令和5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

【地層処分安全評価確証技術開発 (核種移行総合評価技術開発)】

報告書

令和6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 ー般財団法人電力中央研究所 国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構

本報告書は、経済産業省資源エネルギー庁からの委託事業として、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、 一般財団法人電力中央研究所及び国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構が実 施した令和5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(体系 的番号:JPJ007597)【地層処分安全評価確証技術開発(核種移行総合評価技術開発)】 の事業報告書である。

This report shows the technology developments performed by Japan Atomic Energy Agency, Radioactive Waste Management Funding and Research Center, Cenral Resarch Institute of Electric Power Industry and National Institute for Quantum Science and Technology funded by the Ministry of Economy, Trade and Industry of Japan through the project " Project on Research and Development for Validating Safety Assessment of Geological Disposal:Development of the Technology for Integrating Radionuclide Migration Assessments (Systematic Number:JPJ007597)" in JFY2023.

第1章 緒言
1.1 本事業の背景と目的
1.2 本事業の概要
1.2.1 ニアフィールドにおける核種移行総合評価技術の開発
(1) ニアフィールドにおける核種移行に係る個別現象解析モデルの開発
(2) ニアフィールド複合現象・核種移行の総合評価技術開発
1.2.2 天然バリア(岩盤)における核種移行総合評価技術の開発
(1) 岩盤中の核種移行評価技術開発
(2) 岩盤中における地球化学・核種移行の個別現象評価技術開発
1.2.3 生活圏における核種移行総合評価技術の開発
(1) 生活圏における核種移行及び被ばくプロセスモデルに関する検討
(2) 生活圏評価のための核種移行パラメータに関する検討
参考文献

第2章 ニアフィールドにおける核種移行総合評価技術の開発

2.1 目的と5か年の計画······2-1
2.1.1 目的
2.1.2 5 か年の計画 ····································
2.2 ニアフィールドにおける核種移行に係る個別現象解析モデルの開発2-5
2.2.1 ニアフィールド環境変遷を考慮した核種移行個別現象評価技術の開発2-5
(1) 背景と目的
(2) 緩衝材の長期変遷と核種移行評価技術開発
(3) バリア界面現象と核種移行評価技術開発
(4) TRU 廃棄物の核種移行評価技術開発
(5) まとめと今後の課題
2.2.2 TRU 廃棄物固有の廃棄体からの核種放出挙動評価技術の開発
(1) 背景と目的
(2) 調和溶出モデルの評価 ····································
(3) 瞬時放出モデルの評価 ····································
(4) 炭素 14 化学形態の評価
(5) 廃棄体モデルの代表性の検討
(6) まとめと今後の課題
2.3 ニアフィールド複合現象・核種移行の総合評価技術開発
2.3.1 ニアフィールド地球化学・物質移行モデルの高度化
(1) 背景と目的
(2) 圧縮ベントナイトの微細間隙構造を踏まえた間隙水化学のモデル化に関わる
文献調査

(3) 圧縮ベントナイトの微細間隙構造に関わる複数のモデルによる間隙水化学の
予察解析
(4) 地球化学・物質移行モデルの高度化を図る上での計画検討
(5) まとめと今後の課題
2.3.2 ニアフィールド複合現象・核種移行の統合評価技術の高度化
(1) 背景と目的
(2) 緩衝材変質に関わる状態変遷を考慮した核種移行解析のための解析手法の高度化2-93
(3) 地下水条件を変えた場合の緩衝材変質に関わる状態変遷を踏まえた核種移行解
析の試行
(4) 精緻・中間・簡易モデルによる状態変遷を踏まえた核種移行率の評価に係る試行2-98
(5) 安全評価への反映を念頭にモデル・パラメータ等の簡略化の方策検討に係る文
献調査
(6) 5 か年の目標を念頭に統合評価技術の更なる高度化を図るための解析ツールの模索 ·2-107
(7) まとめと今後の課題
2.4 成果と今後の課題
参考文献

第3章 天然バリア(岩盤)における核種移行総合評価技術の開発	3-1
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	
(1) 岩盤中の核種移行評価技術開発	
(2) 岩盤中における地球化学・核種移行の個別現象評価技術開発	3-3
3.2 岩盤中の核種移行評価技術開発	
3.2.1 堆積岩を対象とした核種移行評価技術の開発	3-5
(1) 移行特性や鉱物の不均一性を考慮した核種移行パラメータのデータ取得とモデル	
開発	
(2) 原位置単孔試験のための予備的検討と現場試験	3-22
(3) 地質環境の長期変遷や空間スケールを考慮に入れた核種移行解析モデルの開発	3-43
3.2.2 結晶質岩を対象とした核種移行評価技術の開発	3-80
(1) 土岐花崗岩を対象とした岩石特性分析	3-81
(2) 土岐花崗岩を事例とした核種移行モデルの検討	3-92
(3) トレーサー試験からの核種移行パラメータの抽出方法の検討	3-103
3.3 岩盤中における地球化学・核種移行の個別現象評価技術開発	3-111
3.3.1 地球化学的な変遷を考慮した核種移行評価技術の開発	3-111
(1) セメント材料が岩盤の核種移行に及ぼす影響評価	3-111
(2) 地下環境下の鉱物と核種との相互作用	3-119
3.3.2 コロイド・有機物・微生物影響評価技術の開発	3-141
(1) コロイドへの核種収着	3-141

(2) 有機物と核種との錯生成	
(3) 微生物代謝影響	3-172
3.4 成果と今後の課題	3-184
3.4.1 岩盤中の核種移行評価技術開発	3-184
(1) 堆積岩を対象とした核種移行評価技術の開発	3-184
(2) 結晶質岩を対象とした核種移行評価技術の開発	
3.4.2 岩盤中における地球化学・核種移行の個別現象評価技術開発	
(1) 地球化学的な変遷を考慮した核種移行評価技術の開発	
(2) コロイド・有機物・微生物影響評価技術の開発	
参考文献	

第4章 生活圏における核種移行総合評価技術の開発

4.1 目的と5か年の計画
4.1.1 目的
4.1.2 5か年の計画
(1) 生活圏における核種移行及び被ばくプロセスモデルに関する検討
(2) 生活圏評価のための核種移行パラメータに関する検討
4.2 生活圏における核種移行及び被ばくプロセスモデルに関する検討
4.2.1 生活圏での核種移行/被ばくプロセスの抽出と各プロセスの数学モデル化に関す
る検討4-3
(1) 背景と目的
(2) 具体的な地表環境における移行プロセス設定に関する試行
(3) 国内外の生活圏評価における地表環境での移行プロセス及び環境動態評価における
核種移行モデルを調査した数学モデルの設定状況の整理
(4) まとめ
4.2.2 地質環境と生活圏とのインターフェイス (GBI) での核種移行プロセスとその変遷
4.2.2 地質環境と生活圏とのインターフェイス (GBI) での核種移行プロセスとその変遷 に関する検討
 4.2.2 地質環境と生活圏とのインターフェイス (GBI) での核種移行プロセスとその変遷 に関する検討
 4.2.2 地質環境と生活圏とのインターフェイス (GBI) での核種移行プロセスとその変遷 に関する検討

4.3.2 重要移行パラメータに及ぼす実験条件の影響:土壌・土壌溶液分配係数のデータ拡
充4-49
(1) 背景と目的
(2) 脱離法による土壌-土壌溶液分配係数(Kd)の取得実験4-48
(3) RIトレーサー法による収着Kd4-68
(4) Kdに対する土壌溶液の効果について4-72
(5) まとめ
4.4 成果と今後の課題
4.4.1 生活圏における核種移行及び被ばくプロセスモデルに関する検討4-85
(1) 生活圏での核種移行/被ばくプロセスの抽出と各プロセスの数学モデル化に関する
検討4-85
(2) 地質環境と生活圏とのインターフェイス (GBI) での核種移行プロセスとその変遷に
関する検討4-85
4.4.2 生活圏評価のための核種移行パラメータに関する検討4-85
(1) 被ばくプロセスモデルで扱う環境移行パラメータの整理と最新の知見の集約4-85
(2) 重要移行パラメータに及ぼす実験条件の影響:土壌・土壌溶液分配係数のデータ拡充4-86
参考文献

第5章 結言

5.1 令和5年度成果のまとめ	5-1
5.2 おわりに	5-8
参考文献	5-9

- Appendix I 原位置試験周辺の岩石の固相分析結果
- Appendix II 粒子追跡解析結果図集
- Appendix III 環境移行パラメータデータ集(Cs 編)

図目次

図	1-1 柞	亥種移行評価開発のアプローチ概念図
义	2.1-1	ニアフィールドにおける核種移行総合評価技術の開発を進めるための
		アプローチ
义	2.2-1	Sr-85 拡散試験装置の概略と試験条件
义	2.2-2	Sr-85 拡散試験の結果
汊	2.2-3	PHREEQC による拡散試験のシミュレーション結果
义	2.2-4	各乾燥密度のクニゲル V1 に対するデンドリマー(粒径 5.7nm)の
		透過試験結果
図	2.2^{-5}	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)、及び層間外に Na+が 8 個・CO3 ²⁻ が 4 個共存する系
		(ケース 2)の 20 ns にわたる溶存イオンの層間内における個数履歴2-15
义	2.2-6	初期状態として層間内に Na+が 32 個存在し、層間外に UO2 ²⁺ が 8 個・Cl ⁻ が
		16 個共存する系(ケース 3)、及び層間外に UO2 ²⁺ が 8 個・CO3 ²⁻ が 8 個共存
		する系(ケース 4)の 20 ns にわたる溶存イオンの層間内における個数履歴 …2-16
义	2.2-7	初期状態として層間内に Na+が 32 個存在し、層間外に NpO2+が 8 個・Cl が
		8 個共存する系(ケース 5)、及び層間外に NpO2+が 8 個・CO32 が 4 個共存す
		る系(ケース 6)の 20 ns にわたる溶存イオンの層間内における個数履歴2-17
义	2.2-8	4 層水和状態で、初期状態として層間内に Na+が 16 個存在し、層間外に
		(UO ₂)(CO ₃) ⁰ が1個、Na ⁺ が7個、及び Cl ⁻ が7個共存する系の10 ns にわた
		る密度分布(存在率)
<u>×</u>	2.2-9	4 層水和状態で、初期状態として層間内に Na+が 16 個存在し、層間外に
		(NpO ₂)(CO ₃)が1個、Na ⁺ が7個、及びCl ⁻ が6個共存する系の10 ns にわた
		る密度分布
义	2.2-10	混合媒体の鉱物配置の可視化図
义	2.2-11	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
义	2.2-12	モンモリロナイトの構造中の Fe の XANES 測定結果
义	2.2-13	第一原理 MD 計算用初期構造のスナップショット
义	2.2-14	(a) nH = 1.4 における OH 間の二体相関関数(pcf)と O 原子に対する H の
		積算配位数(rcn)の計算結果、(b) 対応する MD 計算のスナップショット。
		灰色の網掛けの原子が H の配位数を制御した O 原子
义	2.2-15	(a) Fe(III)-O のプロトン配位数の変化に対する自由エネルギーの微分量の変
		化、(b) 自由エネルギーの変化
义	2.2-16	Fe ²⁺ 想定した cv 型(左) tv 型(右)の K ₃ [Al ₅ ,Mg ₂ ,Fe ₁] Si ₁₆ O ₄₀ (OH) ₈ モンモ
		リロナイト・バルクユニットセルモデルの模式図
义	2.2 - 17	¹ 脱プロトン・3 八面体化検証用モデル構造の模式図

义	2.2 - 18	FeMgAl(Fe ²⁺)-tv 脱プロトン化モンモリロナイトモデルの Fe ²⁺ イオン	
		拡散計算	···2 - 34
义	2.2 - 19	ISA 共存化でのセメント収着試験における Pd 濃度	···2-38
义	2.2-20	Pd 固相の XRD(窒素雰囲気下、4 週目、ISA0、風乾)	···2 - 40
义	2.2-21	パラジウムの試料 1 (風乾) および 2 (湿潤) の (左) XANES、(中央) EXAFS、	
		(右)動径構造関数	···2 - 41
义	2.2-22	収着試験におけるヨウ素の液相濃度(試験期間 42 日)	···2 - 43
义	2.2-23	CSH に収着した IO3 の(左)XANES、(中央)EXAFS、(右)動径構造関数	
			···2 - 43
义	2.2-24	ハル・エンドピース(ハル等廃棄体)の処分概念	···2 - 46
义	2.2-25	核種移行評価(部材別の C-14 による被ばく線量評価)	···2 - 46
义	2.2-26	ハル試験体の受け入れ時の様子	···2-48
义	2.2-27	ハル試験体の開封作業の様子・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	····2 - 49
义	2.2-28	エンドピース電子像(1 万倍)	···2 - 53
义	2.2-29	変色境界位置の電子像及び EDS 結果(10 万倍)	···2 - 53
义	2.2-30	エンドピース変色部の薄膜 XRD スペクトル	···2 - 54
义	2.2-31	エンドピース浸漬試験片の形状	···2-55
义	2.2-32	上部ノズルからのエンドピース浸漬試験片採取位置案	···2-55
义	2.2-33	エンドミル方式による採取モックアップ試験状況	2-56
义	2.2-34	小型ホイール方式による採取モックアップ状況	···2-57
义	2.2-35	ガス蓄積型腐食試験の試験手順	2-59
义	2.2-36	アンプル例	2-60
义	2.2-37	試験で用いた二酸化ジルコニウムの XRD 回折パターン	···2-63
义	2.2-38	SEM 画像(Chem) ······	···2-64
义	2.2-39	SEM 画像(Aldrich)	···2-64
义	2.2-40	SEM 画像(左)と ImageJ での画像解析例(右)	···2-64
义	2.2-41	Zr 溶解モル濃度の時間依存性	2-66
义	2.2-42	Zr 規格化溶解量の時間依存性	2-66
义	2.2-43	HIP 固化体の作製フロー	···2-67
义	2.2-44	HIP 処理に用いた Zr および ZrO2 試薬	2-68
义	2.2-45	カプセルへの充填状況	2-69
义	2.2-46	HIP 処理後の固化体断面	···2-70
义	2.2-47	固化体中央部のミクロ組織観察結果(偏光観察)(Run.1~5)	···2-71
义	2.2-48	単一有機化合物の HPLC 分離試験結果	···2-74
义	2.2-49	混合有機化合物の HPLC 分離試験結果	···2-75
义	2.2-50	2020 年までに発生した使用済燃料の燃焼度の推定値	···2-77
义	2.3-1	ドナン平衡及びドナン間隙の概念の例	···2-81
义	2.3-2	異なる間隙水化学モデルによる PHREEQC を用いた試算結果の比較	
		(FRHP の場合)	2-85

义	2.3-3	異なる間隙水化学モデルによる PHREEQC を用いた試算結果の比較 (SPHD の担合)
	0.9.4	(SRHF の場合) 2789 「始ぶいしたノーロズのエンエルロナノー屋の建屋教たパラノ」クトー
凶	2.5-4	圧縮ハントノイト中でのモンモリロノイト層の積層数をハノメータとし
5.0	0 0 r	Kunigel VI を想定した場合の乾燥器度と眉间间隙の関係に係わる純昇結果…2-86
凶	2.3-5	地球化学・物質移行モアルの検証用アータセット整備のためのタッシュホー
		F構成案 ····································
义	2.3-6	体積一定条件における浸潤に伴う圧縮ベントナイト中の微細間隙状態の変化
		に関わる概念図
义	2.3-7	核種移行解析における解析体系及び解析で設定した水質の主な特徴2-96
义	2.3-8	緩衝材変質に関わる状態変遷の解析結果
义	2.3-9	Cs 及び Ni を対象にした緩衝材変質に関わる状態変遷を踏まえた核種移行解
		析結果
义	2.3-10	NF 事業における SP2 及び SP3 において試行された状態変遷を踏まえた核
		種移行評価のためのモデルの簡略化方策の例
义	2.3-11	Csを対象にした緩衝材変質に関わる状態変遷を踏まえた核種移行解析結果 ·2·100
义	2.3-12	モデルの簡略化に関わる手法の分類例
义	3.1.1-1	天然バリア(岩盤)の核種移行評価に係る課題例3-2
义	3.1.2-1	本課題における2つのサブタスクとそれらの関係
义	3.2.1-1	幌延 URL の 250m 調査坑道から採取した声問層の岩石コアと使用用途 3-7
义	3.2.1-2	光学顕微鏡による(a)声問層泥岩および(b)稚内層泥岩の薄片観察結果 3-8
义	3.2.1-3	声問層泥岩試料および稚内層泥岩試料の X 線回折ピーク3-9
义	3.2.1-4	水銀圧入法による間隙構造の分析結果
义	3.2.1-5	測定した試料(声問層泥岩コア 250-MG1-1)の写真(左上)、3 次元の X 線
		CT 画像のスナップショット(右上)、試料断面の X 線 CT 画像(下部). 断
		面画像は、スナップショット画像上に示す青面の位置で取得した画像3-10
汊	3.2.1-6	X線CT画像の解析により求めた割れ目の開口幅のヒストグラム(左)と開
-		口幅分布(右)
X	321-7	フロー・スタグナント領域を含む平行平板の割れ目を想定したモデルとパラ
	0.2.1 1	メータ ····································
V	391-8	フロー・スタグナントモデルを用いた移行解析の結果 (a)Ca と(b)I の破過
Ш	0.2.1 0	曲線
িয়	391-0	山小 512 HCS で取り扱う ^一 重閉踏エデル概会
	0.4.1 0	IIOS く取り扱う二里间原にフル成応 514 0 吉朋屋報振たデル 2-15
凶 IV	$3.2.1^{-1}$	0 戸同唐胜州てノル
凶 I I I I I	3.2.1-1	1 加重条件(注水加重、扬水加重)の感及解析結果
凶	3.2.1-1	2 正吊朳態にわける流迷分布 (Y=15 m の位直の X-Z 断面)
凶	3.2.1-1	3 れ间距離の感度解析結果
図	3.2.1-1	4 割れ目半径の感度解析結果 ····································
义	3.2.1-1	5 割れ目内の比濃度分布

义	3.2.1-16	割れ目の透水量係数の感度解析結果
义	$3.2.1 \cdot 17$	マトリクス間隙率の感度解析結果
义	$3.2.1 \cdot 18$	トレーサー試験条件決定までのフロー図
义	$3.2.1 \cdot 19$	250MIG1-3 10.76m コアでの拡散試験の結果とバッチ法で評価された分配
	係	数のまとめ
义	3.2.1-20	インライン He 濃度分析の試験系概念図(左)と待機時間と GC 分析にお
	け	る He ピーク強度の関係(右)
义	3.2.1 - 21	試験系概念図(左)と幌延岩石コアで得られた破過曲線の例(右)3-32
义	3.2.1-22	砂岩における模擬トレーサー試験
义	3.2.1-23	単孔トレーサー試験の概念図
义	3.2.1-24	地下 250m 調査坑道の水平展開図と 250m 大型試錐座(西)の状況写真3-35
义	3.2.1 - 25	250-MIG1-4 孔の水理試験結果及び深度 18.0~19.0mabh の BTV 画像3-36
义	3.2.1-26	本研究で使用したトレーサー試験装置
义	3.2.1 - 27	定流量注入透水試験及び定流量揚水試験時における P2 区間の水圧計測結
	果	3-38
义	3.2.1-28	定流量注入揚水切り替え試験結果(Case4)··································
义	3.2.1-29	定流量注入揚水切り替え試験結果(Case5)··································
义	3.2.1-30	試驗結果(2023-S1)
义	3.2.1 - 31	試験結果(2023-S2)
义	3.2.1 - 32	収着分配係数(シンボル)とモデルによる再現計算(曲線)の結果3-44
义	3.2.1-33	PARAFAC 解析により得られた 3 つの成分の蛍光スペクトル(a)と蛍光強
	度	の減衰曲線および蛍光寿命(b). 比較として、U を収着させていない試料の
	蛍	光スペクトル(灰色)も示す
义	3.2.1 - 34	カオリナイトの結晶構造
义	3.2.1 - 35	第一原理計算(DFT)と機械学習ポテンシャル(MLP)の散布図··································
义	3.2.1 - 36	(a)機械学習分子動力学法 (b)古典分子動力学法により計算したカオリナイ
	F	の XRD スペクトル···································
义	3.2.1 - 37	古典分子動力学法計算のために作成した Na-モンモリロナイト粒子とセ
	シ	ウム元素
义	3.2.1-38	日本原子力研究開発機構スパーコンピューターHPE SGI8600 上での MPI
	並	列化を用いた水分子のみの系の古典分子動力学法コード GROMACS によ
	る	シミュレーション時間
义	3.2.1 - 39	(a) 黒雲母の構造と(b)風化黒雲母の構造··································
义	3.2.1-40	本事業における核種移行解析技術構築の概念
义	3.2.1-41	幌延地域に適用する核種移行総合解析技術のモデル・データの連携フロー…3-60
义	3.2.1-42	亀裂を通じた地表水の流動と水質コントラストとの関係の概念図3-62
义	3.2.1 - 43	最終氷期および後氷期の幌延地域の広域的な地下水流動概念図3-62
义	3.2.1-44	検討対象領域の概念図
义	3.2.1-45	数値解析モデルの空間分割図

义	3.2.1-46	境界条件の設定
义	3.2.1-47	解析モデルの亀裂分布図
义	3.2.1-48	氷期の基本ケースにおける Cl 濃度 [mg/L] の経時変化
义	3.2.1-49	氷期の基本ケースにおけるδD[‰]の経時変化
义	3.2.1-50	氷期の基本ケースにおける 180 [‰] の経時変化
义	3.2.1 - 51	マトリクスの透水係数に関する感度解析結果(Cl 濃度[mg/L]、5,000 年後)
义	3.2.1-52	マトリクスの比貯留係数に関する感度解析結果(Cl 濃度[mg/L]、5,000 年
	彳	发)
义	3.2.1-53	マトリクスの実効拡散係数に関する感度解析結果(5,000 年後)3-73
义	$3.2.1 \cdot 54$	鉛直方向の動水勾配に関する感度解析結果(5,000年後)
义	3.2.1 - 55	間氷期条件の基本ケースにおける亀裂上での解析結果
义	3.2.1-56	2,000 年間の天水浸透後に拡散支配とした場合の Cl 濃度 [mg/L] の変化 …3-78
义	3.2.1-57	2,000 年間の天水浸透後に拡散支配とした場合のδD[‰]の変化···································
义	3.2.1-58	2,000 年間の天水浸透後に拡散支配とした場合のδ180 [‰]の変化··3-80
义	3.2.2-1	透過拡散試験装置の概略図と試料プレートに固定された土岐花崗岩試料3-82
义	3.2.2-2	土岐花崗岩を対象とした拡散試験の結果
义	3.2.2-3	グリムゼル花崗閃緑岩、片麻状花崗閃緑岩(国内岩石)、土岐花崗岩の重水
		(またはトリチウム水)、Cs、Iの実効拡散係数
义	3.2.2-4	拡散試験終了後の岩石試料断面における、岩石構成鉱物元素および Cs 濃度
		分布
义	$3.2.2^{-5}$	グリムゼル原位置試験場から採取した大型コアを用いたトレーサー試験結
	Ē	果
义	3.2.2-6	室内トレーサー移行試験後のグリムゼル試料を対象とした SEM-EDS およ
	7	び LA-ICP-MS 分析の結果
义	3.2.2-7	原位置試験近傍から採取したコア試料の分析結果
义	3.2.2-8	Partridge コード上で構築した不均質間隙モデル
义	3.2.2-9	Partridge コード上で構築した各解析モデルの一覧
义	3.2.2-10	各解析モデルについて行った粒子追跡解析の結果
义	3.2.2-11	不均質間隙モデルにおける間隙分布、粒子軌跡、および滞留時間分布の一
	ĺ	列
义	3.2.2-12	割れ目中の移行評価モデルの概略図
义	3.2.2-13	偏順位相関係数(PRCC 值)
义	3.2.2-14	GoldSim による不確実性解析結果:パラメータ相関の散布図3-102
义	$3.2.2 \cdot 15$	多層構造を取り扱った解析モデルにおける決定論的解析の解析結果3-103
义	3.2.2-16	H28 年度に JAEA 瑞浪超深地層研究所で実施されたトレーサー試験の試
	臣	策場所 ····································
义	$3.2.2 \cdot 17$	解析対象とした孔間トレーサー試験の破過曲線
汊	3.2.2-18	地下水流動・物質移行解析モデルの概要

义	$3.2.2 \cdot 19$	破過曲線のフィッティング結果	3-110
义	3.3.1-1	試料採取場所とセメントー岩石試料の分析対象エリア	3-112
义	3.3.1-2	泥岩-HFSC(350 m)試料の X 線 CT 画像	3-113
义	3.3.1-3	泥岩·BB(250m)試料の X 線 CT 画像	3-113
义	3.3.1-4	岩石-セメント接触試料の水銀圧入法と水飽和法による間隙率	3-114
义	3.3.1 - 5	水銀圧入法による岩石-HFSC 試料の間隙径分布	3-115
义	3.3.1-6	水銀圧入法による岩石-BB 試料の間隙径分布	3-115
义	3.3.1-7	岩石-HFSC(No.15, 350 m)接触部の元素分布	3-117
义	3.3.1-8	岩石-HFSC(No.15, 350 m)接触部の濃度プロファイル	3-118
义	3.3.1-9	岩石-BB(Bos, 250 m)接触部の元素分布	3-118
义	3.3.1-10	岩石-BB(Bos, 250 m)接触部の濃度プロファイル	3-119
义	3.3.1-11	幌延地域浅部のボーリング孔(BP-7)の簡易柱状図	3-120
义	3.3.1-12	(a)(b): Se,Fe 濃度の深度プロファイル(浅層試料)、(c): Fe-S-H ₂ Oの pH-	
	Ι	5h 図	3-122
义	3.3.1-13	6-7 m の大視野①(6-7 m_1)	3-123
义	3.3.1-14	6-7 m_1 の拡大視野①(6-7 m_1_1)	3-123
义	$3.3.1 \cdot 15$	7-8 m_1 の拡大視野①(7-8 m _1_1)	3-124
义	3.3.1-16	7-8 m_1 の拡大視野②(7-8 m _1_2)	3-124
义	$3.3.1 \cdot 17$	11-12 m_1 の拡大視野(11-12 m _1_1)	3-125
义	3.3.1-18	11-12 m_2 の拡大視野(11-12 m _2_1)	3-125
义	3.3.1-19	Fe K 吸収端の µ -XANES 分析結果	3-126
义	3.3.1-20	マッキナワイトによる Se 取り込み試験により生成した固相の XRD 測定	
	Ŕ	吉果 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3-129
义	3.3.1 -21	マッキナワイトによる Se 取り込み試験により生成した固相の Se の K 吸	
	Ц	又端 XANES スペクトル	3-130
义	3.3.1-22	マッキナワイトによる Se 取り込み試験により生成した固相の Se の k2 重	
	0	みづけ K 吸収端 EXAFS スペクトルおよび EXAFS スペクトルから得られた	
	Ī	動径分布関数	3-131
义	3.3.1 - 23	マッキーノ鉱の構造	3-132
义	3.3.1 - 24	得られた格子パラメーターの実験値に対する割合(%)	3-133
义	3.3.1 - 25	(a) マッキーノ鉱のスーパーセルの構造と(b) Se 置換を行った様子	3-133
义	3.3.1-26	二つの S 原子を Se 原子に置換した構造の計算結果	3-134
义	3.3.1 - 27	堆積岩中のカルサイト部分から作製した薄片のマイクロX線測定部位	3-135
义	3.3.1-28	μ-XRF による U のマッピング結果. 入射 X 線強度: 19.5 keV	3-136
义	3.3.1-29	μ-XRF による図 3.3.1-28 中の P1 および P2 の U のマッピング結果. 入射	
	Σ	K 線強度: 19.5 keV	3-136
义	3.3.1-30	図 3.3.1-29 中の U の濃集スポットとみられる部分における XRF スペクト	
)	レ. 入射 X 線強度: 19.5 keV	3-137
义	3.3.1-31	図 3.3.1-29 の P1-1 における XRF スペクトル	3-138

义	3.3.1 - 32	図 3.3.1-31 の XRF スペクトルの差し引きにより検出された U のピーク3-139
义	3.3.1-33	図 3.3.1-29 の P5-1 における XRF スペクトル
义	3.3.1 - 34	図 3.3.1-29 の P2-1 における XANES スペクトル
义	3.3.2-1	幌延 URL におけるボーリング孔配置図 (a) および深度 350 m のボーリン
	2	ブ孔(350-TR-A)における原位置コロイド収着試験 (b)
义	3.3.2 - 2	孔径 0.2 m フィルターろ液中の希土類元素濃度の残存率の経時変化3-144
义	3.3.2-3	原位置コロイド収着試験における La, Eu, Ho の濃度変化とサイズ分配 …3-146
义	3.3.2-4	岩盤を経由した収着試験系における希土類元素の残存率
义	3.3.2-5	地下水中の DOM の成分 1-4 の EEM
义	3.3.2-6	各地下水試料における、全蛍光強度に対する成分1-4の蛍光強度の比率3-149
义	3.3.2-7	各地下水試料における成分 1-4 の消光定数 KSV
义	3.3.2-8	各採水深度における成分 1-4 の消光定数 KSV の箱ひげ図3-150
义	3.3.2-9	各試料の van Krevelen 図(a) 07-v140-m01, (b)07-v140-m03, (c)09-v250-
	n	n02, (d)11-v250-tr02, (e)12-p350-m02, (f)13-350-c01 ····································
义	3.3.2-10	相関分析から得られた成分 1-4 の van Krevelen 図
义	3.3.2-11	成分 1-4 の質量電荷比の分布の箱ひげ図
义	3.3.2-12	ガンマ線照射前後の HOU-HA 試料溶液の外観
义	3.3.2-13	TOC の照射線量依存性
义	3.3.2-14	各照射量の UV-Vis スペクトル図(未補正)
义	$3.3.2 \cdot 15$	SUVA280, SUVA365(左)および UV280(右)の照射線量依存性3-157
义	3.3.2-16	規格化した HOU-HA のスペクトルにおける吸光度 E の比の照射線量依存
	1	\pm ····································
义	3.3.2-17	HOU-HA の滴定曲線(50 kGy 照射)
义	3.3.2-18	解離官能基当量(R)の照射線量依存性
义	3.3.2-19	解離官能基当量(R)のフィッティング結果
义	3.3.2-20	Eu を添加した場合としていない場合の、
义	3.3.2-21	Eu ³⁺ イオンの水和構造
义	3.3.2-22	Na-pyro モデルの粘土層間におけるフミン酸の分布
义	3.3.2-23	Ca-pyro モデルの粘土層間におけるフミン酸の分布
义	3.3.2-24	Na-mont モデルの粘土層間におけるフミン酸の分布
义	3.3.2-25	Ca-mont モデルの粘土層間におけるフミン酸の分布
义	3.3.2-26	各ケース・各分画の値における凝集体クラスターの個数(左)、及び1クラ
	7	スター当たりの平均分子量(右)
义	3.3.2-27	核種移行における微生物影響の概念図
义	3.3.2-28	地下水中の微生物群集組成の経時変化 (a) 08E140C01 孔、(b)
	0	7V140M03 孔、(c) 09V250M02 孔、(d) 13350C01 孔
义	3.3.2-29	稚内層のコア岩石試料 HFB1-C11(深度 499.60-499.75 mbgl, 左)からの薄
	ļ	十作成
义	3.3.2-30	稚内層の岩石コア試料 (HFB1-C11)の観察結果

182
183
4-4
4-5
4-7
4-8
1-20
-21
1-28
1-29
1-30
1-31
I- 31
4-34
4-34
4-35
4-35
1- 36
1- 36
1- 37
1- 38
1- 38
4-45
4-50
1-5 1
1-5 3
1-54
4-59
4-59
1-60
1-66
1-66

义	4.3 - 11	土壌採取地点を含む都道府県4-69
义	4.3-12	Cs-137の収着率の経時変化
义	4.3-13	実験手順の概略図
义	4.3-14	非農耕地(O34)及び農耕地(P38)土壌における Cs-137 の Kd 値と土壌溶
		液 pH
义	4.3-15	I-125 放射能の減衰と培養試料中の放射能実測値の経時変化 (超純水と MES
		pH6)
义	4.3-16	非農耕地(O34)及び農耕地土壌(P38)土壌における I-125 の Kd 値と土壌
		溶液 pH
义	4.3-17	細菌数定量手順の概要
义	4.3-18	Cs-137 添加バッチ培養における EC と Kd の関係4-79
义	4.3-19	I-125 添加バッチ培養における EC と Kd 値の関係4-79
义	4.3-20	異なる pH の土壌溶液で浸漬した土壌から抽出した DNA の増殖曲線4-80
义	4.3-21	融解曲線と一次導関数から得られた曲線4-81
义	4.3-22	7 日間培養群及び 36 日間培養群における細菌数4-82
义	4.3-23	Cs-137 バッチ培養試験における細菌数と Kd 値の関係4-83
义	4.3-24	I-125 バッチ培養試験における細菌数と Kd 値の関係4-83

表 目 次

表	2.1 - 1	ニアフィールドにおける核種移行総合評価技術の開発を進めるためのサブ
		タスク構成
表	2.1-2	ニアフィールドにおける核種移行総合評価技術の開発の5か年の年度展開2-4
表	2.2 - 1	PHREEQC 計算に用いたイオン交換および表面錯体反応のパラメータ2-10
表	2.2-2	ISD モデルから計算した Sr 化学種の実効拡散係数
表	2.2-3	クニゲル V1+間隙ゼロのケイ砂混合系 (混合媒体) 中の HTO 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及び解析結果2-23
表	2.2-4	Metal-OH 基の酸解離定数:本研究と他の研究グループとの比較2-29
表	2.2-5	Metal-OH2 基の酸解離定数:本研究と他の研究グループとの比較2-30
表	2.2-6	Fe 原子のイオン価数と価電子軌道の電子数解析
表	2.2-7	単層モンモリロナイト構造最適化後のエネルギー
表	2.2-8	単層モンモリロナイト構造最適化後のエネルギー
表	2.2-9	パラジウム固相試験条件
表	2.2-10	パラジウム固相の XANES および EXAFS 測定試料
表	2.2-11	ヨウ素収着試験条件
表	2.2-12	CSH に収着したヨウ素の XANES および XAFS 測定試料
表	2.2-13	ハル試料の基本測定結果(令和5年度)
表	2.2-14	切断前後のハル試験片の質量測定結果
表	2.2 - 15	ハル浸漬試験後の液相試料の基本測定結果
表	2.2-16	C-14 分析値(LSC)及び Co-60 分析値とその比較(炉停止日時点)2-50
表	2.2 - 17	AMS によるハル試料片、液相、気相中の C-14 分析値
表	2.2-18	AMS による浸漬試験後の液相中の C-14 の有機/無機比率
表	2.2-19	放射線測定(pico-β)及び AMS による Cl-36 の定量結果
表	2.2-20	エンドピース及びハル試料の概略燃焼度及び現在の状況
表	2.2-21	金属標準試料
表	2.2-22	標準試料の繰り返し分析結果
表	2.2-23	腐食試験条件(ジルコニウム合金)
表	2.2-24	環境模擬水の溶液組成
表	2.2-25	腐食試験サンプル(ステンレス鋼)の分析項目
表	2.2-26	腐食試験サンプル(ステンレス鋼)の試験結果
表	2.2-27	腐食試験条件(ステンレス鋼)
表	2.2-28	試験に用いた ZrO2 粉末一覧
表	2.2-29	SEM 画像解析により評価した各試料の粒径および表面積
表	2.2-30	HIP 固化処理条件
表	2.2-31	酸化ジルコニウム(ZrO2)粉末試薬の配合結果
表	2.2-32	文献調査から検討対象とした炭素化合物の一覧
表	2.2-33	HPCL による炭素化合物の分離条件

表	2.2-34	HPLC で分離したフラクション(A~G)の AMS 分析結果
表	$2.3 \cdot 1$	圧縮ベントナイト中の間隙水化学のモデル化における間隙の取扱いに関わる
	;	複数の概念モデルの比較
表	2.3-2	層間及び DDL 間隙の割合を算出するために用いたパラメータ
表	2.3-3	Multi porosity モデルにより推定された 3 つの間隙の割合
表	2.3-4	緩衝材変質に関わる状態変遷を踏まえた核種移行解析の解析ケース
表	2.3-5	Cs 及び Ni の収着挙動に関わる中間モデルによる
	;	核種移行パラメータ設定方法の概略
表	2.3-6	モデルの簡略化のための方法の概要、簡略化のメリット及び具体的な適用例
		の整理例
表	2.3-7	NF 事業で開発されたプロトタイプシステムと諸外国で用いられている類似
		解析コードの解析機能や解析コードの特徴等の比較例
表	3.1.2-1	天然バリアにおける核種移行総合評価技術の開発の5か年の年度展開3-4
表	3.2.1-1	声問層におけるトレーサー試験・予察解析ケース一覧
表	$3.2.1 \cdot 2$	圧縮抽水で得られた間隙水中のイオン濃度・同位体比
表	$3.2.1 \cdot 3$	模擬地下水における主要イオン濃度と岩石と接触後の主要イオン濃度の比較·3·26
表	3.2.1-4	岩石と接触前後の模擬地下水中イオン濃度の比較結果
表	$3.2.1 \cdot 5$	選定したトレーサーとその濃度
表	3.2.1-6	単孔トレーサー試験と孔間トレーサー試験の比較
表	3.2.1-7	試験装置の設置深度
表	3.2.1-8	デッドボリューム体積
表	3.2.1-9	単孔トレーサー試験の試験条件
表	3.2.1-10) 機械学習ポテンシャル予測の第一原理計算結果に対する平均2乗誤差 (RMSE)・
表	3.2.1-11	L 黒雲母及び風化黒雲母におけるセシウム吸着反応による結晶構造の変化。 ··3·52
表	3.2.1-12	2 スウェーデン、フィンランド、スイスの地層処分事業において適用されている核
種移	行解析手	法の特徴のまとめ
表	3.2.1-13	3 幌延 URL の地質環境を対象とする場合における核種移行解析手法(モデル化/解
析コ	ード)の)比較検討
表	3.2.1-14	4 ナチュラルトレーサーの設定値
表	3.2.1-1	5 移流および拡散に関するパラメータ一覧3-65
表	3.2.2-1	確率論・決定論的解析における共通パラメーター覧
表	3.2.2-2	各式の記号とパラメータ
表	3.2.2-3	解析対象とした孔間トレーサー試験の試験条件
表	3.2.2-4	割れ目部および岩石マトリクス部の物性値
表	3.2.2-5	推定結果
表	3.3.1-1	X 線 CT の測定条件
表	3.3.12	ポロシメータの測定条件

表	3.3.1-3	EPMA の測定条件
表	3.3.1-4	Fe の XANES に対する線形結合フィッティング結果3-127
表	3.3.1-5	マッキナワイトによる Se 取り込み試験の条件
表	3.3.1 - 6	様々な汎関数によって得られた格子パラメーターの数値結果3-133
表	3.3.2-1	各深度における DOM 分子の分子的特徴の存在割合の平均値3-151
表	3.3.2-2	成分 1-4 の分子的特徴の存在割合
表	3.3.2-3	HOU-HA 試料の pH の照射線量依存性
表	3.3.2-4	吸収スペクトルの吸光度情報に基づくフミン物質の化学状態の指標3-156
表	3.3.2-5	フィッティングで決定したパラメータ
表	3.3.2-6	収着試験の条件
表	4.1-1	生活圏における核種移行総合評価技術の開発に係る実施計画の年度展開4-2
表	4.2-1	モデル集水域の概要
表	4.2-2	設定した移行プロセスに対する H12-FEP の取り扱い4-9
表	4.2-3	国内外の生活圏評価事例の概要
表	4.2-4	(2)で設定を試行した移行プロセスと国内外の文献調査から抽出した移行プロ
		セスの比較
表	4.2-5	"土壌の移動"(侵食)の数学モデルの比較4-15
表	4.2-6	河川流の数学モデルの比較
表	4.2-7	生物擾乱の数学モデルの比較4-16
表	4.2-8	拡散の数学モデルの比較
表	4.2-9	様々なタイプの井戸 (BIOPROTA, 2014)を基に作成4-20
表	4.2-10	地下水湧出 GBI の種類 (BIOPROTA,2014)を基に作成4-22
表	4.2-11	諸外国の生活圏評価における GBI の設定 (BIOPROTA, 2014)を基に作成4·24
表	4.2-12	GBIの位置や核種の希釈水量に影響を与える対象環境の特徴の整理4-26
表	4.2 - 13	感度解析において着目した GBI の設定に影響を与える対象環境の特徴と解
		析での設定
表	4.2-14	解析ケースの設定条件4-32
表	4.2-15	解析ケースの設定の概要4-33
表	4.2-16	処分場領域周辺の地下水流動の傾向と地形のパターンで分類した GBI の位
		置と希釈水量の変化の特徴4-40
表	4.3-1	本システムにおける主な画面構成4-44
表	4.3-2	検索条件設定画面の機能4-46
表	4.3-3	環境移行パラメータ分類とデータ数について4-47
表	4.3 - 4	高分解能 ICP-MS(SF-ICP-MS)の測定条件4-55
表	4.3-5	アーカイブ土壌中の Pu 同位体、Np-237 及び Cs-137 濃度4-57
表	4.3-6	アーカイブ土壤中の Pu-240/Pu-239、Np-237/Pu-239 及び Np-237/Pu-
		239,240の同位体比
表	4.3-7	用いた土壌試料の種類、土地利用及び土壌特性4-61

表	4.3-8	非農耕地土壌中の安定元素による脱離 Kd値(L/kg)4-63
表	4.3-9	農耕地及び非農耕地土壤中の元素濃度の幾何平均値とその比較4-67
表	4.3-10	溶液中のイオン濃度 (mg/L) ····································
表	4.3-11	異なる液/固比における分配係数(Kd)値と土壌溶液の電気伝導度(EC)の
		比較
表	4.3-12	非農耕地土壌と農耕地土壌の Andosol の Cs の Kd4-71
表	4.3-13	土壌の採取深度と Kd 及び土壌溶液の EC と pH の値4-72
表	4.3 - 14	土壌試料の土壌タイプと化学特性4-73

1.1 本事業の背景と目的

地層処分は長期にわたる事業であるため、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必要があ 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、科学的な現象理解を深め、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安全評価の妥当性を向上させていくことが重要となる。このような観 点から、処分システムの評価技術の高度化・確証を目指した技術開発を、特に処分場近傍領域(以 下、「ニアフィールド」という) 焦点をあてて実施してきた(例えば、日本原子力研究開発機構, 原子力環境整備促進·資金管理センター,2019;2020;2021;2022;2023a;2023b)。今後は、 現在進められている文献調査に続く概要調査や精密調査といったサイト選定プロセスの展開を念 頭に、さらなる地層処分の基盤技術の強化が求められる。そのような今後のサイト選定段階にお ける安全評価においては、実際のサイトの地質環境条件や処分システムの長期変遷等をより現実 的に考慮した評価を行い、複数の候補母岩、工学オプションから最適な組合せを選択していくこ とを可能とする評価技術が求められる。この際、人工バリアを中心としたニアフィールドにおけ る安全性の評価技術を進展させることに加え、実際の処分サイトの地質環境~表層環境(生活圏) の特徴(多様性、不均質性、長期変遷等)を反映可能な、実用的かつ体系的な安全性の評価手法 を構築していくことが重要となる。

本事業では、「地層処分研究開発に関する全体計画」(地層処分研究開発調整会議,2023)に基づき、上記のような地層処分システムの安全性の評価のうち、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を適切に反映することが可能な核種移行総合評価技術の開発を行う。 具体的には、高レベル放射性廃棄物及び TRU 廃棄物について、ニアフィールド、岩盤、生活圏のそれぞれを対象に、実際の処分環境条件とその長期変遷や、そこでの核種移行をより現実的に評価するうえで重要な現象について、先端分析・計算科学技術、地下研究施設での原位置試験や ナチュラルアナログ事例等を活用して現象理解を進める。

さらに、それらの現象理解に基づき、実際の地質環境等の特徴や長期的な変遷を考慮した現象 解析モデルを構築し、それらを実用化・体系化の視点を含めて安全評価へ反映する方策を提示す ることを目指す。安全評価に反映するための核種移行評価解析のアプローチの概念を図 1-1 に示 す。この図に基づき、個別現象モデル開発やモデルに必要となるパラメータの整備行い、現象解 析モデルの統合化を図り、核種移行評価が可能なものとしていく。



図 1-1 核種移行評価開発のアプローチ概念図

1.2 本事業の概要

図 1-1 に示す構造に基づき、地層処分システムを構成するニアフィールド、岩盤、生活圏の3 つの領域に分けて、技術開発を展開する。以下にこの3つの領域に対する概要を示す。

1.2.1 ニアフィールドにおける核種移行総合評価技術の開発

(1) ニアフィールドにおける核種移行に係る個別現象解析モデルの開発

高レベル放射性廃棄物及び TRU 廃棄物の地層処分安全評価において、ニアフィールドシステ ムの長期変遷を考慮した核種移行評価を行うためには、各種の廃棄体(ガラス固化体、ハル等廃 棄体、セメント廃棄体等)、オーバーパック等の金属容器、ベントナイト緩衝材、セメント系材料、 岩盤の複数のバリア材や処分施設構成材の相互作用による長期状態変遷を考慮して核種移行評価 を行う必要がある。このため、これらバリア材等の境界領域におけるバリア間相互作用を考慮可 能な核種移行モデルを開発するため、先行事業「ニアフィールドシステム評価確証技術開発」(日 本原子力研究開発機構,原子力環境整備促進・資金管理センター,2019;2020;2021;2022; 2023a;2023b)等で得られた成果と課題を踏まえ、核種移行評価上の重要な現象を対象に、先端 分析・計算科学技術を活用した現象理解と解析モデル開発を実施する。また、TRU 廃棄物の固有 課題を対象に、先行事業「TRU 廃棄物処理・処分技術開発」(原子力環境整備促進・資金管理セ ンター,日本原子力研究開発機構,2019;2020;2021;2022;2023a;2023b)等で得られた成 果と課題を踏まえ、安全評価上の重要核種である炭素の廃棄体からの放出挙動に関する評価技術 開発を実施する。

