

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

TRU廃棄物処理・処分技術
高度化開発

5 年成果報告書

令和5年3月

公益財団法人原子力環境整備促進・資金管理センター
国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

本報告書は、経済産業省資源エネルギー庁からの委託事業として、公益財団法人原子力環境整備促進・資金管理センター及び国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構が実施した平成 30 年度～令和 4 年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分にに関する技術開発事業 (JPJ007597) (TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発) の 5 ヶ年成果報告書である。

This report shows the technology developments performed by Radioactive Waste Management Funding and Research Center and Japan Atomic Energy Agency funded by the Ministry of Economy, Trade and Industry of Japan through the project "Advanced technology development for geological disposal of TRU waste" from JFY2018 to JFY2022 (Grant Number: JPJ007597).

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
TRU廃棄物処理・処分技術高度化開発
5か年成果報告書

1. はじめに.....	1-1
1.1 本事業の背景と目的.....	1-1
1.2 本事業の概要.....	1-1
2. TRU廃棄物に対する人工バリアの閉じ込め機能の向上.....	2-1
2.1 廃棄体パッケージの閉じ込め性能に係る試験と評価.....	2-1
2.1.1 目的と5か年の実施内容.....	2-1
2.1.2 廃棄体パッケージ容器の製作方法の検討.....	2-2
2.1.3 廃棄体パッケージの長期性能評価.....	2-19
2.1.4 操業期間中の異常事象に対する廃棄体パッケージの堅牢性評価.....	2-23
2.1.5 まとめと今後の課題.....	2-24
2.2 陰イオン核種に対する閉じ込め技術の開発.....	2-27
2.2.1 はじめに.....	2-27
2.2.2 ヨウ素固定化技術の開発のこれまでの取り組みと解決すべき課題.....	2-27
2.2.3 陰イオン吸着材の開発における課題と解決に向けた取り組み.....	2-29
2.2.4 HIP 固化体からの要素放出モデルのまとめ.....	2-31
2.2.5 BPI ガラス固化体からのヨウ素放出挙動のモデル化のまとめ.....	2-35
2.2.6 ヨウ素固定化処理技術の地層処分への貢献.....	2-43
2.2.7 陰イオン吸着材の吸着試験の成果のまとめ.....	2-44
3. 閉鎖前安全性の評価技術の整備.....	3-1
3.1 アスファルト固化体の発熱特性の評価.....	3-1
3.1.1 目的と5か年の実施内容.....	3-1
3.1.2 硝酸塩と有機物の反応に係るデータ取得.....	3-2
3.1.3 発熱速度モデルの見直し及び妥当性の確認.....	3-3
3.1.4 まとめと今後の課題.....	3-6
4. 地層処分システムの状態設定のための現象解析モデルの高度化.....	4-1
4.1 廃棄体からの核種溶出モデルの高度化.....	4-1
4.1.1 目的と5か年の実施内容.....	4-1

4.1.2	エンドピースの選定と性状・燃焼条件	4-2
4.1.3	エンドピース中の核種インベントリ分布評価	4-3
4.1.4	溶出モデルの構築	4-8
4.1.5	まとめと今後の課題	4-11
4.2	ニアフィールド構成要素の現象解析モデルの構築・高度化	4-14
4.2.1	目的と5か年の実施内容	4-14
4.2.2	先進的セメント系材料の地下水との反応挙動評価	4-15
4.2.3	先進的セメント-緩衝材相互作用評価モデルの高度化	4-21
4.2.4	ナチュラルアナログによる緩衝材の長期安定性の検証	4-28
4.2.5	まとめと今後の課題	4-38
4.3	廃棄体由来の発生ガスに関する現象解析モデルの妥当性検討	4-42
4.3.1	背景	4-42
4.3.2	処分坑道の力学連成ガス移行評価モデルの高度化	4-43
4.3.3	ガス発生量と影響評価	4-53
4.3.4	長期変遷を考慮したガス移行場の状態設定評価	4-59
4.3.5	まとめと今後の課題	4-61
4.4	有機物の影響評価モデルの高度化	4-64
4.4.1	目的と5か年の実施内容	4-64
4.4.2	ISA等の有機配位子が金属元素の溶解度や収着に及ぼす影響の調査	4-64
4.4.3	ISA等の有機配位子の共存条件での溶解度試験	4-65
4.4.4	ISA等の有機配位子の収着への影響評価	4-67
4.4.5	まとめと今後の課題	4-68
4.5	硝酸塩の現象解析モデルの妥当性検討	4-70
4.5.1	目的と5か年の実施内容	4-70
4.5.2	硝酸イオンの化学的変遷モデル (NEON) を用いた感度解析	4-71
4.5.3	NEONの信頼性向上	4-71
4.5.4	硝酸塩等の人工バリアの長期特性および核種移行データに及ぼす影響調査	4-72
4.5.4	まとめと今後の課題	4-73
5.	おわりに	5-1
5.1	本事業のとりまとめ	5-1
5.1.1	本事業の特徴	5-1
5.1.2	複数のテーマが関連した課題とその解決に向けた取り組み	5-3
5.1.3	事業全体の成果のとりまとめ	5-5

図目次

図 2.1-1	断熱材を設置した場合の伝熱解析の結果	2-3
図 2.1-2	内部充填材の製作フロー	2-4
図 2.1-3	内部充填材からの水素ガス発生による廃棄体パッケージ内の圧力	2-6
図 2.1-4	実験によるバラツキを考慮した場合の内部充填材からの水素ガス発生による廃棄体パッケージ内の圧力	2-6
図 2.1-5	実規模廃棄体パッケージ容器の構造図	2-8
図 2.1-6	実規模廃棄体パッケージの製作工程	2-9
図 2.1-7	銅板の曲げ加工	2-10
図 2.1-8	実規模大廃棄体パッケージ容器本体の製作状況	2-10
図 2.1-9	廃棄体及び断熱材の設置状態	2-11
図 2.1-10	溶接施工状況	2-12
図 2.1-11	UT 実施時の様子	2-12
図 2.1-12	加熱コイルの設置位置	2-13
図 2.1-13	保持温度到達時の溶接ビード上の温度 (1 回目 PWHT 施工)	2-15
図 2.1-14	保持温度到達時の溶接ビード上の温度 (2 回目 PWHT 施工)	2-15
図 2.1-15	残留応力計測位置	2-17
図 2.1-16	応力の方向	2-17
図 2.1-17	LAH 溶接部及び EB 溶接部の浸漬試験	2-19
図 2.1-18	360 日浸漬後の LAH 試験片及び EB 試験 (スケール除去後)	2-20
図 2.1-19	黒皮付き TIG 溶接部の浸漬試験	2-21
図 2.1-20	試験前後の形状プロファイル比較 (人工海水/360 日)	2-22
図 2.1-21	試験前後の形状プロファイル比較 (人工淡水/360 日)	2-22
図 2.1-22	落下条件と解析モデル	2-23
図 2.1-23	予備解析の結果	2-23
図 2.2-1	ヨウ素固定化技術の開発の流れ	2-29
図 2.2-2	陰イオン吸着材の開発の流れ	2-30
図 2.2-3	HIP 固化体の長期浸漬試験の結果の例	2-32
図 2.2-4	浸漬試験後の HIP 固化体内のヨウ素の濃度分布	2-32
図 2.2-5	ヨウ素放出モデルによる各種浸漬試験の整理結果	2-33
図 2.2-6	アルミナの溶解度と算出された D の関係	2-34
図 2.2-7	固化体適用性マップ	2-34
図 2.2-8	BPI ガラスの浸漬試験結果の整理	2-36
図 2.2-9	BPI ガラスのヨウ素放出に関する現象仮説	2-37
図 2.2-10	ガラス表面近傍の変質部とその内部の SEM-EDS	2-38

図 2.2-11	浸漬後のガラス表面への析出物の SEM-EDS	2-38
図 2.2-12	分析結果を受けて修正した BPI ガラスのヨウ素放出に関する現象仮説....	2-39
図 2.2-13	Pb ₂ B ₂ O ₅ 結晶(Sun, Q et al.,2013)中の Pb サイトから抽出したクラスターモデル	2-40
図 2.2-14	Pb ₆ B ₁₀ O ₂₁ 結晶(Zhang, F et al.,2016) 中の Pb サイトから抽出したクラスターモデル	2-40
図 2.2-15	BPI ガラス固化体の適用性マップ	2-42
図 2.2-16	固化体の性能 (ヨウ素の放出期間) と最大被ばく線量との関係	2-43
図 2.2-17	セメント平衡水 (左) 及びベントナイト平衡水 (右) を用いた吸着平衡試験各吸着材への分配係数	2-45
図 3.1-1	5 か年の実施内容.....	3-2
図 3.1-2	アスファルトと塩の反応の概念図	3-4
図 3.1-3	測定値と界面反応 (相変遷/拡散律速) モデルによる計算値の比較.....	3-5
図 4.1-1	ハル・エンドピース (ハル等廃棄体) の処分概念.....	4-1
図 4.1-2	本研究で対象とした燃料集合体 (BWR STEP3 A 型) の構造とエンドピース (下部タイププレート) の外観 (原子力安全基盤機構, 2007)	4-3
図 4.1-3	AMS 分析 (14C) における前処理フロー (グラファイト化) と操作毎の炭素の化学形態変化 (左) 及び MALT における AMS 分析装置構成 (右) (東京大学タンデム加速器研究施設 MALT, 2020)	4-4
図 4.1-4	MCNP-BURN2 による下部タイププレートの核種生成量の評価概要.....	4-5
図 4.1-5	下部タイププレートの ⁶⁰ Co 及び ⁵⁹ Co 分析に供したサンプリング位置.....	4-6
図 4.1-6	下部タイププレート中の ⁶⁰ Co 分布 : 左はイメージングプレート法の強度分布、右は解析と分析結果の比較 (シャットダウン時の放射能に補正済み)	4-6
図 4.1-7	下部タイププレート中の ¹⁴ C 分布	4-7
図 4.1-8	MCNP-BURN2 による BWR タイププレート中の ¹⁴ C 分布解析結果.....	4-8
図 4.1-9	下部タイププレートからの核種溶出モデル (¹⁴ C)	4-9
図 4.1-10	下部タイププレート中の ¹⁴ C 放射能の経時変化 (④現実モデル)	4-10
図 4.1-11	溶出モデルを反映した下部タイププレート中の ¹⁴ C による処分後の被ばく線量の評価結果.....	4-11
図 4.2-1	5 か年の実施内容.....	4-14
図 4.2-2	C-S-H のイオン交換水 (IEW) への浸漬試験結果とモデル計算値との比較.	4-16
図 4.2-3	C-S-H の NaCl 溶液への浸漬試験結果とモデル計算値との比較	4-17
図 4.2-4	HFSC の浸漬試験方法の比較 (原子力環境整備促進・資金管理センター・日本原子力研究開発機構, 2020)	4-18

図 4.2-5	様々な溶液条件に対する HFSC の水和・溶脱に関わる試験結果とモデル化の結果の集約・整理（原子力環境整備促進・資金管理センター・日本原子力研究開発機構, 2023）	4-20
図 4.2-6	HFSC 及び OPC 接触試験体のベントナイト側界面の分析結果の一例	4-24
図 4.2-7	OPC-ベントナイト接触体系試験体(50°C、1 年)の透過 X 線強度(令和 2 年度取得)における X 線強度の等値線	4-25
図 4.2-8	H31 年度モデルと R4 年度モデルの、接触界面近傍の鉱物組成分布の比較	4-25
図 4.2-9	接触界面近傍の観察結果とモデル計算値の比較	4-26
図 4.2-10	クニゲル V1 側接触液組成の時間変化の比較	4-26
図 4.2-11	XRD とモード分析によるスメクタイト化と反応時間の関係	4-30
図 4.2-12	二次生成物の典型的な産状 (PWT02B-15-C2-1-001)	4-31
図 4.2-13	トレンチ 2 (PWT02-15-C2-2-001) の FMCASH 部の TEM 像と電子回折	4-32
図 4.2-14	二次生成物の化学組成 (上段: トレンチ 2 および 3、下段: トレンチ 6 および 7)	4-33
図 4.2-15	Na-Mg-Al-Si-K-Ca-Fe-Cl-O-H 系における Fe の pH-Eh 図	4-35
図 4.2-16	Narra 地区におけるアルカリ変質プロセス	4-36
図 4.3-1	小規模モックアップ試験装置	4-44
図 4.3-2	小規模モックアップ試験再冠水過程の様子	4-45
図 4.3-3	ガス移行試験 (1 回目) における各面からの累積排水量	4-47
図 4.3-4	ガス移行試験 (1 回目) における各測定項目の経時変化	4-47
図 4.3-5	ガス移行試験 (再破過試験) における各測定項目の経時変化	4-48
図 4.3-6	試験装置と試験結果	4-49
図 4.3-7	目視による試験体の帳面および打ち継ぎ面の確認	4-49
図 4.3-8	資料採取部位および算定した飽和度分布図	4-50
図 4.3-9	各解析コードに適用した浸透率モデルについて	4-51
図 4.3-10	解析モデルへの推定した力学パラメータの付与	4-51
図 4.3-11	解析ケース 1 の累積排水量の経時変化の再現解析結果	4-52
図 4.3-12	解析ケース 2 の累積排水量の経時変化の再現解析結果	4-52
図 4.3-13	各ケースの二相流パラメータの比較	4-53
図 4.3-14	グループ 2 におけるガス発生量評価結果	4-55
図 4.3-15	自由水量の低減を反映したケース (右図) との比較	4-55
図 4.3-16	押し出し排水量評価解析モデルおよび条件設定	4-56
図 4.3-17	押し出し排水量評価の結果	4-57
図 4.3-18	既往検討 (RWMC,2017) における押し出し排水量評価 (横軸: 年)	4-57
図 4.3-19	押し出し排水量評価結果の解釈	4-58

図 4.3-20	EDZ 外側での線量評価結果 (左: ガス影響考慮 右: レファレンスケース)	4-59
.....		
図 4.3-21	生物圏での線量評価結果 (左: ガス影響考慮 右: レファレンスケース)	4-59
図 4.3-22	ガス移行場の状態変遷を考慮した化学解析結果 (括弧内は絶対浸透率) ...	4-60
図 4.3-23	排水量ピーク時の間隙率分布 (左: 反映ケース 右: レファレンスケース)	4-60
.....		
図 4.3-24	砂層および粘土層の透過率に関する解析結果と実験結果との比較.....	4-61
図 4.4-1	5 か年の実施内容.....	4-64
図 4.4-2	スズ (IV) の溶解度試験結果.....	4-65
図 4.4-3	パラジウム (II) の溶解度試験結果.....	4-66
図 4.4-4	Tc 溶解度に及ぼす ISA 濃度依存性および ISA 共存下における pH 依存性...	4-67
図 4.4-5	Pd のセメント水和物への収着挙動に及ぼす ISA 濃度依存性.....	4-68
図 4.5-1	5 か年の実施内容.....	4-71
図 4.5-2	本事業および平成 29 年度までに取得したデータの温度依存性および pH 依存性	4-74
.....		
図 5.2-1	本事業の個別課題の関連図.....	5-1
図 5.2-2	本事業の個別課題の対象と時間スケール.....	5-2

表目次

表 2.1-1	5 か年の実施内容.....	2-1
表 2.1-2	計算より算出した圧力推定値及び圧力上昇値.....	2-6
表 2.1-3	容器本体と蓋板の溶接条件.....	2-11
表 2.1-4	JIS に基づいた PWHT 施工条件.....	2-14
表 2.1-5	現場調整後の PWHT 施工条件.....	2-14
表 2.1-6	溶接後の残留応力計測値.....	2-17
表 2.1-7	PWHT 後の残留応力計測値.....	2-18
表 2.2-1	ヨウ素固定化技術への要求.....	2-28
表 2.2-2	HIP 固化技術への要求に対する充足度.....	2-35
表 2.2-3	Pb-O 結合に関する有効共有結合電荷および Pb の有効電荷.....	2-41
表 2.2-4	BPI ガラス固化技術への要求に対する充足度.....	2-42
表 2.2-5	陰イオン吸着材の調査で抽出された吸着材.....	2-44
表 4.1-1	本研究で対象としたエンドピース（BWR 下部タイプレート）の燃焼条件（原子力安全基盤機構, 2007）.....	4-3
表 4.1-2	下部タイプレート中の ^{36}Cl 分析結果と MCNP-BURN2 逆解析から推定した不純物塩素濃度.....	4-7
表 4.2-1	本事業で作成した接触試験体の試験条件と分析状況.....	4-22
表 4.2-2	試験後試料に対する固相分析項目（その 1）.....	4-23
表 4.2-3	試験後試料に対する固相分析項目（その 2）.....	4-23
表 4.2-4	分析試料と分析項目一覧.....	4-29
表 4.3-1	各検討項目の連関と全体検討工程案.....	4-43
表 4.3-2	再冠水過程の試験手順および取得データ.....	4-45
表 4.3-3	ガス移行試験における試験手順および取得データ.....	4-46
表 4.3-4	本検討にてより現実的な評価を実施した項目.....	4-54
表 4.4-1	推定された見かけの平衡定数.....	4-66
表 4.5-1	試験条件および後述する NEON のパラメータ見直しへのデータ適用性.....	4-73

1. はじめに

1.1 本事業の背景と目的

使用済燃料の再処理等により発生する放射能レベルの高い TRU 廃棄物の処分実施に当たっては、高レベル放射性廃棄物の地層処分で開発した技術が利用可能である。しかし、TRU 廃棄物には、天然バリアに対する収着性に乏しい放射性のヨウ素や炭素などが含有される点、多様な形態の廃棄体があることに起因する有機物の分解や金属の腐食等によるガスの発生、有機物と硝酸塩の混在による影響など、高レベル放射性廃棄物とは異なる特徴がある。このような特徴から、TRU 廃棄物の処分においては、セメント系材料を多量に使用するなど、高レベル放射性廃棄物の処分概念と異なる工学的対策を用いた人工バリアにより、長期的な核種移行の抑制が期待されている。また、2015 年 5 月に国の「特定放射性廃棄物の最終処分に関する基本方針」が改訂され、2017 年 7 月に「科学的特性マップ」が公表されたことを受けて、地層処分の国民理解や地域理解のための対話活動が進められる中、2020 年 11 月から北海道の 2 町村において文献調査が開始され、これまで高レベル放射性廃棄物に比べ注目度が低かった TRU 廃棄物の地層処分の安全性にも一般公衆の関心が高まりつつあり、TRU 廃棄物固有の様々な課題についての取り組みの重要性はより高まっている。令和 2 年度に改訂された「地層処分研究開発に関する全体計画（平成 30 年度～令和 4 年度）」では、これまでの設計概念に基づく TRU 廃棄物の廃棄体パッケージについて、閉鎖後長期の閉じ込め性に加えて操業中の安全性の向上を図るための技術開発等の重要性が示されている。

本事業は、これらの処分事業における TRU 廃棄物固有の課題を踏まえ、「地層処分研究開発に関する全体計画（平成 30 年度～令和 4 年度）」に示された、TRU 廃棄物処理・処分に関わる、人工バリアの閉じ込め機能の向上、坑道閉鎖前の安全性の評価に向けた技術開発および地層処分システムの状態設定のための現象解析モデルの高度化を目的とした研究開発事業を実施するものである。このため、本事業は、平成 30 年度からの 5 か年の研究開発事業として、諸課題の解決に向けて研究開発事業を合理的・効率的に実施して行くため、各項目の達成目標や研究全体の進め方を設定し、研究開発に取り組むものである。

本事業の実施にあたっては、地層処分を支える幅広い科学技術分野の知識を有することを前提として、既往の研究開発等の成果を適切に取り込むとともに、分野横断的な連携及び成果の体系的な統合が必要となる。このため、現在までに TRU 廃棄物に関わる研究開発等に従事してきた機関が共同で事業に取り組むことにより、各組織に蓄積されている知識、経験等を相互補完的に利用し、かつ融合することによって、多様な形態の廃棄体が存在する TRU 廃棄物に関わる処理・処分技術の課題を網羅し、事業全体としての総合的な高いレベルの成果の創出が可能となる。このような広範に及ぶ TRU 廃棄物の研究開発事業の特徴から、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）と日本原子力研究開発機構（以下、「原子力機構」という）の二機関が経済産業省資源エネルギー庁から共同で受託し、研究開発事業を実施する。

1.2 本事業の概要

本事業で検討する研究課題は、前述したように TRU 廃棄物が多様な形態の廃棄体であるがゆえに広範囲にわたる。これに加え、廃棄物の処理過程、操業～坑道閉鎖前から閉鎖後長期の安全性まで極めて対象とする時間スケールも異なる。このような様々な課題に対し平成 30 年度から検討を開始し、平成 31 年度までの 2 か年の成果と課題を踏まえ、5 か年事業の後半 3 か年で取り組む課題を見直した。5 か年事業の最終年度に当たる令和 4 年度は以下の検討項目を実施した。

- (1) TRU 廃棄物に対する人工バリアの閉じ込め機能の向上
 - ① 廃棄体からの核種溶出モデルの高度化
 - ② 陰イオン核種に対する閉じ込め技術の開発
- (2) 閉鎖前安全性の評価技術の整備
 - ① アスファルト固化体の発熱特性の評価
- (3) 地層処分システムの状態設定のための現象解析モデルの高度化
 - ① 廃棄体からの核種溶出モデルの高度化
 - ② ニアフィールド構成要素の現象解析モデルの構築・高度化
 - ③ 廃棄体由来の発生ガスに関する現象解析モデルの妥当性検討
 - ④ 有機物の影響評価モデルの高度化
 - ⑤ 硝酸塩の現象解析モデルの妥当性検討。

事業を進めるにあたっては、専門家・有識者で構成される委員会（TRU 廃棄物処理・処分技術開発検討委員会）を設置し、研究計画、実施方法、結果の評価などに関する審議・検討を行った。委員会では、TRU 廃棄物に関連する事業者等（JNFL、電事連、電中研、規制庁）にオブザーバーとして委員会に参加いただき、本事業に関連する知見、技術について情報交換を行った。また、5 年事業の 3 年目にあたる今年度は、事業目的に対するこれまでの成果や今後の見通しについての中間評価を例年実施している第 2 回委員会の代わりに実施した。

一方、本事業の円滑かつ効率的運営のために、2 者で構成される「2 者受託事業運営会議」を設置し、本事業の運営に関する意思決定を行い、全体方針・分担項目の実施内容・進捗の確認、項目間の連携について協議して、本事業をすすめた。

参考文献

原子力環境整備促進・資金管理センター，日本原子力研究開発機構，平成 30 年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 TRU 廃棄物処理・処分に関する技術開発 報告書，2018.

原子力環境整備促進・資金管理センター，日本原子力研究開発機構，平成 31 年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 TRU 廃棄物処理・処分に関する技術開発 報告書，2019.

資源エネルギー庁，特定放射性廃棄物の最終処分に関する基本方針，平成 27 年 5 月 22 日閣議決定，2015.

資源エネルギー庁，科学的特性マップ，2017.

地層処分研究開発調整会議，地層処分研究開発に関する全体計画（平成 30 年度～平成 34 年度），平成 30 年 3 月，2018.

2. TRU廃棄物に対する人工バリアの閉じ込め機能の向上

2.1 廃棄体パッケージの閉じ込め性能に係る試験と評価

2.1.1 目的と5か年の実施内容

高レベル放射性廃棄物であるガラス固化体に比べ発熱量の小さい TRU 廃棄物では、大断面空洞内に廃棄体を集中して処分する集積定置での方法が検討されている。第2次 TRU レポート（電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構, 2005）では、地下施設における搬送・定置を効率化するため、フォークリフトでの定置を想定した上蓋のない廃棄体パッケージの概念が提示され、その後、NUMO 包括的技術報告書（原子力発電環境整備機構, 2021）（以下、NUMO-SC とする）では、廃棄体パッケージの設計要件として、操業期間中の安全性における耐食性、構造健全性、工学的成立性における製作性、遠隔封入性、遠隔定置性に加え、閉鎖後数百年程度の放射性物質の閉じ込め性能が期待でき、かつクレーンでの定置を想定した上蓋を溶接して廃棄体を封入する仕様が示された。

また、地層処分研究開発に関する全体計画（平成 30 年度から令和 4 年度）（地層処分研究開発調整会議, 2018）においても、廃棄体パッケージについては、製作性及び構造健全性に関する実証的な試験を実施し、工学的な成立性や安全性（操業時、閉鎖後）の向上を図る必要があるとしている。

このような背景を踏まえ、本検討では、NUMO-SC で示された操業期間中の安全性と閉鎖後 300 年程度までの放射性物質の閉じ込め性能が期待できるパッケージ B について、TRU 廃棄物の地層処分を実施するにあたり、廃棄体パッケージに求められる設計要件の向上に反映できる製作技術を提示することを目的に、平成 30 年度より検討を開始した（原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 2019）。

表 2.1-1 に示すように、検討項目を 3 つの大項目に分け、5 か年のうち平成 30 年度から令和 2 年度までは、個別の課題に対し要素試験による検討を実施し製作技術の基盤を整え、令和 3 年度より、実規模廃棄体パッケージの製作性確認試験を開始した。

表 2.1-1 5か年の実施内容

検討項目	H30年度	H31年度	R2年度	R3年度	R4年度
① 廃棄体パッケージの製作技術の整備					全体の成果の取りまとめ
(1) 廃棄体パッケージ容器の製作方法の検討	製作手順の策定 接合方法の調査	接合部の熱影響評価、溶接方法・後熱処理の提示 接合方法に関する要素試験	溶接方法、後熱処理方法の検討 非破壊検査方法の検討	溶接方法・後熱処理方法の検討 非破壊検査方法の検討 断熱材の選定、伝熱解析	
(2) 廃棄体パッケージ内充填材（内部充填材）の仕様の検討	内部充填材の設計（机上検討） 内部充填材の特性試験	セメント系材料からの水素ガス発生抑制対策に関する試験 内部充填材の製作方法の検討	内部充填材の製作性に関する要素試験	セメント系材料からの水素ガス発生量に関する検討	水素ガスの発生抑制及び発生量の見積もり方法に関する整理
(3) 実規模廃棄体パッケージの製作性確認				実規模廃棄体パッケージ内充填材の設計・製作 実規模廃棄体パッケージ容器製作設計、容器本体・蓋の製作、組立	実規模廃棄体パッケージ内充填材・模擬廃棄体の製作・容器挿入 蓋溶接、非破壊検査、PWHT、残留応力測定
② 廃棄体パッケージの長期的性能評価					
(1) 閉鎖後の長期健全性評価	破損モードの調査		2重蓋廃棄体パッケージの構造健全性評価		
(2) 廃棄体パッケージ容器溶接部の腐食挙動評価			蓋溶接部の腐食試験 （鋼材：SM490A、溶接方法：EB、LAH） pH8.5人工淡水 & 人工海水	蓋溶接部の腐食試験 （鋼材：SM570、溶接方法：TIG） pH8.5人工淡水 & 人工海水	
③ 操業期間中の異常事象に対する廃棄体パッケージの堅牢性評価	操業中の落下事象の調査（予備解析の実施）				

2.1.2 廃棄体パッケージの製作技術の整備

(1) 廃棄体パッケージ容器の製作方法の検討

1) 溶接施工方法の検討

蓋接合の溶接方法については、令和 2 年度までに、電子ビーム溶接（以下、EB 溶接とする）、レーザ・アークハイブリッド溶接（以下、LAH 溶接とする）、タングステン-不活性ガス溶接（以下、TIG 溶接とする）、ノンフィラータグ溶接について要素試験を実施し、それぞれ遠隔施工による適用性を確認した上で、他の溶接方法に比べ溶接品質が優れている TIG 溶接を採用した。また、容器の蓋構造は、当初 2 重蓋構造を基本として検討を進め、令和 2 年度の構造健全性の評価結果から、より耐圧性を向上させるため一体型蓋構造とし、使用する鋼材を SM570 に決定した。

令和 3 年度から開始した実規模廃棄体パッケージ容器の製作では、使用する鋼材を SM570 に、溶接方法を TIG 溶接に設定し、溶接試験体による性能確認試験を実施した。試験の結果、以下のように TIG 溶接試験体の溶接部は健全であることが実証され、SM570 においても適用は問題ないことを確認した。

- ・ 断面マクロ試験の結果では、初層部の溶け込みも十分得られ、有害な溶接欠陥は確認されなかった。
- ・ 硬さ試験（ビッカース HV0.2）の測定結果では、PWHT の有無に関わらず溶接金属部、熱影響部、母材部を通して著しい硬化部はなく、全ての測定箇所において低温割れ防止の目安とされる 350 HV 以下であった。
- ・ 引張試験の結果は、引張強さは判定基準（母材 SM570 の基準）である 570 MPa 以上であり、破断位置はいずれも溶接部であった。
- ・ 側曲げ試験の結果は、PWHT の有無による影響が少ないことを考慮し PWHT なしの試験片のみで実施し、いずれも「欠陥なし」で合格であった。
- ・ シャルピー衝撃試験の結果は、 -5°C における吸収エネルギー（シャルピー衝撃値）は判定基準（母材 SM570 の基準）の 47 J 以上を満足していた。

2) 非破壊検査方法の検討

令和 2 年度に実施した非破壊検査方法の検討では、EMAT（Electromagnetic Acoustic Transducer）と通常の超音波探傷試験（UT：Ultrasonic Testing、以下 UT という）の適用可能性を確認するための試験を実施した。その結果、振動子のサイズが 1 インチの EMAT では、模擬試験体の人工欠陥の検出が困難であったが、接触媒質を用いる UT では、小型（1/2 インチ、1/4 インチ）の探触子で人工欠陥の検出が可能であった。

そこで令和 3 年度では、UT 手法について、高レベル廃棄物の処分容器に対して非破壊検査の開発を行っているオーバーパックに着目し、「蓋上面からの接触媒質を用いたクリーピング波法（CW 法：Creeping Wave 法）」及び「容器側面側からのフェーズドアレイ法（PAUT：Phased Array UT）」の検査方法について、実用を想定した適用性の確認試験を実施した。試験の結果、CW 二振動子法と CW 二探触子法については、一部のきずの検出が困難で定量性においては誤差の大きい結果となり、溶接形状の影響を受ける恐れがあるなどの課題が残された。一方、フェーズドアレイ法については、きずの検出性及び定量性において良好な結果が得られたことから、製作性確認試験での UT 手法として適用することとした。

3) 溶接後熱処理（PWHT）施工方法の検討

溶接後の残留応力を低減するために実施する PWHT の施工方法については、平成 31 年度ではパネルヒータを用いた方法により試験を実施したが、以下のような課題が抽出された。

- ・ 溶接部を十分に昇温保持するには保温材の設置が必須となる。

- ・ 内面側の温度が最高で 438℃～538℃まで到達してしまい、熱的制限を考慮した廃棄体パッケージの容器構造への影響が大きくなる。
- ・ 30min 程度の保持時間に対し、300℃を基準とした昇温に 3hr 程度、冷却に 2.5hr 程度を要し、想定される加熱冷却時間が長くなる。

そのため、令和 2 年度では、遠隔施工を想定した場合に比較的实现性があると考えられる高周波誘導加熱コイルを用いた方法に着目し、上記の課題を解決するため、蓋部を模擬した試験体の直線部の長手方向中央部について試験を実施し、目標である JIS 規格に基づく PWHT 施工条件通りの加熱が可能であることを確認した。さらに、令和 3 年度では、蓋溶接部の R 部を模擬した試験体を製作して試験を実施した結果、R 部においても目標通りの加熱が可能であることを確認した。ただし、製作性確認試験では、1 回で全周の施工を完了させるためには設備的な問題が懸念されたことから、2 回に分けて施工する方針とした。

4) PWHT 施工による廃棄体への熱影響の検討

実規模廃棄体パッケージには、PWHT 施工時の廃棄体への熱影響を低減するために、容器内部に断熱材を設置する。断熱材は、候補材の中から最も断熱性能が高く入手性及び加工性が良いことから「マイクロサーム」を選定し、設置状態による低減効果を確認するため、令和 3 年度に伝熱解析を実施した。解析モデルはドラム缶の中心軸を対称軸とした二次元軸対称モデルを用いた。

解析結果を図 2.1-1 に示す。令和 2 年度に実施した断熱材を設置しない場合の伝熱解析結果では廃棄体の最高到達温度が 237.2℃であったが、容器内部の廃棄体上部の空間全てを断熱材とすることで、廃棄体の最高到達温度が 150℃と大幅に熱影響が低減することを確認した。

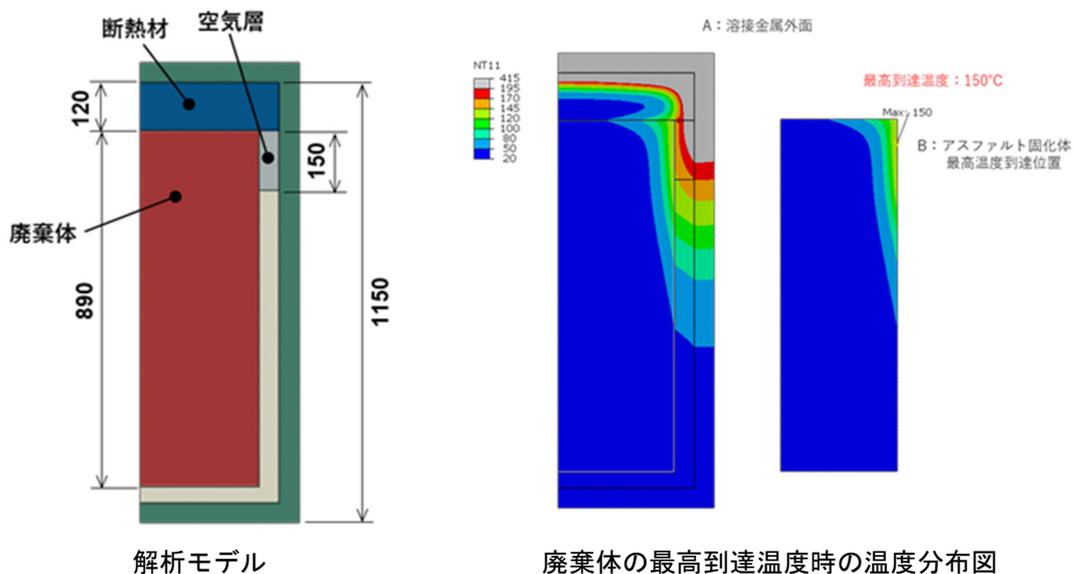


図 2.1-1 断熱材を設置した場合の伝熱解析の結果

(2) 廃棄体パッケージ内充填材の仕様の検討

1) 水素ガスの発生抑制及び発生量の見積り方法に関する検討

廃棄体パッケージ内充填材の仕様については、放射線分解による内部充填材からの水素ガス発生量に関する基盤情報となるよう、これまでに試験で取得したデータを整理し、図 2.1-2 に示す内部充填材の製作フローを構築した。

内部充填材の製作においては、廃棄体パッケージ容器の形状及び寸法の情報に基づき内部充填材の形状が決定され、この形状から施工可能な配合や養生条件及び乾燥条件が設定される。過年度までの結果から、セメント系材料中の自由水量の影響が大きいことが明らかとなり、内部充填材の自由水量を少なくすることで、水素ガス発生量が低減される可能性を見出した。そのため、乾燥工程時の乾燥後の水分量及び保管時の吸湿水分量を把握することにより、水素ガス発生量を見積もることが可能となる。さらに、この見積もられた水素ガス発生量から廃棄体パッケージ内の圧力上昇に及ぼす影響を把握することができ、必要に応じ内部充填材の形状にフィードバックする流れとなる。

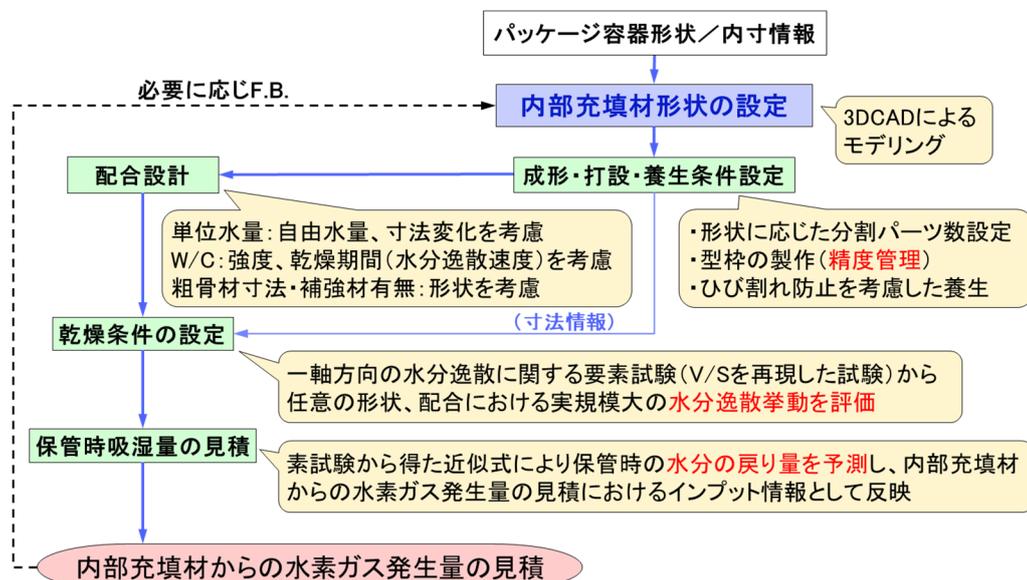


図 2.1-2 内部充填材の製作フロー

成型・打設・養生条件設定では、内部充填材の形状、製作時のハンドリング、乾燥時の水分の抜けやすさ、変形に伴う影響を加味し、分割するパーツ数、形状を設定する。型枠の製作（精度管理）については、廃棄体パッケージ製作の実運用において、型枠は繰り返し使用されることが想定されるが、組み立ての都度、一定の許容公差内になるよう管理することが重要となる。養生については、常圧蒸気養生を行う場合は、打ち込み後から蒸気をかけるまでの養生期間（前養生）も含めて、昇温速度、最高温度とその保持時間、その後の降温時間等の条件を、使用材料、配合、練り上がり温度、製品の形状や寸法に応じて設定する。寒暖差が大きい時期における脱型作業は、温度ひび割れや乾燥収縮ひび割れが発生する可能性が高くなる点に留意する。

配合設計については、単位水量は、成形後の養生・保管時における寸法変化（乾燥収縮）だけでなく、初期の自由水量にも影響を及ぼすため、型枠への打ち込み時におけるワーカビリティが確保される範囲で、単位水量は極力少なく設計する。また、水セメント比は、乾燥工程における水分逸散挙動にも影響を及ぼすため、強度発現と水分逸散速度の両者のバランスを鑑みて設定する。粗骨材最大寸法は、既往のプレキャストコンクリート製品の規準に準じて、部材の最小厚

さを考慮し設定する。なお、十分に締固めができることを要素試験などにより確認することが望ましい。

乾燥条件の設定では、試験体の V/S [乾燥面積 (S) に対する体積 (V) の比率]、乾燥温度及び水セメント比 (W/C) をパラメータとした要素試験で得られる一軸方向の水分逸散に関するデータより、実規模スケールにおける内部充填材の乾燥時の水分逸散量を予測する。内部充填材の製作条件 (使用材料、配合、形状、寸法) や乾燥工程 (温度条件、乾燥期間) が変更となった場合、要素試験により新たにデータを取得することで水分逸散量の予測の見直しは可能であり、廃棄体パッケージの設計情報として反映できる。

保管時吸湿量の見積は、内部充填材の吸湿量は試験体の表面積に比例することから、体積一定で表面積が異なる試験体による吸湿挙動の要素試験から得た近似式により、実規模スケールの内部充填材の保管時の水分の戻り量を予測する。廃棄体パッケージ製作の実運用では、吸湿挙動に関する要素試験で得られるデータと、保管場所の温度、湿度の履歴から、水分の戻り量を概ね見積もることができ、上記より見積もられる水分の戻り量は、内部充填材中の自由水量と捉えられ、内部充填材からの水素ガス発生量の見積におけるインプット情報として反映される。

上記の手法を用いて、実規模廃棄体パッケージを対象に累積水素ガス発生量を評価した。廃棄体パッケージの内部圧力を算出するための前提条件を以下に示す。計算したケースは、内部充填材は、乾燥前、乾燥後、吸湿後の 3 ケース、高強度高緻密コンクリート 8 日間封緘養生の 1 ケースの計 4 ケースとした。

- ・ 計算する廃棄体パッケージは、金属容器内に充填材を設置し、その中に廃棄体を収納する。廃棄体の上部には、金属蓋を溶接する際の溶接熱を遮断するため断熱材を設置する。各材料の内部には空間を持たず、各材料間のすき間のみが空間となる。
- ・ 金属蓋で密閉される前の圧力は 1 気圧 (0.101325 MPa) とする。
- ・ 発生した水素ガス分だけが圧力上昇に寄与する。
- ・ 環境温度は 25°C 一定とする。
- ・ 廃棄体パッケージ内の圧力は、理想気体の状態方程式を用いて算出する。

内部充填材からの水素ガス発生による廃棄体パッケージ内の圧力推定値を図 2.1-3 に、50 年後、100 年後、300 年後の圧力上昇値を表 2.1-2 に示す。実規模試験体の乾燥前のケースの圧力上昇は、300 年後では約 0.016MPa、乾燥後吸湿したケースでは約 0.008MPa の圧力上昇となった。吸湿を考慮したとしても、乾燥工程により脱水したすべての水分量が吸湿されるわけではないことから、乾燥工程を設けることは廃棄体パッケージの圧力上昇を抑制するためにも有効である。高強度高緻密コンクリートのケースでは、約 0.002MPa の上昇と低く抑えられる結果となった。

実際の圧力に関しては、単純な仮定のみだけでは不十分であるが、今回製作した実規模廃棄体パッケージでは、内部充填材の量も少ないことから、内部充填材から発生する水素ガスによる圧力上昇への影響は小さく、内部充填材の製作時に乾燥処理を実施することや高強度高緻密コンクリートを適用することで、廃棄体パッケージの圧力上昇を抑制することができることが示された。

このように OPC を用いた材料であれば、内部充填材の自由水量に対する単位質量、1kGy あたりの水素ガス発生量は、比較的相関の良好な 1 次回帰式が得られ、それを用いて内部充填材からの水素ガス発生量について計算できる。しかし、この評価に用いた単位質量、1kGy あたりの水素ガス発生量は、実験データを基としているため、多かれ少なかれバラツキを含んでいる。そこで、単位質量、1kGy あたりの水素ガス発生量を求める評価式として、自由水量との 1 次回帰直線ではなく、予測区間上限 95% の評価式を用いて計算した例を図 2.1-4 に示す。

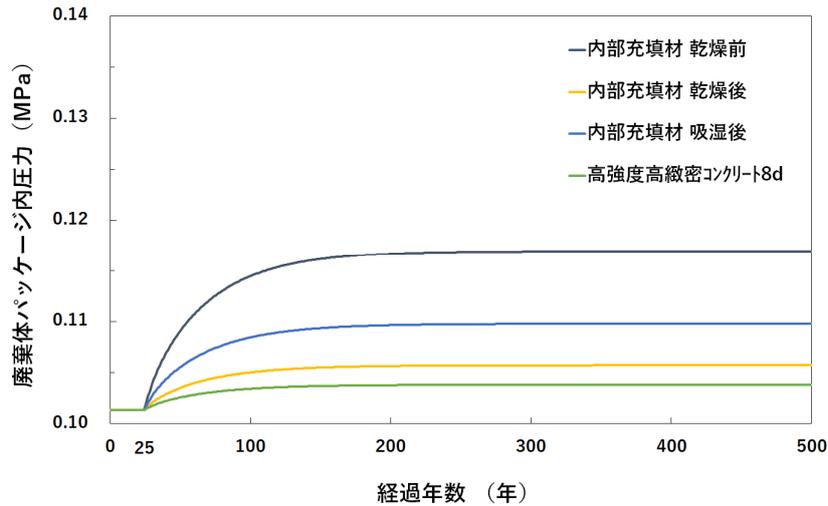


図 2.1-3 内部充填材からの水素ガス発生による廃棄体パッケージ内の圧力

表 2.1-2 計算より算出した圧力推定値及び圧力上昇値

ケース	内部充填材			高強度高緻密 コンクリート 8d
	乾燥前	乾燥後	乾燥後吸湿	
密封前 [24 年後] (MPa)	0.101325	0.101325	0.101325	0.101325
50 年後	圧力値 (MPa)	0.109119	0.103508	0.102558
	圧力上昇値 (MPa)	0.008	0.002	0.004
100 年後	圧力値 (MPa)	0.114485	0.105011	0.103407
	圧力上昇値 (MPa)	0.013	0.004	0.007
300 年後	圧力値 (MPa)	0.116936	0.105697	0.103795
	圧力上昇値 (MPa)	0.016	0.004	0.008

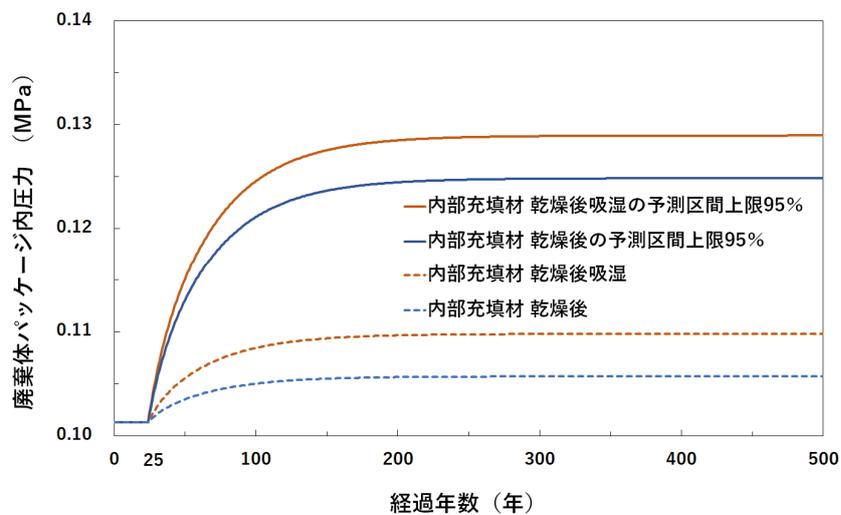


図 2.1-4 実験によるバラツキを考慮した場合の内部充填材からの水素ガス発生による廃棄体パッケージ内の圧力

2) セメント系材料の熱変質による物性値への影響確認試験

TRU 廃棄物処分場において多用されることが想定されるセメント系材料は、廃棄物等からの熱影響により、長期的にはセメント系材料の主要な水和物である C-S-H が結晶化することが推測される。しかし、人工バリア材の長期的挙動の評価においては、このセメント系材料の結晶化に関しては考慮されていない。そのため、セメント系材料中の C-S-H (あるいは C-A-S-H) の結晶化 (トバモライト化) について、令和 3 年度までに取得したデータから得られた知見に基づき、以下のように整理した。

- ・ C-S-H 及び C-A-S-H は、50°C 程度の温度でも、数十年程度の期間において結晶化し、Al や他の成分が共存することにより、Si との置換などで結晶相として安定化する。
- ・ C-S-H 及び C-A-S-H の結晶化は、セメント系材料中でも生じる変化であり、それらが前駆体となり結晶化へと変遷する。
- ・ コンクリートにおいては、石英及び長石などの骨材との反応により、トバモライト組成に近い C-S-H (あるいは C-A-S-H) を生成しトバモライトへと変化する。
- ・ XRD 等で結晶相として検出されない場合でも、トバモライトへの変遷過程では、ある程度規則性の高い結晶構造を持つ C-S-H あるいは C-A-S-H となっているものと考えられる。
- ・ 処分環境においても、C-S-H (あるいは C-A-S-H) の結晶化については、現実的に生じる事象として認識する必要がある。
- ・ トバモライト組成の C-S-H (あるいは C-A-S-H) とトバモライトは、結晶構造の秩序性の違いであり連続的に変化するものである。そのため、それらを明確に線引きすることは難しい。
- ・ 物理的には、結晶化することによる強度への影響は小さく、むしろ、水酸化カルシウム及び高 C/S の C-S-H が骨材の Si 成分と反応し、C-A-S-H (またはトバモライト) の増加に伴う空隙率の減少による強度への影響の方が大きい。

(3) 廃棄体パッケージの製作性確認試験

これまでに得られた廃棄体パッケージ容器や内部充填材の製作技術に関する要素試験や構造健全性評価の結果を踏まえ、令和 3 年度より廃棄体パッケージの構造と製作方法、作業工程を設定し、実規模廃棄体パッケージを製作する製作確認試験を実施した。

1) 実規模廃棄体パッケージの基本仕様

製作確認試験を実施するにあたり、第一の目的を製作性の確認とし、廃棄体パッケージの仕様について以下の前提条件を設定した。

- ・ 検討対象は NUMO-SC の「廃棄体パッケージ B(a)」(ドラム缶用) とする。
- ・ 材料は NUMO-SC を基とし、廃棄体パッケージの容器については炭素鋼、内部充填材についてはセメント系 (プレキャスト) 材料とする。
- ・ 廃棄体パッケージの容器形状は NUMO-SC を基に、角形容器、ドラム缶 4 個挿入を前提とし、容器中央に十字鋼板を設け胴板および底板に溶接固定とする。
- ・ 外圧 10MPa に耐える容器として、容器本体 (胴板・底板・盖板) は、板厚 50mm で SM570 以上の降伏応力を有する材料とし、十字鋼板は、板厚 32mm で SM490Y(B) 以上の降伏応力を有する材料とする。
- ・ 腐食代は、NUMO-SC に記載されている処分坑道内の地下水による冠水が完了するまでの過渡的な期間である 300 年の最大腐食深さ (5.3mm) とする。
- ・ 過渡的な期間である 300 年の耐食層としての閉じ込めは溶接により確保する。なお、孔食も含めた最大腐食代は 8mm 程度と見なし、閉じ込め性確保としての溶接深さを 10mm と

する。

- ・ アスファルト固化体の熱的制限値は、195°C (国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構, 2018) とする。

2) 実規模廃棄体パッケージの設計

実規模廃棄体パッケージ容器を製作するにあたり、製作による寸法誤差及び内部充填材を挿入する際の作業性を考慮したうえで、容器と内部充填材の間のクリアランスを 5 mm に設定した。このクリアランスを担保するための容器の寸法公差を決め、図 2.1-5 に示す構造図を作成した。

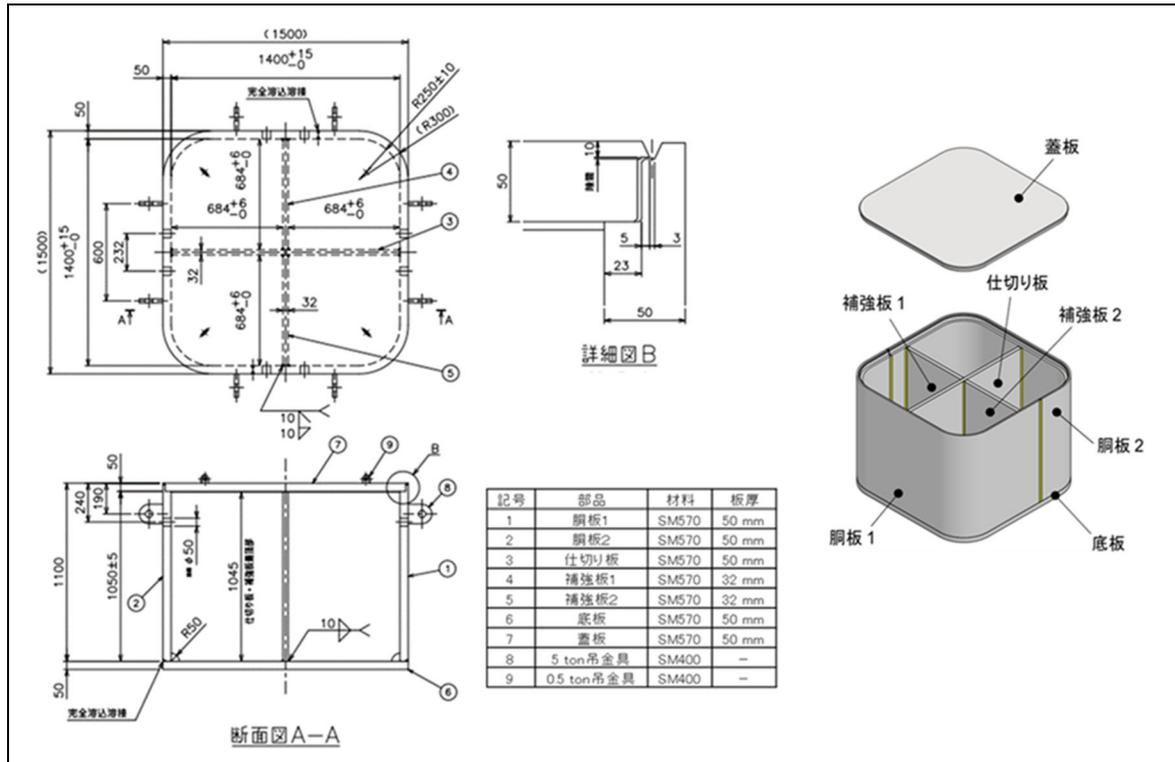


図 2.1-5 実規模廃棄体パッケージ容器の構造図

3) 実規模廃棄体パッケージの製作工程

実規模廃棄体パッケージの製作手順を図 2.1-6 に示す。

廃棄体パッケージの容器本体は、胴板、十字鋼板、底板で構成される。所定の寸法に切出した鋼板を曲げ加工でコの字にし、突合せて溶接したものが胴板となる。十字鋼板（仕切り板と補強板で構成）は、胴板の内面及び底板と溶接され、収納物（内部充填材、模擬廃棄体、断熱材）を各 4 体収納する際の隔壁となる。収納物である内部充填材お飛び模擬廃棄体を容器内部に設置したのち蓋板を溶接し、溶接部の非破壊検査、PWHT 施工を実施し製作は完了する。

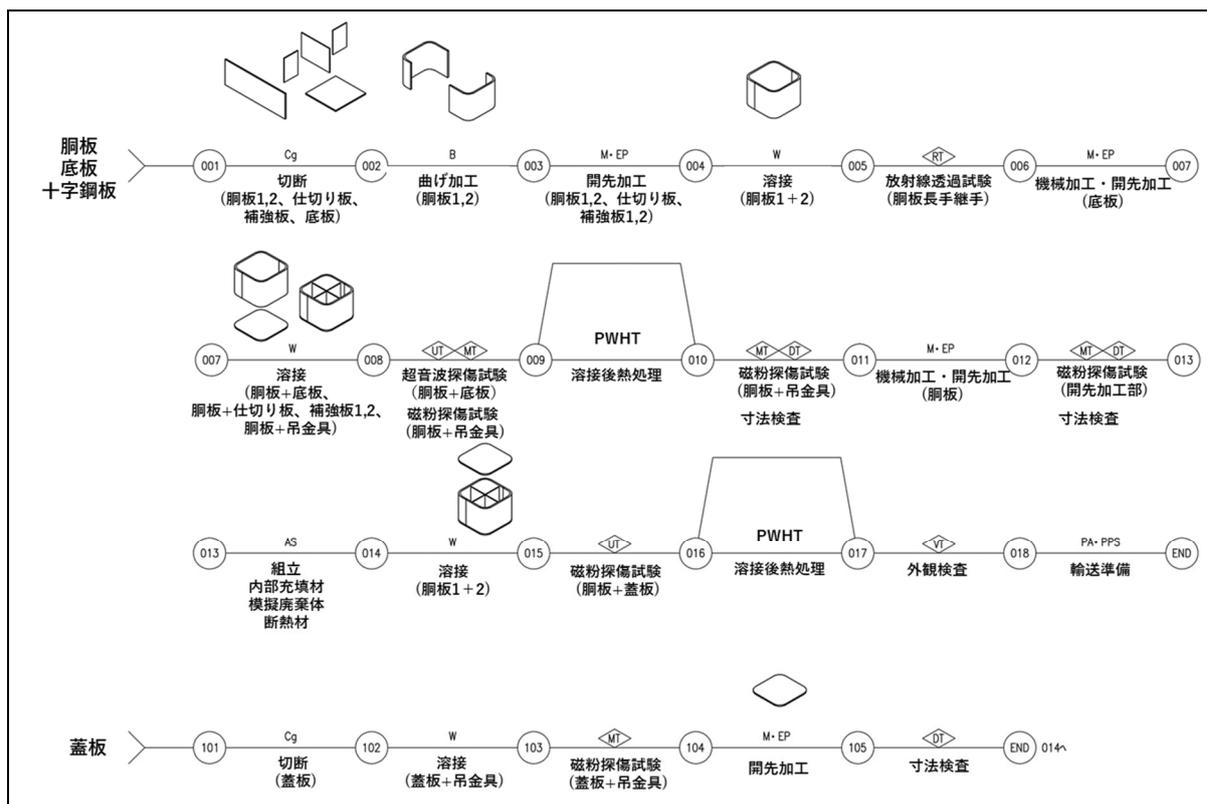


図 2.1-6 実規模廃棄体パッケージの製作工程

4) 実規模廃棄体パッケージ容器本体の製作

容器本体の製作では、素材の加工性、部品の組立施工性（溶接、十字鋼板や側面板、底板の組立性）などの技術課題に注目した。実規模廃棄体パッケージ容器の部品製作のうち、組立精度のコントロールにおいて以下の点が課題となることが想定された。

- ・ 銅板の曲げ加工の精度： R 寸法の公差割れや、銅板の内側寸法（組立時）の公差割れ
- ・ 銅板組立時の溶接変形： 長手継手を溶接する際に生じる、熱ひずみによる変形

曲げ加工は、機械的加圧で銅板に降伏点以上の曲げひずみを与えて行われるため、板厚が厚く曲げ半径が小さくなるほど高性能なプレス装置が必要になるとともに加工も難しくなる。

容器胴部の溶接組み時には、内側寸法の公差割れが懸念され、これは後工程での修正が困難であり、曲げ加工精度によって決定されるためその管理が特に重要となる。曲げ加工した 2 つの銅板の開先合わせ時に目違いを公差内に収めるためには、2 つの銅板の内側寸法が合っていること及び直線部が平行であること（外側に広がる、または内側に落ち込まない）が重要となる。

これらの課題に対して、部品製作では以下の対策を実施した結果、R 寸法の公差割れや銅板の内側寸法の公差割れを防止し、所望する寸法内で製作することができた（図 2.1-7 参照）。

- ・ プレスによる冷間加曲げ加工では、SM570（高強度）の厚板の曲げ実績が豊富な加工メーカーで、十分な能力を持つプレス装置で実施
- ・ 銅板をずらしながら曲げ加工を繰り返し実施（①銅板のケガキ線に沿って曲げる→②銅板を横にずらす、を複数回繰り返す）
- ・ スプリングバックを考慮し、曲げ加工の狙い値を複数個所に設定
- ・ R 部の過度な減肉を発生させないように、曲げ加工の箇所を複数に分散して設定

複数個所に分けて曲げ加工を施工

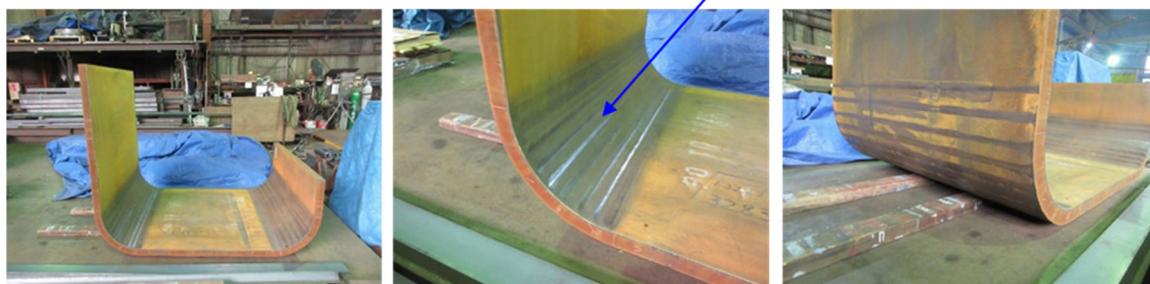


図 2.1-7 胴板の曲げ加工

胴板は複数の部品を溶接接合して組み立てるが、その際の溶接によって熱ひずみや溶接縮みが生じ、胴板の反り、容器の内側及び外側への変形が懸念される。

一般的に、円筒容器に比べて角型容器では溶接部の変形は大きくなり、変形量の制御は難しいため、変形を抑制する対策が必要となる。

この課題に対して、ストロングバックを溶接開先近傍に取り付けること、突っ張り棒を複数個所に取り付けることで、溶接の際の熱ひずみによる変形を抑制した。胴板の長手継手の開先形状については、開先角度、開先リップ位置及び裏ハツリ深さ・形状を調整し内面及び外面の溶接による入熱量が均等化（局所的に高温にならないように）するように開先形状を最適化することで溶接変形を抑制した。

上記の対策を実施した結果、胴板の長手継手溶接時の収縮や胴の反り、容器内側及び外側への変形を防止し、胴板部品の組立精度を確保することができた。製作後の寸法測定結果は、構造図で設定した寸法公差に対して全て公差内であることを確認した。

実規模廃棄体パッケージの容器本体の製作状況を図 2.1-8 に示す。



図 2.1-8 実規模大廃棄体パッケージ容器本体の製作状況

5) 内部充填材、模擬廃棄体、断熱材の挿入・設置

製作した容器本体に、内部充填材、模擬廃棄体、断熱材をそれぞれ容器内に挿入・設置し、挿入前の吊上げ状態のバランスや挿入後の設置状態を確認した。

内部充填材側面部（上段と下段を締結）の事前の吊上げ確認では、重量的なアンバランスにより吊上げ時に傾きが生じた。そのため、今回の吊上げ作業では、吊り上げ時に傾きの調整ができる3点吊りの天秤を使用したことで水平に吊り上げることができた。また、挿入作業では、充填材側面部及び底板部ともに接触もなく安全に挿入でき、容器とのクリアランスを確保しつつ、設置後のがたつきもないことを確認した。

模擬廃棄体はチェーンフックで吊上げたが、脱落等もなく安全かつ安定して吊上げることができた。挿入作業は内部充填材とのクリアランスが小さかったが、接触することもなく、設置後の

がたつきも確認されなかった。

設置後の各区画における部材同士のすき間を測定した結果、挿入・設置時の誤差による設置位置の偏りは見られたが、いずれも内部充填材と容器間、廃棄体と内部充填材間の干渉等は確認されず安定した設置ができた。廃棄体及び断熱材の設置状態を図 2.1-9 に示す。

断熱材については、不要ながたつきや干渉なく、容器の蓋板の溶接にも支障なく設置することができたが、今回使用した断熱材は、被覆材の無い仕様であり、脆性的な材料でもあることから、ハンドリング時に角部等に若干の欠けや割れ、凹みが発生した。



