absorption Fine Structure; EXAFS)スペクトルの解析結果からも、Seはパイライトの結晶構造中に取り込まれていると考え られた。

これらの一連の試験により、ニアフィールド環境において鉄製オーバーパックの腐食によりFe が供給されると、Sに富む環境の場合、Seはマッキナワイトとの共沈により取り込まれ、長期間安 定に存在する可能性が示された。また、一部の条件ではパイライトが生成し、Seはその結晶構造 中に取り込まれることが確認された。今後、図3.3-3(b)に例示するような計算科学的手法を用いる ことで、マッキナワイトやパイライト中のSeの配置がこれらの鉱物の長期的な熱力学的安定性に 与える影響を評価できると考えられる。



図3.3-3 生成した固相の表面分析による評価と推定された構造: (a) X線分析による硫化鉄鉱物のSe取り込みメカニズムの評価, (b) 計算科学的手法によるSeを 取り込んだマッキナワイトの構造の推定

4) 幌延の泥岩中の鉄鉱物とSeとの相互作用

3)の室内試験の結果から、硫化鉄鉱物が地層処分環境においてSeの移行遅延反応として重要な 役割を担う可能性が示された。しかしながら、室内試験と比べて、地層処分環境において廃棄体 から放出されるSeの濃度は非常に低く、反応期間も非常に長いことから、室内試験で得られた結 果と実際の処分環境で起こる反応は異なる可能性がある。天然環境中における長期的な核種移行 挙動を理解する手法として、ナチュラルアナログ研究が挙げられる(例えば、Mizuno et al., 2022)。 本事業では、Seの移行遅延に関するナチュラルアナログとして、北海道幌延地域で得られた深部 堆積岩を対象として天然環境中におけるSeの存在形態を調べた。岩石中のSeの化学形態や分布を 調べるために逐次抽出試験や放射光を用いたマイクロ蛍光X線(micro X-Ray Fluorescence; μ-XRF)測定およびXAFS測定を行い、深部地下環境におけるSeの長期的な保持メカニズムを考察し た(図3.3-4)。

試料は日本原子力研究機構幌延深地層研究センター(Underground <u>R</u>esearch <u>L</u>aboratory; URL)(幌延URL)周辺で実施されたボーリング調査で得られた堆積岩のコアの様々な深度から堆 積岩を採取して用いた。Seの逐次抽出試験(Kulp and Pratt, 2004)の結果、抽出された全Se量のう ち約37~59%がパイライトに取り込まれているかフェロセライトとして存在していることが確認 された。岩石中のSeの分布を調べるためにµ-XRF測定による元素マッピングを行った結果、Seは スポット状に存在し、Seの濃集スポットにはFeおよびSが存在することが確認された。Seの濃集 スポットに対して実施したSeおよびFeのµ-XAFS測定の結果から、Seはパイライトの結晶構造中 に取り込まれた状態で0または-I価として存在することが示された。Seの濃集スポットを走査型 電子顕微鏡(Scanning Electron Microscope; SEM)で観察すると、微生物反応によって生成したと 考えられるフランボイダルパイライトが確認された。



図3.3-4 種々の分析手法を組み合わせた幌延の堆積岩中のSeの構造と取り込みメカニズムの推定 手法の概要

堆積岩に含まれるSの安定同位体比(δ³⁴S)を調べたところ、採取地点や深度によるばらつきは少 なく、約-34.3 - 24.7‰の低い値を示した。このことから、本事業で確認されたSeを結晶構造に 取り込んだフランボイダルパイライトは、隆起後の閉鎖系で生成したのではなく、硫酸イオンが 豊富に存在する海底堆積直後に生成した可能性が示唆された。また、フランボイダルパイライト 生成後は、酸化的な地下水と接触せず、堆積時から現在まで長期的に安定であったと考えられる (岩月ほか, 2009)。室内試験結果(Diener and Neumann, 2011; Diener et al., 2012; Finck et al., 2012)との比較から、Seはパイライトの生成時に取り込まれたと考えられるが、これまで実施 されてきたナチュラルアナログ研究(Matamoros-Veloza et al., 2014)では、Seの結晶構造への取 り込みは自形のパイライトでのみ確認されていた。本事業では、堆積岩中において微生物による 硫酸還元反応によって初生的に生成するフランボイダルパイライトの結晶構造中にSeが取り込ま れることを初めて明らかにした。

上記の多様な分析手法の組合せにより、これまで室内試験で報告されている硫化鉄鉱物へのSeの取り込み反応が天然環境でも起こりうることを確認した。今後、天然事例の分析や天然試料を用いた室内収着試験の結果を拡充することで、長期時間スケールでのSeの移行遅延の現象モデルの構築と性能評価への反映が可能となると考えられる。

(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、セメントと反応し た地下水と緩衝材との反応によっ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となる。そのうち、本事業においては、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に着目した。先行事業(日本原子力研究開発機構,2018)において構築し てきたデンドリマーコロイドを用いた圧縮ベントナイト中のコロイド移行特性評価手法を活用し、 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。具体的には、先行事業で、主に密度0.8 Mg/m³の条件でデータ取得・ 評価手法を構築してきたのに対し、本事業では、乾燥密度1.2 Mg/m³および1.6 Mg/m³のより高密 度の条件において、5.7 nmのサイズのデンドリマーコロイドを用いて、Na型とCa型ベントナイ トの差異や、乾燥密度や間隙水イオン強度の差異に着目してデータ取得を進めてきた。さらに、 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・ろ過データ取得も進めてきた。

ここでは、乾燥密度0.8 Mg/m³のNa型ベントナイトを対象に、5.7 nmと7.2 nmのサイズの異な るデンドリマーコロイドの試験データと評価結果を例示する(図3.3-5)。高濃度側の濃度減衰デ ータおよび低濃度側の破過データ(同図(a-1)および(a-2))から導出された実効拡散係数は、7.2 nm のデンドリマーコロイドで得られた値の方が、5.7 nmのコロイドで得られた値よりも低い値とな った。コロイドサイズが大きいほど、物理的なサイズの影響による幾何学的な狭窄度と静電的な 狭窄度の双方の影響によって拡散係数が小さくなる傾向は妥当であり、サイズの異なるコロイド の妥当な拡散係数が評価できていると考えられる。さらに、実効拡散係数を導出した際の実効拡 散係数と形状因子からは同図(b-1)および(b-2)に示す実線で示す濃度分布が予測される。しかしな がら、実測された濃度分布からはより高い濃度のデンドリマーがベントナイト間隙水中に存在し ていることが確認でき、このことは、デンドリマーコロイドがベントナイト中の狭隘間隙中を移 行する過程でろ過されたためと考えられる。実測の濃度プロファイルに拡散方程式をフィッティングさせた図中の破線と実線との差から、デンドリマーコロイドのろ過率を評価した結果、7.2 nmのコロイドでは平均64 %、5.7 nmのコロイドでは平均55 %となった。サイズが大きい7.2 nmのコロイドの方でろ過率が高く、妥当な結果となった。先行事業では実効拡散係数のみを評価してきたが、このような方法でろ過率を評価することができ、また、ろ過率の空間的な分布を定量評価することで、従来把握が困難であったベントナイト中の間隙サイズや連続性に関する情報を得ることができると考えられる。

本事業で取得された一連の試験結果から、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、間隙水のイオン強度の差異によらず、乾燥密度1.2 Mg/m³ 以下の条件では破過し、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。さらに、異 なるサイズのデンドリマーコロイドを用いた試験結果から、それぞれデンドリマーサイズの違い を反映した妥当な試験結果を取得できていることが確認され、上記のコロイドのろ過・破過の境 界となる密度条件はコロイドサイズを変化させても変わらない結果となった。このように、デン ドリマーコロイドを用いることで、ナノサイズのコロイドの移行・ろ過挙動の把握や、これらの コロイドで移行可能な間隙の連続性等を把握することが可能となった。今後は、実際の処分で緩 衝材として用いられるベントナイトやケイ砂混合ベントナイトを対象に、コロイドのサイズや間 隙水の特性等との関係を含め、コロイド移行メカニズムの把握やろ過機能の発現条件を評価して いく必要がある。



図3.3-5 (1) 乾燥密度1.2 Mg/m³のNa型ベントナイト中の7.2 nmおよび(2) 5.7 nmのデンドリマ ーコロイドの拡散試験データと解析結果:

(a) 高濃度側の濃度減衰と低濃度側の破過データ, (b) 試験後のベントナイト中の濃度分布

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る高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、さらに核種移行挙動への影響が 生じることが想定される。本事業では、幌延URLの原位置条件で10年以上にわたりセメント系材 料と泥岩とが接触した試料を対象として、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検討を進めた。

対象とした試料は、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 <u>Cement</u>; HFSC)の接触界面試料であり、電子線マイクロアナライザー(<u>Electron Probe</u> <u>Micro Analyzer</u>; EPMA)、エネルギー分散型X線分光法(SEM/Energy Dispersive X-ray Spectroscopy; SEM/EDS)およびレーザーアブレーション質量分析(Laser Ablation-Inductively <u>Coupled Plasma Mass Spectrometry</u>; LA-ICPMS)などの分析手法を組み合わせて、岩石とセメ ントの接触界面での変質状態の分析を行った。分析事例として、泥岩とOPCとの接触界面付近(図 3.3-6(a))の分析結果を図3.3-6に示す。EPMA分析では、試料に含有する成分を微小域から広域に かけて定量的に評価でき、Caはセメントから岩盤側に2 mm程度の範囲まで広がっており、セメ ントとの接触界面に近いほどCa量が多い傾向が確認された(図3.3-6(b))。また、LA-ICPMSの分 析の結果、図3.3-6(c)に示すように、EPMAと整合的なCaの分布を確認しつつ、EPMAやSEMで は検出できない微量元素としてSr, Ba, Zn等の分布を取得することができた。さらに、SEM/EDS 分析で得られたCa分布も、他の分析結果と整合することを確認しつつ、二次鉱物の領域に焦点を あてたスポット分析によってその鉱物種の推定を試み、界面近傍ではカルサイトが多く存在する のに対し、界面から少し離れた位置では、C-A-S-Hと推測される鉱物が確認された(図3.3-6(d))。 この鉱物種の推定とLA-ICPMSを突き合わせることで、カルサイトやC-A-S-Hの二次鉱物の分布 状況や、微量元素の取り込み状況を把握することができた。一方で、泥岩とHFSCとの接触界面付 近の分析結果によって、HFSCの場合には、OPCと比較してセメントとの接触界面のごく近傍を 除き、Ca量は相対的に少ない傾向などが確認された。さらに、4章のニアフィールド性能の総合評 価技術開発で取り組んできた地球化学-物質移行解析手法を適用して解析的な評価を試み、泥岩 側へのCaの広がりがOPCとの接触界面の方が卓越する点などは整合するものの、泥岩側で生じる 二次鉱物については一致しない結果となった。このような二次鉱物の生成状況の解析的評価は、 先行研究でも不確実性要因として検討されている鉱物の反応速度や表面積の取り扱い等の課題も 含め、今後更なる解析・評価が必要である。



図3.3-6 泥岩—OPC接触界面の分析結果:

(a) 対象試料全体の写真とEPMAによるCaマップ, (b) EPMAの高分解能のCaマップと深度方向
Ca分布, (c) LA-ICPMSによるCa・Srマップ, (d) SEM/EDSによるCaマップと二次鉱物の同定

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

カルサイトはセメントと母岩および地下水との相互作用により生じる二次鉱物の一つであり、 地下環境で水の通り道に沈殿する主要な鉱物の一つでもある。カルサイトはその結晶構造中に 様々な元素を取り込むことが報告されており(例えば、Curti, 1999)、放射性核種の移行遅延に 寄与すると考えられる。また、カルサイト中の微量元素の組成は、カルサイトが沈殿した地下水 の化学的環境を反映していると考えられ、特に、取り込まれた希土類元素(Rare Earth Elements; REE)はIII価アクチニド元素の核種移行に関するナチュラルアナログとなると考えられる。これ らの背景から、本事業では、幌延URLのボーリング孔の岩石コアから採取したカルサイトを対象 とし、REEを中心とした微量元素濃度を測定する(図3.3-7(a))とともに、放射光を用いたµ-XRF 測定およびXAFS測定を行うことで、カルサイト中のREEの分布および構造を調べた(図3.3-7(b))。

カルサイトを酸分解してカルサイトに含まれている元素を調べた結果、REEが含まれているこ とが確認された。カルサイト中のREE分配パターンを調べると、どの試料においても軽REEで値 が高くなる傾向と負のEu異常がみられた一方、値の大きさや重REEにおける値の変化の傾向は採 取したボーリング孔や深度に応じて異なり、カルサイトが生成した環境が反映されていることが 示唆された(図3.3-7(a))。加えて、カルサイト中の微量元素の分布を調べるため、薄片を作製し てµ-XRF測定を行い、元素マッピングを行った。その結果、カルサイトのマトリクス中には、Ca と同族元素のSrおよびII価遷移金属元素のFeが均一に存在することが確認された。また、カルサ イト中には一部堆積岩が混在している部分があり、その部分ではREE濃度が局所的に高くなって いたものの、REEはカルサイトのマトリクス中に薄く均一に存在することが確認された(図3.3-7(b))。カルサイトのマトリクス中のREEの濃度は低かったため、µ-XAFS測定を行ってREEの構 造に関する情報を得ることはできなかったものの、カルサイト全体に対してバルクXAFS測定を 行うことでXANESスペクトルの形状から化学種を区別できる可能性を確認した。

今後、室内試験により合成カルサイトに対するREEの取り込み試験を行い、XAFS測定により REEの構造を調べることで、カルサイトに対するREEの分配挙動に対する理解をより深められる と考えられる。



図3.3-7 カルサイトに取り込まれた微量元素の測定例:

(a) 幌延URLから採取したカルサイト中のREE分配パターン, (b) μ-XRF測定による元素マッピ ング結果

(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

溶存無機炭酸(<u>D</u>issolved <u>Inorganic Carbon; DIC</u>)共存下では、アクチニド元素は炭酸錯体を形成し、母岩やベントナイトに対する収着が抑制されると考えられている(例えば、Tachi et al., 2014)。DIC共存下におけるアクチニド元素の収着挙動を定量的に評価するためにはDIC濃度を

変化させて K_{d} を取得する必要があるが、泥岩において収着を支配すると考えられる粘土鉱物であ るイライトに対する K_{d} は乏しく、収着メカニズムは明らかになっていない。このような課題を踏 まえ、本事業では、DICがアクチニド元素(Am(III)/Eu(III), Th(IV)およびU(VI))のイライトに対す る収着に及ぼす影響を評価するため、バッチ収着試験を行ってDIC共存下における K_{d} を取得し、 熱力学的収着モデルと先端的な表面分析手法である時間分解型レーザー蛍光分光法(<u>Time-Resolved Laser Fluorescence Spectroscopy</u>; TRLFS)を組み合わせて、収着メカニズムの推定を 行った(図3.3-8)。加えて、幌延の泥岩を対象としてバッチ収着試験を行い、加成則(<u>Component</u> Additivity; CA)モデルによる K_{d} の再現可能性を検討した(図3.3-9)。



※PARAFAC解析により得られた表面化学種の比率は、それぞれの量子収率が不明なため、 実際の比率と必ずしも一致しない

図3.3-8 熱力学的収着モデルと表面分析手法を組み合わせた収着メカニズムの推定例: (a) 炭酸共存下でのイライトに対するU(VI)の収着のTRLFS-PARAFAC解析結果,(b) 収着モデル とPARAFAC解析による表面化学種のDIC濃度依存性解析の比較

バッチ収着試験によりDIC共存下におけるイライトに対するAm(III)/Eu(III), Th(IV)および U(VI)のKaを取得したところ、KaはDIC濃度の上昇に伴って減少する傾向がみられた。KaのpHお よびDIC濃度依存性依存性をイライトにおける熱力学的収着モデルの一つである2SPNE SC/CE モデル(Bradbury and Baeyens, 2009a)によって解析したところ、炭酸イオンを配位した表面化学 種(炭酸三元錯体)が存在することが示唆された。収着モデルによって予測された炭酸三元錯体 の妥当性を検討するため、Am(III)の化学アナログであるEu(III)とU(VI)を対象として、TRLFS測 定により収着形態の分析を行った。特に、U(VI)の分析では、微量検出が可能で質の高いスペクト ルが得られる極低温(Low Temperature; LT)-TRLFSを適用した。pHやDIC濃度を変化させて Eu(III)またはU(VI)を収着させたイライトを測定し、溶液条件の変化に伴う蛍光スペクトルの形 状や蛍光寿命の変化を調べた。Eu(III)およびU(VI)ともにDIC共存下の蛍光スペクトルの形状や 蛍光寿命はDIC非共存下のものとは異なっており、それぞれの条件において存在する異なる表面 化学種を反映している可能性が示唆された(図3.3-8(a))。しかしながら、測定試料中には複数の 表面化学種が存在する可能性があり、それらの蛍光スペクトルの形状や蛍光寿命はそれぞれ異な ると考えられることから、存在する化学種の数や濃度を決定することは難しい。そこで、TRLFS 測定の結果に多変量解析手法の一つであるパラレルファクター(PARAllel FACtor; PARAFAC)解 析を適用し、各化学種の相対強度、蛍光スペクトルの形状および蛍光寿命を抽出した。抽出され た化学種の相対強度のpHおよびDIC濃度依存性、蛍光スペクトルの形状の既往の報告との比較お よび配位子の変化に伴う蛍光寿命の変化を考察した結果、PARAFAC解析によって抽出された化 学種と収着モデルにより予測された表面化学種を結びつけることができ、Eu(III)およびU(VI)が 炭酸三元錯体を形成することを分光学的に確認した(図3.3-8(b))。

