令和４年度

高レベル放射性廃棄物等の
地層処分に関する技術開発事業

ニアフィールドシステム評価確証
技術開発

報告書

令和５年３月

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

目　次

第 1 章　緒言
1.1　本事業の背景と目的 ……1-1
1.2　実施計画 ……1-1
1.2.1　ニアフィールド環境変遷に係る個別評価技術の開発 ……1-4
1.2.2　ニアフィールド環境変遷を考慮した核種移行評価技術の開発 ……1-7
1.2.3　ニアフィールド性能の総合評価技術開発 ……1-9
1.2.4　ニアフィールドシステム評価確証技術開発の 5 か年計画 ……1-10
参考文献 ……1-13

第 2 章　ニアフィールド環境変遷に係る個別評価技術の開発
2.1　目的と 5 か年の計画 ……2-1
2.1.1　目的 ……2-1
2.1.2　5 か年の計画 ……2-1
2.2　オーバーパックの腐食挙動評価 ……2-2
2.2.1　背景と目的 ……2-2
2.2.2　実施内容 ……2-3
2.2.3　5 か年の成果と今後の課題 ……2-52
2.3　緩衝材の変質挙動評価 ……2-54
2.3.1　炭素鋼-緩衝材境界領域における緩衝材の変質 ……2-54
(1) 背景と目的 ……2-54
(2) 実施内容 ……2-56
(3) 5 か年の成果と今後の課題 ……2-68
2.3.2　セメンテーションによる緩衝材の変質 ……2-69
(1) 背景と目的 ……2-69
(2) 実施内容 ……2-70
(3) 5 か年の成果と今後の課題 ……2-100
2.4　ニアフィールド THMC 連成挙動評価 ……2-101
2.4.1　過渡期の THMC 連成挙動に関する現象解析モデル開発 ……2-103
(1) 背景と目的 ……2-103
(2) 実施内容 ……2-105
(3) 5 か年の成果と今後の課題 ……2-120
2.4.2　ニアフィールド長期力学解析コード開発 ……2-122
(1) 背景と目的 ……2-122
(2) 実施内容 ……2-123
(3) 5 か年の成果と今後の課題 ……2-147
2.4.3　緩衝材挙動に関するナノスケールシミュレーションモデルの構築 ……2-149
(1) 背景と目的 ……2-149

(2) 実施内容 ……2-149
(3) 5 か年の成果と今後の課題 ……2-152
2.5 母岩中アルカリプルーム反応輸送挙動評価 ……2-153
2.5.1 グラウチング施工事例を対象とした調査・分析 ……2-154
(1) 背景と目的 ……2-154
(2) 実施内容 ……2-155
(3) 5 か年の成果と今後の課題 ……2-160
2.5.2 亀裂性岩盤を対象とした母岩中アルカリプルーム反応輸送挙動評価 ……2-161
(1) 背景と目的 ……2-161
(2) 実施内容 ……2-164
(3) 5 か年の成果と今後の課題 ……2-171
2.6 流出現象等を考慮した緩衝材の健全性評価 ……2-173
2.6.1 課題設定の考え方 ……2-173
(1) 背景 ……2-173
(2) 本フェーズの中間とりまとめと課題の整理 ……2-174
(3) 本事業の課題の設定 ……2-175
2.6.2 実施内容 ……2-176
(1) 流出を抑制する工学的対策の具体化 ……2-176
(2) 緩衝材の飽和プロセスを対象とした解析的な評価方法の検討 ……2-274
2.6.3 5 か年の成果と今後の課題 ……2-303
参考文献 ……2-305

第 3 章 ニアフィールド環境変遷を考慮した核種移行評価技術の開発
3.1 目的と5か年の計画 ……3-1
3.1.1 目的 ……3-1
3.1.2 5か年の計画 ……3-1
(1) ニアフィールド岩盤中の核種移行評価技術の開発 ……3-1
(2) システム変遷等を考慮した核種移行解析モデル/データベースの開発 ……3-2
(3) 有機物・微生物の影響評価技術の開発 ……3-2
3.2 ニアフィールド岩盤中の核種移行評価技術の開発 ……3-3
3.2.1 背景と目的 ……3-3
3.2.2 実施内容 ……3-6
(1) 結晶質岩中の核種移行評価技術の開発 ……3-6
(2) 堆積岩中の核種移行評価技術の開発 ……3-28
3.2.3 5か年の成果と今後の課題 ……3-61
3.3 システム変遷等を考慮した核種移行解析モデル/データベースの開発 ……3-63
3.3.1 背景と目的 ……3-63
(1) オーバーパック等から生じる鉄共存が緩衝材や岩石中の核種移行へ及ぼす影響の評価 ……3-63

(2) セメント系材料の共存が緩衝材や岩石中の核種移行に及ぼす影響の評価 3-64
(3) 高炭酸濃度の地下水が岩石中の核種移行に及ぼす影響の評価 3-64
3.3.2 実施内容 3-64
(1) オーバーパック等から生じる鉄共存が緩衝材の核種移行へ及ぼす影響評価技術の開発 3-64
(2) セメント系材料の共存が緩衝材や岩石中の核種移行に及ぼす影響評価技術の開発 3-88
(3) 高炭酸濃度の地下水が岩石中の核種移行に及ぼす影響の評価技術の開発 3-105
3.3.3 5か年の成果と今後の課題 3-125
3.4 有機物・微生物の影響評価技術の開発 3-127
3.4.1 有機物影響評価技術の開発 3-127
(1) 背景と目的 3-127
(2) 実施内容 3-128
(3) 性能評価解析への反映と課題 3-149
(4) 5か年の成果と今後の課題 3-153
3.4.2 微生物影響評価技術の開発 3-153
(1) 背景と目的 3-153
(2) 実施内容 3-155
(3) 5か年の成果と今後の課題 3-185
参考文献 3-187

第 4 章 ニアフィールド性能の総合評価技術開発
4.1 目的と5か年の計画 4-1
4.1.1 目的 4-1
4.1.2 5か年の計画 4-1
4.2 現象解析モデルの統合化技術の構築 4-3
4.2.1 背景と目的 4-3
4.2.2 本事業における統合化評価の対象 4-4
4.2.3 閉鎖後過渡期に想定される現象と閉鎖後長期の評価における前提（仮定） 4-6
4.2.4 処分場閉鎖後過渡期から閉鎖後長期に想定されるシナリオの例 4-7
4.2.5 既往の成果を踏まえた本事業での取り組み 4-10
4.2.6 実施内容 4-15
(1) 水理・物質輸送－化学反応の連成解析の信頼性向上に向けた検討 4-15
(2) 統合化評価に関わる最新の動向・現状を踏まえた課題の整理 4-25
4.2.7 5か年の成果と今後の課題 4-30
4.3 ニアフィールド核種移行評価技術の開発 4-32
4.3.1 背景と目的 4-32
4.3.2 実施内容 4-33
(1) 統合化評価におけるモデルの見直し等を踏まえた核種移行評価の試行 4-33
(2) 性能評価への反映を念頭にした核種移行モデルの簡略化の妥当性確認のための試行 4-41

(3) 統合化評価を踏まえた核種移行評価技術に関わる最新の動向・
現状を踏まえた課題の整理 4-44
4.3.3　5か年の成果と今後の課題 4-45
参考文献 4-47

第 5 章　結言
5.1　これまでの 5 か年における主な成果と課題 5-1
5.2　おわりに 5-8

図　目　次

第 1 章　緒言
図 1.2-1　本事業で実施する「ニアフィールドシステム評価確証技術開発」の枠組みの概念図 …… 1-3
図 1.2-2　ニアフィールド性能の総合評価技術開発に向けたアプローチ概念図 …… 1-3
図 1.2-3　ニアフィールドシステム評価確証技術開発のサブタスクマップ …… 1-12
図 1.2-4　ニアフィールドシステム評価確証技術開発のサブプロジェクト相関図 …… 1-12

第 2 章　ニアフィールド環境変遷に係る個別評価技術の開発
図 2.2-1　オーバーパック腐食試験の状況と試験の模式図 …… 2-4
図 2.2-2　各緩衝材ブロック中の各種センサー類の設置状況 …… 2-4
図 2.2-3　断面試料の切断位置及び試料範囲イメージと断面試料のマクロ写真 …… 2-5
図 2.2-4　断面試料の走査型電子顕微鏡分析結果および顕微ラマン分光分析に基づく推定 2-7
図 2.2-5　断面試料の顕微ラマンスペクトル …… 2-7
図 2.2-6　緩衝材中への Fe 成分の浸透の程度大、小の例 …… 2-8
図 2.2-7　分極抵抗の逆数の時間積分値 …… 2-9
図 2.2-8　釜石鉱山で実施された粘土充填・熱負荷試験の模式図と解体時の観察された状態 …… 2-10
図 2.2-9　鉄製ヒーター接触部および亀裂部に観察された変色部と試料の透水試験結果 ‥2-11
図 2.2-10　工学スケールの不均一状態等に起因した腐食挙動 …… 2-12
図 2.2-11　有効モンモリロナイト密度と膨潤圧の関係 …… 2-15
図 2.2-12　幌延 URL における原位置オーバーパック腐食試験で取得された乾燥密度と生菌数の関係 …… 2-17
図 2.2-13　月布ベントナイト原鉱石における乾燥密度と生菌数の関係 …… 2-17
図 2.2-14　微生物群集組成と緩衝材の物理化学因子を用いた正準対応分析結果 …… 2-19
図 2.2-15　地層処分システムの人工バリア性能における微生物影響評価フロー …… 2-21
図 2.2-16　チタン製カラムの模式図 …… 2-22
図 2.2-17　腐食試験後の試験片の外観(Na_2SO_4) …… 2-25
図 2.2-18　腐食試験後の試験片の外観($NaHCO_3$) …… 2-25
図 2.2-19　試験後試験片の X 線回折結果(Na_2SO_4) …… 2-28
図 2.2-20　試験後試験片の X 線回折結果($NaHCO_3$) …… 2-28
図 2.2-21　平均腐食量の経時変化(Na_2SO_4) …… 2-28
図 2.2-22　平均腐食量の経時変化($NaHCO_3$) …… 2-28
図 2.2-23　断面試料の光学像（左）と微小部蛍光 X 線分析による広域元素マッピング像（右） …… 2-29
図 2.2-24　断面試料の微小部蛍光 X 線分析による詳細元素マッピング像（緑：Fe、水色：Si） …… 2-29
図 2.2-25　断面試料の微小部蛍光 X 線分析による Fe ライン分析結果 …… 2-30
図 2.2-26　試料 A と試料 C の詳細元素マッピング像（緑：Fe、水色：Si、青：S、黄：Ca）比較 …… 2-30
図 2.2-27　試料 A と試料 C の接触面近傍の Fe および Ca の線分析結果の比較 …… 2-31
図 2.2-28　広範な条件で実施した浸漬試験における腐食量の経時変化のまとめ …… 2-32

図 2.2-29　SSRT 試験片の形状・寸法 ……2-34
図 2.2-30　緩衝材共存条下試験でのチタンカラム ……2-35
図 2.2-31　SSRT 試験セルの模式図 ……2-35
図 2.2-32　応力-歪み線図の測定結果 ……2-37
図 2.2-33　最大応力比、破断ひずみ比に対する NaCl、Na_2SO_4 濃度の電位依存性 ……2-38
図 2.2-34　破面の SEM 観察例（0.5M NaCl 添加、50 °C、-625mV、粒界割れ） ……2-39
図 2.2-35　絞り比、破面率に対する NaCl、Na_2SO_4 濃度の電位依存性 ……2-40
図 2.2-36　応力-歪み線図の測定結果 ……2-41
図 2.2-37　最大応力比、破断ひずみ比に対する CO_2 濃度の電位依存性 ……2-41
図 2.2-38　破面の SEM 観察例 ……2-43
図 2.2-39　絞り比の電位依存性 ……2-44
図 2.2-40　最大応力比、破断ひずみ比、絞り比に対する RHE 換算電位の依存性 ……2-44
図 2.2-41　応力-歪み線図の測定結果 ……2-45
図 2.2-42　最大応力比、破断ひずみ比に対する人工海水濃度の電位依存性 ……2-46
図 2.2-43　破面の SEM 観察結果（電位：自然電位) ……2-47
図 2.2-44　絞り比の電位依存性 ……2-48
図 2.2-45　酸性水中応力-歪み線図の測定結果 ……2-48
図 2.2-46　最大応力比、破断ひずみ比の pH 依存性 ……2-48
図 2.2-47　破面の SEM 観察結果(1/2) ……2-49
図 2.2-48　破面の SEM 観察結果(2/2) ……2-50
図 2.2-49　最大応力比、破断ひずみ比、絞り比の pH 依存性（緩衝材あり、自然電位） …2-50
図 2.3-1　平城宮跡出土鉄釘 No.4103（奈良文化財研究所所蔵品）の
表面からはく離した腐食生成物層片 ……2-56
図 2.3-2　平城宮跡出土鉄釘の剥離腐食生成物層片の断面試料分析結果 ……2-58
図 2.3-3　分析に供したベントナイト試料の外観写真 ……2-59
図 2.3-4　試料 A の SEM 分析結果（赤枠部が高倍率観察領域） ……2-61
図 2.3-5　試料 C の SEM 分析結果（赤枠部が高倍率観察領域） ……2-61
図 2.3-6　試料 A の高倍率 SEM 分析による反射電子像と元素合成画像 ……2-62
図 2.3-7　試料 C の高倍率 SEM 分析による反射電子像と元素合成画像 ……2-63
図 2.3-8　試料 A の TEM 分析結果 ……2-64
図 2.3-9　試料 C の TEM 分析結果 ……2-65
図 2.3-10　シデライトの溶解度の温度依存性 ……2-66
図 2.3-11　腐食深さ（Y）とセメンテーション厚さ（T）の関係 ……2-67
図 2.3-12　腐食深さ（Y）とセメンテーション厚さ（T）の経時変化 ……2-68
図 2.3-13　熱履歴ベントナイト試料の外観（左：供試体上面、右供試体下面） ……2-72
図 2.3-14　熱履歴ベントナイト供試体から作製した薄片一覧（写真上側が供試体上面） ‥2-73
図 2.3-15　CL の測定対象
（29 番層原鉱石の例:b、d はそれぞれ a、c 赤枠部の高倍率画像） ……2-74
図 2.3-16　カソードルミネッセンスのスペクトル比較 ……2-75
図 2.3-17　CL の重心位置 ……2-76
図 2.3-18　表面加工条件および加速電圧による EBSD パターンの鮮明性変化 ……2-78
図 2.3-19　粗大石英粒子の EBSD パターンの指数付け例 ……2-79
図 2.3-20　シリカ微粒子の EBSD パターン 3（左）とその指数付け例（右） ……2-80

図 2.3-21　熱履歴ベントナイト試料 No.3 の SEM 反射電子像 ……2-82
図 2.3-22　熱履歴ベントナイト試料 No.4 の SEM 反射電子像 ……2-82
図 2.3-23　熱履歴ベントナイト試料 No.4 の NaCl 析出部分の
二次電子像・反射電子像の比較 ……2-83
図 2.3-24　膨潤圧の経時変化 ……2-84
図 2.3-25　試験セルから取り出した時の供試体の様子 ……2-85
図 2.3-26　長期膨潤圧試験の供試体からの断面作製 ……2-85
図 2.3-27　原鉱石試料の膨潤圧試験前（a、c）および試験後（b、d）の組織 ……2-86
図 2.3-28　再構成試料の膨潤圧試験前（a、c）および試験後（b、d）の組織 ……2-87
図 2.3-29　試験前後での石英粒子の比較 ……2-88
図 2.3-30　試験前後での長石粒子の比較 ……2-89
図 2.3-31　試験前後での長石を含む石英粒子の比較 ……2-90
図 2.3-32　原鉱石試料（膨潤圧試験前）の SEM 反射電子像（上）と二値化像（下） ……2-91
図 2.3-33　原鉱石試料（膨潤圧試験後）の SEM 反射電子像（上）と二値化像（下） ……2-92
図 2.3-34　再構成試料（膨潤圧試験後）の SEM 反射電子像（上）と二値化像（下） ……2-92
図 2.3-35　シリカ微粒子の面積ヒストグラム ……2-93
図 2.3-36　シリカ微粒子の粒径ヒストグラム ……2-94
図 2.3-37　長期膨潤圧試験後の原鉱石の微細組織 ……2-96
図 2.3-38　実験に使用したベントナイト充填カラム(a)とカラムの内部構造(b) ……2-98
図 2.3-39　アモルファスシリカの溶解度曲線 ……2-98
図 2.3-40　$Fe(OH)_3$ の溶解度曲線 ……2-99
図 2.3-41　通水実験装置の模式図 ……2-99
図 2.4-1　Couplys の概略と本事業において高度化したスキーム ……2-105
図 2.4-2　試験装置概略図 ……2-106
図 2.4-3　解析に用いた水分特性曲線 ……2-107
図 2.4-4　解析に用いた水分特性曲線のパラメータと乾燥密度およびその近似曲線 ……2-108
図 2.4-5　NaCl 濃度と固有透過度の関係とその近似曲線 ……2-108
図 2.4-6　浸潤量の経時変化 ……2-109
図 2.4-7　人工バリア性能確認試験の解析評価に用いた解析メッシュモデル ……2-111
図 2.4-8　THC 連成解析における温度の境界条件 ……2-111
図 2.4-9　緩衝材の温度勾配水分拡散係数 ……2-114
図 2.4-10　人工バリア性能確認試験の THC および TH 連成解析による
間隙水飽和度コンター ……2-117
図 2.4-11　人工バリア性能確認試験の THC および TH 連成解析による
間隙水飽和度コンター ……2-118
図 2.4-12　緩衝材中の間隙水飽和度に関する計測結果と TH および
THC 連成解析結果との比較 ……2-119
図 2.4-13　比抵抗トモグラフィーによる計測結果から推定された間隙水飽和度コンター 2-119
図 2.4-14　TH および THC 連成解析による緩衝材の間隙水飽和度の時間変化 ……2-120
図 2.4-15　鉛直方向断面の解析メッシュ ……2-124
図 2.4-16　境界条件 ……2-124
図 2.4-17　1,200 日後の各ケースの変形図、体積ひずみ分布、乾燥密度分布 ……2-130
図 2.4-18　緩衝材の変位の経時変化 ……2-131

図 2.4-19　Section-11 での緩衝材の全応力の経時変化 ……2-131
図 2.4-20　MACBECE で取り扱う力学現象例 ……2-131
図 2.4-21　膨潤圧の測定に用いた試験装置の概略図 ……2-137
図 2.4-22　ケイ砂 30wt%混合ベントナイト（乾燥密度 1.8 Mg/m³）の膨潤圧測定結果…2-140
図 2.4-23　カオリナイト（乾燥密度 1.6 Mg/m³）の膨潤圧測定結果 ……2-141
図 2.4-24　温度変化にともなう膨潤圧の推移
（ケイ砂 30 wt%混合ベントナイトの場合）……2-141
図 2.4-25　温度変化にともなう膨潤圧の推移（カオリナイトの場合）……2-142
図 2.4-26　25 °C 時の膨潤圧を基準とした各温度の値（乾燥密度 1.6 Mg/m³）……2-142
図 2.4-27　25 °C 時の膨潤圧を基準とした各温度の値（乾燥密度 1.8 Mg/m³）……2-142
図 2.4-28　ケイ砂 30 wt%混合ベントナイトの温度と膨潤圧の関係 ……2-143
図 2.4-29　温度制御が可能な水槽を用いた圧密試験装置 ……2-144
図 2.4-30　膨潤圧過程 ……2-145
図 2.4-31　体積ひずみと載荷圧関係 ……2-145
図 2.4-32　体積ひずみと載荷圧関係（平均値）……2-146
図 2.4-33　間隙比と載荷圧関係 ……2-147
図 2.4-34　間隙比と載荷圧関係（平均値）……2-147
図 2.4-35　粉末 X 線回折試験と全原子分子動力学計算の結果をふまえて作成した
Na 型モンモリロナイトの水和エネルギーモデル ……2-151
図 2.4-36　Na 型モンモリロナイトの膨潤シミュレーションによる組織構造の結果 ……2-151
図 2.4-37　相対湿度を指定して行った Na 型モンモリロナイトの
膨潤シミュレーションによる粘土層間距離の頻度分布 ……2-152
図 2.5-1　セメントが使用されたボーリング孔（12MI33 号孔）と
コア試料を採取したボーリング孔（18MI65 号孔）の位置関係 ……2-156
図 2.5-2　採取したコア試料の一覧表、偏光顕微鏡写真、X 線分析顕微鏡による
Ca マッピングの結果および観察結果のまとめ ……2-157
図 2.5-3　岩石薄片の作製位置を示す概念図 ……2-158
図 2.5-4　電子顕微鏡観察を行った試料（30.1 m 深部面）の写真 ……2-158
図 2.5-5　電子顕微鏡観察を行った試料の写真および EDS による元素マップ
（Ca と Si）（左）25.15 m、（右）30.1 m 浅部面 ……2-159
図 2.5-6　電子顕微鏡観察を行った試料の写真および EDS による元素マップ
（Ca と Si）（30.1 m 浅部面）……2-160
図 2.5-7　亀裂を二次元平行平板と仮定した準三次元モデルの概念 ……2-163
図 2.5-8　試験系の概念図に基づいた解析体験の概念図 ……2-165
図 2.5-9　亀裂入口からの異なる距離における亀裂中での溶液組成に
対する様々な鉱物の飽和指数の時間変化に関わる解析結果 ……2-167
図 2.5-10　花崗岩マトリクス部および亀裂部における間隙水中の
Si および Al 濃度の経時変化 ……2-167
図 2.5-11　亀裂入口からの異なる距離における亀裂中での溶液組成に対する様々な
鉱物の飽和指数の時間変化に関わる解析結果 ……2-168
図 2.5-12　亀裂入口からの異なる距離における亀裂中での溶液組成に対する様々な
鉱物の飽和指数の時間変化に関わる解析結果 ……2-169
図 2.5-13　亀裂部の透水性および間隙の経時変化（左図：透水性、右図：間隙）……2-170

図 2.6-1　緩衝材の流出挙動に及ぼす影響因子 ……2-180
図 2.6-2　流出量評価モデルの理想的な開発手順 ……2-184
図 2.6-3　2 つの隙間処理オプションにおける緩衝材の流出挙動（想定） ……2-185
図 2.6-4　静的試験で得られた空隙（ケイ砂領域）への緩衝材侵入挙動 ……2-185
図 2.6-5　流出挙動の変化を示す変曲点Ta ……2-186
図 2.6-6　室内要素試験装置の概念と要求される機能 ……2-186
図 2.6-7　緩衝材の流出挙動を表現できるベースモデル（相関式）のイメージ……2-187
図 2.6-8　緩衝材流出特性の評価例
（隙間処理技術オプションの適用範囲の評価イメージ） ……2-190
図 2.6-9　本フェーズにおける流出量評価モデルの整備の手順 ……2-192
図 2.6-10　ベースモデルの概念図 ……2-193
図 2.6-11　室内試験の要素試験系　概念図 ……2-193
図 2.6-12　室内試験の試験状況　写真 ……2-194
図 2.6-13　原位置実規模 1/4 スケール試験の概要図
（ケイ砂充填オプション：長期試験） ……2-195
図 2.6-14　ケイ砂充填オプション　ベースモデルのデータセット ……2-197
図 2.6-15　ベントナイト濃度のピークが確認された時間とベントナイト濃度 ……2-199
図 2.6-16　ケイ砂充填領域の観察結果（例：H05Q10-S①） ……2-199
図 2.6-17　累積流出量と流量の経時変化 ……2-200
図 2.6-18　ケイ砂充填領域のメッシュ分割 ……2-202
図 2.6-19　充填したケイ砂の断面観察結果（例：H2Q10-S） ……2-203
図 2.6-20　ケイ砂間隙内に侵入した細粒分含有量の分布 ……2-204
図 2.6-21　ケイ砂間隙への細粒分含有量の充填率 ……2-204
図 2.6-22　べき乗関数モデルのグラフ概念図 ……2-205
図 2.6-23　Range 1 における累積流出量の経時変化（流量ごとに帯域表示） ……2-206
図 2.6-24　初期流量ごとに整理したべき乗関数モデル ……2-207
図 2.6-25　パラメータα、βと流量の関係 ……2-208
図 2.6-26　Range 2 における累積流出量の経時変化（流量ごとに帯域表示） ……2-208
図 2.6-27　パラメータδと流量の関係 ……2-209
図 2.6-28　べき乗関数モデルと室内試験結果との比較 ……2-210
図 2.6-29　シグモイド関数のグラフ概念図 ……2-212
図 2.6-30　フィッティング係数 2αをパラメータとしたシグモイド関数 ……2-213
図 2.6-31　シグモイド関数によるベースモデルのグラフ概念図 ……2-213
図 2.6-32　ベースモデルの入力値に関する考え方 ……2-214
図 2.6-33　シグモイド関数によるフィッティング結果（$2\alpha=0.6$） ……2-214
図 2.6-34　緩衝材の累積流出量の最大値$A2$ と流量 Q の関係 ……2-214
図 2.6-35　累積流出量が収束する日数 $2t0$ と流量 Q の関係 ……2-215
図 2.6-36　水質（幌延模擬地下水）による流出挙動の違い ……2-217
図 2.6-37　ケイ砂充填領域（左）および隙間未充填領域（右）の観察結果 ……2-218
図 2.6-38　充填したケイ砂の断面観察結果（例：H1Q10-S-HR①） ……2-220
図 2.6-39　充填したケイ砂領域に侵入した緩衝材の細粒分含有量および充填率 ……2-221
図 2.6-40　試験セルの向きによる流出挙動の違い ……2-222
図 2.6-41　ベントナイト濃度のピークが確認された時間とベントナイト濃度 ……2-224

図 2.6-42　充填したケイ砂の断面観察結果（例：H1Q10-S-V）……2-225
図 2.6-43　充填したケイ砂領域に侵入した緩衝材の細粒分含有量および充填率……2-226
図 2.6-44　壁面観察による湧水亀裂の分布（試験孔 2）……2-227
図 2.6-45　短期／長期試験の試験結果（左：累積流出量・濃度、右：流量・膨潤圧）…2-228
図 2.6-46　原位置実規模 1/4 スケール試験を模擬した室内要素試験による流出挙動 ……2-231
図 2.6-47　室内要素試験（面積比倍）と原位置実規模 1/4 スケール試験との比較 ……2-232
図 2.6-48　スケール効果を考慮した流出量評価モデルと
原位置実規模 1/4 スケール試験の比較 ……2-234
図 2.6-49　隙間未充填オプション　ベースモデル構築のためのデータセット（その 1）·2-237
図 2.6-50　隙間未充填オプション　ベースモデル構築のためのデータセット（その 2）·2-238
図 2.6-51　流量および水頭差に対するベントナイト濃度のピーク時間の関係……2-240
図 2.6-52　流量および水頭差に対するベントナイト濃度のピークの関係……2-241
図 2.6-53　流量および水頭差に対する膨潤圧発生の時間の関係……2-241
図 2.6-54　試験開始（左上）、試験中（右上）および終了時（下）の隙間未充填領域 ……2-241
図 2.6-55　ケイ砂の集積状況（例：H2Q10③）……2-242
図 2.6-56　隙間未充填オプション　べき乗関数モデルのグラフ概念図……2-244
図 2.6-57　変曲点Taの決め方 ……2-245
図 2.6-58　初期流量ごとに整理したべき乗関数モデル……2-246
図 2.6-59　パラメータα、βと流量の関係 ……2-247
図 2.6-60　初期流量ごとに整理したべき乗モデル関数……2-247
図 2.6-61　パラメータ δ と流量の関係 ……2-248
図 2.6-62　べき乗関数モデルと室内試験結果との比較……2-250
図 2.6-63　緩衝材の累積流出量の最大値$A2$ と流量 Q の関係 ……2-251
図 2.6-64　累積流出量が収束する日数 $2t0$ と流量 Q の関係……2-252
図 2.6-65　シグモイド関数によるフィッティング結果（$2\alpha=3.0$）……2-252
図 2.6-66　水質（幌延模擬地下水）による流出挙動の違い……2-254
図 2.6-67　緩衝材の膨潤経過（左）および試験終了時（右）の観察結果……2-256
図 2.6-68　ケイ砂の集積状況（例：H05Q5-HR③）……2-256
図 2.6-69　メッシュフィルタ内部のデッドスペース概念図……2-257
図 2.6-70　上流および下流に設置したメッシュフィルタ（左：下流側、右：上流側）…2-257
図 2.6-71　試験セルの向きによる流出挙動の違い……2-258
図 2.6-72　緩衝材の膨潤による隙間の充填過程の観察結果（例：H05Q5-V①）……2-260
図 2.6-73　ケイ砂の集積状況（例：H05Q5-V①）……2-261
図 2.6-74　試験セル解体後における緩衝材の乾燥密度分布……2-262
図 2.6-75　短期試験および長期試験における累積流出量および濃度（左）
流量および膨潤圧（右）の経時変化……2-263
図 2.6-76　室内要素試験（面積比倍）と原位置実規模 1/4 スケール試験との比較 ……2-265
図 2.6-77　スケール効果を考慮した流出量評価モデルと
原位置実規模 1/4 スケール試験の比較 ……2-267
図 2.6-78　荷重計の経時変化（令和 2 年度との比較）……2-271
図 2.6-79　ジャッキ取り外し前後における緩衝材の膨潤による変位量測定位置の説明図 2-272
図 2.6-80　緩衝材の膨潤変形による膨出抑制用鋼製蓋の変位量（緩衝材上昇量）……2-273
図 2.6-81　解析スケールの段階的な拡張……2-275

図 2.6-82　解析の対象となるプロセスの概念図 ……2-277
図 2.6-83　パラメータセット 00 を使用した解析結果 ……2-278
図 2.6-84　試験装置の概要 ……2-279
図 2.6-85　小型試験体スケールの試験による膨潤量・膨潤圧試験の結果 ……2-280
図 2.6-86　試験終了後の供試体スライス断面の分析結果 ……2-280
図 2.6-87　水分特性曲線 ……2-281
図 2.6-88　間隙比依存性を考慮した透水係数 ……2-281
図 2.6-89　各パラメータセットの軸圧と側圧の経時変化 ……2-282
図 2.6-90　各パラメータセットの乾燥密度の経時変化 ……2-283
図 2.6-91　各パラメータセットの乾燥密度の分布 ……2-283
図 2.6-92　各パラメータでの乾燥密度分布（平衡時） ……2-284
図 2.6-93　解析結果（パラメータ見直し後） ……2-285
図 2.6-94　解析で得られた乾燥密度分布の経時変化（パラメータ見直し後） ……2-286
図 2.6-95　原位置実規模 1/4 スケール試験の概要図（隙間未充填オプション） ……2-286
図 2.6-96　一次元解析モデルの概念図および初期・境界条件 ……2-288
図 2.6-97　軸圧の経時変化の解析結果と試験結果の比較 ……2-289
図 2.6-98　側圧の経時変化の試験結果と解析結果の比較 ……2-289
図 2.6-99　二次元解析モデルの概要 ……2-290
図 2.6-100　二次元解析結果：飽和度分布の変遷（ケース 0） ……2-291
図 2.6-101　二次元解析結果：乾燥密度分布の変遷（ケース 0） ……2-291
図 2.6-102　上面および底面の軸圧変化（ケース 0） ……2-292
図 2.6-103　二次元解析結果：外側面の側圧変化（ケース 0） ……2-293
図 2.6-104　ジョイント要素の概念図 ……2-294
図 2.6-105　ジョイント要素のせん断応力と相対変位の関係 ……2-294
図 2.6-106　引抜試験から評価される摩擦剛性およびせん断応力 ……2-294
図 2.6-107　摩擦を考慮した境界条件 ……2-295
図 2.6-108　飽和度分布の変遷 ……2-297
図 2.6-109　乾燥密度分布の変遷 ……2-298
図 2.6-110　各ケースの緩衝材の乾燥密度分布と原位置試験結果との比較 ……2-299
図 2.6-111　各ケースの緩衝材上面における軸圧の経時変化 ……2-299
図 2.6-112　各ケースの緩衝材底面にける軸圧の経時変化 ……2-300
図 2.6-113　各ケースの緩衝材外側面における側圧の経時変化 ……2-300
図 2.6-114　各ケースの緩衝材内側面における側圧の経時変化 ……2-301
図 2.6-115　内側面の拘束条件 ……2-302
図 2.6-116　内側面および外側面における緩衝材の変位 ……2-302
図 2.6-117　内側面および外側面における側圧の経時変化 ……2-303

第 3 章　ニアフィールド環境変遷を考慮した核種移行評価技術の開発
図 3.1-1　ニアフィールドのシステム変遷と核種移行評価に係る課題例 ……3-1
図 3.1-2　本課題における 3 つのサブタスクとそれらの関係 ……3-3
図 3.2-1　結晶質岩と堆積岩のマトリクス部と割れ目部を対象とした複数の室内試験や原位置試験等を組み合わせた核種移行研究アプローチ ……3-5
図 3.2-2　瑞浪 URL の花崗岩コアと各分析・試験用の試料加工状況 ……3-7

図 3.2-3　EPMA 分析による瑞浪 URL の花崗岩試料（孔壁からの距離 55.8 m 付近）の元素組成分布および画像解析により推定された鉱物分布とその面積比 ……3-7
図 3.2-4　偏光顕微鏡による瑞浪の花崗岩（割れ目近傍）の鉱物組成等の観察結果 ……3-8
図 3.2-5　X 線 CT 画像解析による瑞浪の花崗岩試料（18MI65 孔の孔壁からの距離 39.1 m 付近）の(a)割れ目近傍と(b)マトリクス部の黒雲母分布 ……3-9
図 3.2-6　拡散試験の対象とした国内結晶質岩試料の外観（上段）と X 線 CT 画像解析による黒雲母抽出画像（中段：拡散面、下段：側面） ……3-10
図 3.2-7　国内結晶質岩試料中の Cs^+および I^-の拡散試験結果 ……3-11
図 3.2-8　(a)国内結晶質岩と(b)海外結晶質岩の陽イオン加速・陰イオン排除効果の比較 ….3-12
図 3.2-9　(a)グリムゼル原位置試験場の試験対象割れ目帯と試料採取位置、(b)大型コア試料の採取状況、(c)室内トレーサー試験の概念図、(d)トレーサー試験で得られた破過データ ……3-13
図 3.2-10　X 線 CT 画像解析による分岐割れ目の観察(a)と開口幅の解析結果(b)，EPMA による割れ目部の反射電子像(c) ……3-14
図 3.2-11　X 線 CT 画像解析による割れ目内のガウジ充填率(a)割れ目内の CT 画像とガウジ充填率の比較、(b)スライス 1 - 4 試料の割れ目内の充填率分布 ……3-15
図 3.2-12　CT 画像解析によるスライス 2 試料の主経路割れ目と分岐割れ目の構造 ……3-16
図 3.2-13　X 線 CT 分析による割れ目開口幅とガウジ充填率の分布の評価結果と、代表的な X 線 CT 断面像との比較 ……3-16
図 3.2-14　室内トレーサー試験後の主経路割れ目表面上の収着性トレーサーの濃度分布 …3-17
図 3.2-15　分岐割れ目表面を対象とした分析箇所とトレーサー濃度分析結果 ……3-18
図 3.2-16　スライス 1 - 4 の割れ目表面から採取したガウジ試料 ……3-18
図 3.2-17　スライス 1 - 4 から採取したガウジ試料表面のトレーサー強度比の平均値の比較 ……3-19
図 3.2-18　スライス 1 の割れ目表面から採取したガウジ表面のトレーサー濃度分布 ……3-19
図 3.2-19　(a)グリムゼルの岩石割れ目中移行モデルの概念図と(b)流路領域割合変化のモデルイメージ ……3-20
図 3.2-20　(a)移行領域面積、フロー領域・スタグナント領域の効果、 (b)割れ目表面の変質層およびガウジ層の厚さの効果の感度解析結果 ……3-21
図 3.2-21　変質層の厚さを変化させた条件での感度解析結果：(a) I, (b) Cs ……3-22
図 3.2-22　2 経路への分岐を想定したモデルの(a)Cs と(b)Ni の再現解析結果 ……3-23
図 3.2-23　GoldSim の不確実性解析手法を適用した割れ目中核種移行に及ぼす重要因子の分析結果：(a) 不確実性解析フロー、(b) パラメータ相関の散布図、(c) 偏順位相関係数 ……3-24
図 3.2-24　核種移行現象や地質環境の不均質性と長期変遷を反映した核種移行現象解析モデルの構築・確証のアプローチ ……3-25
図 3.2-25　地質環境の環境変遷とそれに伴う核種移行特性の変化を取り扱う核種移行モデルの検討アプロ―チ：精緻・中間・簡易モデルの関係 ……3-26
図 3.2-26　隆起シナリオにおける核種移行解析で考慮すべきプロセス(a)と 500m の割れ目中の核種移行解析体系のグリッド構成(b) ……3-27
図 3.2-27　環境変遷を考慮した条件下での複数のモデル（精緻、中間、簡易モデルおよび変遷なし）による Cs の核種移行解析結果：(a) SRHP ⇒ FRHP 変遷パターン、(b) FRHP ⇒ SRHP 変遷パターン ……3-28

図 3.2-28　環境変遷（SRHP ⇒ FRHP 変遷パターン）を考慮した条件下での核種移行解析における Cs 液相濃度と間隙水イオン強度の時間変化：精緻モデル（上段）と中間モデル（下段）……3-28
図 3.2-29　幌延の泥岩（稚内層）を対象とした間隙特性分析結果（(a) - (b)：ナノ X 線 CT 像と間隙分布、(c)SEM による反射電子像、(d)水銀圧入法による細孔径分布）と拡散モデル概念((e) - (f)）……3-29
図 3.2-30　幌延の泥岩マトリクス中の間隙サイズ分布(a)と Cs, HTO および I の実効拡散係数の実測データへの拡散モデルの適用結果(b)……3-30
図 3.2-31　混合媒体の鉱物配置の可視化図。(a) ケイ砂の体積分率が 0.12 の場合。 (b) ケイ砂の体積分率が 0.65 の場合。クニゲルユニットは緑色、ケイ砂ユニットは青色で配色している……3-32
図 3.2-32　RW シミュレーションによる幾何学的因子Gのケイ砂体積分率Rsand依存性。(a) HTO シミュレーション（赤丸）、Kato et al. (1999b)の HTO 実測データ（青色ダイヤ）。(b) Cs イオン（赤色ダイヤ）、I イオン（青色三角）、HTO（黒丸）。緑色実線は、サイト・パーコレーションによる理論曲線を表す。……3-34
図 3.2-33　二次元正方格子上の鉱物配置の例。(a) R_{sand} = 0.50 の場合の鉱物配置の例。(b) R_{sand} = 0.75 の場合の鉱物配置の例。クニゲルユニットは緑色、ケイ砂ユニットは茶色で配色している……3-35
図 3.2-34　HTO を対象とした RW シミュレーションによる幾何学的因子Gのケイ砂体積分率Rsand依存性。クニゲル V1＋間隙を有するケイ砂混合系（「間隙ありケイ砂」、緑色三角）、クニゲル V1＋間隙を有しないケイ砂混合系（「間隙なしケイ砂」、赤丸）、および Kato et al. (1999b)の HTO 実測データ（青色ダイヤ）…3-36
図 3.2-35　MD シミュレーションに用いたスーパーセルの模式図。スーパーセルにはバイデライトの結晶層を 2 層分含み、間隙は 2 層水和状態の層間間隙、および外部溶液と接した 80 Å の外部間隙を有する。三次元方向には、それぞれ周期的境界条件を設定する……3-39
図 3.2-36　(a) 外部ベーサル面に垂直な方向を横軸にとった水分子の密度分布。層間陽イオンの種類と層電荷の値を変化させた条件で計算した結果を重ねて表示した。滞留層の領域をオレンジ色で表示した。(b) 陽イオンの滞留時間の考え方を示す模式図……3-39
図 3.2-37　Na イオン(a)、K イオン(b)および Cs イオン(c)の滞留時間のヒストグラム。層電荷のバリエーション（x = 0, 0.1, 0.2, 0.3 および 0.4）を色別に表示した。(d) 滞留層内における各陽イオンの拡散係数の層電荷依存性。縦軸は、ベーサル面に平行な成分を対象とした二次元的な拡散係数をバルク溶液中の水分子の拡散係数で規格化した値を表す……3-40
図 3.2-38　層電荷 0.2 のバイデライト表面に垂直な方向に沿った平均力ポテンシャルの概形（青色実線）と、各陽イオンに対する z-position の位置（Yang et al.（2020）から引用）……3-41
図 3.2-39　Na^+の各 z-position における自由エネルギー・マップ（層電荷 0.2 のバイデライト）……3-42
図 3.2-40　K^+の各 z-position における自由エネルギー・マップ（層電荷 0.2 のバイデライト）……3-43
図 3.2-41　Cs^+の各 z-position における自由エネルギー・マップ（層電荷 0.2 のバイデラ

イト） ……3-43
図 3.2-42　幌延の泥岩中の割れ目を対象とした原位置トレーサー試験装置の概略図 ……3-44
図 3.2-43　割れ目中の核種移行評価の平行平板モデル概念図および支配方程式 ……3-45
図 3.2-44　試験孔周辺のボーリングコアの割れ目面のトレーサー分析結果：(a)トレーサーの移行に関与した割れ目分布、(b)割れ目表面のトレーサー濃度分析結果の一例 ……3-46
図 3.2-45　複数の移行経路とフロー領域・スタグナント領域を考慮した解析モデル：(a) 複数の移行経路、(b) フロー領域・スタグナント領域 ……3-47
図 3.2-46　GoldSim 解析における注入孔側から揚水孔側の流量と、複数移行経路の取り扱い ……3-47
図 3.2-47　トレーサー試験における間隙水圧の変化 ……3-48
図 3.2-48　パルス・コンスタント試験結果の間隙水圧差を補正した最適化結果 ……3-49
図 3.2-49　ウラニンのパルス試験とコンスタント試験の最適値および間隙水圧比率の補正を行い Mo における 3 つの移行経路を考慮した解析モデルを用いた解析結果：(a) パルス試験の破過曲線、(b) コンスタント試験の破過曲線 ……3-50
図 3.2-50　ウラニンの最適値を用いて Cs における 3 つの移行経路を考慮した解析モデルを用いた解析結果：(a) コンスタント試験の破過曲線、(b) 割れ目表面の濃度分布 ……3-51
図 3.2-51　幌延 URL の 350 m 坑道におけるマトリクス部の原位置拡散試験後のトレーサー接触面近傍のトレーサー等分布の LA-ICPMS による分析結果 ……3-52
図 3.2-52　幌延 URL の 350 m 坑道における割れ目部を対象とした原位置トレーサー試験後の割れ目面近傍のトレーサー等分布の LA-ICPMS による分析結果 ……3-53
図 3.2-53　本事業で評価を実施した幌延 URL の 350 m 調査坑道における原位置トレーサー試験、原位置拡散試験および室内試験で取得された物質移行パラメータの比較：(a) 実効拡散係数、(b)収着分配係数 ……3-54
図 3.2-54　イオン交換反応に関わるパラメータの不確実性を考慮した解析結果（HDB-1 孔） ……3-59
図 3.2-55　イオン交換反応に関わるパラメータの不確実性を考慮した解析結果（HDB-3 孔） ……3-59
図 3.2-56　炭酸塩の溶解・沈殿反応に関わるパラメータの不確実性を考慮した解析結果（HDB-1 孔） ……3-60
図 3.2-57　炭酸塩の溶解・沈殿反応に関わるパラメータの不確実性を考慮した解析結果（HDB-3 孔） ……3-60
図 3.3-1　Fe(II)がモンモリロナイトに対する Ni の K_d に及ぼす影響と 2SPNE SC/CE モデルによる再現結果 ……3-66
図 3.3-2　(a) 試験 E-1 から得られた粒子の低倍率明視野像、(b) (a)中の角柱状の粒子の拡大像、 (c) (b)中の角柱状の粒子の EDS スペクトル、(d) (a)中の針状の粒子の拡大像と ED パターン（挿入図）、(e) (d)中の針状の粒子の EDS スペクトル、(f) 針状の粒子の高解像度拡大図 ……3-68
図 3.3-3　(a) 試験 E-2 から得られた粒子の低倍率明視野像、(b) (a)の拡大像、(c) (a)中の赤丸部分の EDS スペクトル、(d) (a)中の赤丸部分の ED パターン、(e) (b)中の赤枠部分の高解像度像 ……3-69
図 3.3-4　試験 E-3 から得られた粒子の低倍率明視野像、(b) (a)中の多面体粒子の拡大像

と ED パターン（挿入図）、(c) 中空のチューブ状の粒子の先端の高解像度像、(d) (c)の赤丸部分の EDS スペクトル、(e) 薄いシート状の粒子の高解像度像、(f) (e)の赤丸部分の EDS スペクトル、(g) (a)中の異なる形態を持つ粒子のクラスター部分の BF 像、(h) (a)中の異なる形態を持つ粒子のクラスター部分の高角度環状暗視野像、(i) (g, f)における Se の分布、(j) (g, f)における Fe の分布、(k) (g, f)における O の分布 ……3-70
図 3.3-5　(a) 試験 F-1 から得られた粒子の低倍率明視野像、(b) (a)中の赤枠部分の高解像度像、(c) (a)と同一部分の高角度環状暗視野像、(d) (c)における Se の分布、(e) (c)における Fe の分布、(f) (c)における O の分布 ……3-71
図 3.3-6　(A) pH 8 における 1 mM または $10^{-4.9}$ mM の Se 濃度での β-FeSe の飽和指数の Fe(II)濃度依存性と $Fe(OH)_2$ の飽和指数および(B) 共沈後の溶液の Se(0)と β-FeSe に関する飽和指数　破線は Se(0)と β-FeSe の log K の不確かさ(2σ)を示す ……3-72
図 3.3-7　(A) pH 12 における 1 mM または $10^{-4.9}$ mM の Se 濃度での β-FeSe の飽和指数の Fe(II)濃度依存性および(B) 共沈後の溶液の Se(0)と β-FeSe に関する飽和指数　破線は Se(0)と β-FeSe の log K の不確かさ(2σ)を示す ……3-73
図 3.3-8　(A) 単硫化物共沈試験、(B) 多硫化物共沈試験における液相中 Se 濃度の推移および(C) 熟成終了後における固相の Se の取り込み割合 ……3-76
図 3.3-9　（左）単硫化物共沈および（右） 多硫化物共沈試験で得られた初期および熟成固相の XRD パターン ……3-76
図 3.3-10　(A) 単硫化物共沈試験および(B) 多硫化物共沈試験で得られた初期および熟成固相と比較物質の Se-K 吸収端 XANES スペクトル　八面体パイライトに取り込まれた Se のスペクトルは Matamoros-Veloza et al. (2014)による ……3-77
図 3.3-11　（上）単硫化物共沈試験および（下）多硫化物共沈試験により得られた初期固相および熟成固相の(A) k^2 重みづけ Se-K 吸収端 EXAFS スペクトルおよび(B) FT ……3-78
図 3.3-12　DFT 計算により最適化されたマッキナワイトの構造（VESTA 3 (Momma and Izumi, 2011)を用いて作成）　（上）Se の置換なし（下）Se の置換あり …3-79
図 3.3-13　鉄鉱物と Se との相互作用分析対象試料の採取深度 ……3-81
図 3.3-14　Se 逐次抽出試験の結果　（上） HDB-10、（下） HDB-11 ……3-82
図 3.3-15　HDB-10, HDB-11 および URL 試料の S の同位体分析結果 ……3-83
図 3.3-16　Se 濃集部の共存元素マッピング結果および SEM 観察結果　（上）稚内層(HDB-11), （下）声問層(URL140 m) ……3-84
図 3.3-17　Se 濃集部における XAFS 測定結果　（左）Se、（右）Fe ……3-85
図 3.3-18　（左）URL140 m の Se-K 吸収端 k^3 重みづけ EXAFS スペクトルおよび（右）対応する位相シフトの FT ……3-86
図 3.3-19　定量 EXAFS フィッティング結果をもとに作成したパイライト中の S を Se に置換した結晶構造のイメージ図（VESTA 3 (Momma and Izumi, 2011)を用いて作成） ……3-86
図 3.3-20　乾燥密度 1.2 Mg/m^3 の Na 型および Ca 型ベントナイト中のサイズの異なるデンドリマーコロイド（5.7 nm および 8.8 nm）の拡散・濾過試験データ (a) 高濃度側および低濃度側のデンドリマー濃度変化、(b) 試験後のベントナイト中のデンドリマー濃度分布 ……3-90

図 3.3-21　乾燥密度 1.6 Mg/m^3 の Na 型および Ca 型ベントナイト中のサイズの異なるデンドリマーコロイド（5.7 nm および 1.9 nm）の拡散・濾過試験データ (a) 高濃度側および低濃度側のデンドリマー濃度変化、(b) 試験後のベントナイト中のデンドリマー濃度分布 ……3-90
図 3.3-22　これまでに取得された異なる乾燥密度、間隙水イオン強度、コロイドサイズにおけるデンドリマーコロイドの移行・濾過試験結果のまとめ　(a) Na 型、(b) Ca 型モンモリロナイト ……3-91
図 3.3-23　幌延の泥岩とセメントの接触界面の採取位置と分析対象試料の界面の状況 ……3-92
図 3.3-24　泥岩―OPC 接触界面の分析結果　(a) 対象試料全体の写真と EPMA による Ca マップ、(b) EPMA の高分解能の Ca マップと深度方向 Ca 分布、(c) LA-ICPMS による Ca・Sr マップ、(d) SEM/EDS による Ca マップと二次鉱物の同定 ……3-94
図 3.3-25　泥岩―HFSC 接触界面の分析結果　(a) 対象試料全体の写真と EPMA による Ca マップ、(b) EPMA の高分解能の Ca マップと深度方向 Ca 分布、(c) LA-ICPMS による Ca・Sr マップ、(d) SEM/EDS による Ca マップと二次鉱物の同定 ……3-95
図 3.3-26　泥岩－セメント接触界面を対象とした地球化学－物質移行解析体系 ……3-96
図 3.3-27　泥岩―セメント接触界面を対象とした地球化学－物質移行解析で得られた界面近傍の鉱物体積分率（左：OPC、右：HFSC との接触界面） ……3-98
図 3.3-28　CI コンドライトで規格化した幌延 URL から採取したカルサイトおよび比較用の海成カルサイト(JLs-1)中の REE 分配パターン ……3-100
図 3.3-29　μ-XRF 測定によるマッピング結果　入射 X 線: 18 keV、測定範囲: 50 μm × 50 μm、 Sr -Th: 検出器にアルミ箔あり、La - Nd: 検出器にアルミ箔なし ….3-101
図 3.3-30　図 3.3-29 中に示した部分で取得された XRF スペクトル ……3-101
図 3.3-31　種々の試料の Y-K 吸収端 XANES スペクトル ……3-103
図 3.3-32　カルサイト共沈試験およびアラゴナイト共沈試験により得られた固相中の Sm の EXAFS 解析結果　（上）k 空間、（下）R 空間 ……3-104
図 3.3-33　イライトに対する Eu または Sm の K_d の pH および炭酸濃度依存性の 2SPNE SC/CE モデルによる解析結果 ……3-106
図 3.3-34　TRLFS 測定により得られたイライトに収着した Eu の蛍光スペクトル ……3-107
図 3.3-35　PARAFAC 解析により得られた各要素の蛍光スペクトル ……3-107
図 3.3-36　（左）PARAFAC 解析により得られた各要素の蛍光の減衰プロファイルおよび（右）各要素の存在割合の pH および炭酸濃度依存性 ……3-108
図 3.3-37　イライトに対する U(VI)の K_d の pH および DIC 濃度依存性の 2SPNE SC/CE モデルによる再現結果 ……3-109
図 3.3-38　2SPNE SC/CE モデルから予測された表面化学種の存在割合の pH および DIC 濃度依存性 ……3-109
図 3.3-39　LT-TRLFS 測定により得られたイライトに収着した U(VI)の蛍光スペクトル ……3-110
図 3.3-40　（左）PARAFAC 解析から得られた各要素の蛍光スペクトルおよび（右）蛍光の減衰プロファイル ……3-111
図 3.3-41　PARAFAC 解析から得られた各要素の存在割合の pH および DIC 濃度依存性 3-111
図 3.3-42　幌延の泥岩に対する U(VI)の K_d の pH および DIC 濃度依存性と CA モデル

による再現結果 ……3-112
図 3.3-43　初期状態として層間内に Na^+が 32 個存在し、層間外に Na^+が 8 個・Cl^-が 8 個共存する系（ケース 1)、および層間外に Na^+が 8 個・CO_3^{2-}が 4 個共存する系（ケース 2）の 10 ns にわたる溶存イオンの層間内における個数履歴 (a) ケース 1 の 2 層水和状態、(b) ケース 1 の 3 層水和状態、(c) ケース 1 の 4 層水和状態、(d) ケース 2 の 2 層水和状態、(e) ケース 2 の 3 層水和状態、(f) ケース 2 の 4 層水和状態 ……3-114
図 3.3-44　初期状態として層間内に Na^+が 32 個存在し、層間外に UO_2^{2+}が 8 個・Cl^-が 16 個共存する系（ケース 3)、および層間外に UO_2^{2+}が 8 個・CO_3^{2-}が 8 個共存する系（ケース 4）の 10 ns にわたる溶存イオンの層間内における個数履歴 (a) ケース 3 の 2 層水和状態、(b) ケース 3 の 3 層水和状態、(c) ケース 3 の 4 層水和状態、(d) ケース 4 の 2 層水和状態、(e) ケース 4 の 3 層水和状態、(f) ケース 4 の 4 層水和状態 ……3-116
図 3.3-45　初期状態として層間内に Na^+が 32 個存在し、層間外に NpO_2^+が 8 個・Cl^-が 8 個共存する系（ケース 5)、および層間外に NpO_2^+が 8 個・CO_3^{2-}が 4 個共存する系（ケース 6）の 10 ns にわたる溶存イオンの層間内における個数履歴 (a) ケース 5 の 2 層水和状態、(b) ケース 5 の 3 層水和状態、(c) ケース 5 の 4 層水和状態、(d) ケース 6 の 2 層水和状態、(e) ケース 6 の 3 層水和状態、(f) ケース 6 の 4 層水和状態 ……3-117
図 3.3-46　Np(V)の透過拡散試験の実測データと PHREEQC の Transport 解析による平均 $D_e \cdot K_d$ モデルの比較　(a) 下流側セル内の Np(V)濃度変化（破過曲線)、(b) 試料内部の Np(V)濃度分布（濃度プロファイル） ……3-121
図 3.3-47　Np(V)の透過拡散試験の実測データと PHREEQC の Transport 解析による ISD 表面錯体モデルの比較 (a) 下流側セル内の Np(V)の破過曲線、(b) 試料内部の Np(V)濃度プロファイル ……3-122
図 3.3-48　PHREEQC を用いた不確実性評価解析ツールの概念図 ……3-123
図 3.3-49　PHREEQC を用いた不確実性評価解析ツールによる Np(V)のベントナイト中の不確実性解析結果 (a) PRCC、(b) Np 濃度のヒストグラム、(c) 補累積分布関数 ……3-124
図 3.4-1　pH 6 における(a) Eu^{3+}添加無し、(b) HHA 添加無し、(c) Eu^{3+}/HHA(C_{Eu_T} = 0.10 μM)の蛍光検出器、および、Eu/In 比フラクトグラム ……3-131
図 3.4-2　異なる Eu^{3+}濃度における Eu^{3+} /HHA 試料のフラクトグラムの比較　(a) 蛍光検出器、(b) ICP-MS Eu/In カウント比(pH 6.00) ……3-131
図 3.4-3　pH 6 における HHA に対する Eu^{3+}結合量の Eu^{3+}濃度依存性 ……3-132
図 3.4-4　CE-ICPMS システム概略図 ……3-134
図 3.4-5　CE-ICPMS から取得した Zr^{4+}のフラクトグラム(pH 5, HHA 20 ppm) ……3-136
図 3.4-6　CE-ICPMS から導出した結合量に対する NICA-Donnan モデルフィッティング結果 ……3-139
図 3.4-7　HHA について構築した LFER ……3-141
図 3.4-8　Zr の錯生成熱量滴定結果(a)と各滴定点における Zr の化学種の変化(b) ……3-143
図 3.4-9　滴下 EDTA 溶液(pH 1)中の化学種分布 ……3-143
図 3.4-10　Eu の収着の炭酸濃度依存性 ……3-146
図 3.4-11　有機物影響を考慮した性能評価解析結果 ……3-152

図 3.4-12　微生物と元素との相互作用の概念図 ……3-155
図 3.4-13　URL における ボーリング孔配置図 ……3-157
図 3.4-14　孔径 0.2 μm フィルター濾液中の希土類元素濃度の残存率の経時変化。全コロイド; 地下水中に存在する全コロイド（無機/有機・バイオコロイド)。無機/有機コロイド; γ 線滅菌処理を施して微生物を死活させた地下水中のコロイド（無機および生きたバイオコロイドを除く有機コロイド)。 (a) 140 m 地下水の全コロイドの存在下；無濾過溶液、(b) 140 m 地下水の無機/有機コロイドの存在下；0.2 μm フィルター濾過溶液、(c) 185 m 地下水の全コロイドの存在下；無濾過溶液、(d) 185m 地下水の無機/有機コロイドの存在下；0.2 μm フィルター濾過溶液、(e) 250 m 地下水の全コロイドの存在下；無濾過溶液、(f) 250 m 地下水の無機/有機コロイドの存在下；0.2 μm フィルター濾過溶液、(g) 350 m 地下水の全コロイドの存在下；無濾過溶液 ……3-160
図 3.4-15　深度 140 m (07V140M03 孔)、185 m (08E140C01 孔区間 3)、250 m (09V250M02 孔)、350 m (13350C01 孔)に分布する地下水中のコロイドへの希土類元素の分配係数の経時変化。全コロイド; 地下水中に存在する全コロイド（無機/有機・バイオコロイド)。無機コロイド; γ 線滅菌処理を施して微生物を死活させた地下水中のコロイド（無機および生きたバイオコロイドを除く有機コロイド)。バイオコロイド; 全コロイドの分配係数から無機コロイドの分配係数を減算したもの。(a) 収着試験 1 日後、(b) 収着試験 3 日後、(c) 収着試験 7 日後、(d) 収着試験 14 日後、(e) 収着試験 21 日後、(f) 収着試験 28 日後 ……3-161
図 3.4-16　深度 350 m 地下水を対象とした希土類元素およびセレンの収着試験における微生物群集組成の経時変化。 ……3-162
図 3.4-17　希土類元素およびセレンの収着試験における *Alphaproteobacteria* 綱 *Rhodobacter* に近縁な種の経時変化。 (a) 140 m 地下水、(b) 250 m 地下水、(c) 185 m 地下水、350 m 地下水においては、*Rhodobacter* の増殖は認められなかった。 ……3-163
図 3.4-18　希土類元素およびセレンの収着試験における *Gammaproteobacteria* 綱 *Methylococcaceae* 科に近縁な種の経時変化。 (a) 140 m 地下水、(b) 250 m 地下水、(c) 185 m 地下水、(d) 350 m 地下水。140 m, 250 m, 185 m 地下水では、同科に近縁な種がリファレンス（元素無添加）の系と比較して有意な増殖が認められたが、350 m 地下水では増殖比が比較的低かった。 ……3-163
図 3.4-19　微生物細胞表面で生じている元素との相互作用の概念図 ……3-165
図 3.4-20　地下水中の微生物群集組成の経時変化　(a) 08E140C01 孔、(b) 07V140M03 孔、(c) 09V250M02 孔、(d) 13350C01 孔 ……3-168
図 3.4-21　声問層のコア岩石試料（HFB1-C1; 深度 208.90 – 209.00 m)から作製した薄片の観察結果。実体顕微鏡による可視光(A)と蛍光(B)の観察像（8 倍)。A、B の白い枠の領域を低倍率で実体顕微鏡像(C)と蛍光顕微鏡(D)の観察像（20 倍)。C、D の白い枠を高倍率で実体顕微鏡(E)と蛍光顕微鏡(F)の観察像（100 倍)。 ……3-172
図 3.4-22　声問層のコア岩石試料（HFB1-C2; 深度 229.70 – 229.85 m)から作製し薄片の観察結果。実体顕微鏡による可視光(A)と蛍光(B)の観察像（8 倍)。A、B の白い枠の領域を低倍率で実体顕微鏡の観察像(C)（20 倍)。図 B の(C)の白い

枠の領域を高倍率の実体顕微鏡で観察した像(D)（100 倍)。 ……3-173
図 3.4-23　声問層のコア岩石試料（HFB1-C3; 深度 260.18 – 260.33 m)から作製した薄片の観察結果。実体顕微鏡による可視光の観察像(A)（8 倍）と A の白い枠の領域を蛍光で観察した像 (B) （20 倍)。B の白い枠の領域を高倍率の実体顕微鏡像でフォーカスを変えて観察した結果 (C、 D) (100 倍)。 ……3-173
図 3.4-24　ダイヤモンドバンドソーを用いて作製した声問層 HFB1-C3(深度 260.18–260.33 m)のコア岩石試料薄片の観察および SFXM による分析結果。実体顕微鏡による観察像(A)。白枠は SFXM でのマッピング領域を示す。SFXM による 3 元素のマッピング結果の RGB 合成像(B) 。ポイント a と b から元素マッピングデータを取得。 ……3-174
図 3.4-25　ダイヤモンドバンドソーを用いて作製した声問層 HFB1-C3（深度 260.18 – 260.33 m）のコア岩石試料薄片の SFXM による微小領域分析。図 3.4-24 B のポイント a の単元素のマッピング像(A)。3 元素の合成像と RGB 合成で得られる色相(B)。図 3.4-25 B のポイント 1, 2 および 3 の μ-XRF スペクトル(C)。 ……3-175
図 3.4-26　ダイヤモンドバンドソーを用いて作製した声問層 HFB1-C3(深度 260.18 – 260.33 m)のコア岩石試料薄片の SFXM による微小領域分析。図 3.4-24 B のポイント b の単元素のマッピング像(A)。3 元素の合成像と RGB 合成で得られる色相(B)。B のポイント 1, 2 および 3 の μ-XRF スペクトル(C)。 ……3-176
図 3.4-27　ダイヤモンドバンドソーを用いて作製した声問層 HFB1-C3（深度 260.18 – 260.33 m）のコア岩石試料薄片において、走査型電子顕微鏡(SEM-EDS)による元素マッピングから取得したマトリックス部分の鉱物相の分布と(A)と各相の EDS スペクトル(B)。A の矢印が指す点から得られたスペクトル(C)。 ……3-177
図 3.4-28　コロイドが核種移行に及ぼす影響に関する評価手法フローの例 ……3-179
図 3.4-29　バイオフィルムが核種移行に及ぼす影響に関する評価手法フローの例 ……3-180
図 3.4-30　第 2 次取りまとめで構築したレファレンスケースの概念モデルに、コロイドおよびバイオフィルム影響を追加した核種移行解析モデル（核燃料サイクル開発機構(1999)を改変） ……3-181
図 3.4-31　亀裂性媒体におけるコロイドおよびバイオフィルム影響を考慮した 一次元平行平板モデルの概念図（核燃料サイクル開発機構(1999)を改変） ……3-181
図 3.4-32　全コロイド、微生物コロイド、バイオフィルム影響を考慮した核種移行解析結果 ……3-184
図 3.4-33　各解析ケースの総線量の比較 ……3-185

第 4 章　ニアフィールド環境変遷を考慮した核種移行評価技術の開発
図 4.2-1　閉鎖後過渡期に想定される状態変化とそれらが長期的な変遷挙動に与える影響の関係に係る整理図 ……4-6
図 4.2-2　ニアフィールドシステム変遷と核種移行挙動に関するインフルエンスダイヤグラム ……4-11
図 4.2-3　鉄影響に伴う緩衝材変質を比較するための解析的検討のシナリオの例 ……4-12
図 4.2-4　鉄影響に伴う緩衝材変質を比較するためのシナリオに基づく解析結果の比較の例 ……4-12
図 4.2-5　鉄影響による緩衝材変質の分岐ダイヤグラムを活用したシナリオ分岐の条

件の検討例 ……4-13
図 4.2-6　鉄ーベントナイト相互作用に関わるプロセスインフルエンスダイヤグラム ……4-14
図 4.2-7　セメントーベントナイト相互作用に関わるプロセスインフルエンスダイヤグラム ……4-14
図 4.2-8　令和 2 年度に実施された緩衝材の長期変質挙動に関わる連成解析結果の例（相対的に緩衝材変質の大きい場合：Case 2 の結果） ……4-16
図 4.2-9　石英の溶解・沈殿反応または石英の溶解反応のみを考慮した場合の緩衝材中間隙水の pH の経時変化の比較（相対的に緩衝材変質の大きい場合：Case 2 の結果） ……4-18
図 4.2-10　石英の溶解・沈殿反応または石英の溶解反応のみを考慮した場合の緩衝材中における構成鉱物の比較（相対的に緩衝材変質の大きい場合：Case 2 の結果、3 万年後） ……4-18
図 4.2-11　緩衝材中の構成鉱物の時間変遷（令和 2 年度に実施された Case 2 の解析例） ……4-19
図 4.2-12　鉄ーベントナイト相互作用に伴う二次鉱物の設定前後での解析結果の比較 ……4-20
図 4.2-13　緩衝材の変質に伴う透水係数分布の比較 ……4-23
図 4.2-14　緩衝材の状態変遷評価結果（緩衝材及びセメント支保における構成鉱物）の比較 ……4-25
図 4.2-15　緩衝材の状態変遷評価結果（間隙水の pH 及びモンモリロナイトの残存量の比較 ……4-25
図 4.3-1　核種移行解析における解析体系及び核種移行率の評価箇所 ……4-35
図 4.3-2　石英の沈殿反応考慮の有無による状態変遷の違いを踏まえた核種移行率の比較 ……4-35
図 4.3-3　石英の溶解・沈殿反応した場合（令和 2 年度）におけるイオン強度及び pH の経時変化（相対的に緩衝材変質の小さい場合と大きい場合での比較） ……4-37
図 4.3-4　石英の溶解反応のみを考慮した場合（令和 4 年度）におけるイオン強度及び pH の経時変化（相対的に緩衝材変質の小さい場合と大きい場合での比較） ……4-38
図 4.3-5　モデル等の見直し前後における状態変遷の違いを踏まえた核種移行率の比較 ……4-38
図 4.3-6　ニアフィールドの複合現象を対象とした状態変遷を踏まえた核種移行解析の評価フローの案 ……4-40
図 4.3-7　精緻・中間モデルによる核種移行率の比較のために対象とした解析体系の概要 ……4-41
図 4.3-8　Cs 及び Ni を対象にした緩衝材の状態変遷を踏まえた核種移行解析結果（精緻・中間モデルによる解析結果の比較） ……4-43

表　目　次

第 1 章　緒言
表 1.2-1　本事業の実施項目と募集要項記載項目との対応表 ……1-4
表 1.2-2　ニアフィールドシステム評価確証技術開発の 5 か年の実施スケジュール ……1-11

第 2 章　ニアフィールド環境変遷に係る個別評価技術の開発
表 2.2-1　顕微ラマン分光分析分析条件 ……2-6
表 2.2-2　各種分析により同定された腐食センサー近傍の腐食生成物と Fe の浸透程度 …2-8
表 2.2-3　緩衝材中の微生物活性を抑制する要因の例 ……2-14
表 2.2-4　微生物腐食の原因となる可能性のある事象と現段階での判断およびその根拠 ‥2-21
表 2.2-5　浸漬試験条件 ……2-23
表 2.2-6　試験片の重量減量から算出した平均腐食量及び平均腐食速度(Na_2SO_4) ……2-26
表 2.2-7　試験片の重量減量から算出した平均腐食量及び平均腐食速度($NaHCO_3$) ……2-27
表 2.2-8　広範な条件で実施した浸漬試験における腐食生成物分析結果のまとめ ……2-33
表 2.2-9　炭酸塩環境での SSRT 試験条件 ……2-36
表 2.2-10　高炭酸ガス環境での SSRT 試験条件 ……2-36
表 2.2-11　希釈した人工海水環境での SSRT 試験条件 ……2-36
表 2.2-12　酸性水環境での SSRT 試験条件 ……2-37
表 2.3-1　顕微ラマン分光分析分析条件 ……2-56
表 2.3-2　炭素鋼試験片に接触していたベントナイト試料の分析結果まとめ ……2-66
表 2.3-3　熱履歴ベントナイトの試験条件 ……2-71
表 2.3-4　EBSD パターンの指数付けの結果 ……2-80
表 2.3-5　熱履歴ベントナイト試料の析出物の有無およびモンモリロナイトの化学組成 ‥2-82
表 2.3-6　画像解析による膨潤圧試験前後での鉱物量比 ……2-91
表 2.3-7　シリカ微粒子の面積 ……2-94
表 2.3-8　シリカ微粒子の粒径 ……2-95
表 2.4-1　試験条件 ……2-106
表 2.4-2　一次元の浸潤試験を対象とした緩衝材の解析物性値 ……2-107
表 2.4-3　人工バリア性能確認試験の解析評価における初期間隙水組成 ……2-107
表 2.4-4　温度勾配水分拡散係数に関わるパラメータ ……2-114
表 2.4-5　人工バリア性能確認試験の解析評価に用いた物性値 ……2-115
表 2.4-6　人工バリア性能確認試験の再現解析ケース ……2-115
表 2.4-7　解析ケース ……2-124
表 2.4-8　解析ステップ ……2-125
表 2.4-9　緩衝材の解析用物性値 ……2-125
表 2.4-10　支保工・路盤（セメント系材料）の解析用物性値 ……2-126
表 2.4-11　オーバーパック・ヒーターの解析用物性値 ……2-126
表 2.4-12　充填砂の解析用物性値 ……2-126
表 2.4-13　ジョイント要素の解析用物性値（各材料間共通） ……2-127
表 2.4-14　埋め戻し材の解析用物性値（CASE 0） ……2-127
表 2.4-15　埋め戻し材の解析用物性値（CASE 1） ……2-128
表 2.4-16　埋め戻し材の解析用物性値（CASE 2 および CASE 3） ……2-128

表 2.4-17　入出力ファイル一覧（色付きが修正が必要なファイル）……2-132
表 2.4-18　修正が必要なサブルーチン一覧（1/2）……2-134
表 2.4-19　修正が必要なサブルーチン一覧（2/2）……2-135
表 2.4-20　ケイ砂 30wt%混合ベントナイトを対象とした膨潤圧測定試験条件 ……2-138
表 2.4-21　カオリナイトを対象とした膨潤圧測定試験条件……2-138
表 2.4-22　圧密試験ケース……2-144
表 2.4-23　載荷条件……2-145
表 2.6-1　高レベル放射性廃棄物の地層処分における縦置きブロック型式に関する
隙間処理施工技術オプションの特徴の整理……2-178
表 2.6-2　隙間処理技術オプションの選択における評価項目および判断指標（案）……2-180
表 2.6-3　補正係数が有する保守性・安全性評価に関する定性分析の観点……2-188
表 2.6-4　緩衝材ブロックの仕様……2-196
表 2.6-5　ケイ砂充填オプションの試験ケースの設定……2-196
表 2.6-6　べき乗関数モデルを構成するパラメータ……2-207
表 2.6-7　べき乗関数モデルで予測した緩衝材の累積流出量……2-211
表 2.6-8　ベースモデルの留意点（特徴）……2-211
表 2.6-9　幌延模擬地下水の作製配合……2-216
表 2.6-10　試験ケースの設定（水質補正Cw）……2-216
表 2.6-11　試験ケースの設定（重力補正Cg）……2-216
表 2.6-12　緩衝材ブロックの仕様……2-228
表 2.6-13　試験ケースの設定（スケール効果Cs）……2-230
表 2.6-14　試験ケースの再設定（スケール効果Cs）……2-231
表 2.6-15　ベースモデルの入力パラメータ……2-234
表 2.6-16　ベースモデルと原位置実規模 1/4 スケール試験の面積比……2-234
表 2.6-17　緩衝材ブロックの全乾燥重量に対する流出量の割合……2-235
表 2.6-18　隙間未充填オプションの試験ケースの設定……2-236
表 2.6-19　緩衝材ブロック上面におけるケイ砂の集積状況……2-242
表 2.6-20　べき乗関数モデルを構成するパラメータ……2-246
表 2.6-21　入力値（$A2$ と $2t0$）と流量の相関関数の決定に使用した試験ケース……2-251
表 2.6-22　試験ケースの設定（水質補正Cw）……2-253
表 2.6-23　試験ケースの設定（重力補正Cg）……2-253
表 2.6-24　緩衝材ブロック上面におけるケイ砂の集積状況……2-257
表 2.6-25　緩衝材ブロック上面におけるケイ砂の集積状況……2-262
表 2.6-26　試験ケースの再設定（スケール効果Cs）……2-265
表 2.6-27　ベースモデルの入力パラメータ……2-267
表 2.6-28　ベースモデルと原位置実規模 1/4 スケール試験の面積比……2-267
表 2.6-29　原位置試験結果をもとに試算した累積流出量に対する流出量評価モデル
および NUMO-SC で評価した累積流出量との比較……2-268
表 2.6-30　荷重計の測定値……2-271
表 2.6-31　荷重計の計測値を基にした膨出抑制用鋼製蓋に作用する応力の試算……2-272
表 2.6-32　緩衝材の膨潤変形による膨出抑制用鋼製蓋の変位量（緩衝材上昇量）
測定結果……2-273
表 2.6-33　水分特性曲線モデルおよび透水係数モデルに関するパラメータ……2-276

表 2.6-34　小型試験体スケールの試験で使用したベントナイト供試体の仕様 ……2-279
表 2.6-35　不飽和弾塑性構成モデルに関するパラメータ ……2-285
表 2.6-36　緩衝材の弾塑性構成モデルに関するパラメータ ……2-288
表 2.6-37　緩衝材の透水係数モデルに関するパラメータ ……2-288
表 2.6-38　岩盤の材料パラメータ ……2-289
表 2.6-39　ケイ砂の材料パラメータ ……2-290

第 3 章　ニアフィールド環境変遷を考慮した核種移行評価技術の開発
表 3.2-1　2 経路への分岐を想定したモデルの共通パラメータ ……3-23
表 3.2-2　2 経路への分岐を想定したモデルの Cs, Ni の収着・拡散特性の最適化パラメータ ……3-23
表 3.2-3　クニゲル V1+間隙ゼロのケイ砂混合系（混合媒体）中の HTO および荷電イオンの核種移行をモデル化した RW シミュレーションの条件設定および解析結果 ……3-33
表 3.2-4　三次元格子の浸透閾値(Xu et al., 2014)と空間充填率との関係 ……3-37
表 3.2-5　パルスソース試験およびコンスタントソースの解析モデルにおける最適化パラメータ ……3-49
表 3.2-6　パルス・コンスタントソース試験による投入量に対する回収量の割合 ……3-49
表 3.2-7　パルス・コンスタントソース試験による回収量の割合（間隙水圧補正後） ……3-49
表 3.2-8　原位置および室内拡散試験データに基づくトレーサーの実効拡散係数の設定値 ……3-50
表 3.2-9　原位置および室内拡散試験データに基づく Cs の分配係数の設定値 ……3-51
表 3.2-10　パラメータの不確実性として考慮したイオン交換反応の平衡定数および CEC の設定値 ……3-57
表 3.2-11　Ca - Mg の二成分系での炭酸塩を対象とした固溶体組成とその熱力学特性 ……3-57
表 3.2-12　境界条件および物質移行パラメータに係る条件設定 ……3-58
表 3.3-1　収着モデリングに用いた Ni と Fe の収着パラメータ ……3-65
表 3.3-2　$Fe(OH)_2$ による Se 取り込み試験の条件 ……3-68
表 3.3-3　Fe(II)過剰環境における Se(−II)と Se(IV)の挙動比較のまとめ　網掛けの青は熱力学的制約、緑はニアフィールドでの Se 挙動予測への示唆、赤は制約と不確定要素を示す ……3-74
表 3.3-4　マッキナワイトによる Se 取り込み試験の条件 ……3-75
表 3.3-5　DFT 計算により最適化されたマッキナワイトの結合距離、角度および格子寸法 ……3-80
表 3.3-6　泥岩の初期鉱物組成 ……3-96
表 3.3-7　セメント系材料（左：OPC、右：HFSC）の初期鉱物組成 ……3-96
表 3.3-8　地下水組成と泥岩の初期間隙水組成およびセメントの初期鉱物組成 ……3-96
表 3.3-9　幌延 URL から採取したカルサイト試料の一覧 ……3-99
表 3.3-10　Y の K 吸収端 XANES を取得した参照試料 ……3-102
表 3.3-11　FEFF プログラムを用いた解析で得られたパラメータでフィットさせて得られた Sm の構造パラメータ ……3-104
表 3.3-12　UO_2^{2+}の系および NpO_2^{+}の系における層間内への各イオンの侵入状況 ……3-118
表 3.3-13　平均 $D_e \cdot K_d$ モデルのケース設定　パラメータの値は一次元解析解を実測デー

タにフィッティングさせて得られた最適値……3-120
表 3.3-14　上流側リザーバーにおける初期溶液の Np(V)に係る主な化学種の存在比の PHREEQC による計算値 ……3-121
表 3.3-15　ISD 表面錯体モデルを対象とした不確実性評価解析においてサンプリングする変動パラメータの種類とそのサンプリング値の範囲 ……3-124
表 3.4-1　FFF-ICPMS 測定に供した試料リスト ……3-130
表 3.4-2　Eu-HHA 錯体の条件付き平衡定数 ……3-133
表 3.4-3　CE-ICPMS の測定に供した試料のリストと測定条件 ……3-135
表 3.4-4　HHA への Zr^{4+}結合反応の条件付き平衡定数 ……3-137
表 3.4-5　CE-ICPMS における結合量のフィッティングより最適化された NICA-Donnan モデルパラメータ ……3-138
表 3.4-6　HHA の結合データに対する NICA-Donnan モデルのフィッティングより最適化されたパラメータ ……3-140
表 3.4-7　LFER より推定された NICA-Donnan モデルパラメータ ……3-141
表 3.4-8　収着試験の条件 ……3-145
表 3.4-9　解析に使用した定数 ……3-147
表 3.4-10　解析に用いた NICA-Donnan モデルパラメータ ……3-147
表 3.4-11　解析に用いた地下水条件 ……3-150
表 3.4-12　本調査において設定された評価対象核種の有機物への分配係数(K_{d_DOM}) ……3-151
表 3.4-13　各深度における地下水中のコロイド濃度と微生物密度 ……3-157
表 3.4-14　メタゲノム解析データから取得した窒素、硫黄、セレンに関わる代謝反応ポテンシャル ……3-170
表 3.4-15　核種移行解析に設定したパラメータと解析ケース ……3-182
表 3.4-16　核種移行解析に設定した分配係数 ……3-182

第 4 章　ニアフィールド性能の総合評価技術開発
表 4.2-1　鉄－ベントナイト相互作用に関わる複合現象評価において抽出された課題の例 ……4-11
表 4.2-2　令和 2 年度と令和 4 年度での緩衝材の状態変遷評価におけるモデル等の違い ……4-24
表 4.2-3　鉄－ベントナイト相互作用に関わる文献調査結果　その 1 ……4-26
表 4.2-4　鉄－ベントナイト相互作用に関わる文献調査結果　その 2 ……4-27
表 4.2-5　セメント－ベントナイト相互作用に関わる文献調査結果　その 1 ……4-29
表 4.2-6　セメント－ベントナイト相互作用に関わる文献調査結果　その 2 ……4-29
表 4.3-1　モデルの見直し等に伴う緩衝材の長期変質挙動に関わる状態変遷の解析ケース4-34
表 4.3-2　精緻・中間モデルによる核種移行パラメータの設定方法の概略……4-42

1. 緒言

1.1 本事業の背景と目的

本事業は、令和4年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業（ニアフィールドシステム評価確証技術開発）として、経済産業省資源エネルギー庁（以下、[資源エネルギー庁]という）から国立研究開発法人日本原子力研究開発機構（以下、[原子力機構]という）と公益財団法人原子力環境整備促進・資金管理センター（以下、[原環センター]という）の2機関が共同で受託したものである。本事業の背景と目的を以下に記す。

我が国においては、これまで原子力を利用してきた結果、現在、約19,000 tonの使用済燃料が存在している（経済産業省, 2021）。これは原子力の利用に伴い確実に発生するものであり、将来世代に負担を先送りしないよう、現世代の責任として、その対策を確実に進める必要がある。高レベル放射性廃棄物の地層処分事業は、事業期間が長期にわたることに加え、その実施にあたっては、地質環境調査・評価技術、工学・設計技術、処分場閉鎖後の長期安全性を確認するための安全評価技術などの多岐にわたる技術分野における個々の技術の整備と、整備した技術を全体として統合化することが求められる。その着実な技術開発のために、国、原子力発電環境整備機構（以下、[NUMO]という）及び関係研究機関が実施する研究が緊密に連携を図り地層処分の研究開発を計画的に進めるために「地層処分研究開発に関する全体計画（平成30年度から令和4年度）」（以下、[全体計画]という）が策定されている（経済産業省, 2020）。

本事業は、全体計画に示された課題解決に向けて、地層処分事業における概要調査から精密調査段階に有用となる調査・評価技術を開発することを目的に、平成30年度から継続して実施してきたものである（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019; 2020; 2021; 2022）。この事業では、人工バリアとその設置などにより影響を受けると考えられる人工バリア近傍の岩盤とを合わせた領域（以下、[ニアフィールド]という）を対象として、廃棄体定置後の過渡的な時期から閉鎖後長期に至る期間の地層処分システムの構成要素間及び諸現象間の相互作用を考慮した現象の評価、地質環境の条件に応じた核種移行現象の理解とデータの取得、ニアフィールド環境の長期変遷を評価した結果を反映した核種移行評価手法の検討などを実施する。

1.2 実施計画

これまでの高レベル放射性廃棄物の地層処分における安全性の評価は、シナリオを構築して熱、水理、力学、化学、核種移行など個別の現象に重点を置き、かつ保守的な条件に基づくものであった（例えば、核燃料サイクル開発機構, 1999; 原子力発電環境整備機構, 2021）。このような安全性の評価は、不確実性や曖昧さを回避することで評価の頑健性を目指している。今後は、処分事業の進展につれて経時的に充実するサイト条件などの情報を利用しつつ、サイト間の適切性の比較や、設計オプションの優劣の比較などを行いつつ、処分施設設計や安全評価が進められる。その実現には、下記の要件が満たされる、より現実的な評価技術が必要となる。

- サイト間の適切性の比較や設計オプションの優劣の比較ができる程度の分解能を持つ評価が必要。
- サイトの諸特性（地下水組成、水理特性、岩盤の力学特性など）が不均質に分布する地質環境の特徴に応じた評価が必要。
- 保守的な仮定の確認や、過度な保守性を排除した評価が必要。
- バリア構成要素間の相互作用を含むニアフィールド環境の長期変遷を適切に考慮した評価が必要。

そのため本事業では、「より現実的な評価技術を開発する」という課題を設定し、実際のサイトにおける透水係数などの諸特性が不均質に分布する地質環境の特徴を考慮し、かつバリア構成要素間の相互作用を含むニアフィールド環境の長期変遷を評価可能な技術開発を行うこととした。その課題を解決するため、以下の三つのサブプロジェクト（図1.2-1）を実施することとした。

- サブプロジェクト1（SP1）：ニアフィールド環境の変遷を評価するための個別現象モデル開発やパラメータ整備などの技術開発
- サブプロジェクト2（SP2）：SP1の環境変遷を考慮した核種移行を評価するための個別現象モデル開発・パラメータ整備
- サブプロジェクト3（SP3）：SP1とSP2の成果に基づく、ニアフィールド性能を総合的に評価する技術開発

ニアフィールド性能を総合的に評価する技術開発で実施する個々の現象解析モデルの統合化は、図1.2-2に示すように、ニアフィールド環境の長期変遷のうちシステム性能として核種移行解析結果に重大な影響を及ぼす現象やその相互作用から優先的に取り組むこととした。そのような現象解析モデルの統合化技術と、その成果を反映した核種移行評価技術により得られる知見を個別現象モデル開発などに相互にフィードバックさせる（図1.2-1参照）ことで、地層処分システムの安全性に影響を及ぼす現象の重要度分類や、より現実的なモデル化の必要性の検討に資すると考えられる。

本事業により得られる成果は、これまでの簡略かつ保守的な設定に基づく安全評価手法（例えば、核燃料サイクル開発機構, 1999; 原子力発電環境整備機構, 2021）に対し、概要調査から精密調査段階で必要となる実際のサイトにおける地質環境調査などのデータを適切に反映させた評価モデルの構築と、様々な処分概念や設計オプションの比較、それらの条件での性能評価による安全性の成立性やサイト間の優劣などを検討するための技術基盤としての活用が期待される。

本事業の実施にあたっては、地層処分を支える幅広い科学技術分野の知識を有することを前提として、既往の研究開発などの成果を適切に取り込むとともに、成果の体系的な統合が必要となる。このため、先行事業である処分システム評価確証技術開発（日本原子力研究開発機構, 2018）や処分システム工学確証技術開発（原子力環境整備促進・資金管理センター, 2018）などの成果を継承するとともに、現在までに関連する研究開発などに従事してきた組織が共同で事業にあたることにより、各組織に蓄積されている知識、経験などを相互補完的に利用し、かつ融合することによって事業全体としての総合的な高いレベルの成果の創出を目指すこととし、原子力機構と原環センターの2組織が共同で実施した。それぞれの組織が主として担当する箇所を図1.2-1に示す。また、外部の専門家・有識者などで構成される委員会を設置し、本事業の実施に関する計画、実施方法、成果などに関する審議・検討を実施（年間3回）し、本事業の実施に反映させることとした。なお、本事業の公募時には、(1)地層処分システムの状態設定のための現象解析モデル化の高度化、(2)地層処分システムの状態変遷等を反映した核種移行解析モデルの構築、(3)核種移行等に関するデータの取得及びデータベース整備、の三つの枠組みが示されていた。本事業の実施に際しては、(1)から(3)の枠組みを、図1.2-1に示したサブプロジェクト（SP1、SP2及びSP3）に再編して実施することとした（表1.2-1参照）。

これらのサブプロジェクトについて、平成30年度から令和4年度の5か年の実施計画、平成30年度から令和3年度までの4か年の成果、令和4年度の実施計画の概要を以下に記す。

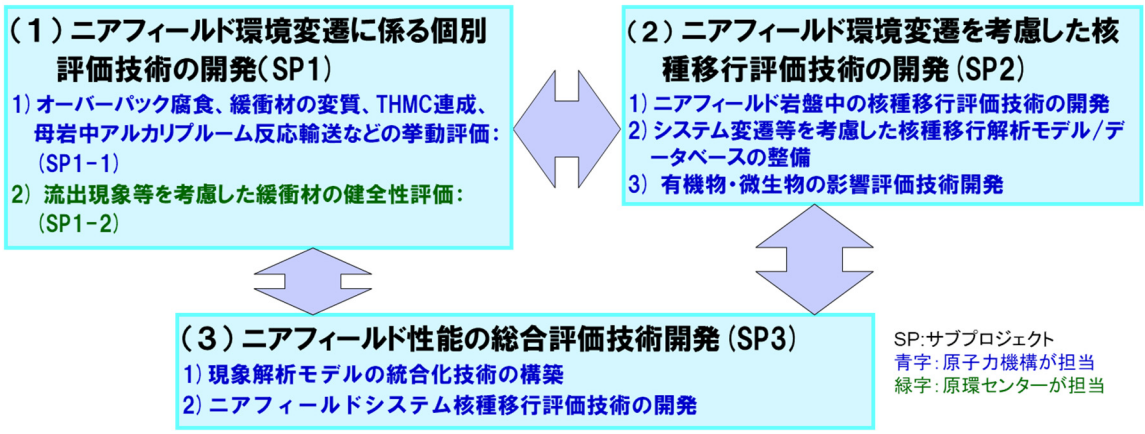


図1.2-1　本事業で実施する「ニアフィールドシステム評価確証技術開発」の枠組みの概念図

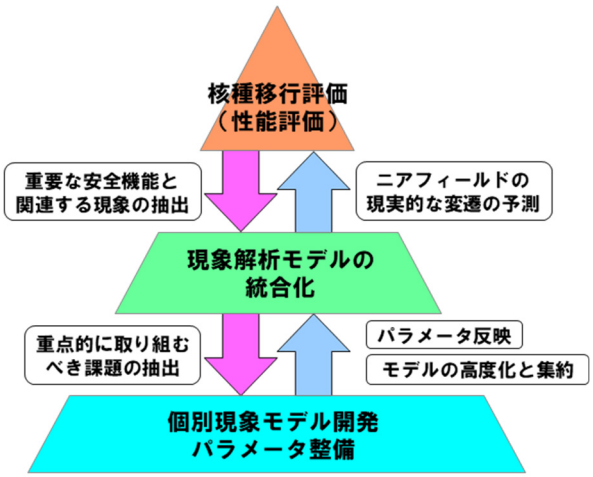
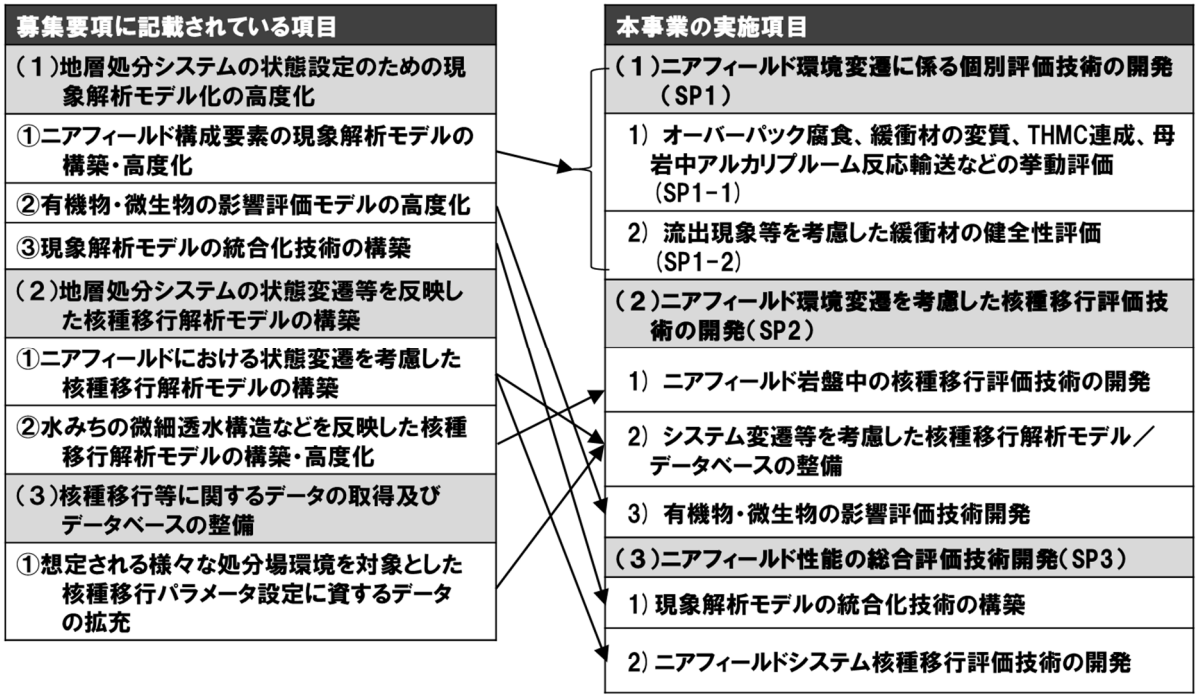


図1.2-2　ニアフィールド性能の総合評価技術開発に向けたアプローチ概念図
（個別現象モデル開発・パラメータ整備からのボトムアップによる現象解析モデルの統合化・核種移行評価と、その評価結果に基づくフィードバックの概念図）

表 1.2-1　本事業の実施項目と募集要項記載項目との対応表



1.2.1 ニアフィールド環境変遷に係る個別評価技術の開発

ニアフィールドはオーバーパック、緩衝材、セメント系材料など複数の材料と岩盤から構成されており、それらの劣化・変質や材料間の相互作用などにより環境条件は時間とともに変化し、バリア構成要素の安全機能や核種移行挙動への影響を与える可能がある。そのため、ニアフィールドの長期挙動評価や環境変遷を評価する技術の開発とその評価技術の妥当性確認が求められている。加えて、日本の地下環境には一般的に湧水があることが知られており、廃棄体の定置後に処分孔内に孔壁からの湧水があることにより、緩衝材と孔壁の境界に水みちができ、緩衝材が流出する可能性が指摘されている。緩衝材の流出は緩衝材を損失することにほかならず、人工バリアの機能の低下につながる事象であるため重要な課題である。

複数の異なる構成材料からなるニアフィールドの状態変遷の評価は、これまでに、オーバーパックやセメント系材料による緩衝材の変質に関する試験データが取得され、これらを表現できる解析モデルが構築されている。今後は、過渡期（廃棄体定置後のT：熱、H：水理、M：応力、C：化学の状態が大きく変化する期間）におけるオーバーパックの腐食や緩衝材の変質などについて100 °Cを超える条件も含めたTHMCの観点からデータを取得し、現象解析モデルの妥当性確認を行うことが求められている。そして、これらを通じて重要な反応系が明らかになった場合には、取得したデータを活用して現象解析モデルへ取り込むことが求められている。また、地下施設でのグラウト施工事例を対象に試験・分析などを実施し、母岩中のアルカリプルームの反応輸送解析モデルを構築することが求められている。一方、過渡期に想定される緩衝材流出現象については、緩衝材流出現象に係るデータの取得と現象解析モデルの開発を行うともに、開発した現象解析モデルを用いて緩衝材流出対策の妥当性評価を実施することが求められている。

上記の課題解決に向けて、以下の五つのサブタスクを実施している。

(1) オーバーパックの腐食挙動評価

過渡期におけるオーバーパックの腐食や緩衝材の変質等についてのTHMCの観点からのデータ

取得について、平成30年度から令和3年度はTHMC条件を制御しつつ広範な条件で全面腐食速度、局部腐食・応力腐食割れの生起進展、腐食生成物皮膜性状等に関する室内試験を実施し、環境条件による腐食挙動への影響等に関するデータを取得した。また、幌延の地下研究施設で実施された原位置試験により得られた試料を対象とした分析により、模擬オーバーパック表面の不均一な腐食のメカニズム等を推定するとともに、腐食センサー表面の腐食生成物種及び緩衝材中の微生物種を把握した。

令和4年度は、オーバーパックの腐食について、広範な条件での室内試験及び緩衝材内部の長期的な微生物活性挙動の調査を継続するとともに、令和3年度に洗い出した不均一状態に関する課題の抽出を実施し、これまでに得られた成果を踏まえ、過渡期から飽和後長期の環境条件の変遷に応じた腐食挙動に関する知見を整理し、既往の腐食モデルの妥当性を確認した。

(2) 緩衝材の変質挙動評価

炭素鋼－圧縮ベントナイト相互作用による緩衝材変質等に関して、平成30年度から令和3年度は、原位置試験試料や室内浸漬試験における炭素鋼試験片に接触していた緩衝材試料、考古学的鉄製品に接触していた土壌試料の分析等を実施し、接触界面の緩衝材領域の腐食生成物の分布、緩衝材の間隙状態及び構成鉱物の変質状態について確認した。また、緩衝材の膨潤、透水性、剛性等のHM連成挙動とそれらに及ぼす緩衝材変質(C)の影響等に関するデータ取得に向けた室内試験及びナチュラルアナログ研究等を実施し、セメンテーションに伴う膨潤性の低下等を引き起こしていると示唆される微細組織の状態に関する知見などの成果を得た。さらに、セメンテーションによる緩衝材基本特性の変化に関するデータ取得に向けて、セメンテーションの原因物質の溶解等に伴うセメンテーション状態の経時的な変化を観察するため、膨潤圧の長期的な変化等に関するデータ取得を開始した。

令和4年度は、炭素鋼－圧縮ベントナイト相互作用に関しては考古学的鉄製品に付着していた土壌試料や室内浸漬試験試料の分析等を令和3年度に継続して実施し、これまでの成果を踏まえ、緩衝材の変質メカニズムの理解、変質挙動評価モデルに組み込む必要のあるプロセスの抽出等を行った。また、セメンテーションに関してはセメンテーションの原因物質の溶解等に伴うセメンテーション状態の経時的な変化を観察するため、１年程度の膨潤圧の変化等に関するデータ取得および試験後試料の分析等を行い、これまでの成果を踏まえ、緩衝材のセメンテーションに伴う緩衝材の膨潤特性、水理特性、剛性への影響評価に資する基礎的な情報を提示した。

(3) ニアフィールドTHMC連成挙動評価

過渡期のTHMC現象解析モデルの妥当性確認に関して、平成30年度から令和3年度は、緩衝材のTHMC条件がオーバーパックの腐食挙動に与える影響や原位置試験等に関する腐食データを活用した腐食進展等に関するモデルの妥当性の検証等を行い、既往のモデルは広範なTHMC条件や工学的スケールでの腐食現象等を包含した評価が可能であることなどを示した。また、多様な地質環境条件に応じて適切にTHMC連成挙動を再現できる現象解析モデル・手法の構築に向けて、様々な塩濃度条件等における浸潤挙動に関する室内試験データを取得し、得られたデータを活用して塩水条件における現象解析モデルの高度化を行った。

令和4年度は、令和3年度までに開発してきた緩衝材のTHMC連成挙動に関する現象解析モデルを用いた幌延人工バリア性能確認試験の再現解析等を実施し、現象解析モデルの妥当性を確認するとともに、膨出挙動などを再現するための課題を抽出した。

(4) 母岩中アルカリプルーム反応輸送挙動評価

地下施設でのグラウチング施工事例を対象とする試験・分析等とそれを用いた母岩中のアルカリプルームの反応輸送解析モデル構築について、平成30年度から令和3年度は、地下施設でのグラウチング施工事例を対象に、瑞浪超深地層研究所のグラウチング施工箇所やセメント充填されたボーリング孔周辺から試料を採取して岩盤やグラウト材の状況等を分析するとともに地下水モニタリングデータの分析により、地下水通水によりグラウト材（セメント材）中にカルサイトが形成されることによりセメント内部の溶脱や変質が抑制されるといった透水性・水質の長期的な変遷に関する知見を取得した。また、セメントと岩盤接触部の詳細観察によりアルカリプルームの影響を把握するための調査手法の検討を行った。さらに、支保工に由来するアルカリプルームがニアフィールド岩盤の物質輸送特性に及ぼす影響に着目して反応輸送解析モデルを構築して感度解析を行い、岩盤の物質輸送特性がセメント影響によって変化する範囲や程度を把握した。そして、この解析結果の分析等を通じて、支保工等のセメント系材料に由来するアルカリプルームがニアフィールド岩盤に及ぼす影響を評価する手法の高度化に向けた研究アプローチを提示した。この研究アプローチに基づき、坑道近傍スケールを対象とした岩盤中の単一亀裂中の水質変化や間隙率低下等の状態変化が生じる要因の解析的検討を行った。

令和4年度は、花崗岩試料を用いた高pH溶液の通水による人工単一亀裂の透水性と開口幅の変化に係る室内試験結果の再現解析を実施し、これまでに構築した反応輸送解析モデルの適用性の確認を行った。

(5) 流出現象等を考慮した緩衝材の健全性評価

竪置きブロック方式に関する緩衝材の流出現象については、平成30年度から令和3年度は処分孔の環境条件に対して柔軟に選択できる施工オプションの整備を目的とし、地下坑道における原位置試験と室内試験を実施した。処分孔の孔壁と緩衝材の隙間がある場合には、湧水環境によっては隙間が閉塞して流出しない状態になり得ることが確認され、隙間にケイ砂を充填することによって、緩衝材流出量を低減させる効果があることが確認された。これらの知見に基づき室内試験による緩衝材の流出量のより確からしい評価や、適用範囲を定量的に示すための指標設定に資するデータの取得を行った。また、許容される初期の緩衝材の流出量を考慮した、飽和に至る迄の期間における緩衝材の状態変遷挙動の予測評価技術（解析的手法）の整備に向け、段階的な開発の最初のステップとして、小型セルサイズを対象に緩衝材の膨潤による隙間の閉塞挙動を評価するための力学解析手法を構築した。併せて、取得した試験データによる検証を行い、初期の隙間部が低密度のまま定常状態に至る挙動を再現できることを確認した。加えて、解析対象をセルサイズから実規模の1/4スケールサイズに拡張するための課題の抽出を行った。

令和4年度は、隙間未充填オプション及びケイ砂充填オプションを対象として、湧水環境条件および流出特性を踏まえたオプション選択における評価指標の定量化手法の構築に向けて、オプションの適用限界や抑制効果の把握に向けた室内試験によるデータ取得を継続するとともに、流出挙動の現象理解ならびに原位置環境への適用性やスケール効果を把握するために、1/4スケールでの原位置試験を継続した。これまでに得られた試験データに基づき、各施工オプションにおける緩衝材の流出特性ならびにオプション選択における評価方法や指標などの案を提示した。また、緩衝材の状態変遷挙動の解析的手法については、これまでに得られた成果や課題ならびに1/4スケールへの解析対象の拡張に向けた検討結果も踏まえ、今後の実規模スケールへの拡張に向けて、考慮すべき現象や課題を取りまとめた。

1.2.2 ニアフィールド環境変遷を考慮した核種移行評価技術の開発

地層処分事業の概要調査から精密調査段階において、実際のサイト条件を対象に処分概念や安全性の評価やサイト間の適切性の評価を行うためには、実際のサイトの地質環境の特徴や処分システムの長期的な変遷などを適切に反映することが可能な核種移行評価技術が求められる。そのため、実際の地質環境の特徴やニアフィールドシステムの長期環境変遷を考慮した核種移行評価を行うための個別現象モデルやデータベースを、室内試験、地下研究施設での原位置試験などを通じて開発する。具体的には以下の三つのサブタスクを実施している。

(1) ニアフィールド岩盤中の核種移行評価技術の開発

水みちの微細透水構造を反映したより現実的な場を反映した核種移行解析モデルの構築に関し、これまでは結晶質岩（花崗岩）及び堆積岩（泥岩）のマトリクス中の核種移行特性を反映した核種移行解析モデルが構築されてきた。そこで、母岩中の割れ目内における充填鉱物への収着や、マトリクス部の間隙構造や鉱物分布等の不均質性を反映することが可能な核種移行解析モデルを開発するとともに、構築した核種移行解析モデルの妥当性を確認することが求められている。

核種移行モデルの開発について、平成30年度から令和3年度は、結晶質岩及び堆積岩を対象として、国内外の地下研究施設等の岩石を用いて、割れ目部及びそのマトリクス部との相互作用に重点をおき、最新の分析技術を適用して鉱物分布や間隙構造の不均質性を定量的に評価するとともに、複数のスケールでの室内トレーサー試験により割れ目部及びマトリクス部の核種移行データを取得し、それらの知見を反映したより精緻な核種移行モデルの開発を進めてきた。

令和4年度は、これまで対象としてきた結晶質岩及び堆積岩に加え、異なる特性を有する多様な岩石試料を対象として、割れ目部とマトリクス部の不均質性とその核種移行への影響との関係をより詳細に把握するための室内トレーサー試験や岩石の不均質性に関する分析データを複数の分析技術を適用して拡充し、割れ目部とマトリクス部の間隙構造や鉱物分布等の不均質性や多様性が核種移行挙動に与える影響を把握した。また、それらの不均質性や多様性を適切に扱うことが可能な核種移行モデル構築手法を開発し、上記室内試験データへの適用性の評価を通じてその妥当性を確認するとともに、より大きな空間スケールでの評価や地質環境の長期変遷を考慮した評価に拡張するための解析手法の改良を進めた。

構築した核種移行解析モデルの妥当性確認を行うため、平成30年度から令和3年度は、これまでに取得された原位置トレーサー試験データやナチュラルトレーサーデータ等を活用し、モデルの適用性の検討や、その結果を踏まえたモデルの改良を実施した。

令和4年度は、これまでの試験や調査で得られた割れ目等を対象とした原位置トレーサー試験結果を対象にモデルの適用性評価と妥当性確認を進めるとともに、より大きな空間・時間スケールや地質環境の長期変遷の影響を考慮した核種移行解析の適用性を検討するためのナチュラルトレーサーデータ等の事例調査と解析評価を行った。これらの成果をもとに、実際の地質環境の特徴や長期変遷を考慮した核種移行解析手法の妥当性評価や今後の課題について提示した。

(2) システム変遷等を考慮した核種移行解析モデル/データベースの整備

セメント系材料と緩衝材との反応など、様々な現象が複合的に進行するニアフィールドを対象として、これまでは、緩衝材等が変質した場合の基礎データが取得されてきた。そこで、地下水化学の変遷に関する情報等に基づき、ニアフィールドの状態の変遷を設定した上で、その設定に応じた条件において変質した緩衝材中や岩石中の核種の移行挙動に係るデータを取得するとともに、変質した材料を対象とした核種移行解析モデルを構築し、さらに、その妥当性を確認することが求められている。また、時間変化を考慮した地質環境モデルやニアフィールドを対象とした

連成解析の結果を、核種移行解析モデルへ反映する手法を構築することが求められている。

ニアフィールドの状態変遷を想定した条件での核種移行データ取得とモデル構築について、平成30年度から令和3年度は鉄製オーバーパックと緩衝材、セメント系材料と緩衝材及び岩石との相互作用が核種移行に及ぼす影響評価において重要な課題として、鉄と核種の競合収着や共沈による影響、セメント影響下での緩衝材中のコロイドろ過機能への影響、セメント共存下での岩石変質による核種移行への影響を抽出したうえで、それぞれの条件での室内試験や原位置試料分析によりデータ取得を行い、鉄やセメント共存が核種移行へ及ぼす影響に係る重要な現象理解と、それらに基づく影響評価モデルの構築を進めてきた。

令和4年度は、鉄共存の影響評価手法の構築に向けて、鉄(II)と核種の収着競合を対象に、収着競合が想定されるII価核種を中心とした収着競合データを拡充し、これまでの取得データをもとに収着モデルの構築とその適用性評価を行った。鉄(II)鉱物へのセレン等の酸化還元に鋭敏な元素の取り込み挙動に係るデータを室内試験と幌延の岩石を用いた事例分析を、セレンの価数や環境条件の差異の影響に着目して拡充し、環境条件に応じた鉄とセレンの相互作用メカニズムを解明した。また、セメント共存の影響評価手法の構築に向けて、ベントナイト中のコロイド移行・ろ過データを、異なるコロイドサイズ条件を対象に拡充し、これまでの一連の取得データをもとにコロイドの移行とろ過の境界条件を把握した。さらに、幌延の泥岩ーセメント接触試料の界面領域の鉱物・間隙や微量元素の分布等の分析データを複数の分析技術を適用して拡充するとともに、岩石側に生じる二次鉱物の生成や微量元素の取り込みメカニズムを把握した。これらの一連の成果をもとに、鉄やセメント共存による核種移行への影響が生じるメカニズム、影響が顕在化する条件と今後の課題を提示した。

核種移行パラメータ設定に必要となるデータについては、これまでに、文献調査に加え、室内試験を通じて熱力学データベース（TDB）、収着データベース（SDB）、拡散データベース（DDB）の拡充が図られてきた。本事業では、比較的炭酸濃度が高い地下水が存在する場等に重点を置き、岩石への収着・拡散データ、溶解度設定に係る熱力学データを取得することが求められている。

このため、平成30年度から令和3年度は、実際の深部環境で考慮すべき高炭酸濃度等の地下水条件範囲、及びその条件で炭酸錯体等の影響が顕在化する核種を抽出したうえで、国内の深部地下環境の岩石やその構成鉱物中のアクチニド元素等の移行挙動を対象に、室内試験による核種の収着・拡散データを拡充した。さらに、収着形態の分析技術や分子動力学計算等の計算科学技術を適用して炭酸共存下における核種の収着・拡散等のメカニズムを把握するとともに、それらを反映した収着。拡散モデルの構築を進めた。

令和4年度は、幌延の岩石やその構成鉱物を対象に、高炭酸条件でのAm(III)やEu(III)、U(VI)、Np(V)等核種の収着・拡散データを取得するとともに、先端的な分析技術（TRLFS等）や計算科学技術を適用して、高炭酸条件下での収着形態などの核種移行メカニズムを解明し、それらの成果をもとに炭酸共存下の核種移行評価モデルの改良を行った。さらに、これらの成果をもとに、高炭酸条件下での核種の収着・拡散パラメータとその不確実性に関する評価事例と今後の課題を提示した。

(3) 有機物・微生物の影響評価技術の開発

有機物については、これまでに、天然有機物と核種の錯体形成モデルの構築が実施されてきた。そこでさらに、影響評価モデルの構築に資することを目的として、天然有機物ー核種ー岩石の三元系における核種収着データを取得することが求められている。微生物については、一部の種類を対象に核種の取り込み等に関するデータが取得されてきた。そこでさらに、微生物影響評価モデルの構築に資することを目的として、その他の主要な微生物についてもデータの取得を行うこ

とが求められている。

有機物影響評価について、平成30年度から令和3年度はデータ拡充の必要がある4価の核種としてZr(IV)を選定し、幌延の深部地下水から分離・精製した腐植物質との錯生成データを流動場分画法(FFF-ICPMS)とキャピラリー電気泳動法(CE-ICPMS)によって取得するとともに、データの蓄積のある元素Eu(III)に対してCE-ICPMS法とFFF-ICPMS法を適用して、錯生成データの妥当性を検証した。また、核種－有機物－岩石三元系のモデル開発に向けてEu(III)の収着試験を実施し、加成則モデル適用に向けた課題を抽出した。

令和4年度は、有機物影響評価モデルの高度化に向けて、特に中性のpH領域におけるZr(IV)との錯生成データをCE-ICPMS法を用いて拡充し、NICA-Donnanモデルパラメータをより信頼性の高い値に更新した。また、核種－有機物－岩石三元系モデルの開発に向けて、室内試験によるEu(III)の収着試験を令和3年度に継続して行い、得られたデータから反応の可逆性について検討するとともに、加成則に基づく暫定的な三元系モデル構築を試みた。以上の成果を取りまとめ、現状の有機物の影響評価モデルから核種移行評価解析に適用可能なモデルを構築するための課題抽出を行った。

微生物影響評価について、平成30年度から令和3年度は希土類元素をアクチニドのアナログ元素として、幌延地下環境において水質条件の異なる複数の堆積岩地下水を対象として、地下水中の全コロイドおよびバイオコロイドへの収着分配係数に関わるデータを拡充した。また、堆積岩における地下施設建設に伴うバイオフィルムの形成領域について、現存量、空間分布や種組成の経時変化に関するデータを拡充し、ゲノム解析手法等を用いて地下微生物の代謝を考慮した核種との相互作用を評価することで、地下環境における微生物反応の現象理解と評価モデルの構築を進めてきた。

令和4年度は、微生物影響評価モデルの構築に向けて、バイオコロイドへの希土類元素の収着挙動メカニズムの理解を進めるとともに、地下施設建設過程における微生物現存量や代謝反応の変化に関するデータを拡充した。また、幌延の原位置環境を活用して、地下微生物の代謝を考慮した希土類元素やセレン等の核種との相互作用に関するデータ取得により、微生物の核種移行への影響に係る知見を得た。得られた知見やデータをもとに、微生物影響を考慮した核種移行解析を実施するとともに、微生物影響評価モデルの信頼性向上のための課題を抽出した。

1.2.3 ニアフィールド性能の総合評価技術開発

地層処分システムの性能評価では、ニアフィールドの長期挙動に影響を及ぼす可能性のある複数の現象とこれらの相関関係の理解に基づき、ニアフィールド環境変遷が評価されるとともに、こうしたニアフィールド環境変遷評価から得られる知見や情報を、核種移行の場の設定に反映させることにより核種移行挙動が評価される。ニアフィールドでは、熱的、水理学的、力学的及び化学的なプロセスが相互に影響を及ぼし合うことにより環境条件が変遷するため、これらの多様なプロセスに関する個別のモデルによる評価だけでは不十分となる可能性がある。そのため、これら個別モデルを統合し、ニアフィールド環境の変遷及びそれを考慮した核種移行挙動を解析することの可能な解析ツールを開発することを目的に、以下の二つのサブタスクを実施している。

(1) 現象解析モデルの統合化技術の構築

空間的・時間的な地層処分システムの変遷を理解するため、ニアフィールドに注目し、これまでに、様々な現象解析モデルを統一したプラットフォームを整備し、複合現象を解析することが可能なシステムが構築されてきた。ここでは、現象解析モデルを当該プラットフォームに取り込み、それらの連成解析を可能とするシステムの拡張を行うことが求められている。さらに、本シ

ステムを用いた試行的な連成解析により、安全上の重要な課題について抽出することが求められている。

連成解析を可能とするシステムの拡張について、平成30年度から令和3年度は複数のプロセスを複合的に考慮する必要のある複合現象で、かつ、安全機能や核種移行への影響が大きい現象を幅広く抽出して、その現象を対象とする評価システムを構築する研究開発アプローチを提案すると共に、このアプローチに基づき、「緩衝材の長期変遷挙動の予測」を優先的に取り組む課題として評価システムのプロトタイプを構築した。そして、緩衝材の機能に影響を及ぼし得る複数の状態変遷のパターン等を対象とする感度解析を行うと共に、変質に伴う緩衝材に期待される機能への影響を評価するための手法検討に着手した。また、閉鎖後長期の状態変遷の解析に反映すべき閉鎖後過渡期の状態変遷に関わる情報を整理した。さらに、水理・物質輸送－化学反応に係る解析コードの妥当性確認の一環として、ベンチマーク解析による検証を行うと共に、解析コードの確証に係る既往成果の再整理も行った。

令和4年度は、プロトタイプの評価システムで用いられている水理・物質輸送－化学反応の解析モデルを用い、安全上の重要な課題のひとつとして、緩衝材変質促進ループの生起が懸念される場合を簡易な系での解析等に基づき課題を整理した。また、緩衝材の状態変遷評価におけるフィードバックの具体例を提示した。

(2) ニアフィールドシステム核種移行評価技術の開発

前述のサブタスク「現象解析モデルの統合化技術の構築」で開発する統合解析技術により求められる、時間変化を考慮した地質環境モデルやニアフィールドを対象とした連成解析の結果を核種移行解析モデルへ反映する手法を構築する。時間変化を考慮した地質環境モデルやニアフィールドを対象とした連成解析の結果を核種移行解析モデルへ反映する手法の構築について、平成30年度から令和3年度は、連成解析の結果を反映させて核種移行を評価するための解析手順やデータ受け渡し等のフレームワークを整備し、これに基づき「現象解析モデルの統合化技術の構築」で構築した連成プラットフォームを利用した核種移行解析モデルを構築して試行的な核種移行解析を実施した。さらに、その試行結果に基づき、緩衝材の長期的な状態の変遷が核種移行に及ぼす影響を定量的に評価するために必要な技術的課題を抽出し、それらの対処方策を提案した。さらに、緩衝材の変質に伴う状態変遷を考慮した核種移行パラメータ設定の方法論についても検討した。

令和4年度は、「現象解析モデルの統合化技術の構築」における緩衝材の状態変遷評価におけるフィードバックを踏まえた核種移行解析を行い、核種移行への影響について整理した。また、緩衝材の変質が核種の移行遅延効果に与える影響を評価する手法の整備に向けて、核種移行率に影響を及ぼす因子の抽出や他のサブプロジェクトへのフィードバックが必要な内容についても案を整理した。

1.2.4 ニアフィールドシステム評価確証技術開発の5か年計画

平成30年度から令和4年度の5か年のスケジュールを表1.2-2に示す。1.2.1項から1.2.3項に記したサブプロジェクト、サブタスクで実施する技術開発のそれぞれが対象とする領域と時間を図1.2-3に示す。これらのタスクは個別に実施されるが、個々の成果は図1.2-4に示すようにサブタスク間の連成などによる集約・統合や核種移行評価手法と連携することにより、ニアフィールド性能を総合的に評価するための統合化に向けた技術開発を目指すものである。

表1.2-2　ニアフィールドシステム評価確証技術開発の5か年の実施スケジュール

ニアフィールドシステム評価確証技術開発	平成30年度				平成31年度				令和2年度				令和3年度				令和4年度			
	第1四半期	第2四半期	第3四半期	第4四半期	第1四半期	第2四半期	第3四半期	第4四半期	第1四半期	第2四半期	第3四半期	第4四半期	第1四半期	第2四半期	第3四半期	第4四半期	第1四半期	第2四半期	第3四半期	第4四半期
全体工程	▼契約			報告書作成 提出▼	▼契約			報告書作成 提出▼	▼契約			報告書作成 提出▼	▼契約			報告書作成 提出▼	▼契約			報告書作成 提出▼
(1) ニアフィールド環境変遷に係る個別評価技術の開発 (SP1) 1) オーバーパックの腐食挙動評価 2) 緩衝材の変質挙動評価 3) ニアフィールドTHMC連成挙動評価 4) 母岩中アルカリプルーム反応輸送挙動評価	調査・開発計画の設定			取りまとめ				取りまとめ	計画策定			取りまとめ				取りまとめ				取りまとめ
	室内腐食試験、原位置試験試料のサンプリング、分析				室内試験データ拡充、腐食モデル原位置試験試料分析			適用性確認	原位置試験試料分析、広範な条件での室内試験データ拡充				室内試験、広範な環境条件等での室内試験データ拡充				室内試験データ拡充、腐食モデルへの反映			
	原位置及び室内試験試料の分析、ナチュラルアナログ事例調査				原位置及び室内試験試料の分析、ナチュラルアナログ事例調査				原位置及び室内試験試料の分析、ナチュラルアナログ事例調査				原位置及び室内試験試料の分析、ナチュラルアナログ事例調査				評価モデルへの反映、緩衝材基本特性への影響整理			
	力学挙動に関する室内試験、解析モデルの改良				室内試験データ拡充、モデル改良 原位置試験等の再現解析				解析条件の設定、原位置試験のTHM解析、解析コード高度化				解析条件の設定、原位置試験のTHM解析、解析コード高度化				原位置試験のTHM解析、解析コード高度化、取りまとめ			
	グラウト材−岩盤接触部の試料を用いた試験・分析								原位置試料データ拡充、反応輸送解析に必要なデータ整理											
	岩盤中の反応性物質の移行等に関する検討事例の調査				アルカリプルーム反応輸送モデルの検討				他分野での類似事例調査、反応輸送モデルによる感度解析				瑞浪の亀裂特性情報を参考に、単一亀裂を対象にアルカリプルームの進展評価							
5)流出現象等を考慮した緩衝材の健全性評価 **(1) 流出を抑制する工学的対策の具体化** **①原位置試験** **②室内試験** **(2) 緩衝材の飽和プロセスを対象とした解析的な評価方法の検討**	試験環境の整備・環境計測				地下での効果確認試験				準備	地下での流出挙動確認試験（隙間未充填）			湧水量変化の水理試験	ケイ砂充填の流出挙動確認試験			施工オプション毎の検証のための流出試験			
	工学的対策効果の確認試験・再冠水挙動試験				原位置試験の予備試験・挙動把握のためのデータの取得				試験パラメータの整理				各施工オプションの評価指標に関する試験				各施工オプションの評価指標に関する試験			
	再冠水時の浸潤挙動、密度変化の解析				再冠水挙動に関する力学解析手法の検討				要素試験等の実施 試験体サイズの妥当性検討のための試験データ取得				スケールアップのための解析手法の検討				実スケールの緩衝材の密度分布の予測			
	●遠心模型試験	適用範囲の精査・妥当性確認浸潤試験							二次元体系への拡張、課題等に関する検討				試験データ取得と解析の検証							
(2) ニアフィールド環境変遷を考慮した核種移行評価技術の開発 (SP2) 1) ニアフィールド岩盤中の核種移行評価技術の開発	調査・開発計画の設定			取りまとめ				取りまとめ	計画策定			取りまとめ				取りまとめ				取りまとめ
	海外地下研究施設の結晶質岩のマトリクス部/割れ目部の不均質性を対象とした室内試験とモデル開発				海外地下研究施設の結晶質岩のマトリクス部/割れ目部の不均質性を考慮したモデル高度化				国内外の結晶質岩・堆積岩のマトリクス部/割れ目部のデータ取得と不均質性・環境変遷を考慮したモデル開発				結晶質岩・堆積岩のマトリクス部/割れ目部の不均質性・環境変遷に着目したデータ拡充とモデル高度化				結晶質岩・堆積岩の実際の地質環境の特徴やその長期変遷を考慮可能な核種移行モデルの構築			
	堆積岩(泥岩)のマトリクス部/割れ目部における不均質性に着目した室内試験とモデル開発				堆積岩(泥岩)のマトリクス部/割れ目部を対象とした不均質性に着目した室内試験データ拡充とモデル高度化、原位置試験結果への適用による妥当性確認				国内外の結晶質岩・堆積岩における原位置試験データを活用した核種移行解析モデルの適用性の評価				結晶質岩・堆積岩における原位置試験データや天然事例データを活用した核種移行解析モデルの適用性の評価				結晶質岩・堆積岩の原位置試験や天然事例データを活用した核種移行解析モデルの妥当性確認結果と課題の提示			
2) システム変遷等を考慮した核種移行解析モデル／データベースの整備	オーバーパック−緩衝材、セメント−緩衝材・岩石の相互作用に関する状態変遷の設定(条件・課題)																			
	鉄影響(鉄と核種の競合収着、共沈現象等)、セメント影響(変質等の収着影響)に関するデータの取得				鉄影響(鉄と核種の競合収着、共沈現象等)、セメント影響(変質等の収着影響)に関するデータの拡充				鉄と核種との競合収着、鉄鉱物と核種との取り込み現象に関する室内試験・天然事例調査による現象解明				鉄と核種との競合収着、鉄鉱物と核種との取り込み現象に関する室内試験・天然事例調査の拡充とモデル開発				鉄共存が核種移行に及ぼす影響評価手法の構築と評価事例・課題の提示			
	高炭酸濃度地下水条件での岩石中の核種移行データの拡充、核種移行メカニズムの理解に基づく核種移行モデルの理解				高炭酸濃度地下水条件での岩石中の核種移行データの拡充、核種移行メカニズムの理解に基づく核種移行モデルの構築				セメント共存下でのベントナイトのコロイド移行・ろ過データ、岩石変質と核種移行に関するデータの取得と現象解明				セメント共存下でのベントナイトのコロイド移行・ろ過データ、岩石変質と核種移行に関するデータの拡充とモデル開発				セメント共存が核種移行に及ぼす影響評価手法の構築と評価事例・課題の提示			
3) 有機物・微生物の影響評価技術の開発	IV核種と天然有機物との錯生物データ取得				錯生物データ取得とモデル高度化・パラメータ整備				IV核種と天然有機物との錯生成データ取得とパラメータ整備								天然有機物−核種二元系モデルのパラメータ整備と高度化			
	核種−有機物−岩三元系モデル開発の文献調査・課題抽出				核種−有機物−岩三元系における核種収着データ取得とモデル検討				三元系での核種収着データ取得方法の検討				三元系での核種収着データ取得				三元系での核種収着データ取得とモデル検討			
	地下微生物による核種収着や取り込み等のデータの取得				地下微生物による核種収着や取り込み等データの拡充、影響評価パラメータの整備と核種移行解析への反映				地下微生物への希土類元素の収着分配係数データの拡充								核種移行影響解析のためのデータ整備			
									微生物と核種との相互作用データの取得								相互作用データ取得、影響評価モデルの構築			
(3) ニアフィールド性能の総合評価技術開発 (SP3) **サブタスク 1)：現象解析モデルの統合化技術の構築**	計画検討・予備検討			取りまとめ				取りまとめ				取りまとめ				取りまとめ				取りまとめ
	研究開発アプローチの提案				解析システムプロトタイプの構築、安全上の重要課題の抽出・対処方方策の検討				プロトタイプを用いた緩衝材長期変質挙動の状態変遷に係る詳細解析				プロトタイプで用いる解析モデルの妥当性確認のための試行				妥当性を確認したモデルによる緩衝材の長期変質挙動の状態変遷に係る再解析・課題整理			
	解析システムプロトタイプの構築																			
サブタスク 2)：ニアフィールドシステム核種移行評価技術の開発	計画検討・予備検討				核種移行モデルの構築、サブタスク1で構築したプロトタイプシステムによる解析結果を踏まえた試解析				サブタスク1による状態変遷に係る解析結果を反映した核種移行パラメータの設定方法の検討、試解析				緩衝材の変質が核種移行遅延効果に与える影響を評価するための手法の検討				緩衝材の変質が核種移行遅延効果に与える影響を評価するための手法の整備に向けた課題整理			
	最新知見の整理・フレームワークの構築																			

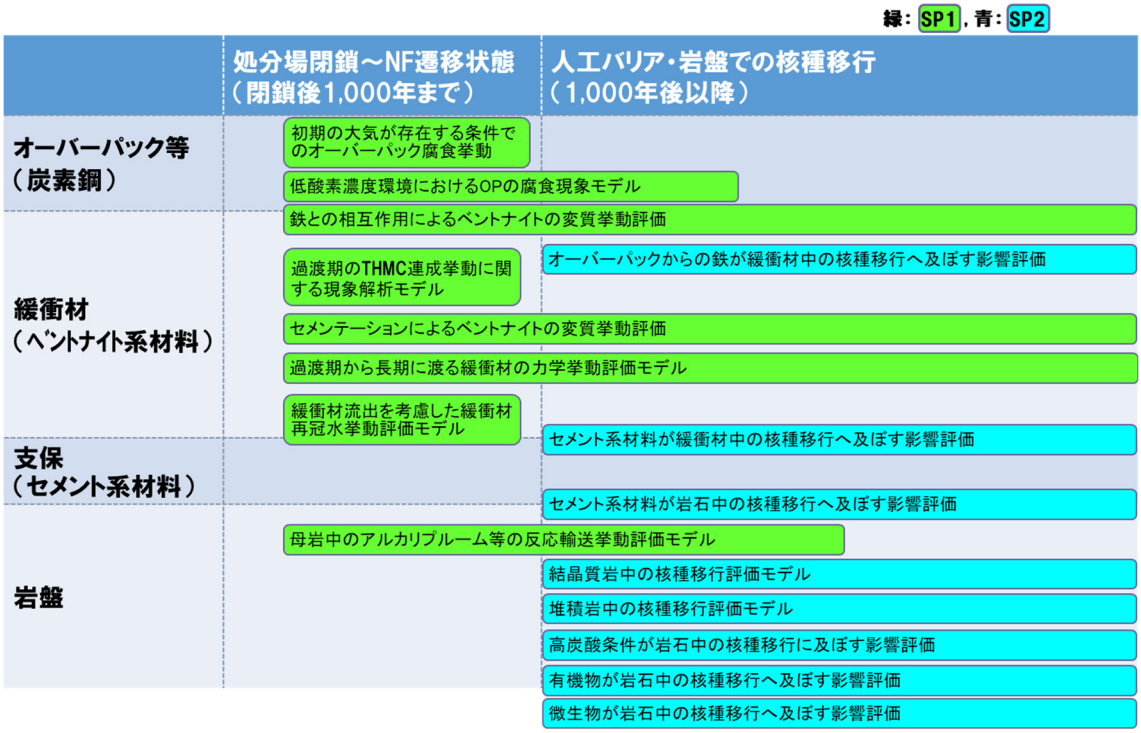


図1.2-3　ニアフィールドシステム評価確証技術開発のサブタスクマップ

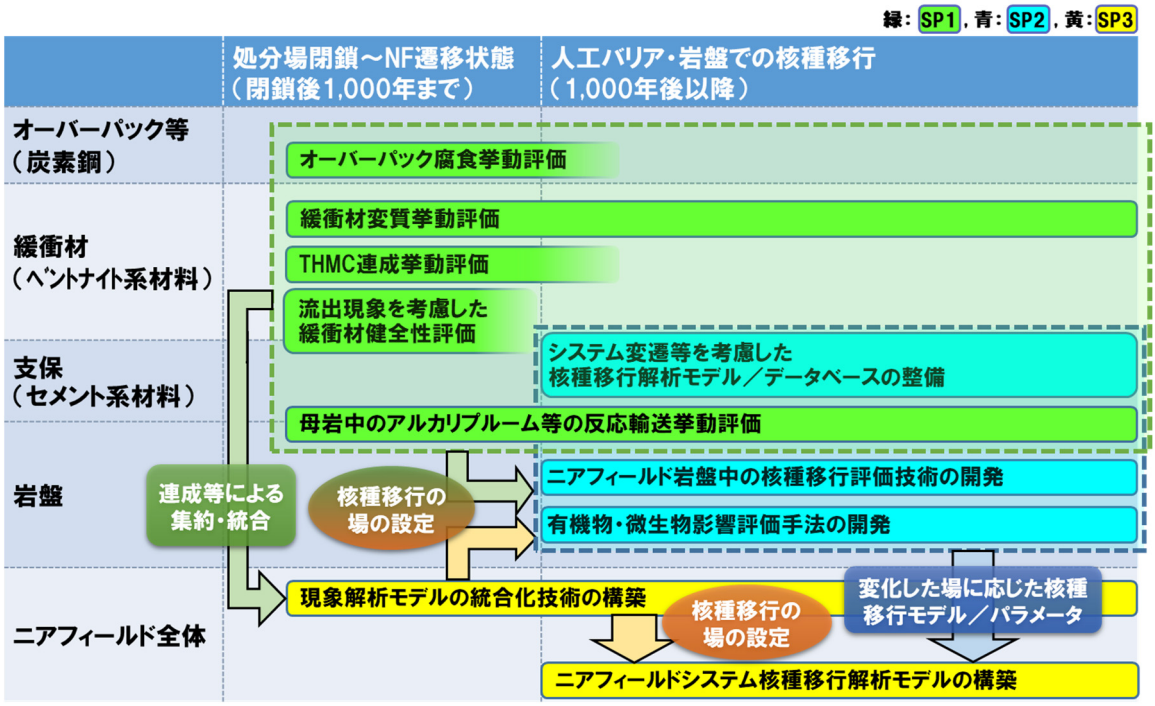


図1.2-4　ニアフィールドシステム評価確証技術開発のサブプロジェクト相関図

参考文献

原子力発電環境整備機構, 包括的技術報告：わが国における安全な地層処分の実現－適切なサイトの選定に向けたセーフティケースの構築－, NUMO-TR-20-03, 2021.

原子力環境整備促進・資金管理センター, 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 処分システム工学確証技術開発 平成25年度～平成29年度の取りまとめ報告書, 262p., 2018.

核燃料サイクル開発機構, わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性－地層処分研究開発第2次取りまとめ－分冊3 地層処分システムの安全評価, JNC TN1400 99-023, 379p., 1999.

経済産業省, 地層処分研究開発に関する全体計画（平成30年度～令和4年度）, 59p., 2020.
https://www.meti.go.jp/shingikai/energy_environment/chiso_shobun/pdf/20200331_001.pdf（2023年3月23日最終閲覧）.

経済産業省, エネルギー基本計画, 128p., 2021.
https://www.enecho.meti.go.jp/category/others/basic_plan/pdf/20211022_01.pdf（2023年3月23日最終閲覧）.

日本原子力研究開発機構, 平成29年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 処分システム評価確証技術開発5か年成果報告書, 2018.

日本原子力研究開発機構, 原子力環境整備促進・資金管理センター, 平成30年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 ニアフィールドシステム評価確証技術開発報告書, 2019.

日本原子力研究開発機構, 原子力環境整備促進・資金管理センター, 平成31年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 ニアフィールドシステム評価確証技術開発報告書, 2020.

日本原子力研究開発機構, 原子力環境整備促進・資金管理センター, 令和2年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 ニアフィールドシステム評価確証技術開発報告書, 2021.

日本原子力研究開発機構, 原子力環境整備促進・資金管理センター, 令和3年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 ニアフィールドシステム評価確証技術開発報告書, 2022.

2. ニアフィールド環境変遷に係る個別評価技術の開発

2.1 目的と5か年の計画

2.1.1 目的

ニアフィールドはオーバーパック、緩衝材、セメント系材料などの人工バリアと、人工バリアの設置により影響を受けると考えられる人工バリア近傍の岩盤など複数の材料から構成されており、それらの劣化・変質や材料間の相互作用などにより環境条件は時間とともに変化し、バリア構成要素の安全機能や核種移行挙動への影響を与える可能がある。そのため、人工バリアの長期挙動評価や環境変遷を評価する技術の開発とその評価の妥当性確認が重要となる。加えて、日本の地下環境には一般的に湧水があることが知られており、廃棄体の定置後に処分孔内に孔壁からの湧水があることにより、緩衝材と孔壁の境界に水みちができ、緩衝材が流出する可能性が指摘されている。緩衝材の流出は緩衝材の損失をもたらし、人工バリアに期待されている安全機能の低下につながる事象であるため重要な課題である。

本章では、複数の異なる構成材料からなるニアフィールドの状態変遷を評価する技術の開発と確証を目的に、以下に示す現象を対象に評価技術開発を実施する。

- オーバーパックの腐食挙動（2.2節）
- 緩衝材の変質挙動（2.3節）
- ニアフィールドTHMC連成挙動（2.4節）
- 母岩中アルカリプルーム反応輸送挙動（2.5節）
- 緩衝材の流出現象およびその後の再冠水プロセスにおける挙動（2.6節）

2.1.2 5か年の計画

上記の項目のうち、オーバーパックの腐食と緩衝材の変質については、緩衝材が再冠水-飽和に至る過渡期と飽和後の長期的な期間を対象に、THMC（T：熱、H：水理、M：応力、C：化学）の変遷やそれによる影響などの観点からデータを取得するとともに、100 ℃を超える条件を含む諸条件で取得された既往のデータを活用し、既往の現象解析モデルの妥当性確認や、現象解析モデルの改良、高度化を行う。THMCの変遷については、これまで開発されてきた連成解析モデルを用いて過渡状態などでの挙動を解析し、原位置試験データなどを活用してモデルの適用性や妥当性を検討するとともに、先行事業「処分システム評価確証技術開発」（日本原子力研究開発機構, 2018a）などで抽出された課題である力学的挙動の解析手法の高度化などに取り組む。母岩中アルカリプルーム反応輸送挙動については、地下施設の試料や原位置試験データなどを活用して、セメント－岩石相互作用の理解を進めるとともに、その知見を活用して先行事業「セメント材料影響評価技術高度化開発」（日本原子力研究開発機構, 2015b）などで構築された亀裂性岩盤におけるセメントと岩石との反応・物質輸送モデルなどをベースにニアフィールド母岩を対象としたアルカリプルーム反応輸送挙動評価手法の高度化を図る。

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

2.2 オーバーパックの腐食挙動評価

2.2.1 背景と目的

オーバーパック周囲の環境条件は時間とともに変化し、それに伴ってオーバーパックの腐食挙動も変化すると考えられる。特に、処分場閉鎖後初期の過渡状態では温度、緩衝材飽和度、緩衝材の間隙水水質、酸化還元性などによって腐食挙動が大きく変化する可能性がある。また、過渡状態以降においても温度など緩やかな変化に伴って長期的な腐食挙動も変化すると考えられる。このような環境条件の変遷に応じた腐食挙動の変化について、先行事業「処分システム評価確証技術開発」（日本原子力研究開発機構, 2014；2015a；2016；2017；2018a）では過渡状態における腐食モニタリングのための腐食センサーを開発し、幌延深地層研究センターの地下研究施設（以下、［幌延URL］という）での工学的スケールの原位置試験に適用して腐食挙動の時間的変化を把握した。また、不飽和緩衝材中での室内試験により不均一な腐食の生起などを把握した。さらに、環境条件の変化を考慮した広範な環境条件（成分濃度、pH、温度など）において、個々のパラメータ値などの条件を変えた比較的短期の室内試験データを取得し、個々の環境因子による腐食挙動への影響を把握した。

しかしながら、緩衝材再冠水から飽和の初期の過渡状態における局部腐食などの不均一な腐食の生起・進展挙動やメカニズムを理解するためには、ある程度の規模の大きさの試験などが必要であることから、工学的規模での試験データを含めて更に知見を拡充することが必要である。また、環境因子が腐食挙動へ与える影響についても長期データや複合的な作用の影響などの知見を拡充し、環境条件の変遷に対応した腐食挙動評価に資する必要がある。

そこで、平成30年度（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2019）は過渡状態におけるオーバーパックの腐食挙動や腐食の不均一性を把握することを目的として、幌延URLにて緩衝材が飽和に至る期間に着目して実施された原位置試験の試料を活用し、模擬オーバーパックの腐食状況や緩衝材中の環境条件に関する調査を行った。また、先行事業「処分システム評価確証技術開発」（日本原子力研究開発機構, 2014；2015a；2016a；2017；2018a）で開始した広範な環境条件での室内試験を継続し、炭酸ガス環境における浸漬期間1年の腐食データを取得した。

平成31年度（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2020）は幌延URLにて実施された原位置試験試料を活用し、模擬オーバーパックの腐食状況や緩衝材中の環境条件に関するデータや解析結果に基づいて環境条件の推定を行うとともに、模擬オーバーパックに観察された不均一腐食のメカニズムを推定した。また、広範な環境条件での室内試験として、炭酸ガス環境における浸漬期間3年の腐食データを取得するとともに、炭酸塩環境での応力腐食割れ感受性に関する腐食データを取得した。

令和2年度（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2021）は模擬オーバーパックや腐食センサー周辺の環境条件と腐食メカニズムをより詳細に明らかにするため、幌延URLにて実施された原位置試験に使用された腐食センサー表面の腐食生成物の分析手法の開発および微生物活性挙動の調査による緩衝材中の環境条件の評価を実施した。また、広範な環境条件での室内試験として、高NaCl濃度環境での浸漬試験データ、塩化物イオンを添加した炭酸塩溶液条件での応力腐食割れ試験データを取得するとともに、先行事業「沿岸部処分システム高度化開発」（産業技術総合研究所ほか, 2017；2018；2019）で開始した沿岸部を想定した地下水条件での浸漬試験データを取得した。

令和3年度（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2022）は、原位置試験試料等の分析として、幌延URLにて実施された原位置試験で使用した腐食センサー周辺の環境条件と腐食メカニズムをより詳細に明らかにするため、腐食センサー表面の腐食生成物の分

析を実施するとともに、工学規模や実規模で生じうる環境の不均一性や腐食の局在化について、過渡期で想定される不均一状態の洗い出しを行った。また、緩衝材内部の長期的な微生物活性挙動を評価するため、月布ベントナイト原鉱石、市販ベントナイト試料、幌延URLの原位置オーバーパック腐食試験で使用した膨潤前の緩衝材ブロック試料（未試験）を用いて、様々なベントナイト条件下における微生物現存量や種組成などのデータを拡充した。広範な環境条件での室内試験としては、温度変遷環境での浸漬試験データを取得するとともに、先行事業「処分システム評価確証技術開発」（日本原子力研究開発機構, 2015a；2018a）で開始した高温水環境を想定した条件での浸漬試験データを取得した。

令和4年度は、原位置試験試料等の分析として、幌延URLにて実施された原位置試験で使用した腐食センサー周辺の環境条件と腐食メカニズムをより詳細に明らかにするため、緩衝材と腐食センサーの接触界面の分析を実施した。また、地層処分環境における緩衝材中の腐食反応に関わる微生物活性挙動の現象理解とその整理を行い、微生物影響の取り扱いに関する評価フローを課題とともに提示した。広範な環境条件での室内試験のうち、浸漬試験については高硫酸塩および高炭酸塩条件での浸漬試験データを取得し、過年度に取得した浸漬試験データとともに統合的な整理を行った。また、広範な環境条件での室内試験のうち、応力腐食割れ試験については、5種類の環境条件（炭酸塩条件、高炭酸ガス条件、高温水条件、希釈人工海水条件、酸性水条件）における応力腐食割れ感受性に関する試験データを取得した。

2.2.2 実施内容

(1) 原位置試験試料等の調査、分析

幌延URLの350 m試験坑道において、処分孔へ定置後の初期の緩衝材が再飽和に至る期間における炭素鋼オーバーパックの腐食挙動を把握することを目的として、平成26年11月12日よりオーバーパック腐食試験が開始され、オーバーパックの腐食や緩衝材中の環境条件に関するモニタリングが実施されてきた。オーバーパック腐食試験の状況と模式図を図2.2-1に示す。オーバーパック腐食試験は平成30年5月に終了し、その後、平成30年5月から6月にかけて試験体の模擬オーバーパックと緩衝材に加えて周辺のコンクリートと一部の岩石の取り出しが行われた。本事業では、取り出された試験体を利用して緩衝材中の環境条件とオーバーパックの腐食状況に関する調査が行われた（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2019；2020；2021；2022）。

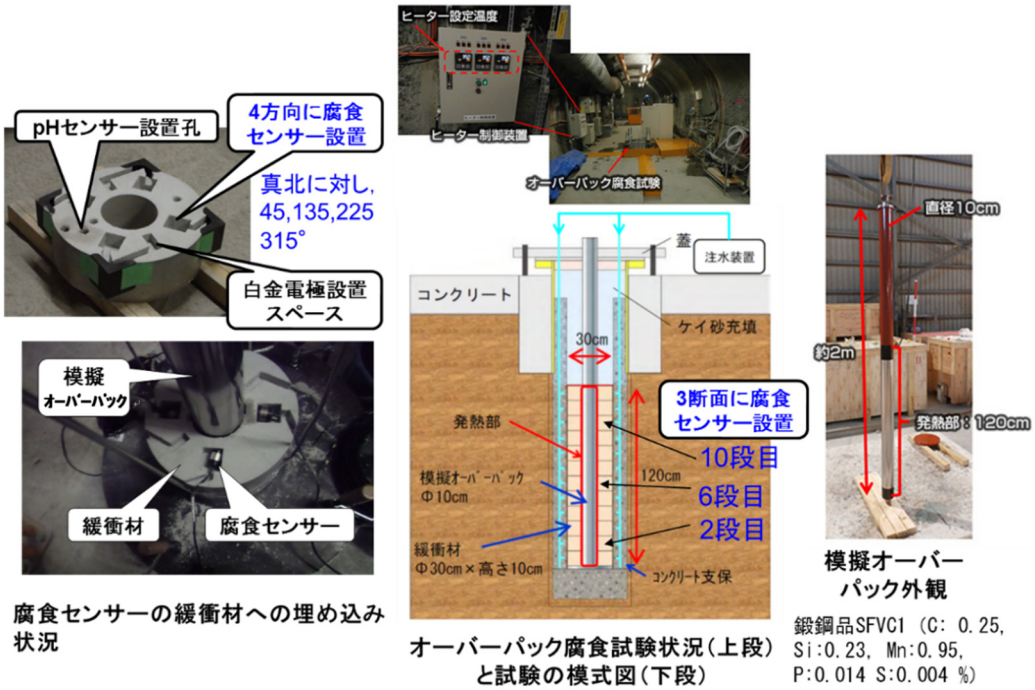


図2.2-1　オーバーパック腐食試験の状況と試験の模式図

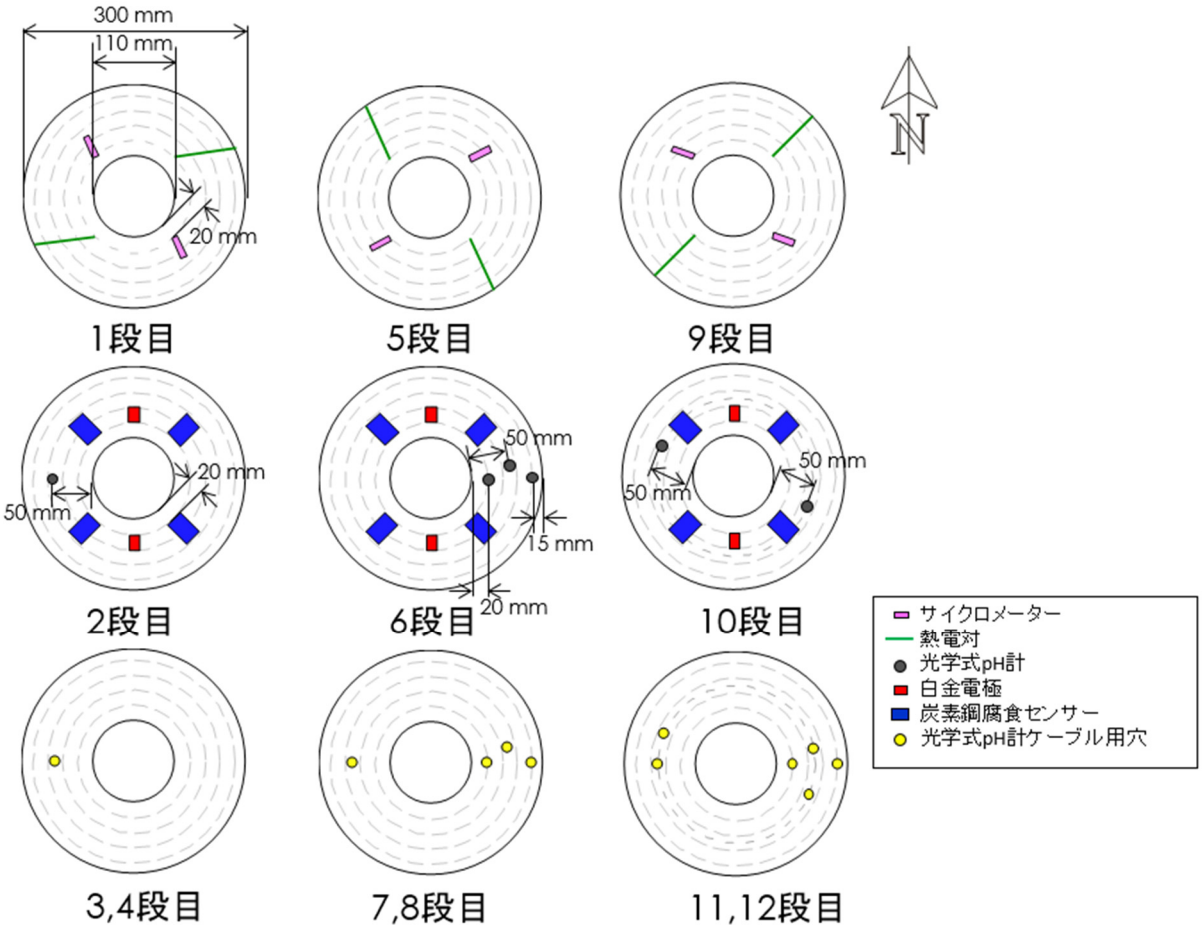


図2.2-2　各緩衝材ブロック中の各種センサー類の設置状況（下からの積み上げ段数ごと）

1) 緩衝材中に埋設した腐食センサーの調査

回収した緩衝材のうち、2、6、10段目にそれぞれ真北に対して45、135、225、315 °の方向（時計回り）に腐食センサーが埋め込まれている（図2.2-2参照）。平成30年度は、このうち2段目と10段目の45 °および225 °の方向に設置されていた腐食センサーの表面に生成した腐食生成物をX線回折により分析し、シデライト($FeCO_3$)の存在を確認した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019）。平成31年度は、6段目の135 °の方向に設置されていた腐食センサーを対象にX線回折と顕微ラマン分光分析を実施し、シデライトに加え、マグネタイト（Fe_3O_4）、ゲータイト(α-FeOOH)に帰属するとみられる分析結果を得た（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2020）。令和3年度は、環境条件の空間的な違いの把握に役立てるため、2段目と10段目の135 °の方向に設置されていた腐食センサーの表面に生成した腐食生成物をX線回折により分析し、ゲータイトおよびマグネタイトのほか、アカガネイト(β-FeOOH)を検出した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2022）。

令和4年度は、緩衝材と腐食センサーの接触界面における腐食生成物の詳細な空間的分布や腐食センサーの腐食状態の把握を目的に、緩衝材に包まれた状態の断面試料の作製を試み、走査型電子顕微鏡分析および顕微ラマン分光分析を行った。本分析の対象とした試料は、2段目と10段目の315 ° の方向に設置されていた腐食センサーとそれらを包含した状態の緩衝材とした。

① 分析試料および分析方法

(a) 分析試料

2段目と10段目の315 °の方向に設置されていた腐食センサーを緩衝材に包まれた状態で切断し、研磨時に水を使わない乾式研磨法（特許第5633078号「乾式研磨法による脆弱試料薄片の作製法」）にて厚さ約3 mmの厚片を作製した。これにより、試料極（炭素鋼）から緩衝材まで連続した範囲の観察・分析が可能となる。断面試料の切断位置、試料範囲イメージ、断面試料のマクロ写真を図2.2-3に示す。図から、いずれの試料も試料極近傍を除いて緩衝材は灰色を呈しており、鉄成分が試料極近傍に留まっていることがわかる。また、10段目315 °試料については断面試料作製時に試料極のずれが生じ、緩衝材と試料極の間に2 mm程度の空間が生じている。赤い枠は図2.2-4のマクロ写真（図2.2-4左端）の範囲である。

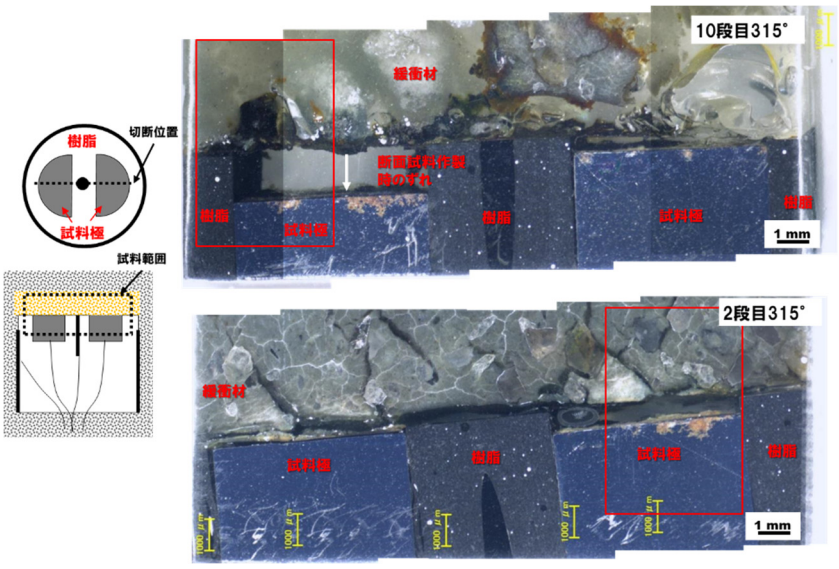


図2.2-3　断面試料の切断位置および試料範囲イメージと断面試料のマクロ写真

(b) 顕微ラマン分光分析

腐食生成物の種類を特定するため、顕微ラマン分光装置を用いた分析を行った。分析条件を表2.2-1に示す。

表2.2-1　顕微ラマン分光分析分析条件

分析装置	日本分光㈱製、NRS-7100 型		
分析条件	分析法	スポット	
	励起波長	532 nm	785 nm
	レーザーパワー	1 mW	1～6 mW
	スリット	100 μmφ	100 μmφ
	アパーチャー	4,000 μmφ	4,000 μmφ
	対物レンズ	×50	×50
	グレーティング	1,200 l/mm	600 l/mm
	観測波数	2,000～100 cm^{-1}	2,000～100 cm^{-1}
	積算回数	5 回×2 sec	5 回×2 sec
	スポットサイズ	1.5 μmφ	2μm Φ

(c) 走査型電子顕微鏡分析

断面試料のFe等の濃度分布を把握するため、走査型電子顕微鏡（日本電子株式会社製JSM-7200F）を用い、加速電圧15 kVにて反射電子像の撮影およびエネルギー分散型X線分光(EDS)による組成分析（マッピング分析）を実施した。なお、観察面はイオンミリング装置（日立ハイテクノロジー社製IM-3000）を用い、加速電圧6 - 20 kVの条件で平滑加工処理を施した。観察倍率は170倍（低倍率）、1,200倍（高倍率）とし、170倍で取得した画像は、汎用的な画像解析ソフトウェアであるImageJ(Schneider et al., 2012)を用いた連結処理を行い、深さ方向（試料極と緩衝材の接触面から離れる方向）の濃度分布の把握等に利用した。

② 分析結果

2段目および10段目の315 °の腐食センサーの断面試料の走査型電子顕微鏡分析結果および顕微ラマン分光分析に基づく腐食生成物種の推定結果を図2.2-4に示す。腐食生成物の推定の根拠とした顕微ラマンスペクトルは図2.2-5に示す。いずれの試料も、メタルから緩衝材まで連続した範囲が観察できており、腐食生成物は試料極側から、概ねマグネタイト、硫化鉄、シデライトの順で分布していると推定した。10段目の315 °のマクロ写真の範囲に認められた黄褐色の腐食生成物は顕微ラマン分光分析によりゲータイトであると推定した。シデライトが分布する領域には、元素マッピング像に水色で示される粒子が分布しており、主に石英またはモンモリロナイトである。

表2.2-2には、腐食センサー表面から削りとった腐食生成物の粉末試料を用いたX線回折分析(PXRD)、試料極を直接分析したX線回折分析(DXRD)、顕微ラマン分光分析(Raman)のそれぞれで同定した腐食生成物の名称（Fe^{2+}を含む腐食生成物は緑色、Fe^{3+}のみを含む腐食生成物は赤色の文字で表示）および緩衝材中のFeの浸透の程度を示した。Feの浸透の程度は、Fe成分が腐食センサー近傍に留まっている場合は「小」、Fe成分が緩衝材中に数ミリ程度浸透している場合は「大」とした。浸透の程度と腐食センサーの設置方位の相関関係は認められない。Fe成分の浸透の程度の例を図2.2-6に示す。表2.2-2から、概ね腐食生成物の種類は一致していること、いずれの腐食センサーについてもシデライトが検出されていることがわかる。

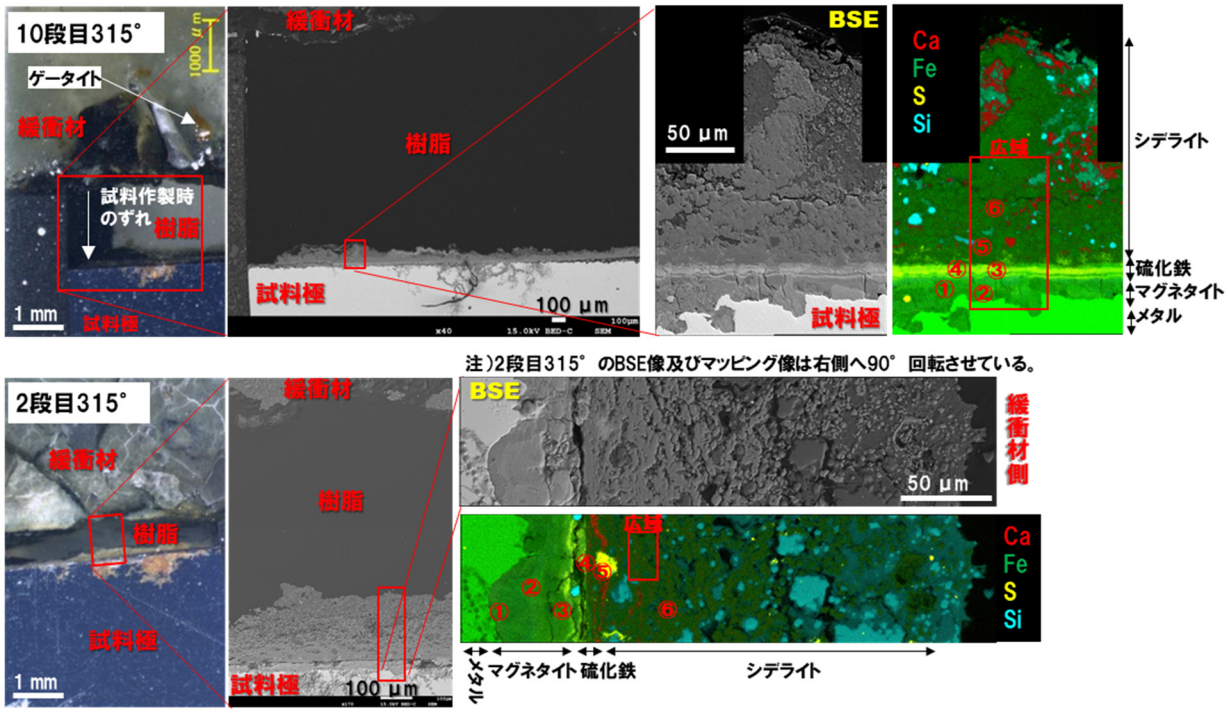


図2.2-4　断面試料の走査型電子顕微鏡分析結果および顕微ラマン分光分析に基づく推定

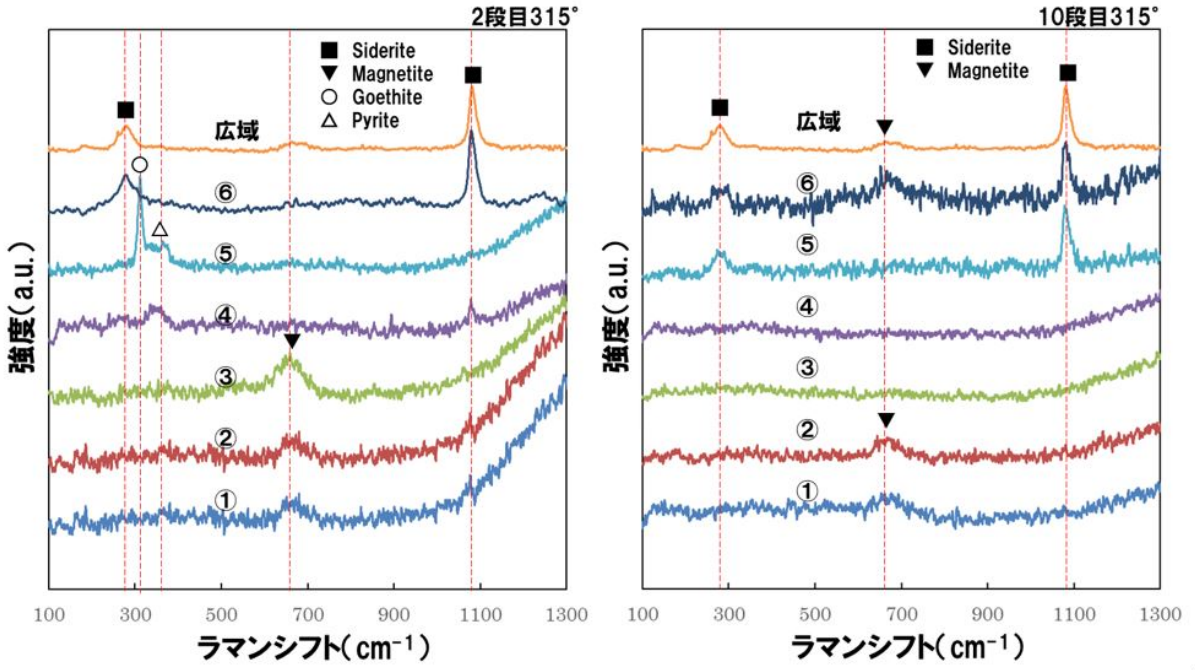


図2.2-5　断面試料の顕微ラマンスペクトル（分析箇所は図2.2-4参照）

表2.2-2　各種分析により同定された腐食センサー近傍の腐食生成物とFeの浸透程度

	45°	135°	225°	315°
10	【PXRD】Gth/Sd 【DXRD】Gth/Mag/Sd/Aka 【Raman】Gth/Mag/Sd 【Fe浸透】小	【PXRD】N/A 【DXRD】Gth/Mag/Aka 【Raman】N/A 【Fe浸透】不明	【PXRD】Gth/Mag/Sd 【DXRD】Gth/Mag 【Raman】Gth/Mag/Sd 【Fe浸透】大	【PXRD】N/A 【DXRD】N/A 【Raman】Gth/Mag/Sd 【Fe浸透】小
6	【PXRD】Gth/Mag/Sd 【DXRD】Sd 【Raman】Gth/Mag/Sd 【Fe浸透】小	【PXRD】Gth/Mag 【DXRD】Mag/Sd 【Raman】Gth/Mag/Sd 【Fe浸透】小	【PXRD】Sd 【DXRD】Sd 【Raman】Gth/Mag/Sd 【Fe浸透】小	【PXRD】Gth 【DXRD】Gth/Mag/Sd/Aka 【Raman】Gth/Mag/Sd 【Fe浸透】大
2	【PXRD】Gth/Sd 【DXRD】Gth/Mag/Sd/Aka 【Raman】Gth/Mag/Sd/Lep 【Fe浸透】小	【PXRD】N/A 【DXRD】Gth/Mag/Aka 【Raman】N/A 【Fe浸透】大	【PXRD】Sd 【DXRD】N/A 【Raman】N/A 【Fe浸透】大	【PXRD】N/A 【DXRD】N/A 【Raman】Mag/Sd 【Fe浸透】小

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

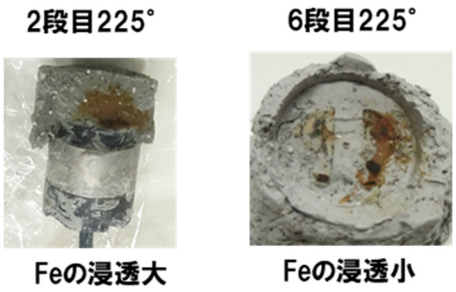


図2.2-6　緩衝材中へのFe成分の浸透の程度大、小の例

③ 考察

図2.2-7には、分極抵抗の逆数($1/R_p$)の時間積分値の経時変化を示した。分極抵抗の逆数は腐食速度、分極抵抗の逆数の時間積分値は腐食量にそれぞれ比例する値である。Stern-Gearyの式($I_{corr}=K/R_p$, Stern and Geary, 1957)における比例係数(K)が既知の場合、腐食速度および腐食量に換算することが可能である。比例係数を20 mV（西方ほか, 1994）と仮定した場合、試験終了時点の腐食速度は2段目が1.7 - 9.3 µm/y、6段目が1.9 - 4.4 µm/y、10段目が1.4 - 7.6 µm/y程度となり、飽和したベントナイト中における長期的な腐食速度（谷口ほか, 2010）に近い値となる。上述の通り、いずれの腐食センサーについてもシデライトが検出されており、試験期間中に腐食センサーの極近傍は低酸素状態となり、低酸素条件での腐食挙動を示した可能性がある。図2.2-7において、分極抵抗の逆数の時間積分値は2段目から10段目に向かって小さくなる傾向が認められる。平成31年度に報告したとおり、模擬オーバーパックの腐食量は下部ほど大きく、この原因として緩衝材と模擬オーバーパックのケイ砂の混入に伴う間隙の増加に起因した酸素供給量の増大が要因の可能性がある（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2020）。腐食センサーについてもケイ砂の混入に伴う酸素供給量の増大が腐食量に影響していることが示唆される。また、上述の通り腐食センサーの腐食によるFe成分の緩衝材への浸透の程度は場所により異なるが、図2.2-6に示したように浸透の程度と腐食量の相関関係も認められない。

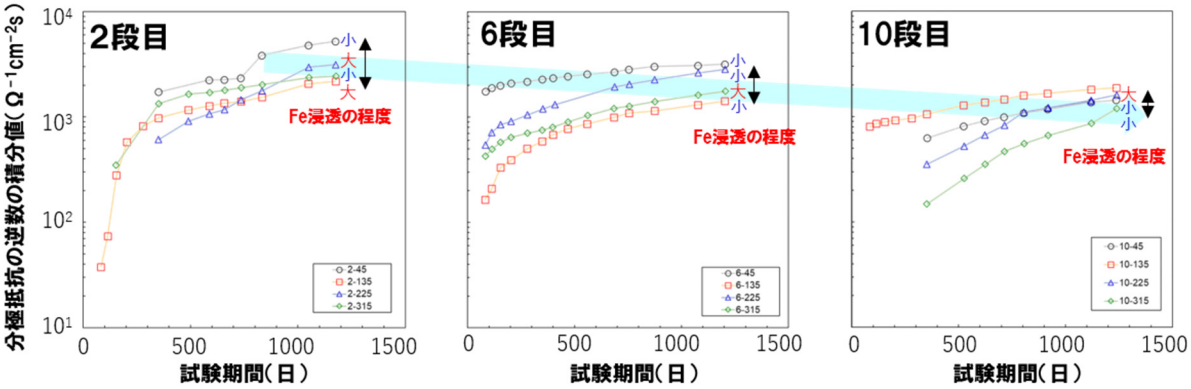


図2.2-7　分極抵抗の逆数の時間積分値（腐食量の経時変化に比例）

④ まとめ

過渡期の炭素鋼オーバーパックの腐食挙動の把握を目的に幌延URLの350 m試験坑道において実施されたオーバーパック腐食試験を対象に、緩衝材中の環境条件と模擬オーバーパック等の腐食状態に関する調査を行った。以下に、これまでに得られた知見を示す。

(a) 緩衝材中環境条件

- 緩衝材の飽和度は100日程度で0.9以上となった。
- pHは試験開始後上昇し、約300日以降は約8.5 - 9の範囲で概ね一定となった。
- 酸化還元電位は経時的に還元性に向かい、400 - 500日でほぼ一定となった。
- 模擬オーバーパックと緩衝材の境界部において腐食反応に関与する可能性のある微生物を検出したが、模擬オーバーパック表面の腐食状態との関係から微生物反応は寄与していないと推定した。

(b) 模擬オーバーパックおよび腐食センサーの腐食状態

- 模擬オーバーパックは、上段および中段の表面と較べて、下段の表面の腐食量が大きく、不均一な腐食状態であった。緩衝材上部に充填されていたケイ砂が模擬オーバーパックと緩衝材の境界部に混入し、酸素供給量に応じた全面腐食速度の場所による違いが不均一な腐食状態の原因であると推定した。
- 模擬オーバーパックの腐食量データに基づいて過渡状態で想定される酸素による最大腐食量を推定して従来の評価手法による推定と比較した結果、既往のモデルにより保守的な評価が可能であることを確認した。
- 腐食センサーで測定したモニタリングデータ（分極抵抗）から推定した腐食速度は、長期的には低酸素濃度環境での代表的な腐食速度である数μm/y程度となった。腐食センサー試料極近傍には腐食生成物として低酸素濃度環境で生成するシデライトが検出されており、数μm/y程度の大きさと整合する。
- モニタリングデータから推定した腐食速度、腐食量は腐食センサーごとに異なるが、センサーの設置方位、Feの浸透の程度の相関関係は確認できなかった。

緩衝材中環境条件や腐食センサーの腐食状態の調査結果に基づくと、過渡期においても、炭素鋼の極近傍は比較的短期間で低酸素濃度環境となり、その環境条件に応じた腐食速度（数μm/y）での腐食、腐食生成物（シデライト）の生成を想定することができるといえる。一方、炭素鋼か

ら数ミリ程度離れた位置にはゲータイトが検出された。令和3年度（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2022）に紹介した通り、平成8年度から岩手県釜石市の釜石鉱山における「粘土充填・熱負荷試験」で使用された炭素鋼製のヒーターの腐食状態の調査の結果、緩衝材の打ち継ぎ面にヒーター表面の腐食によって生成したゲータイトが観察されている（図2.2-8）（炭山, 1999）。緩衝材が飽和するとこのような緩衝材の打ち継ぎ面や緩衝材ブロック境界などの緩衝材の「境界」は消失することが期待されているが、釜石鉱山や幌延URLの原位置試験で観察されたようなゲータイト等の腐食生成物が沈殿すると緩衝材の境界が消失せず、緩衝材飽和後も残存し、水みちや核種移行の経路となる可能性もある。緩衝材境界部における鉄腐食生成物の生成は日本原子力研究開発機構が参画したSKB（スウェーデン放射性廃棄物管理機関）による国際共同研究の中のABM(Alternative Buffer Material)プロジェクト(Eng et al., 2007)を通じて得られた鉄製ヒーター接触試料においても確認されている（日本原子力研究開発機構, 2011）。図2.2-9に示すように、鉄製ヒーター接触部および近傍に設置されていた温度センサー埋設部分に生じた亀裂部に沿ってベントナイトが褐色に変色している。この試料については、鉄製ヒーター接触部から未変色のベントナイト部分にかけて採取された試料を用いた透水試験が実施され、鉄製ヒーターに近い部分ではやや高い透水係数であったことが報告されている（日本原子力研究開発機構, 2011）。このような状態も含め、過渡期に生じる状態が長期的にどのような影響を及ぼしうるかを今後調査する必要がある。

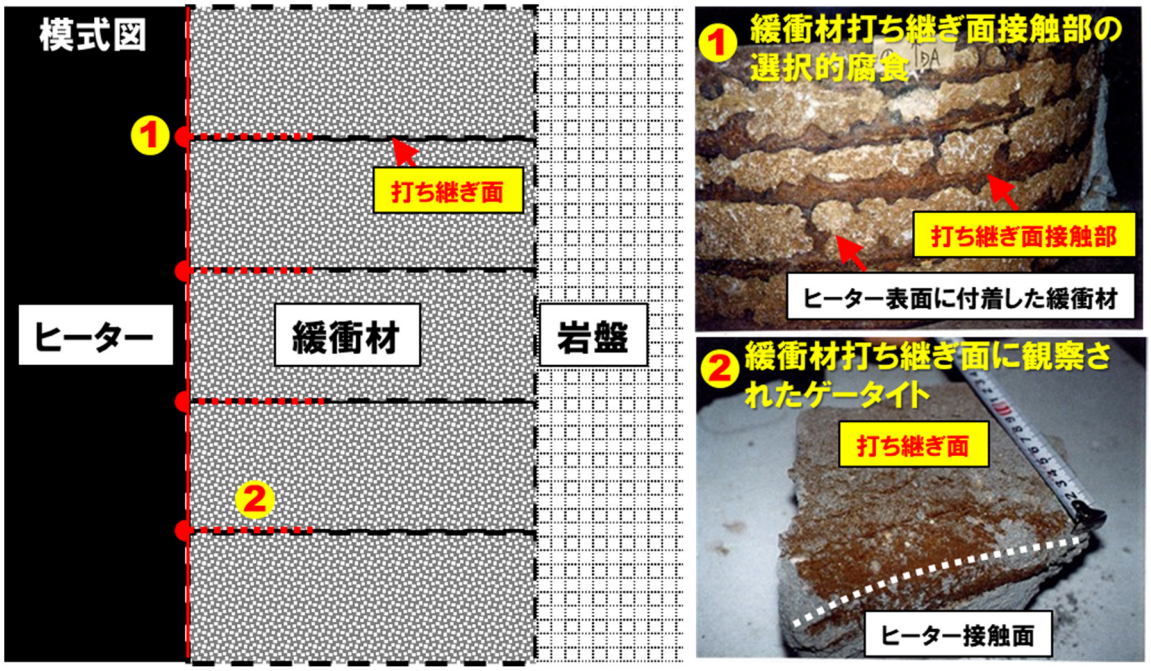


図2.2-8　釜石鉱山で実施された粘土充填・熱負荷試験の模式図と解体時の観察された状態
（写真は炭山 (1999)より転載）

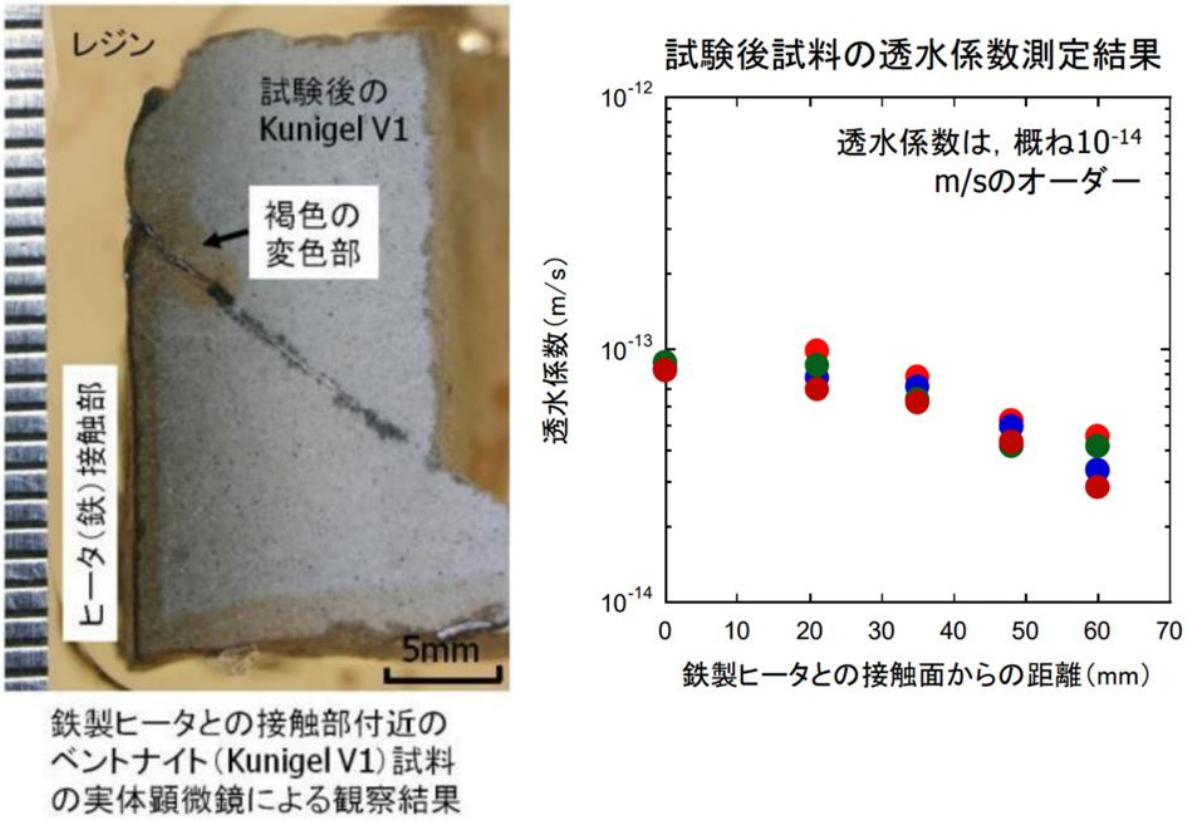


図2.2-9　鉄製ヒーター接触部および亀裂部に観察された変色部と試料の透水試験結果
（日本原子力研究開発機構 (2011)の図を編集して転載）

(c) 課題の抽出

上述の通り、幌延URLの350 m試験坑道において実施したオーバーパック腐食試験試料の調査を通じ、室内試験では得られない、工学スケールの不均一状態等に起因した、腐食挙動が観察された。主なものに対する課題を以下に示す。一部、既往成果の知見を含む。

・オーバーパック/緩衝材接触境界領域の不均一状態の形成による不均一な腐食（図2.2-10(a)）

幌延URLのオーバーパック腐食試験では、ケイ砂混入により模擬オーバーパックと緩衝材の境界領域に不均一状態が形成され、酸素供給量の違いによるとみられる不均一な腐食が観察された。

【課題】

酸素の消費に伴い不均一腐食の進展は停止し、容器寿命への大きな影響はないと推定される。一方、緩衝材中の腐食生成物の沈殿やその分布（厚さ）の不均一がオーバーパックの長期腐食や緩衝材基本特性、核種移行に与える影響は現在のところ不明である。

・オーバーパック/緩衝材接触境界領域の腐食生成物の生成（図2.2-10(b)）

幌延URLのオーバーパック腐食試験では、腐食センサーの試料極に接触していた緩衝材中にシデライトやゲータイトといった腐食生成物の生成が確認された。また、図2.2-9に示すように、国際共同研究ABMプロジェクトでは、鉄製ヒーターとの接触面近傍の緩衝材の透水係数の増加が確認されている（日本原子力研究開発機構, 2011）。

【課題】

ゲータイトは比較的安定な腐食生成物とされており、低酸素状態においても残存し、オーバーパックの長期腐食へ影響する可能性がある。また、シデライトやゲータイトといった腐食生成物の生成領域の厚さによっては緩衝材基本特性や核種移行へ影響する可能性がある。

・緩衝材境界部接触面における腐食の促進（図2.2-10(c)）

図2.2-8に示すように、釜石鉱山で実施された粘土充填・熱負荷試験において、緩衝材の境界（打ち継ぎ部）と接触していた炭素鋼製ヒーターの表面に不均一腐食が観察された。また、緩衝材境界に腐食生成物（ゲータイト）の沈殿が観察された（炭山, 1999）。

【課題】

酸素の消費に伴い緩衝材境界部接触面における不均一腐食の進展は停止し、容器寿命への大きな影響はないと推定される。一方、緩衝材境界部の腐食生成物の沈殿がオーバーパックの長期腐食、緩衝材基本特性、核種移行、岩盤側からの微生物の移行に与える影響は現在のところ不明である。

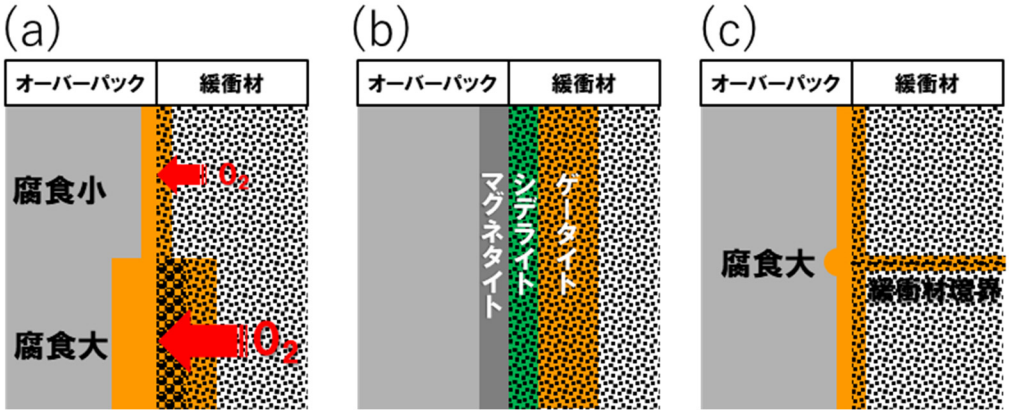


図2.2-10　工学スケールの不均一状態等に起因した腐食挙動

2) ベントナイト中の微生物活性に関するデータ取得

地下の原位置環境に設置された緩衝材中の微生物活性挙動が模擬オーバーパックの腐食反応に及ぼす影響を評価するために、令和2年度までに（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2019；2021）、幌延URLの350 m試験坑道において実施したオーバーパック腐食試験の微生物調査を実施し、オーバーパック腐食試験に用いた緩衝材中の微生物の現存量および種組成に関するデータを取得した。その結果、オーバーパック腐食試験中に90 °C程度の高温環境であった模擬オーバーパック近傍を含め、ほぼすべての試料から微生物が検出され、硫酸還元菌等の腐食に影響を及ぼす可能性のある微生物種も優占種として検出された。一方で、これまでの原位置試験に関わる一連の分析結果から、模擬オーバーパック表面で検出された腐食生成物は、鉄酸化物やシデライトであることが明らかになっていることから、原位置試験において検出された腐食生成物や腐食反応には硫酸還元菌等の微生物腐食が関与している可能性は極めて低いと推察された。緩衝材試料中からは、貧栄養状態などの極限環境でも生き延びることができる種や、環境条件が悪化すると芽胞を形成して休眠状態になる種などが多く検出されたことから、試験過程の緩衝材内部は微生物増殖に適していなかったことが示唆された。原位置試験中は、模擬オーバーパック中心に設置されたヒーターにより模擬オーバーパック近傍が90 °C以上の高温と

なり、緩衝材飽和後は住処としての空間や栄養塩の供給が制限されることにより、微生物は緩衝材内部で低活性状態か休眠状態であったと推察された。

令和3年度（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2022）は、様々な条件下における緩衝材内部の長期的な微生物活性挙動を評価するために、地質学的に古い年代である(12 - 16 Ma)月布ベントナイト鉱山の原鉱石等を用いて、微生物現存量や種組成などのデータを拡充するための分析を実施した。また、月布ベントナイト鉱山から産出された市販のベントナイトについても微生物分析を実施した。様々な条件下における緩衝材内部の長期的な微生物活性挙動を評価するために、地質学的に古い年代である月布ベントナイト鉱山の原鉱石、同原鉱石を原料とする市販ベントナイト（粉末状のクニゲル V1およびクニピア F）、幌延 URL における原位置試験の緩衝材ブロック（試験使用前の試料）を用いて、微生物現存量や種組成などのデータを拡充するための分析を実施した。その結果、対象試料中の DNA 解析の結果から、原鉱石および緩衝材ブロックの試料内部には複数種の微生物が存在していたが多様性は低く、微生物活性を抑制する条件として高乾燥密度、低水分量、低空隙率等が重要であることを示唆する知見を拡充できた。さらに、市販のベントナイトの微生物群集は原鉱石と比較して多様性が高く微生物が混入した可能性があること、高密度の緩衝材ブロックに加工することにより微生物増殖が抑制できる可能性があることが示された。

令和4年度は、本事業で取得したデータとこれまでの知見を考察し、地層処分環境における緩衝材中の腐食反応に関わる微生物活性挙動の現象理解とその整理を行い、性能評価上の微生物影響の取り扱いについて、課題とともに提示した。

オーバーパックの腐食挙動に及ぼす微生物影響については、諸外国において精力的に研究が進められてきており(Stroes-Gascoyne et al., 2010; King et al., 2012; Smart et al., 2017)。国内においても処分容器の微生物腐食影響について知見が集積されてきた（核燃料サイクル開発機構, 1999a ; 和田ほか, 1998 ; 西村ほか, 1999）。しかしながら、国内における知見は、数週間から3か月程度の短期の試験結果をもとに評価が行われていることや、主に単離株を用いた硫酸還元反応を主体とした評価に限定されていることから、微生物腐食の影響を判断するための十分な知見が蓄積されているとは言えない状況であった。また、諸外国で知見が蓄積されているベントナイトは、MX-80 Wyoming bentonite（以下、「MX-80」という）であり、日本における地層処分システムに用いられる候補材料を対象とした微生物影響に関するデータを拡充する必要があったことから、クニゲルV1とケイ砂の混合材料を緩衝材として、異なる乾燥密度にて炭素鋼片への微生物腐食影響を評価する室内試験が実施されている。その結果、1.6 g/cm^{3}の乾燥密度、温度50 °C条件下では、1年間にわたって緩衝材中の微生物活性は抑制されており、微生物腐食はほとんど生じていないことが示された（日本原子力研究開発機構 ; 2018a）。一方で、乾燥密度1.0 g/cm^3、温度30 °Cの条件下では、微生物腐食が著しく促進される結果が得られており、緩衝材の設計条件によっては微生物腐食影響が顕著になる可能性が示唆されている（日本原子力研究開発機構, 2018a）。諸外国では、これまでの室内および原位置試験において得られた成果に基づき、緩衝材内部において微生物活性を抑制する条件として、水分活性 a_w<0.96、膨潤圧 >2 MPaに維持することが望ましく、そのためにはMX-80100 %）を用いた場合において1.6 g/cm^{3}以上の乾燥密度を保持するか、あるいはベントナイト中の間隙水の塩分濃度を≤50 g L^{-1}あるいは＞100 g L^{-1}に保つことが重要であるとされている（表2.2-3、例えばStroes-Gascoyne et al., 2010）。膨潤圧が高くなればなるほど緩衝材中の水分活性が低下し、かつ空隙サイズも微小になることから、微生物の居住空間としては極めて過酷な環境となることが予想される。MX-80(100 %)を緩衝材として用いた場合、乾燥密度1.6 g/cm^{3}での膨潤後の空隙サイズは間隙水の塩分濃度の増加に伴い大きくなるものの、0.005 - 0.1 μmの範囲（平均値 ; 0.02 μm）で分布することが示されている(Stroes-Gascoyne et al.,

2010)。一般的に、微生物（ここでは細菌と古細菌）の最小サイズは0.2 - 0.3 μmと考えられており(Knoll, 1999)、飢餓状態あるいは超ミクロの細菌の大きさは0.2 - 0.4 μmと報告されている(Krumholz et al., 1997)。これは生命活動を維持するために必要な生体分子（細胞膜やタンパク質、リボソーム、ゲノムDNAなど）を含むサイズという観点からも妥当な大きさである。しかしながら、微生物の中には、0.2 μm以上のサイズ径を有している場合であっても、その細胞のしなやかさによって0.1あるいは0.2 μm孔径のフィルターを通過したり(Wang et al., 2008)、環境状態によってサイズを変えるものが存在する(Kuhn et al., 2014)。ただし、それらの微生物サイズや生態は特殊なケースであり、それを踏まえたとしても、緩衝材の空隙サイズが0.1 μmより小さい場合には、微生物の増殖は制限されるものと考えられる。一方で、海外で検討されているMX-80や日本におけるクニゲルV1、クニピアF等の様々な種類のベントナイトやベントナイトとケイ砂混合の緩衝材の特性を比較するために、緩衝材中のモンモリロナイト含有量を指標とした「有効モンモリロナイト密度」を用いて整理する試みがなされている（佐藤, 2009）。クニゲルV1(70 %)とケイ砂(30 %)の混合物を緩衝材とした場合には、有効モンモリロナイト密度は1.0 g/cm^{3}程度であり（ベントナイト中のモンモリロナイト含有率0.59の場合）、MX-80(100 %)の場合に微生物活性が抑制される乾燥密度1.6 g/cm^{3}は有効モンモリロナイト密度にして1.4 g/cm^{3}であることから、日本で検討されているベントナイトおよびケイ砂の混合物を緩衝材として用いた場合には、MX-80（100 %）の場合と比べると膨潤圧や水分活性条件が微生物抑制に十分でない可能性がある（図2.2-11）。したがって、諸外国で所得された抑制条件がクニゲルV1等の国内のベントナイト材料にも適用可能であるかを検討し、日本において使用が検討されているベントナイト材料を対象として、緩衝材内部の微生物活性を抑制する要因とその条件を提示する必要がある。

表2.2-3　緩衝材中の微生物活性を抑制する要因の例

人工バリア条件の項目	微生物活性を抑制する条件	参考文献
緩衝材乾燥密度	>1.6 g/cm^3 (MX-80の場合)	King et al.(2012) Stroes-Gascoyne et al.(2010)
有効モンモリロナイト密度	>1.4 g/cm^3	King et al.(2012) Stroes-Gascoyne et al.(2010)
膨潤圧	>2 MPa	King et al.(2012) Stroes-Gascoyne et al.(2010)
水分活性	a_w <0.96	King et al.(2012) Stroes-Gascoyne et al.(2010)
空隙サイズ	0.2 μm未満	Knoll(1999)
温度	明確な温度はない （幅広い温度で増殖可能）	
	最高生息温度：122℃	Takai et al.(2008)
	60℃以上では，バイオフィルムの形成は抑制される	Else et al.(2003)

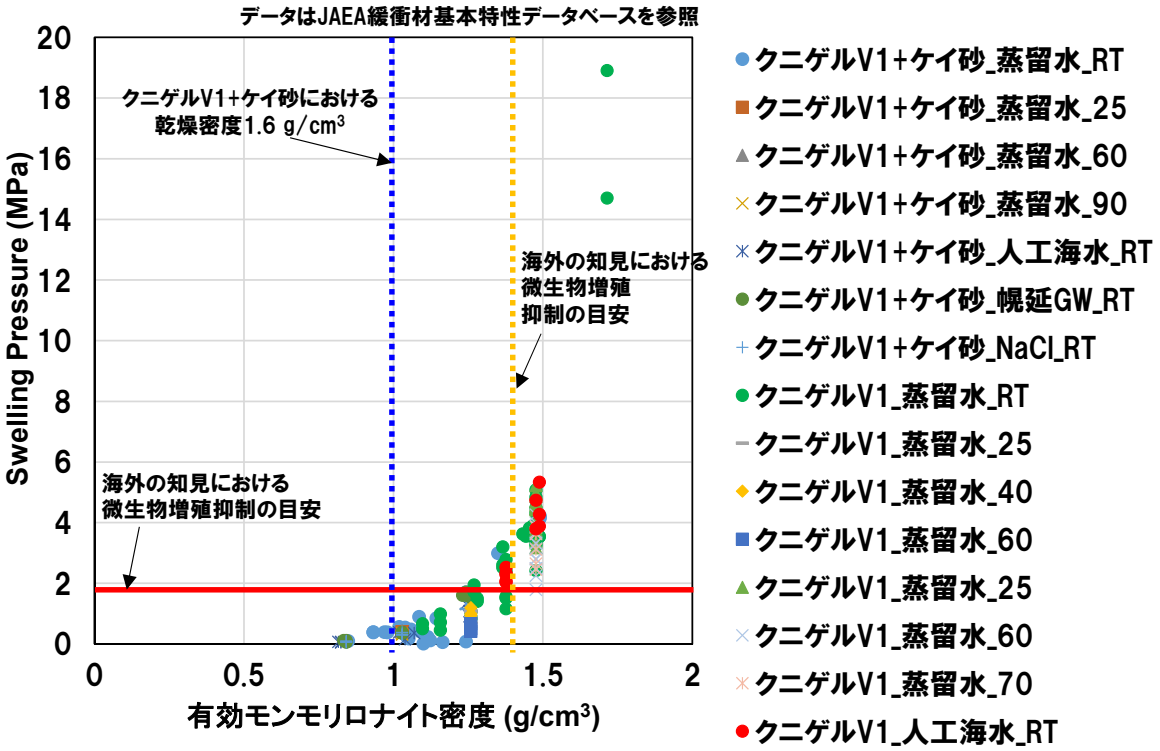


図2.2-11　有効モンモリロナイト密度と膨潤圧の関係

幌延URLの350 m試験坑道におけるオーバーパック腐食試験を対象として、緩衝材中の微生物特性調査を行った結果、ほぼすべての試料から微生物が検出され、硫酸還元菌等の腐食に影響を及ぼす可能性のある微生物種も優占種として検出されたが、約3.5年の原位置試験期間中において検出された腐食生成物や腐食反応には、硫酸還元菌等の微生物腐食が関与している可能性は極めて低いと推察された。緩衝材中から多くの微生物が検出された理由として、緩衝材中に設置時に想定よりも多くのケイ砂が混入したため、ケイ砂混入部の空隙サイズが大きくなり、微生物も混入・増殖しやすい環境が形成されたと推測された。この場合、ケイ砂混入に伴い緩衝材中の有効モンモリロナイト密度は変化していることが予想され、その変化が膨潤圧にも影響していることが考えられる。したがって、オーバーパック腐食試験において混入したケイ砂の混合率を考慮して、実測した乾燥密度から有効モンモリロナイト密度を算出した。図2.2-12にオーバーパック腐食試験における緩衝材中の乾燥密度と生菌数の関係を示す（図2.2-12(a)）。また、混入したケイ砂の混合率を考慮して算出された有効モンモリロナイト密度と、生菌数との関係についても考察した（図2.2-12(b)）。ケイ砂混合率は、日本原子力研究開発機構（2020)で報告された値を参照し、有効モンモリロナイト密度の算出には、佐藤（2009)を参照した。それぞれの試料中の生菌数について、市販のクニゲルV1の生菌数である1 × 10^3 CFU/ g（吉川ほか, 1995）をバックグラウンド値として比較し、原位置環境にて増殖しているか否かの判断基準とした。その結果、乾燥密度の実測値は、1.6 - 1.7 g/cm^3の範囲で検出されていたが、乾燥密度が1.6 g/cm^3より高い場合においても生菌数がバックグラウンド値を上回っている試料が多く認められた。乾燥密度を測定するための緩衝材試料は、比較的均一な部分から数箇所採取されていることから、不均一性を反映した結果ではない可能性がある。有効モンモリロナイト密度については、0.9 - 1.17 g/cm^3の範囲で分布しており、ケイ砂混入率が高い試料ほど有効モンモリロナイト密度が低い値で算出された。クニゲルV１をベースとしてケイ砂を30 %混合した乾燥密度1.6 g/cm^3の緩衝材では、有効モンモリロ

ナイト密度が約0.95 g/cm^{3}になるが、原位置オーバーパック試験の緩衝材試料で有効モンモリロナイト密度が約0.95 g/cm^{3}の試料のうち、特に高い生菌数を示したものは、いずれも模擬オーバーパック表面近傍から採取されたものであり、緩衝材施工の不均一性が微生物の混入および増殖も重要な要因となっていることが示された。

微生物増殖が可能になる要因としては、微生物の住処としての空隙サイズが増加することが考えられる。緩衝材中にベントナイトに加えてケイ砂を混合することによりマクロ空隙が形成され、乾燥密度1.97 g/cm^{3}で10 μm、1.6 g/cm^{3}で50 μm程度の大きい空隙サイズが存在することが報告されている(Wang et al., 2013; Cui, 2017)。一般的な微生物の最小サイズは約0.2 μmであることから、この程度の空隙は微生物増殖が可能なサイズであり、膨潤圧が飽和に達するまでの緩衝材の膨潤過程において緩衝材中に微生物が侵入した場合、あるいは膨潤過程でもともとベントナイト中に存在する微生物に水分が供給された場合には、これらの空隙を利用して微生物が増殖する可能性が十分に考えられる。また、緩衝材の乾燥密度を高く設定した場合でも、施工に不均一性が認められる場合は、比較的低密度や不均一な領域に特異的に微生物が増殖する可能性がある。したがって、微生物活性が抑制される乾燥密度の範囲について、膨潤圧や水分活性の観点からも、日本で検討されている緩衝材を対象とした微生物活性のデータを拡充することが重要であると考えられる。一方で、これらの生菌数は、プレート培養法によって求められた値であり、実際の原位置の約90 °Cの高温環境下では増殖せずに活動していなかった可能性がある。理由として、好気性菌および通性嫌気性菌は検出されているが、嫌気条件下ではいずれの試料からも菌が検出されなかったこと、培養されたコロニーの16S rRNA遺伝子を対象としたDNA解析結果から、*Alphaproteobacteria*に属する*Methylobacterium*（相同性98.6 %）、*Firumicutes*に属する*Geobacillus stearothermophilus* strain ST-YPD（相同性：98.9 %）、*Betaproteobacteria*に属する*Methylophilales*（相同性：97.8 %）に近縁な種が検出されており、検出されたいずれの微生物も腐食反応に関与する可能性は低く、また高温環境下で増殖可能なもので環境条件が悪化すると芽胞を形成し休眠状態に陥ることができるもの（環境条件が回復すると、また活動開始することができる）であったことが挙げられる。DNA解析や腐食生成物の分析結果からは、微生物量はいずれの試料も極めて低い濃度であることが示されており、また腐食に影響を与えうる硫酸還元菌に近縁な種が検出されているものの、腐食生成物として硫化物が検出されていないことから、微生物腐食の影響は限定的であったことが推察される。この理由として、①緩衝材中の温度が90 °Cと高温であったこと、②緩衝材膨潤後は、空隙が大きいサイズでも数10 μmであり、一定量増殖後は、増殖可能な空隙サイズが不足すること、③各空隙間に連結性がなければ増殖に必要な栄養塩の供給が不足すること、などが考えられる。実際、月布ベントナイト鉱山から採取したベントナイト原鉱石からは、好気性生菌数は非常に低い密度で検出されているものの、嫌気性菌は検出されなかった（図2.2-13）。したがって、緩衝材膨潤後は、長期にわたって微生物活性は低い状態で保持されていると考えられる。一方で、緩衝材中から好気性菌や酸化菌が検出されている事実からは、オーバーパック腐食試験装置設置後に混入した酸素をこれらの好気性菌が積極的に消費し、膨潤過程における微生物活性によって還元環境の回復が促進されていることが示唆された(Amano et al., 2012)

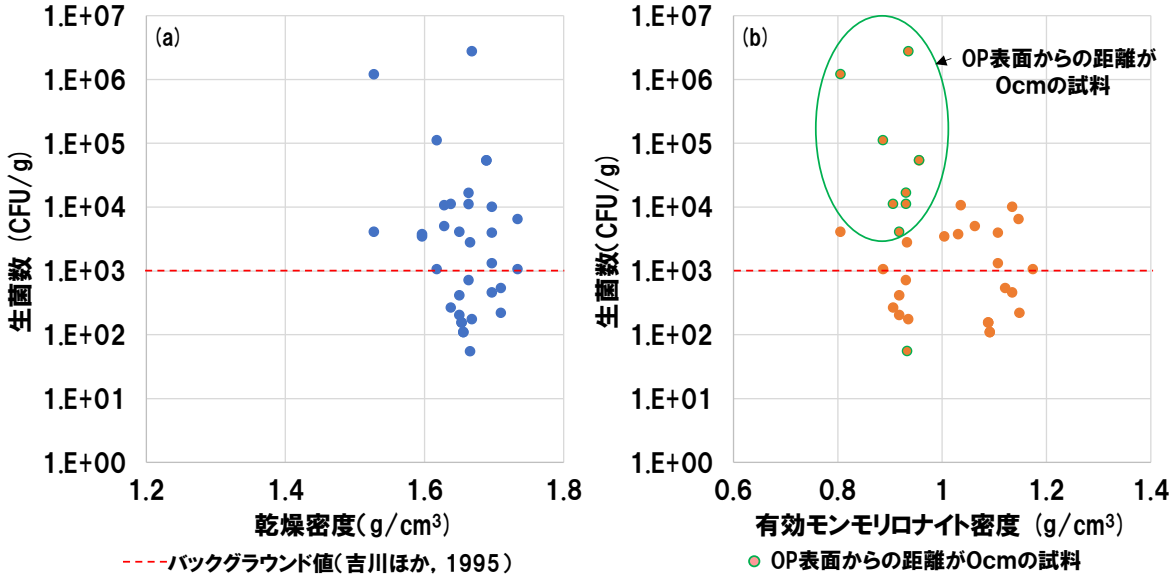


図2.2-12　幌延URLにおける原位置オーバーパック腐食試験で取得された乾燥密度と生菌数の関係

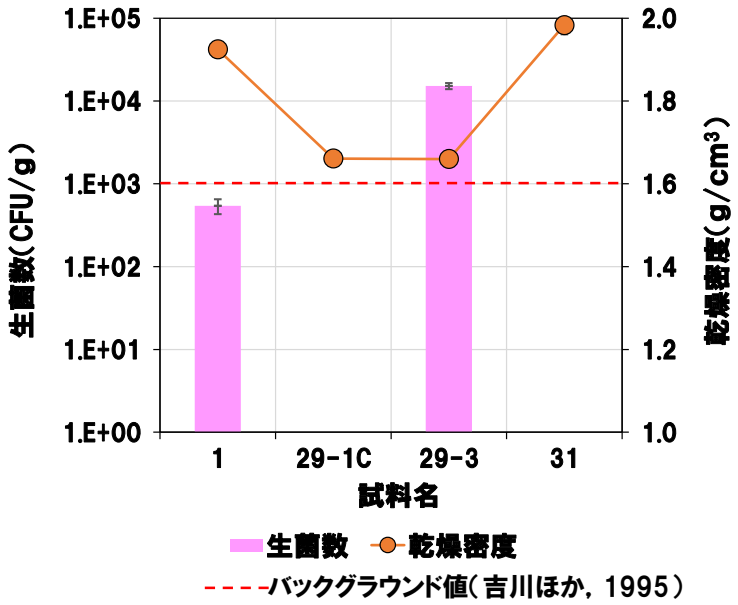


図2.2-13　月布ベントナイト原鉱石における乾燥密度と生菌数の関係

微生物増殖を抑制には、膨潤圧、乾燥密度等複数の因子が関係しており、特に原位置環境における試験を対象とした場合には複雑な要因が絡み合っていると想定される。しかしながら、微生物活性の抑制因子については、環境中に存在する複数因子のうち、実際に抑制効果を有意にもたらす因子の特定が難しい。そのため、複数の要因の関係性について重要な情報を抽出するために、正準対応分析(Canonical Correspondence Analysis: CCA)を用いて生物群集と環境要因の関係について解析をおこなった。CCAは、複数の目的変数に対して複数の変数がどう説明するかを見ることができる解析手法の一つで、近年生物生態学と環境因子の関係を考察する目的で使用されている（鈴木・竹中, 2009）。本研究の解析では、環境因子には、生菌数、DNA濃度、水分量、乾

燥密度、ケイ砂混合率の実測値、ケイ砂混合率から算出した有効モンモリロナイト密度を用いた。微生物群集組成には、緩衝材中から抽出したDNAについて16S rRNA遺伝子の解析結果から得られた種組成を目レベルで使用した。その結果、プロットされたデータとそれぞれの微生物群集組成データ等を詳細に確認することで、各試料は主に「地下水混入グループ」「地下水混入＋増殖グループ」「ケイ砂混入グループ」の3つのグループに区分されることが示された（図2.2-14）。「地下水混入グループ」は、有効モンモリロナイト密度と相関が認められ、地下水中に存在していた微生物が緩衝材中に混入したと考えられる領域であり、絶対嫌気性微生物群集により構成されている。また、「ケイ砂混合グループ」では、ケイ砂混合率と相関が認められ、地下水混入グループよりも比較的酸素に耐性がある、あるいは好気性の微生物群集で構成されている。「地下水混入＋増殖グループ」は、従来地下水中に存在していた微生物に加えて、酸素を用いた代謝を行う微生物、発酵菌などが緩衝材内部で有意に増殖していると推察されるグループで構成されており、生菌数、乾燥密度およびケイ砂混合率と相関関係が認められている。本試験では、施工の過程でケイ砂が不均一に混入しているため、乾燥密度と有効モンモリロナイト密度は必ずしも相関関係を有しておらず、実測値として取得した乾燥密度は緩衝材の不均一性を十分に反映していない可能性がある。したがって、本解析結果は、実規模環境では、緩衝材の不均一性が生じている場合や膨潤過程において、好気性の微生物や発酵性の微生物が緩衝材内部で増殖する可能性を示唆している。このような実規模環境下では、乾燥密度のみを微生物抑制の指標として用いるのは十分でない可能性が高い。一方で、有効モンモリロナイト密度と相関関係を示す「地下水混入グループ」では、地下水中に生息する土着由来の微生物が検出されており、好気性微生物や発酵性微生物の増殖は確認されていない。この領域の緩衝材内部では、地下水の侵入とともに地下水中の微生物も混入するが、それらの有意な有意な増殖は認められないことから、有効モンモリロナイト密度が高い条件下では、緩衝材内部での微生物増殖は抑制されていることが示唆される。したがって、原位置環境のような実規模を対象とした環境下における緩衝材中の微生物抑制因子としては、乾燥密度ではなく、有効モンモリロナイト密度を用いる方がより現実的で信頼性が高くなる可能性が示唆された。

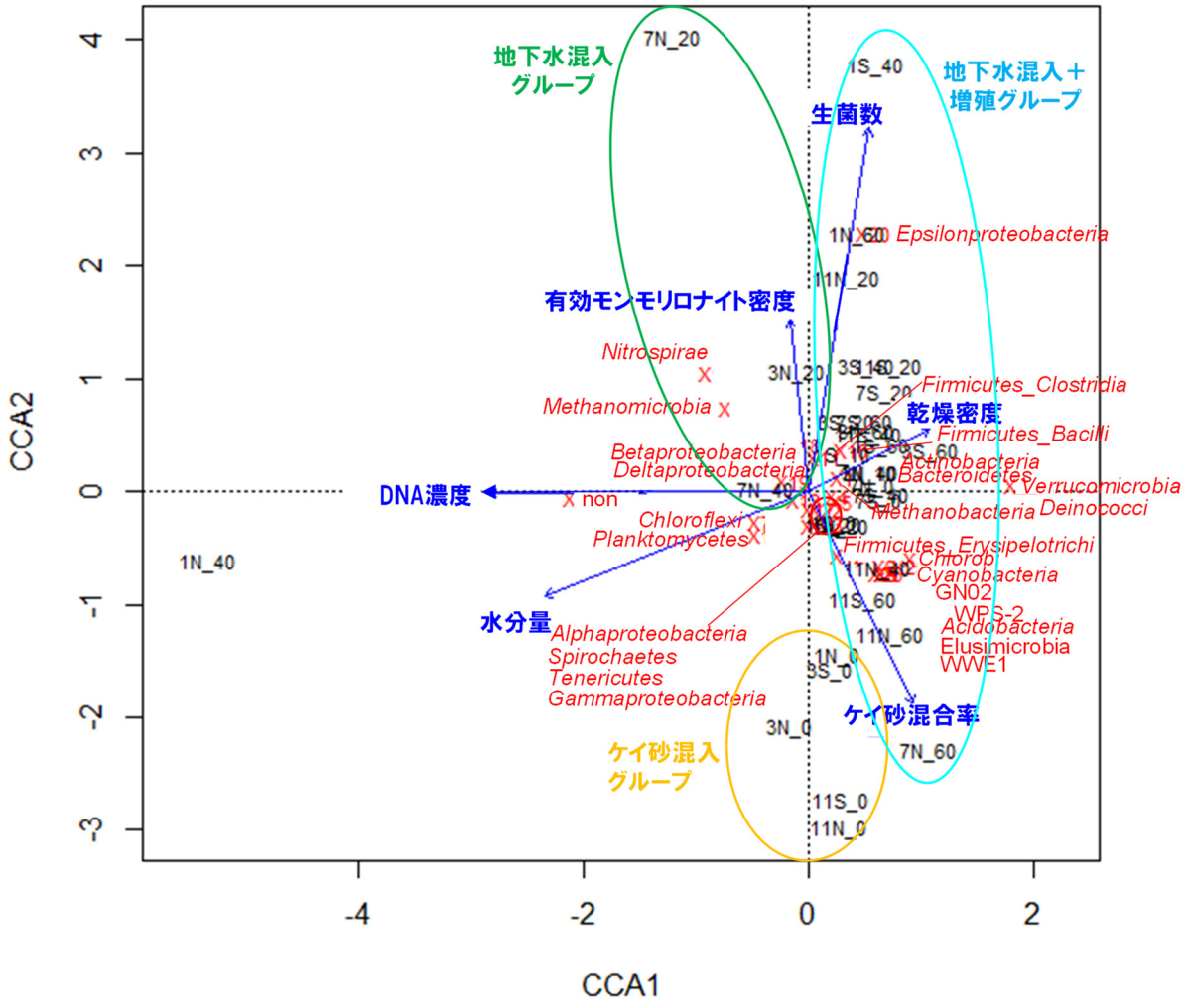


図2.2-14　微生物群集組成と緩衝材の物理化学因子を用いた正準対応分析結果

本事業で得られた成果およびこれまでの知見を踏まえて、地層処分システムの人工バリア性能に及ぼす微生物影響評価フローを作成した（図2.2-15）。評価フローには、King (2009)による処分環境における微生物腐食の可能性に関する検討結果を一部参照し、緩衝材中および岩盤中の微生物挙動に関わる現象を追記した。また、作成した評価フローに基づき、現段階で微生物腐食の原因となる可能性のある事象を抽出し、それらの事象について現段階での判断およびその根拠を取りまとめた（表2.2-4）。その結果、微生物は、人工バリア設置時に緩衝材等の人工バリア材料から緩衝材内部に持ち込まれるとともに、緩衝材の膨潤過程において岩盤側から地下水の流入とともに地下環境に生息していた微生物が緩衝材内部に侵入する可能性があるものの、緩衝材膨潤後、緩衝材に期待された機能が十分に発揮されることにより、微生物活性は抑制されると考えられる。また、本研究で実施したオーバーパック腐食試験における緩衝材中の微生物調査結果から、多くの好気性菌が検出されていることからも、膨潤過程で侵入した酸素は、微生物反応によっても消費されることが示唆された。すなわち、地層処分システムの人工バリア性能に及ぼす微生物

影響は、緩衝材膨潤過程において緩衝材内部に侵入した微生物の働きにより酸素が速やかに消費され、還元環境回復の促進が期待できるという点で、悪影響のみではなくポジティブな影響も想定される。一方で、施工の不均一性などの観点から人工バリアの施工条件が十分に満たされていない場合や、緩衝材の膨潤過程においては、微生物による緩衝材中の移行、活性化、金属容器腐食に対して有意なレベルの腐食性代謝産物の生成が可能になると推測される。硫酸還元菌等の腐食に寄与する可能性のある微生物も侵入・増殖する可能性があり、緩衝材の膨潤の速さおよび均一な施工が微生物影響を低減させる上で極めて重要であると考えられる。また、実際の処分環境下では、オーバーパック周辺の温度は経時的に低下することが予測されており、施工の不均一性に伴い微生物が生息可能な空隙サイズが存在する場合には、温度の低下とともに微生物が増殖可能な環境に近づくことが懸念される。

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

オーバーパックの腐食に及ぼす微生物影響については、国内外における室内試験や原位置試験で知見が集積しており、期待される緩衝材の機能が十分に発揮される環境下では、微生物腐食の影響は排除できると考えられるが、現段階の知見では、環境条件によって不確実性が残されているのが現状である。長期にわたって処分容器に及ぼす微生物腐食影響を除外できることを示すためには、実際の地下環境や処分環境を模擬した様々な条件下かつ長期的なスケールで微生物増殖が十分に抑えられていることを示すデータを蓄積することが重要であると考えられる。

本事業成果を踏まえて、微生物腐食の抑制条件および要因を評価する上で、今後の課題として下記の項目について知見を拡充する必要があると考える。

1. 日本のベントナイト材料を対象とした緩衝材の乾燥密度・膨潤圧と空隙サイズに関するデータの拡充
2. 施工時の緩衝材の不均一性と空隙の連結性に関するデータの拡充
3. 緩衝材の膨潤速度や水分活性と微生物活性の関係性に関するデータの拡充
4. 岩盤中の微生物が硫酸還元反応等の腐食反応に関与する潜在能力に関するデータの拡充

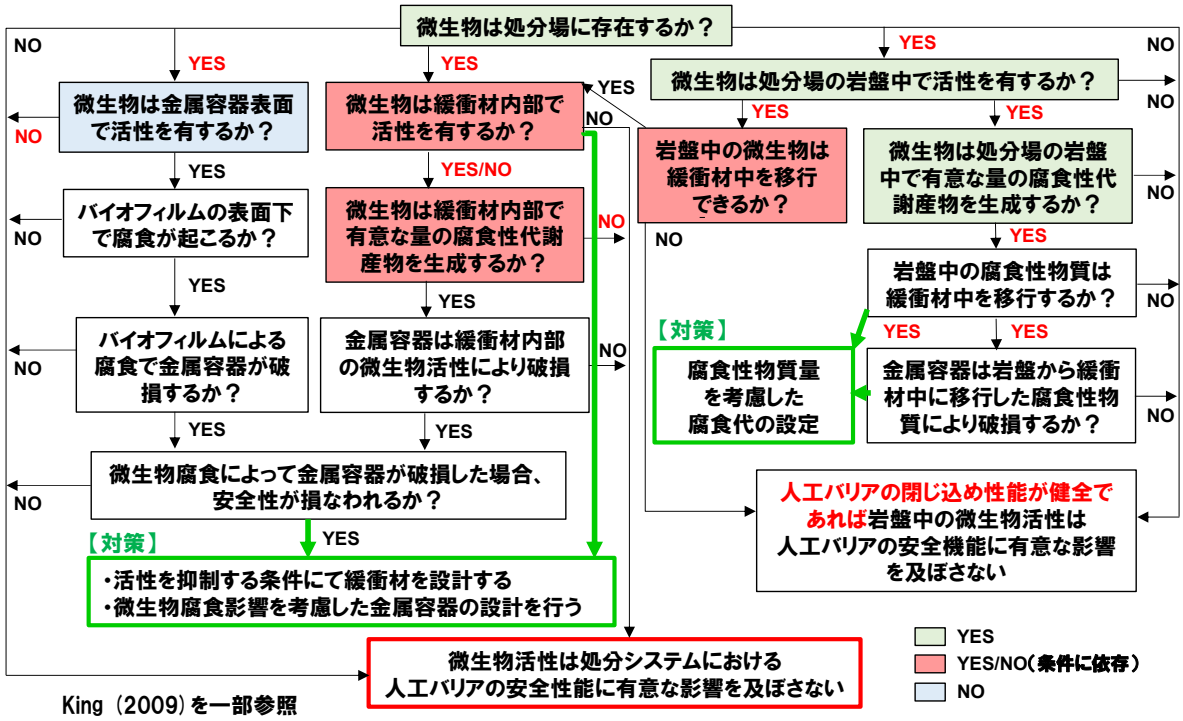


図2.2-15　地層処分システムの人工バリア性能における微生物影響評価フロー
（King, 2009を一部参照）

表2.2-4　微生物腐食の原因となる可能性のある事象と現段階での判断およびその根拠

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

(2) 広範な環境条件での室内試験

先行事業「先進的地層処分概念・性能評価技術高度化開発」（日本原子力研究開発機構, 2013a）において、地震活動による地下水水質の変動を想定し、サイト選定で除外されると考えられる高温水、酸性水なども含めて、幅広くわが国の地下水の条件の整理が行われた。この整理結果を踏まえ、先行事業「処分システム評価確証技術開発」（日本原子力研究開発機構, 2014；2015a；2016a；2017；2018a）において、高塩濃度環境、高温水環境、酸性水環境、炭酸ガス環境を含む広範な環境条件での腐食試験が行われ、腐食データが取得された。

広範な環境条件における浸漬試験は、これまでに長期試験を含めて継続して実施してきており、炭酸ガス環境を対象に、平成30年度は浸漬期間1年、平成31年度は浸漬期間3年の腐食データをそれぞれ本事業において取得した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2019；2020）。令和2年度は、高NaCl濃度環境を対象に浸漬期間1年および3年の腐食データを取得した。令和3年度は、温度など環境条件の連続的な変化に対する腐食挙動の応答に関するデータを取得するため、試験期間中に温度を変更する浸漬試験や高温水環境を対象とした長期腐食試験を実施し、腐食量や水素濃度などの腐食データを取得した。

また、炭酸塩環境での応力腐食割れ感受性について、これまでに、炭素鋼の不働態化を促進する化学種である炭酸塩とは対照的な作用である不働態化を阻害する、または不働態皮膜を破壊する作用を有する化学種に着目し、炭酸塩溶液に塩化物イオンまたは硫酸イオンを添加した条件でのデータを取得した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2019；2020）。希釈した人工海水環境での応力腐食割れ感受性については、沿岸部を想定した地下水条件での水素脆化感受性を評価するため、一部の濃度でのデータを取得した（産業技術総合研究所ほか, 2019）。

令和4年度は、引き続き、広範な環境条件におけるデータを取得するため、浸漬試験および応力腐食割れ試験を実施した。以下では令和4年度中に得られた高硫酸塩および高炭酸塩条件での浸漬試験結果、炭酸塩環境、高炭酸ガス環境、希釈した人工海水環境、酸性水環境での応力腐食割れ試験について述べる。

1) 広範な環境条件における浸漬試験

① 試験方法の概要

図2.2-16に示すように、チタン製カラム内に炭素鋼試験片と緩衝材（ケイ砂混合ベントナイト）を入れ、緩衝材が所定の密度になるように圧縮成形した。密閉容器に所定の試験溶液とチタン製カラムを浸漬し、温度80 °Cに設定した恒温槽内に静置して試験を実施した。

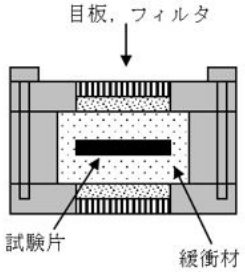


図2.2-16　チタン製カラムの模式図

② 試験片

試験片は、従来の条件に準じて以下のとおりとした。

・炭素鋼材質：JIS G 3106 SM400B (C:0.13, Si:0.20, Mn:1.04, P:0.017, S:0.006 mass%)

・試験片形状：浸漬試験用30×30×2 mm、水素試験用30×10×2 mm

・表面仕上げ：エメリー＃800湿式研磨

③ 緩衝材

緩衝材は、従来の条件に準じて以下のとおりとした。

・組成：30 wt%ベントナイト（クニゲルV1）＋30 wt%ケイ砂混

・密度：1.6 Mg/m^3

④ 試験手順

チタン製のカラム内に炭素鋼試験片と緩衝材を入れ、緩衝材が所定の密度になるように圧縮成型した。試験溶液はNa_2SO_4と$NaHCO_3$を使用し、窒素雰囲気のグローブボックス中（気相部酸素濃度1 ppm以下）で24時間以上ボックス内のガスを試験溶液に通気することにより溶存酸素を除去した。気密容器にチタン製のカラムと試験溶液を入れて恒温槽に所定の期間静置した。試験条件を表2.2-5に示す。

表2.2-5　浸漬試験条件

溶液	濃度(mol/L)	温度(°C)	期間(days)
Na_2SO_4	0.06, 0.6, 飽和	80	30, 90, 365, 1,095※1
$NaHCO_3$	0.1, 0.2, 0.5	80	30, 90, 365, 1,095※1

※1：令和4年度実施

⑤ 微小部蛍光X線分析

(a) 分析試料

試験溶液としてNa_2SO_4を使用した条件については、腐食試験後に炭素鋼試験片から緩衝材を分離した後、炭素鋼試験片との接触面に直交する断面で試料を切断し、断面試料を作製した。Na_2SO_4の濃度条件0.06 mol/L、0.6 mol/L、飽和のそれぞれの試料を試料A、試料B、試料Cとする。

(b) 分析条件

試料A、B、Cについて、Fe等の濃度分布を把握するため、微小部蛍光X線分析装置（株式会社堀場製作所製XGT-9000）を用いた蛍光X線元素マッピングを行った。管電圧30 kV、管電流1,000 μA、X線照射径100 μm（広域分析）又は15 μm（詳細分析）とし、分析はいずれも真空条件とした。

⑥ 試験結果と考察

腐食試験後の試験片の外観を図2.2-17および図2.2-18に示す。試験片表面には灰色から黒色の皮膜が形成していて、試験期間が長くなるほど皮膜の色は濃くなる傾向が見られた。外観で一部褐色を呈するものは緩衝材が付着したものであり、また茶色に見えるものは取り出しの際に大気中で酸化したものと考えられる。脱スケール後の外観から表面はほぼ均一な全面腐食であり腐食の局在化は見られなかった。

X線回折結果を図2.2-19および図2.2-20に示す。従来の結果（谷口ほか, 2010）と同様に主な腐食生成物としてシデライト($FeCO_3$)が検出された。また、$NaHCO_3$溶液条件においてはシデライトの他にマグネタイト(Fe_3O_4)が検出された。いくつかの試験片でシデライトやマグネタイトのピーク強度が低い原因として、緩衝材によって試験片表面が覆われていることが考えられる。

腐食試験前後の試験片の重量減少から算出した平均腐食量と平均腐食速度を表2.2-6および表2.2-7に示す。平均腐食速度は平均腐食量を試験期間で除した値である。また、平均腐食量の経時変化を図2.2-21および図2.2-22に示す。Na_2SO_4と$NaHCO_3$のいずれの試験溶液においても、濃度が高いほど腐食量が小さくなる傾向が認められる。ただし、高$NaHCO_3$条件(0.5 M)では1,095日の腐食量のばらつきが大きく、一部は比較的大きな値となった。腐食生成物のX線回折結果では365日までの試験では検出されていないマグネタイトのピークが見られることから、腐食生成物皮膜の性状に変化が生じ、腐食速度にも影響した可能性がある。

作製した断面試料の光学像、微小部蛍光X線分析による広域元素マッピング像（赤：Al、緑：Fe、水色：Si）を図2.2-23、微小部蛍光X線分析による詳細元素マッピング像（緑：Fe、水色：Si）を図2.2-24、微小部蛍光X線分析によるFeライン分析結果を図2.2-25に示す。図2.2-23、図2.2-24および図2.2-25より、炭素鋼試験片との接触面近傍のFe濃度が高いことが分かる。また、図2.2-25より、Na_2SO_4濃度が高いほどFeの浸入深さが小さいことが分かる。この傾向は、図2.2-21に示した平均腐食量と同様である。図2.2-26には微小部蛍光X線分析による試料Aと試料Cの詳細元素マッピング像（緑：Fe、水色：Si、青：S、黄：Ca）を示す。試料CにはCaとSが重複して分布する白色の領域が確認でき、ジプサム($CaSO_4 \cdot 2H_2O$)もしくはアンヒドライト($CaSO_4$)といった硫酸カルシウム鉱物であると考えられる。炭酸水素イオンが存在する低酸素条件における鉄の腐食生成物はシデライトが一般的であるが、Caが共存する系ではCaを固溶し、$Fe_xCa_{1-x}CO_3$固溶体となることが知られている（谷口ほか, 2010）。Matamoros-Veloza et al. (2020)は、Caを固溶したFe炭酸塩鉱物がシデライトに較べて溶解度が高く、また保護性も低いと報告している。図2.2-27に示すように、試料Aは試料Cに較べて接触面近傍でのCaのカウント数が高く、両者のFe炭酸塩鉱物が固溶しているCaの量に差があること可能性がある。これらを踏まえると、緩衝材中の硫酸カルシウム鉱物の沈殿の有無が、間隙水中のCa濃度、腐食生成物の生成量や保護性に影響し、腐食量の違いを生じたことが示唆される。

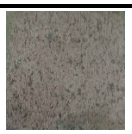
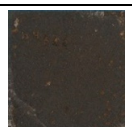
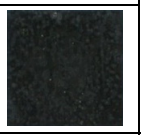
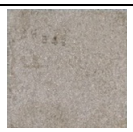
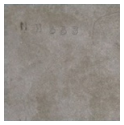
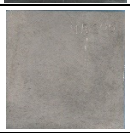
溶液	状態	期間(days)			
		30	90	365	1,095
0.06 mol/L Na_2SO_4	脱スケール前				
	脱スケール後				
0.6 mol/L Na_2SO_4	脱スケール前				
	脱スケール後				
飽和 Na_2SO_4	脱スケール前				
	脱スケール後				

図 2.2-17　腐食試験後の試験片の外観(Na_2SO_4)

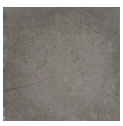
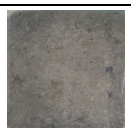
溶液	状態	期間(days)			
		30	90	365	1,095
0.1 mol/L $NaHCO_3$	脱スケール前				
	脱スケール後				
0.2 mol/L $NaHCO_3$	脱スケール前				
	脱スケール後				
0.5 mol/L $NaHCO_3$	脱スケール前				
	脱スケール後				

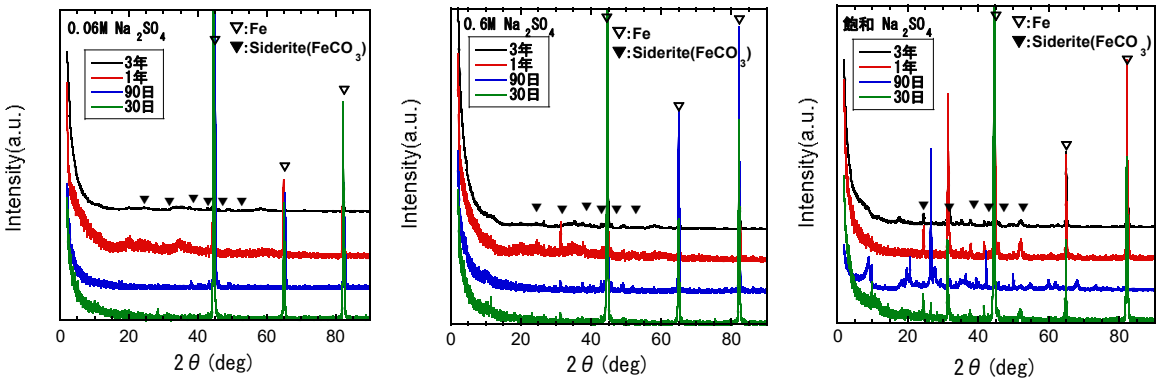
図 2.2-18　腐食試験後の試験片の外観($NaHCO_3$)

表2.2-6　試験片の重量減量から算出した平均腐食量および平均腐食速度(Na_2SO_4)

溶液	期間(days)	腐食量(mm)	腐食速度(mm/y)
0.06 mol/L Na_2SO_4	30	3.44×10^{-3}	4.18×10^{-2}
		3.00×10^{-3}	3.65×10^{-2}
		3.09×10^{-3}	3.76×10^{-2}
	90	6.28×10^{-3}	2.55×10^{-2}
		6.26×10^{-3}	2.54×10^{-2}
		6.37×10^{-3}	2.59×10^{-2}
	365	1.45×10^{-2}	1.45×10^{-2}
		1.46×10^{-2}	1.46×10^{-2}
		1.43×10^{-2}	1.43×10^{-2}
	1,095	1.54×10^{-2}	5.14×10^{-3}
		1.63×10^{-2}	5.43×10^{-3}
		1.50×10^{-2}	5.01×10^{-3}
0.6 mol/L Na_2SO_4	30	2.89×10^{-3}	3.52×10^{-2}
		2.78×10^{-3}	3.38×10^{-2}
		2.84×10^{-3}	3.46×10^{-2}
	90	5.86×10^{-3}	2.38×10^{-2}
		5.77×10^{-3}	2.34×10^{-2}
		6.32×10^{-3}	2.56×10^{-2}
	365	1.18×10^{-2}	1.18×10^{-2}
		1.14×10^{-2}	1.14×10^{-2}
		1.10×10^{-2}	1.10×10^{-2}
	1,095	1.14×10^{-2}	3.79×10^{-3}
		1.19×10^{-2}	3.95×10^{-3}
		1.16×10^{-2}	3.87×10^{-3}
飽和 Na_2SO_4	30	1.24×10^{-3}	1.50×10^{-2}
		1.99×10^{-3}	2.42×10^{-2}
		1.47×10^{-3}	1.79×10^{-2}
	90	1.39×10^{-3}	5.64×10^{-3}
		2.92×10^{-3}	1.19×10^{-2}
		1.28×10^{-3}	5.20×10^{-3}
	365	4.03×10^{-3}	4.03×10^{-3}
		3.82×10^{-3}	3.82×10^{-3}
		3.94×10^{-3}	3.94×10^{-3}
	1,095	3.44×10^{-3}	1.15×10^{-3}
		3.88×10^{-3}	1.29×10^{-3}
		3.67×10^{-3}	1.22×10^{-3}

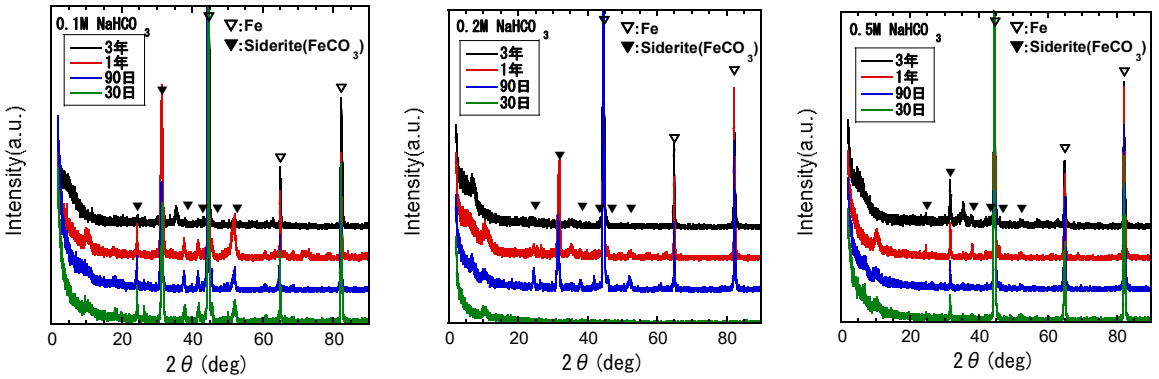
表 2.2-7　試験片の重量減量から算出した平均腐食量および平均腐食速度($NaHCO_3$)

溶液	期間(days)	腐食量(mm)	腐食速度(mm/y)
0.1 mol/L $NaHCO_3$	30	3.18×10^{-3}	3.84×10^{-2}
		3.23×10^{-3}	3.93×10^{-2}
		3.42×10^{-3}	4.16×10^{-2}
	90	5.28×10^{-3}	2.14×10^{-2}
		5.26×10^{-3}	2.13×10^{-2}
		4.93×10^{-3}	2.00×10^{-2}
	365	2.91×10^{-3}	2.91×10^{-2}
		2.56×10^{-3}	2.56×10^{-2}
		5.44×10^{-3}	5.44×10^{-2}
	1,095	3.67×10^{-3}	1.22×10^{-2}
		4.39×10^{-3}	1.46×10^{-2}
		5.77×10^{-3}	1.92×10^{-2}
0.2 mol/L $NaHCO_3$	30	2.63×10^{-3}	3.20×10^{-2}
		1.90×10^{-3}	2.32×10^{-2}
		3.13×10^{-3}	3.81×10^{-2}
	90	3.38×10^{-3}	1.37×10^{-2}
		2.44×10^{-3}	9.92×10^{-3}
		3.01×10^{-3}	1.22×10^{-2}
	365	1.19×10^{-3}	1.19×10^{-3}
		1.78×10^{-3}	1.78×10^{-3}
		1.39×10^{-3}	1.39×10^{-3}
	1,095	1.96×10^{-3}	6.52×10^{-4}
		1.96×10^{-3}	6.54×10^{-4}
		5.63×10^{-3}	7.93×10^{-4}
0.5 mol/L $NaHCO_3$	30	3.40×10^{-4}	4.14×10^{-3}
		5.10×10^{-4}	6.20×10^{-3}
		5.65×10^{-4}	6.87×10^{-3}
	90	5.18×10^{-4}	2.10×10^{-3}
		5.23×10^{-4}	2.12×10^{-3}
		4.63×10^{-4}	1.88×10^{-3}
	365	7.64×10^{-4}	7.64×10^{-4}
		2.84×10^{-4}	2.84×10^{-4}
		2.57×10^{-4}	2.57×10^{-4}
	1,095	2.21×10^{-3}	7.37×10^{-4}
		6.53×10^{-3}	2.18×10^{-3}
		5.93×10^{-4}	1.98×10^{-4}



(a) 0.06M Na_2SO_4　　(b) 0.6M Na_2SO_4　　(c) 飽和 Na_2SO_4

図 2.2-19　試験後試験片の X 線回折結果(Na_2SO_4)



(a) 0.1M $NaHCO_3$　　(b) 0.2M $NaHCO_3$　　(c) 0.5M $NaHCO_3$

図 2.2-20　試験後試験片の X 線回折結果($NaHCO_3$)

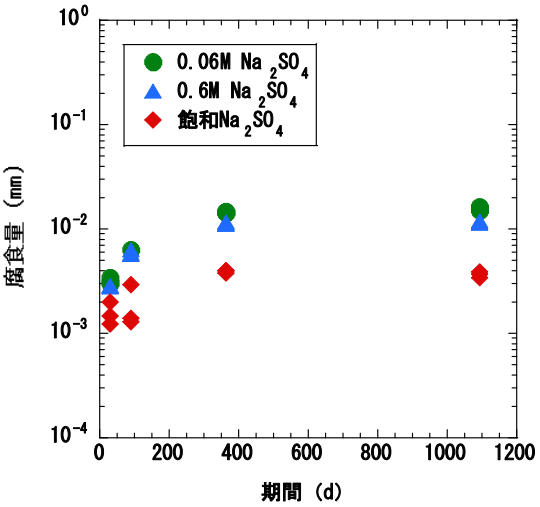


図2.2-21　平均腐食量の経時変化
(Na_2SO_4)

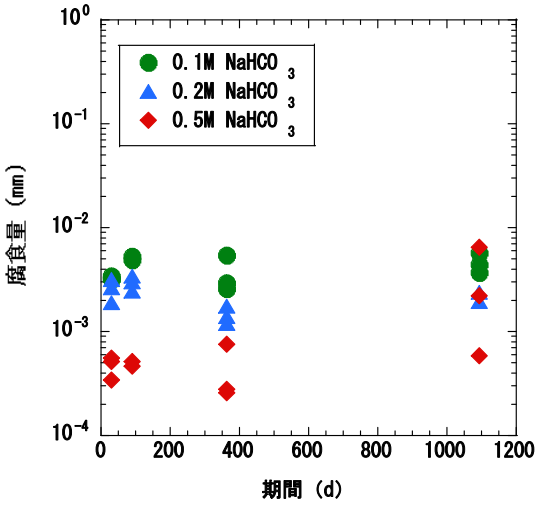


図2.2-22　平均腐食量の経時変化
($NaHCO_3$)

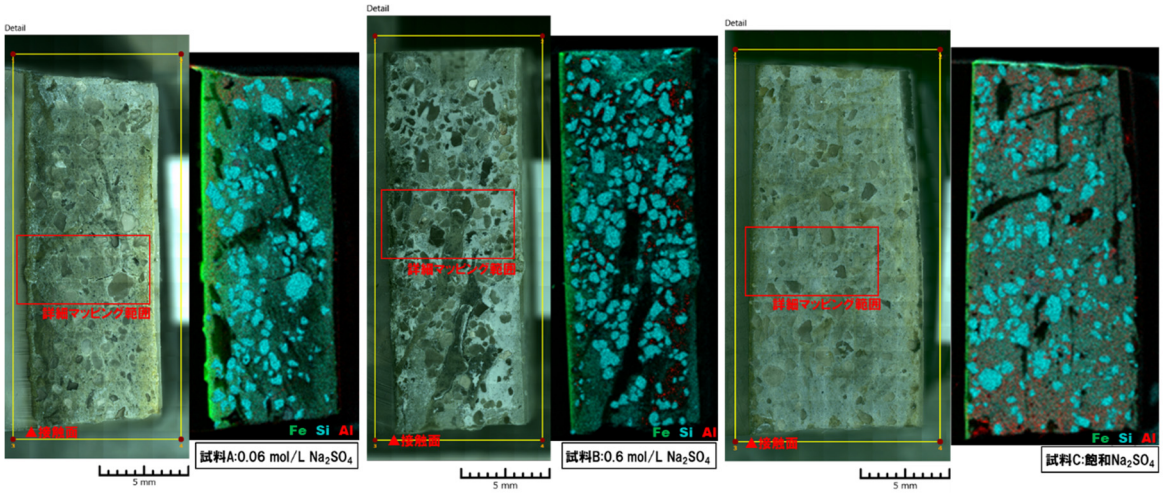


図2.2-23　断面試料の光学像（左）と微小部蛍光X線分析による広域元素マッピング像（右）

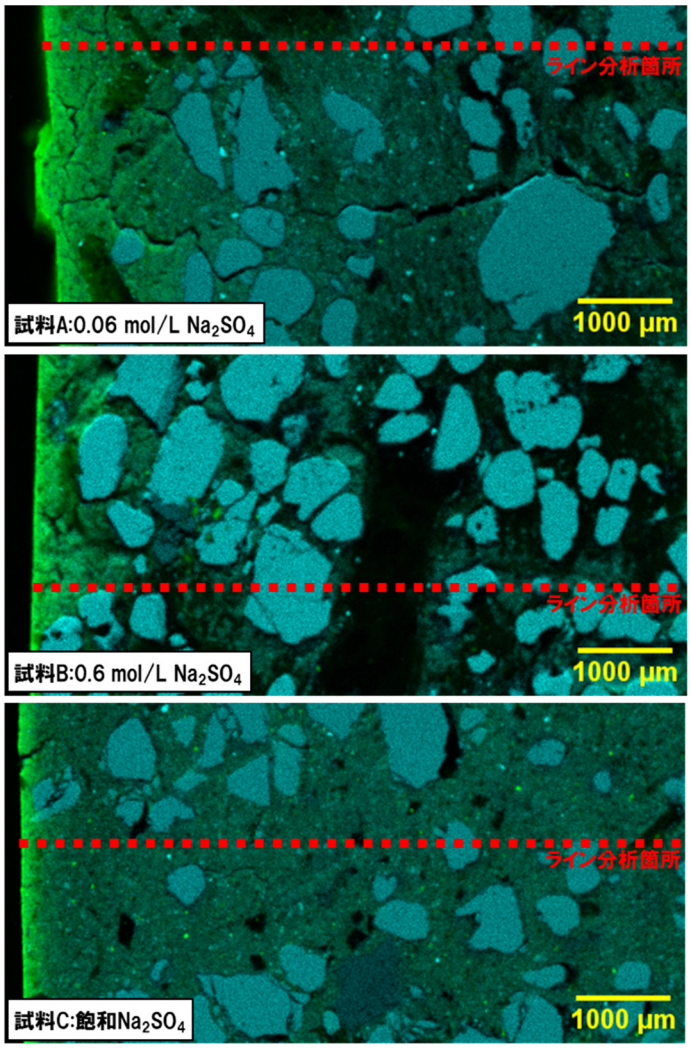


図2.2-24　断面試料の微小部蛍光X線分析による詳細元素マッピング像（緑：Fe、水色：Si）

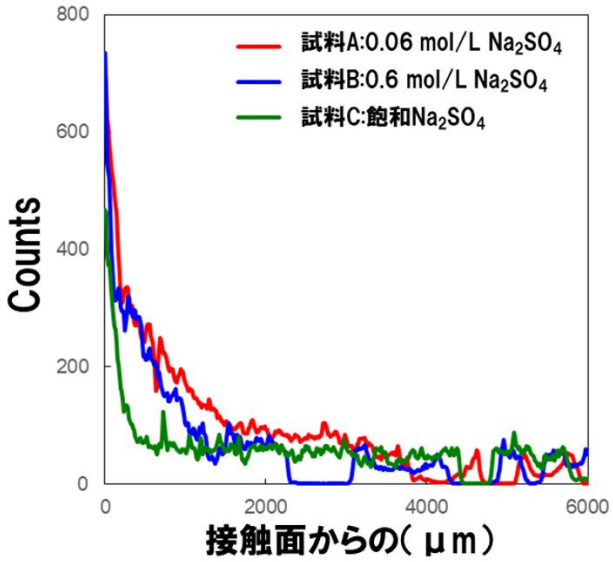


図2.2-25　断面試料の微小部蛍光X線分析によるFeライン分析結果

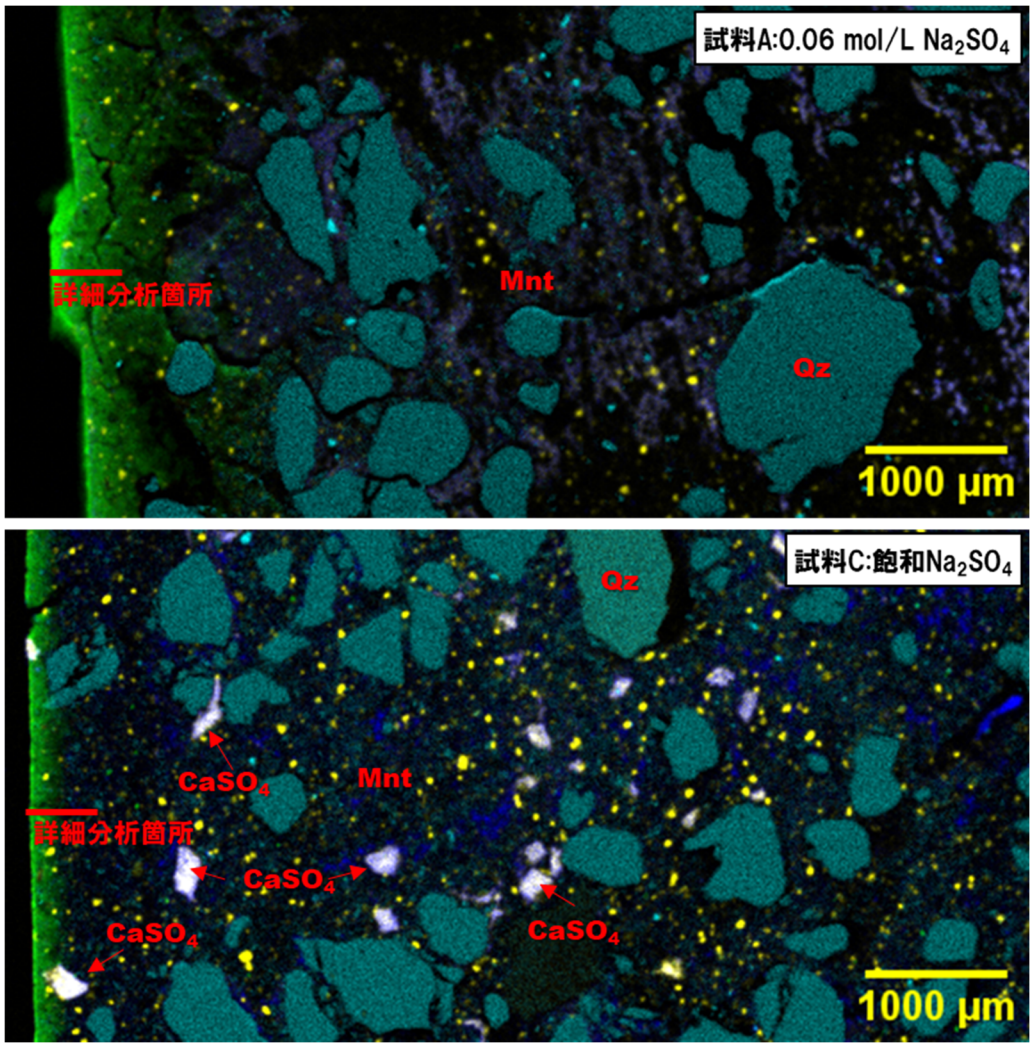


図2.2-26　試料Aと試料Cの詳細元素マッピング像（緑：Fe、水色：Si、青：S、黄：Ca）比較

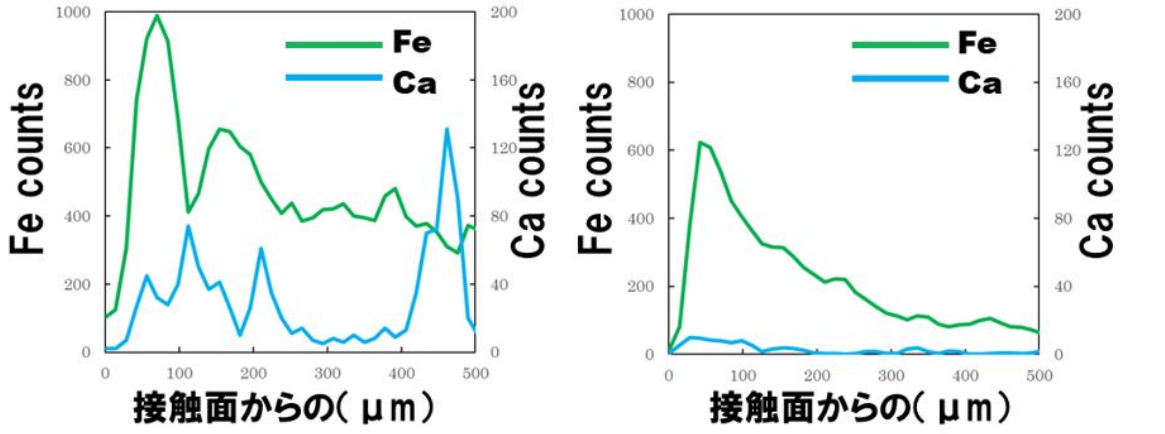


図2.2-27　試料Aと試料Cの接触面近傍のFeおよびCaの線分析結果の比較
（分析箇所は前図参照）

⑥ まとめ

これまでに実施した各種条件での浸漬試験における腐食量の経時変化を図2.2-28に示す。高温水の影響を把握するために実施した温度をパラメータとした浸漬試験では、温度の増加に伴い腐食量が増加する傾向が認められる。また、海水起源の地下水の希釈の影響を把握するために実施した人工海水の希釈率をパラメータとした浸漬試験では、人工海水と較べて10倍以上の希釈率で希釈した条件で腐食量が減少する傾向が認められる。酸性水の影響については、硫酸や塩酸を用いてpHをパラメータとした浸漬試験を実施した。この条件では、pHの低下（酸性化）に伴い、腐食量が増加する傾向が認められる。炭酸系化学種の影響については、炭酸水素ナトリウム濃度や炭酸ガス濃度をパラメータとした浸漬試験を実施した。いずれも濃度の増加に伴う腐食量の減少の傾向が認められるが、炭酸ガス濃度と較べて炭酸水素イオン濃度の変化の影響が大きい。硫酸塩と塩化物塩の影響については、硫酸ナトリウムと塩化ナトリウムの濃度をパラメータとした浸漬試験を実施した。いずれも強酸と強塩基の塩であるが、濃度増加の影響は硫酸ナトリウム水溶液の条件のみで確認された。上述の通り、硫酸ナトリウム水溶液の条件では、緩衝材中の硫酸カルシウム鉱物の沈殿の生成の有無がシデライトの保護性に影響し、このことが塩化ナトリウム水溶液の条件との違いを生じさせている可能性がある。

このように、パラメータの変動に伴い、腐食量が増加するケースがあり、温度をパラメータとした試験の160 °Cの条件やpHをパラメータとした試験のpH1の条件では、試験期間中の腐食量が図中に示した既往の腐食モデルによる腐食量を上回っている。しかしながら、いずれの条件についても、両対数のグラフにおける腐食量の経時変化の傾きが1以下であり、これは腐食速度が経時的に低下することを意味する。また、多くの条件で0.5以下である。今後、詳細なメカニズムの解明が求められるものの、腐食に寄与する物質の皮膜内の拡散以外の機構あるいは拡散係数の時間的な変化など複数の腐食抑制要因が関与している可能性がある。表2.2-8に示したように、浸漬試験後のX線回折分析において、高温水条件や酸性水条件を含むいずれの条件でも腐食生成物としてシデライトが検出されている。谷口ほか (2010)は10年に及ぶ緩衝材共存系の長期の浸漬試験を実施し、炭素鋼試験片表面にシデライトが生成する場合は腐食反応が抑制されることを報告している。本研究の浸漬試験においても、緩衝材中で炭素鋼試験片表面にシデライトが生成し、腐食反応が抑制されていることが示唆される。シデライトの生成には溶存炭酸物質の供給が不可欠であるため、処分環境における溶存炭酸物質の長期的なフラックスの評価が必要である。また、溶存炭酸物質のフラックスやシデライトの保護性の観点から、Caの挙動に関するデータ取得も必要である。

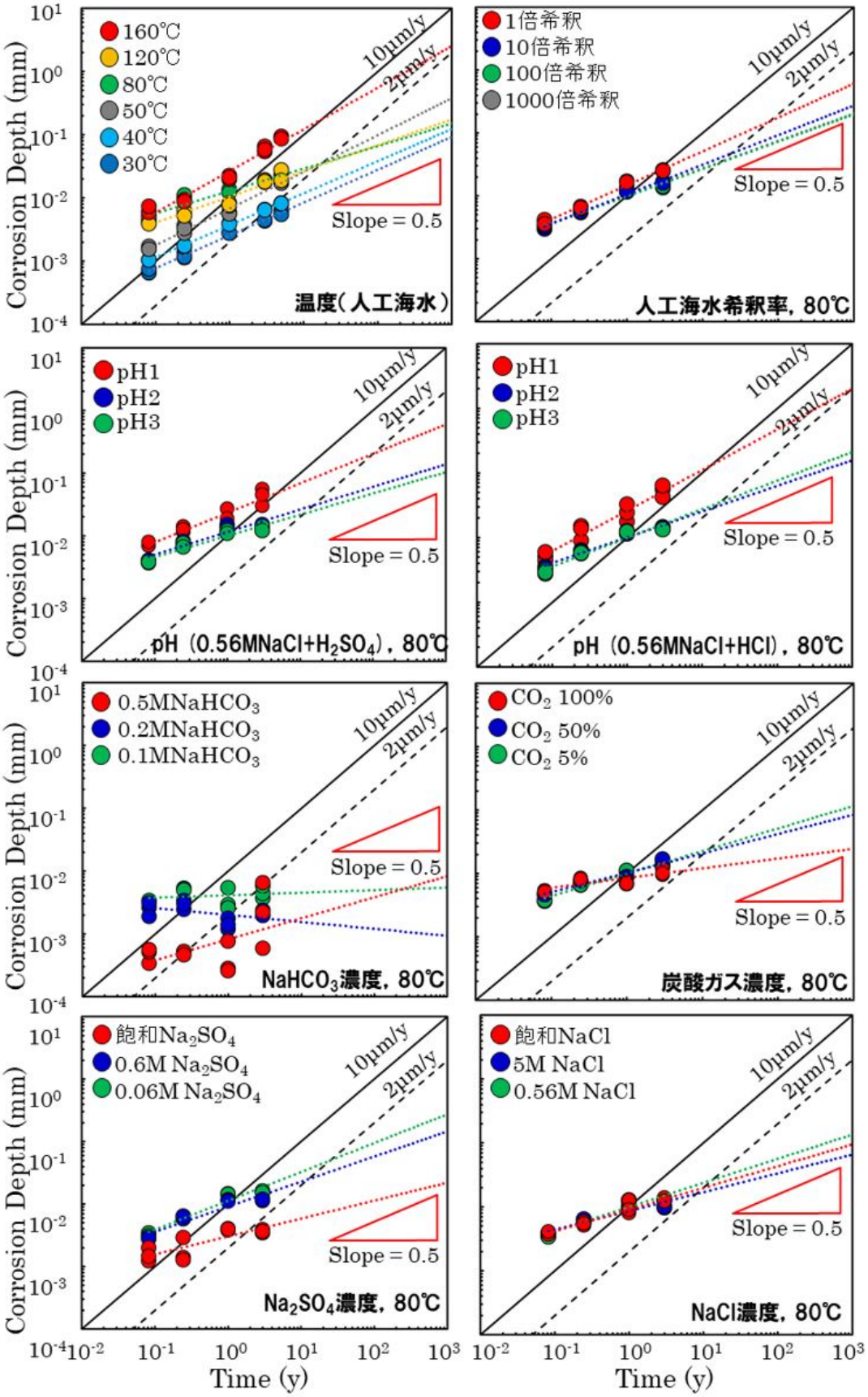


図2.2-28　広範な条件で実施した浸漬試験における腐食量の経時変化のまとめ

表 2.2-8　広範な条件で実施した浸漬試験における腐食生成物分析結果のまとめ

環境条件	試験溶液	試験温度（°C）	試験期間（日）				
			30	90	365	1095	1825
高温水	人工海水	50	?	?	Sd	Sd	Sd
	人工海水	80	Sd	Sd	Sd	Sd	Sd
	人工海水	120			Sd	Sd	Sd
	人工海水	160			Sd,Mag	Mag	Mag
沿岸地下水	人工海水,10 倍	80	Sd	Sd	Sd?	?	
	人工海水,100 倍	80	Sd	Sd	?	Mag,?	
	人工海水,1,000 倍	80	Sd,?	?	Sd	Mag,?	
酸性水	H_2SO_4, pH1	80	Sd	Sd	Sd	Sd	
	H_2SO_4, pH2	80	Sd	Sd	?	C	
	H_2SO_4, pH3	80	Sd	Sd	?	C	
酸性水	HCl, pH1	80	Sd	Sd	?	Sd	
	HCl, pH2	80	Sd	?	Sd	C	
	HCl, pH3	80	?	?	?	C	
高炭酸塩	$NaHCO_3$, 0.1M	80	Sd	Sd	Sd	Sd,Mag	
	$NaHCO_3$, 0.2M	80	?	Sd	Sd	C	
	$NaHCO_3$, 0.5M	80	Sd	Sd	Sd	Sd,Mag	
炭酸ガス	炭酸ガス, 5%	80	Sd	Sd	Sd	Sd	
	炭酸ガス, 50%	80	Sd	Sd	Sd	Sd	
	炭酸ガス, 100%	80	Sd	Sd	Sd	Sd	
高硫酸塩	Na_2SO_4, 0.06M	80	Sd?	?	?	Sd?	
	Na_2SO_4, 0.6M	80	Sd	?	Sd	Sd	
	Na_2SO_4, 飽和	80	Sd	Sd,?	Sd	Sd	
高塩化物	NaCl, 0.56M	80	Sd	?	?	C	
	NaCl, 5M	80	Sd	Sd	?	Sd	
	NaCl, 飽和	80	Sd	Sd	Sd	Sd	

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

2) 広範な環境条件における応力腐食割れ試験

① 試験方法の概要

応力腐食割れ感受性は低歪み速度法(Slow Strain Rate Technique, SSRT)により評価した。図 2.2-29 に示すゲージ部直径 4 mm ゲージ長 25 mm の丸棒引張試験片またはゲージ部幅 4 mm 厚さ 2 mm ゲージ長 20 mm の平板型引張試験片を用いた。試験は溶液単独系のほか、図 2.2-30 に示すようにゲージ部に緩衝材の充填されたカラムを取り付けることにより緩衝材共存系でも実施した。緩衝材はチタン製のカラム内に炭素鋼試験片と緩衝材（30 wt%ケイ砂混合ベントナイト）を入れ、緩衝材が所定の密度(1.6 Mg/m^3)になるように圧縮成形した。これを東伸工業株式会社製 SSRT 装置(MINI-1000T)に図 2.2-31 に示すように試験セルに設置し、自然電位 Ecorr または定電位条件下での SSRT 試験を実施した。歪速度は既往の炭酸塩環境での試験(Mitsui et. al, 2008)と同様に 8.3×10^{-7} /s とした。

② 試験片

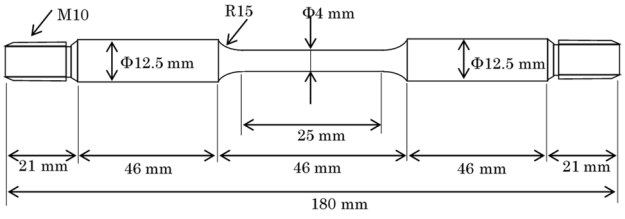
試験片は、以下のとおりとした。

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

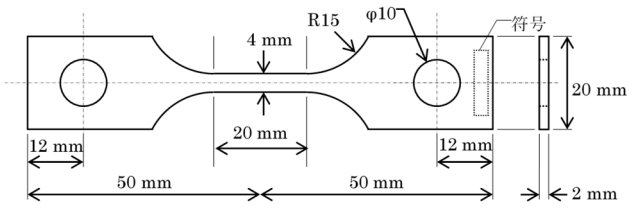
③ 試験条件と試験手順

溶液や吹き込みガスなどを変えて様々な環境を模擬した 4 種類の試験を実施した。試験条件を表 2.2-9 から図 2.2-32 に示す。

試験手順は次のとおり。溶液中の場合は試験溶液に N_2 ガスを 2 時間以上吹き込んで脱気（溶存ガスを N_2 で置換）したのち、試験溶液をヒーターで所定の温度に加熱し、CO_2 ガス吹き込みの場合は N_2 を CO_2 ガスに変更する。温度が定格に達した後に自然電位で、もしくは所定の電位に保持して SSRT 試験を開始した。緩衝材共存条件の場合は、試験開始の前日に組み立てた試験セルに溶液を注ぎ N_2 ガスを吹き込みながらベントナイトを含水させて、翌日溶液中の試験と同じ手順で試験を開始した。



(a) 丸棒引張試験片（大気圧試験用）



(b) 平板型引張試験片（大気圧試験用）

図2.2-29　SSRT試験片の形状・寸法

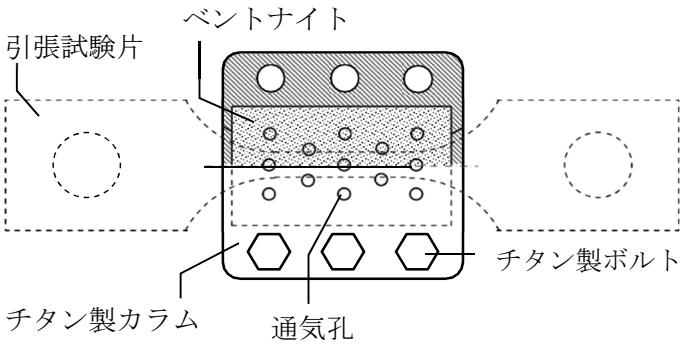


図 2.2-30　緩衝材共存条下試験でのチタンカラム

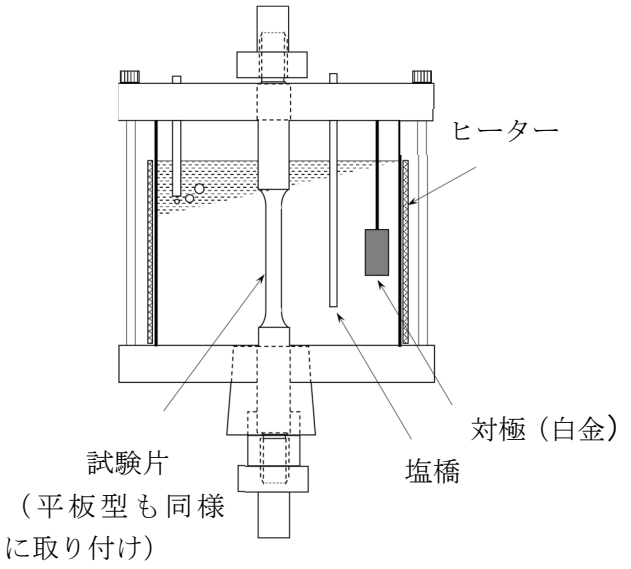


図 2.2-31　SSRT 試験セルの模式図

表2.2-9　炭酸塩環境でのSSRT試験条件

$NaHCO_3$ (mol/L)	NaCl (mol/L)	Na_2SO_4 (mol/L)	雰囲気	温度 (°C)	緩衝材	電位(mV vs. SCE)
0.5	0	0	N_2	50	無し	-600,-625,-650,-667,-675
			N_2	80	無し	-650,-675,-700,-717*1,-725
0.5	0.01	0	N_2	50	無し	-600,-625,-650,-667,-675
			N_2	80	無し	-675,-700,-717*1,-725,-750
0.5	0.1	0	N_2	50	無し	-600,-625,-650,-667,-675
			N_2	80	無し	-675,-700,-717*1,-725,-750
0.5	0.5	0	N_2	50	無し	-575,-600,-625,-650,-667
			N_2	80	無し	-650,-675,-700,-717*1,-725
0.5	0	0.01	N_2	50	無し	-600,-625,-650,-667,-675
			N_2	80	無し	-700,-717*1,-725,-750,-775
0.5	0	0.1	N_2	50	無し	-625,-650,-667,-675,-700
			N_2	80	無し	-700,-717*1,-725,-750,-775
シリコーンオイル			N_2	50	無し	-
			N_2	80	無し	-

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

網掛け部分：日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2020

表 2.2-10　高炭酸ガス環境での SSRT 試験条件

溶液	吹き込みガス	温度 (°C)	緩衝材	電位 (mV vs. SCE)
0.56 mol/L NaCl (比較用)	N_2	80	無し	自然電位,-750,-785,-800
			有り	-725, -750, -775
0.56 mol/L NaCl	5% CO_2	80	無し	-725,-758, -775
			有り	-750, -782, -800
0.56 mol/L NaCl	30% CO_2	80	無し	-725, -745, -775
			有り	-750, -782, -800
0.56 mol/L NaCl	100% CO_2	80	無し	自然電位, -700, -730, -750
			有り	-750, -775, -800

表2.2-11　希釈した人工海水環境でのSSRT試験条件

試験溶液	雰囲気	温度(°C)	緩衝材	電位(mV vs. SCE)
10 倍希釈人工海水	N_2	80	無し	自然電位,-700, -800, -900, -1,000
	N_2	80	有り	自然電位,-700, -800, -900, -1,000
1,000 倍希釈人工海水	N_2	80	無し	自然電位, -600, -700, -800, -900
	N_2	80	有り	自然電位, -700, -800, -900, -1,000

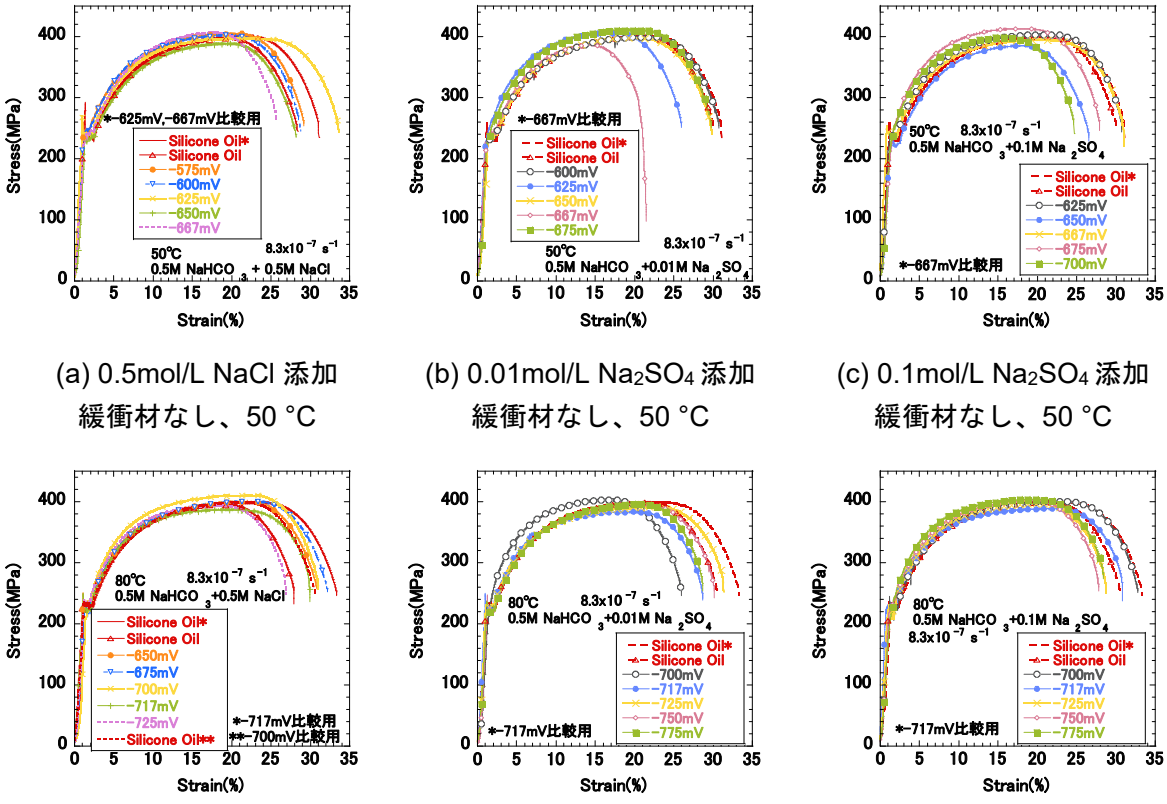
表 2.2-12　酸性水環境での SSRT 試験条件

試験溶液	pH	雰囲気	温度(°C)	緩衝材	電位
0.56 mol/L NaCl +H_2SO_4	1.5	N_2	80	有り	自然電位
	2	N_2	80	有り	自然電位
	3	N_2	80	有り	自然電位

④ 試験結果と考察

(a) 炭酸塩環境での SSRT 試験

SSRT 試験により得られた応力-ひずみ曲線を図 2.2-32 に示す。この図より最大応力(σ_{sol})と破断ひずみ(ε_{sol})を求め、シリコーンオイル中で試験のそれぞれの値(σ_{oil}、ε_{oil})との比、最大応力比($\sigma_{sol}/\sigma_{oil}$)、破断ひずみ比($\varepsilon_{sol}/\varepsilon_{oil}$)を計算した。最大応力比および破断ひずみ比に対する NaCl、Na_2SO_4 濃度の電位依存性を図 2.2-33 に示す。図中には先行事業で取得した同一規格(SM400B)でロットの異なる材料の試験片で得られたデータ（日本原子力研究開発機構, 2018a）も示した。



(a) 0.5mol/L NaCl 添加 緩衝材なし、50 °C

(b) 0.01mol/L Na_2SO_4 添加 緩衝材なし、50 °C

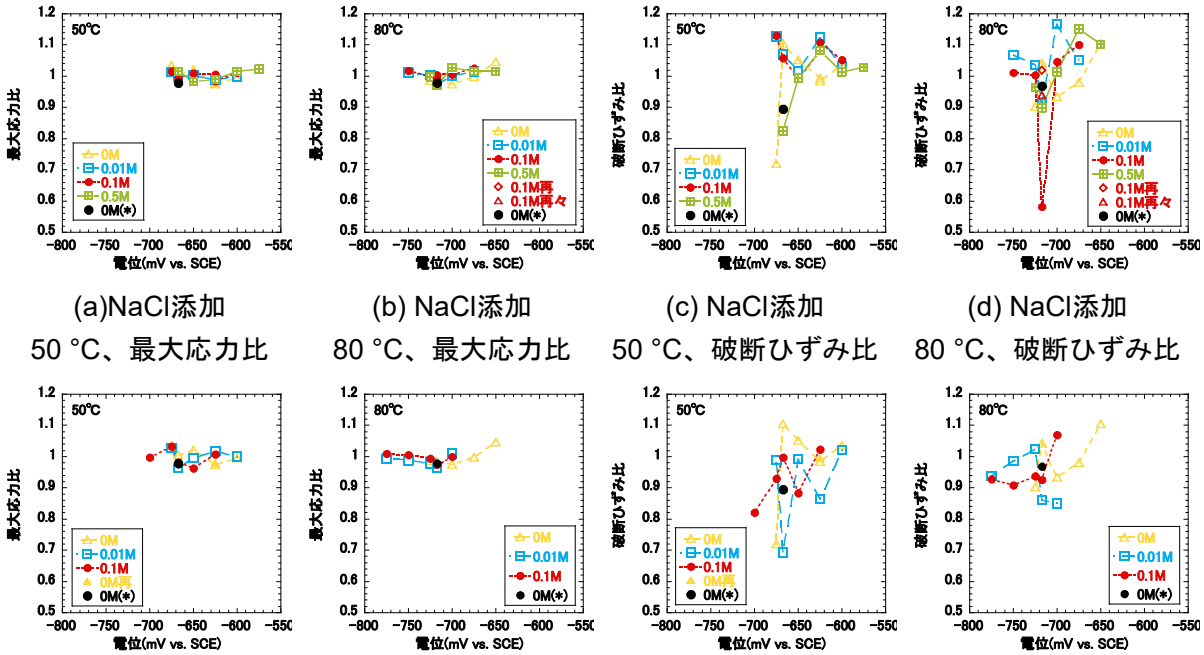
(c) 0.1mol/L Na_2SO_4 添加 緩衝材なし、50 °C

(d) 0.5mol/L NaCl 添加 緩衝材なし、80 °C

(e) 0.01mol/L Na_2SO_4 添加 緩衝材なし、80 °C

(f) 0.1mol/L Na_2SO_4 添加 緩衝材なし、80 °C

図2.2-32　応力-歪み線図の測定結果



(a)NaCl添加 50 °C、最大応力比　(b) NaCl添加 80 °C、最大応力比　(c) NaCl添加 50 °C、破断ひずみ比　(d) NaCl添加 80 °C、破断ひずみ比

(e) Na_2SO_4添加 50 °C、最大応力比　(f) Na_2SO_4添加 80 °C、最大応力比　(g) Na_2SO_4添加 50 °C、破断ひずみ比　(h) Na_2SO_4添加 80 °C、破断ひずみ比

図2.2-33　最大応力比、破断ひずみ比に対するNaCl、Na_2SO_4濃度の電位依存性
（＊：日本原子力研究開発機構, 2018a）

最大応力比は、温度、濃度によらず 1 に近く、電位依存性も明瞭ではない。破断ひずみ比は、NaCl 添加の場合は 50 °C の 0 mol/L および 0.5 mol/L、80 °C の 0.1 mol/L、Na_2SO_4 添加の場合は 50 °C の 0 mol/L および 0.01 mol/L で比較的小さい値を示した。最大応力比、破断ひずみ比に対する温度、濃度の依存性は明瞭ではないが、これらの比について NaCl、Na_2SO_4 濃度ゼロで得られた過去のデータより低下する条件が存在することがわかった。今回得られた結果では、破断ひずみ比が 1 を超える、すなわちシリコーンオイル中での破断ひずみを上回っている場合もあることから、材料自体のばらつきなどの影響を含むと考えられる。

次に、脱錆処理を行った試験後試験片の破断部近傍の SEM 観察結果例を図 2.2-34 に示す。破面では外周部にディンプルとは異なる応力腐食割れの破面が観察された。側面にも開口した亀裂が多数観察された。割れの形態は断面のミクロ組織観察などにより確認が必要であるが、粒界割れに近い様相が観察された。

これらの観察結果から絞り（$R.A._{sol}$）と応力腐食割れ破面率（SCC 破面率, I_{SCC}）を以下の式により算出した。

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

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

S_1: 試験後の破面の面積

S_0: 試験前の平行部断面積

S_{scc}: SCC 破面の面積

絞り比については、シリコーンオイル中での絞り($R.A._{oil}$)との比($R.A._{sol}$ /$R.A._{oil}$)として求めた。絞り比と破面率の電位依存性を図 2.2-35 に示す。NaCl 添加の場合は、絞り比については 50 °C では 1 から大きく低下せず、80 °C では NaCl 添加の溶液では-717mV vs. SCE で低下したが、いずれも NaCl 濃度依存性は明確ではない。電位の依存性については 50 °C では高濃度ほど低下する電位が高くなり、80 °C では NaCl 濃度に関係なく添加なし条件で低下する電位が高くなった。破面率についてはいずれの温度においても 15 %程度であり、濃度依存性は明確ではない。50 °C で破面率がゼロ以上になる電位の幅が広く、濃度が高いと破面率のピークを示す電位が高い。80 °C では電位の幅が狭く、NaCl 添加なしで破面率のピークを示す電位が高いという特徴があるが、破面率の値は 50 °C と大きく変わらない。Na_2SO_4 添加の場合は、絞り比についてはいずれの温度でも 0.8 - 1 程度となり、電位と濃度の依存性は明確ではない。破面率については 50 °C では 13 - 15 %程度であり、濃度が高いほうがピークの電位が低かった。80 °C の破面率は 10 - 15 %程度であり Na_2SO_4 添加なし条件でのピークの電位が高かった。

絞り比の低下と破面率の上昇は必ずしも同じ傾向ではないが、より電位依存性が明瞭な破面率で SCC 感受性を評価すると、NaCl、Na_2SO_4 添加の濃度および化学種による感受性への影響は認められなかった。NaCl、Na_2SO_4 添加なしの既往のデータ（日本原子力研究開発機構, 2018a）と比較しても破面率は同程度となった。SCC 感受性を示す電位は 50 °C では NaCl の濃度が高い方が高くなり、Na_2SO_4 添加では濃度が高いと低くなった。80 °C では NaCl、Na_2SO_4 添加なし条件で電位が高い。また感受性を示す電位の範囲は 50 °C で広くなる傾向を示しており、より幅広い温度条件での調査を実施し感受性の変化を確認する必要がある。

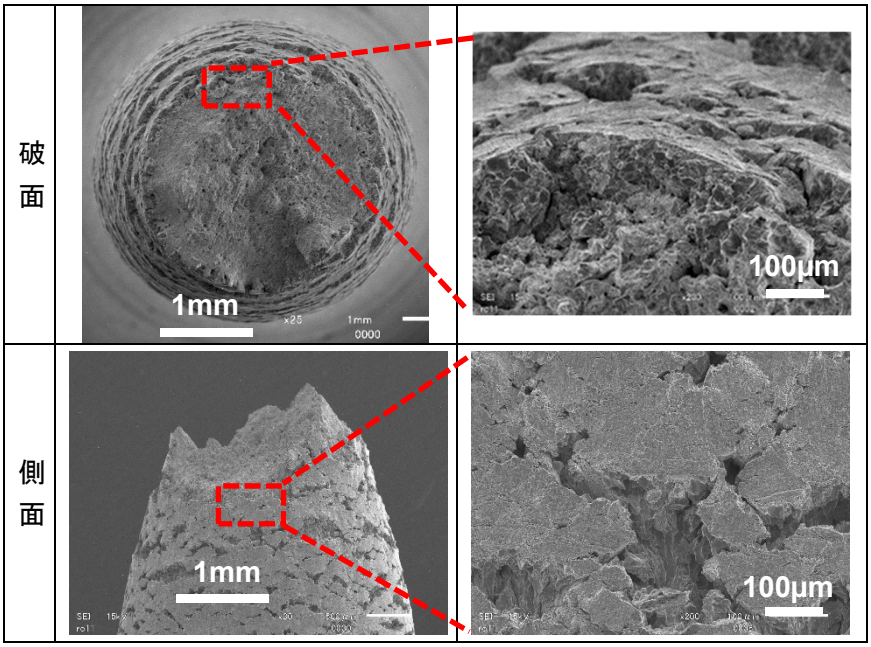
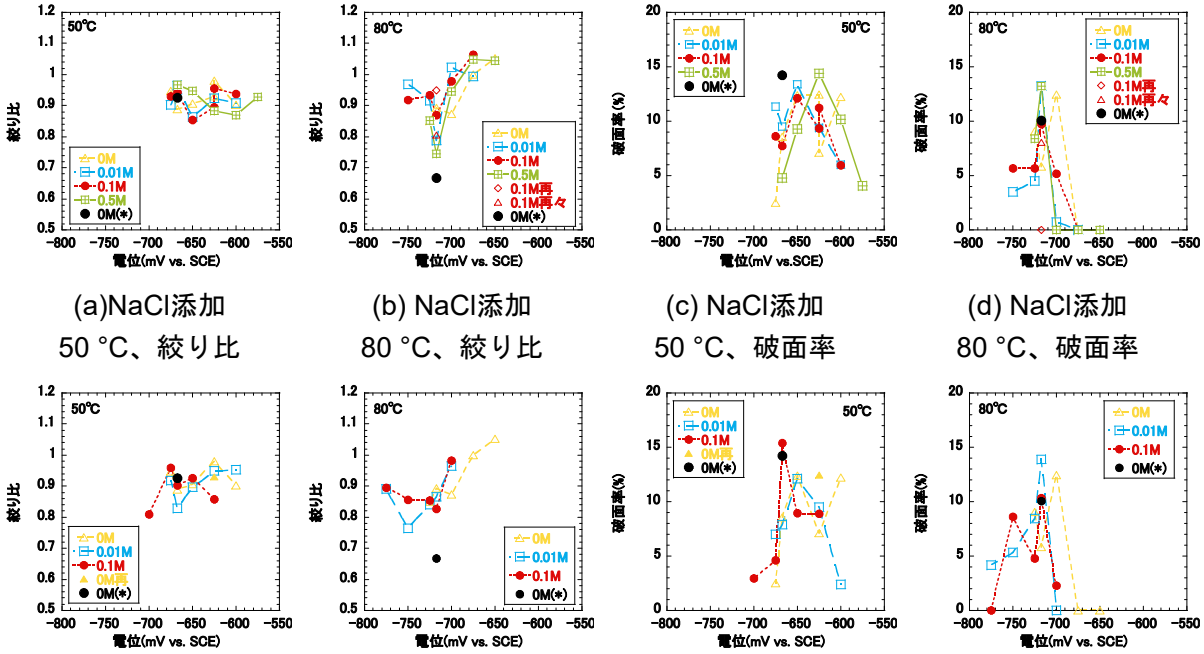


図 2.2-34　破面の SEM 観察例（0.5M NaCl 添加、50 °C、-625mV、粒界割れ）



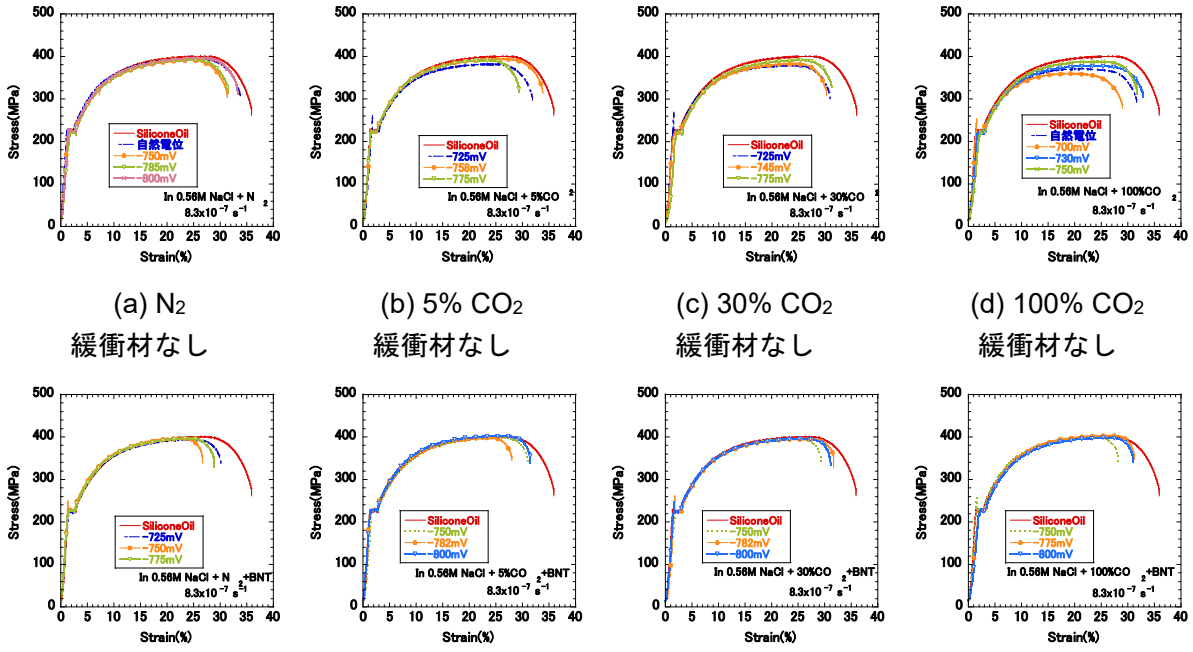
(a)NaCl添加 50 °C、絞り比　(b) NaCl添加 80 °C、絞り比　(c) NaCl添加 50 °C、破面率　(d) NaCl添加 80 °C、破面率

(e) Na_2SO_4添加 50 °C、絞り比　(f) Na_2SO_4添加 80 °C、絞り比　(g) Na_2SO_4添加 50 °C、破面率　(h) Na_2SO_4添加 80 °C、破面率

図2.2-35　絞り比、破面率に対するNaCl、Na_2SO_4濃度の電位依存性
（＊：日本原子力研究開発機構, 2018a）

(b) 高炭酸ガス環境での SSRT 試験

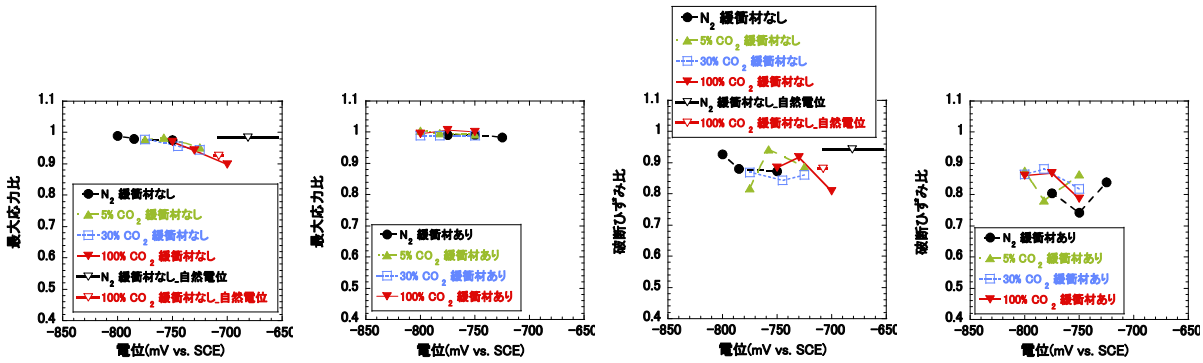
SSRT 試験により得られた応力-ひずみ線図を図 2.2-36 に示す。これらの図から(a)炭酸塩環境での SSRT 試験と同様に最大応力比、破断ひずみ比を求めた（図 2.2-37）。



(a) N_2 緩衝材なし　(b) 5% CO_2 緩衝材なし　(c) 30% CO_2 緩衝材なし　(d) 100% CO_2 緩衝材なし

(e) N_2 緩衝材あり　(f) 5% CO_2 緩衝材あり　(g) 30% CO_2 緩衝材あり　(h) 100% CO_2 緩衝材あり

図2.2-36　応力-歪み線図の測定結果



(a) 最大応力比 緩衝材なし　(b) 最大応力比 緩衝材あり　(c) 破断ひずみ比 緩衝材なし　(d) 破断ひずみ比 緩衝材あり

図2.2-37　最大応力比、破断ひずみ比に対するCO_2濃度の電位依存性

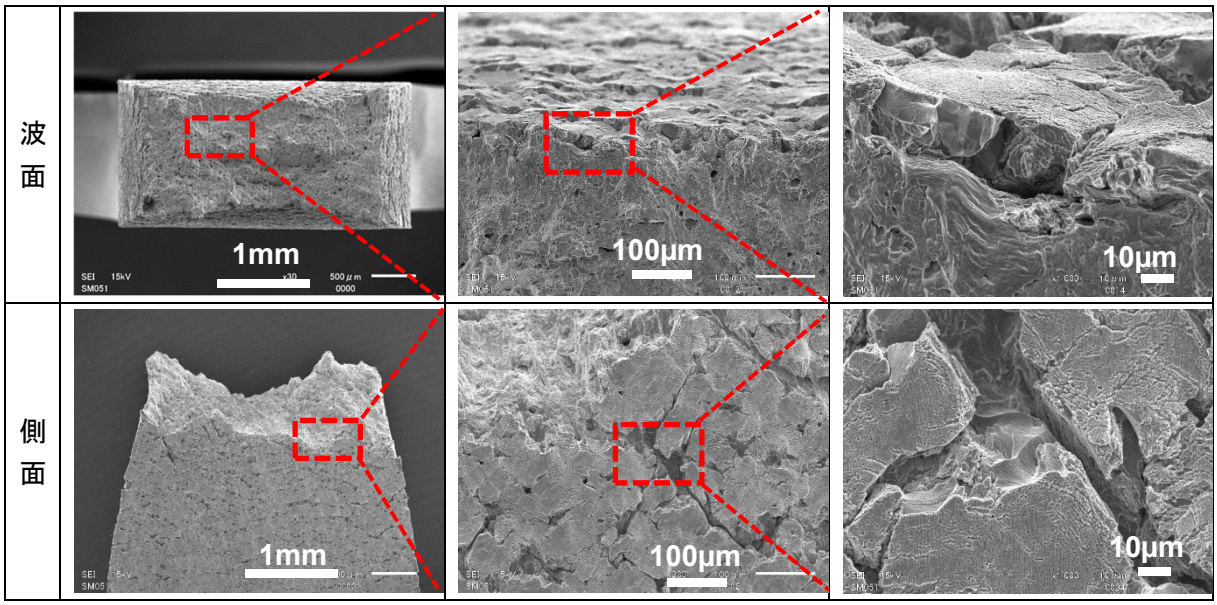
最大応力比については、溶液中の場合は窒素ガス中ではほぼ 1 に近い値だが、炭酸ガス濃度が高いほど電位が上がるにつれて小さくなった。緩衝材共存条件の場合は、炭酸ガス濃度および電位の影響は明瞭ではなく、ほぼ 1 に近い値になった。破断ひずみ比は溶液条件の窒素ガス中で電位が上がるほど小さくなった以外はいずれも炭酸ガス濃度および電位依存性は明瞭ではなかった。

次に、脱錆処理を行った試験後試験片の破断部近傍をSEMを用いて観察した。溶液条件においては窒素ガス中自然電位での試験片の一部で粒界割れに近い形態の破面が認められた。窒素ガス中の試験片は電位が低下すると破面の形態は延性破面から擬へき開破面に変化したが、炭酸ガス濃度が比較的低い5 % CO_2ガス中ではすべての電位で延性破面が認められ、比較的高濃度の30 %と100 % CO_2ガス中では不規則な凹凸が破面全体に広がり形態は判別できなかった。一方、緩衝材共存条件での試験片はガスの種類や電位に関わらずすべて擬へき開破面が認められた。それらのうち粒界割れと擬へき開破面の例を図2.2-38に示す。

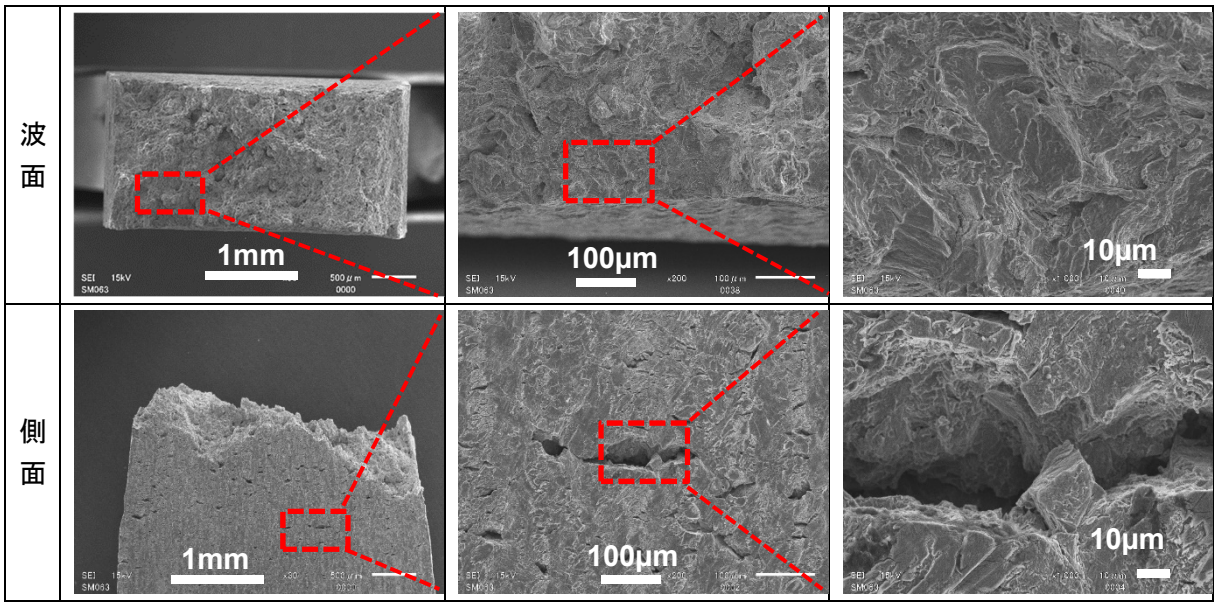
これらの観察結果から(a)炭酸塩環境でのSSRT試験と同様に絞り$R.A._{sol}$を式(2.2-1)により算出し、絞り比を求めた。その電位依存性を図2.2-39に示す。

溶液中と緩衝材共存のいずれも濃度の依存性は認められない。電位依存性については溶液中では明瞭ではないが、緩衝材共存条件では100 % CO_2ガス中を除き電位が上がるにつれて絞り比も上昇する傾向が見られた。また溶液中に比べて緩衝材共存条件で値が小さくなった。ここで擬へき開破面が観察されたことから水素脆化割れが生起した（南雲, 2011）と考えられるが、SCE基準での図には炭酸ガス濃度の違いによるpHの影響が含まれている可能性がある。そこでいずれのpH条件でも水素平衡電位をゼロとするRHE（可逆水素電極電位）に換算し、RHE基準電位での依存性を図2.2-40に示す。RHEへの換算において用いたpHはKitayama et al. (2021)と同様の方法でpH試験紙により測定された緩衝材間隙水中の値である。ただし、SSRT試験に用いた試験カラム中の緩衝材に対するpH測定は困難なことから図2-2-16の試験カラムに充填した緩衝材に対して別途測定した値を準用した。緩衝材なし条件では、最大応力比はほぼ1に近くなり大きな低下はない。破断ひずみ比は炭酸ガス濃度の依存性は明瞭ではないがやや低下した。絞り比はおよそ0.7 - 0.8で濃度が高いと大きい傾向がある。濃度が高い試験片の破面の形態は不明瞭になることからも減肉の影響が考えられる。一方で緩衝材あり条件では、いずれの図においても炭酸ガス濃度の影響が認められないことから、緩衝材中では炭酸ガス濃度の影響が緩和されると考えられる。しかし、最大応力比および破断ひずみ比に比べて、絞り比は緩衝材中で大きく低下することから緩衝材なしに比較して割れ感受性が上昇したと考えられる。また、炭酸ガスの濃度に関わらずRHE基準の電位としてゼロからの過電圧が卑側に大きいほどと絞り比が低下する傾向が見られることから、今回のSSRT試験の結果は従来どおりカソード反応に起因したと思われる水素脆化割れと考えられる。

以上のことから、溶液中、緩衝材共存下のいずれにおいても割れ感受性の炭酸ガス濃度依存性は認められなかった。緩衝材には溶液中での最大応力比および破面への炭酸ガスによる影響を抑制する効果がみられるが、水素脆化によると思われる割れ感受性の上昇が認められた。