図 2.1-9 廃棄体及び断熱材の設置状態

6) 蓋板と容器本体の溶接

実規模廃棄体パッケージ容器の内部に内部充填材および模擬廃棄体を設置した後、容器本体と蓋板の溶接を実施した。

溶接方法については、容器本体の溶接（胴板、底板、十字鋼板）はマグ溶接を用い、本体と蓋板の溶接方法はティグ溶接とした。溶接条件は、令和 3 年度に実施した SM570 を用いたティグ溶接試験で得られた以下の条件（溶接入熱に影響するもの）を基本とした。

容器本体と蓋板を溶接するにあたり、蓋板の溶接部近傍をグラインダーで研削し黒皮を除去したのち、本溶接の前に開先のずれ防止を目的とした仮止め溶接を行なった。

溶接は、表 2.1-3 に示す溶接条件でロボット溶接機を用いて溶接施工を行なった。溶接順序は、直線部中央からスタートし R 部を通過して、次の直線部中央までをマニピュレータによる一筆書きとした。

溶接施工状況を図 2.1-10 に示す。

表 2.1-3 容器本体と蓋板の溶接条件

溶接法	溶接姿勢	平均電流 ※2	電圧 ※3	速度 ※2	予熱	パス間温度	積層※2
TIG 溶接※1	下向き	275A	19.2V	6~9 cm/min	実施しない	50[°C] 以下※4	6層6パス

※1 AVC 制御

※2 電流、速度、積層数については、溶接時の状況（実際の開先精度や母材による抜熱など）を考慮して調整した。

※3 ティグ溶接における電圧は従属パラメータのため、実際の値は変動する可能性がある。

※4 伝熱計測試験体で設定した温度と統一。現段階では、試験体内部が熱的制限値以下となる施工を確実に成立させるため、最も厳しい水準のパス間温度を設定した。



図 2.1-10 溶接施工状況

溶接施工中の温度履歴を取得するため、蓋内面及び容器内側側面に熱電対を貼り付けた。溶接施工中の内面側の温度は、最高でも 80℃程度であることが確認され、模擬廃棄体への熱影響には問題ないことを確認した。

実規模廃棄体パッケージの容器本体と蓋板の溶接については、平成 31 年度に確立したロボットによる自動溶接施工で健全に施工できることを確認している。今後は、遠隔施工をより高度化するために、溶接施工中のモニタリング、溶接電極交換、溶接欠陥発生時の欠陥除去、補修溶接及び最終層施工後のクレータ処理など、遠隔で操作するための装置開発が必要である。

7) 非破壊検査（UT 検査）による溶接部の検査

実規模廃棄体パッケージ容器と蓋板の溶接を実施した後、溶接部の非破壊検査を実施した。

非破壊検査方法は、令和 3 年度に検討した結果から、容器側面側から接触媒質を用いて探傷するフェーズドアレイ法（PAUT : Phased Array UT）を用いた。

UT 施工時の様子を図 2.1-11 に示す。UT データの採取については、手動走査(マニュアル UT) をガイドするジグを用い、エンコーダによって探触子位置を取得することで実施した。

UT 検査の結果、実規模廃棄体パッケージ容器の蓋溶接部に対し、有意な指示エコー（欠陥と思われるエコー）は確認されなかった。

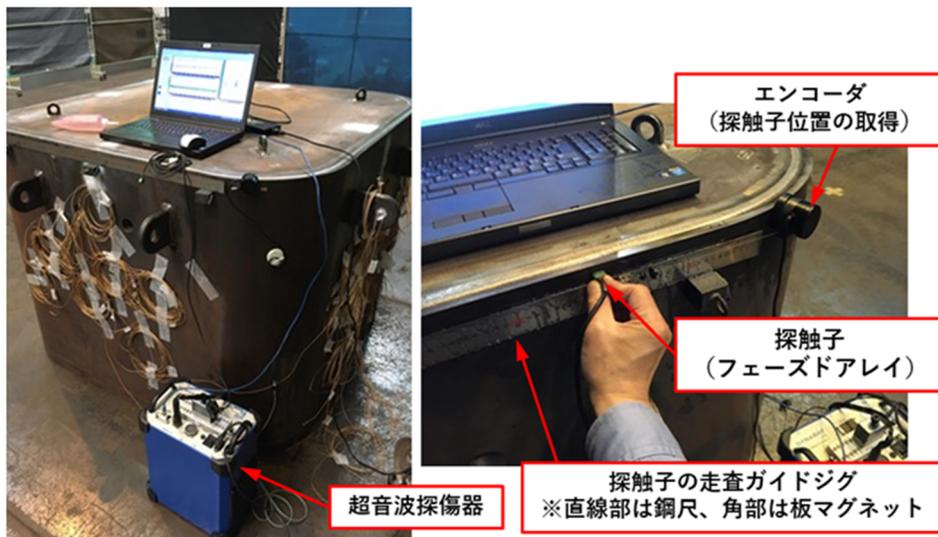


図 2.1-11 UT 実施時の様子

今回、製作した廃棄体パッケージの容器形状及び溶接位置に関しては、容器側面側から接触媒質を用いて探傷するフェーズドアレイ法が適切な UT 施工方法であることを確認した。

この工程で抽出した留意点を以下にまとめる。

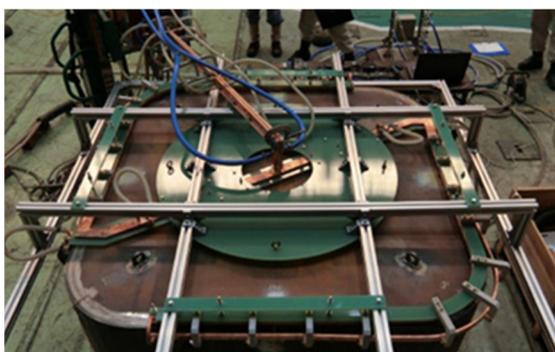
- ・ 検査部位である溶接部の表面状態（研削処理部、打痕部分、スパッタ付着部分）によっては、エコーに若干の乱れが発生することを確認した。そのため、欠陥の検出精度を一定水準以上に管理するためには、工場での容器製作時に、探触子走査面となる部位を目視検査し、必要に応じてグラインダー等による研削加工を施した方がよい。
- ・ 容器本体と蓋板の遠隔溶接の場合、容器側面の探触子走査面に付着したスパッタは、探触子の走査に影響を及ぼすため、スパッタを付着させないような溶接施工が必要となる。もしくは、表面に多少の凹凸がある場合でも追従するような探触子走査機構を開発する必要がある。
- ・ 接触媒質については、探触子の接触状態を安定させるために粘性のあるグリセリンペーストを使用する場合、自動供給及び清掃工程（拭き取りと回収）が必要になる。接触媒質に水を用いる場合においても、清掃工程（拭き取りと回収）の検討も必要になる。

8) 残留応力緩和処置（PWHT 施工）

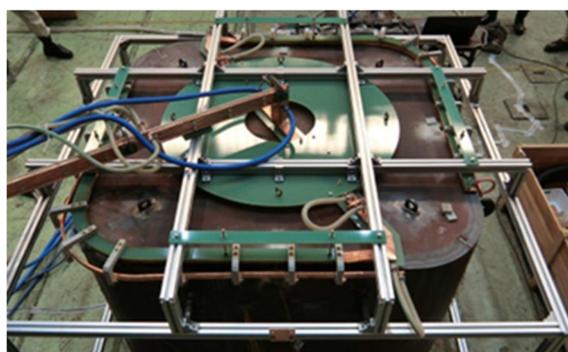
実規模廃棄体パッケージの蓋溶接時及び PWHT 時の熱により、容器内部の温度が上昇するため、施工時の温度履歴を取得するための温度測定機器を設置した。

令和 3 年度までの PWHT 施工に関する検討結果を踏まえ、加熱方法は高周波誘導加熱とし、容器の蓋板溶接部全周を 2 回に分けて加熱する方法とした。これは、溶接部全周を 1 回で加熱する場合、電力や電圧といった電気的な設備の問題や全周の温度調整など技術的な問題を考慮したことによる。1 回目の PWHT 施工及び 2 回目の PWHT 施工における加熱コイルの設置位置を図 2.1-12 に示す。

施工手順は、まず各計測点の昇温速度のバラツキや温度分布を確認するため予備試験を実施し、この予備試験から得た温度分布を基に、本試験におけるフィードバック点を設定した。1 回目の PWHT 施工ではフィードバック点の温度を確認しながら施工を行い、施工終了後、加熱コイルを 90 度回転させ、2 回目の PWHT 施工を行った。2 回目の施工手順は 1 回目と同様である。



1 回目の PWHT 施工時



2 回目の PWHT 施工時

図 2.1-12 加熱コイルの設置位置

PWHT の施工条件は、表 2.1-4 に示すように JIS 規格に基づいた施工条件とし、フィードバック点の設定については、予備試験及び施工結果を反映しそれぞれ以下のような調整を施した。

現場調整後の PWHT 施工条件を表 2.1-5 に示す。

表 2.1-4 JIS に基づいた PWHT 施工条件

	PWHT 施工条件	備考
溶接部厚さ	10 mm	
加熱速度	220 [°C/h]以下 (ただし、220 [°C/h]をねらう)	JIS Z 3700 より
保持温度	595~635 [°C]	JIS Z 3700 より
保持時間	0.4 [h]以上 (0.5 [h]以下を目標とする)	JIS Z 3700 より
冷却速度	280 [°C/h]以下 (ただし、280 [°C/h]をねらう)	JIS Z 3700 より
管理温度範囲	300 [°C]以上	

表 2.1-5 現場調整後の PWHT 施工条件

	1 回目	2 回目
フィードバック点	F1 (最低温度点)	F1 (最高温度点)
加熱速度	178 [°C/h]	195 [°C/h]
保持開始条件	F1 が 595 [°C]到達	F1 が 635 [°C]到達
保持時間	0.42 [h] (25 [min])	0.42 [h] (25 [min])
冷却速度	207 [°C/h]	231 [°C/h]

・ 1 回目施工

予備試験で最低温度点であった F1 点をフィードバック点とし、F1 点が保持温度の最低値である 595°C まで昇温するように加熱を制御した。予備試験の結果とその後のクリアランス調整結果を踏まえ、加熱速度は 20% 程度の余裕を持たせ 178°C/h とし、冷却速度も余裕を持たせ 207°C/h とした。保持時間は 25 分とした。

フィードバック点である F1 点が保持開始温度である 595°C に達した時点では、図 2.1-13 に示すように、同じ均熱範囲の N1 点で 660°C、対角側の H1 点及び J1 点でそれぞれ 718°C と 751°C まで温度が上昇し、いずれも JIS に基づいた PWHT 施工条件の保持温度 (595~635°C) を超過した。

保持温度の超過については、温度の上昇に伴いコーナー部の加熱コイルが変形 (垂れ下がり) し、容器とのクリアランスが狭まったこと、均熱範囲のコーナー部は構造的に熱が逃げ難いこと、が要因として挙げられた。

今後、類似の施工装置を用いる場合、これらの改善が必要になる。

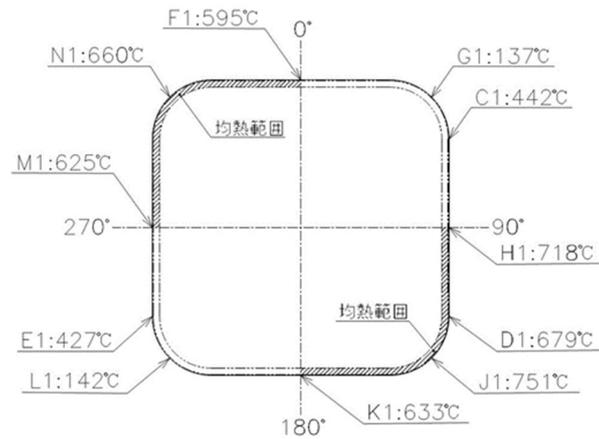


図 2.1-13 保持温度到達時の溶接ビード上の温度（1 回目 PWHT 施工）

・ 2 回目施工

1 回目の施工結果を踏まえ、予備試験の最高温度点であった F1 点をフィードバック点とし、F1 点が保持温度の最高値である 635°C まで昇温するように加熱を制御した。予備試験の結果とその後のクリアランス調整結果を踏まえ、加熱速度は 10% 程度の余裕を持たせ 195°C/h とし、冷却速度も余裕を持たせ 231°C/h とした。保持時間は 25 分とした。

フィードバック点である F1 点が保持開始温度である 635°C に達した時点では、図 2.1-14 に示すように、同じ均熱範囲の H1 点で 649°C、F1 点の対面の K1 点 651°C まで温度が上昇し、いずれも JIS に基づいた PWHT 施工条件の保持温度（595～635°C）を超過したが、1 回目の施工と比べると改善が見られた。しかし、E1 点及び L1 点では、JIS に基づいた PWHT 施工条件の保持温度（595～635°C）に届かない結果となった。

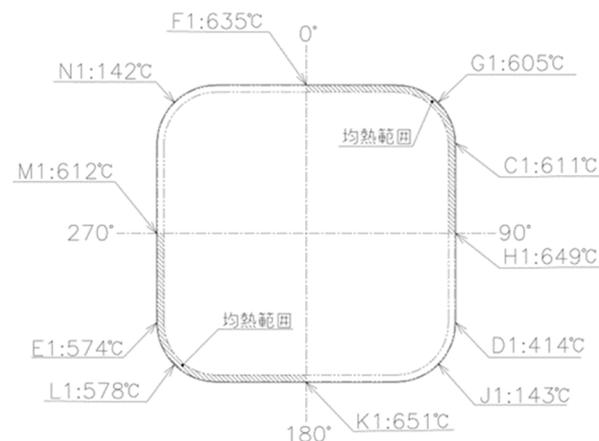


図 2.1-14 保持温度到達時の溶接ビード上の温度（2 回目 PWHT 施工）

実規模廃棄体パッケージの蓋板溶接部の残留応力の低減を目的に、令和 3 年度までの検討内容を踏まえて高周波誘導加熱コイルを製作し、PWHT 施工を実施した。

PWHT で所望する効果を得るためには、対象部位に対して適切な温度と適切な保持時間が重要になるが、内容物である廃棄体の熱的制限などを考慮する場合、容器内部の温度状態を把握する

必要がある。そのため、本来の目的に該当する溶接部の他に、模擬廃棄体上面・側面及び内部充填材上面・側面にも熱電対を取り付け、施工中の温度履歴を取得した。

容器内部の模擬廃棄体の最高到達温度は、1 回目の PWHT 施工では 163°C に到達し、2 回目の PWHT 施工でも 155°C まで到達した。1 回目、2 回目ともに最高到達温度は模擬廃棄体の側面であった。いずれにしても、廃棄体の熱的制限値として設定した 195°C より低いことを確認した。

以上のことから、高周波誘導加熱を用いた PWHT 施工により、廃棄体の熱的制限値をクリアする目途は得られたが、目標である JIS に基づいた PWHT 施工条件の保持温度 (595~635°C) 内で最高到達温度を管理することについては課題が残った。

今後のための留意点を以下にまとめた。

- ・ 今回のような局所的な PWHT 施工で加熱領域全体を均一な温度に到達させるためには、加熱開始前や加熱途中において精緻なクリアランス調整が必要となる。特に遠隔操作で施工する場合には、適宜、調整作業を実施することが困難であることから、今回のように加熱コイルと容器の製作寸法公差や昇温過程での温度分布の不均一に対して、容器全体の温度を監視しながら、時々刻々と変化する温度分布に応じて高周波誘導加熱の出力をコントロールする、もしくはクリアランス調整を分割制御で行えるようなシステムの開発が必要である。
- ・ 今回の製作確認試験では、汎用性の高い非調質鋼を考慮して JIS に基づいた PWHT 施工条件を目標としたが、SM570 のような調質鋼に対しては、その鋼材の焼戻し温度を超えた PWHT 施工は、強度や靱性の低下など調質効果を損失させる可能性がある。そのため、実用際には使用する鋼材に応じた PWHT 施工条件が必要である。

9) 残留応力計測の実施

PWHT 施工による溶接部の残留応力の低減効果を検証するため、ASTM E837-13a 規格に従い、穿孔法を用いて PWHT 施工前後の蓋溶接部の残留応力を計測した。

まず、測定対象物の測定位置に合わせて 3 方向のひずみを測定できるロゼットひずみゲージを貼付し、ロゼットひずみゲージの中心に小孔を穿孔することで、当該位置の残留応力の解放による 3 方向の半径方向解放ひずみが求められる。次いで、この 3 方向のひずみ値から ASTM E837-13a 規格に規定されている計算アルゴリズムにより、存在していた残留応力 (平面応力の 3 成分、主応力と方向など) を求める。計測は、PWHT 実施前後で 1 回ずつ実施した。

計測位置を図 2.1-15 に示す。断面図では代表として F-F 断面の位置のみを示す。溶着金属部 (以下、溶金部) はその中央部を計測し、母材部は溶金部の端部から 10mm 母材側に入った位置を計測した。

本来は、PWHT 施工による効果を確認するには同一カ所での測定が望ましいが、穿孔法による応力解放の影響を避けるため、ここでは容器の右半分 (F、G、H、J) を溶接後、左半分 (K、L、M、N) を PWHT 後の測定位置とした。したがって、溶接後と PWHT 後の測定結果を比較するにあたり、溶接後の残留応力は、左半分も右半分と同等の残留応力が発生しているものと仮定した。

方向及び角度の定義について図 2.1-16 に示す。 σ_x は溶接線方向、 σ_y は溶接線の直交方向の応力である。プラスが引張応力、マイナスが圧縮応力を示す。最大主応力方向の角度は溶接線方向を 0° とし、+90deg または -90deg は直交方向である。

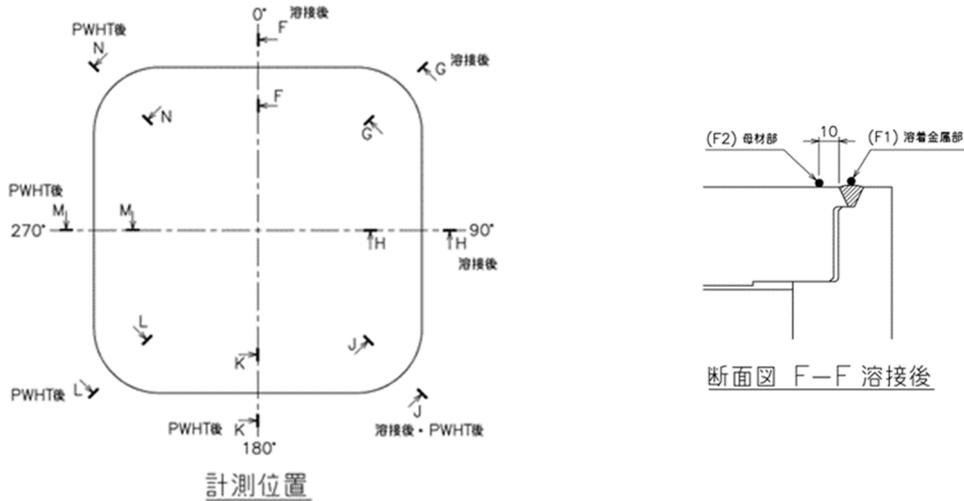


図 2.1-15 残留応力計測位置

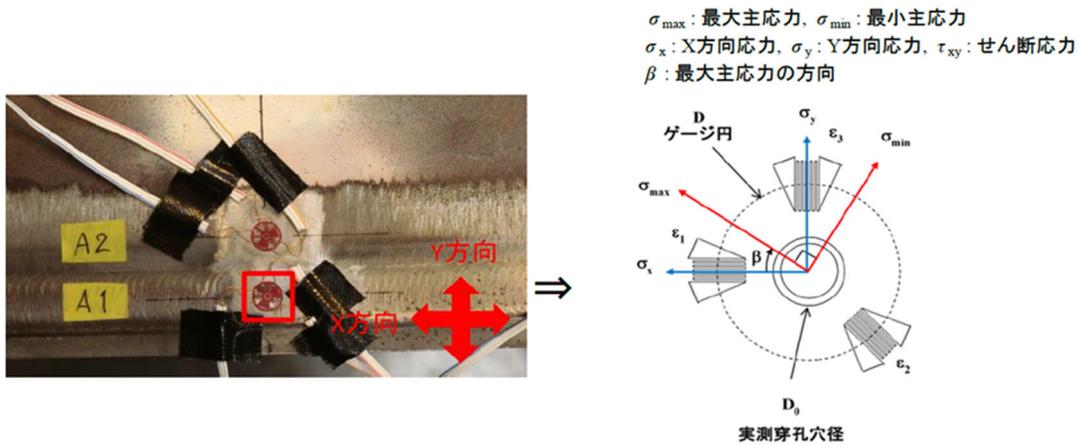


図 2.1-16 応力の方向

溶接後の残留応力計測値を表 2.1-6 に、PWHT 後の残留応力計測値を表 2.1-7 に示す。溶接線直交方向の残留応力 σ_y はいずれも圧縮応力であり、PWHT 後に残留応力が増加した箇所と低減した箇所が見られた。母材部については、溶接線方向の残留応力 σ_x はいずれも引張応力であり、PWHT 後もほぼ変化がない、もしくは残留応力が大きくなるという結果であった。溶接線直交方向の残留応力 σ_y は、溶接後はいずれも引張応力であったが、PWHT 後は圧縮応力へ変化するか、引張応力であっても数十 MPa 程度まで低下した。

表 2.1-6 溶接後の残留応力計測値

部位	位置	σ_{max}	σ_{min}	σ_x	σ_y	β	
		(MPa)	(MPa)	(MPa)	(MPa)	(deg)	
溶金部	直線部	F1	242	-197	230	-185	-9
		H1	268	-208	267	-207	-3
	コーナ一部	G1	221	-256	215	-250	-6
		J1	273	-243	263	-233	-8
母材部	直線部	F2	126	118	124	119	-28

		H2	314	139	140	313	-86
	コーナー部	G2	260	226	226	259	-85
		J2	245	210	218	237	-61

表 2.1-7 PWHT 後の残留応力計測値

部位		位置	σ_{max}	σ_{min}	σ_x	σ_y	β
			(MPa)	(MPa)	(MPa)	(MPa)	(deg)
溶金部	直線部	K1	334	-660	334	-660	0
		M1	548	-514	547	-513	-2
	コーナー部	L1	218	-130	218	-130	-1
		N1	314	-95	305	-85	-9
母材部	直線部	K2	161	-3	160	-2	-5
		M2	261	29	255	35	-9
	コーナー部	L2	205	-66	205	-66	-2
		N2	450	9	450	9	2

溶接後の溶金部の残留応力を見ると、 σ_y （溶接線の直交方向の応力）は直線部及びコーナー部ともに圧縮の残留応力であり、一方、母材部では引張の残留応力であった。定置後、深度相当の水圧が蓋板に作用した場合、溶接部近傍には蓋板の撓みにより溶接線に対し直交方向の引張応力が発生する。そのため、PWHT 施工により、 σ_y の引張の残留応力が低減、または圧縮の残留応力の付与は、外圧作用時に溶接部の損傷に対し有効に働くことから、PWHT 施工の効果があったと言える。

ただし、溶接線方向の引張の残留応力は、PWHT の施工によって逆に増減が大きくなり、部位によって残留応力にムラがある状態になった。

このように、今回の PWHT 施工では、溶接線直交方向の引張残留応力の改善は認められたものの、溶接線方向の引張残留応力の改善については課題を残すこととなった。

10) 製作性確認試験のまとめ

令和 3 年度から開始した実規模廃棄体パッケージの製作性確認試験では、実際に容器の組立から PWHT 施工に至る一連の製作工程を経て製作することで、設計要件を反映した廃棄体パッケージの製作性を実証的に確認した。

また、各工程で得られた知見や製作上の留意点、さらに今後のための課題については、類似の角型形状の廃棄体パッケージにも適用することができる。そのため、本研究の目標である廃棄体パッケージに求められる設計要件の工学的成立性や安全性の向上に貢献できる成果である。

2.1.3 廃棄体パッケージの長期性能評価

(1) 閉鎖後の長期健全性評価

閉鎖後の長期性能評価については、閉鎖後の閉じ込め性能を期待する期間（300年を目安とする）の健全性評価手法案を策定し、溶接部の破損評価の検討を通して許容できる内圧と溶接深さの関係を把握した。また、処分環境と SCC の可能性について調査した結果、炭素鋼製容器の定置環境では SCC 発生 of 潜在的な懸念は否定できないことを確認した。

(2) 廃棄体パッケージ容器溶接部の腐食挙動評価

閉鎖後 300 年程度の放射性物質の閉じ込め性能が期待されるパッケージ B においては、設計要件として構造健全性に加え耐食性が求められる。そのため、溶接技術の妥当性とその品質を評価するための知見を整備することを目的に、溶接部の浸漬試験を実施し検討してきた。

令和 2 年度では、酸化性雰囲気、pH8.5 の人工海水及び人工淡水の水溶液条件で、LAH 溶接部及び EB 溶接部の腐食データを取得すること目的とした全面腐食試験を実施した。

令和 3 年度には、実規模廃棄体パッケージの製作確認試験が開始され、容器本体の鋼材及び蓋溶接方法がそれぞれ SM570、TIG 溶接を適用することとなった。そのため、製作性確認試験の容器の仕様に関する腐食データを取得するため、SM570 によるティグ溶接部を有する試験片を作製し、令和 4 年度にかけて酸化性雰囲気による浸漬試験を実施した。

1) LAH 溶接部及び EB 溶接部の腐食データの取得

令和 2 年度の浸漬試験に用いた試験装置を図 2.1-17 に示す。腐食試験に供す試験片は、設定した溶接条件で作製した溶接試験体から採取した。LAH 溶接は板厚 60mm の鋼板（溶接構造用圧延鋼材（SM400B））に V 溝開先を加工したものに、溶込み深さ 50mm の部分溶込み溶接を行った。また、腐食試験片は溶接部断面から採取した。比較のため EB 溶接により溶接線を付与した試験体も浸漬試験に供した。

試験溶液は、pH=8.5 程度の海水系水溶液と降水系水溶液とした。海水系水溶液は ASTM D1141 相当の人工海水、降水系水溶液は $\text{NaCl} : 2.5 \times 10^{-3} \text{ mol}$ と $\text{NaHCO}_3 : 2.5 \times 10^{-3} \text{ mol}$ に純水を加え 1 L とした人工淡水を用いた。試験温度は既往の報告と比較するため 80°C とし、浸漬期間は 90 日及び 360 日とした。

なお、試験片は溶接部の断面が評価面になるように、試験体の溶接方向に対して直角方向に切断加工したものを使用した。

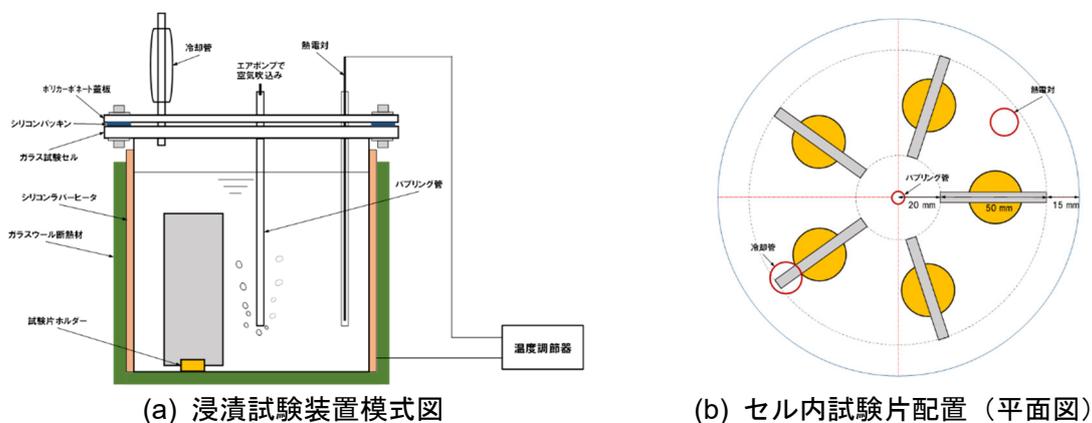


図 2.1-17 LAH 溶接部及び EB 溶接部の浸漬試験

浸漬期間 360 日の LAH 試験片及び EB 試験片の脱スケール後の外観を図 2.1-18 に示す。

LAH 試験片については、人工淡水に比して人工海水において多層盛されたアーク溶接部の選択的な腐食が顕著であり、アーク溶接部以外の部位は比較的均一な腐食であった。EB 試験片については、人工海水及び人工淡水ともに溶接部の選択的な腐食は見られなかった。重量測定による平均減肉量の比較では、LAH 試験片は人工海水で 0.245 mm、人工淡水で 0.160 mm であり、EB 試験片は人工海水で 0.291 mm、人工淡水で 0.186 mm と、人工海水の方が人工淡水に比して平均減肉量が大きかった。

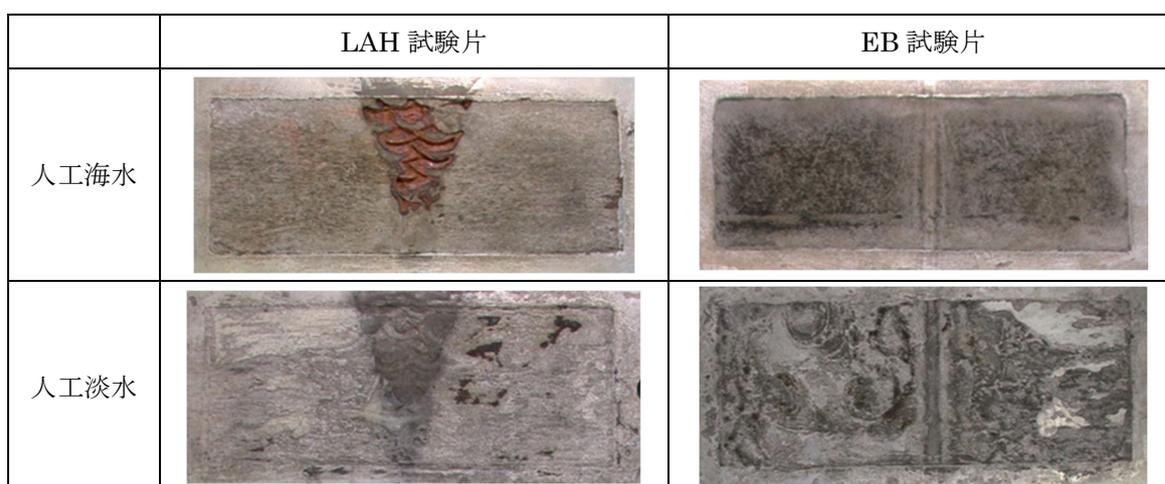


図 2.1-18 360 日浸漬後の LAH 試験片及び EB 試験 (スケール除去後)

この試験では、溶接部の断面が評価面になるように試験片を切断したことで、溶接断面特有の腐食挙動が確認できた。

溶接部の選択的な腐食は、主に LAH 試験片の多層盛されたアーク溶接部に限定され、LAH 溶接のレーザ溶接部及び EB 試験片では見られなかったことから、アーク溶接時の熱影響や溶加材が腐食挙動に影響を及ぼしたことが示唆される。

電縫鋼管の溝状腐食の例のように、溶接時の熱サイクルによって MnS が析出することで、腐食の起点となることはよく知られているが、ここではアーク溶接による多層盛溶接時のスラグ (FeO、SiO₂、MnO) の巻き込みや層状の融合不良が選択的な腐食を促進させている可能性も含まれる。除去する必要のない健全なスラグであっても、その成分には MnO を含んでおり、イオン化傾向からも Mn は鉄鋼の Fe に対して卑な位置にあることから、周囲の母材に対して選択的に腐食することは容易に想像できる。

今回用いた試験片では溶接方向が板厚方向となるため、この面が酸化性雰囲気腐食環境下に置かれた場合には、スラグ巻き込みや層状の融合不良の部位がアノード固定されることで腐食は局部的に板厚方向に進展する。すなわち、多層盛溶接においては、溶接上面と溶接断面のどちらの面が環境側に露出するのかによって、腐食挙動に異方性が表れることを留意する必要がある。

2) 黒皮付き TIG 溶接部の腐食データの取得

腐食試験に供す試験片は、TIG 溶接で作製した溶接試験体から採取した。溶接は板厚 32 mm の鋼板 (溶接構造用圧延鋼材 (SM570)) に V 溝開先を加工したものに、溶込み深さ 10 mm の部分溶込み溶接を行った。さらに実際の状態を模擬するため、溶接ビードが上面になるように試験片を切断加工した。この試験では、実際の容器の状態を模擬するため溶接表面側は研磨などの表面処理は行わず、試験片には圧延工程時に発錆した酸化被膜 (ミルスケール) が付着したままの

状態で、腐食生成物が自然堆積した影響を取り入れることを目的に評価面を上面にした平置き状態で試験を実施した。浸漬期間は 90 日、180 日、360 日とした。なお、試験溶液等の試験条件は、令和 2 年度の試験と統一した。

試験装置の概要を図 2.1-19 に示す。

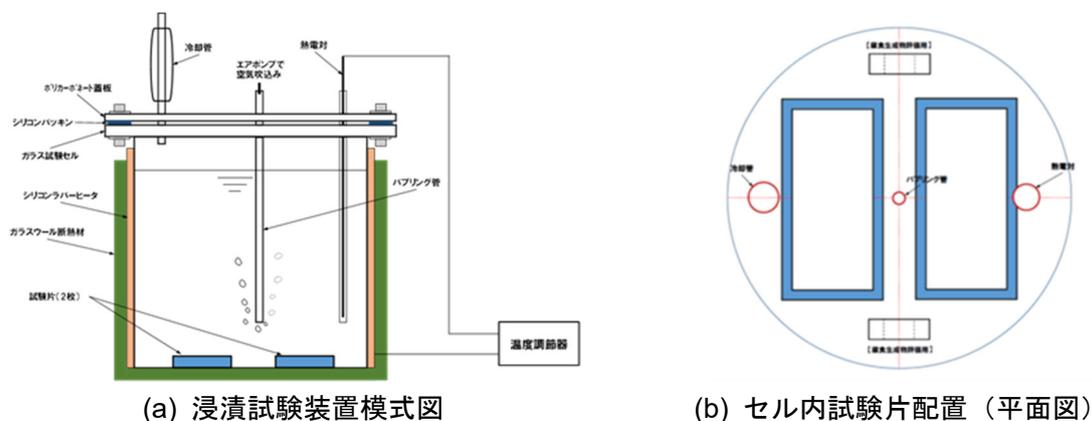


図 2.1-19 黒皮付き TIG 溶接部の浸漬試験

試験終了後の試験片の外観は、人工海水については、180 日までは比較的均一な全面腐食を呈していたが、360 日では均一な全面腐食の進展に加え局部腐食が発生していた。人工淡水については、180 日までに熱影響部のあたりに溶接線に沿った腐食溝及び腐食孔が発生し、360 日ではさらに進展していた。

人工海水と人工淡水の 360 日試験片について、三次元形状測定による浸漬前と浸漬後（脱スケール後）の形状プロファイルの比較を図 2.1-20 及び図 2.1-21 に示す。腐食溝は深さ方向に傾斜になっていたため、変位センサのレーザが最深部まで到達しなかったが、180 日までは人工淡水では深さ 1mm 程に達する腐食溝や腐食孔が発生し、360 日までは人工海水、人工淡水ともに深さ 2mm 程に達する腐食溝や腐食孔が発生していた。

今回の浸漬試験の結果から、酸化性雰囲気下での溶接部の腐食挙動は、人工海水及び人工淡水ともに、ある一定の浸漬期間を経ると腐食溝や腐食孔が点在し、その深さは 1 年間の浸漬で 2mm 程にも達することを確認した。腐食溝は、溶接線に沿って母材部と熱影響部の境界に発生する傾向が見られ、深さ方向に傾斜になっていたことから、母材と溶加材の化学成分の差の影響が考えられる。黒皮の影響については、黒皮部においても腐食孔が発生していたことから、180 日以上での耐食層としての機能は期待できず、むしろ腐食生成物の堆積や微細なクラックの存在による素地とのガルバニック腐食の可能性があることを留意しておく必要がある。

今後の課題として、腐食溝の深さ方向の進展についてもう少し長期の挙動を確認する必要があり、また、その対策についても検討する必要がある。

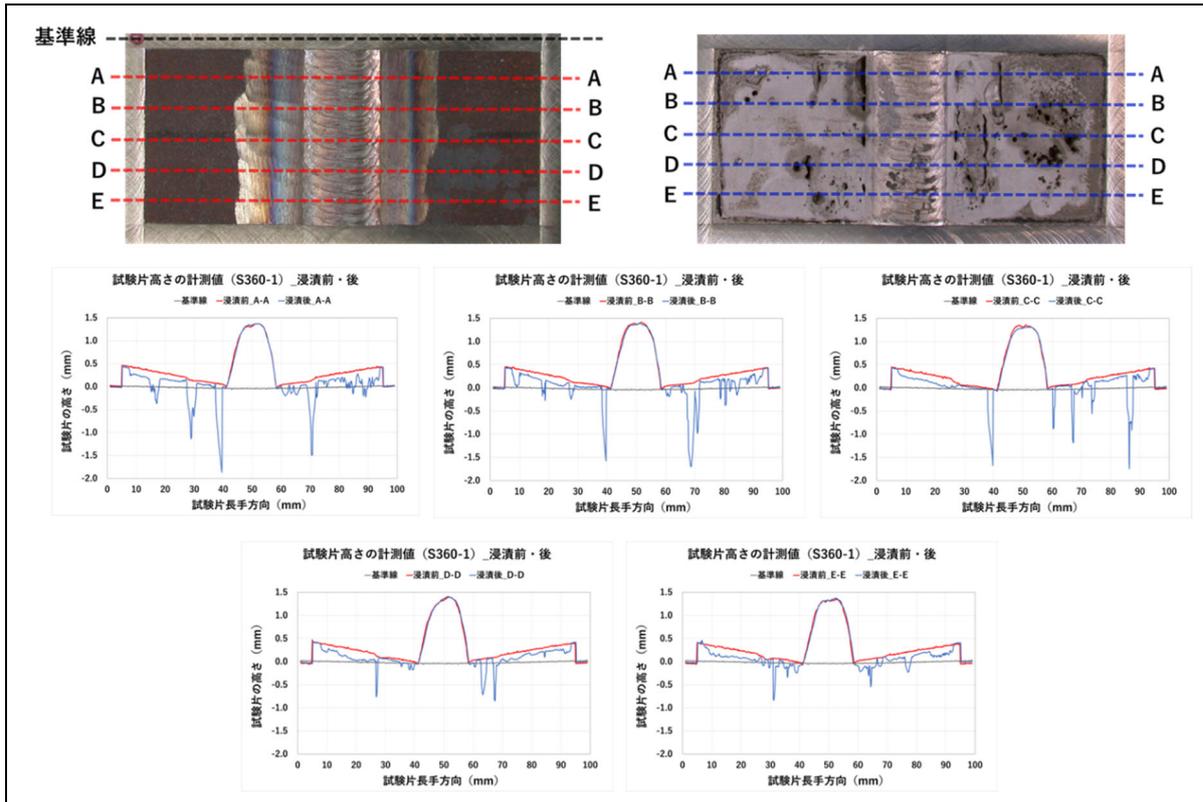


図 2.1-20 試験前後の形状プロファイル比較 (人工海水/360日)

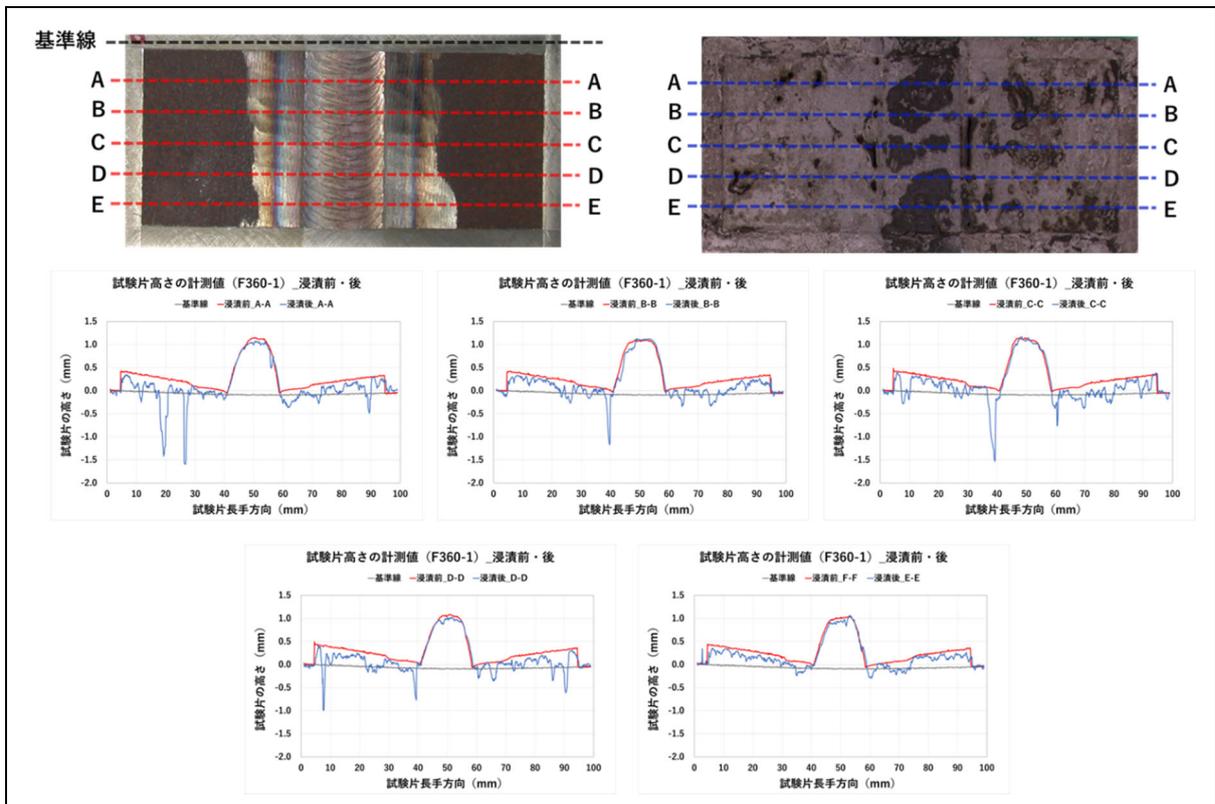


図 2.1-21 試験前後の形状プロファイル比較 (人工淡水/360日)

2.1.4 作業期間中の異常事象に対する廃棄体パッケージの堅牢性評価

廃棄体パッケージは、作業中の安全性確保の観点から、地層処分場の使用環境の中で搬送中に落下した場合でも放射性物質の閉じ込め性能を維持することが求められる。そのため、平成30年度に、将来的に落下試験の実施を想定し、試験条件の設定に資するための情報を得ることを目的に、落下事象を対象とした予備解析を実施した。

解析モデルは、容器は本体、蓋、溶接部、及び未溶着部を一体とし容器本体と蓋の溶接部は完全溶込みしているものとした簡易モデルである。落下条件と解析モデルを図2.1-22に示す。

図2.1-23に示すように、容器に対して厳しい条件を想定し、辺からの落下姿勢及び頂点からの落下姿勢の2ケースについて解析した結果、応力状態が厳しい落下姿勢は辺からの落下姿勢の方であった。この予備解析の結果を踏まえ、実際の形状を反映した解析モデルによる詳細な検討が今後の課題である。

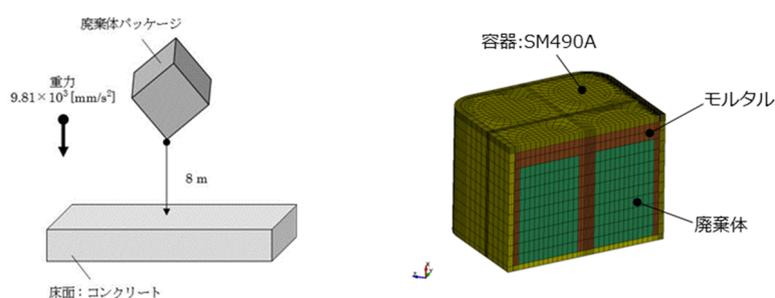
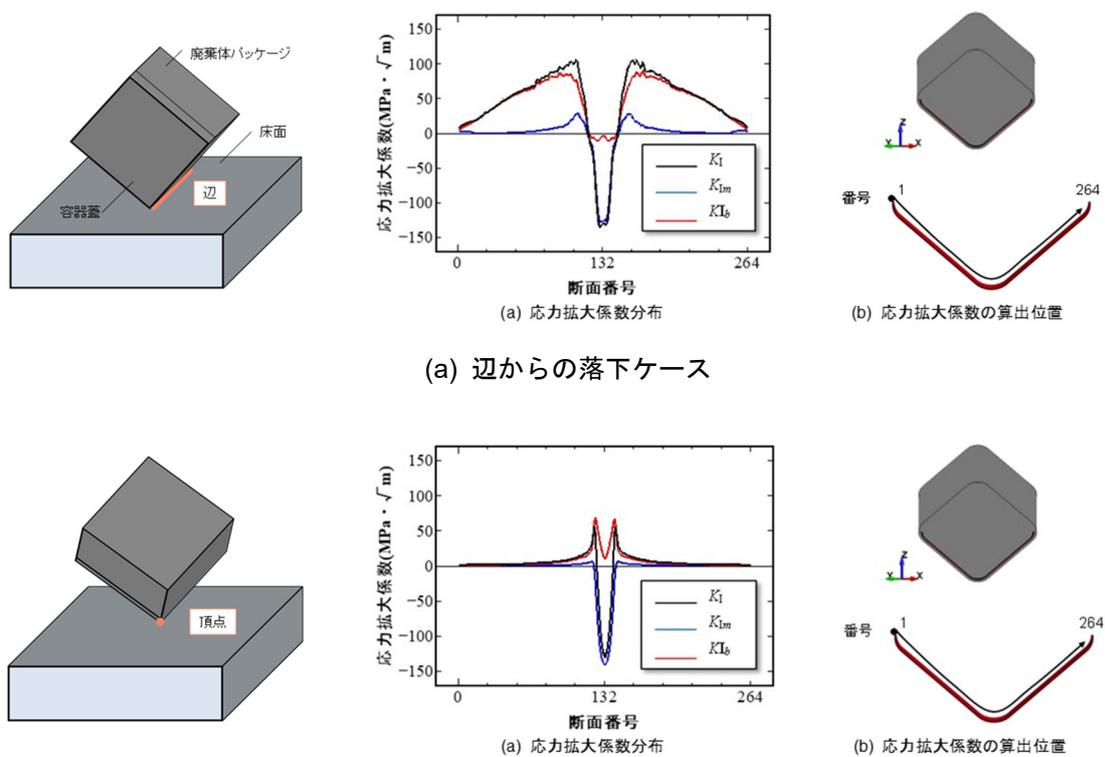


図 2.1-22 落下条件と解析モデル



(a) 辺からの落下ケース

(b) 頂点からの落下ケース

図 2.1-23 予備解析の結果

2.1.5 まとめと今後の課題

(1) 成果のまとめ

定置後の不確実性に対して廃棄体パッケージの閉じ込め性能を担保するため、溶接方法、非破壊検査方法、PWHT 施工などの技術的課題について検討し、その結果を踏まえて、実規模廃棄体パッケージの製作性確認試験を実施した。

各工程において、施工方法の適用性及び製作性について実証的に確認し、今後に活用するための留意点や改善点を抽出した。遠隔施工性については、装置の開発までは着手しなかったが、遠隔を想定して手作業で施工することで、実際に遠隔で操作する場合の装置に求められる機能や設備的な問題点が明確になった。このように、角形状の容器を製作するうえで重要となるポイントは、今回の製作性確認試験で押さえることができ、廃棄体パッケージの製作技術の向上に反映できる成果を得た。

内部充填材については、乾燥処理により自由水を低減することで、水素ガス発生抑制効果が大きいことを確認した。また、乾燥処理後の吸湿により水分が増加した場合でも、乾燥前の含水量に戻ることはなく、乾燥処理工程が水素ガス発生抑制処置として有効であることを実証した。

また、廃棄体パッケージの設計と連携した内部充填材の製作フローを示し、内部充填材から発生する水素ガスを見積もることで、数百年後の容器内の圧力変化を評価することが可能になった。このフローに沿って製作確認試験で製作した内部充填材を対象に水素ガス発生量を見積り、500年後においても密閉された容器内の圧力上昇には、ほぼ影響しないことを確認した。このように、懸念事項であった内部充填材からの水素発生を評価できるようになったことで、容器形状や容器内部のレイアウトなど廃棄体パッケージの設計自由度が広がり、結果的に、廃棄体パッケージの製作技術の工学的成立性や安全性の向上に反映できる成果となった。

廃棄体パッケージ容器溶接部の耐食性については、溶接断面の試験片による腐食データから、多層盛溶接においては、溶接上面と溶接断面のどちらの面が環境に露出するかにより、腐食挙動に異方性が表れる可能性があることを確認した。また、黒皮付きの試験片による腐食データから、廃棄体パッケージが定置後に酸化性雰囲気下に置かれた場合の蓋溶接部に起こり得る腐食挙動を把握した。ただし、評価の上では、今後さらに検討の必要性がある

(2) 今後の課題

今後の課題としては、このフェーズでは検討しなかった以下の項目が挙げられる。

- ・ 廃棄体への熱影響により溶接後熱処理が施工できない場合の SCC 対策技術の検討
- ・ 落下解析・落下試験による落下事象に対する安全性評価
- ・ 耐圧試験（水圧による内圧試験）による閉鎖後を想定した閉じ込め性能の確認
- ・ 廃棄体パッケージの詳細部の形状の最適化（把持機構、内容物の固縛方法など）

参考文献

- 秋田宏, 藤原忠司, 尾坂芳夫, モルタルの乾燥・吸湿・吸水過程における水分移動, 土木学会論文報告集, Vol.420, pp.61-69, 1990.
- 地層処分研究開発調整会議, 地層処分研究開発に関する全体計画 (平成 30 年度～令和 4 年度), 平成 30 年 3 月 令和 2 年 3 月改訂, 2020.
- 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とりまとめ—, FEPC TRU-TR2-2005-02, JNC TY1400 2005-013, 2005.
- 独立行政法人原子力安全基盤機構, 均質・均一固化体及び充填固化体の廃棄のための確認方法について (一部改正), JNES-SS レポート, JNES-SS-0801, 2008 年 4 月.
- 土木学会コンクリート委員会コンクリート標準示方書改訂小委員会, 2017 年制定コンクリート標準示方書 [施工編], 2018 年 3 月
- 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—適切なサイト選定に向けたセーフティーケースの構築—, NUMO-TR-20-03, 2021.
- 原子力発電環境整備機構, 包括的技術報告 付属書 4-23 廃棄体パッケージの閉鎖後長期の耐食性評価, 2021.
- (公財) 原子力環境整備促進・資金管理センター, 平成 29 年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 TRU 廃棄物処分・処分技術高度化開発—平成 25 年度～29 年度取りまとめ報告書— (2018)
- 原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 平成 30 年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 TRU 廃棄物処理・処分に関する技術開発 報告書, 2019.
- 原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 平成 31 年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 TRU 廃棄物処理・処分に関する技術開発 報告書, 2020.
- 原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 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 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発報告書, 2021.
- 原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 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 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発報告書, 2022.
- I. Maruyama, J. Rymeš, A. Aili, S. Sawada, O. Kontani, S. Ueda, R. Shimamoto, Long-term use of modern Portland cement concrete: The impact of Al-tobermorite formation, *Materials & Design*, Vol.198, 2021, 109297
- J.M. Burgh, S. J. Foster “Influence of temperature on water vapour sorption isotherms and kinetics of hardened cement paste and concrete” *Cement and Concrete Research*, Vol.92, pp.37-55, 2017.
- 国立研究開発法人 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, 2018.
- 三上、鈴木、夏井、高久、郡: 穿孔法による残留応力測定技術の検証試験、IHI 技報、Vol.58、No.3 (2018)、26-37.
- 三森、斎藤、佐伯、鈴木: Al 源や養生温度の違いがトバモライトの結晶構造に及ぼす影響, セメント・コンクリート論文集, vol.74, pp.2-8 (2020)

National Institute of Standards and Technology, Temperature Dependent Material Modeling for Structural Steels: Formulation and Application, NIST Technical Note 1907

日本機械学会, 発電用原子力設備規格 設計・建設規格 事例規格 弾塑性有限要素解析を用いたクラス 1 容器に対する強度評価の代替規定, JSME S NA-CC-005, 2008.

日本機械学会, 発電用原子力設備規格維持規格, JSME S NA1-2016, 2016.

日本機械学会, 発電用原子力設備規格 溶接規格 2016 年版 (2018 年追補まで含む), JSME S NB1-2016 (2018 年追補まで含む), 2018.

日本産業規格, 溶接後熱処理方法, JIS Z 3700:2009.

斎藤、三森、鈴木、松井: 養生温度の違いが C-(A)-S-H や Al 置換型トバモライトの結晶構造に及ぼす影響, セメント・コンクリート論文集, vol.75, pp.10-17 (2021)

佐々木謙二, 岡野耕大, 片山強, 原田哲夫, 蒸気養生を模擬した温度履歴を与えたコンクリートの水分逸散性状と緻密性評価, コンクリート工学年次論文集, Vol.34, No.1, pp.1540-1545, 2012.