バッチ収着試験によりDIC共存下における幌延の泥岩に対するEu(III), Th(IV)およびU(VI)の Kdを取得したところ、KdのpHおよびDIC濃度依存性はモンモリロナイトおよびイライトに対する ものと同様の傾向を示し、これらの粘土鉱物が収着に大きく寄与していることが示唆された。そ こで、堆積岩における収着は粘土鉱物であるモンモリロナイトとイライトに支配されると仮定し、 それぞれの収着パラメータを用いたCAモデルを適用してKdの再現を試みた。モンモリロナイトに 対する収着パラメータは既往の文献の収着データをもとに算出し、イライトに対する収着パラメ ータは本事業で得られた値を用いた。その結果、KdのpHおよびDIC濃度依存性は表現できていた ものの、モデルによる予測値は実測値よりも低くなる傾向が確認された(図3.3-9)。この要因と して、モンモリロナイトとイライト以外に収着に寄与する鉱物が存在することや、試験に用いた 幌延の泥岩中のモンモリロナイトとイライトの割合が計算に用いた値(Tachi et al., 2011)よりも 高かったことが考えられた。




イライトに対するアクチニド元素の収着試験では、熱力学的収着モデルとTRLFS測定を組み合わせ、さらにPARAFAC解析を行うことで、収着パラメータの信頼性が向上し、DIC共存下におけるアクチニド元素のイライトに対する収着挙動を定量的に予測することが可能となった。また、幌延の泥岩に対する収着試験では、CAモデルはKaのpHおよびDIC依存性の傾向を再現できたものの、予測値は実測値よりも低くなる傾向がみられた。これは、CAモデルが保守的な予測値を与えることを示すが、今後、実測値との乖離を生じた要因を特定し、そのメカニズムを明らかにする必要がある。

2) 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

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手法の一つとして、古典分子動 カ学(Molecular Dynamics; MD)計算が挙げられる。先行事業(日本原子力研究開発機構, 2018) では、アクチニド元素としてU(VI)およびNp(V)を対象とし、ウラニルイオン(UO₂²⁺)およびネプツ ニルイオン(NpO₂⁺)のモンモリロナイト層間における拡散挙動を評価した。本事業では、先行事業 で認識された課題を踏まえ、2層, 3層, 4層および5層水和状態の層間間隙を含むスーパーセルを作 成し、UO₂²⁺またはNpO₂⁺と炭酸イオン(CO₃²⁻)が共存する系を対象に10 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(図3.3-10)。加えて、これらのアクチニド元素と塩化物イオン(CI-)が共存する系 についてもシミュレーションを実施し、CO₃²⁻が共存する系と比較して拡散挙動の相違について 考察した。

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、層間内へ錯体の 形で侵入していることが確認された。一方、Cl-は層間外で錯体を形成することはあるものの、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、もっぱら単独で侵入していた。CO₃²⁻ (有効イオン半径:0.178 nm)とCl-(有効イオン半径:0.181 nm)は有効イオン半径が同程度 なので、この侵入挙動の違いはイオンの価数と錯形成に係るポテンシャルに起因すると考えられ た。これに対し、陽イオンであるUO₂²⁺およびNpO₂+の層間への侵入挙動は、基本的には単独であ り、層間内のNa+とイオン交換しながら平衡状態に達するまで侵入することが確認された。UO₂²⁺ (有効イオン半径:0.280 nm)とNpO₂+(有効イオン半径:0.290 nm)も有効イオン半径は同程 度なので、錯体形成の違いは主にイオンの価数に起因すると考えられる。そのため、CO₃²⁻と共存 する系では、UO₂²⁺の方がNpO₂+よりも錯体を形成しやすく、UO₂²⁺は[(UO₂)(CO₃)]⁰の形で中性化 するため、NpO₂+よりも層間外に留まる傾向が強いと考えられた。ただし、層間幅が十分広い場 合は、中性化した状態で層間内へ侵入することが確認された。一方、Cl-と共存する系では、CO₃²⁻の場合よりも錯形成しにくく、各イオンが単独で拡散する傾向が強いため、NpO₂+よりも価数の 高いUO₂²⁺の方が層間へ侵入しやすいと考えられた。

本事業では、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元素 (U(VI)およびNp(V))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。総括的に評価すると、CO₃2-が共存する系では層間外で錯体が形 成されやすく、Cl-が共存する系に比べて層間内への侵入が抑制される傾向が確認された。また、 NpO₂+よりも価数が高いUO₂2+においてその傾向が強く現れることが確認された。



古典MD計算によるモンモリロナイト層間へのNp(V)の炭酸錯体のアクセス性評価

図3.3-10 古典MD計算によるモンモリロナイト層間へのアクチニド元素の炭酸錯体のアクセス 性評価の例:Np(V)

3) 高炭酸条件における核種移行解析・不確実性評価の構築

地球化学計算コードPHREEQC (Parkhurst and Appelo, 2013)は、緩衝材 (圧縮ベントナイト) や岩石中の間隙水化学の評価や、核種の溶解度やKa等の評価に広く利用されている。先行事業(日本原子力研究開発機構, 2018)では、圧縮ベントナイト中の間隙水化学および核種の収着・拡散挙動をPHREEQCによって評価するとともに、それらの不確実性を評価するための手法をパラメー タセット生成コードLHS (Latin Hypercube random Sampling, Iman and Shortencarier (1984)) や統計解析コードSPOP (Statistical POst Processor, Saltelli and Homma (1992))を組合せて構築してきた。加えて、PHREEQCにおいて地球化学平衡計算と物質移行計算を組み合わせた解析 が可能なTransport機能の調査や適用性の評価を進めてきた。本事業では、Np(V)を対象として高炭酸条件下において複数の化学種が共存する条件での圧縮ベントナイト中の核種の収着・拡散デ ータを実験的に取得するとともに、PHREEQCのTransport機能を適用したモデルを構築し、その 挙動の解析を行った(図3.3・11(a))。さらに、間隙水化学の変遷が核種移行に及ぼす影響の解析 する手法の開発に資するため、構築したモデルを不確実性解析ツールと組み合わせて試算を行っ た(図3.3・11(b))。

Np(V)の拡散試験は透過拡散法を用いて行い、溶液中の炭酸濃度条件を変化させることで、溶存 化学種(NpO₂+およびNpO₂CO₃-)の存在割合を変化させた。拡散試験の結果、炭酸濃度が高いほ ど破過が早く起こり、これは非収着性のNpO₂CO₃-の存在割合が高くなったためであると考えら れた。この拡散試験の結果を、Np(V)の実効拡散係数(D_{e})を化学種ごとに統合収着・拡散 (Integrated Sorption and Diffusion; ISD)モデル(Tachi and Yotsuji, 2014; Tachi et al., 2014)で 設定し、PHREEQCを用いて核種移行解析を行うことにより、実測値の再現性を評価した。その 結果、圧縮ベントナイト中のNp(V)の濃度プロファイルは、モデル計算によって実測値と炭酸濃度 依存性を概ね再現することができた。一方、破過曲線は、いずれの炭酸濃度の場合でもモデル計 算では実測値よりも破過が早く進行しており、特に、炭酸濃度が低い条件ほど実測値との乖離が 顕著になった(図3.3-11(a))。これは、ISDモデルによる D_{e} の平均化手法について検討する 必要が考えられ、ISD多重間隙モデルの適用や化学種に関する D_{e} の平均化手法について検討する 必要が考えられた。



図3.3-11 PHREEQCを用いた核種移行解析・不確実性評価:

(a) Np(V)の複数の化学種が混在する条件での透過拡散試験結果のPHREEQC-Transport解析, (b) Np(V)の収着・拡散挙動に関するパラメータの不確実性解析

次に、上記の系を対象に、パラメータセット生成コードと統計解析コードを組合せた不確実性 解析を実施した。間隙水中の炭酸濃度、イオン強度、pH等の液性条件や、錯生成定数や拡散係数 等の収着・拡散に関する項目を変動パラメータとし、それぞれに確率密度関数を設定し、LHSに より値を変動させてPHREEQCにより核種移行解析を行った。得られた出力値はSPOPによりヒ ストグラムおよび(補)累積分布関数を作成した。加えて、変動パラメータ値と核種移行解析結 果の出力値との偏順位相関係数(Partial Rank order Correlation Coefficient; PRCC)を取得し、変動パラメータの重要度を評価した。例として、下流側セルにおけるNp(V)濃度の最大値に対する各パラメータの感度を評価した結果、PRCCの値から、比較的相関が強いパラメータとして炭酸濃度とpHが抽出され、両者とも負の相関を示した。したがって、下流側セルのNp(V)濃度に最も影響を与えるのは初期溶液の液性であると評価された(図3.3-11(b))。

以上のように、先行事業から開発してきた圧縮ベントナイト中の核種収着・拡散モデルを、高 炭酸条件まで拡張するとともに、実測値の再現における課題を確認した。さらに、そのモデルを 不確実性解析ツールと統合し、炭酸が収着・拡散に及ぼす影響を評価する手法を構築した。今後 は、多様な核種と環境条件への拡張や適用性評価の検討が課題となる。

3.3.3 5か年の成果と今後の課題

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

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、種々の元素のFe(II)との収着競合に ついてのデータ取得・評価を行い、価数が異なるAm(III)やNb(V)とはほとんど競合しないことを 確認し、競合が確認されたNiにおいても、収着競合は限定的であることを確認した。オーバーパ ックの腐食に伴って生成する鉄鉱物への核種の取り込みについては、Se(-II)およびSe(IV)を対象 に、異なるpH条件での2種類のFeとSeの相互作用試験(共沈または鉄鉱物への収着)によってデ ータを取得し、各条件やプロセスで生じるSeの取り込み現象、熟成に伴う固相変遷やSeの取り込 み状態の変化等を把握した。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線分析等の先端的 分析を含む複数の分析手法によって、岩層(稚内層・声問層)の異なる泥岩試料中で、フランボ イダルパイライト中にSeが取り込まれていることを確認した。これまでの界面や深部岩盤中で想 定される環境条件とそこでの鉄鉱物の生成・変遷過程に応じて、生じる可能性の高いSeの取り込 み現象やその遅延特性や安定性を推定することが可能となった。今後は、より多様な元素や条件 を対象とした室内試験・分析データの取得や、天然事例分析の拡充によって、鉄共存が核種移行 に及ぼす影響を把握するとともに、長期時間スケールでの取り込み現象モデルの構築と性能評価 への反映方策を具体化していくことが重要となる。

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、デンドリマーを用いて、異なるサイズのコロイドの移行・ろ 過挙動や間隙の連続性を把握する手法を構築し、ナノメートルサイズのコロイドが、Na型および Ca型のいずれのモンモリロナイトでも、乾燥密度1.6 Mg/m³ではろ過され、乾燥密度1.2 Mg/m³で は破過することが確認された。今後は、これまで構築してきた手法を適用して、実際のベントナ イトやケイ砂混合系へ適用していくことが課題である。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、泥岩と2種類のセメント(OPCやHFSC)の界面近傍での変質状況を、複数の分析手法の組合 せにより分析・評価し、二次鉱物の生成と微量元素の取り込み状況をより詳細に把握した。また、 これまで構築してきた地球化学ー物質移行解析コードを適用して変質状況の解析的な評価を試行 した。さらに、幌延の泥岩中のカルサイトに含まれるREE等の微量元素を測定し、採取したボー リング孔や深度に応じて特徴的なREE分配パターンを取得し、カルサイトが生成した環境を反映 していること等を確認した。今後は、原位置試料や天然試料の分析事例の拡充に加え、変質試料 を対象とした室内試験・分析データ等を拡充することによって、評価モデルの改良や妥当性確認 を進めていくことが重要となる。

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。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するとともに、TRLFS測定とPARAFAC解析とを組み合わせ て、存在する化学種とそれらのpHおよび炭酸濃度依存性を把握し、収着モデルに分光学的観察結 果の裏付けを与えることができた。加えて、幌延の泥岩に対する収着データを拡充し、CAモデル の適用性を確認した。また、MD計算を用いて粘土層間間隙へのウラニル・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を継続し、層間幅が3層水和状態以上では炭酸錯体もアクセ スしうるが、陰イオン錯体のアクセスは確認できなかった。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)の拡散データを対象に、溶存化学種の平衡計算、化学種毎の拡散係数、収 着モデルを組み合わせた解析手法を適用し、その有効性を確認した。これまでの検討を通じ、粘 土中の核種収着・拡散モデルを、高炭酸条件まで拡張し、それらを統合した核種移行解析手法を 構築することができた。今後は、より多様な核種や環境条件を対象にデータの拡充とモデルの改 良を進めるとともに、これらの一連の評価手法の妥当性確認や、これらの評価手法を反映した核 種移行解析およびパラメータ設定手法を構築していくことが重要である。

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,2018)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。

本事業では、影響が顕在化する可能性の高い4価核種と地下水天然有機物との錯生成データを取得し、錯生成モデル高度化の検討とパラメータ整備を行うとともに、低分子量有機物錯体の回収率の高い評価手法の開発を実施した。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、加成則モデルを構築してその 適用性の評価を評価するとともに、その適用条件について検討した。最後に、錯生成データを整備した幌延深部地下水フミン酸を対象に性能評価解析を実施し、有機物との錯生成が核種の移行

(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(2013a)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。

$$Q_{i} = \frac{n_{i1}}{n_{H1}} \cdot Q_{\max 1,H} \cdot \frac{\left(\widetilde{K}_{i1}C_{i}\right)^{n_{i1}}}{\sum_{i} \left(\widetilde{K}_{i1}C_{i}\right)^{n_{i1}}} \cdot \frac{\left[\sum_{i} \left(\widetilde{K}_{i1}C_{i}\right)^{n_{i1}}\right]^{p_{1}}}{1 + \left[\sum_{i} \left(\widetilde{K}_{i1}C_{i}\right)^{n_{i1}}\right]^{p_{1}}} + \frac{n_{i2}}{n_{H2}} \cdot Q_{\max 2,H} \cdot \frac{\left(\widetilde{K}_{i2}C_{i}\right)^{n_{i2}}}{\sum_{i} \left(\widetilde{K}_{i2}C_{i}\right)^{n_{i2}}} \cdot \frac{\left[\sum_{i} \left(\widetilde{K}_{i2}C_{i}\right)^{n_{i2}}\right]^{p_{2}}}{1 + \left[\sum_{i} \left(\widetilde{K}_{i1}C_{i}\right)^{n_{i1}}\right]^{p_{1}}}$$
(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] |
|-------------------------------|--|
| $C_{ m i}$ | : 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) |
| $\mathrm{log}K_{\mathrm{i2}}$ | :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 |
| n_{i1} | : 金属イオンiに対する結合サイト1の不均一パラメータ |
| <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

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(フミン酸・フルボ酸)への4価核種の錯生成について、流動場分面(flow-field flow fractionation: FI-FFF) 法を用いて錯生成データを取得し、モデルの高度化およびモデルパラメータの整備を進めた。また、低分子量有機物錯体の回収率の高い評価手法としてキャピラリー電気泳動法(Capillary Electophoresis: CE)法の整備とその適用性の評価を実施した。

① 流動場分画法によるZr(IV)と地下水中の溶存腐植物質との錯生成データの取得

流動場分画法(flow-field flow fractionation: Fl-FFF)と誘導結合プラズマ質量分析(ICP-MS)を 組み合わせたFFF-ICPMSを用いて、幌延深地層研究センターの深度250m(09-V250-M02孔)の 地下水から分離精製したフミン酸(HHA)と金属イオンとの錯生成データを取得した。その結果、 NICA-Donnanモデルにおける低親和性サイト(カルボキシル基型サイト)と高親和性サイト(水 酸基型サイト)への結合を考慮した場合において、モデルがHHAに対するZr⁴⁺の結合反応のZr⁴⁺ 濃度依存性と、見かけ上のpH依存性の傾向を再現できることを確認した(図3.4-1)。また、得ら れたモデルパラメータから、多価の金属イオンの結合において、カルボキシル基型サイトの非理 想性が大きく、高次構造の変化などを伴う多座配位などを形成している可能性が示唆された。本 事業において最適化した、HHAのNICA-Donnanモデルパラメータを表3.4-1に示す。



図3.4-1 HHAに対するZr⁴⁺結合量のZr⁴⁺濃度依存性とNICA-Donnanモデルフィッティング結果

表3.4-1 HHAの結合データに対するNICA-Donnanモデルのフィッティングより最適化されたパ ラメータ

| Generic parameter | | | | | | | | |
|-------------------------|----------------------|------------|------------------------|-------|--|--|--|--|
| Donnan, b ⁱ | | 0.81 | | | | | | |
| | Site 1 (low | -affinity) | Site 2 (high-affinity) | | | | | |
| $Q_{ m max,H}{}^{ m i}$ | 4.3 | 8 | 4.44 | | | | | |
| $p^{ m i}$ | 1 | | 0.355 | | | | | |
| Ion specific parameters | | | | | | | | |
| | $log\widetilde{K}_1$ | n_1 | $log \widetilde{K}_2$ | n_2 | | | | |
| $\mathrm{H^{+}~^{i}}$ | 3.74 | 0.82 | 10.62 | 1 | | | | |
| Cu ^{2+ i} | 1.32 | 1 | 14.43 | 0.28 | | | | |
| Cd ^{2+ ii} | 0.48 | 0.55 | 8.44 | 0.32 | | | | |
| Eu ^{3+ iii} | 0.95 | 0.72 | 11.53 | 0.41 | | | | |
| Zr^{4+iv} | 7.93 | 0.30 | 22.80 | 0.57 | | | | |
| Saito et al | ., 2015 | | | | | | | |
| 日本原子 | ·力研究開発機構.2013c | | | | | | | |

iii. 日本原子力研究開発機構,2017

iv. 日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管 理センター, 2020

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

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。

そこで本事業では、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、HHAとZrの 錯生成データを取得した。また、NICA-Donnanモデルのフィッティングからのモデルパラメータ の導出を行った。NICA-Donnanモデルのフィッティングは低親和性サイトのみを考慮した場合 (図3.4・2:左)と、低親和性サイトに加えて高親和性サイトも考慮した場合(図3.4・2:右)の2 パターンで実施した。結果として、高親和性サイトの考慮の有無にかかわらず、現状のCE-ICPMS で取得した結合量データのフィッティングでは、低親和性サイトの寄与を小さく評価してしまう 傾向にあり、安定度定数の誤差が非常に大きく計算されることから、有意なフィッティングが出 来ていないと判断した。特にHHAへの結合量が大きいプロットの再現性が低くなっており、今後、 錯生成定数既知の有機物と金属イオンを用いた解析手法の検証や、錯生成データ取得条件の最適 化等が必要になると思われる。