1) ニアフィールド環境変遷を考慮した核種移行個別現象評価技術の開発

本課題では、ニアフィールドシステムを構成するバリア材料間の相互作用による影響を考慮し て、ベントナイト中の間隙水や鉱物・間隙特性の変遷、バリア間界面での変質が核種移行に及ぼ す影響を評価するための現象解析モデルを、先端分析・計算科学技術を適用して構築する。令和 5年度は、先行事業「ニアフィールドシステム評価確証技術開発」等で得られた成果と課題を踏 まえ、また、国内外の関連研究をレビューすることによって、本事業において重点的に取り組む 課題の抽出と課題解決に向けたアプローチの設定を行う。これに基づいて、多様な環境条件下に おける緩衝材ベントナイト中の間隙水・間隙特性と核種・コロイド等移行現象、バリア材界面で 生じる鉄等と核種との競合収着現象や鉄鉱物等への核種の取り込み現象、鉱物沈殿に伴う間隙閉 塞現象と核種移行への影響等の重要なプロセスに着目して、室内試験等によるデータの取得や先 端分析・計算科学手法を組み合わせることにより現象解明を進めるとともに、それらを踏まえた より精緻な核種移行解析モデルの高度化に着手する。さらに、TRU 廃棄物のニアフィールド環境 変遷と核種移行評価について、セメント系材料や廃棄体等に含まれる影響物質(有機物や硝酸塩 等)が核種・コロイド等移行に及ぼす影響等の重要なプロセスに着目して、特に優先度が高いプ ロセスを対象に室内試験等によるデータ取得や先端分析・計算科学手法を適用した現象解明を進 める。

2) TRU廃棄物固有の廃棄体からの核種放出挙動評価技術の開発

本課題では、先行事業「TRU 廃棄物処理・処分技術開発」等で得られた成果と課題を踏まえ、 TRU 廃棄物の安全評価上の支配核種である炭素の核種移行評価の改良に資するため、ハル等廃 棄体からの炭素の溶出モデルの高度化を実施する。令和5年度は、ハル等廃棄体の溶出モデル開 発について、ハル等の溶出データや腐食データを一部拡充し、先行事業のデータとあわせて腐食 速度との相互比較による調和溶出モデルの妥当性の検証のためのデータ蓄積や瞬時放出モデルの 対策を検討する。そのため新たな照射済み材料(PWR)の調達・取扱いに関する検討や腐食速度 や腐食モデルの評価手法の検討、ハル酸化膜の特性評価と瞬時放出率低減の検討を開始する。ま た、ハル等から溶出した C-14 の化学種の実データを取得するため、極低濃度の C-14 の分析手法 を構築し、実サンプル分析に適用するためのコールド・トレーサー試験による技術開発を行うと ともに、炭素化学種の生成プロセスを明らかにするための計算科学的アプローチによる微視的モ デルの開発に着手する。さらに、使用済燃料の多様性や再処理プロセスに起因するソースターム パラメータとその分布幅が核種移行・安全評価に与える影響について検討するため、使用済燃料 の種類と再処理予測に基づいた廃棄物発生シナリオに関する既往知見について調査・整理する。

(2) ニアフィールド複合現象・核種移行の総合評価技術開発

1) ニアフィールドの地球化学・物質移行モデルの高度化

本課題では、ニアフィールドの環境変遷を評価するうえで、その中核となる地球化学・物 質移行モデルを、上記①の成果を含む最新の先端分析・計算科学研究等の知見をもとに、緩 衝材ベントナイトの間隙構造や間隙水の変化、鉱物の溶解・沈殿と間隙閉塞、それらの物質 移行への影響プロセスをより精緻に取り扱うことが可能なモデルへ改良し、さらに、複合試 験や天然類似事例等の比較を通じて、そのモデルの妥当性を評価する。令和5年度は、ベン トナイトの間隙構造・間隙水、鉱物溶解・沈殿と間隙閉塞に係る現象解明や、それらを考慮 した物質移行モデルの開発に関する諸外国における先行研究のレビューを行うとともに、そ れらを踏まえて本課題で着目すべきプロセスとそのモデルの高度化のアプローチを設定した うえで、モデルの改良に着手する。また、諸外国における先行研究のレビューによって、モ デルの妥当性確認を進めるための適切な複合試験や天然類似事例を調査し、モデルの検証・ 確証に必要な情報等の整理や、先行事業で開発した手法等を適用した予察的な解析評価を実 施する。

2) ニアフィールドの複合現象・核種移行の統合評価技術の高度化

本課題では、先行事業である「ニアフィールドシステム評価確証技術開発」において開発 されたプロトタイプシステムを活用しつつ、また、上記 i)で高度化した、より精緻な現象解 析を可能とするニアフィールド複合現象評価をもとに、ニアフィールドの環境変遷と核種移 行をより現実的に解析可能な評価技術を構築する。令和5年度は、諸外国における先行研究 のレビューに加え、上記プロトタイプシステムを活用したデータ・モデル・シナリオに含ま れる不確実性等を考慮した解析を行い、ニアフィールドの複合現象と核種の移行遅延に影響 が大きい要因を検討するとともに、今後の解析評価技術の高度化を図るべき視点やその際に 重要となる知見や情報について整理する。さらに、性能評価への反映を念頭に、環境変遷を 踏まえた核種移行解析を行う際の精緻な現象解析モデルから、モデルやパラメータとして簡 略化していく方法論や、簡略化の妥当性確認に資するための方法論について、先行事業で開 発してきた手法を改良しつつ検討を行う。

1.2.2 天然バリア(岩盤)における核種移行総合評価技術の開発

(1) 岩盤中の核種移行評価技術開発

岩盤中の核種移行評価は、わが国の多様な地質環境条件を想定しつつ、今後の実際のサイトの 地質環境条件を対象に、より現実的な評価を可能とするための核種移行評価技術の高度化や妥当 性確認が必要となる。本課題では、先行事業「ニアフィールドシステム評価確証技術開発」及び

「岩盤中地下水流動評価技術高度化開発」(日本原子力研究開発機構,電力中央研究所,2019; 2020;2021;2022;2023)で得られた成果と課題を踏まえ、わが国の堆積岩(泥岩)及び結晶質 岩(花崗岩)を主たる対象として、割れ目内における充填鉱物・変質層や岩石マトリクス部の間 隙構造や鉱物分布などの不均質性といった微細構造を反映した核種移行解析モデルの高度化や、 より大きなスケールでの割れ目やその連結部を対象とした核種移行解析モデルの開発を行う。さ らに、わが国の深部地質環境での原位置試験によるデータ取得、天然トレーサーの濃度や年代等 のデータ取得を行い、実際の地質環境が有する不均質場や長期変遷を考慮可能な評価モデルの高 度化とその妥当性確認を進める

1) 岩盤中における核種移行評価技術の開発

本課題では、岩盤中の核種移行評価における重要な不確実性要因である割れ目等の不均質性や 地質環境の長期変遷の影響について、これらの取り扱いが可能な核種移行評価技術の開発を行う。 令和5年度は、これまでの関連プロジェクトの成果等の整理や国内外の最新の知見をもとに、割 れ目等の不均質性や地質環境の長期変遷を反映した核種移行評価技術を構築するうえで重要な課 題の抽出と課題解決に向けたアプローチを設定したうえで、室内試験やモデル改良に着手する。 具体的には、堆積岩(泥岩)及び結晶質岩(花崗岩)を対象に、割れ目部とマトリクス部を含む 試料を対象に、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や拡散・収着試験等により核種移行データを取 得し、先行事業の成果もあわせて割れ目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 握する。また、ii)で実施する堆積岩(泥岩)における原位置トレーサー試験の試験手法や試験条 件を適切に設定するため、同位体や溶存ガスを含む種々のトレーサーを用いた収着・拡散および カラム試験等を実施する。また、多様な条件での室内トレーサー試験を実施し、原位置試験とあ わせてモデルの構築・検証を行ううえで有用なデータを取得する。さらに、これらの室内試験デ ータ等をもとに、割れ目等の不均質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、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る。

2) 原位置トレーサー試験等による核種移行モデルの妥当性確認

本課題では、堆積岩(泥岩)を主たる対象として、割れ目を対象とした原位置トレーサー試験に より実際の深部環境での物質移行データを取得するとともに、天然のトレーサー分布データ等を 調査し、上記 i)で開発した核種移行モデルの適用性や妥当性を確認する。令和5年度は、原位置 試験については、本事業とは別途実施される原位置トレーサー試験との相互補完性も考慮して、 本事業で実施するトレーサー試験の計画を策定する。ここで、本事業の5か年で実施するトレー サー試験は、トレーサーが届く距離で流速等の条件を変えた孔間試験や、収着性の強い岩石でも 容易にデータが取得できる単孔試験などの複数の試験手法を組み合わせ、双方の特徴を活かして、 移行特性の異なるトレーサーのデータを取得できる手法を検討する。あわせてラドン濃度評価等 の割れ目の評価手法、ナチュラルトレーサーの分離・分別を利用したマトリクス拡散の影響評価 手法についても開発の対象とする。また、原位置で単孔・孔間トレーサー試験を実施するための 試験孔を掘削するために、試験の対象とする割れ目の候補を絞り込むほか、原位置でのトレーサ ー試験開始に向けて予備的な試験を実施する。また、天然のトレーサー分布を活用したモデルの 妥当性検討のため、既往の天然トレーサー分布のデータに加え、安定同位体や天然の放射性同位 体を分析することにより同位体分布に時間的な情報を付加し、それらの情報をもとに核種移行モ デルの適用性を評価するための予察解析を実施する。さらに、先行研究や上記の成果を活用して、 堆積岩(泥岩)でのトレーサー試験の予察解析や地下研究施設の岩盤を事例に、より大きな空間 スケールでの核種移行モデルの構築や解析評価の方法論の検討や予察的な解析に着手する。一方 で、結晶質岩(花崗岩)については、先行研究等で得られた原位置トレーサー試験や天然トレー サーのデータを活用して、一部補完データを取得しつつ、割れ目等の不均質性や時間・空間スケ ールの拡張を含めた核種移行モデルの改良や適用性を確認するため、既往の情報の整理を踏まえ たアプローチの設定と、予察的な解析に着手する。

(2) 岩盤中における地球化学・核種移行の個別現象評価技術開発

天然バリアである岩盤中の核種移行は、地下の酸化還元状態や鉱物・水質などの地球化学 環境、バリア材とその場に存在するコロイド・有機物・微生物に大きく影響を受ける。これ らの環境状態は、場が不均質であるだけでなく、処分場の建設から埋め戻し後において長期 的に変遷すると考えられるため、処分場建設により生じる地球化学環境の変化と埋め戻し後 の長期変遷に加え、バリア材料やコロイド・有機物・微生物と岩盤との相互作用を考慮に入 れた核種移行影響について、実際の地質環境を想定した調査・評価技術の開発が必要となる。 これまで主に室内試験により現象理解のためのデータ取得がなされてきたが、地下環境を念 頭に置いたより現実的な系での現象解明や影響評価技術の構築の取り組みが必要である。こ のため、これらバリア材と岩盤境界領域における相互作用、岩盤中の鉄・炭酸塩鉱物やコロ イド・有機物・微生物を考慮した核種移行評価に関して、先端的な分析技術や計算科学技術 を活用した現象理解と評価モデル開発を実施する。

1) 地球化学的な変遷を考慮した核種移行評価技術の開発

本課題では、地下研究施設の深部地下水や岩石などを活用した鉄鉱物、炭酸塩鉱物、セメ ントー岩石反応試料等への多様な元素の取込み挙動を、先端分析や計算科学技術を適用して 解明する。また、得られた成果に基づいて、深部地下環境での長期的な地球化学環境の変遷 や核種移行への影響評価モデルの妥当性を確認する。令和5年度は、先行事業「ニアフィー ルドシステム評価確証技術開発」や関連プロジェクトを含む国内外の最新の知見を踏まえて、 今後取り組むべき課題とその解決のためのアプローチを提示する。そのうえで、地層や深度 等の異なる岩石試料や、セメントと岩石の接触試料等を対象に、鉄鉱物や炭酸塩鉱物中に含 まれる微量元素の濃度や存在状態等の分析に加え、地下水中に含まれる微量元素の濃度や存 在状態等の分析を実施する。また、これまでの先行事業における成果をもとに、長期時間ス ケールでの地質環境の変遷過程における鉱物の生成・変遷過程も考慮しつつ、核種移行過程 で生じる鉱物への核種の収着・共沈・取込み現象の解明に向けた評価に着手する。

2) コロイド・有機物・微生物影響評価技術の開発

本課題では、地下研究施設から採取した実際の地下深部の地下水および岩石試料を用いた 調査や室内試験によって、天然コロイド・有機物・微生物の特性データや、核種との錯形成 や収着、細胞内取込みへの影響に関する現象解明と評価モデルを構築する。これらの現象理 解に基づくコロイド・有機物・微生物による核種移行影響評価モデルを構築するとともに、 核種移行解析への反映方策を提示する。令和5年度は、これまでの関連プロジェクトの成果 等の整理や国内外の研究動向調査を通じて、天然バリアにおけるコロイド・有機物・微生物 の影響が顕在化する現象を抽出し、シナリオの整理を行う。また、室内試験や地下環境調査 を活用した現象論モデルの構築に向けた評価技術開発のアプローチを提示する。コロイド影 響評価については、地下環境における天然コロイドの化学成分や微量元素との収着に関する データを取得する。有機物影響評価については、天然有機物と錯生成しやすい III 価・IV 価 の核種を対象として、錯生成データを拡充し、モデルの高度化とパラメータ整備を進める。 また、現実的な地下環境を想定した核種-有機物-岩石三元系モデルの開発に向けて、天然 環境を考慮した試験により錯生成や収着データを拡充する。微生物影響評価については、岩 盤中における微生物の空間分布、微生物による核種の取込み等の現象解明に向けて、フィー ルド調査や先端分析等によりデータを取得する。また、地下施設建設から施設閉鎖後の安定 状態までの長期にわたる地球化学環境変遷の中で、微生物代謝が人工バリアシステムや核種 移行に及ぼす影響を把握するために、地下施設周辺の地下微生物特性変化および代謝解析調 査を行う。

1.2.3 生活圏における核種移行総合評価技術の開発

(1) 生活圏における核種移行及び被ばくプロセスモデルに関する検討

具体的な地表環境条件やその変遷の状況を適切に生活圏評価に反映するため、国内外の生 活圏評価や環境動態評価での取扱いを参考に、目的に応じた生活圏評価を行うために考慮す べき核種移行/被ばくプロセスを抽出するとともに、モデル上での設定を精査して、評価モ デル(概念モデル及び数学モデル)を整備する。また、評価モデルの構築の根拠を明確化す るため、環境中の核種の動態に関する最新の知見を活用して、各プロセスに関するモデルの 妥当性及び評価への適用条件、不確実性を検討し、生活圏評価上の重要課題を整理する。

1) 生活圏での核種移行/被ばくプロセスの抽出と各プロセスの数学モデル化に関する検討

国内の地層処分安全評価で用いられている既存の生活圏評価モデルでは、環境構成要素や 構成要素間のプロセスが一般的かつ簡略的に表現されていることから、今後は、サイトの特 徴の適切な反映が可能な評価手法を整備することが重要である。そこで、本課題では、最新 の科学的知見に基づき各プロセスに関する数学モデルを確認・更新するとともに、モデルの 妥当性及び評価への適用条件、不確実性を検討し、生活圏評価上の重要課題を整理する。令 和5年度は、国内外の生活圏評価の事例、環境動態研究の成果等に関する文献調査に基づき、 評価において考慮すべき重要な核種移行プロセスを調査・抽出し、現状の評価における数学 モデルの問題点等を整理する。具体的には、国内外の生活圏評価や環境動態研究において考 慮されている核種移行プロセス及びそれらプロセスを表現する数学モデルを抽出・整理する。 その整理の結果に基づき、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)の生活圏評価において用いられている数学モデルとの比較を行い、両者の相違点 を明示する。

2) 地質環境と生活圏とのインターフェイス(GBI) での核種移行プロセスとその変遷に関する 検討

生活圏への核種流入域である GBI の設定は、対象となる地表環境及び地質環境(以下「対 象環境」という)の特徴に大きく左右される。したがって、GBI 設定に当たって重要となる 対象環境の特徴を理解しておくことが重要となる。そこで、本課題では、GBI 設定に必要と なる対象環境の特徴としての風化帯及び地下浅部に関する情報を蓄積・整備する。また、諸 外国の生活圏評価での GBI における核種移行プロセスの取扱いに関する情報についても蓄 積・整備する。さらに、蓄積・整備した情報を活用して、GBI における核種移行プロセスの 概念の最新の知見を整備する。令和5年度は、文献調査により、国内の地下浅部に関する情 報や諸外国の生活圏評価で取り扱われている GBI における核種移行プロセスの取扱いに関 する情報を蓄積・整備し、GBI 設定に当たって重要となる対象環境の特徴を整理する。具体 的には、国内外の評価において設定されている GBI の位置および希釈水量に着目し、それら が対象環境の各特徴(例えば、地形や集水域の面積、地表水の流れやすさ・流れにくさ等) によってどのように変動するかについて整理し、それらの影響の程度から重要となる対象環 境の特徴を特定する。

(2) 生活圏評価のための核種移行パラメータに関する検討

処分地選定の調査が進み概要調査地区が特定されると、地形や土地利用などの具体的な地 表環境が明らかとなってくる。その地表環境を考慮した生活圏評価において、適切な核種移 行パラメータ値が使われることが重要である。そのために、我が国のさまざまな生活圏を想 定した評価に係るデータの拡充を行うことを目的とする。特に元素固有パラメータに関して は、評価に適合するデータを適切に抽出し、パラメータ値を設定する必要があることから、 データ利用側(ユーザー)のニーズを踏まえたデータベースの公表に向け、最新知見を整備 する。また、重要移行パラメータに関するデータ拡充のため、土壌-土壌溶液分配係数(Kd) を例として最新データの蓄積とデータ取得の際の実験条件の影響に係る知見の整備を行う。 そのために以下の項目を実施する。

1) 被ばくプロセスモデルで扱う環境移行パラメータの整理と最新の知見の集約

本課題では、現在までに取得された我が国のパラメータ値に関する知見・データを整理・ 蓄積し、ユーザーのニーズに対応するデータベースを作成する。令和5年度は、特にセシウ ムの環境移行パラメータに着目することによりデータベースの基本設計を行いつつ、様々な 元素についても適用可能な基本レイアウトを作成する。この際、被ばくプロセスモデルにお いて扱う移行パラメータの整理を各機関との連携により行う。さらに専門家によるパラメー タに係る最新の知見(データの考え方、取得方法、アナログ研究等)を集約する。本課題を 進めるにあたり各年度毎に重点項目を設定してパラメータの整備を行う。

2) 重要移行パラメータに及ぼす実験条件の影響:土壌-土壌溶液分配係数のデータ拡充

森林や校庭で取得した土壌を使った脱離 Kd 試験を令和5年度に開始し、農耕地土壌との 比較検討を行い、これまでの値との類似性を把握する。また、長期接触した後の Kd データ を取得するため、Pu については極低濃度レベルのグローバルフォールアウトを利用すると ともに、他の重要核種については安定元素を指標として調査研究を進める。さらに、Kd には 土壌溶液の pH や塩分濃度が影響することが示唆されていることから、Kd に対する土壌溶 液の効果についてデータを拡充するとともに、その効果が引き起こされる機序について調査 を開始し、土壌溶液の pH がヨウ素の Kd に与える影響についてデータを取得する。

本報告書は、5つの章よりなっている。上述したように、2章ではニアフィールドにおける 核種移行総合評価技術の開発の成果、3章では天然バリアにおける核種移行総合評価技術の 開発の成果、4章では生活圏における核種移行総合評価技術の開発の成果を示す。5章では 令和5年度の成果についてまとめる。 参考文献

- 地層処分研究開発調整会議,地層処分研究開発に関する全体計画(令和5年度~令和9年度),令和5年3月,2023.
- 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-本編および付属書,NUMO-TR-20-03,2021.
- 原子力環境整備促進・資金管理センター,日本原子力研究開発機構,平成 30 年度高レベル放射性 廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 TRU 廃棄物処理・処分に関する技術開発 報 告書, 2019.
- 原子力環境整備促進・資金管理センター,日本原子力研究開発機構,平成31年度高レベル放射性 廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 TRU 廃棄物処理・処分に関する技術開発 報 告書,2020.
- 原子力環境整備促進・資金管理センター,日本原子力研究開発機構,令和2年度高レベル放射性 廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発 報告 書,2021.
- 原子力環境整備促進・資金管理センター,日本原子力研究開発機構,令和3年度高レベル放射性 廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発 報告 書,2022
- 原子力環境整備促進・資金管理センター,日本原子力研究開発機構,令和4年度高レベル放射性 廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発 報告 書,2023a.
- 原子力環境整備促進・資金管理センター,日本原子力研究開発機構,令和4年度高レベル放射性 廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発 5か年 成果報告書,2023b.
- 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, 2019.
- 日本原子力研究開発機構,電力中央研究所,平成 31 年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関 する技術開発事業-岩盤中地下水流動評価技術高度化開発- 報告書, 2020.
- 日本原子力研究開発機構,電力中央研究所,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-岩盤中地下水流動評価技術高度化開発-報告書, 2021.
- 日本原子力研究開発機構,電力中央研究所,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-岩盤中地下水流動評価技術高度化開発-報告書, 2022.
- 日本原子力研究開発機構,電力中央研究所,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-岩盤中地下水流動評価技術高度化開発-報告書, 2023.
- 日本原子力研究開発機構,原子力環境整備促進・資金管理センター,平成 30 年度高レベル放射性 廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 ニアフィールドシステム評価確証技術開発 報告書, 2019.
- 日本原子力研究開発機構,原子力環境整備促進・資金管理センター,平成 31 年度高レベル放射性 廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 ニアフィールドシステム評価確証技術開発 報告書, 2020.
- 日本原子力研究開発機構,原子力環境整備促進・資金管理センター,令和2年度高レベル放射性廃 棄物等の地層処分に関する技術開発事業 ニアフィールドシステム評価確証技術開発 報 告書, 2021.

- 日本原子力研究開発機構,原子力環境整備促進・資金管理センター,令和3年度高レベル放射性廃 棄物等の地層処分に関する技術開発事業 ニアフィールドシステム評価確証技術開発 報 告書, 2022.
- 日本原子力研究開発機構,原子力環境整備促進・資金管理センター,令和4年度高レベル放射性廃 棄物等の地層処分に関する技術開発事業 ニアフィールドシステム評価確証技術開発 報 告書, 2023a.
- 日本原子力研究開発機構,原子力環境整備促進・資金管理センター,令和4年度高レベル放射性廃 棄物等の地層処分に関する技術開発事業 ニアフィールドシステム評価確証技術開発 平 成30年度~令和4年度取りまとめ報報告書,2023b.

2. ニアフィールドにおける核種移行総合評価技術の開発

2.1 目的と5か年の計画

2.1.1 目的

地層処分システムの安全評価では、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。先行事業「ニアフィールドシステム評価確証技術開発」 (以下、「NF事業」と称す) (日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター,2019;2020;2021;2022;2023)では、高レベル放射性廃棄物(HLW)を対象に、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解析が可能な解析ツールの開発を目的とし、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 構築するとともに、このシステムの解析により予測される場の状態変遷(環境変遷)を核種移行解析モデルへ反映する手法を構築し、ニアフィールド環境変遷評価を踏まえた核種移行挙動の評価が可能なプロトタイプシステムを開発した。

NF 事業におけるプロトタイプシステムを用いた環境変遷を踏まえた核種移行挙動に関わる統 合化評価では、処分場閉鎖後長期における「緩衝材の長期変遷挙動の予測」を優先的に取り組む 課題として選定し、緩衝材中の環境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-ベントナイト相互作用」を対象に、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、統合化技術の構築がな 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, 2023)。また、統合 化評価の結果から、個別現象モデル開発やパラメータ整備などへのフィードバックを図るための 例も提示され、これらの開発・整備を高度化していくことはプロトタイプシステムによる評価の 信頼性をより向上していく上で重要な課題として整理された(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、2023)。さらに、統合化評価の結果をもと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、変質に関わるシナリオ・データ・ モデルのバリエーションや不確実性等の考慮も視野に、より多面的な視点での検討を個別現象モ デル開発やパラメータ整備と併せて進めることも重要な課題として整理された(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, 2023)。なお、これらの課題への取り組みに あたっては、諸外国も含めた類似した研究事例の動向(現状)のレビューを踏まえつつ、NF 事業 で得られた成果や開発されたプロトタイプシステムの活用に加え、先端的な解析技術等を活用し た統合化評価技術の開発の必要性についても付記された(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,2023)。

本事業において、HLW を対象にしたニアフィールドにおける核種移行総合評価技術を進める にあたっては、NF 事業において課題の一つとして整理された個別現象モデル開発やパラメータ 整備の高度化を目的とし、「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、異なるバリア材の境界領域における相互作用の影響を考慮した核種移行モデル を開発するため、先端分析・計算科学技術を活用した現象理解とモデル開発を行う。また、これ ら個別現象モデル開発やパラメータ整備の高度化を通じて得られた知見や成果との整合を図りつ つ、より現実的かつ精緻な現象解析を可能とすることを目的とし、統合解析技術の高度化に取り 組む。

一方、地層処分対象となる TRU 廃棄物については、廃棄体の性状はセメント固化体、金属圧縮 体等と多種多様であるため、廃棄体に含まれる核種の種類・濃度、発熱の有無、含有化学物質(硝 酸塩等)に応じて、4つのグループに分けられている(共同作業チーム、2000;電気事業連合会・ 核燃料サイクル開発機構、2005)。このうち、グループ2に分類されるハル(燃料被覆管のせん断 片)・エンドピース(燃料集合体末端片)等については、圧縮処理された後、ステンレス鋼製のキ ャニスターに封入され(廃棄体)、廃棄体は4本単位で廃棄体パッケージに収納し、空隙部はセメ ントモルタルで充填される(電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構, 2005)。このような TRU 廃棄物の地層処分における安全評価では、放射化生成物である炭素14(C-14)が被ばく線量の高 い重要核種として位置づけられている(電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構,2005)。その 主な理由として、C-14の半減期が5730年と比較的長く、廃棄物中のインベントリが大きいことに 加え、廃棄体の金属腐食により比較的速い溶出速度が仮定されており、C-14の化学形態は各バリ ア材(構造躯体、緩衝材・埋め戻し材、支保工等)への収着性が低い有機物であると仮定・評価さ れていることに起因していると考えられている(電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構, 2005)。また、グループ2に含まれるセルロース系有機物の分解生成物であるイソサッカリン酸 (ISA)は、核種と錯体を形成し、核種やコロイド等の移行挙動に影響を及ぼす可能性も指摘され ている(電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構, 2005)。さらに、TRU 廃棄物のうち、硝酸 塩含有廃棄体を含むグループ3については、硝酸イオンおよびその化学変遷物質が核種の溶解度や 収着等に影響を与える可能性も示唆されている(電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構、 2005)。先行事業「TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発」(以下、「TRU 事業」と称す)(原 子力環境整備促進・資金管理センター・日本原子力研究開発機構、2019;2020;2021;2022;2023) では、上述したような TRU 廃棄物固有の課題に対し、個別現象モデル開発・高度化やパラメータ 整備を目的に検討が行われ、第2次 TRU 廃棄物処分研究開発で行われた安全評価における被ばく 線量評価に比べ、過度な保守性を排除し、より現実的な評価に資するモデルやパラメータが提示 された。

TRU 事業における廃棄体からの核種溶出モデルの高度化では、エンドピースからの核種溶出モ デルの信頼性向上のため、照射済みエンドピース(実廃棄物)を対象に核種インベントリや核種 溶出率等を評価し、既存の核種溶出モデルの妥当性を確認すると共に、より現実的な核種溶出モ デルを構築した(原子力環境整備促進・資金管理センター・日本原子力研究開発機構,2023)。な お、TRU 廃棄物地層処分の安全評価上、特に重要となる核種である C-14の移行評価にあたって は、核種の溶出に関わる現象理解やメカニズムを解明し、安全評価における安全裕度を示すこと が必要であり、そのための課題として、ハル等の溶出データの拡充や金属腐食に伴う調和溶出モ デルの妥当性確認、瞬時放出が仮定されているハル酸化膜の特性評価や瞬時放出モデルの妥当性 検討、ハル等から溶出した C-14の化学形態の評価、使用済燃料の多様性や再処理プロセスに起因 する核種インベントリの不確実性等を考慮した廃棄体モデルの代表性の検討が整理された(原子 力環境整備促進・資金管理センター・日本原子力研究開発機構,2023)。また、有機物影響評価に ついては、核種として Sn (IV)、Tc (IV) および Pd (II) を対象に ISA 共存条件下で溶解度へ の影響を評価された。その結果、Sn および Tc の溶解度への影響は顕著ではなかったものの、Pd については ISA との錯生成により溶解度が上昇する傾向が認められた(原子力環境整備促進・資 金管理センター・日本原子力研究開発機構, 2023)。今後の課題としては、Pd を主な対象核種と し、ISA 共存下での溶解度評価やセメント系材料への収着影響に関して、現象理解の深化を図る 上で必要な評価・分析の検討が整理された(原子力環境整備促進・資金管理センター・日本原子力 研究開発機構、2023)。さらに、硝酸塩影響に関しては、硝酸塩共存下での核種移行への影響に関 わる国内外での既往知見の整理が行われ、今後、具体的な試験研究による現象理解に基づくモデ ル開発の必要性が課題として認識された(原子力環境整備促進・資金管理センター・日本原子力研 究開発機構, 2023)。

本事業では、上述したようなTRU事業で整理された課題を踏まえつつ、先端分析・計算科学技術を活用した現象理解とモデル開発を行い、個別現象モデル開発やパラメータ整備の高度化を目的として実施する。また、得られた知見や成果については、HLWを対象にした統合化評価技術を参考に、TRU廃棄物を対象とした場合の統合解析技術への反映を念頭に必要なモデル・パラメータ等を整理していく。

2.1.2 5か年の計画

5か年の全体的な目標・計画としては、先行事業である NF 事業及び TRU 事業で得られた知見 や成果等を基に、現象理解の深化に基づき、より精緻な現象解析を可能とする個別現象モデル(現 象解析モデル)やパラメータ整備の高度化を図る。また、安全評価で用いられるシステム評価モ デルへの反映を念頭に、現象解析モデルやモデルで用いられるパラメータの簡略化(抽象化)の 方策に関わる検討を行うと共に、そのような簡略化方策の妥当性確認についても検討し、モデル やパラメータの簡略化方策に関わる方法論の検討例として提示する。

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 種移行挙動を行う際には、図 2.1・1の左図に示すような複合現象・核種移行の統合評価技術の高度 化に向けたアプローチに従い、個別現象理解に基づくモデル開発やパラメータ整備で得られた情 報を現象解析モデルで統合化し、それに基づき核種移行評価を行う(ボトムアップアプローチ)。 また、現象解析モデルの統合化を踏まえた核種移行評価の結果を基に、重要な安全機能と関連す る現象を抽出し、個別現象理解に基づくモデル開発やパラメータ整備を進めるにあたり重点的に 取り組むべき課題としてフィードバックする(トップダウンアプローチ)。本事業では、このよ うなボトムアップ・トップダウンを組み合わせたアプローチに従い、高レベル放射性廃棄物(HLW) と TRU 廃棄物を対象に、ニアフィールドにおける核種移行総合評価技術の開発を行う計画であ る。



図 2.1-1 ニアフィールドにおける核種移行総合評価技術の開発を進めるためのアプローチ (左図:複合現象・核種移行の統合評価技術高度化に向けたアプローチ、右図:HLW を対象と した場合の個別タスクの関係)

また、図 2.1-1の右図には、HLW を対象とした場合を例に、ニアフィールドにおける核種移行 総合評価技術の開発における個別タスク(サブタスク)の関係を示す。HLW を対象にした個別現 象理解・モデル開発としては、ニアフィールドの環境変遷として「鉄(オーバーパック) –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、異なるバリア材の境 界領域における相互作用の影響を考慮した核種移行モデルの開発を中心に実施する。本事業の実施により高度化された技術等は、現象理解・統合モデル開発に反映され、ニアフィールド環境変遷評価を踏まえた核種移行評価技術として統合化される。その際、別事業とし実施されている「ニアフィールド長期環境変遷評価技術開発」で得られた成果も取り込みつつ行う。

表2.1-1に HLW 及び TRU 廃棄物を含め、本事業のニアフィールドにおける核種移行総合評価 技術の開発におけるサブタスク名・サブタスク構成及び各サブタスクの実施概要を示す。また、 表2.1-2には、5か年の年度展開についても示した。サブタスクの構成としては、図 2.1-1の右図に も示される通り、核種移行に係る個別現象理解・モデル開発に関わるサブタスク(個別現象解析 モデルの開発)、それらを統合させた現象解析・モデル開発を行うサブタスク(統合評価技術開 発)に大別される。前者は、HLWを対象にした検討を日本原子力研究開発機構(JAEA)が実施 し、TRU 廃棄物を対象にした検討を原子力環環境整備促進・資金管理センター(RWMC)が主体 (有機物や硝酸塩影響等の一部は原子力機構が分担)となり実施する。後者は、NF 事業における プロトタイプシステムを用いた環境変遷を踏まえた核種移行挙動に関わる統合化評価を活用しつ つ行うため、JAEA が主体となり実施する。

表2.1-1 ニアフィールドにおける核種移行総合評価技術の開発を進めるためのサブタスク構成

サブタスク名	サブタスク構成	実施概要		
SP1-1 NFにおける	SP1-1①(JAEA) NF環境変遷を考慮した核種 移行個別現象評価技術の 開発	SP1-1①a:緩衝材の長期変遷と核種移行評価技術開発 鉄やセメント共存による緩衝材間隙水や間隙特性の変化とそれに伴う核種 移行、コロイド移行等への影響を評価するための現象理解とモデル開発		
核種移行に 係る個別現 象解析モデ ルの開発		SP1-1①b:バリア界面現象と核種移行評価技術開発 鉄-セメントーベントナイトのバリア材料間で生じる現象と核種の移行遅延へ の影響(競合収着、共沈等)を評価するための現象理解とモデル開発		
		SP1-1①C:TRU廃棄物の核種移行評価技術開発 セメント材料に由来する有機物や硝酸塩等が核種の移行遅延に及ぼす影 響を評価するための現象理解とモデル開発		
	SP1-1②(RWMC) TRU廃棄物固有の廃棄体からの核種放出挙動評価技術の開発:TRU廃棄物の安全評価上重要な核種の 一つである ¹⁴ Cの廃棄体からの溶出モデルの高度化に資するための現象理解とモデル開発			
SP1-2 NF複合現 象・核種移行	SP1-2①(JAEA) NFの地球化学・物質移行モ デルの高度化	緩衝材中の複数間隙を考慮した間隙水化学に係わる現象理解とモデル開 発と多重間隙を考慮することによる地球化学反応・物質移行への影響評価 (SP1-1①aと連携)。また、緩衝材と他のパリア材料との相互作用評価へ のモデルの適用性検討等		
の総合評価 技術開発	SP1-2②(JAEA) NFの複合現象・核種移行の 統合評価技術の高度化	先行事業(NFシステム評価確証技術開発)で開発された統合評価技術のプロトタイプを活用した不確実性評価、SP1-1①やSP1-2①の成果を反映した技術の高度化、現象解析モデルの簡略化の方法論の検討		

※緑字:TRU廃棄物固有の現象に関わるタスク、赤字及び青字:HLWを対象にしたタスク

表2.1-2 ニアフィールドにおける核種移行総合評価技術の開発の5か年の年度展開

	令和5年度	令和6年度	令和7年度	令和8年度	令和9年度
①ニアフィールドにおける核種移 行に係る個別現象解析モデル の開発 i)ニアフィールド環境変遷を考	関連研究のレビュー、 ◆ 参 緩衝材の長期	計画策定 変遷やバリア界面現象を	を対象に個別現象解析	モデルの高度化	
慮した核種移行個別現象評 価技術の開発(実施担当: JAEA)	▲ TRU廃棄物(有)	(機物・硝酸塩影響)を対	■ おいまた は ない は ない は の に 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、	★ 統合評価技術へのモ 等)の	デル(データ・シナリオ 反映
ii) TRU廃棄物固有の廃棄体か	調和溶出 ◀	はモデル、瞬時放出モデ	ルの高度化	統合評価技術へ	のモデルの反映
らの核種放出季動評価技術 の開発 (実施担当:RWMC)	化学種分析(CSRA 廃棄体モデルの)技術開発・高度化)代表性の調査	実サンプル/	の適用 の代表性の検討	\longrightarrow
②ニアフィールド複合現象・核種 移行の総合評価技術開発))ニアフィールドの地球化学・物	計画検討・既往の知見 や検討例等のレビュー		TRU廃棄物に固有な現 デル化の方針検討(既	象・プロセスに対するモ 生検討のレビュー含む)	
質移行モデルの高度化 (実施担当:JAEA)	地球化学·物質移行	テモデルの高度化 高度化され	たモデルの検証・確証	★ TRU廃棄物を対象との改良・高度化(モ	↓ とした場合のモデル デルの検証・確証)
ii) ニアフィールドの複合現象・核 種移行の統合評価技術の高	先行事業で開発された モデル・パラメータの簡	とプロトタイプを活用した 略化の方策に関わる材	不確実性解析 討	システム評価モデルへの簡略化の妥当性確認	の反映を念頭にモデル 忍を図るための方法論
及12 (実施担当:JAEA) 諸外国に 例のレビ:	おける類似した先行事 ユー、開発方針の再整理	統合評価技術の たなツールを活用	高度化に向けた新 した解析・検討	の検討	

本事業のニアフィールドにおける核種移行総合評価技術の開発を進めていく上での5か年の年 度展開としては、個別現象解析モデルの開発は、HLW 及び TRU 廃棄物を対象に、各々の先行事 業(NF 事業及び TRU 事業)において残された課題を中心に検討を進め、2~3年程度を目途に、 本事業で得られる成果の現状と今後の見通しを整理し、残りの3~2年程度で実施すべき課題や課 題解決に向けての方針を見直し、5か年での目標の達成を目指す。また、統合評価技術開発につい ては、当面3年程度は、HLW を対象にニアフィールド環境変遷評価を踏まえた核種移行評価技術 の高度化を進める。その際には、本事業における HLW を対象にした個別現象解析モデルの開発 で得られる成果や別事業とし実施されている「ニアフィールド長期環境変遷評価技術開発」で得 られる成果も適宜踏まえつつ検討を進める。また、TRU 廃棄物を対象にした統合評価技術開発に ついては、先行して実施する HLW を対象とした場合の検討を踏まえつつ、TRU 廃棄物固有の課 題に着目しながら、残りの2年程度で効果的な実施に繋がるよう進めていく。さらに、本項の冒頭 に記した本事業において重要な目標の一つである、安全評価で用いられるシステム評価モデルへ の反映を念頭にした現象解析モデルやモデルで用いられるパラメータの簡略化方策に関わる検討 については、事業前半の3年程度の間に、諸外国における類似検討例の文献調査等に基づき、本事 業での検討を進めるにあたっての方策(戦略)を練りつつ、事業後半となる2年程度の間に具体化 を図っていく計画である。なお、簡略化方策に関しては、ニアフィールドを対象とした検討のみ ならず、本事業における他の個別研究領域(岩盤及び生活圏)にも共通する課題と考えられ、異 なる個別研究領域間を繋ぎ、全体としての安全評価を進めていく上でも重要である。このため、 他の個別研究領域との連携についても留意しながら検討を進めていくことが必要である。

2.2 ニアフィールドにおける核種移行に係る個別現象解析モデルの開発

2.2.1 ニアフィールド環境変遷を考慮した核種移行個別現象評価技術の開発

(1) 背景と目的

ニアフィールドにおける核種移行挙動を理解し、個別現象を評価するモデルを開発する上では、 地下水水質の長期的な変化やバリア材間の相互作用により引き起こされるニアフィールド環境の 変化を把握し、それが核種移行挙動に及ぼす影響を評価することが必要である。従来の核種移行 評価においては、ニアフィールド環境の長期的変遷とそれに伴う核種移行挙動の変化を定性的に 評価した上で、これらの影響を考慮して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いる。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、ニアフィールド環境の長期変遷と、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。

HLW を対象とした処分においては、人工バリアとして、ガラス固化体がオーバーパックに封入 され、その周囲に圧縮ベントナイトからなる緩衝材が設置される。また、処分場においては、支 保工等にセメント系材料が使用される。このような処分場レイアウトにおいては、緩衝材ベント ナイトとオーバーパックの相互作用、緩衝材ベントナイトとセメント系材料との相互作用等によ り、圧縮ベントナイトの変質や新たな鉱物の生成、間隙構造や間隙水組成の変化等が想定される。 そのため先行事業においては、これら2つの相互作用影響に着目し、オーバーパックから生じる 鉄共存が緩衝材中の核種移行へ及ぼす影響について、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や、鉄と緩衝材の境界領域において生成する鉄鉱物に安全評 価において線量を支配する 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評価を 進めた。また、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については、緩 衝材の Ca 型化に伴うコロイド移行挙動の変化に着目した評価を実施した。先行事業においては、 これらの影響について、鉄イオンとの収着競合による核種の収着量の低下は限定的であること、 緩衝材の Ca 型化については、乾燥密度 1.6 Mg/m³程度の圧縮モンモリロナイトではナノメート ルサイズのコロイドに対して濾過機能を有すること等を明らかにした。一方で、これらの相互作 用による鉱物の生成や、核種の収着対象となる緩衝材の収着能の変化等が核種の移行挙動に及ぼ す影響の評価や、粗製ベントナイト(例えばクニゲル VI)中でのコロイド透過挙動等についての 評価について課題が残った。

TRU 廃棄物処分においては、廃棄体に含まれる硝酸塩や有機物、また、廃棄体の固化に用いら れるセメント系材料等が、核種移行挙動に影響を及ぼすと考えられる。先行事業においては、廃 棄体に含まれるセルロースの分解生成物であるイソサッカリン酸(ISA)が核種との錯生成能が高 いことから、地層処分の評価対象となっている核種について、評価に必要な情報が不足している 核種を対象に溶解度に及ぼす ISA 影響の調査を進めた。その結果、ISA 影響を定量的に評価でき る見通しが得られたものの、一部核種についてはさらなるデータの拡充が必要となった。また、 硝酸塩の影響について、特に廃棄体として用いられるセメント系材料への収着メカニズムの理解 が十分ではなく、その知見の拡充に課題が残った。

これらの先行事業の成果と課題を踏まえ、本事業においては、緩衝材とオーバーパックや緩衝 材とセメントとの相互作用に関する課題について引き続き検討するとともに、これら相互作用の 影響や地下水水質の長期的な変化等も考慮し、個別現象の理解と評価モデルの開発を実施する。 また、TRU廃棄物処分に関する課題についても、引き続き評価を進める。本項では、これらの実 施にあたって、「緩衝材の長期変遷と核種移行評価技術開発」、「バリア界面現象と核種移行評 価技術開発」、「TRU廃棄物の核種移行評価技術開発」の3項目に分けて開発を進める。

「緩衝材の長期変遷と核種移行評価技術開発」では、ニアフィールド環境の長期変遷を考慮し た個別現象理解と評価モデル開発に向けて、特に緩衝材間隙水組成の変化等の固相変化が伴わな い長期変遷を対象に、評価技術の開発や現象理解を進める。「バリア界面現象と核種移行評価技 術開発」では、緩衝材とオーバーパックの相互作用や緩衝材とセメントとの相互作用に関して、 核種の収着対象となる緩衝材の収着能の変化と、それに伴う核種の収着挙動の変化について評価 を進める。また、これら相互作用に伴い生成する鉱物が核種移行に及ぼす影響についても評価を 進める。「TRU廃棄物の核種移行評価技術開発」では、TRU廃棄物に特有の含有物質であるISA と硝酸塩に焦点を当て、それらの影響について評価を進める。

令和5年度の実施内容については、以下の通りである。

(2) 緩衝材の長期変遷と核種移行評価技術開発

本節では、ニアフィールド環境の長期変遷を考慮した緩衝材中の個別現象理解と評価モデル開発に向けて、これまでに評価技術が確立されていない課題と、現象理解が十分でない課題について検討を進めた。このうち、これまでに評価技術が確立されていない課題として、複数化学種が 共存する条件での緩衝材中の核種の拡散挙動の評価が挙げられる。評価対象核種に複数の溶存化 学種が緩衝材間隙水中に存在する場合、それぞれの化学種の収着拡散挙動を個別に評価し、核種 の拡散挙動を評価する必要がある。しかしながら、このような条件下での解析手法が確立されて いないことから、複数化学種共存下での核種の拡散データ取得し、その結果と比較して解析手法 の構築を進めた。また、緩衝材中の核種の移行挙動は、緩衝材中の間隙をモンモリロナイト層間 間隙、モンモリロナイト粒子間間隙に分類し、これらの間隙中を核種が拡散することを想定して 現象理解とモデル化が進められている。これらの間隙中での核種の拡散特性について評価するた め、緩衝材中のコロイド透過挙動の評価と、古典分子動力学計算を用いたベントナイト層間への 核種のアクセス性の評価を進めた。また、これらモンモリロナイトの間隙中の核種の拡散特性の 評価に加えて、核種の移行経路に影響を及ぼすケイ砂や石英等の共存鉱物の影響を評価するため、 ランダムウォーク計算によるバリア材間隙構造モデルの開発を進めた。