2.2 陰イオン核種に対する閉じ込め技術の開発

2.2.1 はじめに

TRU 廃棄物の地層処分における安全評価において、高い被ばく線量を示す核種は、半減期が比較的長く、完全閉じ込めや移行遅延による減衰効果が望めないことに加え、地質媒体や人工バリア材への収着性に乏しく移行経路での濃度低減効果にも限界がある、I-129、Cl-36、Se-79 を始めとした陰イオン核種であることが分かっている（電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構,2001）、（電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構, 2005）。

特に I-129 においては、原子力発電環境整備機構（NUMO）が公表した包括的技術報告書（以下、NUMO-SC という）（原子力発電環境整備機構,2021）における安全評価でも、深成岩類／低 Cl 濃度地下水の場合に、I-129 からの最大被ばく線量が約 $2\mu\text{Sv/y}$ と評価されている。上述の通り、陰イオン核種は人工バリアや地質媒体による移行遅延効果が小さいため、NUMO-SC での想定と比較して地質媒体の透水量係数が高い側に分布する場合には、廃棄体からの I-129 の浸出期間が短い場合に、最大被ばく線量が目安とした $10\mu\text{Sv/y}$ を上回る場合があることが分かっている。

その他のアニオン核種についてもその性質から同様の傾向にあることは明らかであるため、安全評価上高い被ばく線量を示す核種への対策として、アニオン核種の影響を低減させる技術の開発が必要と考えられる。

これらのうち、I-129 については、その多くが核燃料の再処理施設のオフガス系で発生する使用済みフィルター（廃銀吸着材：グループ 1）から放出される。このグループ 1 の廃棄体に含まれる I-129 以外の核種はごく僅かであることから、I-129 への対策技術として、廃棄体からのヨウ素の放出抑制によって被ばく線量を低減させるための代替固化技術を開発することとし、アルミナ HIP 固化体及び BPI ガラス固化体の開発が進められている（Idemitsu and Sakuragi, 2015; 原環センター, 2018）。

I-129 は廃銀吸着材に含まれるほか、低レベル濃縮廃液を固化した廃棄体（グループ 3）にも含まれている。また、その他のアニオン核種はグループ 3 に含まれるほか、放射化金属廃棄物（グループ 2）、再処理工場の操業廃棄物等からなるその他の固化体（グループ 4）にも含まれており、その形態も様々であることから、上述の I-129 代替固化技術のような特定の廃棄物を対象とした代替技術による対策を取ることが困難であるため、地質媒体の移行遅延効果を補うために人工バリアにおける移行遅延効果を持たせる観点から、地層処分研究開発に関する全体計画（平成 30 年度～平成 34 年度）（以下、全体計画という）（地層処分研究開発調整会議,2018）に盛り込まれた計画に従って、陰イオン核種に対する対策として、吸着材に関する近年の研究開発動向について調査し、有望な技術の探索を実施している。

2.2.2 ヨウ素固定化技術の開発のこれまでの取り組みと解決すべき課題

(1) ヨウ素固定化技術への要求

前項で述べたとおり、I-129 については処分場周囲の地質媒体の透水性が高い場合では、最大線量が目安線量の $10\mu\text{Sv/y}$ を上回る可能性があり、I-129 の特性から、その対策として、全体計画においても、廃棄体からのヨウ素の放出を抑制する技術（ヨウ素固定化技術）の開発が示されている（地層処分研究開発調整会議,2020）。

ヨウ素固定化技術への目標としては、固化体に求められる性能、および地層処分の安全性の説明、及び固化体製造における要求などの観点から、表 2.2-1 に示す各項目を定めて技術開発を進

めている。

表 2.2-1 ヨウ素固定化技術への要求

要求項目	目標	説明
固化体の性能	放出フラックスが小さい (放出期間 10 万年 [※])	地質媒体の透水性が高い場合でもレファレンスケースと同等以下の最大線量を保てる エラー! 参照元が見つかりません。 放出期間。
説明性	長期間のヨウ素放出挙動に関して、説明性の高い予測ができること	
処分環境への適用性	処分場周囲の温度、酸化還元電位、地下水組成等の環境に対して十分な耐性があり、かつ放出フラックスの増大が十分に小さいこと	
2 次廃棄物の発生抑制	固化工程でのヨウ素の放出が十分小さい (固化体への捕集率 95%以上)	ヨウ素固定化処理の工程で 5%以上のヨウ素を含む 2 次廃棄物が発生すると、最大線量の低減効果が得にくくなる
その他	再処理工程への親和性及び経済性	

※：固化体の放出期間と最大線量との関係（原子力環境整備促進・資金管理センター，2004）による

(2) ヨウ素固定化技術の開発のこれまでの成果

ヨウ素固定化技術の開発のこれまでの流れと残された課題を図 2.2-1 に示す。

廃棄体からのヨウ素の放出抑制によって被ばく線量を低減させるための代替技術としては、2001 年度に長期間の核種閉じ込めを想定して国内で検討されていた技術として、①から④に分類される 8 技術を対象として、I-129 の代替固化技術の開発を開始した（原子力環境整備促進・資金管理センター，2008）。

- ① 難溶性の鉱物の成分の一部としてヨウ素を固定する技術（2 種類）
- ② 難溶性の鉱物や耐食性の高い金属のマトリクスに、AgI またはヨウ素を固定させた鉱物を分散させたマトリクス固化技術（3 種類）
- ③ ガラスの構成成分としてヨウ素を取り込むガラス固化技術（2 種類）
- ④ IO_3^- の形態でヨウ素を置換固溶させたエトリンガイトを多量に含有させたセメントを用いるセメント固化技術（1 種類）

これらの技術についてピーカースケールでの製造や、短期的な溶出試験などの要素試験の結果に基づいて、表 2.2-1 に示す要求のうち、ヨウ素の放出期間及び、2 次廃棄物の発生可能性の観点からの技術の絞り込み、及び工業的な固化体製造プロセスの成立性の観点からの絞り込みを経て、グループ 1 の廃棄物である廃銀吸着材にマトリクス材であるアルミナを加えて熱間等方圧プレス（以下、HIP という）法によって緻密な焼結体を得る HIP 固化技術と、廃銀吸着材から乾式脱離したヨウ素で、 $\text{BiPbO}_2\text{NO}_3$ 結晶中の NO_3^- を置換して得た BPI 結晶と $\text{PbO}\cdot\text{B}_2\text{O}_3\cdot\text{ZnO}$ ガラスのガラスフリットとを混合し、低温溶融してガラス固化体を得る BPI ガラス固化技術とのふたつの技術に絞り込み、開発を進めている。

両技術共に、これまでに固化体の製造に必要な要素技術の開発は終了しており、また、様々な

地下水組成に対応した浸漬試験を実施し、10年程度の浸出試験の結果に基づいたヨウ素放出挙動の予測からは、目標とする10年以上の放出期間をおのおの満足できる可能性が示されている。

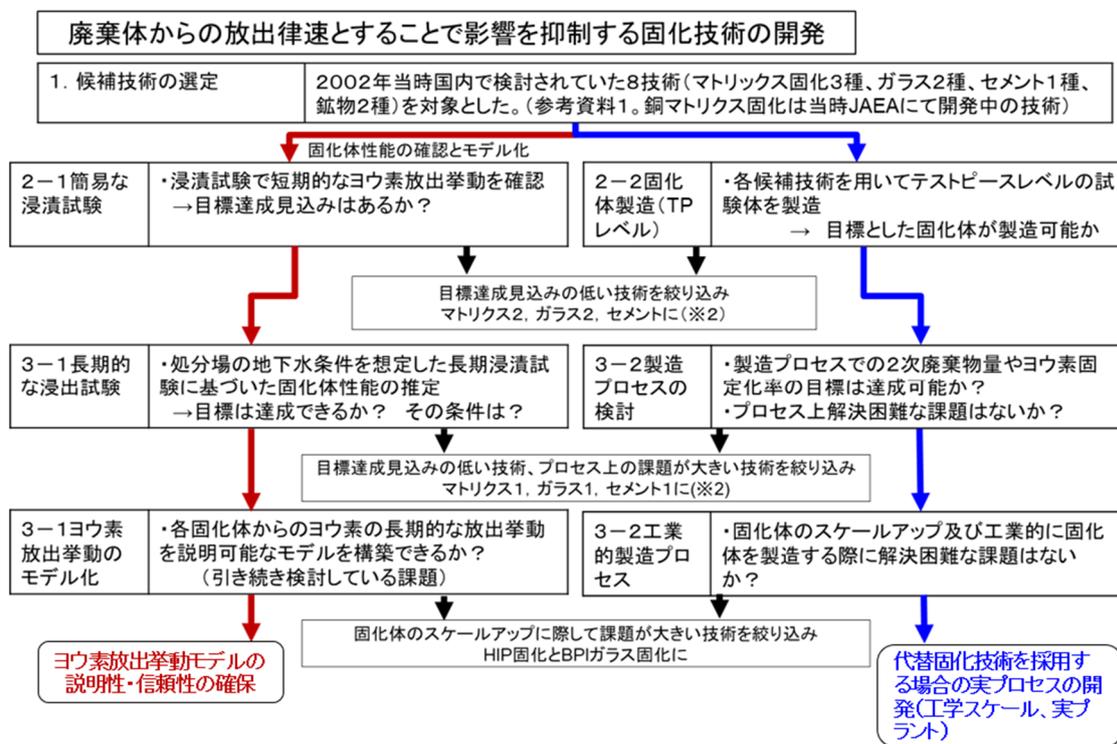


図 2.2-1 ヨウ素固定化技術の開発の流れ

(3) ヨウ素固定化技術の開発において解決すべき課題

(2)では、ヨウ素固定化技術の開発のこれまでの流れと、現時点での到達点について述べた。

平成30年度から令和4年度までの5年間では、より長期間の浸漬試験等によって、様々な環境でのヨウ素放出挙動について調べ、各固化体の適用可能範囲(環境適応性)を明らかにし、今後選定される処分場候補地に対して、固化技術の要/不要も含めて、適切に技術を選択できるように整えることとした。併せて、固化体の寿命評価の信頼性を担保するために必要な、固化体からのヨウ素放出現象の理解及びモデル化を進めることとした。

一方で、固化体の製造プロセスに関しても、スケールアップが固化体性能に及ぼす影響の有無や、各製造プロセスにおけるヨウ素の収率の取得等が残された課題であるが、スケールアップに関しては、再処理工程との親和性を含めて検討する事が必要であることから、事業者が実施すべき課題として整理されている(地層処分研究開発調整会議,2020)。

2.2.3 陰イオン吸着材の開発における課題と解決に向けた取り組み

(1) 陰イオン吸着材への要求

2.2.1項で述べたとおり、グループ1の廃棄物から放出されるI-129を除く陰イオン核種については、その廃棄物の種類および固化方法が複数あり、その全てに対して固化方法を開発することが現実的ではないことから、令和2年度から4年度の3年計画で、陰イオン核種に対する収着性を有する吸着材を探索し、その性能及び地層処分への適用方法を検討することとしている。陰

イオン吸着材に関しては、1990年代に地層処分への適用性について検討された経緯があり、その時点で開発されていた吸着材では、地層処分への応用は現実的ではないとされていた。しかし、その後の水質・土壌の改良技術の開発等の進展によって新たな吸着材が開発された可能性があることから、最新の技術動向について調査するとともにその適用のための処分概念について検討することが、全体計画に記載された（地層処分研究開発調整会議,2020）。

そこで、本開発においては、TRU 廃棄物の安全評価において高い被ばく線量を示す、I-129,Se-79,Cl-36,Tc-99 及び、Mo-93 を対象として、これらの核種に対して TRU 廃棄物の地層処分において想定される還元雰囲気、および廃棄体化の際や処分坑道の構築に用いられるセメント系材料の影響を受けたアルカリ性地下水環境への適用が望める可能性のある吸着材を探索することとした。吸着材に求められる特性として

- ① 対象核種に対する吸着性をもつこと
- ② 地層処分において想定される化学環境（地下水組成/pH/Eh/温度）における耐久性及び安定性を有すること
- ③ 吸着材を使用可能な人工バリア構成が実現可能なこと

を念頭に調査を進めた。

(2) 陰イオン吸着材の開発の進め方

地層処分研究開発に関する全体計画（平成 30 年度～令和 4 年度）（地層処分研究開発調整会議,2020）では、「これまでに、ハイドロタルサイトなどの複数の材料が陰イオンに対して高い吸着性能を有することを確認しているが、モルタル製充填材を使用すると化学環境が高アルカリ性になるため、適用性が低いと考えられてきた。実現可能な環境条件に対して複数の陰イオン吸着材の吸着試験を実施し、適用可能な吸着材を検討する」とされており、併せて陰イオン吸着材を利用可能な処分概念の提示が課題とされている。

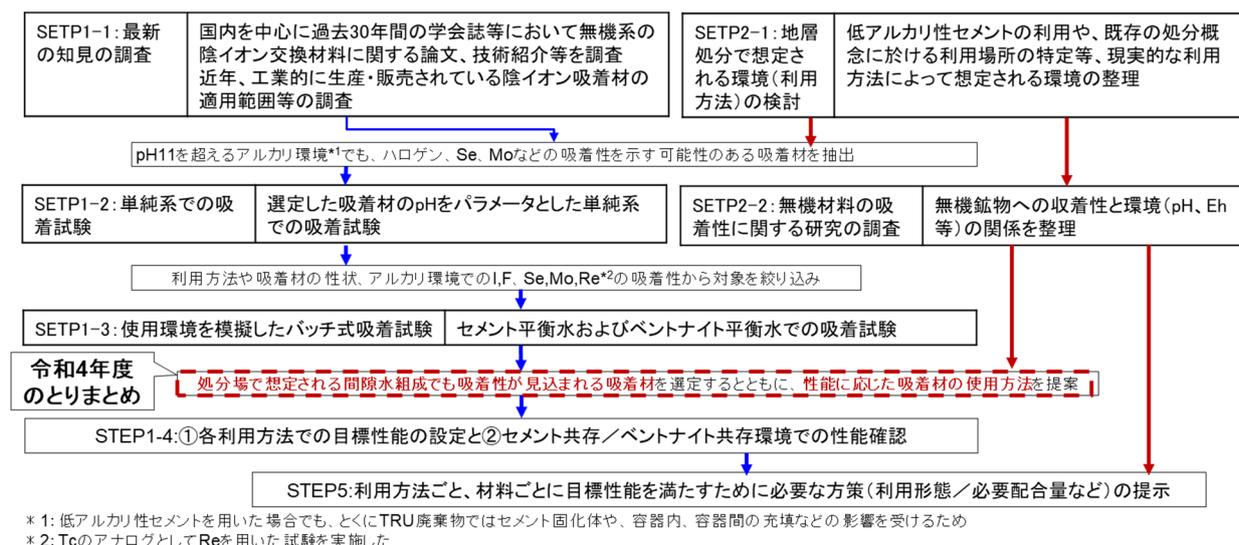


図 2.2-2 陰イオン吸着材の開発の流れ

そこで、本事業では、図 2.2-2 に示すとおり、まず近年の陰イオン吸着材に関する技術（論文、技術紹介、販売されている商品等）に関する調査を実施し、対象とする化学種に加え、pH、Eh 等

の観点から TRU 廃棄物の処分環境にも適用できる可能性がある吸着材を抽出し、それらを対象に、地層処分への適用性及びその使用方法を検討することとした。

その上で、適用性の検討では、幅広い pH での吸着試験の結果から、アルカリ環境でも上述の対象核種の吸着性を示す吸着材を選定した上で、吸着材をセメント系材料またはベントナイト系材料に混合することを想定して、セメント平衡水及びベントナイトとの平衡水を用いたバッチ式吸着試験によって、このような使用方法が可能な吸着材の選定の可否を判断することとした（図 2.2-2）。

また、このような吸着材の使用法に基づいて施設を設計するためには、十分な効果を得るために必要なセメント系材料、ベントナイト系材料の各領域の性能目標を設定するとともに、利用方法を想定した吸着性の確認試験の実施により、処分施設の設計に必要な吸着材の選定、及び利用方法（配合量や配合方法）が必要である。

令和 4 年度までに、このうち吸着材の選定の可否の判断のためのセメント平衡水及びベントナイトとの平衡水を用いたバッチ式吸着試験、および十分な効果を得るために必要なセメント系材料、ベントナイト系材料の各領域の性能目標の設定までを実施することができた。

2.2.4 HIP 固化体からの要素放出モデルのまとめ

(1) この 5 年間の取り組み

HIP 固化技術の開発では、これまでに、ヨウ素の放出を抑制するためのマトリクス材としてのアルミナの添加割合や、HIP 固化条件、製作プロセスについて明らかにすると共に、20L スケールまでの固化体の製作性を確認してきた。併せて、固化体からのヨウ素の放出に関して、地下水に含まれる HS⁻によって AgI の分解が促進されるため、HIP 固化体からのヨウ素放出が加速される一方で、セメント系材料の溶脱等で供給される Ca²⁺はヨウ素の放出がアルミナの溶解を抑制するために、ヨウ素の放出も抑制することを、種々の浸漬液を用いた浸漬試験によって明らかにした。

ヨウ素の長期的な放出を予測するための、ヨウ素放出挙動のモデル化については、これまで、HIP 法によって焼結したアルミナでは、空隙率が小さいためにアルミナマトリクスの溶解量と、その領域に含まれる AgI の分解からヨウ素の放出量を算出するマトリクス溶解モデルによって予測できるものと考え、固化体の空隙率の低減や空隙構造の理解を進めてきたが、空隙率がパーコレーション理論における浸透閾値である 5%を下回る固化体でもヨウ素の放出量がアルミナの溶解度から算出される放出量を上回ることから、単純にマトリクスの溶解だけでモデル化することが困難であることが分かっていた。

そこで、この 5 年間においては、複数の浸漬試験の結果からヨウ素の放出及び固化体内のヨウ素濃度のプロファイルを調べ、それらに基づいたヨウ素の長期放出挙動のモデル化、ならびに、ヨウ素の放出量の予測を可能とすることを、目標とした。

(2) ヨウ素放出挙動のモデル化

これまでの長期浸漬試験の結果から、図 2.2-3 にその例を示すように、ヨウ素の規格化浸出率が浸漬時間の 0.5 乗に対して比例関係にあることが分かっている。したがって、固化体からのヨウ素の規格化浸出量 NL(I)は式 (2.2-1) で示される。

$$NL(I) = k\sqrt{t} \quad \dots \dots (2.2-1)$$

ここで t は浸漬期間、k は比例定数である。

この式の形態と、浸漬液の浸透によって AgI が分解した領域（図 2.2-4、以下変質層）の進展挙

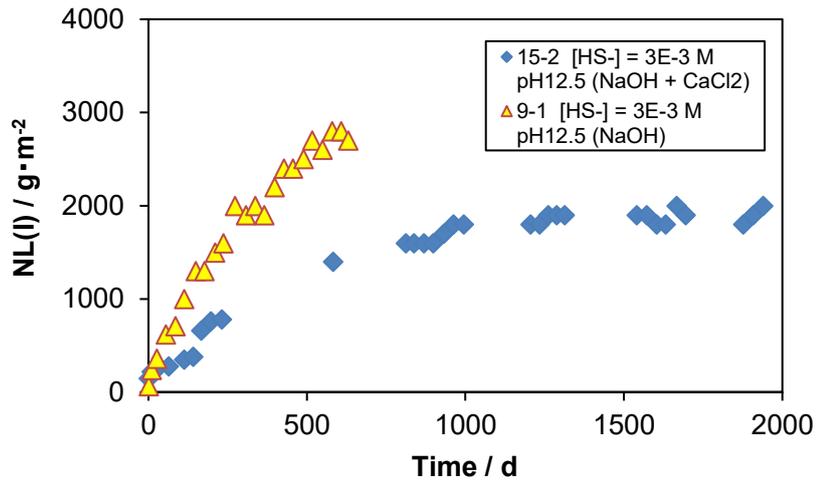


図 2.2-3 HIP 固化体の長期浸漬試験の結果の例

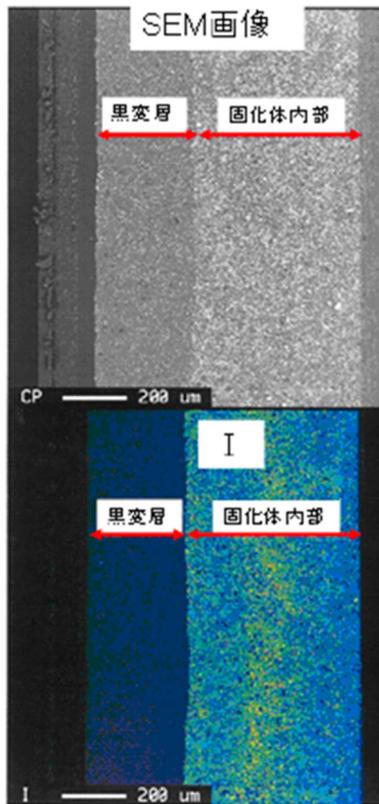


図 2.2-4 浸漬試験後の HIP 固化体内のヨウ素の濃度分布
 (上)SEM 組成像, (下)EPMA のヨウ素の元素マッピング結果
 (原環センター, 2016)

動とから、HIP 固化体からのヨウ素の放出は、ヨウ素の拡散挙動によるものと判断した。また、ヨウ素の放出が、浸漬液中の HS⁻との反応による AgI 分解によって加速されることから、令和 3 年度に、変質層の進展挙動および固化体内のヨウ素の濃度プロファイルから求めた拡散係数 D と、規格化浸出率の関係から、放出挙動を、式 (2.2-2) のとおりモデル化した。

$$k = \frac{1}{f} \sqrt{(2C_{ini} - C_s)D \cdot C_s} \quad \dots \dots (2.2-2)$$

ここで D は変質層の進展挙動から求めた拡散係数、 C_{ini} は固化体のヨウ素の初期濃度、 C_s は変質層の最深部でのヨウ素濃度であり、 AgI と HS^- との反応がヨウ素の拡散に比べて速いことから、その値は HS^- が存在する環境では $C_s=2[HS^-]$ 、 HS^- が存在しない場合には $C_s \doteq 10^{-6} \text{ mol/L}$ (ヨウ素の飽和濃度) である。また、式 (2.2-1) は規格化浸出率を表す式であることから、固化体のヨウ素含有率 f で全体を除すことで係数 k を算出することができる。

式 2.2-2 の両辺を軸にとり、直線の傾きが拡散係数 D となるように浸漬試験の結果をプロットすると、図 2.2-5 のようにヨウ素の放出に係る D がほぼ一定の値をとること、及び、 pH が低くアルミナの溶解が起こらない、または Ca の影響でマトリクスが溶解が制限されるケースでは、異なるグループを形成することがわかる。

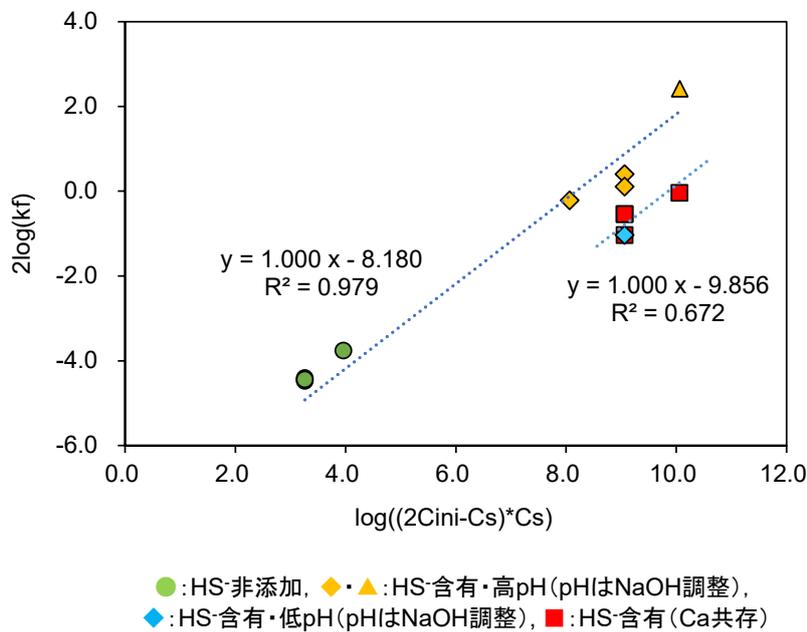


図 2.2-5 ヨウ素放出モデルによる各種浸漬試験の整理結果

ここで、浸漬試験で得られた拡散係数 D と、液性に基づいて PhreeqC で算出したアルミナの拡散係数 D をアルミナの溶解度との関係を図 2.2-6 のように整理し、バラツキは大きいものの、式(2.2-3)で表せることを明らかにした。

$$D = 3.32 \times 10^{-13} C_{Al}^{0.365} \quad (2.2-3)$$

これらの成果によって、空隙率が十分に小さい HIP 固化体からの任意時間までのヨウ素の規格化浸出率を式(2.2-1)及び式(2.2-2)を用いて算出することが可能となった。

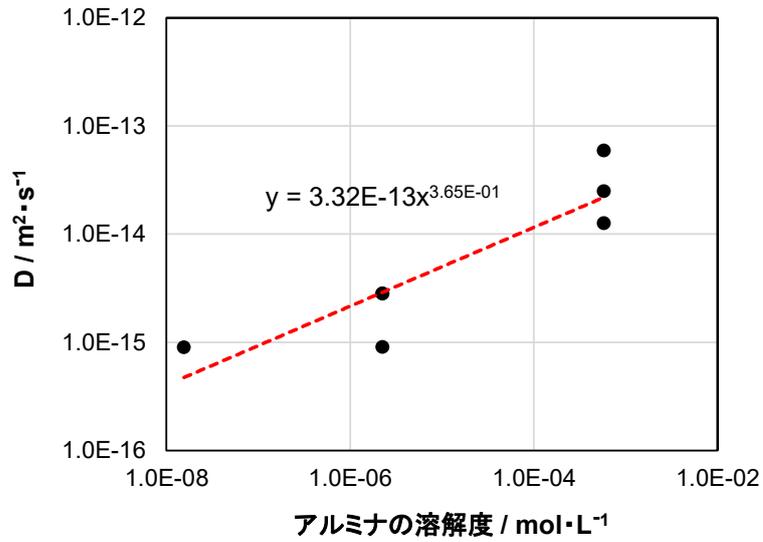


図 2.2-6 アルミナの溶解度と算出された D の関係

(3) HIP 固化技術のまとめ

ここまで述べた成果に基づいて作成した HIP 固化体の適用性 MAP を図 2.2-7 に示す。

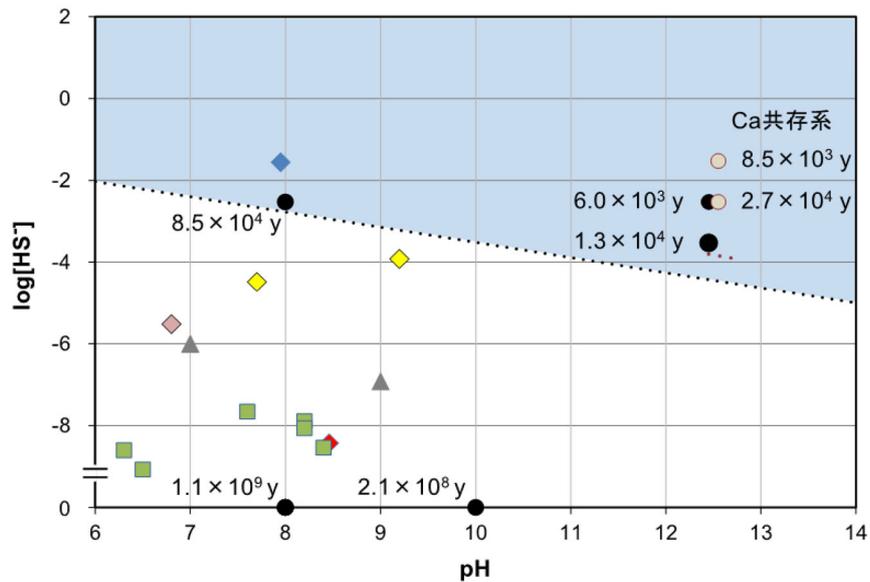


図 2.2-7 固化体適用性マップ

- , ○ : 実験ポイント (記入した数値 : 各条件ポイントにおける浸漬試験結果から計算した固化体寿命)
- ◆ (red) : FRHP の組成
- ◆ (blue) : SRHP の組成(S はすべて還元されるとの前提)
- ▲ (grey) : 幌延地下水の組成例(pH7/9)
- ◆ (pink) : 温泉データ ; 化石地下水型温泉(かつらぎ)
- ◆ (yellow) : 温泉データ ; 和歌山環湯(pH7.7), 宮城白須(pH9.2)
- (green) : NUMO 地下水設定値(包括的技術報告書 2019)

極端な高 HS⁻または高 pH 環境を除いて、HIP 固化体が十分な性能を発揮できることを示すことができた。この結果は、幅広い地下水環境において、候補地の水理条件が好ましくない場合でも目安線量である 10 μSv/y を超えないという説明が可能であることを示すものであり、ヨウ素の影響が、今後進められる処分場候補地の選定において障害とならないための対策技術を準備することができたと考えている。

本年度までの成果を受けたヨウ素固定化技術への要求に対する充足度を表 2.2-2 に示す。

表 2.2-2 HIP 固化技術への要求に対する充足度

要求項目	充足度	説明	残された課題
地質環境が好ましくない場合でもヨウ素129の影響が高まらない			
・放出フラックスが十分小さい(放出期間)	○	極端な高pHおよび高HS ⁻ 環境を除けば目標とした10万年を達成できる見込み	・実地下水での確認は必要 ・pHへの依存性に関するデータが不足
・放出挙動の説明が可能(モデル化)	○	・pHおよびCa等、アルミナの溶解に係る現象・成分を反映したヨウ素放出挙動を表現できる理論式を提案する。	・実地下水等での検証 ・理論式に対する実験的なエビデンスが不足
・処分環境への適用性	○	極端な高pHおよび高HS ⁻ 環境を除けば目標とした10万年を達成できる見込み	・シンプルな液相での浸漬試験結果から環境的要請を推定しているため、想定される地下水環境や人工バリア由来の間隙水組成でのデータが必要
二次廃棄物の発生等による新たな廃棄物を生み出さない			
固化工程でのヨウ素放出がない／十分少ない	◎	廃銀吸着材をカプセルに封入し、HIP 固化するため、2次廃棄物および固化工程でのヨウ素の揮散の可能性がない	・再処理工程に於ける廃棄物処理への適用性 (スケールアップにおける課題／高圧ガス対策)
その他の課題			
再処理工程に於ける廃棄物処理への適用性		・固化体のスケールアップにおける課題 ・高圧ガス対策	

2.2.5 BPI ガラス固化体からのヨウ素放出挙動のモデル化のまとめ

(1) この5年間の取り組み

BPI ガラス固化技術の開発では、これまでに BPI 結晶と PbO-B₂O₃-ZnO ガラスのガラスフリットとを混合し、低温溶融してガラス固化体を得るための固化体の製造条件を明らかにすると共に、2.5 リットルクラスのガラス固化体の製造を行い、その溶融条件や得られたガラスの均一性について確認している。

また、固化体からのヨウ素の放出挙動については、種々の液相への浸漬試験の結果、BPI ガラス固化体からのヨウ素の放出には、ホウ素の放出に対して、ヨウ素の放出調和的になる条件と、抑制的になる条件とが存在することが分かっている。

このうち調和的になる条件（主に地下水中の無機炭素濃度が高い条件）では、ガラスの表面にヨウ素を含まない厚い変質層を形成することが分かっている。一方で、抑制的になる条件（鉛との反応性の低い液相に浸漬した場合）ではガラス表面に薄い変質層が形成され、その近傍にヨウ素が留まる様子が観察されている(図 2.2-8)。

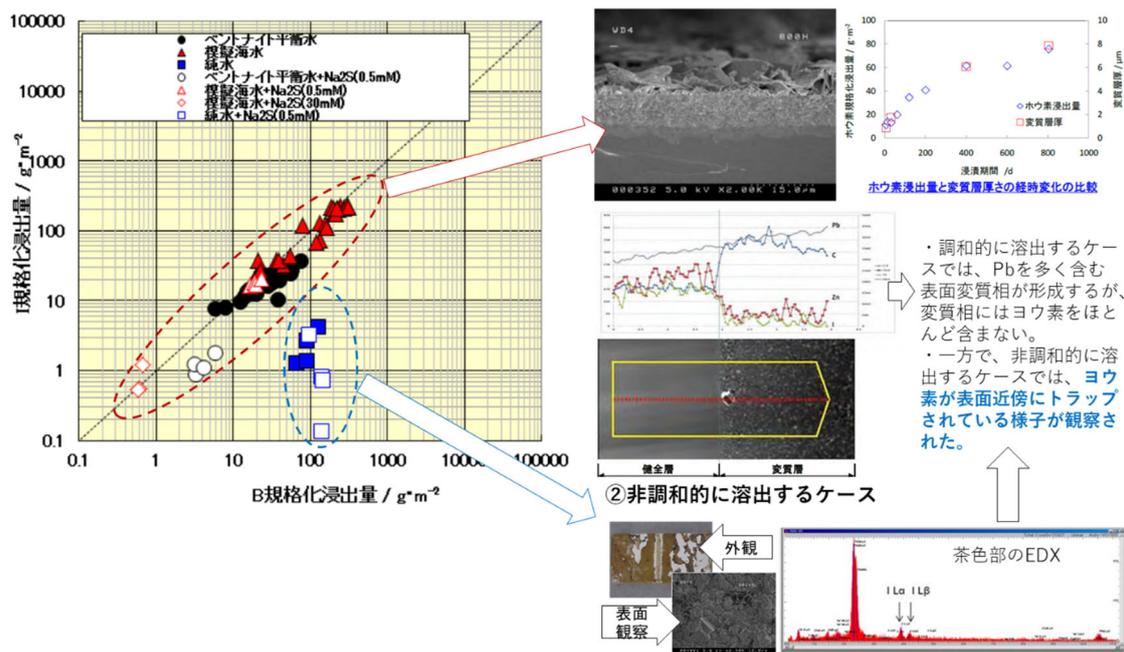


図 2.2-8 BPI ガラスの浸漬試験結果の整理
(原環センター, 2021)

また、このような変質層の形成は、マイクロリアクタを用いた浸出試験でも同様であったことから、ガラスが溶出後に液相成分と反応した結果ではなく、ガラス表面での反応によるものと推定された。

このような BPI ガラスの溶解挙動に影響を及ぼす地下水成分に関して Geochemical Work Bench を用いて幅広く解析し、反応によって析出層を形成する可能性がある成分として硫黄 (HS⁻) とリン酸とを抽出し、それらを含む浸漬液への浸漬試験を実施したところ、ガラス表面に薄い変質層が形成され、ヨウ素の放出がホウ素の放出に対して抑制的となることが分かっている (原環センター, 2021)。

これらを受けたヨウ素の放出予測に関しては、X 線励起光電子スペクトル分析 (以下、XPS という) による各元素の結合エネルギー、X 線回折 (以下、XRD という) および中性子線回折から得られた各構造因子、B-11 核磁気共鳴スペクトル分析 (以下、NMR という) による配位構造等から逆モンテカルロ (以下、RMC という) 法で構築した BPI ガラスの微細構造に基づいて、各結合の結合パラメータをフィッティングすることで、ヨウ素の放出挙動を再現できることが分かっており、ガラスの溶解過程が変化しなければ、短期間 (800 日) の浸漬試験の結果からより長期 (約 4000 日) のヨウ素の放出を予測できることが示されている。

従って、ヨウ素の放出に係る素反応やガラスの溶解過程が長期的に継続することを示すことができれば、これまでの浸漬試験の結果に基づいて、任意時間までのヨウ素の放出挙動を予測することが可能である。

そこで、この 5 年間の課題として、上述のような BPI ガラスからのヨウ素の放出に係るガラスの溶解挙動のモデル化について、主に浸漬試験の結果の精査 (変質層や変質層直下のガラスの分析) に基づく現象モデルの構築と、それらを補完するための、ガラス構造に基づいた溶解挙動の理論計算 (ガラスに含まれる、溶解しやすい微細構造の特定) に取り組むこととした。

(2) BPI ガラス固化体の長期浸漬試験結果からのヨウ素放出挙動の現象仮説

これまでの長期浸漬試験の結果から、ホウ素の放出に対してヨウ素が調和的に放出される液相の条件と、ヨウ素の放出が抑制的となる条件とがあることが分かっている。前者は主にベントナイト平衡水、模擬地下水等、浸漬液に炭酸成分を含む場合であり、ガラス表面には主にヒドロセルサイト ($\text{Pb}_3(\text{CO}_3)_2(\text{OH})_2$) からなる変質層が生成していることが特徴であるのに対して、後者はイオン交換水や HS^- を含む溶液など、表面に変質層を形成しないか、極薄い変質層が膜状に形成することが特徴である。

これまでに得られた結果に基づいて、BPI ガラス固化体からのヨウ素放出に係る現象モデルについて、図 2.2-9 に示すように、地下水成分との反応によるホウ素の溶出と、地下水成分と鉛との反応（溶解および変質層の生成）及び、それらに伴うヨウ素の放出の各過程を通じるという仮説を提案した（原環センター, 2021）。

ここで、鉛の溶解及び反応について詳細に調べるために、表面に厚い変質層を作らないケースでの浸漬試験後の固化体表面を詳細に分析したところ、図 2.2-10 に示すようにガラスの溶解によって空隙が生じた領域と、その内部のガラス相とが同様の組成であったこと、及び図 2.2-11 に示すように表面への薄い析出物相には、鉛とヨウ素からなる析出物（C 相）が含まれることが明らかになり、BPI ガラスの溶解は特定の成分の放出が優先的に起きるのではなく、ガラスの溶解しやすい構造を有する部分から溶解が進展することが強く推定された。低イオン濃度の環境ではガラスの溶解量が高イオン濃度の環境と比較して大きいため、ガラス表面に鉛とヨウ素とを含む 2 次鉱物（C 相）が析出することで、ヨウ素の放出が抑制的になるものと推定した。

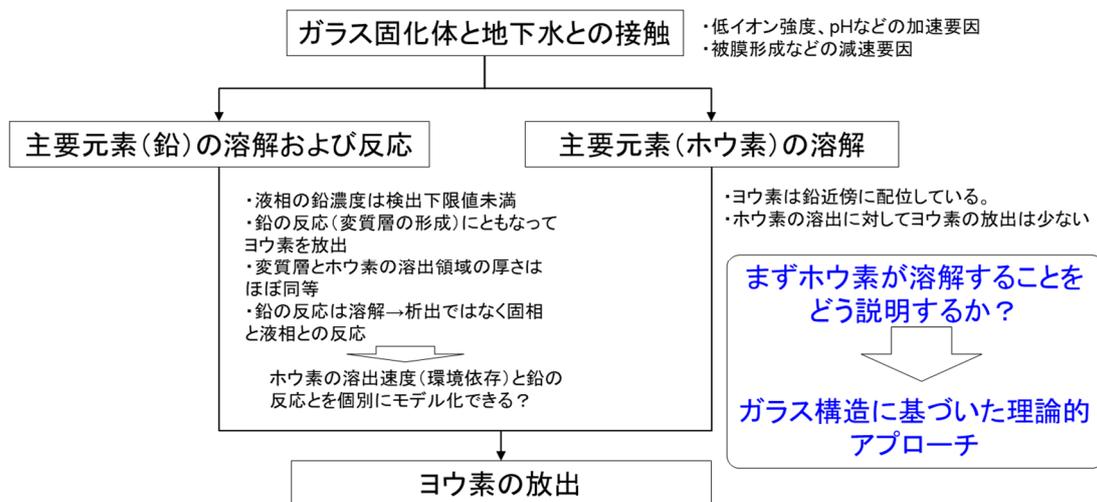


図 2.2-9 BPI ガラスのヨウ素放出に関する現象仮説

これまでに示した NaCl 溶液への浸漬試験の結果、特に低濃度での浸漬試験の結果からは、鉛のガラス骨格を残してホウ素が優先的に溶出するのではなく、ガラスの組成を保つ形で溶解が起こり、溶出した鉛が直ちに固相表面に析出層を作り、また、特に浸漬液のイオン濃度が低い場合にヨウ素を含む析出層を形成することで、ヨウ素の溶出がホウ素のそれに対して非調和的になることが示された。一方、液相に鉛と反応してヨウ素を含まない 2 次鉱物を生成する成分（主に炭酸及び重炭酸）を含む場合には、ヨウ素を含む析出層が形成されにくいいため、ヨウ素の溶出がホウ素のそれと調和的になるものと考えられた（図 2.2-12）。

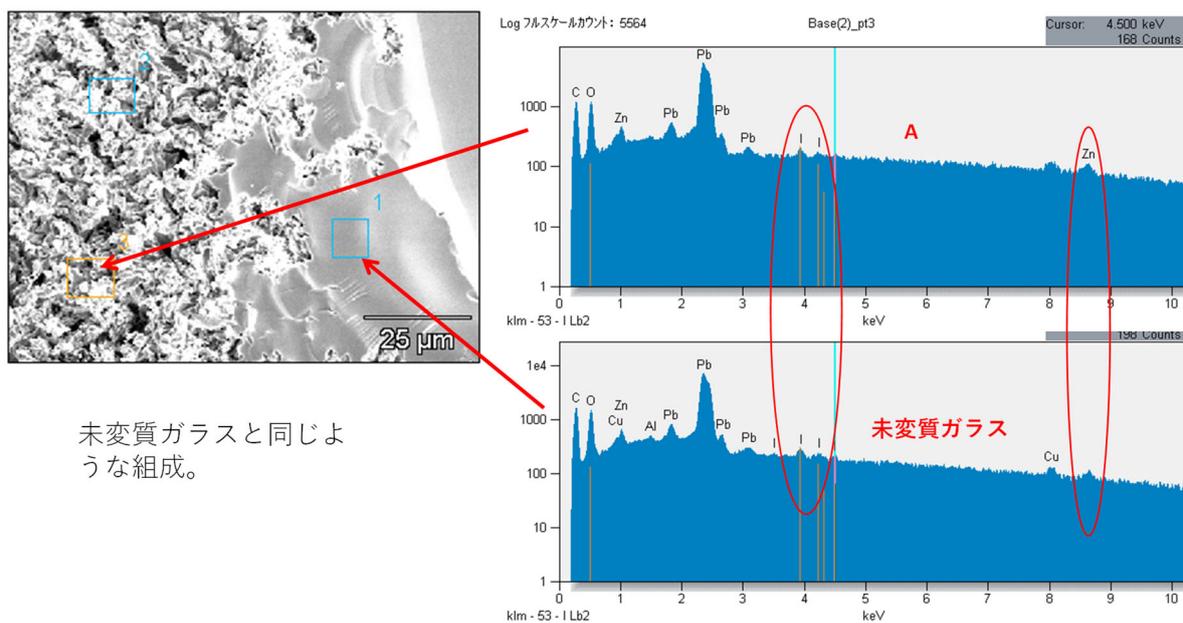


図 2.2-10 ガラス表面近傍の変質部とその内部の SEM-EDS

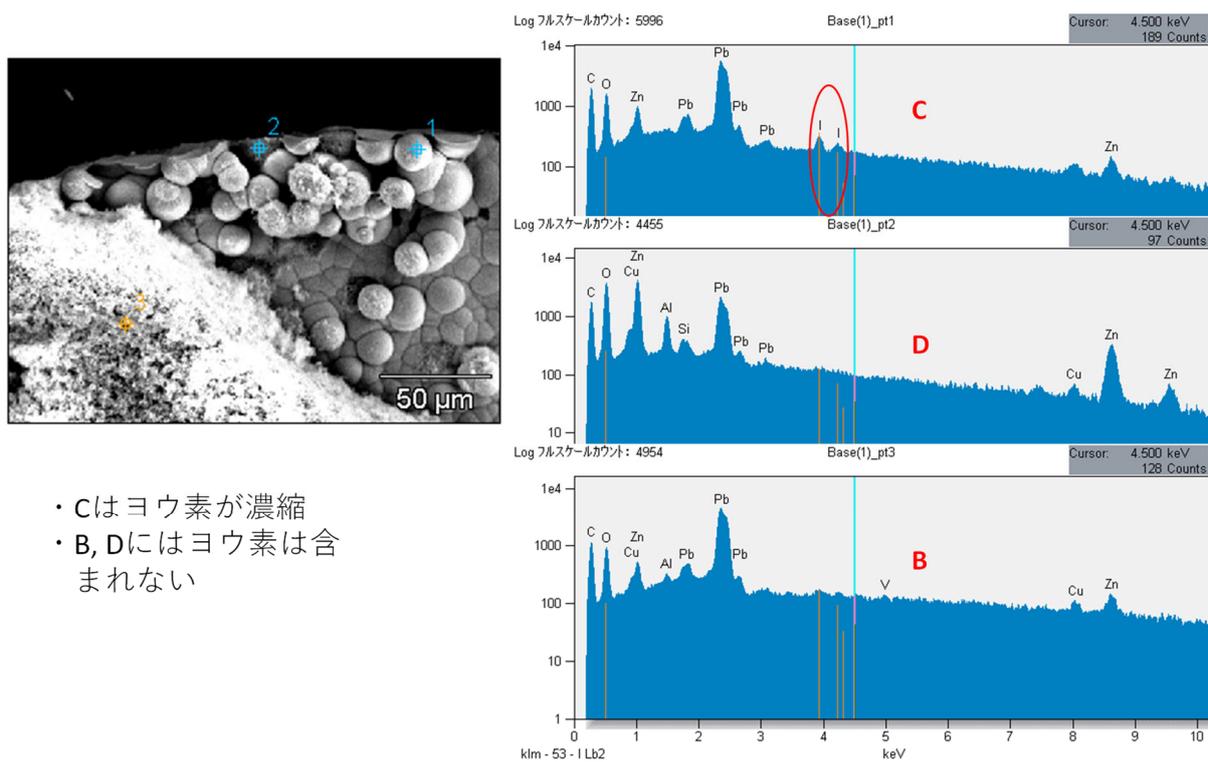


図 2.2-11 浸漬後のガラス表面への析出物の SEM-EDS

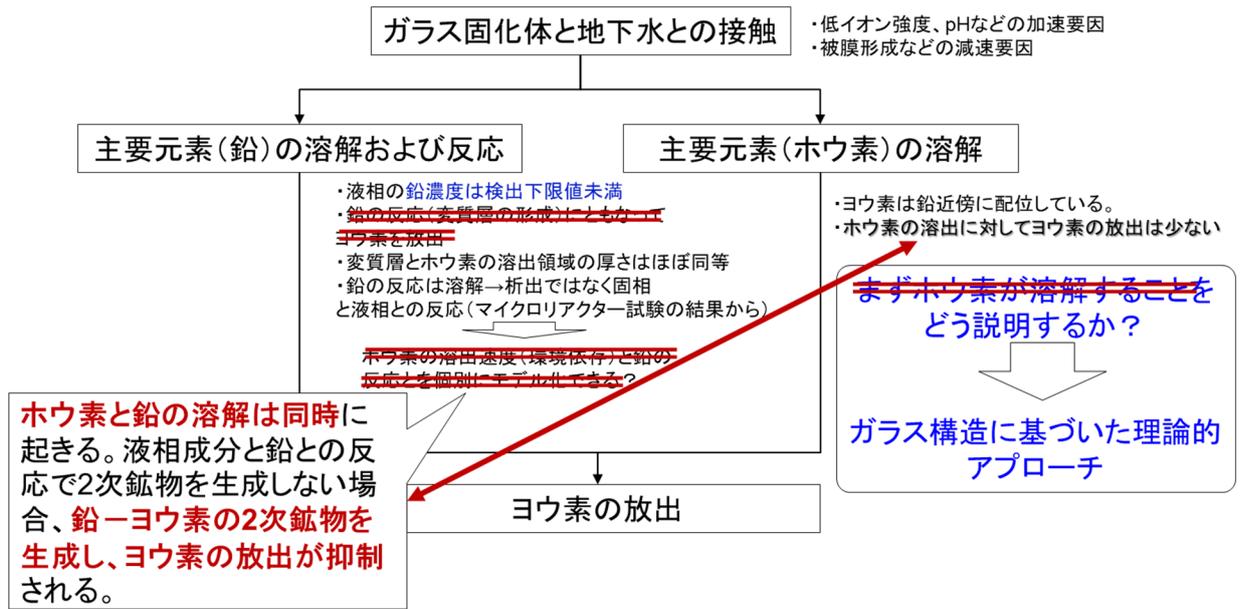


図 2.2-12 分析結果を受けて修正した BPI ガラスのヨウ素放出に関する現象仮説

(3) ヨウ素放出予測の傍証のためのエネルギー計算の試み

BPI ガラス固化体及びその関連ガラスについて、RMC 法によるガラス構造モデルの構築及びその精密化に関するこれまでの取り組みから、これらのガラスの局所構造に多様性と乱れが存在することを示した。ガラス構造モデルの更なる精緻化を達成するには、局所構造のエネルギー評価に基づいて極端に不利な構造や過度の乱れを排除するなどの検討が必要であると考えられる。一方で、BPI ガラス固化体の溶解とヨウ素の溶出現象の理解に向けて、局所構造に対するエネルギー評価手法の活用を進める必要があると考えられる。

そこで、RMC 法で得られた BPI ガラスの構造モデルに対して、結合電荷拘束(BVS 拘束)を考慮することで、局所構造のエネルギー評価に基づいて極端に不利な構造や過度の乱れの排除を試み、BPI ガラスに含まれる鉛、ホウ素の周囲の配位構造を適切表現できるガラス構造モデルを構築した。

このガラス構造モデルを用いて、BPI ガラスに含まれる鉛及びホウ素の周囲の配位構造のクラスターモデルを切り出し、そこに含まれる各結合の解離エネルギーの計算や結合の安定性についての検討を加えてきた。

図 2.2-13 および図 2.2-14 に示すクラスターモデルに対して、モデル中の Pb-O および B-O 結合の結合様式を評価する目的で、共有結合性の指標としての有効共有結合電荷 (BOP, bond overlap population) を算出した。また、イオン結合性の指標として Pb 原子の有効電荷 (net charge) を算出した (表 2.2-3)。その結果、クラスター中心 Pb の有効電荷は 0.7~1.0 の間の値が得られた。一方、クラスター中心近傍の B の有効電荷は 0.5~0.6 を有しており、Pb が B と比較した際にイオン結合性が高いことを示唆する結果であると考えられる。

一般に共有結合性の低い結合は、共有結合性の高い結合と比較して、周囲に存在する水分子等との電荷のやり取りが起りやすいことから、水和反応による結合様式の変化が起きやすいため、このことから、BPI ガラスの溶解がホウ素の溶出が先行して起こるのではなく、鉛を含めたガラスのネットワーク構造そのものが、水和しやすい部分から調和的に溶解することが推測された。

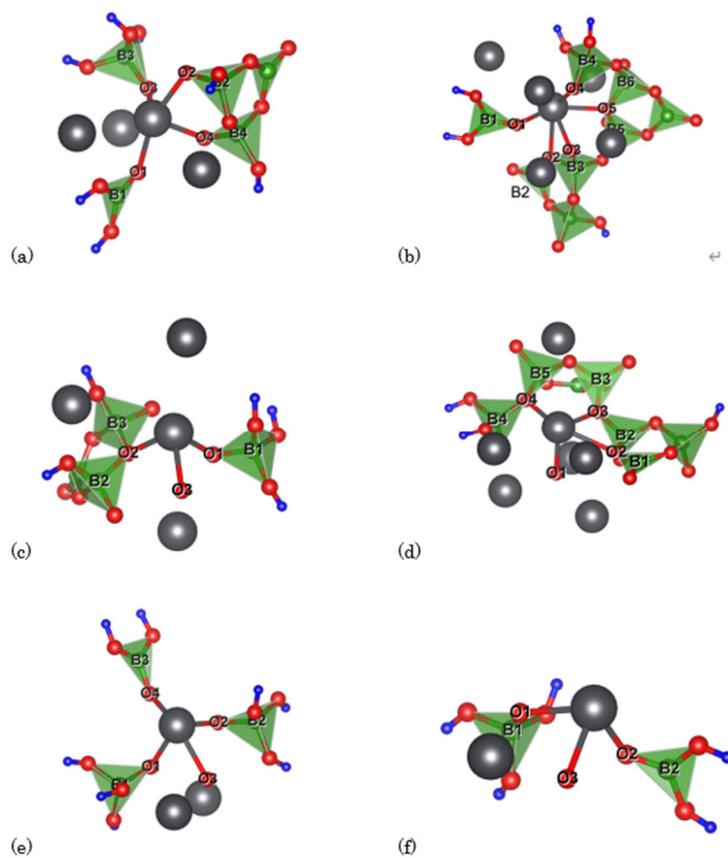


図 2.2-13 $\text{Pb}_2\text{B}_2\text{O}_5$ 結晶(Sun, Q et al.,2013)中の Pb サイトから抽出したクラスターモデル (a)~(f)は、それぞれ Pb1~Pb6 サイトを中心とする。

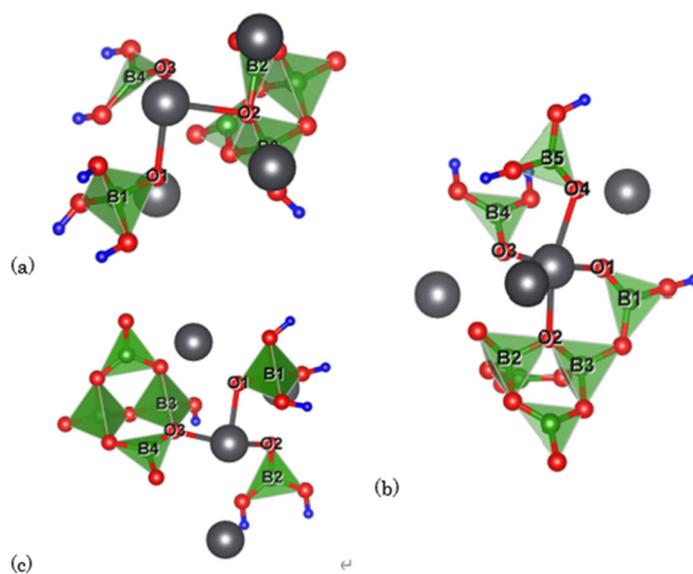


図 2.2-14 $\text{Pb}_6\text{B}_{10}\text{O}_{21}$ 結晶(Zhang, F et al.,2016) 中の Pb サイトから抽出したクラスターモデル (a)~(c)は、それぞれ Pb1~Pb3 サイトを中心とする。

表 2.2-3 Pb-O 結合に関する有効共有結合電荷および Pb の有効電荷

Pb-O 結合の BOP					
Pb サイト	クラスターサイズ	-O1	-O2	-O3	-O4 -O5
<hr/>					
Pb ₂ B ₂ O ₅ 結晶 Pb1	Pb ₄ O ₁₅ B ₅ H ₇	0.033	0.138	0.128	0.155
Pb2	Pb ₆ O ₂₁ B ₈ H ₅	0.074	0.038	0.106	0.120 0.078
Pb3	Pb ₄ O ₁₃ B ₄ H ₅	0.153	0.099	0.173	
Pb4	Pb ₇ O ₁₉ B ₇ H ₃	0.113	0.053	0.118	0.089
Pb5	Pb ₃ O ₁₂ B ₃ H ₇	0.115	0.158	0.102	0.069
Pb6	Pb ₂ O ₈ B ₂ H ₅	0.128	0.122	0.165	
<hr/>					
Pb ₆ B ₁₀ O ₂₁ 結晶 Pb1	Pb ₄ O ₁₆ B ₆ H ₆	0.138	0.064	0.148	
Pb2	Pb ₄ O ₁₇ B ₇ H ₅	0.119	0.106	0.119	0.059
Pb3	Pb ₄ O ₁₆ B ₆ H ₆	0.131	0.088	0.086	
<hr/>					
net charge					
Pb サイト	Pb	-O1	-O2	-O3	-O4 -O5
<hr/>					
Pb ₂ B ₂ O ₅ 結晶 Pb1	0.911	-0.591	-0.479	-0.563	-0.527
Pb2	0.920	-0.581	-0.481	-0.584	-0.622 -0.500
Pb3	0.850	-0.555	-0.501	-0.713	
Pb4	0.763	-0.741	-0.488	-0.479	-0.489
Pb5	0.842	-0.617	-0.603	-0.695	-0.611
Pb6	0.791	-0.630	-0.581	-0.735	
<hr/>					
Pb ₆ B ₁₀ O ₂₁ 結晶 Pb1	0.932	-0.635	-0.490	-0.612	
Pb2	0.967	-0.555	-0.504	-0.585	-0.594
Pb3	0.924	-0.647	-0.598	-0.482	
<hr/>					

(4) BPI ガラス固化技術のまとめ

浸漬試験の結果（鉛と液相成分との反応で鉛を主成分とする 2 次鉱物が析出するケースを除いて、ヨウ素の放出がホウ素の放出に対して抑制的になる）から、ガラスの溶解はホウ素の溶出と鉛の骨格の溶解とヨウ素の放出とが個別に起こることを想定した現象仮説に基づいて、ヨウ素の放出がホウ素のそれに対して抑制的な挙動をとる NaCl 濃度をマラメータとした浸漬試験を 2020 年度から継続的に実施してきた。その結果、未変質層とガラスの溶解によって生じたと考えられる変質相の組成がほぼ一致したことから、BPI ガラスの溶解は特定の成分の放出が先行するようなことはなく、ガラスの骨格を形成する鉛とホウ素とが調和的に溶解すること、浸漬液のイオン濃度が低く、ガラス成分以外の影響が小さい環境では、鉛とヨウ素からなる 2 次鉱物の析出によって、ヨウ素の液相への放出が抑制的になる事が明らかになった。

また、ガラスの溶解過程の継続性と、これまでに実施したヨウ素放出挙動に関するモンテカルロシミュレーションの根拠の補強のために実施している、ガラス構造に基づいた理論計算の試みでは、ガラス構造に含まれるクラスター内の各結合様式の計算では、Pb-O 結合と比較して B-O 結合の共有結合性が高いことが示された。このことは、ガラスの骨格を形成する鉛の結合がホウ素周辺の結合と比較して共有結合性が低い（言い換えれば、水和しやすい）ことを示しており、上述の浸漬試験の結果から得られた現象仮説を裏付けるものと考えられる。

これまでに得られた結果、および4,021日でのベントナイト平衡水中の浸漬試験などの結果を踏まえて見直し、pHおよびCO₃²⁻濃度を指標としたBPIガラス固化体の適用性MAPを図2.2-15に示す。

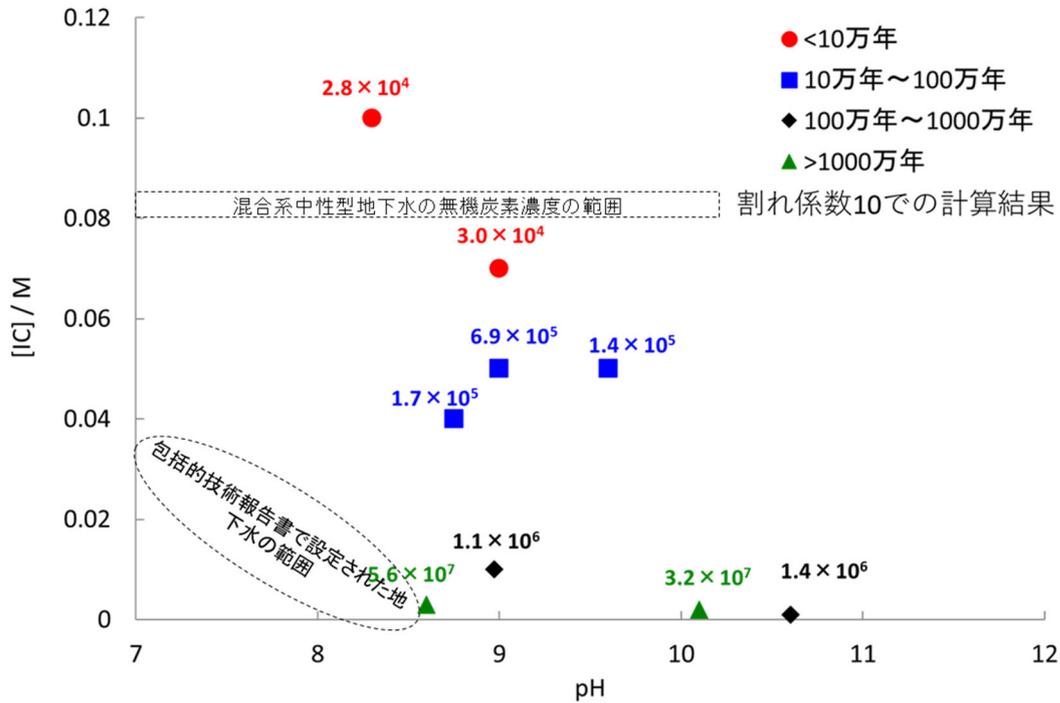


図 2.2-15 BPI ガラス固化体の適用性マップ

表 2.2-4 BPI ガラス固化技術への要求に対する充足度

要求項目	充足度	説明	残された課題
地質環境が好ましくない場合でもヨウ素129の影響が高まらない			
・放出フラックスが十分小さい(放出期間)	○～△	pH≥11および高炭酸環境を除けば目標とした10万年を達成できる見込み	・実地下水での確認は必要
・放出挙動の説明が可能(モデル化)	○～△	・BPIガラスの溶解過程およびヨウ素の放出過程に関して、 ガラス構造に基づいて結合パラメータを仮定(フィッティング)することで放出挙動を再現出来ている。 ・ 解離しやすい構造を推定可能とし、溶解現象の継続性を示す見通しを得た。	・理論計算で解離しやすい構造を推定することで、MC解析で用いた結合パラメータの妥当性(意味づけ)を示す。 ・溶解過程に関する現象(仮定)の検証が必要
・処分環境への適用性	○～△	pH≥11および高炭酸環境を除けば目標とした10万年を達成できる見込み pH11は低アルカリ性セメントの平衡pHに近く、処分坑道でのpHが高ならないよう対策が必要	・実地下水での確認は必要 ・pH≥11とならない工学的対策(処分概念)の検討が必要
二次廃棄物の発生等による新たな廃棄物を生み出さない			
固化工程でのヨウ素放出がない/十分少ない	○	・小規模な試験ではヨウ素脱離工程を含めた効率を確認している ・ガラス化工程でのヨウ素の揮発量に対する検討が必要(ヨウ素の捕集率の目標は小規模ではクリアしている)	・スケールアップにおける ①脱離工程の効率の確認 ②ガラス固化工程でのヨウ素揮発に関するデータ整備 ・ヨウ素脱離後の吸着材の処理/処分
その他の課題			
再処理工程に於ける廃棄物処理への適用性	固化体のスケールアップにおける課題 ・各工程に於けるヨウ素の揮発量の把握(低融点ガラスのため、揮発は限定的と考えているが、offガス系で捕集するため) ・スケールアップしたガラスの均一性/小規模ガラスとの物性の違いの有無		

高 pH 及び無機炭素（炭酸）濃度が高い場合を除いて、幅広い地下水環境で、固化体寿命の目標としている 10 万年間の放出期間を満足できることが示された。

これらを加味して改訂した BPI ガラス固化体の技術的要求に対する充足度を表 2.2-4 に示す。

これまでの検討によって、BPI ガラスの溶解現象についての理解が進み、また、理論計算からもガラス溶解過程が鉛のガラス骨格を残してホウ素が優先的に溶出するものではなく、ガラスの組成を保つ形で溶解が起こり、溶出した鉛が固相表面への析出層を作り、また、特に浸漬液のイオン濃度が低い場合にヨウ素を含む析出層を形成することで、ヨウ素の溶出がホウ素のそれに対して非調和的になることが示された。一方、液相に鉛と反応してヨウ素を含まない 2 次鉱物を生成する成分（主に炭酸及び重炭酸）を含む場合には、ヨウ素を含む析出層が形成されにくいいため、ヨウ素の溶出がホウ素のそれと調和的になることが分かってきた。この現象モデルに基づいて、ガラスの溶解過程の継続性を確認することによって、BPI ガラスからの長期的なヨウ素の放出予測の信頼性を示すことができるものと考えている。

また、BPI ガラス固化技術に関しては、廃銀吸着材からのヨウ素の乾式脱離、及び BPN 結晶の BPI 結晶への転換プロセスなどを含めた実プロセスでのヨウ素の収率の確認等、スケールアップにおける課題が残されている。

2.2.6 ヨウ素固定化処理技術の地層処分への貢献

固化の製造工程のスケールアップの課題や、BPI ガラス固化体でのヨウ素の溶出に係る素反応の継続性の説明など、残された課題はあるものの、2.2.4 項及び 2.2.5 項で述べたこれまでの成果によって、各固化体の性能として、当初の目標である 10⁵ 年を超える固化体寿命を幅広い地質環境において達成可能であることが示された。

このことは、TRU 廃棄物の地層処分において最大線量を示す I-129 の被ばく線量に関して、現実的なほとんどの地下水環境で処分場の安全性に影響を及ぼさない技術があるという説明が可能になるとともに、水理環境が望ましくない場合でも、目安線量である 10 μSv/y を超えないという説明が可能となるので、水理特性が好ましくない環境でも、具体的な評価結果を基にステークホルダーへの安全性の説明が可能になった。

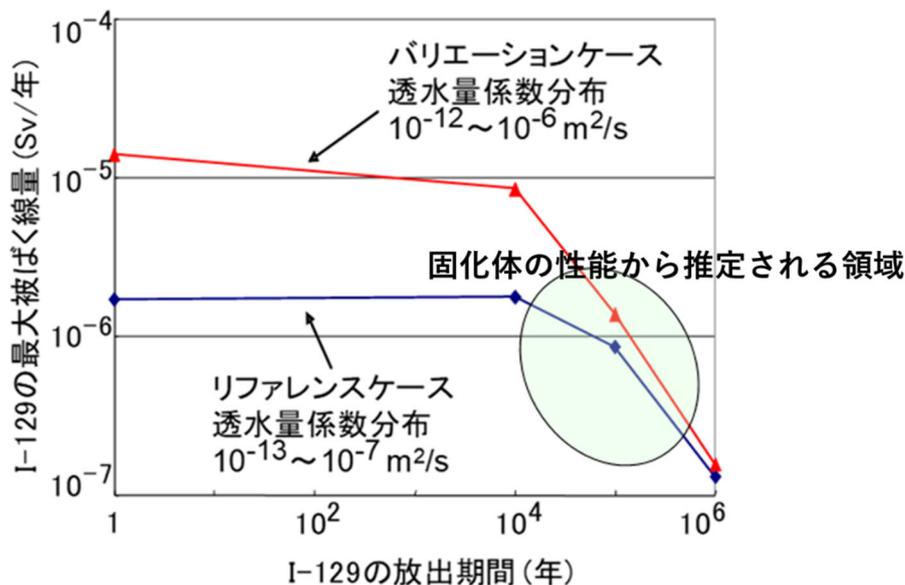


図 2.2-16 固化体の性能（ヨウ素の放出期間）と最大被ばく線量との関係

2.2.7 陰イオン吸着材の吸着試験の成果のまとめ

(1) この3年間の取り組み

2.2.3 項で述べたとおり、本開発においては TRU 廃棄物の安全評価において高い被ばく線量を示す、I-129,Se-79,Cl-36,Tc-99 及び,Mo-93 を対象として、これらの核種に対して TRU 廃棄物の地層処分において想定される還元雰囲気、および廃棄体化の際や処分坑道の構築に用いられるセメント系材料の影響を受けたアルカリ性地下水環境への適用が望める可能性のある吸着材を探索してきた。

平成 2 年度から 3 年度にかけて実施した調査の結果、TRU 廃棄物の地層処分において想定される環境のうち、特にアルカリ環境での陰イオンの吸着性が見込める可能性のある材料として、表 2.2-5 に示す 7 種の吸着材を抽出した。これらを対象にアルカリ環境での吸着試験を実施し、これらの内、IXE-500,IXE-700F 及び TKS-105 の 3 種を可能性のある材料として抽出した。

表 2.2-5 陰イオン吸着材の調査で抽出された吸着材

吸着材名称	メーカー	吸着特性	成分	総交換容量(meq・g ⁻¹)
IXE-500	東亜合成	陰イオン交換	Bi 系	Cl ⁻ = 3.9
IXE-700F	東亜合成	陰イオン交換	Mg, Al 系	Cl ⁻ = 4.5
IXE-800	東亜合成	陰イオン交換	Zr 系	Cl ⁻ = 1.0
TKS-105	アムロン(AMEC)	As, Se, B (Se ⁶⁺ に有効)	鉄系・アルカリ金属系化合物複合体	不明
CAPA-CT	アムロン(AMEC)	アニオン種(As, Se, F 等)	人工ゼオライト・層状複水酸化物複合体	不明
CAMZ-S	アムロン(AMEC)	アニオン種(As, Se, F 等)	人工ゼオライト・鉄化合物複合体	不明
AC-1	アムロン(AMEC)	アニオン種(As, Se, F 等)	アルカリ金属系化合物複合体	不明

これらに加え、令和 3 年度に実施した論文等の追加調査で、特にアルカリ環境でハロゲン等の陰イオンに対しての吸着挙動について研究が進められている、エトリンガイト (AFt) 及びモノサルフェート (AFm) を加え、セメント系材料およびベントナイト系材料への混合を想定し、それぞれの平衡水を用いた吸着試験を実施し、このような使用方法をとったときの吸着材そのものの分配係数を明らかにした。

(2) 地層処分に適用可能と考えられる吸着材の有無

(1)で述べた吸着試験（原子力環境整備促進・資金管理センター, 2021）の結果、特にアルカリ環境での陰イオン核種に対する吸着性が見込めると判断した吸着材を対象として、含水状態からの吸着性と、より現実的な間隙水組成として、セメント平衡水およびベントナイト平衡水での吸着性を確認した。また、TRU 廃棄物のうち、発熱性の廃棄体の影響や地熱の影響を考慮して、80℃までの温度での吸着試験も併せて実施した。

セメント平衡水中での市販の吸着材への各化学種の分配係数は、イオン交換水中での分配係数と比較すると、EXE-500 ではイオン交換水中で非吸着であった Se(IV)及び Mo(VI)について吸着性が示されていた。また、IXE-700F では、イオン交換水中で非吸着性であった Se(VI)に対する吸着性が示された。また、AFt ではイオン交換水中で非吸着性であった Se(IV),Se(VI),及び Mo(VI)について吸着性が、AFm ではこれに加えて I 及び Cl⁻についても吸着性が確認された。

一方ベントナイト平衡水中での収着性は、AFt 及び AFm を除き、セメント平衡水中でのそれと比較して全体に低いことが明らかになった。これは、ベントナイト平衡水はセメント平衡水と比較し、 SO_4^{2-} 濃度が高く、吸着対象イオンと競合したことが要因と考えられ、その組成に SO_4^{2-} を含む AFm および AFt ではその影響が小さかったためと考えられた。

この結果 (図 2.2-17) と、後述する吸着材の利用方法に応じて要求される吸着材の性能とを考え合わせることで、利用可能な吸着材の選定が可能である。たとえば、廃棄体領域のセメント系材料に吸着材を混合して利用する場合、吸着材への対象核種の分配係数が $10^0 \text{m}^3/\text{kg}$ を超える値であることが求められるため、全ての化学種に対応可能な吸着材は無いが、複数の吸着材を組み合わせることで、陰イオン核種の影響を低減できる可能性があることが分かった。

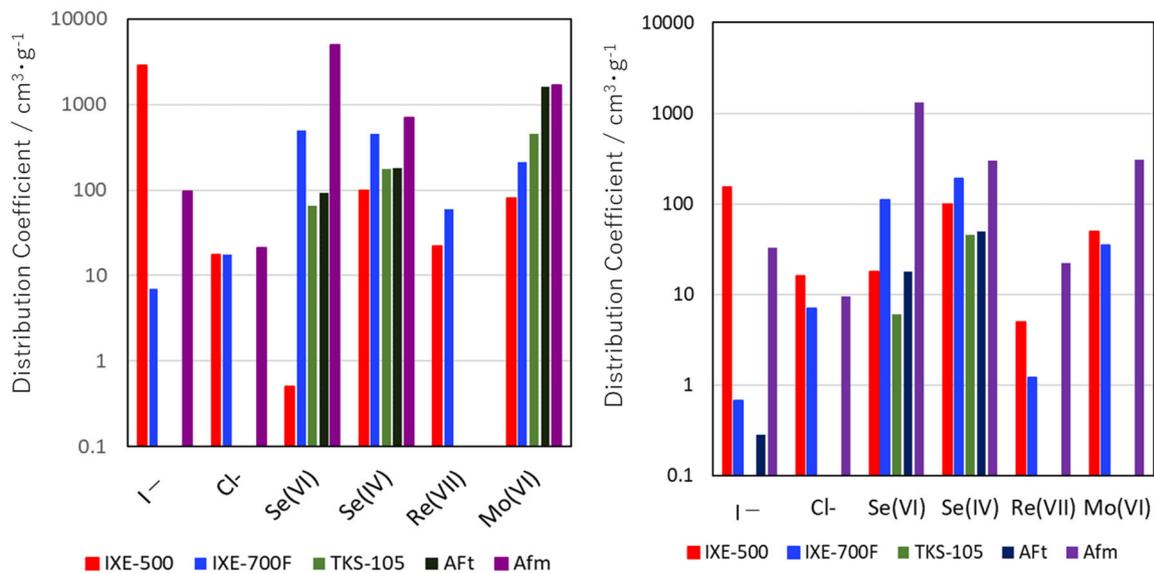


図 2.2-17 セメント平衡水 (左) 及びベントナイト平衡水 (右) を用いた吸着平衡試験各吸着材への分配係数

(3) TRU 廃棄物の地層処分における陰イオン吸着材の利用方法

吸着材の利用方法を考えるにあたって、平衡水を用いた吸着試験の結果も踏まえて、処分坑道において吸着材の配置可能な場所 (部材) およびその必要量について考えた。

ここでは、緩衝材や埋め戻し材への配合、セメント系材料の細骨材や混合剤としての利用等を想定し、ベントナイト系材料およびセメント系材料に混合した状態で陰イオン核種の移行抑制効果を発揮するために必要な、セメント系材料及びベントナイト系材料の分配係数を簡易な核種移行解析によって求めたところ、EDZ からの核種フラックスを 1 桁低減するためには、セメント系材料の分配係数が $10^{-3} \text{m}^3/\text{kg}$ 以上であることが必要なことがわかった。また、同様に緩衝材の分配係数についても $10^{-3} \text{m}^3/\text{kg}$ 以上であることが必要なことが分かった。この分配係数を達成するために、セメント系材料については配合が許される混合材量と吸着材が比表面積が大きく吸水性を有する材料である可能性を考慮すると、吸着材単独での分配係数が $10^0 \text{m}^3/\text{kg}$ を超える値であることが必要であることが分かった。また、緩衝材への混合に関しても、有効モンモリロナイト密度を低下させない範囲で、珪砂等と混合して利用すること、及び、吸着材が吸水性を有する材料で有ることから、緩衝材の物理的な特性を損なわない範囲での配合である必要などを考慮すると、吸着材に求められる分配係数は $10^{-1} \text{m}^3/\text{kg}$ を超える値であることがわかった。

(2)で述べた吸着試験の結果からは、セメント平衡水及びベントナイト平衡水を用いた吸着試験によって、上述の $10^0 \text{ m}^3/\text{kg}$ 及び $10^{-1} \text{ m}^3/\text{kg}$ の分配係数を満足する吸着材があることが明らかになっているため、処分場の設計ならびに環境が明らかになった際に、効果的な吸着材を選択できる条件を整えることができたと考えている。

(4) 陰イオン吸着材の吸着試験のまとめ

セメント平衡水及びベントナイト平衡水を用いた吸着試験、及び熱影響を考慮した吸着試験を実施し、それらの環境においても吸着性を発揮しうる吸着材があることを示した。

併せて、吸着材の使用方法を、セメント系材料または緩衝材への配合と考え、簡易な核種移行解析によって EDZ からのフラックスを低減させるために必要な配合量を求めたところ、いずれの場合でも、緩衝材またはセメント系材料に対して、おのおの $10^{-3} \text{ m}^3/\text{kg}$ を超える分配係数を有する必要があることを明らかにし、現実的に配合可能な吸着材料を考えると、セメント系材料に配合する吸着材、及び緩衝材や埋め戻し材に配合する吸着材には、それぞれ $10^0 \text{ m}^3/\text{kg}$ 及び、 $10^{-1} \text{ m}^3/\text{kg}$ を超える分配係数を示すことが求められることを明らかにした。

この条件を満足する吸着材については平衡水による吸着試験の結果からは選定可能と考えられるが、地層処分で想定される環境、及びセメント系材料及びベントナイト系材料への混合時の処分場の性能を明らかにするためには、外部から供給される地下水成分やセメント、緩衝材の固相との相互作用などを考慮したカラム試験等を実施するとともに、吸着材の長期的な性能変化や地下水成分との反応性などの調査が必要である。

併せて、処分場内の環境の変遷に伴って、吸着材が変質する際に放出される陰イオンの影響についても詳細に評価することも必要である。

参考文献

地層処分研究開発調整会議，地層処分研究開発に関する全体計画（平成 30 年度～令和 4 年度），平成 30 年 3 月 令和 2 年 3 月改訂，2020.