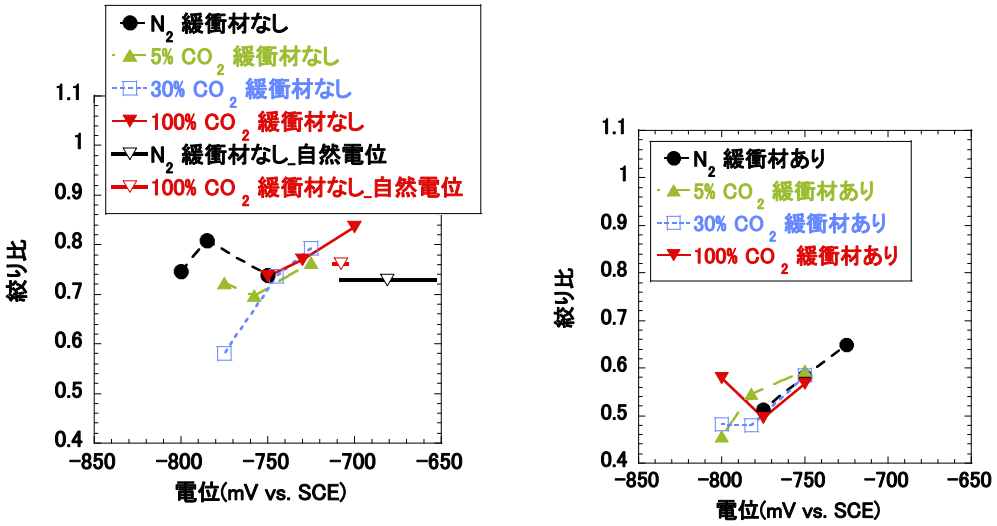


(a) N_2、緩衝材なし、自然電位，粒界割れ



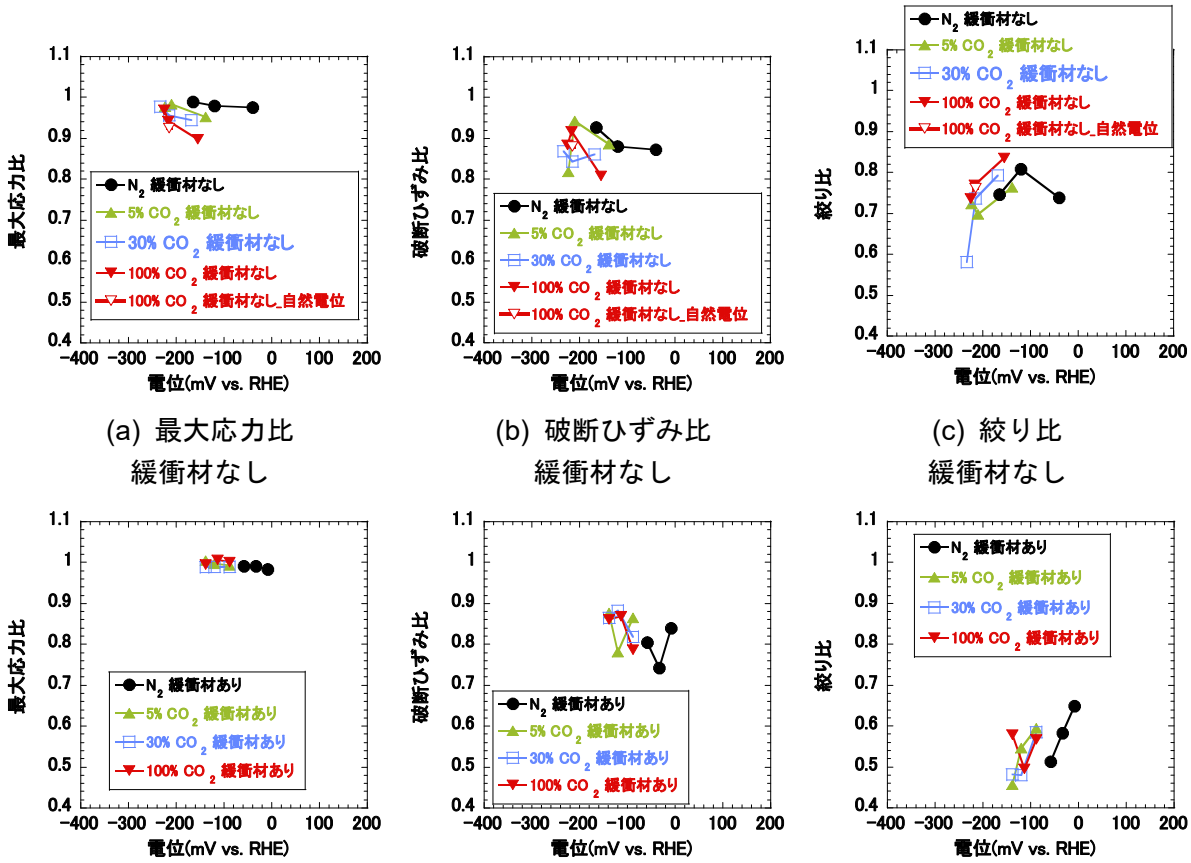
(b) 100%CO_2、緩衝材あり、-775mV、擬へき開破面

図 2.2-38　破面の SEM 観察例



(a) 緩衝材なし　　(b) 緩衝材あり

図2.2-39　絞り比の電位依存性



(a) 最大応力比
緩衝材なし

(b) 破断ひずみ比
緩衝材なし

(c) 絞り比
緩衝材なし

(d) 最大応力比
緩衝材あり

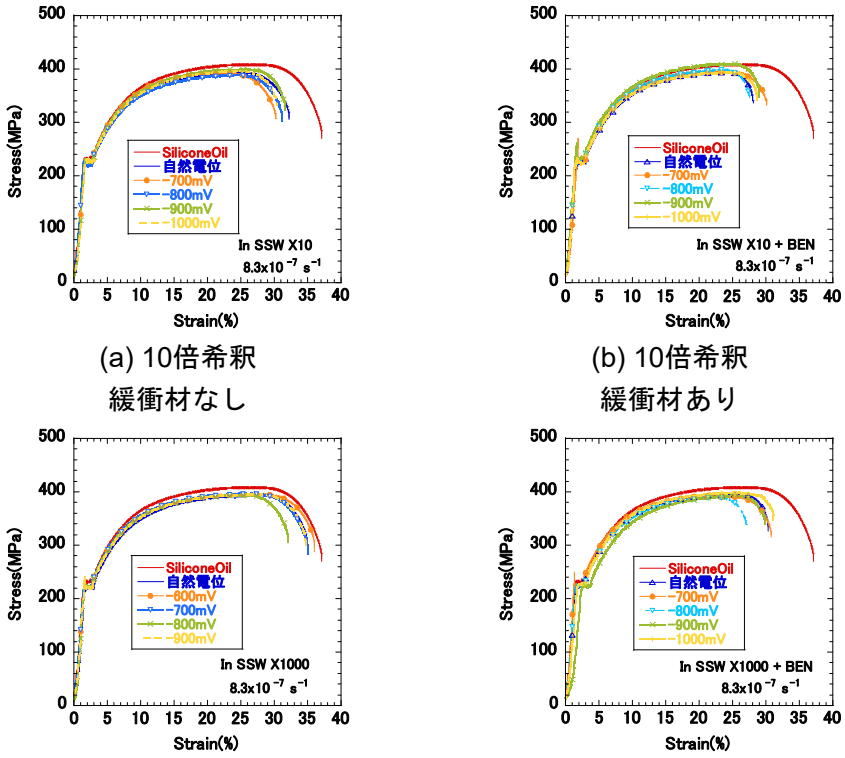
(e) 破断ひずみ比
緩衝材あり

(f) 絞り比
緩衝材あり

図2.2-40　最大応力比、破断ひずみ比、絞り比に対するRHE換算電位の依存性

(c) 希釈した人工海水環境での SSRT 試験

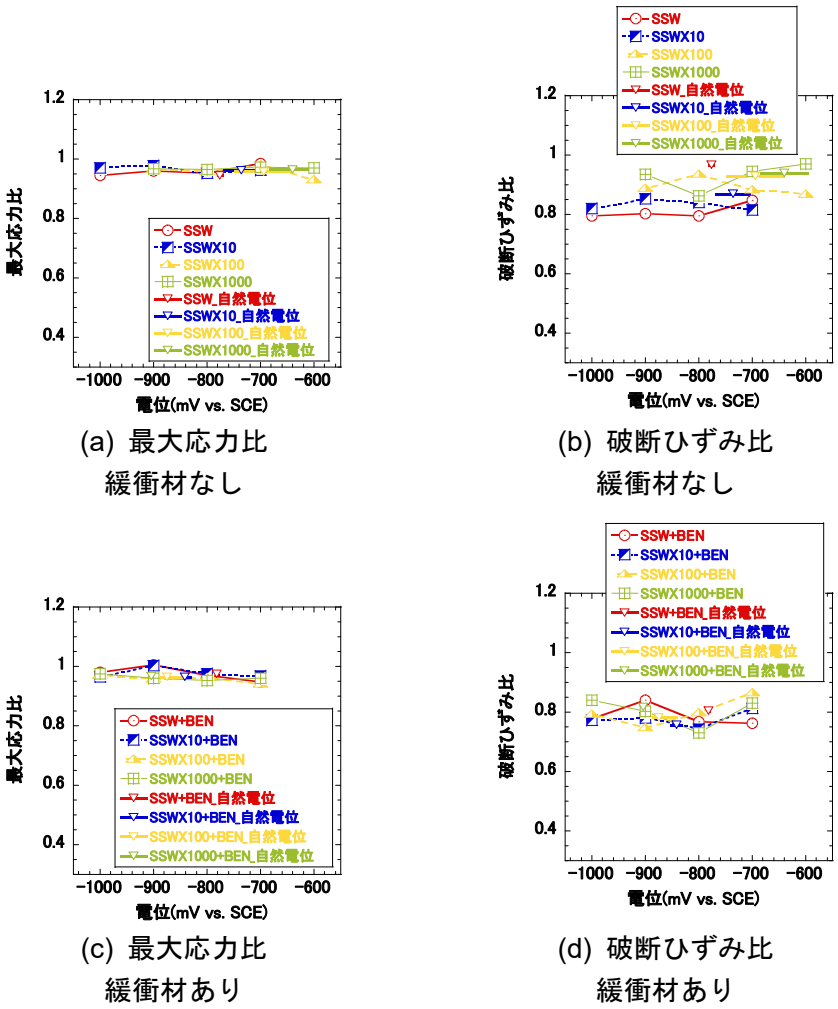
SSRT 試験により得られた応力-ひずみ線図を図 2.2-41 に示す。これらの図から(a)炭酸塩環境での SSRT 試験と同様に最大応力比、伸び比を求めた（図 2.2-42)。最大応力比、伸び比のグラフには既報のデータ（産業技術総合研究所ほか, 2019）も合わせて示した。



(a) 10倍希釈 緩衝材なし　(b) 10倍希釈 緩衝材あり

(c) 1,000倍希釈 緩衝材なし　(d) 1,000倍希釈 緩衝材あり

図 2.2-41　応力-歪み線図の測定結果



(a) 最大応力比 緩衝材なし　(b) 破断ひずみ比 緩衝材なし

(c) 最大応力比 緩衝材あり　(d) 破断ひずみ比 緩衝材あり

図 2.2-42　最大応力比、破断ひずみ比に対する人工海水濃度の電位依存性

最大応力比については、緩衝材の有無にかかわらず 1 から大きく離れた値になった条件はなく人工海水濃度の依存性は認められない。破断ひずみ比については、緩衝材なし条件では濃度が高いと値が小さくなる傾向がみられるが、緩衝材あり条件では濃度による違いは認められない。

次に、脱錆処理を行った試験後試験片の破断部近傍を SEM を用いて観察した。図 2.2-43 に自然電位での観察結果を示す。緩衝材なし条件では、人工海水 10 倍希釈、1,000 倍希釈のいずれの溶液でも、自然電位で延性破面が認められたが、-900mV 以下になると擬へき開破面が認められるようになり、水素脆化によるものと考えられる。また、緩衝材ありの条件では、どちらの希釈倍率でも自然電位およびそれ以下の電位においては擬へき開破面が認められた。

擬へき開破面の境界は不明瞭な場合が多く面積を明確に求められなかったことから、割れ感受性を絞り比で評価することとした。

これらの観察結果から(a)の試験と同様に絞り $R.A._{sol}$ を式(2.2-1)により算出し、絞り比を求めた。その電位依存性を図 2.2-44 に示す。

緩衝材なし条件では、全体的に絞り比の値は希釈なしが小さく、希釈の倍率が高いと値が 1 に近づく傾向がある。-800mV 以上では比較的溶液間での値の違いは小さいが、-900mV 以下では希釈なしと 10 倍希釈、100 倍希釈と 1,000 倍希釈のそれぞれが近い値となり、倍率の低い場合と高い場合の違いは明確である。希釈倍率の低い場合、-900mV で最小となり、-1,000mV でやや上昇

した。一方、緩衝材ありの条件では、希釈なしでは電位によってばらつきが大きく、希釈の違いは明瞭ではない。これらは希釈倍率なしと 100 倍での水素脆化感受性が希釈により低下し緩衝材共存条件でその影響が明瞭ではなくなるという既報の結果（産業技術総合研究所ほか, 2019）と矛盾するものではない。

これらのことから、緩衝材なしの条件では-900mV 以下で希釈なしと 10 倍希釈の溶液で水素脆化によると思われる割れ感受性影響が比較的大きくなるが、緩衝材ありの条件では希釈の影響は明瞭ではないと考えられる。

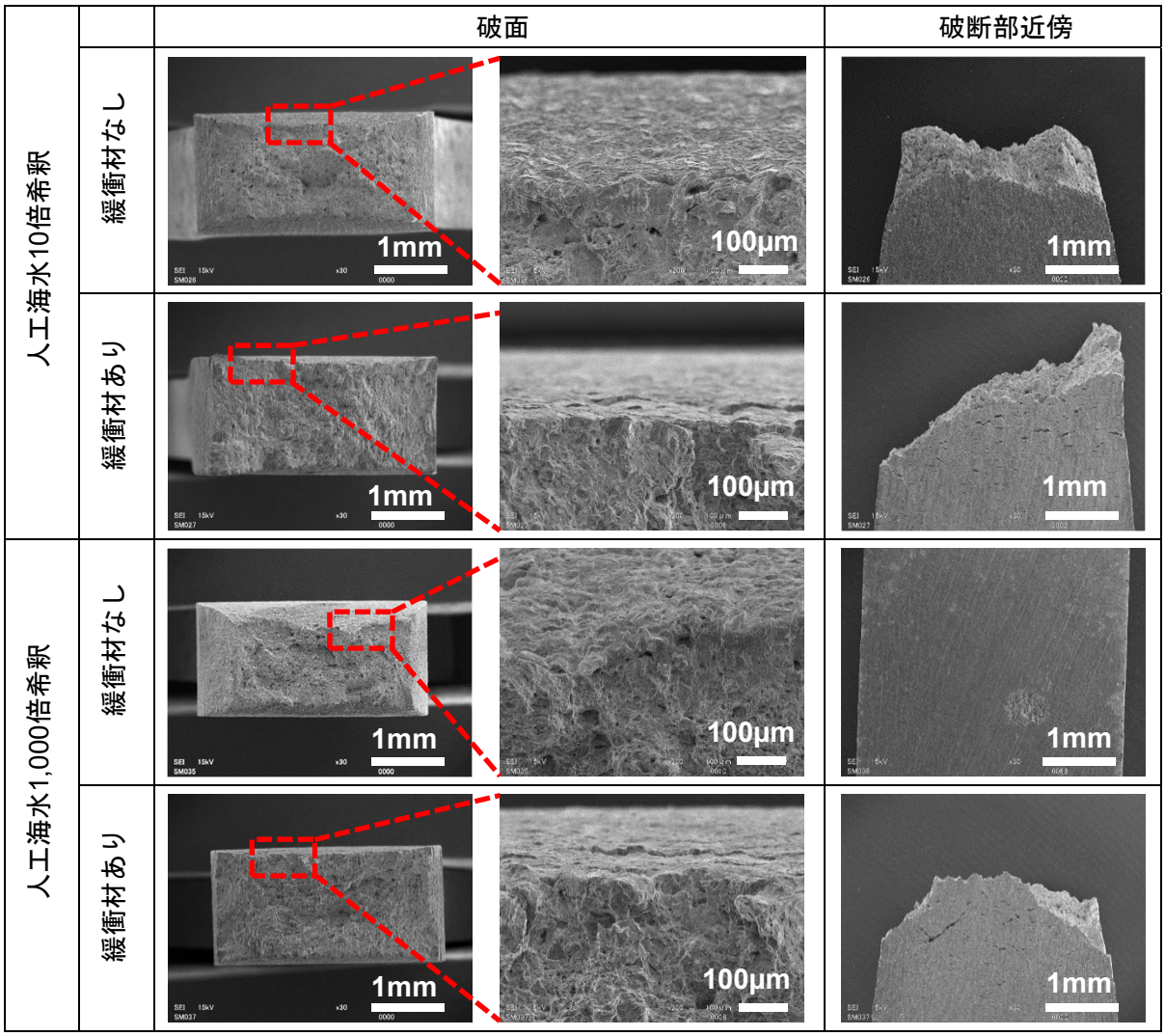
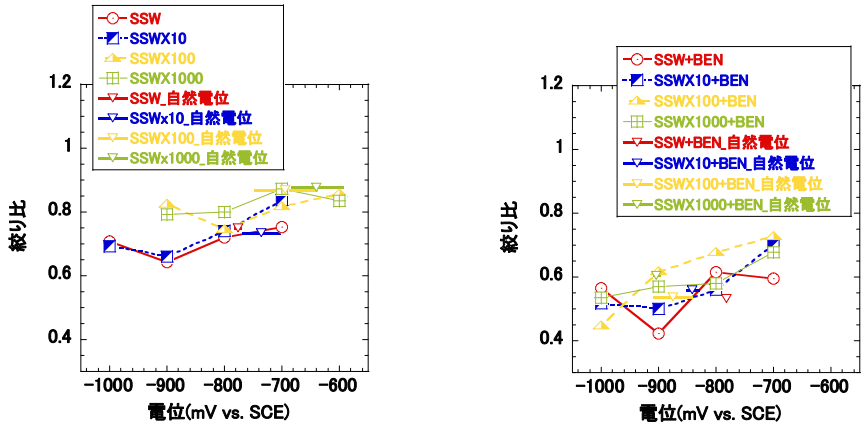


図 2.2-43　破面の SEM 観察結果（電位：自然電位)



(a) 緩衝材なし　　(b) 緩衝材あり

図2.2-44　絞り比の電位依存性

(d) 酸性水環境での SSRT 試験

SSRT 試験により得られた応力-ひずみ線図を図 2.2-45 に示す。この図から(a)炭酸塩環境での SSRT 試験と同様に最大応力比、破断ひずみ比を求めた（図 2.2-46）。

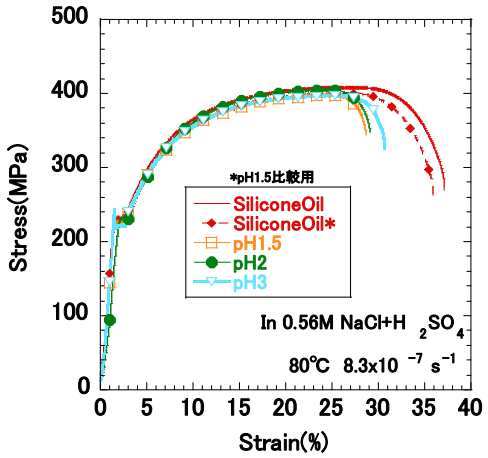


図 2.2-45　酸性水中応力-歪み線図の測定結果（緩衝材あり、自然電位）

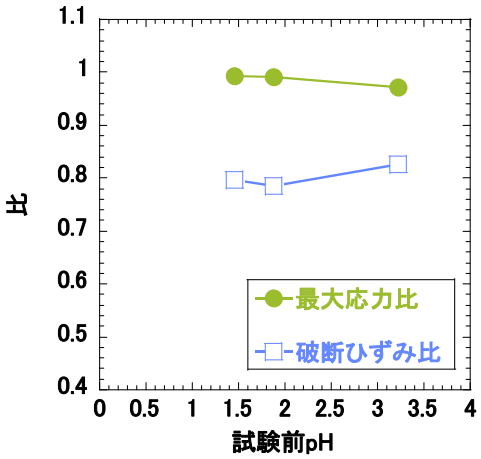


図 2.2-46　最大応力比、破断ひずみ比の pH 依存性（緩衝材あり、自然電位）

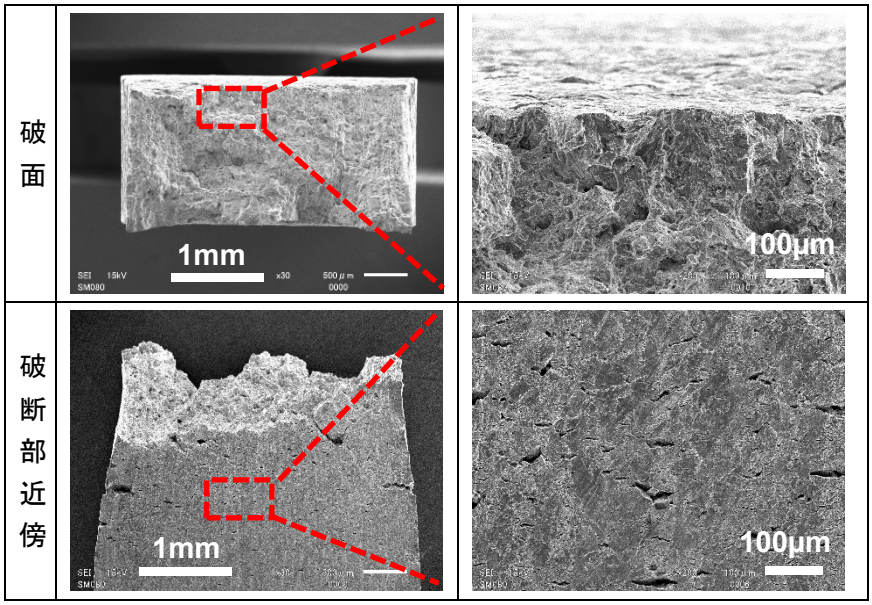
最大応力比については、1 から大きく低下することはなかったが、pH3 の溶液でやや低下した。伸び比については、pH の依存性は明確ではないが pH が低下すると破断ひずみ比が低下し、pH2 と 1.5 は近い値となった。

次に、脱錆処理を行った試験後試験片の破断部近傍を SEM を用いて観察した。その結果を図 2.2-47 および図 2.2-47 に示す。いずれの pH の溶液でも擬へき開破面が認められ、試験面にはクラックが観察され破断部から遠ざかるほど微細になる。クラックは主に引張方向に連なるパーライト上で多く観察された。pH が高いほどクラックは多いように見えるが、pH1.5 では大きなクラックがいくつか観察される。

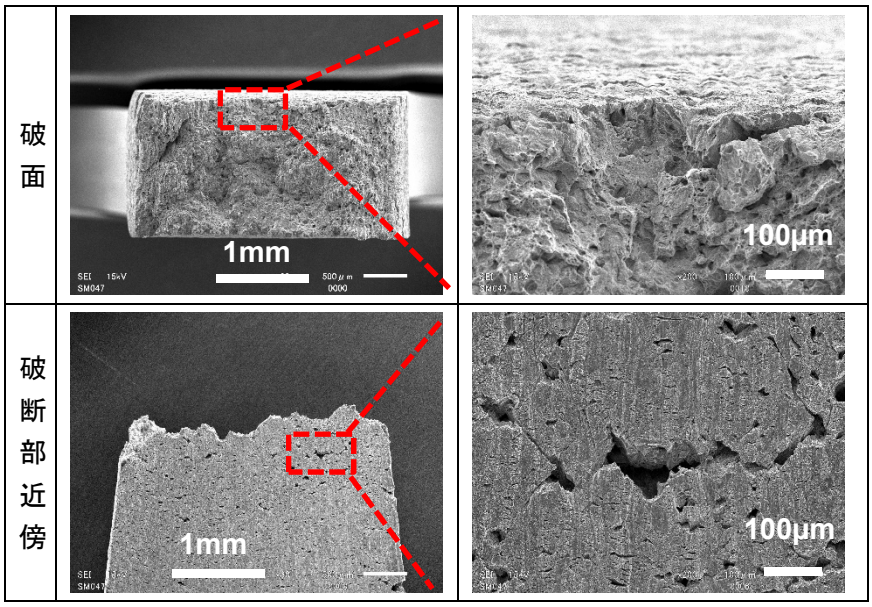
これらの観察結果から、(a)炭酸塩環境での SSRT 試験と同様に絞り $R.A._{sol}$ を式(2.2-1)により算出し、絞り比を求めた。過去の事業での例に従い（例えば、産業技術総合研究所ほか, 2019）、これらの値を用いて擬へき開破面での割れ感受性を評価した。その pH 依存性を図 2.2-49 に示す。

最大応力比、破断ひずみ比とともに同じ塩濃度である人工海水中でのデータ（(c)希釈した人工海水環境での SSRT 試験結果の一部）も表示した。絞り比は pH2、pH3、pH1.5 の順に低下したが大きな違いはなかった。過去の事業「処分システム評価確証技術開発」における浸漬試験の結果（日本原子力研究開発機構, 2015a）では、pH1 で平均腐食速度がやや大きいが pH による腐食速度への影響は顕著ではないことが示されたが、SSRT 試験でも同様の結果が得られた。試験後の SSRT 試験片には黒い皮膜が密着しており、緩衝材による pH 緩衝作用により酸性の影響が緩和された可能性がある。

以上のことから、硫酸酸性溶液で水素脆化割れ感受性が認められたが、人工海水中と比較して大きな低下は認められず pH による割れ感受性への影響は顕著ではないと考える。

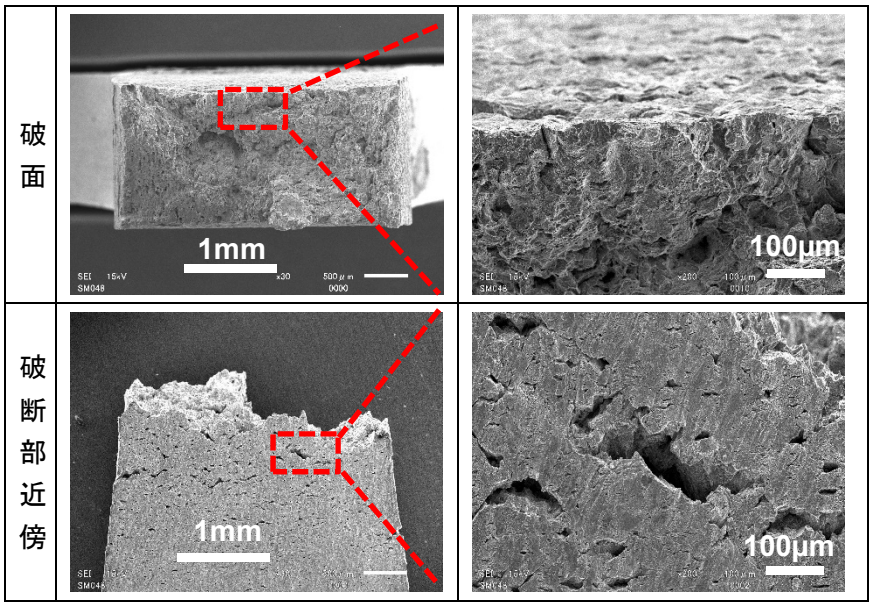


(a) pH1.5（緩衝材あり、自然電位）



(b) pH2（緩衝材あり、自然電位）

図 2.2-47　破面の SEM 観察結果(1/2)



(c) pH3（緩衝材あり、自然電位）

図 2.2-48　破面の SEM 観察結果(2/2)

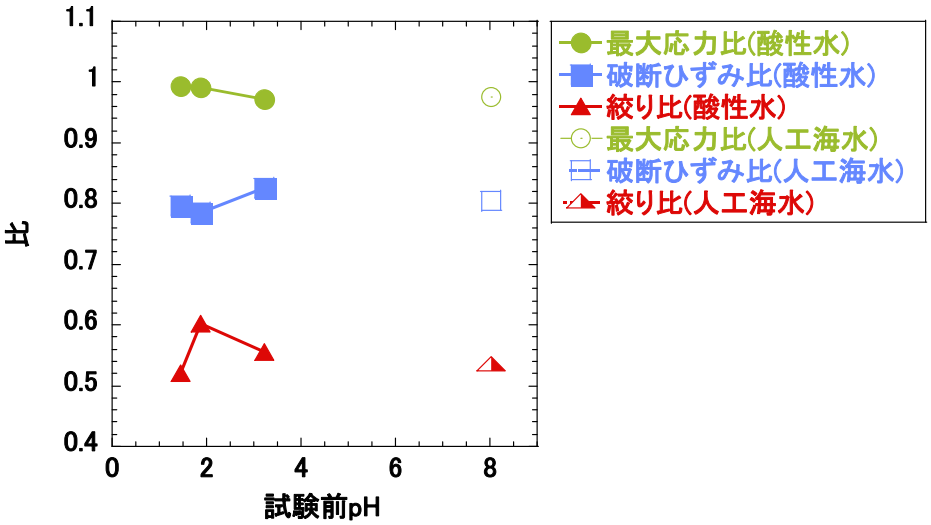


図 2.2-49　最大応力比、破断ひずみ比、絞り比の pH 依存性
（緩衝材あり、自然電位）

⑤ まとめ

広範な環境条件での応力腐食割れ感受性を評価するため SSRT 試験を実施し、以下のことを確認した。

(a) 炭酸塩環境でのSSRT試験

・NaClまたはNa_2SO_4の濃度を変えて添加した溶液中において、破面率でSCC感受性を評価すると、NaCl、Na_2SO_4添加の濃度および化学種による影響は認められず、NaCl、Na_2SO_4添加なしの既往のデータ（日本原子力研究開発機構, 2018a）と比較しても同程度となった。

・SCC感受性を示す電位の範囲は80 °Cに比べて50 °Cで広くなる傾向が認められた。

(b) 高炭酸ガス環境でのSSRT試験

・炭酸ガス濃度を0 %から100 %まで変化させて溶液に吹き込んだところ、溶液中と緩衝材共存下のいずれにおいても割れ感受性の炭酸ガス濃度依存性は認められなかった。

・緩衝材には溶液中での最大応力比および破面への炭酸ガスによる影響を抑制する効果がみられるが、水素脆化によると思われる割れ感受性の上昇が認められた。

(c) 希釈した人工海水環境でのSSRT試験

・人工海水を10倍および1,000倍の倍率で希釈した溶液を用いて試験を行った。これまでに行った希釈なしおよび100倍希釈の結果も合わせると、緩衝材なしの条件では-900 mV以下で希釈なしと10倍希釈の溶液で水素脆化によると思われる割れ感受性影響が比較的大きくなる。

・緩衝材ありの条件では希釈倍率の違いによる感受性への影響は明瞭ではないと考えられる。

・希釈なしと100倍の試験（産業技術総合研究所ほか, 2019）と矛盾しない結果が得られた。

(d) 酸性水環境でのSSRT試験

・硫酸を添加してpH1.5、pH2、pH3に調整した硫酸酸性溶液中では水素脆化割れ感受性が認められたが、人工海水中と比較して大きな低下は認められずpHによる割れ感受性への影響は顕著ではないと考えられる。

2.2.3 5か年の成果と今後の課題

本タスクでは、原位置試験試料等の調査・分析として、緩衝材中に埋設した腐食センサーの調査およびベントナイト中の微生物活性に関するデータ取得を進めるとともに、広範な環境条件での室内試験を実施した。以下にそれぞれの5か年の成果と今後の課題を示す。

(1) 原位置試験試料等の調査・分析

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

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

緩衝材中環境条件や腐食センサーの腐食状態の調査結果に基づくと、過渡期においても、炭素鋼の極近傍は比較的短期間で低酸素濃度環境となり、その環境条件に応じた腐食速度（数μm/y）での腐食、シデライトの生成を想定することができるといえる。一方、炭素鋼から数ミリ程度離れた位置にはゲータイトが検出された。また、オーバーパック腐食試験では、ケイ砂混入により模擬オーバーパックと緩衝材の境界領域に不均一状態が形成され、酸素供給量の違いによるとみられる不均一な腐食が観察された。不均一な腐食は釜石鉱山において実施された粘土充填・熱負荷試験においても観察されている。過渡期に生じるこのような腐食の状態が、オーバーパックの長期腐食や緩衝材基本特性、核種移行に与える影響などの現象把握は、4.2.4項で検討された「処分場閉鎖後過渡期から閉鎖後長期に想定されるシナリオ」の整備をさらに進めるためにも重要である。特に、オーバーパックと緩衝材の境界領域における環境条件の不均一性に起因した腐食挙動など過渡期の状態変遷が、統合化評価で対象とする長期挙動に影響を与える可能性がある。今後、過渡期に生じる状態変遷については、過渡期～長期の挙動にどのような影響を及ぼしうるかを更に詳細に検討する必要がある。

2) ベントナイト中の微生物活性に関するデータ取得

微生物活性挙動に関する平成30年度から令和4年度までの5か年の調査により、幌延URLの原位置試験の模擬オーバーパックと緩衝材の接触部においては、硫酸還元菌などの腐食反応に関与する可能性のある微生物を検出したが、模擬オーバーパック表面の腐食状態との関係から微生物反応は腐食に寄与しておらず温度条件などにより微生物増殖が抑制されていたこと、微生物活性を抑制する条件として高乾燥密度、低空隙率等が重要であることを示唆する知見を拡充することができた。地下環境における原位置オーバーパック腐食試験やベントナイト鉱山の原鉱石を対象とした調査から、長期的な時間スケールにおいても、高乾燥密度条件など期待される緩衝材の機能が十分に発揮されている環境下では、緩衝材中の微生物活性は抑制されうることを明らかにした。令和4年度には取得データの多変量解析を実施し、原位置環境のような実規模を対象とした環境下における緩衝材中の微生物抑制因子として、有効モンモリロナイト密度が重要であることを確認した。微生物増殖の抑制が期待できる有効モンモリロナイト密度は1.4 g/cm^{3}程度であるという知見があるが、ケイ砂30 %が混合したクニゲルV1の場合、乾燥密度にして1.95 g/cm^{3}程度となる。緩衝材中の生菌数と乾燥密度、有効モンモリロナイト密度の関係を調査した結果、乾燥密度1.6 g/cm^3（有効モンモリロナイト密度1.0 g/cm^3）を超える条件においても生菌数のバックグラウンド値を上回る試料があること、ケイ砂の混入率が高い緩衝材中では特に生菌数が高いことを確認した。以上の結果は、乾燥密度を指標とした場合は1.6 g/cm^{3}程度の値は抑制には十分ではない可能性があり、不均一な施工や緩衝材の膨潤速度が微生物増殖の重要な要因の一つとなりえることを

示唆する。長期にわたって処分容器に及ぼす微生物腐食影響を除外できることを示すためには、今後、日本において使用が検討されているベントナイト材料を対象に、実際の地下環境や処分環境を模擬した様々な条件下かつ長期的なスケールで、緩衝材の不均一性や空隙サイズ等の知見とともに、微生物増殖が十分に抑えられていることを示すデータを蓄積することが重要であると考えられる。

(2) 広範な環境条件での室内試験

1) 広範な環境条件における浸漬試験

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

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

2) 広範な環境条件における応力腐食割れ試験

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

2.3 緩衝材の変質挙動評価

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

このような緩衝材の変質がその機能の発現に与える影響などの理解に資するため、これまでに結晶化学的変化について室内試験および原位置試験試料を対象に鉄-ベントナイトの相互作用の調査を行うとともに、二次鉱物の沈殿についてセメンテーションを含む続成変質により生成したとされる月布鉱床のベントナイト原鉱石を対象にセメンテーションによる緩衝材特性の変化を把握してきた（日本原子力研究開発機構, 2018a；日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2019；2020；2021；2022）。

令和4年度は、後述するこれらの変質挙動に関する課題の解決に向けた調査検討として、それぞれ「炭素鋼-緩衝材境界領域における緩衝材の変質」（2.3.1項）および「セメンテーションによる緩衝材特性の変化」（2.3.2項）を実施した。

2.3.1 炭素鋼-緩衝材境界領域における緩衝材の変質

(1) 背景と目的

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

炭素鋼との相互作用に伴うベントナイトの変質は、オーバーパックが1,000年以上の長期にわたって圧縮ベントナイト中に残存し、腐食が継続することを想定して評価を行う必要がある。そのため、圧縮ベントナイト中での炭素鋼との相互作用によるベントナイトの変質メカニズムを理解し、圧縮ベントナイトの長期的な変質挙動を定量的に評価するためのモデルを構築することが必要である。

このような背景を踏まえ、実験的に得られた知見などに基づいて、圧縮ベントナイトの長期的な変質挙動の定量的評価に向けたモデルが提案されてきている（例えば、日本原子力研究開発機構, 2013）。この評価モデルにおいては、オーバーパックの腐食によるFe^{2+}の生成、移行、Fe^{2+}が腐食生成物として沈殿するプロセスや、間隙水の高pH化に伴うモンモリロナイトの溶解と新たな二次鉱物として沈殿するプロセスなどの主要な変質プロセスに対し、モンモリロナイト溶解速度や鉱物の安定性に関する熱力学データなど、各プロセスにおいて考慮されている反応に対するパ

ラメータ値を設定して解析が行われている。評価モデルの信頼性向上のためには、ベントナイトの変質メカニズムの理解を深め、モデルにおける各プロセスの取り扱いの要否を見極めるとともに、モデルに必要なパラメータ値の精度を向上させることが課題である。

本事業における調査では、実際の処分環境を想定した圧縮状態のベントナイトが炭素鋼と接触することに伴うベントナイトの変質に関して、原位置試験や考古学鉄製品接触土壌、室内試験試料の分析により、変質状態の詳細を把握するとともに、それに基づいた評価モデルに組み込む必要のあるプロセスの抽出を行った。

令和2年度までの調査においては、日本原子力研究開発機構の幌延深地層研究センターの地下坑道において実施された原位置でのオーバーパック腐食試験より採取したベントナイト試料と、ナチュラルアナログ事例に関する調査として、月布ベントナイト鉱山の支保工と接触したベントナイト試料および考古学的鉄製品に付着していた土壌の分析を行った（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019 ; 2020 ; 2021）。その結果、幌延深地層研究センターで実施された原位置でのオーバーパック腐食試験より採取したベントナイト試料および月布鉱山の支保工と接触していたベントナイト試料についてはいずれもモンモリロナイトの変質が認められないこと、考古学的鉄製品に付着していた土壌については腐食生成物によるセメンテーションが生じていることや一部のケイ酸塩鉱物粒子は鉄成分による変質が生じたと推測される領域が存在することが確認できた。

令和3年度は、令和2年度の調査により選定した長期間土壌中に埋蔵されていた鉄遺物（弥生時代中期から後期の板状鉄製品および奈良時代の鉄斧）に関する調査を継続して埋蔵環境条件や付着していた土壌中のケイ酸塩鉱物粒子の変質状態に関するデータを拡充するとともに、幌延深地層研究センターで実施した3年間の原位置試験（オーバーパック腐食試験 ; 2.2.2項参照）において使用した腐食センサー（炭素鋼製）表面近傍のベントナイト試料および試験期間5年間の「高温水環境下における長期腐食試験」において炭素鋼試験片に接触していたベントナイト試料の変質状態を電子顕微鏡等で分析した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2022）。その結果、弥生時代の板状鉄製品については表面の腐食生成物が腐食を抑制していた可能性があること、奈良時代の鉄斧については腐食生成物としてシデライトが生成し得る地下水が存在する環境に埋蔵されていたこと、鉄斧に付着していた土壌中の層状ケイ酸塩鉱物とシデライトの界面領域の分析では層状ケイ酸塩鉱物に明瞭な変質が認められないことがわかった。また、腐食センサー接触試料、炭素鋼試験片接触試料は、それぞれ接触面から100 μm程度、200 μm程度まで腐食生成物が緩衝材中に分布する状態が確認され、炭素鋼試験片接触試料については、緩衝材中のモンモリロナイトと腐食生成物（シデライト）の界面で明瞭な変質が認められないものの一部のモンモリロナイトについてはFe型化を示唆するデータが得られた。

令和4年度は、酸化的な埋蔵環境から出土した鉄遺物（鉄釘）に付着していた土壌を分析するとともに、試験期間5年間の「高温水環境下における長期腐食試験」において炭素鋼試験片に接触していたベントナイト試料の変質状態の分析を継続して実施した。

(2) 実施内容

1) 考古学的製品の調査・分析

① 調査・分析試料および調査・分析手法

(a) 調査・分析試料

対象とした試料は、奈良県奈良市の平城宮跡から出土した鉄釘表面からはく離した土壌粒子を含有する腐食生成物層片である。図2.3-1に鉄釘No.4103の腐食生成物層片の写真を示す。なお、鉄釘は奈良文化財研究所の所蔵品である。断面試料は、土壌側から鉄釘側までの腐食生成物層片の厚さが最も大きい箇所（図中の赤い三角で挟まれた部分）を切断して作製した。

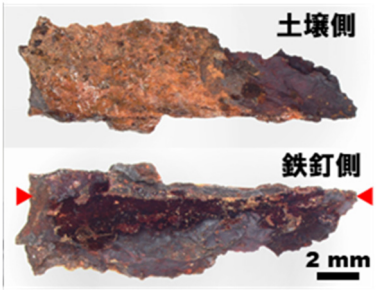


図2.3-1　平城宮跡出土鉄釘No.4103（奈良文化財研究所所蔵品）の表面からはく離した腐食生成物層片

(b) 鉄釘No.4103に関する情報収集

鉄釘No.4103については、奈良文化財研究所柳田明進博士より情報を提供頂いた。

(c) 顕微ラマン分光分析

腐食生成物層片の断面試料について、腐食生成物の種類を特定するため、顕微ラマン分光装置を用いた分析を行った。分析条件を表2.3-1に示す。

表2.3-1　顕微ラマン分光分析分析条件

分析装置	日本分光㈱製、NRS-7100 型		
分析条件	分析法	スポット	
	励起波長	532 nm	785 nm
	レーザーパワー	1 mW	1 - 6 mW
	スリット	100 μmφ	100 μmφ
	アパーチャー	4,000 μmφ	4,000 μmφ
	対物レンズ	×50	×50
	グレーティング	1,200 l/mm	600 l/mm
	観測波数	2,000 - 100 cm^{-1}	2,000 - 100 cm^{-1}
	積算回数	5 回×2 sec	5 回×2 sec
	スポットサイズ	1.5 μmφ	2 μmΦ

(d) 走査型電子顕微鏡分析

腐食生成物層片の断面試料について、ケイ酸塩鉱物の分布状態を把握するため、走査型電子顕微鏡（日本電子株式会社製　JSM-7200F）を用い、加速電圧15 kVにて反射電子像の撮影およびエネルギー分散型X線分光(EDS)による組成分析（マッピング分析）を実施した。観察倍率は170倍とし、取得した画像は、剥離片断面全体が観察できるよう、汎用的な画像解析ソフトウェアであるImageJ(Schneider et al., 2012)を用いた連結処理による加工を行った。

② 調査・分析結果・考察

(a) 鉄釘No.4103に関する情報収集

奈良文化財研究所柳田明進博士より提供頂いた情報によると、鉄釘No.4103は、「平城宮第238次第二次朝堂院東第五堂の調査」（奈良国立文化財研究所, 1993）の際に表土から出土したものである。明治時代以前に使用されていた角釘であることから、年代は8世紀 - 19世紀の間となる。埋蔵深度は、最大10 cm程度である。また、奈良文化財研究所が実施したX線CT分析により鉄釘No.4103内部には金属鉄の残存が確認されており、金属鉄から腐食生成物層表層までの厚さは最大4 mm、平均3 mm程度とのことであった。

(b) 顕微ラマン分光分析

図2.3-2(a)の断面試料のマクロ写真上に顕微ラマン分光分析によって同定した腐食生成物名を記載した。鉄釘側からアカガネイト、マグネタイト、ゲータイトの順に層状に分布していることが確認された。マグネタイトが分布している領域はマクロ写真上で黒色を呈していた。

(c) 走査型電子顕微鏡分析

図2.3-2(b)には、図2.3-2(a)のマクロ写真上の赤枠の範囲の反射電子像(BSE)とEDSによる元素マッピング結果（緑色：Fe、水色：Si、黄色：Clの合成画像）を示した。反射電子像で最も輝度の高い領域は顕微ラマン分光分析でマグネタイトの分布が確認された箇所に対応する。アカガネイトが確認された箇所はEDSによりClが検出されている。ゲータイトが確認された箇所ではSiが検出されており、この領域では土壌由来の鉱物粒子が含有されることが分かる。

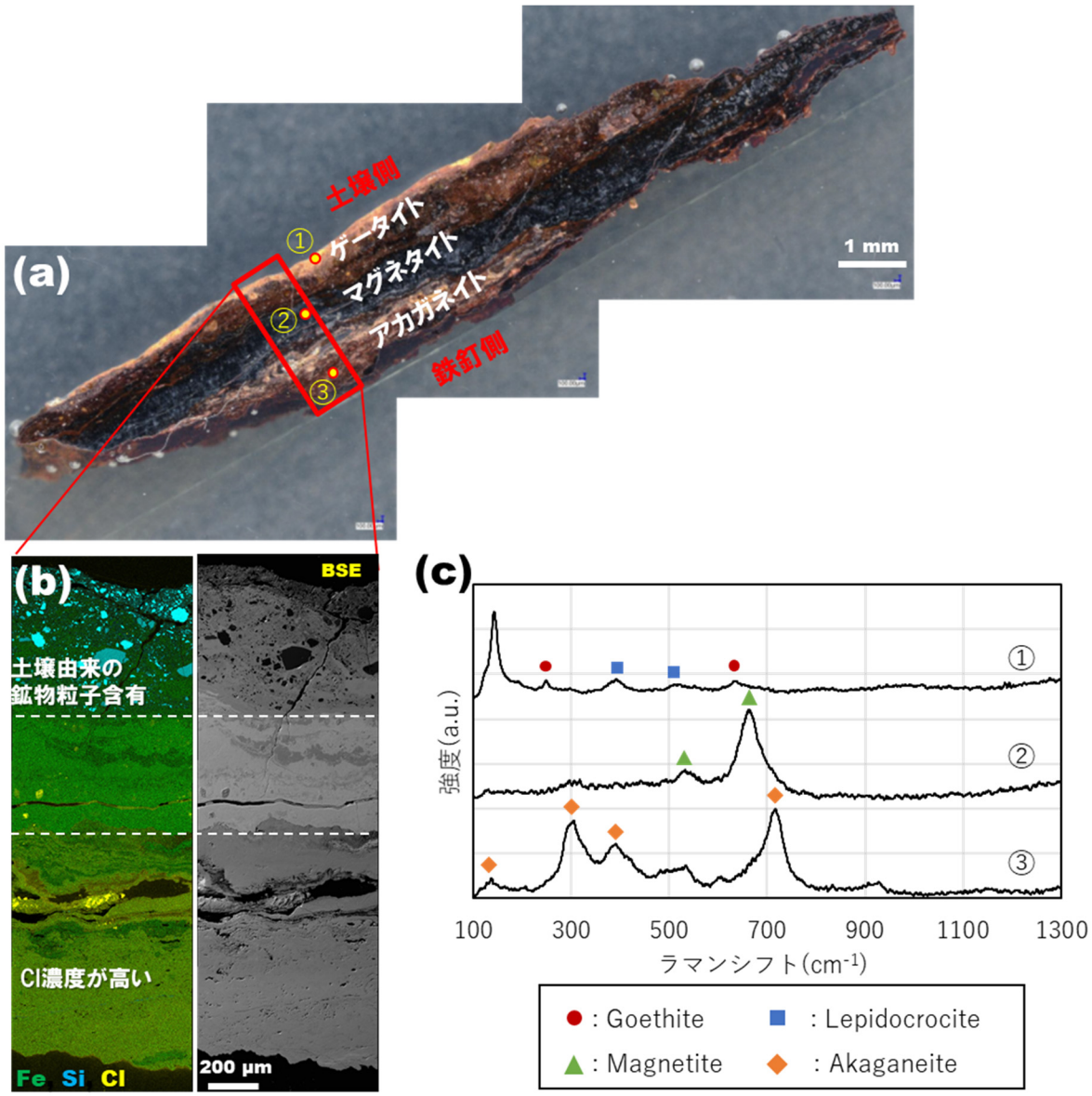


図2.3-2　平城宮跡出土鉄釘の剥離腐食生成物層片の断面試料分析結果

(d) 考察

鉄釘側から土壌側までに層状に分布する腐食生成物の種類（アカガネイト、マグネタイト、ゲーサイト）や土壌由来の鉱物を混入してゲーサイトが生成している状態は、令和2年度に調査した博多遺跡出土鉄製品と同一であることから、鉄釘No.4103は博多遺跡出土鉄製品と類似した埋蔵環境であったことが示唆される。

Bellot-Gurlet et al.(2009)の整理では、埋蔵環境への酸素の影響の程度が大きい場合、ゲーサイトが土壌由来の鉱物の間隙を充填する状態で沈殿する傾向がある。ゲーサイト等の生成は、2.2節で示した幌延URLの「オーバーパック腐食試験」で使用された腐食センサーの緩衝材で確認されたほか、岩手県釜石市の釜石鉱山における「粘土充填・熱負荷試験」の緩衝材（炭山, 1999）、SKB（スウェーデン放射性廃棄物管理機関）による国際共同研究の中のABM(Alternative Buffer Material)プロジェクト(Eng et al., 2007)のクニゲルV1（日本原子力研究開発機構, 2011）、スイスのグリムゼル試験場で18年間実施されたFEBEX原位置試験のヒーター（ライナーは炭素鋼）と

接触していた緩衝材(Hadi et al., 2019)を対象とした分析でも報告されている。原位置試験は閉鎖系の試験ではないため、酸素の影響を受けたことが原因と考えられる。2.2節で紹介した通り、日本原子力研究開発機構（2011)はABMプロジェクトの鉄製ヒーターに接触していたクニゲルV1の変色域の緩衝材の透水係数の増加を報告している。このほか、ゲータイト等の生成により緩衝材の膨潤圧や核種移行に関わる特性も変化する可能性があり、廃棄体の定置後に処分環境に存在する酸素の影響によってどの程度の腐食生成物によるセメンテーションが生じうるか、またセメンテーションによりどのような特性が変化するのかを評価する必要があると考える。

2) 腐食試験試料から採取した炭素鋼接触ベントナイトの分析

① 分析試料および分析手法

(a) 分析試料

分析試料は、試験期間5年間の「高温水環境下における長期腐食試験」（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2022）において炭素鋼試験片に接触していたベントナイト試料のうち、試験温度50 °Cおよび120 °Cの試料である。図2.3-3にそれぞれのベントナイト試料の外観写真を示す。試験温度50 °C、120 °Cの試料を本報告ではそれぞれ試料A、試料Cと称する。電子顕微鏡観察に供するため、炭素鋼試験片との接触面(30×30 mm)に直交する断面で試料をそれぞれ切断し、研磨時に水を使わない乾式研磨法（特許第5633078号「乾式研磨法による脆弱試料薄片の作製法」）にて厚さ約3 mmの厚片を作製した。なお、試験温度80 °C、160 °Cの試料については令和3年度に電子顕微鏡観察を実施しており（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2022）、それぞれ試料B、試料Dと称する。

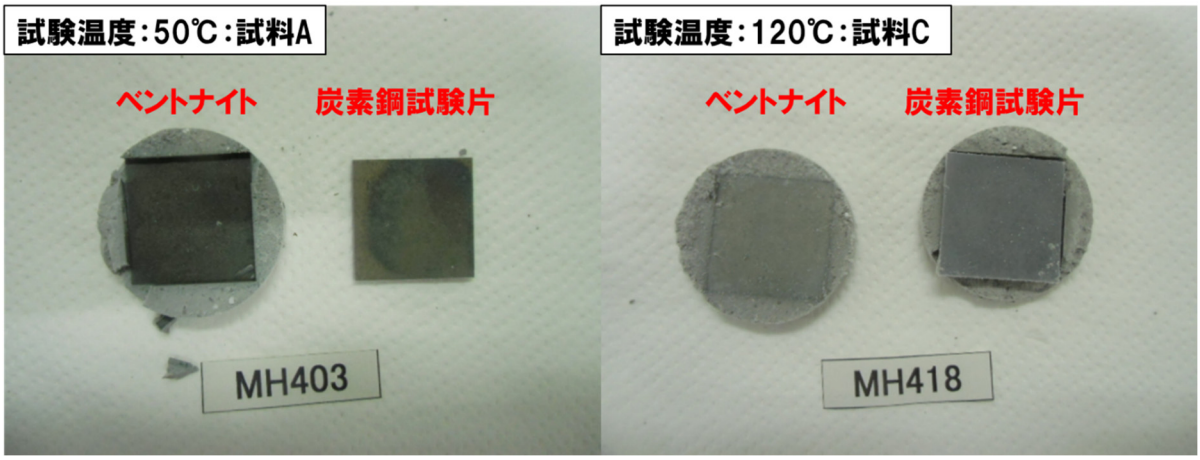


図2.3-3　分析に供したベントナイト試料の外観写真

(b) 走査型電子顕微鏡分析

試料AおよびCについて、Fe等の濃度分布を把握するため、走査型電子顕微鏡（日本電子株式会社製JSM-7200F）を用い、加速電圧15 kVにて反射電子像の撮影およびエネルギー分散型X線分光(EDS)による組成分析（マッピング分析）を実施した。なお、観察面はイオンミリング装置（日立ハイテクノロジー社製IM-3000）を用い、加速電圧6 - 20 kVの条件で平滑加工処理を施した。観察倍率は170倍（低倍率）、1,200倍（高倍率）とし、170倍で取得した画像は、汎用的な画像解析ソフトウェアであるImageJ(Schneider et al., 2012)を用いた連結処理を行い、深さ方向（接触面から離れる方向）の濃度分布の把握等に利用した。

(c) 透過型電子顕微鏡分析

試料AおよびCについて、集束イオンビーム(FIB)装置（日立ハイテクノロジー社製NB5000）および冷却装置（日立ハイテクノロジー社製雰囲気遮断冷却ホルダー）を用いて薄膜切片試料を作製した。作製した薄膜切片試料について、透過型電子顕微鏡（日本電子製JEM-2100FおよびJEM-ARM200F）を用いた観察・分析を行い、モンモリロナイトの変質の有無を確認した。薄膜切片試料作製時の加速電圧は10 - 40 kV、ステージ温度は約-130 °Cである。また、TEM分析時の加速電圧は200 kV、取得データは明視野像、電子回折像、元素組成（マッピング分析、点分析、線分析）である。

② 分析結果

(a) 走査型電子顕微鏡分析

図2.3-4および図2.3-5に、SEM観察により試料A、Cの反射電子像(BSE)と、EDSによる元素マッピング結果(Fe、Si、Al)を示す。各試料の高倍率観察箇所（図2.3-4および図2.3-5の赤枠で囲まれた箇所1 - 5）の反射電子像(BSE)と、EDSによる元素マッピング結果（Fe、Si、Al、Cl、Mg強度を合成）を図2.3-6および図2.3-7に示す。試料A、Cは、それぞれ接触面から100 µm程度まで腐食生成物が分布する状態が確認された。接触面近傍を対象に透過型電子顕微鏡による観察を行うこととした。FIB薄膜切片作製位置を図2.3-6と図2.3-7の反射電子像内に示す。

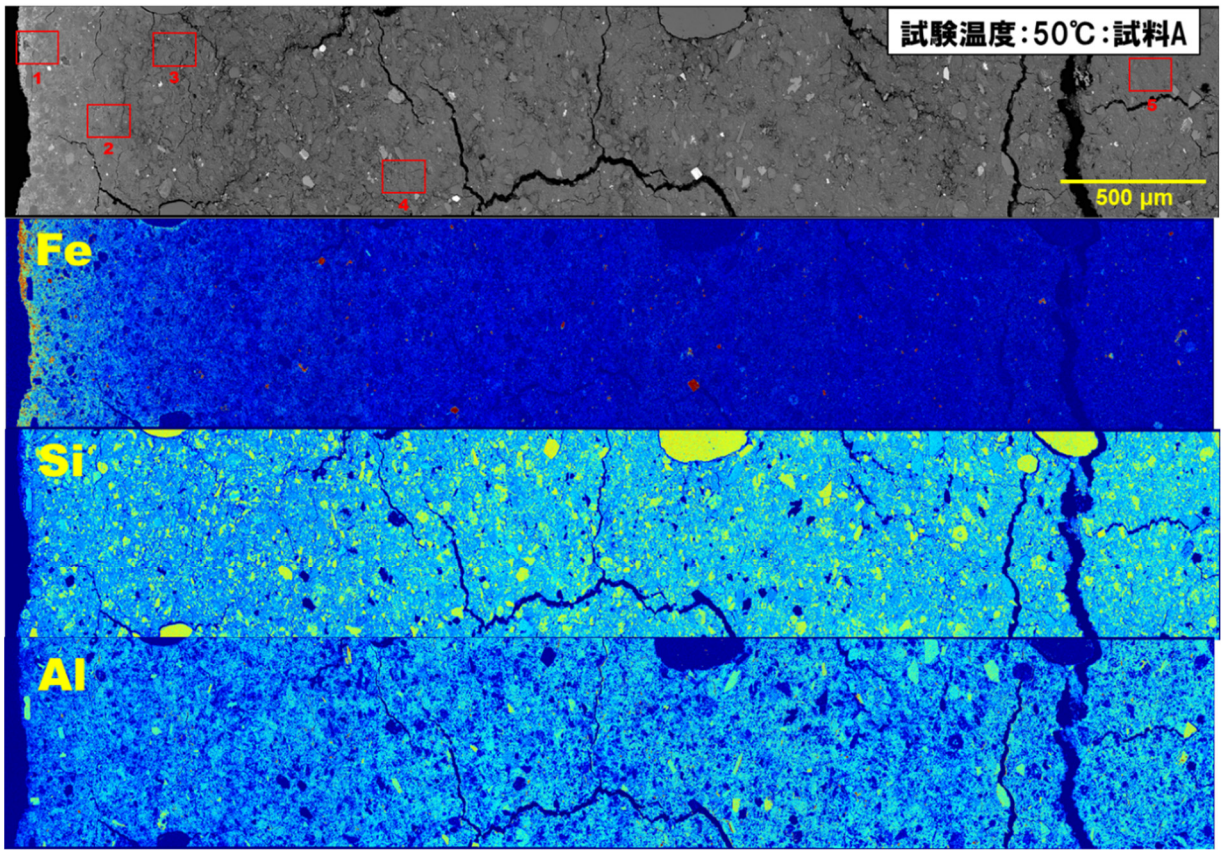


図2.3-4　試料AのSEM分析結果（赤枠部が高倍率観察領域）

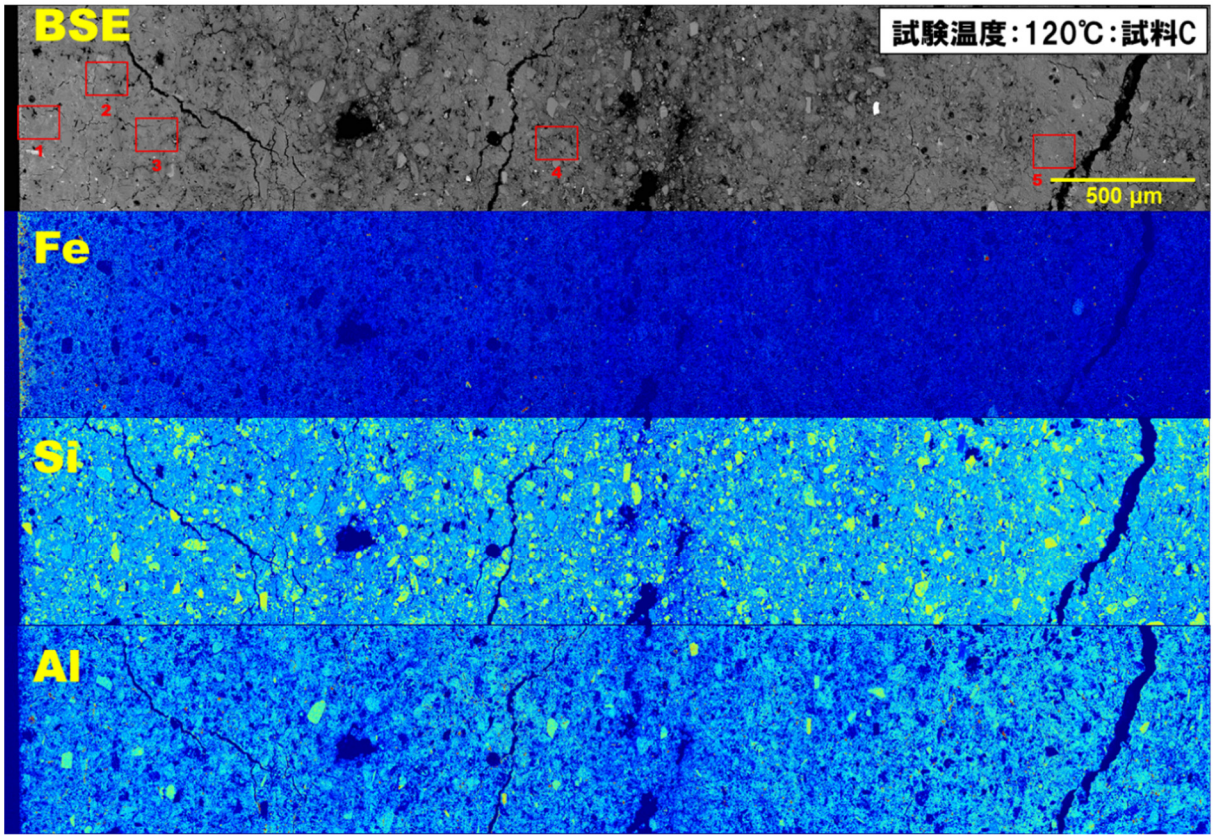


図2.3-5　試料CのSEM分析結果（赤枠部が高倍率観察領域）

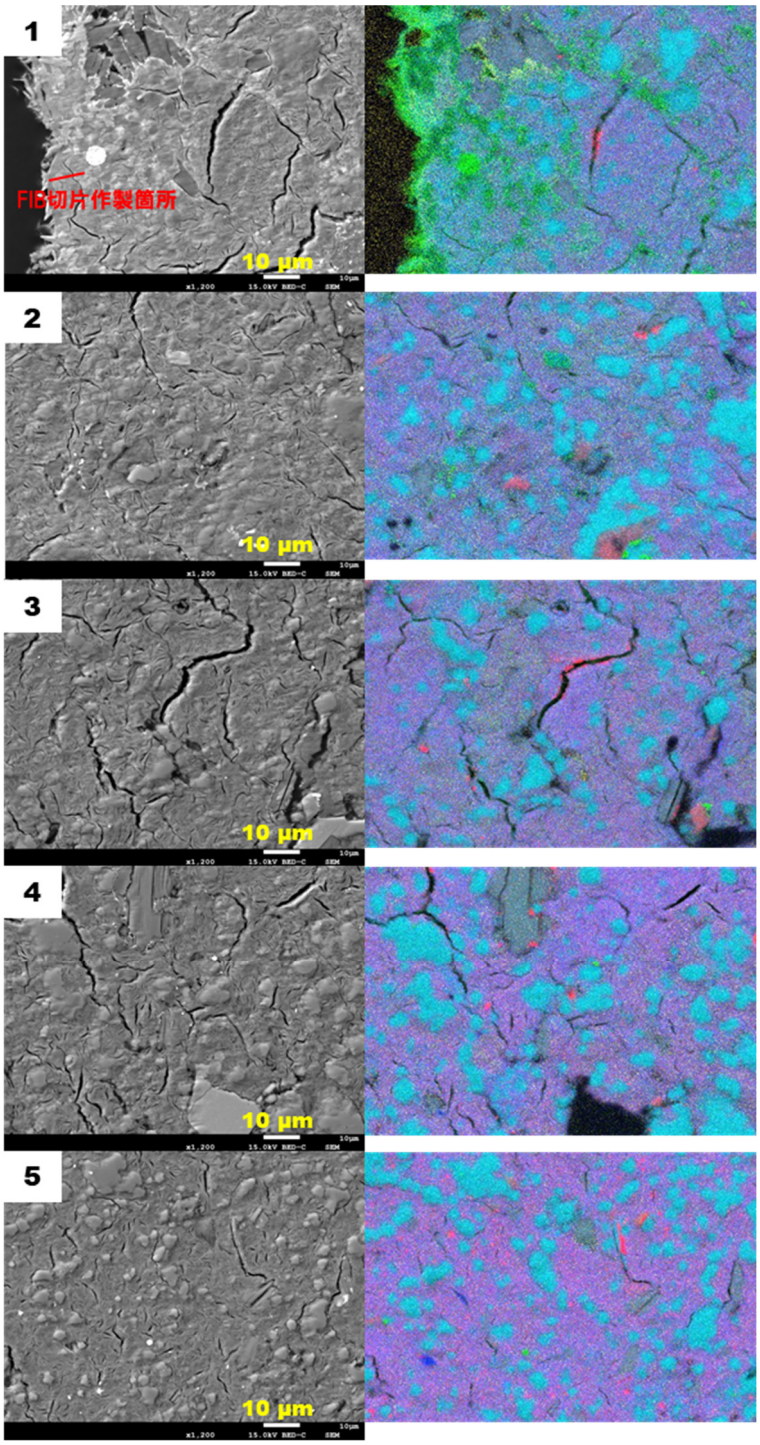


図2.3-6　試料Aの高倍率SEM分析による反射電子像と元素合成画像
（水色：Si、赤色：Al、緑色：Fe、青色：Mg、黄色：Cl）

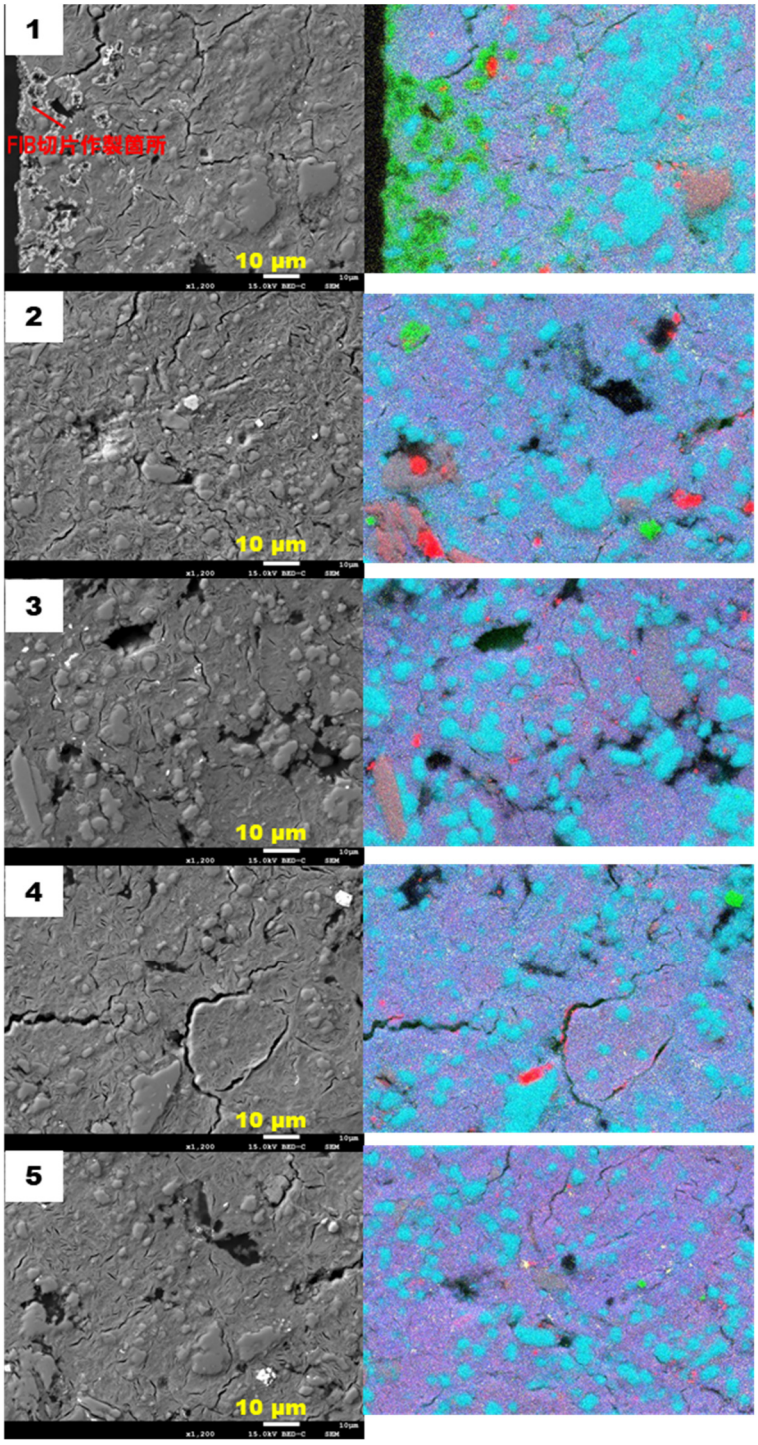


図2.3-7　試料Cの高倍率SEM分析による反射電子像と元素合成画像
（水色：Si、赤色：Al、緑色：Fe、青色：Mg、黄色：Cl）

(b) 透過型電子顕微鏡分析

試料Aおよび試料CのTEM分析結果をそれぞれ図2.3-8および図2.3-9に示す。図の左側が炭素鋼試験片との接触面側である。

試料Aについて、電子回折分析により、元素合成画像（図2.3-8b）の明るい緑色の領域（HAADF像（図2.3-8a）で輝度の高い領域）はシデライト、水色の領域はシリカ鉱物、赤色の領域はモンモリロナイトが分布していることが確認された。モンモリロナイトの電子回折像からd(001)を求めると15 Åであることが確認されたことから、モンモリロナイトの層間陽イオンがFeに変化している可能性などが考えられる（図2.3-8d）。元素合成画像において、シデライト近傍に暗い緑色の領域があるが、電子回折分析ではハローパターン（非晶質）、EDS分析ではFeとSiを含有することが確認された（図2.3-8c）。本報告では、この物質を「Fe、Si含有非晶質物質」と称することとする。Fe、Si含有非晶質物質は、モンモリロナイト由来のAlを含有しないことからモンモリロナイトの変質物質ではないと考える。

試料Cについて、電子回折分析により、元素合成画像（図2.3-9b）の明るい緑色の領域（HAADF像（図2.3-9a）で輝度の高い領域）はシデライト、水色の領域にはシリカ鉱物が分布していることが確認された。モンモリロナイトについてはハローパターン（非晶質）となったため、層間陽イオンの変化を確認することはできなかった。HAADF像で粘土鉱物の格子縞が確認できることから、分析の過程で電子線のダメージにより非晶質化した可能性がある。試料Cについては、Fe、Si含有非晶質物質は確認できなかった。

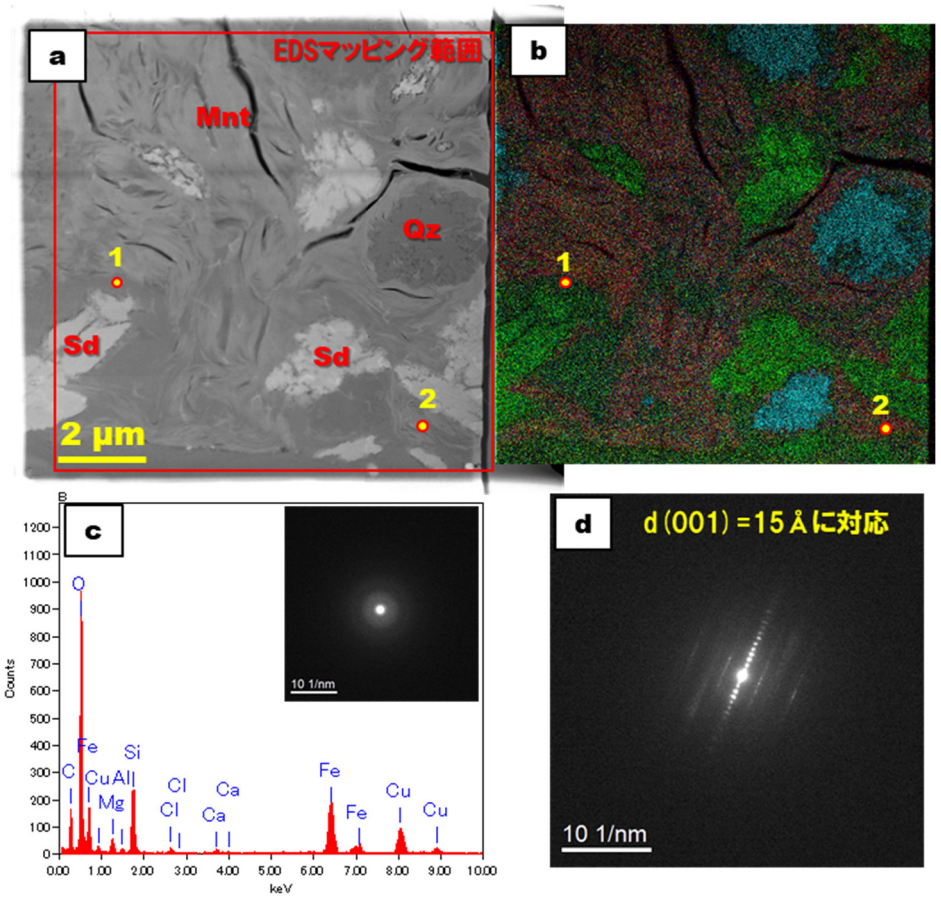


図2.3-8　試料AのTEM分析結果

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

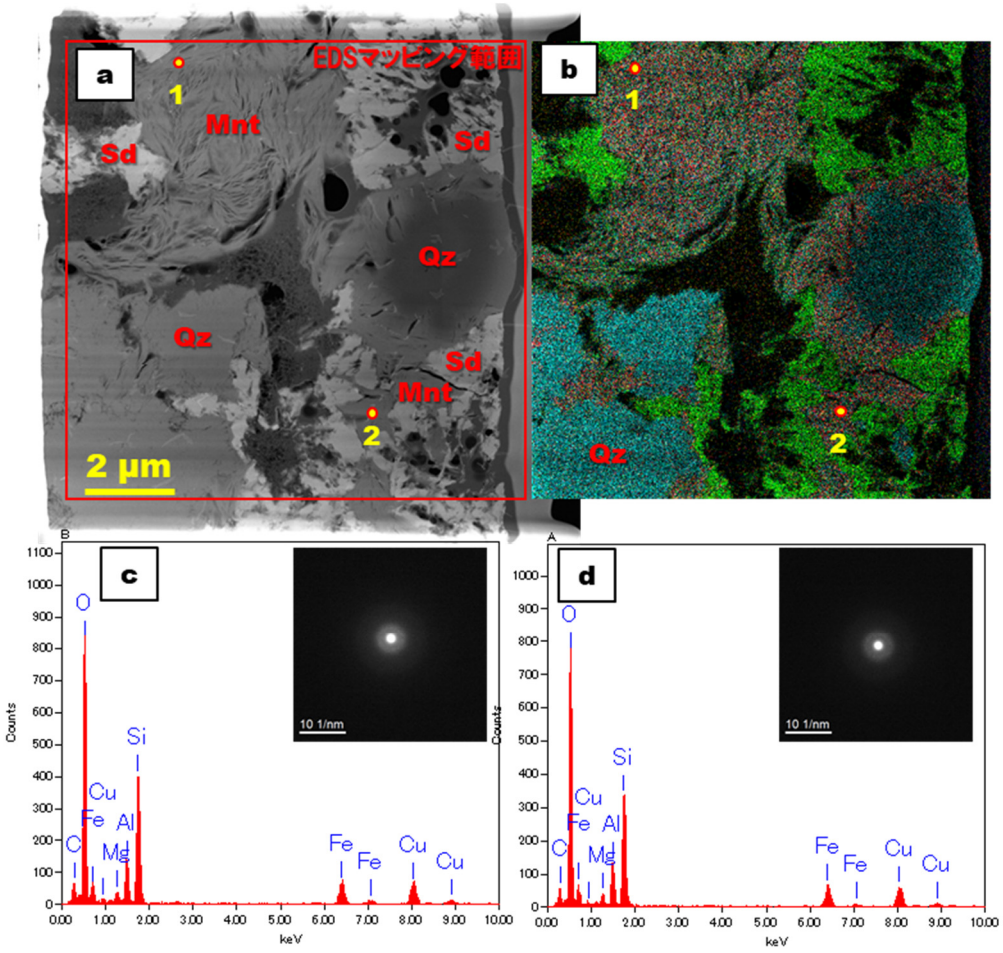


図2.3-9　試料CのTEM分析結果

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

(c) 考察

令和3年度に分析を実施した試料Bおよび試料DのTEM分析結果を精査したところ、試料BについてはFe、Si含有非晶質物質に対応する領域が存在することが確認された。試験期間5年間の「高温水環境下における長期腐食試験」（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2022）において炭素鋼試験片に接触していたベントナイト試料（試料A、試料B、試料C、試料D）の分析結果を表2.3-2に示した。このうち、X線回折分析(XRD)による腐食生成物の判定は炭素鋼試験片の分析結果である（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2022）。試験温度160 °Cの試料のみ、マグネタイトが検出されているが、2.2節で述べたように、試験期間1年の試料では試験温度160 °Cの条件においてもシデライトが検出されている。炭酸化学種が枯渇したことで、腐食生成物の種類の変化が生じた可能性がある。また、シデライトの溶解度は負の温度依存性を示すことから（例えば、Sun et al., 2009）、温度の上昇に伴い緩衝材間隙中のFe^{2+}イオン濃度は低下する（図2.3-10）。モンモリロナイトの層間陽イオンの変化やFe、Si含有非晶質物質の有無は、シデライトの溶解度の温度依存性に関連づけられる可能性がある。

表2.3-2　炭素鋼試験片に接触していたベントナイト試料の分析結果まとめ

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

Sd:シデライト、Mag：マグネタイト、－：検出されず、※：非晶質化

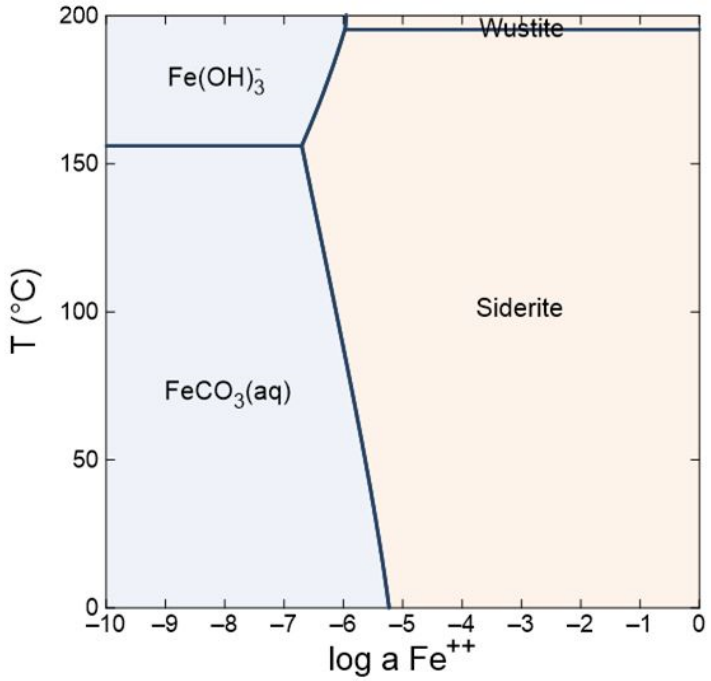


図2.3-10　シデライトの溶解度の温度依存性

3) 緩衝材の長期変質量の推定

原子力発電環境整備機構の包括的技術報告書（原子力発電環境整備機構, 2021）では、鉄影響による緩衝材の変質解析の結果に基づき変質範囲は限定的であるとしている。これは界面近傍の二次鉱物（マグネタイトなど）の沈殿により間隙率が低下し、物質移行が抑制されることによる。令和2年度および令和3年度に調査を実施した奈良県奈良市の平城宮跡（奈良時代）から出土した袋状鉄斧No.5849（奈良文化財研究所所蔵品）（埋蔵期間1200 - 1300年）から剥離した腐食生成物層片は土壌鉱物を含有する状態のシデライトであった（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2021；2022）。また、2.2節および表2.3-2に示したように試験期間

5年間の「高温水環境下における長期腐食試験」（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2022）の腐食生成物として、炭素鋼試験片表面および試験片近傍の緩衝材中にシデライトが確認されている。谷口ほか(2010)は試験期間10年におよび長期の浸漬試験を実施し、炭素鋼試験片表面にシデライトが生成する場合は腐食反応が抑制されることを報告しており、2.2節に示した5年間の腐食量の経時変化からも腐食反応の抑制が示唆される。また、大阪府八尾市の大竹西遺跡の弥生時代の遺構から出土した鉄剣の調査においても表面に生成したシデライトにより腐食反応が抑制されたことを示唆する結果が得られている(Mitsui et al., 2012)。以上を踏まえると、現時点では詳細なメカニズムは不明であるものの、シデライトなどの腐食生成物がオーバーパック表面や近傍の緩衝材中に沈殿することにより物質移行が抑制されると考えることは合理的である。表2.3-2に示したように、試験温度50 °Cおよび80 °Cの条件においてモンモリロナイトの層間陽イオンの変化やFe、Si含有非晶質物質の沈殿は確認されているものの、モンモリロナイトが非膨潤性鉱物などの他の鉱物に変質するといった状態は確認できなかった。ここでは、オーバーパックの腐食に伴って放出されるFeイオンが全てシデライトとして沈殿する状態を仮定し、以下の2つのケースでシデライトによる10,000年間のセメンテーションの厚さの推定を試みた。べき乗則については、試験温度80 °Cの試験結果を概ね近似できる係数を採用した。

・包括的技術報告書の鉄影響評価における一定の腐食速度(0.2 μm/y)を用いた推定
・べき乗則($Y=0.015t^{0.5}$)を用いた推定

腐食深さとセメンテーション厚さの関係は図2.3-11と式(2.3-1)に示した。一定の腐食速度又はべき乗則から得られた腐食深さ(Y)をシデライトの厚さに換算した後、シデライトの厚さから腐食深さを差し引いた残りを間隙率(ε)で除し、セメンテーション厚さ(T)を求めた。

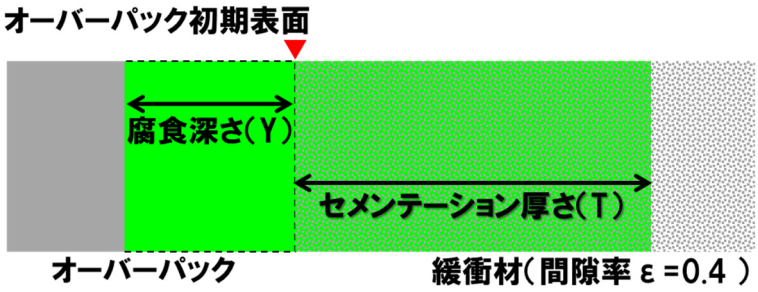


図2.3-11　腐食深さ（Y）とセメンテーション厚さ（T）の関係

$$T = \left(\frac{Y \cdot \rho_{Fe} \cdot M_{FeCO_3}}{M_{Fe} \cdot \rho_{FeCO_3}} - Y \right) \times \frac{1}{\varepsilon} \qquad (2.3\text{-}1)$$

ここで ρ_{Fe}、ρ_{FeCO3}は鉄とシデライトの密度、M_{Fe}、M_{FeCO3}は鉄とシデライトのモル質量である。

図2.3-12はセメンテーション厚さの経時変化を示したものである。いずれのケースにおいての10,000年間のセメンテーション厚さは10 mm程度である。緩衝材厚さを「第2次取りまとめ」（核燃料サイクル開発機構, 1999a）と同様な700 mmとした場合、緩衝材厚さの1.5 %程度であり、緩衝材の基本特性への影響は著しいものではないと考える。しかしながら、緩衝材の間隙がシデライトにより充填されることから、核種移行が抑制される可能性はある。

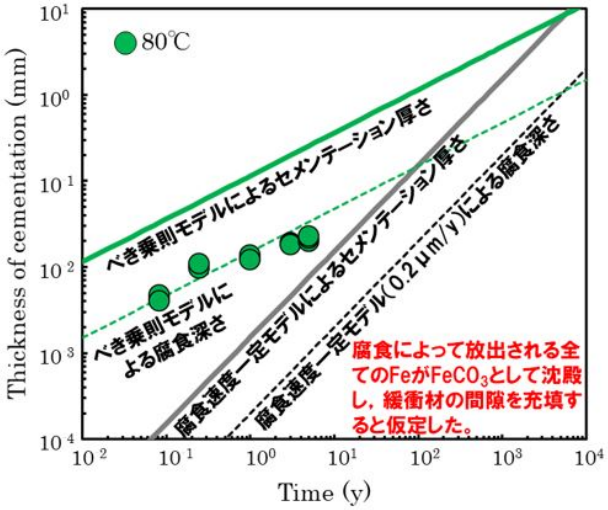


図2.3-12　腐食深さ（Y）とセメンテーション厚さ（T）の経時変化

上述したように、試験温度50 °Cおよび80 °Cに試料についてはモンモリロナイトのFe型化やFe、Si含有非晶質物質が確認されており、実際には腐食に伴って放出されたFeイオンの全てがシデライトとして沈殿している状態ではない。腐食深さと生成する腐食生成物の割合を含め、界面領域の状態の詳細については、腐食試験片と緩衝材を分離しない形で断面試料を作製し、観察・分析を行う必要がある。また、令和3年度に開発した画像解析による試料中の空隙・鉱物組成定量法（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2022, 2.3.2セメンテーションによる緩衝材の変質）などを活用することで、セメンテーション物質である腐食生成物の沈殿量を定量できる可能性がある。

(3) 5か年の成果と今後の課題

原位置試験試料、考古学的鉄製品接触土壌試料、長期腐食試験試料を対象とした平成30年度から令和4年度までの5か年の検討により、炭素鋼-緩衝材境界領域における緩衝材の変質状態の詳細を把握することができた。いずれの試料においても、モンモリロナイト（考古学的鉄製品接触土壌試料については層状ケイ酸塩鉱物）が非膨潤性鉱物などの他の鉱物に変質するといった状態は確認できなかった。考古学的鉄製品接触土壌試料、長期腐食試験試料については、腐食生成物の沈殿により土壌又はベントナイトのセメンテーションする状態が確認された。また、長期腐食試験試料のうち、50、80 °Cの温度条件の試料については、モンモリロナイトのFe型化やFe、Siを含有する非晶質物質の生成が確認された。この状態についてはシデライトの溶解度の温度依存性の影響を受けている可能性がある。緩衝材の長期変質量については、試算したシデライトの沈殿によるセメンテーションの厚さが緩衝材の厚さに較べて十分に小さく、基本特性への影響は著しくないと推定した。本項で得られた新たな知見は、4.2.4項の「処分場閉鎖後過渡期から閉鎖後長期に想定されるシナリオ」で整理された「鉄ーベントナイト相互作用を対象にしたシナリオ」に関する既存の知見の更新に資することが期待できる重要なものである。知見の更新につなげるためにも、今後は、試験期間20年を超える長期の炭素鋼接触試料等を対象とした、炭素鋼試験片から緩衝材の界面領域の詳細な分析等により、炭素鋼と緩衝材の相互作用に関する知見を拡充するとともに、シデライトの生成挙動と緩衝材の変質状態の関係を明らかにする必要がある。また、鉄影響による緩衝材のセメンテーションの範囲は緩衝材の厚さに較べて十分に小さいことから緩衝

材の基本特性に与える影響は著しいものではないと推定されるが、緩衝材中のシデライトや非晶質物質の沈殿、モンモリロナイトのFe型化は核種移行に影響する可能性があり、統合化評価で対象とする緩衝材の状態変遷等に顕著な影響を及ぼす可能性のある現象のシナリオ構築に向け、知見の拡充が求められる。

2.3.2 セメンテーションによる緩衝材の変質

(1) 背景と目的

モンモリロナイトあるいは随伴鉱物の溶解に伴うアモルファスシリカなどの二次鉱物の間隙への沈殿や、発熱廃棄体の近傍での間隙水の蒸発・凝縮の過程で生じる溶質の析出に伴う土粒子同士の固着（セメンテーション）により、モンモリロナイトの鉱物学的変質が起こらない場合でも、膨潤特性や応力緩衝性などの緩衝材に要求される性能が低下することが懸念される（例えば、核燃料サイクル開発機構, 1999b）。ベントナイト鉱山の原鉱石は、このセメンテーションを含む続成作用により、粒子同士が固着した岩石の状態で存在している可能性がある。このような原鉱石のセメンテーションの状態の分析や諸特性の評価は、処分環境における緩衝材のセメンテーションの可能性やそれによる諸特性の変化の理解に役立つと考えられる。これまで、山形県大江町月布のベントナイト鉱床から採取した1番層、29番層、31番層の原鉱石および原鉱石を粉状に粉砕したものを締め固めることにより土粒子構造を再構成した試料（以降では、「再構成試料」と呼ぶ）を対象として、膨潤圧や透水係数などの基本特性の測定を行ってきた（日本原子力研究開発機構, 2018a；日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019；2020）。セメンテーションの影響は粉砕等の処理により取り除くことができることが報告されており（伊藤ほか, 2017）、原鉱石との比較によりセメンテーションによる基本特性等への影響を観察することができると考えられる。再構成試料の膨潤圧は、圧縮ベントナイトに対して取得されてきた経験式と同等の値を示すが、一部の原鉱石の膨潤圧は経験式よりも小さくなる傾向があり、有効モンモリロナイト密度が大きくなれば、その傾向が顕著になることが確認された（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019）。このことは、セメンテーションの影響により膨潤圧が低くなる可能性を示唆する。既往の研究（伊藤ほか, 2017）においても、本事業とは供試体の作製方法が異なっているものの、原鉱石の膨潤圧は再構成試料よりも1桁程度小さいとの結果が得られており、本事業の結果と整合的であった。一方、透水係数は、原鉱石、再構成試料とも圧縮ベントナイトと同等の値であり、セメンテーションの影響により透水性は変化しない可能性を示唆した。さらに、平成31年度はベントナイトの応力緩衝性などの力学的特性に与えるセメンテーションの影響を検討するため、29番層の原鉱石と再構成試料を用いた標準圧密試験を開始し、セメンテーションにより剛性が高くなる可能性を示唆する成果を得た。また、膨潤圧の低下などの要因の特定に役立てるため、電子顕微鏡などを用いて月布鉱山産ベントナイト原鉱石のセメンテーション状態の観察や、地層処分で想定されている環境条件、時間スケールでセメンテーションが生じる可能性を評価するための実験的研究手法について予備的な検討を開始した。令和2年度は、処分環境でどのようなセメンテーションが生じ、それが緩衝材の機能にどのような影響を及ぼしうるのかを把握するため、ベントナイトのセメンテーションおよびケミカルエロージョンに関するナチュラルアナログ研究および実験的研究による既存成果を調査するとともに、平成31年度より開始した電子顕微鏡等を用いた原鉱石のセメンテーション状態の観察、セメンテーションに関する実験的研究手法の検討を継続して実施し、不均質な空隙構造や29番層の原鉱石におけるモンモリロナイト粒子端面がシリカ微粒子に接合する組織など、膨潤性の低下の要因と考えられる原鉱石のセメンテーションの状態を確認することができた。また、標準圧密試験を平成31年度から継続して行い、試験後試料の乾燥密度測定などを行い、剛性への影響の理解を進め

た。さらに、セメンテーションの原因物質の溶解等に伴うセメンテーション状態の経時的な変化を観察するため、原鉱石と再構成試料を対象とした複数年程度の長期の膨潤圧試験を開始した。令和3年度は、月布鉱山産ベントナイト原鉱石で確認されたシリカ鉱物によるセメンテーションに着目した既存研究成果を調査するとともに、セメンテーションの影響を受けていると推察される月布鉱山産ベントナイト原鉱石、その再構成試料および熱履歴を受けたベントナイト試料の電子顕微鏡による観察、セメンテーション状態の経時的な変化に伴う基本特性の変化を観察するための原鉱石およびその再構成試料を対象とした長期膨潤圧試験の継続、セメンテーションに関する実験的研究手法の検討を実施した。その結果、1番層、31番層の原鉱石についてもモンモリロナイト粒子端面がシリカ微粒子に接合する組織が存在すること、再構成試料にはこのような組織が存在しないことを確認するとともに、セメンテーション状態の評価に活用できる技術として、走査型電子顕微鏡の反射電子像（組成像）の画像解析による試料中の空隙・鉱物組成定量法を開発した。また、長期膨潤圧試験については、時間の経過に伴い、原鉱石と再構成試料の膨潤圧はそれぞれなだらかに増加、低下するという反対の傾向を示すことが確認した。

令和4年度は、セメンテーションの影響を受けていると推察される月布鉱山産ベントナイト原鉱石、その再構成試料および熱履歴を受けたベントナイト試料の電子顕微鏡による観察、セメンテーション状態の経時的な変化に伴う基本特性の変化を観察するための原鉱石およびその再構成試料を対象とした長期膨潤圧試験の継続と試験後試料の観察、セメンテーションに関する実験的研究手法の検討を実施した。

(2) 実施内容

1) ベントナイト原鉱石および熱履歴を受けたベントナイトのセメンテーション状態の観察

山形県月布鉱山産ベントナイト原鉱石を、各種の電子顕微鏡等を用いて観察し、セメンテーションの原因物質であるシリカ鉱物の種類とその分布等に関するデータの取得により、セメント物質の特徴や生成環境について推定を行った。また、熱履歴を受けたベントナイト試料のセメンテーション状態について電子顕微鏡等を用いて観察し、試料のセメンテーションの状態など、基本特性の変化の要因等に関する基礎データを取得した。

① 試料および分析手法

(a) ベントナイト原鉱石試料

山形県大江町月布のベントナイト鉱床は、新第三紀中新世後期（10 Ma程度）の硬質頁岩中に互層状に夾在する火山ガラス質の凝灰岩が続成作用によって変質したものであるとされ（伊藤ら, 1999）、このうちクニゲルV1の原料として使用されている29番層と31番層から採取された原鉱石を観察対象として使用した。この原鉱石試料は、採取時の攪乱による原鉱石内部の土粒子構造の変化をできるだけ抑えられるように、月布鉱山の坑道壁面から比較的大きなブロックとして採取したものである。顕微鏡観察に供する原鉱石料の鏡面研磨薄片は研磨時に水を使わない乾式研磨法（大和田ら, 2013）にて作製した。

令和3年度までの観察によって、月布鉱山産のベントナイトには粒径から数μmの球状のシリカ（SiO_2）粒子がモンモリロナイトと共に産する様子が確認されている（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2020 ; 2021 ; 2022）。このシリカ微粒子の起源を検証するために、カソードルミネッセンス(cathodoluminescence：CL)法による観察を行った。CL測定には走査型電子顕微鏡(JEOL, JSM-7501)を用いた。加速電圧15 kV、照射電流量1.0 nAで観察し、CCD検出器を用いて、波長範囲550 ± 300 nm、スリット幅1,000 μm、グレーティング300 - 500 nmで測定した。露光時間は1秒で、スペクトルの質に応じて積算回数を1回、または5回に設定し

た。なお、試料表面に導電性を確保するためにカーボンコーター(JEOL, EC-32010CC)による炭素コーティングを施した。

CL測定と並行して、SiO_2の多形の同定を、電子後方散乱回折(Electron back-scatter diffraction: EBSD)法を用いて試みた。EBSD測定用には、31番層の原鉱石から作成した鏡面研磨薄片を供した。鏡面研磨薄片を7 mm角に細断し、研磨時に生じる表面のダメージ層を取り除くため、クライオクロスセクションポリッシャ（JEOL, IB-19520CCP、以下「CCP」と呼ぶ）による仕上げ研磨を行った。後述するように、CCPによる加工条件（加速電圧、照射角度、照射時間）を複数試行し、加工条件によるEBSDパターンの鮮明さを比較した。なお、Ar^+照射中は試料を回転させることで削られ方に異方性が生じないようにしている。仕上げ研磨後、カーボンコーター(Meiwahosis, CADE-E)で3.0 nm程度の導電膜を付与した。EBSDの測定は電界放出型オージェ電子顕微鏡(JEOL, JAMP-9500F)を用いて行った。試料室内で試料を70 °傾斜させ、加速電圧 15 - 30 kV、照射電流量 5 nAにてEBSDパターンを撮影した。EBSDパターンの撮影および得られたパターンの解析は、方位像顕微鏡(Orientation Imaging Microscopy : OIM)データ解析ソフトウェア（TSL ソリューションズ, IM-Analysis）を用いて行った。

(b) 熱履歴ベントナイト試料

オーバーパックに近い位置の緩衝材は、廃棄体から生じる熱により間隙水が蒸発し、溶存成分の濃度が高まることによって硫酸塩などの塩が析出することが想定される。間隙水の蒸発とそれに伴う塩の濃縮・析出は「サウナ効果」と呼ばれ、研究が行われている（例えば、Svensk Kärnbränslehantering AB, 2019）。そうした蒸発プロセスに伴って生じる塩によるセメンテーションを模擬した試料として、濃度の異なる人工海水を浸潤させたベントナイト供試体を作製し、熱乾燥後のセメント物質の有無・組織を顕微鏡にて観察した。

固相試料は、クニゲルV1を原料に、乾燥密度~1.37 g/cm^{3}になるように直径20 mm、高さ10 mmの円柱状供試体として成型した。これを1倍あるいは2、3倍の濃度の人工海水中に浸漬して飽和させ、その後110 ˚Cで乾燥した試料を計4種作製した。それぞれの試験条件は表2.3-3の通りである。なお、試料No.2については、他の3試料とは異なり、25 ˚Cで浸漬・飽和させた後、90 ˚Cで6日間保持する手順を追加している。乾燥後の試料の外観を図2.3-13に示す。

表2.3-3　熱履歴ベントナイトの試験条件

試料No.	浸漬溶液	浸漬温度 期間	乾燥条件	湿潤試料の重量[g]	乾燥試料の重量[g]	含水比[%]	飽和度 Sr (>1で飽和)	試験前乾燥密度 [g/cm^3]	試験後乾燥密度 [g/cm^3]
1	人工海水1倍	25 ˚C 15日	110 ˚C 24h	6.10	4.31	41.3	1.185	1.38	1.81
2	人工海水1倍	25 ˚C, 15日 ＋ 90 ˚C, 6日	110 ˚C 24h	6.16	4.32	42.6	1.227	1.38	1.87
3	人工海水2倍	25 ˚C 15日	110 ˚C 24h	6.13	4.36	40.4	1.188	1.39	1.75
4	人工海水3倍	25 ˚C 15日	110 ˚C 24h	6.22	4.41	40.9	1.238	1.41	1.64

図2.3-13　熱履歴ベントナイト試料の外観（左：供試体上面、右供試体下面）
(a)試料No.1（人工海水1倍）、(b)試料No.2（人工海水1倍＋90˚C加熱）、(c)試料No.3（人工海水2倍）、(d)試料No.4（人工海水3倍）

乾燥後の円柱状供試体の底面・上面に直交する断面を切り出し、観察面とする鏡面研磨薄片を原鉱石試料と同様に乾式研磨法で作製した（図2.3-14）。鏡面研磨薄片の表面に導電性を確保するために炭素コーティングを施した上で、走査型電子顕微鏡(SEM)による微細構造の観察を行った。SEM観察にはJSM-IT200(JEOL)を用い、加速電圧15 kV、動作距離10.8 mmにて二次電子像・反射電子像の撮影およびエネルギー分散型X線分光(EDS)による組成分析を実施した。

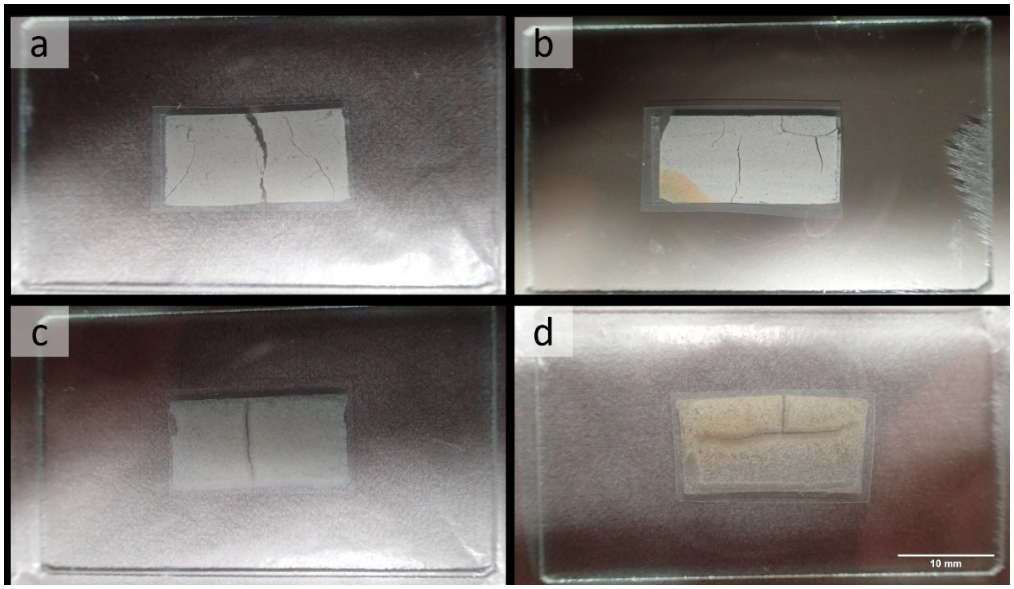


図2.3-14　熱履歴ベントナイト供試体から作製した薄片一覧（写真上側が供試体上面）
(a)人工海水1倍、(b)人工海水1倍＋90˚C加熱、(c)人工海水2倍、(d)人工海水3倍

① 分析結果

(a) CLを用いた原鉱石の観察

29番層原鉱石試料を例に、CL測定で対象とした粒子を含むSEM反射電子像を図2.3-15に示す。主要な構成鉱物である石英やモンモリロナイト、クリノプチロライトの他に、数μmサイズのシリカ微粒子が観察される。これらの粒子から、それぞれCLスペクトルを取得し、比較を行った（図2.3-16）。スペクトルの取得にあたって、石英粒子や長石、クリノプチロライトについては露光時間1秒の積算1回で得られたのに対して、シリカ微粒子やモンモリロナイトについては積算5回で得られたものである。後者の方が、CL発光量そのものが小さい傾向を示した。粗大な石英粒子については、短波長域の約385 nmと約445 nmの2つのピークが共通して見られ、約340 nmに追加のピークを持つものも見られた。一方、長波長域には約610 - 670 nmにかけて緩やかなピークを示したり、約610 nmに肩を持ったりしているものの、短波長域と比べると強度が低い。一方、シリカ微粒子から得られたスペクトルは、全体的に緩やかな傾向を示すものが多く、それに加えて中波長域の約570 nmや短波長域の約650 nmや約710 nmにピークや肩を示すものがいくつか確認された。また粗大な石英粒子と共通する約385 nmと約445 nmにも小さなピークを持つ。

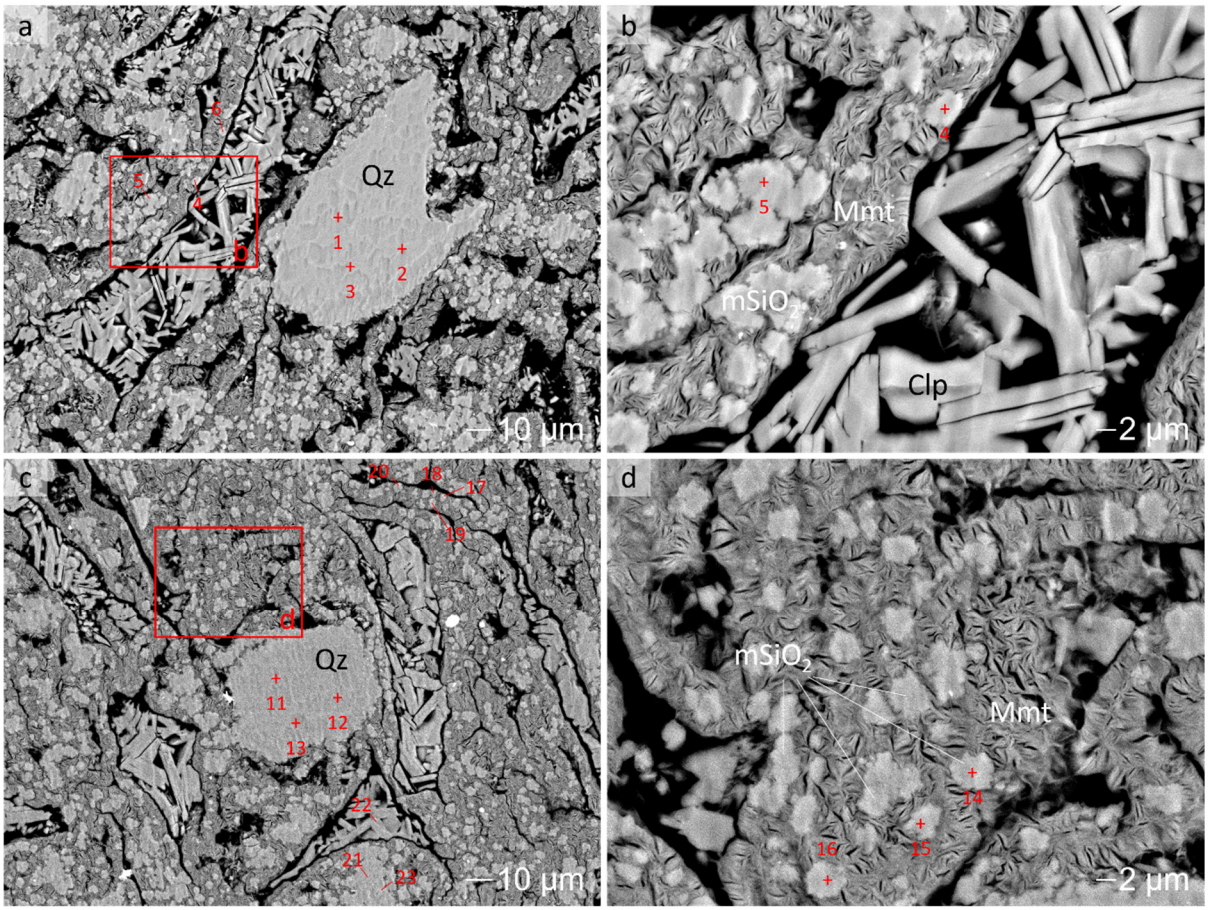


図2.3-15　CLの測定対象（29番層原鉱石の例:b、dはそれぞれa、c赤枠部の高倍率画像）
Qz:石英、$mSiO_2$：シリカ微粒子、Mmt：モンモリロナイト、Clp：クリノプチロライト

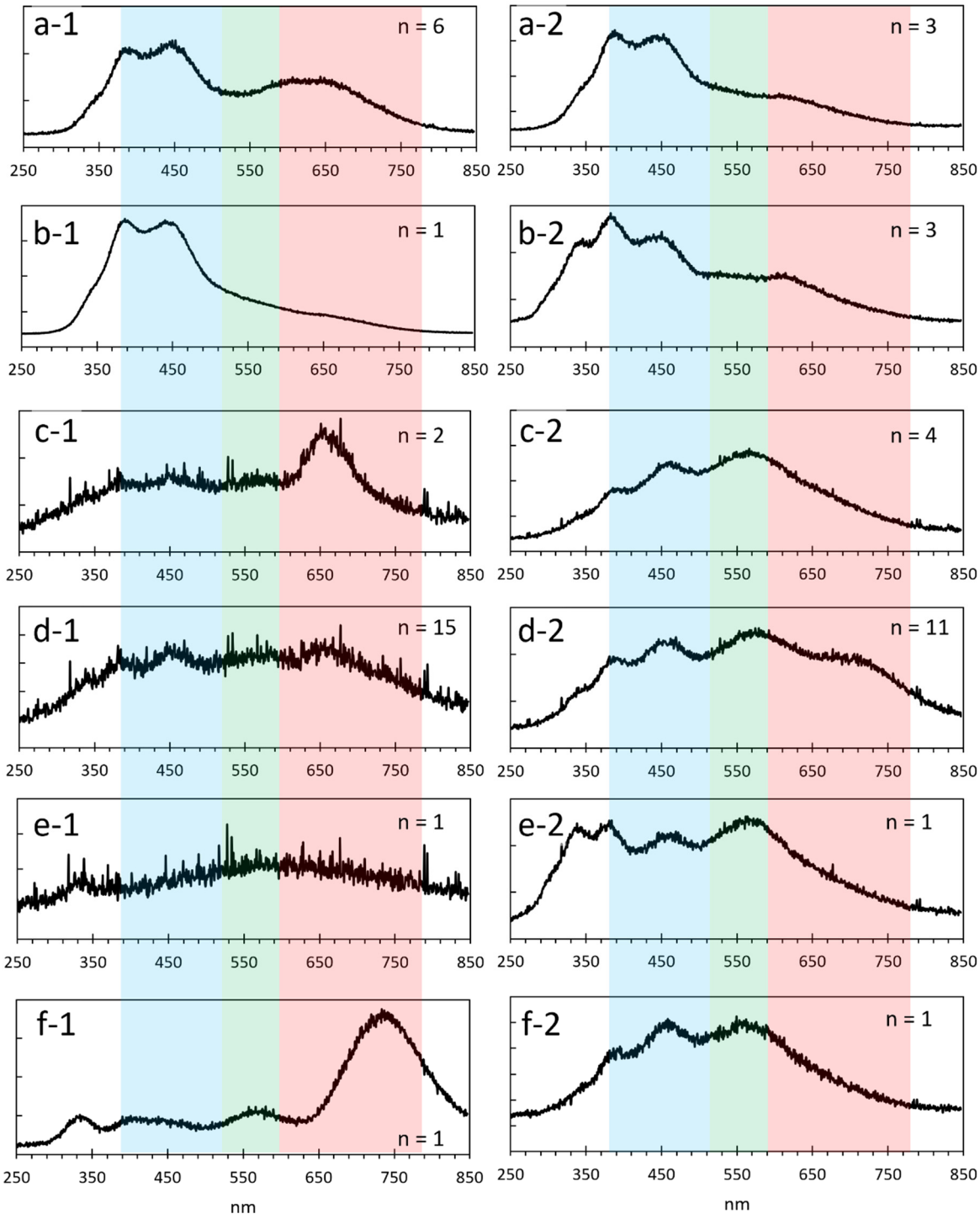


図2.3-16　カソードルミネッセンスのスペクトル比較
各鉱物粒子から得られた代表的なスペクトル形状。左列が31番層から、右列が29番層原鉱石でそれぞれ測定されたもの。a、b)粗大石英、c、d)シリカ微粒子、e-1)モンモリロナイト、e-2)クリノプチロライト、f-1)斜長石、f-2)カリ長石。Boggs et al. (2002)で用いられた青、緑、赤波長フィルターの範囲に合わせて、それぞれの色で影を付けた。

また、先行研究で報告されているCLスペクトルの特徴と比較するために、Boggs et al. (2002)

で用いられた3波長域（青~380 - 515 nm、緑~515 - 590 nm、赤~590 - 780 nm）に分けて、それらのスペクトル積分値から重心位置を計算し、三角ダイアグラム上にプロットしたものを図2.3-17に示す。

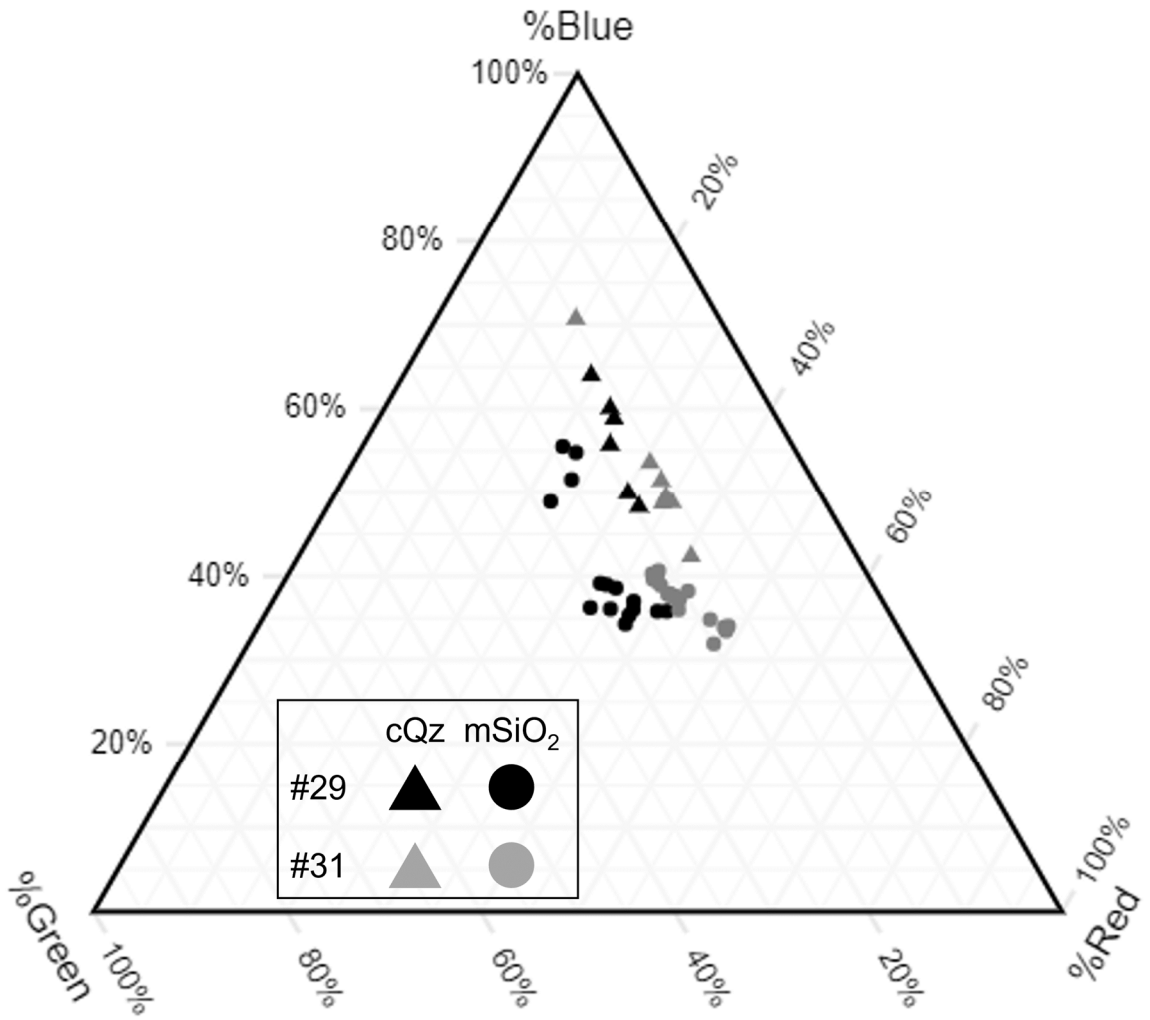


図2.3-17　CLの重心位置
粗大な石英粒子（cQz、▲）およびシリカ微粒子（$mSiO_2$、●）。29番層原鉱石（黒色）と31番層（灰色）をそれぞれ示す。

Boggs et al. (2002)では火山岩・深成岩・変成岩・熱水変質を被った岩石中の石英のCLスペクトルを比較し、火山岩・深成岩と一部の熱水変質由来の石英では青波長域の強度が高く、変成岩の変成温度の低いものでは赤波長域の強度が高くなる傾向を報告している。同様の傾向はAugustsson and Reker (2012)でも見られている。こうした短波長域の強度が高い傾向はベントナイト原鉱石中の粗大石英粒子から得られたCLスペクトルの傾向と一致するため、ベントナイトの原料となった火山灰由来の石英だとする推定と整合している（図2.3-16、図2.3-17）。ただし、粗大石英の発光ピークの位置（約385, 445 nm）がAugustsson and Reker (2012)で報告されている深成岩・ペグマタイト中の石英からの最大ピーク(470 - 490 nm)と比べて短波長側にずれていることや、全体に対する青波長域の相対強度が約40 - 85 %と幅を取っているのに対してBoggs et al. (2002)では火山岩のほとんどで85 %となっているといった違いも見受けられる。

一方、ベントナイト原鉱石中のシリカ微粒子は粗大な石英粒子と比べて低い信号強度を示した（図2.3-16）。一般的に、低温で形成した自生の石英は高温で形成された石英と比べてCL信号強度は低い(Sippel, 1968; Zinkernagel, 1978; Walker and Burley, 1991; Milliken, 1994)とされていることから、続成過程中における形成を支持する結果といえる。また、550 nmよりも長波長域が短波長域よりもCL信号強度が高いという点で、Thyberg et al. (2010)らによって報告されている現海洋底下の泥岩中に見られる細かな石英粒子の特徴とも類似している。

したがって、各発光ピークの解釈は難しいものの、スペクトル全体の形状と信号強度の大小から判断するに、粗大石英は火山岩由来、シリカ微粒子はそれよりも低温の続成過程での形成が支持される。

また今後検討しなければならない点として、測定対象としたシリカ微粒子は石英だけでなくアモルファスシリカなどのSiO_2多形も含まれる点や、続成過程においてOpal-A→Opal-CT→石英に相転移した場合にCLスペクトルがどうなるかという点が挙げられる。前者についてはまずTEMの制限視野電子回折やEBSDによる検証が求められるが、後者については先行研究でも検討が十分にされていないのが現状である(Thyrberg et al., 2010)。

なお、電子線照射によってCLスペクトルが変化することも報告されている(Götze et al., 2005; Augustsson and Reker, 2012)が、照射電流量・合計露光時間ともに先行研究よりも低い値を用いており、さらに同一箇所を複数回測定後もスペクトルが変化しなかったことから可能性としては低いと考えられる。

(b) EBSDによるシリカ鉱物の同定

CLによる測定や3)で観察している長期膨潤圧試験後のベントナイト試料など、通常のSEMを用いた組織観察や鉱物の化学組成の分析では乾式研磨で得られた鏡面研磨面で実施している。EBSDにおいても同様の薄片を用いて、SiO_2の組成を持つ粒子から得られるEBSDパターンによって結晶相・結晶方位の同定を試みたが、粗大な石英粒子・シリカ微粒子ともに鮮明なパターンが得られない結果となった。CLで用いる可視光近傍の発光線やEDS分析で用いられる特性X線と異なり、EBSDの信号は鉱物表面の極表面近傍（数十nm）から得られるため、研磨時に生じる鉱物表面のダメージ層によってパターンが不鮮明化することが考えられる(Inoue and Kogure, 2012)。一般的には粒径1 μm以下のアルミナあるいはダイアモンドペーストでの鏡面研磨後にコロイダルシリカによる研磨を追加で行うのが望ましいが、膨潤性が高く水を嫌うベントナイト試料では適用が難しい。そこで、CCPによってAr^+ガス照射での表面加工を行い、加工後に得られたEBSDパターンを比較した。

図2.3-16の上段は、CCPでの加工を（加速電圧4 kV、15分間、照射角度70 °）で行った上で石英粒子から得られたパターンを比較している。加速電圧を10 kVから25 kVまで上げていくことで、10 kVでは不鮮明だったパターンがしだいに鮮明になっていく様子が確認できる。CCPでの加工をより長時間かつ低速で行った（加速電圧4 kV、8時間、照射角度85 °）加工条件でも同程度の鮮明さを持つパターンが得られている。

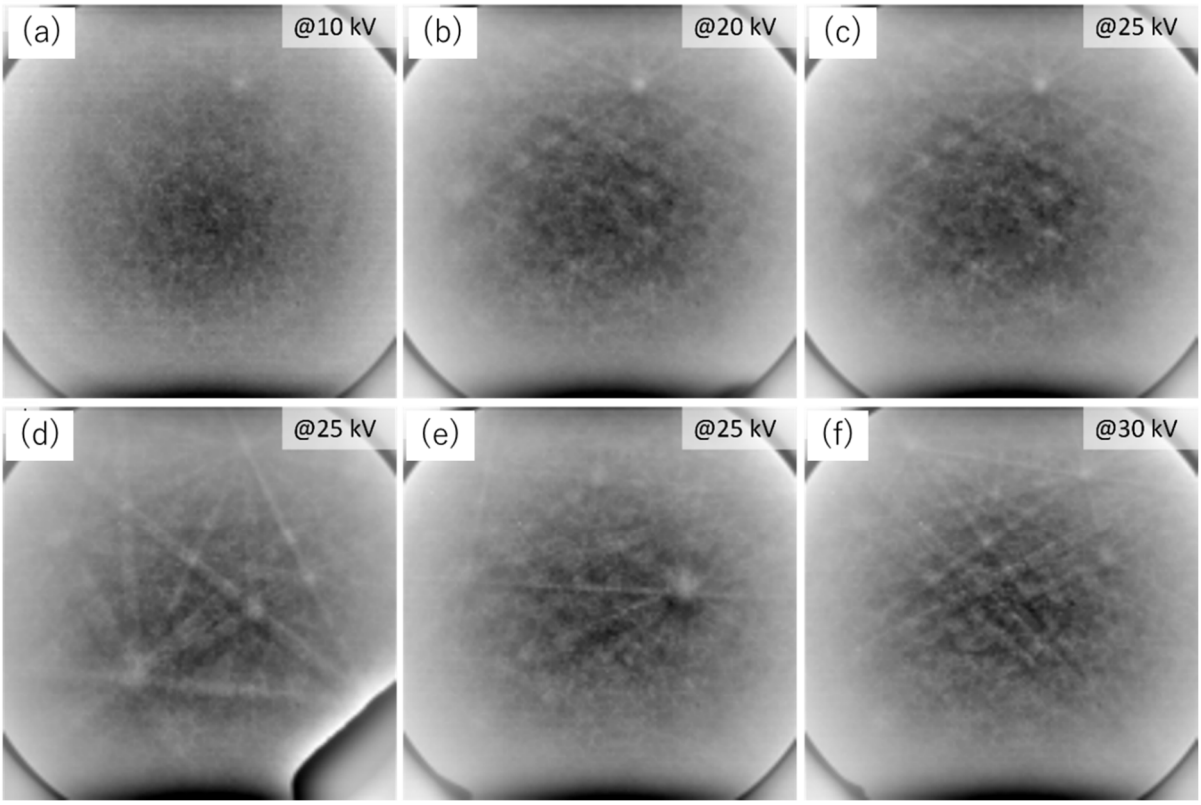


図2.3-18　表面加工条件および加速電圧によるEBSDパターンの鮮明性変化
（上段）加工条件[4 kV_15 min_70 deg]でのEBSDパターン。それぞれ加速電圧が10 kV(a)、20 kV(b)、25 kV(c)で測定。（下段）加工条件[4 kV_8 h_85 deg]でのEBSDパターン。それぞれ加速電圧が25 kV(d、e)、30 kV(f)で測定。

次に、得られたパターンの中でも比較的鮮明に撮影された図2.3-18(d)、(e)のEBSDパターン（それぞれパターン1、2とする）についてSiO_2の多形である低温型石英、トリディマイト、クリストバライトの3つの候補の中からパターンの指数付け・相同定を行った。解析には、石英（三方晶、空間群（S.G.）= 154、Levien et al. 1980）、トリディマイト（単斜晶、S.G. = 9、Graetsch and Topalovic-Dierdorf, 1996）、クリストバライト（正方晶、S.G. = 92、Downs and Palmer, 1994）の結晶構造を用いた。図2.3-17は得られた各パターンに対して、それぞれ対応する結晶面の指数付けを行ったものである。また、この際に3つのSiO_2相のどれが最もパターンを満たしているのかの指標となるVote数、Fit値、CI値を表2.3-4に示す。また、同様の条件にてシリカ微粒子から撮影されたEBSDパターン（パターン3とする）とその指数付けの結果を図2.3-20と表2.3-4に併せて示す。

EBSDの解析ではパターン中に見られる複数のバンド中から選ばれた任意のバンド3本間の角度が、仮定された結晶相の任意の結晶方位から期待されるバンド3本と許容誤差範囲で一致するのかを判定する。Vote数はこの判定に用いられるバンドの組み合わせ数で、多いほど多くの結晶面でパターンの判定が為されていることを示す。Fit値は計算されたバンドと実測のバンドとのズレ角を平均化した指標で、一般的に1.0以下が望ましいとされている。信頼性指数（CI値）は最も多くのVote数を得た解（第1解）と次にVote数の多かった解との差を表す指標で、一般的に0.1だと正しく指数付けられている可能性が極めて高い。

粗大な石英粒子から得られた2つのパターンについてはパターン1でややFit値が大きめに出て

いるものの、3つの多形のうち、石英が他の2相と比べて高いVote数、CI値および低いFit値を示し、妥当な判定がなされたと言える。一方、シリカ微粒子から得られたパターン3はクリストバライトが第一候補として判定されているものの、Vote数、CI値、Fit値のいずれも悪く、他の2相との識別が信頼できない結果となっている。これは撮影されたパターンが非常に不鮮明なことに由来すると考えられる。

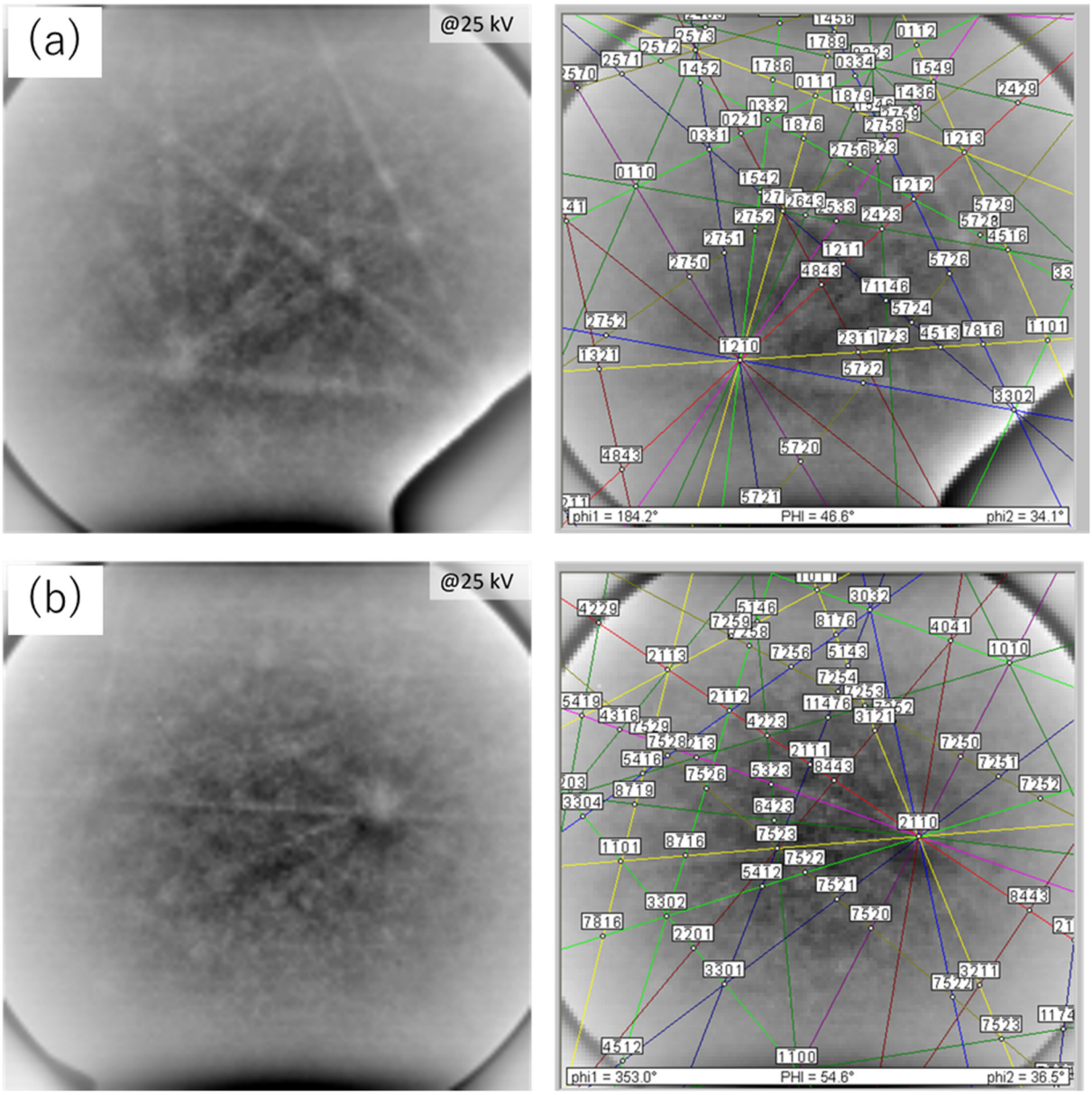


図2.3-19　粗大石英粒子のEBSDパターンの指数付け例
（a）パターン1（図2.3-18d）のEBSDパターン（左）と指数付けの結果（右）
（b）パターン2（図2.3-18e）のEBSDパターン（左）と指数付けの結果（右）

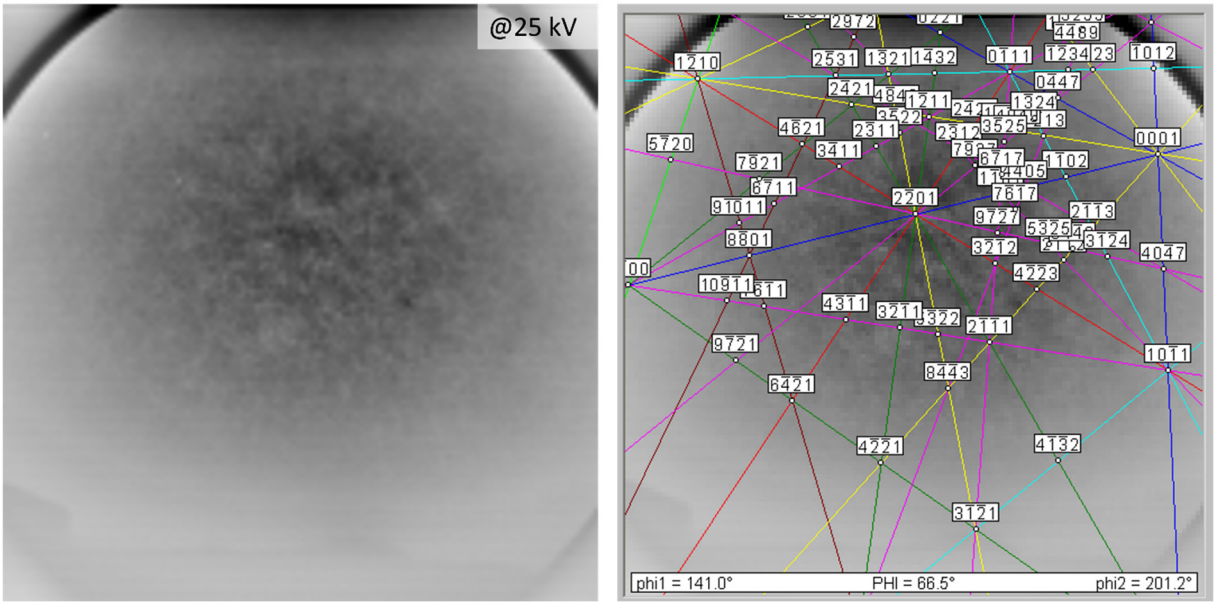


図2.3-20　シリカ微粒子のEBSDパターン3（左）とその指数付け例（右）

表2.3-4　EBSDパターンの指数付けの結果

パターン1	Votes	Fit	CI
Quartz-low	71	1.74	0.102
Tridymite	25	2.12	0.030
Cristobalite	12	2.25	0.008

パターン2	Votes	Fit	CI
Quartz-low	164	0.87	0.341
Tridymite	10	2.12	0.018
Cristobalite	6	2.66	0.005

パターン3	Votes	Fit	CI
Cristobalite	10	2.03	0.086
Tridymite	4	2.35	0.029
Quartz-low	4	1.95	0.000

令和3年度までの原鉱石の観察では、TEMの制限視野電子回折を用いて、モンモリロナイトと接合するシリカ微粒子の多形を決定し、その多くが石英で一部アモルファスシリカが存在することを報告していた。ただし、TEMを用いたこの判別法は観察数が非常に限られ、またFIBを用いた薄膜試料作製に時間を要することから、SEM用の薄片試料を用いて結晶相同定をピンポイント

で行う手法としてEBSDによる分析を試みた。結果として、測定できるEBSDパターンの鮮明さが試料表面の加工状態に大きく左右されることが示された。

粗大な石英粒子から得られたEBSDパターンについてはCCPによる鉱物表面のダメージ層の除去を十分に行うことで鮮明さが向上し、SiO_2の多形である石英、クリストバライト、トリディマイトの3の候補のうち、石英を支持する妥当な識別結果を安定して得ることが可能となった。一方、シリカ微粒子についてはパターンの鮮明さが足りず、信頼できない識別結果に留まった。

水や油を用いない乾式研磨（大和田ら, 2013）では、ダイアモンドペーストではなくアルミナ粒子による機械研磨で鏡面を作製している。この研磨の最終段階では粒径1 μmのアルミナが用いられているが、一般的に直径Dの研磨粒子で試料表面を研磨した場合、研磨粒子はD/3程度の深さまで試料に加工ひずみを与えると言われている（鈴木, 2021）。EBSDの信号は鉱物表面の極表面近傍（30 - 50 nm程度）から得られるため、機械研磨で生じていると考えられる~300 nm程度のダメージ層を取り除く必要がある。実際、図2.3-16で加速電圧が大きいほど、つまり試料内での電子線の拡散領域が広い条件ほどパターンが鮮明になったことからも、鉱物表面の結晶構造が歪んでしまっていることが示唆される。乾式研磨の最終過程における研磨方法やCCPによる仕上げ加工の条件の最適化が安定したEBSDパターンの取得とシリカ微粒子の多形の定量化のためには必要だと考えられる。

また、EBSDパターンの解析では撮影されたパターンを一度Hough変換し、バンドの検出・指数付け・結晶相同定までを自動で行う機能があるものの、今回撮影されたパターンに対してはバンドの検出を一部マニュアルで行わないと妥当な結果とならないケースがほとんどであった。したがって、パターンの自動判定を用いて、シリカ微粒子の結晶相・結晶方位のマッピングを行うといった用途のためにも鮮明さの向上が必要となる。

(c) 熱履歴を受けたベントナイト試料の観察

熱履歴ベントナイト4試料について、SEMによって確認した析出物の候補の有無とモンモリロナイトの化学組成を表2.3-5にまとめる。4試料のいずれにおいても硫酸カルシウム（GypsumあるいはAnhydrite）の析出は確認されなかった。人工海水の濃度が1倍の試料（No.1とNo.2）では確認されなかったものの、No.3およびNo.4ではNaClの析出が確認され、とりわけNo.4では顕著に析出されていた（図2.3-21および図2.3-22）。析出物の候補である炭酸カルシウムも全ての試料で普遍的に観察された。ただし、クニゲルV1には、方解石および苦灰石がそれぞれ2.1 - 2.6 wt%と2.0-2.8 wt%程度（体積割合に変換すると2.3 - 2.4%と2.1 - 2.4%程度）含まれている。観察された炭酸塩鉱物の量は画像中の面積割合で4%程度に過ぎないことと、いずれの粒子も多形性が低いことを鑑みて、この試験で新たに析出した鉱物ではないと判断した。

なお、モンモリロナイトについては4試料のいずれもNa型であるが、人工海水中のKと一部イオン交換していることが考えられる。

表2.3-5　熱履歴ベントナイト試料の析出物の有無およびモンモリロナイトの化学組成

No.	析出物	
	Gypsum/Anhydrite	NaCl
1	×	×
2	×	×
3	×	○
4	×	◎

No.	Montmorilloniteの化学組成
1	$Na_{0.24}K_{0.03}(Al_{1.67}Mg_{0.32})[Al_{0.15}Si_{3.85}]O_{10}(OH)_2$
2	$Na_{0.19}K_{0.04}(Al_{1.64}Mg_{0.38})[Al_{0.03}Si_{3.97}]O_{10}(OH)_2$
3	$Na_{0.26}K_{0.03}(Al_{1.65}Mg_{0.36}Fe_{0.07})[Al_{0.09}Si_{3.91}]O_{10}(OH)_2$
4	$Na_{0.24}K_{0.05}(Al_{1.62}Mg_{0.38}Fe_{0.07})[Al_{0.08}Si_{3.92}]O_{10}(OH)_2$

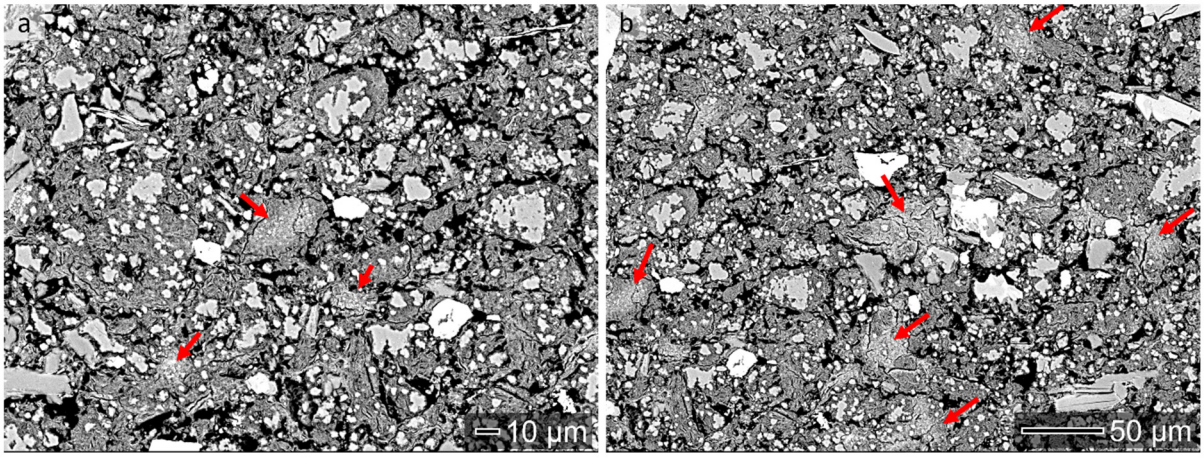


図2.3-21　熱履歴ベントナイト試料No.3のSEM反射電子像
NaClの析出が確認される部分（赤矢印）

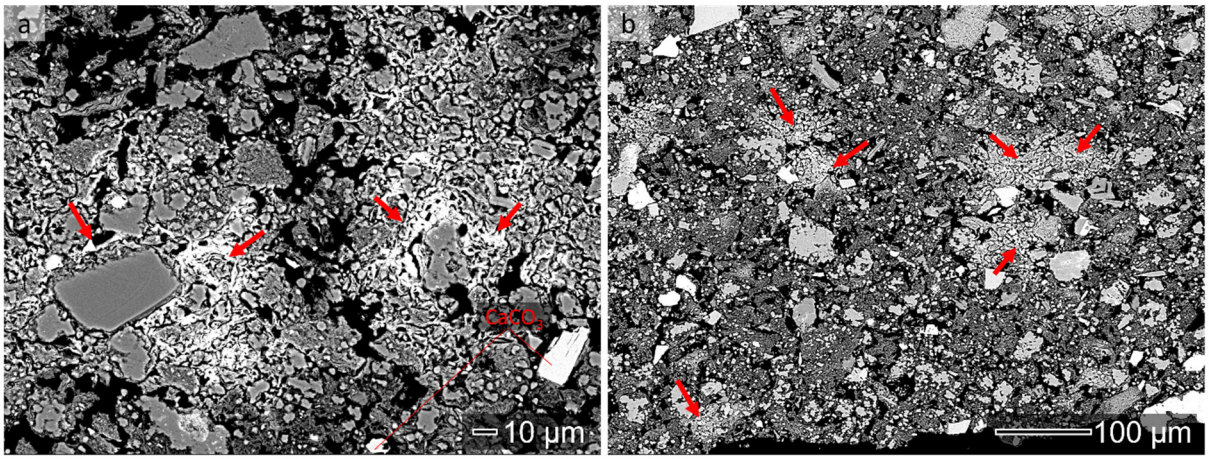


図2.3-22　熱履歴ベントナイト試料No.4のSEM反射電子像
NaClの析出が確認される部分（赤矢印）

NaClの析出が確認されたNo.3とNo.4の試料を比べると、後者のほうではNaClが隙間に析出している箇所がはっきり確認された（図2.3-22）。NaClの析出は試料内で均質に起こるのではなく、局在していることが分かる。また、こうしたNaClが析出している範囲は二次電子像で見ると、凹凸が激しくコントラストが高く、低倍率においては反射電子像よりも二次電子像の方で析出部分の分布が確認しやすい（図2.3-23）。凹凸が激しい部分は、試料を固定するのに用いた樹脂があまり浸透しておらず、それによって研磨時に他の部分よりも平滑に磨けなかったことが考えられる。図2.3-12dの薄片上での分布を確認すると、褐色味を呈する供試体の上半分のほうが、NaClが析出している部分の面積および分布頻度が共に高くなっている（図2.3-213c、d）。また、供試体の再表面をコーティングするようにNaClが析出している様子も見られた（図2.3-23e、f）。こうした表面のみにNaClが顕著に析出する様子はNo.3では見られなかった。一方で、褐色味を呈する要因として考えられる、鉄オキシ水酸化物などの析出はSEM観察上では認められなかった。恐らく析出量が少なく、また局所的に濃集もしていないため検出が難しいことが考えられる。

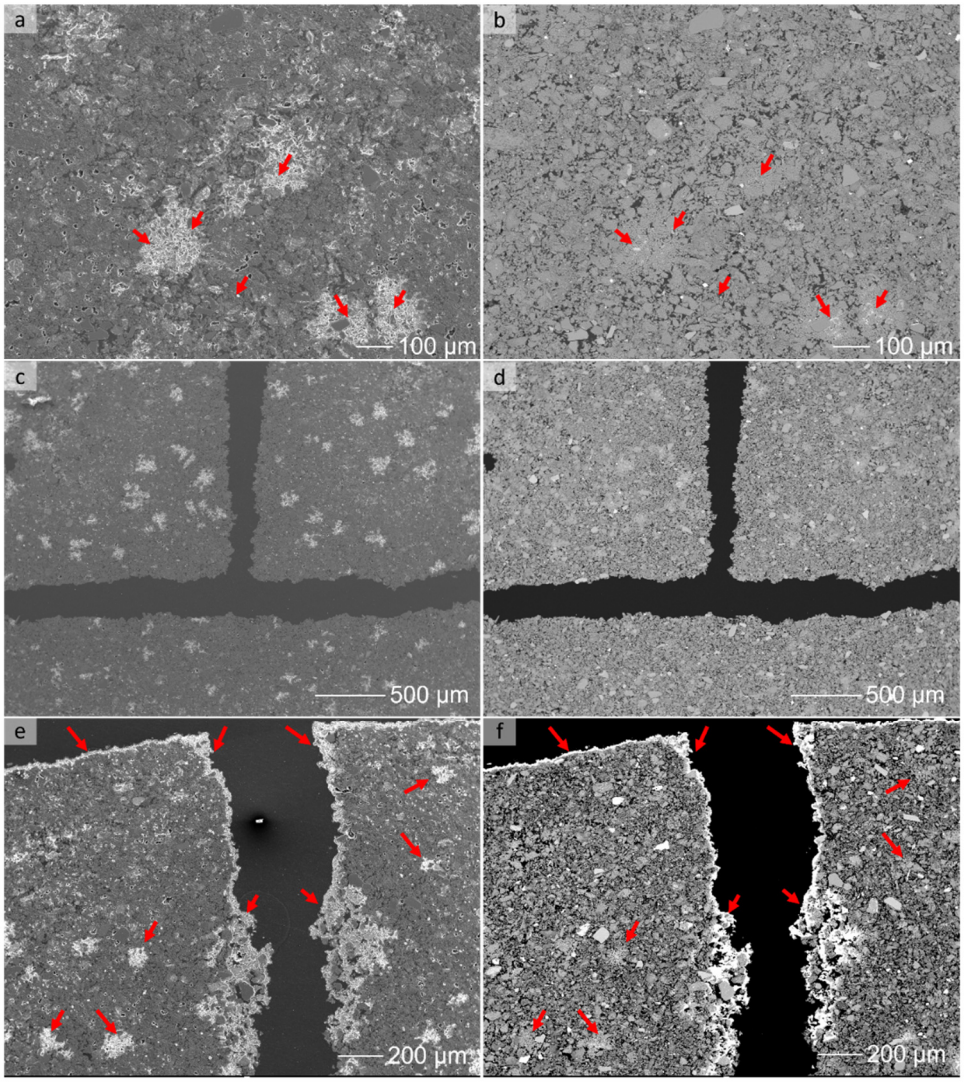


図2.3-23　熱履歴ベントナイト試料No.4のNaCl析出部分の二次電子像・反射電子像の比較
（左：a、c、e）二次電子像と、（右：b、d、f）同視野の反射電子像。NaClの析出が認められる部分（赤矢印）

3) 月布鉱山産ベントナイト原鉱石および再構成試料を対象とした基本特性データの取得

山形県月布鉱山産ベントナイト原鉱石および再構成試料を対象に、セメンテーションの原因物質の溶解等に伴うセメンテーション状態の経時的な変化を観察するための長期の膨潤圧試験を実施し、膨潤圧の経時変化等のデータを取得した。そして、走査型電子顕微鏡を用いて、長期の膨潤圧試験後の試料を観察し、セメンテーションの原因物質であるシリカ鉱物の分布状態の変化の有無と、膨潤圧の経時的な変化との関係を考察した。

① 長期膨潤圧試験

本項目では、ベントナイトの力学的特性に与えるセメンテーションの影響の検討を行った。令和4年度は、セメンテーションの原因物質の溶解等に伴うセメンテーション状態の経時的な変化を観察するため、令和2年度から開始している原鉱石と再構成試料を対象とした複数年程度の長期の膨潤圧試験について、原鉱石と再構成試料のそれぞれ一試料について試験を終了し、セメンテーション状態の観察を実施した。なお、試験は、月布鉱山の29番層の原鉱石を対象に、原鉱石および再構成試料それぞれ3試料に対して膨潤圧試験を実施している。原鉱石試料はダイヤモンドビットを用いて円柱状にコア抜きすることで供試体を作製している。また、試験に使用した原鉱石の塊のうち、供試体に使用した箇所の近くにおける乾燥密度を別途測定すると1.72 Mg/m^{3}であったことから、再構成試料の乾燥密度は1.72 Mg/m^{3}としている。

図2.3-24に膨潤圧の経時変化を示す。再構成試料と原鉱石の膨潤圧は、初期において大きく上昇し、その後、再構成試料の膨潤圧はなだらかに低下、もしくは、ほとんど変化がないのに対し、原鉱石の膨潤圧はなだらかに増加を続けている。このうち、再構成試料のNo.3および原鉱石のNo.3について試験を終了し、セメンテーション状態の観察を行った。図2.3-25は膨潤圧試験セルから取り出した時の供試体の様子である。原鉱石試料は斑模様が見られたが、再構成試料は供試体作製時に原鉱石を細かく砕いているため、そのような模様は見られない。

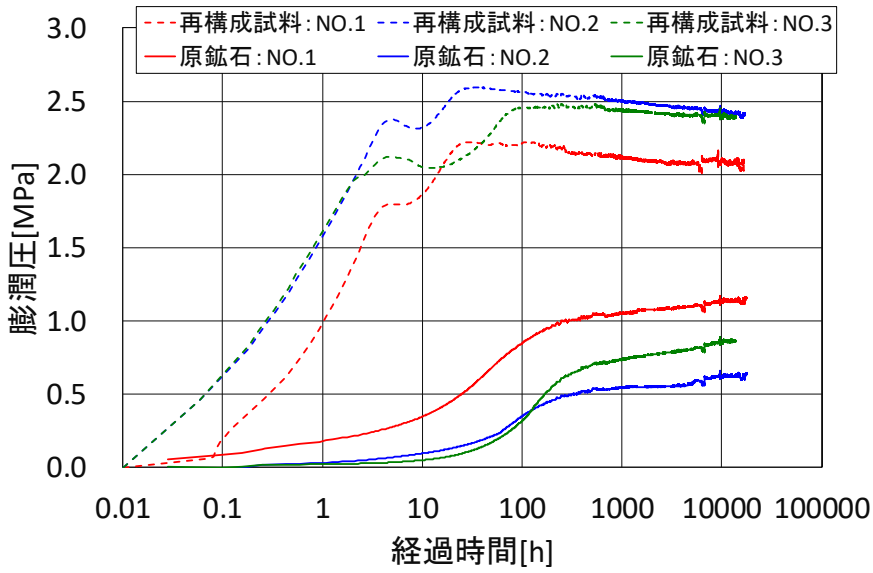
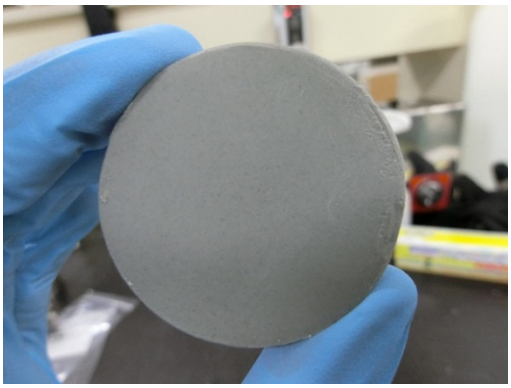
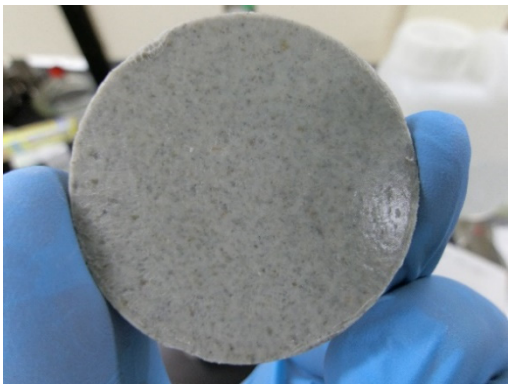


図2.3-24　膨潤圧の経時変化



再構成試料：No.3



原鉱石：No.3

図2.3-25　試験セルから取り出した時の供試体の様子

② 長期膨潤圧試験後のベントナイト試料の観察

(a) 観察方法

膨潤試験を約10,000時間行った29番層原鉱石、再構成試料(No.3)を観察に用いた。供試体の直径・高さは、それぞれ原鉱石について4.994 cm・1.171 cm、再構成試料について5.000 cm・1.000 cmである。膨潤圧試験器から取り出し・乾燥後の円柱状試料に対して、直角に交差する垂直断面が観察できるように研磨薄片を作製した（図2.3-26）。

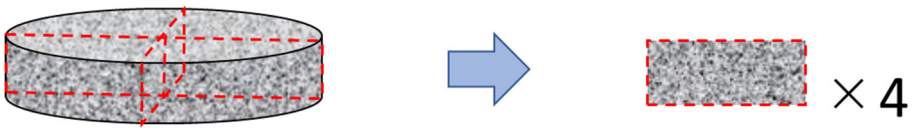


図2.3-26　長期膨潤圧試験の供試体からの断面作製

試料表面に導電性を確保するために研磨薄片に炭素コーティングを行い、SEMによる観察を行った。SEM観察にはJSM-IT200(JEOL)を用い、加速電圧15 kVにて二次電子像・反射電子像の撮影およびエネルギー分散型X線分光(EDS)による組成分析を実施した。また、一部の撮影像に対しては、反射電子像上の輝度の違いや粒子のサイズ・形状に基づいて空隙・鉱物組成の定量を行った。画像解析には汎用的な画像解析ソフトウェアであるImageJ (Schneider et al., 2012)を用いて、輝度および粒子の円形度に基づいた面積比の定量を令和3年度と同様の方法に従って実施した。さらに、試料中の一部をFIBでマイクロサンプリングし、TEMによって微細組織を観察した。FIBによる加工には、JIB-4600F/HKD(JEOL)を用い、加工には加速電圧30 kVのGaイオンビーム（仕上げ加工のみ5 kV）、観察には加速電圧15 kVの電子ビームを利用した。TEMによる観察はJEM-2100F(JEOL)を用いて、加速電圧200 kVにて使用した。

(b) SEMによる観察結果

29番層原鉱石、再構成試料のそれぞれを膨潤圧試験前の試料（令和3年度に観察した試料で、作製条件は同じ）と比較した（図2.3-27および図2.3-28）。試験前後を比較すると、原鉱石・再構成試料共に、主要構成鉱物およびセメント物質であるシリカ微粒子の分布や組織に顕著な変化は見受けられなかった。

細かい変化点に着目すると、長期膨潤圧試験後の試料では、石英や長石の粒子、石英・長石が

混在した粒子の表面に細かな空隙が認められるようになった。この変化は原鉱石、再構成試料共に観察される。石英に関しては、実験後の原鉱石の石英のほとんどに空隙が認められた。(図2.3-29) 長石に関しても、石英と同様に実験後の試料で空隙が見られるものの割合が増えた（図2.3-30）。ただし、その頻度は石英ほどではなく、原鉱石と再構成試料の間で頻度に差は確認されなかった。さらに、石英と長石が混在する複雑な粒子に関しても、長期膨潤圧試験後の試料において空隙が多く認められた（図2.3-31）。特に実験後の原鉱石について頻度が高かった。

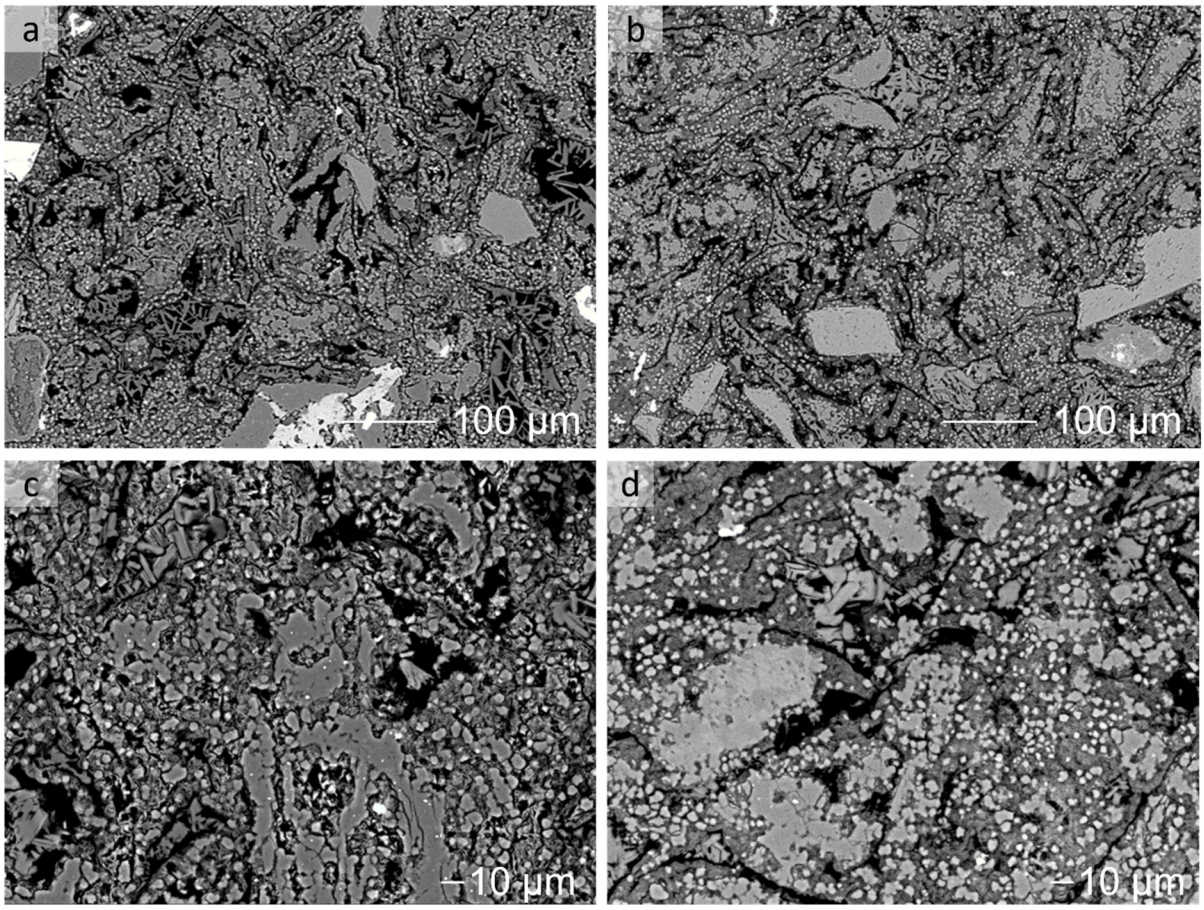


図2.3-27　原鉱石試料の膨潤圧試験前（a、c）および試験後（b、d）の組織
（a、b）倍率200倍、（c、d）倍率500倍

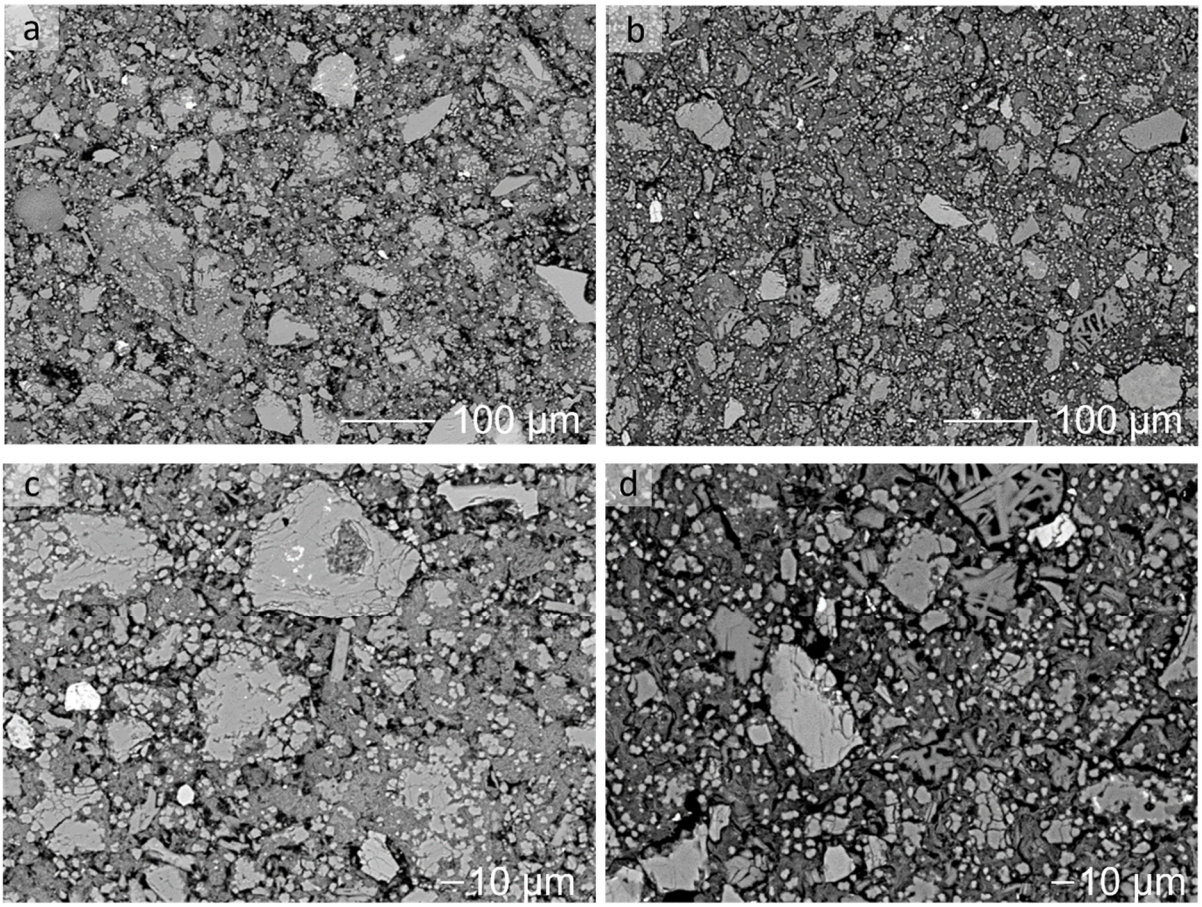


図2.3-28　再構成試料の膨潤圧試験前（a、c）および試験後（b、d）の組織
（a、b）倍率200倍、（c、d）倍率500倍

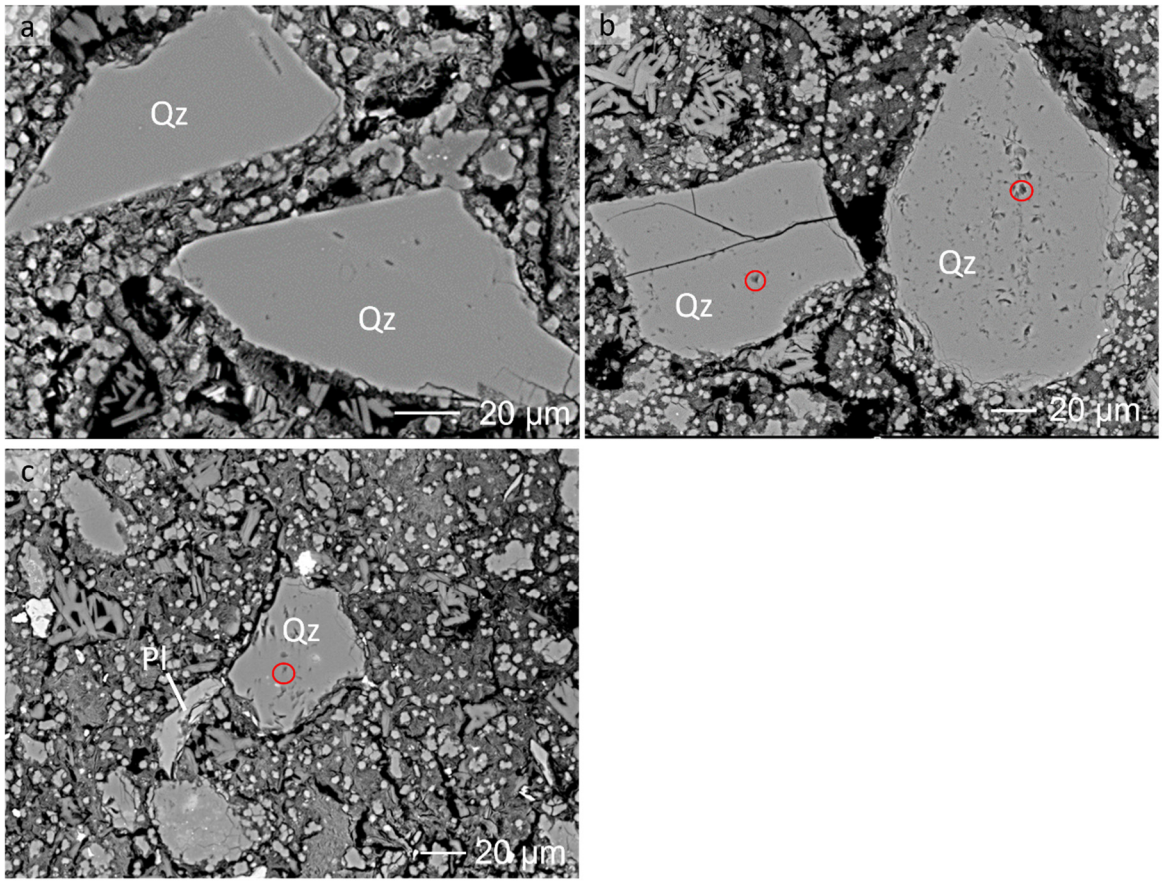


図2.3-29　試験前後での石英粒子の比較
(a) 29番原鉱石（試験前）、(b) 29番原鉱石（試験後）、(c) 29番再構成試料（試験後）
Qz: 石英

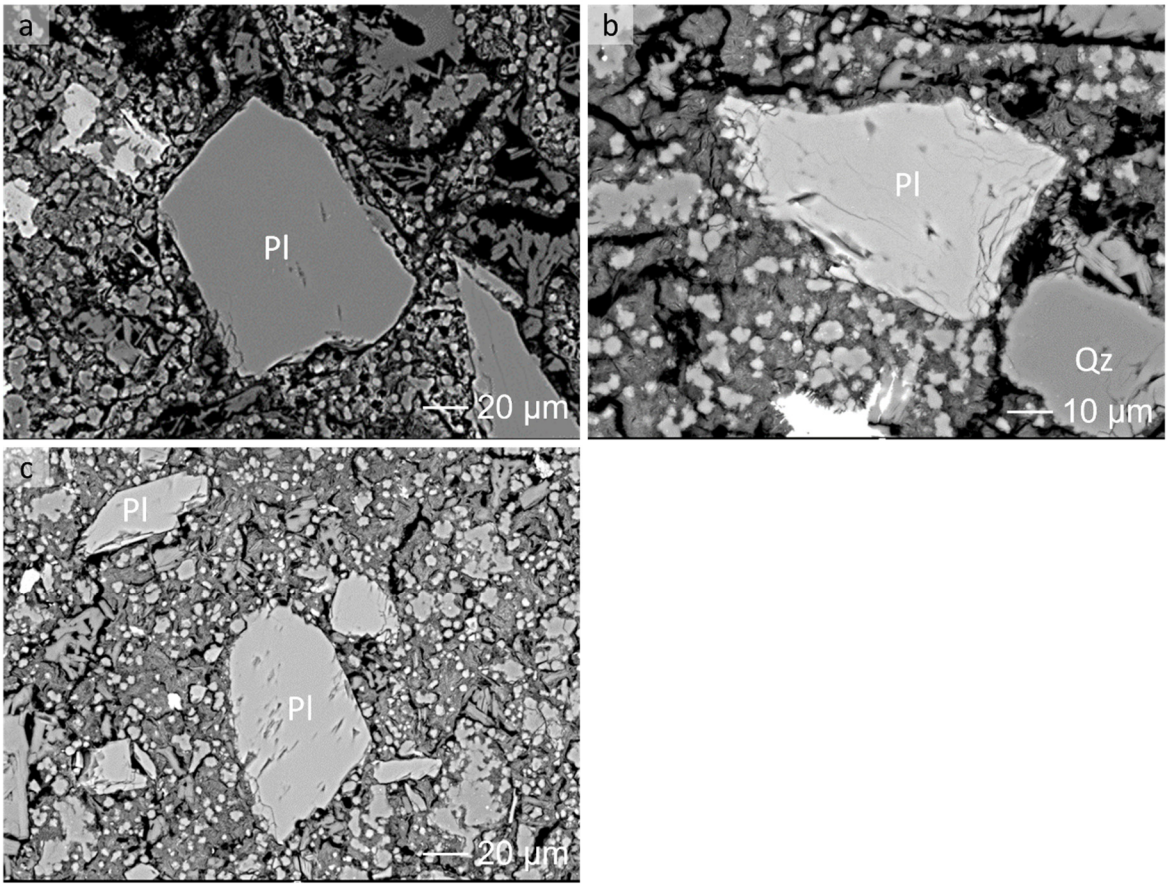


図2.3-30　試験前後での長石粒子の比較
(a) 29番原鉱石（試験前）、(b) 29番原鉱石（試験後）、(c) 29番再構成試料（試験後）
Qz：石英、Pl：斜長石

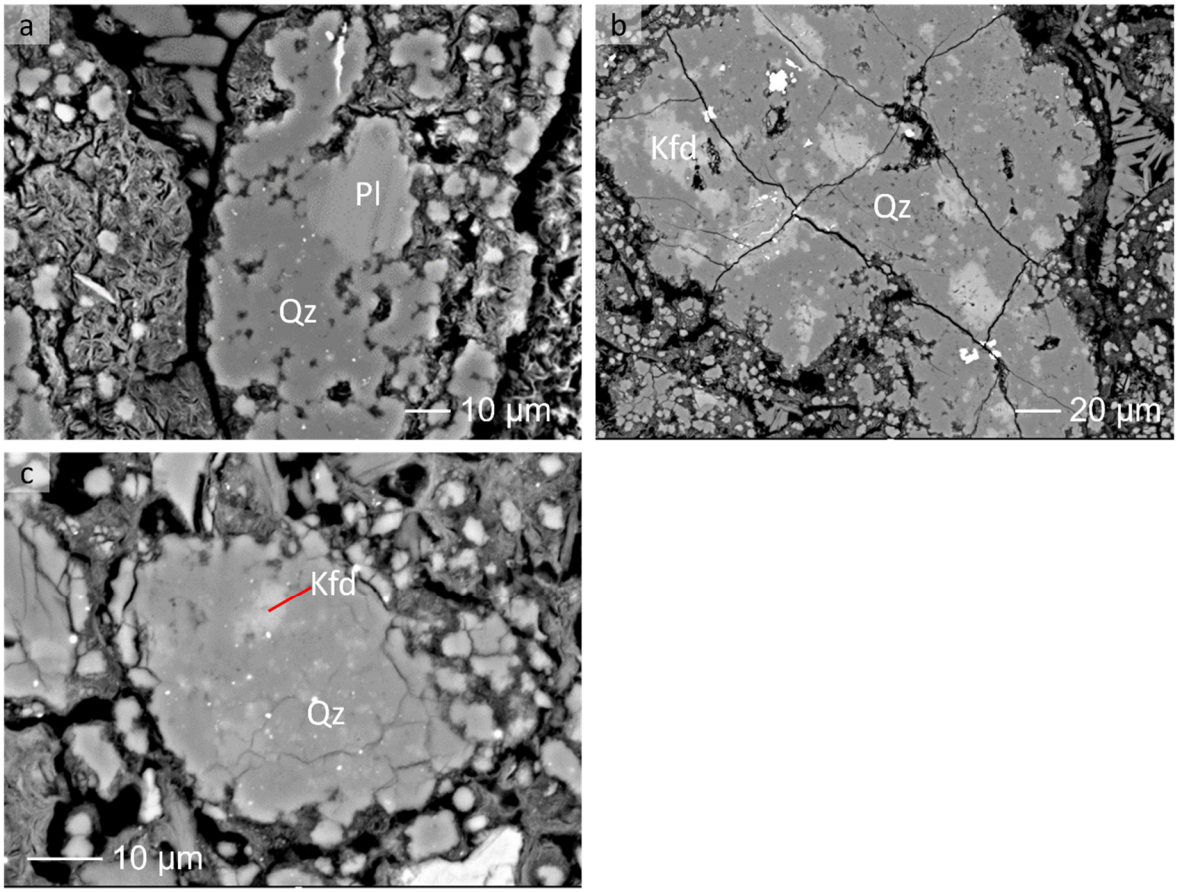


図2.3-31　試験前後での長石を含む石英粒子の比較
(a) 29番原鉱石（試験前）、(b) 29番原鉱石（試験後）、(c) 29番再構成試料（試験後）
Qz：石英、Pl：斜長石、Kfd：カリ長石

(c) 画像解析を用いたベントナイト構成鉱物の定量

観察で得られた画像を令和3年度に開発した空隙・鉱物組成定量法で画像解析による定量を行った。SEMで得られた画像を画像解析ソフトImage Jを用いて、輝度で4つに分類（空隙、モンモリロナイト、シリケート鉱物、パイライト・カルサイト等）し、その後にシリケート鉱物は形状で各鉱物（石英・長石、クリノプチロライト、モルデン沸石、微細なシリカ鉱物）に分類し、面積割合を求めるという方法である。

得られた膨潤圧試験後の原鉱石試料の定量結果を令和3年度に得られた結果と比較したものが表2.3-6である。この結果で目立った変化として、モンモリロナイトの割合が増え、シリケート鉱物の割合が減少する傾向が認められた。また、シリカ微粒子の割合も大きく減少している。ただし、これらの結果は撮影された画像から確認出来る定性的な傾向と差があるため、閾値の設定値が結果に与える影響に対する感度評価や画像解析に用いる画像枚数を増やして試料間の個体差による誤差の評価などが必要だと考えられる。

表2.3-6　画像解析による膨潤圧試験前後での鉱物量比

原鉱石(単位はすべて%)	膨潤圧試験前	膨潤圧試験後
空隙	8.2 ± 0.9	10.6 ± 2.2
モンモリロナイト	49.8 ± 2.4	55.9 ± 1.9
微細なシリカ鉱物	30.4 ± 9.0	9.1 ± 0.0
長石・石英	2.1 ± 3.0	5.6 ± 3.1
クリノプチロライト	6.3 ± 4.0	13.5 ± 9.0
モルデナイト	0.4 ± 0.4	未計測
パイライト・カルサイト	1.3 ± 1.3	0.5 ± 0.5

続いて、シリカ微粒子のみを抽出し、その面積・粒径について膨潤圧試験の前後で比較を行った。粒子計測では図2.3-32から図2.3-34に示すSEM反射電子像から二値化した画像を基にした。これらの二値化した画像は、SEM反射電子像の輝度に閾値を設定してSiO_2相（石英およびシリカ微粒子）、長石、沸石相（クリノプチロライト、モルデナイト）を抽出した後に、シリカ微粒子以外の粗大粒子（ベントナイトの起源物質である火山灰由来の石英であることが明らかなもの）を手動で排除して作製した。ただし、数μmサイズのシリカ微粒子が多数結合して大きな粒子を構成しているケースについてはそのまま残して粒子計測を行った。

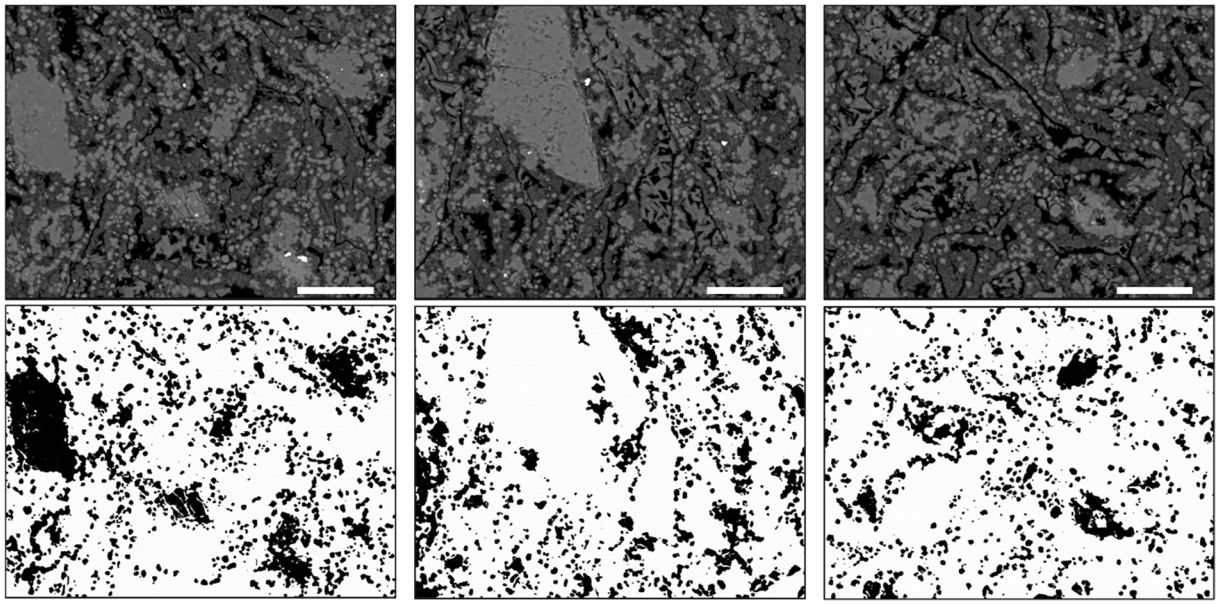


図2.3-32　原鉱石試料（膨潤圧試験前）のSEM反射電子像（上）と二値化像（下）
スケールバーは50 μm。

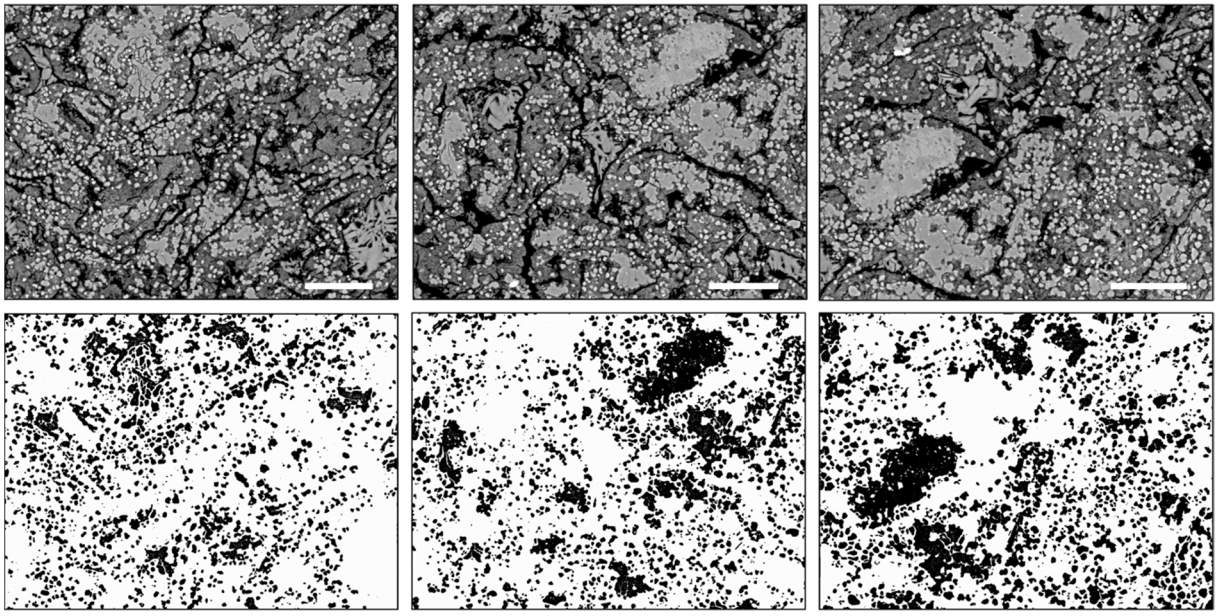


図2.3-33　原鉱石試料（膨潤圧試験後）のSEM反射電子像（上）と二値化像（下）
スケールバーは50 μm。

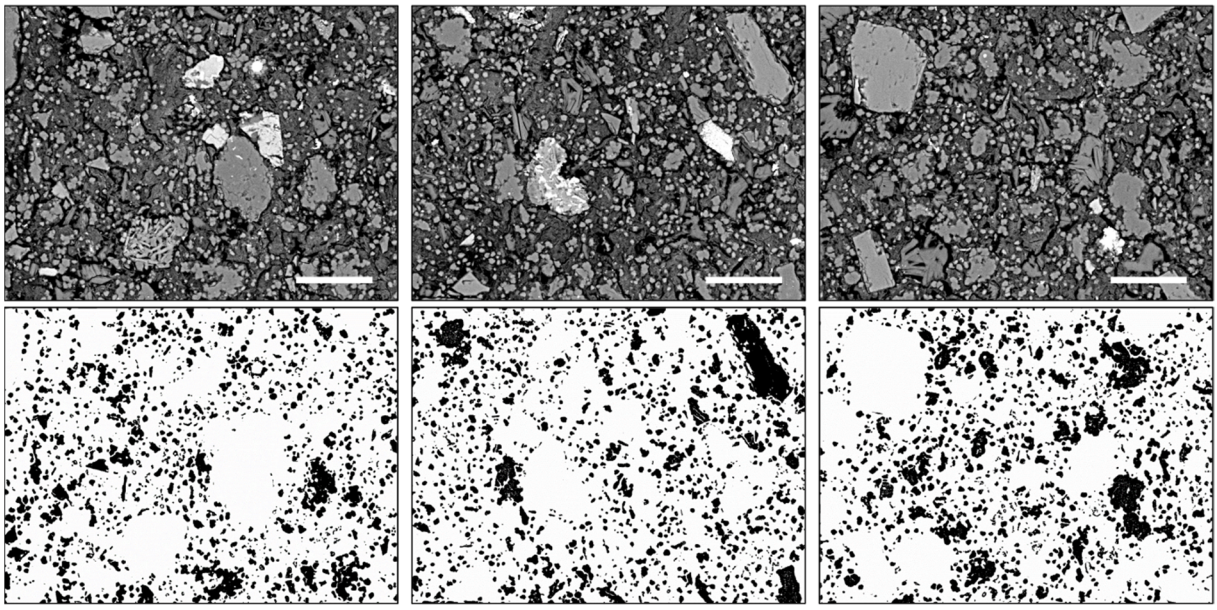


図2.3-34　再構成試料（膨潤圧試験後）のSEM反射電子像（上）と二値化像（下）
スケールバーは50 μm。

29番層原鉱石の膨潤圧試験の前・後、再構成試料の試験後について、それぞれの二値化像から計測した個々の粒子の面積(μm²)のヒストグラムおよび統計量を図2.3-35および表2.3-7に示す。加えて、粒子面積を基に真円を仮定した場合の粒子直径(μm)のヒストグラムおよび統計量を図2.3-36および表2.3-8に示す。

面積1.0 - 5.0 μm²、粒径1.0 - 2.0 μmの区間が最頻度となる分布が確認でき、特に試験後の2試料の分布は非常に類似している。試験前の試料では粒径2.0 - 3.0、3.0 - 4.0の区間の粒子が多く見られていたが、試験後にはこれが減少し、代わりに1.0 - 2.0 μmに収束した分布に変化している。

面積・粒径の平均値・中央値ともに、原鉱石（試験前）＞29原鉱石（試験後）＞再構成（試験後）となる傾向が確認される。ただし、平均値についてはヒストグラム上の右端にプロットされるような凝集体として少数存在するシリカ微粒子によって大きめの値が出るようにバイアスがかかる点を考慮しなければならない。中央値については、試験後の原鉱石は試験前と比べて、ほぼ変わらない、もしくは僅かに減少したと判断される。

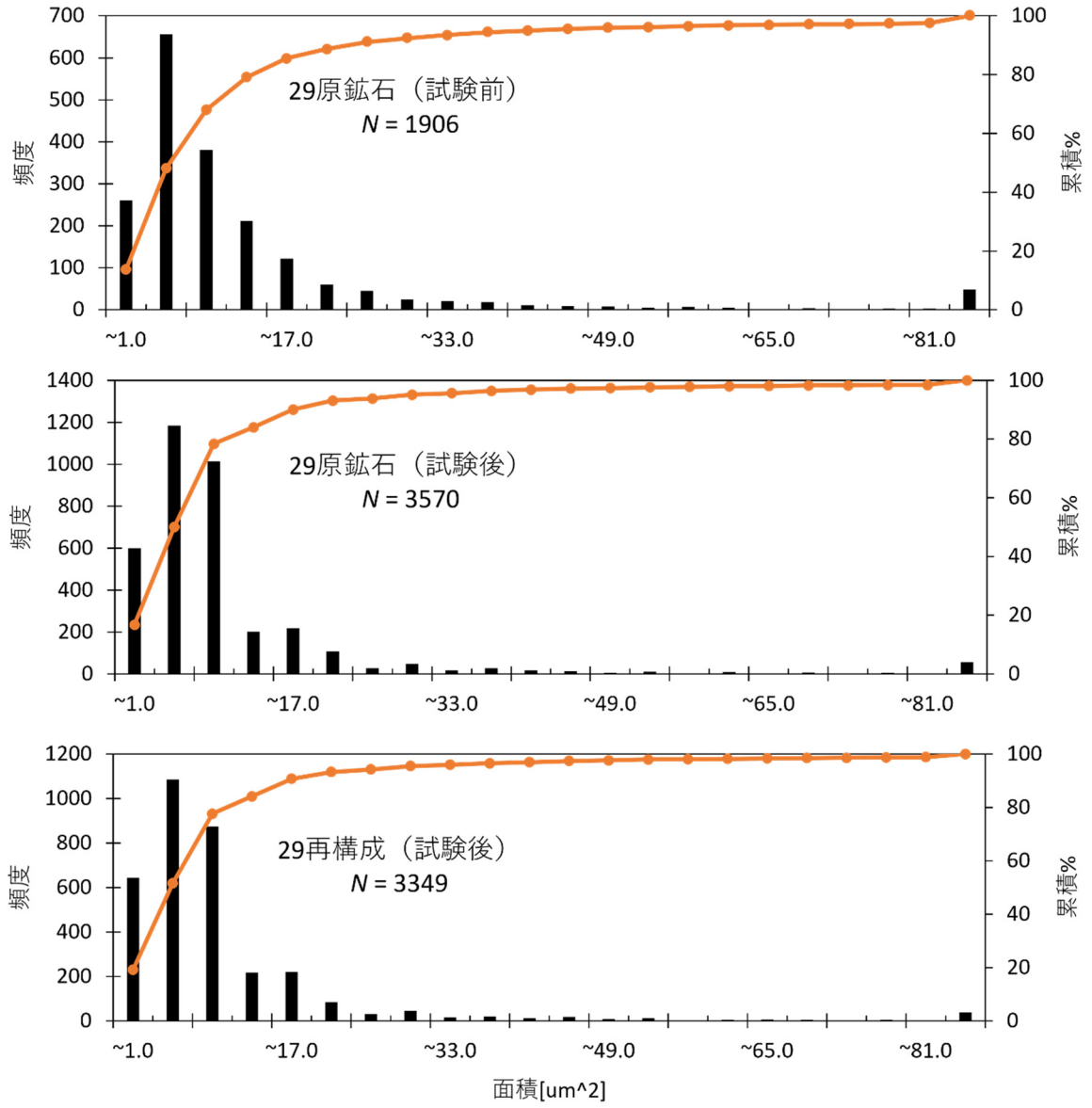


図2.3-35　シリカ微粒子の面積ヒストグラム
黒棒が頻度（左縦軸）、橙線の折れ線が累積頻度（右縦軸）を表す。Nは計測した粒子の個数。

表2.3-7 シリカ微粒子の面積

	29原鉱石（試験前）	29原鉱石（試験後）	29再構成（試験後）
N	1906	3570	3349
最小値	0.285	0.284	0.284
平均値	15.918	10.466	9.100
中央値	5.322	5.227	2.617
最大値	2888.050	1787.626	1104.345

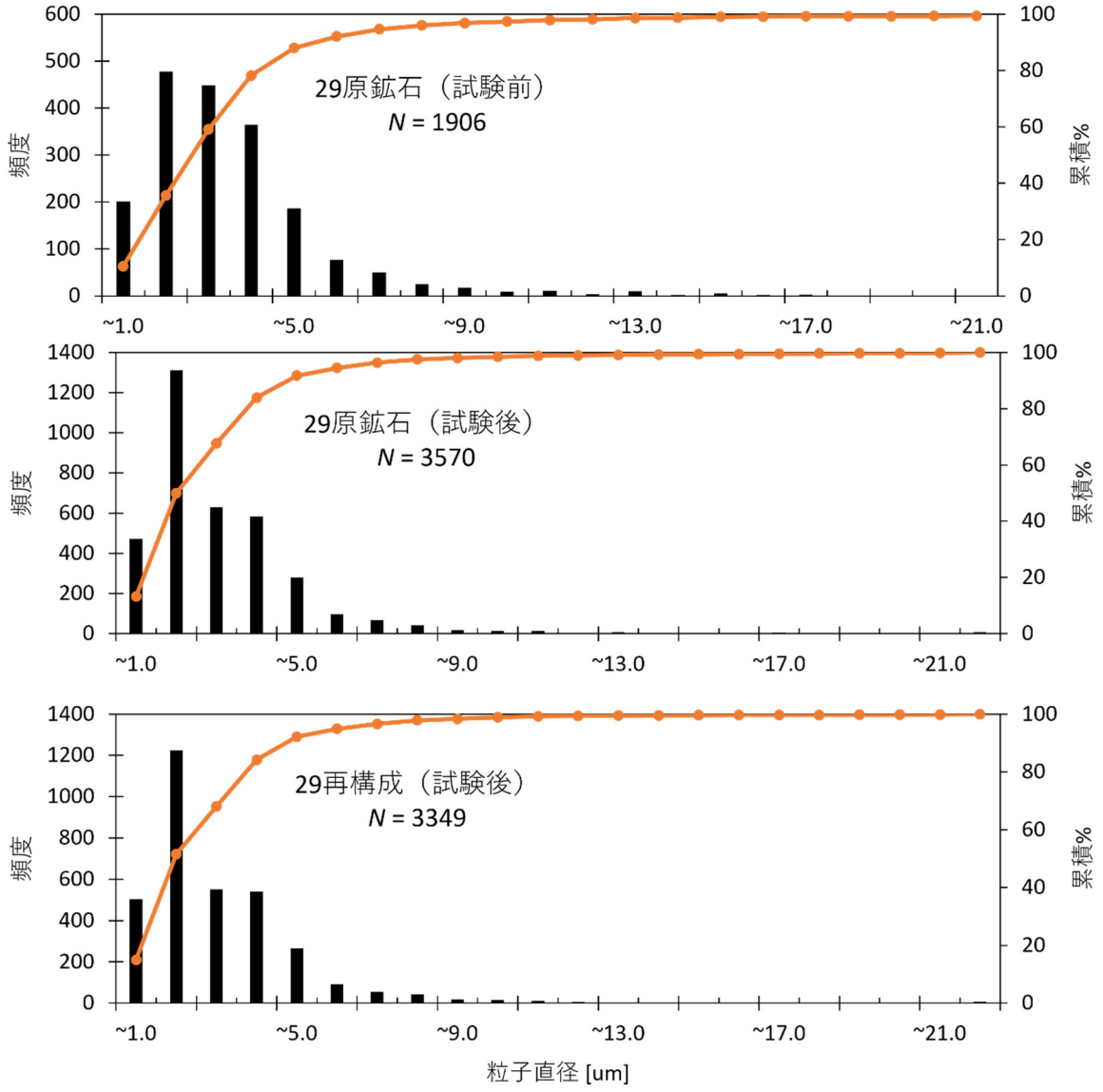


図2.3-36　シリカ微粒子の粒径ヒストグラム
黒棒が頻度（左縦軸）、橙線の折れ線が累積頻度（右縦軸）を表す。Nは計測した粒子の個数

表2.3-8　シリカ微粒子の粒径

	29原鉱石（試験前）	29原鉱石（試験後）	29再構成（試験後）
N	1906	3570	3349
最小値	0.602	0.601	0.601
平均値	3.195	2.702	2.608
中央値	2.603	2.580	1.825
最大値	60.640	47.708	37.498

令和2年度および令和3年度での報告では、原鉱石に含まれるモンモリロナイト粒子端面がシリカ微粒子に接合する特徴的な組織が観察されており、原鉱石の膨潤圧低下の要因として挙げられている（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2021；2022）。令和4年度は、この組織が長期膨潤圧試験後において変化しているのかを確認するため、長期膨潤圧試験後の29番層原鉱石の一部をFIBで切り出し、シリカ微粒子とモンモリロナイトの微細組織をTEMで観察した（図2.3-37）。直径が3 μm以下のシリカ微粒子については制限視野電子回折パターンから、いずれも低温型石英の結晶構造で説明が出来る。このシリカ微粒子とモンモリロナイトの境界部分を観察すると、試験前の原鉱石試料でも観察されたのと同様の接合組織が確認された。図2.3-37aやb中の矢印で示す部分では、モンモリロナイトの密度が低く、粒子同士の凝集が僅かに解消した可能性が考えられるものの、セメンテーションの解消を明瞭に示唆する状態は確認できなかった。

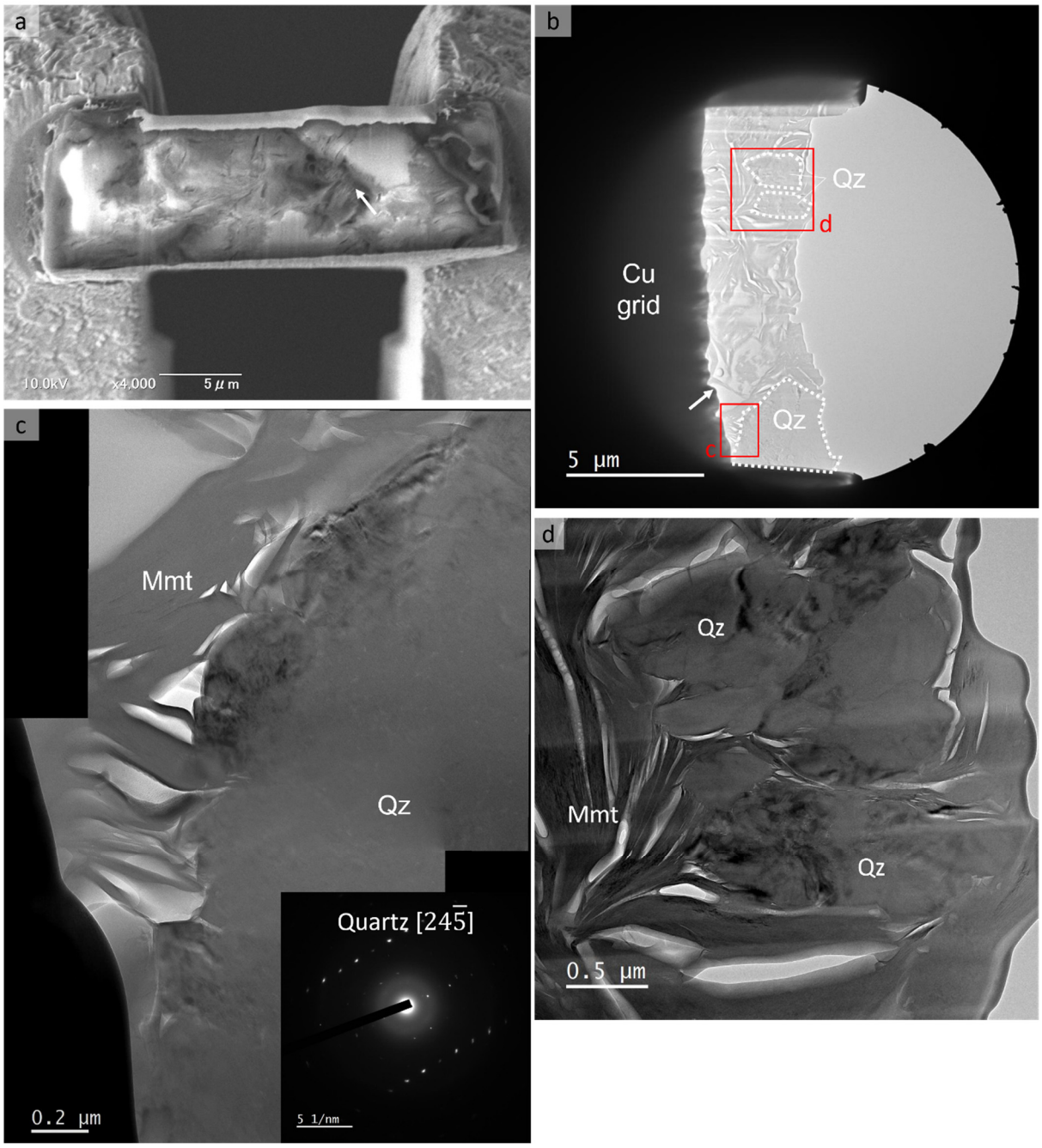


図2.3-37　長期膨潤圧試験後の原鉱石の微細組織
Qz：石英、Mmt：モンモリロナイト

4) ベントナイトのセメンテーションに関する実験的研究手法の検討

令和2年度にレビューした通り、処分環境では様々なセメンテーションが想定されており、緩衝材の基本特性や核種移行特性に影響する可能性がある（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2021）。しかしながら、想定されているセメンテーションがどのような時間スケールでどの程度の範囲で生じうるのか、緩衝材の基本特性等にどの程度の影響を及ぼすのかの評価に利用できるデータは現時点では存在しない。このため本事業では、セメンテーションの評価に必要となる各種基礎データの取得に役立てるため、セメンテーション状態を実験的に生成する手法の開発を進めている。

平成31年度から令和3年度にかけてMgを溶存させたインプット溶液を用いて、ベントナイトを構成するシリカ鉱物の溶解によって間隙水中に供給されるSiと沈殿し、マグネシウムシリケート水和物（MSH）の形成によって間隙を充填されることを想定した実験を行ったが、MSHによるセメンテーションを実現させることができなかった。このため、令和4年度は既往研究でセメンテーションが確認されている鉄およびシリカによるセメンテーションを模擬する実験系を検討した。

前者は、鉄含有鉱物の溶解やオーバーパックの腐食によって放出された鉄イオンが鉄水酸化物や鉄オキシ水酸化物等として沈殿し、セメンテーション物質になる可能性があること(Pusch, 2001)を想定したもので、実規模試験(Pusch et al., 2007; Pusch et al., 2010)や8年間の長期室内試験（Kumpulainen et al., 2010）などで報告されている。後者については、特に高温の熱履歴によって生じる可能性が指摘されており(Wersin et al., 2007)、スウェーデンのKinnekule鉱床などの天然ベントナイト鉱床を対象としたナチュラルアナログの事例(Pusch and Madsen, 1995)などにおいて確認されており、セメンテーションによる膨潤圧の低下や透水係数の増加が報告されている。

令和4年度は、アモルファスシリカの沈殿と$Fe(OH)_3$の沈殿に着目した試験方法を検討した。その試験方法を以下に示す。なお、令和4年度の試験期間中にセメンテーションの発現までを確認するには至らなかったが、セメンテーション状態を実験的に生成する手法として、今後より長期間の試験による手法の確認が求められる。

(a) 浸漬実験

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

ベントナイト試料を乾燥密度0.6 Mg/m^3となるようにアクリル製カラム（内径20 mm・長さ30 mm）に充填する（図2.3-38）。実際に施工が検討されているベントナイトの乾燥密度(~1.6 Mg/m^3)よりも低く設定したのは、通水を容易にすることで短期間での反応の進行を観察可能とするためである。供試体は実験前にイオン交換水に浸し、真空ポンプで3週間脱気させることでベントナイトを膨潤させる。

浸漬実験に用いる溶液は飽和メタケイ酸ナトリウム水溶液（pH11.5、25 ˚Cにおける飽和溶液）と塩化鉄(Ⅲ)水溶液である。前者は、飽和メタケイ酸ナトリウム水溶液（pH11.5、25 ˚Cにおける飽和溶液）を用い、ベントナイト間隙中におけるpHの低下によってアモルファスシリカが沈殿することを想定した（図2.3-39）。後者は、塩化鉄(Ⅲ)六水和物と超純水を混ぜて調製したpH2.26(25 ˚C)、10 mmol/Lの塩化鉄(Ⅲ)溶液を用い、ベントナイト間隙中におけるpHの上昇によって$Fe(OH)_3$が沈殿することを想定した（図2.3-40）。それぞれの溶液にカラム供試体を浸漬させ、70 ˚Cの恒温炉で反応させる。

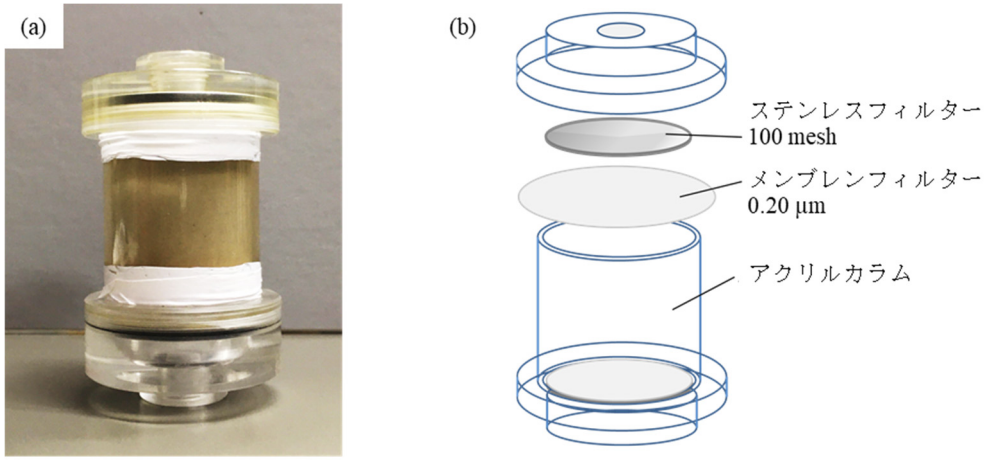


図2.3-38　実験に使用したベントナイト充填カラム(a)とカラムの内部構造(b)
（令和2年度報告書から再掲）

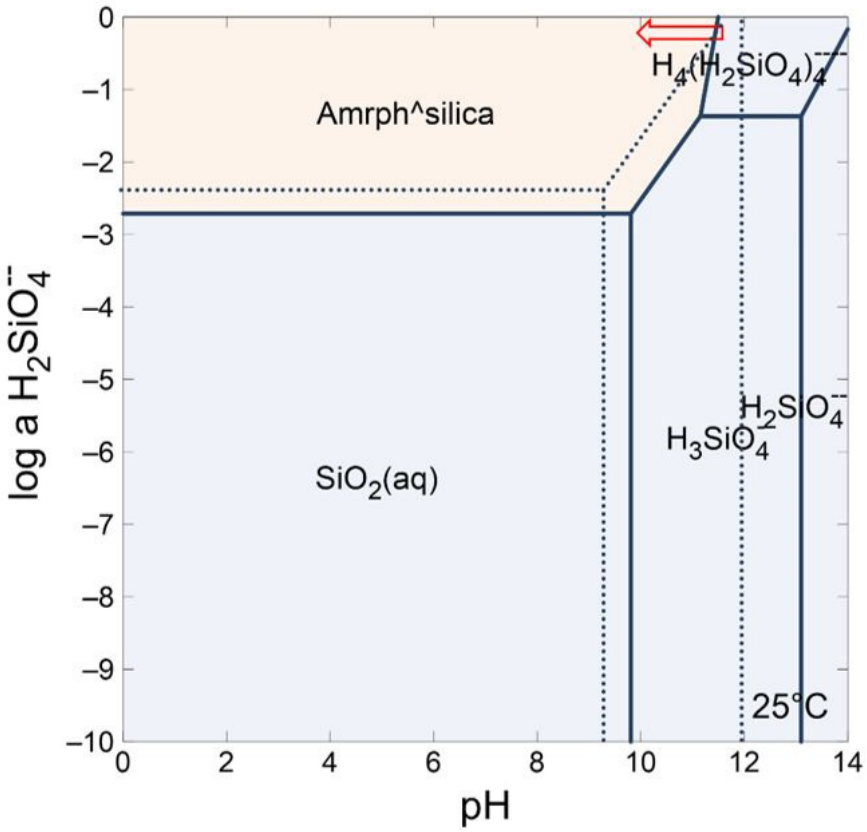


図2.3-39　アモルファスシリカの溶解度曲線
点線は70 ˚Cにおける相境界

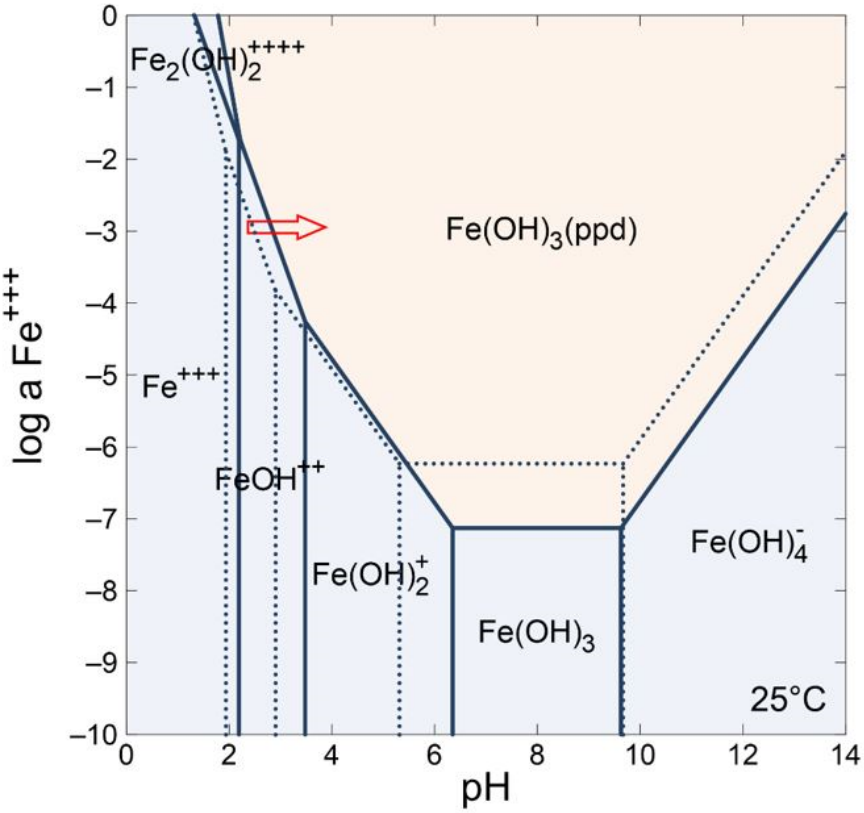


図2.3-40　$Fe(OH)_3$の溶解度曲線
点線は70 ˚Cにおける相境界

試験前、試験中、試験後に溶液を分取し、分析する。試験終了後、回収したカラム供試体はSEMおよびXRDによって解析を行う。SEMでの観察は上流、中流、下流に分けて薄片を作製し、生成した二次鉱物（セメンテーション物質）の分布を観察する。XRDについては構成鉱物の同定のほか、湿度制御を行うことでモンモリロナイトの層間イオンについても確認を行う。

(b) 透水実験

カラム供試体の作製は浸漬実験と同様の条件で行う。溶液を通水圧0.03 MPaのもとで加圧装置からカラム供試体に通水させて反応させる（図2.3-41）。通水圧はカラムの中で水みちが発生しないことを考慮して設定した。溶液およびカラム供試体の分析は浸漬試験と同様に実施する。

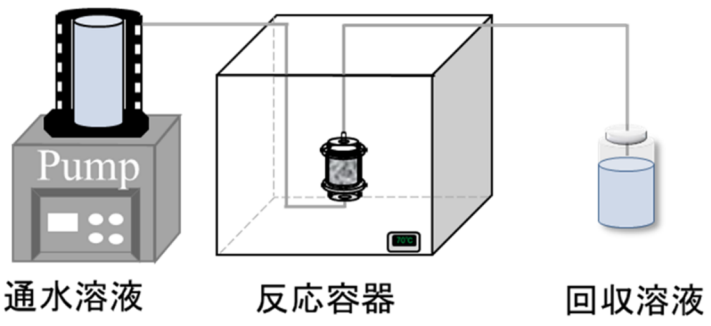


図2.3-41　通水実験装置の模式図

(3) 5か年の成果と今後の課題

山形県月布鉱山のベントナイト原鉱石およびその再構成試料を対象に、走査型電子顕微鏡、透過型電子顕微鏡を用いた詳細な観察を実施し、モンモリロナイト粒子端面とシリカ微粒子が接合している状態など、セメンテーションの状態を示す組織、その原因物質を特定するとともに、走査型電子顕微鏡の反射電子像（組成像）の画像解析による試料中の空隙・鉱物組成定量法の開発、カソードルミネセンス法を利用したシリカ粒子の起源の推定を行うことができた。また、原鉱石および再構成試料を対象とした各種基本特性試験を行い、再構成試料と比較して原鉱石の膨潤圧は低い値を示すものの透水係数には違いが認められないこと、原鉱石は圧密に対する剛性が大きく、除荷による膨潤変形量が小さい傾向があることを確認した。長期の膨潤圧試験において、原鉱石の膨潤圧は経時的な増加を示し、長期的にはセメンテーションの原因物質であるシリカ微粒子の溶解により基本特性への影響が低下する可能性が示唆されたが、透過型電子顕微鏡等を用いた観察では組織の変化を確認することはできなかった。このような新たな知見は、鉄-緩衝材相互作用にともなう腐食生成物によるセメンテーションに関する知見（例えば、図2.3-11から図2.3-12）の発生原因物質とそのメカニズムやそれが緩衝材に期待ししている機能に与える影響などの現象理解とその整理に資すると考えられる。そして、4.2.2項においてSP3における統合化評価の対象である緩衝材の状態変遷に顕著な影響を及ぼす可能性のある現象とその不確実性として検討した「随伴鉱物などの溶解・沈殿とそれに伴う不確実性」の検討として活用できると考えられる。

今後は、鉄セメンテーション、シリカセメンテーション、熱影響に伴う可溶性塩によるセメンテーションを対象に、セメンテーションの状態を模擬した試料を作製するための試験方法を確立し、これらのセメンテーションによる緩衝材基本特性や核種移行への影響の把握等、さらなるデータ拡充を進める必要がある。得られる成果は、統合化評価で対象とする緩衝材の状態変遷に顕著な影響を及ぼす可能性のある現象のシナリオ構築（例えば、4.2.4項参照）につながると考えられる。

2.4 ニアフィールド THMC 連成挙動評価

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

このような背景のもと、過渡期（廃棄体定置後の THMC 状態が大きく変化する期間）の THMC 連成挙動に関する現象解析モデル開発として、平成 30 年度および平成 31 年度においては、FEBEX プロジェクトにおける原位置試験を対象に、THAMES による THM 連成解析を実施した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019；2020）。そして、緩衝材への地下水の浸潤が進んだ約 19 年間の試験期間の評価を通じて、水理挙動を再現するためには、温度勾配によって生じる水分移動を表すパラメータが間隙水飽和度に依存して変化する影響を考慮する必要があることを明らかとした。さらに、幌延深地層研究計画におけるオーバーパック腐食試験を対象として、Couplys による THMC 連成解析を実施し、廃棄体を模擬したヒーターの発熱と地下水の浸潤にともなう緩衝材間隙水の化学的な環境変化に着目した評価を実施した。ここでは、原位置において計測されている緩衝材の間隙水の pH や pe との比較を通じた THMC 連成モデルの適切性の確認を行い、間隙水の pH については、スメクタイトの酸・塩基反応によって、また、pe については、緩衝材中に含有する黄鉄鉱が初期間隙中に存在する酸素を消費する反応を考慮することで、それぞれの変遷を再現可能であることを確認した。令和 2 年度は、より多様な地質環境条件に応じた THMC 連成挙動を再現できる現象解析モデルの構築を目指し、幌延深地層研究計画における人工バリア性能確認試験で得られている計測データを活用して、幌延地下水に対して得られている緩衝材の固有透過度と蒸留水に対する固有透過度を用いた場合の浸潤挙動の違いを把握し、特にオーバーパック近傍の飽和度の経時変化に与える影響が大きいことなどを示した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2021）。令和 3 年度は、海水系地下水条件での浸潤挙動の評価手法の構築に向けて、異なる塩分濃度の試験溶液を用いた浸潤試験を行い、供試体内部の含水比分布などの時間変遷を取得することで、塩濃度に応じた浸潤挙動の違いの把握を行った。試験により取得したデータと、間隙水の塩濃度変化に伴う透水係数の変化を考慮した連成解析コード Couplys による解析結果を比較することにより、解析手法の妥当性の検証と高度化を行った（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2022）。

令和 4 年度は、令和 2 年度に設定した温度勾配による緩衝材中の水分移動評価モデルおよび令和 3 年度に設定した海水系地下水環境下における緩衝材の間隙水組成が透水特性に及ぼす影響を考慮した浸潤挙動評価モデルを適用した Couplys の適切性を確認するために、原子力機構が幌延深地層研究計画において実施している人工バリア性能確認試験を対象とした再現解析を実施した。令和 3 年度に設定した海水系地下水環境下における浸潤挙動評価モデルの適用範囲を拡張するために、令和 3 年度とは異なる乾燥密度の緩衝材に対して海水系地下水の浸潤を想定した試験を実施した。そして、試験結果に基づき浸潤挙動評価モデルの適用性の確認とパラメータの設定を行った。これらの実施内容と成果については 2.4.1 項で述べる。

さらに、処分施設の各材料および周辺岩盤との力学的相互作用を過渡期から長期まで一貫して評価できる解析システムの構築を目的として、ニアフィールド長期力学解析コードの開発を行ってきた。平成 30 年度および平成 31 年度は、過渡期の緩衝材の飽和度変化に伴う力学的な状態変化を解析する機能を MACBECE に追加した。そして、改良した MACBECE を用いて過渡期から 10 万年後までの処分施設の長期力学解析を実施し、過渡期の処分施設の各材料および周辺岩盤の

力学的な相互作用を考慮したニアフィールドの長期力学挙動評価を実施するとともに、過渡期の力学挙動がひずみ、透水係数分布などの処分施設の力学および水理的な状態変遷に与える影響を分析した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019 ; 2020）。令和 2 年度は、MACBECE の更なる改良として、廃棄体の発熱による処分施設の温度変化に伴う構成材料の熱膨張や熱収縮挙動を解析できる機能を MACBECE に追加した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2021）。令和 3 年度は、幌延人工バリア性能確認試験で得られている再冠水時の応力や変位に関する計測データを活用し、原位置試験などの実規模かつ複合的な試験体系における緩衝材の力学挙動に着目した時の MACBECE による解析結果の再現性の確認を行い、過渡期の解析機能の高度化に向けた更なる課題の抽出を行った。さらに、過渡期の緩衝材の力学モデルの高度化に向けて、MACBECE に導入できていない過渡期の緩衝材の力学特性の温度依存性を考慮できる力学モデルの構築に向け、温度を制御した膨潤圧試験に着手し、緩衝材の力学特性の温度依存性に関するデータ取得を進めた（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2022）。

令和 4 年度は、令和 3 年度に実施した MACBECE を用いた幌延人工バリア性能確認試験の解析において課題として抽出された緩衝材の埋め戻し材への膨出挙動をより適切に評価するため、埋め戻し材のモデル化の違い等が緩衝材の膨出挙動に与える影響を検討した。さらに、過渡期の緩衝材の力学特性の温度依存性を考慮できる力学モデルの構築に向け、温度を制御した膨潤圧試験と圧密試験を実施し、緩衝材の力学特性の温度依存性に関するデータ取得を進めた。これらの実施内容と成果については 2.4.2 項で述べる。

一方、過渡期の緩衝材の応力変化や密度変化などの力学挙動、それに伴う透水性や核種移行に関係する特性の変化などの理解や関連するデータ取得に向けたアプローチの検討の一つとして、ナノからマイクロメートルオーダーでの粘土含水系の挙動を調べるためのシミュレーションに着目し、粗視化メソスケール分子動力学モデルの開発を行ってきた。平成30年度以降、指定された温度と圧力で圧縮したときに生じる粘土含水系の凝集挙動の評価（組織構造モデルの作成）および得られた組織構造の特徴を示す実測可能かつ物理的な意味が明確な物理量（マクロ物性など）の定量的な評価に向けての検討を進めてきた。平成31年度までに、メソMD法で得られる組織構造から粘土分子の平均的な積層数や層間距離などを評価する手法を構築し評価を試行した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019 ; 2020）。令和2年度は、手法の拡張として、粘土含水系の組織形成シミュレーションにおいて水分量を変化させることができるように、水和エネルギーと水分量の関係をモデル化しメソMDモデルへの組み込みを行った（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2021）。しかしながら、令和2年度のモデルでは、粘土分子表面への水和挙動を特徴付ける水和エネルギーが水和量の増加に対して単調減少すると仮定して計算を行っているが、このような単調な水和エネルギーモデルは、層間イオン種に応じたモンモリロナイトの複雑な膨潤挙動（例えば、化学ポテンシャルと関係するNa型モンモリロナイトでは相対湿度に対して離散的な膨潤状態をとる）を再現するためには十分でなく、いくつかの極値をもつような非単調な水和エネルギーモデルが必要となる。そのため、令和3年度は、そのようなより複雑な水和エネルギーモデルの開発に着手した。具体的には、より複雑な水和エネルギーモデルの開発に向けて、水和エネルギーの局所的な変動が膨潤挙動に与える影響を調べることを目的に、令和2年度までの単調に変化する水和エネルギー関数に振動成分を加えたより複雑なモデルを用いた解析を試行した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2022）。

令和4年度は、Na型モンモリロナイトのX線回折試験で実際に観測された膨潤挙動を反映した水和エネルギーモデルを作成し、吸水膨潤の粗視化MDシミュレーションを行い、観測事実に基づ

いたNa型モンモリロナイトの組織構造についての計算が実施できるようにした。加えて、これまでのシミュレーションでは、実験では制御が難しい化学ポテンシャルを指定した計算は可能であったが、直接的に相対湿度を指定した計算までは行えなかったことに対して、直接的に相対湿度を指定した計算が実施できるように手法の改良を行った。これらの実施内容と成果については2.4.3項で述べる。

2.4.1 過渡期の THMC 連成挙動に関する現象解析モデル開発

(1) 背景と目的

人工バリアを設置した時点から緩衝材が飽和に至るまでの過渡的な期間では、熱的作用（熱輸送、熱膨張）、水理的作用（地下水浸透、温度勾配による水分移動）、力学的作用（応力変形、膨潤圧の発生）および化学的作用（物質移行、ガスの発生と消費、間隙水の濃縮希釈、鉱物の溶解沈澱など）が相互に影響を及ぼし合う連成現象が生じると考えられている。このような過渡期におけるニアフィールド環境の把握を始めとして、安全評価における核種移行の初期状態の設定や、オーバーパックの腐食寿命評価に必要となるニアフィールド環境条件に関する情報の提供を目的として、熱－水－応力（THM）連成解析コード（以下、[THAMES]という）(Ohnishi et al., 1985)、さらに、THAMES に、物質移行解析コードの Dtransu (Nishigaki et al., 2001)および地球化学解析コードの PHREEQC (Parkhurst, 1999)を連成させた熱－水－応力－化学（THMC）連成解析コード（以下、[Couplys]という）の開発が進められてきた（日本原子力研究開発機構, 2008；2009；2010；2011；2012；2013b；2014；2015a)。このような過渡期の THMC 連成挙動の評価技術を開発することで、連成挙動として扱うべき現象を明らかにし、過渡期の THMC 連成挙動を支配する現象を抽出することも可能となる。例えば、鈴木・高山 (2020)は、緩衝材の力学挙動が熱や水理挙動に及ぼす影響に着目して THAMES の高度化を行い、緩衝材が埋め戻し材側に膨出し緩衝材の密度が低下する力学挙動が緩衝材の最高温度や緩衝材の再冠水時間へ及ぼす影響は小さいことなどを明らかにしている。

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

平成30年度および平成31年度においては、FEBEX (Full scale Engineered Barriers Experiment)プロジェクトにおける原位置試験 (ENRESA, 2000)を対象に、THAMESによるTHM連成解析を実施した。そして、緩衝材への地下水の浸潤が進んだ約19年間の試験期間の評価を通じて、長期的な水理挙動を再現するためには、温度勾配によって生じる水分移動を表すパラメータが間隙水飽和度に依存して変化する効果を考慮する必要があることを明らかにした。そして、このTHM連成解析モデルが、これまでに評価実績の少ない廃棄体横置き方式の人工バリア仕様や、国産とは異なるベントナイトに対しても有効であることを確認した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019；2020）。また、幌延深地層研究計画におけるオーバーパック腐食試験（中山, 2018）を対象として、CouplysによるTHMC連成解析を実施し、廃棄体を模擬したヒーターの発熱と地下水の浸潤にともなう緩衝材間隙水の化学的な環境変化に着目した評価を実施した。そして、コンクリート支保の影響を受けた海水系地下水が浸潤する緩衝材の間隙水組成や酸化還元電位の変遷などオーバーパックの腐食評価に必要となる情報を取得した。さらに、原位置において計測されている緩衝材の間隙水のpHやpeとの比較を通じたTHMC連成モデルの適切性の確認を行っており、間隙水のpHについては、スメクタイトの酸・塩基反応

によって、また、間隙水のpeについては、緩衝材中に含有する黄鉄鉱が初期間隙中に存在する酸素を消費する反応を考慮することで、それぞれの変遷を再現することを確認した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019；2020）。

令和2年度は、FEBEXプロジェクトにおける原位置試験の再現解析によって抽出された課題を踏まえ、THAMESにおける緩衝材中の温度勾配による水分移動モデルの検討を行った。具体的には、気液二相流解析コードのTOUGH2 (Pruess, 1991)を用いて、廃棄体の発熱を想定した人工バリア体系での気相の流れと水蒸気量の勾配によって生じる水蒸気の移動を含む緩衝材の浸潤挙動の評価を行った。そして、得られた浸潤プロファイルを再現可能とするモデルとして、温度および間隙水飽和度依存性を考慮した温度勾配による水分移動モデルの設定を行った（日本原子力研究開発機構･原子力環境整備促進･資金管理センター, 2021）。また、THAMESの検証解析として、幌延深地層研究計画における人工バリア性能確認試験で得られている浸潤挙動に関する計測データを活用して、海水系地下水環境に対する連成解析モデルの適用性の確認を行った。その結果、緩衝材の透水特性として、幌延URL周辺の地下水に対して得られている値を用いた場合においても、計測データを適切に再現することができなかった（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2021）。ベントナイトの透水性は、イオン強度などの間隙水組成の影響を受けることが知られており、海水系地下水が浸潤する緩衝材の間隙水組成は、初期に存在する間隙水と浸潤した地下水とが混合して形成され、間隙水組成に応じて透水性などの水理特性も変化すると考えられる。このため、緩衝材の透水特性に及ぼす海水系地下水の影響は、岩盤に近い緩衝材の外側で大きく、浸潤が進まない緩衝材内部では小さいと推察された。

令和3年度は、THMC連成解析モデルをより多様な地質環境条件に対応できるようにするため、海水系地下水環境下における緩衝材の浸潤挙動を適切に評価するモデルの検討を行った。そして、海水系地下水の浸潤を想定した浸潤試験を実施し、緩衝材の浸潤挙動に及ぼす浸潤水中のNaCl濃度の影響を把握した。さらに、浸潤試験の結果に基づき、飽和・不飽和浸透流解析と物質移行を含む地球化学解析とを連成させる手法によって、緩衝材中に初期に存在する間隙水と浸潤水とが混合して形成される間隙水組成と、それに依存して変化する透水特性の影響を考慮した評価を実施した。これらを通じて、海水系地下水環境下における緩衝材の浸潤挙動評価モデルの設定を行った（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2022）。

令和4年度は、令和2年度に設定した温度勾配による緩衝材中の水分移動評価モデル（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2021）および令和3年度に設定した海水系地下水環境下における緩衝材の間隙水組成が透水特性に及ぼす影響を考慮した浸潤挙動評価モデル（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2022）をCouplysに反映した。Couplysの概要と本事業において高度化したスキームを図2.4-1に示す。本連成解析モデルの適切性を確認するために、原子力機構が幌延深地層研究計画において実施している人工バリア性能確認試験を対象とした再現解析を実施した。本解析では、緩衝材の浸潤挙動に着目し、廃棄体を模擬したヒーターの発熱により温度勾配が形成された条件下における海水系地下水の浸潤と緩衝材の間隙水組成とともに変化する水理特性に与える影響を考慮した。そして、人工バリア性能確認試験で得られている緩衝材の浸潤挙動に関する計測データとの比較を通じて、海水系地下水環境下におけるTHMC連成解析モデルの適用性を確認した。また、令和3年度に設定した海水系地下水環境下における浸潤挙動評価モデルの適用範囲を拡張するために、令和3年度とは異なる乾燥密度の緩衝材に対して海水系地下水の浸潤を想定した試験を実施した。そして、試験結果に基づき浸潤挙動評価モデルの適用性の確認とパラメータの設定を行った。

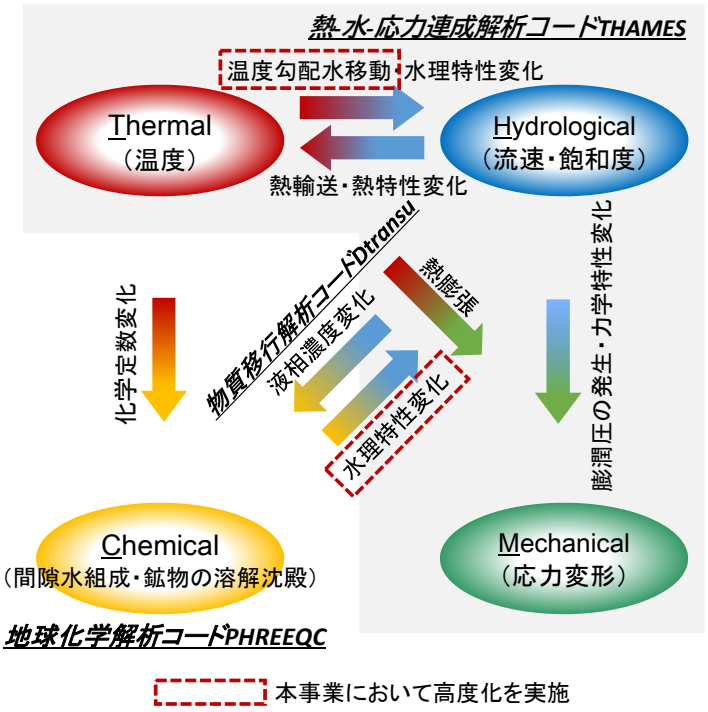


図2.4-1　Couplysの概略と本事業において高度化したスキーム

(2) 実施内容

1) 海水系地下水の浸潤を想定した緩衝材の浸潤試験と再現解析

① 概要と目的

令和 3 年度は、乾燥密度が 1.8 Mg/m^3 の圧縮ベントナイト試料を対象に、浸潤水の NaCl 濃度を変えた複数の浸潤試験を実施し、浸潤時間と浸潤量の関係および一定時間後の浸潤距離毎の含水比データを取得した。さらに、得られた試験データを再現するため、不飽和時の水理特性の NaCl 濃度依存性も考慮できるように Couplys の高度化を行った。令和 4 年度は、令和 3 年度とは異なる乾燥密度条件として、乾燥密度が 1.6 Mg/m^3 および 1.4 Mg/m^3 の圧縮ベントナイト試料を対象に、浸潤水の NaCl 濃度を変えた複数の浸潤試験を実施した。さらに、令和 3 年度に高度化した Couplys による浸潤試験の再現解析により、令和 3 年度とは異なる乾燥密度条件に対する Couplys の適用性の確認を行った。

② 試験条件・試験手順

表 2.4-1 に試験条件を示す。供試体となる圧縮ベントナイト試料の材料は、クニゲル V1、ケイ砂 3 号、ケイ砂 5 号を重量比 7：1.5：1.5 で混合したものであり、乾燥密度は 1.6 Mg/m^3 および 1.4 Mg/m^3 とした。供試体のサイズは直径 50 mm、高さ 50 mm とした。また、浸潤水には、蒸留水、1.49 %NaCl 水溶液、3.98 %NaCl 水溶液を用いた。

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

記録することにより、浸潤時間と浸潤量の関係を把握した。

表 2.4-1　試験条件

材料の割合	クニゲル V1:70 %、ケイ砂 3 号:15 %、ケイ砂 5 号:15 %
ベントナイトの初期含水比	約 8 %
乾燥密度	1.6 Mg/m^3、1.4 Mg/m^3
直径	50 mm
高さ	50 mm
浸潤水	蒸留水、1.49 %NaCl 水溶液、3.98%NaCl 水溶液

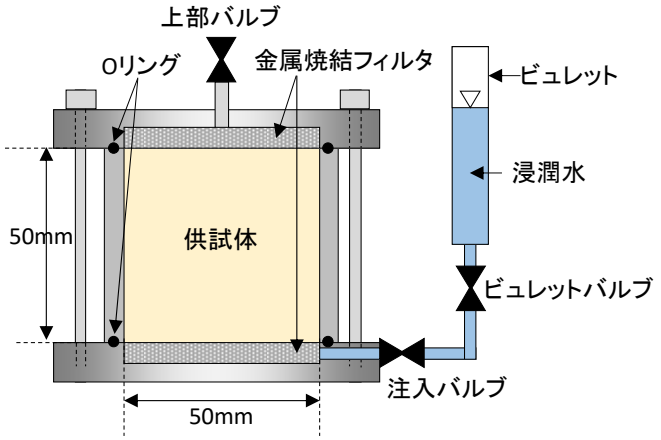


図 2.4-2　試験装置概略図

③ 解析条件

ここでは、THMC連成解析モデルのCouplysを用いて、等温条件で実施された浸潤試験に対して、熱および応力変形の影響を考慮せずに、水理－地球化学の連成解析として実施した。なお、本試験は浸潤時間が最長でも3週間程度と短いことから、緩衝材中における間隙水と含有鉱物との反応やイオン交換反応などの水－鉱物反応は考慮しないものとし、間隙水中のNaおよびClの移行のみを対象とした。解析メッシュは、浸潤面から鉛直方向への一次元のみの流れを考慮することとし、これを要素数100でモデル化した。境界条件として、浸潤試験の浸潤水の条件に合わせて浸潤面要素のNaCl濃度を拘束した。本解析で用いた物性値を表2.4-2に示す。

このうち、緩衝材のサクションΨ（mH_2O）と間隙水飽和度S_r（-）との関係を表す水分特性曲線については、以下に示すvan Genuchtenモデル(van Genuchten, 1980)を用いた。

$$S_r = [1 + |\alpha\Psi|^n]^{-\left(1-\frac{1}{n}\right)} \tag{2.4-1}$$

図 2.4-3 は、解析で用いた水分特性曲線であり、本試験で用いる圧縮ベントナイト試料のサクションと含水比の測定データ（鈴木・藤田, 1999b）を、各乾燥密度を用いて含水比から飽和度に変換したものに対し、van Genuchten モデルをフィッティングさせた結果である。図中の乾燥密度 1.8 Mg/m^3 の水分特性曲線は令和 3 年度の解析（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2022）で用いたものである。なお、各乾燥密度における van Genuchten モ

デルのパラメータαとnを乾燥密度で整理すると、図 2.4-4 のようになり、最小二乗法による近似曲線を求めるとそれぞれ以下のような関係であった。

$$\alpha = 5.9945\exp(-3.92\rho_d) \tag{2.4-2}$$

$$n = -0.05\rho_d + 1.47 \tag{2.4-3}$$

ここで、ρ_dは乾燥密度(Mg/m^3)である。

表2.4-2　一次元の浸潤試験を対象とした緩衝材の解析物性値

		乾燥密度1.6 Mg/m^{3}の場合	乾燥密度1.4 Mg/m^{3}の場合
真密度	Mg/m^3	2.68	2.68
空隙率	-	0.40	0.48
初期間隙水飽和度	-	0.32	0.24
水分特性曲線 （vGモデル）	-	α＝0.012 n=1.39	α＝0.024 n=1.4
比透水係数	-	S_r^3	S_r^3
実効拡散係数*1	m^2/s	1.2×10^{-10}	1.2×10^{-10}
縦分散長*1	m	5.0×10^{-4}	5.0×10^{-4}

＊1：核燃料サイクル開発機構（1999a）

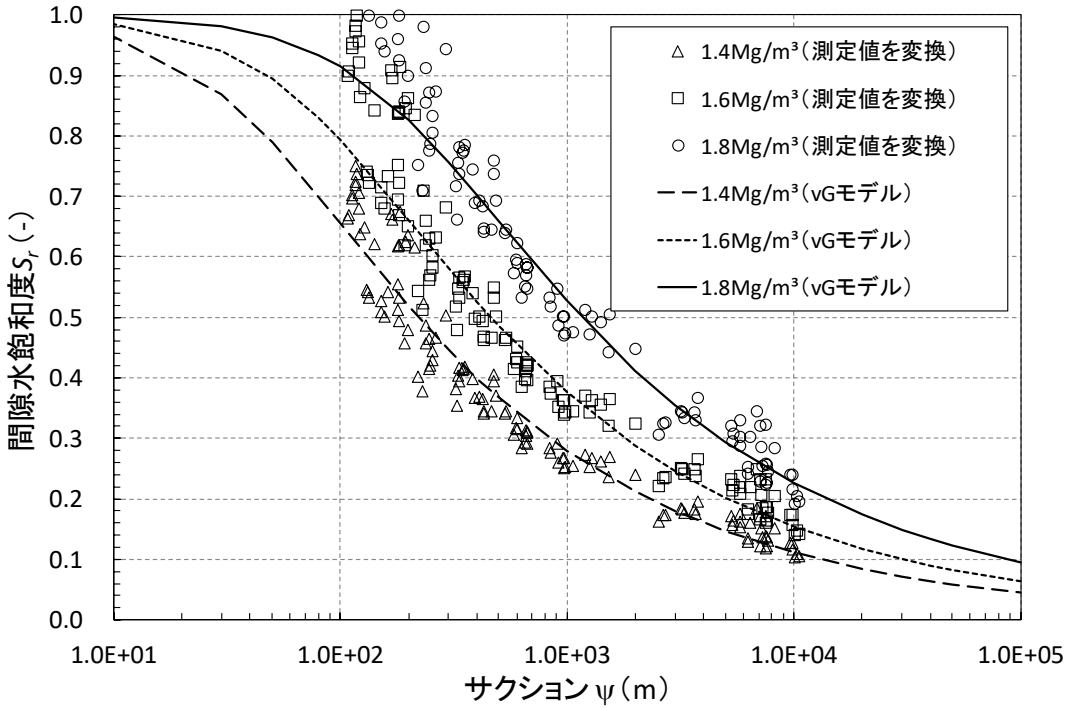
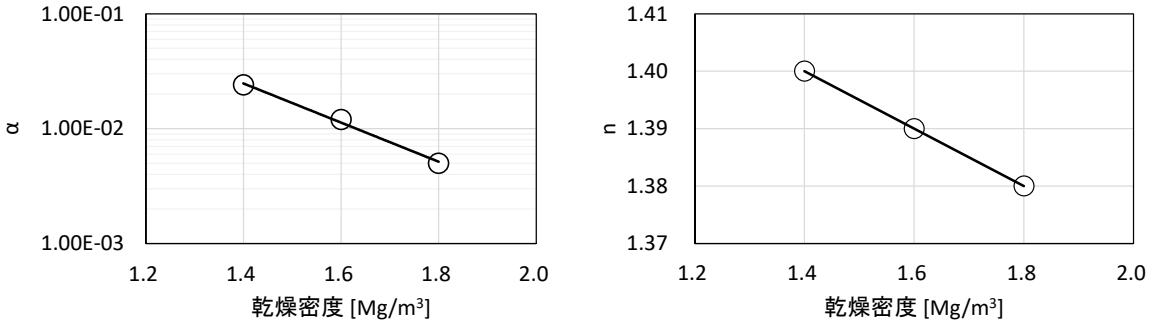


図2.4-3　解析に用いた水分特性曲線



（a）α　　（b）n

図2.4-4　解析に用いた水分特性曲線のパラメータと乾燥密度およびその近似曲線

物質移行パラメータについては、第2次取りまとめにおける安全評価に用いた値とした（核燃料サイクル開発機構, 1999a）。本解析では、緩衝材の透水特性として固有透過度のNaCl濃度依存性を考慮するため、図2.4-5を用いた。図中のプロットは実験室レベルでの透水試験によって得られた値であり、透過させる溶液として、左から蒸留水、幌延地下水相当のNaCl濃度および人工海水相当のNaCl濃度に対して得られた固有透過度である（松本ほか, 1997；菊池・棚井, 2005；菊池ほか, 2003）。そして、透過溶液中のNaCl濃度と固有透過度の関係を指数関数で近似すると次式となり、図2.4-5中の直線のようになる。

乾燥密度 1.8 Mg/m³ の場合：$\kappa = 1.376 \times 10^{-20} exp(1.035c)$　　(2.4-4)

乾燥密度 1.6 Mg/m³ の場合：$\kappa = 4.651 \times 10^{-20} exp(1.267c)$　　(2.4-5)

乾燥密度 1.4 Mg/m³ の場合：$\kappa = 1.244 \times 10^{-19} exp(1.298c)$　　(2.4-6)

ここで、κは固有透過度(m²)、cは透過溶液中の NaCl 濃度(wt%)である。

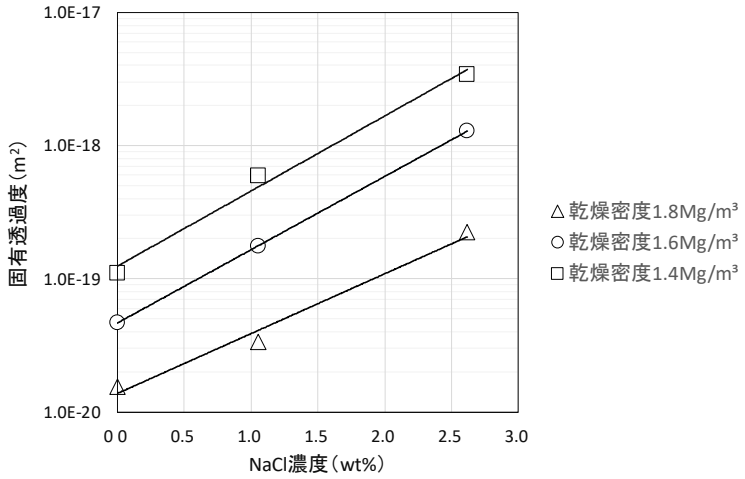


図2.4-5　NaCl濃度と固有透過度の関係とその近似曲線

Couplys では、不飽和時には式(2.4-4)から式(2.4-6)を以下のように拡張することで不飽和時の水理特性の NaCl 濃度依存性を考慮することとし、不飽和状態では浸潤挙動に与える NaCl 濃度の影響が小さくなるようにモデル化した。

$$\text{乾燥密度 1.8 Mg/m}^3\text{ の場合：}\kappa = 1.376 \times 10^{-20} \times exp\left(1.035c \times {S_r}^{A_c}\right) \quad (2.4\text{-}7)$$

$$\text{乾燥密度 1.6 Mg/m}^3\text{ の場合：}\kappa = 4.651 \times 10^{-20} \times exp\left(1.267c \times {S_r}^{A_c}\right) \quad (2.4\text{-}8)$$

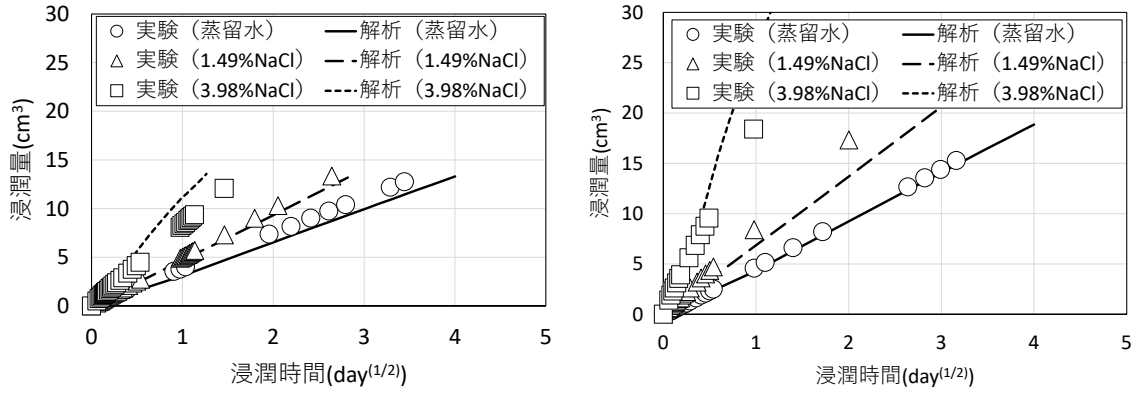
$$\text{乾燥密度 1.4 Mg/m}^3\text{ の場合：}\kappa = 1.244 \times 10^{-19} \times exp\left(1.298c \times {S_r}^{A_c}\right) \quad (2.4\text{-}9)$$

ここで、S_rは間隙水飽和度、A_cは塩水条件での浸潤試験の再現解析から決定するフィッティングパラメータである。本検討で実施した浸潤試験およびその再現解析により、A_cは乾燥密度が 1.6 Mg/m^3 条件では 10.0、1.4 Mg/m^3 条件では 8.0 と決定した。なお、最小二乗法により上式の各係数と乾燥密度の近似曲線を求めると、固有透過度は以下のような乾燥密度と NaCl 濃度と飽和度の関数となることがわかった。

$$\kappa = [2.87 \times 10^{-16} \times exp(-5.504\rho_d)] \times exp\left[(-0.6575\rho_d + 2.252)c \times {S_r}^{(10\rho_d - 6)}\right] \quad (2.4\text{-}10)$$

④ 試験結果および解析結果

図 2.4-6 に、浸潤量の経時変化の実験結果とその再現解析結果を示す。実験では、乾燥密度が 1.6Mg/m^3 の場合と比較すると乾燥密度が 1.4 Mg/m^3 の場合の方が透水性は高いため、同一試験溶液条件で比較すると乾燥密度が小さいほど浸潤量が多く、また、浸潤が速くなっている。同一乾燥密度条件においては、NaCl 濃度が高い場合の方が浸潤が速い。また、乾燥密度が 1.6 Mg/m^3 の場合と比較すると乾燥密度が 1.4 Mg/m^3 の場合の方が浸潤速度に与える塩水の影響が大きく、NaCl 条件では浸潤速度がより早くなっている。解析でもこのような傾向が再現できていることが確認でき、1.49 %NaCl 条件では浸潤速度をやや早く評価し、3.98 %NaCl 条件では、浸潤速度をやや遅く評価する傾向があるものの、概ね実験と整合的な結果が得られることが確認できた。



（a）乾燥密度：1.6 Mg/m^3　　（b）乾燥密度：1.4 Mg/m^3

図2.4-6　浸潤量の経時変化

2) 幌延人工バリア性能確認試験における浸潤挙動の再現解析

① 概要と目的

過渡的な期間におけるニアフィールド環境の状態変遷を適切に評価するための技術開発として、本事業の5年間においてTHMC連成解析モデルの高度化を実施してきた。令和4年度は、これまでに高度化されたモデルの適切性を確認するため、原子力機構が幌延深地層研究計画において実施している人工バリア性能確認試験を対象とした再現解析を実施した。THMC連成解析モデルの高度化として、令和2年度に設定した温度勾配による緩衝材の水分移動評価モデルおよび令和3年度に設定した海水系地下水環境下における緩衝材の間隙水組成の影響を考慮した浸潤挙動評価モデルをCouplysに反映している。解析では、廃棄体を模擬したヒーターの発熱によって温度勾配が形成された環境下において、海水系地下水の浸潤と緩衝材の間隙水組成とともに変化する水理特性に与える影響を考慮した。そして、人工バリア性能確認試験で得られた緩衝材の浸潤挙動に関する計測データとの比較を通じて、海水系地下水環境に対する連成解析モデルの適用性を確認した。

② 解析条件

幌延深地層研究計画における人工バリア性能確認試験は、幌延の地質環境を一つの事例として実規模の処分孔竪置き方式の人工バリアを設置し、人工バリアの定置から再冠水までの現象を模擬したものである。試験は、平成27年1月から令和2年6月までの約5年間、廃棄体を模擬したヒーターの温度を100 °Cに設定した試験が行われている。そして、人工バリア中に設置された様々な計測機器によって、温度や間隙水飽和度の時間変化などのデータが得られており、このうち、2015年1月から2019年6月までの約1,600日間の計測データが整理されている（中山ほか, 2019a）。

解析ではこの1,600日間を評価の対象とし、人工バリア性能確認試験を構成する廃棄体を模擬したヒーターを内蔵したオーバーパック（以下、模擬オーバーパックという）、緩衝材、緩衝材と岩盤の隙間に充填した砂層、埋め戻し材、支保コンクリート、路盤、コンクリートプラグおよび岩盤について、32,722節点、29,226要素でモデル化した（図2.4-7参照）。モデル化の範囲は、温度に対して外側境界の影響が生じないように廃棄体を模擬したヒーターから25 m程度を確保した。

熱的境界条件として、図2.4-7の左側の図のモデル上下面および背面は、初期温度での固定境界、モデル前面および左右両面は断熱境界とした。また、模擬オーバーパックの表面温度、緩衝材と岩盤の隙間に充填した砂層中の温度は、計測値に整合させるように設定した（図2.4-8参照）。このような温度の変動は、ヒーターの出力調整や、緩衝材や埋め戻し材の浸潤を促進させるための注水の影響によるものである。初期条件としての温度は、全領域で23 °Cとした。

水理的な境界条件としては、モデル上下の両面および背面は、後述する初期の地下水位での固定境界、モデル前面および左右の両面は不透水境界とした。また、上述したように、緩衝材の底部および埋め戻し材中で注水が行われており、注水菅が設置された位置に相当する節点に、それぞれ0.3 MPa、0.1 MPaの水圧を与えた。水理に関する初期条件として、岩盤については、原位置での地下水位の計測結果に基づき人工バリア性能確認試験が実施されている地表面から-350 mを基準面として全水頭を22mH_2Oとした。緩衝材の初期間隙水飽和度は製作時の平均的な値の0.58とした。埋め戻し材は、原位置で締固め施工した下側部分を乾燥密度1.2 Mg/m^3、含水比35.2 %とし、これより間隙水飽和度を0.80とした。また、ブロックを積み重ねる方法で施工した上側部分を乾燥密度1.4 Mg/m^3、含水比33.6 %とし、これより間隙水飽和度を0.91とした（中山ほか, 2016）。支保コンクリート、路盤、コンクリートプラグおよび砂層は、飽和を仮定した。

地球化学に関する境界条件は、モデル上下面および背面を一定の地下水組成の濃度で拘束した。地下水組成については、幌延深地層研究計画における試錐調査のうち、HDB-6孔で採取された地

下水に対する分析結果に準じて設定した（藤田ほか, 2007）。それ以外の初期間隙水組成については、後述する設定鉱物あるいはセメント水和生成物と純水との平衡状態を仮定し、地球化学解析コードPHREEQCを用いた計算によって求めた（表2.4-3参照）。

緩衝材および埋め戻し材の設定鉱物として、玉髄、方解石、黄鉄鉱とし、イオン交換反応および酸・塩基反応を考慮した（核燃料サイクル開発機構, 1999a）。このうち、間隙水中のNaCl濃度に直接的に影響を与えるのはイオン交換反応となる。また、試験坑道の底面に設置されているコンクリート路盤、コンクリートプラグおよび支保コンクリートで考慮するセメント水和物生成物としては、初期水和物の主成分である$Ca(OH)_2$およびCSHとした（電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構, 2005）。

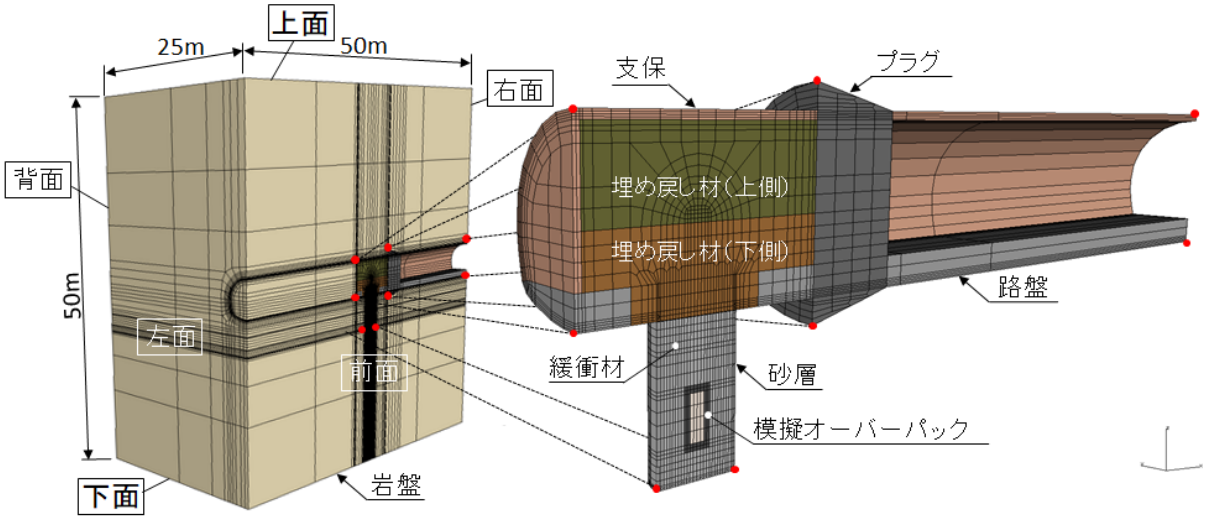


図2.4-7　人工バリア性能確認試験の解析評価に用いた解析メッシュモデル

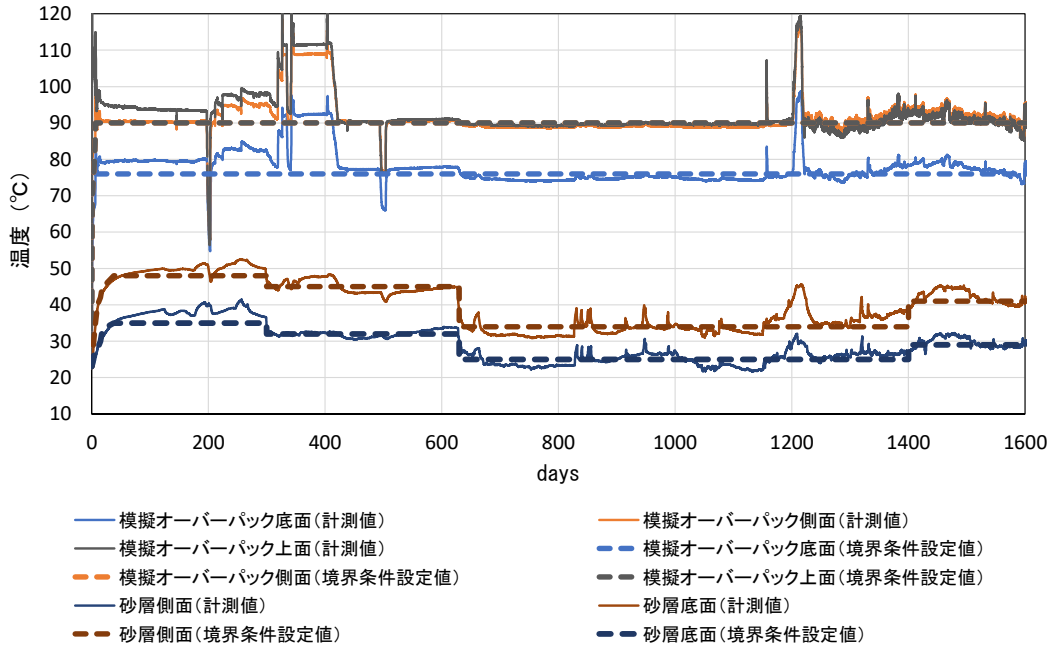


図2.4-8　THC連成解析における温度の境界条件

表2.4-3　人工バリア性能確認試験の解析評価における初期間隙水組成

	岩盤・砂層	路盤・支保・プラグ	埋め戻し材・緩衝材
pH	6.80	12.55	7.30
pe	-2.80	9.05	14.30
Al(mol/m^3)	3.70×10^{-4}	1.00×10^{-7}	1.00×10^{-7}
全C(mol/m^3)	4.10×10^{1}	1.84×10^{-2}	6.21×10^{0}
Ca(mol/m^3)	2.10×10^{0}	7.56×10^{0}	7.14×10^{0}
Cl(mol/m^3)	2.20×10^{2}	1.00×10^{-7}	6.61×10^{0}
Fe(mol/m^3)	1.50×10^{-2}	1.00×10^{-7}	1.00×10^{-7}
K(mol/m^3)	2.10×10^{0}	1.00×10^{-7}	9.16×10^{-1}
Mg(mol/m^3)	5.80×10^{0}	1.00×10^{-7}	1.97×10^{-1}
Na(mol/m^3)	2.30×10^{2}	1.00×10^{-7}	1.96×10^{2}
S(mol/m^3)	6.30×10^{-3}	1.00×10^{-7}	9.64×10^{1}
Si(mol/m^3)	1.10×10^{0}	6.65×10^{-1}	9.56×10^{-2}
溶存酸素(mol/m^3)	1.00×10^{-7}	6.65×10^{-1}	6.65×10^{-1}

③ 解析物性値

岩盤の物性値は、HDB-6孔の岩石コアの室内試験結果（山本ほか, 2005）や、原位置での透水試験結果（太田ほか, 2007）に基づき、深度から物性値を推定する木村ら（木村ほか, 2010）の手法に従い、人工バリア性能確認試験が実施されている地表面から-350 mの深度の物性値を設定した。支保コンクリート、路盤およびコンクリートプラグは同一と仮定し、第2次TRUレポート（電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構, 2005）における軟岩系岩盤に対する吹き付けコンクリートの仕様に準じて間隙率および真密度を設定した。また、熱物性値はコンクリート標準示方書（土木学会, 2007）に基づき設定した。緩衝材と岩盤の隙間に充填した砂の層の物性値は、DECOVALEXにおいて本原位置試験を対象としたベンチマーク解析で用いられた値に準じた(Sugita et al., 2016)。埋め戻し材については、それぞれの密度に応じた物性値を与えた（日本原子力研究開発機構, 2018a）。このうち、熱伝導率λ (W/m K)および比熱c (kJ/kg K)については、圧縮成形した埋め戻し材ブロックの測定結果を採用し、次式により与えた（日本原子力研究開発機構, 2016）。

$$\lambda = 0.339 + 2.97 \times 10^{-2}\omega \tag{2.4-11}$$

$$c = \frac{40.00 + 4.18\omega}{100 + \omega} \tag{2.4-12}$$

ここで、ωは含水比（%）である。

緩衝材は、ケイ砂30wt%混合ベントナイトであり、乾燥密度は設計時の1.8 Mg/m^{3}とした（中山ほか, 2016）。緩衝材の熱伝導率λ (W/m K)は、含水比ω (%)との関係で以下のように整理されている（菊池・棚井, 2005）。

$$\lambda = 0.728 + 8.00 \times 10^{-3}\omega - 1.15 \times 10^{-2}\omega^2 - 4.50 \times 10^{-4}\omega^3 \quad (2.4\text{-}13)$$

また、比熱c (kJ/kg K)については、含水比ω (%)の関数として次式が得られている（菊池・棚井, 2003）。

$$c = \frac{67.32 + 4.18\omega}{100 + \omega} \quad (2.4\text{-}14)$$

緩衝材のサクションΨ (mH_2O)と体積含水率 θ (-)との関係を表す水分特性曲線は、式(2.4-1)で示した van Genuchten モデルに基づき設定し、パラメータのαおよびnは、式(2.4-2)および式(2.4-3)に従い、それぞれ $5.00\times10^{-3}m^{-1}$ および 1.38 とした。固有透過度は、間隙水中の NaCl 濃度とそれによって変化する透水性の影響を考慮し、間隙水飽和度が高いほど間隙水中の NaCl の濃度が透水性に与える影響が大きくなる式(2.4-7)を用い、式中のパラメータ A_cは、乾燥密度が 1.8 Mg/m^3 の条件において設定された値の 12.0 とした（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2022）。温度勾配による水分移動モデルは、多孔質媒体に対する水、蒸気および熱の輸送を連成させた気液二相流解析コード(TOUGH2：Pruess, 1991)を用いて、廃棄体の発熱を想定した人工バリア体系での気相の流れと水蒸気量の勾配によって生じる水蒸気の移動を含む緩衝材の浸潤挙動評価を行った。そして、得られた浸潤プロファイルに基づき、温度勾配水分拡散係数として、温度および間隙水飽和度の依存性を考慮した温度勾配水分移動モデルを設定した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2021）。温度勾配水分拡散係数は、低水分領域と高水分領域で水蒸気の移動が小さくなる Borgesson らのモデル(Börgesson and Hernelind, 1999)に準じて次式を用いた。

$$\begin{aligned} &D_T = D_{Tb} && 0.3 \le S_r \le 0.4 \\ &D_T = D_{Tb} \cdot cos^{a}\left(\frac{S_r - 0.4}{0.6}\frac{\pi}{2}\right) && S_r \ge 0.4 \\ &D_T = D_{Tb} \cdot sin^{b}\left(\frac{S_r}{0.3}\frac{\pi}{2}\right) && S_r \le 0.3 \end{aligned} \quad (2.4\text{-}15)$$

ここで、D_Tは温度勾配水分拡散係数(m^2/s K)、D_{Tb}は間隙水飽和度が0.3 - 0.4における温度勾配水分移動係数(m^2/s K)、aおよびbは、それぞれ高水分領域と低水分領域においてD_Tの低下量を決定するパラメータである。さらに、温度勾配水分拡散係数の温度依存性については、第2次取りまとめで用いたモデルに準じて次式で設定した（核燃料サイクル開発機構, 1999a）。

$$D_T = D_{Tb} \exp\left(\alpha_T (T - T_0)\right) \quad (2.4\text{-}16)$$

ここで、Tは現在温度(°C)、T_0は温度勾配形成時における低い側の温度(°C)、α_Tはパラメータである。TOUGH2の解析結果を再現するための温度勾配水分移動に関わる式(2.4-15)および式(2.4-16)中のパラメータ値を表2.4-4に示す。これより、ケイ砂30wt%混合ベントナイト（乾燥密度1.8 Mg/m^3）の温度勾配水分拡散係数の間隙水飽和度および温度との関係は図2.4-9のようになる。

表2.4-4　温度勾配水分拡散係数に関わるパラメータ

パラメータ	単位	設定値	備考
D_{Tb}	$m^2/s\ K$	3.00×10^{-12}	式(2.4-15)中のパラメータ
a	-	2.5	
b	-	10.0	
α_T	-	0.03	式(2.4-16)中のパラメータ
T_0	°C	30.0	

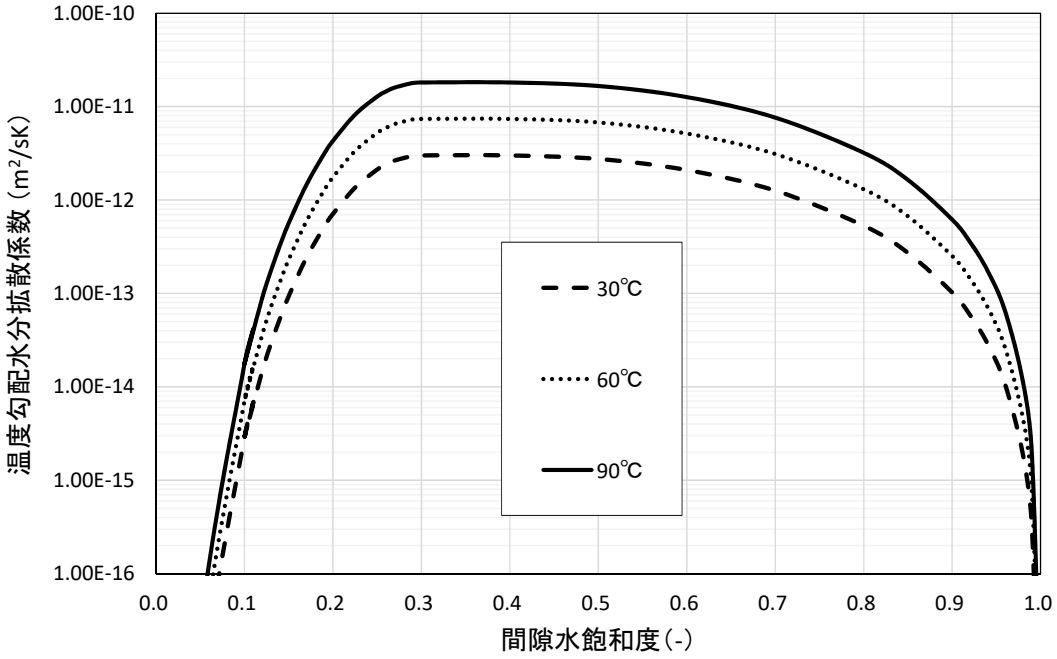


図2.4-9　緩衝材の温度勾配水分拡散係数

緩衝材の実効拡散係数は、第2次取りまとめで示された海水系間隙水に対する値とし、それ以外は、泥質岩・凝灰岩に対して設定された値とした（核燃料サイクル開発機構, 1999a）。また、縦分散長は、緩衝材厚さのおおよそ1/10、横分散長は1/100とした。

熱力学データーベースは、核燃料サイクル開発機構が開発した解析的温度補正式の係数が整備されたJNC-TDB 990900c1.tdb (Arthur, 1999)を用いた。以上、解析に用いた物性値を整理して表2.4-5に示す。

本解析に用いるTHMC連成解析コード(Couplys)では、図2.4-1で示したように、応力変形と熱および水理特性の相互作用が考慮されていないため、応力変形挙動が緩衝材の浸潤挙動の解析結果に影響を与えない。このため、本評価においては、節点の変位を拘束して応力変形を考慮せずにTHC解析として実施した。また、解析ケースとして、緩衝材の固有透過度が間隙水中のNaCl濃度で変化するモデルを用いたTHC解析に加えて、蒸留水および幌延地下水に対する固有透過度を用いた場合のTH解析を実施し、人工バリア性能確認試験における緩衝材の浸潤挙動について比較を行った。解析ケースを表2.4-6に示す。

表2.4-5　人工バリア性能確認試験の解析評価に用いた物性値

パラメータ	単位	岩盤	砂層	支保 路盤 プラグ	埋め戻し 材 （下側）	埋め戻し 材 （上側）	緩衝材	模擬オ ーバー パック
真密度	Mg/m^3	2.454	2.51	2.620	2.593	2.593	2.680	7.800
乾燥密度	Mg/m^3	1.354	1.4	2.280	1.200	1.400	1.800	－
空隙率	－	0.448	0.442	0.130	0.538	0.460	0.328	－
初期間隙水 飽和度	－	1.00	1.00	1.00	0.80	0.91	0.58	－
熱伝導率	W/m K	1.23	2.04	2.56	式(2.4-11)		式(2.4-13)	53.0
比熱	kJ/kg K	1.27	1.28	1.05	式(2.4-12)		式(2.4-14)	0.46
固有透過度	m^2	1.33×10^{-15}	1.00×10^{-13}	9.1×10^{-18}	3.00×10^{-18}	1.76×10^{-19}	表2.4-6参照	－
水分特性曲線	－	－	－	－	式(2.4-1) θ_S =0.538 θ_r=0.000 $\alpha=3.80\times10^{-3}$ n=1.29	式(2.4-1) θ_S =0.460 θ_r=0.000 $\alpha=3.80\times10^{-3}$ n=1.29	式(2.4-1) θ_S=0.329 θ_r=0.000 $\alpha=5.00\times10^{-3}$ n=1.38	－
比透水係数	－	－	－	－	$S_r{}^3$			－
温度勾配水分 拡散係数	m^2/s K	－	－	－	－	－	式(2.4-15) および 式(2.4-16)	－
実効拡散係数	m^2/s	9.00×10^{-12}			3.00×10^{-10}			－
縦分散長	m	0.1						－
横分散長	m	0.01						－

S_r：間隙水飽和度（-）

表2.4-6　人工バリア性能確認試験の再現解析ケース

解析ケース	解析手法	緩衝材の固有透過度	備考
ケース1	TH	1.38×10^{-20} m^2	蒸留水に対する値として、式(2.4-4)において、NaCl濃度を0%として設定
ケース2	TH	5.23×10^{-20} m^2	幌延地下水に対する値として、式(2.4-4)において、NaCl濃度を1.29wt%として設定
ケース3	THC	式(2.4-7)で与える	間隙水中のNaCl濃度によって透水特性が変化するモデル

TH：熱－水理連成解析、THC：熱－水理－化学連成解析

④ 解析結果

人工バリア性能確認試験を対象とした解析結果として、ケース1からケース3の間隙水飽和度のコンターを比較して図2.4-10および図2.4-11に示す。図2.4-10は人工バリア性能確認試験の全体像であり、ここでは岩盤および模擬オーバーパックを除外して示している。また、図2.4-11は、緩衝

材の中間高さにおける水平断面を示したものである。これらの結果より、緩衝材の間隙水飽和度は緩衝材外側から上昇し、時間の経過とともに浸潤が進んでいることが分かる。そして、ケース2の場合の間隙水飽和度の上昇が最も速くなっている。また、ケース1とケース3は、同じような浸潤挙動を示しており、模擬オーバーパック近傍の緩衝材の間隙水飽和度が初期よりも低下し乾燥している様子が読み取れる。

次に、緩衝材中の浸潤挙動に関するTHC連成解析結果およびTH連成解析結果を、緩衝材中に設置された水分計によって計測された間隙水飽和度の時間変化と比較して図2.4-12に示す。評価期間は、廃棄体を模擬したヒーターによる熱負荷を開始した2015年1月から2019年6月までの1,600日間である。図中の計測値は、緩衝材中に設置したサイクロメータによって計測されたサクションを、式(2.4-1)で与えられる水分特性曲線を介して間隙水飽和度に変換している。計測値は、センサー番号PS003、PS006およびPS009によって得られたものである。なお、サイクロメータは、センサー番号PS001からPS009の計9台が緩衝材中に設置されているが、計測値が得られたものは、ここで示したセンサー番号PS003、PS006およびPS009のいずれも緩衝材外周部に設置された3台だけであった（中山ほか, 2019a）。図中の解析結果は、センサー番号PS006の設置位置に対応した値であり、緩衝材の固有透過度として、蒸留水に対する値を用いた場合（ケース1）、幌延地下水に対する値を用いた場合（ケース2）、および間隙水中のNaCl濃度によって透水性が変化するモデルを用いた場合（ケース3）を比較して示している。これより、間隙水飽和度の上昇は、ケース1の場合が計測値よりもやや遅く、ケース2の場合でやや速くなっている。そして、ケース3の場合が計測値と最も整合的な結果となっている。なお、1,400時間以降の計測値の振動は、緩衝材が飽和したことにより計測不能になったものと推察される。

緩衝材の間隙水飽和度の分布に関して、比抵抗トモグラフィー測定結果から推定した緩衝材の水平断面における間隙水飽和度コンターを図2.4-13に示す（中山ほか, 2019a）。中心の白い部分は、模擬オーバーパックである。これより、緩衝材外周部では地下水の浸潤によって間隙水飽和度が上昇しているのに対し、模擬オーバーパック近傍では間隙水飽和度が0.25以下にまで低下し、その水分分布の状態が2018年7月までの1,300日間は維持されている様子が読み取れる。さらに、ケース1、ケース2およびケース3の解析結果として、緩衝材の外側、模擬オーバーパック近傍の緩衝材の内側およびその中間の位置における間隙水飽和度の時間変化を比較して図2.4-14に示す。これより、いずれのポイントにおいても、ケース2の幌延地下水に対する固有透過度を用いた場合の間隙水飽和度の上昇が最も速く、ケース1の蒸留水に対する固有透過度を用いた場合の間隙水飽和度の上昇が最も遅い結果であった。また、各ケースでの差異は、緩衝材の外側よりも内側で大きくなっている。緩衝材内側において、ケース2の間隙水飽和度は0.4程度まで低下した後に上昇に転じ、1,600時間後の間隙水飽和度は0.9程度まで増加しており、図2.4-13で示した比抵抗トモグラフィーによる計測結果とは異なる挙動を示している。これに対して、ケース1およびケース3の場合は、間隙水飽和度が0.3程度まで低下した後の上昇は緩やかなものとなっている。これは、図2.4-13に示すように、2015年6月から2018年7月の間で間隙水飽和度コンターの変化がほとんど見られない測定結果と整合的である。なお、図2.4-13で示したように、比抵抗トモグラフィー測定から求めた緩衝材内側の間隙水飽和度は0.2以下にまで低下する結果になっているのに対して、図2.4-11および図2.4-14に示した解析結果でのそれは0.3程度となっている。このような差異が生じている原因として、比抵抗トモグラフィーの測定精度の問題や、図2.4-8に示すように、模擬オーバーパック表面温度の計測値が一時的に100 °Cを超えており、これによって緩衝材内側の乾燥が進んだ可能性がある。

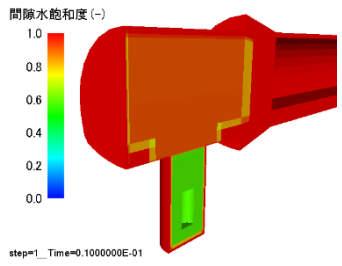
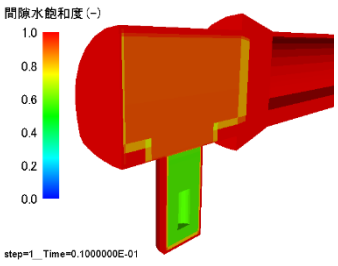
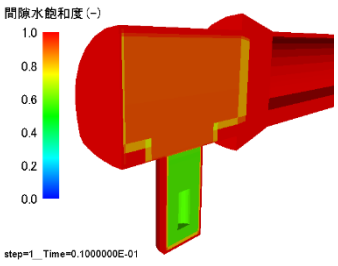
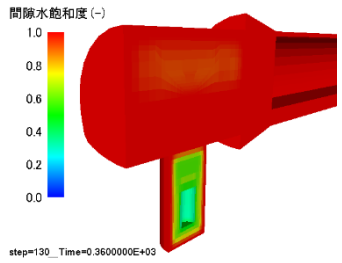
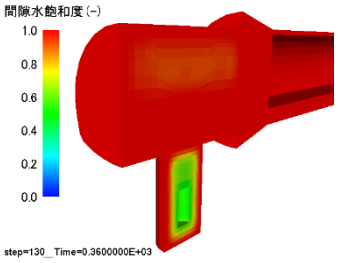
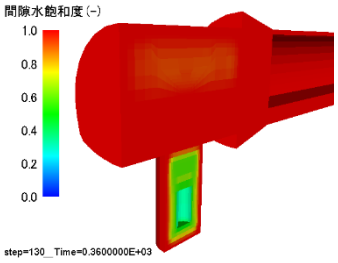
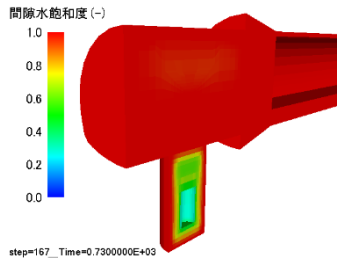
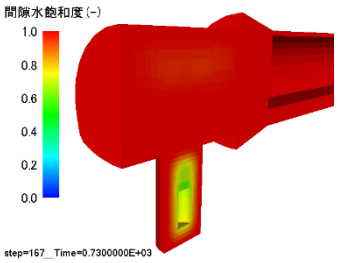
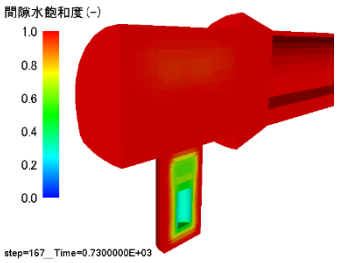
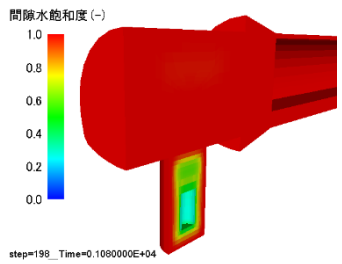
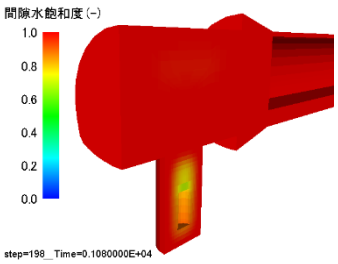
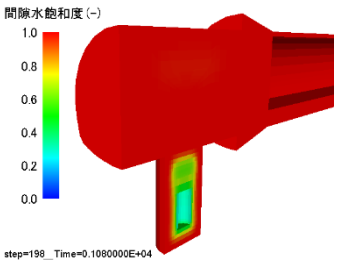
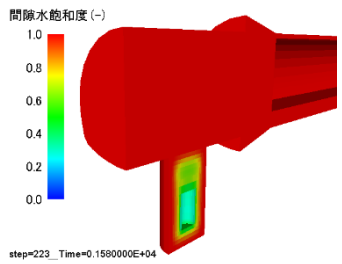
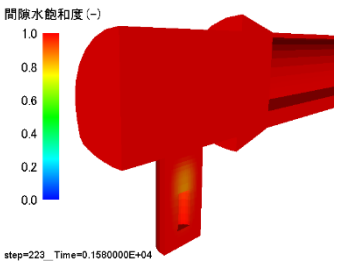
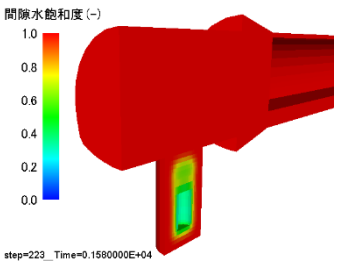
	ケース1	ケース2	ケース3
初期			
360日後			
730日後			
1080日後			
1580日後			

図2.4-10　人工バリア性能確認試験のTHCおよびTH連成解析による間隙水飽和度コンター（全体像）

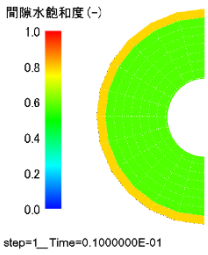
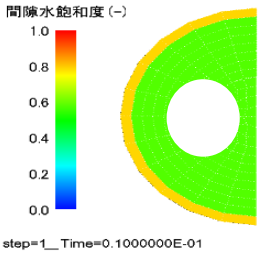
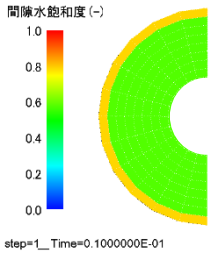
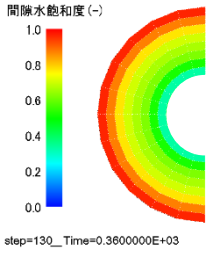
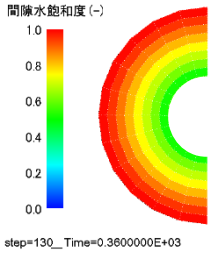
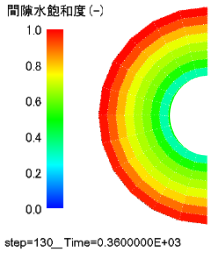
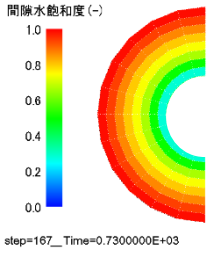
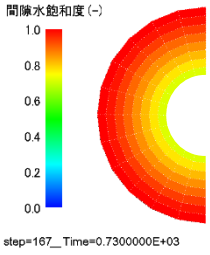
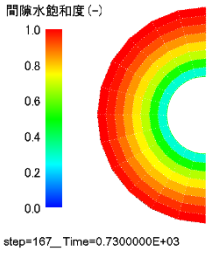
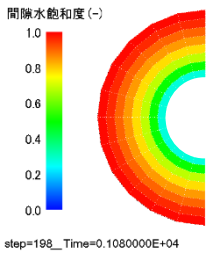
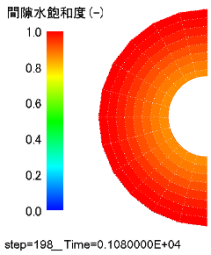
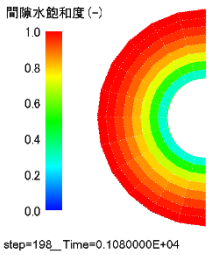
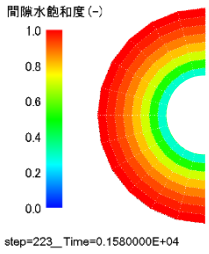
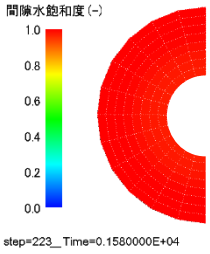
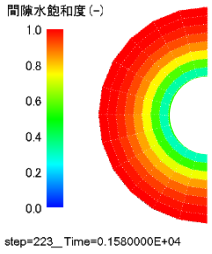
	ケース1	ケース2	ケース3
初期			
360日後			
730日後			
1080日後			
1580日後			

図2.4-11　人工バリア性能確認試験のTHCおよびTH連成解析による間隙水飽和度コンター
（緩衝材の中間高さにおける水平断面）

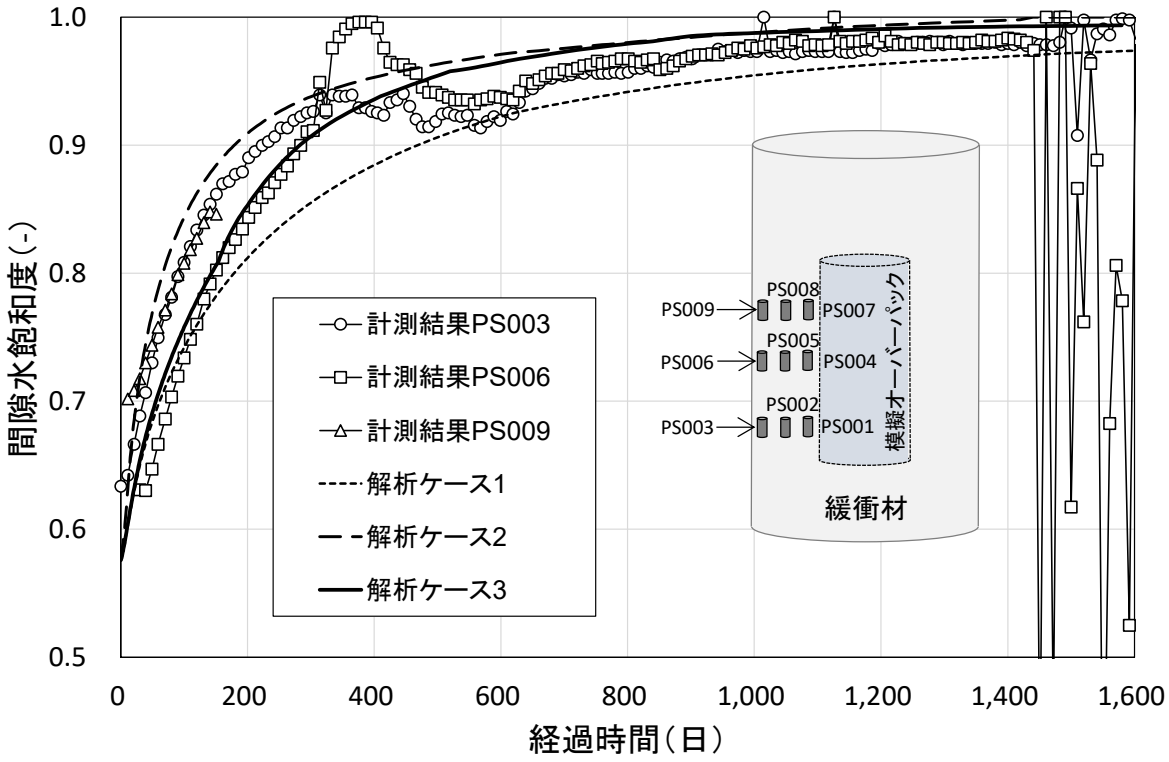


図2.4-12　緩衝材中の間隙水飽和度に関する計測結果とTHおよびTHC連成解析結果との比較

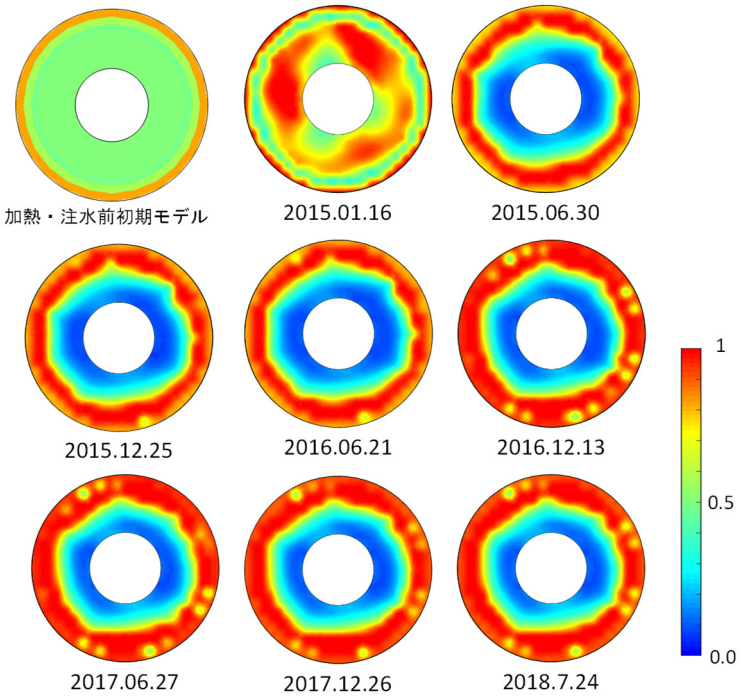


図2.4-13　比抵抗トモグラフィーによる計測結果から推定された間隙水飽和度コンター
（中山ほか, 2019a, 図4.1.1.5-6, p.51）

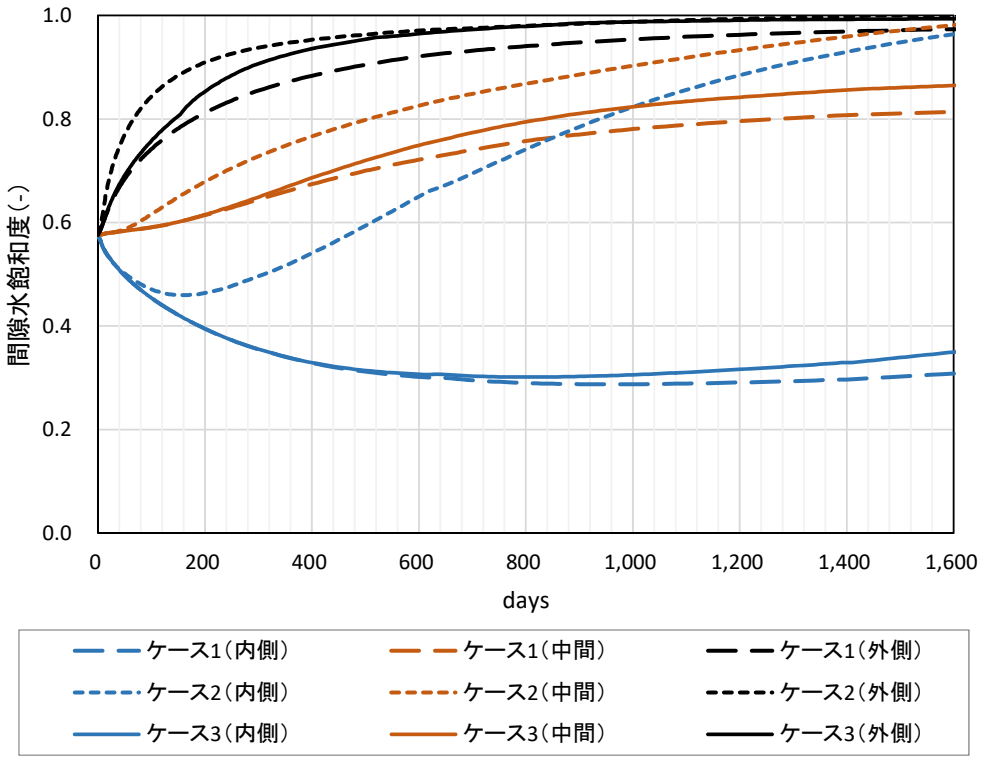


図2.4-14　THおよびTHC連成解析による緩衝材の間隙水飽和度の時間変化

以上、人工バリア性能確認試験における緩衝材の浸潤挙動の評価では、緩衝材の間隙水組成が及ぼす水理特性の影響を考慮し、間隙水中のNaCl濃度によって透水性が変化するとしたモデルを用いたケース3が、緩衝材外周部および内側の両方の浸潤挙動を再現する結果となった。

このように、海水系地下水環境下での緩衝材の浸潤挙動評価においては、設定する固有透過度によって、岩盤に近い緩衝材外周部よりも緩衝材内側の浸潤挙動への影響が大きくなることが明らかとなった。これは、温度勾配による水分の移動によって地下水の浸潤が抑制され、間隙水飽和度が上昇していない模擬オーバーパック近傍においては、緩衝材の水理特性へ及ぼす海水系地下水組成の影響が小さいためと考えられる。すなわち、幌延地下水に対する緩衝材の固有透過度を用いて、間隙水飽和度が上昇していない不飽和領域までを評価する一般的な飽和・不飽和浸透流解析手法を用いることが適切でないことを示すものである。

このようなことから、海水系地下水環境下における緩衝材の水理特性については、初期に存在する間隙水と地下水とが混合することで形成される間隙水組成に基づき設定される必要があると考えられ、海水系地下水環境下における緩衝材の浸潤挙動を適切に評価するためには、水理解析と物質移行を含む地球化学解析とを連成させ、間隙水組成によって変化する水理特性の影響を考慮した解析評価手法が必要となる。本検討では、主に飽和度等の水理挙動について妥当性の検証を行ったが、今後、試験後試料の分析等により試験終了時の間隙水組成等の情報が取得されれば、物質移行を含む地球化学解析結果に関する妥当性の検証もできる可能性がある。

(3) 5 か年の成果と今後の課題

人工バリアを設置した時点から緩衝材が飽和に至るまでの過渡的な期間を対象とした解析評価ツールとして、THMC連成解析モデルの開発が進められている。本事業の5か年におけるTHMC連成解析モデルの高度化として、廃棄体の発熱によってオーバーパック近傍で緩衝材中が乾燥す

る現象を評価のために温度勾配水分拡散係数の飽和度と温度依存性を考慮した温度勾配による水分移動評価モデルを設定した。また、海水系地下水環境下における緩衝材の浸潤挙動評価のために、緩衝材の間隙水組成とともに変化する水理特性の影響を考慮した浸潤評価モデルを構築し、これらをCouplysに反映した。令和4年度は、高度化したCouplysを用いて、原子力機構が幌延深地層研究計画において実施している人工バリア性能確認試験を対象とした再現解析を実施した。その結果、廃棄体を模擬したヒーターの温度を上昇させてから1,600日後まで間で、原位置で得られている緩衝材の浸潤挙動に関する計測結果と整合的な評価結果を得ることができた。これによって、廃棄体の発熱によってオーバーパック近傍で緩衝材が乾燥する現象と、海水の1/2程度のNaCl濃度の地下水が浸潤する緩衝材の浸潤挙動を評価可能であることを確認した。

平成30年度から令和4年度までの5か年においては、FEBEXプロジェクトや幌延深地層研究計画に基づく原位置試験で得られた計測データとの比較を通じて、温度勾配水分拡散係数の温度依存性を考慮した温度勾配による緩衝材中の水分移動評価モデルを設定した。そして、THM連成解析モデルが廃棄体縦置き方式とともに廃棄体横置き方式の人工バリア仕様や、国産とは異なるベントナイトに対しても有効であることを確認した。また、THMC連成解析モデルでは、廃棄体を模擬したヒーターの発熱と地下水の浸潤にともなう緩衝材間隙水の化学的な環境変化の評価を行い、計測されている間隙水のpHやpeと整合することを確認した。その一方で、海水系地下水環境下での緩衝材の浸潤挙動については、一般的な浸透流解析を扱うTHM連成解析モデルでは適切に再現することができないことが明らかとなった。この要因としては、温度勾配による水分の移動によって地下水の浸潤が抑制されるオーバーパック近傍においては、海水系地下水の影響が小さいため、幌延地下水を対象として得られた透水特性を浸潤過程にある緩衝材全領域に対して与えることが適切ではないものと考えられた。ベントナイトの透水性は、イオン強度などの間隙水組成の影響を受けるとされる知見に基づき、緩衝材の間隙水組成に応じた水理特性の変化を考慮できるように、水理解析と地球化学解析を連成させた評価モデルの構築に着手した。そして、室内試験レベルの浸潤試験を通じて、初期に存在する間隙水と浸潤水とが混合して形成される間隙水組成とそれに依存して変化する水理特性の影響を考慮した連成モデルを構築した。本手法では、浸潤する溶液中のNaCl濃度が海水程度までの浸潤挙動を再現することを可能とした。これにより、海水系地下水や降水系地下水などのサイトの地下水水質の違いに応じたニアフィールド環境の状態変遷の違いなどを評価可能となった。

図2.4-1で示したように、本検討では、温度勾配による水の移動や間隙水組成の変化による水理特性変化といった水理挙動について高度化を行い妥当性の確認を行ったが、今後、試験後試料の分析等により試験終了時の間隙水組成等の情報が取得されれば、物質移行を含む地球化学解析結果に関する妥当性の検証もできる可能性がある。また、図2.4-1で示したように、現状のCouplysは、力学特性と地球化学特性との相互作用が考慮されていないため、応力変形が間隙水化学あるいは間隙水化学が応力変形に及ぼす影響を評価できない。ニアフィールドで生じる現象を連成挙動として扱うべきかどうかを把握するためには、力学解析と地球化学解析との相互作用や、力学解析側から熱解析および水理解析側へ解析結果を提供するスキームを追加し、THMC連成解析モデルを高度化していくことが望まれる。また、幌延深地層研究計画における人工バリア性能確認試験では、一時的に100 °Cを超えた温度環境となっているが、このような温度条件での物性値や水移動モデルなどが整備されていないため、再現解析の中で考慮することができなかった。一方で、幌延深地層研究計画における人工バリア性能確認試験では、緩衝材の最高温度を100 °C以上とした条件での試験を実施し、人工バリアやその周辺岩盤で生じる現象を把握する計画となっている（中山, 2022）。このようなことから、緩衝材の温度が100 °Cを超えた条件下でのTHMC連成解析モデルの適用性の確認を始めとして、物性値の取得やモデル開発も必要となってくる。他

方、過渡期のTHMC連成解析モデル開発の目的である安全評価における核種移行解析の初期状態の設定や、オーバーパックの腐食寿命評価に必要となるニアフィールド環境条件に関する情報の提供と、これらの情報が反映される評価技術体系の整備として、SP3で実施しているような複合現象評価における過渡期の状態変遷の評価技術として反映されることが期待される。

2.4.2 ニアフィールド長期力学解析コード開発

(1) 背景と目的

地層処分システムを対象とする従来の安全評価では、保守的に簡略化されたモデルや保守的設定に基づくパラメータが用いられてきた。今後の処分サイト選定段階における安全評価には、実際のサイトの地質環境条件などを反映することに加え、様々な処分概念や設計オプション間の比較、サイト間の優劣などが、より具体性をもって検討されると考えられる。従来の保守的な評価モデルではサイト間やデザイン間の相違を定量的に表現することができず、より現実に即した挙動を評価する手法が必要となる可能性がある。地層処分対象となる放射性廃棄物のうち、例えば、TRU廃棄物の地層処分システムの場合は、周辺岩盤、支保工、緩衝材として使用されるベントナイト系材料、廃棄体や坑道内部の埋め戻し材として使用されるセメント系材料などの複合的な材料で構成される。これらの材料間で多様な相互作用が生じ、これらが相互に影響しあいながら処分場の状態は変遷していくと考えられる。この現象は、変質の促進あるいは抑制の正負のフィードバックループを内包する非線形の連成現象であるとされる（電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構, 2005）。このような化学・力学・物質輸送の連成および材料間の相互作用がもたらす非線形現象を評価するための複合現象評価技術の開発が進められている（例えば、Benbow et al., 2020）。上記に示した複合現象評価技術の一部として、化学および物質輸送と連携して処分施設の力学挙動を評価する技術が必要となる。このような背景のもと、長期力学挙動解析コードMACBECE (Mechanical Analysis considering Chemical transition of BEntonite and CEment materials)の開発が進められてきた。これまで、岩盤クリープ、緩衝材の変質に伴う膨潤圧の低下、セメント系材料におけるCa溶出による剛性・強度の低下とそれによるひずみ軟化挙動、金属の腐食膨張などによりセメント系材料に割れが発生する現象などを考慮できるように開発を行ってきた（例えば、三原ほか, 2010；平野ほか, 2016；日本原子力研究開発機構, 2018b）。このような処分施設の状態変遷評価から得られる場の密度や透水性分布の変遷などの情報は、核種移行挙動を評価する際に用いることができる。さらに、既往の緩衝材の設計検討では、岩盤クリープや金属の腐食膨張などの各材料の力学的な相互作用を考慮した力学解析により緩衝材の応力緩衝性の評価が実施されてきたが、このような検討にもMACBECEを適用することで、緩衝材の応力緩衝性を評価することも可能と考えられる。

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

このような背景のもと、平成30年度は、処分施設の各材料および周辺岩盤との力学的相互作用を過渡期から長期まで一貫して評価できる解析システムの構築を目的として、過渡期の緩衝材の飽和度変化に伴う力学的な状態変化を解析する機能をMACBECEに追加した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019）。平成31年度は、過渡期の解析機能の効果を検証するため、MACBECEを用いて過渡期から10万年後までの処分施設の長期力学解析を実

施し、過渡期の処分施設の各材料および周辺岩盤の力学的な相互作用を考慮したニアフィールドの長期力学挙動評価を実施するとともに、過渡期の力学挙動がひずみ、透水係数分布などの処分施設の力学および水理的な状態変遷に与える影響を分析した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2020）。その結果、再冠水時の緩衝材の飽和度分布の時間変遷の考慮の有無が長期的な坑道内空変位に与える影響が小さいことや、支保工のひび割れ発生個所に違いが生じることにより支保工の透水係数分布に違いが生じることを明らかにした。令和2年度は、MACBECEの更なる改良として、廃棄体の発熱による処分施設の温度変化に伴う構成材料の熱膨張や熱収縮挙動を解析できる機能をMACBECEに追加した。追加した機能の効果を検証するため、MACBECEを用いて過渡期から10万年後までの処分施設の長期力学解析を実施し、温度変化に伴う構成材料の熱膨張や熱収縮挙動が処分施設の力学的な状態変遷や緩衝材の応力緩衝性の評価結果に与える影響を分析した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2021）。令和3年度は、幌延人工バリア性能確認試験で得られている再冠水時の応力や変位に関する計測データを活用し、MACBECEに追加した機能のうち原位置試験などの実規模で複合的な試験体系における緩衝材の力学挙動に着目した時の妥当性の検証と、過渡期の解析機能の高度化に向けた更なる課題の抽出を行った。その結果、緩衝材の埋め戻し材への膨出量を実測値より過少に評価していることや、三次元的な形状に起因する応力分布を適切に評価できないといった課題が抽出された。そこで、MACBECEの三次元化に向けたプログラムの修正項目の抽出と、高速ソルバーや並列計算手法などの計算速度を向上させるための方法について調査した。さらに、MACBECEに導入できていない過渡期の緩衝材の力学特性の温度依存性を考慮できる力学モデルの構築に向け、温度を制御した膨潤圧試験を実施し、緩衝材の力学特性の温度依存性に関するデータ取得に着手した。

令和4年度は、MACBECEを用いた幌延人工バリア性能確認試験の解析において、緩衝材の埋め戻し材への膨出挙動をより適切に評価するため、埋め戻し材のモデル化の違い等が緩衝材の膨出挙動に与える影響を検討した。さらに、過渡期の緩衝材の力学特性の温度依存性を考慮できる力学モデルの構築に向け、温度を制御した膨潤圧試験と圧密試験を実施し、緩衝材の力学特性の温度依存性に関するデータ取得と、それによる現象理解を進めた。