1) 複数化学種共存下における核種の拡散挙動の評価

① 研究の目的

圧縮ベントナイト中の核種の拡散挙動の評価については、これまでに多様な条件(乾燥密度や 間隙水塩濃度等)を対象に核種の実効拡散係数が取得され、拡散メカニズムの理解と核種移行評 価のためのモデル開発が進められてきた。しかしながら、対象とされてきた元素はNaやCs等の一 価のイオンが中心であり、多価イオンの拡散データは十分に取得されていない。多価イオンでは、 処分環境において複数の加水分解種が共存する場合があり、また、地下水中に溶存している炭酸 イオンと錯体を形成する可能性があるため、複数の化学種が共存した状態で圧縮ベントナイト中 を拡散する可能性がある。そのため、このような条件における拡散挙動の理解と解析モデルの構 築が課題の一つとなっている。

先行事業においては、炭酸共存下での圧縮ベントナイト中の拡散試験を実施し、Np(V)の拡散デ ータを取得するとともに、地球化学計算コードPHREEQC(Parkhurst and Appelo, 2013)の Transport機能を用いて、Np炭酸錯体(NpO₂CO₃-やNpO₂(CO₃)₂-)が共存する系における圧縮 ベントナイト中のNp(V)の拡散移行解析を実施した。拡散試験の結果、炭酸濃度の増加に伴い、 Np(V)の分配係数と実効拡散係数の低下が確認された。この傾向については、炭酸共存下では、陰 イオンのNp炭酸錯体が支配的な溶存化学種として存在するため、Np炭酸錯体のベントナイトへ の収着量の低下と、モンモリロナイト表面の静電的相互作用で説明される陰イオン排除により、 定性的に説明可能なことが示された。しかしながら、PHREEQCを用いて、上記の条件の拡散試 験のシミュレーションした結果、試験により得られた破過曲線を十分に再現できなかった。その 要因の一つとして、Np炭酸錯体の割合がpHや炭酸イオン濃度に強く依存するため、これらのパラ メータのわずかな変化に伴ってNp炭酸錯体割合が変化した可能性が考えられた。複数化学種共存 系における拡散メカニズムの解明には、定量的な評価を進めていく必要があることから、本研究 では、共存する化学種の種類が少ないこと、間隙水のpH変化による溶存化学種の変化が少ないこ とから、Np(V)より単純な系としての評価が期待できる硫酸イオン下でのSr(II)に着目した。本年 度は、圧縮Na型ベントナイトを対象に、硫酸イオン濃度を制御した条件でSr-85の拡散試験によ り、Sr²⁺とSrSO₄(aq)共存下での拡散データを取得するとともに、PHREEQCのTransport機能を 用いてSr-85拡散試験のシミュレーションにより、Sr²⁺とSrSO₄(aq)共存下における核種移行解析 体系の構築およびそれらの移行挙動評価を行った。

② 試験手法

試験は、透過拡散試験法で実施した。図 2.2-1に、試験に用いた拡散試験装置の概略図を示す。 透過拡散試験は、高濃度側溶液にトレーサーを添加し、低濃度側溶液に拡散させることで、圧縮 ベントナイト中のトレーサーの拡散挙動を評価する手法である。

試料には、Na型ベントナイトとしてクニピアF(クニミネ工業)を使用した。トレーサーには Sr-85を用いた。高濃度側溶液および低濃度側溶液として使用する試験溶液の組成は、異なるNaCl 濃度(0.05 mol/Lまたは0.1 mol/L)、またはNa₂SO₄濃度(0.05 mol/Lまたは0.1 mol/L)の4条件 とした。試験は、Na型ベントナイトを拡散セル内(直径20 mm,長さ10 mm)に乾燥密度0.8 Mg/m で圧縮充填した後、拡散セルを試験溶液に浸漬し、1か月以上、低圧下で含水させた。含水後、 高濃度側容器にSr-85を含む試験溶液500 mL程度,低濃度側容器には30 mL程度の試験溶液を添 加し、送液ポンプによりテフロンチューブを通してそれらの溶液をベントナイト試料に接触させ、 拡散試験を開始した。トレーサーの初期濃度ついては、Sr-85が300 Bq/mL、安定同位体を含むSr 濃度が1×10⁻⁷ mol/Lとなるように調製した。試験開始後、高濃度側溶液については定期的に採取、 低濃度側溶液については同じ組成及び容量の試験溶液を添加した容器と定期的に交換し、採取し た溶液および交換した容器中の溶液のSr-85濃度を測定した。Sr-85濃度の測定には、液体シンチ レーションカウンタを用いた。



図 2.2-1 Sr-85拡散試験装置の概略と試験条件

③ 試験結果

図 2.2-2に、高濃度側溶液中のSr-85の濃度変化(減衰曲線)および低濃度側溶液中のSr-85の濃 度変化(破過曲線)を示す。図 2.2-2では、試験溶液の組成がNaイオン濃度0.05 mol/L(溶液組 成NaCl 0.05 mol/LとNa₂SO₄ 0.025 mol/L)とNaイオン濃度0.1 mol/L(溶液組成NaCl 0.1 mol/L とNa₂SO₄ 0.05 mol/L)の場合に分けて、硫酸イオン濃度の制御の有無で結果を比較している。Na イオン濃度0.05 mol/Lの減衰曲線について、硫酸イオン濃度を制御した条件の方がよりSr濃度の 減少が早く、Naイオン濃度0.1 mol/Lの減衰曲線では逆の傾向が見られた。Naイオン濃度0.05 mol/Lの破過曲線については、硫酸イオン濃度を制御していない条件では、よりSr-85濃度の増加 がより顕著にみられた。同様の傾向がNaイオン濃度0.1 mol/Lの破過曲線でも得られた。

硫酸イオン濃度を制御していない場合、熱力学データ(Yoshida and Kitamura, 2010; Felmy et al, 1990)を用いたPHREEQCによる化学平衡計算に基づけば、Srの溶存化学種はほとんどが Sr²⁺として存在する。Sr²⁺のような陽イオンの圧縮ベントナイト中の拡散挙動については、ベント ナイト表面の負電荷の影響を受けて電気的に中性の化学種より拡散し易いことが知られている (Tachi et al, 2014)。本試験の条件では、硫酸イオン濃度を制御した条件では、Srの溶存化学種 のおよそ20%程度がSrSO4(aq)として存在するため、硫酸イオン濃度を制御していない条件と比較 して拡散速度が低下すると考えられる。このことから、硫酸イオン濃度の制御の有無による破過 曲線の傾向の違いは、Sr²⁺とSrSO4(aq)の割合と、それらの溶存化学種の実効拡散係数の違いで定 性的には理解される。一方で、減衰曲線については、上記の理解に基づくと、ベントナイトへの Sr²⁺の収着により、溶存化学種としてSr²⁺が主として存在する硫酸イオンがない場合の方がより Sr濃度が低下すると考えられる。しかしながら、図2.2-2のNaイオン濃度0.1 mol/Lの減衰曲線で は、この傾向が確認できるものの、Naイオン濃度0.05 mol/Lでは逆の傾向を示しており、今後、 この原因について検討が必要である。


(b) Na イオン濃度 0.05 mol/L 破過曲線

(c) Na イオン濃度 0.1 mol/L 減衰曲線



(d) Na イオン濃度 0.1 mol/L 破過曲線



図 2.2-2 Sr-85拡散試験の結果: (a)および(b)は Naイオン濃度0.05 mol/L、(c),および(d) Naイ オン濃度0.1 mol/Lの減衰曲線および破過曲線を示す.プロットの赤、青は、それぞれ硫酸イオン 濃度を制御した条件、硫酸イオン濃度を制御していない条件の結果を示す。

複数の溶存化学種が共存する系においては、核種の移行挙動を評価する上で、各溶存化学種の 拡散、収着、平衡を考慮することが必要である。そのため、PHREEQCのTransport機能を用いて、 Srイオンと硫酸イオンが共存する系でのSrの拡散挙動を解析した。解析では、ISDモデル(Tachi and Yotsuji, 2014; Tachi et al, 2014)により各化学種の実効拡散係数を設定し、表面錯体およ びイオン交換反応を考慮した収着モデルにより、ベントナイト・核種間の収着反応を評価した。一 次元の拡散を想定した核種移行解析により、Srの減衰曲線、破過曲線および濃度プロファイルを 評価した。計算に使用したパラメータを表 2.2-1および表 2.2-2に示す。

図 2.2-3に、解析により得られた減衰曲線、破過曲線および80日後のベントナイト中のSr濃度 プロファイルを示す。また、減衰曲線および破過曲線にはSr濃度に加えて、主な溶存化学種であ るSr²⁺とSrSO₄(aq)濃度も示す。硫酸イオンあり及びなしの条件でのSrの破過曲線を比較すると (図中の暖色系と寒色系の実線を比較)、硫酸イオンがない場合の方がSr濃度の増加が顕著であ った。この結果は、前述した拡散試験結果の傾向と一致する。PHREEQCの平衡計算に基づくと、 硫酸イオンがない場合では、溶存化学種のほとんどがSr²⁺であるのに対して、硫酸イオンがある 場合では、およそ20%のSrSO4(aq)が共存している状態である。解析上、Sr²⁺の実効拡散係数は SrSO4(aq)より高い値が設定されているため、硫酸イオンがない場合では全Srの濃度上昇がより 顕著であったと考えられる。

Naイオン濃度0.1 mol/Lと0.05 mol/Lの結果を比較すると、Naイオン濃度が0.05 mol/Lの方が よりSrの破過濃度が上昇する傾向が見られた。濃度プロファイルでは、Naイオン濃度0.1 mol/Lの 方がベントナイト中のSr濃度が低かった。これらの結果から、溶液中のNaイオン濃度の増加に伴 い、ベントナイトへのSr²⁺収着量の減少が確認できる。しかしながら、図 2.2-2(b)と(d)で示した 破過曲線の実測値と解析結果では、逆の傾向を示している。実測データが不十分なことから、解 析結果と実測値の定量的な再現できるかは未検証であり、今後、実測データ拡充および設定した パラメータやモデルの妥当性を実測値との比較から検証していく必要がある。

表 2.2-1 PHREEQC計算に用いたイオン交換および表面錯体反応のパラメータ

Sorption sites	Log k
$X^- = X^-$	0.0
$X^- + Na^+ = XNa$	20.0
$X^- + H^+ = XH$	20.10
$Sr^{2+} + 2X^{-} = SrX_2$	40.69
$Surf_sOH = Surf_sOH$	0.0
$Surf_sOH + H^+ = Surf_sOH_2^+$	5.75
$Surf_sOH = Surf_sO^- + H^+$	-8.30
$Surf_sOH + Sr^{2+} = Surf_sOSr^+ + H^+$	-5.20

表 2.2-2 ISDモデルから計算したSr化学種の実効拡散係数(m²/s)

	Naイオン濃度 0.05 mol/Lの場合	Naイオン濃度 0.1 mol/Lの場合
Sr^{2+}	$5.84\! imes\!10^{-9}$	$1.50\! imes\!10^{-9}$
$SrSO_4$ (aq)	$2.46 imes 10^{-11}$	$2.47 imes 10^{-11}$

(a) 減衰曲線

Na イオン濃度 0.1 mol/L の場合



図 2.2-3 PHREEQCによる拡散試験のシミュレーション結果: (a)は減衰曲線、(b)は破過曲線、(c)は濃度プロファイルを示す.実線、点線、破線は、それぞれ、Sr、Sr²⁺, SrSO₄(aq)の結果を示す。実線の赤、青は、それぞれ、硫酸イオンありと硫酸イオンなしの条件の結果を示す。

2) 緩衝材中のコロイド透過挙動の評価

研究の目的

緩衝材として使用され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透過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、処分場において想定される様々な環境条件において透過する可能 性のあるコロイドを明確にする上では、条件を拡充して検討を実施し、コロイドが透過する地下 水条件や乾燥密度と、コロイド粒子の大きさの関係を明確にすることが課題である。

先行研究においては、上記の課題を踏まえ、ニアフィールドの環境変遷としてセメント系材料 からのCaの溶脱によるベントナイトのCa型化に着目し、Ca型化に伴う間隙特性の変化が、圧縮 ベントナイトのコロイドフィルトレーション機能へ及ぼす影響について検討した。検討において は、大きさが既知のコロイドであるデンドリマーを使用し、ベントナイトの乾燥密度をパラメー タとし、それを透過できるコロイドのサイズに着目した。その結果、ベントナイトに含まれる随 伴鉱物を除去した精製モンモリロナイト(クニミネ工業製クニピアF)を用いた試験において、乾 燥密度1.6 Mg/m³では1.9 nmの大きさのデンドリマーがろ過されたのに対し、乾燥密度1.2 Mg/m³ 以下では8.8 nmの大きさのデンドリマーも透過し得ると考えられる結果が得られた。一方で、乾 燥密度が低い条件では、透過するコロイドの最大の大きさを明確とすることができなかった。ま た、安全評価に得られた知見を適用する上では、モンモリロナイト以外の鉱物を含有する粗製ベ ントナイトが実際の処分において用いられるが、粗製ベントナイトに対する先行事業の知見の適 用性については課題が残る結果となった。

本事業では、粗製ベントナイト及び乾燥密度の低い精製モンモリロナイト中のコロイドの透過 挙動について検討を行う。検討では、より大きな粒径のコロイドを用いた試験等により、低い乾 燥密度の圧縮モンモリロナイトを透過し得るコロイドの大きさを明確にする。また、粗製ベント ナイトについても、乾燥密度や溶液条件と透過するコロイドの大きさの関係を把握し、精製モン モリロナイトで得られたコロイド透過挙動と比較する。令和5年度の事業においては、先行事業に おいて実施したデンドリマーを用いたコロイド透過試験の結果と比較するため、粗製ベントナイ トとしてクニゲルV1を使用し、その透過挙動を検討した。

記験手法

試験に使用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、粒径5.7 nm (Generation 4.5、分子量 26,252)のものを用いた。透過試験は、ベントナイトとしてクニミネ工業製クニゲルV1を使用し、図 2.2-1に示す透過拡散試験装置と同様の装置により実施した。ベントナイトの乾燥密度は、0.8 Mg/m³、1.2 Mg/m³、1.6 Mg/m³の3条件とし、試験溶液は0.05 mol/dm のNaCl溶液を用いた。試験溶液はpH 8程度に調整した。

試験は、デンドリマーを高濃度側溶液に添加して溶液の循環を開始した後、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-Leph, 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。

3 試験結果

図 2.2-4(a)に高濃度側溶液中のデンドリマーの濃度及び低濃度側溶液へのデンドリマーの積算 透過量の時間変化、図 2.2-4(b)にベントナイトのスライスにより得られたベントナイト中のデン ドリマーの濃度分布を示す。図 2.2-4(a)に示す低濃度側溶液へのデンドリマーの積算透過量から は、どの乾燥密度においてもデンドリマーが圧縮ベントナイト中を透過し、低濃度側溶液に移行 したことがわかる。また、ベントナイト中のデンドリマーの濃度分布からも、高濃度側溶液から 低濃度側溶液に向かってデンドリマーの濃度勾配が確認され、デンドリマーが圧縮ベントナイト 中を透過したことが確認できる。これらの結果から、乾燥密度1.6 Mg/m³以下のクニゲルV1中を、 粒径5.7 nm以下のコロイド粒子が透過できることが確認された。

これまでの圧縮ベントナイト中の核種の拡散挙動等に関する研究より、圧縮ベントナイト中を 拡散する核種は、ベントナイトの主要構成鉱物であるモンモリロナイト中を拡散するため、モン モリロナイト部分の密度(モンモリロナイト部分密度)での整理が試みられている。クニゲルV1 中のモンモリロナイト含有率を0.5、含有するモンモリロナイト以外の鉱物の比重を2.8 Mg/m³と すると、本試験で使用したクニゲルV1の乾燥密度0.8 Mg/m³、1.2 Mg/m³、1.6 Mg/m³のモンモリ ロナイト部分密度は、それぞれ0.47 Mg/m³、0.76 Mg/m³、1.12 Mg/m³程度と算出される。先行研 究の結果より、乾燥密度1.2 Mg/m³以下の圧縮モンモリロナイト中を、粒径5.7 nmのデンドリマ ーが透過することを確認している。本試験結果は、精製モンモリロナイトで得られた試験結果と、 粗製ベントナイトで得られた結果が整合的であることを示している。しかしながら、透過できる コロイドの最大粒径等、精製モンモリロナイトの結果を適用する上でのデータが十分でないこと から、今後、試験条件を拡充して検討を進める予定である。



(a)デンドリマーの高濃度側溶液中濃度及び低
濃度側溶液への積算透過量の時間変化
(○△□:高濃度側濃度 ●▲■:積算透過量)

(b)ベントナイト中のデンドリマーの濃度 分布

図 2.2-4 各乾燥密度のクニゲルV1に対するデンドリマー(粒径5.7nm)の透過試験結果

3) 古典分子動力学計算を用いたベントナイト層間へのアクセシビリティ評価

地層処分施設において、ニアフィールド環境の長期変遷と、その変遷を適切に考慮した核種移 行を評価する技術を構築する上では、環境条件の時間変遷を踏まえつつ、半減期の長いアクチニ ド等の核種がニアフィールドの構成材料の中をどのように移行・遅延するかを定量的に評価する ことが重要になる。例えば、ニアフィールドの構成材料の一つである緩衝材中での核種の移行・ 遅延に影響を及ぼす収着・拡散挙動は、緩衝材を構成する鉱物等に支配される微細間隙構造(層 間間隙及び粒子間間隙)と関連している。

本項では、炭酸共存下における緩衝材中の核種の収着・拡散挙動、特に、緩衝材中の核種の拡 散現象を評価するモデルを構築する上で重要なモンモリロナイト層間間隙への炭酸錯体の侵入可 能性を解明するため、モンモリロナイトと水溶液の共存系を対象に、古典分子動力学(molecular dynamics, MD)計算を用いてアクチニド核種の収着・拡散挙動を評価した。

先行事業では、モンモリロナイト鉱物を対象に、層間間隙及び粒子間間隙が共存するスーパー セルを試作し、ウラニルイオン(UO_2^{+})及びネプツニルイオン(NpO_2^{+})の層間間隙へのアクセス 挙動をシミュレートした。その際、層間間隙を2層水和~5層水和状態まで変化させ、またアクチ ニド核種とCl⁻/CO₃⁻が共存する系を比較するなど、種々の影響評価を実施してきた(日本原子力 研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター,2020;2021;2022)。先行事業において は、 UO_2^{+} / NpO_2^{+} /Cl⁻/CO₃⁻をすべて粒子間間隙に配置した初期状態から10 ns間のシミュレー ションを実施し、層間間隙における対イオン(Na^+ イオン)とのイオン交換の状況などから系が平 衡状態に達しているかを判断してきたが、系によっては十分な計算時間とは言えなかった。また、 アクチニド核種は拡散に伴って陰イオン種と錯体を形成するが、時間経過に伴って錯体形成がど のように変化し、それが層間間隙へのアクセス性にどういった影響を及ぼすかについては、十分 な知見が得られたとは言えない状況であった。そこで本事業では、これまで実施してきたシミュ レーションの計算時間を20 nsまで継続し、平衡状態に達するまでの時間について検討した。また、 炭酸錯体の層間間隙へのアクセス性を評価するため、初期状態として粒子間間隙に[(UO_2)(CO_3)]^o /[(NpO_2)(CO_3)]⁻が1個存在する状態からスタートし、その後の拡散挙動を追跡した。

先行事業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、及び粘土層のエッジ 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、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。

$Na_{0.33} \cdot (Al_{1.67}Mg_{0.33})Si_4O_{10}(OH)_2 \cdot nH_2O$

(2.2-1)

ここでnは、層電荷の電荷バランス補償するために存在する層間のNaイオン1個に対して3n個の 水分子が層間に存在することを表しており、n = 5.0、n = 7.5、n = 10.0及びn = 12.5は、それぞれ 2層、3層、4層及び5層水和状態に相当する。間隙水-層間水共存系の計算は、温度298.15 KのNVT アンサンブルで実施した。間隙水に接するエッジ表面は、{010}面を想定し(Rotenberg et al., 2007)、エッジ表面に現れるSi⁴⁺、Al³⁺、及びMg²⁺には、それぞれOH⁻基、OH⁻基とH₂O、及びH₂O を計算初期に付加している。また、エッジ表面に付加するOH⁻基の個数を調整することにより、 系全体の電荷バランスを取っている。スーパーセルの構造作成に関する詳細は、2019年度の報告 書(日本原子力研究開発機構, 2020)に記載しているため、ここでは省略する。

図 2.2-5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~5層水和状態(ケース1、図 2.2-5(a),(b),(c),(d))、及び層間外にNa⁺が8個・CO₃²⁻が4個共存する系の2層~5層水和状態(ケース2、図 2.2-5(e),(f),(g),(h))の20 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。各パネルとも、縦軸は層間内に存在する各イオンの個数を表し、横軸はMDシミュレーションの計算時間を表す。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、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CI⁻あるいは CO₃²⁻が、その後の時間経過とともに層間内に存在して いる個数の変化は、紫色でプロットした。



図 2.2-5 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)、及び層間外にNa⁺が8個・CO₃²⁻が4個共存する系(ケース2)の20 nsにわたる溶 存イオンの層間内における個数履歴。Na_in及びNa_outの個数履歴は、それぞれ青色及び茶色で プロットし、その合計数の履歴を緑色でプロットした。また、Cl⁻あるいは CO₃²⁻の個数履歴は紫 色でプロットした。(a) Case1の2層水和状態、(b) Case1の3層水和状態、(c) Case1の4層水和状 態、(d) Case1の5層水和状態、(e) Case2の2層水和状態、(f) Case2の3層水和状態、(g) Case2の 4層水和状態、(h) Case2の5層水和状態

いずれのケース及び水和状態でも、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⁺と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、計算時間が10 ns程度経過し、平衡状態に達してからの挙動 は、いずれのケースでも水和状態によって顕著に異なるようである。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、電荷中性条件と浸透 圧との競合(日本原子力研究開発機構, 2022)を考慮して、層間内のNa⁺の合計数(緑色の軌跡) が実際には図のように25個程度で推移するものと仮定すると、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、平衡後、層間内のNa⁺の合計数はおおむね定常に推移しているよう であるが、Na_in及びNa_outのそれぞれの個数は大きく増減を繰り返しながら推移しているケー ス・水和状態が見受けられる。その原因の一つとしては、イオンの個数に関する統計が十分でな いことが考えられる。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層間内への侵入はほとんど確認できないが、4層・ 5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CO₃²⁻の挙動を見ると、3層・

2 - 15

4層水和状態で 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 したためであると思われる。このことは、図 2.2-5 (f), (g)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。なお、 ケース1で見られるNa⁺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。また、ケース2の5層水和状態では、層間内への CO_3^2 -の侵入が確認されていない。こ の原因としては、層間外において CO_3^2 -が陽イオンと錯体クラスターを形成し、サイズの影響で侵 入できない可能性が考えられる。



図 2.2-6 初期状態として層間内にNa⁺が32個存在し、層間外にUO²⁺が8個・Cl⁻が16個共存する 系(ケース3)、及び層間外にUO²⁺が8個・CO²⁻が8個共存する系(ケース4)の20 nsにわたる溶 存イオンの層間内における個数履歴。Na⁺及び UO²⁺の個数履歴は、それぞれ青色及び茶色でプ ロットした。また、Cl⁻あるいは CO²⁻の個数履歴は紫色でプロットした。(a) Case3の2層水和状 態、(b) Case3の3層水和状態、(c) Case3の4層水和状態、(d) Case3の5層水和状態、(e) Case4の 2層水和状態、(f) Case4の3層水和状態、(g) Case4の4層水和状態、(h) Case4の5層水和状態

図 2.2-6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UO²⁺が8個・Cl⁻が 16個共存する系の2層~5層水和状態(ケース3、図 2.2-6 (a), (b), (c), (d))、及び層間外にUO²⁺が 8個・CO³⁻が8個共存する系の2層~5層水和状態(ケース4、図 2.2-6 (e), (f), (g), (h))の20 nsにわ たる溶存イオンのシミュレーション履歴を評価した図である。層間内に存在するNa⁺及び UO²⁺の 個数履歴を、それぞれ青色及び茶色でプロットし、陰イオンのCl⁻あるいはCO³⁻の個数履歴は紫色 でプロットした。層間内におけるNa⁺の個数履歴を見ると、ケースや水和状態により多少増減は繰 り返すが、10 ns程度でほぼ平衡に達しているものと思われる。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·UO²⁺) 個になることが期 待される。また図 2.2-5 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·UO²⁺) 個程度になることが期待される。ケース3の解析結果を見ると、層間内に おけるUO²⁺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お おむね整合的であると言える。また、ケース4の結果を見ると、層間内のNa⁺と層間外のUO²⁺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、UO₂²⁺と CO₃²⁻は錯体を形成しやすく、層間外におい てクラスター化している可能性があるためと考えられる。



 図 2.2-7 初期状態として層間内にNa⁺が32個存在し、層間外にNpO[±]が8個・Cl⁻が8個共存する 系(ケース5)、及び層間外にNpO[±]が8個・CO^{2−}が4個共存する系(ケース6)の20 nsにわたる 溶存イオンの層間内における個数履歴。Na⁺及びNpO[±]の個数履歴は、それぞれ青色及び茶色でプロットした。また、Cl⁻あるいはCO^{2−}の個数履歴は紫色でプロットした。(a) Case5の2層水和状態、(b) Case5の3層水和状態、(c) Case5の4層水和状態、(d) Case5の5層水和状態、(e) Case6の 2層水和状態、(f) Case6の3層水和状態、(g) Case6の4層水和状態、(h) Case6の5層水和状態

図 2.2-7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[±]が8個・Cl⁻ が8個共存する系の2層~5層水和状態(ケース5、図 2.2-7 (a), (b), (c), (d))、及び層間外にNpO[±] が8個・CO²⁻が4個共存する系の2層~5層水和状態(ケース6、図 2.2-7 (e), (f), (g), (h))の20 nsに わたる溶存イオンのシミュレーション履歴を評価した図である。層間内に存在するNa⁺及びNpO[±] の個数履歴を、それぞれ青色及び茶色でプロットし、陰イオンのCl⁻あるいはCO²⁻の個数履歴は紫 色でプロットした。これらのケースでも、10 ns程度でほぼ平衡に達しているものと判断すること ができる。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・Na⁺ + 6.4・NpO[±]) 個になることが期待される。また、図 2.2-5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・Na⁺ + 5・NpO[±]) 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見ると、どちらのケースも期待値とおおむね整合していることが確認で きる。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5ではNpO[±]もCl⁻も層間への侵 入が確認でき、どちらも基本的には単独で存在しているようであるが、[(NpO₂)Cl]⁰の形での侵入 も確認されている。一方ケース6では、NpO[±]は単独で侵入し、CO²⁻の侵入はほとんど確認できな い。これは、層間外において[Na(NpO₂)(CO₃)]⁰や[(NpO₂)(CO₃)]⁻などの錯体が確認され、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4層水和状態では、CO²⁻が層間内に定常的 に存在しているが、これは層間幅が比較的広く、錯体を形成して侵入していることが確認されている。

次に、アクチニド炭酸錯体の層間内へのアクセス性に注目するため、あらかじめ層間外に炭酸 錯体を1つ配置し、10 ns間の拡散履歴をMDシミュレーションで解析した。ウラニル系では、初期 状態として層間内に対イオンとしてNa⁺が16個存在し、層間外には[(UO₂)(CO₃)]⁰が1個、及びNa⁺ とCl⁻がそれぞれ7個共存する系をモデル化した。図 2.2-8に、4層水和状態での、(a) UO₂²⁺の密度 分布(存在率)、(b) CO₃²⁻の密度分布をそれぞれ示す。暖色度が強いほど、存在率が高い(滞在時 間が長い)ことを表している。MD計算では、UO₂²⁺とCO₃²⁻を結合するポテンシャルは入れていな いが、両者は静電的に結合した状態で10 nsにわたって拡散した。ここでは、例として4層水和状 態を示したが、5層水和状態でも炭酸錯体[(UO₂)(CO₃)]⁰として層間内への侵入が確認された。一 方、2層及び3層水和状態の場合、少なくとも10 nsの間は層間内への侵入が確認できなかった。



図 2.2-8 4層水和状態で、初期状態として層間内にNa⁺が16個存在し、層間外に[(UO₂)(CO₃)]⁰ が1個、Na⁺が7個、及びCl⁻が7個共存する系の10 nsにわたる密度分布(存在率)。暖色度が強 いほど、存在率が高い(滞在時間が長い)。(a) UO₂⁺の密度分布、(b) CO₃⁻の密度分布

次に、ネプツニル系に対しては、初期状態として層間内に対イオンとしてNa⁺が16個存在し、層 間外には[(NpO₂)(CO₃)]⁻が1個、Na⁺が7個、及びCl⁻が6個共存する系をモデル化した。図 2.2-9に、 4層水和状態での、(a) NpO⁺2の密度分布、(b) CO²⁻3⁻の密度分布をそれぞれ示す。ウラニル系の場合 (図 2.2-8) とは異なり、4層水和状態では炭酸錯体[(NpO₂)(CO₃)]⁻として層間内への侵入がほと んど確認できない。この状況は、2層及び3層水和状態でも同様である。一方、5層水和状態では、 炭酸錯体として層間内への侵入が確認された。層間内へのアクセス性に関するウラニル系及びネ プツニル系の相違は、UO²⁺及びNpO⁺2の有効イオン半径が同程度(UO²⁺は0.280 nm、NpO⁺2は0.290 nm、Marcus, 1997) であることを考慮すると、炭酸錯体の価数の相違、あるいは錯体形状(イオ ンの配位の仕方)の相違などに起因するものと思われる。



図 2.2-9 4層水和状態で、初期状態として層間内にNa⁺が16個存在し、層間外に[(NpO₂)(CO₃)]⁻ が1個、Na⁺が7個、及びCl⁻が6個共存する系の10 nsにわたる密度分布。暖色度が強いほど、存 在率が高い(滞在時間が長い)。(a) NpO⁺₂の密度分布、(b) CO²₃-の密度分布

本解析では、モンモリロナイト層間間隙と粒子間間隙が共存する系におけるアクチニド核種を 対象とした古典MD計算を実施し、層間間隙へのイオンのアクセス性に関する知見を得ることが できた。アクチニド核種の系について結果を要約すると、 $U0_2^{2+}$ 及びNpO₂⁺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す る。 $U0_2^{2+}$ とCl⁻が共存する系ではそれぞれ単独で層間内に侵入するが、 $U0_2^{2+}$ とCO₃²⁻が共存する系 では層間外で錯体を形成してクラスター化し、Cl⁻共存系に比べると層間内への侵入が抑えられる。 CO₃⁻は基本的に単独での侵入は見られないが、陽イオンと錯体を形成して中性化し、層間内へ侵 入する。NpO₂⁺とCl⁻が共存する系では、ウラニル系と同様にそれぞれ単独で層間内に侵入する。一 方NpO₂⁺とCO₃²⁻が共存する系では、CO₃²⁻が基本的に単独では侵入せず、その分NpO₂⁺の侵入もCl⁻共 存系に比べて抑えられる。しかしながら十分な層間幅があれば、炭酸錯体を形成したNpO₂⁺も層間 内に侵入する。[(UO₂)(CO₃)]⁰と[(NpO₂)(CO₃)]⁻の層間内への侵入挙動を比較すると、価数の相違 などにより、侵入可能な水和状態に相違があることが確認された。

4) ランダムウォーク計算によるバリア材間隙構造モデルの開発

研究の目的

緩衝材中の核種の拡散現象を評価するモデルを開発する上では、主要構成鉱物であるモンモリ ロナイト中の層間間隙や粒子間間隙での核種の拡散挙動を理解し、その理解に基づく現象論的モ デルの開発が重要である。一方で、核種移行評価上の重要パラメータである緩衝材中の核種の拡 散係数を評価する上では、モンモリロナイト中の核種の拡散挙動に加えて、緩衝材に含まれる他 の鉱物やケイ砂混合の影響を考慮したモデル開発が重要となる。このような観点から、これまで 開発してきた"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)を適用し、他の鉱物やケイ砂の影響を評価するモデルを検討した。

ISDモデルを適用した緩衝材中の核種拡散係数を評価するアプローチとして、緩衝材の主要構成鉱物であるモンモリロナイト中の核種拡散移行にISD拡散モデルを適用し、その他の鉱物やケイ砂に関しては幾何学的な構造因子として影響するモデルを検討してきた(日本原子力研究開発 機構,2020;2021;2022)。その際、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成し、その構造のなかで核種をランダムウォー ク(Random Walk, RW)させて核種移行のシミュレーションを実行した。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)。これまでの解析により、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て、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、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(たとえば、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(日本原子力研究開発機構, 2022)。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(2³ 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(100³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<u>クニゲルユニット</u>: クニゲルV1を模擬したユニット。すべてのクニゲルユニットは同じ間隙 率を設定し、さらにその間隙率に応じた実効拡散係数を設定する。
- ②<u>ケイ砂ユニット</u>: 天然のケイ砂あるいはガラスビーズを模擬したユニット。すべてのケイ砂 ユニットは間隙率ゼロとし、粒子はユニット内を拡散しないものとする。

これら2種類の粒子の配置の仕方は、2³セルから構成された1ユニットを基本のサイズとして、ク ニゲルとケイ砂は同じ1ユニットの粒子サイズで、ランダムに体系内に配置した。

令和5年度は、天然の岩石をより精緻にモデル化する観点から、クニゲル粒子は従来と同様に1³ ユニット(=2³セル)を1粒子とし、一方ケイ砂粒子は3³ユニットの立方体を1粒子とするケース、 9³ユニットの立方体を1粒子とするケース、及び27³ユニットの立方体を1粒子とするケースの3ケ ースを設定してランダムウォーク(RW)シミュレーションを実施した。

これら2種類の粒子の配置の仕方は、2³セルから構成された1ユニットを基本のサイズとして、 クニゲルとケイ砂は同じ1ユニットの粒子サイズで、ランダムに体系内に配置した。

本年度は、天然の岩石をより精緻にモデル化する観点から、クニゲル粒子は従来と同様に2³セルを1ユニットとし、一方ケイ砂粒子は6³セルの立方体を1ユニットとするケース、18³セルの立方体を1ユニットとするケース、0054³セルの立方体を1ユニットとするケースの3ケースを設定してランダムウォーク(RW)シミュレーションを実施し、ケイ砂粒子のサイズの影響について評価した。

研究手法及び結果

- クニゲル及びケイ砂粒子の配置のコンフィギュレーションは、以下の規則で作成した。
- ①ケイ砂粒子(あらかじめ設定した粒子サイズのもの)だけを配置する。
- ②ケイ砂粒子の中心位置は、乱数を用いて体系内にランダムに配置する。
- ③ケイ砂粒子は、設定したケイ砂の体積分率(*R_{sand}*)に達するまで次々に配置していくものと する。その際、すでにケイ砂粒子が存在する領域に重なるような配置、あるいは面で接する ような配置が選択された場合は、そのまま上書きして粒子を生成する。その結果、基本の粒 子サイズ以上の粒子の塊(クラスター)が生成されることになる。
- ④ケイ砂粒子の中心位置が計算体系の境界近傍に選択された場合、ケイ砂粒子の一部が計算体 系からはみ出す可能性があるが、はみ出した部分は無視するものとする(周期境界条件など は考慮しない)。

⑤ケイ砂粒子の配置の最終段階では、設定したケイ砂体積分率(R_{sand})にちょうど達するよう に配置が完了するとは限らない。R_{sand}に達するまでの端数部分については、2³セルを1ユニッ トとして、上記の規則で配置していくものとする。

⑥ケイ砂粒子の配置がすべて完了したあと、体系内の残りのユニットはすべて2³セルを1ユニットとするクニゲル粒子を配置する。

このようにして作成したコンフィギュレーションの断面イメージ図を、図 2.2-10に示す。例と して、ケイ砂の体積分率が0.2でケイ砂ユニットが6³セルの場合を図 2.2-10(a)に、18³セルの場合 を(b)に、54³セルの場合を(c)に示した。また、ケイ砂の体積分率が0.6でケイ砂ユニットが6³セル の場合を図 2.2-10(d)に、18³セルの場合を(e)に、54³セルの場合を(f)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=10,000 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、境界条件をRWシミュレーションに合わせて設定した3次元拡散方程式の 解析解を導出して、フィッティングにより算出した。

混合媒体 (クニゲルV1+間隙ゼロのケイ砂混合材)の計算条件を、表 2.2・3に示す。クニゲルV1 の真密度 (ρ_s^{bent}) 及びケイ砂の真密度 (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}) 及びクニゲル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 ($R_{\text{bent}} = 1 - R_{\text{sand}}$)、クニゲルV1の間 隙率 ($\varepsilon_{\text{bent}} = 1 - \rho_b^{\text{bent}} / \rho_s^{\text{bent}}$) 及び混合媒体の間隙率 ($\varepsilon_{\text{mix}} = R_{\text{bent}} \cdot \varepsilon_{\text{bent}}$) を算出し、計算条件 と合わせて表 2.2・3に記載した。RWシミュレーションの入力値となるクニゲルV1中のHTOの実 効拡散係数は、Kato et al. (1995) で得られた実測データを元に、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実験式を用いて算出した。

$$D_{\rm e}^{\rm bent} = 1.727 \times \exp(-1.655 \times \rho_{\rm b}^{\rm bent}), \quad 0.5 \le \rho_{\rm b}^{\rm bent} \le 2.0$$
 (2.2-2)

以上の解析条件によるRWシミュレーションから得られた実効拡散係数を、表 2.2-3に記載した。 また、得られ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}) を定義した。



図 2.2-10 混合媒体の鉱物配置の可視化図。上段はケイ砂の体積分率が0.2で、ケイ砂ユニット のサイズが、(a) 6³セルの場合、(b) 18³セルの場合、(b) 54³セルの場合。下段はケイ砂の体積分 率が0.6で、ケイ砂ユニットのサイズが、(d) 6³セルの場合、(e) 18³セルの場合、(f) 54³セルの場 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

HTOに対してRWシミュレーションで得られたGのR_{sand}依存性を、図 2.2-11に図示した。図 2.2-11中の黒色ダイヤのプロットはケイ砂ユニットのサイズが63セルの場合、緑色ダイヤのプロ ットは183セルの場合、青色ダイヤのプロットは543セルの場合の結果を示す。また、赤丸のプロ ットは、先行事業においてHTOに対して実施したケイ砂ユニットのサイズが2³セルの場合(この 場合、クニゲルユニットのサイズと同じになる)の結果(日本原子力研究開発機構,2020)を示し ている。赤色の実線は、ケイ砂ユニットのサイズが23セルのプロットに対して、多項式フィッテ ィングを行ったものである。ケイ砂のサイズが増大すると、幾何学的因子Gもおおむね系統的に上 昇していることが確認できる。これは、系の有限サイズ効果ではなく、ケイ砂サイズの増大にと もなう系の不均質性の効果である。ケイ砂の体積分率が同じ場合でも、ケイ砂が媒質の中に局在 して存在すると、ケイ砂粒子間にクニゲル粒子だけのクラスターが生成されやすくなり、拡散粒 子の出発面からフラックス評価面まで拡散経路がつながる確率が高くなると考えられる。また、 ケイ砂ユニットが2³セルのデータのフィッティング曲線を見ると、ケイ砂体積分率R_{sand}が0.77辺 りでゼロになっている。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 透閾値はR_{sand} ≈ 0.68839 (Xu et al., 2014) であるため有意な差異が生じているが、これは系の有 限サイズ効果である。すなわち、RWシミュレーションにおいて、数値計算の時間ステップをΔt、 拡散係数をDとすると、1回のステップでジャンプする距離は√2DAtとなるため、拡散係数Dが同 じでもΔtの設定値によってジャンプの距離が変化し、Δtが大きいほど粗雑なシミュレーションに なる。したがって $\Delta t \rightarrow 0$ の極限でパーコレーション理論の浸透閾値を再現できると期待されるが、 実際の数値シミュレーションでは不可能であるため、Δtを変化させて計算し、有限サイズ・スケ ーリング法で評価することが有効であると思われる。

ケイ砂ユニット のサイズ	ケイ砂の体積 分率 [–]	クニゲルV1の 乾燥密度 [kg/m ³]	クニゲルV1の 体積分率 [-]	クニゲルV1の 間隙率 [-]	混合媒体の間 隙率 [–]	クニゲルV1中のHTO の実効拡散係数 [m ² /s]	混合媒体中のHTOの 実効拡散係数 [m ² /s] (RWシミュレーション)
	0.200	1000	0.800	0.6296	0.5037	3.300E-10	2.30E-10
u ط3	0.400	1000	0.600	0.6296	0.3778	3.300E-10	1.29E-10
0 セル	0.600	1000	0.400	0.6296	0.2519	3.300E-10	5.66E-11
	0.750	1000	0.250	0.6296	0.1574	3.300E-10	1.72E-11
	0.200	1000	0.800	0.6296	0.5037	3.300E-10	2.35E-10
	0.400	1000	0.600	0.6296	0.3778	3.300E-10	1.41E-10
18 セル	0.600	1000	0.400	0.6296	0.2519	3.300E-10	6.46E-11
	0.750	1000	0.250	0.6296	0.1574	3.300E-10	2.29E-11
	0.200	1000	0.800	0.6296	0.5037	3.300E-10	2.24E-10
	0.400	1000	0.600	0.6296	0.3778	3.300E-10	1.41E-10
54 セル	0.600	1000	0.400	0.6296	0.2519	3.300E-10	7.13E-11
	0.750	1000	0.250	0.6296	0.1574	3.300E-10	3.62E-11

表 2.2-3 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及び解析結果



図 2.2-11 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。ケイ砂のユニットサイズが2³セルの系は赤丸、6³セルの系は黒色ダイヤ、18³セルの系 は緑色ダイヤ、54³セルの系は青色ダイヤでプロットした。赤色の実線は、2³セルの系のプロッ トに対する多項式フィッティング曲線

③ まとめと今後の課題

本解析では、圧縮ベントナイト中の拡散挙動を精緻にモデル化する観点から、クニゲル粒子と ケイ砂粒子のユニットサイズを同じにした従来の設定とは異なり、クニゲル粒子のサイズに比べ てケイ砂粒子のユニットサイズを大きな値に設定してRWシミュレーションを実施した。それぞ れの鉱物粒子を体系内にランダムに配置することで混合媒体をモデル化し、ケイ砂粒子のユニッ トサイズを系統的に変化させた条件でRWシミュレーションを実施し、HTOの実効拡散係数に対 するケイ砂粒子のサイズの影響について評価した。その結果、ケイ砂サイズの増大とともに、幾 何学的因子Gがおおむね系統的に上昇していくことが確認できた。これは、ケイ砂サイズの増大に ともなう系の不均質性の効果が現れたものであり、実際の不均質な岩石系では、理想的なパーコ レーション理論による評価よりも拡散しやすくなる可能性が示唆された。 今後の課題としては、数値シミュレーションに起因した有限サイズ効果の検証と、スケーリン グ手法によりその影響を評価すること、また、ISD拡散モデルを複数の鉱物が混在する不均質な 系に適用する際に問題となる拡散係数の平均化処方を検討するため、RWシミュレーションを用 いて評価することなどが挙げられる。

(3) バリア界面現象と核種移行評価技術開発

本節では、処分場において想定されるバリア材間の接触により生じるバリア界面での変化と、 その変化が核種移行に及ぼす影響について評価するため、主に緩衝材とオーバーパックの相互作 用や、緩衝材とセメントとの相互作用に着目して評価を進める。令和5年度の事業においては、 緩衝材とオーバーパックの相互作用に関して、緩衝材の核種収着能に変化を及ぼす可能性のある モンモリロナイトのエッジ表面のFeや、モンモリロナイト底面へのFeの侵入挙動について計算科 学により評価を進めた。また、緩衝材とオーバーパックの相互作用に伴う核種の収着挙動の変化 について、モンモリロナイト構造中のFeの価数が酸化還元に鋭敏な元素(Se)の収着挙動に及ぼ す影響評価に着手した。

1) モンモリロナイトへのSe(-II)収着挙動の評価

研究の目的

緩衝材中の主要構成鉱物であるモンモリロナイトには、結晶構造中にFeが含まれており、この Feの酸化数が変化しやすいことが知られている。そのため、緩衝材とオーバーパックの相互作用 に伴う強い還元環境の生成等により、結晶構造中のFe(III)がFe(II)に還元される可能性が考えら れる。また、溶液中のFe²⁺が結晶構造中のFe(III)の還元に寄与する可能性も報告されており (Schaefer et al., 2011; Neumann et al., 2013; Soltermann et al., 2014; Latta et al., 2017)、オー バーパックからのFe²⁺の放出によっても、結晶構造中のFe(III)がFe(II)に還元される可能性があ る。粘土鉱物の構造中のFeは、酸化還元に鋭敏な元素の取り込みに寄与する可能性が考えられて おり、Tc (Jaisi et al., 2008; Bishop et al., 2011; Qafoku et al., 2017)、U (Tsarev et al., 2016; Satpathy et al., 2022)、Cr (Joe-Wong et al., 2017; Qafoku et al., 2017)、As (Ilgen et al., 2012; 2017)等で報告されている。核種移行評価上重要な核種であるSe (Se-79) についても、酸化還元 に鋭敏な元素であり、結晶構造中のFeの酸化還元により収着挙動が変化する可能性のある元素の ーつである。

Seは、還元的環境では-II価として存在する。Se(-II)とSe(IV)はともに陰イオンであるものの、 モンモリロナイトに対する収着分配係数はSe(-II)の方が高いことが報告されている(Iida et al., 2011; Sugiura et al., 2020)。その理由の一つとして、モンモリロナイトに対してSe(IV)は表面錯 体反応で収着する一方、Se(-II)は酸化還元反応によりモンモリロナイト表面でSe(0)として沈殿し ていることが考えられる(Sugiura et al., 2020)。この酸化還元反応にはモンモリロナイトの構造 中のFeが寄与している可能性が考えられるが、先行研究ではFeの酸化還元状態については調べら れていない。