以上より、FFF-ICPMS法における回収率補正手法の検証をCE-ICPMS法から行うことは叶わなかった。よって現状では、HHAとZr⁴⁺の錯生成におけるNICA-Donnanモデルパラメータとしては、FFF-ICPMS法から決定したパラメータを用いるのが妥当だと判断した。



図3.4-1 CE-ICPMSから導出したZr⁴⁺のHHAに対する結合量に対するNICA-Donnanモデルフィ ッティング結果(左)低親和性サイトのみ考慮(右)低親和性サイトと高親和性サイトを考慮

③ 線形自由エネルギー相関による地下水腐植物質のNICA-Donnanモデルパラメータの推定

本事業でプロトンに加え、2価 - 4価核種の一連のNICA-Donnanモデルパラメータの整備を達成したことにより、金属イオンの結合パラメータ(*n*_i log*K*_iおよび*n*_i)と第1加水分解定数(log*K*_{0H})の線形自由エネルギー相関(LFER)の関係式を導出することが可能となった。サイト1、サイト2について整理したLFERを図3.4-3に示す。これを用いて、結合量データを取得していない評価対象

核種や地下水中の共存金属イオンの一連のNICA-Donnanモデルパラメータの推定が可能となった。得られた線形近似式は下記の通りである。

サイト 1: $n_1 \log K_1 = 0.189 \log K_{OH} + 2.36$, $R^2 = 0.9411$; $n_1 = -0.041 \log K_{OH} + 0.379$, $R^2 = 0.6454$ サイト 2: $n_2 \log K_2 = 1.017 \log K_{OH} + 12.56$, $R^2 = 0.9970$; $n_2 = 0.026 \log K_{OH} + 0.558$, $R^2 = 0.9089$

得られた線形近似式を用いて、核種移行評価対象核種として選定した金属イオンおよび地下水中の共存イオンのNICA-Donnanモデルパラメータを推定し、表3.4-2に取りまとめた。



図3.4-1 HHAについて構築したLFER

| 移行評価対象金属イオン | log <i>К</i> _{ОН} | $\log K_1$ | <i>n</i> ₁ | $\log K_2$ | n 2 |
|------------------|----------------------------|------------|-----------------------|------------|------|
| Cs ⁺ | -15.685 | -0.58 | 1.03 | -21.53 | 0.16 |
| Pb ²⁺ | -6.91 | 1.59 | 0.67 | 14.53 | 0.38 |
| Ra ²⁺ | -13.47 | -0.19 | 0.94 | -5.29 | 0.21 |
| Th ⁴⁺ | -2.5 | 3.92 | 0.48 | 20.30 | 0.49 |
| U^{4+} | -0.29 | 5.91 | 0.39 | 22.30 | 0.55 |
| Am ³⁺ | -7.2 | 1.48 | 0.68 | 14.03 | 0.37 |
| 地下水共存金属イオン | | | | | |
| Ca ²⁺ | -12.85 | -0.07 | 0.91 | -2.18 | 0.23 |
| Mg^{2+} | -11.794 | 0.16 | 0.87 | 2.24 | 0.26 |
| Al ³⁺ | -4.99 | 2.43 | 0.59 | 17.42 | 0.43 |
| Fe ²⁺ | -9.5 | 0.74 | 0.77 | 9.23 | 0.31 |
| Fe ³⁺ | -2.188 | 4.16 | 0.47 | 20.61 | 0.50 |

表 3.4-2 LFERより推定されたNICA-Donnanモデルパラメータ

2) 核種 - 有機物 - 岩三元系における核種収着モデルの開発

有機物影響を地層処分の安全評価に取り入れるためには、核種と有機物の錯生成モデルを用い、 有機物共存時の岩石への核種の収着モデルを整備する必要がある。そこで、有機物として幌延 URLの深部地下水から採取されたフミン酸(HHA)および国際腐植物質学会(IHSS)が頒布してい るLeonardite標準フミン酸(LHA)、核種としてアクチノイドのアナログ元素であるEu(III)を用い て、幌延URLで採取された岩石へのEuの収着モデルを検討した。岩石へのEuの収着挙動は、収着 分配係数Kaを用いて評価した。水相中で形成される有機物との錯体が主にEu-HA錯体であり、Eu-HA錯体が岩石に収着しないと仮定した三元系の加成則収着モデルを作成し(式(3.4-2))、実験値 と計算値を比較することで、そのモデルの適用性を評価した。

$$K_{\rm d,3} = \frac{K_{\rm d,2} \,\mathrm{a}}{\mathrm{a} + [{\rm EuHA}]}$$
 (3.4-2)

ここで、K_{d,3}、K_{d,2}およびaはそれぞれ、核種・有機物・岩石三元系の収着分配係数、核種・岩石二元 系の収着分配係数およびHAが関係する錯体の化学種を除いた水相中のEuの全化学種の合計濃度 を表す。また、EuとHAとの錯生成を記述するための錯生成モデルにはNICA-Donnanモデルを用 い、そのパラメータとしては、HHAではこれまでに個別に最適化されたパラメータ(日本原子力 研究開発機構, 2018)を、LHAでは一般的なHAに広く当てはまるように設定されたgenericパラ メータ(Milne, 2001, 2003)を用いた。有機物の錯生成に影響する可能性のある地下水成分として、 炭酸が共存した際のEuの岩石への収着試験の結果を、計算結果とともに図3.4・4に示す。NICA-Donnanモデルパラメータが個別に最適化されていないLHA(図3.4・4A)では、収着モデルは実験 値と合わず、有機物影響を過小評価してしまった。一方で、パラメータが個別に最適化され、錯 形成をより正確に評価できていると考えられるHHA(図3.4・4B)では、今回提示した収着モデル によるKaの再現性は高く、HHAにおいては提示した加成則収着モデルが成立することが示唆され た。

有機物影響を適切に評価できるようにするためには、HHAだけでなく、他の環境における有機物の影響を見積もれるようにする必要がある。LHAをはじめとした様々な環境の有機物についても、錯生成モデルパラメータの最適化を行い、環境によって異なる錯生成の傾向を把握するとともに、有機物や他の地下水成分の共存時の核種の岩石への収着機構を明らかにして、環境に応じた適切な収着モデルを提示できるようにする必要があることが示唆された。



図3.4-2 Euの収着の炭酸濃度依存性

3) 性能評価解析への反映

本事業から整備された知見やモデルパラメータを用いて、H12レポート(核燃料サイクル開発 機構,1999)におけるレファレンスケースの降水系地下水条件を対象に、評価対象核種の有機物 への分配係数の設定と、それを考慮した性能評価解析を実施した。現行の性能評価解析では、加 成則性の成立を前提としているため、三元系収着試験から加成則性が成立する可能性が高いこと が確かめられ、2)③項でNICA-Donnanモデルパラメータを整理した、HHAを対象有機物とした。

HHAに対する分配係数の導出には、2)③項で構築したLFERより導出したNICA-Donnanモデルの結合パラメータを用いて、Visual MINTEQ Ver.3.1(Gustafsson, 2016)に導入し、降水系地下水条件における平衡計算を行うことで、評価対象核種および地下水共存イオンのHHAへの分配係数*K*d_DOMを算出した(表3.4-3)。HHAの濃度は、幌延深部地下水中の溶存有機物に占める腐植物質の割合(日本原子力研究開発機構, 2013b)から、10 mgC dm⁻³(1.0×10⁻² kg of C m⁻³)と設定した。表3.4-3には比較のため、先行事業で計算されたAldrichフミン酸(AHA)に対する分配係数も比較のために示した。

HHAへの分配係数とHHA濃度を性能評価解析コードGoldsim(仲島ほか,2009)に導入して、 有機物影響を考慮した核種移行解析を実施した。その結果、コロイドや有機物の影響を考慮しな いH12レファレンスケースと比較すると、AHAやHHAとの錯生成によって断層からの最大線量の 計算値が2桁程度増加することが示された。これは、有機物濃度が10 mgC dm⁻³程度の地下水環境 において、有機物との錯生成による影響が顕在化する可能性を示唆するものである。また、HHA とAHAの比較から、対象とする有機物の特性によって、評価対象核種の移行挙動や線量支配核種 が大きく変化しうることが示された。

| 长任 | 核種濃度 | 有機物濃度 | log <i>K</i> _{d_DOM} | | 備考 | | |
|------------|----------------------|----------|-------------------------------|---------|--|--|--|
| 核 種 | mol dm⁻³ | mgC dm⁻³ | AHA(H29) | HHA(R4) | (HHAの <i>K</i>) | | |
| Se | n.a. | n.a. | 3.0 | 3.0 | コロイドに対するK _d 値(H12レポート)を採用 | | |
| Zr | 1.0×10^{-6} | 10 | 3.3 | 2.6 | logK _{d_DOM_Th} 値を採用 | | |
| Nb | n.a. | n.a. | 3.0 | 3.0 | コロイドに対するKd値(H12レポート)を採用 | | |
| Tc | 4.3×10 ⁻⁹ | 10 | 3.0 | 3.0 | 1:1結合モデルから算出(Maes et al., 2003) | | |
| Pd | n.a. | n.a. | 3.0 | 3.0 | コロイドに対するKd値(H12レポート)を採用 | | |
| Sn | n.a. | n.a. | 3.0 | 3.0 | コロイドに対するKd値(H12レポート)を採用 | | |
| Cs | 1.0×10^{-6} | 10 | -0.6 | -1.7 | NICA-Donnanモデル+NIST_TDBから算出 | | |
| Sm | n.a. | n.a. | 2.8 | 4.1 | logK _{d_DOM_Am} 値を採用 | | |
| Pb | 1.3×10^{-6} | 10 | 1.7 | 4.8 | NICA-Donnanモデル+NIST_TDB+JAEA_TDBから算出 | | |
| Ra | 3.5×10^{-5} | 10 | 1.5 | -0.04 | NICA-Donnanモデル+NIST_TDB+JAEA_TDBから算出 | | |
| Ac | n.a. | n.a. | 2.8 | 4.1 | logK _{d_DOM_Am} 値を採用 | | |
| Th | 7.1×10^{-9} | 10 | 3.3 | 2.6 | NICA-Donnanモデル+NIST_TDB+JAEA_TDBから算出 | | |
| Pa | n.a. | n.a. | 3.0 | 3.0 | logK _{d_DOM_Tc} 値を採用 | | |
| U | 9.0×10 ⁻⁸ | 10 | 1.7 | -0.4 | NICA-Donnanモデル+NIST_TDB+JAEA_TDBから算出(※1) | | |
| Np | n.a. | n.a. | 3.3 | 2.6 | logK _{d_DOM_Th} 値を採用 | | |
| Pu | n.a. | n.a. | 3.3 | 2.6 | logK _{d_DOM_Th} 値を採用 | | |
| Am | 1.0×10^{-6} | 10 | 2.8 | 4.1 | NICA-Donnanモデル+NIST_TDB+JAEA_TDBから算出 | | |
| Cm | n.a. | n.a. | 2.8 | 4.1 | logK _{d_DOM_Am} 値を採用 | | |

表3.4-3 本調査において設定された評価対象核種の有機物への分配係数(K_{d DOM})

※1 U(IV)のK_d値を採用

(3) 5か年の成果と今後の課題

本事業では、HHAを対象に4価核種との錯生成データを拡充し、信頼性の高いNICA-Donnanモ デルパラメータを決定した。また、モデルパラメータと第一加水分解定数のLFERから、錯生成デ ータを取得できていない評価対象核種についても、HHAに対する結合量の推定が可能となった。 さらに、核種・有機物・岩石三元系モデルの開発において、核種と有機物の錯生成の記述にNICA-Donnanモデルを適用した加成則モデルを構築するとともに、Eu, HHAおよび幌延深部堆積岩を 用いた収着試験から加成則モデルの適用性を評価し、HHAに関して加成則性が成立する可能性が 高いことを明らかにした。以上の知見を踏まえ、降水系地下水条件において、HHAによる錯生成 の影響を加味した核種移行解析を実施し、有機物濃度が10 mgC dm⁻³ 程度の地下水環境において、 有機物影響が顕在化する可能性を指摘した。また、対象とする有機物の特性によって、評価対象 核種の移行挙動や線量支配核種が大きく変化しうることが示された。総じて、様々な核種を対象 とした有機物との錯生成や分配係数に関するパラメータ整備手法および有機物影響を考慮した定 量的な核種移行評価手法を提示することができた。

今後の課題としては、核種・有機物の錯生成データ取得手法の信頼性向上が挙げられる。また、 NICA-Donnanモデルパラメータと第一加水分解定数のLFERから錯生成データを取得していない 核種のNICA-Donnanモデルパラメータを推定したが、LFERを構成する金属イオンが4種類と 少なく、LFERにおける分布も一様ではない。そのため、実際に錯生成データを取得する金属イオ ンを拡充し、LFERの信頼性を向上させるとともに、場が与えられ新たな対象有機物が設定された 際の錯生成データ取得の優先順位を示せるよう、検討を進めていく必要がある。核種・有機物・岩石 三元系における加成則モデルについては、その適用性は対象とする有機物の特性によって左右さ れることが示された。よって、加成則性が成立しない有機物に対して、適切なモデルの補正等を 検討し、有機物影響評価を可能とするための手法を開発していく必要がある。最後に、地下水か ら抽出した有機物の詳細な分析評価のみならず、地層処分研究の場が与えられた際に備え、地下 水等を分析し有機物の核種移行挙動に及ぼす影響が顕在化する可能性について判定する技術開発も進める必要がある。

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必要とされている。特に 微生物は、「生きて活動している」というその性質上、室内試験における評価だけでなく、天然 の地下環境を対象とした評価手法の確立やデータの取得が必要である。処分場閉鎖後の酸化還元 状態の回復促進については、スウェーデンのThe Äspö Hard Rock Laboratory (以下、[Äspö 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; Smart et al., 2017)、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とともに、性 能評価解析に必要なコロイドや微生物の濃度、収着分配挙動、多様性・代謝反応の空間分布等の 基礎的知見を取得することを目的として研究を実施した。

国内外の最新の知見を対象として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3.4-5)。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、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。取得した知見をもとに、コロイド及び微生物 の核種移行影響を定量的に評価するために核種移行解析を実施するとともに、性能評価上の微生物影響の取り扱いについて、課題とともに提示した。



図3.4-5 微生物と元素との相互作用の概念図

(2) 実施内容

1) 地下水中のコロイドが核種移行に及ぼす影響評価手法の整備

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。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。そこで本研究では、幌延URLを活用し、堆積岩地下環境における地層,水質および微生物 組成が異なる4深度の地下水(深度140.185.250および350m)を対象として(図3.4-6)、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 イオコロイドへの希土類元素およびセレンの収着特性データを取得した(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;2020;2021;2022)。地下水中の全コロイド濃 度及び微生物密度について調査した結果、コロイド濃度は各地下水試料においてばらつきが認め られ、0.22 μm以上のサイズのコロイドは0.091 - 1.660 mg/L、0.1 μm以上0.22 μm未満のサイズ のコロイドは、0.027 - 0.101 mg/Lの範囲で検出され、0.22 μmサイズのコロイド濃度の方が約3-4倍高い値で存在することが確認された。全コロイドに対する微生物コロイドの割合はいずれの地 下水試料においても小さいことから、地下水中のコロイドは、そのほとんどが無機コロイドか微 生物細胞以外の有機コロイドであると推定された(表3.4-4)。

| ボーリング孔 | 採取深度 (GL-m) | 地層区分 | 塩分濃度 (g/L) | コロイド重量: 0.1 µmサイズ (mg/L) | コロイド重量: 0.2 µmサイズ (mg/L) | パイオコロイド 密度 (cells/L) | バイオコロイド 密度 (mg/L) | 全コロイド重量に 対するパイオコロ イドの割合 (%) | 無機コロイド密度 (全コロイド重量- バイオコロイド) (mg/L) |
|---------------|-----------------------|---------|----------------------|--------------------------------|--------------------------------|-----------------------------|-------------------------|--------------------------------------|---|
| 07-V140-M03 | 140 | 声問層 | 6.6 | n.d. | 0.608 (±0.05) | $1.67 \ge 10^8 (\pm 0.1)$ | 0.05 | 8.2 | 0.558 |
| 08E140C01_z3 | 185 | 声問層 | 4.0 | 0.101 (±0.01) | 0.398 (±0.33) | $0.88 \ge 10^8 (\pm 0.003)$ | 0.03 | 5.5 | 0.441 |
| 09-V250-M02 | 250 | 声問層/稚内層 | 4.0 | 0.027 (±0.004) | 0.085 (±0.06) | $0.69 \ge 10^8 (\pm 0.07)$ | 0.02 | 22.0 | 0.065 |
| 13-350-C01 | 350 | 稚内層 | 10.5 | n.d. | 1.891 (±0.956) | $0.29 \ge 10^8 (\pm 0.15)$ | 0.01 | 0.6 | 1.156 |
| n.d.; no data | | | | | | | | | |

表3.4-4 各深度における地下水中のコロイド濃度と微生物密度

地下水中に存在するコロイドへの元素収着試験には、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と、地層中で移行し やすい元素として重要核種とされているセレンを対象として 試験を行った。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。バイオコロイドへ の元素の分配挙動については、地下水試料に線量53.5 - 71.8 kGyのy線滅菌処理を施し、生きた微生物を死滅させることに より、無機・有機コロイドへの分配係数からバイオコロイ ドへの分配係数を算出した。地下水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