(2) 実施内容

1) 幌延人工バリア性能確認試験における力学挙動の再現解析および三次元化に向けた情報整理

① 解析条件

令和3年度の幌延人工バリア性能確認試験を対象とした解析では、緩衝材の埋め戻し材への膨出挙動を過少に評価していることが課題として抽出された（日本原子力研究開発機構、原子力環境整備促進・資金管理センター, 2022）。令和3年度の解析で膨出挙動を過少に評価した要因としては、埋め戻し材を弾性体としてモデル化していたため、埋め戻し材内に発生すると想定される塑性変形を考慮できていなかったことや、緩衝材と砂間のジョイント要素の剛性が大きいことが膨出挙動を抑制してしまったこと等が考えられる。そこで本項目では、埋め戻し材のモデル化の違いや、緩衝材と砂間のジョイント要素の物性値の違いが、緩衝材の埋め戻し材への膨出挙動に与える影響について検討を行った。埋め戻し材に対しては、剛性の小さい弾性体や、土の弾塑性構成モデルである修正カムクレイモデルを適用した。また、緩衝材と砂間のジョイント要素の物性値として、せん断に対する剛性を小さくした場合について解析を実施した。

解析ケースを表2.4-7にまとめる。CASE0は、令和3度のCASE2-1である。CASE1は埋め戻し材の剛性をCASE0よりも極端に小さくしたケース、CASE2は埋め戻し材に修正カムクレイモデルを適用したケース、CASE3は埋め戻し材に修正カムクレイモデルを適用し、緩衝材と砂間のジョ

イント要素のせん断剛性をCASE0よりも小さく設定したケースである。

解析体系は、図2.4-15のように、鉛直方向の二次元断面とした。境界条件を図2.4-16に、解析ステップを表2.4-8に示す。緩衝材、埋め戻し材、支保工・路盤、オーバーパック・ヒーター、砂、ジョイント要素の物性値を表2.4-9、表2.4-10、表2.4-11、表2.4-12、表2.4-13、表2.4-14、表2.4-15、表2.4-16に示す。MACBECEの解析に必要な飽和度や温度分布の時間変化は、既往の研究（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2021）におけるTHAMESを用いた解析結果のうち、蒸留水条件で得られた固有透過度を用いた場合の結果を用いた。

表2.4-7　解析ケース

ケース	埋め戻し材のモデル化	緩衝材-砂間のジョイント要素の物性値	備考
CASE 0	弾性体（令和3年度と同様）	令和3年度と同様	令和3度のCASE2-1
CASE 1	極端に剛性の小さい弾性体	令和3年度と同様	
CASE 2	修正カムクレイモデル	令和3年度と同様	
CASE 3	修正カムクレイモデル	小さいせん断剛性	

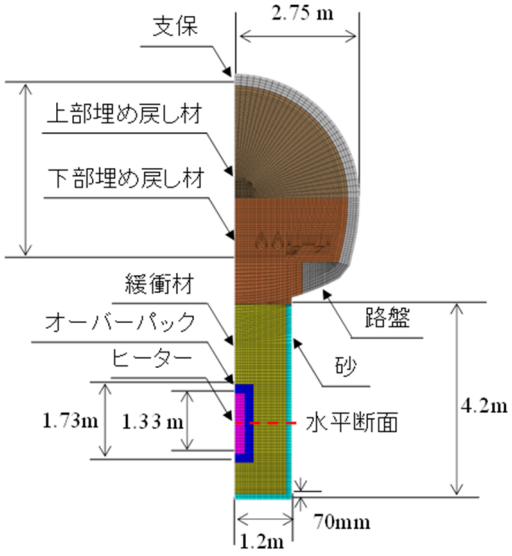


図2.4-15　鉛直方向断面の解析メッシュ

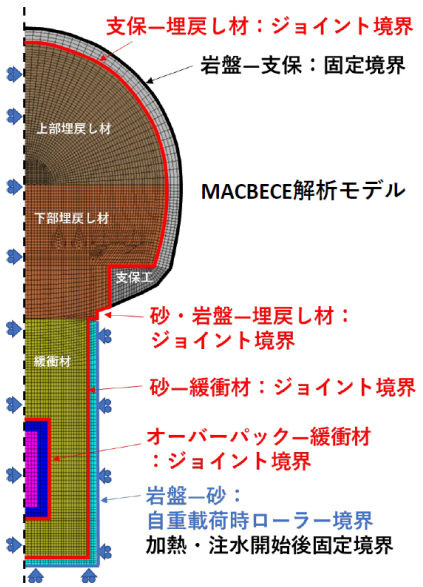


図2.4-16　境界条件

表2.4-8　解析ステップ

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

表2.4-9　緩衝材の解析用物性値

入力パラメータ		単位	入力値	備考
λ	圧縮指数	-	0.125	※1
κ_0	膨潤指数（飽和度Sr=0の時）	-	0.043	※2
κ_{sat}	膨潤指数（飽和度Sr=1の時）	-	0.09	※1
l	膨潤指数の飽和度依存性パラメータ	-	1.8	※2
M	限界応力比	-	0.63	※1
v'	ポアソン比	-	0.1	※1
p'_{ref}	正規圧密線の基準有効応力	MPa	1.0	※1
e_{ref}	正規圧密線の基準間隙比	-	0.620	※1
a	Se-hardening modelパラメータ	-	35	※3
n	Se-hardening modelパラメータ	-	1.3	※3
S_{ra}	最小（残留）飽和度	-	0	※4
S_{rf}	最大飽和度	-	1	※4
v_a	van Genuchtenモデルパラメータ	m^{-1}	5.0×10^{-2}	※4
v_m	van Genuchtenモデルパラメータ	-	0.275	※4
v_n	van Genuchtenモデルパラメータ	-	1.38	※4

※1：高山・菊池（2020）
※2：膨潤圧試験の要素シミュレーションにより、膨潤圧試験（鈴木・藤田, 1999a）の結果を再現する値を設定
※3：締固め試験（千々松ほか, 1999）を参考に設定
※4：日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター（2021）で用いられた水分特性曲線を使用。ただし、今井ほか（2012)に基づき、マトリックサクションはトータルサクションより10倍程度小さいと仮定し、vaは10倍した値を使用。

表 2-4-10　支保工・路盤（セメント系材料）の解析用物性値

入力パラメータ		単位	入力値	備考
γ_t	単位体積重量	kN/m^3	24.1	※1
W/C	水セメント比	%	45	※2
	骨材率	Vol%	67	※2
E	ヤング率	MPa	3.04×10^4	※2
ν	ポアソン比	-	0.2	※3
σ_c	圧縮強度	MPa	43	※2
σ_{t0}	引張強度	MPa	4.3	※4
CFE	ひび割れ後の剛性低下率	-	1/100	※5
α_{TH}	線膨張係数	K^{-1}	11.0×10^{-6}	※6

※1：真密度(2.62 Mg/m^3)および間隙率(13 %)から飽和状態の値として算出した。

※2：電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構（2005）

※3：コンクリート標準示方書[構造性能照査編]（土木学会, 2002）

※4：コンクリート標準示方書[ダムコンクリート編]（土木学会, 2002）

※5：十分に小さい値である 1/100 を使用

※6：金津（1998）

表 2-4-11　オーバーパック・ヒーターの解析用物性値

入力パラメータ		単位	入力値	備考
γ_t	単位体積重量	kN/m^3	76.44	※1
E	ヤング率	MPa	2.0×10^5	※1
ν	ポアソン比	-	0.3	※1
α_{TH}	線膨張係数	K^{-1}	1.64×10^{-6}	※1

※1：日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター（2021）

表 2-4-12　充填砂の解析用物性値

入力パラメータ		単位	入力値	備考
γ_t	単位体積重量	kN/m^3	18.054	※1
G_s	土粒子比重	-	2.51	※2
ρ_{d0}	初期乾燥密度	Mg/m^3	1.4	※2
E	ヤング率	MPa	2.0×10^5	※1
ν	ポアソン比	-	0.3	※1
α_{TH}	線膨張係数	K^{-1}	1.33×10^{-5}	※2

※1：道路橋示方書・同解説 Ⅳ下部構造編（日本道路協会, 2017）を参考に以下の式で算出。

E = 2800N (kN/m^2)、ただし、N=20 と仮定した。

※2：日本原子力研究開発機構（2018a）

表 2-4-13　ジョイント要素の解析用物性値（各材料間共通）

入力パラメータ	単位	入力値	備考
せん断バネ定数	MPa/m	1.0×10^5	※1
垂直バネ定数	MPa/m	1.0×10^5	剛な設定
引張強度	MPa	0	
せん断破壊時剛性逓減率	-	0.001	※2
引張破壊時剛性逓減率	-	0.001	
粘着力	MPa	0	
摩擦角（砂 - 緩衝材）	deg	16.6	※3
摩擦角（支保工 - 上部埋め戻し材）	deg	18.1	※4
摩擦角（支保・路盤 - 下部埋め戻し材）	deg	18.1	※4
摩擦角（岩盤 - 埋め戻し材）	deg	27.1	※5

※1：剛な設定。ただし、CASE 3 での緩衝材と砂間はせん断破壊時の剛性に相当する値である 0.1 に設定。

※2：CASE 3 での緩衝材と砂間のみ、1.0 に設定。

※3：道路橋示方書（日本道路協会, 2017）の「土と土又は岩と岩」に従い決定。緩衝材の限界応力比から設定。

※4：道路橋示方書（日本道路協会, 2017）の「土とコンクリート」に従い決定。埋め戻し材の内部摩擦角は、ベントナイトの内部摩擦角（並河ほか, 1997）と礫質土の内部摩擦角（日本道路協会, 2017）を混合割合 4 : 6 に基づき計算。

※5：路橋示方書（日本道路協会, 2017）の「土と土又は岩と岩」に従い決定。埋め戻し材の内部摩擦角は、ベントナイトの内部摩擦角（並河ほか, 1997）と礫質土の内部摩擦角（日本道路協会, 2017）を混合割合 4 : 6 に基づき計算。

表 2-4-14　埋め戻し材の解析用物性値（CASE 0）

入力パラメータ		単位	入力値		備考
			上部埋め戻し材	下部埋め戻し材	
γ_t	単位体積重量	kN/m^3	17.823	16.551	
ρ_{d0}	初期乾燥密度	Mg/m^3	1.4	1.2	※1
G_s	土粒子比重	-	2.593	2.593	※2
E	弾性係数	MPa	17.967	3.933	※3
ν	ポアソン比	-	0.400	0.400	※4

※1：中山ほか（2016）

※2：日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター（2021）

※3：一軸圧縮試験結果（杉田ほか, 2020）での E50 の平均値

※4：核燃料サイクル開発機構（1999a）

表 2-4-15　埋め戻し材の解析用物性値（CASE 1）

入力パラメータ		単位	入力値		備考
			上部埋め戻し材	下部埋め戻し材	
γ_t	単位体積重量	kN/m^3	17.823	16.551	
ρ_{d0}	初期乾燥密度	Mg/m^3	1.4	1.2	※1
G_s	土粒子比重	-	2.593	2.593	※2
E	弾性係数	kPa	1.0	1.0	※3
ν	ポアソン比	-	0.400	0.400	※4

※1：中山ほか（2016）
※2：日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター（2021）
※3：極端に小さな値
※4：核燃料サイクル開発機構（1999a）

表 2.4-16　埋め戻し材の解析用物性値（CASE 2 および CASE 3）

入力パラメータ		単位	入力値		備考
			上部埋め戻し材	下部埋め戻し材	
λ	圧縮指数	-	0.32	0.4	※1
κ	膨潤指数	-	0.07	0.12	※1
p_c	降伏応力	MPa	0.32	0.3	※1
e_0	降伏時間隙比	-	0.84	1.07	※1
M	限界応力比	-	0.55	0.55	※1

※1：戎ほか（2003)のクニゲル V1 とケイ砂の混合材料（混合比 5：5）の圧密試験結果および圧密非排水三軸圧縮試験結果から設定

② 解析結果

図 2.4-17 に 1,200 日後の各ケースの変形図、体積ひずみ分布、乾燥密度分布を示す。変形図から、いずれのケースでも埋め戻し材への緩衝材の膨出が生じているのが確認できる。緩衝材外周部での膨出量は、CASE 0、CASE 1、CASE 2、CASE 3 でそれぞれ最大 24.0 mm、28.7 mm、28.1 mm、61.8 mm であったことから、CASE 0 と比較するといずれのケースでも膨出量が増加していることが確認できた。CASE 0 から CASE 2 の違いは埋め戻し材のモデル化の違いであり、埋め戻し材の剛性を極端に小さくした CASE 1 でも膨出量が約 5 mm 増加する程度であった。一方、CASE 2 と CASE 3 の違いは緩衝材と砂間のジョイント要素の物性値の違いであり、ジョイント要素のせん断剛性を低く設定した場合には膨出量が 30 mm 程度増加した。また、CASE 2 では埋め戻し材内に塑性変形が生じている要素はなかったが、CASE 3 では埋め戻し材内に塑性変形が生じている要素が確認された。膨出量が増加することで、埋め戻し材内により大きなせん断応力が発生したものと考えられる。

木村ほか（2019)は、緩衝材と埋め戻し材の境界部に設置してある膨出センサーの計測結果から緩衝材の膨出挙動を推定し、膨出の形状は緩衝材中央にて下に凸の形状を示し、緩衝材外周部が中心部よりも 300 mm 程度膨出しているという推定結果を報告している。CASE 0 - CASE 2 ではこのような緩衝材中央にて下に凸の形状となることが再現できていない。一方、CASE 3 では、依然として膨出量を過小評価している可能があるものの、より現実的な膨出の形状を再現することができている。これらのことから、埋め戻し材のモデル化の違いよりも、緩衝材と砂間のジョ

イント要素の物性値の設定の違いの方が膨出量により大きな影響を与え、緩衝材と砂間のジョイント要素の物性値を低く設定した場合にはより現実的な膨出形状が再現できることがわかった。

1,200 日後の体積ひずみ分布および乾燥密度分布では、緩衝材内において不均一な分布が生じている。前述のように、埋め戻し材への緩衝材の膨出挙動が生じているため、緩衝材の乾燥密度は全体的に低下する傾向となっていると考えられるが、局所的にはオーバーパック近傍では圧縮、緩衝材外側では膨張挙動を示している。膨出量の最も大きい CASE 3 では、他のケースと比較して、緩衝材外側でより大きな膨張が生じている。また、CASE 3 では、膨出により、緩衝材外側と埋め戻し材が接している箇所において、埋め戻し材に大きな圧縮ひずみが生じている。

緩衝材中の変位の経時変化の解析結果を実測値と比較した結果を図 2.4-18 に示す。図中には比較として既往の THAMES を用いた解析結果（中山ほか, 2019b）も示している。解析結果はいずれのケースでも時間の経過とともに緩衝材が膨らむ挙動を再現することができている。さらに、既往の研究（中山ほか, 2019b）では計測値と解析結果が大きく乖離することが報告されているが、MACBECE による解析では、課題とされてきた変位の再現性が大きく向上していることが確認できる。また、CASE 0、CASE 1、CASE 2 では大きな差異はないが、埋め戻し材の膨出量が最も大きいケース CASE 3 ではより大きな変位が生じており、実測値よりもやや大きな値であった。

図 2.4-19 に、緩衝材上部の外側に位置している Section-11（図中の青〇）の緩衝材の全応力の経時変化を計測値と比較した結果を示す。なお、この Section-11 における全応力の経時変化は、令和 3 年度の解析において解析結果と計測結果との乖離が大きかった比較点である。緩衝材の膨出量が大きいケースほど全応力の増加は小さくなり、実測値に近くなる傾向があるのが確認できる。しかしながら、最も膨出量の大きい CASE 3 でも計測値との差異は残っていることから、依然として膨出量を過少に評価している可能性が考えられる。

令和 4 年度は、令和 3 年度に課題として抽出された緩衝材の埋め戻し材への膨出挙動について、埋め戻し材のモデルの見直しや、緩衝材と砂間のジョイント要素の物性値の見直しにより、令和 3 年度の解析結果と比較して、より現実的に膨出挙動を再現することができた。しかしながら、本検討では、ジョイント要素の物性値に極端に小さなせん断を設定しているため、今後は、室内試験結果等に基づきジョイント要素の物性値を設定していくことが重要と考えられる。また、依然として膨出量を過少に評価している可能性が考えられた。MACBECE では、二次元の平面歪条件で解析を行っているため、三次元的な形状に起因する応力分布を適切に評価できておらず（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2022）、それが変形挙動の解析結果にも影響を及ぼしていると考えられる。また、後述のように、緩衝材の力学挙動は温度の影響を受けるが、現状の MACBECE では、力学挙動の温度依存性を考慮できていない。これらを考慮していくことにより、より適切なニアフィールドの力学挙動の評価が可能となると考える。

図 2.4-20 に MACBECE で取り扱う力学現象例を示す。図中の過渡期の部分が本事業で新たに追加・検証を実施した部分であり、2.4.1 項の「過渡期の THMC 連成挙動に関する現象解析モデル開発」で開発している評価技術と連携させることで、過渡期のニアフィールドの力学挙動の解析を可能とした。MACBECE は、SP3 で開発が進められている複合現象評価技術のうち力学挙動を評価する機能として活用されている（4.2 節参照）。そのため、2.4.1 項および 2.4.2 項で開発した過渡期の解析技術による「閉鎖後長期の評価における前提」の整理（4.2.3 項参照）だけでなく、MACBECE を通じて過渡期を対象とした解析を SP3 で開発を進めてきた複合現象評価技術への導入を進めていくことで、ニアフィールドの複合現象を過渡期から長期まで一貫した評価が可能な評価システムの開発につながると考えられる。

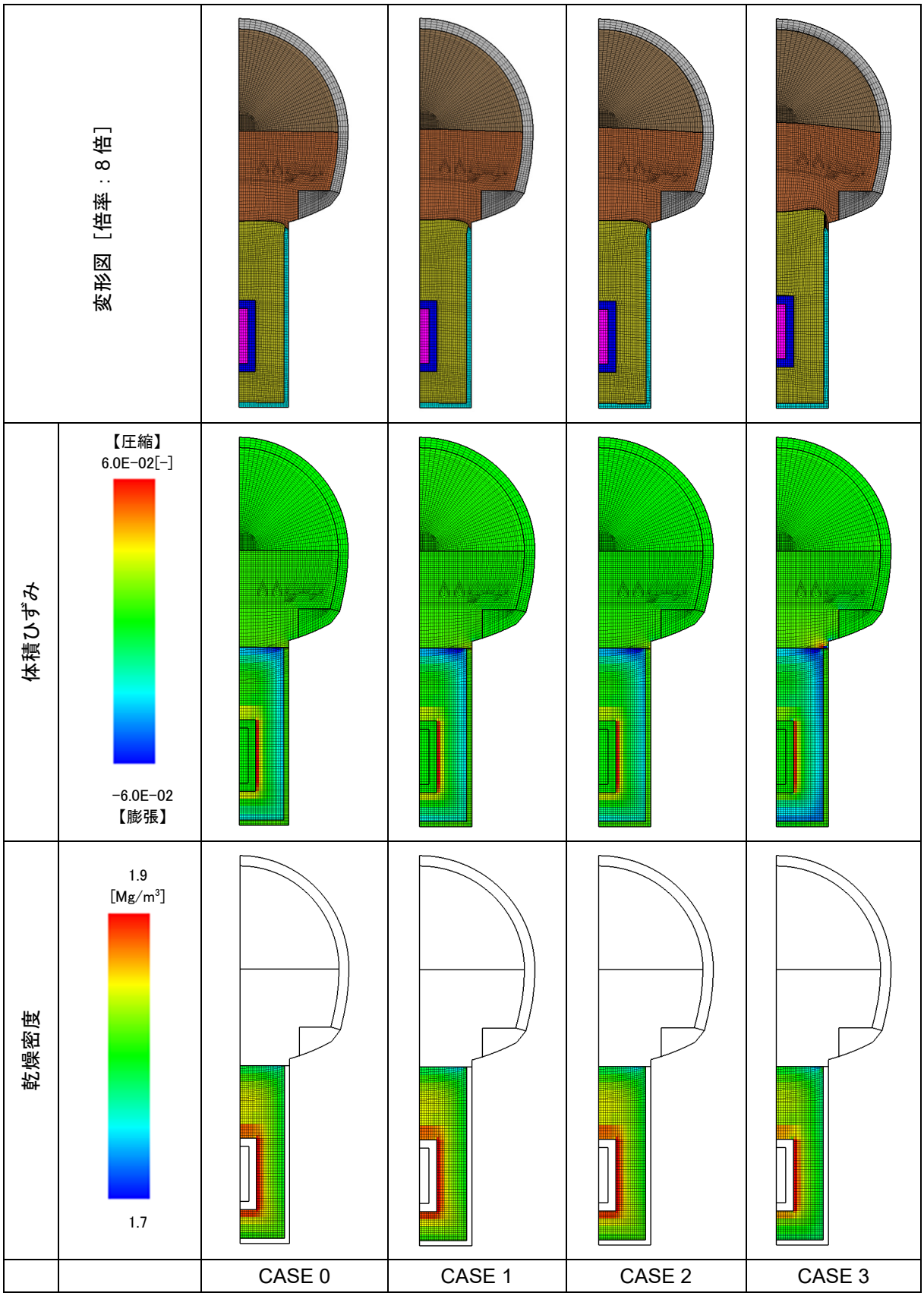


図 2.4-17　1,200 日後の各ケースの変形図、体積ひずみ分布、乾燥密度分布

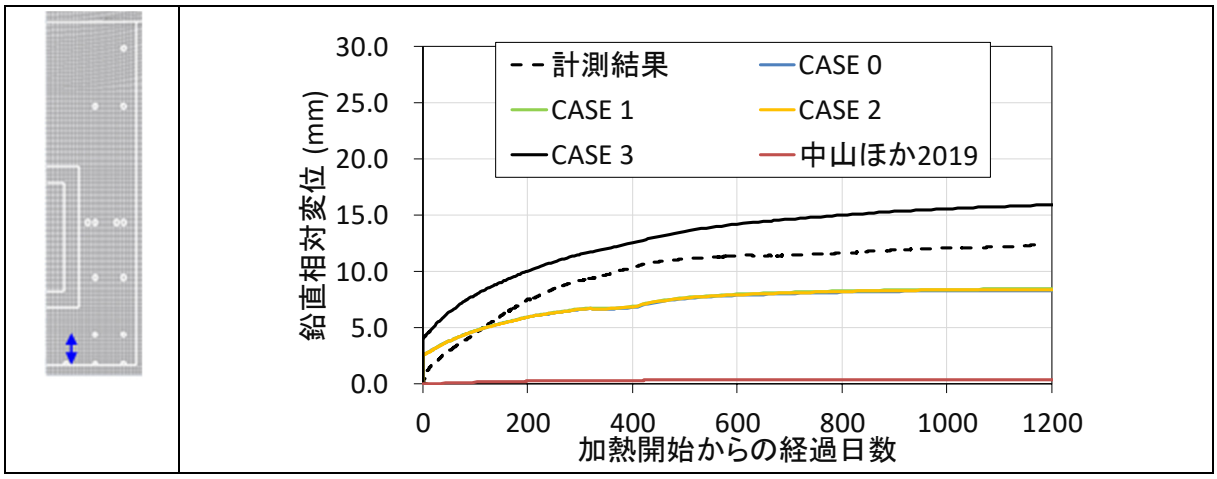


図 2.4-18　緩衝材の変位の経時変化

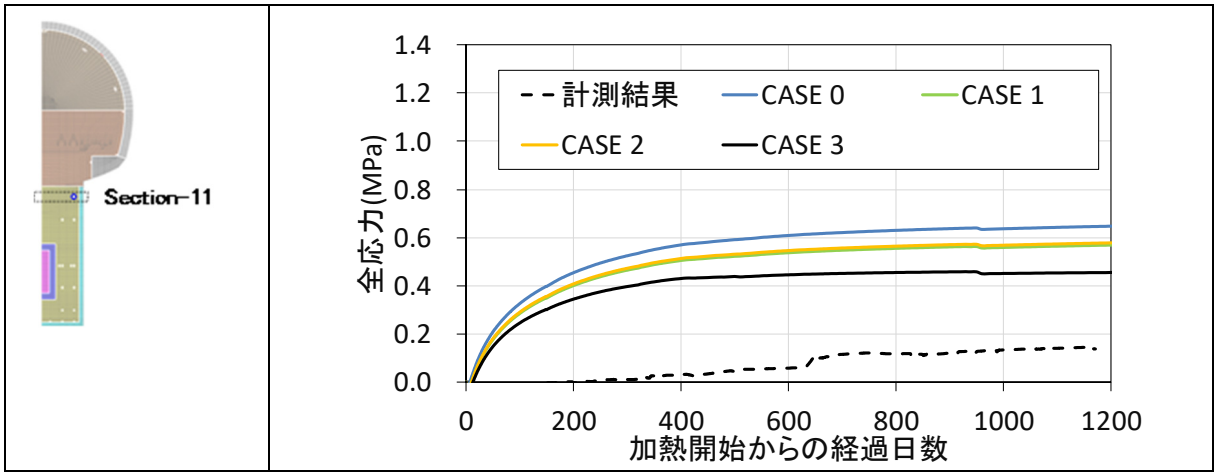


図 2.4-19　Section-11 での緩衝材の全応力の経時変化

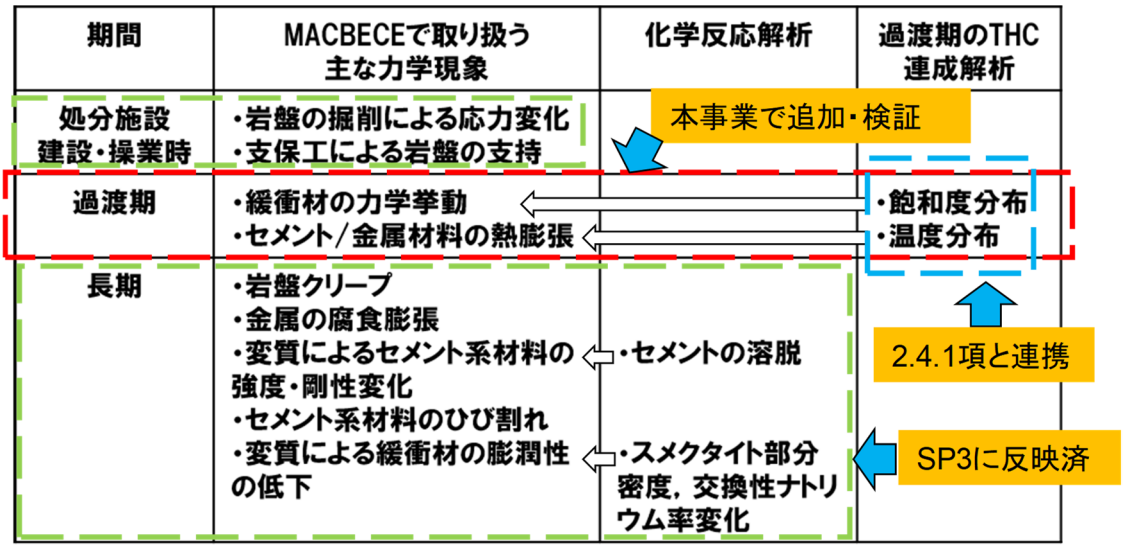


図 2.4-20　MACBECE で取り扱う力学現象例

③ 三次元化に向けた修正箇所の調査

令和 3 年度は、MACBECE の三次元化に向けて、プログラムの基本構造を三次元化し、高速化および並列化を実装するための改良点や留意点、課題などを整理し、MACBECE の三次元化に向けた改良手順を整理した。さらに、MACBECE の三次元化に向けた各材料の構成モデルの課題の抽出を行い、セメント系材料の化学変遷による強度劣化計算や腐食膨張要素の腐食率の計算などの MACBECE に固有の構成モデルについては三次元化に伴いモデルの修正が必要となることが課題として抽出された（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2022）。令和 4 年度は、三次元化に向けたプログラムの具体的な修正箇所の抽出を行い、修正内容を整理した。主な修正内容を以下に示す。

まず、MACBECE の基本構成について、現状の MACBECE の基本構成は、コード本体を実装するファイルと大域変数を定義するファイルから構成されている。大域変数を定義するファイルでは、大域変数についてはコモンブロックに格納し、各サブルーチンでインクルードしている。しかしながら、インクルードでは全大域変数へのアクセスが可能であり、意図しない書き換えが発生する危険性があることから、三次元版の MACBECE は、基本構成は踏襲するものの、大域変数についてはコモンブロックに格納せずにモジュールに格納するのがよいと考えられた。さらに、インプトデータ等の入力ファイルや解析結果等の出力ファイルに対して、三次元化に伴い修正が必要と考えられた入出力ファイルの抽出と修正内容の調査を行った（表 2.4-17）。

表 2.4-17　入出力ファイル一覧（色付きが修正が必要なファイル）

ファイル装置番号	入出力	ファイルの説明	変更の有無／変更内容
5	入力	インプットデータ	要素、応力等の入力データの三次元化対応
6	出力	結果ファイル	要素、応力等の入力データの三次元化対応
7	入力	初期応力ファイル	初期応力の三次元化対応
8	出力	時間およびタイムステップの経過の確認ファイル	時間情報出力のため三次元化に無関係
9	入力	腐食膨張物性の時間変化データテーブルファイル	物性の時間変化データ入力のため三次元化に無関係
17	出力	1番要素の応力の書き出し	変位、歪み、応力の三次元化対応
20	出力	結果ファイル	要素、変位、歪み、応力の三次元化対応
21	出力	出力用リスタートファイル	要素、変位、歪み、応力の三次元化対応
22	入力	入力用リスタートファイル	要素、変位、歪み、応力の三次元化対応
30	入力	化学的変遷指標の読み込みファイル	化学的変遷指標のため三次元化に無関係
31	入力	強制変位読み込みファイル	変位の三次元化対応
36	出力	収束計算の経過の確認ファイル	主応力等を出力するが三次元化の影響はない
37	出力	透水係数出力ファイル	透水係数の三次元化対応
40	入力	飽和度・間隙空気圧読み込みファイル	飽和度・間隙空気圧のため三次元化に無関係
50	入力	温度分布読み込みファイル	温度分布のため三次元化に無関係
9999	出力	エラーメッセージ出力ファイル	行列のLU分解のエラー出力のため三次元化に無関係

また、三次元化に伴い、入力ファイルの形式の変更が必要と考えられた。現状の MACBECE の入力ファイルは固定フォーマット形式で記述されている。要素番号および節点番号には 5 カラム分が割り当てられており 1 から 99999 までの番号が記述できる。しかしながら、三次元の場合、99999 まででは番号が不足する可能性が高いためカラム数を拡張する必要がある。固定フォーマットのままでは十分な拡張が難しいため、表 2.4-17 に示した修正に加え、三次元版の MACBECE では Fortran の namelist を用いてインプットデータをフリーフォーマット形式に変更するのがよいと考えられた。フリーフォーマット形式に変更するメリットとしては上記の入力データの桁数を柔軟に変更できる点に加え、入力データファイルを編集する際に目的のデータを容易に見つけられ、編集ミスが起き難い点が上げられる。

続いて、三次元化に伴い修正が必要と考えられたサブルーチンの抽出および修正内容の調査を行った（表 2.4-18)。なお、現状の MACBECE では 4 節点 4 角形アイソパラメトリック要素を用いているため、三次元版の MACBECE では二次元版の自然な拡張である 8 節点 6 面体アイソパラメトリック要素を採用することを想定している。

表 2.4-18　修正が必要なサブルーチン一覧（1/2）

サブルーチン名	処理内容	変更内容
OPEN_INIT	ファイルのオープン	ファイル内容の変更対応
NOCO	積分点の座標値の設定	積分点の変更対応
WEIGHT	重みの設定	要素変更対応
INDISK	リスタートファイルの読み込み	ファイル内容の変更対応
RESET_DISP	変位等のゼロクリア	要素変更対応
RESET_FORCE	荷重データのゼロクリア	歪み等の三次元化対応
NODEDATA	節点データの読み込み	要素変更対応
ELEMENTDATA	要素データの読み込み	要素変更対応
CONDITIONDATA	境界条件の読み込み	要素変更対応
LOADDATA	荷重データの読み込み	要素変更対応
RESET_STRAIN	指定要素の歪みのゼロクリア	歪みの三次元化対応
READSIG	初期応力の読み込み	応力の三次元化対応
QUAD	4角形要素に関するFEM計算	6面体要素の計算に変更
JACO	ヤコビアンの計算	ヤコビアンの三次元化対応
BMATRIX	Bマトリックスの計算	Bマトリックスの三次元化対応
VALUE	$[B]^T[D][B]$の計算	B, Dマトリックスの三次元化対応
ISOFE4	要素剛性マトリックスの作成	要素変更対応
SFEPST	応力等価な節点外力の計算	応力、外力の三次元化対応
READTH	温度分布ファイルの読み込み	要素変更対応
BACKFDATA	埋戻しデータの読み込み	応力の三次元化、要素変更対応
INITIAL	初期応力の設定	応力の三次元化、要素変更対応
PARAM	偏差応力の計算	応力の三次元化対応
JOINT	ジョイント要素の計算	要素変更対応
USENODE	掘削で取り除かれる節点数の設定	要素変更対応
FREEDOMNUMBER	自由度番号の設定	要素変更対応
READCA	化学変遷ファイルの読み込み	要素変更対応
RESET_STEP	サブステップのゼロクリア	応力、外力の三次元化対応
APPLY_LOAD	荷重データの設定	荷重データの三次元化対応
ELEMENTFORCE	物体力の計算	物体力の三次元化対応
NODALFORCE	節点外力の設定	節点外力の三次元化対応
SSOLVE3	各要素の新たな等価節点力EPFの格納	要素変更対応
APPLY_SUCTION_AIR	サクションと間隙空気圧の計算	応力の三次元化、要素変更対応
SSOLVE	各要素の新たな等価節点力EPFの格納	要素変更対応
APPLY_SWELL_PRESSURE	初期に与える膨潤圧の計算	応力の三次元化、要素変更対応
APPLY_CORROSION_EXPANSION	金属の腐食膨張の計算	応力の三次元化、要素変更対応
EREDUCTION	CA溶出率による弾性係数の低減	応力の三次元化、要素変更対応

表 2.4-19　修正が必要なサブルーチン一覧（2/2）

サブルーチン名	処理内容	変更内容
SCREEP	ベントナイトの膨潤圧低下・セメントの剛性低下計算	応力の三次元化、要素変更対応
SDMAT1	新たな剛性からDマトリックスの算出	要素変更対応
SDEPS	[D0]と[D1]の逆行列の計算	要素変更対応
SDMATINV(DE	DMATの逆行列の作成	要素変更対応
SDSIG0	Dεの計算	要素変更対応
SFEPS2	差分のひずみから節点外力を計算	応力の三次元化、要素変更対応
APPLY_THERMAL_STRESS	金属の腐食膨張の計算	応力の三次元化、要素変更対応
READ_DISP	強制変位量の読み込み	変位の三次元化、要素変更対応
CMATRIX	Cマトリックスの作成	応力の三次元化、要素変更対応
DMATRIX	Dマトリックスの作成	応力の三次元化、要素変更対応
DMATRIX_DOUBLE	Dマトリックスの作成	応力の三次元化、要素変更対応
SPRIN	主応力の計算	応力の三次元化対応
GLOVALSTIF	全体剛性マトリックスの作成	要素変更対応
TRIAN	3角形要素に関する計算	要素変更対応
BOUNDTREAT	境界条件処理	要素変更対応
STRESS	増分応力の計算	応力の三次元化、要素変更対応
STRAIN	増分歪みと歪みの計算	歪みの三次元化、要素変更対応
STRESSG	積分点毎の応力の計算	要素変更対応
SCOMPARESIG	超過応力＆ひび割れ解放の収束計算	要素変更対応
SCOMPARESIG	超過応力の計算	要素変更対応
GET_ROTATED_MATRIX22	任意方向でのテンソル成分計算	応力の三次元化対応
SSOLVE2	解析の実行	変位の三次元化対応
JUDGE	要素状態の判定	要素変更対応
CALCPERM	透水係数の計算	要素変更対応
RNMAST	20番ファイルの書き出し	書き出し内容の変更
OUTPUT	6番ファイルの書き出し	書き出し内容の変更
OUTDISK	リスタートファイルの書き出し	書き出し内容の変更

一方、セメント系材料および金属材料の構成モデルの三次元への拡張にあたり、剛性マトリクスや応力・ひずみベクトルのサイズ拡張などの修正以外に、二次元条件を前提に定式化されている理論を三次元条件でも適用できるように理論の拡張を行う必要がることから、セメント系材料および金属材料の構成モデルの三次元への拡張方法の検討を行った。主な拡張内容について以下にまとめる。

まず、セメント系材料の剛性・強度低下時における超過応力解放過程の超過応力テンソルの計算過程において、強度劣化前の応力テンソルより主応力および主応力方向ベクトルの計算を行う際に、現状の MACBECE は二次元応力場のみに対応した主応力計算式が実装されているが、三次元応力場で主応力を求めるためには三次の固有値方程式を解く必要があるため、三次方程式の解の公式（例えば、カルダノの公式）を実装することで、三次元での計算が可能となる。また、劣化後強度以内となる最大主応力および最小主応力の計算の際に、現状の MACBECE では、平均

主応力一定条件と最小主応力一定条件の 2 種類から選択できる。三次元版の MACBECE でも両方の条件の計算方法を使用できるようにした場合、平均主応力一定条件においては、現状のモデル化では中間主応力を一意に決めることができないため、“中間主応力は強度劣化前後で不変とする”といった仮定を導入することで、三次元での計算が可能となる。また、セメント系材料のひび割れ発生時のモデル化においては、現状の MACBECE ではひび割れ方向で規定される座標系から全体座標系へと剛性マトリクスを変換する際に、ひび割れ面と全体座標系 y 軸とのなす角 θ を用いている。三次元への拡張にあたって、ひび割れ面方向を 1 つの指標では表現できないため、主応力方向ベクトルを基に座標変換する方法に変更することで三次元への拡張が可能となる。

金属材料の構成モデルにおいては、現状の MACBECE では等価弾性係数の算出に必要である減肉部割合は、x、y 方向の腐食ひずみから計算されているが、z 方向の腐食ひずみを考慮することで三次元に拡張することが可能となる。

2) 温度を制御した膨潤圧試験

① 背景と目的

過渡期における緩衝材の力学特性の温度依存性を考慮した力学モデルを構築するためには、膨潤圧の温度依存性を把握する必要がある。令和4年度は、令和3年度に引き続き、緩衝材の膨潤圧の温度依存性に関するデータの拡充を目的として、ケイ砂30wt%混合ベントナイトを対象として、温度を制御した条件での膨潤圧を測定した。また、膨潤圧の温度依存性に関する現象理解を進めるため、非膨潤性粘土のひとつであるカオリナイトについても同様の試験を実施した。

② 試験方法

試験は、締め固めたベントナイト（以下、供試体）に、体積を拘束した状態で水を浸潤させ、所定の温度条件下において発生する圧力（以下、膨潤圧）を測定した。膨潤圧の測定には、図 2.4-21 に示す二種類の試験装置を用いた。膨潤圧を計測するためのロードセルは、A タイプでは共和電業社製（型式名 LMBT-A-2KN-P、定格容量 2kN、許容温度範囲 -20 ℃ から 120 ℃）、B タイプでは東京測器研究所製（型式名 CLA-10KNA、定格容量 10kN、許容温度範囲 -20 ℃ から 70 ℃）を用いた。これらの試験装置は、ステンレス鋼材で作られており発生する膨潤圧に対して十分な剛性を有する。円筒形モールド内の供試体下部より焼結フィルターを介して水を浸潤させ、供試体の上部に設置したロードセルによって鉛直方向に発生する膨潤圧を計測する構造となっている。試験装置は、90 ℃ 以上の温度で制御可能な恒温槽内に設置し、供試体に水を供給するための給水タンクと接続した。試験には、脱気した蒸留水を用い、これを 0.05 MPa の圧力で供試体に供給した。また、浸潤を開始する前には、真空ポンプを用いて試験装置内の空気を排除した。

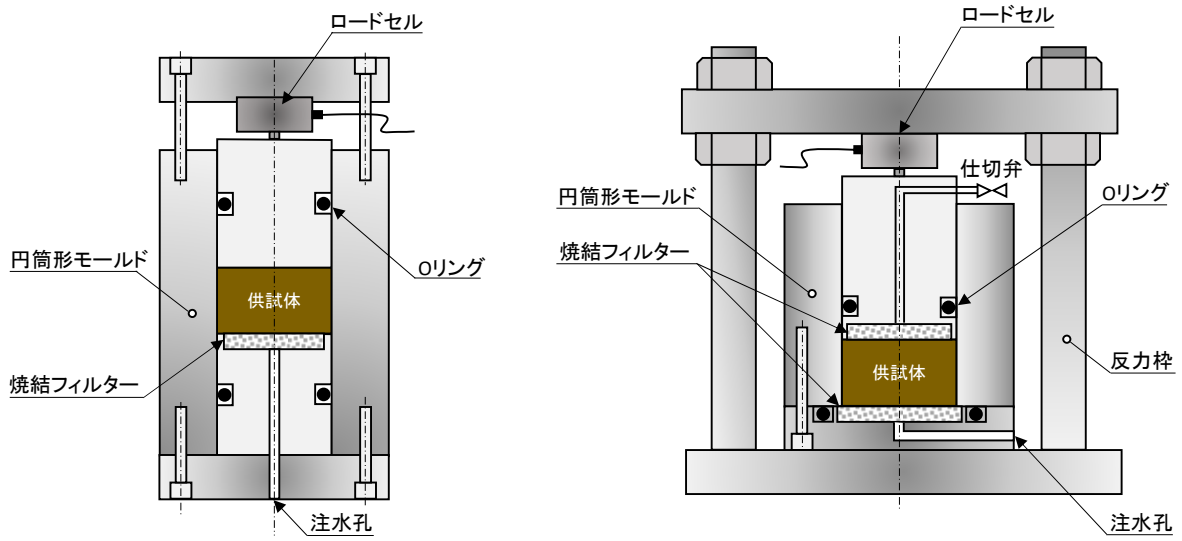


図 2.4-21　膨潤圧の測定に用いた試験装置の概略図

供試体は、ケイ砂 30 wt%混合ベントナイトであり、クニミネ工業製の Na 型ベントナイトのクニゲル V1（含水比：約 8 %）、3 号ケイ砂および 5 号ケイ砂を、乾燥重量比 0.7 : 0.15 : 0.15 で混合し、これを、直径 20 mm、高さ 10 mm、乾燥密度 1.8 Mg/m^3 に圧縮成形して作製した。供試体の初期の間隙水飽和度は約 0.3 である。また、非膨潤性粘土のカオリナイト（製品名：エカライト No.1、啓和ファインマテリアル株式会社製）に対しても同様の試験を実施した。カオリナイト（含水比：約 1 %）の場合は、供試体の乾燥密度を 1.6 Mg/m^3 とした。

試験は、恒温槽の設定温度を段階的に変更し、以下に示すように、ケイ砂 30 wt%混合ベントナイトを対象とした caseA から caseD の 4 ケース、カオリナイトを対象とした caseE から caseG の 3 ケースについて実施した。各ケースともに試験数は 3 とした。試験条件を表 2.4-20 および表 2.4-21 に示す。

- caseA：供試体は、ケイ砂 30 wt%混合ベントナイトで乾燥密度は 1.8 Mg/m^3 である。90 °C の条件で供試体に蒸留水を浸潤させ、膨潤圧の時間変化が見られず定常に至ったと判断した後に 60 °C、さらに 25 °C と段階的に温度を低下させる。試験装置は A タイプを使用する。なお、以下に示す各ケースにおいても、各温度において膨潤圧が定常に至ったと判断した後に温度を変化させた。
- caseB：供試体は、ケイ砂 30 wt%混合ベントナイトで乾燥密度は 1.8 Mg/m^3 である。70 °C の条件で供試体に蒸留水を浸潤させ、50 °C、さらに 25 °C と段階的に温度を低下させる。試験装置は B タイプを使用する。
- caseC：供試体は、ケイ砂 30 wt%混合ベントナイトで乾燥密度は 1.8Mg/m^3 である。25 °C の条件で供試体に蒸留水を浸潤させ、50 °C、さらに 70 °C と段階的に温度を上昇させる。試験装置は B タイプを使用する。
- caseD：供試体は、ケイ砂 30 wt%混合ベントナイトで乾燥密度は 1.8 Mg/m^3 である。25 °C の条件で供試体に蒸留水を浸潤させ、50 °C、さらに 70 °C と段階的に温度を上昇させる。その後、50 °C、続いて 25 °C と段階的に温度を低下させる。本ケースは、25 °C から 70 °C の昇温過程、70 °C から 25 °C の降温過程として実施する。試験装置は B タイプを使用する。

・ caseE：供試体は、カオリナイトで乾燥密度は 1.6 Mg/m³ である。25 °C の条件で供試体に蒸留水を浸潤させ、60 °C、さらに 90 °C と段階的に温度を上昇させる。試験装置は A タイプを使用する。
・ caseF：供試体は、カオリナイトで乾燥密度は 1.6 Mg/m³ である。25 °C の条件で供試体に蒸留水を浸潤させ、50 °C、さらに 70 °C と段階的に温度を上昇させる。試験装置は B タイプを使用する。
・ caseG： 供試体は、カオリナイトで乾燥密度は 1.6 Mg/m³ である。70 °C の条件で供試体に蒸留水を浸潤させ、50 °C、さらに 25 °C と段階的に温度を低下させる。試験装置は B タイプを使用する。

表 2.4-20　ケイ砂 30wt%混合ベントナイトを対象とした膨潤圧測定試験条件

寸法		直径20 mm、高さ10 mm
乾燥密度		1.8 Mg/m³
初期間隙水飽和度		約0.3
浸潤水		蒸留水
試験温度	caseA	90 °C→60 °C→25 °C
	caseB	70 °C→50 °C→25 °C
	caseC	25 °C→50 °C→70 °C
	caseD	25 °C→50 °C→70 °C→50 °C→25 °C

表 2.4-21　カオリナイトを対象とした膨潤圧測定試験条件

寸法		直径20 mm、高さ10 mm
乾燥密度		1.6 Mg/m³
初期間隙水飽和度		約0.01
浸潤水		蒸留水
試験温度	caseE	25 °C → 60 °C → 90 °C
	caseF	25 °C → 50 °C → 70 °C
	caseG	70 °C → 50 °C → 25 °C

③ 試験結果

ケイ砂30wt%混合ベントナイトの膨潤圧の時間変化を図2.4-22に示す。図2.4-22(a)は、caseAの試験結果であり、90 °Cの条件下で浸潤を開始した後に、60 °C、25 °Cと段階的に温度を低下させている。図2.4-22(b)は、caseBの試験結果であり、70 °Cの条件下で浸潤を開始した後に、50 °C、25°Cと段階的に温度を低下させている。caseAおよびcaseBでは、温度を低下させることによって、各温度における定常状態の膨潤圧は減少する結果となっている。図2.4-22(c)は、caseCの試験結果であり、25°Cの環境条件下で浸潤を開始し、50 °C、70 °Cと段階的に温度を上昇させている。温度を上昇させることによって定常状態での膨潤圧は増大する結果となっている。図2.4-22(d)は、caseDの試験結果であり、25 °Cの環境条件下で浸潤を開始し、70 °Cまで段階的に上げていった後、再び25 °Cまで低下させている。その結果、温度を上昇させると膨潤圧は増加し、温度を降下させると減少する結果となっている。なお、各ケースともに、試験終了後に供試体の水分量を測定し、供試体が浸潤水で飽和状態となっていることを確認している。

次に、カオリナイトの場合の膨潤圧の時間変化を図2.4-23に示す。カオリナイトは層間に水分子を保持しない非膨潤性粘土鉱物であるが、蒸留水を浸潤させることで膨潤圧が発生している。これは、ベントナイトのように、層間に水を吸収し層間距離が増大して発生する膨潤圧とは異なり、粒子間隙への水の浸入による間隙水圧の発生に伴うみかけの膨潤圧と考えられている（例えば、河野, 2021）。図2.4-23(a)および(b)は、caseEおよびcaseFの試験結果であり、25 °Cの環境条件下で浸潤を開始した後に温度を段階的に上昇させている。その結果、温度の上昇にともなう膨潤圧に大きな変化は見られなかった。図2.4-23(a)で示したcaseEのNo.1の供試体は、浸潤を開始してから約2,200時間に、No.2の供試体は約2,300時間後に膨潤圧が著しく低下した。そして、約2,400時間後に試験を終了し、供試体の水分量を測定したところ、No.3の供試体については、浸潤水で飽和していることを確認できたが、膨潤圧が低下したNo.1およびNo.2の供試体は不飽和な状態であった。このことから、試験温度が90 °Cの条件下で試験装置の気密を保つことができず、供試体中の水分が蒸発したことが原因と考えられる。図2.4-23(c)はcaseGの結果であり、70 °Cの環境条件下で浸潤を開始した後に温度を段階的に低下させている。その結果、温度の低下とともに膨潤圧も減少する結果となっている。なお、caseFおよびcaseGについては、試験終了後に供試体が飽和状態であることを確認した。

各ケースにおいて定常状態の膨潤圧を温度との関係で整理したものを、ケイ砂30 wt%混合ベントナイトの場合を図2.4-24に、カオリナイトの場合を図2.4-25に示す。図中の矢印は、温度を変化させた方向を示している。これより、ケイ砂30wt%混合ベントナイトの場合、温度を上昇させることによって膨潤圧は増大し、温度を低下させることで減少していることが分かる。また、図2.4-24(d)で示したように、温度の上昇させて行く過程の膨潤圧に比べて、温度を降下させて行く過程の膨潤圧の方が小さくなる現象が確認された。一方、カオリナイトの場合、図2.4-25(a)および図2.4-25(b)で示したcaseEおよびcaseFについては、温度による膨潤圧の変化は大きくないが、図2.4-25(c)で示すcaseGでは、温度が高いほど膨潤圧が大きい結果となっている。このように、ケイ砂混合ベントナイトおよびカオリナイトともに、温度が高いほど膨潤圧が大きくなる現象が確認された。

ケイ砂30wt%混合ベントナイトについて、温度による膨潤圧の変化率を25 °C時の値を基準として整理したものを、乾燥密度1.6 Mg/m^{3}の場合を図2.4-26に、1.8 Mg/m^{3}の場合を図2.4-27に示す。図2.4-26は、令和3年度に乾燥密度が1.6 Mg/m^{3}の供試体を対象として実施したcaseAからcaseGの7ケースのうち、一つの供試体に対して、段階的に温度を変化させる条件で実施したcaseAおよびcaseGの二つのケースの試験結果について示している（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2022）。これより、25 °Cでの膨潤圧に対して、90 °Cでは1.3 - 1.4倍程度大きくなることが分かる。図2.4-27は、令和4年度に得られた供試体の乾燥密度が1.8 Mg/m^{3}に対するものである。これより、25 °Cでの膨潤圧に対して、70 °Cで1.1倍、90 °Cではバラツキがあるものの1.2倍程度大きくなる傾向が見られる。また、図2.4-27(b)に示すように、25 °Cの条件で浸潤を開始し、90 °Cまで温度を上昇させた昇温過程では、25 °Cでの膨潤圧に対して70 °Cで1.2倍程度大きくなり、再び25 °Cに温度を下げる降温過程では、昇温過程と同じ値を示さず、降温過程における25 °Cの膨潤圧は、昇温過程に比べておおよそ0.8程度の値となっている。

ベントナイトを対象として膨潤圧と温度の関係を実験的に調べた事例がいくつか報告されているが、温度が高くなると膨潤圧が低下するとした結果や（例えば、横山・田中, 2012；鈴木・藤田, 1999a）、本試験結果と同様に、温度が高いほど膨潤圧は増大するとした結果もある（例えば、児玉ほか, 2004；佐藤ほか, 2016；Sharif et al., 2010）。緩衝材の膨潤圧が温度とともに増加する要因としては、浸透圧の上昇による水和反応の増加や、層間の電気二重層理論におけるデバイ長さの増加によるものと推察されている（武藤ほか, 2018）。今回、層間構造を有しないカオリナイト

においても、ケイ砂混合ベントナイトと同様に温度が高いほど膨潤圧が大きくなる現象が観察された。このことから、温度による膨潤圧の変化は、上記のような層間に起因するものだけでなく熱膨張などの力学的な要因によっても生じていることが考えられる。

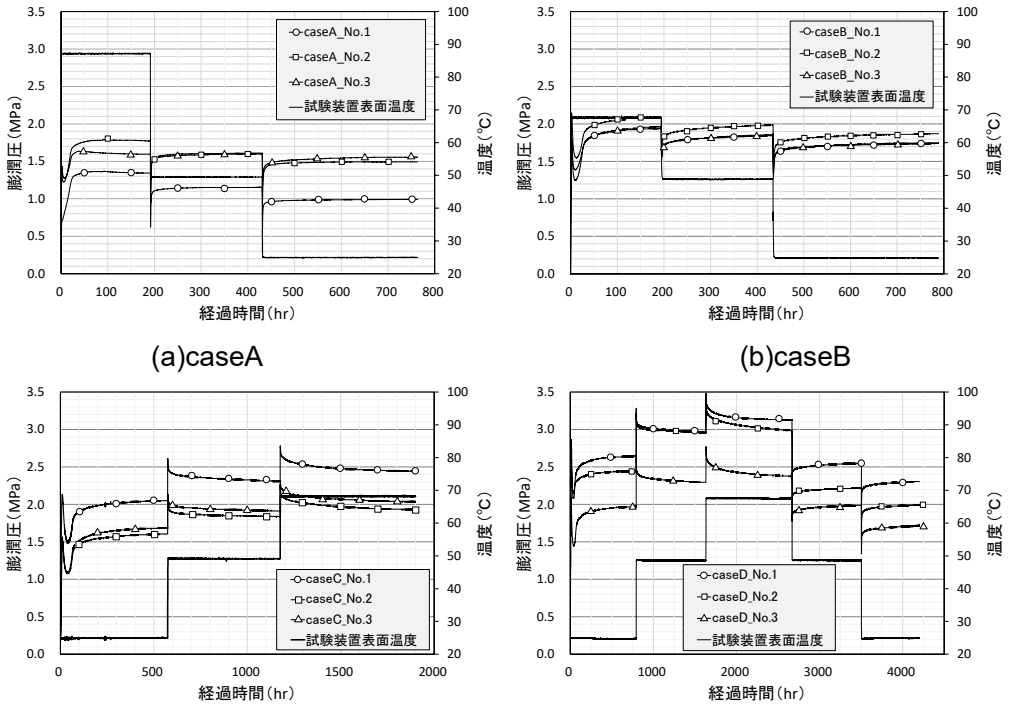
ケイ砂30 wt%混合ベントナイトの定常時における膨潤圧と温度との関係を図2.4-28に示す。図2.4-28(a)の乾燥密度1.8 Mg/m^{3}の膨潤圧は、それぞれの温度において、1 MPa程度の幅を持っているが、これは作製した供試体の密度のバラツキによって生じているものと考えられる。このうち、caseAの場合、供試体の乾燥密度が設定値より小さい約1.79 g/m^{3}であったため、膨潤圧も他のケースに比べて1/2程度と低い（図2.4-24(a)参照）。このため、図2.4-28(a)中には反映していない。これより、乾燥密度1.8 Mg/m^{3}の場合は、25 °Cから70 °Cの範囲で次式のようになる。

$$P_s = 0.00870T + 1.846 \tag{2.4-17}$$

ここで、P_s：定常時の膨潤圧(MPa)、T：温度(°C)である。

また、図2.4-28(b)に示した乾燥密度1.6 Mg/m^{3}については、令和3年度に実施した膨潤圧の測定試験によって得られたものであり（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2022）、温度と膨潤圧の関係は、25 °Cから90 °Cの範囲で次式のようになる。

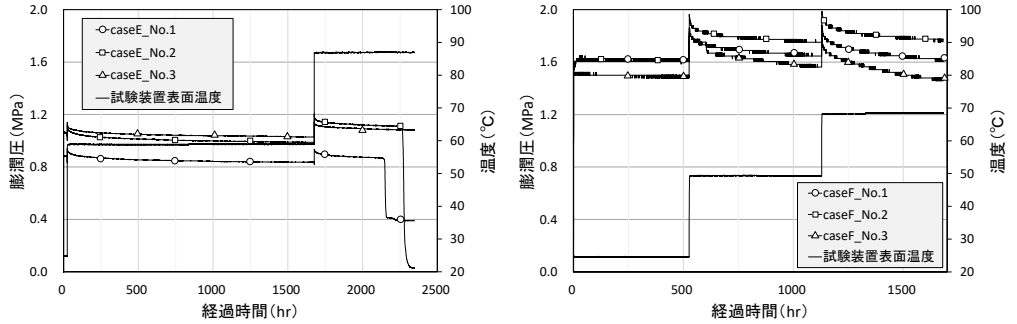
$$P_s = 0.00423T + 0.485 \tag{2.4-18}$$



(a)caseA　(b)caseB

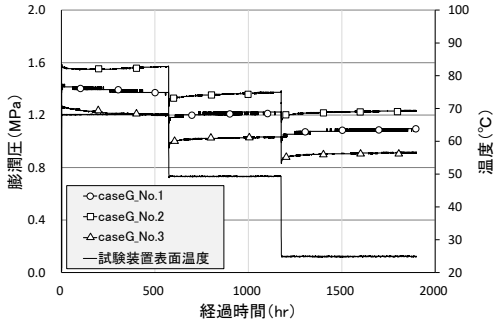
(c)caseC　(d)caseD

図2.4-22　ケイ砂30wt%混合ベントナイト（乾燥密度1.8 Mg/m^3）の膨潤圧測定結果



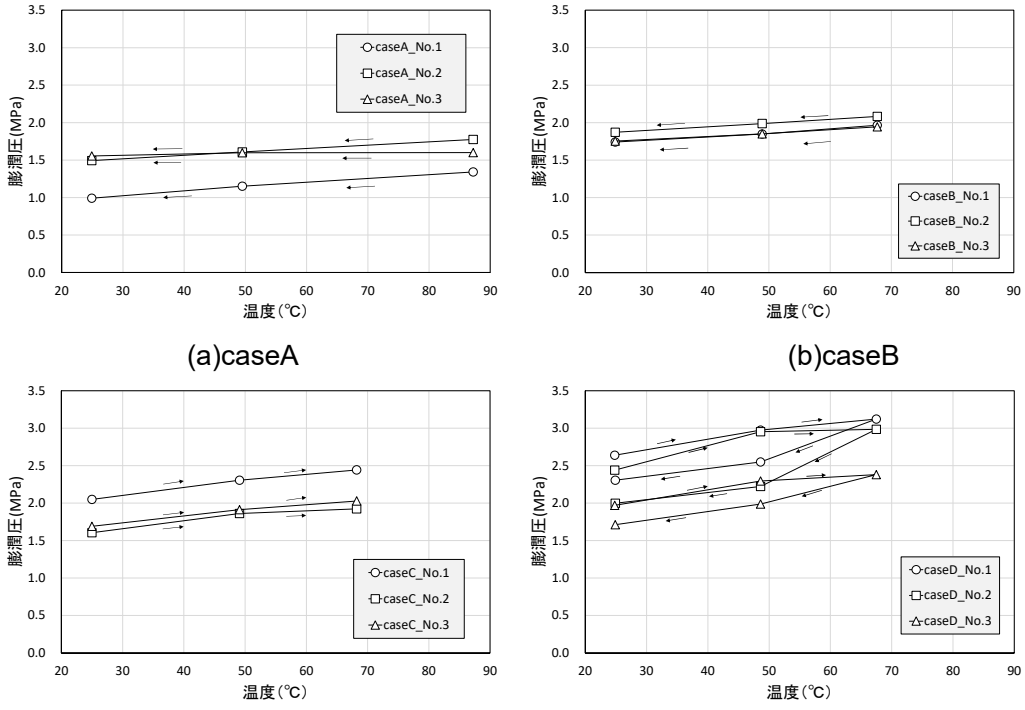
(a)caseE

(b)caseF



(c)caseG

図2.4-23　カオリナイト（乾燥密度1.6 Mg/m^3）の膨潤圧測定結果



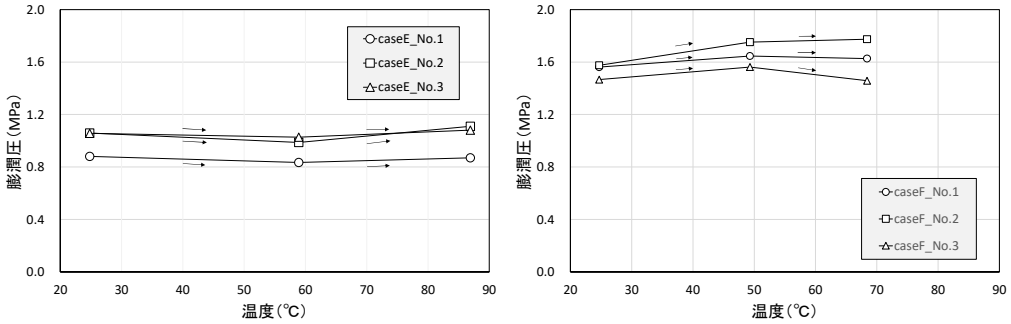
(a)caseA

(b)caseB

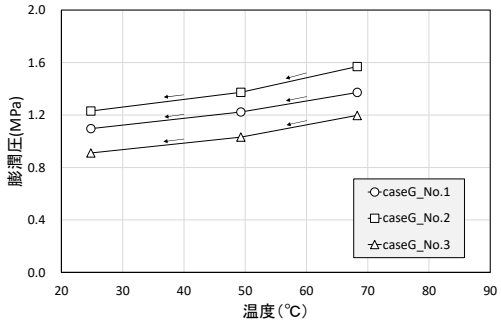
(c)caseC

(d)caseD

図 2.4-24　温度変化にともなう膨潤圧の推移（ケイ砂 30 wt%混合ベントナイトの場合）



(a)caseE　　(b)caseF



(c)caseG

図 2.4-25　温度変化にともなう膨潤圧の推移（カオリナイトの場合）

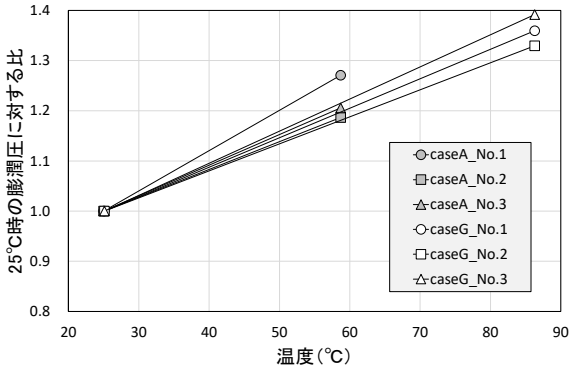
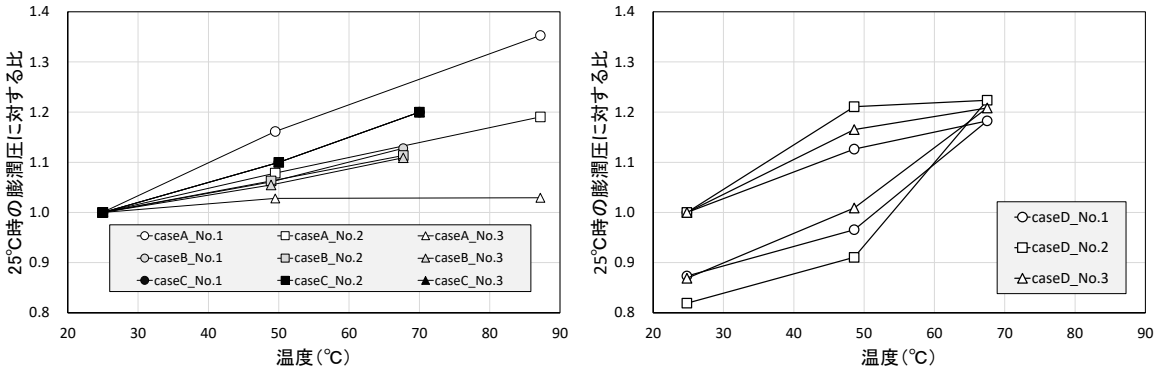
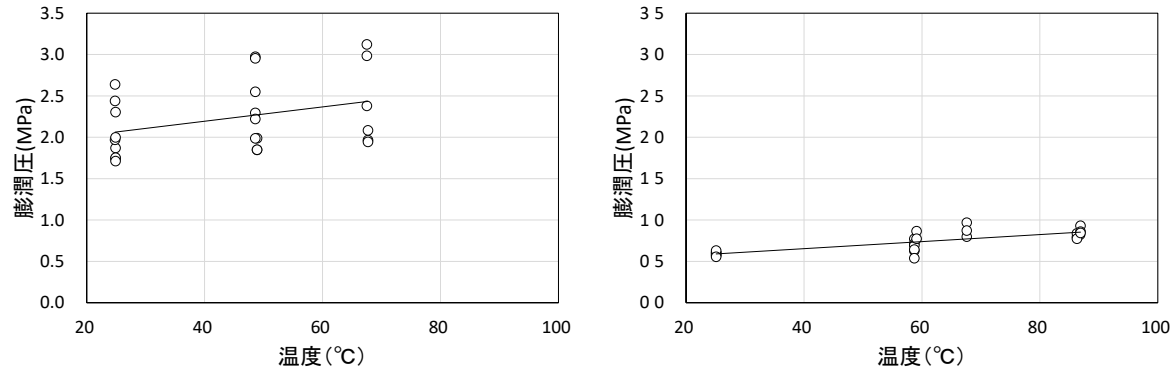


図 2.4-26　25 °C 時の膨潤圧を基準とした各温度の値（乾燥密度 1.6 Mg/m^3）



(a)caseA,caseB および caseC　　(b)caseD

図 2.4-27　25 °C 時の膨潤圧を基準とした各温度の値（乾燥密度 1.8 Mg/m^3）



(a)乾燥密度 1.8 Mg/m^3　　(b)乾燥密度 1.6 Mg/m^3

図2.4-28　ケイ砂30 wt%混合ベントナイトの温度と膨潤圧の関係

3) 温度を制御した圧密試験

① 背景と目的

緩衝材の力学モデルは主に圧密特性とせん断特性から構成されるため、これらの特性に与える温度影響に関する試験データを蓄積していくことが重要と考える。一般的に、土質材料の力学特性の温度依存性として、間隙比と載荷圧関係において正規圧密線は高温であるほど形状や傾きを変えないまま下方にシフトする、といったことが知られている（菊本ほか, 2009）。そこで、令和3 年度に作製した温度制御が可能な圧密試験装置により、非膨潤性粘土であるカオリナイトを用いた場合に上記で述べたような試験データが取得できることを確認するとともに、緩衝材仕様のベントナイトに対する圧密特性の温度依存性に関する試験データを取得した。

② 試験方法

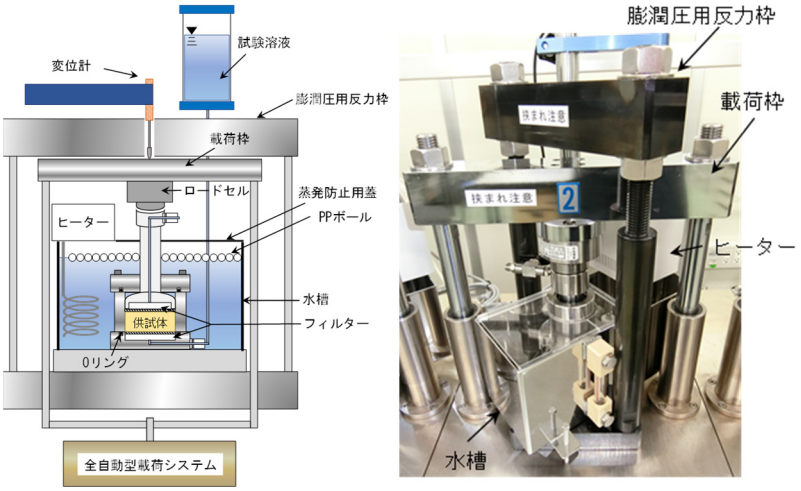
圧密試験装置は、試験装置のサイズが大きいため、前述の膨潤圧試験のように恒温槽内で実施することが困難と考えられたことから、図 2.4-29 に示すように、水の温度を制御した水槽内で圧密試験を実施した。

試験ケースを表 2.4-23 に示す。試験材料は、クニゲル V1 とケイ砂を乾燥重量比 7：3 で混合したものと、比較として非膨潤性粘土であるカオリナイトを用いた。試験温度は 22 °C、50 °C、80 °C に対して実施した。

表2.4-22　圧密試験ケース

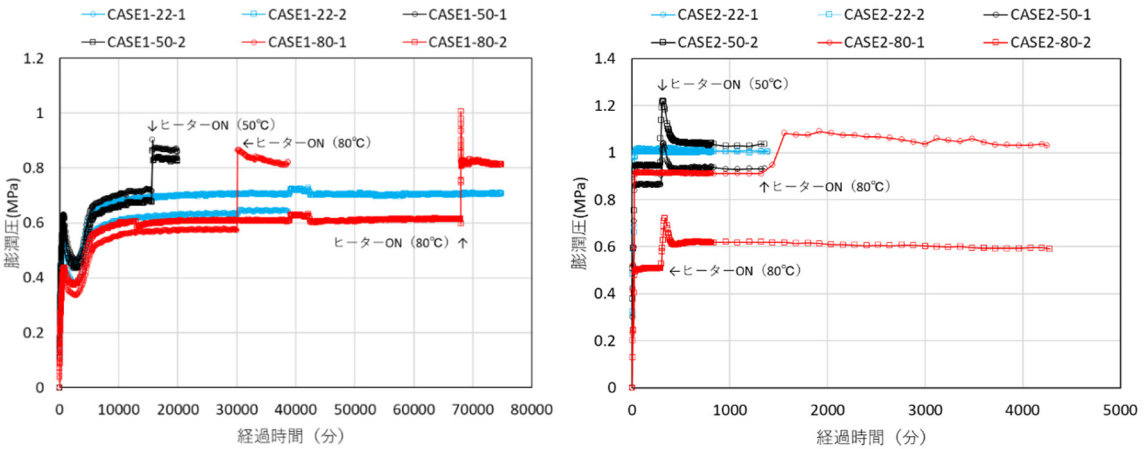
試験ケース	材料	試験温度	初期乾燥密度
CASE-1-22-1	クニゲル V1 とケイ砂混合材	室温（22 °C)	1.6 Mg/m^3
CASE-1-22-2	クニゲル V1 とケイ砂混合材	室温（22 °C)	1.6 Mg/m^3
CASE-1-50-1	クニゲル V1 とケイ砂混合材	50 °C	1.6 Mg/m^3
CASE-1-50-2	クニゲル V1 とケイ砂混合材	50 °C	1.6 Mg/m^3
CASE-1-80-1	クニゲル V1 とケイ砂混合材	80 °C	1.6 Mg/m^3
CASE-1-80-2	クニゲル V1 とケイ砂混合材	80 °C	1.6 Mg/m^3
CASE-2-22-1	カオリナイト	室温（22 °C)	1.6 Mg/m^3
CASE-2-22-2	カオリナイト	室温（22 °C)	1.6 Mg/m^3
CASE-2-50-1	カオリナイト	50 °C	1.6 Mg/m^3
CASE-2-50-2	カオリナイト	50 °C	1.6 Mg/m^3
CASE-2-80-1	カオリナイト	80 °C	1.6 Mg/m^3
CASE-2-80-2	カオリナイト	80 °C	1.6 Mg/m^3

圧密試験では、まず、所定の乾燥密度になるように試験セル内で締め固めた後、室温(22 °C)条件で、体積を拘束した状態で供試体へ給水を行い、膨潤圧の測定を行う。図 2.4-30 に示すように、膨潤圧が定常に落ち着いたら飽和したとみなし、所定の温度まで上昇させる。温度上昇に伴う膨潤圧変化が落ち着いた後、表 2.4-23 に示す載荷条件で圧密試験を実施した。



（a）試験装置概略図　　（b）試験装置写真

図 2.4-29　温度制御が可能な水槽を用いた圧密試験装置



（a）CASE 1　　（b）CASE 2

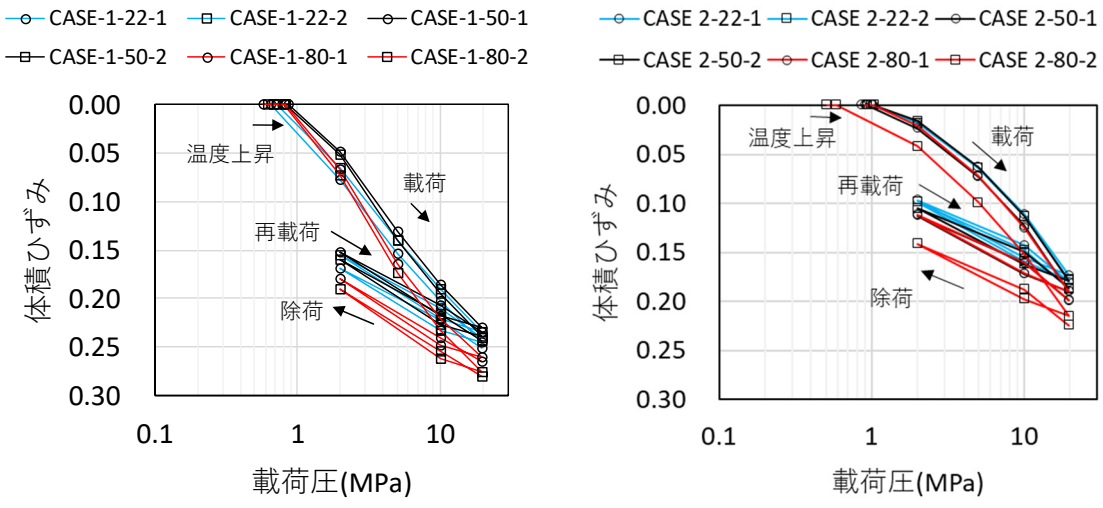
図 2.4-30　膨潤圧過程

表 2.4-23　載荷条件

載荷ステップ		載荷過程				除荷過程		再載荷過程	
	初期	STEP1	STEP2	STEP3	STEP4	STEP5	STEP6	STEP7	STEP8
設定圧(MPa)	膨潤圧	2	5	10	19.6	10	2	10	19.6

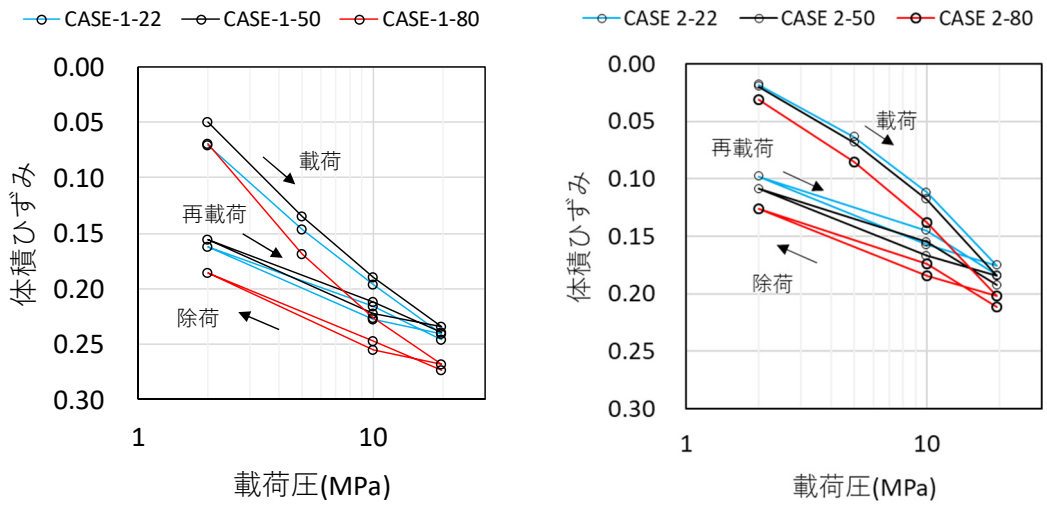
③ 試験結果

図 2.4-31 に体積ひずみ（圧縮：正）と載荷圧の関係をそれぞれ示す。また、試験ケースごとに若干のばらつきが見られたため、図 2.4-32 に STEP1 から STEP8 の試験条件ごとの平均値を示す。膨潤圧が落ち着いた後に温度を上昇させたケースでは、それにより圧力の増加が生じている。その後、載荷による圧縮挙動が生じている。22 °C と 50 °C のケースには大きな差異は認められないが、80 °C のケースでは載荷過程においてより大きな圧縮量が生じる傾向が確認でき、温度上昇に伴い剛性の低下が生じたものと考えられる。また、除荷過程・再載荷過程での体積ひずみの変化量は、温度の違いに依存せず概ね同等の変化量であった。



（a）CASE 1　　（b）CASE 2

図 2.4-31　体積ひずみと載荷圧関係



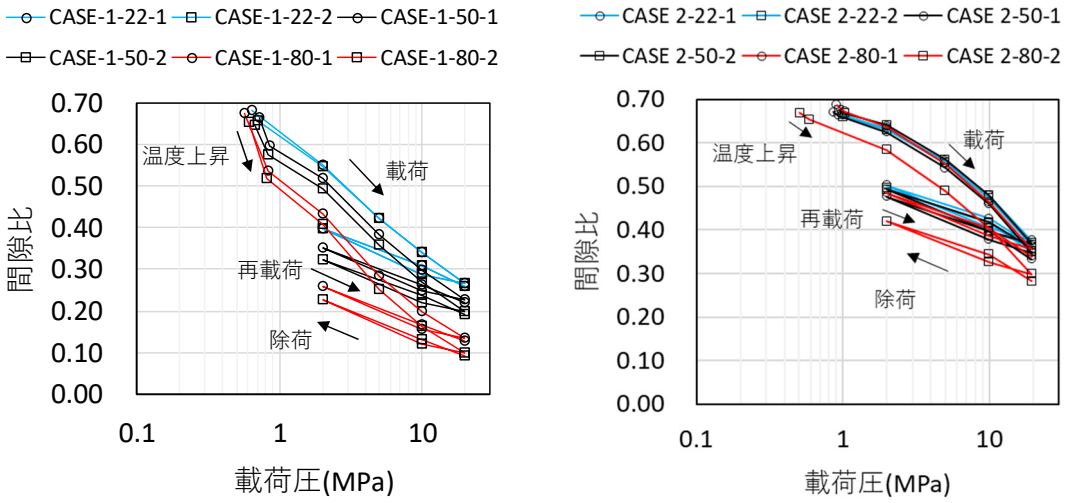
（a）CASE 1　　（b）CASE 2

図 2.4-32　体積ひずみと載荷圧関係（平均値）

図 2.4-33 に間隙比と載荷圧の関係を示す。また、試験ケースごとに若干のばらつきが見られたため、図 2.4-34 に STEP1 から STEP8 の試験条件ごとの平均値を示す。ここで、土粒子の熱膨張を考慮しないと温度変化に対する間隙比減少率は過少に評価されることが指摘されているため（清水・田中, 2000）、図に示した間隙比は土粒子の熱膨張を考慮して整理している。土粒子の熱膨張率(°C $^{-1}$)として、ベントナイト、ケイ砂、カオリナイトでそれぞれ、0.00211、0.000271、0.000155 とした（清水・大西, 2003）。なお、ケイ砂の熱膨張率は、石英と長石を主要な鉱物とする宍道湖泥の値を代用した。

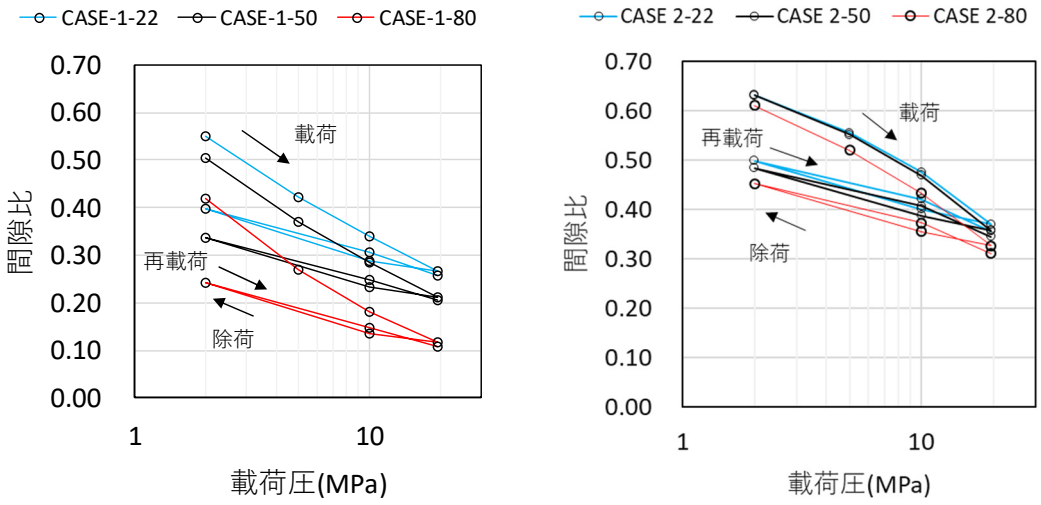
膨潤圧が落ち着いた後に温度を上昇させたケースでは、温度上昇により圧力の増加が生じている。この温度上昇過程では、供試体の体積は固定されているものの、土粒子部分の熱膨張による間隙比の減少が生じている。温度上昇後の載荷・除荷・再載荷過程では、間隙比と載荷圧の関係は温度の増加に伴い概ね下方にシフトする傾向があることがわかる。このような傾向は、カオリナイトとベントナイトの両方において確認でき、従来の土質力学における知見（菊本ほか, 2009）と整合的であることが確認できた。また、本試験では、高密度に締め固められた状態から試験を実施しているため、比較的変形量が小さい条件での比較となった。今後は、より密度の低い条件から試験を実施する等、変形量が大きくなる条件で試験を実施することにより、圧密特性に与える温度依存性の影響をより明確に把握できる可能性が考えられる。

さらに、上記で示したような傾向の他にも、一般的な土質材料に対する温度依存性として、正規圧密土は昇温時には圧縮する傾向を示すが、過圧密比が大きくなるほど昇温に伴う圧縮量は減少し、やがて熱膨張する傾向を示す、といったことが知られている（菊本ほか, 2009）。過渡期における緩衝材の力学特性の温度依存性を考慮できる力学モデルの構築に向け、今後は、載荷圧一定条件下で温度変化を与える試験を行い、ベントナイトに対しても同様の傾向が見られるのかどうか確認していくことが重要である。



（a）CASE 1　　（b）CASE 2

図 2.4-33　間隙比と載荷圧関係



（a）CASE 1　　（b）CASE 2

図 2.4-34　間隙比と載荷圧関係（平均値）

(3) 5 か年の成果と今後の課題

令和 4 年度は、令和 3 年度の MACBECE を用いた幌延人工バリア性能確認試験の解析において課題として抽出された緩衝材の埋め戻し材への膨出挙動をより適切に評価するため、埋め戻し材のモデル化の違いや緩衝材と砂間のジョイント要素の物性値の違いが緩衝材の膨出挙動に与える影響を検討した。その結果、埋め戻し材のモデルの見直しや、緩衝材と砂間のジョイント要素の物性値の見直しにより、令和 3 年度の解析結果と比較して、より現実的に膨出挙動を再現することができた。特に、緩衝材と砂間のジョイント要素の物性値を小さく設定することで、膨出量が大きく増加し、緩衝材と埋め戻し材の境界部に設置してある膨出センサーの計測結果から推定されているような、緩衝材中央にて下に凸となる膨出の形状を示すことがわかった。しかしながら、依然として膨出量を過少に評価している可能性が考えられた。MACBECE では、二次元の平面歪条件で解析を行っているため、三次元的な形状に起因する応力分布を適切に評価できておら

ず（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2022）、それが変形挙動の解析結果にも影響を及ぼしていると考えられる。また、緩衝材の力学挙動は温度の影響を受けるが、現状の MACBECE では、力学挙動の温度依存性を考慮できていない。これらを考慮していくことにより、より適切なニアフィールドの力学挙動の評価が可能となると考える。

さらに、令和 4 年度は、過渡期の緩衝材の力学特性の温度依存性を考慮できる力学モデルの構築に向け、温度を制御した膨潤圧試験と圧密試験を実施し、緩衝材の力学特性の温度依存性に関するデータ取得と、それによる現象理解を進めた。温度を制御した膨潤圧試験では、令和 3 年度とは異なる乾燥密度条件として乾燥密度 1.8 Mg/m^3 条件や、カオリナイト条件で試験を実施した。その結果、これらの条件でも温度増加により膨潤圧が増加する傾向があることを確認した。また、温度を制御した圧密試験では、ベントナイトやカオリナイトを用いて試験を実施した。その結果、いずれの材料においても、温度増加に伴い間隙比-載荷圧関係が下方に移動することを確認した。これらのことから、ベントナイトの力学特性の温度依存性の傾向は、カオリナイトのような非膨潤性粘土と同様の傾向を示す可能性を示唆する結果を得た。

平成 30 年度から令和 4 年度の 5 年間の検討により、処分施設の各材料および周辺岩盤との力学的相互作用を過渡期から長期まで一貫して評価できる解析システムを構築し、幌延人工バリア性能確認試験データを活用した妥当性の検証と更なる課題を抽出することができた。今後は、MACBECE の三次元化や、緩衝材の力学特性の温度依存性の考慮などの改良が必要と考えられた。

そして、過渡期の緩衝材の不均質な飽和度分布の進展に伴う力学挙動の理解や力学モデルの検証データの取得と高度化に向けて、X 線 CT 測定による膨潤圧試験中の供試体内部の観察を行い、膨潤圧の変化と供試体内部の状態変化の関係の把握を試みた。その結果、膨潤圧試験中にしばしば観測される膨潤圧の低下挙動は、供試体内部の吸水圧縮挙動によって生じていることを明らかにした（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2020；日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2021；高山・菊池, 2021）。さらに、膨潤圧が単調に増加する場合や一度低下する場合に対する試験データの比較により、供試体内での吸水圧縮挙動の発生の有無やその大小が膨潤圧変化のパターンに影響を及ぼすことや飽和時には不均一な乾燥密度分布が形成される等を明らかにした（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2022；高山ほか, 2022）。吸水圧縮挙動はコラプスと呼ばれ、従来から不飽和土の特徴的な力学挙動として考えられてきた。MACBECE に導入されているような不飽和土の弾塑性構成モデルでは降伏曲面の拡大・縮小を制御するパラメータにサクションや含水状態に関する物理量を用いることによって吸水圧縮挙動を表現している。過渡期の緩衝材の力学挙動を評価するためには、このような不飽和土の弾塑性構成モデル開発で用いられてきたようなアプローチに基づく力学モデルを用いることが重要となることが示唆された。

また、MACBECE に導入できていない過渡期の緩衝材の力学特性の温度依存性を考慮できる力学モデルの構築に向け、温度を制御した膨潤圧試験や圧密試験を実施し、緩衝材の力学特性の温度依存性に関するデータ取得と、それによる現象理解を進めた。今後は、載荷圧一定条件下で温度変化を与える試験等を行い、温度変化によって生じるベントナイトの変形特性等を把握していくことが重要である。

これらを進めることにより、過渡期から長期までのニアフィールドの力学挙動をより現実に即して評価する手法が構築され、従来の保守的な評価モデルでは困難であったサイト間やデザイン間の相違を定量的に表現する技術として整備されることが期待される。また, 2.4.1 項および 2.4.2 項で開発した過渡期の解析技術を MACBECE を通じて SP3 で開発を進めてきた複合現象評価技術への導入を進めていくことで、ニアフィールドの複合現象を過渡期から長期まで一貫した評価

が可能な評価システムの開発につながると考えられる。

2.4.3 緩衝材挙動に関するナノスケールシミュレーションモデルの構築

(1) 背景と目的

本項では、過渡期の緩衝材の応力変化や密度変化などの力学挙動、それに伴う透水性や核種移行に関係する特性の変化などの理解や関連するデータ取得に向けてのアプローチの検討の一つとして、ナノからマイクロメートルオーダーでの粘土含水系の挙動を調べるためのシミュレーションに着目し、メソスケール粗視化分子動力学（以下、「粗視化 MD」という）モデルの開発を行う。

粗視化 MD 法は、多体粒子の運動を解く分子動力学(MD)シミュレーションの一種であるが、水和粘土分子の単位構造を粗視化し一つの粒子（粗視化粒子）で表現することで解くべき問題の自由度を削減し、通常の MD よりも大きな時間的・空間的スケールの計算を行うことを目指したものである。これにより、多数の水和粘土鉱物が凝集、圧縮される過程や、凝集系が外力によって変形する場合の挙動を調べることができる。

粘土含水系の粗視化 MD モデルについての過年度の取り組みでは、まず、モンモリロナイト粘土分子の単位構造とそこに水和された間隙水を一つの粗視化粒子で表し、粗視化粒子間の相互作用力は全原子 MD 計算の結果から与えることで、指定された温度、圧力で圧縮したときに生じる粘土含水系の凝集挙動を調べることができることを示した。また、粗視化 MD モデルで得られた粘土含水系の組織構造モデルを用いて間隙構造の変形解析や微視的な間隙構造の特性を反映した物質の拡散解析を試行し、微視的多孔質構造を考慮したマクロ量としての弾性係数や拡散係数の評価に向けた見通しを得た（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2018）。さらに、粗視化 MD モデルの結果として得られる粘土含水系の組織構造の特徴を、実測可能かつ物理的な意味が明確な物理量（マクロ物性など）として定量的に評価する手法の開発に着手し、粗視化 MD モデル結果の組織構造から粘土分子の平均的な積層数や層間距離などを評価する手法を構築し評価を試行した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019；2020；木本ほか, 2020）。しかしながら、これまでの粗視化 MD モデルでは間隙の水分量は一定と仮定しているため、粘土含水系に水分の出入りがある場合の膨潤や膨潤圧の発生や、系が平衡状態にあるときに保持される水分量をシミュレーションによって求めることはできなかった。そこで令和 2 年度以降、粘土含水系に水分の出入りがある場合にも対応し、系外から水分を供給することで膨潤や膨潤圧を発生させることにより、様々な条件に対して粘土含水系の吸水膨潤段階での組織構造の特徴の評価ができるように手法の拡張を進めてきた（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2021；2022）。

このような手法の開発は、粗視化 MD モデル結果の妥当性の検証およびマクロ物性などに強い影響を与える因子の特定と定量化、マクロ物性などの発現メカニズムの理解などに資することができると考えられる。さらに、粗視化 MD モデルが実測可能なマクロ量をどの程度再現できるかなどの検証を経て、不飽和粘土の物理量に関する定量的予測技術をより確かなものとしていくことができれば、例えば、緩衝材再冠水時の過渡的挙動を有限要素法などの手法で調べる際に必要となる、変形、熱伝導、透水、物質輸送などに関するパラメータを、種々の温度や圧力、水分状態において、実験を行うことなく数値解析的に推定することにもつながっていくことが期待される。

(2) 実施内容

粘土含水系に水分の出入りがある場合にも対応できるようにするための粗視化MDモデルでの拡張について、令和3年度までに、粘土含水系の微視的多孔質構造を考慮した変形や吸水膨潤挙動

の解析を、ひずみあるいは応力制御下で実施することのできる粗視化MDプログラムの開発を進め、粘土含水系モデルが環境との間で水分をやり取りして吸排水が生じるシミュレーションを実現し、設定した化学ポテンシャルに応じた吸排水や膨潤圧がシミュレーション上発生することを確認することができた（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2021）。また、粘土水系への水分の出入りを制御するために必要となる、粘土分子表面への水和挙動を特徴付ける水和エネルギーのモデルをより現実的なものとしていくために、水和エネルギーの局所的な変動により膨潤挙動がどのように変化するかを調べるため、水和エネルギーが水和量の増加に対して単調に変化するモデルに振動成分を加えたモデルを用いた解析により、単調変化のモデルの場合に示される膨潤状態の連続的な変化に対して、これまでよりもNa型モンモリロナイトの膨潤挙動に近い結果（離散的な膨潤状態）を得ることができた。

そこで、令和 4 年度は、Na 型モンモリロナイトの X 線回折試験で実際に観測された膨潤挙動を反映した水和エネルギーモデルを作成し，吸水膨潤の粗視化 MD シミュレーションを行った。その結果、Na 型モンモリロナイトの吸水膨潤段階での組織構造についての、観測事実に基づいた計算が実施できるようになった。加えて，これまでのシミュレーションでは，実験では制御が難しい化学ポテンシャル（その逆数が環境の湿度の高低に相当）を指定した組織構造の計算は可能であったが，実験で制御可能な相対湿度を指定した計算までは行えなかったことに対して、特定の相対湿度を指定した計算が実施できるように手法の改良を行った。

まず、粉末 X 線回折試験と全原子分子動力学計算の結果をふまえて作成した Na 型モンモリロナイトの水和エネルギーモデルを図2.4-35に示す。図2.4-35の(a)は粉末 XRD 試験で得られた膨潤曲線を示したもので、横軸は相対湿度で縦軸は X 線回折ピークから算出した層間距離を表す。(b)は全原子分子動力学(MD)計算（森本ほか, 2022）で得られた水和モル数と層間距離の関係を示している。いずれも Na 型モンモリロナイトに対する結果である。これらのデータを用いて水和モル数と相対湿度の関係を導き、相対湿度を熱力学理論式で化学ポテンシャルに換算して積分することで水和エネルギーを求めることにより、特定の相対湿度を対象とした組織構造の計算が行えるようになる。(c)はこの方法で実際に計算した水和エネルギーモデルである。ただし、(c)では、全水和エネルギーの内，Na 型モンモリロナイト固有の挙動を与える成分を示すために、水和モル数に対して直線的に変化する成分を差し引いた結果（非線形成分）をプロットしている。以上のように実験と計算で得られた膨潤特性を基に水和エネルギーを与えることで、令和4年度のシミュレーションでは、特定の層間イオン種に対応した粘土の組織構造計算を相対湿度を指定して実施することが可能となった。

次に、相対湿度を指定して行った Na 型モンモリロナイトの膨潤シミュレーションによる組織構造の結果を図2.4-36に示す。図2.4-36の(a)は粘土含水系モデルの初期状態を、(b)は相対湿度 50 %および(c)は相対湿度75 %において緩和計算を行い最終的に得られた組織構造（粘土分子配置）のスナップショットを示す。(a)に示した初期状態は令和2年度で得られた、仮想的な粘土の組織構造モデルである。このモデルでは系全体が一層膨潤に達するには不十分な水分量しかもたない乾燥状態に近いモデルになっている。これを初期状態とし、相対湿度をそれぞれ50 %および75 %に設定し、温度を300で一定として組織構造の緩和（平衡化）計算を行った結果が(b)と(c)である。いずれもの場合も吸水が起こり、粘土層間距離が拡がっている。その結果、粘土分子の積層体は顕著に体積が増す一方、粘土層外の間隙が積層体の体積増加を吸収するためにモデル全体の膨潤量は小さい。相対湿度75 %のケースでは50 %に比較して吸水量が大きく、積層体の体積膨張もより大きいため、層外の間隙がほとんど消失していることがわかる。

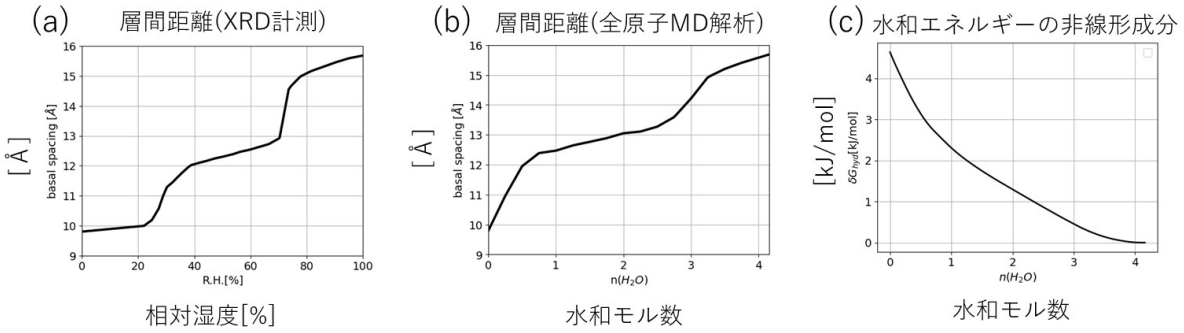


図2.4-35　粉末 X 線回折試験と全原子分子動力学計算の結果をふまえて作成した Na 型モンモリロナイトの水和エネルギーモデル
（(a)粉末 X 線回折試験での XRD 計測による層間距離、(b) 全原子分子動力学計算による層間距離、(c) (a)と(b)の結果をふまえて作成した Na 型モンモリロナイトの水和エネルギーモデル（非線形成分））

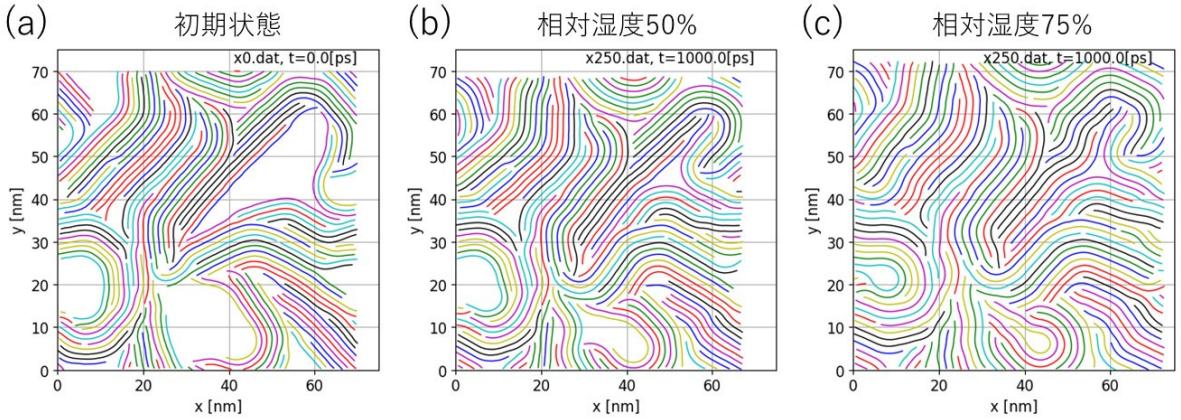


図2.4-36　Na 型モンモリロナイトの膨潤シミュレーションによる組織構造の結果
（(a)は粘土含水系モデルの初期状態、(b)は相対湿度50%および(c)は相対湿度75%において緩和計算を行い最終的に得られた組織構造（粘土分子配置）のスナップショット）

最後に、相対湿度を指定して行った Na 型モンモリロナイトの膨潤シミュレーションによる粘土層間距離の結果を図 2.4-37 に示す。図 2.4-37 の(a)は初期状態、(b)は相対湿度 50 %および(c)は相対湿度 75 %における粘土層間距離の頻度分布を示す。初期状態(a)では、層間距離が 11 – 12 Å の範囲にあり 0 層から 1 層膨潤状態への中間にある。この状態から相対湿度を 50 %にして緩和計算を行った結果である(b)では、層間距離は 12.5 Å 近傍に集中し、ほぼ 1 膨潤状態のみとなっている。さらに相対湿度をあげた 75 %では、13.2 Å と 15.5 Å 付近に 2 つのピークを持つ頻度分布となっている。頻度分布の前者のピークは、1 層から 2 層膨潤へ移行する直前の、後者のピークは 2 層膨潤状態の層間距離に相当し、このケースでは 1 層と 2 層膨潤状態が混在することを示している。いずれの相対湿度も、図 2.4-35 (a)に示した XRD 試験で観測される層間距離をみると、相対湿度 50 %と 75 %では、それぞれ約 12.5 Å と 15.5 Å とシミュレーション結果と近い値であることがわかる。このことからも、令和 4 年度に作成した水和エネルギーモデルには、観測で得られた Na 型モンモリロナイトの膨潤特性が反映されていることが確かめられる。

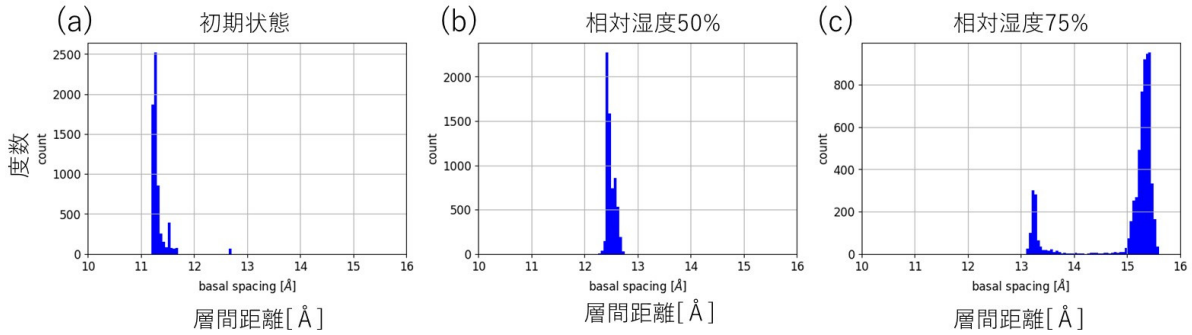


図2.4-37　相対湿度を指定して行ったNa型モンモリロナイトの膨潤シミュレーションによる粘土層間距離の頻度分布

(3) 5か年の成果と今後の課題

メソスケール粗視化分子動力学（粗視化MD）モデルの開発の一環として、粘土含水系の組織形成シミュレーションにおいて、水和エネルギーと水分量の関係をモデル化し、吸排水による組織構造の変化を扱うことができるような粗視化MDモデルの拡張を行った。その際、水和エネルギーモデルとして、令和2年度の研究で用いた単調に変化するモデルに対して、令和3から4年度はモデルをより現実的なものとしていくための検討を進め、Na型モンモリロナイトのX線回折試験で実際に観測された膨潤挙動を反映した水和エネルギーモデルを作成し、Na型モンモリロナイトの膨潤挙動が一部再現できることを確認した。

粗視化MDモデルの開発に関しては、平成30年度までに、ランダムに配置した粘土分子群を圧縮して凝集させることで、指定した温度、圧力における粘土含水系の組織構造モデルが得られるようになった。また、平成31年度からは、粗視化MD計算で得た組織構造に対するX線回折パターンや粘土分子の動径分布関数を数値的に求め、粘土分子の積層数や層間距離分布を評価して組織構造の特徴を調べることで、実測値との比較に向けての検討を進めてきた。これらの成果を踏まえ、令和2年度から令和4年度には、粘土含水系の吸水や排水による組織構造変化を扱うことができるよう水和エネルギーの取扱いを中心にモデルの高度化を進め、モンモリロナイトの重要な性質の一つである膨潤挙動のシミュレーションを行うための基盤の準備ができた。

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

2.5 母岩中アルカリプルーム反応輸送挙動評価

処分場建設時には、湧水抑制対策としてセメント系材料を用いたグラウチング施工が行われることが想定される。セメント系材料は、人工バリア材料のみならず、周辺岩盤に化学的影響として変化を生じさせ天然バリアの性能を低下させることが懸念される。これまで、セメント系材料による周辺岩盤への影響に関する研究が国内外で行われているが、特に亀裂性媒体においては物質移行を促進もしくは遅延する両ケースの研究事例が報告されているなど、その影響を定量的に評価するために必要な知見が得られているとは言い難い（Steefel and Lichtner, 1994；Bateman et al., 1998；1999；Soler, 2003など）。

特に、実際の地下環境におけるグラウト材そのものの変遷や、セメント系材料が周辺岩盤へ与える影響に関する知見は乏しいと言える。また、セメント系材料由来による高pH地下水（アルカリプルーム）が坑道周辺の処分システムに影響を与える懸念もあることから、その解明とモデル化が必要である。

セメント系材料による周辺岩盤への影響の評価に役立てるため、東濃地科学センター瑞浪超深地層研究所におけるグラウチング施工を実施している箇所を対象に、グラウト材・岩盤の変遷を把握するための調査・分析を実施し、グラウト影響に関する概念モデルの構築を進めてきた（日本原子力研究開発機構, 2016；2017；2018a；日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019；2020）。しかしながら、グラウチングは掘削により水圧が解放された坑道の周囲に施工されており、坑道に向かう地下水の流れが卓越するため、地下水とセメント系材料が反応してアルカリ性の地下水が形成されたとしても坑道に湧出し、岩盤側へは拡がらない可能性が高い。そこで、令和2年度は、ボーリング孔掘削時にセメントが使用されたボーリング孔周囲の岩石試料を採取し、アルカリプルームの痕跡の有無を調査した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2021）。令和3年度はこの岩石試料の詳細観察を実施し、鉱物の形成・溶解の有無を調査し、アルカリプルームの影響を検討した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2022）。

令和4年度は、令和3年度に引き続いて、岩石試料の詳細観察を実施し、鉱物の形成・溶解の有無を調査し、アルカリプルームの影響を検討した。

また、支保工やグラウト材に由来するアルカリプルームが岩盤中に移行することによって、岩盤マトリクス中の鉱物や亀裂充填鉱物が溶解して核種の移行が促進される可能性や、亀裂内部に二次鉱物が沈殿して核種の移行が抑制される可能性などが考えられる。このため、アルカリプルームの反応輸送挙動評価手法の高度化に向け、アルカリプルームの移動と岩盤との化学反応によって生じる固相および液相の変化の連成現象を適切に取り扱うことが可能な反応輸送解析モデルの構築に取り組んできた。平成30年度は、アルカリプルームと岩盤の相互作用に関するナチュラルアナログの検討事例や上記の施工事例を対象とした検討などを参考に、モデルの高度化に関する課題を幅広く抽出すると共に、抽出された課題の解決に向けた予察的解析を実施した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019）。平成31年度は、処分孔の支保工とそれに交差する単一の亀裂を対象とした反応輸送解析モデルを構築し、支保工からのアルカリの影響が処分孔近傍に留まるか否かの条件を感度解析などにより分析した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2020）。令和2年度は、平成31年度に構築した反応輸送解析モデルを用いて、坑道近傍スケールでの単一の亀裂を対象とした状態変遷の知見を拡充するための感度解析を継続すると共に、CO_2地下貯蔵等の他分野における類似検討事例に係る文献調査を行い、本検討における今後の進め方や方向性の見直し・整理を行った（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2021）。令和3年度は、これまでに開発してきた解析手法を用い、一次元の単純な系を対象とし、アルカリプルームによる岩盤の状態変

遷プロセス（物質移行の促進もしくは遅延に影響を与えるプロセス）の定量的評価に資する上で重要となる知見（例えば、亀裂の開口が継続する／閉塞に向かう場合の条件の概略等）に関わる解析的な検討を行った（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2022）。

令和4年度は、令和3年度に利用した反応輸送解析コードの適用性確認の一環として、花崗岩試料を用いた高pH溶液の通水による人工単一亀裂の透水性と開口幅の変化に係る室内試験結果を対象にした再現解析を行った。また、亀裂の開口（物質移行の促進）が継続する／閉塞（物質移行の遅延）に向かう場合の条件の定量化に向けた検討も行った。

2.5.1 グラウチング施工事例を対象とした調査・分析

(1) 背景と目的

瑞浪超深地層研究所では、地層処分研究開発における地層科学研究の調査技術開発および評価のため、深度500 mまでの立坑と水平坑道を整備したが、坑道掘削にあたって湧水抑制対策のため、普通ポルトランドセメント(OPC)をグラウト材として注入したグラウチング施工を実施している箇所がある（見掛ほか, 2010）。

既往の研究では、原位置におけるセメント系グラウトの変遷とその周辺岩盤への影響について理解すると共にその概念モデルの構築を行ってきた。例えば、深度300 m研究アクセス坑道における研究では、施工後約3年のグラウト材が炭酸化しつつあることが確認されている（日本原子力研究開発機構, 2016）。また、施工後約3年と約7年が経過したグラウト材コア試料の観察の結果、グラウト材は施工後、比較的早い時期から炭酸化が進行している可能性があることや、坑道を開放している段階ではグラウト材が周辺岩盤へ化学的影響を及ぼす可能性は小さいと考えられた（日本原子力研究開発機構, 2017）。さらに、平成31年度には、施工後約11年が経過したグラウト材ー岩盤接触部から試料を採取・分析した。その結果、グラウト材については、試料（グラウチング施工位置の違い）によって炭酸化の有無が異なることが判明したが、いずれの試料においても岩盤中にはグラウト材の影響とみられる変質は認められていない（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2020）。また、平成30年度には、グラウト材と岩盤との相互作用メカニズムに関する情報の拡充と概念モデルの構築を目的として、既存試料を用いた通水箇所およびそのグラウト材および岩盤の変遷を把握する通水試験実施し、方解石($CaCO_3$)の析出を確認し、関係する反応物質のやり取りを想定した概念モデルを確認した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2019）。

以上のように、グラウチング施工箇所を対象とした事例研究では、グラウト材の炭酸化は確認されたが、セメント系材料による岩盤の変質などは確認されていない。そこで、令和2年度はボーリング孔掘削時にセメント系材料が使用されたボーリング孔を対象として、アルカリプルームの痕跡を調査するため、その周辺岩盤中で岩石試料を採取し、岩石薄片を作成して顕微鏡観察を行った。その結果、岩盤中の割れ目表面においてセメント系の物質の可能性が考えられる沈着物が確認されたが、ボーリング孔で使用されたセメントに起因するアルカリプルームの痕跡を確認することはできなかった（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2021）。令和3年度は、令和2年度に作成した岩石薄片の電子顕微鏡観察およびX線分析顕微鏡観察を実施し、沈着物の性状からその成因を分析するとともに、鉱物の溶解などの有無を調査し、アルカリプルームによる変質等への影響を検討した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2022）。令和4年度は、令和3年度に引き続いて、岩石薄片の電子顕微鏡観察を実施し、沈着物の産状をより詳細に観察するとともに化学組成を取得し、沈着物の成因を検討するとともに、アルカリプルームの影響を検討した。

(2) 実施内容

1) 研究対象のボーリング孔の概要

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

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

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

12MI33号孔の近傍では、平成30年度に18MI65号孔が掘削された（同孔は経済産業省委託事業「岩盤中地下水流動評価技術高度化開発」により掘削された；日本原子力研究開発機構・電力中央研究所, 2019）。18MI65号孔は、12MI33号孔から約2 m離れた位置から掘削され、12MI33号孔と掘削方位はほぼ同じであるものの、下向き傾斜角が若干大きいため、深度が深くなるにしたがって両孔の離間距離は大きくなっていく。本研究では、18MI65号孔の24.15 - 30.1 mの深度で試料を採取したが、深度30 mの位置では、18MI65号孔と12MI33号孔の離間距離は3.7 m程度である（図2.5-1の②の黒塗りの位置。離間距離は黒塗り上に赤線で示した長さとなる）。なお、18MI65号の掘削時には、孔口から深度30.1 mまで孔径123 mmで掘削した後、内径102.3 mmのケーシングパイプを挿入し、パイプと孔壁の隙間をセメントで充填してケーシングパイプを固定した。その後、深度103.1 mまで孔径98.4 mmで掘削された（日本原子力研究開発機構・電力中央研究所, 2019）。

本事業では、18MI65号孔掘削時のコア記載（日本原子力研究開発機構・電力中央研究所, 2019）で割れ目充填物として炭酸塩鉱物の存在が認められた割れ目を対象にしてコア観察を実施し、結晶度が低く、天然の炭酸塩鉱物とは判定できなかったきわめて薄い炭酸塩鉱物が表面に張り付いた割れ目が認められたため、こうした割れ目表面を含むコア試料を7試料採取した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2022）。採取した試料は図2.5-2の通りである。

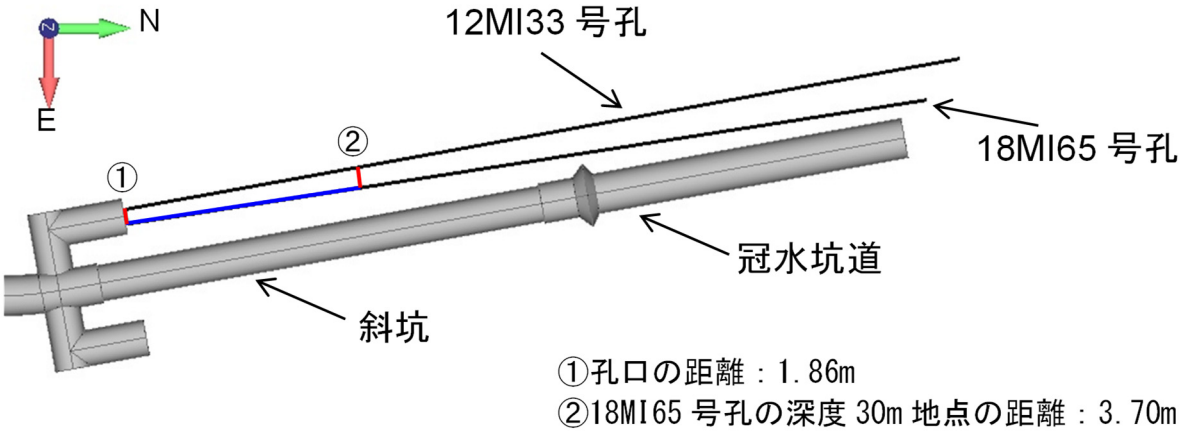
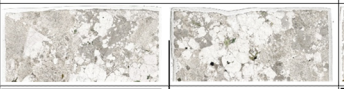
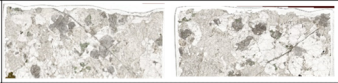
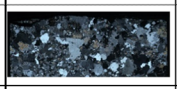
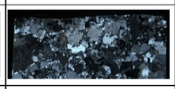
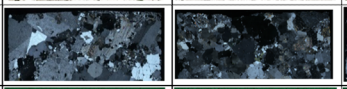
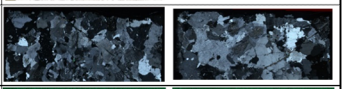
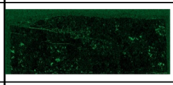
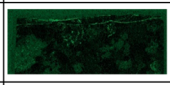
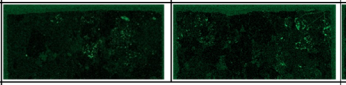
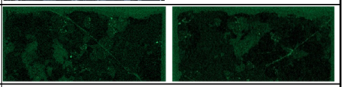


図2.5-1　セメントが使用されたボーリング孔（12MI33号孔）とコア試料を採取したボーリング孔（18MI65号孔）の位置関係
（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2022）

2) 岩石試料の観察

採取した試料を用いて岩石薄片を作製した。岩石薄片の作製に当たっては、図2.5-3に示すように、割れ目表面の沈着物を可能な限り含むように割れ目の鉛直に薄片を作製した。薄片作製に際しては、岩石を切断する必要があるが、その際に沈着物の剥離を避けるため、あらかじめ割れ目表面を樹脂で固め、その後に岩石を切断した。薄片は、付着物の拡がりを考慮し、1試料につき1 - 2枚を作製した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2022）。

令和2年度には試料採取とともに岩石薄片を作製し、作製した薄片の偏光顕微鏡観察を行った。その結果、いくつかの試料では、割れ目表面にごく細粒の沈着物が認められた。また、28.9 mと30.1 mの2試料では炭酸塩鉱物と推定される細粒物も確認された。沈着物の大部分はセメント系の物質と推定されたが、割れ目表面を覆った樹脂や天然の物質である可能性も考えられた。そこで、令和3年度には、偏光顕微鏡観察に加えて、電子顕微鏡観察および電子顕微鏡に搭載されたエネルギー分散型X線分析装置(EDS)を用いた局所の化学分析、走査型X線分析顕微鏡(SXAM)を用いた元素マッピングを実施した。その結果、26.9 mを除く試料でセメント系物質の可能性がある沈着物および炭酸塩鉱物が確認された（図2.5-3）。しかし、令和3年度に使用した電子顕微鏡観察では、薄片への炭素等の蒸着を行わずに低倍率での観察のみを行ったため、セメント系物質の存在を断定することはできなかった。このため、令和4年度は、より詳細な観察を行うため、薄片に炭素蒸着を行った上で高倍率での電子顕微鏡観察を実施した。これらの結果を図2.5-2にまとめた。

試料名	24.15m-1	24.15m-2	25.15m	26.9m
試料写真				
偏光顕微鏡写真 オープンニコル （OP）				
クロスニコル （CR） （画像の横幅が約3cm）				
X線分析顕微鏡によるCaマッピング				
観察結果	肉眼観察では割れ目表面に沈着物が認められた。薄片の偏光顕微鏡観察では，割れ目表面のごく一部にセメント系材料に由来すると推定される沈着物が確認された。電子顕微鏡観察の結果，沈着物の一部は炭酸化している。また，部分的にはCaが溶脱している可能性がある。	肉眼観察では割れ目表面に沈着物が認められた。薄片の偏光顕微鏡観察では，割れ目表面のごく一部にセメント系材料と推定される沈着物が確認された。沈着物の一部は炭酸化している。割れ目表面で認められる炭酸塩鉱物のほとんどは天然の鉱物脈である。	肉眼観察では割れ目表面に沈着物が認められた。薄片の偏光顕微鏡観察では，割れ目表面のごく一部に沈着物が確認された。電子顕微鏡観察の結果，この沈着物は非常に細粒で，主にSiとAlからなり，粘土鉱物の可能性が考えられる。Caに富む粒子（方解石と推定される）を伴うことがある。	肉眼観察では割れ目表面に沈着物が認められたが，薄片の偏光顕微鏡観察では，沈着物などは確認されなかったが，電子顕微鏡観察により10μm程度の極細粒の鉱物の集合部が認められた。ここでは，Si，Al，K，Ca，Naなどが検出され，方解石の微細な結晶が確認された。

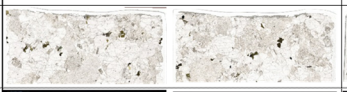
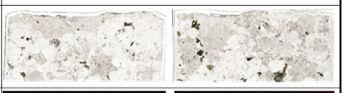
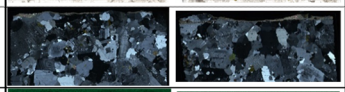
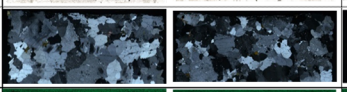
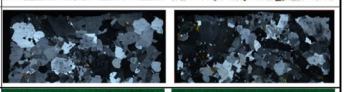
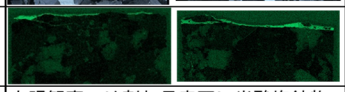
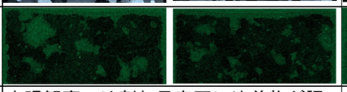
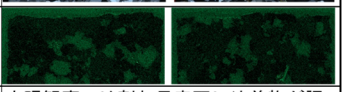
試料名	28.9m	30.1m浅部面	30.1m深部面
試料写真			
偏光顕微鏡写真 オープンニコル （OP）			
クロスニコル （CR） （画像の横幅が約3cm）			
X線分析顕微鏡によるCaマッピング			
観察結果	肉眼観察では割れ目表面に炭酸塩鉱物が認められた。薄片の偏光顕微鏡観察では，全体を炭酸塩鉱物脈が覆うこと，炭酸塩鉱物として比較的粗粒な物と細粒な物とが存在することが確認された。他の試料と比較すると，この炭酸塩鉱物の層は比較的厚いこと，観察範囲全体に分布し，かつ微小割れ目を充填していること，石英粒子を含むことから，天然の炭酸塩鉱物であると判断される。	肉眼観察では割れ目表面に沈着物が認められた。薄片の偏光顕微鏡観察では，割れ目表面のごく一部にセメント系材料と推定される沈着物が確認された。沈着物の一部は炭酸化している。電子顕微鏡観察の結果，10μm以下の鉱物片の隙間を極細粒（数μm）の粒子が埋める産状が確認された。ここでは，Caは鉱物片（方解石）に認められる。極細粒粒子は破砕（粉砕）されたものと推定される。	肉眼観察では割れ目表面に沈着物が認められた。薄片の偏光顕微鏡観察では，割れ目表面のごく一部にセメント系材料と推定される沈着物が確認された。沈着物の一部は炭酸化している。電子顕微鏡観察の結果，セメント系材料が確認された。 なお，このセメントは，試料採取したボーリング孔掘削時に使用されたセメントであり，セメント打設後，数日以内に採取された試料である。

図2.5-2　採取したコア試料の一覧表、偏光顕微鏡写真、X線分析顕微鏡による
Caマッピングの結果および観察結果のまとめ

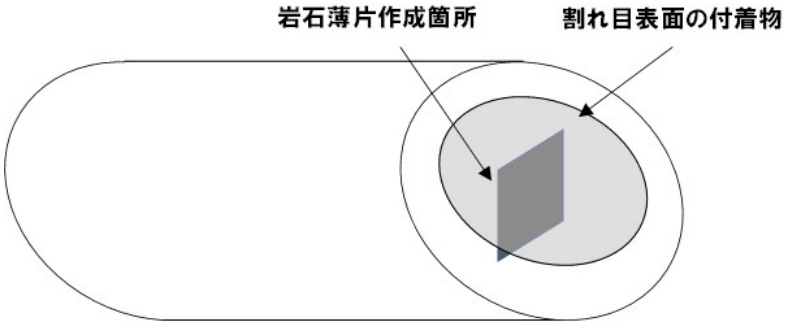


図2.5-3　岩石薄片の作製位置を示す概念図
（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2022）

3) 観察結果の解釈

令和3年度の観察においては、偏光顕微鏡（オープンニコル）下で暗灰色から黒色を呈し、X線分析顕微鏡(SXAM)でCaが認められる薄層をセメント系物質と推定した。しかし、令和4年度、こうした薄層を対象に電子顕微鏡観察を行ったところ、その多くは割れ目表面を固めた樹脂であることが明らかになった。この結果を踏まえ、再度、偏光顕微鏡観察を行い、岩石あるいは樹脂ではないと判断される部分（鏡下では細粒物の集合体に見える）を抽出し、その個所を対象に電子顕微鏡観察を行った。その結果、30.1 m深部面では、セメント系材料と推定される物質からなる厚さ1 mm以下の薄層が確認された（図2.5-4）。この試料のEDS分析により、Caはまだら状に分布していることが明らかになった。また、セメント系材料の表面（地下水と接する箇所）には、炭酸塩鉱物の薄層を確認した。なお、このセメントは、試料採取を行った18MI65号孔掘削時のケーシングパイプの固定に使用されたものであり、セメント注入後、ボーリング掘削によるコア採取までは数日しか経過していない。つまり、セメントと地下水の接触時間は数日程度であるものの、そのような短期間にセメントからCaが溶脱して炭酸塩鉱物が形成されたものと考えられる。

一方で、30.1 m深部面以外の試料では、セメントと断定できるものは見いだせなかったが、いくつかの試料では、図2.5-4に示したセメントと推定される物質と類似した産状を確認できた（図2.5-5）。これら試料では、薄片の他の箇所とは異なり、多くはないもののCaが有意に検出される。

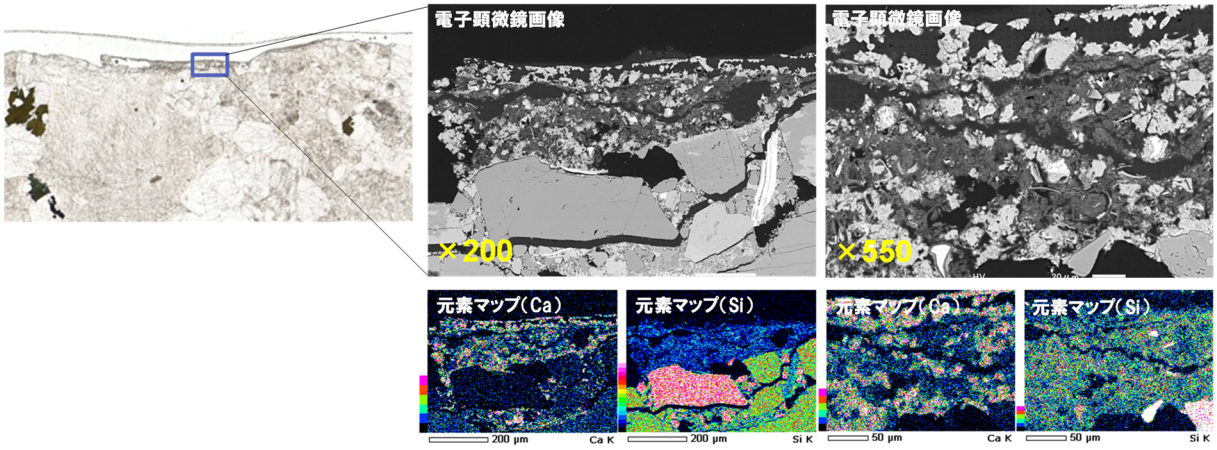


図2.5-4　電子顕微鏡観察を行った試料（30.1 m 深部面）の写真
（左）薄片写真（写真の幅は約3 cm）。薄片の上側が割れ目表面、（右）電子顕微鏡画像およびEDSによる元素マップ（CaとSi）

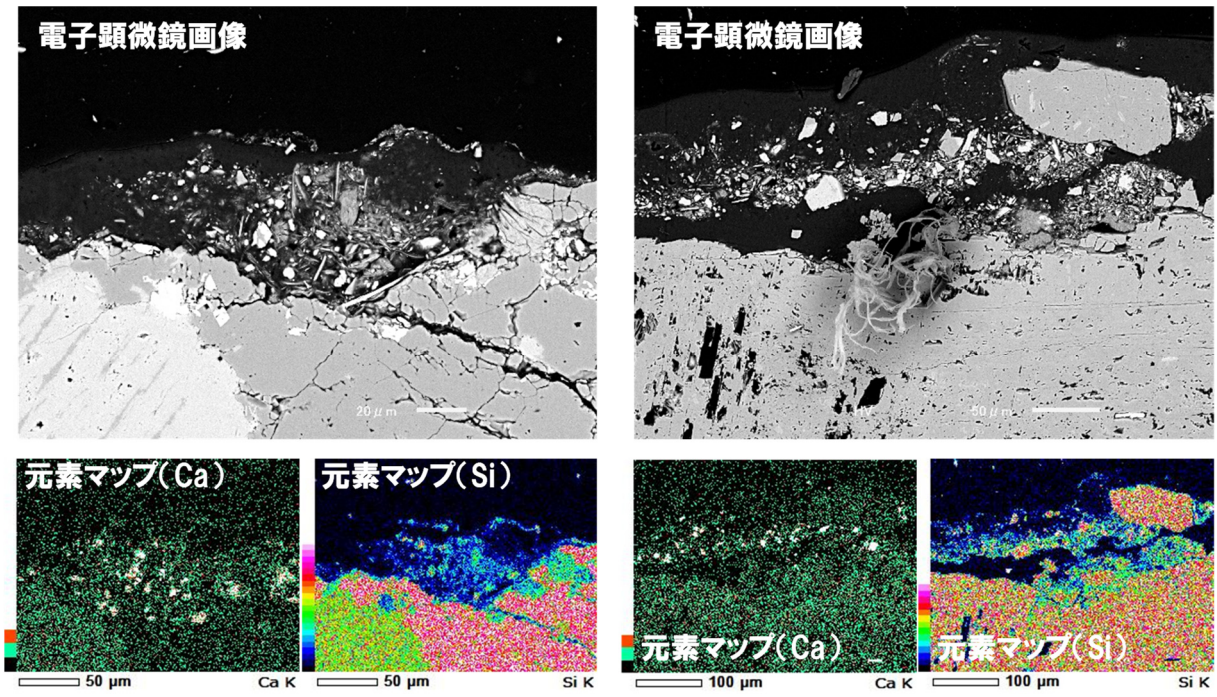


図2.5-5　電子顕微鏡観察を行った試料の写真およびEDSによる元素マップ（CaとSi）
（左）25.15 m、（右）30.1 m 浅部面

これら以外の場所では、セメントと推定される物質を確認することはできなかったが、花崗岩が細かく破砕された産状が認められた（図2.5-6）。日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター (2020)によれば、地下坑道掘削前に施工されたグラウト材と花崗岩の間に花崗岩起源の砕屑粒子が多量に含まれる領域が認められることがあるとされる。図2.5-6に示した産状は、日本原子力研究開発機構･原子力環境整備促進･資金管理センター (2020)の「花崗岩起源の砕屑粒子」の産状に類似する。この砕屑粒子の成因について日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター (2020)では述べられていないが、グラウト材注入時に周囲の岩石を破壊しながらグラウト材が侵入したことによるものと考えられる。仮に、今回観察した破砕されたような産状が同様のメカニズムで形成されると考えると、ケーシングパイプ固定のためのセメント注入時に、セメントが周辺の岩石を破壊しながら割れ目に侵入した可能性が考えられる。この場合、破砕された領域の外側（割れ目側）にはセメントが存在することが期待されるが、図2.5-6の試料の場合、粒子を埋める細粒物質がセメント材である可能性があるものの、セメント材は観察されない。このことは、セメントが沈着しなかったか、あるいは一旦、沈着したセメントが地下水との接触で溶脱したことを示すと考えられる。

令和3年度の検討においては、セメント系物質と推定される薄層の成因として、①セメント注入時にセメントが割れ目に侵入して形成されたもの、②セメントに起因するアルカリプルームによって形成されたものの2つを考えた（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2022）が、令和4年度の検討からは①の可能性が高いと考えられる。

なお、これまでの観察で、割れ目沿いおよび割れ目周辺母岩中での鉱物の溶解や二次鉱物の生成といったアルカリプルームの影響の痕跡は確認されなかった。

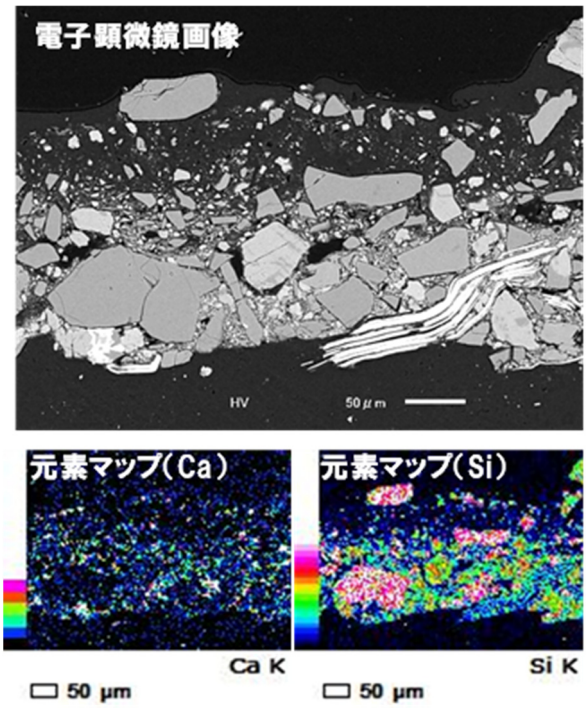


図2.5-6　電子顕微鏡観察を行った試料の写真およびEDSによる元素マップ（CaとSi）
（30.1 m 浅部面）

(3) 5か年の成果と今後の課題

令和4年度は、令和2年度に採取した割れ目表面の沈着物を対象として、電子顕微鏡観察、電子顕微鏡に搭載されたエネルギー分散型X線分析装置(EDS)を用いた局所分析を行った結果、セメント系物質と推定される沈着物と炭酸塩鉱物に加えて、セメント注入時に周辺岩盤が破砕されたと推定される細粒物の集合体が確認された。この結果と令和2年度、令和3年度に実施した沈着物の肉眼観察および偏光顕微鏡観察、電子顕微鏡観察、電子顕微鏡に搭載されたエネルギー分散型X線分析装置(EDS)を用いた局所分析、走査型X線分析顕微鏡(SXAM)を用いた元素マッピングの結果とを合わせると、この炭酸塩鉱物はセメント系材料の炭酸化によって形成されたと考えられ、セメント系物質はボーリング孔掘削作業時のセメント注入時にセメントが割れ目に侵入して形成されたと考えられた。この一方で、割れ目沿いおよび割れ目周辺母岩中での鉱物の溶解や二次鉱物の生成といったアルカリプルームの痕跡は確認されなかった。

炭酸塩鉱物の形成に関して、試料採取したボーリング孔掘削時に使用されたセメントについて、注入後、数日以内にコアリングされて地下水との接触を断たれた試料（深度30.1 m深部面）であっても炭酸塩鉱物の形成が確認された。平成30年度に実施したセメント硬化体と岩盤の供試体の間に地下水を通水する試験の結果、$Ca(OH)_2$の溶解とそれに続く方解石の形成という反応が考えられ、この反応は通水後4日までに起こったと推定されている（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019）。上記の観察結果からは、この反応はより短期間に生じる可能性が示唆される。

花崗岩中におけるアルカリプルームの影響については、室内試験あるいは数値解析の結果が報告されている（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2022）。例えば、大和田ほか (2000)は粉砕した花崗閃緑岩2 gに対して試験溶液2,000 gを使用した浸漬試験を行い、板状および針状の析出物を確認している。また、加藤ほか (2000)は粉砕した花崗閃緑岩を

使用したカラム試験を行い、方解石やC-S-H系化合物の析出を確認している。数値解析においては、電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構（2005)は1万年後に岩盤中に二次鉱物としてクリノタイロライトが生成することを報告している。今回の観察で、地下坑道周辺の花崗岩に対してアルカリプルームの影響が認められなかった理由としては、仮にアルカリプルームが形成されていたとしても、反応時間（セメント注入から試料採取したボーリング孔掘削までの期間）が5年程度と短かったこと、ボーリング孔で観測されたpHは11程度と高アルカリプルームで想定されるpHよりも低かったことなどが考えられる。さらには、令和3年度の報告書でも述べたように、瑞浪超深地層研究所深度500 m研究アクセス北坑道周辺での花崗岩の空隙率は1 %程度（最大1.5 %：桑原ほか, 2015）と比較的小さいことも影響した可能性がある。今回の観察においてはアルカリプルームの影響が認められなかったが、坑道周辺やボーリング孔で使用されたセメントの量が処分場で使用されるセメントの量に比べると非常に少ないため、長期的には割れ目周辺の母岩にアルカリプルームの影響が及ぶ可能性を否定するものではないことに注意が必要である。

平成30年度から令和4年度までの5年間の検討により、地下施設でのグラウト施工およびボーリング孔のセメンチングを事例として活用し、原位置から採取したグラウト材 - 花崗岩接触部の試料や割れ目表面の沈着物を用い、セメント系材料が岩盤へ与える影響やそのプロセスの理解に関する試験・分析を実施した。その成果として、グラウト材などのセメント系材料と花崗岩の境界部においては方解石の析出が確認され、方解石はセメント系材料と地下水が接触し始めて数日以内に形成される可能性が示された。また、原位置におけるグラウト材の変質状態は試料採取箇所により異なること、セメント系材料が使用されたボーリング孔近傍の割れ目沿いおよび割れ目周辺母岩中では母岩を構成する鉱物の溶解や二次鉱物の生成といったアルカリプルームの痕跡は確認されなかったことが明らかになった。

本課題においては、地下水水質を踏まえたアルカリプルーム反応輸送挙動評価モデルへの知見の提供を目的として、室内試験データ拡充による概念モデルの妥当性の確認や原位置データの拡充に取り組んできた。これまでに、セメント系材料が岩盤に与える影響について、グラウト施工およびボーリング孔のセメンチングを事例として検討してきた。これらの検討によって得られたセメント系材料の溶解とそれに続く方解石の形成という反応が極めて短期間に起こるという知見は、今後、アルカリ影響に係るシナリオの検討や影響評価モデルによる解析を行う際、対象とする時間や条件に応じて、適宜、シナリオの見直しやモデルによる解析方法に反映されるとともに、解析結果の妥当性確認において活用されることが期待される。

2.5.2 亀裂性岩盤を対象とした母岩中アルカリプルーム反応輸送挙動評価

(1) 背景と目的

コンクリート支保やTRU廃棄物の充填材などに使用されるセメント系材料は、長期のうちに地下水に溶出してアルカリプルームとなり、岩盤中を移動するとともに、化学反応によって岩石中の固相および液相（地下水および岩石中の間隙水）の性状を変化させる可能性がある。これらの変化は、天然バリア中の核種移行挙動に影響を及ぼし、その結果、母岩が有するバリア性能の長期健全性を阻害する可能性がある。そのため、ニアフィールド環境の長期変遷を評価するための解析技術の構築においては、アルカリプルームの移動と岩盤との化学反応によって生じる固相および液相の変化の連成現象を適切に扱うことが可能な反応輸送解析モデルの開発が求められている。既往の検討（例えば、電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構, 2005）において、主として計算負荷などの制約から用いられている均質な連続体を仮定した近似的なモデルは、特に、亀裂性岩盤を対象とする場合には、アルカリプルームの影響に関する時間・空間スケールを概略的に把握する上では有用なものの、以下の観点から、必ずしも実際の現象を的確に表現するものでは

ないと考えられる。

- 岩石の化学的変質による地下水流動の変化など（連成現象）の取り扱い：アルカリプルームと岩石の反応により、岩石中の鉱物の溶解および二次鉱物の沈殿が生ずる可能性がある。二次鉱物の沈殿が初生鉱物の溶解に対して卓越する場合では、岩盤中の亀裂や間隙の閉塞が、逆に溶解が卓越する場合では、岩盤中の亀裂や間隙の開口によって地下水流動場や物質移動特性が顕著に変化する可能性がある。これに対して、前出の近似的なモデルでは初期の水理や物質移動特性などを固定しているため、このような連成現象を予測することができない。このことは、従来の検討結果がアルカリプルームの影響を的確に表現していない可能性があることを示唆するものと考えられる。
- 岩盤中の不均質性の取り扱い：天然バリア機能を期待する岩盤中には種々の透水性をもつ亀裂が分布しており、近年の安全評価では、不均質かつ不連続な地下水流動場での核種移行を想定したモデル（亀裂ネットワークモデルなど）が使用されている。セメント系材料に由来するアルカリプルームについても、同様の地下水流動場を移動して地下水および岩石と反応するものと考えられるが、その不均質性および不連続性が考慮されていない近似モデルでは、核種移行のクリティカルパスとなる透水性亀裂によって遠方まで移行する効果を考慮していないため、アルカリプルームの予想される影響範囲は廃棄体付近に留まるといった過小評価となる可能性が否定できない。

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

これまで、「第2次取りまとめ」（核燃料サイクル開発機構, 1999a）のような、わが国の地質環境における平均的な動水勾配や亀裂の開口幅を想定した場合、坑道のコンクリート支保などに由来するアルカリプルームが処分坑道周辺の亀裂性岩盤における核種移行に及ぼす影響は、坑道近傍数m程度の領域に留まり、核種移行評価の対象とした100 m下流までのニアフィールド岩盤全域にわたって影響が及ぶことは想定されていなかった（日本原子力研究開発機構, 2015）。しかしながら、このことは、岩盤中の移行経路として想定した亀裂を表す一次元チャンネルと、その周辺の岩盤マトリクスから構成される二重空隙モデルによる解析結果に基づくものであり、二次元的な「面」である亀裂が分布し、三次元のネットワーク状の移行経路が想定される現実の三次元の岩盤を対象に、坑道近傍数m程度の領域にセメント影響が留まるとする、上記の想定が妥当であるかについては確認されていなかった。

そこで、平成30年度は、亀裂面の二次元的な広がりがアルカリプルームの反応輸送挙動に及ぼす影響を把握することを目的として、岩盤中の単一亀裂を二次元平行平板でモデル化した準三次元モデルを構築して、亀裂内部を流れる地下水とコンクリートとの反応輸送解析を行った（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019）。このような解析モデルの概念図を図2.5-7に示す。

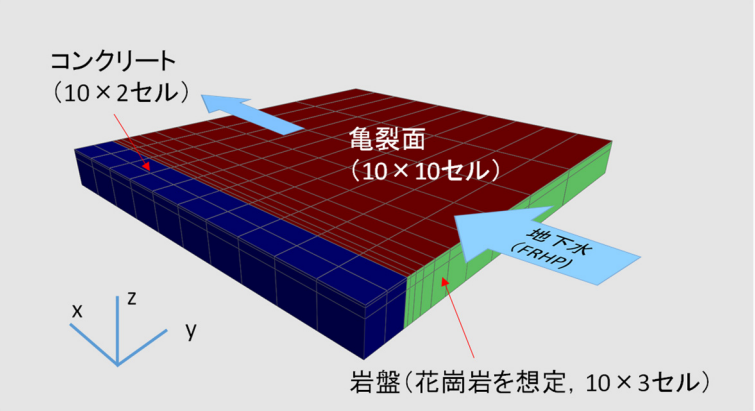


図2.5-7　亀裂を二次元平行平板と仮定した準三次元モデルの概念
（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019）

その結果、亀裂内部での二次鉱物の沈殿により閉塞された領域を迂回する地下水流路が生じることで、セメント影響がより下流に及ぶ可能性があるなどの示唆を得た。セメントによる影響がニアフィールド岩盤のより下流に及ぶ場合には、亀裂の存在によって物質輸送特性が不均一に分布する流動場の影響と、岩石の溶解・二次鉱物の沈殿などによる地下水流動場の変化の影響を考慮したモデルで解析評価を行う必要が生じる可能性がある。このような解析検討を通じて、セメント影響の及ぶ範囲や程度を把握することは重要である。平成31年度は、上記に示した平成30年度の試解析の結果などを参考にしつつ、処分孔の支保工とそれに交差する単一の亀裂を対象とした反応輸送解析モデルを構築し、支保工からのアルカリの影響が処分孔近傍に留まるか否かの条件を把握することを目的とする感度解析を行った（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2020）。また、この結果の分析などを通じて、支保工やグラウト材に由来するアルカリプルームがニアフィールド岩盤に及ぼす影響を評価する手法の高度化に向けた研究アプローチを提示した（日本原子力研究開発機構･原子力環境整備促進･資金管理センター, 2020）。令和2年度は、平成31年度に実施した感度解析の中からアルカリプルームの影響の拡がりが異なる二つのケースを選定し、各々のケースに対する反応輸送解析の結果を再分析した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2021）。また、平成31年度の解析では、いずれのケースでも岩盤亀裂に隣接するコンクリート支保との境界において、二次鉱物の沈殿により間隙率が著しく低下(1 %)し、亀裂中へのアルカリ供給が抑制された（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2020）。令和2年度の解析では、間隙率が低下してもアルカリ供給が継続することを仮定し、解析条件を見直すと共に、亀裂中でのアルカリプルームの影響の違いの有無を調べた（日本原子力研究開発機構･原子力環境整備促進･資金管理センター, 2021）。さらに、反応輸送解析モデルを用いた岩盤状態変遷の評価に関して、地層処分以外の他分野における類似検討事例に係る文献調査を行い、モデル開発の今後の方向性についても整理した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2021）。令和2年度までの検討により、岩盤中での核種移行評価の観点で重要となる状態変遷プロセス（物質移行の促進もしくは遅延に影響を与えるプロセス）への影響が大きい現象や要因（例えば、岩盤マトリクスの溶解、亀裂中での二次鉱物の溶解・沈殿、亀裂中での透水量係数の大小等）が抽出され、それらの相互関係に伴う状態変遷の違いを把握するための解析手法を整備した。令和3年度は、これまでの解析で着目してきたプロセスを考慮しつつ、一次元の単純な系を対象とし、アルカリプルームによる岩盤の状態変遷プロセス（物質移行の促進もしくは遅延に影響を与えるプロセス）の定量

的評価に資する上で重要となる知見を抽出するための解析的な行うと共に、亀裂の開口／閉塞に影響を与える条件も概略的に把握した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2022）。

令和4年度は、令和3年度に利用した反応輸送解析コードの適用性確認の一環として、花崗岩試料を用いた高pH溶液の通水による人工単一亀裂の透水性と開口幅の変化に係る室内試験結果(Tashiro et al., 2017)を対象にした再現解析を主に行った。そして、再現解析の結果を踏まえつつ、亀裂性岩盤を対象にアルカリプルームの影響に伴う亀裂の開口（物質移行の促進）が継続する／閉塞（物質移行の遅延）に向かう場合の条件の定量化を図るために必要な課題についても整理した。

(2) 実施内容

花崗岩試料を用いた高pH溶液の通水による人工単一亀裂の透水性と開口幅の変化に係る室内試験として、Tashiro et al. (2017)による試験例を対象とし、反応輸送解析コードによるモデル計算との比較を行った。Tashiro et al. (2017)の例では、マイクロフローセルを用いた試験により、花崗岩中の人工単一亀裂に高pH溶液を通水し、それに伴う亀裂の透水性の変化と岩石側の変化の様子が調べられており、一連の試験の内容については、Niibori et al. (2012)、Kurata et al. (2014)、Chida et al. (2015)およびKurata et al. (2017)にもまとめられている。ここでは、これらの論文に記された情報をもとに、室内試験の概要について整理した。

1) モデルによる再現解析の対象とした室内試験の概要

マイクロフローセルを用いた試験では、SiCの微粉末を用いて表面を研磨された花崗岩の人工単一亀裂は、テフロン製の基盤の上に設置された。花崗岩試料とテフロン製の基盤の間には、厚さ80 μmのテフロンシートが挿入され、このテフロンシートの厚さに相当する部分に高pH溶液が通水されるように設定された。人工単一亀裂は、長さ6 cm、幅0.5 cm、開口幅は80 μm（テフロンシートの厚さに相当）であり、高pH溶液は、テフロン製の基盤の下側から通水され、上側に位置する花崗岩の表面と接した後、下流側のテフロン製の基盤の下側から排出された。試験では、定流速ポンプを用いて、25 °Cの温度条件で、1 mL/hrの流速で高pH溶液の通水がなされた。また、試験期間中は、マイクロフローセルの上流側において圧力計測が行われ、下流側では通水液のサンプリングが行われた。

試験の結果、圧力の変化が観測され、この変化は亀裂の透水性の変化によるものと解釈された。また、この様な透水性の変化は、亀裂表面に生じた二次鉱物（C-S-H相）の沈殿やそれに伴う亀裂の間隙や開口幅の変化と関連することが示唆された。

Tashiro et al. (2017)により見積もられた初期の亀裂の透水性は、5.3E-10 m^2であり、この時のダルシー流速は250 cm/hrであった。この条件では、初期の亀裂の状態において、高pH溶液は1.44秒で通水することになる。

マイクロフローセルを用いた高pH溶液の通水試験では、初期溶液の$Ca(OH)_2$濃度を変えた複数の試験が行われたが、今回の再現解析では、透水性の変化が比較的明瞭に判りやすい$Ca(OH)_2$濃度を7.5 mMに設定した場合の試験結果の例を対象にした。この試験結果の例では、数時間程度で、亀裂の透水性が初期の5.3E-10 m^2から3.0E-10 m^2程度に低下していた。なお、亀裂の透水性が低下後、再び、透水性が増加しており、これは亀裂表面に生じた二次鉱物が高pH溶液の通水により流され、二次鉱物が剥ぎ取られたために生じたのではないかと推察された。試験では、このような透水性の変化が周期的に何回か生じていた。また、周期的な透水性の変化は、試験条件として流速が早い場合の方がより顕著に生じていた。

試験後の花崗岩亀裂表面の形状観察の結果からは、亀裂表面には二次鉱物が生じており、その厚さは場所毎に不均一であることが確認された。なお、一部の試験後試料に対する表面形状観察の結果では、観察した領域内において、亀裂表面の二次鉱物の厚さが下流側の方が厚くなるような傾向も認められたが、このような傾向が亀裂全体で認められたかどうかは不明であった。

2) 解析体系および解析条件の設定

上述したマイクロフローセルを用いた試験を対象に、反応輸送解析コードの適用性確認の一環として、試験結果の再現解析を試みた。解析コードとしては、令和3年度の検討と同様に、市販のコードで地球化学の分野で幅広く利用されているGeochemist's Workbench(GWB)のX2tモジュール(Bethke, 2008)を用いた。以下に、解析体系および解析条件の詳細について整理した。

① 解析体系

上述したマイクロフローセルを用いた試験系での概念をもとに、解析体系として図2.5-8に示す様な設定を行った。花崗岩の亀裂方向については、6 cmの長さを10のノード（要素）に分割し、各要素は0.6 cmとした。また、花崗岩のマトリクス方向については、7の要素に分割し、そのうち、亀裂部分については、初期の開口幅である80 μmとし、その他のマトリクス部については、亀裂表面に近い5要素については0.8 cmとし、残りは1.0 cmとした。なお、亀裂の水平方向の拡がりとしては、試験系におけるテフロンシートの幅に相当する0.5 cmを1つの要素として設定した。また、亀裂部で分割された10要素のうち、亀裂中での状態変化を比較するため、解析結果は亀裂の入口と出口に加え、その間の2個所（図2.5-5中でa - dに相当し、aは亀裂入口から0.3 cm、bは2.1 cm、cは3.9 cm、dは5.7 cmの位置になる）について結果を整理した。

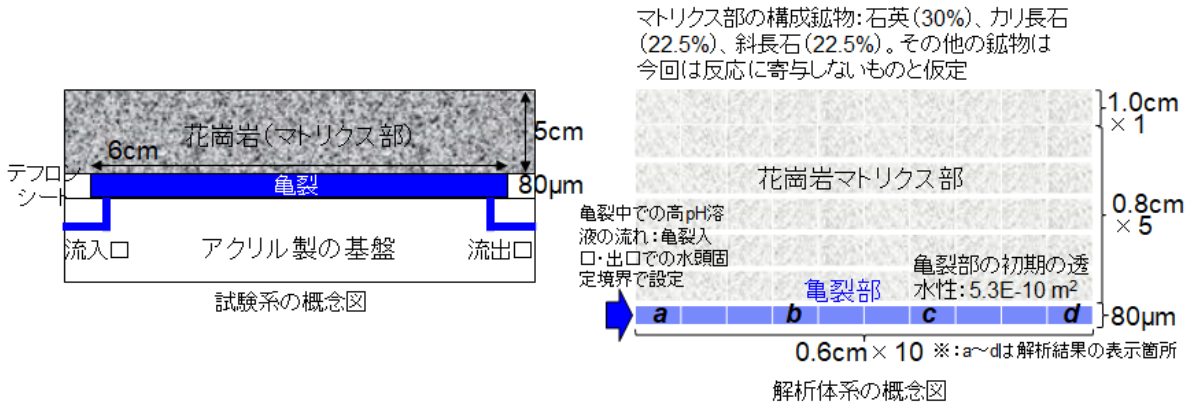


図2.5-8　試験系の概念図に基づいた解析体験の概念図

② 解析条件

亀裂中での高pH溶液の流れの設定にあたっては、本解析では、亀裂の入口および出口における水頭固定境界により設定した。なお、前述の室内試験の概要で述べたように、試験では透水性の変化が周期的に何回か生じており、このような変化の要因として高pH溶液の通水に伴う二次鉱物の剥奪の可能性が推察されていた。このような現象が生じた場合、透水性に限らず、水圧の変動にも影響するが、本解析ではこのような変化の影響を模擬した解析は困難であることから、再現解析にあたっては、1つの周期における変化のみを対象にした。今回の解析では、高pH溶液の通水後、3時間程度で生じた透水性変化のケースを対象に再現解析を実施した。

試験に用いられた高pH溶液の初期溶液は、NaOH溶液を添加し、pH12.5に調整された$Ca(OH)_2$

濃度が7.5 mMの溶液である。花崗岩マトリクス部の初期の間隙率は、2 %に設定し、亀裂に通水された高pH溶液は、花崗岩表面からマトリクス部に拡散し、花崗岩中の構成鉱物と反応すると想定した。この際の拡散係数は、1.0E-10 m²/sと仮定した。花崗岩マトリクス中の初生鉱物として反応に寄与するものとしては、Kurata et al. (2014)の報告値を参考に、カリ長石として22.5 wt%、斜長石（本解析では、曹長石を仮定）として22.5 wt%、石英として30 wt%とし、その他の構成鉱物は、今回の解析上、反応性に乏しい鉱物として考慮しなかった。

鉱物の溶解反応については、遷移状態理論（TST）に基づく速度論による速度式を基に解析した。速度定数等は、Palandi and Kharaka (2004)による25 °Cの値を用いた。各鉱物の反応表面積については、溶液の単位体積あたりに対する鉱物の比表面積として、通常良く用いられる方法の一つである鉱物の形状を立方体と仮定した場合の比表面積を算出し、解析に用いた。

間隙率および透水性の変化については、令和3年度に行った解析（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2022）の場合と同様の式を適用し、高pH溶液と岩石（鉱物）との化学反応に伴う亀裂および花崗岩マトリクス中で生じる間隙率・透水性の変化と物質輸送の変化を逐次取り込んだ解析を行った。

3) 解析結果

図2.5-9に、亀裂入口からの異なる距離における亀裂中での溶液組成に対する様々な鉱物の飽和指数の時間変化に関わる解析結果を示す。図2.5-9において、鉱物の飽和指数(saturation index: Q/K)が1の場合、その鉱物は溶液から沈殿し得ることを意味する。一方、飽和指数が1未満の場合、仮にその鉱物が存在すれば、鉱物は溶液に対して未飽和であり、溶解することを意味する。図2.5-9を見ると、結晶質のC-S-H相であるjaffeite ($Ca_6Si_2O_7(OH)_6$)のみが亀裂入口から5.7 cm離れた場所で沈殿することが示唆された。その他のC-S-H相である結晶質相のC_2SH_alpha ($Ca_2HSiO_4(OH)$)やヒレブランド石($Ca_2SiO_3(OH)(H_2O)_{0.17}$)、種々のCa/Si比からなるC-S-Hゲル相については、飽和指数は1より小さく、これらは亀裂中の溶液に対して未飽和であるため、沈殿する可能性は無い。また、図2.5-6から判る通り、jaffeiteが沈殿し得る状態は、亀裂入口から5.7 cm離れた場所においても時間的に限定的であり、高pH溶液の流入後、数十分程度の間のみである。その後は、jaffeiteに対して未飽和となるため、沈殿したjaffeiteは、再溶解すると考えられる。なお、亀裂入口から5.7 cm離れた場所において、jaffeiteに対して飽和に達した間に沈殿した沈殿量は、非常にわずかであり、このため亀裂の透水性は初期の透水性と全く変わらなかった。

上述したように、亀裂部分における二次鉱物の生成量（沈殿量）が非常に少ない解析結果となったが、この要因を検討するため、花崗岩マトリクス部および亀裂部における間隙水中のSiおよびAl濃度の経時変化を整理した（図2.5-10）。図2.5-10に示される通り、花崗岩マトリクス部の間隙水中のSiおよびAl濃度は、亀裂部中のそれらと比べて、2桁以上高いことが判る。花崗岩マトリクス部の間隙水は、初生鉱物として高pH溶液との反応に寄与するカリ長石・斜長石・石英の溶解により、溶液中のSiおよびAl濃度が増加し、マトリクス部側から亀裂部側への濃度勾配に伴い、拡散により、亀裂部側に移行する。しかしながら、亀裂部側に移行したこれらの元素は、亀裂中での溶液の移行が速いため、亀裂中の間隙水の濃度は増加せず、このため亀裂中において二次鉱物の生成が可能な場所や時間が非常に限定された結果になったと推察された。ちなみに、図2.5-10において花崗岩マトリクス部および亀裂部におけるSi濃度が上の凸の形状を示すが、これは間隙水の溶液組成がjaffeiteに対して飽和になった時期に相当していた。

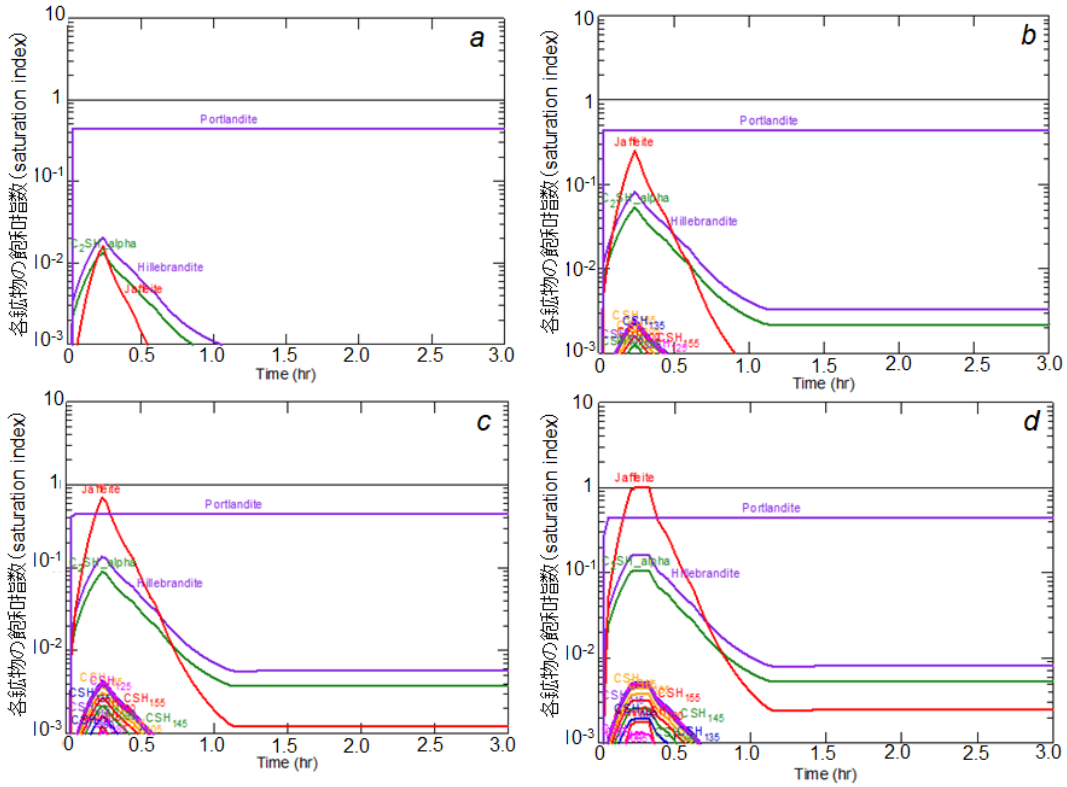


図2.5-9　亀裂入口からの異なる距離における亀裂中での溶液組成に対する様々な鉱物の飽和指数の時間変化に関わる解析結果
（亀裂入口からの距離：a=0.3 cm、b=2.1 cm、c=3.9 cm、d=5.7 cm）

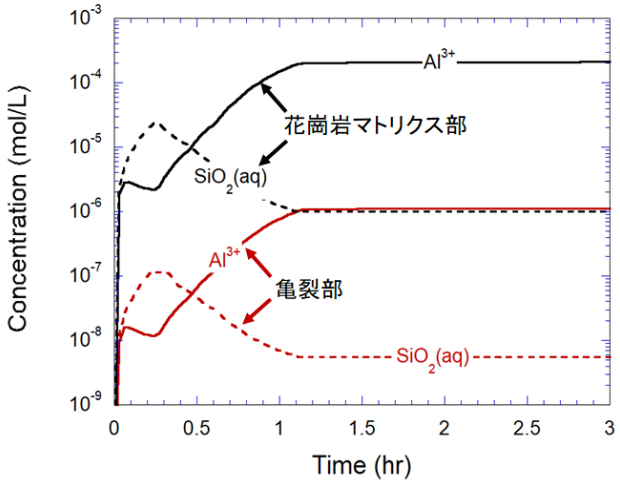


図2.5-10　花崗岩マトリクス部および亀裂部における間隙水中のSiおよびAl濃度の経時変化

上述したような解析条件の設定では、マイクロフローセルを用いた試験に対するモデル解析による再現性は低い結果となった。一方、モデル解析による再現性を向上させるためには、亀裂部における間隙水の元素濃度の増加（試験結果では、二次鉱物としてC-S-H相の沈殿が示唆されているため、特にSi濃度の増加）が期待される条件を検討することが必要であることも示唆された。そこで、亀裂中を流れる高pH溶液の流速を遅くした場合や花崗岩マトリクス部から亀裂部へ移行する溶存成分のフラックスが高くなる場合を想定した解析条件を設定し、モデル解析による試験

結果の再現性を向上できないかどうか検討した。

① 単一亀裂中でのダルシー流速を変えた場合

上述した解析では、Tashiro et al. (2007)の試験条件を近似するダルシー流速(250 cm/hr)になるように亀裂の入口および出口における水頭差を設定した。そこで、ダルシー流速を1/10した状態での解析を行い、解析結果への影響を見ることにした。この条件では、時間あたりの流量は、0.1 mL/hrとなり、Kurata et al. (2017)がマイクロフローセルを用いて異なる流量条件で行った試験(0.06 mL/hr)に近い値となった。このため、解析における流速の設定として、実際の試験で行われた条件と比較しても、極端に小さい流速条件とはなっておらず、妥当な設定であると考えられる。

図2.5-11に、図2.5-9と同様に亀裂入口からの異なる距離における亀裂中での溶液組成に対する様々な鉱物の飽和指数の時間変化に関わる解析結果を示す。

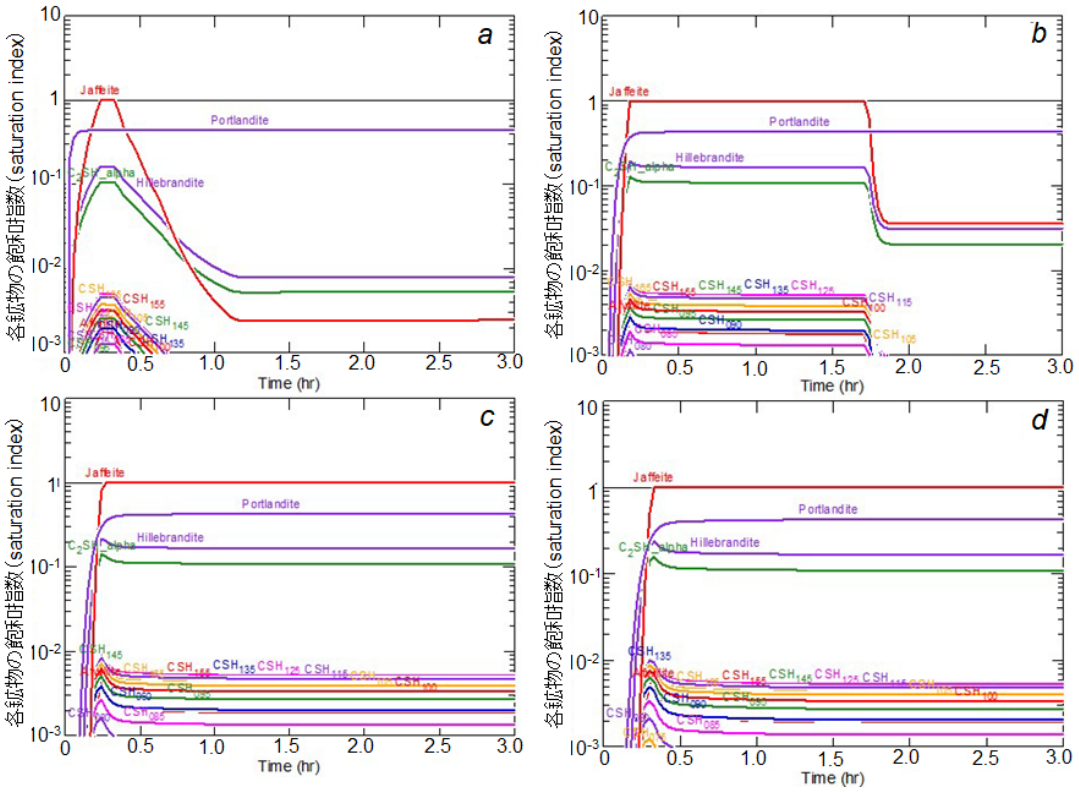


図2.5-11　亀裂入口からの異なる距離における亀裂中での溶液組成に対する様々な鉱物の飽和指数の時間変化に関わる解析結果（ダルシー流速を1/10にした場合）
（亀裂入口からの距離：a=0.3 cm、b=2.1 cm、c=3.9 cm、d=5.7 cm）

ダルシー流速が遅くなることにより、高pH溶液が亀裂中を通過するまでに要する時間が長くなり、結晶質のC-S-H相であるjaffeiteは亀裂全体にわたり沈殿が生じ得る条件となった。一方、jaffeite以外のC-S-H相については、図2.5-9の場合と同様に溶液に対して未飽和であり、沈殿の可能性は無かった。また、図2.5-9と図2.5-11を比較すると、亀裂入口からの距離に応じたjaffeiteの飽和状態の変遷が異なる。図2.5-9では、jaffeiteは、亀裂入口から離れた箇所（亀裂入口から5.7 cm）において、高pH溶液の通水後、一時的に飽和状態に達した後、未飽和となる。同様な傾向は、図2.5-11における亀裂入口に近い箇所（亀裂入口から0.3 cm）で認められ、ダルシー流速が遅くなることで、亀裂入口に近い上流側でのSi濃度が増加し、jaffeiteが飽和状態になったと推察された。

なお、亀裂入口から離れるにつれ、jaffeiteが飽和に達しやすくなることから、亀裂中における二次鉱物は、亀裂の上流側よりも下流側の方が生成（沈殿）し易いと想定された。しかしながら、このようにダルシー流速が遅くした場合でも、二次鉱物の沈殿量は、非常にわずかであり、このため亀裂の透水性は初期の透水性と比べて著しい変化は無かった。

② 花崗岩マトリクス部から亀裂部へ移行する溶存成分のフラックスを変えた場合

花崗岩マトリクス部から亀裂部へ移行する溶存成分のフラックスを変えるための方法として、ここでは、二次鉱物として沈殿を考慮する鉱物として、Tashiro et al. (2017)による試験で生成が推定されたC-S-Hゲル相以外の鉱物は考慮しないという仮定を設定した。この仮定を設けることで、C-S-Hゲル相以外の鉱物が過飽和（飽和指数が1以上）になっても、鉱物の沈殿は生じないため、花崗岩マトリクス部の溶存元素濃度（特にSi濃度）が増加し、亀裂部側への溶存成分の拡散によるフラックスを高くできると考えられる。また、この仮定は、C-S-Hゲル相以外の鉱物の沈殿速度がC-S-Hゲル相よりも非常に遅いという意味合いにもなり、結晶質のC-S-H相であるjaffeite等が室温で数時間程度の期間内に沈殿するという想定よりは、鉱物の沈殿速度に関わる速度論の観点からも適切な仮定であると考えられる。

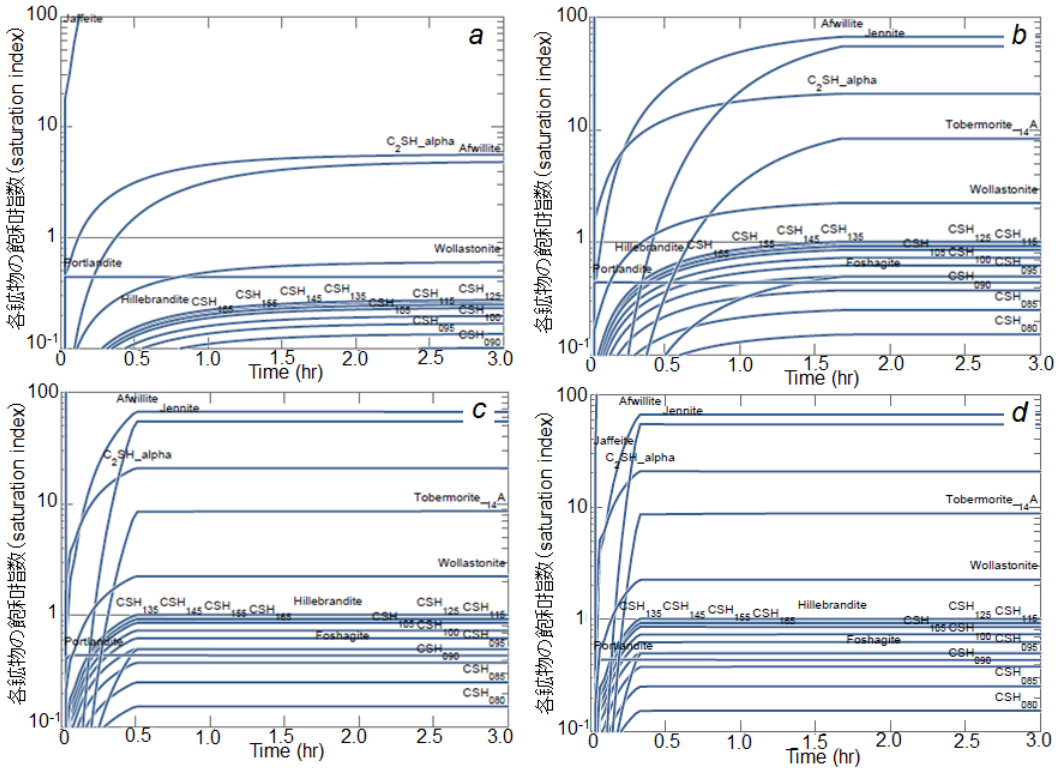


図2.5-12　亀裂入口からの異なる距離における亀裂中での溶液組成に対する様々な鉱物の飽和指数の時間変化に関わる解析結果（亀裂部へ移行する溶存成分のフラックスを変えた場合）
（亀裂入口からの距離：a=0.3 cm、b=2.1 cm、c=3.9 cm、d=5.7 cm）

図2.5-12に、図2.5-9および図2.5-11と同様に亀裂入口からの異なる距離における亀裂中での溶液組成に対する様々な鉱物の飽和指数の時間変化に関わる解析結果を示す。二次鉱物としての沈殿可能性のある鉱物をC-S-Hゲル相に選定することで、他の結晶質のC-S-H相は溶液に対して過飽和になるものの沈殿せず、花崗岩マトリクス部の溶存元素濃度が増加し、それに伴い亀裂中の

溶液のSi濃度も増加することで、亀裂の下流側の方からC-S-H相が飽和に達し易い状態になった。亀裂中でのC-S-H相の沈殿は、亀裂の下流側ほど多くなると推定される。

このような解析条件における亀裂部の透水性や間隙の経時変化について、図2.5-13に整理した。図2.5-13に示される通り、この解析条件では、これまでの解析結果と異なり、亀裂部の透水性が亀裂の下流側においてわずかに低くなり、それに対応して、亀裂部の間隙も初期状態に比べて、わずかに小さくなっていることが判る。しかしながら、この解析条件においても二次鉱物として沈殿するC-S-Hゲル相の沈殿量が少なく、Tashiro et al. (2017)によるマイクロフローセルを用いた試験で観測されたような透水性の低下（5.3E-10 m²から3.0E-10 m²に低下）を再現することは困難であった。

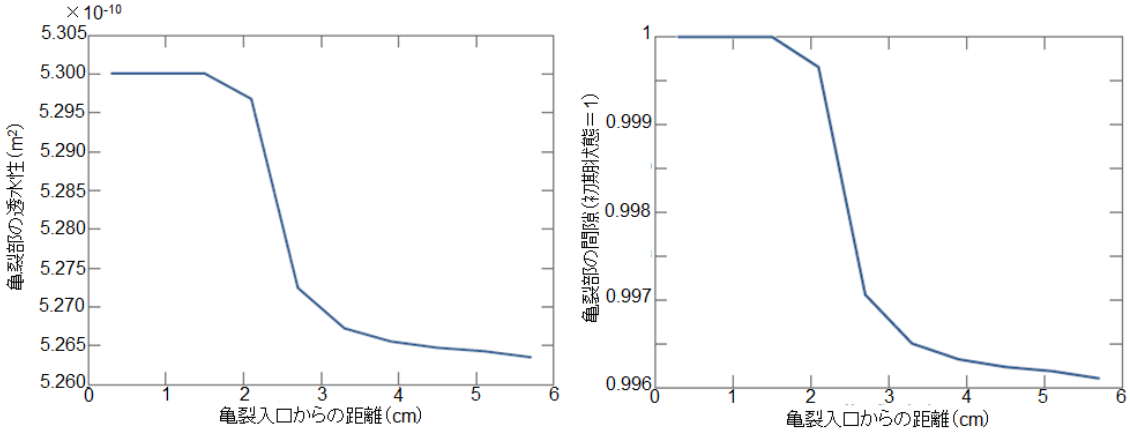


図2.5-13　亀裂部の透水性および間隙の経時変化（左図：透水性、右図：間隙）

上述した2つの異なる解析条件により、Tashiro et al. (2017)によるマイクロフローセルを用いた試験で推測・観察された結果（二次鉱物としてのC-S-H相の沈殿やそれに伴う亀裂の間隙や開口幅の変化）の再現性を向上させるには、花崗岩マトリクス部から亀裂部へ移行する溶存成分のフラックスを大きくすることが最も影響が大きい要因であると推察された。間隙水中の溶存成分のフラックスは、花崗岩マトリクス部の初生鉱物の溶解速度と二次鉱物の沈殿速度のバランスおよび花崗岩マトリクス部から亀裂部への溶存成分の拡散速度が関係すると考えられ、これらが実際の試験系を解析により再現する上で適切なパラメータ設定になっているかが重要である。ちなみに、反応輸送解析において、最も不確実性の大きいパラメータは反応比面積であり、この取り扱いにより、初生鉱物の溶解速度や二次鉱物の沈殿速度は、大きく影響される（例えば、Marty et al., 2009）。今回の再現解析においては、暫定的に、通常良く用いられる鉱物の比表面積の推定方法に基づき設定したが、このような推定方法にも複数の課題（鉱物表面の粗さ等の影響が加味されていない、反応に伴う比表面積の変化が考慮されていない等）が含まれており、反応比面積の見積もりの不確実性が溶解速度や沈殿速度にどの程度の影響（感度）を示すかも検討することが必要である。

なお、再現解析の結果を踏まえつつ、亀裂性岩盤を対象にアルカリプルームの影響に伴う亀裂の開口（物質移行の促進）が継続する／閉塞（物質移行の遅延）に向かう場合の条件の定量化に向けた探索的解析を行うことを予定していた。しかしながら、上述した通り、現状の反応輸送解析モデルでは、亀裂の閉塞に影響を与える二次鉱物の沈殿量や亀裂の透水性低下に関わる試験結果の再現性に乏しいため、現時点で条件の定量化に向けた探索的解析を行うのは適切でないと判断した。本事業において探索的解析を計画した際に参考にしたBrunet et al. (2016)の例では、亀

裂を含むセメントコアを用いて溶存CO_2を含む酸性水を通水し、亀裂表面に沈殿した方解石による亀裂の透水性変化を調査すると共に、亀裂の開口／閉塞に関わる探索的解析が行われた。Brunet et al. (2016)の例では、セメントマトリクス部の溶解に伴うCaの溶出・マトリクス部から亀裂部への拡散による移行が比較的速く生じ、またセメントマトリクス部由来のCaの供給量も多く、それに伴い亀裂部での方解石の沈殿も比較的速やかに生じ、沈殿量も多くなったと推察される。一方、今回の検討対象とした花崗岩中の亀裂に高pH溶液を通水した場合では、セメントマトリクス部の主要鉱物であるポルトランダイト($Ca(OH)_2$)に比べて、花崗岩マトリクス部の主要な構成鉱物（カリ長石、斜長石、石英）の溶解速度は遅く、亀裂部へのSiの供給量も少ないため二次鉱物としてのC-S-H相の沈殿量が制限されたと考えられる。このため、Brunet et al. (2016)の例を参考にした探索的解析を行うには、花崗岩マトリクス部から亀裂部へ移行する溶存成分のフラックスが現状の解析よりも大きくなることが必要であり、そのためには、花崗岩マトリクス部で想定する反応に寄与する鉱物種の見直し（例えば、黒雲母の溶解も考慮する等）や反応比表面積の扱い方の見直し等も検討し、マイクロフローセルを用いた試験結果の再現をさらに向上させることが重要である。

(3) 5か年の成果と今後の課題

令和4年度は、令和3年度に利用した解析コードの適用性確認の一環として、花崗岩試料を用いた高pH溶液の通水による人工単一亀裂の透水性と開口幅の変化に係る室内試験結果を対象にした再現解を試みた。その結果、モデル解析による試験結果の再現性をさらに向上する上で必要な課題が抽出され、この課題に取り組むことにより、初期の課題として設定されていた亀裂の開口（物質移行の促進）が継続する／閉塞（物質移行の遅延）に向かう場合の条件の定量化に向けた探索的解析が可能になることが示唆された。

平成30年度から令和4年度までの5年間の検討により、亀裂性岩盤を対象とした母岩中アルカリプルームの反応輸送挙動評価においては、コンクリート支保との相互作用による岩盤特性変化のプロセスを整理し、坑道近傍スケールにおけるアルカリプルームの影響範囲を確認するための準三次元の反応輸送解析モデルを構築した。また、準三次元モデルを用いた試解析を行い、坑道近傍スケールの水質変化や局所的な間隙率低下などの状態変化が生じる要因を分析し、亀裂中の地下水流量・高pH溶液と地下水との混合（希釈）割合・二次鉱物の沈殿の相互関係が影響していることを推察すると共に、アルカリプルームの影響範囲に応じた評価手法の概念（スケールに応じた解析モデル連結方法）も提示した。さらに、アルカリプルームによる岩盤の状態変遷プロセスの定量的評価に資するための解析方法を検討し、亀裂の開口／閉塞に影響を与える条件を概略的に整理した。加えて、解析コードの適用性確認の一環として、花崗岩試料を用いた高pH溶液の通水による人工単一亀裂の透水性と開口幅の変化に係る室内試験結果を対象にした再現解析を試みると共に、モデル解析による試験結果の再現性をさらに向上する上で必要な課題を抽出した。この課題に取り組むことにより、亀裂の開口／閉塞に向かう場合の条件の定量化に向けた探索的解析も可能になることが示唆された。

今後は、花崗岩マトリクス部で想定する反応に寄与する鉱物の種類や反応比表面積の扱い方の見直しを検討し、モデル解析による試験結果の再現性をさらに向上させ、花崗岩中の亀裂に高pH溶液を通水した場合の亀裂の開口／閉塞に向かう場合の条件を定量化するための探索的解析を試行し、定量化のための検討方法や検討事例の具体化を図ることが重要である。このような具体例が示されれば、実際の地質環境で得られた情報（例えば、瑞浪の結晶質岩で得られた岩石・鉱物データ、地下水データ、亀裂情報等）に基づいた評価も可能となる。また、評価結果は、アルカリプルームによる影響が顕在化する場合または影響の顕在化の可能性が低い場合等、アルカリプル

ームによる岩盤の状態変遷に関わるシナリオ構築にも役立つと考えられる。さらに、構築されたシナリオは、SP3での研究対象とされているニアフィールド性能の総合評価技術開発において、今後、ニアフィールド岩盤を含めた環境変遷評価や核種移行評価を行う際のシナリオ設定への反映も期待される。

2.6 流出現象等を考慮した緩衝材の健全性評価

2.6.1 課題設定の考え方

(1) 背景

緩衝材には、人工バリアとして複数の機能が期待されている。処分場の性能評価における緩衝材の初期状態は、飽和で、密度が均一とされている。ベントナイトを主材料とする緩衝材は、施工方法に応じて適切な密度や含水比に調整される。例えば、竪置き・ブロック方式の場合、緩衝材は、ケイ砂混合率30 wt%、乾燥密度1.6 Mg/m^{3}以上、含水比10 %前後で圧縮成形され、その後、地下水の浸潤過程を経て飽和に至ることとなる。この飽和に至る過程で、緩衝材は地下水の浸潤に伴い、膨潤し、透水性などの特性が変化する。飽和に至るまでの緩衝材の状態の変化は、緩衝材ブロックの製造品質や施工品質の影響を受け、また、緩衝材と処分孔壁面との隙間からの地下水の浸潤および膨潤による隙間の閉塞など、不均質な環境の影響も受ける。このような再冠水過程における局所的な膨潤による変形やそれに起因する緩衝材の不均質な密度分布は、飽和に至る過程で均質化に向かうことが期待されるが、飽和後の緩衝材の密度分布に影響を与える可能性がある。既往の報告によれば、試験結果において隙間へ緩衝材が膨潤した後に有効粘土密度は均一化が進む傾向があり、試験期間を長くすれば均一化の程度はさらに増加すると予想されている（土木学会, 2008）。また、限定的な室内試験ではあるが、密度の均質化は応力がつり合ったところで収束し、緩衝材内に初期の段階で生じる密度分布の幅に応じて最終的に不均質な密度となる可能性が示唆されている（原子力環境整備促進･資金管理センター, 2018bなど）[1]。緩衝材に期待する性能が長期的に発揮されるには、緩衝材の飽和後の密度分布が所定の範囲内にある必要がある。そのため、飽和過程において緩衝材の状態変遷を把握し、飽和後の緩衝材の密度分布を確からしく評価することが重要である。飽和後の緩衝材の状態は、長期の性能評価の初期状態となるため、これをより確からしく予測評価することは性能評価の不確実性の低減の観点から必要不可欠である。

竪置き・ブロック方式の場合には、定置から再冠水完了までの過渡期に緩衝材の密度に影響を与える要因の1つとして、定置後の処分孔内への局所的な地下水の流入（湧水）によって発生するパイピング現象による緩衝材の流出の可能性が懸念されている（原子力発電環境整備機構, 2021 ; SKB, 2008）。緩衝材の流出は、湧水が緩衝材ブロックに浸潤して処分孔の孔壁との隙間を膨潤により自己シールするまでの間、および自己シールに至らずにパイプ状の水みちが形成されて残存し、あるいは新しく形成し、水みちを介して湧水が処分孔外に排出される一連の過程で発生する。緩衝材の流出が進行すると、緩衝材の平均的な密度が低下し、期待している機能が損なわれることが懸念される。

2000年以降SKBを中心に，パイピング現象に着目した室内試験が実施されており（例えば，Börgesson and Sandén, 2006 ; Sandén and Börgesson, 2008 ; Sandén et al., 2008）、国内でも、緩衝材ブロックと処分孔の壁面との間に隙間がある条件や，隙間にペレットを充填した条件でのカラム試験が行われ、パイピング現象とそれに伴う緩衝材の流出が確認されている（原子力環境整備促進･資金管理センター, 2015）。原子力発電環境整備機構の包括的技術報告書（以下、

[1] 関連する既往の研究として、例えば、Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co.（スウェーデンの放射性廃棄物処分実施主体、以下、[SKB]という）（Dueck et al., 2011 など）では、不飽和状態のベントナイト供試体（MX-80）を吸水膨潤させて設定した隙間を充填したのち、平衡状態に至るまでの状態変化について調査している。ベントナイト供試体が軸方向と半径方向に膨潤する試験では、隙間充填後おおよそ平衡状態に至っても、なお供試体の乾燥密度分布が均一にはならず、吸水面近傍において乾燥密度が相対的に低い領域が残留するという結果が得られている。また、原環センター（原子力環境整備促進･資金管理センター, 2017）では、初期乾燥密度が異なる２つの供試体を、ピストンを介して直列につなぎ、ピストンの動きから膨潤量を測定した結果、緩衝材の初期の密度差は減少する傾向を示したが、最終的に密度差が残留したまま定常状態に至るという結果となった。

［NUMO-SC］という：原子力発電環境整備機構, 2021）では、緩衝材からの流出量が許容できる範囲であるかを処分孔内への湧水量および処分坑道の埋戻しまでの期間に基づいて評価している。しかしながら、NUMO-SCの流出量の評価は、これまでの強制注水条件による室内試験結果をベースとした手法であることから、原位置試験などの実環境での現実的な流出挙動を踏まえた評価となっていない。また、このような評価手法では、湧水量によっては、使用できない処分孔が多数発生する可能性があるため、信頼性の高い評価手法を構築するとともに、流出対策となる施工技術オプションを整備する必要がある。そのため、過渡期に想定される緩衝材の流出現象に係るデータの取得や現象解析モデルの開発を行うともに、開発した現象解析モデルを用いて緩衝材流出対策の妥当性を適切に評価することが重要である。

竪置き・ブロック方式において、緩衝材の流出が起こる期間として大きく2つの期間が想定される。最初の期間は緩衝材の定置直後の上部の処分坑道の埋戻しがなされるまでの期間（以下、［期間1］という）であり、孔内湧水が処分孔上部（処分坑道底盤）から排出される可能性のある期間である。次の期間は、処分坑道の埋戻しが完了し、その後に処分坑道内の水位が回復するまでの期間（以下、［期間2］という）であり、この間に、周囲の地下水が処分孔内の水みちを介して処分坑道へ流れる可能性（緩衝材が埋戻し材の間隙に流出する可能性）のある期間である。期間2を経て坑道内外の動水勾配が十分に小さくなる水位回復後には、地下水流動は緩慢（拡散支配の場）となり、水みちを伴う緩衝材の流出を引き起こすような坑内（孔内）への湧水は無視できるレベルになると想定される。このため、期間1における地下の湧水環境の変化を踏まえた流出挙動の把握が重要であり、緩衝材の機能に影響を与えるほどのベントナイト量が期間1に流出する可能性があるかどうかを評価する必要がある。更に、湧水量が多い地下環境でも緩衝材の流出を抑制できる工学的な対策工法を準備し、多様な地下環境条件への適用性を高めることで、掘削した処分孔の利用効率を高めることができる。

また、緩衝材の密度に影響を及ぼすその他の要因の1つとして、期間1における緩衝材の膨出挙動が危惧されている。緩衝材の膨出対策の1つとして、ロックボルト方式や坑道天盤支持方式などにより緩衝材上面をキャップで拘束することが検討されており、緩衝材の膨潤に伴いキャップに作用する荷重は淡水場において約200 tonと見積もられている（核燃料サイクル開発機構, 1999）。しかし、期間1において実際に緩衝材の膨出がどの程度生じるかを把握し、膨出を抑制するための工学的な対策の適切性や実現性に関する実証的な研究には至っていない。

以上の背景を踏まえ、本事業では、緩衝材の健全性を保つための緩衝材の流出に関する工学的な対策を具体化するとともに、許容可能な緩衝材の流出量を考慮した飽和に至るまでの緩衝材の状態変化（浸潤、膨潤などの緩衝材の挙動の変化）を予測評価するための解析手法の構築を目標とすることとした。併せて、工学的対策を施す緩衝材施工の際に同時に問題となる膨出挙動の把握に資するデータを文献や試験により取得することとした。

(2) 本フェーズの中間とりまとめと課題の整理

本事業において平成30年度から平成31年度には、竪置き・ブロック方式を対象とした期間1における緩衝材の流出に対する工学的な対策の1つとして、ケイ砂を孔壁と緩衝材ブロックの隙間に充填する方法（ケイ砂充填オプション）を抽出するとともに、室内流出試験によってケイ砂の隙間充填が緩衝材の流出を抑制する効果があることを確認した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019 ; 2020）。同様に、幌延深地層研究センターの地下研究施設（以下、［幌延URL］という）の地下実環境において、期間1を対象とした自然湧水条件で、後述するケイ砂充填オプションと隙間未充填オプションの双方に関する原位置試験を1から2か月程度の短期試験として実施した。その結果、隙間未充填オプションでは定置後の初期の緩衝材流出量が多

くなることや、ケイ砂充填オプションでは緩衝材の流出濃度が低く維持されるといった傾向を確認することができた。なお、このような工学的対策の具体化においてケイ砂充填オプションに着目している理由には、緩衝材ブロックと孔壁との隙間を一様に地下水が流動するように単純化させ（局所的に流速が大きくなる水みちの残存を抑制）、緩衝材の流出挙動の評価を容易にすることに加え、緩衝材ブロック界面からの浸潤環境を均一化するなどの効果が期待できることにある。このような緩衝材の流出に関する試験などに加え、緩衝材の飽和プロセスを対象とした解析モデルの開発として、不飽和から飽和に至る過程でのベントナイト材料の膨潤による隙間の閉塞プロセスとその後の密度分布の変化に関する力学解析方法を検討した。平成31年度までの検討から、土骨格の変形を支配するモデルとして塑性膨潤の概念を取り入れた弾塑性構成モデルを導入することにより、解析によって緩衝材の力学応答を表現できる可能性が示された（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2020）。以上を踏まえ、令和2年度からの令和4年度では、以下のような取り組みの必要性が示唆された。

- 緩衝材流出に係る現象把握と定量的な把握のための室内試験を行うとともに、実際の地下環境（地下水環境）における流出挙動を把握するための原位置試験を行い、確認する必要がある。
- 緩衝材の飽和プロセスを対象とした解析モデルの開発では、多次元化や実規模スケールを解析対象とできるモデル体系の構築やパラメータ値の設定手法を整備していく必要がある。

(3) 本事業の課題の設定

本事業では、竪置き・ブロック方式を対象とした「緩衝材の流出挙動」について、緩衝材ブロックと孔壁との隙間の処理に関して、現時点で考え得る緩衝材の施工技術オプション（隙間未充填、ケイ砂充填、ペレット充填、原位置締固め）を念頭に置き、各オプションに関する緩衝材の流出特性を処分孔の環境条件との関係から整理し、実際の処分場の操業に際し、処分孔の実環境に応じて柔軟かつ迅速な施工技術オプションが選択できるように、評価方法の枠組みなどの基盤情報を整備した。緩衝材の施工技術オプションの選択では、後述する表 2.6-1 に例示するような多様な評価項目に対する特徴などの比較評価が行われることを想定している。本事業では、上記の施工技術オプションの選択を念頭に、緩衝材の流出特性について評価した。

また、緩衝材の状態変遷を踏まえた閉鎖後長期の性能評価における初期条件（初期状態）をより確からしく評価することを目的として、土質系材料を対象とした既存の力学モデルをベースに、緩衝材の隙間充填や飽和過程初期の流出（許容される流出量）を考慮した緩衝材の乾燥密度の状態変遷に関する解析手法を開発することとした。

2.6.2 実施内容

(1) 流出を抑制する工学的対策の具体化

1) 研究方針（研究アプローチ）

① 本課題に関するこれまでの研究等の経緯

前フェーズの事業（平成25年度から平成29年度）における緩衝材の流出量評価に関する研究では、SKBの先行検討事例(Sanden et al., 2008)を参照しつつ、わが国の緩衝材の仕様案を対象に流出挙動の把握と流出量の評価手法の開発に向けて、緩衝材の流出に影響することが想定された要因・因子（通水量、液種、界面、岩盤の透水性、流路距離、通水・排水の位置等）をパラメータとして、強制注水条件による室内試験を実施し、緩衝材の流出現象に及ぼす影響要因を明らかにするとともにプレ膨潤やペレット充填等の工学的対策の効果を検証した（原子力環境整備促進･資金管理センター, 2018b）。これらの結果、各対策オプションに一定の効果はあったものの、いずれのオプションでも水みちの完全な閉塞には至らないことを確認した。また、実際の地下環境で現実的に起こりうる現象を把握し理解するため、室内試験と同様の強制注水条件による原位置試験を実施し、不均質に湧水箇所が存在する場合には、緩衝材の定置後にパイピングが生じるとともにその経路や数が変化することなどが確認された。SKBのアプローチを踏襲したこれらの定流量条件（強制注水）による試験およびモデル化手法に基づき、緩衝材の流出量を定量評価するモデル（以下、［べき乗モデル］という）を提示した。

その後の平成30年度には、原子力発電環境整備機構により包括的技術報告書（レビュー版）が公表され、上述のべき乗モデルを参照した緩衝材の流出量評価による処分孔の利用可否の判断およびグラウト等の湧水対策など、事業者としての柔軟な対応の考え方が示された。併せて、緩衝材の定置後、上部の処分坑道を埋め戻すまでの期間（以下、［有限期間］という）において一定量の緩衝材の流出を許容（許容流出量）することや処分孔環境に応じて柔軟な施工対策を導入して処分孔の利用率を高めるといった考え方が示された。

一方、定流量条件（強制注水）による試験に基づくべき乗モデルは、緩衝材の流出量を過大評価している可能性があることから、実際の原位置環境に即した現実的な評価方法の開発が望まれる。ただし、より現実的な評価方法の開発においては、以下の留意が必要となる。

- 流出挙動に影響を及ぼす多様な影響要因を考慮した精緻な定量評価手法（モデル）の開発は、精密な試験環境（一様な密度の緩衝材ブロック、処分孔壁の精密な寸法や表面仕上げなど）やパラメータの制御を要求するだけでなく、その結果として得られるモデルを実事業に適用するには、処分孔掘削や緩衝材ブロックの製造に過度な品質を要求し、処分孔の湧水環境等の詳細な調査を要求することとなる。
- 全ての処分孔への適用を念頭に1つの施工オプションを特定して、より精緻な定量評価手法を開発しても、処分孔の利用可否を判断することしかできず、処分孔の利用率の向上に繋がらない。

② 本課題に関する研究開発の基本方針

前述したこれまでの研究成果やNUMO-SCに示された事業者の考え方に留意して、本フェーズでは以下を本課題に関する研究開発の基本方針として取り組むこととした。

○ 処分孔の環境条件に応じた柔軟かつ適切な工学的判断（技術オプションの比較評価による選択）を可能とする複数の隙間処理技術オプションを開発・整備する。

○ オプションの選択（比較評価）を支援する定量的な判断指標の設定に資する緩衝材の流出量評価モデルを地下原位置の実環境に即した現実的な環境条件を念頭に置いた試験に基づき開発する。同モデルの開発では、流出挙動を詳細かつ厳格に表現することを指向するのでは

なく、操業中に原位置で得られる限定的なパラメータ値やブロック等の製造・施工品質のバラツキ等に留意した工学的な判断を行うための評価モデルを指向する。

○ 処分孔の利用率の向上に寄与する幅広い処分孔湧水環境への柔軟な適用に留意して、本事業では、①隙間未充填、②ケイ砂充填、③ペレット充填の3つの隙間処理技術オプションを先行検討対象として取り組む。

○ 研究段階である本事業では、幌延URLへの適用を例題として、緩衝材の流出量評価モデルを含む緩衝材流出特性の評価手法（方法論）を開発する。

※方法論を開発することで、精密調査段階以降に事業者(NUMO)が開発された手法に沿って候補サイトの地下水環境等に即した流出量評価モデルを迅速かつ合理的に整備し適用することができる。

○ 研究／実事業ともに、原位置や工学/実規模スケールでの多数のパラメータ試験の実施は困難であることから、室内要素試験を主体とした方法で評価できる手法の開発を指向する。

2) 緩衝材流出特性の評価手法（方法論）の整備結果

① 隙間処理技術オプションの最適化における評価項目（案）の整備

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

本事業では、実事業における放射線防護や施工手順（作業負荷）の最小化の観点から、前述した3つの隙間処理技術オプションを先行検討対象として、緩衝材の流出挙動に着目して研究に取り組むこととしているが、将来の実事業において適用する技術オプションの選択（最適化）において考慮すべき事項（評価項目）について、主に“工学的な観点”から包括的な整理を行い、併せて3つのオプションの特徴に関する定性的な整理を試みた[2]。

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

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

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

評価項目		隙間未充填	ペレット充填(ベントナイトペレット)	ケイ砂充填
施工性		・隙間充填作業が無い。	・隙間の湿潤した孔壁にはペレットが着きやすく、ペレットの充填量の不足や不均一が発生する可能性（隙間幅 2cm での試験結果[1]より）。施工方法やペレットの改良が必要。 ・ペレットの製造や施工の設備、手順や品質管理方法の整備が必要。	・ケイ砂を隙間に流し込む等の簡易な設備や方法（四方から均等に同時にや水中で流し込む等）で湿潤した孔壁であっても施工できる可能性。 ・施工手順によってはケイ砂の充填が不十分な箇所ができる可能性がある。 ・施工手順や品質管理方法の整備が必要。
施工品質の管理･保証	・品質確保のための要求水準 ・施工品質の管理・保証のし易さ（負荷）	・緩衝材とオーバーパックの直立性の維持や自己シールの均質性のための処分孔底面の水平加工、孔壁の寸法精度や、隙間への異物混入の回避に関して、処分孔の条件によっては品質確保のための要求水準が高く、施工品質の管理・保証への負荷が大きい可能性。	・ペレットの密度・粒径管理、充填の密度等の製造・施工に関して品質確保のための要求水準は高く、処分孔の条件によっては施工品質の管理・保証への負荷が大きい可能性（隙間未充填と同様に処分孔底面の水平加工が必要）。	・ケイ砂充填の施工性を踏まえると、品質確保のための要求水準は低く、品質管理・保証の負荷は小さい可能性（隙間未充填と同様に処分孔底面の水平加工は必要）。
	・隙間充填材料の供給、代替性	・なし	・ペレット製造や施工の品質管理方法の整備が必要。	・ケイ砂は、ペレットよりも供給や代替が容易（産地などの選択肢は多い）。
緩衝材の流出特性	・流出量評価の確からしさ（評価方法の有無、評価のし易さ、予測精度）	・パイピング(piping)[2]による流出量の評価方法が、SKB の室内試験[3]に基づき NUMO-SC[4]（付属書 4-56）に提示されている。 ・エロージョン(erosion)[5] を含めた湧水量や水位差を中心とした実環境条件に基づいた定水位の室内要素試験による流出量の評価手法の方法論が示され、試験方法の改善や現象理解を進めることにより評価方法が構築できる可能性がある。 ・孔壁の亀裂に緩衝材が侵入(extrusion)し浸食されることによる流出は室内試験結果[6]によれば限定的。	・パイピングによる流出量の評価方法が、SKB の室内試験に基づき NUMO-SC に提示されている（隙間未充填と同様な評価方法）。 ・エロージョンによる流出を含めた評価手法は未充填の評価方法を使用できる可能性（界面の状況／挙動は室内試験結果[7]によれば、未充填オプションに近い可能性）。 ・孔壁の亀裂へ緩衝材が侵入し、浸食されることによる流出は、隙間未充填と同様に限定的。	・室内試験結果より緩衝材の流出するベントナイトの濃度と湧水量の積などの単純化モデルで評価できる可能性[8]。 ・緩衝材からの流出が隙間に充填したケイ砂により抑制される可能性。 ・実環境条件（水位や湧水量等）を考慮した定水位の室内要素試験に基づく流出量が示され、試験法の改善や現象理解を進めることで評価手法が構築できる可能性がある。 ・孔壁の亀裂に緩衝材が侵入し浸食されることによる流出は、隙間未充填よりも抑制される可能性。
	・適用可能な孔内湧水環境	・パイピングによる流出量の予測と許容流出量から許容湧水量の算出により適用範囲の評価が可能（NUMO-SC　付属書 4-56）。 ・パイピングにエロージョンを加え、湧水量や水位差を中心とした環境条件を考慮した定水位の室内要素試験が示され、これによる流出挙動の評価により適用可能な孔内湧水環境を明確にできる可能性がある。	・ペレットの充填により、処分孔内のベントナイト量が増加し、緩衝材への流出の影響を低減でき、隙間未充填よりも湧水の多い環境に適用できる可能性。 ・隙間未充填の定水位の室内要素試験や評価方法を適用して、ペレット充填の適用可能な孔内湧水環境を明確にできる可能性がある。	・原位置試験[8]によれば、隙間未充填と比較して流出量は少なく、隙間未充填よりも湧水量の多い環境に適用できる可能性。 ・定水位の室内要素試験に基づく流出量の評価により、適用可能な坑内湧水環境を明確にできる可能性がある。
緩衝材の膨出特性	・膨出量評価の確からしさ ・膨出量抑制効果 ・追加対策工の必要性	・原位置流出により緩衝材の上方への膨潤による変位や荷重を確認。膨出挙動の現象理解とそれに基づく膨出量評価方法の整備、工学的対策の整備が必要。	・同左(膨出評価方法と工学的対策の整備)	・同左(膨出評価方法と工学的対策の整備)
閉鎖迄の性能確認のし易さ	・力学的安定性（直立性、変位量）	・緩衝材は、膨潤による自己シールにより支持される。 ・隙間が自己シールされるまで支持材がない。 ・孔壁の亀裂からの湧水等による緩衝材の不均一な浸潤による偏膨潤の可能性により、緩衝材の均一な支持に不確実性がある可能性。	・ペレットの膨潤による隙間の充填により、緩衝材の自己シールの効果が、隙間未充填よりも高まる可能性。 ・孔壁の亀裂からの湧水等による不均一な浸潤によるペレットの偏膨潤の可能性により、緩衝材の均一な支持に不確実性がある可能性。	・充填したケイ砂により緩衝材が支持される。 ・ケイ砂を介した緩衝材の均一な浸潤により、緩衝材は偏膨潤がおこりにくく、支持が均一になる可能性。
	・伝熱特性	・緩衝材の膨潤による隙間の自己シールにより熱伝達性を確保。 ・自己シールの速度によって熱伝導性に不確実性。	・隙間のシールまでは、充填したペレットによる熱伝達性が期待できる。	・ケイ砂よる熱達性性が期待できる（熱伝導度は概ね一定）。
	・原位置測定・モニタリングの必要性（簡略化できるほど良い）	・孔壁の亀裂からの湧水等による緩衝材への不均一な浸潤による偏膨潤により、部分的に乾燥密度が低下する可能性。予め偏膨潤の有無や程度を把握し、それに応じた適用範囲、評価方法および対策等の整備がなければ原位置モニタリングが必須となる可能性。	・同左（偏膨潤による乾燥密度の低下等）	・隙間のケイ砂を介して湧水が緩衝材の表面へ一様に浸潤し偏膨潤が起こりにくい可能性。予め浸潤・膨潤挙動や密度分布の程度等を把握・予測できる可能性があり、原位置モニタリングを省略できる可能性。
不確実性の管理のし易さ	・埋戻し材施工迄の状態予測のし易さ ・処分場の再冠水までの過渡期の確からしい性能評価のし易さ（長期の性能評価に引き渡す初期条件の確からしさ） ・処分場閉鎖後長期の性能評価における不確実性の管理のし易さ	・隙間への孔壁落盤や緩衝材の欠落が起こる可能性。 ・緩衝材外周からの一様な湧水供給とならず、偏膨潤の発生などにより、処分場の再冠水までの過渡期の性能評価に不確かさが存在する可能性。 ・隙間への緩衝材の膨潤に伴い乾燥密度の不均質が起こるが、膨潤圧均衡下で長期的な均質化の程度を評価しておく必要性。 ・自己シール部分の緩衝材の乾燥密度などの状態が均一となれば、長期の性能評価では管理しやすい。	・隙間未充填と同様に緩衝材の乾燥密度の不均質の発生やその後の均質化が起こるが、ペレットにより初期の不均一さが緩和される可能性。 ・緩衝材外周からの一様な湧水供給とならず、ペレットと緩衝材の偏膨潤が起こり、再冠水までの過渡期の性能評価に不確かさが存在する可能性。 ・閉鎖後長期の性能評価の面では、流出量を差し引いてもペレット充填分のベントナイト増量の効果が期待できる可能性。	・隙間にケイ砂が充填することにより緩衝材の隙間へ膨潤は抑制され乾燥密度の低下は抑制される可能性。 ・緩衝材がケイ砂の間隙に入り込み充填して地下水の流路が減少する可能性。 ・緩衝材周りの浸潤環境が一様で緩衝材の偏膨潤による径方向の乾燥密度の不均一は発生しにくく、再冠水までの過渡期の性能評価の不確実性が少ない可能性。 ・緩衝材がケイ砂の間隙に入り込むことで、緩衝材ブロックの外周の乾燥密度が低下し、径方向の不均一が発生する可能性（隙間未充填に比べて影響は少ない）。 ・ケイ砂の間隙への緩衝材の充填の程度に不確実性があり、再冠水までの過渡期や閉鎖後長期の性能評価に不確かさが存在する可能性。
回収可能性		・開発中の回収技術の適用に課題は想定されない（塩水による緩衝材除去システム、ウォータージェット）[9]､[10]。	・同左。	・同左。
経済性		・充填材料・装置および作業が不要。	・ペレット製造費および製造・施工のための装置や運用費が必要。	・簡便な施工装置で対応出来る可能性。

注釈

・本表は、令和 4 年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業（ニアフィールドシステム評価確証技術開発）において、緩衝材の流出対策として流出量の評価方法を検討している 3 つの孔壁と緩衝材の隙間処理技術オプションの特徴について、処分場の操業技術や設計等を比較評価し選定（最適化）する手法を参考に、処分場の環境条件に依存せず、現時点での知見や技術に基づいて整理したものである。

・本表は、今後の知見の拡充、技術の進展や地質環境等の処分場の条件も踏まえ評価項目や評価内容を見直すものである。なお、隙間処理技術オプションに影響が考えられる地質環境の条件は、地下水に関連する湧水(流量や水圧)、水質、岩盤の多孔質性や亀裂性等である。追加が必要と考えられる評価項目として、遠隔自動化、作業安全性、放射線安全、一般労働安全、作業時間、微生物の影響等がある。

・上記の環境条件や評価項目に加え、施工技術オプションの追加、補助的なオプション(処分孔周辺での地下水の排水やケーシング、遮水シート等)との組み合わせや、複数のオプションの組み合わせ等で、より柔軟な技術選択の支援も可能になると考えられる。また、地質環境条件に応じて、パネルや処分坑道単位で異なるオプションを適用するような柔軟な技術選択も可能と考えられる。

用語と参考文献

[1]原子力環境整備促進・資金管理センター，平成 28 年度地層処分技術調査等事業処分システム工学確証技術開発報告書（第 2 分冊）－人工バリア品質／健全性評価手法の構築－　緩衝材，2017

[2]パイピング(piping)：孔壁と緩衝材の隙間を緩衝材が充填した後に管状の水みちを形成して流れる地下水により緩衝材が浸食される現象

[3]T.Sandén and L.Böergesson, Deep repository -engineered barrier system. Piping and erosion in tunnel backfill, SKB, R-06-72, 2008

[4]原子力発電環境整備機構，包括的技術報告：わが国における安全な地層処分の実現－適切なサイトの選定に向けたセーフティケースの構築－，NUMO-TR-20-03，2021

[5]エロージョン(erosion)：緩衝材の表面に接触した地下水で緩衝材が浸食される現象。ここでは隙間が緩衝材で充填するまで(パイピングが起こる前まで)の間に発生する。

[6]菅野毅，松本一浩，ベントナイト緩衝材の流出特性の評価 I，PNC TN8410 97-313，1997

[7]原子力環境整備促進・資金管理センター，平成 25 年度地層処分技術調査等事業処分システム工学確証技術開発報告書（第 2 分冊）－人工バリア品質／健全性評価手法の構築－　緩衝材，2014

[8]日本原子力研究開発機構，原子力環境整備促進・資金管理センター，令和 2 年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業ニアフィールドシステム評価確証技術開発報告書，2021

[9]原子力環境整備促進・資金管理センター，平成 26 年度地層処分技術調査等事業（地層処分回収技術高度化開発）報告書，2015

[10]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回収可能性技術高度化開発報告書，2022

上表2.6-1で整理した最適化における3つの隙間処理技術オプションの特徴（要約整理）

隙間未充填オプション

・隙間充填作業がないため施工性や経済性の面で有利である。
・流出量の評価方法が提案されている(NUMO-SC)。
・緩衝材の偏膨潤が想定され、過渡期の確からしい性能評価のためには、詳細な孔内湧水環境の調査技術や過渡期の緩衝材の状態変遷挙動評価技術の高度化といった開発課題がある（不確実性の管理の面で課題）。
・操業段階における処分孔内の精緻な湧水環境調査、処分孔壁面仕上や隙間への孔壁剥落など品質保証の要求水準への影響が考えられる。

ケイ砂充填オプション

・湿潤処分孔環境でも充填施工性が良く（施工品質を確保し易い）、材料費も経済的である。
・流出濃度は隙間未充填より少ない可能性がある。
・卓越した孔内湧水箇所があっても、ケイ砂領域で緩衝材との界面環境（湧水供給環境）を一様化できるため、偏膨潤は抑制され緩衝材の初期浸潤・膨潤プロセスに係る性能評価の境界条件を単純化できる（性能評価の信頼性を高められる）。
・充填したケイ砂の間隙にベントナイトが入り込み徐々に充填される可能性がある。

ペレット充填オプション

・湿潤処分孔環境下では充填施工性（施工品質）に課題がある。
・ペレットの製造や費用が必要となる。
・ペレットの先行的な流出により緩衝材の流出を抑制できる可能性がある。
・隙間未充填と同様な方法で流出量の評価方法が出来る可能性がある。
・不確実性の管理の面でも、過渡期の確からしい性能評価など、隙間未充填オプションと同様の課題がある。

② 緩衝材の流出量評価のための判断指標案の設定

緩衝材ブロック界面（孔壁との間）での流出挙動は、図2.6-1に示すように緩衝材の成分や密度、初期含水比などの材料組成、地下水組成や粘性などの水質や孔内湧水の位置・分布、緩衝材ブロック界面の流速などの孔内湧水環境、処分孔壁面の形状や緩衝材ブロック界面の形状などの幾何形状などの多様な影響要因、更に緩衝材の表面での浸潤・膨潤に伴う状態変化など、緩衝材流出の抑制および促進に寄与する多様な挙動や要因の複合的な現象である。

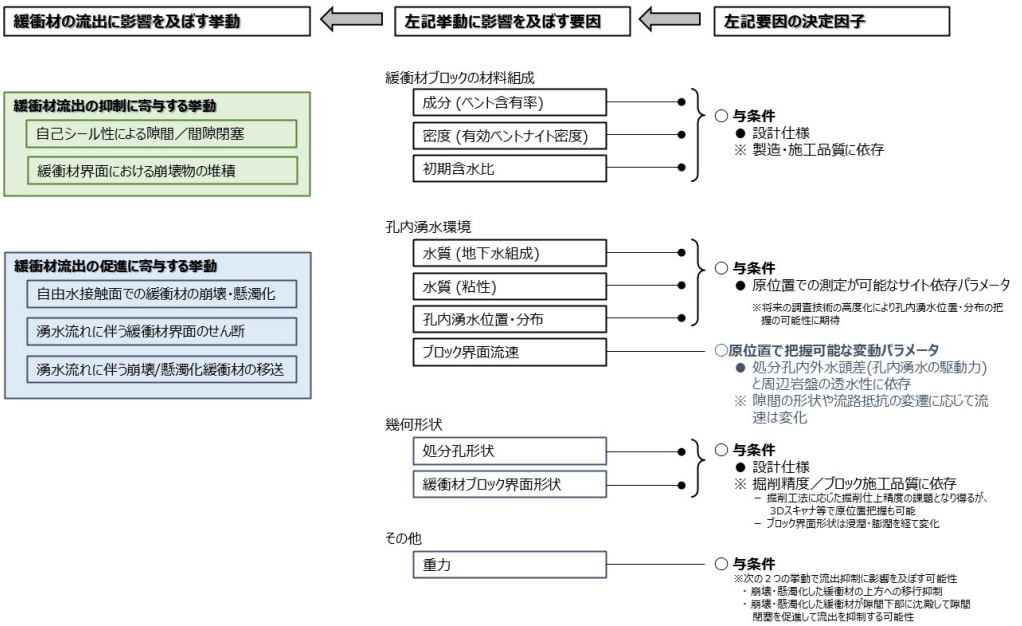


図2.6-1　緩衝材の流出挙動に及ぼす影響因子

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

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

オプション	想定される施工性と緩衝材の流出挙動		緩衝材の流出に関する最適化評価項目と判断指標（案）	
	施工性	ブロック界面における緩衝材流出挙動（想定）	評価項目	判断指標の設定に関する考え方
①隙間未充填	・施工作業なし ・隙間充填までの自立性(安定性)に留意	● 期待する挙動：緩衝材の膨潤により隙間をシールして孔内湧水（緩衝材の流出）を止める（＝閉塞） ● 想定される緩衝材施工後のプロセス ✓浸潤進行に伴いブロック界面が孔壁に迫り壁面に到達 ⇒ 自由界面から懸濁化した緩衝材が流出 ✓壁面到達後、孔内湧水環境に応じて以下の挙動 ➢更なる浸潤に伴い、膨潤圧が増加して閉塞 ⇒ 界面の低密度の緩衝材が流出 ➢界面にケイ砂領域が残存して水みちを形成 ⇒ ブロック界面で緩衝材（細粒分）がケイ砂領域（間隙）を介して流出 ※ケイ砂領域を緩衝材がシールして閉塞する可能性あり	【評価パラメータ】 ●処分孔周辺岩盤との水頭差 ●処分孔内湧水量 ⇒緩衝材流出量が許容量以下であることを確認	● 任意期間における緩衝材流出量で判断（許容可能な量か否か）
②ケイ砂充填	・充填性の懸念を低減させる施工方法（手順管理）の確立	● 期待する挙動：処分孔内外の水頭差が維持する環境下において、敢えてケイ砂領域を介して孔内湧水を移動（流出）させる ● 想定される緩衝材施工後のプロセス ✓浸潤の進行に伴い体積拘束条件下で膨潤圧は増加 ⇒ ブロック界面で緩衝材（微細分）がケイ砂領域（空隙）を介して流出 ※ケイ砂領域を緩衝材がシールして閉塞する可能性あり		
③ペレット充填	・浸潤・狭隘環境における緩衝材ペレットの施工品質に課題	● 期待する挙動：ペレット(および緩衝材)の膨潤により隙間をシールして孔内湧水(緩衝材の流出)を止める（＝閉塞） ● 想定される緩衝材施工後のプロセス ※ 上記①の緩衝材界面の挙動をペレットで代用することで、緩衝材ブロックそのものの流出を抑制する		● ペレットの充填量を除き、任意期間における緩衝材流出量で判断（許容可能な量か否か）

上表2.6-2の整理に関する補足説明

隙間未充填オプション

- 隙間充填作業はないものの、隙間を充填するまで緩衝材の自立性（安定性）に留意する必要がある。
- 緩衝材の流出挙動に関しては、処分孔と周辺岩盤と水頭差が駆動力となる湧水に対して、緩衝材の膨潤により隙間をシールして孔内湧水を止め、緩衝材の流出を止める（閉塞する）ことが期待される。
- ただし、浸潤の進行に伴い緩衝材ブロック界面が孔壁に到達するまでの間に自由界面から懸濁化した緩衝材が流出する可能性がある。壁面到達後には、更なる浸潤と膨潤の増加に伴い界面の密度は徐々に設計値に向かうものの、界面の密度が低い初期段階に緩衝材が粘性流体として流出する可能性がある。
- また、これまでの室内試験によれば界面にケイ砂領域が残存して水みちを形成し、緩衝材の微細粒分がケイ砂領域の空隙を介して流出し続ける可能性にも留意が必要である。
- 評価項目としては、処分孔周辺岩盤との水頭差や処分孔内湧水量が許容量以下であることを確認する。また、判断指標の設定に関する考え方としては、任意期間において許容可能な量か否か緩衝材の流出量で判断する。

ケイ砂充填オプション

- 施工性に関しては、ケイ砂充填の実現性の見通しがあり、緩衝材の自立性（安定性）に留意する必要がない。
- 緩衝材の流出挙動に関しては、処分孔内外の水頭差が存続する期間において、意図的にケイ砂領域を介して孔内湧水を移動させることで（ハイドロゲージ）、緩衝材の流出を抑制する（ケイ砂領域を設けて一定の流路断面積を維持することで、侵食に寄与する流速の低減や局所的に高い流速となり得る水みちの形成を抑制する）
- ケイ砂領域を介した孔内湧水の継続に伴い、緩衝材の微細粒分がケイ砂領域の空隙を介して流出し続ける可能性に留意が必要である。
- 評価項目としては、隙間未充填オプションと同様に、処分孔周辺岩盤との水頭差や処分孔内湧水量が許容量以下であることを確認する。また、判断指標の設定に関する考え方としては、任意期間において許容可能な量か否か緩衝材の流出量で判断する。

ペレット充填オプション

- 現時点でペレットに対する要求性能や仕様は定まっておらず、想定される施工性として浸潤環境における緩衝材ペレットの狭隘部充填の施工品質に留意しつつ、ペレットの仕様や施工方法等と併せて検討を進める必要がある。
- 緩衝材の流出挙動に関しては、ペレットおよび緩衝材の膨潤により隙間をシールして孔内湧水を止め、緩衝材の流出を止めることが期待される。緩衝材界面の挙動をペレットが補助することで、緩衝材ブロックそのものの流出を抑制する可能性がある。
- 評価項目としては、隙間未充填オプションと同様に、処分孔周辺岩盤との水頭差や処分孔内湧水量が許容量以下であることを確認する。また、判断指標の設定に関する考え方としては、ペレットの充填量を除き、任意期間において許容可能な量か否か緩衝材の流出量で判断する（ペレットの流出は緩衝材の機能維持の判断から除外できる）。

以上の検討・整理結果を踏まえ、本事業では隙間未充填オプションとケイ砂充填オプションを

緩衝材流出特性の評価手法の開発対象とし、ペレット充填オプションについては、要求性能に基づくペレットの仕様に関するバリエーション（ベントナイト混合率、粒径／粒度分布、表面コーティングの有無など）や緩衝材の補完部材として期待する機能に応じた許容流出量の考え方、更に湿潤環境下での施工性や材料調達性／経済性など、評価項目や判断指標を検討する際の前提条件の設定が必要なため、本フェーズではそれらの設定に資する情報整理を実施することとした。

なお、先行検討対象とした上述のオプションが適用できないような処分孔湧水環境であっても、以下のような留意すべき事項があるものの、ケーシングや防水シートの導入などの対策による対応も想定し得る。

※ケーシングや防水シートの導入といった対策の導入の留意事項

- 人工バリア設置後のケーシングや防水シートの除去作業に伴う作業員被ばくリスク
- 上記の追加作業および作業工程の複雑化に伴う事故リスク
- 資機材や作業人工の増加に伴う費用増加リスク

③ 各種試験に基づく流出量評価モデルの開発・整備手順

前述したように、緩衝材流出特性の評価指標として“緩衝材の流出量”を挙げた。これを評価するには、各オプションに適用可能な緩衝材の“流出量評価モデル”が必要となる。以下に、同モデルの開発手順ならびに開発に必要となる試験や方法について整理する。

(a) 研究段階における方法論の開発手順と実事業への適用方法

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

ⅰ．処分孔内外水頭差 H：底盤高さを基準とした水頭 [m]または[Pa]

ⅱ．処分孔内湧水量 Q_w：処分孔内湧水量 [L/min]

ⅲ．緩衝材の流出が懸念される期間t：緩衝材の定置直後から処分坑道埋め戻しの施工完了迄

上記のⅰとⅱは、表2.6-2に示した緩衝材の流出挙動の評価項目（操業時に原位置で取得可能なパラメータ）、ⅲは今後のNUMOの詳細設計（作業工程の設計）により具体化される。

実事業の施工オプションの選択における比較評価での活用を念頭に、緩衝材の流出量評価モデルは時間の関数$M_{BENT}(t,H,Q)$として表現する。緩衝材ブロック界面での緩衝材のせん断や移送は、界面を流れる湧水の流速 v [m/s]に依存するが、流速分布を把握することは困難であるため、モデル化する際は、処分孔口の流速を処分孔内湧水量Q_wとして整理を試みた。

現在の研究段階において利用可能な研究施設インフラの活用を前提とした、緩衝材の流出量評価モデルの理想的な開発手順を図2.6-2（上図）に示す。理想的な流出量評価モデルの開発手順として以下のステップを想定した。

Step1：室内要素試験によるベースモデルの構築

Step2：室内工学規模（中規模）スケール試験によるスケール効果を考慮したベースモデルの拡張

Step3：室内要素試験による実環境効果（水質等）を考慮したベースモデルの拡張

Step4：室内工学規模（中規模）スケール試験によるスケール効果および実環境効果（水質等）を考慮したベースモデルの拡張（以下「拡張モデル」という。）

Step5：原位置工学規模（中規模）スケール試験によるスケール効果および実環境効果（水質、幾何形状等）を考慮した拡張モデルの補正

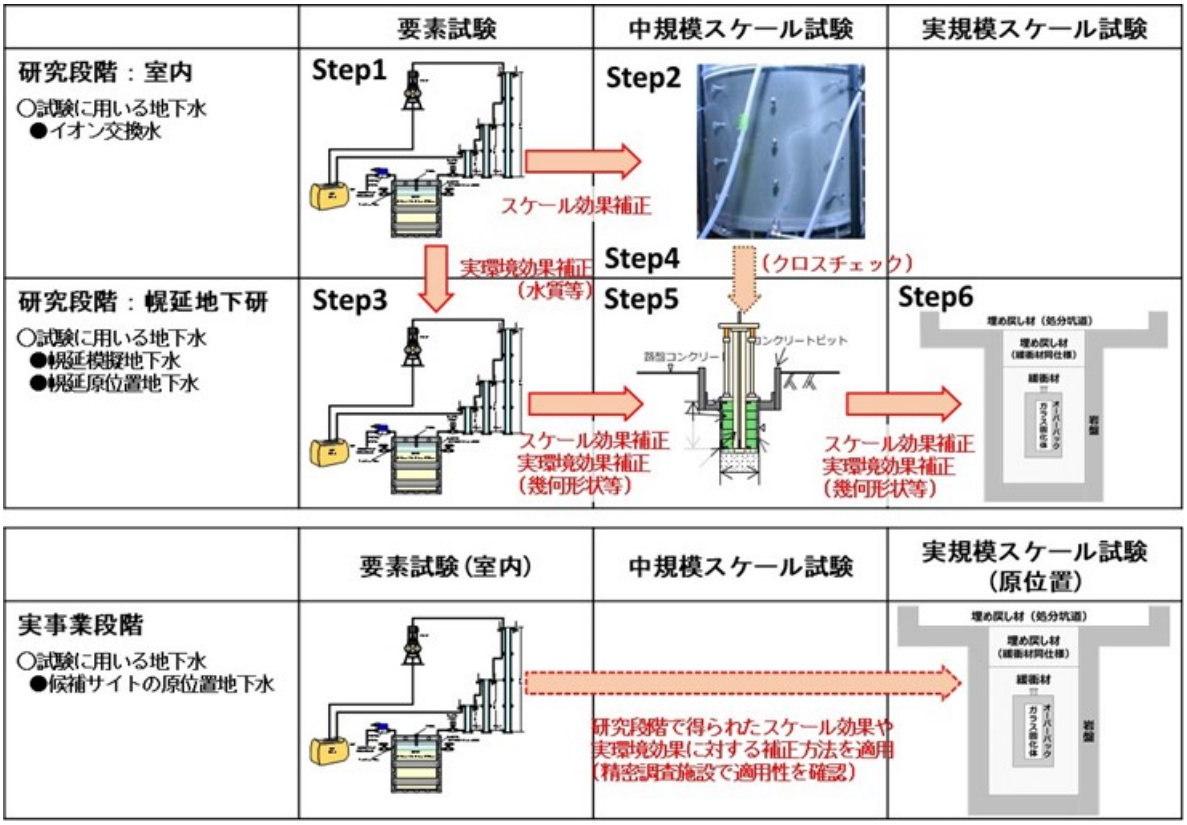
Step6：原位置工学規模（中規模）スケール試験結果とStep1からStep5で整備した拡張モデル

を比較し、Step1で整備するベースモデルの拡張性／適用性を検証することにより、実事業（精密調査段階以降）への適用性の確認へ展開する。

研究段階において、利用可能な研究施設インフラを用いて、要素試験スケールから工学規模／実規模へのスケールアップ、単純系から複合系（実環境）への拡大適用を、以下に留意しつつ段階的に進めるものとする。なお、本事業では、原位置工学規模スケール試験として、幌延URLの深度350 m試験坑道5に設けられた既存の試験孔（実規模の約1/4スケール）の活用を念頭に置く。

- スケールや特徴の異なる室内試験と原位置試験を組み合わせることで、図2.6-1に示す多様なパラメータの一部の影響を排除する（着目した因子の影響を定量化する）。例えば、処分孔壁面の幾何形状の影響を排除した室内試験と原位置試験の差分を分析することでその影響を定量化する。
- 多量の水を使う室内要素試験では、原位置の地下水（あるいは模擬地下水）の利用に量的な制約がある。
- 緩衝材界面での流出挙動に関して、室内要素試験スケールが微少であるがために、試験装置の設定や試料等の調整（緩衝材の密度均質性など）に対する感度が高いため（シビアに影響する可能性）、一定の試験点数を重ねて信頼性を確保することが望まれる。

研究段階において上述の手順で流出量評価モデルの構築方法（方法論）を開発しておくことで、図 2.6-2（上図）に示すように、実事業では（精密調査段階以降）、本手法に沿って候補サイトの地下水環境等に即した流出量評価モデルを迅速かつ合理的に整備することができる。また、室内要素試験に基づき構築したベースモデルの工学規模／実規模ならびに実環境への拡張性（適用する際の補正方法等の具体化）が、研究段階において予め確認できれば、実事業では室内要素試験に基づくベースモデルを開発して適用可能なモデルへ展開できる可能性がある。



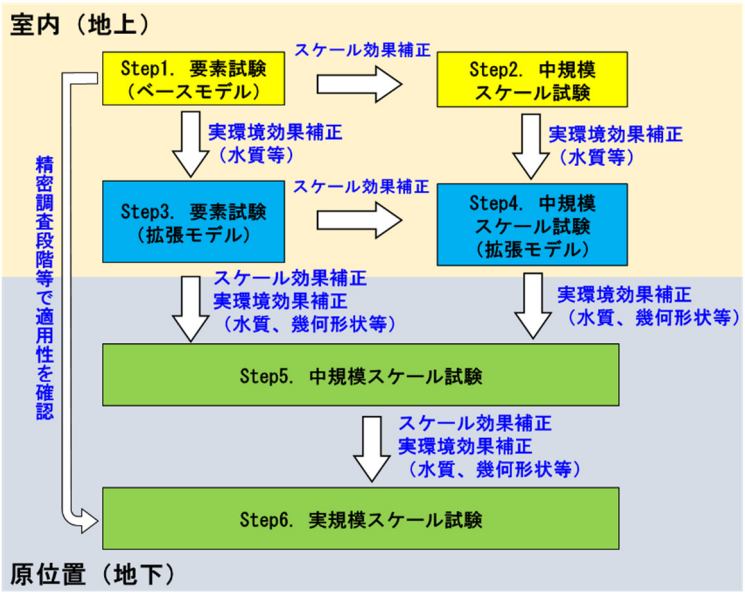


図2.6-2　流出量評価モデルの理想的な開発手順

(b) 室内要素試験によるベースモデルの開発方法

既出の表 2.6-2 において、各隙間処理オプションにおける緩衝材の流出挙動を要約整理した。本事業で緩衝材流出特性の評価手法の開発対象とした“隙間未充填オプション”と“ケイ砂充填オプション”の流出挙動は、過年度に実施した各種試験等から窺える挙動として図 2.6-3 のように想定した。ここで、ケイ砂充填オプションは、ケイ砂の充填領域を優先的に水が流れることを意図したものであるが（ケイ砂充填部がハイドロゲージとなり緩衝材の流出を抑制する）、過年

度に実施した室内要素試験の結果（CT スキャンを用いた試料の経時変化：図 2.6-4 参照）や原位置 1/4 スケール試験の結果（ケイ砂充填オプションにおける流量の時間変化：3)②に後述）を踏まえ、ケイ砂の充填領域に緩衝材が侵入して閉塞（自己シール）する可能性にも留意をする。

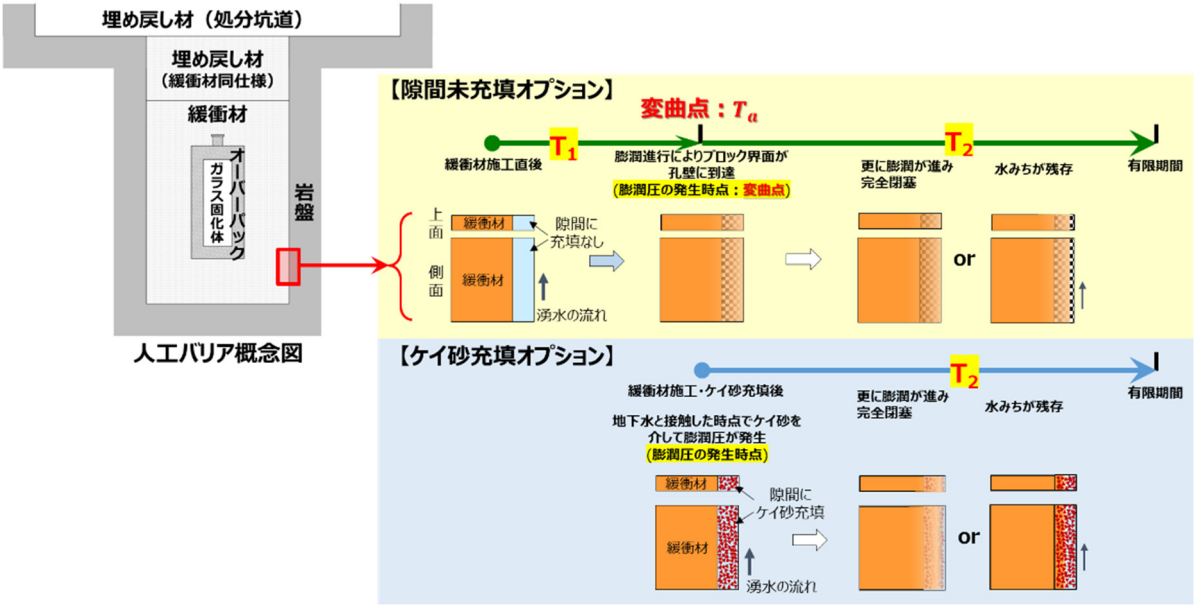


図2.6-3　2つの隙間処理オプションにおける緩衝材の流出挙動（想定）

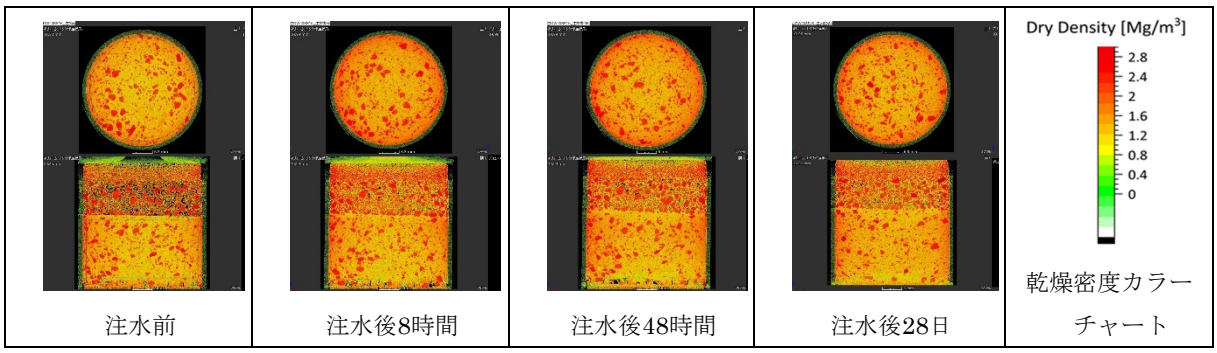


図2.6-4　静的試験で得られた空隙（ケイ砂領域）への緩衝材侵入挙動（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2022）

上図2.6-3に示す変曲点(T_a)は、図2.6-5に示す令和3年度に予備的に実施した隙間未充填オプションに関する室内要素試験結果を例とすれば、緩衝材ブロックの界面が隙間を膨潤して孔壁に接するタイミング（圧力計が反応するタイミング）であり、その後に緩衝材の流出量が収束に向かい始めるタイミングである。ケイ砂充填オプションの場合には、緩衝材は予め体積拘束されていることから、隙間未充填オプションで発現する初期の累積流出量の増加割合は減少する（もしくは無い）ことが想定される。

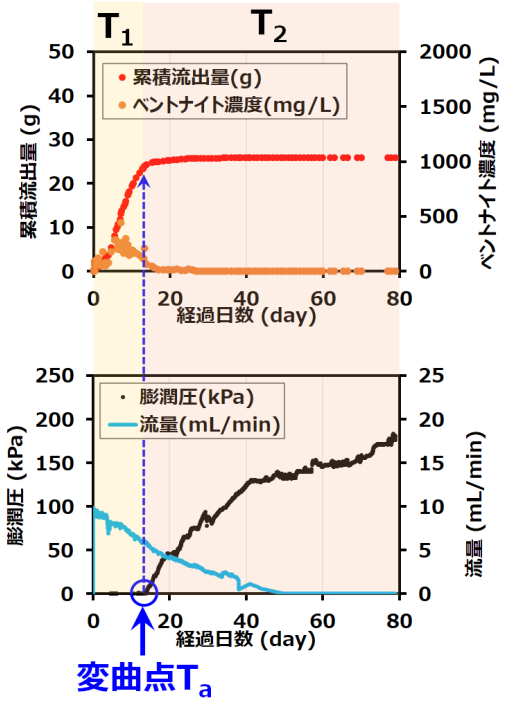
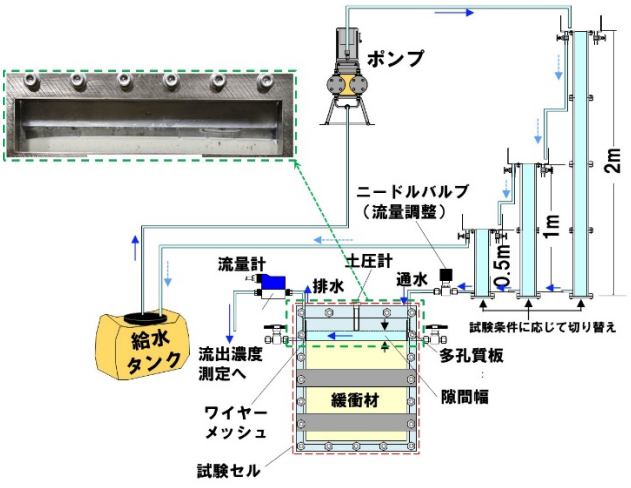


図2.6-5　流出挙動の変化を示す変曲点T_a

以上のように、ベースモデルは、実規模スケールの緩衝材界面（ブロック界面と孔壁の間の隙間）を切り出した微小領域の挙動を表現する。同モデルの開発において入力値となる室内要素試験には、前述した2つのパラメータ（処分孔内外水頭差、処分孔内湧水量）の制御が可能な機構が必要である。室内要素試験装置の概念と要求される機能を図2.6-6に示す。試験対象とする微小領域のサイズや隙間幅は、1ケースあたりの試験期間を考慮して設定する必要がある。なお、本事業で整備した室内要素試験装置、およびベースモデルの開発のために設定した試験ケースについては、「2.6.2(1)3)」で詳述する。



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

図2.6-6　室内要素試験装置の概念と要求される機能

上述の室内要素試験によって、① 緩衝材ブロックの界面が孔壁に到達するタイミング（変曲点）、② T_1 における流出挙動／流出量（変曲点の前）、③ T_2 における流出挙動／流出量（変曲点の後）の情報を得る。得られた情報に基づき、図 2.6-7 に示すような緩衝材の流出挙動を表現できるベースモデル（相関式）を構築することとした。1 つの相関式で表現するか、幾つかの領域に分割して各領域で相関式を整備するかは、各オプションの流出挙動（各種の要素試験結果）を踏まえて判断することとした。また、変曲点を有する挙動については、そのタイミングについても影響因子との関連性や相関性を模索することとした。

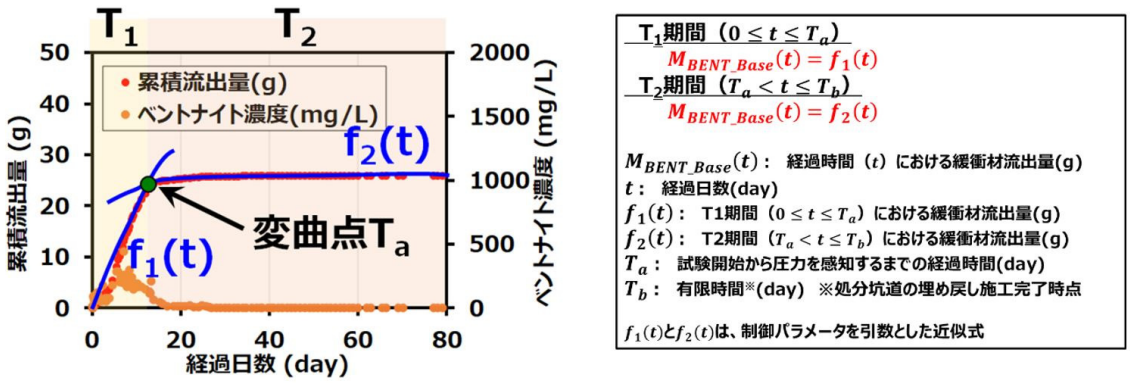


図2.6-7　緩衝材の流出挙動を表現できるベースモデル（相関式）のイメージ

(c) スケールアップ方法および実環境への拡張方法

室内要素試験に基づいて構築されたベースモデルは、工学規模あるいは実規模、更に実環境への適用を念頭に拡張する。ベースモデルがイオン交換水を用いた室内要素試験に基づくものであれば、原位置地下水環境への補正も必要となる。図 2.6-2 に示す各種試験をとおしてのベースモデルの拡張において、考慮すべき要素（補正係数）を挙げ、これらの効果が保守性や安全性に与える影響を定性評価する観点を表 2.6-3 に示す。

表2.6-3　補正係数が有する保守性・安全性評価に関する定性評価の観点

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

ベースモデルの拡張で考慮すべき要素（補正係数）について、要素（補正）を考慮する場合の観点、および要素が保守性および安全性に与える影響（効果）を定性評価する上での観点を以下にまとめる。

- 水質（C_w）
  - 原位置地下水を用いた室内要素試験ではない場合に考慮。
  - 緩衝材の浸潤、膨潤挙動に大きく影響し、地下水組成（イオン種）、濃度（イオン強度）、pH 等による影響で崩壊挙動（砂状に分解される挙動：凝集）を引き起こすため、非保守的な評価としてはたらくと想定。
  - 水質に関する補正係数は、水質固有の値で表現されると想定。

- 幾何形状（C_G）
  - 原位置（工学規模／実規模）の孔壁に不陸等の形状が存在する場合は考慮。

・ 前フェーズ（原子力環境整備促進・資金管理センター, 2018b）の成果として、孔壁に凹凸（不陸）がある場合、流出量が抑制される傾向が確認されているため、保守的な評価としてはたらくと想定。
・ 幾何形状に関する補正係数は、試験孔固有の値で表現されると想定。

● 重力（C_g）
・ 室内要素試験の流向（横向き）に対して工学規模／実規模の流向が異なれば考慮。
・ 流出促進効果（非安全評価）または流出抑制効果（安全評価）のどちらに働く。（想定）
・ 流出促進効果：竪方向の場合、重力によって沈降したケイ砂が留まり続け、流路を維持すると想定。
・ 流出抑制効果：竪方向の場合、流出するはずの緩衝材が重力によって沈降し、留まり続けることで流路抵抗が増加すると想定。
・ 流出促進効果および流出抑制効果には、水質（緩衝材の凝集効果）や幾何形状（孔壁の凹凸によるせん断抵抗）等も影響因子に含まれることに留意した上で、試験固有の値として表現されると想定。

● 隙間幅（C_{gap}）
・ 室内要素試験の隙間幅（緩衝材ブロックと孔壁間の距離）に対して工学規模／実規模の隙間幅が異なれば考慮。
・ 隙間の体積が変化することに伴って緩衝材の密度分布が異なる（緩衝材が充填すべき体積が変化する）ため、隙間幅が大きくなるほど非保守的な評価となると想定。
・ 隙間幅に関する補正係数は、隙間幅固有の値で表現されると想定。

● スケール（C_s）
・ 室内要素試験が対象とした微小面積と工学規模／実規模の側面積との比で表現。
・ 孔内の湧水は、孔底から地下水が供給されて孔口へ向かう単純な一方向の流動場を想定した場合、スケール効果は保守的に評価され、安全側に働くと想定。

④ 流出量評価モデルに基づく緩衝材流出特性の評価方法（案）

前述までの手順で構築された流出量評価モデルに基づく“緩衝材流出特性の評価方法”の実事業への適用例として、処分孔の利用判断および隙間処理オプションの選択評価例について、以下に例示する。

図2.6-8に示すように、緩衝材の流出量評価モデルを用いて2つのパラメータ（処分孔内外水頭差、処分孔内湧水量）の組合せ毎に得られた各グリッドの算出結果（T_2期間までの緩衝材の流出量）を等高線で整理し（図2.6-8の青線）、緩衝材の設計仕様から導かれる「許容流出量」を重ね合わせることで（図2.6-8のオレンジ線）、個々の処分孔環境に対して適用可能な隙間処理技術オプションを判断する。流出量評価モデルの入力となるT_2期間は、設計する作業プロセスから導出される処分坑道の埋戻しの完了までの時間となる（NUMO-SCでは、緩衝材施工から処分坑道の埋め戻しの完了までの期間で評価。深成岩類：299日、新第三紀堆積岩類：284日）。図2.6-8の等高線から、以下の判断が可能となる。

● オレンジ線の範囲内にある処分孔環境（水頭差と孔内湧水量の組合せ）であれば当該オプションが適用できる。

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

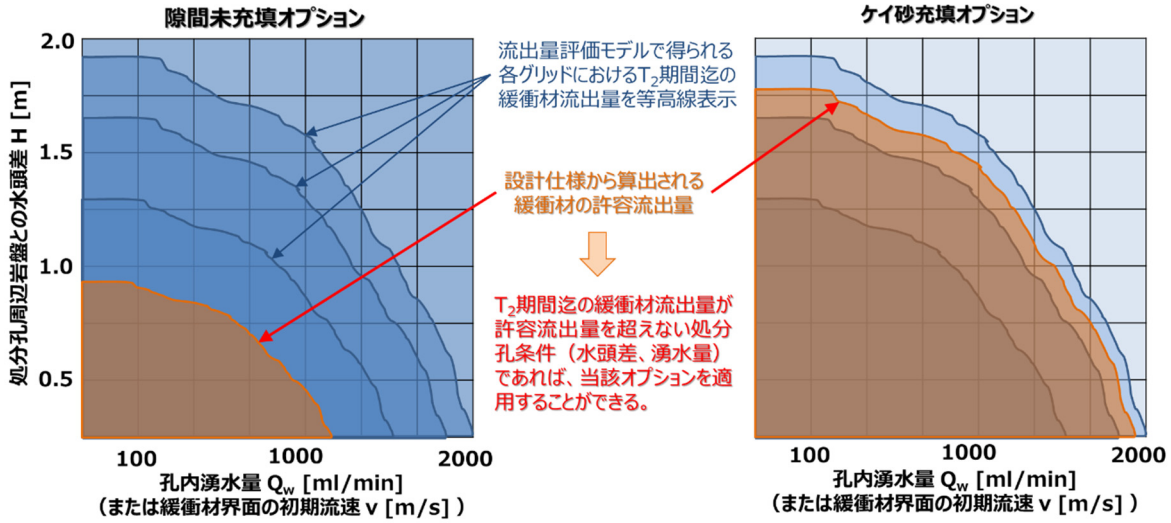


図2.6-8　緩衝材流出特性の評価例（隙間処理技術オプションの適用範囲の評価イメージ）

他の評価例として、適用する隙間施工技術オプションを与条件とすれば、緩衝材の設計仕様から導かれる「許容流出量」に至る時間（T_2期間）を流出量評価モデルから逆算できる。詳細設計される処分坑道単位での操業手順が、要求される時間（T_2期間）に収まるか否かを確認することで、必要となる操業技術の開発課題（高度化／迅速化）の抽出、あるいは操業手順や詳細設計（処分坑道あたりの処分孔数など）の見直しの可否などの評価に利用できる。

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

① 本事業における確認方法と手順

(a) 確認方法と手順

理想的な開発手順を用いて流出量評価モデルを開発する場合、要素試験の点数を十分に確保し、候補サイトの地下水の水質および緩衝材の仕様等を固定して実施することが望ましい。しかし、現段階では候補サイトが決まっておらず、図2.6-1に与条件として示した緩衝材ブロックなどの設計仕様や原位置での測定が可能なサイト依存パラメータ、原位置で把握可能な変動パラメータなどは現在の研究段階では全て未知である。そのため、本事業では、それらのパラメータを仮設定した上でモデル開発を試行し、モデル整備の方法論としての適用性を確認した。

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

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

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

- スケールや特徴の異なる室内試験と原位置試験を組み合わせることで、図2.6-1に示す多様なパラメータの一部の影響を排除する（着目した因子の影響を定量化する）。例えば、処分孔壁面の幾何形状の影響を排除した室内試験と原位置試験の差分を分析することで、その影響を定量化する。
- 多量の水を利用する室内要素試験では、原位置の地下水（あるいは模擬地下水）の利用に量的な制約がある。
- 緩衝材ブロック界面での流出挙動に関しては、要素試験スケールが微少であるがために、試験装置の設定や緩衝材（試料）の密度均質性などの感度が高く影響する可能性があり、一定の試験数（N数）を重ねて信頼性のあるデータを確保する。

以上を踏まえ、本事業では、室内要素試験と原位置実規模1/4スケール試験を組み合わせて図2.6-9に示す開発手順に従い、緩衝材の流出量評価モデル開発を進めることとした。

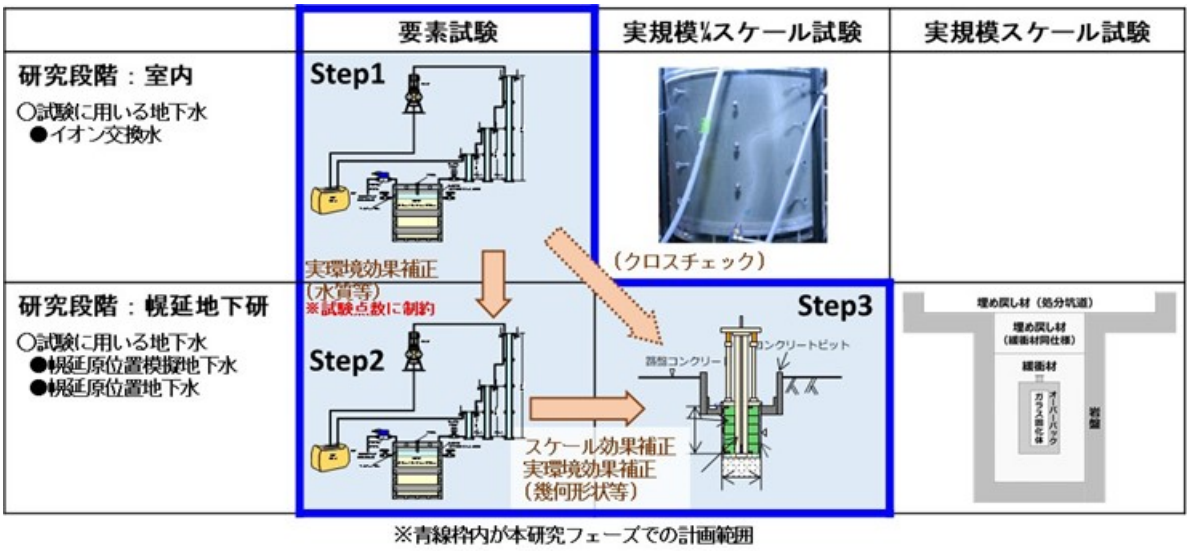
Step1 (1※) : 室内要素試験によるベースモデルの構築

Step2 (3※) : 室内要素試験による実環境効果（水質、重力等）を考慮し、拡張モデルへの更新

Step3 (5※) : 原位置実規模1/4スケールへの適用性の確認

原位置実規模1/4スケール試験結果と上記のStep1（およびStep2）で整備した拡張モデルを比較し、同モデルの拡張性／適用性を確認し、実事業（精密調査段階以降）へ適用する。

上述したステップ番号の右側括弧内は、既出「2) (a)の図2.6-2」のステップ番号である（対比として記載）。



※青線枠内が本研究フェーズでの計画範囲

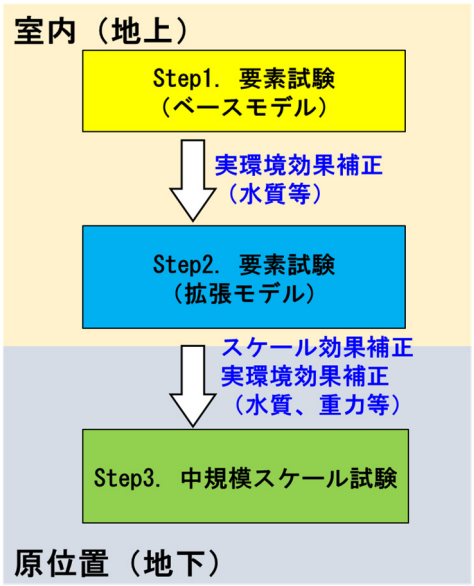


図2.6-9　本フェーズにおける流出量評価モデルの整備の手順

(b) 本事業で整備した試験装置

本事業では、ベースモデルの開発(Step1)および実環境効果を考慮したモデルの拡張(Step2)に必要となる室内要素試験装置、ならびに実環境効果（スケール効果、水質、幾何形状等）を考慮した拡張モデルの原位置試験による適用性の確認（図 2.6-2 の Step5、Step6）に必要となる、原位置実規模（中規模）1/4 スケール試験装置を整備した。

室内要素試験装置

ベースモデルは、実規模スケールの緩衝材界面（ブロック界面と孔壁の間の隙間）を切り出した領域の挙動を表現するものである（図 2.6-10）。試験装置には、“処分孔内外水頭差”および“処分孔内湧水量”をパラメータとして制御が可能な機構が必要である。

本事業では、図 2.6-11 および図 2.6-12 に示す試験装置を用いて要素試験を実施した。水頭差は、スタンドパイプ内を介して水頭が一定となるようオーバーフローの状態を維持し、初期流量

（流量調整）は、通水口の手前に設置したニードルバルブで制御し、試験セルの排水口に取り付けた流量計で経時的に測定した。試験装置や試験における留意事項を以下に要約する。

- 試験セル：耐腐食性を有する SUS316 を素材として選定し、緩衝材ブロック（高さ 200 mm×幅 200 mm×奥行 20 mm）、および隙間（高さ 20 mm×幅 200 mm×奥行 20 mm）を設定。
- 流量計 : SURPASS 社製（NTFZ 3S-5 型、NTFZ 3S-35 型）を使用し、試験ケース（初期流量）に合わせて選定。
- 圧力計：東京測器研究所社製(PDB-1MPB)を使用し、試験セル中央部に設置。
- データロガー：東京測器研究所社製(TDS-530)を使用し、流量、圧力データを一元管理。
- 吸光光度計 : ヤマト科学社製(PAS-110-YU)を使用。採水試料中に分散するベントナイト量（濃度）を吸光度との検量線により計測。

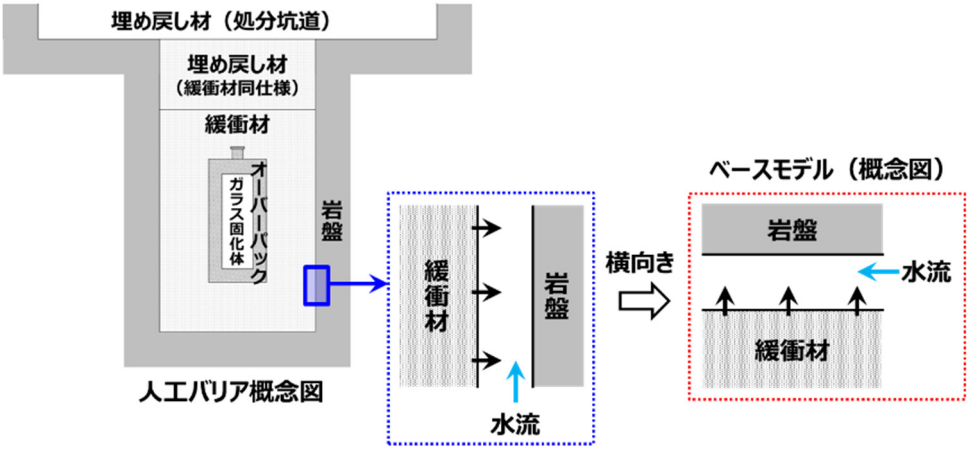


図2.6-10　ベースモデルの概念図

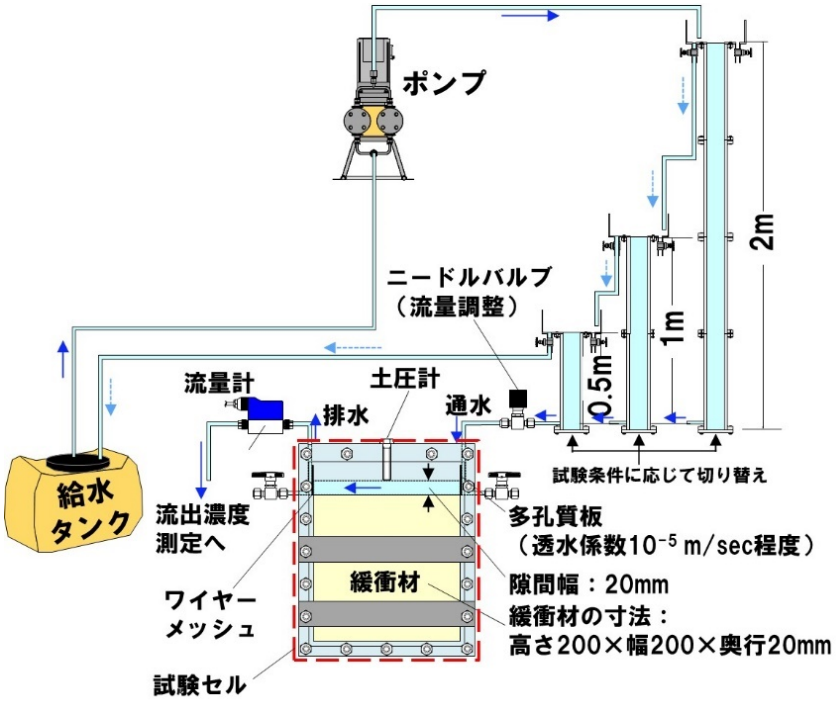


図2.6-11　室内試験の要素試験系　概念図

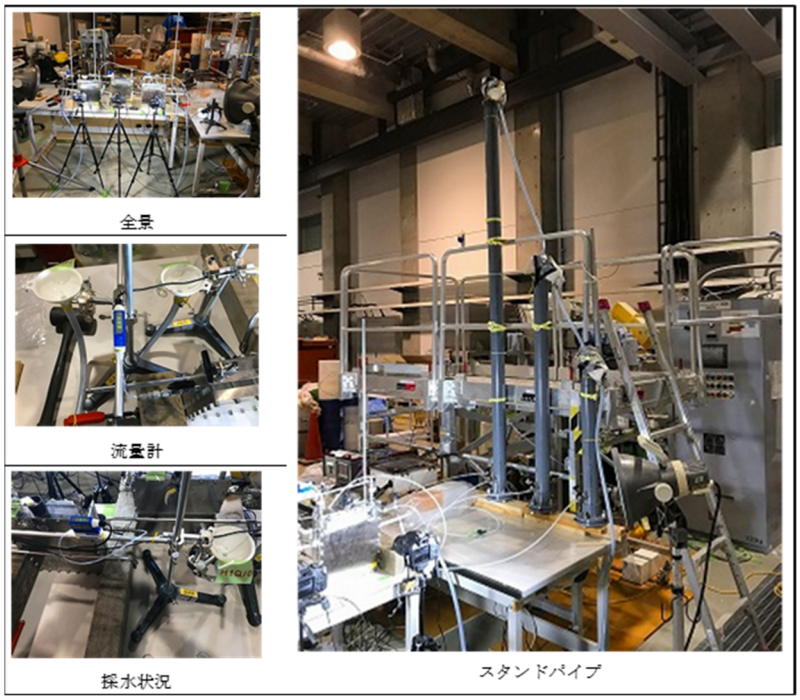


図2.6-12　室内試験の試験状況　写真

原位置実規模 1/4 スケール試験装置

原位置実規模1/4スケール試験は、原位置で確認される挙動と室内要素試験で整備したモデルとの整合性を確認し、モデルの拡張を図るためのものである。室内要素試験装置と同様、“処分孔内外水頭差”および“処分孔内湧水量”をパラメータとして制御が可能な機構が必要である。本事業では、幌延URLの深度350 m試験坑道5に設けられた試験孔2（孔径580 mm、深さ1,590 mm）を試験対象孔として使用した。緩衝材の形状は、中空円柱状のドーナツ型(外径540 mm、内径210 mm)のブロックを使用し、試験孔内に緩衝材を定置直後は、緩衝材外周と孔壁との間に幅20 mmの隙間が生じる設定とした。水頭差は中央円柱管の内部に設置した水位計で測定し、流量は試験孔から排水された地下水を釜場と水中ポンプを介して積算流量計で測定した。試験装置や試験における留意事項を以下に要約する。

- 試験孔：緩衝材ブロック上面が孔口の面と合うように、ケイ砂（3 号）で嵩上げ調整（重力による緩衝材の沈降で、流出量が過小評価される可能性を抑制）。孔底から地下水が供給されるよう、底部鋼製板には水抜き穴（φ10 mm の穴を 15 mm 間隔で千鳥配置）を設置。
- 積算流量計： KEYENCE 社製(FD-M5AT)を使用し、試験期間中に排水される地下水の積算値（積算排水量）を測定。
- 圧力計：東京測器研究所社製(KDE-2MPa)を使用し、緩衝材と孔壁の間の隙間に設置して側方膨潤圧を測定。また、緩衝材ブロック上面に圧力計を埋め込み、膨出に寄与する圧力（軸圧）を測定。
- 吸光光度計：島津製作所社製(UVmini-1280)を選定。採水試料中に分散するベントナイト量（濃度）を、吸光度との検量線により計測。

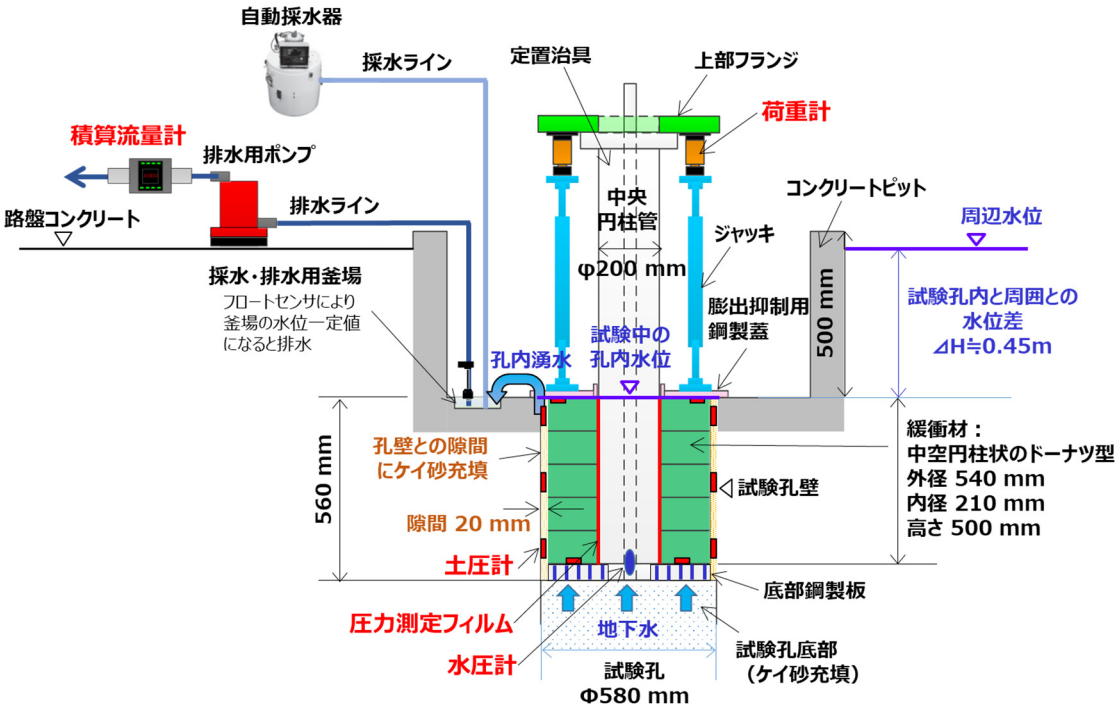


図2.6-13　原位置実規模1/4スケール試験の概要図（ケイ砂充填オプション：長期試験）

② ケイ砂充填オプションに対する適用性の確認結果

(a) Step1：室内要素試験に基づくベースモデルの構築

(i) 室内要素試験によるデータセットの取得

ケイ砂充填オプションを対象として、図2.6-9に示した流出量評価モデルの開発手順に沿って緩衝材流出特性の評価手法（方法論）の適用性を確認するため、図2.6-11に示す室内要素試験系でベースモデルの構築に関する試行を実施した。緩衝材ブロックは、表2.6-4に示すようにNa型ベントナイトとして、クニゲルV1（クニミネ工業製）を用い、混合用の砂としてケイ砂3号（マレーシア産）とケイ砂5号（オーストラリア産）を7：1.5：1.5の割合で混合したケイ砂30 wt%混合ベントナイトを使用した。供試体の寸法は、高さ200 mm、幅200 mm，奥行20 mm、乾燥密度は、緩衝材が膨潤し、試験セルの所定の隙間幅を充填した際に、乾燥密度1.6 Mg/m^{3}になるように初期乾燥密度1.9 Mg/m^{3}と設定し、含水比は、10 %に調整して使用した。なお、使用したクニゲルV1のモンモリロナイト含有率は58 %程度で、その他は石英などの随伴鉱物を含んでいる。通水液には水質変化に因らない結果を取得するため、不純物を含まないイオン交換水を使用した。ベースモデルのデータセット整備として、表2.6-5に示す試験ケースを設定し、緩衝材の累積流出量および濃度、排水流量、膨潤圧の経時変化等を取得した。

室内要素試験の制御パラメータのうち処分孔内外水頭差は、室内試験で一定水位を管理可能、かつ実際の処分坑道の高さ（処分孔で水柱管理が可能な高さ）を考慮して設定した。流量は、流路断面積の比率から室内要素試験から実規模スケールに換算した流量、かつNUMO-SCで示されている許容湧水量を参考に設定した。

試験期間は30日程度とし、緩衝材の累積流出量が一定値に収束する、もしくは排水流量がゼロ(0 mL/min)になることを試験終了の目安とした。

表2.6-4　緩衝材ブロックの仕様

ベントナイト	クニゲルV1（Na型ベントナイト）
ケイ砂	ケイ砂3号、ケイ砂5号
混合率	ベントナイト70 wt%：ケイ砂30 wt%（3号15 wt%＋5号15 wt%）
初期乾燥密度	1.9 Mg/m^3
隙間充填後の乾燥密度	1.6 Mg/m^3
含水比	10 %
供試体寸法	高さ 200 mm　幅 200 mm　奥行 20 mm

表2.6-5　ケイ砂充填オプションの試験ケースの設定

		流量・流速		
		1 mL/min 4.17×10^{-5} m/sec	10 mL/min 4.17×10^{-4} m/sec	20 mL/min 8.33×10^{-4} m/sec
水頭差	2 m	H2Q1-S	H2Q10-S	H2Q20-S
	1 m	H1Q1-S	H1Q10-S	H1Q20-S
	0.5 m	H05Q1-S	H05Q10-S	H05Q20-S
換算流量(実規模1/4) mL/min		90	880	1,760
換算流量(実規模) mL/min		680	6,850	13,700

(ii) 試験結果と考察

ベースモデルのデータセット（緩衝材の累積流出量、ベントナイト濃度、流量、膨潤圧の経時変化）として整理した室内要素試験の結果を図2.6-14に示す。同図に示す累積流出量から、制御パラメータである水位と流量に応じた一定の傾向が窺える。これらの各ケースの試験は概ね1回の試験で得られたものであることから、本ケイ砂充填オプションの室内要素試験では、安定した試験結果が得られる傾向があると言える。

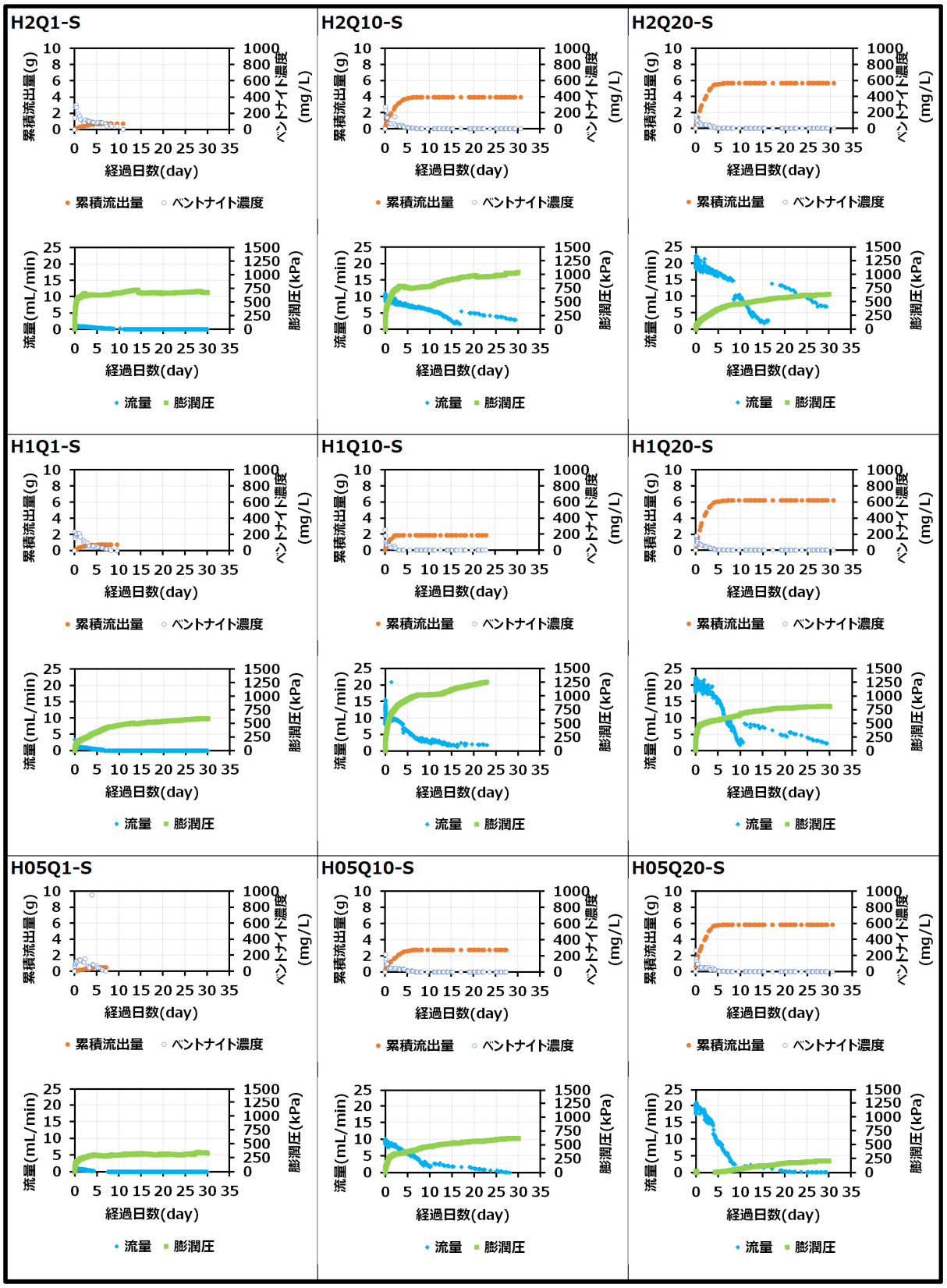


図2.6-14　ケイ砂充填オプション　ベースモデルのデータセット
（緩衝材の累積流出量、ベントナイト濃度、排水流量、膨潤圧）

上図2.6-14に示す試験結果から窺える特徴および考察を、以下に整理する。

［ベントナイト濃度］

- 試験開始直後にピーク波形が表れており、その裾野は非常に狭い。すなわち、試験開始の初期段階で最終的な累積流出量の大半を占めている。試験ケースごとにベントナイト濃度のピークが確認された時間とベントナイト濃度の関係をグラフ化すると、H05Q1-Sを除き0.5日以内に収束する傾向を示す（図2.6-15参照）
- 考察：
  - ケイ砂は予め洗浄処理しておりケイ砂に付着した微細粒分の流出は想定し難いため、試験開始直後に、緩衝材表面の微細粒子が先行的に流出した可能性が考えられる。
  - 精緻な要素試験装置であるため感度高く測定してしまう可能性がある。
  - ベントナイト濃度がピークの確認後に減少し低水準で維持する挙動は、ケイ砂充填オプションに期待した流出を抑制する効果が表れたものと推察される。

［膨潤圧］

- 低流量(1 mL/min)の条件では、水頭差の増加に伴い膨潤圧も上昇する傾向が窺えるが、流量を増加させたケース(10、20 mL/min)では、水頭差の増加と膨潤圧の増加傾向は一致していない。
- 考察：
  - 試験セル内は、緩衝材ブロックと隙間を充填したケイ砂によって体積拘束されており、試験開始後の給水に伴い緩衝材ブロックが膨潤し、充填したケイ砂を介して圧力計で膨潤圧が測定されることから、膨潤圧の伝播に伴いケイ砂充填領域が圧縮され、ケイ砂の骨格構造に違いが生じたため、膨潤圧を十分に伝播できていない可能性が考えられる。
  - 試験経過に伴う膨潤圧増加の軌跡に規則性はみられず、H05Q20-Sでは膨潤圧が遅れて表れている。
  - 一様な傾向を示さない他の要因として、供試体作製時の密度勾配や材料に混合したケイ砂の分散状態などの影響や、土圧計の測定誤差（設置誤差）も考え得る。

［流量］

- 初期流量が低流量のケース(1 mL/min)では、時間経過に伴い流量が減少して最終的に0mL/minとなる(H05Q1-S、H1Q1-S、H2Q1-S)。
- 初期流量を増加させたケース(10、20 mL/min)では、いくつかのケースで流量が突然増加する現象が確認された(H2Q20-S、H1Q20-S、H2Q10-S、H05Q10-S)。これらは、塞ぎつつあったケイ砂領域内の間隙部が水頭差による水圧に耐え切れず、破壊されて抜けたような挙動であることが窺える。なお、累積流出量に変化はみられないことから（図2.6-17参照）、破過したことによって取り除かれた緩衝材は、排水口から流出せずにケイ砂間隙内に留まり続けたと推察される。
- 初期流量を増加させたケースでは、それぞれ水頭差の増加に応じて流量の減少速度が遅く（減少に要する時間は長く）なる。水頭差が同程度であれば、流量の減少速度の傾向も同程度である。
- 考察：
  - 初期流量が低流量(1 mL/min)のケースで定点観察した写真（図2.6-16参照（試験終了後））において緩衝材の侵入状況が確認されることから、膨潤した緩衝材や通水液によって浸食された緩衝材が充填したケイ砂充填領域に侵入し、流路面積を狭めたことにより、流量が減少したものと考えられる。
  - 図2.6-17に示すように流量の経時変化を両対数軸で整理すると、初期流量に因らず、試

験開始から3 - 6日程度で流量が低下する傾向を示した。

・ 初期流量が低流量(1 mL/min)であれば、緩衝材の吸水効果との関係で流量が影響される。それを超える初期流量であれば、流量は初期流量に比例する。ただし、時間経過とともに低下し、その低下速度は水頭差に依存する。また、図2.6-14に示す試験結果にはバラツキがあるため、試験点数の拡充による確認が望まれる。

［緩衝材の累積流出量］

● 緩衝材の累積流出量は、時間経過に伴って増加する軌跡を描き、最終的にある一定の値に収束する。最終的な累積流出量は、本試験で設定した水頭差の範囲において相関は低く、流量との相関が高い傾向を示す。

● 考察：

・ 累積流出量の初期の増加傾向は当初の想定外である。この理由として、初期流量を増加（初期流速の増加、せん断・移送力の増加）させることに伴う、流出濃度の増加が考えられるが、この期間は短い。

・ 上述の期間以降は、低水準の流出濃度で維持され、水頭差に伴う流量の減少速度の違いがあるものの、累積流出量への影響は相対的に小さい。

・ 図2.6-17に示すように累積流出量の経時変化を両対数軸で整理すると、初期流量に因らず、試験開始から3 - 6日程度で累積流出量の増加率が低下する傾向を示しており、流量が低下するタイミングと概ね一致している。累積流出量の増加率の低下は、流量と相関があることを示していると考えられる。

・ 試験対象とするスケールや装置・試料への感度を踏まえると累積流出量の初期の増加傾向の定量化／一般化は難しい可能性があるが、今回の試験ケースから窺える一定の傾向を踏まえると、試験点数の拡充によって改善できる可能性がある。

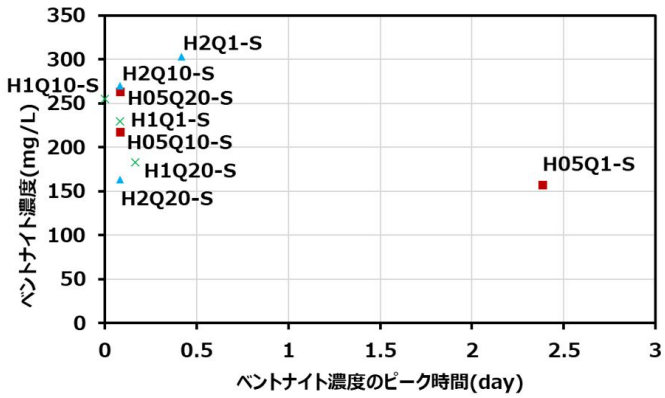
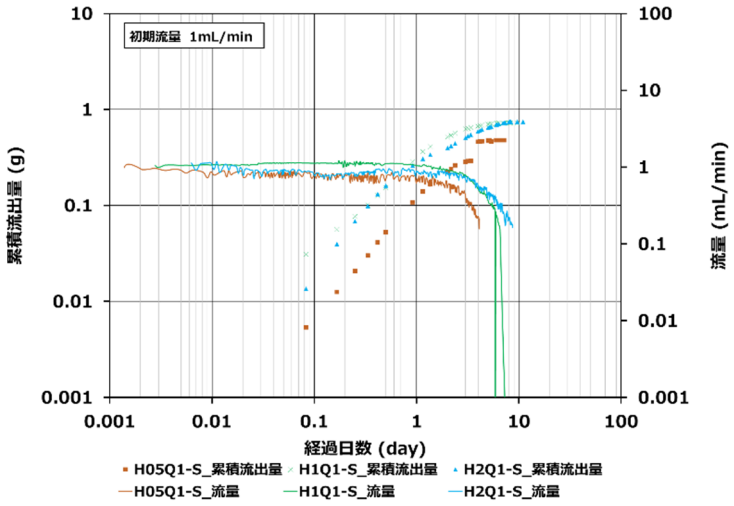


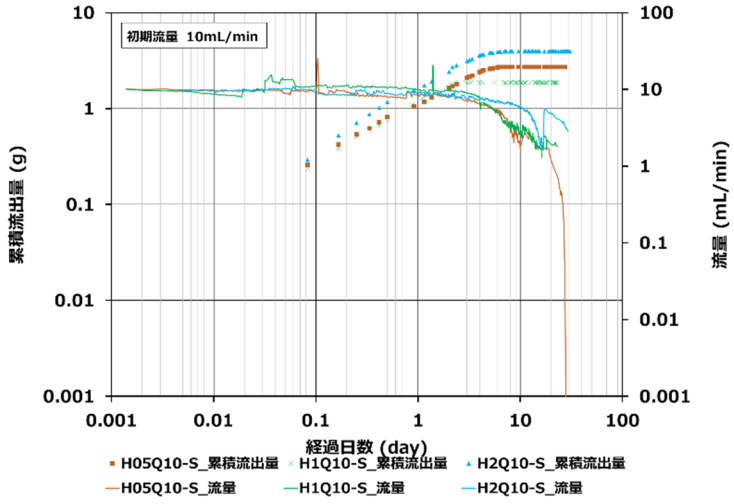
図2.6-15　ベントナイト濃度のピークが確認された時間とベントナイト濃度

試験開始時　　試験時　　試験終了時

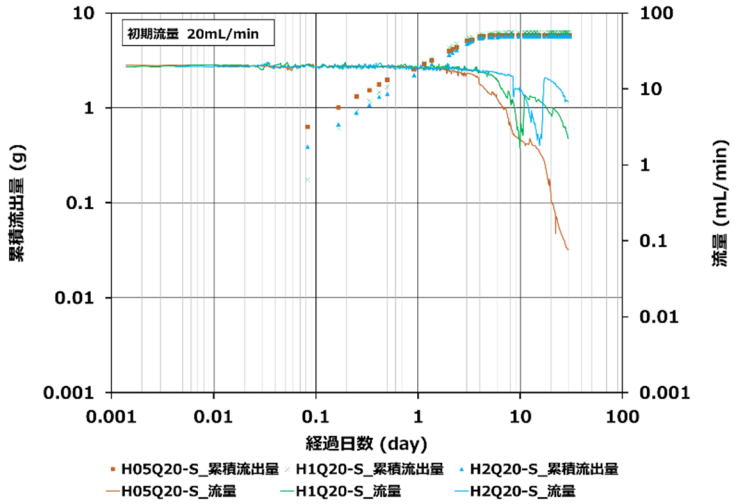
図2.6-16　ケイ砂充填領域の観察結果（例：H05Q10-S①）



（a）初期流量 1 mL/min



（b）初期流量 10 mL/min



（c）初期流量 20 mL/min

図2.6-17　累積流出量と流量の経時変化

以上のような試験結果と個々の測定値に対する考察を踏まえ、以下の観点から更なる分析と考察を進めた。

- 累積流出量の初期の増加傾向に影響を及ぼした可能性のある試験開始直後における緩衝材の細粒分や微細粒子の挙動
- 流量の低下に影響を及ぼした可能性のあるケイ砂領域の間隙への緩衝材の侵入挙動、あるいは予期せぬ試験装置の影響(ポーラスセラミックへの逆流やメッシュフィルタの目詰まり等)

試験終了後に試験セルを解体し、充填したケイ砂へ緩衝材が侵入した状況を観察し、隙間のケイ砂領域に侵入したベントナイトと混合したケイ砂の侵入量を計測した。

充填したケイ砂領域へ緩衝材が侵入した状況を観察する際、図2.6-18に示すようにケイ砂充填領域をメッシュ分割し、排水側のメッシュ領域(A-8)から側方を掘削してケイ砂領域の断面を観察した。観察および計測結果から以下が窺える。

- 試験ケース全体の特徴として、緩衝材ブロックと接触していたケイ砂領域（図2.6-18中のB-1からB-8）への緩衝材の侵入が観察された。ただし、目視観察の結果、接触面から数mm程度の侵入に留まっており（図2.6-19）、緩衝材から離れた試験セル上部のケイ砂領域（図2.6-18中のA-1からA-8）には緩衝材はほとんど侵入していない。この状況から、流路断面である当初のケイ砂領域（間隙領域）が徐々に小さくなり、流路抵抗が増したことが流量の減少に繋がったと考えられる。

更に、上述したケイ砂領域への緩衝材の侵入状況を定量的に分析するために、図2.6-18に示すメッシュ領域（A-1からA-8、B-1からB-8の16領域）ごとにケイ砂を取り除く。取り除いたケイ砂を、恒温槽を用いて絶乾状態にした後、75 μmのふるいで分離させて水洗いする方法（以下、［水洗い法］という）によって、緩衝材の細粒分のみを採取し、細粒分の重量を測定した。測定結果から窺える事項を以下に整理する。なお、充填したケイ砂(カラーサンド)の粒度規格は2.40 - 0.50 mmであり、75 μm以下の細粒分は含まれていない。

- ケイ砂充填領域全体の細粒分含有量を試験ケースごとに比較すると、最も細粒分含有量が多い試験ケースはH2Q10-S、最も少ない試験ケースはH1Q10-Sであった（図2.6-20）。細粒分含有量と制御パラメータ（水頭差、流量）の相関は、本試験点数では明確に表れなかった。
- 試験ケースごとにメッシュ領域（16領域）の細粒分含有量を図2.6-20に示す。同図に全体平均に対する大小を色調で表現した。図2.6-20から、どのケースにおいてもケイ砂領域の上下で色調のコントラストが確認されており、緩衝材ブロックと接触していたケイ砂領域（図2.6-18中のB-1からB-8）の細粒分含有量が多い傾向を示した。
- 次に、試験ケースごとにメッシュ領域（16領域）の細粒分の充填率を図2.6-21に示す。細粒分含有量と同様に充填の程度を色調で表現した。ここで、細粒分の充填率は以下のように定義した。

  細粒分の充填率 ＝（細粒分の体積）/（充填したケイ砂の間隙体積）×100(%)

  試験ケースごとに細粒分の充填率に違いはあるが、緩衝材ブロックと接触していたケイ砂領域（図2.6-18中のB-1からB-8）で比較的高い充填率を示しており、緩衝材の細粒分がケイ砂領域へ侵入していると推察される。
- 他方、通水口（図2.6-18中のA-1、B-1）および排水口（図2.6-18中のA-8、B-8）付近においても、充填率が高い傾向が示されている。通水口では、試験セル（側面）とケイ砂の界面付近ということもあり、装置の特性として細粒分が侵入しやすい形状である可能性に加え、上流からの給水が下側の緩衝材ブロックの浸潤に優先的に寄与した可能性がある。また、排水

ロでは、試験装置を通って移送された細粒分が集積している可能性がある。試験終了時点では、全ケースで流出量は概ねゼロ(0 g)であることから、細粒分の中には微細粒分（モンモリロナイト粒子）はほとんど残存していないと考えられる。今後、細粒分の沈降分析で確証を得ることが課題として挙げられる。

以上を踏まえると、ケイ砂領域（間隙領域）に緩衝材の細粒分が侵入し、流路断面の減少や抵抗の増加が流量の低下の要因と考えられる。ただし、一定の大きさの細粒分はケイ砂の間隙領域に留まったとしても、累積流出量の初期の増加傾向に寄与した可能性のある試験開始直後における緩衝材の微細粒子の挙動の詳細は把握できておらず、その挙動や影響の程度について今後の詳細な試験や分析が望まれる。また、上述したように、今回の室内要素試験に用いた装置の構造そのものが流出や浸潤・膨潤／侵入過程に影響した可能性も考えられる。後述する隙間未充填オプションに関する複数の試験のなかには、通水口や排水口付近の緩衝材の膨潤が極端に速いケースや逆のケースもあり、試験装置の構造特性や試料の製造品質が結果に影響することも把握されている。

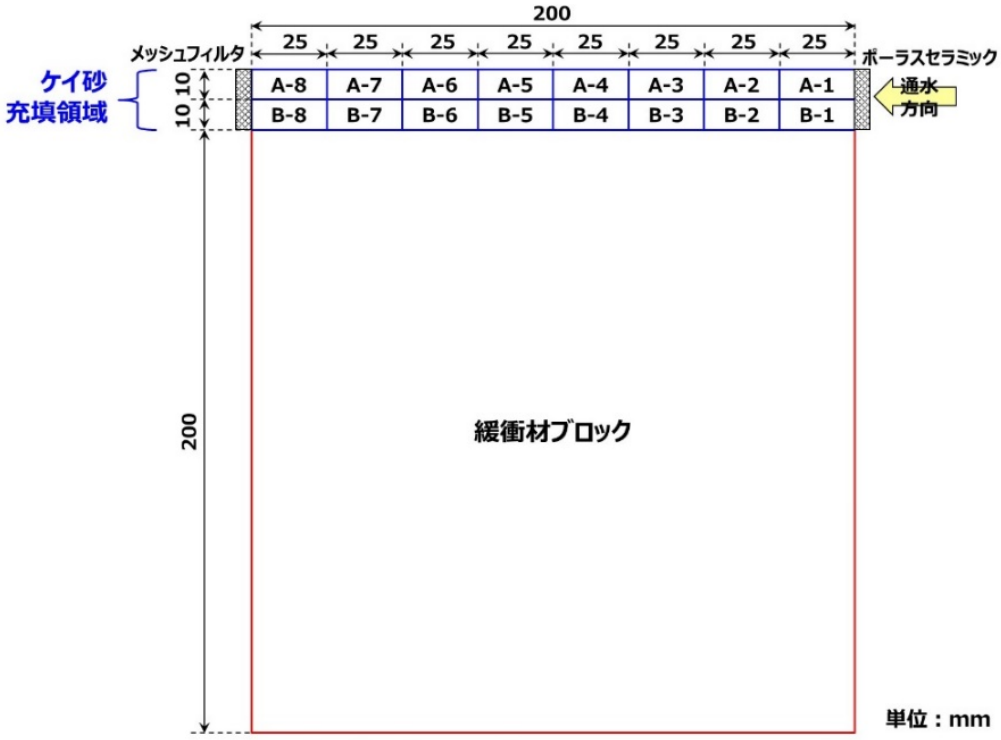
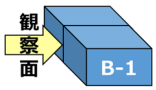
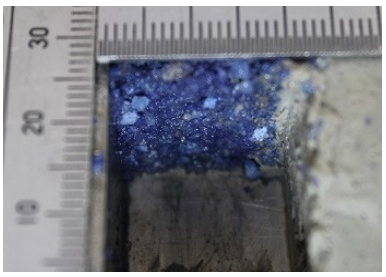


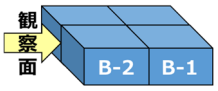
図2.6-18　ケイ砂充填領域のメッシュ分割

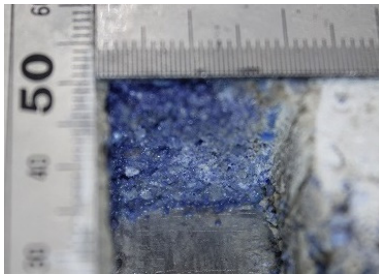
給水側からの距離：25 mm



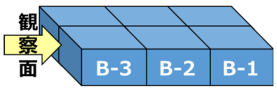


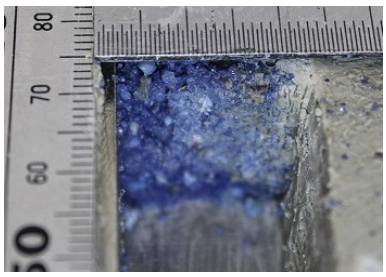
給水側からの距離：50 mm



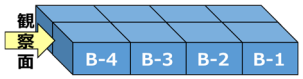


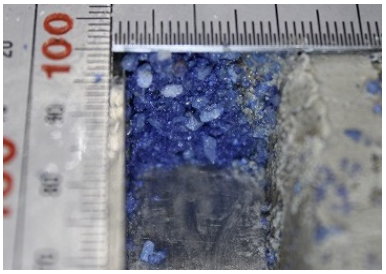
給水側からの距離：75 mm



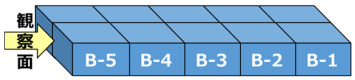


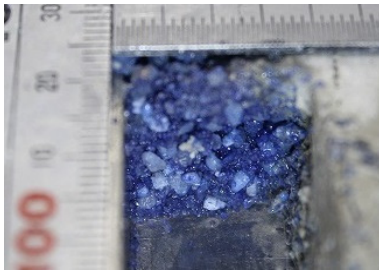
給水側からの距離：100 mm



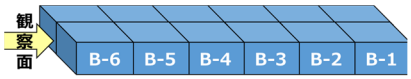


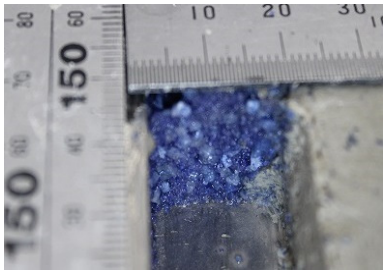
給水側からの距離：125 mm



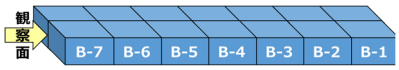


給水側からの距離：150 mm





給水側からの距離：175 mm



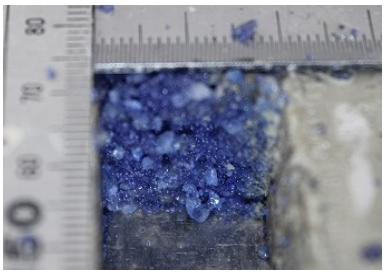
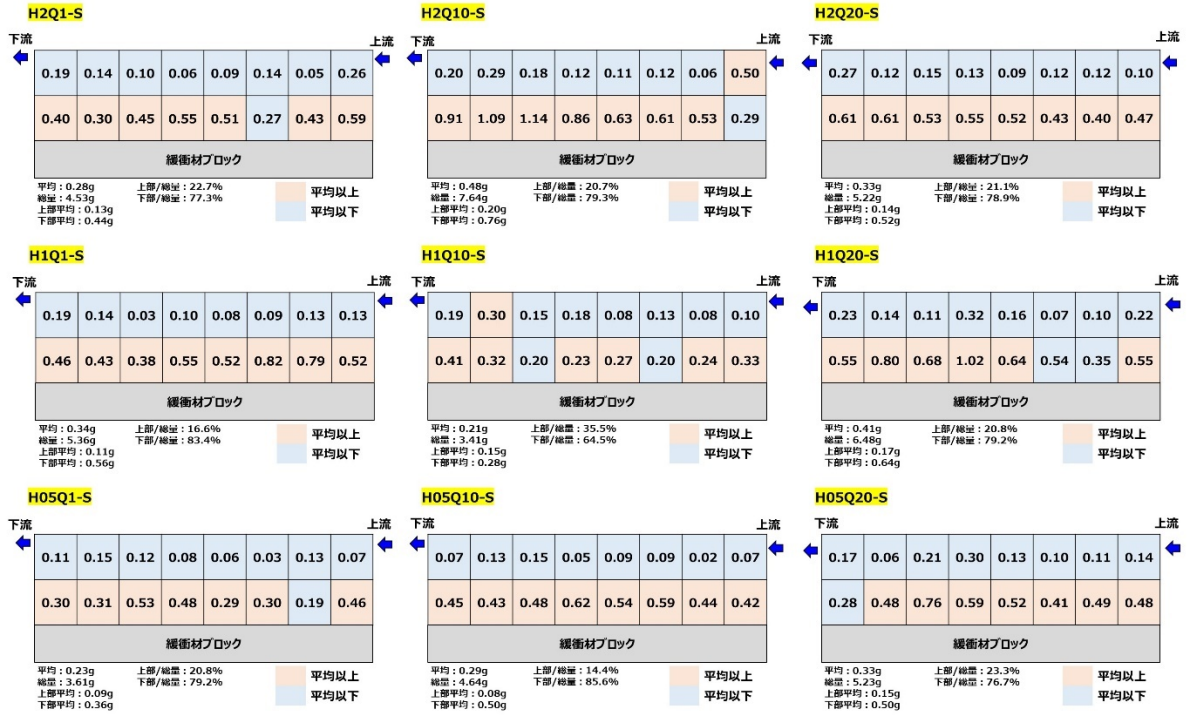
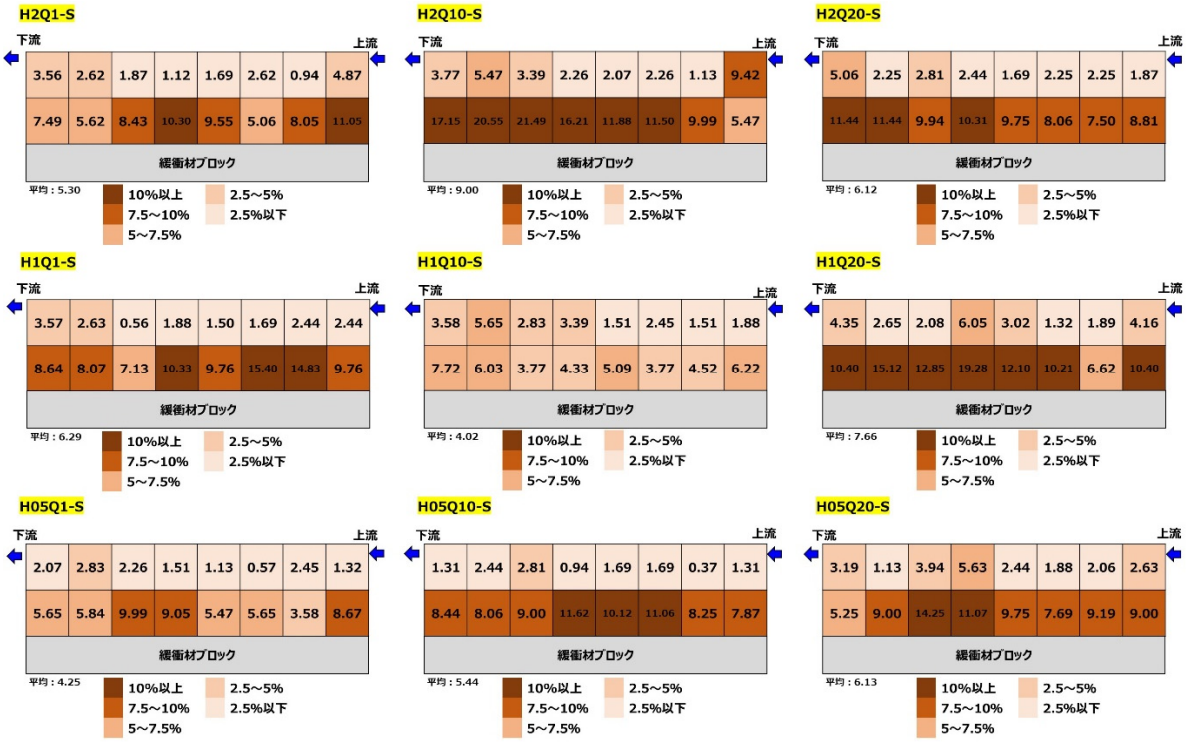