本事業では、モンモリロナイトの構造中のFeの酸化還元状態に着目し、Se(-II)の収着に及ぼす 影響を評価することを目的として試験を行う。本年度は、Se(-II)の収着試験に使用するため、モ ンモリロナイトの構造中のFeを還元したモンモリロナイト(還元モンモリロナイト)を調製し、 調整したモンモリロナイト中のFeの酸化還元状態について確認した。

試験手法及び結果

還元モンモリロナイトは、Lee et al. (2006)の手法を参考として次の手順で調製した。N₂ガスを 満たした雰囲気制御グローブボックス中で脱気水300 mLにモンモリロナイト粉末1.5 gを加えて 懸濁させた後、0.5 Mクエン酸ナトリウム溶液6.6 mLおよび1 M NaHCO₃溶液93.6 mLを加えて 混合した。懸濁液をセパラブルフラスコに入れてマントルヒーターで70℃に加熱し、亜ジチオン 酸ナトリウム粉末4.5 gを加えた後、N₂ガスでバブリングしながら4時間反応させた。その後、懸 濁液を遠沈管に移し、遠心分離により固相を回収した。回収した固相に0.1 M NaCl溶液を加えて 撹拌した後、再度遠心分離により固相を回収した。この0.1 M NaCl溶液による洗浄操作を合計5 回行った。洗浄終了後、固相を0.1 M NaClに懸濁させ、還元モンモリロナイトのストック懸濁液 とした。ストック懸濁液の固液比は、ストック懸濁液とその調製に用いた0.1 M NaCl溶液をそれ ぞれ同量採取して110℃の恒温槽で乾燥させ、それらの乾燥重量の差から算出し、7.6 g/Lであっ た。また、未処理のモンモリロナイト粉末を0.1 M NaCl溶液に懸濁させ、固液比7.6 g/Lの未処理 モンモリロナイト懸濁液を調製した。

先行研究(Iida et al., 2011; Sugiura et al., 2020)では、Se(-II)収着試験を行う際、0.1 Mのヒド ラジンを共存させることで還元雰囲気を達成している。この条件でのモンモリロナイト構造中の Feの価数をX線吸収分光分析(X-ray Absorption Spectroscopy; XAS)により調べるため、上記の手 順により作製した還元モンモリロナイトについて、次の手順でXAS測定用試料を調製した。還元 モンモリロナイトのストック懸濁液を0.1 M NaCl溶液および98%ヒドラジン一水和物溶液と混合 し、固液比2.0 g/Lの懸濁液を調製した。ヒドラジン一水和物はその濃度が0.1 Mとなるように加 えた。1週間後、遠心分離により固相を回収し、ペースト状の固相を酸素低透過性フィルムに封入 して雰囲気制御グローブボックスから搬出した。XAS測定はフォトンファクトリーのBL-9Aまた はBL-12Cにおいて透過法により行った。試料のX線吸収近傍構造(X-ray Absorption Near Edge Structure; XANES)スペクトルを比較用試料のスペクトルでフィッティングし(Noda et al., 2021)、 試料中のFeの価数を調べた。また、上記の試料に加え、還元処理を実施していない未処理モンモ リロナイトを使用して同様の手順で試料を作製し、XAS測定を行って結果を還元モンモリロナイ トと比較した。

各試料のXANESスペクトルを図 2.2-12に示す。未処理のモンモリロナイト粉末中のFeの約 98%はIII価であると評価された。0.1 Mヒドラジン溶液と接触した未処理モンモリロナイトの XANESスペクトルは7121 eV付近にショルダーが出現し、構造中のFeが還元されてII価となって いることを示した。しかしながら、フィッティングの結果ではII価のFeの割合は約63%であり、 約37%はIII価のままであることが確認された。一方、0.1 Mヒドラジン溶液と接触した還元モンモ リロナイトでは、Feのほぼ100%がII価で存在すると評価された。



図 2.2-12 モンモリロナイトの構造中のFeのXANES測定結果

③ まとめと今後の課題

モンモリロナイトの構造中のFeが酸化還元に鋭敏なSe(-II)の収着に及ぼす影響を評価するこ とを目的に、モンモリロナイト構造中のFeを還元した還元モンモリロナイトを作製し、構造中の Feの価数について確認した。また、先行研究のSe(-II)の収着試験と同条件で試料を作製し、モン モリロナイトの構造中のFeの価数を測定した。その結果、先行研究の試験条件ではモンモリロナ イトの構造中のFeのすべては還元されておらず、一部がIII価として存在することが明らかとなり、 Se(-II)を酸化できる可能性が示唆された。一方、あらかじめ亜ジチオン酸で処理することにより、 モンモリロナイトの構造中のFeの価数をII価に調整した還元モンモリロナイトを調製することが 可能であった。次年度以降、構造中のFeの価数の状態が異なるモンモリロナイトを用いたSe(-II) 収着試験を行い、SeおよびFeの価数の測定することで収着挙動の評価を行う予定である。

2) 第一原理電子状態計算によるモンモリロナイト・エッジ表面の酸解離定数評価

研究の目的

モンモリロナイトは緩衝材中の主要な粘土鉱物の一つであり、そのエッジ表面での核種の収着 挙動は、緩衝材の核種の収着能に大きく寄与する現象である。エッジ表面での核種の収着は、地 下水中のpHに大きな影響を受け、エッジ表面における酸解離挙動がその要因であると考えられて いる。本節では、モンモリロナイト結晶構造中に含まれるFeが、エッジ表面での核種の収着挙動 に及ぼす影響を評価するため、モンモリロナイト結晶のエッジ部にFeが存在する場合の酸解離定 数について、MD計算により評価する。

エッジ表面における核種吸着のモデル化に際しては、エッジ表面が接する水溶液のpH条件に応じた官能基の変化を取り込む必要がある。先行研究では、モンモリロナイトのエッジ表面を対象

に、表面構造のバリエーションと層電荷の影響を考慮しつつ、第一原理分子動力学(molecular dynamics, MD)計算を用いて結合断裂面(エッジ表面)の安定構造を同定し、核種の吸着に係る 反応サイトの評価を実施した(Sakuma et al., 2017)。さらに、これまでの解析結果に基づき、 安定なエッジ表面に対するプロトンの吸脱着を定量評価し、量子化学計算を用いて官能基ごとの 酸解離定数の評価を進めてきた(日本原子力研究開発機構, 2018; 2019)。本節では、これらの解 析結果及び評価手法を踏まえ、核種移行評価において重要となるFe(II)及びFe(III)イオンを対象 に、モンモリロナイト・エッジ表面における吸着形態を評価するための計算手法を検討する。ま た、安定なエッジ表面での酸解離定数の評価を踏まえ、Feが共存する系において、Feの存在が酸 解離定数に及ぼす影響について評価する。令和5年度は、Fe(II)及びFe(III)を含むモンモリロナイト・エッジ表面を対象に、酸解離定数を第一原理電子状態計算から算出した。

② 研究手法及び結果

はじめにモンモリロナイト・エッジ表面の初期構造を作成する。初期構造は、モンモリロナイトの層電荷をy = 0.33 (e^{-}/Si_4O_{10})とし、表面エネルギーが小さく最も安定と考えられる{130}のエッジ表面 (Sakuma et al., 2017)を対象とする。Feイオン置換前の組成は、Na₂(Al₁₀Mg₂)[Si₂₄O₆₀](OH)₁₂ + 8H₂Oとする。ここで8H₂Oは、エッジ表面で不安定なダングリング・ボンドを除去するために化学的に吸着させた水分子であり、層間やエッジ表面近傍に存在する水分子ではない。このモンモリロナイトの周りを75H₂Oで囲み、水環境下でのモンモリロナイト・エッジ表面の構造モデルを作成した。スーパーセル内の原子数は371個となる。初期構造を安定構造に近づけるため、Feイオン置換前のモンモリロナイト・水モデルに対してNPTアンサンブル条件 (N = 371, P = 0.1 MPa, T = 298.15 K)で古典MD計算を実施した。最終的に得られたスーパーセルは、x = 9.0936 Å, y = 28.0785 Å, z = 15.404 Å、密度=1.56 g/cm³である。初期構造のスナップショットを、図 2.2-13に示す。



図 2.2-13 第一原理MD計算用初期構造のスナップショット、(a) ベーサル面方向からの視点、 (b) x軸方向からの視点

第一原理MD計算は計算ソフトQuantum ESPRESSOを用いてBorn-Oppenheimer MD (BOMD)法で計算した。Feなどの3d電子を含む強相関電子系を扱う場合には、密度汎関数理論 (DFT)の交換相関汎関数として良く用いられるLDAやGGAでは電子状態を適切に記述できない ことが知られている。特にバンドギャップ・強磁性や反強磁性の安定性の再現に問題がある。そ こで本研究では、モンモリロナイトを対象とし、扱う原子・電子数が多いことから、計算負荷の 低いDFT+U法 (Anisimov et al., 1991; Cococcioni and de Gironcoli, 2005)を採用した。また酸 解離定数pKaの計算手法は、熱力学的積分法の一つであるBlue-moonアンサンブル法 (Carter et al., 1989; Ciccotti et al., 2005; 日本原子力研究開発機構, 2018; 2019)を採用する。これら一連の 手法の有効性は、水分子H₂Oに対する評価などにより検証されている(日本原子力研究開発機構, 2018)。

まず、Na₂(Al₁₀Mg₂)[Si₂₄O₆₀](OH)₁₂ + 8H₂Oの基本構造において、八位面体シートのAl³⁺の一部 をFe³⁺で同形置換したNa₂(Fe(III)₂Al₈Mg₂)[Si₂₄O₆₀](OH)₁₂ + 8H₂Oを対象に、エッジ表面に現れる Fe(III) – OH₂基の酸解離定数を評価した。Fe(III) – Oのプロトン配位数 $n_{\rm H}$ を、1.1 ~ 1.9まで0.1刻 みで9点設定し、各配位数において拘束条件付きの第一原理MD計算を実施して、構造を最適化し た。 $n_{\rm H}$ = 1.4の例を、図 2.2-14に示す。図 2.2-14(a)はOH間の二体相関関数(pair correlation function, pcf) 、図(b)はO原子に対するHの積算配位数(running coordination number, rcn)を 表す。図からわかるように、 $r_{\rm OH}$ = 1.0 Å付近のピークの積算配位数が1であり、これがFe(III) – OH₂の一つのHの位置を表している。もう一つのHの位置は、 $r_{\rm OH}$ = 1.4 Å付近のピークで示されて いる。



図 2.2-14 (a) *n*_H = 1.4におけるOH間の二体相関関数(pcf) とO原子に対するHの積算配位数 (rcn)の計算結果、(b)対応するMD計算のスナップショット。灰色の網掛けの原子がHの配位 数を制御したO原子

Fe(III) – **O**のプロトン配位数 $n_{\rm H}$ の変化に対する自由エネルギーの微分量の変化(図(a))と、これら微分値の変化を積分することによって求めた自由エネルギーの変化(図(b))を、図 2.2-15に示す。ただし、図(a)のプロットは、1 ps以上にわたる第一原理MD計算において微分量d $F/dn_{\rm H}$ が一定値に収束した際の値であり、実線はそれらのデータから多項式フィッティングによって得られた曲線である。また、 $n_{\rm H}$ = 1はFe(III) – OHの状態、 $n_{\rm H}$ = 2はFe(III) – OH₂の状態であり、Fe(III) – OHの状態を基準(F = 0)にして、無限遠方からプロトンを近づけてきた際の自由エネルギーの変化を計算したものである。図からわかるように、Fe(III) – OHの状態よりもFe(III) – OH₂の状態の方がエネルギー的に安定であり、そのエネルギー差は14 kcal/molと見積もることができる。したがって、Fe(III) – OH₂基の酸解離定数はpK_a(Fe(III) – OH₂) = 7.65となる。



図 2.2-15 (a) Fe(III)-Oのプロトン配位数の変化に対する自由エネルギーの微分量の変化、(b) 自 由エネルギーの変化

同様な評価手法により、モンモリロナイト・エッジ表面におけるFe(III) - OH基からプロトンを 無限遠方に引き離した際の自由エネルギーの差は、28.5 kcal/molと見積もることができた。した がって、この場合の酸解離定数は、 $pK_a(Fe(III) - OH) = 15.58$ となる。これらの結果から、Fe(III)- OH_2 基からプロトンを1つ引き離す場合よりFe(III)-OH基からプロトンを引き離す方が、2倍以上 のエネルギーを必要とすることが定量的に評価できた。

Surface group	Mineral (Layer charge)	Miller index of edge surface	p <i>K</i> a	error	Ref.
(AIO-)Si-OH	pyrophyllite	{010}	6.8	0.4	Tazi <i>et al</i> ., 2012
(AIO-)Si-OH	pyrophyllite	{110}	8.3	0.3	Liu <i>et al</i> ., 2014
(AIO-)Si-OH	pyrophyllite	{110}	8	0.5	Liu <i>et al</i> ., 2014
(AIO-)Si-OH	montmorillonite (0.25)	{010}	7	0.7	Liu <i>et al</i> ., 2013
(MgO-)Si-OH	montmorillonite (0.25)	{010}	10.8	0.5	Liu <i>et al</i> ., 2013
(MgO-)Si-OH	Li-montmorillonite (0.25)	{110}	11	0.8	Liu <i>et al</i> ., 2014
(MgO-AIO-)Si-OH	Na-montmorillonite (0.5)	{130}	6.3	-	This study (2019)
(H ₂ O–)AI–OH	pyrophyllite	{010}	22.1	1	Tazi <i>et al</i> ., 2012
AI-OH	Na-montmorillonite (0.5)	{130}	17.6	-	This study (2019)
Mg-OH	Na-montmorillonite (0.5)	{130}	28.8	-	This study (2019)
Fe(III)-OH	Na-montmorillonite (0.33)	{130}	15.6	-	This study

表 2.2-4 Metal-OH基の酸解離定数:本研究と他の研究グループとの比較

本研究で得られた酸解離定数の結果を、他の研究グループによる計算結果(Tazi et al., 2012; Liu et al., 2013; 2014)と比較する。表 2.2-4には*Metal* – OH基に対する酸解離定数を、また表 2.2-5にはFe(III) – OH₂基に対する酸解離定数を示した。エッジ表面の構造が異なるなど計算条件 の違いがあるため厳密な比較はできないが、概ね整合的な結果が得られているといえる。Fe(III) – OH₂基の場合に比べ、*Metal* – OH基ではいずれのケースでも酸解離定数が比較的高く、プロトン の脱離が起こりにくいことを定量的に示している。今回の計算で得られたFe(III)に対する酸解離 定数を見る限り、Alに対して得られた値と同程度であることが確認できる。

Surface group	Mineral (Layer charge)	Miller index of edge surface	p <i>K</i> a	error	Ref.
(HO-)AI-OH ₂	pyrophyllite	{010}	7.6	1.3	Tazi <i>et al</i> ., 2012
(HO-)AI-OH ₂	montmorillonite (0.25)	{010}	8.3	1	Liu <i>et al</i> ., 2013
Al-OH ₂	Na-montmorillonite (0.5)	{130}	5.8	-	This study (2019)
Fe(III)-OH ₂	Na-montmorillonite (0.33)	{130}	7.7	-	This study

表 2.2-5 Metal-OH2基の酸解離定数:本研究と他の研究グループとの比較

今後、Fe(II)を対象に、モンモリロナイト・エッジ表面における吸着形態を評価するための計算 手法を検討する。令和5年度、本計算について一部着手し、モンモリロナイト・八位面体シートの Al³⁺の一部をFe²⁺で同形置換した構造モデルを対象に、エッジ表面に現れるFe(II) – OH₂基の酸解 離定数を、Fe(III)の場合と同様に第一原理MD計算を開始したが、電子状態計算の収束性が非常に 悪く、自由エネルギーの計算に必要な統計量が得られなかった。収束性が悪い原因として、初期 構造、擬ポテンシャルモデル、Feのスピン状態などが考えられることから、今後検討を進めてい く予定である。

3) 量子化学計算を用いたFe共存下におけるモンモリロナイト変質挙動の評価

① 研究の目的

緩衝材とオーバーパックの相互作用においては、オーバーパックの腐食によりFeイオンが緩衝 材中に溶出し、緩衝材中のモンモリロナイトと相互作用する可能性が考えられる。Feイオンとの 相互作用により、モンモリロナイトの変質や構造破壊が引き起こされる可能性があり、モンモリ ロナイトの核種収着能の変化等の当初期待された緩衝材としての機能が損なわれることが懸念さ れる。

これまでにFe共存下でのスメクタイト(モンモリロナイト、ベントナイト、ノントロナイトな どの混合物、またはそれらの総称)の変質・不安定化に関して、実験事実に基づいたシナリオが 報告されているが(Lantenois et al., 2005)、そのシナリオの理論的な検証は行われておらず、 不安定化の十分な理解は得られていない。そこで本節では、変質シナリオの検証に資するため、 Fe共存下のモンモリロナイトを対象に第一原理電子状態計算を実施した。本年度は、Fe含有モン モリロナイトの構造モデルの作成と、その構造モデルを用いて変質シナリオの一部(脱プロトン、 3八面体化)についての知見を得ることを試みた。

② 研究手法及び結果

Lantenois et al. (2005) は、溶液中で金属Fe(鉄粉)と様々なスメクタイトを混合した粘土の 反応実験を行い、その実験結果に基づいて、以下のような粘土構造の破壊が起こる変質シナリオ を提唱した。

1) 八面体層のFeO6·H構造からの脱プロトン(H+遊離)

 $FeO_6H \rightarrow FeO_6^- + H^+$

2) モンモリロナイト外部のFe原子(炭素鋼起源)の酸化

 Fe_{AB} + 2H⁺ → $Fe^{2+}AB$ + H₂ ↑

3) エッジにFe²⁺が吸着、酸化してFe³⁺となり、内部の八面体サイトのFe³⁺を還元

 $Fe^{2+}_{x_{y}y}$ + $O_6Fe^{3+}_{case}$ → $Fe^{3+}_{x_{y}y}$ + $O_6Fe^{2+}_{case}$

4) 遊離Fe²⁺が八面体空隙サイトへ入り局所的に3八面体型に変化することで構造が不安定化

2八面体型スメクタイトの変質、すなわち構造変化の観点からは、1)脱プロトン、4)局所的な

3八面体化が重要なポイントとなる。本年度は、この2点に注目して計算を行った。

計算のステップとして最初に、モンモリロナイトのバルク構造を対象とした構造最適化計算を 行い、モンモリロナイトのセルパラメータを決定する。次に脱プロトン、3八面体化のシミュレー ションを行うための板状の単層モンモリロナイトモデル(スラブ状スーパーセル)を作成する。 第一原理計算プログラムはVASPパッケージ(VASP software https://www.vasp.at)を用い、粘 土鉱物の電子状態計算で標準的に用いられる経験的分散力補正を用いた第一原理計算(PBE+D3) を行った。

2八面体型構造においては、八面体の頂点酸素に結合しているプロトンの配置にcis-vacant(cv) 型とtrans-vacant(tv)型の2タイプが存在し、それぞれの構造で、脱プロトン後に遊離Fe²⁺イオ ンが入り込む八面体空隙サイトへの侵入パスも異なるため、それぞれ別モデルとして扱う必要が ある。モンモリロナイトの2:1型テンプレート構造には、層間イオンを含む白雲母構造を用いた。 白雲母の四面体層は層電荷を持っているが四面体中心イオンを全てSi⁴⁺に置換することで層電荷 をゼロとし、層電荷ゼロだった2八面体層のAl³⁺の一部をMg²⁺, Fe²⁺, Fe³⁺などに置き換えてモンモ リロナイトの初期構造モデルを作成した。八面体シートの3つのAl³⁺サイトを2つのMg²⁺と1つの Fe²⁺で置換したモンモリロナイト(cv型、tv型)のユニットセルモデルの模式図を、図 2.2-16に 示す。



図 2.2-16 Fe²⁺想定したcv型(左) tv型(右)のK₃[Al₅,Mg₂,Fe₁] Si₁₆O₄₀(OH)₈モンモリロナイト・ バルクユニットセルモデルの模式図

上記で作成した構造モデルに対し構造最適化を実施し、最適化後の電子分布から抽出したFeの イオン価数を、表 2.2・6に示す。第一原理計算では原子核の配置から基底状態の電子分布が導かれ るため、Fe²⁺やFe³⁺といったイオン価状態を仮定したモデルを作成しても、そのイオン価が反映 されるとは限らない。本シミュレーションでは、計算リソースを確保するため、例えばFeについ ては価電子のみを陽に扱うZ=8 (8電子原子)の擬ポテンシャルを用いて計算を実行する。また、 より精度の高い計算が期待できるZ=16 (Fe原子の最も浅い内殻電子も価電子として扱う)の擬ポ テンシャルを用いた計算も行って、随時、検証計算を実施した。表 2.2・6からわかるように、Fe (Z=8)を用いた計算では、Fe²⁺、Fe³⁺を想定した各モデル中のFe原子のイオン価数はほとんど同 じであり、いずれも想定した値に対してかなり小さい。一方、Fe (Z=16)を用いた計算結果では、 想定された値は再現されていないものの、Fe (Z=8)の計算に比べ、改善された結果が得られてい る。

	Charge	S	р	d	total
	state				
Fe ²⁺ -assumed model K ₃ [Al ₅ Mg ₂ Fe ₁]Si ₁₆ O ₄₀ (OH) ₈					
cv-Fe(Z=8)	+1.299	0.276	0.350	6.075	6.701
tv-Fe(Z=8)	+1.288	0.278	0.352	6.082	6.712
cv-Fe(Z=16)	+2.390	2.097	5.994	5.519	13.610
tv-Fe(Z=16)	+2.385	2.098	5.995	5.523	13.615
$Fe^{3+}\text{-}assumed model} \\ K_2[Al_5Mg_2Fe_1]Si_{16}O_{40}(OH)_8$					
cv-Fe(Z=8)	+1.333	0.354	0.508	5.805	6.667
tv-Fe(Z= 8)	+1.328	0.355	0.509	5.808	6.672
cv-Fe(Z=16)	+2.603	2.131	6.030	5.236	13.397
tv-Fe(Z=16)	+2.601	2.131	6.030	5.238	13.399

表 2.2-6 Fe原子のイオン価数と価電子軌道の電子数解析(単位:価数、電子数)

次に、バルク構造セルの最適化で得られたモンモリロナイトのセルパラメータに基づいて、脱 プロトンと3八面体化の検証に用いるモンモリロナイトのモデルを作成する。遊離Fe²⁺イオンの層 内拡散が周期的境界条件の影響を受けずに追跡できる十分な広さをもつ表面をつくるため、バル クセルパラメータをa、b軸方向にそれぞれ1.5倍、2倍した単層モンモリロナイトスラブ構造を作 成する。c軸方向もスラブ間に周期的境界条件の影響がないように距離をとる。脱プロトンと3八 面体化の検証に用いる構造モデルの模式図を、図 2.2-17に示す。



図 2.2-17 脱プロトン・3八面体化検証用モデル構造の模式図(cv型(左)、tv型(右)で脱プロ トンのサイトに関わる八面体サイトのインデックスが異なる)

2八面体層の1つの空隙(図 2.2-17中の緑色四角記号で示されたサイト)、そのほぼ直上のプロトン(図 2.2-17の点線で囲われた水素)、そしてその周辺の6つの八面体で形成されたエリアを反応場(ホットゾーン)として設定し、Lantenois et al. (2005)が提唱した変質シナリオを検証する構造を作成した(ホットゾーン以外の八面体は全てAlO₆八面体とする)。6つの八面体中心イオンには、Al³⁺の他、Mg²⁺、Fe²⁺またはFe³⁺が配置される。脱プロトン及び3八面体化の計算を行う際に、その配置パターンが多く存在するため、ここではホットゾーンの6つの八面体サイトは、Al³⁺イオンが1つおきに3つのサイトを占有し(図 2.2-17のサイト4, 5, 6)、残りの3つのサイト(図 2.2-17のサイト1, 2, 3)を、Mg²⁺イオン、Fe²⁺/Fe³⁺イオン、Al³⁺イオンが埋めることとした。図 2.2-17では、サイト1にFe²⁺,サイト2にMg²⁺,サイト3にAl³⁺が置かれており、これを

FeMgAl(Fe²⁺)と呼称する(サイト1, 2, 3の元素を列記する表現)。以下ではこの表記法に準じて 各モデルの結果などを説明する。脱離するプロトンは2つの八面体中心イオンの組み合わせによっ て、-Fe²⁺-O(H)-Al³⁺、 -Fe³⁺-O(H)-Al³⁺、-Mg²⁺-O(H)-Al³⁺、-Al³⁺-O(H)-Al³⁺のパターンがある。 これらの水素を脱離させて、脱プロトンに関する知見を得る。

上記で作成した構造モデルの脱プロトン前後におけるエネルギーとそのエネルギー差を、表 2.2-7に示す。各モデルに対するプロトン脱離前後のエネルギー差の値を比較することで、モンモ リロナイトモデル間の相対的な脱プロトンの傾向についての情報を得ることができる。八面体シ ートで層電荷を発生させるFe²⁺が存在する系では、-Al-O(H)-Al-サイトのプロトン脱離の場合が最 もエネルギー差が低く、次いで、-Fe-O(H)-Al-サイト、-Mg-O(H)-Al-サイトの順番にエネルギー差 が上昇していくことがわかる。一方、Fe³⁺を含むモデルでは、-Fe-O(H)-Al-サイトが一番低いエネ ルギー差となっている。また、全てのモデルを通して、-Mg-O(H)-Al-のプロトンサイトが最もエ ネルギー差が大きい、つまり脱離しにくい傾向にあることがわかる。これらの結果から、十分時 間をかけて系を観察した場合、八面体シートで層電荷を発生させている2価の正イオン (Mg²⁺, Fe²⁺)の場合に比べ、層電荷を増さない3価の正イオン (Al³⁺, Fe³⁺)の八面体サイトの脱プロトン の方が発生する確率が高いことが示唆される。

Model (PBE+D3)	type	E_init (脱プロトン前)	E_deprot (脱プロトン後)	dE	Deprotsite
AIFeMg(Fe2+)	CV	-1789.133 145 04	-1784.840 749 89	4.292	-AI-O(H)-AI-
FeMgAI(Fe2+)	tv	-1789.391 255 64	-1784.889 091 53	4.502	-AI-O(H)-AI-
FeMgAI(Fe2+)	CV	-1789.173 665 25	-1784.640 356 99	4.533	-Fe-O(H)-Al-
MgAIFe(Fe2+)	tv	-1789.426 630 85	-1784.845 018 58	4.582	-Fe-O(H)-Al-
MgAIFe(Fe2+)	CV	-1789.175 192 36	-1784.112 163 91	5.063	-Mg-O(H)-Al-
AIFeMg(Fe2+)	tv	-1789.366 737 43	-1784.252 803 13	5.114	-Mg-O(H)-Al-
FeMgAI(Fe3+)	CV	-1787.848 731 03	-1784.830 732 22	3.018	-Fe-O(H)-Al-
MgAIFe(Fe3+)	tv	-1788.127 907 45	-1784.982 475 26	3.145	-Fe-O(H)-Al-
AIFeMg(Fe3+)	CV	-1787.854 582 18	-1784.300 433 86	3.554	-AI-O(H)-AI-
FeMgAI(Fe3+)	tv	-1788.105 789 20	-1784.359 266 39	3.747	-AI-O(H)-AI-
MgAIFe(Fe3+)	CV	-1787.855 227 46	-1783.539 730 54	4.315	-Mg-O(H)-Al-
AlFeMg(Fe3+)	tv	-1788.122 291 92	-1783.741 403 16	4.381	-Mg-O(H)-Al-

表 2.2-7 単層モンモリロナイト構造最適化後のエネルギー(単位:eV)

前節で得られた脱プロトン後の単層モンモリロナイト構造モデルを用いて、遊離Fe²⁺イオンの 結晶層内の拡散シミュレーションをNudged Elastic Band (NEB) 法 (Sheppard et al., 2012) を用いて行った。この計算により炭素鋼オーバーパック境界から遊離したFe²⁺イオンの八面体シ ートの空隙サイト (図 2.2-17の緑四角記号) への移動障壁 (拡散バリア)を調べることができる。 これはLantenois et al. (2005) が提唱した変質シナリオの3八面体化の可能性を探るシミュレー ションとなる。ここでは、FeMgAl(Fe²⁺)-cv型、FeMgAl(Fe²⁺)-tv型、FeMgAl(Fe³⁺)-cv型、 FeMgAl(Fe³⁺)-tv型の脱プロトン化モンモリロナイト構造のそれぞれに、拡散子となるFe²⁺イオン を加え、始状態 (表面近傍にFe²⁺付着させ状態) から終状態 (八面体シートの空隙サイトにFe²⁺を 配置させた状態) までFe²⁺イオンの位置を変えながら、遷移状態を含む7つの状態でNEB計算を実 行した。例として、FeMgAl(Fe²⁺)-tv型モデルの始状態、遷移状態、終状態の模式図を、図 2.2-18 に示す。



図 2.2-18 FeMgAl(Fe²⁺)-tv脱プロトン化モンモリロナイトモデルのFe²⁺イオン拡散計算、 (a) 始状態(Fe²⁺表面付着)、(b) 遷移状態(鞍点)、(c) 終状態(八面体サイト)

始状態では、Fe²⁺イオンは四面体層のSiO₄六員環中心付近に(準)安定的に存在する(図 2.2-18)。始状態としては複数の可能性が考えられるが、ここではLantenois et al (2005)のシナリ オに従い、イオン交換により層間に侵入したFe²⁺イオンが脱プロトン化した局所構造をもつべー サル面上の六員環から八面体シートに拡散して行くことを想定してシミュレーションを行った。

_						
	Madal	doprot oito	E_init(遊離Fe ²⁺ が	E_trans	E_final	
	Model	deprot_site	表面近傍)	(遷移状態構造)	(局所3八面体化)	
	FeMgAI(Fe2+)-cv	-Fe-O()-Al-	(0.0000)	0.3281	-1.2810	
	FeMgAI(Fe2+)-tv	-AI-O()-AI-	(0.0000)	0.2294	-1.5671	
	FeMgAI(Fe3+)-cv	-Fe-O()-Al-	(0.0000)	0.5312	-1.5621	
	FeMgAI(Fe3+)-tv	-AI-O()-AI-	(0.0000)	0.2779	-2.0915	

表 2.2-8 単層モンモリロナイト構造最適化後のエネルギー(単位:eV)

図 2.2-18の3つの状態に対応する系のエネルギーを、CI-NEB計算(Sheppard et al., 2012)を 用いて評価し、始状態のエネルギーをゼロ(基準)とした場合の値を表 2.2-8に示した。3八面体 化の障壁となるエネルギー(E_trans)は0.23~0.53 eV程度であり、室温で観察して数時間程度 でこの拡散事象が起きる可能性があると考えられる。すなわち、脱プロトン後に遊離Fe²⁺がモン モリロナイト表面近傍にあれば、3八面体化は自然に起こり得ることが示唆される。また3八面体 化後のエネルギー(E_final)は、遷移状態を基準とすると-1.6~-2.3 eVの範囲まで下がってお り、一度、3八面体化サイトに入ったFe²⁺が脱出するためのエネルギーは、侵入する際のエネルギ ー障壁に比べて4倍以上となっている。すなわち、3八面体化した状態から2八面体化が起こる可能 性は非常に低いと考えられる。

本解析では、Fe共存下のモンモリロナイトを対象に構造モデルを作成し、第一原理電子状態計 算を用いて、Lantenois et al. (2005)の変質シナリオの一部(脱プロトン化、3八面体化)につ いての知見を得ることを試みた。脱プロトン化では、八面体シートで層電荷を発生させている2価 の正イオン(Mg²⁺, Fe²⁺)の場合に比べ、層電荷を増さない3価の正イオン(Al³⁺, Fe³⁺)の八面体 サイトの脱プロトンの方が発生する確率が高いことが示唆された。また、脱プロトン後に遊離Fe²⁺ がモンモリロナイト表面近傍にあれば、3八面体化は自然に起こり得ることが示唆され、一度、3 八面体化した状態からは2八面体化が起こりにくいことがわかった。

4) 古典分子動力学計算を用いた粘土鉱物への鉄影響に関する調査と解析の検討

緩衝材とオーバーパックの相互作用においては、オーバーパックの腐食によりFeイオンが溶出 し、モンモリロナイト層間の対イオンとの交換反応などによりモンモリロナイトが変質して、当 初期待された緩衝材としての機能が損なわれることが懸念される。古典分子動力学法(molecular dynamics simulations, MD)を用いた膨潤挙動に関するこれまでの解析によると、モンモリロナ イト層間の膨潤挙動は、対イオンの層間内での水和力に支配され、層間に存在するイオンの特性、 及び結晶層との相互作用が重要であることが認識されてきた。本節では、八面体シートでMg²⁺及 びFe²⁺が同形置換したNa型モンモリロナイトを対象として、膨潤挙動や水和特性にどのような相 違が生起するかを、古典MDシミュレーションを用いて解析した"Molecular dynamics simulation of strength weakening mechanism of deep shale"(Zhang et al., 2019)とその関連文献につい てレビューした。この文献は、シェールガス資源の開発のため、環境問題の観点から掘削液とし て水を使用し、深部頁岩の粘土層に水が浸入した際の坑井の安定性を制御することを目的として、 温度・圧力等が鉱物の水和反応と、鉱物の力学的強度に与える影響について、古典MD計算で評価 したものである。

対象とする粘土鉱物の構造モデルは、ワイオミング・モンモリロナイト(Wyoming MMT)の 粘土構造に基づいてNa_{0.75}(Si_{7.75}Al_{0.25})(Al_{3.5}Mg_{0.5})O₂₀(OH)₄とし(以下、Mg-Sub-MMTと呼称)、 同形置換のバリエーションとして八面体シートでMg²⁺の代わりにFe²⁺を置換したモデル(以下、 Fe-Sub-MMTと呼称、置換量はMg-Sub-MMTと同じ)とする。計算条件としては、4種類の温度 設定(25℃,75℃,150℃,250℃)、7種類の圧力設定(0.1 MPa, 5 MPa, 10 MPa, 20 MPa, 30 MPa, 60 MPa, 90 MPa)、さらに1層水和(水分子32個)及び2層水和(水分子64個)状態の計56ケー スを設定している。また古典MD計算の力場は、Clayff力場(Cygan et al., 2004)及びSPC水分子 モデル(Teleman et al., 1987)を用いている。

Mg-Sub-MMT モデルを対象にシミュレーションで得られた底面間隔は、1層水和及び2層水和 状態の系に対してそれぞれ 12.24 ~ 12.48 Å及び14.12 ~ 14.68 Åであり、また同じ含水量の下で は、温度と圧力の条件を変化させても、モンモリロナイト結晶の底面間隔はほとんど変化せず、 底面間隔が温度と圧力の影響を受けにくいことを示した。次に、Mg-Sub-MMT モデルにおける 層間中の水分子及びNaイオンの拡散係数は、含水量の増加に伴い増加し、温度が高くなるに伴っ て/圧力が低くなるに伴って拡散係数は増加した。この温度/圧力に対する傾向は、層間の水和 数状態が異なっても同じであった。次に、層間対イオンであるNaイオンの水和水分子数(水和数) と水和半径を評価したところ、どちらも含水量の増加に伴って上昇、温度の上昇に伴って減少し、 また圧力の上昇に伴って増加した。これらは、温度/圧力の効果として妥当な結果である。また、 Naイオンは層間において外圏錯体的に分布するため(Yotsuji et al., 2021; 四辻ら, 2022)、Na イオンは1層水和状態よりも2層水和状態の方がより自由な状態で水和できており、その結果、配 位数/水和半径が増大したと考えられる。一方、イオンの拡散係数については、バルク溶液中で は一般にイオンの水和半径と拡散係数とは逆比例するため、水和半径が大きい2層水和状態の方が Naイオンの拡散係数は1層水和状態に比べて小さくなると思われるが、層間でのシミュレーショ ンの結果は逆の傾向を示している。これは、モンモリロナイト層間領域がバルク溶液とは異なる 特殊な領域であり、1層水和状態の方は層間幅が狭い分、Naイオンと層電荷との相互作用が強く なるため、1層水和状態の方がNaイオンの水和半径が小さいにもかかわらず拡散係数が大きくな ったものと考えられる。また水分子の拡散係数についてだが、1層水和状態に比べて2層水和状態 は水分子数が2倍に増えているのに対して層間のNaイオンの個数は同じであるため、Naイオンに 配位しない水分子が単純に増え、平均の拡散係数が上昇したものと考えられる。次に、モンモリ ロナイト結晶の弾性に与える温度/圧力/含水量の影響を評価するため、結晶のヤング率及びポ アソン比を評価した。含水量の増加/温度の上昇/圧力の低下に伴い、ヤング率は減少し、ポア ソン比は増加した。含水量の増加/温度の上昇/圧力の低下は、いずれも水分子とNaイオンの拡 散係数の上昇を促進し、モンモリロナイト結晶の安定性を低減させる方向に寄与するため、モン モリロナイト結晶の力学的強度が低下したものと考えられる。

次に、Mg-Sub-MMTモデルとFe-Sub-MMTモデルの解析結果を、層間1層水和状態の下で比較 する。層間の水分子及びNaイオンの拡散係数は、温度の上昇/圧力の低下とともに拡散係数が増 大するという傾向は同じであった。しかしながら、水分子の拡散係数はMg-Sub-MMTモデルの場 合よりFe-Sub-MMTモデルの方が大きいのに対し、Naイオンの拡散係数は逆に小さい値になった。 またNaイオンの水和数及び水和半径を2つのモデルで比較したところ、同形置換の種類が異なっ ても、Naイオンの水和力は、温度の上昇/圧力の低下とともに減少するという傾向は同じであっ た。しかしながら、Mg-Sub-MMTモデルとFe-Sub-MMTモデルでは、Naイオンの水和数及び水 和半径の値は顕著に異なり、Mg-Sub-MMTモデルにおけるNaイオンの水和力の方が、Fe-Sub-MMTモデルの場合よりも強いことが示された。この結果は、Mg-Sub-MMTモデルにおける水分 子の拡散係数がFe-Sub-MMTモデルよりも小さいことと整合している。すなわち、Fe-Sub-MMT モデルの場合にはNaイオンの水和力が何らかの理由でMg-Sub-MMTモデルに比べて弱くなり、 その結果、自由に動ける水分子数が増加するため、水分子の平均的な拡散係数が増大したと考え られる。一方Naイオンの拡散係数については、バルク溶液中であるならば、一般に水和力が弱い イオンの方が水和半径は小さくなり、その結果、拡散係数が大きくなる。しかしながら、水和力 が弱くなるFe-Sub-MMTモデルの方がNaイオンの拡散係数は小さい。これは、Fe-Sub-MMTモデ ルの場合、Naイオンの本来の水和力が低減して、例えばCsイオンのようにモンモリロナイトのベ ーサル面で内圏錯体的に配位し(Yotsuji et al., 2021; 四辻ら, 2022)、その結果、層電荷との相 互作用が強まり拡散係数が小さくなったものと考えられる。次に、2つの同形置換モデルで、モン モリロナイト結晶のヤング率及びポアソン比を比較したところ、温度の上昇/圧力の低下に伴っ て、ヤング率は低下し、ポアソン比は増加した。しかしながら、同じ温度・圧力条件で比較する と、Mg-Sub-MMTモデルよりもFe-Sub-MMTモデルの方が、モンモリロナイト結晶の強度が顕著 に低い。これは、Naイオンの水和力の減少と、それに伴う水分子の拡散係数の上昇により、岩石 の強度を弱める方向に影響したものと考えられる。すなわち。Fe-Sub-MMTモデルでは、Mg-Sub-MMTモデルよりも水分子の平均的な拡散係数が大きくなり、ベーサル面と水分子との間の結合力 が低下して、粘土層の力学的強度が弱められたものと考えられる。

以上により、本論文から以下のことがわかった。

 温度が上昇すると、水分子やNaイオンの運動エネルギーが上昇し、拡散係数が増大する。また 水和数は減少し、したがって水和半径も減少する。さらにモンモリロナイト結晶の強度が低下 し、変形しやすくなる。

- 2) 圧力の増加は、温度の上昇とは逆の傾向を示す。
- 3)同じ温度/圧力/含水量の条件下では、Fe-Sub-MMTモデルにおけるNaイオンの水和力が、 Mg-Sub-MMTモデルの場合に比べて弱くなる傾向がある。すなわち、モンモリロナイトの八面 体シートでFeイオンが同形置換すると、水和数及び水和半径が減少する。その結果、水分子の 平均的な拡散係数が増大し、モンモリロナイト結晶の強度がMg-Sub-MMTモデルに比べて顕著 に低下する。

本論文のMDシミュレーションでは、モンモリロナイトの八面体シートでFeイオンが同形置換 した場合、Mgイオンが同形置換した場合よりも、層間の対イオンであるNaイオンの水和力が何 らかの理由で低減するという結果が得られた。しかしながら、Feイオンの同形置換がどのような メカニズムで対イオンに影響を与えたのかは、明らかになっていない。本論文のMD計算では、力 場としてClayff及びSPC水分子モデルが採用されたが、他の力場モデルを用いて結果の再現性を 検証することが重要であり、さらに第一原理計算によるメカニズムの解明も今後の課題である。

(4) TRU廃棄物の核種移行評価技術開発

本節では、TRU廃棄物に特有の含有物質であるISAと硝酸塩に焦点を当て、それらの影響について評価を進める。先行事業においては、廃棄体に含まれるセルロースの分解生成物であるイソサッカリン酸(ISA)が核種の溶解度に及ぼす影響を調査を進めた。その結果、ISA影響を定量的に評価できる見通しが得られたものの、一部核種(Pd)についてはさらなるデータの拡充が必要となったことから、令和5年度の事業では、ISA共存下でのPd固相の調査を実施した。また、硝酸塩影響について、硝酸塩より溶出する硝酸イオンとの収着の競合により、収着分配係数が低下する可能性のあるヨウ素について、その収着競合メカニズムを明らかにするため、セメント系材料への収着試験に着手した。

1) ISA共存下でのPd固相の実験的調査

研究の目的

先行事業(原子力環境整備促進・資金管理センター,2023)では、TRU 廃棄物処分における 有機物影響評価に向けて、まず、諸外国における有機物影響評価の設定事例のレビューを行い、 調査対象の金属イオンとして、Sn (IV)、Tc (IV)、Pd (II)を選定した。その後、それぞれの 金属イオンについて、イソサッカリン酸(ISA)共存条件下で溶解度試験を実施した。その結 果、Sn と Tc の溶解度上昇に及ぼす ISA 影響は顕著ではないことが示された。Pd に関しては、 ISA との錯生成によって溶解度が上昇する傾向が示されたため、Ni の先行研究を参考に錯体種 を仮定し、見かけの平衡定数を算出することで、ISA 影響を定量的に評価することが可能となっ た。また、収着試験から、Pd のセメント材料への収着に及ぼす ISA 影響は限定的(log スケー ルで1 桁程度)であることが示唆された。一方で、先行事業で実施されたセメントへの Pd の収 着試験について、溶解度制限固相を Pd(OH)2として設定した溶解度 10⁻⁷ M に対し、セメント平 衡水中における ISA 非共存下での Pd の濃度が 2 桁以上小さく、Pd 水酸化物の溶解度積の設定 値と実験値に乖離が見られたことから、設定した溶解度制限固相が異なる可能性が示唆された (図 2.2-19)。

上記を踏まえ、本事業においては、TRU 廃棄物処分環境下における Pd の溶解と収着に及ぼ す有機物影響評価の信頼性を向上させるために、ISA 共存下・非共存下において生成するパラジ ウム固相の分析を実施した。



図 2.2-19 ISA共存化でのセメント収着試験におけるPd濃度

2 試験手法

ISA 母溶液(Na(ISA))は、Ca(ISA)2(Alfa Aesar 社製)を出発物質として、Na2CO3を加えて沈 殿させた CaCO3を除去し、窒素ガスによるバブリングにより溶存炭酸成分を除去することで調製 した。母溶液中のカルシウム除去率は、99.9%であることを確認した。Pd 固相は、市販の塩化物 塩を塩酸に溶解した母溶液に、NaOH を加えて pH を 10.0 として沈殿を生成させ、2 週間程度熟 成させて作製した。熟成後、ISA を所定の濃度になるように添加し、4 週間静置した。溶液の pH は 10.0 の 1 条件とし、ISA の濃度は 0 および 3×10⁻³ M の 2 条件、塩濃度は 0.6 M の 1 条件、 試験雰囲気は、炭酸による影響を確認するために大気雰囲気と低酸素雰囲気の 2 条件とした。こ れら試験条件を表 2.2-9 にまとめた。

固相の XRD 測定は、Malvern Panalytical 社 Empyrean の X 線回折装置を使用した。湿潤試料は全量吸引ろ過を行い、十分に洗浄後、湿潤状態を維持した状態で測定した。風乾試料は、一 晩風乾し、粉砕した後、測定を実施した。

Pd-K 吸収端に対する XA スペクトル測定は、大型放射光施設(Spring-8)の BL14B2 ビームライ ンを使用し、室温下で透過法により行った。測定により得られた X 線吸収端近傍構造(XANES)お よび広域 X 線吸収微細構造(EXAFS)を、Athena を用いて解析した。標準試料は、酸化パラジウ ム(PdO)を使用した。測定試料は、ISA の有無および湿潤と風乾における変化を調べるため、表 2.2-10 に示す試料とした。風乾試料については、XRD 測定で使用したものと同じ試料を使用し、 湿潤試料については、測定直前にろ過と洗浄を行うことで、湿潤状態を保持した状態で、測定を 実施した。