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，JNC-TY1400 2005-013，FEPC TRU TR2-2005-2，2005.

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—適切なサイト選定に向けたセーフティーケースの構築—，NUMO-TR-20-03，2021.

原子力環境整備促進・資金管理センター，平成 15 年度地層処分技術調査等 TRU 廃棄物関連処分技術調査 ヨウ素固定化技術調査報告書，2004.

原子力環境整備促進・資金管理センター，平成 19 年度地層処分技術調査等委託費 TRU 廃棄物処分技術ヨウ素・炭素処理・処分技術高度化開発 報告書，2008.

原子力環境整備促進・資金管理センター，平成 20 年度地層処分技術調査等委託費 TRU 廃棄物処分技術 人工バリア長期性能評価技術開発 報告書（第 1 分冊）—人工バリアの長期挙動の評価—，2010.

原子力環境整備促進・資金管理センター，平成 27 年度地層処分技術調査等委事業 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発報告書（第 1 分冊）—ヨウ素 129 対策技術の信頼性向上—，2016.

原子力環境整備促進・資金管理センター，日本原子力研究開発機構，平成 30 年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 TRU 廃棄物処理・処分に関する技術開発 報告書，2019.

原子力環境整備促進・資金管理センター，日本原子力研究開発機構，平成 31 年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 TRU 廃棄物処理・処分に関する技術開発 報

告書, 2020.

原子力環境整備促進・資金管理センター, 平成 29 年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発 報告書 (第 1 分冊) -ヨウ素 129 対策技術の信頼性向上-, 2018.

原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 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 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発 報告書, 2021.

原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 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 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発 報告書, 2022.

Idemitsu, K. and Sakuragi, T. Current Status of Immobilization Techniques for Geological Disposal of Radioactive Iodine in Japan, Mater. Res. Soc. Symp.Proc. Vol.1744,2015

核燃料サイクル開発機構・電気事業連合会, TRU 廃棄物処分概念検討書,JNC TY1400 2000-001,TRU TR2000-01, 2000.

3. 閉鎖前安全性の評価技術の整備

3.1 アスファルト固化体の発熱特性の評価

3.1.1 目的と 5 か年の実施内容

わが国における使用済燃料の再処理においては PUREX 法（プルトニウム・ウラン溶媒抽出（Plutonium Uranium Redox EXtraction））が採用されており、せん断・溶解工程に代表される多くの工程に硝酸が用いられている。そのため、硝酸塩を多量に含む TRU 廃棄物が発生するとともに、再処理のプロセスや固化処理において有機物の含有が想定され、このような TRU 廃棄物の処分においては、含有される化学物質の影響を考慮し、適切に実施する必要がある。多量の硝酸塩と有機物が共存する廃棄物の代表的なものとしては、固化材としてアスファルトを利用し、低レベル放射性廃液を処理した、アスファルト固化体が挙げられる。

アスファルトはセメントに比べて優れた減容効果を持ち、脱水により廃棄物を数十%の高濃度まで含有可能であることに加え、核種の耐浸出性も優れていることから、特に海洋投棄処分を念頭に低レベル放射性廃棄物の固化材として広く用いられてきた（例えば、International Atomic Energy Agency, 2009）。わが国でも、動力炉・核燃料開発事業団（現日本原子力研究開発機構）（以下、「動燃」という）東海再処理施設の低レベル放射性濃縮廃液の固化処理に適用され、1982 年からアスファルト固化処理施設の開発・運転に伴い、200 L ドラム缶約 3 万本のアスファルト固化体が製造された。この製造された約 3 万本の内、比較的放射能が高い MA 系と呼ばれる 16,155 本が地層処分対象の TRU 廃棄物として想定されている（原子力発電環境整備機構, 2011）。

アスファルト固化体の処分においては、含有される硝酸塩が易溶性であるとともに、酸化剤として作用する可能性があることから、処分施設閉鎖後、硝酸塩は地下水に溶出し、周辺の化学的環境に影響を与えることが想定される（この影響評価については、4.5 に記載する）。また、硝酸塩を含有するアスファルト固化体は、ある環境条件において、硝酸塩が酸化剤として、アスファルト（有機物）が還元剤として作用することで発熱反応を起こし、ガスなどを生成する可能性がある。この反応は、例えば、1997 年に発生した動燃のアスファルト固化処理施設の火災爆発事故（例えば、核燃料サイクル開発機構, 1999）（以下、「アスファルト固化処理施設火災爆発事故」という）のように、熱による反応暴走（以下、「熱反応暴走」という）を起こす可能性がある。また、2014 年に発生した米国の廃棄物隔離パイロットプラント（WIPP）における放射性廃棄物の漏洩事故も、硝酸塩と有機物の反応によって、熱反応暴走が生じたものとされている（U.S. Department of Energy Office of Environmental Management, 2015）。このようなことから、アスファルト固化体の処分の実施にあたっては、先述した事象に関する評価技術の整備が必要である。

閉鎖後（地層処分）において、経済産業省資源エネルギー庁受託事業「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（平成 25 年度 - 平成 28 年度）」（日本原子力研究開発機構, 2014 ; 2015 ; 2016 ; 2017）及び「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（平成 29 年度）」（日本原子力研究開発機構, 2018a ; 2018b）にて、アスファルト固化体に含まれる硝酸塩とアスファルトの反応による熱反応暴走の可能性に関する検討が行われ、アスファルト固化体の発熱速度モデルを構築し、処分施設における熱収支解析による試行的評価から、地層処分環境においてアスファルト固化体が熱反応暴走を起こす可能性は低いことが示された。

一方、「地層処分研究開発に関する全体計画（平成 30 年度 - 平成 34 年度）」（地層処分研究開発調整会議, 2018）及び「地層処分研究開発に関する全体計画（平成 30 年度 - 令和 4 年度）」（地層処分研究開発調整会議, 2020）では、これまでの設計概念に基づく TRU 廃棄物の廃棄体パ

パッケージについて、閉鎖後長期の閉じ込め性に加えて、操業中（閉鎖前）の安全性などの向上を図るため、廃棄体への衝撃や火災などの事象に対する影響評価技術の重要性が示されている。アスファルト固化体については、火災の延焼に伴う硝酸塩と有機物の化学反応の促進の可能性について評価するために、特性評価試験を実施し、反応評価モデルの開発と検証を実施し、廃棄体パッケージの閉じ込め性能に係わる試験と評価へ反映することが示されている。

本事業では、地層処分施設の閉鎖前の安全性の評価技術の整備として、前述した処分施設閉鎖後における熱反応暴走の評価のために構築したアスファルト固化体の発熱速度モデルを火災の延焼に伴う評価にも使用できるように改良を行った。このため、硝酸塩と有機物（アスファルト）の反応評価に関わるデータ取得とアスファルト固化体発熱速度の見直し及び妥当性の確認について取り組んだ。5か年の実施内容を図 3.1-1 に示す。

	平成30年度	平成31年度	令和2年度	令和3年度	令和4年度
1) 硝酸塩と有機物の反応評価に関わるデータ取得	模擬アスファルト固化体の熱量測定 (昇温速度変化、塩濃度変化等)				成果取りまとめ
	硝酸塩と有機物の反応機構調査		模擬アスファルト固化体の熱量測定・硝酸塩と有機物の反応機構調査		
2) 発熱速度モデルの見直し及び妥当性の確認	発熱速度モデル見直し及び妥当性の確認		模擬アスファルト固化体照射方法検討	模擬アスファルト固化体照射・熱量測定	
	モデルの適用範囲の評価		酸素の取り扱い検討	発熱速度モデル改良・妥当性検討	

図 3.1-1 5か年の実施内容

3.1.2 硝酸塩と有機物の反応に係るデータ取得

反応評価モデルにおいて重要な要素である、アスファルト固化体の発熱速度モデル(発熱特性)については、経済産業省資源エネルギー庁受託事業「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(平成25年度 - 平成28年度)」(日本原子力研究開発機構, 2014; 2015; 2016; 2017)及び「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(平成29年度)」(日本原子力研究開発機構, 2018a; 2018b)にて検討された内容が参考になると考えられる。しかし、当該発熱速度モデルは、閉鎖後(地層処分環境)を想定した条件に加え、試料として代表的な模擬アスファルト固化体を用いた熱量測定データを基に検討されている。そのため、閉鎖前の火災の延焼を想定した評価においては、空気(酸素)との接触が否定できないことや地層処分環境よりも速い温度上昇が予想されることから、このような環境を想定した条件による熱特性データを取得し、既往の発熱速度モデルの見直しや妥当性の確認を行う必要がある。また、実際のアスファルト固化体は、製造条件により塩含有率が異なるなど、仕様の異なるものが存在しており、含有される塩の組成や濃度の変化などがアスファルト固化体の発熱特性に与える影響についても確認する必要がある。加えて、発熱速度モデルの見直しなどを実施する上では、アスファルトと硝酸塩の反応機構に関する検討が重要であり、反応物及び生成物に関する情報が必要であると考えられる。まずは、アスファルトと反応する酸化性塩の発熱速度モデルにおける扱いなど、反応評価モデルの重要な要素である発熱速度モデルの見直しに反映するために、模擬アスファルト固化体に含有される塩の成分、含有される塩の組成、濃度、粒径分布及び粒子形状を確認した(原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 2019)。そして、地層処分における閉鎖前安全性の評価技術の整備として、火災の延焼を想定したアスファルト固化体の熱反応暴走の可能性を評価するためのモデル(反応評価モデル)開発に資するため、模擬アスファルト固化体及びその原料物質の熱特性データを取得し、昇温速度を変えた示差走査熱量測定では、昇温速度の増加に伴い、発熱ピークが高温側にシフトする昇温速度

依存性が確認された（原子力環境整備促進・資金管理センター，日本原子力研究開発機構，2019; 2020; 2021; 2022; 2023）。また、アスファルト固化体は、製造条件により塩含有率が異なるなど、仕様の異なるものが存在していることを踏まえ、製造時の塩含有率の異なる模擬アスファルト固化体を用いて低酸素条件（窒素）での示差走査熱量測定を行い、塩の含有率の影響が見られるか調査した結果、塩の含有率が大きいほど、発熱量が大きくなる傾向が確認された（原子力環境整備促進・資金管理センター，日本原子力研究開発機構，2021）。接触空気量を変えた示差走査熱量測定では、発熱量及び発熱曲線について大きな変化が見られなかった。これは、アスファルト固化体に含まれる硝酸塩が、酸化剤の量として十分に存在しており、接触空気量が変化しても発熱量に影響は受けないと考えられる（原子力環境整備促進・資金管理センター，日本原子力研究開発機構，2022; 2023）。さらに、放射線の影響について、放射線の照射量や照射方法などを検討し、模擬アスファルト固化体を対象に放射線照射を実施し、試験手法を検討し、放射線照射（約 700 kGy）した模擬アスファルト固化体を用い、示差走査熱量測定を実施した結果、放射線照射した模擬アスファルト固化体の方がわずかに低温側で発熱ピークが確認されたが、発熱量は大きく変化しないことから放射線照射の影響はないと判断した（原子力環境整備促進・資金管理センター，日本原子力研究開発機構，2021; 2022; 2023）。放射線照射により副産物や揮発性ガスが生成する影響を評価するため、放射線照射したアンプル試験体を開封してガス成分について測定を行った結果では、水素、二酸化炭素が確認された（原子力環境整備促進・資金管理センター，日本原子力研究開発機構，2022; 2023）。昇温速度の履歴が模擬アスファルト固化体の発熱特性に及ぼす影響を調査するため、昇温速度を途中で変更（変更温度：模擬アスファルト固化体中の塩粒子の融点（260 °C - 280 °C）の手前の温度 254 °C）した示差走査熱量測定を実施した結果、発熱曲線は、昇温速度の履歴を受けないことが確認された（原子力環境整備促進・資金管理センター，日本原子力研究開発機構，2022）。アスファルトと硝酸塩との反応機構の調査として、石油学会規格「TLC / FID 法によるアスファルト組成分析試験方法（JPI-5S-70-2010）」に準拠した方法により、加熱処理を行った原料アスファルト及び模擬アスファルト固化体のアスファルト組成分析を実施したが、不溶解率が測定できなかったことから、石油学会で規格化された JPI-5S-22-83「アスファルトのカラムクロマトグラフィーによる組成分析法」（石油学会，1983）の方法により原料アスファルトの組成分析を実施した。分画したアスファルト成分について、既存の模擬アスファルト固化体の熱量測定データ同様、いずれの成分も昇温速度が大きくなるにつれ、発熱ピークが高温側にシフトする現象が確認された（原子力環境整備促進・資金管理センター，日本原子力研究開発機構，2021; 2022; 2023）。

3.1.3 発熱速度モデルの見直し及び妥当性の確認

平成 31 年度（令和元年度）は、先行事業である処分システム受託事業にて検討された既往の発熱速度モデル（以下、界面反応（相変遷／拡散律速）モデル）による適切な評価を実施するためには、測定データの再現性向上に関する検討した。

界面反応（相変遷／拡散律速）モデルにおいて想定されている、アスファルトと塩の反応の概念を図 3.1-2 に示す。また、モデルの構築において検討された内容を、以下の i) ～ v) に示す。

なお、界面反応（相変遷／拡散律速）モデルでは、アスファルトと反応する酸化性塩として、亜硝酸塩（ NaNO_2 ）及び硝酸塩（ NaNO_3 ）を想定しており、混乱を避けるため、以下の本文中では、塩の成分を区別しない場合のみ"塩"と標記する。

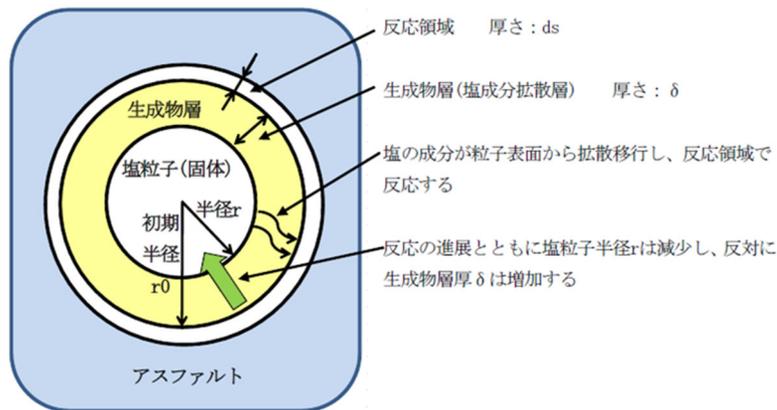


図 3.1-2 アスファルトと塩の反応の概念図

・ i) 温度による固液状態の変化

アスファルトと塩の固液状態は、常温からの温度上昇を考えた場合、アスファルト（固体）/塩（固体）、アスファルト（液体）/塩（固体）、アスファルト（液体）/塩（液体）の3つが想定される。したがって、発熱特性は、これら3つの固液状態における反応速度の組み合わせにより表現できると考えられる。ただし、熱量測定において、アスファルトの軟化点である 90 °C以下の発熱が確認できなかったため、アスファルト（固体）/塩（固体）における発熱は無視する。

・ ii) 生成物層の形成に伴う塩粒子の拡散過程などの考慮

アスファルト固化体に存在する塩粒子を球状とすると、アスファルトはその周辺に存在していると考えられる。接触界面で反応が生じるとアスファルトと塩粒子の間には生成物層が形成されるため、以降は生成物層を拡散により移動した塩の成分が反応領域に達することで反応が進行する。したがって、生成物層における塩の成分の拡散を想定する。また、反応の進展に伴い、塩粒子半径の減少及び生成物層厚さの増加を考慮する。

・ iii) アスファルトと反応する塩の成分

アスファルト固化体には、酸化剤として作用する塩として、亜硝酸塩及び硝酸塩が含まれている。したがって、アスファルト（液体）/塩（固体）の固液状態において、アスファルトと反応する塩は硝酸塩及び亜硝酸塩の2成分を想定する。

・ iv) アスファルト（液体）/塩（液体）の固液状態における反応モデル

アスファルト（液体）/塩（液体）の固液状態は、塩の融点以上である。このような温度においては、生成物層は安定に存在せず、液体のアスファルトと液体の塩が均一な混合状態であると考えられる。したがって、反応速度は単純なアレニウス則に従うとし、このとき、塩の成分は見かけ上、1成分とする。

・ v) アスファルト（液体）/塩（液体）の状態へ遷移する温度の昇温速度依存性

上記 i) - iv) の検討によって構築されたモデルでは、測定データに見られる昇温速度依存性（昇温速度の増加に伴い発熱ピークが高温側にシフトする）を表現できない。そこで、高温側で生じると考えられる、アスファルト（液体）/塩（液体）の反応へ遷移する温度を LL 遷移温度とし、アスファルト（液体）/塩（液体）の反応における活性化エネルギーが LL 遷移温度に伴い変化することを想定する。

以上の検討から、アスファルト固化体の発熱速度モデル（界面反応（相変遷/拡散律速）モデル）は、アスファルト（液体）/亜硝酸塩（固体）（添え字：LS_NO₂）、アスファルト（液体）/硝酸塩（固体）（添え字：LS_NO₃）、アスファルト（液体）/塩（液体）（添え字：LL）の3つの反応における発熱速度を組み合わせることで定義された。

$$S = S_{LS_NO_2} + S_{LS_NO_3} \quad , \quad S_{LS_NO_2} + S_{LS_NO_3} \geq S_{LL} \quad (3.1-1)$$

$$S = S_{LL} \quad , \quad S_{LS_NO_2} + S_{LS_NO_3} < S_{LL}$$

$$S_{LS_NO_2} = \rho_{aw} \cdot \Delta H \cdot Area \cdot N_{LS_NO_2} \cdot ds \cdot A^*_{LS_NO_2} \cdot \exp(-E_{LS_NO_2}/(R \cdot T)) \quad (3.1-2)$$

$$S_{LS_NO_3} = \rho_{aw} \cdot \Delta H \cdot Area \cdot N_{LS_NO_3} \cdot ds \cdot A^*_{LS_NO_3} \cdot \exp(-E_{LS_NO_3}/(R \cdot T)) \quad (3.1-3)$$

$$S_{LL} = \rho_{aw} \cdot \Delta H \cdot (1-X) \cdot A_{LL} \cdot \exp(-E_{LL}/(R \cdot T)) \quad (3.1-4)$$

$$X = Q/Q_{all} \quad (Q_{all} = \rho_{aw} \cdot \Delta H \quad Q = \int S dt \quad (Q \geq Q_{all} \text{ のとき } S = 0)) \quad (3.1-5)$$

平成31年度においては、界面反応（相変遷/拡散律速）モデルによる測定データの再現性向上を目的に、高温側の反応による発熱（S_{LL}）の頻度因子（A_{LL}）に対する昇温速度補正関数 f(dT/dt) を導入して検討した。dT/dt は、昇温速度（°C/min）である。

$$S_{LL} = \rho_{aw} \cdot \Delta H \cdot (1-X) \cdot f(dT/dt) \cdot A_{LL} \cdot \exp(-E_{LL}/(R \cdot T)) \quad (3.1-6)$$

令和4年度においては、アスファルト固化体の発熱曲線（昇温速度 0.01 °C/min - 20 °C/min の範囲）に対して、モデルに用いられているパラメータの最適化を実施した。

以上の検討より得られた、高温側の反応による発熱 S_{LL} の頻度因子に対する昇温速度補正関数 f(dT/dt) を以下に示す。

$$f(dT/dt) = 3 \times 10^{-5} \cdot (dT/dt)^{-2.301} \quad , \quad dT/dt < 0.5$$

$$f(dT/dt) = 1 \times 10^{-5} \cdot (dT/dt)^{-3.825} \quad , \quad dT/dt \geq 0.5 \quad (3.1-7)$$

模擬アスファルト固化体の熱量測定により得られた測定値及び上記の発熱速度モデルによる計算式を図 3.1-3 に示す。検討した高温側の反応による発熱（S_{LL}）の頻度因子（A_{LL}）に対する昇温速度補正関数 f(dT/dt) を導入によって、実測値との再現性が向上したことがわかる（原子力環境整備促進・資金管理センター、日本原子力研究開発機構、2021; 2023）。

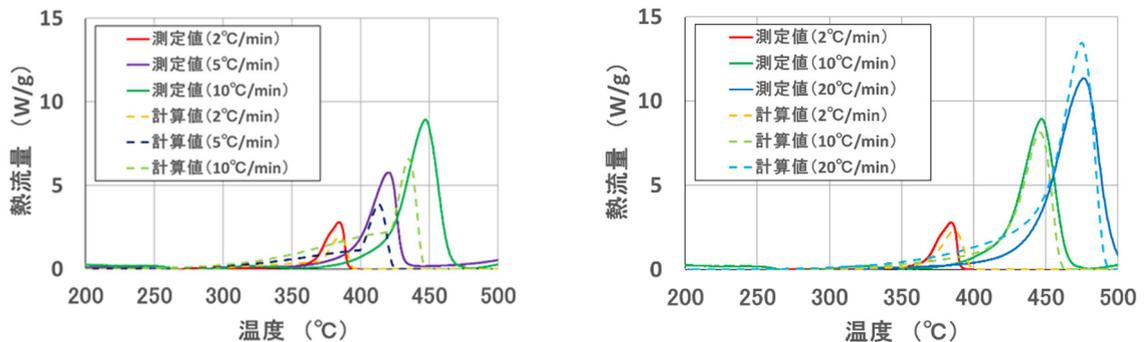


図 3.1-3 測定値と界面反応（相変遷/拡散律速）モデルによる計算値の比較
 (左：平成29年度に処分システム受託事業にて検討されたモデルによる計算値、
 右：本事業で改良したモデルによる計算値)

3.1.4 まとめと今後の課題

先行事業で開発されたアスファルト固化体発熱速度モデルを火災の延焼に伴う、硝酸塩と有機物の化学反応の促進の可能性評価にも用いられるように、液体状のアスファルトと塩の反応の頻度因子に昇温速度補正関数を導入することで改良した。この改良にあたっては、硝酸塩と有機物（アスファルト）の反応評価に関わるデータ取得として、模擬アスファルト固化体を用いた広範な昇温速度条件（昇温温度 0.01 °C/min - 20 °C/min）における熱量測定、放射線照射の影響を調べるために照射後の模擬アスファルト固化体に対する熱量測定、さらには火災発生時における空気の影響を調べるために接触空気量（1g の試料に対して空気量を最大 100cm³）を変えた熱量測定を実施した。放射線の照射については、熱量測定の結果を大きく変化させるものはないことが示された。また、接触空気量もその量（1g の試料に対して空気量を最大 100cm³）が制限させれば、発熱特性にも影響はしないと考えられた。これらの熱量測定データを用いて、頻度因子に対する昇温速度補正関数のパラメータの最適化を行い、広範な昇温速度条件にも適用可能なアスファルト固化体発熱速度モデルを提示した。また、昇温速度補正関数の導入については、アスファルト成分の熱分解に関わる論文調査の結果から、現象論的には大きな間違いではないと考えられる。

本事業で提示したアスファルト固化体発熱モデルを用いることで、火災の発生に伴う硝酸塩と有機物の化学反応の可能性が評価可能となった。本事業では、模擬アスファルト固化体を用いて、試料の熱量測定を実施し、モデル化の手順を構築してきた。今後は、実アスファルト固化体についても熱量測定を行い、本事業で構築したアスファルト固化体発熱速度モデルの妥当性を示していく必要がある。

参考文献

International Atomic Energy Agency, Disposal Approaches for Long Lived Low and Intermediate Level Radioactive Waste, IAEA Nuclear Energy Series No.NW-T-1.20, International Atomic Energy Agency, 10p, 2009.

原子力発電環境整備機構, 地層処分低レベル放射性廃棄物に関わる処分の技術と安全性 「処分場の概要」の説明資料, NUMO-TR-10-03, 3-15p, 2011.

原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 平成 30 年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 TRU 廃棄物処理・処分に関する技術開発, 2019.

原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 平成 31 年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 TRU 廃棄物処理・処分に関する技術開発, 2020.

原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 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 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発, 2021.

原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 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 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発, 2022.

原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 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 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発, 2023.

藤根幸男, 村田幹生, 阿部 仁, 高田準一, 塚本導雄, 宮田定次郎, 井田正明, 渡辺眞樹男, 内山軍蔵, 朝倉俊英, 杉川 進, 岡崎修二, 宮内正勝, 富樫喜博, 茅野政道, 永井晴康, 加藤正平, 中山真一, 梅田 幹, 前田 充, 井澤直樹, 西尾軍治, 鴻坂厚夫, アスファルト固化処理施設火災・爆発事故の原因究明試験と環境影響評価, JAERI-Research 99-056, 62p, 1999.

U.S. Department of Energy Office of Environmental Management, Accident Investigation Report Phase 2 Radiological Release Event at the Waste Isolation Pilot Plant, 2015.

公益財団法人石油学会, 石油学会規格「TLC/FID 法によるアスファルト組成分析試験方法」, JPI-5S-70-2010, 2010.

公益財団法人石油学会, 石油学会規格「アスファルトのカラムクロマトグラフィーによる組成分析法」, JPI-5S-22-83, 1983.

日本原子力研究開発機構, 平成 25 年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発報告書, 2014.

日本原子力研究開発機構, 平成 26 年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発報告書, 2015.

日本原子力研究開発機構, 平成 27 年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発報告書, 2016.

日本原子力研究開発機構, 平成 28 年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発報告書, 2017.

日本原子力研究開発機構, 平成 29 年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 処分システム評価確証技術開発報告書, 2018a.

日本原子力研究開発機構, 平成 29 年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 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, 2018b.

4. 地層処分システムの状態設定のための現象解析モデルの高度化

4.1 廃棄体からの核種溶出モデルの高度化

4.1.1 目的と5か年の実施内容

地層処分対象の TRU 廃棄物のうち、ハル・エンドピースと呼ばれグループ 2 に分類される燃料被覆管のせん断片（ハル）、燃料集合体末端片（エンドピース）等の処理・処分については第 2 次 TRU レポート（以下、略称としては「TRU-2」）（電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構，2005）に基本方針が示されている。具体的には、図 4.1-1 で示されるように圧縮処理された後、ステンレス鋼製のキャニスタに封入され、地層処分される計画となっている。キャニスタに封入された廃棄体はハル等廃棄体とも称される。ハル・エンドピースは炉内での放射化や再処理工程等で汚染されている。特に放射化生成物である ^{14}C は TRU 廃棄物地層処分の安全評価において、被ばく線量の高い重要核種として位置づけられている。これは、 ^{14}C の半減期が 5730 年と比較的長く、廃棄物中のインベントリが大きいことに加え、廃棄体の金属腐食により比較的速い溶出速度が仮定されており、 ^{14}C の化学形態は各バリア材への収着性が低い有機物であると仮定・評価されていることに起因している。



図 4.1-1 ハル・エンドピース（ハル等廃棄体）の処分概念

これまで、ハル・エンドピースに関する国内の研究は、加圧水型原子炉（以下、「PWR」という）にて実際に照射された燃料被覆管を用いた試験が先行的に行われ、 ^{14}C のインベントリや溶出試験のデータが取得された (Yamaguchi et al., 1999)。その後、沸騰水型原子炉（以下、「BWR」という）の被覆管のインベントリデータや溶出データ (Yamashita et al., 2014; Sakuragi et al., 2016 a) が取得された。これらは取扱いが困難な照射材料を使った貴重なデータではあるが、特定の条件の燃料被覆管に限られており、エンドピースに関する知見は含まれていない。 ^{14}C のインベントリについては評価パラメータの見直しにより現実に近いインベントリの評価結果も報告されている (Sakuragi et al., 2013)。

一方、海外では、1990 年前後にユッカマウンテン計画に関連した被覆管の分析データ (Guenther et al., 1990; Van Konynenburg, 1994) やドイツの研究例 (Bleier et al., 1987) が報告されている。その後、目立った研究例はなかったが、2013 年に開始された欧州の共同研究 CAST (CArbon14 Source Term) プロジェクトに関連して ^{14}C に関するいくつかの成果が報告されている (Mibus et al., 2018; Necib et al., 2018; Neeft, 2018)。このプロジェクトでは複数の照射済み試料の分析データが示されているが、いわゆるエンドピースに相当する材料は取り扱われ

ていない。

そこで本事業の5か年では、これまで実廃棄物のデータが報告されていないエンドピースの特性評価に注力した研究開発を実施した。まず、試験や解析評価に供する照射材料を選定し、その性状や燃焼条件等の調査に基づき試料の代表性を評価した。従来の核種溶出モデルでは、特に、核種が均一に分布していることを前提とした評価に基づいていることから、エンドピース中の核種分布を評価することを目的とし、詳細な核種分析や解析評価を実施した。その際、加速器質量分析法 (Accelerator Mass Spectrometry、以下、「AMS」という) による難測定核種の分析・定量やモンテカルロ法を用いた中性子輸送評価に基づく放射化計算を試みた。また、従来モデルでは、廃棄物の比表面積や腐食速度を過度に保守的に評価している可能性があるため、現実的なパラメータと取り入れることで高度化した溶出モデルを構築し、溶出モデルに与える重要パラメータを評価した。特に、近年、地層処分環境における比較的長期の金属腐食速度のデータが評価されていることから (Sakuragi et al., 2016 b)、溶出モデルへの取込みが期待される。さらに、エンドピースの溶出データの取得とともに、溶出モデルの高度化による安全評価、すなわち処分後の被ばく線量への低減効果について検証した。

なお、ハル・エンドピースの安全な処理・処分のためには、本事業で対象とするエンドピースの評価だけでなく、ハル等廃棄体に含まれる各廃棄物材料に対する合理的なインベントリの設定、現実的な溶出速度の設定、放出される¹⁴Cの化学種の同定、化学種の安定性や収着挙動などの移行パラメータ評価、さらに生物圏における炭素循環を含め、¹⁴Cに関する体系的な安全評価手法の確立が必要であることに留意する必要がある。

4.1.2 エンドピースの選定と性状・燃焼条件

エンドピースは代表性を考慮し、BWR燃料として比較的多く使用されている高燃焼度9×9燃料 (Sakuragi et al., 2013)、いわゆるSTEP3燃料 (取出平均燃焼度45 GWd/tHM、最高燃焼度55 GWd/tHM) を選定した。また、燃焼解析におけるボイド影響の煩雑さを軽減させるために、下部タイプレート进行分析・評価対象とした。本燃料の素性や燃焼条件等については、本研究対象の代表性の観点から重要であるため、表4.1-1にまとめるとともに、外観写真を図4.1-2に示す。本燃料は、高燃焼度9×9燃料の信頼性実証試験のため、福島第二原子力発電所1号機で先行的に装荷・燃焼され、照射後試験の後、燃料プールにて保管管理されていたものである。3サイクル燃焼で照射後試験に供されているため燃焼度は低く、それに合わせて濃縮度もバッチ装荷燃料の約3.7%に比べて小さいが、それ以外の性状については一般的なSTEP3燃料と変わらないので、現在までに発生量が多くBWR燃料を代表する燃料集合体と考えても差し支えない。燃料や照射後試験に関する詳細については原子力安全基盤機構報告書 (原子力安全基盤機構, 2007) を参照されたい。

表 4.1-1 本研究で対象としたエンドピース（BWR 下部タイププレート）の燃焼条件（原子力安全基盤機構, 2007）

炉型	BWR
燃料タイプ	9×9 STEP3 A 型
照射炉	福島第二原子力発電所 1 号機
集合体番号	2F1Z3
濃縮度	約 3.4%
平均燃焼度	35.0 GWd/tHM
照射期間	3 サイクル 1,160 日（1996 年 6 月から 2000 年 5 月）

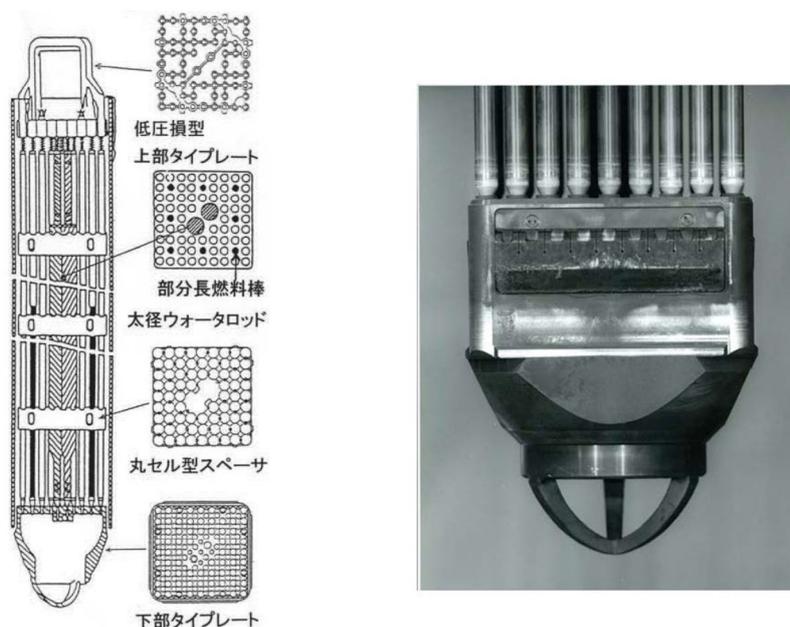


図 4.1-2 本研究で対象とした燃料集合体（BWR STEP3 A 型）の構造とエンドピース（下部タイププレート）の外観（原子力安全基盤機構, 2007）

4.1.3 エンドピース中の核種インベントリ分布評価

(1) 高感度分析による核種分析方法

ハル等廃棄体に含まれる放射性核種のうち ^{14}C や ^{36}Cl といった核種は安全評価上の関心が高いため、インベントリや溶出する ^{14}C の化学形態を含めた溶出挙動を明らかにすることが重要である。しかしながら、これらの核種は純ベータ核種であり、これまでハルの溶出試験では、溶出濃度が極めて低く、液体シンチレーションカウンタ（Liquid Scintillation Counter、以下、「LSC」という）のような通常的手法では詳細な化学形態の分析は困難であった（Yamaguchi et al., 1999, Yamashita et al., 2014; Sakuragi et al., 2016 a）。そこで、本研究では ^{14}C や ^{36}Cl の極低濃度分析に有望な加速器質量分析法（Accelerator Mass Spectrometry、以下、「AMS」という）について検討し、実分析に利用した。AMS としては、東京大学タンデム加速器研究施設（以下、「MALT」という）を用いた（東京大学タンデム加速器研究施設 MALT, 2020）。

AMS による ^{14}C 分析では、試料をグラファイトの形態で導入する必要がある。AMS 分析の概要（ ^{14}C 分析の前処理フロー）を図 4.1-3 に示す。エンドピース試料（照射済み BWR 下部タイププレートから採取）を溶解するために、塩酸と硝酸の混酸を使用して過熱溶解した。このとき、

試料中に無機炭素や揮発性の有機炭素が含まれていた場合には揮発し散逸してしまうことから、オフガス回収装置によりオフガス中の ^{14}C を CO_2 に酸化し回収した。溶解液中に残留する不揮発性 ^{14}C は硫酸及び過マンガン酸カリウムにより湿式酸化処理を行うことにより CO_2 に酸化分解し回収した。このとき、試料溶解に使用した塩酸の副産物である塩素ガスが ^{14}C とオフガスへ移行する。塩素は、LSC 測定時のクエンチングを発生させるため測定上の妨害となることから、水トラップを追加することで CO_2 回収部への塩素の混入を防止した。

AMS による ^{14}C 分析では、AMS の校正に ^{14}C 同位体比 1.2×10^{-12} オーダーの標準物質を使用していることから、測定試料は標準物質の同位体比以下の範囲で測定することが好ましいことから、AMS 測定時にオーバースケールとならない様に同位体希釈操作を実施した。同位体比の調整時には、 ^{14}C の減衰が AMS 測定により確認されている大理石の認証標準物質から抽出した D.C. (Dead Carbon、太古に形成されたため ^{14}C の減衰が十分に進行しその濃度が極めて低く無視できるレベルの炭素) の溶液を用いた。AMS 分析用試料は同位体希釈後、直ちに塩化カルシウムを添加することにより、発生した炭酸カルシウムを回収・乾燥し MALT へ輸送した。MALT では炭素 1mg 分の炭酸カルシウム試料を分取し、真空状態とした閉鎖系の反応容器内でリン酸と反応させ、試料を二酸化炭素の状態に取り出した。取り出した二酸化炭素状の試料は、ライン分析装置により脱湿した後、触媒下で水素還元処理することによりグラファイトに変換し、AMS 分析に供した。

^{36}Cl については、安定同位体の S-36 が同重体干渉に留意しつつ、Cl 担体を添加したのち試料の溶解から蒸留法、鉄共沈法、硫化コバルト沈殿法により精製を行った。最終的に塩化銀として AMS 測定を行った。また、プラスチックシンチレータ (Pico- β) によるベータ線測定も合わせて行った。

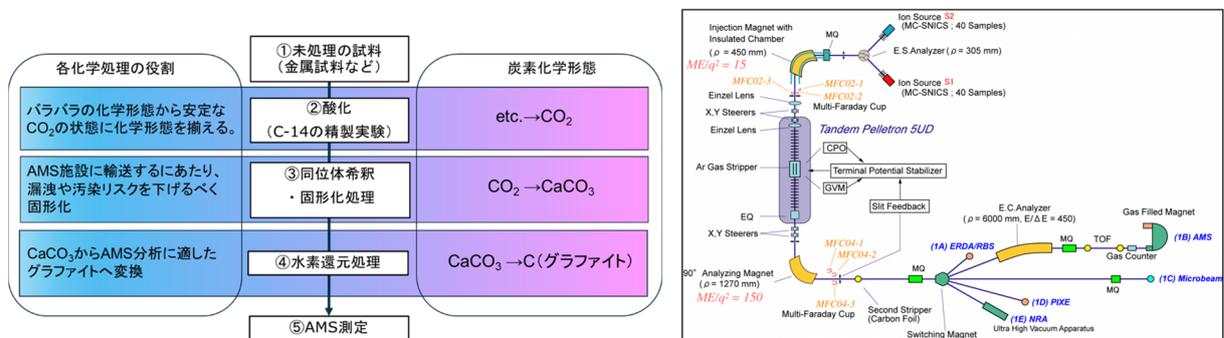


図 4.1-3 AMS 分析 (^{14}C) における前処理フロー (グラファイト化) と操作毎の炭素の化学形態変化 (左) 及び MALT における AMS 分析装置構成 (右) (東京大学タンデム加速器研究施設 MALT, 2020)

(2) 放射化計算

下部タイププレート中の放射化による核種生成量は、TRU-2 で用いられている簡易的な手法である ORIGEN2 (Croff, 1983) と、詳細な解析モデルであるモンテカルロ燃焼解析コード MCNP-BURN2 (Ando et al., 2003) を用いたシミュレーションにより評価した。

MCNP-BURN2 では解析対象とする物体の三次元構造を作成し、物質の組成および反応断面積を設定する。図 4.1-4 に MCNP-BURN2 による評価体系を示す。本評価では燃料、被覆管、チャンネルボックスを含む燃料バンドルおよび下部タイププレートの三次元構造をモデル化し、各組成の反応断面積は核データライブラリ JENDL4.0 (Shibata et al., 2011) を基に設定した。核種生

成量評価においては、中性子源における中性子の発生、中性子源から構造物へ中性子の輸送、構造物中での中性子と物質の反応を解析する。ここでは被覆管中の燃料を中性子源として、サンプルの燃焼度および冷却期間を含む運転履歴に基づいた燃焼ステップを作成し、各ステップでの中性子発生量を評価した。この過程で燃料自体の燃焼計算も同時に行うため、各ステップで燃料組成や中性子発生量およびエネルギースペクトルが変動する。中性子源から構造物へ中性子の輸送計算は、作成した三次元構造内でのモンテカルロ法により燃焼ステップごとに計算される。この過程で中性子は減速材等の影響により減速された後に構造物へ照射される。構造物へ照射された中性子のスペクトルと構造物の組成および反応断面積から核種生成量が評価される。以上の解析を燃焼ステップに応じて繰り返すことにより、運転履歴を反映した照射および核種生成を再現した。

なお、解析のインプットとして使用した下部タイプレートの組成（不純物組成含む、対象核種の親元素（核種）の濃度）は、MCNP-BURN2については下部タイプレートを直接分析して得られた値を用いた。ORIGEN2については、TRU-2の設定条件である燃焼度（45 GWd/tHM）や組成条件（Co 濃度、窒素濃度共に 500 ppm）を用いた計算に加え、対象とした燃料集合体の実際の燃焼度や、MCNP-BURN2と同様に下部タイプレートを直接分析して得られた組成の値を用いた評価も行った。ORIGEN2 の中性子照射量については、いずれも TRU-2 の設定である燃料部の 1/4 として評価した。

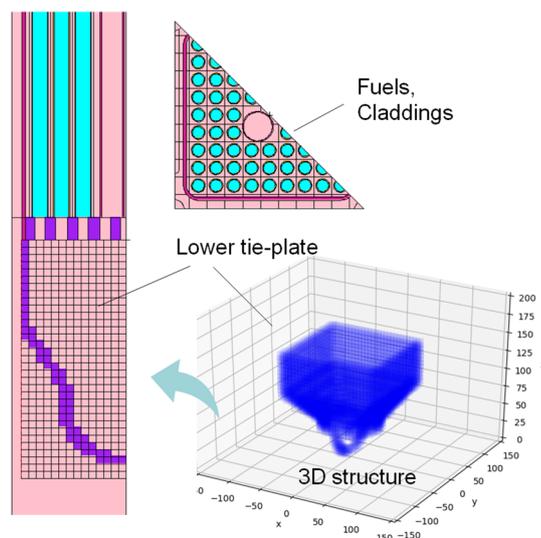


図 4.1-4 MCNP-BURN2 による下部タイプレートの核種生成量の評価概要

(3) 下部タイプレートの核種分布評価結果

図 4.1-5 に核種分析に供する下部タイプレートのサンプリング位置を示す（ ^{60}Co 分析のケース）。サンプリング位置 A-D はイメージングプレート（Imaging Plate、以下「IP」という）法、G1-G5 はガンマ測定（Ge 半導体検出器）による分析位置である。なお、B-D 及び G3-G5 については、図中に示す部分を IP 法用に薄板状（約 1.0 mm 厚）に加工している。

図 4.1-6 に ^{60}Co の分析及び解析結果を示す。ここでは照射終了（シャットダウン時）から分析まで約 20 年経過していることから減衰補正を行っている。また、IP 法では放射能の相対的な強度情報は得られるが、直接的に定量評価は困難であるため、G1 位置を基準とした相対値でグラフ化した。図に示すように、 ^{60}Co 濃度は下部タイプレートの上部、すなわち燃料に近い部分が高く、下方向へ離れるにしたがって低下した。この分析結果は MCNP-BURN2 による解析で良く再現されている。さらに、分析値と解析値の比（E/C）は 0.57 から 0.89 の範囲であり、特に燃料

に近い位置で一致していることから、MCNP-BURN2 による解析には十分な精度があると考えられる。一方、ORIGEN2 による解析結果は、下部タイプレートの燃焼度や不純物組成 (^{59}Co 濃度) を反映させることである程度改善するものの、分析結果との乖離があり、かなり大きな ^{60}Co 生成量として評価される結果となった。

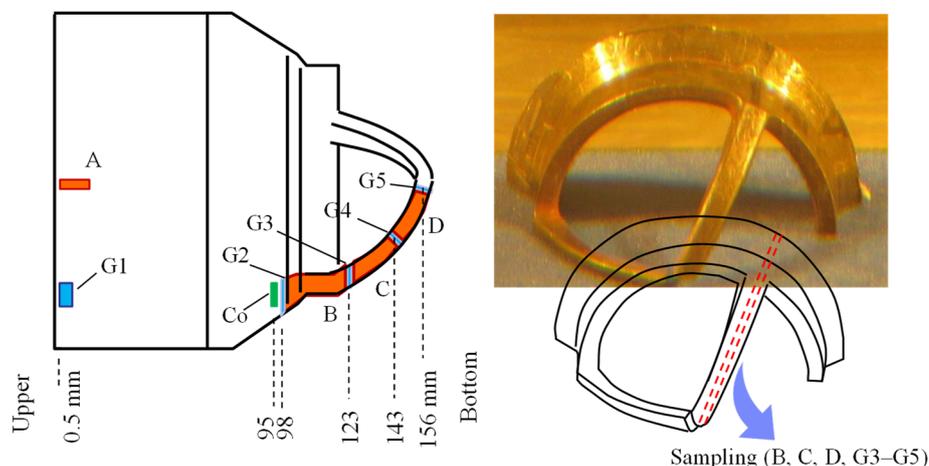


図 4.1-5 下部タイプレートの ^{60}Co 及び ^{59}Co 分析に供したサンプリング位置

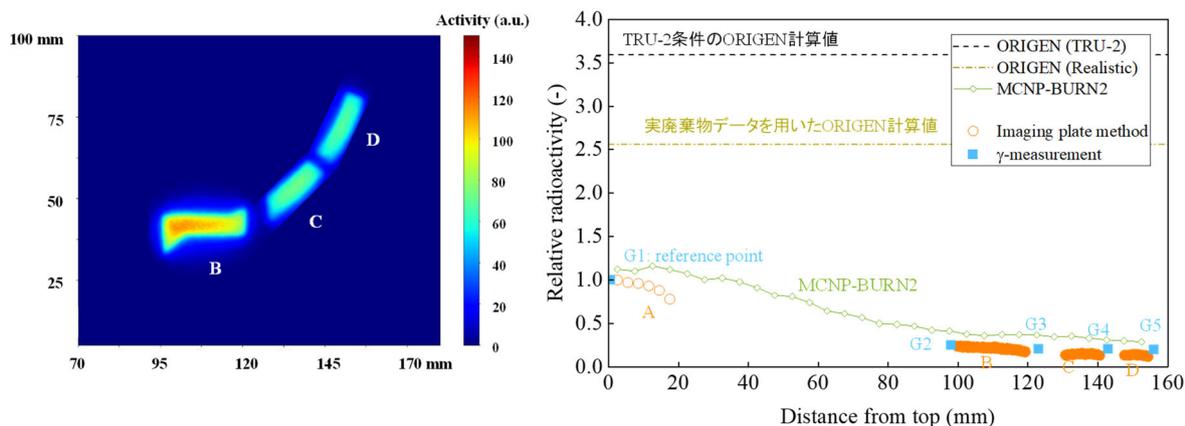


図 4.1-6 下部タイププレート中の ^{60}Co 分布：左はイメージングプレート法の強度分布、右は解析と分析結果の比較（シャットダウン時の放射能に補正済み）

次に ^{14}C の評価結果を図 4.1-7 に示す。ここでの放射能は相対値ではなく材料重量あたりの放射能 (Bq/g) で示す。また、分析値は LSC と AMS 両方の結果を示すが概ね両者は良い一致が見られた。 ^{60}Co と同様に、燃料に近い下部タイププレートの上側で比放射能は高く、下側で低下する傾向が確認される。MCNP-BURN2 による解析結果は、窒素不純分の分析結果の誤差を含めた最大・最小値を反映させた結果を示すが、 ^{60}Co 同様に ^{14}C の解析値は分析値の再現性が高いが、不純物の誤差の範囲で一致するところまでには至らなかった。中性子照射量まで詳細に計算した MCNP-BURN2 の精度がより高いことが示された一方で、OGIREN2 の解析結果については ^{60}Co と同様に実際の条件 (燃焼度や親元素である窒素濃度) をインプットデータとして使用することで、分析値に近づくことが確認できるが、分析結果との乖離があり、かなり大きな ^{14}C 生成量として評価される結果となった。

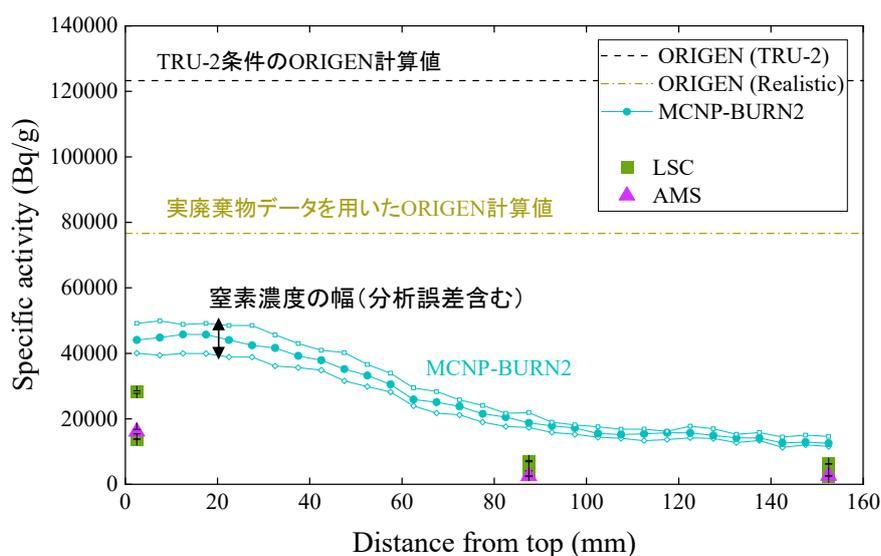


図 4.1-7 下部タイプレート中の ¹⁴C 分布

³⁶Cl については、放射化計算を行うための不純物情報が十分でないことから、解析との比較は行わず、放射能の分析結果のみを表 4.1-2 に示す。下部タイプレート中の ³⁶Cl 濃度は、放射線計測としては低バックグラウンドで検出感度が高い Pico-β では検出下限以下であったが、AMS により良好な精度で定量が可能となった。なお、TRU-2 でのエンドピース中の塩素濃度は 1 ppm として ³⁶Cl の生成量が ORIGEN にて解析評価されている。ここで、解析精度が高いことが示された MCNP-BURN2 を用いて、エンドピース中の塩素濃度を逆解析により求めた。その結果、TRU-2 の設定濃度よりかなり低い結果が示されたことから、TRU-2 のインベントリ評価には十分な保守性があることが示唆された。

これまでの核種分析と放射化計算の比較等から、MCNP-BURN2 による解析は相応の信頼性があるものと考えられることから、タイプレートの三次元構造中の核種分布を図 4.1-8 に示すように MCNP-BURN2 により再現し、核種溶出モデルの評価に反映させることとした。

表 4.1-2 下部タイプレート中の ³⁶Cl 分析結果と MCNP-BURN2 逆解析から推定した不純物塩素濃度

位置	³⁶ Cl 分析値		MCNP-BURN2 逆解析から求めた下部タイプレート中の塩素濃度 (ppm)
	Pico-β (Bq/g)	AMS (Bq/g)	
G1	$< 8.51 \times 10^{-2}$	$1.81 \times 10^{-2} \pm 1.63 \times 10^{-4}$	1.09×10^{-3}
G2	$< 8.64 \times 10^{-2}$	$3.69 \times 10^{-3} \pm 5.53 \times 10^{-5}$	4.20×10^{-4}
G5	$< 1.06 \times 10^{-1}$	$2.70 \times 10^{-3} \pm 5.67 \times 10^{-5}$	5.35×10^{-4}

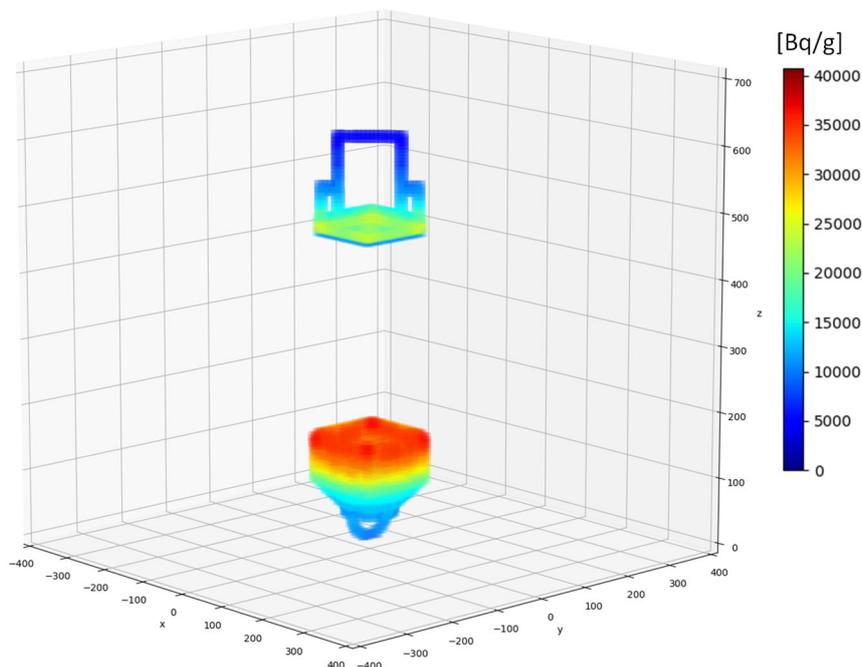


図 4.1-8 MCNP-BURN2 による BWR タイプレート中の ^{14}C 分布解析結果

4.1.4 溶出モデルの構築

TRU-2 におけるエンドピースの溶出モデルでは、形状は薄膜（厚さ $340\ \mu\text{m}$ ）で比表面積は約 $0.8\ \text{m}^2/\text{kg}$ 、核種分布は均一（濃度は ORIGEN で評価）、溶出速度は一定の腐食速度（ $0.02\ \mu\text{m}/\text{y}$ ）と調和的と仮定されている。このような複数の保守的な設定評価に対して、本研究では以下の観点から溶出モデルの高度化を検討した。

- ① TRU-2 モデル：薄膜モデル
- ② 3D 構造モデル：下部タイプレートの形状（厚み）を三次元で反映させることで、現実的な表面積を反映させたモデル
- ③ 3D 核種分布モデル：3D 構造モデルに加え、MCNP-BURN2 による核種濃度を精度向上と、三次元構造中の核種分布を反映させたモデル
- ④ 現実モデル：3D 構造及び 3D 核種分布に加え、ステンレス鋼の長期的な腐食速度（約 $0.4\ \text{nm}/\text{y}$ ）（Sakuragi et al., 2016 b）を溶出速度に反映させたモデル

^{14}C に対する溶出モデルの評価結果を図 4.1-9 に示す。ここで溶出率は、溶出した全 ^{14}C を初期インベントリと経過年数で除した値（ $\text{Bq}/\text{Bq}/\text{y}$ ）であり、半減期による減衰を考慮していることから、参考に ^{14}C の減衰曲線も示す。①TRU-2 モデルの ^{14}C 溶出率が最も高く、8500 年で溶出が終了する。その間の ^{14}C の減衰効果はほとんど見られない。②3D 構造モデルにより溶出率が 1 桁程度低下している。これは初期の比表面積が TRU-2 の $0.8\ \text{m}^2/\text{kg}$ であるのに対し、3D 構造の反映により $0.1\ \text{m}^2/\text{kg}$ であるため実際の形状の効果が表れていると考えられる。次に③3D 核種分布モデルによる MCNP-BURN2 解析は溶出率を 1/3 程度に低減できる効果が認められる。これは MCNP-BURN2 による現実的な解析により核種インベントリを低減できたためと考えられる。最後に④の現実モデルでは、腐食速度を $0.02\ \mu\text{m}/\text{y}$ から現実的な $0.4\ \text{nm}/\text{y}$ とした効果が大きく表れて、溶出率をさらに 1/40 程度に、当初の TRU-2 モデルに比べると 1/1000 程度に低減されていることがわかる。図には④現実モデルにおける下部タイプレートの金属材料の重量変化、

すなわち腐食が進行するなかで残存する下部タイプレートの経時変化も載せているが、これからわかるように ^{14}C は廃棄物中（すなわち下部タイプレート）での減衰により消滅し、外部への溶出が極めて少ないことが示される結果となった。下部タイプレート中における ^{14}C の減衰の様子を図 4.1-10 に示す。

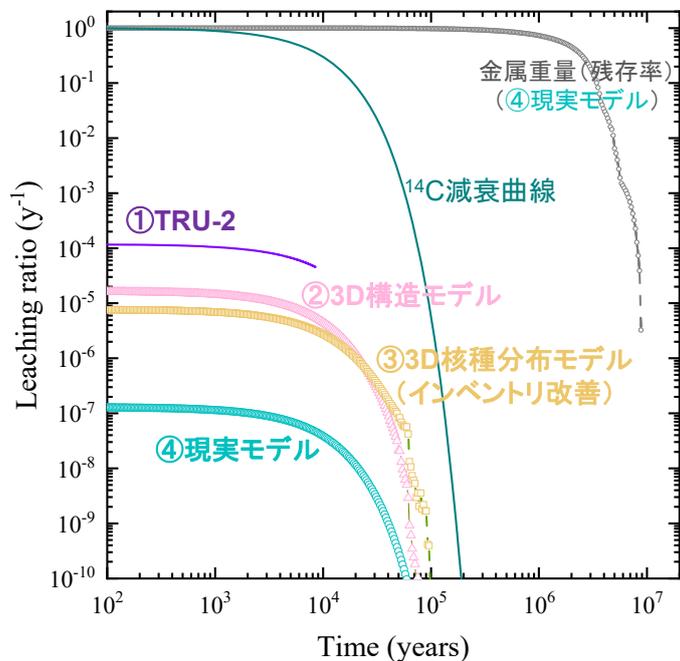


図 4.1-9 下部タイプレートからの核種溶出モデル (^{14}C)