図2.6-19　充填したケイ砂の断面観察結果（例：H2Q10-S）



単位：g

図2.6-20　ケイ砂間隙内に侵入した細粒分含有量の分布



単位：%

図2.6-21　ケイ砂間隙への細粒分含有量の充填率

(iii) ベースモデルの整備

室内要素試験で取得した緩衝材の累積流出量をデータセットとして、データの規則性や傾向を分析し、累積流出量を予測評価するベースモデルを検討した。前述の室内要素試験の結果から、ケイ砂充填オプションにおける緩衝材の累積流出量は、全試験ケースの傾向から流量との相関が高いことから、流量を引数としたベースモデル（相関式）の構築を試みた。

累積流出量の初期の増加傾向を示す領域を含めて、SKBのべき乗モデルを経過時間で表現し直したモデル（以下、［べき乗関数モデル］という）による表現を試みた。ただし、本モデルは室内要素試験で取得した試験結果をベースとするため、1 mL/min - 20 mL/minの流量および0.5 m - 2.0 mの水頭差が適用範囲であることに留意されたい。また、初期の増加以後は、時間経過とともに低い流出濃度が維持されつつ流量は減少することから、1つのべき乗関数モデルで全区間をモデル化すると累積流出量を過大評価することに留意して検討した。

べき乗関数モデルは、緩衝材設置後の経過日数tと緩衝材の累積流出量m_sをべき乗関数（式(2.6-1)）で整理したものであり、NUMO-SCのべき乗モデル（式(2.6-2)）のM_wをtにしている。

$$m_s = \alpha t^{\beta} \qquad (2.6\text{-}1)$$

$$m_s = \alpha {M_w}^{\beta} \qquad (2.6\text{-}2)$$

ここに、m_s：緩衝材の累積流出量、M_w：孔からの累積排水量、t：緩衝材設置後の経過日数、α, β：係数を示す。

緩衝材の累積流出量は、初期流量と水頭差を制御パラメータとした条件のもと、時間経過に伴い対数関数的に増加する傾向が示されている。緩衝材の累積流出量の経時変化を本モデルで表現する場合、図2.6-22に示すように、単調増加区間（以下、［Range 1］という）と漸増区間（以下、［Range 2］という）に分けて整理することとする。

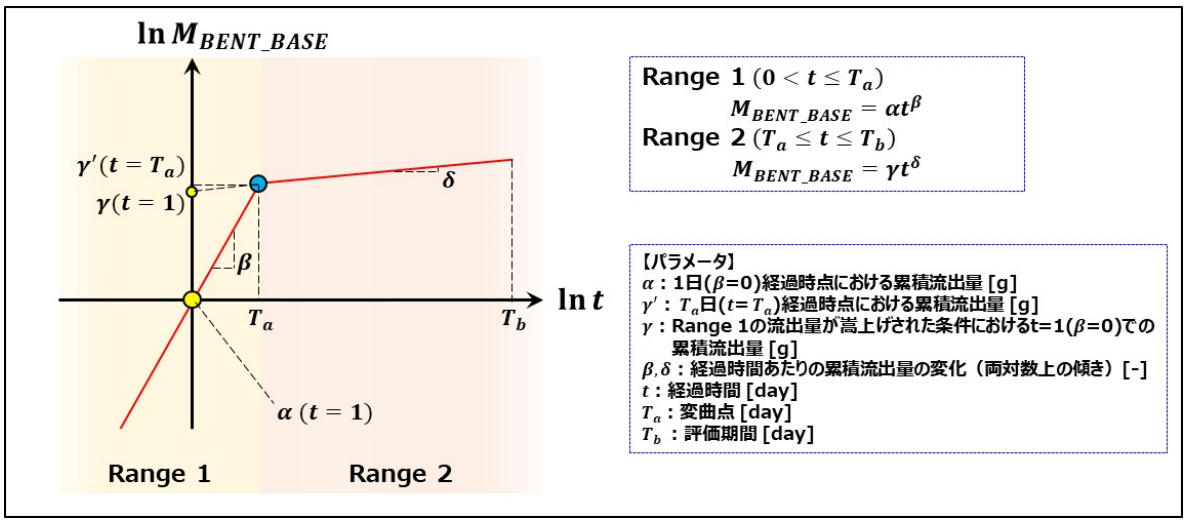


図2.6-22　べき乗関数モデルのグラフ概念図

本モデルは、Range 1およびRange 2で異なる関数を使用するため、Range 2以降の累積流出量を予測評価する際には、両者を区分する時間T_aは入力値（既知）として求められる。両者を区分する時間T_a(day)は、2つの関数の折れ点（以下、［変曲点］という）を指し、前述した室内要素試

験の結果では試験パラメータである初期流量や膨潤圧の発生挙動との相関性が低いことから、実験的（統計的）に取得する必要がある。試験点数は限定的であるものの、今回の試験結果（図2.6-14）から$3 \leq T_a \leq 6$(day)の範囲に集中していることや試験結果との整合性を踏まえて、$T_a = 3$(day)と設定した。Range 1、Range 2における累積流出量の経時変化は、それぞれ式(2.6-3)、式(2.6-4)で表現させ、べき乗関数を構成する4つパラメータ$(\alpha, \beta, \gamma, \delta)$については、流量を引数とした関数で表現させることとした。

$$M_{BENT_BASE} = \alpha t^{\beta} \quad (2.6\text{-}3)$$

$$M_{BENT_BASE} = \gamma t^{\delta} \quad (2.6\text{-}4)$$

以降、本モデルをデータセット（図2.6-14）へ適用し、Range 1とRange 2でフィッティングした結果を示す。

【Range 1 $(0 < t_1 \leq T_a)$】

緩衝材の累積流出量の経時変化（両対数グラフ）は、図2.6-23に示すように流量ごとに帯域でグルーピングできるため、流量1 mL/min、10 mL/min、20 mL/minでグラフを整理し、べき乗関数を用いてフィッティングした（図2.6-24）。データセットを本モデルで網羅するためには、どの流量においても帯域幅をもつため、パラメータα（試験開始から1日経過後の累積流出量）は表2.6-6に示すように幅をもって示される。αの値を決める際は、保守的な評価として帯域幅の上限値で設定し、αと流量Qの線形相関で整理した（図2.6-25）。パラメータβ（対数グラフで表現したべき乗関数の傾き）は、データ点数が3点のみであることから、平均値を用いて設定した（図2.6-25）。

以上から、Range 1 $(0 < t \leq T_a)$ のモデルは、以下の式(2.6-5)で示される。

$$M_{BENT_BASE}(t, Q) = (0.136Q + 0.393)t^{0.7} \quad (2.6\text{-}5)$$

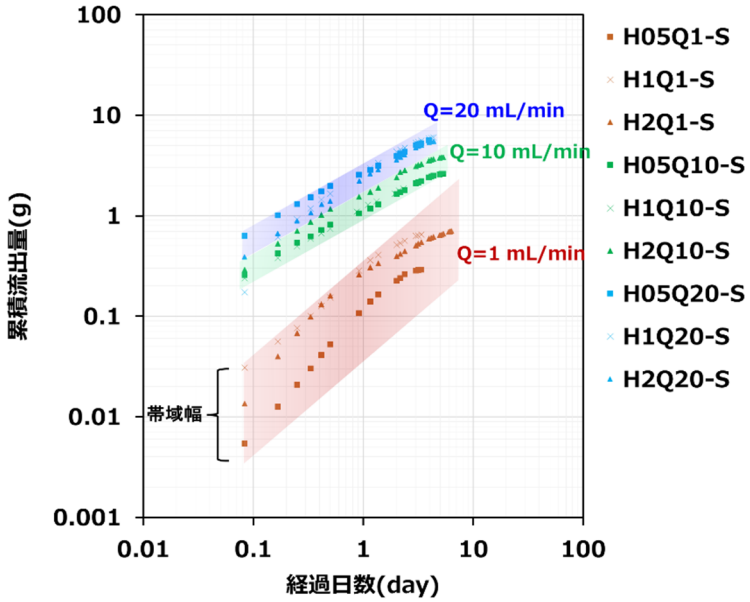
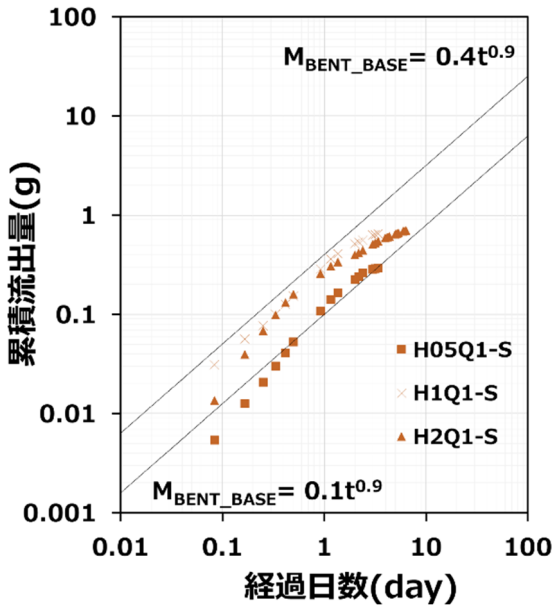
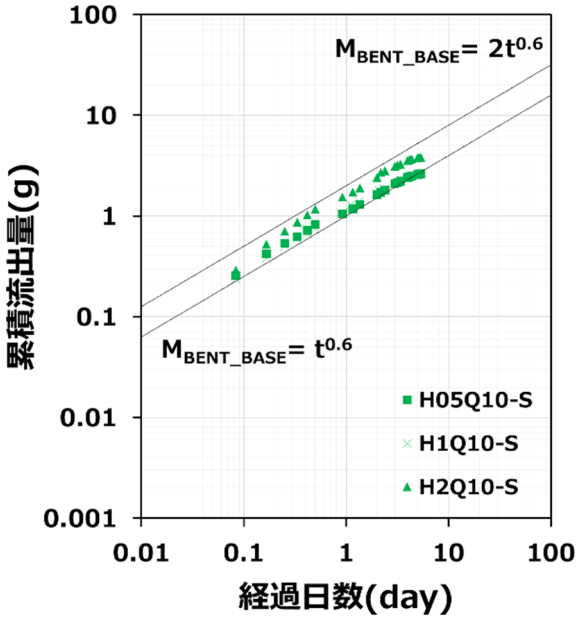


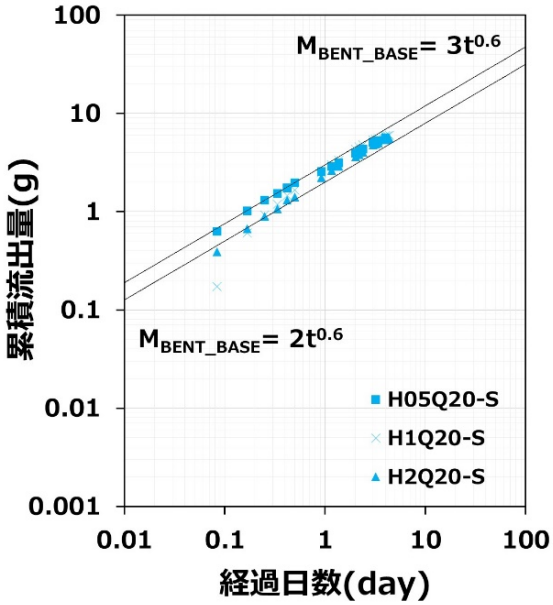
図2.6-23　Range 1における累積流出量の経時変化（流量ごとに帯域表示）



（a）初期流量 1 mL/min



（b）初期流量 10 mL/min



（c）初期流量 20 mL/min

図2.6-24　初期流量ごとに整理したべき乗関数モデル

表2.6-6　べき乗関数モデルを構成するパラメータ

流量(mL/min)	α（g）	β
1	0.1 - 0.4	0.9
10	1 - 2	0.6
20	2 - 3	0.6

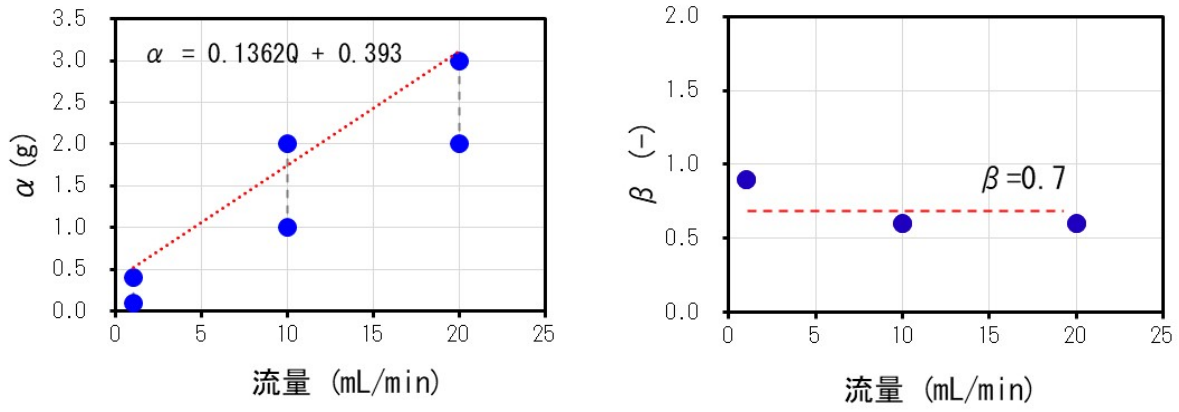


図2.6-25　パラメータα、βと流量の関係

【Range 2($T_a < t \leq T_b$)】

Range 2についてもRange 1と同様、緩衝材の累積流出量の経時変化（両対数グラフ）を流量ごとに帯域でグルーピングし、流量1 mL/min、10 mL/min、20 mL/minごとに整理し、べき乗関数を用いてフィッティングした（図2.6-26）。

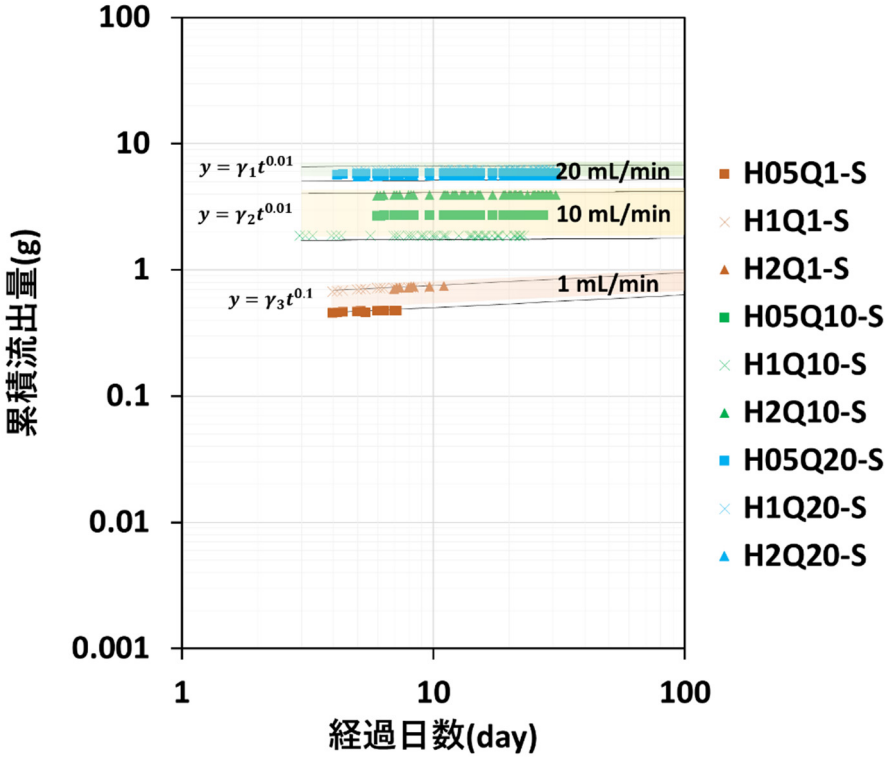
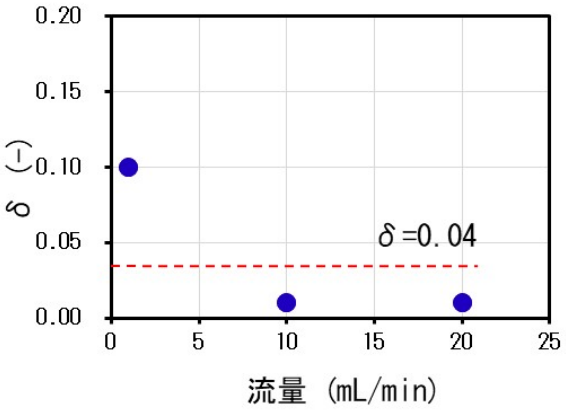


図2.6-26　Range 2における累積流出量の経時変化（流量ごとに帯域表示）

パラメータγ（t=1との交点）は、Range 1の累積流出量分が嵩上げされた値（厳密にはγ'：図2.6-22）である点に留意する必要がある。パラメータδ（対数グラフで表現したべき乗関数の傾き）は、データ点数が3点のみであることから、平均値を用いて設定することとした（図2.6-27）。



流量(mL/min)	δ
1	0.1
10	0.01
20	0.01

図2.6-27　パラメータδと流量の関係

以上のことを踏まえ、Range 2（$T_a < t \leq T_b$）のモデル式の導出を以下に示す。
まず、Range 2（$T_a < t \leq T_b$）のモデル式は、式(2.6-6)で定義される。

$$M_{BENT_BASE} = \gamma t^{\delta} \tag{2.6-6}$$

次に、変曲点 T_aにおける累積流出量 γ'は式(2.6-7)で表される。

$$\gamma' = \gamma {T_a}^{\delta} \tag{2.6-7}$$

$$\gamma = \frac{\gamma'}{{T_a}^{\delta}} \tag{2.6-8}$$

式(2.6-5)から、累積流出量 γ'を求める。

$$\gamma' = M_{BENT_BASE}(T_a, Q) = (0.136Q + 0.393){T_a}^{0.7} \tag{2.6-9}$$

式(2.6-9)を式(2.6-8)に代入し、それを式(2.6-6)へ代入する。

$$M_{BENT_BASE} = \frac{(0.136Q + 0.393){T_a}^{0.7}}{{T_a}^{\delta}} t^{\delta} \tag{2.6-10}$$

図2.6-27より、 δ =0.04を式(2.6-10)へ代入する。

$$M_{BENT_BASE} = \frac{(0.136Q + 0.393){T_a}^{0.7}}{{T_a}^{0.04}} t^{0.04} \tag{2.6-11}$$

以上より、Range 2 ($T_a \leq t \leq T_b$)のモデルは、式(2.6-11)で示される。
Range 1、Range 2のモデル式を総括して、べき乗関数モデルは、式(2.6-12)、式(2.6-13)で表現される。

評価期間が$0 < t \leq T_a$のとき、

$$M_{BENT_BASE}(t, Q) = (0.136Q + 0.393)t^{0.7} \tag{2.6-12}$$

評価期間が$T_a \leq t \leq T_b$のとき、

$$M_{BENT_BASE}(t, Q) = \frac{(0.136Q + 0.393){T_a}^{0.7}}{{T_a}^{0.04}} t^{0.04} \qquad (2.6\text{-}13)$$

べき乗関数モデルによる流出量の予測評価式(2.6-13)を用いて、流量 $Q = 1$、10、 20(mL/min)、変曲点$T_a = 3$(day)、評価期間 $T_b = 284$(day)（新第三紀堆積岩類の評価期間 : NUMO-SC）を例題としたときの経時変化を図2.6-28に示す。なお、図2.6-28には、試験結果（データセット）も合わせて示す。

べき乗関数モデルによる予測評価と試験結果（データセット）を比較した結果を以下に示す。

- 室内要素試験の実施期間30日における累積流出量は、流量によらず、べき乗関数モデルによる予測評価の値が上回っている（表2.6-7）。
- 試験で取得した値と予測評価した値に大きな乖離はないが、本検討では各水準の試験結果は1回の試験によるものであることから、試験点数を増やしてバラツキを考慮した流出量の予測評価が課題として挙げられる。
- NUMO-SCで示されている新第三紀堆積岩類の評価期間284日のうち、べき乗関数モデルで累積流出量を予測評価した値は、評価期間30日からの増加量は1 g以下に抑えられている。ただし、変曲点T_a以降の流出量は漸増傾向が継続する仮定を置いていることに留意する（室内要素試験による試験データがないため、参考値として扱う）。
- 累積流出量と経過日数の関係で示すと、試験結果（データセット）の累積流出量をべき乗関数モデルによって概ね再現することができた（図2.6-28）。

以上のことより、室内要素試験の結果（データセット）に基づくベースモデル（べき乗関数モデル）を構築することができた。ただし、試験点数が少ないため、その代表性に不確実性があることに留意が必要である。今後は、データセットの試験点数の拡充による与条件に対する代表性の精度向上、データセットの制御パラメータの分解能の向上、緩衝材の許容流出量に留意した入力値（データセットの制御パラメータ）の範囲拡張等が課題として挙げられる。

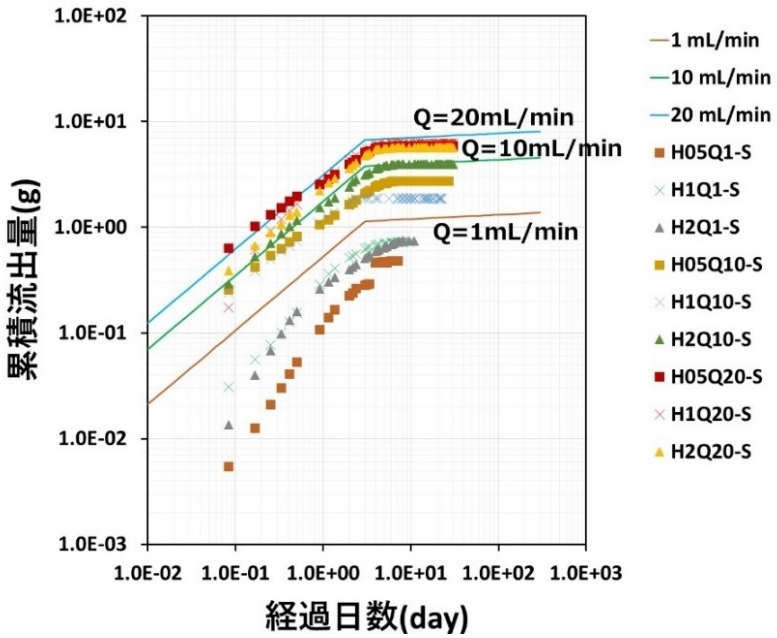


図2.6-28　べき乗関数モデルと室内試験結果との比較

表2.6-7　べき乗関数モデルで予測した緩衝材の累積流出量

初期流量（mL/min）		1	10	20
換算流量(実規模1/4)（mL/min）		90	880	1,760
換算流量(実規模)（mL/min）		680	6,850	13,700
モデル予測値（g）	評価期間30日	1.25	4.15	7.37
	評価期間284日	1.37	4.54	8.07
試験値（試験期間30日）（g）		0.65	2.84	5.89

緩衝材の累積流出量を予測評価するベースモデルとして、べき乗関数モデルの入力パラメータ、適用範囲、容易性や評価精度等のメリット、デメリットの観点で整理した留意点を表2.6-8に示す。

ベースモデル（べき乗関数モデル）では、累積流出量が収束傾向にある区間(Range 2)においても漸増する評価式を適用しているため、保守的な評価となっている。一方、変曲点T_aを境に適用する式が異なるため、取り扱いが若干煩雑になることや、収束傾向にある区間(Range 2)の評価が過剰となる可能性がある。また、室内要素試験で取得したデータセットの試験点数が少ないため、試験条件ごとの代表性に不確実性が残る点、制御パラメータに対する分解能が低い点に課題が残るため、試験点数の拡充によりバラツキの影響を確認し、モデル化する必要がある。

表2.6-8　ベースモデルの留意点（特徴）

ベースモデル	べき乗関数モデル
入力パラメータ	・1日経過時点における緩衝材の累積流出量α（g） ・経過時間当たりの累積流出量の変化 β（傾き） ・変曲点の時間 T_a（day）
入力パラメータの引数	・流量Q（mL/min）
評価モデルの適用範囲	・0.5 m≦水頭差H≦2 m ・1 mL/min≦流量Q≦20 mL/min
メリット	・SKBのべき乗モデルを踏襲しているため、イメージしやすい。 ・モデルの適用範囲内であれば、流量のみを入力パラメータとできる。 ・変曲点T_a以降の累積流出量の漸増する挙動も表現できる。
デメリット	・変曲点T_aを境に式が変わるため、モデル構築が若干煩雑である。 ・変曲点T_a以降の累積流出量が過剰評価となる可能性がある。 ・データセットの試験点数不足による代表性（再現性）の不確実性が残る。 ・制御パラメータに対する分解能が粗い。

(iv) 他の関数によるベースモデル整備の試み

室内要素試験で取得した累積流出量は、時間の経過に伴い単調増加し、変曲点T_aで一定値に収束する傾向がある。単調増加する流出挙動はべき乗関数によって表現し、ベースモデルとして整備することが可能であるが、その他の関数を用いて本挙動を表現することが可能であるかを試行するため、室内要素試験の累積流出量と経時変化に類似した挙動を示し、上限および下限に漸近線を有するS（シグマ）型の単調増加関数（シグモイド関数）を例題としてフィッティングを試みることとした。

シグモイド関数は、生物の個体数の変化を表現する数理モデルの一種であり、ある単一種の生

物が一定環境内で増殖（単調増加）するときに、その生物の個体数の変化を予測評価するのに使用される単調増加連続関数である。個体数がある上限を超えた場合は、その個体数は環境収容力の値に向かって、緩やかに収束する挙動を示すものである。式(2.6-14)で表される関数形で示され、$y = A_1$、$y = A_2$を漸近線としたS型の単調増加を描く特徴をもつ（図2.6-29）。単調増加区間には変曲点 $(x_0, (A_1+A_2)/2)$ を有し、変曲点における接線勾配 $(A_1+A_2)/4\alpha$ によってグラフのフィッティングが可能となる。

$$y = \frac{A_1 - A_2}{1 + e^{(x-x_0)/\alpha}} + A_2 \qquad (2.6\text{-}14)$$

ここに、xは入力値、yは出力値、A_1は最小収束値、A_2は最大収束値、x_0は変曲点の位置、αは係数を示す。

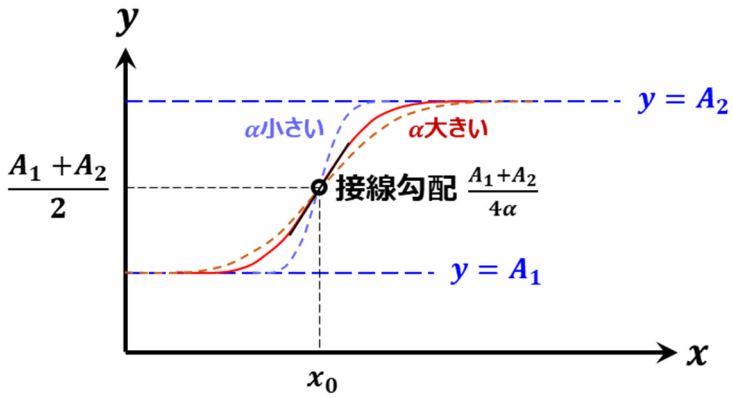


図2.6-29　シグモイド関数のグラフ概念図

緩衝材の累積流出量は、現象として生物の個体数の変化と直接的な相関は無いが、既往の試験から初期流量や水頭差を制御パラメータとした条件下で、ある値（最終的な累積流出量）に向かって緩やかに収束する傾向が示されている。これは、緩衝材の膨潤によって流路断面積が縮小し、通水液の流量が低減される（粘性応力が小さくなる）ことが一因と考えられる。この現象に従って表現された緩衝材の累積流出量の経時変化は、式(2.6-15)のように示される。

$$M_{BENT_BASE} = \frac{-A_2}{1 + e^{(2t-2t_0)/2\alpha}} + A_2 \qquad (2.6\text{-}15)$$

ここに、M_{BENT_BASE}は緩衝材の累積流出量（ベースモデルの予測評価値）(g)、tは経過日数(day)、A_2は緩衝材の累積流出量の最大値(g)、$2t_0$は累積流出量が収束する日数(day)、2αはフィッティング係数を示す。

フィッティング係数2αは、その大きさによって上限および下限の漸近線に収束するまでの時間（横軸）が変化する。すなわち、2αが大きい（小さい）ほど収束に要する時間（横軸の幅）が大きく（小さく）なる（図2.6-30）。試験開始直後の累積流出量M_{BENT_BASE}は初期条件としてゼロ(0 g)で固定され、上限の漸近線に収束する時間が一意に決めることが可能であれば、2αを調整することでフィッティングすることができる。フィッティング係数2αを設定したシグモイド関数は、図2.6-31のようなグラフ概念図で示され、緩衝材の累積流出量の最大値A_2と累積流出量が収束する日数$2t_0$を入力値とするモデルで表現される。

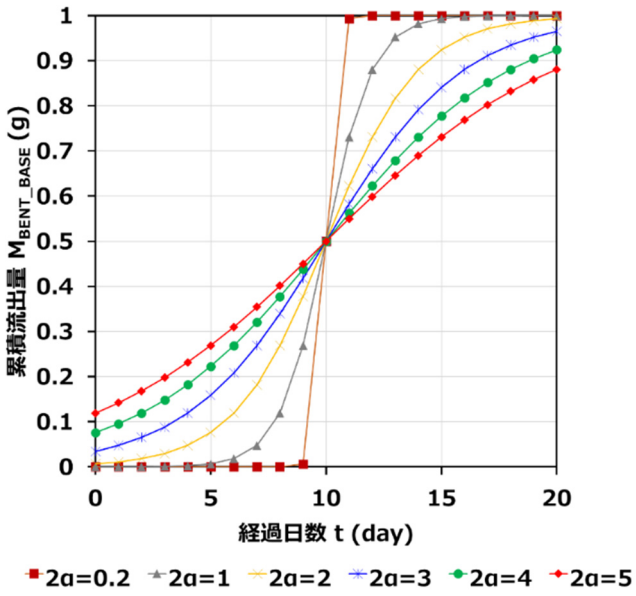


図2.6-30　フィッティング係数2αをパラメータとしたシグモイド関数

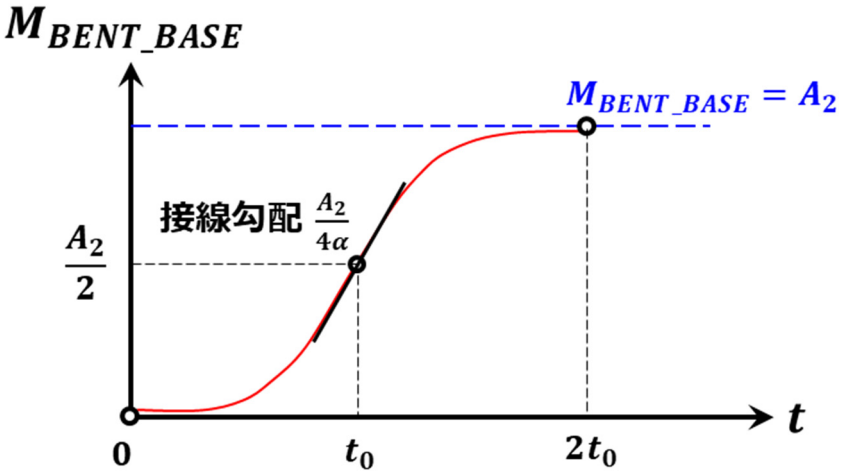


図2.6-31　シグモイド関数によるベースモデルのグラフ概念図

本モデルは、緩衝材の累積流出量の最大値A_2と累積流出量が収束する日数$2t_0$が入力値（既知）であるが、累積流出量を予測評価する上では、これらは未知数（出力値）として扱われる。そこで、室内要素試験で取得したデータセットを本モデルで表現させ、入力値（A_2と$2t_0$）は、流量を引数とした関数で置き換えることとした（図2.6-32）。図2.6-14に示すデータセットについて、本モデルでフィッティングさせた結果を図2.6-33に、緩衝材の累積流出量の最大値A_2と流量、累積流出量が収束する日数$2t_0$と流量の関係グラフを図2.6-34、図2.6-35に示す。なお、フィッティング係数2αは、試験結果との整合性を踏まえて0.6で設定した。

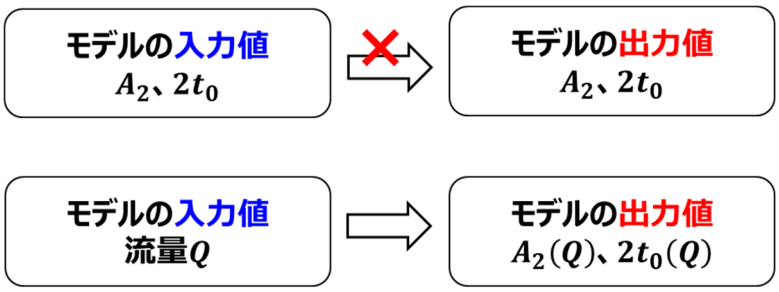


図2.6-32　ベースモデルの入力値に関する考え方

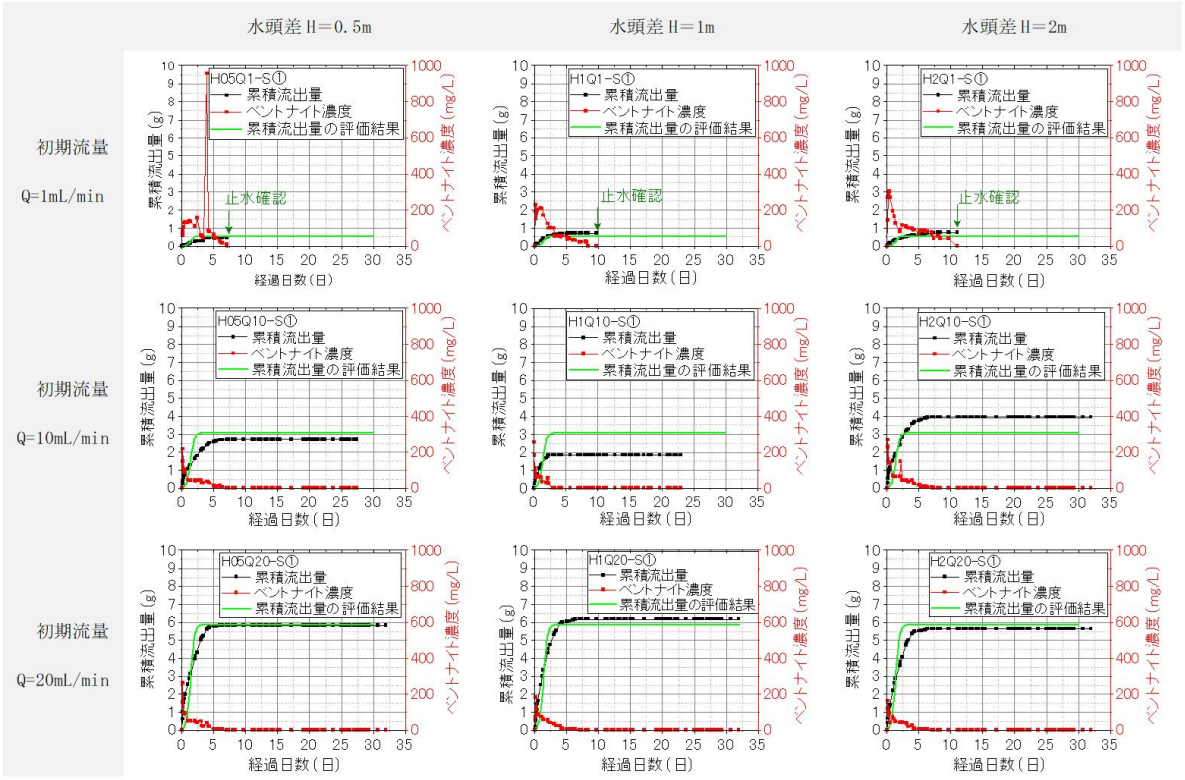
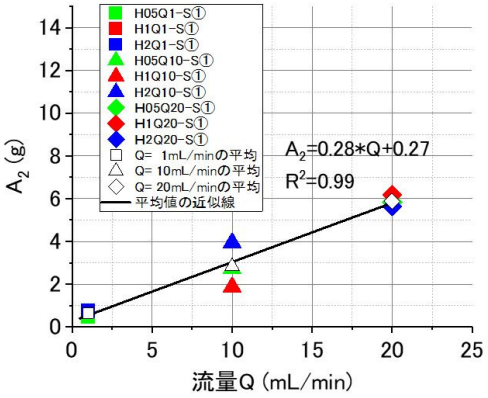
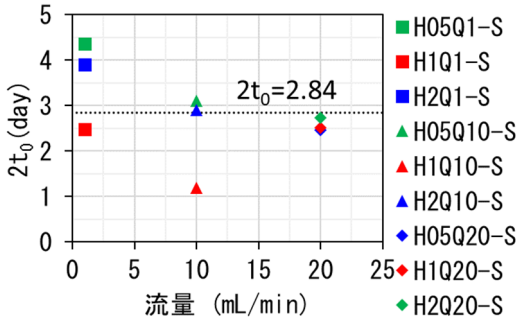


図2.6-33　シグモイド関数によるフィッティング結果（2α＝0.6）



流量 / 水頭差	1 mL/min	10 mL/min	20 mL/min
2m	0.74	3.93	5.64
1m	0.72	1.86	6.18
0.5m	0.48	2.71	5.84

図2.6-34　緩衝材の累積流出量の最大値A_2と流量Qの関係



水頭差＼流量	1 mL/min	10 mL/min	20 mL/min
2m	3.9	2.9	2.74
1m	2.48	1.2	2.52
0.5m	4.36	3.1	2.46

図2.6-35　累積流出量が収束する日数$2t_0$と流量Qの関係

本モデルと試験結果（データセット）を比較すると、累積流出量の経時変化や累積流出量の最大値Aと変曲点の位置t_0で正規化した式と要素試験の結果は概ね整合している。H1Q10-S、H2Q10-Sなど、モデルの累積流出量の収束値が試験結果と乖離するケースも一部で確認されており、試験点数の不足による代表性の不確実要素があること、数g程度の誤差であることから緩衝材ブロックの僅かな不均質性が影響した可能性があることが推察される。他方、緩衝材の累積流出量の最大値A_2と流量Qでは、線形の相関（$A_2 = 0.28Q + 0.27$）が確認され、累積流出量が収束する日数$2t_0$と流量Qでは、3 - 5日の間にデータが集中して分布し、平均で$2t_0$＝2.84にあることが確認された。

以上のことを踏まえ、シグモイド関数を用いたベースモデルは、式(2.6-15)のように表現される。

$$M_{BENT_BASE} = \frac{-0.28Q - 0.27}{1 + e^{(2t-2.84)/0.6}} + 0.28Q + 0.27 \qquad (2.6\text{-}16)$$

(b) Step2：室内要素試験による実環境効果を考慮した拡張モデルへの更新

(i)　試験条件の設定

図2.6-9に示した流出量評価モデルの開発手順のうち、実環境効果を考慮したベースモデルの拡張について検討した。Step2で扱う実環境効果を水質および重力として、室内要素試験でこれらの影響を確認した。試験条件を以下に要約する。

- 水質の影響を確認する試験では、Step1と同様の室内要素試験の試験系とし、重力の影響を確認する試験では、Step1の室内要素試験の試験系の試験セルを横置きから竪置きへ変えて使用した（図2.6-11）。
- 緩衝材ブロックは、Step1と同様の設計仕様とした（表2.6-4）。
- 水質補正を精緻に検討する場合、イオン種や濃度等をパラメータとした試験を実施する必要があるが、本事業では、幌延URLを例題とするため、深度350m試験坑道5の試験孔から採取された地下水を代表的な水質と仮定した。
- 原位置地下水を通水液とした試験に供することが望ましいが、水質変化を抑制する処置をした上で多量の地下水を運搬することは現実的ではないため、表2.6-9に示す配合で幌延の地下水を模擬した溶液（以下、［幌延模擬地下水］という）を作製することとした。

以上の条件を踏まえ、表2.6-10、表2.6-11に示す試験ケースを設定した。制御パラメータ（水頭差、流量）は、後述する原位置1/4スケール試験との環境条件と近づけるように設定した。試験期間は30日程度とし、緩衝材の累積流出量が一定値に収束する、もしくは排水流量がゼロ(0 mL/min)になることを試験終了の目安とした。

表2.6-9　幌延模擬地下水の作製配合

試薬	M(mol/L)	濃度（mg/L）
NaCl	8.9E-02	5,200
$NaHCO_3$	3.6E-02	3,000
$CaCl_2$	1.6E-03	180
KCl	3.1E-03	230
$MaCl_2$	2.0E-03	190
H_3BO_3	6.6E-03	410

表2.6-10　試験ケースの設定（水質補正C_w）

試験ケース	水頭差	流量	通水液	試験セル向き
H1Q10-S-HR①	1 m	10 mL/min	幌延模擬地下水	横
H1Q10-S-HR②				
H1Q10-S（レファレンス）			イオン交換水	

表2.6-11　試験ケースの設定（重力補正C_g）

試験ケース	水頭差	流量	通水液	試験セル向き
H1Q10-S-V	1 m	10 mL/min	イオン交換水	竪
H1Q10-S（レファレンス）				横

(ii) 試験結果と考察（水質補正）

表2.6-10の試験ケースについて、緩衝材の累積流出量、ベントナイト濃度、流量、膨潤圧を経過日数で整理した結果を図2.6-36に示す。なお、H1Q10-Sはベースモデル（データセット）の一部であり、レファレンスケースとして比較の対象とした。

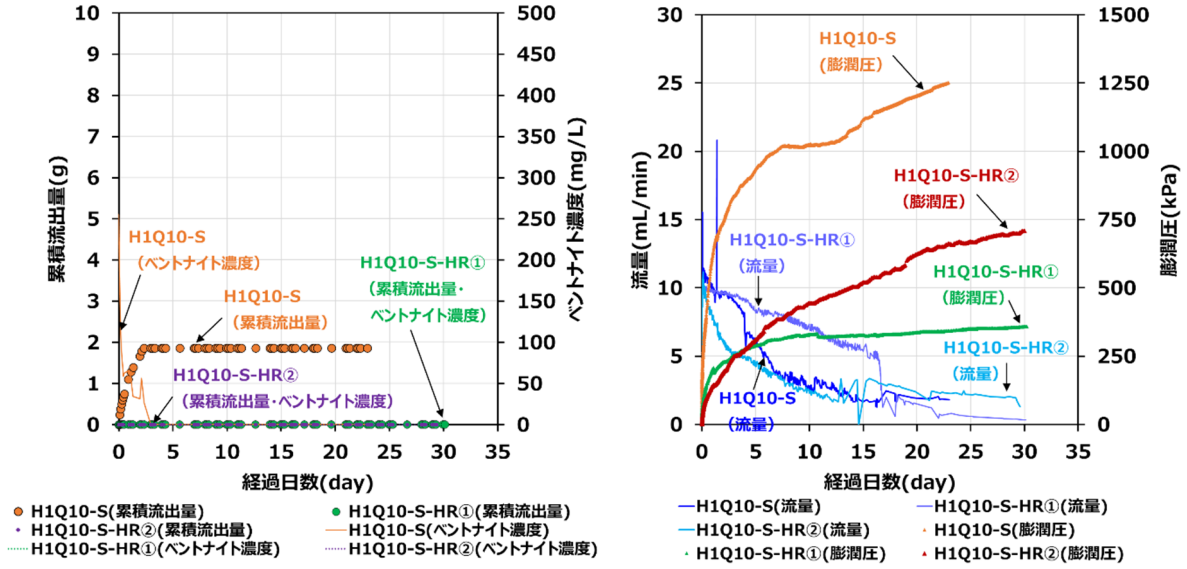


図2.6-36　水質（幌延模擬地下水）による流出挙動の違い

上図2.6-36に示す試験結果および考察を、以下に整理する。

［ベントナイト濃度］

- 幌延模擬地下水を通水液とした試験ケース(H1Q10-S-HR①②)では、試験開始後から緩衝材の流出は確認されず、ベントナイト濃度はゼロ(0 g)の状態で推移した。
- ベントナイト濃度がゼロ(0 g)で推移する現象の再現性は、同じ試験条件で2回試行した結果から確認された。
- 後述する隙間未充填オプションで幌延模擬地下水を通水液とした場合でも、ベントナイト濃度はゼロ(0 mg/L)の状態で推移した。
- 考察：
  - 緩衝材が膨潤して緩衝材表面から“微細粒分”が水中に分散するが、水質（イオン強度や 2価のイオン種の影響等）による凝集効果で微細粒分が団粒化したため、移送できなかった可能性が示唆された。
  - “微細粒分”の団粒化は、隙間未充填オプションでのみ視認できている（図2.6-37(右)）。ケイ砂充填オプションでは、ケイ砂によって“微細粒分”の団粒化を視認できていないが（図2.6-37 (左)）、隙間未充填オプションと水質の条件は揃えているため、ケイ砂充填オプションでも団粒化は生じていると考えられる。

［膨潤圧］

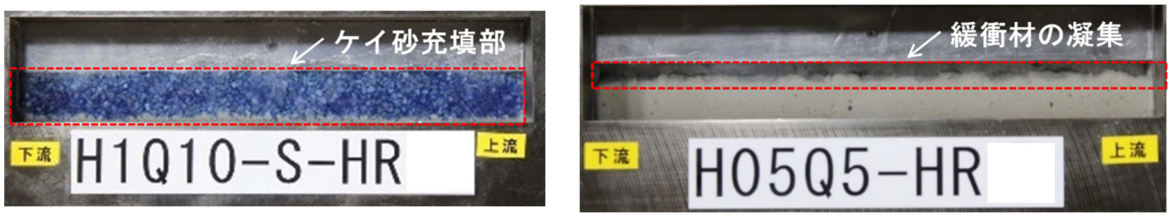
- 幌延模擬地下水を通水液とした試験ケース(H1Q10-S-HR①②)では、イオン交換水と同様に膨潤圧は単調増加の傾向を示した後、緩やかに圧力が落ち着く傾向を示す。本試験の最大膨潤圧は、イオン交換水を通水液とした試験ケース(H1Q10-S)と比べて1/3程度である。
- 考察：
  - 幌延模擬地下水を通水液とした試験ケースを2回試行した結果で、膨潤圧の経時変化にバラツキが生じているのは、膨潤圧の伝播に伴いケイ砂充填領域が圧縮され、ケイ砂の骨格構造に違いが表れたため、膨潤圧が圧力計へ十分に伝播できていない可能性がある。
  - 圧力計の値が一様な傾向を示さない他の要因として、供試体作製時の密度勾配や材料に混合したケイ砂の分散状態などの影響や、土圧計の測定誤差（設置誤差）も考え得る。

［流量］

- 幌延模擬地下水を通水液とした試験ケース(H1Q10-S-HR①②)では、時間経過に伴って流量が低下する傾向が確認され、イオン交換水を通水液とした試験ケース(H1Q10-S)と同様の傾向を示した。
- 考察：
  - 試験セル前面に設置したアクリル面で定点観察した写真（図2.6-37(左)）より、緩衝材の侵入状況が確認されていることから、流量の減少は、膨潤した緩衝材が充填したケイ砂の間隙内に侵入し、流路断面積を狭めたことが考えられる。
  - 幌延模擬地下水を通水液とした試験ケースを2回試行した結果、流量の経時変化の軌跡は一致しないことから、侵入パターンに規則性はないと考えられる。
  - 緩衝材の浸潤速度は、イオン交換水と比べて幌延模擬地下水の方が速いため、緩衝材の吸水速度も速くなると考えられるが、その影響は初期に限定されると考えられる。

［緩衝材の累積流出量］

- 幌延模擬地下水を通水液とした試験ケース(H1Q10-S-HR①②)では、緩衝材の流出は確認されず、累積流出量はゼロ(0 g)の状態で推移した。
- イオン交換水を通水液とした試験ケース(H1Q10-S)では、全流出量の大半が試験初期に流出する挙動を示しており、幌延模擬地下水を通水液とした試験ケースの流出挙動と明確に違いが表れた。
- 考察：
  - 後述する原位置実規模1/4スケール試験では累積流出量が線形に増加する結果に対して、幌延模擬地下水を用いた室内要素試験で累積流出量がゼロ(0 g)の状態を維持し続けた結果は予想と異なった。
  - 後述する隙間未充填オプションで幌延模擬地下水を通水液とした試験ケースにおいても、緩衝材の流出は確認されなかった。
  - 以上のことより、幌延模擬地下水を用いた室内要素試験と原位置実規模1/4スケール試験の流出挙動は異なる結果であり、その一因として、室内要素試験に用いた装置の構造が、緩衝材の流出を抑制する傾向、および緩衝材の表面積（界面の面積）が小さく、流出した緩衝材が測定できなかったことが考えられる。そのため、試験方法や装置の構造を見直し、水質補正について検討する必要がある。



（例：H1Q10-S-HR②）　　（例：H05Q5-HR）

図2.6-37　ケイ砂充填領域（左）および隙間未充填領域（右）の観察結果

以上のような試験結果と個々の測定値に対する考察を踏まえ、次のような観点から更なる分析と考察を進めた。

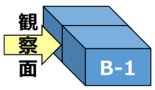
- 流量の低下に影響を及ぼした可能性のあるケイ砂領域の間隙への緩衝材の侵入挙動
- 試験装置等の影響（ポーラスセラミックへの逆流やメッシュフィルタの目詰まり等）

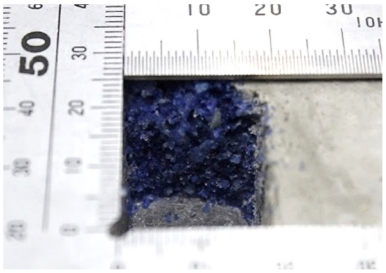
試験終了後に試験セルを解体し、充填したケイ砂領域に緩衝材が侵入した状況を目視観察するとともに、ケイ砂領域に侵入したベントナイトの侵入量を計測した。ケイ砂領域への緩衝材の侵入状況の観察では、ケイ砂充填領域を既出の図2.6-18に示すようにメッシュ分割し、排水側のメッシュ領域（A-8）から側方を掘削して断面を観察した。

幌延模擬地下水を通水液とした試験ケース(H1Q10-S-HR①②)では、充填したケイ砂領域（図2.6-18中のB-1からB-8）に、緩衝材の侵入が観察された。イオン交換水を通水液とした試験ケース(H1Q10-S)と同様に、緩衝材の侵入は緩衝材とケイ砂の接触面から数mm程度に留まっており（図2.6-37(左)）、緩衝材から離れたケイ砂領域（図2.6-18中のA-1からA-8）には緩衝材はほとんど侵入していない。これらの状況を図2.6-38と図2.6-39に示す（図2.6-39の定量情報の取得方法は、既出のStep1と同様である）。得られた情報から次のように考察した。

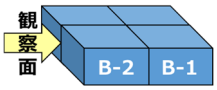
- 図2.6-39から幌延模擬地下水の試験ケース(H1Q10-S-HR①②)とイオン交換水の試験ケース(H1Q10-S)のどちらも、ケイ砂領域の上下で色調のコントラストが確認されており、緩衝材ブロックと接するケイ砂領域（図2.6-18中のB-1からB-8）で細粒分含有量が多い傾向を示している。
- 細粒分含有量と同様に充填の程度を色調で表現した図2.6-39（右図）から、幌延模擬地下水の試験ケース(H1Q10-S-HR①②)とイオン交換水の試験ケース(H1Q10-S)のどちらも、緩衝材ブロックと接触していたケイ砂領域は比較的高い充填率を示しており、緩衝材の細粒分がケイ砂領域へ侵入していると推察される。
- 他方、幌延模擬地下水の試験ケース(H1Q10-S-HR①②)とイオン交換水の試験ケース(H1Q10-S)のどちらも、通水口（図2.6-18中のA-1、B-1）および排水口（図2.6-18中のA-8、B-8）付近の充填率が高い傾向を示しており、これは、通水口付近に存在する試験セル（側面）とケイ砂の界面に沿って細粒分が侵入した可能性が要因として考えられた。排水口では、前述の要因に加え、ケイ砂の間隙部を通って移送された細粒分が集積している可能性が考えられた。
- 幌延模擬地下水の試験ケース(H1Q10-S-HR①②)では、充填したケイ砂間隙内に緩衝材が侵入するものの、凝集効果で緩衝材の“微細粒分”が団粒化した状態で残留、もしくは移送されて排水口（下流）付近で堆積したため、累積流出量が抑制された可能性が考えられた。
- なお、試験セル上流および下流に設置したメッシュフィルタには白色の析出物が付着しており、炭酸カルシウムが析出していると考えられた（塩酸を滴下したところ発砲したため）。そのため、ケイ砂粒子に炭酸カルシウムが析出して間隙（流路）を狭めた可能性もある。

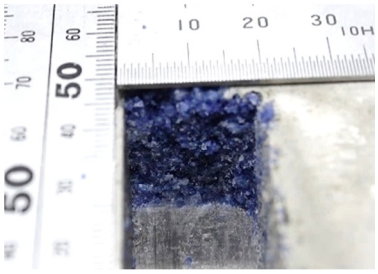
給水側からの距離：25 mm



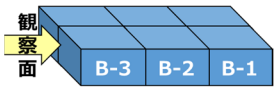


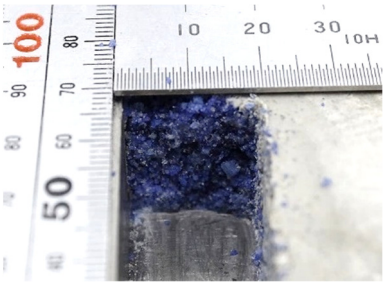
給水側からの距離：50 mm



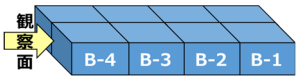


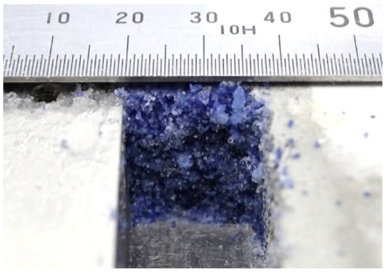
給水側からの距離：75 mm



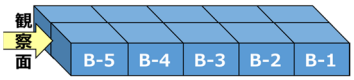


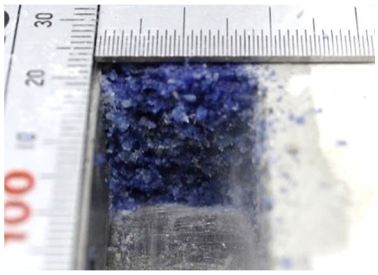
給水側からの距離：100 mm



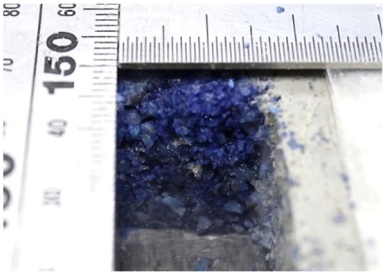


給水側からの距離：125 mm

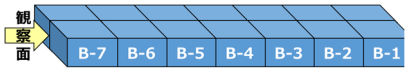




給水側からの距離：150 mm



給水側からの距離：175 mm



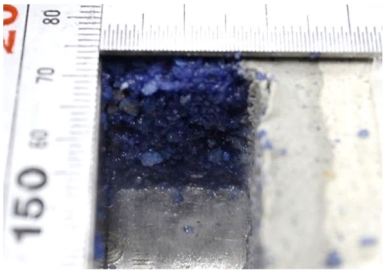


図2.6-38　充填したケイ砂の断面観察結果（例：H1Q10-S-HR①）

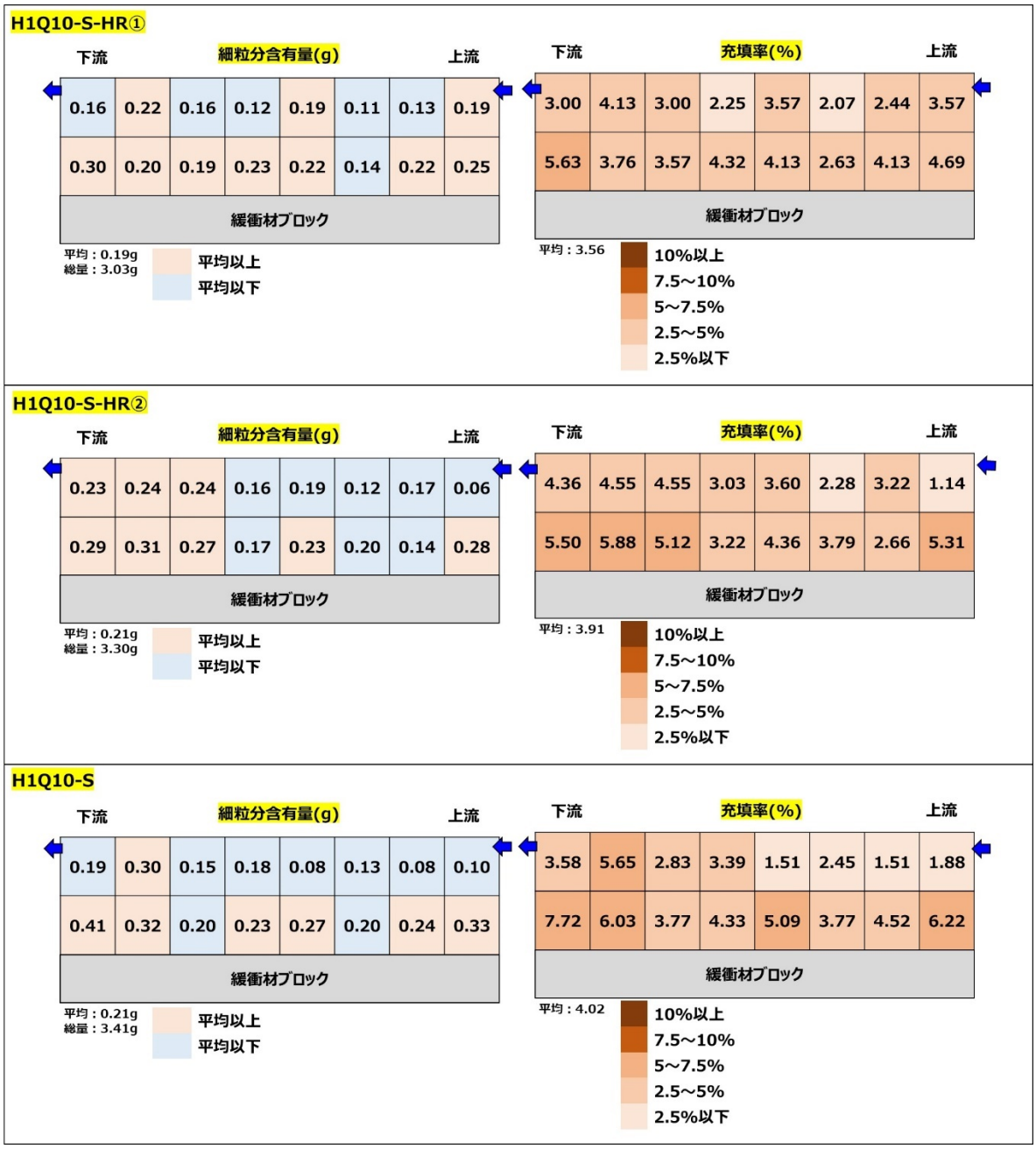


図2.6-39　充填したケイ砂領域に侵入した緩衝材の細粒分含有量および充填率

以上のことから、幌延模擬地下水(H1Q10-S-HR①②)とイオン交換水(H1Q10-S)のどちらの試験ケースも、ケイ砂領域（間隙領域）への緩衝材（細粒分）の侵入状況は概ね同様であり、それによって流量断面積を縮小させ、流量を低下させたと考えられる。しかし、幌延模擬地下水では、流量の経時変化の状況によらず累積流出量はゼロ(0 g)で推移している。これは“微細粒分”の凝集により水頭差を駆動力とした流量で移送できず、ケイ砂間隙内に残留していたことが要因として考えられるが、今回の試験ではその詳細は把握できていない。

他方、環境条件に差異があるものの、後述する原位置実規模1/4スケール試験では累積流出量は線形に増加する結果に対して、室内要素試験は累積流出量がゼロ(0 g)の状態で推移した結果であり、両者は異なる挙動を示した。このような幌延模擬地下水を通水液とした要素試験で確認された挙動は、後述する隙間未充填オプションにおいても同様の結果となった。

これらのことから、幌延模擬地下水を用いた室内要素試験と原位置実規模1/4スケール試験の流出挙動が異なる要因として、次のようなことが想定された。

・イオン交換水と幌延模擬地下水では、緩衝材の浸潤、膨潤ならびに界面での溶液への懸濁・分散状態や崩壊などの挙動に違いがある（例えば今回の幌延模擬地下水の室内試験で示唆された“微細粒分”の凝集挙動など）。
・室内要素試験に用いた装置のスケールが微小（流路長20 cm、流路幅2 cm）であるため、実規模1/4スケール試験で発現する流出量を検知できない可能性がある。
・今回の原位置実規模1/4スケール試験が比較対象としての妥当性（環境条件の違い、試験装置としての適切性など）の是非。

今回実施したイオン交換水から幌延模擬地下水へ変更した室内要素試験では、現時点で水質による影響を適切に評価することが困難なため、後述する原位置実規模1/4スケールへの拡張では、水質の違いによる影響の補正は加味しないこととした（水質補正$C_w = 1$）。

(iii) 試験結果と考察（重力補正）

表2.6-11の試験ケースについて、緩衝材の累積流出量、ベントナイト濃度、流量、膨潤圧を経過日数で整理した結果を図2.6-40に示す。なお、H1Q10-Sはベースモデル（データセット）の一部であり、レファレンスケースとして比較の対象とした。

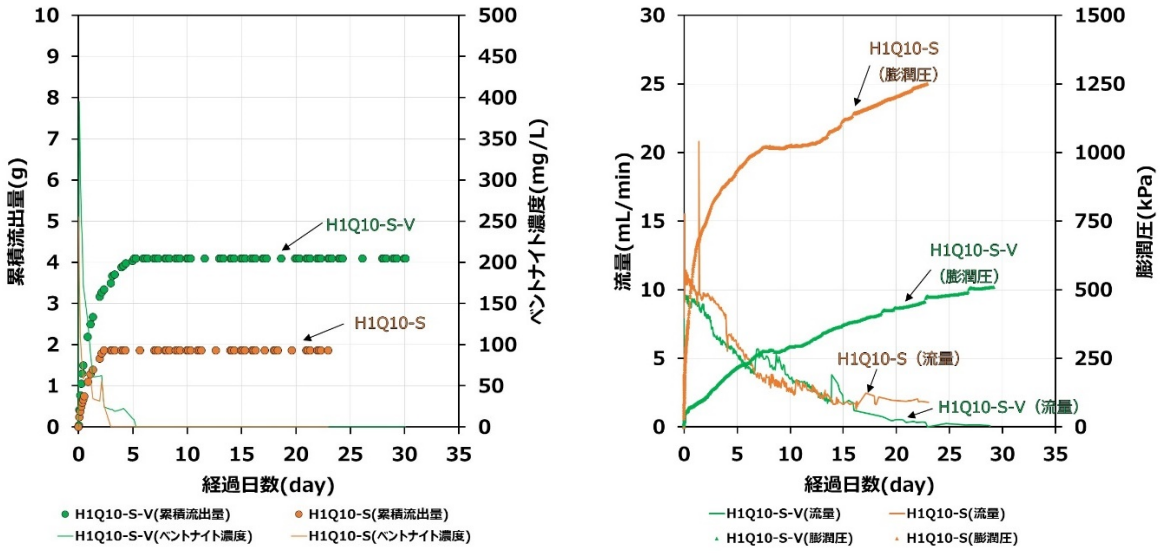


図2.6-40　試験セルの向きによる流出挙動の違い

上図2.6-40に示す比較から、試験セルを竪置きとした場合も横置きと同様の挙動を示していることが確認できる。両者の比較から窺える特徴および考察を以下に整理する。

［ベントナイト濃度］

- 濃度ピークが確認された時間およびピーク高さは、試験セルを横置きとした試験ケース(H1Q10-S)と一致した（図2.6-41）。
- 試験開始初期の濃度が高く推移する期間において（約5日程度まで）、両者の濃度に約2倍程度の差がある。

- 考察：
  - 試験セルの向きに因らずベントナイト濃度の経時変化は概ね一致しているため、ケイ砂充填オプションでは、セルの向きによる違いがベントナイト濃度に与える影響は小さいと考えられる。

［膨潤圧］

- 試験セルを竪置きとした試験ケース(H1Q10-S-V)では、膨潤圧は単調増加の傾向を示すが、最大膨潤圧は、試験セルを横置きとした試験ケース(H1Q10-S)に比べて1/2程度に留まった。
- 考察：
  - 竪置きでは、重力による微細粒分の沈降に上流（下方）からの水流が加わるため、単純な膨潤圧分布を検討することは難しい可能性がある。
  - 上述の懸念はあるが、竪・横の違いが緩衝材界面における水圧ならびにケイ砂領域内（流路断面）における流速分布の違いをもたらし、緩衝材の浸潤速度に違いをもたらした可能性がある。

［流量］

- 試験セルの向きによらず流量の経時変化は概ね一致しているが、横置きのケースに瞬間的に流量が増加したスパイク状の挙動がある。
- 考察：
  - ケイ砂充填オプションでは、セルの向きによる違いが流量に与える影響は小さいと考えられる。
  - ただし、上述したように、竪・横の違いがケイ砂領域内（流路断面）における流速分布の違いをもたらしている可能性がある。

［緩衝材の累積流出量］

- 累積流出量の経時変化は、試験セルを横置きとした試験ケース(H1Q10-S)と同様の軌跡を描いているが、最終的な累積流出量は、横置きと比べて2倍であった。これは上述した試験開始初期段階における、同程度の流量における両者の濃度差が反映されている。
- 考察：
  - 初期に累積流出量が増加する現象は、試験セルを横置きとした試験ケース(H1Q10-S)と同様であるため、試験セルの向きは寄与しないと考えられる。累積流出量の初期に増加する現象は、初期流量を増加（初期流速の増加、せん断・移送力の増加）させることに伴う、流出濃度の増加が一因と考えられるが、この期間は短い。
  - 横置きの試験ケースと比べて竪置きの試験ケースで累積流出量が多いのは、後述する隙間未充填オプションで確認された傾向と同様であった。緩衝材の表面から重力によって剥落した後、下方へ沈降した状態で残留することなく、水流によって攪拌され、上方へ移送されたと考えられる。
  - 累積流出量の初期の増加傾向に約2倍の差があることから、緩衝材界面から浮遊した“微細粒分”の移送に、上述した竪・横の違いによるケイ砂領域内（流路断面）における流速分布の違いが影響する可能性がある。

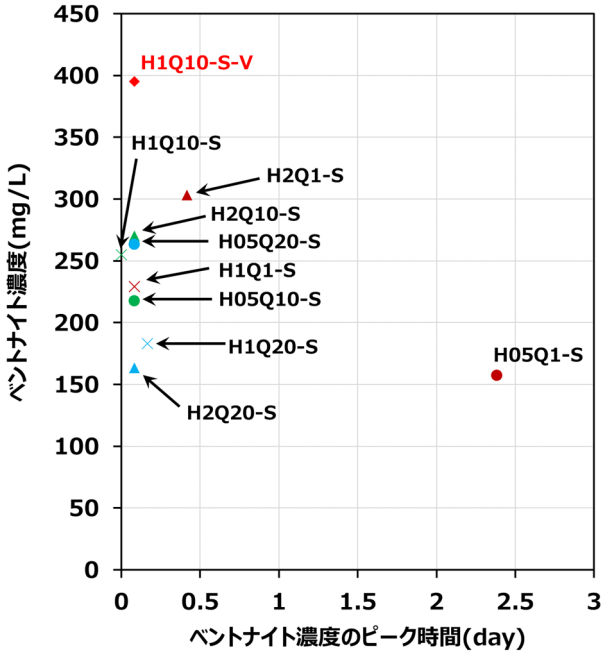


図2.6-41　ベントナイト濃度のピークが確認された時間とベントナイト濃度

以上のような試験結果と個々の測定値に対する考察を踏まえ、流量の低下に影響を及ぼした可能性のあるケイ砂領域の間隙への緩衝材の侵入挙動、あるいは予期せぬ試験装置の影響（ポーラスセラミックへの逆流やメッシュフィルタの目詰まり等）の観点から更なる分析と考察を進めた。

試験終了後に試験セルを解体し、ケイ砂領域に緩衝材が侵入した状況を目視観察し、ケイ砂領域に侵入したベントナイトの侵入量を計測した。ケイ砂領域への緩衝材の侵入状況の観察では、既出の図2.6-18に示すようにメッシュ分割し、排水側のメッシュ領域（A-8）から側方を掘削して断面を観察した。

竪置きとした試験ケース(H1Q10-S-V)は、緩衝材ブロックと接触した充填したケイ砂領域（図2.6-18中のB-1からB-8）への緩衝材の侵入が観察された。なお、横置きの試験ケース(H1Q10-S)と同様、緩衝材の侵入は、緩衝材とケイ砂の接触面から数mm程度の侵入に留まっており（図2.6-43）、緩衝材から離れた試験セル上部のケイ砂領域（図2.6-18中のA-1からA-8）には緩衝材はほとんど侵入していない。これらの状況を図2.6-42と図2.6-43に示す（図2.6-43の定量情報の取得方法は、前出のStep1と同様である）。得られた情報から次のように考察した。

- 図2.6-43から、竪置き(H1Q10-S-V)では、横置き(H1Q10-S)と比べて細粒分の量が多く、排水口付近に集中して分布している傾向を示した。
- 竪置きの試験ケースで、排水口付近に細粒分が集中する現象は、緩衝材の界面からケイ砂領域の間隙水中に分散した微細粒分と細粒分が、上流（下方）からの水流で攪拌され、下流（上方）へ移送されたと考えられる。
- その後、排水口付近に設置したメッシュフィルタにより微細粒分と細粒分がフィルタリングされ、微細粒分は流出し、細粒分は上流側に残留したと考えられる（ただし、今回の試験では、ケイ砂間隙内から取り出した細粒分のうち“微細粒分”が含まれる割合は測定できていない）。
- 排水口（メッシュフィルタ）より下流に設置したバルブや配管（図2.6-11参照）には、緩衝材の微細粒分および細粒分による詰まりは確認されなかった。
- 他方、流量の経時変化は、試験セル竪置きの試験ケース(H1Q10-S-V)と試験セル横置きの試

験ケース(H1Q10-S)で概ね一致した。

・ 上述の内容を踏まえると、竪置きの試験ケースで流量が低下した原因は、緩衝材の表面から剥落した細粒分が、上流（下方）からの流量によって下流（上方）へ移送され、排水口付近に集積した細粒分の詰まりの可能性が考えられる。ただし、横置きの試験ケースでも同様の流量の低下を示しているため、その他にも原因が考えられる。例えば、ケイ砂間隙内に緩衝材が侵入する量のみで判断されず、ある区間における流路断面積を縮小させるような侵入形態（フィルム状（薄層状））であれば、侵入した量が少量であっても、流量を低下させられる可能性が考えられる。令和3年度では、シリンジ容器を用いた緩衝材のケイ砂間隙内への侵入をX線CT装置で観察しているが（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2022）、本試験装置を用いた竪置きおよび横置きの試験ケースのおいても、X線CTによる経時的な観察により、流量を低下させた要因が判明する可能性がある。

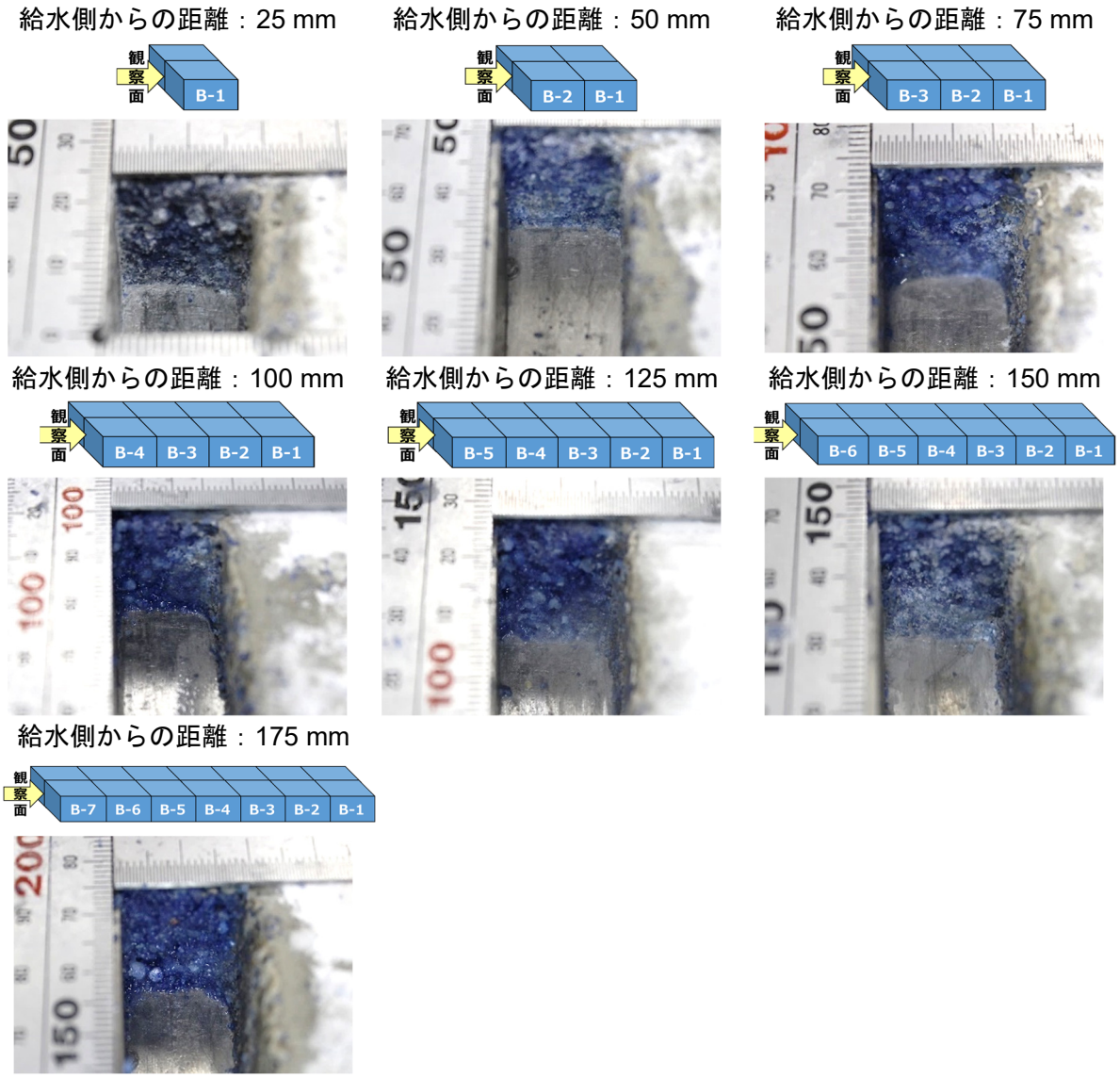


図2.6-42　充填したケイ砂の断面観察結果（例：H1Q10-S-V）

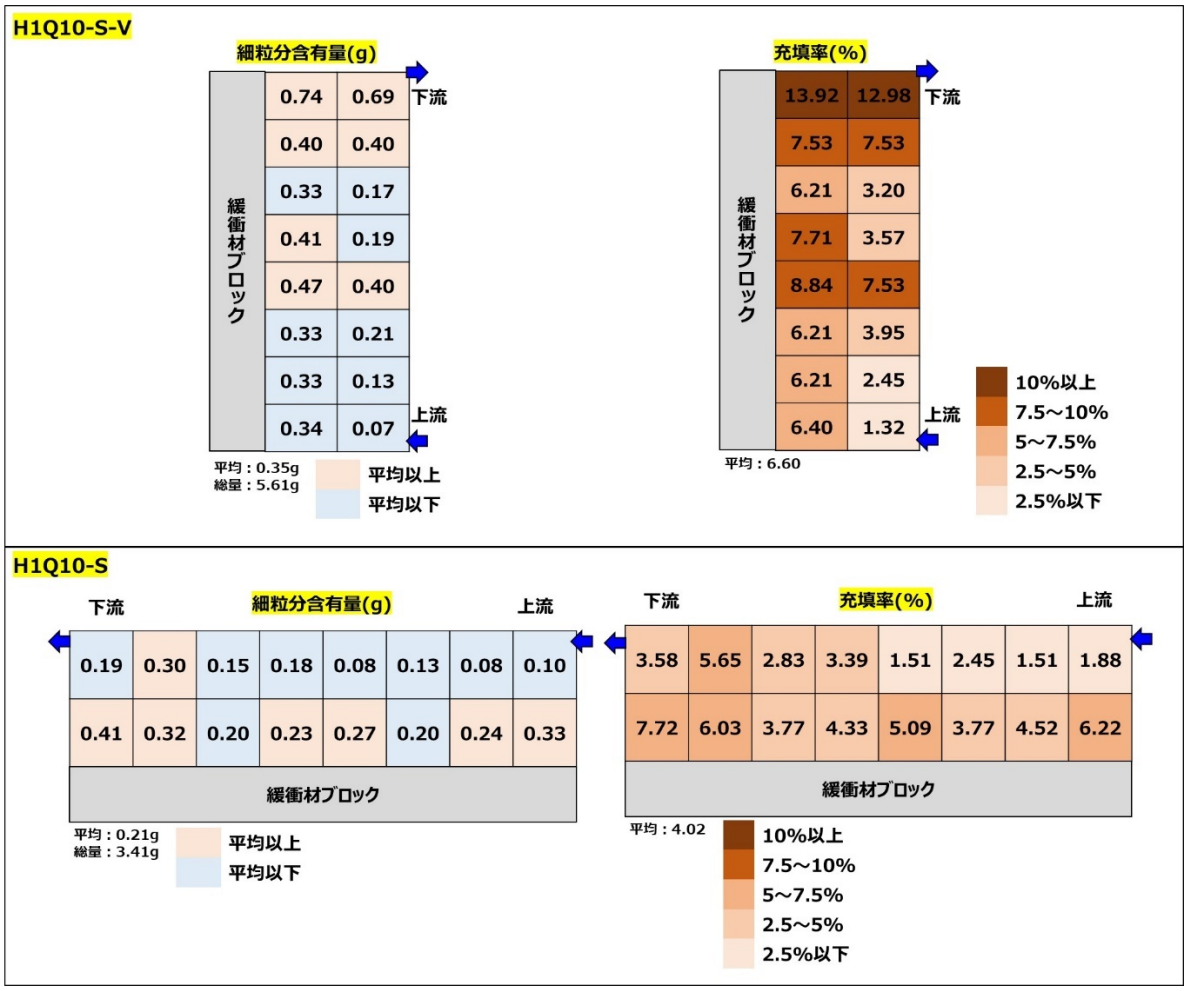


図2.6-43　充填したケイ砂領域に侵入した緩衝材の細粒分含有量および充填率

竪置きの場合の挙動は既出のStep1で述べた横置きの挙動と概ね同様であり、その全体的な特徴や考え得る考察も類似したものとなる。前述した試料の解体分析の結果から伺えることは前述したとおりであるが、竪置きと横置きで約2倍を示す累積流出量の差は、試験開始後の初期の流出濃度の差が支配的となっている（その間の流量は両者で同レベル）。その差は、既に述べた初期の“微細粒分”の挙動と竪と横で異なる可能性のある流路断面の流速分布の可能性、更に横置きでは、多少の重力の影響も受けつつ界面から一度分散した細粒分が下流でトラップされた可能性も考え得る。その他、下流に設置したメッシュフィルタが流出抑制に寄与している可能性など、室内要素試験に用いた装置の構造が緩衝材の流出抑制に寄与した可能性もある。試験セル竪置きの試験回数は1回であるため、試験点数の拡充による流出挙動の再現性確認や、挙動の詳細な分析が必要である。

以上の検討の結果、試験セル横置きから竪置きへ変更した室内要素試験では、緩衝材の流出量は2倍となるため、次のStep3の原位置実規模1/4スケールへの拡張では、試験セルの向きによる補正値（重力補正）を、$C_g = 2$と設定することとした。

(c) Step3：原位置実規模1/4スケールへの適用性の確認

(i)　原位置実規模1/4スケール試験の試験装置と2つの試験結果から窺える特徴

原位置実規模1/4スケール試験は、利用可能な研究施設インフラとして幌延URLの深度350 m試

験坑道5に設けられた試験孔2（既存孔）で実施した。試験孔2は平成25年度に掘削された深さ0.84 mの孔であるが、孔口周辺の孔壁崩壊の補修を目的として、平成27年度に孔内に無収縮モルタルを充填させた後にリボーリングし、深さ1.59 mまで延伸した。このため、試験孔2の孔壁面は、表面の凹凸が少なく滑らかに仕上がった。無収縮モルタルによって、孔口（コンクリートピットの底盤）から深さ0.84mまでの亀裂は閉塞されたものの、時間経過に伴いモルタルは剥離し、深さ0.6m以深では、壁面から湧水が確認された（図2.6-44）。複雑な実環境条件ではあるものの、試験孔2を利用することで、ベースモデルの拡張（スケールアップおよび実環境への適用）の際に考慮すべき要因（補正係数；表2.6-3）のうち、以下について単純化することができる。

・幾何形状補正（C_G）：孔壁面は凹凸が少なく滑らかな形状であるため考慮は不要。
・スケール効果（C_s）：深度0.6 m未満であれば孔壁から湧水する亀裂が存在せず、緩衝材と孔壁間への下から上への一様な流れ場が期待でき、ベースモデルの入力である室内要素試験の面積比による単純増倍でスケール効果（C_s）の表現が可能。

なお、試験孔2では、孔壁面を加圧すると孔内の湧水が増加する現象が確認されている。これは、試験孔2の底盤直下のズリ敷き均し領域と交差する亀裂との位置関係による試験孔2固有の特徴であり、隣接する試験孔1では加圧に伴う湧水の増加現象は確認されておらず、実事業の緩衝材設置深度でもそのような事象の発生は想定されない（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2022）。そのため、試験孔2における試験では、本現象に留意して試験結果を扱うこととした。

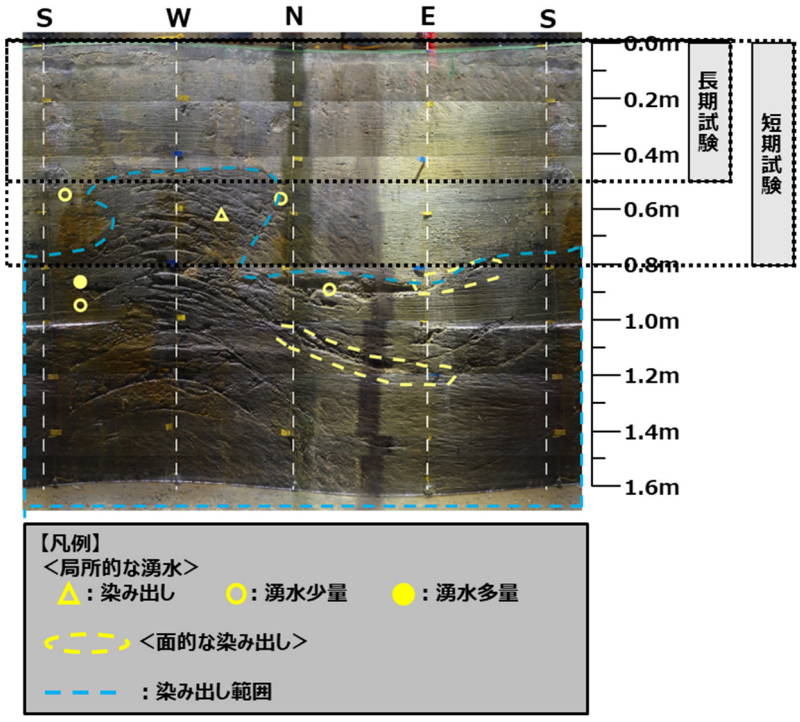


図2.6-44　壁面観察による湧水亀裂の分布（試験孔2）

今フェーズにおいて実施した2つの原位置実規模1/4スケール試験は、図2.6-13に示す試験系で実施した。緩衝材ブロックは表2.6-12のとおりであり、いずれも試験も幌延URL（試験孔2）の自然湧水環境条件である。

平成31年度に予備試験として実施した約2か月間の短期試験（日本原子力研究開発機構・原子力

環境整備促進･資金管理センター, 2020）では、緩衝材ブロックの高さを0.8 mで設置しているため、壁面（側方）からも地下水が供給される地質環境条件（孔口から0.6 m以深で湧水亀裂が分布：図2.6-44）であった。したがって、孔底と壁面の二方向から地下水が供給される流動場となり、スケール効果を見極めるには不確定要素を含む結果となる。加えて、試験期間中の膨潤圧の上昇が装置の耐荷重を上回る可能性があったため試験を中断することとなった（故に短期試験となった）。令和4年度に約5か月間実施した長期試験は、上述の短期試験結果を踏まえ、スケール効果の単純化と装置の改良を施して実施したものである。

短期試験および長期試験について、緩衝材の累積流出量および濃度、流量について、経過日数で整理した結果を図2.6-45に示す。

表2.6-12　緩衝材ブロックの仕様

ベントナイト	クニミネ工業製クニゲルV1（Na型ベントナイト）
ケイ砂	ケイ砂3号、ケイ砂5号
混合率	ベントナイト70 wt%：ケイ砂30 wt%（3号15 wt%＋5号15 wt%）
初期乾燥密度	1.92 Mg/m^3
隙間充填後の乾燥密度	1.6 Mg/m^3
含水比	10.5 %
形状と数量	ドーナツ型の中空円柱を8等分した扇型ブロック　計40個（8個/段×5段）
寸法	外径 0.54 m、内径0.21 m、厚さ0.1 m（1段あたり、これを8分割）

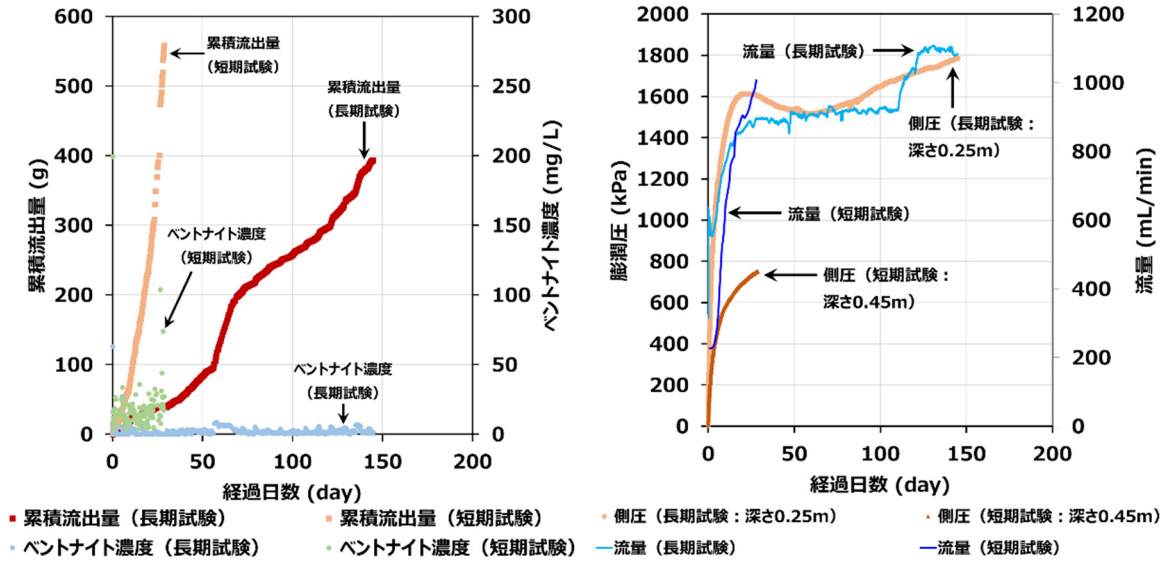


図2.6-45　短期／長期試験の試験結果（左：累積流出量・濃度、右：流量・膨潤圧）

試験孔内が体積拘束された状態にあるケイ砂充填オプションに関する原位置実規模1/4スケール試験結果である図2.6-45から、以下が確認できる。

○ ケイ砂を介して圧力が伝播するため、短期試験、長期試験の膨潤圧（側圧）は、試験開始直後から発現し、経時的に増加傾向を示した。膨潤圧の増加とともに流量も増加している。これは前述した試験孔2固有の特徴である。

○ 流量の経時変化について両試験結果を比較すると、流量の増加率は短期試験の方が大きく、日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター (2022)の加圧試験の結果とも整合する。ただし、試験開始から約110日における長期試験の流量変化については、幌延を震源とした地震直後に生じた現象であることに留意が必要である。
○ ベントナイト濃度については、短期試験は10 - 30 mg/L、長期試験は10 mg/L以下の濃度で推移しており、流量の増加によらず、ある一定範囲の濃度で流出している。

以上の結果から窺える特徴より、ベントナイト濃度（累積流出量）に違いが表れた要因について、流量の挙動の観点から以下のように考察した。

○ 要因1：流路長の違い
・短期試験の緩衝材ブロックの高さは0.8 mであり長期試験は0.5 mであることから、地下水と接触する面積（流路長）の比は（短期試験）／（長期試験）＝8／5となる。
・長期試験のベントナイト濃度10 mg/L以下は、短期試験の条件（流路長0.8 m）では単純計算で16 mg/L以下と試算される。短期試験のベントナイト濃度が10 - 30 mg/L程度であることから、試算結果はその範囲にあると言えるが、結論付けられる状況ではない（両者の流量の差や短期試験の濃度のバラツキを解釈できない）。
○ 要因2：地下水が供給される箇所（流動場）の違い
・長期試験は孔底からの一方向から地下水が供給される環境条件であるが、短期試験は孔底と側方の二方向から地下水が供給される。
・そのため、湧水亀裂と近接する緩衝材については、側方からの地下水流れの影響を受ける可能性や、流路断面の中で流速分布（緩衝材界面で流速が早い部分と遅い部分）が発生している可能性がある。
○ 要因 3：水質の時間変化
・試験孔 2 で採取される地下水は、地下水由来の濁り（微生物の存在やイオン種等）を有しており、濁りの程度は時間変化することが確認されている。
・ベントナイト濃度は、水中に分散するベントナイト粒子による懸濁度を光透過法による検量線で計測しているため、地下水由来の濁りは僅かながらに影響する。
・水質の時間変化はランダムであり、試験の実施時期によっては濁りの程度が大きくなり、ベントナイト濃度が嵩上げされた可能性がある。

これらの要因が 2 つの試験における緩衝材の流出挙動の差に影響を与えていると考えられ、なかでも要因 2 と要因 3 を由来する不確実性は、スケール効果を考慮した室内要素試験の結果との差異を生じる可能性がある。要因 3 の影響は制御不能であるため、結果の解釈に留意することとし、要因 2 の影響は環境条件の単純化を意図した長期試験で解消されているため、以後の検証や考察では、長期試験データを参照することとした。以降、長期試験を“原位置試験（ケイ砂充填）”と称する。

(ii) ベースモデルの原位置実規模1/4スケールへの適用可能性に関する考察

図2.6-9に示した流出量評価モデルの開発手順のうち、前記のStep2において水質補正と重力補正を検討した。ここではStep3として、表2.6-3に示した補正係数のうち、残されたスケール効果の補正について、Step1で得られたベースモデルおよび前記の原位置試験（ケイ砂充填）の結果を用いて検討する（原位置実規模1/4スケール試験の環境条件から、幾何形状補正と隙間幅補正の考

慮は不要である）。

原位置実規模1/4スケール試験（長期試験（ケイ砂充填））の環境条件と整合させるために、表2.6-13に示す条件の室内要素試験を追加実施してベースモデルの整備を行い検討した。スケール効果は面積比で表現できると考え、室内要素試験(FC-S-HR-V)の試験条件は、接触面積と水頭差を除き、水質（幌延模擬地下水）や試験セルの向き（竪置き）など、原位置実規模1/4スケール試験と可能な範囲で整合性させ、以下に留意して試験を進めた。得られた室内要素試験(FC-S-HR-V)の結果を図2.6-46に示す。

○ 水頭差については、水頭差をパラメータとした試験を計画していたが、他の試験ケースとの兼ね合い（研究リソースの制約）で、水頭差1 mのケースに限定された。ただし、水頭差が0.5 - 2 mの範囲である場合、水頭差が累積流出量へ与える影響は小さいと考えられる。

○ 流量については、原位置実規模1/4スケール試験の流量が増加する現象（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2020）を、流速一定条件下の流路断面積比で換算した流量を室内要素試験で再現させた。流量制御は、図2.6-11に示す上流側のニードルバルブで調整し、流量制御の分解能は1 mL/minとした。原位置実規模1/4スケール試験（ケイ砂充填 原位置試験）の流量は、試験開始時に約600 mL/minであったものが試験開始30日後に約900 mL/minとなり、その後は一定流量で推移したため、室内要素試験(FC-S-HR-V)では、初期流量6 mL/min（実規模1/4の換算流量：530 mL/min）から1週間ごとにバルブを調整し、流量10 mL/min（実規模1/4の換算流量：880 mL/min）まで上げた後は、流量調整は行わない計画とした。

表2.6-13　試験ケースの設定（スケール効果C_s）

	室内要素試験	原位置実規模1/4スケール試験
試験ケース	FC-S-HR-V	原位置試験（ケイ砂充填）
水頭差（m）	1	0.5
流量（mL/min）	6→7→8→9→10	600→900→1,100
実規模1/4換算流量（mL/min）	530→620→700→790→880	
通水液	幌延模擬地下水	幌延地下水
試験体の向き	竪置き	竪置き
隙間幅（m）	0.02	0.02
接触面積（m^2）	0.004	$0.54\pi \times 0.5$
面積比（原位置/室内）	212	

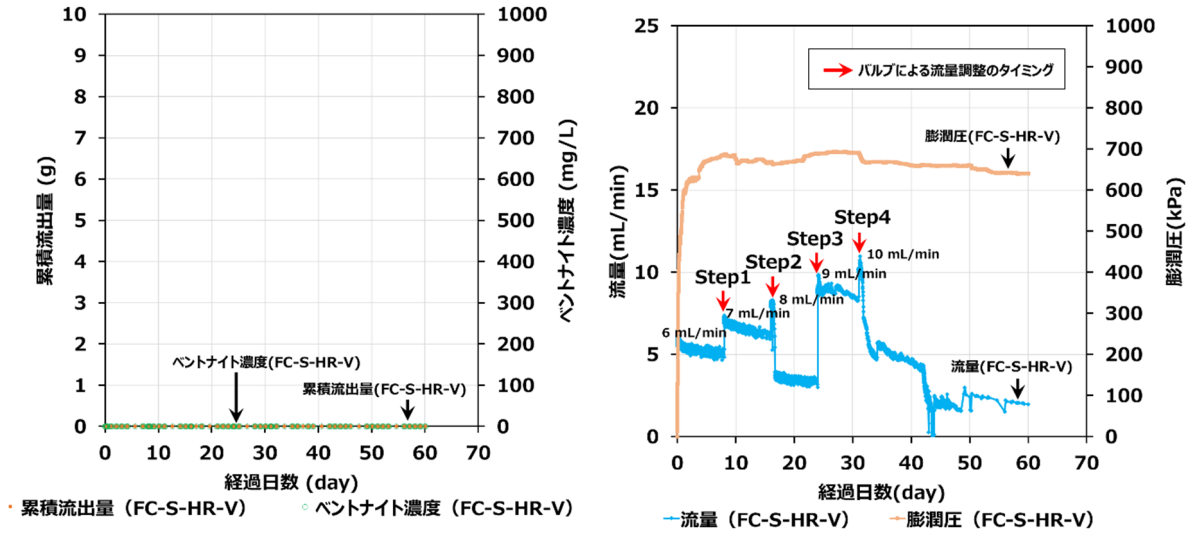


図2.6-46　原位置実規模1/4スケール試験を模擬した室内要素試験による流出挙動

上図2.6-46に示すように、幌延模擬地下水を用いた本試験は、既出の水質補正の検討と同様にベントナイト濃度および累積流出量がゼロ(0 g)で推移したため、原位置実規模1/4スケール試験との面積比でスケール効果を考慮することができない。

そのため、表2.6-14に示す既出のイオン交換水を通水液とした試験結果(H1Q10-S-V)をレファレンスケースとして、原位置実規模1/4スケール試験（ケイ砂充填 原位置試験）の結果と比較することとした。ただし、レファレンスケース(H1Q10-S-V)は重力補正の検討のために実施した試験の結果（(1)3)②(b)(iii)）であるため、原位置の挙動と整合させて段階的に流量を増加させたケースではなく、初期流量10 mL/min（実規模1/4換算流量880 mL/min）で設定した試験であることに留意されたい。

表2.6-14　試験ケースの再設定（スケール効果C_s）

	室内要素試験	原位置実規模1/4スケール試験
試験ケース	H1Q10-S-V	原位置試験（ケイ砂充填）
水頭差（m）	1	0.5
流量（mL/min）	10	600→900→1,100
実規模1/4換算流量（mL/min）	880	
通水液	イオン交換水	幌延地下水
試験体の向き	竪置き	竪置き
隙間幅（m）	0.02	0.02
接触面積（m^2）	0.004	$0.54\pi \times 0.5$
面積比（原位置/室内）	212	

両ケース試験結果を図2.6-47に示す。なお、同図に示すレファレンスケース(H1Q10-S-V)は、緩衝材の累積流出量は面積比を乗じたもの、流量は流速一定条件下の流路断面積比で換算したものである。膨潤圧については単純な比率計算で評価できないため、ここでは省略した。

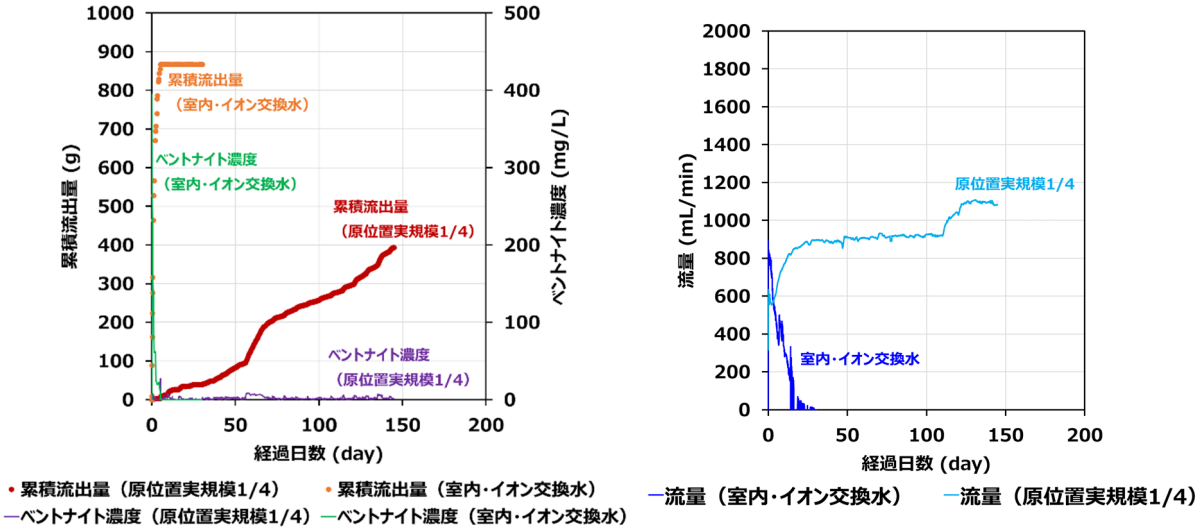


図2.6-47　室内要素試験（面積比倍）と原位置実規模1/4スケール試験との比較

イオン交換水を用いた竪置きの室内要素試験(H1Q10-S-V)の傾向については既出のStep2で整理しているため、ここでの再掲は割愛し、以下に原位置実規模1/4スケール試験との比較結果について整理する。

［流量］

- 室内要素試験の流量低下は、ここまでに述べた室内要素試験の全てのケースで確認された傾向である。
- 他方、原位置試験では、試験孔2固有の特性である孔壁面を加圧すると孔内の湧水が増加する現象（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2022）が表れており、ある一定流量で推移した後も、室内要素試験でみられたような流量低下はみられない。
- 流量を維持した要因として、スケールの違いに伴うケイ砂領域への緩衝材の侵入挙動の違いが考えられる。例えば、室内要素試験では狭いケイ砂領域（流路断面積：2 cm×2 cm）であるが故に特定の区間を閉塞することができるが、原位置試験ではその流路断面の大きさ故に全てを閉塞させることができない。

［累積流出量］

- 室内要素試験の初期段階における累積流出量の初期の増加傾向は、全ての要素試験で同様であり、原位置試験の累積流出量の経時変化（線形に増加）とは異なる。
- 既に述べたように、室内要素試験の累積流出量の初期の増加傾向は“微細粒分”が影響した可能性があるが、室内要素試験装置のスケールにおける累積流出量への感度を踏まえると、累積流出量の初期の増加傾向の定量化／一般化は難しい可能性がある。
- 他方、原位置試験では、累積流出量の初期の増加傾向は確認されておらず、微少領域を扱う室内要素試験装置で現れる特有の現象である可能性がある。例えば、室内要素試験では試験装置のスケールが小さいが故に分散した“微細粒分”がそのまま出口に到達して排出されたが、実規模1/4スケール試験では分散した“微細粒分”が出口に到達するまでにケイ砂領域内や緩衝材界面にトラップされた可能性も考え得る。
- これらを踏まえ、室内試験装置やサイズの見直し（例えば、要素試験セルを長くしたもので傾向を確認する）や、今回1ケースしか実施していない原位置試験の試験点数の拡充などによって再検証することが望まれる。

- また、模擬地下水を用いた室内要素試験で緩衝材の流出が測定できなかったことから、試験セルを大きくする（緩衝材の面積を増やし流出量を多くする）など、試験条件を変えることにより流出挙動が把握できないかを確認し、適切な室内要素試験方法の検討をする必要がある。

以上のように、本検討では水質による影響は考慮せずに（水質補正$C_w = 1$）、イオン交換水を通水液とした試験ケース(H1Q10-S-V)を面積比倍し、原位置実規模1/4スケール試験（原位置試験（ケイ砂充填））と比較した。その結果、面積比倍した室内要素試験の累積流出量は、原位置実規模1/4スケール試験の累積流出量よりも2倍程度の課題評価となった。幌延模擬地下水を使えば流出量の減少の可能性があることや、不確実性の多い原位置試験が1ケースしかないなどの課題が示唆されたが、次項の拡張の試みでは、そのまま面積比（212倍）を仮設定して検討することとした。

(iii) ベースモデル拡張の試み

べき乗関数モデルで整備を試行したベースモデルから、実規模1/4スケールへの拡張を試み、現時点における評価モデルの構築手法に関する知見や課題の整理を試みた。ベースモデルは時間と流量の関数式（式(2.6-17)、式(2.6-18)）として表現されているため、評価期間と初期流量を入力値として緩衝材の累積流出量を予測評価した。他方、他の関数によるベースモデル構築の試みとして、シグモイド関数モデルによる検討も試行しているため（式(2.6-19)）、これら2つのモデルを対象にベースモデルの拡張を試みた。両モデルは室内要素試験結果をベースとしているため、1 mL/min - 20 mL/minの流量および0.5 m - 2.0 mの水頭差が適用範囲であることに留意されたい。

【べき乗関数モデル】

評価期間が$0 < t \leq T_a$のとき、

$$M_{BENT_BASE}(t, Q) = (0.136Q + 0.393)t^{0.7} \quad (2.6\text{-}17)$$

評価期間が$T_a \leq t \leq T_b$のとき、

$$M_{BENT_BASE}(t, Q) = \frac{(0.136Q + 0.393){T_a}^{0.7}}{{T_a}^{0.04}} t^{0.04} \quad (2.6\text{-}18)$$

※ここでは、$T_a = 3$ (day)に設定

【シグモイド関数モデル】

$$M_{BENT_BASE} = \frac{-0.28Q - 0.27}{1 + e^{(2t-2.84)/0.6}} + 0.28Q + 0.27 \quad (2.6\text{-}19)$$

ベースモデルに入力するパラメータを表2.6-15に示す。評価期間tは、NUMO-SCに示される新第三紀堆積岩類の評価期間、流量Qは原位置実規模1/4スケール試験の平均流量を流路断面積で換算した値を設定した。ベースモデル（べき乗関数モデルおよびシグモイド関数モデル）で予測評価した累積流出量M_{BENT_BASE}に対して、重力補正$C_g = 2$、スケール効果C_s（面積比=212：表2.6-16）を設定したものを拡張モデル（流出量評価モデル）として、累積流出量を整理した（図2.6-48）。

表2.6-15　ベースモデルの入力パラメータ

入力パラメータ	値
試験（評価）期間t (day)	284
室内要素試験スケール 流量Q (mL/min) （実規模1/4スケール 流量Q (mL/min)	10（880）

表2.6-16　ベースモデルと原位置実規模1/4スケール試験の面積比

	ベースモデル	原位置実規模1/4スケール試験
試験ケース	べき乗関数／シグモイド関数	ケイ砂充填 原位置試験
流路長（m）	0.2	0.5
円周長（m）	0.02	0.54 π
地下水との接触面積（m^2）	4.0×10^{-3}	8.48×10^{-1}
接触面積比（原位置/室内）	212	

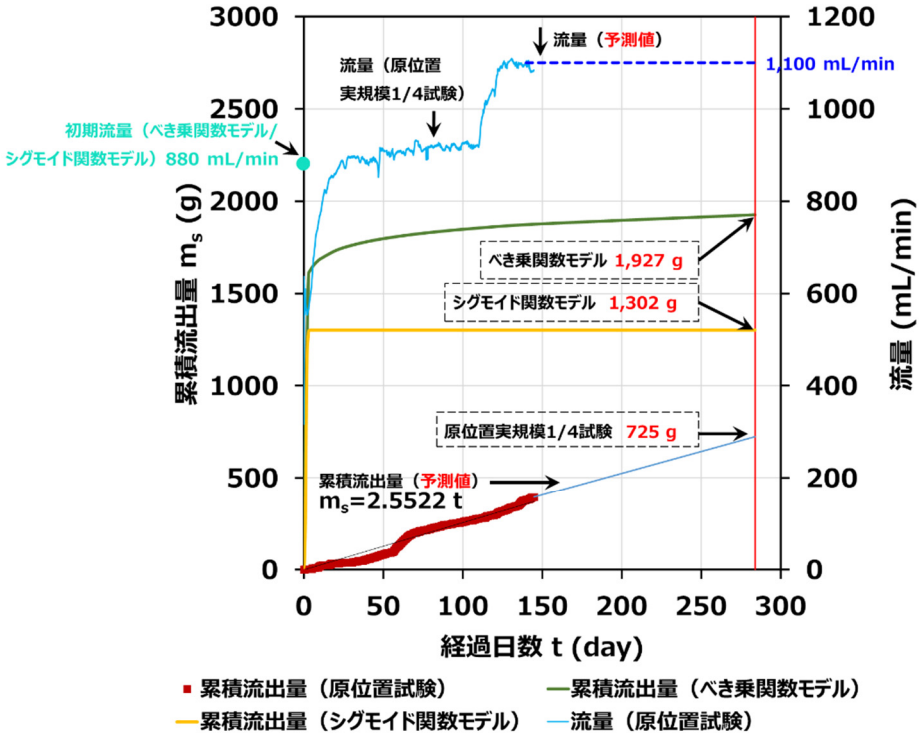


図2.6-48　スケール効果を考慮した流出量評価モデルと原位置実規模1/4スケール試験の比較

上図2.6-48にべき乗関数およびシグモイド関数の評価モデルによるそれぞれの予測結果を原位置試験結果とともに示す。図2.6-48に示すように、流出量評価モデルは室内要素試験のデータセットに基づくモデル式であるため、累積流出量のグラフは数日経過した段階($T_a = 3$ day)まで立ち上がる挙動を示した。その後、シグモイド関数モデルは瞬時に収束し、流出量評価モデル（べき乗関数モデル）は漸増する挙動を維持した。一方、原位置試験で測定されている累積流出量は、最初から線形に増加する傾向を示しており、開始直後に立ち上がるベースモデル（流出量評価モデルおよびシグモイド関数モデル）の流出挙動とは異なる。

シグモイド関数モデルは総流出量（累積流出量の最大値(g)）と累積流出量が収束する日数(day)

が既知である必要があり、利用において制約がある参考的な位置付けである。流出量評価モデルの基本的な関数として整理したべき乗モデルに関する原位置試験への適用結果は、評価期間（284日）において約2.7倍の過大評価を示すが、水質補正を加味すれば両者の差は縮まる可能性がある。また、両者の差を特徴付けるベースモデルの初期の増加傾向については、既述したように、室内要素試験で顕在化する“微細粒分”や装置設定の影響（試験セルの小ささ、出口構造など）、原位置実規模1/4スケール試験の試験点数の少なさなどが課題として示唆され、これらの改善が望まれる。その一方で、ケイ砂充填オプションに関する室内要素試験の安定性およびその結果としてのベースモデル整備の容易性や信頼性などは、隙間処理技術オプションの最適化における評価項目のうち、「緩衝材の流出特性」ならびに「閉鎖迄の性能評価のし易さ」および「不確実性の管理のし易さ」といった評価項目においてメリットのあるオプションであると言える。

表2.6-17　緩衝材ブロックの全乾燥重量に対する流出量の割合

	原位置実規模1/4 スケール試験	流出量評価モデル	
試験ケース、モデル名	ケイ砂充填 原位置試験	べき乗関数モデル	シグモイド関数モデル
試験期間（評価期間）	284日	284日	
通水液	幌延地下水	イオン交換水	
試験体の向き	竪	横	
流量（換算流量）	600 - 1,100 mL/min	10（880）mL/min	
① 緩衝材の累積流出量	725 g	1,927 g	1,302 g
② 緩衝材ブロックの乾燥重量	1.69×10^5 g	1.69×10^5 g	1.69×10^5 g
全重量に対する流出割合 （①／②）× 100 %	0.43	1.14	0.77

③　隙間未充填オプションに対する適用性の確認結果

(a) Step1：室内要素試験に基づくベースモデルの構築

(i)　室内要素試験によるデータセットの取得

前述した②のケイ砂充填オプションと同様の手順で、隙間未充填オプションに関する室内要素試験を進めベースモデルの構築を行った。ここでの試験ケースは表2.6-18の通りである。H05Q5のケースは後述する原位置実規模1/4スケール試験との比較のために追加設定したものである。

試験の制御パラメータ（水頭差、初期流量）の設定方法や試験終了の判断についてもケイ砂充填オプションと同様である。

表2.6-18　隙間未充填オプションの試験ケースの設定

		流量・流速			
		1 mL/min 4.17×10^{-5} m/sec	5 mL/min 2.08×10^{-4} m/sec	10 mL/min 4.17×10^{-4} m/sec	20 mL/min 8.33×10^{-4} m/sec
水頭差	2 m	H2Q1①(R03) H2Q1②		H2Q10①(R03) H2Q10②(R03) H2Q10③	H2Q20①(R03) H2Q20②
	1 m	H1Q1①(R03) H1Q1② H1Q1③		H1Q10①(R03) H1Q10②	H1Q20①(R03) H1Q20②
	0.5 m	H05Q1①(R03)	H05Q5①②	H05Q10①(R03) H05Q10②(R03)	H05Q20①(R03) H05Q20②
換算流量(実規模1/4) mL/min		90	440	880	1,760
換算流量 (実規模) mL/min		680	3,420	6,850	13,700

※R03:令和3年度実施分(日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2022)
※試験ケース語尾の番号は、試験回数を示す。

(ii) 試験結果と考察

表2.6-18の試験ケースの結果を図2.6-49および図2.6-50に示す。

なお、18の試験ケースのうち、H1Q1①、H1Q1②、H05Q10①、H2Q10①、H2Q10②の5ケースでは、試験セルの上流（通水口）および下流（排水口）で先行して膨潤し、緩衝材が隙間を充填する前に止水する現象が確認された。このような挙動は実規模スケールにおいて想定される挙動とは異なるため、試験結果の整理から除外している。更に、上表2.6-18に示す1ケースあたりに要した試験回数（ケイ砂充填オプションで示唆された累積流出量の傾向を表現する結果が得られるまで再試験を実施）から、隙間未充填オプションの室内要素試験では、安定した試験結果を得ることが容易ではなく、試験装置や試料の品質（緩衝材の密度均質性など）に対して感度が高いことを示唆している。

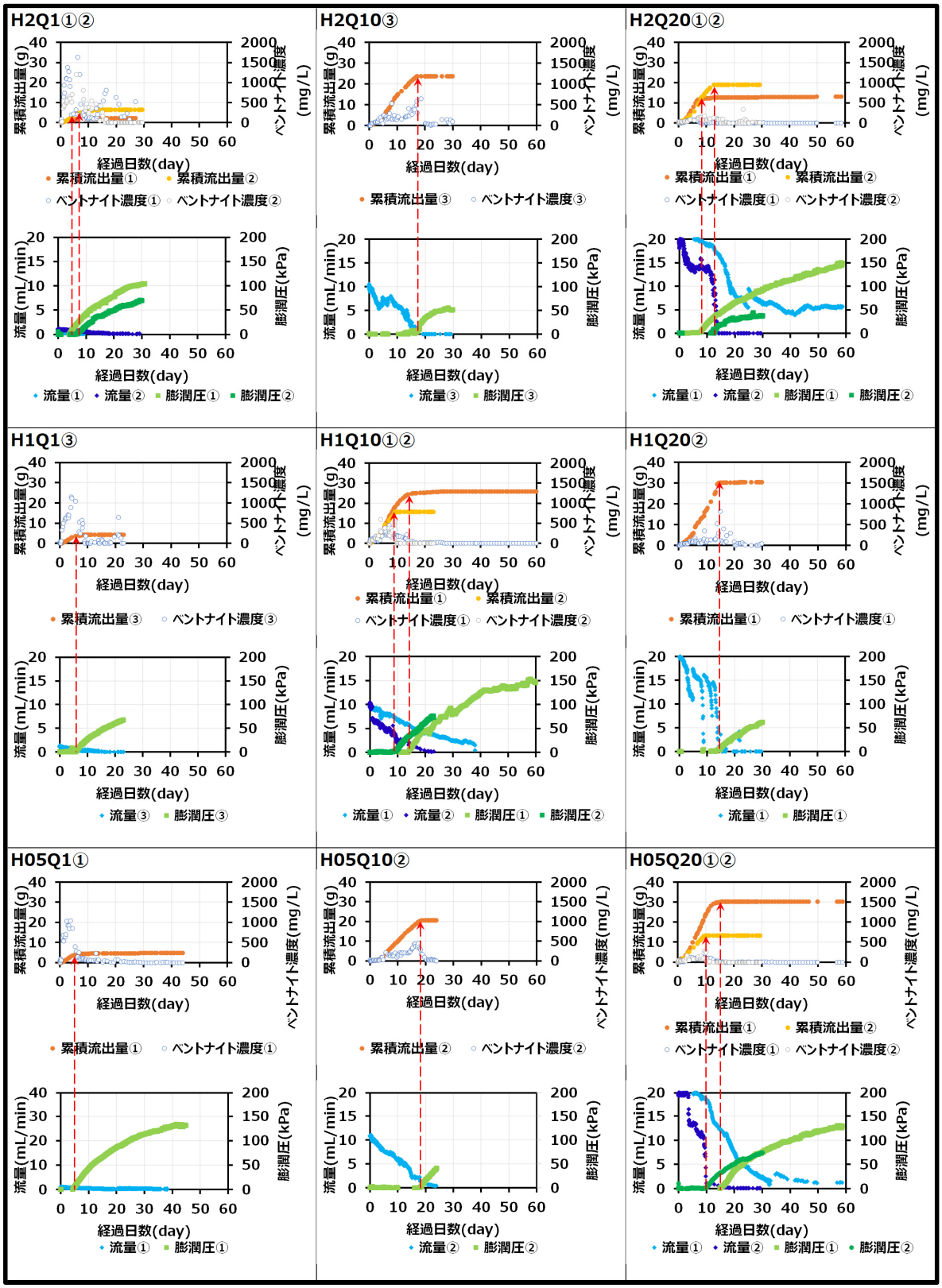


図2.6-49　隙間未充填オプション　ベースモデル構築のためのデータセット（その1）
（緩衝材の累積流出量、ベントナイト濃度、排水流量、膨潤圧）

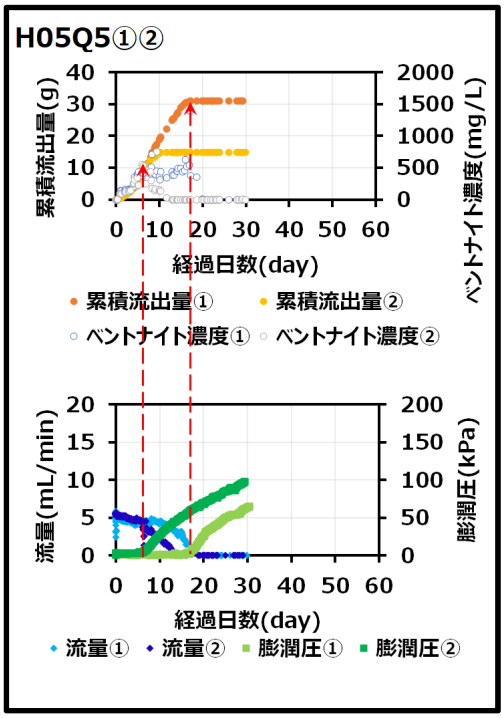


図2.6-50　隙間未充填オプション　ベースモデル構築のためのデータセット（その2）
（緩衝材の累積流出量、ベントナイト濃度、排水流量、膨潤圧）

上図2.6-49および図2.6-50に示す試験結果から窺える特徴および考察を、以下に整理する。

［ベントナイト濃度］

- ベントナイト濃度は、試験開始直後から経時的に増加し減少する傾向がある。これは、方法論の整理として述べた既出の図2.6-3に示したT_1とT_2の区間における予想された挙動である。ただし、流量や水頭差に対する規則性はなく、バラツキがみられた。
- 図2.6-51より、ベントナイト濃度のピーク時間を流量で整理すると、流量の低いケース(1 mL/min)であればピーク時間は3 - 6日の範囲に収束するが、5 mL/min以上の流量ではバラツキが大きくなった。なお、水頭差との相関は低い。
- 図2.6-52より、ベントナイトのピーク濃度を流量で整理すると、流量の増加に伴いベントナイト濃度のピークは低下した。なお、水頭差との相関は低い。
- 考察：
  - ベントナイト濃度の挙動に規則性がみられない理由として、緩衝材表面の不均質な浸潤・膨潤の影響（供試体作製時の密度勾配や材料に混合したケイ砂の分散状態などの影響）や、緩衝材に含まれる細粒分の移動等が、微細粒分の水中分散および水流による微細粒分の移送に影響を与えていると考えられる。
  - 流量の低いケース(1 mL/min)でベントナイト濃度のピークが高い理由として、緩衝材の表面から水中へ分散する微細粒分の供給速度に対して排水流量（流速）が遅いため、水中に分散する“微細粒分”が多くなる（ベントナイト濃度が高くなる）ことが考えられる。そのため、流量が大きくなると、緩衝材表面から水中へ分散する微細粒分の供給速度に対して排水流量（流速）が速くなるため、水中に分散する微細粒分が少なくなる（ベントナイト濃度が低くなる）と考えられる。

［膨潤圧］

- 緩衝材ブロックの表面と試験セルの間は未充填であるため（隙間が設けられているため）、

試験開始直後の膨潤圧はゼロ(0 kPa)で推移した。

- 緩衝材ブロックが上方へ膨潤し、試験セル上面に設置した圧力計に到達した時点から膨潤圧が発生し、そこから単調に増加した。膨潤圧が発生するタイミング（緩衝材ブロックの表面が試験セルに到達するタイミング：変曲点）では、累積流出量が収束する傾向を示すタイミングと概ね一致する結果が確認されたことから（図2.6-49、図2.6-50の赤矢印）、このタイミングは既出の図2.6-3に示した変曲点Taである。
- 膨潤圧が発生するタイミングは、制御パラメータ（水頭差、流量）との相関が小さく、同じ条件の試験による再現性は低い。
- 流量が少ないケース(1 mL/min)は、膨潤圧が発生するタイミングは他ケースと比べて早く、そのバラツキも小さい（図2.6-53）。
- 同じ条件(H2Q1、H05Q5、H1Q10、H05Q20、H2Q20)で試験回数を増やした結果から、膨潤圧が発生するタイミングの傾向に規則性は確認できない。
- 考察：
  - 膨潤圧が発生するタイミングは、緩衝材の膨潤により隙間を充填したタイミングであり（流路断面の完全閉塞ではない）、膨潤圧が発生した後の累積流出量は収束する傾向を示した。
  - ただし、膨潤圧が発生するタイミングと累積流出量の変曲点は必ずしも一致しておらず、試験セル中央の1ヶ所に設置した土圧計による点測定の結果を、試験セル内の膨潤圧として代表させていることには注意が必要である。
  - 隙間未充填オプションでは、緩衝材の表面が自由水で満たされた隙間内を均一に膨潤するわけではないため、緩衝材が試験セルに初めて到達する位置が、必ずしも土圧計を設置した位置と一致しない。
  - 流量が少ないケース(1 mL/min)では緩衝材の流出量が少ないため、他ケースと比べて隙間の充填に寄与する微細粒分が多くなり、隙間を充填する速度が速くなる（膨潤圧が発生するタイミングは早くなる）と考えられる。

［流量］

- 時間経過に伴い緩衝材が隙間を充填して流路断面積を狭めた（埋めた）ことにより、流量は減少した。
- H2Q10③、H05Q20①、H1Q20①、H2Q20①では、試験経過（緩衝材が隙間を充填する過程）の中で、流量が突然増加する現象が確認されており、塞がれつつあった間隙部が水頭差による水圧に耐え切れず、破過が発生したものと考えられた。
- 緩衝材が隙間を充填して流路断面積を狭めた（埋めた）ことにより、全ての試験ケースで最終的な流量がゼロ(0 mL/min)、もしくはゼロに近づく結果が確認された。
- 流量がゼロ(0 mL/min)となる（止水される）ケース(H2Q1①、H05Q1①)は、流量が低いケース(1 mL/min)であった。
- 流量がゼロとならないケースは、試験セルと緩衝材の界面で水みちが残存していると考えられる。詳細は後述するが、緩衝材の上面にケイ砂が集積する現象がアクリル面の観察（図2.6-54）および試験セル解体の結果で確認されており、このケイ砂の集積領域が水みちとして残存していると考えられた。
- 考察：
  - 破過の挙動を示す理由として、緩衝材の隙間への不均質な膨潤による部分的な流路の遮断が考えられた。そのため、本現象の発生は不規則であり、全ての試験ケースで必ず起こるものではない。

・ 流量が少ないほど“微細粒分（粘土粒子）”の流出を抑制でき、流路断面の減少や閉塞に寄与する。流量が大きくなるほど“微細粒分”の流出量が増加（濃度が増加）すると考えられる。

［緩衝材の累積流出量］

- 緩衝材の累積流出量は、時間経過に伴って増加する軌跡を描き、変曲点を経て収束する傾向を示した。最終的な累積流出量は、本試験で設定した水頭差の範囲において相関は低く、流量との相関が高い傾向を示す。
- 流量が少ないケース(1 mL/min)では、累積流出量のバラツキは小さい。
- 同じ試験条件(H2Q1、H05Q5、H1Q10、H05Q20、H2Q20)における累積流出量の再現性については、対数関数的に増加した後、変曲点を経て収束する傾向に至るまでの軌跡は再現されるが、変曲点（膨潤圧の発生）が発現するまでの時間や最終的な累積流出量にバラツキが生じる。
- 考察：

・ 累積流出量の初期の増加傾向は、緩衝材が通水液（自由水）と接触して膨潤（密度低下）してせん断抵抗が低下、あるいは自由水界面での“微細粒分”や細粒分の分散（懸濁化）が発生し、通水液（水頭差を駆動力とした流量）が微細粒分を押し流した現象と考えられる。試験初期は、流路断面積が大きく流量低下もほとんどないため、より大きな移送力によって流出させたと考えられる。

・ 同じ試験条件(H2Q1、H05Q5、H1Q10、H05Q20、H2Q20)で累積流出量にバラツキが生じているのは、自由水で満たされた隙間における上述の現象や試験装置や試料の品質のバラツキに伴う緩衝材の浸潤・膨潤挙動の違いによる隙間充填までの時間（変曲点：膨潤圧の発生）の差が一因として考えられる。

・ 変曲点（膨潤圧の発生）の発現以降、僅かな流量を維持しつつ低水準の流出濃度が維持されている要因として、ケイ砂の集積による水みちの残存が考えられる。詳細は後述するが、緩衝材の上面に集積したケイ砂によって、ケイ砂充填オプションの流出挙動（緩衝材表面と通水液との接触面積の低下）と同様の挙動を示していると考えられる。

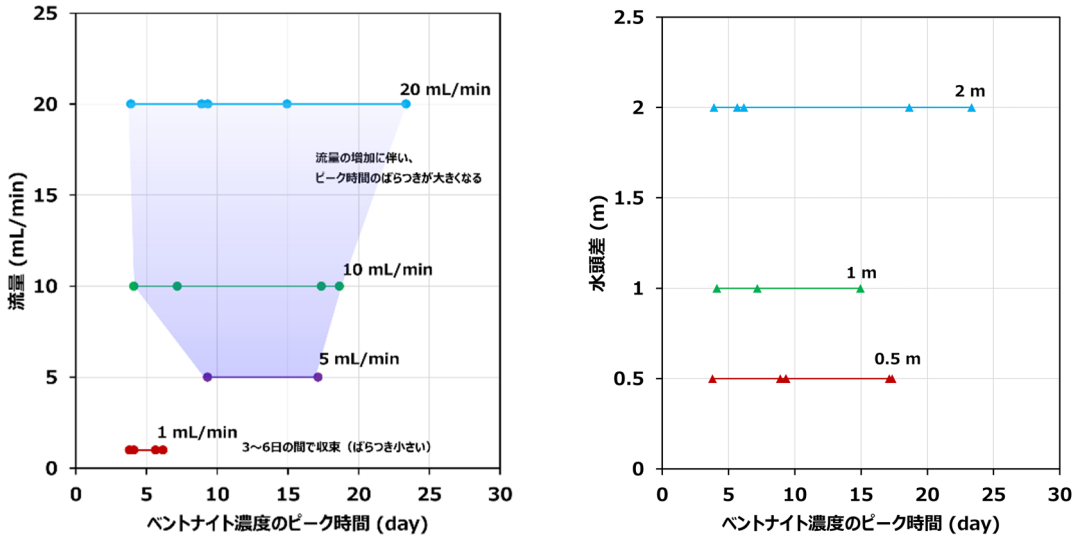


図2.6-51　流量および水頭差に対するベントナイト濃度のピーク時間の関係

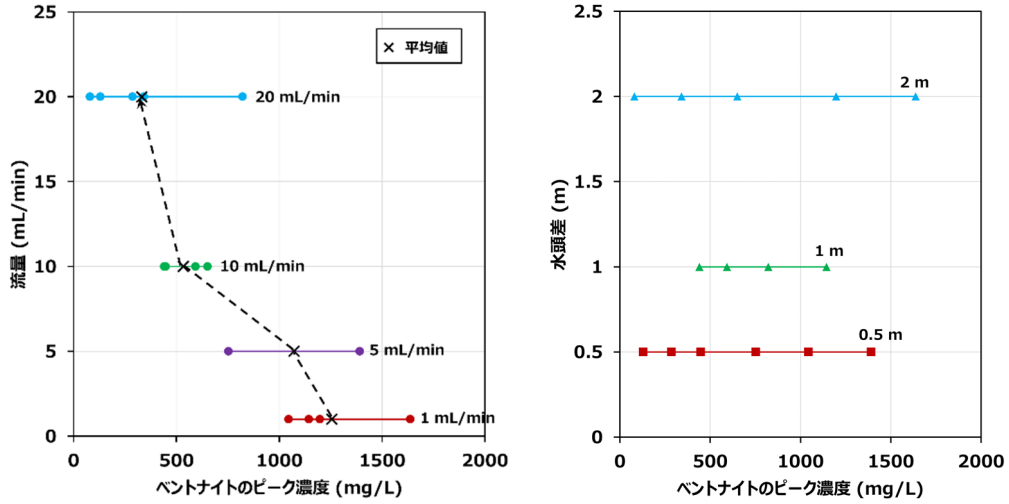


図2.6-52　流量および水頭差に対するベントナイト濃度のピークの関係

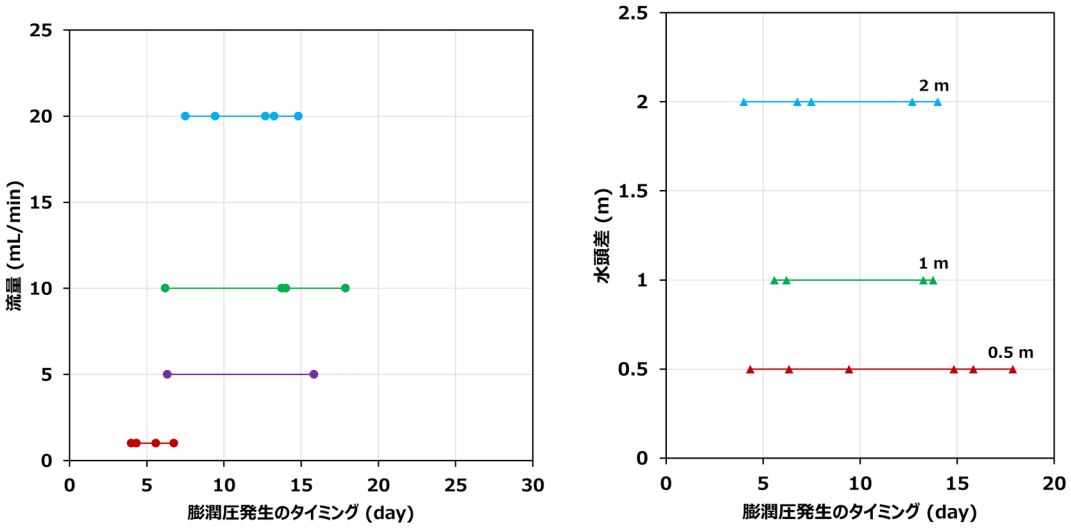


図2.6-53　流量および水頭差に対する膨潤圧発生の時間の関係

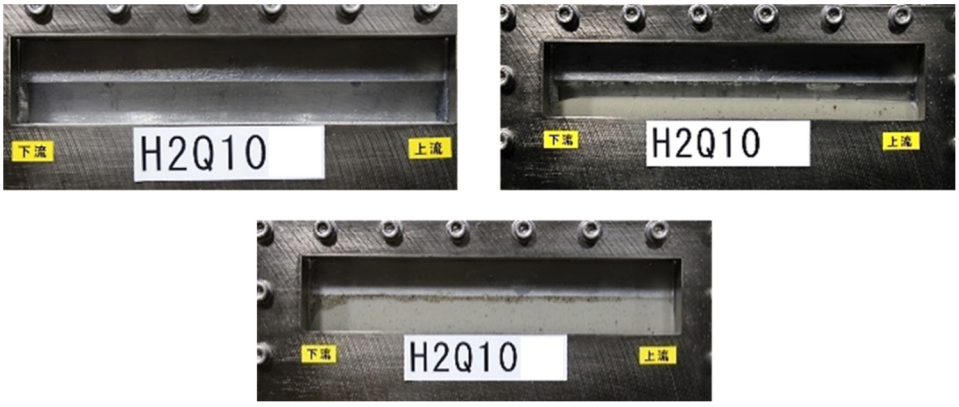


図2.6-54　試験開始（左上）、試験中（右上）および終了時（下）の隙間未充填領域（例：H2Q10）

以上のような試験結果と個々の測定値に対する考察を踏まえ、試験過程で形成された「ケイ砂の集積」が流出に与える挙動の観点から更なる分析と考察を進めた。

試験終了後に試験セルを解体し、隙間を充填した緩衝材ブロックのうち、緩衝材ブロック上面（試験セルと接触する面）および前面（アクリルと接触する面）を観察し（図2.6-55）、集積するケイ砂の分布状況を表2.6-19にまとめた。観察結果から以下が窺える。

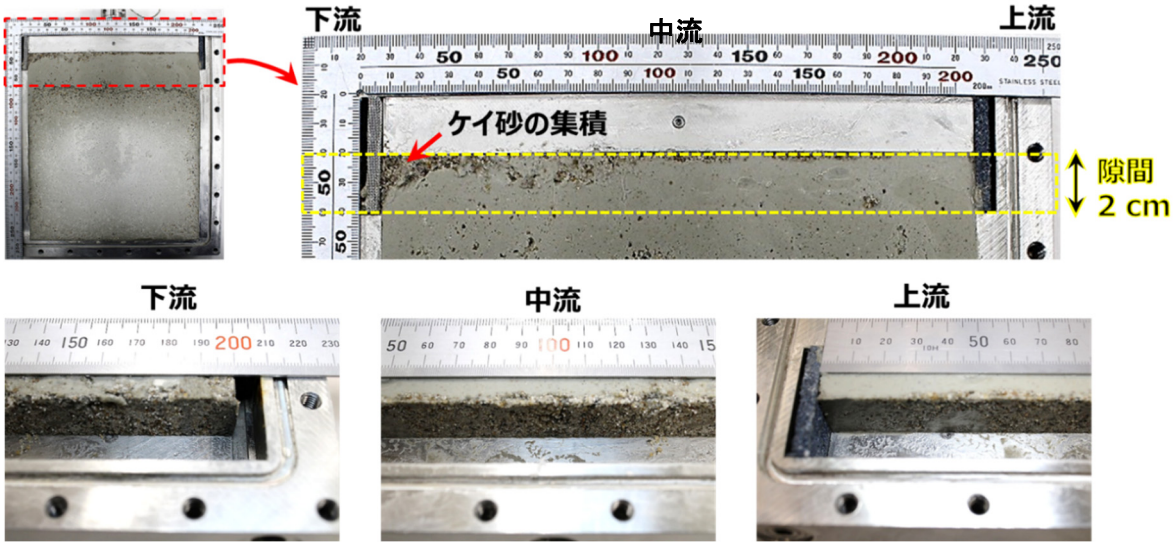


図2.6-55　ケイ砂の集積状況（例：H2Q10③）

表2.6-19　緩衝材ブロック上面におけるケイ砂の集積状況

試験ケース	試験期間 day	水頭差 m	流量 mL/min	止水状況*1	ケイ砂の集積状況*2		
					下流	中流	上流
H05Q1①(R03)	44	0.5	1	○	N	N	L
H1Q1③	23	1		△	S	N	N
H2Q1①(R03)	27	2		○	L	L	N
H2Q1②	29.3			△	L	S	S
H05Q5①	29.3	0.5	5	△	L	L	S
H05Q5②	30			△	L	L	S
H05Q10②(R03)	24	0.5	10	△	N	N	S
H1Q10①(R03)	79	1		△	L	L	L
H1Q10②	23			×	S	S	S
H2Q10③	30	2		△	L	S	S
H05Q20①(R03)	58.7	0.5	20	△	L	L	L
H05Q20②	29.3			△	L	S	S
H1Q20②	30	1		△	L	S	S
H2Q20①(R03)	58.7	2		×	L	L	L
H2Q20②	29.3			△	L	S	S

※R03：令和3年度実施分（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2022）

*1　○：止水　△：わずかに止水　×：排水

*2　L：集積量多い(Large)　S：集積量少ない(Small)　N：集積なし(Nothing)

・ ケイ砂の集積状況については、上流、中流、下流に分けた上で、集積量が多い(L)、少ない(S)、なし(N)の3段階で評価した。試験ケース全体の傾向として、ケイ砂は満遍なく集積していることが観察され、特に下流側に集中していることが確認された（図2.6-55、表2.6-19）。
・ 以下のようなメカニズムで、ケイ砂が下流側に集中したことが考えられる。

Step1 : 自由水との接触、あるいは緩衝材の膨潤に伴う乾燥密度の低下でせん断抵抗が低下により、“微細粒分や細粒分が水中に分散。

Step2 : 通水液（水頭差を駆動力とした流量）によって“微細粒分”や細粒分および一部のケイ砂が下流に移動。

Step3 : ケイ砂は下流に設置したメッシュフィルタによりフィルタリングされて集積し、緩衝材の“微細粒分”や細粒分は流出。

・ 上流から移送された細粒分は下流側で堆積し、図2.6-55に示されるようなくさび状を呈した。
・ 一方、上流、中流、下流のいずれかでケイ砂の集積が確認されていない試験ケースは、H05Q1①、H2Q1①、H05Q10②であり、流量の少ないケースでみられる傾向であった。これらのケースにおける残留物はケイ砂よりも粘性土が主体的であることが観察できたことから、ケイ砂の集積よりも緩衝材の膨潤挙動が支配的であったことが考えられる。
・ 以上を踏まえると、ケイ砂の集積は、粘土粒子（微細粒分や細流分）のみが先行して流出してケイ砂が集積することで形成され、ケイ砂の集積の程度は、流量が影響因子としてはたらくと考えられる。

(iii) ベースモデルの整備

室内要素試験で取得した緩衝材の累積流出量をデータセットとして、データの規則性や傾向を分析し、累積流出量を予測評価するベースモデルを検討した。隙間未充填オプションについても、ケイ砂充填オプション同様に、以下に留意して流量を引数としたベースモデルの構築を試みた。

・ 本モデルは室内要素試験で取得した試験結果をベースとするため、1 mL/min - 20 mL/minの流量および0.5 m - 2.0 mの水頭差が適用可能な範囲である。
・ 初期の増加以後は、時間経過とともに低い流出濃度が維持されつつ流量は減少することから、1つのべき乗関数モデルで全区間をモデル化すると累積流出量を過大評価する可能性がある。

前述したように、累積流出量は時間経過に伴って対数関数的に増加し、最終的にある一定の値に収束する傾向が示されている。緩衝材の累積流出量の経時変化を本モデルで表現する場合、図2.6-56に示すように、単調増加区間（以下、［T_1期間］という）と漸増区間（以下、［T_2期間］という）に分けて整理する必要があるため、本モデルの整備ではT_1期間およびT_2期間で異なる関数を使用することとした。T_2期間以降の累積流出量を予測評価する際には、両者を区分する時間T_aは入力値（既知）として要求される。両者を区分する時間T_aは、2つの関数の交点（以下、［変曲点］という）を指し、緩衝材の膨潤圧が発生する時間と概ね一致するため、その時間を参照して設定することとした。

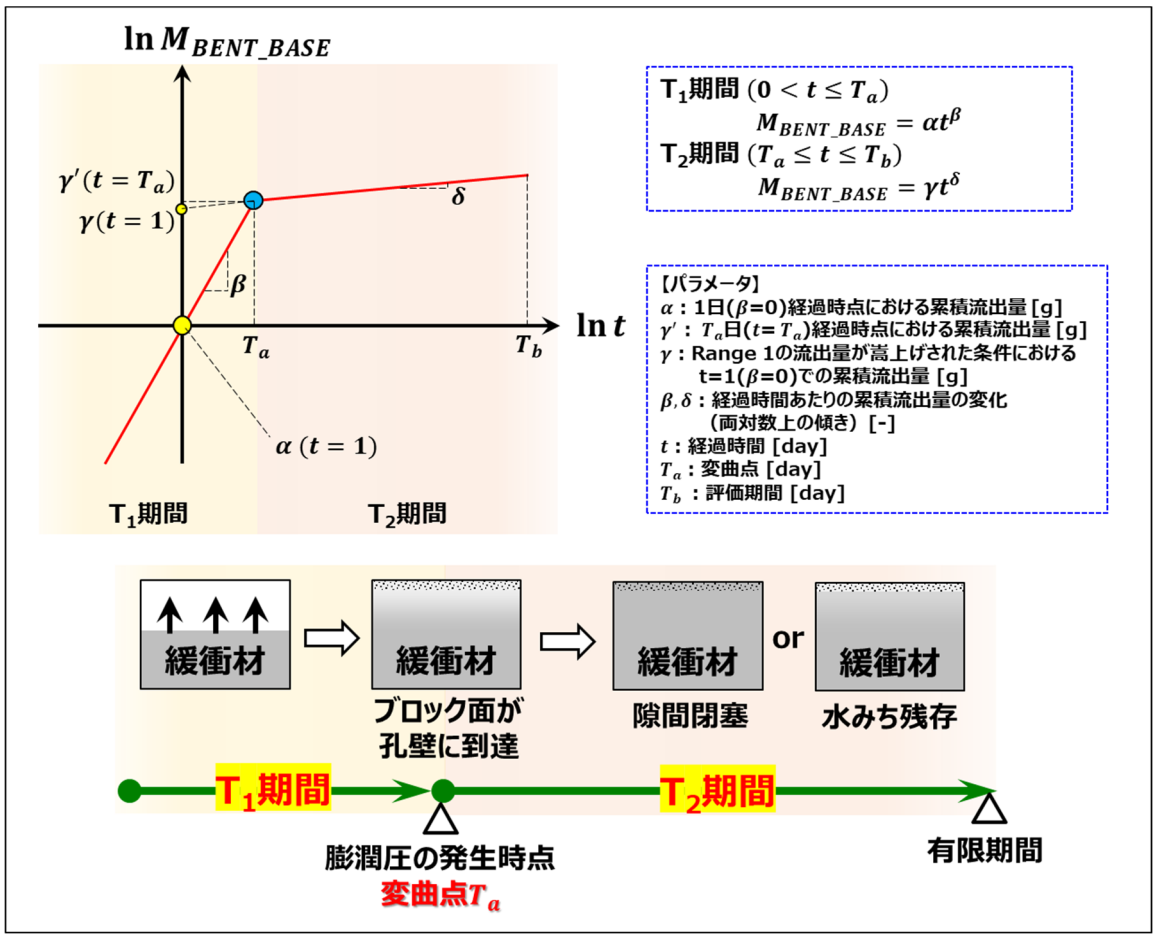


図2.6-56　隙間未充填オプション　べき乗関数モデルのグラフ概念図

前述した試験結果の傾向から、制御パラメータ（水頭差、流量）の双方を加味した関数（引数）として膨潤圧が発生する時間（変曲点T_a）を表現することは難しく、また、試験点数に制約もあるものの、流速に着目して以下のように変曲点T_aを設定した（図2.6-57）。

- 水頭差と膨潤圧が発生するタイミングとの相関は小さいため、水頭差は引数から除外する。
- 5≦流量≦20 mL/minの範囲においては、膨潤圧が発生するタイミングのバラツキは同程度であるため、これら全データの平均値(T_a=10.9 day)を適用する。
- 1≦流量＜5 mL/minの範囲においては、膨潤圧が発生するタイミングのバラツキは小さいため、これら全データの平均値(T_a=7.1 day)を適用する。

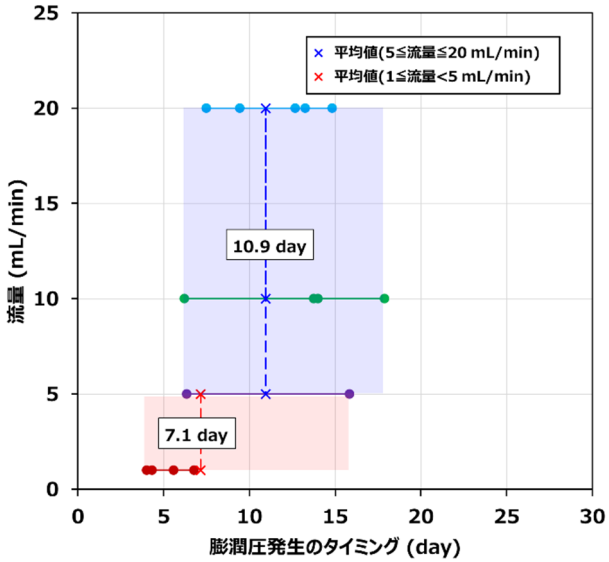


図2.6-57　変曲点T_aの決め方

T_1期間、T_2期間における累積流出量の経時変化は、それぞれ式(2.6-20)、式(2.6-21)で表現させ、べき乗関数を構成する4つパラメータ$(\alpha, \beta, \gamma, \delta)$については、流量を引数とした関数で表現させることとした。

$$M_{BENT_BASE} = \alpha t^{\beta} \tag{2.6-20}$$

$$M_{BENT_BASE} = \gamma t^{\delta} \tag{2.6-21}$$

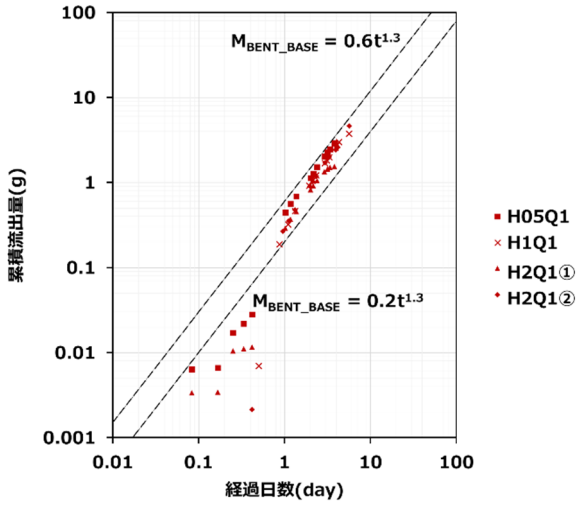
以降、本モデルをデータセット（図2.6-49、図2.6-50）へ適用し、T_1期間とT_2期間でフィッティングした結果を示す。

【T_1期間 $(0 < t_1 \leq T_a)$】

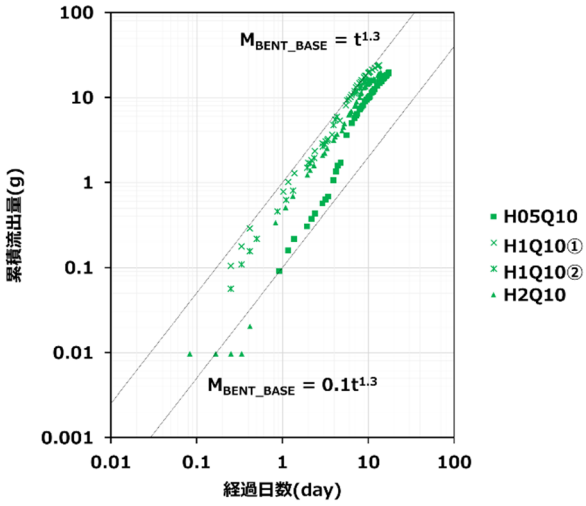
緩衝材の累積流出量の経時変化（両対数グラフ）は、図2.6-58に示すように初期流量ごと（流量1 mL/min、5 mL/min、10 mL/min、20 mL/min）にグラフを整理し、べき乗関数を用いてフィッティングした。データセットを本モデルで網羅するためには、どの流量においても帯域幅をもつため、パラメータα（試験開始から1日経過後の累積流出量）は表2.6-20に示すように幅をもって示される。αの値を決める際は、保守的な評価となるように帯域幅の上限値を採用することとして、αを流量Qとの線形相関として整理した（図2.6-59）。パラメータβ（対数グラフで表現したべき乗関数の傾き）は流量によらず同じ値を示す（図2.6-59）。

以上から、T_1期間 $(0 < t_1 \leq T_a)$ のモデルは、以下の式(2.6-22)で示される。

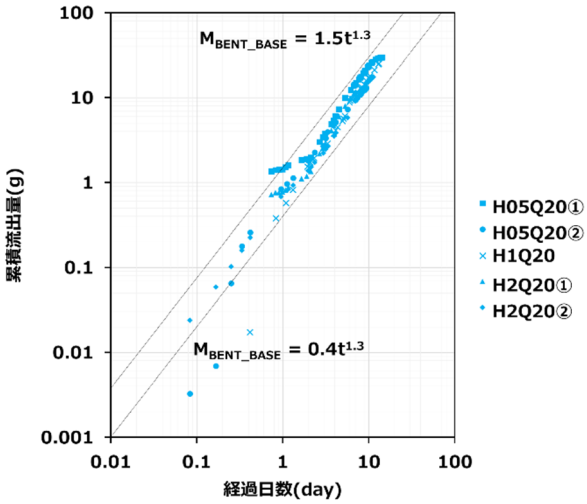
$$M_{BENT_BASE}(t, Q) = (0.043Q + 0.637)t^{1.3} \tag{2.6-22}$$



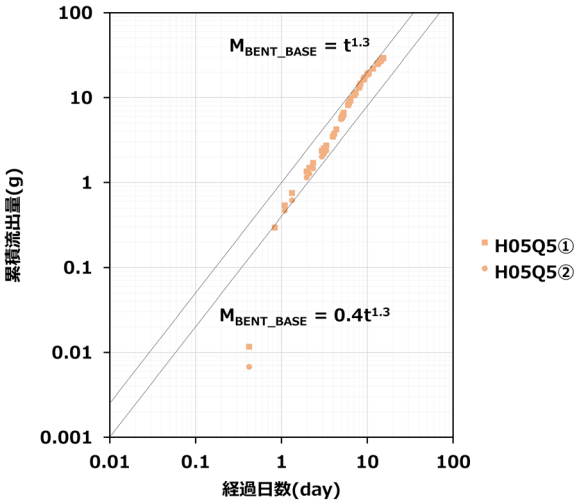
（a）初期流量 1 mL/min



（b）初期流量 10 mL/min



（c）初期流量 20 mL/min



（d）初期流量 5 mL/min

図2.6-58　初期流量ごとに整理したべき乗関数モデル

表2.6-20　べき乗関数モデルを構成するパラメータ

流量（mL/min）	α（g）	β
1	0.2 - 0.6	1.3
5	0.4 - 1.0	
10	0.1 - 1.0	
20	0.4 - 1.5	

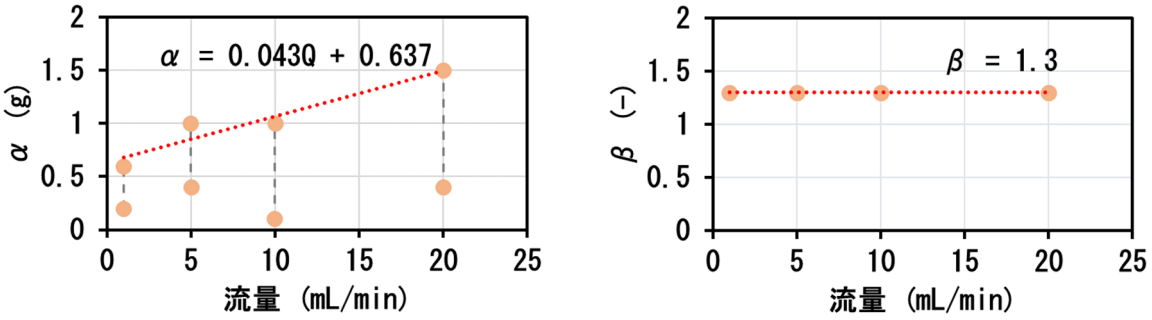
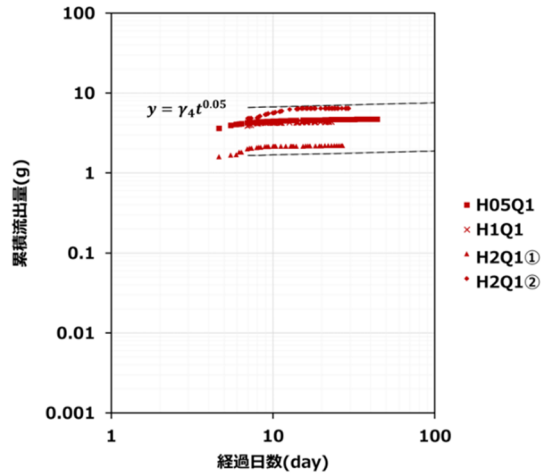
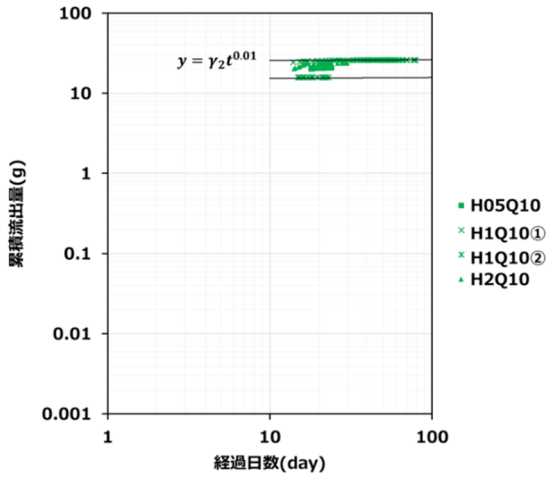


図2.6-59　パラメータα、βと流量の関係

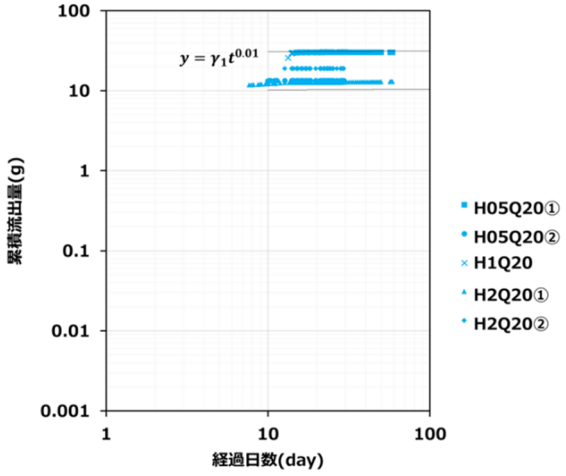
T_2期間についてもT_1期間と同様に、緩衝材の累積流出量の経時変化（両対数グラフ）を流量ごとに整理し、べき乗関数を用いてフィッティングした（図2.6-60）。



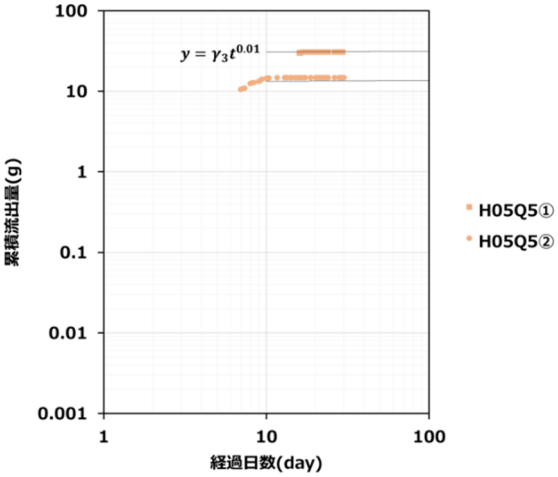
（a）初期流量　1 mL/min



（b）初期流量　10 mL/min



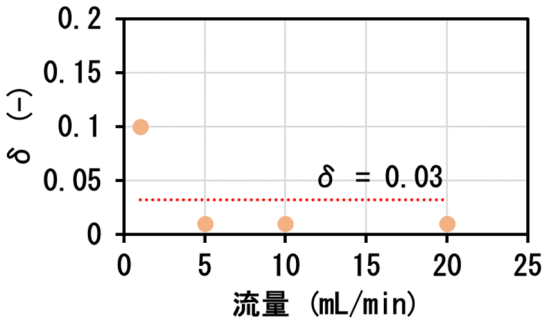
（c）初期流量　20 mL/min



（d）初期流量　5 mL/min

図2.6-60　初期流量ごとに整理したべき乗モデル関数

パラメータγ（t=1との交点）は、T1期間の累積流出量分が嵩上げされた値（厳密にはγ'：図2.6-56）である点に留意する必要がある。パラメータδ（対数グラフで表現したべき乗関数の傾き）は、今回の試験データは4点のみであるが、それらの平均値を用いて設定することとした（図2.6-61）。



流量(mL/min)	δ
1	0.1
5	0.01
10	0.01
20	0.01

図2.6-61　パラメータδと流量の関係

以上より、T2期間（$T_a < t \leq T_b$）のモデル式の導出を以下に示す。
まず、T2期間（$T_a < t \leq T_b$）のモデル式は、式(2.6-23)で定義される。

$$M_{BENT_BASE} = \gamma t^{\delta} \tag{2.6-23}$$

次に、変曲点 T_aにおける累積流出量 γ'は式(2.6-24)で表される。

$$\gamma' = \gamma {T_a}^{\delta} \tag{2.6-24}$$

$$\gamma = \frac{\gamma'}{{T_a}^{\delta}} \tag{2.6-25}$$

式(2.6-22)から、累積流出量 γ'を求める。

$$\gamma' = M_{BENT_BASE}(T_a, Q) = (0.043Q + 0.637){T_a}^{1.3} \tag{2.6-26}$$

式(2.6-26)を式(2.6-25)に代入し、それを式(2.6-23)へ代入する。

$$M_{BENT_BASE} = \frac{(0.043Q + 0.637){T_a}^{1.3}}{{T_a}^{\delta}} t^{\delta} \tag{2.6-27}$$

図2.6-61より、δ=0.03を式(2.6-27)へ代入する。

$$M_{BENT_BASE} = \frac{(0.043Q + 0.637){T_a}^{1.3}}{{T_a}^{0.03}} t^{0.03} \tag{2.6-28}$$

以上より、T2期間($T_a \leq t \leq T_b$)のモデルは、式(2.6-28)で示される。
T1期間、T2期間のモデル式を総括して、べき乗関数モデルは、式(2.6-29)と式(2.6-30)で表現される。

評価期間が$0 < t \leq T_a$のとき、

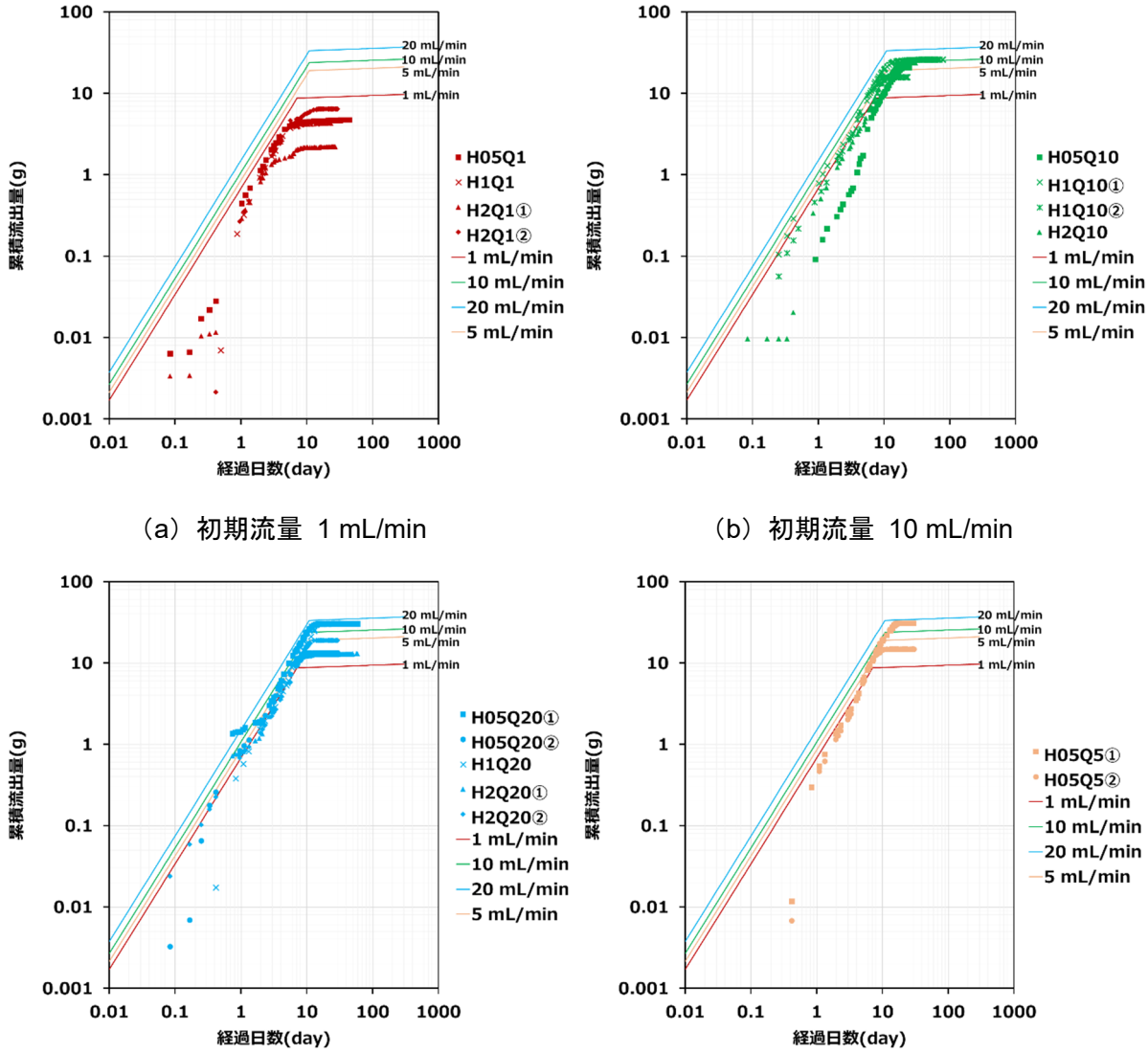
$$M_{BENT_BASE}(t, Q) = (0.043Q + 0.637)t^{1.3} \quad (2.6\text{-}29)$$

評価期間が$T_a \leq t \leq T_b$のとき、

$$M_{BENT_BASE}(t, Q) = \frac{(0.043Q + 0.637){T_a}^{1.3}}{{T_a}^{0.03}} t^{0.03} \quad (2.6\text{-}30)$$

図2.6-62に示したべき乗関数モデルと試験結果（データセット）を比較すると、モデルは試験結果の傾向を概ね再現しているが、流量5 mL/minのケースなど、一部の試験ケースではべき乗関数モデルから外れるものもある。隙間未充填オプションにおける累積流出量を予測評価するうえで、流出挙動の不確実性が評価結果に大きく影響しており、その要因として室内試験結果そのもののケース毎のバラツキが考えられる。そのようなバラツキの要因については、前述した試験結果と考察において述べたとおりである。

上記の試験結果のバラツキに伴う不確実性を包含した評価モデルを構築するためには、ケースごとの試験回数（N数）を増やして不確実性を包含した統計的な処理を加味して評価モデルを構築することが望まれる。べき乗関数モデルで流出量を評価する場合、流出挙動が変化する点（膨潤圧が発生するタイミングT_a）を統計的に整理、もしくは制御パラメータ（水頭差、流量）を引数とした整理が課題であるが、今回の試験ケース数ではバラツキが大きく（図2.6-53）、また、既述したように本隙間未充填オプションのT_1期間における挙動の特徴を踏まえれば、相当数の試験点数を確保しても収束しない可能性があることに留意が必要である。



（a）初期流量 1 mL/min　　（b）初期流量 10 mL/min

（c）初期流量 20 mL/min　　（d）初期流量 5 mL/min

図2.6-62　べき乗関数モデルと室内試験結果との比較

(iv) 他の関数によるベースモデル整備の試み

ケイ砂充填オプションと同様に、室内要素試験の累積流出量と経時変化に類似した挙動を示し、上限および下限に漸近線を有するS（シグマ）型の単調増加関数（シグモイド関数）を例題としてフィッティングを試みた。

緩衝材の累積流出量の経時変化をシグモイド関数で表現させると、式(2.6-31)のように示される。

$$M_{BENT_BASE} = \frac{-A_2}{1 + e^{(2t-2t_0)/2\alpha}} + A_2 \qquad (2.6\text{-}31)$$

ここに、M_{BENT_BASE}は緩衝材の累積流出量（ベースモデルの予測評価値）(g)、tは経過日数(day)、A_2は緩衝材の累積流出量の最大値(g)、$2t_0$は累積流出量が収束する日数(day)、2αはフィッティング係数を示す。

隙間未充填オプションについてもケイ砂充填オプションと同様に、入力値（緩衝材の累積流出

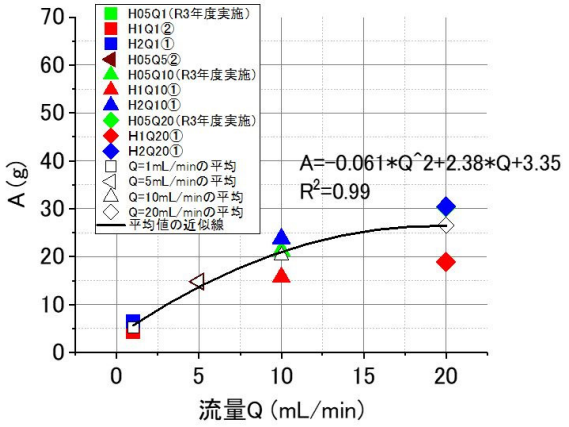
量の最大値A_2と累積流出量が収束する日数$2t_0$）は、流量を引数とした関数で置き換えることとした。隙間未充填オプションでは、一部の試験ケースで試験点数(N=2 - 3)を増やしているが、同水準の試験結果に再現性はほとんど無いため、全ての試験データを用いて入力値（A_2と$2t_0$）と流量の相関を決定することは困難である。そのため試行的に、表2.6-21に示すように試験ケースごとに1データを抽出して入力値と流量の相関関数を決定することとした。

緩衝材の累積流出量の最大値A_2と流量、累積流出量が収束する日数$2t_0$と流量の関係グラフを図2.6-63と図2.6-64に、入力値（A_2と$2t_0$）と流量の相関を本モデルでフィッティングさせた結果を図2.6-65に示す。なお、フィッティング係数2αは、試験結果との整合性を踏まえて3.0で設定した。

表2.6-21　入力値（A_2と$2t_0$）と流量の相関関数の決定に使用した試験ケース

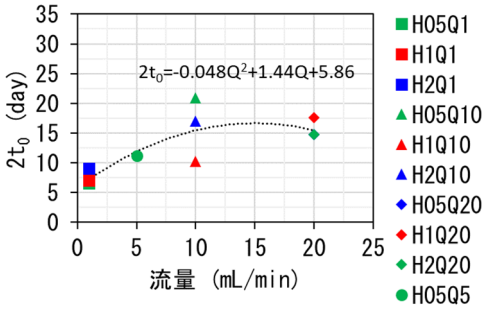
		流量・流速			
		1 mL/min 4.17×10^{-5} m/sec	5 mL/min 2.08×10^{-4} m/sec	10 mL/min 4.17×10^{-4} m/sec	20 mL/min 8.33×10^{-4} m/sec
水頭差	2 m	H2Q1①(R03)		H2Q10①(R03)	H2Q20①(R03)
	1 m	H1Q1③		H1Q10①(R03)	H1Q20①(R03)
	0.5 m	H05Q1①(R03)	H05Q5②	H05Q10②(R03)	H05Q20①(R03)
換算流量(実規模1/4) mL/min		90	440	880	1,760
換算流量(実規模) mL/min		680	3,420	6,850	13,700

※R03：令和3年度実施分（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2022）



流量 / 水頭差	1 mL/min	5 mL/min	10 mL/min	20 mL/min
2m	6.44		23.79	18.89
1m	4.37		15.72	30.47
0.5m	4.70	14.81	21.25	30.28

図2.6-63　緩衝材の累積流出量の最大値A_2と流量Qの関係



流量 / 水頭差	1 mL/min	5 mL/min	10 mL/min	20 mL/min
2m	9.04		16.96	14.7
1m	7.02		10.2	17.6
0.5m	6.62	11.22	20.88	14.8

図2.6-64　累積流出量が収束する日数$2t_0$と流量Qの関係

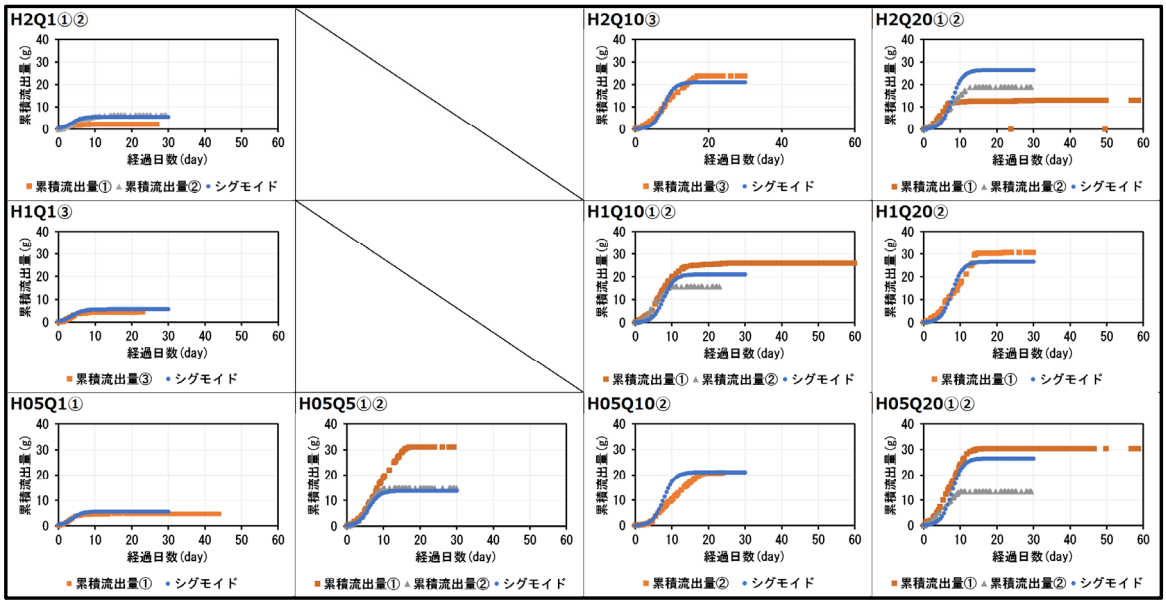


図2.6-65　シグモイド関数によるフィッティング結果（2α＝3.0）

本モデルと試験結果（データセット）を比較すると、累積流出量の経時変化に対して、以下のケースが確認された。

・単調増加の軌跡にずれが生じるケース（例：H05Q10②）

・最終的な累積流出量（収束値）と乖離するケース（例：H2Q20①）

これらの要因は、入力値（A_2と$2t_0$）と流量の相関関数を決定するためのデータ抽出（表2.6-21）にあると考えられるため、試験ケースごとの試験点数を拡充し、データ抽出の代表性の精度を上げることで、乖離（誤差）は抑制されるものと考えられる。

以上のことを踏まえ、シグモイド関数を用いたベースモデルは、式(2.6-32)のように表現される。

$$M_{BENT_BASE} = \frac{-A_2}{1 + e^{(2t-2t_0)/3.0}} + A_2$$

$$A = -0.061Q^2 + 2.38Q + 3.35 \qquad (2.6\text{-}32)$$

$$2t_0 = -0.048Q^2 + 1.44Q + 5.86$$

(b) Step2：室内要素試験による実環境効果を考慮した拡張モデルへの更新

(i) 試験条件の設定

図2.6-9に示した流出量評価モデルの開発手順のうち、実環境効果を考慮したベースモデルの拡張について検討した。Step2で扱う実環境効果を水質および重力として、室内要素試験でこれらの影響を確認した。試験条件は、前述したケイ砂充填オプションと同様であるため、ここでの再掲は割愛する（3)②(b)(i)を参照されたい）。

試験ケースは表2.6-22および表2.6-23のとおりである。制御パラメータ（水頭差、流量）は、後述する原位置1/4スケール試験との環境条件と近づけるように設定した。試験期間は30日程度とし、緩衝材の累積流出量が一定値に収束する、もしくは排水流量がゼロ(0 mL/min)になることを試験終了の目安とした。

表2.6-22　試験ケースの設定（水質補正C_w）

試験ケース	水頭差	流量	通水液	セル向き
H05Q5-HR①	0.5 m	5 mL/min	幌延模擬地下水（表2.6-9参照）	横
H05Q5-HR②				
H05Q5-HR③				
H05Q5①②（レファレンス）			イオン交換水	

表2.6-23　試験ケースの設定（重力補正C_g）

試験ケース	水頭差	流量	通水液	セル向き
H05Q5-V①	0.5 m	5 mL/min	イオン交換水	竪
H05Q5-V②				
H05Q5-V③				
H05Q5①②（レファレンス）				横

(ii) 試験結果と考察（水質補正）

表2.6-22の試験ケースについて、緩衝材の累積流出量、ベントナイト濃度、流量、膨潤圧を経過日数で整理した結果を図2.6-66に示す。なお、H05Q5はベースモデル（データセット）の一部であり、レファレンスケースとして比較の対象とした。

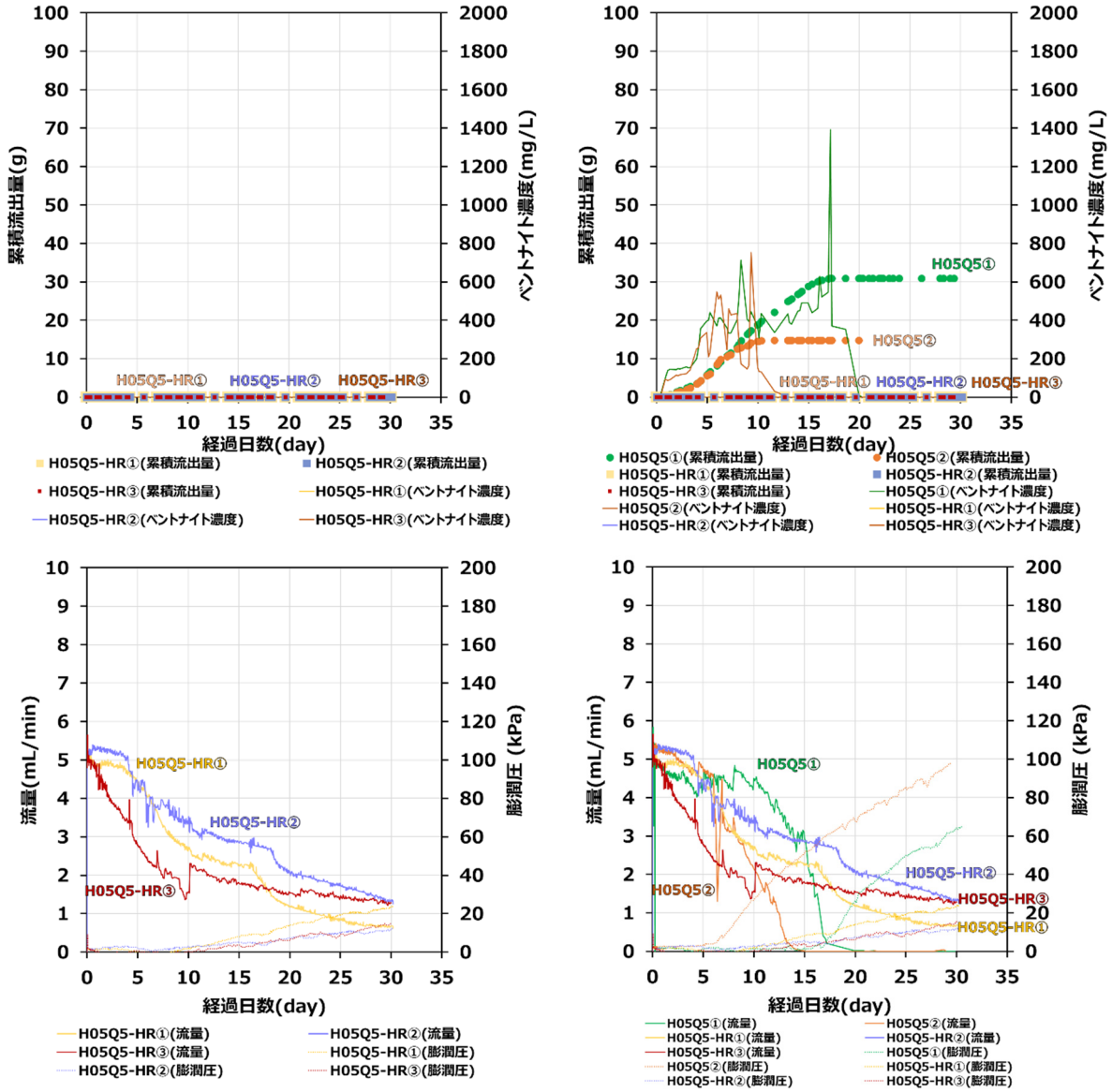


図2.6-66　水質（幌延模擬地下水）による流出挙動の違い
（左：幌延模擬地下水の試験ケース、右：幌延模擬地下水とイオン交換水の試験ケース）

上図2.6-66に示す試験結果および考察を、以下に整理する。

［ベントナイト濃度］

- 幌延模擬地下水を通水液とした試験ケース(H05Q5-HR①②③)は、緩衝材の流出は確認されず、ベントナイト濃度はゼロ(0 mg/L)の状態で推移した。
- ベントナイト濃度がゼロ(0 mg/L)で推移する現象の再現性は、同じ試験条件で3回試行した結果から確認された。
- 前述したケイ砂オプションで幌延模擬地下水を通水液とした試験ケース(H1Q10-S-HR①②)でも、ベントナイト濃度はゼロ(0 mg/L)の状態で推移した。
- 考察：
  - 緩衝材が膨潤して緩衝材表面から“微細粒分”が水中に分散するが、水質（イオン強度や2価のイオン種の影響等）による凝集効果で“微細粒分”が団粒化したため、移送できなかった可能性が示唆された。

・ “微細粒分”の団粒化は、アクリル面の観察から視認できている（図2.6-67（右））。また、排水口から下流に設置されているバルブや配管内に緩衝材の微細粒分が詰まっている状況は確認されていない。

［膨潤圧］

- 幌延模擬地下水を通水液とした試験ケース(H05Q5-HR①②③)では、イオン交換水と同様に膨潤圧は単調増加の傾向を示したが、最大膨潤圧はイオン交換水のケース(H05Q5①②)と比べて1/5 - 1/3程度である。
- 考察：

・ 幌延模擬地下水を通水液とした試験ケースを3回試行した結果で、膨潤圧の経時変化に僅かにバラツキが生じているのは、イオン交換水を通水液とした試験ケースと同様、緩衝材表面の不均一な膨潤により試験セル上面に到達するタイミングが異なっていることが考えられる。

・ 圧力計の値が一様な傾向を示さない他の要因として、供試体作製時の密度勾配や材料に混合したケイ砂の分散状態などの影響や、圧力計の測定誤差（設置誤差）も考え得る。

［流量］

- 幌延模擬地下水を通水液とした試験ケース(H05Q5-HR①②③)では、イオン交換水を通水液とした試験ケース(H05Q5①②)と同様に時間経過に伴って流量が低下する傾向が確認されたが、流量の低下の程度は幌延模擬地下水の試験ケース(H05Q5-HR①②③)が緩やかであった。
- 考察：

・ 緩衝材の浸潤速度は、イオン交換水と比べて幌延模擬地下水（塩水）の方が速いため、試験初期の流量の低下速度は、幌延模擬地下水の方が速くなる傾向を示したと考えられる。

・ 緩衝材上面が試験セルに到達した時点（変曲点）以降は、緩衝材と試験セルの界面が水みちとして残存するため、流量がゼロになっていないと考えられる。

・ 幌延模擬地下水（塩水）のケースは、イオン交換水のケースと比べて膨潤圧が低いため、流量の低下の程度も緩やかになっていると考えられる。

［緩衝材の累積流出量］

- 幌延模擬地下水を通水液とした試験ケース(H05Q5-HR①②③)では、緩衝材の流出は確認されず、累積流出量はゼロ(0 g)の状態で推移した。
- イオン交換水を通水液とした試験ケース(H05Q5①②)では、時間経過に伴って対数関数的に増加し、変曲点を経て収束する傾向を示しており、幌延模擬地下水を通水液とした試験ケースの流出挙動と明確に違いが表れた。
- 考察：

・ 後述する原位置実規模1/4スケール試験では累積流出量が対数関数的に増加する結果に対して、幌延模擬地下水を用いた室内要素試験で累積流出量がゼロ(0 g)の状態を維持し続けた結果は予想と異なった。

・ 上述の一因として、ケイ砂充填オプションと同様に、室内要素試験に用いた装置の構造が、緩衝材の流出を抑制する傾向、および緩衝材の表面積（界面の面積）が小さく、流出した緩衝材が測定できなかったことが考えられる。そのため、試験方法や装置の構造を見直し、水質補正について検討する必要がある。

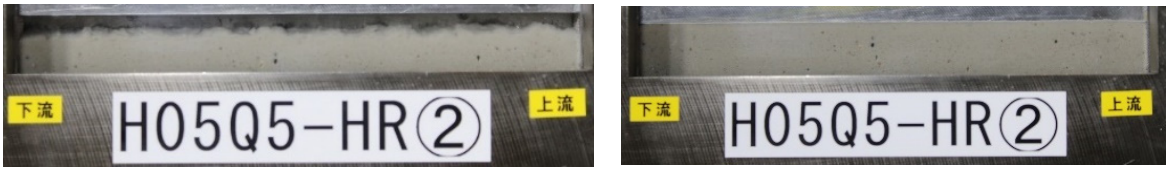


図2.6-67　緩衝材の膨潤経過（左）および試験終了時（右）の観察結果

以上のような試験結果と個々の測定値に対する考察を踏まえ、試験過程で形成された「ケイ砂の集積」が流出に与える挙動の観点から更なる分析と考察を進めた。

試験終了後に試験セルを解体し、隙間を充填した緩衝材ブロックのうち、緩衝材ブロック上面（試験セルと接触する面）および前面（アクリルと接触する面）を観察し（図2.6-68）、集積するケイ砂の分布状況を表2.6-24にまとめた。観察結果から以下が窺える。

- ケイ砂の集積状況については、上流、中流、下流に分けた上で、集積量が多い(L)、少ない(S)、なし(N)の3段階で評価した。幌延模擬地下水を通水液とした試験ケース(H05Q5-HR①②③)では、緩衝材表面でケイ砂の集積は確認されず、“微細粒分”を主体とした密実かつ滑らかな状態が観察された（図2.6-68）。
- 上述した状態は、幌延模擬地下水のケースでは緩衝材が流出していないため、微細粒分に富んだ状態で試験セル上面に達した後、膨潤圧の発生に伴って圧密されたものと考えられる。
- H05Q5-HR③については、緩衝材表面（上面）に幅1 mm程度のクラックが不連続な分布として確認された。このクラックが水みちとして機能していたか否かは判断できないが、膨潤圧による圧密によってクラックが生成された可能性がある。
- 上流および下流側に設置したメッシュフィルタは、図2.6-69に示すような籠状構造としており、その内部にデッドスペースが存在する。メッシュフィルタおよびデッドスペースには、“微細粒分”を主体とした緩衝材がゲル状に付着しており（図2.6-70）、この付着物がデッドスペースを埋めた可能性がある。デッドスペースは排水経路の一部であるため、ゲル状の緩衝材がデッドスペースに堆積する現象が流量低下に寄与した可能性がある。

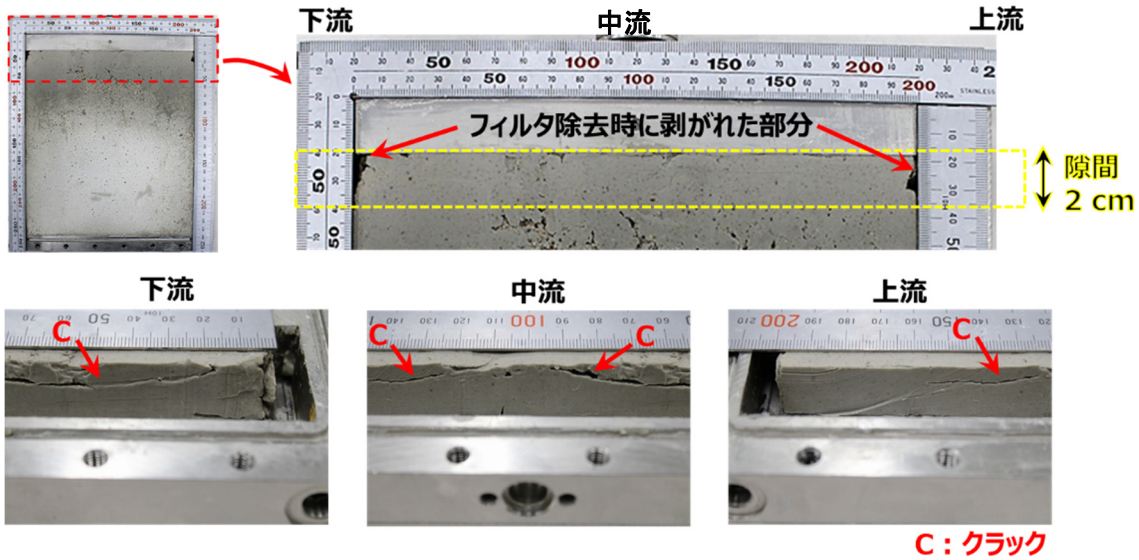


図2.6-68　ケイ砂の集積状況（例：H05Q5-HR③）

表2.6-24　緩衝材ブロック上面におけるケイ砂の集積状況

試験ケース	試験期間 day	水頭差 m	流量 mL/min	止水状況*1	ケイ砂の集積状況*2		
					下流	中流	上流
H05Q5-HR①	30	0.5	5	×	N	N	N
H05Q5-HR②	30			×	N	N	N
H05Q5-HR③	29			×	N	N	N
H05Q5①	29.3	0.5	5	△	L	L	S
H05Q5②	30			△	L	L	S

*1　○：止水　△：わずかに止水　×：排水

*2　L：集積量多い(Large)　S：集積量少ない(Small)　N：集積なし(Nothing)

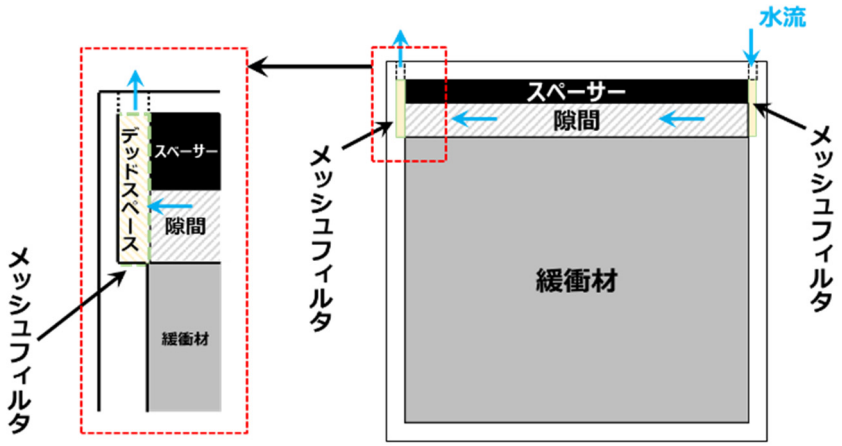


図2.6-69　メッシュフィルタ内部のデッドスペース概念図

図2.6-70　上流および下流に設置したメッシュフィルタ（左：下流側、右：上流側）

以上をまとめると、幌延模擬地下水を通水液とした試験では、累積流出量はゼロ(0 g)で推移し、その要因の1つとして、“微細粒分”が団粒化して移送できなかったことが考えられた。室内要素試験の流出挙動は、後述する原位置実規模1/4スケール試験の流出挙動（対数関数的に増加）と異なる結果であり、その要因として、ケイ砂充填オプションと同様に、以下が考えられた。

・イオン交換水と幌延模擬地下水では、緩衝材の浸潤、膨潤ならびに界面での溶液への懸濁・分散状態や崩壊などの挙動に違いがある（例えば今回の幌延模擬地下水の室内試験で示唆された“微細粒分”の凝集挙動など）。

・室内要素試験に用いた装置のスケールが微小（流路長20 cm、流路幅2 cm）であるため、実規

模1/4スケール試験で発現する流出量を検知できない可能性がある。

・今回の実規模1/4スケール試験が比較対象として妥当性（環境条件の違い、試験装置としての適切性など）があるかの是非。

今回実施したイオン交換水から幌延模擬地下水へ変更した室内要素試験では、現時点で水質による影響を適切に評価することが困難なため、後述する原位置実規模1/4スケールへの拡張では、水質の違いによる影響の補正は加味しないこととした（水質補正$C_w = 1$）。

(iii) 試験結果と考察（重力補正）

表2.6-23の試験ケースについて、緩衝材の累積流出量、ベントナイト濃度、流量、膨潤圧を経過日数で整理した結果を図2.6-71に示す。なお、H05Q5はベースモデル（データセット）の一部であり、レファレンスケースとして比較の対象とした。

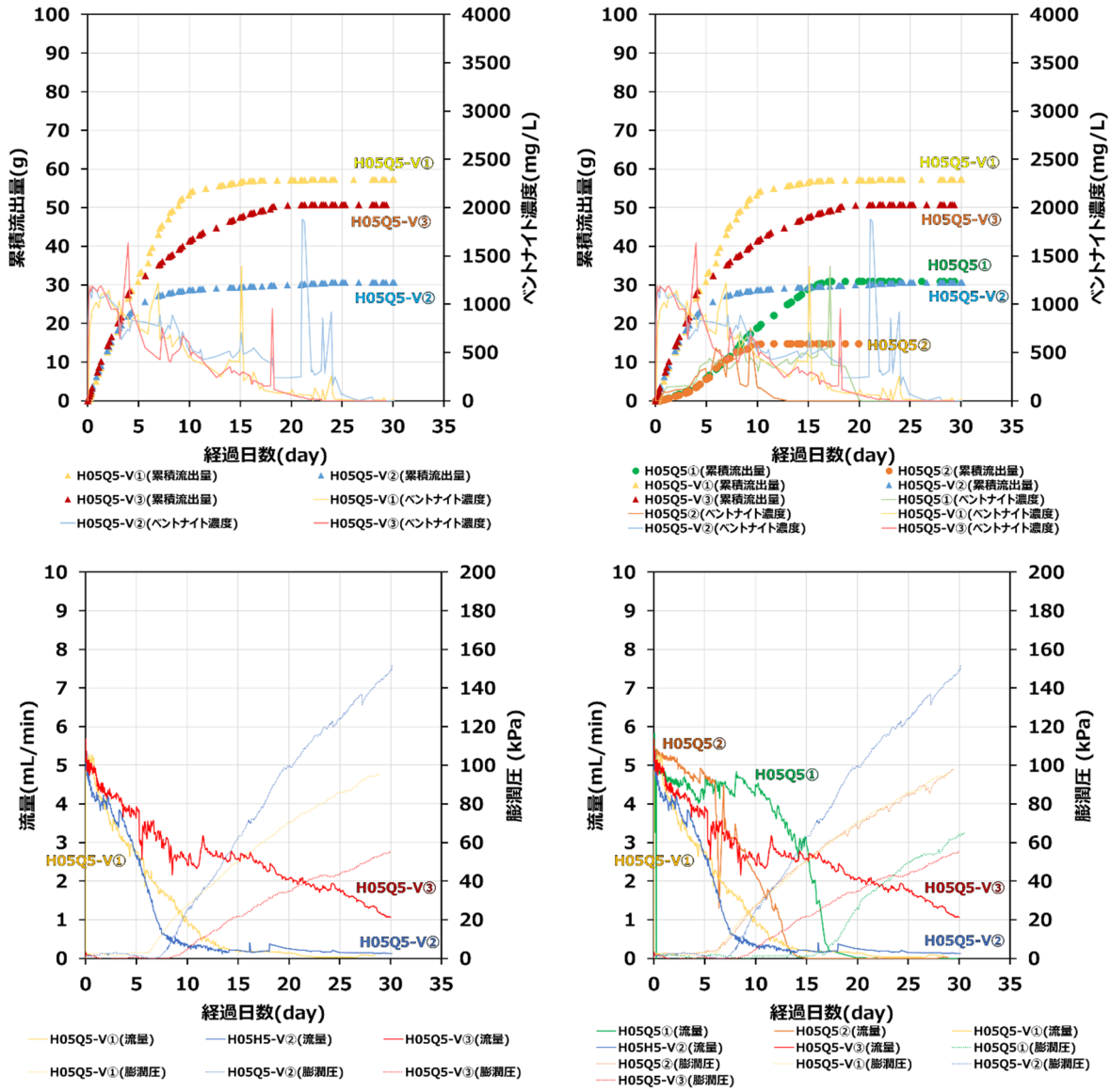


図2.6-71　試験セルの向きによる流出挙動の違い
（左：試験セル竪置きの試験ケース、右：試験セル竪置きと横置きの試験ケース）

上図2.6-71に示す比較から、試験セルを竪置きとした場合も横置きと同様の挙動を示していることが確認できる。両者の比較から窺える特徴および考察を以下に整理する。

［ベントナイト濃度］

- 竪置きの試験ケースで隙間に堆積した緩衝材を観察すると、側方へ膨潤した緩衝材は重力の影響で剥落し、堆積により隙間を充填する挙動を示した（図2.6-72）。
- 隙間に堆積した緩衝材は、上流（下方）から通水される水の流れによって、“微細粒分”のみが再び分散し、下流（上方）へ押し流される。なお、ポーラスセラミックによって流路断面（隙間断面）から均等な流速で通水される機構としているが、ポーラスセラミック通過以降、水が流れやすい試験セルとの界面を選択的に流れるため、試験セル側の“微細粒分”は分散されやすく、細粒分（ケイ砂）のみが集積すると考えられる。
- したがって、緩衝材表面側から試験セル側に向かって粒径が大きくなる層構造を呈していると考えられる。試験後半でみられるベントナイト濃度の低下は、ケイ砂の集積領域を通水液が選択的に流れ、緩衝材との接触面積を低減させる効果（ケイ砂充填オプションに期待される効果）が表れている可能性がある。

［膨潤圧］

- 試験セルを竪置きとした試験ケース(H05Q5-V①②③)では、側方へ膨潤した緩衝材は重力の影響で剥落し、隙間に累積することで隙間を充填する挙動を示したため（図2.6-72）、膨潤圧が発生するタイミングは、圧力計が設置されている位置（試験セル中央）まで緩衝材が累積したタイミングと一致した。
- 竪置きでは、横置きのように隙間を充填したタイミングで膨潤圧が発生するわけではない。
- 考察：
  - 竪置きで膨潤圧が発生するタイミングは、3つのケースで数日程度の幅（違い）があるが、その要因として、緩衝材が側方へ膨潤する速度、剥落するタイミング（堆積する速度）、“微細粒分”の流出量の違い等が反映されていると考えられる。

［流量］

- 試験セルを竪置きとした試験ケース(H05Q5-V①②③)では、時間経過に伴って流量が低下する傾向が確認された。
- 竪置きの試験ケースでは、側方へ膨潤した緩衝材が重力の影響で剥落し、隙間に累積する厚さが増すにつれて、流量は低下した。
- 考察：
  - 竪置きの試験ケースで隙間に累積した緩衝材を観察すると、試験セルとの界面にはケイ砂の集積が確認されており（図2.6-72）、ケイ砂の集積領域が水みちとして機能していたと考えられる。
  - 試験後半の観察では、ケイ砂の集積領域は微細粒分によって塞がれていることを確認した。水頭差を駆動力とした流量では、その高さ（位置）まで水流を維持できなかったことが考えられる。
  - H05Q5-V③は、H05Q5-V①②と比べて流量の低下が緩やかであり、その要因として、ケイ砂の集積領域（水みち）が排水口まで連続して存在していたことが考えられる。

［緩衝材の累積流出量］

- 累積流出量の経時変化は、横置き(H05Q5)と比べて試験初期の勾配が急であり、最終的な累積流出量は、横置きの数倍であった。

● 考察：

・ 試験セルを竪置きとした試験ケース(H05Q5-V①②③)で初期の累積流出量が立ち上がる現象は、試験セルを横置きとした試験ケース(H05Q5)と同様の傾向であるが、急勾配で立ち上がる挙動は、竪置き固有の特徴と考えられる。したがって、竪置きおよび横置きの試験ケースのどちらも、試験開始の初期段階で最終的な累積流出量の大半を占めているため、竪置きのケースでは、横置きと比べて累積流出量が多くなる。

・ 上述の一因として、竪置きは横置きと比べて隙間を充填するまでに要する時間が異なることが考えられる。竪置きの試験ケースでは、側方へ膨潤した緩衝材は重力の影響で剥落し、隙間の下部から累積する挙動を示すため、隙間を完全に充填するまでは、隙間を全く埋めきれていない隙間領域が常に存在する。したがって、側方から緩衝材が膨潤および剥落して一部が流出するため、竪置きの累積流出量は多くなると考えられる。

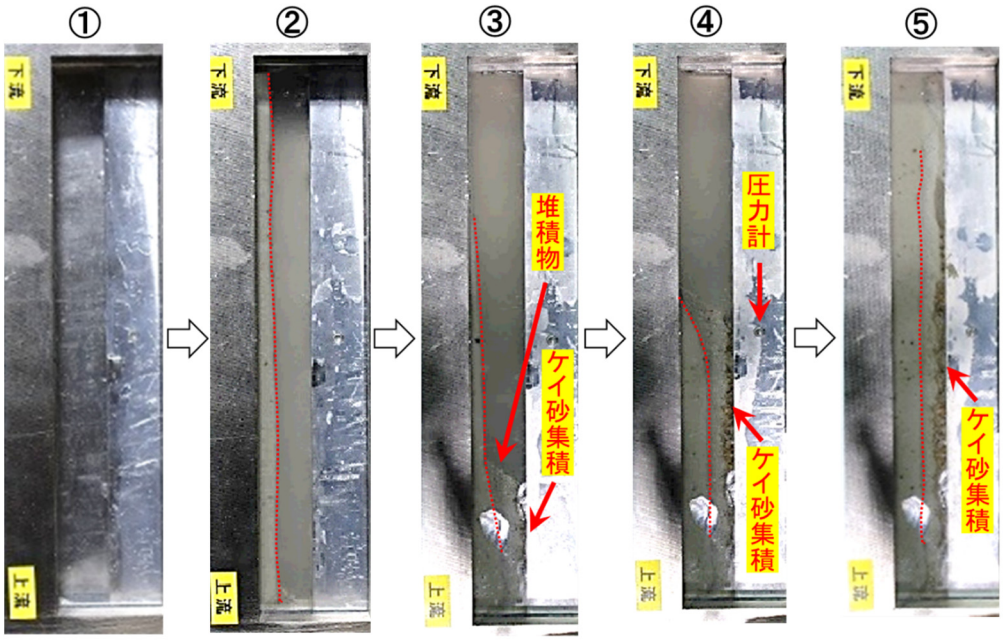


図2.6-72　緩衝材の膨潤による隙間の充填過程の観察結果（例：H05Q5-V①）

以上のような試験結果と個々の測定値に対する考察を踏まえ、以下の観点から更なる分析と考察を進めた。

○ 試験過程で形成された「ケイ砂の集積」が流出に与える挙動

○ 重力の影響で緩衝材が剥落、および隙間に累積することによる緩衝材全体の密度分布

試験終了後に試験セルを解体し、隙間を充填した緩衝材ブロックのうち、緩衝材ブロック上面（試験セルと接触する面）および前面（アクリルと接触する面）を観察し（図2.6-73）、集積するケイ砂の分布状況を表2.6-25にまとめた。また、試験セルの緩衝材をメッシュで分割し、ブロックごとに乾燥密度を測定し、図2.6-74に密度分布としてまとめた。これらの観察結果から以下が窺える。

・ ケイ砂の集積状況については、上流、中流、下流に分けた上で、集積量が多い(L)、少ない(S)、なし(N)の3段階で評価した。竪置きでは(H05Q5-V①②③)、緩衝材表面（外側）にケイ砂の集積が確認されており、特にH05Q5-V①②で顕著に確認された。
・ H05Q5-V③のケースは、他ケースと比べて、試験終了から試験セル解体に取り掛かるまでに時間を要したため、その間にベントナイトが膨潤し、ケイ砂の間隙内を充填してしまった可能性がある。
・ 竪置きでは、重力による沈降効果により上流（下方）にケイ砂が多く集積する傾向があり、横置きの集積形態（水頭差を駆動力とした流量によってケイ砂が下流へ移送される挙動）とは異なったと考えられる。
・ 試験終了後の緩衝材の乾燥密度分布について、竪置きでは、隙間充填部の外側（図2.6-74の右側）に乾燥密度が高い領域が分布している。これは集積したケイ砂の影響により計算上、密度が高くなったと考えられる。
・ また、隙間充填部の左側では、ケイ砂が集積していない領域となり、“微細粒分”が主体となるため、乾燥密度は低く推移していると考えられる。
・ 竪置きの試験ケースのうち、隙間充填部と接している緩衝材の密度は、鉛直上向きに（上流から下流に向かって）密度勾配が確認された。密度勾配が形成された要因として、重力による剥落によって隙間に累積する挙動により、最後まで隙間が充填されない領域（下流付近）は、緩衝材が常時膨潤および剥落し続けていたことが考えられる。
・ 横置きの試験ケースの密度分布は、鉛直上向きに（試験セル上面に向かって）密度勾配が確認された。なお、水平方向の密度勾配は鉛直方向の密度勾配と比べて小さい傾向を示しており、この要因として、緩衝材表面に重力が均等に作用したことが考えられる。

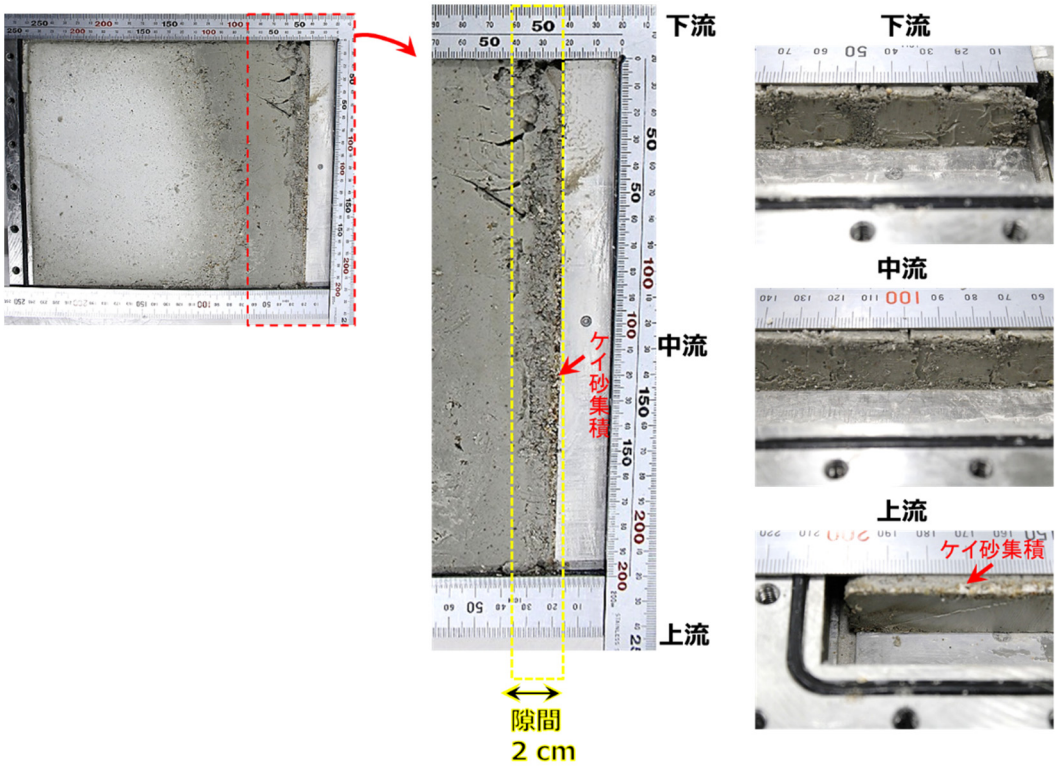


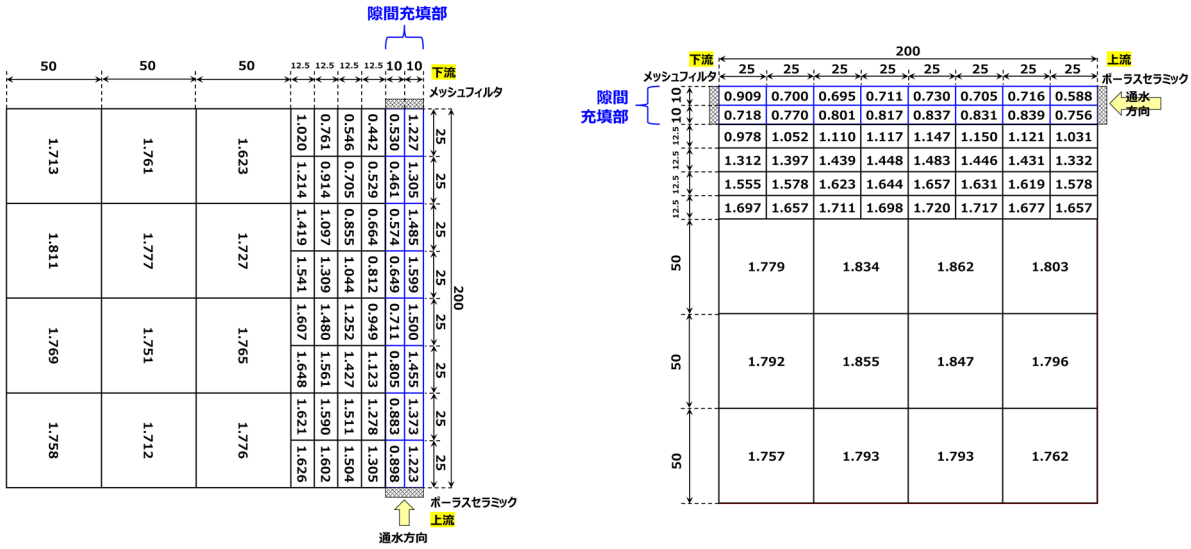
図2.6-73　ケイ砂の集積状況（例：H05Q5-V①）

表2.6-25　緩衝材ブロック上面におけるケイ砂の集積状況

試験ケース	試験期間 day	水頭差 m	流量 mL/min	止水状況*1	ケイ砂の集積状況*2		
					下流	中流	上流
H05Q5-V①	30	0.5	5	×	S	L	L
H05Q5-V②	30			×	S	L	L
H05Q5-V③	29.3			×	S	N	N
H05Q5①	29.3	0.5	5	△	L	L	S
H05Q5②	30			△	L	L	S

*1　○：止水　△：わずかに止水　×：排水

*2　L：集積量多い(Large)　S：集積量少ない(Small)　N：集積なし(Nothing)



竪置きの試験ケース（H05Q5-V③）　　横置きの試験ケース（H05Q5②）

図2.6-74　試験セル解体後における緩衝材の乾燥密度分布

以上から、横置きの累積流出量が15 - 30 gであることに対して、竪置きの累積流出量は30 - 60 gとなり、竪置きによって流出量が促進されることが分かった。その要因として、側方へ膨潤した緩衝材が重力の影響で剥落して隙間に累積する挙動を示し、隙間を完全に充填するまでに隙間を全く埋めきれていない隙間領域の存在により、緩衝材が常に膨潤、剥落し続け、その一部が流出に寄与したことが考えられた。

本検討の結果、竪置きおよび横置きの試験ケースのどちらもバラツキが大きいため、試験セルの向きによる補正（重力補正）については保守的な評価となるように、横置きの最小累積流出量15 g、竪置きの最大累積流出量60 gを用いて、Step3（原位置実規模1/4スケールへの適用性の確認）においては、$C_g = 60/15 = 4$を仮設定した。

(c) Step3：原位置実規模1/4スケールへの適用性の確認

(i)　原位置実規模1/4スケール試験の試験装置と2つの試験結果から窺える特性

原位置実規模1/4スケール試験は、前記②のStep3のケイ砂充填オプションと同様に、幌延URLの深度350 m試験坑道5に設けられた試験孔2（既存孔）で実施した。隙間未充填オプションでも2

つの試験（短期の予備試験と長期試験）を実施しており、試験孔2の環境条件および2つの試験の環境条件の違いについてはケイ砂充填オプションと同様であるため、ここでの再掲は割愛する。ケイ砂充填オプションと同様に、原位置試験は複雑な実環境条件ではあるものの、試験孔2を利用することで、ベースモデルの拡張（スケールアップおよび実環境への適用）の際に考慮すべき要因（補正係数；表2.6-3）のうち、以下について単純化することができる。

・幾何形状補正（C_G）：孔壁面は凹凸が少なく滑らかな形状であるため考慮は不要。
・スケール効果（C_s）：深度0.6 m未満であれば孔壁から湧水する亀裂が存在せず、緩衝材と孔壁間への下から上への一様な流れ場が期待でき、ベースモデルの入力である室内要素試験の面積比による単純増倍でスケール効果（C_s）の表現が可能。

短期試験および長期試験について、緩衝材の累積流出量および濃度、流量について、経過日数で整理した結果を図2.6-75に示す。

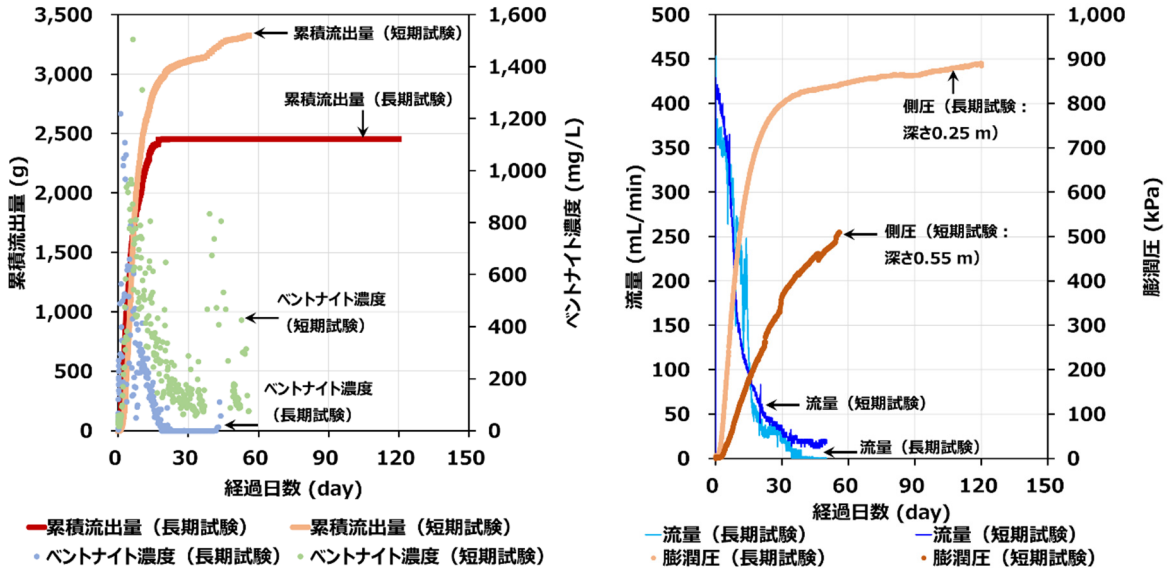


図2.6-75　短期試験および長期試験における累積流出量および濃度（左）、流量および膨潤圧（右）の経時変化

上図2.6-75に示す試験結果から、以下が確認できる。

○ 隙間未充填オプションでは、試験経過に伴い緩衝材が膨潤して隙間を充填するため、流路断面積の縮小に伴い流量は低下する傾向を示している。緩衝材の表面が孔壁面へ到達したタイミングを示す側圧が試験開始から数日程度で検知されたが、本試験が土圧計による膨潤圧測定であるため、緩衝材の側面が全て孔壁面に到達したタイミングではないことに留意が必要である。

○ 緩衝材表面が孔壁面に到達した後は、流量は徐々に減少したが、短期試験では流量20 mL/min程度で継続し、長期試験では約40日後に止水が確認された。それに伴い、試験期間中において、短期試験は排水が継続するため累積流出量（ベントナイト濃度）は増加傾向を示し、長期試験は止水したタイミングで累積流出量（ベントナイト濃度）が収束した。

以上の結果から窺える特徴より、ベントナイト濃度（累積流出量）に違いが表れた要因について、流量の挙動の観点から以下に考察した。更に、短期試験と長期試験の差について、緩衝材ブ

ロックの高さの違いに伴う流路長の違いや水質の時間変化も要因として考えられる。これらに対する考察は隙間未充填オプションと同様であるため再掲を割愛する（前記③のStep3を参照されたい）。

○ 要因1：地下水が供給される箇所（流動場）の違い

・試験孔2の特徴から、短期試験は孔底と側方の二方向から地下水が供給される環境条件である。湧水亀裂と近接する緩衝材は、側方からの地下水流れの影響を受けるため、流路断面の中で流速分布（緩衝材界面で流速が早い部分と遅い部分）が発生している可能性や湧水亀裂の位置を起点に水みちが残存した可能性が考えられる。したがって短期試験では、少量の流量を維持した状態となり、地下水に分散するベントナイトが排出され続けた可能性がある。

・長期試験は孔底から地下水が供給される環境条件として設定されるため、緩衝材が湧水亀裂と近接することはなく、水頭差を駆動力とした下方からの湧水が形成する水みちが流量に影響すると考えられる。なお、水みちの閉塞（止水）の有無には、地下水の僅かな水質変化、緩衝材の製造品質（密度の不均質性、緩衝材表面の状態等）、処分孔の施工状態（壁面の僅かな不陸等）等が影響因子として緩衝材の膨潤挙動に寄与すると考えられる。

これらの要因が 2 つの試験における緩衝材の流出挙動の差に影響を与えていると考えられ、なかでも要因 2 と要因 3 を由来する不確実性は、スケール効果を考慮した室内要素試験の結果との差異を生じる可能性がある。要因 3 の影響は制御不能であるため、結果の解釈に留意することとし、要因 2 の影響は環境条件の単純化を意図した長期試験で解消されているため、以後の検証や考察では、長期試験データを参照することとした。以降、長期試験を“原位置試験（隙間未充填）”と称する。

(ii) ベースモデルの原位置実規模1/4スケールへの適用可能性に関する考察

図2.6-9に示した流出量評価モデルの開発手順のうち、前記のStep2において水質補正と重力補正を検討した。ここではStep3として表2.6-3に示した補正係数のうち、残されたスケール効果の補正について、Step1で得られたベースモデルおよび前記の原位置試験（ケイ砂充填）の結果を用いて検討する（原位置実規模1/4スケール試験の環境条件から、幾何形状補正と隙間幅補正の考慮は不要である）。

前記②のケイ砂充填オプションに係るStep3と同様に、原位置実規模1/4スケール試験（原位置試験（隙間未充填））の環境条件と整合させるために、水質（幌延模擬地下水）や試験セルの向き（竪置き）など、原位置実規模1/4スケール試験と可能な範囲で整合性させた追加試験を実施したが、ケイ砂充填オプションと同様に緩衝材の累積流出量がゼロ(0 g)となったため、ここでのレファレンスは前記のStep2で実施した通水液にイオン交換水を用いた竪置き試験ケース(H05Q5-V)として、原位置実規模1/4スケール試験（隙間未充填 原位置試験）の結果と比較することとした。

表2.6-26　試験ケースの再設定（スケール効果C_s）

	室内要素試験	原位置実規模1/4スケール試験
試験ケース	H05Q5-V①②③	原位置試験（隙間未充填）
水頭差（m）	0.5	0.5
流量（mL/min）	5	400
実規模1/4換算流量（mL/min）	440	
通水液	イオン交換水	幌延地下水
試験体の向き	竪置き	竪置き
隙間幅（m）	0.02	0.02
接触面積（m²）	0.004	0.54π×0.5
面積比（原位置/室内）	212	

両ケース試験結果を図2.6-76に示す。なお、同図に示すレファレンスケース(H05Q5-V)は、緩衝材の累積流出量は面積比を乗じたもの、流量は流速一定条件下の流路断面積比で換算したものである。膨潤圧については単純な比率計算で評価できないため、ここでは省略した。

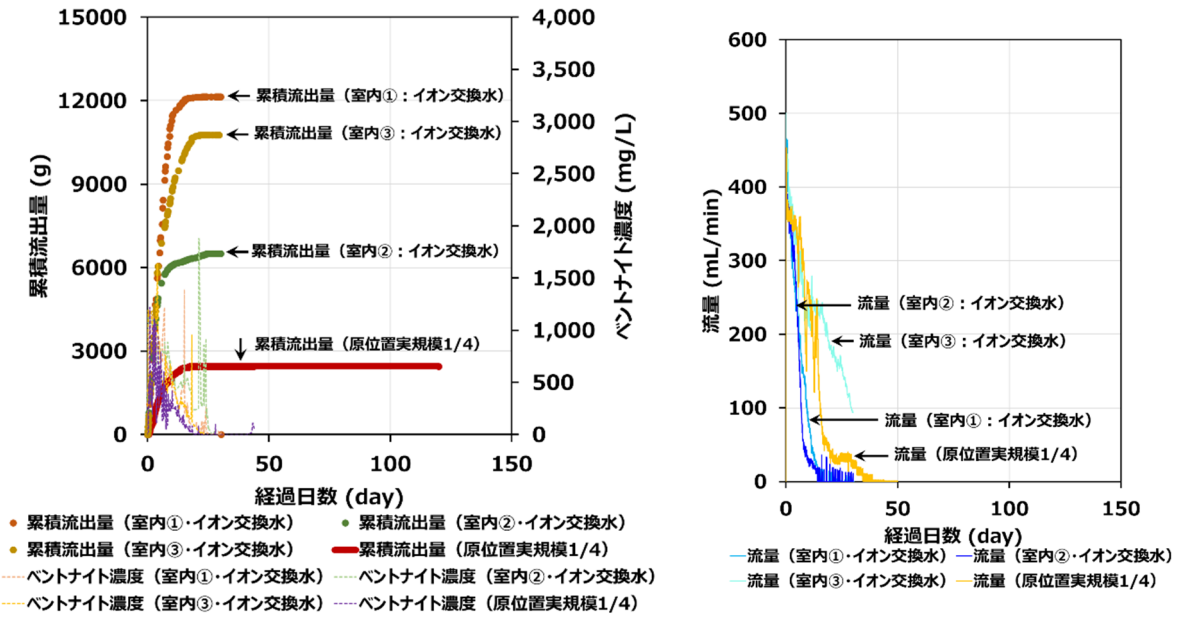


図2.6-76　室内要素試験（面積比倍）と原位置実規模1/4スケール試験との比較

イオン交換水を用いた竪置きの室内要素試験(H05Q5-V)の傾向については既出のStep2で整理しているためここでの再掲は割愛し、以下に上図2.6-76に示した原位置実規模1/4スケール試験との比較結果について整理する。

［流量］

- 室内要素試験では、側方膨潤した緩衝材が重力の影響で剥落し、隙間に堆積する挙動を示しており、堆積厚が厚くなるにつれて流路抵抗が増すため、流量が低下したと考えれた。
- 原位置試験でも、流量に同様の傾向が窺えることから、室内試験と同様の挙動があった可能性が示唆される。

［累積流出量］

- 室内要素試験と原位置試験の双方で、時間経過に伴う累積流出量の変化傾向は同様である。
- 室内要素試験と原位置試験の累積流出量の差は主に初期段階(T_1)の立ち上がりの差である。この要因として、前記②のケイ砂充填オプションと同様に“微細粒分”の影響やスケール効果が想定されることから、室内試験装置やサイズの見直し、ならびに原位置試験の試験点数の拡充などによる再検証などが望まれる。

以上のように、本検討では水質による影響は考慮せずに（水質補正$C_w = 1$）、イオン交換水を通水液とした試験ケース(H05Q5-V①②③)を面積比倍し、原位置実規模1/4スケール試験（原位置試験（隙間未充填））と比較した。その結果、室内要素試験と原位置試験の累積流出量の経時変化の傾向は概ね一致した。累積流出量の値については、室内要素試験が2 - 4倍程度の値を示すものの、幌延模擬地下水を使えば流出量の減少の可能性があることや、不確実性の多い原位置試験が1ケースしかないなどの課題が示唆されたが、次項の拡張の試みでは、そのまま面積比 (212倍) を仮設定して検討することとした。

(iii) ベースモデル拡張の試み（補正係数の定量化の試み）

べき乗関数モデルで整備を試行したベースモデルから、実規模1/4スケールへの拡張を試み、現時点における評価モデルの構築手法に関する知見や課題の整理を試みた。ベースモデルは、時間と流量の関数（式(2.6-33)、式(2.6-34)）として表現されているため、評価期間と初期流量を入力値として緩衝材の累積流出量を予測評価した。他方、他の関数によるベースモデル構築の試みとして、シグモイド関数モデルによる検討も試行しているため（式(2.6-35)）、これら2つのモデルを対象にベースモデルの拡張を試みた。両モデルは室内要素試験結果をベースとしているため、1mL/min - 20 mL/minの流量および0.5 m - 2.0 mの水頭差が適用範囲であることに留意されたい。

【べき乗関数モデル】

評価期間が$0 < t \leq T_a$のとき、

$$M_{BENT_BASE}(t, Q) = (0.043Q + 0.637)t^{1.3} \quad (2.6\text{-}33)$$

評価期間が$T_a \leq t \leq T_b$のとき、

$$M_{BENT_BASE}(t, Q) = \frac{(0.043Q + 0.637){T_a}^{1.3}}{{T_a}^{0.03}} t^{0.03} \quad (2.6\text{-}34)$$

※5≦流量Q≦20 mL/minのとき、$T_a = 10.9$ (day)に設定

※1≦流量Q＜5 mL/minのとき、$T_a = 7.1$ (day)に設定

【シグモイド関数モデル】

$$M_{BENT_BASE} = \frac{-A_2}{1 + e^{(2t - 2t_0)/3.0}} + A_2$$
$$A = -0.061Q^2 + 2.38Q + 3.35 \quad (2.6\text{-}35)$$
$$2t_0 = -0.048Q^2 + 1.44Q + 5.86$$

ベースモデルに入力するパラメータを表2.6-27に示す。評価期間tは、NUMO-SCに示される新

第三紀堆積岩類の評価期間、流量Qは、原位置実規模1/4スケール試験の平均流量を流路断面積で換算した値を設定した。ベースモデル（べき乗関数モデルおよびシグモイド関数モデル）で予測評価した累積流出量M_{BENT_BASE}に対して、重力補正$C_g = 4$、スケール効果C_s（面積比=212：表2.6-28）を考慮したものを拡張モデルとして、累積流出量を整理した（図2.6-77）。

表2.6-27　ベースモデルの入力パラメータ

入力パラメータ	値
試験（評価）期間t (day)	284
室内要素試験スケール 流量Q (mL/min) （実規模1/4スケール 流量Q (mL/min)	5 （440）

表2.6-28　ベースモデルと原位置実規模1/4スケール試験の面積比

	ベースモデル	原位置実規模1/4スケール試験
試験ケース	べき乗／シグモイド	ケイ砂充填 原位置試験
流路長（m）	0.2	0.5
円周長（m）	0.02	0.54 π
地下水との接触面積（m²）	4.0×10^{-3}	8.48×10^{-1}
接触面積比（原位置/室内）	212	

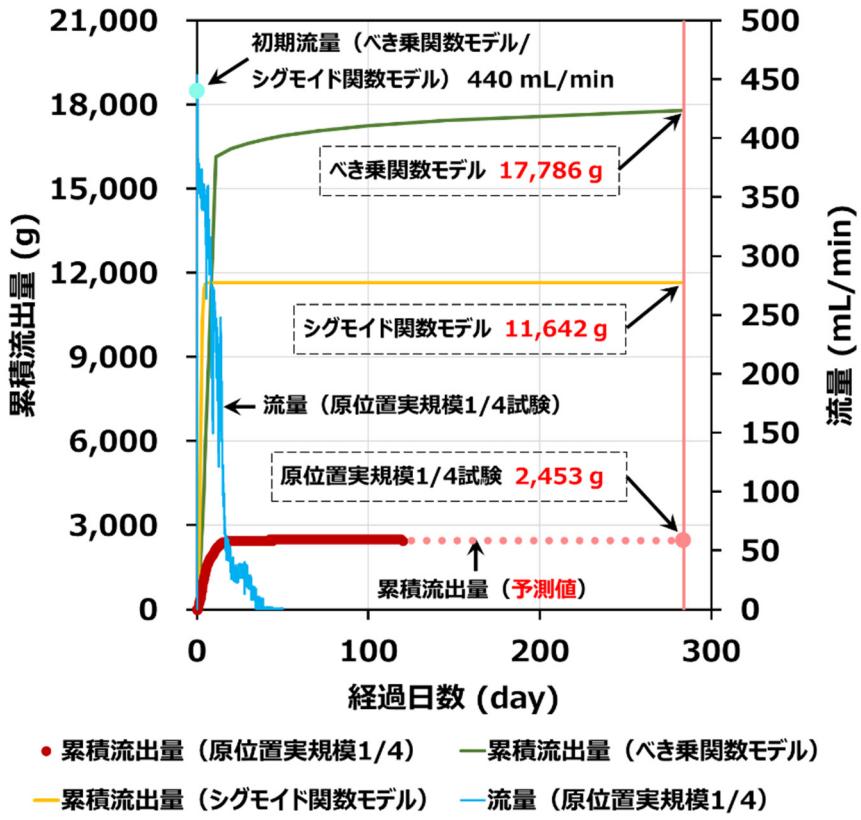


図2.6-77　スケール効果を考慮した流出量評価モデルと原位置実規模1/4スケール試験の比較

上図2.6-77のとおり、拡張モデル（流出量評価モデル）は室内要素試験のデータセットに基づくモデル式であるため、累積流出量のグラフは10日程度経過した段階で半パルス状に立ち上がる挙動を示した。その後、シグモイド関数モデルは瞬時に収束、べき乗関数モデルは漸増する挙動を維持した。原位置試験で測定されている累積流出量についても、単調に増加した後、隙間の閉塞により収束する傾向を示しているが、拡張モデルで示されるようなシャープなグラフ形状は示さない。表2.6-29に示すように、評価期間における累積流出量は、原位置実試験で2,453 g（隙間閉塞による止水が継続した場合の予測値）、べき乗関数モデル（拡張モデル）で17,786 g、シグモイド関数モデル（拡張モデル）で11,642 gであった。ただし、流出量評価モデルはイオン交換水を通水液としたモデルであるため、原位置試験よりも過大に評価している。

隙間未充填オプションについては、NUMO-SCにおいて緩衝材の流出量の評価式($M_s = 9.0 \times {M_w}^{0.85}$)が示されていることから、NUMO-SCの評価式を用いて緩衝材の累積流出量M_sを試算した。NUMO-SCの評価式に入力する累積排水量M_wは、幌延URLでの原位置実試験の初期流量400 mL/minとし、評価期間は、新第三紀堆積岩類における緩衝材施工から処分坑道の埋め戻しの完了までの期間 284日(408,960 min)により、累積排水量$M_w = 1.64 \times 10^5$ Lと設定した。NUMO-SCの評価式を用いて試算した結果（表2.6-29）、284日後の累積流出量は$M_s = 2.43 \times 10^5$ gとなる。

以上のように、原位置試験と比較した結果、流出量評価モデルが5 - 8倍であるのに対して、NUMO-SCの評価式による試算結果は約100倍程度となった。このことから、今回の流出量評価モデルは、強制注水条件の室内要素試験をベースとしたNUMO-SCの評価方法よりも、より現実的な評価が行える可能性が示された。また、流出量評価モデルは原位置試験の累積流出量の傾向を経時的に再現できており、過大な値はケイ砂充填オプションと同様に、水質補正の加味や“微細粒分”の扱い方によって改善できる可能性がある。ただし、隙間未充填オプションは、前記のStep1における室内要素試験の不安定さから、改善のためには要素試験点数の拡充、要素試験装置の改善ならびに試料の品質の確保（密度の均質性など）が要求され、その結果として得られる流出量評価モデルを実事業に適用するには、実事業において、緩衝材ブロックの厳格な品質確保や原位置環境条件の把握など、過度な要求を強いることとなる。

表2.6-29　原位置試験結果をもとに試算した累積流出量に対する流出量評価モデルおよびNUMO-SCで評価した累積流出量との比較

	原位置実規模1/4スケール試験	流出量評価モデル		NUMO-SC（緩衝材の流出量の評価式）
試験ケース（モデル名）	原位置試験 隙間未充填	べき乗関数モデル	シグモイド関数モデル	
試験期間（評価期間）	284日	284日		284日
通水液	幌延地下水	イオン交換水		イオン交換水
試験体の向き	竪	横		竪
流量（換算流量）	400 mL/min	5(440) mL/min		400 mL/min
緩衝材の累積流出量	2,453 g	17,786 g	11,642 g	243,177 g
原位置実規模1/4スケール試験とモデルの流出量比	－	7.3	4.7	99.1

④ 方法論の適用性の確認結果に関する総括

前項2)で整理した方法論に基づき、限定的な試験の種類や試験点数ではあるが、幌延URLの深度350m試験坑道5を利用した原位置実規模1/4スケール試験との比較検討により、方法論の適用性を確認した。以下、前項までに整理した確認結果を総括する。

室内要素試験に基づくベースモデルの構築(Step1)

○ ケイ砂充填オプションでは、パラメータである水位と流量に応じた一定の傾向が概ね1回の試験で得られたことから、流出量評価モデルの整備において試験装置や試料の品質などに対して寛容性のある安定的なオプションであると言える。この要因として、隙間に充填したケイ砂が緩衝材界面の浸潤環境の一様化や緩衝材の体積拘束（細粒分の分離や剥落の抑制）に寄与したことが考えられる。

一方で、全てのケースで試験開始直後に緩衝材の流出濃度のピークが発現し、この初期の流出が累積流出量の大半を占める結果となった。これは当初想定していなかった挙動であり、その要因として緩衝材界面から分離・分散する“微細粒分”である可能性が示唆された。この減少は原位置実規模1/4スケール試験では確認されないことから、装置設定の影響（試験セルの小ささ、出口構造など）の可能性が示唆された。

○ 隙間未充填オプションでは、予期せぬ挙動やパラメータの組合せに応じた傾向から外れる試験結果が多数あり、安定した試験結果を得ることが容易ではなく、試験装置や試料の品質（緩衝材の密度均質性など）に対して感度が高いことを示唆している。一定の傾向を得るためには、厳格な装置設定や管理ならびに試料の品質確保などを経たうえで、多数の試験点数が必要となるが、試験点数を増やしても真値に収束しない可能性もあり（真値のないバラツキのあるオプションである可能性）、また、このような試験で得られる流出量評価モデルを実事業に適用するには、実事業において、緩衝材ブロックの厳格な品質確保や原位置環境条件の把握など、過度な要求を強いることとなる。

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

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

室内要素試験による実環境効果を考慮した拡張モデルへの更新(Step2)

○ 水質補正は原位置地下水を利用できない研究段階で必要となる情報である。Step1と同じ試験装置により、幌延模擬地下水を用いた室内要素試験をとおして拡張を試みたが、今回の試験では両オプションともに緩衝材の流出が検出できず、モデル拡張のための補正係数を得ることができなかった。その要因として、幌延模擬地下水の利用に伴う“微細粒分”や細粒分の凝集や団粒化が想定された。ただし、原位置実規模1/4スケール試験の傾向とは異なるため（原位置では緩衝材の流出が確認されている）、室内要素試験に用いた装置の構造やスケールに改善すべき課題が残されている可能性がある。

○ 重力補正は今回の室内要素試験装置を横置きとしたために必要となる情報である（今回の要素試験のスケールが小さいため、竪置きにすると剥離した緩衝材が下部に溜まって流路の閉塞を加速する可能性があった）。試験点数に制約があったものの、両オプションともに横置きより竪置きの方が緩衝材の流出量が多くなる結果が得られ、その理由に関する考察も得ら

れた。

原位置実規模1/4スケールへの適用性の確認(Step3)

○ 各オプションについて2つの原位置試験を実施し（短期（予備）試験と長期試験）、複合的な原位置の環境パラメータを単純化した長期試験との比較により流出量評価モデル（ベースモデルの拡張モデル）の適用性が確認できた。ただし、比較対象の原位置試験が1つの長期試験しかないことに留意が必要である。

○ ケイ砂充填オプションでは、流出量評価モデルで発現する累積流出量の初期の立ち上がりが原位置試験とは異なるものの、過大評価する流出量評価モデルは、室内要素試験で顕在化する“微細粒分”や装置設定の影響（試験セルの小ささ、出口構造など）、原位置試験の試験点数の少なさなどの課題への対処により改善の可能性がある。

○ 隙間未充填オプションでは、同オプションを対象としたNUMO-SCに示される評価式の結果との比較も行い、①NUMO評価式、②今回整備した流出量評価モデル、③原位置規模1/4スケール試験の3つがいずれも累積流出量の経時変化の傾向が一致するとともに、その値は①＞②＞③となって、今回のモデルがより原位置に即した評価を示すという結果を得た。ただし、本オプションのベースとなる室内要素試験(Step1)の結果が真値を表現できていない可能性や将来の実事業に過度な要求を強いる可能性に留意が必要である。

以上のように、前項2)で整理した緩衝材流出特性の評価手法は、試験点数の制約や要素試験装置に関する課題の示唆などがあるものの、方法論としての適用性の見通しを得ることができた。

他方、ケイ砂充填オプションおよび隙間未充填オプションの比較の点では、後者に関する室内要素試験の不安定さや真値の表現できる可能性への懸念なども示唆された。このことは、前項2)①で整理した隙間処理施工技術オプションの特徴に基づく最適化の観点では、施工品質の管理･保証、緩衝材の流出特性、不確実性の管理のし易さなどの点で、現時点ではケイ砂充填オプションが相対的に有利と言える。

4) 緩衝材の膨出挙動の把握に資する情報の取得

① 原位置実規模1/4スケール試験を活用した膨出挙動の把握

既述のとおり、緩衝材の流出挙動の把握のために、幌延URLの深度350 m、試験坑道5の試験孔2（孔径580 mm、深さ1,590 mm）において、5か月程度の原位置実規模1/4スケール試験（長期試験）を実施した。

3）②(c)(i)に示した原位置試験（流出試験）の一環で、緩衝材の膨出挙動を把握するために、緩衝材の膨出を抑制するために設置した蓋（膨出抑制用鋼製蓋）に作用する鉛直方向の力（応力）を経時的に測定した。試験装置解体時では、膨出抑制用鋼製蓋を撤去してから緩衝材ブロックが上昇する量（変位量）を測定した。これらの測定結果を以下に整理する。

② 緩衝材が膨出する力（膨出抑制用鋼製蓋に作用する鉛直方向の力）

(a) 測定結果

緩衝材の最上面に膨出抑制用鋼製蓋を設置し、4つのジャッキとフランジで抑えつけるように固定した。それぞれのジャッキとフランジの間に荷重計を設置し、膨出抑制用鋼製蓋に作用する鉛直方向の力を測定した。令和4年度に実施したケイ砂充填と令和2年度に実施した隙間未充填の荷重計の計測結果を図2.6-78、表2.6-30に示す。東西南北の4方位に設置した荷重計の全ておいて、時間経過とともに荷重が増加する傾向を示し、経過時間145日における各荷重は約63 kNから75 kNの値を示した。

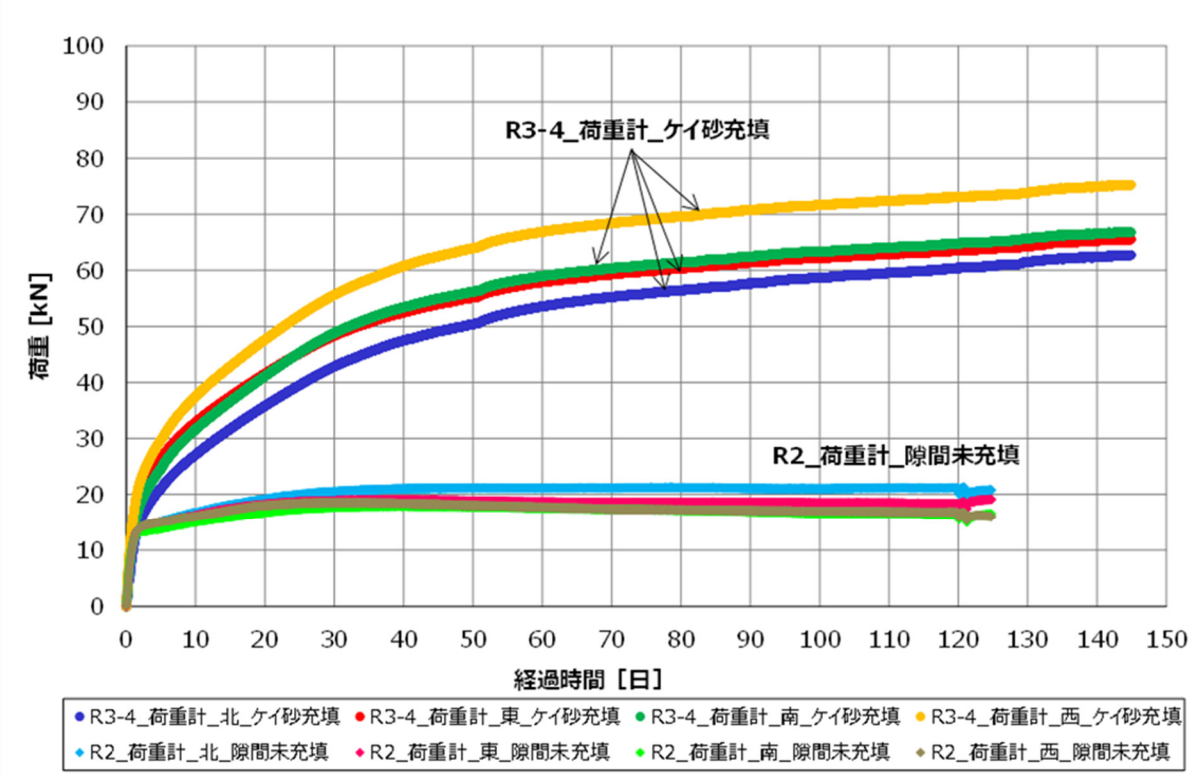


図2.6-78　荷重計の経時変化（令和2年度との比較）

表2.6-30　荷重計の測定値

	経過時間	荷重（kN）				合計荷重（kN）	平均（kN）
		北	東	南	西		
令和４年度「隙間のケイ砂充填」	145 日	62.7	65.5	66.8	75.2	270.2	67.6
令和２年度「隙間未充填」	120 日	21.0	18.2	16.2	16.7	72.1	18.0

(b) 令和2年度の成果との比較

令和4年度に実施した「ケイ砂充填オプション」については、経過時間145日おける各荷重計の荷重を合計し、膨出抑制用鋼製蓋に作用する鉛直方向の力を算出すると、270.2 kNとなった。なお、令和2年度実施した「隙間未充填オプション」の経過時間120日の結果では、膨出抑制用鋼製蓋に作用する力は72.1 kNとなる。これらの値は、ある経過時間における緩衝材が膨出する力と考えられる。ここで、経過時間145日における荷重計の測定値をもとに、「ケイ砂充填オプション」における膨出抑制用鋼製蓋に作用する鉛直方向の応力を試算すると、約1.4 MPaとなり（表2.6-31）、「隙間未充填」オプションの場合（経過時間120日）は、約0.3 MPaとなった。

表2.6-31　荷重計の計測値を基にした膨出抑制用鋼製蓋に作用する応力の試算

項目	値	備考
「隙間のケイ砂充填」オプション（令和4年度）		
鋼製蓋に作用した荷重	270.2 kN	合計荷重 表2.6-30参照
緩衝材の断面積	0.198 m²	緩衝材ブロックの内側のみの膨潤を設定（外側のケイ砂充填部への膨潤はなしと設定） 外径0.54 m、内径0.20 m
膨出抑制用鋼製蓋に作用する応力の試算値	1.4 MPa	270.2 kN ÷ 0.198 m² ＝1,365 kN/m²
「隙間未充填」オプション（令和2年度）		
鋼製蓋に作用した荷重	72.1 kN	合計荷重 表2.6-30参照
緩衝材の断面積	0.233 m²	隙間閉塞時を設定 外径0.58 m、内径0.2 m
膨出抑制用鋼製蓋に作用する応力の試算値	0.3 MPa	72.1 kN ÷ 0.233 m² ＝309 kN/m²

③ 緩衝材の膨潤変形による膨出抑制用鋼製蓋の変位量

(a) 測定結果

緩衝材の膨潤変形による膨出抑制用鋼製蓋と上部フランジの距離をジャッキの取り外し前後において測定し、緩衝材の膨潤による変位量を測定（図2.6-79）した。東西南北の4箇所で測定した結果を表2.6-32および図2.6-80に示す。

膨出抑制用鋼製蓋の変位量（上昇量）の測定は10分毎の計測で、変位量の変化がなくなった経過時間30分後まで実施した。経過時間10分では-1 mmから11 mmと変位量に12 mmのバラツキが生じたが、経過時間30分では6 mmから11 mmと5 mmのバラツキとなり、平均では9 mmの変位量となった。

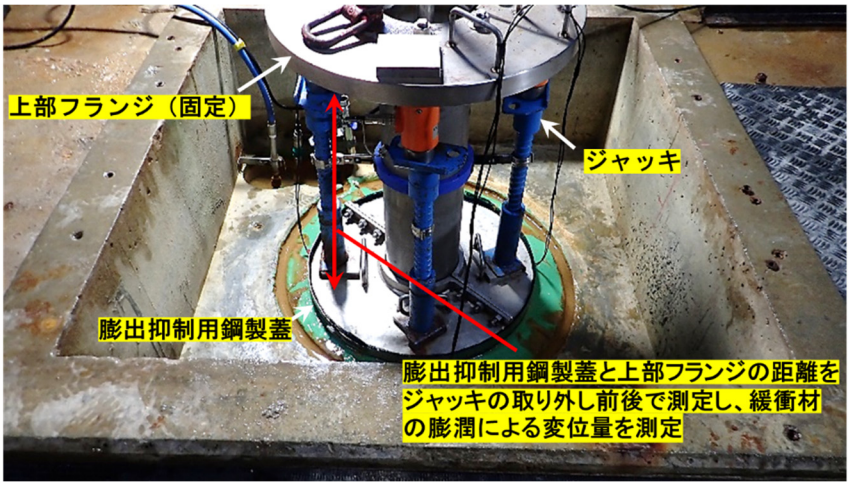


図2.6-79　ジャッキ取り外し前後における緩衝材の膨潤による変位量測定位置の説明図

表2.6-32　緩衝材の膨潤変形による膨出抑制用鋼製蓋の変位量（緩衝材上昇量）　測定結果

経過時間 [min]	測定値／変位量	北 [mm]	東 [mm]	南 [mm]	西 [mm]	平均 [mm]
0	測定値	765	765	766	767	766
	変位量	0	0	0	0	0
10	測定値	766	759	757	756	760
	変位量	-1	6	9	11	6
20	測定値	757	759	756	756	757
	変位量	8	6	10	11	9
30	測定値	757	759	756	756	757
	変位量	8	6	10	11	9

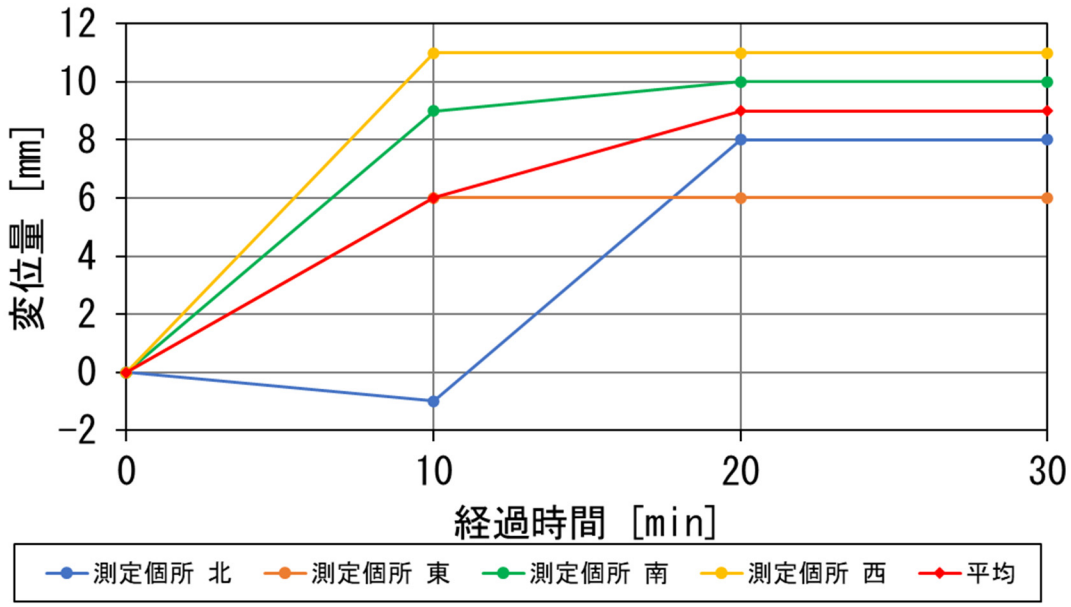


図2.6-80　緩衝材の膨潤変形による膨出抑制用鋼製蓋の変位量（緩衝材上昇量）

(b) 考察

緩衝材の膨出抑制用鋼製蓋を撤去した際の変位量は、平均で9 mmとなった。すなわち、緩衝材の高さが約9 mm増加（膨出）したと考えられる。試験孔内に定置した際の緩衝材の高さは500 mmであることから、緩衝材の元の高さから約2 %増加（膨出）したこととなる。なお、試験孔外に膨出した緩衝材を除去・撤去した場合は、試験孔内の緩衝材の乾燥密度、湿潤密度は低下することになる。したがって、試験孔および処分孔内に緩衝材を定置した後の一定期間において、緩衝材の膨出抑制対策として蓋の設置等を行う場合には、蓋を撤去するときに一定量の緩衝材の膨出が生じる可能性があるため、緩衝材の流出対策とともに膨出量や膨出対策の方法を検討しておく必要がある。

(2) 緩衝材の飽和プロセスを対象とした解析的な評価方法の検討

1) 研究方針（研究アプローチ）

2.6.1項で述べたように、処分場の長期の性能評価における緩衝材の初期状態は、これまで飽和かつ密度が均一な状態として扱われてきた。しかし、前述した緩衝材の流出や隙間への膨潤に伴う緩衝材の不均質な密度分布は、飽和に至る過程で均質化に向かうことが期待されるが、飽和後に残存する可能性がある。このように懸念される緩衝材の初期状態に関して、緩衝材に期待する安全機能への影響の分析や閉鎖後長期の性能評価の初期条件として反映するために、飽和後の緩衝材の状態をより確からしく予測評価することが望まれる。そのため、緩衝材の飽和プロセスを対象とした解析的な評価方法を整備しておく必要がある。2.6.1項で述べたように、本事業では、力学解析モデルをベースとした段階的なモデルの高度化を進めており、本フェーズでは多次元化や実規模スケールを解析対象とするモデル体系の構築やパラメータ値の設定手法を整備していくこととしている。

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

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

- 数値解析手法や構成モデルの高度化（例えば、Takeyama et al., 2015）がなされており、弾塑性構成モデルの拡張が可能な土／水連成の有限要素法解析コードDACSARを用いる。
- 解析領域は図2.6-81に示すように、小型試験体スケールから実規模の1/4スケール、さらに実規模スケールへと段階的に拡張して解析手法の構築を進める。

小型試験体スケールの検討では、不飽和から飽和に至る過程の緩衝材の膨潤挙動が表現可能な基礎的な解析モデルを構築する。実規模1/4スケールの検討は、小型試験体スケールで構築した解析モデルを用いて実規模1/4スケール試験の解析を行い、原位置（実規模1/4スケール）試験の実環境で想定される条件を踏まえて解析モデルの拡張を図る。また、実環境で想定される課題となり得る事項を解析結果と原位置試験結果との比較・検証により抽出する。最後に、実規模スケール試験の解析では、抽出した課題を踏まえて、実環境の条件を解析モデルに反映し、より精度の高い評価が可能な解析モデルの構築を目指す。令和4年度までに小型試験体スケールの検討および1/4スケールの検討を実施した。

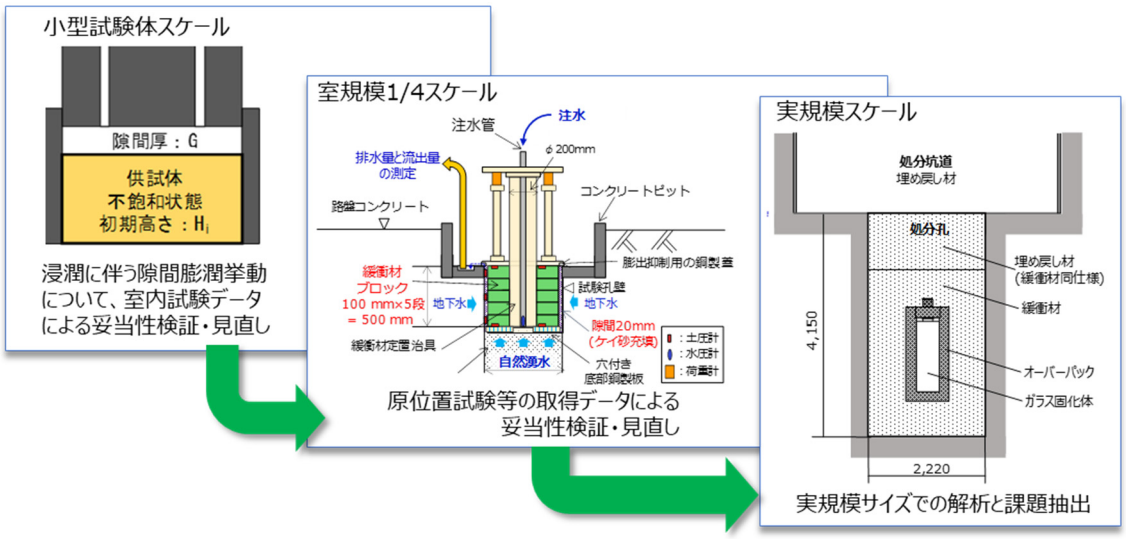


図2.6-81　解析スケールの段階的な拡張

2) 状態予測手法（解析的手法）の開発

①　解析コード・材料パラメータの設定

本検討の解析には、有限要素解析コード群 DACSAR（Iizuka, et al., 1987；日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2020）のひとつである DACSAR-I(Takeyama et al., 2015)をベースとした改良版を用いた。本モデルには不飽和状態にある緩衝材の力学特性を表現するための改良が施されている。具体的には、土骨格の変形と間隙水圧の流れを連成して解く、土／水連成有限要素解析手法を用いており、緩衝材の力学応答を表現するために、土骨格の変形を支配するモデルとして塑性膨潤の概念を取り入れた弾塑性構成モデルを採用している。ベースとなる弾塑性構成モデルは、飽和状態にある地盤材料の力学挙動表現に広く用いられている修正 Cam-clay モデルである。これにより、緩衝材に用いられるベントナイト（あるいはその混合土）の膨潤挙動を表現する。

解析に使用した水分特性曲線モデルおよび透水係数モデルに関するパラメータを表2.6-33に示す。水分特性曲線については、式(2.6-36)に示す杉井・宇野（1997)によるロジスティック曲線モデルを使用した。

$$S_e = \frac{S_r - S_{r0}}{1 - S_{r0}} = \frac{1}{1 + s^B \exp(A)} \tag{2.6-36}$$

ここで、Se は有効飽和度、Sr は飽和度(%)、s はマトリックサクションである。A および B は水分特性曲線の形状を定める材料パラメータ、S_{r0}は残留飽和度であり、理論上、サクションを無限に作用させたときの飽和度の収束値を意味する。また、マトリックサクション s は、間隙空気圧と間隙水圧との差である。

また、透水係数については、式(2.6-37)に示す乾燥密度（間隙比）依存性を考慮した透水係数モデル(Börgesson et al., 1995)を使用した。

$$k = k_0 \left(\frac{e}{e_0}\right)^{\lambda_k} \tag{2.6-37}$$

ここで、k_0はリファレンスとなる間隙比e_0に対応する透水係数、λ_kは材料パラメータである。式(2.6-23)は、飽和状態($S_r = 1$)における透水係数を与える。本来、飽和度の減少($Sr < 1$)に応じて透水係数を低減する効果を導入することが好ましいが、シミュレーションで対象とする材料に関

する乾燥密度（間隙比）依存性と同時に飽和度依存性を同定するための実験事実が見当たらないため、本研究では、解析上、不飽和状態にあっても式(2.6-37)に則り透水性が定まるものとした。なお、解析手法の検討を進めるにあたり、小型試験体スケールを対象とした緩衝材と孔壁の隙間への膨潤を対象とし、緩衝材初期条件を飽和状態とした淡水の吸水膨潤による緩衝材の変形と密度変化の解析手法を検討し、次に、初期条件を不飽和状態とした解析手法を検討した。これらにより土骨格の変形を支配するモデルとして塑性膨潤の概念を取り入れた弾塑性構成モデルにより緩衝材の再冠水プロセスの力学応答を表現できる解析モデルを構築した。

表2.6-33　水分特性曲線モデルおよび透水係数モデルに関するパラメータ

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

※1　サクションの単位を MPa としたときの値を記入している。

②　小型試験体スケールにおける基礎的な解析モデルの構築

(a) 不飽和からの浸潤過程における解析手法の整備（令和2年度）

小型試験体スケールにおける解析手法の検討では、不飽和ベントナイト供試体の上部に隙間を設けた状態で上面から給水し、供試体が軸方向に膨潤し隙間を充填する過程と、充填後の平衡に至るまでのプロセスを対象とした。なお、試験体の形状が円柱状であり追跡する応答が軸対称問題であることから、解析モデルは二次元軸対称モデルとし、水分特性曲線モデルおよび透水係数モデルに関するパラメータは表2.6-33のうちパラメータセット00を使用した。

解析の対象となるプロセスの概念図を図2.6-82に示す。初期状態では、ベントナイト供試体は不飽和状態にあり、上部に隙間が設けられた状態で試験セル内に定置されている。給水過程では、供試体上面とピストンとの間に設けられた隙間に蒸留水が供給される。このとき、供給水に背圧は作用せず、水圧はゼロ(0 kPa)となるものとした。不飽和状態にあるベントナイト供試体は初期にサクションを保持し、内部の間隙水圧は負圧である。したがって、供試体の外部から内部へと動水勾配が生じ、供試体への供給水の浸透とそれに伴う膨潤が促される。吸水面である供試体上面の近傍では、比較的早期に負圧であった水圧が消散し、先行して飽和化・膨潤が生じることが考えられる。供試体が隙間を充填した後は、均一化過程と称するプロセスに移行し、供試体全体の高さ（体積）が固定される境界条件に切り替わり、供試体内部でのみ押し合い（圧し合い）による乾燥密度分布の変化が生じることになる。この変化の原動力は動水勾配であり、これが消滅するまで乾燥密度分布の変化が続く。この過程では、供試体上部に遅れて下部にも膨潤が促されることになるが、供試体全体としての体積が固定されているため、上部は再圧縮されることになる。

ベントナイト供試体の初期寸法は、直径40 mm、高さ20 mmで均一な状態であると仮定し、初期乾燥密度は2.0 Mg/m^3、初期含水比は10 %とした。また、吸水による膨潤の余裕代として、供試体の上部には隙間を設け、隙間を充填したときの平均乾燥密度が1.6 Mg/m^{3}になるように5.0

mmの隙間を設定した。

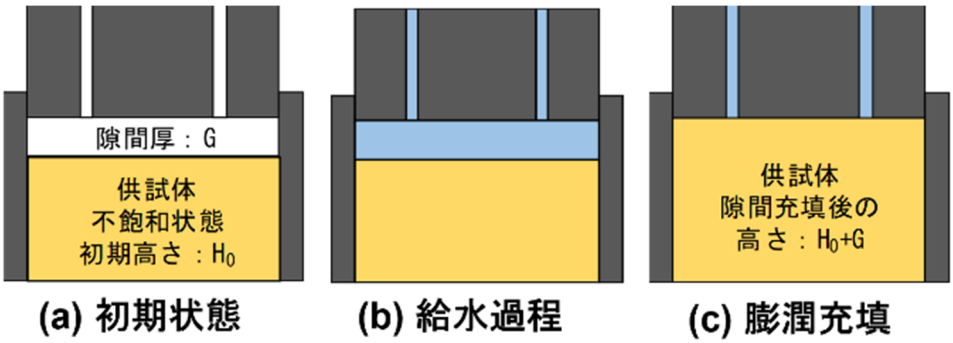
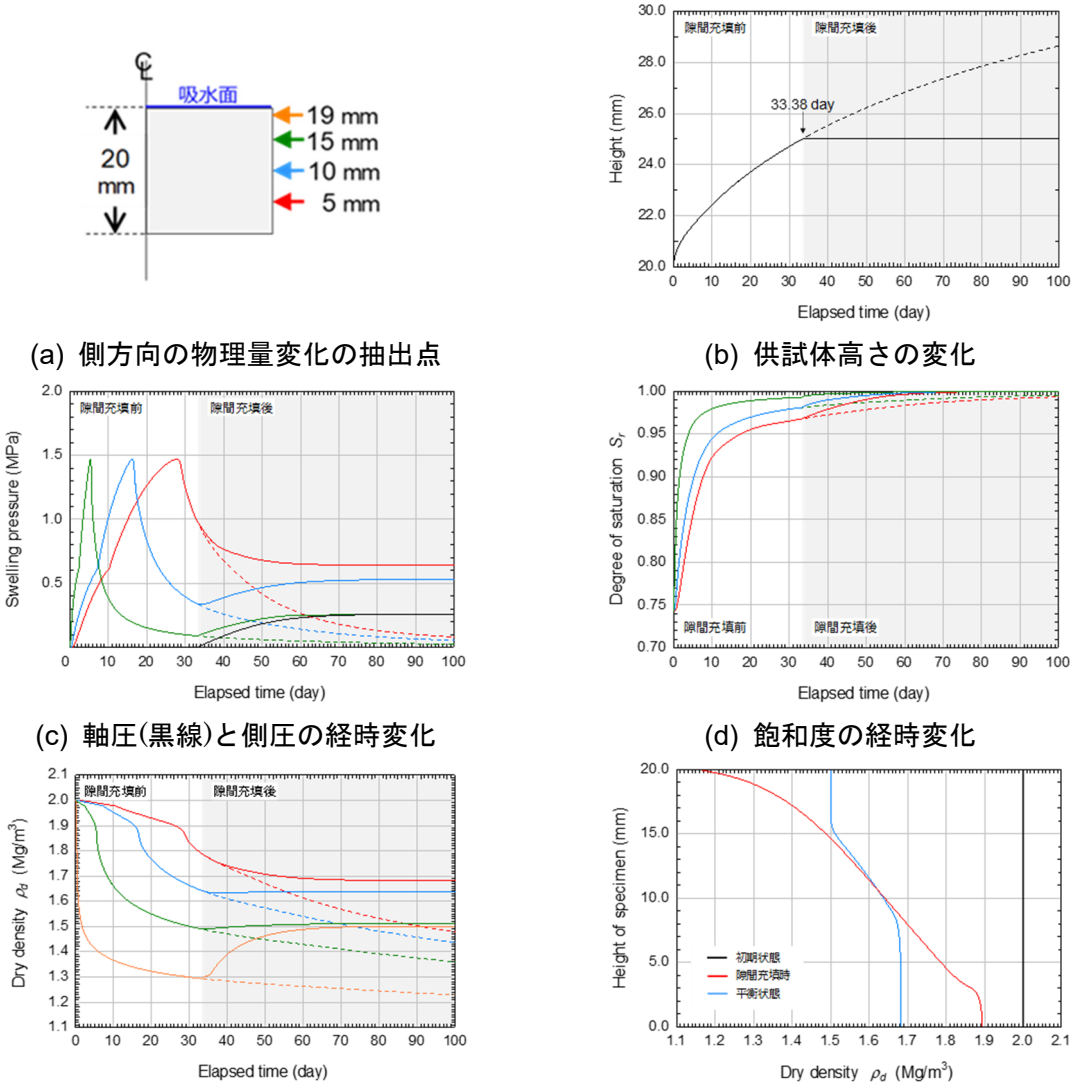


図2.6-82　解析の対象となるプロセスの概念図

解析結果を図2.6-83に示す。供試体が膨潤し上部の隙間を充填するまでの期間は、33.38日であった。隙間充填過程において膨潤が先行した供試体上部（給水面から19 mm）の領域では、35日以降に乾燥密度が回復し再圧密が生じている。一方、膨潤が遅れた領域である供試体下部では、隙間充填後に緩やかに定常に向かう挙動であった。緩衝材内部では、隙間膨潤過程で生じた乾燥密度の不均一な分布が隙間充填後に緩和され均一化に向かうものの、100日後の平衡状態においても、乾燥密度の分布の不均一性は完全に解消されることはなかった。以上のように、前記①で述べた解析コードを用いて飽和プロセスにおける隙間充填挙動や乾燥密度分布を表現することが可能となった。



(a) 側方向の物理量変化の抽出点　(b) 供試体高さの変化

(c) 軸圧(黒線)と側圧の経時変化　(d) 飽和度の経時変化

(e) 乾燥密度の経時変化　(f) 乾燥密度の分布

図2.6-83　パラメータセット00 を使用した解析結果

(b) 小型試験体スケールの試験による検証データの取得（令和2から4年度）

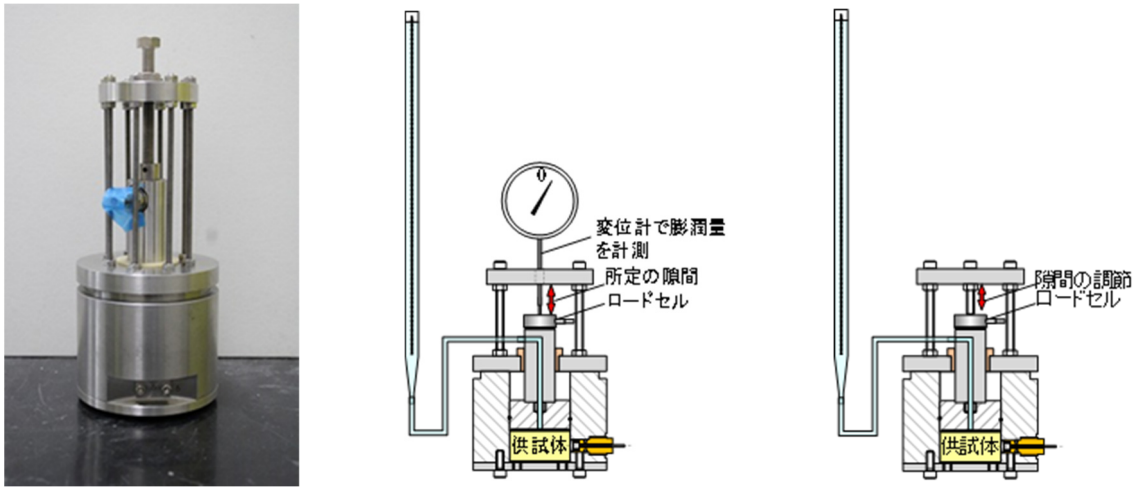
前記(a)の解析結果の妥当性を確認や材料パラメータの検討をするために、小型試験体スケールの試験による検証データを取得した。試験に使用したベントナイト供試体の仕様を表2.6-34に示す。

試験には、図2.6-84に示すように膨潤量試験の過程を経て膨潤圧試験の過程に移行できる試験装置を用いた。まず、膨潤量試験過程では、試験セル内の初期乾燥密度2.0 Mg/m^3 に締め固めたベントナイト供試体が給水（イオン交換水）により膨潤する間、体積拘束板の中央に空けたM8のボルト用の穴から挿入された変位計により膨潤量の経時変化を計測した。膨潤量が既定の高さ（膨潤後の平均乾燥密度が1.6 Mg/m^{3}に相当する高さ）に達した時点で計測は終了し、M8の体積拘束用のボルトを所定の位置に設置して、そのまま膨潤圧試験過程に移行した。膨潤圧試験過程では、体積を拘束された状態のまま膨潤圧（軸圧および側圧）の計測を続け、膨潤挙動がある程度平衡状態に達したと判断した時点で試験を終了した。

試験終了後、供試体を超音波カッターでスライスし、給水面から排水面まで全部で17層の断面について、含水比、乾燥密度、飽和度のデータを取得した。

表2.6-34　小型試験体スケールの試験で使用したベントナイト供試体の仕様

原材料 および配合	Na型ベントナイト70 wt%（クニゲルV1）＋ケイ砂30 wt%（3号15 wt%（マレーシア産）＋5号15 wt%（オーストラリア産））
初期乾燥密度	2.0 Mg/m^3
含水比	10 %
寸法	直径 40 mm、高さ 20 mm
隙間充填後の 平均乾燥密度	1.6 Mg/m^3（隙間幅は5 mm）



(a)小型試験セル　(b)膨潤量試験過程　(c)膨潤圧試験過程

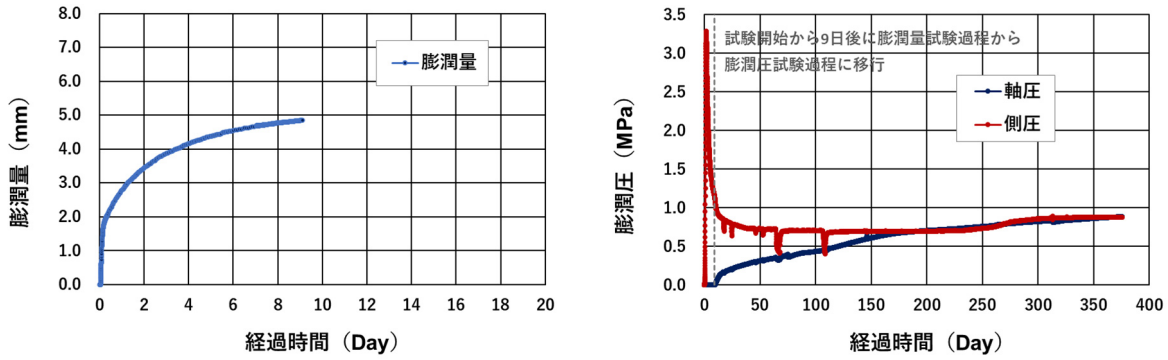
図2.6-84　試験装置の概要

小型試験体スケールの試験の結果を図2.6-85に示す。膨潤量の経時変化から、幅5.0 mmの隙間を充填するまでに9日程度要した。また、側圧については、供試体の膨潤に伴いピーク値である3.27 MPa まで急激に上昇し、隙間を充填する9日までに急激に降下後、およそ0.7 MPaで落ち着いた。その後、260日あたりから再度、緩やかに上昇し始め、0.9 MPaに達するあたりで再び落ち着いた。一方、軸圧については、膨潤圧試験過程に移行した直後から徐々に増加し、緩やかな上昇を続けた。378日時点で軸圧はまだ増加傾向を示していたが、側圧は定常状態と見なし試験を終了した。

試験終了後の供試体のスライス断面による分析結果を図2.6-86に示す。含水比については比較的均一化しており、顕著に給水側が大きく排水側が少ないといった傾向はみられなかった。乾燥密度については給水側の方が小さく、やや不均一な傾向がみられた。飽和度は計算上、概ね100 %を超え、十分に飽和していた。なお、飽和度が100 %を超える理由としては、ベントナイトの土粒子密度を計測する際に、ベントナイトに含まれるパイライトなどの可溶な随伴鉱物が溶解するため、その土粒子密度を過小評価していることが考えられる。

上記で得られた試験結果と前記(a)で得られた解析結果を比較した。解析では高さ方向に等間隔に位置する6点の側圧を出力しているのに対して、小型セル試験では供試体の高さの中央に設置した土圧計で側圧を計測しているという違いはあるが、試験の膨潤圧の挙動や乾燥密度分布（後掲）の傾向は本解析手法で概ね再現することができた。ただし、供試体の膨潤速度や膨潤圧のピーク値に顕著な乖離が見られた。この点については、後述(c)の解析パラメータの検討において関係す

る弾塑性構成モデルに関するパラメータおよび水分特性曲線と透水係数モデルに関するパラメータを見直した。



(a)膨潤量の経時変化　　(b)膨潤圧の経時変化

図2.6-85　小型試験体スケールの試験による膨潤量・膨潤圧試験の結果

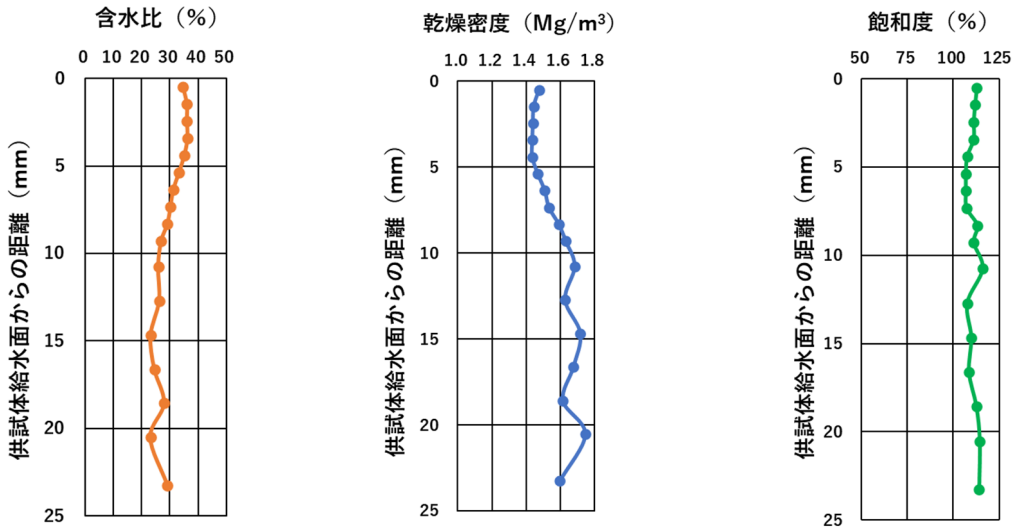


図2.6-86　試験終了後の供試体スライス断面の分析結果

(c) 試験結果による解析結果の検証に基づく材料パラメータの検討

前述のとおり、パラメータセット00を使用した解析結果と小型試験体スケールの試験結果の比較からもわかるように、側圧のピーク値と供試体の膨潤速度に顕著な差異がある。これらを踏まえて膨潤速度に影響する水分特性曲線と透水係数モデルに関するパラメータ、膨潤挙動に影響する不飽和弾塑性構成モデルに関するパラメータのそれぞれについて検討し、パラメータを見直した。

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

供試体の膨潤速度に影響するパラメータとして、水分特性曲線および透水係数モデルのパラメータを見直した。前述の表2.6-34に示すパラメータセットのうち、00、W1、W2によって描かれる水分特性曲線を図2.6-87に示す。ここでは、ケイ砂30 %混合クニゲルV1に対して実施された保

水性試験の結果（鈴木・藤田, 1999）をプロットで併記している。先の解析で用いたパラメータセット00は、幅広い飽和度状態で保水性試験の結果をフィッティングするために同定したものである。しかし、解析で想定する不飽和ベントナイトの初期飽和度は74.3 %(Sr = 0.73)であるため、この飽和度から飽和化する応答を解析対象とする場合、パラメータセット00では高飽和度状態におけるサクションを過小評価することになる。また、74.3 %未満の水分特性曲線は解析には影響しない。そのため、高飽和度領域においてより試験結果と調和的なパラメータセットW2とパラメータセット00とW2の中間にあたるパラメータセットW1 について検討した。

また、パラメータセット00、H1、H2によって描かれる間隙比と透水係数の関係を図2.6-88に示す。図中には、ケイ砂30 %混合クニゲルV1に対して実施された透水試験の結果（鈴木ほか, 1992 ; 松本ほか, 1997）をプロットで併記している。この3つのパラメータセットの中でセット00 が最も試験結果に近いが、透水係数に対する間隙比依存性をより大きく考えた場合として、セットH1およびH2について膨潤応答がどのように変化するのかを解析的に把握し、解析結果と整合するパラメータを検討した。

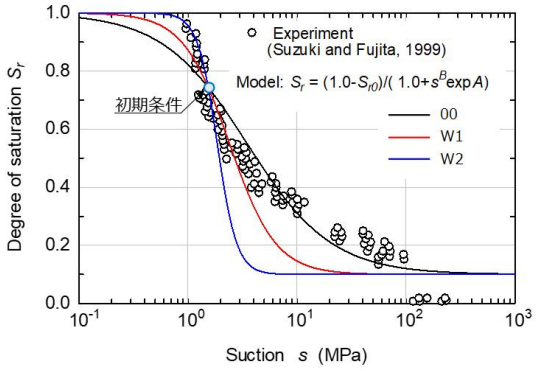


図2.6-87　水分特性曲線

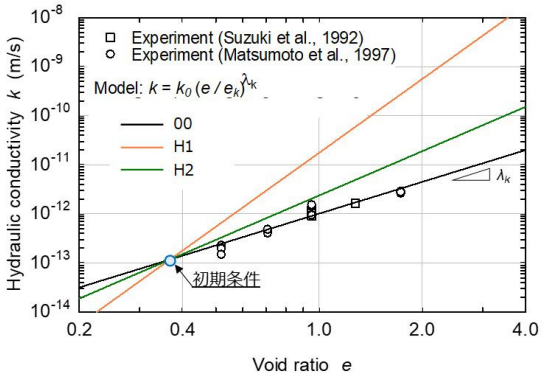


図2.6-88　間隙比依存性を考慮した透水係数

各パラメータセットで、隙間を充填するために要した時間（図2.6-89）に着目するとパラメータセット00が33.38日であったのに対し、セットW1およびW2ではそれぞれ23.08日、19.36日、パラメータセットH1およびH2ではそれぞれ16.71日、2.71日となった。すなわち、パラメータセットH2が最も膨潤速度が大きい結果となった。

各抽出点における軸圧（黒線）および側圧の経時変化（図2.6-89）では、いずれのパラメータセットも、隙間充填過程において、吸水面に近い順（緑→青→赤）に側圧の急激な増加が見られ、位置に依らず同じピーク値を経た後に減少に転じている。パラメータセット00の結果と比較すると、保水性を高くしたパラメータセットW1およびW2ではピーク値が低減し、透水係数の間隙比依存性を大きくしたパラメータセットH1およびH2ではピーク値が増加するといった差異が見られた。

続いて、隙間充填後の乾燥密度の変化（図2.6-90）に着目すると、いずれのパラメータセットにおいても、隙間充填過程で膨潤が先行する供試体上部において、乾燥密度が回復する再圧密が生じている。一方、充填過程で膨潤が遅れた領域である供試体下部では、再圧密の挙動は見受けられず速やかに定常に向かう挙動が見られた。

乾燥密度の分布（図2.6-91）については、いずれのケースにおいても隙間膨潤過程で生じた乾燥密度の不均一が、隙間充填後に解消され、均一化に向かうことになるが、平衡状態においても乾燥密度の差が完全に解消されることはなく0.2 Mg/m^{3}程の差が残存する結果であった。また、水分

特性曲線を変更したパラメータセットW1、W2では、乾燥密度分布の低密度領域が相対的に狭くなる。一方で、透水係数パラメータを変更したパラメータセットH1、H2では、低密度領域が広くなった。

前述(b)の試験結果と各ケースの解析結果を比較すると膨潤速度や、側圧のピーク値については、パラメータセットH2が最も試験結果と整合しており、次いでW2が整合していた。平衡後の乾燥密度分布については、図2.6-92に示すようにパラメータセットW2が最も試験結果と整合していた。既述のように、パラメータセットW2の水分特性曲線は、高飽和度領域で保水性試験値とよく整合している。また、パラメータセットW2における透水係数モデルのパラメータは、透水試験の結果と最も整合する00である。以上のように、膨潤速度や側圧に関しては、パラメータセットH2での解析結果が最も整合するが、パラメータセットの保水性試験や透水試験結果との整合性も踏まえて、パラメータセットW2が最も妥当な設定と判断した。

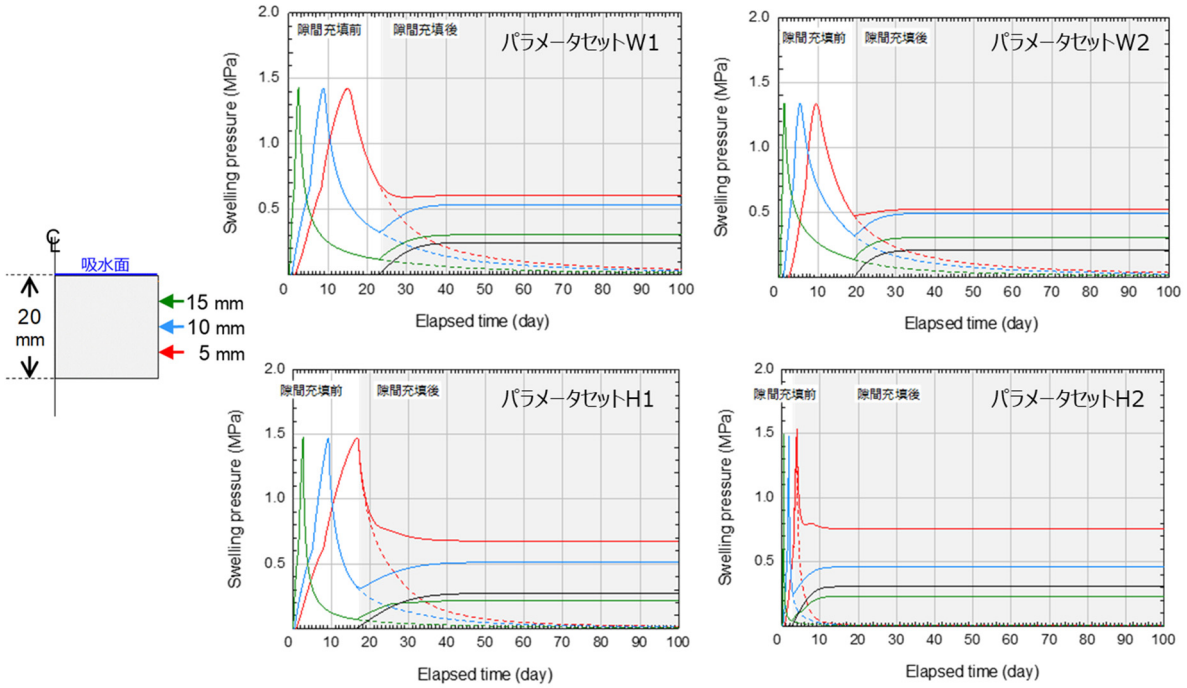


図2.6-89　各パラメータセットの軸圧（黒線）と側圧の経時変化

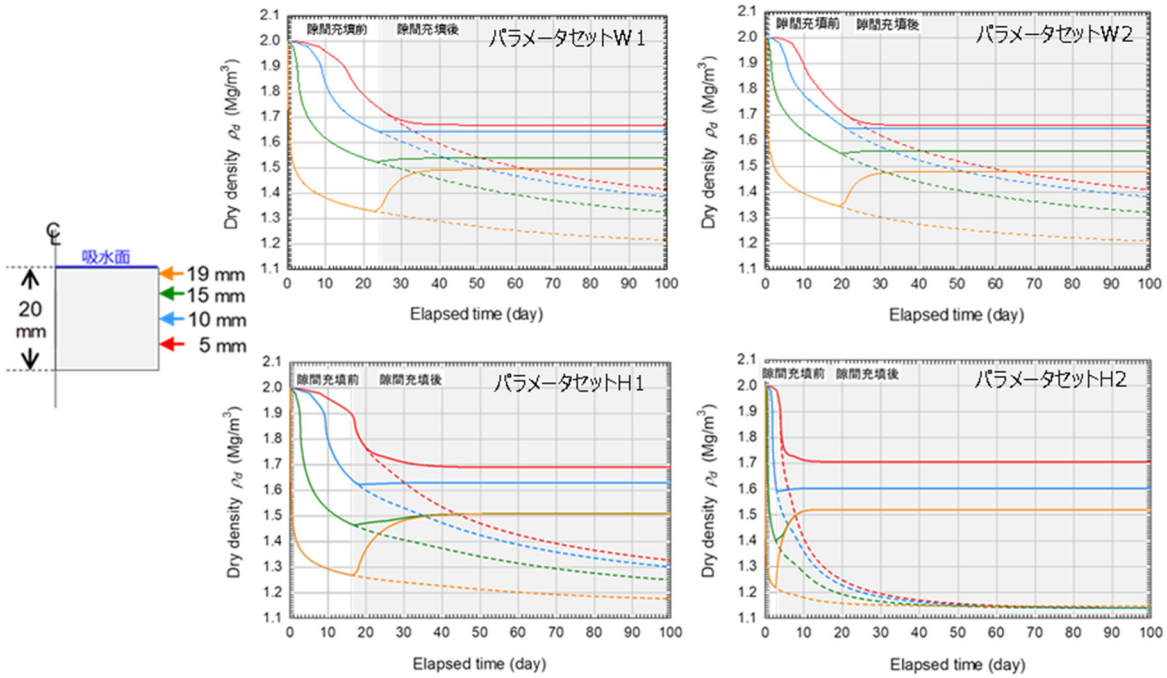


図2.6-90　各パラメータセットの乾燥密度の経時変化

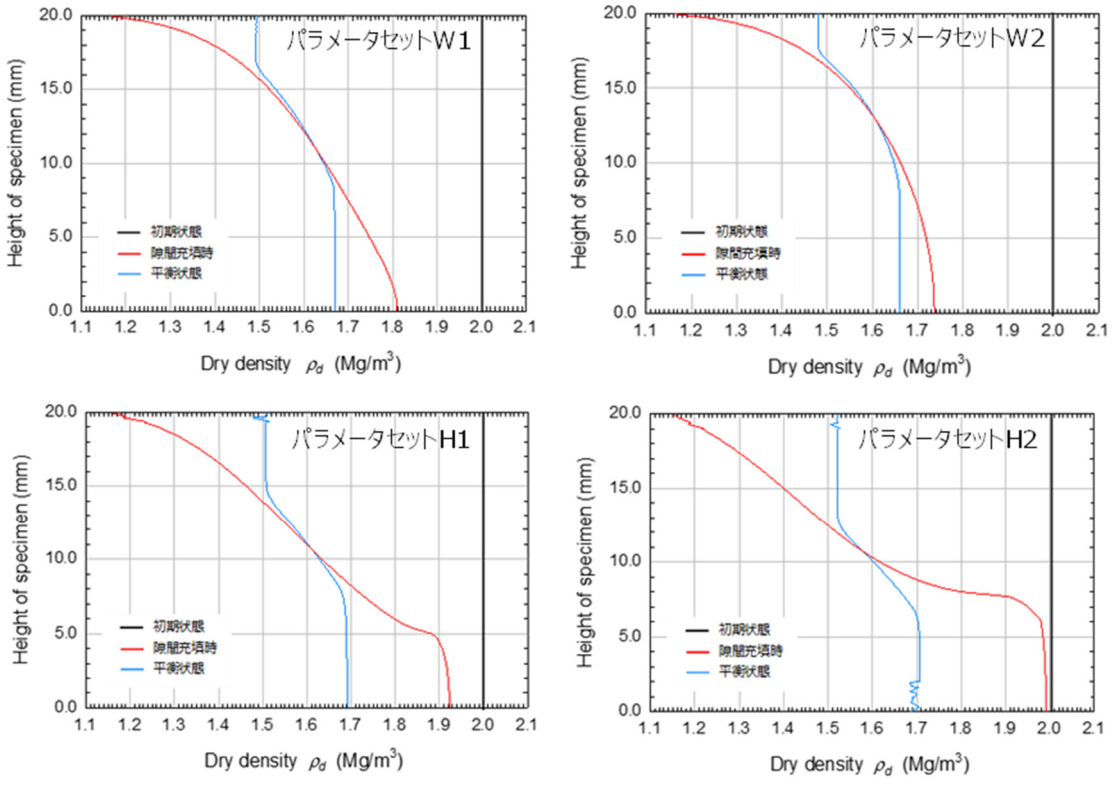


図2.6-91　各パラメータセットの乾燥密度の分布

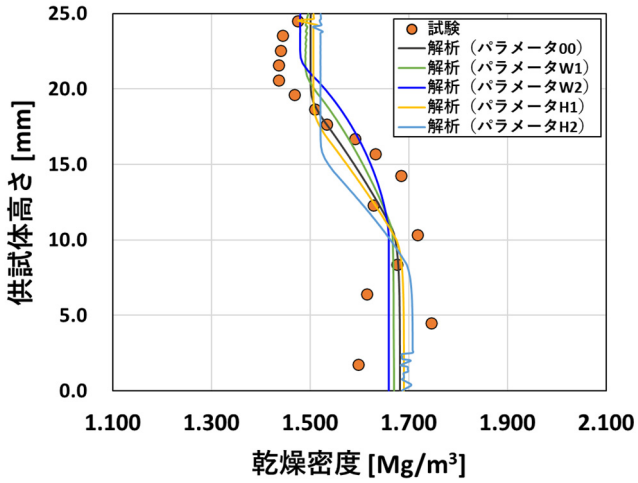


図2.6-92　各パラメータでの乾燥密度分布（平衡時）

(ii)　不飽和弾塑性構成モデルに関するパラメータの検討（令和3年度）

自由膨潤過程において発現する最大側圧に関する弾塑性構成モデルのパラメータの見直しを実施した。弾塑性構成モデルのパラメータのうち、飽和状態における圧密特性やせん断特性に関係するパラメータのほとんどは、同材料に対する力学試験の結果（高治・鈴木, 1999）を参考に同定している。そのため、これらのパラメータには設定根拠があることから、不飽和状態の力学応答に関連するパラメータであるα、θ、l の3つとポアソン比ν'を調整することとした。

パラメータα、θ、l は、解析対象である緩衝材に対して膨潤圧試験で計測される膨潤圧を要素応答として表現できるように定めており、体積一定条件で発生する膨潤圧を等方圧であると見做した上で同定されたパラメータであった。しかし、ここでの側圧は、一次元的な膨潤変形を伴いながら発生するものであり、隙間が充填されるまでは軸圧（上載圧）がないことからベントナイト供試体の応力状態が異方的であることも明らかである。また、一次元膨潤過程における有効応力経路はポアソン比にも依存する。以上の理由からパラメータα、θ、l およびポアソン比ν'を調整した。調整前と調整後のパラメータを併せて表 2.6-35 に示す。

調整後のパラメータを用いて実施した解析結果を図 2.6-93 に示す。パラメータ調整の結果、隙間充填に至るまでの自由膨潤過程において発生する側圧が大きくなり、最大側圧が室内試験の計測値と同等に得られている。また、ある高さの側圧が最大に達する時刻もパラメータ調整前に比べると、より早期になっていることも確認できる。一方、軸圧が発生し始める時刻、すなわち、ベントナイト供試体が 5.0 mm の隙間を充填するために要する時間は、パラメータ調整前よりも若干長くなっているが、概ね試験結果と整合した膨潤速度を保持している。乾燥密度分布の経時変化を図 2.6-94 に示す。平衡後の乾燥密度分布は、概ね試験結果（図 2.6-92）と同様の傾向を示すことができた。

表2.6-35　不飽和弾塑性構成モデルに関するパラメータ

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

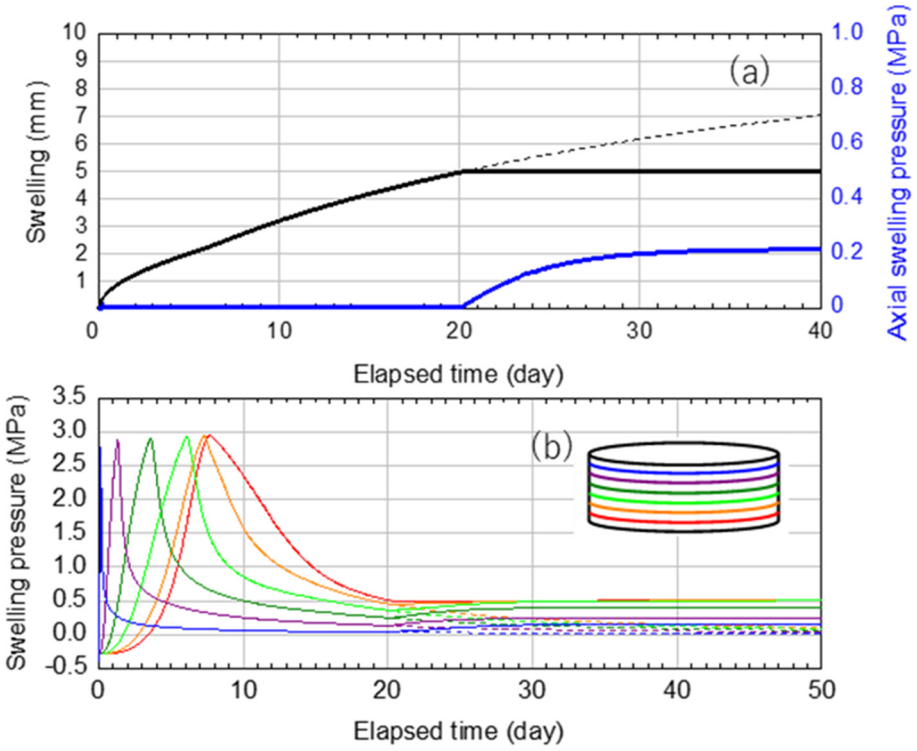


図2.6-93　解析結果(パラメータ見直し後)
(a)　膨潤量と軸圧の変化，(b)　側圧の変化

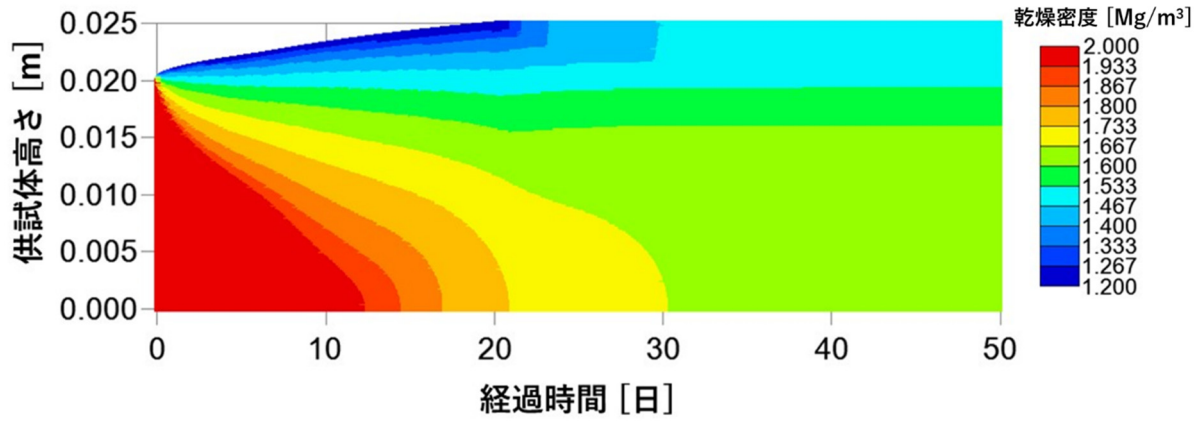


図2.6-94　解析で得られた乾燥密度分布の経時変化（パラメータ見直し後）

③　原位置実規模1/4スケール試験の条件を反映した解析手法の整備

(a) 解析対象

小型試験体スケールで検討した解析手法について、前出の「(1)流出を抑制する工学的対策の具体化」の一環として令和2年度に幌延URLの地下350 mで実施した、原位置実規模1/4スケール試験へと解析対象を拡張し、実環境の試験条件を反映した解析手法について検討した。解析体系および境界条件は、図2.6-95 に示す原位置実規模1/4スケール試験の隙間未充填オプションに基づき設定した。