た実測値の平均値を用いた。その結果、0.2 μmフィルターにてろ過処理を施したろ液中からは、 添加直後から希土類元素が除去されており、この現象は特に軽希土類元素で顕著に認められた。 したがって、軽希土類元素は添加後速やかに0.2 μm以上のコロイドに収着したか、あるいは希土 類元素自体が0.2 μm以上のサイズの真正コロイドを形成していたと推察される。重希土類元素は、 軽希土類元素と比較して、0.2 μmフィルターのろ液に残存する濃度が高かったことから、軽希土 類元素の方がコロイドとともに存在しやすいことが示された。この傾向は、これまでに取得した 4深度の地下水試料で共通して認められたが、深度350 mの地下水は、0.2 μmフィルターのろ液中 の濃度が無濾過の溶液濃度と比較して大きく変化していないことから、他の深度の地下水試料と 比較して、コロイドとして存在する割合が著しく低かった。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、深度140 m,250 mおよび350 m地下水では、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%程度の残存率であった(図3.4-7)。それに対して、深度350 m地下水では、試験開始1日後、軽希土類元素の残存率が約60-80%、重希土類元素は90%以上 残存した。試験期間の経過とともに、残存率は低下する傾向を示したが、他の深度の地下水と比 較して、コロイドへの収着挙動が大きくないことが明らかになった。 収着試験結果をもとに算出された分配係数結果から、いずれの地下水試料においても地下水中のコロイドに対する希土類元素の分配係数は軽希土類の方が高い傾向を示し、Laが最も高い値を示すが、重希土類元素になるほど分配係数は低下した(図3.4-8)。一方で、350 m地下水の分配係数は、他の地下水試料の分配係数と比較して、約3桁低い値となっており、残存率の結果と同様に、他の地下水試料と比較するとコロイドへの収着が著しく低いことが示された。これまでの取得データの中で最も低い分配係数を示したのは、140 m地下水の無機コロイドで、log Ka (m³/kg)として2.35-3.90であったが、350 m地下水の分配係数はそれよりもさらに低い値を示した。時間の経過とともに分配係数がやや高くなる傾向は、他の地下水で得られた結果と同様であった。

本事業の成果から、地下水中のコロイドへの希土類元素の収着にはバイオコロイドが影響している可能性が示唆されている。コロイド濃度は各地下水試料間で異なっており、350 m地下水は他の地下水の2.8-18倍とかなり高い濃度で存在しているが、それに対してバイオコロイド密度は非常に低く、全コロイドに対するバイオコロイドの割合は0.6%と他の地下水と比較して著しく低い値を示していた。したがって、350 m地下水中のコロイドへの希土類元素の収着挙動が異なる要因として、バイオコロイドの寄与が小さいことが考えられた。

バイオコロイドへの希土類元素の分配係数が高くなる要因としては、2つの反応が考えられる。 一つは、微生物細胞が代謝反応に希土類元素を利用する場合、2つ目は、細胞表面への収着・濃集 反応である。これまでに実施した地下水試料を対象とした全コロイドの収着試験では、試験過程 において元素添加後に一部の微生物の増殖が認められ、希土類元素添加に伴う微生物代謝反応が 活性化されたことが推察された。16S rRNA遺伝子解析の結果から、*Gammaproteobacteria*網 *Methylococcus*などのメタン酸化反応を行う種の有意な増殖が確認された。近年メタノールの酸 化反応を触媒するメタノール脱水素酵素に、希土類元素を活性中心とする新規のタイプが存在す ることが明らかにされていることから(Picone & Camp, 2019)、収着試験過程で有意に増殖したこ れらの種は、メタノール酸化反応に希土類元素を用いている可能性が示唆された。今後、メタゲ ノム解析を活用した酵素遺伝子の解析等により、実際の地下環境におけるメタン代謝を明らかに していくことで、より微生物と核種の相互作用理解が促進すると考えられる。

バイオコロイドが関連する2つ目の反応として、細胞表面への希土類元素の収着及び濃集反応が 考えられる。この収着、濃集反応には、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関与していると推察される(図3.4-18; Takahashi et al., 2010; Newsome et al., 2014)。この反応は、微生物代謝を伴わず、微生物が環境中に存在す るだけで収着反応が生じることから、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。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3.4-8 (a))。また、 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。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、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。本試験における地下水溶液中の溶存化学種濃度及び飽和指数を、PhreeqCによ る地球化学的平衡計算にて算出したところ、液相の化学種は希土類元素によって多少の違いはあ

るが、そのほとんどが炭酸塩錯体であるLn(CO₃)₂, LnCO₃+, LnOHCO₃およびLnOH(CO₃)₂-とし て溶存することが示され、固相では、LnPO4・10H2Oのリン酸塩として沈殿することが示された (Lnは希土類元素を示す)。これらの地球化学的平衡計算結果は、上述の希土類元素の収着パター ンやバイオコロイド表面への収着分配係数が高いことに対する考察をサポートするものである。 また、Kirishima et al. (2022)は、幌延URLの350 m地下水を対象として、希土類元素のうちLa, Sm, HoおよびUを対象としたコロイドへの収着試験を実施しており、コロイドの収着挙動がリン 酸塩に制御されていることを明らかにしている。リンは生物にとって必須の元素であり、生体内 でエネルギーの貯蔵や遺伝情報物質だけでなく、すべての細胞で構成要素として用いられている。 微生物にとっても膜を構成要素としてリン酸基を合成しており、リン酸獲得のための様々な分子 機構が存在している。リン酸飢餓に対処する戦略も有しており、その1つとして、余分のリン酸を ポリリン酸として細胞内に蓄える機構も有している(図3.4-5)。したがって、微生物細胞の存在 下では、希土類元素がバイオコロイドにより収着する可能性が十分に考えられる。本結果から、 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。また、 本研究ではアクチノイド元素のアナログ元素として、希土類元素を対象とした試験を行ったが、 環境中でのアクチノイド元素の挙動は希土類元素に類似する可能性があり、アクチノイド元素の 挙動がリン酸塩に制御される場合には、アクチノイドの収着挙動に微生物細胞が影響及ぼす可能 性がある。また、メタン酸化反応などの微生物代謝に希土類元素が用いられる場合、類似挙動を 示すアクチノイド元素も利用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。

一方、亜セレン酸ナトリウムを添加した収着試験結果からは、添加したセレンは0.2 µm以上の サイズのコロイドへの収着反応は生じておらず、低濃度のセレンの存在下においては、1か月の試 験期間ではコロイド収着および微生物との相互作用の影響はほとんど生じていないことが示唆さ れた。一方で、65 µg/Lの比較的高いセレン濃度条件下にて、地下水中の微生物とセレン(IV)濃度 の変化について分析した結果、溶液中の全セレン濃度の減少が認められ、溶液中の沈殿物を走査 型電子顕微鏡で観察したところ、単斜セレン状の沈殿物や黄鉄鉱との共沈が観察されたほか、一 部の微生物細胞内に固体として濃集する様子が観察・分析された。このことから、セレンは地下 水中の微生物の代謝反応によって、4価から還元されて固体化され、溶液中から除去される可能性 が示唆された。16S rRNA遺伝子解析結果から、Seの代謝に関与する微生物種は、 *Deltaproteobacteria*綱などに属する一部の微生物であることが示された。これらの現象は、微生 物反応によってセレンが還元されて固体化されることを示す一方で、コロイド態の微生物細胞に 濃集する場合には、地下環境においてセレンの移行を促進させる可能性がある。今後、地下環境 における微生物のセレン代謝について、濃度依存性や代謝反応に関与する微生物種などに関する 知見の拡充が必要と考える。



図3.4-7 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。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)140 m地下水の全コロイドの存在下;無濾過溶液. (b) 140 m地下水の無機/有機コロイ ドの存在下;0.2 µmフィルター濾過溶液. (c)185 m地下水の全コロイドの存在下;無濾過溶液. (d) 185m地下水の無機/有機コロイドの存在下;0.2 µmフィルター濾過溶液. (e)250 m地下水の 全コロイドの存在下;無濾過溶液. (f) 250 m地下水の無機/有機コロイドの存在下;0.2 µmフィル ター濾過溶液. (g)350 m地下水の全コロイドの存在下;無濾過溶液.



図3.4-8 深度140 m (07V140M03孔)、185 m (08E140C01孔区間3)、250 m (09V250M02孔)、 350 m (13350C01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28日後

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、長期的な 時間スケールにおいて核種移行挙動に影響を及ぼす可能性があることから、地下施設建設に伴う 微生物代謝の変化について評価を行う必要がある。そこで、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孔お よび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た。

その結果、各ボーリング孔における地下水中の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)、区間3(深度185 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7年間で著しく変化していることが示された (図3.4-9)。一方で、深度140 mおよび350 mにおいては、その構成種の割合には変化が認めら れるものの、構成種はほとんど変化していないことが示された(図3.4-9)。水質については、Na、 Cl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。著しい変化が認 められる種として、Candidatus Altiarchaeales (SM1)が挙げられる。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の検出領域では亀裂表 面などの岩盤内部にバイオフィルムが形成されているものと推測される。これまでにSM1が優占 して検出されていたのは、壁面からの距離が約20 m以内の坑道壁面近傍の領域であったが(図3.4-9 (b), (c))、時間の経過とともにSM1の検出領域が坑道壁面から離れた31-46 mの領域まで拡大 するとともに、その現存量が著しく増加していることが明らかになった(図3.4-9(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。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 十分でないと推察される。しかしながら、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、SM1バイオフィルム形成領域が拡大すると予測される。

微生物種組成が地下施設建設の影響を受けて変化する一方で、大きな変化が認められない微生 物種も確認されている。坑道壁面から比較的距離のある空間で優占種として検出されている Deltaproteobacteria、 Betaproteobacteria、 Methanomicrobiaである(図3.4-9(a))。これらの 種は、地下施設建設の影響を大きく受けておらず、従来から地下環境に生息する土着由来の微生 物種であると推察される。実際の地層処分環境においても、処分場建設過程から閉鎖後の地質環 境安定状態までの間に、水理場の変化とともに地球化学・微生物特性が変化することが予想され るが、長期にわたる地質環境の変遷を経た後の核種移行環境では、これらの土着由来の微生物と の核種の相互作用が起こる可能性があることから、変化種と土着由来種に関する微生物種や代謝 反応ポテンシャルに関する知見は、長期的な核種移行影響を評価する上で重要であると考えられ る。優占種として検出されている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、特に坑道壁面から比較的離れた領域(深度185 m)では試料中の50 % 以上が*Deltaproteobacteria*に属する菌で構成されてい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、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。幌延の地下水中には その酸化還元状態から硫酸イオン濃度が限られているが、本研究成果により、これらの微生物は 固体硫黄(S⁰)とポリスルフィドを硫化水素(H₂S)へ還元できる硫黄酸化酵素遺伝子を持っているこ とが明らかにされた。この酵素は、固体硫黄だけでなく硫化水素も酸化することができ、酸素の ない環境下ではFe³⁺を用いて酸化反応を行っていると考えられている(H₂S + 6Fe³⁺ + 3H₂O → SO₃²⁻ + 6Fe²⁺ + 8H⁺)。このことから、これらの微生物は硫酸イオンがない環境下でも硫黄の酸 化/還元に関する循環が機能していることが推察された。また、このような硫黄代謝ポテンシャル は、金属容器の腐食に影響を及ぼす可能性のある硫化水素の生成と消費の観点からも極めて重要 な知見であるとともに、硫酸還元菌の中には重金属元素の還元反応を行うことができる種が多く 報告されていることから、地下環境における微生物が関わる硫黄代謝について、詳細なプロセス の評価を行う必要がある。



図3.4-9 地下水中の微生物群集組成の経時変化 (a) 08E140C01孔、(b) 07V140M03孔、(c) 09V250M02孔、(d) 13350C01孔

優占種である Deltaproteobacteriaに属する種のうち、全体の55%が Syntrophus属に属する種で占められていた。Syntrophus属は、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。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。検出されたSyntrophusおよび Methanomicrobiaは、その検出校正比が正の相関を示すことやDNA解析結果に基づく近縁種の代謝に関わる知見から、これらの種は共生関係にあり、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行っている可能性が示唆された。その他の優占種であるBetaproteobacteriaは、RhodocyclalesやMethylophilalesに属する種が検出されており、これらは、鉄酸化などの金属代謝やメタン酸化代謝に関連することが知られている。 メタン酸化菌のうちメタノール酸化反応を中心代謝とするメタンおよびメタノール酸化細菌の多くは、カルシウムタイプだけでなく希土類タイプのメタノール脱水素酵素を有することが知られていることから、これらの種が希土類元素や挙動が類似するアクチノイド元素と相互作用反応を行う可能性がある。以上のことから、地層処分システムの核種移行フェーズに優占種として存在すると考えられる土着由来の微生物種は、金属との相互作用を行う機能を有する可能性があり、微生物影響の不確実性を低減させるためには、それらの核種移行影響を評価する必要がある。

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還元的な状態に保持さ 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

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)。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。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、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(Sueoka et al., 2019; Suzuki et al., 2020)、堆積岩内部 における微生物の分布特性を明らかにするために、幌延URLの周辺で実施されたボーリング調査 によって採取された岩石試料を対象として分析評価に着手した。

その結果、声問層及び稚内層の深部堆積岩を対象とした岩石薄片試料すべてにおいて、微生物 細胞の存在を確認することができた。観察結果から、稚内層の岩石内部では、亀裂表面に微生物 細胞が分布する様子が確認されたが、声問層の岩石内部では、亀裂表面に分布する細胞だけでな く、空隙を充填するように分布する細胞や鉱物表面に付着するように分布する細胞が確認できた (図3.4・10)。声問層の空隙サイズは約60%であることが報告されており、約30%の稚内層と比較すると微生物にとっては住処としての空間が多いと考えられ、地下環境では空隙サイズが微生物の存在を律速する要因の一つであることが推察された。また、鉱物表面に付着する様子から、微生物が直接鉱物からエネルギーを獲得している可能性も推察された。これらの薄片試料を対象として、FE-SEM-EDS、レーザーアブレーションICP-MS、走査型軟X線分光顕微鏡(SFXM)による複数の分析手法を用いて、岩石中の元素分布に関するデータを取得した。その結果、亀裂内部の微生物の存在が示唆された領域では、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、微生物農集部の亀裂内部では、FeやSも検出されたことから、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。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., 2007)、後者の可能性も考えられる。今後、本結果の妥当性や代表性確認を行うとともに、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それらの長期的な物質移行挙動への影響について評価を進めることで、核種移行への微生物影響のより現実的な評価につながると考える。



図3.4-10 声問層及び稚内層の岩石コア試料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、声問層では岩石粒子周辺や空隙に細胞が分布する様子が観察され た。稚内層では亀裂を充填するように微生物細胞が観察された。

4) 微生物影響を考慮した核種移行の定量的評価と課題

地下環境に存在する微生物が処分システムの安全機能に及ぼす影響を評価するためには、地下 環境の現象理解を深めるとともに、性能評価において不確実性となる現象について課題を抽出し、 不確実性を低減させるための研究開発を実施、その成果を性能評価にフィードバックさせるとい う一連の影響評価を繰り返し実施することが望ましい。また、抽出された課題について、室内試 験だけでなく、フィールド調査、原位置試験を組み合わせた評価をおこなうことで、より信頼性 の高い微生物影響評価を行うことが可能になる。天然バリアにおけるコロイドおよびバイオフィ ルム形態で存在する微生物の核種移行影響について、先行事業において提示した評価フローに基 づき、これまでの既存の知見および本事業で得られた成果をもとに、情報を更新した(図3.4-11、 図3.4-12)。コロイドの核種移行影響については、堆積岩地下環境を対象として、コロイド密度、 微生物密度、全コロイドおよびバイオコロイドへのセレンや希土類元素の分配係数を拡充した。 バイオフィルム影響については、本事業にて、実際の地下環境の岩盤内部に微生物がバイオフィ ルムの形態で存在することを明らかにした。また、バイオフィルムに対する元素の透過性の高さ や地下環境における低栄養塩・低空隙サイズの観点から、核種移行を促進させるレベルの高密度 で形成される可能性は低く、母岩の収着・拡散能力を低下させる可能性も低いと判断された。バ イオフィルムは、その生物学的性質上、物質表面に付着してある程度成熟すると、環境状態の変 化や炭素源の枯渇、代謝産物の蓄積等に起因してバイオフィルムから菌体が脱離し、浮遊菌とし て存在した後、また物質表面に付着するといったライフサイクルを有することが知られている。 したがって、核種を高濃度に濃集したバイオフィルムが岩石表面からはがれてしまう可能性もあ り得る。しかしながら、万が一、核種を濃集したバイオフィルムが岩盤から剥離した場合におい ても、その密度により速やかに沈降するか、また新たに別の岩盤表面にバイオフィルムを形成す ると推定されることから、天然バリアの安全機能が損なわれることはないと考えられる(図3.4-12)。これらの判断は、地下環境に形成されたバイオフィルムに関するフィールド調査と取得デ ータに基づいたものである(図3.4-12)。

これらの微生物の核種移行への影響を定量的に評価するためには、微生物が関与する事象を核 種移行パラメータとして反映した核種移行解析をおこなうことで、不確実性を低減させたより信 頼性の高い評価を行うことが可能となる。そこで、本研究では、汎用シミュレーションソフトウ エアGoldSim(ver. 10.1: GoldSim Technology Group, 2010)を用いて、これまで日本原子力研究 開発機構発機構で構築されてきた核種移行解析モデル(核燃料サイクル開発機構, 1999; 仲島ほ か, 2009; 小尾・稲垣, 2010)に微生物パラメータを追加し、微生物影響を考慮にいれた核種移行 解析を実施した。なお、本検討では、地層処分の人工バリア及び天然バリアを対象とし、天然バ リアについては、バイオフィルムの分布領域が主に亀裂性媒体であると推測されることから、天 然バリアを亀裂性媒体として取り扱う核種移行モデルを対象として微生物影響評価を試みた。