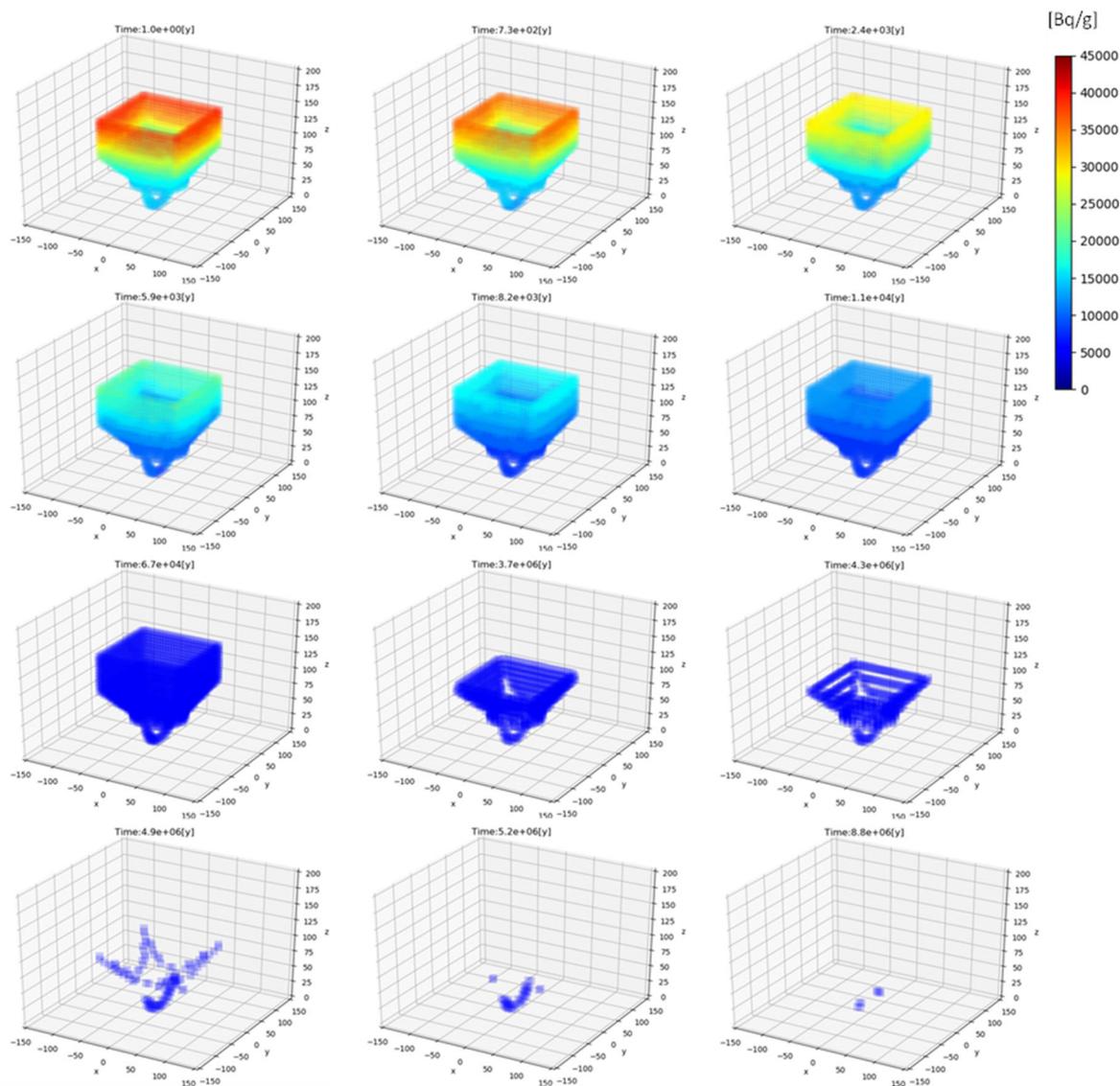


図 4.1-10 下部タイプレート中の ^{14}C 放射能の経時変化 (④現実モデル)

TRU 廃棄物の処分後の安全評価 (地下水シナリオ) に上述の溶出モデルの高度化を反映させた結果を図 4.1-11 に示す。核種移行解析は汎用的シミュレーションソフトウェア GoldSim (GoldSim Player User's Guide, 2021) を用い、核種移行に係わる処分概念や溶出率以外のパラメータは TRU-2 (電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構, 2005) におけるグループ 2 のものを使用した。生活圏における ^{14}C による被ばく線量の結果は、リファレンスである TRU-2 モデルの最大被ばく線量を基準とした相対値で示す。被ばく線量は各溶出モデルの溶出率に依存し、TRU-2 に比べて②3D 構造モデルで 0.14、③3D 核種分布モデルで 0.073、④現実モデルで 0.001 に低下する結果が得られた。

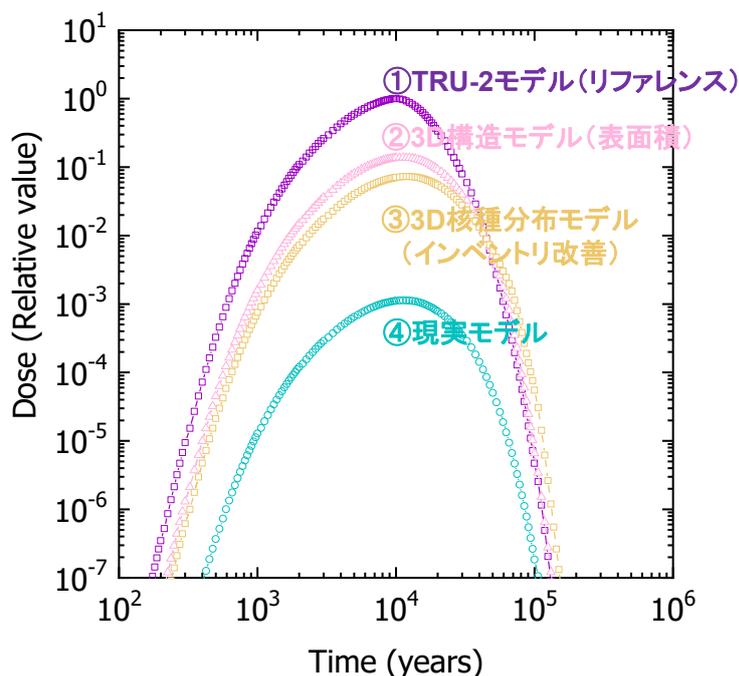


図 4.1-11 溶出モデルを反映した下部タイププレート中の ^{14}C による処分後の被ばく線量の評価結果

4.1.5 まとめと今後の課題

再処理の後、燃料集合体の残材（ハル・エンドピース）の核種インベントリ、核種溶出率等について、実廃棄物のデータに基づき評価し、既存の核種溶出モデルの妥当性を検討するとともにより現実的な核種溶出モデルを構築し、安全評価における被ばく線量評価の過度な保守性を低減する、という目標に対して、以下のステップで検討を進めた。

- ・ 燃焼履歴や代表性の観点から、分析評価対象となる照射済みエンドピース（BWR 下部タイププレート）を選定
- ・ 詳細な燃焼条件、タイププレートの幾何形状、不純物組成の分析データ等を取得し、詳細な放射化計算条件を整備
- ・ モンテカルロ法を用いた詳細な放射化計算の手法を構築・評価し、安全評価等で用いられる簡易手法（ORIGEN）と比較
- ・ 下部タイププレートの各部分を採取し、重要核種の分析データを取得。また、イメージングプレート法により核種分布データを取得し、放射化計算との比較検討
- ・ 加速器質量分析法（AMS）を適用させることで、これまで分析が困難であった ^{36}Cl の定量を可能とし、極低濃度である ^{14}C のデータを取得
- ・ 溶出モデル（溶出率）に与える現実的な腐食速度、核種インベントリ、下部タイププレートの表面積（3D 構造、核種分布含む）の効果を確認し、それらに基づく溶出モデルを構築
- ・ 溶出モデルを用いて核種移行（安全評価）への影響・効果の評価

5 か年の検討の成果として、エンドピースの核種溶出を評価するために、実廃棄物のデータを取得し、核種インベントリや分布評価の基礎情報（分析・解析）を整備することで、これまでのインベントリモデルの保守性とその程度を把握した。また、溶出モデルの検討・高度化により、従来の溶出モデルの保守性、高度化した溶出モデルの適用性や不確実性を定量的に評価した。

ハル等廃棄体からの核種溶出モデルのさらなる信頼性向上のため、以下のような課題が挙げられる。

- ・ 長期溶出データのさらなる蓄積と金属腐食に伴う調和溶出モデルやハル酸化膜からの瞬時溶出モデルの妥当性の検討
- ・ ^{14}C 化学形態の評価として、極低濃度の ^{14}C 化学種の分析手法を構築・高度化し照射材の溶出試験の分析に適用、また、計算科学技術により溶出前後の生成メカニズムを評価する等実データの理解や説明性を向上
- ・ これまで BWR に関するデータを取得して来たことから、PWR に関するデータの拡充
- ・ 廃棄体モデルの代表性の検討として、使用済燃料の多様性や再処理プロセスに起因する核種インベントリの分布幅等、廃棄物の多様性を評価し、それらが安全評価に与える影響を提示

参考文献

- 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。
- 原子力安全基盤機構，平成 18 年度高燃焼度 9×9 型燃料信頼性実証成果報告書，付録 1，9×9A 型燃料照射後試験結果，2007。
- 東京大学タンデム加速器研究施設 MALT，加速器紹介，2020。 <http://malt.um.u-tokyo.ac.jp/introductionj.html>。
- Ando, Y., Yoshioka, K., Mitsuhashi, I., Sakurada, K., and Sakurai, S., Proc. the 7th International Conference on Nuclear Criticality Safety ICNC2003, October 20–24, Tokai, Ibaraki, Japan, 2003.
- Bleier, A., Neeb, K.H., Kroebel, R., Wiese, H.W., Carbon-14 inventories and behaviour in LWR spent fuel rods during reprocessing. Proc. Int. Conf. on Nuclear Fuel Reprocessing and Waste Management Recod 87, Paris 1987, Vol. 3, pp. 1089–1094, 1987.
- Croff, A.G., Nucl. Technol. 62, pp. 335–352, 1983.
- GoldSim Player User's Guide, Version 14.01. GoldSim technology group LLC, 2021.
- Guenther, R. J., Blahnik, D. E., Thomas, L. E., Baldwin D. L., and Mendel J. E., Proc. Spectrum 90 Conference, Sep. 30–Oct. 3, Knoxville, TN, 1990.
- Mibus, J., Diomidis, N., Wieland, E., and Swanton, S., Final synthesis report on results from WP2 (D2.18), Carbon-14 Source Term (CAST) Project Report, 2018.
- Necib, S., Ambard, A., Bucur, C., Caes, S., Cochin, F., Fulger, M., Gras, J. M., Herm, M., Kasprzak, L., Legand S., Metz, V., Perrin, S., Sakuragi, T., and Suzuki – Muresan, T., Final report on ^{14}C behaviour in Zr fuel clad wastes under disposal conditions (D3.20), Carbon-14 Source Term (CAST) Project Report, 2018.
- Neeft, E.A.C., Final overview of CAST (D7.23), Carbon-14 Source Term (CAST) Project Report, 2018.
- Sakuragi, T., Tanabe, H., Hirose, E., Sakashita and A., Nishimura, T., Estimation of Carbon 14 Inventory in Hull and End-piece Wastes from Japanese Commercial Reprocessing Operation, Proceedings of the ASME 2013, 15th International Conference on Environmental Remediation and Radioactive Waste Management, ICEM2013, September 8–13, 2013, Brussels, Belgium, 2013.
- Sakuragi, T., Yamashita, Y., Akagi, M., and Takahashi, R., Carbon 14 distribution in irradiated BWR cladding and released carbon 14 after aqueous immersion of 6.5 years,

- Procedia Chemistry 21, pp. 341–348, 2016.
- Sakuragi, T., Yoshida, S., Kato, O. and Tateishi, T., Study of stainless steel corrosion by hydrogen measurement under deoxygenated, low-temperature and basic repository conditions, *Progress in Nuclear Energy* 87, pp. 26–31, 2016.
- Shibata, K., Iwamoto, O., Nakagawa, T., Iwamoto, N., Ichihara, A., Kunieda, S., Chiba, S., Furutaka, K., Otuka, N., Ohsawa, T., Murata, T., Matsunobu, H., Zukeran, A., Kamada, S., and Katakura, J., *J. Nucl. Sci. Technol.* 48, pp. 1–30, 2011.
- Van Konynenburg, R.A., Behavior of carbon-14 in waste packages for spent fuel in a tuff repository. *Waste Management* 14, pp. 363–383, 1994.
- Yamaguchi, T., Tanuma, S., Yasutomi, I., Nakayama, T., Tanabe, H., Katsurai, K., Kawamura, W., Maeda, K., Kitao, H. and Saigusa, M., A Study on Chemical forms and Migration Behavior of Radionuclides in HULL Waste. *Proceedings of ICEM1999*, September, Nagoya, Japan, 1999.
- Yamashita, Y., Tanabe, H., Sakuragi, T., Takahashi, R., and Sasoh, M., C-14 release behavior and chemical species from irradiated hull waste under geological disposal condition, *Mater. Res. Soc. Symp. Proc.* 1665, pp. 187–194, 2014.

4.2 ニアフィールド構成要素の現象解析モデルの構築・高度化

4.2.1 目的と5か年の実施内容

TRU 廃棄物の地層処分施設は、構造材や充填材としてのセメント系材料、緩衝材としてベントナイト、廃棄体パッケージの鋼材など、複数の構成材料よりなる（電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構，2005）。処分施設閉鎖後における複数の異なる構成材料からなるニアフィールドの状態変遷を評価するため、セメント系材料と緩衝材の変質に関するデータが取得され、これらを表現できる解析モデルの構築が行われている（例えば，日本原子力研究開発機構，2019）。処分施設において、普通ポルトランドセメント(OPC)をベースとしたセメント系材料が用いた場合には、OPC と反応した地下水は高 pH(>13)となるため(Byfors, 1987; Diamond, 1983; Lothenbach and Winnefeld, 2006)、ニアフィールド環境が高アルカリ性となる可能性がある。このような、高アルカリ性環境は、ベントナイト緩衝材や母岩の物理的・化学的性質を変え、地層処分施設の長期性能に影響を与える可能性がある(Berner, 2004; Savage et al., 2007)。一方、高アルカリ性環境の形成を抑制するために、OPC に比べて浸出液の pH（例えば、11 以下）が低くなる先進的なセメント系材料の開発が行われている(Bodén and Sievänen, 2005; Mihara et al., 2008)。日本原子力研究開発機構（原子力機構）においては、フライアッシュやシリカフェームなどのポズラン材料を多量に用いることで、処分施設の建設において施工性や力学的特性を確保可能な低アルカリ性セメント (HFSC: Highly Fly-ash contained Silica-fume Cement) の開発が行われた(Iriya et al., 1999; Mihara et al., 2008)。しかし、このようなセメントの地下水との反応や緩衝材との相互作用に関する実験データやモデル化に関する研究は、OPC と比べるとはるかに少ない。このため、上述した先進的セメント系材料の一つである HFSC の地下水との反応挙動や HFSC と緩衝材の相互作用による変質挙動の将来予測に必要なデータ取得とモデルの高度化が必要となる。

本事業では、先進的セメント系材料を地層処分施設に用いた際に、ニアフィールドの状態変遷の評価が可能となるよう、先進的セメント系材料の地下水との反応挙動評価、先進的セメントー緩衝材相互作用評価モデルの高度化、及びナチュラルアナログによる緩衝材の長期安定性の検討を実施した。5か年の実施内容を図 4.2-1 に示す。

	平成30年度	平成31年度	令和2年度	令和3年度	令和4年度
1) 先進的セメント系材料の地下水との反応挙動評価	HFSCと地下水との反応に関わるデータ取得	水和モデルの改良・予備解析	実施計画検討 浸漬試験方法確認		成果取りまとめ
	二次鉱物の熱力学データの整備(C-(A)-S-H等)		HFSC水和物とMgCl ₂ 溶液等との反応データ取得・試験結果のモデル化		
2) 先進的セメントー緩衝材相互作用評価モデルの高度化	HFSC-緩衝材相互作用試験 (試験条件, 分析手法検討)	HFSC-緩衝材相互作用に関わる データ取得(接触界面分析等)		HFSC-緩衝材相互作用試験・分析	
	HFSC-緩衝材相互作用のモデル解析		反応モデルの構築のための熱力学データの整備(C-(A)-S-H,C-S-H鉱物等)	HFSC-緩衝材相互作用モデル解析・改良・妥当性確認	
3) ナチュラルアナログによる緩衝材の長期安定性の検証	アルカリ環境下の反応時間とスメクタイト化率の評価			アルカリ環境下のスメクタイト化に係る化学成分の影響評価	アルカリ変質プロセスにおける化学成分の影響とベントナイトの長期変遷モデルへの反映を考慮したとりまとめ
	アルカリ環境下のスメクタイト生成に関わる反応プロセスの評価				

図 4.2-1 5か年の実施内容

4.2.2 先進的セメント系材料の地下水との反応挙動評価

先進的セメント系材料の地下水との反応挙動評価として、HFSC との地下水との反応試験、C-S-H の浸漬試験及び C-A-S-H の合成方法の検討を行った(原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 2019)。HFSC と地下水との反応試験においては、従来の方法とは異なり、OPC クリinker、フライアッシュ、シリカシュームを出発物質とする浸漬試験を実施した。その結果、高液固比の条件において、従来の浸漬試験結果と異なる結果が得られた。高液固比では、OPC クリinkerで生成したポルトランドライトが全て溶解してしまうため、シリカフュームやフライアッシュのポゾラン反応が進行しにくかったものと考えられた。また、C-S-H の合成試験と NaCl 溶液への浸漬試験については、C-S-H の溶解モデルの高温への適用性 (~80°C)、高塩濃度への適用性(NaCl 濃度~0.64mol/L)を確認するためのデータを取得することができた。さらに、C-A-S-H については、3 種類の異なる方法で、合成を試みた。合成方法によっては、C-A-H の存在も確認された。

HFSC の地下水との反応挙動評価のための試験方法については、試験方法の見直しを図るための浸漬試験を実施した(原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 2020)。見直した試験方法では、HFSC の水和が十分に進行した試料を用い、試料を乾燥・粉砕することなく、HFSC と IEW や NaCl 溶液(濃度 0.64 mol/L)と反応させデータを取得することが可能となった。また、C-S-H の熱力学モデルの信頼性の向上については、温度条件を 20、50、80°C で実施した C-S-H の合成・浸漬試験結果 (IEW 及び NaCl 溶液) について、原子力機構で開発した温度の依存性を考慮した C-S-H の溶解度モデル (Walker et al., 2016)を用いた計算結果と比較した。その結果、IEW については、Si 濃度について課題が残るものの C-S-H の浸漬試験結果を再現することができた(図 4.2-2)。NaCl 溶液については、pH については試験結果を再現することができたが、Ca 濃度及び Si 濃度の再現性については課題が残された(図 4.2-2)。C-A-S-H の合成・浸漬試験については、C₃S、SiO₂ 及び C₃A を出発物質として A/S=0.1 で C/S=0.4~2.0 となるように C-A-S-H を合成し、NaCl 溶液を用いた浸漬試験を実施することで、C-A-S-H の溶解・沈澱モデルの開発に反映するためのデータを取得した。さらに、HFSC と地下水の反応試験結果に対して、予備的に構築した C-A-S-H の溶解・沈澱モデルを導入した HFSC のモデルの計算結果とを比較することによりモデルの適用性を検討した。その結果、IEW については、モデル計算値は、試験結果を概ね再現することが確認できた。また、C-A-S-H のモデルが導入されていないモデル計算値との比較から、Al 濃度の再現性が大きく向上した。なお、NaCl 溶液についてもモデル計算値は、試験結果を概ね再現しているが、Si 濃度については、モデルの見直しが必要であった。

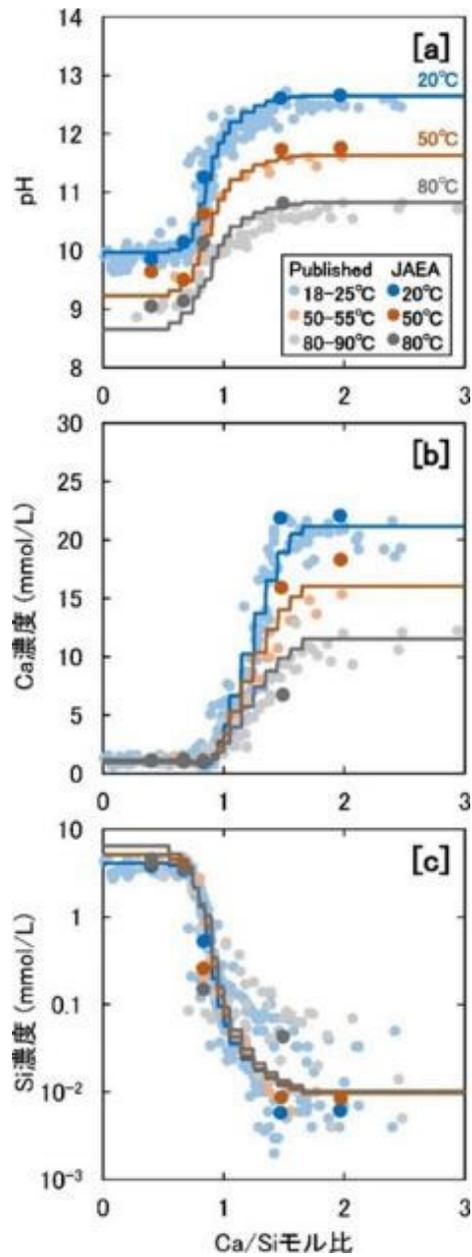


図 4.2-2 C-S-H のイオン交換水 (IEW) への浸漬試験結果とモデル計算値との比較
 (実験値には、既往の報告値を含む。原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究
 開発機構, 2019)

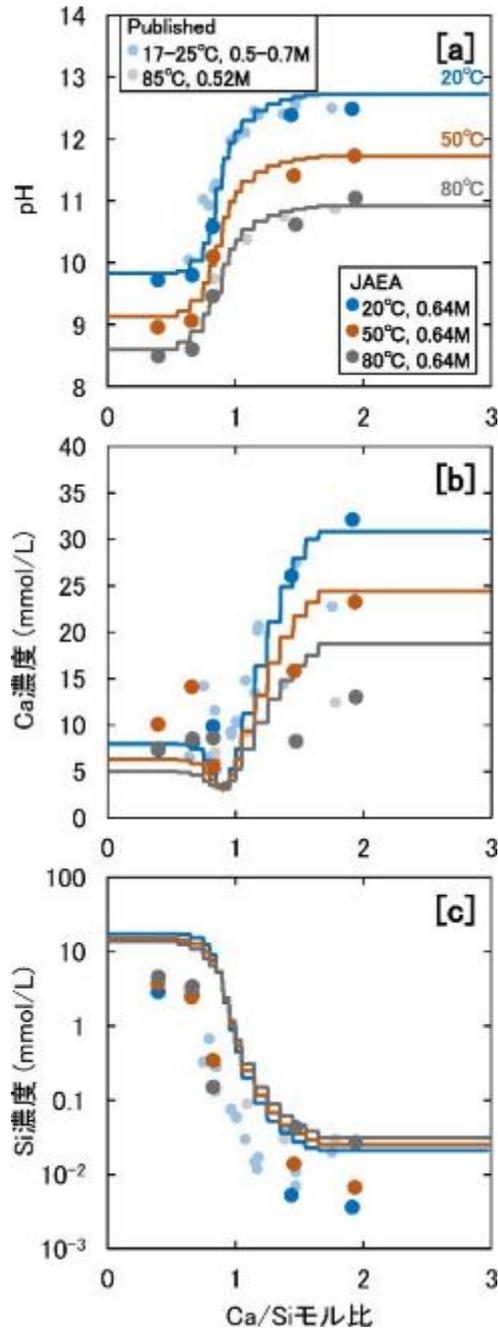


図 4.2-3 C-S-H の NaCl 溶液への浸漬試験結果とモデル計算値との比較
 (実験値には、既往の報告値を含む。原子力環境整備促進・資金管理センター，日本原子力研究
 開発機構, 2019)

試験方法の見直しに関しては、試料の前処理方法を変化させるなどして、4 種類の方法で浸漬試験を行い、浸漬液組成や水和物の存在状態などへの影響について確認を行った (図 4.2-4) (原子力環境整備促進・資金管理センター，日本原子力研究開発機構, 2021)。試料の乾燥方法 (真空乾燥、相対湿度 11%の乾燥) による違いは確認されなかった。スラリー状態で準備した試料の試験結果は、従来のセメント硬化体を乾燥・粉砕する方法とで、低液固比の Ca 濃度について違いが見られたが、他の結果については、ほぼ同じ結果であることが確認された。スラリー試料を用いた試験方法 (方法 4) は、実際に処分施設に使用する HFSC の水セメント比に比べ、4~7 倍の

水の量で反応させたものであり、実際の使用を想定した場合の水セメント比とは異なるものの、試料の乾燥・粉砕といったプロセスは生じず、PHREEQC等の化学反応モデルにて、モデル化が容易であることから、HFSCの化学反応モデル開発のための浸漬試験として考えれば、適切な方法であると考えられた。

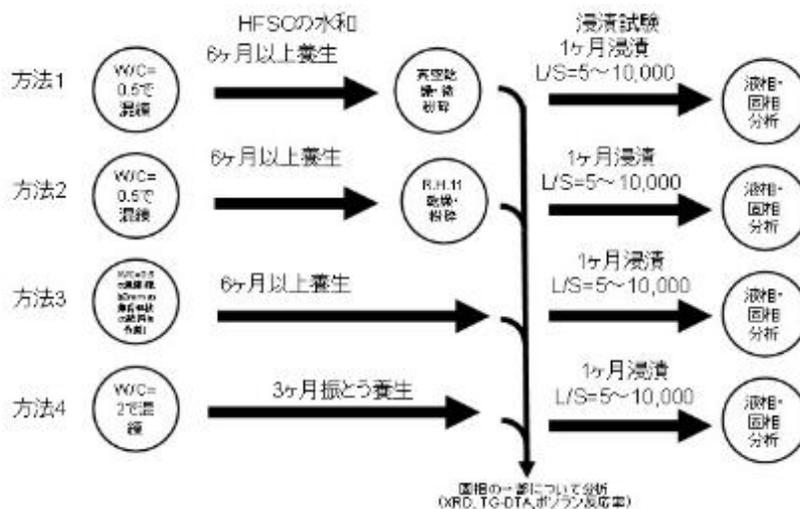


図 4.2-4 HFSC の浸漬試験方法の比較 (原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 2020)

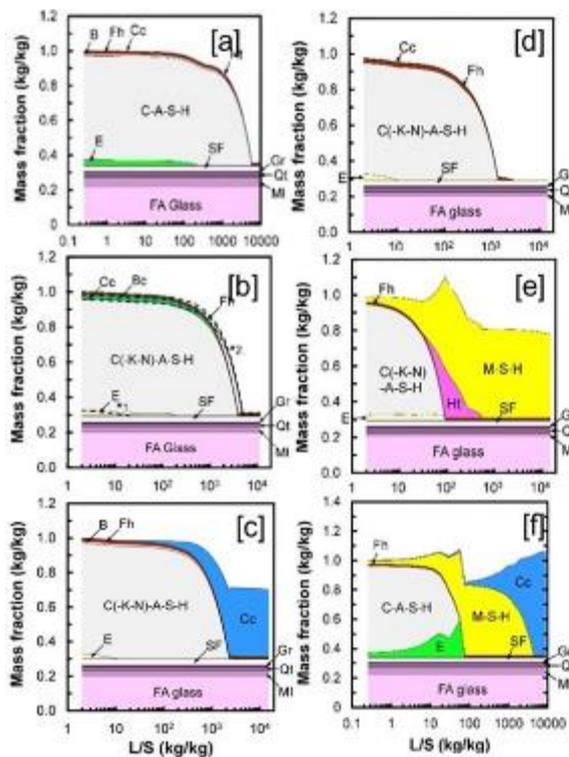
多様な地下水組成での HFSC モデルの適用性検討に資するため、 $MgCl_2$ 溶液系での浸漬試験を行った。先進的セメント系材料と地下水との反応挙動評価モデル開発にあたり必要となる、セメントの主要水和物である C-S-H や CSH 鉱物の熱力学データの信頼性向上に関わる取り組みとして、令和 2 年度は、平成 31 年度に合成した C-S-H を用いた加熱試験により、CSH 鉱物を合成するための試験条件等を把握するため、Ca/Si 比=0.833 の C-S-H を対象に、トバモライト-14Å の合成試験を行った。その結果、液/固比=20、60°C の条件で 77 日程度の期間、振とう・加熱することにより、トバモライト-14Å を合成可能であることを確認できた。また、今後、合成した CSH 鉱物等の熱力学データ整備を行うことを念頭に、ポルトランドイト ($Ca(OH)_2$) を例に熱容量測定を試験を大阪大学との共同研究として実施した。令和 2 年度の試験により、大阪大学の装置を利用することで、既往の報告値の誤差範囲に収まるような信頼性のある測定値を得ることができ、鉱物の熱容量測定に関わる測定方法や測定値の妥当性を確認することができた。

地下水組成の多様性に対する HFSC モデルの適用性検討の一環として、人工海水相当の SO_4 濃度環境下での HFSC 浸出挙動への影響を把握するため、 Na_2SO_4 溶液中での HFSC の浸漬試験を行った。HFSC のモデル化を進めるにあたり、HFSC を模擬する構成要素として、C-S-H と AFt (エトリンガイト) に単純化した系や $MgCl_2$ 溶液系での C-S-H の浸漬試験も行った(原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 2022)。令和 2 年度とは異なる CSH 鉱物 (トバモライト-11Å 及びジェナイト) を合成するための試験条件等を把握するため、Ca/Si =0.883 及び 1.500 の C-S-H を使い、各々、120°C 及び 80°C の条件で合成試験を行った。その結果、トバモライト-11Å については合成条件を確認できたものの、ジェナイトについては、再試験の必要性が確認された。CSH 鉱物等の熱力学データ整備の一環として、エトリンガイト及びモノサルフェートを対象に熱容量測定を試験も行い、大阪大学の装置を利用することで、適切なデータ取得が可能である見通しを得た。令和 2 年度に検討した $NaCl$ 溶液系での HFSC 浸漬試験に

対するモデルの適用性検討で課題として挙げられた Na-Si 錯体による溶液中の Si 濃度へ影響については、C-S-H の溶解度評価の観点でも重要であるため、これらの錯体に関わる熱力学データの信頼性を確認するための文献調査を継続し、JAEA TDB への取り込みについては、現状では保留にするのが望ましいと判断された。また、令和 2 年度に参加した国際会議での C-A-S-H の浸漬試験における試験期間に関わる情報を参考に、C-A-S-H の溶解・沈澱モデルの開発に反映させるため、3 カ月以上の浸漬期間を前提にした浸漬試験の準備として、試験に使用する C-A-S-H の合成を行い、試験を開始した。C-A-S-H モデル開発の一環として、これまでに検討してきた固溶体モデルに基づいた手法に加え、C-A-S-H のゲル構造を考慮し、熱力学データ (ΔG_f^0) を求める手法 (polyhedral モデルアプローチ : PMA) による評価も行い、C-A-S-H の浸漬試験で得られたデータとの比較・検討も行い、PMA の有効性を確認した。HFSC と地下水の反応試験として実施した NaSO₄ 溶液系での試験結果に対して、HFSC の溶脱モデルの適用性について検討した。HFSC を模擬する構成要素として、C-S-H と AFt に単純化した系でのモデルの適用性についても検討した。HFSC を近似する構成要素の一つとして C-S-H を対象に MgCl₂ 溶液との反応試験結果に対して、C-S-H の溶脱モデルの適用性についても検討した。

地下水組成の多様性として、人工海水相当の CO₃ 濃度環境下を対象とし、HFSC 浸出挙動への影響を把握するため、Na₂CO₃ 溶液中での HFSC の浸漬試験を行った。また、これまでに行った様々な溶液条件に対しての HFSC の水和・溶脱に関わる試験結果とモデル化の結果を集約・整理も行った (図 4.2-5) (原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 2023)。CSH 鉱物 (ジェナイト) の合成については、非晶質シリカである AeroSil200 を用いた再試験を 85°C で行ったが Ca/Si=1.500 のアフウィライトの合成が示唆され、ジェナイト合成に係る温度条件の見直しが課題として残された。CSH 鉱物の熱力学データの信頼性向上の一環として実施した大阪大学との共同研究では、メタエトリンガイトの Cp について緩和型 (PPMS) 及び断熱側 (Adiabatic) 熱量測定装置を用いた測定により、理想的なデータが取得され、導出された熱力学諸量 (例えば S⁰) は、既往の報告例と誤差範囲で一致することを確認した。また、温度条件を変えてエトリンガイトの溶解度測定を行い、既往の報告値の誤差範囲内に含まれる妥当な溶解度積の値を温度依存性も含め取得可能になった。C-A-S-H については、従来の手法であるクリンカー鉱物を出発物質とした合成方法に加え、カトアイト (C₃AH₆) に飽和した溶液を用いた合成方法も試行し、後者の方がより短期間で C-A-S-H 以外の不随物の生成を抑制し、C-A-S-H を合成可能である見通しを得た。熱力学データベースの更新については、5 ヶ年の検討を踏まえデータベースの更新準備を行うと共に、個別のデータ評価やアップデートしては、セメント影響で想定される高 pH 条件における Si の化学種 (単量体である H₃SiO₄⁻や H₂SiO₃⁻や Na 等との錯体である NaSiO(OH)₃ 等) の信頼性について評価し、前者の単量体については、本事業の中で見直し (再評価) を図った。

上述したような 5 か年の実施により、HFSC と水との反応試験における HFSC 浸出挙動の評価で必要となる水和・溶脱のモデルの高度化が図られ、これまで IEW のような単純な溶液系に加え、人工海水中の各成分 (Mg, SO₄, CO₃ 等) の濃度に準拠したような溶液系に対してもモデルの適用性を概ね確認することが可能になった。また、HFSC の水和・溶脱モデルの適用性確認を進める上で重要となる C-S-H や C-A-S-H 等の熱力学データについても、より信頼性の高いデータを取得し、熱力学データベースの更新に反映させることができた。一方、5 か年の検討を通じて抽出された課題 (例えば、HFSC の浸出挙動評価に関しては、これまでに開発してきた HFSC の水和・溶脱モデルの実際の地下水条件への適用性検討、C-S-H や C-A-S-H 等の熱力学データ整備に関しては、室温よりも高い温度条件を対象にしたデータ整備等) については、今後の課題として整理した。



反応溶液	C-A-S-Hゲルの消失が推定される液固比(L/S)	二次鉱物種 (XRD分析結果)
[a] IEW	6485	—
[b] 0.029 M Na ₂ SO ₄	4205	Ettringite
[c] 0.002 M Na ₂ CO ₃	2306*	Calcite
[d] 0.64 M NaCl	1316	—
[e] 0.054 M MgCl ₂	90	Hydrotalcite, M-S-H
[f] SW	58	Ettringite, M-S-H, calcite

図 4.2-5 様々な溶液条件に対しての HFSC の水和・溶脱に関わる試験結果とモデル化の結果の集約・整理 (原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 2023)

4.2.3 先進的セメント－緩衝材相互作用評価モデルの高度化

TRU 廃棄物の地層処分では、支保工および充填材に使用されるセメントがそれぞれ緩衝材と接触することで緩衝材が変質する可能性がある。ナチュラルアナログ研究やバッチ試験などがよく行われているが、セメント硬化体とベントナイトとを接触させて試験した事例は少ない。特に、低アルカリ性セメントの一つである HFSC を用いたセメント系材料については、ベントナイトを接触させた条件での試験を行った事例はこれまでなかった。

本事業では、セメント－ベントナイト接触試験を行って各種の分析を実施するとともに、化学反応と物質輸送とを連成させたモデルで再現解析を行った。

(1) セメント－ベントナイト接触試験

HFSC を用いることによるベントナイトの変質の抑制効果の評価や HFSC とベントナイトの相互作用に関するデータの取得を目的に行うため、平成 30 年度および平成 31 年度に低アルカリ性セメント (HFSC)－ベントナイト接触試験体 (以下、「HFSC 接触試験体」という) を作製し、接触試験体を一定期間加熱した後、接触界面近傍の HFSC 及びベントナイトの分析を行った(原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 2019; 2020)。なお、HFSC との比較を行うために、普通ポルトランドセメント (OPC)－ベントナイト接触試験体 (以下、「OPC 接触試験体」という) に関しても、同様の試験及び分析に供した。本事業で作成した接触試験体の試験条件を表 4.2-1 に示す。また、試験終了後の試料について実施した分析項目を表 4.2-2 および表 4.2-3 に示す。

試験体の分析により、HFSC 試験体に関しては、ベントナイト側界面において、鉍物の顕著な溶解および沈殿は確認されておらず、スメクタイトの Ca 型化が確認されている (図 4.2-6 左)。また、セメント側界面では、界面から 1mm 程度までの範囲で密度の低下および Ca 濃度の低下が確認されており、HFSC から溶脱した Ca がベントナイトに供給され、スメクタイトの層間陽イオン組成が変化したと考えられる。

また、比較対象とした OPC 試験体では、ベントナイト側界面において密度が増加しており、種々の分析により、シリカ粒子の溶解、C-S-H 様鉍物の沈殿及びスメクタイトの K 型化が確認された (図 4.2-6 右)。セメント側界面では、HFSC と比較して狭い領域で、密度の低下と Ca 濃度の低下が確認されている。OPC の間隙水は HFSC のものと比較して pH が高いため、OPC から浸出した溶液に接触したベントナイト中のシリカ鉍物が溶解し、C-S-H として沈殿した可能性が考えられる。またスメクタイトに関しては、湿式分析で界面近傍における溶解を示唆するような結果が得られているが、顕微鏡観察では顕著な溶解を示すような産状は確認されていない。中林ら(2013)は圧縮ベントナイトに水酸化ナトリウムを通水した試験により、通水初期にはシリカ鉍物の溶解によりモンモリロナイトの溶解が抑制されることを報告しており、OPC 試験体でも同様のプロセスが働いていると考えられる。

両試験結果を比較すると、HFSC の場合では OPC の場合と比較して、ベントナイト側の変質がほとんど生じていない結果が得られている。他の低アルカリセメントとベントナイトの相互作用に関しては、Yokoyama et al.(2021)が Mont Terri で行われた CI 試験の試料分析から、低アルカリセメントである LAC とベントナイトの相互作用により、ベントナイト側に Mg を含む鉍物 (e.g.,M-S-H)の生成を報告している。本試験とはベントナイト試料や試験条件が異なるため直接的な比較は難しいが、このような試料と比較して HFSC ではベントナイト側での変質が生じにくいと推察される。

本検討では、上記の接触試験と合わせて、 μ -XRF、 μ -XCT、FIB-SEM、BIB-SEM 及び TEM を用いた分析の適用性についても検討を行ってきた。

μ -XRF に関しては、接触試験体全体から界面近傍にかけて、元素分布および密度の変化に関する情報を取得する事が可能であった。透過 X 線強度に関しては、試験条件等による不確実性があるものの、密度（間隙率）の推定に適用可能であることを確認した。

μ -XCT に関しては、湿潤状態での密度分布を確認可能である一方、分解能を向上させた分析の必要性が確認された。

FIB-SEM および BIB-SEM に関しては、両手法による表面加工により、研磨で生じたダメージがない状態の表面について観察・分析が可能であった。FIB では加工可能な面積が小さいため、より広範囲の加工が可能な BIB 加工の方が本分析には適していると考えられる。

TEM に関しては、同試料への本手法の適用性と、試料ダメージを低減するためのクライオホルダーの使用の有効性について確認することができた。本手法により、界面近傍の微小領域において、鉱物および元素の分布を確認可能である。また、令和 4 年度は EDS 分析の際にクライオホルダーを用いることで、元素分布によるダメージを軽減し、その情報をもとに電子回折の分析点の選定を行うことが可能であった。一方で、一部試料の電子回折では分析過程で非晶質化した可能性が示唆されており、今後は電子回折でもクライオホルダーを用いた分析が必要と考えられる。

表 4.2-1 本事業で作成した接触試験体の試験条件と分析状況

ID	セメント種	サイズ	ベントナイト側 試験溶液	加熱温度 (°C)	加熱期間 (yr)	取り出し ・分析年度
HFSC-1cm-1	HFSC	φ2×1cm	イオン交換水	80	0.25	H31
HFSC-1cm-2	HFSC	φ2×1cm	イオン交換水	50	1.25	R2
HFSC-1cm-3	HFSC	φ2×1cm	イオン交換水	80	1.25	R2
HFSC-3cm-1	HFSC	φ2×3cm	イオン交換水	50	2	R3
HFSC-3cm-2	HFSC	φ2×3cm	イオン交換水	50	3	R4
HFSC-3cm-3	HFSC	φ2×3cm	イオン交換水	80	3	—
HFSC-3cm-4	HFSC	φ2×3cm	0.64M NaCl溶液	50	1	R3
HFSC-3cm-5	HFSC	φ2×3cm	0.64M NaCl溶液	50	2	—
OPC-1cm-1	OPC	φ2×1cm	イオン交換水	80	0.25	H31
OPC-3cm-1	OPC	φ2×3cm	イオン交換水	50	1.25	R2
OPC-3cm-2	OPC	φ2×3cm	イオン交換水	50	2	—
OPC-3cm-3	OPC	φ2×3cm	イオン交換水	80	1	R3
OPC-3cm-4	OPC	φ2×3cm	0.64M NaCl溶液	50	2	—

※灰色は試験中の試験体

表 4.2-2 試験後試料に対する固相分析項目（その1）

ID	EPMA	μ -XRF /透過X線	μ -XCT	μ -XRD	p-XRD	RH-XRD	LC	湿式分析
HFSC-1cm-1	○	○		○				
HFSC-1cm-2	○	○	○	○	○	○	○	
HFSC-1cm-3	○	○	○	○	○	○	○	
HFSC-3cm-1	○	○	○	○	○	○	○	○
HFSC-3cm-2	○	○	○	○	○	○	○	○
HFSC-3cm-3								
HFSC-3cm-4	○	○	○	○	○	○	○	○
HFSC-3cm-5								
OPC-1cm-1	○	○		○				
OPC-3cm-1	○	○	○	○	○	○	○	
OPC-3cm-2								
OPC-3cm-3	○	○	○	○	○	○	○	○
OPC-3cm-4								

※灰色は試験中の試験体

※(分析項目)EPMA：電子プローブマイクロアナライザ分析、 μ -XRF：微小部蛍光X線分析、 μ -XCT：マイクロフォーカスエックス線断層撮影、 μ -XRD：微小部X線回折分析、p-XRD：粉末X線回折分析、RH-XRD：相対湿度制御X線回折分析、LC：浸出陽イオン量分析(SFSA法)

表 4.2-3 試験後試料に対する固相分析項目（その2）

ID	偏光顕微鏡	FE-SEM	FIB-SEM	BIB-SEM	TEM
HFSC-1cm-1	○	○			
HFSC-1cm-2	○	○	○		○
HFSC-1cm-3	○	○	○	○	
HFSC-3cm-1				○	○
HFSC-3cm-2				○	○
HFSC-3cm-3					
HFSC-3cm-4				○	○
HFSC-3cm-5					
OPC-1cm-1	○	○		○	○
OPC-3cm-1	○	○	○	○	○
OPC-3cm-2					
OPC-3cm-3				○	○
OPC-3cm-4					

※灰色は試験中の試験体

※(分析項目)FIB-SEM：フォーカスイオンビーム(FIB)により試料表面の前処理後にSEM観察、BIB-SEM：ブロードイオンビーム(BIB)により試料表面の前処理後にSEM観察、TEM：FIB法により作成した薄膜試料を透過型電子顕微鏡にて観察

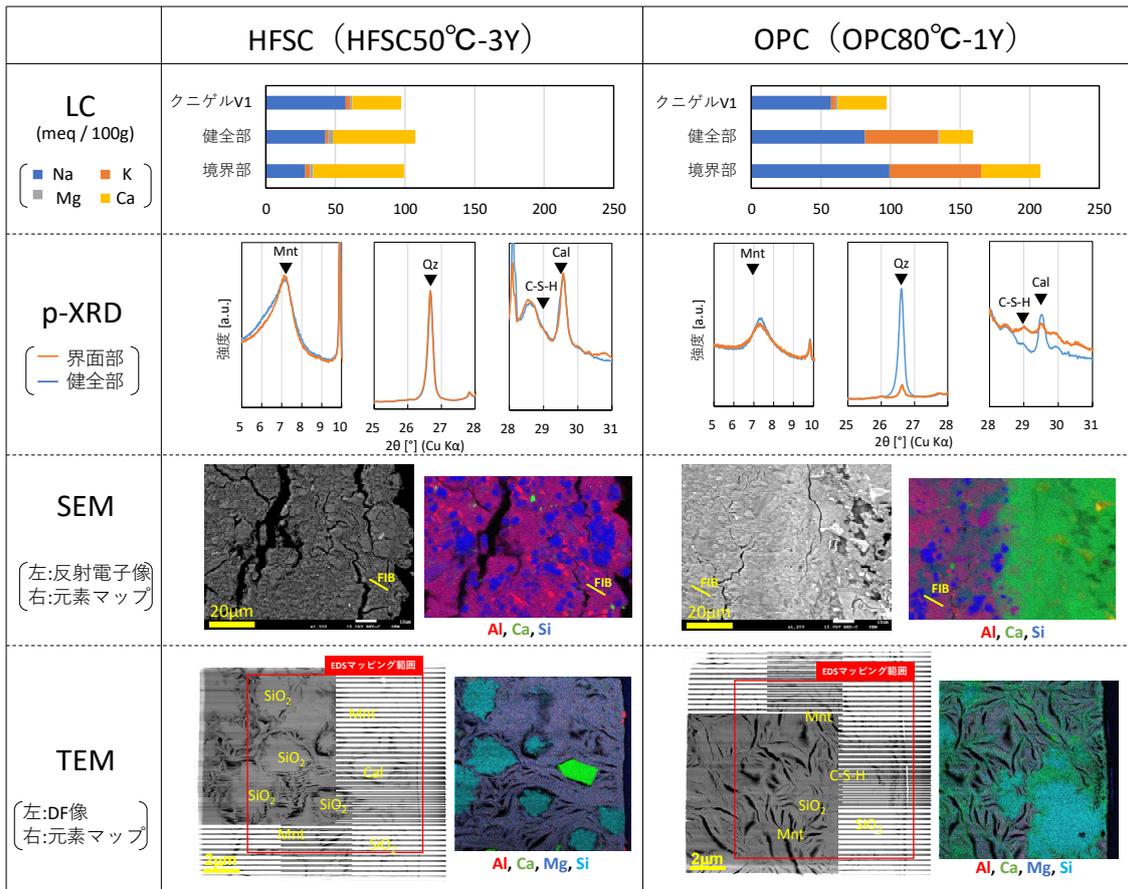


図 4.2-6 HFSC 及び OPC 接触試験体のベントナイト側界面の分析結果の一例

(2) 化学反応—物質輸送連成モデルによる解析

原子力機構ではこれまで、HFSC を含めたセメントと緩衝材の相互作用を評価するための化学反応—物質輸送連成モデルの開発を行ってきた (日本原子力研究開発機構, 2018)。このモデルで上記のセメント—ベントナイト接触試験の再現解析を行い、その結果を試験結果と比較することでモデルの高度化を図った。具体的な改善内容は以下のとおりである。

・セメント地球化学モデルの更新

反応—物質輸送連成モデルの一部を構成するセメント地球化学モデルは、熱力学的平衡計算によってセメントの水和・変質を予測するものであり、C-S-H ゲルによるアルカリ取り込みを扱っている。改善前のモデルではこの取り込みを表面錯体反応として表現していたが、4.2.2 での成果として、分配係数を用いて表現した方が間隙水化学組成の再現性が高いことが示されたため (原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 2019)、後者を導入した。また、C-A-S-H ゲルの溶解度積は 25°C のデータしかないために既存モデルではカトアイトと C-S-H ゲルを用いて C-A-S-H ゲルを表現していたが、高温における C-A-S-H ゲルの溶解度積を類似鉱物から推定し、高温で行った接触試験の解析においても C-A-S-H ゲルを扱えるようにした。

・最小グリッド幅の見直し

改善前のモデルで表 4.2-1 の HFSC-1cm-1、OPC-1cm-1 の試験再現解析を行ったところ、どちらの体系でも、接触界面付近のベントナイト及びセメントの変質幅が観察結果よりも大きく計算された (原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 2020)。そこで、変質幅に与える影響が大きいと考えられる最小グリッド幅、実効拡散係数、ゼオライトの設定につ

いて感度解析を行った。その結果、最小グリッド幅の設定が解析結果に大きな影響を与えることが明らかになったため(原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 2021)、観察で得られた不均質性の情報から代表要素体積の条件を満たすグリッド幅を求めた(図 4.2-7)。これを参考に最小グリッド幅を 50 μm とした(原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 2022)。

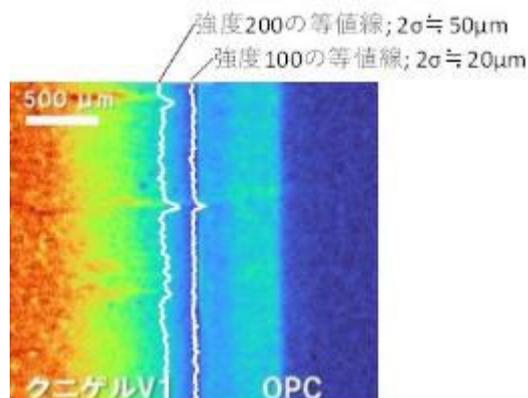


図 4.2-7 OPC-ベントナイト接触体系試験体(50 $^{\circ}\text{C}$ 、1年)の透過 X 線強度(令和 2 年度取得)における X 線強度の等値線

・二次鉱物設定の見直し

上記の感度解析ではゼオライトの沈殿の有無が結果に与える影響は小さかったものの、接触試験ではゼオライトの沈殿が生じていなかったことから、ゼオライトの沈殿を制限した。

以上の改善により、表 4.2-1 に示した試験のうち、ベントナイト側試験溶液がイオン交換水のものについては、試験結果をおおむね再現できるようになった。モデルの改善点を示すため、平成 31 年度及び令和 4 年度のモデルで HFSC-3cm-1 の試験(50 $^{\circ}\text{C}$)の再現解析を行った結果を図 4.2-8、図 4.2-9 に示す。平成 31 年度のモデルではゼオライト類が沈殿する、ベントナイト側モンモリロナイトが Ca 型化しない、界面付近で HFSC の間隙増加が起こらない、といった点が観察結果と相違していた。令和 4 年度のモデルではそれらの相違が解消された。

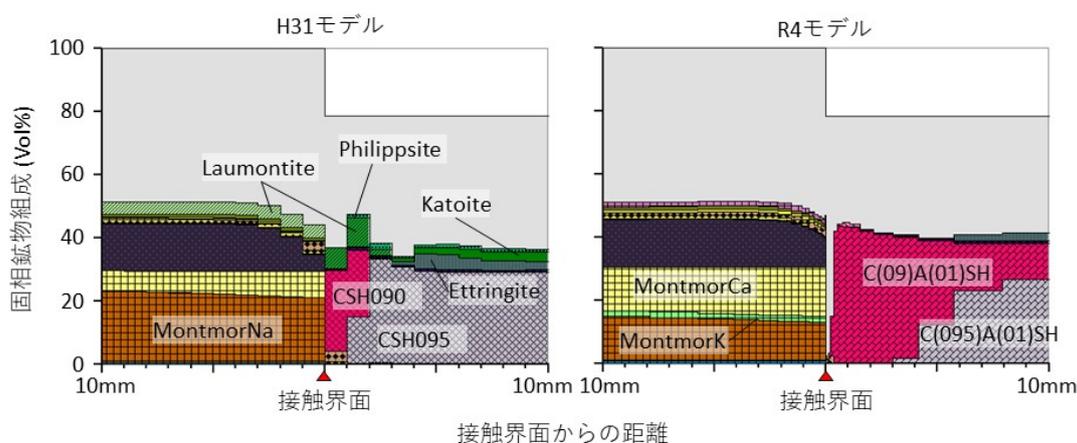


図 4.2-8 H31 年度モデルと R4 年度モデルの、接触界面近傍の鉱物組成分布の比較 (HFSC 3cm イオン交換水 50 $^{\circ}\text{C}$ 3Y の体系)

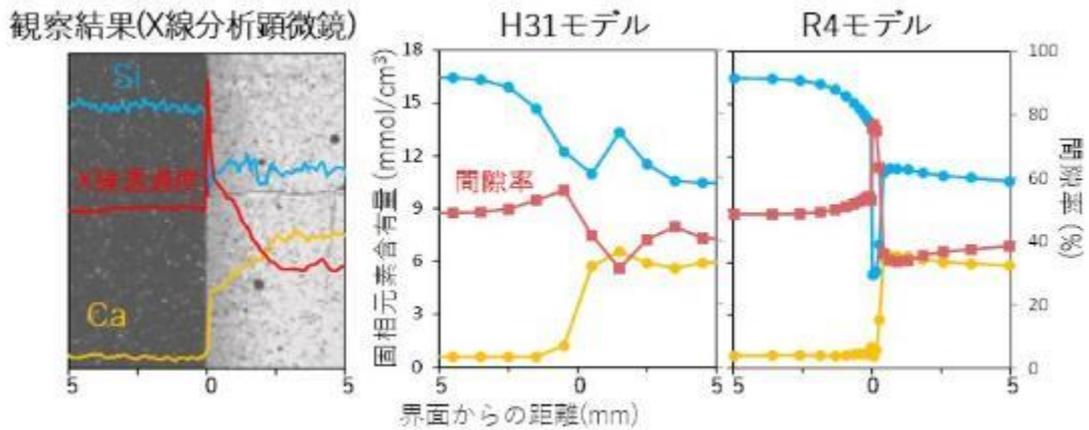


図 4.2-9 接触界面近傍の観察結果とモデル計算値の比較
(HFSC 3cm イオン交換水 50°C 3Y の体系の、空隙率、固相 Ca、Si 含量を示す)

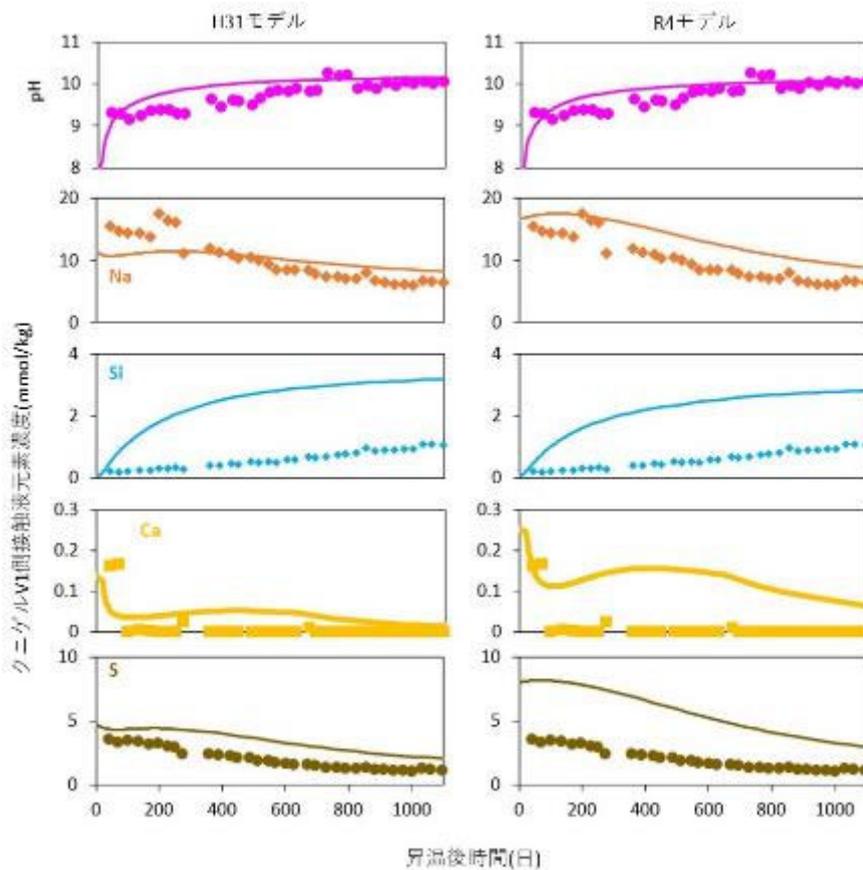


図 4.2-10 クニゲル V1 側接触液組成の時間変化の比較
(HFSC 3cm イオン交換水 50°C 3Y の体系)

ただし、改善後のモデルにおいても、C-(A)-S-H ゲル、エトリンガイト、モノサルフェートについては溶解が過小評価(もしくは沈殿が過大評価)される傾向が見られた。これらの鉱物の熱力学データと速度論データについては感度解析を行い、速度論データよりも熱力学データを変動させた方が観察結果に近づくことが明らかになったが、熱力学データベースに記載された不確実性の範囲内では解析結果は大幅には変わらなかった(原子力環境整備促進・資金管理センター、日本

原子力研究開発機構, 2023)。また、クニゲル V1 側接触液の化学組成についても、pH や Na 濃度については概ね再現されているものの、その他の元素濃度についてはまだ改善の余地がある（図 4.2-10）。観察結果との整合性をより向上させるためには、沈殿を想定する鉱物の種類、変質したベントナイトにおける拡散係数などの検討が必要になると考えられる。また、より長期的な視点ではゼオライトの沈殿も起こると考えられ、どの時間スケールからゼオライトの沈殿を想定すべきか検討する必要があると考えられる。

4.2.4 ナチュラルアナログによる緩衝材の長期安定性の検証

(1) 調査概要

構造材や充填材としての HFSC 等のセメント系材料、緩衝材としてベントナイト、廃棄体パッケージの鋼材など、複数の構成材料よりなる TRU 廃棄物の地層処分施設において、HFSC から高アルカリ浸出水との相互作用に伴う変質挙動の長期評価に必要な現象解析モデルの開発とそれに必要なデータ取得に加え、ナチュラルアナログにより長期挙動の直接的な証拠を取得してベントナイトの長期変質プロセスの現象理解を深め、TRU 廃棄物処分場のベントナイト系緩衝材の現象解析モデルに知見を反映することや、アルカリ環境下での長期間健全性の根拠として活用することが TRU 廃棄物の処分事業の安全性を示すうえでも重要である。

TRU 廃棄物の処分環境における HFSC の浸出水相当の高アルカリ性流体が天然でみられるナチュラルアナログサイトとして、大規模なオフィオライトが分布し、蛇紋岩化作用 (Barnes・O'Neil, 1969 ; Frost・Beard, 2007 ; Marques et al., 2008) に伴うアルカリ地下水の湧水がみられるフィリピンのルソン島北西部とパラワン島中部が挙げられる。

ルソン島北西部の Saile 鉱山のナチュラルアナログでは (原子力環境整備促進・資金管理センター, 2013)、天然のベントナイトとアルカリ地下水との長期にわたる相互作用によって明確な変質層を確認したが、アルカリ変質が生じていても、Fe、Mg に富むスメクタイト系粘土鉱物などの二次鉱物によるクロッキングにより、変質領域は数 mm に限定され、大部分のベントナイト鉱床が未変質のまま残存していることが確認された。ただし、Saile 鉱山のナチュラルアナログサイトでは既にアルカリ地下水の供給は止まっているため、相互作用によるアルカリ変質反応後の痕跡は観察できるが、アルカリ地下水の水質や浸出時の環境条件に加えアルカリとの反応時間も明確でないため、アルカリの条件や溶解-沈殿-結晶化に至る変質プロセスの評価が困難であった。そのため、現在もアルカリ性地下水が流出している候補サイトを探索し、苦鉄質の堆積物にアルカリ地下水が浸出し、先の Saile 鉱山のナチュラルアナログでもみられた高アルカリ環境下における二次鉱物としての Fe、Mg に富むスメクタイト系の生成物を確認したパラワン島中部の Narra 地区において詳細な調査を実施している (原子力環境整備促進・資金管理センター, 2016)。

これまでのフィリピンでのナチュラルアナログ調査 (原子力環境整備促進・資金管理センター, 2018) から、スメクタイトを溶解させる要因となるアルカリは条件によってはスメクタイト系の二次生成物を生成する要因にもなることが明らかになった。ルソン島ではこのような二次鉱物のスメクタイトが物質移行や反応を抑制していることから、どのような環境・条件でアルカリ変質によりスメクタイトが生成するのかを明らかにすることが、処分場でのアルカリ変質の現象解析モデルにおいて有益なナチュラルアナログ情報になると考えられる。

そのため、本事業においては、パラワン島 Narra 地区のナチュラルアナログサイトの試料分析に基づき、二次鉱物の組成や産状等アルカリ変質プロセスに係る現象の理解をすすめ、類似事例の先行研究や地球化学計算による検討結果も併せて、アルカリ変質によりスメクタイト化に進む環境要因を特定する。そして、これらの検討結果から TRU 処分場のベントナイトのアルカリ環境下での長期挙動のナチュラルアナログ情報としてとりまとめる。

1) パラワン島 Narra 地区の調査サイトの概要

ナチュラルアナログサイトであるパラワン島 Narra 地区の調査サイトには、パラワンオフィオライト基盤岩の断裂系より湧水する裂隙水が、当サイトのアルカリ源泉地点(Narra3-1)を基点として、東方に開いた河川系扇状地様の緩慢な傾斜に沿って表層部を流下し、トラバーチン (石灰華) 起源のルーズな炭酸塩沈殿物が地表に分布している。その下に Fe、Mg を含むスメクタイトに富む碎屑性堆積物が形成されている。これは、パラワンオフィオライト (超苦鉄質複合岩体)

が定置後(33~23 Ma (Aurelio et al., 2010, 2013))、パラワンオフィオライトの風化—浸食—破碎—運搬—堆積による碎屑性堆積物の形成、碎屑性堆積物中に浸透する高アルカリ地下水との相互作用と解釈することができる(原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機, 2019)。トレンチ7の底面近傍(現地表面から約2m)のみに、降下火山灰堆積物が連続性のある水平で北東系走行をもつ層厚約20cmで挟在している。この起源は、パラワン島近傍にある火山の火山活動により風に運ばれて堆積し、局所的に残存しているものと推察される。

調査サイトのトレンチ1~7及びすべての試錐孔内水はアルカリ地下水(pH > 11)であり、このアルカリ地下水の水理場やその流動系から、上位の砂質で粗粒な碎屑性堆積物、下位の泥質な碎屑性堆積物ともアルカリ地下水と確実に接触する地球化学的な環境である(原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機, 2019)。また、高pHに加え、温度が高く、酸化還元電位が低いことはTRU廃棄物の地層処分環境でのHFSC浸出水との類似性を示している。また、堆積物中のヒューミンの¹³Cから推定された過去の水環境の変化から、扇端のトレンチ6,7では海水~汽水環境を経験しているのに対して、扇央の浅部であるトレンチ2では現在のアルカリ地下水が支配的な環境であったとみられる(Shimbashi et al., 2020)。