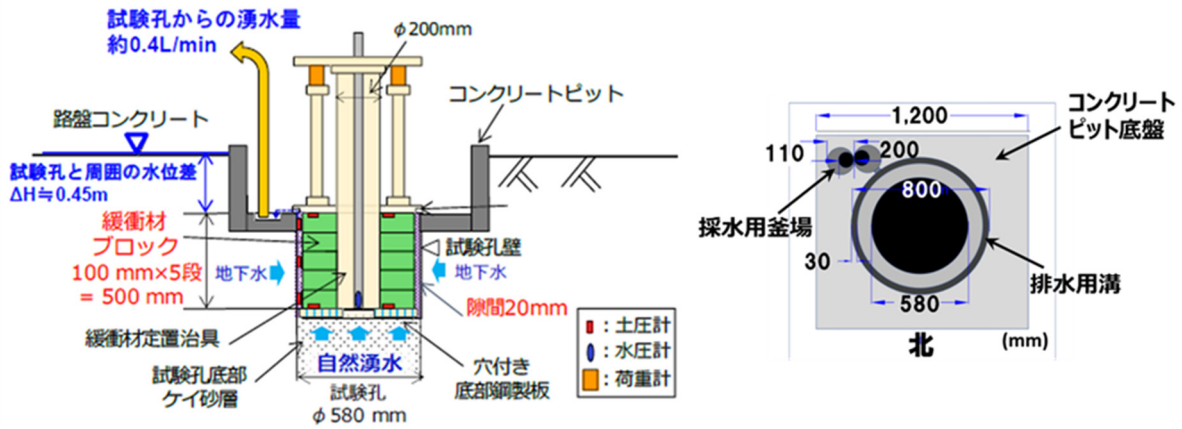


図2.6-95　原位置実規模1/4スケール試験の概要図（隙間未充填オプション）

原位置実規模1/4スケール試験では、8分割×5段（高さ500 mm）の緩衝材ブロックを試験孔内に充填したケイ砂の上に設置した。緩衝材の水平断面はドーナツ状であり、その内側面は円柱形の治具に接する。隙間未充填オプションでは、緩衝材ブロック設置時の緩衝材の外側面と孔壁の間に20 mm の隙間がある。緩衝材の上面には、緩衝材の膨出を防止するために鋼製の蓋を設置してあり、岩盤あるいは緩衝材下部のケイ砂層から自然湧水した地下水の一部は、緩衝材に浸透し、残りは上蓋の周辺から排水され、コンクリートピット部でポンプアップした。自然湧水の浸潤により緩衝材が膨潤すると、孔壁と緩衝材の隙間は充填され、緩衝材の外側面と孔壁が接触する。排水面の高さは緩衝材上面の高さとほぼ一致している。また、湧水が継続するためには、動水勾

配をもたらす水頭差が必要である。湧水量の確認試験の結果（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2021）、孔内の湧水はその水位が路盤コンクリート面と同じ高さに至るまで継続したことから、岩盤側の水位は路盤コンクリート面と同じ高さにあり、排水面との水位差は0.5 m と推察した。

緩衝材の上面、底面、孔壁に土圧計を設置し、緩衝材の上部の蓋を固定する治具には荷重計を設置して上部への緩衝材の膨潤圧を計測した。また、円柱形治具の中心は空洞になっており、緩衝材底面位置の水頭を空洞内の水面高さから計測した。

(b) 材料パラメータの設定（令和4年度）

原位置試験との比較による課題の抽出や境界条件の検討などに関する二次元解析モデルによる検討に先立ち、概ね原位置試験の膨潤挙動を再現できるように一次元解析モデルで材料パラメータの見直しを実施した。解析は令和3年度の検討における解析条件を参照し、図2.6-96に示す一次元解析モデルを対象とした。解析モデルは、中心軸から近い順に、緩衝材、隙間、岩盤から構成される。緩衝材と岩盤は、9節点アイソパラメトリック四角形要素を用い、水平方向に領域を分割した。分割数は、緩衝材を30要素、岩盤を10要素とした。また、緩衝材と岩盤の間にはジョイント要素を設け、その初期厚さは隙間相当の20 mmとした。

解析モデルの初期条件および境界条件を図2.6-96 に示す。緩衝材の初期厚さ（図では横方向の幅）は、原位置試験の寸法を参考に170 mmとした。岩盤の厚さは、1,000 mmとした。緩衝材の初期乾燥密度は、原位置試験の条件と同じ1.92 Mg/m^{3}とした。これは、20 mmの隙間を充填すると、緩衝材全体としての平均乾燥密度が1.60 Mg/m^{3}になる値である。緩衝材の初期含水比は11.15 %とした。これに対応する初期飽和度は72 %となる。緩衝材の初期水頭は、初期サクションを水頭換算した値を設定した。一方、岩盤は、隙間が充填するまでは、緩衝材の外側面における水頭を0 mm（排水面を基準高さとする）とし、岩盤の外側面（図中の右端）の水頭を500 mm、内側面（図中では左端）の水頭を0 mmに維持した。すなわち、隙間が充填するまでは、岩盤内の動水勾配は常に一定であり、中心軸に向かう方向に地下水が定常的に流れる状況を想定した。緩衝材によって隙間が充填された後の期間は、岩盤からの湧水は全て緩衝材に浸透し、外部への排水はないものと仮定した。解析では、緩衝材が飽和し、全域の水頭が500 mmとなる平衡状態までの期間を対象とした。

見直したパラメータの一覧を表2.6-36および表2.6-37に示す。ここでは、弾塑性構成モデルのパラメータと透水係数モデルのパラメータを変更した。透水係数については、原位置試験の坑内湧水量を基に算出した値を設定した。ベントナイトの水分特性曲線および透水係数モデルについては、小型試験体スケールで設定した値を使用した。

見直したパラメータによる解析結果を図2.6-97および図2.6-98に示す。軸圧の経時変化（図2.6-97）は、緩衝材の内側（青：緩衝材内側面から32.2 mmの位置）と外側（赤：緩衝材内側面から144.5 mmの位置）の2点の側圧を示している。比較の対象となる原位置試験で計測される軸圧は、上面と底面で大きな違いが見られる。この違いは、緩衝材の流出による上部の緩みの影響や二次元的な浸透・変形の発生と緩衝材境界面で発生する摩擦の影響によるものと考えられる。解析で得られる軸圧は、底面での計測値に近い。

一方で、側圧の経時変化（図2.6-98）に着目すると、緩衝材が隙間を充填し、側圧が発生し始めるのが3.84日目である。これは、原位置試験において孔壁で計測される土圧が発生するタイミングと大差がなく、より妥当な膨潤速度が得られていることが確認できる。発生した側圧は単調に増加したのち、0.75 MPaの平衡値に至っている。原位置試験で計測される側圧の平衡値は、側圧が計測される高さで異なるが、深さ0.45 m（緩衝材下部）での平衡値が約0.65 MPa、深さ0.25 m

（緩衝材中部）での平衡値が約0.90 MPaであったことを勘案すると、妥当な計算結果が得られた。

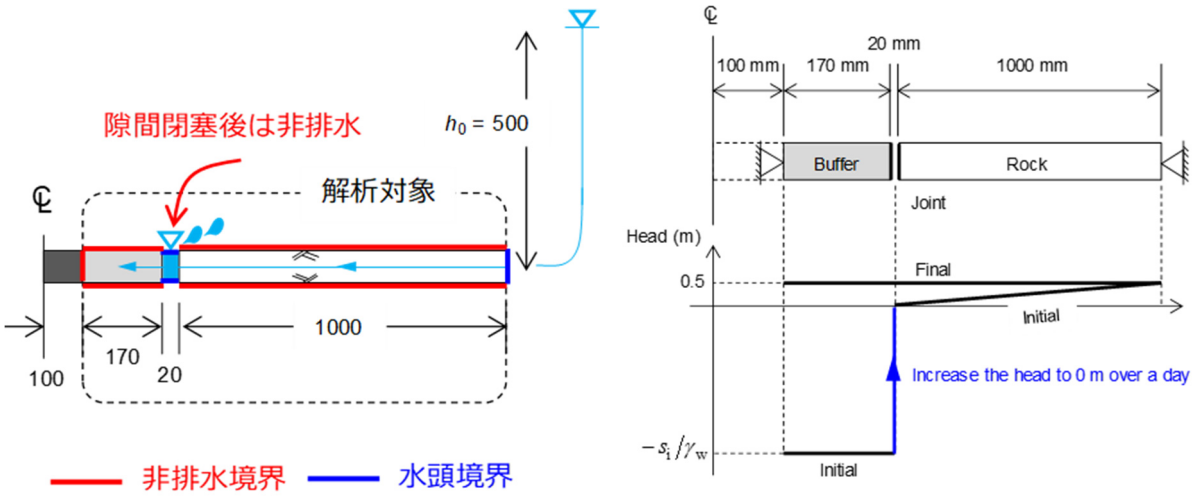


図2.6-96　一次元解析モデルの概念図および初期・境界条件

表2.6-36　緩衝材の弾塑性構成モデルに関するパラメータ

名称	記号	単位	元の数値（小型試験体スケールでのキャリブレーション値）	変更後の数値
限界応力比	$\bar{M}$	－	0.63	同左
圧縮指数	λ	－	0.14	0.28
膨潤指数（飽和状態）	$\bar{\kappa}$	－	0.028	0.056
有効ポアソン比	ν'	－	0.20	0.20
正規圧密曲線の基準圧	p'_{ref}	MPa	6.795	20.0
基準圧に対応する間隙比	e_{ref}	－	0.350	0.643
塑性膨潤パラメータ	ζ	－	0.45	同左
不飽和モデルパラメータ	α	－	10.0	同左
不飽和モデルパラメータ	θ	－	0.80	0.40
不飽和モデルパラメータ	l	－	5.00	2.00

表2.6-37　緩衝材の透水係数モデルに関するパラメータ

名称	記号	単位	元の数値（小型試験体スケールでのキャリブレーション値）	変更後の数値
基準間隙比	e_k	－	0.368	同左
基準間隙比に対応する透水係数	k_0	m/s	1.18e-13	4.72e-12
透水係数の間隙比依存性の程度を表すパラメータ	λ_k	－	2.15	同左

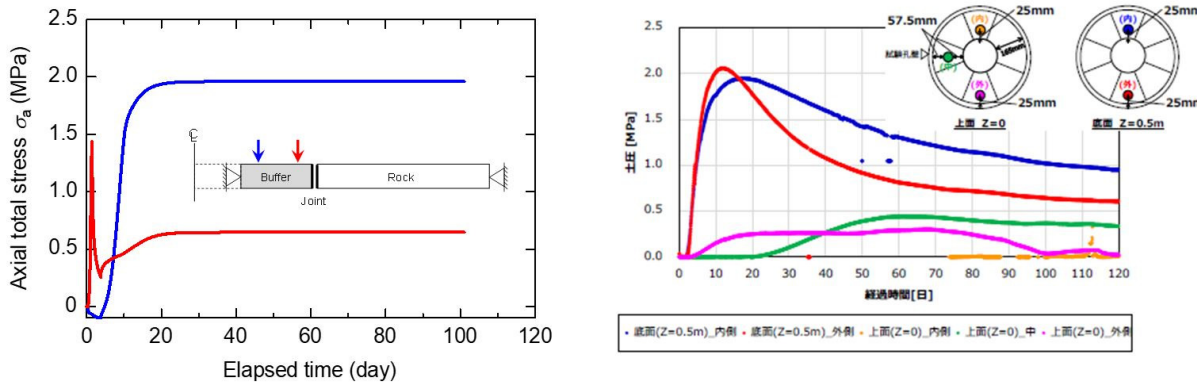


図2.6-97　軸圧の経時変化の解析結果と試験結果の比較

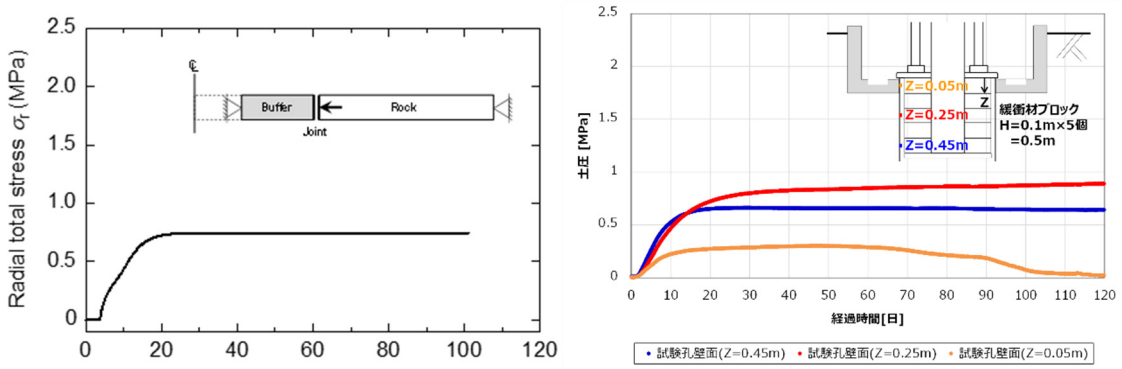


図2.6-98　側圧の経時変化の試験結果と解析結果の比較

(c) 二次元解析への解析手法の拡張（令和4年度）

(i)　解析モデル

二次元解析の解析モデルは、緩衝材、岩盤、ケイ砂層からなる領域を解析対象として令和 3 年度の検討を参照して解析条件を設定して実施した。ケイ砂層の寸法は、高さ 500 mm、半径 290 mm とし、岩盤の寸法は高さ 1,000 mm、厚さ 1,000 mm とした。隙間充填後の吸水過程では、緩衝材上縁からの排水を許容するため、緩衝材ないし岩盤内に上向きの地下水流れが発生し、半径方向だけでなく鉛直方向にも乾燥密度や飽和度の不均一分布が形成し得る。岩盤およびケイ砂層の材料パラメータを表 2.6-38 および表 2.6-39 に示す。

表2.6-38　岩盤の材料パラメータ

名称	記号	単位	元の数値（令和3年度採用）
ヤング率	E	MPa	3.50×10^{3}
有効ポアソン比	ν'	―	0.30
透水係数	k	m/day	3.0×10^{-6}

表2.6-39　ケイ砂の材料パラメータ

名称	記号	単位	数値
ヤング率	E	MPa	5.00×10^2
有効ポアソン比	ν'	－	0.45
透水係数	k	m/day	8.64

図 2.6-99 に二次元解析モデルの概要を示す。軸対称条件の下で、緩衝材の内側面および岩盤の外側面については、上下端以外、鉛直方向の変位を許容する。また、緩衝材と岩盤の上面および底面に沿う変位は、緩衝材の左端および岩盤の右端を除き、半径方向の変位を許容する。緩衝材、岩盤、ケイ砂層は、9 節点アイソパラメトリック四角形要素を用い、緩衝材を 600 要素（半径方向 30 要素で等分割、鉛直方向 20 要素で等分割）、岩盤を 250 要素（半径方向 10 方向で等分割、鉛直方向 25 要素で等分割）、ケイ砂層を 150 要素（半径方向 30 要素、鉛直方向 5 要素で等分割）で要素分割している。緩衝材と岩盤の間にはジョイント要素を設け、その初期厚さは隙間相当の 20 mm とした。緩衝材の初期乾燥密度は、原位置試験の条件と同じ 1.92 Mg/m^3 である。20 mm の隙間を充填すると、緩衝材全体としての平均乾燥密度は 1.60 Mg/m^3 になる。初期含水比は 11.15 %であり、これに対応する初期飽和度は 72 %、水分特性を介して初期サクションは 1.8 MPa と定まる。

岩盤およびケイ砂の初期水頭分布には、図 2.6-99 に示す解析モデルから緩衝材部分を除いた岩盤とケイ砂のみからなる解析モデルを用いて解析を実施し、得られた値を初期条件として引き継いだ。しかし、上記のように得られた初期水頭分布とすると緩衝材とケイ砂との間に水頭の大きなギャップが生じるため、緩衝材の底面と外側面の水頭を 1 日の時間をかけて上昇するように設定した。以上の条件の解析ケース名を“ケース 0”とする。

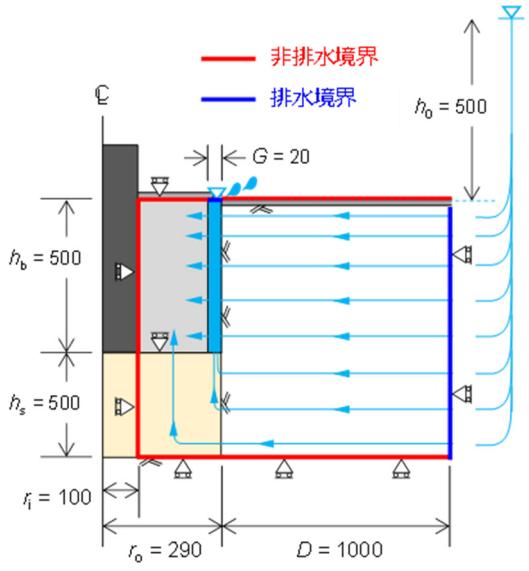


図2.6-99　二次元解析モデルの概要

(ii) 解析結果

図 2.6-100 は、ケース 0 における地下水浸透開始から 100 日後までの飽和度分布の変遷である。緩衝材の底面および外側面から地下水が浸透し、緩衝材の中心・上面に向かって飽和化が進んで

いる。緩衝材全域は、吸水開始から 20 日経過後に飽和状態に至っている。本解析は、完全排気条件、すなわち、緩衝材内部の間隙空気圧が常に大気圧と等しいという条件になっているため、地下水の浸透を妨げる残留空気は存在しない。仮に、間隙空気圧の移動もダルシー則に従うとすれば、飽和化がより緩慢に進行することが予想される。

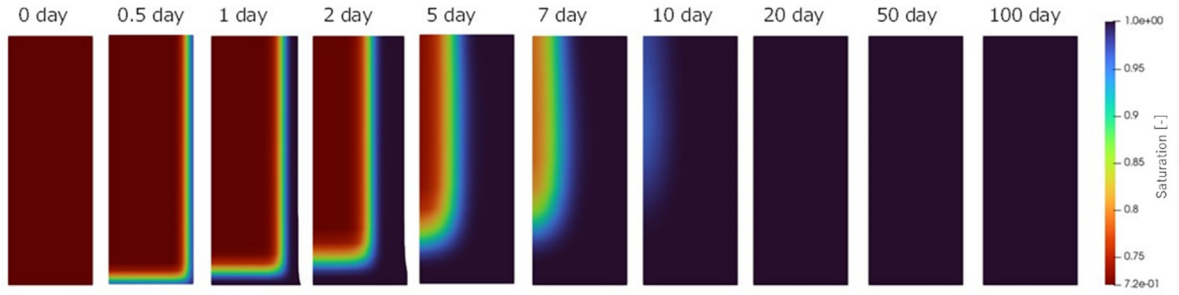


図2.6-100　二次元解析結果：飽和度分布の変遷（ケース0）

図 2.6-101 は、ケース 0 の地下水浸透開始から 100 日経過後までの乾燥密度分布の変遷である。緩衝材側部の隙間が充填されるまでは、外側面からの吸水に伴って外側部が膨潤し、乾燥密度が低下することが確認できる。緩衝材底面からも吸水があるため、底面近傍でもわずかながら乾燥密度の低下が確認できるが、緩衝材の高さは不変とする境界条件を設定しているため、外側部ほどの乾燥密度の低下は発生していない。外側部の底面近傍では、外側面と底面からの吸水があるため膨潤が促される。結果として、緩衝材側部の隙間は下から徐々に充填されていくことになる。吸水開始から 5 日後には全ての隙間が充填している。隙間が充填して緩衝材の外側面が岩盤に接触した後は、更なる地下水の浸透に伴って緩衝材の内部に乾燥密度の低下が生じている。既に緩衝材の体積は拘束されているため、内部が膨潤すると同時に外側部には再圧密が生じ、乾燥密度が回復している。つまり、隙間閉塞時に顕著であった内部と外部の乾燥密度の差が解消され、均一化が進行することになる。しかしながら、この均一化は、全体の乾燥密度が均一になるまで続くわけではなく、吸水開始から 50 日後には概ね定常状態に至っている。すなわち、緩衝材の内部と外部には不均一が残存しており、内部で乾燥密度が高く、外部で乾燥密度が低い分布が形成されている。

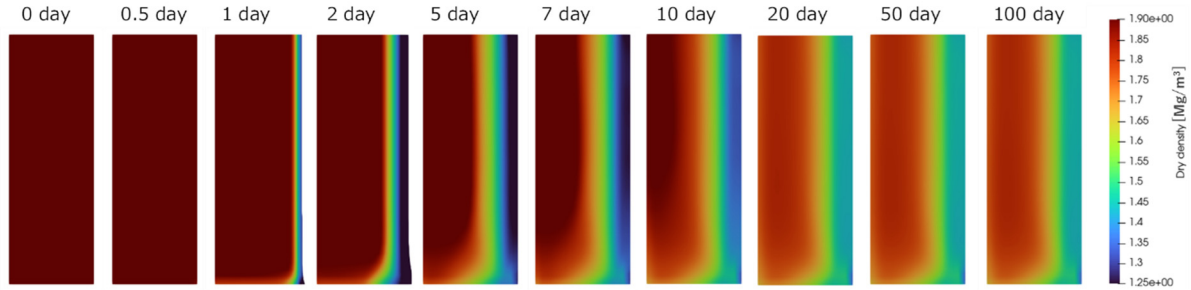
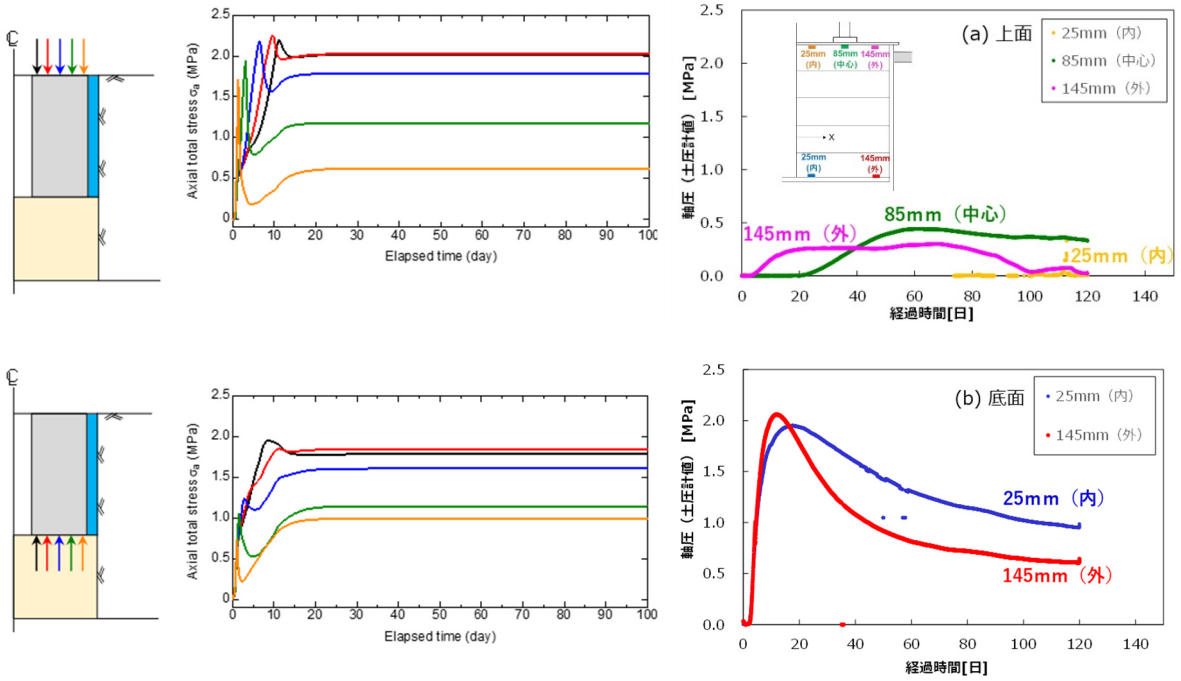


図2.6-101　二次元解析結果：乾燥密度分布の変遷（ケース0）

原位置試験で土圧計が設置されている位置における軸圧や側圧の変化に注目する。図 2.6-102 にケース 0 の緩衝材上面と底面の土圧計測位置における軸圧の経時変化を解析結果と試験結果を併せて示す。

解析結果については、緩衝材の外側面からの地下水の浸透に伴って、外側に近い部分から軸圧が上昇し、内側がそれに追従する。軸圧の最大値はどの位置でも約 1.9 MPa であり、最大値を迎えた後は、どの位置も平衡値まで軸圧は低下する。平衡値は緩衝材の内外で異なっており、内側ほど高い平衡値（内側から 25 mm の位置で約 1.5 MPa）、外側ほど低い平衡値（外側から 25 mm の位置で約 0.4 MPa）となっている。また、上面と底面の同じ半径位置での軸圧は、やや差があるものの大きな違いは見られない。

試験結果については、解析結果と同様に外側から軸圧が上昇し、内側がそれに追従する傾向が見られる。上面の軸圧は、最大値が 0.5 MPa 程度であり、解析結果に比べて低く明瞭なピークは示さない。一方で、底面については、内および外側のいずれも、約 2.0 MPa 程度の最大値を示した後に平衡値に向かう傾向が見られる。このように試験結果において上面と底面との間に差異が見られる。この点については令和 3 年度の解析でも同様な傾向を確認し、緩衝材と孔壁における側面摩擦の影響を考慮する必要性を課題として抽出している。



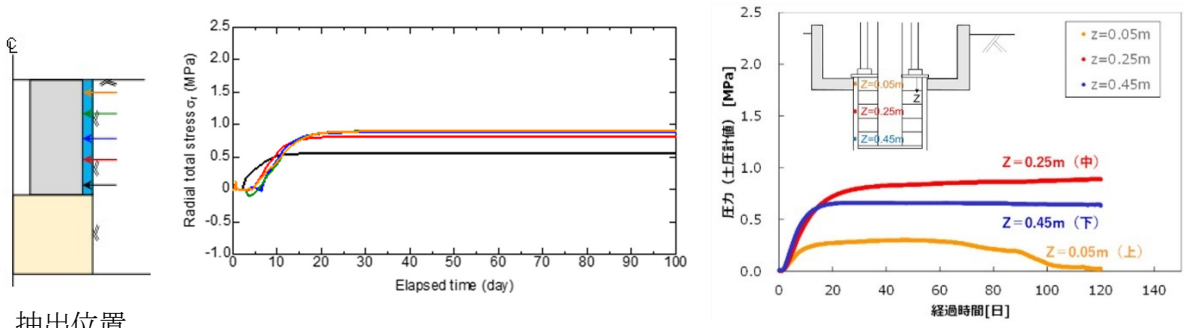
抽出位置　　解析結果　　試験結果

図 2.6-102　上面および底面の軸圧変化（ケース 0）

図 2.6-103 に緩衝材外側面の側圧の経時変化を解析結果と試験結果を併せて示す。

解析結果については、隙間が閉塞する 9 日後あたりから側圧が上昇し始め、どの位置でも概ね単調増加した後に平衡値に至っている。平衡値は、底部に最も近い位置を除いて、概ね同じ値を示している。

試験結果については、解析結果と同様に隙間が閉塞するタイミングで側圧が上昇し始め、どの位置でも概ね単調増加した後に平衡値に至っている。解析結果では、位置による側圧の差異はほとんど見られなかったが、試験結果では、中央部が最も高く、次いで下部、上部の順となっている。これは、水平方向の摩擦の影響で、上面および底面において外側面にむかう膨潤が拘束されたためと推察される。以上により、解析において水平方向の摩擦を考慮する必要性が示唆された。



抽出位置　　解析結果　　試験結果

図 2.6-103　二次元解析結果：外側面の側圧変化（ケース 0）

(d) 摩擦の影響等を反映した境界条件の検討（令和4年度）

(i)　摩擦の条件設定および解析ケース

摩擦が膨潤挙動へ与える影響を定性的に把握し、境界条件の反映方法を検討した。緩衝材の界面には、図2.6-104のように、ジョイント要素が設けられ、2つの面が接触したら、対面する節点の相対変位増分Δu_sから発生するせん断応力の増分$\Delta\tau$を式(2.6-38)に従って算出する。

$$\Delta\tau = k_s \Delta u_s \tag{2.6-38}$$

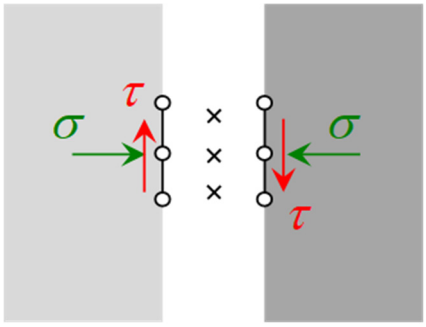
ただし，k_sは摩擦剛性である。また、せん断応力τは、上限値として降伏せん断応力τ_fが式(2.6-39)によって与えられるものとする。

$$\tau_f = c + \sigma tan\phi \tag{2.6-39}$$

ここで，σはジョイント要素が両側面の要素から受ける垂直応力（全応力）、cは粘着力、ϕは摩擦角である。界面に作用するせん断応力は、対面する節点の相対変位に対して、図2.6-105のように発生することになる。

ジョイントの摩擦特性を与えるパラメータは、ベントナイトに挟まれた炭素鋼の引き抜き試験（原子力環境整備促進・資金管理センター, 2015）の結果から決定した。この試験は、ベントナイトペレットあるいは緩衝材によって両面から炭素鋼板を挟み、所定の圧力条件で試験体をプレスした状態で炭素鋼板を引き抜くことにより、引抜き量と引抜荷重の関係を得るものである。炭素鋼板と緩衝材あるいはペレットの接触面積によって引抜荷重を除すことによって、接触面に作用する平均的なせん断応力を知ることができる。

引き抜き試験から評価される摩擦剛性と降伏せん断応力を図2.6-106にそれぞれ示す。試験体を挟む側圧が大きくなると摩擦剛性が高くなる傾向がある。側圧が小さい場合は、特に炭素鋼板に接するベントナイトがブロックであれば、摩擦剛性はほぼ一定である。この結果を受けて、本解析で用いる摩擦剛性k_sを0.25 MPa/mmとした。また、降伏せん断応力は式(2.6-39)に従うものとして図2.6-106のような破線を引き、粘着力cを25 kPa、摩擦角ϕを17 °と決定した。



※せん断応力はジョイント要素内の3点の積分点で評価

図2.6-104　ジョイント要素の概念図

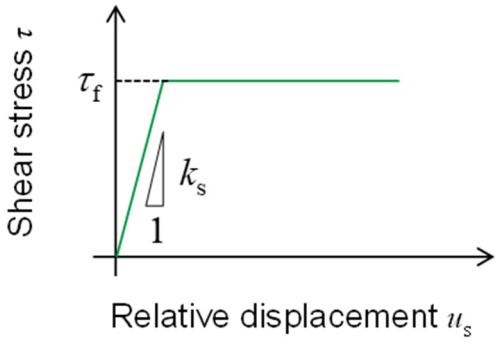
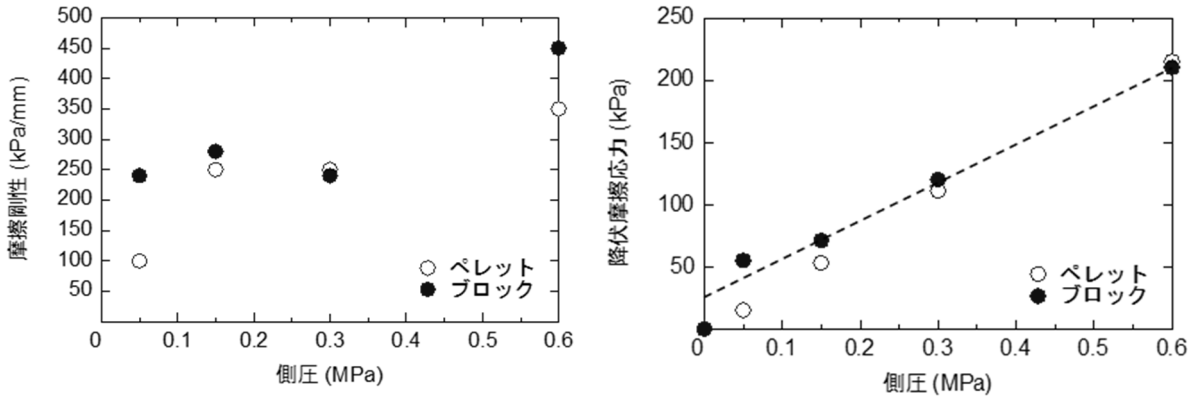


図2.6-105　ジョイント要素のせん断応力と相対変位の関係



側圧に対する摩擦剛性　　側圧に対する降伏摩擦応力

図2.6-106　引抜試験から評価される摩擦剛性およびせん断応力

本検討では、実規模1/4スケールの解析モデルにおける緩衝材の界面への摩擦の考慮のパターンが異なる3つのケースを設けた。各ケースの概要を図2.6-107に示す。ケース1では上下面、ケース2では内外側面にのみ摩擦を考慮し、ケース3では全界面について摩擦を考慮するものとした。なお、本解析では全ての界面に上述の摩擦係数を一律に設定した。

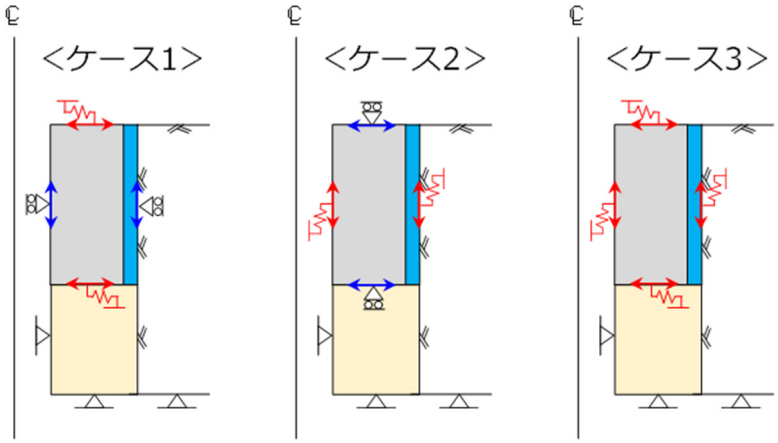


図2.6-107　摩擦を考慮した境界条件

(ii) 解析結果

緩衝材の飽和度分布および乾燥密度分布の変遷を図2.6-108および図2.6-109に示す。緩衝材の飽和度分布については、ケース1から3のいずれのケースもケース0と同様の挙動を示している。すなわち、緩衝材界面の摩擦の影響を受けないことが分かる。

緩衝材の乾燥密度分布については、全界面に摩擦が考慮されていないケース0と内外側面にのみ摩擦を考慮したケース2の分布の変遷を比較すると、ほとんど差異が見られない。これは、緩衝材の上面と底面で鉛直方向の変位が拘束されており、緩衝材内にほとんど鉛直変位が生じないため、摩擦の有無にかかわらず、同じような状態変化になったと考えられる。このように緩衝材に鉛直方向の変位が無いために摩擦が発現せず、緩衝材が内外側面から何ら影響を受けないことは、ケース1とケース3の乾燥密度分布の変遷に違いが見られないことからも把握できる。一方、ケース0とケース1、あるいは、ケース2とケース3の乾燥密度分布の変遷を比較すると明らかなように、緩衝材の上下面の摩擦は、緩衝材に半径方向の変位があるために、乾燥密度分布の変遷に影響を及ぼす。この影響は、緩衝材が膨潤して隙間を閉塞してから顕著に現れるが、界面に沿う変位が大きくなるほど摩擦抵抗として発生するせん断応力が大きくなる摩擦モデルの性質に因るところが大きい(ただし、せん断応力には上限となる降伏応力があり、降伏応力も垂直応力に依存する)。摩擦の影響が顕在化するのは、隙間が充填された後、緩衝材の外側部が再圧密される過程である。ケース1あるいはケース3の乾燥密度分布の変化をみると、この過程において、緩衝材の上下の端に乾燥密度が低下したままで再圧密が進行していない領域が見受けられる。この端部では上面と底面に再圧密を阻害するせん断応力が作用しているため、緩みが残存する。

図2.6-109に示すケース0から3までの100 day後の乾燥密度分布と原位置実規模1/4スケール試験終了後に取得した乾燥密度分布の結果を図2.6-110に示す。摩擦の影響を考慮した解析と原位置試験の乾燥密度分布を比較すると、原位置試験では、外側面側で1.3 - 1.7 Mg/m^{3}程度の値を示した。解析では、各ケースともに外側面側の乾燥密度が1.4 Mg/m^{3}程度で平衡に至り、傾向を概ね再現することができた。

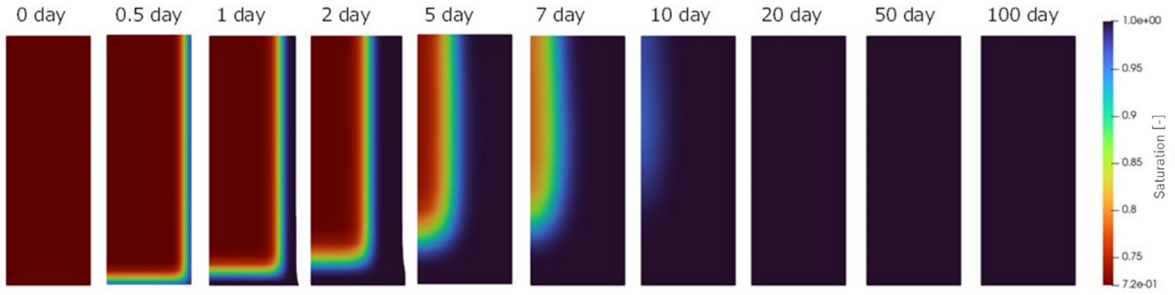
各ケースの緩衝材の上面および底面の軸圧の変化をそれぞれ、図2.6-111および図2.6-112に示す。軸圧を示す位置は図示するとおりであり、半径方向に5箇所を抽出している。上面の軸圧は、吸水面となる外側面に近い側から順に上昇し、ピークに至った後に減少に転じて、もう一度いくらかの上昇を経て平衡値に至る傾向を示している。ただし、ピーク値と平衡値は位置によって異なっており、どちらも中心治具に近いほど、大きい結果となっている。底面の軸圧も、ピーク値

と平衡値が中心治具に近いほど大きいという点では上面と同じ傾向を示す。ただし、治具からの距離が同じであっても、上面と底面の軸圧は異なっており、平衡値に着目すると、内側面に近い位置では上面の軸圧の方が大きく、外側面に近い位置では底面の軸圧の方が大きくなっている。底面からの吸水があることにより、底面の軸圧は上面の軸圧に比べると、より高低差がない分布となっている。

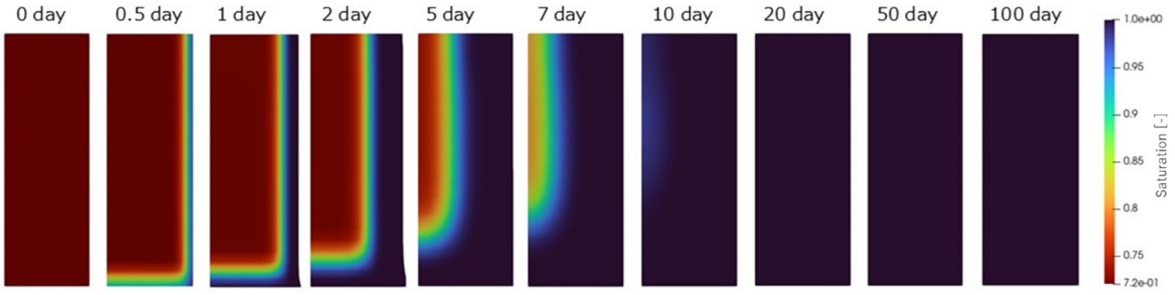
軸圧に関して、摩擦を考慮していない(c)のケース0と摩擦を考慮したケース1から3との比較をする。鉛直方向の摩擦のみを考慮したケース2は、ケース0とほぼ同じ挙動を示し、鉛直方向の摩擦は軸圧にはほとんど寄与しないことが分かる。水平方向の摩擦を考慮したケース1および3については、内側面側と外側面側との間で見られる軸圧の差が基本ケースに比べて小さくなっている。また、ピーク値についても基本ケースでは2.0 MPa以上あるのに対して、ケース1と3は2.0 MPa程度まで低下している。

各ケースの緩衝材の外側面および内側面における側圧の変化をそれぞれ、図2.6-113および図2.6-114に示す。側圧は、鉛直方向に設定された5箇所から抽出している。外側面においては、底面に近い位置がより早期に膨潤して孔壁に接触するため、先行して側圧が発生し始めている。内側面では、緩衝材の側方膨潤に伴って、側圧が一旦、負になった後、単調増加に転じて平衡値に至っている。

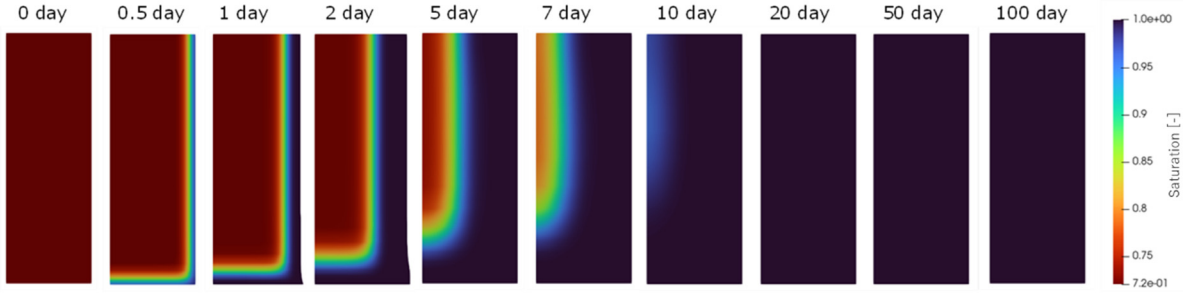
側圧に関して、摩擦を考慮していないケース0と摩擦を考慮したケース1から3との比較をする。ケース0の外側面における側圧では、底面に最も近い位置の側圧が最も低く、その他の位置では概ね同じ値を示しており、その差はおよそ0.4 MPaである。鉛直方向のみ摩擦を考慮したケース2では、いずれの位置でもほぼ同じ側圧値となっているが、ケース0と異なり、底面に最も近い位置の側圧が最大となっている。水平方向のみ摩擦を考慮したケース1では、ケース0と同様に底面に最も近い位置の側圧が最も低い値となっている。その他の位置ではやや側圧に差異が見られ、中央部に近いほど側圧が大きい値を示している。水平および鉛直方向の摩擦を考慮したケース3については、ケース1と同様に中央部に近いほど側圧が大きくなる傾向を示すが、ケース1と異なり最上部の側圧が最も低い値を示す。このケース3で見られる傾向（中央部に近いほど側圧が大きく、最上部の側圧が最小となる）は、原位置試験と同様の傾向であり、最も整合している。したがって、水平および鉛直方向の摩擦を境界条件として設定する必要性が示された。以上のように、緩衝材との境界に摩擦を考慮することで、原位置試験で見られる側圧の傾向を再現可能となったが、位置による側圧の差異は充分に再現できていない。本解析では、前記(i)で述べたように、緩衝材で挟まれた炭素鋼の引抜試験から得られたデータに基づき摩擦係数を計算し、緩衝材と接する境界に一律に設定している。原位置試験で見られるような位置による側圧の差異を再現するためには、より現実的な条件による試験で得られたデータを基に摩擦係数を設定する必要があると考えられる。また、原位置試験で見られる上面と底面の間で見られる軸圧のピーク値の差異についても、摩擦を考慮した解析では再現できなかった。この上面と底面の間の軸圧の差異は摩擦応力を考慮するだけでは再現することは難しく、自重効果など、他の要因について検討する必要がある。



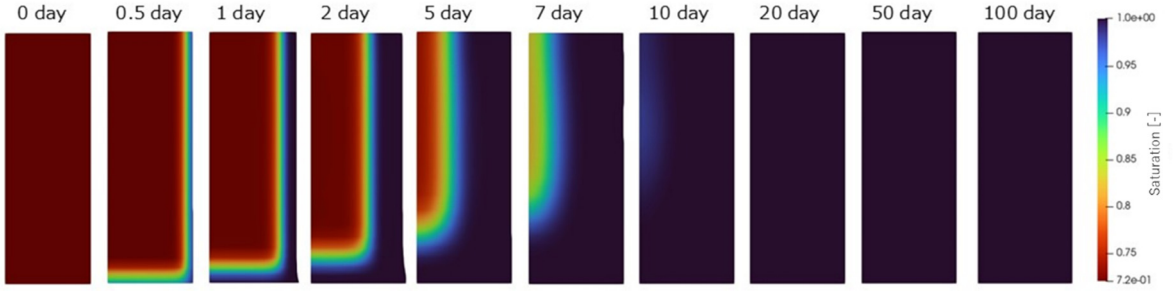
ケース0



ケース1

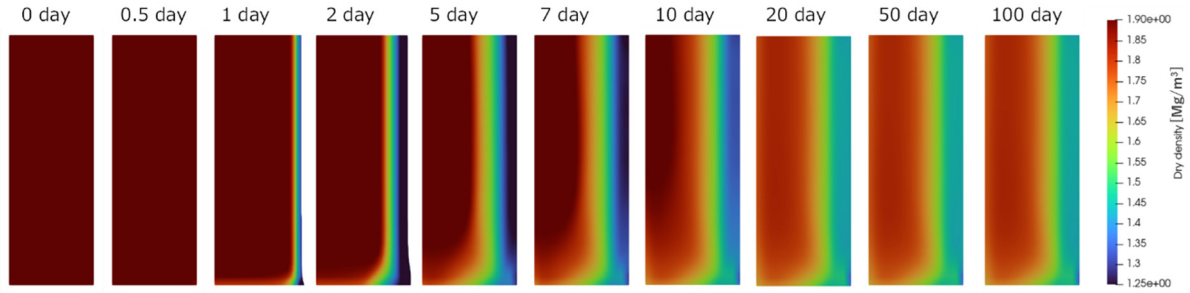


ケース2

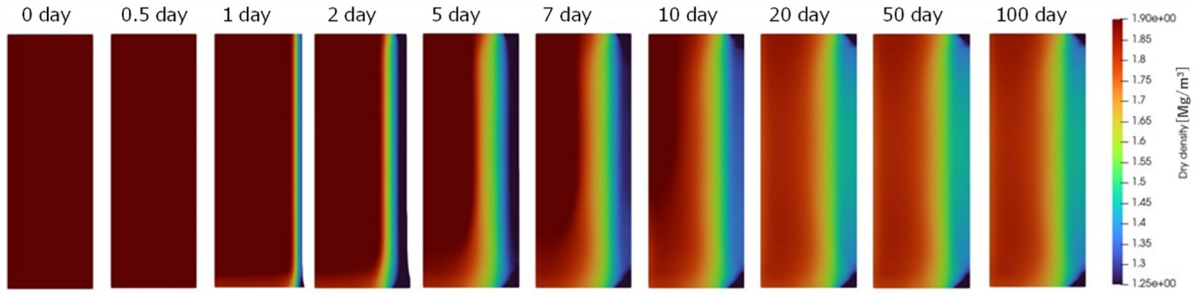


ケース3

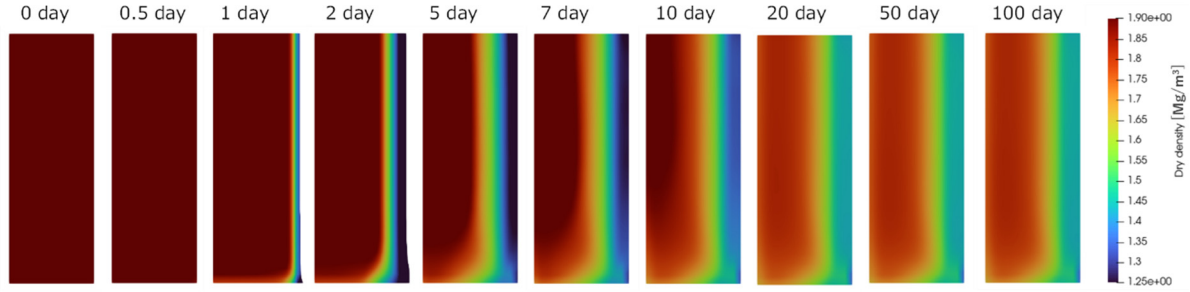
図2.6-108　飽和度分布の変遷



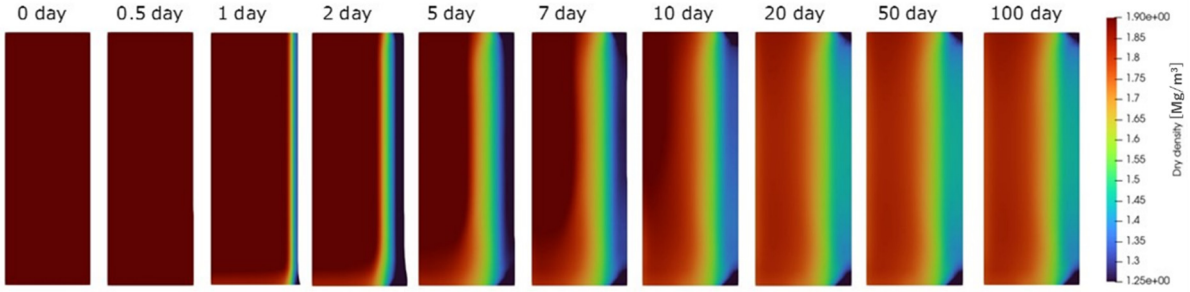
ケース0



ケース1

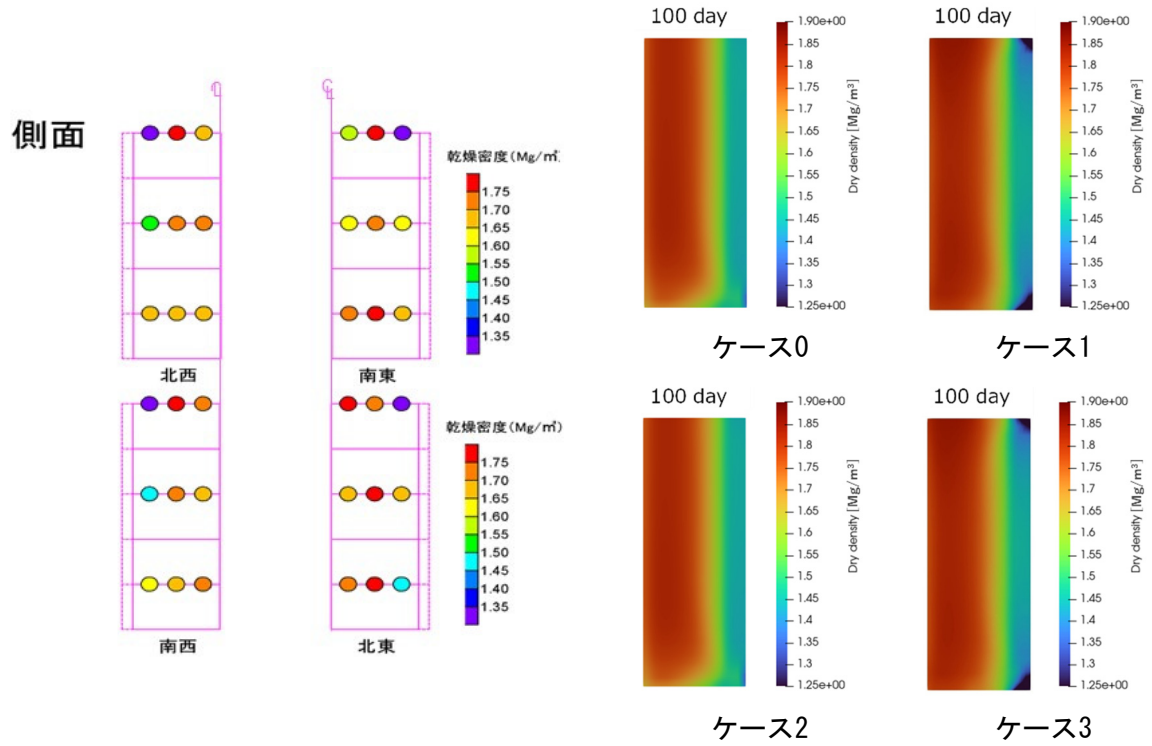


ケース2



ケース3

図2.6-109　乾燥密度分布の変遷



(a)原位置試験結果　　(b)解析結果

図2.6-110　各ケースの緩衝材の乾燥密度分布と原位置試験結果との比較

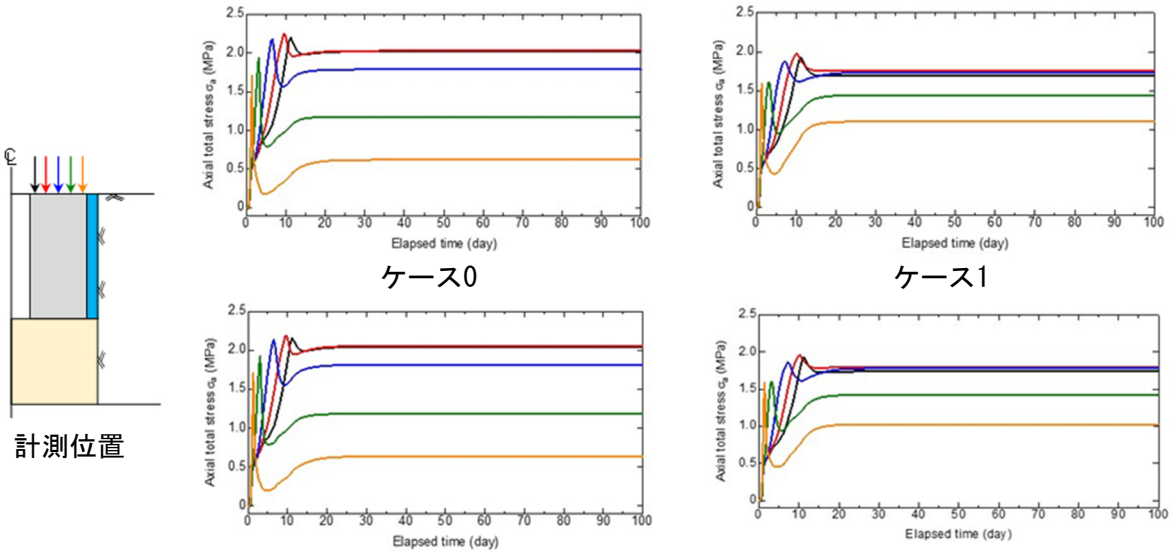
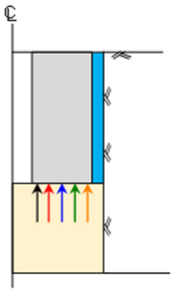
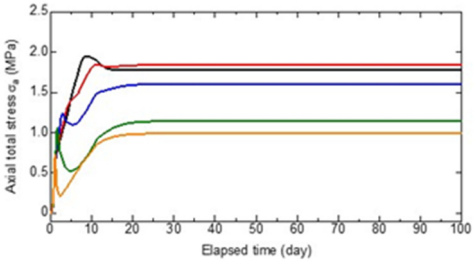


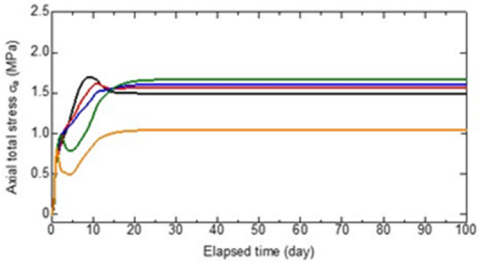
図 2.6-111　各ケースの緩衝材上面における軸圧の経時変化



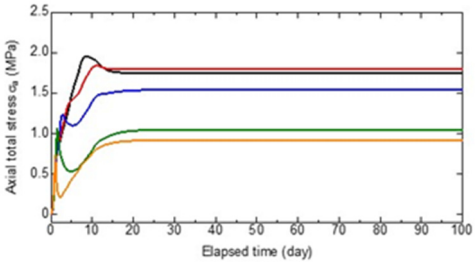
計測位置



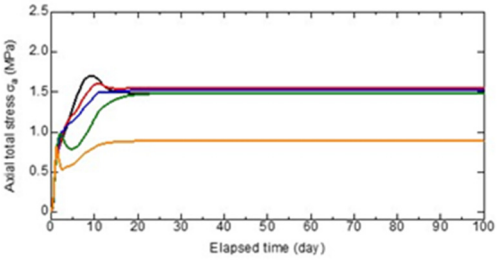
ケース0



ケース1

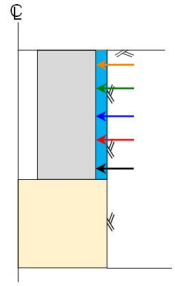


ケース2

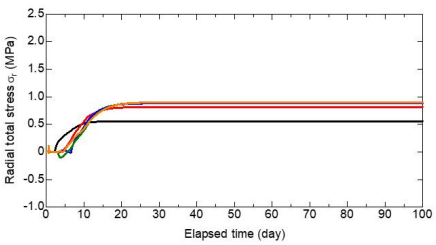


ケース3

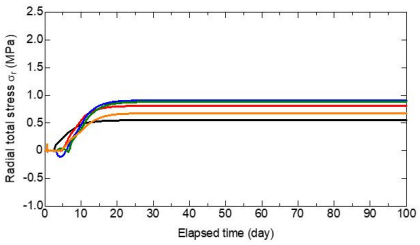
図2.6-112　各ケースの緩衝材底面にける軸圧の経時変化



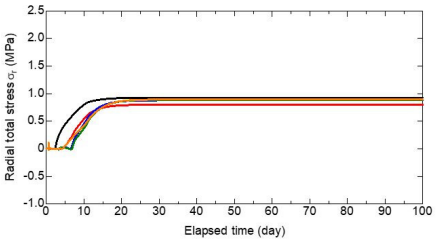
計測位置



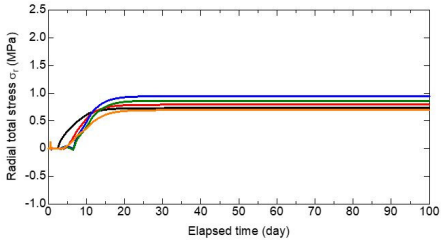
ケース0



ケース1



ケース2



ケース3

図2.6-113　各ケースの緩衝材外側面における側圧の経時変化

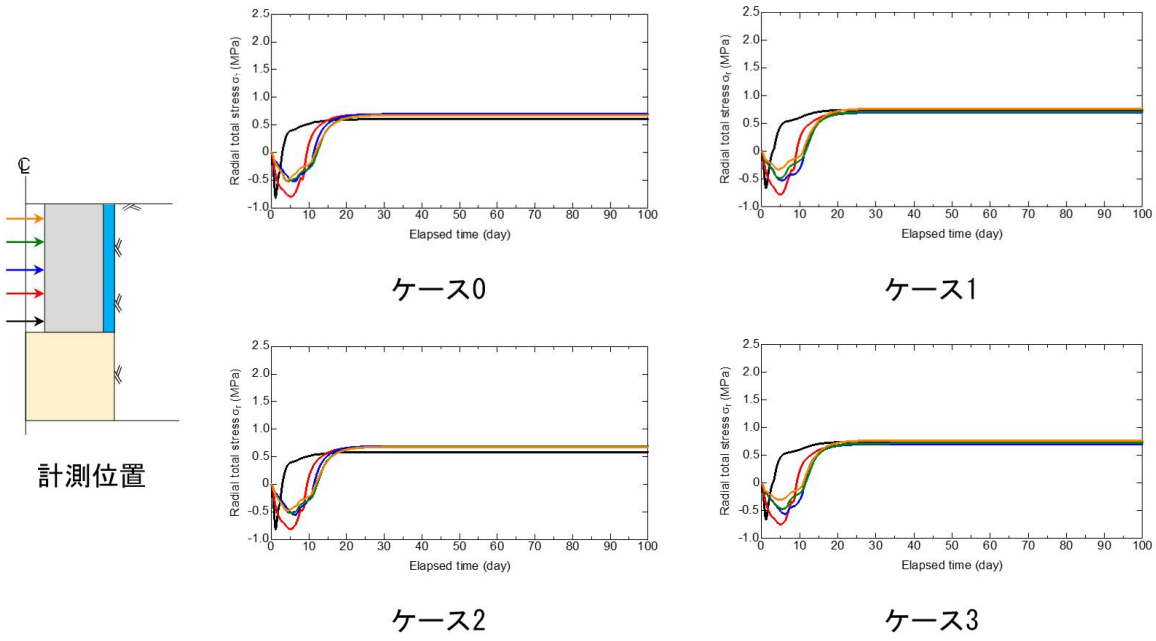


図2.6-114　各ケースの緩衝材内側面における側圧の経時変化

(e) 緩衝材内側面の拘束条件の検討（令和4年度）

緩衝材の内側面からの離合を許容する境界条件を検討した。(d)の緩衝材と内側面が拘束された境界条件では、隙間充填期間における緩衝材の側圧が負の値を示す。これは、外側面側の緩衝材の膨潤に追従するように内側面側でも外側に向かって膨潤しようとするが、治具による拘束のために内側への引張が生じ、負圧が発生するものと推察された。これは、令和3年度における一次元解析結果でも確認し、課題として抽出している。ここでは、ケース4として、図2.6-115に示すように緩衝材と内側面の間にジョイント要素を設けて、治具からの離合を許容する境界条件を設定して解析を実施した。緩衝材の内側面および外側面からの変位を図2.6-116に示す。また、内側面および外側面における膨潤圧の経時変化を図2.6-117に示す。

緩衝材の内側面からの変位（図2.6-116）については、半径方向外向きに最大0.5 mmとなっている。外側の膨潤に追従して内側も変位し、内側面側に隙間が生じていると考えられる。この隙間は、緩衝材下端からの吸水に伴う膨潤により、緩衝材底部から徐々に埋められていき、飽和が完了する頃には内側面に生じた隙間は完全に閉塞されている。緩衝材の外側面からの変位（図2.6-116）については、吸水開始後から側面の下側から外向きの変位が発生し、緩衝材の外径が拡大していることが分かる。特に底面の近傍で外向きの変位が顕著であり、中央部から上部にかけてはほぼ均一に外径が拡大している。吸水開始から2日ほどで底面近傍が岩盤に接し、4日後には外側面全域が岩盤に接して隙間が閉塞されることが分かる。外側面と岩盤が接触しつつある状態においては、側面の幾何形状が鋸歯状になる領域が見受けられ、接触判定あるいは接触過程にある有限要素の変位の内挿方法に改善の余地がある。しかし、更に時間が経過すると全面が岩盤にフラットに接触することから、計算が破綻する程の致命的なエラーではないことが窺える。

側圧の経時変化を(c)の基本ケース0とともに図2.6-117示す。平衡状態の側圧の大きさについては、ケース0とケース4の間でほとんど差異は見られなかった。上記のように緩衝材の内径の拡大縮小という履歴がありながら、平衡状態において内側面に発生する側圧の大きさは、その影響をほとんど受けないということが明らかとなった。また、先述のとおりケース0では、内側面側と外側面側のいずれにおいても隙間充填の期間に負圧が発生しており、特に内側面側の側圧でその傾

向が顕著である。一方で、内側面からの離合を許容したケース4については、隙間充填期間の負圧は解消されており、0 Paで横ばいとなっている。以上を踏まえると、内側面側の治具からの離合を許容する境界条件が妥当な設定と言える。

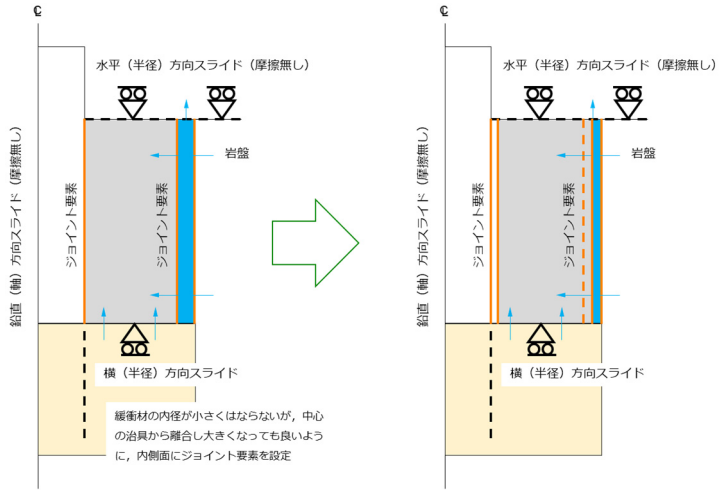
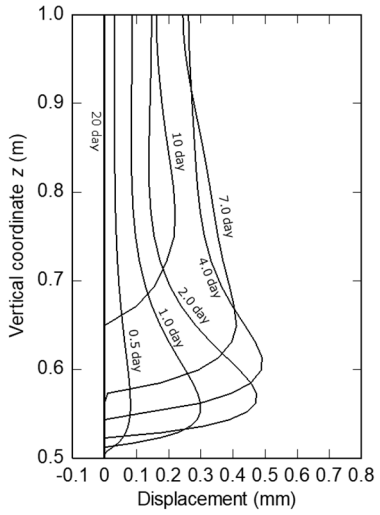
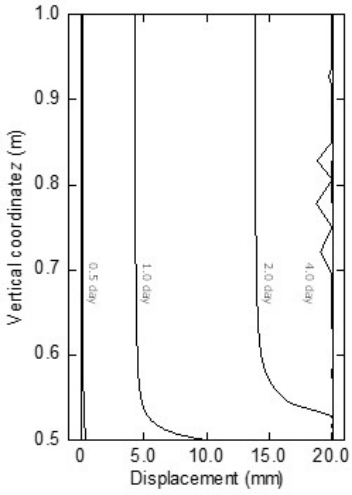


図2.6-115　内側面の拘束条件



緩衝材の内側面からの変位（ケース4）



緩衝材の外側面からの変位（ケース4）

図 2.6-116　内側面および外側面における緩衝材の変位

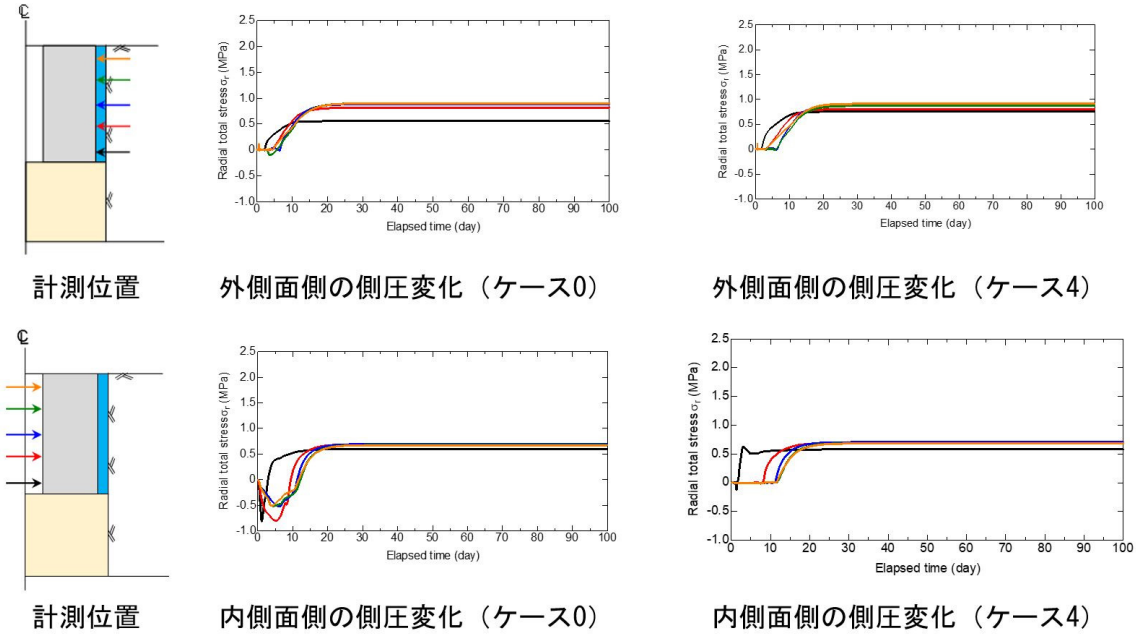


図2.6-117　内側面および外側面における側圧の経時変化

2.6.3 5か年の成果と今後の課題

(1) 流出を抑制する工学的対策の具体化

竪置き・ブロック方式を対象とした「緩衝材の流出挙動」については、緩衝材ブロックと孔壁との隙間の処理に関する現時点で考え得る緩衝材の施工技術オプションを念頭に置き（ケイ砂充填、隙間未充填、ペレット充填等）、各オプションに関する緩衝材の流出特性を処分孔の環境条件との関係から整理することで、将来の処分場の環境条件に応じて柔軟かつ迅速に施工技術オプションの選択を可能とするため、評価手法の枠組みなどの基盤情報を整備することを目的に検討を進めた。本フェーズに得られた成果と今後の課題について以下に要約する。

○ 将来の実事業において適用する技術オプションの選択（最適化）の際に考慮すべき事項（評価項目）について、主に“工学的な観点”から包括的な整理を行い、先行検討対象とした3つの隙間処理オプション（ケイ砂充填、隙間未充填、ペレット充填）の特性に関する定性的な整理を行い取りまとめた。これらは現時点におけるエキスパート・ジャッジに基づく定性的な評価であるが、将来の技術選択を支援する客観的な定量情報として整備（開発）を進めていく必要がある。

○ 緩衝材流出特性の評価手法（方法論）の開発については、設定した研究方針に沿って、将来の実事業への活用を念頭に、処分孔環境に応じて適切なオプションを選択における判断指標として、操業時に取得可能なパラメータ（処分孔内外水頭差、処分孔内湧水量）を評価項目として設定するとともに判断指標の設定に関する考え方を整理した。併せて、判断指標に沿って評価を行う際に必要となる緩衝材の流出量の評価手法の開発手順を方法論として構築した。

○ 更に、上述の方法論の適用性の確認のために、幌延URLの深度350 m試験坑道5の試験孔（試験孔2）を用いた原位置実規模1/4スケール試験への適用性（拡張性）について検討を進め、その見通しが得られた。

○ 特に、2つのオプション（ケイ砂充填、隙間未充填）に対する具体的なベースモデルの整備と原位置への拡張をとおして、整備した緩衝材の流出量評価モデルが過度に安全側となる

NUMO-SCに示される評価方法よりも適切に評価できる見通しを得るとともに、緩衝材流出特性だけではなく上述した技術オプションの選択（最適化）における幾つかの評価項目について、現時点におけるメリットやデメリットを定量的な情報とともに示すことができた。

○ 一方、上述の適用性の確認をとおして、緩衝材の流出量評価に影響を及ぼす予期せぬ挙動（例えば“微細粒分”の挙動など）、試験装置に関する改善点、試験点数の拡充など、手法や方法論としての更なる高度化に向けた課題も具体化した。

(2) 緩衝材の飽和プロセスを対象とした解析的な評価方法の検討

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

○ 小型試験体スケールで生起する不飽和から飽和に至る緩衝材の膨潤挙動と乾燥密度分布の変遷を定量的に評価することが可能となった。

○ 更に、実規模1/4スケールに拡張した解析手法の検討では、原位置試験の水理や拘束条件の設定について検討し、緩衝材の界面における摩擦の影響、ならびに、緩衝材の内側面からの離合を考慮した解析手法により、原位置試験で見られた膨潤挙動および乾燥密度分布の傾向を概ね再現することができた。

○ 今後、上記の検討をとおして把握された下記に示す課題を含めて段階的なモデルの高度化開発に取り組み、過渡期の緩衝材の状態変遷の確からしい評価や閉鎖後長期の性能評価における初期条件に関する情報提供に繋げていくことが可能となると考えられる。

○ 実規模1/4スケールにおける解析では、摩擦が膨潤挙動に与える影響を把握するために、解析モデルに摩擦の影響を取り入れた。ここでの摩擦に関するパラメータは、膨潤した緩衝材に挟まれた炭素鋼の引抜試験結果（原子力環境整備促進・資金管理センター, 2015）を基に設定した。しかし、実際の膨潤途中の緩衝材境界面では、膨潤による乾燥密度の変化に伴い摩擦係数が変動すると推測される。そのため、緩衝材境界面における摩擦が膨潤変形挙動に及ぼす影響をより確からしく評価するためには、膨潤過程における緩衝材境界面の摩擦に関する実験データを取得し、摩擦係数として反映する必要がある。このとき、現行のモデルでは考慮されていない自重の効果を初期条件として設定することで、摩擦の有無による膨潤変形への影響をより確からしく評価できると考えられる。

○ 原位置試験では緩衝材ブロック内部に残留する封入空気が浸潤を妨げていた可能性がある。現行の解析モデルは、完全排気条件であり、間隙空気圧は大気圧平衡として扱っている。気相圧を考慮することで、より現実的な膨潤挙動の評価につながると考えられる。

○ 実規模スケールの実際の処分環境では、緩衝材の隙間充填挙動だけでなく、膨出現象などが乾燥密度に与える影響が大きくなると考えられる。膨出現象を表現できるように、現行の微小変形理論に基づく解析コードの膨出挙動を表現するモデルへの適用性について確認する必要がある。

参考文献

Amano, Y., Sasao, E., Niizato, T. and Iwatsuki, T., Redox buffer capacity in water-rock-microbe interaction systems in subsurface environment, Geomicrobiology Journal, Vol. 29, pp. 628-639, 2012.

Aoki, K., Sugita, Y., Chijimatsu, M., Tazaki, K. Impacts of thermo-hydro-mechanical experiments on the microbial activity in compacted bentonite at the Kamaishi Mine, Northeast Japan. Applied Clay Science, 47, pp.147-154, 2010.

Arthur, R. C, Sasamoto, H., Shibata, M., Yui, M. and Neyama, A, Development of Thermodynamic Databases for Geochemical Calculations, JNC-TN8400 99-079, 1999.

Augustsson, C. and Reker, A., Cathodolumenescence spectra of quartz as provenance indicators revisited. Journal of Sedimentary Research, 82(8), 559-570, 2012.

Bateman, K., Coombs, P., Noy, D. J., Pearce, J. M. and Wetton, P. D., Numerical modelling and column experiments to simulate the alkaline disturbed zone around a cementitious radioactive waste repository, Sci. Basis Nucl.Waste Manage., Materials esearch Society, 506, pp.605-611, 1998.

Bateman, K., Coombs, P., Noy, D. J., Pearce, J. M., Wetton P., Haworth, and Linklater A. C., Experimental simulation of the alkaline disturbed zone around a cementitious radioactive waste repository: numerical modelling and column experiments, Geological Society of London, 157, pp.183-194, 1999.

Bellot-Gurlet, L., Neff, D., Reguer, S., Monnier, J., Saheb, M. and Dillmann P., Raman studies of corrosion layers formed on archaeological irons in various media. J. Nano Res., vol. 8, pp.147-156, 2009.

Benbow, S. J., Kawama, D., Takase, H., Shimizu, H., Oda, C., Hirano, F., Takayama, Y., Mihara, M. and Honda, A., A Coupled Modelling Simulator for Near-Field Processes in Cement Engineered Barrier Systems for Radioactive Waste Disposal, Crystals, vol. 10, No.767, 2020.

Bethke, C. M., Geochemical and biogeochemical reaction modeling. Cambridge University Press, New York, NY, 2008.

Boggs Jr, S., Kwon, Y. I., Goles, G. G., Rusk, B. G., Krinsley, D., and Seyedolali, A., Is quartz cathodoluminescence color a reliable provenance tool? A quantitative examination. Journal of Sedimentary Research, 72(3), 408-415, 2002.

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

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

Börgesson, L. and Sandén, T., Piping and erosion in buffer and backfill materials Current knowledge, SKB Report R-06-80, 2006.

Brunet, J-P., Li, L., Karpyn, Z.T. and Huerta, N. J., Cement fracture opening or self-sealing: Critical residence time unifies diverging observations under geological carbon sequestration conditions, International Journal of Greenhouse Gas Control, vo. 47, pp.25-37, 2016.

Chida, T., Kurata, D., Niibori, Y., and Mimura, H., Influence of temperature on permeability changes in flow-paths altered by highly alkaline Ca-rich groundwater. Proc. of WM2015 Conference, Paper No. 15192, 2015.

Cui, Yu-Jun., On the hydro-mechanical behavior of MX80 bentonite-based materials. Journal of Rock Mechanics and geotechnical Engineering. 9, 565-574, 2017.

千々松正和, 杉田裕, 雨宮清, 緩衝材の製作・施工技術に関する検討, JNC TN 8400 99-035, 1999.

電気事業連合会, 核燃料サイクル開発機構, TRU廃棄物処分技術検討書, -第2次TRU廃棄物処分研究開発取りまとめ-, JNC TY1400 2005-013, FEPC TRU-TR2-2005-02, 2005.

土木学会, コンクリート標準示方書［構造性能照査編］, 2002.

土木学会, コンクリート標準示方書［ダムコンクリート編］, 2002.

土木学会, コンクリート標準示方書「設計編」（2007年制定）, 2007.

土木学会, 余裕深度処分の安全評価における地下水シナリオに用いる核種移行評価パラメータ設定の考え方, 低レベル放射性廃棄物の余裕深度処分に関する研究小委員会, 2008.

Downs R, T., and Palmer D, C., The pressure behavior of alpha cristobalite P= room pressure. Am Mineral, 79, 9-14, 1994.

Dueck, A., Goudarzi, R., Börgesson, L., Buffer homogenisation, status report, SKB TR-12-02, Svensk Kärnbränslehantering AB, 2011.

戎剛史, 三田地利之, 谷村匡哉, 小松賢司：ベントナイト緩衝材の強度・変形特性, 第38回地盤工学研究発表会 発表講演集, D-06, pp.97-98, 2003.

Else, T.A., Pantle, C.R., Amy, P.S., Boundaries for biofilm formation: Humidity and temperature. Appl. Environ. Microbiol, 69, No.8, pp.5006-5010, 2003.

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

Eng, A., Nilsson, U. and Svensson, D.: Alternative buffer material installation report, IPR-07-15, 2007.

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

原子力環境整備促進･資金管理センター, 平成26年度地層処分技術調査等事業 処分システム工学確証技術開発報告書（第2分冊）-人工バリア品質／健全性評価手法の構築-緩衝材, 2015.

原子力環境整備促進・資金管理センター, 平成28年度 地層処分技術調査等事業 処分システム工学確証技術開発報告書（第2分冊）-人工バリア品質／健全性評価手法の構築-緩衝材, 2017.

原子力環境整備促進･資金管理センター, 平成29年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関 する技術開発事業 処分システム工学確証技術開発（第2分冊）-人工バリア品質／健全性評価手法の構築-緩衝材, 2018a.

原子力環境整備促進・資金管理センター, 平成29年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 処分システム工学確証技術開発 平成25年度～平成29年度の取りまとめ報告書, 2018.

原子力発電環境整備機構, 包括的技術報告：わが国における安全な地層処分の実現-適切なサイトの選定に向けたセーフティケースの構築-, 2021.

Gŏtze, J., Plŏtze, M., & Trautmann, T., Structure and luminescence characteristics of quartz from pegmatites. American Mineralogist, 90(1), 13-21, 2005.
Graetsch, H., and Topalovlć-Dierdorf, I., 29Si MAS NMR spectrum and superstructure of modulated tridymite L3-TO (MX-1). European Journal of Mineralogy, 103-114, 1996.
Guillaume, D., Neaman, A., Cathelineau, M., Mosser-Ruck, R., Peiffert, C., Abdelmoula, M., Dubessy, J., Villiéras, F. and Michau, N., Experimental study of the transformation of smectite at 80 and 300 ºC in the presence of Fe oxides, Clay Minerals, 39, pp.17-34, 2004.
Hadi, J., Wersin, P., Serneels, V. and Greneche, J-M., Eighteen years of steel–bentonite interaction in the FEBEX in situ test at the Grimsel Test Site in Switzerland. Clays and Clay Minerals, vol. 67, pp.111-131, 2019.
林田一貴, 加藤利弘, 久保田満, 村上裕晃, 天野由記, 岩月輝希, 坑道閉鎖試験に基づく坑道掘削・閉鎖時の化学環境変化プロセスの考察, 地球化学, 52(1), pp.55-71, 2018.
平野史生, 大谷芳輝, 京川裕之, 三原守弘, 清水浩之, 本田明, TRU廃棄物処分システムの性能評価の観点からの人工バリアの透水性に対するセメント系材料のひび割れの影響に関する検討, 日本原子力学会和文論文誌, vol. 15, No.2, pp.97-114, 2016.
Iizuka, A. and Ohta, H., A determination procedure of input parameters in elasto-plastic finite element analysis, Soils and Foundations, vol. 27, No.3, pp.71-87, 1987.
今井久, 九石正美, 鈴木英明, 藤田朝雄, 山下亮, 飽和過程における緩衝材の水分特性曲線推定の試み, 土木学会第67回年次学術講演会, CS13-002, 2012.
Inoue, S., and Kogure, T., Electron backscatter diffraction (EBSD) analyses of phyllosilicates in petrographic thin sections. American Mineralogist, 97(4), 755-758, 2012.
伊藤雅和, 岡本真由美, 鈴木啓三, 柴田雅博, 佐々木康雄：ベントナイトの鉱物組成分析, 日本原子力学会誌, 36, 1055-1058, 1994.
伊藤雅和, 石井卓, 中島均, 平田征弥., ベントナイトの成因・生成環境に関する一考察 国内4鉱床の比較, 粘土科学, 38(3), 181-187, 1999.
伊藤大知, 小峯秀雄, 諸留章二, 関口高志, 三浦玄太, ベントナイト原鉱石の膨潤圧特性から観た緩衝材における膠結作用の定量評価の試み, 第52回地盤工学会研究発表会, 2017.
核燃料サイクル開発機構, わが国における高レベル放射性廃棄物 地層処分の技術的信頼性 -地層処分研究開発第2次取りまとめ-分冊2 地層処分の工学技術, JNC TN1400 99-022, 1999a.
核燃料サイクル開発機構, わが国における高レベル放射性廃棄物 地層処分の技術的信頼性 -地層処分研究開発第2次取りまとめ-分冊3 地層処分システムの安全評価, JNC TN1400 99-023, 1999b.
加藤大生, 佐藤光吉, 大和田仁, 三原守弘, 大井貴夫, セメント系材料の浸出液の地質媒体への影響評価－大型カラム試験設備を用いた高 pH プルームの岩盤への影響試験－, JNC TN8430 2000-008, 2000.
河野勝宣, 粘土鉱物の種類に着目した締固めた粘土試料の膨潤圧と透水係数, 材料, Vol. 70, No. 3, pp. 272-278, 2021.
菊池広人, 棚井憲治, 松本一浩, 緩衝材の飽和透水特性-II, 海水性地下水が緩衝材の透水性に及ぼす影響, 核燃料サイクル開発機構報告書, JNC TN8430 2003-002, 2003.
菊池広人, 棚井憲治, 幌延地下水を用いた緩衝材・埋め戻し材の基本特性試験, 核燃料サイクル開発機構報告書, JNC TN8430 2004-005, 2005.
菊本統, 京川裕之, 中井照夫, ホサインシャヒン, 土の温度依存挙動の一次元弾塑性モデル, 第21回中部地盤工学シンポジウム, pp.9-16, 2009.

金津努, 鉄筋とコンクリートの熱膨張係数差に起因する内部応力の評価, 土木学会論文集, No. 585/V-38, pp.113-125, 1998.
木村誠, 九石正美, 藤田朝雄, 中間茂雄, 鈴木英明, 緩衝材中の化学影響評価に向けた熱-水-応力-化学連成解析モデルの開発, JAEA-Research 2010-034, 2010.
木村駿, 中山雅, 木野田君公, 棚井憲治, 丹生屋純夫, 志村友行, 深谷正明, 人工バリア性能確認試験における緩衝材膨出センサーを用いた膨出量評価, 日本原子力学会2019年秋の大会, 3A10, 2019.
木本和志, 河村雄行, 牧野仁史: 粗視化分子動力学法による水和モンモリロナイトの組織構造シミュレーション, Journal of Computer Chemistry, Japan, 19巻, 2号, p.46-49, 2020.
King, F., Microbially influenced corrosion of nuclear waste containers. Corrosion, 65, 223-251, 2009.
King, F., Lilja, C., Pedersen, K., Pitkänen, P., Vähänen M., An update of the State-of-the-art report on the corrosion of copper under expected conditions in a deep geologic repository. POSIVA report, POSIVA 2011-01, 2012.
Kitayama, A. et al., Electrochemical Behavior of Carbon Steel with Bentonite/Sand in Saline Environment, Materials and Corrosion, vol.72, issues 1-2, p.211-217, 2021.
Knoll, A., In space studies board (ed.), Size limit's of very small microorganisms; Proceedings of a workshop. National Academy Press, Washington, D.C., Overview, pp.1-3, 1999.
児玉潤, 足立格一郎, 田邉亮, 鈴木絵理子, 山元茂弘, ベントナイト・珪砂混合試料の高温環境下での膨潤特性, 土木学会論文集 No.764/Ⅲ-67, pp.319-328, 2004.
Krumholz, L.R., McKinley, J.P., Ulrich, G.A., and Suflita, J.M.: Confined subsurface microbial communities in Cretaceous rock. Nature, 386, 64-66, 1997.
Kuhn, E., Ichimura, A.S., Peng, V., Fritsen, C.H., Trubl, G., Doran, P.T., Murray, A.E., Brine assemblages of ultrasmall microbial cells within the ice cover of Lake Vida, Antarctica. Appl. Environ. Microbiol. 80, 3687-3698, 2014.
Kumpulainen, S., Carlsson, T., Muurinen, A., Kiviranta, L., Svensson, D., Sasamoto, H.,Yui, M., Wersin, P., and Rosch, D., Long-term alteration of bentonite in the presence of metallic iron, SKB Report R-10-52, Stockholm, Sweden, 2010.
Kurata, D., Niibori, Y., Chida, T., and Mimura, H., Estimation of permeability change due to contact with highly alkaline Ca-rich solution by using micro flow-cell of granite chip. Proc. of WM2014 Conference, Paper No. 14094, 2014.
Kurata, D., Niibori, Y., and Chida, T., Flow rate dependency of permeability changes with the deposition of CSH under highly alkaline Ca-rich condition. Proc. of WM2017 Conference, Paper No. 17175, 2017.
黒岩弘, 川本康司, 山田信人, 笹尾英嗣, 超深地層研究所計画 瑞浪超深地層研究所 研究坑道におけるボーリングデータ集（12MI27号孔～14MI51号孔）, JAEA-Data/Code 2015-003, 2015.
桑原和道, 佐藤稔紀, 真田祐幸, 高山裕介, 超深地層研究所計画（岩盤力学に関する調査研究）深度500mにおける岩盤力学調査, JAEA-Research 2015-005, 2015.
Levien, L., Prewitt, C. T., and Weidner, D. J., Structure and elastic properties of quartz at pressure. American Mineralogist, 65(9-10), 920-930, 1980.
Marty, N.C.M., Tournassat, C., Burnol, A., Giffaut, E., Gaucher, E., D.: Influence of reaction kinetics and mesh refinement on the numerical modeling of concrete/clay interaction, Journal of hydrology, vol.364, pp.58-72, 2009.

Matamoros-Veloza, A., Barker, R., Vargas, S., Neville, A., Iron Calcium Carbonate Instability: Structural Modification of Siderite Corrosion Films, ACS Appl. Mater. Interfaces, 12, 49237-49244, 2020.
松本一浩, 菅野毅, 藤田朝雄, 鈴木英明, 緩衝材の飽和透水特性, 動力炉・核燃料開発事業団報告書, PNC-TN8410 97-296, 1997.
松岡稔幸, 濱克宏（編）, 超深地層研究計画における調査研究－必須の課題に関する研究成果報告書, JAEA-Research 2019-012, 2020.
三原守弘, 佐藤信之, 大野進太郎, 森川誠司, TRU 廃棄物地層処分施設の力学挙動解析コード(MACBECE)の開発, JAEA-Data/Code 2009-026, 2010.
見掛信一郎, 山本勝, 池田幸喜, 杉原弘造, 竹内真司, 早野明, 佐藤稔紀, 武田信一, 石井洋司, 石田英明, 浅井秀明, 原雅人, 久慈雅栄, 南出賢司, 黒田英高, 松井裕哉, 鶴田忠彦, 竹内竜史, 三枝博光, 松岡稔幸, 水野崇, 大山卓也, 結晶質岩を対象とした坑道掘削における湧水抑制対策の計画策定と施工結果に関する考察, JAEA-Technology 2010-026, p.146, 2010.
Milliken, K. L., Cathodoluminescent textures and the origin of quartz silt in Oligocene mudrocks, south Texas. Journal of Sedimentary Research, 64(3a), 567-571, 1994.
Mitsui, H., Takahashi, R., Asano, H., Taniguchi, N. and Yui, M., Susceptibility to Stress Corrosion Cracking for Low-Carbon Steel Welds in Carbonate-Bicarbonate Solution, Corrosion, Vol. 64, No. 12, pp.939-948, 2008.
森本逸紀, 木本和志, 河村雄行: 分子動力学法によるモンモリロナイト層間の水分子と陽イオンの分布解析, 土木学会論文集 A2(応用力学), vol.78, 2022.
Mualem, Y., A new model for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated porous media, Water Resour. Res. 12, pp. 513-522, 1976.
武藤尚樹, 金澤伸一, 市川希, 温度変化を考慮したベントナイトの膨潤圧の計測について, 2018年秋の大会, 原子力学会, 2018.
南雲道彦, 破壊現象における水素の機能, まてりあ, vol.50, pp.205-211, 2011.
中山雅, 松﨑達二, 丹生屋純夫 : 幌延深地層研究計画における人工バリア性能確認試験, -大口径掘削機の開発, 模擬オーバーパック, 緩衝材および埋め戻し材の製作-, JAEA-Research 2016-010, 2016.
中山雅, 幌延深地層研究計画におけるオーバーパック腐食試験; 模擬オーバーパック、緩衝材およびヒーターの製作、設置, JAEA-Technology, 2018-006, 2018.
中山雅, 大野宏和, 中山真理子, 小林正人, 幌延深地層研究計画における人工バリア性能確認試験；計測データ集（平成29年度）, JAEA-Data/Code-2019-003, 2019a.
中山雅, 雑賀敦, 木村駿, 望月陽人, 青柳和平, 大野宏和, 宮川和也, 武田匡樹, 早野明, 松岡稔幸, 櫻井彰孝, 宮良信勝, 石井英一, 杉田裕, 笹本広, 棚井憲治, 佐藤稔紀, 大澤英昭, 北山彩水, 谷口直樹, 幌延深地層研究計画における地下施設での調査研究段階（第3段階：必須の課題2015－2019年度）研究成果報告書, JAEA-Research 2019-013, 2019b.
中山雅, 幌延深地層研究計画; 令和4年度調査研究計画, JAEA-Review 2022-026, 2022.
奈良国立文化財研究所, 1992年度平城宮跡発掘調査部発掘調査概報, 1993.
並河努, 菅野毅, 石川博久, 石黒勝彦, 緩衝材のせん断特性1, PNC TN8410 97-074, 1997.
日本道路協会, 道路橋示方書・同解説 Ⅳ下部構造編, 2017.
日本原子力研究開発機構, 平成19年度 地層処分技術調査等事業 処分システム化学影響評価高度化開発報告書 平成20年3月, 2008.
日本原子力研究開発機構, 平成20年度 地層処分技術調査等事業 処分システム化学影響評価高度

化開発報告書 平成21年3月, 2009.
日本原子力研究開発機構, 平成21年度 地層処分技術調査等事業 処分システム化学影響評価高度化開発報告書 平成22年3月, 2010.
日本原子力研究開発機構, 平成22年度 地層処分技術調査等事業 処分システム化学影響評価高度化開発報告書 平成23年3月, 2011.
日本原子力研究開発機構, 平成23年度 地層処分技術調査等事業 処分システム化学影響評価高度化開発報告書 平成24年3月, 2012.
日本原子力研究開発機構, 平成24年度 地層処分技術調査等事業 高レベル放射性廃棄物処分関連先進的地層処分概念・性能評価技術高度化開発 －巨大地震・津波を含む想定外事象への対応－報告書 平成25年3月, 2013a.
日本原子力研究開発機構, 平成24年度 地層処分技術調査等事業 処分システム化学影響評価高度化開発報告書 平成25年3月, 2013b.
日本原子力研究開発機構, 平成25年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発報告書 平成26年3月, 2014.
日本原子力研究開発機構, 平成26年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発報告書 平成27年3月, 2015a.
日本原子力研究開発機構, 平成26年度 地層処分技術調査等事業 セメント材料影響評価技術高度化開発報告書 平成27年3月, 2015b.
日本原子力研究開発機構, 平成27年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発報告書 平成28年3月, 2016.
日本原子力研究開発機構, 平成28年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発報告書 平成29年3月, 2017.
日本原子力研究開発機構, 平成29年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 処分システム評価確証技術開発報告書 平成30年3月, 2018a.
日本原子力研究開発機構, 平成29年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 直接処分等代替処分技術開発報告書 平成30年3月, 2018b.
日本原子力研究開発機構, 電力中央研究所, 平成30年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 岩盤中地下水流動評価技術高度化開発報告書 平成31年3月, 2019.
日本原子力研究開発機構, 原子力環境整備促進・資金管理センター, 平成30年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 ニアフィールドシステム評価確証技術開発報告書 平成31年3月, 2019.
日本原子力研究開発機構, 原子力環境整備促進・資金管理センター, 平成31年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 ニアフィールドシステム評価確証技術開発報告書 令和2年3月, 2020.
日本原子力研究開発機構, 原子力環境整備促進・資金管理センター, 令和2年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 ニアフィールドシステム評価確証技術開発報告書 令和3年3月, 2021.
日本原子力研究開発機構, 原子力環境整備促進・資金管理センター, 令和3年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 ニアフィールドシステム評価確証技術開発報告書 令和4年3月, 2022.
Niibori, Y., Komatsu, K., and Mimura, H., Deposition of calcium-silicate-hydrate gel on rough surface of granite from calcium-rich highly alkaline plume. Scientific Basis for Nuclear Waste Management XXXV, Materials Research Society Proceedings, 1475, 349-354, 2012.

Nishigaki, A., Ohshima, S., Nakayama, K., Okada, M., Nagashima, U., Application of molecular orbital calculations to interpret the chlorophyll spectral forms in pea photosystem II, Photochem. Photobiol., 73, pp. 245-248, 2001.

西方篤, 高橋岳彦, 侯保栄, 水流徹, 乾湿繰り返し環境における炭素鋼の腐食速度のモニタリングとその腐食機構, 材料と環境, 43, pp.188-193, 1994.

西村務, 和田隆太郎, 西本英敏, 藤原和雄, 谷口直樹, 本田明, ベントナイト中における炭素鋼の腐食挙動に及ぼす微生物の影響. 核燃料サイクル開発機構 技術報告書 JNC TN8400 99-077, 1999.

Norwood, D.E., and Gilmour, A., The differential adherence capabilities of two Listeria monocytogenes strains in monoculture and multispecies biofilms as a function of temperature. Lett. Appl, Microbiol., 33, pp.320-324, 2001.

Ohnishi, Y., Shibata, H. and Kobayashi, A., Development of finite element code for the analysis of coupled Thermo-Hydro-Mechanical behaviors of a saturated-unsaturated medium, Proc. of Int. Symp. on Coupled Process Affecting the Performance of a Nuclear Waste Repository, Berkeley, pp.263-268, 1985.

太田久仁雄, 阿部寛信, 山口雄大, 國丸貴紀, 石井英一, 操上広志, 戸村豪治, 紫野一則, 濱 克寛, 松井裕哉, 新里忠史, 高橋一晴, 丹生屋純夫, 大原英史, 浅森浩一, 森岡宏之, 舟木泰智, 茂田直孝, 福島龍朗, 幌延深地層研究計画における地上からの調査研究段階（第1段階）研究成果報告書 分冊「深地層の科学的研究」, JAEA-Research 2007-044, 2007.

大和田朗, 佐藤卓見, 平林恵理, 新開発乾式法による脆弱岩石試料の薄片・研磨薄片製作, 地質調査研究報告, 224, 221, 2013.

大和田仁, 三原守弘, 黒木泰貴, 有本邦重, アルカリ溶液中での花崗岩の変質挙動, JNC TN8400 2000-027, 2000.

Palandri, J.L. and Kharaka, Y.K., A compilation of rate parameters of water-mineral interaction kinetics for application to geochemical modeling. U.S. Geological Survey, Open File Report 2004-1068, Menlo Park, California, 2004.

Parkhurst, D. L., User's Guide to PHREEQC (VERSION 2) A Computer Program for Speciation, Batch-Reaction, One-Dimensional Transport, and Inverse Geochemical Calculations, U.S. geological Survey, Water-Resources Investigations Report 99-4259, 1999.

Perrot, F., Jouenne, T., Feuilloley, M., Vaudry, H., Junter, G.-A., Gel immobilization improves survival of Escherichia coli under temperature stress in nutrient-poor natural water. Water Res., 32, pp.3521-3526, 1998.

Pruess, K., TOUGH2 - A General- purpose numerical simulator for multiphase fluid and heat flow, LBL20700 Lawrence Berkeley National Laboratory, 1991.

Pusch, R., The Buffer and Backfill Handbook Part 2: Materials and techniques. SKB Technical Report TR-02-12. Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co (SKB), Stockholm, Sweden, 2001.

Pusch, R., Kasbohm, J., Pacovsky, J., and Cechova, Z., Are all smectite clays suitable as "buffers"?, Clay in Natural and Engineered Barriers for Radioactive Waste Confinement - Part 1. Physics and Chemistry of the Earth, 32, 116-122, 2007.

Pusch, R., Kasbohm, J., and Thao, H.T.M., Chemical stability of montmorillonite buffer clay under repository-like conditions – A synthesis of relevant experimental data. Applied Clay

Science, 47, 113-119, 2010.
Pusch, R., and Madsen, F.T., Aspects of the illitization of the Kinnekulle bentonites. Clays and Clay Minerals, 43, 133-140, 1995.
Sandén, T. and Börgesson, L., Deep repository-engineered barrier system. Piping and erosion in tunnel backfill Laboratory tests to understand processes during early water uptake, SKB Report R-06-72, 2008.
Sandén T., Börgesson L., Dueck A.; Goudarzi, Reza; Lönnqvist, Margareta : Deep repository-Engineered barrier system. Erosion and sealing processes in tunnel backfill materials investigated in laboratory, SKB R-08-135, 2008.
産業技術総合研究所, 日本原子力研究開発機構, 原子力環境整備促進・資金管理センター, 電力中央研究所, 平成28年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業沿岸部処分システム高度化開発, 2017.
産業技術総合研究所, 日本原子力研究開発機構, 原子力環境整備促進・資金管理センター, 電力中央研究所, 平成29年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業沿岸部処分システム高度化開発, 2018.
産業技術総合研究所, 日本原子力研究開発機構, 原子力環境整備促進・資金管理センター, 電力中央研究所, 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 沿岸部処分システム高度化開発 平成27年度～平成30年度 取りまとめ報告書, 2019.
佐藤治夫, 高レベル放射性廃棄物地層処分における緩衝材の核種移行抑制機能, Journal of MMIJ, 125, 1-12, 2009.
佐藤文啓, 金澤伸一, 林久資, 高山裕介, 温度変化によるベントナイトの膨潤特性, 土木学会第71回学術講演会（平成28年9月）, 2016.
Schneider, C. A., Rasband, W. S., and Eliceiri, K. W., NIH Image to ImageJ: 25 years of image analysis, Nature methods, 9(7), 671-675, 2012.
Shirazi, S. M., Kazama, H., Salman, Firas A., Othman, F and Akib Shatirah: Permeability and swelling characteristics of bentonite, International Journal of the Physical Sciences, Vol. 5, No.11, pp. 1647-1659, 18 September, 2010.
清水正喜, 大西崇史: 加熱による二次圧縮促進効果の土粒子熱膨張を考慮した評価, 第38回地盤工学研究発表会, 2003.
清水正喜, 田中淳 : 粘性土の温度変化時の圧縮特性評価における土粒子の熱膨張の影響, 地盤と建設, Vol.18, No.1, 2000.
Sippel, R. F., Sandstone petrology, evidence from luminescence petrography. Journal of Sedimentary Research, 38(2), 530-554, 1968.
SKB, Deep repository-engineered barrier system. Piping and erosion in tunnel backfill. 2-144 Laboratory tests to understand processes during early water uptake. SKB R-06-72, Swedish Nuclear Fuel and Management Co., 2008.
Smart, N.R., Reddy, B., Rance, A. P., Nixon, D. J., Frutschi, M., Bernier-Latmani, R., Diomidis, N. The anaerobic corrosion of carbon steel in compacted bentonite exposed to natural Opalinus Clay porewater containing native microbial populations, Corrosion Engineering, Science and Technology, 52:sup1, 101-112, 2017.
Soler, J. M., Reactive transport modeling of the interaction between a high-pH plume and a fractured marl: the case of Wellenberg, Appl. Geochem., 18, pp.1555-1571, 2003.
Steefel, C. I. and Lichtner, P. C., Diffusion and reaction in rock matrix bordering a

hyperalkaline fluid-filled fracture, Geochim. Cosmochim. Acta, 58, pp.3595-3612, 1994.
Stern, M. and Geary, A. L., Electrochemical Polarization: I. A Theoretical Analysis of the Shape of Polarization Curves, J. Electrochem. Soc., 104, pp.56-63, 1957.
Stroes-Gascoyne, S., Hamon, C.J., Maak, P., Russell, S. The effects of the physical properties of highly compacted smectitic clay (bentonite) on the culturability of indigenous microorganisms. Applied Clay Science, 47, p155-162, 2010.
Stroes-Gascoyne, S., Hamon, C.J., Vilks, P., Gierszewski, P. Microbial, redox and organic characteristics of compacted clay-based buffer after 6.5 years of burial at AECL's underground research laboratory. Applied Geochemistry, 17, pp.1287-1303, 2002.
杉井俊夫, 宇野尚雄, 新しい水分特性曲線のモデル化について, 土木学会・第50回年次学術講演会概要集, pp. 130-131, 1997.
Sugita Y., Kwon S., Lee C., Massmann J., Pan P-Z and Rutovist J., DECOVALEX-2015 project Task B2 final report, KTH Architecture and the Built Environment, 2016.
杉田裕, 菊池広人, 星野笑美子, 幌延深地層研究計画で得られた掘削土を用いた埋め戻し材の特性試験(受託研究), JAEA-Data/Code 2020-017, 2020.
炭山守男, 土壌埋設鋼材の長期腐食挙動に関する研究（XI）, JNC-TJ8400 99-042, 1999.
Sun, W., Nešic, S. and Woollam, R.C., The effect of temperature and ionic strength on iron carbonate (FeCO3) solubility limit, Corrosion Science, 51, 1273-1276, 2009.
鈴木千夏, 竹中眞, 土壌微生物生態研究における正準対応分析（Canonical Correspondence Analysis: CCA）の利用法, 土と微生物, 63, No.1, pp.32-38, 2009.
鈴木英明, 柴田雅博, 山形順二, 広瀬郁朗, 寺門一馬, 緩衝材の特性試験（Ⅰ）, 動力炉・核燃料開発事業団報告書, PNC-TN8410 92-057, 1992.
鈴木英明, 藤田朝雄, 緩衝材の膨潤特性, 核燃料サイクル開発機構報告書, JNC TN8400 99-038, 1999a.
鈴木英明, 藤田朝雄, 緩衝材の不飽和水理特性, 核燃料サイクル開発機構報告書, JNC TN8430 99-010, 1999b.
鈴木英明, 高山裕介, ニアフィールドにおける過渡期の熱-水-応力連成挙動に及ぼす緩衝材の密度変化の影響評価（受託研究）, JAEA-Research 2020-015, 2020.
鈴木清一, EBSD読本-OIMを使用するにあたって- (B4.00), 株式会社TSLソリューションズ, 2021.
Svensk Kärnbränslehantering AB: Supplementary information on canister integrity issues.
TR-19-15, Svensk Kärnbränslehantering AB, 2019.
Takai, K., Nakamura, K., Toki, T., Tsunogai, U., Miyazaki, M, Miyazaki, J., Hirayama, H., Nakagawa, S., Nunoura, T., Horikoshi, K. Cell proliferation at 122°C and isotopically heavy CH_4 production by a hyperthermophilic methanogen under high-pressure cultivation. Proceedings of the National Academy of Sciences, 105(31), pp.10949-10954, 2008.
高治一彦, 鈴木英明, 緩衝材の静的力学特性, JNC-TN8400 99-041, 1999.
Takeyama, T., Tachibana, S. and Furukawa, A., A finite element method to describe the cyclic behavior of saturated soil, International Journal of Material Science and Engineering 2 (1), pp.20-25, 2015.
高山裕介, 菊池広人, 塩水条件での緩衝材の力学挙動に対する弾塑性構成モデルの適用性に関する研究, 原子力バックエンド研究 vol.27, No.1, 2020.
高山裕介, 菊池広人, X線CT測定による膨潤圧試験中のベントナイトの吸水圧縮挙動の観察, 土

木学会論文集C（地圏工学）， vol. 77, No. 3, pp. 302-313. 2021.
高山裕介, 佐藤大介, 菊池広人, 膨潤圧試験中のベントナイトの膨潤圧変化に与える吸水圧縮挙動の影響, 原子力バックエンド研究, Vol.29, No.2, pp. 101-111, 2022.
谷口直樹, 川崎学, 内藤守正, 低酸素濃度下での模擬地下水の飽和した圧縮ベントナイト中における炭素鋼の腐食挙動，材料と環境, Vol. 59, No. 11, pp.418-429, 2010.
Tashiro, R., Kurata, D., Niibori, Y., and Chida, T., Influence of calcium concentration on permeability changes in flow-paths altered by highly alkaline groundwater. Proc. of WM2017 Conference, Paper No. 17129, 2017.
Thyberg, B., Jahren, J., Winje, T., Bjørlykke, K., Faleide, J. I., and Marcussen, Ø., Quartz cementation in Late Cretaceous mudstones, northern North Sea: Changes in rock properties due to dissolution of smectite and precipitation of micro-quartz crystals. Marine and Petroleum Geology, 27(8), 1752-1764, 2010.
van Genuchten, M. Th., A closed-form equation for predicting hydraulic of unsaturated soils, Soil Science Society American Journal 44, pp.892-898, 1980.
和田隆太郎, 西村務, 下郡一利, 泊里治夫, 舛形剛, 下田秀明, 藤原和雄, 西本英敏, 小田正彦. 還元条件下におけるチタンオーバーパックの耐食性に関する研究(II). 動力炉・核燃料開発事業団 研究委託内容報告書, PNC TJ 1058 98-001, 1998.
Walker, G., and Burley, S., Luminescence petrography and spectroscopic studies of diagenetic minerals. In: Berker, C.E., Kopp, O.C. (Eds.), Luminescence Microscopy and Spectroscopy: Quantitative and Qualitative Application: SEPM Short Course 25, pp.83-96, 1991.
Wang, YY., Hammes, F., Düggelin M., Egli, T. Influence of size, shape, and flexibility on bacterial passage through micropore membrane filters. Environ. Sci. Technol. 42, 6749-6754, 2008.
Wang. Q., Tang, AM, Cui YJ, Barnichon JD, Delage P, Ye WM.: The effects of technological voids on the hydro-mechanical behavior of compacted bentonite-sand mixture. Soils and Foundations, 53(2), 232-245, 2013.
Wersin, P., Johnson, L., and McKinley, I., Performance of the bentonite barrier at temperatures beyond 100ºC: A critical review. Physics and Chemistry of the Earth, 32, 780-788, 2007.
山本卓也, 下茂道人, 藤原靖, 服部弘道, 各合牧人, 田所照夫, 中垣真一, 幌延深地層研究計画における試錐調査（HDB-6, 7, 8）のうちHDB-6孔, JNC TJ5400 2005-004, 2005.
横山信吾, 田中幸久, イオン交換水で飽和したベントナイト系材料の透水性と膨潤特性に及ぼす熱影響に関する実験的検討, 電力中央研究所報告, 平成24年度4月, 2012.
吉川英樹, 川上泰, 福永栄, 岡野誠司, 藤木喜市, 本谷益良, 朝野英一, 地層処分システムにおける微生物の影響について（2）-微生物の栄養源と透過性について-, 原子力バックエンド研究, vol. 1, pp.213-230, 1995.
Zinkernagel, U., Cathodoluminescence of quartz and its application to sandstone petrology, In: Contributions to Sedimentology, vol.8 E. Schweizerbart'sche Verlagbuchhandlung, Stuttgart, 69 pp, 1978.

3. ニアフィールド環境変遷を考慮した核種移行評価技術の開発

3.1 目的と5か年の計画

3.1.1 目的

地層処分は長期にわたる事業であるために、常に最新の科学的知見に照らして、システムの安全性を評価するとともに、評価手法や結果の妥当性の確認や見直しが適切に行われていくことが重要である。このため、最先端の科学的知見や手法を駆使して、処分システムにおいて発生することが想定される諸現象について、科学的な現象の理解を進め、より現象に忠実なモデルを開発し、それらに基づいて、処分システムの評価の妥当性を示すことが重要となる。本課題では、図3.1-1に示すように、処分場の閉鎖前から閉鎖後の長期にわたって、人工バリアとその設置等により影響を受ける人工バリア近傍の岩盤とを合わせた領域（ニアフィールド）において発生することが考えられる様々な複合現象とその結果生じる環境変遷、および地質環境が有している不均質性等を考慮して、核種移行を評価するための技術の高度化とその妥当性の確認を行うことを目的とする。この際、計算科学的な手法、室内試験、原位置試験あるいは天然類似事象の調査等のそれぞれの特徴を踏まえ、それらを適切に組み合わせることで、核種移行評価で対象とする時間・空間スケールの視点も含めたモデルの適用性や信頼性を高めていくこととする。

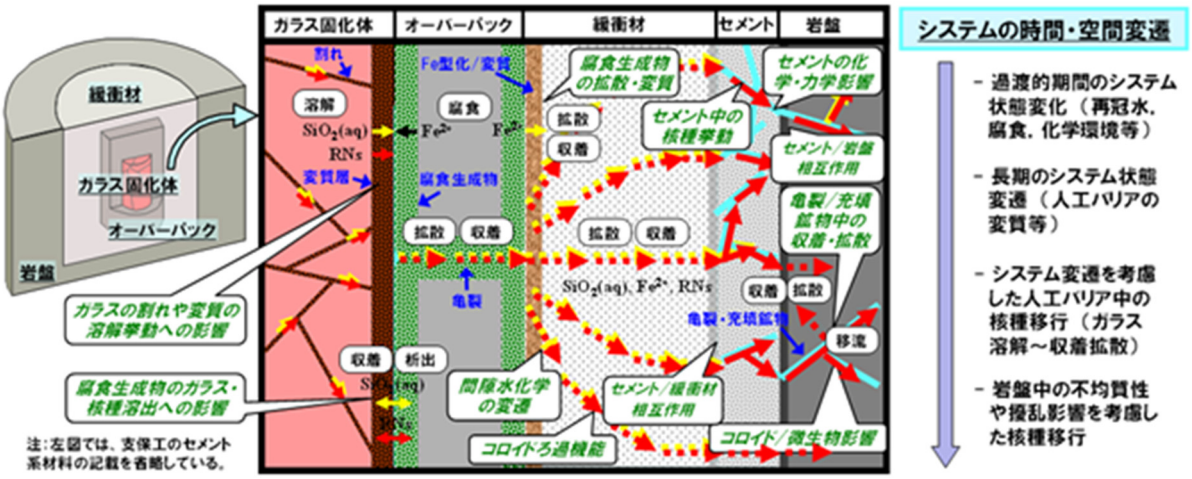


図3.1-1　ニアフィールドのシステム変遷と核種移行評価に係る課題例

3.1.2 5か年の計画

上記の目的を達成するために、2章におけるニアフィールドの環境変遷（サブプロジェクト1）の成果を踏まえながら、また、4章におけるニアフィールド性能の総合評価技術（サブプロジェクト3）に反映させることを念頭に、本課題では図3.1-2に示す3つのサブタスクを設定し、相互に連携させつつ核種移行評価技術の開発を進める。3つのサブタスクの計画の概要を以下に示す。

(1) ニアフィールド岩盤中の核種移行評価技術の開発

核種移行モデルの開発については、結晶質岩および堆積岩を対象として、これまでの関連プロジェクト等において今後取り組むべき課題として抽出された、割れ目等の不均質性や地質環境の長期変遷を考慮可能な核種移行解析モデルを開発する。具体的には、国内外の地下研究施設等の岩石試料を用いて、これまで主に対象としてきたマトリクス部の核種移行モデルに加え、割れ目部およびそのマトリクス部との相互作用に重点をおき、最新の分析技術を適用して鉱物分布や間隙構造の不均質性を定量的に評価するとともに、室内トレーサー試験により割れ目部およびマト

リクス部の核種移行データを取得する。さらに、これらのデータをもとに、マトリクス部の核種移行特性に加えて割れ目等の不均質に分布する水みちの特性を反映した核種移行解析モデルを開発する。構築した核種移行解析モデルについては、これまでに取得された原位置トレーサー試験データ等を活用し、上記で開発したモデルの適用性を評価することによりその妥当性確認を行う。また、長期時間スケールでの核種移行モデルの妥当性確認に向けて、地質環境の長期変遷や不均質性等を考慮したナチュラルトレーサーの解析評価事例の拡充を行う。さらに、これらの成果に基づいた岩盤中の割れ目等の不均質性や地質環境の長期変遷を考慮した核種移行解析の試行により、現象解析モデルを核種移行評価へ適用するための方法論と今後の課題を提示する。

(2) システム変遷等を考慮した核種移行解析モデル/データベースの開発

ニアフィールドの状態変遷の設定については、炭素鋼製オーバーパックと緩衝材との相互作用、セメント系材料と緩衝材および岩石との相互作用を対象として、地下水化学の変遷に関する情報等に基づき、ニアフィールドの状態変遷を設定する。その設定に応じた条件において変質した緩衝材や岩石中の核種の移行挙動に係るデータの取得を行う。このうち、炭素鋼の腐食に伴う鉄による影響については、その状態変遷に応じた条件で、室内試験により、鉄と核種との競合収着現象や鉄鉱物と核種との共沈現象に関するデータを取得する。さらに、セメント影響については、セメント共存系における地下水水質変化や変質等を想定した条件下での緩衝材や岩石中の核種移行データを取得する。核種移行解析モデルの構築と妥当性確認については、上記の取得データやメカニズム理解に基づき、鉄製オーバーパックと緩衝材との反応、セメント系材料と緩衝材および岩石との反応に伴う状態変遷を考慮した核種移行解析モデルを構築し、このモデルを既存データ等に適用して、その妥当性を確認する。

また、多様な地質・地下水条件に対応していくため、比較的炭酸濃度が高い地下水が存在する場等に重点を置き、岩石への核種の収着・拡散データベースを整備する。実際の深部環境で考慮すべき高炭酸濃度等の地下水条件範囲、およびその条件で炭酸錯体等の影響が顕在化する核種を検討し、重要な地下水条件と核種との組み合わせを抽出した上で、炭酸濃度条件等を制御した岩石中の核種移行データの取得手法を構築し、先端的な分析技術を適用して重要な核種の収着・拡散データを取得する。さらに、そのデータの信頼性確認と多様な条件下での核種移行パラメータ設定に反映するため、分子動力学計算等の計算科学技術を適用して炭酸共存下における核種の収着・拡散等のメカニズムを評価するとともに、それらを反映した核種移行モデルの構築を行う。

(3) 有機物・微生物の影響評価技術の開発

有機物影響評価技術については、核種 - 天然有機物 - 岩石の三元系の評価の基礎となるデータのうち、核種 - 有機物の二元系の錯生成データを取得する。具体的には、天然有機物と錯体を形成しやすい3価・4価核種のうち、データ拡充の必要がある4価核種を主たる対象として、錯生成データを室内試験等により取得するとともに、錯生成反応機構等を把握し、モデル高度化とパラメータ整備を行う。さらに、核種と天然有機物との錯生成反応における不可逆性の評価、核種 - 有機物 - 岩石三元系モデルの開発に向けた文献調査と課題抽出を行い、そのうち重要度の高い課題に焦点をあててデータ取得を行う。これらの成果を踏まえ、有機物影響を考慮した核種移行評価に向けた課題と今後の研究アプローチを提示する。

天然に存在する主要な微生物のデータ取得については、核種移行に及ぼす微生物影響評価モデルを構築し、パラメータを整備するため、これまで未評価の微生物を対象に、核種移行への影響の観点から文献調査を行い、研究課題の抽出とその重要度分類を行う。その上で、重要な微生物を対象に、微生物による核種の収着や微生物の代謝による核種の取り込み等の重要な現象に関す

るデータを取得し、これらの核種移行への影響メカニズムを把握する。さらに、これらの成果と、これまでの感度解析等において重要と評価されたモデル・パラメータとの関係性を明らかにし、微生物影響を考慮した核種移行解析に反映する。

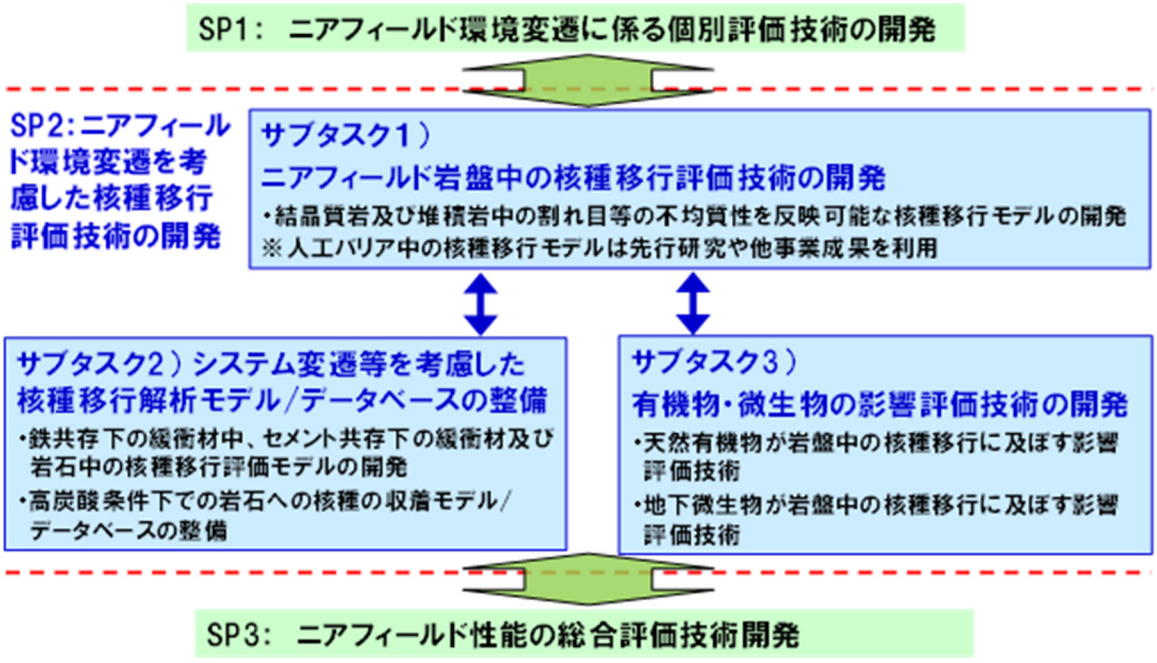


図3.1-2　本課題における3つのサブタスクとそれらの関係

3.2 ニアフィールド岩盤中の核種移行評価技術の開発

3.2.1 背景と目的

ニアフィールド岩盤中の核種移行を評価するためには、岩石中の割れ目やマトリクス部の鉱物や間隙の特性、地下水の地球化学的特性、そこでの核種の収着・拡散特性といった岩石自体の核種移行特性に係る課題に加えて、隆起・侵食や海水準変動等による地質環境の長期変遷の影響、セメント等の人工バリア材に起因する長期変遷の影響、地質環境に存在する有機物、微生物、コロイドの影響等、様々な影響要因やその核種移行への影響等について考慮する必要がある。そのため、概要調査から精密調査段階で必要となる実際のサイトにおける地質環境調査等のデータを適切に反映させた評価モデルを構築するとともに、様々な処分概念や設計オプションの比較、それらの条件での性能評価による安全性の成立性やサイト間の優劣等を検討するための技術基盤を整備していく必要がある。このような観点からは、最新の科学技術の成果を反映した現象理解の深化や評価手法の高度化を図るとともに、今後の実際の地質環境を対象とした評価への展開を念頭に、実際の地質環境の特性をいかに考慮するか、あるいは、実際の地質環境での原位置試験等によっていかにそれらを確証していくかといった視点を含む評価確証の方法論を検討しておくことが重要な課題となる。

本サブタスクでは、上記の背景を踏まえ、岩石中の割れ目やマトリクス部の不均質性および地質環境特性の長期変遷等を考慮した核種移行評価技術について、室内試験、原位置試験および天然事例評価等を通じて高度化や確証を行うことを目的とする。この目的の達成に向けて、先行事業（日本原子力研究開発機構, 2013a; 2018）において、結晶質岩および堆積岩のそれぞれを対象に進めてきた研究開発成果を含む既往の知見をもとに、今後取り組むべき課題とアプローチを設定し、室内試験や原位置試験等によるデータ取得、それらに基づくモデルの構築や妥当性の確認

を進めていくこととした（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019）。

結晶質岩では、割れ目とマトリクス部からなる二重間隙モデル体系に関連した割れ目（開口状態や充填鉱物等）やマトリクス（鉱物や間隙）の不均質性の把握と、それらを反映したモデルの構築が重要な課題となる。一方、堆積岩では、その透水性が極めて低く物質移動は拡散によって支配されることから、マトリクス部の収着・拡散メカニズムの理解とモデル化に加え、堆積岩でも割れ目が存在する場合には、結晶質岩と同様に割れ目近傍の岩石変質状況や核種移行特性の把握が重要となる。このような課題および先行事業の成果（日本原子力研究開発機構, 2018）を踏まえ、本タスクでは、結晶質岩としてグリムゼル等の海外の花崗岩等を、堆積岩として幌延の泥岩を主たる対象とし、さらに国内岩石へと対象を拡充しつつ研究を展開することとする。研究アプローチとしては、図3.2-1に示すように、これまでの先行事業と同様に、重要となる不確実性要因に着目して、室内試験データを系統的に取得する。また、そのデータをもとに評価モデルを構築した上で、原位置試験を活用したモデルの適用性評価や、ナチュラルアナログ的なアプローチによる長期時間スケールでのモデルの確証を進める。

令和3年度までに、結晶質岩と堆積岩のそれぞれの課題について、以下のような取り組みを進めた（日本原子力研究開発機構･原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019; 2020; 2021; 2022）。

結晶質岩については、これまでにスイスのグリムゼル等の国外のURLから採取した花崗閃緑岩マトリクス部を対象に、鉱物や間隙の不均質性を考慮した核種移行モデルを構築してきた。さらに、構築してきた手法およびモデルの国内岩石への適用性を評価するため、国内の標準岩石試料や瑞浪超深地層研究所から採取された試料を対象に、鉱物分布等の不均質性の定量評価を進めるとともに、室内試験による拡散データの取得を行った。また、グリムゼルの岩石割れ目部を対象に、複雑な割れ目試料中の室内トレーサー試験データを解釈可能なモデルの改良を進めるとともに、グリムゼルの原位置から採取・加工した大型の割れ目試料を対象に室内トレーサー試験、収着・拡散試験、各種分析によって核種移行データや割れ目周辺の鉱物・間隙等の不均質性に関するデータを拡充した。さらに、これらの知見を反映しつつ、核種の収着・拡散や溶解・沈殿等のより精緻な取り扱い、実際の地質環境の不均質性や環境条件の変遷等による核種移行への影響の取り扱いを可能とする解析手法の調査・検討を進めた。

堆積岩については、幌延の泥岩を対象として、泥岩マトリクス中の鉱物や間隙の不均質性や核種移行特性を室内拡散試験や核磁気共鳴(NMR)法による分析により把握し、それらを反映したモデルの高度化を進めるとともに、原位置拡散試験データへのモデルの適用性を評価してきた。また、幌延の調査坑道で実施された割れ目中の原位置トレーサー試験を対象に、試験後の割れ目試料の分析によりトレーサー分布状況を把握するとともに、複数の移行経路や不均質な流れ場を考慮したモデルの改良と適用性の確認を段階的に進めてきた。さらに、幌延の既存データを活用した地質環境の長期変遷等を考慮したナチュラルトレーサーの評価手法について、従来の非収着性トレーサーに加え、反応性トレーサーを対象とした解析を試行し、モデルの適用性や課題の抽出を進めてきた。

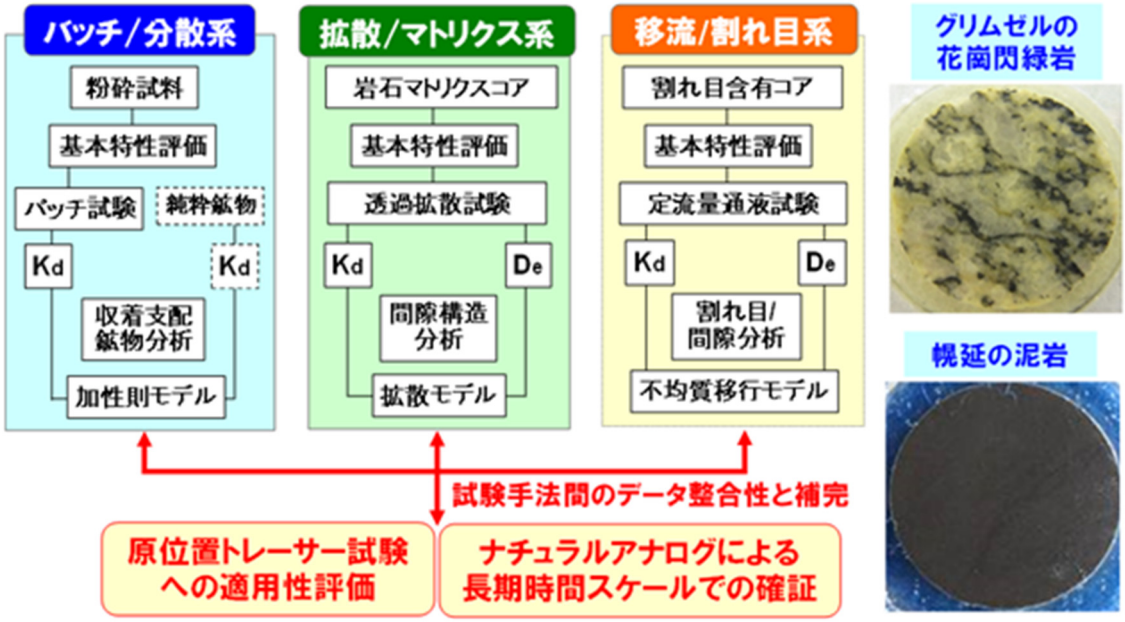


図3.2-1　結晶質岩と堆積岩のマトリクス部と割れ目部を対象とした複数の室内試験や原位置試験等を組み合わせた核種移行研究アプローチ

結晶質岩と堆積岩のそれぞれについて、上記のような令和3年度までの取り組みを踏まえ、令和4年度は事業の最終年度の取りまとめを含めて、以下のような取り組みを進めた。

結晶質岩については、国内の標準岩石試料や瑞浪超深地層研究所の試料を対象に鉱物分布の不均質性や拡散データ等を拡充し、黒雲母等の含有率、サイズ、連続性等の特徴と核種移行特性（陽イオン加速・陰イオン排除）との関係を把握し、これまでに海外の岩石を対象に構築してきたモデル化手法の適用可能性を評価した。また、グリムゼルの原位置から採取した20 cm程度の大型の割れ目試料を用いて実施した室内トレーサー試験後試料を対象に、割れ目周辺部等の不均質性のX線CTによる評価や、割れ目表面近傍のトレーサー濃度分布の分析データを拡充するとともに、一連の試験・分析データをもとに支配的な移行経路の推定や核種移行モデルの適用性評価を試みた。さらに、これまでの結晶質岩のマトリクス部と割れ目部の不均質性とその核種移行への影響に関する知見を反映しつつ、核種の収着・拡散や溶解・沈殿等のより精緻な取り扱い、実際の地質環境の不均質性や環境条件の変遷等による核種移行への影響の取り扱いを可能とする解析手法の改良や解析事例の拡充を進め、その結果をもとに核種移行に及ぼす影響が大きいプロセスや今後の課題の抽出を行った。

堆積岩については、幌延の泥岩を対象とし、泥岩マトリクス中の鉱物や間隙の不均質性とそれを踏まえた核種移行モデルに関する一連の室内試験・分析をもとに、核種移行モデルの高度化検討を進めるとともに、原位置拡散試験データへの適用性を含めて、モデルの妥当性を確認した。また、これまでに幌延深地層研究センターの地下調査坑道で実施してきた、割れ目部を対象とした原位置トレーサー試験の結果を対象に解析手法の改良と適用性評価を行い、原位置試験から得られたパラメータ値の室内試験結果等との比較によって、モデルやパラメータの妥当性を確認した。さらに、幌延の既存データを活用した地質環境の長期変遷等を考慮したナチュラルトレーサーの評価手法について、反応性トレーサーを対象とした解析手法の改良と、その適用性評価や不確実性解析を行い、一連の評価手法の有効性と課題を取りまとめた。

3.2.2 実施内容

(1) 結晶質岩中の核種移行評価技術の開発

1) 結晶質岩の岩石マトリクス中の核種移行モデルの開発

結晶質岩のマトリクス部を対象とした不均質性等の影響を含む核種移行メカニズムの理解とモデルの開発については、先行事業において、スイスのグリムゼルの原位置長期拡散(LTD: Long-Term Diffusion)プロジェクトと連携して研究を進めてきた。グリムゼルの原位置試験場から採取した岩石マトリクス試料を対象に、室内試験によって多様な核種の収着・拡散データの取得とモデルの開発を進めるとともに、原位置試験データへの適用性を評価してきた。その結果、グリムゼルの花崗閃緑岩試料の鉱物と間隙の不均質性、および室内試験試料の加工の際に生じる擾乱影響を考慮することの重要性が確認された（日本原子力研究開発機構, 2018; Tachi et al., 2015, 2018）。具体的には、花崗閃緑岩中の拡散特性として、狭隘間隙中での静電的相互作用に起因した陽イオン加速と陰イオン排除の傾向が確認され、その傾向は陽イオンの加速の方が顕著であり、これは花崗閃緑岩中の鉱物や間隙の不均質性に起因するものと推定された。さらに、この鉱物や間隙の不均質性の影響を評価する上で、特に黒雲母の形状や分布が重要であることが示唆されたことから、岩石中の黒雲母等の鉱物や間隙の不均質性の定量化と、不均質性を考慮した拡散挙動の解析手法の開発を進めてきた。X線CT等の分析により得られる鉱物・間隙分布情報をもとに、黒雲母の層状構造とその不均質な分布を反映した不均質場モデルを構築し、ランダムウォーク法による粒子拡散解析によって、層状の雲母鉱物のサイズや配向性、鉱物間の粒界間隙の連続性、雲母間隙中における静電的相互作用による陽イオン加速や陰イオン排除の効果等が拡散挙動へ及ぼす影響の把握を試みてきた（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2019; 2020）。さらに、構築してきた不均質場モデルの国内結晶質岩への適用性を評価するため、黒雲母花崗岩（茨城県笠間市稲田）、花崗閃緑岩（山梨県甲州市塩山）、片麻状花崗閃緑岩（愛知県幡豆町東幡豆）の3種類の標準岩石の黒雲母等の鉱物分布の不均質性の評価および拡散データの取得を進めてきた（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2021; 2022）。令和4年度は、上記3種類の国内岩石に加えて、瑞浪超深地層研究所（瑞浪URL）から採取した花崗岩を対象に、鉱物分布の分析や拡散データの取得を実施した。

① 結晶質岩マトリクス中の鉱物分布の不均質性評価

瑞浪URLの深度500 mの研究坑道から採取した花崗岩（岐阜県瑞浪市）を対象に、電子プローブマイクロアナライザー(EPMA)分析、X線回折(XRD)分析、偏光顕微鏡観察およびX線CT測定による岩石中の構成鉱物や分布等の分析、およびトレーサー透過拡散試験による拡散データの取得を進めた。これらの分析および試験には、瑞浪URLの花崗岩コア（18MI65孔から採取）を図3.2-2のように加工した試料を使用した。瑞浪の花崗岩コアには、天然の割れ目が存在し、その割れ目表面の変質が観察された。割れ目近傍と健岩部（マトリクス部）では、その鉱物組成や間隙構造が異なることが予想されたため、それらの違いに着目し、上記分析を実施した。

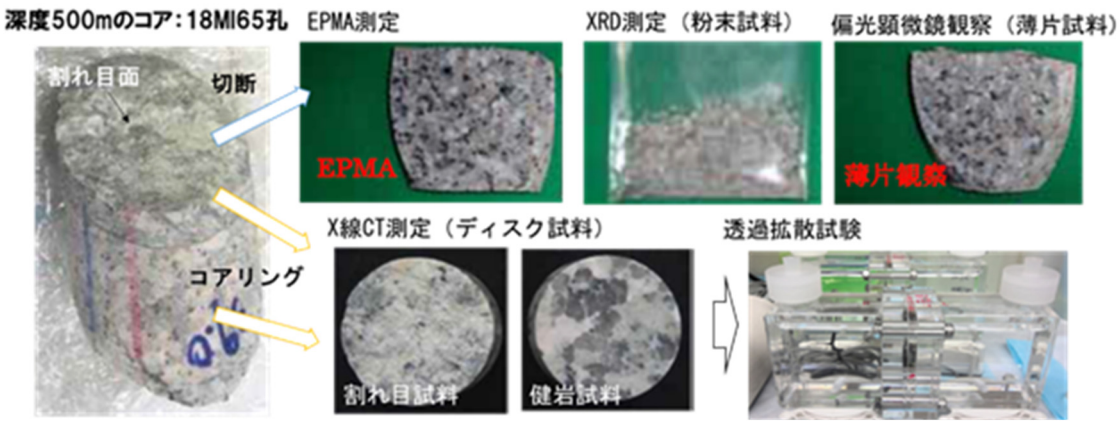


図3.2-2　瑞浪URLの花崗岩コアと各分析・試験用の試料加工状況

図3.2-3に、EPMAを用いた、割れ目近傍の試料とマトリクス試料（いずれも孔壁からの距離55.8 m付近のコアから採取）の元素組成分布の測定結果を示す。主要な成分はSiO_2, Al_2O_3, Na_2OおよびK_2Oであることから、主要鉱物が石英と長石類であることが確認された。また、分析面の黒色の鉱物は、組成分布のFe_2O_3と対応していることから、雲母類の分布であると考えられる。これらの組成分布を画像解析し、推定鉱物の分布およびその面積割合を評価した。図3.2-3に示したとおり、割れ目近傍とマトリクス部の推定鉱物の面積割合にほとんど差はみられなかった。一方、割れ目近傍の試料では、割れ目表層に、上記した主要鉱物とは異なる変質鉱物（図中のその他）が観察された。

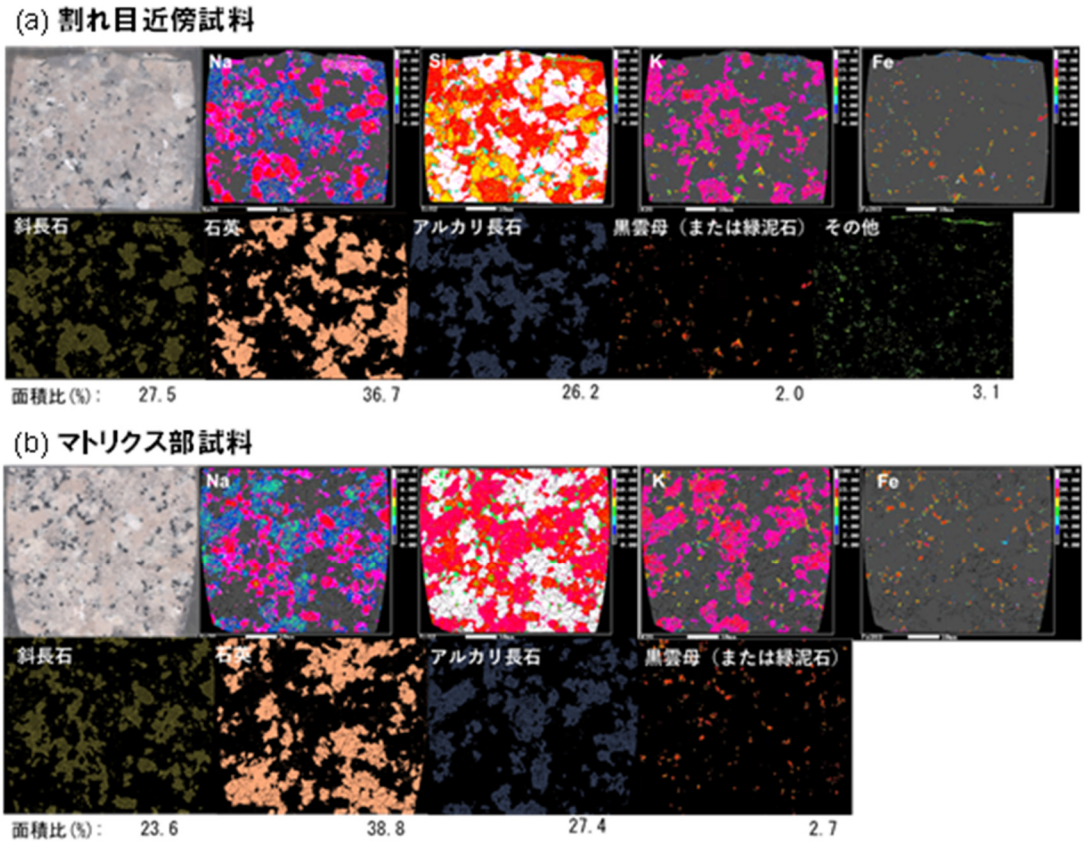


図3.2-3　EPMA分析による瑞浪URLの花崗岩試料（孔壁からの距離55.8 m付近）の元素組成分布および画像解析により推定された鉱物分布とその面積比

割れ目表層の鉱物組成を同定するため、偏光顕微鏡による薄片試料（厚さ20 μm）の観察を行った。割れ目近傍試料およびマトリクス試料（いずれも孔壁からの距離55.8 m付近）の観察した領域の写真と観察から推定された主成分鉱物の推定結果を図3.2-4に示す。単ニコルは薄片試料を透過光で観察した結果を示し、直交ニコルは単ニコルと同じ視野において偏光板をさらに差し込むことで、鉱物の種類による異なる複屈折が干渉色として表現された結果を示している。いずれの試料も石英、斜長石、アルカリ長石および黒雲母が主成分鉱物であることが推定された。また、黒雲母の多くは緑泥石に変質、割れ目部付近ではセリサイト（絹雲母）が多量に生成していることが推定された。このことから、EPMAで観察された変質鉱物はセリサイトと考えられる。

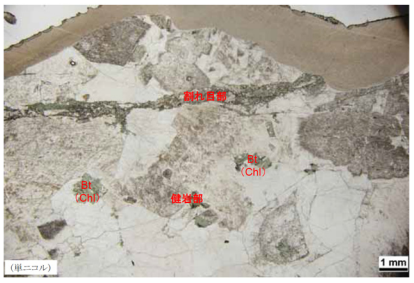
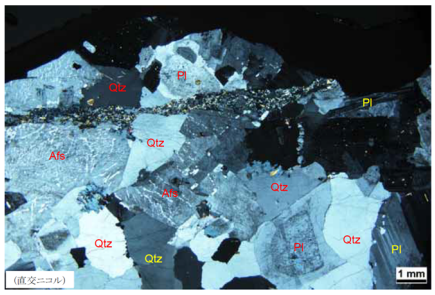
構成鉱物および変質鉱物	単ニコル	直交ニコル
石英(Qtz) 斜長石(Pl) アルカリ長石(Afs) 黒雲母(Bt) 緑泥石(Chl) セリサイト(Se)		

図3.2-4　偏光顕微鏡による瑞浪の花崗岩（割れ目近傍）の鉱物組成等の観察結果

結晶質岩中に含まれる黒雲母は、その他の鉱物より間隙率が比較的高く、その表面に形成される負電荷による静電相互作用により、間隙水中に陽イオンおよび陰イオンとして存在する核種の拡散挙動に影響を与えると考えられている。黒雲母は、結晶質岩中に数マイクロから数十ミリメートル程度の領域サイズで点在しており、一定の方向にその領域が配向しているまたは無秩序に分布している。これらから、結晶質岩中の黒雲母の不均質性と核種の拡散挙動の関係を評価するためには、黒雲母の形状や分布を空間的に把握することが重要である。X線は黒雲母に比較的高い割合で含まれている鉄元素に感度があるため、X線CT測定により、その形状や空間分布を取得することが可能である。令和3年度までに、国内の標準岩石を対象に、X線CT測定を実施し、三次元画像データの解析から結晶質岩中の黒雲母の分布を評価してきた。この手法を瑞浪URLの花崗岩にも適用し、その黒雲母含有率を評価した。対象試料として、瑞浪の花崗岩コア18MI65孔の孔壁からの距離39.1 m付近の割れ目部を含む試料から、割れ目表面を含む試料（割れ目試料）と割れ目から数cm離れた岩石内部からコア抜きおよび加工した試料（マトリクス試料）を用いた。これらの試料を対象に、X線CT測定を実施した。X線CT画像の解析によって得られた、黒雲母含有率のプロファイルを図3.2-5に示す。図中の深度は、ディスク試料表面からの距離を示し、割れ目試料では深度0 mm付近が割れ目近傍を示す。マトリクス試料では、その分布は深度との相関はほとんどみられず、黒雲母含有率はおおよそ1 %であった。一方、割れ目試料では、割れ目近傍ほど黒雲母含有率が高いことを示した。この結果およびEPMAおよび薄片観察の結果から、割れ目表層では変質部や黒雲母（または緑泥石）がマトリクス部より比較的多く存在しており、これらが核種拡散挙動に影響を与える可能性が考えられる。

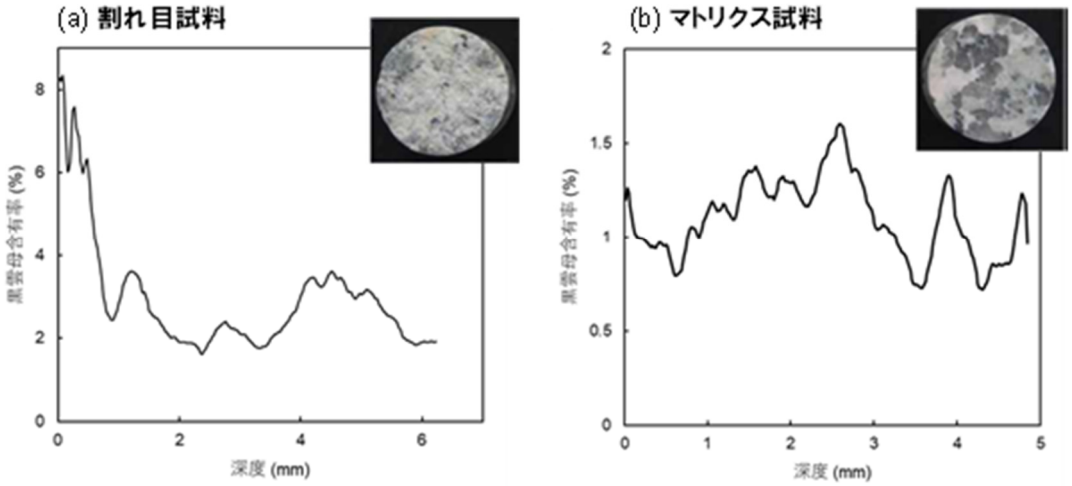


図3.2-5　X線CT画像解析による瑞浪の花崗岩試料（18MI65孔の孔壁からの距離39.1 m付近）の(a)割れ目近傍と(b)マトリクス部の黒雲母分布

② 結晶質岩マトリクス中の核種拡散挙動の評価

結晶質岩中の黒雲母等層状ケイ酸塩鉱物の配向性や連続性と陽イオンおよび陰イオン種の拡散挙動の関係を評価するため、図3.2-6に示す黒雲母花崗岩（茨城県笠間市稲田）、花崗閃緑岩（山梨県甲州市塩山）、片麻状花崗閃緑岩（愛知県幡豆町東幡豆）、および花崗岩（岐阜県瑞浪市）を対象に、Cs^+およびI^-をトレーサーとした透過拡散試験を実施した。透過拡散試験には、上記結晶質岩をディスク状（直径:20 mm, 厚さ:5 mm）に加工した試料を用いた。瑞浪の花崗岩については、X線CT測定に用いた試料と同様の、割れ目表面を含む試料（割れ目試料）と割れ目から数 cm 離れた岩石内部からコア抜きおよび加工した試料（マトリクス試料）の2種類を用いた。これらの試料をアクリル製の試料プレートに設置し、プレートと試料の隙間にエポキシ樹脂により埋めることで固定した。試料プレートの両端に溶液リザーバーセルを接続し、両方の溶液リザーバーに模擬地下水（NaCl: 1×10^{-2} M, $CaCl_2$: 1×10^{-4} MおよびKCl: 1×10^{-4} M）100 mLを入れ、一か月以上、真空含水させた。含水操作終了後、溶液リザーバーから模擬地下水を取り除き、その片側に模擬地下水と同様の組成の溶液にCs^+ 1×10^{-5} MおよびI^- 1×10^{-4} Mを加えたトレーサー溶液100 mLを入れ、逆側の溶液リザーバーに模擬地下水100 mLを入れ、透過拡散試験を開始した。拡散試験中、2週間に一回程度両側のリザーバーから溶液を採取し、誘導結合プラズマ質量分析(ICPMS)を用いて、両溶液リザーバー中の溶液のトレーサー濃度を測定した。

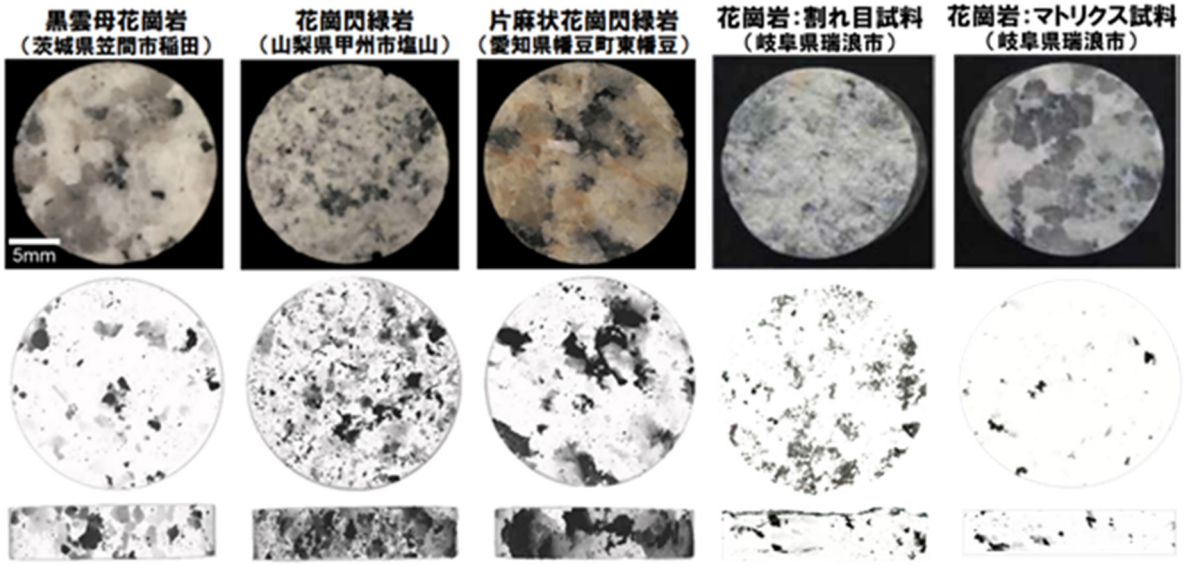


図3.2-6　拡散試験の対象とした国内結晶質岩試料の外観（上段）とX線CT画像解析による黒雲母抽出画像（中段：拡散面、下段：側面）

図3.2-7にCs^+の透過拡散試験の結果を示す。また、比較のため、令和2年度に取得した、黒雲母花崗岩、花崗閃緑岩、片麻状花崗閃緑岩のI^-の拡散データも合わせて図3.2-7に示した。図中の減衰曲線はトレーサー溶液側のトレーサー濃度の時間変化を示し、破過曲線は模擬地下水側のトレーサー濃度の時間変化を示す。いずれの試料においてもCs^+の減衰曲線はほぼ一定であるが、黒雲母花崗岩、花崗閃緑岩、片麻状花崗閃緑岩のI^-の減衰曲線はわずかに増加傾向、花崗岩（割れ目試料およびマトリクス試料では減少傾向が見られた。しかしながら、トレーサー溶液中のI^-濃度測定ではその初期濃度が高いことから希釈倍率を1000倍と高くする必要があったため、測定値のばらつきが大きいと考えられる。このため、I^-の減衰曲線の傾向については測定精度の改善を含め、その要因を検討する必要がある。一方、破過曲線では、いずれの試料においても、Cs^+およびI^-濃度は時間経過に伴い明確な増加傾向を示した。黒雲母花崗岩および花崗閃緑岩では、Cs^+よりI^-の破過曲線の増加が顕著にみられた。このことは、I^-よりCs^+の方がより拡散性が低いことを示している。一方、片麻状花崗閃緑岩の破過曲線では、100日以前ではCs^+の収着によると考えられる遅延がみられるが、100日以降のCs^+濃度の増加割合はI^-より高くなっている。この結果は、片麻状花崗閃緑岩ではI^-よりCs^+の拡散性が高いことを示唆する。I^-よりCs^+の拡散性が高くなった理由として、試料中に含まれる黒雲母表面の静電相互作用による陽イオン加速または陰イオン排除効果が考えられる。片麻状花崗閃緑岩は、黒雲母花崗岩および花崗閃緑岩より黒雲母含有率が高いため、この効果が顕著に観測されたと考えられる。この結果は、令和3年度実施した$^{22}Na^+$をトレーサーとした透過拡散試験においても、同様の傾向の結果が得られている。一方で、瑞浪の花崗岩の破過曲線では、およそ50日以降からCs^+濃度の増加が顕著になり、I^-より高い拡散性を示している。この結果から、瑞浪の花崗岩においても黒雲母の影響と考えられる陽イオン加速または陰イオン排除効果が存在すると考えられる。しかしながら、EPMA, X線CTおよび薄片観察に基づく鉱物組成評価では、瑞浪花崗岩の黒雲母含有率は数%であり、黒雲母花崗岩や花崗閃緑岩とほとんど変わらない、もしくは、それらより低い値を示している。

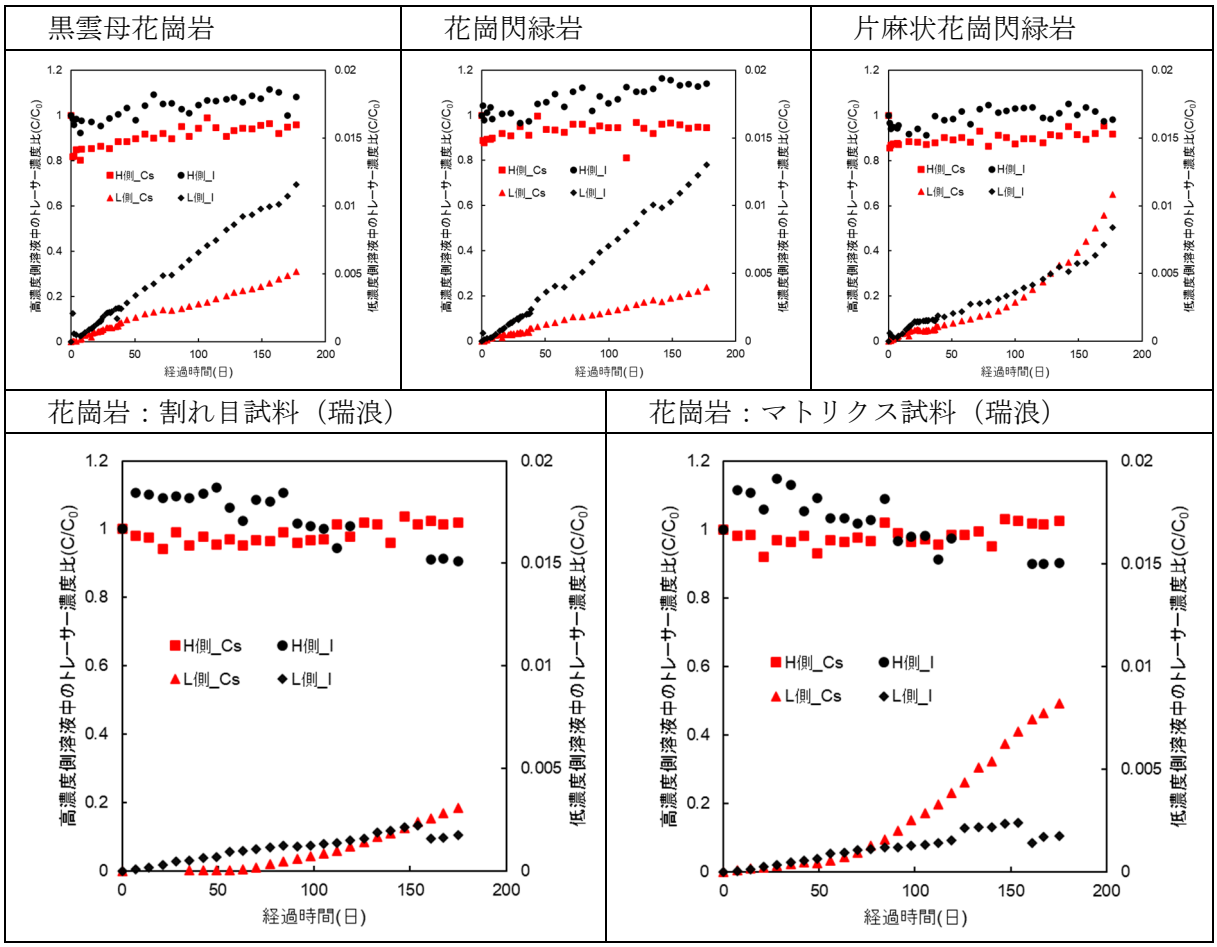


図3.2-7　国内結晶質岩試料中のCs^+およびI^-の拡散試験結果

これまでに取得してきた海外岩石および国内岩石の拡散試験データを用いて、陽イオン加速および陰イオン排除効果の度合いを評価するため、中性化学種であるHTOの実効拡散係数と陽イオンおよび陰イオン種の実効拡散係数の比を図3.2-8に示した。海外岩石は、海外の地下研究施設から採取された花崗閃緑岩（グリムゼル、スイス）および片麻岩（オンカロ、フィンランド）を対象とした。これらの岩石は、それぞれ5 % - 15 %，20 % - 40 %程度の比較的高い黒雲母含有率を有している（Tachi et al., 2015; Andersson et al., 2020; 日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2020）。また、評価に用いる実効拡散係数は、HTO, $^{22}Na^+$および$^{36}Cl^-$のデータを対象とした（Tachi et al., 2015; 日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2020; Fukatsu et al., 2021）。一方で、国内岩石は、本事業でデータ取得を進めてきた黒雲母花崗岩（茨城県笠間市稲田）、花崗閃緑岩（山梨県甲州市塩山）、片麻状花崗閃緑岩（愛知県幡豆町東幡豆）中のHTO, $^{22}Na^+$およびI^-の実効拡散係数データを用いた（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2022）。図3.2-8に示すように、国内岩石の黒雲母花崗岩および花崗閃緑岩では、陰イオン排除効果はわずかにみられるが、陽イオン加速効果はみられなかった。一方で、これらの岩石より黒雲母含有率が高い片麻状花崗閃緑岩では、陰イオン排除および陽イオン加速効果が観測された。国内岩石と海外岩石を比較すると、グリムゼルの花崗閃緑岩の陰イオン排除効果および陽イオン加速効果は、国内岩石より顕著にみられた。一方で、片麻岩の陰イオン排除効果は、グリムゼルの花崗閃緑岩より顕著にみられたが、陽イオン加速効果は確認できなかった。これまでの本事業において、グリムゼルの花崗閃緑岩を対象に、明瞭な陽イオン加速と陰イオン排除効果を確認し、その定量的な評価モデルの構築を進めてきた（日

本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2020）。しかしながら、国内外の多様な結晶質岩中のデータの比較から、黒雲母等の層状ケイ酸塩鉱物が、陽イオン加速や陰イオン排除を含む拡散挙動に重要な役割を果たしていることが確認できたものの、これらの効果は、黒雲母等の含有率のみで表現できるようなものではない。多様な結晶質岩中の拡散挙動の表現するためのより一般化されたモデルを構築していくためには、黒雲母等の含有率のみではなく、黒雲母等鉱物内の間隙率や粒界間隙の連続性等もあわせた定量化とモデル化を検討していく必要がある。

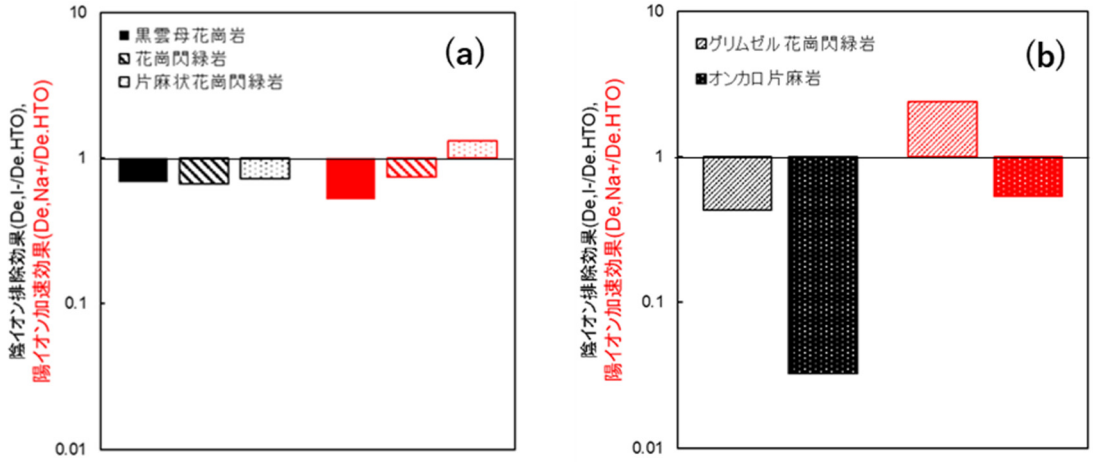


図3.2-8　(a)国内結晶質岩と(b)海外結晶質岩の陽イオン加速・陰イオン排除効果の比較

2) 結晶質岩の割れ目中の核種移行モデルの開発

割れ目からマトリクスにかけての核種移行特性を理解するため、先行事業において、グリムゼル原位置試験場から採取した比較的単純な割れ目特性を有する小規模なコア試料を対象に、割れ目部とマトリクス部の鉱物・間隙分布の分析、割れ目部を含むコア試料中の室内トレーサー試験および収着･拡散試験を組み合わせた研究を実施してきた（日本原子力研究開発機構, 2018; Tachi et al., 2018）。実際の割れ目に適用可能なより現実的なモデルを構築するため、本事業ではより複雑で、より大きなスケールの割れ目を含むグリムゼルの岩石試料を対象として、室内試験によるデータ取得とモデル改良を進めてきた（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019; 2020; 2021; 2022）。

割れ目中の核種移行モデルを、原位置条件の割れ目へ適用可能なモデルとしていく上で、天然の割れ目の構造の不均質性をより大きなスケールと実際の原位置条件で明らかにしていくことが重要となる。特に、結晶質岩においては割れ目内の連続した流路（チャンネル構造）の把握とその核種移行への影響の評価が重要となるが、このようなチャンネル構造を評価する上で、より大きなスケールや原位置条件での試験が不可欠となる。ここでは、別途国際共同研究として計画されているグリムゼル原位置試験場での割れ目部を対象とした原位置トレーサー試験（この原位置試験は本事業とは別の事業で実施されるものである）との連携を念頭に、より複雑で大きなスケールの割れ目試料を対象として、割れ目の特性評価、収着・拡散試験、トレーサー試験を実施し、割れ目中の核種移行評価モデルの高度化を目指した研究を進めてきた。

平成30年度から平成31年度にかけて、図3.2-9(a)および(b)に示すように、原位置試験の候補として検討しているグリムゼル原位置試験場のGAMサイト（以前にガス移行試験が実施されたサイト）(Marschall and Lunati, 2006)の割れ目帯の坑道壁面から割れ目を中心付近に含む20 cmほどの直径と長さのコア試料を採取し、割れ目周辺の鉱物・間隙分布等を分析するとともに、収着・拡散試験および室内トレーサー試験を実施した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･

資金管理センター, 2019; 2020）。収着・拡散試験は、移行特性の異なるトレーサー（HDO：重水, Cs, Se, NiおよびEu）を対象として実施し、マトリクス部と比較して割れ目部の実効拡散係数が低い傾向や、収着分配係数はEu > Ni > Cs > Seの順となり、割れ目部の方がマトリクス部に比べて分配係数がやや大きくなる傾向等が確認された。これらの傾向は、グリムゼル岩を用いた先行試験(Tachi et al., 2018)と概ね整合する傾向であった。

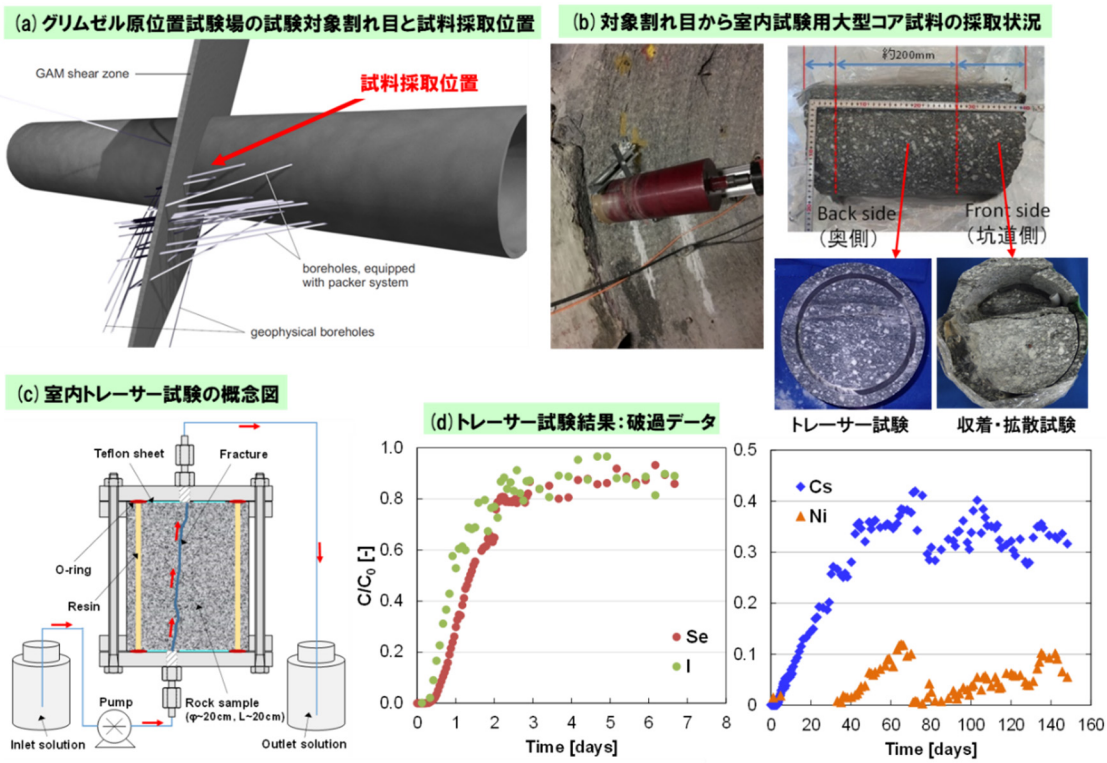


図3.2-9　(a)グリムゼル原位置試験場の試験対象割れ目帯と試料採取位置、(b)大型コア試料の採取状況、(c)室内トレーサー試験の概念図、(d)トレーサー試験で得られた破過データ

さらに、図3.2-9(c)に示すような体系で実施された、約20 cmの大型コア試料を用いた室内トレーサー試験では、同図(d)に示すように、非収着性のIについては数日のうちに破過し、一方で、収着性のCsやNiについては、60日程度かけて徐々に濃度が上昇する傾向が確認できたものの、70日付近から濃度が減少して再び増加していく傾向が確認された。このトレーサー試験の結果についても、トレーサーの移行特性に応じた遅延の傾向性（Eu > Ni > Cs > Se > I）が明瞭に確認でき、当該試料を用いた収着・拡散試験や先行研究で得られた傾向(Tachi et al., 2018)とも整合するものである。

令和2年度以降は、トレーサー試験結果の解釈を目指して、試験に用いた大型コア試料の割れ目からマトリクスにかけての不均質性を把握するためのX線CT分析データの解析・評価を行うとともに、トレーサー試験後の割れ目表面のトレーサー濃度分布の取得を進めてきた（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2021; 2022）。令和4年度は、X線CT分析データの解析・評価やトレーサー試験後の割れ目表面のトレーサー濃度分布データを拡充するとともに、これまでに得られた一連の試験・分析データをもとに支配的な移行経路の推定や核種移行モデルの構築を行い、室内トレーサー試験結果の解釈を試みた。さらに、割れ目近傍の不均質性を考慮した核種移行モデルをもとに、不確実性解析を通じて、重要な因子の抽出を試みた。

① 割れ目近傍の不均質性の評価

令和3年度までに、X線CT画像の解析により、グリムゼル花崗閃緑岩の大型コア試料の割れ目の不均質構造を評価してきた。具体的には、割れ目開口領域と岩石領域のCT値の差を利用して、割れ目開口部の領域を抽出し、割れ目の開口幅を評価した。また、抽出した割れ目の連続性の評価および割れ目内の充填鉱物（ガウジ）量の評価方法を検討した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2021; 2022）。令和4年度は、令和3年度に続き、割れ目内のガウジ充填率の評価を継続するとともに、これまでの一連の分析結果をもとに、解析で考慮すべき重要な不均質性を検討した。

グリムゼル花崗閃緑岩の大型コア試料のX線CT測定では、測定可能な試料サイズが装置により制限されたため、4つに分割して（スライス1 - 4）、それぞれのスライスを対象に測定を実施した。図3.2-10(a)にスライス1 - 4の側面からの円柱中央付近の横断面のX線CT画像を示す（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2021; 2022）。横断面のX線CT画像から、主経路はスライス1 - 4まで連続していることが確認された。一方で、横断面のスライス画像および実際のコア試料の観察の結果、スライス1 - 2にかけて主経路から分岐した割れ目が確認され、スライス2で主経路に合流していることが確認された。令和2年度に提案したX線CT像解析による開口幅分布の評価手法を用いて取得した主経路と分岐割れ目の開口幅分布と、主経路の開口幅の二次元マップを図3.2-10(b)に示す。主経路については、最大5 mm程度で、1 mm程度にピークをもつが、二次元マップからは開口幅は不均質であることが確認できる。一方で、分岐割れ目については、主経路と比較して開口幅が狭いことが確認された。

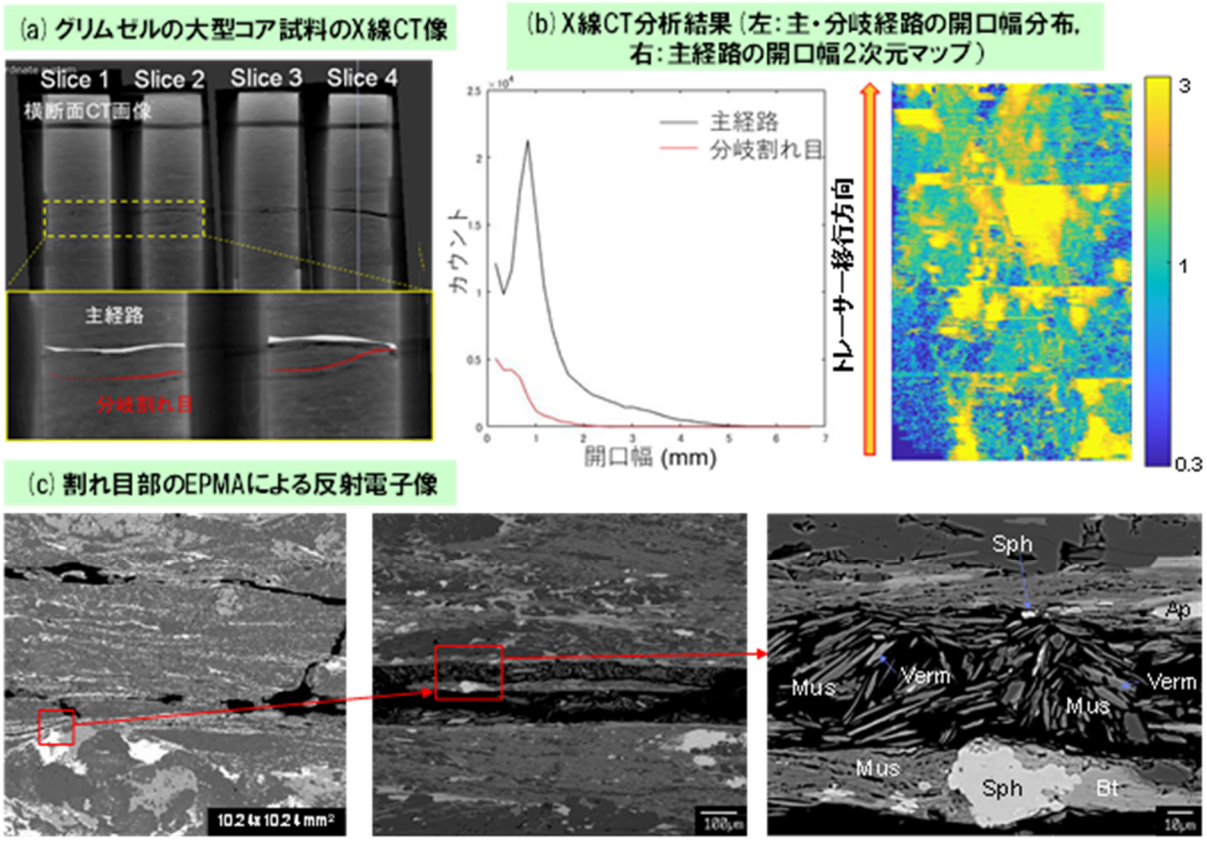


図3.2-10　X線CT画像解析による分岐割れ目の観察(a)と開口幅の解析結果(b)，EPMAによる割れ目部の反射電子像(c)

図3.2-10(c)に示す主経路割れ目周辺部のEPMAによる反射電子像からは、非常に複雑な割れ目性状を有し、開口部が不均質・不連続に存在している状況や、割れ目中にガウジが挟み込まれている状況等が確認された（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2020）。このように複雑ではあるものの、割れ目表面近傍に配向した雲母層が存在し、さらに割れ目表層部には粘土鉱物層が存在している状況は、グリムゼルの先行研究で観察された性状(Tachi et al., 2018)に類似しており、この先行研究で構築してきた割れ目表面からマトリクスにかけての3層からなるモデルを適用することがある程度可能であると考えられる。

上記のようにグリムゼルの対象割れ目中には、ガウジが不均質に存在していることが確認され、割れ目中の核種移行の経路や特性を把握する上で、これらのガウジの不均質な分布を定量的に評価することが重要となる。そこで、令和3年度に、X線CT画像の解析により割れ目中のガウジ分布を評価する方法について検討し、一部領域を対象にその適用を試みた（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2022）。この評価手法を、大型コア試料の主経路割れ目全体に適用した。具体的には、CT画像から抽出した割れ目領域を対象に、割れ目内のCT値をCT画像のy軸に対して平均した値をマトリクス部のCT値で規格化することにより、割れ目内のガウジ充填率を評価した。スライス1 - 4試料の割れ目中のガウジ充填率およびその分布を図3.2-11に示す。充填率は、1以上で対象領域の割れ目がガウジにより充填されていることを示す。充填率が1以上になる原因は、マトリクスおよび充填物のCT値が鉱物組成による異なること、および測定時のアーティファクト（特に画像両端部分の輝度が高くなる）ことが挙げられるが、図3.2-11(a)に示すように、CT画像で確認されるガウジとその充填率は概ね相関することが確認できる。図3.2-11(b)より、スライス1 - 4試料の割れ目内の充填率には偏りがあることから、トレーサーの移行経路も複雑であった可能性が考えられる。特に、スライス2試料は割れ目幅の中央付近以外はガウジ充填率が高いため、中央付近の流れが卓越していたことが予想される。

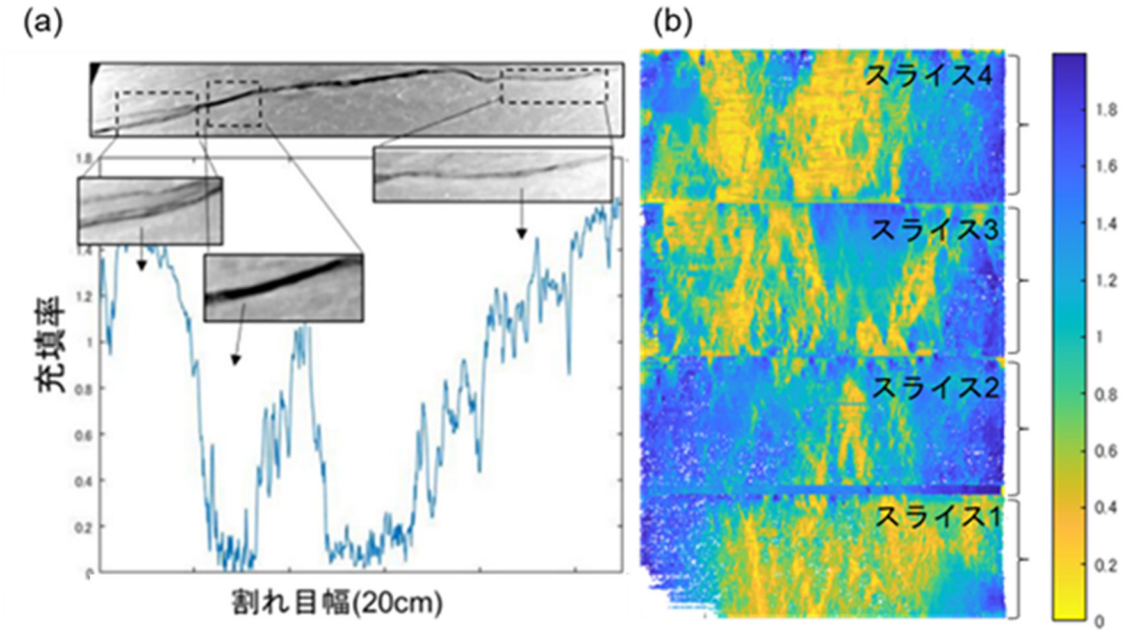


図3.2-11　X線CT画像解析による割れ目内のガウジ充填率(a)割れ目内のCT画像とガウジ充填率の比較、(b)スライス1 - 4試料の割れ目内の充填率分布

さらに、図3.2-10(a)で示した主経路割れ目から分岐している割れ目に着目して、X線CT画像から、割れ目とマトリクスの輝度の差を利用した二値化により、スライス2の割れ目と分岐割れ目を

可視化した結果を図3.2-12に示す。図のXY面の上側の割れ目は、これまで画像解析やその表面のトレーサー濃度分岐を実施してきた主経路と想定される割れ目である。その割れ目中央付近で分岐している割れ目は、YZ面上ではスライス2の途中で合流していることが確認された。この観察結果から、スライス1 - 2にかけて存在する分岐割れ目は、トレーサー移行の経路の一つとして機能した可能性が考えられる。

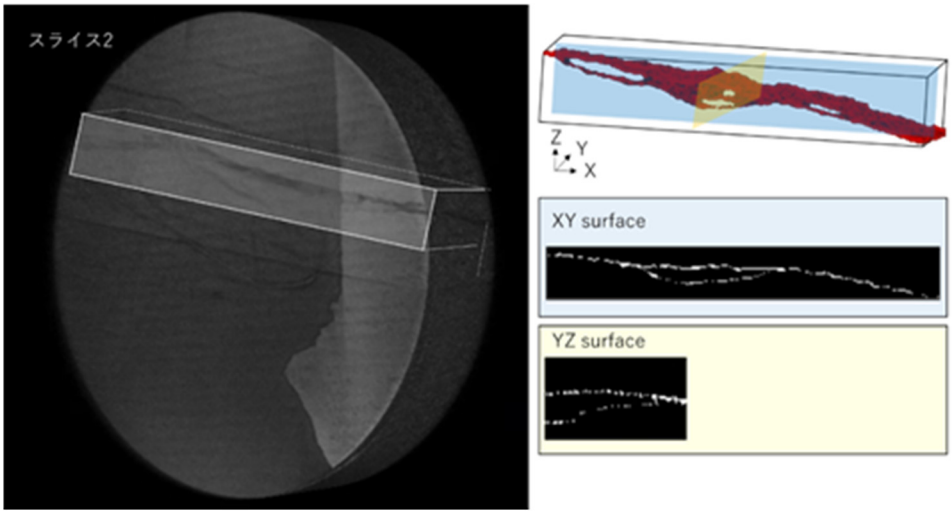


図3.2-12　CT画像解析によるスライス2試料の主経路割れ目と分岐割れ目の構造

これまでにX線CT分析結果から評価された主経路割れ目の開口幅分布とガウジ充填率の二次元マップと、代表的な5断面でのX線CT像とを図3.2-13にまとめる。これらの図を比較しながら、トレーサー移行方向に沿って、移行経路の特徴をみてみると、まず、トレーサーの注入側では割れ目が分岐しており、断面A - Cにかけて分岐割れ目が主経路割れ目につながっていることが確認できる。断面Aを含むスライス1では、中央よりやや右寄りに、充填率が比較的低い開口割れ目が存在している。スライス2では、上記の通り、ガウジの充填率が高く、移行経路は中央より右側の狭い範囲に限定される状況が推定される。スライス3では、ガウジ充填率が高い中央付近を挟んで両側が移行経路となり、スライス4では中央付近と左側が移行経路となりうるものと推定される。

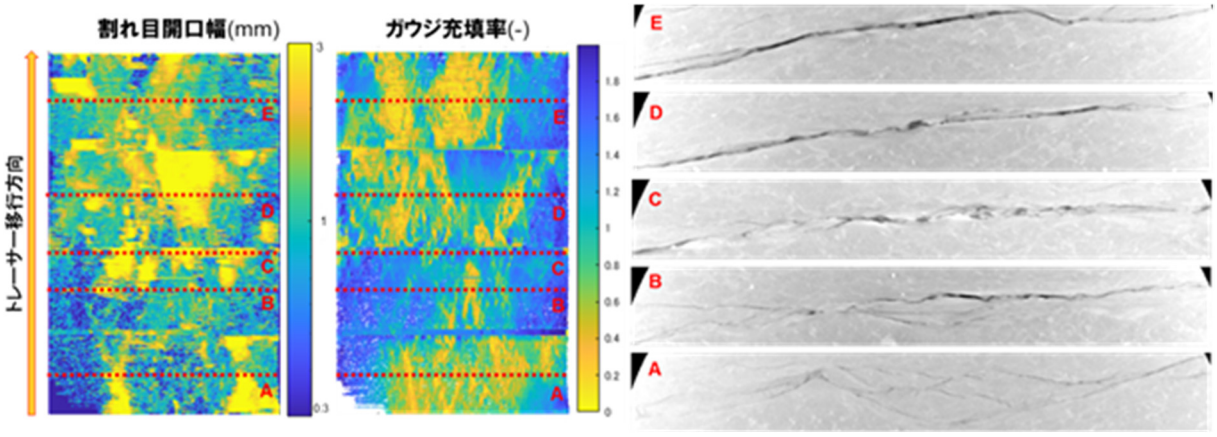


図3.2-13　X線CT分析による割れ目開口幅とガウジ充填率の分布の評価結果と、代表的なX線CT断面像との比較

② 割れ目中のトレーサー分布の評価

割れ目面からマトリクスにかけてのトレーサー元素の分布状況の分析については、先行研究で検討してきた手法(Tachi et al, 2018)適用して、主経路割れ目を対象にデータを取得してきた。その結果、図3.2-14に示すように、収着性の高いCs, NiおよびEuでは、トレーサー試験の上流に近いスライス1ほどそれらの濃度が高く、下流側のスライス4にかけて濃度の減少が確認され、さらに、それらの分布では割れ目の中央付近から右側にかけて濃度が高い状況が確認された（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2021; 2022）。

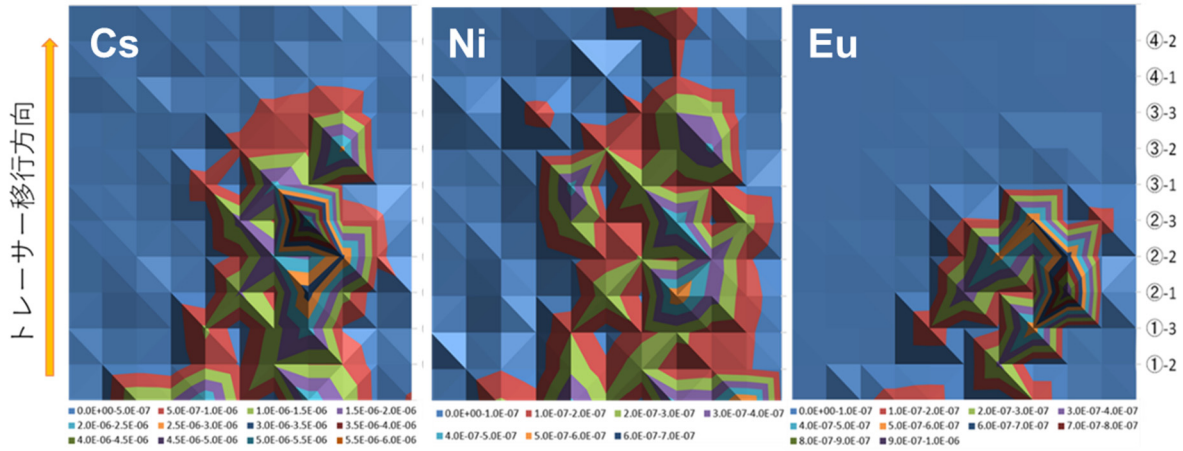


図3.2-14　室内トレーサー試験後の主経路割れ目表面上の収着性トレーサーの濃度分布

上記のX線CT測定の画像解析結果から、スライス1 - 2において、分岐割れ目が主経路割れ目につながって存在していることが確認された。この分岐経路がトレーサーの移行経路となっていたかどうかを確認するため、令和3年度までに報告した割れ目表面から試料採取して濃度分析を行う手法を用いて、分岐割れ目表面のトレーサー濃度を分析した。図3.2-15に示すスライス1および2の割れ目表面には、その中央付近に数センチ程度の比較的大きな試料破片（分岐割れ目破片）が存在し、その破片の下側がCT画像で観察された分岐割れ目であったと推定される。分岐割れ目と主経路割れ目の間に存在していた領域は容易に取り除くことができ、分岐割れ目表面をいくつかの領域に分割し、各領域内の粉末を採取した。粉末試料は、1 Mの硝酸5 mLに浸漬し、2週間程度攪拌した。その上澄み液を採取し、遠心濾過により固液分離した後、ICPMSを用いて、分取した試料溶液のトレーサー濃度を測定した。粉末試料中のトレーサー濃度の分析結果を図3.2-15に示す。いずれの領域においても、1×10^{-7} mol g^{-1}程度のCs, SeおよびNiが観測された。この結果は、主経路と想定される割れ目の濃度と比較し、ほとんど同様の値であった。Euについては、主経路と同様に、スライス1から2にかけて濃度が減少していることが確認された。これらの結果から、上記のX線CTの解析結果とあわせて、分岐割れ目がトレーサー移行経路の一つとなりうる可能性が示唆された。

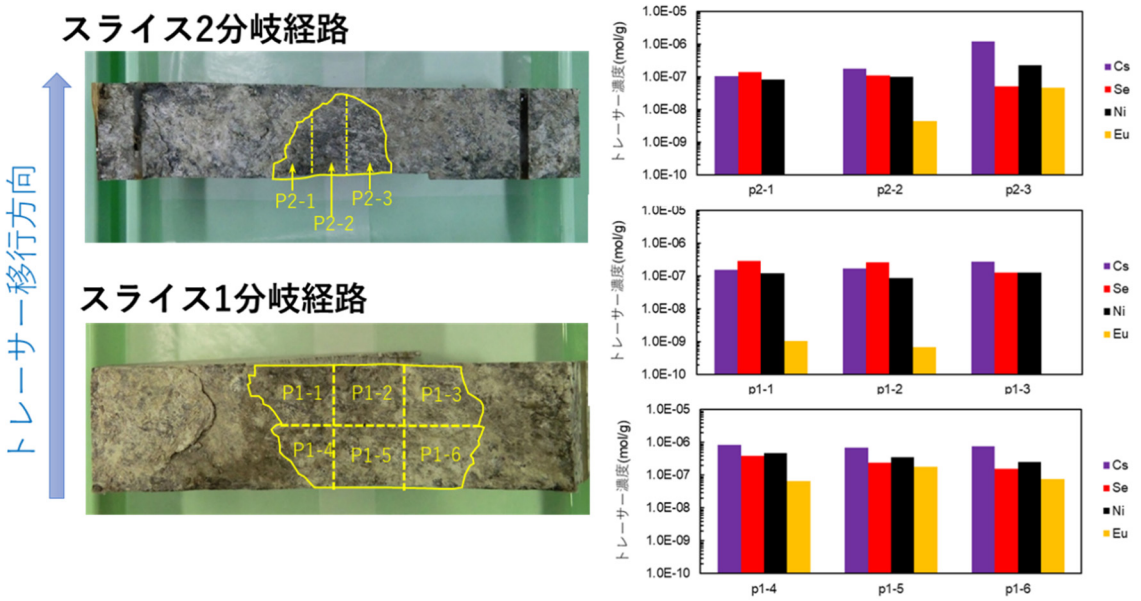


図3.2-15　分岐割れ目表面を対象とした分析箇所とトレーサー濃度分析結果

さらに、新たな分析手法としてレーザーアブレーションICPMSを用いて、スライス1 - 4試料の割れ目から採取したガウジ試料表面を対象にトレーサー濃度分析を試みた。スライス1 - 4から採取したガウジの様子を図3.2-16に示す。同図に示すガウジ表面の1 mm × 1 mmの領域を対象に、スポット径100 μmのレーザーを100 μm間隔で照射し、アブレートされた微量試料をICPMSで測定した。図3.2-17にスライス1 - 4から採取したガウジ（ガウジ1 - 4）の測定領域内のトレーサーの強度比の平均値を比較した。図3.2-17より、ガウジ1からガウジ4にかけてその強度比が低下している。この結果は、令和3年度に取得した割れ目表面のトレーサー濃度分布の傾向と一致していることから、トレーサー強度比と濃度に相関があることが確認できる。図3.2-18にスライス1から採取したガウジ表面の測定領域の写真とトレーサー（Ni-60, Se-77, Cs-133およびEu-153）の濃度分布を示す。トレーサーの濃度分布は、レーザーの出力やICPMSに導入された試料量のばらつきを補正するため、試料の構成元素の一つのSi-28を内標準として、トレーサーのシグナル強度をSi-28シグナル強度で規格化した。濃度分布のスケールの最小値は、トレーサーを含まない試料のトレーサー強度比の平均値、最大値は分析領域1のトレーサー強度比の平均値を用いた。また、構成鉱物の分布も合わせて推定するため、Al-27, Mg-24, K-39およびFe-57についても、同様の手法でシグナル強度比を評価した。各トレーサーの強度比分布を比較すると、Cs以外、概ね同じ傾向の濃度分布を示している。Csの強度比については、他のトレーサーでは低い値を示す領域（x: 1000 μm、y: 1000 μm付近）においても比較的濃度が高い領域が確認された。この結果から、ガウジ表面にCsに特異的に収着する鉱物等があると考えられる。同じ領域のMg, KおよびFeの強度比が高いことから、黒雲母が存在し、そこにCsが収着していたと考えられる。しかしながら、今回分析した領域は1 mm × 1 mmと限定的であり、また、レーザーアブレーションICPMSでは定量評価が困難なため、今回みられたガウジ表面へのCs収着がどの程度トレーサー移行挙動に影響を与えたかは把握できていない。このことを明らかにするためには、広範囲のトレーサー濃度分析、ガウジ表面の鉱物組成の分布および割れ目表面近傍のトレーサー濃度との比較が必要である。

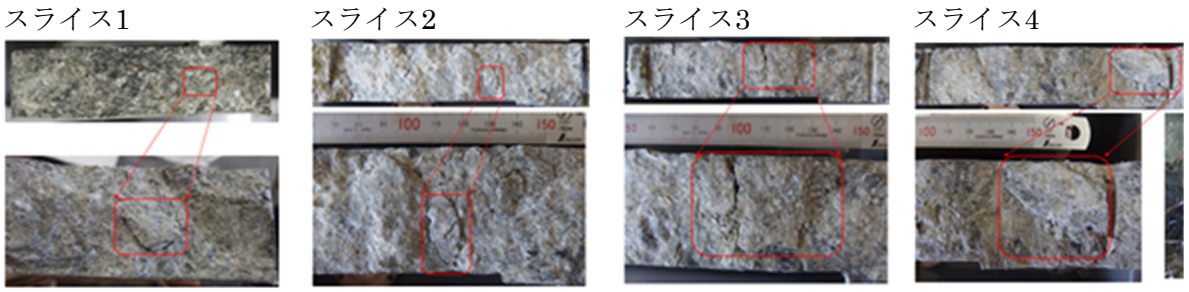


図3.2-16　スライス1 - 4の割れ目表面から採取したガウジ試料

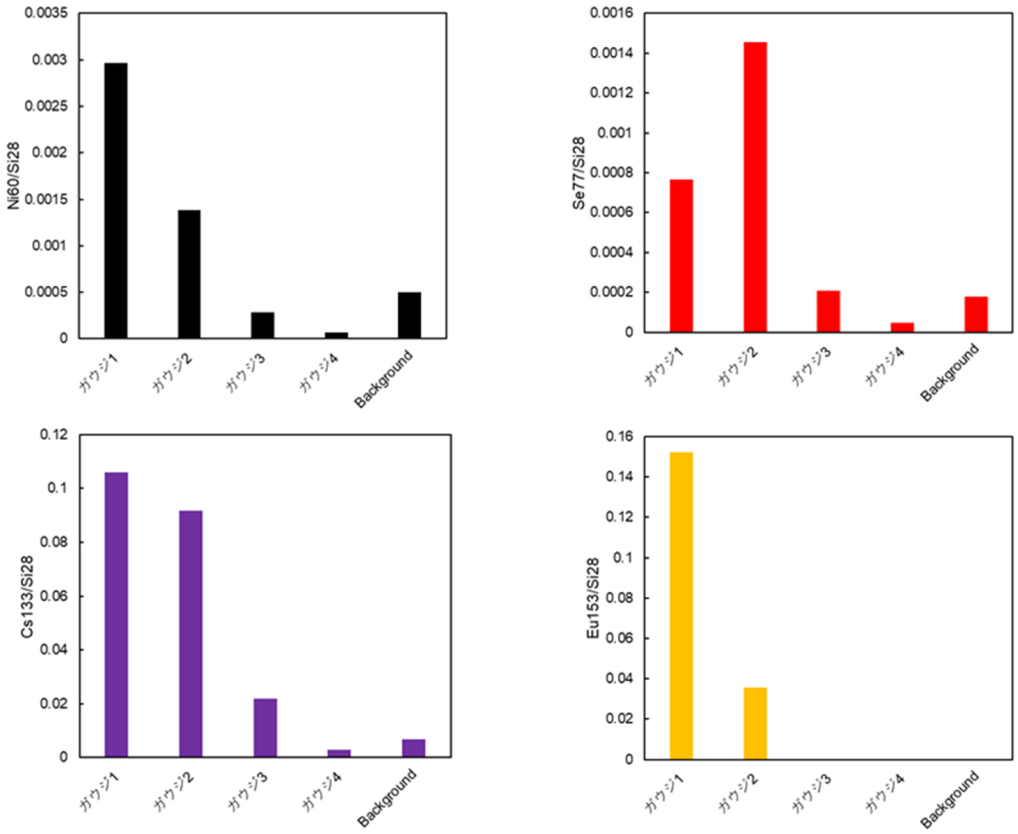


図3.2-17　スライス1 - 4から採取したガウジ試料表面のトレーサー強度比の平均値の比較

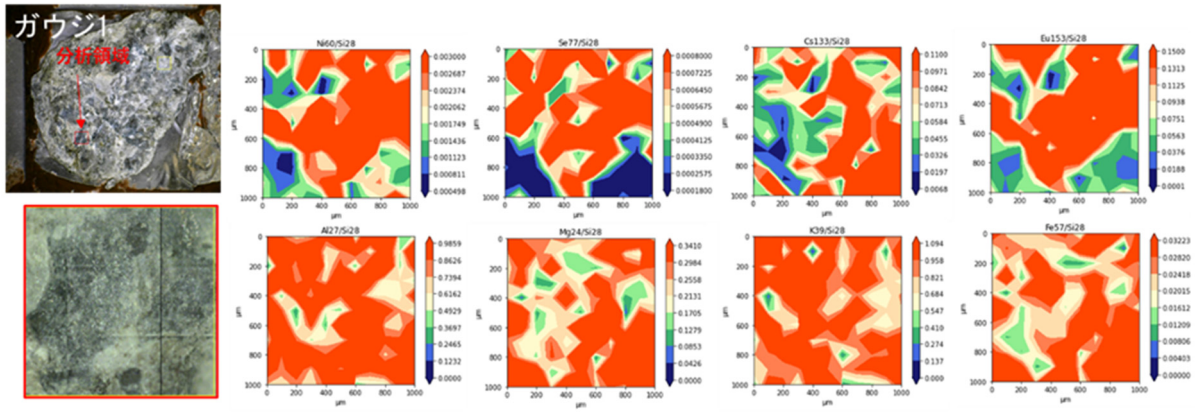


図3.2-18　スライス1の割れ目表面から採取したガウジ表面のトレーサー濃度分布

③ 割れ目中の室内トレーサー試験の解析評価

(a) モデル構築と感度解析

上記①に示したX線CT等から観察された割れ目部周辺の不均質性としては、割れ目表層からマトリクスにかけて層状構造、割れ目内のガウジ層の不均質な存在、割れ目の開口幅や開口部の連続性、割れ目の分岐等が重要な要素として抽出された。また、上記の②の割れ目表面のトレーサー濃度の分析結果からは、割れ目の一部領域を選択的に移行している可能性、流れが卓越した領域と停滞した領域（フロー・スタグナント領域）の寄与や、分岐した割れ目が移行に寄与していること等が確認された。これらの考慮すべき不均質性に関する要素を考慮して、割れ目中のトレーサー移行の概念モデルとして、図3.2-19(a)に示すような平行平板モデルをベースに上記のような様々な要素を組み込んだモデルを解析コードGoldSimのセルモデルで構築して解析を行い、図3.2-9(d)に示した室内トレーサー試験で得られた複数のトレーサーの破過データの再現を試みた。

この概念モデルによる解析として、まず、上記に示したような多様な不均質性等の要素がトレーサー移行に及ぼす重要性を把握するための感度解析的な検討を行った。最初に、割れ目の一部で流れが生じる影響を把握するため、流路領域の割合を段階的に狭くすることで流速を変化させて、感度解析的にトレーサーの破過挙動への影響を調査した。さらに、流路領域の割合の変化に加えて、移流領域・停滞領域（フロー領域・スタグナント領域）を組み込むことで、スタグナント領域への拡散影響についても調査した。これらの流路領域割合の変化や、フロー領域・スタグナント領域の効果を把握するために設定したモデルの概念図を図3.2-19(b)に示す。

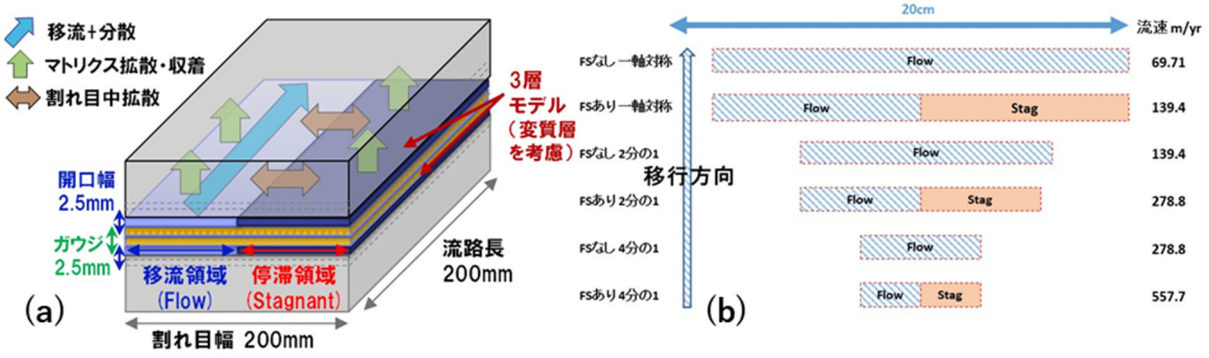


図3.2-19　(a)グリムゼルの岩石割れ目中移行モデルの概念図と(b)流路領域割合変化のモデルイメージ

流路領域割合の変化や、フロー領域・スタグナント領域の効果を考慮したCsの破過挙動の解析結果を、実測データとともに図3.2-20(a)に示す。図中に示す解析結果の比較から、破過曲線において流路領域割合の変化とその結果生じる流速変化は、破過挙動に非常に大きな影響を及ぼすことがわかる。一方、スタグナント領域の考慮の有無による影響については、流路領域が割れ目全体（1/1モデル）でその半分がスタグナント領域としたモデルと、流路領域は割れ目の半分（1/2モデル）でスタグナント領域を考慮しないモデルを比較することによって、実質的な流れが生じる領域と流速が同じ条件で、スタグナント領域の有無の効果を把握することが可能となる。図3.2-20(a)に示すこれらの2つの条件での解析結果（赤色の点線と黄色の実線）の比較より、スタグナント領域が存在し、フロー領域からスタグナント領域へと割れ目内を拡散し、さらにマトリクスへの拡散・収着を生じる効果はわずかであることが確認できた。

次に、ガウジ層の厚みの変化や割れ目表面近傍の変質層の厚みの変化がトレーサー移行に及ぼす影響の程度を、それぞれの厚みを変化させた感度解析によって把握した。なお、割れ目表面の

変質層および未変質のマトリクス中のトレーサーの拡散・収着特性は、グリムゼルの花崗閃緑岩の割れ目を対象に、割れ目表面からマトリクスにかけての3層モデルとその拡散・収着特性(Tachi et al., 2018)を適用し、ガウジ層には、この3層モデルの最表層の拡散・収着特性を適用した。Csの破過挙動の解析結果は、図3.2-20(b)に示すように、ガウジ層の厚みの変化や割れ目表面近傍の変質層の厚みのいずれの変化も、ガウジ内や変質層内へ収着性トレーサーの拡散・収着が促進される結果、破過挙動に大きく影響することが確認できる。なお、ガウジ層と変質層も同様の拡散・収着特性を与えているため、双方の厚さの変化は同程度となっている。このように収着性のトレーサーについては、ガウジ層と変質層の厚さの影響は大きいといえる。

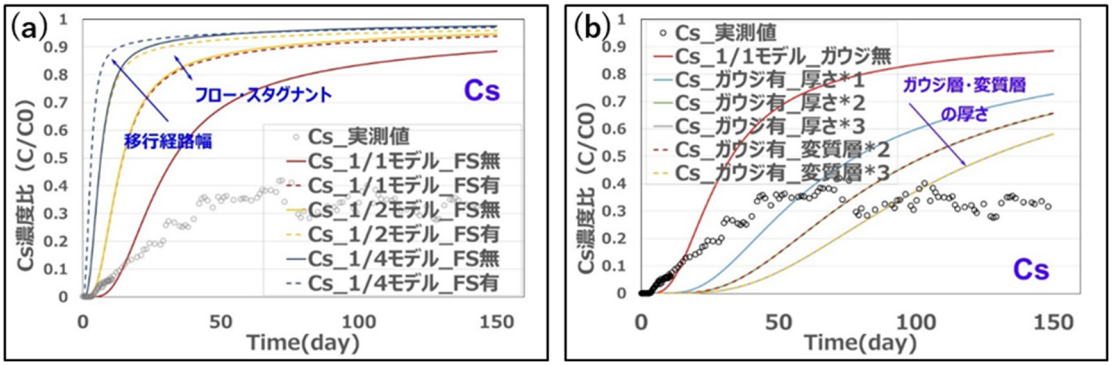


図3.2-20　(a)移行領域面積、フロー領域・スタグナント領域の効果、 (b)割れ目表面の変質層およびガウジ層の厚さの効果の感度解析結果

(b) モデル・パラメータの最適化評価

上記の感度解析の結果を踏まえ、スタグナント領域の効果を除く、モデル要素を組み合わせた最適化解析によって、図3.2-9(d)に示した室内トレーサー試験で得られた移行特性の異なる複数の元素を対象に、モデルとパラメータの最適化を検討した。まず、非収着性トレーサーであるヨウ素を対象として、移行経路の特性の推定を試みた。上記①と②の分析結果も考慮しつつ、割れ目内の移行経路の経路幅、割れ目の開口幅、割れ目表面の変質層の厚さを現実的に想定しうる範囲で変化させた解析の結果、図3.2-21(a)に示すように、20 cmの割れ目幅の1/3の移行経路、2.5 mmの割れ目の開口幅（ガウジ層の両側で全体で5 mm）、5 mmの割れ目表面の変質層（2.5 mmのガウジ層）の存在を仮定した場合に、ヨウ素の破過データを比較的良く再現することができた。さらに、このヨウ素のデータをもとに導出したモデルに対して、Csの拡散・収着特性を適用することで得られたCsの破過挙動は、図3.2-21(b)に示すように、Csの実測された破過データの傾向を概ね再現可能な結果となった。しかしながら、Csの破過データは、70日付近でCs濃度が減少しており、この変化はNiではさらに顕著であった（図3.2-22参照）。

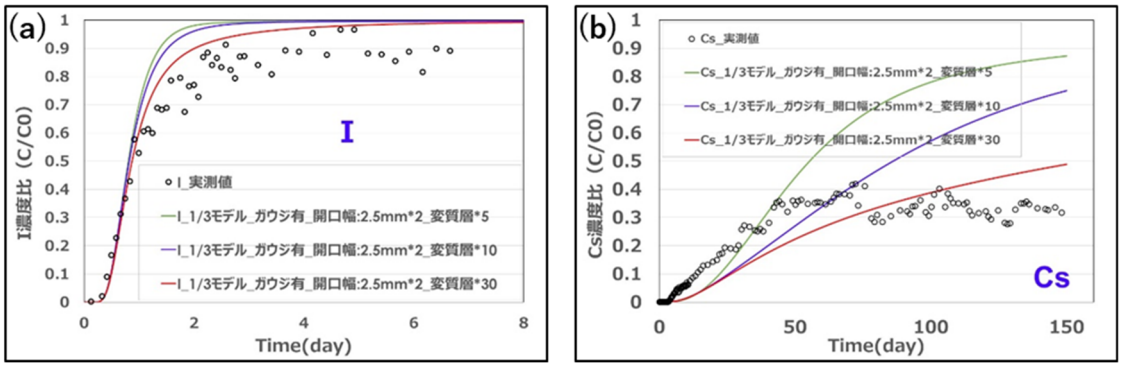


図3.2-21　変質層の厚さを変化させた条件での感度解析結果：(a) I, (b) Cs

このようなCsとNiの70日付近での破過濃度の急激な減少とその後の濃度変化は、一つの移行経路では表現することはできない。上記①で示したように、試験に用いた20 cm程度のコアに含まれる割れ目は開口幅やそこに存在するガウジの充填率の分布が不均質であり（図3.2-13参照）、さらに割れ目が分岐しており（図3.2-10参照）、複雑な移行経路をとることが想定される。また、上記②に示したように、分岐した割れ目内にもトレーサーが移行したことを示唆しており、これらのことを踏まえ、主たる割れ目を移行している状態から、トレーサー濃度の急激な減少が生じた70日付近で分岐経路が新たにトレーサーに移行経路として加わることを仮定したモデル解析を試みた。

上記のヨウ素の感度解析結果に基づき設定された移行経路の幅、割れ目の開口幅、割れ目表面の変質層のパラメータを基準にし、分岐した割れ目に移流経路が新たに加わることを仮定して、この事象が生じた時刻と、2経路目との流量のバランスをGoldSimの最適化機能を用いて求めた。さらに、不確実性が大きいと考えられる割れ目表面の変質層とガウジ層のトレーサーの収着・拡散特性の最適化を試みた。ここで、パラメータの最適化については、GoldSimに付属する「Optimization機能」を用いて検討した。Optimization機能では、目的関数（最小化または最大化したい特定の関数）、オプションの制約（満たすべき条件）、および1つ以上の最適化対象変数（モデル内の変数で変動可能な値）を指定する。次に、GoldSimはモデル計算を複数回実行して、各最適化変数の値の組み合わせの選択を系統的に行う。これにより、GoldSimは指定された制約を満たしながら目的関数を最適化（最小化または最大化）することが可能である。目的関数は割れ目表面のトレーサー濃度の破過曲線に対する実測値との残差二乗和とする。そして最適化対象変数は、割れ目の最表面に影響を及ぼす実効拡散係数と収着分配係数の2つのパラメータとした。

最適化により得られたCsの破過曲線を、実測データとともに図3.2-22(a)に示す。また、導出されたパラメータ値について表3.2-1および表3.2-2にそれぞれ示す。Csについては、最適化によって、実測データを概ね再現可能な結果が得られ、75日程度で2経路目が移行経路として加わり、その経路幅と流量バランスは1経路目と同程度で、割れ目の開口幅は2経路目が狭い値が導出された（表3.2-1）。この割れ目の開口幅の傾向は、図3.2-12に示した主経路（1経路目）と分岐経路（2経路目）のX線CTからの評価結果の傾向と整合している。Csの収着・拡散パラメータ（表3.2-2）については、先行研究で推定されたグリムゼルの花崗閃緑岩の割れ目の最表層の拡散・収着特性(Tachi et al., 2018)に対して、収着分配係数は数倍高く、逆に実効拡散係数は1桁程度低い値が得られた。一方で、Niについては、同図(b)に示すように、Csと比較して、最適化結果と実測データに乖離があり、破過挙動における急激な濃度上昇の再現に課題が確認された。

以上のように、グリムゼルの20 cmの大型コアを対象に取得されたトレーサー試験結果に対し、割れ目周辺の不均質性やトレーサーの移行経路等の分析情報に基づき、それらを反映したより現

実的なモデルの構築と実験データの再現性の検討を行った。その結果、移行特性の異なる複数のトレーサーの実験データを概ね再現可能なモデル・パラメータを導出することができた。しかしながら、複数の移行経路の関与や、割れ目近傍のトレーサーの移行特性等、実験や観察からは特定が困難な部分もあり、今後割れ目試料を対象とした更なる試験データの拡充や分析手法の改良等を通じて、今回提案したモデルの妥当性を確認していくことが重要である。

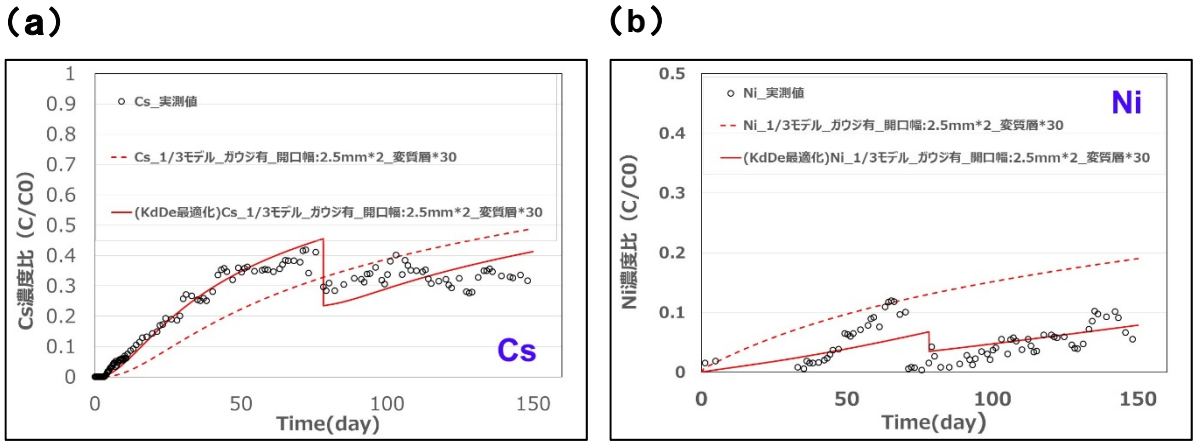


図3.2-22　2経路への分岐を想定したモデルの(a)Csと(b)Niの再現解析結果

表3.2-1　2経路への分岐を想定したモデルの共通パラメータ

分岐時刻 75.154（day）	割れ目幅(mm)	開口幅(mm)	流量バランス
Path1	200/3	2.5 (×2)	-
Path2	200/3	1 (×2)	0.485

表3.2-2　2経路への分岐を想定したモデルのCs, Niの収着・拡散特性の最適化パラメータ

Cs	初期値(m^3/kg)	K_d, D_e最適化 (m^3/kg)
K_d 1層目	0.062	0.151
D_e 1層目	1.50E-10	1.66E-11

Ni	初期値(m^3/kg)	K_d, D_e最適化 (m^3/kg)
K_d 1層目	2.03	0.66
D_e 1層目	1.21E-11	4.79E-11

④ 割れ目中の核種移行の不確実性解析

上記③において、グリムゼルの20 cmの大型コアを対象に、割れ目近傍の不均質性等を反映したモデルを検討した。具体的には、割れ目表面の変質層、割れ目内ガウジ層、選択的移行経路、フロー・スタグナント領域といった様々な不均質の要素を考慮したモデルを、解析コードGoldSim (ver. 11.1：GoldSim Technology Group, 2014)を用いて構築し、それらの効果を感度解析的に把握しつつ、最適化解析を試行した。ここでは、これらの多様な不均質性要素や核種の移行特性が、核種移行に及ぼす影響やその重要度を分析するため、GoldSimの確率論的解析手法を適用した検討を試みた。

GoldSimを用いた確率論的解析の流れを図3.2-23(a)に示す。ここでは、一例として、割れ目表面の変質層とマトリクス部からなる比較的な単純な系を対象に、割れ目中の地下水の流速、変質層の厚さ、変質層およびマトリクス部の核種の拡散・収着パラメータを変動させた不確実性解析を試行した。核種は上記③でも検討した非収着性のIと収着性のCsの2つを対象とした。パラメータセット生成コードであるLHSコード(LHS：Latin Hypercube random Sampling)を用いて、複

数の入力パラメータに対する設定値の範囲と分布形に基づきランダムサンプリングを行う。各サンプリングパラメータに対する核種移行解析を実施して、図3.2-23 (b)に例示するようなパラメータ相関の散布図を取得する。その後、GoldSimに備わる統計解析機能を用いることで、変動させた複数の入力パラメータと割れ目出口の核種の最大濃度比に対する偏順位相関係数(PRCC)の分析評価を行う。この偏順位相関係数は、2つのパラメータの相関を示し、その正負の値が大きいほど正負の相関が強いことを示す。図3.2-23 (c)に示すように、非収着性のIは流速に加え、より深い領域までマトリクス拡散が生じるためにマトリクス部のD_eが、最も影響が大きいパラメータとなる。一方、収着性のCsについては、流速に加えて、割れ目表層の変質層のK_dとD_eが影響の大きいパラメータとなる。このようなGoldSimの不確実性解析手法を適用することによって、上記③で検討したような様々な割れ目部の多様な不均質性要素や核種移行特性が、核種移行に及ぼす影響度を分析することが可能であり、そのような系統的な分析評価を更に進めていく必要がある。

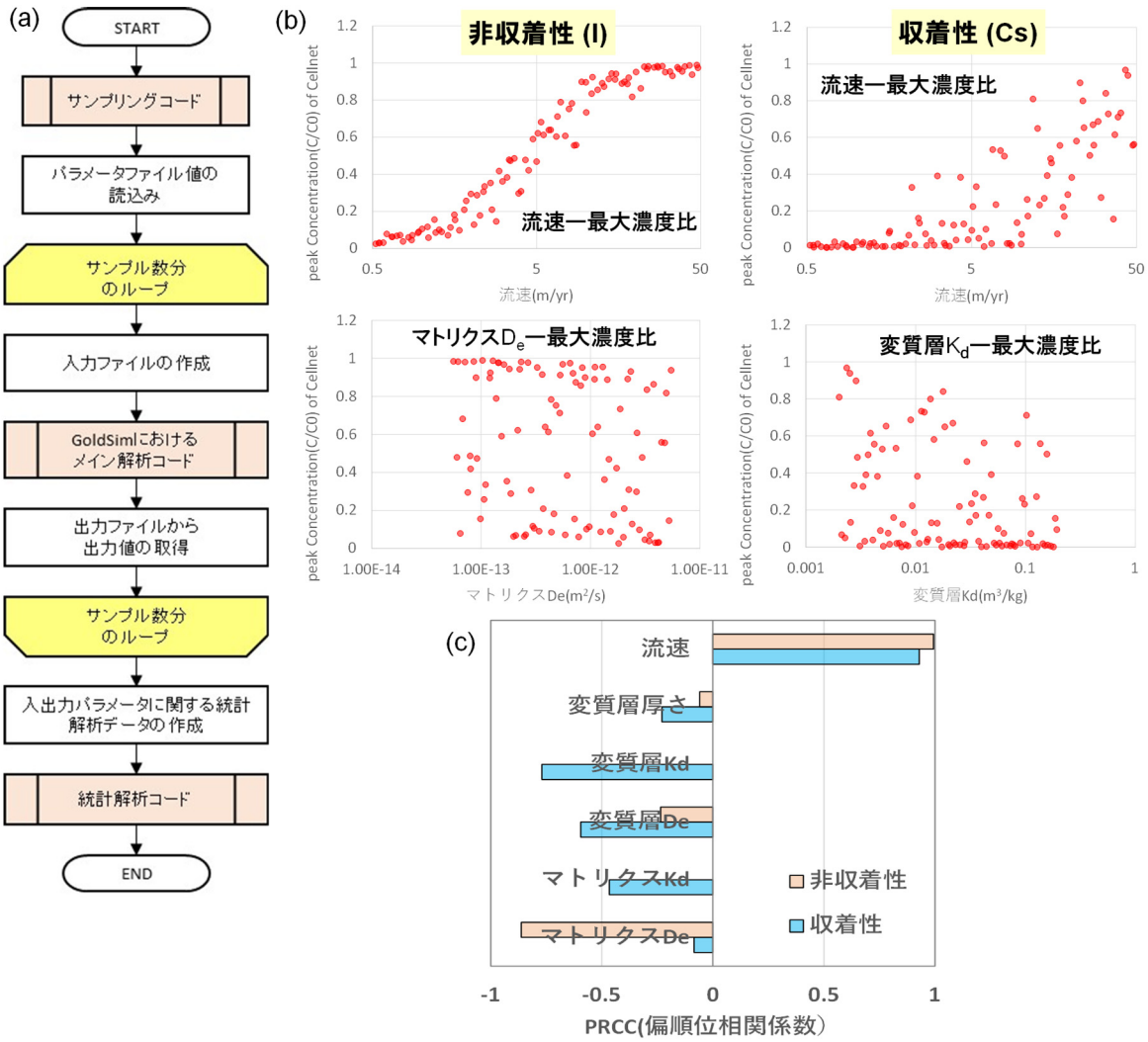


図3.2-23　GoldSimの不確実性解析手法を適用した割れ目中核種移行に及ぼす重要因子の分析結果：(a) 不確実性解析フロー、(b) パラメータ相関の散布図、(c) 偏順位相関係数

3) 核種移行モデルの性能評価解析への反映に関する検討

結晶質岩中の核種移行評価手法として、上記のようにマトリクス部と割れ目部を対象に、鉱物や間隙の分布の不均質性とその核種移行への影響に関する現象理解とそれを反映したモデルの開

発に取り組んできた。これらの成果をもとに、核種移行現象のより精緻な取り扱いや、実際の地質環境の不均質性や環境条件の変遷等が核種移行へ及ぼす影響を取り扱うための解析手法を構築するとともに、その性能評価への反映方策を検討していくことが重要である。令和3年度までに、核種移行プロセスや環境条件の変遷等が核種移行へ及ぼす影響を取り扱うため、岩石割れ目を対象とした核種移行解析手法を構築し、大きなスケールまでの解析を可能とする解析手法の拡張を進めてきた（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2019; 2020; 2021; 2022）。令和4年度は、これまでに割れ目部の不均質性や収着現象のより精緻な取り扱いや、地質環境の長期変遷の影響を考慮した核種移行解析等、これまでの成果を実際の核種移行解析に反映するための検討と解析を実施した。

実際の地質環境の不均質性や環境条件の変遷等が核種移行へ及ぼす影響を取り扱うための解析手法の構築と確証のアプローチを、これまでに図3.2-24に示すように整理してきた（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2021）。このアプローチの主たる部分は、上記や先行研究で取り組んできた割れ目等の不均質性や収着メカニズムの影響に加え、地下水化学や酸化還元環境の変遷とそれらに伴う鉱物の溶解・沈殿の考慮といった地質環境の長期変遷の影響、空間的なアップスケールの影響をより精緻に取り扱うことが可能な核種移行解析手法を検討することである。これらの高度化要素を組み込んだ核種移行モデルを構築しつつ、感度解析や環境変遷を考慮した解析等を実施することにより、考慮すべき影響の大きい重要な因子と環境変遷やスケールの影響等の把握を進めてきた（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2021; 2022）。さらに、核種移行評価への影響度の大きい重要なプロセスを性能評価へ反映していく観点から、それらの簡易な取り扱いの方策を検討するとともに、精緻化モデルとの比較によってその有効性を確認していく必要がある。また、後述するナチュラルトレーサーを用いた解析のような天然事例評価によって、精緻な核種移行モデルや地質環境の長期変遷の取り扱いについての妥当性を確認していく取り組みについても検討していくことが重要である。

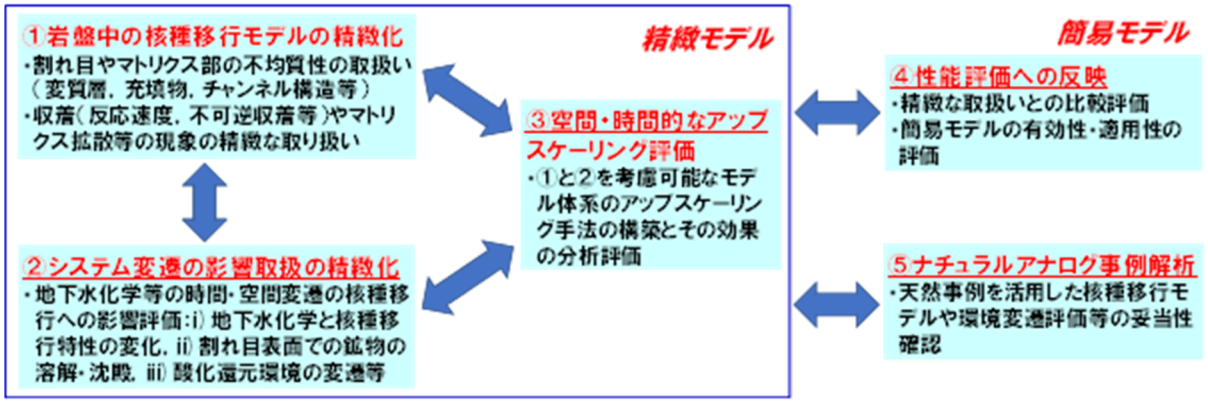


図3.2-24　核種移行現象や地質環境の不均質性と長期変遷を反映した核種移行現象解析モデルの構築・確証のアプローチ

これまでに、上記のアプローチに沿って、隆起シナリオを想定して、核種移行プロセスや環境条件の変遷等が核種移行へ及ぼす影響を取り扱うための大きなスケールの割れ目を含む岩石を対象とした、より精緻な核種移行解析手法の検討を進めてきた。令和4年度は、精緻なモデルを核種移行解析に適切に反映するための方法論を検討するため、図3.2-25に示すように、環境条件変遷と核種移行現象の取り扱いを、精緻なモデルから、中間的なモデル、さらに簡易なモデルへと段階的に簡略化する手法を用いて、地質環境変遷を考慮した核種移行解析を試行し、それらの解析

手法の有効性や課題を評価した。ここでの検討は、令和3年度までの検討の流れを踏襲し、隆起シナリオにおける地下水化学の変遷と、それに伴う核種収着挙動の変化に着目することとする。地質環境の長期変遷としては、多様な環境変遷の要素を含む事例として、先行事業から検討を進めてきた結晶質岩における隆起シナリオを考慮した核種移行を対象に検討を行った。

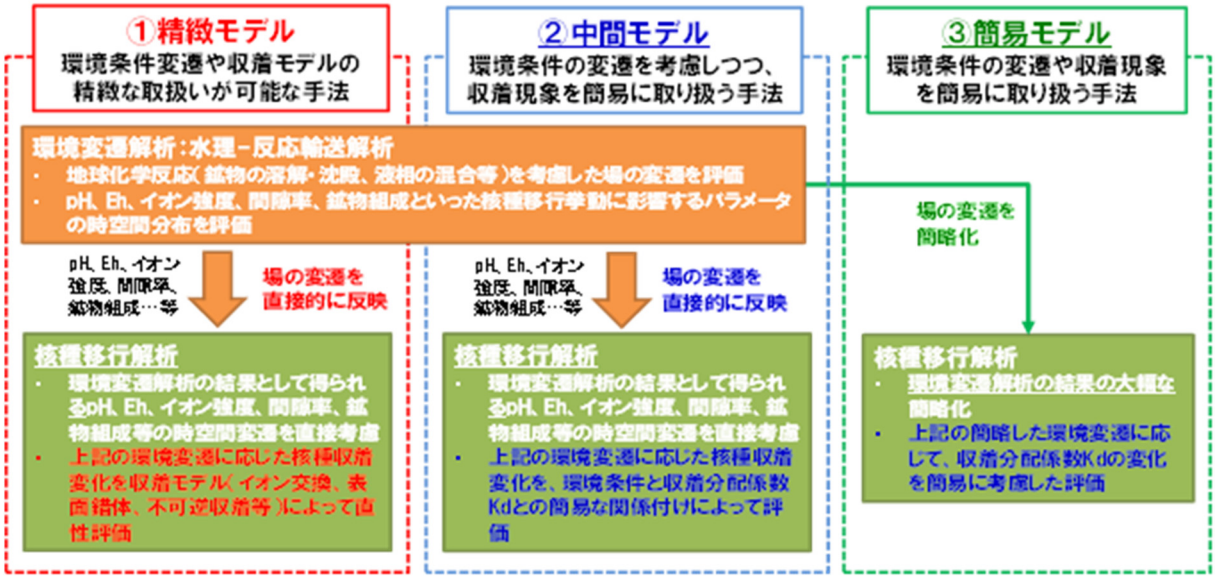


図3.2-25　地質環境の環境変遷とそれに伴う核種移行特性の変化を取り扱う核種移行モデルの検討アプロ―チ：精緻・中間・簡易モデルの関係

隆起シナリオについては、これまでに図3.2-26(a)に示すように、わが国の結晶質岩の隆起プロセスにおいて想定される地質環境変遷とその核種移行への影響プロセスを整理した上で（日本原子力研究開発機構, 2018）、地下水の組成や酸化還元条件の変化の影響を考慮した核種移行解析を検討してきた（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2020; 2021; 2022）。核種移行解析には、有限体積法による物質移行シミュレーションが可能なQPACコード(Quintessa, 2013)を使用し、より大きなスケールとして500 mの割れ目を対象に構築してきた解析手法（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2020）を用いた。解析体系は図3.2-26(b)に示すように、割れ目からマトリクス方向へは、1 mを25セルで構成し、割れ目部を1セル、変質領域(5 cm)を5セル、残りの未変質マトリクス部(95 cm)を19セルで表現した。また、割れ目面に平行な方向(500 m)へは、幾何級数的にサイズを増加させた100セルで構成したモデルを構築してきた。令和4年度は、このモデル体系をベースとして、マトリクス領域として5 cmの変質領域のみを考慮した体系を対象に、地下水環境の変遷を考慮したCsの核種移行解析を検討した。

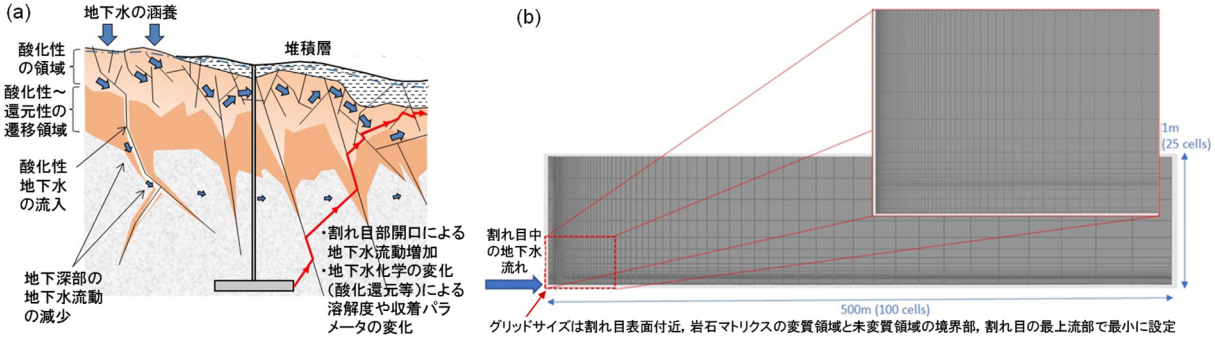


図3.2-26　隆起シナリオにおける核種移行解析で考慮すべきプロセス(a)と500mの割れ目中の核種移行解析体系のグリッド構成(b)

想定する環境変遷としては、海水系地下水(SRHP)から降水系地下水(FRHP)へ、逆に降水系地下水(FRHP)から海水系地下水(SRHP)へと、それぞれ核種移行開始後の1万年から5万年にかけて変遷が生じる条件を想定した。Csの収着の取り扱いについては、先行研究を踏まえ、花崗岩中の黒雲母がCsの収着を支配することを仮定し、Kyllönen el al. (2014)の黒雲母へのCsの収着モデルをベースに検討した。この黒雲母へのCs収着モデルは、3つの収着サイトを仮定したモデルであるが、ここでは黒雲母のベーサル面でのイオン交換反応のみを対象に単純化した1サイトイオン交換モデルを精緻なモデルとして設定した。一方で、中間モデルは、この1サイトイオン交換モデルで表現される収着分配係数(K_d)と液相のイオン強度との関係式を設定して、間隙水のイオン強度に応じてK_dへ変動させる方法で解析を行った。さらに、簡易モデルでは、地下水変遷過程の設定した時間に瞬時にK_dを変化させる方法を適用した。2つの地下水変遷パターンに対する複数のモデルによる核種移行解析の結果を図3.2-27に比較する。同図(a)に示すSRHP ⇒ FRHPの変遷パターンでは、精緻モデルと中間モデルのいずれにおいても、SRHP ⇒ FRHPへの変遷に伴うK_dの増加に伴って、概ね整合的にCs濃度が低下していく傾向が確認できる。これらの精緻モデルと中間モデルによる解析結果におけるCsの液相濃度と間隙水のイオン強度の時間変遷を図3.2-28に比較するが、概ね整合する変化が確認できる。一方で、同図(b)に示すFRHP ⇒ SRHPの変遷パターンの結果においても、精緻モデルと中間モデルのいずれにおいても、FRHPからSRHPへの変遷に伴うK_dの低下に伴って、生じる時間に差異はあるもののピーク上のCs濃度が双方で確認できる。さらに、双方の変遷パターンにおける簡易モデルをみると、瞬時にK_dを変化させることで、Cs濃度の変化の方向性や程度はある程度表現できるものの、その変化の傾向を十分に再現することは難しいといえる。

これらの解析結果の比較から、ここで仮定したCsの1サイトのイオン交換反応といった比較的単純な収着メカニズムを対象とした場合には、環境変遷に伴うK_dの変化を中間モデルによって精緻モデルと同様な結果を得ることが可能であり、中間モデルの適用が可能であるといえる。しかしながら、より複雑なモデルを対象とした場合、例えば、本来想定すべき黒雲母へのCsの3サイトのイオン交換反応や、複数の表面化学種を仮定する表面錯体反応等においては、上記のような中間モデルの適用が困難になる可能性も想定され、より多様な条件を対象に、同様の評価を検討していくとともに、その結果に基づき精緻モデルや中間モデルの適用方策を検討していく必要がある。

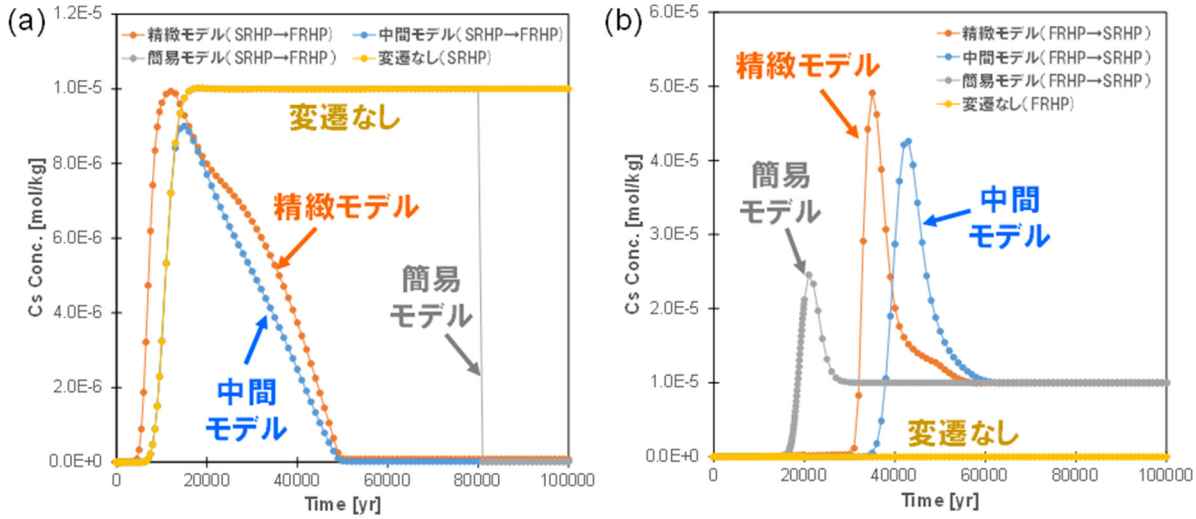


図3.2-27　環境変遷を考慮した条件下での複数のモデル（精緻、中間、簡易モデルおよび変遷なし）によるCsの核種移行解析結果：(a) SRHP ⇒ FRHP変遷パターン、(b) FRHP ⇒ SRHP変遷パターン

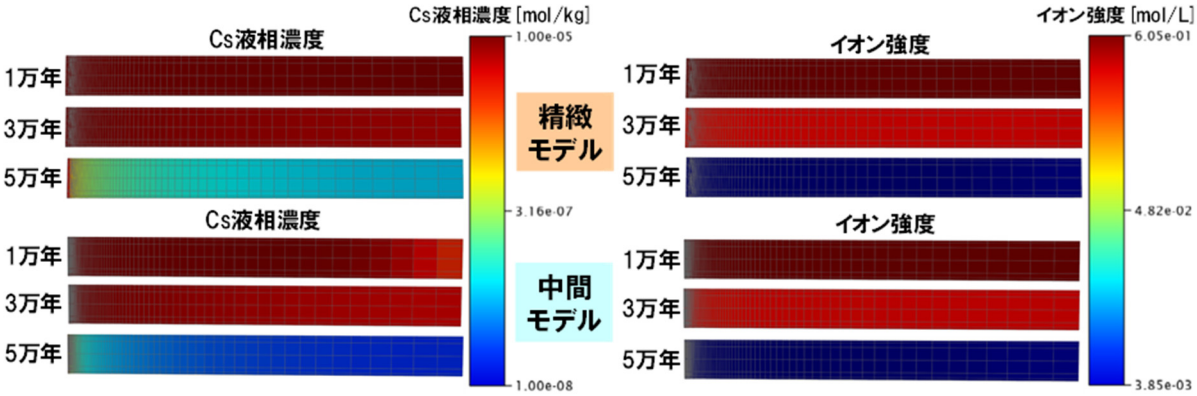


図3.2-28　環境変遷（SRHP ⇒ FRHP変遷パターン）を考慮した条件下での核種移行解析におけるCs液相濃度と間隙水イオン強度の時間変化：精緻モデル（上段）と中間モデル（下段）

(2) 堆積岩中の核種移行評価技術の開発

1) 堆積岩マトリクス中の核種移行モデルの開発

① 幌延の泥岩マトリクス中の核種移行モデルの開発

先行事業（日本原子力研究開発機構, 2013a, 2018）において、緩衝材ベントナイトや堆積岩等を対象として、多様な核種の収着・拡散データを室内試験により取得するとともに、統合収着・拡散（ISD）モデルの開発を進めてきた(Tachi et al., 2011, 2014, 2016; Tachi and Yotsuji, 2014)。幌延深地層研究センターの地下深部から採取した泥岩マトリクスを対象とした収着・拡散モデルについては、多様な核種の収着・拡散データがベントナイトと同様の静電的な相互作用の明瞭な影響を示すこと、20 %程度の粘土鉱物を含んでいること等を踏まえ、粘土成分を主体としたモデル化手法を構築してきた(Tachi et al., 2011, 2016)。本事業では、このような幌延の泥岩マトリクス中の核種移行モデルの高度化と確証に向けて、不均質な間隙特性やその核種収着挙動への影響を評価していく観点と、原位置において収着・拡散モデルを確証していく観点から研究に取り組んできた（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019; 2020; 2021;

2022）。令和4年度は、これまでに取得された一連の試験分析データをもとに、幌延の岩石マトリクス部を対象とした核種移行モデルを改良しつつ、その適用性を評価した。

幌延の泥岩マトリクス中の鉱物分布や間隙構造評価は、これまでに電子顕微鏡（SEM等）による直接観察のほか、水銀圧入法による細孔径分布、X線CT分析よる間隙分布の不均質性の取得等、様々な手法が適用されてきた(Tachi et al, 2011; 日本原子力研究開発機構, 2013a, 2018)。これらの分析結果の代表的なものを図3.2-29に示す。いずれも幌延URLの深度500 m付近から採取された稚内層岩石を対象とした分析データであり、同図(a) - (b)に示すナノX線CT分析結果からは、サブμm - μmスケールの比較的大きなサイズの間隙が岩石内部にある程度均質に存在することが確認できる（日本原子力研究開発機構, 2013a）。同図(c)に示すSEM像からも、比較的大きな鉱物粒子の隙間に粘土鉱物を含む鉱物が分布している状況が確認できる(Tachi et al., 2011)。一方で、同図(d)には水銀圧入法で得られた細孔径分布を示しており、岩石中の間隙を100 nm以下のサイズの間隙が支配的であることが確認できる(Tachi et al., 2011)。ここで、1 nm以下の粘土層間間隙については、水銀圧入法では測定できないために推定した値を採用していた。

そこで、本事業において、間隙構造の不均質性の定量評価に有効な手法として、核磁気共鳴法(Nuclear Magnetic Resonance, NMR)に着目し、幌延泥岩の間隙構造の不均質性の定量評価を試み、それらデータのモデルへの反映を検討した。NMRを用いた水分子の緩和時間(T_2)の測定によって、幌延泥岩の層間も含めた間隙幅の分布を定量化した。その結果、粘土鉱物の層間中の水(T_2 = 0.001 s)は全体の間隙率の数%であることが分かった（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019; 2020; 2021）。この結果は、上記先行研究の水銀圧入法で推定された値(3.5 %)とも整合的であった。このNMRを用いて評価された層間間隙の間隙率と水銀圧入法の結果とをあわせた間隙サイズと体積割合の関係を図3.2-30(a)に示す。

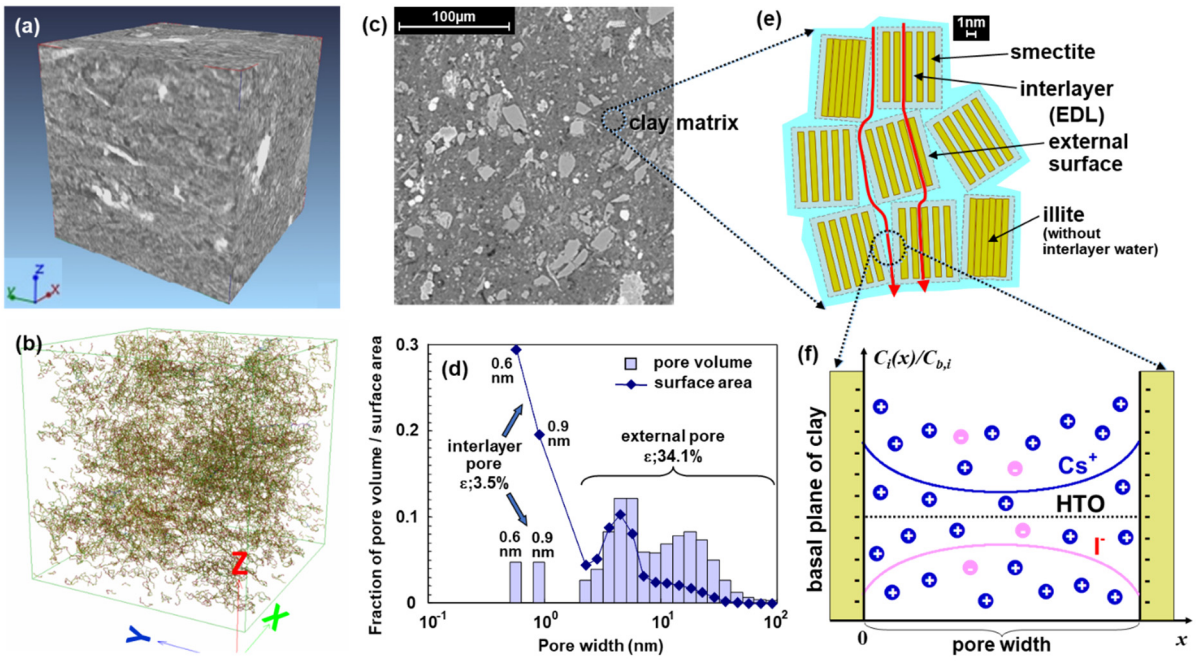


図3.2-29　幌延の泥岩（稚内層）を対象とした間隙特性分析結果（(a) - (b)：ナノX線CT像と間隙分布、(c)SEMによる反射電子像、(d)水銀圧入法による細孔径分布）と拡散モデル概念((e) - (f))

さらに、この間隙サイズ分布とこれまでに構築してきた狭隘間隙中の静電的相互作用を考慮した拡散モデル（図3.2-29(e) - (f)参照）とを組み合わせて、当該岩石中のセシウムイオン(Cs^+)、ヨ

ウ化物イオン(I^-)、トリチウム水(HTO)の実測された実効拡散係数へ適用した結果を同図(b)に示す。ここで、対象とする化学種の実効拡散係数は、この間隙分布をISDモデルに適用して、各間隙幅に対する電気的収れん度を算出し、各間隙の体積割合を重みとした幾何学的因子および電気的収れん度を平均化処理することで、次式に従って算出した。

$$D_{e,i} = \varepsilon \cdot \bar{G} \cdot \bar{\delta}_{el,i} \cdot D_{w,i} ,$$
$$\bar{G} = \sum_{k=1}^{n} \alpha_k \cdot G_k , \qquad \log \bar{\delta}_{el,i} = \sum_{k=1}^{n} \alpha_k \cdot \log \delta_{el,i}(d_k) \tag{3.2-1}$$

ここで、$D_{e,i}$は化学種iの実効拡散係数、εは試料全体の間隙率（$= 0.375$）、$\bar{G}$は試料全体で平均化された幾何学的因子、$\bar{\delta}_{el,i}$は化学種iの試料全体で平均化された電気的収れん度、$D_{w,i}$は化学種iの自由水中拡散係数である。また、nは対象とした間隙の総数（モンモリロナイト層間も含む）、α_kは間隙kの体積分率、G_kは間隙kの幾何学的因子、$\delta_{el,i}(d_k)$は間隙kにおける化学種iの電気的収れん度であり、間隙kの間隙幅d_kに依存する。なお、各間隙における幾何学的因子は、電粘性の効果を考慮して算出している。

電解質濃度の変化に対するCsイオン, Iイオンおよび HTOの実効拡散係数の挙動を、図3.2-30(b)に示す。ISDモデルは、HTOの実測データに基づいて幾何学的因子を設定しているため、本解析のような多重間隙モデルにおいても整合的な結果が得られており、このことは平均化処理が妥当であることを裏付けるものである。またCsイオンおよびIイオンに対しても、ISDモデルによる計算結果が実測データの電解質濃度に対する傾向を概ね再現していることが確認できる。このことから、幌延の泥岩のような多重間隙構造を有する岩石を対象とした系においても、その拡散挙動が主にナノサイズの層間間隙を含めた間隙のサイズと静電相互作用を考慮することによって評価できることが確認された。

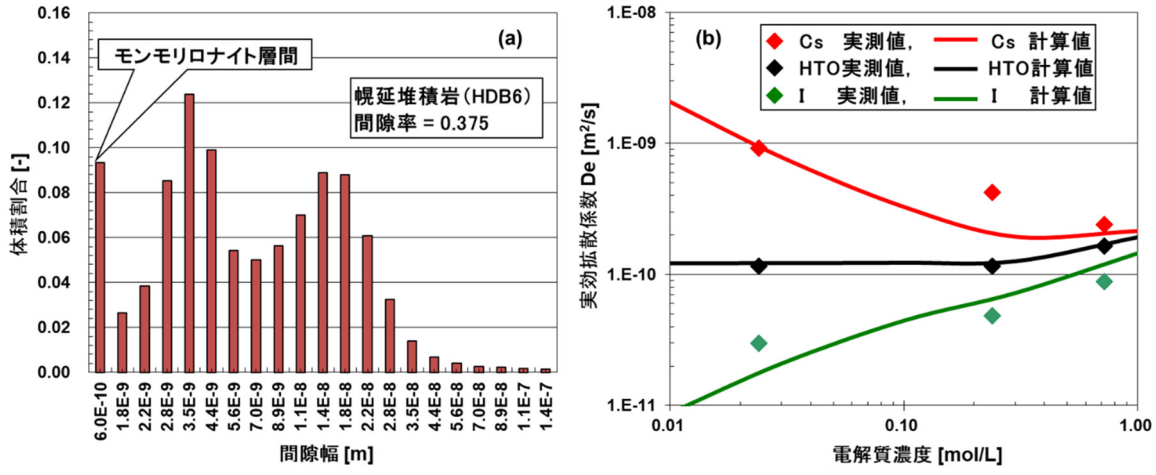


図3.2-30　幌延の泥岩マトリクス中の間隙サイズ分布(a)とCs, HTOおよびIの実効拡散係数の実測データへの拡散モデルの適用結果(b)

② 粘土鉱物を含む不均質媒体中の拡散モデルの開発

上記①に示したように、幌延の泥岩試料を対象として、粘土鉱物が主たる物質移行経路となることを仮定して、統合収着・拡散（ISD）モデルと間隙径分布とを組み合わせた拡散モデルによっ

て、実測データを概ね説明可能であることが確認された。一方で、幌延の泥岩中（稚内層）には、粘土鉱物（スメクタイトやイライト）が20 %程度含まれるものの、オパールCTや石英を主成分としており、これらの鉱物や間隙が物質移行にどう関与しているかを含めた理解が重要である。さらに、緩衝材ベントナイトや多様な堆積岩中の核種移行評価においても、粘土鉱物と石英等の複合した媒体中での鉱物や間隙の不均質場とその核種移行への影響を把握することは重要となる。これらを踏まえて、堆積岩に含まれている粘土鉱物中の核種拡散移行にはISD拡散モデルを適用し、その他の石英等の鉱物に関しては幾何学的な構造因子として影響することを仮定した不均質場の核種移行モデルの検討を進めてきた（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2020; 2021; 2022）。

そのモデル解析のアプローチは、核種の移行経路となるベントナイト鉱物と移行の障害となる他の鉱物をランダムに分布して構造モデルを作製し、その構造のなかで核種をランダムウォーク(Random Walk; RW)させて核種移行のシミュレーションを行うものである。RWシミュレーションに用いる解析コードには、花崗岩中の拡散メカニズムを理解するために黒雲母の層状構造を考慮した仮想的な解析体系に適用してその有効性が示されているPartridgeコードを用いた（日本原子力研究開発機構, 2016）。以下では、クニゲルV1とケイ砂を様々な比率で混合した供試体の構造をモデル化し、まずHTOを対象としたシミュレーション解析の結果と実測データ(Kato et al., 1999b)を比較してモデルの適用性を確認した。さらに、HTOの場合と同じ供試体構造に対して、2種類のイオン(Cs^+, I^-)を対象にISD拡散モデルで評価したクニゲルV1中の実効拡散係数を入力値として与え、RWシミュレーションにより混合系の実効拡散係数を計算してモデルの適用性を検証した。また、浸透（パーコレーション）理論（例えば、小田垣(1993)）の知見を踏まえて、HTOを対象としたRWシミュレーションによる解析結果と実測データの整合性に関する考察を行った。

Kato et al. (1999b)では、クニミネ工業製のベントナイトであるクニゲルV1と天然ケイ砂（粒径 ≈ 0.2 mm）あるいは加工された球状のガラスビーズ（粒径 = 0.05 - 5.0 mm）を様々な比率で混合した20 mmの円筒形の供試体（以下、混合媒体と呼ぶ）中のHTOの実効拡散係数を測定して、その混合率依存性を評価している。また得られた混合媒体中の実効拡散係数D_e^{mix}と、クニゲルV1におけるHTOの実効拡散係数D_e^{bent}との比を取ることにより、天然ケイ砂やガラスビーズの混在に起因した幾何学的因子$G(= D_e^{mix}/D_e^{bent})$の評価を試みている。混合媒体は、ベントナイト中に天然ケイ砂あるいはガラスビーズを埋め込むかたちで作製されるが、球状粒子をランダムに充填する際、その充填率には上限値が存在するため(Scott and Kilgour, 1969)、ケイ砂体積分率がより高い状況での評価には限界がある。また、実測データの傾向を再現するようなモデル化を行う際、モデルの適応限界や物理的背景を認識しておくため、極端な混合率の領域も含め系統的に理解する必要がある。そこで、RWシミュレーションを用いてモデルの構築を検討した。

RWシミュレーション解析における混合媒体のモデル化は、立方体状の計算体系全体を1辺が200の格子に分割し、その最小単位を1セルとする。Kato et al. (1999b)のクニゲルV1+天然ケイ砂混合系を模擬するため、2 × 2 × 2セルを1ユニットとして、計算体系全体を100 × 100 × 100ユニットで構成した。またクニゲルV1+ガラスビーズ混合系では、ガラスビーズのサイズに応じて1ユニットを設定し、そのユニットを単位として計算体系全体を構成した。各ユニットは、次のような物性の異なる2種類の構造物のいずれかとする。

①クニゲルユニット：クニゲルV1を模擬したユニット。すべてのクニゲルユニットは同じ間隙率を設定し、さらにその間隙率に応じた実効拡散係数を設定する。
②ケイ砂ユニット：天然のケイ砂あるいはガラスビーズを模擬したユニット。すべてのケイ砂

ユニットは間隙率ゼロとし、粒子はユニット内を拡散しないものとする。

上記2種類の構成ユニットを三次元的に配置した計算体系の断面イメージ図を、図3.2-31に示す。例として、ケイ砂の体積分率が0.12の場合を図(a)に、0.65の場合を図(b)に示した。図の緑色がクニゲルユニットであり、青色がケイ砂ユニットである。ランダムウォークさせる粒子（粒子数は計算体系のサイズに応じて設定。例えば、2 × 2 × 2セルを1ユニットとする系の場合、100 × 100 = 1万個）を初期位置である上流側端面に一様に配置し、向かい側の下流側端面から体系外に移行する際の拡散フラックスを評価する。粒子の実効拡散係数は、下流側端面における拡散フラックスの経時変化をプロットして、1次元拡散方程式の解析解とのフィッティングにより算出した。

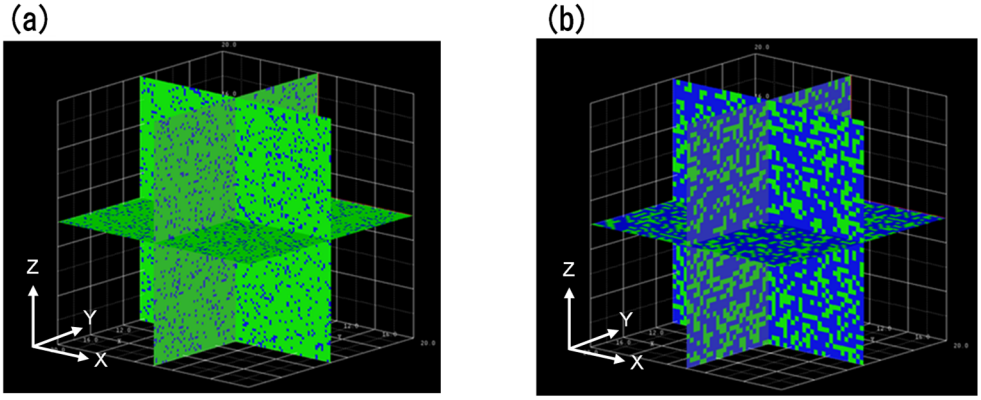


図3.2-31　混合媒体の鉱物配置の可視化図。(a) ケイ砂の体積分率が0.12の場合。 (b) ケイ砂の体積分率が0.65の場合。クニゲルユニットは緑色、ケイ砂ユニットは青色で配色している

混合媒体の計算条件を、表3.2-3に示す。クニゲルV1の真密度(ρ_s^{bent})およびケイ砂の真密度(ρ_s^{sand})を、それぞれ2700 kg/m³（鈴木ほか, 1992）、2670 kg/m³(Kato et al., 1999a)とし、ケイ砂の体積分率(R_{sand})およびクニゲルV1の乾燥密度(ρ_b^{bent})を設定条件として与えたときの、クニゲルV1の体積分率(R_{bent})、クニゲルV1の間隙率(ε_{bent})、混合媒体（クニゲルV1+間隙ゼロのケイ砂混合材）の乾燥密度(ρ_b^{mix})および混合媒体の間隙率(ε_{mix})は、次式で算出される。

$$R_{bent} = 1 - R_{sand} \tag{3.2-2}$$

$$\varepsilon_{bent} = 1 - \rho_b^{bent}/\rho_s^{bent} \tag{3.2-3}$$

$$\rho_b^{mix} = R_{bent} \cdot \rho_b^{bent} + R_{sand} \cdot \rho_s^{sand} \tag{3.2-4}$$

$$\varepsilon_{mix} = R_{bent} \cdot \varepsilon_{bent} \tag{3.2-5}$$

一方、RWシミュレーションの入力値となるクニゲルV1中のHTO、CsイオンおよびI^-イオンの実効拡散係数は、間隙中のイオン強度をすべてのケースで0.01 mol/(dm)³と想定し、各ケースで設定したクニゲルV1の乾燥密度に従ってISDモデルで算出した（表3.2-3の7 - 9列目）。なおISDモデルの計算で必要となるクニゲルV1中のHTOの実効拡散係数は、Kato et al. (1995)で得られた実測データをもとに、クニゲルV1の乾燥密度の関数として指数関数で最適化した次のような実験式を用いて算出した。

$$D_e^{bent} = 1.727 \times \exp\left(-1.655 \times \rho_b^{bent}\right), \quad 0.5 \le \rho_b^{bent} \le 2.0 \tag{3.2-6}$$

またCsイオンおよびIイオンの自由水中拡散係数は、化学便覧第5版(2004)におけるイオンの極限モル伝導率に基づいて、2.058×10^{-9} m²/s (Cs^{+})および2.048×10^{-9} m²/s (I^{-})と設定した。

表3.2-3　クニゲルV1+間隙ゼロのケイ砂混合系（混合媒体）中のHTOおよび荷電イオンの核種移行をモデル化したRWシミュレーションの条件設定および解析結果

ケイ砂の体積分率 [–]	クニゲルV1の乾燥密度 [kg/m³]	クニゲルV1の体積分率 [–]	クニゲルV1の間隙率 [–]	混合媒体の乾燥密度 [kg/m³]	混合媒体の間隙率 [–]	クニゲルV1中のHTO及び荷電イオンの実効拡散係数 [m²/s]（イオン強度＝0.01 [mol/L]としてISDモデルで算出）			混合媒体中のHTO及び荷電イオンの実効拡散係数 [m²/s]（RWシミュレーション）		
						Cs^{+}	HTO	I^{-}	Cs^{+}	HTO	I^{-}
0.000	1600	1.000	0.407	1600	0.407	1.02E−08	1.22E−10	1.25E−12	1.10E−08	1.29E−10	1.28E−12
0.120	1455	0.880	0.461	1600	0.406	1.01E−08	1.56E−10	2.09E−12	8.60E−09	1.26E−10	1.77E−12
0.240	1263	0.760	0.532	1600	0.404	9.82E−09	2.13E−10	4.18E−12	6.20E−09	1.28E−10	2.77E−12
0.300	1143	0.700	0.577	1600	0.404	9.62E−09	2.60E−10	6.51E−12	5.20E−09	1.35E−10	3.50E−12
0.360	1000	0.640	0.630	1600	0.403	9.28E−09	3.30E−10	1.13E−11	4.10E−09	1.44E−10	5.20E−12
0.420	828	0.580	0.693	1600	0.402	8.67E−09	4.39E−10	2.27E−11	3.20E−09	1.57E−10	8.18E−12
0.480	616	0.520	0.772	1600	0.401	7.50E−09	6.24E−10	5.98E−11	2.10E−09	1.84E−10	1.75E−11
0.540	348	0.460	0.871	1600	0.401	5.24E−09	9.71E−10	2.67E−10	1.20E−09	2.05E−10	5.69E−11
0.600	1000	0.400	0.630	2000	0.252	9.28E−09	3.30E−10	1.13E−11	1.40E−09	4.90E−11	1.59E−12
0.650	1000	0.350	0.630	2083	0.220	9.28E−09	3.30E−10	1.13E−11	1.00E−09	3.50E−11	1.24E−12
0.700	1000	0.300	0.630	2166	0.189	9.28E−09	3.30E−10	1.13E−11	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00
0.800	1000	0.200	0.630	2333	0.126	9.28E−09	3.30E−10	1.13E−11	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00

以上の解析条件によるRWシミュレーションから得られた実効拡散係数を、右端（表3.2-3の10-12列目）に記載した。混合媒体中の実効拡散係数（D_e^{mix}）をベントナイト中の実効拡散係数（D_e^{bent}）で規格化することにより混合媒体の幾何学的因子G（$= D_e^{buff}/D_e^{bent}$）を定義し、Gがゼロでない領域のR_{sand}依存性を

$$G(R_{sand}) = 1 - a \cdot R_{sand} \qquad (3.2\text{-}7)$$

の関数形でフィッティングして、ケイ砂の体積分率R_{sand}をパラメータとした幾何学的因子Gの変動を図3.2-32に示した。図3.2-32(a)は、HTOのRWシミュレーション結果を赤丸でプロットし、比較のためKato et al. (1999b)によるHTOの実測データを青色ダイヤでプロットした。一方図3.2-32(b)は、すべてRWシミュレーションの結果であり、赤色ダイヤはCsイオン、黒丸はHTO、青色三角はIイオンのプロットを表す。それぞれのイオンに対する傾きaの値は、Csイオンが$a \simeq 1.445 (R^2 = 0.985)$、Iイオンが$a \simeq 1.444 (R^2 = 0.993)$、HTOが$a \simeq 1.479 (R^2 = 0.988)$となり整合的な結果が得られた。また、Kato et al. (1999b)によるHTOの実測データの場合は$a \simeq 1.36$（$R^2 = 0.979$）であり、シミュレーションの結果と有意な差は確認できるが、概ね傾向性は一致した。図中の緑の実線は、単純立方格子で格子化した場合のサイト・パーコレーションにおける浸透閾値：$R^*_{sand} \simeq 0.68839$（Xu et al., 2014)に基づいて線形近似した理論曲線を表す。この場合の傾きは$a \simeq 1.45266$であり、RWシミュレーションの結果と定量的によく一致していることが確認できる。なお浸透閾値の値は、数値シミュレーションの結果から有限サイズスケーリングの手法により、格子サイズが無限大の極限値として得られたものである。

本解析で対象とした拡散試験のRWシミュレーションによるモデル化は、粒子の拡散可能なクニゲルユニットが混合媒体の端面間で浸透する（拡散経路として端から端まで繋がる）確率が、クニゲルユニットの体積割合に対してどのように変化するかをみていることになり、これはサイト・パーコレーションのシミュレーションに相当するものである。このことを説明するため、図

3.2-31に示したような三次元単純立方格子上の鉱物配置を、10 × 10ユニットからなる二次元正方格子上に配置して簡単化した構造の例を、図3.2-33に示す。図3.2-33 (a)は、ケイ砂の体積分率R_{sand}が0.50の場合の鉱物配置の例であり、クニゲルユニットを緑色、ケイ砂ユニットを茶色で配色した。この例の場合、左の辺から右の辺まで繋がった（浸透した）クニゲルユニットだけからなるクラスターが存在し、最後まで粒子の拡散移行が可能となるため、幾何学的因子もゼロではない値をもつ。一方図3.2-33 (b)は、ケイ砂の体積分率R_{sand}が0.75の場合の鉱物配置の例であり、この例の場合、両辺を繋ぐクニゲルユニットのクラスターが存在せず、粒子が拡散移行できないため幾何学的因子もゼロになる。R_{sand}が0.75の場合に、クニゲルユニットだけで両辺を繋ぐようなクラスター（浸透クラスター）が存在する鉱物配置が仮に生成されたとしても、その生成確率は極めて低いものとなる。このような相転移現象（パーコレーション転移）は、パーコレーション理論で詳しく研究されており、三次元単純立方格子のサイト・パーコレーションの場合では、相転移点（浸透閾値）が約0.688になることが知られている。RWシミュレーションの結果は、この事実を反映したものであると考えられる。

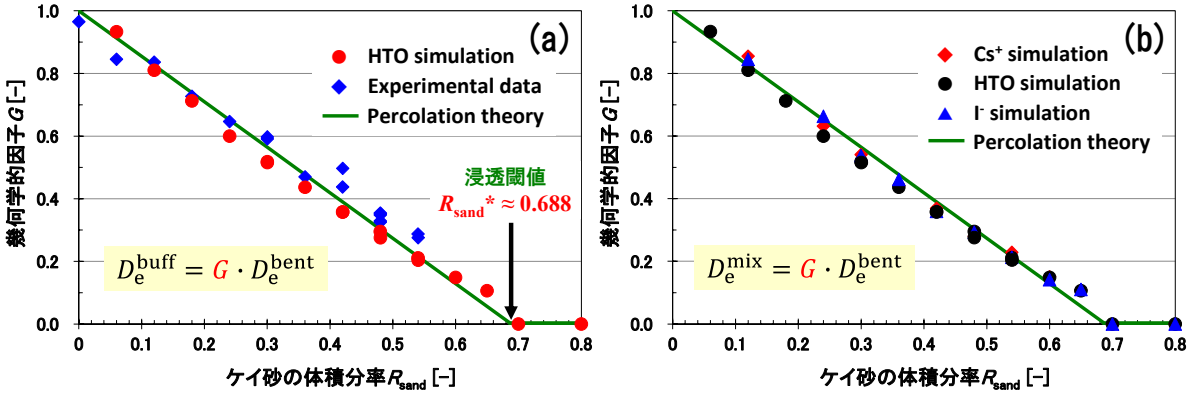


図3.2-32　RWシミュレーションによる幾何学的因子Gのケイ砂体積分率R_{sand}依存性。(a) HTOシミュレーション（赤丸）、Kato et al. (1999b)のHTO実測データ（青色ダイヤ）。(b) Csイオン（赤色ダイヤ）、Iイオン（青色三角）、HTO（黒丸）。緑色実線は、サイト・パーコレーションによる理論曲線を表す。

令和4年度に実施したRWシミュレーションの結果からは、混合媒体の幾何学的因子Gはトレーサーの種類にはほとんど依存せず、クニゲルV1とケイ砂の体積分率だけに依存することが確認できたが、実際の堆積岩については、イオンをトレーサーとした実測データを対象として検証する必要がある。また本解析の結果として図3.2-32(b)をみると、ケイ砂の体積分率が高くなるに従ってトレーサーの種類に関係なくプロットが重なっていく傾向が確認できる。これは、Csイオン、IイオンおよびHTOのRWシミュレーションにおいて、鉱物配置が同じ混合媒体のサンプルを用いたことに起因する可能性が考えられる。ケイ砂の体積分率が高くなると、クニゲルユニットからなる浸透クラスターの存在確率が減少し、サンプリングした鉱物配置の特徴が顕著に現れることになる。したがって、トレーサーの種類が異なっても鉱物配置が同じならば、その特徴が幾何学的因子に顕著に反映すると思われる。そのため今後の課題の一つとしては、ケイ砂の体積分率が同じ条件でも鉱物配置が異なる複数の混合媒体を作製してRWシミュレーションを実施し、混合媒体に対しても十分な統計を取ること、さらにトレーサーごとに混合媒体の独立性を保つことが挙げられる。特に浸透閾値近傍ではデータのゆらぎが大きくなるため、統計は十分に取る必要がある。

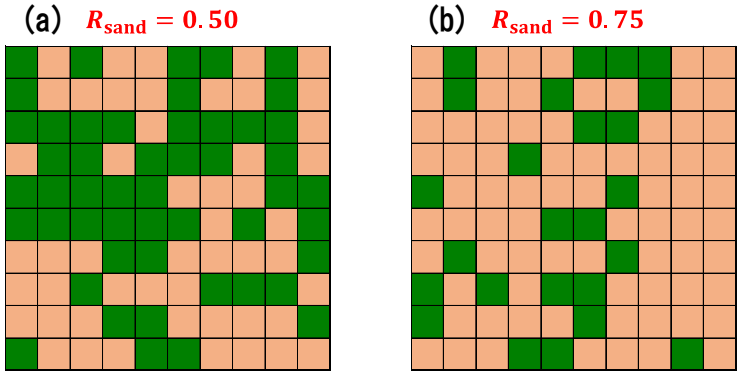


図3.2-33　二次元正方格子上の鉱物配置の例。(a) R_{sand} = 0.50の場合の鉱物配置の例。(b) R_{sand} = 0.75の場合の鉱物配置の例。クニゲルユニットは緑色、ケイ砂ユニットは茶色で配色している

Kato et al. (1999b)によるHTOの実測データとRWシミュレーションの結果は概ね整合的であるが（図3.2-32(a)参照）、その傾きには有意な相違が確認できる。実際のケイ砂では表面近傍等が粒子の拡散経路として寄与している可能性がある。そこで、この有意な相違の原因の一つはケイ砂ユニットのモデル化にあると考え、ケイ砂ユニットにも間隙率とそれに応じた実効拡散係数を設定し、HTOを対象とするRWシミュレーションを実施した。クニゲルV1の真密度($\rho_s^{bent} = 2700\ kg/m^3$)、ケイ砂の真密度($\rho_s^{sand} = 2670\ kg/m^3$)、クニゲルV1の乾燥密度($\rho_b^{bent}$)、ケイ砂の乾燥密度($\rho_b^{sand}$)、およびケイ砂の体積分率($R_{sand}$)が与えられたときの、ケイ砂の間隙率($\varepsilon_{sand}$)、混合媒体の乾燥密度($\rho_b^{mix}$)および混合媒体の間隙率($\varepsilon_{mix}$)は、次式で算出される。

$$\varepsilon_{sand} = 1 - \rho_b^{sand}/\rho_s^{sand} \quad (3.2\text{-}8)$$

$$\rho_b^{mix} = R_{bent} \cdot \rho_b^{bent} + R_{sand} \cdot \rho_b^{sand} \quad (3.2\text{-}9)$$

$$\varepsilon_{mix} = R_{bent} \cdot \varepsilon_{bent} + R_{sand} \cdot \varepsilon_{sand} \quad (3.2\text{-}10)$$

なお、クニゲルV1の体積分率(R_{bent})およびクニゲルV1の間隙率(ε_{bent})は、それぞれ式(3.2-2)および式(3.2-3)と同じである。このシミュレーションでは、クニゲルV1の乾燥密度(ρ_b^{bent})およびケイ砂の乾燥密度(ρ_b^{sand})をそれぞれ1400 kg/m³および2600 kg/m³とし、またクニゲルV1中のHTOの実効拡散係数($D_{e,HTO}^{bent}$)は式(3.2-6)と同じ式で評価して、1.70×10^{-10} m²/sと設定した。一方、ケイ砂中のHTOの実効拡散係数($D_{e,HTO}^{sand}$)については適当な情報がないので、クニゲルV1の場合を参考にケイ砂の乾燥密度の指数関数として、3.04×10^{-12} m²/sの値を設定した。

R_{sand}を0.0, 0.2, 0.4, 0.6および0.8と変化させて、クニゲルV1＋間隙を有するケイ砂混合媒体の系でRWシミュレーションを実施し、混合媒体中のHTOの実効拡散係数($D_{e,HTO}^{mix}$)をベントナイト中の実効拡散係数($D_{e,HTO}^{bent}$)で規格化することにより混合媒体の幾何学的因子Gを算出した。図3.2-34には、クニゲルV1＋間隙を有するケイ砂混合系（「間隙ありケイ砂」、緑色三角）とともに、従来のクニゲルV1＋間隙を有しないケイ砂混合系（「間隙なしケイ砂」、赤丸）およびKato et al. (1999b)によるHTOの実測データ（青色ダイヤ）をプロットした。「間隙ありケイ砂」の系と「間隙なしケイ砂」の系を比較すると、クニゲルユニットが支配的なパラメータ領域では、ほとんど改善されていないことが確認できる。ケイ砂ユニットが支配的な領域($R_{sand} = 0.8$)で幾何学的因子がゼロでないのは、ケイ砂ユニットのクラスターだけでもHTOの拡散移行が可能であるためである。これらの解析の結果から、ケイ砂のなかに拡散移行が可能な間隙が存在していても、クニゲ

ルユニット中の拡散係数がケイ砂中に比べて十分大きいならば(本解析の場合、50倍程度異なる)、クニゲルユニットが支配的なパラメータ領域においては、ケイ砂ユニットは拡散移行の経路としてほとんど寄与しないものと考えられる。ただし、クニゲルV1＋間隙を有するケイ砂混合系のシミュレーションデータをさらに補充するとともに、ケイ砂ユニット内の物性条件、特に実効拡散係数の設定について十分検討する必要がある。

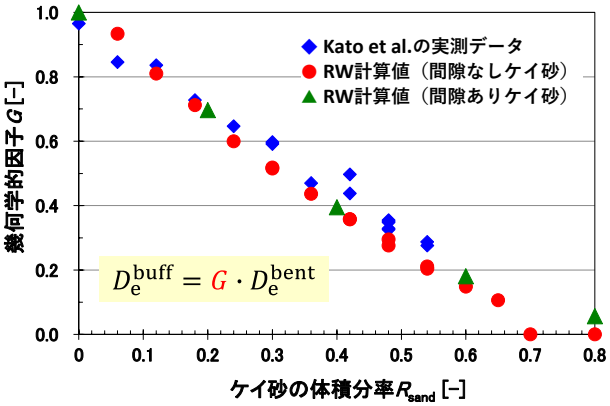


図3.2-34　HTOを対象としたRWシミュレーションによる幾何学的因子Gのケイ砂体積分率R_{sand}依存性。クニゲルV1＋間隙を有するケイ砂混合系（「間隙ありケイ砂」、緑色三角）、クニゲルV1＋間隙を有しないケイ砂混合系（「間隙なしケイ砂」、赤丸）、およびKato et al. (1999b)のHTO実測データ（青色ダイヤ）

上記の検証シミュレーションをみる限り、HTOの実測データとRWシミュレーションの結果における有意な相違は、現状において、ケイ砂ユニットのモデル化が本質的な原因ではない可能性がある。そこで次に、結晶構造の空間充填率と浸透閾値との現象論的関係(Scher and Zallen, 1970)に基づいて考察する。RWシミュレーションによる本解析では混合媒体のモデル化として単純立方格子を採用したが、三次元体系の格子化としては他の方法も存在する。そのような三次元格子のうち、ここではよく知られているダイヤモンド格子、体心立方格子、および面心立方格子について検討した。これらの三次元格子に対して、サイト・パーコレーションの浸透閾値p_c（以下ではケイ砂の体積分率R_{sand}をp、その浸透閾値R^*_{sand}をp_cで表す）がそれぞれ知られており、単純立方格子の場合も含めて表3.2-4に示した。これらの結果は、文献Xu et al. (2014)からの引用であり、モンテカルロ・シミュレーションにより得られた計算値である。一方、それぞれの格子に対して同一球体による空間充填率fが厳密に計算でき、同じく表3.2-4に示した。これらの諸量は格子の種類によりそれぞれ異なる値をもつが、表3.2-4の右端に示すように$(1-p_c)\times f$の積は次元不変量として格子の種類にほとんど依存しないことが、現象論的に知られている。そこでこの経験則を、実測データのようなランダムな系にも適用できると仮定して、実測データに対する浸透閾値を評価した。すなわち、ランダムな系の最密充填率は約0.637 (Scott and Kilgour, 1969)になることが知られているので、表3.2-4に記した$(1-p_c)\times f$の平均値($\cong$ 0.156)を用いて、ランダム系の場合の浸透閾値を算出したところ、約0.75の推定値を得た。この値は、Kato et al. (1999b)の実測データを線形フィットした場合に幾何学的因子Gがゼロになるケイ砂体積分率R_{sand}の値($\cong$ 0.74)と整合する結果である。また表3.2-4の浸透閾値をみると、仮にダイヤモンド格子で混合媒体をモデル化していれば、RWシミュレーションの結果と実測データとの乖離は本解析結果（図3.2-32(a)参照）よりも大きくなり、一方体心立方格子でモデル化したならば、本解析よりもさらに整合的な結果が得られていたものと推察できる。したがって、図3.2-32(a)で確認された実測データとRWシ

ミュレーションの結果における有意な相違は、混合媒体の格子化に起因するものであると考えられる。

表3.2-4　三次元格子の浸透閾値(Xu et al., 2014)と空間充填率との関係

3次元格子	浸透閾値, p_c	$1-p_c$	空間充填率, f	$(1-p_c)\times f$
単純立方格子	0.688	0.312	0.524	0.163
ダイヤモンド格子	0.570	0.430	0.340	0.146
体心立方格子	0.754	0.246	0.680	0.167
面心立方格子	0.801	0.199	0.741	0.147

なお、幾何学的因子Gの浸透閾値近傍での漸近挙動は、ランダムな系の場合も含め、三次元格子の種類に依存しない普遍的な振る舞いを示すことが知られている（例えば、Kirkpatrick, 1973; Sahimi, 1993）。三次元格子上で金属ユニットと絶縁体ユニットをランダムに配置した系において電気伝導率σを計算すると、その漸近挙動は$\sigma(p) \propto (p - p_c)^{\mu}$となり、このとき臨界指数(critical exponent)は$\mu \approx 2.0$（例えば、Hughes, 2021）である。線形応答理論におけるアインシュタインの関係式(Luttinger, 1964)より、電気伝導率σと実効拡散係数D_eとの間に$\sigma \propto n \cdot D_e$の関係が成り立つ。ここで$n$は、荷電粒子の数密度を表す。荷電粒子は金属ユニットからなるクラスター上で拡散できるが、浸透クラスター上での拡散だけが拡散係数に寄与するため、$n \propto P(p)$とおける。$P(p)$は金属ユニットの存在確率がpのときに、ある与えられたユニットが金属ユニットからなる浸透クラスターに属する確率を表し、浸透確率(percolation probability)と呼ばれる（例えば、小田垣, 1993）。浸透確率は系の秩序パラメータ(order parameter)であり、その漸近挙動は$P(p) \propto (p - p_c)^{\beta}$となる。ここで$\beta$は浸透確率の臨界指数であり、三次元では$\beta \approx 0.41$になることが知られている（例えば、Sahimi, 1993; Hunt et al., 2014）。したがって、実効拡散係数D_eの漸近挙動は$D_e(p) \propto (p - p_c)^{\mu-\beta}$となり、その臨界指数は1.6程度の値になる。図3.2-32には、サイト・パーコレーションにおける浸透閾値に基づいて線形近似した理論曲線を示したが、実際には1.6乗程度の関数形でゼロに漸近するものと考えられる。

幌延の堆積岩中の核種移行モデルの一つとして、間隙構造の細孔幅分布とその細孔幅を有する間隙の体積割合に関するNMR分析データに基づいて、それぞれの細孔間隙にISD拡散モデルを適用し、所定の平均化処方に従って実効拡散係数を評価した。Csイオン、IイオンおよびHTOを対象に実測データと比較したところ、電解質濃度に対する傾向を概ね再現していることが確認され、幌延泥岩のような多重間隙構造を有する岩石を対象とした系においても、ISDモデルの適用可能性、さらに平均化処方の妥当性が確認された。また、粘土鉱物間隙中のISD拡散モデルと、ケイ砂の混合を想定した不均質場モデルとを組み合わせたモデル化手法の妥当性を検討する観点から、RWシミュレーションによる拡散解析を実施した。HTOに対しては実測データとの整合性が確認されるとともに、2種類のイオン(Cs^+, I^-)についてもケイ砂の存在に起因した幾何学的因子がトレーサーの種類には依存しないこと等が示された。さらに、RWシミュレーションの結果に基づいて、パーコレーション理論の既往知見を実測データに適用したところ、パーコレーション転移の浸透閾値に対応するケイ砂体積分率の値は約0.75であり、その漸近挙動の臨界指数は1.6程度になることが推定できた。

今後の課題としては、実際の堆積岩中でのイオンの実測データに対して本解析モデルの適用性を検証すること、またケイ砂混合割合が同じ条件下でも鉱物配置が異なる複数の混合媒体を作製してRWシミュレーションを実施し、混合媒体に対しても十分な統計を取ること、さらに鉱物サイズの不均質性を考慮したモデル解析を検討すること等が挙げられる。

③ 粘土鉱物を含む不均質媒体中の拡散モデルの開発

上記①や②で検討したように、幌延の泥岩を含めた堆積岩や、ベントナイト緩衝材に含まれる粘土鉱物は核種移行を支配する重要な成分である。粘土鉱物は負の層電荷をもつ層状鉱物であり、表面電荷の影響を強く受けている層間間隙をはじめ、間隙は物理的・化学的に極めて複雑な構造を有するため、粘土鉱物の膨潤挙動、また層間間隙や鉱物表面等における核種移行挙動を理解することは極めて重要である。

古典分子動力学（Molecular Dynamics, MD）計算を用いたこれまでの研究では、モンモリロナイトの層間間隙を対象に、層間の膨潤挙動および層間水の物性、層間対イオンと層間水の拡散挙動、さらに水分子の拡散係数に基づく層間水の粘性挙動等について評価した。その際、処分環境の長期変遷に伴う層間イオン種の変化や層電荷の影響を評価する観点から、さまざまな種類の層間対イオン（Na型・K型・Cs型・Ca型・Sr 型）に対して計算し、さらにNa型については層電荷の値を変動させてその影響を評価した。これらのMD計算の結果をもとに、分子レベルでの層間水の物性情報を取得して水 – 鉱物間の相互作用に関する理解を深めるとともに、現状の統合収着・拡散モデル（Integrated Sorption and Diffusion Model, ISDモデル）で仮定している電気二重層理論や電粘性効果の有効性を確認し、さらにモデルに用いているパラメータ値の改善等モデルの高度化に向けたMD解析結果の反映について検討した（四辻ほか, 2019）。また、上記5種類の単一イオン型モンモリロナイトの膨潤現象に関する分析試験の結果にMD計算で得られた情報を統合することにより、モンモリロナイト層間への水分子吸着量は、層間対イオンの水和数に強く依存していることを確認した。さらに、層間における対イオンの水和数は、対イオンの水和自由エネルギー、体積および対イオンの分布状態により決まることを示した。また、層間対イオンの特性パラメータを仮想的に変動させたMD計算を実施し、層間対イオンの水和自由エネルギーと電荷とが影響因子として競合することにより、対イオンの分布状態が制御されることを明らかにした。これらの結果から得られた影響因子を含む経験式により、層間対イオンの異なるモンモリロナイトの膨潤挙動に対する定量的予測を提示した（Yotsuji et al., 2021; 四辻ほか, 2022）。

本報告では、粘土鉱物の一種であるバイデライトの外部表面を対象に古典MD計算を実施し、外部溶液に接したベーサル面近傍におけるイオンの滞留時間、拡散係数等を計算して、層電荷の変化に対する影響やイオンの種類に対する影響について評価した。さらに、各イオンに対してベーサル面近傍での自由エネルギー・ランドスケープを解析し、イオン種による滞留時間や拡散係数の相違について自由エネルギーの観点から考察した。

本報告のMD計算で用いたバイデライトの分子モデルは、すべて四面体シートで同型置換しているものとし、層電荷xを有する構造モデルを次の組成式で表す。

$$\mathrm{E}_x^+ \cdot \mathrm{Al_2(Si_{4-x}Al_x)O_{10}(OH)_2} \cdot n\mathrm{H_2O} \qquad (3.2\text{-}11)$$

ここでE^+は1価の陽イオンで、Na^+, K^+およびCs^+のいずれかを表すものとする。またnは、系に含まれる水分子の量を表す。MDシミュレーションに用いたスーパーセルの模式図を、図3.2-35に示す。スーパーセルにはバイデライトの結晶層を2層分含み、片方の間隙は2層水和状態の層間間隙であり、その底面間隔は17.3 Åとする。また、もう一方の間隙は外部間隙を表し、その間隙幅は80 Åとする。三次元方向には、それぞれ周期的境界条件を設定した。MD計算に用いた解析ツールは、水 – 粘土鉱物系等で汎用されているLAMMPS(Large-scale Atomic/Molecular Massibely Parallel Simulator)コード(Plimpton et al., 2020)をメインコードとする解析システムであり、相互作用ポテンシャル関数はCLAYFF(Cygan et al., 2004)を使用した。シミュレーションは、はじめに293 K, 0.1 MPaのNTPアンサンブルで、系の平衡状態を得るための計算を実施した。その際、

50 ps間の計算によって、系の全エネルギー、密度および圧力が平衡状態に達していることを確認した。その後、293 Kの*NVT*アンサンブルでMD計算を1 ns間実施し、解析用のデータをサンプリングした。

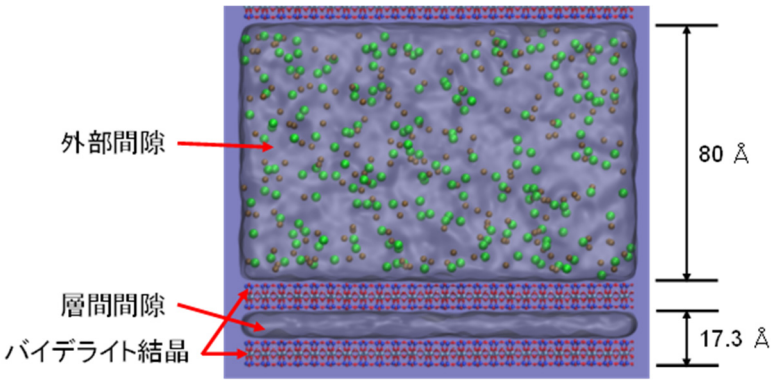


図3.2-35　MDシミュレーションに用いたスーパーセルの模式図。スーパーセルにはバイデライトの結晶層を2層分含み、間隙は2層水和状態の層間間隙、および外部溶液と接した80 Åの外部間隙を有する。三次元方向には、それぞれ周期的境界条件を設定する

外部表面近傍における陽イオンの滞留時間を評価するため、はじめに陽イオンが滞留していると判断される領域（滞留層）を定義する。滞留層としては、層間陽イオンの種類や種々のパラメータになるべく依存しない物理量を基準にして定義されるべきであるが、本解析では表面近傍での水分子の密度分布を用いて定義した。図3.2-36(a)には、外部ベーサル面に垂直な方向を横軸にとった水分子の密度分布を示しているが、層間陽イオンの種類や層電荷の値を変化させてもほとんど普遍的な分布形状であることが確認できる。そこで本解析では、第2水分子層のピーク位置（外部ベーサル面から6.16 Å）までを滞留層と定義した（図3.2-36にオレンジ色で表示した）。また滞留時間は、1個の陽イオンがこの滞留層に継続して存在している時間として定義した。ただし、ある陽イオンが滞留層から一度脱出して再び滞留層に戻ってきた場合は、別の陽イオンとして新たに滞留時間をカウントした。滞留時間を定義する模式図を、図3.2-36(b)に示す。

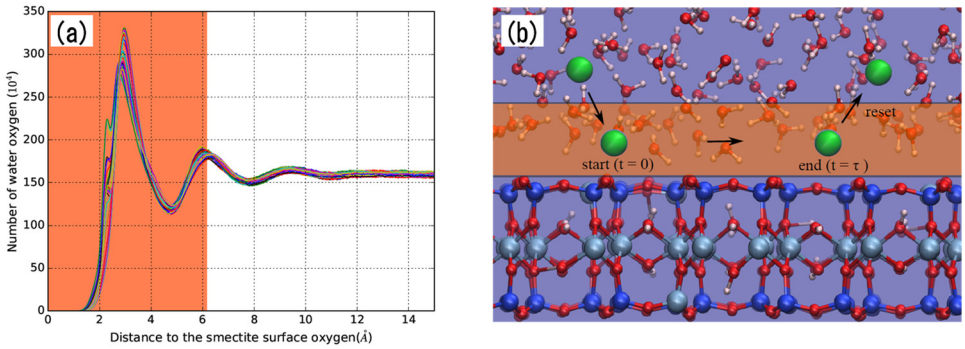


図3.2-36　(a) 外部ベーサル面に垂直な方向を横軸にとった水分子の密度分布。層間陽イオンの種類と層電荷の値を変化させた条件で計算した結果を重ねて表示した。滞留層の領域をオレンジ色で表示した。(b) 陽イオンの滞留時間の考え方を示す模式図

Naイオン, KイオンおよびCsイオンの滞留時間のヒストグラムを、それぞれ図3.2-37(a), (b)および(c)に示す。各図中において、層電荷のバリエーション（x = 0, 0.1, 0.2, 0.3および0.4）を、色

を分けて表示した。いずれの陽イオンでも、層電荷の上昇とともに滞留時間が増加する傾向が確認できる。これは、層電荷の上昇とともに層電荷と陽イオンとの静電相互作用が強くなるためであると考えられる。また、陽イオンの種類に関しては、$Na^+ < K^+ < Cs^+$の順番で分布のピーク位置が右側へシフトし、滞留時間が増大する傾向にあることが確認できる。これについては、自由エネルギー・ランドスケープの解析とともに考察する。

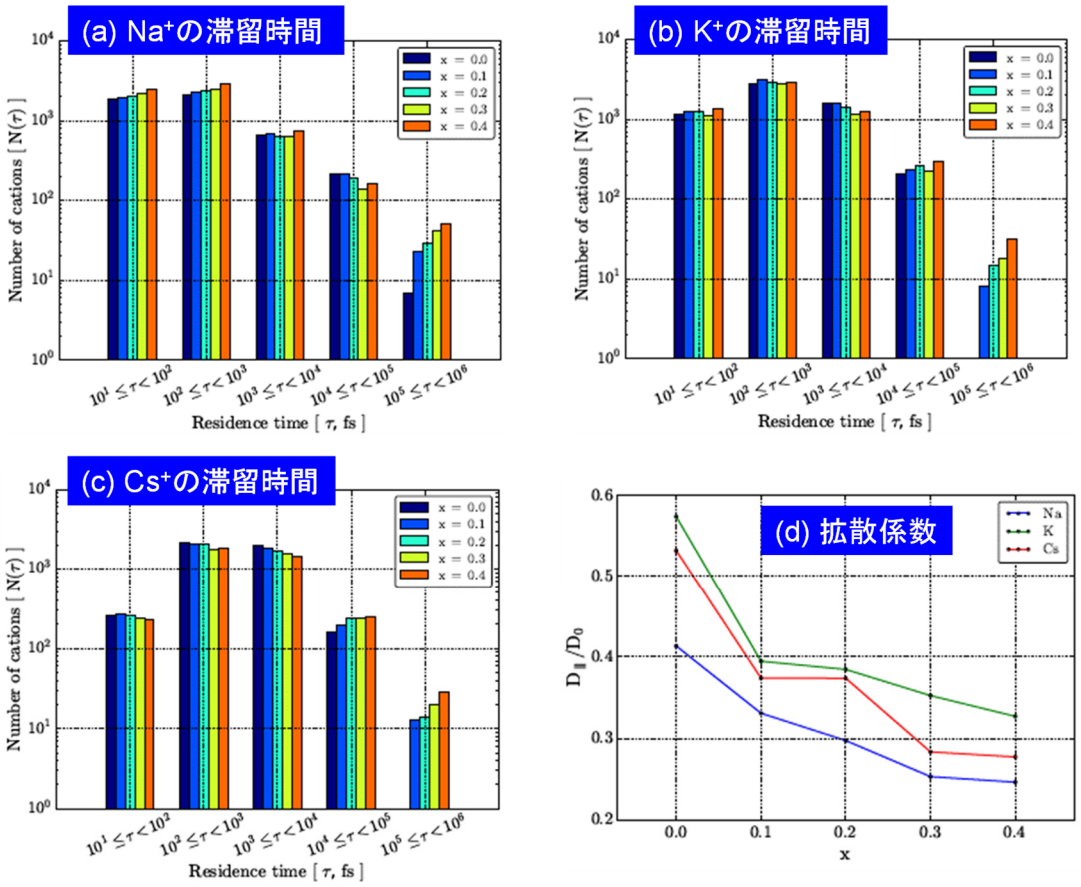
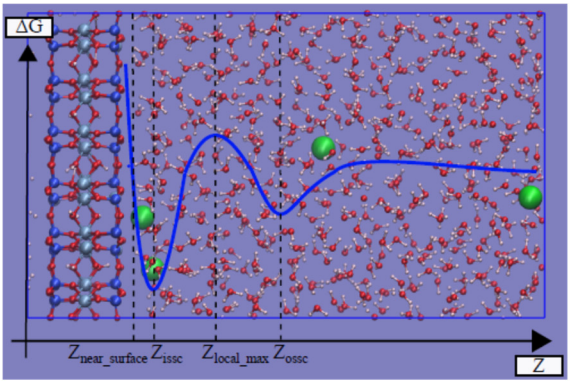


図3.2-37　Naイオン(a)、Kイオン(b)およびCsイオン(c)の滞留時間のヒストグラム。層電荷のバリエーション（x = 0, 0.1, 0.2, 0.3および0.4）を色別に表示した。(d) 滞留層内における各陽イオンの拡散係数の層電荷依存性。縦軸は、ベーサル面に平行な成分を対象とした二次元的な拡散係数をバルク溶液中の水分子の拡散係数で規格化した値を表す

一方図3.2-37(d)には、滞留層の領域内を対象に、各陽イオンの拡散係数の層電荷依存性を評価した結果を示す。図の横軸は層電荷xを表し、縦軸は滞留層内のイオンの拡散係数をバルク溶液中の水分子の拡散係数(D_0 =4.73 × 10^{-9} m^2/s)で規格化した値を表す。なお拡散係数は、ベーサル面に平行な成分を対象とした二次元的な拡散係数$D_{\parallel}$であり、速度相関関数を用いてGreen-Kuboの表式から算出した(Liu et al., 2004)。いずれの陽イオンでも、層電荷の上昇とともに拡散係数が減少する傾向が確認できる。これは滞留時間の場合と同様に、静電相互作用の影響のためであると考えられる。一方、陽イオンの種類に関しては、層電荷の値に関係なく常に$Na^+ < Cs^+ < K^+$の大小関係が確認できる。これについても、自由エネルギーとの関係で考察を試みる。

上述したように、滞留層における陽イオンの滞留時間と拡散係数の結果を踏まえ、陽イオンの種類に起因した相違について考察するため、各陽イオンに対してベーサル面近傍での自由エネルギー・ランドスケープを評価する。各陽イオンを試験粒子として自由エネルギーを計算するため、

本解析ではアンブレラサンプリング法(Torrie et al., 1977; Roux, 1995)を用いた。自由エネルギー・ランドスケープを評価するため、Yang et al. (2020)を参考にして、外部ベーサル面に垂直な方向に、自由エネルギーを評価するベーサル面に平行な面の位置（z-position）を決定した。図3.2-38は、層電荷0.2のバイデライト表面に垂直な方向に沿った平均力ポテンシャルΔGの概形（青色実線）と、バイデライト表面近傍における分子モデルの模式図を重ねて表示したものである。z-positionとして、ベーサル面から1 Å離れた位置を$Z_{\mathrm{near_surface}}$、$\Delta G$の第1極小点の位置を$Z_{\mathrm{issc}}$、$\Delta G$の第1極大点の位置を$Z_{\mathrm{local_max}}$、$\Delta G$の第2極小点の位置を$Z_{\mathrm{ossc}}$と、それぞれ表示して設定した。平均力ポテンシャルは陽イオンの種類により異なるが、Yang et al. (2020)のデータを引用して各陽イオンのz-positionを図3.2-38の表に記載した。



z-position	Na^+	K^+	Cs^+
$Z_{near_surface}$ (Å)	1.0	1.0	1.0
Z_{issc} (Å)	2.1	2.2	2.3
Z_{local_max} (Å)	2.9	3.6	4.0
Z_{ossc} (Å)	4.2	4.4	5.8

図3.2-38　層電荷0.2のバイデライト表面に垂直な方向に沿った平均力ポテンシャルの概形（青色実線）と、各陽イオンに対するz-positionの位置（Yang et al.（2020）から引用）

層電荷0.2のバイデライトを対象とした、Naイオン、KイオンおよびCsイオンの各z-positionにおける自由エネルギー・マップを、それぞれ図3.2-39、図3.2-40および図3.2-41に示す。いずれの陽イオンの場合でも、同型置換位置の周辺に、自由エネルギーが低く安定なサイトが存在していることが確認できる。またベーサル面により近いz-positionでは、六員環の中心付近に安定サイトが存在し、その安定度は$Na^+ < K^+ < Cs^+$の順に増大していく傾向が確認できる。一方Naイオンの場合、ベーサル面から離れた位置($Z_{\mathrm{local_max}}$)でも比較的安定なサイトが広がった状態で存在していることが確認できる。