項目	内容
試験方法	バッチ式不飽和試験
対象元素	パラジウム
支持電解質及び濃度	NaCl溶液(0.6 M)
パラジウム濃度	3×10 ⁻³ M
рН	10.0
イソサッカリン酸濃度	0、3×10 ⁻³ M
試験温度	室温
試験雰囲気	大気雰囲気、低酸素雰囲気(窒素雰囲気)
サンプリング周期	0、4週
固液分離方法	メンブレンフィルター(0.45 μm)
繰り返し数	2

表 2.2-9 パラジウム固相試験条件

表 2.2-10 パラジウム固相のXANESおよびEXAFS測定試料

	熟成期間(週間)	ISA濃度(M)	試料状態	雰囲気
1	4	0	風乾	大気
2	4	0	湿潤	大気
3	4	3 × 10 ⁻³	湿潤	大気

③ 試験結果

XRD 測定の結果を図 2.2-20 に示す。全ての試験条件において、主成分は酸化パラジウム (PdO)であり、試料状態(湿潤および風乾)、試験雰囲気(大気および窒素)、ISA の有無、試験 期間(0-4週)による XRD パターンの差異は確認できなかった。一方で、XRD のデータベース 上には Pd(OH)2のデータが存在しないため、XRD だけでは Pd(OH)2の判別が厳しいことから、 他の分析方法も併せた評価が必要である。また、湿潤状態での XRD 測定については、測定の 10 分の間に、表面が乾燥したため、溶液中での構造と異なっている可能性がある。



図 2.2-20 Pd固相のXRD(窒素雰囲気下、4週目、ISA0、風乾)

XANES および EXAFS の結果を図 2.2-21 に示す。XANES については、PdO の標準試料のスペクトル形状が類似していることから、試料中のパラジウムは酸化数が+2 であり、配位構造は PdO と同様であることが分かった。EXAFS においては、風乾試料は PdO と同様であるのに対 し、湿潤試料は周期が4分の1程度ずれている。湿潤状態では原子間距離が長いものと短いもの が存在しており、平均として原子間距離が PdO より短いスペクトルが得られていると考えられ る。また、動径構造関数では、風乾試料と湿潤試料どちらについても、第1および第2近接のピ ーク強度が小さく、両試料ともに、PdO に比べて配位数が減少していることが分かった。配位数 が減少した原因としては、試料中の水分により、結晶性が低下し、さらに湿潤状態の試料につい ては水分の影響により、結合距離が変化していると考えられる。また、ISA の有無によるスペク トルの差異は見られなかったことから、本試験条件においては、ISA の有無によらず、パラジウ ム周辺の構造は同様であることが分かった。

XRD、XANES および EXAFS より、Pd の溶解度制限固相が PdO である可能性が示唆された。 先行研究 (Polotnyanko et al., 2013) においては、Pd(OH)₂(am)は PdO(cr)に対して準安定相で あり、Pd(OH)₂(am)の溶解度は PdO(cr)の溶解度よりも 2.1 桁高いと報告されていることから、調 製した試料には PdO と Pd(OH)₂が存在している可能性が考えられる。一方で、XRD のデータベ ースに Pd(OH)₂ のデータが存在しないことや、XANES および EXAFS においては PdO と Pd(OH)₂ のパラジウム周辺の構造が類似していることから、PdO・xH₂O と Pd(OH)₂を判別する ことは難しいため、それらを明らかにするためには、異なる分析方法 (示差熱・熱重量同時測定な ど) を行う必要があると考えられる。



図 2.2-21 パラジウムの試料1(風乾)および2(湿潤)の(左)XANES、(中央)EXAFS、 (右)動径構造関数

2) 硝酸塩共存化におけるセメント系材料に対するヨウ素の収着挙動の評価

① 研究の目的

TRU 廃棄物に含まれる硝酸塩については、硝酸イオン(NO₃)によって陰イオン核種のバリア材 に対する収着が阻害されることが懸念される。特に、ヨウ素(I, IO₃)は可溶性であり、硝酸イオン と同じ1価の陰イオンであるため、バリア材に対して収着が強く競合する可能性が考えられる。 また、セメント系材料はTRU 廃棄物の固化材として多量に使用されており、ヨウ素のセメントへ の収着については、セメント中のモノサルフェートやエトリンガイト、Ca/Si モル比が高い CSH などに収着することが報告されている (Michael et al., 2016)。そのため、セメント系材料に対し て、ヨウ素イオンと硝酸イオンは収着競合することが考えられることから、硝酸共存下でのヨウ 素のセメントへの収着挙動を評価する必要がある。

令和5年度の試験においては、硝酸塩共存下でのセメントへのヨウ素の収着挙動を調べるため、予察的検討として、セメントの主要な水和物である CSH を対象として収着試験を実施した。

2 試験手法

収着試験はバッチ法で行い、ヨウ素の出発物質はヨウ化カルシウムn水和物(Cal2・nH2O) およびヨウ素酸カルシウム(Ca(IO3)2)、硝酸イオンの出発物質として、硝酸カルシウム 4 水和物 (Ca(NO3)2・4H2O)を使用した。固相の CSH については、酸化カルシウム(CaO)とシリカヒューム(SiO2)を Ca/Si モル比が 1.4 となるように混合し、液固比が 40 ml/g となるように、イオン交換水と1週間程度反応させることで調製した。硝酸濃度は0、0.1 および1 M の3条件とし、試験開始から1、4 および8週間経過した後に、溶液の一部を分取し、分画分子量 104(10 kDa)のフィルターを用いてろ過を行った上で、溶液中の元素濃度を誘導結合プラズマ質量(ICP-MS)分析により定量した。これらの試験条件を表 2.2-11 にまとめた。

I-K 吸収端に対する XA スペクトル測定は、大型放射光施設(SPring-8)の BL14B2 ビームラインを使用し、室温下で蛍光法により行った。測定により得られた X 線吸収端近傍構造(XANES)および広域 X 線吸収微細構造(EXAFS)を、Athena を用いて解析した。標準試料は、Ca(IO₃)₂(固体および溶液)を使用した。測定試料は、収着試験と同様の試料を作製し、遠心分離後、固相のみを用いた。測定試料は、ヨウ素酸イオンの硝酸の有無による収着影響を確認するため、表 2.2-12に示す 2 試料とした。測定試料は、液相側の IO₃の影響を最小限にするため、遠心分離後の沈殿物に純水を加えよく振り交ぜ、遠心分離を行う操作を、複数回行うことで、液相側の IO₃を取り

2-41

除いた。また、ヨウ化カルシウムn水和物及びヨウ素酸カルシウムの標準溶液は、純水及び平衡 液それぞれに 1×10⁻² M、5×10⁻³ M となるよう添加した。固体標準については、適切な量になる よう 30mg に対し、ホウ化窒素(BN)で希釈、混合し、ペレットを作製した。

項目	内容
試験方法	バッチ式収着試験
対象元素	ヨウ化物イオン、ヨウ素酸イオン
固相	CSH (Ca/Siモル比1.4)
固液比	液相100 ml / 固相2.5 g
初期濃度	l⁻ 1 × 10 ⁻² M IO₃- 5 × 10 ⁻³ M
硝酸濃度	0、0.1、1 M
試験温度	室温
試験雰囲気	低酸素雰囲気(窒素雰囲気)
サンプリング周期	1、4、6週
固液分離方法	限外ろ過(分画分子量10 ⁴)
元素濃度分析	ICP-MS
繰り返し数	2

表 2.2-11 ヨウ素収着試験条件

表 2.2-12 CSHに収着したヨウ素のXANESおよびXAFS測定試料

	熟成期間(週間)	硝酸濃度(M)	試料状態
1(CSH-IO ₃)	6	0	湿潤
2(CSH-IO3)	6	1	湿潤

3 試験結果

ヨウ素の収着試験における液相のヨウ素濃度について、図 2.2・22 に示す。I については、硝酸 の有無によらず、液相のヨウ素濃度が添加した濃度とほぼ同程度であったことから、CSH にはほ とんど収着していないと考えられる。IO3 について、硝酸無しの条件において、時間が経過するに つれて、液相の濃度が減少する傾向が見られたが、固相を添加していないブランク試料で確認し た場合も、同様の傾向が確認されたことから、容器収着等の影響と推測される。IO3 の硝酸濃度依 存性について、硝酸を添加した系においてはヨウ素濃度が減少しているが、ブランク試料で硝酸 の有無による IO3 の濃度を確認したところ、硝酸添加により Ca(IO3)2 の溶け残りを確認した。し たがって、収着試験における IO3 の硝酸添加によるヨウ素濃度の減少は、硝酸添加による初期濃 度の低下が主な原因であり、硝酸による収着への影響については、XANES および EAXFS より 確認した。



図 2.2-22 収着試験におけるヨウ素の液相濃度(試験期間42日) (硝酸濃度0は1.0E-04にプロット)

収着試験の固相試料の XANES および EXAFS の結果を図 2.2-23 に示す。試料のスペクトル は標準試料 Ca(IO₃)₂の固体と比較しているが、Ca(IO₃)₂のスペクトルは固体と液体で同様であっ たことから、固体や液体に関わらず IO₃:は同じ配位構造や原子間距離を維持していると推測され る。試料については、硝酸の有無によらず、固体の Ca(IO₃)₂とスペクトルが一致していることか ら、IO₃:は CSH に収着しても、酸化数や配位構造、原子間距離を維持した状態であり、硝酸共存 下においても、CSH への収着形態は変化しない可能性が示唆された。



図 2.2-23 CSHに収着したIO3-の(左) XANES、(中央) EXAFS、(右) 動径構造関数

④ まとめと今後の課題

ISA共存下・非共存下で生成するパラジウム固相の分析について、XRD、XANESおよびEXAFS 測定を実施した結果、ISAの有無に関わらず、パラジウムの溶解度制限固相はPdOである可能性が 示唆された。しかしながら、上記の測定からPdOとPd(OH)2を判別することは厳しいため、それら を明らかにするためには、異なる分析を実施する必要があることが課題となった。一方で、 Pd(OH)2とPdOは準安定相と安定相であることから、処分環境下においては、どちらか片方のみ が存在したり、もしくは混在したりする状態も予測される。本試験の結果からは、核種移行挙動 評価においては、溶解度が高いPd(OH)2を溶解度制限固相として評価することが適切であると考 えられた。

硝酸共存下でのヨウ素のCSHへの収着挙動については、I・の硝酸イオンの共存による収着挙動 への影響は確認されず、硝酸イオンが存在しない状態においても、CSHにはほとんど収着してい ないことが示唆された。固相分析においては、IO3・は硝酸の有無によらず、出発物質であるCa(IO3)2 と同様の形態でCSHに収着していることが分かった。セメントは複数の水和物で構成されており、 それぞれの水和物への収着挙動が異なることから、硝酸共存下でのセメントへのヨウ素の収着メ カニズムを解明するためには、エトリンガイトやモノサルフェートなどのCSH以外のセメント水 和物についても収着試験を実施し、各水和物への収着メカニズムを個別に解明していくことが重 要である。上記に加えて、TRU廃棄物に含まれるセメントへの核種収着挙動に影響を及ぼす物質 として、ISAについても、硝酸塩と同様に、陰イオン核種と収着競合することが考えられる。この ことから、今後、ISAのセメントへの収着メカニズムや、ISA共存下での陰イオンのセメント水和 物への収着挙動を評価することが必要である。

(5) まとめと今後の課題

ニアフィールドにおける核種移行挙動を理解し、個別現象を評価するモデルを構築するため、 「緩衝材の長期変遷と核種移行評価技術開発」、「バリア界面現象と核種移行評価技術開発」、 「TRU廃棄物の核種移行評価技術開発」の3項目に分けて開発を進めた。

緩衝材の長期変遷と核種移行評価技術開発においては、これまでに評価技術が確立されていな い複数化学種が共存する条件での緩衝材中の核種の拡散挙動について評価を進めた。評価では、 Sr²⁺とSrSO₄(aq)共存下での拡散試験を実施するとともに、PHREEQCのTransport機能を用いて 拡散試験結果の解析手法の構築を進めた。拡散試験では、Sr²⁺とSrSO₄(ag)の比率に応じてSrの拡 散挙動の違いが確認されたものの、解析結果と試験結果が一致しない条件もあり、試験を継続し てより長期のデータを取得し、解析結果の検証や解析手法の改良を行う必要があると考えられた。 また、緩衝材中の核種の移行間隙として想定されるモンモリロナイト層間間隙と粒子間間隙中の 核種の移行挙動を評価するため、主に粒子間間隙を移行すると考えられるコロイドの緩衝材中の 透過挙動の評価と、古典分子動力学計算を用いたベントナイト層間への核種のアクセス性の評価 を進めた。緩衝材中のコロイド透過挙動の評価では、粗製ベントナイトを使用してコロイド透過 試験を実施し、先行事業において実施した精製モンモリロナイトでの試験結果と整合的な結果が 得られたことを確認した。一方で、透過できるコロイドの最大粒径等に関する試験データが不十 分であることに課題が残った。ベントナイト層間への核種のアクセス性の評価については、十分 な層間幅のある4層から5層の水和状態では、ウラン及びネプツニウムの炭酸錯体が層間に侵入 し得ることがわかった。さらに、核種の移行経路に影響を及ぼすケイ砂や石英等の共存鉱物の影 響を評価するため、ランダムウォーク計算によるバリア材間隙構造モデルの開発を進めた。モデ ルによる解析の結果、共存鉱物の粒径の増大とともに拡散係数が増加することが確認された。こ れらの結果から、緩衝材中の核種移行モデルを構築する上で必要なモンモリロナイト層間間隙及 び粒子間間隙のサイズや核種の侵入可能性に関する知見を得ることができ、また、共存鉱物の粒 径等もモデル化する上で重要なパラメーターとなり得ることが確認された。

バリア界面現象と核種移行評価技術開発では、緩衝材とオーバーパックの相互作用に着目し、 緩衝材の核種収着能に変化を及ぼす可能性のあるモンモリロナイトのエッジ表面のFeや、モンモ リロナイト底面へのFeの侵入挙動について計算科学により評価を進めた。モンモリロナイトのエ ッジ表面の酸解離定数を評価した結果、エッジ表面にFe(III)存在する場合の酸解離定数は、Alが 存在する場合と同程度であり、モンモリロナイト結晶構造中のFe(III)とAlは、核種の収着能の観 点からは概ね同等と取り扱えることがわかった。モンモリロナイト底面へのFe(II)の侵入は、Fe²⁺ イオンが四面体層のSiO4六員環中心付近に存在する場合、自然に起こり得ることが示唆された。 しかしながら、Fe²⁺イオンが六員環中心付近に存在し得る可能性については、今後検討が必要で あると考えられた。また、酸化還元に鋭敏な元素であるSeの緩衝材への収着挙動を評価するため、 収着した核種の酸化還元に影響を及ぼす可能性のあるモンモリロナイト構造中のFe(III)の還元手
法を検討し、調製したモンモリロナイト中のFe(III)がFe(II)に還元されたことを確認した。今後、 還元したモンモリロナイトを使用し、Seの収着分配係数を取得する予定である。

TRU廃棄物の核種移行評価技術開発においては、ISA共存下・非共存下で生成するパラジウム 固相をXRD、XANESおよびEXAFS測定により分析し、ISAの有無に関わらず、パラジウムの溶 解度制限固相はPdOまたはPd(OH)2であることを確認した。この結果からは、核種移行評価にお いては、溶解度が高いPd(OH)2を溶解度制限固相として評価することが適切であると考えられた。 また、硝酸共存下でのヨウ素のCSHへの収着挙動を評価し、Iが硝酸イオンの共存の有無によら ずCSHにはほとんど収着しないこと、IO3 も硝酸イオンの有無によらず、出発物質であるCa(IO3)2 と同様の形態でCSHに収着していることが分かった。今後、エトリンガイトやモノサルフェート などのCSH以外のセメント水和物についても収着試験を実施し、各水和物への収着メカニズムや 硝酸イオンの影響を個別に解明していく予定である。

2.2.2 TRU廃棄物固有の廃棄体からの核種放出挙動評価技術の開発

(1) 背景と目的

TRU廃棄物のうち、燃料被覆管のせん断片(以下、「ハル」という)、燃料集合体末端片(エンドピース)等は、図 2.2・24で示されるように圧縮処理された後、ステンレス鋼製のキャニスターに封入され、地層処分される計画となっている。ハル・エンドピース(ハル等廃棄体)の地層処分を対象とした従来の安全評価(電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構、2005)では、C-14由来の最大被ばく線量が高レベル放射性廃棄物処分の安全評価(核燃料サイクル開発機構、2000、原子力発電環境整備機構、2021)における全核種の最大被ばく線量を上回ることが知られている(図 2.2・25)。したがって、ハル等廃棄体の安全な処理・処分のためには、ハル等廃棄体に含まれる廃棄物毎の合理的な核種インベントリの設定、現実的な溶出速度の設定、放出されるC-14化学種の同定、C-14化学種の安定性や収着挙動などの移行パラメータ評価、さらに生物圏における炭素循環を含め、C-14に関する体系的な安全評価手法の確立が必要である。本テーマでは、とくに核種インベントリ、核種溶出速度、溶出時のC-14化学形態に着目し、実廃棄物のデータを積み上げるとともに、現象理解やメカニズム解明により、さらなる安全裕度を提示(被ばく線量評価値を低減)することを目的としている。



図 2.2-24 ハル・エンドピース(ハル等廃棄体)の処分概念



図 2.2-25 核種移行評価(部材別のC-14による被ばく線量評価)

これまで、ハルに関する国内の研究は、加圧水型原子炉(PWR)にて実際に照射されたハルを 用いた試験が先行的に行われ、C-14のインベントリや浸漬試験のデータが取得された

(Yamaguchi et al., 1999)。その後、沸騰水型原子炉(BWR)のハルのインベントリデータや
 溶出データが取得された(Yamashita et al., 2014, Sakuragi et al., 2016a)。C-14のインベント
 リについては評価パラメータの見直しにより現実に近いインベントリの評価結果も報告されている(Sakuragi et al., 2013)。

エンドピースについては、令和4年度までのTRU事業において研究開発を実施した。まず、試験 や解析評価に供する照射材料を選定し、その性状や燃焼条件等の調査に基づき試料の代表性を評 価した。従来のエンドピースからの核種溶出モデル(電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構、 2005)では、核種分布、廃棄物の比表面積、腐食速度等を過度に保守的に評価している可能性が ある。そこで、より現実的な設定を取り入れることで保守性を低減した核種溶出モデルを構築し た。具体的には、燃料集合体の3次元構造を考慮した中性子輸送計算(モンテカルロ法)に基づく 放射化計算(Sakuragi et al., 2023)を行い、エンドピース中の現実的な核種分布を評価した。また、 地層処分環境における比較的長期の金属腐食速度データ(Sakuragi et al., 2016b)を取り入れた。 さらに、これらのより現実的な設定が安全評価結果、すなわち処分後の被ばく線量低減に及ぼす 影響について定量的に検討した。解析的評価と並行して、安全評価上重要かつ難測定である核種 (C-14, Cl-36, Mo-93等)のインベントリ分布と溶出率を精度よく評価するために、加速器質量分 析法(Accelerator Mass Spectrometry:以下、「AMS」という)によるC-14およびCl-36の極微 量分析や、トリプル四重極ICP-MSを用いたMo-93の分析(Tanaka et al., 2024)を実施した。

一方、海外では、1990年前後にユッカマウンテン計画に関連したハルの分析データ(Guenther et al., 1990, Van Konynenburg, 1994)やドイツの研究例(Bleier et al., 1987)が報告されてい る。その後、原環センターも参画し2013年に開始された欧州の共同研究(CArbon14 Source Term: 以下、「CAST」という)プロジェクトの一環として、C-14インベントリや化学形態に関するいく つかの成果が報告されている(Mibus et al., 2018, Necib et al., 2018, Neeft, 2018)。最新の成果 として、照射済みステンレス鋼から溶出したC-14化学種の分画分取とAMSの適用により、化学種 を特定した放射性炭素分析(compound-specific radiocarbon analysis:以下、「CSRA」という) が実施され、処分環境下におけるステンレス鋼からのC-14溶出形態はメタンとカルボン酸が支配 的である、との研究結果が権威ある国際誌に掲載されている(Guillemot et al., 2022)。

実際のハル・エンドピースを用いた研究と並行して、放射化していない未照射のジルコニウム やステンレス鋼を用いた炭素化学種の浸漬試験も行われている。Kaneko et al. (2003)は炭素鋼、 ジルコニウム、炭化鉄(Fe₃C)、炭化ジルコニウム(ZrC)を用いた浸漬試験(還元雰囲気、pH =12.5 および pH=8)を実施している。その結果、溶出した炭素の化学形態はカルボン酸が支配 的で、アルデヒドやアルコールも検出されたと報告している。Nakabayashi and Fujita (2018)は SUS 304LおよびSUS316L粉末を用いた浸漬試験(還元雰囲気、pH=11.8およびpH=2)を実施 している。その結果、アルカリ性ではコロイド状炭素が支配的で、ギ酸、酢酸、シュウ酸が検出 され、酸性ではギ酸が支配的であると報告している。いずれの既往研究でも金属中から溶出した 炭素化学種にはカルボン酸が含まれると報告されているものの、その生成プロセスは定性的な解 釈に留まり、定量的かつ統一的には論じられていない。

ハル等廃棄体は処分後の一定期間は放射線影響を無視できないと考えられ、放射線照射による 炭素化学種の変化にも着目する必要がある。Kani et al. (2008)は還元雰囲気、アルカリ条件にて 濃度の異なる酢酸に対しガンマ線照射を実施した。その結果、分解効率は酢酸濃度のみに依存し 線量率依存性は無いこと、29,700 Gy (1,000 Gy/h×29.7 h)のガンマ線照射により酢酸の90%は 無機化すること、が報告されている。Kuroda et al. (2023)は還元雰囲気、アルカリ条件にてギ酸 およびシュウ酸の水溶液にガンマ線を照射し、累積線量が1,000 Gy未満では照射線量の増加とと もにギ酸が完全に分解しシュウ酸濃度が増加すること、1,000から10,000 Gyでは照射線量の増加 とともにシュウ酸濃度が減少し、無機炭素の濃度が増加すること、が報告されている。これらの 研究結果は、ハル等廃棄体から溶出した有機炭素は、長期の放射線照射により無機化する可能性 を示している。

以上に記述したように、国内外での精力的な研究により、ハル等廃棄体のより現実的な安全評価に資する知見は着実に蓄積されつつある。一方で、C-14由来の被ばく線量低減には、C-14化学種の分面分取とAMSを適用したCSRAをステンレス鋼だけではなくハル(ジルカロイ)にも適用する必要がある。また上述のとおり、放射化金属から溶出したC-14化学種の実験データは報告されているものの、生成プロセスについては金属の種類を問わずほとんど明らかになっていないのが現状であり、AMS等による最先端の実験的手法で信頼性の高いデータを取得することに加え、計算科学の適用など、新たな観点からのアプローチも重要となる。

そこで本事業の5ヵ年では、先行のTRU事業等で得られた成果と課題を踏まえ、TRU廃棄物の 安全評価上の重要核種であるC-14の核種移行評価の改良に資するため、ハル等廃棄体からのC-14 の溶出モデルの高度化を実施する。令和5年度は、ハル等廃棄体の溶出モデル開発について、ハル 等の溶出データや腐食データを一部拡充し、先行事業のデータとあわせて腐食速度との相互比較 による調和溶出モデルの妥当性の検証のためのデータ蓄積や瞬時放出モデルの対策を検討する。 そのため新たな照射済み材料 (PWR)の調達・取扱いに関する検討や腐食速度や腐食モデルの評 価手法の検討、ハル酸化膜の特性評価と瞬時放出率低減の検討を開始する。また、ハル等から溶 出したC-14化学種の実データを取得するため、極低濃度のC-14の分析手法を構築し、実サンプル 分析に適用するためのコールド・トレーサー試験による技術開発を行うとともに、炭素化学種の 生成プロセスを明らかにするための計算科学的アプローチによる微視的モデルの開発に着手する。 さらに、使用済燃料の多様性や再処理プロセスに起因するソースタームパラメータとその分布幅 が核種移行・安全評価に与える影響について検討するため、使用済燃料の種類や再処理の主要工 程の想定に基づいた廃棄物発生シナリオに関する既往知見について調査・整理する。

(2) 調和溶出モデルの評価

1) 照射済み構造材の溶出挙動評価

1 BWR

(a) BWRハル試験体の輸送・基本測定・切断加工

燃料試験施設において浸漬試験中のハル試験体を、分析作業の主な実施場所となる燃料・化学 実験施設に輸送・搬入した(図 2.2-26)。受け入れた試験体を十分に純空気でパージしたグロー ブボックス内で開封し、ハル試料片、液相、気相をそれぞれ採取した(図 2.2-27)。



図 2.2-26 ハル試験体の受け入れ時の様子



図 2.2-27 ハル試験体の開封作業の様子

ハル試料片に対して、重量、寸法、表面線量率を測定した(表 2.2-13)。さらに、精密切断機 によりハル試料片からCl-36分析用試料とC-14分析用試料を切り出した。令和4年度のTRU事業で 取得したハル分析結果を参考とし、Cl-36分析用試料の方をC-14分析用試料と比較して大きく切 り出した(表 2.2-14)。また、ハル試料片中のCo-60及びγ線放出核種分析に関してはC-14、Cl-36、および元素分析の過程で余剰な溶解液が発生すると予想されることから、これを利用するこ とを基本とし、試料が不足した場合に残材を充当することとした。

また、液相については容量、pH及び酸化還元電位(ORP)を測定した(表 2.2-15)。液相の分 析項目がpH/ORP測定、無機炭素及び全炭素のC-14分析、Cl-36分析、Co-60分析、元素分析とな っている。このうち、pH/ORP測定とCo-60分析は非破壊分析であることから、分析後の試料を他 の分析と共有できる。よって、試料を共有できない独立した分析項目は5項目となる。ハル浸漬試 験における液相の分析に関する知見が限られており、個々の分析における検出可能性を事前に予 想できないことから、液相全体の1/7程度を各分析に等分配し、残りを予備とすることとした。

試料名		サンプル量			線量			材質
		風袋	風袋+Sample	Sample	$IC(\mu Sv/h)$	GM(kcpm)		小員
ハル試料	計廠上	15 5640 a	10 6071 g	4 0421 a	250	>100	-	Znu
STEP1	动观灯	15.5040 g	13.0071 g	4.0431 g		55	at 30 cm	Ζſÿ
浸漬試験体	液相試料			16.5 ml		0.6	-	NaOH

表 2.2-13 ハル試料の基本測定結果(令和5年度)

IC:電離箱式サーベイメーター GM:GM管式サーベイメーター

試料名			田泽	材质		
		風袋	風袋+Sample	Sample	日後	竹貝
	切断前	15.564	19.6071	4.0431		
ハル試料 STEP1 浸漬試験体	1	33.3705	33.4721	0.1016	C-14	7.5.
	2	34.5194	35.5546	1.0352	U同位体比 /元素分析	۲y
	3	33.5824	34.5231	0.9407	CI-36	

表 2.2-14 切断前後のハル試験片の質量測定結果

表 2.2-15 ハル浸漬試験後の液相試料の基本測定結果

7]	×温	ORP測定値	標準水素電極電位	pН
(°C)	(mV)	(mV)	
2	4.0	-11.2	195.5	11.0

(b) BWRハル試料片、液相、気相中のC-14分析(LSC)およびCo-60分析

ハル試料片に対し超純水による表面洗浄を行い、試料片の表面に付着した液相を除去した。ハル試料片を硝酸と塩酸の混酸により加熱溶解し、溶解時のオフガス及び溶解液からそれぞれC-14を回収した。液相中のC-14については全燃焼法で回収した。無機炭素として回収した各試料を液体シンチレーションカウンタ(以下、「LSC」という)及びAMSに適した化学形態に転換した。ハル試料片及び液相中のCo-60及びγ線放出核種についてはGe半導体検出器で測定した。気相中のCo-60はC-14(LSC)用の試料をGe半導体検出器で測定した。

LSCおよびGe半導体検出器によるハル試料片、液相、気相中のC-14およびCo-60分析の結果を 表 2.2-16にまとめた。浸漬試験片に含まれるC-14およびCo-60は定量できた一方で、液相および 気相中のC-14およびCo-60は検出限界未満であった。

	LSCで測定した C-14放射能濃量		Co-60		C-14/Co-60		減衰補正日
Bq/試料		Bq,	/試料	放射	1能比		
浸漬試験片	9.61E+03	± 1.18E+02	3.56E+07	± 4.83E+05	2.70E-04	± 4.94E-06	1990/3/9
液相試料	< 3.7	0E+01	< 4.8	34E+02			1990/3/9
気相試料	< 4.3	85E-01	< 4.6	63E+00			1990/3/9
【2021度分析結果】 ハル試料 STEP1					8.99E-03	± 3.13E-04	1990/3/9

表 2.2-16 C-14分析値(LSC)及びCo-60分析値とその比較(炉停止日時点)

(c) BWRハル試片料、液相、気相中のC-14分析(AMS)

LSCでは検出限界未満であった液相および気相中の極微量C-14を分析するため、AMS用試料を 調製した。LSCの測定結果から、AMSの測定に適したC-14同位体比(1×10⁻¹²オーダー以下)と なるように、Dead Carbon(C-14を含まない炭素)を用いて同位体希釈を行った各試料を、東京 大学タンデム加速器研究施設(以下、「MALT」という)に輸送した(東京大学タンデム加速器研 究施設 MALT, 2020)。

MALTにてAMS測定を実施した結果、ハル試料片、液相、気相中のC-14を定量できた(表 2.2-17)。AMSによるハル試料片中のC-14分析値は1.11×10⁴(±5.05×10²)Bq/試料であり、LSCに よる分析値9.61×10³(±1.18×10²)Bq/試料と良好な一致を示した。したがって、AMSによる液 相、気相中のC-14分析結果も妥当であると判断できる。

	AMSで C-14放	減衰補正日	
	Bq/		
浸漬試験片	1.11E+04	± 5.05E+02	1990/3/9
浸漬試験液	2.43E+00	± 1.10E-01	1990/3/9
気相回収液	4.65E-02	± 1.74E-04	1990/3/9

表 2.2-17 AMSによるハル試料片、液相、気相中のC-14分析値

(d) 液相中のC-14の有機/無機比率の評価

液相試料に硝酸を加えてpHを4以下として液相中の無機炭素を回収し、AMSにより無機C-14を 定量した。またAMSによる全C-14分析結果と無機C-14分析結果から、液相中のC-14の有機/無機 比率とその不確かさを評価した。

その結果、液相中に浸出したC-14は約64%が有機で約36%が無機形態であった(表 2.2-18)。 既往研究では、ハルを用いた浸漬試験における液相中の無機C-14割合は、浸漬期間1年で70%程 度であるものの、5.5年経過後では30%程度まで減少している(原子力環境整備促進・資金管理セ ンター,2017; Necib et al., 2018)。本事業で使用したハル試験体の浸漬試験は2008年3月10日か ら開始しているため、経過時間(約15年)を考慮すると既往研究と概ね整合的といえる。一方で、 試料毎に燃焼履歴、材質、試験条件が若干異なる場合があるので、既往研究との比較検討の際は これらの違いに留意する必要がある。

	言平,	価値	減衰補正日
全炭素(Bq/試料)	2.43E+00	± 1.10E-01	1990/3/9
無機炭素(Bq/試料)	8.84E-01	± 3.99E-02	1990/3/9
不揮発性有機炭素(Bq/試料)	1.55E+00	± 1.17E-01	1990/3/9
不揮発性有機炭素/全炭素比率(wt.%)	63.6%	± 5.6%	
無機炭素/全炭素比率(wt.%)	36.4%	± 1.8%	
不揮発性有機炭素/無機炭素比率(wt.%)	174.9%	± 17.6%	

表 2.2-18 AMSによる浸漬試験後の液相中のC-14の有機/無機比率

(e) BWRハル試料および液相中のCI-36分析

液相中のCl-36分析については、ハル試料片および液相から精製したCl-36分析試料を酸性条件 下で硝酸銀と反応させて塩化銀とし、プラスチックシンチレータ(Pico-β)によるβ線測定によ りCl-36を定量した。放射線測定ではハル試料片からのみCl-36を検出し、液相中のCl-36は検出で きなかった。さらに、放射線測定に使用した試料をアンモニアで溶解し、適切なCl-36/Cl比となる ように塩化物イオン標準溶液を用いて同位体希釈し、AMSによる極微量のCl-36分析を実施した。 その結果、放射線測定では液相試料からはCl-36が検出されなかったのに対し、AMSを採用する ことで液相からも良好な精度で定量結果を得ることが可能となった(表 2.2-19)。

表 2.2-19 放射線測定 (pico-β) 及びAMSによるCI-36の定量結果

	pico-βで測定した Cl-36放射能量		AMSで測定した CI-36放射能量		減衰補正日	
	Bq/試料		Bq/試料			
浸漬試験片	7.33E+02	± 8.73E+00	9.20E+02	± 4.60E+00	1990/3/9	
浸漬試験液	< 1.91E-01		1.44E-03	± 1.38E-04	1990/3/9	

(f) BWRエンドピース試料の表面分析

令和4年度に開封したエンドピース浸漬試料の表面には不均一な変色部分が確認された(図 2.2-28)。変色の原因について確認するため、走査型電子顕微鏡(以下、「SEM」という)によ る表面付着物の観察と元素分析(以下、「EDS」という)を実施した。その結果、Feと酸素を多 く含む針状結晶が確認された一方で、針状結晶からNiとCrの信号は得られなかった(図 2.2-29)。



図 2.2-28 エンドピース電子像(1万倍) 変色部分と変色なし部分の比較



図 2.2-29 変色境界位置の電子像及びEDS結果(10万倍)

SEM-EDSにより表面付着物はFeと酸素を主成分とした化合物である可能性が高いため、SEM 観察後の試料をX線回折装置(以下、「XRD」という)で薄膜法により測定した。その結果、母材 のSUSに由来するNi-Cr-FeおよびCr₂O₃のピークと、それ以外のピークが認められた(図 2.2-30)。 Feと酸素を主成分とする化合物で帰属した結果、鉄酸化物としてFe₂O₃が含まれる可能性が考え られた。

エンドピースの主要材料であるステンレス鋼は、還元雰囲気かつアルカリ性では腐食が起こり にくい。腐食生成物が認められた要因として、エンドピースに含まれるCo-60等からの放射線によ り部分的に酸化雰囲気が形成され、ステンレス鋼の腐食が促進されるとともに、溶出した鉄が鉄 酸化物として再沈殿した可能性が考えられる。



図 2.2-30 エンドピース変色部の薄膜XRDスペクトル

2 PWR

(a) 候補材料の選定

燃料試験施設内に保管されている照射済PWR構造材の中から、エンドピース2種類(上部・下部ノズル各1種類)及びハル1種を選定した(表 2.2-20)。エンドピースについては、2種類の候補で燃焼度に差がないことから、単体で保管されているため取り扱いが容易な上部ノズルを優先候補とした。

	概略爆	然焼度	2021年2日	
	集合体平均 (GW d /t)	燃料棒平均 (GW d /t)	2024年2月 現在の状況	
エンドピース候補材① (上部ノズル)	約37	-	上部ノズル単体	
エンドピース候補材② (下部ノズル)	約37	-	下部ノズルに グリッド下端が付属	
ハル候補材	-	約57	被覆管単体	

表 2.2-20 エンドピース及びハル試料の概略燃焼度及び現在の状況

(b) PWRエンドピース採取位置・方法の検討

エンドピース浸漬試験片の形状は、先行実施中のBWRでの試験を参考に、高さ約20 mm×幅約 10 mm×厚さ約0.5 mmを目標として設定した(図 2.2·31)。採取位置については、優先候補であ る上部ノズルの中で比較的肉厚が薄く均一な厚さの試料が採取可能と期待される、上部ノズル側 面中央部を目標として設定した(図 2.2·32)。

上部ノズル側面中央部から採取可能な試料は高さ30 mm程度×幅130 mm程度×厚さ5 mm程 度となる。切り出し時の精度や切り代、その後の加工代を考慮すると、切り出し後試料から目標 とするエンドピース浸漬試験片を採取するためには1片当たり高さ30mm程度×幅15mm程度の 面積を必要とすると考えられる。よって、エンドピース浸漬試験片は上部ノズル1体から最大で32 片(1面当たり8片×4面)を採取可能と考えられる。



図 2.2-31 エンドピース浸漬試験片の形状(目標寸法 mm)



図 2.2-32 上部ノズルからのエンドピース浸漬試験片採取位置案

セル内での試験片採取作業はセル外での作業と比較して、使用可能な機材が制限されることな どから難易度が高まる。新規の装置導入により、セル内作業を可能とするための具体的な検討を 行った。

上部ノズル側面中央部(厚み5mm程度)から試料を切り出し可能な装置としては、一般的には 放電加工装置、切断機、フライス盤等が挙げられる。装置の価格、許認可の追加取得を含めた装 置導入に要する時間を考慮した結果、フライス盤(エンドミル方式及び小型ホイール方式)を優 先的に検討することとした。

セル内での作業を新規に行うにあたっては、セル外でのモックアップ試験により、作業の妥当 性を確認することが必要となる。よって、優先検討目標であるフライス盤(エンドミル方式及び 小型ホイール方式)を入手し、セル外にて未照射上部ノズルを用いたモックアップ試験を実施し た。未照射上部ノズルには、候補材として選定したPWR上部ノズルと同型のものを使用した。

図 2.2-33にエンドミル方式による採取モックアップ状況を、図 2.2-34に小型ホイール方式に よる採取モックアップ状況を示す。モックアップの結果、優先検討対象とした2種類の採取方式 のいずれにおいてもエンドピース片の採取が可能な見込みを得ることが出来た。



図 2.2-33 エンドミル方式による採取モックアップ試験状況



図 2.2-34 小型ホイール方式による採取モックアップ状況

(c) PWRハルに関する検討

先行実施中のBWRハルを用いた浸漬試験が管状で行われていたことから、PWRハルについて も任意の長さで管状に採取することを目標として設定した。候補材は、使用済み燃料ペレットが 取り出された後、いくつかに切断された使用済み燃料被覆管となる。候補材は単純な棒状であり 位置による採取難易度は大きく変わらないことから、採取位置の目標については設定しないこと とした。

使用可能な候補材の長さから、切り代を考慮した場合、長さ20mmの試験片を最大で6片程度採 取可能であることが分かった。セル内作業のうち、切断に関しては中型切断機を用いた実績があ り、既存設備が利用可能となる。一方で、浸漬試験を目的とした場合は内外面を均一に研磨する 必要がある。ハル試料の内外面のような曲面を均一に研磨するためには、一定圧力で研磨紙を押 し付けた状態で試料を回転させるなどの操作が必要と考えられ、別途、未照射の燃料被覆管を用 いたセル内でのモックアップが必要となる。

また、実際のハル浸漬試験片採取時には管の内側にどの程度のウランが残留しているか、固着 したウランを除去するまでにどの程度の時間が必要かを事前に見積もることは難しい。そのため、 ハル浸漬試験片についてもエンドピース浸漬試験片と同様に、小規模の試験的な採取から実施し ていくことで、採取工程を計画する必要がある。

2) 未照射材の腐食挙動評価

① ジルコニウム合金の腐食特性評価試験

ジルコニウム合金の低温環境での腐食速度を求める場合、その値が非常に小さいことから一般 的な重量法による算出方法では定量性が不十分である。このため、水素測定法に基づいて腐食速 度を求める必要がある。特に、ジルコニウム合金の水素吸蔵特性に留意し、腐食により発生する 水素ガスとともに、吸収される極低濃度の水素の定量分析が可能な手法について検討した。

(a) ジルコニウム合金中の水素分析

試験材に吸収された水素の分析は、金属を溶融過熱して放出される水素を分析する、不活性ガス融解-ガスクロマトグラフ法(以下、「不活性ガス融解法」という)を用いるものとした。

定量下限の確認を、試験材を用いない分析(ブランク試験)の繰り返し結果をもとに行った。 繰り返し精度の確認は、表 2.2-21 に示す Zr の標準試料を用いた。

金属種	型番	水素濃度 (ppm)
Zr	AR640	14 ± 4

表 2.2-21 金属標準試料

また、繰り返し再現精度の確認のため、Zrの標準試料の0.1g及び0.2gを用いて、1日に6回また は8回繰り返して日内の分析値の変動(併行精度、Repeatability)を評価した。さらに、約1か月 の間に測定日を変えて8回の繰り返しを行い日間変動(室内再現精度、Intermediate Precision) を評価した。Zrの標準試料の繰り返し分析結果を表 2.2・22に示す。いずれも、同一金属試料同士 であれば、日内変動も日間変動も変わらず同様の精度で分析できると考えられる。それぞれの相 対誤差は、Zr標準試料に対して10~20%程度であった。相対誤差が大きいのは、試料のばらつき の影響が考えられる。そのため、試料量を多くしたときに精度が向上する可能性もある。試料重 量の影響を評価した結果、水素吸収量が1 ppm程度となる場合には、試料量は0.1 g以上が好まし いと考えられた。

	日内	内変動	日間変動
試料量	$0.1~{ m g}$	$0.2~{ m g}$	$0.1~{ m g}$
	分析值	分析値	分析値
	(ppm)	(ppm)	(ppm)
n=1	15.40	14.82	15.40
n=2	14.78	13.64	13.75
n=3	15.34	15.03	16.12
n=4	15.98	14.19	12.85
n=5	16.04	14.60	13.40
n=6	15.04	14.93	14.03
n=7	14.91		15.21
n=8	13.06		14.87
平均值 (ppm)	15.1	14.5	14.5
標準偏差 (ppm)	0.9	0.5	1.1
2 σ (ppm)	1.9	1.1	2.2
3 σ (ppm)	2.8	1.6	3.4
3 σ (μg)	0.28	0.32	0.34
相対誤差 (%)	20	10	20

表 2.2-22 標準試料の繰り返し分析結果

(b) ジルコニウム合金の腐食試験

分析に必要な水素量を確保するため、ジルカロイ-4(Zry-4)の板材を圧延して比表面積を大き くした0.1 mm^t及び0.05 mm^tの箔材を用いた。以下に板材の加工条件および処理条件を示す。

- ≪加工条件·処理条件≫
- (i) 供試材 : ジルカロイ-4 (Zry-4)
- (ii) 加工方法 : 冷間圧延
- (iii) 熱処理 : 真空焼鈍
- (iv) 最終仕上げ厚さ: 0.1 mm^t、0.05 mm^t
- (v) 目標水素濃度 : 10 ppm以下(低水素化熱処理後、0.05 mm^tの水素濃度)
- (vi) 最終表面仕上げ:#800エメリー紙研磨

腐食挙動の評価はガス蓄積型腐食試験(特許第2912365号)により行った。低酸素環境下での浸 漬試験として、ガラス製密封容器(以下、「アンプル」という)を用いた水素測定試験を実施し た。また、アンプル内の雰囲気を低酸素(≦0.1 vol. ppm)に保持するために雰囲気制御グローブ ボックスを用いた。水素測定法による腐食試験の手順とアンプル例を図 2.2-35および図 2.2-36 に示す。







図 2.2-36 アンプル例

新たに腐食試験を開始するものについては、特に炭酸イオンの影響等に着目し、腐食試験期間 (最大2年を目安)、試験温度(25℃、45℃、80℃を基本)、濃度等の試験条件を設定した。令和 5年度から新たに開始した腐食試験条件を表 2.2-23に示す。設定した腐食試験条件に基づきアン プルを作製し、恒温槽に保管して試験を開始した。

項目	試験条件
供試材	ジルカロイ・4
試験溶液	 炭酸ナトリウム+炭酸水素ナトリウム水溶液(炭酸濃度: 0.1 mol/L) pH:9.2程度
試験温度	$45^{\circ}\mathrm{C}$
試験雰囲気	窒素雰囲気;酸素濃度≦0.1 vol. ppm

表 2.2-23 腐食試験条件 (ジルコニウム合金)

② ステンレス鋼の腐食特性評価試験

ジルコニウム合金と同じくステンレス鋼でも水素測定法に基づいて、純水(脱イオン水)、ア ルカリ条件や処分模擬環境といった溶液条件のもと、先行事業から腐食試験を行ってきた。この 腐食試験のうち、長期の試験期間を設定したものの一部について、試験を終了し、腐食速度を求 めることとした。溶液組成、分析項目、及び方法を表 2.2-24および表 2.2-25に示す。

No	тU		濃度	(mol/L)	
INO.	рп	Na+ *	$\mathrm{CO}_{3^{2^{-}}}$	${ m SO}_{4^{2^{-}}}$	Cl-
7	12.5	$1.34 imes 10^{-1}$			
8	12.0	$1.12 imes 10^{-1}$	$4.0 imes 10^{-4}$	$5.0 imes10^{-2}$	$1.5 imes 10^{-3}$
9	11.5	$1.05 imes 10^{-1}$			

表 2.2-24 環境模擬水の溶液組成

*: Na+濃度はpH調整のために変動する。

表 2.2-25 腐食試験サンプル(ステンレス鋼)の分析項目

項目	分析方法・条件
放出水素ガス量	浸漬試験後、気密チャンバ内でアンプルを開封し、アンプル内 に蓄積した水素ガス量をガスクロマトグラフで定量
外観観察	試験後のアンプル及び試験片の外観写真
重量測定	試験後の試験片重量