(2) ナチュラルアナログ試料の分析・微細構造の観察

Narra地区のナチュラルアナログサイトにおいて、堆積年代の異なる5か所のトレンチ(トレンチ2, 3, 5, 6, 7)の試料について分析を実施した。本事業における主なトレンチの分析試料と分析項目を表4.2-4に示す。トレンチ7の降下火山灰堆積層(PWT07-17-Rh-C03)を除く表4.2-4に示すトレンチの分析試料は全て苦鉄質のかんらん岩や蛇紋岩を原岩とするFe, Mgに富む碎屑性堆積物である。

表 4.2-4 分析試料と分析項目一覧

試料番号	分析方法	XRD, XRF	PLM	SEM, EPMA	TEM STEM	EELS	Remarks
PWT02B-15-C1-002		H27	R4	R4			トレンチ2底部【2413±82年】。C-S-Hと共生するSmが顕著。
PWT02B-15-C2-1-001		H27	R4	R4			トレンチ2底部【2413±82年】。C-S-Hと共生するSmが顕著。
PWT02B-15-C2-2-001		H30 R4	H30*	H31	H31 R4	R3	トレンチ2底部【2413±82年】。C-S-Hと共生するSmが顕著。
PWT03-16-C2-001		H31		H31	H31		トレンチ3底部【9721±57年】。年代が古い。岩片サイズの大きい蛇紋石が残存。C-S-Hと共生するSmがみられる。
PWT05-16-Rh-013		H31		H31			トレンチ5底部【9647±56年】。年代が古く十分Sm化が進行。斑レイ岩の岩脈由来のAlの含有率が比較的高い。
PWT06-17-Rh-002		H30	H30* R3	R3			トレンチ6中位。十分Sm化が進行。
PWT06-17-Rh-C06		H29	R3	R3			トレンチ6底部【4008±73年】。年代がそこそこ古く十分Sm化が進行。
PWT07-17-Rh-009		R2 R4	R2	R2	R2 R3	R2 R3	トレンチ7浅部。十分Sm化が進行。
PWT07-17-Rh-C03		R2	H29* R2	R2	R2 R3	R2 R3	トレンチ7底部【3445~4516年】アルカリ環境下でも長期間残っている火山ガラスを含む降下火山灰堆積層。
PWT07-17-Rh-C05		R2 R4		R2	R3	R3	トレンチ7底部【4516±74年】。降下火山灰堆積物の下位層。年代がそこそこ古く十分Sm化。

※モード分析も実施

※※【】は堆積物のヒューミンの¹⁴C年代測定で見積もられた体積年代

主要構成鉱物の鉱物組み合わせや二次鉱物の膨潤・収縮挙動を把握するための X 線回折 (XRD) 分析、化学組成を把握するための蛍光 X 線 (XRF) 分析を実施した。次に微細構造の観察として、試料に含まれる鉱物の産状と鉱物種の確認のために偏光顕微鏡 (PLM) を用いて観察を行った。より詳細な産状および各鉱物の化学組成を調べるために、走査型電子顕微鏡 (SEM) による観察・分析を行った。また、二次鉱物の化学組成の定量のために、電子プローブマイクロアナライザ (EPMA) による分析を実施した。さらに微細組織および各鉱物の化学組成は透過型電子顕微鏡 (TEM) によって調べた。さらに、走査透過型電子顕微鏡 (STEM) を用いて、元素分布を含め EDS による化学組成分析を実施した (分析方法や分析手順の詳細は原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機 (2023) 等を参照)。

Fe, Mg に富む砕屑性堆積物では、XRD により全ての試料でスメクタイトとみられるピークが確認されたが、反応時間の長いトレンチ 3、5 (T-3、T-5) の試料のスメクタイトのピークが強いものに対して、反応時間の短いトレンチ 2 (T-2) の試料は総じてピークが弱く、アルカリとの反応時間が長いほどスメクタイト化が進んでいるとみられる。次に、PLM によるモード分析によりスメクタイトの含有率を調べたが (図 4.2-11 参照)、反応時間との間に明確な相関はみられず、スメクタイト化はアルカリとの反応時間の長さだけが変質領域の進展に寄与しているのではない。モード分析の結果から、岩片の割合が少なく、粒子径の小さい鉱物片サイズのものよりスメクタイト化しており (T-3 は岩片サイズの蛇紋石が多い)、アルカリとの反応時間よりも粒子の大きさ、すなわち粒度分布のような物理的状态の影響が大きいことを示している。

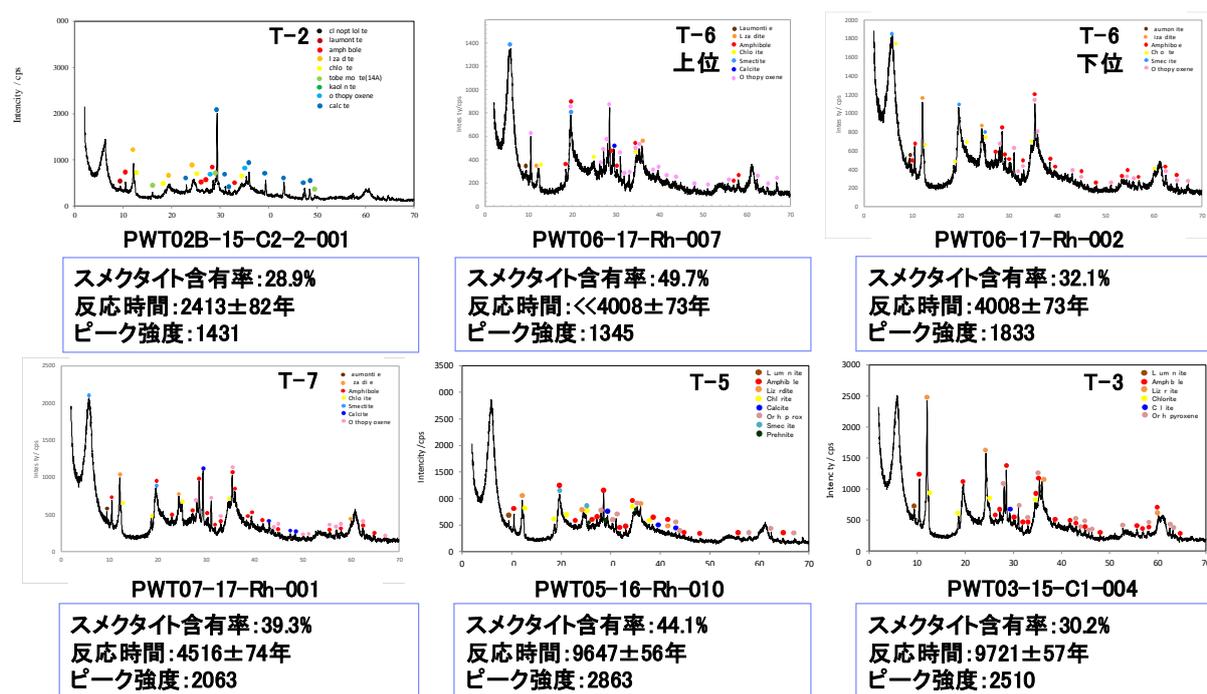


図 4.2-11 XRD とモード分析によるスメクタイト化と反応時間の関係

PLM や SEM による観察から、Fe, Mg に富む砕屑性堆積物は主要構成鉱物として、蛇紋石 (serpentine: Srp) や直方輝石 (斜方輝石) (orthopyroxene: Opx)、スピネル (spinel: Spl)、普通角閃石 (hornblende: Hrb) が含まれている。蛇紋石には特有のメッシュ組織を呈する粒子と全体が一様に蛇紋石になっている粒子の 2 種類が観察されるが、前者はスメクタイト化が粒子全体で進行している一方で、後者は粒子の周囲や粒子内部に存在する亀裂に沿ってスメクタイト化が

進行しており、蛇紋石部分も多く残存している様子が見られている。一方、こうした鉱物粒子とは別に、それらの鉱物片の周囲にスメクタイト（の前駆体）と褐色～濃褐色の細かい基質が広く観察される。

二次鉱物を産状に則して整理すると、以下の4種類に大きく分けられる。

1. **Fe-rich FMSH**: 鉱物片の周囲に付着あるいは空隙を充填するように分布する褐色～濃褐色の基質（図 4.2-12a,b の左側）。化学組成の特徴として Fe に富む Fe サポナイトあるいはノントロナイトに近い組成を持つ点が挙げられるが、スメクタイトの構造式として計算した場合に四面体サイトの Al+Si が 4 に満たず、Ca がやや過剰に含まれるもの。
2. **Mg-rich FMSH**: 蛇紋石あるいは蛇紋石化している頑火輝石（Enstatite: Ens）の周囲や亀裂に沿って分布する淡褐色～黄褐色の部分（図 4.2-12a, b の右側および c, d）。化学組成の特徴として、Mg に富むサポナイトに近い組成を持つが、スメクタイトの構造式として計算した場合に四面体サイトの Al+Si が 4 に満たず、Ca がやや過剰に含まれるもの。
3. **C-S-H**: 針状結晶が外周から内部に向かって放射状に集合した組織を示す。隙間の多い構造で、外周の一部あるいは全体がより密な方解石でセメンテーションされている（図 4.2-12e, f）。Ca/Si はおよそ 0.74~0.82 前後である。トレンチ 2, 3 でみられる。
4. **FMCASH**: トレンチ 2 のみでみられる、C-S-H の近辺に見られる斑状に淡褐色を呈する部分（図 4.2-12e, f）。反射電子像のコントラストが一様でなく、化学組成も Ca に富む部分から Fe, Mg に富む部分が混在していることから、C-S-H と FMSH 系二次鉱物が細かく混合していると考えられる。

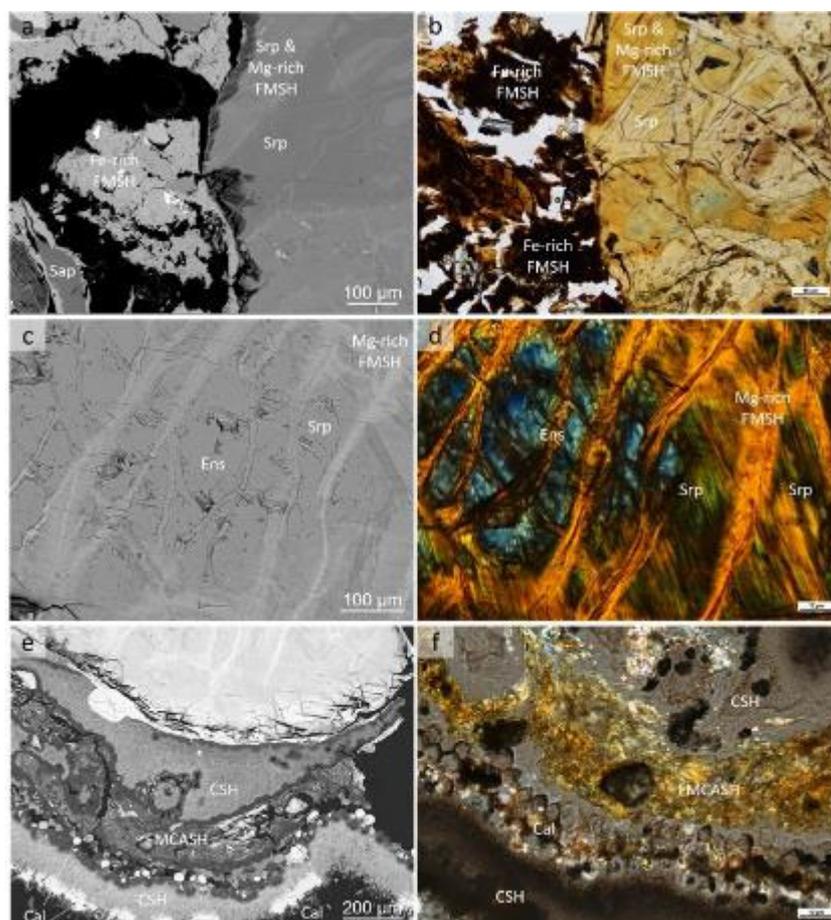


図 4.2-12 二次生成物の典型的な産状 (PWT02B-15-C2-1-001)

トレンチ 2 の FMCASH とした部分を TEM 観察した結果、内部に多くの空隙と筋状の構造、直径 5 μm 程度の球状粒子を含む様子が観察される。さらに詳細に制限視野電子回折および高分解能観察を行った結果を図 4.2-13 に示す。球状粒子については、C-S-H の組成であること、電子回折パターンから複数の単結晶がランダムな向きに存在していることが確認された。筋状の部分については化学組成から Fe,Mg を含むスメクタイト（やや Fe 寄りでサポナイトよりもノントロナイトに近い）であることが分かった。ただし、結晶性や結晶方位の揃い方にも場所によって不均質性があり、非常に弱い回折スポットを示すもの（図 4.2-13 の“03”）と比較的明瞭な回折スポットを示すもの（図 4.2-13 の”04”）が見られた。筋状部分の高分解能観察では 1.2 - 1.3 nm 程度のスメクタイト特有の格子縞が見られ、層構造は真っすぐ平行に伸びているというよりは、蛇行したり途切れたりしており、スメクタイトとしての結晶性が低いことが分かる。

この TEM 分析により、空隙に侵入したアルカリ地下水との反応により沈殿した M-S-H（マグネシウムシリケート水和物：ここでは Fe を含む FMSH 組成であるため、FMSH と表記）を初めて同定することができた。このアルカリ変質反応において、FMSH は、アルカリ溶液から C-S-H を伴って共沈し、時間とともに結晶化するスメクタイトの前駆体とみられる。

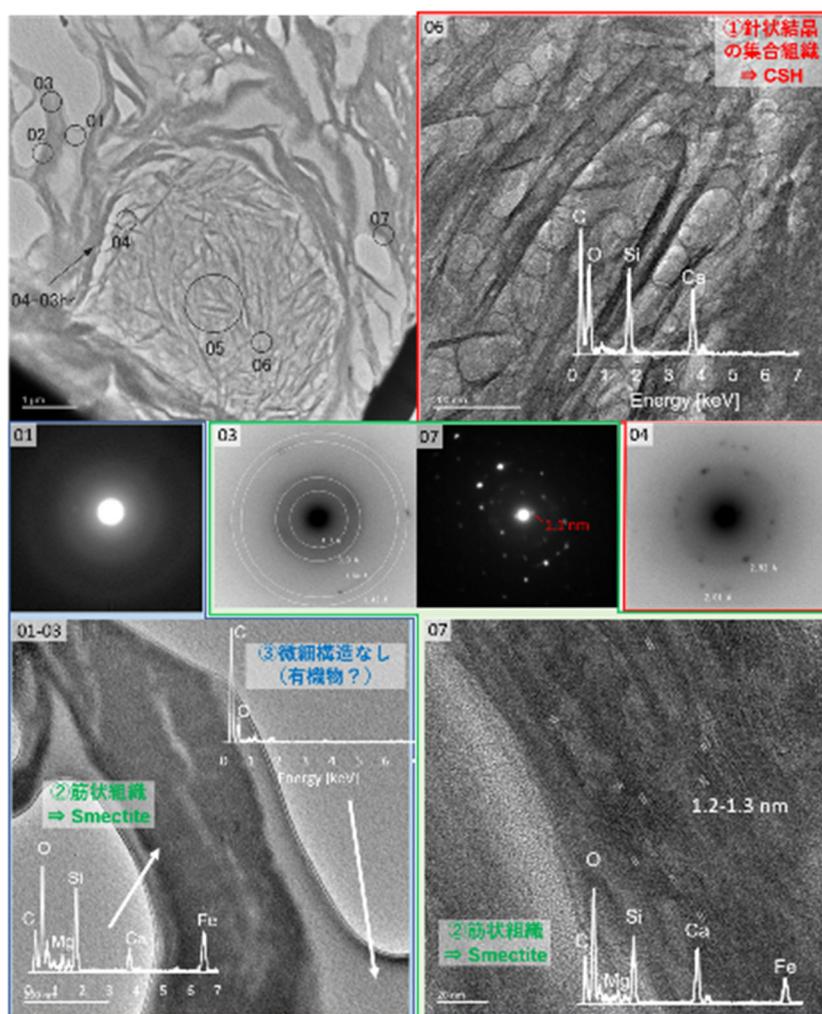


図 4.2-13 トレンチ 2 (PWT02-15-C2-2-001) の FMCASH 部の TEM 像と電子回折

これらの二次生成物について EPMA による組成分析を実施し、Fe-Mg-Al および Si-(Na+Ca)-(Mg+Fe+Al)の 2 種類の三角ダイアグラム上にプロットした (図 4.2-14)。全ての試料において共通する傾向として、岩片・鉱物片間を充填している基質部分はやや Fe に富む傾向にあり、一方で岩片・鉱物片そのものが置換している部分は Mg に富む傾向に分かれている。後者は基質と異なり、変質する前の頑火輝石や蛇紋石の化学組成や構造を一部引き継いでいると考えられる。また、Si-(Na+Ca)-(Mg+Fe+Al)のダイアグラム上では岩片・鉱物片を置換している部分は基質部分と比較して、スメクタイトの化学組成と比べて Si がやや乏しく、蛇紋石の化学組成に少し近い組成を示す。このことから、蛇紋石が一部残存していることが示唆される。トレンチ 2 では、トレンチ 6 およびトレンチ 7 と異なり、C-S-H が産している点で異なる。この C-S-H と FMSH 系の二次鉱物が混在した結果として、FMCASH と分類したグループで基質と C-S-H の組成を端成分とする範囲に広く分布する傾向が確認される。

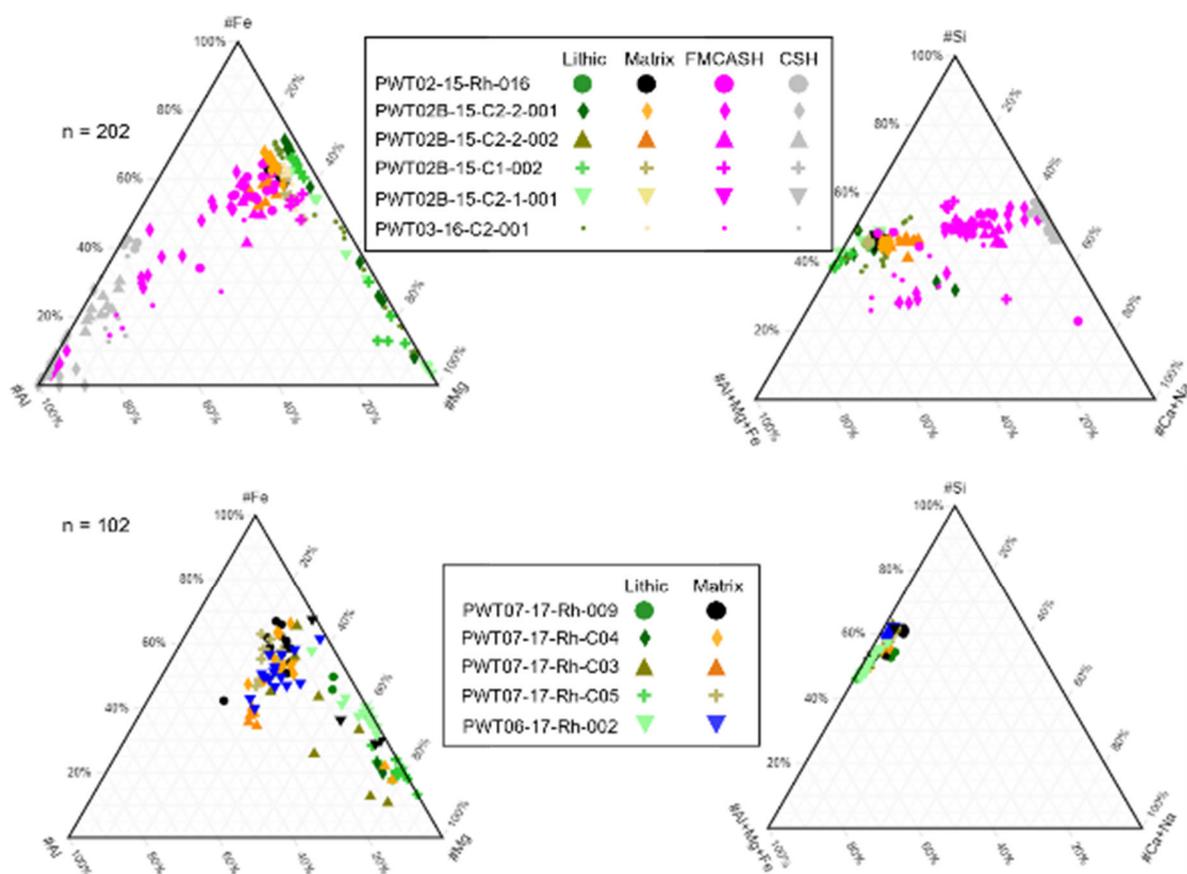


図 4.2-14 二次生成物の化学組成 (上段 : トレンチ 2 および 3、下段 : トレンチ 6 および 7) (産状別に、鉱物片を置換しているもの (Lithic) と鉱物片の周囲の隙間を充填している基質 (Matrix)、C-S-H と混在して産する基質 (FMCASH) および針状結晶の集合体 (CSH) の 4 種類に分けてプロット)

基質や変質鉱物片として観察されている FMSH 系の二次鉱物はスメクタイトに近い組成を示しながらも、Ca が過剰でその結晶化学的性質が不明確である。XRD により FMSH 系の二次鉱物の K 飽和試料の加熱による収縮挙動に着目すると、トレンチ 2 の試料はスメクタイトの収縮挙動と全く異なるのに対し、トレンチ 7 では深部の試料のほうがよりスメクタイトに類似した性質

を持つことを確認した。STEMによる観察では、トレンチ7の浅部と底部との比較において、浅部の試料は結晶化度が低くCa過剰な組成を示すのに対して、深部の試料は非晶質部分が少なく、層状の粘土鉱物が大部分を占めている。したがって、アルカリからの沈殿で形成したC-S-Hを伴う低結晶なスメクタイト様の二次生成物はCa過剰な組成をもち、反応時間として2400年程度ではまだ結晶化途上のFMSHであるが、4000年程度でスメクタイトに近い状態まで結晶成長するものと考えられる。

スメクタイト化が進んでいる変質鉱物片や、岩片・鉱物片間の隙間を充填する基質を構成する二次生成物中のFeの価数を評価するために電子エネルギー損失分光(EELS)による分析を行った。基質中のスメクタイト様の箇所から得られたEELSスペクトルからは2価よりも3価が主体であろうと推定されるが、変質鉱物片でも3価と評価されるものがある。EELSによる鉄状態の分析は、酸化の影響を取り除くことが不可能であるとの報告もあり(Sakuma et al., 2020)、この分析試料もサンプリング後に酸化の影響を受けた可能性が考えられる。

トレンチ2の底部(PWT07-17-Rh-C03)には石英、斜長石、火山ガラス等で構成される降下火山灰起源の白色砂質部分が存在する。ガラス中心から周囲に向かって主要元素のプロファイルを確認すると、周囲に向かってKとCa、Alの減少とSiの増加が確認される。堆積した際の火山ガラスの組成が均一であったと仮定すると、長期間にわたって周囲溶液と反応した結果、アルカリとAlの溶出が起り、相対的にSiが界面付近で増加したと考えられる。火山ガラス変質層から溶解速度を見積もると、スメクタイトに富む堆積層に挟存する火山ガラスはアルカリ環境でも溶解が遅いといえる(Kikuchi et al., 2022)。

(3) 地球化学モデリングによるアルカリ環境下の二次鉱物生成の評価

高アルカリ水から生成が期待される二次鉱物の地球化学モデリングによる計算を、高アルカリ源泉(Narra3-1)とカンラン石が反応するケース、蛇紋岩堆積物と反応中の高アルカリ水(トレンチ2, トレンチ7)から生成するケースの2ケースについて、The Geochemist's Workbench (GWB)のReactを使用し、GWBのデフォルトとなっている「thermo」、フランス地質調査所発行の「ThermoddemV1.10_15Dec2020」、日本原子力研究開発機構発行の「GWB19v12」の3つの異なる熱力学データベースを用いて実施した。

高アルカリ源泉とカンラン石との反応で生じる二次鉱物種の計算では、データベースによって生成が予測される二次鉱物に多少の違いは見られるものの、FeやMgを含む層状ケイ酸塩(サポナイトや低温の蛇紋石(Chrysotile)など)の生成が見込まれる点で一致している。一方で、ベントナイトのアルカリ変質実験等で広く認められる沸石類はNarra地区の水質では生成が期待されない。

トレンチ浸出水における二次鉱物の飽和指数・各元素の安定相の検討では、「Thermoddem V1.10_15Dec2020」と「GWB19v12」の間では多くの鉱物種について飽和指数の傾向は類似していること、サポナイト、ノントロナイトについては生成と溶解の傾向がデータベース間で少し異なることを確認した。安定相については、データベース多少の差は見られるもののMgやFeを含む層状ケイ酸塩が安定相として登場する点で類似していることが分かる(図4.2-15)。

ナチュラルアナログで確認したFe-ケイ酸塩やMg-ケイ酸塩鉱物の準安定相の熱力学データについて、M-S-Hは近年整備されつつあるものの、スメクタイト系二次鉱物の前駆体とみられるF-S-Hやケイ酸塩鉱物(とりわけFeを含む固溶体)の整備は必要と考えられる。

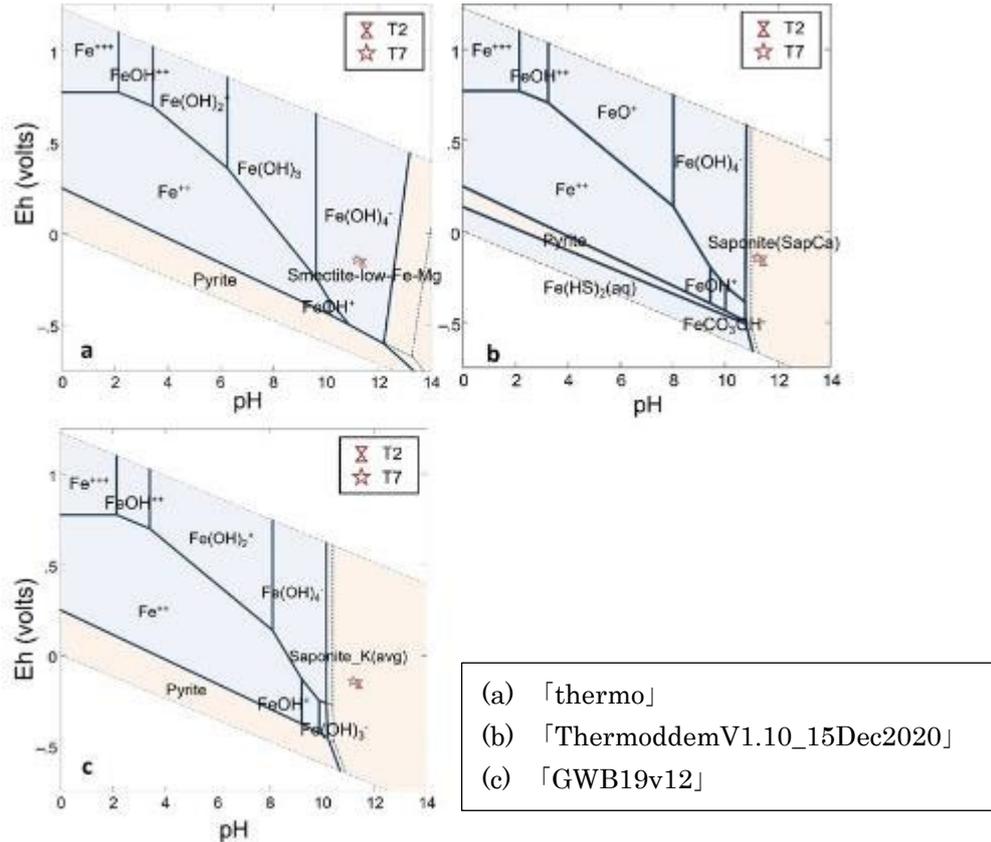


図 4.2-15 Na-Mg-Al-Si-K-Ca-Fe-Cl-O-H 系における Fe の pH-Eh 図

(4) アルカリ変質プロセスに関する考察

パラワン島 Narra 地区でみられる FMSH 系二次鉱物について、産状と化学組成の特徴はトレンチ 7 浅部とトレンチ 2 では一致していることから、堆積年代の若いこれらの堆積物中では一次鉱物である蛇紋石 (Serpentine) や直方輝石 (Opx) を Mg に富む FMSH が置換したり、Fe に富む FMSH が岩片間の空隙に新たに沈殿したりする反応が進行中だと考えられる。また、スメクタイトの理想式と比べて Ca 過剰な組成であること、また、この Ca は TEM による微細構造観察から層間に交換性陽イオンを含むものの骨格にも Ca が含まれ、四面体サイトが不完全な準安定相であることが想定される。

トレンチ 7 の浅部と深部で化学組成の変化、すなわち前述した Ca 過剰且つ四面体サイトの Al、Si が少ない FMSH 系二次鉱物がよりスメクタイトの理想式に近い組成への変化が見られる一方で、その基質と変質鉱物片に分かれた産状に変化がないことが分かっている。このことから、Fe に富む FMSH から Fe に富むスメクタイト (Fe-rich Smectite) (3 八面体の鉄サポナイト) が、Mg に富む FMSH から Mg に富むスメクタイト (Mg-rich Smectite) (3 八面体のサポナイト) にシフトしていることが示唆される。

Shimbashi et al. (2020) では、炭素同位体 ^{13}C の分析に基づき、Narra 地区の堆積物の深部においては過去に海水の混入があったことを指摘している。アルカリ地下水と比べて酸化的な海水と堆積物との反応した場合は、3 価の Fe を主体とするノントロナイトが形成されやすいことが予想される。トレンチ 7 浸出水の水質での鉱物の飽和指数の計算からは、現在の浸出水単体ではノントロナイトは形成しづらく、その形成には海水の混合が必要だと考えられる。オフィオライトの起源の堆積物の形成過程から堆積物が浅い沿岸域で堆積したと考えられることから、海水影響が ^{13}C の分析結果から示唆される河川系扇状地の扇端に位置するトレンチ 6 や 7 でノントロナ

イトの組成に近いスメクタイトがみられるのは、海水と高アルカリ浸出水との混合によって形成されたためと考えるのが妥当である。

これまでの知見に加え（原子力環境整備促進・資金管理センター, 2018）、本事業において観察された鉱物産状から推測されるパラワン島 Narra 地区のナチュラルアナログにおけるアルカリ変質プロセスを、ルソン島 Saile 鉱山のナチュラルアナログと併記して図 4.2-16 にまとめた。

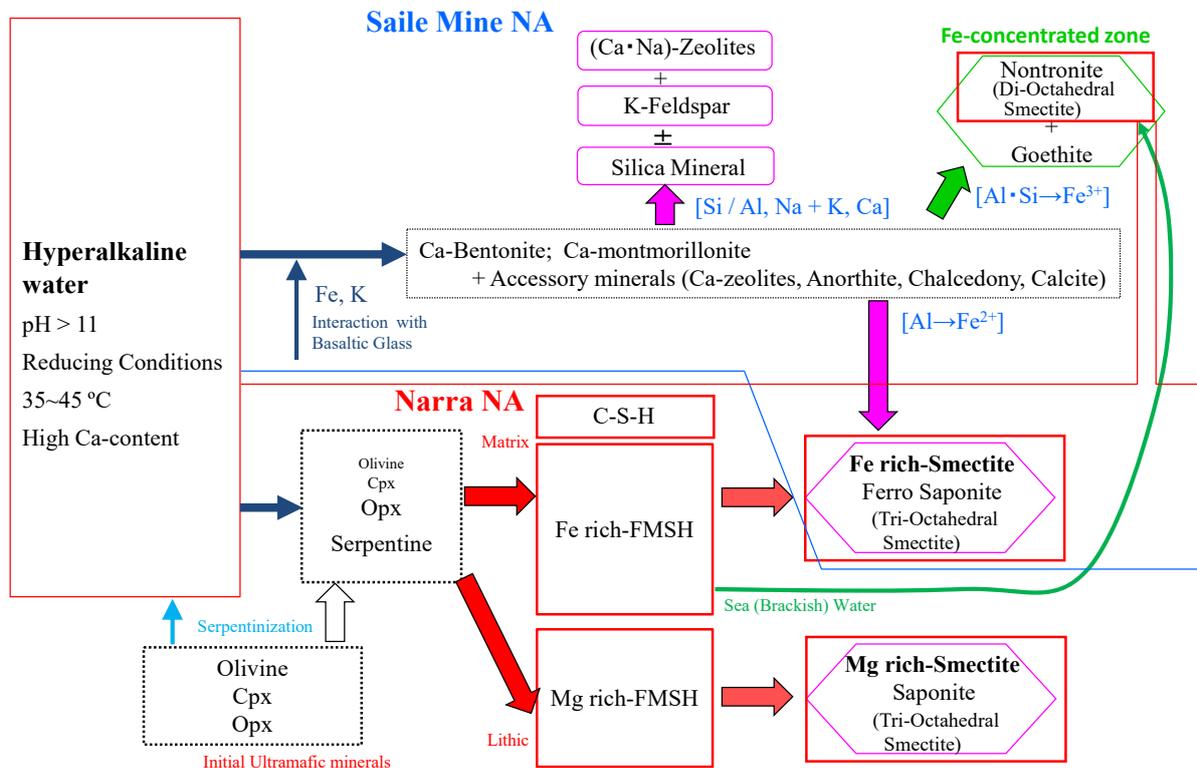


図 4.2-16 Narra 地区におけるアルカリ変質プロセス

アルカリ変質反応の初期では、C-S-H の形成と Fe に富む FMSH の形成が岩片間の空隙で同時に進行することで FMCASH のように 2 つが細かく混在した産状が形成されたと考えられ、この FMSH が時間とともに結晶化するスメクタイトの前駆体とみられる。C-S-H はトレンチ 2 およびトレンチ 7 浸出水の水質からは生成が期待できないことから、Ca の供給がなくなることで C-S-H はしだいに溶解していくことが予想される。

ルソン島 Saile 鉱山のナチュラルアナログでは、ベントナイトとアルカリ地下水との相互作用による明確なアルカリ変質が観察されたが、そのアルカリ変質帯が 5mm 程度であったのは、玄武岩ガラス等から供給される Fe²⁺ を使ってスメクタイト系の鉄粘土鉱物（図 4.2-16 の鉄サポナイトやノントロナイト）等の二次鉱物が密度の高い領域（クロッキング）を形成して変質を抑制していたためであることが、様々な分析結果や産状観察から示唆された（原子力環境整備促進・資金管理センター, 2013）。

Saile 鉱山のナチュラルアナログとパラワン島 Narra のナチュラルアナログとの共通点は、同様のオフィオライト起源のアルカリ地下水との相互作用に伴うアルカリ変質において、Fe イオンの影響を受け Fe・Mg に富むスメクタイト系の二次鉱物の生成していることである。そのため、クロッキングにも寄与しうるスメクタイトの生成において最も影響が大きいのは Fe イオンの存在であると考えられる。

フィリピンナチュラルアナログサイトと類似する環境での M-S-H やスメクタイトの生成や合成実験に関する文献調査 (Nishiki, et al., 2020; Pozo, et al., 2018; Besselink, et al., 2020; Nied, et al, 2016; Gainey, et al, 2017; Decarreau and Bonin, 1986; Sakuma, et al., 2022) から、スメクタイト化に反応が進む要因は、

- ・ 鉄の存在
- ・ アルカリ
- ・ 酸化環境 > 還元環境

であると報告されており、これはパラワン島 Narra でのアルカリ変質におけるスメクタイト化が進んだ環境要因とも整合している。

5 か年にわたり実施した本事業の検討により、アルカリ変質プロセスについては、上記のように空隙に Fe に富む非晶質の FMSH を形成しそれが Fe に富むスメクタイトに結晶成長すること、環境条件としては、Fe イオンが必須であり、HFSC と同等の pH11 程度で高 Ca 濃度のアルカリ環境であること、反応時間として 2400 年程度ではまだ結晶化途上の FMSH であるが、4000 年程度でスメクタイトに近い状態まで結晶成長することを、根拠となる様々なデータに基づき明らかにすることができた。

(5) 緩衝材の長期安定性の検証に係るフィリピンのナチュラルアナログのまとめ

パラワン島 Narra のナチュラルアナログサイトでは、オフィオライト起源のアルカリ地下水との相互作用に伴うアルカリ変質が生じており、Fe イオンの影響を受け Fe・Mg に富むスメクタイト系の二次鉱物の生成している。それゆえ、パラワン島 Narra のナチュラルアナログサイトは、同じくオフィオライト起源のアルカリ地下水とベントナイト鉱床との相互作用が起きていたルソン島 Saile 鉱山のナチュラルアナログでは観察できなかった、アルカリによる変質（特に二次鉱物の生成）プロセスの詳細、環境条件、反応時間が直接観察できるサイトである。

パラワン島 Narra 地区のナチュラルアナログサイトの試料分析に基づき、当サイトのアルカリ変質プロセスにおいて、アルカリ環境での Fe イオンが Fe・Mg に富むスメクタイト系二次鉱物が生成させることを確認した。なお、類似事例の先行研究でもアルカリと鉄の存在がスメクタイト生成の要因となることを確認した。

アルカリ変質プロセスにおけるスメクタイト系二次鉱物生成過程では、最初に Ca 過剰の FMSH と C-S-H が生成し、FMSH が 4000 年程度の時間経過とともに Fe・Mg に富むスメクタイトに結晶成長していることが、本事業において取得した鉱物学的データから示唆され、ベントナイトの長期健全性に係るアルカリ変質における二次鉱物の生成過程の現象理解が深まったといえる。ベントナイトのアルカリ変質では単純系の試験系からゼオライト化が一般的に知られているが、処分場のような複雑系での変質反応では一概にそうとは言えず、このサイトのように Mg や特に Fe に富む環境ではモンモリロナイトとは異なるサポナイトやノントロナイトのような Fe・Mg に富むスメクタイト系の二次鉱物が生成する。

TRU 廃棄物の処分環境とのアナログという観点で、現在の処分概念では構造材や充填材として多量のセメント系材料の使用に加え、海水の影響を受けた地下水には比較的高濃度の Mg イオンが含まれていること、また、炭素鋼などの鉄系材料を還元環境で使用しているため、間隙水の相当量の Fe²⁺の含有も予想されるため、このような環境でのベントナイト緩衝材の健全性（変質はするが微小量）を示す長期挙動の根拠データとして利用できる。

一方、現象解析モデルへの反映という観点で、現状の GWB による地球化学計算でも、パラワン島 Narra の地下水環境がスメクタイト（還元環境ではサポナイト）の安定相であることを示されたが、当サイトで観察された FMSH と C-S-H の共沈や FMSH のスメクタイト化を化学計算

で再現することは現状ではできない。このようなスメクタイト化の変質プロセスを予測できるようにするために、二次鉱物の前駆体とみられる F-S-H やケイ酸塩鉱物（とりわけ Fe を含む固溶体）の熱力学データの整備が今後必要である。

4.2.5 まとめと今後の課題

先進的セメント系材料の地下水との反応挙動評価については、先進セメントとして、日本原子力研究開発機構が開発した低アルカリ性セメント（HFSC）を対象に地下水との反応を評価するためのモデルの信頼性向上を図った。HFSC と水との反応試験において、試料の乾燥・粉砕の影響を低減可能な試験方法を選定し、地下水中に存在する主要イオン（Cl⁻, Mg²⁺, SO₄²⁻, CO₃²⁻）と HFSC との反応についてデータを取得した。HFSC の主要水和物である C-A-S-H について、新たに熱力学データを整備するとともに、HFSC と各種溶液との反応についてモデル化を行い、それらの結果を概ね再現することが可能であることを示した。また、モデル化に必要なセメント水和物等について、浸漬試験、熱量測定、エックス線回折等を用いた熱力学データの整備フローについて、熱力学データを整備することが可能であることを示した。これらにより、様々な溶液条件での HFSC の反応挙動を評価するための熱力学データ及びモデルが整備され、様々なサイト条件にて、処分施設に HFSC を用いた際の長期的な化学的変遷を評価可能となる見通しを得ることができた。HFSC と溶液との反応試験は、これまで室内試験で実施してきたため、今後は、室温以外（～80℃程度）においてもデータを取得し、モデルの適用性を確認していく必要がある。

先進的セメント-緩衝材相互作用評価モデルの高度化については、セメントと緩衝材との相互作用について、接触界面の状態を調べるための接触試験体を検討・作製し、接触試験体を加熱（50℃及び80℃、一部試料を3年間加熱）した試料を対象として各種機器分析を適用した（EPMA, BIB-SEM, μ -XRD, μ -XRF, 透過 X 線分析, 光学顕微鏡）。接触界面近傍の元素濃度分布、X 線透過度（間隙率の変化に対応）、鉱物組成分布について情報を得ることができた。これらの情報に基づき、反応-物質輸送連成モデルを用いて、最小グリッド幅、沈殿するゼオライトの種類、HFSC の初期鉱物組成等を見直し解析を行うことにより、界面近傍における HFSC とベントナイトの相互作用を反応-物質輸送連成モデルで再現することができた。これにより、処分施設に HFSC を用いた際のセメント-緩衝材の変質挙動の評価が可能との見通しを得ることができた。

ナチュラルアナログでは、HFSC と同等の pH11 程度で高 Ca 濃度のアルカリ環境で空隙に Fe に富む FMSH を形成しそれが Fe に富むスメクタイトに結晶成長すること、環境条件としては、Fe イオンが必須であり、HFSC と同等の pH11 程度で高 Ca 濃度のアルカリ環境であること、反応時間として 2400 年程度ではまだ結晶化途上の FMSH であるが、4000 年程度でスメクタイトに近い状態まで結晶成長することを、フィリピン国パラワン島 Narra 地区で採取した試料の産状観察及び鉱物・化学分析や地球化学計算から明らかにすることができた。現在の TRU 廃棄物の処分概念では構造材や充填材として多量のセメント系材料の使用に加え、海水の影響を受けた地下水には比較的高濃度の Mg イオンが含まれていること、また、炭素鋼などの鉄系材料を還元環境で使用しているため、間隙水への相当量の Fe²⁺ の含有も予想されるため、ベントナイトのアルカリ変質帯が数 mm 程度に制限されていたルソン島 Saile 鉱山のナチュラルアナログと合わせて、このような環境でのベントナイト緩衝材の長期健全性（変質はするが微量）を示すナチュラルアナログといえる。一方、現象解析モデルへの反映という意味では、スメクタイト化の変質プロセスを予測できるようにするために、二次鉱物の前駆体とみられる F-S-H やケイ酸塩鉱物（とりわけ Fe を含む固溶体）の熱力学データの整備が今後必要である。

参考文献

- Aurelio, M.A. and Pena, R.E., *Geology of the Philippines Tectonics and Stratigraphy*, second ed., vol.1, Mines and Geosciences Bureau, Department of Environment and Natural Resources, Quezon City, Philippines, 2010.
- Aurelio, M.A., Franke, D., Savva, D. and Steur, S., Middle to late Cenozoic tectonic events in south and central Palawan (Philippines) and their implications to the evolution of the south-eastern margin of South China Sea: Evidence, *Marine and Petroleum Geology*, pp.1-16, 2013.
- Barnes, I. and O'Neil, J.R., The relationship between fluids in some fresh alpine-type ultramafics and possible modern serpentinization, Western United States, *Geol. Soc. of America Bull.*, vol.80, No.10, pp.1947-1960, 1969.
- Berner, U., Status of cement modelling: Future investigations in the view of cement/bentonite interactions. In R. Metcalfe, and C.S. Walker, Eds. *International workshop on bentonite-cement interaction in repository environments*, p. 182-186, Tokyo, Japan, 2004.
- Besselink, R. et al., Mechanism of saponite crystallization from a rapidly formed amorphous intermediate, *Crystal Growth & Design*, 20(5). 3365-3373, 2020.
- Bodén, A., and Sievänen, U., Low-pH injection grout for deep repositories. Summary report from a co-operation project between NUMO (Japan), Posiva (Finland) and SKB (Sweden), p. 82. *Svensk Kärnbränslehantering AB*, 2005.
- Byfors, K., Influence of silica fume and flyash on chloride diffusion and pH values in cement paste. *Cement and Concrete Research*, 17, 115-130, 1987.
- Decarreau, A. and Bonin D., Synthesis and crystallogenesi s at low temperature of Fe(III)-smectite by evolution of coprecipitated gels: experiments in partially reducing conditions, *Clay Minerals*, 21, 861-877, 1986.
- 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.
- Diamond, S., Effects of microsilica (silica fume) on pore-solution chemistry of cement pastes. *Journal of the American Ceramic Society*, 66(5), C82-C84, 1983.
- Frost, B.R. and Beard, J.S., On silica activity and serpentinization, *J. Petrology* vol.48, No.7, pp.1351-1368, 2007.
- Gainey, S.R. et al., Clay mineral formation under oxidized conditions and implications for paleoenvironments and organic preservation on Mars, *Nature Communications* 8, Article number 1230, 2017.
- 原子力環境整備促進・資金管理センター, 平成 24 年度放射性廃棄物共通技術調査等事業 放射性廃棄物重要基礎技術研究調査 多重バリアの長期安定性に関する基礎情報の収集及び整備平成 19 年度～平成 24 年度の取りまとめ報告書, 2013.
- 原子力環境整備促進・資金管理センター, 平成 27 年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 TRU 廃棄物処理・処分高度化開発報告書 (第 4 分冊) —人工バリア材料長期挙動評価・人工バリア評価の初期条件の設定—, 2016.
- 原子力環境整備促進・資金管理センター, 平成 29 年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 TRU 廃棄物処理・処分高度化開発 平成 25 年度～平成 29 年度取りまとめ報告書, 第 4 章ナチュラルアナログ調査, 2018.
- 原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 平成 30 年度 高レベル放射

- 性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 TRU 廃棄物処理・処分に関する技術開発報告書 平成 31 年 3 月, 2019.
- 原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 平成 31 年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 TRU 廃棄物処理・処分に関する技術開発報告書 令和元年 3 月, 2020.
- 原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 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 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発, 2021.
- 原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 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 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発, 2022.
- 原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 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 TRU 廃棄物処理・処分に関する技術開発報告書 令和 5 年 3 月, 2023.
- Iriya, K., Matsui, A., and Mihara, M., Study on applicability of HFSC for radioactive waste repositories. 7th International Conference Proceedings on Radioactive Waste Management and Environmental Remediation, Nagoya, Japan, 1999.
- Kikuchi, R., Sato, T., Fujii, N., Shimbashi, M. and Arcilla, C., Survival of natural glass under hyperalkaline conditions for ~4000 years, Scientific Reports 12, Article number: 16012, 2022.
- Lothenbach, B., and Winnefeld, F., Thermodynamic modelling of the hydration of Portland cement. Cement and Concrete Research, 36(2), 209-226, 2006.
- Marques, J.M., Carreira, P.M., Carvalho, M.R., Matias, M.J., Goff, F.E., Basto, M.J., Graça, R.C., Aires-Barros, L. and Rocha, L., Origins of high pH mineral waters from ultramafic rocks, Central Portugal, Appl. Geochem., vol.23, Issue 12, pp.3278-3289, 2008.
- Mihara, M., Iriya, K., and Torii, K., Development of low-alkaline cement using pozzolans for geological disposal of long-lived radioactive waste. Journal of Japan Civil Engineering Society, 64(1), 92-103, 2008.
- 中林亮、木嶋達也、塚田康元、佐藤努、大竹翼。金子勝比古、米田哲朗、高アルカリ環境における圧縮ベントナイト中のシリカ鉱物の溶解; X線 CT 観察および地球化学モデリングによる定量評価、粘土科学 52(1)、pp.9-22、2013
- Nied, D., EnemarkRasmussen, K., L'Hopital, E., Skibsted, J., Lothenbach, B., Properties of magnesium silicate hydrates (M-S-H), Cem. Concr. Res., vol.79, pp.323-332, 2016.
- 日本原子力研究開発機構, 平成 30 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 31 年 3 月, 2019.
- Nishiki, Y. et al., Precipitation of magnesium silicate hydrates in natural alkaline surface environments, Clay Science, vol.24, No.1, pp.1-13, 2020.
- Pozo, M. et al., An Overview of Authigenic Magnesian Clays, Minerals, vol.8, Issue 11, 520, 2018.
- Sakuma, H., Morida, K., Takahashi, Y., Fukushi, K., Noda, N., Sekine, Y. and Tamura, K., Synthesis of Ferrian and Ferro-Saponite: Implications for the structure of (Fe, Mg)-smectites synthesized in reduced conditions, American Mineralogist, vol.107, Issue 10, 1926-1935, 2022.
- Savage, D., Walker, C., Arthur, R.C., Rochelle, C.A., Oda, C., and Takase, H., Alteration of bentonite by hyperalkaline fluids: a review of the role of secondary minerals, Physics and

Chemistry of the Earth, 32, 287-297, 2007.

Shimbashi, M., Yokoyama, S., Watanabe, Y., Sato, T., Otake, T., Kikuchi, R., ... Fujii, N.,
Formation of natural silicate hydrates by the interaction of alkaline seepage and sediments
derived from serpentized ultramafic rocks at narra, Palawan, The Philippines, Minerals,
vol.10, Issue 8, 719, 2020.

Yokoyama, S., Shimbashi, M., Minato, D., Watanabe, Y., Jenni, A., Mader, U., Alteration of
Bentonite Reacted Cementitious Materials for 5 and 10 years in the Mont Terri Rock
Laboratory (CI Experiment), Minerals, 11, 251, pp.1-17, 2021.

4.3 廃棄体由来の発生ガスに関する現象解析モデルの妥当性検討

4.3.1 背景

TRU 廃棄物処分場では、廃棄物及びその周辺に存在する水分の放射線分解、廃棄物に含まれる金属の還元腐食などに起因した水素などのガスの発生が想定される。ガスの発生による懸念事項として、ガスの蓄圧に伴う緩衝材の力学安定性の低下、及びガスの蓄圧・移行による施設内汚染水の押出しに伴う核種移行の加速が挙げられている。

このため、第 2 次 TRU レポート（電気事業連合会／核燃料サイクル開発機構、2005a）では、処分場で生じるガス発生及び人工バリア（特に応力場の影響を受ける可能性の高い粘土系材料が候補となっている緩衝材）中の移行挙動及び力学挙動を予測し、その影響を評価するための連成評価モデルの開発が必要となることが示されている。

これまでの検討では、緩衝材などの人工バリアを対象とした、水・ガス移行特性及び力学特性などの材料特性データの取得を目的とした各種要素試験及びその解析的評価により、力学連成気液二相流解析が可能なモデルを構築してきた。今後の課題としては、①これまでの各種要素試験で取得した材料特性データ及び評価モデルの実スケールへの適用性の確認、②実スケールにおいてより現実的なガス移行場の状態を設定したうえでの、適用性の確認された材料特性データ及び評価モデルを用いたガス影響評価手法の構築、③最新の人工バリア候補材料に対する材料特性データの拡充などが挙げられた。

また、地層処分研究開発に関する全体計画（平成 30 年度～令和 4 年度）（地層処分研究開発調整会議、2020）においても、これまでに実施した各種要素試験とその解析的評価をもとに取得したバリア材のガス移行特性及び力学特性と、それらをもとに構築した現象解析モデルの実施設の安全評価への適用性を、処分坑道の小型モックアップ（3 次元拡大系供試体）を用いたガス移行試験などにより確認すること、適用性を確認した現象解析モデルを用いた解析評価の試行により、核種移行挙動へのガス影響を検討することが示されている。

以上より、本事業では、ガス移行挙動が処分場の性能に及ぼす影響を評価可能な現象モデルおよびその現象を再現する解析手法を構築することを目標とする。そのために、TRU 廃棄物処分施設における廃棄体由来の発生ガスについて、人工バリアの状態を考慮したより現実的なガス移行場の環境を設定したうえで、核種移行や力学的挙動に対するガス移行挙動の影響を評価可能なモデル・解析手法を構築するための検討を実施する。

本事業における 5 カ年の各検討項目の全体検討工程を表 4.3-1 に示す。本とりまとめ報告書では、処分坑道の力学連成ガス移行評価モデルの高度化（4.3.2）およびガス発生量とその影響評価（4.3.3）の成果を中心に示す。

- 処分坑道の力学連成ガス移行評価モデルの高度化（4.3.2）
 - ・ 小規模モックアップを用いたガス移行試験、再破過試験の実施と予察解析・再現解析により、要素モデルからスケールアップした試験系への、二相流パラメータの適用性を確認（必要に応じて補正）する。
 - ・ 適用性を確認した二相流パラメータ及び、室内試験で確認したベントナイト系材料の力学特性をもとに、実スケールの力学連成ガス移行評価モデルを構築する。
 - ・ 解体調査などにより、隅角部や施工界面の存在の、ガス移行挙動に対する影響を把握する。
- ガス発生量とその影響評価（4.3.3）
 - ・ 最新の知見をもとにガス発生挙動（発生時期・発生速度）とその影響を評価する。

- ・ ガスと核種移行挙動の連成評価手法を検討するとともに、核種移行挙動に及ぼすガス影響評価手法を構築する。
- 長期変遷を考慮したガス移行場の状態設定評価（4.3.4）
- ・ これまでに検討した人工バリアの長期挙動評価をもとに、4.3.2 で構築する実スケールの力学連成ガス移行評価モデルに考慮可能なガス移行場の状態設定を行う。
 - ・ ガス移行場の変遷とガス移行挙動との関連を評価する。

表 4.3-1 各検討項目の全体検討工程

調査研究項目	平成30年度	平成31年度	令和2年度	令和3年度	令和4年度
ガス移行挙動を評価するためのツール、評価手法の検討・構築					
処分坑道の力学連成ガス移行評価モデルの高度化（モックアップ試験、他）	モックアップ試験仕様設定、予察解析、要素試験				
		モックアップガス移行試験、再破過試験、解体調査			TRU処分施設における力学連成ガス移行解析
		再冠水挙動、ガス移行挙動の解析評価			
より現実的なガス移行場の環境等の設定に関する検討					
ガス影響を考慮した核種移行評価モデルの構築（ガス発生挙動評価、他）	ガス発生定量評価のための評価条件の整理				
		ガス発生量定量評価手法の構築、ケーススタディ、ガス発生量評価			ガス影響を考慮した核種移行解析評価
長期変遷を考慮したガス移行場の状態評価	現象の整理・モデル化、解析コードの適用性の確認				
		解析手法の適用性確認、状態変遷のケーススタディ			ガス移行場の状態設定評価

4.3.2 処分坑道の力学連成ガス移行評価モデルの高度化

ガス移行評価モデルの実スケールへの適用性の確認、実スケールへ適用するための高度化を目的とした検討を行い、より現実的なガス移行挙動を評価する手法を開発する。処分施設をモデル化した3次元の小規模モックアップ試験体による、再冠水試験およびガス移行試験並びに解体調査を実施した。要素試験で取得した気液二相流パラメータを用いた小規模モックアップ試験の再現解析によるパラメータの適用性の確認および力学連成二相流解析コード CODE_BRIGHT による再現解析を実施し、ガス移行挙動評価モデルの更なる高度化を図る。

(1) 小規模モックアップガス移行試験の実施

要素試験スケールと実規模施設の相違点を評価するためには、その相違をもたらす要因を含む試験によるデータ取得と評価手法の適合性の確認が必要となる。試験体および試験装置としては、

処分施設の形状的特徴を有し、情報取得のための計器設置が可能な寸法を有することが望ましく、そのような意図で本検討における小規模モックアップ試験は計画し実施した。たとえば、隅角部を有する緩衝材形状、ガスを中央（処分施設の廃棄体エリアに相当）から3次元的に放出、背圧（NFの水圧に相当）を周囲から載荷、6面全ての計測、土圧計が設置可能な面積確保などが設計要件である。本小規模モックアップ試験の実施手順としては、再冠水試験により飽和を確認した試験体へ破過を伴うまでガスを注入するガス移行試験を実施し、その後破過を経験した試験体を再注水により再飽和させ、再びガスを注入する再破過試験を実施した。試験終了後は、試験体を解体して試験体に異常がないことを確認するとともに、乾燥密度、含水比の測定を実施した。

1) 試験体設計

本検討の実施しにあたり、公表されている文献情報を対象とした調査を実施し、研究事例のうち最も試験規模の近いグリムゼル岩盤試験場（スイス）におけるFORGEモックアップ試験を参考に（Nagra, 2013）試験規模及び試験期間についての情報を整理し、試験体設計および試験条件の参考とした。試験体の設計にあたっては予察解析を実施し、実際の試験中に想定される現象の（緩衝材の再冠水過程における発生膨潤圧の経時変化や、ガス移行過程で想定される破過圧あるいはガス透過の時期）把握、定められた試験期間内（再冠水過程及びガス移行過程ともに、概ね各々が1年以内）に現象の把握が可能となる諸条件を確認することで、試験体の設計や試験の条件を設定するうえでの根拠とした。緩衝材形状を実スケールの1/10程度の規模としたうえで立方体と曲面を有する形状の2種類を設定して予備解析を実施した結果、再冠水過程、ガス移行過程ともに顕著な形状依存性は見られなかった。また、試験期間についても、当該規模で現実的な試験期間内（概ね100日程度以内）に実施できる見通しを得た。解析結果をもとに装置の仕様を設定し、詳細設計・製作を行った。試験体仕様については、試験目的や、モニタリングデータに対する不確実性の排除の観点から、緩衝材形状を立方体とすることとした。試験装置の仕様を図4.3-1に示す。試験体には包括的技術報告書レビュー版（NUMO, 2021）に示された緩衝材仕様 [ベントナイト（クニゲルV1）：ケイ砂（3号と5号ケイ砂を乾燥重量比1：1で混合したもの）＝70wt%：30wt%] と同配合の材料（真密度2.7 Mg/m³）で圧縮成型体（全7層、各層の乾燥密度1.6 Mg/m³および飽和度95%）に注水することで作製した飽和試験体を用いた。

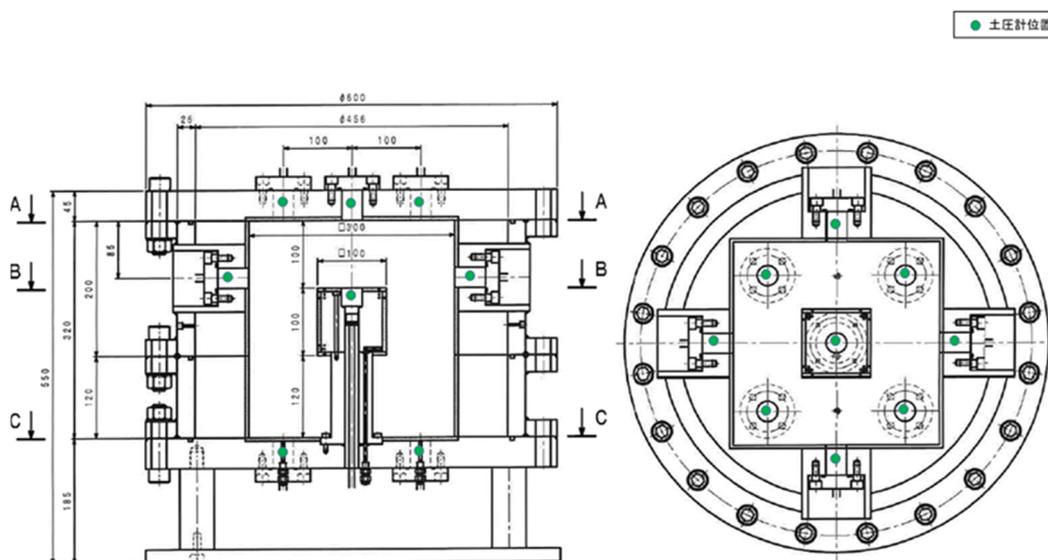


図 4.3-1 小規模モックアップ試験装置

2) 試験条件および試験手順

予察解析により、試験中の現象（緩衝材の再冠水過程における発生膨潤圧の経時変化や、ガス移行過程で想定されるガス透過挙動）を把握するとともに、定められた試験期間内（再冠水過程及びガス移行過程ともに、概ね各々が1年以内）に現象が把握可能となる諸条件（注水圧や注入ガス圧の昇圧速度など）を検討し、その妥当性を確認のうえで試験における諸条件を決定した。小規模モックアップ試験は試験体の飽和状態を確認する再冠水過程（図 4.3-2）および破過現象が確認されるまでガス圧を載荷するガス移行試験により実施される。下表にそれぞれ試験手順および取得データを示す。再破過試験時においてはガスの移行媒体への侵入の様子や破過前後の挙動をより精緻に確認するため、昇圧ペースを+0.1 MPa/週（7日）より長くした。

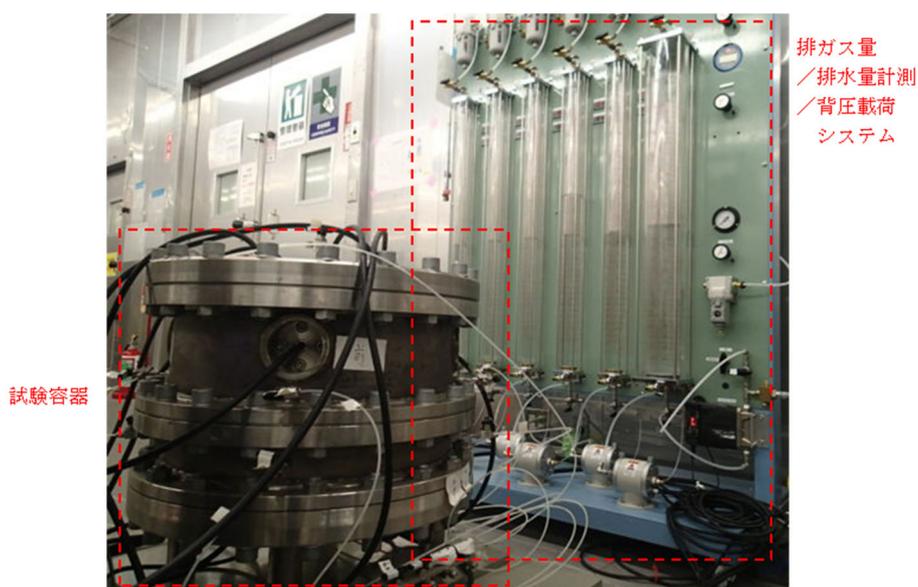


図 4.3-2 小規模モックアップ試験再冠水過程の様子

表 4.3-2 再冠水過程の試験手順および取得データ

再冠水過程試験手順	取得データ
①不飽和供試体の持つサクションを利用した自然吸水（初期注水）：数日程度を想定	<ul style="list-style-type: none"> ・ 単位時間（min）当たりの注水（吸水）量 ・ 累積注水（吸水）量 ・ 全応力
②「手順①」で単位時間当たりの注水量が低下し始めたら、飽和促進のための加圧注水を開始：予察解析条件に基づき、+0.1 MPa/2日にて想定膨潤圧（0.3～0.4 MPa程度）と同等まで加圧注水	<ul style="list-style-type: none"> ・ 単位時間（min）当たりの注水（吸水）量 ・ 累積注水（吸水）量 ・ 注水圧 [MPa] ・ 膨潤圧（全応力－注水圧） [MPa]
③「手順②」で注水圧が想定膨潤圧（0.3～0.4 MPa程度）と同程度に到達したら昇圧を停止し、一定圧にて注水を継続	<ul style="list-style-type: none"> ・ 単位時間（min）当たりの注水（吸水）量および排水量 ・ 累積注水（吸水）量および累積排水量 ・ 注水圧 [MPa] ・ 膨潤圧（全応力－注水圧） [MPa]