これらのデータから、ベーサル面近傍においてCsイオンとKイオンは内圏錯体的に分布し、一方Naイオンは外圏錯体的に分布する傾向にあると考えられる。本報告で実施した自由エネルギー・ランドスケープの解析からは、CsイオンとKイオンの相違が明確ではないが、四辻ほか(2022)においてモンモリロナイト層間で評価した層間対イオンの外圏錯体率を考慮すると、各イオンの分布は$Cs^+ < K^+ < Na^+$の順に外圏錯体的な分布の傾向が強まると考えられる。したがって、Naイオンは平均的に滞留層内のベーサル面から最も離れた位置で拡散している傾向にあり、滞留層からより脱出しやすいため、他のイオンに比べ滞留時間が短くなったものと考えられる。同様に外圏錯体率を考慮すると、CsイオンよりもKイオンの方で滞留時間が短くなると考えられる。このことは、図3.2-37で確認した陽イオンの種類に対する滞留時間の傾向性と整合的である。

次に、滞留層内における陽イオンの拡散係数について、イオン種に対する傾向性を検討する。バルク溶液における拡散係数の実測データは、$Na^+ < K^+ < Cs^+$の順で増大し(Marcus, 1997)、この傾向はMD計算でも確認されている（四辻ほか, 2019）。これは、イオンの結晶半径が$Na^+ < K^+ < Cs^+$の順で増大するが、その水和半径（ストークス半径）は逆に$Cs^+ < K^+ < Na^+$の順に増大するため、ストークスの法則から拡散係数が$Na^+ < K^+ < Cs^+$の順で増大するものと解釈されている。

この関係が滞留層でもそのまま成り立つと仮定すると、拡散係数は$Na^+ < K^+ < Cs^+$の順で増大すると考えられるが、Kイオンよりも外圏錯体率が低いCsイオンは、自由エネルギーの観点からベーサル面近傍でより強く束縛されている可能性があり、その結果、図3.2-37(d)でみられたように、KイオンとCsイオンの拡散係数の逆転現象が現出したものと思われる。このような、バルク溶液中と粘土鉱物表面近傍での拡散係数の不整合については、水 – モンモリロナイト系でも得られており（四辻ほか, 2019）、そのメカニズムについてはさらに定量的に検討する必要がある。

本報告では、バイデライトの外部表面を対象に古典MD計算を実施し、外部溶液に接したベーサル面近傍におけるイオンの滞留時間および拡散係数を計算して、層電荷やイオン種に対する依存性について評価した。滞留時間の評価では、Naイオン, KイオンおよびCsイオンについて、いずれの陽イオンでも、層電荷の上昇とともに滞留時間が増加する傾向にあること、また、陽イオンの種類に関しては、$Na^+ < K^+ < Cs^+$の順番で滞留時間が増大する傾向にあることが確認された。一方、拡散係数の評価では、いずれの陽イオンでも、層電荷の上昇とともに拡散係数が減少する傾向が、また、陽イオンの種類に関しては、層電荷の値に関係なく常に$Na^+ < Cs^+ < K^+$の大小関係が確認された。さらに、ベーサル面近傍での各イオン種に対する自由エネルギー・ランドスケープを解析した。その結果、イオン種による滞留時間や拡散係数の相違については、自由エネルギーの観点からある程度説明可能であることが確認された。

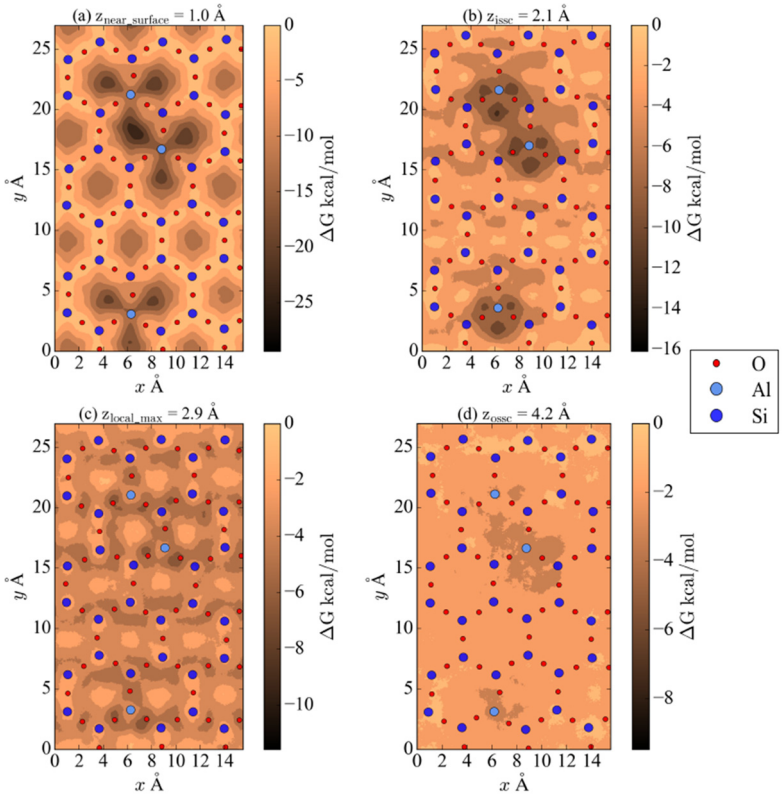


図3.2-39　Na^+の各z-positionにおける自由エネルギー・マップ（層電荷0.2のバイデライト）

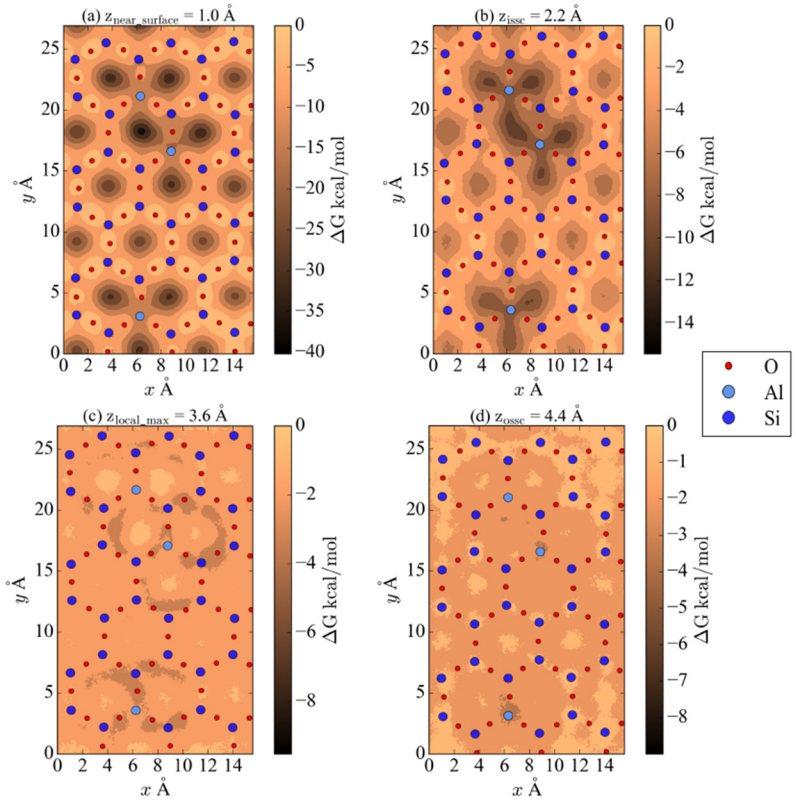


図3.2-40　K^+の各z-positionにおける自由エネルギー・マップ（層電荷0.2のバイデライト）

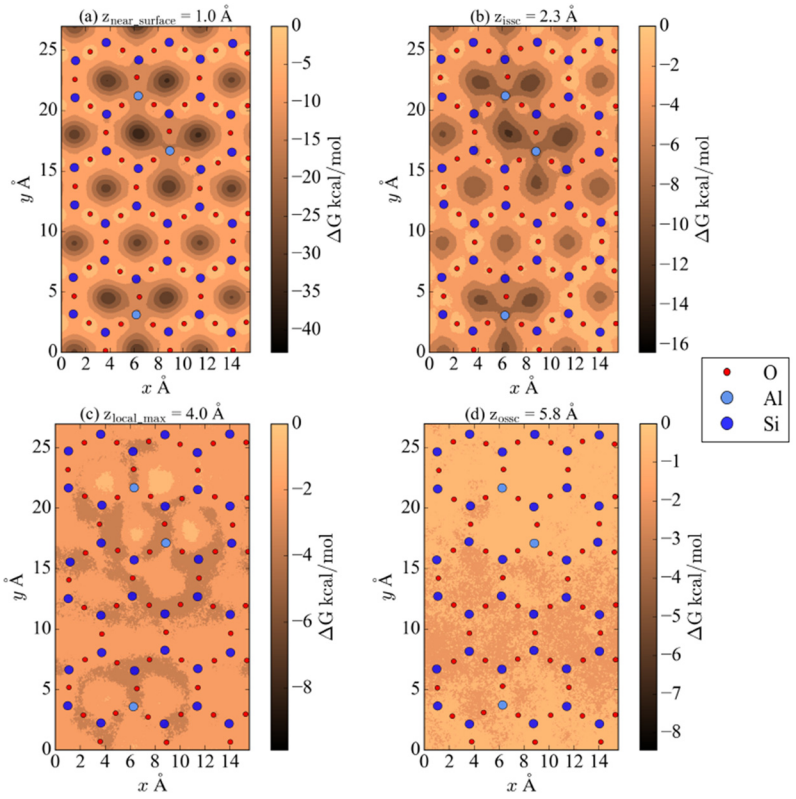


図3.2-41　Cs^+の各z-positionにおける自由エネルギー・マップ（層電荷0.2のバイデライト）

2) 堆積岩割れ目中の核種移行モデルの開発

これまでに、幌延深地層研究センターの深度350 m調査坑道において実施された割れ目部を対象とした原位置トレーサー試験を対象として、原位置試験をサポートする室内試験・分析データ（原位置トレーサー試験後の岩石コア試料分析、コア試料を用いた室内試験等）を取得しつつ、原位置試験結果の解釈に取り組んできた（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2019; 2020; 2021; 2022）。令和4年度は、これまでに得られた解析の結果と課題を踏まえつつ、複数の移行経路または不均質な流れ場等を考慮した核種移行モデルのさらなる改良とその適用性について検討した。

① 幌延の泥岩割れ目中の原位置トレーサー試験の概要

天然の割れ目を対象とした原位置トレーサー試験は、幌延深地層研究センターの深度350 mの調査坑道において、図3.2-42に示すような複数の割れ目が存在する割れ目帯領域を対象に、2本の試錐孔を利用した孔間方式で実施された（武田ほか, 2017）。注水孔および揚水孔は孔径約10 cm、約1 mの離間距離であり、坑道壁面から約2 - 3 m付近にパッカーを設置して試験区間を形成し（試験区間：注水孔 30 cm、揚水孔 60 cm）、注入孔(40 mL/min)から揚水孔に一定流量(30 mL/min)で多様なトレーサー（Cs, Co, Mo, I, 重水およびウラニン）を含んだ原位置地下水が通液された。最初に、トレーサー溶液を注水孔に10分間注入し、その後トレーサーを含まない原位置地下水の注水を継続した状態で、割れ目中を移行して揚水孔に達したトレーサーの濃度変化を計測した（パルスソース試験）。次に、収着性のトレーサーについて揚水孔での破過データを取得するため、同様の試験体系において、注水孔に一定濃度のトレーサーを含む原位置地下水を注水し続けるトレーサー試験を実施した（コンスタントソース試験、トレーサーとしてはMo, Cs, Co, Euおよびウラニン）。

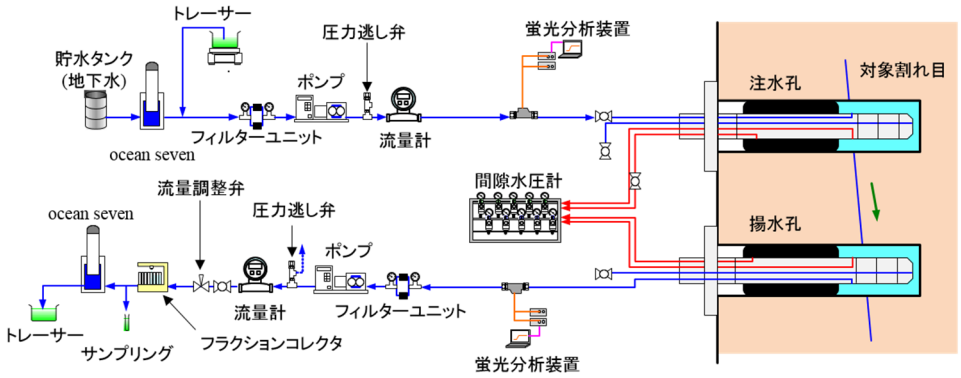


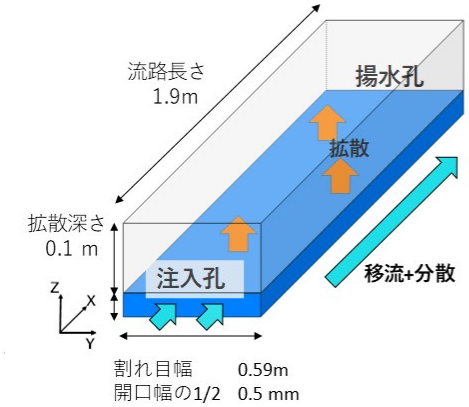
図3.2-42　幌延の泥岩中の割れ目を対象とした原位置トレーサー試験装置の概略図

② 原位置トレーサー試験結果のモデル解析

(a) モデル解析のアプローチ

原位置トレーサー試験は、複数の割れ目が存在する割れ目帯領域を対象に 2 孔間で実施されたが、注水孔側の割れ目の分布状況や開口幅、注水孔および揚水孔近傍の割れ目表面のトレーサー分布状況が確認されたものの、主たる移行経路となりうる割れ目やその連続性等のトレーサーの移行経路を特定するための情報は限られている。これまでの解析検討においては、最初のステップとして、単純な平行平板モデルと均質な流れ場を仮定したモデル解析を検討した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2019）。さらに、割れ目表面のトレーサーの分析結果をもとに、2 つまたは 3 つの移行経路を介した移行や、フロー領域とスタグナント領

域の存在を考慮した解析を試みてきた（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2020; 2021; 2022）。ここで、基本となる解析体系は、図 3.2-43 に示すモデル概念、支配方程式と初期・境界条件に基づくものであり、GoldSim コード(ver. 11.1：GoldSim Technology Group, 2014)の CellPathway オブジェクトを用いた解析を行い、パルスソースおよびコンスタントソースで得られた非収着性のウラニンと Mo および収着性の Cs の破過データ、Cs の割れ目表面濃度データを比較する方法で実施してきた。これまでの解析結果では、これらの 3 種のトレーサーの破過データの全体の傾向性を概ね再現することはできるものの、特にパルスソースとコンスタントソースの試験結果を同じパラメータでは十分に再現できない等が課題であった（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019; 2020; 2021; 2022）。



割れ目中の核種移行に関する支配方程式(Goldsim Pipe Pathway)

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} = -\left[\left(\frac{Q}{A}\right)\frac{\partial C_i}{\partial x} - \left(\frac{AD_w + \alpha Q}{A}\right)\frac{\partial^2 C_i}{\partial x^2}\right] - \frac{1}{A}D_e P \left.\frac{\partial C_i^m}{\partial z}\right|_{z=0}$$

マトリクス中の核種移行に関する支配方程式

$$\frac{\partial C_i^m}{\partial t} = \frac{D_e}{\theta R_i^m}\frac{\partial^2 C_i^m}{\partial z^2} + \left(\frac{D_e}{\theta A^m R_i^m}\right)\frac{\partial A^m}{\partial z}\frac{\partial C_i^m}{\partial z}, \left(R_i^m = 1 + \frac{\rho K_d}{\theta}\right)$$

初期条件：初期濃度

割れ目中 $C_i(x,t) = 0 \ (t = 0)$, マトリクス中 $C_i^m(x,y,z) = 0 \ (t = 0)$

パルスソース　$C_i(0,t) = C_0 \ (0 < t < 10 \ min)$

コンスタントソース　$C_i(0,t) = C_0$

境界条件

割れ目表面　$C_i(x,t) = C_i^m(x,0,t)(z = 0)$

拡散の最大深度　$\left.\frac{\partial C_i^m}{\partial z}\right|_{z=d} = 0 \ (z = d)$

Q	：割れ目中の流量	m^3/sec	P	：割れ目表面から垂直方向への距離	m
Ci	：割れ目中の濃度	Kg/m^3	C_i^m	：マトリクス中の濃度	Kg/m^3
A	：割れ目の断面積の半分（割れ目の開口幅の半分×割れ目幅）	m^2	θ	：空隙率	-
			R_i^m	：マトリクス中の遅延係数	-
D_w	：自由水中の拡散係数	m^2/sec	A^m	：拡散領域/割れ目の長さ	M
a	：縦方向の分散長	M	ρ	：マトリクスの乾燥密度	Kg/m^3
D_e	：マトリクス中の実効拡散係数	m^2/sec	K_d	：収着分配係数	m^3/Kg
P	：割れ目の周囲長の半分（開口部の横幅の長さ）	m			

図3.2-43　割れ目中の核種移行評価の平行平板モデル概念図および支配方程式

(b) 移行経路の推定

対象とした原位置トレーサー試験は、複数の割れ目が存在する割れ目帯領域を対象に実施された試験であり、令和2年度までに、試験箇所周辺のボーリング掘削時のコア観察等の情報から割れ目の分布状況を推定してきた（図3.2-44(a)）。試験孔としたS-30およびS-31の周辺、孔間にはせん断割れ目、引張割れ目および両者の性質を有する割れ目が複雑に分布しており、試験区間内の断層は同一面上で連続していないことが推定された。図3.2-44 (a)に示したトレーサーが検出された割れ目の分布状況から、トレーサーは注水孔および揚水孔間に分布する複数の割れ目のうち、選択的な経路（割れ目）を介して、移行している可能性が示唆された。また、図3.2-44 (b)に示すように、試験後に採取したコア中の割れ目表面のCs濃度の分析結果からは、明瞭な濃度の濃淡が認められる。このことは、不均質なトレーサーの移行が生じていることを示すものであり、流れが卓越した領域と停滞した領域（フロー・スタグナント領域）を考慮する必要性が確認された。

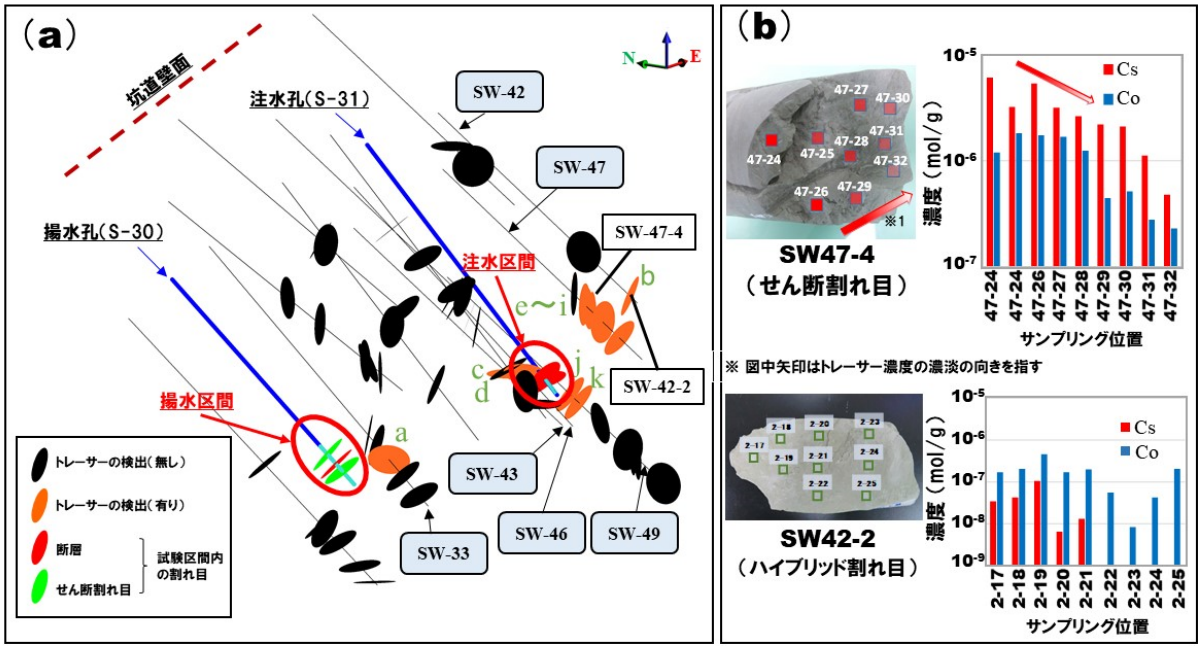


図3.2-44　試験孔周辺のボーリングコアの割れ目面のトレーサー分析結果：(a)トレーサーの移行に関与した割れ目分布、(b)割れ目表面のトレーサー濃度分析結果の一例

(c) 複数の移行経路とフロー領域・スタグナント領域を考慮した解析方法

上記(b)に示したように、ここで対象とした割れ目帯領域でのトレーサー試験では、複数の移行経路を経由してトレーサーが移行している可能性、割れ目内をトレーサーが不均質に移行（フロー・スタグナント領域）している可能性が示唆された。このことを踏まえ、複数の移行経路とフロー・スタグナント領域を考慮したモデルを検討してきた（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2020; 2021; 2022）。令和3年度までに、3つの移行経路とフロー領域･スタグナント領域を考慮したモデル解析やパラメータ最適化の改良を加えつつ検討したが、パルスソースとコンスタントソースのそれぞれで得られた複数のトレーサーの破過曲線を概ね再現できるものの、パルスソースとコンスタントソースの双方の結果を同じモデル・パラメータで再現するには至らなかった。

これまでに検討してきた複数の移行経路とフロー領域・スタグナント領域を考慮した移行経路のモデル概念を図3.2-45に示す。複数の移行経路を考慮したモデルは、図3.2-45 (a)に示すように、一次元平行平板モデルの結果を重ね合わせるもので、注水孔から揚水孔までの流路を複数設定し、それぞれの3経路の流路長さ、割れ目幅および開口幅の合計9つの条件を変動させる。一方で、割れ目内にフロー領域・スタグナント領域を考慮したモデルでは、図3.2-45(b)に示すように、フロー領域の移流・分散に加え、フロー領域からスタグナント領域への拡散と、マトリクス拡散を考慮する。これまで、複数の移行経路と、フロー・スタグナント領域の双方を組み合わせたモデルを基本として解析を進めてきた。

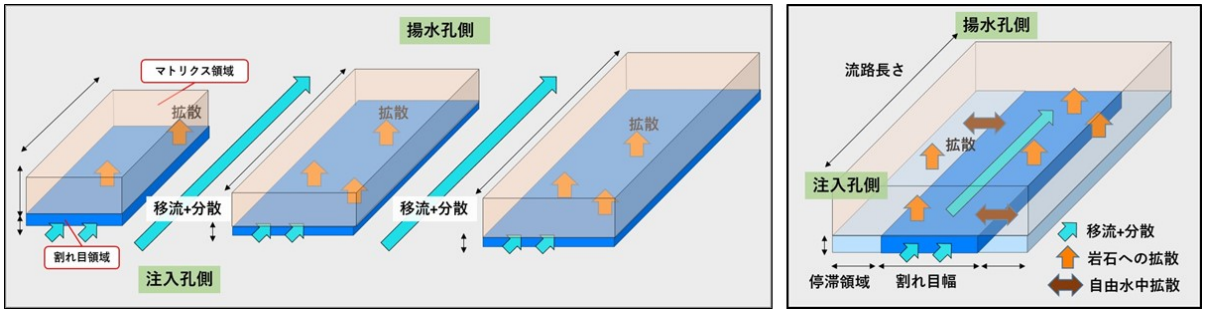


図3.2-45　複数の移行経路とフロー領域・スタグナント領域を考慮した解析モデル：(a) 複数の移行経路、(b) フロー領域・スタグナント領域

また、解析においては、トレーサー試験において注入孔からの注水量が40 mL/minであるのに対し、揚水孔からの揚水量を30 mL/minに設定されていることを考慮する必要がある。これらの取り扱いと複数の移行経路の取り扱いの概念図を図3.2-46に示す。ここでは注入量と揚水量の差10 mL/minを差し引いた上で、残りの30 mL/minを、複数の移行経路にそれぞれの移行経路の割れ目開口面積に応じて割り振る方法とした。それぞれの移行経路からの流量とトレーサー濃度から、揚水孔における揚水中のトレーサー濃度を評価した。なお、複数経路に対しての破過曲線をグラフ上に記載する際には、経路ごとの濃度比はそれぞれの流量比に応じた曲線として表現することとした。

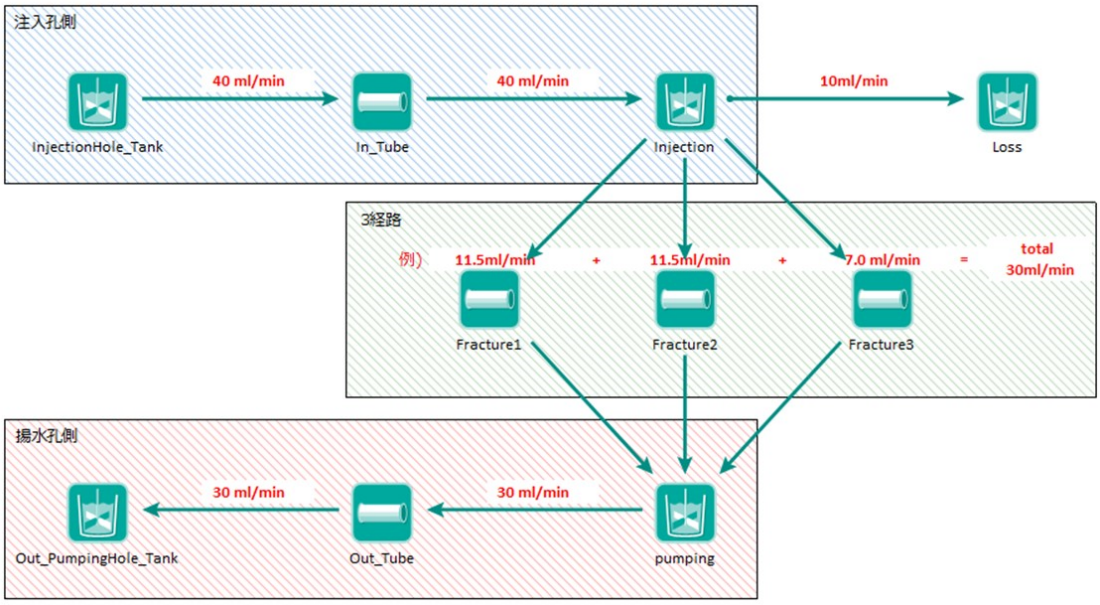


図3.2-46　GoldSim解析における注入孔側から揚水孔側の流量と、複数移行経路の取り扱い

令和4年度は、これまでと同様にモデル化手法を踏まえた3つの移行経路を考慮したモデル解析を継続して行った。具体的には、流路の長さや割れ目幅および開口幅等のパラメータを変動させ、実測データとの比較によって最適化を行う手法を適用して、最適なパラメータの導出を試みた。そして、パルスソース・コンスタントソース両方で実測されたトレーサーの投入量に対する回収率との比較や、移行特性の異なる複数のトレーサーの実測データへの再現性の検討を含めた解析結果の妥当性検討を行った。また、これらの検討をしていく中で、パルスソースとコンスタント

ソース試験における間隙水圧条件（注入孔と揚水孔）に差異が生じていることに着目して（図3.2-47）、パルスソースとコンスタントソース試験における間隙水圧差（注入孔と揚水孔）の差異（間隙水圧差の比率：1.47）に応じて、流速を補正して最適化を実施した。

なお、パラメータの最適化については、GoldSimに付属する「Optimization機能」を用いて検討した。Optimization機能では、目的関数（最小化または最大化したい特定の関数）、オプションの制約（満たすべき条件）、および1つ以上の最適化対象変数（モデル内の変数で変動可能な値）を指定する。次に、GoldSimはモデル計算を複数回実行して、各最適化変数の値の組み合わせの選択を系統的に行う。これにより、GoldSimは指定された制約を満たしながら目的関数を最適化（最小化または最大化）することが可能である。目的関数はコンスタンスソース試験、およびパルスソース試験の破過曲線に対する実測値との残差二乗和とする。そして最適化対象変数は、割れ目の経路長、割れ目の経路幅および割れ目開口幅の3つのパラメータとした。

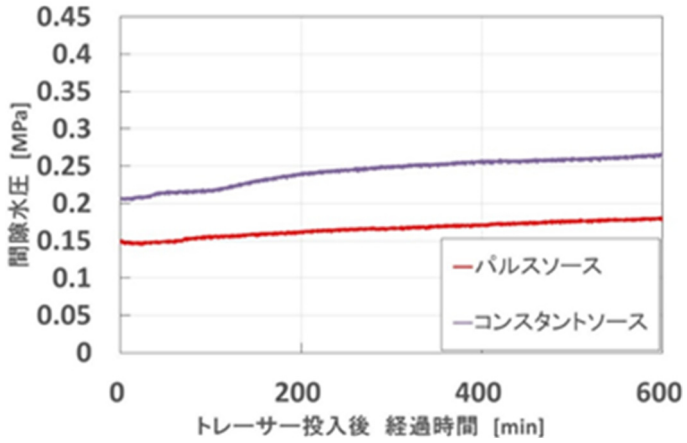


図3.2-47　トレーサー試験における間隙水圧の変化

(d) 解析結果と考察

上記の解析手法に基づき、間隙水圧比率の差異に応じて流速を補正した条件で、3つの移行経路とフロー・スタグナント領域を組み合わせたモデルにより最適化を行った結果を図3.2-48に示す。また、それぞれの最適化で得られた3つの移行経路パラメータを表3.2-5に示す。

最適化の結果、同じパラメータでパルスソースとコンスタントソースの双方の結果を再現することはできなかった状況に対し、今回新たに間隙水圧比率を補正することでパルスソースとコンスタントソースの双方をより良く再現できる解析結果を得ることができた。また、最適化により得られた破過曲線とパラメータ値を比較してみると、パルスソースとコンスタントソースで、注入孔と揚水孔の区間長よりも長い1.7 m程度の移行距離を主たる移行経路とし、3 - 5 mの範囲の移行距離の残り2本の移行経路によって解釈された。また、割れ目の開口幅は0.5 - 1.3 mm程度の最適化結果が得られ、これらの最適化パラメータも現実的に想定されうる範囲の値となった。

さらに、トレーサーの回収率についても同様に間隙水圧条件の差異を補正することで、パルスソースとコンスタントソースの双方で、実測データに近い結果を得ることができた。それぞれの回収率の結果を表3.2-6および表3.2-7に示す。

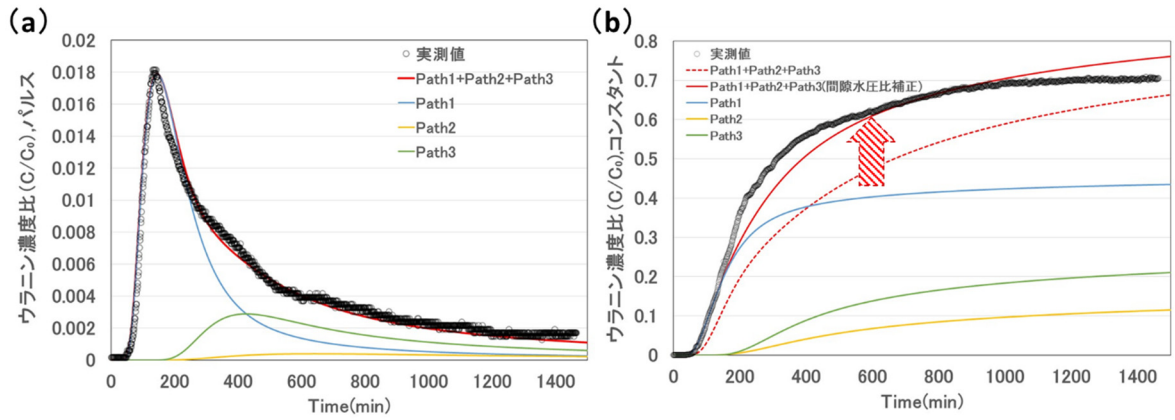


図3.2-48　パルス・コンスタント試験結果の間隙水圧差を補正した最適化結果

表3.2-5　パルスソース試験およびコンスタントソースの解析モデルにおける最適化パラメータ

パルス最適化	1経路目	2経路目	3経路目
流路長(mm)	1755.48	3496.97	4985.65
割れ目幅(mm)	337.19	319.11	288.74
開口幅(mm)	1.32	0.58	1.03

表3.2-6　パルス・コンスタントソース試験による投入量に対する回収量の割合

解析値	回収率（パルス）(%)	回収率（コンスタント）(%)
パルス最適化	49.36	34.24
コンスタント最適化	55.64	43.29
実測値	49.79	45.89

表3.2-7　パルス・コンスタントソース試験による回収量の割合（間隙水圧補正後）

	回収率（パルス）(%)	回収率（コンスタント）(%)
実測値	49.79	45.89
解析値	49.69	32.34（補正前） →42.55(流速：間隙水圧補正)

次に、上記で得られた非収着性ウラニンのパルスおよびコンスタントソースでの最適化結果およびモデルの妥当性を評価するため、これまでにも解析検討の対象としてきた非収着性の陰イオントレーサーであるモリブデン(Mo)と、収着性トレーサーであるセシウム(Cs)の試験データに対してモデルおよびパラメータの適用性を確認した。ここでも、間隙水圧比率を補正した上記のパルスソースとコンスタントソースのそれぞれのウラニンの試験結果の最適化によって得られた3つの移行経路に係るパラメータと、これまでの原位置および室内拡散試験で得られた拡散・収着データに基づく移行特性の推定値とを組み合わせた解析を行い、実測データとの比較および、間隙水圧差の補正の有効性の確認を行った。Moのパルスソースとコンスタントソースのそれぞれの実測データと解析結果の比較を図3.2-49に示す。

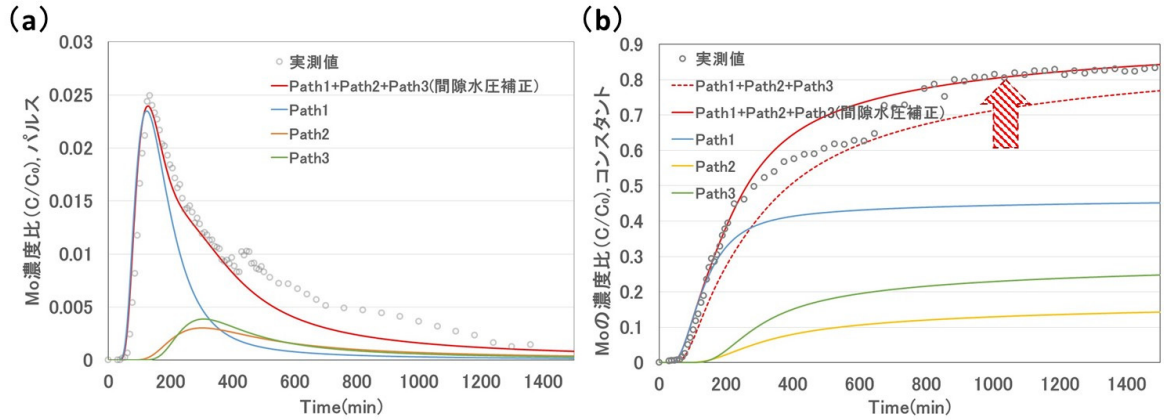


図3.2-49　ウラニンのパルス試験とコンスタント試験の最適値および間隙水圧比率の補正を行いMoにおける3つの移行経路を考慮した解析モデルを用いた解析結果：(a) パルス試験の破過曲線、(b) コンスタント試験の破過曲線

幌延の泥岩（稚内層）の先行研究で得られた中性の水分子（重水またはトリチウム水）と陰イオン（ヨウ素等）の実効拡散係数の関係から推定したMoの実効拡散係数（表3.2-8）を用いて解析した結果は、図3.2-49に示すように、パルスソースおよびコンスタントソースの双方で、間隙水圧比率を補正したウラニンの最適化パラメータを用いた場合に実測データを良好に再現できることが確認された。

表3.2-8　原位置および室内拡散試験データに基づくトレーサーの実効拡散係数の設定値

トレーサー	拡散係数 D_e (m^2/s)
ウラニン	4.80E-10
Mo	2.00E-10
Cs	9.50E-10

一方、Csにおいては、収着分配係数の不確実性を考慮することで、同様に最適化を行いコンスタントソースの破過データを対象に、実測データと解析結果の比較を行った。最適化によって得られた収着分配係数を表3.2-9に示す。解析の結果は図3.2-50(a)に示す通り、ウラニンとMoと同様により実測値に近い結果を得ることができた。さらに、これらのコンスタントソースの最適化結果を用いたCsの解析で得られた割れ目表面のトレーサー濃度と上記に示した分析結果との比較では、図3.2-50(b)に示すように、実測データは解析結果の上限と下限の間に分布することが確認できた。

上記検討の結果、3つ移行経路とフロー・スタグナント領域を考慮したモデルとパラメータの最適化手法に加え、間隙水圧比率を補正することでパルスソースおよびコンスタントソースの両方の破過曲線の傾向性を再現できることを確認した。幌延URLの深部地下環境で得られた複雑な断層帯を対象とした原位置トレーサー試験結果を対象とした一連の検討を通じて、複数の移行経路や流れの不均質性等を考慮したより現実的な物質移行モデルとパラメータの最適化手法を組み合わせたトレーサー試験の解析評価手法を提示することができた。

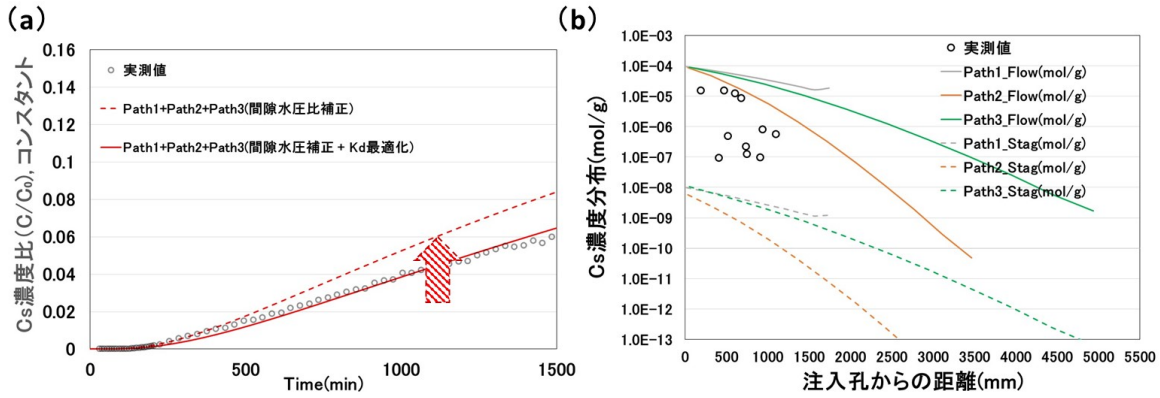


図3.2-50　ウラニンの最適値を用いてCsにおける3つの移行経路を考慮した解析モデルを用いた解析結果：(a) コンスタント試験の破過曲線、(b) 割れ目表面の濃度分布

表3.2-9　原位置および室内拡散試験データに基づくCsの分配係数の設定値

Cs-分配係数：推定値	
分配係数 K_d (m^3/kg)	0.0266 →0.0345(最適値)

3) 原位置物質移行試験の妥当性の確認

本事業において、堆積岩については、幌延URLの泥岩のマトリクス部と割れ目部の双方を対象として、室内試験と原位置試験とを組み合わせて、データ取得とそれらに基づくモデルの高度化や適用性評価を進めてきた。ここでは、これまでに取得・評価を進めてきた原位置試験のデータの妥当性を確認する観点から、原位置試験後の試料を対象にレーザーアブレーションICP質量分析(LA-ICPMS)法を適用して岩石内部のトレーサーの分布を把握することによって、これまでに実施してきたマトリクス部の拡散試験や割れ目部のトレーサー試験の結果や解釈の妥当性確認を試みた。また、これまでに原位置試験の解析によって取得された原位置での物質移行データを、室内試験データとあわせて比較・分析することを通じて、原位置試験で得られたデータの妥当性を評価した。

幌延URLの350 m坑道の泥岩（稚内層）のマトリクス部（健岩部）を対象として、先行事業において原位置地下水条件での原位置・室内試験において多様なトレーサー元素を用いて拡散試験を実施した（日本原子力研究開発機構, 2018）ほか、本事業において地下水塩濃度の影響に着目して、Csを対象に原位置試験によるデータ取得や解析を実施してきた（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019）。ここでは、原位置地下水条件での原位置拡散試験（D-05孔）の試験後に採取されたトレーサー接触面試料（トレーサー接触面の幅0.5 mm、トレーサー拡散方向への深さ2 mmの範囲）を対象に、トレーサー等の分布をLA-ICPMS分析により取得した（図3.2-51）。幌延の泥岩の主要成分のSi, AlおよびFeの分布からは一部領域でこれらの濃度が低濃度となっているものの、全体的には均質な泥岩マトリクスであることが確認された。原位置拡散試験でトレーサーとして使用した元素のうち、Csは2 mmの範囲に均質な濃度でCsが分布していること、一方で、Eu, CoおよびIは、トレーサー接触面から2 mmの範囲で濃度が徐々に低下している状況が確認できた。これらの結果は、先行事業で報告した岩石の研削・溶解した上でICP-MSで分析することにより取得した濃度分布（日本原子力研究開発機構, 2018）と整合する結果である。しかしながら、Iがトレーサー接触近傍に濃集している状況は、接触面近傍でIの沈殿が生じている可能性が考えられ、この点はデータの解釈において留意する必要がある。

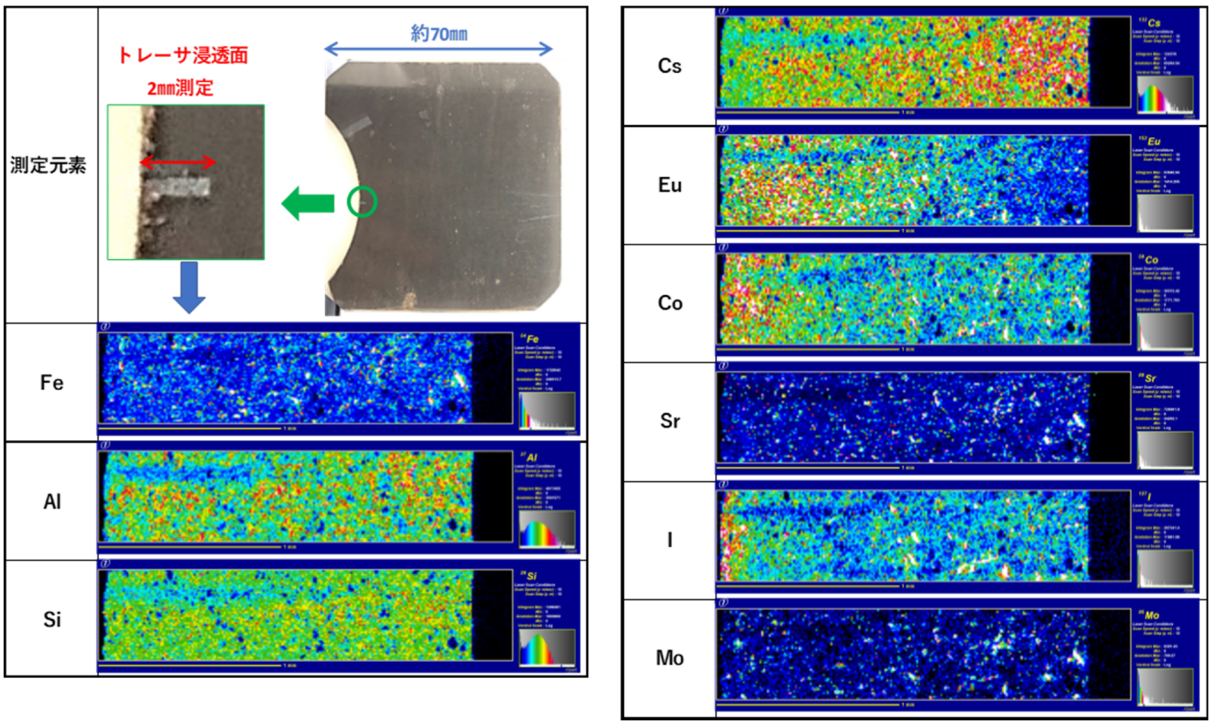


図3.2-51　幌延URLの350 m坑道におけるマトリクス部の原位置拡散試験後のトレーサー接触面近傍のトレーサー等分布のLA-ICPMSによる分析結果

一方、幌延URLの350 m坑道の割れ目帯を対象とした原位置トレーサー試験は、上記2)に記載の通りである。ここでは、これらの割れ目部の原位置トレーサー試験の試験後試料のうち、これまでの分析でトレーサーの移行経路となっていることが確認された割れ目試料のうちの一試料を対象に、LA-ICPMS分析を実施した。割れ目面からマトリクスにかけての断面のうち、割れ目面近傍の幅0.5 mm、トレーサー拡散方向への深さ2 mmの範囲を対象とし、さらに、比較のために割れ目面から70 mm程度離れた同程度の大きさの領域を対象として、LA-ICPMS分析によりトレーサー等の分布を取得した（図3.2-52）。泥岩の主成分であるSiやAlの分布からは、割れ目表面からマトリクスにかけてある程度均質であることが確認できる。一方で、原位置トレーサー試験でトレーサーとしたCs, CoおよびMoについては、70 mm離れた領域に比較して、割れ目表面付近で高い濃度となっていること、CsとCoについては割れ目表面からマトリクスにかけて2 mmの範囲で濃度が徐々に低下している状況が確認できた。本事業においてこれまで実施してきた割れ目表面のトレーサー濃度の分析では、割れ目面の複数の地点での濃度分析を行うことによって、トレーサーの移行経路やフロー領域・スタグナント領域の寄与等を確認してきたが、ここでのLA-ICPMSの深度方向へのトレーサー濃度分布を把握することによって、割れ目面からマトリクスにかけての拡散状況を確認することができ、このような分析手法は、トレーサー試験における拡散現象の理解や割れ目面内の拡散特性の不均質性等を把握する上で重要な情報となる。

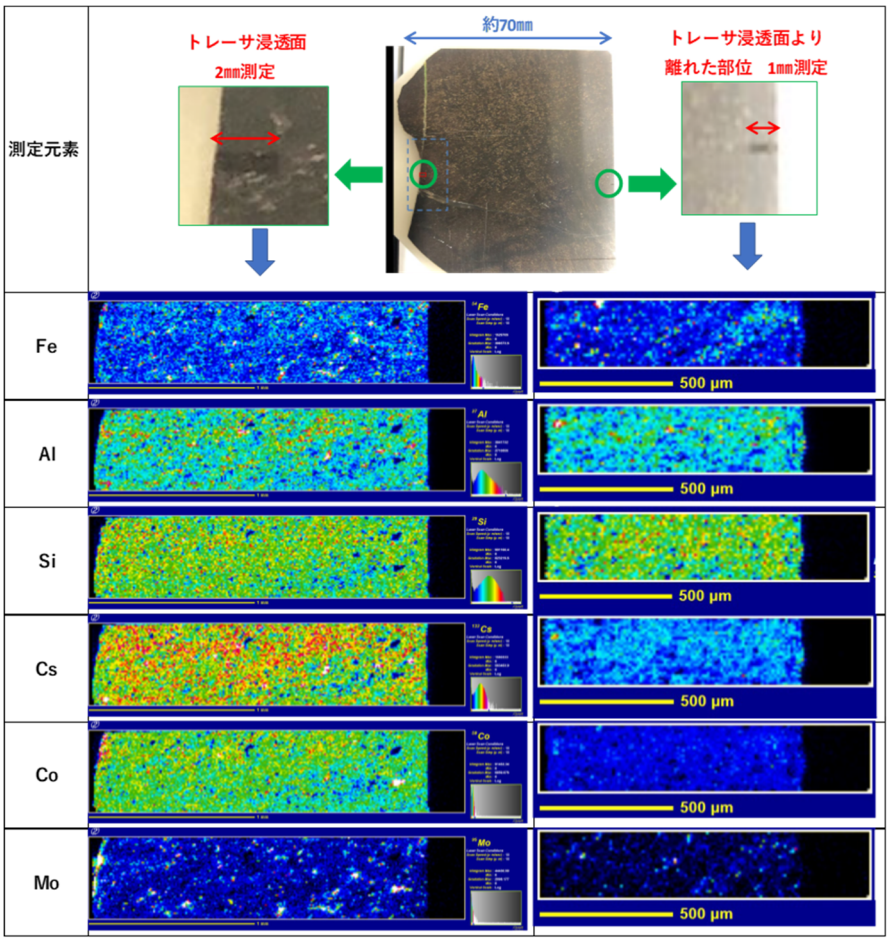


図3.2-52　幌延URLの350 m坑道における割れ目部を対象とした原位置トレーサー試験後の割れ目面近傍のトレーサー等分布のLA-ICPMSによる分析結果

上記1)で示したように、先行事業（日本原子力研究開発機構, 2013a, 2018）で緩衝材ベントナイトを対象に開発してきた統合収着・拡散(ISD)モデルをベースに、幌延の泥岩に含まれる粘土鉱物の特性や間隙構造を考慮して、幌延の泥岩マトリクスを対象とした収着・拡散モデルを構築してきた。ここでは、本事業で評価を行ってきた幌延URLの350 m調査坑道での原位置物質移行試験（マトリクス部の拡散試験、割れ目部のトレーサー試験）で得られたデータを、先行研究を含めた室内試験データやモデル化結果と比較することによって、原位置試験で得られたデータの妥当性を評価した。なお、ここでは、原位置条件を含めて最も信頼性の高いデータが取得できている収着性トレーサーのCsを対象に評価を試みた。

原位置・室内試験で得られた実効拡散係数(D_e)を図3.2-53(a)に示す。先行研究で得られた幌延URLのHDB-6孔の深度500 m付近の泥岩中の拡散試験の結果から、陽イオンであるCsはHTOのD_eよりも高く、塩濃度とともに減少傾向を示し、一方で陰イオンのIではその逆の傾向を示し、粘土成分の狭隘間隙中の静電的な相互作用がイオンの拡散挙動に支配的な寄与をしていることが確認された(Tachi et al., 2011)。この傾向は、上記1)に示した通り、幌延の泥岩に含まれる粘土鉱物の特性や間隙構造を考慮した拡散モデル（図中の実線）で表現可能である。原位置試験で得られたCsの拡散データも、先行研究と同様に、塩濃度とともに実効拡散係数が低下する傾向が確認された。また、原位置試験と同じ岩石と地下水条件で取得された室内試験で得られた拡散データは原位置データと整合することが確認された。さらに、割れ目部のトレーサー試験で得られた拡散

データは、マトリクス部の拡散データより若干高い値となったものの概ね整合する結果となった。これらの比較から、350 m調査坑道の泥岩試料を用いた原位置・室内試験で得られた拡散データは概ね整合する値であり、HDB-6孔の500 m付近の試料の拡散データと比較して値自体は高めとなっているが、この差異も350 mより浅部の泥岩試料の方において間隙率が高いこと等を考慮すれば妥当な傾向であるといえる。

一方、Csの収着データの間隙水塩濃度やCs濃度に対する依存性とそのモデル化結果を図3.2-53(b)に示す。先行研究で得られた幌延URLのHDB-6孔の深度500m付近の泥岩の収着試験の結果からは、明瞭な塩濃度とCs濃度依存性が確認でき、これらの傾向は泥岩に含まれる主要な粘土鉱物であるスメクタイトとイライトのイオン交換モデルの組み合わせによって概ね再現できている(Tachi et al., 2011)。原位置試験で得られたCsの収着データも、先行研究と同様に、塩濃度とともに低下する傾向が確認され、これらの傾向は上記先行研究の傾向とも定量的にも整合することが確認された。また、原位置試験と同じ岩石と地下水条件で取得された室内試験で得られた収着データは原位置データと整合することが確認された。さらに、割れ目部のトレーサー試験で得られた収着データは、原位置拡散試験の結果と比較して1桁近く低い値となった。この差異は、割れ目部のトレーサー試験では、より高いCs濃度での試験であることを考慮すれば妥当な傾向であり、図中のモデル（実線）のCs濃度依存性からも定量的にも妥当な結果であるといえる。以上のこれまでの室内・原位置試験のデータの比較から、原位置試験で得られたデータの妥当性が評価された。今後、より多様な深度条件での原位置・室内試験による深度に応じた岩石特性と物質移行特性の定量的な把握や、後述するコロイド、有機物、微生物影響等とあわせたモデルの高度化を検討していくことが重要となる。

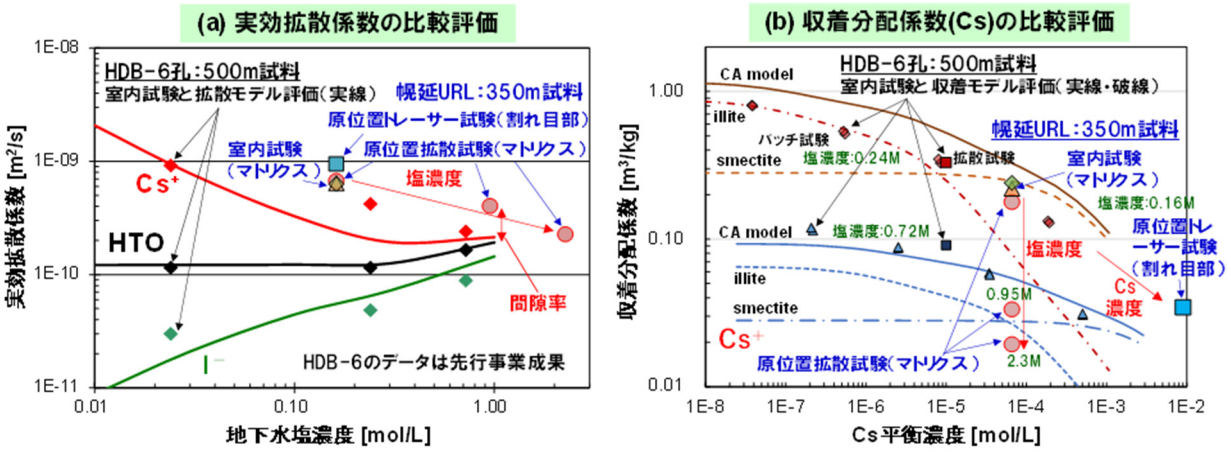


図3.2-53　本事業で評価を実施した幌延URLの350 m調査坑道における原位置トレーサー試験、原位置拡散試験および室内試験で取得された物質移行パラメータの比較：(a) 実効拡散係数、(b) 収着分配係数

4) 幌延のナチュラルトレーサー評価に関する検討

粘土質堆積岩は、透水性が極めて低い拡散バリアとしての性能が期待されており、諸外国でもこれら岩石における長期にわたる拡散バリア性能の立証が中心的な課題となっている。これまで幌延の堆積岩を一例に、地下水（間隙水）中に含まれる非収着性（弱収着性）の元素濃度プロファイル（ナチュラルトレーサープロファイル；以下「NTプロファイル」と略す）をもとに、NTプロファイルの形成過程の解釈を試み、主要な物質移行プロセスの検討を進めてきた（日本原子力研究開発機構,2018）。検討にあたっては、幌延深地層研究計画における地上からの調査研究段階

（第1段階）で掘削されたボーリング孔（HDB-1孔からHDB-11孔）のうち、NTプロファイルが相対的に明瞭であること、大曲断層や褶曲軸から比較的離れた場所に位置していること（水理地質構造が相対的に単純と想定されること）、埋没・続成作用の過程におけるシリカ鉱物の相変化と脱水により深部地下水のCl濃度の希釈が概ね解釈可能であることおよびNTプロファイルの形状が相互に異なることを条件に対象とするボーリング孔（HDB-1孔およびHDB-3孔）を選定した（日本原子力研究開発機構, 2016a）。検討の結果、両孔で認められるNTプロファイルは、移流・拡散を基本とした物質移行プロセスでの解釈が適当であること、HDB-3孔はHDB-1孔に比べると移流の影響は小さいこと等が示唆された（日本原子力研究開発機構, 2018）。なお、NTプロファイルの解釈における不確実性の大きいパラメータとして、移流速度および移流・拡散期間が抽出され、これらを主なパラメータとしたbounding analysis（保守的に境界条件を見積もった解析）では、実測されたNTプロファイルと比較的良い整合を示す解析結果が幾つかの条件設定の組み合わせで得られたものの、実測値との整合の良いパラメータの条件設定の絞り込みには至らなかった（日本原子力研究開発機構, 2018）。このことは、幌延の堆積岩を対象に移流・拡散を基本とした鉛直方向の物質移行モデルにより最適な条件を導出するには、非収着性元素の濃度プロファイルの解釈だけでは不十分であることを示唆する。このため、本検討では、非収着性元素の濃度プロファイルに加え、反応性元素の濃度プロファイルの解釈も併せて行うことで、条件の絞りこみに繋がるような検討が可能かどうかを試行する。平成30年度は、反応性元素の濃度プロファイルの解釈を進める上で必要な概念モデルを検討し、モデルで考慮すべき反応・プロセスの整理を行った（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019）。また、解析対象とするHDB-1孔およびHDB-3孔における反応性元素（Na, K, Ca, MgおよびSO_4）の濃度プロファイルに係るデータの整理も行った（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019）。平成31年度は、反応性元素の濃度プロファイルを対象とした移流・拡散に化学反応を加えた解析評価に先立ち、岩石コアから抽出された間隙水データの信頼性を評価すると共に、データの品質に影響を与えると考えられる間隙水抽出時の人為的影響の評価手法についても検討した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2020）。令和2年度は、これまでの検討で整理した概念モデルで考慮する反応・プロセスをもとに、粘土鉱物によるイオン交換反応を取り込んだ解析モデルにより、反応性元素の濃度プロファイルを対象に移流・拡散に化学反応を加えた解析を行った（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2021）。令和3年度は、イオン交換反応に加え、炭酸塩鉱物による寄与として方解石の溶解・沈殿反応を考慮した場合の反応性元素の濃度プロファイルへの影響を把握するための解析を実施した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2022）。令和4年度は、令和2年度および令和3年度に解析モデルに取り込んだイオン交換反応および炭酸塩の溶解・沈殿反応を対象に、これらの反応をモデル化する際に用いるパラメータの不確実性を考慮した解析を行い、モデル解析による実測値の再現性向上を図るための検討を行った。

① 解析対象としたボーリング孔およびデータ

解析対象としたボーリング孔は、令和2年度および令和3年度の検討に引き続き、非収着性元素の濃度プロファイルの解釈を試みた場合と同様に、HDB-1孔およびHDB-3孔である。両孔における反応性元素の濃度プロファイルに係るデータには、國丸ほか(2007)で報告された揚水による地下水(pumped water)と岩石コアからの間隙水(pore water)が含まれる。このうち、岩石コアから抽出された間隙水データの信頼性については平成31年度の検討により、抽出過程での雰囲気（大気、不活性雰囲気）の影響やそれに付随する化学反応（黄鉄鉱等の還元性鉱物の酸化溶解、方解石等の炭酸塩鉱物の溶解）の影響により、水質が変化していることが推察された（日本原子力研

究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2020）。このため、幌延の地下施設周辺における地上からのボーリング孔（HDB-1孔およびHDB-3孔以外の他のボーリング孔も含む）で得られたpumped waterのデータをもとに、各反応性元素とClとの関係をべき乗則による回帰直線として求め、その関係に基づき、HDB-1孔およびHDB-3孔の間隙水データを補正した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2020）。令和4年度の検討でも、平成31年度の検討により補正された反応性元素の濃度プロファイルを実測値の濃度プロファイルとして考慮した。

② 概念モデルで考慮した反応・プロセスに係る条件設定

幌延の地下水水質形成に関わる概念としては、大局的にみた場合、浅層に分布する降水系地下水と深層に分布する海水系地下水の混合であると考えられている（例えば、Yamamoto et al., 2005）。地下水中の成分としては、単に異なる地下水の混合で濃度を概略的に評価可能な元素（例えば、Cl）と単純に混合だけでは濃度の評価が困難と考えられる元素（反応性元素）に分けられる。また、地下水のpHや酸化還元電位(Eh)も鉱物 - 水反応により支配されると考えられ、異なる地下水の混合だけでは評価が困難であり、鉱物 - 水反応を基本とした幌延の地下水水質形成に関わる検討も行われている（Yamamoto et al., 2005; Hama et al., 2007; Sasamoto et al., 2007; 岩月ほか, 2009; Sasamoto et al., 2011）。これらを踏まえ、平成30年度には、反応性元素の濃度プロファイルを解釈するための概念モデルで考慮すべき反応・プロセスが整理された（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019）。これらを簡単に整理すると以下の通りである。反応性元素のうち、Na, K, CaおよびMgについては、幌延の堆積岩中に含まれるスメクタイト等の粘土鉱物によるイオン交換反応により濃度が変化し、CaやMgについては炭酸塩鉱物の溶解・沈殿反応も濃度変化に寄与する。また、反応性元素であるSO_4および地下水のEhに関しては、黄鉄鉱と地下水との平衡反応により影響される。

令和3年度は、イオン交換反応に加え、炭酸塩鉱物による寄与として方解石の溶解・沈殿反応を考慮し、反応性元素（Na, K, CaおよびMg）の濃度プロファイルへの影響を把握するための解析を行った（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2022）。令和4年度は、イオン交換反応および炭酸塩の溶解・沈殿反応を対象に、これらの反応をモデル化する際に用いるパラメータの不確実性を考慮した解析のための条件設定を行った。

(a)イオン交換反応に関わるパラメータの条件設定

イオン交換反応に関わるパラメータとしては、イオン交換反応の平衡定数と陽イオン交換容量(CEC)が挙げられる。令和3年度の検討では、幌延の岩石を対象に取得されたデータに基づき設定されたYamamoto et al. (2005)での検討例を参考にパラメータ設定を行った（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2022）。令和4年度の検討では、これらのパラメータの不確実性として、パラメータ値に幅を持たせた設定を行うため、ここではスイスのオパリナス粘土層中に含まれる粘土鉱物であるイライトを対象にしたパラメータ設定(Illite model : Bradbury and Baeyens, 2000)や我が国の地層処分における人工バリア材候補材料の一つである緩衝材（クニゲルV1）中のスメクタイトを対象にしたパラメータ設定(Smectite model : Oda et al., 2001)を参照し、表3.2-10に示すように幅を持たせた値を設定した。なお、イライトについては、複数の交換サイトを想定し、各々のサイトに対する平衡定数が報じられている(Bradbury and Baeyens, 2000; Marques Fernandes et al., 2015)が、ここではイライトの基底表面（層間）に対するパラメータ値を採用した。

表3.2-10　パラメータの不確実性として考慮したイオン交換反応の平衡定数およびCECの設定値

パラメータ		令和3年度の設定値	Illite model			Smectite model
CEC（meq/100g）		21	20			108
交換サイト		PS[1)]	FES[2)]	Type-II[3)]	PS	PS
サイト容量（meq/100g）		—	0.05	4	16	—
イオン交換反応の平衡定数（Log K）	Na-K	0.07	2.4	2.1	1.1	0.42
	$Na\text{-}NH_4$	—	3.5	—	—	0.46
	2Na-Ca	2.31	—	—	1.04	0.69
	2Na-Mg	1.06	—	—	1.04	0.67

1) PS（Planner Site）：基底表面サイト、2) FES（Frayed Edge Site）：ほつれたエッジサイト、
3) Type-II（イライトのエッジに沿ったサイト）

(b)炭酸塩の溶解・沈殿反応に関わるパラメータの条件設定

令和3年度は、炭酸塩鉱物による寄与として方解石の溶解・沈殿反応を考慮した解析を行った（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2022）。Caと同様に2価の陽イオンであるMgは、方解石中のCaを置換することが知られている。一方、低温ではMgを含む鉱物の反応速度は遅いため、このような現象の解釈は難しいものの、天然における自生のMg含有炭酸塩の生成事例(Bunsenberg and Plummer, 1989; Lammers and Mitnick, 2019)や非晶質Ca - Mg炭酸塩の研究事例(Purgstaller et al., 2019)等もあり、Ca - Mgの二成分系での炭酸塩を対象にした固溶体としての取り扱いの可能性も示唆される。そこで、令和4年度は、$Ca_xMg_{(1-x)}CO_3$の化学式で示されるような固溶体組成を想定し、方解石(Calcite)と菱苦土石(Magnesite)を端成分した固溶体モデルにより、固溶体中でのCaのモル分率をx=0.95, 0.9, 0.5および0.1とした場合の固溶体組成に対する溶解・沈殿反応の平衡定数を導出した。表3.2-11に各固溶体組成の化学式に対応する熱力学特性である生成ギブズエネルギー(ΔG_f^0)と平衡定数(Log K)を示す。なお、これらは解析対象としたボーリング孔における地下水温を考慮し、15 °Cでの計算値とした。

表3.2-11　Ca - Mgの二成分系での炭酸塩を対象とした固溶体組成とその熱力学特性

x	化学式	反応式	ΔG_f^0	Log K
1.00	$CaCO_3$	$CaCO_3 + H^+ = Ca^{2+} + HCO_3^-$	-269,880	2.00
0.95	$(Ca_{0.95}Mg_{0.05})CO_3$	$Ca_{0.95}Mg_{0.05}CO_3 + H^+ = 0.95Ca^{2+} + 0.05Mg^{2+} + HCO_3^-$	-269,186	2.03
0.90	$(Ca_{0.90}Mg_{0.10})CO_3$	$Ca_{0.90}Mg_{0.10}CO_3 + H^+ = 0.90Ca^{2+} + 0.10Mg^{2+} + HCO_3^-$	-268,004	2.05
0.50	$(Ca_{0.50}Mg_{0.50})CO_3$	$Ca_{0.50}Mg_{0.50}CO_3 + H^+ = 0.50Ca^{2+} + 0.50Mg^{2+} + HCO_3^-$	-258,550	2.28
0.10	$(Ca_{0.10}Mg_{0.90})CO_3$	$Ca_{0.10}Mg_{0.90}CO_3 + H^+ = 0.10Ca^{2+} + 0.90Mg^{2+} + HCO_3^-$	-249,096	2.50
0.00	$MgCO_3$	$MgCO_3 + H^+ = Mg^{2+} + HCO_3^-$	-246,732	2.55

③ 境界条件および物質移行パラメータに係る条件設定

令和4年度の検討において、HDB-1孔およびHDB-3孔を対象とした物質移行解析における境界条件および物質移行パラメータの条件設定は、令和3年度と同様である（表3.2-12）。これらの条件設定は、平成28年度および平成29年度に実施したHDB-1孔およびHDB-3孔を対象とした非収着性元素の濃度プロファイルの解釈を試みた場合に準拠した（日本原子力研究開発機構, 2017, 2018）。なお、解析コードとしては、令和3年度と同様にGeochemist's Workbench : GWB(Bethke, 2008)のX1tモジュールを用いた。

表3.2-12　境界条件および物質移行パラメータに係る条件設定

パラメータ	設定値（幅）	設定（仮定）にあたり参考とした文献等
Cl⁻濃度（ppm）	地表側（上側）境界の値としては、河川水の値を設定。岩盤側（下側）境界の値としては、HDB-1孔の深部における現在のCl⁻濃度（10,000）、HDB-3孔の深部における現在のCl⁻濃度（13,000）を設定。	Mazurek et al.（2009） 國丸ほか（2007）
δD・$\delta^{18}O$（‰）	地表側（上側）境界の値としては、現在の地表水の値を設定。岩盤側（下側）境界の値としては、HDB-1孔深部の現在の地下水の値を設定。	國丸ほか（2007）
拡散係数（m^2/s）	Cl⁻：稚内層中でのI⁻の実効拡散係数（De）と声問層の空隙率（0.6）をもとに、声問層のDeを仮定（1.6×10^{-10}を設定）。また、陰イオン拡散間隙としては、0.3と仮定。 δD・$\delta^{18}O$：CLAYTRACプロジェクトでの設定例等を参考に仮定（1.98×10^{-10}・1.28×10^{-10}）。拡散間隙は、空隙率と同様と仮定。	Tachi et al.（2011） Mazurek et al.（2009）
移流速度（m/s）	下方向への移流速度として、3.17×10^{-12}（約0.1 mm/y）～3.17×10^{-13}（約0.01 mm/y）を設定（仮定）。	Karasaki et al.（2011） Mazurek et al.（2009）
期間（時間）	幌延の地下施設周辺における古水理地質学的変遷に関わる情報を参考に、物質移行プロセスが生じた期間の最大値として、1Ma程度を仮定。	新里ほか（2007） 岩月ほか（2009）

④ 解析結果

図3.2-54にHDB-1孔を対象とした場合のイオン交換反応に関わるパラメータの不確実性を考慮した解析結果と実測値（間隙水データは補正値）の比較を示す。なお、令和2年度および令和3年度に実施した物質移行解析の結果、移流・拡散期間による移動に要する期間を1Maと仮定した場合、非収着性元素に加え、反応性元素のうちの一部（NaおよびK）についても解析結果と実測値の整合性が良かったため、令和4年度も移流・拡散期間を1 Maと仮定した解析を行った。解析の結果、令和3年度の結果と令和4年度に実施したイオン交換反応に関わるパラメータの不確実性を考慮した結果（IlliteおよびSmectite model）を比較すると、地表から300 m以深の部分では、ほとんど違いは認められなかった。一方、300 m以浅の部分では、Smectite modelによる解析の場合、地下水中の反応性元素（Na, K, CaおよびMg）の濃度がより高くなった。このことは、Smectite modelによる解析では、300 m以浅の部分において、他の解析ケースに比べて方解石の溶解がより促進され、地下水中に浸出されたCa^{2+}と固相（岩石）中のNa^+のイオン交換反応により、より多くのNa^+が地下水中に浸出し、他の解析ケースよりも濃度が高くなったと推察された。また、地下水中の浸出したNa^+は、岩石中のK^+とのイオン交換反応により、その一部は岩石に収着し、地下水中のK^+濃度が高くなったと考えられる。同様に、Ca^{2+}とMg^{2+}のイオン交換反応も生じるが地下水中の濃度への影響は、Na^+やK^+に比べると小さかった。

図3.2-55にHDB-3孔を対象とした場合のイオン交換反応に関わるパラメータの不確実性を考慮した解析結果と実測値（間隙水データは補正値）の比較を示す。HDB-1孔を対象とした場合の解析結果と比較すると、HDB-3孔の解析結果の方がイオン交換反応に関わるパラメータの不確実性による地下水中の反応性元素濃度への影響は小さかった。

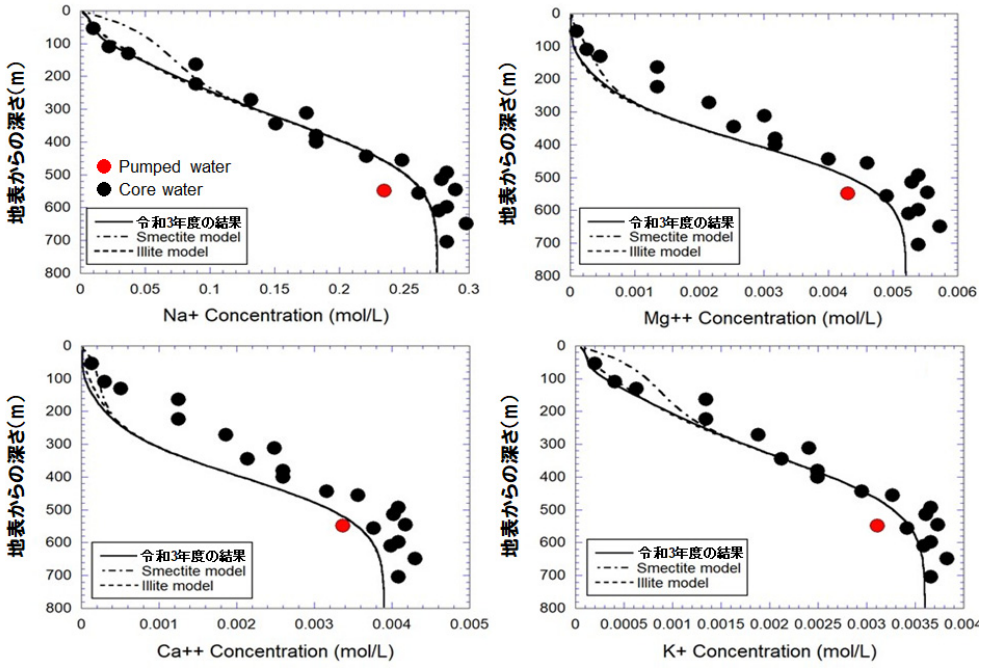


図3.2-54　イオン交換反応に関わるパラメータの不確実性を考慮した解析結果（HDB-1孔）

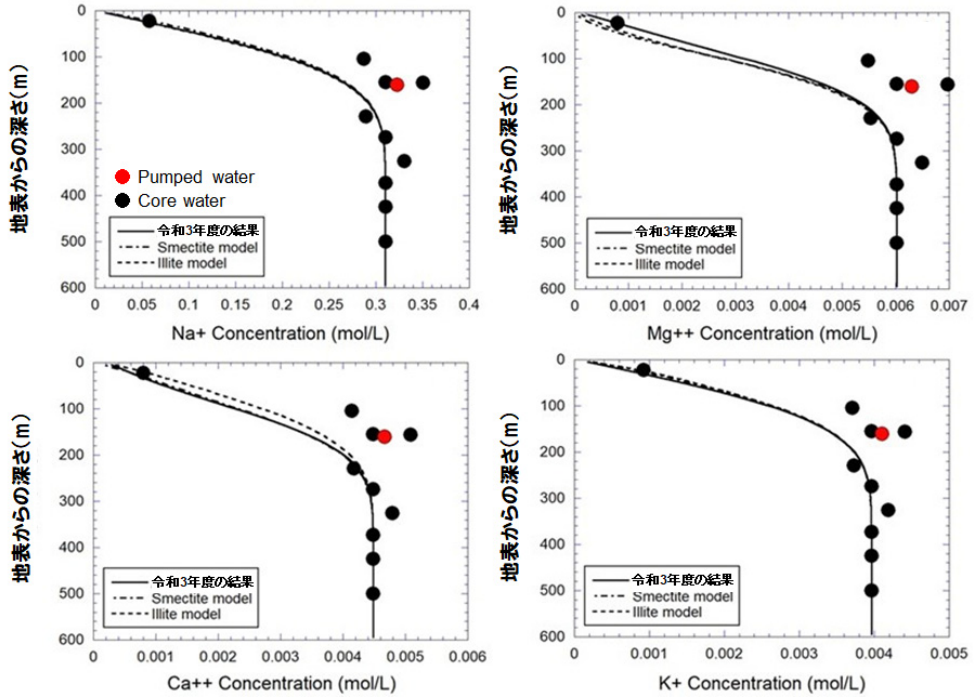


図3.2-55　イオン交換反応に関わるパラメータの不確実性を考慮した解析結果（HDB-3孔）

上述した様な解析結果を踏まえると、岩石中の粘土鉱物に対するイオン交換反応に関わるパラメータの不確実性が反応性元素の深度方向のプロファイルに与える影響は、あまり顕著ではないと推察された。ちなみに、解析対象とした幌延の岩石である声問層や稚内層は、Opal-AやOpal-CTを主成分とする珪藻を多く含む岩石であり、構成鉱物の割合としては、粘土鉱物は、20 wt %程度である。近年の研究例では、Opal中のSiをAlやFeが置換することによる電荷の欠陥がイオン交換能を引き起こす可能性も示唆されている(Derkowski et al., 2015)。このようなOpalによるCECの

値は、粘土鉱物に比べると小さい（10 meq/100 g程度）ものの、声問層や稚内層中での含有量は、50 wt %程度以上あるため、イオン交換反応として、どの程度の寄与があり得るのかは、別途、検討が必要かもしれない。

次に、図3.2-56および図3.2-57にHDB-1孔およびHDB-3孔を対象とした場合の炭酸塩の溶解・沈殿反応に関わるパラメータの不確実性を考慮した解析結果と実測値（間隙水データは補正値）の比較を示す。

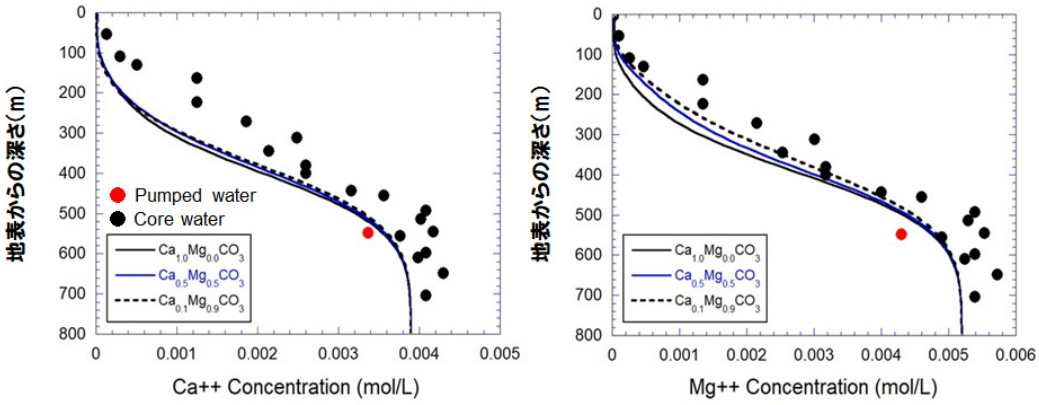


図3.2-56　炭酸塩の溶解・沈殿反応に関わるパラメータの不確実性を考慮した解析結果（HDB-1孔）

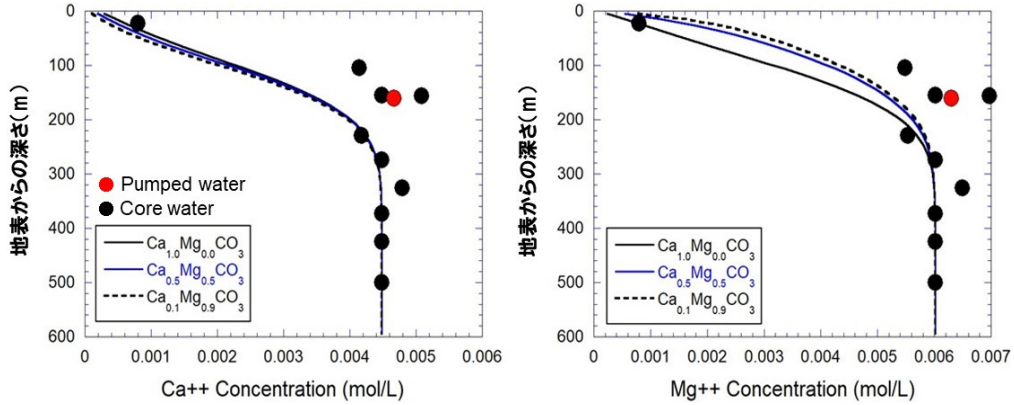


図3.2-57　炭酸塩の溶解・沈殿反応に関わるパラメータの不確実性を考慮した解析結果（HDB-3孔）

図3.2-56および図3.2-57において、固溶体中でのCaのモル分率をx = 0.95および0.9にした場合の結果は、x＝1.0の場合（令和3年度に方解石の溶解・沈殿反応を考慮した場合と同一）と図上では変わらなかったため、図示していない。図3.2-56および図3.2-57に示される通り、方解石と菱苦土石を端成分とし、Caのモル分率を4パターン設定した固溶体モデルによる解析を行ったが、Ca^{2+}濃度については、令和3年度の場合とほとんど差異は生じなかった。一方、Mg^{2+}濃度については、固溶体中でのMgのモル分率が大きいほど、実測値に近づく傾向が認められた。地下水中のMg濃度について今回の解析結果から示唆された傾向は、幌延の岩石中にMg含有量の多い方解石や菱苦土石が存在すること(Kemp et al., 2002)とも調和的である。

上述した様な解析結果を踏まえると、岩石中の炭酸塩の溶解・沈殿に関わるパラメータの不確実性が反応性元素（CaおよびMg）の深度方向のプロファイルに与える影響も、あまり顕著ではないと推察された。

⑤ まとめ

幌延の地下研究施設周辺を対象に、地表から地下深部に形成されたナチュラルトレーサーの濃度分布について、地層スケールでの長期的な物質移行プロセスの理解を深めるため、地質環境の長期変遷を考慮したモデル解析を検討してきた。平成 31 年度までに、反応性元素を対象とした解析に向けて既存データの信頼性や補正手法の検討を進めてきた。令和 2 年度は、HDB-1 および HDB-3 孔を対象に、非反応性元素と反応性元素の双方を考慮した解析を実施し、非反応性元素を対象にした解釈の場合と同様のモデルパラメータを用いて反応性元素の濃度分布の解釈をイオン交換反応の寄与を中心に検討した。令和 3 年度は、イオン交換反応に加え、炭酸塩鉱物の寄与として方解石の溶解・沈殿による影響を把握するための補完的な解析を行い、地下水中の Ca および Mg の実測値に対する再現性の向上に関わる検討を行った。令和 4 年度は、イオン交換反応および炭酸塩の溶解・沈殿反応を対象に、これらの反応をモデル化する際に用いるパラメータの不確実性を考慮した解析を行い、モデル解析による実測値の再現性向上を図るための検討を行った。結果として、粘土鉱物に対するイオン交換反応や方解石と菱苦土石を端成分とした炭酸塩鉱物の固溶体モデルに関わるパラメータの不確実性は、反応性元素の深度方向プロファイルの変化に与える影響は小さく、実測値の再現性を著しく向上するには至らなかった。なお、イオン交換反応については、粘土鉱物以外に Opal の寄与の可能性も示唆されるため、そのような反応を考慮することにより、反応性元素の深度方向プロファイルにどの程度の影響が生じ得るかは、別途、確認が必要である。また、非反応性元素を対象とした NT プロファイルの形成過程の解釈に際にも課題として整理された（日本原子力研究開発機構, 2018）が、本事業における評価では、各ボーリング孔における鉛直方向での流れ（物質移行）しか考慮していないが、幌延の地下施設を含む比較的広域な領域を対象にした場合、大局的には、東側から西側への地下水流動が支配的であることが推察されている（太田ほか, 2007）。さらに、地質環境の長期変動性を考慮する場合、氷期・間氷期における動水勾配の違いによる陸域部分での地下水流動への影響も示唆される（日本原子力研究開発機構, 2016b）。今後、幌延におけるナチュラルトレーサー評価の信頼度を高める上では、現実的な水理場の評価結果も踏まえた検討が重要な課題となる。

3.2.3 5か年の成果と今後の課題

本タスクでは、結晶質岩および堆積岩を対象に、割れ目やマトリクス部の不均質性や地質環境特性の長期変遷等を考慮した核種移行評価技術について、室内試験、原位置試験および天然事例評価等を通じた高度化と適用性評価を進めた。

結晶質岩中のマトリクス部については、令和4年度に、国内の標準岩石試料や瑞浪超深地層研究所の岩石試料を対象に鉱物分布の不均質性や拡散データを拡充し、黒雲母等の層状ケイ酸塩鉱物の含有率や分布等の特徴と核種移行特性（陽イオン加速・陰イオン排除）との関係を把握した。これまでの5か年で、特にスイス・グリムゼルの花崗閃緑岩を対象に、黒雲母等の鉱物や間隙の不均質性の定量化と、不均質性を考慮した拡散挙動の解析手法の開発を進めた。さらに、スウェーデン・エスポやフィンランド・オンカロの海外URLの岩石試料や国内の結晶質岩試料を用いた試験分析によって、多様な結晶質岩マトリクス部の鉱物や間隙分布の特徴と、その核種移行特性との関係を把握できつつある。これらの結果から、黒雲母等の層状ケイ酸塩鉱物が核種移行に重要な役割を果たすことが確認できた一方で、多様な結晶質岩を対象とした核種移行モデルを構築する上では、黒雲母等の含有率のみではなく、黒雲母等鉱物内の間隙率や粒界間隙の連続性もあわせた定量化とモデル化が重要となり、今後はこのような核種移行モデルの一般化に向けた取り組みが課題となる。

結晶質岩の割れ目部については、令和4年度に、複雑な割れ目性状を有する大型のグリムゼルの

割れ目試料を対象に、室内トレーサー試験結果の解釈に向けて、トレーサー試験後の岩石試料を対象としたX線CTデータの解析および割れ目表面近傍のトレーサー濃度分析を継続した。具体的には、割れ目開口部におけるガウジの充填率の空間分布をX線CT解析により定量評価したほか、対象割れ目から分岐した割れ目面のトレーサー濃度分布を取得し、モデル化で考慮すべき不均質性の要素についての情報を得た。さらに、これらの情報をもとに、複数の移行経路や重要な割れ目特性を推定しつつ、それらを反映した核種移行モデルの構築とパラメータの最適化解析を行い、複数の特性の異なるトレーサーの移行データを概ね再現することができた。これまでの5か年で、複雑な性状を有する大型の割れ目試料を対象に、核種移行データや不均質な割れ目特性を取得し、それらデータをもとに核種移行評価モデルを構築する手法を提示することができた。今後は、より多様な割れ目特性を有する試料を用いた室内試験や、より大きなスケールの原位置試験等によるデータの取得やモデルの適用性評価を通じて、これまで構築してきたモデルの妥当性を確認していく必要がある。

さらに、上記のマトリクス部と割れ目部を対象とした研究成果を反映した結晶質岩を対象とした核種移行評価技術の高度化に向けて、令和4年度は、地質環境の長期変遷による地下水組成の変遷とそれに伴う核種収着特性の変化等を考慮可能な核種移行解析手法の検討を継続した。特に、性能評価への反映に向け、環境変遷や収着現象の取り扱いが異なるモデル（精緻 - 中間 - 簡易モデル）を比較・分析することによって、性能評価上で採用すべきモデルやパラメータの考え方等を提示した。これまでの5か年の検討を通じて、割れ目等の不均質性の影響や収着メカニズムの影響、地質環境の長期変遷の影響や空間的なアップスケールの影響等を考慮した核種移行解析手法を構築するためのアプローチを提案し、それに沿った解析手法を段階的に構築してきた。今後は、マトリクスから割れ目部の不均質性、収着等の精緻な取り扱いに加え、地質環境の長期変遷の影響等を考慮した核種移行を評価するために構築してきた複数のモデルを統合化するとともに、原位置試験や天然事例への適用性評価によってその妥当性を確認していくことが重要である。

堆積岩については、幌延URLの泥岩試料（稚内層）を対象に、原位置試験や室内試験を組み合わせて、マトリクス部および割れ目部の核種移行データの取得とモデルの構築を進めてきた。マトリクス部については、令和4年度は、これまでに把握してきた幌延の泥岩マトリクスの間隙構造を反映した拡散モデルを構築するとともに、モデルや室内試験等との比較を通じて原位置拡散試験結果の妥当性を評価した。また、幌延の泥岩中の鉱物・間隙の不均質性を考慮した拡散モデルの構築に向けて、粘土鉱物と他の鉱物の不均質場モデル中の核種移行特性をランダムウォークシミレーションで評価する手法の構築や、粘土鉱物中のCsの収着・拡散の詳細メカニズムを把握するための分子動力学シミュレーションによるCsの自由エネルギー、滞留時間や拡散係数の評価手法の構築を進めた。これまでの5か年で、幌延の泥岩マトリクス部の鉱物・間隙の不均質性とその核種移行への影響に関する個別現象を多面的に把握したほか、原位置拡散試験と室内試験とを組み合わせて、信頼性の高い原位置の核種移行特性を取得・評価するための手法を構築した。今後は、これらの一連の個別研究成果を踏まえて、幌延の泥岩マトリクス中の核種移行モデルの鉱物・間隙特性の不均質性を考慮したモデルの構築や、ここで構築した手法を泥岩とは特徴の異なる堆積岩へ適用していくための検討が重要な課題となる。

割れ目部については、令和 4 年度に、幌延 URL で実施した割れ目中トレーサー試験を対象に、複数の移行経路や不均質な流れ場を考慮したモデルの改良と適用性評価を進めた。パルスソースとコンスタントソース試験における間隙水圧差の差異に応じて、流速を補正して最適化を行うことにより、移行特性の異なる複数のトレーサー（ウラニン：非収着・中性、Mo：非収着・陰イオン、Cs：収着・陽イオン）の実測データを、概ね再現することが可能となった。これまでの 5 か年の検討を通じ、複雑な割れ目を対象とした原位置トレーサー試験結果に対し、複数の移行経路

等を考慮したより現実的な物質移行モデルとパラメータの最適化手法を組み合わせたトレーサー試験の評価手法を構築することができた。今後は、より多様な割れ目性状やスケールに対する原位置試験データを拡充し、これまでに構築してきた評価手法やモデルの更なる改良と妥当性確認を進めていく必要がある。

さらに、幌延URL付近の地表から地下深部に形成されたナチュラルトレーサーの濃度分布を対象に、地層スケールでの長期的な物質移行プロセスの理解を深めるため、地質環境の長期変遷を考慮したモデル解析を進めてきた。令和4年度は、反応性トレーサーのうちCaやMgに対するモデル解析と実測データとの差異の原因を検討するため、粘土鉱物のイオン交換反応のより現実的なモデルパラメータや、炭酸塩鉱物による共沈反応を反映したモデル解析を試みたが、実測値に対する十分な再現性を得るには至らなかった。これまでの5か年の検討を通じ、地層スケールでの長期的な物質移行プロセスの理解を深めるためのアプローチとして、幌延の堆積岩を例に、非収着性および反応性元素の深度プロファイルの解釈評価手法を構築した。今後は、多様な鉱物・地球化学プロセスや地下水流動影響等も考慮した評価手法の更なる改良や適用性評価が課題となる。

3.3 システム変遷等を考慮した核種移行解析モデル/データベースの開発

3.3.1 背景と目的

ニアフィールドシステムの長期的な環境変遷と核種移行を評価する上では、図3.1-1に示したように、ガラス固化体、オーバーパックおよびベントナイト緩衝材と、セメント系材料や岩盤の複数のバリア材および処分施設構成材の相互作用を含むニアフィールドシステムの状態の変遷を把握した上で、それらの変遷が核種移行に及ぼす影響を理解し、その影響を評価する手法を整備する必要がある。従来の性能評価においては、このような人工バリア環境の長期的な変遷や、それが核種移行に及ぼす影響を定性的に評価した上で、これらの影響を考慮しつつ簡略的かつ保守的に評価することを重視した評価モデルとパラメータ値が採用されてきた。地層処分の安全評価が信頼に足るものとして社会に受け入れられるためには、最新の科学技術に基づいて、ニアフィールドシステムの長期変遷と、その変遷を適切に考慮した核種移行を評価するための技術を構築し、それらを反映した地層処分の長期安全評価技術の妥当性を確認していくことが重要である。

このような背景をもとに、本タスクでは、先行事業として実施してきた「処分システム評価確証技術開発」（日本原子力研究開発機構, 2018）や、2章や4章で示したニアフィールドシステム長期変遷評価に関する成果を活用しつつ、複数のバリア材の間で生じる相互作用によるニアフィールド環境の変遷や地下水条件等の地質環境の長期変遷等を考慮した核種移行評価を可能とするため、これら環境変遷が核種移行へ影響を及ぼすプロセスに係る現象理解を進め、それらを反映した核種移行評価技術を開発することを目的とする。

本サブタスクでは、ニアフィールド環境の変遷や地下水条件等の地質環境の長期変遷等のうち、(1)オーバーパック等から生じる鉄共存が緩衝材や岩石中の核種移行へ及ぼす影響、(2)セメント系材料の共存が緩衝材や岩石中の核種移行に及ぼす影響および(3)高炭酸濃度の地下水が岩石中の核種移行に及ぼす影響に着目して、それぞれ以下のようなアプローチで研究を進める。

(1) オーバーパック等から生じる鉄共存が緩衝材や岩石中の核種移行へ及ぼす影響の評価

オーバーパックの共存が核種移行へ及ぼす影響については、先行事業「処分システム評価確証技術開発」（日本原子力研究開発機構, 2018）でも取り組んできた課題であり、その成果や2章や4章での成果を活用し、鉄と緩衝材との相互作用によって生じる緩衝材領域における環境変遷を評価しつつ、その環境において核種移行への影響が生じるプロセスを抽出し、その影響の評価に向けた研究課題とアプローチを設定した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理

センター, 2019）。具体的な課題としては、先行事業でも課題として取り組んできた、緩衝材への核種の収着が溶存する鉄イオンとの競合によって低減する収着競合に関する検討に加え、鉄と緩衝材の境界領域や岩石中の環境において生成する鉄鉱物にSe等の核種が取り込まれる共沈・酸化還元現象等に着目した室内試験や天然事例調査を行う。得られたデータをもとに、それらが核種移行に及ぼす影響を評価するモデルを構築するとともに、既存データを活用したモデルの適用性評価を通じて、評価モデルの有効性を確認する。

(2) セメント系材料の共存が緩衝材や岩石中の核種移行に及ぼす影響の評価

セメント系材料が緩衝材や岩石へ及ぼす影響については、先行事業「処分システム評価確証技術開発」（日本原子力研究開発機構, 2018）で取り組んできた。その成果に加えて、2章や4章での成果や関連事業の成果等を活用して、セメント系材料共存系での緩衝材や岩石の間隙水組成や鉱物組成の変遷を評価しつつ、その環境において発生する核種移行への影響を抽出し、その影響の評価に向けた研究課題とアプローチを設定した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2019）。具体的な課題として、緩衝材については、先行事業でも課題として取り組んできた緩衝材のCa型化に伴うコロイド移行挙動の変化に着目して室内試験を行う。セメントが岩石に及ぼす影響については、間隙水組成の変化や鉱物の変質等が核種の収着等の核種移行プロセスに及ぼす影響に着目した室内試験や原位置試料分析を行う。得られたデータをもとに、それらが核種移行に及ぼす影響を評価するモデルを構築するとともに、既存データを活用したモデルの適用性評価を通じて、評価モデルの有効性を確認する。

(3) 高炭酸濃度の地下水が岩石中の核種移行に及ぼす影響の評価

これまでにも多様な地質・地下水条件に対応していくため、様々な岩種や地下水条件において地層処分評価対象核種の核種移行データを取得、あるいは文献情報を調査し、核種移行データベースとして整備してきた。ここでは、比較的炭酸濃度が高い地下水条件における核種の収着・拡散挙動の評価に着目した研究に取り組む。実際の深部環境で考慮すべき炭酸濃度等の地下水条件の範囲、およびその範囲において炭酸錯体等の生成により収着・拡散挙動への影響が顕在化する核種を検討し、本事業で取り組む課題とアプローチを設定した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2019）。具体的には、炭酸濃度条件を制御して岩石やその構成鉱物中における核種の収着・拡散データを取得するとともに、先端的な分析技術を適用し、炭酸共存下での核種の収着・拡散メカニズムの解明とそれを反映したモデルの開発に取り組む。さらに、そのデータの信頼性確認と多様な条件下での核種移行パラメータ設定に適用するため、分子動力学計算等の計算科学技術を適用して炭酸共存下における核種の収着・拡散等のメカニズムを評価し、それらの知見をもとに核種移行モデルの構築を行う。

3.3.2 実施内容

(1) オーバーパック等から生じる鉄共存が緩衝材の核種移行へ及ぼす影響評価技術の開発

1) 鉄腐食生成物による放射性核種の収着影響に関する検討

平成29年度までに実施した先行事業では、緩衝材における収着反応を支配するモンモリロナイトに対するFe(II)の収着分配係数(K_d)を取得するとともに、Fe(II)共存条件におけるCs、NiおよびEuのK_dを取得し、収着挙動の評価を行ってきた（日本原子力研究開発機構, 2018）。先行事業ではpH 8付近においてK_dを取得し、それに基づいてFeに対する選択定数の導出を行った。しかしながら、2.3.1項で実施している炭素鋼-緩衝材境界領域における緩衝材の変質挙動評価試験においても想定されているとおり、圧縮ベントナイト間隙水中のpHは炭素鋼の腐食反応に伴って上昇する

と考えられる。そのため、より高いpH領域までFe(II)と放射性核種の競合収着を定量的に評価するための実測値を取得する必要がある。

令和2年度は幅広いpHおよびFe濃度条件でFe(II)のモンモリロナイトのエッジサイトに対する収着試験を行い、錯生成定数を取得した。加えて、令和3年度までにFe(II)と種々の元素(Ni, Pb, Am, Eu, Nb)との収着競合試験を行い、Fe(II)と価数が異なると収着競合が顕在化しないことを確認した。一方、Fe(II)と同じ2価の遷移金属元素のNiでは収着競合が起こることを確認した。そのため、令和4年度は溶液条件を変化させてFe(II)とNiの収着競合を調べ、収着モデルによる再現を試みた。

バッチ収着試験は令和3年度（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2022）の手順と同様に行った。バッチ収着試験において、支持電解質は0.5 M NaClとし、Fe(II)濃度は10 μM、固液比は0.76 g/Lとした。精製したモンモリロナイトであってもその懸濁液中には不純物由来のNiが含まれており、コールドでの試験ではK_dを正確に求められない可能性があるため、放射性同位体のNi-63を用いて試験を行い、初期Ni濃度は5.3×10^{-10} Mとした。Ni-63の放射能は液体シンチレーションカウンター(Tri-Carb 2770TR/SL, Packard)で測定した。得られたK_dは2SPNE SC/CE (2-Site Protolysis Non-Electrostatic Surface Complexation/Cation Exchange)モデル(Bradbury and Baeyens, 2005a)を用いて収着モデリングを行い、値の再現を行った。収着パラメータは表3.3-1の値を用いた。

表3.3-1　収着モデリングに用いたNiとFeの収着パラメータ

Reaction	log K	Reference
$2XNa + Ni^{2+} \rightleftharpoons X_2Ni + 2Na^+$	1.0	Sugiura et al. (2021)
$2XNa + Fe^{2+} \rightleftharpoons X_2Fe + 2Na^+$	0.8	Soltermann et al. (2014)
$\equiv S^SOH + Ni^{2+} \rightleftharpoons \equiv S^SONi^+ + H^+$	-0.9	Sugiura et al. (2021)
$\equiv S^SOH + Ni^{2+} + H_2O \rightleftharpoons \equiv S^SONiOH + 2H^+$	-9.5	Sugiura et al. (2021)
$\equiv S^SOH + Ni^{2+} + 2H_2O \rightleftharpoons \equiv S^SONi(OH)_2^- + 3H^+$	-18.6	Sugiura et al. (2021)
$\equiv S^{W1}OH + Ni^{2+} \rightleftharpoons \equiv S^{W1}ONi^+ + H^+$	-3.3	Bradbury and Baeyens (2005a)
$\equiv S^{W1}OH + Ni^{2+} + H_2O \rightleftharpoons \equiv S^{W1}ONiOH + 2H^+$	-14.2	LFER (Bradbury and Baeyens, 2005a)による予測値
$\equiv S^{W1}OH + Ni^{2+} + 2H_2O \rightleftharpoons \equiv S^{W1}ONi(OH)_2^- + 3H^+$	-21.9	LFER (Bradbury and Baeyens, 2005a)による予測値
$\equiv S^SOH + Fe^{2+} \rightleftharpoons \equiv S^SOFe^+ + H^+$	-1.0	日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター(2021)
$\equiv S^SOH + Fe^{2+} + H_2O \rightleftharpoons \equiv S^SOFeOH + 2H^+$	-8 2	日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター(2021)
$\equiv S^SOH + Fe^{2+} + 2H_2O \rightleftharpoons \equiv S^SOFe(OH)_2^- + 3H^+$	-18.0	日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター(2021)
$\equiv S^{W1}OH + Fe^{2+} \rightleftharpoons \equiv S^{W1}OFe^+ + H^+$	-2.5	日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター(2021)

図3.3-1にFe(II)とNiの収着競合試験の結果を示す。NiのK_dはFe(II)の存在により低下していた。Fe(II)とNiの収着競合試験の結果を2SPNE SC/CEモデルで再現を行ったところ、Fe共存によるNiのK_d低下の傾向を再現できたものの、収着モデルはK_d低下の程度を過大に評価していた。今回行ったFe(II)とNi(II)の収着競合試験の結果と同様に、Marques Fernandes and Baeyens (2019)も、Pb(II)とNi(II)またはZn(II)は収着競合を起こすものの、2SPNE SC/CEモデルではK_dの低下の程度を過大に評価していたことを報告している。Marques Fernandes and Baeyens (2019)はstrongサイトにおいて収着競合が起こるのは一部であると仮定して再現計算を行った。ここでも同様のアプローチをとって再現計算を行ったところ、収着競合が起こるstrongサイトの割合を90 %と仮定することで、pH 8までの結果を再現することができた。しかしながら、pH 8.5ではNiのK_dはFe(II)の影響はほとんどみられておらず、収着モデルでも再現することはできなかった。

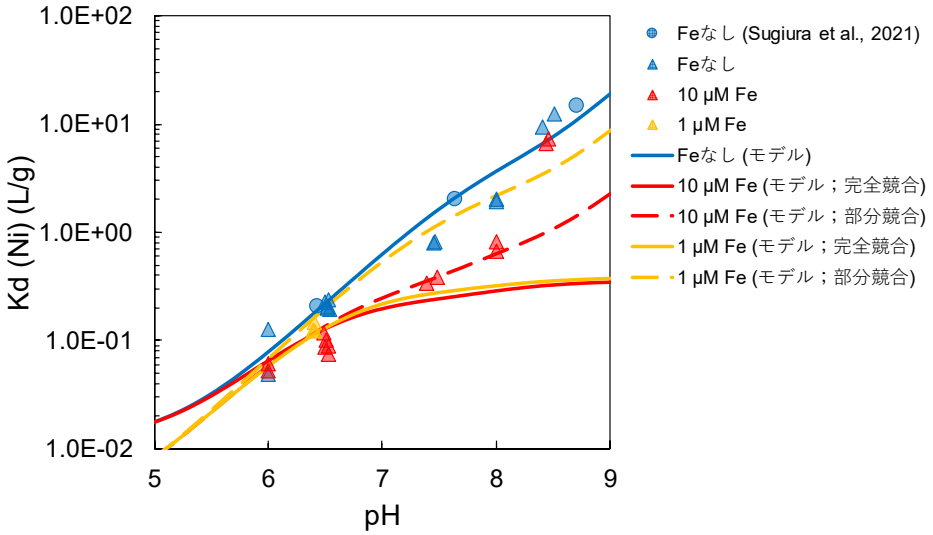


図3.3-1　Fe(II)がモンモリロナイトに対するNiのK_dに及ぼす影響と2SPNE SC/CEモデルによる再現結果

2SPNE SC/CEモデルはモンモリロナイトの滴定試験や収着試験の結果を再現できるように構築された「半メカニスティックな」モデルであり、実際の粘土鉱物の特性を必ずしも反映していない。例えば、モンモリロナイトのエッジサイトには電気二重層が存在しているが、2SPNE SC/CEモデルでは計算においてその存在を無視している。また、2SPNE SC/CEモデルでは、収着サイトを反応性が高く容量が小さいstrongサイトと、反応性が低く容量が大きいweakサイトに分けており、strongサイトの容量は2 mmol/kg程度と見積もられている。strongサイトの酸解離定数は滴定試験から求めることができないため、weakサイトのものと同じであると仮定されているが、実際には元素特異性の異なる複数のstrongサイトが存在すると考えられており(Bradbury and Baeyens, 1997, 2002, 2005a, b)、2SPNE SC/CEモデルはそれらの違いを十分に表現できていない。一方、モンモリロナイトの構造を反映して複数のサイトを考慮した収着モデルの構築も試みられており(Tournassat et al., 2013, 2016, 2018; Orucoglu et al., 2021; Gao et al., 2022)、こうしたモデルを用いれば、元素の価数が異なると収着競合が顕在化しないことや、価数が同じであっても競合が限定的であることを示すことができる可能性がある。しかしながら、モデルが複雑になると計算に必要なパラメータは多くなる。例えば、Orucoglu et al. (2021)は8種類のエッジサイトを考慮し、それぞれのエッジサイトで最大4つの酸解離定数を与えている。収着モデルを複数の粘土鉱物や核種が存在する実際の環境へ適用することを考えた場合、パラメータに一貫性と整合性を持たせる観点から、モデルは簡易的な方が望ましい。今回の2SPNE SC/CEモデルによる再現結果は、収着競合の影響を表しつつ、保守的な評価をできていると考えることができる。

加えて、これまで4章で得られてきた知見（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2021）を踏まえると、ベントナイトとオーバーパックの境界部分では、間隙水のpHは10程度、Fe(II)濃度は最大で10 μM程度となると推定される。これまでのFe(II)と種々の元素との収着競合試験の結果から、Fe(II)と価数が異なる元素では競合は顕在化せず、競合がみられたNiであってもK_dの低下量は1桁以内にとどまっており、Fe(II)共存に伴うK_dの低下は限定的であると考えられる。

2) 鉄酸化物鉱物によるSeの固定化

高レベル放射性廃棄物に含まれるSe-79は半減期が長く、さらに陰イオンの化学形を取ることか

ら粘土鉱物に収着しにくいと考えられる。そのため、線量評価に寄与する可能性が高く、地層処分の安全評価において重要な核種の一つとなっている。一方で、鉄酸化物鉱物へのSeの収着や取り込み等の相互作用による遅延効果は先行研究が報告されている（例えば、Naveau et al., 2007; Scheinost and Charlet, 2008）。鉄酸化物鉱物は母岩中に存在するほか、鉄製オーバーパックの腐食に伴って生成することが想定される。Seと鉄酸化物鉱物との相互作用による遅延効果を地層処分の性能評価において考慮するためには、そのメカニズムを明らかにする必要がある。

地層処分環境では、マグネタイト($Fe^{II}Fe^{III}_2O_4$)が長期間にわたって安定に存在する鉄酸化物鉱物として想定されている。Seとマグネタイトの相互作用として、マグネタイト表面での収着反応や構造中のFeによる酸化還元反応が考えられる(Scheinost and Charlet, 2008; Missana et al., 2009)。また、鉄製オーバーパックの腐食により生成するマグネタイトは結晶性の低い準安定相を経由する可能性がある。Se(IV)と結晶性の低い酸化水酸化鉄(III)であるフェリハイドライトとの相互作用に関する近年の研究では、pHによる熱力学的安定相の差異によってSeの保持量も異なることが報告されている(Börsig et al., 2017; Francisco et al., 2018)。このことは、鉱物相の変化によってはSeの移行が遅延されるだけでなく促進される可能性があることを示唆しており、鉱物相の変遷過程におけるSeとの相互作用メカニズムの解明は重要である。

令和3年度までに、マグネタイトの前駆体である水酸化第一鉄($Fe(OH)_2$)準安定相によるSe(−II)およびSe(IV)の収着・取り込み挙動と、その後のマグネタイトへの変遷におけるSeの保持挙動について、反応プロセスやpH条件等を変動させて固相生成試験を行い、得られた固相を種々の表面分析手法を用いて観察することでメカニズムの推定を行った（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2022）。その結果、Se(−II)の場合ではナノサイズのセレン化鉄(FeSe)粒子がSeの主要な取り込みホストであることが確認された。また、高pH条件ではセレン化鉄粒子に加えてマグネタイト結晶のエッジ部分にSeが取り込まれていることが確認された。一方、Se(IV)の場合ではSe(0)やFeSeの存在が確認され、酸化還元反応が起こっていることが明らかとなった。

令和 4 年度は、$Fe(OH)_2$ と Se(IV)の相互作用メカニズムのより詳細な理解を目的として、透過型電子顕微鏡(Transmission Electron Microscope; TEM)および走査型 TEM (Scanning TEM; STEM)を用いた固相の粒子形態および Se の分布状態の観察を行った。また、Se(−II)と Se(IV)で $Fe(OH)_2$ との相互作用メカニズムを比較し、核種移行解析への反映の検討を行った。

表 3.3-2 に $Fe(OH)_2$ による Se 取り込み試験の条件を示す。試験手順は令和 3 年度までに行った試験に準じる。機器分析以外の試験は N_2 を満たした雰囲気制御グローブボックス内で行い、溶液調製には脱気した超純水を用いた。Fe(II)ストック溶液はモール塩($(NH_4)_2Fe(SO_4)_2{\cdot}6H_2O$)、Se(IV)ストック溶液は Na_2SeO_3 を用いて調製した。共沈試験では、超純水に Fe(II)ストック溶液を加えて Fe 濃度を調整した後、Se(IV)ストック溶液を加えて混合し、沈殿を生成させた後に 1 M NaOH を適量加えて pH を目標の値に調整した。収着試験では、超純水に Fe(II)ストック溶液を加えて Fe 濃度を調整した後、1 M NaOH を適量加えて pH を 12 とし、$Fe(OH)_2$ の沈殿を生成させた。その後、Se(IV)ストック溶液を加えて固相に収着させた。固相の熟成は雰囲気制御グローブボックス内の恒温槽中において 90 °C で 7 日間反応させることで行った。反応期間終了後、孔径 0.45 μm の濾紙を用いて吸引濾過を行って固相を回収した。固相は雰囲気制御グローブボックス内で 1 日以上乾燥させた。乾燥した固相を粉砕してエタノールに分散させ、懸濁液を Cu 製グリッド上に滴下して TEM および STEM 測定用試料とした。TEM 観察は Si(Li)検出器を備えた TEM (JEM-2010UHR, JEOL)、STEM 観察は Si ドリフト検出器を備えた STEM (Titan3 G2 60-300, FEI)で行った。STEM 観察では選択領域(Selected Area; SA)電子回折(Electron Diffraction; ED)測定による鉱物同定およびエネルギー分散型 X 線分析(Energy Dispersive X-ray

Spectroscopy; EDS)による元素マッピングも行った。

表3.3-2　$Fe(OH)_2$によるSe取り込み試験の条件

試験名	条件	初期pH	初期Eh (mV)	最終pH	最終Eh (mV)	XRDにより同定された固相
E-1	Se(IV)-Fe(II)共沈・中性付近条件	6.8	-0.5	3.2	210	ゲータイト、三方晶Se(0)
E-2	Se(IV)-Fe(II)共沈・アルカリ性条件	8.43	-160	7.9	-270	マグネタイト
E-3	Se(IV)-Fe(II)共沈・高アルカリ性条件	12	-430	11.9	-540	マグネタイト
F-1	Se(IV)-$Fe(OH)_2$収着・高アルカリ性条件	11.95	-320	11.8	-530	マグネタイト

図 3.3-2 に試験 E-1 の観察結果を示す。試験 E-1 では大きさが 25 - 100 nm の角柱状の粒子と長さが 2 - 5 μm の針状の粒子の 2 種類が支配的な粒子として確認された。EDS 測定から、前者の粒子の大部分は Fe で構成されていることが確認された。これらの粒子は小さいため SAED 測定を行うことはできなかったが、令和 3 年度に行った XRD 測定の結果から、ゲータイトであると考えられる。一方、EDS 測定から、後者の粒子は Se を主成分とすることが確認された。また、これらの針状の粒子の一部は小さな角柱状の粒子で覆われているようにみえた。EDS および SAED 測定から、針状の粒子は三方晶の Se(0)と同定された。

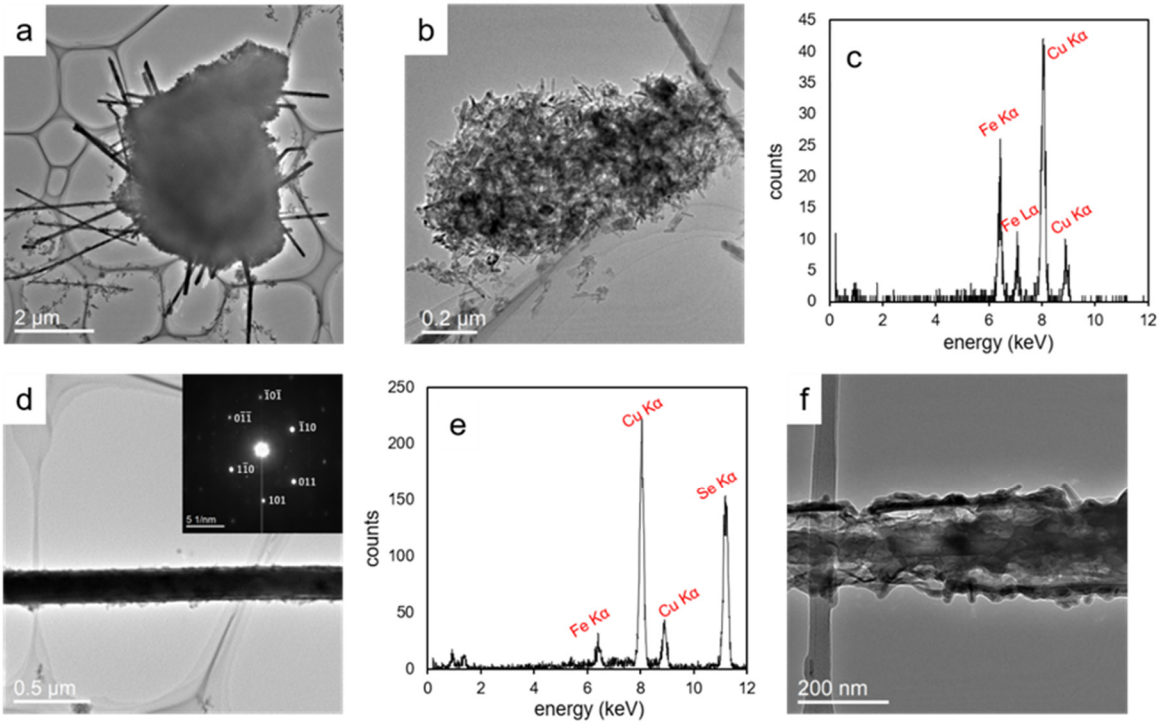


図3.3-2　(a) 試験E-1から得られた粒子の低倍率明視野像、(b) (a)中の角柱状の粒子の拡大像、(c) (b)中の角柱状の粒子のEDSスペクトル、(d) (a)中の針状の粒子の拡大像とEDパターン（挿入図）、(e) (d)中の針状の粒子のEDSスペクトル、(f) 針状の粒子の高解像度拡大図

図 3.3-3 に試験 E-2 の観察結果を示す。試験 E-2 では固相のほとんどは大きさが 45 - 150 nm の多面体粒子で構成されていた。高解像度像ではいくつかの粒子に空隙があるようにみえるが、透明な粒子も確認された。多面体粒子の SAED 測定から、マグネタイトと一致する ED パターンが得られた。また、ED 測定から、この粒子は Fe を主成分とすることが確認されたが、微量の Se が含まれていることも確認された。いくつかの粒子には薄い層状の粒子が付着していた。目にみ

える格子縞の d 間隔は約 5.7 Å で、これは四面体 FeSe の[0 0 1]と一致していた。

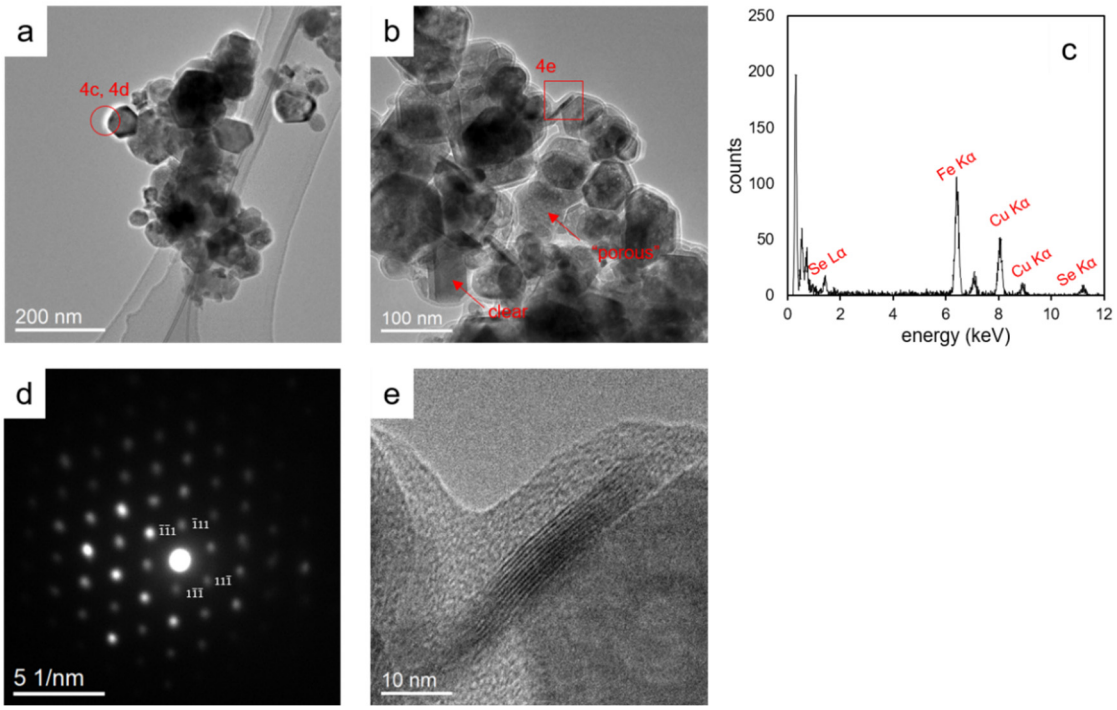


図3.3-3　(a) 試験E-2から得られた粒子の低倍率明視野像、(b) (a)の拡大像、(c) (a)中の赤丸部分のEDSスペクトル、(d) (a)中の赤丸部分のEDパターン、(e) (b)中の赤枠部分の高解像度像

図 3.3-4 に試験 E-3 の観察結果を示す。試験 E-3 から得られた固相には 3 つの異なる形態が確認された。1 つ目は大きさがほぼ一様な約 0.1 μm の多面体粒子、2 つ目は大きさが約 0.5 - 1 μm の長いチューブ状の粒子、3 つ目は薄いシート状の粒子であった。SAED 測定から、多面体粒子はマグネタイトの単結晶であることが確認された。一方、EDS 測定から、チューブ状および薄いシート状の粒子には Fe と Se が高濃度で含まれており、これらは鉄セレン化物であることが示唆された。このことは、元素マッピング結果においてこれらの粒子中には O がみられなかったことからも支持される。チューブ状の粒子はシート状の粒子が巻き上がったものである可能性がある。

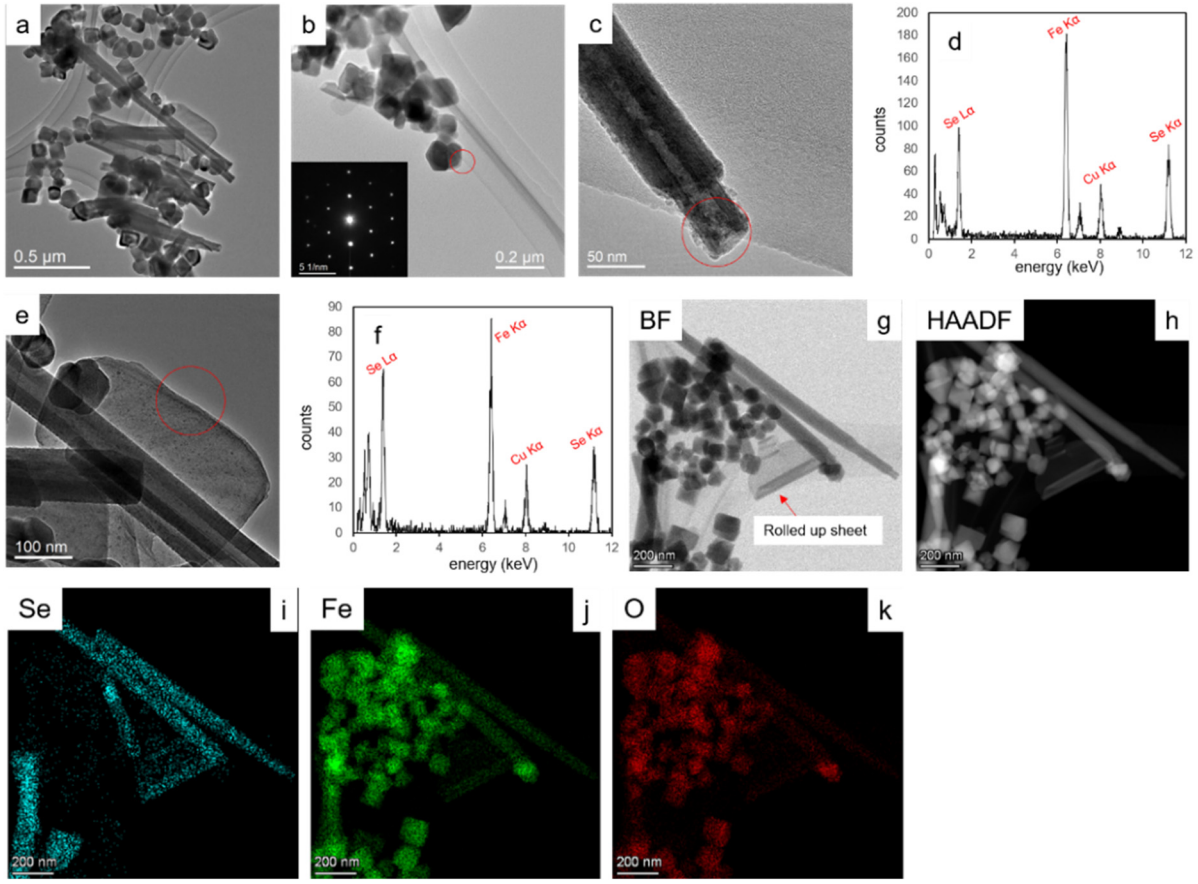


図3.3-4　試験E-3から得られた粒子の低倍率明視野像、(b) (a)中の多面体粒子の拡大像とEDパターン（挿入図）、(c) 中空のチューブ状の粒子の先端の高解像度像、(d) (c)の赤丸部分のEDSスペクトル、(e) 薄いシート状の粒子の高解像度像、(f) (e)の赤丸部分のEDSスペクトル、(g) (a)中の異なる形態を持つ粒子のクラスター部分のBF像、(h) (a)中の異なる形態を持つ粒子のクラスター部分の高角度環状暗視野像、(i) (g, f)におけるSeの分布、(j) (g, f)におけるFeの分布、(k) (g, f)におけるOの分布

図 3.3-5 に試験 F-1 の観察結果を示す。試験 F-1 の固相は、主に 0.1 - 0.3 μm の均一な大きさの正八面体の粒子から構成されていた。加えて、角柱状やシート状の粒子も観察された。角柱状の粒子の高分解能画像では *d* 間隔が約 5.6 Å の格子縞が観察された。これは四面体 FeSe の[0 0 1]面(5.52 Å)のものと近い。元素マッピングの結果、角柱状およびシート状の粒子にはほとんど O が含まれていないことも明らかとなった。

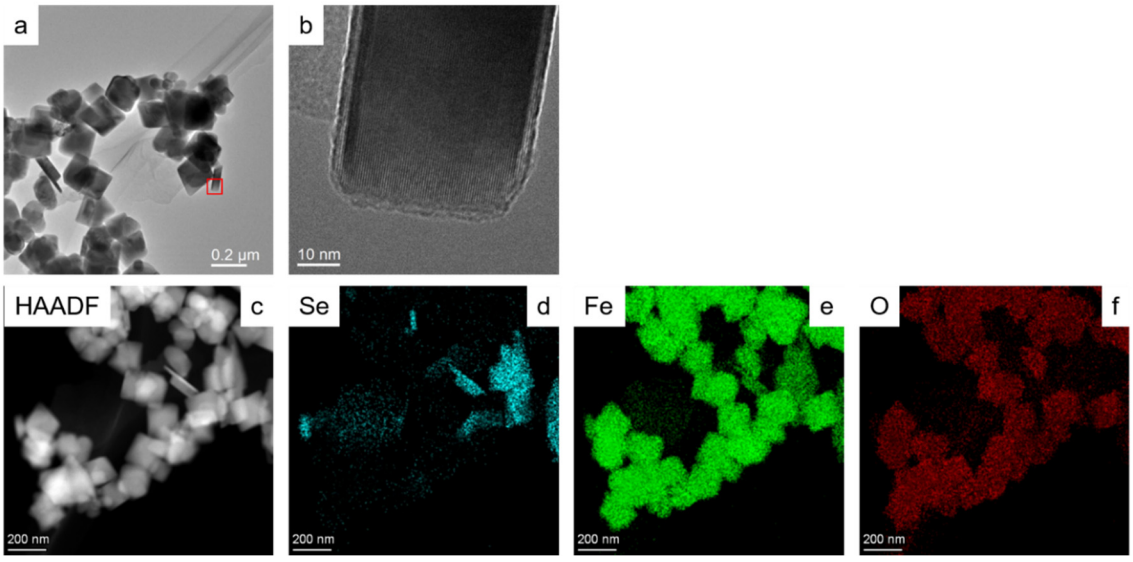


図3.3-5　(a) 試験F-1から得られた粒子の低倍率明視野像、(b) (a)中の赤枠部分の高解像度像、(c) (a)と同一部分の高角度環状暗視野像、(d) (c)におけるSeの分布、(e) (c)におけるFeの分布、(f) (c)におけるOの分布

これまでの Se(−II)および Se(IV)を対象とした、異なる pH 条件での 2 種類の Fe と Se の相互作用試験（Fe-Se 共沈、鉄鉱物と Se の反応）の一連の試験結果をもとに、Fe 鉱物の生成・変遷と Se の取り込み状況、さらにそれらの熱力学的な考察を以下に整理する（表 3.3-3）。

中性付近（pH 8 程度）の条件での共沈では、Se(−II)と Se(IV)の試験の両者ともに、Se の迅速かつ効率的な取り込みが起こった。Se(−II)の試験では、Se と Fe(II)の溶液を混合した直後に pH が約 8 に上昇し、ほぼ瞬時に黒い粒子(β-FeSe)が析出した。熱力学計算から、pH 8 で Se 濃度が 1 mM の場合、β-FeSe が析出するには Fe(II)濃度が 10^{-6} mM 以上必要である（図 3.3-6）。Se に対して Fe(II)が大きく過剰であったため、溶液が急速に飽和して β-FeSe が析出したと解釈できた。さらに、この初期反応後に Se 濃度が低下しても、過剰な Fe(II)は β-FeSe の飽和を維持することができた。Se 濃度が $10^{-4.9}$ mM (Iida et al., 2014)の場合、β-FeSe の析出に必要な Fe(II)濃度は高くなる（10^{-2} mM 以上）が、それでも $Fe(OH)_2$ やマグネタイト等の溶解度(10^{-1} - 1 mM)よりはるかに低い。このことは、β-FeSe は広い範囲の Se 濃度と Fe(II)濃度で析出する可能性があることを示唆している。したがって、オーバーパックの腐食初期に生成する $Fe(OH)_2$ や腐食後期に生成するマグネタイトの溶解度は、β-FeSe を析出させるのに十分な溶存 Fe(II)を供給することができ、ニアフィールド領域において Se(−II)は β-FeSe として固定化される可能性がある。一方、Se(IV)の試験では、Se と Fe(II)の溶液を混合しても pH は 7.6 程度までしか上昇せず、混合中に沈殿は起こらなかった。溶液の pH を約 8 まで上げると、$Fe(OH)_2$ と考えられる薄緑色の粒子が沈殿し始め、その数分後に Se(0)とマグネタイトの混合物と考えられる黒い粒子が沈殿した。このことから、Se(IV)の固定化は、最初に $Fe(OH)_2$ が沈殿し、その後に $Fe(OH)_2$ によって Se(IV)が Se(0)に還元されるという 2 段階で進むことが示唆された。pH 8 では、Fe(II)濃度が 1 mM 以上で $Fe(OH)_2$ が析出することができ（図 3.3-6(A)）、これは β-FeSe の沈殿に必要な Fe(II)濃度（10^{-6} mM 以上）よりもかなり高い。しかしながら、$Fe(OH)_2$ はオーバーパックの腐食によって生成する最初の相の一つである(King et al., 2008; Smart et al., 2009; Metz et al., 2012)ことから、Se(IV)は腐食したオーバーパックの近傍で Se(0)に還元されて固定される可能性がある。

熱力学計算の結果、Se(−II)と Se(IV)の試験溶液は、β-FeSe に対しては飽和であり、Se(0)に対

しては不飽和であった（図 3.3-6(B)）。Se(−II)の場合、計算結果は実験結果と一致しており、溶解度の考慮のみで β-FeSe の生成を予測できることが示された。一方、Se(IV)の場合は計算結果が試験結果と異なっていた。これは、Se(0)は準安定相である可能性と、Fe(II)を含む相による Se(IV)からの Se(0)の生成は、利用可能な熱力学データでは適切に予測できない可能性のどちらかあるいは両方であることを示唆するものであった。

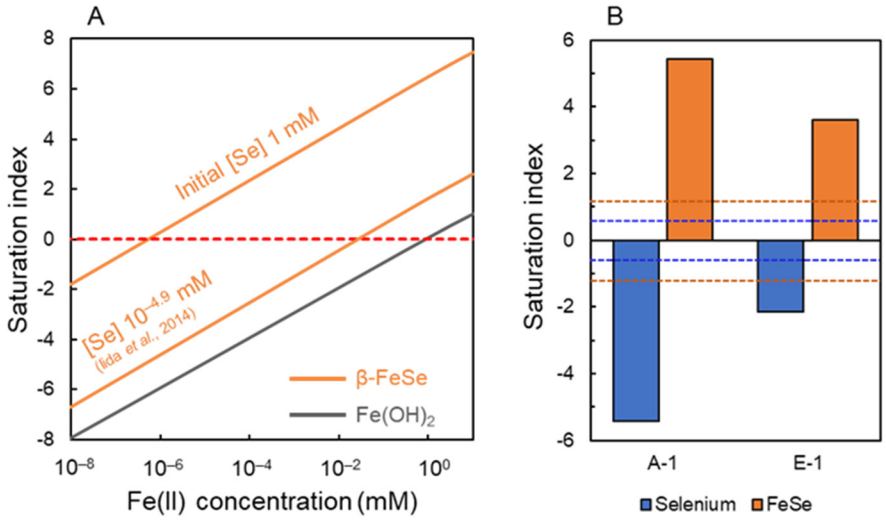


図3.3-6　(A) pH 8における1 mMまたは$10^{-4.9}$ mMのSe濃度でのβ-FeSeの飽和指数のFe(II)濃度依存性とFe(OH)$_2$の飽和指数および(B) 共沈後の溶液のSe(0)とβ-FeSeに関する飽和指数　破線はSe(0)とβ-FeSeのlog Kの不確かさ(2σ)を示す

アルカリ性条件(pH 12)においても、Se(−II)と Se(IV)の試験の両者ともに、Se の迅速かつ効率的な取り込みが起こった。Se(−II)の試験では、pH 12 で Se 濃度が 1 mM で β-FeSe が析出するには Fe(II)濃度が 10^{-4} mM 以上必要であり、pH 8 の場合よりも高かった。しかしながら、Fe(OH)$_2$ 析出後に残った Fe(II)濃度は β-FeSe を析出させるのに十分であった（図 3.3-7(A)）。Se(IV)の試験においても、ただちに β-FeSe が析出した。中性付近条件では Se(0)までしか還元されていなかったことから、Fe(OH)$_2$ との反応によって Se(IV)を直接 Se(−II)に還元するためには、高い pH が必要であることを示唆している。Fe(OH)$_2$ 中の Fe(II)と Se(IV)の間で電子移動が起こるためには、Se(IV)がまず Fe(OH)$_2$ 表面に収着しなければならない。Se(IV)の収着は一般に高 pH で低くなるので、この還元反応は収着により制限されていると考えられる。いずれの場合も、1 mM の Se と Fe(OH)$_2$ との反応により β-FeSe が生成したことから、この相は初期の Se の酸化状態にかかわらず、少なくとも固定化の初期段階において Se 濃度を制限すると考えられる。実際に、熱力学計算の結果から、Se と Fe(OH)$_2$ の反応後の溶液は β-FeSe と平衡に近いことがわかった（図 3.3-7(B)）。しかしながら、Se 濃度が $10^{-4.9}$ mM の場合、β-FeSe の析出には Fe(II)濃度が 10 mM 以上必要である。これは Fe(OH)$_2$ やマグネタイトの溶解度よりも高いため、高 pH では Se の主要シンクである β-FeSe の形成は期待できないと考えられる。

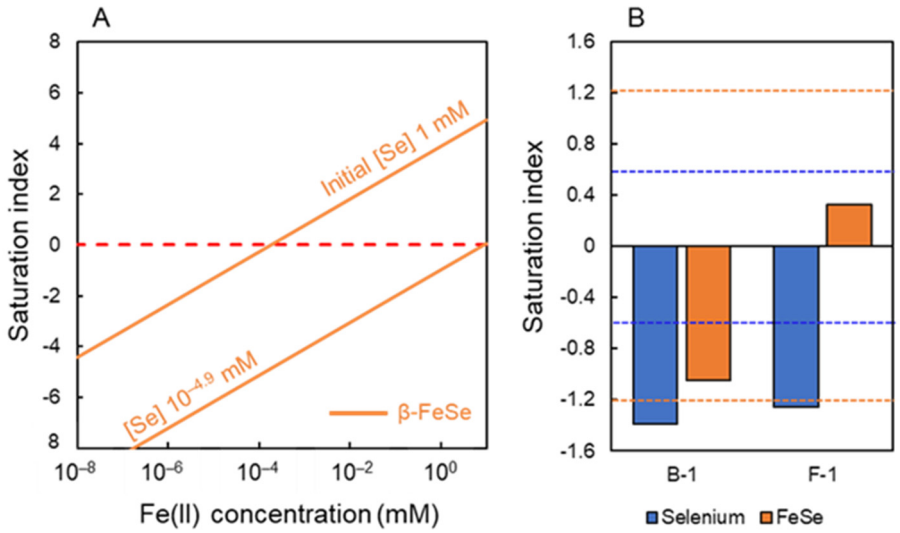


図3.3-7　(A) pH 12における1 mMまたは$10^{-4.9}$ mMのSe濃度でのβ-FeSeの飽和指数のFe(II)濃度依存性および(B) 共沈後の溶液のSe(0)とβ-FeSeに関する飽和指数　破線はSe(0)とβ-FeSeのlog Kの不確かさ(2σ)を示す

一方で、90 °C での熟成試験においては、Se(−II)と Se(IV)のいずれにおいても、Se は中性付近条件では主に $FeSe_2$（および Fe_7Se_8、Fe_3Se_4 等の他の鉄セレン化物）として保持できることが示された。Se(−II)の試験では最初に形成された β-FeSe が $FeSe_2$ に、Se(IV)の試験では Se(0)が $FeSe_2$ に変化しており、$FeSe_2$ が熱力学的に最も安定な Se のシンクであることを示している。また、アルカリ性条件下では、いずれの実験でも Se が放出され、β-FeSe の溶解が確認された。しかしながら、かなりの割合の Se が β-FeSe として保持されていた。Se(IV)の試験では Se(−II)の試験よりも保持率が高く、他の鉄セレン化物や Se(0)の生成に起因している可能性がある。

表3.3-3　Fe(II)過剰環境における Se(−II)とSe(IV)の挙動比較のまとめ　網掛けの青は熱力学的制約、緑はニアフィールドでのSe挙動予測への示唆、赤は制約と不確定要素を示す

反応	条件	Se(-II)試験	Se(IV)試験
初期の固定	中性付近条件 溶存Fe(II)との共沈	β-FeSeの析出により、初期に存在するSeはほぼ完全に取り込まれる	Se(IV)の即時還元とSe(0)(+鉄セレン化物)の析出により、初期に存在するSeはほぼ完全に取り込まれる
		豊富に存在するFe(II)により、β-FeSeの飽和度は容易に超える	Se(IV)が反応を起こすためには、$Fe(OH)_2$の飽和度を超える必要がある
		広い範囲のSe濃度と、様々な鉄腐食生成物と平衡のFe(II)濃度において、β-FeSeが析出する可能性がある	鉄腐食生成物として$Fe(OH)_2$が存在すれば、Se(IV)からSe(0)への還元が起こる
			$Fe(OH)_2$を介したSe(IV)からSe(0)への酸化還元反応は熱力学データベースから適切に予測されない
	高pH条件 $Fe(OH)_2$との反応	β-FeSeの析出により、初期に存在するSeはほぼ完全に取り込まれる	Se(IV)のβ-FeSeへの迅速な直接還元が起こる
		$Fe(OH)_2$の析出後に残ったFe(II)濃度は、β-FeSeの飽和度を超えるのに十分である	Se(IV)の$Fe(OH)_2$への収着が低いため、還元と固定の程度が制限される
		低Se濃度では、β-FeSeの析出に必要なFe(II)濃度が高すぎるためにSeの取り込みが制限される	
		Seの固定化にはバリア材への収着等の他の経路を考慮する必要がある	
熟成中の挙動	中性付近条件	β-FeSeは$FeSe_2$(±Fe_3Se_4)に酸化され、Seはほぼ完全に保持される	Se(0)は$FeSe_2$(±Se(0)とFe_3Se_4)に還元され、Seはほぼ完全に保持される
		熱力学データベースから予測される熱力学的に最も安定な相は$FeSe_2$である	熱力学データベースから予測される熱力学的に最も安定な相は$FeSe_2$である
		$FeSe_2$の形成によりSe濃度が長期的に制御されると考えられる	$FeSe_2$の形成によりSe濃度が長期的に制御されると考えられる
	高pH条件	経時変化でSeが部分的に放出され、Se(-II)は固相と水相に保持される	経時変化でSeが部分的に放出されるが、保持率はSe(-II)の場合より高い
		放出されたSeの固定化にはバリア材料への収着等の他の経路を考慮する必要がある	追加的な固定経路の存在を評価する必要がある

3) 鉄硫化物鉱物によるSeの固定化

Se-79 の移行の遅延効果が考えられる現象として、2)で挙げた鉄酸化物鉱物に加え、鉄硫化物鉱物との相互作用が考えられる。パイライト(FeS_2)は母岩中でみられる鉄硫化物鉱物の１つであり、緩衝材ベントナイトにも含まれる。室内試験の結果から、沈殿生成や収着反応によってパイライトのナノ粒子や表面に Se(−II, IV)が迅速かつ効率的に取り込まれること(Bruggeman et al., 2005; Naveau et al., 2007; Breynaert et al., 2008; Liu et al., 2008; Curti et al., 2012; Charlet et al., 2012; Kang et al., 2016)や、Se がパイライトの構造中の S と置換すること(Ryser et al., 2005; Matamoros-Veloza et al., 2014)が報告されている。また、Se はニアフィールド環境において、溶存態として存在する Fe や S との共沈や、新たに生成するマッキナワイト(FeS)と相互作用することも考えられる。マッキナワイトも Se(IV)を還元できること(Scheinost and Charlet, 2008; Scheinost et al., 2008; Finck and Dardenne, 2016; Wang et al., 2022)や構造中に Se を取り込むことができること(Diener and Neumann, 2011; Diener et al., 2012; Finck et al., 2012)が知られている。しかしながら、これらの先行研究では短い期間（最大 8 日間）の熟成しか行われていないため、マッキナワイトが Se のホスト相として長期間存在するかは不明である。また、マッキナワイトがパイライトに変化する場合、固定化されていた Se がどのような挙動を取るかも明らかになっていない。加えて、これまでの研究では、完全に還元された S(−II)である単硫化物イオン(HS^-)からのマッキナワイトの生成反応が調べられてきたが、やや酸化的な環境で生成する多硫化

物イオン(S_n^{2-})からのマッキナワイトの生成反応は明らかになっていない。

これらの背景から、Fe や S に富む環境において Se が鉄硫化物鉱物に取り込まれるメカニズムを明らかにすることを目的として、鉄硫化物鉱物による Se の取り込み試験と生成した固相の分析を行った。加える S の化学種と溶液の pH 条件を変化させて Se とマッキナワイトの共沈試験を行い、固相を長期間熟成することでマッキナワイトによる Se の長期保持能力の評価を行った。共沈試験後の固相を回収し、X 線回折(X-Ray Diffraction; XRD)測定および X 線吸収微細構造(X-ray Absorption Fine Structure; XAFS)測定を行い、生成した鉱物の同定およびマッキナワイトに取り込まれた Se の構造の評価を行った。

表 3.3-4 にマッキナワイトによる Se 取り込み試験の条件を示す。以下に記述する部分以外の試験手順は 2)の鉄酸化物鉱物による Se 取り込み試験と同様である。Se(−II)ストック溶液は Na_2Se、HS^-ストック溶液は $Na_2S{\cdot}9H_2O$ から調製した。S_n^{2-}ストック溶液の調製は Dekkers and Schoonen (1996)の手法を一部変更して行い、S(0)/S(−II)比が 1:3 となるように S 結晶を HS^-ストック溶液に溶解して調製した。超純水に目標の濃度となるように S および Se(−II)ストック溶液を加えて混合した後、Fe(II)ストック溶液を加えて沈殿を生成させた。熟成は雰囲気制御グローブボックス内において室温で行った。液相中の元素濃度は、孔径 0.2 μm のメンブレンフィルターで濾過後、誘導結合プラズマ発光分析(Inductively Coupled Plasma - Atomic Emission Spectroscopy; ICP-AES) (ICPE-9100, Shimadzu)または誘導結合プラズマ質量分析(Inductively Coupled Plasma - Mass Spectrometry; ICP-MS) (NexION 3000, ParkinElmer)で測定した。反応期間終了後、孔径 0.2 μm の濾紙を用いて吸引濾過を行い、回収した固相を雰囲気制御グローブボックス内で 1 日以上乾燥させた。固相は XRD (Smartlab, Rigaku)および XAFS 測定を行い、生成した鉱物の同定および Se の化学形の評価を行った。XAFS 測定は SPring-8 のビームライン BL14B1 または BL22XU においてイオンチャンバー検出器による透過法または 19 素子 Ge 半導体検出器による蛍光法で行った。

表3.3-4　マッキナワイトによるSe取り込み試験の条件

条件	試験名	Fe(II)/S(-II)比	初期Se(-II)濃度 (mM)	初期pH	初期Eh (mV)	最大反応期間 (days)
単硫化物共沈・中性付近条件	M-1	1	0.1	6.3	-125	147
単硫化物共沈・アルカリ性条件	M-0.5	0.5	0.1	9.4	-379	147
多硫化物共沈・中性付近条件	P-1	1	0.1	6.2	-45	147
多硫化物共沈・アルカリ性条件	P-0.5	0.5	0.1	8.9	-275	157

図 3.3-8 に共沈による Se 取り込み試験後の液相中 Se 濃度測定結果を示す。単硫化物共沈試験では、Se の即時的な取り込みが確認された。熟成期間中の液相中 Se 濃度は、中性付近条件(試験 M-1)ではさらに減少し、アルカリ性条件(試験 M-0.5)では値は誤差の範囲内でばらついていた。多硫化物共沈試験においても、Se の取り込みの程度は単硫化物沈試験と同様だった。しかしながら、熟成期間中の液相中濃度は、中性付近条件(試験 P-1)ではほとんど変わらなかったのに対し、アルカリ性条件(試験 P-0.5)では 7 日後で一時的に上昇し、14 日後に再び低下した。最終的には加えた S の化学種に関係なく、共沈物には Se の大部分が取り込まれていた。

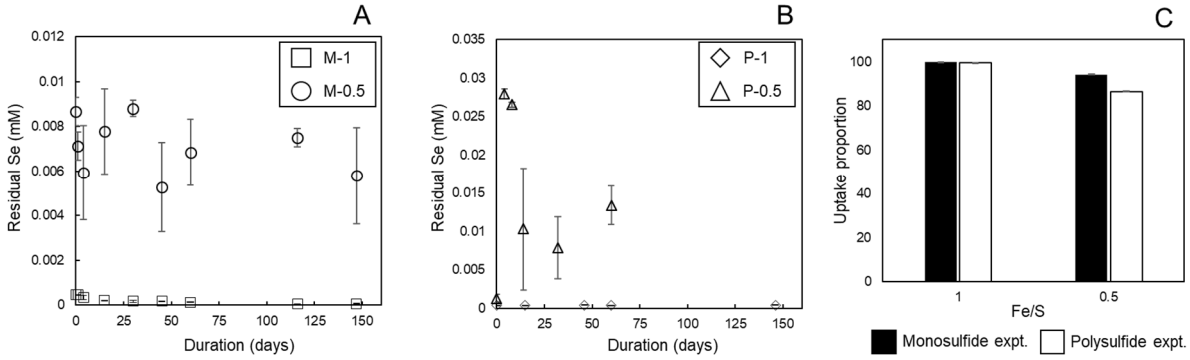


図3.3-8　(A) 単硫化物共沈試験、(B) 多硫化物共沈試験における液相中Se濃度の推移および(C) 熟成終了後における固相のSeの取り込み割合

図 3.3-9 に共沈試験で得られた固相の XRD パターンを示す。単硫化物共沈試験から得られた初期沈殿物の XRD パターンは、ブロードで低強度の回折ピークを示し、結晶性が低いことが確認された。結晶性は低いものの、試験 M-1 の初期固相のピーク位置はマッキナワイトのものと一致し、XRD パターンは熟成後も大きな変化はみられなかった。一方、試験 M-0.5 の初期固相の XRD パターンは試験 M-1 のものよりもさらに不明瞭なものであったが、熟成固相では初期固相よりもピークは強く明瞭になり、結晶性が大幅に増加したことを示した。また、これらのピークはマッキナワイトのものと一致した。これらの結果は、マッキナワイトの生成がより中性的な条件で促進されるか、過剰な硫化物がその生成を阻害していることを示唆している。一方、多硫化物共沈試験から得られた固相は、単硫化物共沈試験のものと比較して結晶性が悪かった。試験 P-1 と試験 P-0.5 の初期固相では、12.3, 29.2 および 49.1°2θ に 3 つのブロードなピークが確認された。これらのピークは試験 P-0.5 の熟成固相でやや顕著であった。また、試験 P-1 では、小さいながらも 16.1 および 32.9°2 θ に新たなピークが現れた。前者はマッキナワイトの[0 0 1]ピークに近く、後者はパイライトの[2 0 0]ピークと一致する。

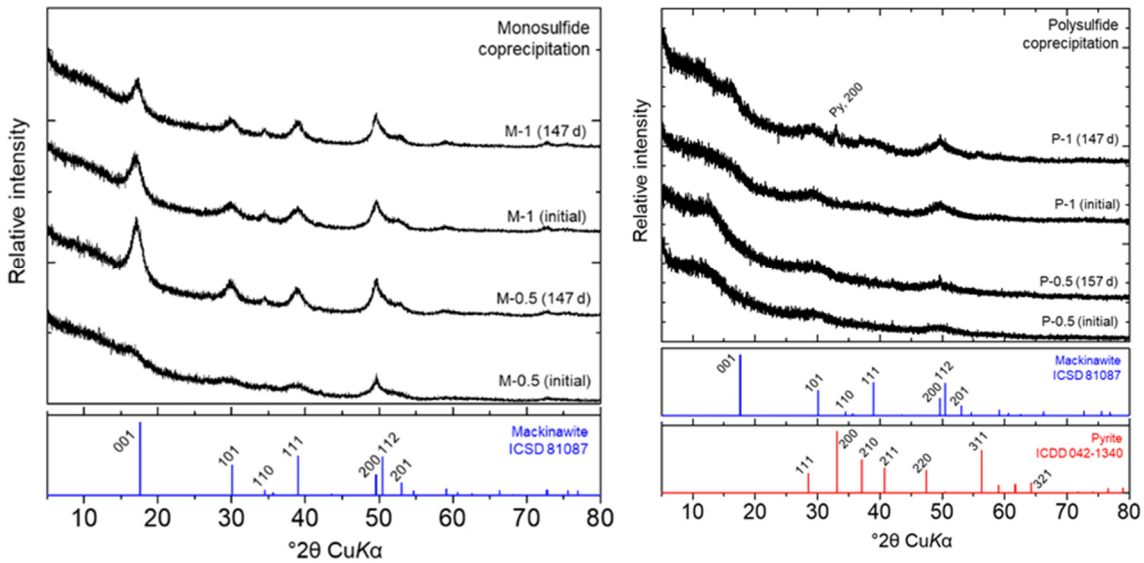


図3.3-9　（左）単硫化物共沈および（右） 多硫化物共沈試験で得られた初期および熟成固相のXRDパターン

図 3.3-10 に各試験で得られた固相と比較物質の X 線吸収端近傍構造(X-ray Absorption Near Edge Structure; XANES)スペクトルを示す。単硫化物共沈試験から得られた初期固相の Se の XANES スペクトルの形状は、$FeSe_2$ および Se(0)のものと類似していた。熟成後の固相も同様のスペクトル形状を示し、Se の化学種が熟成期間中にほとんど変化しないことが示唆された。多硫化物共沈試験において初期固相のスペクトル形状は単硫化物共沈試験のものと同様だった。しかしながら、試験 P-0.5 では熟成してもスペクトルの形状がほとんど変化しなかったのに対し、試験 P-1 ではスペクトルの形状が変化していた。熟成後の試験 P-1 のスペクトルの形状は、パイライト中の Se のもの(Matamoros-Veloza et al., 2014)と酷似しており、Se はパイライト中に取り込まれたと推察された。

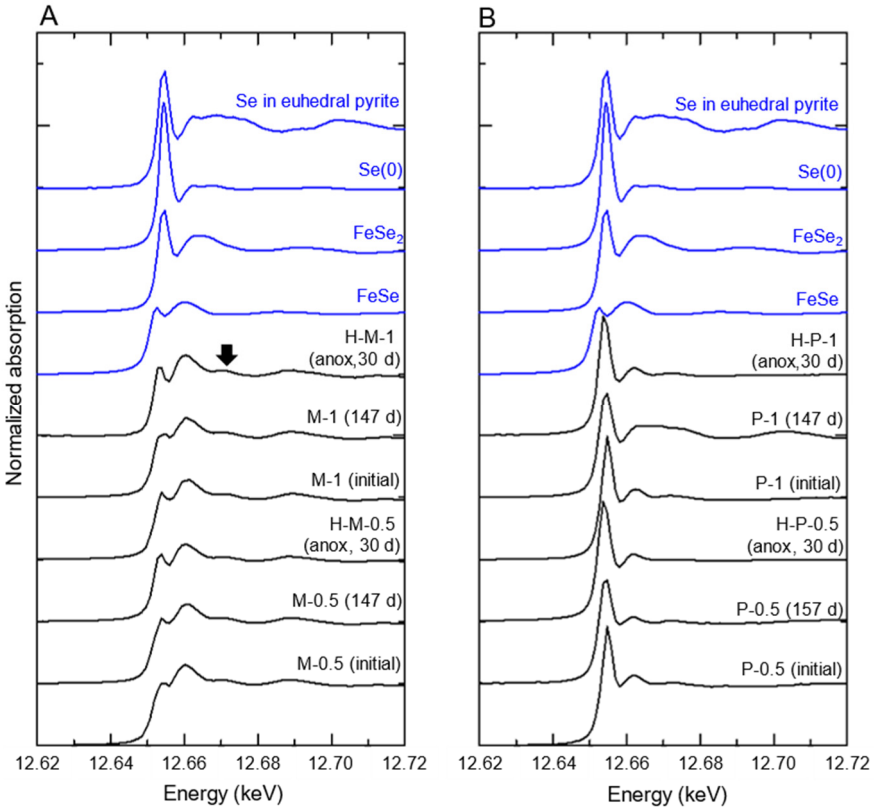


図3.3-10　(A) 単硫化物共沈試験および(B) 多硫化物共沈試験で得られた初期および熟成固相と比較物質のSe-K吸収端XANESスペクトル　八面体パイライトに取り込まれた Se のスペクトルはMatamoros-Veloza et al. (2014)による

図 3.3-11 に各試験で得られた固相と比較物質の k^2 重みづけ広域 X 線吸収微細構造(Extended X-ray Absorption Fine Structure; EXAFS)スペクトルと位相シフト無補正フーリエ変換(Fourier-Transform; FT)を示す。単硫化物共沈試験で得られた初期固相と熟成固相の FT は 2 Å 付近に顕著なピークを示した。EXAFS スペクトルのフィッティング解析から、この特徴は 3.3 - 3.5 Se-Fe パス(2.37 Å)によるものと考えられた。また、FT は 3.3 および 4.1 Å 付近に小さなピークを示し、これらの特徴は 2.3 - 2.7 Se-Se パス(3.53 - 3.71 Å)、4.7 - 7.3 Se-S パス(3.74 Å)および 6.6 - 7.6 Fe パス(4.42 Å)でフィットできる。Se-Se パスは試験 M-0.5 の方が試験 M-1 より長く、より緩やかな局所環境であることを示している。一方、多硫化物共沈試験では、初期固相の FT は 1.8 Å 付近にピークを示し、単硫化物共沈試験で観察されたものよりも短かった。この特徴は、試験 P-1 および試験 P-0.5 の両者とも 0.8 - 0.9 Se-S パス(2.11 - 2.15 Å)と 0.9 - 1.0 Se-Se パス(2.34

- 2.35 Å)でフィットでき、Se は主に一部 S が置換した元素状 Se の局所環境にあると考えられる。熟成固相では試験 P-1 と試験 P-0.5 で異なる結果が得られた。試験 P-1 の熟成固相の EXAFS スペクトルおよび FT は正八面体のパイライトに取り込まれた Se のもの(Matamoros-Veloza et al., 2014)と類似していた。フィッティング解析からも、強い FT ピークは~ 3 Se-Fe パス(2.33 Å) と ~ 1.2 Se-S パス (2.27 Å) でフィットすることができ、後者はパイライトの S-S 鎖のサイトにおいて Se 原子が S と置換していることを示唆している。一方、試験 P-0.5 の熟成固相のスペクトルは初期固相のスペクトルとほとんど同じであり、熟成による Se の局所環境の変化がないことが示唆された。

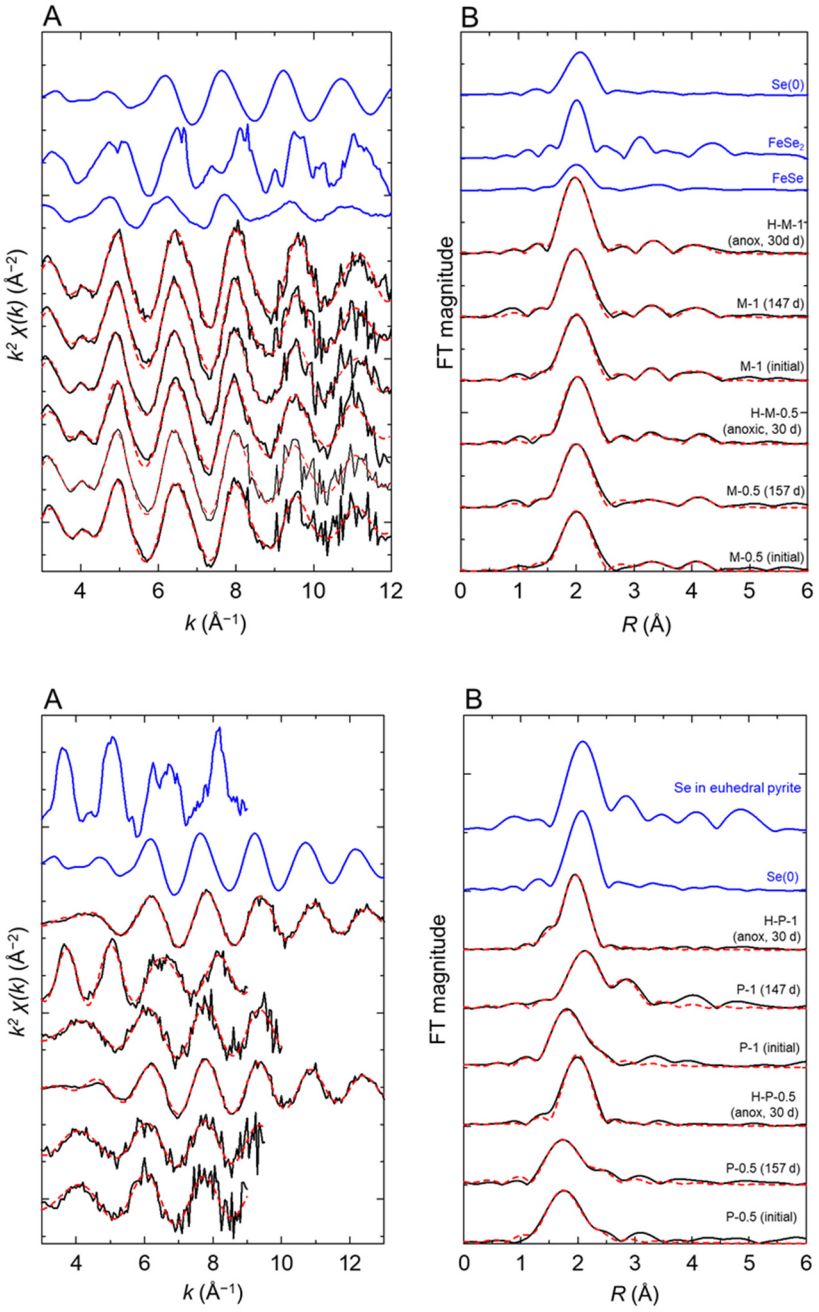


図3.3-11　（上）単硫化物共沈試験および（下）多硫化物共沈試験により得られた初期固相および熟成固相の(A) k^2重みづけSe-K吸収端EXAFSスペクトルおよび(B) FT

構造中の S の一部が Se に置換したマッキナワイトはその構造が大きく歪むことが報告されており(Diener and Neumann, 2011; Diener et al., 2012; Finck et al., 2012)、マッキナワイト中の Se の最適な配置が何であり、その配置がマッキナワイトの熱力学的安定性に与える影響は不明である。そこで、密度汎関数理論(Density Functional Theory; DFT)計算により、S の一部が Se に置換したマッキナワイトの構造の最適化を試算した。DFT 計算は QUANTUM ESPRESSO ver. 7.1 (Giannozzi et al., 2009, 2017)を用いて行った。計算は 123 個の Fe 原子と 180 個の S 原子からなり、3 つの FeS_4 層を含む 4 × 4 × 2 のスーパーセルで行った。ここで、FeS_4 四面体エッジに沿った Se-Se 結合は考慮せず、Se は孤立して存在すると仮定して、20 個の S 原子を Se でランダムに置換した(最大 11 %)。最適化により得られたパラメータを表 3.3-5 に、構造を描画したものを図 3.3-12 に示す。最適化された構造は Lennie et al. (1995)が報告しているものといくつかの点で異なっていた。例えば、FeS_4 四面体はわずかに歪んでおり、S-Fe-S の結合角は 112.52° と 107.97° であり、理想的な四面体における角度である 109.5° からずれていた。Se の置換があるマッキナワイトでは、$FeSeS_3$ 四面体に明らかな歪みが生じていた。計算された Se-Fe の距離(約 2.54 Å)は、試験により得られた値(2.33 - 2.37 Å)や先行研究で観察された値である 2.37 Å (Diener et al., 2012; Finck et al., 2012)よりも長かった。この不一致の原因の一つとして、計算した構造では Se の置換量が少ないために歪みも少なくなったことが考えられるが、今後より詳細な調査が必要である。

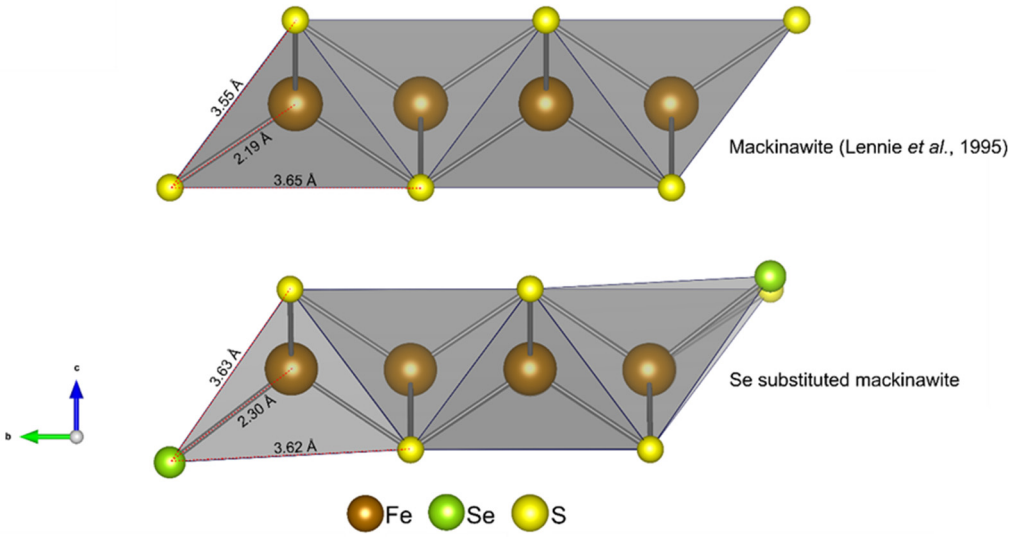


図3.3-12　DFT計算により最適化されたマッキナワイトの構造（VESTA 3 (Momma and Izumi, 2011)を用いて作成）　（上）Seの置換なし（下）Seの置換あり

表3.3-5　DFT計算により最適化されたマッキナワイトの結合距離、角度および格子寸法

Bond	Bond distances (Å)		
	Lennie et al. (1995)	Optimized (no Se)	Optimized (with Se)
S—Fe	2.2558	2.1945	
Fe—Fe	2.5976	2.5808	
Se—S			2.2999
Se—Fe			2.5369
	Bond angles (°)		
S—Fe—S	109.6947	112.5233	112.9662
	109.0251	107.9671	108.4431
Se—Fe—S			108.5219
			109.0765
			109.2939
Parameter	Lattice dimensions (Å)		
a	3.6735	3.6497	3.6013
b	3.6735	3.6497	3.6013
c	5.0328	5.0868	5.1330

4) 幌延の泥岩中の鉄鉱物とSeとの相互作用

3)の室内試験から、Se(−II)が鉄硫化物鉱物に収着・共沈によって取り込まれることを確認するとともに、初期共沈固相から安定固相への変遷過程における Se の保持・脱離挙動に係るメカニズムを把握した。特に、パイライトは岩盤中やベントナイト中に含まれる鉱物であり、また、オーバーパックの腐食に伴う地下水中の鉄濃度の上昇により、その沈殿や結晶成長が促進されると考えられる。したがって、地層処分環境において、Se とパイライトの相互作用は Se の移行を遅延させる重要な反応となる可能性がある。

室内試験では、Se を鉄鉱物に添加することで、その取り込みメカニズムを調べる研究が行われてきた。しかしながら、廃棄体から放出される Se 濃度は、室内試験で用いられてきた濃度と比べて非常に低いと考えられ、室内試験で示された取り込みメカニズムは実際の地下環境で生じる反応メカニズムと異なる可能性がある。また、一部の室内試験は、鉱物の結晶成長を促進させるために高温条件下で行われているため、鉱物の生成プロセスの観点からも、実際の処分環境で想定される長期的な反応とは異なる可能性がある。天然環境中における長期的な反応を理解する手法として、ナチュラルアナログ研究が挙げられる。地層処分で想定される核種移行に関するナチュラルアナログ研究として、U や希土類元素(Rare Earth Elements; REE)を対象にしたものが多数行われている（例えば、Takahashi et al. (2002); 岩月ほか(2009); 村上ほか(2016); Mizuno et al. (2022)）。これらの研究では、対象元素と主要元素の含有量に関する相関関係や元素の分布状態を明らかにすることで、地層処分で考慮される元素やそのアナログ元素の収着に寄与する鉱物の同定や、移行経路の検討が行われてきた。しかしながら、天然環境中のアナログ元素の価数や収着形態に着目して、微量元素の長期的な収着メカニズムを評価した研究はほとんど行われていない。天然環境中の微量元素の長期的な収着メカニズムの理解は、室内試験で得られた結果の長期的な信頼性を高める上で重要なデータとなる。

本事業では、幌延の堆積岩を対象に、地下深部環境中における Se の存在形態分析を実施してきた。特に、Se のホスト鉱物として期待される鉄鉱物に着目し、Fe と Se の相互作用に関する分析を実施してきた。令和 3 年度の分析結果から、堆積岩における Se の保持・脱離メカニズムを理解

する上で、パイライトによる Se の収着挙動の理解が重要であることが示された。特に、パイライトの生成時期および長期安定性を理解することで、パイライトに取り込まれた Se の長期安定性を明らかにできる可能性がある。パイライトはその生成メカニズムによって S の安定同位体比($\delta^{34}S = {}^{34}S/{}^{32}S$)が異なることが知られている。また、パイライトは種々の形状をとるため、Se が濃集しているパイライトの形状を調べることで、その生成メカニズムや堆積環境について推定できると考えられる。令和 4 年度は、異なる深度の泥岩試料を対象に、マイクロ蛍光 X 線(X-Ray Fluorescence; XRF)および XAFS 分析データ、岩石の逐次抽出データを拡充するとともに、S の同位体分析や SEM 分析を実施することによって、深部地下環境での岩石中の鉄硫化物鉱物と Se の相互作用メカニズムを評価した。

日本原子力研究機構幌延深地層研究センター（幌延 URL）周辺で実施されたボーリング調査で得られたコア試料および幌延 URL 地下施設の調査坑道から掘削されたコア試料を対象として分析を行った。分析に供した試料の採取位置と深度に関する情報を図 3.3-13 に示す。マイクロ X 線分析は令和 3 年度までに行った方法に準じる。また、Se の濃集がみられた部分は SEM（TM3000, 日立ハイテク）を用いて形状の観察を行った。Se 逐次抽出試験は、コア試料を粉末化した後、Kulp and Pratt (2004)の手法を用いて Se を抽出して行った。Se は抽出溶液に応じて水溶性 Se（超純水抽出）、配位子交換性 Se（0.1 M K_2HPO_4-KH_2PO_4 抽出）、アルカリ溶解性 Se（0.1 M NaOH 抽出）、金属 Se（1 M Na_2SO_3 抽出）、酢酸溶解性 Se（15 % CH_3COOH 抽出）、硫化物/セレン化物（0.5 M $CrCl_2$ 抽出）および残渣（HNO_3+HF+H_2O_2 抽出）の 7 つの画分に分けた。抽出試験後の溶液中の Se および Fe 濃度は ICP-MS (Agilent 7700; 7900, Agilent)または ICP-AES (Avio 500, PerkinElmer)を用いて測定した。S 同位体比の測定は Yanagisawa and Sasaki (1983)および Yamanaka et al. (2010)の手法を用いて行った。試料から SO_2 ガスを生成させ、デュアルインレット方式の安定同位体比質量分析計(IsoPrime, GV Instrument)を用いて $\delta^{34}S$ を測定した。標準試料には the Vienna Cañyon Diablo troilite (VCDT)を用いた。

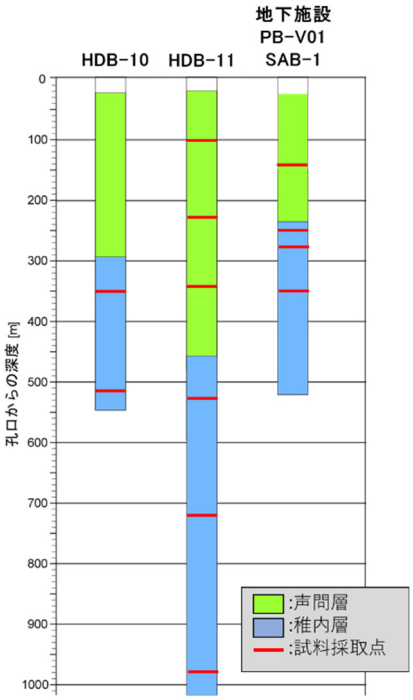


図3.3-13　鉄鉱物とSeとの相互作用分析対象試料の採取深度

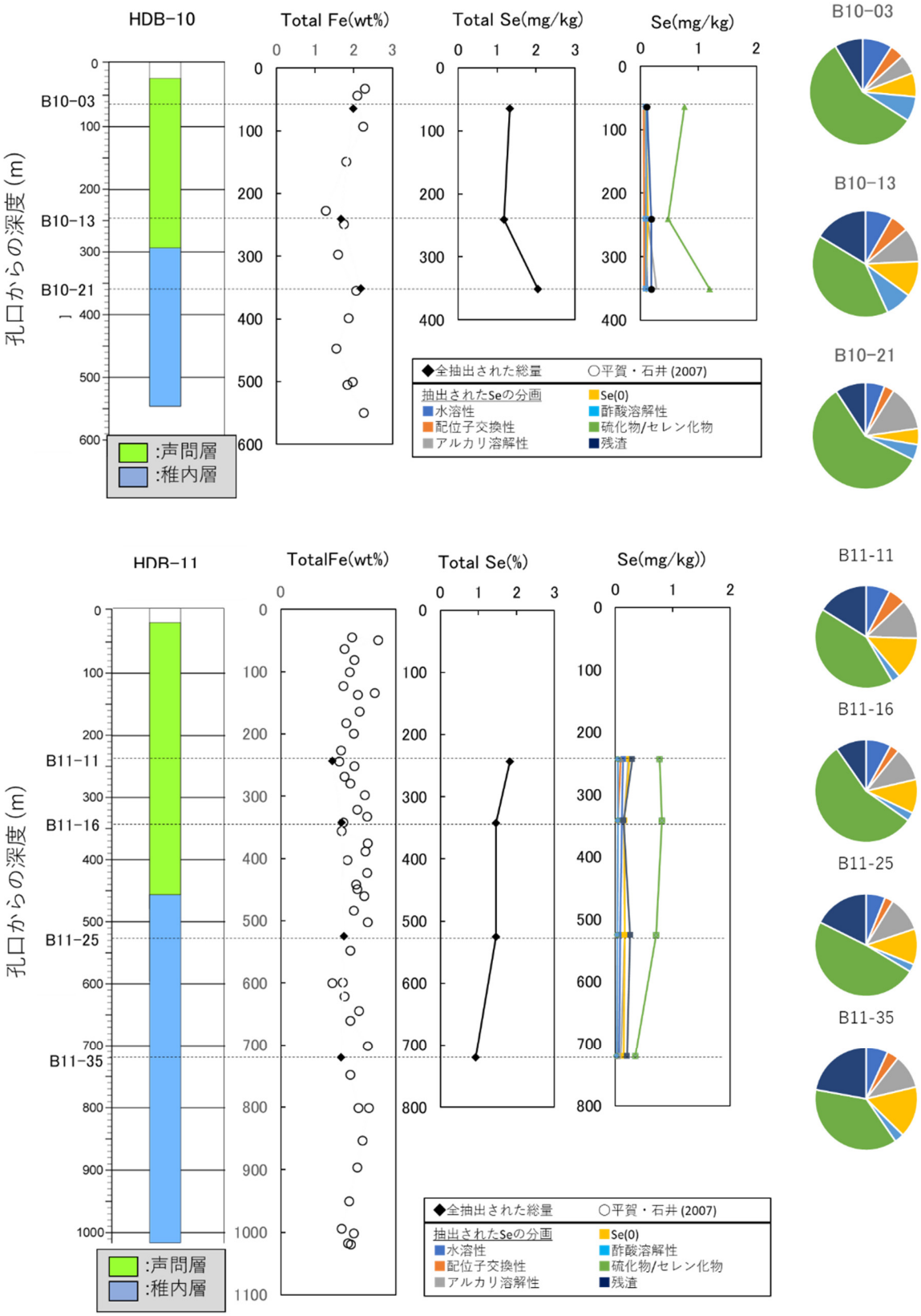


図3.3-14　Se逐次抽出試験の結果　（上） HDB-10、（下） HDB-11

Se 逐次抽出試験の結果を図 3.3-14 に示す。岩石中の Se 濃度は 0.9 - 2ppm、Fe 濃度は 1.4 -

2.5 %であり、岩層や深度に依存した濃度の大きな変動は確認されなかった。Se の存在形態は、声問層・稚内層ともに硫化物/セレン化物の画分が最も大きく、総 Se 量の 37 - 59 %を占めていることが確認された。その他の画分としては、残渣が 9 - 22 %、金属 Se が 5 - 16 %、アルカリ溶解性 Se が 6 - 14 %含まれており、水溶性 Se、配位子交換性 Se、酢酸溶解性 Se の含有率はそれぞれ 10 %未満であった。なお、金属 Se は抽出試験の過程において過大評価となる可能性がある(Wright et al., 2003)ことに注意する必要がある。Se はアルカリ溶解性の腐植物質（フルボ酸やフミン酸）や難溶解性有機物（ヒューミン）にも収着している可能性も示されたが、令和 3 年度に行った μ-XRF 測定ではその存在を確認できなかった。その理由として、幌延の堆積岩中の腐植物質は低分子であり、岩盤中に普遍的に存在していたために濃集部として検出できなかった可能性が考えられる。

HDB-10, HDB-11 および URL 試料を対象に実施した S の安定同位体比($\delta^{34}S$)の深度分布を図 3.3-15 に示す。$\delta^{34}S$ は深度や岩石の違いに依存せず、−34.3 - −24.7 ‰の値を示した。この値は、パイライトが硫酸還元菌による酸化還元反応によって生じた可能性を示唆している(Kaplan and Rittenberg, 1964)。また、上記の反応が隆起後の閉鎖的環境で生じていた場合、硫酸還元反応の進行に伴い、全硫化物(S(−II))の $\delta^{34}S$ は、反応前の硫酸イオンの同位体比に漸近的に近づくと考えられる。声問層・稚内層が堆積した時期(13 - 2 Ma)の海水中の $\delta^{34}S$ は 20 ‰程度と考えられている(Claypool et al., 1980)ため、このような $\delta^{34}S$ を持つ間隙水が閉鎖系で硫酸還元菌によって硫化物になった場合、パイライトの $\delta^{34}S$ は 20 ‰程度になると考えられる。このような値は声問層・稚内層の試料ともに確認されていないため、パイライトは海洋から硫酸イオンが豊富に供給される海洋堆積時に生成したと推定される。

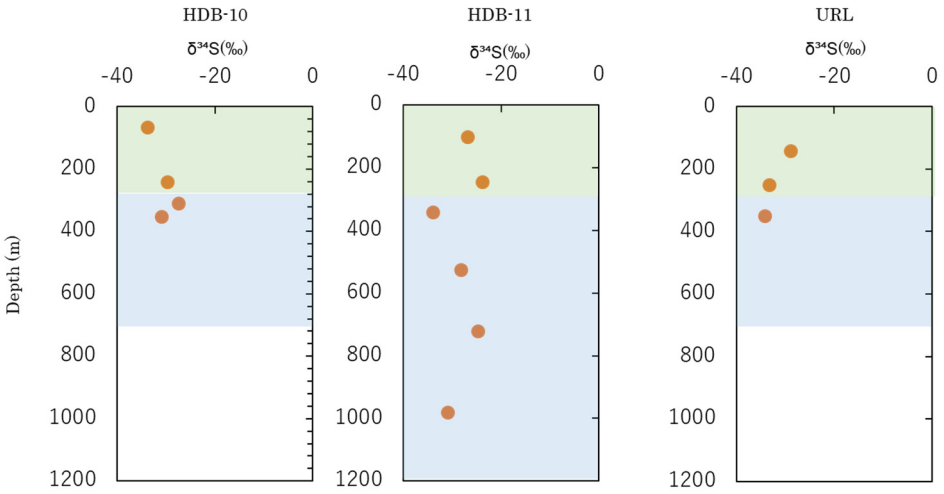


図3.3-15　HDB-10, HDB-11およびURL試料のSの同位体分析結果

HDB-11 の試料において声問層・稚内層の両方の試料でフランボイダルパイライトの存在が確認され、令和 3 年度は稚内層の試料を対象として Se の局所構造の解析を行った（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2022）。令和 4 年度は、幌延 URL の 140 m 調査坑道の孔壁から掘削した声問層のコア試料(URL140 m)を用いて、声問層における Se の存在形態の分析を行った。稚内層の試料の μ-XRF 分析の結果と同様に、URL140 m でも Se が Fe および S とともに濃集していた。URL140 m の試料中では、数 100 μm 程度の大きさの Se, Fe および S の濃集スポットが存在しており（図 3.3-16）、稚内層の試料の分析で多くみられた数 10 μm 程度の大きさの濃集スポットに比べて非常に大きな粒子に Se が濃集していることが確認された。

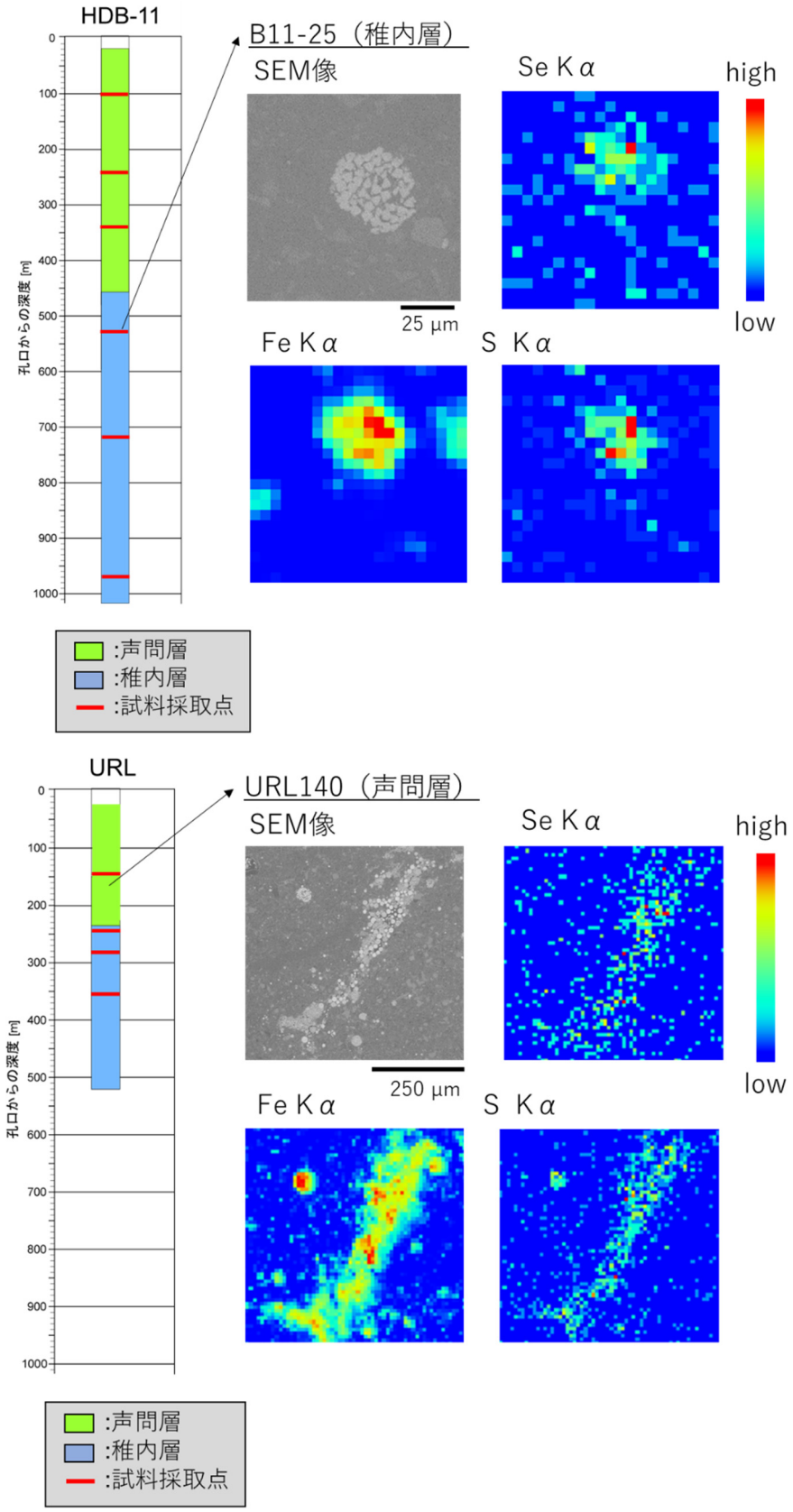


図3.3-16　Se濃集部の共存元素マッピング結果およびSEM観察結果　（上）稚内層(HDB-11), （下）声問層(URL140 m)

このスポットを対象としてSeとFeのXAFS測定行った結果、Feはパイライトの標準試料と類似したXANESスペクトル形状を示し、Seは$FeSe_2$やSe(0)の標準試料のものと近い吸収端を示した（図3.3-17）。Seの局所構造を調べるため、さらにEXAFSスペクトルを取得したところ、その形状は$FeSe_2$やSe(0)のような標準試料のものとは異なり、令和3年度の稚内層の試料や先行研究(Matamoros-Veloza et al., 2014)で確認された、構造中のSの一部がSeに置換したパイライトのものと類似していた。令和3年度と同様に、パイライトの結晶構造データ(Bayliss, 1977)を用いてフィッティング解析を行った。その結果、得られた原子間距離および近隣元素はパイライトの結晶構造と一致しており、声問層においてもSeはパイライト中のSと置換する形で岩石中に保持されていることが示された（図3.3-19）。また、EXAFS分析を行った部分のSEM観察を行った結果、フランボイダルパイライトが確認された（図3.3-18）。

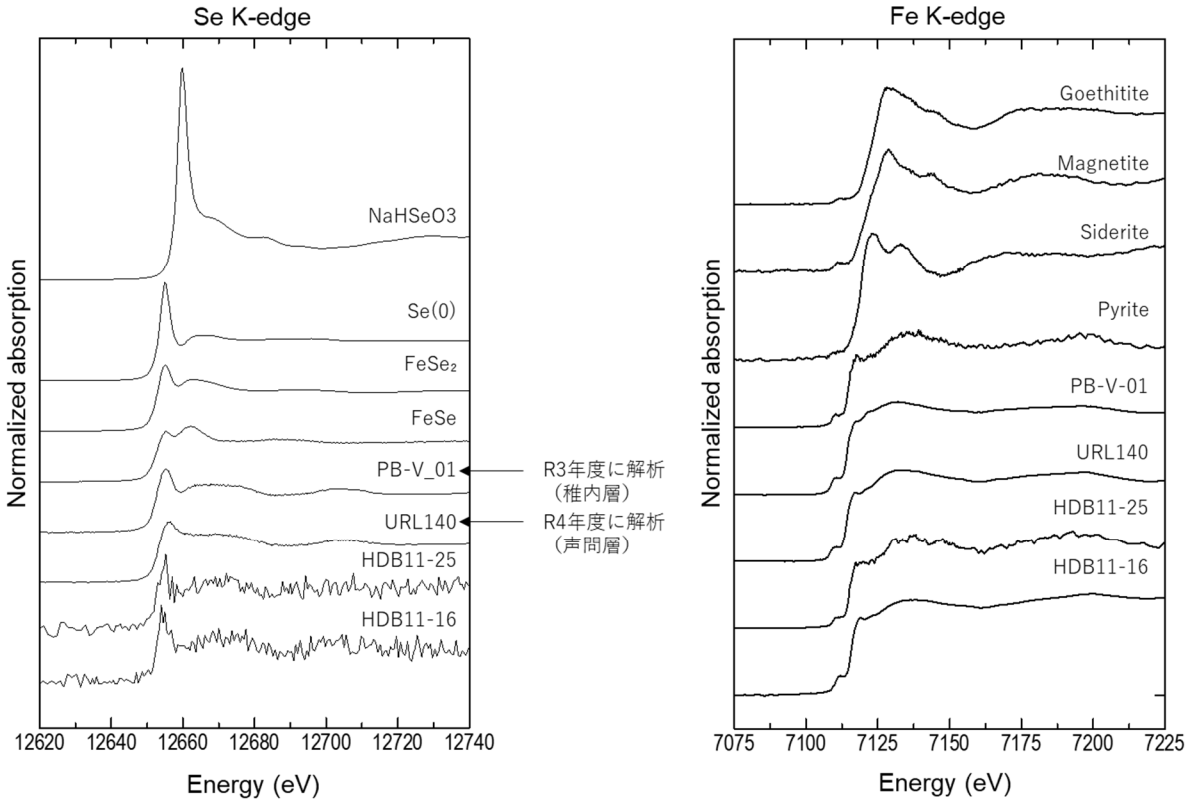


図3.3-17　Se濃集部におけるXAFS測定結果　（左）Se、（右）Fe

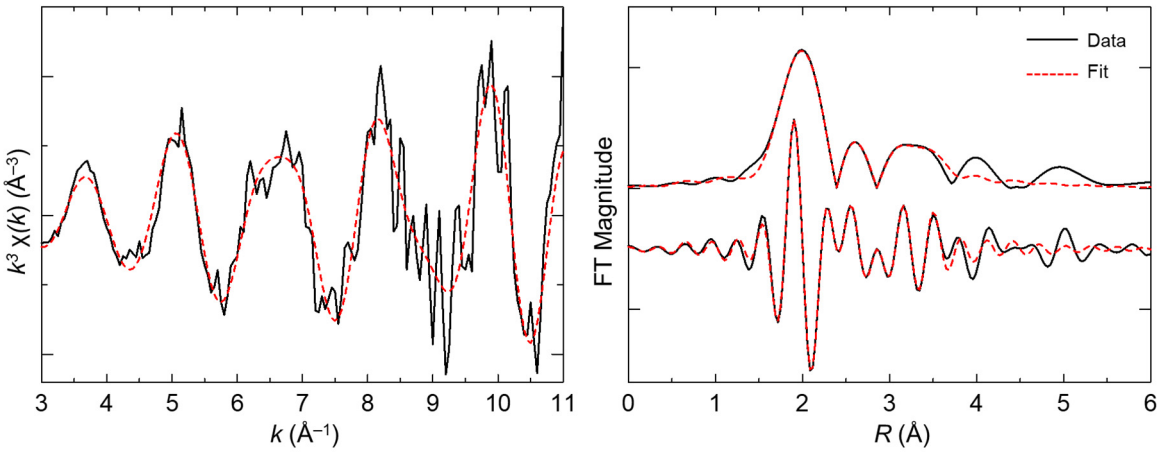


図3.3-18　（左）URL140 mのSe-K吸収端k^3重みづけEXAFSスペクトルおよび（右）対応する位相シフトのFT

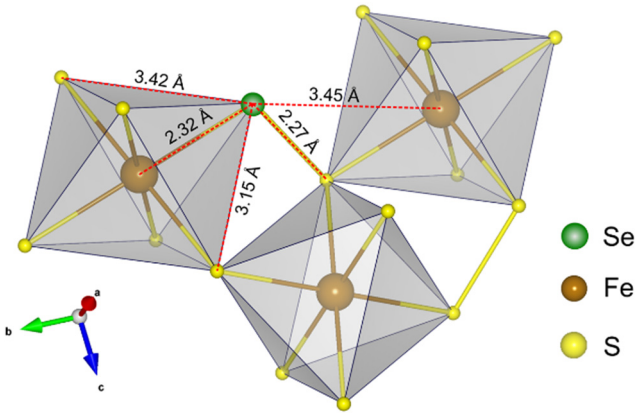


図3.3-19　定量EXAFSフィッティング結果をもとに作成したパイライト中のSをSeに置換した結晶構造のイメージ図（VESTA 3 (Momma and Izumi, 2011)を用いて作成）

Se 逐次抽出試験および薄片試料のマイクロ X 線分析の結果から、幌延の堆積岩中に含まれる Se の多くはパイライトに濃集していることが明らかになった。先行研究（例えば、Kulp and Pratt, 2004; Matamoros-Veloza et al., 2014）では、Se がパイライトのほかに有機物にも濃集することが報告されており、Se 逐次抽出試験の結果から、幌延の堆積岩にも少量の有機態の Se が含まれていることが明らかになった。ただし、今回の分析ではマイクロ X 線分析で有機態の Se の存在は確認できず、局所構造を明らかにすることができなかった。有機態への Se の分配率は最大でも総 Se 量の 14 %以下であるため、支配的な収着プロセスではないと考えられる。そのため、ここではパイライトによる Se の長期的な収着・保持メカニズムについて考察を行う。

幌延地域では、深度 30 m 以浅を除き、フランボイダルパイライトが普遍的に存在することが報告されている（岩月ほか, 2009）。フランボイダルパイライトの生成には微生物による硫酸の還元プロセスが関与していると考えられており(Wilkin and Barnes, 1996)、本事業で Se の濃集が確認されたパイライトもフランボイダルパイライトであった。また、パイライトは声問層においてオパール質珪藻を置換する形で存在していることから、そのパイライトの生成時期は海底堆積後であると考えられており（甲斐・前川, 2008）、S の同位体分析の結果も踏まえると海底堆積物が埋没した直後に生成したと考えられる。声問層の堆積年代の上限は約 2.0 Ma であると考えら

れている（石井ほか, 2008）ことから、幌延地域のパイライトの生成時期は少なくとも 2.0 Ma 以前であると考えられる。また、幌延地域の深部地下環境では酸化的な地下水との接触による岩石からのパイライトの溶脱は生じていないと考えられており（岩月ほか, 2009）、今回分析したパイライトも堆積時から現在まで長期的に安定であったと考えられる。

EXAFS 領域の解析結果から、Se は声問層・稚内層のどちらの地層においてもパイライトの結晶構造中に取り込まれていることが確認された。鉄硫化物鉱物の結晶構造中への Se の取り込みは、パイライトやその前駆体であるマッキワナイトの共沈反応によって取り込まれると先行研究(Diener et al., 2012; Finck et al., 2012)にて報告されており、3)の結果でも同様の傾向が確認されている。マッキナワイト生成に伴う HSe^-の取り込みについては、以下のような反応が考えられる。

$$Fe^{2+} + HS^- + xHSe^- \rightleftarrows FeSe_xS_{1-x\,(\text{mackinawite})} + xHS^- + H^+ \quad (3.3\text{-}1)$$

また、3)における熟成試験の EXAFS 解析の結果から、中性からアルカリ性溶液中における Se の取り込みでは、非晶質の単硫化鉄と Se(0)の反応による溶解・再沈殿に伴う取り込みが生じていたと考えられる。

$$2FeS_{(\text{am})} + xSe^0_{(\text{am})} \rightleftarrows FeSe_xS_{2-x\,(\text{pyrite})} + xS^0_{(\text{am})} \quad (3.3\text{-}2)$$

パイライトによる Se の結晶構造中への取り込みでは、マッキナワイトによる溶存 Se(−II)の収着反応において、溶解・再沈殿による取り込みが生じる可能性が報告されている(Diener and Neumann ,2011; Finck et al., 2012)。

$$FeS_{(\text{mackinawite})} + xH_2Se \rightleftarrows FeSe_xS_{2-x\,(\text{pyrite})} + xH_2 \quad (3.3\text{-}3)$$

$$FeS_{(\text{mackinawite})} + xSe^{2-} \rightleftarrows FeSe_xS_{1-x\,(\text{pyrite})} + xS^{2-} \quad (3.3\text{-}4)$$

上記の先行事例から、パイライトの前駆体であるマッキワナイトの生成時あるいはマッキナワイトと HSe^-や Se(0)の相互作用による溶解・再沈殿プロセスにより、Se が鉄硫化物鉱物の結晶構造に取り込まれると考えられる。一方で、フランボイダルパイライトは室内試験での合成が難しく、Se がフランボイダルパイライトの結晶構造に取り込まれることを明らかにしたのは、本研究が初めてである。フランボイダルパイライトの結晶成長メカニズムについて本報の結果から推察することは難しいが、上記の先行事例と類似した反応が天然試料中のパイライトでも生じたため、Se が結晶構造に取り込まれた可能性が考えられる。

パイライトは少なくとも 2 Ma 以前に硫酸イオンが多量に存在する海洋下で生成し、海水中に存在した Se はパイライト生成に伴い取り込まれたと考えられる。HSe^-や Se(0)として存在していた Se がパイライトに取り込まれたと考えられるが、このような還元的な Se の生成には微生物反応が寄与していた可能性がある(Herbel et al., 2000)。Se の還元反応への微生物反応の寄与や Se とマッキワナイトの相互作用については、Se の同位体分析で明らかにできる可能性がある(Mitchell et al., 2012)。

上述したように、鉄鉱物による Se の結晶構造への取り込みは主に鉱物生成時に生じる。地層処分環境では還元的な地下水が長期的に保たれると想定されるため、Se の移行経路において Fe および S 濃度の上昇が起こらない限り、本事業で確認されたパイライトの生成に伴う Se の取り込

みは起こりづらいと考えられる。しかしながら、Se 収着後の鉱物の溶解・再沈殿および結晶成長時において Se が結晶構造内に取り込まれる可能性がある(Diener and Neumann, 2011; Finck et al., 2012)。パイライトによる Se の取り込みは地層処分環境における核種移行において想定される反応であり、Se がパイライトの結晶構造に取り込まれた場合、Se が移行しづらい形態で岩盤中に保持されると考えられる。そのため、フランボイダルパイライトと Se の相互作用に伴い、Se が結晶構造に取り込まれるか確認することが地層処分における Se の長期的な保持メカニズムを評価する上で重要である。

(2) セメント系材料の共存が緩衝材や岩石中の核種移行に及ぼす影響評価技術の開発

1) セメント系材料共存に伴うCa型ベントナイト中のコロイド移行特性の評価

セメント系材料がニアフィールド環境や核種移行に及ぼす影響については、平成30年度の検討において、セメントと反応した地下水と緩衝材や岩盤との反応によるニアフィールドの環境変遷、その結果として生じる間隙水化学、鉱物変質および間隙特性の変化と、その核種移行への影響プロセスの理解が重要であり、そのための課題とアプローチを設定した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019）。そのうち、セメント系材料の共存が緩衝材に及ぼす影響としては、セメントから生じる高Ca濃度の間隙水によって緩衝材中に含まれるモンモリロナイトの層間陽イオンがCa型へと変化し、これに伴い緩衝材の間隙特性が変化し、その結果としてコロイドフィルトレーション機能へ影響が及ぶ可能性を課題として抽出した。緩衝材である圧縮ベントナイトは、コロイド粒子を物理的に濾過するコロイド濾過機能を有し、緩衝材内部での核種移行に及ぼすコロイドの影響を排除することが期待されている（核燃料サイクル開発機構, 1999）。これまでに報告されている圧縮ベントナイト中のコロイドの透過試験においては、試験溶液の塩濃度や圧縮ベントナイトの乾燥密度等の条件によっては、サイズの小さいコロイドがベントナイト中を移行することが確認されている（黒澤, 2005; Wold and Eriksen, 2007; Iijima et al., 2009; Holmboe et al., 2010）。しかしながら、既存の研究で検討された条件は限られており、圧縮ベントナイトがコロイド濾過機能を発揮する条件を明確化する必要がある。特に、本事業で焦点をあてるバリア材料間の相互作用を含むニアフィールド環境の長期変遷の影響を考慮する際、この環境変遷がコロイド濾過機能に及ぼす影響を評価しておくことは、コロイド濾過機能が喪失した場合の影響の大きさを考慮すると重要な課題である。

このような観点から、先行事業（日本原子力研究開発機構, 2018）において構築してきたデンドリマーコロイドを用いた圧縮ベントナイト中のコロイド移行特性評価手法を活用し、乾燥密度や間隙水塩濃度の異なる条件でのCa型ベントナイト中のデンドリマーコロイドの移行・濾過データを取得してきた（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019; 2020; 2021; 2022）。これまでの結果から、5.7 nmのサイズのデンドリマーコロイドを用いた場合、Na型とCa型ベントナイトの差異、間隙水イオン強度の差異によらず、乾燥密度1.2 Mg/m^{3}の条件では破過し、乾燥密度1.6 Mg/m^{3}では完全に濾過されることが確認された。この結果を踏まえ、令和3年度から、破過と濾過の境界条件のより詳細な把握と、多様なサイズを有するコロイドの移行・濾過挙動の評価を念頭に、異なるサイズのデンドリマーコロイドを用いた拡散・濾過データ取得に着手した。具体的には、乾燥密度1.2 Mg/m^{3}の条件では、これまでに5.7 nmのデンドリマーが全て破過していることを踏まえ、より大きな8.8 nmのデンドリマーを用いた試験を行い、一方で、乾燥密度1.6 Mg/m^{3}の条件では、これまでに5.7 nmのデンドリマーが全て濾過されていることを踏まえ、より小さな1.9 nmのデンドリマーを用いた試験を行うこととした。令和4年度は、これらの試験を継続することによって、異なるサイズのデンドリマーコロイドを用いた試験結果を取得し、コロイドのサイズが、コロイドの破過あるいは濾過挙動に及ぼす影響の把握を試みた。

試験に供したデンドリマーは、一定のサイズで球状の構造を有する樹状高分子であるカルボン酸ナトリウムを末端基に持つポリアミドアミンデンドリマー（Aldrich製）で、これまでに用いてきた5.7 nm（Generation 4.5、分子量 26,252）のサイズに対し、1.9 nm（Generation 1、分子量 1,430）と8.8 nm（Generation 7、分子量 116,493）のサイズを用いた。拡散・濾過試験は、ベントナイトとしてNa型ベントナイト（クニピアF）および層間陽イオンをCa型に置換したCa型ベントナイトを使用し、これまでと同様の循環型の透過拡散試験セルを用いて試験を実施した。ここで、ベントナイトの乾燥密度は、1.2 Mg/m^{3}と1.6 Mg/m^{3}の2条件とした。Na型ベントナイトの試験では0.05と0.5 Mに調整したNaCl溶液を試験溶液とし、Ca型ベントナイトでは0.0167と0.167 M$CaCl_2$溶液を試験溶液とした。ここで、これまで5.7 nmのコロイドが破過している乾燥密度1.2 Mg/m^{3}の条件では、低塩濃度（0.05 Mまたは0.0167 M）の条件で、8.8 nmの大きなコロイドサイズを対象に試験を行った。一方、これまで5.7 nmのコロイドが濾過された乾燥密度1.6 Mg/m^{3}の条件では、高塩濃度（0.5 Mまたは0.167 M）の条件で、1.9 nmの小さなコロイドサイズを対象に試験を実施することとした。コロイドの移行・濾過試験は、これまでと同様に、循環型の透過拡散試験セルを用いて実施した。試験溶液はpH 8程度に調整し、溶液の量は高濃度側を250 mL、低濃度側を15 mLとした。試験開始後、一定期間ごとに低濃度側溶液を新しい溶液に入れ替え、採取した低濃度側溶液を全有機態炭素(Total Organic Carbon; TOC)計(TOC-Lcph, Shimadzu)で測定した。高濃度側の溶液は一定期間ごとにサンプリングし、TOCを測定した。試験終了後、拡散セルを解体し、ベントナイトをスライスした。スライス片を1 MのNaCl溶液に入れ、2週間攪拌した後、遠心分離装置にかけた後に上澄みを採取し、TOC計でベントナイト中のデンドリマーの濃度を測定した。

これまでの試験で5.7 nmのコロイドの破過が確認された乾燥密度1.2 Mg/m^{3}のNa型およびCa型モンモリロナイトにおいて、低塩濃度（0.05 Mまたは0.0167 M）の条件で、8.8 nmの大きなコロイドサイズを対象に実施した試験結果を、図3.3-20に示す。図3.3-20(a)に示す低濃度側溶液中のデンドリマーの累積濃度の経時変化からは、Na型とCa型のいずれの条件でもデンドリマーが破過していることが確認された。図3.3-20(a)には、Na型の同じ試験条件での5.7 nmのデンドリマーの破過データをあわせて示しているが、破過データからは5.7 nmと8.8 nmとの間で大きな差異は認められなかった。図3.3-20(b)には、200日程度の試験期間終了後の試験試料中のデンドリマーの濃度分布を示している。図3.3-20 (a)と図3.3-20(b)の8.8 nmのデンドリマーの結果を比較すると、Na型の方がCa型に比べて、内部への移行が抑制され、破過濃度も相対的に低濃度となっており、この点は整合的な結果と評価できる。ただし、Na型の5.7 nmと8.8 nmの結果を比較すると、内部プロファイルからはサイズが小さい5.7 nmの方がより内部へ移行している状況が確認されたものの、破過データでは明瞭な差異が確認できず、この点は更なる分析評価が必要な課題といえる。

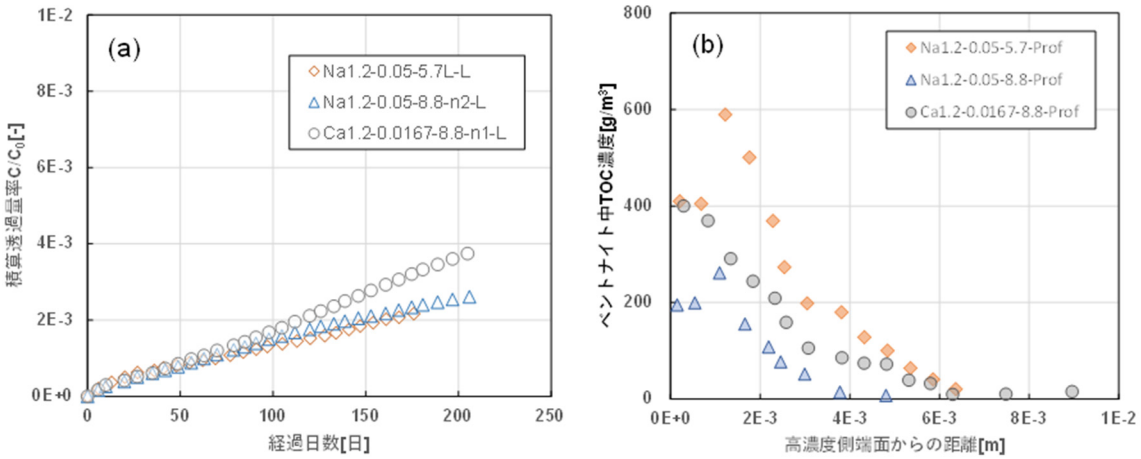


図3.3-20　乾燥密度1.2 Mg/m³のNa型およびCa型ベントナイト中のサイズの異なるデンドリマーコロイド（5.7 nmおよび8.8 nm）の拡散・濾過試験データ　(a) 高濃度側および低濃度側のデンドリマー濃度変化、(b) 試験後のベントナイト中のデンドリマー濃度分布

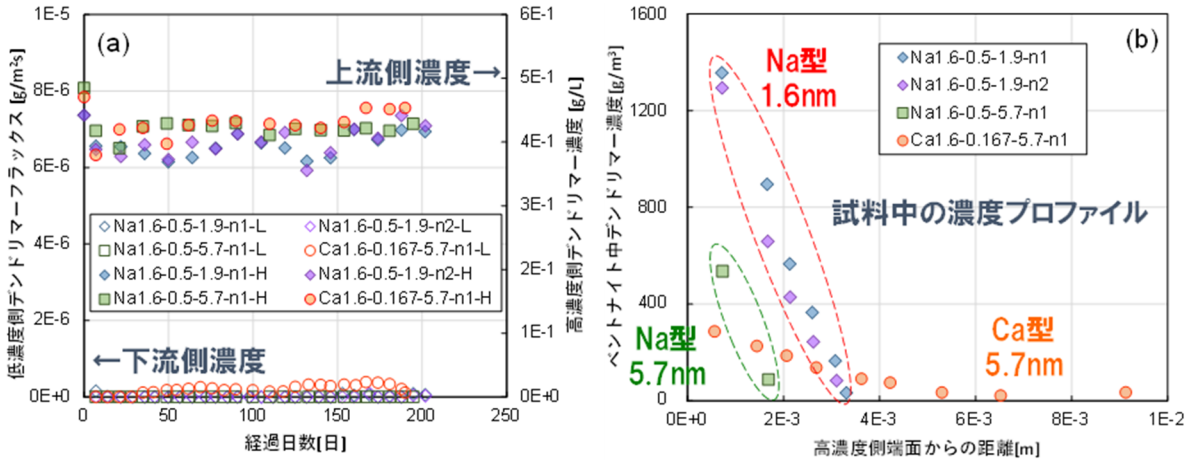


図3.3-21　乾燥密度1.6 Mg/m³のNa型およびCa型ベントナイト中のサイズの異なるデンドリマーコロイド（5.7 nmおよび1.9 nm）の拡散・濾過試験データ　(a) 高濃度側および低濃度側のデンドリマー濃度変化、(b) 試験後のベントナイト中のデンドリマー濃度分布

一方で、これまでの試験で5.7 nmのコロイドの破過が認められていない乾燥密度1.6 Mg/m³のNa型モンモリロナイトにおいて、低塩濃度（0.05 Mまたは0.0167 M）の条件で、1.9 nmのより小さなコロイドサイズを対象に実施した試験結果を、これまでに同じ条件で取得されたNa型およびCa型モンモリロナイト中の5.7 nmのデンドリマーコロイドの試験結果とあわせて図3.3-21に示す。図3.3-21(a)に示す低濃度側溶液中のデンドリマー濃度（フラックス）の経時変化からは、サイズの小さい1.9 nmのデンドリマーコロイドも、これまでの5.7 nmの試験結果と同様に、200日以上にわたってデンドリマーの破過は確認できなかった。図3.3-21(b)には、200日程度の試験期間終了後の試験試料中のデンドリマーの濃度分布を示した。1.9 nmと5.7 nmのデンドリマーの内部プロファイルを比較すると、1.9 nmの小さいデンドリマーの方がより高い濃度でより深い領域まで拡散していることが確認できる。また、図3.3-21には、Na型の1.9 nmのデンドリマーを対象に試験数2で実施した結果を示しているが、双方の試験結果の整合性からも、本試験の再現性を確認することができた。以上のことから、乾燥密度1.6 Mg/m³のNa型モンモリロナイトの場合、1.9 nmのサイズのデンドリマーコロイドも完全に濾過されていると推察された。なお、Ca型モンモリ

ロナイトの乾燥密度1.6 Mg/m³の条件での1.9 nmのデンドリマーを用いた試験はデータ取得を継続している。

令和3年度までの結果から、5.7 nmのサイズのデンドリマーコロイドを用いた場合、Na型とCa型ベントナイトの差異、間隙水のイオン強度の差異によらず、乾燥密度1.2 Mg/m³の条件では破過し、乾燥密度1.6 Mg/m³では完全に濾過されることが確認された（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2022）。令和4年度は、この破過と濾過の境界条件のより詳細な把握と、多様なサイズを有するコロイドの移行・濾過挙動の評価を念頭に、異なるサイズのデンドリマーコロイドを用いた拡散・濾過データを取得評価した。乾燥密度1.2 Mg/m³の条件では、より大きな8.8 nmのデンドリマーを用いた試験、乾燥密度1.6 Mg/m³の条件では、より小さな1.9 nmのデンドリマーを用いた試験を実施し、その結果、それぞれデンドリマーサイズの違いを反映した妥当な試験結果を取得できていることが確認された。デンドリマーコロイドを用いることで、ナノサイズのコロイドの移行・濾過挙動の把握や、これらのコロイドで移行可能な間隙の連続性等を把握することが可能となった。これまでに取得してきたデンドリマーコロイドの移行・濾過試験の一連の結果を図3.3-22にまとめる。Na型およびCa型モンモリロナイトの双方で、間隙水の塩濃度が0.05 - 0.5 Mの範囲では、乾燥密度1.2 Mg/m³の条件ではデンドリマーコロイドは破過し、乾燥密度1.6 Mg/m³の条件では完全に濾過されることが確認された。今後は、実際の処分で用いられるベントナイトや、ケイ砂混合ベントナイトを対象に、コロイドのサイズや間隙水の特性等との関係を含め、コロイド移行メカニズムの把握や濾過機能の発現条件を評価していく必要がある。

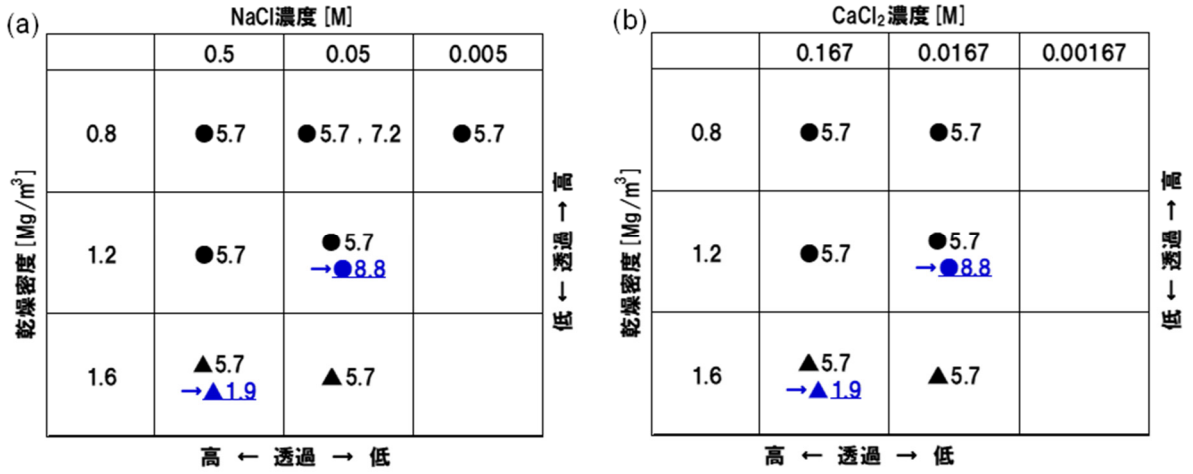


図3.3-22　これまでに取得された異なる乾燥密度、間隙水イオン強度、コロイドサイズにおけるデンドリマーコロイドの移行・濾過試験結果のまとめ　(a) Na型、(b) Ca型モンモリロナイト

2) セメント系材料共存下でのニアフィールド岩盤中の核種移行特性の評価

① 原位置におけるセメントと岩盤の接触界面の分析評価

地層処分における支保工やグラウト材として使用されるセメント系材料がニアフィールド岩盤に及ぼす影響については、セメントの影響によって高pHや高Ca濃度の地下水や間隙水の拡がりと、岩石構成鉱物の溶解や二次鉱物の沈殿等による岩盤変質が生じることが想定される。この周辺岩盤の溶解や変質によって、岩石中の間隙構造や鉱物の収着特性に変化をもたらし、地下水組成の変化とあわせて、核種移行挙動への影響が生じることとなる。さらに、割れ目とマトリクスからなる岩盤においては、高アルカリプルームの拡がりや、二次鉱物の生成による割れ目の閉塞、割れ目表面に二次鉱物が沈殿することに伴うマトリクス拡散や収着の抑制といった、より複雑な

影響プロセスも考慮する必要が生じる。本タスクでは、幌延の泥岩を主たる研究対象として選定し、セメント系材料の共存により生じる岩石の変質や核種移行特性の変化に関する分析試験、収着等の核種移行特性への影響評価に必要なデータやモデルの調査を進めてきた。

幌延の泥岩試料へのセメント共存影響を評価するため、令和3年度までに、幌延URLの140 m坑道から採取された泥岩（声問層）と普通ポルトランドセメント(Ordinary Portland Cement; OPC)および低アルカリ性セメント(Highly Fly ash Silica fume Cement; HFSC)の接触試料（図3.3-23）を対象として、岩石とセメントの接触界面での変質状態の分析を電子線マイクロアナライザー(Electron Prove Micro Analyzer; EPMA)、SEMおよびXRDを用いて行うとともに、界面近傍の間隙率、交換性陽イオン、主要・微量元素の分布等を各種分析により把握してきた。令和3年度までに実施した各種分析の結果から、OPCとHFSCのセメントの種類に応じて、接触界面付近の変質状況に特徴的な差異が生じていることが確認された。例えば、EPMA分析からは、OPCの接触界面では、OPC側ではCa濃度の低下が生じており、SiおよびAl濃度のわずかな上昇が観察されたほか、岩石側ではCa濃度の上昇とSiおよびAl濃度のわずかな低下が確認された。一方で、HFSCと岩石の接触界面でも、OPCと同様にセメントのCaが溶脱したと考えられるCaの低濃度層の存在が確認でき、その領域はOPCに比べて広く、SiおよびAl濃度は界面に向かってわずかに低下する傾向が観察された。また、界面近傍の岩盤側ではCa濃度の上昇とSi濃度のわずかな低下が確認された。SEM/EDS分析、陽イオン交換容量(Cation Exchange Capacity; CEC)や主要・微量元素の分析結果から、OPCとHFSCでの間隙水のpHや元素組成の差異によって、主要元素の分布、二次次鉱物の生成状況、CEC等に違いが生じている状況が把握できた。

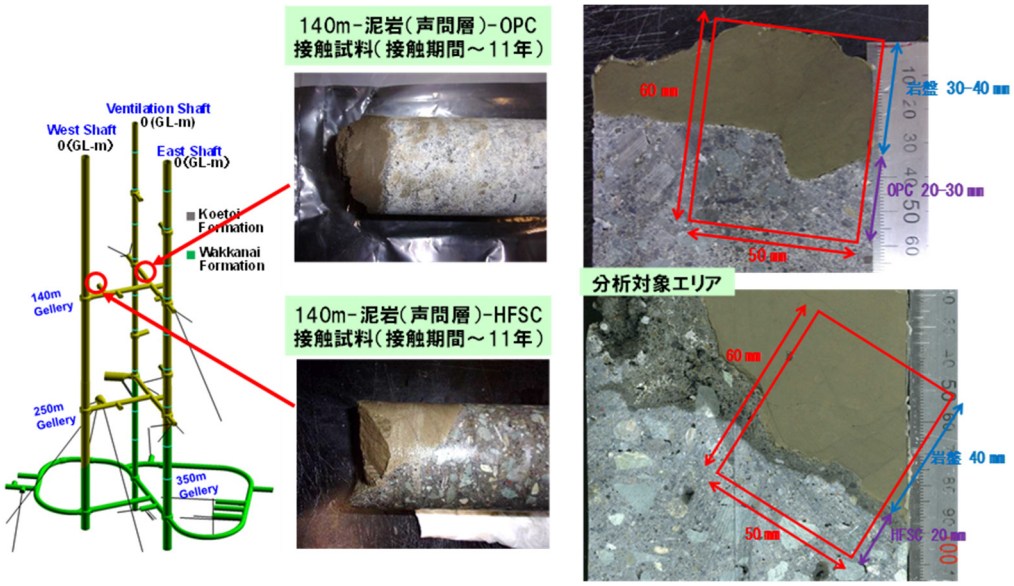


図3.3-23　幌延の泥岩とセメントの接触界面の採取位置と分析対象試料の界面の状況

令和4年度は、上記のような令和3年度までに観察されたOPCとHFSCの界面近傍での変質状況の特徴的な差異を、より詳細に把握することに加え、二次鉱物への微量元素の取り込み状況を把握する観点から、これまでと同様の140 m坑道の泥岩（声問層）とOPCおよびHFSCとの接触界面を対象に分析評価を試みた。具体的には、これまでと同様のEPMAおよびSEM/EDS分析を界面近傍に焦点をあてて高分解能で測定するとともに、レーザーアブレーション(Laser-Ablation; LA)-ICPMS (LA-ICPMS)を適用することを試みた。これら複数の分析手法を、同一の界面領域に適用することによって、変質状況を高い精度で把握するとともに、二次鉱物を同定しつつ、その二次

鉱物への微量元素を把握する手法の構築を試みた。さらに、4章で開発を進めてきたバリア複合環境下での地球化学－物質移行解析手法を適用し、泥岩とセメントの接触界面の変質状況の解析的な評価を試みた。

泥岩とOPCとの接触界面付近の分析結果を図3.3-24に示す。令和3年度に分析対象とした140 m坑道での泥岩（声問層）とOPCの接触試料を対象に、図3.3-24(a)の枠内の領域を分析した。まず、EPMA分析では、試料に含有する成分を定量的に評価できること、さらには測定範囲が微小域から広域にかけて評価できる特性を活かし、Caの拡がりを評価した。図3.3-24(b)に示すように、Caはセメントから岩盤側に、2 mm程度の範囲まで拡がっており、セメントとの接触界面に近いほどCa量が多い傾向が確認された。岩盤を構成する主成分（SiやAl）の量は、界面近傍と界面から離れた部位（健全相）と比較し、明瞭な差異は確認されなかった。LA-ICPMSの分析の結果、図3.3-24(c)に示すように、EPMAと整合的なCaの分布を確認しつつ、EPMAやSEMでは検出できない微量元素としてSr, Ba, ZnおよびLiの分布を取得することができた（図3.3-24(c)にはSrの分布を例示する）。なお、LA-ICPMSで分析できた微量元素は、令和3年度までに実施したバルク試料の分析結果とも整合するものである。これら微量成分の分布は、Caの分布と類似しており、Caを含む二次鉱物と共存する可能性が示唆された。さらに、SEM/EDS分析で得られたCa分布も、他の分析結果と整合することを確認しつつ、二次鉱物の領域に焦点をあてたスポット分析によってその鉱物種の推定を試みた。図3.3-24(d)に例示するように、界面近傍ではカルサイトが多く存在するのに対し、界面から少し離れた位置では、C-A-S-Hと推測される鉱物が確認された。この鉱物種の推定とLA-ICPMSを突き合わせることで、カルサイトにはSr, Ba, ZnおよびLiが共存し、C-A-S-HにはSr, Baが共存していることが確認された。

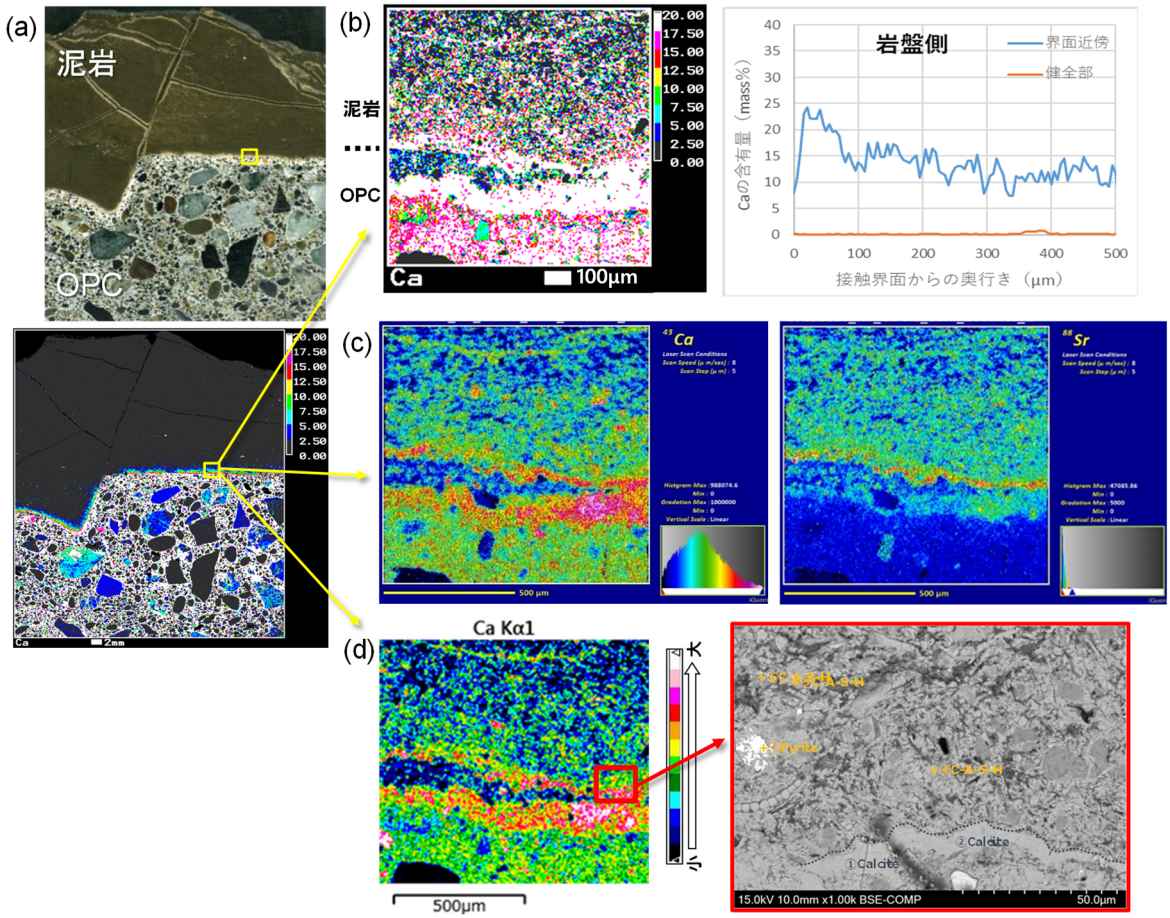


図3.3-24　泥岩—OPC接触界面の分析結果　(a) 対象試料全体の写真とEPMAによるCaマップ、(b) EPMAの高分解能のCaマップと深度方向Ca分布、(c) LA-ICPMSによるCa・Srマップ、(d) SEM/EDSによるCaマップと二次鉱物の同定

一方、泥岩とHFSCとの接触界面付近の分析結果を図3.3-25に示す。令和3年度に分析対象とした140 m坑道での泥岩（声問層）とHFSCの接触試料を対象に、図3.3-25(a)の枠内の領域を分析した。EPMA分析では、図3.3-25(b)に示すように、Caはセメントから岩盤側に、2 mm程度の範囲まで拡がっているものの、上記のOPCと比較して、セメントとの接触界面のごく近傍を除き、Ca量は相対的に少ない傾向が確認された。LA-ICPMSの分析の結果、図3.3-25(c)に示すように、EPMAと整合的なCaの分布を確認しつつ、EPMAやSEMでは検出できない微量元素としてSr, Baの分布を取得することができた（図3.3-25(c)にはSrの分布を例示する）。さらに、SEM/EDS分析で得られたCa分布も、他の分析結果と整合的であり、二次鉱物の領域に焦点をあてたスポット分析によってその鉱物種の推定を試みた。図3.3-25(d)に例示するように、界面近傍ではカルサイトが多く存在するのに対し、界面から少し離れた位置では、C-A-S-Hと推測される鉱物が確認された。この鉱物種の推定とLA-ICPMSの測定結果を突き合わせることで、カルサイトやC-A-S-HにはSrおよびBaが共存していることが確認された。

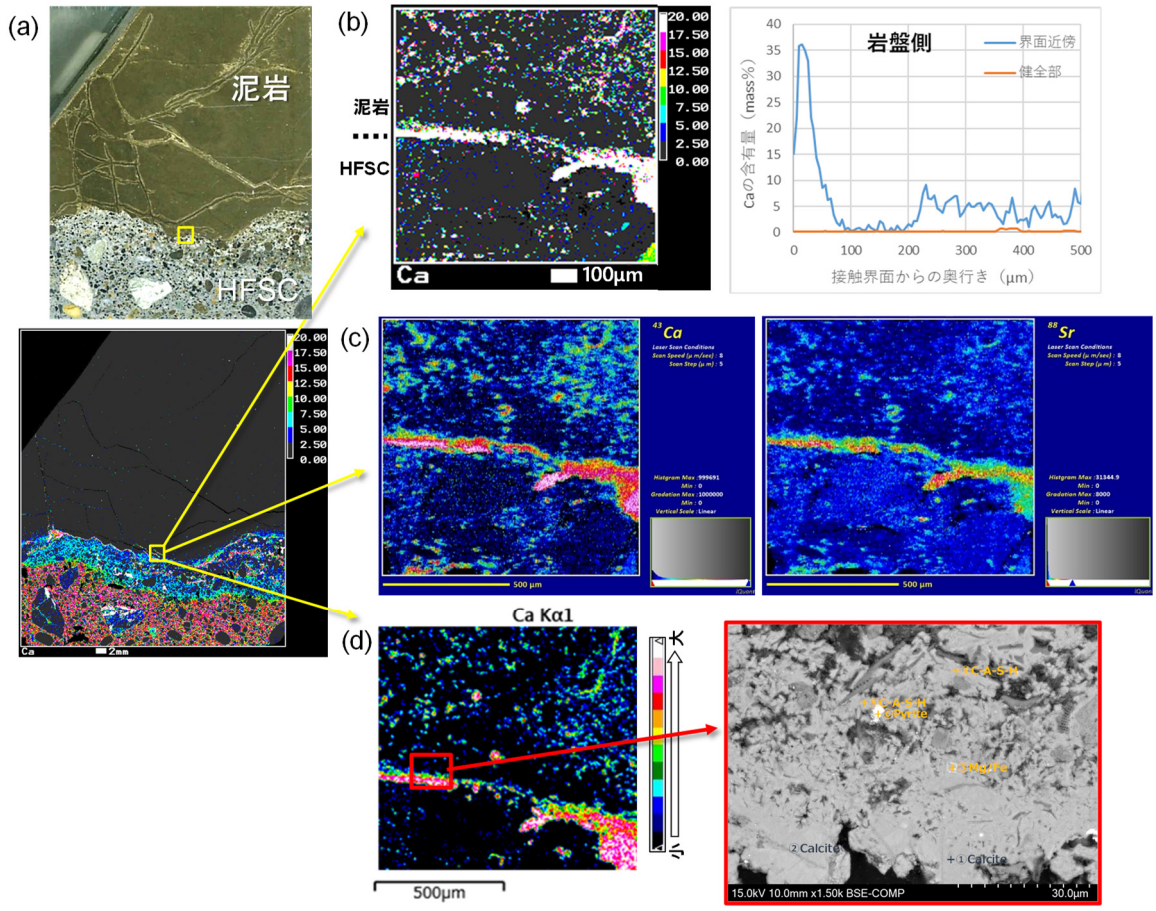


図3.3-25　泥岩—HFSC接触界面の分析結果　(a) 対象試料全体の写真とEPMAによるCaマップ、(b) EPMAの高分解能のCaマップと深度方向Ca分布、(c) LA-ICPMSによるCa・Srマップ、(d) SEM/EDSによるCaマップと二次鉱物の同定

上記のような泥岩とセメントの接触界面での反応・変質状況を対象に、これまで4章のニアフィールド性能の総合評価技術開発で取り組んできた地球化学－物質移行解析の手法を適用することによって解析的な検討を試みた。解析コードとしてQPACのGUIバージョンであるCABARETを用い、熱力学データベースとしてはJAEA-TDBを用いた。なお、HFSCの初期水和物として考慮するC-A-S-H相については、対応する熱力学データをTDBファイルに追記して計算に用いた。解析体系は図3.3-26に示す1次元モデルを採用した。境界条件は濃度固定境界とし、対応する材料の間隙水組成を基に濃度を設定した。すなわち、初期泥岩間隙水組成を泥岩領域外端に、初期セメント間隙水組成をセメント領域外端に設定した。各領域の長さは泥岩、セメント各100 mmずつで、グリッドの離散化については、変質帯の形成が予想される泥岩－セメント界面付近で細かいグリッドサイズ（境界近傍のグリッドサイズは0.1 mm、界面±40 mmの範囲でグリッドサイズを1 mm、それより外側では計算負荷軽減のためグリッドサイズを10 mm）を設定した。

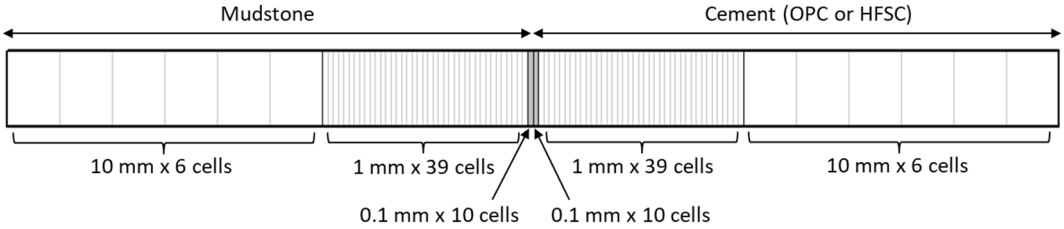


図3.3-26　泥岩－セメント接触界面を対象とした地球化学－物質移行解析体系

泥岩の初期鉱物組成およびセメント系材料の初期鉱物組成は、それぞれ表3.3-6および表3.3-7に示す値を設定した。また、セメント系材料の初期間隙率は実験値をもとにOPCは8.7 %、HFSCは6.9 %と設定した。地下水組成は幌延原位置データに基づき設定し（表3.3-8）、地下水組成と各材料の初期鉱物組成を基に、PHREEQCの平衡計算により各材料の初期間隙水組成を算出した（表3.3-8）。

表3.3-6　泥岩の初期鉱物組成

Mineral name (JAEA TDB)	Composition	Mass	Vol (dry)	Vol (dry)	Vol
		(wt%)	(-)	(%)	(%)
Quartz	SiO_2 (crystalline)	11	0.10	9.5	4.4
Albite	$NaAlSi_3O_8$	5	0.04	4.4	2.0
Anorthite	$CaAl_2Si_2O_8$	3	0.02	2.5	1.2
K_Feldspar	$KAlSi_3O_8$	3	0.03	2.7	1.3
Illite	$K_{0.6}(Mg_{0.25}Al_{1.8})(Al_{0.5}Si_{3.5})O_{10}(OH)_2$	10	0.08	8.3	3.9
Montmor_K	$K_{0.33}(Mg_{0.33}Al_{1.67})(Si_4)O_{10}(OH)_2$	11	0.10	9.6	4.5
$SiO_{2(am)}$ (Opal)	SiO_2 (amorphous)	57	0.63	63.0	29.4
Porosity		0	0	0	53.4
Total		100	1	100.0	100.0

表3.3-7　セメント系材料（左：OPC、右：HFSC）の初期鉱物組成

Mineral	Volume (%)
Portlandite	5.161
CSH165	10.50
Katoite-AlSi08	1.043
Brucite	0.3921
Monosulfate_Al	3.702
Monocarbonate_Al	0.8947
Inert*	69.61
Porosity	8.700

Mineral	Volume (%)
C(095)A(01)SH	8.848
C(090)A(01)SH	5.736
CSH095	0.4017
Brucite	0.2913
Ettringite-Al	1.172
Calcite	0.05892
Inert*	76.59
Porosity	6.900

表3.3-8　地下水組成と泥岩の初期間隙水組成およびセメントの初期鉱物組成

	Groundwater	Mudstone
pH	7	6.99
(mol/kg)		
Al	< 3.7e-07	5.26E-07
C	5.37e-02	5.42E-02
Ca	2.06e-03	5.44E-03
Cl	1.11e-01	1.12E-01
Fe	7.22e-07	7.28E-07
K	3.10e-03	4.70E-03
Mg	2.28e-03	1.08E-02
Na	1.54e-01	1.30E-01
S	1.05e-06	1.06E-06
Si	2.33e-03	1.22E-04

	OPC	HFSC
pH	12.76	10.91
(mol/kg)		
Al	1.94E-05	1.06E-01
C	7.57E-07	5.53E-06
Ca	5.02E-02	4.71E-03
Cl	1.12E-01	1.12E-01
Fe	4.12E-05	7.26E-07
K	3.11E-03	3.12E-03
Mg	1.88E-07	8.14E-02
Na	1.55E-01	1.55E-01
S	5.12E-02	5.21E-02
Si	1.33E-05	6.55E-03

二次鉱物は、Bateman et al. (2021)に基づき、セメントー岩石の相互作用生成物として代表的なゼオライト鉱物（フィリップサイト、クリノタイロライト、ヒューランダイトおよびローモンタイト）に加え、M-S-Hゲル、フリーデル氏塩、クゼル氏塩、エトリンガイト、石膏、ソーマサイト、ハイドロタルサイト、ストラトリンガイト、カトアイト、ブルーサイト、粘土鉱物（サポナイトおよびモンモリロナイト）等を設定し、炭酸塩としてカルサイトに加えてマグネサイトとドロマイトを考慮した。セメント二次鉱物は、硫酸塩アタック、MgおよびClアタックに関連する相が含まれている(Wilson et al., 2018)。C-S-H, C-A-S-H, M-S-Hは固溶体アプローチではなく、離散化固相として設定した。初期鉱物や二次鉱物の溶解沈殿反応については、遷移状態理論（T-S-T) アプローチを使用して速度論的に取り扱うこととし、入力パラメータは Bateman et al. (2021)に基づいて設定した。

泥岩－セメント接触界面を対象とした地球化学－物質移行解析で得られた10年間の反応期間での界面近傍の鉱物体積分率を図3.3-27に示す。泥岩とOPCの接触界面近傍では、OPCの初期水和物分が溶解し、ポルトランダイトの消失範囲は1 mm程度まで拡がっている。泥岩に隣接したセルではポルトランダイトやC-S-H等の初期固相がカルサイトやM-S-H (M-S-H15)に置き換わっている。泥岩に接したOPCセルでは、10年後にはM-S-Hとカルサイトの沈殿により間隙はほぼ閉塞した状態であった。一方、泥岩とHFSCの接触界面近傍では、HFSCと泥岩の反応により、一次C-A-S-H相からCaが溶出し、高Ca組成のC(095)-A(01)-S-Hの一部が低Ca組成のC(09)-A(01)-S-Hに置き換わっていた。10年後のCa溶出はセメント内部300 μm (0.3 mm)の範囲まで生じていた。界面近傍のHFSCセル（厚さ100 μm）でカルサイト、ブルーサイト、ストラトリンガイトが沈殿したが、二次鉱物の全体積は初期水和物相の体積より少なく、結果としてセメントの間隙率が増加した。界面から2番目のHFSCセルでは、C-S-Hゲル(C-S-H055)、M-S-H (M-S-H06)、ソーマサイトが少量沈殿していた。また、10年後には界面から少し離れたHFSC領域でソーマサイトが二次鉱物として存在し、その大半が初期エトリンガイトから変質したものであることが確認された。

これらの解析結果と、上記のEPMAやSEM/EDS等の観察結果とを比較すると、泥岩側へのCaの拡がりがOPCとの接触界面の方が卓越する点は、双方の結果で整合するものの、泥岩側で生じる二次鉱物については、観察と解析で一致しない結果となった。このような二次鉱物の生成状況の解析的評価は、先行研究でも不確実性要因として検討されている鉱物の反応速度や表面積の取り扱い等の課題も含め、更なる解析・評価が必要である。

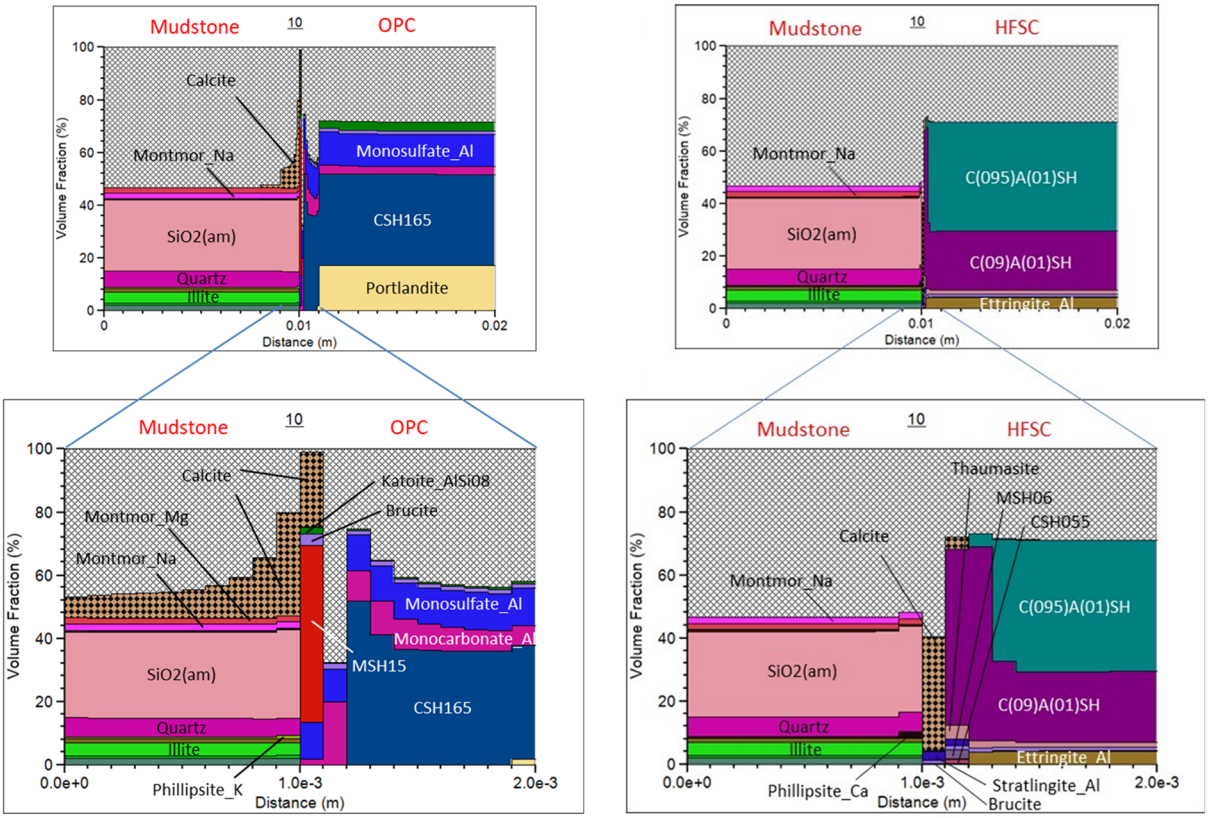


図3.3-27　泥岩―セメント接触界面を対象とした地球化学－物質移行解析で得られた界面近傍の鉱物体積分率（左：OPC、右：HFSCとの接触界面）

② 地下深部におけるカルサイトへの微量元素の取り込み挙動の評価

①で確認されたように、セメントは母岩および地下水との相互作用によりC-S-Hやカルサイト($CaCO_3$)等の二次鉱物を生成する。また、カルサイトは岩石中に一般的に産出する炭酸塩鉱物の1つである。カルサイトは遷移金属元素やREE、アクチニド元素(An)、SeやAs等のオキソ酸陰イオンとなる元素等の様々な微量元素をその結晶構造中に取り込むことが報告されている(Rimstidt et al., 1998; Curti, 1999; Elzinga et al., 2002; Heberling et al., 2014; Zhang et al., 2020)。したがって、カルサイトに対する放射性核種の取り込みは、その移行遅延に寄与すると考えられる。また、カルサイト中の微量元素の組成は、カルサイトが沈殿した地下水の化学的環境（化学組成やpH、酸化還元状態等）を反映していると考えられ、実際の地質環境を対象とした分析と地球化学環境の推定に関する研究が実施されている（例えば、Wallin and Peterman, 1999; Tanaka et al., 2009; Munemoto et al., 2015）。

ある金属元素 Me のカルサイトへの取り込まれやすさは、カルサイトと溶液間の分配係数 λ_{Me} として評価される(Curti, 1999)。

$$\lambda_{Me} = \frac{[Me]_{calcite}/[Ca]_{calcite}}{[Me]_{solution}/[Ca]_{solution}} \qquad (3.3\text{-}5)$$

令和 3 年度は、幌延 URL から採取したカルサイト中の主要および微量元素の存在量分析と、地下水中の元素濃度に基づく元素ごとの λ_{Me} の評価を行った（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2022）。その結果、カルサイト中において 2 価遷移金属元素であ

る Fe や Mn の λ_{Me} が高いことが確認された。また、カルサイト中には REE が含まれており、ばらつきは大きいものの、それらの λ_{Me} はイオン半径の増加に伴って増加していることが確認された。

実際の深部地質環境中におけるカルサイト中の微量元素の取り込み状態とカルサイトが沈殿した地下水化学環境の検討に資することを目的として、令和 3 年度には、幌延 URL の地下深部の岩石コアに含まれるカルサイトを対象として微量元素分析を行い、カルサイトへの元素分配データを取得した。令和 4 年度は、令和 3 年度に分析を実施した幌延の泥岩中に含まれるカルサイト試料を対象に、REE の分配データを拡充するとともに、μ-XRF および XAFS 分析によってカルサイト中の微量元素の分布や局所構造の把握を試みた。また、カルサイトへの微量元素の取り込みメカニズムを解明する観点から、結晶系の異なる炭酸カルシウムであるカルサイト（六方晶系）とアラゴナイト（斜方晶系）への REE の取り込み試験と分析を実施した。

カルサイト中における種々の元素の分布および化学形態を調べるため、放射光を用いた XRF および XAFS 測定を行った。また、3 価のアクチニド元素の化学アナログである REE に着目し、それらのカルサイトに対する取り込みメカニズムを明らかにするため、結晶構造の異なる炭酸カルシウムであるカルサイトおよびアラゴナイトに対する Sm の取り込み試験を行い、EXAFS 測定により取り込まれた Sm の構造を調べた。

(a) 幌延の泥岩中のカルサイトに対するREE分配パターン

表 3.3-9 に幌延 URL から採取したカルサイト試料の一覧、および図 3.3-28 に CI コンドライトで規格化したカルサイト中の REE 分配パターンを示す。どの試料においても負の Eu 異常がみられ、軽 REE に向かって値が高くなる傾向がみられた。一方、SAB-2 から採取された試料は重 REE に向かって再度値が高くなる傾向がみられ、PBV-01 では重 REE に向かう変化の傾向が不明瞭だった。また、Y/Ho 比はカルサイトが生成した際に海水の影響を受けているかどうかの指標となり(Takahashi et al., 2002)、ES-1y で相対的にやや値が低いものの、いずれの Y/Ho 比も高く、海水の影響を受けているカルサイトの特徴を表していた。このように、カルサイトは採取したボーリング孔や深度に応じて特徴的な REE 分配パターンを示し、生成した環境が反映されていることが示唆された。

表3.3-9　幌延URLから採取したカルサイト試料の一覧

試料名	ボーリング孔　深度 (mbgl)	性状	色
HDB10-1y	HDB-10	450 割れ目に発達した晶洞を伴う脈石	黄色
HDB10-2y	HDB-10	517 割れ目に発達した晶洞を伴う脈石	黄色
HDB9-1g	HDB-9	306 割れ目に発達した脈石	白灰色
ES-1y	東立坑	324 割れ目に発達した晶洞を伴う脈石	黄色
PBV01-1y	PB-V01	290 割れ目に発達した脈石	黄色
SAB1-8w	SAB-1	491 ネットワーク状に発達した脈石	白色
SAB1-8y	SAB-1	491 ネットワーク状に発達した脈石	黄色
SAB1-9g	SAB-1	503 割れ目に発達した脈石	白灰色
SAB1-9w	SAB-1	503 晶洞に付着した炭酸塩鉱物の結晶	白色
SAB2-5w	SAB-2	352 ネットワーク状に発達した脈石	白色
SAB2-11b	SAB-2	609 角礫状に破砕された炭酸塩ノジュール	淡黄褐色
SAB2-11w	SAB-2	609 ネットワーク状に発達した晶洞を伴う脈石	白色

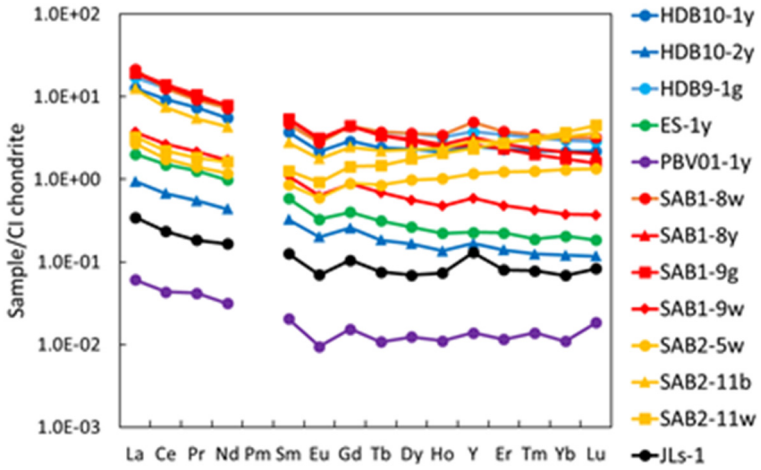


図3.3-28　CIコンドライトで規格化した幌延URLから採取したカルサイトおよび比較用の海成カルサイト(JLs-1)中のREE分配パターン

(b) 幌延の泥岩中のカルサイトのμ-XRF-XAFS測定

測定試料は表 3.3-9 に示したもののうち、SAB1-8 を対象とした。放射光を用いた μ-XRF 測定および μ-XAFS 測定は SPring-8 のビームライン BL37XU において行った。μ-XRF 測定による元素マッピングでは、アルカリ金属元素として Rb、アルカリ土類金属元素として Sr、2 価金属元素として Fe、REE として Y, La, Ce および Nd、アクチニド元素として U および Th を対象とした。Y の Kα 線やアクチニド元素の Lα 線を放出させるためには 18 keV 程度の X 線を照射する必要があるが、薄片試料の堆積岩部分には Fe が多く含まれているため、これらの蛍光 X 線を測定する際に Fe のサムピークが影響を与える可能性がある。これを防ぐため、Y の Kα 線やアクチニド元素の Lα 線を測定する際は、Si ドリフト検出器にアルミ箔を巻いて測定を行った。REE の Lα 線を測定する際は検出器のアルミ箔を取り除いた。

μ-XRF 測定の結果を図 3.3-29 に示す。Sr が分布している領域はカルサイトの分布領域に相当しており、Sr はカルサイト中に均質に分布していることが確認された。一方で、Rb は粘土鉱物中の K と置換する形で存在しているため、堆積岩の分布の指標となる。Rb と Sr の分布より、カルサイト部にも堆積岩が部分的に混在している状況が確認された。カルサイト部における Fe の分布は Sr の分布と同様であり、カルサイト中に均質に取り込まれていると考えられる。一部 Sr と Fe がスポット状に濃集している部分があるが、この部分では Rb も濃集しており、カルサイトに混在した堆積岩であると考えられる。U も Sr や Fe と同様にカルサイト部分に均質にしていることが確認された。また、わずかであるが REE のカウントもカルサイト部分で得られていることが確認できた。しかしながら、REE の存在量が少ないためにカウントが低く、より正確に調べるには測定時間を長くしたり、エネルギー分解能の高い手法を用いたりすることが必要と考えられた。図 3.3-29 のカルサイトマトリクス部分を対象に XRF スペクトルを取得した結果を図 3.3-30 に示す。マッピングからも確認されたように、Fe と Sr が検出されたほか、2 価の金属元素である Mn, Zn および Cu の Kα 線とみられるピークも確認された。一方で、Rb のピークも確認されたため、粘土鉱物が混在して存在していた可能性も考えられる。また、Th の Lα 線(12.967 keV)が明瞭に確認された。REE では La の Lα 線(4.650 keV)とみられるピークが確認された。以上の幌延の泥岩中のカルサイト領域に焦点をあてた μ-XRF 分析結果より、令和 3 年度のカルサイトのバルク分析で確認された微量元素のうちのいくつかの元素がカルサイトマトリクス中の均質に取り込まれていることが示唆された。その一方で、カルサイト中に堆積岩あるいは粘土鉱物が混在

している可能性も確認された。これらの結果も踏まえつつ、天然岩石中に含まれるカルサイトへの微量元素の取り込み状況の分析および評価を進めていく必要がある。

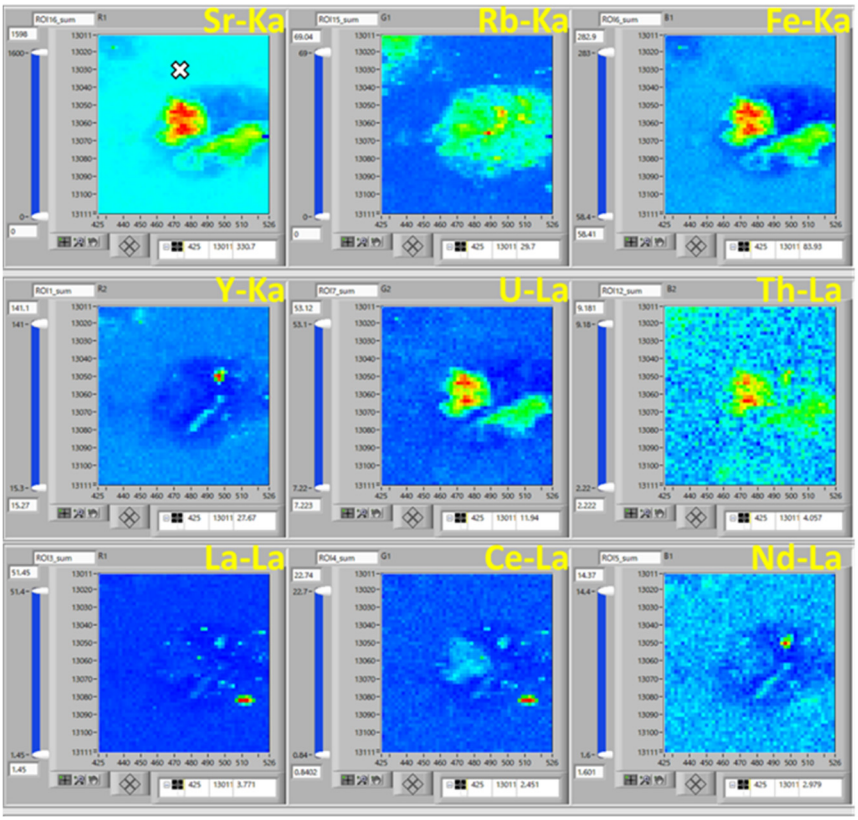


図3.3-29　μ-XRF測定によるマッピング結果　入射X線: 18 keV、測定範囲: 50 μm × 50 μm、 Sr -Th: 検出器にアルミ箔あり、La - Nd: 検出器にアルミ箔なし

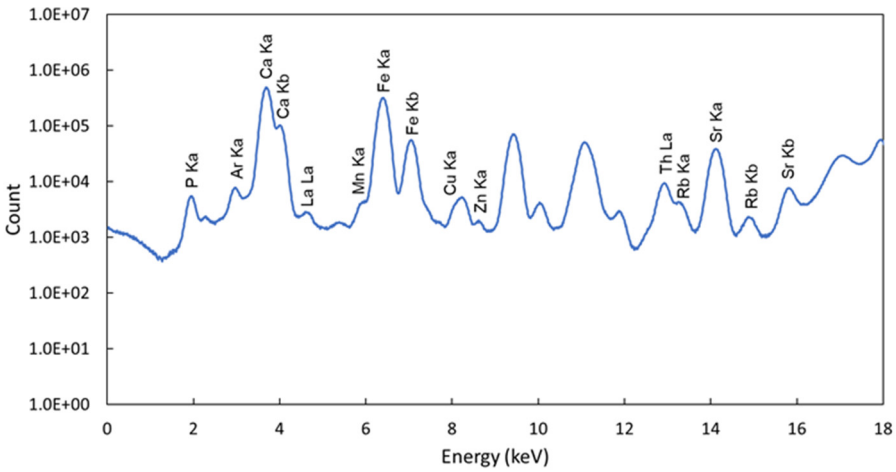


図3.3-30　図3.3-29中に示した部分で取得されたXRFスペクトル

(c) 幌延の泥岩中のカルサイトのバルクXAFS測定

(b)のカルサイトの μ-XRF-XAFS 測定では、Y 等の REE のカウント（信号）を十分に得ることができなかった。これは、カルサイト中に REE が低濃度で均一に分布しているためであると考え

られた。このような試料と元素でXAFSスペクトルを取得する場合、カルサイト中の微小領域に対してμ-XAFS測定を行うのではなく、カルサイト全体に対して1 mm程度のビーム径のX線を用いてバルクXAFS測定を行う方が有意なスペクトルを得られる可能性がある。ただし、先に確認されたようにカルサイト中に堆積岩が混在している場合があるので、そのような試料や測定箇所を避ける必要がある。

カルサイト中のREE濃度が低いことからEXAFSスペクトルを取得することは難しいため、XANESスペクトルの形状から化学種を区別する手法が妥当であると考えられる。そのために、標準試料のスペクトルから他の化学種とカルサイト中のREEのスペクトルが異なることを示す必要がある。ここでは、REEのうちYを対象とし、堆積岩中の化学種として考えられる様々な化学種を参照試料とし（表3.3-10）、それらのXANESスペクトルを比較することで手法の有効性を調べた。

表3.3-10　YのK吸収端XANESを取得した参照試料

Yの状態	備考
水和イオンのY^{3+}	0.1 M $Y(NO_3)_3$溶液
フェリハイドライトに収着したY	収着試験により調製
δ-MnO_2に収着したY	収着試験により調製
カルサイトと共沈したY	共沈試験により調製
天然ドロマイト中のY	ドロマイト標準試料(地質調査所; JDo-1)
天然アパタイト中のY	Yates鉱山(カナダ)
YPO_4沈殿のY	等モルのY^{3+}とHPO_4^{2-}をpH 6.0で混合して合成
YPO_4試薬中のY	レアメタリック社製
幌延カルサイト中のY	SAB1-8a

バルクXAFS測定はSPring-8のBL01B1において行った。Y濃度の高い試料は窒化ホウ素(BN)で希釈して透過法により測定した。Y濃度の低い試料は19素子Ge半導体検出器を用いた蛍光法により測定し、必要に応じてスペクトルの質を高めるためにスキャン回数を繰り返した。試料間のエネルギー校正のため、透過光の強度を測定するイオンチャンバー(I_1)の下流に追加のイオンチャンバー(I_2)を設置し、I_1とI_2の間にBNで希釈してペレット化した透過法用のY_2O_3試料を常に置き、そのXANESスペクトルをI_1とI_2の信号から常時得た。

得られたXANESスペクトルを図3.3-31に示す。水和イオンY^{3+}は明瞭なガウシアン型の1つのピークを示した。これは$Y(NO_3)_3$のスペクトルとほぼ同一の形状であり、イオン結合的な化合物に特徴的である。これに対し、フェリハイドライトやδ-MnO_2に収着したYのスペクトルはわずかに低エネルギー側にシフトしており、水和イオンとは異なる化学種であることが確認された。このスペクトルの変化は内圏錯体の生成を意味しており(Borst et al., 2020)、水和イオンに比べてやや共有結合的な性質を持つことが示唆される。炭酸塩中のYとして、カルサイト共沈試料と天然ドロマイトを測定した。後者は試料中のY濃度が低いためにスペクトルの質が悪いが、両者のスペクトル形状は類似しており、炭酸塩に取り込まれたYに特徴的なものであることが確認できた。また、リン酸塩中のYとして天然アパタイト、沈殿として生成させたYPO_4および試薬のYPO_4を測定した結果、17.047 keV付近に明瞭な肩があり、前述の他のYの化学種とは明瞭に区別できることが確認された。以上から、YのK吸収端XAFSでは、EXAFSは得られなくとも、XANESスペクトルのみからY^{3+}の化学種を識別できることが示された。

これらの結果を踏まえ、幌延の泥岩中のカルサイトを測定した結果を図3.3-31中に示す。しかしながら、バルクXAFS測定を行っても信号が非常に弱く、3時間程度のスキャンを行っても十

分な質のスペクトルを得ることができなかった。ピークの立ち上がりの位置等は炭酸塩中の Y^{3+} と類似した部分もあるが、ここで結論を述べることは困難であった。

しかしながら、今回の測定から、環境中の低濃度試料でも XANES スペクトルから炭酸塩中の Y を識別可能であることを示せたことは、分析化学的に大きな意義がある。今回測定に用いた試料より Y 濃度が高い試料があれば十分な質のスペクトルが得られると期待できる。炭酸塩中の REE の同定のために、Y の K 吸収端 XANES は重要なツールとなると考えられる。

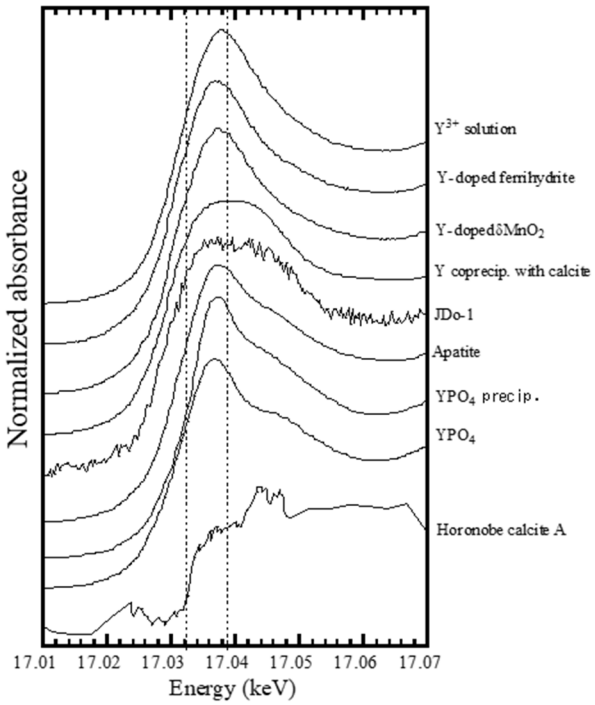


図3.3-31　種々の試料のY-K吸収端XANESスペクトル

(d) 合成カルサイトおよびアラゴナイトに対するREE分配試験

炭酸塩鉱物は地下環境での水の通り道に沈殿する主要な鉱物の 1 つであり、炭酸塩鉱物への REE の分配の程度は 3 価アクチニド元素の地層処分環境における挙動を予測する上で重要である。主要な炭酸塩鉱物として炭酸カルシウムであるカルサイトとアラゴナイトが挙げられる。通常、常圧では前者の方が安定であるが、生物が関与したり共存する Mg^{2+}濃度が高かったりすると、アラゴナイトが生成する可能性がある。Ca^{2+}サイトの配位数はカルサイト中では 6 であるが、アラゴナイト中では 8 であるため、配位環境の違いがこれらの炭酸塩への REE や 3 価アクチニド元素の分配に影響を与える可能性がある。これらのことを念頭におき、EXAFS 測定を行って両者の関係を調べた。

カルサイトまたはアラゴナイトと Sm を共沈させ、生成した固相の EXAFS 測定を行った。カルサイト共沈試料は、0.1 M $CaCl_2$ 溶液 25 mL に Sm を 10 mg/kg となるように添加した後、0.1 M $NaHCO_3$ 溶液 25 mL を加えて炭酸カルシウムを沈殿させることで調製した。アラゴナイト共沈試料は 0.1 M $NaHCO_3$ 溶液 25 mL の代わりに $MgCl_2$ を 0.5 M 含む 0.1 M $NaHCO_3$ 溶液 25 mL を用いてカルサイト共沈試料と同様の手順で合成を行った。得られた固相は濾過により回収し、XRD 測定により鉱物同定を行った。また、固相は Photon Factory の BL-12C において XAFS 測定を行った。Sm の L3 吸収端 EXAFS は 7 素子 Si ドリフト型半導体検出器を用いた蛍光法により取得した。

固相の EXAFS 測定を行う前に、生成した鉱物を XRD 測定により確認したところ、カルサイト共沈試料ではカルサイトのピークのみが観測されたが、アラゴナイト共沈試料ではアラゴナイトのピークに加えてカルサイトのピークも確認された。REE を加えない場合では今回用いたアラゴナイト合成手法でアラゴナイトが選択的に合成されることを確認しているため、REE の共存がカルサイトの生成を助長した可能性がある。このような試料ではあるものの、Sm の EXAFS 測定を行った（図 3.3-32）。k 空間ではカルサイトとアラゴナイト中の Sm の EXAFS 振動にわずかな差があり、k = 4.7, 6.2 および 7.8 Å 付近で位相のずれがみられる。この特徴はフーリエ変換した R 空間で明瞭であり、アラゴナイトの方で第一近接のピークがやや長距離側にシフトしている。このことは、FEFF プログラムを用いた解析で得られたパラメータでフィットさせて得た構造パラメータ（表 3.3-11）からも同様である。アラゴナイトの Sm-O シェルの配位数はカルサイトのものと比べてわずかに増加していたが、誤差の範囲内であった。しかしながら、結合距離はアラゴナイトで有意に増加していた。このことは、アラゴナイト共沈試料中でカルサイトが共存していることも含めて考えると、カルサイト中に比べてアラゴナイト中の Sm の配位数や結合距離が大きくなっていることを示すと考えられる。これらの議論を 3 価のアクチニドイオンに拡張すると、例えば Eu^{3+}と f 電子数が同じ Am^{3+}を比較した場合、配位数 6 の Eu^{3+}と Am^{3+}のイオン半径はそれぞれ 0.947 Å と 0.975 Å であり、Am^{3+}のイオンサイズの方が大きいため、カルサイトにはより適合しにくくなる可能性がある。一方、配位数 8 の Eu^{3+}と Am^{3+}のイオン半径はそれぞれ 1.066 Å と 1.09 Å であり、8 配位の Ca^{2+}のイオン半径は 1.12 Å であることから、アラゴナイトには Am^{3+}の方がより適合することになる。これらのことを考えると、カルサイトやアラゴナイトに対する REE や 3 価アクチニド元素の分配挙動については、鉱物ごとに系統的に議論していく必要があることを示す。

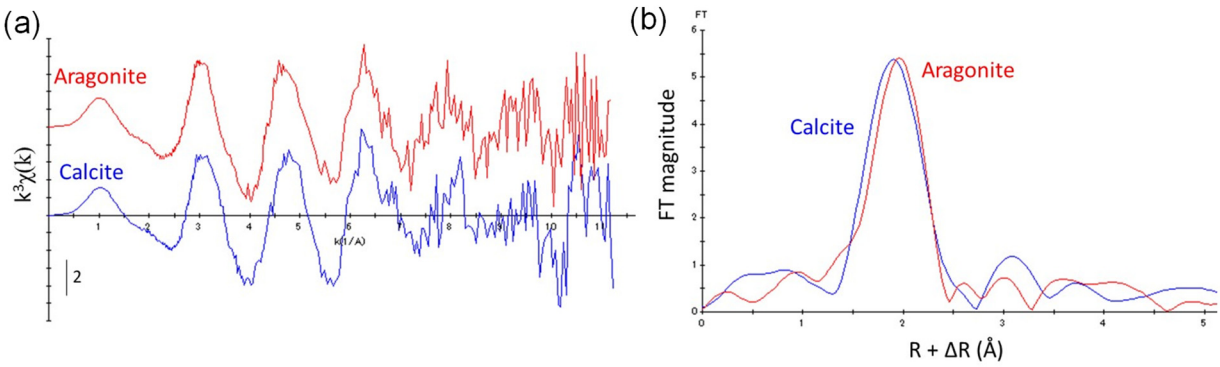


図3.3-32　カルサイト共沈試験およびアラゴナイト共沈試験により得られた固相中のSmの EXAFS解析結果　（上）k空間、（下）R空間

表3.3-11　FEFFプログラムを用いた解析で得られたパラメータでフィットさせて得られたSmの構造パラメータ

Sample	k range (Å^{-1})	Shell	CN	R (Å)	Δ E_0 (eV)	σ^2 (×10^3 Å)	Residual (%)
Sm in calcite	2.0~9.5	Sm-O	6.6 ± 0.5	2.393 ± 0.008	-2.3 ± 2.1	10*	1.0
		Sm-C	2.2 ± 2.0	3.567 ± 0.083		10*	
Sm in aragonite	2.0~9.5	Sm-O	6.8 ± 0.6	2.438 ± 0.016	0.2 ± 1.5	10*	0.5
		Sm-C	1.5 ± 1.9	3.559 ± 0.104		10*	

(3) 高炭酸濃度の地下水が岩石中の核種移行に及ぼす影響の評価技術の開発

1) 高炭酸条件下でのアクチニドの収着データ取得とモデル評価

わが国には溶存無機炭酸(Dissolved Inorganic Carbon; DIC)濃度が比較的高い地下水環境が存在するため、そのような環境ではベントナイト間隙水中の炭酸濃度が長期にわたり高濃度で継続する可能性がある。炭酸イオン共存下ではアクチニド元素は炭酸錯体を形成し、岩石やベントナイト中に対する K_d は低下することが知られている(Marques Fernandes et al., 2008, 2012; Tachi et al., 2014)。しかしながら、比較的炭酸濃度が高い条件での収着データや、そのメカニズムに関する知見は限られている。原子力発電環境整備機構が公表した包括的技術報告書（原子力発電環境整備機構, 2021）においても高炭酸濃度が被ばく線量に与える影響の評価が課題となっている。例えば、高炭酸濃度では U の価数が 6 価になり、岩石やベントナイトに対する K_d が低下することにより、U が被ばく線量評価において支配的となる結果が得られている。

このような課題を踏まえ、幌延の泥岩において収着への寄与が大きい粘土鉱物であるモンモリロナイトとイライトのうち、収着データの乏しいイライトを対象に、炭酸共存系でのアクチニドの収着データ取得を行ってきた。加えて、イライトに対する収着のメカニズムを収着モデルを用いて再現するとともに、先端的な表面分析手法である時間分解型レーザー蛍光分光法(Time-Resolved Laser Fluorescence Spectroscopy; TRLFS)を用いて収着形態の分析を行ってきた。また、アクチニドの幌延の泥岩に対する収着試験を実施し、モンモリロナイトとイライトへの収着反応に基づいた加成則(Component Additivity; CA)モデル(Tachi et al., 2011, 2016)を用いて、得られた K_d の pH および炭酸濃度依存性の再現可能性を検討してきた。

令和 3 年度は、3 価アクチニド元素の化学アナログである Eu(III)と U(VI)を対象として TRLFS 測定による収着形態の分析を行った（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2022）。その結果、pH や炭酸濃度の変化に伴って蛍光スペクトルの形状が変化しており、表面化学種の変化を反映している可能性が示された。しかしながら、TRLFS 測定試料中には複数の表面化学種が存在する可能性があり、それらの蛍光スペクトルの形状や蛍光寿命はそれぞれ異なると考えられ、存在する化学種の数や濃度を決定することは容易ではない。その解決手法として、多変量解析手法の一つであるパラレルファクター(PARAllel FACtor; PARAFAC)解析が有効である。PARAFAC 解析はもともと計量化学の分野で用いられてきた手法であり(Andersson and Bro, 2000)、近年は TRLFS データの解析に適用されている(Saito et al., 2010, 2015b, 2017; Ishida et al., 2012; Drobot et al., 2015; Sasaki et al., 2016)。TRLFS データを PARAFAC 解析することにより、各化学種の蛍光スペクトルの形状、蛍光寿命および相対強度を抽出可能となる。令和 4 年度は、Eu(III)および U(VI)を対象に収着データの拡充をしつつ、TRLFS 測定を行い、TRLFS データの PARAFAC 解析を行って表面化学種の pH や炭酸濃度の変化に伴う変化を解析した。さらに、収着モデリングの結果と PARAFAC 解析の結果の比較を行い、収着モデリングの妥当性を検証した。加えて、U(VI)を対象としての幌延の泥岩に対する収着試験を実施し、CA モデルの適用性を評価した。

① Eu(III)を用いた収着試験

バッチ収着試験により炭酸共存下でイライトに対して Eu(III)を収着させて K_d を取得した。バッチ収着試験は令和 2 年度（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2021）の手順と同様に行った。収着データを拡充するため、令和 4 年度は 3 価のランタニド元素である Sm(III)も用いて試験を行った。バッチ収着試験において、支持電解質は 0.5 M NaCl とし、炭酸共存条件では $NaHCO_3/Na_2CO_3$ 溶液を加えて炭酸濃度を 10 - 50 mM に設定した。また、pH は炭酸非共存条件で 5.0 - 12.0、炭酸共存条件で 8.5 - 11.2 とした。初期 Eu(III)または Sm(III)

濃度は 6.2 - 7.4 × 10^{-7} M、固液比は炭酸非共存条件で 0.19 g/L、炭酸共存条件で 0.94 g/L であった。得られた K_d の pH および炭酸濃度依存性は 2SPNE SC/CE モデル(Bradbury and Baeyens, 2009a, 2009b)を用いて収着モデリングを行い、表面化学種の推定を行った。TRLFS 測定用試料はバッチ収着試験により調製し、遠心分離により液相を除去した後、固相を回収してアクリル製の TRLFS 測定試料用ホルダーに充填して乾燥させた。TRLFS 測定用試料は十分な Eu の信号強度を得るために初期 Eu 濃度を高くした。支持電解質は 0.5 M NaCl とし、炭酸共存条件では $NaHCO_3$ / Na_2CO_3 溶液を加えて炭酸濃度を 20 mM に設定した。pH は 8.5 - 10.5 とした。初期 Eu(III)濃度は 3.0 × 10^{-4} M、固液比は 9.4 g/L であった。TRLFS 測定は令和 3 年度（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2022）の手順と同様に行った。得られた TRLFS データはベースライン補正と規格化を行った後に三次元（溶液条件 × 波長 × 時間）に配列し、*N*-way toolbox for MATLAB (Andersson and Bro, 2000)を用いて PARAFAC 解析を行った。蛍光の減衰には指数関数的な制約、蛍光スペクトルと分布には非負の制約を設定した。適切な要素の数の決定には残差平方和(Sum of Squared Residuals; SSR)とコアコンシステンシー(Core Consistency; CC)を指標とした。

図 3.3-33 にバッチ収着試験の結果および収着モデルによる再現計算結果を示す。K_d は炭酸濃度の上昇に伴って低下する傾向がみられた。また、炭酸共存下では pH 8 - 10 において K_d が低下し、pH 10 - 11 において K_d が上昇していた。Sm(III)の K_d の挙動は Eu(III)のものと同様であった。2SPNE SC/CE モデルによる解析の結果（図 3.3-33）、pH 8 - 10 では炭酸三元錯体（≡S^SOEuCO_3 および≡S^SOEu$(CO_3)_2^{2-}$）が生成しており、炭酸濃度の上昇に伴って S^SOEu$(CO_3)_2^{2-}$ の寄与が大きくなることが確認された。また、pH 10 - 11 における K_d の上昇は、加水分解した Eu が収着した表面化学種（水酸化物三元錯体）である≡S^SOEu$(OH)_2$ の寄与によるものであることが確認された。

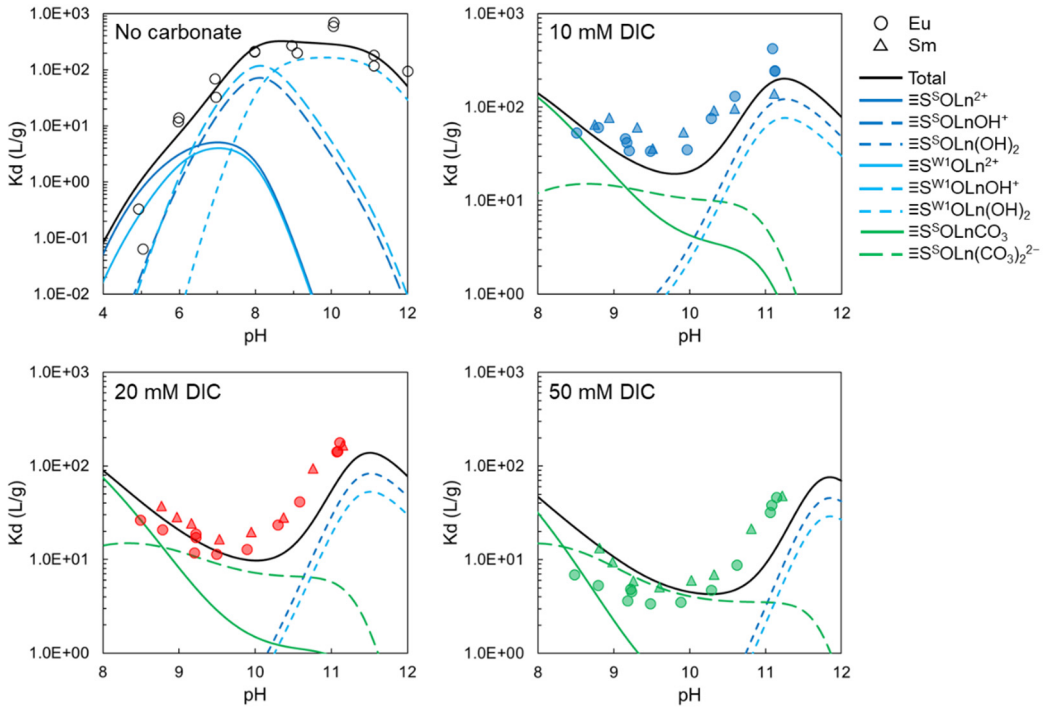


図3.3-33　イライトに対するEuまたはSmのK_dのpHおよび炭酸濃度依存性の2SPNE SC/CEモデルによる解析結果

TRLFS 測定により得られた蛍光スペクトルを図 3.3-34 に示す。得られた TRLFS データを PARAFAC 解析した結果、SSR および CC の値から、要素の数は 3 であると考えられた。要素の数を 3 (Comp1 - 3)としたときのそれぞれの要素の蛍光スペクトルを図 3.3-35 に示す。Comp1 と Comp2 は蛍光スペクトルの形状が似ているが、$^5D_0 \rightarrow {}^7F_1$ 遷移に由来する、対称性に感度のある 616 nm のピーク(Plancque et al., 2003)は Comp1 の方がわずかに高かった。また $^5D_0 \rightarrow {}^7F_4$ 遷移に由来するピークは Comp2 の方が高かった。蛍光スペクトルの形状から、Comp3 はノイズであると考え、以降は要素の数を 2 として解析を行った。なお、Comp1 および Comp2 の蛍光スペクトルの形状は、沈殿である $Eu(OH)_3$ のもの(Sasaki et al., 2016)とは異なっており、沈殿生成の影響は無視できると考えられた。

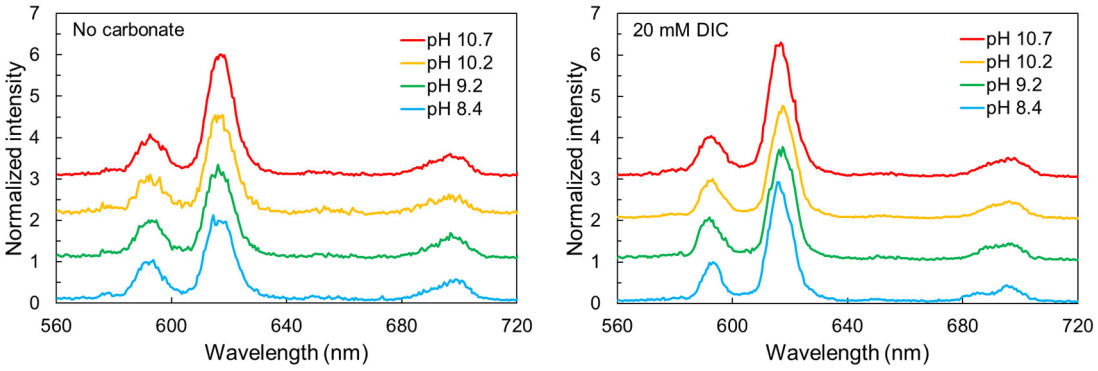


図3.3-34　TRLFS測定により得られたイライトに収着したEuの蛍光スペクトル

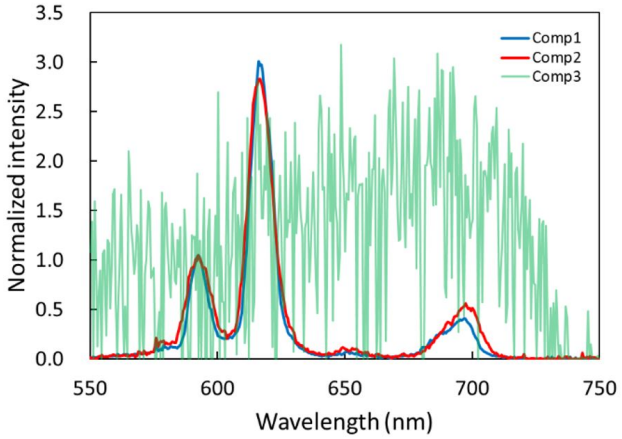


図3.3-35　PARAFAC解析により得られた各要素の蛍光スペクトル

PARAFAC 解析により得られた、Comp1 および Comp2 の蛍光の減衰プロファイルを図 3.3-36 に示す。Comp1 および Comp2 の蛍光寿命はそれぞれ 460 および 73 μs であった。また、Comp1 および Comp2 の存在割合の pH および炭酸濃度依存性を図 3.3-36 に示す。Comp2 は炭酸非共存条件では pH 8 - 11 において支配的であり、炭酸共存条件(20 mM DIC)では pH 10 - 11 で割合が増加していた。一方、Comp1 は炭酸共存条件の pH 8 - 10 で支配的であった。Comp2 の pH および炭酸濃度依存性は、収着モデルで予測された水酸化物三元錯体の挙動と整合的である。一方、Comp1 の pH および炭酸濃度依存性は、収着モデルで予測された炭酸三元錯体の挙動と類似している。なお、PARAFAC 解析から予測された表面化学種の割合は、個々の表面化学種の量子収率

が不明であるため、正確な比率と直接関連づけることができないことに留意する必要がある。Comp1 は Comp2 と比較して相対的に蛍光寿命が長く、これは Eu 原子に炭酸イオンが配位したことによると考えられる(Stumpf et al., 2002; Marques Fernandes et al., 2016)。以上より、TRLFS データを PARAFAC 解析することによって推定された表面化学種の挙動は収着モデリングにより推定されたものと整合的であり、収着モデリングに分光学的観察に基づく根拠を与えることができた。

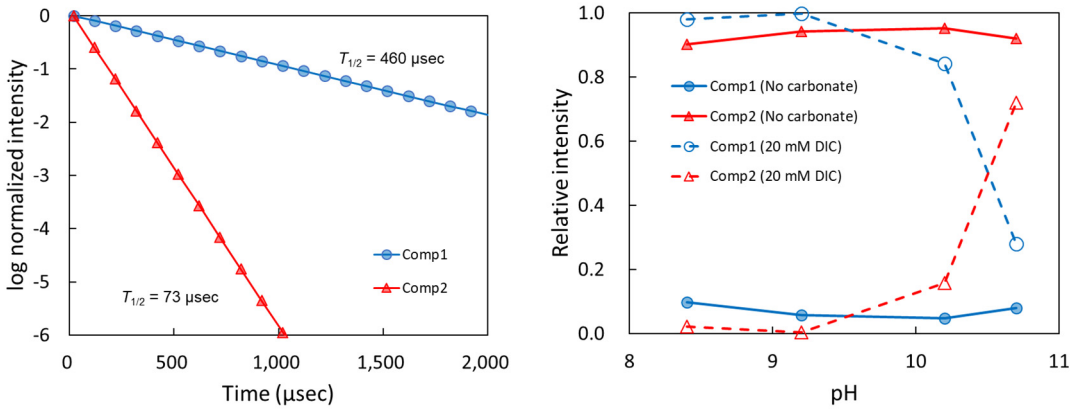


図3.3-36　（左）PARAFAC解析により得られた各要素の蛍光の減衰プロファイルおよび（右）各要素の存在割合のpHおよび炭酸濃度依存性

② U(VI)を用いた収着試験

バッチ収着試験により炭酸共存下でイライトに対して U(VI)を収着させて K_d を取得した。バッチ収着試験は令和 2 年度（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2021）の手順と同様に行った。バッチ収着試験において、支持電解質は 0.1 M NaCl とし、炭酸共存条件では $NaHCO_3$/Na_2CO_3 溶液を加えて炭酸濃度を 1 - 20 mM に設定した。また、pH は 7.5 - 10.5 とした。初期 U(VI)濃度は 1.0×10^{-5} M または 1.0×10^{-5} M、固液比は 50 g/L とした。得られた K_d の pH および炭酸濃度依存性は①と同様に 2SPNE SC/CE モデル(Bradbury and Baeyens, 2009a, 2009b)を用いて収着モデリングを行い、表面化学種の推定を行った。極低温(Low-Temperature; LT)-TRLFS 測定用試料はバッチ収着試験により調製し、遠心分離により液相を除去した後、固相を回収して乾燥・粉末化した後、銅製の LT-TRLFS 測定試料用ホルダーに充填した。LT-TRLFS 測定は令和 3 年度（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2022）の手順と同様に行った。LT-TRLFS データの PARAFAC 解析は①と同様の手順で行った。

図 3.3-37 にバッチ収着試験の結果および 2SPNE SC/CE モデルによる再現結果を示す。K_d は pH 7.5 - 9.5 にかけて低下し、その後上昇していた。また、K_d は炭酸濃度の上昇に伴って低下していた。これらの傾向は炭酸三元錯体（$\equiv S^sOUO_2CO$ および $\equiv S^sOUO_2(CO_3)_2^{3-}$）の生成を仮定することで、2SPNE SC/CE モデルで再現することができた。

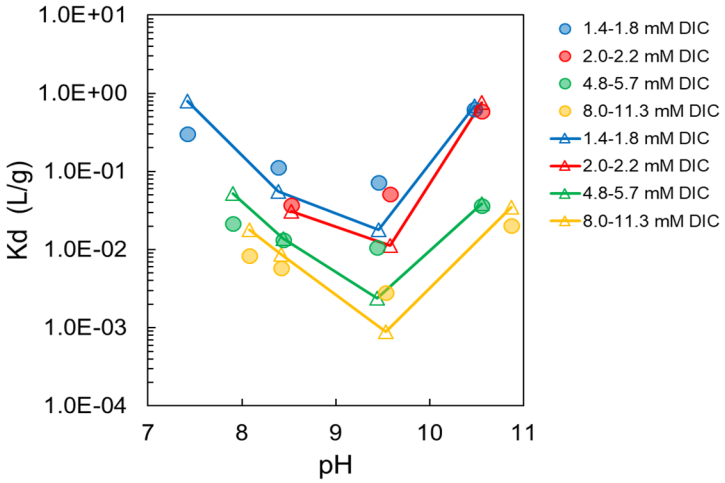


図3.3-37　イライトに対するU(VI)のK_dのpHおよびDIC濃度依存性の2SPNE SC/CEモデルによる再現結果

図 3.3-38 に 2SPNE SC/CE モデルから予測された表面化学種の存在割合の pH および炭酸濃度依存性を示す。pH 8.5 において表面化学種は≡$S^sOUO_2(CO_3)_2^{3-}$が支配的であり、炭酸濃度の上昇に伴ってその割合は徐々に増加していた。初期 U(VI)濃度を 20 μM とした試験でも、表面化学種の変化傾向は、初期 U(VI)濃度を 10 μM とした試験と同様だった。pH 9.5 では、炭酸三元錯体の≡$S^sOUO_2(CO_3)_2^{3-}$と水酸化物錯体の≡$S^sOUO_2(OH)_3^{2-}$が支配的な表面化学種となり、炭酸濃度の上昇に伴って≡$S^sOUO_2(CO_3)_2^{3-}$の割合は増加し、≡$S^sOUO_2(OH)_3^{2-}$の割合は減少していた。pH 10.5 では水酸化物錯体の≡$S^sOUO_2(OH)_3^{2-}$が唯一の支配的な表面化学種であった。

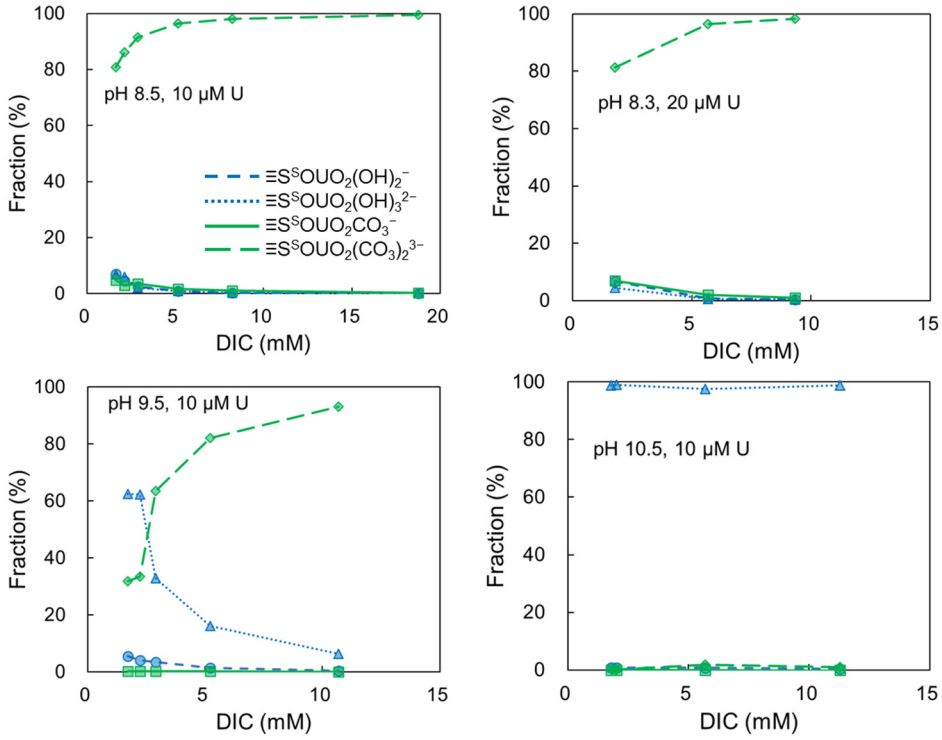


図3.3-38　2SPNE SC/CEモデルから予測された表面化学種の存在割合のpHおよびDIC濃度依存性

図 3.3-39 に様々な pH および DIC 濃度で U(VI)を収着させた固相試料を LT-TRLFS 測定して得られた蛍光スペクトルを示す。pH 8.5 では、炭酸濃度の上昇に伴ってブロードなピークから 2 または 3 本の明瞭なピークに変化しており、複数の表面化学種が共存してそれらの存在割合が変化していることが示唆された。pH 9.5 および pH 10.5 においても 2 または 3 本の明確なピークが確認され、DIC 濃度が高いほどピークがより明瞭になった。

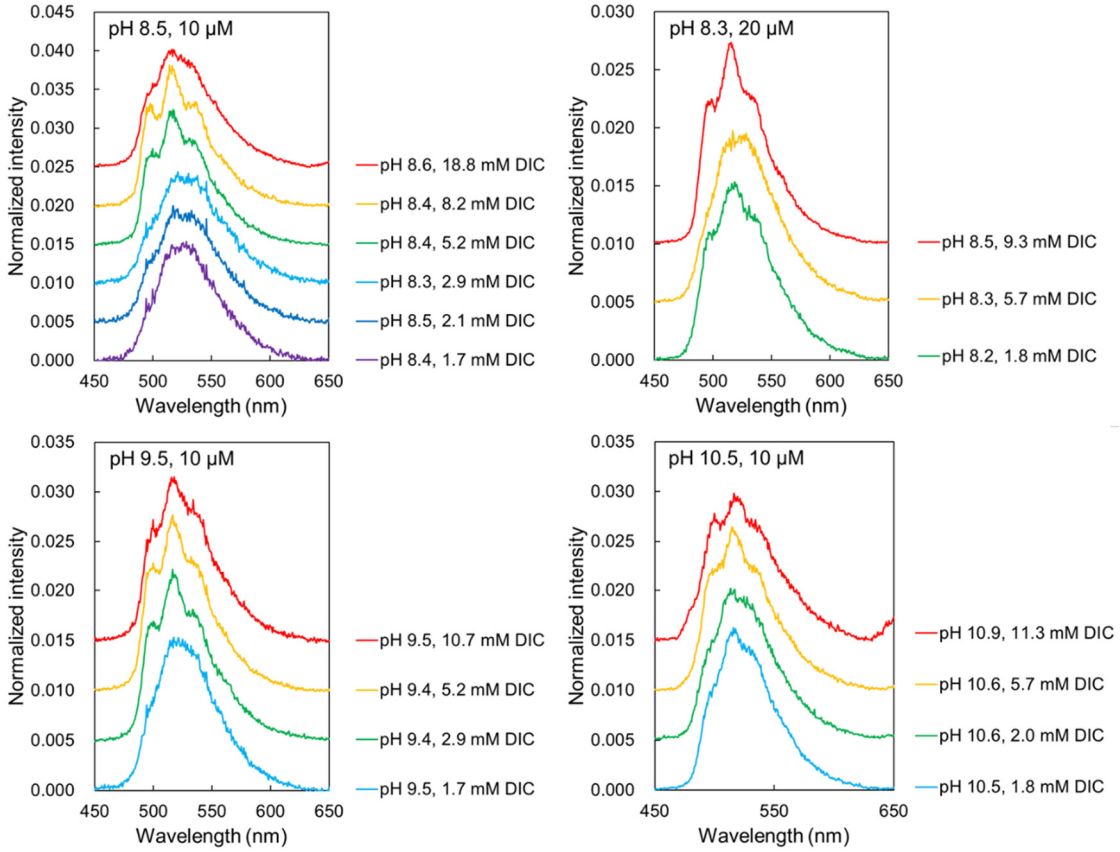


図3.3-39　LT-TRLFS測定により得られたイライトに収着したU(VI)の蛍光スペクトル

PARAFAC 解析の結果、SSR および CC の値から、要素の数は 2 または 3 とすることが妥当と考えられた。収着モデリングでは炭酸三元錯体の≡$S^{s}OUO_2CO_3^-$と≡$S^{s}OUO_2(CO_3)_2^{3-}$および水酸化物錯体の≡$S^{s}OUO_2(OH)_3^{2-}$の 3 種類が主要な表面化学種と推定されたことから、ここでは要素の数を 3 と仮定した。図 3.3-40 に PARAFAC 解析から得られた 3 要素(Comp1 - 3)の蛍光スペクトルの形状および蛍光の減衰プロファイルを示す。Comp1 の蛍光スペクトルは長波長側にピークを持ち、蛍光寿命は最も短く 38 秒であった。一方、Comp2 蛍光スペクトルは短波長側にピークを持ち、蛍光寿命は最も長く 233 秒であった。また、Comp3 の蛍光スペクトルは Comp2 のものと似た形状であるが、蛍光寿命は 69 秒と中程度であった。既往の報告(Bernhard et al., 2001; Wang et al., 2004; Steudtner et al., 2011; Tits et al., 2011; Lee and Yun, 2013; Richter et al., 2016; Philipp et al., 2019)を参考とすると、炭酸を配位した U(VI)の表面化学種のピーク位置は、加水分解した U(VI)の表面化学種に比べて青方偏移を起こすと考えられる。したがって、Comp2 および Comp3 は炭酸三元錯体、Comp1 は水酸化物錯体に割り当てられる可能性がある。また、水酸化物イオンは炭酸イオンよりも強いクエンチャーであると考えられており(Philipp et al., 2019)、水酸化物錯体の蛍光寿命は相対的に短いと考えられる。Comp1 は 3 成分の中で最も蛍光

寿命が短いことから、蛍光寿命の観点から考えても Comp1 が水酸化物錯体に帰属すると考えられる。

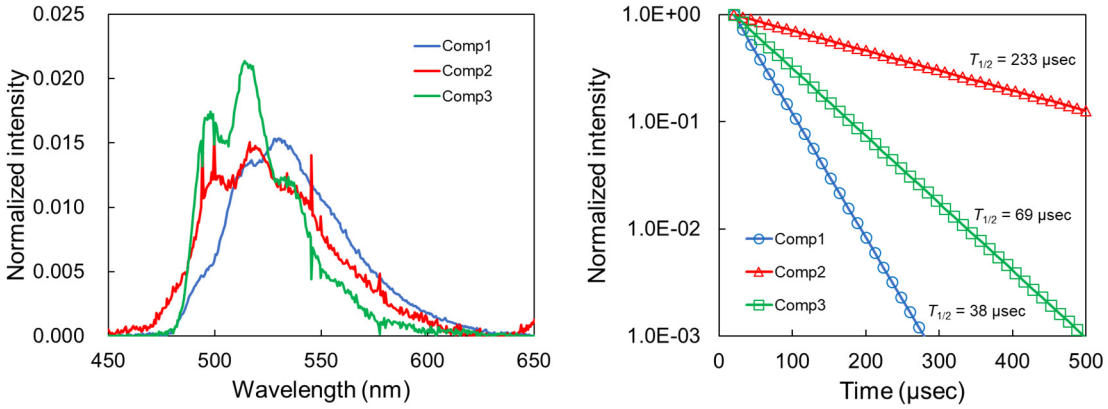


図3.3-40　（左）PARAFAC解析から得られた各要素の蛍光スペクトルおよび（右）蛍光の減衰プロファイル

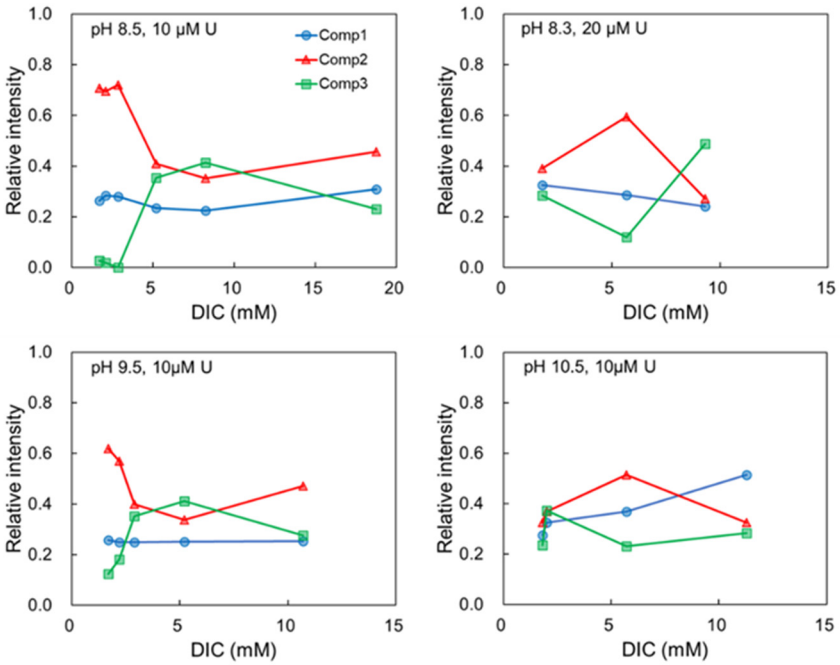


図3.3-41　PARAFAC解析から得られた各要素の存在割合のpHおよびDIC濃度依存性

収着モデリングと同様に、PARAFAC 解析から予測された表面化学種の存在割合の pH および炭酸濃度依存性を調べた（図 3.3-41）。Comp1 の割合は pH 8.5 および pH 9.5 において炭酸濃度の上昇に伴って減少しており、収着モデリングで予測された≡$S^{s}OUO_2(OH)_3^{2-}$の傾向と類似している。一方、pH 8.5 および pH 9.5 において、Comp3 の存在割合は炭酸濃度の上昇に伴って増加しており、この傾向は収着モデリングで予測された≡$S^{s}OUO_2(CO_3)_2^{3-}$の傾向と類似している。また、図 3.1-40 のスペクトル形状と蛍光寿命から Comp2 は炭酸三元錯体であると考えられ、≡$S^{s}OUO_2CO_3^{-}$に割り当てられる。なお、Eu(III)の場合と同様に、PARAFAC 解析から予測された表面化学種の割合は、個々の表面化学種の量子収率が不明であるため、正確な比率と直接関連づけることができないことに留意する必要がある。以上より、U(VI)においても TRLFS データの