分析結果及び放出水素ガス量から算出した腐食速度を表 2.2-26 に示す。先行事業での結果とほぼ同程度の腐食速度と評価された。

N.	学歌游游	試験温度	試験期間	試験片重量	放出水素ガス量	腐食速度
INO.	武员(谷代)	(°C)	(日)	(g)	(µL)	(µm/y)
7	環境摸擬水,	95	1915	5 0074	5.8×101	3.0×10^{-4}
1	pH12.5	20	1919	5.0974	5.6×10^{-1}	5.0 \ 10
8	環境摸擬水,	25	1291	5 0534	8 4 × 101	4 3 × 10-4
	pH12.0	20	1021	0.0004	0.4 \ 10	4.5 \ 10 -
9	環境摸擬水,	25	1915	5 0705	1.4×10^{2}	7.9×10^{-4}
	pH11.5	25	1515	0.0790	1.4 ^ 102	7.2 ~ 10 *

表 2.2-26 腐食試験サンプル(ステンレス鋼)の試験結果

新たに腐食試験を開始するものについては、特に炭酸イオンの影響等に着目し、腐食試験期間 (最大2年を目安)、試験温度(25℃、45℃、80℃を基本)、濃度等の試験条件を設定した。令和 5年度から新たに開始した腐食試験条件を表 2.2-27に示す。設定した腐食試験条件に基づきアン プルを作製し、恒温槽に保管して試験を開始した。

 項目
 試験条件

 供試材
 SUS304

 試験溶液
 炭酸ナトリウム+炭酸水素ナトリウム水溶液 (炭酸濃度:0.1 mol/L、pH: 9.2程度)

 試験温度
 45℃

 試験雰囲気
 窒素雰囲気;酸素濃度≦0.1 vol. ppm

表 2.2-27 腐食試験条件 (ステンレス鋼)

(3) 瞬時放出モデルの評価

1) ジルコニアの溶解特性評価

ハル酸化被膜、すなわち結晶性二酸化ジルコニウムの水への溶解挙動のうち、特にZr 溶解速度 に関する理解を深めることを目的とする。令和5年度は、溶解速度を評価するための実験・解析手 法を確立するため、結晶性二酸化ジルコニウムの溶解度が比較的高く、分析装置での定量が容易 な酸性pH 条件下で溶解試験を行った。ZrO₂粉末は、Chem 製、Aldrich 製、の2 種類を用いた (表 2.2-28)。

略称	製造元	製品名とロット
Chem	Chempur Feinchemikalien	酸化ジルコニウム(IV)/
	und Forschungsbedarf	99.995% Zirconium(IV)
	GmbH	oxide/ 99.995% Lot 301106
Aldrich	Aldrich	Zirconium(IV)oxide powder,
		5µm, 99% trace metals basis
		Lot BCCK2921

表 2.2-28 試験に用いたZrO2粉末一覧

各試料50 mg 程度を専用試料台に載せ、XRD測定を行った。測定条件は、管電圧50 kV、電流

40 mVとし、X線はCu-Ka 線 (λ=0.154059nm)を使用した。ステップ幅は0.01°、スキャン範囲 5°から80°、スキャン速度2.00°/min とした。Chem、Aldrich のそれぞれ測定したパターンは装 置付属のSmartLabII Powder XRD ソフトウエアを用いて結晶相を同定した。

図 2.2·37にXRD測定のピークおよびXRD解析プログラムによるピーク同定結果を示す。2θ が10°から80°において、全ての有意なピークはZrO₂のピーク位置と一致していることが確認さ れた。試験で用いた二酸化ジルコニウムは試薬級の純度を有していることが確認できた。



図 2.2-37 試験で用いた二酸化ジルコニウムのXRD 回折パターン (▼はm-ZrO2 を表す)

また、試料に電子線を照射した際に発生する反射電子または二次電子を利用して、粉末表面の 状態、形状を評価するため、SEM 法を適用した。用いた装置は、走査型電子顕微鏡(SEM, JEOL JCM-6000 NeoScope) とそれに接続されたエネルギー分散型X 線分析装置(EDX, JEOL EX-37001)である。微量の各粉末試料は、アルミニウム基盤上のカーボンテープに付着させ、マグネ トロンスパッタ装置(真空デバイス製MSP-1S)を用いてAu-Pd コーティングを行った。

SEM で確認した画像の一例として、2000 倍および6000 倍の倍率のものを図 2.2-38および図 2.2-39に示す。Chem 試料は、1 μ m 程度のものが多く観察された。一方、Aldrich の粒径は、 製品名称 (表 2.2-28) によれば5 μ m という記載がある。図 2.2-39のように約5 μ m の粒子は 一部確認できるが、非常に多くのより小さい粒子で構成されていることが分かった。



図 2.2-38 SEM 画像(Chem) 右; 2000 倍、左: 6000 倍



図 2.2-39 SEM 画像(Aldrich) 右; 2000 倍、左: 6000 倍

SEMを用いて得られた粒子画像の解析を行って粒子径分布を求め、粒子集団の特徴を代表する 平均粒子径を求めた。SEMで得られた画像に対し、画像処理用フリーソフトImageJ(日本語版) を用いた。まず、SEMで得られた画像から粒子形状の情報のみを取り出すため、解像度を下げる ことにより結晶粒をより明瞭に分離し、白黒の2 値化処理を行った。次に、編集した画像をもと に粒子ごとの粒子径を求めた。この際、球体近似を用いて結晶粒を楕円として認識させる作業を 行った。各楕円体の長径と短径を求め、その平均値を球体径として求める方法である。図 2.2-40 にSEM-EDX による試料観察像、および楕円近似を行った例を示す。



図 2.2-40 SEM 画像(左)とImageJ での画像解析例(右)

球形近似により得られた各試料の粒径を表 2.2-29にまとめた。さらに、粒子および結晶子のサ イズに基づき、それぞれの比表面積を計算した結果を記載した。以上の結果をもとに、後述する 溶解試験のバッチ浸漬における粉末試料の表面積 (m²)を見積もった。この値は、特にAldrich 試 料が特に高いことが分かった。サプライヤーの情報としての5 µm を表面積の指標として用いる と、相当の評価結果の違い(評価ミス)を生んでしまう可能性があることから、実際の分析に基 づく固相評価は非常に重要であると言える。

試料名	Chem	Aldrich
平均粒径 (µm)	0.58 ± 0.01	0.03 ± 0.67
比表面積 (m²/g)	0.132	1.356
実質表面積 (m²)	0.07	0.68

表 2.2-29 SEM画像解析により評価した各試料の粒径および表面積

浸漬試験では、各粉末試料を0.50g 秤量し、50 mL 広口アイボーイへ入れた。 浸漬液は過塩素 酸であり、そのpHを 0、 1、 2 に調整した。前述の通り、このpH 域では難溶な結晶性ZrO2の 有意な溶解反応が見込まれる。また一般に、過塩素酸イオンは金属イオンとの錯生成能が低いこ とが知られている。この選択は、固相から溶解したZrイオンの液相中での水酸化物イオン以外と の錯生成、すなわち、Zr の見かけの溶解度の更なる上昇への寄与の可能性、そして、固相表面の Zr の水界面における水酸化物イオン以外の陰イオンとの錯生成の考慮の必要性、をできる限り排 除する狙いがある。所定量の超純水 (Milli-Q) を容積1 LのPFA ボトルに入れ、HClO₄ 試薬(Wako, Lot169-00725)を加えて1 M HClO₄とした。これを用いて、0.1 M および0.01 M の HClO₄溶液 を調製した。イオン強度は全て0.1(NaClO₄)に固定した。25℃条件下でHClO₄溶液30 mL の入 ったプラスチック製容器にテフロン製撹拌子を入れ、マグネチックスターラーを用いて300 rpm で攪拌した。そこに、ZrO₂粉末0.5g を入れ、浸漬実験を開始した。なお、この固液比はZr の溶 「解度に十分達する固相量である。容器ZrO₂粉末を入れた時刻をt=0 とし、所定の時間間隔(例え ば、5 分、10 分、15 分、30 分、60 分、120 分、300 分・・・) で、マイクロピペットを用い て上澄み0.5 mL を分取した。分取液を直ちに3kDa NMWL (AmiconUltra)フィルターを付けた 1.5 mL スピッチに入れ、遠心分離を10 分間、13000 rpm の条件で行った。この限外ろ過フィ ルターを通過した液に濃硝酸(60%)を極微量滴下し、強酸性を保つことで、ろ液中のZr イオン のスピッチ内壁への吸着を防いだ。

ICP-MS によって測定した液相中のZr 濃度 (mol/dm³, M)の浸漬時間 (min) 依存性を図 2.2-41に示す。左はChem、右はAldrich 試料の結果である。pH0、pH1のZr 濃度は概ね定量下限 を上回る濃度を示した。pH1 でのZr 濃度は、pH0のそれよりもかなり低いことが分かった。 pH の増加と共に溶解度が低下することに加え、速度論的な要因も影響していると推察された。 また、表 2.2-29の実質表面積をもとに、縦軸を表面積あたりのZr 溶解量、すなわちZr 規格化溶 解量 (mol/m²) としてプロットした結果を図 2.2-42に示す。対数値としての溶解量の時間に対す る傾きは、概ね線形関係にあることが分かった。

今後は、プロトン濃度が関与する表面溶解反応機構について、異なるpH での溶解実験や、さらなる固相実験を行うなど、更なる検討が必要である。



図 2.2-41 Zr 溶解モル濃度の時間依存性(左: Chem、右: Aldrich)



図 2.2-42 Zr 規格化溶解量の時間依存性

2) 瞬時溶出率の低減対策

ハル酸化膜について、安全評価で想定されている瞬時放出の抑制・低減対策に資する試験等を 実施する必要がある。そのため、燃料被覆管(ジルカロイ)やハル酸化膜の特性等に留意し、模 擬材による予備検討として、ジルコニウム粉末と酸化ジルコニウム粉末を用い、熱間等方圧加圧 (Hot Isostatic Pressing、以下「HIP」という)法による瞬時放出抑制に関する方法論を検討し た。令和5年度は、予備試験として酸素濃度をパラメータとした複数の条件にて、ジルコニウム(Zr) 粉末と酸化ジルコニウム(ZrO₂)粉末の混合体のHIP固化処理を行い、今後の技術高度化や実用 化の観点から、酸化物の閉じ込め性や酸素の固溶等に関連した基礎データを取得した。

① HIP固化体の作製条件及び作製フロー

HIP固化処理条件を表 2.2-30に、固化処理の全体フローを図 2.2-43に示す。この条件で酸素濃度の異なるZr+ZrO2混合物のHIP処理を行った。ここで、Zr粉末のみの場合において酸素濃度が 16%となるのは、Zr粉末試薬に酸素が含まれるためである。

項目	条件
カプセルのサイズ	$50~{ m cm}^3$
カプセルの材質	ニオブ(Nb)
材料	Zr粉末+ZrO2粉末
酸素濃度 [at%]	6条件:16(Zr粉末のみ), 18, 20, 22, 25, 67(ZrO ₂ 粉末のみ)
真空加熱脱気処理	450℃×2時間、目標到達真空度=10 ⁻² Pa程度以下
HIP固化処理	1,700℃×175 MPa×3 時間

表 2.2-30 HIP固化処理条件



図 2.2-43 HIP固化体の作製フロー

図 2.2-44に示す試薬を用いてHIP処理材料を配合した。



高純度化学研究所製 純度98% ca.1µm

図 2.2-44 HIP処理に用いたZrおよびZrO2試薬

ジルコニウム粉末試薬は水浸された状態で販売されていたため、風乾処理して使用した。また、 酸素含有量を事前に測定し、酸化ジルコニウムの配合量を補正した。各配合条件に基づいて所定 量の試薬を秤量し、ビーカ内で薬さじを用いて混合した後、ニオブカプセルに充填した。配合結 果を表 2.2-31 に示す。

Run No	目標値		配合結果				
	酸素濃度	$ m ZrO_2$	Zr	$ m ZrO_2$	$Zr+ZrO_2$	$ m ZrO_2$	
110.	[at%]	[wt%]	[g]	[g]	[g]	[wt%]	
1	16	0	98.91	0.00	98.91	0	
2	18	1.8	127.64	2.34	129.98	1.8	
3	20	4.0	120.00	5.00	125.00	4.0	
4	22	6.2	112.56	7.45	120.01	6.2	
5	25	9.8	99.24	10.79	110.03	9.8	
6	67	100	0.00	27.59	27.59	100	

表 2.2-31 酸化ジルコニウム (ZrO₂) 粉末試薬の配合結果

カプセル充填後の状態を図 2.2-45に示す。また、HIP固化処理の手順の詳細を以下に示す。

- (i) 充填済みカプセルに蓋を仮止めし、加熱脱気用真空容器に仕込んだ。その際、加熱脱気用真空 容器とカプセルの隙間には熱伝導性を保つため、カッパーウールを充填した。
- (ii) 真空引き用の導管がついたSUSの蓋を加熱脱気用真空容器にTIG溶接した。
- (iii) 温度450℃、2時間の条件にて真空加熱脱気処理を行った。
- (iv) 真空加熱脱気終了後、アルゴン(Ar)ガスを容器内に導入し、冷却した。
- (v) ハンドグラインダーで加熱脱気用真空容器のSUS上蓋を切断し、カプセルを取り出した。
- (vi) カプセルの蓋をEB溶接した。
- (vii) 温度1,700℃、圧力175 MPaで3時間の条件にてHIP処理を行った。



図 2.2-45 カプセルへの充填状況

② HIP処理後の断面観察および組織観察

HIP固化処理後のカプセルを切断した断面の様子を図 2.2-46に示す。酸素濃度20 at%以上の Run.3、Run.4でクラックが大きく観察された。



図 2.2-46 HIP処理後の固化体断面

各固化体断面の偏光顕微鏡による観察結果を図 2.2-47に示す。固化体中央部では酸素濃度とと もに結晶粒が大きくなる傾向が見られた。また、酸素濃度25 at%のRun.5の25倍観察像では、マ トリクス(Zr+ZrO₂混合物)に空孔が多く疎な構造となっていた。



図 2.2-47 固化体中央部のミクロ組織観察結果(偏光観察) (Run.1~5)

(4) 炭素14化学形態の評価

1)計算科学的アプローチによる炭素14化学種の生成プロセスの文献調査

C-14化学種の生成プロセスについて計算科学を適用して検討した事例について幅広く調査した。 基礎的な検討例として、ジルコニウム(Zr)およびその酸化膜であるジルコニア(ZrO₂)中の炭素の拡 散挙動を計算科学的に検討した事例がある。Xu et al., (2016)は計算科学を適用し、ジルコニウム 完全結晶中の炭素の拡散係数は50℃で10⁻³⁴ cm²/s以下で非常に小さく、C-14は常温では全く動か ないと報告している。Plantet et al., (2020)は同様のアプローチを用いて、ジルコニア中の炭素の 拡散係数は50℃で10⁻²² cm²/s程度で非常に小さいこと、表面付近の炭素はバルクから表面方向に 向かって拡散する傾向があること、ジルコニア表面における炭素の拡散係数は比較的大きく50℃ で10⁻¹⁵ cm²/s程度であり、常温でも長期的には動き得ること、を報告している。これらの研究は 金属中の炭素の拡散挙動をシミュレーションする上で基礎的な知見を提供している。一方で、炭 素化学種の生成プロセスについては未検討で、今後の課題に位置付けられていることが分かった。

調査範囲を放射性廃棄物処分以外の分野に広げ、様々な材料中に含まれる炭素が炭素化学種に 変化するプロセスについて、計算科学的に検討した事例を調査した。半導体(SiC, SiO2)の加工 プロセス(エッチングプロセス)の事例(Ito et al., 2016, 伊藤 2018)では、電子状態を計算に 取り入れることで未知の化学反応を考慮でき、かつ高速計算が可能なTight-Binding量子分子動力 学法を適用している。SiO2エッチングプロセスでは、CF2およびCF3ラジカルの照射により、SiO2 表面のSi-O結合の切断や、C-O結合の生成、さらにはCOF₂分子などの副生成物の蒸発が観察され たと報告している(伊藤 2018)。また、エンジンやハードディスクなどの摺動部の低摩擦化・低 摩耗化のために利用が期待されているダイヤモンドライクカーボンの摩耗プロセスの例(Wang et al., 2019) では、実践的な材料設計に必要な多数の分子を対象とした大規模計算を行うため、 各原子間に作用するポテンシャル関数としてReactive Force Field (ReaxFF)を適用し、上述の量 子化学的手法のような計算負荷が大きい手法を用いなくても多数の分子の反応を考慮したシミュ レーションが行われている。その結果、ダイヤモンドライクカーボンの摩擦により、メタン・エ タン・エチレンなどの炭化水素が生成することが示されており、さらにシミュレーションで求め た各炭化水素の放出割合が実験結果と一致したと報告している(Wang et al., 2019)。また表面 に吸着した水素が炭化水素として放出されることにより、炭素同士の接着が加速されて機械的摩 耗が生じる過程が明らかにできたとしている。

これらの先行研究は、材料中の炭素が材料表面で化学反応を起こし有機炭素として放出される プロセスを計算科学的に検討可能なことを示している。すなわち、未知の化学反応を考慮可能な 量子分子動力学計算が、ハル等廃棄体から放出される炭素14化学種の生成プロセスを明らかにす るために有望と考えられる。そこで、上述の計算科学的アプローチ(Ito et al., 2016,伊藤 2018, Wang et al., 2019)がハル等廃棄体にも適用可能かどうかについて、これらの研究の責任著者で ある東北大学金属材料研究所の久保百司教授に相談した。その結果、久保研究室のノウハウを活 用できる可能性が高いことが判明したため、令和6年度から久保研究室と協力して計算科学研究を 実施することで合意した。一方、計算科学で対象とする時間スケールは数ナノ秒程度であり、ハ ル・エンドピース中の炭素の拡散や腐食速度は、計算科学で対象とする時間スケールと比較して 非常に小さいという課題があることが明らかとなった。一方で、炭素の拡散や金属腐食のような 常温では速度(頻度)が小さい現象は原子数を増やすことで追跡できる可能性があり、スーパー コンピュータによる大規模計算が将来的に有効となる可能性がある。

2) AMSによる炭素化学形態評価

① 検討対象とする炭素化合物の文献調査

AMSを利用した炭素化学形態評価を行うためには、あらかじめ炭素を化学形態毎に分離回収す る必要がある。液体クロマトグラフィーを利用して炭素化合物を成分ごとに分離する場合、条件 検討のために目的とする成分を明確にする必要がある。令和5年度は、文献調査を実施することで、 液相中に含まれていると期待される化合物をリストアップし、それらの分離が可能な試験条件を 検討した。

文献調査によって検討対象とした炭素化合物の一覧を表 2.2-32に示す。炭素数が2以下の化合物が支配的であったことから、令和5年度は炭素数2までの化合物に絞って分離手法を検討することとした。

確認方法	化合物	分子式	採否	引用
	ギ酸	НСООН	対象	文献1
	酢酸	CH₃COOH	対象	文献1
	プロピオン酸	C ₂ H ₅ COOH	対象	文献1
	炭酸イオン	CO ₂	対象	文献1
COLD 実験的に確認	ホルムアルデヒド	CH ₂ O	対象	文献2
大同次ロリレニル自己の	酢酸	CH₃COOH	対象	文献2
	シュウ酸	$C_2H_2O_4$	対象	文献2
	グリコール酸	$C_2H_4O_3$	エチレングリコールで代表	文献2
	乳酸	$C_3H_6O_3$	非対象	文献2
熱力学計算	エタノール	C ₂ H ₅ OH	対象	文献1
	酢酸Na	CH₃COONa	酢酸で代表	文献1
	酢酸	CH₃COOH	対象	文献1
	ギ酸	НСООН	対象	文献1
	メタノール	CH₃OH	対象	文献3
文献研究から 着目	エタノール	C ₂ H ₅ OH	対象	文献3
	ギ酸	НСООН	対象	文献3
	プロピオン酸	C ₂ H ₅ COOH	対象	文献3
	酪酸	C ₃ H ₇ COOH	非対象	文献3
	吉草酸	C ₄ H ₉ COOH	非対象	文献3

表 2.2-32 文献調査から検討対象とした炭素化合物の一覧

文献 1: 原子力環境整備促進・資金管理センター(2009) 文献 2: Cvetkovic et al. (2018) 文献 3: Wieland (2013)

② HPLCによる炭素化合物の分離

高速液体クロマトグラフィー(HPLC)を用いた具体的な分離条件を表 2.2-33に示す。検出器に は化合物によらず応答性を持つ示唆屈折計を使用した。また、移動相にリン酸を用いることとし たことから、炭酸を分離検討の対象から除くこととした。

検討対象とした炭素化合物単体の示唆屈折計タイムスペクトルを取得し、全化合物のタイムスペクトルを重ね合わせた結果を図 2.2-48に示す。令和5年度は主にAMS測定のバックグラウンド

を把握することが目的であるため、フラクションB~Eに関しては2種類の化合物を1つのフラクションにまとめて回収することとした。すなわち、11種類(①~⑪)の化合物を7つ(A~G)のフラクションに分画した。

次に、対象とする11種類の化合物を混ぜ合わせた混合試料を分離した際のタイムスペクトルを 図 2.2-49に示す。混合試料のタイムスペクトルは、化合物単体のタイムスペクトルを重ね合わせ た場合と一致し、分離対象とする化合物間での相互作用はHPLCでの化合物の分離に影響しない ことが確認出来た。

分離カラム :	Shim-pack SCR-102H
ガードカラム :	Shim-pack SCR (C)
検出器 :	分光光度計 SPD-10AV(島津)
フラクションコレクター :	FRC-10A(島津)
カラム温度 :	50°C
移動相:	リン酸 5.8g/L
流量:	0.55ml∕min
試料導入量:	0.5ml

表 2.2-33 HPCLによる炭素化合物の分離条件



図 2.2-48 単一有機化合物のHPLC分離試験結果

2-74





③ AMSによる各フラクションのバックグラウンド¹⁴C測定

混合試料をA~Gのフラクション毎に分離し、精製してAMS試料とした。AMS分析結果を表 2.2-34に示す。AMS分析結果は8.1~20.5 pMCとなった(100 pMC=13.56 Bq/g-carbon)。バッ クグラウンド相当濃度に当たる、最大のpMCを記録したGフラクション(エタノール)の放射能 換算値は3.5×10⁻⁴ Bq/試料となる。これはLSCに期待される検出限界(0.1Bq/試料)よりも2桁程 度低い値であり、各フラクションのC-14を定量できる見通しが得られた。

今後は操作BGの安定性や実試料を分析した際のメモリー効果の影響などを確認していくことで、より詳細なC-14化合物の分離条件を検討していくことが必要となると考えられる。

No.		рМС	Bq/試料	備考
А	シュウ酸	10.3	1.8E-04	
В	グリオキシル酸+グリオキサール	8.7	1.5E-04	
С	ホルムアルデヒド+ギ酸	12.2	2.1E-04	100 nMC = 1356 Bg/g
D	酢酸+エチレングリコール	8.1	1.4E-04	DC-76mg使用
Е	プロピオン酸+アセトアルデヒド	9.5	1.6E-04	D.07.011g区用
F	メタノール	11.3	1.9E-04	
G	エタノール	20.5	3.5E-04	

表 2.2-34 HPLCで分離したフラクション(A~G)のAMS分析結果

(5) 廃棄体モデルの代表性の検討

本事業では放射化金属廃棄物の特性評価のため、商業炉で照射された使用済燃料構造材を用いた分析及び解析評価を行っている。本事業で使用できる照射材は、企業等の照射後試験施設で保

管・廃棄対象となったものであり、照射条件等の選択肢には制限がある。また、電力会社や燃料 メーカー等の機微情報を含むことから、照射材の燃焼履歴や材料組成(放射化生成物の親元素で ある不純物組成含む)の利用・開示にも制限がある。このような制限の元で研究開発を進めてい る観点から、利用している照射材の代表性について評価し、得られたデータの成果反映について 検討しておくことは重要である。ここでは、過去の文献からこれまでに発生した使用済燃料の燃 焼度を調査し、本事業で使用している照射材と比較検討を行った。

図 2.2-50に、燃焼度の調査結果(桜木ほか、2022)と本事業(先行事業を含む)で使用してい る照射材との比較を示す。文献情報はPWRとBWRに区別し、国内の各発電所で公開されている使 用済燃料の各年度の貯蔵量から、当該年代の代表的な燃料型式を参考に推定した結果(燃焼度は 取出し平均燃焼度であり実測値とは異なることに留意)について統計処理を行ったものである。 本事業で使用した照射材の燃焼度(燃料集合体平均燃焼度であることに留意)は、BWR STEP I 39.4 GWd/t、BWR STEP III 35.0 GWd/t、BWR STEP III 53.0 GWd/tの3種類である。情報があ るものについては図の破線で燃料棒平均燃焼度も示す。また、参考情報として、第2次TRU廃棄物 処分研究開発(電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構,2005)の安全評価の根拠として扱われ たPWR燃料被覆管の燃焼度(47.9 GWd/t)(Yamaguchi et al., 1999)も合わせて示す。文献の BWR燃料の燃焼度は40~45 GWd/tが代表的であり、本事業での照射材は低燃焼度と高燃焼度に わかれているが、これは使用したBWRの照射実験がこのような低及び高燃焼度における燃料のふ るまいを評価するために行われたことによる。このように、本事業で使用する照射材に完全な代 表性を求めることは難しいが、C-14のような放射化生成物の生成量は照射量(燃焼度)に比例し て増加することが知られており、低燃焼度側と高燃焼度側から内挿的に平均燃焼度の挙動を評価 することは可能である。ただし、燃料被覆管の照射脆化や水素化物による影響、ペレット・被覆 相互作用(PIC: pellet-clad interaction)などのより複雑・詳細な照射影響の評価が必要な場合には、 燃焼度の代表性について慎重に考慮することが重要となる。

なお、代表性については材料組成や使用済燃料の再処理までの冷却期間等も重要となる可能性 がある。材料組成については既述のように電力・メーカー等の機微情報に関連する。冷却期間に ついては、C-14のような比較的半減期が長い核種についての影響は限定的であるが、ハル・エン ドピース(ハル等廃棄体)は比較的発熱が高く、Am-241のビルドアップ(Sakuragi et al., 2024) とハルへの移行率(Hirano et al., 2009)が重要となる可能性があり、今後の課題である。また、 今後、研究炉を利用して照射条件や材料組成をコントロールした分析評価を行う事で、種々の不 確実性を低減できることから、商業炉データの補完や代表性の議論に資することが期待される。



図 2.2-50 2020年までに発生した使用済燃料の燃焼度の推定値(桜木ほか, 2022を編集) と本事業で使用した照射材の燃料集合体平均燃焼度

(6) まとめと今後の課題

TRU 廃棄物の地層処分安全評価への反映を念頭に、先行事業である TRU 事業等で得られた成果と課題を踏まえ、TRU 廃棄物に固有の課題を対象にした核種移行評価に関わる個別現象評価技術の開発や廃棄体からの核種放出挙動評価技術の開発を行った。

TRU 廃棄物の廃棄体からの核種放出挙動評価技術に係る令和5年度の成果としては、新たに 照射済み PWR 構造材の候補を選定し、ホットセル内での作業を想定したモックアップを開始す るとともに、未照射試料の腐食試験データを拡充し、新たに炭酸イオンの影響に着目した腐食試 験を開始した。ハル酸化膜の瞬時放出率の低減対策では、ジルコニアの溶解速度に関するデータ を取得した。C-14 化学形態については、極低濃度のC-14 化学種の分析技術の高度化を図るとと もに、計算科学的アプローチによるC-14 化学種の生成プロセス解明研究を開始した。廃棄体モ デルの代表性については、これまでに発生した使用済燃料の燃焼度を調査し、本事業で使用して いる照射材と比較検討した。

今後の課題としては、照射済み PWR 構造材および未照射試料を用いた腐食試験から調和溶出 モデルの高度化を図ること、瞬時放出率低減に資する知見を拡充することが挙げられる。また、 C-14 化学種の分析技術を実サンプル分析に適用できるレベルに引き上げるとともに、C-14 化学 種の生成プロセスに関する簡略モデルを構築すること、廃棄体モデルの代表性に関するデータ補 完のための研究炉の活用等について調査することが課題として抽出された。

2.3 ニアフィールド複合現象・核種移行の総合評価技術開発

ニアフィールドにおける複合現象・核種移行の総合評価技術開発では、人工バリア及び周辺岩 盤からなるニアフィールドにおいて、熱的、水理学的、力学的及び化学的なプロセスが相互に影 響を及ぼす複合現象が生じ、それに伴うニアフィールドの長期的な環境変遷を評価するための技 術開発と、そのような環境変遷を踏まえた核種移行挙動評価を行うための技術開発を行う。前者 に関わる技術開発は、2.3.1項で述べるニアフィールド地球化学・物質移行モデルの高度化の中で 検討する。また、後者に関わる技術開発については、2.3.2項で述べるニアフィールド複合現象・ 核種移行の統合評価技術の高度化で行う。2.1.1項で述べた通り、上述した技術開発は、先行事業 であるNF事業で検討が行われ、ニアフィールド環境変遷評価を踏まえた核種移行挙動の評価が可 能なプロトタイプシステムが開発された(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;2020;2021;2022;2023)。本事業では、NF事業で行われたプロトタイプ システムの開発を通じて抽出・整理された課題を基に、それらの課題を解決する上で取り組むべ き内容を検討し、本事業における主な実施項目として整理し、検討を進めることとした。

2.3.1 ニアフィールド地球化学・物質移行モデルの高度化

(1) 背景と目的

処分場閉鎖後の環境変遷としては、閉鎖後初期の熱・水・応力・化学の状態が大きく変化する 過渡期の状態変遷を経た後、閉鎖後長期における地温・飽和・還元性雰囲気の状態に変遷すると 考えられる(原子力発電環境整備機構・日本原子力研究開発機構、2012)。このような環境変遷 のうち、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がある現象として、

「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」が整理され、先行事業 におけるNF事業でも、これら相互作用に係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)。その中では、これらの相互 作用に関わる複合現象評価にあたり重要となるプロセス・現象の相互関係にかかるインフルエン スダイヤグラムを活用し、様々なプロセス・現象を想定したシナリオ(緩衝材変質シナリオ)に 基づく緩衝材の長期的な状態変遷の解析的評価が行われた(日本原子力研究開発機構・原子力環 境整備促進・資金管理センター,2021;2022;2023)。また、このような解析的評価を通じ、緩衝 材の状態変遷評価への影響が相対的に大きいと考えられるプロセス・現象の抽出等も試行される と共に、諸外国における類似した研究事例の文献調査を行い、これら相互作用に関わるプロセス・ 現象理解の観点及びモデル化の観点での現状と課題についても整理された(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,2023)。

上述したようなNF事業を通じて整理された「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」の双方に共通し、プロセス・現象理解及びモデル化の両観点でも重要性の 高い課題の一つとして、水理・物質輸送-化学反応に伴う異なるバリア材の境界領域における間 隙変化(間隙閉塞)の評価が挙げられた(日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管 理センター,2023)。これらの相互作用に伴うバリア材境界領域及び緩衝材中の間隙変化は、境界 領域及び緩衝材中での間隙水のpH・水質の変化や鉱物の溶解・沈殿反応と深く関係し、また、環 境変遷(状態変遷)を踏まえた核種移行解析における物質移行特性(拡散係数や収着分配係数) にも影響を与える。

このため、本事業におけるニアフィールド地球化学・物質移行モデルの高度化にあたっては、 先端分析・計算科学等の進歩により明らかになりつつある圧縮ベントナイトの微細間隙構造を踏 まえた間隙水化学モデルの高度化を図ると共に、それを踏まえた物質移行モデルの改良により、 バリア材境界領域及び緩衝材中の間隙変化の評価に対し、現象理解の深化とそれを踏まえたモデルの高度化に基づき、より現実的な評価が可能なモデルを構築することを目的とする。なお、圧縮ベントナイトの微細間隙構造と物質移行特性との関係については、2.2.1項のニアフィールド環境変遷を考慮した核種移行個別現象評価技術の開発で実施される個別現象モデル開発と密接に関係するため、相互に連携しながら進めていく。

圧縮ベントナイトの微細間隙構造を踏まえた間隙水化学モデルの高度化を図るため、令和5年度 は、まず国内外における類似事例を対象にした文献調査を行い、国内外を踏まえた最新のモデル 化の考え方やモデル化手法について整理した。また、文献調査の結果を基に、圧縮ベントナイト の微細間隙構造に関わる複数のモデルを対象とし、異なるモデルによる間隙水化学の予察解析を 試行し、概念モデルやそれに基づく数値モデルの違いによる間隙水化学への影響について検討し た。さらに、令和5年度に実施した文献調査及び複数の異なるモデルによる間隙水化学の予察解析 の結果を踏まえ、次年度以降、地球化学・物質移行モデルの高度化を図る上での計画についても 検討した。以下に、これらの検討結果をまとめる。

(2) 圧縮ベントナイトの微細間隙構造を踏まえた間隙水化学のモデル化に関わる文献調査

圧縮ベントナイトは、水を含むことで膨潤し、核種移行の支配的なプロセスを拡散にすること が期待され、また含有される粘土鉱物が核種を収着することで移行を遅延することが期待されて いる。圧縮状態では、固液比(S/L比)が大きくなり、圧縮ベントナイト中の間隙水の割合が少な くなるため、間隙水の水質を実験的に評価することが難しくなる。このため、従来から、固液比 が小さい状態(ベントナイト粉末を用いたバッチ系)での実験的評価に基づき、間隙水化学を評 価するためのモデル開発が進められてきた(例えば、Wanner et al., 1994; Bradbury and Baeyens, 1997; Oda et al., 2000)。これらのモデルでは、圧縮ベントナイト中での間隙水化学を支配する 主要な反応として、粘土鉱物によるイオン交換反応や粘土鉱物の結晶端面(エッジ)における酸 塩基反応、随伴鉱物として含まれる方解石・石膏や可溶性塩(NaCl, NaSO4, CaCl, CaSO4等)の 溶解反応等が考慮され、固液比を振った実験結果との比較により、モデルの検証が行われた。ま た、このような方法により検証されたモデルを基に、地層処分の安全評価で想定される高固液比 の条件における圧縮ベントナイト中の間隙水の設定も行われた(例えば、核燃料サイクル開発機 構, 1999; Bradbury and Baeyens, 2002)。上述したモデルでは、圧縮ベントナイト中の間隙と しては、1つの間隙を想定し、この間隙中で前述したような主要な化学反応が生じ、間隙水質が形 成されると想定されている。

一方、上述したようなモデルでは、高固液比の圧縮状態におけるベントナイト中の間隙水を評価する上では、幾つかの課題も示された(Wersin et al., 2004)。例えば、水を含むことでベントナイト中の粘土鉱物が膨潤し、それに伴い、水の大部分は粘土鉱物の層間に存在すると想定されるが、その場合、水中の陰イオンは粘土鉱物表面の負電荷の影響により、層間から排除されると考えられるものの、そのような効果はモデルに取り込まれていない。また、圧縮状態で粘土鉱物同士が非常に近接する状態では、粘土鉱物表面に分布すると想定される電気二重層(または拡散二重層、Diffuse Double Layer: DDL)の影響も無視できない可能性があり、その場合、層間の場合と同様に陰イオン排除の影響を考慮する必要がある。これらの課題は、圧縮ベントナイトが水を含んで膨潤した際の微細間隙構造と関係する。すなわち、圧縮ベントナイト中の間隙は、粘土鉱物の層間に相当する間隙、粘土鉱物表面の電気的作用の影響をうけた間隙(DDL間隙)、粘土鉱物や随伴鉱物等の鉱物粒子間の間隙(粒子間間隙)といった複数の間隙から構成されると想定され、各々の間隙には各間隙の特徴・性質を踏まえた水が分布すると考えられる。このため、

近年、先端分析等による圧縮ベントナイトの微細間隙構造の観察結果に基づき構築された概念モ デルに基づき、間隙構造とその影響を考慮した間隙水化学のモデル開発が進められている(例え ば、Birgesson and Karland, 2009; Birgersson, 2019; Wersin et al., 2016; Gimmin and Alt-Epping, 2018; Idiart et al., 2019; Tournassat and Appelo, 2011; Appelo, 2013; Tournassat and Steefel, 2015)。ここでは、既往の文献を調査することにより、従来から用いられている圧縮ベ ントナイト中の間隙を単一の間隙として仮定したモデルに加え、近年検討されている複数の間隙 を想定した間隙水化学モデルについて、各モデルにおける概念モデルや各々のモデルにおける特 徴(長所・短所)等について、情報を整理した(表 2.3-1)。

間隙モデル	概念図	モデルの特徴(長所・短所)	参考文献			
Single porosity (bulk)		 ・長所:最もシンプルなモデルであり、粒子間間隙(自由)水の評価として、多数の適用例あり。 ・短所:圧縮ベントナイト中のミクロな間隙構造の影響は反映されていない(陰イオン排除の効果無) 	- Oda et al. (2000) - Savage et al. (2002) - Arcos et al. (2003) - Salas et al. (2014)			
Single porosity (Inter Layer: IL)	(ლ101) サイン 一部では、間隙としては 層間のみが存在と仮定	 ・長所:高圧密(高固液比)条件での検証例あり。陰イオン排除の効果を考慮可。比較的シンプルなモデル ・短所:鉱物の溶解・沈殿の影響の考慮不可 	- Birgersson and Karnland (2009) - Birgersson (2017)			
Double porosity		 ・長所: 圧縮ベントナイト中のミクロな 間隙構造の影響を考慮(陰イオン 排除の効果有)。鉱物の溶解・沈殿 の影響考慮可 ・短所:モデルが複雑、必要なパラ メータが多い 	- Wersin et al. (2016) - Gimmi and Alt- Epping (2018) - Idiart et al. (2019)			
Multi porosity	 『聞水 2000 日本 日日水 (・長所: 圧縮ベントナイト中のミクロな 間隙構造の影響を考慮(陰イオン 排除の効果有)。鉱物の溶解・沈殿 の影響考慮可。概念は最も現実的。 ・短所:モデルが複雑、必要なパラ メータが多い 	- Tournassat and Appelo (2011) - Appelo (2013) - Tourassat and Steefel (2015)			

表 2.3-1 圧縮ベントナイト中の間隙水化学のモデル化における間隙の取扱いに関わる 複数の概念モデルの比較

1) Single porosityモデル(Bulk)

従来から幅広く用いられている間隙水化学モデルであり、圧縮ベントナイト中の物理的な全間 隙をバルク間隙として1つの間隙として取り扱う。バルク間隙中の間隙水は、随伴鉱物等の溶解・ 沈殿反応、イオン交換反応、酸塩基反応(表面錯体反応)等を平衡論的に扱いモデル化される。 このモデルの長所としては、最もシンプルなモデルであり、粒子間間隙(自由間隙)水の評価と して、多くの適用例が存在する(例えば、Oda et al., 2000; Savage et al., 2002; Arcos et al., 2003; Salas et al., 2014)ことが挙げられる。一方、短所としては、圧縮ベントナイト中の微細(ミク ロ)な間隙構造の影響は反映されていないため、圧縮ベントナイトに含まれる粘土鉱物であるモ ンモリロナイト表面の負電荷の影響は考慮されていない。このため、この様な概念モデルを圧縮 ベントナイト中での核種の拡散等の核種移行評価に適用するには、層間やDDL間隙からの陰イオ ン排除の効果は含まれていないことに留意する必要がある。
2) Single porosityモデル (Inter layer)

E縮ベントナイト中の間隙を1つの間隙で代表させるという意味では、前述のモデルと概念的に は同様であるが、このモデルでは、水を含むことでベントナイト中の粘土鉱物が膨潤し、それに 伴う間隙構造の変化を考慮し、飽和したベントナイトでは、物理的な全間隙のほとんどが粘土鉱 物の層間の間隙に支配されるという概念に基づいている。このため、モデル化にあたっては間隙 として層間(Inter layer)のみを考慮する。このモデルは、Birgersson and Karnland (2009)ら により提案され、粘土鉱物が半透膜のような効果を果たすことで、層間の水とそれ以外の外部の 水との間で浸透圧(Osmosis pressure)により、平衡状態に至るといったDonnan(ドナン)平衡 の仮説(モデル)に基づいている。ドナン平衡及びドナン間隙の概念の例を図 2.3-1に示す。



図 2.3-1 ドナン平衡及びドナン間隙の概念の例

ドナン間隙については、間隙構造の取扱いとそのモデル化において、2つの考え方があり、 Birgersson and Karnland (2009)のモデルでは、DDL間隙は考慮されておらず、この場合のド ナン間隙は層間のみである。一方、後述するDoubly porosityモデルでは、層間とDDL間隙を合わ せて、ドナン間隙として扱っている。Birgersson and Karnland (2009)のモデルでは、外部水 (ベントナイト間隙水以外の水。例えば、地下水)とベントナイト間隙水(層間水)との間での イオン交換反応を想定し、モデル化されている。一方、随伴鉱物等の溶解・沈殿反応や酸塩基反 応については、モデルの中で考慮されていない。このモデルの長所としては、1つの間隙で代表さ せるという意味でモデルとしてもシンプルであり、また非常に固液比の大きい圧縮状態(例えば、 乾燥密度が1.8~2.0 Mg/m³)に対するモデルの検証例も示されおり、ドナン平衡の仮説に基づく 層間からの陰イオン排除の効果も考慮されている点が挙げられる。なお、圧縮ベントナイトの微 細間隙構造を考慮する場合、粒子間間隙のような相対的に間隙径の大きい間隙が支配的になる条 件(低圧縮状態)では、このモデルの概念は適用できないという短所がある。また、随伴鉱物等 の溶解・沈殿反応も考慮されておらず、この点も低圧縮状態で粒子間間隙(自由間隙)水の評価 が重要になる場合、モデルとしての不十分性があると考えられる。

3) Double porosityモデル

このモデルは、圧縮ベントナイト中の間隙をドナン間隙と粒子間間隙の2つに分けて取扱うモデ ルである。このモデルにおけるドナン間隙の概念は、図 2.3-1に示す様な層間とDDL間隙を合わ せた間隙となる。このモデルでは、随伴鉱物等の溶解・沈殿反応や酸塩基反応については、粒子 間間隙(自由間隙)水の評価の中で考慮され、自由水の中で電荷バランスが取られる。イオン交 換反応については、ドナン間隙水と自由水との間で考慮される。このモデルは、前述したSingle porosityモデルと後述するMulti porosityモデルの中間的な位置づけのモデルでもあり、近年、反応輸送解析モデルへの取り込み等も行われている(Wersin et al., 2016; Gimmi and Alt-Epping, 2018; Idiart et al., 2019)。このモデルの長所としては、比較的幅広い固液比の条件に対するモデルの検証例も示されおり、ドナン平衡の仮説に基づく層間からの陰イオン排除の効果も考慮されている点が挙げられる。一方、短所としては、Single porosityモデルに比べてモデルが複雑となり、モデル化にあたって必要なパラメータが多くなる点が挙げられる。ちなみに、2.2.1項のニアフィールド環境変遷を考慮した核種移行個別現象評価技術の開発において、圧縮ベントナイト中における核種の収着・拡散現象の個別現象理解で用いられているISD (Integrated Sorption and Diffusion)モデル(Tachi et al., 2014)は、概念的にはこのモデルと同様であるが、モンモリロナイト表面の負電荷の影響をPoisson-Boltzmann式により評価しており、ドナン平衡のように負電荷の影響を均一化して取り扱う場合に比べて、より現実的な精緻な概念を取り込んでいると言える。

4) Multi porosityモデル

このモデルは、圧縮ベントナイト中での微細間隙として想定される3つの間隙(層間・DDL・粒 子間)を全て考慮したモデルである(Tournassat and Appelo, 2011; Appelo, 2013; Tournassat and Steefel, 2015)。上述したDouble porosityとの違いは、DDL間隙を考慮し、モンモリロナイ ト表面の負電荷の影響をより現実的に評価した点にある。このモデルの長所としては、モデルの 概念としては、最も現実的に圧縮ベントナイトの微細間隙を考慮しており、層間やDDLからの陰 イオン排除の効果も考慮され、随伴鉱物等の溶解・沈殿反応も考慮されており、比較的幅広い固 液比の条件にも適用可能なモデルであると考えられる。一方、短所としては、モデルが複雑であ り、モデル化にあたり必要なパラメータも多いため、現時点では、反応輸送解析モデルへの取り 込み等は非常に限定的である点が挙げられる。

(3) 圧縮ベントナイトの微細間隙構造に関わる複数のモデルによる間隙水化学の予察解析

前述した通り、文献調査により、圧縮ベントナイトの微細間隙構造に関わる取扱いの違いによ り、間隙水化学をモデル化する上でのモデルとして、4つの概念モデルに分類された。ここでは、 各々の概念モデルに基づく間隙水化学のモデル化の概要を説明すると共に、各モデルにより試算 された間隙水水質を比較した結果について説明する。なお、圧縮ベントナイト中の間隙水化学の モデル計算にあたっては、ベントナイトと反応する地下水として、第2次取りまとめにおけるレフ ァレンスケースの地下水として設定された降水系地下水(FRHP)及び地質環境変更ケースの地 下水の一つである海水系地下水(SRHP)とし、圧縮ベントナイトは第2次取りまとめにおける緩 衝材仕様である珪砂混合のKunigel V1(乾燥密度1.6 Mg/m³)とした(核燃料サイクル開発機構、 1999)。また、解析コードとしては、PHREEQC(Parkhurst and Appelo, 2013)を用い、熱力 学データベースについては、原子力機構が開発整備中のデータベースであるPHREEQC20v12(日 本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2020)を用いた。

1) 各モデルによる間隙水化学のモデル化の概要

以下に4つの概念モデルに対するモデル化の概要を簡単にまとめる。ここでは、今回の計算において新たに考慮した手順や各モデル計算において他のモデルとは異なる特徴的な部分の計算条件等を中心に整理した。各モデルの詳細については、引用元となった文献に記されているため、そちらを参照頂きたい。

① Single porosityモデル (Bulk)