**COLFRACでは速度論を考慮することが可能

図 3.4-11 コロイドが核種移行に及ぼす影響に関する評価手法フローの例



図 3.4-12 バイオフィルムが核種移行に及ぼす影響に関する評価手法フローの例

解析には、本事業で拡充した、天然地下環境を対象とした全コロイド濃度、微生物濃度、バイ オフィルム乾燥密度、バイオフィルム厚みのデータを使用した。また、天然地下水中に存在する 全コロイド及び微生物コロイドを対象とした、天然コロイドへのセレンや希土類元素の分配係数 に関する取得データについても解析に使用した。

本事業における解析(以下、R4とする)では、先行研究(日本原子力研究開発機構, 2018;以 下、H29とする)の解析から、再現性確認試験および地下水試料数の増加等により全コロイドお よびバイオコロイドへの分配係数値を見直しており、全コロイドはH29よりも低い値、バイオコ ロイドは高い値で設定されている。バイオフィルムについては、原位置環境からの取得データを 拡充し、乾燥密度が18.8 kg/m³から0.108 kg/m³と2桁低い値として見直しをおこなった。核種移 行解析の結果、第2次取りまとめにてコロイド影響を考慮しないレファレンスケースやコロイド影 響を考慮した解析ケースと比較して、全コロイド影響を考慮した解析ケースにおいて核種移行の 助長が顕在化することが示された(図3.4-13)。第2次取りまとめにおけるコロイドの影響を考慮 した解析ケースでは、コロイドへの分配係数を10³ m³/kg、 コロイド濃度10⁻³ kg/m³と設定してお り、R4では2桁ほど高い分配係数、約2倍のコロイド濃度が設定されているためと考えられる。一 方で、バイオフィルム影響を考慮した場合、H29では遅延効果が顕著に表れていたが、地下環境 データを拡充してより現実的なバイオフィルム乾燥密度を設定した結果、地下環境に形成される バイオフィルムの密度や厚みでは、顕著な遅延効果はもたらされない可能性が示唆された。微生 物コロイドを考慮した場合、全コロイドに対する微生物コロイドの密度や核種の分配係数値が低 いことから、全コロイドケースより総線量は低い傾向が示された。R4解析ケースでは、実際の地 下環境を対象として、コロイドやバイオフィルムの濃度、核種の分配係数等に関する知見を拡充 しており、より現実的な信頼性の高い影響評価結果が得られているものと考える。

本事業において、天然の地下環境に存在する全コロイド、微生物コロイド、バイオフィルムを 対象として、それらの特性データ及び核種の分配係数に関する知見を拡充し、これらの影響を考 慮した定量的な核種移行影響評価を行う手法を整備した。しかしながら、実際の地下環境では岩 石への核種の収着・拡散による分配が期待されているが、本事業で取得した地下水中に存在する コロイドを対象とした収着試験では、岩石への収着および拡散等の影響が考慮されていない。し たがって、今後、岩石-地下水-全コロイド(無機/有機/微生物)の相互作用について信頼性の高 い評価を行うためには、原位置の地下環境を対象とした試験を実施し、本事業で取得した試験結 果の妥当性を評価する必要がある。また、本解析モデルには微生物特有の重要な現象である核種 の取込・形態変換・鉱物化等に関わる不可逆反応が考慮されていない。長期的な時間スケールで 微生物の核種移行への影響を評価するためには、微生物代謝を考慮に入れた影響評価モデルの構 築やデータの整備を行っていく必要がある。



(3) 5か年の成果と今後の課題

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とともに、性能評価 解析に必要なコロイドや微生物の濃度、収着分配挙動、多様性・代謝反応の空間分布等の基礎的 知見を取得することを目的として幌延URLを活用した研究を実施した。地下環境中のコロイドや バイオフィルムへの元素の収着挙動を評価した結果、コロイドについてはバイオコロイドが希土 類元素の収着挙動に顕著な影響を及ぼす可能性が示された。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、バイオフィルムの空間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、 地下施設建設過程において、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、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領域が拡大することが明 らかにされた。一方で、地下環境に生息する土着由来の微生物について、種組成・分布領域・構 成比・代謝反応に関わる情報をゲノム解析手法を用いて取得し、核種との相互作用や金属腐食に 及ぼす影響について知見を拡充した。これらの成果を踏まえて、地層処分システムにおいてコロ イドやバイオフィルムによる微生物影響を考慮した定量的な核種移行影響評価を行い、地下環境 においてコロイド濃度およびコロイドへの核種の分配が高い場合に核種移行が助長される可能性

を示した。本研究における一連の成果から、性能評価を行う上で必要なデータを拡充し、定量的 な核種移行評価を行うためのパラメータを整備するとともに、最新の知見を踏まえた微生物影響 評価手法について提示することができた。

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、地下 環境における微生物コロイドを含む天然コロイドへの核種の収着/取込特性とメカニズムに関す る現象解明を行う必要がある。また、深部地下環境にて原位置試験などにより、取得した試験結 果の妥当性を確認することで、信頼性の高い評価を行うことが可能になる。最終的に、処分サイ トが与えられた際に微生物影響評価手法の技術を提示するとともに、処分施設建設過程から閉鎖 後の地質環境安定状態までの長期にわたるスケールにおいて、地下環境の微生物現存量及び代謝 反応の空間分布評価と現象モデルを構築し、核種移行フェーズにおける微生物影響評価を行うた めの基礎情報が集積されていることが必要である。

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.
- Anderson, C., Jakobsson, A.-M. and Pedersen, K., Influence of in situ biofilm coverage on the radionuclide adsorption Capacity of subsurface granite, Environmental Science & Technology, vol. 41, pp.830-836, 2007.
- 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.
- Bartók, A. P., Kondor, R. and Csányi, G., On representing chemical environments, Physical Review B, Vol. 96, 019902, 2013.
- 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.
- 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, 2005a.
- Bradbury, M. H. and Baeyens, B., Sorption modelling on illite. Part I: Titration measurements and the sorption of Ni, Co, Eu and Sn, Geochimica et Cosmochimica Acta, vol. 73, pp. 990-1003, 2009a.
- 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.

- Charlet, L., Kang, M., Bardelli, F., Kirsch, R., Gehin, A., Greneche, J.-M. and Chen, F., Nanocomposite pyrite-greigite reactivity toward Se(IV)/Se(VI), Environmental Science & Technology, vol. 46, pp. 4869-4876, 2012.
- 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.
- Diener, A., Neumann, T., Kramar, U. and Schild, D., Structure of selenium incorporated in pyrite and mackinawite as determined by XAFS analyses, Journal of Contaminant Hydrology, vol. 133, pp. 30-39, 2012.
- Ekendahl, S., Arlinger, J., Ståhl, F. and Pedersen, K., Characterization of attached bacterial populations in deep granitic groundwater from the Stripa research mine with 16S rRNA gene sequencing technique and scanning electron microscopy, Microbiology, Vol. 140, pp. 1575-1583, 1994.
- Finck, N., Dardenne, K., Bosbach, D. and Geckeis, H., Selenide retention by mackinawite, Environmental Science & Technology, vol. 46, pp. 10004-10011, 2012.
- Flemming, H. C. and Wingender, J., The biofilm matrix, Nature Reviews Microbiology, Vol. 8, pp. 623-633, 2010.
- Fredrickson, J. K. and Fletcher, M. (eds.), Subsurface microbiology and biogeochemistry, Wiley-Liss, 2001.
- 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., 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.
- GoldSim Technology Group, GoldSim user's guide, GoldSim version 10.1., 2010.
- Gustafsson, J. P., Visual MINTEQ 3.1 user guide, 2016.
- 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.
- Iman, R. L. and Shortencarier, M. J. A., A FORTRAN 77 program and user's guide for the generation of latin hypercube and random samples for use with computer models, NUREG/CR-3624 / SAND83-2365, 1984.
- 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.
- Ise, K., Sato, T., Sasaki, Y. and Yoshikawa, H., Development of simplified biofilm sorption and diffusion experiment method using *Bacillus* sp. isolated from Horonobe Underground Research Laboratory, Scientific Basis for Nuclear Waste Management XXXVII, vol. 1665, pp. 171-177, 2014.
- 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.
- 核燃料サイクル開発機構,わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性 地層 処分研究開発第2次取りまとめ 分冊3, JNC TN1400 99-023, 1999.
- Kato, H., Nakazawa, T., Ueta, S. and Yato, T., Measurements of effective diffusivities of tritiated water in sand-mixed bentonite, Proceedings of the 7th International Conference on Radioactive Waste Management and Environmental Remediation, Nagoya, Japan, 1999b.
- 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.
- 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.
- Kirishima, A., Terasaki, M., Miyakawa, K., Okamoto, Y., Akiyama, D., Deep groundwater physicochemical components affecting actinide migration. Chemosphere, 289, 133181, 2022.
- 小尾繁, 稲垣学, GoldSimによる核種移行パラメータの時間的変化を考慮した地層処分核種移行

解析モデルの構築, JAEA-Data/Code 2010-006, 2010.

- 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.
- 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.
- 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.
- 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.
- 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.
- 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 vol. 2, Pergamon, Amsterdam, 332p, 2000.
- Milne, C. J., Kinniburgh, D. G. and Tipping, E., Generic NICA-Donnan Model Parameters for

Proton Binding by Humic Substances, Environmental Science & Technology, vol. 35, pp. 2049-2059, 2001.

- Milne, C. J., Kinniburgh, D. G., van Riemsdijk, W. H. and Tipping, E., Generic NICA-Donnan model parameters for metal-ion binding by humic substances, Environmental Science & Technology, vol. 37, pp. 958-971, 2003.
- Mizuno, T., Milodowski, A. E. and Iwatsuki, T., Precipitation sequence of fracture-filling calcite in fractured granite and changes in the fractionation process of rare earth elements and yttrium, Chemical Geology, vol. 603, 120800, 2022.
- 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.
- 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.
- 仲島邦彦,小尾繁,蛯名貴憲,江橋健,稲垣学,GoldSimによる第2次取りまとめレファレンスケースの安全評価モデルの構築,JAEA-Data/Code 2009-009, 2009.
- Newsome, L., Morris, K. and Lloyd, J. R. The biogeochemistry and bioremediation of uranium and other priority radionuclides, Chemical Geology, vol. 363, pp. 164-184, 2014.
- 日本原子力研究開発機構, 平成24年度 地層処分技術調査等事業 高レベル放射性廃棄物処分関連 処分システム化学影響評価高度化開発, 2013a.
- 日本原子力研究開発機構(2010): 幌延深地層研究計画地下施設での調査研究段階(第3段階)計画-その1: 深度350mまでの調査研究計画-
- 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評価高度化開発 -6ヶ年研究成果の取りまとめ-, 2013b
- 日本原子力研究開発機構, 平成25年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発 報告書, 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, 2016a.
- 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 地質環境長期安定性評価確証技術開発報告書, 2016b.
- 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 5か年成果報告書,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, 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報告書, 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, 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, 2022.
- 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,阿倍寛信,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-Resarch 2007-044, 2007.
- O'Toole, G., Kaplan, H. B. and Kolter, R., Biofilm formation as microbial development, Annual Review of Microbiology, vol. 54, pp. 49-79, 2000.
- Parkhurst, D. L. and Appelo, C. A. J., Description of input and examples for PHREEQC version 3-A computer program for speciation, batch-reaction, one-dimensional transport, and inverse geochemical calculations, U. S. Geological Survey Techniques and Methods Chapter A43, 2013.
- Pedersen, K., Subterranean microorganisms and radioactive waste disposal in Sweden, Engineering Geology, vol. 52, pp. 163-176, 1999.
- Pedersen, K., Bomberg, M. and Itävaara, M., Summary report microbiology of Olkiluoto and ONKALO groundwater, POSIVA 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.
- Picone, N., and Op den Camp, H. J. M., Role of rare earth elements in methanol oxidation, Current Opinion in Chemical Biology, vol. 49, pp. 39-44, 2019.
- 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.
- Saltelli, A. and Homma, T., LISA. Package user guide Part III SPOP (Statistical POst Processor). Uncertainty and sensitivity analysis for model output. Program description and user guide, Commission of the European Communities, physical sciences EUR 13924, 1992.
- Scott, G. D., Kilgour, D. M., The density of random close packing of spheres, Journal of Physics D: Applied Physics, vol. 2, pp.863-866, 1969.
- 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.

- Smart, N.R., Reddy, B., Rance A.P., Nixon, D.J., Frutschi, M., Bernier-Latmani, R., Diomidis, N., The anaerobic corrosion of carbon steel in compacted bentonite exposed to natural Opalinus Clay porewater containing native microbial populations. Corrosion Engineering, Science and Technology, 52, pp.101-112, 2017.
- Soltermann, D., Marques Fernandes, M., Maeyens, B., Miehé-Brendlé, J. and Dähn, R., Competitive Fe(II)-Zn(II) uptake on a synthetic montmorillonite, Environmental Science & Technology, vol. 48(1), pp. 190-198, 2014.
- 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, vol. 47, pp. 36-42, 2010.
- 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.
- 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., Ito, T., Akagi, Y., Satoh, H. and Martin, A. J., Effects of fine-scales surface alterations on tracer retention in a fractured crystalline rock from the Grimsel Test Site, Water Resources Research, vol. 54(11), pp. 9287-9305, 2018.
- Tachi, Y., Ochs, M. and Suyama, T., Integrated sorption and diffusion model for bentonite. Part 1: Clay-water interaction and sorption modeling in dispersed systems, Journal of Nuclear Science and Technology, vol. 51(10), pp. 1177-1190, 2014.
- Tachi, Y., 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), The Clay Mineral Society Workshop Lectures Series, vol. 21(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.

- 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.
- Thurman, E. M., Organic geochemistry of natural waters, Springer, Berlin, 509p, 1985.
- 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.
- West, J. M., McKinley, I. G. and Stroes-Gascoyne, S., Microbial effects on waste repository materials; In: Keith-Roach, M. J. and Livens, F. R. (eds.), Interactions of microorganisms with radionuclides, Elsevier, Amsterdam, 408p, 2002.
- 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.

4. ニアフィールド性能の総合評価技術開発

4.1 目的とアプローチ

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)。

なお、サブタスク1の実施にあたっては、サブプロジェクト1 (SP1) におけるニアフィールド 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で得られた成 果との関係も踏まえつつ、統合化技術の構築を進めた。また、サブタスク2の実施にあたっては、 サブプロジェクト2 (SP2) における 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・パラメータ整備で得られた成果との関係も踏まえつつ、サブプロジェクト3 (SP3) においてニアフィールド性能を総合的に評価する上で不可欠となる緩衝材変質に伴う場の長期的 な変遷を考慮した核種移行パラメータの設定手法の開発を SP2と連携しつつ進めた。

4.2 現象解析モデルの統合化技術の構築

人工バリア及び周辺の岩盤からなるニアフィールドを対象に、個別のモデルを統合し、ニアフ ィールド環境の変遷を解析することが可能な統合化技術の構築を行った(サブタスク1)。

4.2.1 現象解析モデルの統合化技術開発で対象とする課題の選定

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、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 ーチを採用した(図4.2-1)。



図4.2-1 ニアフィールド性能の総合評価技術開発に向けたアプローチの概念図

また、このアプローチに基づき、第2次取りまとめ(電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構、
2005) での従来のシステム性能評価モデルを用いた感度解析による相対的に重要な安全機能の抽 出や、安全機能が維持される条件を評価するため関連する現象及びそれらの相互作用(複合現象) の抽出を行い、安全機能の重要度と個別現象モデルのモデル化の進捗状況を総合的に勘案し、複 合現象解析モデルの統合化技術開発で重点的に取り組むべき課題を設定した(表4.2-1)。さらに、 その中から個別のモデルを統合するボトムアップ的な視点からの検討に加えて、地層処分システ ム全体の核種の閉じ込め性能(核種移行解析などにより評価)からのトップダウン的な視点を取 り入れて検討し、「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選定した。な お、設定された課題のうち、閉鎖後過渡期の人工バリア挙動の予測についてはSP1における課題 として、ニアフィールド岩盤中の核種移行遅延の予測に関してはSP2における課題として、各々 取り組み、緩衝材の長期変質挙動の予測についてはSP3において、SP1及びSP2と連携しながら課 題として取り組んだ。

| 課題 | 安全機能 | 目標 |
|--|--------------------|--|
| 1:閉鎖後過渡期の人工バリア 挙動の予測 | オーバーパック 閉じ込め性 | 過渡期における人工バリアの変遷挙動 を予測して、所期のオーバーパック寿命 が達成される環境となることを示す。 |
| ②:ニアフィールド 岩盤中の核種 移行遅延の予測 | 岩盤中の 核種移行遅延 | 岩盤中の核種移行場を現実的に想定した場合,岩盤の核種移行遅延機能が十分に発揮されることを示す。 |
| ③:緩衝材の長 期的変遷挙動の 予測 | 緩衝材止水性・ コロイドろ過性 | 人工バリア材料間の相互作用を考慮し た長期にわたる緩衝材の状態変遷を予 測し、止水性とコロイドろ過性等の安全 機能が維持されることを示す。 |

表4.2-1 複合現象解析モデルの統合化技術開発で重点的に取り組むべき課題

4.2.2 現象解析モデルの統合化のためのプロトタイプシステムの開発

本事業の先行事業である「処分システム評価確証技術開発」(平成25年度~平成29年度)では、 ニアフィールドのシステム変遷と核種移行解析の体系的評価技術として、ニアフィールドシステ ム変遷に関する複合現象の解析とその現象解析結果に追随して核種移行解析を行う手法を開発し、 ニアフィールド複合現象評価手法、核種移行評価手法、共通モデル・シナリオ・データベース及 び成果の体系化手法をまとめたニアフィールド総合評価システムを構築した(日本原子力研究開 発機構,2016;2017;2018)。一方、当該システムで対象とした現象は、コンクリートのひび割 れ・進展問題に限定されていた。このため、本事業の検討で抽出された三つの課題を対象として、 ニアフィールドの複合現象を評価するシステムを構築するには、統合化に向けて必要となる個別 の現象モデルを見直すと共に、それらを連携させるためのシステム開発が必要であった。