表 4.3-3 ガス移行試験における試験手順および取得データ

ガス移行試験手順	取得データ
① 飽和供試体に背圧（再冠水過程時と同じ注水圧 0.2 MPa）を載荷：2日間程度	<ul style="list-style-type: none"> ・ 注水圧 [MPa] および背圧 [MPa]
② 背圧を維持した状態で供試体内側からガス圧（背圧と同値）を載荷 :その後、+0.1 MPa/週（7日）にて昇圧してゆき、ガスの排出（破過）が観測されるまでガス注入を継続 ⇒注入ガス圧の最大値は、試験容器の設計耐圧値（3.0 MPa）から初期膨潤圧を差引いた値まで（初期膨潤圧が 0.4 MPa の場合は 2.6 MPa まで） ⇒安全面（試験室内酸欠防止）の観点から、破過直後にガス注入を遮断 ⇒破過後は背圧載荷（再注水）を継続し、注水飽和を再開	<ul style="list-style-type: none"> ・ 単位時間（min）当たりの排水量および排出ガス量[mL/min] ・ 累積排水量[mL] ・ ガス注入圧 [MPa] ・ 供試体の有効応力（=全応力-有効ガス圧*） [MPa] <ul style="list-style-type: none"> ➤ 有効ガス圧[MPa] =ガス注入圧-背圧

3) 試験結果

特徴的な挙動や取得データを中心に小規模モックアップ試験におけるガス移行試験の試験結果を示す。

① ガス移行試験の試験結果

ガス移行試験（1回目）での各面における累積排水量の測定結果を図 4.3-3 に示す。実測された累積排水量は面ごとに大きなばらつきのある結果となった。負の値となっている後面に関しては、試験装置とベントナイト試験体との微小な隙間を通じて他の面が引き込んだ結果と考察した。また、左面において排水量が卓越していることに関しては、当方向は他の面方向よりガスおよび水の移行経路が生じやすくなっていたと考えられる。各面における結果の違いやばらつきについては、数 cm 程度の要素試験と数 10cm スケールのモックアップ試験で、供試体の締固め度合いや不均質性の違いなどが要因の 1 つとして考えられる。

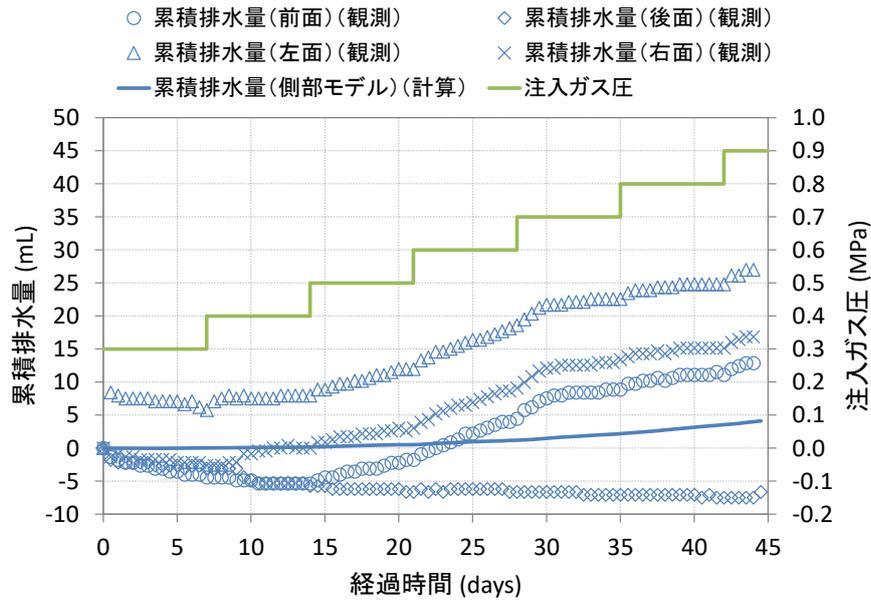


図 4.3-3 ガス移行試験（1回目）における各面からの累積排水量

ガス移行試験（1回目）での特に左面を中心とした測定データを図 4.3-4 に示す。有効応力の経時変化については、有効ガス圧（注入ガス圧－背圧）が 0.4MPa に到達した 27 日経過以降に緩やかな漸減傾向が確認できた。この挙動は、「有効ガス圧（注入ガス圧－背圧） > 有効応力（全応力－背圧－有効ガス圧）」の条件となったことに伴い、有効ガス圧が有効応力に打ち勝って間隙が押し広げられたことに起因するものであると解釈した。したがって、この時点より緩衝材中へガスが浸入を開始したものと推定した。その後、有効ガス圧が 0.6MPa に到達した 42 日経過以降、有効応力（全応力－間隙水圧－有効ガス圧）の経時変化が再び増加傾向に転じ、更にその 2 日後（44 日経過後）に排水が卓越した。このような排水の卓越が観測されたのは、有効応力が「ゼロ」となる条件時に特定の隙間が連結することで、間隙水がガス圧によって一気に押し出されたことが要因と考えられ、試験体に破過が生じた状態と解釈した。

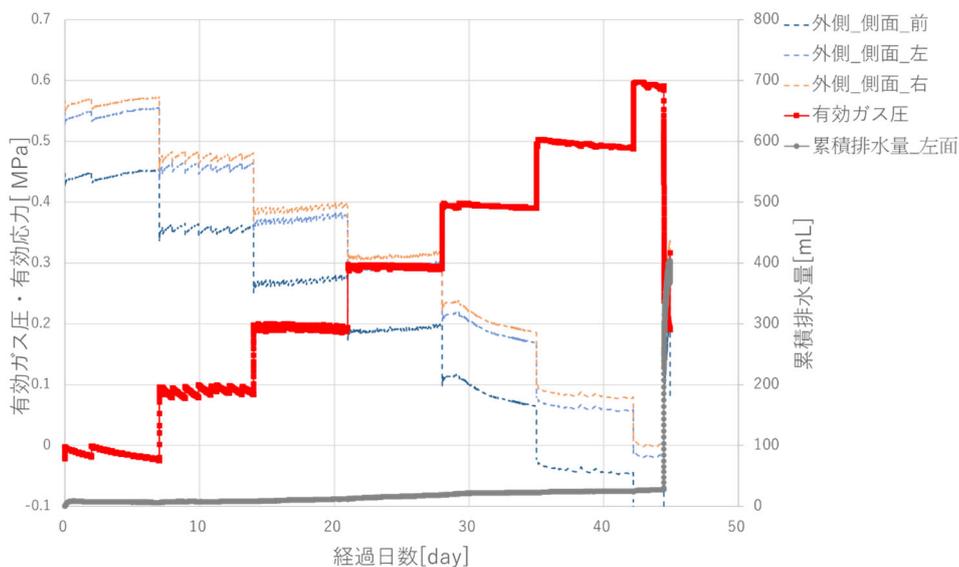


図 4.3-4 ガス移行試験（1回目）における各測定項目の経時変化

再破過試験においても同様に方向による排水量のばらつきや左面からの破過現象が確認された。再破過試験におけるガス移行試験の測定データのうち、特に左面方向に着目した結果を図 4.3-5 に示す。1 回目のガス移行試験ではガス圧の昇圧ペースを+0.1 MPa/週としていたが、ガスの移行媒体への侵入の様子や破過前後の挙動をより精緻に確認するため、再破過試験においては有効ガス圧 0.3 MPa への昇圧以降はより長い昇圧ペースとした。1 回目のガス移行試験とは異なり、有効ガス圧 0.3 MPa の時点で移行媒体への侵入が開始していること、0.4MPa の時点での有効応力の低下傾向は抑えられていることがわかる。しかし、破過が生じたのは 1 回目のガス移行試験時と同様の 0.6MPa の時点であった。このことより、一度破過を経験した試験体を再冠水させるという理想的な状況においてではあるが、緩衝材への致命的な欠陥等が生ずることはなく緩衝材の自己シール性が機能したことが確認できた。

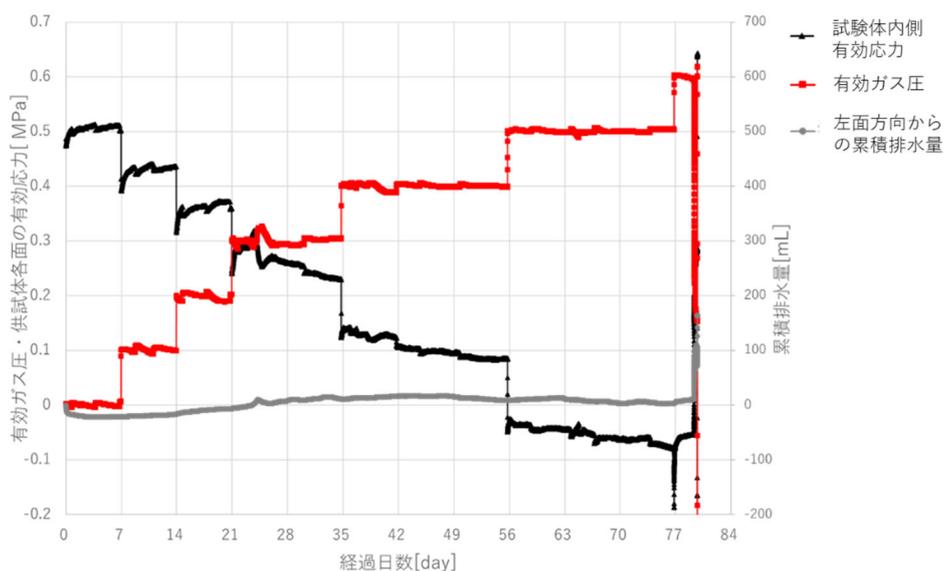


図 4.3-5 ガス移行試験（再破過試験）における各測定項目の経時変化

② 1次元系要素試験との比較

小規模モックアップ試験に供したベントナイト混合土 [ベントナイト (クニゲル V1) : ケイ砂 (3号と5号ケイ砂を乾燥重量比 1 : 1 で混合したもの) = 70wt% : 30wt%] に対する気液二相流特性の把握に必要なデータを蓄積・拡充することを目的とした要素試験を実施した。(RWMC, 2019)要素試験体は、最も実施事例が多い形状 (φ60mm・高さ 25mm の円柱形状) に準拠したものを用いた。試験体はモックアップ試験と同様の仕様とし、圧縮成型後に乾燥密度 1.6 Mg/m³、飽和度 95%となるよう計量・加水調整し飽和に至ったことを確認した後、ガス移行試験を実施した。試験結果を図 4.3-6 に示す。供試体の圧縮による排水を伴いながら有効な底面応力 (全応力-間隙圧) が低下していく様子が確認できる。また、有効な底面応力は、その後約 20 日経過以降にゼロに到達していることから、この時期に供試体にガスが浸入したものと想定できる。破過は更にその 4~8 日後 (ガス注入開始から 24 日~28 日経過後) に観測されており、破過圧は有効ガス圧約 1.4MPa が確認できた。この値は小規模モックアップ試験で観測した 0.6MPa よりも大きな値であり、両試験とも同じベントナイト混合土を用いていることから、この差は試験系に寄るものと推定される。実処分施設に近いものは小規模モックアップ試験の方であり、このことから要素試験における破過圧は過剰に評価したものであったことが判明した。また、有効応力の漸減傾向もモックアップ試験でしか観測されておらず、これらの差異は試験系での体積拘束

の違いによるものと考えられる。

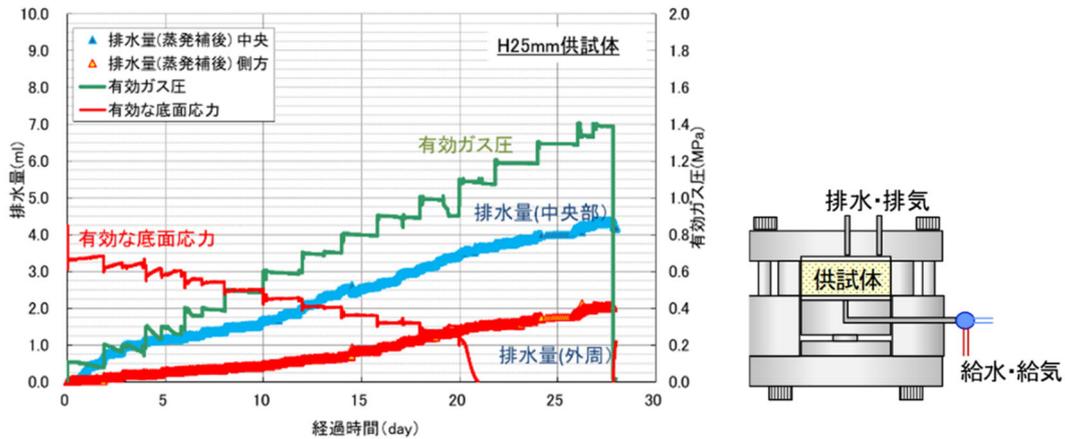


図 4.3-6 試験装置と試験結果

③ 解体調査の結果

再破過試験の後、解体調査による試料採取と試料分析を行った。まず、試験装置の上蓋を外し、目視により試験体の頂面の状態を調査した。試料採取はシンウォールサンプラーを挿入することにより試料を行った。また、その際に試験体製作時の打ち継ぎ面に相当する部位に関しても目視により状態を確認した。図 4.3-7 のように、試験体の頂面および打ち継ぎ面のどちらに関しても亀裂や致命的な欠陥等は存在せず、試験体がよく密着した状態であることを確認した。採取した試料は図 4.3-8 に示すようにカット、細分化して分析に供した。ガス移行に伴い、ガスが通過した経路の含水比が低下する可能性がある。また、ガス移行試験の結果、試験体の各面の間で、排水あるいはガス排出量に大きな差が生じたことから、試験体に不均質性が内在すると考えられる。したがって、ガス移行経路を推定するために、ガス移行に影響すると考えられる採取試料の含水比、密度及び飽和度を調査することとし、ガス注入口から外面に向けたパラメータの分布を取得することとした。図 4.3-8 に破過が確認された左面の一部を含む部位について算定した飽和度の分布図を示す。試験体中のガス移行に伴っていると思われる飽和度分布（外周面側からガス注入口側にかけて低飽和度になっている状況）が見られる。特に左面側（B 部）と頂面（A 部）で、飽和度が相対的に小さい領域が多く見られたことから、再破過試験での評価結果（主に左面で破過が生じた可能性）と連動していると考えられる。ガスの排出挙動や移行特性に関して、A 部全体の飽和度が低いことにも留意すべきである。これは重力の影響によるもので、気体は相対的に供試体上方へ、液体は相対的に下方へと移動しやすくなっているのではないかと考察した。

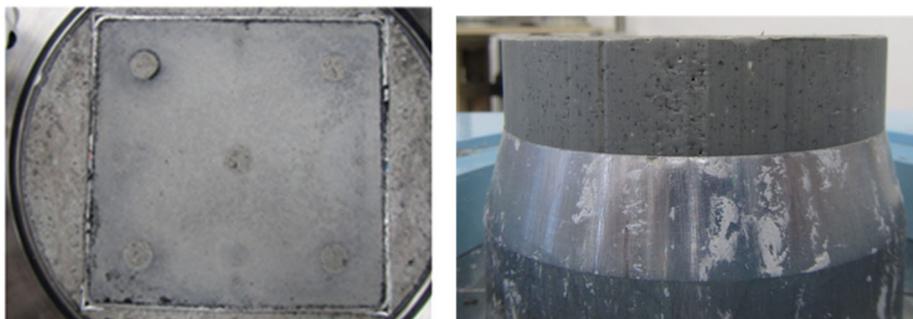


図 4.3-7 目視による試験体の帳面および打ち継ぎ面の確認

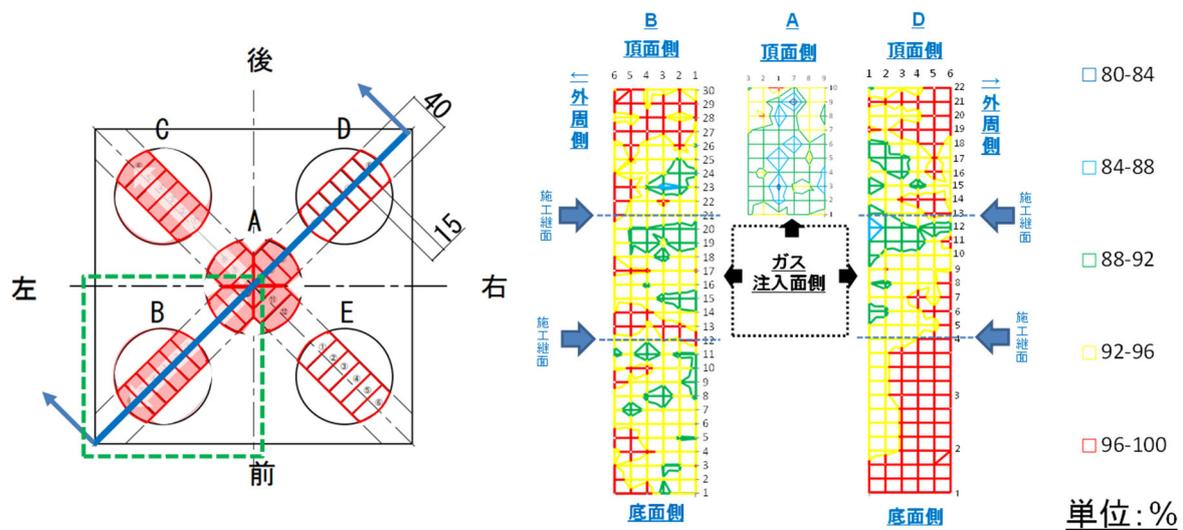


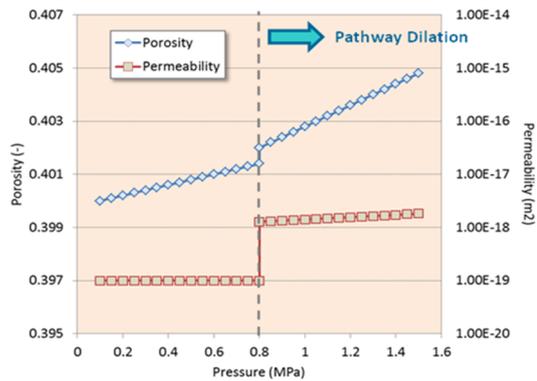
図 4.3-8 資料採取部位および算定した飽和度分布図

(2) 力学連成ガス移行評価モデルの高度化

より現実的なガス移行挙動を評価する手法を開発するべく、力学連成二相流解析コード CODE_BRIGHT による小規模モックアップ試験の再現解析を実施し、ガス移行挙動評価モデルの更なる高度化を図った。小規模モックアップ試験の結果に関して、1次元要素試験により取得した気液二相流パラメータによる再現解析および再同定した気液二相流パラメータによる再現解析結果の比較を実施し、小規模モックアップ試験への要素試験により取得したパラメータの適用性の確認を行った。

1) 解析手法および解析ケース

ここでは解析における設定の内、用いた解析コードについての概要とケース設定を図 4.3-9 とともに示す。従来の解析コード GETFLOWS ではガス圧と間隙水圧、膨潤圧の関係から間隙比を変化させることにより絶対浸透率を増減させており、ガス圧が「間隙水圧+膨潤圧」を上回る地点で適用する関数を変えて絶対浸透率をステップ状に変化させていた (RWMC,2017) (RWMC,2021)。CODE_BRIGHT による再現解析で適用する絶対浸透率モデルは、ガス移行に伴う緩衝材中の応力 (ひずみ) 変化により微小亀裂が生じ、更に微小亀裂が絶対浸透率に影響を与えるというモデルで、応力 (ひずみ) 変化に応じて絶対浸透率を緩やかに変化させるものである。小規模モックアップ試験の結果からもガス圧が移行媒体の応力に打ち勝つことで間隙が押し広げられていく挙動が確認できており、再現性の向上への寄与が見込まれると考えた。



流路拡幅モデル (Pathway dilationモデル (登坂, 2010)) 「GET FLOWS」

亀裂生成影響考慮モデル

(I.P. Damians, S. Olivella, A. Gens (2020))

- 各要素の気相・液相それぞれの固有透過率はマトリックスの透過率に微小亀裂による透過率の増分を加えたものとする。

$$k = k_{matrix} + k_{eq_fractures}$$

- 亀裂開口幅 b と亀裂間隔 a を有する亀裂の等価透過率(3乗則)経験則

$$k_{eq_fractures} = k_{fracture} \frac{b}{a} = \frac{b^3}{12a}$$

図 4.3-9 各解析コードに適用した浸透率モデルについて

小規模モックアップ試験の再現解析にあたっては比較のため複数のケースを設定し再現解析を実施した。要素試験により取得したパラメータの適用性に注目し、本報告書ではそのうち2通りのケースの比較に注目する。ケース1はガス移行要素試験で得られた二相流パラメータ(RWMC,2019)を用いた解析ケースで、比較のためのレファレンスケースとして設定した。ケース2はガス移行特性をモックアップ試験体の解体調査等から推定し、乾燥密度等の力学パラメータを図4.3-10のように解析モデルの左面部位に付与する。また、モックアップ試験結果を考慮し、二相流パラメータを再同定した。

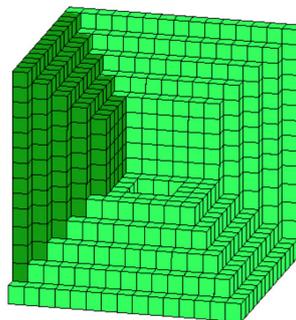


図 4.3-10 解析モデルへの推定した力学パラメータの付与

2) 小規模モックアップ試験の再現解析結果

各ケースの再現解析結果および二相流パラメータの比較についてここで記す。

① ケース1 (レファレンスケース)

ケース1-1の解析結果を図4.3-11に示す。解析結果は試験結果やGETFLOWSによるシミュレーション結果とも乖離した。主な要因は、用いた二相流パラメータが難排水条件である(ガスが難浸入条件であり、かつ飽和度が90%を下回らない条件では排水が進展しない条件となっている)ため、当該条件での力学連成二相流挙動が生じなかったことによると考察した。

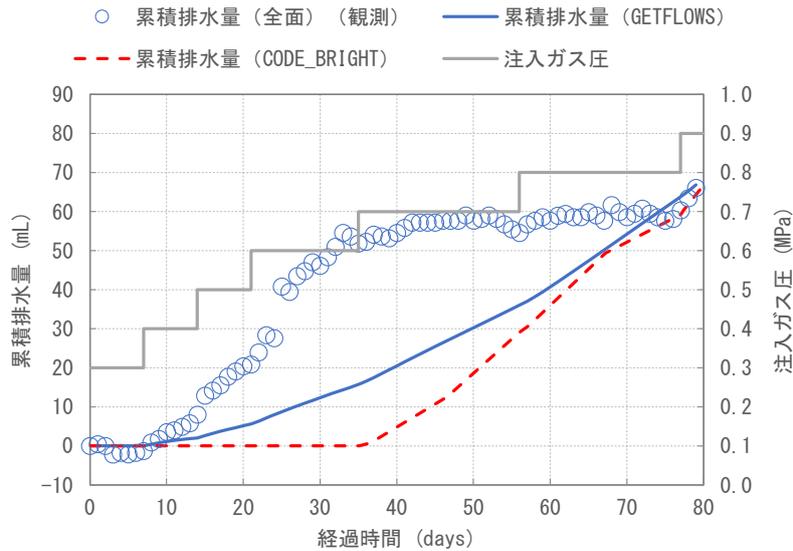


図 4.3-11 解析ケース 1 の累積排水量の経時変化の再現解析結果

② ケース 2

ケース 2 の解析結果を図 4.3-12 に示す。解析結果は既往検討で実施した GETFLOWS によるシミュレーション結果と比較して試験結果を良好に再現できている。これは、同定した二相流パラメータが易排水条件（ガスが易浸入条件）となっているため、試験開始（ガス注入開始）から 30 日後までの排水挙動が再現できていることによる。詳細は後述する。

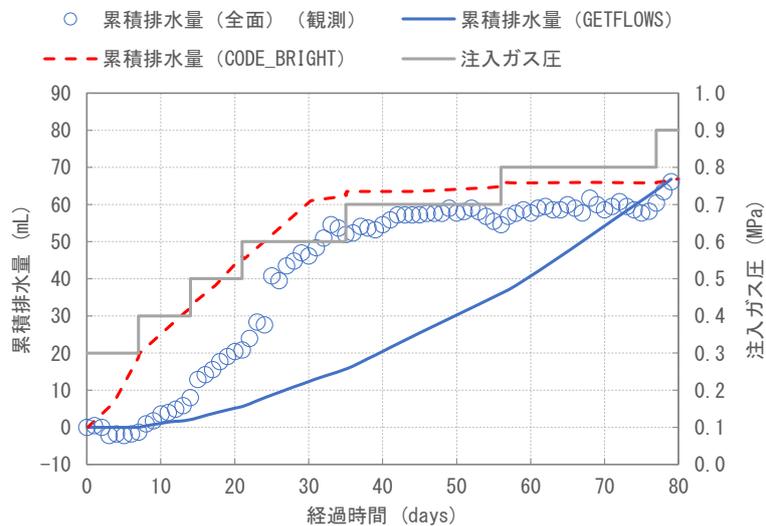


図 4.3-12 解析ケース 2 の累積排水量の経時変化の再現解析結果

③ 二相流パラメータの比較

各ケースにおける二相流パラメータの比較を図 4.3-13 に示す。既往検討での再現解析においては van Genuchten モデルを用いてきたが、同モデルでは高飽和度領域における気相の相対浸透率の上昇が小さく表現される（ガスが浸入し難い）ため、試験で初期に観測される排水が再現できなかった。高飽和度領域における気相の相対浸透率の動きを大きく表現できる Grant モデルを適用することでガスが浸入し易くなる（初期に排水され易くなる）挙動が表現でき、再現度を

向上させることができた。モックアップ試験では要素試験時と比べ、体積拘束等の違いからガスが侵入しやすくなっていることが影響していると考えた。

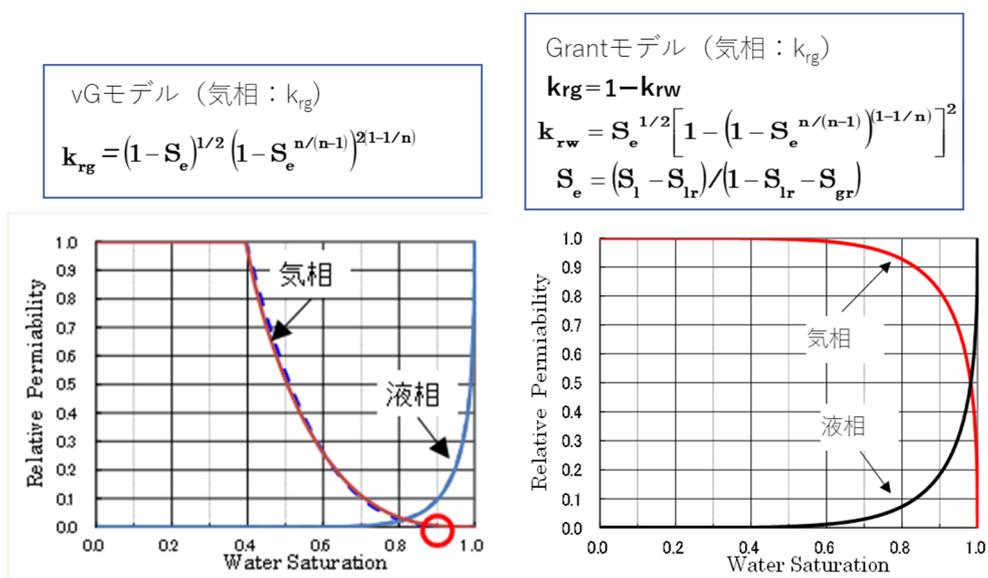


図 4.3-13 各ケースの二相流パラメータの比較

4.3.3 ガス発生量と影響評価

放射性廃棄物由来の発生ガスによる核種移行挙動への影響を評価するため、ガス挙動（発生、移行）の影響を定量的に評価可能な核種移行評価モデルの再構築、及びそれを用いた核種移行解析を実施した。ガス発生量の定量評価のため、最新の知見や設定条件を整理し、ガス発生挙動（発生時期、発生速度）を現実的に評価すべくガス発生量定量評価手法を構築した。当手法による廃棄体グループ2を対象としたガス発生量評価結果をソースタームとしたガス移行解析評価を実施し、その結果を基とした核種移行解析を実施した。本報告書では既往検討（RWMC,2017）との差異に注目してとりまとめる。

(1) ガス発生量評価手法および評価結果

本検討では、ガス移行解析の入力条件を定めるため、廃棄体グループ2を対象としたガス発生量を経時的変化を定量的に評価した。ガス発生機構としては、水の放射線分解と金属材料の嫌気性腐食とした。評価期間としては廃棄物発生から10,000年後まで、評価対象とする領域としては廃棄体/廃棄体パッケージ/人工バリアまでとした。本検討において発生量の評価に関してより現実的に評価を実施した項目を表4.3-4にまとめる。また、廃棄体由来のガス発生は廃棄体（キャニスタ）製作時から始まりうることから、評価開始を廃棄体製作時と設定し、ガス発生シナリオとして時系列ごとのイベントを設定した。（ $T=0$ y: 廃棄物発生（容器封入）= 基準年 $T=25$ y: 処分実施主体による廃棄物受け取り、廃棄体パッケージ製作 $T=50$ y: 処分場閉鎖、EBS 製作 $T=325$ y: 廃棄体パッケージ開口 $T=10,000$ y: 評価期間終了）

表 4.3-4 本検討にてより現実的な評価を実施した項目

実施例	既往検討におけるインプット (RWMC,2017)	本検討 (RWMC,2022)
全体	TRU-2レポートの条件がベース	包括的技術報告書 (NUMO) の条件がベース
核種 インベントリ	— (廃棄体グループ2) (キャニスタ: 30,870本)	廃棄体当たりのインベントリは同じ。 ただし、廃棄体本数が微増 (キャニスタ: 31,332本)
廃棄体 パッケージ	(当時の) 廃棄体パッケージB 炭素鋼5mm、セメントモルタル、 寿命0年 (核種漏洩開始はT=50 年)	(更新された) 廃棄体パッケージB 炭素鋼50mm、セメントモルタル、 寿命300年 (核種漏洩開始はT=325 年)
処分坑道 設計	G2の4種の廃棄体毎に専用の処分 坑道を用意。	発熱量を考慮して混合して定置。 処分坑道としては1種類。
	円形坑道 セメントモルタルに収着を期待 (Kd≠0)	馬蹄形坑道。 廃棄体パッケージの定置ピッチが異な り、総坑道長が延長。 セメントモルタルに収着を期待しない。 (Kd=0)
解析モデル	GoldSim	GoldSim (NUMO包括的技術報告書に準拠)

経時的なガス発生量の評価結果を図 4.3-14 に示す。水の放射線分解によるガス発生量が金属腐食によるガス発生量よりも卓越する結果となった。水の放射線分解によるガス発生では、廃棄体パッケージが開口する $T=325$ 年の外部から地下水が流入する時点で初めてキャニスタ内にも地下水が流入することとなり、 α 線および β 線による放射線分解が開始されガス発生量が大きく上昇する。金属腐食については、初期は廃棄体パッケージモルタル中の自由水を消費しながら、廃棄体パッケージを主要因としたガス発生機構となっているが、 $T=50$ 年からは人工バリア材による金属腐食が、 $T=325$ 年以降はキャニスタ内に流入した地下水による廃棄物 (ハル、エンドピース) の腐食が追加されることとなる。このように本検討では、時系列的に発生するイベントを反映した評価結果となっている。

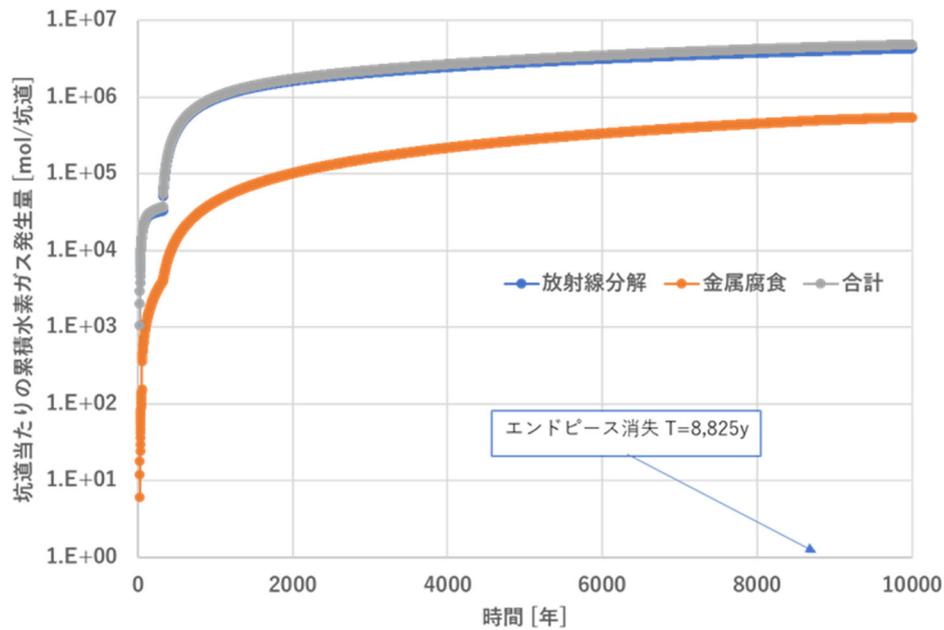


図 4.3-14 グループ2におけるガス発生量評価結果

廃棄体パッケージの閉じ込め性能に係る試験と評価において検討したガス発生量低減対策の成果を反映するため、充填材の乾燥処理による自由水量の低減を反映したケースを設定し評価した結果を図 4.3-15 に示す。右図が自由水量の低減を反映したケースとなっており、初期の状態 ($T < 325$ y) では、モルタル自由水量が少なく放射線分解によるガス発生が抑制されているために、放射線分解によるガス発生量と金属腐食によるガス発生量に相違が見られる結果となっている

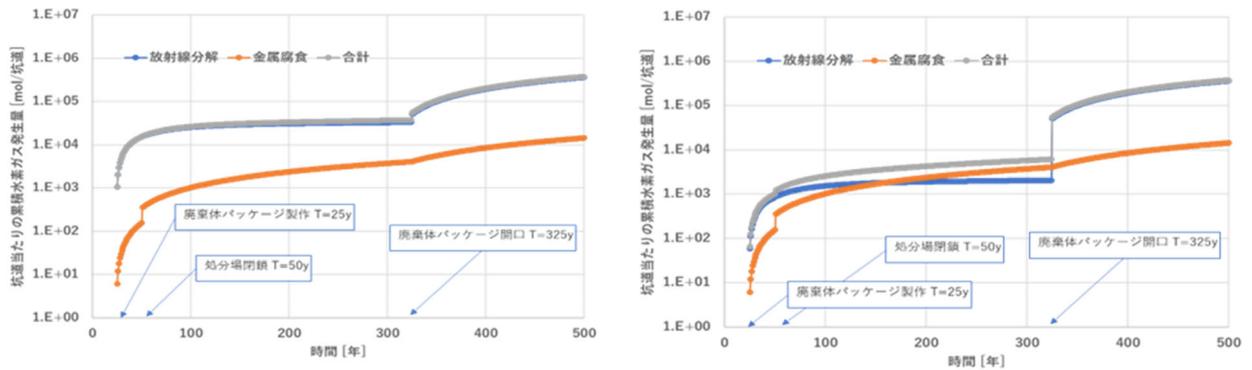


図 4.3-15 自由水量の低減を反映したケース（右図）との比較

(2) ガス移行解析による押し出し排水量評価

核種移行解析へのインプットとすべく、ガスによる押し出し排水量をガス移行解析により評価した。解析体系としては実スケールレベルの処分施設のガス移行解析を想定し、ガス発生量評価結果をソースタームとした解析を実施した。解析には小規模モックアップ試験の再現解析と同様に応力連成二相流解析コード CODE_BRIGHT を用いた。いくつかの解析ケースを設定し評価を実施したが、そのうち小規模モックアップ試験やその再現解析結果から得られた知見を最も反映し設定したケースについて着目した評価結果をここでは示す。小規模モックアップ試験で得られ

た知見を反映しガス発生量評価で設定したガスシナリオに沿ったものとなるよう解析手法および解析条件を整備した。

1) 解析条件および評価結果

解析モデルを図 4.3-16 に示す。解析に設定する境界条件として解析モデルの支保工外側を深度 500m 相当の静水圧分布にするとともに、廃棄体領域に設定する境界条件では $T=325$ y におけるパッケージ開口シナリオ設定に沿ったものとし、 $T<325$ y では不浸透条件とした。小規模モックアップ試験では偏りのある排水挙動が観測され、再現解析においても解析モデルの特定部位に対して試験結果より推定した力学パラメータを設定することで再現性を向上させることができた。これらの結果を考慮し本解析でも偏りのある排水条件の設定として、図示した部分に再現解析のケース 2 で整備した力学パラメータセットを適用した。

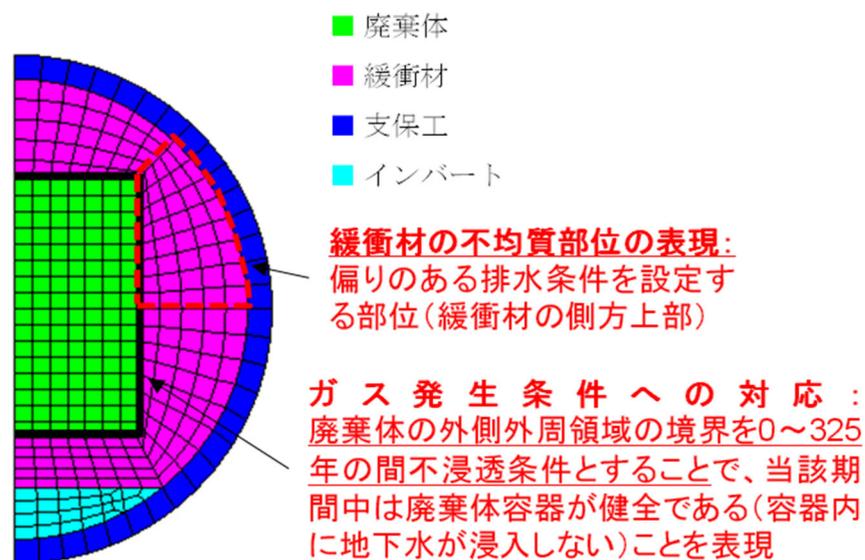


図 4.3-16 押し出し排水量評価解析モデルおよび条件設定

ガス発生量評価結果のうち図 4.3-14 の結果をインプットの基とし、緩衝材からの押し出し排水量の経時変化を評価した。図 4.3-17 に結果を示す。緩衝材からの排水流量は廃棄体パッケージの健全性が損なわれると設定した $T=325$ y ごろにピークが見られることがわかった。

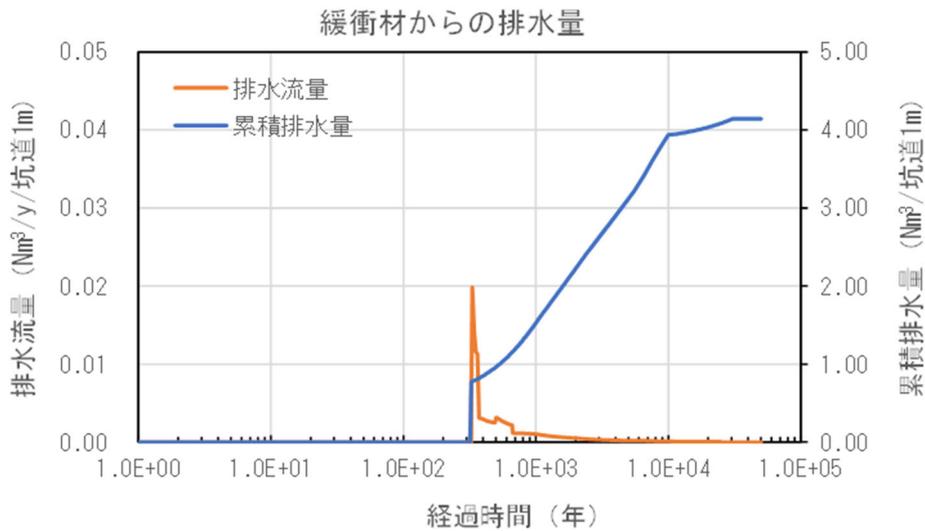


図 4.3-17 押し出し排水量評価の結果

2) 既往検討との比較

既往検討 (RWMC,2017) の評価結果のうち、前提条件が本検討と類似しているものと比較し、考察した。既往検討のうちで本検討と類似したケースの評価結果を図 4.3-18 に示す。10000 年時点での累積排水量とピーク時の排水流量 (排水速度) はともに本検討の方が小さい。これは本検討において解析のソースタームとしているガス発生量をより現実的に評価したことによる影響が大きいと考察した。

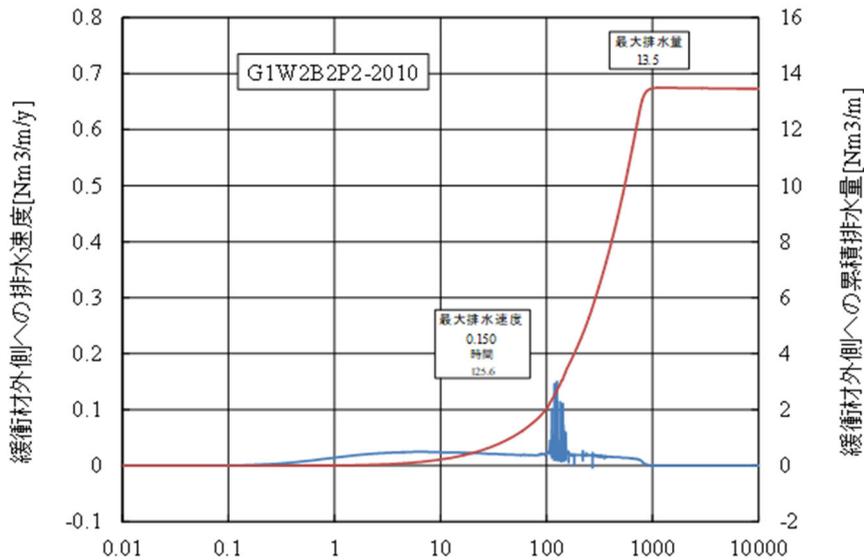


図 4.3-18 既往検討 (RWMC,2017) における押し出し排水量評価 (横軸 : 年)

(3) 核種移行評価

ガス発生量評価結果及びそれを受けたガス移行解析結果を基にガス影響を想定したシナリオ条件下における核種移行解析を行った。評価対象廃棄物は廃棄物グループ 2 とした。評価上の核種インベントリはキャニスタあたりの核種インベントリ (電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構, 2005) に総発生本数を乗じた積を核種移行解析における評価上の核種インベントリとした。

ガス発生量評価におけるガスシナリオに合わせ、廃棄物が発生する時点を核種移行解析における始点とし、核種漏洩開始は廃棄体パッケージ開口に伴う T=325y と設定した。

1) ガス移行解析結果の解釈および反映方法

ガス影響を核種移行解析上に反映するにあたって、ガス移行解析結果をどのように解釈し解析条件の設定に反映させたかという点に注目して記す。

ガス影響を考慮した核種移行解析では、通常は拡散支配の条件下で緩慢に移行する緩衝材中での核種の移行がガスの透気によってどのような擾乱を受けるかに注目して評価モデルを構築する。本検討における設定では、ガスは緩衝材中に透気経路を形成して透気しその透気経路を通じて汚染水も排水されるとした。ただし、一旦形成された透気経路ではあるが、ガス透気後は内部のガス圧も低下するため、緩衝材の膨潤性によって閉塞し透気前の緩衝材による拡散移行の場が再形成されるものとした。評価上の透気経路は、H : 0.4 m × W : 1.0 m × L : 2.0 m の寸法と設定した。

核種移行解析における透気経路の水力条件については以下の条件を満たすように設定した。ガス移行解析の結果として得られた緩衝材外側境界を評価点とした時の排水速度及び累積排水量は、全て一時的に形成された透気経路から流出するものと保守的に捉え、汚染水の水力条件としても保守的な条件となることを満足させた。図 4.3-19 にガス移行解析結果を解釈した入力値を示す。

- (透気経路の排水速度) > Max (ガス移行解析における排水速度)
- (透気経路の排水期間) = (ガス移行解析における累積排水量) ÷ (透気経路の排水速度)

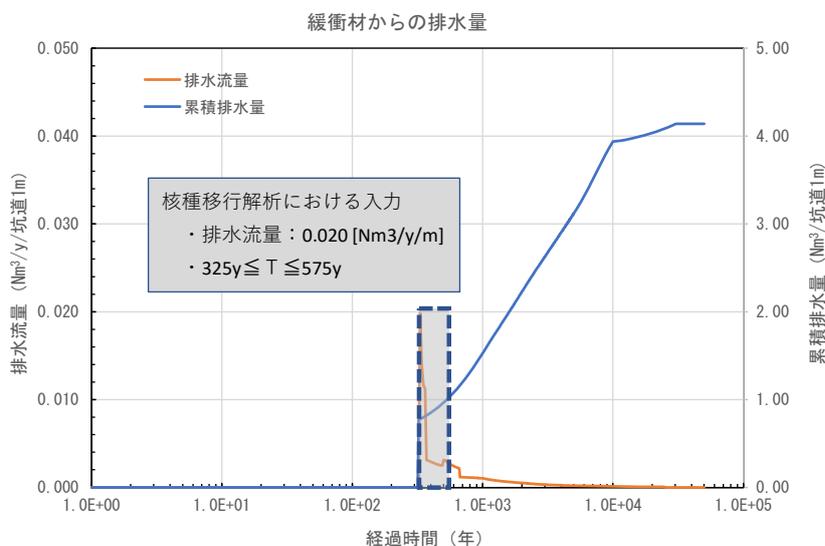


図 4.3-19 押し出し排水量評価結果の解釈

2) 線量評価結果

EDZ 外側での線量評価結果を図 4.3-20 に、生物圏での線量評価結果を図 4.3-21 に示す。EDZ 外側での核種移行率に注目した場合、ガス影響を考慮したケースでは、325 年頃にピークが起ち上がった後に、500 年～1,000 年程度の「肩」となる平坦部が生じている。この「肩」は、ガスの破過時に透気経路を通じて緩衝材から漏洩する核種に由来するものである。ただし、緩衝材の通常の拡散経路から漏洩する核種移行率に比較すれば相対的に小さいので、EDZ 外側での核種移行率全体のピークを左右するほどの影響を及ぼしていないと言える。生物圏での線量当量率からは線量当量率のピークも経時変化も解析ケース間での相違がほとんど認められない。したがって、

ガス発生量評価、ガス移行解析、核種移行解析を通しての一連の解析評価条件の範囲では、廃棄体に由来する発生ガスの地層処分の長期安全性への影響度合いは小さいと判断することができる。このことは各評価点でのフラックスを比較する場合、一般論として、評価点の位置がソースから遠ざかれば遠ざかるほど、バリア効果によって標準設定との差異が小さくなることと合致している。

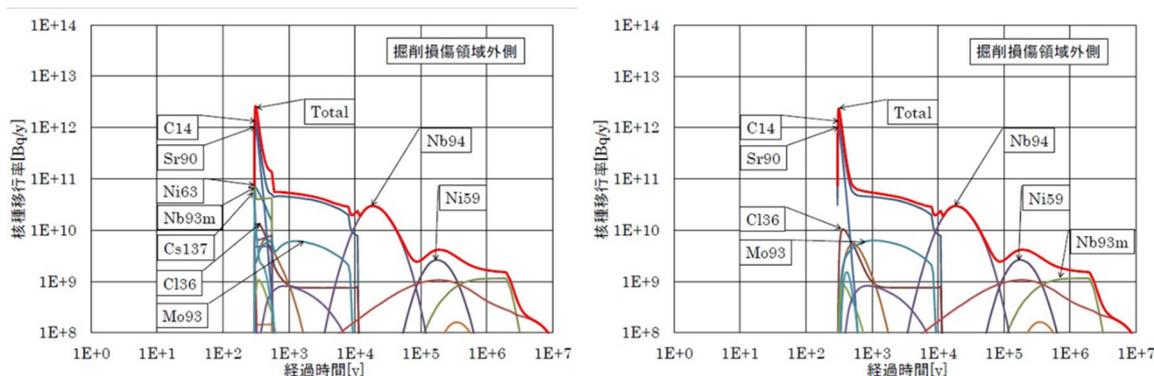


図 4.3-20 EDZ 外側での線量評価結果 (左: ガス影響考慮 右: レファレンスケース)

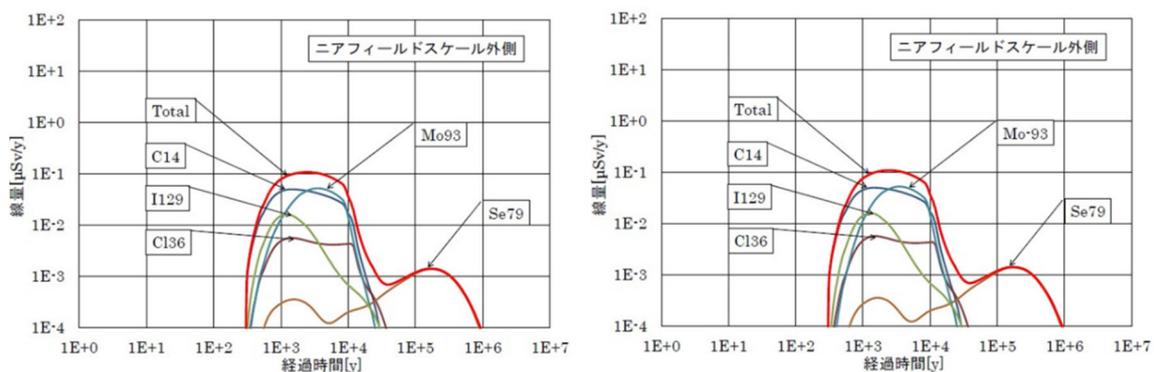


図 4.3-21 生物圏での線量評価結果 (左: ガス影響考慮 右: レファレンスケース)

4.3.4 長期変遷を考慮したガス移行場の状態設定評価

人工バリアの状態変遷を踏まえたガス移行場の状態設定を目的に、人工バリアの状態変遷に関わる複数の物理現象について逐次かつ相互の連成が可能な有限要素解析コード COMSOL Multiphysics® (以下、「COMSOL」という。)による人工バリアの状態評価を実施した。その結果を反映したガス移行解析により、人工バリアの状態変遷によるガス移行現象への影響について評価した。緩衝材の移行特性に関する構成則の検討として、montmorillonite 粒子を円板状粒子に近似した Monte Carlo 構造解析手法(RWMC,2021)の移行特性評価への適用性を、有効空隙率、比表面積、屈曲度のような空隙構造に関する幾何学的な特性量のモデル化を通し確認した。さらに砂層やシルト層を模した球状粒子層、粘土層を模した円板粒子層、および実際のベントナイト層を模した球-円板粒子混合層の構造を数値解析によって求め、粒子層中の空隙特性量の推移を調べることで、統一的な透水モデル構築の可能性について検討した。

(1) 実処分施設を想定したガス移行場の状態設定

COMSOL による人工バリアの状態評価を実施した。解析は力学解析と化学解析の 2 つの段階に分けて実施し、2 次元モデルを用いた力学解析により最も体積ひずみの大きくなる箇所および体積ひずみを抽出し、得られた体積ひずみを 1 次元の化学解析モデルへと反映することで人工バリアの状態評価解析を実施した。解析条件は既往検討(RWMC,2021)を基に設定した。解析のタイムスケールに関しては、ガス発生量評価におけるガスシナリオを踏まえ、廃棄体パッケージ開口 (T=325y) までとした。人工バリアの透水係数をガス移行解析への受け渡しパラメータとして出力した。化学解析より得られた透水係数の分布を図 4.3-22 に示す。ベントナイト層とモルタル層の境界面付近で透水係数が上昇する結果となった。ガス移行解析では、最大となる透水係数の値を保守的にモデル全域に絶対浸透率として与えた。

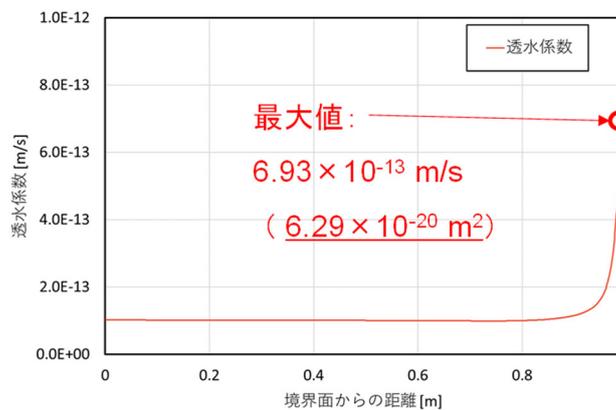


図 4.3-22 ガス移行場の状態変遷を考慮した化学解析結果（括弧内は絶対浸透率）

ガス移行解析での排水量ピーク時における空隙率分布を図 4.3-23 に示す。左が化学解析より受け渡したパラメータを反映したもので、右は押し出し排水量評価結果のうちレファレンスケースとして実施したもので、比較として示す。解析コードは CODE_BRIGHT、二相流パラメータは 1 次元要素試験にて取得したのものを用い、緩衝材はモデル全域で均質なものとした。最も大きな差異が確認されると推測される排水量ピーク時における空隙率分布においても、大きな差異は確認されず、廃棄体パッケージ開口 (T=325y) までの人工バリアの状態評価の反映ではガス移行挙動に大きな影響はないことが示唆された。

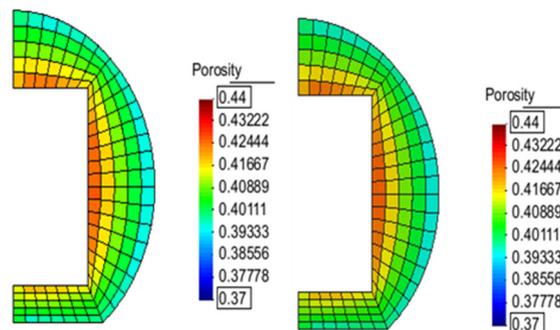


図 4.3-23 排水量ピーク時の空隙率分布（左：反映ケース 右：レファレンスケース）

(2) 状態設定に係る緩衝材の移行特性の検討

これまで球形に近い形状の粒子層中の透水性を表すモデルとして、Kozeny-Carman 式が用いられてきた (Carman, 1937)。定数の扱い方や表記方法には任意性があるが、一般的な Kozeny-

Carman 式 (以下、KC 式) は空隙特性量 (透過率、空隙率、屈曲度、比表面積) を用いて次式のように表される。

$$k = \frac{\phi^3}{c\tau^2(1-\phi)^2(S_v)^2} \quad (4.3-1)$$

砂層、粘土層、混合層を模した粒子構造を数値解析によって求め、その空隙特性量から KC 式により透過率を算出することにより、clay fraction を変数とした砂-粘土層の統一的な透水モデル構築の可能性についての検討を行った。砂層を模した球充填層および粘土層を模した円板粒子層に対して、空隙領域を抽出し、有効空隙率、比表面積および屈曲度の空隙特性量を算出した。これら 3 つの空隙特性量を、KC 式に代入することで、各粒子構造の透過率を算出した。

図 4.3-24 に、球充填層および円板粒子層の解析結果と文献の実験結果を透過率と porosity で整理し比較したものを示す。砂層、粘土層ともに実験結果とのよい一致が得られ、本解析結果により、砂層、粘土層に関わらず、KC 型の透水モデルに適切な空隙特性量の構成式を代入することにより、統一的な透水モデル式を構築できる可能性が示唆された。

球-円板混合層に対しても同様に解析によって有効空隙率、比表面積、屈曲度を求め、それらを KC 式に代入することにより透過率を算出したが、値の範囲はよい一致が得られたが、実験結果とは変化の傾向が異なる結果となった。粒子サイズの相違等の解析における条件設定が実験における条件と異なることが解析結果と実験結果との差異の一因であると考察した。要因の追及は今後の課題である。

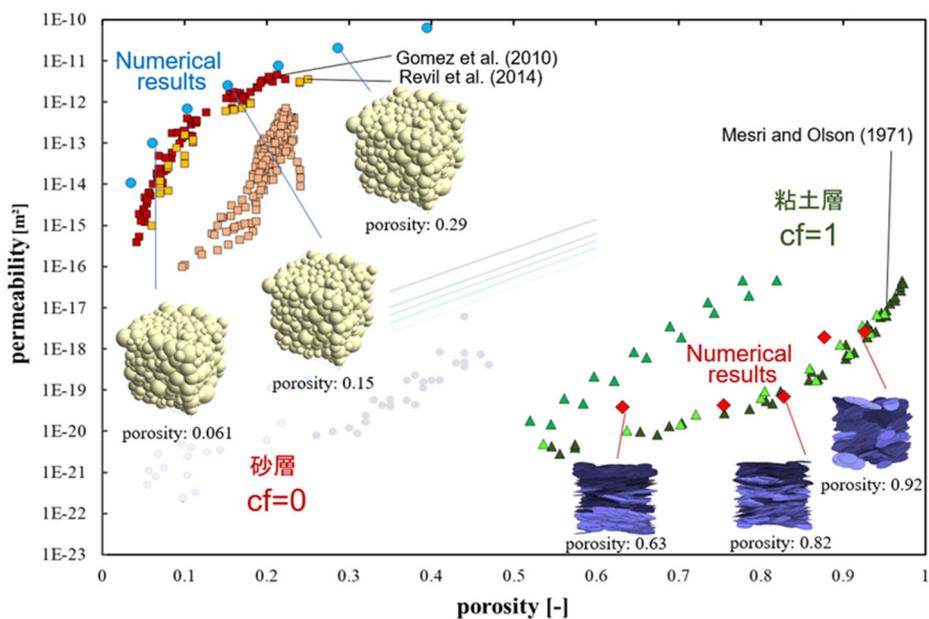


図 4.3-24 砂層および粘土層の透過率に関する解析結果と実験結果との比較

4.3.5 まとめと今後の課題

ガス移行挙動が処分場の性能に及ぼす影響を評価可能な現象モデルおよびその現象を再現する解析手法を構築することを目標とし、小規模モックアップ試験およびその再現解析の実施、発生ガスによる核種移行挙動への影響を評価した。

より現実的なガス移行挙動を評価する手法を開発するため、実処分施設の形状的特徴を有する

3次元系の小規模モックアップ試験体による、ガス移行試験並びに再破過試験、解体調査、試験結果の再現解析を実施した。ガス移行試験では観測された破過の発生方向や排水量には方向による偏りが観測された。また、小規模モックアップ試験で観測した破過圧は要素試験時に観測した値よりも小さくなった。これら3次元的なガス移行挙動の特徴は材料特性のばらつき（施工継ぎ目等が弱部となった可能性）や要素試験との体積拘束状態の差異によるものと考察した。再破過試験では一度再飽和過程を経ての理想的な条件下においてではあるが、緩衝材による自己修復性が発揮されたことを確認した。そして、小規模モックアップ試験で観測した排水量の再現解析を通して要素試験で取得した二相流パラメータの適用性の確認および気/液相移動一力学連成解析モデルの高度化を実施した。要素試験により取得した二相流パラメータでは小規模モックアップ試験の再現性はあまりよくなかったが、解体調査結果を参考にした初期間隙率のモデルへの付与、二相流パラメータの再同定により再現性が向上した。より現実的なガス移行挙動の評価に向けて、モックアップ試験等による3次元的なガス移行挙動への材料特性のばらつき等の影響要因の絞り込みとその程度について現象理解を深め、水理一力学連成を考慮したガス移行評価技術を高度化することが課題である。

発生ガスによる核種移行への影響を定量的に評価するため、ガス発生量評価、ガス移行評価、核種移行評価を一連の解析チェーンとして実施した。最新の知見や設定条件を整理し、ガス発生挙動（発生時期、発生速度）を現実的に評価すべくガス発生量定量評価手法を構築した。当手法による廃棄体グループ2を対象としたガス発生量評価結果をソースタームとし、ガス移行解析による押し出し排水量の評価を実施した。そして、その結果を基としたガス影響を考慮した核種移行解析を実施したところ生物圏における発生ガスによる有意な影響は確認されなかった。しかし、今回の解析ではガスによる蓄圧・破過（移行経路の卓越）と緩衝材の自己シールによる閉塞はそれぞれ一度のみ発生するという設定であり、それに基づく評価結果である。実際の処分場における現象としては、ガスによる蓄圧・破過と緩衝材の自己シールは相互に関与しつつ同時に進行することも想定され、破過と閉塞が繰り返し起こることも想定される。実処分場における破過現象に関する精緻なシナリオ設定や予測には、緩衝材の自己シール性に関するデータの拡充やそれに基づいた予測解析が必要である。

参考文献

- Carman, P. C., Fluid flow through granular beds, Trans. Inst. Chem. Eng., 15 150, 1937.
- 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—適切なサイト選定に向けたセーフティーケースの構築—, NUMO-TR-20-03, 2021.
- 原子力環境整備促進・資金管理センター, 平成 28 年度地層処分技術調査等事業 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発報告書 (第 4 分冊) —人工バリア材料長期挙動評価・人工バリア評価—, 平成 28 年 3 月, 2017.
- 原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 平成 29 年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 TRU 廃棄物処理・処分に関する技術開発 報告書 平成 29 年 3 月, 2018.
- 原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 平成 30 年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 TRU 廃棄物処理・処分に関する技術開発 報告書 平成 30 年 3 月, 2019.
- 原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 平成 31 年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 TRU 廃棄物処理・処分に関する技術開発 報告書 平成 31 年 3 月, 2020.
- 原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 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 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発 報告書 令和 2 年 3 月, 2021.
- 神山 新一, 佐藤 明, モンテカルロ・シミュレーション, 朝倉書店, 1997.
- 三原守弘, 西村努, 和田隆太郎, 本田明: 低酸素かつアルカリ条件における炭素鋼、ステンレス鋼及びジルカロイからのガス発生率及び腐食速度の評価, サイクル機構技報, No.15, JNC TN1340 2002-001, pp.91-101, 2002.