このモデルとしては、Oda et al. (2000) によるモデルを用いた。Odaらのモデルは、第2次取 りまとめにおける緩衝材の間隙水化学モデルの設定に用いられたものであり、モデル化にあたり 用いられたパラメータ(陽イオン交換反応や表面錯体反応定数、可溶性塩の種類や含有量等)や モデル化の概要は、ここでは割愛する。なお、今回のモデル計算にあたっては、圧縮ベントナイ トの初期含水比(含水比7.8 wt%程度を想定)の状態で、ベントナイト中の間隙に初期に含まれる 水(蒸留水を仮定)とベントナイトとの反応を計算し(計算により得られた間隙水をここでは、 便宜的に「残留間隙水」と称す)、その後、残留間隙水と地下水を混合させた後、混合水とベント ナイトとの反応を再度計算する方法を採用した。このモデル化の方法は、より現実的な状態を模 擬したモデル化の手順であり、近年、POSIVAによる圧縮ベントナイト中の間隙水化学をモデル 化する上での手順(POSIVA, 2021)として利用されているため、ここでも同手順を参考にした。

Single porosityモデル (Inter layer)

このモデルとしては、提案者であるBirgersson and Karnland (2009)のモデルに準拠した。 このモデルでは、基本的にベントナイト中の間隙水としてはモンモリロナイトの層間水のみを想 定し、層間水と外部水(地下水)との間のドナン平衡の仮定に基づき、層間水が計算される。す なわち、下式の様に、ドナン係数(fb)に基づき計算される。

 $a_i^{int} = f_D^{-z_i} \cdot a_i^{bulk} \tag{2.3-1}$

ここで、 a_i^{int} は層間水中の化学種iの活量、 $f_D^{-z_i}$ は電荷Zの化学種iに対するドナン係数、 a_i^{bulk} は外部水中の化学種iの活量である。

ドナン係数は、外部水の組成とモンモリロナイトの層間のCECと関係し、下式の関係がある。

 $\sum_{i} z_{i} \cdot \Gamma_{i} \cdot f_{D}^{-z_{i}} \cdot c_{i}^{bulk} = c_{IL}$ ここで、 Γ_{i} は化学種iに対する外部水と層間水の活量係数の比であり、 c_{i}^{bulk} は外部水の化学種i

の濃度である。モンモリロナイトの層間のCECは、下式で与えられる。

$$c_{IL} = \frac{c_{EC} \cdot \rho_D}{\phi_{IL} \cdot \rho_{wIL}}$$
(2.3-3)

ここで、 c_{IL} は層間水1kgあたりの当量に相当する。 ρ_D はベントナイトの乾燥密度、 ϕ_{IL} は層間間隙、 $\rho_{w,IL}$ は層間水の密度である。

外部水の組成が与えられれば、上式の関係からドナン係数が導出され、それに基づき層間水を 算出することができる。なお、このモデルを適用する際の不確定な要因として、層間水の溶液に 対する活量係数の設定が挙げられている。通常、外部水と同様の活量係数に基づき計算される場 合が多いが、後述するように、粘土鉱物表面での負電荷の影響を考慮したモデルでは、層間水の イオン強度は外部水に比べるとかなり高くなることが想定される。このため、層間水の溶液に対 する活量係数については、外部水に対する活量補正方法とは別のよりイオン強度が高い条件で適 用される活量補正方法や係数が用いられる場合もある。

Double porosityモデル

このモデルとしては、ここでは、Idiart et al. (2019)のモデルを用いた。このモデルは、前述のドナン平衡を仮定したモデルに加え、粒子間間隙における随伴鉱物等の溶解・沈殿反応やモンモリロナイトの酸塩基反応も考慮されたモデルである。Birgersson and Karnland (2009)のモデルとの違いは、ドナン平衡における層間水との平衡を仮定する水は、粒子間間隙(自由間隙)水となる。

④ Multi porosityモデル

このモデルとしては、Appelo (2013) のモデルに準拠した。このモデルでの特徴としては、3つの間隙を想定し、各間隙における間隙水を推定する点である。すなわち、全間隙 (ϕ_{tot}) は下式のように表される。

 $\phi_{free} + \phi_{EDL} + \phi_{IL} = \phi_{tot} \tag{2.3-4}$

ここで、 ϕ_{free} は粒子間間隙、 ϕ_{EDL} はEDL間隙、 ϕ_{IL} は層間間隙である。

このモデルでは、全間隙に対する各間隙の寄与(割合)について、モリロナイトの幾何学的な 形状(層構造)に基づき算出している。

例えば、層間間隙については、下式より求められる。

$$\phi_{IL} = \frac{A_{int}}{2} \cdot h_{IL} \cdot f_D \cdot w_{mm} \cdot \rho_d \tag{2.3-5}$$

ここで、 A_{int} はモリロナイトの層間表面積、 h_{IL} は層間距離、 f_D は層間水と自由水(自由間隙水)の密度比、 ρ_d は乾燥密度である。

また、DDL間隙については、下式より求められる。

 $\phi_{DDL} = A_{ext} \cdot d_{DDL} \cdot w_{mm} \cdot \rho_d$

ここで、*A_{ext}*はモリロナイトの外部表面積、*d_{DDL}*はデバイ長、*w_{mm}*モリロナイトの含有率である。なお、*d_{DDL}*は下式より求められる。

$$d_{DDL} = \frac{3.09 \cdot 10^{-10}}{\sqrt{I}} \cdot f_{DDL}$$
(2.3-7)

(2.3-6)

ここで、Iはイオン強度、fpplはデバイ長の数である。

粒子間間隙は、上記により算出された層間間隙とDDL間隙を全間隙から差し引くことにより求 められる。今回、Kunigel V1を対象に上述したようなMulti polosityの概念により層間間隙及び DDL間隙を求める際に用いたパラメータを表 2.3・2にまとめた。上述した方法により、圧縮ベン トナイト中での3つの間隙を想定した際の各間隙の割合について、イオン強度に応じて、その比率 の変化を考慮して見積もることができる。なお、この他に重要なパラメータの一つとして、モリ ロナイト層の積層数(stacking number)がある。このパラメータは、モリロナイトの外部表面積 の評価とも関係する。積層数の想定と全間隙における層間の割合については、後述するモデルに よる計算結果の所で述べる。

表 2.3-2 層間及びDDL間隙の割合を算出するために用いたパラメータ

パラメータ	記号	単位	パラメータ値	参考文献
粒子密度	ρ _g	Mg/m ³	2.681	Svensson et al. (2011)
乾燥密度	ρ_{d}	Mg/m ³	1.600	核燃料サイクル開発機構 (1999)
全間隙	φ _t	-	0.403	
モンモリロナイト含有率	W _{mm}	-	0.475	Oda et al. (2000)
モンモリロナイトの全表面積	A _{tot}	m²/g	810	Ochs et al. (1998)
モンモリロナイトの外部表面積	A _{ext}	m²/g	29	Oda et al. (2000)
モンモリロナイトの層間表面積	A _{int}	m²/g	781	
層間距離	h _{IL}	m	9.40E-10	3 層水和を仮定, (Wersin et al., 2016)
層間水と自由水の密度比	f _d	-	1	Wersin et al. (2016)
デバイ長の数	f _{DDL}	-	1	POSIVA (2021)
イオン強度	Т	М	0.39 (FRHP) 0.76 (SRHP)	今回の計算値
デバイ長	d _{DDL}	m	4.95E-10 (FRHP) 3.54E-10 (SRHP)	今回の計算値 Wersin et al.(2016)

2) 各モデルによる間隙水水質の計算結果

前述した4つの概念モデルに基づく圧縮ベントナイト中の間隙水水質の計算結果を比較した。な お、ベントナイトと反応する地下水として、降水系地下水(FRHP)及び海水系地下水(SRHP) を想定した場合の各々のケースについて、それぞれ図 2.3-2及び図 2.3-3として整理した。また、 Multi porosityモデルにより、3つの間隙の割合を試算した結果について各々の地下水の場合につ いて表 2.3-3に整理すると共に、試算上の仮定として想定したモリロナイト層の積層数と層間間 隙との関係について図 2.3-4に併せて整理した。









間隙(FRHP)		割合(%) 間隙		RHP)	割合(%)	
層間	0.280	69.2	層間	0.280	69.2	
DDL	0.011	2.7	DDL	0.008	1.94	
粒子間	0.113	28.1	粒子間	0.116	28.9	
合計	0.404	100	合計	0.404	100	

表 2.3-3 Multi porosityモデルにより推定された3つの間隙の割合 (左:FRHPの場合、右:SRHPの場合)



図 2.3-4 圧縮ベントナイト中でのモンモリロナイト層の積層数をパラメータとしKunigel V1を想 定した場合の乾燥密度と層間間隙の関係に係わる試算結果

まず、降水系地下水であるFRHPのケースでは、粒子間間隙水のpH及び主要な陽イオン及び陰 イオンの濃度については、モデルの違いによる影響はそれほど顕著ではないものの、粒子間間隙 以外の間隙も含めて比較すると、Single porosity(bulk)モデルの場合とDouble porosity及びMulti prosityモデルの場合で幾つかの相違が認められた。例えば、Na・Ca・Mgといった陽イオンでは、 複数間隙を想定したモデルの場合、粒子間間隙水よりも層間水(ドナン間隙水を含む)の方が高 い濃度が推定されている。また、ClやSといった陰イオンについては、複数間隙を想定したモデル の場合、粒子間間隙水よりも層間水の方が低い濃度が推定されている。これは、複数間隙を想定 した場合に考慮されているモンモリロナイト表面の負電荷の影響による陰イオン排除の影響と考 えられる。また、層間水について異なるモデル間で比較してみると、Single porosity (inter layer) モデルとDouble porosityモデルの場合は、Caを除けば陽イオン及び陰イオンの濃度の推定結果は 比較的類似している。一方、Multi porosityモデルは、Naの濃度が他のモデルの場合に比べて高 くなり、陰イオンについてはモデル上の仮定から濃度はゼロになっている。その代わり、Multi porosityモデルでは陰イオンについはEDL間隙水として扱われており、その濃度は、Single porosity (inter layer) モデルやDouble porosityモデルにおける層間水の陰イオン濃度に近似し ている。なお、Multi porosityモデルにより推定された3つの間隙の割合は、表 2.3-3の左表に示 される通り、層間が69%程度を占め、粒子間間隙が28%程度、DDL間隙は3%程度となった。また、 今回の試算では、Kunigel V1に対するモンモリロナイトの外部表面積としてOda et al. (2002) らの値を参考に、モンモリロナイトの積層数を3と仮定しており、その場合、層間間隙は0.28程度 となる(図 2.3-4)。図 2.3-4から判る通り、モンモリロナイトの積層数が大きくなる(すなわち、 モンモリロナイトの外部表面積が小さくなる)と層間間隙の割合が大きくなり、逆にモンモリロ ナイトの積層数が小さくなる(モンモリロナイトの外部表面積が大きくなる)と層間間隙の割合 が小さくなる。

次に海水系地下水であるSRHPのケースでは、粒子間間隙水のpH及び主要な陽イオン及び陰イ

オンの濃度については、モデルの違いによる影響はそれほど顕著ではないものの、粒子間間隙以 外の間隙も含めて比較すると、FRHPの場合と同様にSingle porosity (bulk)モデルの場合と Double porosity及びMulti prosityモデルの場合で幾つかの相違が認められた。但し、その影響の 差異はFRHPの場合に比べると小さかった。陽イオンについては、層間水(ドナン間隙水を含む) の方が粒子間間隙水よりも濃度が高く、陰イオンについては陰イオン排除の効果により、層間水 の方が粒子間間隙水よりも濃度が低い傾向が認められた。ただ、Multi porosityモデルでは、SRHP の場合、陰イオン排除の効果はあまり見られておらず、陰イオン濃度は粒子間間隙水と同等にな った。ちなみに、表 2.3-3の右表に示すMulti porosityモデルにより推定された3つの間隙の割合 を見るとSRHPの場合、FRHPよりもさらにDDL間隙の割合が小さく見積もられているため、陰 イオン排除の効果がFRHPの場合よりも弱いことが可能性の一つとして考えられる。

上述した様に、今回4つの異なる概念モデルに基づき圧縮ベントナイト中の間隙水を推定した結果、安全評価における核種移行パラメータとして重要となる核種の溶解度や収着分配係数の設定 にあたり必要となる粒子間間隙水については、従来の単一間隙の概念に基づくSingle porosity

(bulk)モデルによる計算結果と複数間隙を想定したモデルによる計算結果では、pH及び主要な 陽イオン及び陰イオンの濃度について、モデルの違いによる影響はそれほど顕著ではないと推定 された。一方、今回検討した様に、近年では圧縮ベントナイト中の微細間隙構造を考慮した間隙 水化学の評価のためのモデル開発も進められており、概念モデルについても複数の提案がなされ ている。これらのモデルについては、長所・短所があるため、モデル化の対象や条件に応じて使 い分けていくことも有効であると考えられる。また、安全評価における不確実性の一つとして、 このような概念モデルの違いによる圧縮ベントナイト中の間隙水水質の不確実性を評価すること も重要と考えられ、今後、今回試みた様な複数間隙を想定した概念モデルにより推定された間隙 水水質を基に、核種の溶解度や収着分配係数の評価を行い、従来の単一間隙を想定した場合との 評価・比較等も行うことも必要である。なお、今回、Single porosity (bulk)モデルによる間隙水 水質の計算において、モデル化の手順としては、第2次取りまとめの際に用いられた手順より現実 的な想定に基づいた手順で計算を行ったが、結果として計算される間隙水水質への影響としては、 それほどの差は生じなかった。しかしながら、安全評価における核種移行パラメータを設定する 上での間隙水のモデル化における不確実性の一つとして、このようなモデル化の手順の違いによ る影響について留意することも重要である。

また、本項(2.3.1項)の「背景と目的」の部分でも述べた通り、圧縮ベントナイト中の微細間 隙構造の取扱いは、バリア材境界領域及び緩衝材中の状態変遷やそれを踏まえた核種移行解析に おける物質移行特性(拡散係数や収着分配係数)にも影響を与えると考えられ重要である。今回 試行したMulti porosityモデルによる試算では、表 2.3・3に示される様に飽和した圧縮ベントナイ トでは、水の大部分は層間に分布し、粒子間間隙は30%程度であると推定された。また、全間隙 (0.4程度)に対して、粒子間間隙は0.1程度であると見積もられた。これまでにNF事業で行われ た処分場閉鎖後長期における「緩衝材の長期変質挙動の予測」では、水理・物質輸送-化学反応 を考慮した反応輸送解析において、緩衝材中の間隙については全間隙(0.4程度)に対する解析を 行ってきた。一方、圧縮ベントナイト中の微細間隙構造を想定した場合、鉱物の溶解・沈殿反応 が生じるのは粒子間間隙と考えられるため、全間隙よりも間隙の割合は小さくなる。このため、 反応輸送解析において、今回検討した様な複数間隙の概念を取り込むと緩衝材の長期的な状態変 遷にも変化が生じる可能性がある。特に、バリア材境界領域における間隙変化(例えば、clogging のような間隙閉塞)は、状態変遷を踏まえた核種移行解析において不確実性の大きい現象の一つ であり、間隙の取扱いの違いによる状態変遷への影響を評価することは今後重要になると考えら れる。さらに、複数間隙を考慮したモデルでは、粘土鉱物表面での負電荷の影響を考慮すること

で、層間からの陰イオン排除の効果が模擬された。この様な陰イオン排除の効果は、2.2.1項の核 種移行個別現象評価技術の開発において、核種の拡散挙動に関わる実験的な評価の中でその妥当 性が確認されている現象である(例えば、Tachi et al., 2014)。モンモリロナイトのような粘土 鉱物が主体の圧縮ベントナイトが飽和した場合、間隙としては層間が主となるため、陰イオンが 移行可能と考えられる間隙は、粒子間間隙及びDLL間隙になる。なお、DDL間隙についても粘土 鉱物表面での負電荷の相互作用の影響により、陰イオンの移行が妨げられるような実験的な知見 も示されており(Chagneau et al., 2015)、このような知見に基づくと陰イオンの移行は粒子間 間隙に限定される可能性もある。その場合、今回の試算に基づけば、圧縮ベントナイト中で陰イ オンが移行可能な間隙は、DDL間隙を含めたとしても全間隙の30%程度と見積もられる。これま でにNF事業で行われた緩衝材の状態変遷を踏まえた核種移行解析では、陰イオン(例えば、I)を 対象にした解析において、圧縮ベントナイト中の微細間隙構造を考慮した陰イオン排除の効果は 考慮されていなかった(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,2021)。 今後は、この様な陰イオン排除の効果を考慮した場合の緩衝材の状態変遷を踏まえた核種移行解 析についても検討し、従来の結果と比較を行うことで、陰イオンの移行率への影響について具体 的な考察を進めていくことも必要である。なお、陰イオンの移行評価については、HLWだけでな く、TRU廃棄物においても被ばく線量の高い重要核種であるC-14の移行評価においても重要であ るため、共通的な課題として今後取り組んでいくことも必要である。

(4) 地球化学・物質移行モデルの高度化を図る上での計画検討

圧縮ベントナイト中の間隙水化学のモデル化の観点で、令和5年度は複数の異なる概念モデルに 基づくモデルに基づき、間隙水水質の試算を行ったが、これらのモデルにより、本事業で対象と するような緩衝材仕様(例えば、第2次取りまとめにおける緩衝材仕様)に対するモデルの適用性 を確認することが必要である。また、圧縮ベントナイト中の微細間隙構造を考慮した複数間隙モ デルの反応輸送解析への取り込みや、そのようなモデルによる物質移行評価の妥当性についても 確認することが重要である。このような観点から、令和5年度は単一間隙または複数間隙を想定し たモデルによる地球化学・物質移行モデルの高度化を図り、モデルの検証を進める上で必要とな るデータ等について、既往の類似した研究例を対象に文献調査を行った。

文献調査の結果、上述した観点と一致した論文として、ベントナイトを対象とした熱-水-応 カー化学(THMC)の連成解析モデルの検証への反映を目的にデータベース(データセット)整 備を行った論文 (Cabrera et al., 2023) を選定した。Cabrera et al. (2023) では、MX-80、FEBEX 及びGMZ等、様々なベントナイトを対象にTHMC連成解析モデルの検証にあたり必要となる情 報・データをMicrosoft Excel[®]のデータシートとして整備している。整備された情報・データとし ては、ベントナイトの種類、ベントナイトの構成鉱物、物理特性(密度・表面積等)、化学特性 (CEC、交換性陽イオン種等)、実験の初期条件や境界条件、実験の仕様(カラムの大きさ、試 料サイズ等)等であり、これらの情報・データが既往の文献・報告書から網羅的に引用されてい る。整備されたデータシートについては、リンク(https://doi.org/10.1007/s12665-023-10902-6) から入手可能である。Cabrera et al. (2023) が整備したデータシートには、ホームシートと して、「Bentonite」、「Test」及び「Reference」のダッシュボードがあり、これらのダッシュ ボードから閲覧したい情報・データを選択すると「Test data」のダッシュボードに該当するデー タシートが選定される。選定されたデータシートを選択すると個別のデータシートにリンクされ た情報・データを閲覧することができる。このようなデータセットの構造は利便性が良いため、 本事業においてもCabrera et al. (2023) が整備したデータセットをベースに必要なデータを追加 していく方針とした。令和5年度は、次年度以降の情報・データの追加を念頭に、本事業における

主な対象となる地球化学・物質移行モデルの高度化において、モデルの検証を進める上で必要となる項目を抽出した。その結果、以下が抽出された。

- ・間隙水化学に関わる情報・データ
- ・陽イオン、陰イオン、中性種の拡散に関わる情報・データ
- ・上記の2項目に関わる情報の塩濃度依存性及び乾燥密度依存性に係る情報・データ

また、上記で抽出された項目を含む文献を対象に文献調査を行い、51件の文献を選定した。さらに、次年度以降、今年度選定された論文からモデルの検証を進める上で必要となる情報・データを抽出し、データセットに追加することを想定し、新たなダッシュボードの案についても検討した(図 2.3-5)。ダッシュボードの構成案としては、用いられたベントナイトの種類に関わる情報、実験方法や実験条件に関わる情報、引用文献に関わる情報の3つのセクションに分けた。今後、実際にデータの追加を検討していく中で、必要に応じて各セクションに含める項目については適宜見直しを図っていく予定である。



図 2.3-5 地球化学・物質移行モデルの検証用データセット整備のためのダッシュボード構成案

ニアフィールドにおける複合現象を対象とした評価では、2.3節の冒頭でも述べた通り、熱的、 水理学的、力学的及び化学的なプロセスが相互に及ぼす影響の評価が重要になる。閉鎖後長期を 対象とした場合、熱的影響については地温程度での定常状態が仮定されるが、力学的影響につい ては、飽和後のオーバーパックの腐食に伴う腐食膨張や圧縮ベントナイトの膨潤に伴う膨潤圧の 影響が経時的に変化し、水理学的・化学的なプロセスにも相互に影響が生じる可能性がある。こ のため、NF事業においては、水理・物質輸送-化学反応を考慮した反応輸送解析に力学の影響を 加えた評価を行うためのシステム開発が行われ、水-応力-化学(HMC)の連成解析が可能なプ ロトタイプの解析ツールが整備された(日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理 センター,2020)。一方、力学との連成が可能なプロトタイプの解析ツールについては、検証・確 証の観点で不十分な点があり、開発については一時中断された(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)。しかしながら、閉鎖後長期における複合現象として 力学的な影響による他のプロセスへの相互作用に関わる評価も重要であり、本事業の中でも継続 して取り組むべき課題の一つであると考えられる。このため、令和5年度は将来的にHMCの連成 解析に再度取り組む場合を想定し、水理学的、力学的及び化学的なプロセスの連成において重要 となる現象とそれに関わるプロセスについて、既往の類似した研究事例等を対象にした文献調査 により情報を整理した。図 2.3-6にZhu et al. (2013) で整理された体積一定条件での浸潤に伴う 圧縮ベントナイト中の微細間隙状態の変化に関わる概念図をもとに、HMCに関わる現象・プロセ スを追記し、不飽和から飽和状態における連成解析を検討する際、どのような現象・プロセスに 着目する必要があるかをまとめた。



図 2.3-6 体積一定条件における浸潤に伴う圧縮ベントナイト中の微細間隙状態の変化に関わる 概念図(Zhu et al., 2013を参考にHMCに関わる現象・プロセスを追記し改変)

図 2.3-6の概念図では、不飽和から飽和状態における圧縮ベントナイト中の状態を Stage 0 か らStage4までの5段階で整理した。まず、Stage0では、不飽和状態のベントナイトに水が浸潤 することでモンモリロナイトの層間に水が取り込まれ、結晶性膨潤(層間水和)が生じる。また、 モンモリロナイトの積層数が増え、凝結晶を生成する。Stage1では、Stage0からさらに水が浸 潤し、ベントナイト中に存在する可溶性塩が溶解すると共に、随伴鉱物の一部で溶解・沈殿反応 が生じる。また、モンモリロナイトの層間でのイオン交換反応や結晶端(エッジ)における酸塩 基反応等も生じる。これに伴い、粒子間間隙の水質(pH やイオン濃度)も変化する。さらに、凝 結晶中のモンモリロナイトの積層数も増加する。Stage 2 では、Stage 1 よりもさらに水が浸潤す ることで、結晶性膨潤が顕著になり、膨潤圧が増加し、一方、不飽和の度合いが低下するためサ クションは減少する。また、凝結晶中のモンモリロナイトの膨潤に伴い、層間間隙は増加し、粒 子間間隙は減少する。Stage 3 では、Stage 2 までに増加したモンモリロナイトの積層数の増加し た凝結晶中の集積構造が崩壊し、より積層数の少ない凝結晶中に分割され、これに伴い、一時的 に膨潤圧が低下する。さらに水の浸潤が進行し、Stage 4 では飽和状態に近づき、Stage 3 での崩 壊後に生成した積層数の少ない凝結晶中でのモンモリロナイト表面の負電荷の相互作用により DDL 間隙が増加し、粒子間間隙はさらに減少する。また、層間及び DDL 間隙からの陰イオン排 除の効果により、粒子間間隙中の陰イオン濃度が増加する。さらに、圧縮状態での DDL 間隙の増 加に伴う浸透圧の発生により、膨潤圧が増加する。このように、ベントナイトの飽和度が高くな

るにつれ、モンモリロナイトの膨潤に伴い粒子間間隙は減少し、化学反応に伴う二次鉱物の沈殿 が生じると粒子間間隙はさらに減少し、透水性は低下する。

上述した様な圧縮ベントナイト中で生じると想定される水理学的、力学的及び化学的に重要と なる現象とそれに関わるプロセスのうち、連成解析において重視すべき現象の一つは間隙の変化 である。間隙の変化は、HMC の 3 つの現象を連成する際に相互の現象にフィードバックを与え るため、HMC の各々のモデルにおいて間隙の概念(取扱い)について整合を持たせることが重要 である。なお、HC については、Kozeny-Carman (KC)をベースにした考え方を基に膨潤性粘土 への適用を考慮した修正 KC 式の検討がなされている様に(例えば、Ruan and Fu, 2022; Ren and Santamaria, 2018)、間隙率をパラメータに相互作用に関わる現象のモデル化が可能である と考えられる。一方、M との連成を図る場合、膨潤圧の評価で重要なのは間隙率というより、む しろモンモリロナイト間隙比(水の浸潤に伴い膨潤したモンモリロナイト体積の評価。水の浸潤 が増加すると膨潤したモンモリロナイト間隙比は低下する; Sanchez, 2013)であると考えられるため、H や C との相互作用に関わる現象をモデル化する際 には、受け渡すパラメータに留意が必要である。

今回、文献調査を基に将来的に HMC の連成解析に再度取り組む場合を想定し、水理学的、力 学的及び化学的なプロセスの連成において重要となる現象とそれに関わるプロセスについての整 理を試みた。図 2.3-6 の概念図からも判る通り、力学の影響が顕著になるのは不飽和の段階(Stage 2 から Stage 3) であり、閉鎖後長期のような飽和状態ではモンモリロナイト間隙比も減少し、膨 潤圧としては不飽和の段階に比べると小さいと想定される。なお、不飽和の段階を含めたニアフ ィールドの長期環境変遷については、別事業「ニアフィール長期環境変遷評価技術開発」でも検 討が進められることから、今後、本事業における閉鎖後長期における HMC の連成解析について 具体的な検討を進める場合は、別事業における事業の動向や得られた成果の活用可能性等につい て確認し、必要に応じて、連携を進めていくことも必要である。

(5) まとめと今後の課題

令和 5 年度は、圧縮ベントナイトの微細間隙構造を踏まえた間隙水化学モデルの高度化を図る ため、国内外における類似事例を対象にした文献調査、それを踏まえた圧縮ベントナイトの微細 間隙構造に関わる複数のモデルによる間隙水化学の予察解析を試行した。その結果、安全評価上 重要となる核種の溶解度や収着分配係数の設定に直接関係すると考えられる粒子間間隙水につい ては、従来から検討されている単一間隙の概念によるモデル化と今回検討した複数間隙の概念に よるモデル化で顕著な違いは生じなかった。一方、微細間隙構造の取扱いの違いは、水理・物質 移行-化学反応を考慮した反応輸送解析において、緩衝材の長期的な状態変遷に影響を及ぼす可 能性のあるバリア材境界領域における間隙変化(例えば、clogging のような間隙閉塞)にも関係 すると考えられる。今後、従来の単一間隙を想定した場合と今回検討したような複数間隙を想定 した場合での緩衝材の長期的な状態変遷に関わる解析を行い、その影響についても確認すること が必要である。また、複数間隙の概念において重要となる陰イオン排除の効果は、2.2.1 項におけ る核種移行個別現象評価技術の開発における核種の拡散挙動の評価においても、その妥当性が確 認されている現象である。陰イオン排除の効果は、2.3.2 項で検討される緩衝材の状態変遷を踏ま えた核種移行解析において、陰イオンの移行率への影響を把握する上で重要な現象であり、HLW だけでなく、TRU 廃棄物の安全評価においても被ばく線量の高い重要核種である 14C の移行評価 においても重要であるため、今後、共通的な課題として取り組むことが必要である。

2.3.2 ニアフィールド複合現象・核種移行の統合評価技術の高度化

(1) 背景と目的

2.1.1項で述べたように、先行事業であるNF事業では、HLWを対象に、ニアフィールドで想定 される複合現象を対象とし、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し、このシステムの解析により予測される環境変遷(状態変 遷)を核種移行解析モデルへ反映する手法を構築することで、ニアフィールド複合現象・核種移 行の統合評価を行うためのプロトタイプシステムを開発した(日本原子力研究開発機構・原子力 環境整備促進・資金管理センター, 2019; 2020; 2021; 2022; 2023)。また、このプロトタイプ システムを用い、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、相対的に緩衝材の変質影響が小さい場合と大きい場合を例に、状態変遷を踏まえた核種移行 パラメータの設定方法(核種の収着挙動を対象に、環境条件の変化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方法。収着メカニズムに基づくモデルに対して簡略化さ れた方法であり、ここでは、「中間モデル」と称す)を検討し、核種移行解析を行うことで核種の 移行遅延に影響を及ぼす要因を抽出することも試行した(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 ; 2023)。さらに、安全評価への反映を念頭に核種移行モデル の簡略化の妥当性確認を進めるための試行として、Cs及びNiを例に、核種の収着メカニズムに基 づくモデル(ここでは、「精緻モデル」と称す)と中間モデルを用い、セメント支保の影響のみを 考慮した簡略化された体系での状態変遷を踏まえた核種移行解析を行った。その結果、中間モデ ルによる核種移行率の変化は、精緻モデルの場合と概ね傾向が一致し、簡略化されたパラメータ 設定方法による評価の妥当性を確認するための方法として、このような検討が有効であることが 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, 2023)。

上述したようなNF事業における複合現象・核種移行の統合評価技術の開発を通じて整理された 課題としては、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 引き続き検討が重要であり、その中では変質に関わるシナリオ・モデル・データのバリエーショ ンや不確実性等も考慮し、より幅広い条件での検討が必要である(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,2023)。また、NF事業の後半において予察的な検討が試み られた安全評価への反映を念頭にした核種移行モデルの簡略化や簡略化手法の妥当性確認につい ても、引き続き検討が必要な重要な課題の一つである(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,2023)。さらに、統合評価技術の更なる高度化を図る上では、先端的 な解析技術等の活用も視野に入れつつ、幅広いユーザーの利用可能性も念頭した検討の必要性も 課題として整理された(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,2023)。

これらを踏まえ、本事業におけるニアフィールド複合現象・核種移行の統合評価技術の高度化 では、5か年の目標として掲げた安全評価で用いられるシステム評価モデルへの反映を念頭にした 現象解析モデルやモデルで用いられるパラメータの簡略化方策の検討及び簡略化手法の妥当性確 認を目的とし、そのために必要な調査・解析・検討をNF事業で得られた成果を活用しつつ実施す る。なお、事業後半での実施を計画しているTRU廃棄物を対象にした統合評価技術の開発にあた っては、本事業においてTRU廃棄物を対象にした検討を主体的に実施する原環センターの協力を 得つつ、過年度のエネ庁事業である「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等)で実施されたTRU廃棄物を対象にしたニアフィールドの状態変遷を考慮した核種移 行解析手法も参考にしつつ検討を進める。

先行事業であるNF事業で抽出された課題に対する対応として、セメント支保と緩衝材及びオー バーパックと緩衝材の両方の相互作用に伴う状態変遷を考慮しつつ、精緻モデルでの核種移行解 析を可能とするための解析手法の高度化を進めた。また、NF事業で検討された中間モデルによる 評価手法を基に、セメント支保と緩衝材及びオーバーパックと緩衝材の相互作用を対象とし、緩 衝材の長期変質挙動に影響を及ぼすと考えられる不確実性要因の一つとして、地下水条件を変え た場合の解析を行い、その結果を踏まえた核種移行解析結果に基づき、緩衝材の変質が核種の移 行遅延に与える影響について分析した。さらに、前述した解析手法の高度化として取り組んだ精 緻モデルによる解析による結果とNF事業で開発された中間モデルや簡易モデルを用いた解析結 果を比較し、精緻・中間・簡易モデルの比較によるモデルの簡略化方策についての具体的な検討 についても試行すると共に、今後のモデル・パラメータ等の簡略化方針の検討や統合評価技術の 更なる高度化を図る上で重要となる解析コードを検討する上で参考となる情報を文献調査により 整理した。以下に、これらの検討結果をまとめる。

(2) 緩衝材変質に関わる状態変遷を考慮した核種移行解析のための解析手法の高度化

NF事業で開発されたプロトタイプシステムでは、緩衝材変質に関わる状態変遷の解析にあたり、 水理・物質輸送-化学反応に係る連成解析コードとしてQPAC(Quintessa Ltd., 2013)が用いら れている(例えば、日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2020)。 QPACによるセメント支保と緩衝材及びオーバーパックと緩衝材の両方の相互作用を考慮した連 成解析は、計算負荷の大きい解析であり、この連成解析に核種移行解析を含めるのは、経済性(コ スト)や効率性(計算時間)の観点から好ましくないため、NF事業では、QPACによる緩衝材の 状態変遷(例えば、間隙水のpH、間隙水組成、構成鉱物の種類や体積割合等)に係る解析結果を QPAC-RNTと呼ばれる解析コードに読み込ませ、状態変遷を考慮した核種移行解析(核種の収着 に関しては、Kdによる評価:上述した中間モデルによる手法)が行われた(例えば、日本原子力 研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2023)。このような解析手法を選択する ことで、緩衝材の状態変遷を踏まえた核種移行解析を効果的・効率的に実施することが可能にな った。一方、収着メカニズムに基づくモデルによる手法(精緻モデル)のQPAC-RNTへの反映に ついては、NF事業では十分な検討に至らなかったため、本事業において解析手法の高度化として 取り組むこととした。

対象核種としては、NF事業の場合と同様にCs及びNiの2核種を対象とした。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、安全評価上、 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。収着メカニズムについては、 本事業で対象となるような緩衝材の状態変遷における環境条件(イオン強度やpHの範囲)を勘案 すると、Csはイオン交換反応(例えば、Tachi and Yotsuji., 2014)、Niは表面錯体反応(Sugiura et al., 2021)が主体であると考えられた(日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管 理センター, 2023)。このため、本事業においてもQPACによる緩衝材の状態変遷に係る解析結果 から、これらの反応をQPAC-RNTでの解析に反映する上で必要な情報である間隙水のpHや間隙 水組成を読み込み、CsやNiの収着挙動をイオン交換反応又は表面錯体反応によりモデル化し、核 種移行解析に反映するための解析手法を検討した。以下に、Csの場合を例に説明する。

QPACでは、粘土鉱物のイオン交換反応を含む地球化学反応を考慮した水理・物質輸送-化学 反応に係る連成解析が行われる。このような連成解析の中で、仮にCsのイオン交換反応による収 着影響の評価を考慮した核種移行解析を行う場合、粘土鉱物によるCsとNa等とのイオン交換反応 を扱うことになる。その場合、核種としてのCs濃度は、連成解析においてイオン交換反応のカウ

ンターとなるイオン (例えば、Na等) の濃度に比べて極微量になると想定される。このため、QPAC を用いた連成解析において核種であるCsを含めた解析を行わずとも、QPACの連成解析により得 られた状態変遷の情報をQPAC-RNTに取り込み、QPAC-RNTにおいてCsとNa等とのイオン交換 反応を考慮した核種移行解析を行えば、得られる結果はほぼ変わらないと考えられる。なお、こ のような解析方法であれば、QPACによる解析負荷を増やすこと無く、緩衝材の状態変遷を考慮 し、収着メカニズムに基づく精緻なモデルを用いた核種移行解析をQPAC-RNTで行うことが可能 になると期待される。そこで、QPACによる連成解析から得れたCsのイオン交換反応に寄与する 各種イオンの濃度(活量)を基に、QPAC-RNTにおいて、Csのイオン交換反応をモデル化し、そ れにより導出される遅延係数(Rd)を用いて、核種移行解析を行う手法を構築した。

まず、QPACにおいては、自然由来のCsとイオン交換反応のカウンターとなる陽イオン(ここ では、Naで代表させて説明)とのイオン交換平衡が各タイムステップで計算される。その際には、 以下の4つが未知数となる。

・c^{RT}_{Cs}及び c^{RT}_{Na}: いずれも自然由来(ここでは地下水中)のCs及びNaの溶存濃度(mol/kg)

・*q*^{RT}_{Cs}及び*q*^{RT}_{Na}:いずれも自然由来のCs及びNaの固相への収着濃度(mol/m³)

ここで、上記のCs及びNaの全量(T_{Cs}^{RT} 及び T_{Na}^{RT})については、各々、下式で定義される。

 $T_{CS}^{RT} = q_{CS}^{RT} + \theta \rho_w c_{CS}^{RT}$ (2.3-8)

 $T_{Na}^{RT} = q_{Na}^{RT} + \theta \rho_w c_{Na}^{RT}$ (2.3-9)

上式において、 θ は間隙率、 ρ_w は液相の密度(kg/m³)である。

同様に、QPAC-RNTでは、放射性Csを対象にするため、放射性Csの全量(T_{Cs}^{TT})は、

 $T_{Cs}^{TT} = \theta C^{Cs} + \rho_b C_{Sorb}^e$ (2.3-10)のように表される。ここで、 C^{cs} は液相中での放射性Csの溶存濃度(mol/kg)、 ρ_h は固相の密度

(kg/m³)、*C^e*_{Sorb}は固相に収着した放射性Csの収着濃度(mol/kg)である、

QPAC-RNTにより、放射性Csを含む系での新たなイオン交換反応を計算するためには、以下の 6つが未知数となる。なお、下式において、TTの上付添え字はQPAC-RNTで計算されるパラメー タ、RTの上付添え字はQPACで計算されるパラメータとなる。

・c_{Cs}^{TT*}, c_{Cs}^{RT*}及び c_{Na}^{RT*}: QPAC-RNTで計算される放射性Csの溶存濃度、QPACで計算される自然 由来のCs及びNaの溶存濃度(いずれも単位は、mol/kg)

・q^{TT*}, q^{RT*}及び q^{RT*}: QPAC-RNTで計算される放射性Csの固相への収着濃度、QPACで計算さ れる自然由来のCs及びNaの固相への収着濃度(いずれも単位は、mol/m³)

ここで、QPAC-RNTにおいてCsのイオン交換反応を考慮した $Rd(R_d^{IE,Cs})$ は、以下の様に示さ れる。

$$R_d^{IE,CS} = 1 + \frac{q_{CS}^{TT^*}}{\theta \rho_w c_{CS}^{TT^*}}$$
(2.3-11)

ここで、 $q_{Cs}^{TT^*}$ は上述の通り、QPAC-RNTで考慮するバルク体積中に収着した放射性Csの濃度 (mol/m³)、*c*^{TT*}_{Cs}はQPAC-RNTで考慮する液相中の放射性Csの濃度(mol/kg)である。なお、2.3-11式は、Kdを用いると以下の様に表される。

$$R_d^{IE,Cs} = 1 + \frac{\rho_b}{\rho} K_d^{IE,Cs}$$
(2.3-12)

ここで、 $K_d^{IE,Cs}$ はCsの収着分配係数(m^3/kg)である。

前述した通り、QPAC-RNTにおいて放射性Csを考慮したイオン交換反応をモデル化する際には、 上記の6つのパラメータが未知数となるため、以下の6つの式が必要になる。

$T_{CS}^{TT} = q_{CS}^{TT^*} + \theta \rho_w c_{CS}^{TT^*}$	(2.3-13)
$T_{Cs}^{RT} = q_{Cs}^{RT^*} + \theta \rho_w c_{Cs}^{RT^*}$	(2.3-14)

$$T_{CS}^{RI} = q_{CS}^{RI} + \theta \rho_w c_{CS}^{RI}$$
(2.3-14)

T_{Na}^{RT} =	$= q_{Na}^{RT^*} + \theta \rho_w c_{Na}^{RT^*}$	(2.3-15)
'Na '	$-q_{Na} + 0p_w c_{Na}$	(2.0 10

$$\frac{q_{Cs}^{TT^*}}{q_{Cs}^{TT^*} + q_{Cs}^{RT^*}} = \frac{c_{Cs}^{TT^*}}{c_{Cs}^{TT^*} + c_{Cs}^{RT^*}}$$
(2.3-16)

$$\frac{q_{Cs}^{RT}}{\alpha_{Cs}^{RT}} + \frac{q_{Na}^{RT}}{\alpha_{Na}^{RT}} = \frac{q_{Cs}^{TT^*}}{\alpha_{Cs}^{TT}} + \frac{q_{Na}^{RT^*}}{\alpha_{Cs}^{RT}} + \frac{q_{Na}^{RT^*}}{\alpha_{Na}^{RT}}$$
(2.3-17)

$$K_{ex,Cs-Na} = \frac{[CsX]_*[Na^+]_*}{[NaX]_*[Cs^+]_*}$$
(2.3-18)

上式において、2.3-13式はQPAC-RNTでの計算における放射性Csの質量保存に関わる式、2.3-14式はQPACでの計算における自然由来のCsの質量保存に関わる式、2.3-15式はQPACでの計算における自然由来のNaの質量保存に関わる式、2.3-16式はQPAC及びQPAC-RNTでの計算における全量Csに対する放射性Csの割合が固相及び液相において同一であることに関わる式、2.3-17式はイオン交換サイト数の保存に関わる式、2.3-18はイオン交換平衡に関わる式である。なお、2.3-17式における α_i^{RT} 及び α_i^{TT} は、QPAC及びQPAC-RNTでの計算における固相に収着した元素iの化学量論係数を意味する。

上述した様な方法により、Csのイオン交換反応を考慮した核種移行解析をQPAC-RNTで行った。 なお、Niについては、表面錯体反応を対象にCsと同様な考え方に基づき数式化し、表面錯体反応 を考慮した核種移行解析をQPAC-RNTで実施した。

(3) 地下水条件を変えた場合の緩衝材変質に関わる状態変遷を踏まえた核種移行解析の試行

NF事業では、緩衝材の変質に伴う状態変遷を踏まえた核種移行解析の試行として、セメント影 響に伴う緩衝材の鉱物学的な変質シナリオの違いによる状態変遷への影響に着目した検討がなさ れた(例えば、日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2021; 2022; 2023)。その中では、地質環境条件の一つである地下水水質については、降水系地下水(FRHP: 核燃料サイクル開発機構,1999)を想定した解析が行われた。核種移行解析の対象核種として選 定したCs及びNiについては、収着メカニズムの観点から考えると緩衝材中の間隙水のイオン強度 やpHによる影響が大きいと考えられる(Tachi and Yotsuji., 2014; Sugiura et al., 2021)。この ため、本事業における令和5年度の検討にあたっては、地質環境条件の不確実性の一つとして、地 下水条件を対象とし、NF事業で検討された地下水とは異なる特徴の水質を想定した解析を行い、 緩衝材変質に関わる状態変遷を踏まえた核種移行解析を行うこととした。なお、緩衝材の鉱物学 的な変質シナリオとしては、NF事業における検討を継承し、相対的に緩衝材変質への影響が大き い場合のシナリオを対象とした。令和5年度に実施した地下水条件を変えた場合の緩衝材変質に関 わる状態変遷を踏まえた核種移行解析の解析ケースを表 2.3・4に示す。地下水条件以外の設定に ついては、NF事業において令和4年度に検討されたR4 Allのケース(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海外専門家によるレビューコメントを踏まえモデルの見直 し等を図ったケース:日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター、2023) を基本とし、核種移行パラメータについては中間モデル(Kdと環境条件の関係に基づく経験式に よるモデル: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,2023)により設 定した。

地下水条件		
降水系地下水 (FRHP)		
		よりも高Cl濃度 O SCの深成岩 、)
		よりも高Cl・高C濃 JMO SCの新第三 責岩ケース)

表 2.3-4 緩衝材変質に関わる状態変遷を踏まえた核種移行解析の解析ケース

※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性評価手法の検討のための試験で得られた 透水係数の評価式(Yamaguchi et al., 2018)

また、上述した核種移行解析における解析体系及び地下水条件として設定した2つの水質の主な 特徴を図 2.3-7に整理した。



図 2.3-7 核種移行解析における解析体系(左図)及び解析で設定した水質の主な特徴(右図)

解析体系は、先行事業であるNF事業での検討と同様であり核種移行率の評価箇所は、図 2.3-7 の左図における図中の赤線に相当する掘削損傷領域の外側とした。また、令和5年度の解析にあた り加えた2つの水質については、R5-1のケースはNUMOによる包括的技術報告(原子力発電環境 整備機構,2018)で設定された3つの岩種のうち深成岩類の場合に相当し、R5-2は新第三紀堆積岩 類の場合に相当する。これらの水質は、NF事業における検討で対象とされた降水系地下水(FRHP) に比べて、R5-1のケースでは相対的にCl濃度が高く(イオン強度:ISが高い)、R5-2のケースで は相対的にCl濃度(イオン強度が高い)及び炭酸(重炭酸)濃度が高いという特徴がある。また、 pHについてはFRHPに比べて、pHが低い特徴を有する。表 2.3-5には、Cs及びNiを対象にした収 着挙動に関わる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を示した。これら核種に 対する設定方法の詳細は、CsについてはNF事業における令和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については同事業の令和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)に記載されているた め、ここでは割愛する。

表 2.3-5 Cs及びNiの収着挙動に関わる中間モデルによる核種移行パラメータ設定方法の概略 (日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2023を基に改変)

	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)				
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(1.6×10 ⁻² ×(IS) ^{-0.7}) •Na型以外:Kd(8×10 ⁻³ ×(IS) ^{-0.35}) ※Na型以外:K・Ca・Mg・Fe・Cs型化は全て同様の扱い •Deの状態変遷に対する影響は、考慮していない。			
	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<9:1.11×10 ⁻⁶ ×EXP(1.9×pH) - pH9~11:pHに依らず一定≒30 - pH>11:5.31×10 ⁶ ×EXP(-1.1×pH) pH>11:Iに準拠したIS依存性換算式を利用 (Na型:1.3×10 ⁻¹⁰ ×(IS) ^{0.50} 、Na型以外:3.0×10 ⁻¹⁰ x(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			
	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			