PARAFAC 解析により収着モデリングに分光学的観察に基づく根拠を与えることができた。

炭酸共存下での幌延の泥岩に対する U(VI)収着試験の結果を図 3.3-42 に示す。幌延の泥岩においても岩石中にバックグラウンドとして U が存在することが確認されたため、イライトと同様に 250 mM $NaHCO_3/Na_2CO_3$ 溶液(pH 10)で洗浄してからバッチ収着試験を行った。イライトと同様に、K_d は pH 7.5 - 9.5 にかけて低下し、その後上昇していた。また、K_d は炭酸濃度の上昇に伴って低下していた。これは、幌延の泥岩における収着が主に粘土鉱物によるものであることを示唆している。幌延の泥岩中のイライトとモンモリロナイトの含有率をそれぞれ 10 および 16 wt %(Tachi et al., 2011)と仮定し、CA モデルにより K_d の再現計算を行った。イライトに対する U(VI)の収着パラメータは本事業により得られた値、モンモリロナイトに対する U(VI)の収着パラメータは Marques Fernandes et al. (2012)の報告値を用いた。再現計算の結果を図 3.3-42 中に線で示す。CA モデルにより、K_d の pH および炭酸濃度依存性を良好に再現することができた。また、pH 10.5 においてやや過小評価となっているものの、K_d の値も概ね良好に再現することができた。

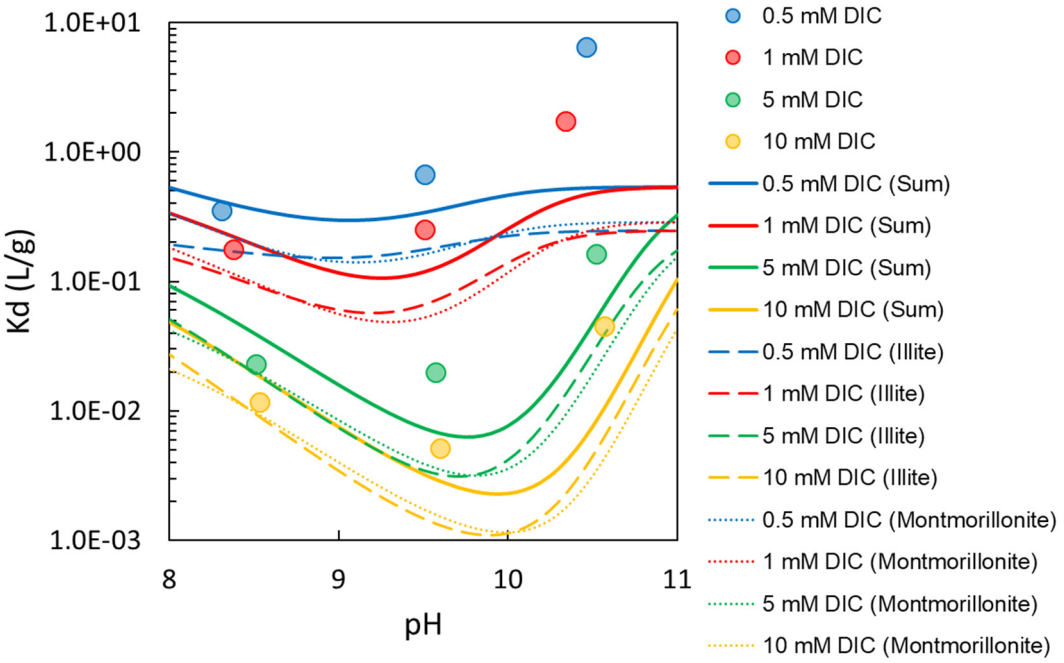


図3.3-42　幌延の泥岩に対するU(VI)のK_dのpHおよびDIC濃度依存性とCAモデルによる再現結果

これまでに、データの不足している炭酸共存下でのイライトに対するアクチニド元素の収着データを実験で取得し、収着パラメータを導出した。加えて、一部元素では TRLFS 測定および PARAFAC 解析を行い、収着パラメータの妥当性を確認した。これにより、炭酸共存がイライトに対するアクチニド元素の収着に与える影響を収着モデルにより定量的に評価することが可能となった。一方、炭酸共存下でのモンモリロナイトに対する収着パラメータは既往の報告データをもとに導出した。これらのイライトおよびモンモリロナイトに対する収着パラメータを用いて、CA モデルによる幌延の泥岩に対するアクチニド元素の収着の評価の適用可能性を検討した。その結果、一部元素や条件によってはやや実測値との乖離があるものの、CA モデルは幌延の泥岩に対するアクチニド元素の収着の pH および DIC 濃度依存性を良好に再現できることを確認した。今後、対象元素や岩石を増やし、適用事例を拡充してモデルの有効性を評価することが課題である。

2) 高炭酸条件での核種移行現象についての計算科学手法による評価

炭酸共存下における岩石中の核種の収着・拡散挙動を解明するため、主要鉱物であるモンモリロナイトと水溶液の共存系を対象に、古典分子動力学(Molecular Dynamics; MD)計算を用いてアクチニド元素の収着・拡散挙動を定量的に評価することは重要な課題である。先行事業（日本原子力研究開発機構, 2018）では、アクチニド元素としてU(IV)のウラニルイオン(UO_2^{2+})および Np(V)のネプツニルイオン(NpO_2^{+})を対象に、モンモリロナイト層間における拡散挙動を評価した。また、より現実的な間隙構造における核種の挙動を評価するため、層間間隙および粒子間間隙が共存するスーパーセルを試作し、各種イオンの層間への侵入挙動について検討するとともに、炭酸イオン(CO_3^{2-})の存在を考慮してCO_3^{2-}を含む系でのシミュレーションを試みた。これらの試解析を踏まえた上で、本事業では、2層・3層・4層水和状態の層間間隙を含むスーパーセルを作製し、UO_2^{2+}とCO_3^{2-}が共存する系、およびNpO_2^{+}とCO_3^{2-}が共存する系を対象に2 nsまでのシミュレーションを実施して、溶存イオンの拡散履歴を観察することで、炭酸共存下における拡散挙動への影響について評価した。その際、これらのアクチニド元素とCl^-が共存する系についてもシミュレーションし、CO_3^{2-}が共存する系と比較して、拡散挙動の相違について考察した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019; 2020）。その結果、2 nsのシミュレーション時間では系が平衡状態に達しているかどうかが確認できず、より長時間のシミュレーションが必要であることが認識された。そこで令和3年度は、UO_2^{2+}とCO_3^{2-}が共存する系、およびUO_2^{2+}とCl^-が共存する系を対象に、2層・3層・4層・5層水和状態の層間間隙を含むスーパーセルで10 nsまでのシミュレーションを実施し、イオンの層間間隙への侵入履歴を評価することにより、系が平衡状態に達したと判断し得る時間スケールについて検討した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2021）。令和4年度は、UO_2^{2+}の代わりにNpO_2^{+}が共存する系を対象として、令和3年度と同じ体系およびシミュレーション時間で計算し、UO_2^{2+}共存系の場合と比較することにより、炭酸共存下における層間間隙へのアクセス性の相違について考察した。

令和3年度までの計算体系を踏まえ、スーパーセルは粘土層とその層間間隙、および粘土層のエッジ表面に接する粒子間間隙で構成した。層間間隙（以下、層間内）には層間間隙水（以下、層間水）が、また粒子間間隙（以下、層間外）には粒子間間隙水（以下、間隙水）が存在する。また粘土鉱物は、層電荷0.33のNa型モンモリロナイトとした。

$$Na_{1/3} \cdot (Al_{5/3}Mg_{1/3})Si_4O_{10}(OH)_2 \cdot nH_2O \qquad (3.3\text{-}6)$$

ここで、nは層電荷の電荷バランス補償するために存在する層間のNa^+ 1個に対して3n個の水分子が層間に存在することを表しており、n = 5, 7.5, 10.0および12.5は、それぞれ2層、3層、4層および5層水和状態に相当する。間隙水-層間水共存系の計算は、温度298.15 Kの*NVT*アンサンブルで実施した。間隙水に接するエッジ表面は、[0 1 0]面を想定し(Rotenberg et al., 2007)、エッジ表面に現れるSi^{4+}, Al^{3+}およびMg^{2+}には、それぞれOH^-基、OH^-基とH_2O、およびH_2Oを計算初期に付加した。また、エッジ表面に付加するOH^-基の個数を調整することにより、系全体の電荷バランスをとった。スーパーセルの構造作製は平成31年度（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2020）のものと同様に行った。

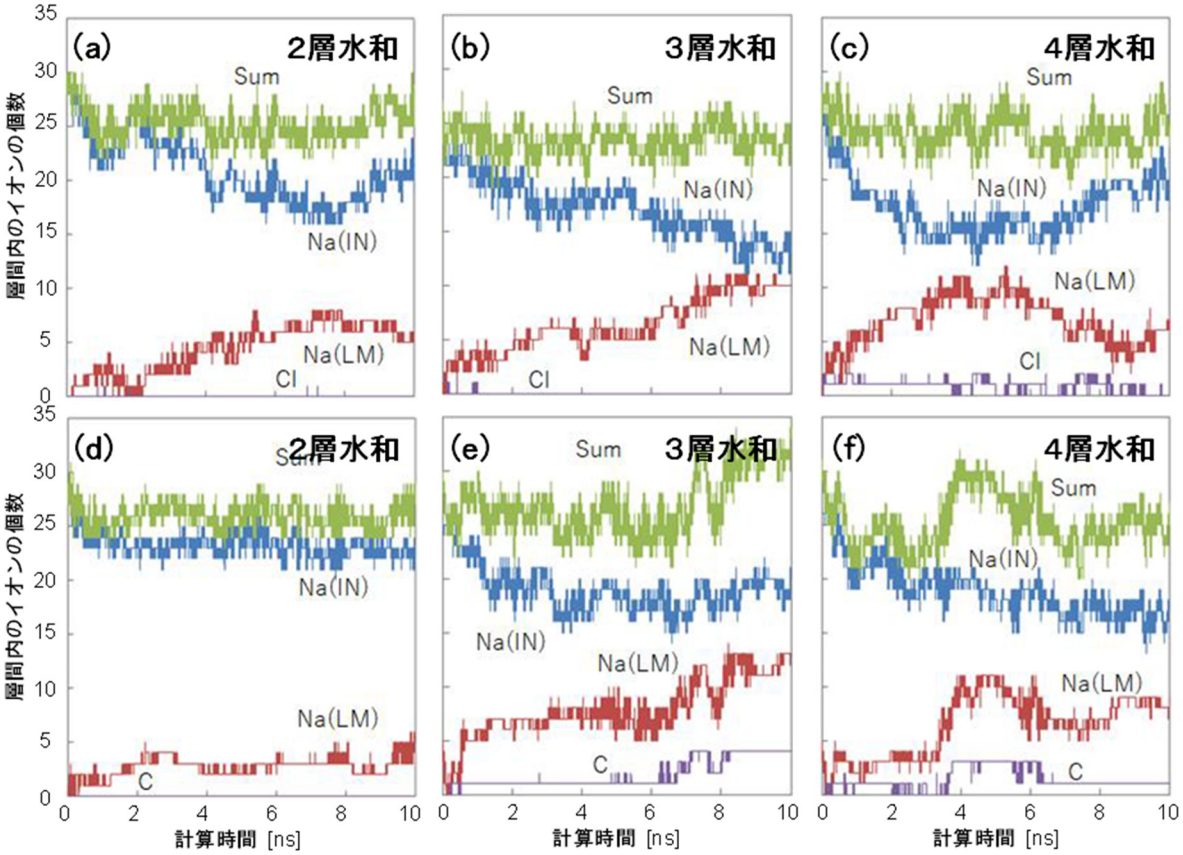


図3.3-43　初期状態として層間内にNa⁺が32個存在し、層間外にNa⁺が8個・Cl⁻が8個共存する系（ケース1）、および層間外にNa⁺が8個・CO_3^{2-}が4個共存する系（ケース2）の10 nsにわたる溶存イオンの層間内における個数履歴　(a) ケース1の2層水和状態、(b) ケース1の3層水和状態、(c) ケース1の4層水和状態、(d) ケース2の2層水和状態、(e) ケース2の3層水和状態、(f) ケース2の4層水和状態

図3.3-43は、初期状態として層間内に対イオンのNa⁺が32個存在し、層間外にNa⁺とCl⁻がそれぞれ8個共存する系の2層・3層・4層水和状態（ケース1、図3.3-43(a), (b)および(c)）、および層間外にNa⁺が8個・CO_3^{2-}が4個共存する系の2層・3層・4層水和状態（ケース2、図3.3-43(d), (e)および(f)）の10 nsにわたる溶存イオンのシミュレーション履歴を評価した図である。なお、それぞれの系の5層水和状態も評価しているが、4層水和状態の場合と基本的に同じ傾向を示すため、本報告では割愛した。図中の青色の軌跡は、計算初期に対イオンとして層間内に存在していたNa⁺（以下Na_{in}とする。図中ではNa(IN)と表示）が、その後の時間経過で層間内に存在している個数の変化を表し、また茶色の軌跡は、計算初期に層間外に存在していたNa⁺（以下Na_{out}とする。図中ではNa(LM)と表示）が、層間内に存在する個数の変化を表している。緑色の軌跡は、それらの合計数をプロットしたものである。計算初期に層間外に存在していたCl⁻あるいはCO_3^{2-}が、その後の時間経過で層間内に存在している個数の変化は、紫色でプロットした。いずれのケースおよび水和状態でも、時間の経過とともに初期に層間内に存在したNa⁺と層間外に存在したNa⁺が拡散によって交換し合い、初期の時間帯には平衡状態に向かって遷移していることが確認できる。しかしながら、平衡状態に達してからの挙動は、どちらのケースでも水和状態によって顕著に異なっていた。本解析の計算体系はいずれも、初期状態としてNa⁺が層間内に32個、層間外に8個存在する。したがって、完全にイオンが混ざり合った状態（平衡状態）において、理想的には層間内に

(25.6·Na_{in} + 6.4·Na_{out})個、層間外に(6.4·Na_{in} + 1.6·Na_{out})個のNa^+が存在することが期待される。また、後ほど言及するように、層間内のNa^+の合計数（緑色の軌跡）が図のように何らかの理由により25個程度で推移することを考慮すると、平衡状態において層間内には(20·Na_{in} + 5·Na_{out})個程度、層間外には(12·Na_{in} + 3·Na_{out})個程度のNa^+が存在することが期待される。しかしながら、その後の層間内におけるNa_{in}およびNa_{out}の個数の挙動は、いずれの水和数の場合も安定していない。その原因として、イオンの個数に関する統計が十分でないこと、またシミュレーション時間が十分でないこと等が考えられる。一方、ケース1のCl^-の挙動を観察すると、2層・3層水和状態では層間幅が比較的狭く、陰イオン排除の影響が強くなるために層間内への侵入は確認されないが、4層水和状態になると層間内への侵入が確認できる。また、ケース2のCO_3^{2-}の挙動をみると、3層水和状態でもCO_3^{2-}が層間内へ侵入している。これは、CO_3^{2-}がNa^+と錯体を形成し、中性化して移行したためである。このことは、図3.3-43(e), (f)において、CO_3^{2-}の層間内での存在数が増えている時間帯ではNa_{out}も増えており、高い相関を示していることからも確認できる。ちなみに、ケース1でみられるCl^-の層間内への侵入では、このような中性化は確認されず、単独での移行と考えられる。

ところで、層間内におけるNa^+の合計数の挙動（緑色の軌跡）を観察すると、層電荷との電荷バランスから考えて、陰イオン種が層間内に侵入していない状況では、合計数が32個の辺りでゆらぐものと推測できるが、10 nsのシミュレーション時間をみる限り、明らかに少ない量（25個程度）で推移していることが確認できる。Na型モンモリロナイト等の膨潤性粘土鉱物で観測されている浸透膨潤についてそのメカニズムを考えると、膨潤初期の層間幅が比較的狭い状況では層間内と層間外でイオン濃度に差があるために浸透圧が発生し、その圧力を低減させるように層間内に水分子が侵入して層間を押し広げる（須藤談話会編, 2000）。しかしながら、本解析では体積が一定値を取るように設定したシミュレーションであり、計算体系内の水分子の個数も一定である。したがって、層間内と層間外でイオン濃度差が生じていたとしても、水分子を増加させて層間幅を押し広げることはできない。そのため、層間内から層間外へイオンが移動することにより、電荷中性条件と浸透圧が競合するバランスで平衡が保たれている可能性が考えられる。これについては、さらに定量的な検証が必要である。

図3.3-44は、初期状態として層間内に対イオンのNa^+が32個存在し、層間外にUO_2^{2+}が8個・Cl^-が16個共存する系の2層・3層・4層水和状態（ケース3、図3.3-44 (a), (b)および(c)）、および層間外にUO_2^{2+}が8個・CO_3^{2-}が8個共存する系の2層・3層・4層水和状態（ケース4、図3.3-44 (d), (e)および(f)）の10 nsにわたる溶存イオンのシミュレーション履歴を評価した図である。平衡状態において、層間内への陰イオンの侵入を無視すると、層間内の陽イオンの個数は(21.3·Na^+ + 5.3·UO_2^{2+})個になることが期待される。また、図3.3-43の場合と同様に、1価陽イオンが25個程度で推移する場合は、(16.7·Na^+ + 4.2·UO_2^{2+})個程度になることが期待される。ケース3の解析結果をみると、3層・4層水和状態でUO_2^{2+}の存在数が若干多めに現れているが、Cl^-の層間内への単独での侵入を考慮すると、概ね整合的であるといえる。また、ケース4の結果をみると、層間内のNa^+と層間外のUO_2^{2+}との交換が、ケース3の場合に比べて起こりにくいことが確認できる。これは、各イオンの密度分布やスナップショットの解析結果を踏まえると、UO_2^{2+}とCO_3^{2-}は錯体を形成しやすく、層間外においてクラスター化している可能性があるためと考えられる。そのため、サイズ的に層間内へは侵入しにくくなり、たとえ小さいサイズの$[(UO_2)(CO_3)]^0$として侵入しても電気的に中性化しているため、Na^+との交換には寄与しないものと考えられる。

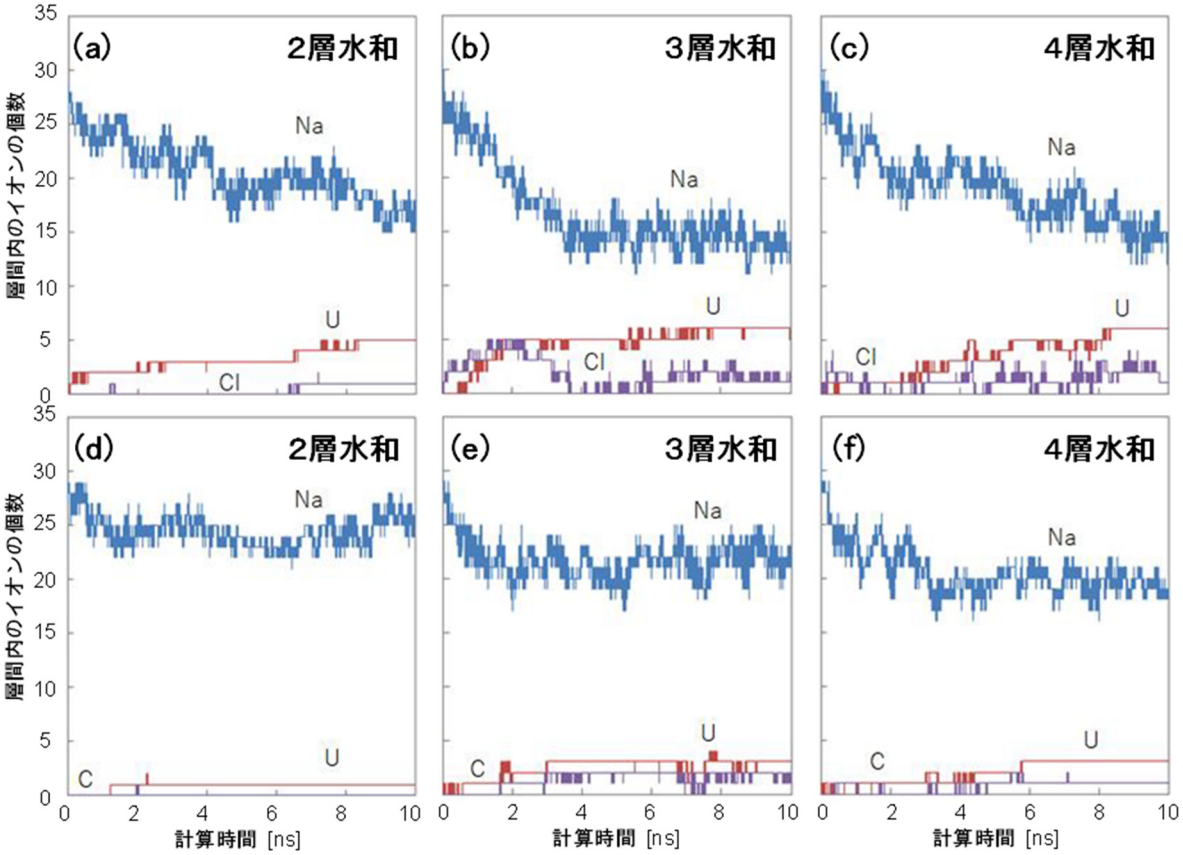


図3.3-44　初期状態として層間内にNa^+が32個存在し、層間外にUO_2^{2+}が8個・Cl^-が16個共存する系（ケース3）、および層間外にUO_2^{2+}が8個・CO_3^{2-}が8個共存する系（ケース4）の10 nsにわたる溶存イオンの層間内における個数履歴　(a) ケース3の2層水和状態、(b) ケース3の3層水和状態、(c) ケース3の4層水和状態、(d) ケース4の2層水和状態、(e) ケース4の3層水和状態、(f) ケース4の4層水和状態

図3.3-45は、初期状態として層間内に対イオンのNa^+が32個存在し、層間外にNpO_2^+が8個・Cl^-が8個共存する系の2層・3層・4層水和状態（ケース5、図3.3-45 (a), (b)および(c)）、および層間外にNpO_2^+が8個・CO_3^{2-}が4個共存する系の2層・3層・4層水和状態（ケース6、図3.3-45 (d), (e), (f)）の10 nsにわたる溶存イオンのシミュレーション履歴を評価した図である。平衡状態において、層間内への陰イオンの侵入を無視すると、層間内の陽イオンの個数は$(25.6 \cdot Na^+ + 6.4 \cdot NpO_2^+)$個になることが期待される。また図3.3-43の場合と同様に、1価陽イオンが25個程度で推移する場合は、$(20 \cdot Na^+ + 5 \cdot NpO_2^+)$個程度になることが期待されるが、シミュレーション結果をみると、どちらのケースも期待値と概ね整合していることが確認できる。2層水和状態では、どちらのケースも陰イオンの層間への侵入は確認されていない。各イオンの密度分布やスナップショットの解析から、ケース6ではNpO_2^+は単独で層間へ侵入し、平衡状態に達しているように思われる。一方、ケース5では、NpO_2^+は単独で侵入するが、まだ平衡状態には達していないように思われる。3層水和状態では、ケース5の場合、NpO_2^+もCl^-も層間への侵入が確認できるが、どちらも単独で存在すると考えられる。一方、ケース6では、NpO_2^+は単独で侵入し、CO_3^{2-}の侵入はほとんど確認できない。これは、各イオンの密度分布やスナップショットの解析において層間外で$[Na(NpO_2)(CO_3)]^0$や$[(NpO_2)(CO_3)]^-$等の錯体が確認されることから、サイズや電荷の影響で侵入が困難であるためと考えられる。また、NpO_2^+はこのような錯体形成に使われるため、単独での侵入も量的に制限

されていると思われる。4層水和状態では、ケース5の場合、NpO_2^+とCl^-は単独で層間へ侵入するだけでなく、$[(NpO_2)Cl]^0$の形でも侵入していると思われる。一方、ケース6では、NpO_2^+は単独での侵入だけでなく、$[Na_3(NpO_2)_2(CO_3)_2]^+$等の錯体形状で層間内に存在することが確認された。また、CO_3^{2-}は、単独での侵入はなく、$[Na(CO_3)]^-$の形での侵入が確認された。

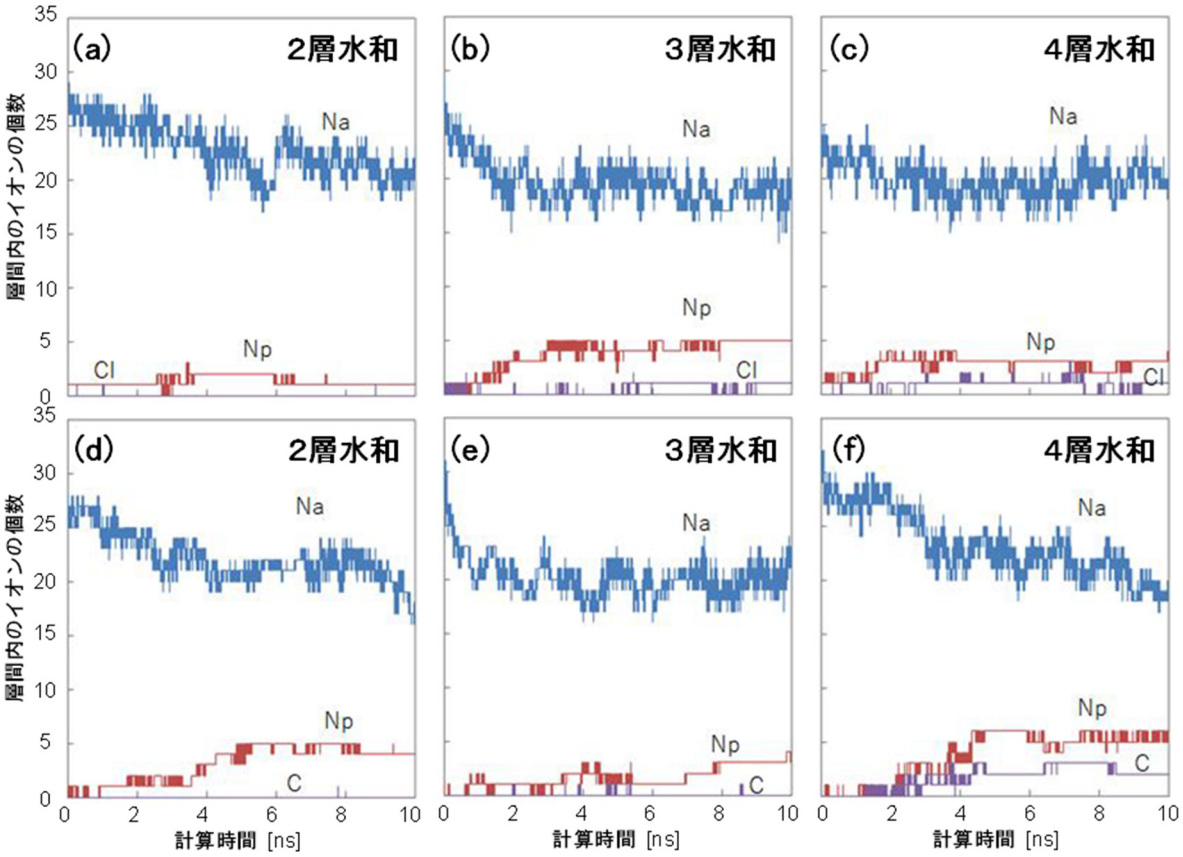


図3.3-45　初期状態として層間内にNa^+が32個存在し、層間外にNpO_2^+が8個・Cl^-が8個共存する系（ケース5）、および層間外にNpO_2^+が8個・CO_3^{2-}が4個共存する系（ケース6）の10 nsにわたる溶存イオンの層間内における個数履歴　(a) ケース5の2層水和状態、(b) ケース5の3層水和状態、(c) ケース5の4層水和状態、(d) ケース6の2層水和状態、(e) ケース6の3層水和状態、(f) ケース6の4層水和状態

以上の結果を踏まえ、UO_2^{2+}の系およびNpO_2^+の系の解析結果を総合的に俯瞰する。まず、陰イオンの価数が高いCO_3^{2-}は、Cl^-に比べて陽イオンと錯体を形成しやすく、層間内へも錯体の形で侵入している。一方、Cl^-の場合は、層間外で錯体を形成することはあるが、錯体の形で層間内へ侵入している事例はほとんど確認できず、もっぱら単独で侵入していた。CO_3^{2-}とCl^-は有効イオン半径が同程度(Cl^-: 0.181 nm; CO_3^{2-}: 0.178 nm, Marcus (1997))なので、この侵入挙動の相違はイオンの価数と錯形成に係るポテンシャルに起因するものと考えられる。次に、UO_2^{2+}およびNpO_2^+の層間への侵入挙動については、基本的には単独の形で、層間内のNa^+とイオン交換しながら平衡状態に達するまで侵入していた。UO_2^{2+}とNpO_2^+は有効イオン半径が同程度(UO_2^{2+}: 0.280 nm; NpO_2^+: 0.290 nm, Marcus (1997))なので、その錯形成の相違は主にイオンの価数に起因すると考えられる。そのため、CO_3^{2-}と共存する系ではNpO_2^+よりもUO_2^{2+}の方が錯形成しやすく、$[(UO_2)(CO_3)]^0$の形で中性化してNpO_2^+よりも層間外に留まる傾向が強いと思われる。ただし、層

間幅が十分広い場合は、中性化した状態で層間内へも侵入することが確認された。一方、Cl^-と共存する系では、CO_3^{2-}の場合よりも錯形成しにくく、各イオンが単独で拡散する傾向が強いため、NpO_2^+よりも価数の高いUO_2^{2+}の方が層間への侵入が容易であると考えられる。UO_2^{2+}の系およびNpO_2^+の系における層間内への各イオンの主な侵入状況を、表3.3-12に一覧にして示す。

表3.3-12　UO_2^{2+}の系およびNpO_2^+の系における層間内への各イオンの侵入状況

計算体系	層間外の初期イオン	層間内の水和状態	層間内への各イオンの侵入状況
ケース3	UO_2^{2+} (×8) Cl^- (×16)	2層水和	NaイオンとUO_2^{2+}イオンの交換あり。Cl^-イオンは6ns以降に単独での侵入を確認。
		3層水和	NaイオンとUO_2^{2+}イオンの交換あり。Cl^-イオンの単独での侵入あり。
		4層水和	NaイオンとUO_2^{2+}イオンの交換あり。Cl^-イオンの単独での侵入あり。
ケース4	UO_2^{2+} (×8) CO_3^{2-} (×8)	2層水和	NaイオンとUO_2^{2+}イオンの交換あり。炭酸イオンの侵入なし。
		3層水和	NaイオンとUO_2^{2+}イオンの交換あり。UO_2^{2+}イオンと炭酸イオンが錯体形成して侵入あり。層間外でUO_2^{2+}イオンと炭酸イオンの錯体クラスターを確認。
		4層水和	NaイオンとUO_2^{2+}イオンの交換あり。UO_2^{2+}イオンと炭酸イオンが錯体形成して侵入あり。層間外でUO_2^{2+}イオンと炭酸イオンの錯体クラスターを確認。
ケース5	NpO_2^+ (×8) Cl^- (×8)	2層水和	NaイオンとNpO_2^+イオンの交換あり。Cl^-イオンの侵入なし。
		3層水和	NaイオンとNpO_2^+イオンの交換あり。Cl^-イオンの単独での侵入あり。
		4層水和	NaイオンとNpO_2^+イオンの交換あり。Cl^-イオンの単独での侵入あり。NpO_2^+イオンとCl^-イオンが錯体形成して侵入あり。
ケース6	NpO_2^+ (×8) CO_3^{2-} (×4)	2層水和	NaイオンとNpO_2^+イオンの交換あり。炭酸イオンの侵入なし。
		3層水和	NaイオンとNpO_2^+イオンの交換あり。炭酸イオンの侵入なし。層間外でUO_2^{2+}イオンと炭酸イオンの錯体クラスターを確認。
		4層水和	NaイオンとNpO_2^+イオンの交換あり。炭酸イオンと陽イオンが錯体形成して侵入あり。

本報告では令和3年度に引き続き、モンモリロナイト層間間隙と粒子間間隙が共存する系におけるアクチニド元素を対象とした古典MD計算を実施し、層間間隙へのイオンのアクセス性に関する知見を得ることができた。特に、令和4年度は、NpO_2^+とCl^-が共存する系、およびNpO_2^+とCO_3^{2-}が共存する系についても計算時間（ステップ数）を10 nsまで拡張して、陽イオンがNa^+の系、およびUO_2^{2+}の系と合わせて網羅的にデータを取得し、それらを相互比較することにより、各イオンの層間内へのアクセス性に関する理解を深めることができた。個々の系の条件により一概にはいえないが、CO_3^{2-}が共存する系では層間外で錯体が形成されやすく、Cl^-が共存する系に比べて層間内への侵入が抑制される傾向にあった。また、NpO_2^+よりも価数の高いUO_2^{2+}の方がその傾向が強く現れる。したがって、アクチニド元素の層間内へのアクセス性に関しては、ケース3 > ケース5 > ケース6 > ケース4のような大小関係が推察できる。系が熱力学的平衡状態に達しているかどうかの判定基準については、検討の余地があるものの、層間内／層間外での陽イオン交換の観点から一つの指標を得ることができた。今後、計算体系内のイオンの個数を増やして統計精度を上げるとともに、錯体としての挙動の解析データを拡充し、層間間隙へのイオンのアクセス性に関する定量的評価（層間間隙への移行割合の、層間幅・イオンサイズ・イオン価数等に関する依存性の定量的評価。すなわち、アクセスしやすさの数値化）について、さらに検討を進める必要がある。

3) 高炭酸条件における核種移行解析・不確実性評価の構築

緩衝材（圧縮ベントナイト）や岩石中の間隙水化学の評価、核種の溶解度やK_d評価等に、地球化学計算コードPHREEQC (Parkhurst and Appelo, 2013)が広く利用されている。PHREEQCは地球化学平衡計算に加え、物質移行と化学反応を連成した評価が可能であり（Transport機能）、先行事業（日本原子力研究開発機構, 2018）では、バリア材中の間隙水化学および核種の収着・拡散をPHREEQCのTransport機能によって評価するとともに、それらの不確実性を評価するための手法をパラメータセット生成コードLHS (Latin Hypercube random Sampling, Iman and Shortencarier (1984))や統計解析コードSPOP (Statistical POst Processor, Saltelli and Homma (1992))を組み合わせて構築してきた。本報告では、上記1)と2)の成果も踏まえつつ、PHREEQCのTransport機能を適用して、高炭酸条件下において複数の化学種が共存する条件での圧縮ベントナイト中の核種の収着・拡散解析や、間隙水化学の変遷が核種移行に及ぼす影響の解析、さらにその不確実性を評価するための解析を実施した。

はじめに、圧縮ベントナイト中のNp(V)の拡散移行挙動をPHREEQCのTransport機能を用いて解析を行い、Transport機能の有効性を確認するとともに、炭酸共存下でNp(V)に係る複数の化学種が共存する系におけるNp(V)の拡散移行解析を実施した。具体的には、Np(V)の透過拡散試験により得られた破過曲線および濃度プロファイルのデータを、一次元拡散方程式の解析解を用いてフィッティングし、Np(V)に対する実効拡散係数(D_e)およびK_dの最適値を取得する。そこで得られたD_eおよびK_dを入力値としてPHREEQCで核種移行解析を実施し、計算によるNp(V)の破過曲線および濃度プロファイルを実測データと比較することによりTransport機能の有効性を確認した。PHREEQCによる核種移行解析では、Np(V)の間隙水中での化学種平衡を考慮して様々な化学種が生成されるが、それらのD_eはすべて同じ値（上記のフィッティングにより得られたD_e）を用い、また収着反応は線形収着を仮定したK_d（上記のフィッティングにより得られたK_d）を用いてNp(V)の合計に対する固液分配収着のモデルとした。このモデルを「平均D_e・K_dモデル」と呼ぶこととする。このようにしてTransport機能の有効性を確認した上で、次に、Np(V)の実効拡散係数をNp(V)に係る化学種ごとに統合収着・拡散モデル（Integrated Sorption and Diffusion Model; ISDモデル, Tachi and Yotsuji, 2014; Tachi et al., 2014）で設定し、さらに、収着反応は表面錯体およびイオン交換反応を考慮した収着反応モデル（表面錯体モデル）を採用して、核種移行解析によりNp(V)の破過曲線および濃度プロファイルを評価した。このモデルを「ISD表面錯体モデル」と呼ぶこととする。実測データとISD表面錯体モデルによる結果を比較することにより、現状モデルの限界や改良の方針等について検討した。

Np(V)の実測データは、Na型モンモリロナイト（クニピアF）を試料として、炭酸を含むイオン強度が約0.5 Mのトレーサー溶液（Np-237を90 Bq/mL含む）の透過拡散試験により得た（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2022）。トレーサー溶液に含まれる炭酸濃度として、5×10^{-4}, 5×10^{-3}および5×10^{-2} Mの3ケースを設定し、炭酸濃度による影響を評価した。試料中の核種の拡散は、次式で与える一次元拡散方程式でモデル化した。

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \frac{D_e}{\alpha} \cdot \frac{\partial^2 c}{\partial x^2}, \quad (0 \le x \le L, t > 0) \tag{3.3-7}$$

また、上流側および下流側リザーバーセル内の核種濃度変化を考慮した境界条件として、次式を設定した。

$$c(x,t)|_{x=0,t=0} = c_0, \ \ c(x,t)|_{x=L,t=0} = 0, \tag{3.3-8}$$

$$\frac{V_u}{A}\cdot\frac{\partial c}{\partial t}\Big|_{x=0} - D_e\cdot\frac{\partial c}{\partial x}\Big|_{x=0} = 0, \qquad \frac{V_d}{A}\cdot\frac{\partial c}{\partial t}\Big|_{x=L} + D_e\cdot\frac{\partial c}{\partial x}\Big|_{x=L} = 0 \ (t \geq 0)$$

ここで、Aは試験体の断面積、Lは試験体の断面に垂直な方向の長さ、c_0は上流側セルにおける核種の初期濃度、V_uおよびV_dはそれぞれ上流側および下流側セルの体積である。また、距離x、時刻tにおける核種濃度を$c(x,t)$とする。さらに、収着容量αは、εおよびρ_bをそれぞれ試料の間隙率および乾燥密度とすると、

$$\alpha \equiv \varepsilon + K_d\cdot\rho_b \tag{3.3-9}$$

で定義される。このとき方程式(3.3-7)の解析解は次式で与えられる(Hsieh et al., 1981)。

$$c(x,t) = \frac{c_0}{1+\gamma+\delta} - 2c_0 \times \sum_{m=1}^{\infty} \frac{\left[\delta\cdot\cos\left(\phi_m\cdot\frac{L-x}{L}\right) - \gamma\cdot\phi_m\cdot\sin\left(\phi_m\cdot\frac{L-x}{L}\right)\right]\cdot\exp\left(-\frac{D_e\cdot\phi_m^2}{\alpha\cdot L^2}\cdot t\right)}{\{\gamma\cdot\phi_m^2 - \delta\cdot(1+\gamma+\delta)\}\cdot\cos(\phi_m) + (2\gamma+\gamma\cdot\delta+\delta)\cdot\phi_m\cdot\sin(\phi_m)} \tag{3.3-10}$$

ただし、ϕ_mは次式を満たす正の実数解であり、ゼロに近いものから順番にm = 1, 2, 3, ...とラベルした。

$$\tan(\phi) = \frac{\delta\cdot(1+\gamma)\cdot\phi}{\gamma\cdot\phi^2 - \delta^2}\ ,\ \gamma \equiv \frac{V_d}{V_u}\ ,\ \delta \equiv \frac{A\cdot\alpha\cdot L}{V_u} \tag{3.3-11}$$

Np(V)の透過拡散試験により得られた破過曲線および濃度プロファイルのデータを式(3.3-10)でフィッティングすることにより得られたD_eおよびK_dの最適値を表3.3-13に示す。表中の解析ケースは、炭酸濃度が5×10^{-4}, 5×10^{-3}および5×10^{-2} Mの場合を、それぞれ平均D_e・K_dモデル-1、平均D_e・K_dモデル- 2および平均D_e・K_dモデル-3と表記した。各ケースのパラメータ条件でPHREEQCのTransport解析を行った結果を図3.3-46に示す。Np(V)の破過曲線および濃度プロファイルを、それぞれ図3.3-46(a)および(b)に図示した。炭酸濃度が5.0×10^{-4} Mの場合の実測データを「実測値-1」、PHREEQCによるTransport解析のデータを「モデル-1」等と表記した。いずれのケースも、実測データとモデル計算の結果は概ね整合的であり、実測データと一次元解析解とのフィッティング処理、またPHREEQCのTransport解析が有効に機能していることを裏付ける結果である。

表3.3-13　平均D_e･K_dモデルのケース設定　パラメータの値は一次元解析解を実測データにフィッティングさせて得られた最適値

解析ケース	炭酸濃度 [M]	D_e [m^2/s]	K_d [m^3/kg]
平均D_e・K_d-1	5×10^{-4}	4.0×10^{-11}	0.160
平均D_e・K_d-2	5×10^{-3}	2.1×10^{-11}	0.050
平均D_e・K_d-3	5×10^{-2}	1.9×10^{-11}	0.012

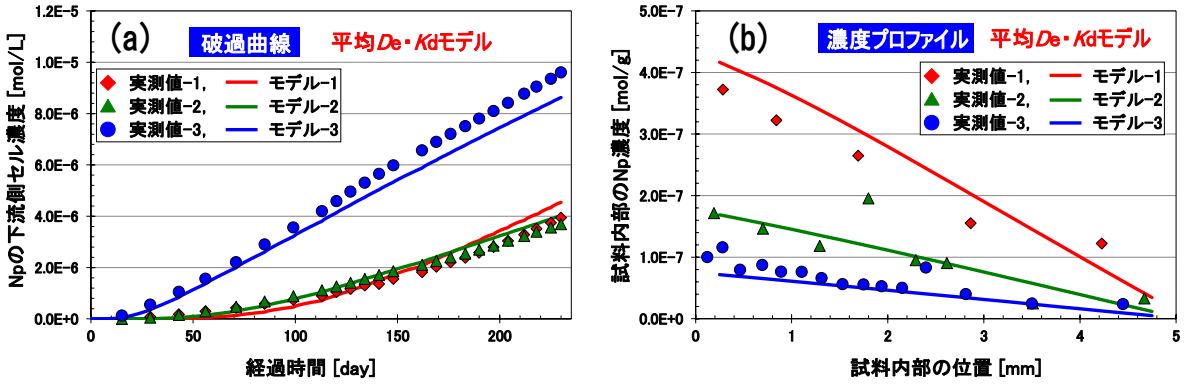


図3.3-46　Np(V)の透過拡散試験の実測データとPHREEQCのTransport解析による平均D_e·K_dモデルの比較　(a) 下流側セル内のNp(V)濃度変化（破過曲線）、(b) 試料内部のNp(V)濃度分布（濃度プロファイル）

次に、上記の結果を踏まえて、ISD表面錯体モデルの解析を実施した。拡散試験の溶液条件（pH 8.5 - 9.7、Np-237含有量：90 Bq/mL）に基づくPHREEQC計算の結果から得られたNp(V)に係る主な化学種の存在比を表3.3-14に示す。炭酸濃度に依存して化学種の存在比は変化するが、+1価のNpO_2^+と−1価の$NpO_2CO_3^-$が支配的である。炭酸濃度が5×10^{-2} Mのケースでは−3価の化学種も有意に存在するが、本解析ではモデル計算の簡略化のため、$NpO_2CO_3^-$と同じ拡散パラメータを設定した。

表3.3-14　上流側リザーバーにおける初期溶液のNp(V)に係る主な化学種の存在比のPHREEQCによる計算値

解析ケース	炭酸濃度 [M]	NpO_2^+	$NpO_2CO_3^-$	$NpO_2(CO_3)_2^{3-}$
ISD表面錯体−1	5×10^{-4}	53%	46%	0%
ISD表面錯体−2	5×10^{-3}	10%	86%	4%
ISD表面錯体−3	5×10^{-2}	1%	69%	30%

Np(V)に係る化学種の実効拡散係数はISDモデルにより計算して設定した。ISDモデルでは、D_eに影響する因子として化学種の自由水中拡散係数および電気的収れん度、また試料の間隙率および幾何学的因子を考慮して評価する。電気的収れん度は、電荷を持った化学種と粘土鉱物の静電相互作用を担う因子であり、陽イオンに対しては加速効果（陽イオン濃集）を、陰イオンに対しては減速効果（陰イオン排除）を及ぼす。本解析では、Np(V)に係る+1価の化学種、中性化学種、および−1価の化学種に対するD_eを、それぞれ8.46×10^{-11}, 4.83×10^{-11}および3.02×10^{-11}と設定した。ただし、拡散が進行する過程において、溶液中に価数の高い陽イオンや陰イオンが生成されるが、それらの存在比が十分小さいことを仮定して、陽イオンはすべて+1価のD_eで、また陰イオンはすべて−1価のD_eで代用した。また、Np以外の化学種のD_eについては、陽イオン濃集および陰イオン排除の効果を無視して、自由水中拡散係数に基づいた従来のPHREEQC計算による設定値を用いた。ISD表面錯体モデルを対象にPHREEQCのTransport解析を行った結果を図3.3-47に示す。また、Np(V)の破過曲線および濃度プロファイルを、それぞれ図3.3-47(a)および(b)に示す。濃度プロファイルの結果（図3.3-47(b)）をみると、モデル計算の結果は実測データの傾向を概ね再現しているといえる。一方、破過曲線（図3.3-47(a)）をみると、いずれの炭酸濃度の場合もモ

デル計算の破過が実測データよりも速く進行していることが確認できる。特に、炭酸濃度が低い条件のときほど実測データとの乖離が顕著である。Np(V)の化学種の存在比の経時変化を解析すると、試料内でのNp(V)の移行に伴い、時間経過とともに上流側から下流側へと濃度分布は移動していくが、各時刻での化学種の存在比はほとんど変化せず、表3.3-14に示した存在比が保持されていた。そこで、表3.3-14に示した化学種の存在比を重みとして、化学種に関するD_eの算術平均を計算すると、モデル-1、モデル-2、およびモデル-3におけるNpのD_eは、それぞれ5.90×10^{-11}, 3.56×10^{-11}、および3.07×10^{-11}となった。これらの数値と、実測データにおけるD_eの推定値（表3.3-13）との差が、破過曲線の乖離の原因であると考えられる。したがって、ISDモデルによるD_eの計算値が過大評価をもたらした可能性について検討する必要がある。特に本解析では、ISDモデルは均質間隙モデル（圧縮ベントナイト試料の乾燥密度に応じて間隙の幅を均等に評価）を採用したが、モンモリロナイト層間と層間外の間隙とを区別した多重間隙モデルの適用についても検討が必要である。また、PHREEQCのTransport解析における化学種に関するD_eの平均化手法について、その妥当性を確認する必要がある。

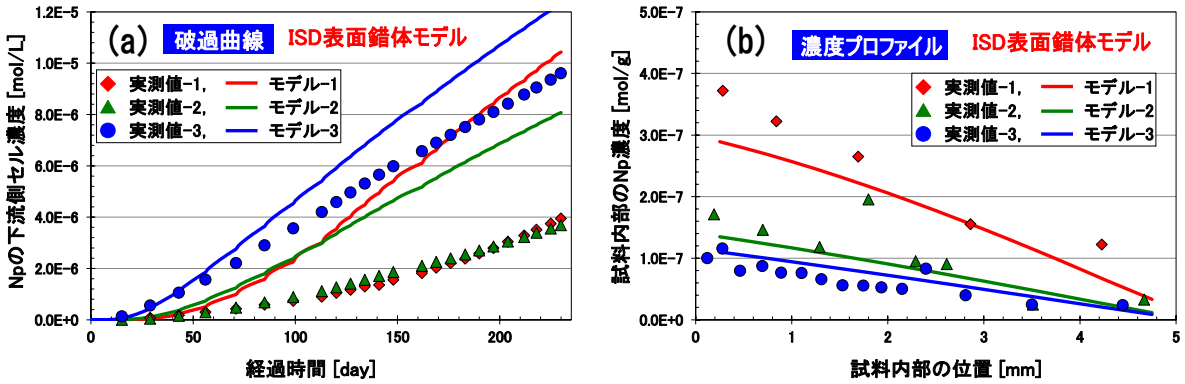


図3.3-47　Np(V)の透過拡散試験の実測データとPHREEQCのTransport解析によるISD表面錯体モデルの比較 (a) 下流側セル内のNp(V)の破過曲線、(b) 試料内部のNp(V)濃度プロファイル

次に、上記の圧縮ベントナイト中のNp(V)の拡散移行の系を対象に、パラメータセット生成コードLHSと統計解析コードSPOPを組み合わせた不確実性評価解析を実施した。パラメータセットの生成手法はさまざま存在するが、ここではLHS法に基づいて、変動パラメータの確率密度関数等の情報を入力することにより必要なサンプル数のデータセットを生成し、核種移行解析を実行した。ここで、変動させるパラメータは、間隙水中の炭酸濃度、イオン強度、pH等の液性条件に加え、収着・拡散関連のパラメータを対象とした。これらの核種移行解析の結果に対し、統計解析コードとしてSPOPコードを適用し、核種移行解析の出力値のヒストグラム、累積分布関数または補累積分布関数を作成するとともに、確率密度関数を設定した変動パラメータの重要度に関する情報として変動パラメータ値と核種移行解析結果の出力値との偏順位相関係数(Partial Rank order Correlation Coefficient; PRCC, Freund (1992))を取得した。不確実性評価解析コードシステムの概念図を図3.3-48に示す。これら結果から、炭酸濃度等の間隙水化学の変遷による核種移行特性への影響等に着目して分析を行い、化学環境変遷と核種移行評価を支配する因子の相対的な重要度を把握した。さらに、ベントナイトの下流側境界に溶液を接触させた条件で、炭酸イオンがベントナイト中に継続的に供給される条件、あるいは逆に継続的に排除される条件を設定して同様の解析を行い、地下水中の炭酸濃度による長期的な間隙水中の炭酸濃度の変化とそれがNp(V)の収着・拡散挙動に及ぼす影響を評価した。

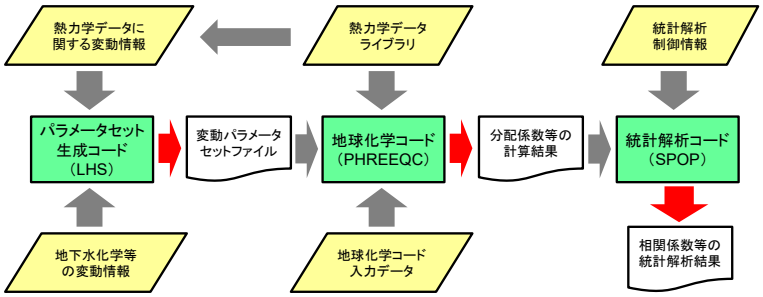


図3.3-48　PHREEQCを用いた不確実性評価解析ツールの概念図

不確実性評価解析でサンプリングする変動パラメータの種類とそのサンプリング値の範囲（最大値・最小値で指定）を表3.3-15に示す。各変動パラメータの確率密度関数（分布関数）の関数形を表の右端に表記した。また、ISDモデルで算出されるD_eは間隙水の電解質(NaCl)濃度に顕著に依存するため、電解質濃度との相関関係を考慮するパラメータには※印を併記した。表3.3-15に示した28種類のパラメータを1セットとして、LHS法によりランダムに300セットのパラメータのセットを設定した。ISD表面錯体モデルを対象とした不確実性評価解析の一例として、下流側セルにおけるNp(V)濃度の最大値に対する各パラメータの感度を評価した。PRCCを解析した結果（図3.3-49）、比較的相関が強いパラメータとしてHCO_3^-濃度で−0.77、pHで−0.60の値が得られた。PRCCの絶対値が0.5を超えるパラメータは他になく、表3.3-15に示したパラメータの変動範囲に関する限りでは、下流側セルのNp(V)濃度に最も影響を与えるのは初期溶液の液性であることがわかった。しかしながら、PRCCの評価で注意すべきことは、パラメータの変動範囲によって相関の傾向が全く異なるような場合が存在することである。本解析では、不確実性評価解析の試計算として変動パラメータの条件を設定したが、今後、パラメータの変動範囲を細かく分けてPRCCの変化を確認する等の検証解析を実施する必要がある。

表3.3-15　ISD表面錯体モデルを対象とした不確実性評価解析おいてサンプリングする変動パラメータの種類とそのサンプリング値の範囲

サンプリングするパラメータ	単位	最小値	最大値	分布関数
CO_3^{2-}の実効拡散係数(※)	m^2/s	2.60E-12	2.12E-11	対数一様分布
OH^-の実効拡散係数		1.43E-11	1.17E-10	
Cl^-の実効拡散係数(※)		5.52E-12	4.50E-11	
$NaCO_3^-$の実効拡散係数(※)		3.26E-12	2.66E-11	
HCO_3^-の実効拡散係数		3.21E-12	2.62E-11	
O_2の実効拡散係数		7.27E-11	8.35E-11	
CH_4の実効拡散係数		5.72E-11	6.57E-11	
CO_2の実効拡散係数		5.94E-11	6.82E-11	
H_2の実効拡散係数		1.59E-10	1.82E-10	
H_2Oの実効拡散係数		6.93E-11	7.96E-11	
$NaHCO_3$の実効拡散係数(※)		2.08E-11	2.39E-11	
H^+の実効拡散係数(※)		5.79E-10	3.75E-09	
Na^+の実効拡散係数		8.27E-11	5.36E-10	
Np陰イオンの実効拡散係数(※)		3.70E-12	3.01E-11	
Np中性粒子の実効拡散係数(※)		4.21E-11	4.83E-11	
Np陽イオンの実効拡散係数(※)		8.46E-11	5.48E-10	
$X^- + Na^+ = XNa$　のイオン交換反応定数(logk)	-	19.9	21.0	一様分布
$X^- + H^+ = XH$　のイオン交換反応定数(logk)		19.1	21.1	
$X^- + NpO_2^+ = XNpO_2$　のイオン交換反応定数(logk)		18.712	20.712	
$Surf_sOH + NpO_2^+ = Surf_sOHNpO_2^+$　の表面錯体反応定数(logk)		1.871	3.871	
$Surf_sOH + NpO_2^+ - H^+ = Surf_sONpO_2$　の表面錯体反応定数(logk)		-5.48	-3.48	
$Surf_sOH + NpO_2^+ + H_2O - 2H^+ = Surf_sONpO_2OH^-$　の表面錯体反応定数(logk)		-15.47	-13.47	
$Surf_sOH + NpO_2^+ + CO_3^{2-} - H^+ = Surf_sONpO_2CO_3^{2-}$　の表面錯体反応定数(logk)		-1.28	0.72	
イオン交換反応のサイト数	mol	6.79E-05	2.04E-04	一様分布
表面錯体反応のサイト数		2.71E-06	8.12E-06	
炭酸濃度(HCO_3^-)	mol/kgw	5.00E-04	5.00E-02	対数一様分布
水素イオン濃度(pH)		8.5	9.7	一様分布
電解質濃度(NaCl)		0.05	0.5	対数一様分布

(※)電解質濃度(NaCl)との相関を考慮したパラメータ

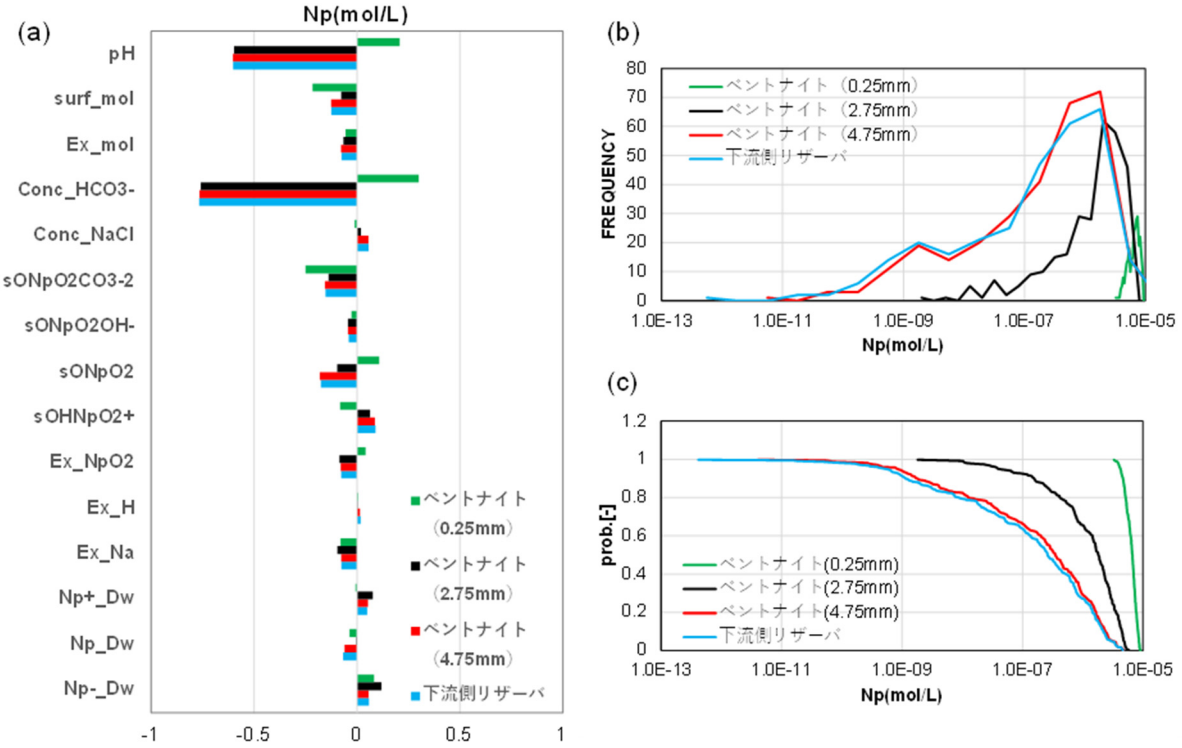


図3.3-49　PHREEQCを用いた不確実性評価解析ツールによるNp(V)のベントナイト中の不確実性解析結果 (a) PRCC、(b) Np濃度のヒストグラム、(c) 補累積分布関数

3.3.3 5か年の成果と今後の課題

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

ニアフィールドの状態変遷のうち、鉄製オーバーパックと緩衝材との反応による核種移行影響に関する課題として、鉄共存による核種収着競合の影響、鉄鉱物への核種の取り込みの影響に関する研究を進めてきた。このうち緩衝材における鉄と核種の収着競合については、令和4年度にFe(II)とNiの収着競合データを拡充し、収着モデルの適用性を確認した。これまでの5か年で、種々の元素のFe(II)との収着競合を評価し、価数が異なるAm(III)やNb(V)とはほとんど競合しないことを確認し、競合が確認されたNiにおいても、収着競合は限定的であることが確認された。オーバーパックの腐食に伴って生成する鉄鉱物への核種の取り込みについては、令和4年度に、これまでにSe(−II)およびSe(IV)を対象に実施した、異なるpH条件での2種類のFeとSeの相互作用試験（共沈または鉄鉱物への収着）の一連の試験結果をもとに、各条件やプロセスで生じるSeの取り込み現象、熟成に伴う固相変遷やSeの取り込み状態の変化等を取りまとめた。また、実際の深部地下環境下における岩石中のFe鉱物とSeの相互作用について検討するため、幌延URLから採取した泥岩を対象としたマイクロX線分析をより多様な試料に対して実施し、複数の岩層（稚内層・声問層）を含む泥岩試料中で、フランボイダルパイライト中にSeが取り込まれていることを確認した。これまでの5か年の検討を通じて、鉄とベントナイト界面や深部岩盤中で想定される環境条件とそこでの鉄鉱物の生成・変遷過程に応じて、生じる可能性の高いSeの取り込み現象やその遅延特性や安定性を推定することが可能となった。今後は、より多様な条件での室内試験・分析や、天然事例分析の拡充によって、長期時間スケールでのSeの遅延の現象モデルの構築と性能評価への反映方策を検討していくことが重要となる。

セメント共存系での核種移行影響評価のうち、セメント共存による圧縮ベントナイト中のコロイド濾過機能への影響については、令和4年度に、これまでに実施してきた5.7 nmと異なるサイズのデンドリマーコロイドを用いて（乾燥密度1.6 Mg/m^{3}で1.6 nmのサイズ、乾燥密度1.2 Mg/m^{3}で8.8 nmのサイズを使用）、Na型およびCa型モンモリロナイト中のコロイドの拡散・濾過試験データを拡充した。これまでの5か年の検討を通じて、デンドリマーを用いて、異なるサイズのコロイドの移行・濾過挙動や間隙の連続性を把握する手法を構築し、ナノメートルサイズのコロイドが、Na型およびCa型のいずれもモンモリロナイトでも、乾燥密度1.6 Mg/m^{3}では濾過され、乾燥密度1.2 Mg/m^{3}では破過することが確認された。今後は、これらの手法を、実際のベントナイトやケイ砂混合系へ適用していくことが課題である。セメント系材料が岩石中の核種移行へ与える影響については、幌延URLにおける泥岩とセメント系材料の原位置での接触試料を対象として選定し、セメントの種類（OPCやHFSC）の差異に着目した変質状況等の分析を進めてきた。令和4年度は、これまでに観察されたOPCとHFSCの界面近傍での泥岩の変質状況を、複数の分析手法の組み合わせにより分析・評価し、二次鉱物の生成と微量元素の取り込み状況をより詳細に把握したほか、これまで構築してきた地球化学－物質移行解析コードを適用して変質状況の解析的な評価を試行した。また、幌延の泥岩中のカルサイトに含まれるREE等の微量元素を測定し、採取したボーリング孔や深度に応じて特徴的なREE分配パターンを取得し、カルサイトが生成した環境を反映していること等を確認した。今後は、原位置試料や天然試料の分析や、変質試料を対象とした核種移行データ等を拡充するとともに、それらの評価モデルの改良や妥当性確認が重要となる。

地下水中の高炭酸濃度が核種移行に及ぼす影響評価技術の開発については、高炭酸条件下での核種収着モデルとデータベースの整備に向けて、イライトや幌延の泥岩を対象に高炭酸条件下で

の収着試験・分析データの拡充や、モデル化検討を進めてきた。令和4年度は、Eu(III)およびU(VI)の炭酸共存下でのイライトへの収着データを拡充するとともに、TRLFS測定とPARAFAC解析とを組み合わせて、存在する化学種とそれらのpHおよび炭酸濃度依存性を把握し、収着モデルに分光学的観察結果の裏付けを与えることができた。加えて、幌延の泥岩に対する収着データを拡充し、CAモデルの適用性を確認した。また、MD計算を用いて粘土層間間隙へのウラニル・ネプツニルイオンおよびそれらの炭酸錯体のアクセス性評価を継続した。その結果、層間幅が3層以上では炭酸錯体のアクセスが確認できたが、陰イオン錯体のアクセスは確認できなかった。さらに、炭酸共存下の複数の化学種が共存する系でのNp(V)の拡散データを対象に、溶存化学種の平衡計算、化学種毎の拡散係数、収着モデルを組み合わせた解析手法を適用し、その有効性を確認した。これまでの5か年の検討を通じ、粘土中の核種収着・拡散モデルを、高炭酸条件まで拡張し、それらを統合した核種移行解析手法を構築することができた。今後は、これらの一連の評価手法を、多様な核種と環境条件への適用性を確認していくことが重要である。

3.4 有機物・微生物の影響評価技術の開発

3.4.1 有機物影響評価技術の開発

(1) 背景と目的

地下水に溶存する天然有機物には、カルボキシル基や水酸基等の酸解離性官能基を有し、金属イオンと安定な錯体を形成することができるものが存在する(Thurman, 1985)。高レベル放射性廃棄物の地層処分システムにおいて、廃棄体から溶出した核種がそのような有機物と錯体を形成すると、地下水に対する核種のみかけの溶解度が上昇するとともに、母岩への核種の収着・拡散が抑制されることで、核種移行が促進される可能性がある(Artinger et al., 1998, 2003; McCarthy et al., 1998a, 1998b; Mahara and Kudo, 1995; Matsunaga et al., 2004; Maes et al., 2006)。一方で、核種と天然有機物の錯生成反応は、地下水に溶存する炭酸イオン等の無機配位子との競合によって抑制される可能性があるほか(Pourret et al., 2007)、核種と天然有機物との錯体が母岩へ収着する可能性がある(Bryan et al., 2012)等、地下環境中の複雑な系において天然有機物が核種移行の促進・遅延にどのように寄与するかは明らかになっていない。そのため、核種移行に対する天然有機物の影響を評価するためには、多様な水質の地下水における核種と天然有機物の錯生成反応や、その錯体の母岩中での移行挙動を定量的に評価する必要がある。

このような観点から、先行事業（日本原子力研究開発機構, 2018）において、3価核種を主な対象に信頼性の高い錯生成モデルおよびモデルパラメータを整備し、それらを用いて降水系地下水条件における評価対象核種の天然有機物への分配係数を整備するとともに、その分配係数を用いた性能評価解析から有機物による核種移行への影響をより現実的に評価した。平成30年度は、文献調査および室内試験により、影響が顕在化する可能性の高い4価核種と天然有機物との錯生成データを取得し、モデル高度化の検討とパラメータ整備を行うとともに、既存の手法では測定前に流出してしまう、低分子量有機物錯体の回収率の高い手法の必要性を明らかにした。また、文献調査を通して、二元系モデルの加成則や各二元系における反応の瞬時・可逆性に関わる現状と課題を整理し、核種-有機物-岩三元系モデルの開発に向けて検討すべき課題を抽出した。平成31年度は、新たにキャピラリー電気泳動(CE)-質量分析(ICP-MS)法を整備し、4価核種と天然有機物との錯生成についてデータを取得するとともに、三元系モデル構築のために、有機物の錯生成・解離反応機構を検討した。令和2年度は、CE-ICPMSを用いた4価核種と天然有機物の錯生成データ拡充を行うとともに、錯生成量の定量的な評価に向けた課題を抽出した。また、核種-有機物-岩三元系モデルの開発に向けて、Eu-天然有機物-幌延深部堆積岩共存系でのバッチ収着試験を行い、予察的なデータを取得した。令和3年度は、定量的評価のための錯生成データ拡充と、NICA-Donnanモデルパラメータの既報の値との比較検討を実施した。核種-有機物-岩石三元系モデルの開発に向けては、バッチ試験結果の解析による炭酸錯体影響の検討に加え、幌延深部地下環境から採取された天然有機物を使用したバッチ試験を実施した。

令和4年度は、錯生成データの拡充に加え、これまでに得られた錯生成データの取りまとめを行い、NICA-Donnanモデルと金属イオンの第一加水分解定数の対数値との間の線形自由エネルギー相関式から、錯生成データを取得していない評価対象核種についてもNICA-Donnanモデルパラメータの推定を行った。核種-有機物-岩石三元系モデルの開発に向けては、深部地下環境に近い条件で収着試験データを拡充するとともに、三元系における核種-有機物の錯生成の記述にNICA-Donnanモデルを適用して加成則モデルを構築し、取得した実験データの再現性を確認することから、加成則モデル適用性を評価した。最後に、幌延深部地下水フミン酸を対象に性能評価解析を実施し、有機物との錯生成が核種の移行に及ぼす影響を考察した。

(2) 実施内容

1) 核種と天然有機物との錯生成モデルの開発

有機物影響を考慮した性能評価の実施に当たっては、多様な地下水条件での核種と腐植物質との錯生成を高い信頼性をもって評価する必要がある。NICA-Donnanモデル（式(3.4-1)）は、金属イオンと腐植物質との相互作用に特徴的な錯生成反応の不均一性（非線形性）と静電相互作用を考慮することで、熱力学モデルに類似した評価が可能であり(Kinniburgh et al., 1996; Bemedetti et al., 1996; Koopal et al., 2005)、これまでに日本原子力研究開発機構(2013a)は多様な地下水条件での錯生成評価に用いるモデルとして、このNICA-Donnanモデルを暫定的に選定してきた。しかし、NICA-Donnanモデルは、錯生成試験から取得したデータセットへのモデルの当てはめ（フィッティング）によってモデルパラメータを設定していることから、フィッティングに用いたデータセットから外れる条件（例えば、異なる腐植物質、高pH条件、低い核種濃度等）での錯生成評価に対しては、評価の信頼性を十分担保できないという課題がある。本事業では、NICA-Donnanモデルを対象に、深部地下水から分離・精製した腐植物質等への3価・4価核種の錯生成データへのモデルの適用性を調査し、その結果を踏まえ、モデルの高度化およびモデルパラメータの整備を進める。

$$Q_i = \frac{n_{i1}}{n_{\mathrm{H1}}} \cdot Q_{\mathrm{max1,H}} \cdot \frac{\left(\tilde{K}_{i1} C_i\right)^{n_{i1}}}{\sum_i \left(\tilde{K}_{i1} C_i\right)^{n_{i1}}} \cdot \frac{\left[\sum_i \left(\tilde{K}_{i1} C_i\right)^{n_{i1}}\right]^{p_1}}{1+\left[\sum_i \left(\tilde{K}_{i1} C_i\right)^{n_{i1}}\right]^{p_1}} + \frac{n_{i2}}{n_{\mathrm{H2}}} \cdot Q_{\mathrm{max2,H}} \cdot \frac{\left(\tilde{K}_{i2} C_i\right)^{n_{i2}}}{\sum_i \left(\tilde{K}_{i2} C_i\right)^{n_{i2}}} \cdot \frac{\left[\sum_i \left(\tilde{K}_{i2} C_i\right)^{n_{i2}}\right]^{p_2}}{1+\left[\sum_i \left(\tilde{K}_{i2} C_i\right)^{n_{i2}}\right]^{p_2}} \qquad (3.4\text{-}1)$$

Q_i	：有機物に結合した金属イオンiの濃度 [mol g^{-1}]
C_i	：遊離体の金属イオン濃度 [mol/(dm)^3]
$Q_{\mathrm{max1,H}}$	：結合サイト1の濃度 [meq/g]
$Q_{\mathrm{max2,H}}$	：結合サイト2の濃度 [meq/g]
$\log K_{i1}$	：金属イオンiの結合サイト1に対する親和定数（結合定数）
$\log K_{i2}$	：金属イオンiの結合サイト2に対する親和定数（結合定数）
$n\mathrm{H}_1$	：H^+結合サイト1の不均一パラメータ
$n\mathrm{H}_2$	：H^+結合サイト2の不均一パラメータ
n_{i1}	：金属イオンiに対する結合サイト1の不均一パラメータ
n_{i2}	：金属イオンiに対する結合サイト2の不均一パラメータ
p_1	：結合サイト1の親和性分布幅
p_2	：結合サイト2の親和性分布幅

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

令和3年度までに、流動場分画法(flow-field flow fractionation: Fl-FFF)と誘導結合プラズマ質量分析(ICP-MS)を組み合わせたFFF-ICPMSを用いて、幌延深地層研究センターの深度250 m（09-V250-M02孔）の地下水から分離精製したフミン酸(HHA)およびフルボ酸(HFA)と金属イオンとの錯生成データを取得してきた。Fl-FFFでは、流動場中で分画分子量300 Daの限外濾過膜に試料中のコロイドを押し付けることで、連続的なサイズ分画と有機物の金属イオンとの結合量評価を行っている。しかし、天然有機物であるフミン物質は広範な分子量分布を持ち、特に本事業で対象としている幌延深部地下水中のHHA、HFAといった有機物は、表層土壌中の有機物と比較して、顕著に小さなサイズと単純有機酸に近い反応機構を持つことが報告されている(Kimuro et

al., 2018)。それゆえに、Fl-FFFにおけるHHA、HFAの回収率（濾過膜を透過せず、検出器に到達する有機物の割合）は高くても50 %程度であり、NICA-Donnanモデルの結合パラメータは検出器に到達する比較的サイズの大きな画分に対して最適化されているため、その信頼性を検証する必要がある。これまでに金属イオンとしてZr(IV)とEu(III)を選定し、Zr(IV)とHHAとの錯生成データをpH 5, pH 6およびpH 8またはHFAに関しては加えてpH 7の条件下で取得し、そのNICA-Donnanモデルパラメータを整備した。一方で、時間分解レーザー蛍光法や、溶媒抽出法、三次元蛍光分析法といった手法で、HHAとの錯生成データの取得が行われているEu(III)については、FFF-ICPMSによりpH 5, pH 6およびpH 7の条件下で錯生成データの取得とNICA-Donnnanモデルパラメータの導出を試みたものの、競合配位子として選定したEDTAの錯生成能が大きすぎ、大部分のEu^{3+}がEDTA錯体としてICPMS測定開始前の段階で装置から排出されてしまい、信頼性の高い評価ができなかった。そこで令和4年度は、HHAとEu(III)の錯生成データを、競合配位子なしのpH 5および6の条件下で取得するとともに、CE-ICPMSによってみかけの平衡定数の評価がされている(Kautenburger et al., 2017)、国際腐植物質学会の頒布するLeonarditeフミン酸(LHA)を対象に錯生成量を評価することで、FFF-ICPMSの評価手法としての妥当性の検証と課題の整理を行った。

表3.4-1にFFF-ICPMSに供した試料のリストを、図3.4-1に、pH 6における(a)Eu^{3+}添加無し、(b)HHA添加無し、(c)Eu^{3+}/HHAの蛍光検出器およびICP-MS Eu/Inカウント比から取得したフラクトグラムを、図3.4-2に (a)蛍光検出および(b)ICP-MS Eu/Inカウント比によるpH 6の異なるEu^{3+}濃度におけるフラクトグラムの比較を示す。令和3年度までは、HHAの定量にはUV/Vis検出器の波長255 nmにおけるシグナルを用いていたが、UV/Vis検出ではEu自体の吸光がHHAの定量に干渉することが確かめられたため、令和4年度のHHAおよびLHAの定量には、蛍光検出器（励起波長255 nm、蛍光波長475 nm）を用いることとした。また、図3.4-1(a)において、Eu^{3+}を添加していない試料(15-1)においても、Eu^{3+}が検出されている。これは、HHAにもともと含まれているEu^{3+}に相当するものと考えられ、Eu^{3+}を添加した試料における結合量評価において無視できない影響を与えると思われたため、Eu^{3+}の結合量評価値はHHAにもともと結合していたEu^{3+}の寄与を差し引く補正を行った。図3.4-1(a)のフラクトグラムより、分画ステップ開始直後からHHAの流出が開始していることから、HHAが非常に小さいサイズの分子を含んでいることがわかる。一方で、HHAの回収率は2.4 %（表3.4-1中16-1）であり、令和3年度までの競合配位子であるEDTAが共存する場合（回収率29.5 %）と比較して大幅に小さくなった。この非常に小さい回収率はpH 5の試料でも共通しており、比較的小さいpH領域においてHHAの負電荷が十分でなく、FFFのチャネル底部に設置してある膜への吸着が大きくなったことによるものと考えられる。EDTAの有無による回収率の違いについては、HHAの凝集構造の変化等が要因として挙げられる。図3.4-1(b)のフラクトグラムをみると、蛍光検出器のシグナルに有意なピークは確認されず、ICPMSによるEu^{3+}のシグナルも十分小さいことから、大部分のHHAと結合していないフリーのEu^{3+}がフォーカシング過程で膜から排出され、HHAへの結合量評価に大きな影響を及ぼさないことが確認された。図3.4-1(c)より、HHAに結合したEu^{3+}のフラクトグラムのピーク位置は、Eu^{3+}が存在しない場合のHHA自体のフラクトグラムのピーク位置と同様である一方で、ピーク強度はEu^{3+}の添加によって大きくなっており、HHAの回収率は10 - 11 %に改善した。図3.4-2(a)をみると、Eu^{3+}濃度の変化によってHHAのフラクトグラムのピーク位置や強度は変化せず、安定した検出ができていることがわかる。また、Eu^{3+}のフラクトグラム（図3.4-2(b)）では、Eu^{3+}添加量の減少に伴って、Eu/Inカウント比、すなわちEu^{3+}結合量が減少しており、妥当な結果が得られている。これらより、HHAが不均質な配位子であり、Eu^{3+}に対する親和性に幅があることがみて取れる。

一方、pH 5におけるHHAを用いた試料（シリーズ15）では、蛍光検出器シグナル/ノイズ比（S/N

比）が悪く、HHAの回収率が非常に小さいことに加え、異なるEu^{3+}添加濃度試料でも、明瞭なHHAあるいはEu^{3+}由来のピークは確認されなかったため、HHAに対するEu^{3+}の結合量評価はできなかった。また、pH 5においてEDTA共存下でLHAを用いた試料（シリーズ18）でも、S/N比が悪く、LHAの膜への吸着によって十分な分画ができず、回収率も小さい。HHAとZr(IV)の錯生成データをEDTA共存下で取得した際には、pH 5においてもある程度分画ができていたことから、LHAはHHAよりも膜との相互作用が大きいと考えられ、本条件におけるEu^{3+}結合量評価は難しいものと結論付けられた。

表3.4-1　FFF-ICPMS測定に供した試料リスト

No.	HA 濃度 (mg/L)	Eu^{3+} 濃度 (μM)	pH	HA 回収率[1)] (%)	Eu^{3+} 回収率 (%)	Eu^{3+}結合量 (mmol/Kg HA)	Eu^{3+} 結合割合 (%)
シリーズ15, Eu^{3+}-HHA, 溶出液pH 5.00							
15-1	20.3	0	4.96	2.4	-	-	-
15-2	0	0.10	4.96	-	1.8	-	-
15-3	20.3	0.10	4.96	4.1	0.4	0.52	10.7
15-4	20.3	0.05	4.96	4.5	N.A. [2)]	0.08	3.4
15-5	20.3	0.02	5.03	0.5	4.6	8.60	873.8
シリーズ16, Eu^{3+}-HHA, 溶出液pH 6.04							
16-1	20.3	0	4.97	2.4	-	-	-
16-2	0	0.10	5.96	-	0.8	-	-
16-3	20.3	0.10	5.95	10.1	6.2	3.00	61
16-4	20.3	0.05	5.97	11	6.4	1.43	58.1
16-5	20.3	0.02	6.01	10.7	12.1	1.12	113.8
シリーズ18, Eu^{3+}-LHA, 溶出液pH 5.00, EDTA = 0.25μM							
18-1	20	0	5.00	0.9	-	-	-
18-2	0	0.10	4.96	-	10.3	-	-
18-3	20	0.10	5.00	11.5	2.3	0.10	20.3
18-4	20	0.05	5.04	13.9	4.8	0.86	34.8
18-5	20	0.02	4.96	16.7	63.3	0.62	63.3

全ての試料は 5 mM $NaClO_4$ を含む。

1)　励起波長 255 nm、蛍光波長 475 nm における蛍光強度から求めた回収率

2)　Not applicable. シグナル/ノイズ比（S/N 比）が悪く、回収率が負となった。

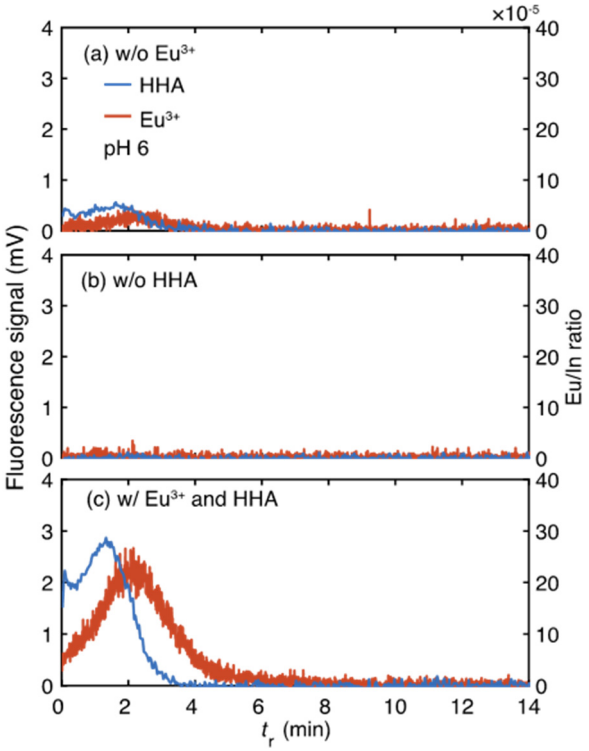


図3.4-1　pH 6における(a) Eu^{3+}添加無し、(b) HHA添加無し、(c) Eu^{3+}/HHA(C_{Eu_T} = 0.10 μM)の蛍光検出器、および、Eu/In比フラクトグラム

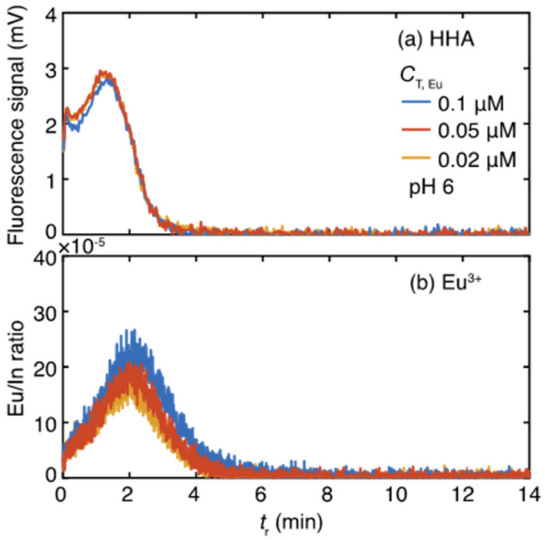


図3.4-2　異なるEu^{3+}濃度におけるEu^{3+} /HHA試料のフラクトグラムの比較　(a) 蛍光検出器、(b) ICP-MS Eu/Inカウント比(pH 6.00)

次に、pH 6におけるEDTAが存在しない条件でのHHAへのEu^{3+}の結合量を評価する。前述したようにフラクトグラム（図3.4-1(b)）にEu^{3+}は現れてこないことから、HHAへのEu^{3+}の結合量を$B_{Eu\text{-}HHA}$(mol/kg)、全Eu^{3+}濃度を$C_{T,\,Eu}$、全HHA濃度を$C_{T,\,HHA}$とすると、以下の式が成り立つ。

$$B_{\mathrm{Eu-HHA}}C_{\mathrm{T,HHA}} = f_{\mathrm{Eu}}C_{\mathrm{T,Eu}} + (1 - f_{\mathrm{HHA}})C_{\mathrm{T,HHA}}B_{\mathrm{Eu-HHA}} \qquad (3.4\text{-}2)$$

ここで、f_{HHA}およびf_{Eu}は、それぞれ、HHAおよびEu^{3+}の回収率である。式(3.4-2)より、$B_{Eu\text{-}HHA}$は、

$$B_{Eu-HHA} = \frac{f_{Eu}}{f_{HHA}} \frac{C_{T,Eu}}{C_{T,HHA}} \tag{3.4-3}$$

と表される。このようにして、FFF-ICPMSによるEu^{3+}とHHA回収率から計算された$B_{Eu\text{-}HHA}$、および、HHAに結合したEu^{3+}の割合を表3.4-1に、$B_{Eu\text{-}HHA}$を$C_{T,Eu}$に対してプロットしたものを図3.4-3に示す。pH 6において、Eu^{3+}濃度($C_{T,Eu}$)の増加に伴い、Eu^{3+}結合量は増加している。

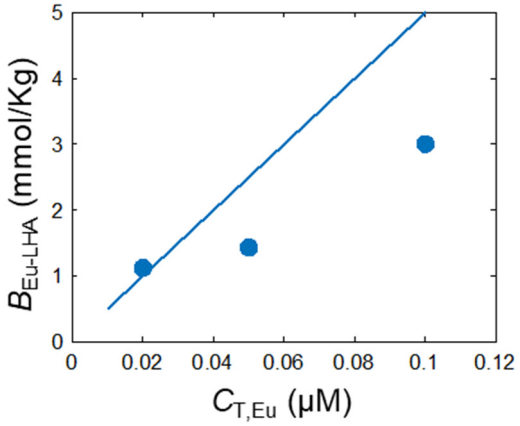


図3.4-3　pH 6におけるHHAに対するEu^{3+}結合量のEu^{3+}濃度依存性

本条件におけるEu^{3+}とHHAとの条件付き平衡定数(K_c)は、結合反応がフミン酸のカルボキシル基サイトとの1:1の錯生成反応としてとらえると、以下の式(3.4-4)で定義される。

$$Eu^{3+} + HHA^{-} = EuHHA^{2+} \quad \text{において} \quad K_c = \frac{[EuHHA^{2+}]}{[Eu^{3+}][HHA^{-}]} \tag{3.4-4}$$

ここで、$[EuHHA^{2+}]$および$[Eu^{3+}]$はそれぞれEu^{3+}-HHA錯体およびフリーのEu^{3+}の活量であり、式(3.4-2)の$B_{Eu\text{-}HHA}$より、それぞれ以下の式(3.4-5)および(3.4-6)で表される。

$$[EuHHA^{2+}] = f_{EuHHA} B_{Eu-HHA} C_{T,HHA} \tag{3.4-5}$$

$$[Eu^{3+}] = C_{T,Eu} - [EuHHA^{2+}]/f_{EuHHA} \tag{3.4-6}$$

ここで、f_{EuHHA}はEu^{3+}-HHA錯体の活量係数である。また、[HHA-]はフリーのHHAカルボキシル基サイトの活量であり、以下の式(3.4-7)で表される。

$$[HHA^{-}] = f_{HHA} \frac{C_{T,HHA-carb} - [EuHHA^{2+}]/f_{EuHHA}}{1 + K_{H,HHA}[H^{+}]} \tag{3.4-7}$$

ここで、$C_{T,HHA\text{-}carb}$はカルボキシル基換算したHHA濃度であり、HHAのカルボキシル基サイト密

度$Q_{max1,H}$ = 4.38 eq/kg (Saito et al., 2015b)から、$C_{T,\ HHA\text{-}carb} = C_{T,\ HHA} \times Q_{max1,H}$となる。また、$K_{H,\ HHA}$は1:1の単純な錯生成を仮定した場合のHHAのプロトン結合反応の平衡定数であり、HHAに対しては、H^+に対するカルボキシル基型サイトの化学的不均質性が小さく、また、同サイトに関するNICA-Donnanモデルのnパラメータ（結合反応の化学量論比に対応）も1に近いことから、$K_{H,\ HHA}$としてNICA-Donnanモデルの平衡定数をそのまま用いることが妥当である。さらに、$[H^+]$はプロトンの活量($[H^+] = 10^{-pH}$)、$\beta_{H,i}$はi段階目のEDTA^{4-}へのH^+結合反応の平衡定数(Baalousha et al., 2006)、そして、f_{HHA}はHHAの活量係数である。

Eu^{3+}結合量から上記の計算で得られた、pH 6におけるEu-HHA錯体の条件付き平衡定数($\log K_c$)と、比較のため令和3年度に0.25 μMのEDTA共存下で取得した平衡定数を表3.4-2にまとめた。$\log K_c$の値は$C_{T,\ Eu}$ = 0.02 μMの条件で特に大きくなり、HHAが不均質な配位子として作用していることがわかる。これは、カルボキシル基を主体とするHHAの結合サイトへのH^+の競合とHHAに対するEu^{3+}の結合反応の平衡定数の分布を反映したものであり、金属イオンの腐植物質への結合反応において、一般的にみられる傾向と合致している。一方、先行研究(Saito et al., 2015b)より、HHAのカルボキシル基サイトは表層環境由来の腐植物質の場合と異なり化学的に均質であり($p_1 \fallingdotseq 1$)、また、H^+やCu^{2+}の結合反応の化学量論比を反映したイオン固有の非理想性は小さいことから、Eu^{3+}の結合反応におけるこのような不均質性は、Eu^{3+}やZr^{4+}のような多価イオンに固有のものである可能性がある。また、競合配位子を使用せずに取得した平衡定数と、令和3年度にEDTA共存下で取得した平衡定数とは大きな乖離があることがわかる。この違いの要因として、令和3年度は大部分のEu^{3+}がEDTAに配位してしまい、Eu-HHA錯体の形成量を十分稼げなかったのに対して、競合配位子を使用しない場合は、膜との相互作用等によりHHA自体の回収率が非常に小さくなり、回収率の補正が上手く機能していないことが挙げられる。また、HHAにもともと結合していたEu^{3+}の寄与の補正も、結合量評価に大きな影響を及ぼしていると考えられる。図3.4-3における実線は、HHAへのEu^{3+}の結合量に対して、NICA-Donnanモデルのフィッティングを行った結果であるが、Eu^{3+}の結合挙動をうまくフィットできておらず、有意な最適化ができていない。これは、pH条件がpH 6のみに限られていることに加え、上述した回収率補正やもともとHHAに結合していたEu^{3+}の寄与の補正が機能していないことが要因として考えられる。FFF-ICPMSによる妥当な評価を行うためには、HA回収率を向上させるための工夫（適切な競合配位子を選択する、有機物と膜の相互作用が低減する実験条件でデータを取得する等）を重ねつつ、結合量データの拡充を進めていく必要があるといえる。

表3.4-2　Eu-HHA錯体の条件付き平衡定数

$C_{T,\ Eu}$ (μM)	[COOH]/[Eu]モル比	$\log K_c$
pH 6		
0.10	889	3.90
0.05	1778	3.88
0.02	4446	4.20
pH 6, EDTA = 0.25μM*		
0.10	889	11.8
0.05	1778	12.7
0.02	4446	12.4

*日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター（2022）

② キャピラリー電気泳動質量分析装置(CE-ICPMS)を用いた錯生成データ取得

令和3年度までに、4価核種と腐植物質との錯生成データ取得において実績のあるキャピラリー電気泳動(CE)とICP-MSを連結させたCE-ICPMS法(Stern et al., 2014)を整備し、HHAの錯生成データの取得を行ってきた（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金・管理センター, 2020; 2021; 2022）。整備したCE-ICPMSシステムの概略図を図3.4-4に示す。Agilent 7100 CEの外部接続用インターフェースを用いて装置外部に取り出したキャピラリーを、クロスインターフェースを介してAgilent 7900のネブライザーに接続した。このクロスインターフェースには、シリンジポンプとアースを接続し、シリンジポンプには濃度10 ppbのインジウムを含む0.1 Mの硝酸溶液を充填し、キャピラリーからの泳動液を支持するシースフローとして3 μL/minの流速で流した。サンプルのキャピラリー導入量の定量性を向上させるために、レオダイン製インジェクションバルブから濃度既知の試料の定量注入を行った。この際、インジェクションバルブを図中のクロスインターフェースに接続すると、流路が直交したためか全量がICP-MSに導入されなかった。よって、定量注入時はクロスインターフェースを介さず、インジェクションバルブを直接ネブライザーに接続することとした。インジェクションバルブのサンプルループの容量は2 μLである。

令和2年度にHHAとZr^{4+}の錯生成データを取得した際には、データ取得条件に十分幅を持たせられなかったためか、フィッティングが収束せず、NICA-Donnanモデルパラメータが導出できなかった。そのため、令和4年度は、より広範な条件でHHAとZr^{4+}の錯生成データを取得し、NICA-Donnanモデルパラメータの導出を試みるとともに、FFF-ICPMS法による結果との比較検討から、FFF-ICPMS法における回収率補正手法の妥当性を検証することとした。本試験に供した試料と測定条件を表3.4-3に示す。

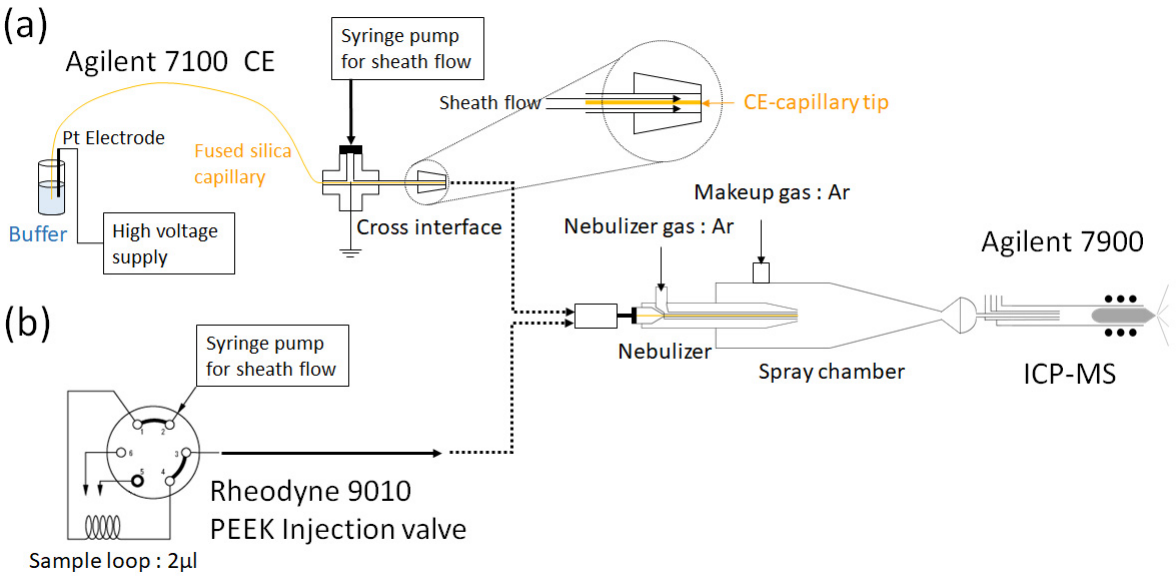


図3.4-4　CE-ICPMSシステム概略図
(a) CE-ICPMS測定時　(b) 定量注入時

表3.4-3　CE-ICPMSの測定に供した試料のリストと測定条件

pH	Zr濃度（μM）	HHA濃度（ppm）	EDTA濃度（μM）	印加電圧（kV）	印加圧力（mbar）
5.0	0.022	20	0.25	15	0
6.0	0.055	20	0.30	20	0
7.1	0.110	20	0.50	15	-30
7.1	0.022	20	0.50	15	-30
8.0	0.110	20	0.50	15	-50

HHAにZr^{4+}がカルボキシル基サイトと1:1で錯生成することを仮定した際のHHAとZr^{4+}の条件付き平衡定数(K_c)は、下記の式(3.4-8)で定義される。

$$Zr^{4+} + HHA^{-} = ZrHHA^{3+} \quad \text{において} \quad K_c = \frac{[ZrHHA^{3+}]}{[Zr^{4+}][HHA^{-}]} \tag{3.4-8}$$

Zr^{4+}, HHAおよびEDTAが存在する系において、Zr-EDTA錯体とZr-HHA錯体との交換反応の平衡定数(K_{exch})は以下の式(3.4-9)で定義される。

$$ZrEDTA^{0} + HHA^{-} = ZrHHA^{3+} + EDTA^{4-} \quad \text{において} \quad K_{exch} = \frac{[ZrHHA^{3+}][EDTA^{4-}]}{[ZrEDTA^{0}][HHA^{-}]} \tag{3.4-9}$$

また、Zr^{4+}とEDTAとの錯生成の平衡定数($\log K_{ZrEDTA} = 29.25$, Morel et al., 1993)は以下の式(3.4-10)で定義される。

$$Zr^{4+} + EDTA^{4-} = ZrEDTA^{0} \quad \text{において} \quad K_{ZrEDTA} = \frac{[ZrEDTA^{0}]}{[Zr^{4+}][EDTA^{4-}]} \tag{3.4-10}$$

最終的に、HHAへのZr^{4+}の結合反応の条件付き平衡定数は、Zr^{4+}とEDTAの錯生成の平衡定数を用いて、

$$\log K_{c} = \log K_{exch} + \log K_{ZrEDTA} \tag{3.4-11}$$

となる。

図 3.4-5 に、EDTA, HHA 共存下における Zr^{4+}のフラクトグラムの一例を示す。この図において、測定時間 215 秒付近のシャープなピークが Zr-EDTA のピークと判断される。また、HHA は分子量分布を持つために Zr-HHA 錯体のサイズが一様ではないこと、熱力学計算から本試験系における Eu の加水分解種の存在量が極めて少ないことから、400 秒付近の比較的ブロードなピークは Zr-HHA 錯体のピークであり、HHA の存在によって、Zr-EDTA 錯体から Zr-HHA 錯体への交換反応が起こっていることが確認できる。それぞれのピークの面積から Zr 錯体の物質量を計算し、サンプル注入量を乗ずることで Zr-EDTA、Zr-HHA の濃度を決定した。式(3.4-11)からみ

かけの錯生成定数を導出した結果を、令和 3 年度までに実施してきた FFF-ICPMS、および CE-ICPMS による Zr^{4+} と HHA のみかけの錯生成定数とともに表 3.4-4 にまとめた。

CE-ICPMS によって導出した Zr^{4+} と HHA のみかけの錯生成定数は、いずれの pH においても、[COOH]/[Zr]モル比に伴い増加した。これは、HHA の結合サイトの強さが一様でないことを反映しており、典型的なフミン酸と同様の傾向を示している。CE-ICPMS によって導出したみかけの錯生成定数は、FFF-ICPMS によって導出した結果よりも、1 桁から 2 桁程度大きな値となった。これは主に Eu-EDTA 錯体と Eu-HHA 錯体の交換反応の平衡定数(K_{exch})の差に起因しており、Zr-EDTA と Zr-HHA の交換反応の平衡定数を比較しても、やはり CE-ICPMS により導出した値が 1 桁程度大きい。この要因としては、FFF-ICPMS では、回収できた一部の HHA 画分と同等の錯生成能を、回収できなかった画分に仮定して平衡定数を評価しているのに対し、CE-ICPMS では、導入した HHA のほぼ全量を対象に平衡定数を評価していることが考えられる。すなわち、FFF で回収可能な画分よりも、回収できない分子量の小さな画分（300 Da 未満）や、膜と相互作用してしまう画分の方が高い錯生成能を有している可能性がある。これは同時に、一般的な腐植物質によく知られている高分子電解質効果の寄与が小さいことを示唆するものである。

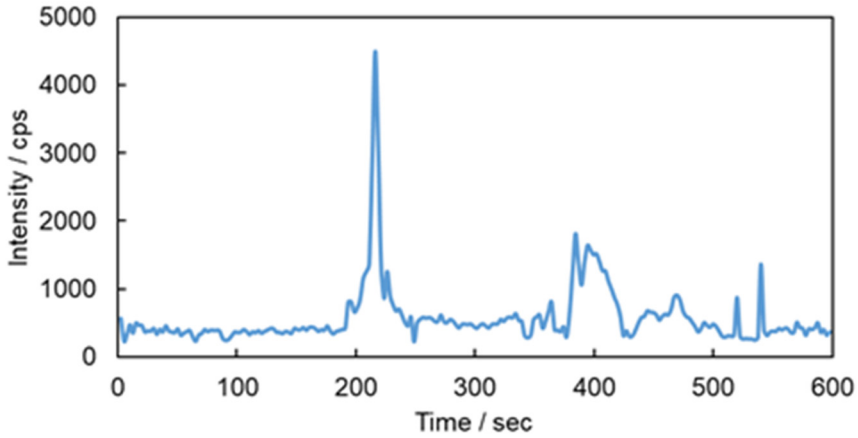


図3.4-5　CE-ICPMSから取得したZr^{4+}のフラクトグラム(pH 5, HHA 20 ppm)

表3.4-4　HHAへのZr^{4+}結合反応の条件付き平衡定数

	$C_{T,Zr}$ (μM)	[COOH]/[Zr]モル比	logK_{exch}	logK_c	Reference
FFF-ICPMS	pH 5 (C_T.EDTA = 0.25 μM)				
	0.110	796	-8.89	20.4	(1)
	0.055	1593	-8.79	20.5	(1)
	0.022	3982	-8.41	20.8	(1)
	pH 6 (C_T.EDTA = 0.25 μM)				
	0.110	796	-7.3	21.9	(1)
	0.055	1593	-7.2	22.1	(1)
	0.022	3982	-6.2	23.0	(1)
	pH 8 (C_T.EDTA = 0.50 μM)				
	0.110	1026	-4.57	24.7	(1)
	0.055	2051	-4.81	24.4	(1)
	0.022	3982	-4.26	25.0	(1)
CE-ICPMS	pH 5 (C_T.EDTA = 0.30 μM*, 0.25 μM**)				
		325	-8.97	20.27	(2)
	0.110*	651	-8.83	20.42	(2)
		976	-8.79	20.46	(2)
	0.022**	3255	-8.63	20.62	**本研究**
	pH 6 (C_T.EDTA = 0.30 μM*, 0.50 μM**)				
		325	-6.56	22.69	(2)
	0.110*	651	-6.35	22.90	(2)
		976	-6.52	22.72	(2)
	0.055**	1302	-5.57	23.68	**本研究**
	pH 7 (C_T.EDTA = 0.50 μM)				
	0.110	651	-5.85	23.40	**本研究**
	0.055	1952	-5.20	24.04	(2)
	0.022	3255	-4.73	24.52	**本研究**
	pH 8 (C_T.EDTA = 0.50 μM)				
	0.110	651	-3.57	25.68	**本研究**

(1) 日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター(2020)
(2) 日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター(2021)

CE-ICPMS 法により得られた HHA への Zr^{4+}の結合量データへの NICA-Donnan モデルのフィッティングを行った。フィッティングは低親和性サイト（カルボキシル基型サイト(Site1)）のみを考慮した場合と、低親和性サイトに加えて高親和性サイト（水酸基型サイト(Site2)）も考慮した場合の 2 パターンで実施した。得られた結果を表 3.4-5 および図 3.4-6 に示す。なお、表 3.4-5 には FFF-ICPMS から決定された NICA-Donnan モデルパラメータも比較のために示した。この結果より、現状の CE-ICPMS で取得した結合量データをフィッティングする際、低親和性サイトの寄与を小さく評価してしまう傾向にあることが明らかとなった。NICA-Donnan モデルパラメータにおける n は結合サイトの安定度定数の分布幅の逆数に相当するため、n_1 の値が小さくなっていることは、非常に幅のある log K を使ってフィッティングしていることを意味しており、log K_1 の誤差が非常に大きくなっていることからも、有意なパラメータを決定できていないと考えられる。特に HHA への結合量が大きいプロットの再現性が低くなっており、確かな理由はわからないものの、CE-ICPMS 法から信頼性の高い NICA-Donnan モデルパラメータを決定するためには、錯生成定数既知の有機物と金属イオンを用いた解析手法の妥当性の検証や、錯生成デー

タ取得条件の最適化等が必要になると思われる。よって現状では、HHA と Zr^{4+}の錯生成における NICA-Donnan モデルパラメータとしては、FFF-ICPMS 法から決定したパラメータを用いるのが妥当であると判断した。

表3.4-5　CE-ICPMSにおける結合量のフィッティングより最適化されたNICA-Donnanモデルパラメータ

Generic parameter				
Donnan, b [i]	0.81			
	Site 1 (low-affinity)		Site 2 (high-affinity)	
$Q_{max,\ H}$ [i]	4.38		4.44	
p [i]	1		0.355	
Ion specific parameters for Zr^{4+}				
	$\log \tilde{K}_1$	n_1	$\log \tilde{K}_2$	n_2
FFF-ICPMS (Site 1 + Site 2)[ii]	7.93 (7)	0.30 (0.2)	22.80 (0.8)	0.57 (0.2)
CE-ICPMS (Site 1)	−5.38 (30)	0.094 (0.15)	-	-
CE-ICPMS (Site 1 + Site 2)	−20* (30)	0.08 (1.5)	21.8 (2.6)	0.64 (0.37)

i. Saito et al. (2015b)

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

* 制約条件の最小値

()内の数字はフィッティングの 95 %信頼幅に対応するパラメータの誤差を表す

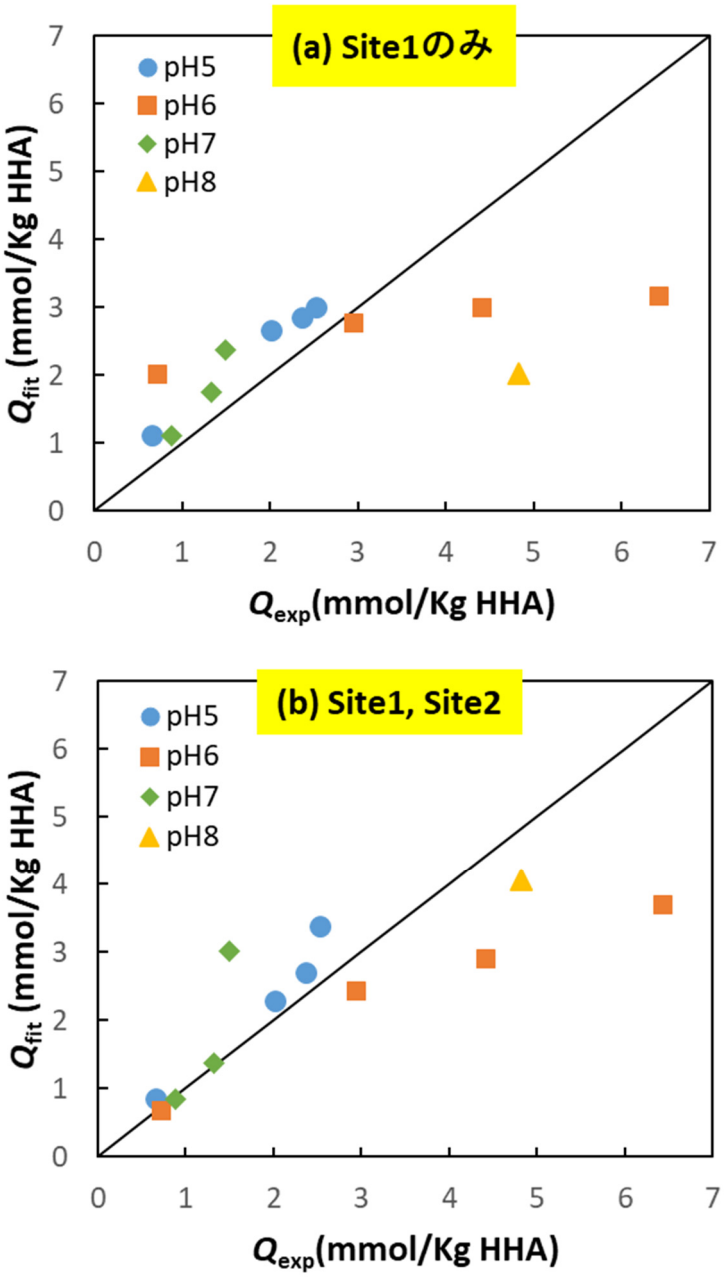


図3.4-6　CE-ICPMSから導出した結合量に対するNICA-Donnanモデルフィッティング結果

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

令和4年度までに整備してきた、幌延深部地下水から抽出・精製したフミン酸のNICA-Donnanモデルパラメータを表3.4-6に示す。Eu^{3+}とのモデルパラメータについては、時間分解レーザー蛍光分光法（TRLFS法）から取得したpH・イオン強度依存性の錯生成データと、溶媒抽出法を用いて取得した金属イオン濃度依存性の錯生成データ（結合等温線データ）への同時フィッティングから導出している。Zr^{4+}とのモデルパラメータについては、より信頼性が高いと判断したFFF-ICPMS法から導出した錯生成データのものを採用した。

表3.4-6　HHAの結合データに対するNICA-Donnanモデルのフィッティングより最適化されたパラメータ

Generic parameter				
Donnan, b [i]	0.81			
	Site 1 (low-affinity)		Site 2 (high-affinity)	
$Q_{max,H}$ [i]	4.38		4.44	
p [i]	1		0.355	
Ion specific parameters				
	$log\widetilde{K}_1$	n_1	$log\widetilde{K}_2$	n_2
H^+ [i]	3.74	0.82	10.62	1
Cu^{2+} [i]	1.32	1	14.43	0.28
Cd^{2+} [ii]	0.48	0.55	8.44	0.32
Eu^{3+} [iii]	0.95	0.72	11.53	0.41
Zr^{4+} [iv]	7.93	0.30	22.80	0.57

i. Saito et al. (2015b)
ii. 日本原子力研究開発機構(2013b)
iii. 日本原子力研究開発機構(2017)
iv. 日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター(2020)

プロトンに加え、2価 - 4価核種の一連のNICA-Donnanモデルパラメータの整備を達成したことにより、金属イオンの結合パラメータ（$n_i \log K_i$およびn_i）と第1加水分解定数($\log K_{OH}$)の線形自由エネルギー相関(LFER)を構築することが可能となった。サイト1、サイト2について構築したLFERを図3.4-7に示す。これを用いて、結合量データを取得していない評価対象核種や地下水中の共存金属イオンの一連のNICA-Donnanモデルパラメータの推定が可能となった。得られた線形近似式は下記の通りである。

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

得られた線形近似式を用いて、核種移行評価対象核種として選定した金属イオンおよび地下水中の共存イオンのNICA-Donnanモデルパラメータを推定し、表3.4-7に取りまとめた。

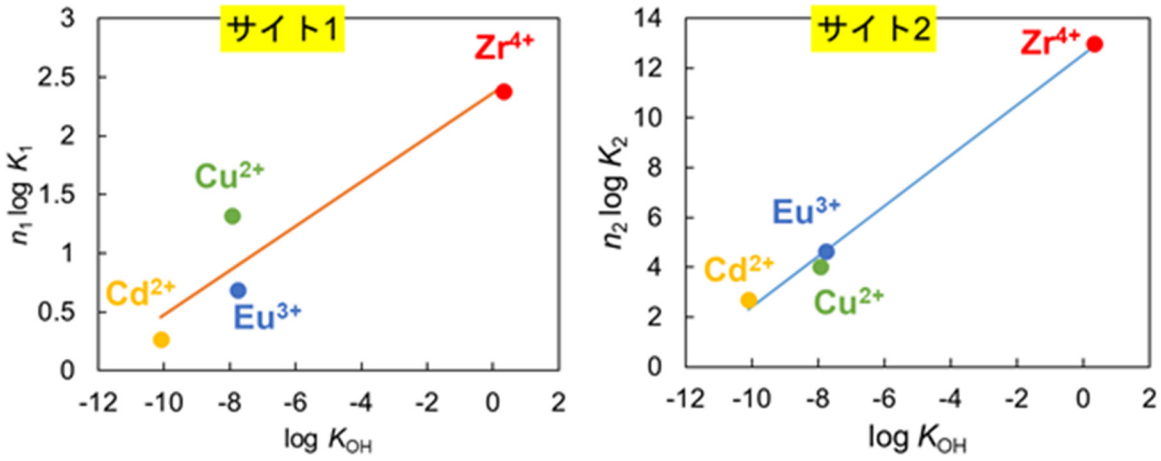


図3.4-7　HHAについて構築したLFER

表3.4-7　LFERより推定されたNICA-Donnanモデルパラメータ

移行評価対象金属イオン	$\log K_{OH}$	$\log K_1$	n_1	$\log K_2$	n_2
Cs^{+}	-15.685	-0.58	1.03	-21.53	0.16
Pb^{2+}	-6.91	1.59	0.67	14.53	0.38
Ra^{2+}	-13.47	-0.19	0.94	-5.29	0.21
Th^{4+}	-2.5	3.92	0.48	20.30	0.49
U^{4+}	-0.29	5.91	0.39	22.30	0.55
Am^{3+}	-7.2	1.48	0.68	14.03	0.37
地下水共存金属イオン					
Ca^{2+}	-12.85	-0.07	0.91	-2.18	0.23
Mg^{2+}	-11.794	0.16	0.87	2.24	0.26
Al^{3+}	-4.99	2.43	0.59	17.42	0.43
Fe^{2+}	-9.5	0.74	0.77	9.23	0.31
Fe^{3+}	-2.188	4.16	0.47	20.61	0.50

④ 熱量滴定法によるZr(IV)の錯生成反応における熱力学量の推定

4価の陽イオンであるZrは、水溶液中では容易に加水分解種を生成することが知られており、水酸基の配位数や形式電荷も溶液中のpHによって多様に変化すると考えられている(Brown et al., 2005; Rai et al., 2018)。しかしながら、Zr^{4+}の加水分解反応における熱力学量の報告値はギブズ自由エネルギーに相当する平衡定数に限られており、結合エネルギーを意味する反応エンタルピーを反応熱から導出した例はない。Zr^{4+}が地下水中の天然有機物と錯生成する際の化学形についても知見が不足しており、加水分解したZr^{4+}に結合している水酸基の、天然有機物との錯生成への寄与の有無についても明確ではない。そこで平成31年度に、ナノジュールオーダーで溶液反応における反応熱を測定可能な熱量滴定法をZr^{4+}の加水分解反応に適用し、バッチ式にpHの変化を電極でモニタリングしながら反応熱を測定することによって、加水分解反応における反応エンタルピーの導出を行った。また、地下水条件のような中性pH領域において、この熱量滴定法を腐植物質とZr^{4+}の錯生成反応に適用するためには、ZrO_2(s)の固相が生じることを防ぐために、EDTA

等の競合配位子を添加する必要があり、ZrとEDTAの錯生成反応における反応熱力学量を整備する必要性を指摘した。そこで令和4年度は、酸性条件におけるZrとEDTAの錯生成反応に熱量滴定法を適用し、Zr-EDTA錯体の生成エンタルピーの導出を行った。

本調査においては、pH 1、濃度10 mmol/(dm)^{3}のZr過塩素酸溶液2 mlに対して、pH 1、濃度3 × 10^{-6} mol/(dm)^{3}のEDTA溶液を50 μLずつ15回にわたって滴下し、反応熱とpHの変化を連続的に測定した。それぞれの滴下間のインターバルは、60分間である。

本試験系における熱量滴定の結果(a)と、Visual MINTEQ Ver.3.1 (Gustafsson, 2016)を用いて計算した、滴定時におけるZr化学種の変化(b)を図3.4-8に示す。なお、(b)中には、pH電極の読み値の変化も同時にプロットした。この図より、ZrとEDTAの錯生成反応に伴う反応熱を十分検出できていること、EDTAの滴下に伴うpHの変化はほとんど無視できることがわかる。ここで、滴下液のEDTAのpH 1における化学種分布の計算値を図3.4-9に示す。これにより、滴下液中のEDTAはほとんどがH^+と結合しており、ZrEDTA(aq)錯体を形成する際には、脱プロトン化反応由来の反応熱が発生することがわかる。よって、(a)の観測熱は、ZrEDTAの錯生成反応熱、EDTAの脱プロトン化反応熱および希釈熱の総和となる。ここで、EDTAの脱プロトン化反応熱は、NIST_TDBに収録されている生成エンタルピーを用いて計算し、観測熱から差し引くことでZrEDTA(aq)の錯生成反応熱を導出した。1回目の滴下では、熱平衡の待ち時間による拡散影響や希釈熱の影響が大きくなることが予想されたため、2回目から15回目の滴下による反応熱を積算し、ZrEDTA(aq)の生成量の計算値で除することで、ZrEDTA(aq)の錯生成エンタルピーを－56.03 kJ mol/(dm)^{3}と推定した。

今後の課題として、Zrと天然有機物との錯生成反応における錯生成エンタルピーの導出が挙げられる。熱量滴定の適用のためには、一回の滴下毎にどの程度錯生成反応が進行するかを予め計算する必要があるため、FFF-ICPMS法から決定したNICA-Donnanモデルパラメータを決定した条件における反応熱を測定できれば、Zrと天然有機物の結合エネルギーを決定し、その化学形（Zr^{4+}が配位しているのか、$ZrOH^{3+}$等の加水分解種が配位しているのか等）についても知見を得ることが期待される。

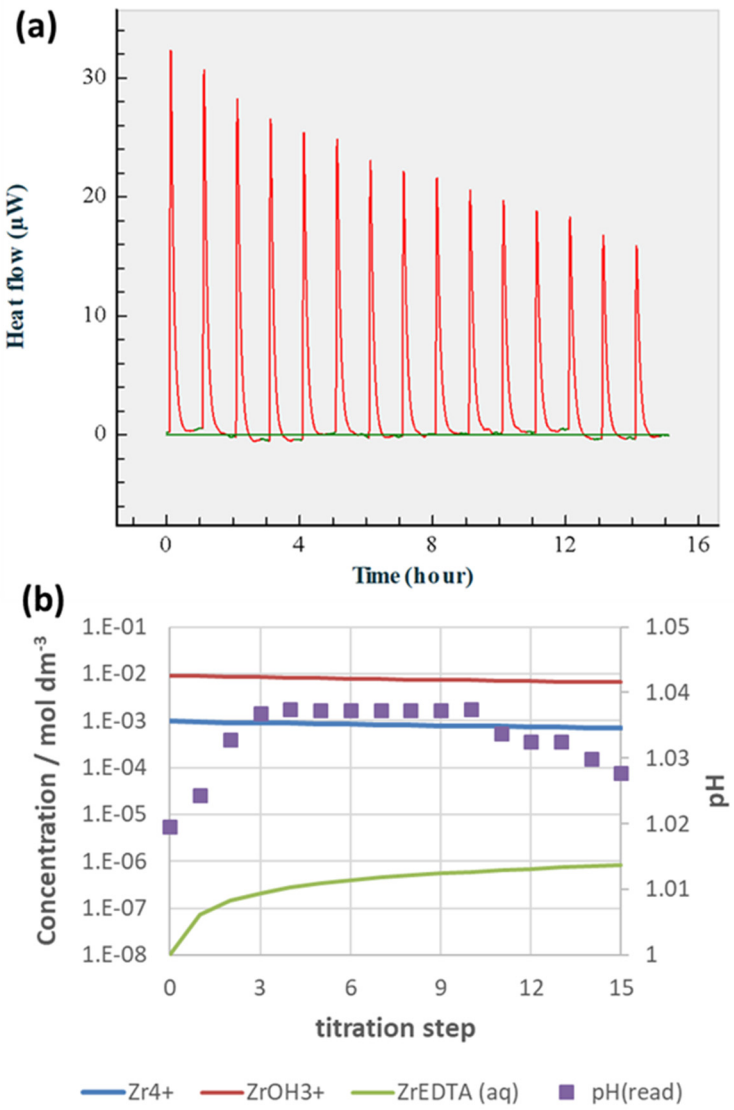


図3.4-8　Zrの錯生成熱量滴定結果(a)と各滴定点におけるZrの化学種の変化(b)

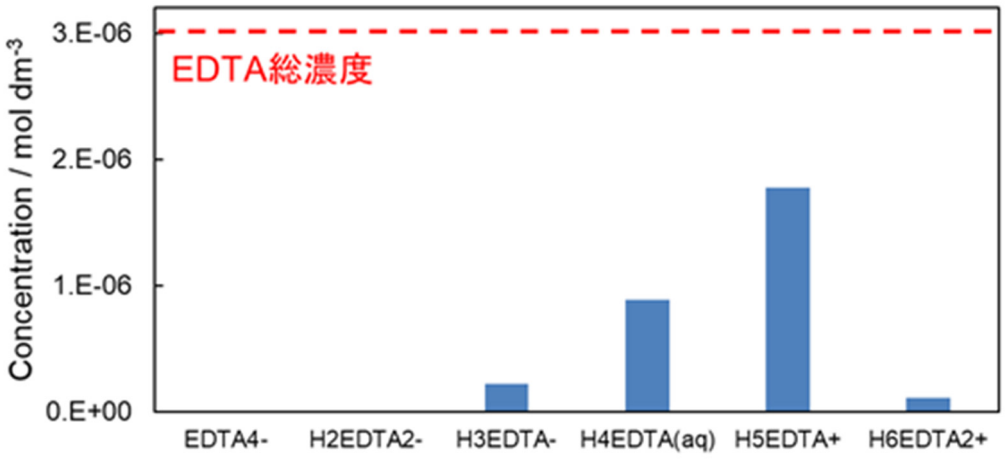


図3.4-9　滴下EDTA溶液(pH 1)中の化学種分布

2) 核種 - 有機物 - 岩三元系における核種収着モデルの開発

天然有機物による核種移行への影響を現実的に評価するには、核種の岩石への収着に対する天然有機物の影響を定量的に評価する必要がある。定量評価には、核種 - 天然有機物 - 岩石三元系における核種収着モデルが不可欠となるが、現在、有用なモデルは存在していない。そこで、核種 - 天然有機物 - 岩石三元系における核種の収着モデルの開発に向けて、核種 - 岩石、核種 - 天然有機物、天然有機物 - 岩石の3種類の二元系モデルの加成則アプローチが検討されている（Joseph et al., 2011; 2013; Seida et al., 2010; 日本原子力研究開発機構, 2013a）。このアプローチは、独立した複数の二元系モデルを足し合わせることで、岩石への核種の収着量を算出する手法であり、既存の二元系モデルやパラメータを用いることによって簡易に多元系モデルに展開できる可能性がある。このアプローチは、それぞれの二元系相互作用が他の二元系相互作用に影響しないことと、それぞれの反応が可逆的であることを前提に成立する。例えば、上記3種類の二元系からなると仮定した三元系の加成則アプローチが成立するためには、天然有機物の存在による岩石への核種の収脱着性の変化、岩石の存在による天然有機物と核種との錯生成能の変化および核種の存在による岩石への天然有機物の収脱着性の変化が生じず、天然有機物や岩石に不可逆に吸着する核種の割合が十分小さいことが前提となる。加成則アプローチによって三元系モデルを構築するためには、以上の前提が成り立つ条件や、三元系モデルの構築に必要となる二元系の反応を明らかにする必要がある。地層処分が行われる実際の深部地下環境においては、岩石に含まれる多様な鉱物、天然に存在する多様な有機物および地下水に含まれる多様な成分が核種の収着に影響すると考えられる。したがって、加成則アプローチを用いた地下環境における三元系収着のモデル化においては、深部地下環境により近い条件における三元系収着試験から有機物の影響を検討することが必要となる。これまでに日本原子力研究開発機構は、幌延URLの堆積岩および有機物を用いたEuの三元系収着試験を行って加成則アプローチによるモデル化を検討しており（日本原子力研究開発機構, 2013a）、三元系収着モデル構築における加成則アプローチの有用性や適用可能性の高さが示されている。堆積岩を母岩とする地下水には比較的高濃度の炭酸イオンが溶け込んでおり、幌延URLにおける地下水中の炭酸イオン濃度は10^{-2} mol/$(dm)^3$のオーダーとなる（宮川ほか, 2020）。炭酸イオンは核種と錯形成して収着挙動に影響することから(Marques Fernandes et al., 2008; 2016)、収着に対する有機物の影響は、炭酸イオンとの競合や相互作用によって干渉される可能性がある。しかし、これまでに行われた三元系収着の加成則アプローチによるモデル化検討（日本原子力研究開発機構, 2013a）では、炭酸イオン成分が幌延の深部地下水とは大きく異なっており、天然有機物以外の成分も含まれる、実際の地下水に近い条件におけるモデルの適用性評価が必要である。そこで、核種の収着挙動に大きな影響を及ぼす炭酸イオンに着目し、幌延深部地下水と同程度の炭酸イオンが共存した系における核種の収着に与える有機物影響評価についてデータの取得を行った。

有機物影響に干渉する可能性のある成分が複数含まれている実地下水を用いた核種の収着は、かなり複雑な反応となることが予想されるため、幌延深部地下水の炭酸濃度を模擬した水溶液を使用した。岩石には、幌延URLの深度350 m地点で採取された堆積岩（稚内層）を用い、有機物には、幌延URLの深度250 m地点の地下水から採取されたHA(HHA)および比較として物理的化学的性質がよく調べられている国際腐植物質学会(IHSS)のLeonardite標準フミン酸(LHA)を用いた。また、核種には、高レベル放射性廃棄物に含まれるアクチニドのアナログ元素としてEu(III)を用いた。

収着試験は、表3.4-8に示した条件に従いバッチ法により大気下で実施した。堆積岩としては、粉砕して63 μm以下に分画化したものを用いた。炭酸濃度は$NaHCO_3$およびNa_2CO_3を加えて調整し、これらの添加比率を変えるあるいはNaOHを添加することでpH調整を行った。固相分離は孔

径0.45 μmのメンブレンフィルターを用いた濾過により行った。収着平衡後のEu濃度はICP-MSを用いて測定し、収着分配係数(K_d)を計算した。

令和3年度は、HAと炭酸の両方を含む系においては、EuのHA錯体にHAだけでなく炭酸も関与したEu-CO_3-HA錯体の形成や、Eu-HA錯体の岩石への収着を考慮した加成則モデルを用いることで、Euの岩石への収着挙動を正確に予測できる可能性が示唆された。ここでは、加成則モデルに組み込まれたEu-HA錯体の生成量の定量化の方法として、単純な電荷中和モデルが用いられた。その電荷中和モデルによるEuとHAとの錯生成定数は、フィッティングパラメータとして加成則モデルに組み込まれ、収着試験の実験値K_dへのフィッティングによって最適化して用いられた。

令和3年度には、実験を実施した条件において加成則モデルが成立することが示唆されたことから、令和4年度は、これまでの事業でパラメータが整備されてきたNICA-DonnanモデルをEu-HA錯体の生成量の計算方法として用いることによって、Euの岩石への収着モデルに加成則モデルを使用できるかどうかを検討した。また、実際の原位置における核種濃度は、これまで試験を行ってきた1.0×10^{-6} mol/(dm)^{3}よりも低いことが予想される。より低濃度側での収着挙動の傾向をつかむために1.0×10^{-7} mol/(dm)^{3}での収着試験も実施し、その結果を比較した。

表3.4-8　収着試験の条件

Eu初期濃度/ mol dm^{-3}	1.0×10^{-6}, 1.0×10^{-7}
HA濃度/ mg dm^{-3}	10, 50
イオン強度/ mol dm^{-3}	2.0×10^{-2}
全炭酸濃度/ mol dm^{-3}	5.0×10^{-4} - 5.0×10^{-2}
pH	9±0.5
固液比/ g dm^{-3}	1.0
遠沈管材質	テフロン

岩石へのEuのK_dの炭酸濃度依存性を調べた結果を図3.4-10に示す。HA無添加の系では、炭酸濃度の増加とともにK_dが大きく低下し、HAが共存する系では、HA無添加の系に比べてK_dが減少していた。このHA共存時のK_dの減少は、HAを添加したことによって水溶液中のEuの化学種として岩石に収着しにくいHA錯体が支配的になることが原因であると考えられた。その効果はHHAよりもLHAの方が大きく、Euとの錯生成能の違いを反映していると考えられた。HAによるK_dの減少効果は炭酸濃度が高くなるほど低下していることから、炭酸錯体の形成がHA錯体の形成を阻害していると考えられた。

HAは、それぞれ錯生成能が異なる多数の官能基を持つ大きな分子である。錯生成能の高い官能基から優先的に核種と錯生成することから、一つひとつの官能基ではなく全体でみるHAの錯生成定数は、HAの官能基とEuの濃度比に依存して変化する。Eu濃度に対する官能基濃度の割合([COOH]/[Eu])が大きいほど、錯生成能の高い官能基と結合してできた錯体の割合が大きくなるため、みかけ上HAの錯生成定数が大きくなる。以上のことから、HHAの系においては、[COOH]/[Eu]が最も大きい、HHA濃度が10ppmで総Eu濃度が10^{-7} mol/(dm)^{3}である系において、HAを添加しない系と比較したときのK_dの減少量が最も大きくなったと考えられる。

NICA-Donnanモデルを用いてEu-HA錯体の生成量を見積り、生成したEu-HA錯体が岩石に収着しなくなると仮定した加成則モデルによって、K_dの値を計算した。NICA-Donnanモデルによる Eu-HA錯体の生成量の計算は、Visal MINTEQ Ver3.1 (Gustafsson, 2016)を用いて行った。Euの熱力学データは、NAGRA/PSI TDB (Hummel et al., 2002)（表3.4-9）に収録の値を使用し、その

他の熱力学データは、Visal MINTEQの初期TDBであるNIST TDBに収録の値を用いた。NICA-Donnanモデルのパラメータには、HHAについては、日本原子力研究開発機構(2018)の報告値を用い、LHAについては、genericパラメータ(Milne, 2001, 2003)を用いた（表3.4-10）。加成則モデルによるK_dの計算について以下に記述する。

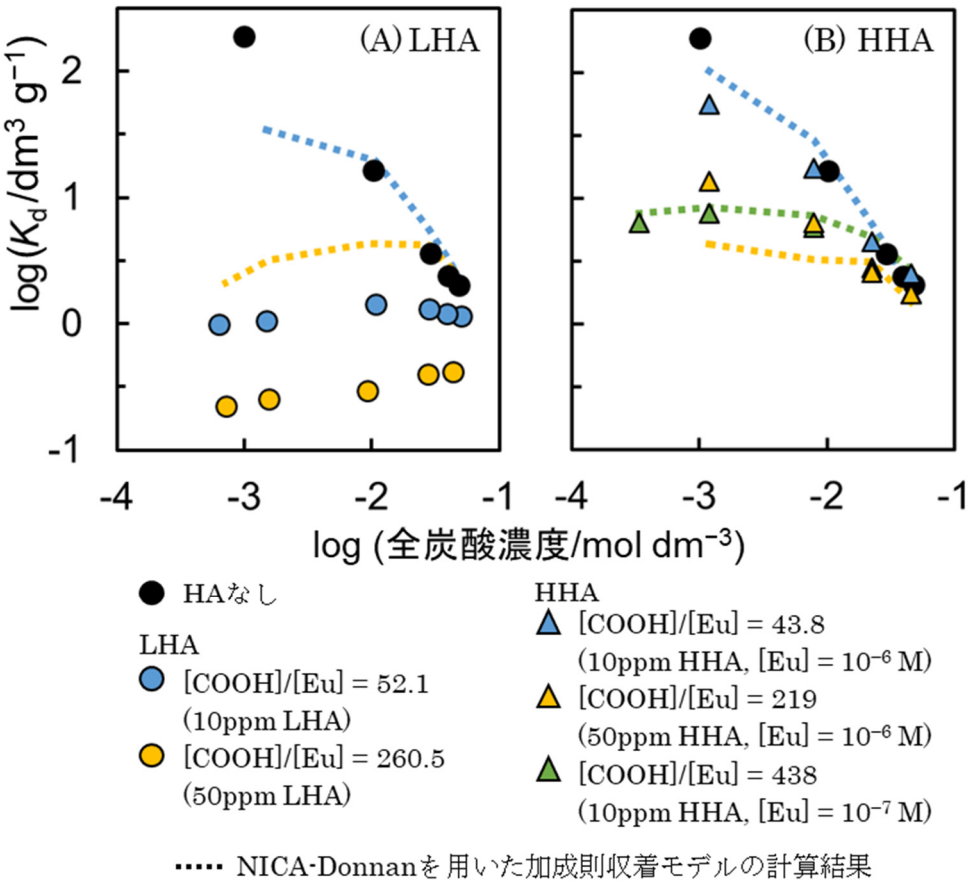


図3.4-10　Euの収着の炭酸濃度依存性

表3.4-9　解析に使用した定数

		反応	文献
log $K_{Cl,1}$	1.1	$Eu^{3+} + Cl^- \rightleftarrows EuCl^{2+}$	Hummel et al. (2002)
log $K_{Cl,2}$	1.5	$Eu^{3+} + 2Cl^- \rightleftarrows EuCl_2^+$	Hummel et al. (2002)
log$K_{OH,1}$	−7.64	$Eu^{3+} + H_2O(l) \rightleftarrows EuOH^{2+} + H^+$	Hummel et al. (2002)
log $K_{OH,2}$	−15.1	$Eu^{3+} + 2H_2O(l) \rightleftarrows Eu(OH)_2^+ + 2H^+$	Hummel et al. (2002)
log $K_{OH,3}$	−23.7	$Eu^{3+} + 3H_2O(l) \rightleftarrows Eu(OH)_3 + 3H^+$	Hummel et al. (2002)
log $K_{OH,4}$	−36.2	$Eu^{3+} + 4H_2O(l) \rightleftarrows Eu(OH)_4^- + 4H^+$	Hummel et al. (2002)
log $K_{CO3,1}$	8.1	$Eu^{3+} + CO_3^{2-} \rightleftarrows EuCO_3^+$	Hummel et al. (2002)
log $K_{CO3,2}$	12.1	$Eu^{3+} + 2CO_3^{2-} \rightleftarrows Eu(CO_3)_2^-$	Hummel et al. (2002)
log $K_{a,LHA}$	4.59	$(LHA)(H^+) \rightleftarrows LHA + H^+$	Sonke and Salters (2006)
log $K_{a,HHA}$	4.79	$(HHA)(H^+) \rightleftarrows HHA + H^+$	日本原子力研究開発機構(2018)
LHAのカルボキシル基濃度 /meq g^{-1}	3.15	−	Sonke and Salters (2006)
HHAのカルボキシル基濃度 /meq g^{-1}	4.38	−	日本原子力研究開発機構(2018)

表3.4-10　解析に用いたNICA-Donnanモデルパラメータ

パラメータ	幌延HA (HHA)	Generic HA
q^0 /eq kg^{-1}	−0.64	−
b	0.81	0.49
$Q_{max1,H}$ /eq kg^{-1}	4.38	3.15
p_1	1	0.62
$Q_{max2,H}$ /eq kg^{-1}	4.44	2.55
p_2	0.36	0.41
log $K_{1,H}$	3.74	2.93
$n_{1,H}$	0.82	0.81
log $K_{2,H}$	10.62	8.00
$n_{2,H}$	1	0.63
log $K_{1,Eu}$	0.95	1.92
$n_{1,Eu}$	0.72	0.57
log $K_{2,Eu}$	11.53	3.43
$n_{2,Eu}$	0.41	0.36

まず、HA錯体以外のEu化学種の濃度をまとめて次式(3.4-12)のように置換した。Euの化学種としては、Nagra/PSIの熱力学データベースに安定度定数が記載されている化学種を用いた（表3.4-9）。

$$[Eu^{3+}] + [EuCl^{2+}] + [EuCl_2^+] + [Eu(OH)^{2+}] + [Eu(OH)_2^+] + [Eu(OH)_3] + [Eu(OH)_4^-] + [Eu(CO_3)^+] + [Eu(CO_3)_2^-] = a \quad (3.4\text{-}12)$$

Eu-岩石二元系の収着において、Euの具体的な収着化学種には言及せず、Eu-岩石二元系の収着係数$K_{d,2}$は、岩石に収着したEu濃度を[$Eu_{rock,2}$]として次のように表せる。

$$K_{d,2} = \frac{[Eu_{rock,2}]}{a} \tag{3.4-13}$$

Eu-HA-岩石三元系の収着においては、Eu-HA錯体が収着しないとした場合、Euの収着化学種は二元系と同じであり、液相中の化学種としてEu-HA錯体が加わるので、Eu-HA-岩石三元系の収着係数$K_{d,3}$は次のように表せる。

$$K_{d,3} = \frac{[Eu_{rock,2}]}{a + [EuHA]} \tag{3.4-14}$$

さらに、式(3.4-14)より、$K_{d,3}$は

$$K_{d,3} = \frac{K_{d,2}\, a}{a + [EuHA]} \tag{3.4-15}$$

と表せる。NICA-Donnanモデルを用いたVisual MINTEQによる液相中のEu化学種濃度の計算値を、式(3.4-15)のaと[EuHA]に代入することで、$K_{d,3}$の値を計算できるように思われるが、そのようにして計算した場合、岩石に収着する分のEuの平衡への寄与を一緒に考えることができない。そこで、NICA-Donnanモデルを使って計算されたスペシエーションの結果を、単純な錯生成定数に変換することで、NICA-Donnanモデルによる Eu-HA錯体の生成量の計算を、平衡計算として収着モデル式に取り込むことにした。

単純な錯生成平衡では、Eu-HA錯体の錯形成反応は式(3.4-16)で表され、その錯生成定数は式(3.4-17)で表される。

$$Eu^{3+} + HA \rightleftarrows EuHA \tag{3.4-16}$$

$$K_{EuHA} = \frac{[EuHA]}{[Eu^{3+}][HA]} \tag{3.4-17}$$

さらに、$EuCl^{2+}$, $EuCl_2^{+}$, $Eu(OH)^{2+}$, $Eu(OH)_2^{+}$, $Eu(OH)_3$, $Eu(OH)_4^{-}$, $Eu(CO_3)^{+}$および$Eu(CO_3)_2^{-}$の錯生成定数をそれぞれ$K_{EuCl,1}$, $K_{EuCl,2}$, $K_{EuOH,1}$, $K_{EuOH,2}$, $K_{EuOH,3}$, $K_{EuOH,4}$, $K_{EuCO3,1}$および$K_{EuCO3,2}$とし、炭酸の2段階の酸解離定数および水相中の全炭酸濃度をそれぞれK_{a1}, K_{a2}および$C_{CO3,t}$とすると、二元系での水相中のEu化学種濃度の合計aは

$$\begin{aligned} a = [Eu^{3+}]\Bigg\{ & 1 + K_{EuCl,1}[Cl^-] + K_{EuCl,2}[Cl^-]^2 + \frac{K_{EuOH,1}}{[H^+]} + \frac{K_{EuOH,2}}{[H^+]^2} + \frac{K_{EuOH,3}}{[H^+]^3} + \frac{K_{EuOH,4}}{[H^+]^4} \\ & + K_{EuCO3,1}\frac{C_{CO3,t}\, K_{a1} K_{a2}}{[H^+]^2 + K_{a1}[H^+] + K_{a1}K_{a2}} + K_{EuCO3,2}\left(\frac{C_{CO3,t}\, K_{a1} K_{a2}}{[H^+]^2 + K_{a1}[H^+] + K_{a1}K_{a2}}\right)^2 \Bigg\} \end{aligned} \tag{3.4-18}$$

となることから、水相中のEu化学種濃度を表す係数として新たに α を設定し、

$$\alpha = \frac{\mathrm{a}}{[\mathrm{Eu}^{3+}]} \tag{3.4-19}$$

と置くと、式(3.4-15)は、式(3.4-17)および式(3.4-19)を用いて次のように表せる。

$$K_{\mathrm{d},3} = \frac{K_{\mathrm{d},2} \cdot \alpha}{\alpha + K_{\mathrm{EuHA}}[\mathrm{HA}]} \tag{3.4-20}$$

式(3.4-17)に基づき、Visual MINTEQのスペシエーション計算の結果からK_{EuHA}を計算し、式(3.4-20)の収着モデル式に基づいて$K_{\mathrm{d},3}$の値を計算し、結果を図3.4-10中に点線で示した。LHAでは実験値と計算値との乖離が大きかった一方で、HHAでは計算による実験値の再現性が高くなっており、HHAについては、収着モデルとして加成則モデルが成立する可能性が高いことが示唆された。HHAにおいて計算による実験値の再現性が高くなった理由としては、錯生成パラメータを個別に最適化できていることや、有機物の特性としてNICA-Donnanモデルとの適合性が高いことが可能性として考えられた。一方で、[COOH]/[Eu]の値が219の系（全HHA濃度：50ppm、全Eu濃度：10^{-6} mol/(dm)^3）と、438の系（全HHA濃度：10ppm、全Eu濃度：10^{-7} mol/(dm)^3）の計算結果は、実験値および予想されるK_{d}値の大小の序列と異なっていた。より精度の高い錯生成モデルパラメータを整備するためには、この原因を明らかにする必要がある。

一方で、LHAについては、加成則収着モデル計算によるK_{d}の再現性が低かった。この理由として、NICA-Donnanモデルパラメータが合っていないこと、不可逆的な結合による錯生成が存在すること、あるいはEu-CO_3-HA錯体の形成等、収着モデルに考慮されていない反応が寄与していることが可能性として考えられた。

今後、与えられた場に応じた有機物の影響を収着モデルに反映する方法を確立するためには、加成則モデルが成立しない場合、例えば不可逆的な結合やEu-CO_3-HA錯体の形成等の、Eu-HA錯体の形成以外の反応が収着機構に寄与する場合の、収着モデル式の補正手法や、NICA-Donnanモデルパラメータの最適化手法の検討を進める必要がある。また、与えられた場、あるいは有機物の特徴から、有機物の影響を収着モデルに取り入れる方法を判断できるようにするために、様々な環境下に存在する有機物の影響を調べ、分類していくことも必要となると考えられる。

(3) 性能評価解析への反映と課題

先行事業（日本原子力研究開発機構, 2018）において、有機物による影響が顕在化する可能性の高い3価・4価核種を対象に、降水系地下水条件における有機物影響を考慮した性能評価解析を実施した。ここでは、過度に保守的な評価にならず、且つ現実的な評価が可能な有機物として、Aldrich社の販売するフミン酸(AHA)に対する金属イオンの分配係数を評価に用いた。しかしながら、腐植物質の特性や錯生成能等はその生成履歴によって大きく異なることが知られており、深部地下環境中における核種移行に及ぼす有機物影響を評価するためには、実際に深部地下水中に溶存しているフミン酸を対象とした性能評価解析が必要不可欠である。また、現行の性能評価解析では加成則性の成立が前提となっている。そこで三元系収着試験から加成則性が成立する可能性が高いことが確かめられ、2)③項でNICA-Donnanモデルパラメータを整理した、HHAを対象に性能評価解析を実施した。

① 分配係数の設定

本検討では、NICA-Donnanモデルを用いて、与えられた地下水条件における評価対象核種と天然有機物との錯生成評価を行い、より現実的な分配係数を算出した。先行事業（日本原子力研究開発機構, 2018）における報告値との比較のため、花崗岩中の亀裂を降水系地下水が流れる地下環境条件を想定し、H12レポート（核燃料サイクル開発機構, 1999）におけるレファレンスケースの降水系地下水条件（表3.4-11）を対象に分配係数を算出した。有機物に対する分配係数の導出には、2)③項で構築したLFERより導出したNICA-Donnanモデルの結合パラメータを用いて、評価対象核種および地下水共存イオンの有機物への分配係数K_{d_DOM}を算出した。その際には、NICA-DonnanモデルパラメータをVisual MINTEQ Ver.3.1(Gustafsson, 2016)に導入し、降水系地下水条件における平衡計算を行うことで、有機物への結合を評価した。熱力学データベース(TDB)は、共存イオンについてはNIST_TDB（Visual MINTEQ初期TDB）を、評価対象核種についてはJAEA_TDB(Kitamura et al., 2020)を用いた。評価対象核種の濃度は、先行事業と同様に、表3.4-11の地下水に対する核種の溶解度として設定した。また、有機物の濃度は、幌延深部地下水中の溶存有機物に占める腐植物質の割合（日本原子力研究開発機構, 2013b）から、10 mgC /(dm)^3 (1.0 × 10^{-2} kg of C m^{-3})と設定した。

計算結果を表3.4-12に示す。Cs, Pb, Ra, Th, UおよびAmについて、K_{d_DOM}値を算出することができた。RaはVisual MINTEQにおいて設定されていないため、CaやSrとの化学類似性を利用して、Srのパラメータに Raのパラメータを導入することで算出した。Sm, AcおよびCmについては、Amとの化学類似性からAmのK_{d_DOM}値を設定した。Zr, NpおよびPuについては、Thとの化学類似性からThのK_{d_DOM}値を設定した。TcとPaについては、熱力学データの不足からLFERを構築し平衡計算を実施することができなかったため、AHAに対する1:1結合モデルから算出された既存の報告値を用いた。Se, Nb, PdおよびSnについても、信頼性の高い熱力学データを利用できず計算が不可能だったため、コロイドに対するK_d値を採用した。

表3.4-11　解析に用いた地下水条件

	地下水（降水系）		
pH	8.5		
Eh [mV]	-281		
	mol L^{-1}	備考	Vsiual MINTEQ入力化学種名
Na (total)	3.6×10^{-3}		Na^+
Ca (total)	1.1×10^{-4}		Ca^{2+}
K (total)	6.2×10^{-5}		K^+
Mg (total)	5.0×10^{-5}		Mg^{2+}
Fe (total)	9.7×10^{-10}		Fe^{2+}
Al (total)	3.4×10^{-7}		Al^{3+}
C (total)	3.5×10^{-3}	無機炭素 = 3.5×10^{-3} mol L^{-1} , $CH_4(aq) = 1.5\times10^{-10}$ mol L^{-1}	CO_3^{2-}
S (total)	1.1×10^{-4}	$SO_4^{2-} = 1.1\times10^{-4}$ mol L^{-1}, $HS^- = 3.8\times10^{-9}$ mol L^{-1}, $H_2S(aq) = 1.2\times10^{-10}$ mol L^{-1}	$S(SO_4)$
B (total)	2.9×10^{-4}	実測地下水の平均値より設定	B(III)
P (total)	2.9×10^{-6}	実測地下水の平均値より設定	$P(PO_4)$
F (total)	5.4×10^{-5}	実測地下水の平均値より設定	F^-
N (total)	2.3×10^{-5}	実測地下水の平均値より設定	$N(NH_4^+)$
Cl (total)	1.5×10^{-5}	電荷バランスをとるために調整	Cl^-
Si (total)	3.4×10^{-4}		$Si(H_4SiO_4)$

表3.4-12　本調査において設定された評価対象核種の有機物への分配係数(K_{d_DOM})

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

※1 U(IV)のK_d値を採用

② 性能評価解析

新たに整備した有機物への分配係数（表3.4-12）と有機物濃度を性能評価解析コードGoldsim（仲島ほか, 2009）に導入して、H12レポートと同じ降水系地下水条件を対象に有機物影響を考慮した性能評価解析を行った。得られた解析結果を、コロイドや有機物の影響を考慮しないH12レファレンスケース、先行事業で有機物としてAHAを対象に実施した結果とともに、図3.4-11に示す。この結果をレファレンスケースと比較すると、AHAおよびHHAとの錯生成を考慮した場合、断層からの最大線量が2桁程度増加することが示された。これは、有機物濃度が10 mgC /(dm)^3 程度の地下水環境における核種移行評価において、有機物との錯生成による影響を無視しえないことを意味している。また、AHAを対象とした移行解析ではSe-79、Th-229が線量に占める割合が高いのに対して、HHAを対象とした場合は、Pb-210が占める割合が高く、次いでSe-79、Th-229となっている。これは、表3.4-12に示した、Pbに対する$\log K_{d_DOM}$がAHAでは1.7であるのに対して、HHAでは4.8と3桁程度上昇していることに起因している。K_dを導出する際に使用するPbとのNICA-DonnanモデルパラメータはどちらのケースにおいてもLFERから推定しており、AHAのモデルパラメータのうち特にHHAとの乖離が大きいのは$\log K_2$である。AHAでは$\log K_2 = 5.41$であるのに対し、HHAでは$\log K_2 = 14.53$となっており、高親和サイト（サイト2）の安定度定数の差によって解析結果に大きな差がみられた。これは、対象とする有機物の特性によって評価対象核種の移行挙動が大きく変化することを示唆するものである。加えて、この性能評価解析は錯生成反応を可逆的に取り扱い、加成則性の成立を前提としている。収着試験から、HHAに対してはこの加成則性が成立する可能性が高いことが示唆されているが、例えばLeonardite標準フミン酸(LHA)のように、対象とする有機物の錯生成・収着挙動に加成則性が成立しなければ、有機物影響はより顕在化する可能性がある。本事業の成果から、幌延地域の堆積岩地下環境を事例として、地下に存在するフミン酸を対象とした核種との錯生成や分配係数に関するデータを整備し、有機物影響を考慮した定量的な核種移行評価手法を提示することができた。今後、より信頼性の高い

有機物影響評価を実現するためには、処分環境に近い条件下での有機物の錯生成挙動や岩石への収着挙動を調査するための技術開発を進めるとともに、評価モデルパラメータ整備手法を高度化していくことが必要であると考えられる。

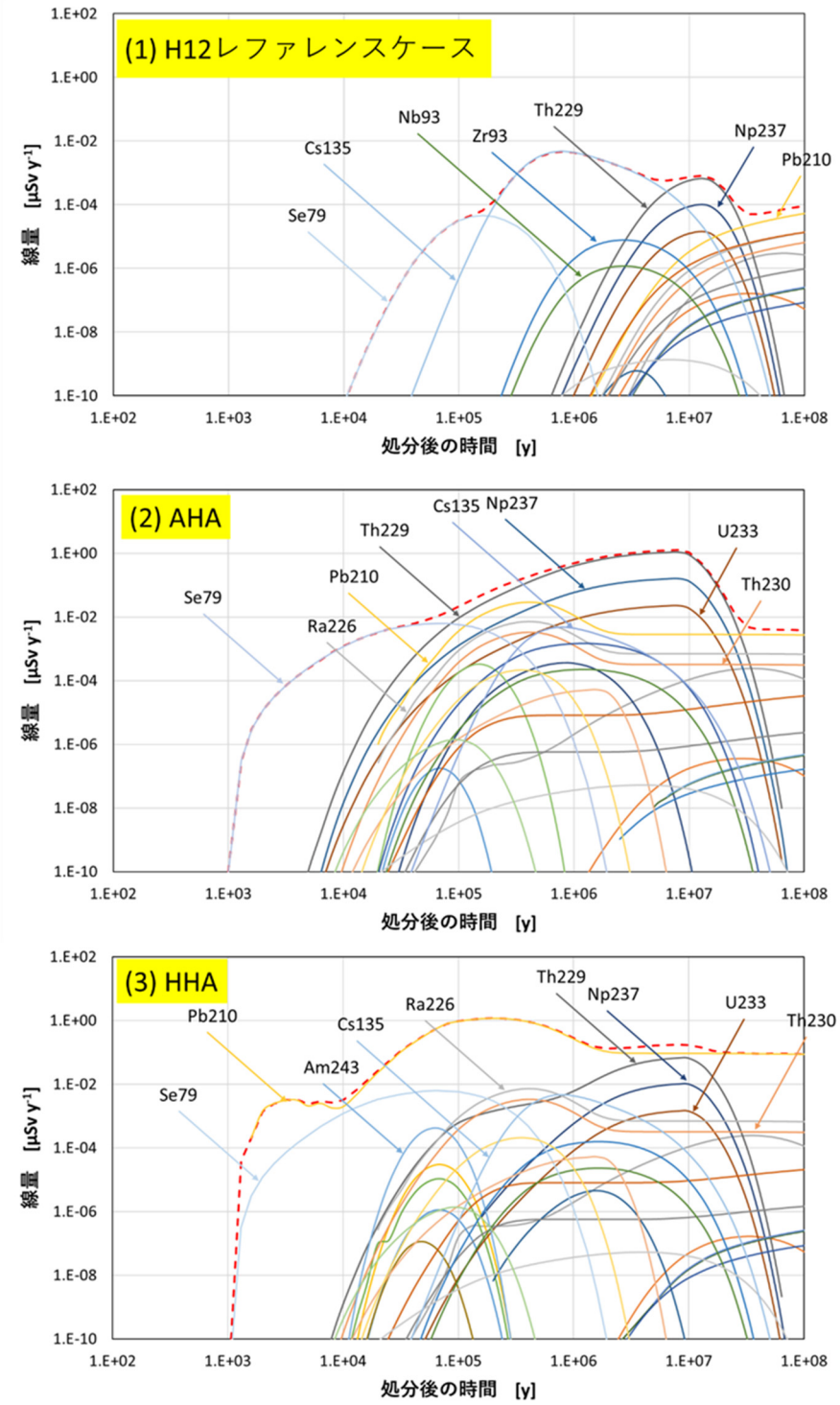


図3.4-11　有機物影響を考慮した性能評価解析結果
(1) コロイド、有機物影響を考慮しないH12レファレンスケース、(2) AHAとの錯生成を考慮した平成29年度の結果、(3) HHAとの錯生成を考慮した本調査の結果
線量は断層出口での値

(4) 5か年の成果と今後の課題

令和4年度は、FFF-ICPMS法およびCE-ICPMS法により、幌延深部地下水フミン酸(HHA)の錯生成データを拡充し、NICA-Donnanモデルパラメータを導出した。その結果、ZrとHHAのモデルパラメータは、FFF-ICPMS法から導出したものを採用するのが適当と判断した。また、これまでの5年間で整備してきたNICA-Donnanモデルパラメータから線形自由エネルギー相関(LFER)式を算出し、錯生成データを取得できていない評価対象核種に対しても、幌延深部地下水フミン酸への結合量を推定することが可能となった。核種-有機物-岩石三元系モデルの開発に向けては、核種-有機物の錯生成の記述にNICA-Donnanモデルを適用した加成則モデルを構築し、収着試験結果へのフィッティングを通じてその適用性を評価した。その結果、HHAの収着挙動を加成則モデルで良く記述でき、HHAに関しては加成則性が成立する可能性が高いことを明らかにした。以上を踏まえ、幌延地域の堆積岩地下環境を事例として、地下に存在するフミン酸を対象とした核種との錯生成や分配係数に関するパラメータを整備し、HHAとの錯生成を考慮した核種移行解析を実施した。その結果、有機物影響を考慮した場合は核種移行影響が顕在化する可能性が示され、有機物濃度が10 mgC /(dm)^3 程度の地下水環境における核種移行評価において、有機物との錯生成による影響を無視しえないことが示唆された。また、HHAを対象とした解析ケースでは、平成29年度に表層土壌フミン酸を対象に実施した解析と線量支配核種が異なることが明らかになり、有機物の特性によって評価対象核種の移行挙動が大きく変化しうることが示された。この核種移行解析においては、核種の有機物および岩盤への収着において加成則性が成立することを前提としているため、対象とする有機物の錯生成が不可逆的かつ加成則性が成立しない条件下では、有機物影響がより顕在化する可能性がある。一連の本事業の成果から、様々な核種を対象とした有機物との錯生成や分配係数に関するパラメータ整備手法、および有機物影響を考慮した定量的な核種移行評価手法を提示することができた。

今後の課題としては、核種-有機物の錯生成データ取得手法の信頼性向上が挙げられる。本調査におけるNICA-Donnanモデルパラメータの導出においては、FFF-ICPMS法を採用したが、FFF-ICPMSにおける回収率補正手法の妥当性を検証することはできなかった。また、NICA-Donnanモデルパラメータと第一加水分解定数のLFERから、錯生成データを取得していない核種のNICA-Donnanモデルパラメータを推定したが、図3.4-7に示したように、LFERを構成する金属イオンが4種類と少なく、LFERにおける分布も一様ではない。そのため、実際に錯生成データを取得する金属イオンを拡充し、LFERの信頼性を向上させるとともに、場が与えられ新たな対象有機物が設定された際の錯生成データ取得の優先順位を示せるよう、検討を進めていく必要がある。また、本調査において提示した核種-有機物-岩石三元系における加成則モデルについて、その適用性は対象とする有機物の特性によって左右されることが示された。よって、加成則性が成立しない有機物に対して、適切なモデルの補正等を検討し、有機物影響評価を可能とするための手法を開発していく必要がある。加えて、室内試験から構築したモデルやパラメータが、深部地下原位置における核種移行挙動に適用可能か、適用できない場合には、どういった補正やモデルの修正を行うかの検討が必要である。最後に、地下水から抽出した有機物の詳細な分析評価のみならず、地層処分研究の場が与えられた際に備え、地下水等を分析し有機物の核種移行挙動に及ぼす影響が顕在化する可能性について判定する技術開発も進める必要があると考えられる。

3.4.2 微生物影響評価技術の開発

(1) 背景と目的

放射性廃棄物の地層処分システムにおいて、人工バリアやその周辺母岩で構成されるニアフィールドおよび天然バリアには、放射性物質の移行を抑制する安全機能が期待される。しかしなが

ら、地下環境には膨大な数の微生物が存在することが明らかにされており（例えば、Fredrickson and Fletcher, 2001; Inagaki et al., 2015）、処分システムの安全機能にこれらの微生物が影響を及ぼす可能性が指摘されている(Pedersen, 1999; 2005; West et al., 2002)。地層処分システムに及ぼす微生物影響については、処分場閉鎖後の酸化還元状態の回復促進や水質形成、人工バリア内の金属容器の腐食および放射性核種の移行等が想定されており(Pedersen et al., 2014; 日本原子力研究開発機構, 2014, 2015)、微生物影響評価の不確実性を低減させるためには、地下環境を対象とした影響評価手法の開発と様々な環境から取得した知見の拡充が求められている。特に微生物は、「生きて活動している」というその性質上、室内試験における評価だけでなく、天然の地下環境を対象とした評価手法の確立やデータの取得が必要である。処分場閉鎖後の酸化還元状態の回復促進については、スウェーデンのThe Äspö Hard Rock Laboratory（以下、［Äspö HRL］という）、日本では幌延URLや瑞浪超深地層研究所地下施設を対象とした原位置試験および室内試験が行われており、酸化還元状態が擾乱を受けた場合でも、岩石 - 地下水 - 微生物の相互作用によって速やかに酸素が消費され(Kotelnikova and Pedersen, 1999)、還元環境が回復することが示されている（Amano et al., 2012; 林田ほか, 2018）。処分システムにおける金属容器の腐食への微生物影響については、多くの原位置試験が実施されており(Masurat et al., 2010; Stroes-Gascoyne et al., 2010)、現在も日本を含む世界各国で影響評価が進められている（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター,2021）。核種の移行への微生物影響については、カナダ原子力公社の地下研究施設やÄspö HRLにおいて花崗岩環境下のバイオフィルムを対象とした原位置試験等が報告されているが(Vandergraaf et al., 1997; Anderson and Pedersen, 2003; Anderson et al., 2006)、天然環境における核種と微生物の相互作用を理解する上で十分な知見があるとはいい難い。

そこで本事業では、地層処分システムにおいて想定されている微生物影響のうち、地下深部に存在する微生物が岩盤中の核種移行に及ぼす影響を評価するための技術を整備することを目的として、平成30年度は、核種移行への影響の観点から文献調査を行い、核種と微生物の相互作用反応について整理した（図3.4-12）。微生物と核種を含む元素の相互作用反応としては、①細胞表面への収着(biosorption)、②濃集(bioaccumulation)、③酸化還元反応による形態変換(bioreduction/oxidation)および④鉱物化(biomineralization)が主なものとして挙げられる。地下環境に生息する微生物が核種移行に及ぼす影響については、微生物の生息形態に大きく依存すると考えられる。すなわち、微生物が浮遊性（バイオコロイド）か、付着性（バイオフィルム）かにより、核種移行の促進/遅延影響が異なる。また、いずれの生息形態の場合でも、微生物と核種との相互作用反応により、核種移行への影響は異なってくると考えられる。そこで、平成31年度までに、幌延の地下研究施設を活用し、水質特性等が異なる地下水試料を対象としてバイオコロイドへの元素収着に関するデータを取得した。また、バイオフィルムの生息域や代謝機能等に関する情報を取得するとともに、取得したデータをもとにこれらの核種移行への影響メカニズムについて考察した。令和2年度は、堆積岩地下環境における微生物種の空間分布および地下施設建設過程における種組成の変化に関するモニタリング結果を取りまとめ、バイオフィルム形成領域の広がりやゲノム解析手法を用いた主要な代謝機構の空間分布について解析評価を行った。令和3年度は、水質だけでなく微生物特性が異なる地下水試料を対象として、バイオコロイドへの元素収着に関するデータを継続して取得し、収着分配係数に関わるデータの拡充と収着メカニズムについて考察した。また、微生物代謝が地下水の水質形成に及ぼす影響を評価するために、地下環境における微生物の空間分布と地下施設建設過程における経時変化についてデータを取得し、バイオフィルム形成領域や微生物代謝について評価した。

令和4年度は、バイオコロイドへの元素収着と取り込みに関するデータ取得、処分場建設フェー

ズに該当する地下施設建設過程の微生物群集組成の変化とバイオフィルム形成領域の空間分布に関する評価、微生物ゲノム解析に基づく代謝機能解析を実施し、取得した知見をもとに収着・濃集・取り込み等の核種と微生物の相互作用現象に関する理解を進めるとともに、核種移行評価上必要なパラメータや、性能評価上の微生物影響の取り扱いについて、課題とともに提示した。

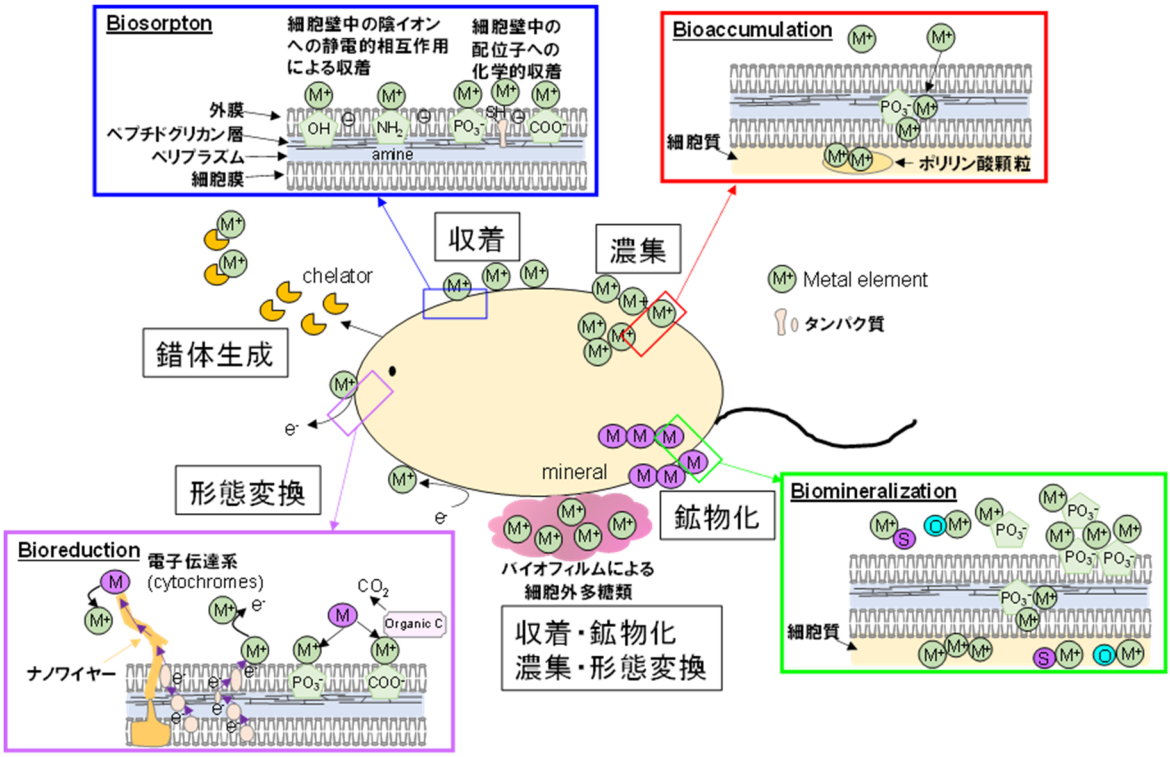


図3.4-12　微生物と元素との相互作用の概念図

(2) 実施内容

1) 地下水中のコロイドが核種移行に及ぼす影響評価手法の整備

地下水中には、無機あるいは有機の形態の様々な化学種のコロイドが存在することが知られており、地層処分システムにおいて、これらのコロイドが放射性核種の移行を促進する可能性が懸念されている（Miller et al., 2000; Kersting et al., 1999; Penrose et al., 1990; 長尾ほか, 2013）。微生物は、生態学的に固体表面に付着して生息するものと、水中において浮遊状態で生息するものが存在するが、後者の場合はコロイドと形態が類似していることから、浮遊状微生物（すなわちバイオコロイド）に核種が収着あるいは濃集された場合には、核種移行が促進されることが懸念される。また、微生物代謝により細胞内に核種が取り込まれて濃集した場合、核種の収着/脱着反応が不可逆的であると予測されるため（Anderson et al., 2011; 大貫, 2002; Pedersen, 2005）、無機コロイド等と比較すると核種移行の促進がより顕在化される可能性がある。地層処分システムにおける核種移行の長期的な影響評価を定量的に行うために様々な解析ツールが用いられているが、そのうちコロイド移行の影響を考慮した解析を行うことができるツールとして、汎用シミュレーションソフトウェアであるGoldSimやコロイド移行解析コードとして開発されたCOLFRACが挙げられる。GoldSim (ver. 10.1: GoldSim Technology Group, 2010)およびCOLFRAC (Ibaraki and Sudicky, 1995)を用いた核種移行解析結果やコロイド影響を考慮した既存の核種移行解析結果からは、コロイドが核種移行を顕在化する条件は、地下水中のコロイド密度、コロイドへの元素の収着分配係数および収着の不可逆性に関係することが示されている（久

野・笹本, 2010; 日本原子力研究開発機構, 2014）。しかしながら、地下水中のコロイドの密度やコロイドへの元素の収着分配係数に関する情報は、試料採取時の陸上由来物質の汚染や調査技術的な問題から、ほとんど知見がなく、核種移行解析に資するためのデータが不足していた。そこで、令和3年度までに、声問層において、地下施設の坑道壁面近傍（坑道壁面から4 mから20 mの領域）に分布する幌延URLの深度140 mおよび250 mのボーリング孔地下水および坑道壁面から比較的離れた領域に分布する深度185 mの地下水（図3.4-13）を対象として、地下水中に存在する無機・有機形態の全コロイドの密度・バイオコロイドの密度および全コロイド・バイオコロイドへの希土類元素の収着特性データを取得した（日本原子力研究開発機構, 2017, 2018; 日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019; 2020）。

令和4年度は、地質学・地球化学・微生物学的な特性がこれまでと異なる、稚内層を対象とした塩分濃度が10.5 %と比較的高い深度350 mの地下水試料（図3.4-13）について、地下水中に存在する全コロイドへの希土類元素の収着分配係数データを取得した。本ボーリング孔は、坑道壁面から比較的近傍に掘削されているボーリング孔であることから、微生物特性は既存調査孔である深度140 mおよび250 mの地下水試料と同様にバイオフィルム形成種である古細菌のAltiarchaeotaが優占種として検出されているが、水質等化学環境条件の違いにより、これまでの地下水試料と異なる微生物組成を示していることから、多様な条件下における収着データを拡充することができる。取得したデータについて、先行事業において提案された「微生物コロイドの評価手法フロー」に基づき、微生物コロイド（バイオコロイド）が地層処分システムの安全機能に及ぼす影響について、既存の核種移行解析ツールを用いて評価した。

① 地下水中の全コロイド濃度および微生物密度

地下水中の全コロイド濃度および微生物密度のデータを拡充するために、幌延深地層研究センター地下施設内に掘削されたボーリング孔から地下水を採取した（図3.4-13）。コロイド濃度については、0.22 μm孔径のデュラポアメンブレンフィルター(GVWP, Millipore)および0.1 μm孔径のデュラポアメンブレンフィルター(VVLP, MerckMillipore)を用いて地下水を濾過し、コロイド捕集後のフィルター重量を測定することにより、捕集物重量と濾過量から地下水中の各分画における全コロイド濃度（無機/有機・微生物コロイドの総量）を算出した。0.1 μm以上のサイズのコロイド捕集時には、0.22 μm以上のサイズのコロイド粒子を除去した。また、地下水中の微生物コロイド濃度については、蛍光顕微鏡を用いた直接計数法により全菌数を算出した。全菌計数用の試料として採取した地下水について、採取後直ちに終濃度が4 %になるように中性化ホルマリンを添加し、地下水中の微生物細胞を固定した。ホルマリン固定処理した地下水を、0.22 μm孔径のイソポアメンブレンフィルター(GTBP, Millipore)で濾過し、微生物細胞をフィルター上に捕集した。捕集された微生物細胞を0.05 %のアクリジンオレンジにて3分間染色した。染色後の細胞を、蛍光顕微鏡(Leica, DMLP)を用いて観察、計数し、地下水中の細胞数を算出した。深度140 m、185 m、250 mおよび350 mの4深度から採取した地下水について、全コロイド濃度および微生物密度を表3.4-13に示す。微生物コロイドの重量については、本試験で取得された微生物コロイド密度から、既存の知見に基づく大腸菌1細胞あたりの重さ(2.8×10^{-13} g/cell; Madigan et al., 2009)を参考にして重量換算した。その結果、コロイド濃度は各深度においてばらつきが認められ、0.22 μm以上のサイズのコロイドは、0.091 - 1.660 mg/Lの範囲で検出された。また、0.1 μm以上0.22 μm未満のサイズのコロイドは、0.027 - 0.101 mg/Lの範囲で検出され、0.22 μmサイズのコロイド濃度が約3から4倍高い値で存在していることが示された。全コロイドに対する微生物コロイドの割合はいずれの地下水試料においても小さいことから、地下水中のコロイドは、そのほとんどが無機コロイドか微生物細胞以外の有機コロイドであると推定された。

表3.4-13　各深度における地下水中のコロイド濃度と微生物密度

ボーリング孔	採取深度 (GL-m)	地層区分	塩分濃度 (g/L)	コロイド重量：0.1 μmサイズ (mg/L)	コロイド重量：0.2 μmサイズ (mg/L)	バイオコロイド密度 (cells/L)	バイオコロイド密度 (mg/L)	全コロイド重量に対するバイオコロイドの割合 (%)	無機コロイド密度（全コロイド重量－バイオコロイド） (mg/L)
07-V140-M03	140	声問層	6.6	n.d.	0.608 (±0.05)	1.67×10^8 (±0.1)	0.05	8.2	0.558
08E140C01_z3	185	声問層	4.0	0.101 (±0.01)	0.398 (±0.33)	0.88×10^8 (±0.003)	0.03	5.5	0.441
09-V250-M02	250	声問層/稚内層	4.0	0.027 (±0.004)	0.085 (±0.06)	0.69×10^8 (±0.07)	0.02	22.0	0.065
13-350-C01	350	稚内層	10.5	n.d.	1.891 (±0.956)	0.29×10^8 (±0.15)	0.01	0.6	1.156

n.d.; no data

② 核種の全コロイド・バイオコロイドへの分配係数

幌延URLの350 m坑道から掘削されたボーリング孔（13-350-C01孔；掘削長20 m）から、耐圧ステンレス容器に地下水を採取した。耐圧ステンレス容器は、使用前にあらかじめ0.1 M硝酸洗浄・オートクレーブ滅菌を施した後、純度99.999 %のアルゴンガスで容器内の空気を置換した後試験に用いた。試験では、無機・有機コロイドとバイオコロイドを区別せず、pH還元条件および水質条件等の化学条件をできるだけ原位置に近い条件下で実施した。収着試験には、アクチニドと元素の挙動が類似しており天然環境中でアクチニドのアナログ元素とされている希土類元素と、地層中で移行しやすい元素として重要核種とされているセレンを対象として試験を行った。これらの元素を大気に触れないように希土類元素および亜セレン酸ナトリウムを地下水中に添加し、各元素のコロイドへの収着挙動を評価した。希土類元素については、多元素混合標準液（R-I, R-II, R-IIIおよび和光純薬製）を用いて、初期濃度が約10 ppbになるように添加した。これらの他元素混合標準液には硝酸が含まれているが、地下水試料が緩衝作用のある重炭酸イオンが非常に高いため、標準液の添加によりpHの変化は確認されていない。セレンのコロイドへの収着挙動評価については、ICP-MSを用いてセレン濃度を測定する場合、CaやClがスペクトル干渉するが、幌延地域の地下水中には、CaやClが高濃度で含まれており、これらの干渉を考慮して濃度を算出する必要があった、令和3年度に幌延の地下水試料中で検出できるセレンの濃度下限値や測定方法について検討試験をおこなった。これらの検討試験の結果を踏まえて、セレンを用いた収着試験については、亜セレン酸ナトリウムを初期のセレン濃度が約20 ppbになるように添加した。一定期間元素と反応させた溶液中のコロイドを、微生物サイズとして孔径0.2 μmのメンブレンフィルターにてサイズ分画し、固相を捕集したフィルターと液相の濾液および未濾過液（原液）を採取した。溶液試料については、Na, K, Ca, Mg, Cl, HCO_3^-, TOC, TIC, Total Fe, Fe^{2+}およびS^{2-}等の一般水質分析を行った。添加した希土類元素およびセレンについては、ICP-MS（パーキンエルマー社製、 NexION300X型）を用いて測定した。

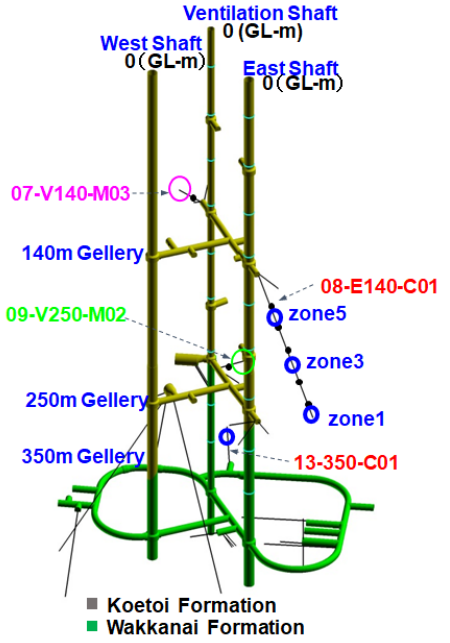


図3.4-13　URLにおけるボーリング孔配置図

添加した各元素の溶液中の濃度分析結果から、すべての添加元素は溶液中に溶存状態であるか、コロイドに収着したと仮定して、希土類元素および亜セレン酸ナトリウム添加直後から28日後までの間、コロイドを含む未濾過溶液と0.2 μmフィルター濾液中の希土類元素およびセレン濃度を分析し、地下水中の全コロイド、すなわち無機・有機・バイオコロイドへの希土類元素の分配係数を算出した。分配係数の算出に用いた地下水中のコロイド濃度は、実際の地下環境にて取得し

た実測値の平均値として、深度140 mの地下水については0.608 mg/L、深度185 mの地下水については0.398 mg/L、深度250 mの地下水については0.085 mg/L、深度350 mの地下水については1.89 mg/Lを用いた。

深度350 mの地下水中の全コロイドを対象とした希土類元素の収着試験結果を図3.4-14、 図3.4-15に示す。また、比較のために、これまでに取得した深度140 m, 185 mおよび250 mの地下水を対象とした収着試験結果も図3.4-14、図3.4-15に示す。添加した希土類元素の初期濃度は、いずれの試験においても約7 - 8 μg/Lで検出された。投入時の予定濃度としていた10 μg/Lから初期濃度が若干減少する理由としては、地下水を採取した試験容器の満水容量が11.8 Lであるが、対象とした地下水試料中に含まれているメタンおよび炭酸ガスの脱ガスの影響により、各採水容器で地下水としての採取量に誤差が生じたことや、ステンレス容器への瞬時収着等の影響が考えられる。ただし、収着挙動の評価上は、試料採取毎に無濾過の溶液中の濃度と0.2 μmフィルター濾液の分析値を比較しているため、容器収着の影響については排除できると判断している。収着試験過程の試験溶液中の希土類元素濃度を定期的に分析した結果、全コロイドおよび無機/有機コロイドを対象としたいずれの試験においても、無濾過の試験溶液中では試験開始後2日目までは初期濃度と同程度の濃度で検出されていたが、その後時間の経過とともに濃度が減少する傾向を示した。一方で、0.2 μmフィルターにて濾過処理を施した濾液中からは、添加直後から希土類元素が除去されており、この現象は特に軽希土類元素で顕著に認められた。したがって、軽希土類元素は添加後速やかに0.2 μm以上のコロイドに収着したか、あるいは希土類元素自体が0.2 μm以上のサイズの真正コロイドを形成していたと推察される。重希土類元素は、軽希土類元素と比較して、0.2 μmフィルターの濾液に残存する濃度が高かったことから、軽希土類元素の方がコロイドとともに存在しやすいことが示された。この傾向は、これまでに取得した4深度の地下水試料で共通して認められたが、深度350 mの地下水は、0.2 μmフィルターの濾液中の濃度が無濾過の溶液濃度と比較して大きく変化していないことから、他の深度の地下水試料と比較して、コロイドとして存在する割合が著しく低いことが示された。無濾過溶液中の希土類元素濃度を100 %として、0.2 μmフィルター濾液中の希土類元素の残存率を算出したところ（図3.4-14）、深度140 m, 250 m, 350 m地下水では、軽希土類元素は添加直後から数%程度しか溶液中に残存せず、HoからLuまでの重希土類元素は10 - 40 %程度の残存率であった。それに対して、深度350 m地下水では、試験開始1日後、軽希土類元素の残存率が約60 - 80 %、重希土類元素は90 %以上残存した。試験期間の経過とともに、残存率は低下する傾向を示したが、他の深度の地下水と比較して、コロイドへの収着挙動が大きくないことが明らかになった。

収着試験結果をもとに算出された分配係数結果から、いずれの地下水試料においても地下水中のコロイドに対する希土類元素の分配係数は軽希土類の方が高い傾向を示し、Laが最も高い値を示すが、重希土類になるほど分配係数は低下した（図3.4-15）。しかしながら、350 m地下水の分配係数は、他の地下水試料の分配係数と比較して、約3桁低い値となっており、残存率の結果と同様に、他の地下水試料と比較するとコロイドへの収着が著しく低いことが示された。収着試験開始7日後の値をみると、350 mの地下水では、全コロイドの分配係数は$\log K_d$ (m^3/kg)として2.09 - 3.27の範囲で算出された。これまでの結果から、深度140 mの地下水では、全コロイドの分配係数は$\log K_d$ (m^3/kg)として3.03 - 4.68の範囲、深度250 mの地下水では、全コロイドの分配係数は$\log K_d$ (m^3/kg)として4.47 - 5.33の範囲、深度185 mの地下水では、$\log K_d$ (m^3/kg)として3.78 - 5.60の範囲で得られており、これまでの取得データの中で最も分配係数が低かった140 m地下水の無機コロイドの分配係数$\log K_d$ (m^3/kg)として2.35 - 3.90よりもさらに低い値を示した。時間の経過とともに分配係数がやや高くなる傾向は、他の地下水で得られた結果と同様であった。

350 m地下水中のコロイドへの収着挙動が他の深度地下水と異なる理由として、塩分濃度等の

水質、コロイド濃度、微生物密度、微生物組成の違いが考えられる（表3.4-13）。350 m地下水中の塩分濃度は、10.5 g/Lであり、他の地下水試料と比較すると2倍ほど高い値となっている。一方で、PHREEQCを用いた地球化学計算結果から、熱力学的平衡計算に基づく希土類元素の存在形態は、溶液中では炭酸塩との錯体を形成した状態で存在すると推察されるが、各地下水試料間の重炭酸イオン濃度は、250 mにおいて2036 mg/Lとやや低い値を示すものの、140 m, 185 mおよび350 mでは2731 mg/L, 2847 mg/Lおよび2398 mg/Lと比較的近い値で検出されていることから、重炭酸イオン濃度の差によるものではないと考えられる。コロイド濃度は各地下水試料間で異なっており、350 m地下水は他の地下水の2.8-18倍とかなり高い濃度で存在しているが、それに対してバイオコロイド密度は非常に低く、全コロイドに対するバイオコロイドの割合は、0.6 %であった。140 m, 185 mおよび250 mではそれぞれ8.2 %, 5.5 %および22 %を示していたことから、バイオコロイドが他の地下水と比較して著しく低いことがわかる。令和3年度までに得られた成果から、希土類元素の収着にはバイオコロイドが影響している可能性が示唆されており、350 m地下水中のコロイドへの希土類元素の収着挙動が異なる要因として、バイオコロイドの寄与が小さいためであると推察された。

一方、収着試験には、亜セレン酸ナトリウムも同時に添加して反応試験を実施しており、反応時間に伴う試験溶液中のセレンの濃度についても分析をおこなった。その結果、試験過程におけるセレンの濃度は、初期濃度の20 μg/Lからほとんど変化しておらず、試験開始から28日後においても、 20 μg/Lで検出された。セレン濃度の分析は、全セレンとしてICP-MSを用いておこなっており、それぞれの化学形態の濃度を測定していないことから、化学形態変化のみが生じている場合にはその変化を検出できていない可能性もある。しかしながら、未濾過試料および0.2 μmフィルター濾液のいずれの溶液中においても濃度変化が認められなかったことから、添加したセレンは0.2 μm以上のサイズのコロイドへの収着反応は生じておらず、溶液中に溶存形態で存在していると推定された。0.2 μmよりも小さいサイズで錯生成やコロイド収着が生じている可能性も否定できないが、セレンは溶液中で陰イオンの形態を取りやすい元素であることが知られていることから、溶存状態であった可能性が高い。今後、地下水中でのセレンの存在形態や0.2 μmより小さいサイズのコロイドとの収着・錯生成の可能性について、検討を進める必要がある。

本収着試験で実施した20 μg/L程度の低濃度におけるセレンの存在下においては、1か月の試験期間ではコロイド収着および微生物との相互作用の影響はほとんど生じていないことが示唆された。そこで、微生物とセレンの相互作用反応の理解を深めるために、予察試験として、溶液中のセレン濃度が65 μg/Lになるように亜セレン酸ナトリウムを添加し、地下水中の微生物とセレン(IV) 濃度の変化について分析をおこなった。その結果、溶液中の全セレン濃度は7日後には3.1 μg/L、4か月後には1.3 μg/Lまで減少した。溶液中の沈殿物を走査型電子顕微鏡で観察したところ、一部のセレンは単斜セレン状の沈殿物として存在していたほか、一部の微生物細胞内に固体として濃集する様子が観察・分析された。このことから、セレンは地下水中の微生物の代謝反応によって、4価から還元されて固体化され、溶液中から除去される可能性が示唆された。また、溶液中の微生物を対象とした遺伝子解析結果から、Seの代謝に関与する微生物種は、*Deltaproteobacteria*綱等に属する一部の微生物であることが示された。しかしながら、これらの現象は、微生物反応によってセレンが還元されて固体化されることを示す一方で、コロイド態の微生物細胞に濃集する場合には、地下環境においてセレンの移行を促進させる可能性がある。今後、地下環境における微生物のセレン代謝について、濃度依存性や代謝反応に関与する微生物種等に関する知見の拡充が必要と考えられる。

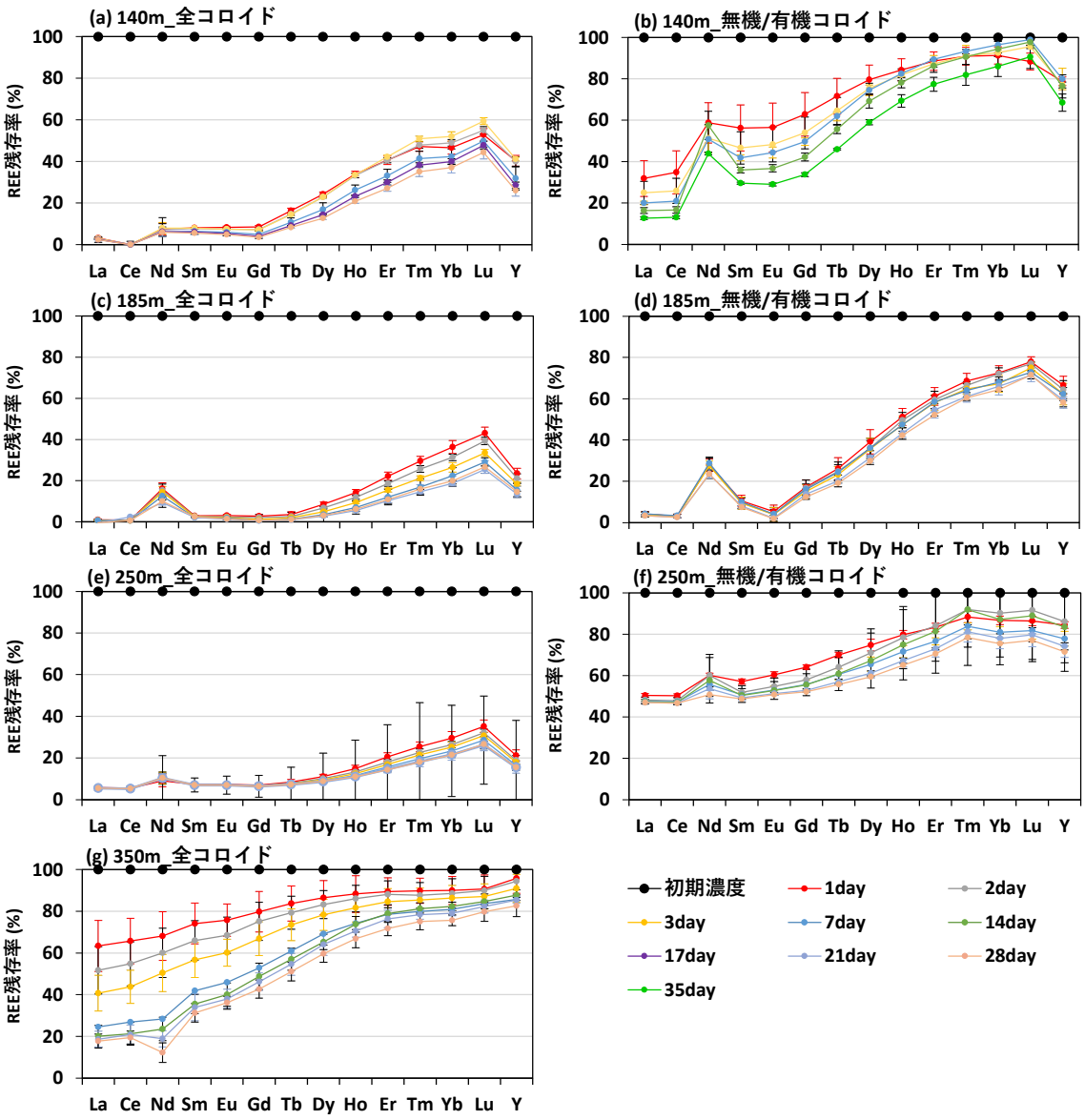


図3.4-14　孔径0.2 μmフィルター濾液中の希土類元素濃度の残存率の経時変化。全コロイド; 地下水中に存在する全コロイド（無機/有機・バイオコロイド）。無機/有機コロイド; γ線滅菌処理を施して微生物を死活させた地下水中のコロイド（無機および生きたバイオコロイドを除く有機コロイド）。 (a) 140 m地下水の全コロイドの存在下；無濾過溶液、(b) 140 m地下水の無機/有機コロイドの存在下；0.2 μmフィルター濾過溶液、(c) 185 m地下水の全コロイドの存在下；無濾過溶液、(d) 185m地下水の無機/有機コロイドの存在下；0.2 μmフィルター濾過溶液、(e) 250 m地下水の全コロイドの存在下；無濾過溶液、(f) 250 m地下水の無機/有機コロイドの存在下；0.2 μmフィルター濾過溶液、(g) 350 m地下水の全コロイドの存在下；無濾過溶液

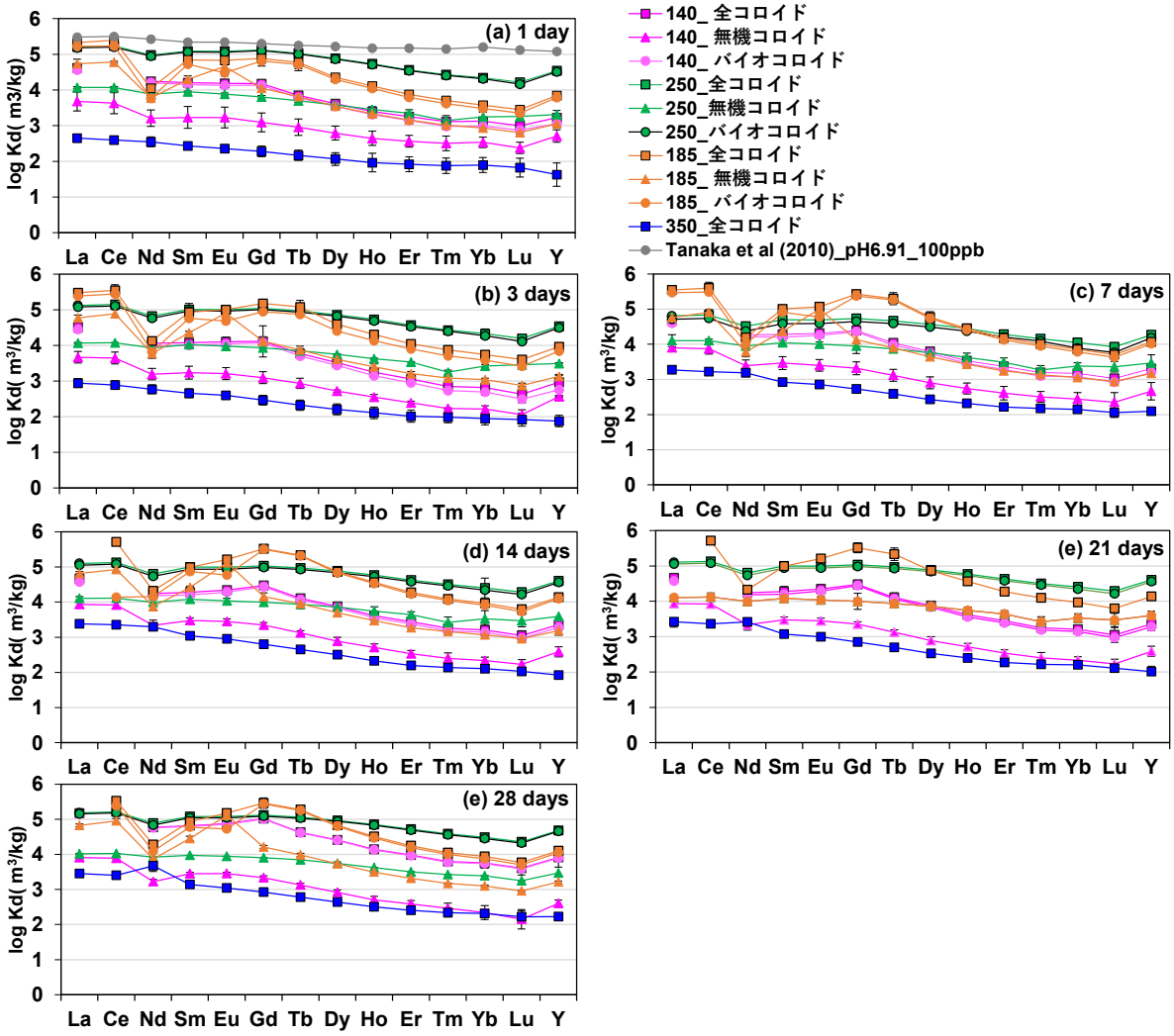


図3.4-15　深度140 m (07V140M03孔)、185 m (08E140C01孔区間3)、250 m (09V250M02孔)、350 m (13350C01孔)に分布する地下水中のコロイドへの希土類元素の分配係数の経時変化。全コロイド; 地下水中に存在する全コロイド（無機/有機・バイオコロイド）。無機コロイド; γ線滅菌処理を施して微生物を死活させた地下水中のコロイド（無機および生きたバイオコロイドを除く有機コロイド）。バイオコロイド; 全コロイドの分配係数から無機コロイドの分配係数を減算したもの。(a) 収着試験1日後、(b) 収着試験3日後、(c) 収着試験7日後、(d) 収着試験14日後、(e) 収着試験21日後、(f) 収着試験28日後

バイオコロイドへの希土類元素の分配係数が高くなる要因としては、2つの反応が考えられる。1つは、微生物細胞が代謝反応に希土類元素を利用する場合、2つ目は、細胞表面への収着・濃集反応である。微生物の代謝反応による分配係数への影響を評価するために、微生物組成の経時変化に関するデータ取得を目的として、16S rRNA遺伝子を対象とした遺伝子解析を実施した。その結果、試験期間中の微生物群集組成は、希土類元素添加に伴い一部の微生物の増加が認められるものの、希土類元素を添加していない系の経時変化と比較して群集組成はほとんど変化していないことから（図3.4-16）、350 m地下水においては、細胞内への取り込み等の微生物代謝反応には大きく寄与していない可能性が示唆された。これまでに実施した地下水試料を対象とした全コロイドの収着試験では、試験過程において元素添加後に一部の微生物の増殖が認められ、希土類元

素あるいはセレン添加に伴う微生物代謝反応が活性化されたことが推察された。そこで、これまでに取得した収着試験過程における16S rRNA遺伝子解析を再解析し、検出されたすべての生物種について元素未添加の系（リファレンス）との比を算出し、比が経時的に1以上を示した種を有意に増殖が認められた種として抽出した。その結果、*Alphaproteobacteria*綱*Paracoccus aminophilus* JCM7686（相同性98.3 %），*Betaproteobacteria*綱*Rhodocyclales*および*Gammaproteobacteria*綱*Methylococcus*に近縁な種が有意に増殖していることが確認された（図3.4-17, 図3.4-18）。全試料の16S rRNA遺伝子解析結果から検出された生物種は、数千種にも上るが、そのうち元素添加により増殖が認められた種はわずか数種であることが判明した。*Methylococcus*は、メタン酸化反応を行う種であると推察されるが、近年メタノールの酸化反応を触媒するメタノール脱水素酵素に、希土類元素を活性中心とする新規のタイプが存在することが明らかにされていることから(Picone and Camp, 2019)、これらの種はメタノール酸化反応に希土類元素を用いている可能性が示唆された。既知のタイプのメタノール脱水素酵素は、カルシウムを活性中心としていたが、活性は比較的低く、希土類元素が活性中心となるメタノール脱水素酵素は、カルシウムタイプと比較して活性が高いことが知られている。メタノール酸化反応を中心代謝とするメタンおよびメタノール酸化細菌の多くは、カルシウムタイプだけでなく希土類タイプのメタノール脱水素酵素を有しており、希土類元素が利用可能な環境では高活性の脱水素酵素を優先的に使用し、希土類元素が利用できない環境下では、低活性ながら元素の入手が容易なカルシウムタイプを使用すると考えられている。したがって、本研究で希土類元素添加により増殖が刺激された種は、メタノール酸化反応に希土類元素を使用している可能性がある。これらの種が地下環境において希土類元素を用いたメタノール酸化反応を行っているかどうかは現時点では明らかではない。今後、メタゲノム解析を活用した酵素遺伝子の解析等により、実際の地下環境におけるメタン代謝を明らかにしていくことで、より微生物と核種の相互作用理解が促進すると考えられる。

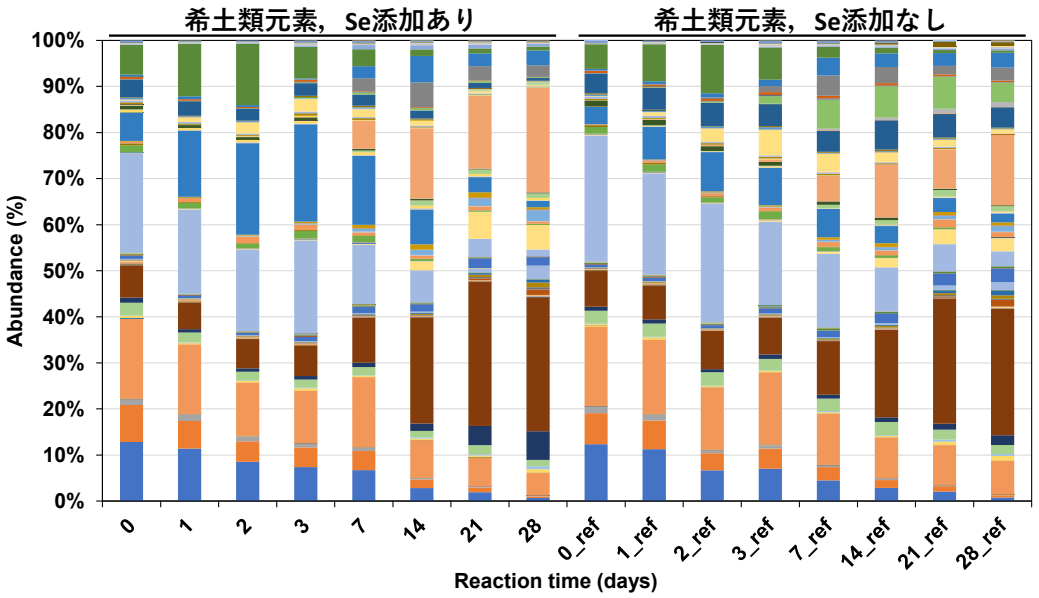


図3.4-16　深度350 m地下水を対象とした希土類元素およびセレンの収着試験における微生物群集組成の経時変化。

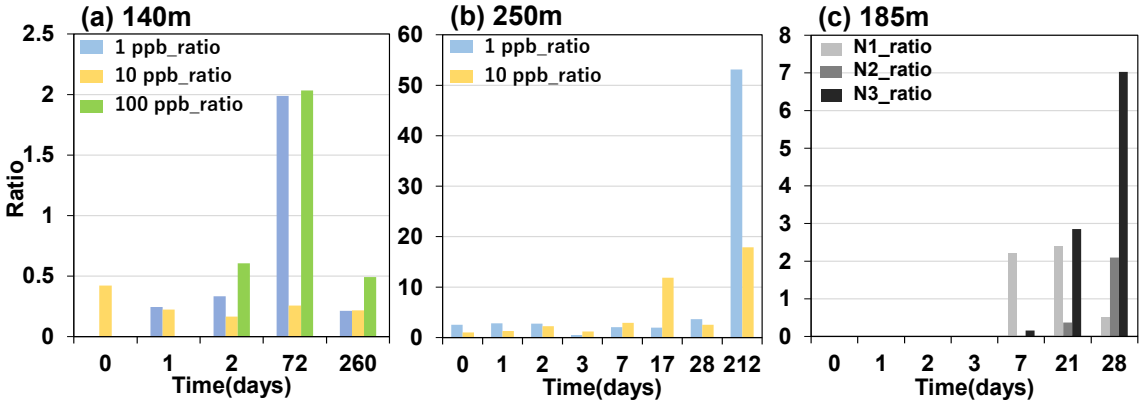


図3.4-17　希土類元素およびセレンの収着試験における*Alphaproteobacteria*綱*Rhodobacter*に近縁な種の経時変化。 (a) 140 m地下水、(b) 250 m地下水、(c) 185 m地下水、350 m地下水においては、*Rhodobacter*の増殖は認められなかった。

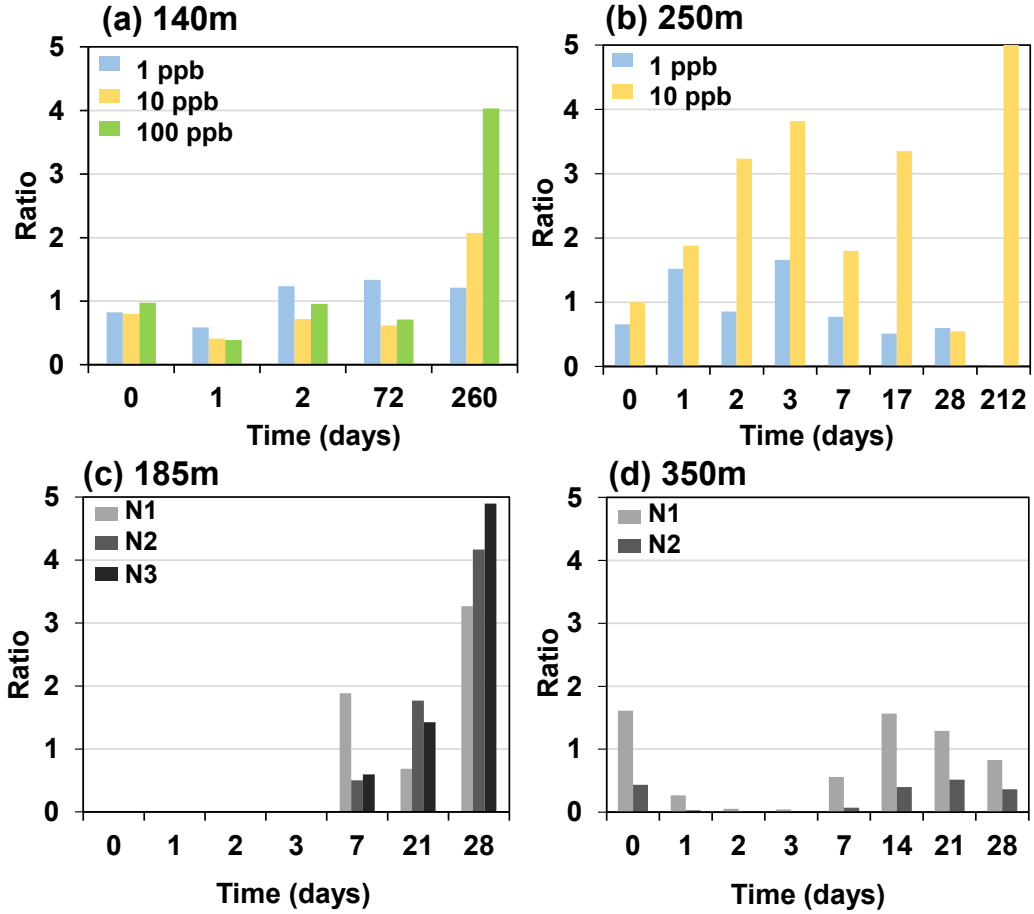


図3.4-18　希土類元素およびセレンの収着試験における*Gammaproteobacteria*綱*Methylococcaceae*科に近縁な種の経時変化。 (a) 140 m地下水、(b) 250 m地下水、(c) 185 m地下水、(d) 350 m地下水。140 m, 250 m, 185 m地下水では、同科に近縁な種がリファレンス（元素無添加）の系と比較して有意な増殖が認められたが、350 m地下水では増殖比が比較的低かった。

バイオコロイドが関連する2つ目の反応である、細胞表面への希土類元素の収着および濃集反応の要因としては、微生物細胞表面の細胞膜に含まれるリン酸基、カルボキシル基、ヒドロキシル基およびアミノ基等が細胞表面への希土類元素の収着に関与していると推察される（図3.4-18; Takahashi et al., 2010; Newsome et al., 2014）。この反応は、微生物代謝を伴わず、微生物が環境中に存在するだけで収着反応が生じることから、地下水中の微生物密度が高い場合には、核種の移行促進が顕在化される可能性がある。また、環境中に存在する微生物種や元素によっては、細胞表面の官能基と元素の反応だけでなく、微生物代謝が関与してくる可能性があり、様々な微生物種や元素に対してデータを拡充する必要がある。本試験で算出された全コロイド、無機コロイドおよびバイオコロイドの分配係数値は、これまでに単一の培養株である*Acremonium* sp.を対象として評価された希土類元素の収着パターン(Tanaka et al., 2010)と概ね近似している（図3.4-15 (a)）。単離株を用いた試験(Tanaka et al., 2010)では溶液条件に応じて異なる傾向を示しており、本試験のpH条件と比較的近いpH6.91の試験条件下では、分配係数は$\log K_d$ (m^3/kg)として5.08 - 5.50の範囲で取得されていた（図3.4-15 (a), Tanaka et al., 2010）。図3.4-15(a)に参照までに追記したTanaka et al. (2010)のデータは、pH 6.91の条件下で100 ppbの濃度で希土類元素を添加して取得されたものであり、本試験で取得されたデータは地下水のpH 7.5の条件下で10 ppbを添加濃度としている。また、試験に用いた溶液条件も異なることから、各試験データの厳密な比較を行うことは難しいが、少なくとも希土類元素のコロイドへの収着分配パターンや分配係数の傾向性については参照できると考えられる。Takahashi et al. (2010)では、微生物の細胞表面に希土類元素が高濃度に濃縮する現象を報告しており、そのメカニズムがバクテリアの細胞壁に含まれるリン酸基との結合によるものであることを明らかにしている。したがって、Tanaka et al. (2010)で報告されている収着分配係数が、地下水中のコロイドを対象とした本試験結果と比較してやや高い値を示す理由として、地下水中のバイオコロイドの割合が0.6 - 22 %であるのに対して、Tanaka et al. (2010)の収着試験は微生物細胞のみを対象としたものであるため、微生物表面に存在するリン酸基に希土類元素が濃集したことで、収着分配係数が高い値を示していることが要因として考えられる。単離株*Bacillus subtilis*の培養液を用いた収着試験の報告では、単離株への希土類元素の収着パターンが本試験結果や*Acremonium* sp.培養株の結果と逆の傾向を示しており、重希土元素ほど分配係数が高くなることが示されている(Takahashi et al., 2005, 2010)。このパターンの違いは、収着試験の溶液条件（pHや溶液の化学組成等）に依存すると考えられる。本試験で得られたコロイドへの希土類元素の収着パターンは、試験対象とした幌延URLの地下水中に高濃度の重炭酸イオンが含まれているため、重希土類が炭酸錯体を形成することによって、既存の報告と異なる収着パターンを示したものと考えられる。また、図3.4-14、図3.4-15に示すような、バイオコロイドによる希土類元素の収着挙動影響については、Takahashi et al. (2010)やTanaka et al. (2010)の報告から、レアアースはカルボキシル基(COO)よりもリン酸基により強く吸着することが明らかにされていることから、本試験においても、図3.4-19で示すように、微生物細胞表面の細胞壁に多く存在するリン酸基に希土類元素が吸着あるいは濃集する現象が生じていることが推定される。本試験における地下水溶液中の溶存化学種濃度および飽和指数を、PHREEQCによる地球化学計算にて算出したところ、液相の化学種は希土類元素によって多少の違いはあるが、そのほとんどが炭酸塩錯体である$Ln(CO_3)_2^-$, $LnCO_3^+$, $LnOHCO_3$および$LnOH(CO_3)_2^{2-}$として溶存することが示され、固相では、$LnPO_4 \cdot 10H_2O$のリン酸塩として沈殿することが示された（Lnは希土類元素を示す）。これらの地球化学的平衡計算結果は、上述の希土類元素の収着パターンやバイオコロイド表面への収着分配係数が高いことに対する考察をサポートするものである。また、Kirishima et al. (2022) は、幌延URLの350 m地下水を対象として、希土類元素のうちLa, Sm, HoおよびUを対象としたコロイドへの収着試験を実施しており、コロイドの収着挙動がリン酸塩

に制御されていることを明らかにしている。リンは生物にとって必須の元素であり、生体内でエネルギーの貯蔵や遺伝情報物質だけでなく、すべての細胞で構成要素として用いられている。微生物にとっても膜を構成要素としてリン酸基を合成しており、リン酸獲得のための様々な分子機構が存在している。リン酸飢餓に対処する戦略も有しており、その一つとして、余分のリン酸をポリリン酸として細胞内に蓄える機構も有している（図3.4-19）。したがって、微生物細胞の存在下では、希土類元素がバイオコロイドにより収着する可能性が十分に考えられる。本結果から、様々な地下水化学状態において、様々な微生物種が混在している地下水中の微生物群集を対象とした場合でも、室内試験で取得した希土類元素の分配係数結果を参照できる可能性がある。また、本研究ではアクチニド元素のアナログ元素として、希土類元素を対象とした試験を行ったが、環境中でのアクチニド元素の挙動は希土類元素に類似する可能性があり、アクチニド元素の挙動がリン酸塩に制御される場合には、アクチニドの収着挙動に微生物細胞が影響及ぼす可能性がある。地層処分システムにおけるコロイドの核種移行影響について、信頼性を向上させるためには、今後も引き続き水質や微生物群集組成の特徴の異なる地下水中のコロイドへの核種を含めた元素の分配係数のデータを拡充していく必要がある。

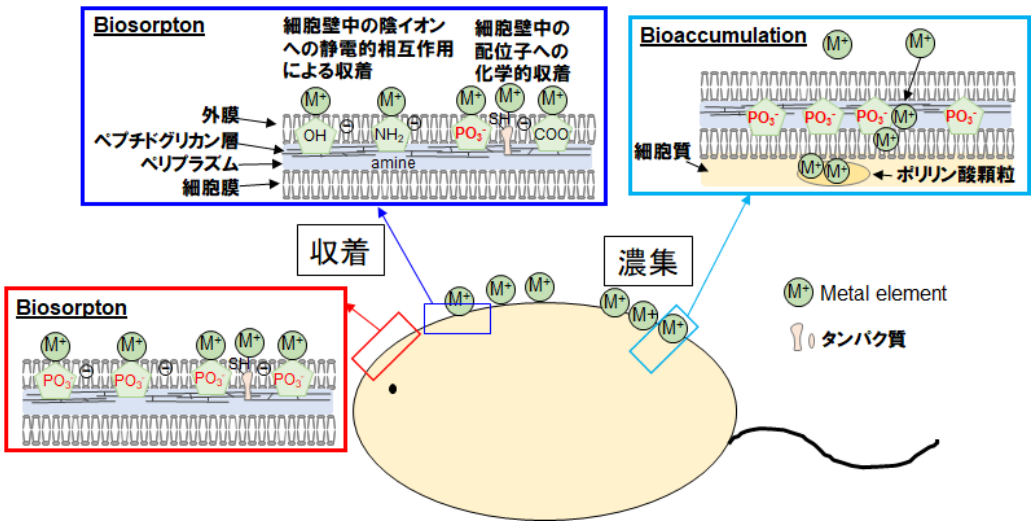


図3.4-19　微生物細胞表面で生じている元素との相互作用の概念図
細胞表面の細胞壁に多く存在するリン酸基が収着・濃集に関与している.

2) 地下施設建設後の地下環境における微生物種の空間分布と経時変化に関する評価

大規模な地下施設の建設により、施設周辺の地下環境は岩盤の力学・水理・地球化学的な擾乱を受ける。周辺の水理・地球化学状態の変化に伴い、微生物特性も影響を受けると考えられる。地下施設建設に伴う地下環境の擾乱の程度を把握するために、建設過程における周辺の地下水の水圧・水質モニタリングが実施されている（例えば、福田ほか, 2020; 宮川ほか, 2020）。微生物は、酸化還元状態の変化に鋭敏に反応し、地下施設建設過程において坑道周辺で活性化して地下水の水質形成に影響を及ぼす可能性がある。また、微生物種組成や代謝機能の変化は、長期的に核種移行挙動に影響を及ぼす可能性があるため、微生物特性の変化についてもデータを取得してきた。令和3年度までに、幌延URL内に掘削された深度140 mから350 mまでの合計4本のボーリング孔（08-E140-C01孔, 07-V140-M03孔, 09-V250-M02孔, 13-350-C01孔）を利用して、6区間から地下水を採取し、地下施設建設過程において16S rRNA遺伝子解析およびメタゲノム解析を実施している（図3.4-13）。地下水の採取深度を以下に記す。

- 08-E140-C01孔（以下、［08E140C01］という）区間1: 209.69 - 218.17 m (mbgl; m below ground level; 中間深度; 214 m)、区間3: 175.13 - 194.2 m（中間深度; 185 m）、区間5: 157.55-167.86 m（中間深度; 163 m）
- 07-V140-M03孔（以下、［07V140M03］という）: 140 m、09-V250-M02孔（以下、［09V250M02］という）: 250 m
- 13-350-C01孔（以下、［13350C01］という）: 350 m

令和4年度も継続して、孔径0.2 μmのメンブレンフィルター（GVWP; Millipore）上に捕集した微生物細胞を対象として、微生物多様性および代謝機能に関する情報を取得するための解析を実施した。

各採取試料中の微生物群集組成を明らかにするために、16S rRNA遺伝子を対象とした解析を実施した。微生物細胞の全DNAをExtrap Soil DNA Kit Plus ver.2（日鉄住金環境株式会社製)を用いて抽出し、微生物の16S rRNA遺伝子をターゲットとしたPCR増幅産物について、次世代シーケンス解析（MiSeq, Illumina社製）を実施した。解析には、次のプライマーを用いた。

V4-5 region primers:
V4-F (5'-AYTGGGYDTAAAGNG-3'), V4-R (5'-CCGTCAATTYYTTTRAGT-3')

得られた配列解析データについて、複数の解析ツールが統合されたQIIMEパイプラインを用いて、塩基配列のチェック、OTU (Operation Taxonomic Unit) の選定、代表配列の決定を行うとともに、各OTUの代表配列について16S rRNA遺伝子データベースに対する相同性検索を行い、系統分類を推定するとともに菌種構成比を算出した。

メタゲノム解析については、捕集した微生物細胞の全DNAをExtrap Soil DNA Kit Plus ver.2 (日鉄住金環境株式会社製)を用いて抽出し、抽出したDNAについてゲノムDNA断片化を行い、ビーズ精製により550 bpインサートを基準としてサイズ選択した後、Agilent 2100BioAnalyzerにより濃度測定・品質を確認することでシーケンス用ライブラリ調製を行った。シーケンス解析は、Paired-End法にて150 bpを対象として実施した。Paired-End解析のゲノム配列データセットについて、checked and quality trimmedおよびidba ud (Peng)を用いてゲノム配列の再構築（アセンブル）を行った。meta-Prodigalを用いて1000 bp以上のコンティグについてオープンリーティングフレーム（ORF; 推定遺伝子領域。塩基配列のうち、タンパク質として機能していると予測される領域のこと）を推定した。カリフォルニア大学バークレー校のBanfield研究室で構築されたアノテーションパイプラインを用いて(Wrighton et al., 2012)、ORFsの予察的な機能の推定やrRNA、tRNAの推定を行った。その後、ゲノム配列データベース中からそれぞれのORFについて最も相同性の高いものを同定した。また、微生物種の空間的分布を評価するために、16S rRNA遺伝子に加えて、rpS3遺伝子に着目し、これまでに実施したメタゲノム解析データを対象として、各採水区間における種組成の経時変化について解析を実施した。

その結果、各ボーリング孔における微生物群集構成種は、経時的に変化をしており、特に08E140C01孔の区間5（深度163 m）、区間3（深度185 m）および区間1（深度214 m）、09V250M02孔（深度250 m）では、微生物群集種が7年間で著しく変化していることが示された（図3.4-20）。一方で、深度140 mおよび350 mにおいては、その構成種の割合には変化が認められるものの、構成種はほとんど変化していないことが示された（図3.4-20）。水質については、Na、Cl等の一般成分はボーリング孔掘削後からほとんど変化がみられないことから、変化する要因として、微生物の代謝に関わる酸化還元状態、pH等が関係していると考えられる。著しい変化が認められる種

として、Candidatus Altiarchaeales (SM1)が挙げられる。幌延地下環境において優占するSM1は、バイオフィルムを形成する種として知られているため、SM1の検出領域では亀裂表面等の岩盤内部にバイオフィルムが形成されているものと推測される。これまでにSM1が優占して検出されていたのは、07-V140-M03孔、09-V250-M02孔および13-350-C01孔で、採水区間が坑道壁面近傍であり、壁面からの距離が約20 mの領域であったが（図3.4-20 (b), (c)）、微生物の空間分布に関するより詳細な解析結果から、坑道壁面から20 m以上離れた領域においても、SM1の割合が徐々に増加していることが明らかになった。この現象は、深度140 mから掘削された掘削長100 mのボーリング孔（08-E140-C01孔）で確認され、令和3年度までは、坑道に比較的近い採水区間（坑道壁面からの水平距離: 16 - 25 m）において顕著に生じていることが示されていたが、坑道壁面からの距離が30 m以上の領域では顕著に確認されていなかった（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2022）。しかしながら、令和4年度に実施した調査結果から、SM1の構成比は前年と比較して大きく増加していることが確認され、バイオフィルムの形成領域が坑道壁面から離れた31 - 46 mの領域まで拡大するとともに、その現存量が著しく増加していることが明らかになった（図3.4-20 (a)）。水質モニタリングの結果からは、Na^+等の一般成分や酸化還元電位等に変化が認められないことから、地下施設建設に伴う坑道周辺の脱ガスによるpHや炭酸分圧の変化等が要因として考えられる。一方で、深度250 mにおける坑道壁面近傍の領域でSM1の減少が認められた要因として、坑道近傍の水圧低下に伴う不飽和領域の拡大により、栄養塩供給の減少や炭酸ガス濃度の低下が考えられた。これまでの顕微鏡観察では、坑道壁面近傍から離れた領域にてEPSが顕微鏡で観察できるレベルでの顕著なバイオフィルムの形成は、観察例が非常に限られていた。この要因として、バイオフィルムの形成には付着するための基盤に加えて、炭素源やエネルギー源が供給されるための水流が必要になるが、地下環境にはバイオフィルムが高密度で形成されるための栄養条件や水流が十分でないことが考えられる。バイオフィルム形成（微生物増殖）に必要な炭素源としては、無機炭素と有機炭素が挙げられ、一般的には様々な種類の低分子・高分子有機物（アミノ酸、タンパク質および脂質等を含む）を利用する微生物が大部分を占めるが、地下環境は微生物が利用可能な有機物量が欠乏した状態である。幌延地下環境における地下水中の全有機炭素濃度は、約15 - 30 mg/Lであることが調査結果から明らかにされているが（例えば、笹本ほか, 2015）、そのうち60.9 % - 67.0 %は微生物にとって難分解性有機物として知られるフミン酸やフルボ酸等の腐植物質であると報告されている(Terashima et al., 2020)。微生物に利用されやすい酢酸やギ酸等の低分子有機物は、地下水中には極めて低濃度でしか存在しておらず、幌延地下環境ではメタン生成菌等との競合により速やかに消費されており（玉村ほか, 2012, 2014）、利用可能な形態の有機炭素は量的に非常に限られていると推察される。一方で、幌延URLにて検出されているバイオフィルムの主な形成種であるSM1は、炭素源として無機炭素であるCO_2あるいは炭酸イオンを利用する能力を有することがゲノム解析の予察的な結果から推定されており、SM1が優占的にバイオフィルムを形成しているのは、幌延の地下環境に豊富に存在するCO_2を炭素源として利用することができるためであると考えられる。したがって、SM1が広域に渡って検出されてきた要因として、坑道周辺の水圧低下に伴う脱ガスにより炭酸分圧が変化し、SM1の増殖に適した炭酸ガス濃度の環境が広がっているものと考えられる。今後も地下施設建設・施設維持の期間の長さに応じて、周辺水圧が低下し脱ガスが生じることで、バイオフィルム形成領域が拡大すると予測される。

微生物種組成が地下施設建設の影響を受けて変化する一方で、大きな変化が認められない微生物種も確認されている。坑道壁面から比較的距離のある空間で優占種として検出されている*Deltaproteobacteria*, *Betaproteobacteria*および*Methanomicrobia*である（図3.4-20(a)）。これらの種は、地下施設建設の影響を大きく受けておらず、従来から地下環境に生息する土着由来の微

生物種であると推察される。実際の地層処分環境においても、処分場建設過程から閉鎖後の地質環境安定状態までの間に、水理場の変化とともに地球化学・微生物特性が変化することが予想されるが、長期にわたる地質環境の変遷を経た後の核種移行環境では、これらの土着由来の微生物との核種の相互作用が起こる可能性があることから、変化種と土着由来種に関する微生物種や代謝反応ポテンシャルに関する知見は、長期的な核種移行影響を評価する上で重要であると考えられる。

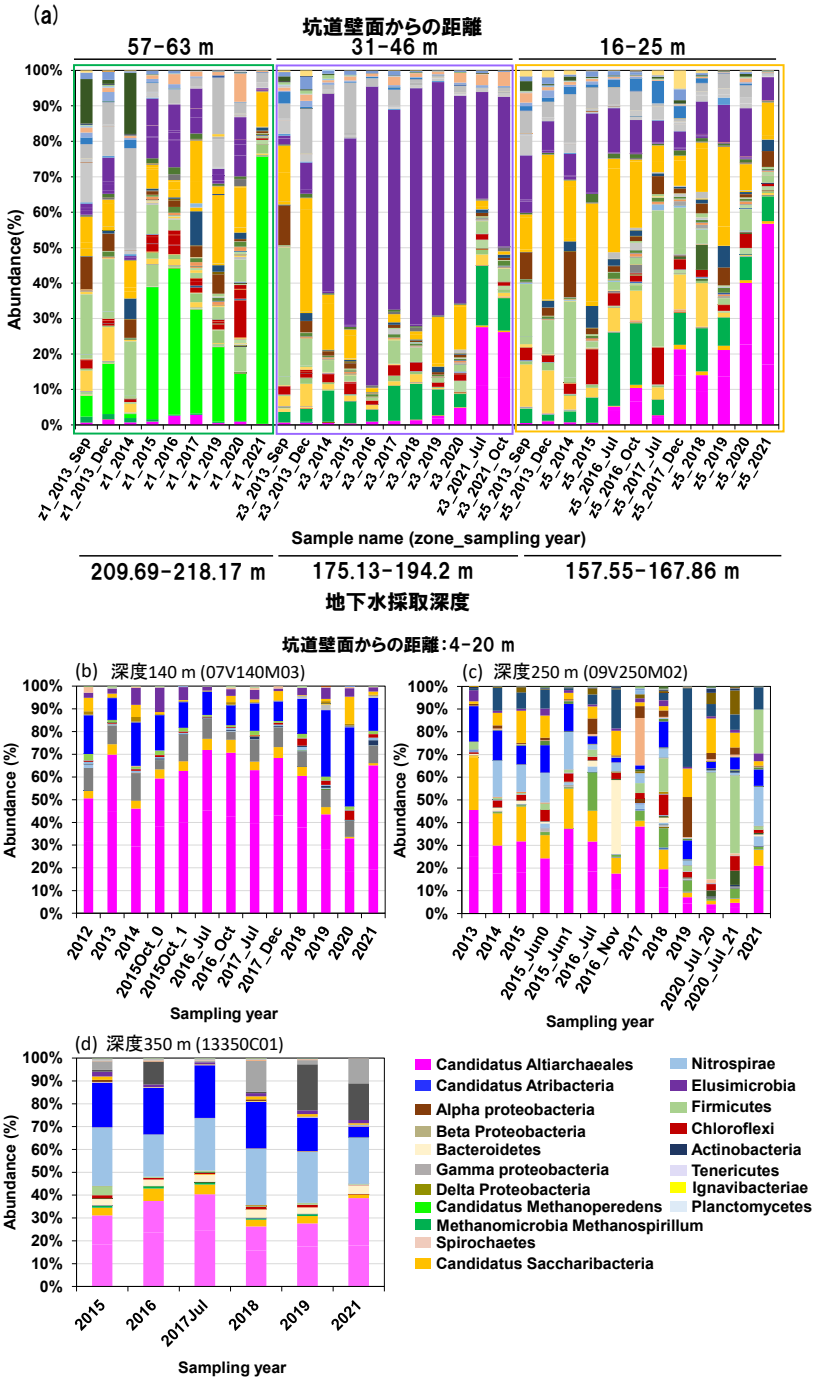


図3.4-20　地下水中の微生物群集組成の経時変化　(a) 08E140C01孔、(b) 07V140M03孔、(c) 09V250M02孔、(d) 13350C01孔

これまでに取得したメタゲノム解析データを用いて、幌延を対象とした地下生態系におけるCO_2固定, 水素循環, 窒素循環および硫黄循環に関わる遺伝子に着目し、隠れマルコフモデル解析と系統学的解析を組み合わせて、代謝解析を行った。その結果、これまでに実施した簡易的な代謝解析と同様、いずれの代謝反応も広域的な空間でポテンシャルを有する微生物が分布することが示唆された（表3.4-14)。水素代謝に関連するヒドロゲナーゼの解析結果からは、4つの主要な[NiFe]グループと3つの主要な[FeFe]グループにまたがって広く検出されており、[NiFe]ヒドロゲナーゼの多くは3b, 3c, 3dおよび4fグループで確認され、[FeFe]ヒドロゲナーゼはA3グループで最も多く検出された。グループ4の[NiFe]ヒドロゲナーゼは膜結合型のH_2発生酵素であると推定されており、グループ4fの機能は不明であるが、プロトン移動と同時に炭素化合物の酸化とプロトン還元のカップリングに関係している可能性が示唆された。グループ3bは、最も多く検出されたヒドロゲナーゼ遺伝子の1つであり、NADPHを酸化して水素を発生させるが、おそらく可逆的であると予測され(Greening et al., 2016)、それらは元素硫黄(S^0)とポリスルフィドを硫化水素(H_2S)へ還元できる硫黄酸化酵素活性を持っていると報告されている(Ma et al., 1993)。この酵素は、元素硫黄だけでなく硫化水素も酸化することができ、酸素のない環境下ではFe^{3+}を用いて酸化反応を行っていると考えられている($H_2S + 6Fe^{3+} + 3H_2O \rightarrow SO_3^{2-} + 6Fe^{2+} + 8H^+$)。興味深いことに、硫黄代謝に関連する遺伝子のうち、亜硫酸塩還元、硫黄酸化に関わる遺伝子が多く検出されており、特に元素硫黄を酸化/還元する酵素遺伝子が最も多く検出されている。この結果はヒドロゲナーゼ遺伝子の解析結果と一致している。幌延の地下環境では、硫酸還元をおこなうと推測される*Deltaproteobacteria*が優占種として検出されているが、環境中の硫酸イオン濃度は検出限界以下であることから、おそらく硫化水素あるいは元素硫黄を活用することにより、硫黄の酸化と硫酸イオンの還元が微生物生態系のサイクルにより成り立っていると推察された。このような硫黄代謝ポテンシャルは、金属容器の腐食に影響を及ぼす可能性のある硫化水素の生成と消費の観点からも極めて重要な知見であることから、地下環境における微生物が関わる硫黄代謝について、詳細なプロセスの評価を行う必要があると考えられる。

微生物は酸化還元状態に鋭敏に反応することから、微生物代謝に伴う酸化還元反応により、その領域に存在する微生物種は変化するが、結果的に微生物代謝反応により酸化還元状態が還元的に保持されていると推察される。ニアフィールド領域や坑道周辺の岩盤は、長期的にバリア機能を保持することが期待されているが、地下施設建設の影響により、岩盤中の核種移行の場がどの程度変化するのか、あるいは元の状態に回復するのかについて、長期的な視点も含めて評価する必要がある。また、これまでに観測されている現象が幌延の地下環境に特有のものであるのか、あるいは一般的な事象であるのかについても評価を進めるべきと考えられる。バイオフィルム形成領域や微生物代謝の変化について、今後もデータを取得し、地下施設建設の影響を評価していく必要がある。

表3.4-14　メタゲノム解析データから取得した窒素、硫黄、セレンに関わる代謝反応ポテンシャル

	アンモニア酸化			N2 固定								亜硝酸塩酸化	
	amoA	amoB	amoC	anfD	anfK	anfG	nifD	nifK	vnfD	vnfK	vnfG	nifH	nxrA	nxrB
140 m	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.06	0.05	0.00	0.00	0.00	0.07	0.00	0.00
250 m	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.03	0.03	0.00	0.00	0.00	0.05	0.00	0.00
163 m	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.05	0.04	0.00	0.00	0.00	0.07	0.00	0.00
185 m	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.04	0.03	0.00	0.00	0.00	0.07	0.00	0.00
214 m	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.05	0.05	0.00	0.00	0.00	0.07	0.00	0.00

	硝酸塩酸化				亜硝酸塩還元によるアンモニア化					硝酸塩還元			一酸化窒素還元		亜酸化窒素還元		嫌気的アンモニア酸化	
	napA	napB	narG	narH	nrfH	nrfA	nrfD	nirB	nirD	nirK	nirS	octR	norB	norC	nosD	nosZ	hzoA	hzsA
140 m	0.04	0.03	0.09	0.10	0.06	0.13	0.00	0.04	0.05	0.03	0.05	0.08	0.07	0.05	0.02	0.03	0.00	0.00
250 m	0.06	0.05	0.04	0.05	0.04	0.09	0.00	0.05	0.06	0.02	0.07	0.04	0.10	0.05	0.05	0.02	0.00	0.00
163 m	0.05	0.04	0.05	0.04	0.06	0.11	0.00	0.04	0.04	0.02	0.06	0.06	0.10	0.04	0.00	0.03	0.00	0.00
185 m	0.04	0.04	0.04	0.03	0.07	0.10	0.00	0.04	0.04	0.02	0.06	0.05	0.10	0.04	0.01	0.03	0.00	0.00
214 m	0.06	0.05	0.03	0.02	0.06	0.11	0.00	0.03	0.03	0.01	0.06	0.06	0.09	0.04	0.00	0.02	0.00	0.00

	硫化物酸化		亜硫酸塩還元	硫黄酸化			硫黄酸化/還元	硫黄還元		
	fccB	sqr	dsrD	dsrA	dsrB	sdo	sor	sreA	sreB	sreC
140 m	0.00	0.09	0.03	0.03	0.03	0.19	0.00	0.00	0.00	0.00
250 m	0.00	0.04	0.03	0.03	0.03	0.15	0.00	0.00	0.00	0.00
163 m	0.00	0.04	0.04	0.05	0.04	0.17	0.00	0.00	0.00	0.00
185 m	0.00	0.04	0.04	0.04	0.04	0.14	0.00	0.00	0.00	0.00
214 m	0.00	0.04	0.02	0.03	0.03	0.11	0.00	0.00	0.00	0.00

	チオ硫酸塩酸化			亜硫酸塩還元			硫酸塩還元		チオ硫酸塩不均化	セレン酸塩還元		
	soxB	soxY	soxC	asrA	asrB	asrC	aprA	sat	phsA	ygfM	xdhD	YgfK
140 m	0.00	0.03	0.01	0.00	0.00	0.00	0.01	0.07	0.06	0.03	0.06	0.06
250 m	0.02	0.04	0.01	0.01	0.01	0.01	0.02	0.05	0.02	0.00	0.03	0.05
163 m	0.01	0.04	0.01	0.02	0.02	0.01	0.02	0.04	0.05	0.01	0.05	0.07
185 m	0.01	0.04	0.01	0.02	0.01	0.01	0.01	0.03	0.04	0.01	0.04	0.07
214 m	0.01	0.04	0.02	0.01	0.01	0.01	0.01	0.03	0.04	0.01	0.03	0.04

3) 地下環境の堆積岩内部における微生物分布特性とその元素との相互作用に関する評価

水界環境に生息する多くの微生物は、固体表面に付着し、そこで増殖して細胞外高分子物質(Extracellular polymeric substances: EPS)を生成する。これらの微生物集団とEPSによって形成される高次構造体をバイオフィルムといい(Flemming and Wingender, 2010; O'Toole et al., 2000)、地球上の9割以上の微生物が自然環境中にバイオフィルムの形態で存在するともいわれている(Lerchner et al., 2008; Stoodley et al., 2002)。形成されたバイオフィルムの高次構造体が成熟すると、一部の細菌は成熟バイオフィルムから脱離して浮遊状態に移行するが、やがて浮遊菌体はまた新たな環境をみつけて付着することが知られている(Flemming and Wingender, 2010)。EPSを含むバイオフィルムは、様々な機能を有しており(Flemming and Wingender, 2010)、その中でも有機化合物、無機イオンおよび鉱物粒子を収着することが報告されている(MacLean et al., 2007; Moreau et al., 2007; Takahashi et al., 2005; Amano et al., 2017)。このような生態を考慮すると、地層処分システムにおいてバイオフィルムは放射性核種の移行を遅延あるいは促進の両

方に影響を及ぼす可能性があり(Pedersen, 2005; Anderson et al., 2011)、地下の岩石内部における微生物の分布特性とその存在形態、それらの元素との相互作用に関する評価は、微生物が核種移行に及ぼす影響を評価する上で重要な知見となる。地下環境におけるバイオフィルムの研究については複数の報告例があるが(Ekendahl et al., 1994; MacLean et al., 2007; Jägevall et al., 2011)、坑道掘削やボーリング孔掘削等の人為的な影響を受けていない岩盤亀裂表面を対象としたバイオフィルムに関する直接的な観察例は報告されていない。これまでに幌延URLにおいて実施してきたバイオフィルム調査の中で、堆積岩内部においてバイオフィルムが形成されている可能性を示すデータが取得されてきた（日本原子力研究開発機構, 2017, 2018; 日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2019; 2020）。幌延URLの地下坑道壁面近傍に分布する地下水中で、優占種として検出された微生物は、バイオフィルムを形成する種として知られるSM1に近縁な種であり、これらの微生物は天然の堆積岩岩盤内部でバイオフィルムを形成していることが示唆された。また、微生物のメタゲノム解析により取得されたゲノム情報を用いて、バイオフィルム形成に関連する遺伝子の空間分布に関する調査を行ったところ、地下微生物が広域的にバイオフィルム形成の潜在能力を有していることが示唆された。しかしながら、これまでのバイオフィルム調査やメタゲノム解析、顕微鏡観察および菌計数等の分析結果から、バイオフィルムは、地下環境において水理・地球化学環境の擾乱が生じる処分施設の建設・操業時において、地下水が湧水する坑道壁面や坑道壁面近傍の数10 mの領域（幌延URLの事例では、約46 mの領域）で形成されているが、利用可能な有機炭素量が限られているために形成密度は小規模であり、地下水流量の変化に応じて次第に減退していく可能性がある。しかしながら、地下環境中の微生物の大部分は地下水よりも岩石中に生息すると考えられている一方で、堆積岩内部における微生物分布やバイオフィルム形成についての知見は間接的な分析結果から推察されるものであり、技術的な難易度や汚染の観点から、岩石内部の微生物分布について直接的に可視化した証拠はこれまでに得られていなかった。

近年、海洋地殻の玄武岩から微生物細胞の観察に成功した研究成果が公表され(Sueoka et al., 2019; Suzuki et al., 2020)、岩石内部の微生物観察・分析手法が開発されたことを受けて、堆積岩内部における微生物の分布特性を明らかにするために、令和2年度から幌延URLの周辺で実施されたボーリング調査によって採取された岩石試料を対象として分析評価に着手した。

令和3年度までに実施した微生物観察では、声問層および稚内層から採取されたボーリングコア試料を対象として、親水性のLR-White樹脂（London Resin社製）で包埋した薄片を作製した。稚内層にて採取した岩石試料の薄片観察の結果から、岩石中の亀裂表面に微生物細胞様の粒子が濃集されている様子が観察されたことから、稚内層の岩盤内部においても微生物が存在し、その分布は亀裂表面であることが示された。しかしながら、声問層の試料は、岩石が非常に脆く、樹脂が適切に浸透せず、樹脂包埋ブロックにひびが発生した。また、作製された薄片は、研磨の過程で一部粒子が抜け落ちており、岩石の組織を補完した状態で試料作製および観察することができなかった。そこで、はやぶさ2のリュウグウ試料の加工の際に用いられた精密ダイヤモンドバンドソー(Meiwa Fosis Corporation, DWS 3500P) を用いて切断し、厚さ2 mmの厚切り薄片に加工し、切断面を研磨等の処理をせずに分析に供した。この手法は、岩石をダイヤモンドの研磨剤のついたバンドで切断するため、切断面が800番の研磨剤で研磨した効果が得られることから、表面の滑らかな2 mm厚さの薄片作製に成功した。薄片中の微生物細胞の可視化は、親水性樹脂に包埋した薄片を観察する手法を用いた(Sueoka et al., 2019; Suzuki et al., 2020)。分析には、令和3年度から幌延町北進地区において、地表から掘削されたボーリング孔(HBF-1)にて採取された岩石コア試料のうち、声問層から採取されたHFB1-C1 （深度208.90 m - 209.00 m）、HFB1-C2（深度229.70 m - 229.85 m）、HFB1-C3（深度260.18 m - 260.33 m）の3試料を用いた。なお、本ボ

ーリング孔は、資源エネルギー庁委託事業「令和3、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(JPJ007597)（岩盤中地下水流動評価技術高度化開発）」において調査が実施されたものである。

その結果、ダイヤモンドバンドソーを用いて作製した薄片について、3深度から採取した声問層の岩石試料すべてにおいて、微生物細胞の存在を確認することができた。観察結果から、声問層の岩石内部では、亀裂表面に分布する細胞だけでなく、空隙を充填するように分布する細胞や鉱物表面に付着するように分布する細胞が確認できた（図3.4-21, 図3.4-22および図3.4-23）。声問層の空隙サイズは約60 %であることが報告されており、約30 %の稚内層と比較すると微生物にとっては住処としての空間が多いと考えられ、地下環境では空隙サイズが微生物の存在を律速する要因の一つであることが推察された。また、鉱物表面に付着する様子から、微生物が直接鉱物からエネルギーを獲得している可能性も推察された。

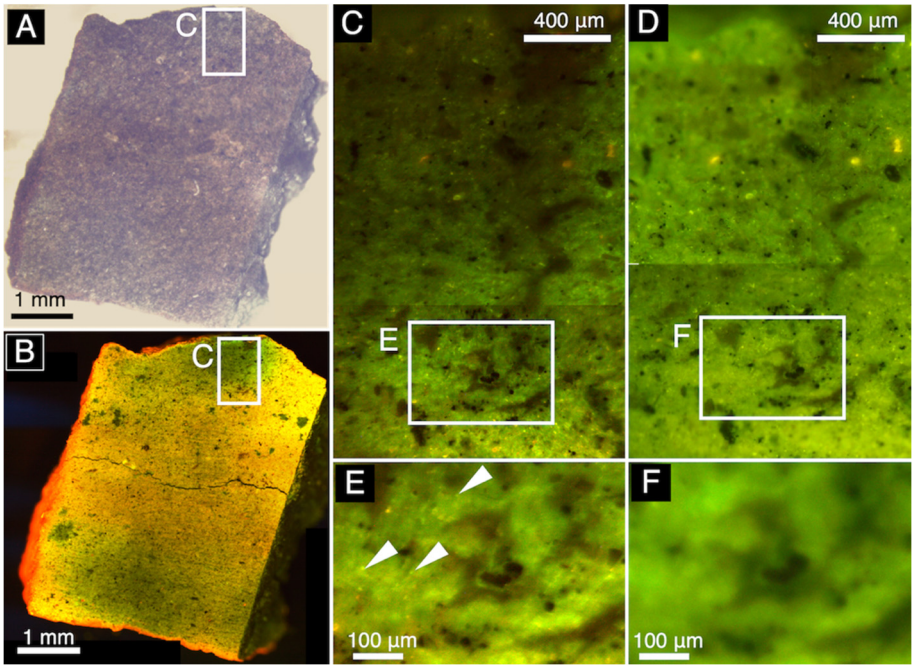


図3.4-21　声問層のコア岩石試料（HFB1-C1; 深度208.90 – 209.00 m)から作製した薄片の観察結果。実体顕微鏡による可視光(A)と蛍光(B)の観察像（8倍）。A、Bの白い枠の領域を低倍率で実体顕微鏡像(C)と蛍光顕微鏡(D)の観察像（20倍）。C、Dの白い枠を高倍率で実体顕微鏡(E)と蛍光顕微鏡(F)の観察像（100倍）。

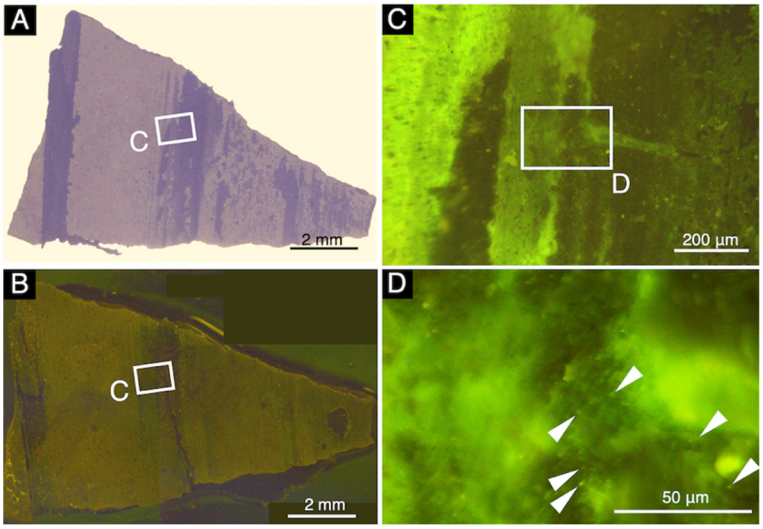


図3.4-22　声問層のコア岩石試料（HFB1-C2; 深度229.70 – 229.85 m)から作製し薄片の観察結果。実体顕微鏡による可視光(A)と蛍光(B)の観察像（8倍）。A、Bの白い枠の領域を低倍率で実体顕微鏡の観察像(C)（20倍）。図Bの(C)の白い枠の領域を高倍率の実体顕微鏡で観察した像(D)（100倍）。

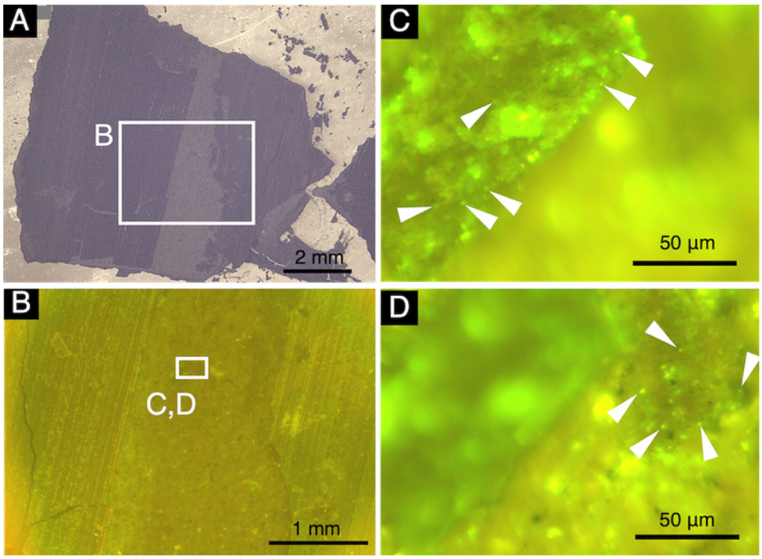


図3.4-23　声問層のコア岩石試料（HFB1-C3; 深度260.18 – 260.33 m)から作製した薄片の観察結果。実体顕微鏡による可視光の観察像(A)（8倍）とAの白い枠の領域を蛍光で観察した像（B)（20倍）。Bの白い枠の領域を高倍率の実体顕微鏡像でフォーカスを変えて観察した結果（C、D) (100倍)。

岩石中の元素分布を明らかにするために、作製した薄片試料を対象として、走査型軟X線分光顕微鏡(SFXM)による測定をおこなった。SFXMの測定は、SPring-8のビームライン BL17SUで行われた。試料を高精度のステージに搭載して、厚い試料を観察する反射型に配置した試料にプローブを走査した(Oura et al. 2020)。フレネルゾーンプレート(Fresnel Zone Plate： FZP)を用いた光学系によりサブミクロンスケールに軟X線ビームを集光し、測定時のビーム径は600-800 nmであった。試料から放出される蛍光X線をシリコンドリフト検出器で計数する蛍光X 線分析(microprobe X-Ray Fluorescence analysis： μ-XRF)を行った。SFXMはSEM-EDSと比べると焦

点深度が深く、表面研磨が粗い試料でも元素マッピングが得られることが期待される。また、微生物細胞の主要構成元素であるCとNを、岩石の主要元素であるSi, Al, Mg, FeおよびOと同時にマッピングが可能であるため、岩石内の鉱物と微生物の分布の関係性についてデータを取得できる可能性がある。低倍での元素マッピングの結果、珪藻質な岩石の組成を反映して、Si, Al, MgおよびFeで比較するとSiが成分として主要であることが確認できた（図3.4-24）。次に図3.4-24に示した二箇所の地点aおよびb (20 × 20 µm)で、詳細な元素マッピングを行った（図3.4-25, 26）。図3.4-24地点aおよびbの解析の結果、Si, Al, MgおよびSi+Alの濃度が高い領域5 µm程度の領域で存在することが明らかとなった（図3.4-25, 図3.4-26）。また、図3.4-26に示した領域ではFeとNの濃度が高く、Mgと相関していた。Siに対してAlやMg濃度の高い領域には粘土鉱物が存在している可能性が高いことから、Feの濃度が高い要因として、粘土鉱物とFeが共存している可能性が示唆された。本分析の対象領域は、顕微鏡観察により微生物細胞が観察された領域と同じではないことから、粘土鉱物と推定される領域に微生物が共存していたかどうかは明らかではないが、稚内層を対象とした分析結果から、岩石中のSi, MgおよびAl濃度が高い領域において、微生物細胞が分布していることが示されている。したがって、この領域におけるNの濃集については、粘土鉱物の層間にイオン交換したアンモニウムイオンなのか、鉄を代謝で用いる微生物の有機態の窒素か、もしくは微生物とは関係ない有機物態の窒素（例えば、腐植物質）である可能性が考えられる。今後、局所のX線吸収端近傍構造解析等より詳細な分析を行うことで、Nの起源を明らかにすることができると考えられる。

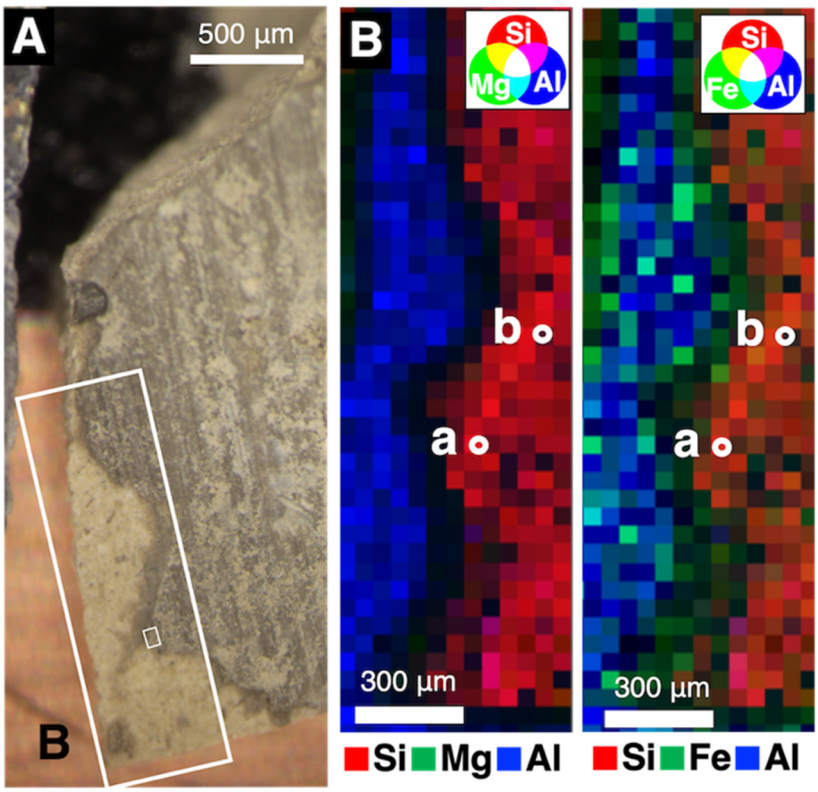


図3.4-24　ダイヤモンドバンドソーを用いて作製した声問層HFB1-C3(深度260.18–260.33 m)のコア岩石試料薄片の観察およびSFXMによる分析結果。実体顕微鏡による観察像(A)。白枠はSFXMでのマッピング領域を示す。SFXMによる3元素のマッピング結果のRGB合成像(B) 。ポイントaとbから元素マッピングデータを取得。

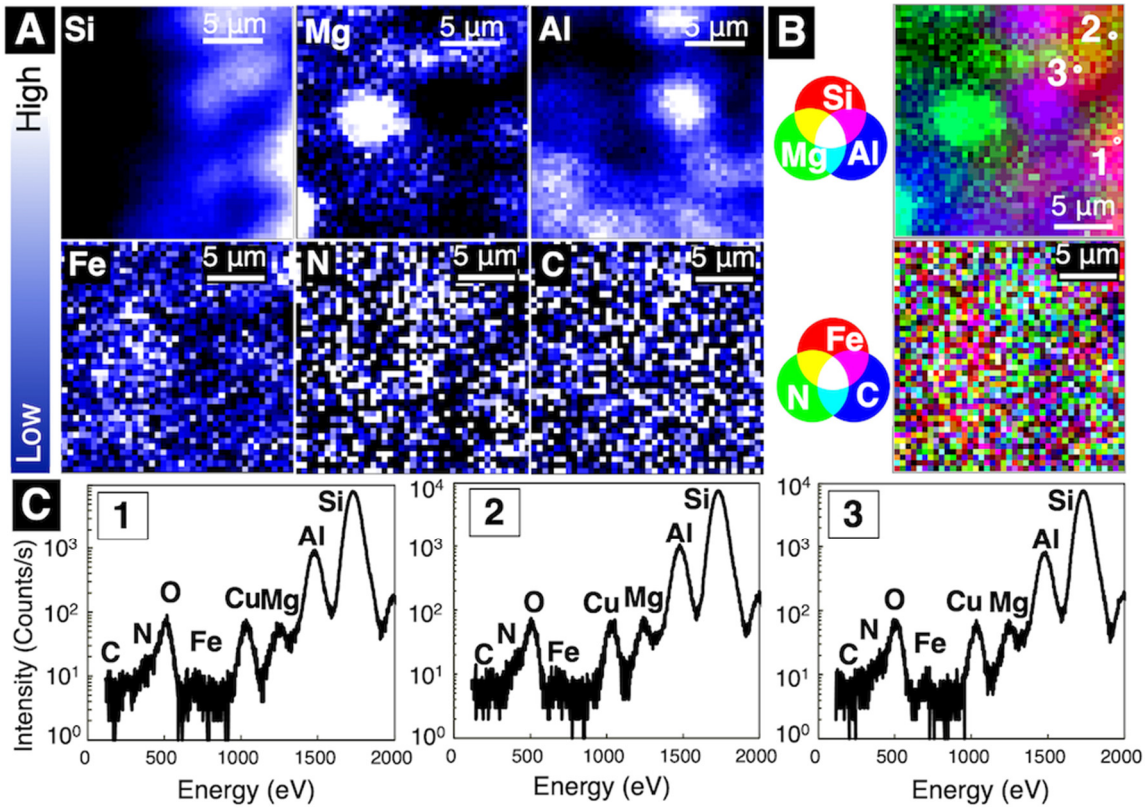


図3.4-25　ダイヤモンドバンドソーを用いて作製した声問層HFB1-C3（深度260.18 – 260.33 m）のコア岩石試料薄片のSFXMによる微小領域分析。図3.4-24 Bのポイントaの単元素のマッピング像(A)。3元素の合成像とRGB合成で得られる色相(B)。図3.4-25 Bのポイント1, 2および3のμ-XRFスペクトル(C)。

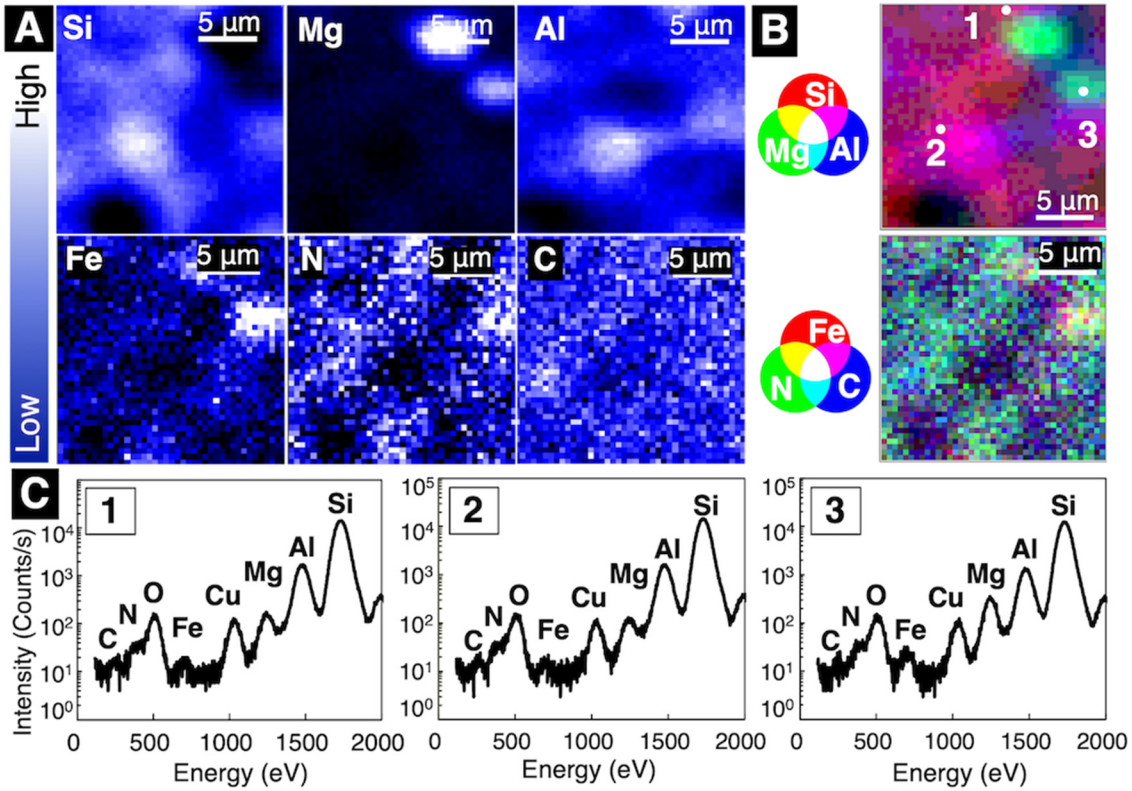


図3.4-26　ダイヤモンドバンドソーを用いて作製した声問層HFB1-C3(深度260.18 – 260.33 m)のコア岩石試料薄片のSFXMによる微小領域分析。図3.4-24 Bのポイントbの単元素のマッピング像(A)。3元素の合成像とRGB合成で得られる色相(B)。Bのポイント1, 2および3のμ-XRFスペクトル(C)。

声問層HFB1-C3（深度260.18 - 260.33 m）のコア岩石試料薄片に対して、SFXM解析をした後カーボン蒸着し、SEM-EDS解析を行った。SEM-EDSはSFXMで取得が不可能なPやSの情報が感度は違うが得られるため、SFXMのデータを補完することが可能になると考えられる。その結果、SFXMでみられた元素のマッピングの結果と整合的に、Si, AlおよびMgの濃度の違う鉱物相がみられた（図3.4-27）。SFXMでマッピングを行ったSi, Al, MgおよびFe以外にもCaやS等が主成分としてEDSスペクトル中にピークがみられた（図3.4-27）。特にMgに濃度が高いポイントでEDS分析を行った結果、Si, Al, Mg, CaおよびFeを含む粘土鉱物に類似したスペクトルを取得することができた。今後は、薄片試料の同じ領域を対象として、微生物情報（細胞密度や群集組成等）と岩石組織（空隙、亀裂）や鉱物相に関するデータを取得し、岩盤中の元素と微生物の相互作用に関する評価をより詳細に行う手法の構築を目指す。

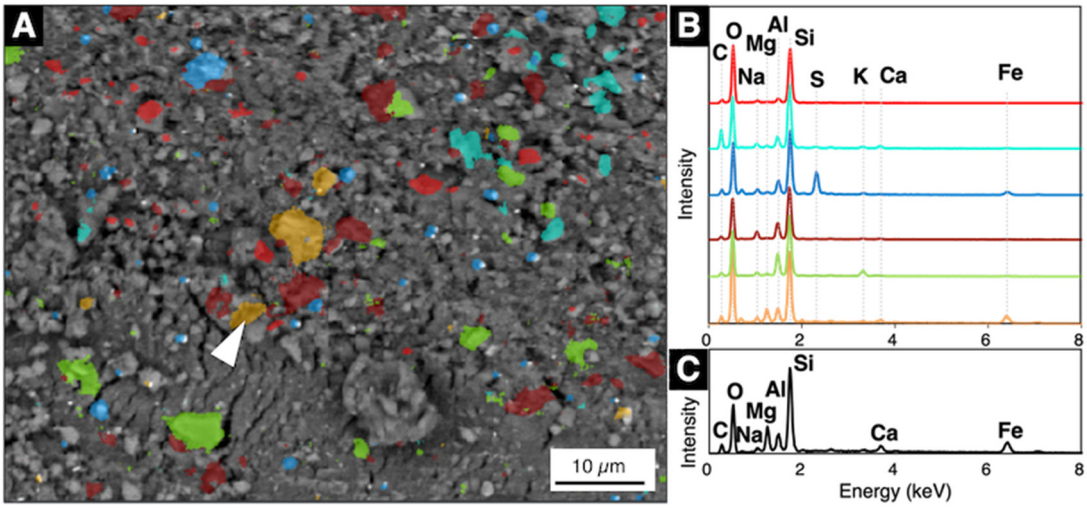


図3.4-27　ダイヤモンドバンドソーを用いて作製した声問層HFB1-C3（深度260.18 – 260.33 m）のコア岩石試料薄片において、走査型電子顕微鏡(SEM-EDS)による元素マッピングから取得したマトリックス部分の鉱物相の分布と(A)と各相のEDSスペクトル(B)。Aの矢印が指す点から得られたスペクトル(C)。

4) 微生物影響を考慮した核種移行の定量的評価と課題

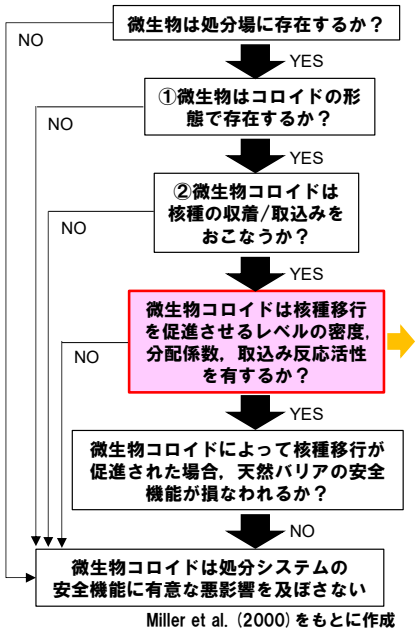
地下環境に存在する微生物が処分システムの安全機能にどの程度影響を及ぼすかを評価するためには、地下環境の現象理解を深めるとともに、それを反映した評価モデルを構築して性能評価解析を実施することが必要である。性能評価解析は、実施結果に基づいて性能評価において不確実性となる現象について課題を抽出し、不確実性を低減させるための研究開発を実施、その成果を性能評価にフィードバックさせるという一連の影響評価を繰り返し実施することが必要である。また、抽出された課題について、室内試験だけでなく、フィールド調査、原位置試験を組み合わせた評価をおこなうことで、より信頼性の高い微生物影響評価を行うことが可能になる。先行事業において、「地層処分システムの安全機能への影響評価が必要であるが結論が得られていないとみなされる項目」として抽出された事象として、コロイド・バイオフィルムへの核種の収着特性と核種移行に及ぼす影響、微生物代謝活性が地下水の水質形成に及ぼす影響が挙げられている。天然バリアにおけるコロイドおよびバイオフィルム形態で存在する微生物の核種移行影響について、評価フローを図3.4-28および図3.4-29に整理し、これまでの既存の知見および本事業で得られた成果をもとに、情報を更新した。微生物を含むコロイドが核種移行に及ぼす影響については、ほぼすべての地下環境において、微生物を含めたコロイドが存在し、コロイドへの核種の収着および取り込み反応が起こると考えられる（図3.4-28）。これらが核種移行を促進させるレベルの密度、分配係数および取り込み反応活性を有するか否かについて、評価を進める必要があるが、不確実性も含めた評価を行うためには、これらの影響を定量的に取り扱うことができる手法が開発されていることが望ましい。コロイドの形態として存在する「バイオコロイド」は、微生物に由来するコロイド粒子のことを指し、a. 生きた微生物細胞、b. 細胞形態の健全・不健全な状態の死んだ微生物細胞、c. 微生物の代謝反応に伴い細胞外に生成されたナノコロイドの3種類が挙げられる。aの「生きた微生物細胞」については、微生物細胞表面に核種が電気化学的に収着するケースに加えて、代謝反応に伴い細胞内への核種の取り込み（濃縮、形態変換、鉱物化）を行うことで、核種と微生物細胞の相互作用は不可逆的挙動を示す可能性が高い。また細胞が鞭毛を有する場合走化性を有することから、走化性のある細胞と核種が反応した場合、地下水の流れよりも早く核種が移行する可能性がある。さらに、cについては、微生物が細胞内にウラン等の核種を取り

込み、鉱物化してナノサイズの粒子（すなわちナノコロイド）を細胞外に生成する現象も報告されている。したがって、従来のコロイド移行評価に加えて微生物特有の評価項目についてもデータおよび知見の整備が必要とされていたが、地下環境に存在する微生物を対象としたデータの整備はほとんど行われていない状況であった。本事業では、地下環境に存在するバイオコロイドを含むこれらのデータの拡充をおこなった。結果として、堆積岩地下環境を対象として、コロイド密度、微生物密度、全コロイドおよびバイオコロイドへの希土類元素の分配係数を拡充した（図3.4-28）。

バイオフィルム影響に関しては、地下環境において、岩石中にバイオフィルムが形成されているのか、形成されていたとして、その密度はどの程度で存在するのかについて、これまで知見が限られていた。既存の知見では、地下環境を模擬した条件下にて、あるいはボーリング孔の孔壁や採水ツールにおいて形成されたバイオフィルムに関する調査結果は報告されていたが(Amano et al., 2017; Ekendahl and Pedersen 1994; Anderson and Pedersen, 2003; Anderson et al., 2006; 2007; Jägevall et al., 2011; Krawczyk-Bärsch et al., 2012)、それらはいずれも地下水流速やエネルギー源供給速度の観点において、地下本来の岩盤亀裂表面における環境条件と比較するとバイオフィルムの形成にとって好条件であり、その密度は実際の岩盤亀裂表面におけるそれと比較すると過大評価されていたと考えられる。本事業にて、実際の地下環境の岩盤内部に、微生物がバイオフィルムの形態で存在することを明らかにした。次に、バイオフィルムが母岩の収着・拡散能力を低下させる可能性について考察した結果、バイオフィルムは元素の透過性が高いことから、母岩の収着・拡散能力を低下させないと考えられるが、試験データに基づく考察ではないため、岩石表面に形成されたバイオフィルムを活用した試験の実施が望ましいと考えられた。万が一、バイオフィルムが母岩の収着・拡散能力を低下させる場合、岩盤中のバイオフィルムが核種移行を促進させる密度で存在する可能性については、地下環境が低栄養塩であることや住処としての空隙サイズが制限されていることから、地下環境下で形成されるバイオフィルムは低密度であり、核種移行を促進させるレベルではないと考えられる。また、バイオフィルムへの核種の分配係数や不可逆特性の核種移行への影響については、バイオフィルムへの核種の分配係数は高く、不可逆であると考えられることから、岩盤表面に膜の形態で存在している場合においては、核種移行を促進させないと推定される。また、数センチ以上の厚みのバイオフィルムが形成される場合には、核種の遅延効果が期待できるが、岩盤中に形成されるバイオフィルムは、低栄養塩および空隙サイズに律速されるため、その規模は低密度であると推定される。バイオフィルムは、その生物学的性質上、物質表面に付着してある程度成熟すると、環境状態の変化や炭素源の枯渇、代謝産物の蓄積等に起因してバイオフィルムから菌体が脱離し、浮遊菌として存在した後、また物質表面に付着するといったライフサイクルを有することが知られている。したがって、核種を高濃度に濃集したバイオフィルムが岩石表面からはがれてしまう可能性もあり得る。しかしながら、万が一、核種を濃集したバイオフィルムが岩盤から剥離した場合においても、その密度により速やかに沈降するか、また新たに別の岩盤表面にバイオフィルムを形成すると推定されることから、天然バリアの安全機能が損なわれることはないと考えられる（図3.4-29）。これらの判断の信頼性の向上に向けて、地下環境に形成されたバイオフィルムについて、フィールド調査とデータ取得を実施し、バイオフィルムの乾燥密度およびバイオフィルムへの元素の分配係数を拡充した（図3.4-29）。

これらの微生物の核種移行への影響を定量的に評価するためには、これらが関与する事象を核種移行パラメータとして反映した核種移行解析をおこなうことで、不確実性を低減させたより信頼性の高い評価を行うことが可能となる。地下水中の浮遊微生物については、コロイドとみなすことでコロイドを対象とした核種移行解析ツールを用いることができる。例えば、COLFRACは

コロイド移行を考慮した核種移行解析を行うツールとして開発されており（Ibaraki, 1995）、解析例が報告されている（久野・笹本, 2010; 黒澤, 2004）。しかしながら、COLFRACでは、コロイドを取り扱うことは可能であるが、バイオフィルムのような膜を対象としたパラメータ設定を行うことができない。また、取り扱い可能な核種も、一度の解析で１元素に限られている。一方で、汎用シミュレーションソフトウェアGoldSim (ver. 10.1: GoldSim Technology Group, 2010)は、複数の核種を同時に解析可能であることに加えて、バイオフィルムを「膜」として取り扱うことで、バイオフィルムを考慮に入れた核種移行解析を行うことができる。したがって、本研究では、GoldSimを用いて、これまで日本原子力研究開発機構発機構で構築されてきた核種移行解析モデル（核燃料サイクル開発機構, 1999; 仲島ほか, 2009; 小尾・稲垣, 2010）に微生物パラメータを追加して、微生物影響を考慮に入れた核種移行解析を実施した。なお、本検討では、地層処分の人工バリアおよび天然バリアを対象とし、特に天然バリアについては、バイオフィルムの分布領域が主に亀裂性媒体であると推測されることから、天然バリアを亀裂性媒体として取り扱う核種移行モデルを対象として微生物影響評価を試みた。



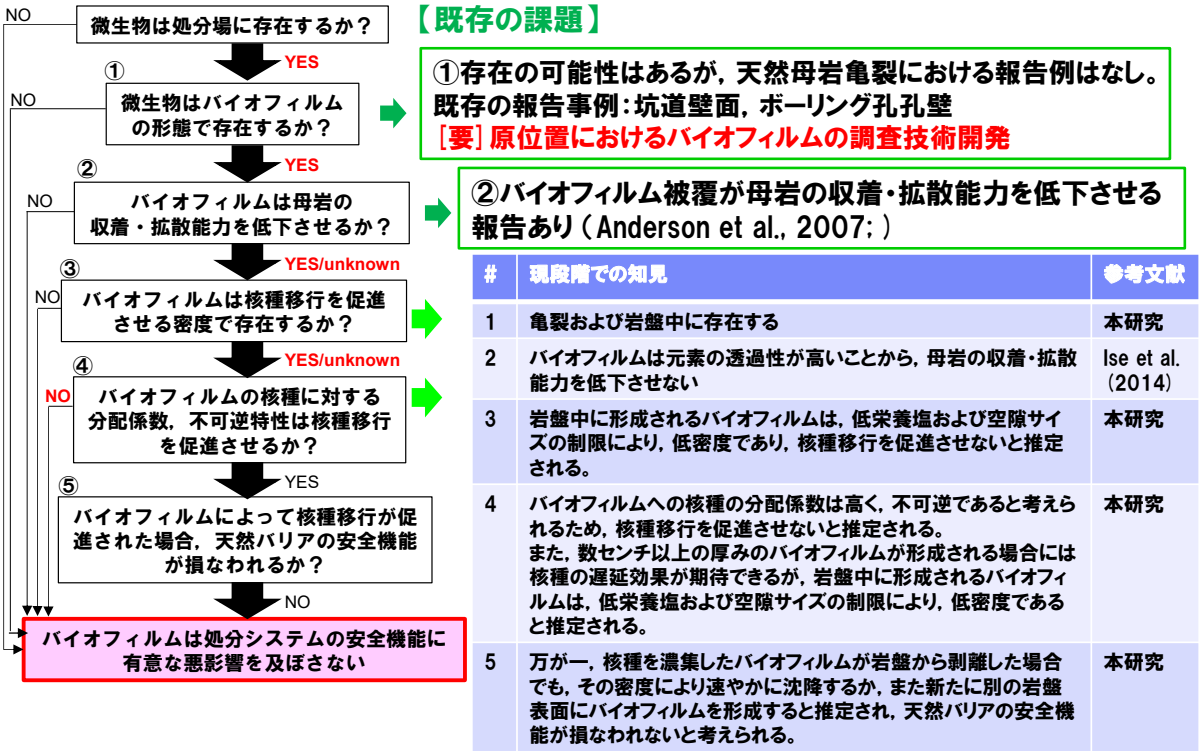
微生物コロイドの定量的・長期的影響評価手法の一例

核種移行解析ツール 汎用シミュレーションソフトウエア：GOLD-SIM，
コロイド移行解析コード：COLFRAC (Ibaraki and Sudicky, 1995)

評価に必要なパラメータ	評価手法と知見の整備	核種移行を促進させるレベル*と取得された知見
①微生物密度 (M [kg/m^3])	蛍光顕微鏡による直接計数法 データ整備：本事業	KdM (KdとMの積) >1の条件下にて促進が顕在化 ①1-5 x 10^{-5} ②Se, REEの場合： 0.00076-3.5 x 10^5
②核種の微生物への分配係数 (Kd [m^3/kg])	地下水中の全/無機コロイドを対象とした収着試験を応用 データ整備：本事業	
③微生物による核種の取込み速度（不可逆性）**	収着試験，培養法，ゲノム解析 データ整備：本事業で「取込み反応活性評価」に着手	KdM=0.1, KdM=1の条件下とも，脱離速度 <1 (1/y) の場合に促進が顕在化。 ③特定の微生物により取り込まれることを確認
④微生物の走化性	運動様式と移動速度について，知見が集積 移動速度： 0.015-200 μm/s	走化性を考慮した例はないが，地下水流速が促進に及ぼす影響として取扱いが可能。KdM=0, KdM=1の条件下で流速100 m/yの場合に促進が顕在化

*久野・笹本（2009）JAEA-Research 2009-071 参照
**COLFRACでは速度論を考慮することが可能

図3.4-28　コロイドが核種移行に及ぼす影響に関する評価手法フローの例
本事業では、核種移行解析に必要だと考えられる微生物密度、微生物への核種の分配係数、微生物による核種の取り込みの有無に関するデータを拡充した。



#	現段階での知見	参考文献
1	亀裂および岩盤中に存在する	本研究
2	バイオフィルムは元素の透過性が高いことから，母岩の収着・拡散能力を低下させない	Ise et al. (2014)
3	岩盤中に形成されるバイオフィルムは，低栄養塩および空隙サイズの制限により，低密度であり，核種移行を促進させないと推定される。	本研究
4	バイオフィルムへの核種の分配係数は高く，不可逆であると考えられるため，核種移行を促進させないと推定される。 また，数センチ以上の厚みのバイオフィルムが形成される場合には核種の遅延効果が期待できるが，岩盤中に形成されるバイオフィルムは，低栄養塩および空隙サイズの制限により，低密度であると推定される。	本研究
5	万が一，核種を濃集したバイオフィルムが岩盤から剥離した場合でも，その密度により速やかに沈降するか，また新たに別の岩盤表面にバイオフィルムを形成すると推定され，天然バリアの安全機能が損なわれないと考えられる。	本研究

図3.4-29　バイオフィルムが核種移行に及ぼす影響に関する評価手法フローの例

解析には、本事業で拡充した、天然地下環境を対象とした全コロイド濃度、微生物濃度、バイオフィルム乾燥密度、バイオフィルム厚みのデータを使用した。また、天然地下水中に存在する全コロイドおよび微生物コロイドを対象として、希土類元素をアクチニド元素のアナログとして、天然コロイドへの希土類元素の分配係数に関するデータを取得し、解析に必要なパラメータを整備した。本パラメータを用いて、GoldSimによる核種移行解析を実施した。人工バリアについては、第2次取りまとめ、仲島ほか(2009)および、小尾・稲垣(2010)に準拠した。本事業で検討した天然バリアにおける核種移行解析モデルを図3.4-30および図3.4-31に示す。また、本モデルで追加したパラメータと解析ケースは、表3.4-15の通りである。アクチニドの分配係数については、本事業で希土類元素をアクチニドのアナログ元素として取得した分配係数のうち、3価核種のアナログとなるEuの値を用いることとした。Zr(IV), Tc(IV), Th(IV), U(IV)およびNp(IV)については、Eu(III)とTh(IV)の堆積岩への収着・拡散挙動は大きな相違がないという研究事例（日本原子力研究開発機構, 2013b）や天然有機物を例としたTh(IV)に対する親和性がEu(III)のそれと比較して10倍程度高くなる(Maes et al., 2011)という知見を踏まえて、ここではEuの値を設定した。バイオコロイドへの核種の分配係数については、全コロイドの分配係数設定と同様に、本事業で取得されたバイオコロイドに対する希土類元素の分配係数値のうち、Euの値を設定した。バイオフィルムの分配係数については、本事業で取得した実測値やAmano et al. (2017)の値を採用し、参考データの知見が不足している元素については、バイオフィルムによる核種の遅延効果が最小限となる1を設定値として用いた。なお、バイオフィルム影響パラメータとして考慮される空隙率および屈曲度については、バイオフィルムが母岩を被覆することにより生じる母岩に対する核種のマトリクス拡散の抑制に反映されるパラメータである。空隙率については、 0.1 (Ise et al., 2014)を設定、屈曲度については参照データがないため、影響が最大となるように設定値として1を用いた。

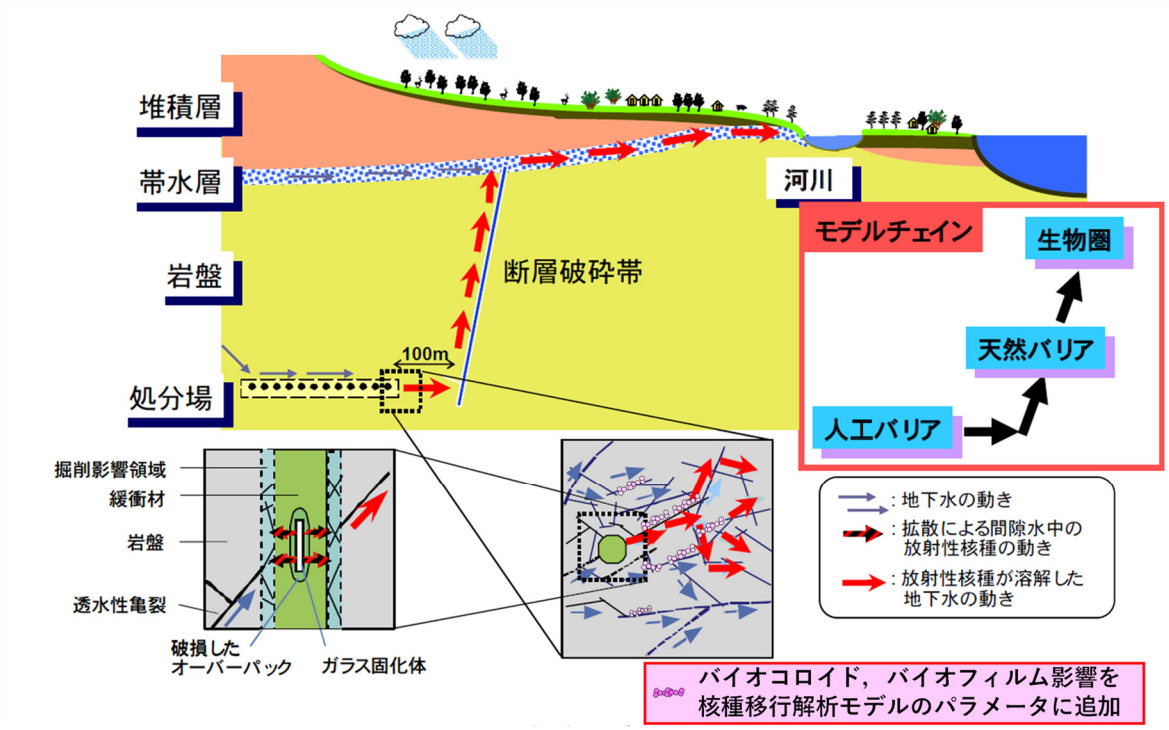


図3.4-30　第2次取りまとめで構築したレファレンスケースの概念モデルに、コロイドおよびバイオフィルム影響を追加した核種移行解析モデル（核燃料サイクル開発機構(1999)を改変）

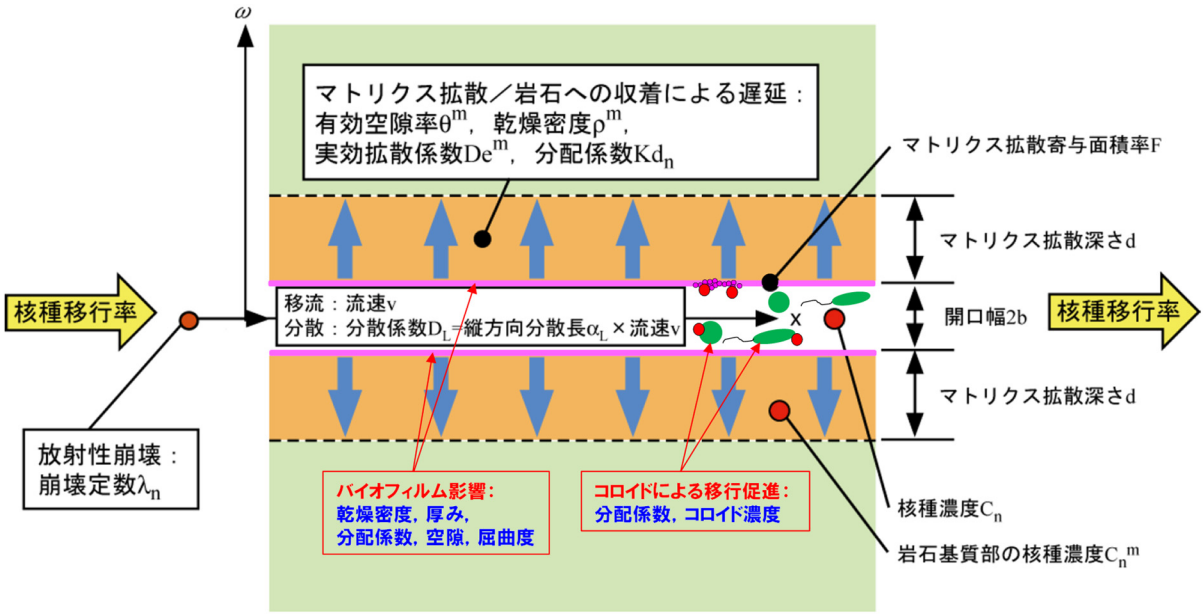


図3.4-31　亀裂性媒体におけるコロイドおよびバイオフィルム影響を考慮した一次元平行平板モデルの概念図（核燃料サイクル開発機構(1999)を改変）

表3.4-15　核種移行解析に設定したパラメータと解析ケース

	コロイド濃度 [kg/m^3]	コロイドへの核種の分配係数 K_d [m^3/kg]	バイオフィルムの乾燥密度[2] [kg/m^3]	バイオフィルムの厚み [mm]	バイオフィルムへの核種の分配係数 K_d [m^3/kg]	バイオフィルムの空隙率[10]	バイオフィルムの屈曲度
レファレンスケース_H12[1]	-	-	-	-	-	-	-
コロイドケース_H12[1]	0.001	1000	-	-	-	-	-
コロイド_H26	0.0006[2]	3160[5]	-	-	-	-	-
バイオフィルム_H26	-	-	0.038[6]	0.1[8]	3160[5]	0.1	1.0[8]
コロイド＋バイオフィルム_H26	0.0006[2]	3160[5]	0.038[6]	0.1[8]	3160[5]	0.1	1.0[8]
全コロイド_H29	0.00166[3]	10^3 - 6.5 x 10^5					
全コロイド＋バイオフィルム_H29	0.00166[3]	10^3 - 6.5 x 10^5	18.8[7]	0.01[9]	1 - 1.2 x 10^8	0.1	1.0[8]
微生物コロイド_H29	0.00005[4]	10^3 - 1.7 x 10^4					
微生物コロイド＋バイオフィルム_H29	0.00005[4]	10^3 - 1.7 x 10^4	18.8[7]	0.01[9]	1 - 1.2 x 10^8	0.1	1.0[8]
全コロイド_R4	0.00189	10^2 - 1.4 x 10^5					
全コロイド＋バイオフィルム_R4	0.00189	10^2 - 1.4 x 10^5	0.108	0.01[9]	0.04 - 5.3 x 10^3	0.1	1.0[8]
微生物コロイド_R4	0.00005	10^2 - 1.3 x 10^5					
微生物コロイド＋バイオフィルム_R4	0.00005	10^2 - 1.3 x 10^5	0.108	0.01[9]	0.04 - 5.3 x 10^3	0.1	1.0[8]

1) 核燃料サイクル開発機構（1999）, 2) 日本原子力研究開発機構（2014）, 3) 日本原子力研究開発機構（2017）,
4) 日本原子力研究開発機構（2017）, 5) 天野ほか (2013), 6) Anderson et al., (2006), 7) 日本原子力研究開発機構（2017）, 8) 文献データなし, 9) 日本原子力研究開発機構（2017）, 10) Ise et al., (2014),

表3.4-16　核種移行解析に設定した分配係数

(a) 全コロイド

元素名	分配係数（m^3/kg）	文献
Se	100	2
Zr	102243	2
Nb	1000	1
Tc	1000	2
Pd	1000	1
Sn	1000	1
Cs	1000	1
Sm	102243	2
Pb	1000	1
Ra	1000	1
Ac	1000	1
Th	141299	2
Pa	1000	1
U	102243	2
Np	102243	2
Pu	102243	2
Am	102243	2
Cm	102243	2

(b) 微生物コロイド

元素名	分配係数（m^3/kg）	文献
Se	100	2
Zr	93565	2
Nb	1000	1
Tc	1000	2
Pd	1000	1
Sn	1000	1
Cs	1000	1
Sm	93565	2
Pb	1000	1
Ra	1000	1
Ac	1000	1
Th	129612	2
Pa	1000	1
U	93565	2
Np	93565	2
Pu	93565	2
Am	93565	2
Cm	93565	2

(c) バイオフィルム

元素名	分配係数（m^3/kg）	文献
Se	0.371	2
Zr	0.111	2
Nb	1	
Tc	61.48	2
Pd	1	
Sn	1.129	2
Cs	2.87	2
Sm	5280	2
Pb	83.98	2
Ra	0.037	2
Ac	2828	2
Th	61.48	2
Pa	1	
U	127.8	2
Np	61.48	2
Pu	5280	2
Am	5280	2
Cm	25.07	2

1; 核燃料サイクル開発機構（1999）, 2; 本事業

表3.4-15、表3.4-16に示したケースについて、核種移行解析の結果を図3.4-32および図3.4-33に示す。本解析では、コロイドおよびバイオフィルムへの核種の分配係数、コロイド濃度、バイオ

フィルムの乾燥密度、厚み、空隙率および屈曲率をパラメータとして、キャリアとしてのコロイドに保持される核種量と岩石表面に形成される膜であるバイオフィルムへの核種量および核種移行挙動との関係について確認した。なお、本解析（以下、R4とする）では、先行研究（日本原子力研究開発機構, 2018; 以下、H29とする）の解析から、再現性確認試験および地下水試料数の増加等により全コロイドおよびバイオコロイドへの分配係数値を見直している。全コロイドおよびバイオコロイドの分配係数値はそれぞれ、H29では最大値で650, 980 m^3/kgおよび16, 900 m^3/kgとして設定していたが、R4では141, 299 m^3/kgおよび129, 612 m^3/kgとし、全コロイドはH29よりも低い値、バイオコロイドは高い値で設定されている。バイオフィルムについては、乾燥密度が18.8 kg/m^3から0.108 kg/m^3とかなり低い値として見直しをおこなった。解析の結果、全コロイド影響を考慮した解析ケースにおいて、コロイド影響を考慮しないレファレンスケースや第2次取りまとめにおいてコロイド影響を考慮した解析ケースと比較して、核種移行の助長が顕在化することが示された。第2次取りまとめにおけるコロイドの影響を考慮した解析ケースでは、コロイドへの分配係数を10^3 m^3/kg、 コロイド濃度を10^{-3} kg/m^3と設定しており、R4と比較して分配係数は2桁ほど高く、コロイド濃度は約2倍となっているためと考えられる。一方で、バイオフィルム影響を考慮した場合、H29では遅延効果が顕著に表れていたが、地下環境データに基づくより現実的なバイオフィルム乾燥密度を設定した結果、地下環境に形成されるバイオフィルムの密度や厚みでは、顕著な遅延効果はもたらされない可能性が示唆された。微生物コロイドを考慮した場合の結果は、全コロイドに対する微生物コロイドの密度や分配係数値が低いことから、全コロイドケースより総線量は低い傾向が示された。R4解析ケースでは、実際の地下環境を対象として、コロイド濃度やコロイドへの分配係数、バイオフィルム乾燥密度やバイオフィルムへの分配係数に関する知見を拡充しており、より現実的な信頼性の高い影響評価結果が得られているものと考えられる。

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

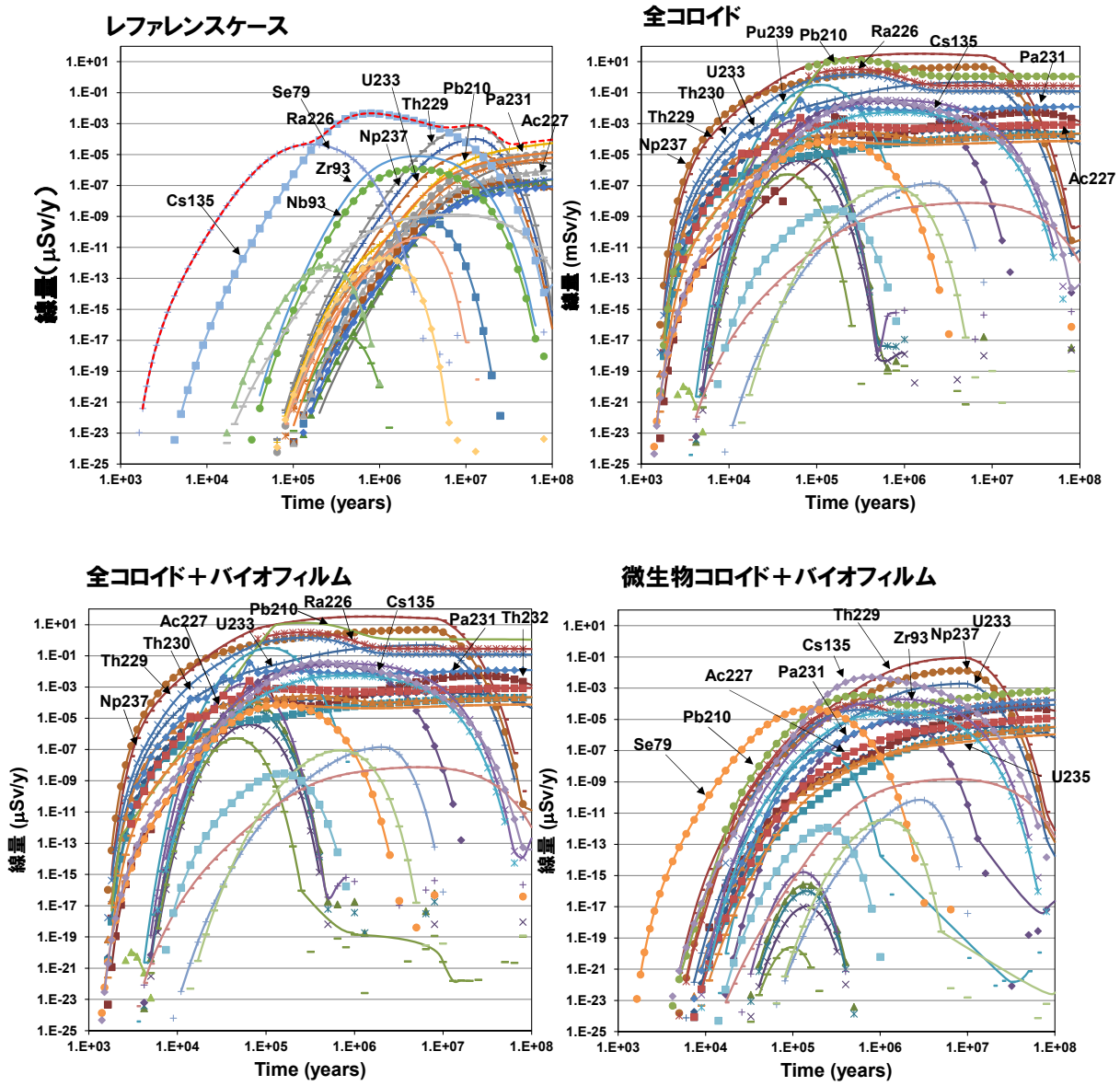


図3.4-32　全コロイド、微生物コロイド、バイオフィルム影響を考慮した核種移行解析結果

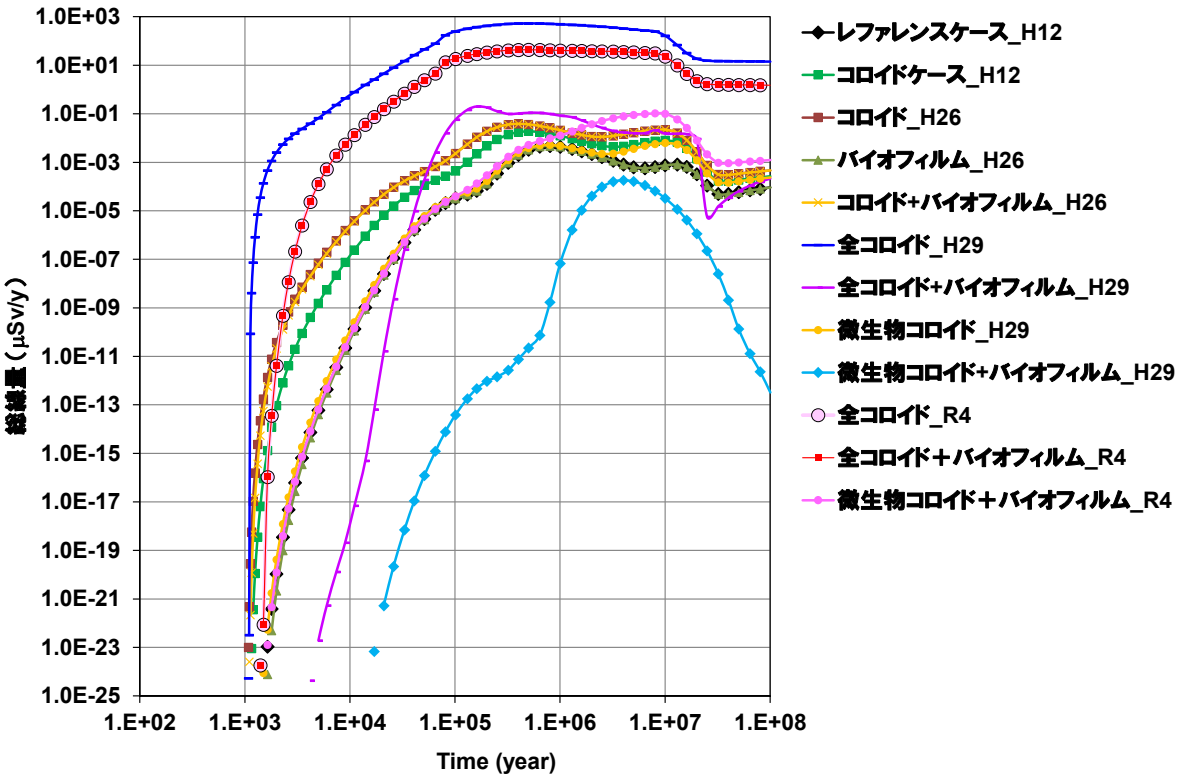


図3.4-33　各解析ケースの総線量の比較

(3) 5か年の成果と今後の課題

令和4年度は、堆積岩地下水中に存在する天然コロイドへの元素収着特性を評価するために、令和3年度までに実施した地下水試料と比較して塩分濃度等の地下水水質、コロイド濃度、微生物特性が異なる試料を対象として、微生物コロイドを含む全コロイドへの元素収着データを取得し、天然コロイドの収着分配係数に関わるデータの拡充と収着メカニズムについて考察した。また、堆積岩地下環境における微生物種の空間分布および地下施設建設過程における種組成の変化に関するモニタリング結果を取りまとめ、バイオフィルム形成領域に関する評価や鉄・硫黄・メタン等の反応に関わる微生物代謝反応について評価をおこなった。

これまでの5年間で、核種移行への影響の観点から文献調査を行い、核種と微生物の相互作用について整理したところ、室内試験を対象とした微生物と核種との相互作用に関する知見は数多く報告されているが、地下環境を模擬した条件下で実施された試験や地下微生物を対象とした試験については知見が非常に限られていることが確認された。したがって、地層処分システムにおける微生物の核種移行影響について、信頼性の高い評価を行うためには、地下環境に生息する微生物を対象としてこれらの相互作用に関する知見の拡充の重要性が挙げられた。核種移行への微生物影響を評価するためには、微生物と核種の相互作用に関する理解を深めるだけでなく、地下環境における微生物の生息形態（浮遊/付着）に関する評価手法の確立と原位置環境から取得した知見の拡充が極めて重要であると考えられる。また、バイオコロイドやバイオフィルムによる元素の収着や生息状況に関するデータを取得し、バイオフィルムへの元素の濃集は微生物が生成する細胞外高分子物質や微生物代謝に起因する可能性があることが示された。抽出された重要度の高い研究課題を踏まえて、幌延URLの深度140 m, 250 m, 185 mおよび350 mのボーリング孔から採取した地下水に対し、コロイドへの希土類元素およびセレンの収着特性データを取得し、微生

物コロイドが希土類元素の収着挙動に顕著な影響を及ぼすことが示されたことから、微生物影響を考慮した収着挙動について考察した。バイオフィルムの核種移行影響評価に関しては、幌延の地下環境を対象として、バイオフィルムの分布とその形成の潜在能力、収着特性について評価手法を提示した。また、幌延の地下環境において形成されているバイオフィルムには、重金属元素が濃集することが確認されたが、バイオフィルムへの元素の濃集はバイオフィルム構成微生物種ではなく、主に細胞外高分子物質の量に起因する可能性が示唆された。バイオフィルムを形成する種であるSM1を指標としたバイオフィルム形成領域の評価結果からは、坑道掘削直後は坑道壁面近傍のみで検出されていたが、時間の経過とともに坑道壁面から離れた領域についてもバイオフィルム形成種の増加が認められた。また、一部の領域では時間の経過とともに出現率が減少することが示されたことから、SM1によるバイオフィルム形成が顕著にみられる領域は、坑道近傍の不飽和領域の拡大に伴い坑道掘削から時間が経過するにつれて減退する一方で、水圧の変化に伴う脱ガスや水質・酸化還元状態の変化により、坑道近傍から離れた領域にも拡大する可能性が示唆された。これらの成果を踏まえて、地層処分システムにおいてコロイド・バイオフィルムによる微生物影響を考慮した定量的な核種移行影響評価を行い、地下環境においてコロイド濃度およびコロイドへの核種の分配が高い場合に核種移行が助長される可能性を示した。本研究における一連の成果から、性能評価を行う上で必要なデータを拡充し、定量的な核種移行評価を行うためのパラメータを整備するとともに、最新の知見を踏まえた微生物影響評価手法について提示することができた。

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

参考文献

天野由記, 雨宮浩樹, 村上裕晃, 岩月輝希, 寺島元基, 水野崇, 桐嶋陽, 久野温, 佐々木隆之, 窪田卓見, 本田照幸, 幌延URL地下水を用いたコロイドに関する研究, 1; 限外濾過手法を用いた地下水中のコロイド特性調査, 日本原子力学会2013年秋の大会, O10, 2013.