本事業での複合現象の対象となるセメント系材料やオーバーパック(鉄)と緩衝材との間では、 多様な相互作用が生じ、これらが有機的に影響しあいながら全体として長期的な変質をもたらす と考えられる。このような変質現象は、変質の促進あるいは抑制の正負のフィードバックループ を内包する非線形の連成現象である。そこで、このような化学的現象、物質輸送現象及び力学的 現象に跨るフィードバックループを含む非線形挙動が起こり得る領域や現象相関のポイントを明 確にしながら、緩衝材の長期的な変遷の全体像をインフルエンスダイアグラムとして整理した(日 本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター,2019)。また、インフルエンスダ イアグラムを基に、緩衝材の止水性とコロイドろ過性などの安全機能を維持する観点から、好ま しくない状況に至る状態変遷のパターンを整理した(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)。その結果、安全機能が失われる可能性が高い状態変遷の一つと して、岩盤中の亀裂を通して地下水が流入し、コンクリート支保のセメントが溶出し、それに伴 い緩衝材の変質が進展すると共に、オーバーパックとの境界領域でも鉄との相互作用によって変 質が進展し、両者の変質領域が重なることで緩衝材中を横断する様な変質状態が想定された。このような状態変遷の発生には、水理、力学及び化学一物質輸送に跨る現象が含まれる。

このため、上述した水理、力学及び化学一物質輸送の現象を考慮した連成解析を行うため、先 行事業である「セメント材料影響評価技術高度化開発」(平成23年度~平成26年度)及び「処分シ ステム評価確証技術開発」(平成25年度~平成29年度)において、ニアフィールドにおける複合現 象の評価において活用された実績(日本原子力研究開発機構,2012;2013;2014a;2014b;2015a; 2015b;2016;2017;2018)があり、緩衝材の状態変遷を対象とする評価においても活用可能な 解析ツールを選定した。具体的には、化学-物質輸送・水理連成解析コードとしてQPAC (Quintessa Ltd., 2013)、力学解析コードとして、MACBECE(三原ほか,2010;平野ほか,2016; 三原ほか、2017;日本原子力研究開発機構,2018)を利用した。

また、複数のモデルを連携しつつ解析を行うシステムとして、先行事業「システム評価確証技術開発」(平成25年度~平成29年度)のニアフィールド複合現象評価システムにおいて活用された モデル連成フレームワークであるOpenMI (Open Geospatial Consortium, 2014)を活用し、シ ステム開発を行った。本事業において開発したプロトタイプシステムの概要を図4.2-2に示す(日 本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2020)



図4.2-2 現象解析モデルに関わるプロトタイプシステムの概要 (図中の「Wrapper」とはOpenMIにおけるインタフェイスを意味する)

プロトタイプシステムでは、QPACを用いて鉱物の溶解・沈殿及び液相の移動を連成解析し、化 学的な変遷指標(例えば、間隙率等)をMACBECEに引き渡す。MACBECEでは、化学変遷に依 存した力学挙動を計算し、変形を体積ひずみの形でQPACに引き渡す。このような計算を繰り返 すことで、人工バリア材料間での相互作用に伴う水理、力学および化学一物質輸送の連成現象を 考慮しながら、長期に亘る緩衝材の状態変遷を予測する。

上述したような本事業で開発したプロトタイプシステムを用いて、コンクリート支保やオーバ ーパックと緩衝材との相互作用を対象に、水理・物質輸送-化学反応と水理・物質輸送-化学反 応-力学の連成解析結果の比較を行い、緩衝材の変形や膨潤などの力学的な影響が水理・物質輸 送や化学反応の特性に与える影響の考察等を行った(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)。図4.2-3に水理、力学及び化学一物質輸送の3つの現象を考慮し た連成解析結果の一例を示す。なお、図4.2-3においてドーナツ状の緩衝材の中心部にオーバーパ ックが位置し、緩衝材の外側にコンクリート支保が位置する。また、Case Aは水理・物質輸送-化学反応解析、Case Bは水理・物質輸送-化学反応に力学解析を連成させたケースである。



図4.2-3には、水理・物質輸送及び化学反応の特性に関わるパラメータの例として、間隙率及び モンモリロナイト残存量の経時変化の解析結果を示した。力学との連成を考慮したケースでは、 緩衝材中の体積ひずみの経時変化に係る解析結果についても併せて示した。間隙率の変化につい て比較すると、力学との連成の有無に依らず、5万年を過ぎる辺りからコンクリート支保のひび割 れと接する緩衝材の外側部分において、間隙率の低下が認められる。力学との連成の有無による 違いは小さいものの、連成を考慮した場合の方が10%程度、間隙率の低下割合が小さくなった。 また、モンモリロナイト残存量の変化について比較すると、変化の傾向は間隙率の場合と類似し ているが、時間的にはより早い段階から残存量の顕著な変化が認められる。さらに、モンモリロ ナイト残存量の変化は、オーバーパックと接する緩衝材の内側部分及びコンクリート支保のひび 割れと接する緩衝材の外側部分の両方で認められる。間隙率の場合と同様、力学との連成の有無 による違いは小さいものの、連成を考慮した場合の方が5%程度、残存量の低下割合が小さくなっ た。なお、力学解析により推定された緩衝材の体積ひずみの変化の傾向も間隙率やモンモリロナ イト残存量の変化と調和的であり、時間の経過と伴にひずみが大きくなる領域がオーバーパック と接する緩衝材の内側部分から外側部分に向かい拡がった。しかしながら、緩衝材の体積ひずみ は、最も大きくなったオーバーパックと接する緩衝材の内側部分でも、最大で6%程度であった。 このため、この解析ケースでは、オーバーパックの腐食膨張に伴う緩衝材へひずみ応力の影響が 小さかったため、力学との連成の有無による水理・物質輸送や化学反応の特性に与える影響も小 さかったと考えられる。

上述した複数の現象を対象とした連成解析においては、より現実的な評価の観点では、網羅的 に連成現象を取り込んだモデルでの評価が重要になる。一方、現象間によっては相互作用の影響 が小さい連成現象もあり得る。そのような場合、複合現象を対象とした連成解析にあたり、簡略 化や単純化を図れる要素となり得る可能性もある。網羅的に連成現象を取り込んだ現実性の高い 評価モデルの開発は、このような可能性を検討する上でも必要であり、図4.2-3に示したような水 理、力学及び化学一物質輸送の3連成解析は、複合現象により相互に与える影響の有無に係る知見 を整理する上でも重要であると考えられる。このような検討の前提として、連成解析で用いられ る解析コードの検証・確証が十分に確認されていることも重要になる。

4.2.3 プロトタイプシステムの検証・確証に関わる現状の整理

連成解析コードを用いて解析・評価を行う場合、解析結果の信頼性や妥当性を担保する上で、 各々の解析コードの検証事例やどのような現象を対象とした確証事例があるかを把握しておくこ とが重要である。そこで、緩衝材の長期変質挙動の評価にあたり、評価対象となるバリア材の種 類またはバリア材料間での相互作用、評価対象となる個別現象または連成現象を軸に、関係する 解析コードの検証・確証に関わる現状を整理し、表4.2-2にまとめた(日本原子力研究開発機構・ 原子力環境整備促進・資金管理センター, 2020)。

| 材料 連成 | セメント | ベントナイト | 鉄-ベントナイト | セメントーベントナイト |
|-----------------------|--|--|---|---|
| 水理・物質 輸送一化学 | ・検証^{*1} されたコード (QPAC)を用いた確 証^{*2}例あり 【セメント材料影響評 価技術高度化開発】 (日本原子力研究開発 機構, 2014a; 2015a) | ・検証^{*1}されたコード (QPAC)を用いた確 証^{*2}例あり 【セメント材料影響評 価技術高度化開発】 (日本原子力研究開発 機構, 2014a; 2015a) | ・検討中(QPAC) ・モデル開発例あり 【処分システム化学影響 評価高度化開発】 (日本原子力研究開発機構, 2012b; 2013b) ・確証^{※2}用データ取得 中(SP1: ナチュラルア ナログとしての考古学的 遺物の調査) | ・検証^{*1}されたコード (QPAC)を用いた確 証^{*2}例あり 【セメント材料影響評 価技術高度化開発】 (日本原子力研究開発 機構, 2015a) ・TRU 廃棄物処理・処 分技術高度化開発でも 確証^{*2}中 |
| 力学 | ・検証^{*1}されたコード ・検証^{*1}されたコー (MACBECE)を用い (MACBECE)を用い (MACBECE)を用 た確証^{*2}例あり 人で確証^{*2}例あり 【セメント材料影響評 (奥津ほか, 2004) 価技術高度化開発】 (日本原子力研究開発 機構, 2014a) | | ・検討中 (MACBECE) | ・検討中 (MACBECE) |
| 水理・物質 輸送-化学 -カ学 | 未検討 | ・検討中(QPAC+ MACBECE) ・現象理解及びデータ 取得中(SP1:シリカ セメンテーション) | ・検討中(QPAC+ MACBECE) ・モデル開発中(SP3) | ・検討中(QPAC+ MACBECE) ・モデル開発中 (SP3) |

表4.2-2 複合現象解析モデルの検証・確証に関わる現状

※1)数値モデル解とシミュレーション解の照合のように、数値モデル化して得られた結果が適切であるかどうか 確認することを、ここでは「検証」という。

※2) 適切なデータ・パラメータを用いて、現象(室内試験や原位置試験データなど)に対して適切な数値シミュレーションが行われているかどうか確認することを、ここでは「確証」という。

コンクリート支保や緩衝材単独のケースに対しては、水理・物質輸送-化学反応及び力学解析 に対して、各々、QPAC及びMACBECEによる確証事例があるものの、バリア材料間での相互作 用に係るケースでは、モデルの開発段階や解析コードを用いた確証段階のものが含まれる。特に、 力学解析に関して、バリア材料間での相互作用を対象とした場合での確証や水理・物質輸送-化 学反応との連成を考慮した場合の確証については、検討段階のケースが多い。このような現状を 鑑みると、開発した評価システムのプロトタイプでは、バリア材料間での相互作用を対象に、力 学解析を含めた連成解析結果の信頼性や妥当性を十分に判断可能なレベルには至っていない可能 性があると考えられた。このため、まず、緩衝材の長期的変質挙動に関わる連成解析として、水 理・物質輸送-化学反応に重点をおき、力学を含めた連成解析のための評価システムの改良は、 水理・物質輸送-化学反応に係る連成解析の妥当性確認に概ね目途がついた段階で、再度取り組 みを検討することとした。

4.2.4 プロトタイプシステムを用いた検証に関わる検討

4.2.4項での整理を踏まえ、本事業での統合化技術開発においては、プロトタイプシステムで取り扱われている水理・物質輸送-化学反応に関わるシステムを対象とした検証に関わる検討を行った。

(1) ベンチマーク解析

プロトタイプシステムで用いられている水理・物質輸送ー化学反応の連成解析には、QPACが 用いられている。本事業におけるQPACのベンチマーク解析としては、Marty et al. (2015)が行 ったコンクリートー粘土層の相互作用を対象に水理・物質輸送ー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)との比較に基づいたベンチマーク解析を参考にした。ベンチマーク解析の一例として、 pH及びイオン交換反応に関与する元素濃度の比較結果を図4.2-4に示す。



図4.2-4 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)

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。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た。また、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 ていた。このように、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。これらより、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。

(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り、前者の計算を踏まえて 後者の間隙率や透水係数を計算する際、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。このような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、緩衝材の長期変質挙動に関わる解析結果を対象とし、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いことをNeumann criteria(ノイマン条 件)を満たしていることに基づき確認した。

(3) メッシュサイズが解析結果に与える影響に係る検討

水理・物質輸送-化学反応の連成解析では、メッシュサイズの設定の違いにより、異なる材料 間での相互作用に伴う間隙変化の挙動が異なり(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。そこで、Marty et al. (2009)を参考に、コンクリート-粘土層の相互作用を対象とし、メッシュサイズの設定や 反応速度(反応比表面積)の違いが解析結果に与える影響についてQPACを用いて検討した。検討 結果の一例を図4.2.5に示す(日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2021)。



図4.2-5 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)コンクリートー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った。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っ た。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 れた。なお、QPACを用いた現状での解析では、コンクリートー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ものの、QPACを用いた解析では、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ことを確認した。

4.2.5 水理・物質輸送-化学反応の連成に関わる複合現象を対象にした統合化技術の信頼性向上 に関わる検討

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信頼 性向上の一環として、QPACを用いた緩衝材の長期的変質挙動に関わる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た。レビューでは、セメントーベントナイト及び鉄ーベント ナイト相互作用に関わる類似した解析・評価を行った経験を有する海外の専門家により、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した(表4.2-3: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,2022)。また、レビューコメントを踏まえ、セメントーベントナイト及び鉄ーベント ナイト相互作用に関わるモデルの見直し等に関わる検討を行った。

| レビューコメント | コメントへの回答及び今後の対応案 | | | |
|--|--|--|--|--|
| セメントーベントナイト相互作用 | | | | |
| 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。25℃、~数千年程度での石英の沈殿が想定し難い。溶存シリカ濃度は、モンモリロナイト安定性(溶解)にも影響を与えるので注意が必要。 | ・解析で使用している石英の溶解・沈殿速度式の適用条件(pHとの関係) を再確認する。 ・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行う。 | | | |
| 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、SO ₄ 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、SepioliteはM-S-Hの代替として想定されていると思われるがM-S-Hの熟力学データが利用可能であれば考慮した方が良い。 | ・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について試解析した。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を検討する予定。また、小田らのシナリオは、Na-K-Ca系での想定であり、より複雑な系(Na-K-Ca-Mg/Fe-Cl-SO_4等)で想定される鉱物変遷のシナリオも今後検討の余地がある。M-S-Hの熟力学データは、別事業で整備中であり、今後、TDBへの取り込みを検討する予定。 | | | |
| ③5万年以降、セメント支保一緩衝材の境界で閉塞が生じている。 この種の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。 | ・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、EDL、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ほか、2020)。複数間隙の取扱いについては、今後の課題と認識。 | | | |
| ④比較的短期(~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、現実的ではないのでは。 | ・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。 | | | |
| 鉄ーベントナイト相互作用 | | | | |
| ⑤鉄ー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(III)に富んだサボナイトのような2:1型の粘土鉱物を考慮すべき。 | ・拝承 | | | |
| ※鉄ー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、主にセメントーベントナイト関係のコメントを受けた。 | | | | |

表4.2-3 海外専門家によるレビューコメントとそれに対する回答及び今後の対応案

ここでは、レビューコメントを踏まえたモデルの見直し等に関わる一例として、緩衝材の状態

変遷への影響が大きかった石英の沈殿反応考慮の有無による例について説明する。レビューコメ ントとしては、緩衝材の長期変質挙動に関わる連成解析結果において、初期に緩衝材中の随伴鉱 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 殿しているとのコメントがあった。コメント対象となった解析では、温度条件は25℃であり、数 千年程度で石英が沈殿するのは想定し難く、溶存シリカ濃度は、モンモリロナイトの安定性(溶 解)にも影響を与えるため、シリカ鉱物の溶解・沈殿の取り扱いには、注意が必要とのことであ った。上記のコメントを踏まえ、石英の溶解・沈殿反応の速度式の適用条件(例えば、速度式が 適用可能なpHの範囲等)を確認すると共に、解析上、石英については溶解反応のみを考慮し、沈 殿は考慮しないという仮定を設けて再解析を行った。図4.2-6にモデルの見直し前後における緩衝 材中における構成鉱物の比較の結果を示す(日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金 管理センター, 2023)。



図4.2-6 石英の溶解・沈殿反応または石英の溶解反応のみを考慮した場合の緩衝材中における構成 鉱物の比較。図中の赤丸は、石英の沈殿反応を考慮しないことで変化が生じた主な箇所を示す。

石英の溶解・沈殿反応を考慮した場合の解析結果では、3万年程度経過後には、初期に緩衝材中 の随伴鉱物として存在していた玉髄が消失し、その代わりに石英の存在量が増加した。一方、石 英の溶解反応のみを考慮した場合の解析結果では、3万年程度経過後でも玉髄は残存しており、石 英の存在量は初期状態と変化は無かった。両者の解析結果を比較すると、緩衝材中のモンモリロ ナイトの残存量にも違いが見られ、石英の溶解反応のみを考慮した場合の方がモンモリロナイト の残存量が多く、二次鉱物として沈殿する沸石類の生成量も少ない。さらに、セメント支保/緩 衝材境界での間隙率やオーバーパック/緩衝材境界における二次鉱物の生成割合にも相違が認め られた。このように、石英の溶解・沈殿反応の取り扱いは、緩衝材中の間隙水pHの経時変化や構 成鉱物の時間変遷にも大きく影響し、また、異種材料間の境界における状態変化にも影響を与え る。このため、特に石英の沈殿反応については、対象とする解析条件と照らし合わせて、沈殿反 応を考慮することの妥当性を十分に吟味した上で連成解析に反映することが重要であることが示 唆された。

4.2.6 統合化評価から個別現象評価へのフィードバックに関わる検討

本事業におけるSP3で行われるような統合評価への反映を念頭にした場合、解析条件により 様々な状態変化が生じることが想定されるが、その様な状態変化に適切に対応し得る様な評価式 の整備も必要になると考えられる。ここでは、個別現象評価において検討されたある特定の試験 条件で得られた異なる経験的な関係式をSP3で行われるような複合現象を対象とした長期影響評 価の解析に取り込んだ場合、どの程度の不確実性が生じるかを試しに検討した。具体的には、緩 衝材の変質に伴う透水係数分布の変化を対象とし、Yamaguchi et al. (2018) による透水性評価 式の場合と伊藤・三原 (2005) による関係式の場合とで、緩衝材の変質に伴う透水係数分布の変 化に関わる評価結果を比較した。比較の結果を図4.2-7に示す(日本原子力研究開発機構・原子力 環境整備促進・資金管理センター, 2023)。