4.4 有機物の影響評価モデルの高度化

4.4.1 目的と5か年の実施内容

TRU 廃棄物に含まれており、HLW との共処分において核種移行挙動に影響を及ぼすと考えられる因子として、TRU 廃棄物に含まれる硝酸塩や有機物、そして処分施設のセメントなどが挙げられる。これらのうち、TRU 廃棄物に含まれる有機物を対象として、先行研究において平成 26 年度から核種移行に及ぼす影響の評価に着手した（日本原子力研究開発機構，2015）。この調査結果として、処分後の核種移行挙動評価に影響を及ぼす有機物として最も基盤データの充実が必要と判断されたものが、セルロールの分解生成物であるイソサッカリン酸 (ISA) であった。したがって、金属イオンの ISA との錯生成について、熱力学データの導出を試みるとともに、錯生成のメカニズムについて考察を行うことを目標として研究を実施した。先行研究では、TRU 廃棄物処分の性能評価の優先度や熱力学データの充実度を考慮して、ジルコニウムおよびウランを対象とした。これまでに、ISA 及び類似物質のグルコン酸 (GLU) 共存下におけるジルコニウムの溶解度実験を実施し、実験結果から支配的な溶存化学種 (ISA 及び GLU 錯体種) を推定した上で、反応の平衡定数を導出した (Kobayashi et al., 2017)。さらに、酸化数 4 価のアクチノイドとして、既往知見が不足している 4 価ウラン(U(IV))に着目し、ISA 共存下における U(IV)の溶解度の測定に着手し、支配的な溶存化学種の推定を行うとともに、その溶存化学種の錯生成定数の算出を行った (Kobayashi et al., 2019)。ウランの酸化状態は酸化還元電位に鋭敏であり、U(IV)が安定であるはずの還元状態といえども U(VI)が生成しやすいことから、比較のため U(VI)の溶解度の測定にも着手し、U(IV)と同様に支配溶存化学種の推定と錯生成定数の算出を行った (Kobayashi et al., 2019)。これまで、廃棄体由来の ISA によるアクチノイド元素の溶解への影響調査が実施されてきた。

本事業では、アクチノイド元素以外の金属元素を対象に広げ、データの存在の有無、溶解度や収着分配係数への影響の大小、データ取得の容易性等の観点からデータ取得の優先順位を提示し、情報が不足している元素を対象 (パラジウム (Pd)、スズ (Sn)、テクネチウム (Tc) を対象) に溶解度試験を実施し、溶解度に及ぼす ISA 影響を調査した。また、ISA が溶解度に及ぼす影響が顕著であると考えられた元素 (Pd) については、錯生成定数の導出やその導出の妥当性を確認するため錯体の構造解析、及びバリア材料に対する収着試験を実施した。5 か年の実施内容を図 4.4-1 に示す。

	平成30年度	平成31年度	令和2年度	令和3年度	令和4年度
1) ISA等の有機配位子が金属元素の溶解度や収着に及ぼす影響の調査	溶解度・収着分配係数の調査・データ取得優先順位提示	バリア材に対するPd等の収着への影響評価			成果取りまとめ
2) ISA等の有機配位子の共存条件での溶解度試験	溶解度試験準備・予備試験 (Pd,Sn)	溶解度試験準備 (Pd)	金属元素に対する溶解度試験 (Pd,Tc)		
3) ISA等の有機配位子の収着への影響評価			錯体の構造解析(Pd-ISA)		
			収着試験 (Pdのセメント硬化体への収着)		

図 4.4-1 5か年の実施内容

4.4.2 ISA 等の有機配位子が金属元素の溶解度や収着に及ぼす影響の調査

ISA が TRU 廃棄物処分の性能評価に及ぼす影響を評価するために、報告されている ISA 錯体の溶解度測定や熱力学データ取得に関する文献のレビューを実施し、信頼性の高い熱力学データ

を使用して、種々の金属イオンの溶解度に及ぼす ISA 影響の評価を行った。その結果、実質的な価数が高い金属イオンほど ISA の影響を受ける傾向にあることを明らかにした。しかし、アクチニド以外の元素の ISA 影響については情報が不足しており、特に 4 価以上であるテクネチウム (IV)、スズ (IV)、ニオブ (V) の他、2 価でありながらアンモニア等と顕著な錯生成挙動を示す (Kitamura et al., 2011) パラジウムについて、溶解度に及ぼす ISA の影響を確認する必要がある。ただし、ニオブについては、水溶液中での挙動に不明な部分が多いため、本調査では対象から除外し、テクネチウム、スズ、パラジウムについて溶解度試験を実施することとした。

4.4.3 ISA 等の有機配位子の共存条件での溶解度試験

(1) スズ (IV)

スズの溶解度試験は過飽和状態（水溶液中に過剰量を添加して沈殿が生成）のバッチ法でアルゴン雰囲気グローブボックス中で行った。試験期間は最長で 8 週間とし、分取した水溶液を孔径 $0.45\ \mu\text{m}$ メンブレンフィルタ（以下、MB）および分画分子量 104 の限外ろ過フィルタ（以下、UF）でろ過し、ろ液を誘導結合プラズマ質量分析 (ICP-MS) で定量した。結果を図 4.4-2 に示す。この結果より、ISA 濃度が低い条件ではフィルター孔径依存性が見られることから、コロイドが生成していることがわかる。一方、ISA 濃度が $30\ \text{mmol dm}^{-3}$ ではフィルター孔径依存性が見られず、UF 通過成分が多くなることから、コロイド生成と ISA 錯体形成が競合関係にあることが示唆された。同時に、UF 通過画分の濃度は ISA 濃度が高い条件で増加しているため、ISA と錯生成することが示唆されたものの、錯生成の強さは後述するパラジウム程ではないため、TRU 廃棄物処分性能評価へのインパクトは顕著ではないと判断した。

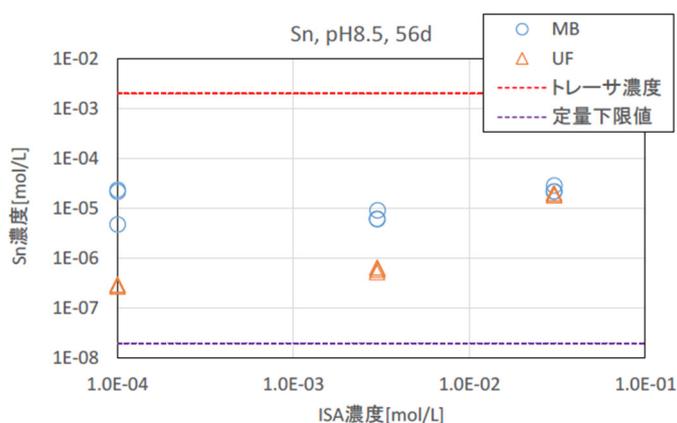


図 4.4-2 スズ (IV) の溶解度試験結果

(2) パラジウム (II)

パラジウムの溶解度試験は、過飽和状態と不飽和状態（過飽和状態で生成した沈殿を溶解させる）の 2 種類のバッチ試験法から検討したが、結果が一致しなかったため、固相として $\text{Pd}(\text{OH})_2$ を定義できる不飽和法の結果を採用した。試験期間はスズと同様に最長 8 週間とし、窒素雰囲気グローブボックス内で実施した。固液分離には UF を用いて、溶液中のパラジウム濃度は ICP-MS で定量した。結果を図 4.4-3 に示す。この結果より、Pd と ISA が錯体を形成することで、ISA 濃度の増加に伴い溶存 Pd 濃度が増加することがわかる。また、得られた結果について、Ni (II) と ISA の錯生成を評価した先行研究を参考に、下記の 3 種類の錯体種を仮定し、非線形最小二乗法でフィッティングすることで、それぞれの見かけの平衡定数を推定し、表 4.4-1 にまと

めた。これにより、Pd の溶解度に及ぼす ISA 影響を熱力学的に評価することが可能となった。

$\text{Pd}(\text{OH})_2(\text{am}) + \text{ISA}^- + \text{H}^+ \rightleftharpoons \text{PdOHISA}(\text{aq}) + \text{H}_2\text{O}(\text{l})$	(4.4-1)
$\text{Pd}(\text{OH})_2(\text{am}) + \text{ISA}^- \rightleftharpoons \text{Pd}(\text{OH})_2\text{ISA}^-$	(4.4-2)
$\text{Pd}(\text{OH})_2(\text{am}) + \text{ISA}^- + \text{H}_2\text{O}(\text{l}) \rightleftharpoons \text{Pd}(\text{OH})_3\text{ISA}^{2-} + \text{H}^+$	(4.4-3)

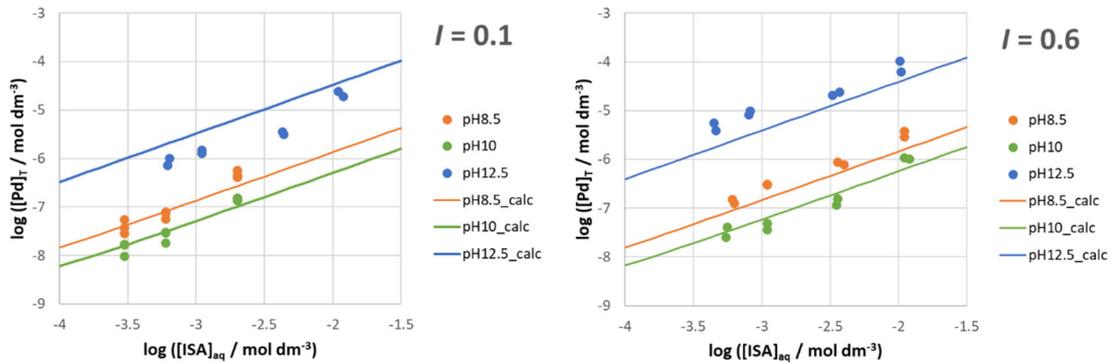


図 4.4-3 パラジウム (II) の溶解度試験結果

表 4.4-1 推定された見かけの平衡定数

錯体種	見かけの平衡定数 ($I = 0$)	Pd(II)	Ni(II)*
MOHISA(aq)	$\log_{10} K_{s(1,1,1)}^0$	4.5 ± 0.1	5.6 ± 0.3
$\text{M}(\text{OH})_2\text{ISA}^-$	$\log_{10} K_{s(1,2,1)}^0$	-4.4 ± 0.1	-5.5 ± 0.5
$\text{M}(\text{OH})_3\text{ISA}^{2-}$	$\log_{10} K_{s(1,3,1)}^0$	-15.0 ± 0.1	-18.9 ± 0.7

* González-Siso et al., 2018

(3) テクネチウム (IV)

テクネチウムの溶解度試験は、不飽和状態のバッチ法で窒素ガス雰囲気グローブボックス中で行った。試験期間は最長で4週間とし、固液分離にはMBとUFを用いて、ろ液中のテクネチウム濃度は液体シンチレーションカウンターにより測定した。測定結果およびISA濃度10 mmol dm⁻³におけるpH依存性の先行研究との比較を図4.4-4に示す。これにより、TcがISAと錯体を形成することによる溶解度の上昇は顕著ではないことが示された。先行研究におけるグルコン酸(GLU)共存下では、Tc溶解度がlogスケールで1桁以上増加しており、ISAとGLUでこれほどの差が生じた理由は不明だが、以下追及。

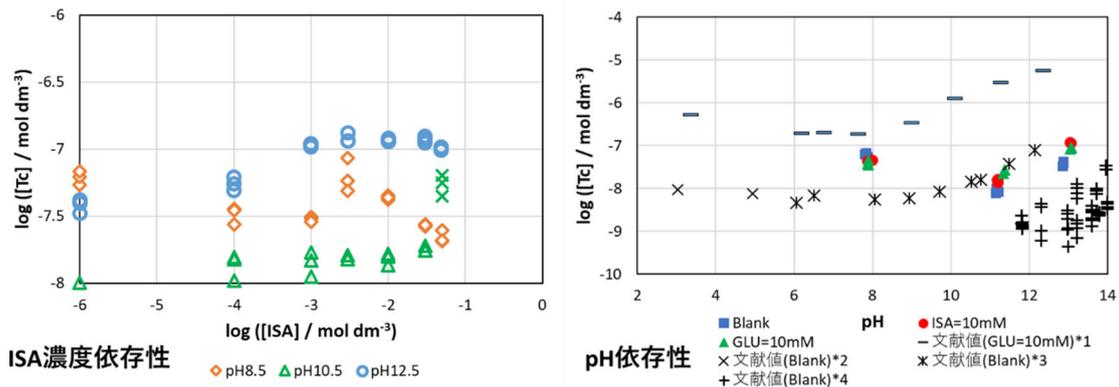


図 4.4-4 Tc 溶解度に及ぼす ISA 濃度依存性および ISA 共存下における pH 依存性
文献値*1 (Hess et al., 2006)、文献値*2 (Eriksen et al., 1993)、文献値*3 (Mayer et al.,
1991)、文献値*4 (Warwick et al., 2007)

4.4.4 ISA 等の有機配位子の収着への影響評価

溶解度試験から ISA との錯生成による顕著な溶解度上昇が示唆されたパラジウムについて、バリア材料に対する収着挙動に及ぼす ISA 影響を評価するため、ISA 共存下における Pd の普通ポルトランドセメントへのバッチ式収着試験を実施した。添加する Pd 濃度は、Pd(OH)₂ の沈殿が生じないと予想された $1 \times 10^{-7} \text{ mol dm}^{-3}$ とし、セメント水和物との液個比は 40 ml g^{-1} とした。試験期間は最長 8 週間とし、窒素雰囲気グローブボックス内で実施した。結果を図 4.4-5 に示す。この結果より、まず ISA 共存下において、セメントが存在しない場合でも溶存 Pd 濃度が定量下限値以下となることがわかる。これは、4.4.3(2)項で導出した見かけの平衡定数を用いた熱力学計算と矛盾するが、本試験系において溶解度試験とは異なる化学形の Pd の沈殿が生成している可能性等が考えられる。また、Pd を添加せず、ISA とセメントを接触させた系において、ISA 濃度の増加に伴うセメント水和物からの顕著な Pd 溶出が確認された。これにより、ISA 濃度が高い条件下では、ISA とセメントが関与した見かけの溶解平衡が成立していると考えられるため、この結果から Pd の収着挙動に及ぼす ISA 影響を評価するのは現実的ではない。しかし、セメントから溶出する Pd によって制限されていると思われる見かけの溶解度は $10^{-8} \text{ mol dm}^{-3}$ 程度である。ISA 濃度が 1 mmol dm^{-3} 以下の領域では、ISA が存在しない場合と比較して溶存 Pd 濃度が増加傾向にあるため、ISA との錯生成による収着の阻害が起こっていると考えられるものの、その程度は log スケールで 1 桁以下である。以上より、ISA が Pd のセメント系材料に対する収着を阻害する効果は、限定的なもの (1 桁程度) であると判断した。

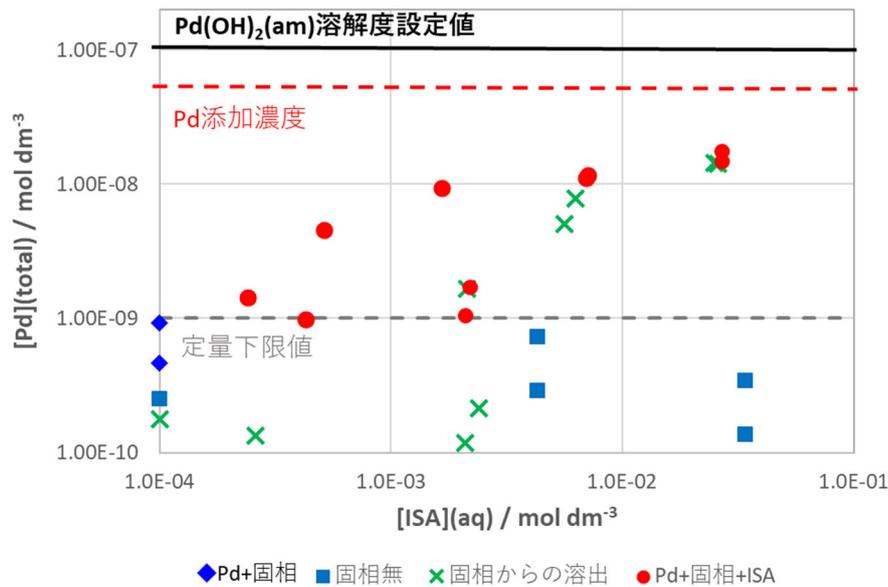


図 4.4-5 Pd のセメント水和物への収着挙動に及ぼす ISA 濃度依存性

4.4.5 まとめと今後の課題

本事業では、諸外国における有機物影響評価の設定事例のレビューを行い、調査対象の金属イオンとして、Sn (IV)、Tc (IV)、Pd (II) を選定した。それぞれの金属イオンについて、ISA 共存条件下で溶解度試験を実施した結果、Sn と Tc の溶解度上昇に及ぼす ISA 影響は顕著ではないことが示された。Pd に関しては、ISA との錯生成によって溶解度が上昇する傾向が示されたため、Ni の先行研究を参考に錯体種を仮定し、見かけの平衡定数を算出することで、ISA 影響を定量的に評価することが可能となった。また、収着試験から、Pd のセメント材料への収着に及ぼす ISA 影響は限定的 (log スケールで 1 桁程度) であることが示唆された。

今後の課題として、Pd 水酸化物の溶解度積の設定値と実験値に乖離が見られたため、TRU 廃棄物処分環境下における Pd の溶解と収着に及ぼす有機物影響評価の信頼性を向上させるためには、ISA 共存下、非共存下において生成する Pd 固相の分析が必要になると思われる。また、ISA 共存下の収着試験におけるセメント由来の金属イオンの影響を回避するための試験体系の構築が必要だと考えられる。最後に、アクチニド等 ISA 影響が顕在化しやすいと考えられる元素については、諸外国の設定事例のレビューを継続するとともに、わが国特有の地下水環境中における ISA 影響についても検討を進めていく必要がある。

参考文献

原子力環境整備促進・資金管理センター，日本原子力研究開発機構，平成 30 年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 TRU 廃棄物処理・処分に関する技術開発報告書，2019.

原子力環境整備促進・資金管理センター，日本原子力研究開発機構，平成 31 年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 TRU 廃棄物処理・処分に関する技術開発報告書，2020.

原子力環境整備促進・資金管理センター，日本原子力研究開発機構，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 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発報告書，2021.

原子力環境整備促進・資金管理センター，日本原子力研究開発機構，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 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発報告書, 2022.
原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 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 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発報告書, 2023.

Kitamura, A. and Sasaki, T., Thermodynamic interpretation on solubility of neptunium, technetium, selenium and palladium in nitrate and ammonium solutions, Proc. 10th Intl. Conf. GLOBAL 2011, December 2011, Chiba, Japan, Paper No. 384177 (7 p.), 2011.

Kobayashi, T., Teshima, T., Sasaki, T. and Kitamura, A., Thermodynamic model for Zr solubility in the presence of gluconic acid and isosaccharinic acid, J. Nucl. Sci. Technol., 54, 233-241, 2017.

Kobayashi, T., Sasaki, T. and Kitamura, A., Thermodynamic interpretation of uranium(IV/VI) solubility in the presence of α -isosaccharinic acid, J. Chem. Thermodynamics, 138, 151-158, 2019.

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.

4.5 硝酸塩の現象解析モデルの妥当性検討

4.5.1 目的と5か年の実施内容

TRU 廃棄物の地層処分においては、セメント系材料を多量に使用するなど、高レベル放射性廃棄物 (HLW) の処分概念と異なる工学的対策を用いた人工バリアにより、長期的な核種移行の抑制が期待されている。3章の冒頭において述べた通り、TRU 廃棄物には多量の硝酸塩が含まれているものが存在する。第2次 TRU レポートにおいては、硝酸塩が溶解した際の地下水のイオン強度の変化、硝酸イオンの化学的変遷による化学形態の変化、硝酸イオンやその変遷物質の TRU 核種との錯体形成などにより、硝酸塩が処分施設構成要素の機能や放射性核種の挙動に影響を及ぼす可能性について触れている。また、HLW との併置処分を想定する場合、硝酸塩の影響を検討するには硝酸イオン (NO_3^-) のみならず、その変遷物質であるアンモニア (NH_3) 及びアンモニウム (NH_4^+) 濃度 (以下、「 $\text{NH}_3 + \text{NH}_4^+$ 」と記す) などの影響も併せて評価する必要がある。

これまでに硝酸塩の影響評価技術として、TRU 廃棄物の地層処分施設内部における硝酸イオンの化学的変遷挙動を評価することを目的に硝酸塩化学的変遷挙動評価モデル (Model for Nitrate Evolution due to mineral reaction, microbial activity and metal corrosion、以下、「NEON」という) が開発され、第2次 TRU レポートでの評価に使用された。当時の NEON は、金属腐食に伴う硝酸イオンの還元反応及び水の還元による水素ガス発生反応とアスファルト固化体からの可溶性有機物を利用した微生物活動が考慮されていた。その後、経済産業省資源エネルギー庁受託事業「地層処分技術調査等委託費 TRU 廃棄物処分技術 硝酸塩処理・処分技術高度化開発 (平成 19 年度 - 平成 22 年度)」(日本原子力研究開発機構, 2008 ; 2009 ; 2010 ; 2011)、「地層処分技術調査等事業 TRU 廃棄物処分技術 硝酸塩処理・処分技術高度化開発 (平成 23 年度 - 平成 24 年度)」(日本原子力研究開発機構, 2012 ; 2013a ; 2013b) にて、岩盤中に存在する硝酸イオンを還元する能力のある鉱物 (例えば、黄鉄鉱等の還元性鉱物) との反応や処分施設内に存在する有機物を利用した脱窒菌による窒素発生のプロセスをより詳細にモデル化し、NEON の高度化が行われた。「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 (平成 25 年度 - 平成 28 年度)」(日本原子力研究開発機構, 2014 ; 2015 ; 2016 ; 2017) 及び「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 (平成 29 年度)」(日本原子力研究開発機構, 2018a ; 2018b) においては、高度化された NEON のモデルの妥当性について検討が行われ、硝酸イオンと黄鉄鉱との反応についてモデルの見直しが行われた。

一方、「地層処分研究開発に関する全体計画 (平成 30 年度 - 平成 34 年度)」(地層処分研究開発調整会議, 2018) において、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、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、多岐にわたる技術分野における個々の技術を全体として統合することが必要であるとしており、これら安全評価技術の一つとして開発された NEON の妥当性確認の重要性が示されている。

本事業では、硝酸イオンの化学的変遷モデルである NEON を用いて感度解析を行い、モデルにおいて感度の高いデータを抽出するとともに、モデルの信頼性向上に向けた試験を実施し、モデルの妥当性を検討した。さらに、硝酸塩等の人工バリアの長期特性及び核種移行データに及ぼす影響調査を行い、処分の安全性の評価における取り扱いを提示した。5か年の実施内容を図 4.5-1 に示す。

	平成30年度	平成31年度	令和2年度	令和3年度	令和4年度
1) 硝酸イオンの化学的変遷モデル (NEON) を用いた感度解析	浸漬試験 (恒温保持、硝酸塩-黄鉄鉱)	感度解析	アンブル試験・分析		成果取りまとめ
2) NEONの信頼性向上					
3) 硝酸塩等の人工バリアの長期特性および核種移行データに及ぼす影響調査			アンモニウム型ベントナイトの長期安定性等に係る知見の調査	硝酸塩等の核種移行データ等に及ぼす影響の知見の調査	処分の安全性の評価における取り扱いの提示

図 4.5-1 5か年の実施内容

4.5.2 硝酸イオンの化学的変遷モデル (NEON) を用いた感度解析

NEON の信頼性向上に向けて有効なデータ項目を抽出するために、モデルに組み込まれている種々のパラメータを対象として感度解析を行った。(原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 2020)。感度解析では、NEON に組み込まれている鉱物反応、微生物反応および金属反応のそれぞれに関してパラメータ値を 0.01 倍から 100 倍まで設定して解析を行った。

各解析結果を用いて、①NO₃⁻濃度分布、②NH₃/NH₄⁺濃度分布および③pH に感度が大きいパラメータの抽出を行った。感度の大きいパラメータとして、①では鉱物反応、②では微生物反応、③では鉱物反応と微生物反応に含まれる項目が抽出された。抽出項目の内、鉱物反応に関しては試験データを外挿して解析が行われていることから、実験的検討によるデータ拡充が有効であると報告した。また、微生物反応に関しては、データ拡充や最新の知見を反映する重要性を示しているが、その手法や有効性について検討が必要であるとしている。

4.5.3 NEON の信頼性向上

NEON で想定されている鉱物反応モデルでは、硝酸イオンと黄鉄鉱の反応を想定しており、先行事業の試験結果(試験温度：50 – 120℃、pH：2- 5)をもとに構築されたものである(日本原子力研究開発機構, 2012；日本原子力研究開発機構, 2018)。一方で、低い温度条件やアルカリ条件における解析ではこれらのパラメータが外挿されるため、不確実性が大きい。そこで試験温度を 25℃とした条件およびアルカリ溶液を用いた条件でアンブル試験を行い、データの拡充を行った(原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 2020; 2021; 2022; 2023)。

試験条件と後述する NEON のパラメータ見直しへのデータ適用性について表 4.5-1 に示す。取得したデータのうち、初期 pH が 8 および 10 の試験結果、試験後に二次鉱物の生成が確認された試験結果、洗浄状態が異なる試験結果、過年度と異なる傾向が確認された令和 3 年度の試験結果に関しては、NEON の想定化学反応式と異なる反応が生じたと考えられるため、パラメータの見直しには用いなかった。平成 29 年度までに得られているデータに平成 31 年度および令和 2 年度に取得したデータを拡充し、パラメータの見直しを行った。また令和 4 年度の取得データに関しては、試験後固相試料の比表面積が小さいものの、過年度のデータと同様の傾向が確認されているため、上記のデータ群とは別にパラメータの検討を行った。

試験結果の温度依存性および pH 依存性について図 4.5-2 に示す。各試験結果をもとに算出したパラメータは式(4.5-1)および式(4.5-2)となった。ここで、W は液固比、R はガス定数、T は温度(K)である。

(平成 29 年度 - 令和 2 年度)

$$\frac{d[NO_3^-]}{dt} = 0.137 \times W \times [H^+]^{0.108} \times \exp\left(\frac{-45200}{RT}\right) \times [NO_3^-] \quad (4.5-1)$$

(令和 4 年度)

$$\frac{d[NO_3^-]}{dt} = 6.5 \times 10^{-4} \times W \times [H^+]^{0.042} \times \exp\left(\frac{-36500}{RT}\right) \times [NO_3^-] \quad (4.5-2)$$

令和 2 年度までに取得したデータを拡充して見直したモデルに関しては、解析結果は従来のモデルと大きく変わらなかった。また、令和 4 年度に取得した結果をもとにしたモデルでは、反応速度定数が 2 桁程度小さくなっており、反応比表面積が小さいことに起因すると考えられる。今後比表面積や処分体系への適用性を検討する際には、黄鉄鉱の反応比表面積についてもパラメータを設定する必要性が示唆される。

4.5.4 硝酸塩等の人工バリアの長期特性および核種移行データに及ぼす影響調査

(1) 硝酸塩等の人工バリアの長期特性に及ぼす影響

硝酸塩等が人工バリアの長期特性に及ぼす影響として、硝酸イオンが還元されて発生する NH_4^+ が緩衝材の候補材料であるベントナイトと接触し、スメクタイトが NH_4^+ 型化した場合の長期特性と、その発生可能性について文献調査および解析による評価を行った(原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 2021; 2022; 2023)。

スメクタイトの NH_4^+ 型化に関する文献調査により、 NH_4^+ 濃度が比較的高い地下水環境における粘土鉱物中での NH_4^+ の存在やその長期的な安定性を示唆する情報を得た。そこで、スメクタイトの NH_4^+ 型化に関する熱力学的パラメータを文献調査により取得し、簡易的に NH_4^+ 型化の割合を推定する手法を作成した。 NH_4^+ を高濃度で含む地下水を対象とした解析では、最大で 70% 程度のスメクタイトが NH_4^+ 型化すると推定された。また、異なる水理条件の地層処分施設周辺を対象とした硝酸塩の化学的変遷挙動に関する解析結果より、拡散が優勢な場では NO_3^- の化学的変遷で生じる NH_4^+ による影響が顕著になり、スメクタイトが 40% 程度まで NH_4^+ 型化すると推定された。

スメクタイトの NH_4^+ 型化がベントナイトの緩衝材性能に及ぼす影響に関しては、先行研究で他の陽イオン型化と比較して小さいことが報告されており、仮に発生したとしても緩衝材性能に著しい影響を与えないことが示唆される。また、 NH_4^+ 型化に伴う非膨潤化に関しては、文献調査により処分環境条件での発生可能性は低い事が示唆されている。

(2) 硝酸塩等の核種移行データに及ぼす影響

硝酸イオンおよびその化学変遷物質が核種移行に及ぼす影響については、文献調査による情報整理を行った。(原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 2022; 2023)

核種移行に及ぼす硝酸塩等の影響は、対象となる文献が少なかったものの、先行事業以降に主だった知見拡充は行われていなかった。また、間接的な影響として、硝酸塩が反応場に作用して核種の収着に影響を及ぼす知見を得た。

また諸外国における硝酸塩影響の取り扱いに関しては、フランスおよびベルギーの報告書を対象とした文献調査と、日本における検討内容の整理を行い、人工バリアの長期特性および核種移行に及ぼす影響は小さいと整理された。

4.5.5 まとめと今後の課題

NEON で想定している鉍物反応に関しては、本事業のデータ拡充により信頼性が向上した。一方で一部の試験結果では、黄鉄鉍の比表面積が異なる試験結果や想定している化学反応式とは異なる挙動が確認されており、これらの取り扱いについて今後検討が必要である。特に後者に関しては、従来想定されてきた化学反応とは異なる反応機構が生じている可能性が高いため、その理解を深化してモデル化することがモデルの適用性を高めるうえで非常に重要になる。

硝酸塩が人工バリアの長期特性に及ぼす影響に関しては、スメクタイトの NH₄ 型化の発生可能性に関して簡易的な推定手法を作成し、処分環境における発生可能性について評価を行った。NH₄ 型スメクタイトが緩衝材性能に及ぼす影響は、文献調査から小さいことが示唆されているが、研究例が少ないため、非膨潤化を含めて実験的検討による知見の拡充が必要と考えられる。

硝酸塩が核種移行に及ぼす影響に関しては、文献調査により、先行事業以降に新たな知見が得られておらず、諸外国及び日本ではその影響が小さいと評価されていることを整理した。これに関しても、対象としている研究例が数少ないため、試験等によりデータおよび知見の拡充を行い、影響の取り扱いに関する不確実性を低減させることが今後必要になると考えられる。

表 4.5-1 試験条件および後述する NEON のパラメータ見直しへのデータ適用性

分析年度	試験期間 (日)	試験温度(°C) / pH			その他の試験条件
		25			
		2	4	5	
H31	1800	×	○	×	液固比、硝酸濃度を変えた試験

分析年度	試験期間 (日)	試験温度(°C) / pH							その他の試験条件
		50	60				70		
		4	2	4	5	8	10	4	
R2	300	○	○	○ ^{*1}	○	×	× ^{*2}	○	液固比を変えた試験
R3	150	×	×	×	×	×	×	×	
R4 ^{*3}	450	△	×	△	△	△	△	△	

NEON の反応速度式パラメータ算出への適用性(○ : H29 以前のデータと合わせて検討、△ : 別途検討、× : 検討に用いない)、※1 : 黄鉄鉍の洗浄無し・洗浄 2 回の試料でも試験を実施、※2 : 黄鉄鉍の洗浄 2 回の試料でも試験を実施、※3 : 黄鉄鉍の洗浄回数は 2 回(他の試験では洗浄回数 1 回)

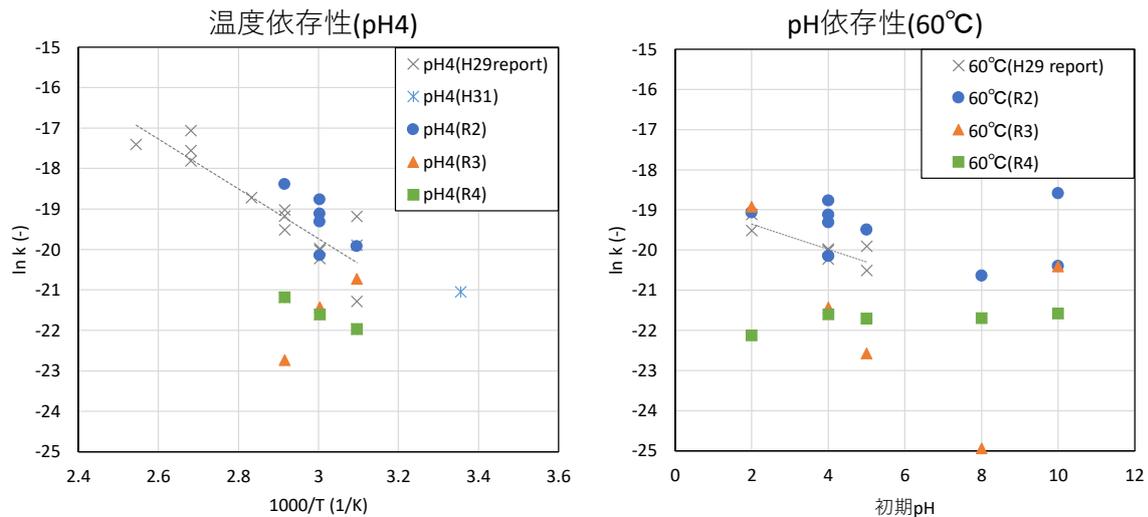


図 4.5-2 本事業および平成 29 年度までに取得したデータの温度依存性および pH 依存性

参考文献

- 原子力環境整備促進・資金管理センター，日本原子力研究開発機構，平成 30 年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 TRU 廃棄物処理・処分に関する技術開発，2019.
- 原子力環境整備促進・資金管理センター，日本原子力研究開発機構，平成 31 年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 TRU 廃棄物処理・処分に関する技術開発，2020.
- 原子力環境整備促進・資金管理センター，日本原子力研究開発機構，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 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発，2021.
- 原子力環境整備促進・資金管理センター，日本原子力研究開発機構，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 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発，2022.
- 原子力環境整備促進・資金管理センター，日本原子力研究開発機構，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 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発，2023.
- 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委託費 TRU 廃棄物処分技術 硝酸塩処理・処分技術高度化開発報告書，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委託費 TRU 廃棄物処分技術 硝酸塩処理・処分技術高度化開発報告書，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委託費 TRU 廃棄物処分技術 硝酸塩処理・処分技術高度化開発報告書，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委託費 TRU 廃棄物処分技術 硝酸塩処理・処分技術高度化開発報告書，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 TRU 廃棄物処分技術 硝酸塩処理・処分技術高度化開発報告書，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 硝酸塩処理・処分技術高度化開発報告書，2013a.
- 日本原子力研究開発機構，平成 24 年度 地層処分技術調査等事業 TRU 廃棄物処分技術 硝酸塩処理・処分技術高度化開発 -6 カ年研究成果取りまとめ報告書，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, 2016.

日本原子力研究開発機構, 平成 28 年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発報告書, 2017.

日本原子力研究開発機構, 平成 29 年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 処分システム評価確証技術開発報告書, 2018a.

日本原子力研究開発機構, 平成 29 年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 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, 2018b.

地層処分研究開発調整会議, 地層処分研究開発に関する全体計画 (平成 30 年度 - 平成 34 年度), 20p, 2018.

5. おわりに

5.1 本事業のとりまとめ

5.1.1 本事業の特徴

地層処分の基本概念は、多重バリアシステムにより地下深部に埋設した放射性廃棄物から将来の人類が受ける可能性のある放射線学的な影響を受け入れ可能な低いレベルに抑えることである。また、通常の工学施設とは異なる長期間、数万年以上にわたる安全性は直接実証することが不可能であるため、科学的な知見に基づく予測によって保証するという手段（安全評価）が取られる。そのため、地層処分の研究開発では地質環境の調査・評価、処分場の設計・工学技術及び安全評価の各分野で必要となる技術開発を実施することに、各分野での取り組み方や成果について連携を図り統合することが重要である。「地層処分研究開発に関する全体計画（平成30年度～令和4年度）」（以下、「全体計画」という）においても、『地層処分に適した地質環境の選定及びモデル化』、『処分場の設計と工学技術』、『閉鎖後長期の安全性の評価』という区分で基盤的な研究開発課題が整理されており、NUMOの包括的技術報告書においても、『閉鎖前の安全性の評価』が独立した分野として取り扱われているが、全体計画と同様の区分で整理されている。

TRU 廃棄物の地層処分については、高レベル放射性廃棄物の地層処分が開発した技術開発が利用可能であるため、高レベル放射性廃棄物と異なる TRU 廃棄物や処分場の特徴に特化した研究課題が設定されており、この全体計画において、本事業で取り組んでいる TRU 廃棄物に係る個別の研究課題は、『処分場の設計と工学技術』における「TRU 廃棄物に対する人工バリアの閉じ込め機能の向上」及び「閉鎖前安全性の評価技術の整備」に係る課題と、『閉鎖後長期の安全性の評価』における「地層処分システムの状態設定のための現象解析モデルの高度化」に係る課題として整理されている。

1.2 本事業の概要で説明したように、本事業で検討する個別の研究課題は、前述したように TRU 廃棄物が多様な形態の廃棄体であるがゆえに広範囲にわたるとともに、対象とする時間スケールも異なる。各個別課題がどの TRU 廃棄物に由来する問題なのか、廃棄物からニアフィールドまで処分場構成要素のどこで問題となるのか、どの時間スケールを対象としているのか、さらに課題間での連携も併せて図 5.1-1 に示す。

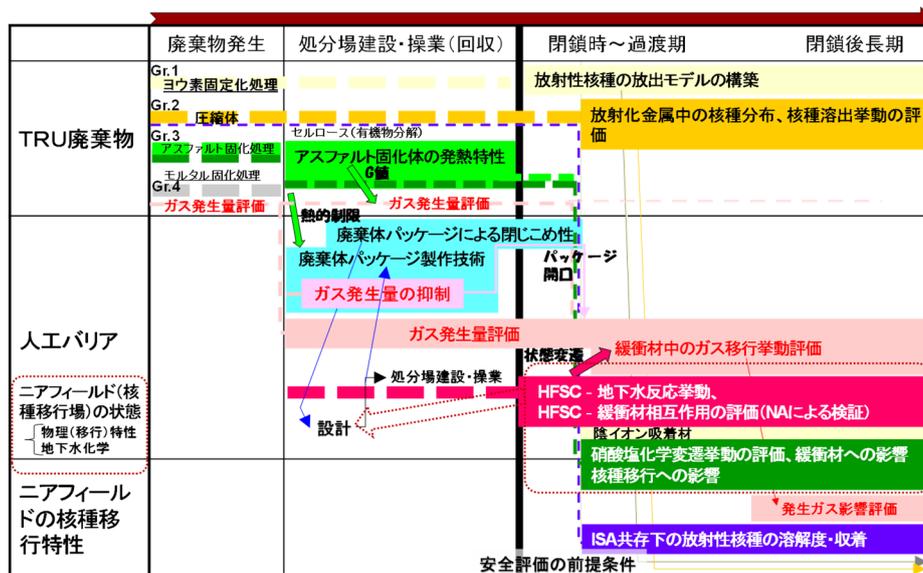


図 5.1-1 本事業の個別課題の関連図

また、個別の研究課題が TRU 廃棄物の地層処分事業の何を課題とし、どこに焦点を当てて検討しているかを図 5.1-2 に整理した。本事業の研究課題と TRU 廃棄物との関連については、「ニアフィールド構成要素の現象解析モデルの構築・高度化」以外の研究課題は TRU 廃棄物の特性を評価する課題（図 5.1-2 緑色セル部）と TRU 廃棄物の特性が検討の条件になる課題（図 5.1-2 薄緑色セル部）に大別される。また、「アスファルト固化体の発熱特性の評価」を除く各研究課題の目的は閉鎖後の安全性に係るものであり、核種移行あるいは移行場への影響を明らかにして安全評価における前提条件を整備して安全評価の信頼性向上を図るもの（図 5.1-2 水色セル部）と処分施設を構成する人工バリア材料の健全性や核種移行を抑制する機能への影響を明らかにして処分場の安全性・機能の向上をはかるものに整理できる。一方、「アスファルト固化体の発熱特性の評価」の目的は、アスファルト固化体の発熱特性モデルを改良・構築して火災に対する影響評価技術の整備し、閉鎖前における安全評価の信頼性向上を図るものである。対象となる処分事業の時間スケールも各研究課題によって異なる上に、同じ研究課題でも対象とする時間スケールが異なるものもあり、5 か年の本事業でどの時間スケールを主対象としているかがわかるように（図 5.1-2 赤色セル部）明示した。

課題項目	廃棄物	核種移行（移行場）への影響	バリア材料（処分施設）への影響	他キーワード	対象となる処分事業の時間スケール				
					廃棄物処理	廃棄体製作	搬送・定置	閉鎖後過渡期（～300年）	閉鎖後長期（300年～）
(2) TRU廃棄物に対する閉じ込め機能の向上									
①廃棄体パッケージの閉じ込め性能に係る試験と評価	Gr. 1～4【特にGr. 3の熱】	パッケージ寿命	廃棄体パッケージ	製作性					
②陰イオン核種に対する閉じ込め技術の開発	Gr. 1	I放出挙動、陰イオン収着							
(3) 閉鎖前安全性の評価技術整備									
①アスファルト固化体の発熱特性の評価	Gr. 3アスファルト固化体			発熱特性					
(4) 地層処分システムの状態設定のための現象解析モデルの高度化									
①廃棄体からの核種溶出モデルの高度化	Gr. 2	核種（ ¹⁴ C等）の溶出挙動							
②ニアフィールド構成要素の現象解析モデルの構築・高度化	(Gr. 1～4)		セメント系材料（構造材等）、緩衝材						
③廃棄体由来の発生ガスに関する現象解析モデルの妥当性検討	Gr. 1～4：発生ガス	ガスによる汚染水押出	人工バリア【特に緩衝材】						
④有機物の影響評価モデルの高度化	Gr. 2等：ISA	核種【遷移元素】の溶解度・収着							
⑤硝酸塩の現象解析モデルの妥当性検討	Gr. 3：硝酸塩	硝酸イオンの変遷	緩衝材						

		人工バリアの健全性への影響を目的とする課題（安全性・機能の向上）	
		核種の溶出率や移行パラメータ等の評価を目的とする課題（安全評価の前提条件）	
	廃棄体の特性を評価する課題		本フェーズで主対象とする時間スケール
	廃棄体の特性が検討の条件となる課題		本フェーズで対象とする時間スケール
			過去に実施した処理技術の技術開発
			過去に実施した処理技術の技術開発（工学試験は今後必要）

図 5.1-2 本事業の個別課題の対象と時間スケール

[TRU 廃棄物に対する閉じ込め機能の向上]に係る 2 つの研究課題は、廃棄物の処理・廃棄体の製作技術から閉鎖後長期の評価までを対象とした技術開発である。ただし、本事業においてこれらの課題がおのおのの対象とする時間は全く異なり、「廃棄体パッケージの閉じ込め性能に係る試験と評価」は本事業から検討を開始した研究課題であり、まずは閉鎖後 300 年の閉じ込めを前提とした製作技術の確立なのに対して、「陰イオン核種に対する閉じ込め技術の開発」では、過去の検討で廃棄物の処理技術の開発も検討していたが、実験室レベルでの技術開発はめどがなかったため、本事業では閉鎖後長期の評価モデルの整備を対象としている。このように、TRU 廃棄物

に対する閉じ込め機能の向上という課題では、当然放射性廃棄物で求められる長期の安全性を考慮する必要があるため、廃棄物の処理や製作といった工学的な対策と長期の性能やそれを評価するモデルが関連することに留意して研究開発を進める必要がある。ここで、処分施設の設計は本事業の目的ではない（上述の全体計画において事業者の課題として整理されている）が、「廃棄体パッケージの閉じ込め性能に係る試験と評価」における長期の閉じ込め性や製作性から設計にフィードバックできる知見も得られるため、これらの成果についてもとりまとめる。

〔地層処分システムの状態設定のための現象解析モデルの高度化〕に係る「廃棄体由来の発生ガスに関する現象解析モデルの妥当性検討」は、主に閉鎖後長期のベントナイト緩衝材中のガス移行挙動に伴う緩衝材の健全性や核種移行への影響を評価することが主要な目的であるが、ガス発生挙動については廃棄体発生時からの評価も必要となり、この課題においても廃棄体の発生から閉鎖後長期までが対象となる。

以上のように、個別の研究課題が多様な TRU 廃棄物の特性に由来することや対象とする時間スケール異なることから、事業全体として取り組む内容の範囲の広さが本事業の特徴としてあげられる。一方で、廃棄物の処理から、廃棄体化などの操業・製作時の工学技術、閉鎖前の安全性評価、閉鎖後長期の安全評価まで、事業全体で時間スケールの異なる課題を俯瞰して見通すことができる。

5.1.2 複数のテーマが関連した課題とその解決に向けた取り組み

(1) 本事業における研究課題間の連携の試み

本事業で取り組んでいる研究課題のうち多くは連携が必要な課題を含んでいる。たとえば、「廃棄体パッケージの閉じ込め性能に係る試験と評価」では、製作した容器が数百年間の閉じ込め性を担保するためには、容器の耐食性に加え、応力腐食割れの原因となる残留応力の低減を可能とする溶接方法や、内圧の上昇を抑制するための内部でのガス発生の低減方法などが必要になるが、このうち、残留応力の低減方法として一般的な溶接後熱処理（以下、PWHT という）を行った場合、「アスファルト固化体の発熱特性の評価」でモデル化を実施している、アスファルト固化体の熱反応暴走に至らない条件を設定することが必要不可欠の課題となっている。本事業では、「アスファルト固化体の発熱特性の評価」におけるこれまでの成果を受けて、廃棄体表面の温度が 195℃ を上回らないことを目標とした技術開発を実施した。

過度な内圧の上昇による破壊を防止するためには、容器内で放射線分解等によって生じるガスの発生を抑制することが必要なため、内部充填材のガス低減対策による水分量の低下させた条件で、各廃棄物の放射線分解によるガス発生量の予測を実施した。この成果は、「廃棄体由来の発生ガスに関する現象解析モデルの妥当性検討」において実施している廃棄体由来の発生ガスに関する現象解析モデルの妥当性検討において、ガス発生量の与条件として利用することを考えている。さらに、ガス移行解析でも廃棄体パッケージ内の状態や寿命を解析の前提条件として検討した。

また、「ニアフィールド構成要素の現象解析モデルの構築・高度化」で実施しているニアフィールド構成要素の現象解析モデルの構築・高度化の成果として期待されるベントナイト系材料中の二次鉱物の生成挙動に関しては、生成する 2 次鉱物の種類、量によって緩衝材の局所的な密度の変化の原因になるため、「廃棄体由来の発生ガスに関する現象解析モデルの妥当性検討」において実施しているガス発生影響において、ガス移行場の設定に反映し得るものと考えている。

このように、TRU 廃棄物の地層処分に於ける各課題の解決に当たっては、それらの有機的な連携や、成果の共有が必要不可欠である上に、安全評価の前提条件となる移行場の設定においても、それぞれの課題で得られた成果をもとに、総合的な設定方法の検討が必要である。

(2) 関連する研究開発およびこれまでの成果との連携による課題解決の試み

TRU 廃棄物に係る本事業内での連携だけでなく、HLW 等の関連する放射性廃棄物の処分システムの研究開発との連携や現在進行中の研究開発の成果等の利用なども成果の充実度や波及効果という点で有効である。

地層処分においては、廃棄物に含まれる放射性核種を、廃棄体から生物圏に至る移行過程のより廃棄体に近い範囲に多くとどめ得ることを示すことが、生物圏への影響が十分に小さいことを示すことに加え、長期的な安全性を説明する上では重要である。また、処分場の各構成要素に期待される機能が、十分に維持されることを示すこともまた必要である。

このような説明を可能にするためには、各構成要素が、処分場の建設から閉鎖に至るまでの期間はもちろんのこと、閉鎖後 100 万年に及ぶ長期間にわたってどのような変遷過程をたどり、その結果どのように性能が変化していくかを予測できることが必要である。一方で、このような長期にわたる予測においては、その初期の状態設定によってはその後の変遷過程に於ける不確実性が増大し、十分に安全裕度を示し得ない可能性がある。

このような問題を解決するためには、ソースタームとなる廃棄体内の核種の存在形態や、その放出挙動を精度良く予測することに加え、各構成要素の安全評価の起点となる閉鎖・冠水後の状態をいかに設定するか、また、その後の変遷をいかに精度良く予測するかが肝要である。

本事業では、「陰イオン核種に対する閉じ込め技術の開発」や「廃棄体からの核種溶出モデルの高度化」は、このうちのソースタームの不確実性を低減する方策として重要であるが、その精度を高めていくためには、たとえばヨウ素固定化技術のうち BPI ガラスからのヨウ素放出のモデル化には高レベル廃棄物のガラス溶解モデルや、核種放出モデルの高度化と平仄を合わせることで、説明性の高い評価モデルを構築することが重要と考えられる。また、廃棄体からの核種溶出モデルの高度化において取得される放射化生成核種の親元素の濃度測定結果は、安全評価におけるソースタームの不確実性を低減する情報として重要と考えられる。

「ニアフィールド構成要素の現象解析モデルの構築・高度化」において実施しているナチュラルアナログによる緩衝材の長期安定性の検証は、地層処分において鉄系材料が構成要素として多く持ち込まれることを考えると、その後の変遷の予測や、酸化還元環境の変遷予測において重要と考えられる。とりわけ、鉄系材料とベントナイトとの相互作用に関する今後の研究開発、特に F-S-H など今後整備が必要な熱力学データの導出において、有用なデータを提供できるものと考えている。また、セメント-ベントナイト相互作用に関する化学解析の成果は、緩衝材の状態設定において重要な情報を提供するものであり、とりわけガス移行場の状態設定においてはその結果生じる緩衝材の性能変化を反映することが必要不可欠である。一方で、廃棄物の集積配置の点で中深度処分との処分場の類似性から、ベントナイト緩衝材の物理特性や力学特性のデータなども緩衝材の状態設定において有用であると考えられる。また、ガス移行解析の実施に必要なソースタームとして、各廃棄体から発生するガスの定量的なデータが必要であるが、ガスの発生源として考えられる有機物の放射線分解に関しては、その多くを含有するアスファルト固化体に関して、かつて日本原子力研究開発機構が取得した G 値の測定結果の利用が有効であった。

また、成果の発信や広くデータを共有するという観点で、本事業で得られた放射性核種の移行特性や移行場の熱力学データ等を日本原子力研究開発機構で整備しているデータベースに拡充し、Web を通じて発信することは有効であり、本事業で得られた成果も活用している。

このように、地層処分の安全性を説明していく上では、本技術開発に留まらず、今後実施されるものを含めて、各廃棄体の性状、処分場構成要素の性状やそれらの変遷の予測、地質環境の短期、長期の変遷など、多くの分野、多くの研究開発間の成果の相互利用が必要不可欠である。

5.1.3 事業全体の成果のとりまとめ

事業全体のとりまとめとして、上記の示した本事業の特徴や課題解決に必要な連携も踏まえ、TRU 廃棄物の処分事業を進める上での課題を俯瞰し、(1) 製作・施工技術の確立（設計への反映）、(2) 処分場閉鎖前の安全性、(3) 閉鎖後長期のバリア機能の信頼性の向上・不確実性低減、(4) 安全評価の前提条件の提示、という観点で、本事業の成果がどのように役立つのかをとりまとめた。

(1) 製作・施工技術の確立

1) 製作・施工技術

NUMO 包括的技術報告書では、設計した処分場を実現するための建設・操業・閉鎖の技術についても、段階的に最適化と実証を進める、と記載されている。だが、TRU 廃棄物を対象とした実規模の処分場地下施設・地上施設・人工バリア構成要素については、製作性・施工性を実証した例はまだない。一方で、処分場や人工バリアの製作において、HLW や L1 廃棄物（中深度処分）の事例を活用可能であるため、TRU 特有の課題を優先して検討する本事業では、TRU 廃棄物の特性が影響し閉鎖後の閉じ込め性能を有する廃棄体パッケージの製作について検討した。

NUMO 包括的技術報告書での廃棄体パッケージの製作性に関する検討では、中深度処分容器の製作事例を引用し、同様の技術で製作が可能であるとの標記されている。セメント系充填材については、パッケージ間充填材について、設計要件、配合、厚さの設定についてまとめられているが、ガス発生に関する対応が内部充填材とは異なる。

本事業における廃棄体パッケージの製作性の検討により、閉鎖後数百年の閉じ込め性を有する廃棄体 B の仕様に基づき設計した実規模大の角型の廃棄体パッケージを既存の製作技術で初めて製作し、基本的な製作・施工技術や施工・品質管理方法を確立（製作性を実証）し、人工バリア製作の工学的実現性に向けた段階的な実証の第一歩を刻んだ。

2) 設計への反映

閉鎖後長期の評価で問題がある場合や明らかに安全性の向上が見込まれる場合は、設計へのフィードバックが必要となる。廃棄体パッケージについては、NUMO 包括的技術報告書において、設計要件を具体化し、人工バリア、地下施設および地上施設の設計が検討されている。処分場の設計は基本的に NUMO の課題であり、本事業の主目的ではないが、閉じ込め性の観点で構造健全性をもつ廃棄体パッケージを製作試験における設計は行った。また、製作確認試験や腐食試験を通じて、設計にフィードバックできる知見が得られた。

廃棄体パッケージの設計において、製作性（寸法精度（部品の加工精度）、廃棄体（ドラム缶）形状、廃棄体（充填材）挿入）を考慮した隙間（クリアランス）を設定し、廃棄体の挿入・設置に支障がないことを確認した。酸化性雰囲気での溶接部の腐食挙動を考慮した腐食代や鋼材の種類を反映した構造解析を実施して、構造健全性を考慮した設計の合理化を図った。

廃棄体パッケージ製作設備の設計については、製作確認試験から放射線管理区域での遠隔操業時における作業方法、治具、資材供給等、設計において留意すべき点を抽出した。また、金属廃棄物等重量物を想定した設備設計の重要性も確認した。

(2) 処分場閉鎖前の安全性

処分場閉鎖前の安全性の評価については、NUMO 包括的技術報告書では、異常時の処分場への影響評価を火災や廃棄物の落下を対象として実施している。この中で TRU 廃棄物処分場での搬送車両火災の影響評価では、アスファルト固化体を対象とし、その発熱特性（前事業の平成 27 年度時点）を反映した評価を実施している。一方、放射線分解ガスによる漏洩や爆発等についての評価は未検討である。そのため本事業では、模擬アスファルト固化体の発熱特性に関わるデー

タを取得し、発熱速度モデルを改良した。また、廃棄体パッケージの閉じ込め性評価の観点で、放射性分解ガスによる内圧の評価も実施した。

アスファルト固化体の発熱特性については、火災の延焼に伴う硝酸塩と有機物の化学反応の促進の可能性の評価にも用いられるように改良したアスファルト固化体の発熱速度モデルを提示した。この発熱速度モデルを用い、火災を想定した熱収支解析を行うことで、硝酸塩と有機物の化学反応の促進による熱反応暴走の発生の可能性が評価可能となった。

ガス発生量（パッケージ内圧）の低減については、内部充填材の製作時の乾燥工程で自由水量を低減し、品質管理することによりガス発生量を低減させ、内圧の上昇に効果があることを解析で確認した。

(3) 閉鎖後長期のバリア機能の信頼性の向上・不確実性低減

NUMO 包括的技術報告書では、要因分析で抽出した FEP にかかわる現象が安全機能へ影響を及ぼす可能性やその程度について、さまざまな現象解析の結果などを通じて分析を実施している。この現象解析のモデルに対し、どこが課題なのか、その課題に対する本事業での取り組みによってどのように信頼性向上や不確実性の低減が図れたかを明確に示すことが重要である。そのため、閉鎖後長期のバリア機能の信頼性の向上や不確実性の低減に影響する事象として、セメント影響、発生ガスの影響、硝酸塩の影響を対象として本事業で検討した。NUMO の包括的技術報告書では、セメント影響については、OPC を対象として緩衝材の変質や移行物性へのアルカリ影響を考慮した評価を実施している。発生ガスの影響については、一次元ガス移行特性に基づく気液二相流モデルによるガス移行解析、押出水量の評価を実施している。硝酸塩の影響については、Partridge 等複数のモデルによる硝酸塩プルームの母岩中への広がりの評価を実施している。

セメント影響として HFSC-緩衝材相互作用については、HFSC と地下水の反応や緩衝材との相互作用モデルの信頼性を向上させるとともに、評価に必要な熱力学データを取得し、TDB を更新した。また、ナチュラルアナログにより Fe, Mg に富むアルカリ環境での二次鉱物生成の現象理解と現象解析モデルに必要な情報の提示し、HFSC と炭素鋼などの鉄系材料を還元環境で使用する TRU 廃棄物処分場で想定される環境でのベントナイト緩衝材の長期健全性の傍証となりうる根拠を示した。

発生ガスの影響として、内部充填材のガス発生量低減化等が反映可能なより現実的なガス発生量の評価が可能となった。また、モックアップ試験による三次元のガス移行特性（⇒低圧での破過により緩衝材の損傷が生じず自己シール性に影響しない可能性）を反映した気/液相移動一力学連成ガス移行解析モデルを構築し、現実的なガス影響シナリオにおけるガス影響の大きさの評価が可能となった。

硝酸塩の影響として、硝酸イオンを還元する能力を有する黄鉄鉱と硝酸イオンの反応データに基づき硝酸イオン変遷モデル (NEON) の信頼性を向上させた。また、硝酸イオンとその変遷物質の人工バリアの長期特性や核種移行データ等の最新の知見に基づき、処分の安全性の評価における硝酸塩影響の取り扱いを提示した。

(4) 安全評価の前提条件の提示

1) 陰イオンの閉じ込め性

NUMO 包括的技術報告書では、処分場の設計と工学技術での機能向上の例として、TRU 廃棄物でのヨウ素の代替固化体（前事業の平成 27 年度時点）の成果が引用されているが、代替固化体は、候補地の地質および水理的な環境が好ましくない場合の影響低減のための技術であることから、安全評価においてはグループ 1 はセメント混練固化体を前提として評価されている。一方、

陰イオン吸着材の適用性の評価は検討されていないが今後検討すべき課題である。TRU 廃棄物処分における陰イオンについては、処分場全体の最大線量への寄与は大部分 TRU 等廃棄物処分場由来の I-129 (NUMO 包括的技術報告書によるセメント混練固化体での安全評価結果) であることから、工学的な対策による被ばく線量への影響低減が必須である。そのため、陰イオン核種の影響を低減するための対策として、ヨウ素固定化技術の開発としての廃棄体からの放出律速となる固化体 (ヨウ素代替固化体) の性能の確認及びそのモデル化と人工バリアの核種移行遅延効果の向上の可能性のある陰イオン吸着材の評価・選定を実施した。

ヨウ素固定化技術については、代替固化体の固化体寿命と適用範囲を明示するとともに、ヨウ素放出を予測できるヨウ素放出挙動モデルやそのパラメータの妥当性を示した。

陰イオン吸着材については、地層処分で想定される環境で利用可能性のある陰イオン吸着材の候補材料を提示した。

2) 放射化金属中の核種分布、核種溶出挙動

TRU 廃棄物処分場の安全評価において使われるソースタームの核種溶出率や核種移行データにおいて、実廃棄物の分析が困難であったり、実測値が極端に少ないなどの事情から、実測値に基づかず、保守的な考え方に基いて設定されたデータについては、影響が大きく優先度の高いデータを取得することで、その信頼性の確保と過度な保守性の見直しをしていく必要がある。NUMO の包括的技術報告書では、ハル・エンドピースの核種溶出率は第 2 次 TRU レポートの値に基づき設定されている。保守的であると思われる第 2 次 TRU レポートでの核種溶出率の設定に対し、より現実的な核種溶出モデルに資する実廃棄物データが不足していることから、エンドピースの核種分布、核種溶出挙動を評価した。

エンドピース (BWR 下部タイププレート) を対象に、高感度分析法 (AMS) を適用させることで、これまで定量が困難であった核種を含め、インベントリ・溶出等の実データを取得した。また、実廃棄物のデータに基づくエンドピースの核種インベントリや分布評価の基礎情報 (分析・解析) を整備するとともに、従来の溶出モデルの保守性の定量的な評価や溶出モデルの適用性、不確実性を提示した。

3) ISA 共存下の放射性核種の溶解度・収着

有機物の核種移行パラメータへの影響については、有機物 (グループ 2 由来の ISA) による一部の核種の溶解度上昇の可能性があることから、溶解度の設定に ISA を考慮する必要がある。ISA の評価はアクチニド元素等で実施されているが、一部の元素 (遷移金属等) では実測データがないため、ISA による錯生成の影響が不明である。そのため、優先度の高い放射性核種のアクチニド元素以外の金属元素を対象に ISA 等の有機配位子の共存条件での溶解度試験・収着試験を実施した。

Pd、Sn、Tc(IV)の溶解度に及ぼす ISA の影響については、Pd では見られるものの、Sn、Tc については ISA 影響が限定的であることを示した。また、Pd については、セメント存在下 Pd の収着低減に及ぼす ISA 影響が限定的であることを確認した。これらの試験結果から Pd、Sn、Tc と ISA の錯生成の熱力学データを整理し、Pd、Sn、Tc の溶解度への ISA 影響の評価が可能となった。

(5) 事業全体のとりまとめ

本事業の検討により、TRU 廃棄物の地層処分事業における、(1) 製作・施工技術の確立 (設計への反映)、(2) 処分場閉鎖前の安全性、(3) 閉鎖後長期のバリア機能の信頼性の向上・不確実性

低減、(4) 安全評価の前提条件の提示における研究課題の検討から得られた成果により、事業を実施する上での課題の解消は進んだといえる。これは、全体計画で示された『処分場の設計と工学技術』及び『閉鎖後長期の安全性の評価』の課題について、新規の課題については本事業で初めて有用となるデータ・実績が得られ、継続の課題については、より現実的、より精緻なモデル化やデータ取得により信頼性の向上を図ることができた。一方で、より現実的な条件での試験によりこれまで見えなかった課題も抽出されている。これらは、処分事業の安全性や連携と称した他の事象に係る影響から優先度を判断して、引き続き取り組むべきものとする。