Amano, Y., Iwatsuki, T. and Naganuma, T., Characteristics of naturally grown biofilms in deep groundwaters and their heavy metal sorption property in a deep subsurface environment, Geomicrobiology Journal, vol. 34, pp. 769-783, 2017.

Amano, Y., Sasao, E., Niizato, T. and Iwatsuki, T., Redox buffer capacity in water-rock-microbe interaction systems in subsurface environment, Geomicrobiology Journal, vol. 29, pp. 628-639, 2012.

Andersson, C. A. and Bro, R., The *N*-way toolbox for MATLAB, Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems, vol. 52, pp. 1-4, 2000.

Anderson, C., Jakobsson, A.-M. and Pedersen, K., Influence of in situ biofilm coverage on the radionuclide adsorption Capacity of subsurface granite, Environmental Science & Technology, vol. 41, pp.830-836, 2007.

Anderson, C., Johnsson, A, Moll, H. and Pedersen, K., Radionuclide geomicrobiology of the deep biosphere, Geomicrobiology Journal, vol. 28, pp. 540-561, 2011.

Anderson, C. and Pedersen, K., *In situ* growth of Gallionella biofilms and partitioning of lanthanides and actinides between biological material and ferric oxyhydroxides, Geobiology, vol. 1, pp. 169-178, 2003.

Anderson, C., Pedersen, K. and Jakobsson, A. M., Autoradiographic comparisons of radionuclide adsorption between subsurface anaerobic biofilms and granitic host rocks, Geomicrobiology Journal, vol. 23, pp. 15-29, 2006.

Andersson, P., Nilsson, K. and Löfgren, M., Task description of Task 9C – Modelling of REPRO experiment TDE, SKB-P-17-31, 2020.

Artinger, R., Buckau, G., Zeh, P., Geraedts, K., Vancluysen, J., Maes, A. and Kim, J. I., Humic colloid mediated transport of tetravalent actinides and technetium, Radiochimica Acta, vol. 91, pp. 743-750, 2003.

Artinger, R., Kienzler, B., Schüßler, W. and Kim, J. I., Effects of humic substances on the ^{241}Am migration in a sandy aquifer: Column experiments with Gorleben groundwater/sediment systems, Journal of Contaminant Hydrology, vol. 35, pp. 261-275, 1998.

Baalousha, M., Kammer, F. V. D., Motelica-Heino, M., Baborowski, M., Hofmeister, C. and Le Coustumer, P., Size-based speciation of natural colloidal particles by flow field flow fractionation, inductively coupled plasma-mass spectroscopy, and transmission electron microscopy/X-ray energy dispersive spectroscopy: Colloids-trace element interaction, Environmental Science & Technology, vol. 40(7), pp. 2156-2162, 2006.

Bateman, K., Murayama, S., Hanamachi, Y., Wilson, J., Seta, T., Amano, Y., Kubota, M., Ohuchi, Y. and Tachi, Y., Evolution of the reaction and alteration of mudstone with ordinary portland cement leachates: Sequential flow experiments and reactive-transport modelling, Minerals, vol. 11, 1026, 2021.

Bayliss, P. Crystal structure refinement of a weakly anisotropic pyrite cubic model, American Mineralogist, vol. 62, pp. 1168-1172, 1977.

Bemedetti, M. F., van Rimemsdijk, W. H. and Koopal, L. K., Humic substances considered as

a heterogeneous Donnan gel phase, Environmental Science & Technology, vol. 30, pp. 1805-1813, 1996.

Bernhard, G., Geipel, G., Reich, T., Brendler, V., Amayri, S. and Nitsche, H., Uranyl(VI) carbonate complex formation: Validation of the $Ca_2UO_2(CO_3)_3$(aq.) species, Radiochimica Acta, vol. 89, pp. 511-518, 2001.

Bethke, C. M., Geochemical and biogeochemical reaction modeling, Cambridge University Press, New York, 564p, 2008.

Börsig, N., Scheinost, A. C., Shaw, S., Schild and D., Neumann, T., Uptake mechanisms of selenium oxyanions during the ferrihydrite-hematite recrystallization, Geochimica et Cosmochimica Acta, vol. 206, pp. 236-253, 2017.

Borst, A. M., Smith, M. P., Finch, A. A., Estrade, G., Villanova-de-Benavent, C., Nason, P., Marquis, E., Horsburgh, N. J., Goodenough, K. M., Xu, C., Kynický, J. and Geraki, K., Adsorption of rare earth elements in regolith-hosted clay deposits, Nature Communications, vol. 11, 4386, 2020.

Bradbury, M. H. and Baeyens, B., A mechanistic description of Ni and Zn Sorption on Na-montmorillonite Part II: Modelling. Journal of Contaminant Hydrology, vol. 27, pp. 223-248, 1997.

Bradbury, M. H. and Baeyens B., A generalized sorption model for the concentration dependent uptake of caesium by argillaceous rocks, Journal of Contaminant Hydrology, vol. 42, pp. 141-163, 2000.

Bradbury, M. H. and Baeyens, B., Sorption of Eu on Na- and Ca-montmorillonites: Experimental investigations and modelling with cation exchange and surface complexation, Geochimica et Cosmochimica Acta, vol. 66(13), pp. 2325-2334, 2002.

Bradbury, M. H. and Baeyens, B., Modelling the sorption of Mn(II), Co(II), Ni(II), Zn(II), Cd(II), Eu(III), Am(III), Sn(IV), Th(IV), Np(V) and U(VI) on montmorillonite: Linear free energy relationships and estimates of surface binding constants for some selected heavy metals and actinides, Geochimica et Cosmochimica Acta, vol. 69(4), pp. 875-892, 2005a.

Bradbury, M. H. and Baeyens, B., Experimental measurements and modeling of sorption competition on montmorillonite, Geochimica et Cosmochimica Acta, vol. 69(17), pp. 4187-4197, 2005b.

Bradbury, M. H. and Baeyens, B., Sorption modelling on illite. Part I: Titration measurements and the sorption of Ni, Co, Eu and Sn, Geochimica et Cosmochimica Acta, vol. 73, pp. 990-1003, 2009a.

Bradbury, M. H. and Baeyens, B., Sorption modelling on illite. Part II: Actinide sorption and linear free energy relationships, Geochimica et Cosmochimica Acta, vol. 73(4), pp. 1004-1013, 2009b.

Breynaert, E., Bruggeman, C. and Maes A., XANES-EXAFS analysis of Se solid-phase reaction products formed upon contacting Se(IV) with FeS_2 and FeS, Environmental Science & Technology, vol. 42, pp. 3595-3601, 2008.

Brown, P. L., Curti, E. and Grambow, B., Chemical thermodynamics of zirconium, Chemical Thermodynamics vol. 8, Elsevier, Amsterdam, 544p, 2005.

Bruggeman, C., Maes, A., Vancluysen, J. and Vandemussle, P., Selenite reduction in Boom clay: Effect of FeS_2, clay minerals and dissolved organic matter, Environmental Pollution,

vol. 137, pp. 209-221, 2005.

Bryan, N. D., Abrahamsen, L., Evans, N., Warwick, P., Buckau, G., Weng, L. and van Riemsdijik, W. D., The effects of humic substances on the transport of radionuclides: Recent improvements in the prediction of behavior and the understanding of mechanisms, Applied Geochemistry, vol. 27, pp. 378-389, 2012.

Bunsenberg, E. and Plummer, L. N., Thermodynamics of magnesian calcite solid-solutions at 25°C and 1 atm total pressure, Geochimica et Cosmochimica Acta, vol. 53, pp. 1189-1208, 1989.

Charlet, L., Kang, M., Bardelli, F., Kirsch, R., Gehin, A., Greneche, J.-M. and Chen, F., Nanocomposite pyrite-greigite reactivity toward Se(IV)/Se(VI), Environmental Science & Technology, vol. 46, pp. 4869-4876, 2012.

Claypool, G. E., Holser, W. T., Kaplan, I. R., Sakai, H. and Zak, I., The age curves of sulfur and oxygen isotopes in marine sulfate and their mutual interpretation, Chemical Geology, vol. 28, pp. 199-260, 1980.

Curti, E., Coprecipitation of radionuclides with calcite: Estimation of partition coefficients based on a review of laboratory investigations and geochemical data, Applied Geochemistry, vol. 14(4), pp. 433-445, 1999.

Curti, E., Aimoz, L. and Kitamura, A., Selenium uptake onto natural pyrite, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, vol. 295, pp. 1655-1665, 2012.

Cygan, R. T., Liang, J. -J. and Kalinichev, A. G., Molecular models of hydroxide, oxyhydroxide, and clay phases and the development of a general force field, The Journal of Physical Chemistry B, vol. 108, pp. 1255-1266, 2004.

Dekkers, M. J. and Schoonen, M. A. A., Magnetic properties of hydrothermally synthesized greigite (Fe_3S_4)—I. Rock magnetic parameters at room temperature, Geophysical Journal International, vol. 126, pp. 360-368, 1996.

Derkowski, A., Środoń, J., and McCarty, D. K., Cation exchange capacity and water content of opal in sedimentary basins: Example from the Monterey Formation, California, Americal Mineralogist, vol. 100, pp. 1244-1256, 2015.

Diener, A. and Neuman, T., Synthesis and incorporation of selenide in pyrite and mackinawite, Radiochimica Acta, vol. 99, pp. 791-798, 2011.

Diener, A., Neumann, T., Kramar, U. and Schild, D., Structure of selenium incorporated in pyrite and mackinawite as determined by XAFS analyses, Journal of Contaminant Hydrology, vol. 133, pp. 30-39, 2012.

Drobot, B., Steudtner, R., Raff, J., Geipel, G., Brendler, V. and Tsushima, S., Combining luminescence spectroscopy, parallel factor analysis and quantum chemistry to reveal metal speciation – A case study of uranyl(VI) hydrolysis, Chemical Science, vol. 6, pp. 964-972, 2015.

Ekendahl, S., Arlinger, J., Ståhl, F. and Pedersen, K., Characterization of attached bacterial populations in deep granitic groundwater from the Stripa research mine with ^{16}S rRNA gene sequencing technique and scanning electron microscopy, Microbiology, vol. 140, pp. 1575-1583, 1994.

Elzinga, E. J., Reeder, R. J., Withers, S. H., Peale, R. E., Mason, R. A., Beck, K. M. and Hess, W. P., EXAFS study of rare-earth element coordination in calcite, Geochimica et

Cosmochimica Acta, vol. 66, pp. 2875-2885, 2002.
Finck, N. and Dardenne, K., Interaction of selenite with reduced Fe and/or S species: An XRD and XAS study, Journal of Contaminant Hydrology, vol. 188, pp. 44-51, 2016.
Finck, N., Dardenne, K., Bosbach, D. and Geckeis, H., Selenide retention by mackinawite, Environmental Science & Technology, vol. 46, pp. 10004-10011, 2012.
Flemming, H. C. and Wingender, J., The biofilm matrix, Nature Reviews Microbiology, vol. 8, pp. 623-633, 2010.
Francisco, P. C. M, Sato, T., Otake, T., Kasama, T., Suzuki, S., Shiwaku, H. and Yaita, T., Mechanisms of Se(IV) co-precipitation with ferrihydrite at acidic and alkaline conditions and its behavior during aging, Environmental Science & Technology, vol. 52, pp. 4817-4826, 2018.
Fredrickson, J. K. and Fletcher, M. (eds.), Subsurface microbiology and biogeochemistry, Wiley-Liss, New York, 352p, 2001.
Freund, J. E., Mathematical statistics, Prentice-Hall, New Jersey, 576p, 1992.
Fukatsu, Y., Yotsuji, K., Ohkubo, T. and Tachi, Y., Diffusion of tritiated water, $^{137}Cs^{+}$, and $^{125}I^{-}$ in compacted Ca-montmorillonite: Experimental and modeling approaches, Applied Clay Science, vol. 211, 106176, 2021.
福田健二, 渡辺勇輔, 村上裕晃, 天野由記, 青才大介, 原直弘, 超深地層研究所計画における地下水の地球化学に関する調査研究 －瑞浪層群・土岐花崗岩の地下水の地球化学特性データ集－（2019年度）, JAEA-Data/Code 2020-012, 2020.
Gao, P., Liu, X., Guo, Z. and Tournassat, C., Acid-base properties of cis-vacant montmorillonite edge surfaces: A combined first-principles molecular dynamics and surface complexation modeling approach, Environmental Science & Technology, vol. 57(3), pp. 1342-1352, 2022.
Giannozzi, P., Andreussi, O., Brumme, T., Bunau, O., Buongiorno Nardelli, M., Calandra, M., Car, R., Cavazzoni, C., Ceresoli, D., Cococcioni, M., Colonna, N., Carnimeo, I., Dal Corso, A., de Gironcoli, S., Delugas, P., DiStasio Jr, R. A., Ferretti, A., Floris, A., Fratesi, G., Fugallo, G., Gebauer, R., Gerstmann, U., Giustino, F., Gorni, T., Jia, J., Kawamura, M., Ko, H.-Y., Kokalj, A., Küçükbenli, E., Lazzeri, M., Marsili, M., Marzari, N., Mauri, F., Nguyen, N. L., Nguyen, H.-V., Otero-de-la-Roza, A., Paulatto, L., Poncé, S., Rocca, D., Sabatini, R., Santra, B., Schlipf, M., Seitsonen, A. P., Smogunov, A., Timrov, I., Thonhauser, T., Umari, P., Vast, N., Wu, X. and Baroni, S., Advanced capabilities for materials modelling with QUANTUM ESPRESSO, Journal of Physics: Condensed Matter, vol. 29, 465901, 2017.
Giannozzi, P., Baroni, S., Bonini, N., Calandra, M., Car, R., Cavazzoni, C., Ceresoli, D., Chiarotti, G. L., Cococcioni, M., Dabo, I., Corso, A. D., Gironcoli, S. De, Fabris, S., Fratesi, G., Gebauer, R., Gerstmann, U., Gougoussis, C., Kokalj, A., Lazzeri, M., Martin-samos, L., Marzari, N., Mauri, F., Mazzarello, R., Paolini, S., Pasquarello, A., Paulatto, L., Sbraccia, C., Smogunov, A., Umari, P., Dal Corso, A., de Gironcoli, S., Fabris, S., Fratesi, G., Gebauer, R., Gerstmann, U., Gougoussis, C., Kokalj, A., Lazzeri, M., Martin-samos, L., Marzari, N., Mauri, F., Mazzarello, R., Paolini, S., Pasquarello, A., Paulatto, L., Sbraccia, C., Scandolo, S., Sclauzero, G., Seitsonen, A. P., Smogunov, A., Umari, P. and Wentzcovitch, R. M., QUANTUM ESPRESSO: A modular and open-source software project for quantum simulations of materials, Journal of Physics: Condensed Matter, vol. 21, 395502, 2009.

原子力発電環境整備機構, 包括的技術報告書：わが国における安全な地層処分の実現―適切なサイトの選定に向けたセーフティケースの構築―, NUMO-TR-20-03, 2021.
GoldSim Technology Group, GoldSim user's guide, GoldSim version 10.1., 2010.
GoldSim Technology Group, GoldSim user's guide, GoldSim version 11.1., 2014.
Greening, C., Biswas, A., Carere, C. R., Jackson, C. J., Taylor, M. C., Stott, M. B., Cook, G. M. and Morales, S. E., Genomic and metagenomic surveys of hydrogenase distribution indicate H_2 is a widely utilized energy source for microbial growth and survival. The ISME Journal, 10, pp.761-777, 2016.
Gustafsson, J. P., Visual MINTEQ 3.1 user guide, 2016.
Hama, K., Kunimaru, T., Metcalfe, R. and Martin, A. J., The hydrogeochemistry of argillaceous rock formations at the Horonobe URL site, Japan. Physics and Chemistry of the Earth, vol. 32, pp. 170-180, 2007.
林田一貴, 加藤利弘, 久保田満, 村上裕晃, 天野由記, 岩月輝希, 坑道閉鎖試験に基づく坑道掘削・閉鎖時の化学環境変化プロセスの考察, 地球化学, vol. 52, pp. 55-71, 2018.
Herbel, M. J., Johnson, T. M., Oremland, R. S. and Bullen, T. D., Fractionation of selenium isotopes during bacterial respiratory reduction of selenium oxyanions, Geochimica et Cosmochimica Acta, vol. 64, pp. 3701-3709, 2000.
Heberling, F., Bosbach, D., Eckhardt, J. D., Fischer, U., Glowacky, J., Haist, M., Kramar, U., Loos, S., Müller, H. S., Neumann, T. and Stelling, J., Reactivity of the calcite-water-interface, from molecular scale processes to geochemical engineering, Applied Geochemistry, vol. 45, pp. 158-190, 2014.
平賀正人, 石井英一, 幌延深地層研究計画（第1段階）において採取されたボーリングコアの鉱物組成・全岩化学組成および地表ガスの化学組成, JAEA-Data/Code 2007-022, 2008.
Holmboe, M., Wold, S. and Jonsson, M., Colloid diffusion in compacted bentonite: Microstructural constraints, Clays and Clay Minerals, vol. 58(4), pp. 532-541, 2010.
Hsieh, P. A., Tracy, J. V., Neuzil, C. E., Bredehoeft, J. D. and Silliman, S. E., A transient laboratory method for determining the hydraulic properties of 'tight' rocks—I. Theory, International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences & Geomechanics Abstracts, vol. 18, pp. 245-252, 1981.
Hughes, B. D., Conduction and diffusion in percolating systems, In: Sahimi, M. and Hunt, A. G. (eds.), Complex media and percolation theory 2nd edition, Springer, Berlin, 459p, 2021.
Hummel, W., Berner, U., Curti, E., Pearson, F. J. and Thoenen, T., Nagra/PSI chemical thermodynamic database 01/01, Universal publishers, 592p, California, 2002.
Hunt, A., Ewing, R. and Ghanbarian, B., Percolation theory for flow in porous media 3rd edition, Springer, New York, 472p, 2014.
Ibaraki, M. and Sudicky, E. A., Colloid-facilitated contaminant transport in discretely fractured porous media: 1. Numerical formulation and sensitivity analysis, Water Resources Research, vol. 31(12), pp. 2945-2960, 1995.
Iida, T., Yamaguchi, T. and Tanaka, T., Sorption behavior of hydroselenide (HSe^-) onto iron-containing minerals, Journal of Nuclear Science and Technology, vol. 51, pp. 305-322, 2014.
Iijima, K., Kurosawa, S., Tobita, M., Kibe, S. and Ouchi Y., Diffusion behavior of humic acid in compacted bentonite: Effect of ionic strength, dry density and molecular weight of humic acid, Materials Research Society Symposium Proceedings, vol. 1124, pp. 263-270,

2009.

Iman, R. L. and Shortencarier, M. J. A., A FORTRAN 77 program and user's guide for the generation of latin hypercube and random samples for use with computer models, NUREG/CR-3624 / SAND83-2365, 1984.

Inagaki, F., Hinrichs, K. -U., Kubo, Y., Bowles, M. W., Heuer, V. B., Hong, W. -L., Hoshino, T., Ijiri, A., Imachi, H., Ito, M., Kaneko, M., Lever, M. A., Lin, Y. -S., Methé, B. A., Morita, S., Morono, Y., Tanikawa, W., Bihan, M., Bowden, S. A., Elvert, M., Glombitza, C., Gross, D., Harrington, G. J., Hori, T., Li, K., Limmer, D., Liu, C. -H., Murayama, M., Ohkouchi, N., Ono, S., Park, Y. -S., Phillips, S. C., Prieto-Mollar, X., Purkey, M., Riedinger, N., Sanada, Y., Sauvage, J., Snyder, G., Susilawati, R., Takano, Y., Tasumi, E., Terada, T., Tomaru, H., Trembath-Reichert, E., Wang, D.T. and Yamada, Y., Exploring deep microbial life in coal-bearing sediment down to ~2.5 km below the ocean floor, Science, vol. 349, pp. 420-424, 2015.

Ise, K., Sato, T., Sasaki, Y. and Yoshikawa, H., Development of simplified biofilm sorption and diffusion experiment method using *Bacillus* sp. isolated from Horonobe Underground Research Laboratory, Scientific Basis for Nuclear Waste Management XXXVII, vol. 1665, pp. 171-177, 2014.

Ishida, K., Saito, T., Aoyagi, N., Kimura, T., Nagaishi, R., Nagasaki, S. and Tanaka, S., Surface speciation of Eu^{3+} adsorbed on kaolinite by time-resolved laser fluorescence spectroscopy (TRLFS) and parallel factor analysis (PARAFAC), Journal of Colloid and Interface Science, vol. 374, pp. 258-566, 2012.

石井英一, 安江健一, 大平寛人, 古澤明, 長谷川健, 中川光弘, 北海道北部, 大曲断層近傍の背斜成長の開始時期, 地質学雑誌, vol. 114, pp. 286-299, 2008.

岩月輝希, 石井英一, 新里忠史, 北海道幌延地域における深部地球化学環境の長期変遷シナリオの構築, 地学雑誌, vol. 118(4), pp.700-716, 2009.

Jägevall, S., Rabe, L. and Pedersen, K., Abundance and diversity of biofilms in natural and artificial aquifers of the Äspö Hard Rock Laboratory, Sweden, Microbial Ecology, vol. 61, pp. 410-422, 2011.

Joseph, C., Schmeide, K., Sachs, S., Brendler, V., Geipel, G. and Bernhard, G., Sorption of uranium(VI) onto Opalinus clay in the absence and presence of humic acid in Opalinus clay pore water, Chemical Geology, vol. 284, pp. 240-250, 2011.

Joseph, C., Stockmann, M., Schmeide, K., Sachs, S., Brendler, V. and Bernhard, G., Sorption of U(IV) onto Opalinus clay: Effects of pH and humic acid, Applied Geochemistry, vol. 36, pp. 104-117, 2013.

甲斐邦男, 前川恵輔, 北海道天北地方幌延地域の新第三系珪藻質泥岩中の続成鉱物の分布, 日本地熱学会誌, vol. 30(3), pp. 205-214, 2008.

核燃料サイクル開発機構, わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性 地層処分研究開発第2次取りまとめ 分冊3, JNC TN1400 99-023, 1999.

Kang, M., Bardelli, F., Ma, B., Charlet, L., Chen, F. and Yang, Y., The influence of pH and reaction time on the formation of $FeSe_2$ upon selenite reduction by nano-sized pyrite and greigite, Radiochimica Acta, vol. 104, pp. 649-656, 2016.

Kaplan, I. R. and Rittenberg, S. C., Microbiological fractionation of sulphur isotopes, Journal of General Microbiology, vol. 34, pp. 195-212, 1964.

Karasaki, K., Ito, K., Wu, Y., Shimo, M., Sawada, A., Maekawa, K. and Hatanaka, K., Uncertainty reduction of hydrologic models using data from surface-based investigation, Journal of Hydrology, vol. 403, pp. 49-57, 2011.

Kato, H., Muroi, M., Yamada, N., Ishida, H. and Sato, H., Estimation of effective diffusivity in compacted bentonite, Materials Research Society Symposium Proceedings, vol. 353, pp.277-284, 1995.

Kato, H., Nakazawa, T., Ueta, S. Muroi, M., Yasutomi, I. and Fujihara, H., Effective diffusivities of iodine, chlorine, and carbon in bentonite buffer material, Materials Research Society Symposium Proceedings, vol. 556, pp.687-694, 1999a.

Kato, H., Nakazawa, T., Ueta, S. and Yato, T., Measurements of effective diffusivities of tritiated water in sand-mixed bentonite, Proceedings of the 7th International Conference on Radioactive Waste Management and Environmental Remediation, Nagoya, Japan, 1999b.

Kautenburger, R., Sander, J.M., Hein, C., Europium (III) and Uranium (VI) complexation by natural organic matter (NOM): Effect of source, Electrophoresis, vol. 38, pp. 930-937, 2017.

Kemp, S. J., Cave, M., Hodgkinson, E., Milodowski, A. E., and Kunimaru, T., Mineralogical observations and interpretation of porewater chemistry from the Horonobe deep boreholes HDB-1 and HSB-2, Hokkaido, Japan, British Geological Survey Commercial Report, CR/02/303, 2002.

Kersting, A. B., Efurd, D. W., Finnegan, D. L., Rokop, D. J., Smith, D. K. and Thompson, J. L. Migration of plutonium in groundwater at the Nevada Test Site, Nature, vol. 397, pp. 56-59, 1999.

Kimuro, S., Kirishima, A., Nagao, S., Saito, T., Amano, Y., Miyakawa, K., Akiyama, D. and Sato, N., Characterization and thermodynamic study of humic acid in deep groundwater at Horonobe, Hokkaido, Japan, Journal of Nuclear Science and Technology, vol. 55(5), pp. 503-515, 2018.

King, F., Corrosion of carbon steel under anaerobic conditions in a repository for SF and HLW in Opalinus clay, Nagra Technical Report 08-12, 2008.

Kinniburgh, D. G., Milne, C. J., Pinheiro, J. P., Filius, J., Koopal, L. K. and van Riemsdijk, W. H., Metal ion binding by humic acid: Application of the NICA-Donnan model, Environmental Science & Technology, vol. 30, pp. 1687-1698, 1996.

Kirishima, A., Terasaki, M., Miyakawa, K., Okamoto, Y., Akiyama, D., Deep groundwater physicochemical components affecting actinide migration. Chemosphere, vol. 289, 133181, 2022.

Kirkpatrick, S., Percolation and conduction, Reviews of Modern Physics, vol. 45, pp. 574-588, 1973.

Kitamura, A., JAEA-TDB-RN in 2020; Update of JAEA's thermodynamic database for solubility and speciation of radionuclides for performance assessment of geological disposal of high-level and TRU wastes, JAEA-Data/Code 2020-020, 2020.

小尾繁, 稲垣学, GoldSimによる核種移行パラメータの時間的変化を考慮した地層処分核種移行解析モデルの構築, JAEA-Data/Code 2010-006, 2010.

Koopal, L. K., Saito, T., Phinheiro, J. P. and van Riemsdijk, W. H., Ion binding to natural organic matter: General considerations and the NICA-Donnan model, Colloids and

Surfaces A, vol. 265, pp. 40-54, 2005.
Kotelnikova, S. and Pedersen, K., The Microbe-REX project. Microbial O_2 consumption in the Äspö tunnel, SKB Technical Report TR-99-17, 1999.
Krawczyk-Bärsch, E., Lünsdorf, H., Pedersen, K., Arnold, T., Bok, F., Steudtner, R., Lehtinen, A. and Brendler, V., Immobilization of uranium in biofilm microorganisms exposed to groundwater seeps over granitic rock tunnel walls in Olkiluoto, Finland. Geochimica et Cosmochimica Acta, vol. 96, pp. 94-104, 2012.
Kulp, T. R. and Pratt, L. M., Speciation and weathering of selenium in upper cretaceous chalk and shale from South Dakota and Wyoming, USA, Geochimica et Cosmochimica Acta, vol. 68, pp. 3687-3701, 2004.
國丸貴紀, 柴野一則, 操上広志, 戸村豪治, 原稔, 山本肇, 幌延深地層研究計画における地下水,河川水および降水の水質分析, JAEA-Data/Code 2007-015, 2007.
久野義夫, 笹本広, 岩盤亀裂中でのコロイドに助長された核種移行に関する解析検討, JAEA-Research 2009-071, 2010.
黒澤進, 高レベル放射性廃棄物地層処分システムにおける核種移行評価に及ぼすコロイド影響に関する研究 - 第2次とりまとめ以降の検討 - , JNC TN8400 2005-007, 2005.
黒澤進, 佐々木良一, 上田真三, 吉川英樹, COLFRACを利用した性能評価に及ぼす微生物の影響に関する評価, JNC TN8400 2004-012, 2004.
Kyllönen, J., Hakanen, M., Lindberg, A., Harjula, R., Vehkamäki, M. and Lehto, J., Modeling of cesium sorption on biotite using cation exchange selectivity coefficients, Radiochimica Acta, vol. 102(10), 919-929, 2014.
Lammers, L. N. and Mitnick, E. H., Magnesian calcite solid solution thermodynamics inferred from authigenic deep-sea carbonate, Geochimica et Cosmochimica Acta, vol. 248, pp. 343-355, 2019.
Lee, J. -Y. and Yun, J. -I, Formation of ternary $CaUO_2(CO_3)_3^{2-}$ and $Ca_2UO_2(CO_3)_3(aq)$ complexes under neutral to weakly alkaline conditions, Dalton Transactions, vol. 42, 9862, 2013.
Lennie, A. R., Redfern, S. A. T., Schofield, P. F. and Vaughan, D. J., Synthesis and Rietveld crystal structure refinement of mackinawite, tetragonal FeS, Mineralogical Magazine, vol. 59, pp. 677-683, 1995.
Lerchner, J., Wolf, A., Buchholz, F., Mertens, F., Neu, T. R., Harms, H. and Maskow, T., Miniaturized calorimetry - A new method for real-time biofilm activity analysis, Journal of Microbiological Methods, vol. 74, pp. 74-81, 2008.
Liu, P., Harder, E. and Berne, B. J., On the calculation of diffusion coefficients in confined fluids and interfaces with an application to the liquid‐vapor interface of water, The Journal of Physical Chemistry B, vol. 108, pp. 6595-6602, 2004.
Liu, X., Fattahi, M., Montavon, G. and Grambow B., Selenide retention onto pyrite under reducing conditions, Radiochimica Acta, vol. 96, pp. 473-479, 2008.
Luttinger, J. M., Theory of thermal transport coefficients, Physical Review, vol. 135, pp. A1505-A1514, 1964.
Ma, K., Schicho, R. N., Kelly, R. M. and Adams, M. W. W., Hydrogenase of the hyperthermophile *Pyrococcus furiosus* is an elemental sulfur reductase or sulfhydrogenase: Evidence for a sulfur-reducing hydrogenase ancestor. Proceedings of the

National Academy of Science, vol. 90, pp. 5341-5344, 1993.
MacLean, L. C. W., Pray, T. J., Onstott, T. C., Brodie, E. L., Hazen T. C and Southam, G., Mineralogical, chemical and biological characterization of an anaerobic biofilm collected from a borehole in a deep gold mine in South Africa, Geomicrobiology Journal, vol. 24, pp. 491-504, 2007.
Madigan, M.T., Martinko, J.M. and Dunlap, P.V., Clark, D.P.(eds.)(2009) Brock Biology of Microorganisms. Prentice hall International, Inc. New Jersey. p 54.
Maes, N., Bruggeman, C., Govaerts, J., Martens, E., Salah, S. and van Gompel, M., A consistent phenomenological model for natural organic matter linked migration of Tc(IV), Cm(III), Np(IV), Pu(III/IV) and Pa(V) in the Boom Clay, Physics and Chemistry of the Earth 36, pp.1590-1599, 2011.
Maes, N., Wang, L., Hicks, T., Bennett, D., Warwick, P., Hall, T., Walker, G. and Dierckx, A., The role of natural organic matter in the migration behavior of americium in the Boom Clay - Part I: Migration experiments, Physics and Chemistry of the Earth, vol. 31, pp. 541-547, 2006.
Mahara, Y. and Kudo, A., Plutonium released by the Nagasaki A-bomb: Mobility in the environment, Applied Radiation and Isotopes, vol. 46, pp. 1191-1201, 1995.
Marcus, Y., Ion properties, CRC Press, New York, 272p, 1997.
Marques Fernandes, M. and Baeyens, B., Cation exchange and surface complexation of lead on montmorillonite and illite including competitive adsorption effects, Applied Geochemistry, vol. 100, pp. 190-202, 2019
Marques Fernandes, M., Baeyens, B. and Bradbury, M. H., The influence of carbonate complexation on lanthanide/actinide sorption on montmorillonite, Radiochimica Acta, vol. 96, pp. 691-697, 2008.
Marques Fernandes, M., Baeyens, B., Dähn, R., Scheinost, A. C. and Bradbury, M. H., U(VI) sorption on montmorillonite in the absence and presence of carbonate: A macroscopic and microscopic study, Geochimica et Cosmochimica Acta, vol. 93, pp. 262-277, 2012.
Marques Fernandes, M., Scheinost, A. C. and Baeyens, B., Sorption of trivalent lanthanides and actinides onto montmorillonite: Macroscopic, thermodynamic and structural evidence for ternary hydroxo and carbonato surface complexes on multiple sorption sites, Water Research, vol. 99, pp. 74-82, 2016.
Marques Fernandes, M., Vér, N., and Baeyens, B., Predicting the uptake of Cs, Co, Ni, Eu, Th and U on argillaceous rocks using sorption models for illite, Applied Geochemistry, vol. 59, pp. 189-199, 2015.
Marschall, P. and Lunati, I., GAM - Gas migration experiments in a heterogeneous shear zone of the Grimsel Test Site, Nagra Technical Report 03-11, 2006.
Masurat, P., Eriksson, S., and Pedersen, K., Microbial sulfide production in compacted Wyoming bentonite MX-80 under *in situ* conditions relevant to a repository for high-level radioactive waste, Applied Clay Science, vol. 47, pp. 58-64, 2010.
Matamoros-Veloza A., Peacock C. L. and Benning L. G., Selenium speciation in framboidal and euhedral pyrites in shales, Environmental Science & Technology, vol. 48, pp. 8972-8979, 2014.
Matsunaga, T., Nagao, S., Ueno, T., Takeda, S., Amano, H. and Tkachenko, Y., Association of

dissolved radionuclides released by the Chernobyl accident with colloidal materials in surface water, Applied Geochemistry, vol. 19. pp. 1581-1599, 2004.

Mazurek, M., Alt-Epping, P., Bath, A., Gimmi, T. and Waber, H. N., Natural tracer profiles across argillaceous formations: The CLAYTRAC project, OECD/NEA Report 6523, 2009.

McCarthy, J. F., Czerwinski, K. R., Sanford, W. E., Jardine, P. M. and Marsh, J. D., Mobilization of transuranic radionuclides from disposal trenches by natural organic matter, Journal of Contaminant Hydrology, vol. 30, pp. 49-77, 1998a.

McCarthy, J. F., Sanford, W. E. and Stafford, P. L., Lanthanide field tracers demonstrate enhanced transport of transuranic radionuclides by natural organic matter, Environmental Science & Technology, vol. 32, pp. 3901-3906, 1998b.

Metz, V., Geckeis, H., Gonzalez-Robles, E., Loida, A., Bube, C. and Kienzler, B., Radionuclide behavior in the near-field of a geological repository for spent nuclear fuel, Radiochimica Acta, vol. 100, pp. 699-713, 2012.

Miller, W. M., Alexander, W. R., Chapman, N. A., McKinley, I. G. and Smellie, J. A. T., Geological disposal of radioactive wastes and natural analogues, Waste management series vol. 2, Pergamon, Amsterdam, 332p, 2000.

Milne, C. J., Kinniburgh, D. G. and Tipping, E., Generic NICA-Donnan Model Parameters for Proton Binding by Humic Substances, Environmental Science & Technology, vol. 35, pp. 2049-2059, 2001.

Milne, C. J., Kinniburgh, D. G., van Riemsdijk, W. H. and Tipping, E., Generic NICA–Donnan model parameters for metal-ion binding by humic substances, Environmental Science & Technology, vol. 37, pp. 958-971, 2003.

Missana, T., Alonso, U., Scheinost, A. C., Granizao, N. and García-Gutiérrez, M., Selenite reduction by nanocrystalline magnetite: Role of adsorption, reduction and dissolution/co-precipitation processes, Geochimica et Cosmochimica Acta, vol. 73, pp. 6205-6217, 2009.

Mitchell, K., Mason, P. R. D., Cappellen, P. V., Johnson, T. M., Gill, B. C., Owens, J. D., Diaz, J., Ingall, E. D., Reichart, G. J. and Lyons, T. W., Selenium as paleo-oceanographic proxy: A first assessment, Geochimica et Cosmochimica Acta, vol. 89, pp. 302-317, 2012.

Mizuno, T., Milodowski, A. E. and Iwatsuki, T., Precipitation sequence of fracture-filling calcite in fractured granite and changes in the fractionation process of rare earth elements and yttrium, Chemical Geology, vol. 603, 120800, 2022.

宮川和也, 女澤徹也, 望月陽人, 笹本広, 幌延深地層研究計画で得られた地下水の水質データ（2017年度～2019年度）, JAEA-Data/Code 2020-001, 2020.

Momma, K. and Izumi, F., *VESTA 3* for three-dimensional visualization of crystal, volumetric and morphology data, Journal of Applied Crystallography, vol. 44, pp. 1272-1276, 2011.

Munemoto, T., Ohmori, K. and Iwatsuki, T., Rare earth elements (REE) in deep ground water from granite and fracture-filling calcite in the Tono area, central Japan: Prediction of REE fractionation in paleo- to present-day groundwater, Chemical Geology, vol. 417, pp. 58-67, 2015.

村上拓馬, 笹本広, 水野崇, 希土類元素・トリウムおよびウランの堆積岩中における保持状態：北海道幌延地域における調査例, 地球化学, vol. 50, pp. 299-317, 2016.

Moreau, J. W., Weber, P. K., Martin, M. C., Gilbert, B., Hutcheon, I. D. and Banfield, J. F., Extracellular proteins limit the dispersal of biogenic nanoparticles, Science, vol. 316, pp.

1600-1603, 2007.
Morel, F. M. M., and Hering, J. G., Principles and applications of aquatic chemistry, John Wiley & Sons, New York, 608p, 1993.
長尾誠也, 新堀雄一, 田中忠夫, 佐々木隆之, 斉藤拓巳, 桐島陽, 吉川英樹, 飯島和毅, 濱克宏, 岩月輝希, 高橋嘉夫, 足立泰久, 鈴木庸平, 渡辺芳夫, 放射性廃棄物の地層処分における国内の地下水コロイド研究の現状と今後の展開, 原子力バックエンド研究, vol. 20, pp. 3-14, 2013.
仲島邦彦, 小尾繁, 蛯名貴憲, 江橋健, 稲垣学, GoldSimによる第2次取りまとめレファレンスケースの安全評価モデルの構築, JAEA-Data/Code 2009-009, 2009.
Naveau A., Monteil-Rivera F., Guillon E. and Dumonceau J., Interactions of aqueous selenium (−II) and (IV) with metallic sulfide surfaces, Environmental Science & Technology, vol. 41, pp. 5376-5382, 2007.
Newsome, L., Morris, K. and Lloyd, J. R. The biogeochemistry and bioremediation of uranium and other priority radionuclides, Chemical Geology, vol. 363, pp. 164-184, 2014.
日本化学会[編], 化学便覧（基礎編, 改訂5版）, 丸善出版, 東京, 2004.
日本原子力研究開発機構, 平成24年度 地層処分技術調査等事業 高レベル放射性廃棄物処分関連処分システム化学影響評価高度化開発, 2013a.
日本原子力研究開発機構, 平成24年度 地層処分技術調査等事業 高レベル放射性廃棄物処分関連処分システム化学影響評価高度化開発 ―6ヶ年研究成果の取りまとめ―, 2013b
日本原子力研究開発機構, 平成25年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発報告書, 2014.
日本原子力研究開発機構, 平成26年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発報告書, 2015.
日本原子力研究開発機構, 平成27年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発報告書, 2016a.
日本原子力研究開発機構, 平成27年度 地層処分技術調査等事業 地質環境長期安定性評価確証技術開発報告書, 2016b.
日本原子力研究開発機構, 平成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 5か年成果報告書, 2018.
日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 平成30年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 ニアフィールドシステム評価確証技術開発報告書, 2019.
日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 平成31年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 ニアフィールドシステム評価確証技術開発, 2020.
日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 令和2年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業, ニアフィールドシステム評価確証技術開発報告書, 2021.
日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 令和3年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業ニアフィールドシステム評価確証技術開発報告書, 2022.
新里忠史, 舟木泰智, 安江健一, 北海道, 北部幌延地域における後期鮮新世以降の古地理と地質構

造発達史, 地質学雑誌, vol. 133, pp. 119-135, 2007.
Oda, C., Shibata M., and Yui, M., Experimental indications of effects of surface deprotonation on Na-bentonite porewater chemistry in a geological repository, Materials Research Society Symposium Proceedings vol. 663, pp. 637-644, 2001.
小田垣孝, パーコレーションの科学, 裳華房, 東京, 1993.
大貫敏彦, 地層処分における微生物の影響－研究の現状と今後の課題－, 原子力バックエンド研究, vol. 9, pp. 35-42, 2002.
太田久仁雄, 阿倍寛信, 山口雄大, 國丸貴紀, 石井英一, 操上広志, 戸村豪治, 柴野一則, 濱克宏, 松井裕哉, 新里忠史, 高橋一晴, 丹生屋純夫, 大原英史, 浅森浩一, 森岡宏之, 舟木泰智, 茂田直孝, 福島龍朗, 幌延深地層研究計画における地上からの調査研究段階（第1段階）研究成果報告書 分冊「深地層の科学的研究」, JAEA-Research 2007-044, 2007.
Orucoglu, E., Grangeon, S., Gloter, A., Robinet, J. C., Madé, B. and Tournassat, C., Competitive adsorption processes at clay mineral surfaces: A coupled experimental and modeling approach, ACS Earth and Space Chemistry, vol. 6, pp. 144-159, 2021.
O'Toole, G., Kaplan, H. B. and Kolter, R., Biofilm formation as microbial development, Annual Review of Microbiology, vol. 54, pp. 49-79, 2000.
Oura, M., Ishihara, T. and Yamaguchi, A., Application of microprobe soft X-ray fluorescence and absorption spectroscopic analyses to characterize the buried multi-layered micro-structure, Japanese Journal of Applied Physics, vol. 59(6), 060902, 2020.
Parkhurst, D. L. and Appelo, C. A. J., Description of input and examples for PHREEQC version 3-A computer program for speciation, batch-reaction, one-dimensional transport, and inverse geochemical calculations, U. S. Geological Survey Techniques and Methods Chapter A43, 2013.
Pedersen, K., Subterranean microorganisms and radioactive waste disposal in Sweden, Engineering Geology, vol. 52, pp. 163-176, 1999.
Pedersen, K., Bomberg, M. and Itävaara, M., Summary report microbiology of Olkiluoto and ONKALO groundwater, POSIVA Technical Report 2012-42, 2014.
Pedersen, K., Microorganisms and their influence on radionuclide migration in igneous rock environments, Journal of Nuclear and Radiochemical Sciences, vol. 6, pp. 11-15, 2005.
Penrose, W. R., Polzer, W. L., Essington, E. H., Nelson, D. M. and Orlandini, K. A. Mobility of plutonium and americium through a shallow aquifer in a semiarid region, Environmental Science & Technology, vol. 24, pp. 228-234, 1990.
Philipp, T., Shams Aldin Azzam, S., Rossberg, A., Huittinen, N., Schmeide, K. and Stumpf, T., U(VI) sorption on Ca-bentonite at (hyper)alkaline conditions – Spectroscopic investigations of retention mechanisms, Science of the Total Environment, vol. 676, pp. 469-481, 2019.
Picone, N., and Op den Camp, H. J. M., Role of rare earth elements in methanol oxidation, Current Opinion in Chemical Biology, vol. 49, pp. 39-44, 2019.
Plancque, G., Moulin, V., Toulhoat, P. and Moulin, C., Europium speciation by time-resolved laser-induced fluorescence, Analytica Chimica Acta, vol. 478, pp. 11-22, 2003.
Plimpton, S., Kohlmeyer, A., Thompson, A., Moore, S. and Berger, R., Lammps stable release 29 october 2020, 2020.
Pourret, O., Davranche, M., Gruau, G. and Dia, A., Competition between humic acid and

carbonates for rare earth elements complexation, Journal of Colloid and Interface Science, vol. 305, pp. 25-31, 2007.

Purgstaller, B., Goetschl, K., Mavromatis, V., and Dietzel, M., Solubility investigations in the amorphous calcium magnesium carbonate system. CrystEngComm., 21, 155-164, 2019.

Quintessa, QPAC: Quintessa's general-purpose modelling software, QRS-QPAC-11, 2013.

Rai, D., Kitamura, A., Altmaier, M., Rosso, K. M., Sasaki, T. and Kobayashi, T., A thermodynamic model for ZrO_2(am) solubility at 25 °C in the $Ca^{2+}-Na^{+}-H^{+}-Cl^{-}-OH^{-}-H_2O$ system: A critical review, Journal of Solution Chemistry, vol. 47, pp. 855-891, 2018.

Richter, C., Müller, K., Drobot, B., Steudtner, R., Großmann, K., Stockmann, M. and Brendler, V., Macroscopic and spectroscopic characterization of uranium(VI) sorption onto orthoclase and muscovite and the influence of competing Ca(2+), Geochimica et Cosmochimica Acta, vol. 189, pp. 143-157, 2016.

Rimstidt, J. D., Balog, A. and Webb, J., Distribution of trace elements between carbonate minerals and aqueous solutions, Geochimica et Cosmochimica Acta, vol. 62(11), pp. 1851-1863, 1998.

Rotenberg, B., Marry, V., Vuilleumier, R., Malikova, N., Simon, C. and Turq, P., Water and ions in clays: Unraveling the interlayer/micropore exchange using molecular dynamics simulation, Geochimica et Cosmochimica Acta, vol. 71, pp. 5089-5101, 2007.

Roux, B., The calculation of the potential of mean force using computer simulations, Computer Physics Communications, vol. 91, pp. 275-282, 1995.

Ryser, A. L., Strawn, D. G., Marcus, M. A., Johnson-Maynard, J. L., Gunter, M.E., Möller, G., Micro-spectroscopic investigation of selenium-bearing minerals from the western US phosphate resource area, Geochemical Transactions, vol. 6(1), pp. 1-11, 2005.

Sahimi, M., Flow phenomena in rocks: From continuum models to fractals, percolation, cellular automata, and simulated annealing, Reviews of Modern Physics, vol. 65, pp. 1393-1537, 1993.

Saito, T., Aoyagi, N. and Kimura, T., Time-resolved laser-induced fluorescence spectroscopy combined with parallel factor analysis: A robust speciation technique, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, vol. 303, pp. 1129-1132, 2015.

Saito, T., Aoyagi, N. and Terashima, M., Europium binding to humic substances extracted from deep underground sedimentary groundwater studied by time-resolved laser fluorescence spectroscopy, Journal of Nuclear Science and Technology, vol. 54, pp. 444-451, 2017.

Saito, T., Sao, H., Ishida, K., Aoyagi, N., Kimura, T., Nagasaki, S. and Tanaka, S., Application of parallel factor analysis for time-resolved laser fluorescence spectroscopy: Implication for metal speciation study, Environmental Science & Technology, vol. 44, pp. 5055-5060, 2010.

Saito, T., Terashima, M., Aoyagi, N., Nagao, S., Fujitake, N. and Ohnuki, T., Physicochemical and ion-binding properties of highly aliphatic humic substances extracted from deep sedimentary groundwater, Environmental Science: Processes & Impacts, vol. 17, pp. 1386-1395, 2015b.

Saltelli, A. and Homma, T., LISA. Package user guide Part III SPOP (Statistical POst Processor). Uncertainty and sensitivity analysis for model output. Program description

and user guide, Commission of the European Communities, physical sciences EUR 13924, 1992.

Sasamoto, H., Arthur, R. C. and Hama, K., Interpretation of undisturbed hydrogeochemical conditions in Neogene sediments of the Horonobe area, Hokkaido, Japan. Applied Geochemistry, vol. 26, pp. 1464-1477, 2011.

笹本広, 山本信幸, 宮川和也, 水野崇, 幌延深地層研究計画で得られた地下水の水質データ（2011年度～2013年度）, JAEA-Data/Code 2014-033, 2015.

Sasamoto, H., Yui, M. and Hama, K., A preliminary interpretation of groundwater chemistry in the Horonobe area, Japan, In: Bullen, D. B. and Wang, Y. (eds.), Water-rock interaction, CRC Press, New York, 850p, 2007.

Sasaki, T., Ueda, K., Saito, T., Aoyagi, N., Kobayashi, T., Takagi, I., Kimura, T. and Tachi, Y., Sorption of Eu^{3+} on Na-montmorillonite studied by time-resolved laser fluorescence spectroscopy and surface complexation modeling, Journal of Nuclear Science and Technology, vol. 53, pp. 592-601, 2016.

Scheinost, A. C. and Charlet, L., Selenite reduction by mackinawite, magnetite and siderite: XAS characterization of nanosized redox products, Environmental Science & Technology, vol. 42, pp. 1984-1989, 2008.

Scheinost A. C., Kirsch, R., Banerjee, D., Fernandez-Martinez, A., Zaenker, H., Funke, H. and Charlet, L., X-ray absorption and photoelectron spectroscopy investigation of selenite reduction by Fe^{II}-bearing minerals, Journal of Contaminant Hydrology, vol. 102, pp. 228-245, 2008.

Scher, H. and Zallen, R., Critical density in percolation processes, The Journal of Chemical Physics, vol. 53, pp. 3759-3761, 1970.

Scott, G. D., Kilgour, D. M., The density of random close packing of spheres, Journal of Physics D: Applied Physics, vol. 2, pp.863-866, 1969.

Seida, Y., Terashima, M., Tachi, Y., Iijima, K., Nakazawa, T., Yamada, M. and Yui, M., Sorption and diffusion of Eu in sedimentary rock in the presence of humic substances, Radiochimica Acta, vol. 98, pp. 703-709, 2010.

Smart, N. R., Corrosion behavior of carbon steel radioactive waste packages: A summary review of Swedish and U.K. research, Corrosion (2009), vol. 65(3), pp. 195-212, 2009.

Soltermann, D., Baeyens, B., Bradbury, M. H. and Marques Fernandes, M., Fe(II) uptake on natural montmorillonites. II. Surface complexation modeling, Environmental Science & Technology, vol. 48(15), pp. 8698-8705, 2014.

Sonke, J., E. and Salters, V. J. M., Lanthanide–humic substances complexation. I. Experimental evidence for a lanthanide contraction effect, Geochimica et Cosmochimica Acta, vol. 70, pp. 1495-1506, 2006.

Stern, J. C., Foustoukos, D. I., Sonke, J. E. and Salters, V. J. M., Humic acid complexation of Th, Hf and Zr in ligand competition experiments: Metal loading and pH effects, Chemical Geology, vol. 363, pp. 241-249, 2014.

Steudtner, R., Sachs, S., Schmeide, K., Brendler, V. and Bernhard, G., Ternary uranium(VI) carbonato humate complex studied by cryo-TRLFS, Radiochimica Acta, vol. 99, pp. 687-692, 2011.

Stoodley, P., Sauer, K., Davies, D. G. and Costerton, J. W., Biofilms as complex differentiated

communities, Annual Review of Microbiology, vol. 56, pp. 187-209, 2002.
Stroes-Gascoyne, S., Microbial occurrence in bentonite-based buffer, backfill and sealing materials from large-scale experiments at AECL's Underground Research Laboratory, Applied Clay Science, vol. 47, pp. 36-42, 2010.
Stumpf, T., Bauer, A., Coppin, F., Fanghänel, T. and Kim J. I., Inner-sphere, outer-sphere and ternary surface complexes: A TRLFS study of the sorption of Eu(III) onto smectite and kaolinite, Radiochimica Acta, vol. 90, pp. 345-349, 2002.
須藤談話会[編], 粘土科学への招待, 三共出版, 東京, 292p, 2000.
Sueoka, Y., Yamashita, S., Kouduka, M. and Suzuki, Y., Deep microbial colonization in saponite-bearing fractures in aged basaltic crust: Implications for subsurface life on Mars, Frontiers in Microbiology, vol. 10, 2793, 2019.
Sugiura, Y., Ishidera, T. and Tachi, Y., Surface complexation of Ca and competitive sorption of divalent cations on montmorillonite under alkaline conditions, Applied Clay Science, vol. 200, 105910, 2021.
鈴木英明, 柴田雅博, 山形順二, 広瀬郁郎, 寺門一馬, 緩衝材の特性試験(I), PNC TN8410 92-057, 1992.
Suzuki, Y., Yamashita, S., Kouduka, M., Ao, Y., Mukai, H., Mitsunobu, S., Kagi, H., D'Hondt, S., Inagaki, F., Morono, Y., Hoshino, T., Tomioka, N. and Ito, M., Deep microbial proliferation at the basalt interface in 33.5–104 million-year-old oceanic crust, Nature Communications Biology, vol. 3(1), pp. 1-9, 2020.
Tachi, Y., Ebina, T., Takeda, C., Saito, T., Takahashi, H., Ohuchi, Y. and Martin, A. J., Matrix diffusion and sorption of Cs^+, Na^+, I^- and HTO in granodiorite: Laboratory-scale results and their extrapolation to the in situ condition, Journal of Contaminant Hydrology, vol. 179, pp. 10-24, 2015.
Tachi, Y., Ito, T., Akagi, Y., Satoh, H. and Martin, A. J., Effects of fine-scales surface alterations on tracer retention in a fractured crystalline rock from the Grimsel Test Site, Water Resources Research, vol. 54(11), pp. 9287-9305, 2018.
Tachi, Y., Ochs, M. and Suyama, T., Integrated sorption and diffusion model for bentonite. Part 1: Clay-water interaction and sorption modeling in dispersed systems, Journal of Nuclear Science and Technology, vol. 51(10), pp. 1177-1190, 2014.
Tachi, Y., Suyama, T., Yotsuji, K., Ishii, Y. and Takahashi, H., Clay-based modelling approach for diffusion and sorption in the argillaceous rock from the Horonobe URL: Application for Ni(II), Am(III) and Se(IV), The Clay Mineral Society Workshop Lectures Series, vol. 21(19), pp. 241-250, 2016.
Tachi, Y. and Yotsuji, K., Diffusion and sorption of Cs^+, Na^+, I^- and HTO in compacted sodium montmorillonite as a function of porewater salinity: Integrated sorption and diffusion model, Geochimica et Cosmochimica Acta, vol. 132, pp. 75-93, 2014.
Tachi, Y., Yotsuji, K., Seida, Y. and Yui, M., Diffusion and sorption of Cs^+, I^- and HTO in samples of the argillaceous Wakkanai Formation from the Horonobe URL, Japan: Clay-based modeling approach, Geochimica et Cosmochimica Acta, vol. 75, pp. 6742-6759, 2011.
Takahashi, Y., Chatellier, X., Hattori, K. H., Kato, K. and Fortin, D., Adsorption of rare earth elements onto bacterial cell walls and its implication for REE sorption onto natural microbial mats, Chemical Geology, vol. 219, pp. 53-67, 2005.

Takahashi, Y., Yamamoto, M., Yamamoto, Y. and Tanaka, K., EXAFS study on the cause of enrichment of heavy REEs on bacterial cell surfaces, Geochimica et Cosmochimica Acta, vol. 74, pp. 5443-5462, 2010.

Takahashi, Y., Yoshida, H., Sato, N., Hama, K., Yusa, Y. and Shimizu, H., W- and M-type tetrad effects in REE patterns for water-rock systems in the Tono uranium deposit, central Japan, Chemical Geology, vol. 184, pp. 311-335, 2002.

武田匡樹, 大野宏和, 石井英一, 舘幸男, 幌延URLにおける物質移行特性評価：(1) 泥岩中の割れ目及びマトリクスを対象とした原位置トレーサー試験, 日本原子力学会, 2017年秋の大会 予稿集, 1H14, 2017.

玉村修司, 赤塚真依子, 井川怜欧, 越谷賢, 清水了, 上野晃生, 大味泰, 金子勝比古, 五十嵐敏文, 丸井敦尚, 北海道北西部の声問層～沖積層に胚胎する溶存メタンの起源, 地球化学, vol. 48, pp. 39-50, 2014.

玉村修司, 遠藤亮, 清水了, 岩月輝希, 天野由記, 大味泰, 五十嵐敏文, 北海道幌延地区における地下水中の有機酸のメタン生成微生物の基質としての可能性, Journal of MMIJ, vol. 128, pp. 570-575, 2012.

Tanaka, K., Takahashi, Y. and Shimizu, H., Determination of the host phase of rare earth elements in natural carbonate using X-ray absorption near-edge structure, Geochemical Journal, vol. 43, 143-149, 2009.

Tanaka, K., Tani, Y., Takahashi, Y., Tanimizu, M., Suzuki, Y., Kozai, N. and Ohnuki, T., A specific Ce oxidation process during sorption of rare earth elements on biogenic Mn oxide produced by *Acremonium* sp. Strain KR21-2, Geochimica et Cosmochimica Acta, vol. 74, pp. 5463-5477, 2010.

Terashima, M., Endo, T. and Miyakawa, K., Determination of humic substances in deep groundwater from sedimentary formations by the carbon concentration-based DAX-8 resin isolation technique, Journal of Nuclear Science and Technology, vol. 57, pp. 380-387, 2020.

Thurman, E. M., Organic geochemistry of natural waters, Springer, Berlin, 509p, 1985.

Tits, J., Geipel, G., Macé, N., Eilzer, M. and Wieland, E., Determination of uranium(VI) sorbed species in calcium silicate hydrate phases: A laser-induced luminescence spectroscopy and batch sorption study, Journal of Colloid and Interface Science, vol. 359, pp. 248-256, 2011.

Torrie, G. M. and Valleau, J. P., Nonphysical sampling distributions in Monte Carlo free-energy estimation: Umbrella sampling, Journal of Computational Physics, vol. 23, pp. 187-199, 1977.

Tournassat, C., Davis, J. A., Chiaberg, C., Grangeon, S. and Bourg, I. C., Modeling the acid-base properties of montmorillonite edge surfaces, Environmental Science & Technology, vol. 50, pp. 13436-13445, 2016.

Tournassat, C., Grangeon, S., Leroy, P. and Giffaut, E., Modeling specific pH dependent sorption of divalent metals on montmorillonite surfaces. A review of pitfalls, recent achievements and current challenges, American Journal of Science, vol. 313, pp. 395-451, 2013.

Tournassat, C., Tinnacher, R. M., Grangeon, S. and Davis, J. A., Modeling uranium(VI) adsorption onto montmorillonite under varying carbonate concentrations: A surface complexation model accounting for the spillover effect on surface potential, Geochimica et Cosmochimica Acta, vol. 220, pp. 291-308, 2018.

Vandergraaf, T. T., Miller, H. G., Jain, D. K., Hamon, C. J. and Stoes-Gascoyne, S., The effect of biofilms on radionuclide transport in the geosphere: Results from an initial investigation, Atomic Energy of Canada Technical Report TR-774, COG-96-635-I, 1997.

Wallin, B. and Peterman, Z., Calcite fracture fillings as indicators of paleohydrology at Laxemar at the Äspö Hard Rock Laboratory, Southern Sweden. Applied Geochemistry, vol. 14, 953-962, 1999.

Wang, K., Fernandez-Martinez, A., Simonelli, L., Made, B., Henocq, P., Ma, B. and Charlet, L., Redox interaction between selenite and mackinawite in cement pore water, Environmental Science & Technology, vol. 56, pp. 5602-5610, 2022.

Wang, Z., Zachara, J. M., Yantasee, W., Gassman, P. L., Liu, C. and Joly, A. G., Cryogenic laser induced fluorescence characterization of U(VI) in Hanford vadose zone pore waters, Environmental Science & Technology, vol. 38, pp. 5591-5597, 2004.

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

Wilkin, R. T., Barnes, H. L., Pyrite formation by reactions of iron monosulfides with dissolved inorganic and organic sulfur species, Geochimica et Cosmochimica Acta, vol. 61, pp. 4167-4179, 1996.

Wilson, J. C., Benbow, S. and Metcalfe, R., Reactive transport modelling of a cement backfill for radioactive waste disposal, Cement and Concrete Research, vol. 111, pp. 81-93, 2018.

Wold, S. and Eriksen, T., Diffusion of humic colloids in compacted bentonite, Physics and Chemistry of the Earth, vol. 32, pp. 477-484, 2007.

Wright, M. T., Parker, D. R. and Amrhein, C., Critical evaluation of the ability of sequential extraction procedures to quantify discrete forms of selenium in sediments and soils., Environmental Science & Technology, vol. 37, pp. 4709-4716, 2003.

Wrighton, K. C., Thomas, B. C., Sharon, I., Miller, C. S., Castelle, C. J., Ver Berkmoes, N. C., Wilkins, M. J., Hettich, R. L., Lipton, M. S., Williams, K. H., Long, P. E. and Banfield, J. E., Fermentation, hydrogen, and sulfur metabolism in multiple uncultivated bacterial phyla, Science, vol. 337, pp. 1661-1665, 2012.

Xu, X., Wang, J., Lv, J. -P. and Deng, Y., Simultaneous analysis of three-dimensional percolation models, Frontiers of Physics, vol. 9, pp. 113-119, 2014.

Yamamoto, H., Shimo, M., Fujiwara, Y., Kunimaru, T., Xu, T., Laakshoharju, M., Long-term geochemical transport simulation to evaluate ambient chemical conditions at Horonobe URL site, Japan, American Geophysical Union, Fall Meeting 2005, H11D-1293, 2005.

Yamanaka, T., Miyabe, S., Sawai, Y. and Shimoyama, S., Geochemical and diatom evidence of transition from freshwater to marine environments in the Aira Caldera and Kagoshima Bay, Japan, during post-glacial sea-level rise, Journal of Asian Earth Sciences, vol. 39, pp. 386-395, 2010.

Yanagisawa, F. and Sakai, H., Thermal decomposition of barium sulfate–vanadium pentaoxide–silica glass mixtures for preparation of sulfur dioxide in sulfur isotope ratio measurements, Analytical Chemistry, vol. 55, pp. 985-987, 1983.

Yang, S., Li, X., Li, Q., Gu, P., Liu, X. and Yang, G., Competitive adsorption of metal ions at smectite/water interfaces: Mechanistic aspects, and impacts of co-ions, charge densities,

and charge locations, The Journal of Physical Chemistry C, vol. 124, pp. 1500-1510, 2020.
四辻健治, 舘幸男, 河村雄行, 有馬立身, 佐久間博, 分子動力学法によるモンモリロナイト層間中の水とイオンの物性評価 ―拡散モデルへの反映―, 粘土科学, vol. 58, pp. 8-25, 2019.
Yotsuji, K., Tachi, Y., Sakuma, H. and Kawamura, K., Effect of interlayer cations on montmorillonite swelling: Comparison between molecular dynamic simulations and experiments, Applied Clay Science, vol. 204, 106034, 2021.
四辻健治, 舘幸男, 佐久間博, 河村雄行, モンモリロナイトの膨潤挙動に及ぼす層間対イオンの影響：分子動力学シミュレーションによる支配因子の評価, 原子力バックエンド研究, vol. 29, pp. 1-19, 2022.
Zhang, X., Guo, J., Wu, S., Chen, F. and Yang, Y., Divalent heavy metals and uranyl cations incorporated in calcite change its dissolution process, Scientific Reports, vol. 10, 16864, 2020.

4. ニアフィールド性能の総合評価技術開発

4.1 目的と5か年の計画

4.1.1 目的

地層処分システムの性能評価では、ニアフィールドの長期挙動に影響を及ぼす可能性のある複数の現象とこれらの相関関係の理解に基づき、ニアフィールド環境変遷を評価するとともに、こうしたニアフィールド環境変遷評価から得られる知見や情報を、核種移行の場の設定に反映させて核種移行挙動を評価する必要がある。人工バリア及び周辺の岩盤からなるニアフィールドにおいては、熱的、水理学的、力学的及び化学的なプロセスが相互に影響を及ぼし合うことにより環境条件が変遷するため、これらの多様なプロセスに関する個別のモデルによる評価だけでは不十分となる可能性がある。

上述した観点から、各プロセスに関する個別のモデルを統合し、ニアフィールド環境の変遷及びそれを考慮した核種移行挙動を解析することの可能な解析ツールを開発することを目的として、個別の現象モデルを統合してニアフィールドの時間的・空間的な変遷を解析するためのシステムを構築する（サブタスク1において実施；4.2節参照）とともに、このシステムの解析によって予測される場の変遷を核種移行解析モデルへ適切に反映する手法を構築する（サブタスク2において実施；4.3節参照）。

なお、サブタスク1の実施にあたっては、サブプロジェクト1（SP1；2章参照）におけるニアフィールド環境の変遷を評価するための個別現象モデル開発やパラメータ整備などの技術開発で得られた成果との関係も踏まえつつ、統合化技術の構築を進める。また、サブタスク2の実施にあたっては、サブプロジェクト2（SP2；3章参照）における SP1の環境変遷を考慮した核種移行を評価するための個別現象モデル開発・パラメータ整備で得られた成果も踏まえつつ、サブプロジェクト3（SP3；本章）においてニアフィールド性能を総合的に評価する上で不可欠となる緩衝材変質に伴う場の長期的な変遷を考慮した核種移行パラメータの設定手法の開発を SP2と連携しつつ進める。

4.1.2 5か年の計画

サブタスク1について、平成30年度は、ニアフィールドにおける化学、水理、力学などの異なる物理現象の連成効果、バリア材料間の界面などの局所的な領域で生ずる相互作用などの現象とこれがニアフィールドシステムの挙動へ与える影響や間隙構造など微視的スケールでの不均質性などを有する諸現象を対象に、ニアフィールドシステムの変遷を評価するために必要なスケール間や現象間の相互の関係を明らかにした。また、各研究分野において開発されている個別現象解析モデルや連成解析手法の最新知見の調査を行い、これらの知見に基づき、様々な現象解析モデルを解析モデル間の連成のルールに基づき解析をコントロールする機能などを有するプラットフォーム上に、統合・連成させるための研究開発アプローチを提案した。さらに、先行事業「セメント材料影響評価技術高度化開発」（日本原子力研究開発機構, 2012a ; 2013a ; 2014a ; 2015a）及び「処分システム評価確証技術開発」（日本原子力研究開発機構, 2014b ; 2015b ; 2016 ; 2017 ; 2018）で開発されたニアフィールド複合現象解析システムを最大限活用して、ニアフィールドの振る舞いが評価できる解析システムのプロトタイプの構築に着手した。

平成31年度は、プロトタイプを活用して試行的な解析を行い、その結果に基づき、核種移行パラメータや核種移行解析の前提条件への影響の分析・整理を通じた課題の抽出と対処方策を提案した。

令和2年度は、平成31年度までに開発されたプロトタイプの解析ツールを用い、緩衝材の長期的

変質挙動の予測の観点から複数の解析ケースを設定し、緩衝材に期待される機能に影響を及ぼし得る状態変遷を評価するための解析例を提示すると共に、得られた解析結果の妥当性確認を進めていく上での基礎的な検討を行った。

令和3年度は、プロトタイプの評価システムで用いられている水理・物質輸送－化学反応の解析モデルの妥当性確認の一環として、本事業で使用する解析コードを用いたベンチマーク解析や解析手法の妥当性に関わる検討を実施した。また、解析コードの確証に係る既往成果の再整理を行うと共に、緩衝材の長期的変質挙動の予測に関わる解析について、海外の専門家によるレビューを受け、現状での解析・評価における課題を整理した。

令和4年度は、令和2年度までに開発したプロトタイプシステムを用いた水理・物質輸送－化学反応の解析モデルの妥当性確認及び信頼性向上の一環として、令和3年度に実施した海外の専門家によるレビューコメントを踏まえたモデルの見直しを図り、見直しを反映した再解析を行った（4.2.6項の(1)の1)参照）。また、令和2年度に実施した緩衝材の長期変質挙動に係る解析を一例に、緩衝材の状態変遷評価（SP3のサブタスク1における統合化評価）から、他の SP における個別現象評価へのフィードバック（例えば、SP3の解析で用いるパラメータ値や評価式の見直しの必要性の有無等）に関わる具体例についても検討した（4.2.6項の(1)の2)参照）。さらに、モデル等の見直し前後における緩衝材の状態変遷評価の比較の結果を整理した（4.2.6項の(1)の3)参照）。

サブタスク2については、平成30年度は、ニアフィールド条件の変化を設定するために必要な、時間変化を考慮した地質環境モデルに関する最新知見や、ニアフィールドを対象として開発されている現象解析モデルの最新知見を踏まえつつ、連成解析の結果を反映させて核種移行を評価するための解析手順やデータ受け渡しなどのフレームワークの構築に着手した。

平成31年度は、上記の連成プラットフォームを利用した核種移行解析モデルを構築し、試行的な核種移行解析を実施した。また、その試行結果に基づいた課題の抽出及び課題解決に向けた研究開発のアプローチを提案した。

令和2年度は、サブタスク1で実施した緩衝材の長期的変質挙動に関わる水理・物質輸送－化学反応の連成解析結果を基に、緩衝材の変質状態の時間変遷を踏まえた核種移行評価を行うための核種移行パラメータ設定の方法論について、イオン強度や間隙率との依存性が大きい核種を対象に検討し、検討結果を反映した予察的な核種移行解析を実施した。

令和3年度は、核種移行解析の妥当性検討の一環として、メッシュの大きさが解析結果に与える影響について予察的な検討を行うとともに、令和2年度に引き続き、緩衝材の変質状態の時間変遷を踏まえた核種移行パラメータ設定の方法論の検討を継続して行った。また、SP1や SP2との連携の観点から、今後、連携の具体化を図る際に双方で必要となる情報の整理案やフィードバックを図るためのフロー案の検討も進めた。

令和4年度は、サブタスク1におけるモデルの見直しを踏まえた緩衝材の長期変質挙動に関わる再解析結果を対象とした核種移行解析を行い、モデルの見直しに伴う緩衝材の状態変遷評価への影響とそれらが核種移行評価に与える影響について分析・整理した（4.3.2項の(1)の1)参照）。また、緩衝材の変質が核種の移行遅延効果に与える影響を評価する手法の整備に向けて、核種移行率に影響を及ぼす因子の抽出を試みるとともに（4.3.2項の(1)の2)参照）、サブタスク1及び他の SP に今後フィードバックを図ることが重要と考えられる項目案を提示した（4.3.2項の(1)の3)参照）。さらに、性能評価への反映を念頭にした核種移行モデルの簡略化の妥当性確認のための試行についても検討した（4.3.2項の(2)参照）。

最後に、本事業における5か年の実施内容を踏まえた成果と諸外国における類似した近年の研究動向（現状）を踏まえつつ、サブタスク1及びサブタスク2の両観点から、それぞれのサブタスクに関連する今後の課題を整理した（4.2.6項の(2)及び4.3.2項の(3)参照）。

4.2 現象解析モデルの統合化技術の構築

4.2.1 背景と目的

本事業の先行事業である「処分システム評価確証技術開発」では、ニアフィールドのシステム変遷と核種移行解析の体系的評価技術として、ニアフィールドシステム変遷に関する複合現象の解析とその現象解析結果に追随して核種移行解析を行う手法を開発し、ニアフィールド複合現象評価手法、核種移行評価手法、共通モデル・シナリオ・データベース及び成果の体系化手法をまとめたニアフィールド総合評価システムを構築した(日本原子力研究開発機構, 2016;2017;2018)。この先行事業の取り組みでは、個別モデルによる解析だけでは、ニアフィールド全体性能への影響の把握が困難な現象として、主に「コンクリートでのひび割れの発生・進展問題」に着目し、プラットフォームを中核とするシステムの開発を実施した。これにより、コンクリートのひび割れ発生・進展とその周囲の化学的変質などに係る局所スケールの現象が、坑道全体スケールの挙動にどのような影響を及ぼすかという点に着目した化学－物質輸送－力学連成解析が可能となった。

しかしながら、当該システムで対象とする現象は、上記で示したコンクリートのひび割れ・進展問題に限定されており、ニアフィールドで考慮する必要のある複合現象と、それが安全機能に与える影響に関する情報の抽出とその分析・整理が十分に行われていない。また、システムで対象とする現象が変わる場合には、個別現象モデルやそれらの統合・連成の構造なども変わる可能性があることから、これらを反映したシステムの整備も不十分であると考えられた。

このため、複数のプロセスを複合的に考慮する必要のある複合現象で、かつ、安全機能や核種移行への影響が大きい現象を幅広く抽出して、その現象を対象とする評価システムを構築する研究開発アプローチを提案すると共に、このアプローチに基づき、「緩衝材の長期変遷挙動の予測」を優先的に取り組む課題として評価システムのプロトタイプを構築した。このプロトタイプによる試解析の結果、ニアフィールド複合現象評価における連成解析で想定している現象として、コンクリート支保のセメント影響を受けた地下水によって緩衝材の変質が不均質に進展していく様子などが確認できた。しかしながら、構築したプロトタイプを用いて、バリア材料に期待している安全機能の維持あるいは劣化・喪失に至る可能性のある現象が発現する条件を定量的に分析し、ニアフィールドの複合的な振る舞いを評価するためのシステム開発に向けた課題を抽出することは今後の課題とされた。

そこで、平成30年度に構築されたニアフィールド複合現象評価システムのプロトタイプを活用して、バリア材料に期待している機能の維持／喪失に至るプロセスが発現する条件を定量的に分析することを目的とする感度解析を行った。加えて、平成30年度に抽出されたバリア構成要素の機能や核種移行挙動への影響が大きいと考えられた現象のうち、閉鎖後過渡期における状態の変化及び人工バリアと岩盤の相互作用がもたらす影響を評価することが可能なシステム開発に向けた課題を抽出した。

また、緩衝材に期待される機能が発揮されるか否かを評価することを想定した場合、国内外において、どのような指標や基準が考えられているかを文献調査に基づき整理した。さらに、プロトタイプの解析ツールを用い、緩衝材の長期的変質挙動の予測の観点から複数のケースを対象に解析を実施した。加えて、緩衝材の長期的変質挙動に関わる連成解析結果の妥当性確認を進めていく上での方針や、閉鎖後長期の状態変遷の解析に反映すべき閉鎖後過渡期の状態変遷に関わる情報についても整理した。

上述した検討を踏まえつつ、プロトタイプの評価システムで用いられている水理・物質輸送－化学反応の解析モデルの妥当性確認の一環として、本事業で使用する解析コードを用いたベンチマーク解析を行うと共に、解析手法（擬定常状態の仮定やメッシュサイズ設定）の妥当性に関わ

る検討も実施した。また、解析コードの確証に係る既往成果の再整理を行うと共に、令和2年度に実施した緩衝材の長期的変質挙動の予測に関わる解析結果を一例に、類似した解析実績の経験のある海外の専門家によるレビューを受け、今後の課題について整理した。

令和4年度は、5か年計画で進めてきた事業の最終年度に当たるため、改めて、本事業における統合化評価の対象（4.2.2項参照）、SP3で統合化評価の対象とする閉鎖後長期の評価とその前提や仮定となる閉鎖後過渡期に想定される現象との関係（4.2.3項参照）、統合化評価を進めるうえで役立つと考えられるシナリオの整理例（4.2.4項参照）、既往の成果を踏まえた上での本事業での取り組みの概要（4.2.5項参照）をまとめた。その後、4.2.6項に、令和4年度の実施内容をまとめた。具体的には、水理・物質輸送－化学反応の連成解析の信頼性向上に向けた取り組みの一環として、海外専門家によるレビューを踏まえたモデルの見直し・妥当性確認に関わる検討を行った。また、緩衝材の変質に伴う透水性変化の評価式における不確実性の評価を一例とし、統合化評価から個別現象評価へのフィードバックに関わる検討も実施した。さらに、モデル等の見直し前後における緩衝材の状態変遷評価の比較の結果を整理した。最後に、統合化評価における最新の動向・現状を踏まえつつ、課題の整理を行った。本節では、これらの検討・整理の成果を示す。

4.2.2 本事業における統合化評価の対象

SP3 における統合化評価では、処分場閉鎖後初期の熱・水・応力・化学の状態が大きく変化する過渡期での状態変遷が終了し、その後の処分場閉鎖後長期における地温・飽和・還元性雰囲気での状態変遷を対象としている。ここで、閉鎖後過渡期と閉鎖後長期の時間区分については、原子力発電環境整備機構・日本原子力研究開発機構 (2012) における区分例を参考に、本事業では、以下のように整理している（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2021）。

・閉鎖後過渡期：廃棄体発熱による温度上昇及び緩衝材全体が再冠水するまでの坑道閉鎖後の過渡的期間
・閉鎖後長期：緩衝材全体が再冠水した後、多重バリア性能に期待する期間

上記のうち、閉鎖後過渡期において緩衝材の状態変遷に顕著な影響を及ぼす可能性のある現象とその不確実性としては、以下のように整理されている（原子力発電環境整備機構・日本原子力研究開発機構, 2012）。

・パイピング及び浸食とそれに伴う不確実性

不飽和状態の緩衝材に局所的に周辺からの地下水の浸入がある場合、緩衝材中に水みちが形成される現象（パイピング）が発生する可能性がある。パイピングが生じた場合、緩衝材中の水みちに沿って緩衝材の浸食が生じ、緩衝材の密度低下や、密度低下に伴う膨潤圧の低下・透水性の上昇といった不確実性を伴う。

・随伴鉱物などの溶解・沈殿とそれに伴う不確実性

過渡期には、温度勾配下において、熱－水－応力－化学の連成現象が生じ、緩衝材中に含まれる随伴鉱物や可溶性塩などが地下水の浸入に伴い、溶解･沈殿すると想定される。その場合、緩衝材中に沈殿した二次鉱物により、部分的にセメンテーションが発生する可能性がある。セメンテーションが生じた場合、緩衝材の透水性の変化や膨潤性の低下などの不確実性を伴う。

一方、閉鎖後長期において緩衝材の状態変遷に顕著な影響を及ぼす可能性のある現象とその不確実性は、以下の通りである（原子力発電環境整備機構・日本原子力研究開発機構, 2012）。

・鉄ーベントナイト相互作用とそれに伴う不確実性

ベントナイトが炭素鋼オーバーパックと長期にわたり接触することで、炭素鋼の腐食に伴い生じる腐食生成物とベントナイトが相互作用を起こすと想定される。その場合、ベントナイトの主要成分であるモンモリロナイトの変質等が生じ、緩衝材の密度低下や、密度低下に伴う膨潤圧の低下・透水性の上昇といった不確実性を伴う。

・セメントーベントナイト相互作用とそれに伴う不確実性

坑道支保にセメント系材料が用いられる場合、セメント系材料から溶出するアルカリ性溶液により、長期間にわたりベントナイトの主要成分であるモンモリロナイト等が徐々に溶解し、鉱物組成やベントナイトの間隙構造が変化する。その場合、緩衝材の密度低下や、密度低下に伴う膨潤圧の低下・透水性の上昇といった不確実性を伴う。

前述したように、SP3 における統合化評価では、処分場閉鎖後長期を対象に「緩衝材の長期変遷挙動の予測」を優先的に取り組む課題として検討を進めている。このため、緩衝材の状態変遷に顕著な影響を及ぼす可能性のある現象としては、「鉄ーベントナイト相互作用」及び「セメントーベントナイト相互作用」が対象となる。これらの相互作用については、緩衝材の長期安定性評価技術の現状（柴田ほか、2004）において、処分環境で発生する可能性のある緩衝材変質過程（変質シナリオ）を網羅的に抽出・列挙された現象のうち、変質現象の発生可能性が高く、発生した場合の緩衝材性能への影響が無視できなく（或いはその判断が困難）、工学的対策（処分システム及び緩衝材の設計による発生の回避）での対応か不可能であるため、これらの相互作用が生じた場合の緩衝材変質の進展を考慮した性能評価が必要となる現象である。このため、SP3 のサブタスク 1 では、これらの相互作用に伴い生じる複合現象に関わる現象モデルを統合化し、ニアフィールドの時間的・空間的な変遷を解析するためのシステム開発を行ってきた。

なお、閉鎖後過渡期において緩衝材の状態変遷に顕著な影響を及ぼす可能性のある「パイピング及び浸食」や「随伴鉱物等の溶解・沈殿に伴うセメンテーション」については、柴田ほか（2004）による緩衝材の長期安定性評価フローに照らし合わせて現状を整理すると、これらの現象の発生可能性の検討や発生した場合の緩衝材性能への影響を検討している段階にある。このため、SP1 におけるニアフィールド環境の変遷を評価するための個別現象モデル開発やパラメータ整備などの技術開発の一環として取り組まれている。

また、本事業での SP3 における統合化評価では、過渡期の状態変遷がその後の長期的な状態変遷に及ぼす影響については考慮しておらず、閉鎖後長期の状態変遷を評価するにあたり不確実性が伴う。前述した通り、閉鎖後過渡期において「パイピング及び浸食」や「随伴鉱物等の溶解・沈殿に伴うセメンテーション」のような現象が発生した場合の緩衝材に及ぼす影響を整理すると、緩衝材の密度低下、膨潤圧の低下及び透水性の上昇が挙げられる。閉鎖後長期の状態変遷を評価する際には、閉鎖後過渡期におけるこれらの現象に伴う不確実性がどの程度になるかを把握し、長期の状態変遷に反映すべきであると考えられる（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2021）。SP1 においては、ニアフィールド THMC 連成挙動評価や流出現象などを考慮した緩衝材の健全性評価が行われており（2 章参照）、これらの評価から導き出される不確実性を SP3 で実施する緩衝材の長期的変質挙動における初期状態の不確実性として適切に反映することが重要になる。なお、本事業では、次項（4.2.3 項）で述べるように閉鎖後長期の状

態変遷を評価する際の前提もしくは仮定として、閉鎖後過渡期にこれらの現象が生じたとしても、閉鎖後長期の状態変遷評価における初期状態には、顕著な影響は生じないとしている。

4.2.3 閉鎖後過渡期に想定される現象と閉鎖後長期の評価における前提（仮定）

閉鎖後過渡期及び閉鎖後長期において、ニアフィールドで生じると想定される熱的（T）、水理学的（H）、力学的（M）及び化学的（C）なプロセスを対象に、各現象が処分場の操業（オーバーパック、廃棄体、緩衝材定置）から処分場の閉鎖、閉鎖後長期の時間軸において、概ねどのような時期にどのような時系列で生起すると考えられるかを整理した（図 4.2-1）。

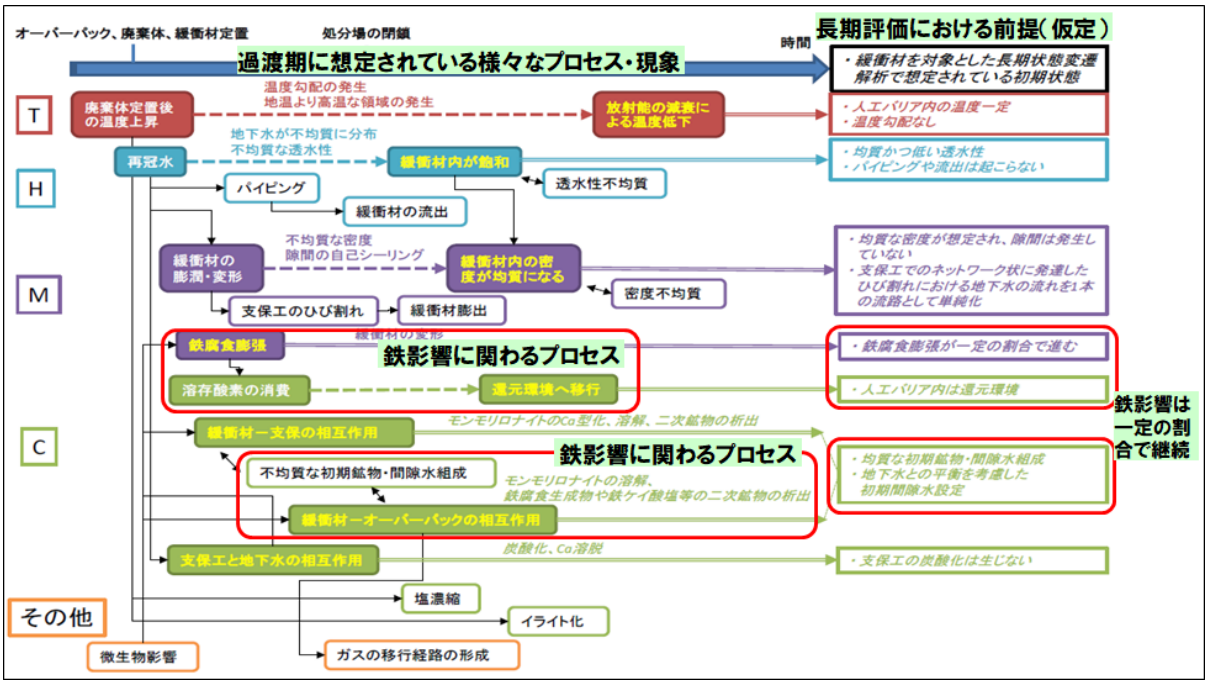


図4.2-1 閉鎖後過渡期に想定される状態変化とそれらが長期的な変遷挙動に与える影響の関係に係る整理図（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2021を改変）

図 4.2-1 において、白抜きで示す各現象は、閉鎖後長期の評価にあたり、その前段階で既に考慮されている現象に関わる前提（仮定）であり、黄色字で示す各現象（例えば、H における「緩衝材内が飽和」等）は、閉鎖後過渡期の段階を経て、閉鎖後長期の評価における前提（仮定）となるもの（図 4.2-1 の右側に整理されている前提に繋がるもの）である。なお、図 4.2-1 において黒字で示す各現象（例えば、H における「パイピング」やそれに伴う「緩衝材の流出」等）は、閉鎖後過渡期の段階に評価が必要になると考えられるが、ニアフィールドにおける複合現象を対象とした統合化評価において、これまで具体的には考慮されていないものである。なお、閉鎖後長期の評価における初期状態としては、T-H-M-C に関わる様々なプロセス・現象に対して、図 4.2-1 の黄文字で示す現象が想定されているが、これらの現象は、処分場の操業から閉鎖後長期に至る時間軸において、必ずしも同一の時期に生起が想定されているわけではない。従って、閉鎖後長期における初期状態を想定する時期については、一律に処分場閉鎖後のある時期を想定するというより、T-H-M-C に関わる様々なプロセス・現象に対して、緩衝材に期待されている各機能がそれぞれ発揮される時期と捉えるべきである。

SP3 におけるニアフィールドにおける複合現象を対象とした統合化評価においては、閉鎖後長

期の評価における前提（仮定）として、T-H-M-C に関わる様々なプロセス・現象に対して、各々、以下のような状態が初期状態として想定されている。

・熱に関わる状態　：人工バリア内の温度は一定であり、温度勾配は想定しない。
・水理に関わる状態：緩衝材内は、均質かつ低い透水性が維持されている。パイピングや流出等は生じていない。
・力学に関わる状態：緩衝材内は、密度分布は均一であり、隙間等は発生していない。炭素鋼オーバーパックの腐食膨張は、一定の割合（速度）で進行する。セメント支保工の利用を想定する場合、セメント支保工内における亀裂発生の影響は、単一亀裂に単純化して評価する。
・化学に関わる状態：人工バリア内は、還元状態が維持されている。緩衝材内の構成鉱物や間隙水組成は均一に分布している。間隙水は、地下水との反応により平衡状態に達している。セメント支保工の利用を想定する場合、支保工の炭酸化は生じていない。

なお、図4.2-1に示された閉鎖後過渡期に想定されるT-H-M-Cに関わる様々なプロセス・現象については、本事業のSP1において個別現象評価の技術開発として取り組まれており、それらの成果の一部（閉鎖後長期の評価にも反映可能な知見等）は、SP3における統合化評価に反映される。例えば、SP1におけるオーバーパック腐食挙動評価で得られた知見の一部（SP3の統合化評価において考慮されるオーバーパックの長期的な腐食速度を設定する上で知見や想定される腐食生成物の種類等）は、SP3の統合化評価における鉄ーベントナイト相互作用に関わる評価に反映される。

4.2.4 処分場閉鎖後過渡期から閉鎖後長期に想定されるシナリオの例

SP3における統合化評価で対象とする緩衝材の状態変遷に顕著な影響を及ぼす可能性のある現象である鉄ーベントナイト相互作用及びセメントーベントナイト相互作用について、処分場閉鎖後過渡期から閉鎖後長期に想定されるプロセス・現象を考慮したシナリオを諸外国における先行事例をもとに整理した。諸外国における先行事例としては、スウェーデン（SKB）、フィンランド（POSIVA）、フランス（ANDRA）及びスイス（Nagra）等の各国における処分事業の実施主体が整理しているシナリオがあるが、ここでは、その中でも我が国における高レベル放射性廃棄物（ガラス固化体）の地層処分を対象にした場合の処分概念や処分システムに類似した検討がなされているスイスの事例や欧州連合（EU）によるジョイントプロジェクトで実施された事例（EURAD）を参考にした。

まず、鉄ーベントナイト相互作用を対象にしたシナリオについて整理する。整理にあたっては、NagraのTechnical Report（NTB-09-02：Landolt et al., 2009）を参考とし、その中で述べられている処分場閉鎖後過渡期から閉鎖後長期に至るまでの温度・湿度変化とそれらに対応して生起する様々なプロセス・現象について、下記のように整理した。その際には、処分場閉鎖後過渡期から閉鎖後長期に至るまでの状態変遷を、飽和・不飽和状態や酸化（好気的）・還元（嫌気的）状態の変化と照らし合わせて、下記の4つのフェーズに分けて整理がされており（Landolt et al., 2009）、ここでもそれらに準拠した形で整理した。なお、NTB-09-02では、温度としては、キャニスター（ここでは、炭素鋼オーバーパックに相当）表面が最高温度として、140℃程度になることを想定したシナリオとなっている。

・フェーズ1：初期の乾燥過程

・フェーズ2：好気的・不飽和過程
・フェーズ3：嫌気的・不飽和過程
・フェーズ4：還元性・飽和過程

フェーズ1は、処分場閉鎖後初期の乾燥状態であり、水蒸気及び酸素が酸化剤として炭素鋼オーバーパックの腐食に作用すると想定される。ただし、オーバーパック表面は高温のため、オーバーパック／緩衝材境界での湿度は低く、絶乾状態に近くなるため、オーバーパックの腐食速度は遅いと想定される。また、オーバーパックの腐食に伴い生じる可能性の高い腐食生成物としては、磁鉄鉱（Magnetite）・磁赤鉄鉱（Maghematite）・赤鉄鉱（Hematite）・針鉄鉱（Goethite）・鱗鉄鉱（Lepidocrocite）等の複数の腐食生成物からなる腐食層が形成されると想定される。

フェーズ2は、処分場閉鎖後過渡期の初期の状態であり、好気的・不飽和状態が想定される。このような期間では、オーバーパック／緩衝材境界での湿度が上昇し、フェーズ1の期間に比べて、腐食速度が増加すると想定される。なお、この期間にはフェーズ1で残存していた酸素の消費が生じるが好気的から嫌気的（フェーズ3）に移行する時期は、人工バリア中での酸素の移行と消費速度のバランスにより変化すると想定される。また、オーバーパック／緩衝材境界付近では、NaClや$NaSO_4$等からなる塩の濃集も想定される。さらに、濃集した塩の影響により、オーバーパック表面には孔食等の局部腐食の発生可能性も想定される。

フェーズ3は、処分場閉鎖後過渡期のうち、好気的状態（フェーズ2）から嫌気的状態に変化した状態であり、嫌気的・不飽和状態が想定される。この期間中には、温度の低下に伴い、緩衝材中での水分の飽和状態が進展し、オーバーパック／緩衝材境界付近に濃集した塩が溶解すると共に、溶解した成分は緩衝材中に拡散により散逸すると想定される。また、人工バリア中の酸素が消費され、嫌気的状態になると共に、オーバーパックの腐食は均一な腐食反応になると想定される。このような状態でのオーバーパック／緩衝材境界付近では、pHは中性付近で弱還元性の状態にあると想定されるため、腐食生成物としては、グリーンラスト（Green rust）やFe(II)/Fe(III)の水酸化物等が生成すると想定される。さらに、緩衝材中が飽和状態に近づくにつれ、緩衝材中の鉱物組成にも変化が生じると想定される。例えば、モンモリロナイトの不安定化（変質）に伴い、Feに富むスメクタイトや非膨潤性のFeに富む珪酸塩鉱物への変化、鉄腐食生成物の沈殿に伴うセメンテーションやモンモリロナイトの変質に由来するSiによるセメンテーション等も想定される。これらに加えて、水の放射線分解に伴う生じるラジカル（水和電子、OH、H、HO_2等）による酸化還元に鋭敏な元素への影響が腐食速度にも影響すると共に、緩衝材の物理特性（膨潤性等）や緩衝材中での微生物活性の減少にも影響が生じると想定される。

フェーズ4では、人工バリアが再冠水に至り、緩衝材中は還元性・飽和状態が想定される。温度は、まだ定常状態には至っておらず、Landolt et al.（2009）でのシナリオでは、定常状態（40℃程度）に至るには数万年後になると想定されている。この期間では、緩衝材中は完全飽和の状態であり、均一な膨潤状態が生じていると想定される。また、酸素は完全に消費され、フェーズ3の段階で生じたFe(III)を含む一部の腐食生成物中に含まれるFe(III)は、Fe(II)へと還元されると想定されている。人工バリア中は完全な還元状態（強還元状態）となり、オーバーパックの腐食は均一な腐食反応で進行し、酸化剤となり得るのは水のみで、腐食に伴い水素の発生が想定される。発生した水素によりガス圧が上昇し、オーバーパック近傍の緩衝材中にマイクロクラックを発生させる可能性も想定されるが、フェーズ4の条件では腐食速度は非常に遅く、水素ガスの発生量も抑制されるため、マイクロクラックの発生による影響は小さいと想定される。なお、水素ガス圧が上昇し、緩衝材中にガスの破過が生じたとしても、飽和状態における緩衝材の膨潤に伴う自己シール性により、破過が生じた亀裂は修復されると想定される。微生物の作用に伴うオーバーパッ

クの腐食への影響については、飽和した圧縮ベントナイト中での低間隙により、微生物の活性は抑制されると想定される。この期間における腐食生成物は、環境条件（pH, Eh及び溶存化学種）により影響されるものの、主な腐食生成物としては、磁鉄鉱（Magnetite）・菱鉄鉱（Siderite）・硫化鉄（Iron sulphide）等が想定される。さらに、モンモリロナイトの変質に伴い、非膨潤性のFeに富んだ珪酸塩鉱物（バーチェリン等）が生じた場合、緩衝材の特性（膨潤性、透水性）に変化が生じ、脆性破壊等の影響が生じることも想定される。

次に、セメントーベントナイト相互作用を対象にしたシナリオについて整理する。整理にあたっては、EUのプロジェクト報告書（EURAD D2.5：Deissmann et al., 2021）やNagraのTechnical Report（NTB-19-03：Jennie et al., 2019）を参考とし、不飽和から飽和状態に至る過程（処分場閉鎖後過渡期に相当）で生起する様々なプロセス・現象及び飽和後（処分場閉鎖後過渡期から閉鎖後長期）に生起する様々なプロセス・現象について、それぞれ下記のように整理した。

不飽和から飽和状態に至る過程で生起するプロセス・現象としては、セメント支保の表面には炭酸化が進行すると共に、セメント支保を通じて、アルカリ影響を受けた地下水が不飽和状態の緩衝材に浸入すると想定される。不飽和状態の緩衝材中では、浸入した地下水は移流により浸潤すると共に、緩衝材は膨潤し、均質化が進行すると想定される。また、セメント支保／岩盤境界では、セメントー岩盤相互作用に伴い境界部の間隙率が低下すると想定される（例えば、スイスにおける地層処分の候補母岩として想定されているオパリナス粘土層のような低透水性の岩盤の場合）。このようなセメント支保／岩盤境界における間隙率の低下は、岩盤からの地下水の浸入を抑制し、緩衝材の飽和過程を遅延させる可能性があると想定される。

セメント支保を通じて緩衝材に浸入したアルカリ影響を受けた地下水は、緩衝材中の構成鉱物と反応（陽イオン交換反応、モンモリロナイトの溶解反応）し、緩衝材の密度や膨潤圧を低下させることが想定される。ただし、緩衝材が飽和に至るまでの期間（EURADでは、100年程度内で飽和に至ると想定）では、これらの反応に伴う緩衝材の物理特性への影響や影響範囲は小さいと想定されている。さらに、セメント支保／緩衝材境界では、反応生成物や方解石等の二次鉱物の沈殿により、境界部の間隙率が低下し、セメント浸出水の緩衝材への浸入が抑制されると想定される。なお、反応生成物としては、高pH条件での安定性の観点から、Mgを含む層状水酸化物の沈殿が想定されている。これらの反応に伴い、緩衝材中の間隙に完全な閉塞が生じるかどうかは、現在のシナリオでは不明とされている。

飽和後に生起するプロセス・現象としては、セメント支保と緩衝材の境界に反応ゾーンが形成され、両材料間での化学勾配に伴い物質移行が生じると想定される。その際、飽和状態における緩衝材中での物質移行は、拡散により生じる。セメント浸出水に由来する水酸基は、緩衝材中の珪酸・アルミノ珪酸塩鉱物を不安定化（溶解）させ、これらの反応により水酸基が消費されることで溶液のpHが中性化の方向に変化すると想定される。また、これらの反応に伴いモンモリロナイトが溶解するため、緩衝材の膨潤圧は低下すると想定される。セメント支保／緩衝材境界から緩衝材側に向けては、二次鉱物による変質ゾーン（境界に近い方から、C-S-H、C-A-S-H、カリ長石／イライト、沸石の順）が生成し、緩衝材中の間隙率は全体的に減少する方向に変化すると想定されている。

セメント支保では、ポルトランダイトやC-S-Hの溶出に伴い、セメント支保／緩衝材境界でCa炭酸塩（方解石：Calciteやアラレ石：Aragonite）が比較的速やかに沈殿すると想定されるが、これはセメント支保中では水酸基濃度が高く、緩衝材中では炭酸分圧が高く、これらの濃度勾配がセメント支保／緩衝材境界を挟んで生じることに起因する。このため、長期的にはセメント支保側では間隙率が増加し、緩衝材側では間隙率が減少する方向で変化すると想定される。ちなみに、セメント支保工の材料として、普通ポルトランドセメント（OPC）の代わりに低アルカリ性セメ

ントが用いられる場合、水和物であるC-A-S-Hの脱Ca化はOPCの場合よりも速く生じ、アモルファスシリカへの変化がOPCの場合よりも早くなると想定される。

OPCを想定したセメント支保では、ポルトランダイト・C-S-H・モノサルフォアルミネートのエトリンガイトへの変化も想定される。一方、セメント支保／緩衝材境界に近いセメント支保工側では、pHが低下することで、セメント支保工内部に向かい、硫酸の再配分が生じる可能性があると想定される。すなわち、pHの高い初期の状態で沈殿したCa-Al硫酸塩であるエトリンガイトやモノサルフェートが不安定化し、溶解する。

セメント支保／緩衝材境界では、C-A-S-HやM-S-Hの生成に伴い、間隙率や物質移行特性（拡散係数等）が変化すると想定される。また、境界におけるこれらの変化は、緩衝材の透水性・拡散性・ガス移行性にも影響を与える可能性が想定される。さらに、セメントーベントナイト相互作用に伴うモンモリロナイトの溶解は、緩衝材の安全機能である低透水性や核種に対する高収着性に影響を与え得ることも想定されている。

上述したようなシナリオの整理は、SP3における統合化評価で実施する閉鎖後長期を対象にした「緩衝材の長期変遷挙動の予測」において、考慮すべきプロセス・現象に欠落した事象等が無いか、また予測結果が諸外国で想定されている性能評価上のシナリオと整合しているか等を確認する上で役立つと考えられる。また、SP1やSP2における個別現象モデル開発やパラメータ整備で対象としているプロセス・現象で、統合化評価への反映を念頭にした際に重要となるプロセス・現象に欠落した事象等が無いかを確認する上でも有効であると考えられる。

4.2.5 既往の成果を踏まえた本事業での取り組み

先行事業である処分システム評価確証技術開発（日本原子力研究開発機構, 2014b；2015b；2016；2017；2018）では、ニアフィールドシステム変遷とその不確実性を考慮した核種移行評価を行うための技術（ニアフィールド総合評価技術）の開発が進められた。本事業のSP3におけるサブタスク1が、先行事業でのニアフィールドシステム変遷に関わる技術開発の後継に相当する。ニアフィールドシステム変遷に関わる現象解析を行うにあたっては、ニアフィールドシステム変遷と核種移行挙動に関わる重要なプロセス・現象について、それらの相互関係を適切に考慮して取り扱うことが必要になるため、先行事業では図4.2-2に示すようなプロセス・現象の相互関係をインフルエンスダイヤグラムとして整理されている（日本原子力研究開発機構, 2016）。

例えば、鉄ーベントナイト相互作用に関わる現象の一つとして、「鉄影響による（緩衝材）変質部のひび割れ」に関わる現象では、オーバーパック領域における鉄の腐食反応とオーバーパック領域と緩衝材領域における水理・物質輸送ー化学反応の連成現象に加え、オーバーパック領域におけるオーバーパックの腐食膨張といった力学影響も連成させた評価が必要になる。このように、ニアフィールドシステム変遷に関わる現象解析では、図4.2-2に示す複数の異なる領域や現象間の複合現象を連成させ、それに伴う個別の各現象へのフィードバックを適切に考慮することが重要になる（日本原子力研究開発機構, 2016）。また、先行事業である処分システム評価確証技術開発の中では、鉄ーベントナイト相互作用に関わる複合現象で対象となるプロセスを整理し、これらのプロセスを考慮しつつ複合現象をモデル化する上で留意すべき課題が整理された（表4.2-1）。

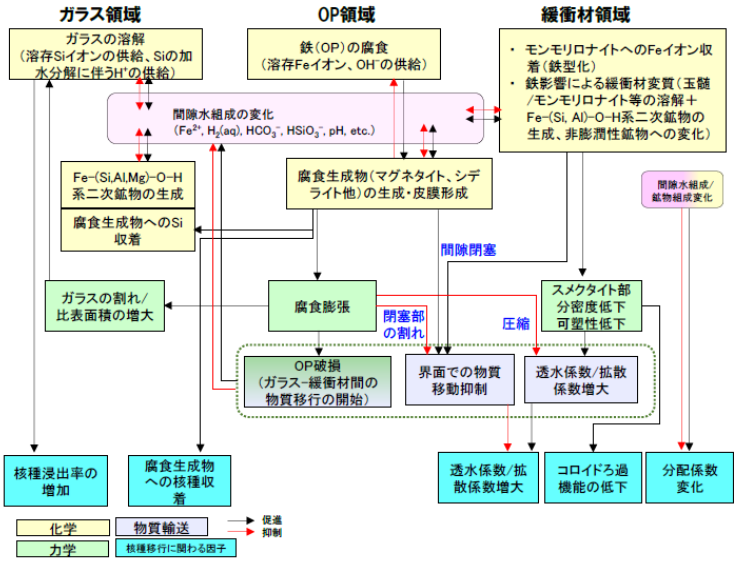


図4.2-2　ニアフィールドシステム変遷と核種移行挙動に関するインフルエンスダイヤグラム
（日本原子力研究開発機構, 2016）

表4.2-1　鉄－ベントナイト相互作用に関わる複合現象評価において抽出された課題の例
（日本原子力研究開発機構, 2016の内容を基に作成）

対象となる主なプロセス	複合現象をモデル化する上で留意すべき課題の例
・還元環境での炭素鋼腐食 ・鉄腐食生成物層の形成（マグネタイトやシデライト等） ・溶存Fe (II) イオン拡散 ・モンモリロナイト等の初期鉱物の溶解 ・固相化学組成の変化（モンモリロナイト等の初期鉱物の含有率低下及び二次鉱物沈殿） ・モンモリロナイト等の溶解成分の拡散、非膨潤性二次鉱物層（バーチェリン等）の形成 ・鉄腐食生成物による膨張、ひび割れ発生	・知見やモデルの不確実性が大きいため、一義的なシナリオだけで、複合現象を評価するのが困難。このため、発生可能性のある複数のシナリオを想定し、各シナリオの中で、適切なモデルを選択し、評価することが必要。例えば、溶存Fe (II) イオンの挙動としては、 － OP腐食に伴い生じた溶存Fe (II) イオンが腐食生成物として沈殿・消費されるシナリオ － OPと緩衝材境界近傍で非膨潤性二次鉱物等として沈殿・消費されるシナリオ － ある程度、緩衝材領域に拡散した後、非膨潤性二次鉱物等として沈殿・消費されるシナリオ等 が想定される。 ・上述したようなシナリオの分岐の条件を把握するためには、腐食生成物の皮膜形成に伴い変化する溶存Fe (II) イオンの供給速度、腐食生成物と非膨潤性二次鉱物等の沈殿速度、二次鉱物等の沈殿に伴う間隙率や拡散係数等の物質移行パラメータの変化を考慮したモデルによる探索的な解析評価が必要 ・非膨潤性二次鉱物の生成は、収縮に伴い、ひび割れの発生可能性もあり

このような課題整理の中で、鉄影響に伴う緩衝材変質については、知見やモデルの不確実性が大きいため、発生可能性のある複数のシナリオを想定し、各シナリオの中で適切なモデルを選択し、評価することが必要とされた（日本原子力研究開発機構, 2016）。その中で、複数のシナリオ（オーバーパック腐食に伴い生じた溶存Fe(II)イオンが腐食生成物として沈殿・消費されるシナリオ、オーバーパックと緩衝材境界近傍で非膨潤性二次鉱物等として沈殿・消費されるシナリオ、溶存Fe(II)イオンがある程度緩衝材領域に拡散した後非膨潤性二次鉱物等として沈殿・消費されるシナリオ等）が想定されたが、どのような要因（条件）がこれらのシナリオの分岐に関係するかは不明であった。このようなシナリオ分岐に関わる条件を模索するため、溶存Fe(II)イオンの挙動に関わる複数のシナリオを想定し、鉄影響に伴う緩衝材変質を比較するための解析的検討が行われた（日本原子力研究開発機構, 2016）。図4.2-3には、解析的検討で考慮されたシナリオのうち、相対的に溶存Fe(II)イオンの移行が抑制されるシナリオ（シナリオ1）と溶存Fe(II)イオンの移行が促進されるシナリオ（シナリオ3）の例を図示した。シナリオ1では、溶存Fe(II)イオンは腐食

生成物等としてオーバーパック－緩衝材近傍で沈殿し、保護的な変質層が生じることで緩衝材内部への拡散による移行が抑制され、また、変質層が破壊されても、二次鉱物の沈殿により閉塞されるため、緩衝材内部への拡散が抑制されると想定するシナリオである。一方、シナリオ3は、シナリオ1より溶存Fe(II)イオンの緩衝材内部への移行促進を想定したシナリオであり、保護的な変質層による拡散抑制の効果は考慮せず、オーバーパックの腐食膨張に伴いオーバーパック近傍の緩衝材中にひび割れが発生し、溶存Fe(II)イオンの拡散による移行促進が想定している。これらの両シナリオを対象にした複合現象に関わる連成解析により、シナリオ1を想定した解析では、腐食生成物として$Fe(OH)_2$が生成し、緩衝材中での二次鉱物の生成はオーバーパックの極近傍に限られ、溶存Fe(II)イオンの緩衝材内部への移行を抑制するような結果となった（図4.2-4）。また、シナリオ3を想定した解析では、腐食生成物として磁鉄鉱が生成し、緩衝材中での二次鉱物の生成領域は、シナリオ1よりもオーバーパックから離れた領域まで拡がる結果となった（図4.2-4）。なお、オーバーパックの腐食膨張に伴うひび割れの発生について、一様なひび割れ又は不均質なひび割れの発生を想定し、溶存Fe(II)イオンの拡散による移行促進を考慮した解析を行ったが、緩衝材中での二次鉱物の生成領域は、4万年程度経過してもオーバーパックから2.4 cm程度の領域に限定された（日本原子力研究開発機構, 2016）。

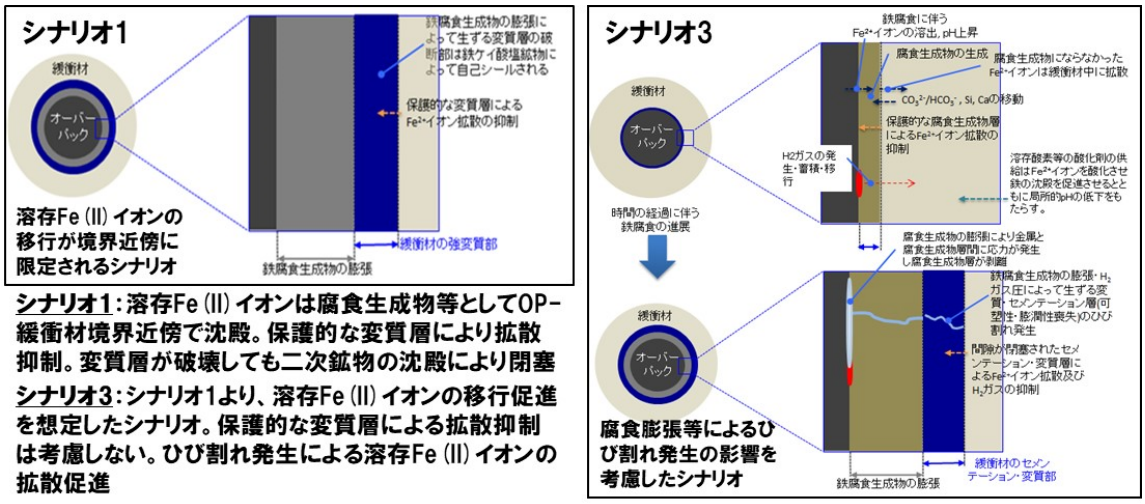


図4.2-3　鉄影響に伴う緩衝材変質を比較するための解析的検討のシナリオの例
（日本原子力研究開発機構, 2016の内容を基に改変）

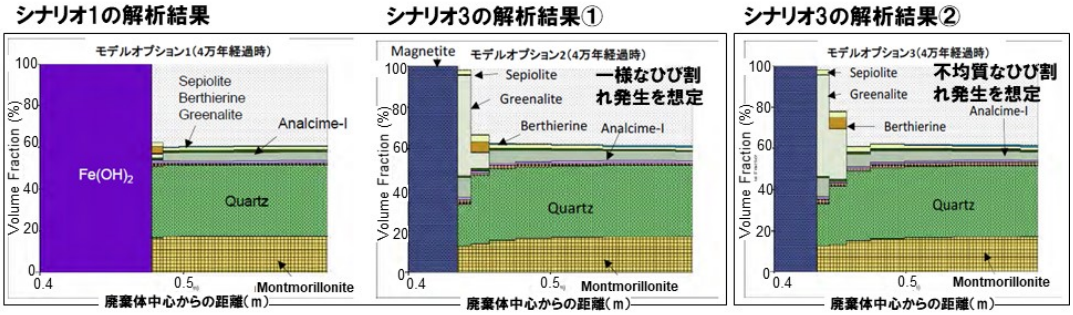


図4.2-4　鉄影響に伴う緩衝材変質を比較するためのシナリオに基づく解析結果の比較の例
（日本原子力研究開発機構, 2016の内容を基に改変）

上述したシナリオ1及びシナリオ3の解析例を基に、ここでは、鉄影響による緩衝材変質の分岐

ダイヤグラムの例（日本原子力研究開発機構, 2016）に照らし合わせ、シナリオの分岐に関わる条件について整理を試みた（図4.2-5）。まず、鉄（オーバーパック）腐食により溶存Fe(II)イオンが供給されるが、シナリオ1及びシナリオ3では腐食生成物が異なり、溶存Fe(II)イオンの供給量にも違いが生じる。次に、シナリオ1では、オーバーパック腐食で生じた溶存Fe(II)イオンは、$Fe(OH)_2$として沈殿し、溶存Fe(II)イオンとして緩衝材に拡散するのが抑制される（溶出成分の拡散速度＜二次鉱物の沈殿速度）。ただし、シナリオ1では、二次鉱物の生成に伴う間隙閉塞が生じて変質を抑制するような結果にはならなかった。いずれにしても、シナリオ1は、図4.2-5に示す分岐ダイヤグラムで緩衝材変質抑制ループに相当するような条件であることが示唆される。また、シナリオ3では、腐食膨張に伴うひび割れを通じて、溶存Fe(II)イオンは緩衝材内部へ拡散により移行する（溶出成分の拡散速度＞二次鉱物の沈殿速度）。ただし、シナリオ3では、ひび割れ発生に伴い実効拡散係数が1桁程度大きくなる程度であり、これに伴い緩衝材の変質が著しく拡大するような結果にはならなかった。このため、シナリオ3は、図4.2-5に示す分岐ダイヤグラムで緩衝材変質促進ループに相当するような条件であることが示唆される。このように、変質抑制或いは変質促進のどちらのループのシナリオに分岐されるかは、オーバーパック腐食速度、二次鉱物沈殿速度（溶出成分の移行速度とも関係）、間隙率と拡散係数等の物質移行特性の変化のバランスにより決まると考えられる。

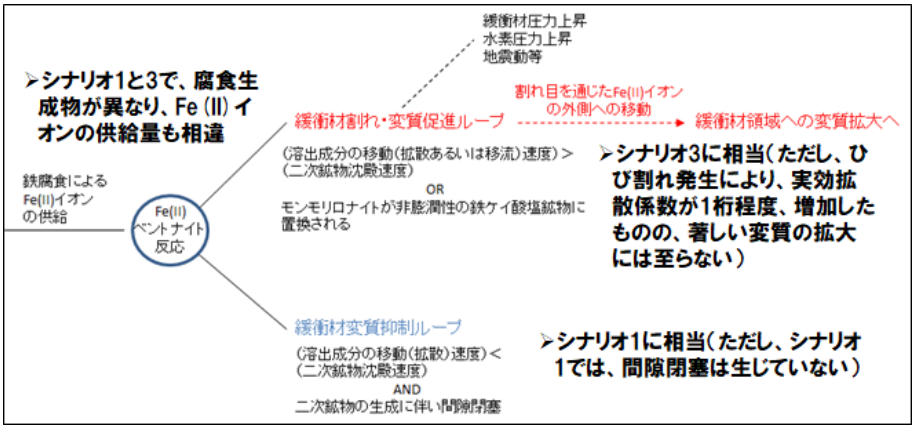


図4.2-5　鉄影響による緩衝材変質の分岐ダイヤグラムを活用したシナリオ分岐の条件の検討例（日本原子力研究開発機構, 2016の内容を基に改変）

このように、先行事業である処分システム評価確証技術開発では、鉄ーベントナイト相互作用に関わる複合現象を対象に、複数のシナリオを想定し、鉄影響に伴う緩衝材変質を比較するための解析的検討が行われた（日本原子力研究開発機構, 2016）。一方、セメントーベントナイト相互作用に関わる複合現象については、同様の検討例に乏しかったため、本事業においてセメント影響に伴う緩衝材変質が相対的に大きいケースと小さいケースを想定する等の検討を進め、鉄ーベントナイト相互作用と同様に、シナリオ分岐に関わる条件の模索等を試みた（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2020；2021）。なお、本事業における鉄ーベントナイト相互作用に関わる複合現象を対象とした評価では、シナリオ分岐に影響を与える要因の一つである二次鉱物の生成について、その生成可能性の妥当性について、海外の専門家によるレビューを踏まえ見直しを図る等の検討を進めた（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2022）。また、令和4年度は、レビュー結果を踏まえた連成解析により、より生成可能性が高いと推察される代替鉱物を想定した場合の緩衝材変質への影響を把握した。

上記で述べた通り、本事業における現象解析モデルの統合化技術の構築にあたっては、先行事

業である「処分システム評価確証技術開発」で実施されたニアフィールドシステム変遷に関わる技術開発を継承し、前事業での成果を活用しつつ、残された課題の一部について本事業の中で取り組んできた。前事業の成果を踏まえた本事業の取り組みとしては、前述の内容に加え、本事業の実施にあたり、例えば、先行事業で整理されたニアフィールドにおける複合現象評価にあたり重要となるプロセス・現象の相互関係に係るインフルエンスダイヤグラムを活用し、SP3での統合化評価の対象となる鉄ーベントナイト相互作用及びセメントーベントナイト相互作用に特化した形で、各々の相互作用に関わるプロセスインフルエンスダイヤグラム（PID）として再整理した（図4.2-6及び図4.2-7）。

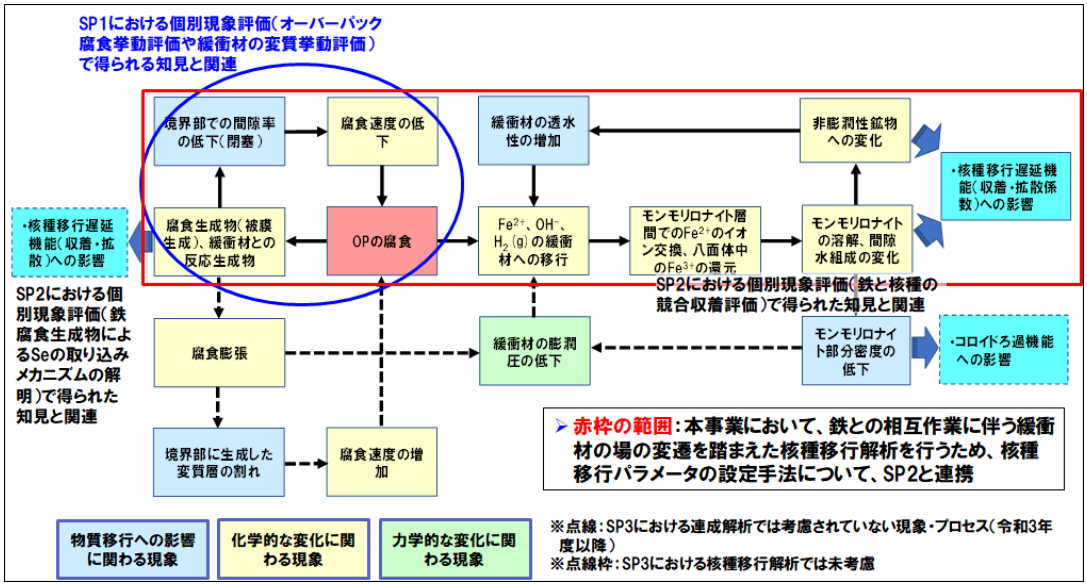


図4.2-6　鉄ーベントナイト相互作用に関わるプロセスインフルエンスダイヤグラム

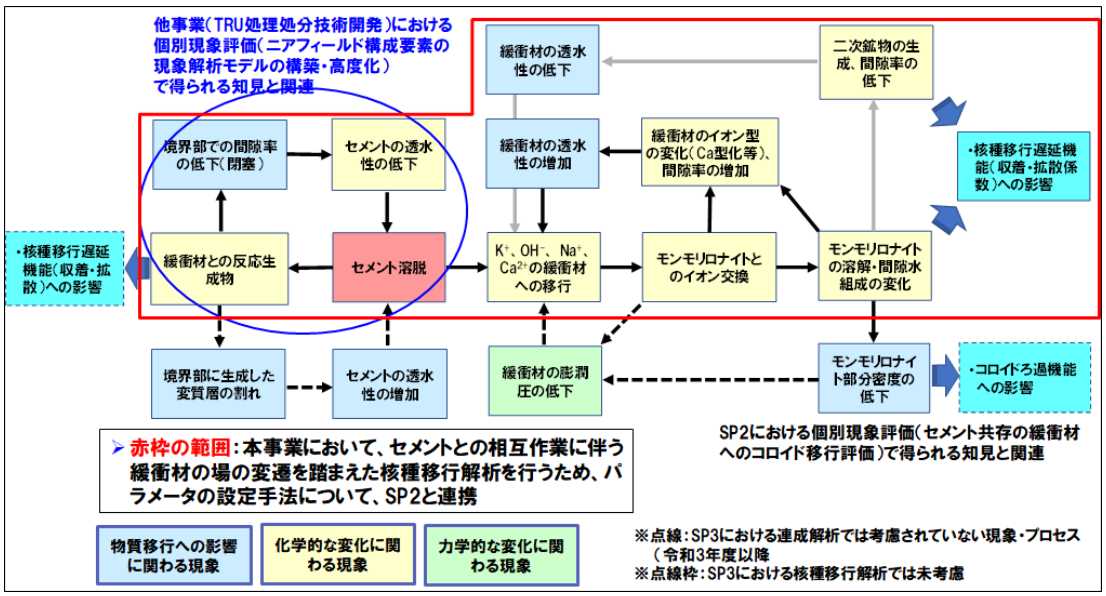


図4.2-7　セメントーベントナイト相互作用に関わるプロセスインフルエンスダイヤグラム

また、SP3と他のSPとの関係整理・連携の観点から、再整理された各々の相互作用に関わるPIDについて、SP1におけるオーバーパックや緩衝材を対象にした個別現象モデル開発・パラメータ

整備との関係やSP2におけるSP1の環境変遷を考慮した核種移行を評価するための個別現象モデル開発・パラメータ整備との関係について整理した。具体的には、鉄－ベントナイト相互作用に係るPID（図4.2-6）では、鉄影響に伴う緩衝材変質の起点となるオーバーパックの腐食とそれに付随する種々のプロセス・現象については、SP1におけるオーバーパックや緩衝材の変質挙動で得られる知見と関連し、SP3における複合現象を対象とした連成解析におけるモデルで用いられるデータや解析上の設定・仮定等にも反映され得るものである。また、オーバーパックの腐食生成物による核種移行遅延機能への影響については、SP2での腐食生成物によるSeの取り込みメカニズムの解明を通じて得られた知見と関連し、SP3におけるサブタスク2での状態変遷を踏まえた核種移行評価技術の開発において、Seの移行遅延をどのような形でモデル化し、核種移行解析に反映すべきかを検討するため、SP2とSP3との連携が重要となるものである。さらに、緩衝材中に拡散により移行した溶存Fe(II)イオンは、2価の核種であるNiの緩衝材中での収着に競合し、Niの移行遅延にも影響が生じる可能性がある。そのため、Niの収着競合に影響を及ぼすと想定される状態変遷（間隙水のpHや溶存Fe(II)イオン濃度等）を踏まえた核種移行パラメータの設定手法の開発をSP2と連携して進めることが必要となる。同様に、セメント－ベントナイト相互作用についても本事業で再整理したPID（図4.2-7）を用い、他のSPや別途実施されている他の事業で得られる知見等との関連を整理しつつ、必要に応じて連携を図りながら本事業における課題へ取り組んだ。

4.2.6 実施内容

(1) 水理・物質輸送－化学反応の連成解析の信頼性向上に向けた検討

サブタスク 1 で取り組む課題である「緩衝材の長期変遷挙動の予測」に関しては、閉鎖後長期の緩衝材を対象とした場合に不確実性の大きいと考えられる現象として、コンクリート支保と緩衝材及びオーバーパックと緩衝材の相互作用が想定されている（例えば、原子力発電環境整備機構・日本原子力研究開発機構, 2012）。これら相互作用に伴う影響が大きい連成現象としては、国内外での先行事例による評価では、主に水理・物質輸送－化学反応に着目した場合が多い（Gaucher et al., 2004；Wersin and Birgersson, 2014；小田ほか, 2013）。また、令和 2 年度には、本事業において開発を進めてきたプロトタイプシステムにおける解析コードの検証・確証に関わる現状を整理し、上述したようなバリア材料間の相互作用に係る水理・物質輸送－化学反応の連成解析に対して、検証・確証に関して部分的に不十分な点があることも認識された（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2021）。このため、サブタスク 1 においては、緩衝材の長期的変質挙動に関わる連成解析として、水理・物質輸送－化学反応に重点をおき、力学を含めた連成解析のための評価システムの改良は、水理・物質輸送－化学反応に係る連成解析の妥当性確認に概ね目途がついた段階で、再度取り組みを検討することとされた（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2021）。

上述したような開発方針の見直しを踏まえ、令和 3 年度は、プロトタイプの評価システムで用いられている水理・物質輸送－化学反応の解析モデルの妥当性確認の一環として、本事業で使用する解析コードである QPAC（Quintessa Ltd. 2013）を用いた緩衝材の長期的変質挙動に関わる連成解析結果を対象に、海外の専門家によるレビューを受けた（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2022）。レビューでは、セメント－ベントナイト及び鉄－ベントナイト相互作用に関わる類似した解析・評価を行った経験を有する海外の専門家により、緩衝材の長期変質に関して一般的な変遷として考えられている知見等との比較に基づきコメントを受け、今後見直すべき課題を整理した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2022）。令和 4 年度は、レビューコメントを踏まえ、セメント－ベントナイト及び鉄－

ベントナイト相互作用に関わるモデルの見直し等に関わる検討を行った。

また、令和 2 年度に実施した緩衝材の長期変質挙動に関わる連成解析（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2021）では、図 4.2-8 に示すように数万年以降は、セメント支保／緩衝材境界付近において緩衝材の変質が顕著になり、モンモリロナイトの残存量が著しく低下し、それに伴い透水係数も顕著に増加すると予想されている。一方、セメント支保／緩衝材境界付近での間隙率は、二次鉱物の沈殿に伴い低下し、数万年後にはセメント支保／緩衝材境界において間隙が閉塞する結果となっている。緩衝材部分の透水係数は、伊藤・三原（2005）により報じられた関係式（主に緩衝材中の Na 型モンモリロナイトの残存量や間隙率との関係に基づく経験式）が用いられており、このため、Na 型モンモリロナイトが消失すると透水係数は著しく上昇すると見積もられている。一方、緩衝材中の構成鉱物の時間変遷に関わる解析結果では、モンモリロナイトの溶解に伴い、二次鉱物として沸石類の生成が推定されている。生成する沸石類の種類によっては、モンモリロナイトのような粘土鉱物と同様に膨潤性を有する沸石類もあると考えられるため、緩衝材の変質に伴う透水係数の変化を評価する場合は、変質に伴い生成する二次鉱物の種類も考慮して評価する必要もある。そこで、令和 4 年度は緩衝材の変質に伴う透水性変化に関して、国内外での類似研究例を調査すると共に、本事業で適用した伊藤・三原（2005）による関係式に変わる代替式を用いた場合の連成解析も行い、緩衝材変質に伴う透水性評価の不確実性を試行的に把握することを検討した。また、これらの検討を踏まえつつ、SP3 における統合評価から個別現象評価へのフィードバックとして、緩衝材の変質に伴う状態変化と透水性との関係を理論的に評価可能な評価式の開発の必要性についても提言した。以下に、その成果を記す。

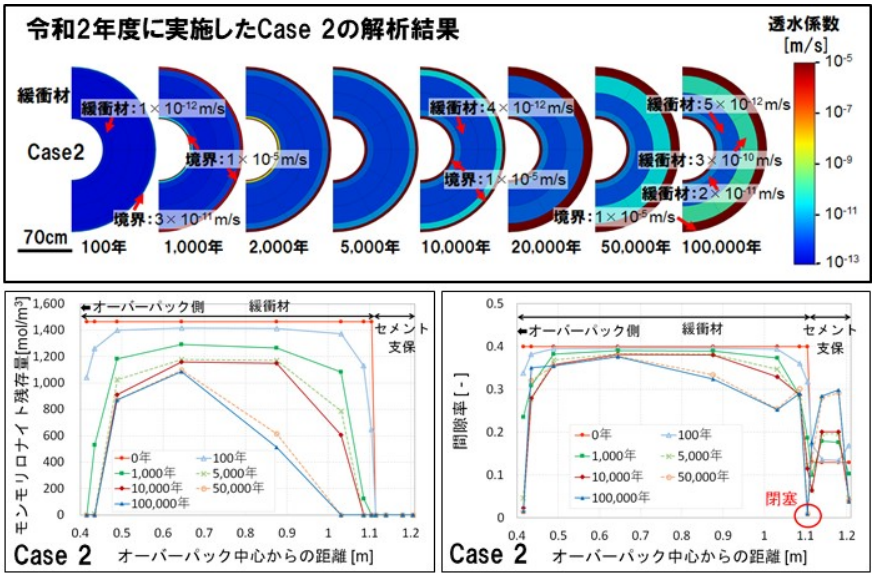


図4.2-8 令和2年度に実施された緩衝材の長期変質挙動に関わる連成解析結果の例（相対的に緩衝材変質の大きい場合：Case 2の結果）
（日本原子力研究開発機構･原子力環境整備促進･資金管理センター, 2021をもとに改変）

1) 海外専門家によるレビューを踏まえたモデルの見直し・妥当性確認

令和3年度に実施した海外専門家によるレビュー（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2022）では、セメントーベントナイト及び鉄ーベントナイト相互作用に関わるモデル化の観点で、幾つかの重要なコメントを得た。令和4年度は、これらのうち、セメントーベントナイト相互作用に関わるコメントとして2点（連成解析における石英の溶解・沈殿反応の

取り扱い、二次鉱物として沈殿が想定されている沸石類の沈殿反応に関わる速度論的取り扱い）、鉄ーベントナイト相互作用に関わるコメントとして1点（二次鉱物の設定に関わる見直し）についてモデルの見直し等を図り、見直しを反映した再解析を行った。

① 連成解析における石英の溶解・沈殿反応の取り扱い

令和3年度におけるレビュー（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2022）では、緩衝材の長期変質挙動に関わる連成解析結果において、初期に緩衝材中の随伴鉱物として存在していた玉髄（Chalcedony）が反応の進行に伴い溶解し、より安定なシリカ相である石英（Quartz）として沈殿しているとのコメントがあった。令和2年度に実施された解析では、温度条件は25℃であり、数千年程度で石英が沈殿するのは想定し難く、溶存シリカ濃度は、モンモリロナイトの安定性（溶解）にも影響を与えるため、シリカ鉱物の溶解・沈殿の取り扱いには、注意が必要とのことであった。上記のコメントを踏まえ、令和4年度は、まず解析で使用した石英の溶解・沈殿反応の速度式の適用条件（例えば、速度式が適用可能なpHの範囲等）について確認した。

石英の溶解・沈殿反応の速度式は、先行事業である平成25年度のセメント材料影響評価技術高度化開発（日本原子力研究開発機構, 2014）において見直された。具体的には、まず鉱物の溶解速度に関わるパラメータをコンパイルしたPalandri and Kharaka（2004）の報告書に記載されている石英の溶解速度に関わるパラメータやその導出元になった論文を確認した。その後、アルカリ性側での溶解速度としてより適切であると推定された論文（Wollast and Chou, 1988 ; Brady and Walther, 1990）のデータを加え、アルカリ性条件でのパラメータが見直された。溶解速度式が適用可能なpHは、pH 6からpH 12程度の範囲であり、本事業で対象とする緩衝材の長期変質挙動の予測においてセメントーベントナイト相互作用に伴い変化すると想定されるpHの範囲で適用可能であると考えられる。一方、沈殿速度は、溶解速度の裏返しで、溶液組成が石英に対して過飽和になった場合、溶解速度の絶対値で沈殿するという仮定に基づいた取り扱いが行われており、実験値に基づいて導出されたパラメータではない。レビューコメントにもあった通り、令和2年度に実施された解析では、温度条件は25℃であるため、結晶性の石英の沈殿を想定するのは、一般的な地球化学的知見と照らし合わせても妥当とは言い難い。このため、解析上石英については溶解反応のみを考慮し、沈殿は考慮しないという仮定を設けて再解析を行うこととした。

図4.2-9に令和2年度に実施されたCase 2（相対的に緩衝材変質の大きい場合）の解析ケースを対象に、石英の溶解と沈殿反応を考慮した場合（令和2年度の解析）と石英の溶解反応のみを考慮した場合（令和4年度の解析）の緩衝材中間隙水のpHの経時変化を比較した結果を示す。

図4.2-9には、緩衝材内側（オーバーパック側）から緩衝材外側（セメント支保側）の8箇所における間隙水pHの経時変化を示してある。この図を見ると、石英の溶解と沈殿反応を考慮した場合、緩衝材中において2万年から3万年程度までは、時間の経過と共にpHが低下する傾向（緩衝材内側では、一旦、pHが少し上昇した後に低下）が認められるが、その後、pHが上昇することが判る。一方、石英の溶解反応のみを考慮した場合、10万年程度までは、緩衝材中の間隙水pHは、時間の経過と共に全体的にpHは低下する傾向が認められ、石英の溶解と沈殿反応を考慮した場合とはpHの変化の傾向が異なる。そこで、セメントーベントナイト相互作用を対象にした諸外国における類似解析事例を対象に文献調査を行い、類似した解析での緩衝材中の間隙水pHの変化の傾向について確認した。

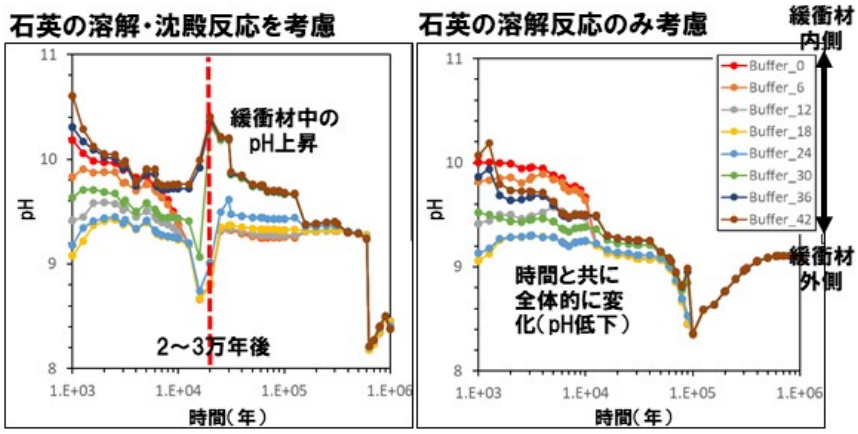


図4.2-9　石英の溶解・沈殿反応または石英の溶解反応のみを考慮した場合の緩衝材中間隙水のpHの経時変化の比較（相対的に緩衝材変質の大きい場合：Case 2の結果）

文献調査の結果、例えば、De Windt et al.（2008）によるセメントー粘土層の相互作用を対象にした解析やMon et al.（2017）によるセメントーベントナイト及び鉄ーベントナイト相互作用を対象にした解析では、緩衝材中の間隙水pHは、反応の初期段階で上昇するものの、時間の経過と共に全体的に低下する傾向が示されている。これは、4.2.4節のシナリオ例の中で述べたようにセメントーベントナイト相互作用であれば、セメント浸出水に由来する水酸基が緩衝材中の珪酸・アルミノ珪酸塩鉱物の溶解により水酸基が消費され、溶液のpHが中性化する方向に変化するためである。しかしながら、令和2年度に実施された石英の溶解と沈殿反応を考慮した解析では、このような中性化が進行した後に間隙水のpHが再度上昇するという結果となった。このような結果となった要因を検討するため、3万年程度経過後の緩衝材中における構成鉱物について、石英の溶解と沈殿反応を考慮した場合と石英の溶解反応のみを考慮した場合とで比較した。比較の結果を図4.2-10に示す。

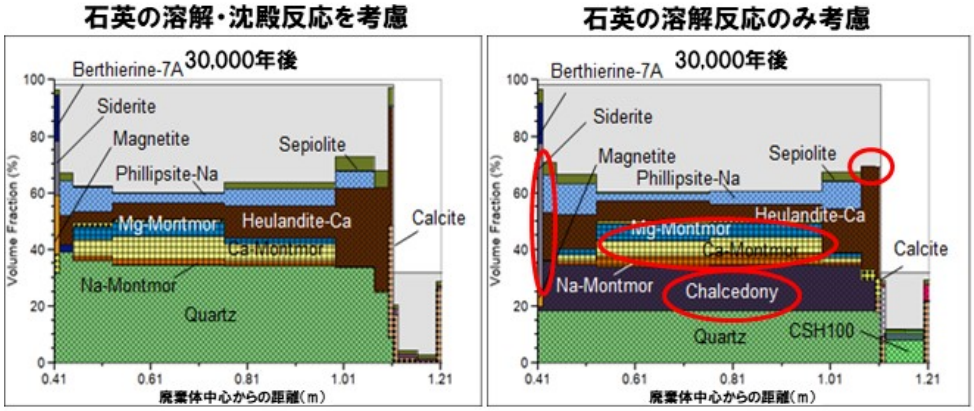


図4.2-10　石英の溶解・沈殿反応または石英の溶解反応のみを考慮した場合の緩衝材中における構成鉱物の比較（相対的に緩衝材変質の大きい場合：Case 2の結果、3万年後）。図中の赤丸は、石英の沈殿反応を考慮しないことで変化が生じた主な箇所を示す。

令和2年度に実施された石英の溶解と沈殿反応を考慮した場合の解析結果では、3万年程度経過後には、初期に緩衝材中の随伴鉱物として存在していた玉髄が消失し、その代わりに石英の存在量が増加していることが判る。一方、令和4年度に実施した石英の溶解反応のみを考慮した場合の

解析結果では、3万年程度経過後でも玉髄は残存しており、石英の存在量は初期状態と変化は無かった。また、令和2年度と令和4年度の解析結果を比較すると、緩衝材中のモンモリロナイトの残存量にも違いが見られ、石英の溶解反応のみを考慮した場合の方がモンモリロナイトの残存量が多く、二次鉱物として沈殿する沸石類の生成量も少ない。さらに、セメント支保／緩衝材境界での間隙率やオーバーパック／緩衝材境界における二次鉱物の生成割合にも相違が認められた。このように、石英の溶解・沈殿反応の取り扱いは、緩衝材中の間隙水pHの経時変化や構成鉱物の時間変遷にも大きく影響し、また、異種材料間の境界における状態変化にも影響を与える。このため、特に石英の沈殿反応については、対象とする解析条件と照らし合わせて、沈殿反応を考慮することの妥当性を十分に吟味した上で連成解析に反映することが重要である。

② 沸石類の沈殿反応に関わる速度論的取り扱い

令和3年度におけるレビュー（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2022）では、緩衝材の長期変質挙動に関わる連成解析結果において、比較的短期（おおよそ100年程度）で、セメント影響に伴い、緩衝材の全域にわたりNa型フィリップサイトが生じているのは現実的な解析結果には思えないため、その要因を確認した方が良いとのコメントがあった。上記のコメントを踏まえ、令和2年度に実施した解析を対象にNa型フィリップサイトの生成の時間変遷について詳細に確認した。図4.2-11に令和2年度に実施されたCase 2の解析を一例に、20年程度までの緩衝材中の構成鉱物の時間変遷を整理した結果を示す。なお、図4.2-11はNa型フィリップサイトの生成と関連性のある鉱物（方沸石：analcime及びモンモリロナイト）との関連に主に着目して確認するため、緩衝材中の構成鉱物の一部分の時間変遷のみを切り出して示してある。

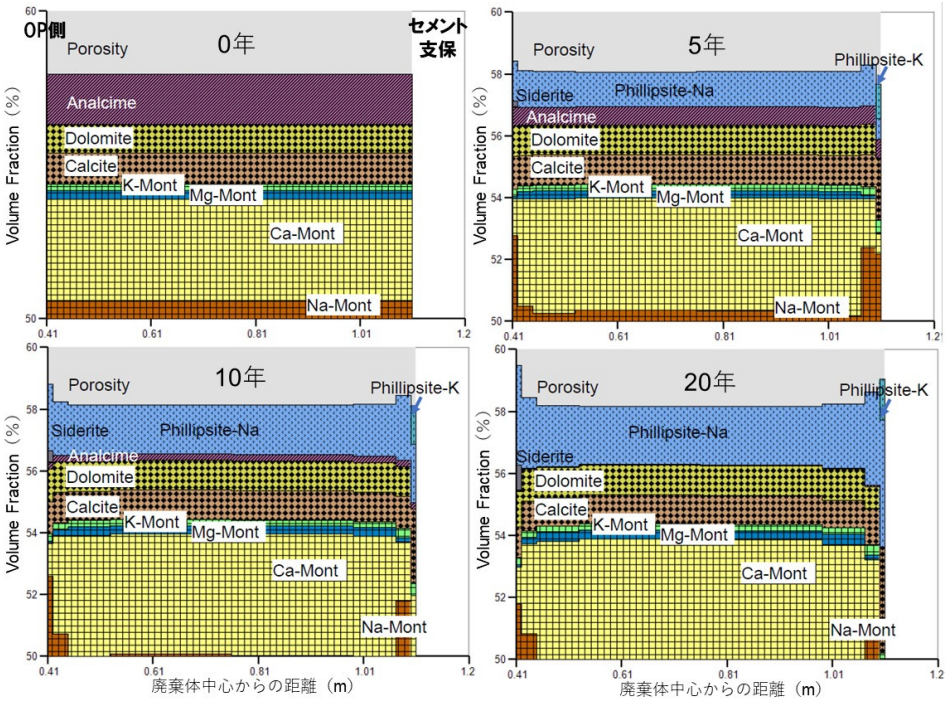


図4.2-11 緩衝材中の構成鉱物の時間変遷（令和2年度に実施されたCase 2の解析例）

初期の緩衝材中には、随伴鉱物として沸石類の一つである方沸石が存在する。令和2年度の解析では、セメントーベントナイト相互作用に伴う鉱物学的長期変遷シナリオとして、準安定相である灰十字沸石（フィリップサイト：phillipsite）やクリノプチロル沸石（clinoptilolite）をセメン

ト影響に伴う二次鉱物として考慮し、安定相である方沸石については、二次鉱物としての生成は考慮しなかった（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2021）。このため、初期の緩衝材中に含まれる間隙水との反応に伴い、方沸石が溶解し、その準安定相の一つに相当するフィリップサイトが生成する結果となった。令和2年度のCase 2の解析において、比較的短期にNa型フィリップサイトが緩衝材の全域にわたり生じていたのは、セメント影響に伴う変化ではなく、鉱物学的長期変遷シナリオにおける仮定（設定）の影響であったと考えられる。ちなみに、随伴鉱物として緩衝材中に初期に存在した方沸石は、概ね20年程度で全てNa型フィリップサイトへと変化した。一方、セメント影響に伴う沸石類の生成（沈殿）としては、セメント支保近傍においてモンモリロナイトの溶解が進行し、二次鉱物としてK型やNa型フィリップサイトが生成している。これらの沸石類の生成は、セメント支保の劣化に伴い生じた高pH溶液により、緩衝材中のモンモリロナイトが溶解したことに起因し、数千年以上に亘り、徐々に緩衝材内部に影響が進展していた。鉱物変遷は仮定と整合していることから、モンモリロナイト及び沸石類の溶解・沈殿を速度論的に扱った妥当な解析結果であると考えられる。

③ 鉄－ベントナイト相互作用における二次鉱物の設定に関わる見直し

令和3年度におけるレビュー（日本原子力研究開発機構･原子力環境整備促進･資金管理センター, 2022）では、鉄－ベントナイト相互作用に伴い生成が想定される二次鉱物として、鉄ケイ酸塩鉱物や1:1型の鉄含有粘土鉱物より、むしろ、Fe(II)に富んだサポナイトのような2:1型の粘土鉱物を考慮すべきであるとのコメントがあった。上記のコメントを踏まえ、令和2年度に実施されたCase2の解析における溶液条件（pH, Fe^{2+}, $SiO_{2(aq)}$）を確認し、熱力学的に安定と想定される固相を再確認した。再確認にあたっては、Wilson et al.（2015）による溶液のpHや溶液中のFe^{2+}及び$SiO_{2(aq)}$の活量に基づき、熱力学的に安定な固相を推定した活量度図を用い、Case 2の解析における溶液条件をプロットすることで、安定固相を確認した。その結果、溶液中の$SiO_{2(aq)}$濃度が石英の溶解度よりも小さい場合、1:1型の鉄含有粘土鉱物であるバーチェリンが安定固相となるが、石英の溶解度よりも大きい場合、2:1型の粘土鉱物であるサポナイトが安定固相になる。Case 2の解析における溶液条件でのlog a SiO_2(aq)は-3.5程度となることから、熱力学的な安定固相は、サポナイトであった。そこで、鉄－ベントナイト相互作用に伴い生成が想定される二次鉱物として、バーチェリンに代わり、サポナイトを想定し、再解析を行った。再解析の結果の一例（1,000年後）を図4.2-12に示す。

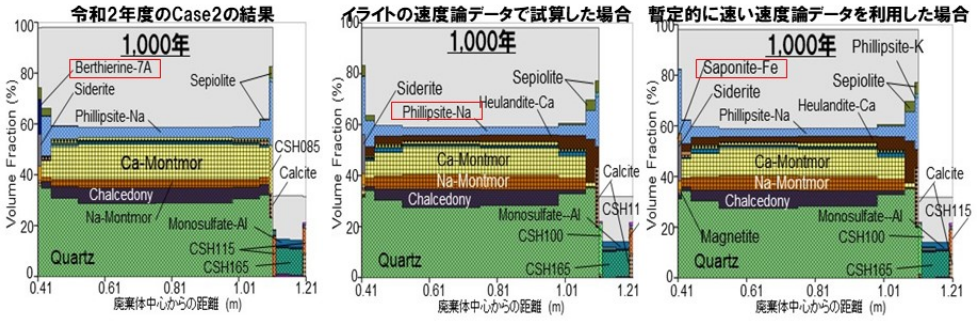


図4.2-12 鉄－ベントナイト相互作用に伴う二次鉱物の設定前後での解析結果の比較
（左図：二次鉱物としてバーチェリンを想定した場合、中心図：バーチェリンに代わりサポナイトを想定した場合・イライトの速度論データで代用した場合、右図：バーチェリンに代わりサポナイトを想定した場合・暫定的にサポナイトの沈殿速度を速くした場合）

サポナイトの溶解と沈殿に関わる速度論パラメータ（反応速度定数、pH依存性に関わるパラメータ等）が欠落していたため、ここでは、まずイライトの速度論パラメータ（Köhler et al., 2003）で代用し、解析を行った。その結果、オーバーパック近傍での二次鉱物としては令和2年度の解析で認められた磁鉄鉱及び菱鉄鉱石に加え、フィリップサイトが生成する結果となった。これは、二次鉱物としてバーチェリン（Fe, Al及びSiを主成分とする鉄含有粘土鉱物）の生成を考慮しなかったことにより、オーバーパックの腐食に伴い生じたFeは、磁鉄鉱または菱鉄鉱の生成に寄与し、モンモリロナイトの溶解に伴い生じたAl及びSiは、フィリップサイトの生成に寄与したためと推定された。1,000年以降の解析でも、サポナイトの生成は生じなかったため、イライトの速度論パラメータでは沈殿速度が遅く、サポナイトの生成を解析で模擬できなかった。このため、暫定的に速度論データを見直し、見かけ上、サポナイトの沈殿が速くなるような条件設定を行い、再度解析を試みた。その結果、フィリップサイトと共に、少量のサポナイトも生成する結果となった。しかしながら、現状では、サポナイトの溶解と沈殿に関わる速度論パラメータが欠落しており、今回試みた解析が適切であるかは不明である。このため、バーチェリンの代わりにサポナイトを二次鉱物として想定した場合の鉄影響による緩衝材の変質影響の度合いについても適切な検討は難しいと考えられる。今後は、文献調査等により、サポナイトの溶解と沈殿に関わる適切な速度論パラメータの収集し、再度検討を行うことが必要である。また、サポナイトに関わる適切な速度論パラメータが欠落している場合、代替しての利用可能性が高い速度論パラメータ（例えば、サポナイトと同様の2：1型の粘土鉱物であるスメクタイトの速度論パラメータ等）の利用について検討することも重要である。

2) 統合化評価から個別現象評価へのフィードバックに関わる検討

令和2年度における検討では、平成31年度までに開発した評価システムのプロトタイプにおける水理・物質輸送－化学反応に係る連成解析コード（QPAC）を用いて、緩衝材の長期的変質挙動に関わる連成解析の詳細な結果を示すと共に、その結果をもとに緩衝材に期待される機能の変化との関係（例えば、緩衝材に期待される機能の一つである「低透水性」について、緩衝材の変質に伴う透水係数分布の変化と低透水性と見なされる基準との関係等）をどのような形で評価可能かについて試行された（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2021）。令和2年度の試行では、緩衝材部分の透水係数は、伊藤・三原（2005）により報じられた関係式（主に緩衝材中のNa型モンモリロナイトの残存量や間隙率との関係に基づく経験式）が用いられた。このため、Na型モンモリロナイトが消失すると透水係数は著しく上昇すると見積もられた。一方、緩衝材中の構成鉱物の時間変遷に関わる解析結果では、モンモリロナイトの溶解に伴い、二次鉱物として沸石類の生成が推定されている。生成する沸石類の種類によっては、モンモリロナイトのような粘土鉱物と同様に膨潤性を有する沸石類もあると考えられるため、緩衝材の変質に伴う透水係数の変化を評価する場合は、変質に伴い生成する二次鉱物の種類も考慮して評価することも必要であることが示唆された（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2021）。また、二次鉱物の生成に伴い間隙率の低下も生じるが伊藤・三原（2005）による関係式では、透水係数の上限値は主にNa型モンモリロナイトの残存量に依存し、二次鉱物の生成に伴う間隙率の低下と透水係数への影響に関わる効果は小さい。このため、緩衝材の長期変質挙動に関わる解析結果の条件に、伊藤・三原（2005）による関係式をそのまま適用するのが適切かどうかについては、改めて確認が必要な課題でもある。このような課題が生じるのは、伊藤・三原（2005）により導出された関係式が得られた試験条件と、令和2年度に対象とされた緩衝材の長期変質挙動に関わる解析結果から推定される条件が異なることによる。すなわち、個別現象評価において検討されたある特定の試験条件で得られた経験的な関係式をSP3で行われるような複合

現象を対象とした長期影響評価の解析に取り込む際には、経験的な関係式の適用条件を予め十分に吟味しておくことが重要になる。

そこで、令和4年度の検討では、令和2年度に実施された緩衝材の長期変質挙動に関わる連成解析を対象とし、セメント支保の影響に伴う緩衝材の長期変質挙動評価への反映を目的に実施された室内試験（アルカリ条件下において変質したベントナイト系緩衝材の透水係数評価手法検討のための試験：澤口ほか、2015；Yamaguchi et al., 2018）で得られた透水係数の評価式を伊藤・三原（2005）による関係式の代替式として利用し、緩衝材の変質に伴う透水係数分布の変化を再評価した。また、Yamaguchi et al.（2018）による透水性評価式の場合と伊藤・三原（2005）による関係式の場合とで、緩衝材の変質に伴う透水係数分布の変化に関わる評価結果を比較し、このような個別現象評価で得られた異なる評価式・関係式の適用により、複合現象を対象とした長期影響評価の解析において、透水係数分布の推定結果にどの程度の不確実性が生じるかについても整理した。さらに、SP3で行われるような統合評価への反映を念頭にした場合、解析条件により様々な状態変化が生じることが想定されるが、その様な状態変化に適切に対応し得る様な評価式の整備も必要になると考えられる。ここでは、緩衝材の変質に伴う透水性評価を一例とし、SP3における統合評価から個別現象評価へのフィードバックとして、緩衝材の変質に伴う状態変化と透水性との関係を理論的に評価可能な評価式の開発の必要性についても提言した。以下に、各々の実施内容について述べる。

① 緩衝材の変質に伴う透水性評価の代替式

Na型ベントナイト（クニゲルV1）とケイ砂を混合させた圧縮体を対象に、有効モンモリロナイト密度を40～870 kg/m^3、イオン強度を0～1 mol/Lとした条件で透水試験を実施し、イオン強度、有効モンモリロナイト密度及び温度をパラメータとした透水係数評価式が整備された（Yamaguchi et al., 2007）。得られた評価式は、以下の通りである。

$$K = 1.2\times10^{-7}\,Is^{1.5}\,10^{-0.0042\rho_m}\,(7.9\times10^{-5}\,T^2-1.9\times10^{-2}\,T-0.21) \qquad (4.2\text{-}1)$$

ここで、Kは透水係数（m/s）、ρ_mは有効モンモリロナイト密度（kg/m^3）、Isはイオン強度（mo/L）、Tは絶対温度（K）である。

上式を基に、澤口ら（2015）やYamaguchi et al.（2018）では、拡散場でアルカリ溶液により変質させた圧縮体を用い、透水係数を系統的に実施し、アルカリ溶液による変質を受けた緩衝材に対する透水係数評価式の適用範囲を整理した。例えば、アルカリ変質後の試料に対する透水試験の際、通水溶液のイオン強度が0.1 mol/L未満の場合、透水係数評価式による透水係数の推定値は実験値よりも低くなることや、アルカリ変質に伴いモンモリロナイトの含有量が減少するとイオン強度依存性が小さくなり、透水係数の推定値と実験値が乖離すること等も整理され、緩衝材の変質を対象とした場合の透水性評価式の適用にあたっての留意事項（モンモリロナイトの含有量が減少すると、間隙構造の変化が透水係数にも影響する可能性があること、二次鉱物の生成が透水係数に与える影響は考慮されていないこと等）も示された。このような留意事項を踏まえつつ、上述した透水性評価式の適用範囲として、有効モンモリロナイト密度：0～900 kg/m^3、イオン強度：0.1～1.0 mol/Lの範囲とし、透水係数の最大値は、1.9×10^{-8}（$7.9\times10^{-5}\,T^2-1.9\times10^{-2}\,T-0.21$）m/s（40℃における透水係数$3.0\times10^{-8}$ m/sを参考に設定）とすること、また0.1 mol/Lの低イオン強度の場合は、0.1 mol/Lの場合の透水係数を適用することが示された。

② 透水性評価の代替式による透水係数分布の再評価

令和2年度に行われた相対的に緩衝材への変質影響の大きいCase 2を対象に、伊藤・三原（2005）による関係式の場合とYamaguchi et al.（2018）による透水性評価式の場合とで、緩衝材の変質

に伴う透水係数分布の推定に関わる解析結果を比較した（図4.2-13）。伊藤・三原（2005）による関係式を用いた令和2年度の解析結果では、変質前の初期の透水係数は10^{-12} m/sのオーダーであり、時間の経過と伴にオーバーパックと接する緩衝材内側やセメント支保と接する緩衝材外側の部分で透水係数が大きくなり、透水係数は式の上限である10^{-5} m/sのオーダーまで増加する。一方、Yamaguchi et al.（2018）による評価式では、変質前の初期の透水係数は10^{-11} m/sのオーダーであり、時間の経過と伴にオーバーパックと接する緩衝材内側やセメント支保と接する緩衝材外側の部分で透水係数が大きくなるものの、透水係数は10^{-9} m/sのオーダーまでの増加に留まる。緩衝材の長期変質挙動に関わる解析結果に対し、これらの関係式・評価式の適用が適切であるかどうかについては、現状では言及できないものの、緩衝材の変質に伴う透水性分布の評価をこのような経験式に基づき評価をすると、変質が進んだ状態での透水係数の推定値として、最大で4桁程度の不確実性が生じる可能性があることが示唆された。

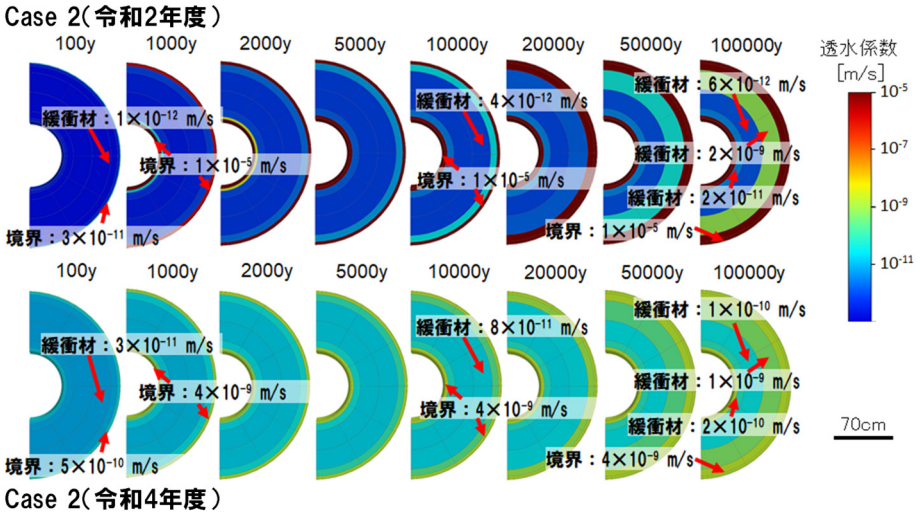


図4.2-13　緩衝材の変質に伴う透水係数分布の比較（上図：伊藤・三原（2005）による関係式での解析結果、下図：Yamaguchi et al.（2018）による評価式での解析結果）

③　個別現象評価へのフィードバック

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

地盤工学等の分野では、土質材料を対象に間隙率と透水性の理論的評価をKozeny-Carman（KC）式をベースに幅広く、その適用性検討が進められている。KC式は、従来、砂質土のような膨潤性を有さない鉱物からなる媒体を対象に適用性確認が行われてきたが、近年、粘土鉱物のような膨潤性を有する鉱物を含む媒体も含め、KC式を修正する形でその適用性検討が進められている（例えば、Kobayashi et al., 2017；Ren and Sanatamarina, 2018；Ruan and Fu, 2022）。緩衝材として用いられる圧縮ベントナイトのように、膨潤性の粘土鉱物であるモンモリロナイトを多く含む媒体では、従来のKC式をもとに透水係数を評価すると、実測値に比べて3～5桁程度透水性を過大に評価する（KC式による計算値の方が実測値に比べて大きいということ）（Ruan and Fu, 2022）。

このため、圧縮ベントナイト中での間隙構造の区分（粒子間、層間）や飽和浸潤過程における比表面積の変化等を考慮し、KC式の修正が試みられている。例えば、Ruan and Fu（2022）におけるKunigel V1を対象とした乾燥密度と透水性の相関に対しては、修正KC式を用いることで、従来のKC式の場合よりも透水性の過大評価の程度は低減されるものの、それでも実測値に対し、2桁程度、透水性を過大評価する結果となる。一方、Ren and Santamarina（2018）では、ベントナイトを含む様々な多孔質媒体を対象とし、mean pore size（間隙比と比表面積から評価）を用いてKC式を修正し、修正KC式による透水性の評価が行われている。Ren and Santamarina（2018）の例では、彼らの修正KC式を適用することで多様な多孔質媒体に対し、幅広い透水性の範囲（10^{-11} cm/sから10^{-2} cm/s）において、実測値に対して概ね5倍ないしは1/5程度の範囲で整合することが報じられている。このように、圧縮ベントナイトへの適用を視野に、KC式の拡張を図るような検討も進められているが、変質した圧縮ベントナイトのような媒体に対しての適用可能性については、現状では不明であり、今後の検討が望まれる。また、SP3のような核種移行評価を含む統合評価への反映を想定した場合、圧縮ベントナイト中での間隙構造の区分や比表面積の変化等をモデルとして取り組むことも必要になると考えられる。

3) モデル等の見直し前後における緩衝材の状態変遷評価の比較

上述した通り、令和2年度に実施した緩衝材の長期変質挙動に関わる連成解析結果に対する海外の専門家によるレビューコメント等を踏まえ、令和4年度はモデル等の見直しを図り、長期変質挙動に関わる再解析を行った。表4.2-2に令和2年度と令和4年度での緩衝材の状態変遷評価におけるモデルの違いを整理した。

表4.2-2 令和2年度と令和4年度での緩衝材の状態変遷評価におけるモデル等の違い

Case2を対象	石英の溶解・沈殿反応の取り扱い	緩衝材の変質に伴う透水性評価の代替式の適用	鉄影響に伴う二次鉱物の選定
令和2年度の解析	溶解・沈殿反応を考慮	伊藤・三原（2005）による評価式	1:1型粘土鉱物（バーチェリン）
令和4年度の解析	溶解反応のみを考慮	Yamaguchi et al.（2018）による評価式	2:1型粘土鉱物（サポナイト）※

※なお、令和4年度に実施した全てのモデル等を反映した解析では、サポナイトの生成（沈殿）速度の設定に課題があり、バーチェリンに代わり、フィリップサイトやシデライト等が生成する結果を示してある。

また、令和4年度の見直したモデル等を全て考慮した場合の緩衝材の状態変遷評価の結果（緩衝材及びセメント支保における構成鉱物、間隙水のpH及びモンモリロナイトの残存量）について、令和2年度の場合と比較した結果を各々、図4.2-14及び図4.2-15に示した。令和4年度に実施したモデル等の見直しにより、令和2年度の場合の解析結果と比較すると、緩衝材中での間隙水pHの全体的な経時変化の傾向、緩衝材中での構成鉱物（石英、玉髄、モンモリロナイト）の経時変化、オーバーパック近傍における二次鉱物の時間変遷、セメント支保と緩衝材の境界部における間隙率の経時変化等に違いが認められた。なお、モデルの見直しを個々に行った解析も実施し、それによると表4.2-2に示したモデル等の見直しの中で緩衝材の状態変遷評価への影響が相対的に大きかったのは、石英の沈殿反応の考慮の有無であった。

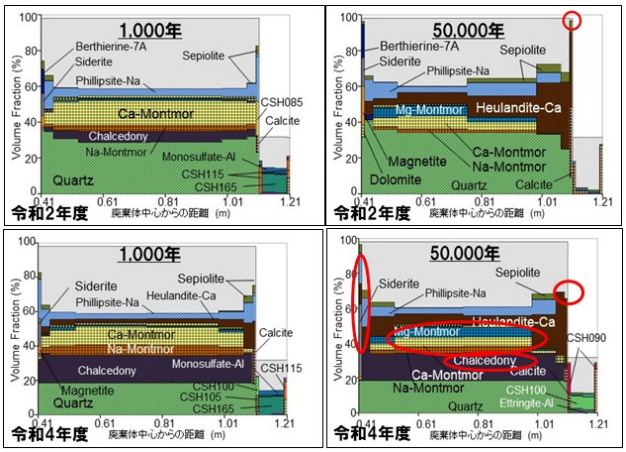


図4.2-14　緩衝材の状態変遷評価結果（緩衝材及びセメント支保における構成鉱物）の比較
（上図：令和2年度、下図：令和4年度）

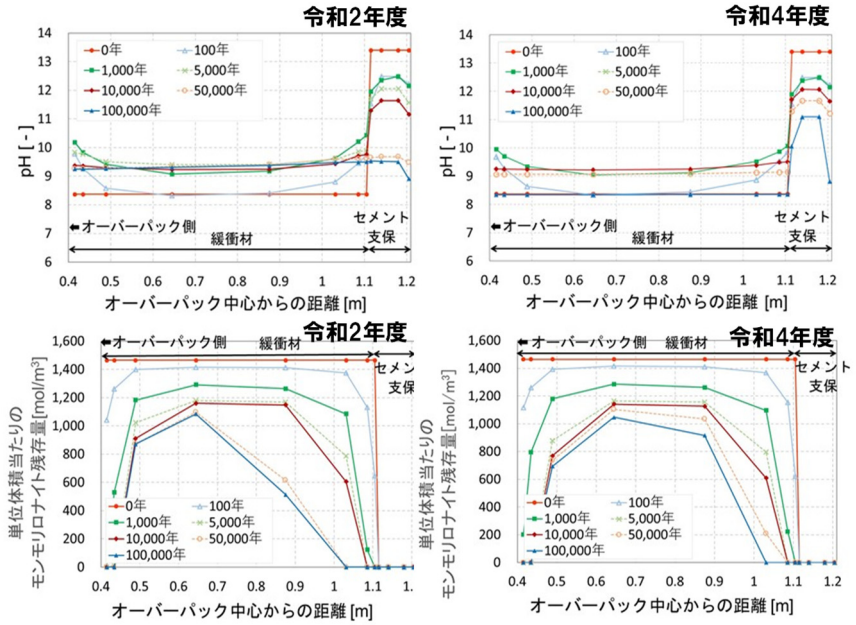


図4.2-15　緩衝材の状態変遷評価結果（間隙水のpH及びモンモリロナイトの残存量の比較
（左図：令和2年度、右図：令和4年度）

(2) 統合化評価に関わる最新の動向・現状を踏まえた課題の整理

前述した通り、SP3のサブタスク1における統合化評価では、処分場閉鎖後長期を対象に「緩衝材の長期変遷挙動の予測」を優先的に取り組む課題として検討を進め、その中で緩衝材の状態変遷に顕著な影響を及ぼす可能性のある現象として、「鉄ーベントナイト相互作用」及び「セメントーベントナイト相互作用」を対象とした。オーバーパック材料の候補材である鉄、緩衝材の候補材であるベントナイト、坑道等の支保工としての利用が想定されているセメントについては、放射性廃棄物の地層処分における人工バリア材として、我が国だけでなく、諸外国においても各々の国における処分概念の中で、これらの材料の利用が想定されている。緩衝材であるベントナイトと鉄またはセメントとの相互作用については、サブタスク1で実施された緩衝材の長期変質挙動の予測に関わる解析例でも示されたように、処分場閉鎖後長期の時間を対象とした場合、遅い反応ではあるもののモンモリロナイトの溶解等の影響は無視できず、例えば地層処分システムの安全機能の一つである「放射性物質の移行抑制」への影響が懸念される場合もあり得ると考えられ

る。このため、これらの相互作用に伴い生じる現象・プロセスの理解と長期変質挙動を評価する上で必要となるモデル化の観点で、これまでに諸外国においても多数の調査・解析等が行われている。そこで、これらの相互作用を対象に諸外国における類似した近年の研究の動向や現状について、文献調査により情報を整理する共に、本事業における5か年の実施内容を踏まえた成果と抽出された課題とも照らし合わせて、今後の課題について整理した。

まず、鉄ーベントナイト相互作用を対象にした情報整理の結果等について記す。文献調査の対象とした海外における報告書としては、Savage（2012）及びJennie et al.（2019）の2件を選定した。前者は、フィンランドにおける規制当局であるSTUK（フィンランド放射線・原子力安全庁）が発行する報告書である。この報告書の中では、処分場での利用が想定される様々な材料間での相互作用を対象に、T-H-M-C-B（Bは微生物影響を表す）の連成モデルへの将来的な見通しや期待を含め、現状と課題が整理されている。このため、後述のセメントーベントナイト相互作用を対象にした文献調査でも同報告書を対象にした。後者は、スイスにおける放射性廃棄物処分の実施主体であるNagraが発行する報告書である。この報告書では、処分場で想定される地球化学的な現象・プロセスがベントナイトに期待される安全機能に及ぼす影響について評価した内容がまとめられている。この報告書は、Savage（2012）よりも比較的最近の知見等も含まれており、また評価（モデル化）の観点でセメントーベントナイト相互作用とも共通する内容が整理されており、両相互作用に反映できる知見の整理が可能なため、文献調査の対象とした。これらの報告書を基に、鉄ーベントナイト相互作用を対象に現象・プロセスの理解の観点及びモデル化の観点から、各々、現状の理解或いはモデル化に関わる現状、今後の課題について整理した。整理の結果を表4.2-3及び表4.2-4に示す。

表4.2-3 鉄ーベントナイト相互作用に関わる文献調査結果 その1（Savage, 2012）

現象・プロセスの理解の観点	**現象・プロセスに関わる理解の現状と今後の課題**
	【現状の理解】 鉄-ベントナイト相互作用に伴い生成する二次鉱物の種類や量については、既往の報告では様々なケースが存在し、不確実性が大きい項目の一つ。様々なケースが生じているのは、試験条件（試験期間、温度、水／粘土比、粘土組成、溶液条件）の違いが大きな要因であると考えられている。 例えば、高温条件（＞250℃）では、緑泥石が主に生成するが、より低温の条件では、初期の粘土組成、水／粘土比に応じて、バーチェリン、オーディナイト、クロンステダイト及びFeに富んだスメクタイトが生成する。このような条件の違いにより生成物に違いが生じるのは、オストワルド段階則による速度論的な影響によると考えられている。 【今後の課題】 鉄-ベントナイト相互作用に関わる室内試験やナチュラルアナログ（ただし、自然界には金属鉄の存在は稀なため、完全なアナログとしての利用は困難な場合が多い）で得られた様々なデータを対象に、各々のデータが意味するところを理解・解釈すると共に、それらを統合させ、モデル化における予測評価に反映可能な知見や情報として整理することが必要である。
モデル化の観点	**モデル化に関わる現状と今後の課題**
	【モデル化に関わる現状】 鉄-ベントナイト相互作用に伴い生じる現象は、非線形性が強いため、様々なプロセスを連成させてモデル化することが重要になる。 鉄-ベントナイト相互作用に関わる長期的なモデル化の事例では、鉄影響に伴う鉱物学的変遷が生じる範囲は、数cm程度に留まる可能性を示唆する結果もあるが、そのような解析では、ベントナイトの物理的特性の時間的変化（例えば、鉄-ベントナイト相互作用に伴い生じる非膨潤性鉱物の影響による透水性の増加や鉄腐食生成物によるセメンテーションの影響等）が考慮されていない。 【今後の課題】 鉄-ベントナイト相互作用に伴い生じる二次鉱物の速度論的評価は、モデル化の観点でも重要な課題の一つである。また、オーバーパックの腐食に伴い生じる水素ガスによる物質移行（ガス移行）や化学反応への影響（SO_4の還元等）のモデルへの取り込みも今後の課題である。

表4.2-4 鉄－ベントナイト相互作用に関わる文献調査結果 その2（Jennie et al., 2019）

現象・プロセスの理解の観点	**現象・プロセスに関わる理解の現状と今後の課題**
	【現状の理解】 ①緩衝材が飽和に至るまでの期間 炭素鋼の腐食に伴い生じるFeの化学種は、腐食生成物の生成や粘土との反応に寄与する。初期の酸化的な環境では、Fe (III) の水酸化／酸化物が沈殿するが、その後の嫌気的な条件ではFe (II) を含む鉱物（磁鉄鉱や菱鉄鉱）が腐食生成物として生成する。また、Fe (II) はベントナイト中にも拡散し、粘土鉱物への収着／沈殿や酸化還元プロセスにも影響を与える。ただし、これらの相互作用の詳細は、まだ、十分には解明されていない。これらの作用の中には、粘土鉱物中のFe (III) の還元に伴う不安定化やFeに富む他の粘土鉱物（Feスメクタイトやバーチェリン）への変化等も含まれる。しかしながら、飽和に至るまでの限られた期間で、これらの変化は非常に限られたものなると想定される。また、Fe (III) の水酸化／酸化物の沈殿による間隙の減少も同様に限定的であると予想される。さらに、これに関わる他の現象として、腐食に伴い生じたFe (II) がベントナイト中の低密度領域（例えば、ベントナイトペレット間の隙間等）に選択的に移動し、Fe (III) の水酸化／酸化物として沈殿することも想定される。 ②緩衝材の飽和後の期間 嫌気的な条件での腐食が継続するものの、保護的な腐食生成物層の形成に伴い、腐食速度は1μm/yかそれ以下に低下すると想定される。また、腐食に伴い生じるFe (II) のベントナイトへの移行速度も低減される。ベントナイト中の間隙水のうち、自由水またはドナン水【ドナン間隙（層間及び拡散二重層からなる間隙）中に存在する水】のどちらかが腐食に関与するかは不明確である。なお、高密度下では、炭素鋼と電荷を帯びた粘土鉱物表面は、陰イオン排除や溶液中のイオン種の活量に影響を及ぼす可能性もある。腐食に伴い生じるFe (II) と粘土鉱物との反応は継続すると想定されるが、粘土鉱物中のFe (III) の還元に伴う不安定化やFeに富む他の粘土鉱物への変化は十分には理解されていない。 【今後の課題】 腐食に伴い生じるFe (II) と粘土鉱物との反応に伴う粘土鉱物の不安定化については、長期的な時間スケールでの評価において重要となる不確実性の大きい課題であり、引き続き、メカニズムの理解やそれらの知見を取り込んだ反応輸送解析によるモデル化に反映可能なデータや知見の整備が必要である。
モデル化の観点	**モデル化に関わる現状と今後の課題**
	【モデル化に関わる現状】 鉄－ベントナイト相互作用及びセメント－ベントナイト相互作用は、モデル化において共通した部分があり、反応輸送モデルにおけるベントナイト間隙の取り扱いもその一つである。二つの材料間には大きな濃度勾配が生じ、鉱物の溶解・沈殿反応と拡散が生じる。圧縮ベントナイトでは、溶質の交換反応は、相対的に多くの間隙を占める粘土の層間水による影響を受けると考えられ、現段階では粒子間隙を占める自由間隙での閉塞が生じても、溶質の交換はドナン間隙では生じるモデルを考慮している。 【今後の課題】 二つの材料間のモデル化においては、粘土鉱物の遅い溶解速度と二つの異なる間隙におけるイオンの移行による影響を強く受けるが、これらのモデル化におけるパラメータや仮定には大きな不確実性が存在している。このため、影響の範囲や間隙閉塞が生じる時期について、信頼性を持って予測するのは、現状では難しい（不確実性が大きい）。今後は、このような不確実性を低減するために、モデル化で用いるパラメータや間隙の取り扱いに関わる仮定の妥当性を確認していくことが必要である。

表4.2-3及び表4.2-4において、青字で記した箇所は今後の課題として重要と考えられるものであり、下線を付した箇所は、その内、本事業における5か年の実施内容を踏まえて抽出された課題とも関連する内容に相当する。現象・プロセスの理解の観点では、Savage（2012）で整理されたように、室内試験やナチュラルアナログで得られたデータの意味するところを十分に理解・解釈をし、モデル化における予測評価に反映可能な知見や情報として活用可能にしていくことが重要である。この課題内容は、本事業におけるSP1での成果をSP3での統合化評価に反映していく上で、SP1やSP3のサブタスク1へのフィードバックとしても位置付けられる。また、Jennie et al.（2019）で整理されたFe(II)と粘土鉱物との反応に伴う粘土鉱物の不安定化に関しては、諸外国も含め、十分にメカニズムの理解が進んでおらず、長期的な時間スケールを対象とした評価において不確実性の大きい現象の一つである。これについては、鉄影響に伴い生じる二次鉱物種の選定にも関係し、緩衝材の物理的特性（透水性や膨潤性等）への影響や核種移行パラメータ（Kd等）への影響も懸念されるため、全てのSPに関連する重要な課題の一つとして整理される。さらに、モデル化の観点では、Savage（2012）で整理された通り、二次鉱物の速度的評価の取り扱い（特に、信頼性の高い沈殿速度のデータの取得・利用や準安定相から安定相への変遷といったオストワルド段階則の考慮等）やオーバーパック腐食に伴い発生する水素ガスによる化学的・力学的影響のモデル化へ反映も今後の課題である。なお、ガスの影響をモデル化に反映する際には、溶液へのガスの溶存効果についても十分に留意し、過度に保守的にガス発生量を見積もらないことが必要である。Jennie et al.（2019）では、圧縮ベントナイトを対象としたモデル化において重要となる間隙（例えば、層間、粒子間、拡散二重層構造の区分や各間隙での反応・物質移行の取り扱いの違いは、水理・物質輸送－化学反応に伴う間隙閉塞や物質移行特性の変化に大きく影響することを指摘している。SP3における現状のモデルでは、間隙についての区分はしておらず、total porosity

としての取扱いを行っている。このような間隙構造に関わるモデルの不確実性が緩衝材の変質に関わる状態変遷や核種移行パラメータに与える影響は不明な部分が多く、全てのSPに関連する重要な課題の一つとして整理される。これについては、前述した通り、セメントーベントナイト相互作用とも共通する。

次に、セメントーベントナイト相互作用を対象にした情報整理の結果等について記す。文献調査の対象とした海外における報告書・論文としては、鉄ーベントナイト相互作用を対象にした文献調査で対象とした報告書であるSavage（2012）に加え、最近までのセメントー泥質岩相互作用（泥質岩もベントナイトと同様にスメクタイト等の粘土鉱物を主に含むため、ここではベントナイトと同質な物質として対象とした）に関わる室内／原位置試験・ナチュラル／インダストリアルアナログ・モデル解析について網羅的に重要な知見等が集約されたレビュー論文であるWilson et al.（2021）を選定した。整理の結果を表4.2-5及び表4.2-6に示す。なお、表4.2-5及び表4.2-6における青字及び下線を付した箇所の意味は、表4.2-3及び表4.2-4と同様である。

現象・プロセスの理解の観点では、Savage（2012）で整理されたように、二次鉱物の沈殿速度は初生鉱物の溶解速度にも影響し、二次鉱物の選定の違いによりモンモリロナイトの溶解量にも顕著な影響を与える可能性が高いため、二次鉱物の速度的評価の取り扱いには十分に留意することが重要な課題である。これについては、前述した通り、鉄ーベントナイト相互作用とも共通する。また、速度的評価にあたり、鉱物の反応比表面積の時間変化や鉱物の溶解・沈殿に伴う物理的特性（透水性等）の時間変化については、データが不足しており、今後これらに関連する知見の拡充も必要である。Wilson et al.（2021）では、セメントー泥質岩相互作用に伴う現象・プロセスの評価において、不確実性の大きいと考えられる要素が整理されている。これらの不確実性を考慮した解析評価により、ナチュラルアナログ等の長期の変質事例をどの程度まで定量的に評価可能かを示していくことがモデルの妥当性を示していく上で重要な課題である。さらに、モデル化の観点では、Savage（2012）で整理されたように、二次鉱物の選定を含む鉱物の溶解・沈殿の仮定や設定の妥当性については、熱力学・速度論に関わる高度に専門的な知識が要求される場合がり、エキスパートジャッジが必要な場合もある。このため、ナチュラルアナログ等の天然事例での事例に熟知することや熱力学／速度論的評価に関わる専門的な知識やノウハウ等の知識化を進めていくことも重要な課題である。また、現象・プロセスの理解の観点とも対応し、反応比表面積の時間変化のモデル化への取り組むも今後の課題として必要になる。

表4.2-5　セメントーベントナイト相互作用に関わる文献調査結果　その1（Savage, 2012）

現象・プロセスの理解の観点	**現象・プロセスに関わる理解の現状と今後の課題**
	【現状の理解】 セメント-ベントナイト相互作用に伴い、両者の材料の境界部には、下記の様な種々のプロセスにより、化学的・鉱物学的な反応領域が生じる。 ・セメント由来の高pH溶液のベントナイトへの拡散、ベントナイト間隙水との混合及び粘土鉱物との反応。また、ベントナイト間隙水のセメントへの拡散に伴う境界部での炭酸塩（方解石等）や水酸化物（$Mg(OH)_2$）の生成と間隙率の低下 ・セメント浸出液に含まれる陽イオン（K, Na, Ca）とモンモリロナイト層間イオンのイオン交換反応（速い反応）、それに伴う膨潤圧の低下 ・粘土鉱物のエッジサイトにおけるプロトン化／脱プロトン化反応（速い反応）。高pH溶液の中性化に寄与 ・モンモリロナイトや随伴鉱物等の加水分解反応。高pH溶液では、水酸基を消費する反応となるため、高pH溶液の中性化に寄与。これらに伴い、間隙率の増加や膨潤圧が低下 ・粘土鉱物、水酸化物、炭酸塩、ケイ酸カルシウム水和物、アルミノケイ酸塩（沸石、長石等）等の二次鉱物の沈殿。これらのうち、水酸化物・炭酸塩・ケイ酸カルシウム水和物の沈殿は比較的速い反応だが、粘土鉱物・アルミノケイ酸塩の沈殿は遅い反応 上記のプロセスが生じるには、液相の存在が重要になる（飽和状態でなければ、セメント由来の高pH溶液による顕著な影響は生じない。不飽和状態ではセメント-ベントナイト相互作用に伴う反応ー物質移行の影響も小さい）。 また、セメント-ベントナイト相互作用に伴うベントナイトの変質における二次鉱物の評価の重要性も整理されており、二次鉱物の沈殿速度は、初生鉱物の溶解速度にも影響し、二次鉱物の種類により、変質量にも顕著な影響を与える。 【今後の課題】 ナチュラルアナログやインダストリアルアナログを利用し、反応メカニズムの検討、長期的な変質幅の評価、鉱物の溶解・沈殿に関わる速度論データの活用等が進められているが、鉱物の反応比表面積の時間変化や物性（透水性等）の時空間変化に関わる知見が不足
	モデル化に関わる現状と今後の課題
モデル化の観点	【モデル化に関わる現状】 セメント-ベントナイト相互作用のモデル化は、以前は、部分平衡を仮定したモデルによる評価も行われていたが、近年は、相互作用に伴い生じる変質層の再現性を高めるため、細かなメッシュサイズを設定した速度論による評価が行われている。また、モデル化では、相互作用に伴う間隙率の変化と対応させ、拡散係数の変化も連成させた解析も行われている。多くの解析は、1次元系であるが、2次元系で長期の解析を視野にいれた解析コードもある。モデル化において、二次鉱物の沈殿速度は間隙率の変化等にも影響するため重要であり、ナチュラルアナログ事例を対象にした検討例もある。現状のモデルは、T-H-Cを対象にしており、Mの連成例には乏しい。 【今後の課題】 モデル化において、間隙率と拡散係数の変化をArchiの関係式に基づき評価しているが、適用範囲については課題がある。また、二次鉱物の選定についても、解析者のエキスパートジャッジに依存する部分が多く、このためナチュラルアナログ等の天然での事例に熟知した専門的知識が要求される。二次鉱物の沈殿速度の取り扱いについては、反応比表面積の時間変化のモデル化を今後如何に取り込んでいくのかが重要になる。

表4.2-6　セメントーベントナイト相互作用に関わる文献調査結果　その2（Wilson et al., 2021）

現象・プロセスの理解の観点	**現象・プロセスに関わる理解の現状と今後の課題**
	【現状の理解】 セメント-泥質岩相互作用に伴い生じる現象・プロセスは、対象となる母岩や地下水組成等の違い、セメント組成（普通ポルトランドセメント、低アルカリ性セメント、セメントへの添加剤の違い等）の違い等による異なるものの、共通する幾つかの主要な現象・プロセスは整理可能である。例えば、セメント-泥質岩相互作用に伴い境界部で変質層が生じ、泥質岩側への影響は間隙率の減少を伴い影響範囲は限定的（mm～数十cm、10万年で最大2m程度との解析結果あり）。セメント側の変質としては、脱Ca化（浸出）や炭酸化（Ca炭酸塩の沈殿）、SO_4との置換によるエトリンガイトの生成。泥質岩中の粘土鉱物による陽イオン交換反応とそれに伴う化学特性（収着への影響）や物理特性（膨潤性）への影響等が挙げられる。 セメント-泥質岩相互作用に伴う現象・プロセスの評価において、不確実性の大きいと考えられる要素を以下に整理する。 ・溶解挙動の不確実性：泥質岩の構成鉱物（粘土鉱物、石英、非晶質シリカ、炭酸塩、アルミノケイ酸塩等）の溶解速度について、室内試験で得られた溶解速度データの原位置や天然の条件への適用性。また、水和したセメントの溶解挙動の評価における速度論データの不足 ・陽イオン交換反応と表面錯体反応の不確実性：泥質岩を対象とした場合の粘土鉱物のCECが得られているケースが少なく、また陽イオン交換反応が考慮されていない場合もある。なお、粘土鉱物のエッジサイトにおけるプロトン化／脱プロトン化反応も重要ではあるが、CECの10％程度であるため、セメント影響におけるpH変化への影響は小さい。 ・想定される二次鉱物の不確実性：普通ポルトランドセメントの場合の二次鉱物については、比較的、知見も多く、二次鉱物生成の傾向や特徴の概略は整理されているものの、低アルカリ性セメントの場合は知見が相対的に不足 ・間隙率評価の不確実性：二次鉱物として生成するC-S-Hの様なゲル相は、鉱物表面を覆い、反応比表面積を低下させ、間隙の閉塞にも影響する可能性がある。一方、この様な現象に伴い生成する被覆層（skin）の特性は、よく理解されていない。また、間隙の取り扱いの違い（粘土の間隙や間隙構造の概念の違い）による、間隙閉塞の有無の評価にも不確実性がある。 【今後の課題】 不確実性の大きい要素に関わるデータや知見の拡充。また、酸化還元状態をコントロールした系でのデータ取得。さらに、モデル化との連携により、主要な現象・プロセスを対象にした不確実性を考慮した地球化学計算の結果と天然事例との比較によるモデルの信頼性向上を図ることも重要である。
	モデル化に関わる現状と今後の課題
モデル化の観点	【モデル化に関わる現状】 セメント-泥質岩相互作用に伴い生じる二次鉱物については、室内試験データ、アナログデータ、熱力学モデル等を複合的に勘案し検討されている。その際には、専門的な知識が要求されるが、専門家の考え方がバイアスを生むことにもなり得る。モデル化で用いられる熱力学データについては、半経験的な計算手法による導出方法とその妥当性検討が進められ、データベース化も進められている。 【今後の課題】 C-A-S-H、沸石及び粘土鉱物を対象にした熱力学データの信頼性向上。25℃よりも高温の条件を想定したモデル化に必要となる熱力学データや速度論データの整備

Wilson et al.（2021）による整理では、解析・評価で必要となるC-A-S-H、沸石及び粘土鉱物等の重要鉱物等に対する熱力学データの信頼性向上や、温度依存性に関わる解析・評価を行う上で

不足している熱力学データや速度論データの取得・拡充も重要な課題である。なお、この課題については、別事業の中で別途取り組まれている項目（例えば、TRU事業（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））もあり、他の事業との連携が必要な課題の一つでもある。

4.2.7 5 か年の成果と今後の課題

令和4年度は、令和2年度までに開発したプロトタイプシステムを用いた水理・物質輸送－化学反応の解析モデルの妥当性確認及び信頼性向上の一環として、令和3年度に実施した海外の専門家によるレビューコメントを踏まえたモデルの見直しを図り、見直しを反映した再解析を行った。また、令和2年度に実施した緩衝材の長期変質挙動に係る解析を一例に、緩衝材の状態変遷評価（SP3のサブタスク1における統合化評価）から､他の SP における個別現象評価へのフィードバック（例えば､SP3の解析で用いるパラメータ値や評価式の見直しの必要性の有無等）に関わる具体例についても検討した。さらに、SP3における統合化評価で主に対象とした鉄－ベントナイト相互作及びセメント－ベントナイト相互作用について、諸外国における類似した研究の動向を整理すると共に、本事業における5か年の成果も踏まえた上で、今後の課題についても整理した。

平成 30 年度から令和 4 年度までの 5 年間の検討により得られた成果の概要を以下に記す。まず、ニアフィールドを対象とした複合現象評価のためのシステム開発にあたり、トップダウンとボトムアップの双方の視点から検討するアプローチに基づき、システム開発で着目すべき評価課題を選定する手法を提示した。そして、選定された課題「緩衝材の長期的変質挙動の予測」の評価にあたり重要となる複合現象（コンクリート支保及びオーバーパックとの水理・物質輸送－化学－力学相互作用による緩衝材の状態変化）を対象にシステムの開発を行い、プロトタイプの評価システムを構築した。なお、力学を含めた連成解析のための評価システムの改良は、令和 2 年度で一旦保留とし、水理・物質輸送－化学反応に係る連成解析の妥当性確認に概ね目途がついた後に、再度取り組みを検討することとした。令和 3 年度はプロトタイプの評価システムで用いられている水理・物質輸送－化学反応の解析モデルの妥当性確認を中心に検討を進め、モデルや評価手法の信頼性を向上するための課題を抽出した。令和 4 年度は、令和 3 年度に実施した海外の専門家によるレビューコメントを踏まえてモデルの見直しを図り、現時点で最も確からしいと想定される緩衝材の状態変遷の評価例を提示した。また、SP3 のサブタスク 1 における統合化評価の結果から､他の SP における個別現象評価へのフィードバックを図るための具体例も提示した。このような統合化評価と個別現象評価との間でのフィードバックを継続的に進めることで、本事業で開発されたプロトタイプシステムの信頼性がより向上していくことが期待される。

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

今後は、本事業を通じてアップデートされた過渡期から長期に亘るシナリオを活用すると共にプロトタイプシステムのナチュラルアナログや長期の試験データ等を用いた検証・確証事例の拡充により、モデルの見直しを図り、評価結果の信頼性を更に向上させていくことが必要である。その際には、本事業において評価システムの改良を一旦保留とした力学との連成や過渡期に生じる影響の長期評価における取扱いについても、水理・物質輸送－化学反応の解析モデルの妥当性確認の状況や過渡期を対象にした個別現象評価で得られる成果を踏まえつつ、計画を再度検討す

ることも重要である。その際には、力学との連成にあたり 2 章における 2.4.1 項及び 2.4.2 項で述べられているような過渡期から長期に亘るニアフィールドの力学挙動を対象にした解析コードである MACBECE との連成解析に関わる検証･確証の進展を確認しつつ進めることが必要である。また、諸外国における類似した研究動向や本事業における 5 か年の成果も踏まえた上で整理された鉄ーベントナイト相互作及びセメントーベントナイト相互作用に関わる課題について、諸外国での研究アプローチ等についてレビューを行うと共に、今後 5 年程度での実施を想定した場合の課題の優先付けや具体的な取り組み内容・方針を整理した上で、計画的に進めることが肝要である。

4.3 ニアフィールド核種移行評価技術の開発

4.3.1 背景と目的

4.2節（サブタスク1）で示したように、本事業の先行事業である「処分システム評価確証技術開発」では、ニアフィールドのシステム変遷と核種移行解析の体系的評価技術として、ニアフィールドシステム変遷に関する複合現象の解析と、その現象解析結果に追随して核種移行解析を行う手法を開発し、ニアフィールド複合現象評価手法、核種移行評価手法、共通モデル・シナリオ・データベース及び成果の体系化手法をまとめたニアフィールド総合評価システムを構築した。この先行事業の取り組みでは、個別モデルによる解析だけではニアフィールド全体性能への影響の把握が困難な現象として、主に「コンクリートでのひび割れの発生・進展問題」に着目し、プラットフォームを中核とするシステムの開発を実施した。

ニアフィールドの場の状態を反映して核種移行評価を行う手法の開発については、ニアフィールド複合現象解析モデルによって評価される過渡的な場の状況を捉えて、核種移行解析を行うことのできる可変グリッド型の核種移行解析モデル GARFIELD-RNT (Grid Adaptive Refinement FInite ELement Discretisation-Radio Nuclides Transport) を開発してきた（日本原子力研究開発機構, 2018）。これにより、コンクリート支保などのセメント系材料におけるひび割れの発生・進展を中心とする、化学、水理及び力学に跨る状態の変化と、それに追随して核種移行解析を行うことが可能となった。特に、緩衝材を使用せずに、坑道内部のスペースをセメント系材料で充填する処分システムにおいては、このようなひび割れにおける地下水の流れとそれに関連する変質挙動がバリアシステム全体の核種の閉じ込め性能に大きな影響を及ぼし得ることから、このようなシステム開発の重要性が高いと考えられた（日本原子力研究開発機構, 2018）。

しかしながら、上記で示した核種移行解析モデルは、対象とする問題がコンクリートのひび割れ・進展問題に限定されており、ニアフィールドで考慮する必要のある様々な複合現象を対象とした核種移行解析に適用することはできない。

そこで、4.2節で示したニアフィールド複合現象評価システムを用いた連成解析の結果を核種移行解析モデルへ反映する手法における解析手順やデータ受け渡しなどのフレームワークを検討し、ニアフィールド複合現象評価システムから求められる環境変遷を核種移行モデルによる解析に反映する手法の概念を整理した。これに基づき、化学、水理及び力学に跨る状態の変化に追随して核種移行解析を行うモデルの要件と、核種移行解析で必要なインプットパラメータを抽出・整理し、ニアフィールド複合現象評価システムを利用した核種移行解析手法を構築した。

また、サブタスク1における連成解析で得られた緩衝材の変質に関わる状態変遷を考慮し、核種移行パラメータを設定するための方法をSP2と連携しつつ行った。さらに、設定した核種移行パラメータを基に核種移行解析を行い、緩衝材の変質程度の違いが核種の移行遅延に及ぼす影響について考察した。このような核種移行解析の結果を活用して性能評価を行うための課題を整理した。

上述した検討を踏まえつつ、核種移行解析の妥当性検討の一環として、メッシュ依存性について予察的な検討を行った。また、緩衝材の変質状態の時間変遷を踏まえた核種移行パラメータ設定の方法論の検討を継続し、pHへの依存性の大きい核種を対象にした場合の予察的な核種移行解析を行った。さらに、SP1及びSP2との連携の観点から、SP1及びSP2の成果のSP3への反映に向けた情報整理の案を作成すると共に、SP3で実施する状態変遷を踏まえた核種移行解析の評価結果を基に、他のSPにフィードバックを図る際のフロー案についても整理した。

令和4年度は、サブタスク1におけるモデルの見直しを踏まえた緩衝材の長期変質挙動に関わる再解析結果を対象とした核種移行解析を行い、モデルの見直しに伴う緩衝材の状態変遷評価への影響とそれらが核種移行評価に与える影響について分析・整理した（4.3.2項の(1)の1)参照）。ま

た、緩衝材の変質が核種の移行遅延効果に与える影響を評価する手法の整備に向けて、核種移行率に影響を及ぼす因子の抽出を試みるとともに（4.3.2項の(1)の2)参照）、サブタスク1及び他のSP に今後フィードバックを図ることが重要と考えられる項目案を提示した（4.3.2項の(1)の3)参照）。さらに、性能評価への反映を念頭にした核種移行モデルの簡略化の妥当性確認を今後進める上での試行として、単純化した緩衝材の状態変遷評価を例に、核種の収着挙動に着目し、収着メカニズムに基づいたモデル（ここでは「精緻モデル」と称する）と状態変遷に伴う収着分配係数（Kd）の変化を換算（経験）式に基づき評価するモデル（令和2年度及び令和3年度にSP2と連携して構築した核種移行パラメータ設定の方法論。ここでは「中間モデル」と称する）による核種移行解析の比較を行った（4.3.2項の(2)参照）。なお、性能評価への反映を念頭にした核種移行モデルの簡略化に関しては、諸外国における類似した近年の研究動向（現状）を踏まえつつ、今後の課題についても整理した（4.3.2項の(3)参照）。

4.3.2 実施内容

(1) 統合化評価におけるモデルの見直し等を踏まえた核種移行評価の試行

4.2節における現象解析モデルの統合化技術の構築では、令和3年度に実施した海外の専門家によるレビューコメントを踏まえたモデルの見直しや緩衝材の変質に伴う透水性評価に関わる代替式の適用による透水性評価の不確実性等に関わる検討を行った。これらの見直しに伴い、緩衝材の長期変質挙動に関わる状態変遷も更新された。4.2節で検討されたモデルの見直し等としては、石英の溶解・沈殿反応の取り扱いに関わる見直し、緩衝材の変質に伴う透水性評価に関わる代替式の適用、鉄ーベントナイト相互作用における二次鉱物設定に関わる見直しが挙げられる。本節（4.3節）における統合化評価を踏まえた核種移行評価では、上述したようなモデルの見直し等による状態変遷の更新を踏まえた核種移行評価を行い、状態変遷の違いが核種移行評価にどのような影響を与え得るかを分析・整理した。その際には、令和2年度に実施された緩衝材の長期変質挙動に関わる状態変遷の解析結果（Case 1：緩衝材変質への影響が相対的に小さい場合、Case 2：緩衝材変質への影響が相対的に大きい場合）に対する核種移行評価の結果とも比較しつつ、分析・整理を行った。また、これらの分析・整理の結果を基に、緩衝材の変質が核種の移行遅延効果に与える影響を評価する手法の整備に向けて、本事業での検討内容を一例に核種移行率に影響を及ぼす因子を抽出した。さらに、これら一連の評価であるニアフィールドの複合現象を対象とした状態変遷を踏まえた核種移行解析を通じて、サブタスク1及び他のSPに今後フィードバックを図ることが重要と考えられる項目案についても整理した。以下に、これらの分析・整理に関わる検討の成果を記す。

1) 緩衝材の長期変質挙動に関わる状態変遷の違いが核種移行評価に与える影響の分析・整理

4.2節で検討されたモデルの見直し等に伴う緩衝材の長期変質挙動に関わる状態変遷の解析ケースを表4.3-1に整理した。また、表4.3-1には令和2年度に実施された緩衝材の長期変質挙動に関わる状態変遷の解析ケースも含めた。表4.3-1では、令和2年度に実施された解析ケースを基本とし、令和4年度で検討されたモデルの見直し等に関わる内容を「SP3のサブタスク1（SP3-1）におけるHC連成解析で考慮されたモデルの例」として各々記し、また各解析ケースでの核種移行パラメータ（実効拡散係数：Deや収着分配係数：Kd）の設定方法も併せて記した。

表4.3-1 モデルの見直し等に伴う緩衝材の長期変質挙動に関わる状態変遷の解析ケース

<table>
<tr><th>解析
ケース</th><th>緩衝材への
変質影響</th><th>セメント影響による変質に伴い生成を仮定した二次鉱物(沸石)種</th><th>SP3-1におけるHC(水理・物質移行-化学反応)連成解析で考慮されたモデルの例</th><th>核種移行
パラメータの設定
(Cs・Niを対象)</th></tr>
<tr><td>R2-1
(R:令和)</td><td>相対的に小さい場合</td><td>K+Na>Ca系での準安定相
(phillipsite, clinoptilolite)</td><td rowspan="2">石英の溶解・沈殿反応を速度論で考慮</td><td rowspan="3">場の状態変遷に応じてKd・Deを変化させるため、R2及びR3にSP2と連携して整備した経験式に基づき設定(中間モデル)</td></tr>
<tr><td>R2-2</td><td>相対的に大きい場合</td><td>K+Na>Ca系での準安定相
(phillipsite, clinoptilolite)
Ca>K+Na系での準安定相
(Heulandite)</td></tr>
<tr><td>R4-1</td><td colspan="2">R2-1と同様</td><td rowspan="4">石英の溶解反応のみを速度論で考慮(海外専門家からのレビューコメントを踏まえたモデルの見直し)</td></tr>
<tr><td>R4-2</td><td colspan="2">R2-2と同様</td></tr>
<tr><td>R4-1c</td><td colspan="2">R2-1と同様</td><td rowspan="2">場の変遷に関わらず、一定のKd・Deの値を設定(H12やTRU-2での設定値を参照)</td></tr>
<tr><td>R4-2c</td><td colspan="2">R2-2と同様</td></tr>
<tr><td>R4-3</td><td colspan="2">R2-2と同様</td><td>・石英の溶解・沈殿反応を速度論で考慮(R2-2と同様)
・緩衝材変質に関わる透水係数評価式の見直し(山口らの式を代用)</td><td rowspan="3">場の状態変遷に応じてKd・Deを変化させるため、R2及びR3にSP2と連携して整備した経験式に基づき設定(中間モデル)</td></tr>
<tr><td>R4-4</td><td colspan="2">R2-2と同様</td><td>・石英の溶解・沈殿反応を速度論で考慮(R2-2と同様)
・鉄影響に伴う二次鉱物選定の見直し(海外専門家からのレビューコメントを踏まえたモデルの見直し)</td></tr>
<tr><td>R4-All</td><td colspan="2">R2-2と同様</td><td>令和4年度に実施したモデルの見直し等を全て反映
・石英の溶解反応のみを速度論で考慮
・透水性評価式を山口らの式で代用
・鉄影響に係る二次鉱物選定の見直し</td></tr>
</table>

令和4年度に核種移行評価の対象とした核種は、Cs及びNiの2核種である。Csは、高レベル放射性廃棄物におけるガラス固化体に含まれる放射能の時間変化において、1,000年程度の比較的初期における高い放射能を支配する核種（Cs-137やSr-90等）の一つであると共に、数十万年以降の長期における放射能を支配する核種（Cs-135、Tc-99やNp-237等）の一つでもあり、性能評価上、線量を支配する可能性の高い重要核種である。Niは、TRU廃棄物処分における廃棄体グループ2の金属中に存在する核種であり、グループ2における核種の移行率の評価において、数万年以降の長期における核種の移行評価において支配的な核種（Ni-59）となる。緩衝材中の核種の拡散・収着挙動は、ベントナイトの主成分であるモンモリロナイトにより支配される。核種の拡散は、主にモンモリロナイトの表面との静電的な相互作用により影響を受け、間隙水中での核種の支配化学種の電荷と間隙水の塩濃度が拡散挙動を評価するうえで重要な要素となる。一方、核種の収着は、モンモリロナイトのベーサル面（層間）での陽イオン交換反応やエッジ（端）面の表面錯体反応により生じ、核種の支配化学種の電荷や反応性に加え、競合するイオンの濃度、配位子の濃度、pHや塩濃度が重要な影響因子となる。令和4年度に対象とした2核種のうち、Csについては、低Cl濃度の間隙水中では錯形成による化学種分配の影響は小さく、拡散・収着への影響は、モンモリロナイトの表面との静電的な相互作用と共存イオンとの競合反応が主な影響因子になると想定される核種である。一方、Niについては、間隙水のpHの条件により支配化学種が変わり、また炭酸との錯形成の影響も大きいため、拡散・収着への影響は、核種の支配化学種の電荷や反応性、競合するイオンや配位子の濃度及びpHが重要な影響因子になると想定される核種である。このように、緩衝材中での核種の拡散・収着挙動における影響因子が異なる二つの核種を選定し、各々の核種について、令和2年度及び令和3年度にSP2と連携して構築した緩衝材の状態変遷解析における解析条件を踏まえた核種移行パラメータの換算式（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2021；2022）により、核種移行パラメータを設定した。なお、令和4年度は、令和2年度及び令和3年度に実施したような緩衝材の状態変遷を踏まえて核種移行パラ

メータを設定する場合に加え、従来の性能評価解析で行われている保守的と考えられる一定の値を核種移行パラメータとして設定した場合（表4.3-1における解析ケースR4-1c及びR4-2c）についても核種移行解析を行い、比較の対象とした。

また、上述した核種移行解析における解析体系及び令和4年度における核種移行率の評価箇所を図4.3-1に示す。解析体系は、令和3年度までに実施された核種移行解析の場合（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2021；2022）と同様である。一方、核種移行率の評価箇所については、令和3年度までは緩衝材の外側としていたが、令和4年度は掘削損傷領域の外側（図4.3-1の赤線部）に変更した。

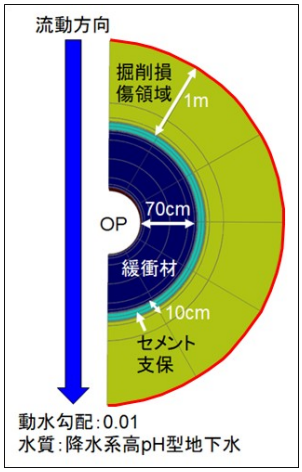


図4.3-1　核種移行解析における解析体系及び核種移行率の評価箇所
（図中の赤線に相当する掘削損傷領域の外側を核種移行率の評価箇所とした）

①　石英の沈殿反応考慮の有無による状態変遷の違いが核種移行評価に与える影響

令和2年度に実施された石英の溶解と沈殿反応を考慮した場合（表4.3-1における解析ケースR2-1及びR2-2）と令和4年度に実施した石英の溶解反応のみを考慮した場合（表4.3-1における解析ケースR4-1及びR4-2）での解析結果の比較について述べる。

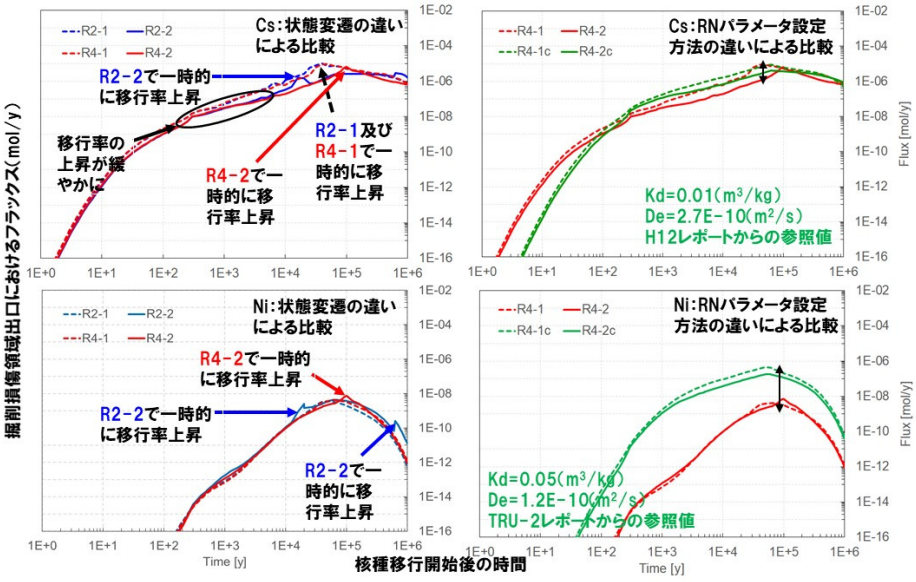


図4.3-2　石英の沈殿反応考慮の有無による状態変遷の違いを踏まえた核種移行率の比較

図4.3-2の左側に、これらの解析ケースに対するCs及びNiの核種移行率に関わる解析結果を示す。図4.3-2の左図に示される通り、石英の沈殿反応の考慮の有無に伴う緩衝材の状態変遷の違いがCs及びNiの核種移行率に与える影響は、顕著ではないことが判る。一方、核種移行率の解析結果を細かく見ると、両核種共に一時的に核種移行率が上昇する期間が認められる。この要因については、緩衝材の状態変遷において、これらの核種の移行率に影響を与え得るパラメータ（間隙水のイオン強度やpH）の変動と併せて、別途考察する。また、上述した解析では、緩衝材の状態変遷に伴う核種移行パラメータの変化を考慮しているが、ここではこれらの解析結果と従来の性能評価解析で行われている様に核種移行パラメータを一定として解析した場合の結果の比較についても整理した。なおCs及びNiについて、核種移行パラメータを一定とした場合のKd及びDeの値は、各々、高レベル放射性廃棄物地層処分における第2次取りまとめ（通称「H12レポート」、核燃料サイクル開発機構, 1999）及びTRU廃棄物処分における第2次取りまとめ（通称「TRU-2レポート」、電気事業連合会,・核燃料サイクル開発機構, 2005）においてレファレンスとされた解析ケースで用いられた値を採用した。図4.3-2の右側に、状態変遷に伴い核種移行パラメータの変化を考慮した場合（表4.3-1における解析ケースR4-1及びR4-2）と考慮しない場合（核種移行パラメータ一定の場合：表4.3-1における解析ケースR4-1c及びR4-2c）でのCs及びNiの核種移行率に関わる解析結果を示す。図4.3-2の右側の図中には、核種移行パラメータを一定とした場合のKd及びDeの値も併せて記してある。図4.3-2の右図に示される通り、Csの場合は、両者での核種移行率の違いは、それほど顕著には見られないものの、核種移行パラメータを一定とした場合の方が核種移行率のピークがやや高くなった。一方、Niの場合、核種移行パラメータを一定とした場合の方が明らかに核種移行率のピークがより高い結果となった。従来の性能評価解析では、緩衝材の変質に伴う状態変遷により、核種の移行遅延が抑制される可能性も考慮し、保守的なKdやDeの設定が行われている（核燃料サイクル開発機構, 1999；電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構, 2005）。今回試みたこの様な解析結果の比較からも、従来の性能評価解析で用いられた核種移行パラメータの設定が保守的であることを改めて確認できた。また、今回試みたこのような試行結果に基づけば、緩衝材の変質が必ずしも核種の移行を促進する場合だけでなく、むしろ変質の影響は小さい場合や、変質の影響を考慮し、その影響を勘案した核種移行パラメータを設定するといったより現実的な評価を行った方が核種の移行率がより低くなる可能性も示唆された。今回の試行だけで、このような可能性を強く主張することはできないものの、従来の性能評価解析では評価上の保守性の観点から陽には考慮されてこなかったシステム変遷を考慮した核種移行解析による評価の重要性が改めて認識された。

次に、前述したようなCs及びNiに対する核種移行率の経時変化に係る解析結果で、一時的に核種移行率が上昇する要因の考察について述べる。図4.3-3に令和2年度に実施した解析（石英の溶解・沈殿反応を考慮）で相対的に緩衝材変質の小さい場合（Case R2-1）と相対的に緩衝材変質の大きい場合（Case R2-2）における緩衝材間隙水のイオン強度及びpHの経時変化を示す。なお、経時変化の傾向を概略的に説明するため、図4.3-3では、緩衝材内側部分で3箇所（Buffer-0からBuffer-12）、緩衝材外側部分で2箇所（Buffer-30及びBuffer-42）について表示してある。図4.3-2において、Cs及びNiの両核種の核種移行率が一時的に上昇したのは、核種移行開始後、概ね2万年から3万年頃に相当する。Csについては、1万年に至るまでに移行率が緩やかに上昇する傾向も認められる。これらの時期に相当する緩衝材間隙水のイオン強度を見ると、Case R2-1及びCase R2-2共に、1万年に至るまではイオン強度が緩やかに低下し、2万年から3万年頃にはイオン強度が上昇することが判る。CsのKdは、イオン強度と相関があり、イオン強度が大きくなると競合イオンの影響によりKdが低下する。このため、図4.3-2においてCsの核種移行率が2から3万年頃に一時的に上昇したのは、何らかの鉱物の溶解に伴いイオン強度が増加し、CsのKdが低下したため

と推察される。一方、図4.3-2においてCsの核種移行率が1万年前後に緩やかに上昇したのは、何らかの鉱物の沈殿に伴いイオン強度が緩やかに低下し、CsのKdが緩やかに増加したため、2万年から3万年頃の核種移行率の変化と比べると核種移行率の上昇が抑制され、緩やかな上昇率の変化になったと考えられる。pHの経時変化については、Case R2-1とCase R2-2ではやや傾向が異なる。Case R2-1では、2万年から3万年頃において、緩衝材内側及び外側においてpHが低下する傾向が認められるが、Case R2-2では、緩衝材内側ではpHが低下する傾向があるものの、緩衝材外側ではpHが上昇する傾向が認められる。Case R2-2における緩衝材外側でのpH上昇の要因については、4.2.6項の(1)1)②における連成解析における石英の溶解・沈殿反応の取扱いの部分で述べた通り、石英の沈殿反応を考慮したことによる何らか鉱物の溶解・沈殿が影響した可能性が示唆されている。Niの場合、pHによるNiの支配化学種が異なることにより、表面錯体反応に寄与する化学種が変化し、Kdが変化すると想定される。現状では、このようなpH変化に対するNiの支配化学種の変化と関連付けて、核種移行率の上昇についての考察には至っていないが、鉱物の溶解・沈殿に伴う間隙水pHの変化がNiの核種移行率の上昇に影響を与えている可能性が示唆される。

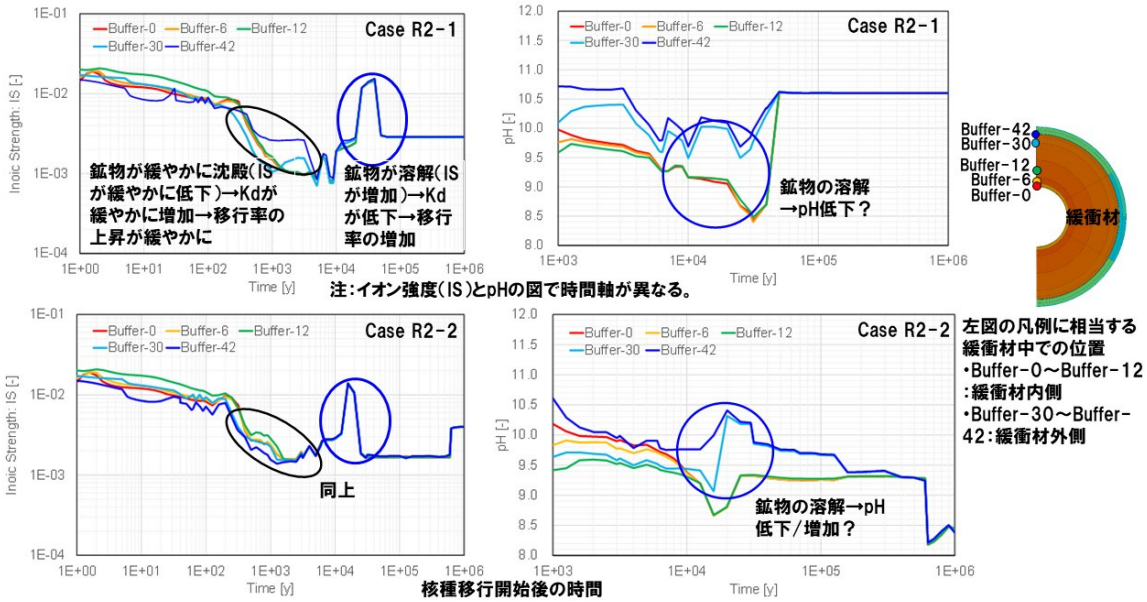


図4.3-3 石英の溶解・沈殿反応した場合（令和2年度）におけるイオン強度及びpHの経時変化（相対的に緩衝材変質の小さい場合と大きい場合での比較）

図4.3-4に令和4年度に実施した解析（石英の溶解反応のみを考慮）で相対的に緩衝材変質の小さい場合（Case R4-1）と相対的に緩衝材変質の大きい場合（Case R4-2）における緩衝材間隙水のイオン強度及びpHの経時変化を示す。

図4.3-3及び図4.3-4を比較すると、緩衝材変質への影響が相対的に小さい場合（Case R2-1及びCase R4-1）では、石英の沈殿反応の考慮の有無による緩衝材間隙水のpHやイオン強度への影響は小さいことが判る。一方、緩衝材変質への影響が相対的に大きい場合（Case R2-2及びCase R4-2）では、石英の沈殿反応の考慮の有無により、緩衝材間隙水のpHやイオン強度にやや違いが生じ、特にpHについては、Case R4-2では緩衝材外側でもpHは低下する傾向になる。このようなpH変化の違いが影響しているかどうかは定かではないが、図4.3-2におけるCase R4-2におけるNiの一時的な核種移行率の上昇とも相関している可能性もある。

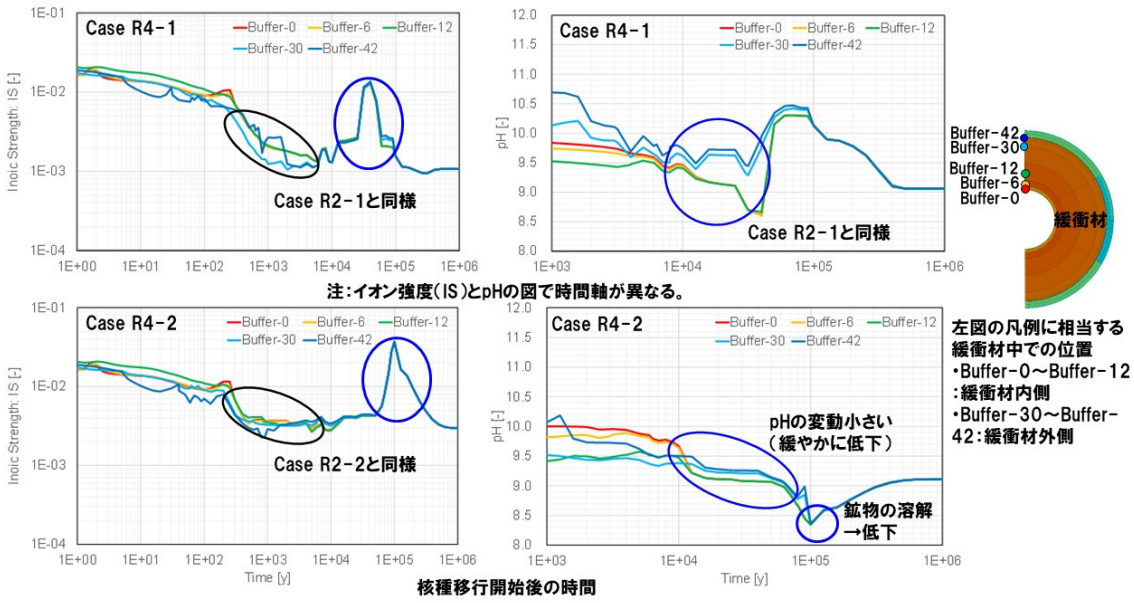


図4.3-4　石英の溶解反応のみを考慮した場合（令和4年度）におけるイオン強度及びpHの経時変化（相対的に緩衝材変質の小さい場合と大きい場合での比較）

② モデル等の見直し前後における緩衝材の状態変遷の違いが核種移行評価に与える影響

表4.3-1に示したモデルの見直し等に伴う緩衝材の長期変質挙動に関わる状態変遷の解析ケースのうち、Case R2-1からCase R4-2cまでの結果については、前項で説明した。ここでは、それ以外の解析ケースを含め、令和4年度に実施したモデル等の見直しを全て反映した状態変遷とそれを踏まえた核種移行解析の結果について、モデル等の見直し前に相当する令和2年度の解析条件に基づく解析ケース（Case R2-1またはCase R2-2）における核種移行解析の結果と比較する。なお、参考までに、令和4年度に実施した石英の沈殿反応を考慮せず、一定の核種移行パラメータを用いた場合の結果（Case R4-2）についても、保守的な評価の一例として示した。図4.3-5にモデル等の見直し前後における状態変遷の違いを踏まえた核種移行率を比較した結果を示す。

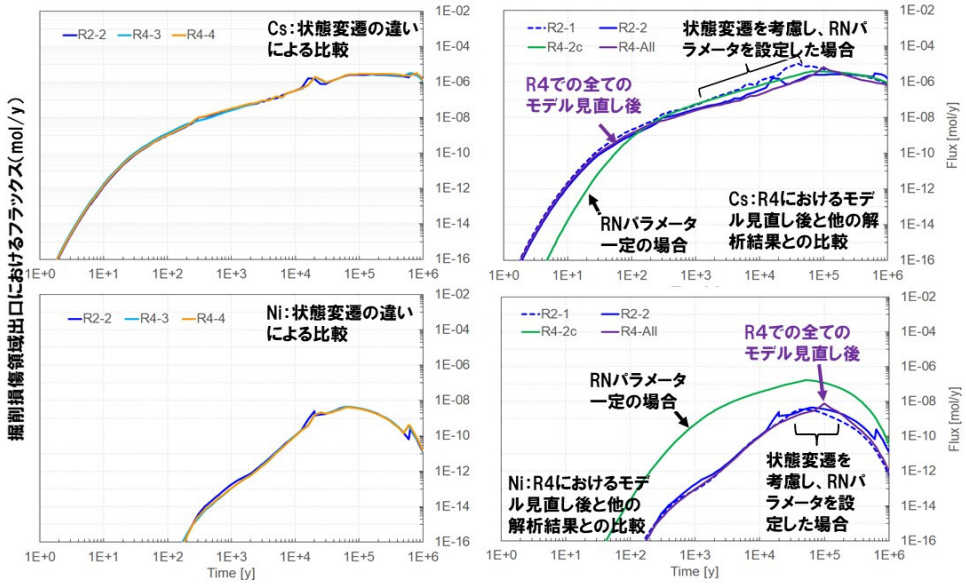


図4.3-5　モデル等の見直し前後における状態変遷の違いを踏まえた核種移行率の比較

図4.3-5の左図に示されるように、透水係数評価式を見直したケース（Case R4-3）や鉄影響に伴う二次鉱物の選定を見直したケース（Case R4-4）について、Case 2-2の結果と比較すると、Cs及びNiの核種移行率には顕著な差は認められない。また図4.3-5の右図に示す通り、Cs及びNi共に、モデル等の見直し前後における状態変遷の違いを踏まえた核種移行率を比較しても、顕著な差が生じていない。この要因としては、Case R4-3やCase R4-4の緩衝材の状態変遷における化学的な条件（イオン強度やpH）は、Case R2-2と比べても顕著な違いがなかったためと推察される。

2) 本事業での検討内容を一例とした緩衝材の変質が核種の移行率に影響を及ぼす因子の抽出

本事業では、令和2年度における緩衝材の変質に関わる不確実性の一つとして、セメント影響に伴う二次鉱物種選定の違いを例に、緩衝材変質への影響が相対的に小さい／大きい場合を設定した。また、令和4年度は、令和3年度に実施した海外専門家によるレビューを踏まえ、モデル等の一部を見直す等、モデル等の不確実性による緩衝材変質への影響についても検討した。また、これら緩衝材の変質に伴う状態変遷に影響を与え得る不確実性を考慮し、状態変遷評価を行い、その結果を反映しつつ、Cs及びNiを例に核種移行解析を行った。これらを踏まえ、状態変遷評価における不確実性を考慮した結果が核種移行率に与える影響について分析すると、まず、セメント影響に伴う二次鉱物種選定の違いによる状態変遷の違い（Case R2-1及びCase R2-2）は、核種の移行率への影響は小さかった。次に、モデル等の不確実性による状態変遷の違いが核種の移行率へ与える影響も顕著ではなかった（Case 4-1からCase 4-4）。但し、モデル等の不確実性の中で、石英の沈殿反応考慮の有無は、今回の検討の中では、一時的に核種の移行率に影響を与え得る結果となった。核種移行解析の対象とした核種はCs及びNiであるため、これらの核種の移行率に影響を与えるパラメータは、緩衝材間隙水のイオン強度及びpHであると考えられる。イオン強度及びpHは、鉱物の溶解・沈殿反応により影響を受ける。このため、今回の検討では、緩衝材の変質において核種の移行率に影響を及ぼした主な因子は、鉱物の溶解・沈殿反応であり、それにより、間隙水のイオン強度及びpHが変化したためであると想定される。なお、具体的にどのような鉱物の溶解・沈殿反応が強く影響しているかについては、結果の分析が不十分であるため断定はできないが、鉱物の溶解・沈殿に伴い、相対的にプロトン（H^+）の関与が大きいのは沸石類であるため、沸石類の溶解・沈殿反応による影響の可能性が示唆される。

3) ニアフィールドの複合現象を対象とした状態変遷を踏まえた核種移行解析を通じた個別現象評価等へのフィードバックの案

SP3では、SP1及びSP2で得られた成果の統合化を図ることが重要であると共に、SP3のサブタスク1で実施するニアフィールドの空間的・時間的な変遷に係る解析とそれを踏まえてサブタスク2で実施する核種移行評価から、SP1やSP2にフィードバックを図ることも重要な役割となる。SP1及びSP2で得られた成果のSP3への反映は、ボトムアップ型での現象解析モデルの統合化アプローチであるが、本項で述べるSP3からSP1及びSP2へのフィードバックは、トップダウン型での現象解析モデルの統合化アプローチと捉えることもできる（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2022）。本事業のSP3で実施したニアフィールドの複合現象を対象とした状態変遷を踏まえた核種移行解析の評価フローの案（重要な安全機能に着目し設定された課題「緩衝材の長期的変質挙動の予測」を対象にした例：図4.3-6）を基に、令和4年度の実施内容を踏まえ、他のSPへフィードバックを図ることを念頭に、フィードバックの案を整理した

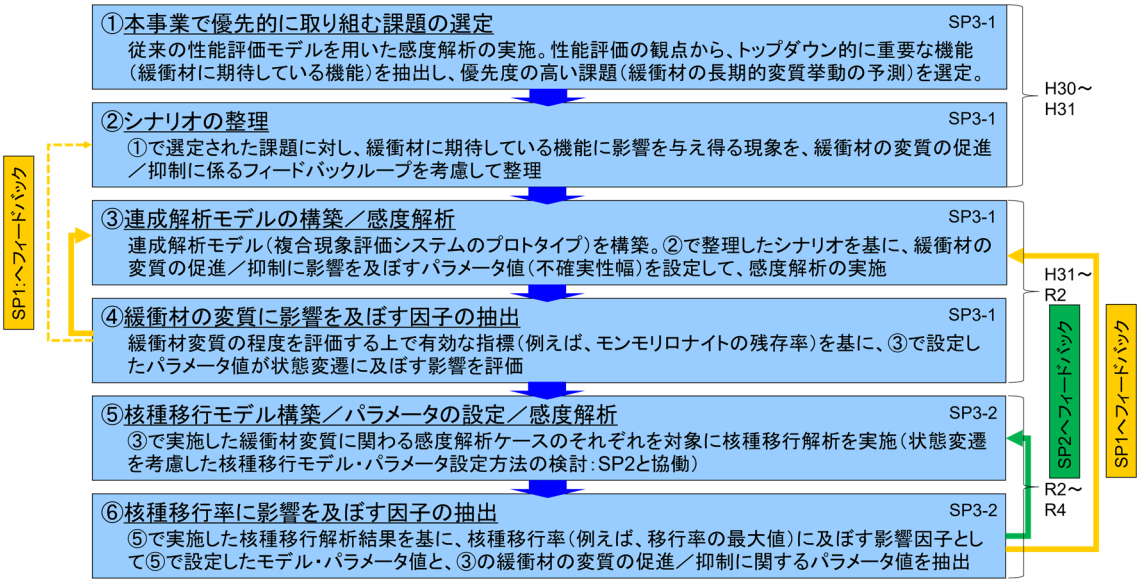


図4.3-6　ニアフィールドの複合現象を対象とした状態変遷を踏まえた核種移行解析の評価フローの案
（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2022）

4.3.2項(1)の3)で述べたように、緩衝材の状態変遷を踏まえた核種移行解析を通じて核種移行率に影響を及ぼす因子を抽出するための試行が行われた。この試行から、例えば、緩衝材の変質において核種の移行率に影響を及ぼした主な因子は、鉱物の溶解・沈殿反応であることが推察された。具体的にどのような鉱物の溶解・沈殿反応が強く影響しているかについては十分な分析ができていないが、可能性の一つとして沸石類の溶解・沈殿反応による影響の可能性も示唆された。SP3のサブタスク1で実施する緩衝材の長期的な状態変遷に関わる解析では、令和3年度の実施した海外専門家からのレビューでの指摘にもあった通り、水理・物質輸送－化学反応の連成解析の中で想定もしくは仮定する反応や二次鉱物の選定は、緩衝材の状態変遷に顕著な影響を与え得る。このため、どのような反応を仮定するのが妥当なのか、また対象とする解析条件に対し適切な二次鉱物の選定になっているか等、鉱物の溶解・沈殿反応に関わる熱力学や速度論に係る専門的知識（エキスパートジャッジ）が重要になる。さらに、これらの専門知識を裏付けるためのナチュラルアナログ等の天然における長期の変質事例に基づく情報・知見等も必要になる。これらは、SP3から、SP1及びSP3のサブタスク2からSP3のサブタスク1に対するフィードバックとして整理できる。また、鉄影響やセメント影響を受けた緩衝材に対する核種移行パラメータの設定にあたり、本事業では変質に伴うモンモリロナイトのイオン型の変化及び残存量（Kd及びDeへの影響）、間隙水のイオン強度及びpH（Kdへの影響）、間隙率（Deへの影響）の変化を考慮した。一方、SP3における緩衝材の長期に亘る状態変遷解析の結果では、鉄影響に伴いサポナイト・バーチェリン等の二次鉱物やセメント影響に伴い沸石類の二次鉱物が生成し、緩衝材内での場所によっては、これらの二次鉱物の割合が多くなる。このような場所では、モンモリロナイトを主対象とした核種移行パラメータの設定の考え方をそのまま適用可能かどうか確認が必要である。例えば、本事業におけるSP2では、セメント影響を考慮したコロイド移行に関わるデータ取得を行い、コロイドが破過する条件（有効モンモリロナイト密度での条件）を実験的に導きだしたが、このような実験条件とSP3におけるセメント影響を受けた緩衝材の状態変遷に関わる解析で推定された条件とは、緩衝材中の構成鉱物種や間隙の状態（セメンテーション等の影響を含む）が異なる可能性がある。このため、実際に鉄影響やセメント影響を受けた試料（可能であれば長期に亘る天然での変質試料）を対象にした核種移行パラメータの取得を踏まえたパラメータ設定の考え方も

今後必要になると考えられる。これらは、SP3からSP2に対するフィードバックとして整理できる。

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

放射性廃棄物の地層処分における性能評価では、地層処分で想定されるシステムの安全性を評価するため、数値解析モデルが用いられる。数値解析モデルとしては、地層処分システム全体の評価を対象とするシステム評価モデルと、地層処分における各システム（例えば、人工バリアシステム等）を対象に現象理解に基づく現象解析のための現象解析モデルに大別され、これら二つの階層のモデルを関係づけ、並行して開発が進められる。本事業のSP3で対象としている数値解析モデルは、後者の現象解析モデルに相当する。地層処分における性能評価では、広範囲な領域における非常に長期に亘る時間を対象にした評価や多数のパラメータを用いた不確実性解析等が求められ、そのための計算負荷を低減する上で、何らかの単純化や簡略化が求められる。その際の対応の一つとしてモデルの簡略化がある。モデルを簡略化する場合、解析の確からしさを維持しつつ、複雑なモデルを単純化し、計算負荷を低減する必要がある。このようなモデルの簡略化を図る上でのアプローチとして、一つは複雑なモデルの中から最も重要な要素を抽出し、解析体系・幾何形状・反応輸送プロセス等を単純化した系において解析し、複雑なモデルで解析した結果と比較した際、主に着目する対象に関わる結果が許容範囲内に十分に納まるようにする方法がある（Frantz, 1995）。もう一つは、サロゲートモデルと呼ばれるもので、モデルのインプットとアウトプットの間の相関に倣い、データ主導型の関数により近似する方法がある（Razavi et al., 2012）。本事業のSP3において、これまでにSP2と連携しつつ開発を進めてきた中間モデルは、簡略化のためのアプローチとしては、前者に近い方法になる。

性能評価への反映を念頭にした核種移行モデルの簡略化の妥当性確認を今後進める上での試行として、SP3では単純化した緩衝材の状態変遷評価を対象に、核種の収着挙動に着目し、収着メカニズムに基づくモデル（精緻モデル）と状態変遷に伴う収着分配係数（Kd）の変化を換算（経験）式に基づき評価するモデル（中間モデル）により、各々、核種移行評価を行い、両モデルによる核種移行率の比較を行った。対象とした核種は、Cs及びNiの2核種である。図4.3-7に精緻・中間モデルによる核種移行率の比較を行うために対象とした解析体系の概要を示す。緩衝材の状態変遷としては、セメントーベントナイト相互作用に伴う緩衝材の変質の場合を想定した。

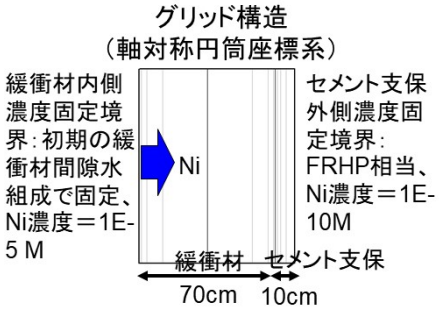


図4.3-7 精緻・中間モデルによる核種移行率の比較のために対象とした解析体系の概要
（セメントーベントナイト相互作用を対象にしたNiの場合の解析条件を含む）

表4.3-2には、精緻・中間モデルにおける核種移行パラメータの設定方法の概略を一覧としてまとめた。これら核種移行パラメータの設定方法については、SP2と連携しながら行った。

表4.3-2 精緻・中間モデルによる核種移行パラメータの設定方法の概略

	中間モデル（状態変遷に対応したKd（m^3/kg）への影響を評価する換算（経験）式に基づく。Deは一定）		精緻モデル（収着メカニズムに基づくモデル。Cs：イオン交換反応モデル、Ni：表面錯体反応モデル。Deは一定）
Cs（1価の弱収着性核種の一例）	モンモリロナイト（ケイ砂30%，密度1.6の場合）	イオン強度（IS）依存性を考慮 ・Na型：$Kd\ (1.6e-2\times (IS)^{-0.7})$ ・Na型以外：$Kd\ (8.0e-3\times (IS)^{-0.35})$ ※Na型以外：K・Ca・Mg・Fe・Cs型化は全て同様の扱い ・Deの状態変遷に対する影響は、考慮していない。	・Csの圧縮ベントナイトへの収着メカニズムは、主にイオン交換反応に基づき、KdはISに依存し、ISが大きくなると競合イオンの影響でKdは低下（例えば、Tachi and Yotsuji, 2014）。 ・モンモリロナイトによるイオン交換反応のモデル化では、以下のパラメータを利用（Oda et al., 2001; Wanner et al., 1996） - CEC（108 meq/100g） - Na-K：logK=0.42, 2Na-Ca：logK=0.69、2Na-Mg：0.67、Na-Cs：log K=1.6） ・モンモリロナイト以外の鉱物への収着は、考慮していない。 ・Deの状態変遷に対する影響は、考慮していない。
	モンモリロナイト以外の鉱物（変質鉱物：ゼオライト等）	・Kd（0：保守的に設定） ・Deの状態変遷に対する影響は、考慮していない	
Ni（2価の強収着性核種の一例） ※pH<9→pH>11で、陽イオン→中性種→陰イオンと化学種が変化	モンモリロナイト（ケイ砂30%，密度1.6の場合）	pH依存性を考慮 ・Kd（イオン型の違いは考慮せず） - pH<9：$1.11e-6\times EXP(1.9\times pH)$ - pH9～11：pHに依らず一定≒30 - pH>11：$5.31e+6\times EXP(-1.1\times pH)$ pH>11：Iに準拠したIS依存性換算式を利用 （Na型：$1.3e-10\times (IS)^{0.50}$、Na型以外：$3.0e-10x\ (IS)^{0.1}$） ※Na型以外：K・Ca・Mg・Fe型化は全て同様の扱い ・Deの状態変遷に対する影響は、考慮していない	・Niのモンモリロナイトへの収着のメカニズムは、低IS及び低pH（pH<6）ではイオン交換反応が主、高IS及び高pH（pH>6）では表面錯体反応が主（例えば、Sugiura et al., 2021）。SP3-1の状態変遷解析の結果では、低IS及び高pH（pH>8）のため、ここでは、表面錯体反応の影響を主として、KdのpH依存性を考慮してモデル化 ・Niの収着サイトは、2SPNE/CEモデルによる実験値のフィッティング解析で、強収着性のエッジに収着すると想定され、この知見に基づく以下のパラメータを利用（Bradbury and Baeyens, 1997; Sugiura et al., 2021）。 $-\equiv S^sOH$（2E-3 mol/kg） $-\equiv S^sOH + Ni^{2+} = \equiv S^sONi^+ + H^+$（logK=-0.90） $-\equiv S^sOH + Ni^{2+} + H_2O = \equiv S^sONiOH + 2H^+$（logK=-9.5） $-\equiv S^sOH + Ni^{2+} + 2H_2O = \equiv S^sONi(OH)_2^- + 3H^+$（logK=-18.6） ・モンモリロナイト以外の鉱物への収着は、考慮していない。 ・Deの状態変遷に対する影響は、考慮していない。
	モンモリロナイト以外の鉱物（変質鉱物：ゼオライト等）	・Kd（0：保守的に設定） ・Deの状態変遷に対する影響は、考慮していない	

中間モデルにおける核種移行パラメータの設定方法については、令和2年度及び令和3年度において、SP2と連携しながら検討しており、Csについては令和2年度報告書（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2021）、Niについては令和3年度報告書（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2022）に各々詳細が記されている。ここでは、令和4年度に検討した精緻モデルにおける核種移行パラメータの設定方法について述べる。まず、Csについては、圧縮ベントナイト中での収着メカニズムとしては、主にイオン交換反応により支配され、Kdはイオン強度に依存し、イオン強度が大きくなると競合イオンの影響によりKdは低下することが示されている（例えば、Tachi and Yotsuji, 2014）。ここでは、Oda et al.（2001）によるクニゲルV1を対象にした陽イオン交換反応に関わる平衡定数やWanner et al.（1996）によるベントナイトへのCsのイオン交換反応に関わる平衡定数をパラメータ設定にあたり用いた。精緻モデルとしては、Csのイオン交換反応に関わるパラメータをQPACによる水理・物質輸送－化学反応の解析に取り込み計算を行った。次にNiについては、モンモリロナイトへの収着メカニズムとして、イオン強度が低く、pH＜6程度の領域では、イオン交換反応が支配的であるが、イオン強度が高く、pH＞6程度の領域では、表面錯体反応が支配的であることが示されている（例えば、Sugiura et al., 2021）。SP3のサブタスク1における統合化評価や今回の単純化されたセメント－ベントナイト相互作用を対象にした緩衝材の状態変遷評価では、イオン強度はそれほど高くはないもののpH＞8程度の領域であるため、ここではNiの収着メカニズムとしては表面錯体が支配的になると想定した。Sugiura et al.（2021）では、Baeyens and Bradbury（1997）による2サイトプロトリス非静電的表面錯体及び陽イオン交換（2SPNE SC/CE）収着モデルを適用し、Niの収着サイトを検討した結果、強収着性のエッジに収着すると想定された。ここでは、Baeyens and Bradbury（1997）及びSugiura et al.（2021）による表面錯体反応に関わる平衡定数をパラメータ設定にあたり用いた。精緻モデルとしては、Niの表面錯体反応に関わるパラメータをQPACによる水理・物質輸送－化学反応の解析に取り込み計算を行った。なお、本検討では、モンモリロナイト以外の鉱物への収着は考慮せず、また単純化のため拡散係数については状態変遷に伴う

パラメータの変化は考慮せず、一定の値を用いた。

図4.3-8に、セメントーベントナイト相互作用に伴う緩衝材の変質を対象に単純化した解析体系での精緻・中間モデルによるCs及びNiの濃度変化を比較した結果を示す。図4.3-8において核種の濃度を比較したのは、セメント支保と緩衝材の境界部分である。まず、Csについて精緻モデルによる解析結果を見ると、セメント影響に伴い緩衝材中のモンモリロナイトの溶解が進み、モンモリロナイトの総濃度が解析開始後1,000年頃から低下し、それに対応する形で固相のCs濃度も減少し、モンモリロナイトに収着していたCsが溶液中に溶出するため、液相中のCs濃度が増加する傾向が認められる。中間モデルによる解析結果でも、精緻モデルの場合と基本的に同様な傾向が認められ、モンモリロナイトの溶解の進行に伴う固相Cs濃度の減少やそれに伴うKdの低下が対応している。但し、中間モデルによる評価の場合、セメント影響に伴いモンモリロナイトの溶解が進む前に、一旦、固相及び液相のCs濃度が増加する傾向が認められる。この原因ついては、現状では把握できておらず、今後、状態変遷の解析結果と併せて分析が必要である。次にNiについて、精緻モデルによる解析結果を確認すると、Csと同様にセメント影響に伴う緩衝材中のモンモリロナイトの溶解に対応した形でNi表面錯体濃度や吸着サイト濃度が低下し、モンモリロナイトに収着していたNiが溶液中に溶出するため、液相のNi濃度が増加する傾向が認められる。なお、Niの場合、液相Ni濃度がステップ状に増加するように見え、このような変化は吸着サイト濃度の変化とも対応している。このような挙動は、支配的な表面錯体反応の違いと関連している可能性があるが現状では原因についての把握はできておらず、今後、状態変遷の解析結果と併せて確認が必要である。中間モデルによる解析結果では、基本的に精緻モデルによる解析結果と同様な傾向が示されている。但し、今回の解析では、液相Ni濃度の初期設定が精緻と中間モデルで異なっており、両モデルでの濃度比較を定量的に評価するのは難しい。この点については、解析条件の設定等に問題がなかったどうかを再度確認する必要がある。

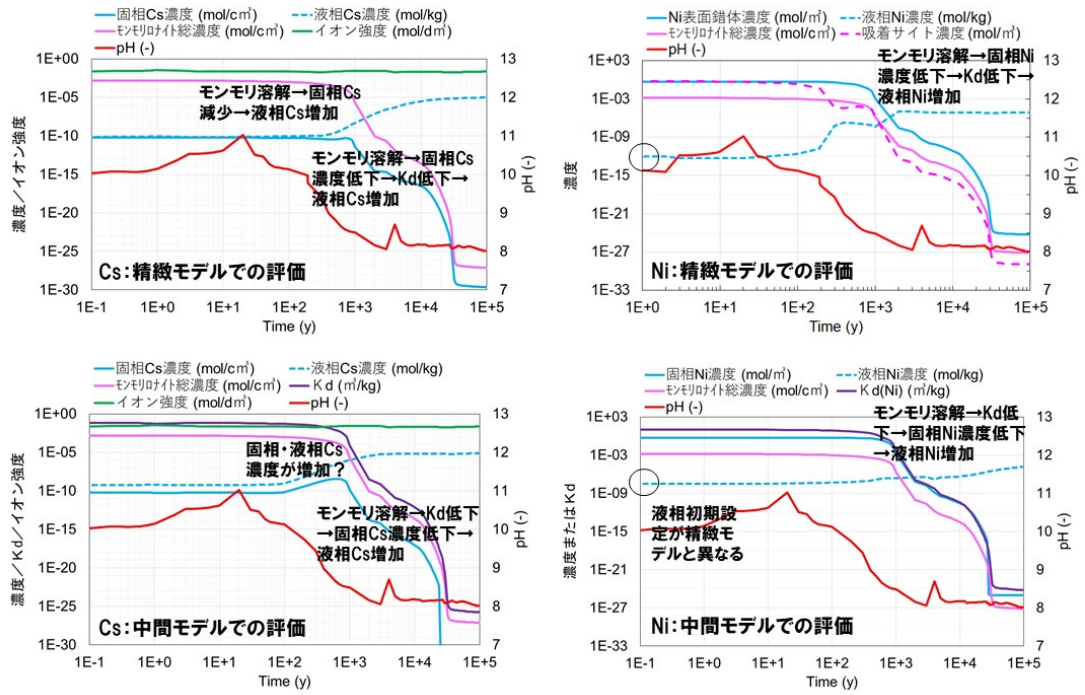


図4.3-8　Cs及びNiを対象にした緩衝材の状態変遷を踏まえた核種移行解析結果
（精緻・中間モデルによる解析結果の比較）

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

(3) 統合化評価を踏まえた核種移行評価技術に関わる最新の動向・現状を踏まえた課題の整理

前述した通り、SP3のサブタスク1での統合化評価による緩衝材の長期的変質挙動に関わる状態変遷の解析結果を踏まえ、サブタスク2において状態変遷を踏まえた核種移行解析を行うためのパラメータ設定をSP2と連携しつつ行い、状態変遷を踏まえた核種移行解析が可能なシステムを構築した。また、そのシステムを活用し、状態変遷の違いが核種の移行率に与える影響を評価すると共に、核種の移行率に影響を及ぼす状態変遷評価における因子の抽出についても例示した。さらに、将来的な性能評価への反映を念頭に核種移行モデルを適用する際の簡略化の妥当性をどのように示してゆけば良いのか、妥当性検討のための考え方や方法論の試行として、核種の収着に着目した場合の精緻モデルと中間モデルでの比較による検討も試みた。このような検討は、諸外国においても行われており、ここでは特に性能評価への反映を念頭にしたモデルの簡略化の妥当性確認に関わる類似事例を対象に文献調査を行い、本事業において最終年度である令和4年度に試行した実施内容と抽出された課題とも照らし合わせて、今後の課題について整理した。

文献調査では、Samper et al.（2010）による中間モデルと簡易モデルでの比較による簡易モデルの妥当性に関わる検討例、Garlbay-Rodriguez et al.（2022）による精緻モデルとサロゲートモデル（我々の称する中間モデルとは手法は異なるものの精緻モデルを簡略化した中間モデル的な位置づけのモデル）の比較によるモデルの精緻化と計算負荷との関係に関わる検討例を対象とした。前者の例では、一次元の解析体系において緩衝材間隙水に含まれる溶質が緩衝材外側に位置する岩盤側に時間の経過と共に拡散で移行し、緩衝材中の間隙水水質が時間と共に変化する状態で、キャニスターから溶出したCsが移行した場合の核種移行解析が行われている。この例では、緩衝材中の状態変遷として、緩衝材からのout diffusionにより間隙水のイオン強度が時間の経過と共に変化（減少）し、それに伴いCsのKdが増加する挙動を水理・物質輸送－化学反応の解析により評価している。中間モデルとしては、イオン強度とCsのKdの相関に係る関係式を用い、解析コードとして、CORE^{2D}（Xu et al., 1999）を用いた。簡易モデルでは、解析コードとしてGoldSim（GoldSim, 2007）を用い、variable Kdモデルによる評価が行われた。また、CORE^{2D}を用いた解析では、緩衝材中での状態変遷に依らず、一定のKd（保守的な値）を与えた場合の解析も行われた。これらの解析の結果、一定のKdを与えた場合、緩衝材中の間隙水のイオン強度の変化に対する感度が無いため、中間モデルで解析した場合の結果と比較すると、イオン強度の低下の影響が顕著になる数万年頃から、緩衝材外側部分でのCs濃度の違いも顕著になり、中間モデルでの結果に比べて過度に高いCs濃度になった。一方、中間モデルと簡易モデルでの比較では、両モデルでの結果の差は小さく、簡易モデルによる評価の妥当性が示唆されている。次に後者の例では、Opalinus粘土層中でのCsの拡散による移行と粘土層への収着を考慮した水理・物質輸送－化学反応の解析が行われている。Csの収着に関わる精緻なモデルとしては、Aguila et al.（2021）による粘土鉱物とのイオン交換反応（層間及びエッジ）が考慮された。解析コードとしては、

OpenGeosys（OGS-6 ; Bilke et al., 2019）によるOGS#iPHREEQCが用いられた。また、サロゲートモデルとしては、PHREEQCによるバッチ計算によりlook-up tableが生成され、それをOGS6-LTにより解析する方法が用いられた。なお、look-up tableでは、解析対象となる境界条件での最大及び最小の値から、ある条件での値を線形補完するような単純なやり方のため、look-up tableの数が少ないと連成解析における計算負荷は小さくなるものの誤差が大きくなる。一方、look-up tableの数が増えるにつれ、計算負荷は大きくなるが誤差は相対的に小さくなる。この解析例では、Csのソースとなる部分の濃度が高い場合、濃度勾配が大きくなるため、サロゲートモデルで評価する場合は、look-up tableの数を多くしないと解析結果の信頼性が低くなり、精緻モデルでの解析結果との差も大きくなることを示している。但し、解析精度を上げるためにlook-up tableの数を多くとると計算負荷が大きくなる。逆にソース部分のCs濃度が低い場合は、look-up tableの数を抑制しても精緻モデルとの整合にはあまり影響せず、計算負荷も小さい。この事例で示されるように、モデルの精緻化や解析精度の向上と計算負荷との間はトレードオフの関係にあり、対象とする核種の種類や解析条件等に応じて、適用するモデルの選定を変える等の考え方の整理が課題の一つである。また、Csのような比較的単純な化学種に加え、pHやEh等の化学条件により複雑な化学種分配を採るような核種について検討する場合には、経験式（換算式）に基づく中間モデルでは、精緻なモデルによる評価と同等の評価が可能な条件や領域が限定される可能性も示唆される。このような簡易なモデルを用いる場合の留意点や適用限界等を整理していくことも、今後の重要な課題であると考えられる。

4.3.3 5 か年の成果と今後の課題

令和4年度は、サブタスク1におけるモデルの見直しを踏まえた緩衝材の長期変質挙動に関わる再解析結果を対象とした核種移行解析を行い、モデルの見直しに伴う緩衝材の状態変遷評価への影響とそれらが核種移行評価に与える影響について分析・整理を行い、核種移行率に影響を及ぼす因子の一つとして、緩衝材の変質に伴う鉱物の溶解・沈殿の取り扱い（沈殿反応考慮の適切性や二次鉱物種の選定）を抽出し、これが核種の移行遅延評価において重要となる可能性を示唆した。また、今後、緩衝材の変質が核種の移行遅延効果に与える影響を評価する手法の整備に向けて、サブタスク1及び他の SP に今後フィードバックを図ることが重要と考えられる項目案を提示した。さらに、性能評価への反映を念頭にした核種移行モデルの簡略化の妥当性確認を今後進める上での試行として、核種の収着挙動に着目し、精緻と中間モデルによる核種移行解析結果を比較し、本事業を通じて検討・開発した中間モデルの適切性や現状での限界（適用可能な条件や領域が限定される可能性）についても整理した。加えて、性能評価への反映を念頭にした核種移行モデルの簡略化については、諸外国における類似した近年の研究動向（現状）を踏まえつつ、今後の課題についても整理した。

平成 30 年度から令和 4 年度までの 5 年間の検討により、ニアフィールドの状態変遷に関わる解析結果を反映しつつ、核種移行評価が可能なプラットフォームを利用し、核種移行解析を可能とするシステムを開発すると共に、開発したシステムを用いて状態変遷を考慮した核種移行解析を行うための方法論を整備した。方法論の整備の中では、具体的に以下のような検討を行った。例えば、核種移行解析システムを用いた解析の妥当性確認の一環として、メッシュ依存性についての予察的な検討を行った。また、本事業で開発した核種移行解析システムを活用し、環境条件の違いによる核種移行パラメータへの依存性が異なる複数の核種を対象とした場合の状態変遷を踏まえた核種移行パラメータの設定方法を SP2 と連携しながら検討し、核種移行解析を行うことで、緩衝材中での核種の移行遅延に影響を及ぼす因子の抽出を試みた。さらに、今後、緩衝材の変質が核種の移行遅延効果に与える影響を評価する手法の整備に向けて、サブタスク 1 及び他の

SP に今後フィードバックを図ることが重要と考えられる項目案を提示した。これらに加え、性能評価への反映を念頭にした核種移行モデルの簡略化の妥当性確認を今後進める上での試行として、精緻・中間モデルによる核種の収着挙動に着目した核種移行解析を行い、核種移行モデルの簡略化に向けた現状を整理すると共に、諸外国での現状も踏まえつつ、今後の課題を整理した。

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

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

参考文献

Aguila, J.F., Montoya, V., Samper, J., Montenegro, L., Kosakowski, G., Krejci, P. And Pfingsetn, W., Modeling cesium migration through Opalinus caly: a benchmark for single- and multi-species sorption-diffusion models, Computational Geosciences, 25, 1405-1436, 2021.

Baeyens, B., Bradbury, M.H., A mechanistic description of Ni and Zn sorption on Na-montmorillonite. Part I: Titration and sorption measurements. J. Contam. Hydrol. 27, 199–222, 1997.

Bilke, L., Felmisch, B., Kalbacher, T., Kolditz, O., Helimg, R. and Nagel, T., Development of open-source porous media simulations: Principles and experiences, Transport in Porous Media, 130, 337-361, 2019.

Brady P. V. and Walther J. V., Kinetics of quartz dissolution at low temperature. Chem. Geol. Vol. 82, pp. 253–264, 1990.

Deissmann G., Ait Mouheb N., Martin C., Turrero, M.J., Torres, E., Kursten, B., Weetjens, E., Jacques, D., Cuevas, J., Samper, J., Montenegro, L., Leivo, M., Somervuori, M. and Carpen, L., Experiments and numerical model studies on interfaces. Final version as of 12.05.2021 of deliverable D2.5 of the HORIZON 2020 project EURAD, 2021.

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.

De Windt L., Marsal F., Tinseau E. and Pellegrini D. Reactive transport modeling of geochemical interactions at a concrete/argillite interface, Tournemire site (France). Physics and Chemistry of the Earth, 33, S295-S305, 2008.

Frantz, F.K., Taxonomy of model abstraction techniqes, 1995, doi:10.1145/224401.224834.

Garibay-Rodriguez, J., Chen, C., Shao, H., Bike, L., Kolditz, O., Montoya, V. and Lu, R., Computational framework for radionuclide migration assessment in clay rocks, Frontiers in Nuclear Engineering, doi: 10.3389/fnuen.2022.919541, 2022.

Gaucher, E.C., Blanc, P., Matray, J-M. and Michau N., Modeling diffusion of an alkaline plume in a clay barrier, Applied Geochemistry, Vol.19(10), pp.1505-1515, 2004.

原子力発電環境整備機構・日本原子力研究開発機構, 概要調査段階における設計・性能評価手法の高度化, －NUMO-JAEA 共同研究報告書（2011 年度）－, NUMO-TR-12-03, 2012.

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・処分に関する技術開発報告書,令和4年3月, 2022.

GoldSim., GoldSim Contaminant Transport Module User's Guide, GoldSim Technology Group, Version 4.20, 2007.

伊藤弘之, 三原守弘, ベントナイト系材料の飽和透水係数の変遷評価式. JNC TN8400 2005-029, 2005.

Jenni, A., Wersin, P., Thoenen, T., Baeyens, B., Ferrari, A., Gimmi, T., Mader, U., Marshall, P., Hummel. and Leupin, O., Bentonite backfill performance in a high-level waste repository: a geochemical perspective, NAGRA Technical Report 19-03, 2019.

核燃料サイクル開発機構, わが国における高レベル放射性廃棄物 地層処分の技術的信頼性 －地層処分研究開発第2次取りまとめ－分冊3 地層処分システムの安全評価, JNC TN1400 99-

023, 1999.
Kobayashi, I., Owada, H., Ishii, T. and Iizuka, A., Evaluation of specific surface area of bentonite-engineered barriers for Kozeny-Carman law, Soils and Foundations, 57, 683-697, 2017.
Köhler, S.J., Dufaud, F. and Oelkers, E.H. An experimental study of illite dissolution kinetics as a function of pH from 1.4 to 12.4 and temperature from 5 to 50°C. Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol. 67, pp. 3583–3594, 2003.
Landolt, D., Davenport, A., Payer, J. and Shoesmith,D., A review of materials and corrosion issues regarding canisters for disposal of spent fuel and high-level waste in Opalinus clay, Nagra Technical Report 09-02, 2009.
Mon, A., Samper, J., Montenegro, L., Naves, A. And Fernández, J. Long-term non-isothermal reactive transport model of compacted bentonite, concrete and corrosion products in a HLW repository in clay, Journal of Contaminant Hydrology, 197, pp.1-16, 2017.
日本原子力研究開発機構, 平成 23 年度 地層処分技術調査等事業 ＴＲＵ廃棄物処分技術 セメント材料影響評価技術高度化開発報告書, 平成 24 年 3 月, 2012.
日本原子力研究開発機構, 平成 24 年度 地層処分技術調査等事業 ＴＲＵ廃棄物処分技術 セメント材料影響評価技術高度化開発報告書, 平成 25 年 3 月, 2013.
日本原子力研究開発機構, 平成 25 年度 地層処分技術調査等事業 セメント材料影響評価技術高度化開発報告書, 平成 26 年 3 月, 2014a.
日本原子力研究開発機構, 平成 25 年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発報告書, 平成 26 年 3 月, 2014b.
日本原子力研究開発機構, 平成 26 年度 地層処分技術調査等事業 セメント材料影響評価技術高度化開発報告書, 平成 27 年 3 月, 2015a.
日本原子力研究開発機構, 平成 26 年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発報告書, 平成 27 年 3 月, 2015b.
日本原子力研究開発機構, 平成 27 年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発報告書, 平成 28 年 3 月, 2016.
日本原子力研究開発機構, 平成 28 年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発報告書, 平成 29 年 3 月, 2017.
日本原子力研究開発機構, 平成 29 年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 処分システム評価確証技術開発報告書, 平成 30 年 3 月, 2018.
日本原子力研究開発機構, 原子力環境整備促進･資金管理センター, 平成 30 年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 ニアフィールドシステム評価確証技術開発報告書, 令和元年 3 月, 2019.
日本原子力研究開発機構, 原子力環境整備促進･資金管理センター, 平成 31 年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 ニアフィールドシステム評価確証技術開発報告書, 令和 2 年 3 月, 2020.
日本原子力研究開発機構, 原子力環境整備促進･資金管理センター, 令和 2 年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 ニアフィールドシステム評価確証技術開発報告書, 令和 3 年 3 月, 2021.
日本原子力研究開発機構, 原子力環境整備促進･資金管理センター, 令和 3 年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 ニアフィールドシステム評価確証技術開発報告書, 令和 4 年 3 月, 2022.

小田治恵, 本田明, 高瀬博康, 小曽根健嗣, 佐々木良一, 山口耕平, 佐藤努, セメント系材料由来のアルカリ性条件における緩衝材の鉱物学的変遷シナリオに基づく化学反応・物質移動連成解析, 粘土科学 第 51 巻 第 2 号, pp.34-49, 2013.

Oda C., Shibata M. and Yui M., Experimental indications of effects of surface deprotonation on Na-bentonite porewater chemistry in a geological repository. In: Scientific Basis for Nuclear Waste Management XXIV, Mat. Res. Soc. Symp. Proc. 663, 637–644, 2001.

Palandri, J. L. and Kharaka, Y. K., A Compilation of Rate Parameters of Water-Mineral Interaction Kinetics for Application to Geochemical Modeling. U.S. Geological Survey, Open File Report 2004-1068.

Quintessa Ltd., QPAC: Quintessa's General-Purpose Modelling Software, QRS-QPAC-11, 2013.

Razavi, S., Tolson, B.A. and Bum, D.H., Review of surrogate modeling in water resouces, Water Resouces Research, doi: 10.1029/2011ER011527, 2012.

Ren, X.W. and Santamarina, J.C., The hydraulic conductivity of sediments: A pore size perspective, Engineering Geology, 233, 48-54, 2018.

Ruan, K. and Fu, X.L., A modified Kozeny-Carman equation for predicting saturated hydraulic conductivity of compacted bentonite in confined condition, Journal of Rock Mechanics and Geotechnical Engineering, 14-3, 984-993, 2022.

Samper, J., Ma, H., Cormenzana, J.L., Lu, C., Montenegro, L. and Cunado, M.A., Testing Kd models of Cs^+ in the near field of a HLW repository in granite with a reactive transport model, Physics and Chemistry of the Earch, 35, 278-283, 2010.

Savage, D., Prospects for coupled modelling, STUK-TR 13, 2012.

澤口拓麿, 塚田学, 向井雅之, 山口徹治, アルカリ条件下において変質したベントナイト系緩衝材の透水係数評価手法の開発, 第 31 回「バックエンド」夏季セミナー, 2015.

柴田雅博, 笹本広, 神徳敬, 油井三和, 緩衝材の長期安定性評価技術の現状, JNC TN8400 2004-010, 2004.

Sugiura, Y., Ishidera, T. and Tachi, Y., Surface complexation of Ca and competitice sorption of divalent cations of montmorillonite under alkaline conditions, Applied Clay Science, 200, 105910, 2021.

Tachi, Y. and Yotsuji, K., Diffusion and sorption of Cs^+, Na^+, I^- and HTO in compacted sodium montmorillonite as a fuction of porewater salinity: Integrated sorption and diffusion model, Geochimica et Cosmochimica Acta, 132, 75-93, 2014.

Wanner H., Albinsson Y. and Wieland E., A thermodynamic surface model for caesium sorption on bentonite. Fresenius J. Anal. Chem. 354, 763–769, 1996.

Wersin, P. and Birgersson, M., Reactive transport modelling of iron-bentonite interactionwithin the KBS-3H disposal concept – the Olkiluoto site as case study. Geological Society, London Special Publication 400, pp.237-250, 2014.

Wilson, J.C., Benbow, S., Watson, C., Sasamoto, H. and Savage, D. Fully-copled reactive transport models of the Fe-bentonite interface, Applied Geochemistry, 61, pp.10-28, 2015.

Wilson, J., Bateman, K. and Tachi, Y., The impact of cement on argillaceous rocks in radioactive waste disposal systems: A revies focusing o key processes and remaining issues, Applied Geochemistry, 130, 104979, 2021.

Wollast, R. and Chou, L., Rate control of weathering of silicate minerals at room temperature and pressure. In Physical and Chemical Weathering in Geochemical Cycles (ed. Lerman,

A. and Maybeck, M.), Amsterdam, Kluwer Academic, pp.11-32, 1988.
Yamaguch, T., Sakamoto, T., Akai, M., Takazawa, M., Iida, Y., Tanaka, T. and Nakayama, S., Experimental and modeling study on long-term alteration of compacted bentonite with alkaline groundwater, Physics and Chemistry of the Earth, 32, 298-310, 2007.
Yamaguchi, T., Yamada, F., Negishi, K., Hoshino, S., Mukai, M., Tanaka, T. and Nakayama, S., Development and verification of a reactive transport model for long-term alteration of bentonite-cement-seawater systems, Physics and Chemistry of the Earth, 33, 285-294, 2018.
Xu, T., Samper, J., Ayora, C., Manzano< M. and Custodio, E., Modeling of non-isothermal maulticomponent reactive transport in field scale porous media flow systems, Journal of Hydrology, 214, 144-164, 1999.

5. 結言

5.1 これまでの5か年における主な成果と課題

本事業において、平成30年度から令和4年度までの5か年で得られた主な成果と今後の課題を以下にまとめる。

2章「ニアフィールド環境変遷に係る個別評価技術の開発」では、オーバーパック、緩衝材、セメント系材料など複数の材料と岩盤から構成されるニアフィールドの状態変遷を評価する技術の構築と、その技術の検証を目的に、以下の五つのサブタスクを実施した。

オーバーパックの腐食挙動評価

処分後の過渡期から長期にわたるオーバーパックの腐食挙動について、原位置試験試料等の調査・分析として、緩衝材中に埋設した腐食センサーの調査や広範な環境条件での室内試験によってデータを取得した。緩衝材中の環境条件や腐食センサーの腐食状態の調査結果に基づき、過渡期においても、炭素鋼の極近傍は比較的短期間で低酸素濃度環境となり、その環境条件に応じた腐食速度（数μm/y）での腐食、腐食生成物（シデライト）の生成を想定することが可能であることなどを確認した。また、微生物腐食について、原位置試験試料等の調査結果に基づき、緩衝材中の微生物活性を抑制するには、高乾燥密度条件など、期待される緩衝材の機能が十分に発揮される必要があることを明らかにした。広範な条件での室内試験からは、全面腐食については、酸性条件、高温条件を含め、保護的な腐食生成物であるシデライトの生成により腐食反応が抑制され、広範な条件で現行モデルが適用可能であることを確認したほか、応力腐食割れについては、緩衝材が環境条件（塩濃度、炭酸濃度、pH）の影響を緩和、応力腐食割れ感受性を変動させないことを確認した。一部試験条件の長期試験において、腐食生成物の変化と腐食速度の増加の兆候を確認した。

今後、過渡期に生じる状態変遷については、過渡期～長期の腐食挙動にどのような影響を及ぼしうるかを更に詳細に検討すること、微生物影響については、実際の地下環境や処分環境を模擬した様々な条件下かつ長期的なスケールで、緩衝材の不均一性や間隙サイズ等の知見とともに、微生物増殖が十分に抑えられていることを示すデータを蓄積することが必要である。腐食生成物による腐食反応抑制効果については、長期データの拡充と腐食生成物の種類や性状（間隙率等）、それらの変遷などについての現象理解、モデル化が必要である。

緩衝材の変質挙動評価

炭素鋼とベントナイトの相互作用による緩衝材変質に関しては、原位置試験試料、考古学的鉄製品接触土壌試料、長期腐食試験試料を対象としたデータ取得によって、炭素鋼－緩衝材境界領域における緩衝材の変質状態の詳細を把握することができた。いずれの試料においても、モンモリロナイトが非膨潤性鉱物などの他の鉱物に変質するといった状態は確認できなかった。また、考古学的鉄製品接触土壌試料や長期腐食試験試料については、腐食生成物の沈殿により土壌又はベントナイトのセメンテーション状態が確認されたほか、比較的高温条件の長期腐食試験試料では、モンモリロナイトのFe型化やFe、Siを含有する非晶質物質の生成が確認された。さらに、セメンテーションによる緩衝材基本特性の変化については、ベントナイト原鉱石を対象としたナチュラルアナログ研究により、シリカ微粒子が原鉱石のセメンテーションの原因物質であり、シリカセメンテーションが膨潤圧の低下など基本特性の変化を生じさせていること、セメンテーションの原因物質の溶解により基本特性への影響が低下する可能性があることなどを確認した。

今後は、試験期間20年を超える長期接触試料等を対象とした詳細な分析等により、炭素鋼と緩衝材の相互作用に関する知見を拡充するとともに、腐食生成物の生成挙動と緩衝材の変質状態の関係を明らかにする必要がある。また、より多様なセメンテーションの状態を模擬した試料を作製するための試験方法を確立し、これらのセメンテーションによる緩衝材基本特性や核種移行への影響の把握等を行う必要がある。得られる成果は、統合化評価で対象とする緩衝材の状態変遷に顕著な影響を及ぼす可能性のある現象のシナリオ構築への反映も期待できる。

ニアフィールドTHMC連成挙動評価

過渡期のTHC連成挙動に関する現象解析モデル開発として、FEBEXプロジェクトにおける原位置試験や幌延深地層研究計画における人工バリア性能確認試験等で得られた計測データ等を活用して、現象解析モデルの妥当性の検証と高度化を実施した。その結果、NaCl濃度が海水程度までの塩水条件での浸潤挙動等を評価することが可能となった。また、ニアフィールド長期力学解析コード開発として、不飽和土の弾塑性構成モデルの導入等により、上記のTHC連成挙動に関する現象解析モデルと連携して過渡期の力学挙動を解析する機能を追加した。これにより処分施設の各材料及び周辺岩盤との力学的相互作用を過渡期から長期まで一貫して解析可能なシステムを構築し、幌延の人工バリア性能確認試験データを活用した妥当性の検証と、解析コードの三次元化等の更なる課題を抽出することができた。ニアフィールド長期力学解析コードの過渡期の解析機能以外については、SP3で開発が進められている複合現象評価技術にすでに取り込まれている。そのため、上記で示した過渡期の解析技術をSP3での複合現象評価技術に導入する等により、ニアフィールドの複合現象を過渡期から長期まで一貫して評価することが可能となってくると考える。

今後は、緩衝材の温度が100 °Cを超えた条件を含め、想定すべきより多様な環境条件でのTHMC連成解析を可能とするためのデータ取得やモデル開発が重要となる。また、過渡期のTHMC連成解析モデルによる核種移行解析の初期状態の設定への反映や、過渡期のTHMC連成解析モデルの導入により過渡期から長期にわたる複合現象評価システムを構築していくことが重要となる。

母岩中アルカリプルーム反応輸送挙動評価

セメント系材料が岩盤へ与える影響を理解することを目的に、これまで、瑞浪超深地層研究所の地下坑道周辺におけるグラウト等に使用されたセメント系材料を事例として、実際の地下環境におけるセメント系材料の変遷およびセメント系材料が周辺岩盤へ与える影響を評価した。グラウト材などのセメント系材料と花崗岩の境界部においては方解石の析出が確認され、この知見をもとにセメント系材料と岩盤との相互作用メカニズムの変遷に係る概念モデルを構築した。セメント系材料が使用された割れ目周辺の母岩中では母岩を構成する鉱物の溶解や二次鉱物の生成といったアルカリプルームの痕跡は確認されなかった。また、亀裂性岩盤を対象とした母岩中アルカリプルームの反応輸送挙動評価においては、コンクリート支保との相互作用による岩盤特性変化のプロセスを整理し、坑道近傍スケールにおけるアルカリプルームの影響範囲を確認するための準三次元の反応輸送解析モデルを構築した。さらに、アルカリプルームによる岩盤の状態変遷プロセスの定量的評価に資するための解析方法を検討し、亀裂の開口／閉塞に影響を与える条件を概略的に把握した。

今後は、セメント系材料が使用されてからの時間がより長期の事例や、より多量のセメントが使用された事例などを対象に調査・評価事例を拡充していく必要がある。また、アルカリプルームによる岩盤の状態変遷の解析モデルをさらに改良し、亀裂の開口／閉塞に向かう場合の条件を定量化するための探索的解析を試行し、定量化のための検討方法や検討事例を拡充していくこと

が重要である。さらに、 ニアフィールド性能の総合評価技術開発において、ニアフィールド岩盤も含めた状態変遷やそれを踏まえた核種移行評価を検討する上でのシナリオ設定への反映も期待される。

流出現象などを考慮した緩衝材の健全性評価

竪置き・ブロック方式に関する緩衝材の流出への工学的対策に関して、緩衝材ブロックと孔壁との隙間の処理に関する現時点で考え得る緩衝材の施工技術オプション（ケイ砂充填、隙間未充填、ペレット充填等）を対象に、室内要素試験や原位置実規模1/4スケール試験を通じて評価手法などの基盤情報を整備した。このうち、隙間未充填オプションおよびケイ砂充填オプションは、流出量の評価に関し室内試験に基づいて評価モデルを構築し、原位置や実規模へ拡張する評価手法の方法論を提示した。緩衝材流出特性の評価手法については、将来の実事業への活用を念頭に、処分孔環境に応じて適切なオプションを選択するための判断指標として、操業時に取得可能なパラメータを評価項目として設定するとともに、判断指標の設定に関する考え方や緩衝材の流出量の評価手法の開発手順を提示した。これらを通じて、ケイ砂充填、隙間未充填の2つのオプションを対象に、緩衝材の流出量をより適切に評価できる見通しを得た。

今後は、緩衝材の流出量の評価手法の方法論のさらなる具体化を図ることに加え、膨出挙動を考慮した各隙間処理オプションの評価方法の整備が必要である。また、原位置の実規模スケールでの試験による評価方法の検証や、隙間処理技術オプションの確証や適用範囲の検討を進めていくことが重要となる。

竪置き・ブロック方式の緩衝材における地下水の浸潤に伴う膨潤による、孔壁との隙間の充填、その後の再冠水完了までの緩衝材内部の応力再分配と乾燥密度変化の解析手法の整備に向けて、不飽和状態から飽和状態に至る過程における緩衝材の力学挙動を表現できるように弾塑性構成モデルを拡張して土/水連成有限要素解析コードへ実装し、室内試験や実規模1/4スケールの試験結果等による検証をした。これにより、パラメータや緩衝材の界面における摩擦の影響等の境界条件の設定を検討して解析手法の方法論を示すと共に、実規模1/4スケールにおける緩衝材の乾燥密度分布の傾向を概ね再現することができた。

今後は、これまでの検討を通して把握した、摩擦係数の設定、自重や気層圧の考慮等の課題を含めて実規模スケールへの段階的なモデルの高度化開発に取り組み、過渡期の緩衝材の状態変遷の確からしい評価や閉鎖後長期の性能評価における初期条件に関する情報提供に繋げていくことが可能となると考えられる。加えて、緩衝材の流出や隙間充填挙動だけでなく、膨出現象などが乾燥密度に与える影響が大きくなると考えられる。膨出現象を表現できるように、本検討における微小変形理論に基づく解析コードの膨出挙動を表現するモデルへの適用性についても確認していくことも重要である。

3章「ニアフィールド環境変遷を考慮した核種移行評価技術の開発」では、実際の地質環境の特徴やニアフィールドシステムの長期環境変遷を考慮した核種移行評価を行うための個別現象モデルやデータベースを、室内試験、地下研究施設での原位置試験などを通じて開発することを目的に、以下の三つのサブタスクを実施した。

ニアフィールド岩盤中の核種移行評価技術の開発

・結晶質岩中の核種移行評価技術の開発

結晶質岩中のマトリクス部については、スイス・グリムゼルの花崗閃緑岩を対象に、黒雲母等の鉱物や間隙の不均質性の定量化と、不均質性を考慮した拡散挙動の解析手法を開発した。さら

に、スウェーデン・エスポやフィンランド・オンカロの海外URLの岩石試料や国内の結晶質岩試料を用いた試験分析によって、多様な結晶質岩マトリクス部の鉱物や間隙分布の特徴と、その核種移行特性との関係を把握し、黒雲母等が核種移行に重要な役割を果たすことを確認した。結晶質岩の割れ目部については、複雑な割れ目性状を有する大型のグリムゼルの割れ目試料を対象に、室内トレーサー試験データに加え、割れ目近傍の開口部やガウジ充填状況等の不均質性を把握した。また、これらの不均質性等を反映した核種移行モデルを構築し、複数の特性の異なるトレーサーの移行データを概ね再現することができた。さらに、これらの成果を反映して、地質環境の不均質性や長期変遷が核種移行に及ぼす影響をより現実的に考慮可能な核種移行解析手法を構築した。

今後は、マトリクス部については、より多様な結晶質岩を対象として、黒雲母等の含有率に加え、黒雲母等の鉱物内の間隙率や粒界間隙の連続性等もあわせた定量化とモデル化が重要となる。割れ目部については、より多様な割れ目特性を有する試料を用いた室内試験や、原位置試験等によるモデルの適用性評価を通じて、これまで構築してきたモデルの妥当性を確認していく必要がある。さらに、割れ目部等の不均質性や地質環境の長期変遷等のそれぞれの視点で構築してきた複数のモデルを統合化するとともに、原位置試験や天然事例への適用性を評価していくことが重要である。

・堆積岩中の核種移行評価技術の開発

堆積岩については、幌延URLの泥岩試料を対象に、原位置試験や室内試験を組み合わせて、マトリクス部および割れ目部の核種移行データの取得とモデルの構築を進めた。マトリクス部については、泥岩マトリクスの間隙構造を反映した拡散モデルを構築するとともに、先端的な分析技術や計算科学手法を適用して収着・拡散メカニズムをより詳細に把握した。割れ目部については、幌延URLにける割れ目中トレーサー試験を対象に、複数の移行経路等を考慮したモデルの改良を進め、移行特性が異なる複数の元素のデータを、概ね再現することが可能となった。これまでの検討を通じ、複雑な割れ目を対象とした原位置トレーサー試験結果に対し、複数の移行経路等を考慮したより現実的な移行モデルとパラメータの最適化手法を組み合わせたトレーサー試験の評価手法を構築することができた。さらに、幌延URL付近の地表から地下深部に形成されたナチュラルトレーサーの評価について、反応性トレーサーを対象として、粘土鉱物のイオン交換反応や炭酸塩鉱物による共沈反応を考慮したモデルによる解析を試みた。これまでの検討を通じ、地層スケールでの長期的な物質移行プロセスの理解を深めるためのアプローチとして、幌延の堆積岩を例に、非収着性及び反応性元素の深度プロファイルの解釈評価手法を構築した。このように幌延の泥岩を対象に、室内試験、原位置試験及び天然事例評価とを組み合わせて、信頼性の高い原位置の核種移行特性を評価可能な手法を提示した。

今後は、幌延の泥岩のマトリクス及び割れ目部を対象とした核種移行モデルの妥当性確認に加え、より多様な堆積岩、割れ目性状やスケールに対するデータを拡充し、これまでに構築してきた評価手法やモデルの更なる改良と妥当性確認を進めていく必要がある。また、天然事例を活用した物質移行評価についても、多様な鉱物・地球化学プロセスや地下水流動影響なども考慮した評価手法の更なる改良や適用性評価が課題となる。

<u>システム変遷等を考慮した核種移行解析モデル／データベースの開発</u>

・オーバーパック等から生じる鉄共存が緩衝材や岩石中の核種移行へ及ぼす影響の評価

ニアフィールドの状態変遷のうち、鉄製オーバーパックと緩衝材との反応による核種移行影響に関する課題として、鉄共存による核種収着競合の影響、鉄鉱物への核種の取り込みの影響に関

する研究を進めた。このうち緩衝材における鉄と核種の収着競合については、種々の元素のFe(II)との収着競合データを取得・評価し、価数が異なるAm(III)やNb(V)とはほとんど競合しないことを確認し、競合が確認されたNi(II)においても、収着競合は限定的であることを確認した。オーバーパックの腐食に伴って生成する鉄鉱物への核種の取り込みについては、異なるpH条件での2種類のFeとSeの相互作用試験（共沈または鉄鉱物への収着）によってデータを取得し、各条件やプロセスで生じるSeの取り込み現象、熟成に伴う固相変遷やSeの取り込み状態の変化等を把握した。また、実際の深部地下環境下における岩石中のFe鉱物とSeの相互作用について検討するため、幌延URLから採取した泥岩を対象とした多面的な分析によって、フランボイダルパイライト中にSeが取り込まれていることを確認した。これまでの検討を通じて、鉄とベントナイト界面や深部岩盤中で想定される環境条件とそこでの鉄鉱物の生成・変遷過程に応じて、生じる可能性の高いSeの取り込み現象やその遅延特性や安定性を推定することが可能となった。

今後は、より多様な元素や条件を対象とした室内試験・分析データの取得や、天然事例分析の拡充によって、鉄共存が核種移行に及ぼす影響を把握するとともに、長期時間スケールでの遅延の現象モデルの構築と性能評価への反映方策を具体化していくことが重要となる。

・セメント系材料の共存が緩衝材や岩石中の核種移行へ及ぼす影響の評価技術の開発

セメント共存系での核種移行影響評価のうち、セメント共存による圧縮ベントナイト中のコロイドろ過機能への影響については、デンドリマーコロイドを用いて、異なるサイズのコロイドの移行・ろ過挙動や間隙の連続性を把握する手法を構築し、ナノメートルサイズのコロイドが、Na型およびCa型のいずれのモンモリロナイトでも、乾燥密度1.6 Mg/m^{3}ではろ過され、乾燥密度1.2 Mg/m^{3}では破過することが確認された。セメント系材料が岩石中の核種移行へ与える影響については、幌延URLにおける泥岩とセメント系材料の原位置での接触試料を対象として選定し、泥岩と2種類のセメント（OPCやHFSC）の界面近傍での変質状況を、複数の分析手法の組合せにより分析・評価し、二次鉱物の生成と微量元素の取り込み状況を詳細に把握したほか、これまで構築してきた地球化学ー物質移行解析コードを適用して変質状況の解析的な評価を試行した。また、幌延の泥岩中のカルサイトに含まれる微量元素を測定し、採取したボーリング孔や深度に応じて特徴的な希土類元素の分配パターンを取得し、カルサイトが生成した環境を反映していること等を確認した。

今後は、コロイドの移行・ろ過挙動については、これまで構築してきた手法を実際のベントナイトやケイ砂混合系へ適用していくことが課題である。セメント系材料が岩石中の核種移行に及ぼす影響については、原位置試料や天然試料の分析事例を拡充し、評価モデルの改良や妥当性確認を進めていくことが重要となる。

・高炭酸濃度の地下水が岩石中の核種移行に及ぼす影響の評価技術の開発

地下水中の高炭酸濃度が核種移行に及ぼす影響評価技術の開発については、高炭酸条件下での核種収着モデルとデータベースの整備に向けて、イライトや幌延の泥岩を対象に高炭酸条件下での収着試験・分析データの拡充や、モデル化検討を進めてきた。Eu(III)およびU(VI)の炭酸共存下でのイライトへの収着データを拡充するとともに、TRLFS分析による収着形態評価から収着メカニズムの裏付けを得つつ収着モデルを構築することができた。加えて、幌延の泥岩に対する収着データを拡充し、加成則に基づく収着モデルの適用性を確認した。また、分子動力学計算を用いて粘土層間間隙へのアクチニドの炭酸錯体のアクセス性を定性的に把握した。さらに、炭酸共存下の複数の化学種が共存する系でのNp(V)の拡散データを対象に、溶存化学種の平衡計算、化学種毎の拡散係数、収着モデルを組み合わせた解析手法を適用し、その有効性を確認した。これまで

の検討を通じ、粘土中の核種収着・拡散モデルを、高炭酸条件まで拡張し、それらを統合した核種移行解析手法を構築することができた。

今後は、より多様な核種や環境条件を対象にデータの拡充とモデルの改良を進めるとともに、これらの一連の評価手法の妥当性確認や、これらの評価手法を反映した核種移行解析およびパラメータ設定手法を構築していくことが重要である。

有機物・微生物の影響評価技術の開発

・有機物影響評価技術の開発

幌延URLの天然有機物（フミン酸）を対象にIV価核種との錯生成データを拡充し、信頼性の高いNICA-Donnanモデルパラメータを決定した。また、フミン酸の錯形成モデルパラメータと第一加水分解定数の相関性（線形自由エネルギー相関）から、錯生成データを取得できていない評価対象核種についてもフミン酸との結合量の推定が可能となった。さらに、核種－有機物－岩石三元系を評価するため、Eu、フミン酸、幌延堆積岩を用いた収着試験データを取得し、加成則モデルの適用性を評価し、幌延のフミン酸の場合には加成則性が成立する可能性が高いことを明らかにした。これらの知見を踏まえ、フミン酸による錯生成の影響を考慮した核種移行解析を試行し、対象とする有機物や核種の錯生成特性によって、その影響が大きく変化しうることが示された。以上の検討を通じて、様々な核種を対象とした有機物との錯生成や分配係数に関するパラメータ整備手法、および有機物影響を考慮した定量的な核種移行評価手法を提示することができた。

今後の課題としては、核種-有機物の錯生成データ取得手法や、モデルパラメータの推定評価手法の信頼性向上が挙げられる。核種－有機物－岩石三元系の評価については、加成則性が成立しない有機物に対して、適切なモデルの補正等を検討し、有機物影響評価を可能とするための手法を開発していく必要がある。

・微生物影響評価技術の開発

微生物影響のうち核種移行への影響が大きいことが想定されるバイオコロイドやバイオフィルムに着目し、幌延URLの地下深部において微生物特性、収着分配挙動等のデータを取得した。コロイドについては、複数の深度から採取した試料を用いた収着試験から、バイオコロイドが希土類元素の収着挙動に顕著な影響を及ぼす可能性が示された。バイオフィルムの核種移行影響評価に関しては、バイオフィルムの空間分布とその形成の潜在能力、収着特性について評価手法を提示した。また、幌延の地下環境において形成されているバイオフィルムには、重金属元素が濃集することが確認されたが、バイオフィルムへの元素の濃集はバイオフィルム構成微生物種ではなく、主に細胞外高分子物質の量に起因する可能性が示唆された。これらの成果を踏まえて、バイオコロイドやバイオフィルムによる微生物影響を考慮した定量的な核種移行影響評価を行い、地下環境においてコロイド濃度およびコロイドへの核種の分配が高い場合に核種移行が助長される可能性を示した。一連の成果から、核種移行への微生物影響を評価するためのパラメータを整備するとともに、最新の知見を踏まえた微生物影響評価手法について提示することができた。

今後は、核種移行に及ぼす微生物影響評価モデルの構築とパラメータ整備を目的として、地下環境における微生物コロイドを含む天然コロイドへの核種の収着/取込特性とメカニズムに関する現象解明を行う必要がある。また、深部地下環境における原位置試験などにより、取得した試験結果の妥当性や影響評価モデルの妥当性を確認していくことが重要である。

4章「ニアフィールド性能の総合評価技術開発」では、個別現象モデルを統合してニアフィールドの空間的・時間的な変遷を解析するシステムの構築と、時間変化を考慮した地質環境モデルや

ニアフィールドを対象とした連成解析の結果を核種移行解析モデルへ反映する手法の構築を目的に、以下の二つのサブタスクを実施した。

現象解析モデルの統合化技術の構築

ニアフィールドを対象とした複合現象評価のためのシステム開発にあたり、過渡期から長期にわたるシナリオを踏まえた従来のシステム性能評価モデルによる感度解析により、相対的に重要な安全機能を抽出し、複合現象解析モデルの統合化技術開発で重点的に取り組むべき課題を設定した。その中から、システム開発で着目すべき評価課題として緩衝材の長期的変質挙動を選定したうえで、その評価にあたり重要となる複合現象としてコンクリート支保及びオーバーパックとの水理・物質輸送－化学－力学相互作用による緩衝材の状態変化に着目し、プロトタイプの評価システムを構築した。なお、力学を含めた連成解析のための評価システムの改良は、令和 2 年度で一旦保留とし、令和 3 年度以降はプロトタイプの評価システムで用いられている水理・物質輸送－化学反応の解析モデルの妥当性確認を中心に検討を進めた。開発されたプロトタイプシステムやそれを用いた検討例に基づき、緩衝材の変質を考慮した透水性評価にあたり、状態変遷と透水性との関係を理論的に評価可能な評価式の必要性を個別現象評価へのフィードバックの一つとして例示した。また、ニアフィールドを対象とした複合現象について、現時点での最新の知見に基づく確からしい評価が可能となり、今後、どういう安全機能が鍵となるかというシステムの理解に繋げるための基盤となる技術が構築された。このような解析システムや解析技術を用いることで、従来の評価では考慮されていなかった現象をモデルとして取り込み、評価上の見落としが無かったか等を確認していく上でも有効に活用できると考えられる。

今後は、本事業を通じて更新された過渡期から長期にわたるシナリオを活用すると共にプロトタイプシステムを用いてナチュラルアナログや長期の試験データ等を対象にした検証・確証事例の拡充により、モデルの見直しを図り、評価結果の信頼性を更に向上させていくことが必要である。その際には、本事業において評価システムの改良を一旦保留とした力学との連成や過渡期に生じる影響の長期評価における取扱いについても、水理・物質輸送－化学反応の解析モデルの妥当性確認の状況や過渡期を対象にした個別現象評価で得られる成果を踏まえつつ、計画を再度検討することも重要である。

ニアフィールドシステム核種移行評価技術の開発

ニアフィールドの状態変遷に関わる解析結果を反映しつつ、核種移行評価が可能なプラットフォームを利用し、核種移行解析を可能とするシステムを開発すると共に、開発したシステムを用いて状態変遷を考慮した核種移行解析を行うための方法論を整備した。方法論の整備の中では、具体的に以下のような検討を行った。例えば、核種移行解析システムを用いた解析の妥当性確認の一環として、メッシュ依存性についての予察的な検討を行った。また、本事業で開発した核種移行解析システムを活用し、環境条件の違いによる核種移行パラメータへの依存性が異なる複数の核種を対象とした場合の状態変遷を踏まえた核種移行パラメータの設定方法を SP2 と連携しながら検討し、核種移行解析を行うことで、緩衝材中での核種の移行遅延に影響を及ぼす因子の抽出を試みた。さらに、今後、緩衝材の変質が核種の移行遅延効果に与える影響を評価する手法の整備に向けて、サブタスク 1 及び他の SP に今後フィードバックを図ることが重要と考えられる項目案を提示した。これらに加え、性能評価への反映を念頭においた核種移行モデルの簡略化の妥当性確認を今後進める上での試行として、精緻・中間モデルによる核種の収着挙動に着目した核種移行解析を行い、核種移行モデルの簡略化に向けた現状を整理すると共に、諸外国での現状も踏まえつつ、今後の課題を整理した。

今後は、緩衝材の変質が核種の移行遅延効果に与える影響を評価する手法の整備に向けて、変質に関わるシナリオ・モデル・データのバリエーションや不確実性等の考慮も視野に、より幅広い検討をサブタスク 1 での検討も含めて行うことも重要である。また、本事業の最終年度に予察的に検討を試みた性能評価への反映を念頭においた核種移行モデルの簡略化の妥当性確認については、簡易なモデルを用いる場合の留意点や適用限界等について、具体化を図っていくことが必要になる。

5.2 おわりに

本事業では、バリア構成要素間の相互作用を含むニアフィールド環境の長期変遷のより現実的な評価を可能とするために必要な技術開発として、状態変遷やそれが核種移行挙動に与える影響の評価に向けた個別現象についてのモデル開発やパラメータ整備と、複数の現象解析モデルを統合化するための技術開発を、三つのサブプロジェクトとして設定し、相互に連携させつつ進めた。現象解析モデルの統合化は、ニアフィールド環境の長期変遷のうち、核種移行解析結果に重大な影響を及ぼすと考えられる現象やその相互作用から優先的に取り組むことし、その優先課題の抽出からシステム開発に向けた一連の方法を整備することとした。

ニアフィールド環境の長期変遷に係る個別現象解析モデルについては、ニアフィールド環境の長期変遷のうち、オーバーパック、緩衝材、セメント系材料、岩盤の複数の材料間の相互作用に着目して、処分後の過渡期から長期にわたる複合現象を解明しつつ、個別現象解析モデルを構築した。ニアフィールド環境変遷を考慮した核種移行評価技術の開発については、オーバーパック、緩衝材、セメント系材料、岩盤の複数の材料間の相互作用が核種移行に及ぼす影響に着目するとともに、ニアフィールド岩盤中の核種移行や有機物・微生物影響を対象として、個別現象解明と解析モデルの開発を進めた。これらの個別現象解明とモデル開発にあたっては、室内試験、原位置試験や天然事例を適切に組み合わせるとともに、先端的な分析技術や計算科学技術を適用することにより、国際的にみても先駆的な成果を提示することができた。

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

以上の本事業で得られた成果は、NUMOが公表した包括的技術報告書に示された課題にも対応するものであり、今後の概要調査から精密調査段階で必要となる実際のサイトにおける地質環境調査等のデータを適切に反映させた評価モデルの構築と、様々な処分概念や設計オプションの比較、それらの条件での性能評価による安全性の成立性やサイト間の優劣等を検討するための技術基盤としての活用が期待される。さらに、地層処分が安全で信頼に足るものとして社会に受け入れられるものとするために本事業の成果が活用され、それがステークホルダーにとって地層処分システムがより納得のいくものとなることの一助となることが期待される。