図4.2-7 緩衝材の変質に伴う透水係数分布の比較(上図:伊藤・三原(2005)による関係式での解析結 果、下図: Yamaguchi et al. (2018)による評価式での解析結果)

伊藤・三原(2005)による関係式を用いた解析結果では、変質前の初期の透水係数は10⁻¹² m/s のオーダーであり、時間の経過と伴にオーバーパックと接する緩衝材内側やセメント支保と接す る緩衝材外側の部分で透水係数が大きくなり、透水係数は10⁻⁵ m/sのオーダーまで増加する。一方、 Yamaguchi et al.(2018)による評価式では、変質前の初期の透水係数は10⁻¹¹ m/sのオーダーで あり、時間の経過と伴にオーバーパックと接する緩衝材内側やセメント支保と接する緩衝材外側 の部分で透水係数が大きくなるものの、透水係数は10⁻⁹ m/sのオーダーまでの増加に留まる。緩衝 材の長期変質挙動に関わる解析結果に対し、これらの関係式・評価式の適用が適切であるかどう かについては、現状では言及できないものの、緩衝材の変質に伴う透水性分布の評価をこのよう な経験式に基づき評価をすると、変質が進んだ状態での透水係数の推定値として、最大で4桁程度 の不確実性が生じる可能性があることが示唆された。

上記で述べたようなある実験条件に基づく緩衝材を対象にした透水性評価の評価式等では、その適用範囲(条件)が限られる可能性があり、また緩衝材の長期変質挙動の予測において推定される緩衝材中での構成鉱物や間隙率の変化が必ずしも評価式等の適用条件に適するとは限らない。このため、緩衝材の変質を考慮した透水性評価にあたっては、今後、変質に伴う状態変化と透水性との関係を理論的に評価可能な評価式の整備も必要になると考えられ、このような視点は、SP3における統合化評価を踏まえた個別現象評価へのフィードバックとして位置づけられる。

4.2.7 統合化評価に関わる最新の動向・現状を踏まえた課題の整理

SP3のサブタスク1における統合化評価では、処分場閉鎖後長期を対象に「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検討を進め、その中で緩衝材の状態変遷に顕著な影響を及ぼす可能性のある現象として、「鉄ーベントナイト相互作用」及び「セメントーベントナイト相互作用」を対象とした。オーバーパック材料の候補材である鉄、緩衝材の候補材であるベントナイト、坑道等の支保工としての利用が想定されているセメントについては、放射性廃棄物の

地層処分における人工バリア材として、我が国だけでなく、諸外国においても各々の国における 処分概念の中で、これらの材料の利用が想定されている。緩衝材であるベントナイトと鉄または セメントとの相互作用については、サブタスク1で実施された緩衝材の長期変質挙動の予測に関わ る解析例でも示されたように、処分場閉鎖後長期の時間を対象とした場合、遅い反応ではあるも ののモンモリロナイトの溶解等の影響は無視できず、例えば地層処分システムの安全機能の一つ である「放射性物質の移行抑制」への影響が懸念される場合もあり得ると考えられる。このため、 これらの相互作用に伴い生じる現象・プロセスの理解と長期変質挙動を評価する上で必要となる モデル化の観点で、これまでに諸外国においても多数の調査・解析等が行われている。そこで、 これらの相互作用を対象に諸外国における類似した近年の研究の動向や現状について、文献調査 により情報を整理する共に、本事業における5か年の実施内容を踏まえた成果と抽出された課題と も照らし合わせて、今後の課題について整理した(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、2023)。整理された課題としては、例えば本事業におけるSP1での成果を SP3での統合化評価に反映していく上で、SP1やSP3へのフィードバックとしても重要な課題とし て位置づけられる「室内試験やナチュラルアナログで得られたデータの意味するところを十分に 理解・解釈をし、モデル化における予測評価に反映可能な知見や情報として活用可能にしていく こと」や、全てのSPに関連する重要な課題の一つとして整理される「圧縮ベントナイトを対象と したモデル化において重要となる間隙構造の区分や各間隙での反応・物質移行の取り扱いの違い による水理・物質輸送-化学反応に伴う間隙閉塞や物質移行特性への影響」等が挙げられた。

4.2.8 まとめ

平成 30 年度から令和 4 年度までの 5 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。令和 4 年度は、令和3年度に実施した海外の専門家によるレビューコメントを踏まえてモデルの見直し を図り、現時点で最も確からしいと想定される緩衝材の状態変遷の評価例を提示した。また、SP3 のサブタスク1における統合化評価の結果から、他のSPにおける個別現象評価へのフィードバ ックを図るための具体例も提示した。このような統合化評価と個別現象評価との間でのフィード バックを継続的に進めることで、本事業で開発されたプロトタイプシステムの信頼性がより向上 していくことが期待される。

上述したような5か年の成果により、本事業で開発されたプロトタイプシステムやそれを用いた検討例に基づき、ニアフィールドを対象とした複合現象について、現時点での最新の知見に基づく確からしい評価が可能となり、今後、どういう安全機能が鍵となるかというシステムの理解に繋げるための基盤となる技術が構築された。また、このような解析システムや解析技術を用いることで、従来の評価では考慮されていなかった現象をモデルとして取り込み、評価上の見落としが無かったか等を確認していく上でも有効に活用できると考えられる。

今後は、プロトタイプシステムを用いてナチュラルアナログや長期の試験データ等を対象にし

た検証・確証事例の拡充により、水理・物質輸送-化学反応に係る連成解析モデルの見直しや妥 当性確認を更に図り、評価結果の信頼性を更に向上させていくことが必要である。その際には、 本事業において評価システムの改良を一旦保留とした力学との連成についても、水理・物質輸送 -化学反応の解析モデルの妥当性確認の状況を踏まえつつ、計画を再度検討することも重要であ る。また、諸外国における類似した研究動向や本事業における5か年の成果も踏まえた上で整理 された鉄-ベントナイト相互作及びセメント-ベントナイト相互作用に関わる課題について、諸 外国での最新の取り組みに関わるレビューを行い、緩衝材の長期的な状態変遷の予測において不 確実性の大きい要因(例えば、相互作用に伴う間隙の閉塞等)を整理すると共に、今後5年程度 での実施を想定した場合の課題の優先付けや具体的な取り組み内容・方針を整理した上で、計画 的に進めることが肝要である。

4.3 ニアフィールド核種移行評価技術の開発

サブタスク1による構築された人工バリア及び周辺の岩盤からなるニアフィールドを対象とし た複合現象の統合化技術により評価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ため の手法を構築した(サブタスク2)。

4.3.1 緩衝材における状態変遷を考慮した核種移行解析技術の構築

4.2節で述べたニアフィールドを対象とした複合現象の統合化技術により評価される緩衝材中 の状態変遷に関する数値情報を読み込み、核種毎に核種移行パラメータを設定し、核種移行解析 を行うための解析ツールを構築した。解析ツールでは、場の状態変遷に関わる数値情報を一方通 行的に核種移行解析のインプットとして反映させるものの、核種移行解析の結果は連成解析の結 果には反映されない。核種移行パラメータのうち、例えばKdのように核種移行解析に特有なパラ メータは、領域内に設定された各要素の物性タイプ毎に設定が必要になり、かつ、pH等の地球化 学パラメータにも依存して変化させることが必要になる。一方、実効拡散係数のように連成解析 と共通的なパラメータは、連成解析で得られた数値情報をそのまま使用することが可能である。 場の変遷状態を踏まえた核種移行解析を行うための解析技術の構築にあたっては、上述したよう な点に留意し、下記のような機能を解析ツールの中に含めるよう検討した。

- 核種の崩壊/生成の連鎖を解析する機能
- 連成解析システムによる解析で得られた状態変遷を表すパラメータ(pHや間隙率など)や実効拡散係数などを読み込む機能
- 上記の状態変遷に関わるパラメータの変化に伴う核種移行遅延特性などのパラメータの時空間的な変化の取り込みが可能な解析機能

上記の機能のうち、例えばダルシーフラックス、実効拡散係数、間隙率、pH、鉱物組成及びモンモリロナイト残存量等のパラメータは、2つ目と3つ目の機能で考慮される。

4.3.2 緩衝材における状態変遷を考慮した核種移行パラメータ設定手法の検討

4.2節で述べたサブタスク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。なお、 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。また、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。これらの先行事例も参考にしつつ、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。

緩衝材の状態変遷を踏まえた核種移行パラメータの設定にあたり対象とした核種は、緩衝材中 での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の検討や、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、それに伴い核種移行特性が複雑に変化する核種(NiやSn)を対象にし た拡散・収着パラメータの設定手法の検討を進めた。表4.3-1にCsとIの場合(日本原子力研究開発 機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2021)、表4.3-2にNiとSnの場合(日本原子力研 究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2022)の緩衝材の長期的変質に伴う状態変 遷を踏まえた核種移行パラメータ設定方法の概要を一覧としてまとめた。

| 搓成鉱物 | Cs(陽イオン) | | I(陰イオン) | |
|------------------------------|--|--|---|---------------------------|
| 1丹/火叫4120 | $D_e (\mathrm{m^2/s})$ | $K_d (\mathrm{m^3/kg})$ | $D_e (\mathrm{m}^2/\mathrm{s})$ | $K_d ({ m m}^3/{ m kg})$ |
| モンモリロナイト | | | | |
| 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 | 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 緩衝材の状態変遷を踏まえた核種移行パラメータ設定方法(Cs及びIの場合)

※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_a = 0.1であると期待できるが、ここでは 0 と仮定した。

| 表4.3-2 約 | 緩衝材の状態変遷を踏ま | えた核種移行パラメー | -タ設定方法(Ni及びSnの場合) |
|----------|-------------|------------|-------------------|
|----------|-------------|------------|-------------------|

| 場の設定 | 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) |
|--|--|---|---|--|--|
| (稱成女衆) | De (m²/s) | Kd (m³/kg) | De (m²/s) | Kd (m ³ /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:pH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に依らず 一定) ・pH>8:IIに準拠 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:Csに準拠した IS依存性換算式を利用 ・pH9~11:HTOに準拠 (ISIこ依らず一定) ・pH>11:IIに準拠した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に準拠 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} |

図4.3-1に緩衝材の状態変遷とそれを踏まえた核種移行解析結果の例として、Cs-135の存在量分 布と緩衝材中でのKd及びモンモリロナイト残存量の経時変化を比較した結果を示す。これらの結

果は、令和2年度に実施された緩衝材の状態変遷に関わる不確実性解析のうち、相対的に変質影響 が大きい場合であるCase 2を対象にした場合に相当する。



図 4.3-1 緩衝材中での Cs-135 の存在量分布の経時変化と Cs の Kd、モンモリロナイト残存量 及び緩衝材中での構成鉱物の時間変遷との比較

(a) 緩衝材中での単位体積当たりの Cs-135 の存在量、Cs の Kd 及び単位体積当たりのモンモ リロナイト残存量の経時変化(b) 緩衝材中での構成鉱物の核種放出開始後1万年及び5万年経 過時点でのスナップショット

Cs・135の存在量分布の経時変化は、緩衝材中でのKd及びモンモリロナイト残存量の経時変化と 類似しており、Cs・135の存在量の低い部分は、Kdが低く、モンモリロナイト残存量の低い部分に 相当する。CsのKdはイオン強度、モンモリロナイトのイオン型の変化や単位体積当たりのモンモ リロナイト残存量と関係するパラメータである。この解析結果では、緩衝材中での間隙水のイオ ン強度の分布は、緩衝材中で大きな差は認められなかった。また、モンモリロナイトのイオン型 は、初期のNa型からCa型またはMg型に変化し、残存量は時間の経過と共に減少する。一方、モ ンモリロナイトの減少に伴い、二次鉱物として沸石類(フィリップサイト、ヒューランダイト) やMg質の粘土鉱物(セピオライト)が生成する(図4.3・1の(b))。この解析では、沸石などの二次 鉱物については、Kd=0と仮定している。このため、Cs・135の存在量分布の経時変化は、主に緩衝 材の変質に伴う場の状態変遷(緩衝材中の構成鉱物の変化)を反映したCsのKdの変化に依存した。 図4.3-2に緩衝材の状態変遷とそれを踏まえた核種移行解析結果の例として、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を示す。ま た、図4.3-3には、Ni-59及びSn-126に対するKd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。



図4.3-2 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4.3-3 緩衝材中の間隙水のpH変化とKd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

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4.3-2)。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Kd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4.3-3)。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4.3-2)。このことは、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4.3-2)。

上述した通り、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、緩衝材中の 構成鉱物の変化、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、4.3.1項に記した機能により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 されていることを確認できた。

4.3.3 緩衝材の状態変遷を踏まえた核種移行解析を通じた個別現象評価等へのフィードバック

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重要な役割となる。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。本事業のSP3で実施したニアフィール 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4.3-3)を基に、 他のSPへフィードバックを図ることを念頭に、フィードバックの案を整理した



図4.3-4 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

本事業では、図4.3・3のフローに従い、緩衝材の状態変遷を踏まえた核種移行解析を通じて核種

移行率に影響を及ぼす因子を抽出するための試行が行われた。この試行から、例えば、緩衝材の 変質において核種の移行率に影響を及ぼした主な因子は、鉱物の溶解・沈殿反応であることが推 察された。具体的にどのような鉱物の溶解・沈殿反応が強く影響しているかについては十分な分 析には至らなかったが、可能性の一つとして沸石類の溶解・沈殿反応による影響の可能性も示唆 された。SP3のサブタスク1で実施する緩衝材の長期的な状態変遷に関わる解析では、令和3年度 の実施した海外専門家からのレビューでの指摘にもあった通り、水理・物質輸送-化学反応の連 成解析の中で想定もしくは仮定する反応や二次鉱物の選定は、緩衝材の状態変遷に顕著な影響を 与え得る。このため、どのような反応を仮定するのが妥当なのか、また対象とする解析条件に対 し適切な二次鉱物の選定になっているか等、鉱物の溶解・沈殿反応に関わる熱力学・速度論に係 る専門的知識(エキスパートジャッジ)が重要になる。さらに、これらの専門知識を裏付けるた めのナチュラルアナログ等の天然における長期の変質事例に基づく情報・知見等も必要になる。 これらは、SP3から、SP1及びSP3のサブタスク2からSP3のサブタスク1に対するフィードバック として整理した。

4.3.4 性能評価への反映を念頭にした核種移行モデルの簡略化の妥当性確認のための試行

放射性廃棄物の地層処分における性能評価では、地層処分で想定されるシステムの安全性を評 価するため、数値解析モデルが用いられる。数値解析モデルとしては、地層処分システム全体の 評価を対象とするシステム評価モデルと、地層処分における各システム(例えば、人工バリアシ ステム等)を対象に現象理解に基づく現象解析のための現象解析モデルに大別され、これら二つ の階層のモデルを関係づけ、並行して開発が進められる。本事業のSP3で対象としている数値解 析モデルは、後者の現象解析モデルに相当する。地層処分における性能評価では、広範囲な領域 における非常に長期に亘る時間を対象にした評価や多数のパラメータを用いた不確実性解析等が 求められ、そのための計算負荷を低減する上で、何らかの単純化や簡略化が求められる。その際 の対応の一つとしてモデルの簡略化がある。本事業におけるSP3では、性能評価への反映を念頭 にした核種移行モデルの簡略化の妥当性確認を今後進める上での試行として、単純化した緩衝材 の状態変遷評価(一次元でのセメントーベントナイト相互作用)を対象に、核種の収着挙動に着 目し、収着メカニズムに基づくモデル(精緻モデル)と状態変遷に伴う収着分配係数(Kd)の変 化を換算(経験)式に基づき評価するモデル(中間モデル;4.3.2項に示した核種移行パラメータ 設定方法)により、各々、核種移行評価を行い、両モデルによる核種移行率の比較を行った。対 象とした核種は、Cs及びNiの2核種である。表4.3·3には、精緻・中間モデルにおける核種移行パ ラメータの設定方法の概略を一覧としてまとめた。収着に関わる精緻モデルとしては、Csの場合 はイオン交換反応、Niの場合は表面錯体反応を各々考慮した。また、図4.3-4に緩衝材の変質を対 象に単純化した解析体系での精緻・中間モデルによるCs及びNiの濃度変化を比較した結果を示す。 図4.3-4において核種の濃度を比較したのは、セメント支保と緩衝材の境界部分に相当する。

Csについて精緻モデルによる解析結果を見ると、セメント影響に伴い緩衝材中のモンモリロナ イトの溶解が進み、モンモリロナイトの総濃度が解析開始後1,000年頃から低下し、それに対応す る形で固相のCs濃度も減少し、モンモリロナイトに収着していたCsが溶液中に溶出するため、液 相中のCs濃度が増加する傾向が認められる。中間モデルによる解析結果でも、精緻モデルの場合 と基本的に同様な傾向が認められ、モンモリロナイトの溶解の進行に伴う固相Cs濃度の減少やそ れに伴うKdの低下が対応している。但し、中間モデルによる評価の場合、セメント影響に伴いモ ンモリロナイトの溶解が進み前に、一旦、固相及び液相のCs濃度が増加する傾向が認められる。 この原因ついては、現状では把握できておらず、今後、状態変遷の解析結果と併せて分析が必要 である。

| | 中間モデル(状態変遷に対応したKd(m ³ /kg)への 影響を評価する換算(経験)式に基づく。Deは一定) | | 精緻モデル(収着メカニズムに基づくモデル。 Cs:イオン交換反応モデル、Ni:表面錯体反応 デル。Deは一定) | |
|---|--|---|--|--|
| CS (1価の 弱収着 性核種 の一例) | モンモリロナイ ト(ケイ砂30%, 密度1.6の場 合) | イオン強度(IS)依存性を考慮 •Na型:Kd(1.6e-2×(IS) ^{-0.7}) •Na型以外:Kd(8.0e-3×(IS) ^{-0.35}) ※Na型以外:K・Ca・Mg・Fe・Cs型化は全て同様の 扱い ・Deの状態変遷に対する影響は、考慮していない。 | ・Csの圧縮ペントナイトへの収着メカニズムは、主にイオン交換反応に基づき、KdはISに依存し、ISが大きくなると競合イオンの影響でKdは低下(例えば、Tachi and Yotsuji, 2014)。 ・モンモリロナイトによるイオン交換反応のモデル化では、以下のバラメータを利用(Oda et al., 2001: Wanner et al., 1996) - CEC(108 meg/100g) | |
| | モンモリロナイ ト以外の鉱物 (変質鉱物:ゼ オライト等) | ・Kd(0:保守的に設定) ・Deの状態変遷に対する影響は、考慮していない | Na-K:logK=0.42, 2Na-Ca:logK=0.69、2Na-Mg:0.67、 Na-Cs:logK=1.6) ・モンモリロナイト以外の鉱物への収着は、考慮していない。 ・Deの状態変遷に対する影響は、考慮していない。 | |
| Ni (2価の 強収着 性核種 の一例) ※pH<9→ pH>11で、 陽イオン→ 中性種社 化学種が 変化 トロス (変) オラ・ | モンモリロナイ ト(ケイ砂30%, 密度1.6の場 合) | pH依存性を考慮 •Kd(イオン型の違いは考慮せず) - pHく9:1.11e-6×EXP(1.9×pH) - pH9~11:pHLてあらず一定=30 - pH>11:5.31e+6×EXP(-1.1×pH) pH>11:Lに準拠したIS依存性換算式を利用 (Na型:1.3e-10×(IS) ^{0.50} 、Na型以外:3.0e- 10x(IS) ^{0.1}) ※Na型以外:K・Ca・Mg・Fe型化は全て同様の扱い •Deの状態変遷に対する影響は、考慮していない | ・Niのモンモリロナイトへの収着のメカニズムは、低IS及び低pH (pH<6)ではイオン交換反応が主、高IS及び高pH(pH>6)では 表面錯体反応が主(例えば、Sugiura et al., 2021)。SP3-1の 状態変遷解析の結果では、低IS及び高pH(pH>8)のため、ここ では、表面錯体反応の影響を主として、KdのpH依存性を考慮 してモデル化 ・Niの収着サイトは、2SPNE/CEモデルによる実験値のフィッティング 解析で、強収着性のエッジに収着すると想定され、この知見に 基づく以下のパラメータを利用(Bradbury and Baeyens, 1997: Sugiura et al., 2021)。 -=S^sOH(2E-3 mol/kg) | |
| | モンモリロナイ ト以外の鉱物 (変質鉱物:ゼ オライト等) | ・Kd (0:保守的に設定) ・Deの状態変遷に対する影響は、考慮していない | -=S ^s OH + Ni ²⁺ = =S ^s ONi ⁺ + H ⁺ (logK=-0.90) -=S ^s OH + Ni ²⁺ + H ₂ O = =S ^s ONiOH + 2H ⁺ (logK=-9.5) -=S ^s OH + Ni ²⁺ + 2H ₂ O = =S ^s ONi (OH) ₂ ⁻ + 3H ⁺ (logK= -18.6) ・モンモリロナイト以外の鉱物への収着は、考慮していない。 ・Deの状態変遷に対する影響は、考慮していない。 | |

表4.3-3 精緻・中間モデルによる核種移行パラメータの設定方法の概略



図4.3-5 Cs及びNiを対象にした緩衝材の状態変遷を踏まえた核種移行解析結果 (精緻・中間モデルによる解析結果の比較)

Niについて、精緻モデルによる解析結果を確認すると、Csと同様にセメント影響に伴う緩衝材 中のモンモリロナイトの溶解に対応した形でNi表面錯体濃度や吸着サイト濃度が低下し、モンモ リロナイトに収着していたNiが溶液中に溶出するため、液相のNi濃度が増加する傾向が認められ る。なお、Niの場合、液相Ni濃度がステップ状に増加するように見え、このような変化は吸着サ イト濃度の変化とも対応している。このような挙動は、支配的な表面錯体反応の違いと関連して いる可能性があるが現状では原因についての把握はできておらず、今後、状態変遷の解析結果と 併せて確認が必要である。中間モデルによる解析結果では、基本的に精緻モデルによる解析結果 と同様な傾向が示されている。但し、今回の解析では、液相Ni濃度の初期設定が精緻と中間モデ ルで異なっており、両モデルでの濃度比較を定量的に評価するのは難しい。この点については、 解析条件の設定等に問題がなかったどうかを再度確認する必要がある。

上述した通り、核種の収着挙動に着目し、収着メカニズムを考慮した精緻モデルと状態変遷に 伴うKdの変化を経験式に基づく評価する中間モデルの両方で核種移行解析を行い、両者の解析結 果を比較した。Cs及びNiを対象とした例では、精緻モデルと中間モデルで推定されるセメント支 保と緩衝材の境界部分における核種濃度の経時変化は、両モデルで同様な変化の傾向を示し、定 性的には中間モデルでの評価の妥当性が確認された。一方、両モデルによる解析で、変化の傾向 が一部異なる場合や初期条件の設定が異なる等、核種濃度の定量的な比較に基づく妥当性の確認 には至らなかった。これについては、今後、状態変遷の解析結果と併せた分析を行い、改善を図 ると共に、核種移行モデルの簡略化の妥当性を定量的に示すための方策を検討することも必要で ある。

4.3.5 統合化評価を踏まえた核種移行評価技術に関わる最新の動向・現象を踏まえた課題の 整理

SP3のサブタスク1での統合化評価による緩衝材の長期的変質挙動に関わる状態変遷の解析結 果を踏まえ、サブタスク2において状態変遷を踏まえた核種移行解析を行うためのパラメータ設定 をSP2と連携しつつ行い、状態変遷を踏まえた核種移行解析が可能なシステムを構築した。また、 そのシステムを活用し、状態変遷の違いが核種の移行率に与える影響を評価すると共に、核種の 移行率に影響を及ぼす状態変遷評価における因子の抽出についても例示した。さらに、将来的な 性能評価への反映を念頭に核種移行モデルを適用する際の簡略化の妥当性をどのように示してゆ けば良いのか、妥当性検討のための考え方や方法論の試行として、核種の収着に着目した場合の 精緻モデルと中間モデルでの比較による検討も試みた。このような検討は、諸外国においても行 われており、ここでは特に性能評価への反映を念頭にしたモデルの簡略化の妥当性確認に関わる 類似事例を対象に文献調査を行い、本事業において最終年度である令和4年度に試行した実施内容 と抽出された課題とも照らし合わせて、今後の課題について整理した(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,2023)。整理された課題としては、例えば、モデルの精 緻化や解析精度の向上と計算負荷との間はトレードオフの関係にあり、対象とする核種の種類や 解析条件等に応じて、適用するモデルの選定を変える等の考え方の整理が必要であることが挙げ られた。また、pHやEh等の化学条件により複雑な化学種分配を採るような核種について検討する 場合には、経験式(換算式)に基づく中間モデルでは、精緻なモデルによる評価と同等の評価が 可能な条件や領域が限定される可能性も考えられ、このような場合に簡易なモデルを用いる際の 留意点や適用限界等を整理していくことも、今後の重要な課題であると整理された。

4.3.6 まとめ

平成 30 年度から令和4年度までの5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 とするシステムを開発すると共に、開発したシステムを用いて状態変遷を考慮した核種移行解析 を行うための方法論を整備した。方法論の整備の中では、具体的に以下のような検討を行った。 例えば、核種移行解析システムを用いた解析の妥当性確認の一環として、メッシュ依存性につい ての予察的な検討を行った。また、本事業で開発した核種移行解析システムを活用し、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 SP2 と連携しながら検討し、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の抽出を試みた。さらに、今後、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、サブタスク1及び他の SP に今後フィードバックを図ることが重要と考えられる項目案を提示した。これらに加え、性能 評価への反映を念頭にした核種移行モデルの簡略化の妥当性確認を今後進める上での試行として、 精緻・中間モデルによる核種の収着挙動に着目した核種移行解析を行い、核種移行モデルの簡略 化に向けた現状を整理すると共に、諸外国での現状も踏まえつつ、今後の課題を整理した。

今後は、緩衝材の変質が核種の移行遅延効果に与える影響を評価する手法の整備に向けて、変 質に関わるシナリオ・モデル・データのバリエーションや不確実性等の考慮も視野に、より幅広 い検討をサブタスク1での検討も含めて行うことも重要である。また、このような検討を進める 場合、本事業で開発したプロトタイプシステムで対応可能な部分と新たに開発が必要となる部分 について、諸外国も含めた類似した研究事例の動向(現状)を踏まえた上で計画を立案すること が必要である。なお、本事業を通じて提示された統合化評価から個別現象評価等へのフィードバ ックが必要な項目については、上述したような検討を進めてゆく中でも、今後、留意していくこ とが肝要である。さらに、本事業の最終年度に予察的に検討を試みた性能評価への反映を念頭に した核種移行モデルの簡略化の妥当性確認については、簡易なモデルを用いる場合の留意点や適 用限界等について、具体化を図っていくことが必要になる。

最後に、サブタスク1での実施内容も含め、本事業におけるSP3で実施したようなニアフィール ド性能の総合評価技術については、幅広いユーザーに利用してもらい、今後の開発課題や高度化 にあたっての改良点を抽出することも効果的である。今後、更にシステム開発を進めていく上で は、OpenGeosys (Bilke et al., 2019)の例のようなオープンソースコードの利用も視野に検討し ていくことも重要である。

- Bilke, L., Felmisch, B., Kalbacher, T., Kolditz, O., Helimg, R. and Nagel, T., Development of open-source porous media simulations: Principles and experiences, Transport in Porous Media, 130, 337-361, 2019.
- 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.
- 平野史生,大谷芳輝,京川裕之,三原守弘,清水浩之,本田明,TRU廃棄物処分システムの性能評価の観点からの人工バリアの透水性に対するセメント系材料のひび割れの影響に関する検討, 日本原子力学会和文論文誌,Vol.15, No.2, pp.97-114, 2016.
- 伊藤弘之,三原守弘,ベントナイト系材料の飽和透水係数の変遷評価式.JNC TN8400 2005-029, 2005.
- 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.
- 三原守弘, 平野史生, 高山裕介, 京川裕之, 大野進太郎, TRU廃棄物地層処分施設の化学的変遷を 考慮した長期力学挙動解析コードの開発, 原子力バックエンド研究, Vol.24, No.1, pp.15-26, 2017.
- 三原守弘,佐藤信之,大野進太郎,森川誠司,TRU廃棄物地層処分施設の力学挙動解析コード (MACBECE)の開発, JAEA-Data/Code 2009-026, 2010.
- 日本原子力研究開発機構,平成 23 年度 地層処分技術調査等事業 TRU廃棄物処分技術 セメン ト材料影響評価技術高度化開発報告書,平成 24 年 3 月,2012.
- 日本原子力研究開発機構,平成 24 年度 地層処分技術調査等事業 TRU廃棄物処分技術 セメント材料影響評価技術高度化開発報告書,平成 25 年 3 月,2013.
- 日本原子力研究開発機構,平成 25 年度 地層処分技術調査等事業 セメント材料影響評価技術高 度化開発報告書,平成 26 年 3 月, 2014a.
- 日本原子力研究開発機構, 平成 25 年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開 発報告書, 平成 26 年 3 月, 2014b.
- 日本原子力研究開発機構, 平成 26 年度 地層処分技術調査等事業 セメント材料影響評価技術高度化開発報告書, 平成 27 年 3 月, 2015a.
- 日本原子力研究開発機構, 平成 26 年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開 発報告書, 平成 27 年 3 月, 2015b.
- 日本原子力研究開発機構, 平成 27 年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開 発報告書, 平成 28 年 3 月, 2016.
- 日本原子力研究開発機構, 平成 28 年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開 発報告書, 平成 29 年 3 月, 2017.
- 日本原子力研究開発機構, 平成 29 年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開 発報告書, 平成 30 年 3 月, 2018.
- 日本原子力研究開発機構,原子力環境整備促進・資金管理センター,平成 30 年度 高レベル放射性 廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 ニアフィールドシステム評価確証技術開発報告 書,令和元年 3 月,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.
- 日本原子力研究開発機構,原子力環境整備促進·資金管理センター,令和 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,2022.
- 日本原子力研究開発機構,原子力環境整備促進·資金管理センター,令和 4 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5年3月,2023.
- Open Geospatial Consortium, OGC® Open Modelling Interface (OpenMO) Interface Standard, 2014, https://www.ogc.org/standard/openmi/ (2023年3月30日最終閲覧)

Quintessa Ltd., QPAC: Quintessa's General-Purpose Modelling Software, QRS-QPAC-11, 2013. Yamaguchi, T., Yamada, F., Negishi, K., Hoshino, S., Mukai, M., Tanaka, T. and Nakayama,

S., Development and verification of a reactive transport model for long-term alteration of bentonite-cement-seawater systems, Physics and Chemistry of the Earth, 33, 285-294, 2018.

本事業では、人工バリアとその設置などにより影響を受けると考えられる人工バリア近傍の岩 盤とを合わせた領域(ニアフィールド)を対象として、バリア構成要素間の相互作用を含むニア フィールド環境の過渡期から長期にわたる状態変遷や、それらの状態変遷が核種移行挙動に与え る影響を評価するため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 めの技術開発に取り組んだ。これらを三つのサブプロジェクトとして設定し、相互に連携させつ つ進め、ニアフィールド環境の長期変遷のうち核種移行に重大な影響を及ぼすと考えられる個別 現象の解析モデルから、それらの複合現象の解析評価のシステム開発に向けた一連の方法を整備 した。

ニアフィールド環境の長期変遷に係る個別評価技術の開発については、ニアフィールド環境の 長期変遷のうち、オーバーパック、緩衝材、セメント系材料、岩盤の複数の材料間の相互作用に 着目して、処分後の過渡期から長期にわたる複合現象を解明しつつ、個別現象解析モデルを構築 した。オーバーパックの腐食や緩衝材の変質については、原位置試験や室内浸漬試験、天然事例 の分析データを拡充し、過渡期や長期に生じうる腐食状態とその要因の理解を通じて既往の腐食 モデルの妥当性を確認するとともに、緩衝材中の微生物活性を抑制する条件や緩衝材の変質状態 の詳細を把握することができた。ニアフィールドのTHMC連成挙動評価については、過渡期の THC連成解析モデルや、ニアフィールド長期力学解析コードの高度化を進め、原位置試験データ を活用した検証を通じて過渡期のTHMC現象の評価手法を提示した。セメント系材料と岩盤の相 互作用については、瑞浪超深地層研究所の地下坑道周辺におけるグラウト施工を事例として、実 際の地下環境におけるセメント系材料の変遷を評価すると共に、セメント系材料が周辺岩盤へ与 える影響を定量的に評価するための解析手法の開発や解析手法の妥当性を確認に向けた検討例を 提示した。緩衝材の流出現象については、様々な施工オプションや条件での室内・原位置試験を 通じて、各施工オプションにおける緩衝材の流出特性ならびにオプション選択における評価方法 や指標などの案を提示した。

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については、オーバーパック、緩 衝材、セメント系材料、岩盤の複数の材料間の相互作用が核種移行に及ぼす影響に着目するとと もに、ニアフィールド岩盤中の核種移行や有機物・微生物影響を対象として、個別現象解明と解 析モデルの開発を進めた。バリア材料の共存による核種移行影響評価としては、オーバーパック やセメント系材料と緩衝材の境界領域での化学環境や鉱物の変遷に対し、重要核種の収着・拡散 等への影響が生じるメカニズムの把握とその評価モデルを提案した。実際の地質環境の特徴を考 慮した核種移行評価を可能とするため、先端分析・計算科学技術や原位置試験等の活用を通じて、 結晶質岩や堆積岩を対象としたより現実的な核種移行評価モデルを構築したほか、実際の深部地 下環境下での有機物・微生物等の特性とその核種移行への影響評価手法を構築した。このような 核種移行への影響プロセスは、従来の安全評価において定量的には考慮されていなかったもので あり、本成果を根拠として、今後の安全評価において核種移行遅延機能として反映することが可 能となると考えられる。

現象解析モデルの統合化は、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、特に、緩衝材の長期挙動に及ぼすオーバーパックとセメ ント系材料の影響に着目して、上記の個別現象研究の成果を反映させつつプロトタイプの評価シ ステムを構築した。また、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システムを開発すると共に、 開発したシステムを用いて状態変遷を考慮した核種移行解析手法を整備した。開発されたプロト タイプシステムやそれを用いた検討例に基づき、ニアフィールドを対象とした複合現象やそれを 踏まえた核種移行について、現時点での最新の知見に基づく確からしい評価が可能となり、今後、 どういう安全機能が鍵となるかというシステムの理解に繋げるための基盤となる技術が構築され た。また、このような解析システムや解析技術を用いることで、従来の評価では考慮されていな かった現象をモデルとして取り込み、評価上の見落としが無かったか等を確認していく上でも有 効に活用できると考えられる。

以上の本事業で得られた成果は、NUMOが公表した包括的技術報告書に示された課題にも対応 するものであり、今後の概要調査から精密調査段階で必要となる実際のサイトにおける地質環境 調査等のデータを適切に反映させた評価モデルの構築と、様々な処分概念や設計オプションの比 較、それらの条件での性能評価による安全性の成立性やサイト間の優劣等を検討するための技術 基盤としての活用が期待される。さらに、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となることが期待される。