図 2.3-8に令和5年度に実施した緩衝材変質に関わる状態変遷の解析結果を示す。状態変遷としては、CsやNiの移行挙動への影響が大きいと考えられる緩衝材間隙水のイオン強度、pH及び緩衝材中の構成鉱物の時間変遷(構成鉱物については1万年後の状態変遷を例示)について整理した。

図 2.3・8に示される通り、緩衝材間隙水のイオン強度については、設定した地下水の水質に依存 し、R5・2>R5・1>R4 Allのケースの順に低くなり、同様にpHについてはR4 All>R5・1>R5・2の ケースの順に低くなった。また、緩衝材中の構成鉱物に関しては、R5・1のケースはR4 Allに比べ て、モンモリロナイトのCa型化の進展が特徴的であり、R5・2のケースは他の2つのケースと比べ るとモンモリロナイトの残存率が低下し、二次鉱物として沸石類(フィリップサイトやヒューラ ンダイト)の生成が特徴的となった。これら鉱物学的な状態変遷の違いも設定された水質の違い (降水系地下水に比べて想定的に高いCa濃度や相対的に低いpH等)に依存していることが示唆 されるが詳細については別途分析が必要である。

図 2.3・9に、地下水条件を変えた場合の緩衝材変質に関わる状態変遷の結果を踏まえた核種移 行解析の解析結果を示す。なお図 2.3・9には比較のため、NF事業で実施された降水系地下水を対 象とした場合の解析結果(R2・1、R2・2及びR4 Allの3ケース)についても併記した。図 2.3・9に示 される通り、Cs及びNiの場合共に、令和5年度に実施された解析ケース(R5・1及びR5・2)の方が 他の解析ケースに比べて移行が促進される傾向があることが推察される。NF事業で実施された3 つのケースでは、その違いは主に緩衝材中での鉱物学的な状態変遷の違いであり、それに伴う核 種移行率への影響は顕著ではない(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,2023)。令和5年度に実施した解析ケースでは、図 2.3・8に示される様にNF事業で行われた 解析ケース(R4 All)と比べると緩衝材中での鉱物学的な状態変遷に比較的顕著な変化が生じて いるものの、前述した通り、それらの違いが核種移行率に与える影響は小さいことが推察される。 このため、令和5年度に実施した解析ケースで核種移行が促進される要因としては、設定された地 下水の水質(イオン強度、炭酸濃度(pH))による影響が主であると推察される。



図 2.3-8 緩衝材変質に関わる状態変遷の解析結果(左図:NF事業における降水系地下水を対象 とした場合、中央図:令和5年度における相対的にCI濃度の高い地下水を対象とした場合、右 図:令和5年度における相対的にCI及び炭酸濃度の高い地下水を対象とした場合)



図 2.3-9 Cs及びNiを対象にした緩衝材変質に関わる状態変遷を踏まえた核種移行解析結果 (地下水条件を変えた場合の解析結果の比較例)

(4) 精緻・中間・簡易モデルによる状態変遷を踏まえた核種移行率の評価に係る試行

NF事業では、地質環境の変遷や複合現象に伴うニアフィールド(人工バリアを主な対象)の状態変遷が核種移行に及ぼす影響を取り扱うための解析手法について、SP2(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)及びSP3(ニアフィールド性能の総合評価技術開発)において、各々、検討が進められた(日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター,2023)。図 2.3-10に、NF事業におけるSP2及びSP3において試行された状態変遷を踏まえた核種移行評価のためのモデルの簡略化方策の例を示す。



図 2.3-10 NF事業におけるSP2及びSP3において試行された状態変遷を踏まえた核種移行評価の ためのモデルの簡略化方策の例

(核種の収着分配係数のモデル化に係る取扱い方法を一例にした検討)

SP2における検討の中では、環境条件の変遷と核種移行現象の取扱いについて、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の評価や課題の整理が行われた(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, 2023)。SP3では、上述したよ うな緩衝材変質に関わる状態変遷を考慮した核種移行解析を対象に核種の収着分配係数のモデル 化に関わる取扱いについて、精緻モデル、中間モデル及び従来モデル(環境変遷を考慮せず、一 定のKdで評価)を用いた比較が行われ、中間モデルの有効性の評価や精緻モデルの取扱いにおけ る課題の整理が行われた(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, 2023)。SP2及びSP3のいずれにおいても、精緻モデルとは環境条件の変遷(地下水や間隙水の pH、Eh、イオン強度、間隙率、構成鉱物等の情報の変化)を考慮し、収着モデル(イオン交換反 応、表面錯体反応、不可逆収着等)により核種の移行遅延を評価可能なモデルである。中間モデ ルは、環境条件の変遷を考慮しつつ、収着現象を精緻モデルよりも簡易な方法(収着分配係数: Kd)で扱うモデルである。その際、環境条件の変化に伴うKdの変化を実験等から得られた知見に 基づく経験式により評価する。簡易モデルは、環境条件の変遷及び収着現象の両方を簡易な取扱 い(環境条件やKdの経時変化を連続的には扱わず、幾つかの時間ステップで代表させる)で評価 するモデルである。従来モデルは、環境条件の変遷を考慮せず、評価上保守的と考えられるKdの 値で固定して評価するモデルである。

本事業における令和5年度の検討では、前述した解析手法の高度化として取り組んだ精緻モデル による解析結果とNF事業で開発された中間モデルや簡易モデルを用いた解析結果を比較し、精 緻・中間・簡易モデルの比較によるモデルの簡略化方策についての具体的な検討を試行した。な お、試行にあたり、簡易モデルでの解析にあたっては、環境条件の変遷として4つの時間ステップ (0から10²年、10²から10³年、10³から10⁴年、10⁴から10⁵年)に区分し、各時間ステップにおいて 一定のKd (0から10²年ではKd=0.1 m³/kg、10²から10³年ではKd=0.05 m³/kg、10³から10⁴年では Kd=0.03 m³/kg、10⁴から10⁵年ではKd=0.005 m³/kg)を設定した。簡易モデルでのKd設定は、図 2.3・8に示される様な状態変遷(イオン強度の変化)や中間モデルによるKd変化を参照しつつ行っ た。図 2.3・11にCsを対象にした場合の緩衝材変質に関わる状態変遷を踏まえた核種移行解析結果 として、降水系地下水(FRHP)の場合の精緻・中間・簡易モデルによる結果を比較した。図 2.3・ 11に示される通り、中間・簡易モデルによるCsの移行率の解析結果は比較的類似しているが、精 緻モデルによる解析結果は、中間・簡易モデルの解析結果よりもCsの移行率が低減される結果となった。安全評価の観点では、中間・簡易モデルによる解析結果は保守的な結果ではあるものの、モデルの簡略化の観点では精緻モデルによる解析結果との乖離が大きく、簡略化方法としての妥当性については現状では議論が困難である。ちなみに、中間・簡易モデルと精緻モデルでのCs移行率の違いは、初期(核種移行開始後10年以内)の段階で著しく乖離が生じており、その後の移行率の挙動は、中間・簡易モデルと精緻モデルとで同様な傾向を示すことから、精緻モデルでのモデル化における初期の条件設定等に課題がある可能性が示唆された。同様な乖離は、Niを対象とした場合の精緻・中間・簡易モデルによる移行率の比較を行った場合にも認められ、令和5年度に試みた解析手法の高度化として検討したモデル化手法における条件設定等で課題があると考えられる。



図 2.3-11 Csを対象にした緩衝材変質に関わる状態変遷を踏まえた核種移行解析結果 (精緻・中間・簡易モデルによる解析結果の比較例)

(5) 安全評価への反映を念頭にモデル・パラメータ等の簡略化の方策検討に係る文献調査

地球化学・物質移行モデルを含む反応輸送解析モデルは、近年、放射性廃棄物の地層処分に係 る研究開発において、人工バリア及び周辺岩盤を含むニアフィールドを対象とした複合現象の現 象理解や複合現象に伴う人工バリア材や周辺岩盤への影響評価のため、多用されている(例えば、 Bildstein et al., 2019; Chang et al., 2021; De Windt et al., 2008; Idiart et al., 2020など)。反応 輸送解析モデルの開発が進むにつれ、考慮される現象・プロセスが増加し、また複数の現象を連 成させた複合現象を評価するためのモデルも複雑となり、それらに関連するパラメータも膨大に なっている。さらに、反応輸送解析モデルで対象とする領域(スケール)も広域になり、地層処 分で対象となるような長期(数十万年以上)の時間に対する解析も行われている。これらは、近 年の計算科学の進歩により、計算機の能力が飛躍的に向上していることにも関連している。この ような背景のもと、反応輸送解析モデルに代表されるような現象解析モデルの精緻化・高度化が 進められているものの、経済性(コスト)や効率性(計算時間)の観点での課題も示されている

(Bildstein et al., 2019) $_{\circ}$

また、放射性廃棄物の地層処分の長期的な安全性評価においては、広域を対象にした長期の評価が行われ、様々なシナリオを想定し、モデル・データの不確実性を考慮した感度解析や不確実性解析が行われるため、上述したような計算科学の進歩に依存した検討のみでは、現在のところは限界がある。このため、上述したような個別現象理解に基づく現象解析モデルの精緻化・高度化を踏まえつつ、それらの成果を安全性評価で用いられるシステム評価モデルに反映するための

方策が必要になる。このための方策の一つとして、モデル・パラメータ等の簡略化が挙げられる。 ここでは、複合現象を対象にした地球化学・物質移行モデルを含む反応輸送解析モデルを主な対 象とし、コストや計算時間の低減に繋がるような簡略化に関わる事例について整理された報告書

(EUプロジェクトの一環として行われたEURADでの成果の例: Govaerts et al., 2022)に加え、 米国のDOE(エネルギー省)により実施されたハンフォードサイトにおけるIDF(Integrated Disposal Facility)を対象にした安全評価手法に対し、より簡易な手法での検討が試行された報告 書(RPP-RPT-59958, 2022)を対象に文献調査を行い、モデル・パラメータ等の簡略化に関わる 具体例の情報整理を行った。以下に整理の内容をまとめる。

1) 欧州における検討事例(EURAD報告書)に基づく情報整理

EURAD報告書では、放射性廃棄物の地層処分に関わる研究事例の中で用いられている反応輸送解析モデルを主な対象とし、モデル・パラメータの簡略化の事例が整理されている(Govaerts et al., 2022)。この中で、モデルの簡略化については、Frantz (1995)を引用し、「複雑さを低減のための手法」や「解析(シミュレーション)による結果の妥当性を損なわずに計算負荷を低減するための手法」として定義されている。モデルの簡略化は、概念モデルの単純化、重要なプロセスの選定、適切な時間及び領域の選定、より計算効率の高い方法の選定等により行われる。極端な例として、いわゆる「メタモデル」と呼ばれるものがあり、このモデルでは非常に単純化されたモデル(例えば、一つの要素からなるモデル)に置き換えられ、インプットに対する適切なアウトプットが得られ、計算効率的にも高いモデルになる。

放射性廃棄物の地層処分に関わる研究では、反応輸送解析モデルによる評価で用いられるデー タやシナリオの不確実性により、モデルによる評価結果の不確実性も大きくなる。このため、適 切な感度解析・不確実性解析に行うには、膨大な数のシミュレーションが必要になる。また、こ のようなシミュレーションを行う際に必要となるインプットパラメータについても、適切なパラ メータ設定を行う上で重要となるデータ数も膨大になる。さらに、上述したような複雑なシミュ レーションでは、結果の解釈を複雑にさせ、専門家のみならず、一般の方々への理解も想定した 場合、非常に困難になることが予想される。このようなことから、実現象に則した忠実性の高い (high-fidelity) モデルを、より簡易・単純な忠実性の低い (low-fidelity) モデルに落とし込むこ とも必要になる。但し、この際には、簡易・単純化されたモデルの客観性や包括性が維持されて いることに留意することが重要である。そのためには、モデルの簡略化を図る際、その過程を一 つずつ追跡可能な形で報告書としてまとめことが肝要となる。このような対応を行うことで、簡 略化されたモデルを利用することの正当性や妥当性を示すことが可能になる。

モデルの簡略化は、通常、忠実性の高いモデルを出発的として行われる。なお、出発的となる 忠実性の高いモデル自体に既に何らかの簡略化や抽象化が図られている場合もある。モデルの簡 略化を進め、それを利用していく上では、例えば以下のような手順が挙げられる。

- ・モデルの簡略化に係る必要性の確認:モデルの簡略化を進める前に、簡略化を実施するにあたり必要となる手順と簡略化の実現可能性について、必要となる予算や人材、簡略化による計算時間の効率化の観点も含めて検討する。また、モデルの簡略化を行う場合と行わない場合とで、両者の場合における経済性や効率性の観点での比較も必要である。
- ・モデルの簡略化において対象となる問題点の確認:モデルの簡略化においては、複雑なものを 単純化することに対する客観性や包括性が保証されていることが重要である。そのためには、 簡略化の過程の中で、どのような問題に対し、何が省略され(あるいは優先度を下げられ)た のかの詳細が判るようにしておくことが必要である。

- ・モデルの簡略化において適切な手法や実現可能な単純なモデルの選定
- ・簡略化されたモデルを用いた検証計算の実施
- ・上述したプロセス(簡略化の必要性、簡略化における問題点、簡略化モデルの選定プロセス、 検証計算結果)の透明性を図るための報告書作成
- ・簡略されたモデルを用いた解析の実施:例えば、メタモデルを利用した広域でより多次元な体 系での解析や、包括的な感度解析・不確実性解析の実施等

なお、モデルの簡略化の手法としては複数の手法があるため、ここではPachepsky et al. (2006) やRazavi et al. (2012)の分類を参考に、図 2.3-12に示すようにモデルの忠実度を下げて簡略化 する手法(方法A)と統計的な観点を取り入れて簡略化する手法(方法B)の二つに大別して整理 した。



図 2.3-12 モデルの簡略化に関わる手法の分類例(Govaerts et al. (2022)を参考に改変)

モデルの忠実度を下げた簡略化の手法としては、図 2.3・12に示すように、事前に定義されたモ デルの階層に基づく手法(A-1)、インプットに関わる情報(現象・プロセスやパラメータ)を省 略する手法(A-2)、モデルで対象とするスケールを変える手法(A-3)及び数値解析における解 析精度を下げる手法(A-4)の4つに細分化される。また、統計的な観点を取り入れて簡略化する 手法では、統計的な関連性に基づき、複雑なモデルによるインプットとアウトプットの間の関係 を模擬する手法が導出される。そのための手法として、反応輸送解析モデルの全てを模擬するよ うな関係を導出する手法(B-1)、反応輸送解析コードにおいて地球化学解析の部分を統計的な手 法を用いて置き換える手法(B-2)及び計算コストの高いプロセスモデルを簡易な代替モデルに置 き換える手法(B-3)の3つに細分化される。これらの手法による簡略化のための方法の概要、簡 略化を図った際のメリット及び簡略化の手法を適用した具体例について、Govaerts et al. (2022) を基に主な情報を一例として整理した(表 2.3・6)。

表 2.3-6 モデルの簡略化のための方法の概要、簡略化のメリット及び具体的な適用例の整理例 (Govaerts et al. (2002)を基に情報を整理)

	簡略化のための方法の概要	簡略化のメリット	具体的な適用例
方法A: 忠デルの を 定 で で で 変 る た 化 を を と と 、 で 前 南 る ち 方 新 一 で 象 る こ た 代 前 略 れ ん の の を を と げ 、 前 、 略 た れ 。 の る た た の 。 を る こ た の 。 の を る こ た の 。 の る た た の る た た の る た れ ん し う ら る た ん し た う ろ こ ち ろ こ た の ろ た た の ろ た た ろ た た ろ た ろ た ろ た ん し ろ ち う 、 略 れ た ろ ち 方 、 略 た た ろ ち 方 、 ろ ち う ら ろ ち う 、 ろ ち う ら ろ ち う ろ ち う ろ ち う ろ ち う ろ ち う ろ ち う ろ ち う ろ ち う ろ ち う う ろ ち う ろ ち う ろ ち う ろ ち う ろ ち う ろ ち う ろ ち う ろ ち う ろ ち う う ろ ち う ろ ち う う ろ ち う ろ ち う ろ ち う ろ ち う う ろ ち う う ろ ち う う う う ろ ち う う ろ ち う う ろ う う う う う う う う う う う う う	 対象とする現象のモデル化にあたり、モデルの忠実度 を下げる(考慮する現象・プロセスの一部を省略する 等)ことにより簡略化 忠実度を下げるための方法として、4つに大別 対象とする現象に対し、忠実度の異なるモデルを構築 し、それらを序列化することで、現象の複雑度に応じた モデルの簡略化方策を還定(A-1) 現象理解や感度解析に基づき、対象となる現象・プロセ スやパラメータの重要性を評価し、重要性の低い現象・ プロセスやパラメータを省略する方法(A-2) モデル化で対象とするスケールを変化(粗視化)させ、 平均化することで簡略化を図る方法(A-3) モデル化で対象とする時空間な分解能を下げる(例え ば、解析で考慮するメシュを粗視化する等)ことで簡 略化を図る方法(A-4) また、上記の手法を組み合わせることで、より単純化さ れた簡略化方法の検討も可能) 簡略化による計算コストの低減が可能 > A-1の簡略化手法の場合、他の手法に比べて、現象の複雑度に応じたモデルの複雑さの違いを比較し易く、モデルを選定する際の根拠も説明し易い。 > A-2の簡略化手法の場合、他の手法に比べて、感度解析によるパラメータの重要度の評価がなされると、モデルの簡略化にあたり省略された現象・プロセスやパラメータの選定根拠が明確になる。 > A-4の簡略化手法の場合、モデルで考慮、する現象・プロセスやパラメータの省略等がないため、忠実度の観点では、他の手法よりも優る。 	 A-1: 亀裂性多孔質媒体中の地 下水流動の概念モデルと解析モ デルの比較・序列化の検討例 (Berre et al., 2019) A-2: 粘土層-低アルカリセメント 相互作用に関わる反応輸送解析 において考慮する現象・プロセス 等の簡略化の検討例(Idiart et al., 2020) A-3: 間隙スケールのシミュレー ションから反応場における間隙- 透水性を評価するためのアップス ケーリングに関わる検討例 (Prasianakis., 2018)
方法B: 統計的な しなること の で 筒 図 る 方 法	 対象とする現象のモデル化にあたり、反応輸送モデルの出入力関係(液相濃度と沈殿量の関係など)を再現するモデル(メタモデル)を作成することにより簡略化 メタモデルでは、あらかじめ作成したルックアップテーブルや人工ニューラルネットワークモデルなどで得たモデルにより出入力を計算 反応輸送モデル全体をメタモデルで置き換えて簡略化する方法(B-1)や、反応輸送モデルの一部である地球化学ソルバー(B-2)やプロセスモデル(B-3)のみを置き換える方法もあり。) 簡略化による計算コストを低減可能 > メタモデルの信頼性が高ければ、計算精度を損なうことなく、計算速度を大幅に向上可能(例えば、B-2の事例では計算速度を15倍向上) > 計算速度が大幅に向上できるため、感度解析や不確実性解析等の実施にあたり、優位 > メタモデルは、解析の目的に応じて、適用範囲の選定が可能 	B-2: カルサイト沈殿に関する反 応輸送プロセスの人工ニューラ ルネットワークを用いたメタモデ ル構築(Guérillot and Bruyelle, 2020) B-3: ルックアップテーブルを使 用したコンクリート劣化シミュレー ションの高速化(Jacques et al., 2011)

ここでは、表 2.3-6に整理した具体的な適用例を対象に、各事例での簡略化方策について簡単に まとめるとともに、本事業において今後参考となりそうな点についても整理した。

① A-1の例:事前に定義されたモデルの階層に基づく簡略化のための方策の例

この事例では、既往の多数の研究事例等から、対象とする現象の複雑さや対象とするスケール に応じて、単純なモデルから複雑なモデルに至るまでのモデルの階層が示されている事例 (Berre et al., 2019)を引用し、このように既往の知見に基づきモデルの階層化が例示されている場合の 簡略化のための方策を例示したものである。Berre et al. (2019) では、亀裂性多孔質媒体を対象 にした場合の地下水流動と物質移行のモデル化について、既往の研究例に基づき、亀裂やマトリ クスの取扱いに着目し、対象とするスケールや対象となる母岩の特徴等に応じて、単純なモデル から複雑なモデルにモデルを階層的に整理した例が示されている。例えば、最も単純なモデルは 単一連続体(Single-continuum)モデルであり、一方、最も複雑なモデルは離散亀裂マトリクス (Discrete fracture matrix) モデルである。前者は、亀裂の影響を考慮せず、全てを多孔質媒体 として扱うモデルであり、後者は、亀裂及びマトリクスの各々について、亀裂の影響を考慮した モデルである。後者のモデルは、最も実現象に則した忠実性の高いモデルであり、前者は最も簡 略化されたモデルになる。これらの中間的な忠実度のモデルとして、多重連続体(Multicontinuum)モデルもある。モデルの簡略化を検討する際に、このように事前に幾つかのモデル の階層が整理(序列化)されている場合は、モデル化の対象に応じて、適切な手法やモデルを選 定することも可能である。例えば、対象とする亀裂性多孔質媒体にREV(Representative Elemental Volume: 代表要素体積)のような概念が存在する場合、対象とするスケールがREVよ りも大きければ、単一連続体モデルを用いた簡略化手法の適用可能性も示唆される。このような 事例は、本事業においては、天然バリア(岩盤)を対象とした場合の水理-物質移行モデルの開 発やその簡略化方策を検討する際にも参考になると考えられる。

② A-2の例:インプットに関わる情報の省略に基づく簡略化のための方策の例

この事例では、粘土質岩石と低アルカリ性セメントの相互作用に関わる反応輸送解析において、 複数の解析コードを用いたベンチマーク計算を行いつつ、考慮する現象・プロセスやそれらに関 わるインプット情報を変えた場合に解析結果に与える影響を評価し、情報を省略することによる 簡略化方策に示唆を与える結果を示している(Idiart et al., 2020)。具体的には、粘土質岩石と 低アルカリ性セメントの相互作用での評価にあたり考慮すべき現象として、鉱物の溶解・沈殿反 応、酸化還元反応及び陽イオン交換反応とし、これらの現象に関わるプロセスとして、間隙の変 化に伴う拡散係数の変化、粘土鉱物の溶解速度及び電荷の異なる化学種の拡散挙動の違いにより 生じる電位勾配による拡散係数の変化を選定した。この事例では、これら全てのプロセスを考慮 した解析に対し、個々のプロセスの影響度を把握するため、プロセスの考慮の有無による解析を 行い、全てのプロセスを考慮した場合との比較が行われた。その結果、粘土質岩石と低アルカリ 性セメントの相互作用に伴う間隙率・pH及び二次鉱物の変化(C-S-Hの分布)に関しては、間隙 の変化に伴う拡散係数の変化が最も感度が高い(影響が大きい)プロセスとなり、粘土鉱物の溶 解速度の違いによる感度(瞬時平衡を仮定した場合と速度論に基づく遅い反応速度の場合)は小 さかった。上述したような解析例は、例えば上記のような相互作用に関わる反応輸送解析を行う 場合、相互作用に伴う状態変化への影響が大きいプロセスを抽出する方法(モデルの忠実度を下 げる際、考慮すべきプロセスとしての優先度を判断する方法)としても参考になる。また、この ような結果に基づき将来的にインプットに関わる情報の省略(モデルで考慮すべきプロセスの省 略)を検討する際、簡略化を行うことに対する客観性を示す上でも重要になると考えられる。

③ A-3の例:モデルで対象とするスケールの変更に基づく簡略化のための方策の例

多孔質媒体を対象にした反応輸送解析では、分子レベル(スケール)からフィールドスケール に至るまでに幾つかのサブスケールを設け、連続体としての取扱いを小さいスケールからより大 きいスケールにアップスケールする方法が取られる。その際、小さいスケールを対象とした場合 に得られた平均化された値・係数・関係式等をより大きいスケールに適用して検討がなされる。 通常、大きなスケール(マクロスケール)で認められる化学ー物質移行に係る現象は、より小さ いスケール(マイクロスケールや分子スケール)で生じたプロセスによる影響を強く受けている。 このため、鉱物の溶解・沈殿等で生じるマイクロスケールでの間隙の不均質性が透水性の時間変 化にも影響を与える。このような変化は非線形であり、初期の間隙状態の情報では評価するのが 困難である。この事例では、多孔質媒体中での微視的(マイクロ)スケールでの間隙の変化が巨 視的(マクロ)スケールの透水性に与える影響を評価するための方策として、微視的と巨視的な 評価を繋ぐ方策の一案を紹介している(Parasinakis et al., 2018)。アップスケールの方法には、 既に幾つかの方法や事例が報じられている(平均化:Whitaker, 1967、均一化:Hornung, 1991、 繰り込み化:Hanasoga et al., 2017、アンサンブル平均化:Wood et al., 2003)。モデルの簡略 化を検討する際の目的や対象により、どのような方法がより適切かを検討することが必要である。

④ B-2の例:地球化学解析部分の統計的手法による代替に基づく簡略化のための方策の例

反応輸送解析では、物質輸送に関わる部分の計算に比べて、化学反応や化学種計算に関わる部 分の方がより計算負荷が大きい。このため、地球化学解析の部分の計算負荷を低減するための工 夫が行われている。このような事例の一つとして、CO₂の地下貯蔵に関わる研究の一環として実 施された多孔質媒体中での方解石の溶解・沈殿を考慮した反応輸送解析において、地球化学解析 に関わる部分を人工ニューラルネットワーク(Artificial Newron Network : ANN)と呼ばれる機 械学習手法で代替させた例がある(Guérillot and Bruyelle, 2020)。ANNでは、地球化学解析に より推定された方解石の溶解・沈殿に対し、インプット情報である液相組成に対する方解石の沈 殿量の関係(入出力関係)を学習データとして学習させ、地球化学解析と同様な推定結果が得ら れるようなメタモデルを構築した。このメタモデルを地球化学解析の部分に置き換えることで、 反応輸送解析に要する解析時間は、1/14に短縮された。一方、機械学習手法では、学習程度によ り、予測(評価)精度も異なり、地球化学解析に比べて誤差が大きくなることもあり得る。従っ て、このような代替方法に基づく簡略化を検討する際には、代替手法を適用することによる誤差 の影響が小さいことを予め確認しておくことが必要である。

⑤ B-3の例:計算コストの高いプロセスモデルの代替に基づく簡略化のための方策の例

前述のB·2の場合と同様に、地球化学解析の部分の計算負荷を低減するための工夫として、この 事例では、より簡便な方法としてルックアップテーブルを利用している。Jacques et al. (2011) では、コンクリートの劣化に関わる反応輸送解析を対象に、予め地球化学解析により一定数の入 出力関係(例えば、液相組成と化学反応量との関係)の解析を行い、その情報を別途テーブルと して保存しておき、対象とする反応輸送解析を行う際には、あるタイムステップでの入力値に最 も近い出力値を保存していたテーブルから読み込むことで、地球化学解析を行わずに簡略化させ ている。このような簡略された方法によるコンクリートの劣化に関わるパラメータ(間隙率やpH) の評価結果について、従来通りの地球化学解析を含めた解析結果と比較したところ、再現性は高 く、ルックアップテーブルを利用した場合の解析時間は、1/14に短縮された。このような代替方 法は、手法としても簡易であり、経済性(コスト)や効率性(計算時間)の観点でも優れている。 一方、統計的な観点を取り入れて簡略化された手法であるため、利用にあたっては解析対象(条 件や時間)に対し、ルックアップテーブルが適用できる範囲が適切かどうかを十分に確認してお くことが必要である。

本事業で検討を進めている環境条件の変遷と核種移行現象の取扱いを対象にした精緻・中間・ 簡易モデルによる段階的な簡略化手法については、簡略化の手法としては、モデルの忠実度を下 げて簡略化するアプローチであり、収着モデルで考慮する現象・プロセスやパラメータを実験結 果等に基づく知見から省略する手法に基づいていることから、上述した分類のうち、A-2の手法と 同等と考えられる。なお、セメント支保やオーバーパックとの相互作用に伴う緩衝材の変質評価 に関しては、統計的な観点を取り入れて簡略化する手法の有効性(計算負荷の低減)がEURAD報 告書にも幾つかの事例として報告されており、本事業の中でも今後の試行の中で検討する価値が あると考えられる。いずれにしても、上述したような既往の類似事例を参考に、今後、本事業の 中で検討する複合現象・核種移行の総合評価技術の高度化を進める中で、どのような評価の場合 にどのような簡略化手法を適用するのが適切なのかを具体的に検討し、安全評価への反映を念頭 にした場合の簡略化の方策(戦略)を練ることが必要である。

2) 米国における類似検討事例(Hanford IDF)に関わる文献調査

米国のワシントン州南部に位置するDOE (エネルギー省) が所管するハンフォードサイトでは、 中低レベル放射性廃棄物の浅層処分施設としてIDFの建設が進められており、現在、廃棄物を受 け入れるための許認可待ちの状態である。許認可にあたっては、IDFにおける長期的な環境リス クや人間環境への影響評価が求められ、放射線影響の観点からの安全評価も行われている。IDF における最新の安全評価は、2017年に行われ(以下、「2017 IDF PA」と称す)、その内容は、 2000ページ程度に及ぶ報告書(RPP-RPT-59958)として公開されている。IDFでは、主要な廃棄 物としては、ガラス固化された廃棄物とセメント固化された廃棄物に大別され、各々の廃棄物に 対しての安全評価が行われているが、ここでは、前者のガラス固化廃棄物を対象として行われた 例を対象に情報整理を行った。

IDFにおける安全評価の概略的なシナリオとしては、雨水の浸透に伴う地表水が地表から20~ 30m程度の深さ(不飽和帯)に設置された処分施設に浸入し、その後、廃棄物から浸出した核種 が地下に移行し、地表から120m程度の深さにある帯水層に流入するといったものである。安全評 価上重要な核種としては、99Tcや129Iといった収着や二次鉱物への取り込みがあまり期待できない 核種となっている。これらの核種の移行率の評価にあたっては、本事業におけるニアフィールド を対象にした複合現象・核種移行の総合評価と同様な目的のために開発されたSTOMPと呼ばれ るPNNLが開発した解析コード(PNNL-12030; PNNL-15782)を用いたプロセスモデリングが行 われ、その中ではニアフィールド等の状態変遷が核種移行に与える影響を評価するための決定論 的な解析や感度解析も行われた。また、このようなSTOMPを用いたプロセスモデリングで得られ た核種の移行率に関わる評価を通じて、STOMPのような多成分・多相を対象にした複合現象解析 を行わずに、より簡易な解析方法で、STOMPの解析で得られる結果と同等の解析結果を得るため の簡略化の方策(Geochemist's Workbench: GWBのReactモジュールを用いた反応経路計算; Bethke, 2008) も検討された。さらに、上述したようなプロセスモデリングの検討を通じて簡略 されたモデルをGoldSim (GoldSim, 2007)のような安全評価のためシステムモデリングに取り込 み、安全評価における概念モデルにおける不確実性や解析で用いるパラメータの不確実性等を対 象にした確率論的な解析や感度解析が行われた。

ここでは、プロセスモデリングの中で検討が行われたモデルの簡略化に関わる方策の部分について下記に情報を整理した。

① モデルの簡略化を図る上での前提条件の確認

前述したようにIDFにおけるガラス固化廃棄物からの核種の放出において、安全評価上重要と なる核種は、Tc-99やI-129であり、これらはニアフィールド及び地層中における移行遅延が期待 できない。このため、ガラス固化廃棄物からのソースタームモデルが重要となり、そのモデルを どのような根拠に基づき簡略化を図れるかが肝要になる。2017 IDF PAでは、地表からの浸透水 とガラス固化廃棄物との反応系は、処分場閉鎖後、比較的早い段階(数百年程度)で定常状態に なり、その状態は安全評価の対象期間である1万年程度まで維持されることが想定されている。こ のような想定は、STOMPを用いた複合現象解析の結果から推測されたものである(RPP-RPT-59958)。また、ガラス固化廃棄物からの核種の放出率はこのような定常状態において最大の放出 率となることから、分別放出率(fractional release rate)は安全評価の観点からは保守的な値と なる。このため、モデルの簡略化を図るにあたっては、定常状態が仮定できる処分場閉鎖後、千 年程度から1万年程度を対象とし、安全評価上重要となる核種は、ガラスの溶解速度に依存するも のとして、ガラス固化廃棄物からの分別放出率で評価された。

② モデルの簡略化に関わる方法

上述したモデルの簡略化を図る上での前提条件で述べた通り、定常状態を仮定できる場合、安 全評価上必要となる期間(例えば、1万年程度)を対象に解析を行う必要はなく、ある与えられた 期間での分別放出率を算出すれば良いことになる。このため、STOMPを用いた場合では、数時間 から数日程度の時間を要する解析もGWBのReactモジュールでは分単位での解析で行うことがで きる。Reactモジュールにおける簡略化されたモデルでは、全体的なガラスの溶解速度をガラスマ トリクスの溶解速度と未変質のガラスがイオン交換反応(溶液中のH+とガラスマトリクス中の Na+)により水和する速度により律速されると仮定している。このような仮定に基づくガラスの溶 解速度モデルにより、ある与えられた期間での反応経路計算をReactモジュールで行い、分別放出 率が算出された。

③ 簡略化されたモデルの妥当性確認

2017 IDF PAでは、STOMPを用いて核種移行に与える影響を評価するための決定論的な解析 や感度解析も行われたが、それらによる解析と併せて、GWBのReactモジュールを用いた簡略化 されたモデルによる解析も行われた。後者の場合、STOMPに比べて解析に要する時間が短いため、 パラメータの不確実性(例えば、IDFに処分予定のガラス固化廃棄物には、ガラス組成の異なる幾 つかの廃棄物があるため、このようなガラス組成の違いによるガラス溶解速度への影響に係る不 確実性)等を考慮した感度解析も行われた。また、STOMP及びReactモジュールによる解析は、 両解析コードによるベンチマークとしても位置付けられ、解析結果の比較が行われた。その結果、 ガラス固化廃棄物からの⁹⁹Tcの分別放出率は、様々な感度解析により放出率のオーダーとして4桁 程度の幅が生じ、それらの幅の中で両解析コードによる解析結果の差は、±25%に収まった。こ のようにSTOMPによる忠実度の高いモデルによる解析結果とReactモジュールによる忠実度を 下げた簡易なモデルによる解析結果を比較し、簡略化されたモデルの妥当性が確認された。

上述した通り、2017 IDF PAにおける安全評価では、STOMPを用いたプロセスモデリングによ り、ガラス固化廃棄物からの核種の放出率の評価を定常状態の仮定に基づき評価することが妥当 であることが示唆され、その客観的な根拠に基づき、モデルの簡略化が行われた。この場合も EURAD報告書で述べられていたように、忠実性の高いプロセスモデリングによる検討を踏まえ、 モデルの簡略化の方針が検討されている。本事業で検討を進めている環境条件の変遷と核種移行 現象の取扱いを対象にした精緻・中間・簡易モデルによる段階的な簡略化手法については、現段 階では、精緻なモデルによる忠実性の高いプロセスモデリングにおいて、解析結果の信頼性が十 分に確認できていない。このため、簡略化手法の客観性を高めるためにも、今後も引き続き、精 緻なモデルによるプロセスモデリングの解析手法の高度化を進めていくことが重要である。

(6) 5か年の目標を念頭に統合評価技術の更なる高度化を図るための解析ツールの模索

2.3.2項の冒頭である「背景と目的」で触れた通り、ニアフィールド複合現象と核種移行を統合 化させた評価技術の開発にあたっては、NF事業で開発されたプロトタイプシステムの活用のみな らず、更なる高度化を図ることを念頭に近年の先端的な解析技術等の活用についても視野に入れ るべきである。また、評価技術の開発を進める上では、評価結果の追跡性・透明性を確保するた めにも幅広いユーザーの利用可能性も念頭に検討することも必要である。このような観点から、 令和5年度は、プロトタイプシステムの活用と並行し、今後の5か年の事業を進めていく中で統合 評価技術の更なる高度化を図る上で候補となり得る解析コードを把握するため文献調査を行い、 諸外国で用いられている類似解析コードの解析機能や解析コードの特徴等に関わる情報を整理し た。情報整理にあたっては、解析対象とされた連成解析の例(例えば、水理と化学の連成(HC) 等)、解析次元(例えば、1次元等)、解析方法(例えば、有限要素法等)、解析用ソルバー(例 えば、operator splitting等)、状態変遷を踏まえた核種移行解析の事例の有無、並列化計算の可 能性の有無、Multi porosityモデルの取扱い可能性の有無、解析コードの利用条件、解析コードで 利用可能な熱力学データベースの型式(例えば、PHREEQCフォーマット等)を調査対象とした。 なお、ニアフィールドにおける複合現象の主な対象としては、緩衝材を想定しているため、既往 の適用例として緩衝材または粘土層を扱っている事例を中心に文献調査を行った。文献調査の結 果を表 2.3-7にまとめる。

表 2.3-7 NF事業で開発されたプロトタイプシステムと諸外国で用いられている類似解析コードの解析機能や解析コードの特徴等の比較例(表中の黄色のハッチは、プロトタイプシステムに比 べて優位性や利便性が高いと判断された箇所)

解析 コード名	連成 解析例	解析対 象次元	解析 方法	解析用ソ ルバー	状態変遷を踏ま えたRN解析例	並列化計算 の可能性	Multi porosity	利用 条件	利用可能 TDB形式	参考 文献例	
COMSOL	HM HC	1D, 2D, 3D	FEM		Operator		マルチスレッド		ライセン	PHREEOC	ldiart et al. (2020), Lavina et al. (2023)
iCP Donnan	HM HC MC	1D, 2D, 3D		splitting	_	処理は可	еј	→購入 必要	フォーマット	ldiart et al. (2019)	
QPAC CABARET	нс	1D, 2D, 3D	FEM FVM	Operator splitting	地下水条件の時 間変遷を踏まえた 事例あり	不可	現状では 不可	外部利 用不可 (CABA RETは JAEA 可)	GWB フォーマット	原子力機構・ 原環センター (2020)、 Metcalfe et al.(2021)	
QPAC- MACBECE, QPAC-RNT	НС НМС	1D, 2D	FEM FVM	Operator splitting	QPAC(HC)及び QPAC-RNTでのセ メント影響を踏まえ た事例あり	不可	現状では 不可	エネ庁 許可要	GWB フォーマット	原子力機構・ 原環センター (2020、 2022)	
Crunch Clay	НС	1D, 2D, 3D	FDM FVM	Operator splitting	_	大規模並列 計算:可	可		CRUNCH フォーマット	Steefel (2009), Tournassat et al.(2023)	
Open GeoSys	HM HC	1D, 2D, 3D	FEM	Operator splitting	粘土層中間隙水 の状態変遷を踏ま えた事例あり(HC)	大規模並列 計算:可	現状では 不可	Free (オーブ ンソー ス)	PHREEQC フォーマット	Garibay- Rodriguez et al.(2022)	
PFLOTRAN	HM HC HMC	1D, 2D, 3D	FVM	Monolithic, Operator splitting	-	大規模並列 計算:可	可		CRUNCH フォーマット 類似	Hammond et al.(2014), Trinchero et al.(2022)	
PHREEQC	НС	1D	FDM	Monolithic	粘土層中間隙水 の状態変遷を踏ま えた事例あり	マルチスレッド 処理は可	ग		PHREEQC フォーマット	Parkhurst and Appelo (2013), Aguila et al. (2021)	

表 2.3-7には、NF事業で開発が進められたプロトタイプシステム(表中で青色のハッチの付い た箇所)の情報も加え、他の類似解析コードとの解析機能や解析コードの特徴等について比較し た。例えば、解析対象とされた連成解析例について見るとプロトタイプシステムと同様に水理・ 力学・化学の3連成の解析可能性を示唆する解析コードとしては、iCP Donnan及びPFLOTRAN が挙げられた。また、解析対象とされた次元については、PHREEQCを除く解析コードは、いず れも2次元以上の解析事例があった。解析方法は、FEM(有限要素法)またはFEV(有限体積法) による解析コードが多く、解析ソルバーはoperater splittingを採用している解析コードが多かっ た。状態変遷を踏まえた核種移行解析については、十分な調査時間が取れなかったため調査不十 分な点は否めないが検討事例は比較的少なかった。プロトタイプシステムは並列化計算の実施は 不可能だが、将来的に包括的な感度解析や不確実解析が必要になる場合も想定し、並列化計算の 可否についても調査した。その結果、今回対象とした解析コードの中では、COMSOL、iCP Donnan、 Crunch Clay、PFROTRAN及びPHREEQCが実施可能であった。解析コードの利用条件として は、幅広く利用可能なオープンソースの解析コードとして、Crunch Clay、Open GeoSys、 PFROTRAN及びPHREEQCが挙げられた。解析コードで利用可能な熱力学データベースのフォ ーマットについては、PHREEQC及びGWBフォーマットが主であり、Crunch Clay及び PFROTRANについてはCRUNCHフォーマットに準拠したデータベースが利用されていた。なお、 データベースフォーマットについては、フォーマット変換のプログラムを利用できれば、これら 主要なデータベースのフォーマットであれば相互に変換が可能であると考えられる(例えば、 BRGMが開発・運用しているTHERMODDEMでは、これら主要なデータベースフォーマットに 対応したデータベースが準備されている;https://thermoddem.brgm.fr/databases)。なお、表 2.3-7で調査対象とした各解析コードについては、いずれの解析コードもこれまでに複数の事例を対象 に検証・確証が行われており、各々の信頼性ついては個別に別途確認がされているものである。 上述した様な整理に基づくと、本事業においてNF事業で開発されたプロトタイプシステムと並

行して活用を進めることを念頭に、HCを中心に力学(M)も含めた連成の実績・拡張性、将来的な3次元(3D)解析や多様なパラメータを考慮した大規模な不確実性・感度解析(並列計算)を視野にいれた発展性、複数間隙の取扱い可能性、幅広い活用性等に着目すると、現状ではPFOTRANが有力な候補として挙げられる。

(7) まとめと今後の課題

令和5年度は、緩衝材と材料間での相互作用としてセメント支保及びオーバーパックの影響を考 慮した体系での精緻モデルによる核種移行解析を可能とするための解析手法の高度化を試みた。 解析手法の高度化にあたっては、QPACにより解析負荷を増やすこと無く、緩衝材の状態変遷を 考慮し、収着メカニズムに基づく精緻なモデルを用いた核種移行解析をQPAC-RNTで行うための 手法を構築した。また、NF事業で検討された中間モデルによる手法を基に、緩衝材の長期変質挙 動に影響を及ぼすと考えられる不確実要因の一つとして、地下水条件を変えた場合の核種移行解 析を行い、核種の移行遅延に与える影響について分析した。その結果、Cs及びNiを対象にした解 析では、緩衝材中での鉱物学的な状態変遷による影響より、地下水の水質(イオン強度、炭酸濃 度(pH))の違いによる影響の方が核種の移行遅延に与える影響が大きい可能性が示唆された。 さらに、解析手法の高度化として取り組んだ精緻モデルによる解析による結果とNF事業で開発さ れた中間モデルや簡易モデルを用いた解析結果を比較し、精緻・中間・簡易モデルの比較による モデルの簡略化方策についても試行した。試行の結果、解析手法の高度化において構築された精 一般モデルによる核種移行解析の手法については、精緻モデルでのモデル化における初期の条件設 定等に課題がある可能性が示唆された。加えて、今後のモデル・パラメータ等の簡略化方策の検 討や統合評価技術の更なる高度化を図る上で重要となる解析コードを検討する上で参考となる情 報に係る文献調査では、欧州や米国における先行した類似事例での取り組む内容や簡略化方策の 具体例を整理すると共に、本事業においても今後参考とすべき点をまとめた。また、NF事業で開 発されたプロトタイプシステムの活用と並行し、今後の5か年の事業を進めていく中で統合評価技 術の更なる高度化を図る上で候補となる解析コードとして、現状での有力な候補として PFOTRANを選定した。今後の課題としては、圧縮ベントナイト中の間隙の取扱いの違い(単一 間隙と複数間隙)が複合現象の評価結果に与える影響を解析的に検討することやモデルの簡略化 方策に関わる更なる具体的な検討の試行を継続していくことが必要である。

2.4 成果と今後の課題

HLW及びTRU廃棄物を対象にした地層処分安全評価において、ニアフィールドシステムの長 期変遷を考慮した核種移行評価を行う上では、HLW及びTRU廃棄物で想定される廃棄体、オーバ ーパック等の金属容器、ベントナイトを主成分とする緩衝材、セメント系材料による支保工、人 エバリア周辺の岩盤といった複数のバリア材や処分施設構成材との相互作用に伴う環境変遷(状 態変遷)の評価とそれを考慮した核種移行を評価するためのモデルや解析・評価技術が必要にな る。

このため、HLWの地層処分安全評価への反映を念頭に、これらバリア材等の境界領域における バリア間相互作用を考慮可能な核種移行モデルを開発するため、先行事業であるNF事業等で得ら れた成果と課題を踏まえ、核種移行評価上の重要な現象を対象とし、先端分析・計算科学技術等 を活用した現象理解とモデル開発を行った。令和5年度の成果としては、緩衝材の長期変遷を考慮 した核種移行評価技術開発として、炭酸錯体等の複数の溶存化学種が共存する系を想定した緩衝 材中での核種の拡散移行評価手法の構築に向けて、試験データの取得や解析手法の開発を進める とともに、粗製ベントナイト中でのコロイド移行挙動やモンモリロナイト層間間隙へのアクチニ ド炭酸錯体の移行挙動を評価し、核種が移行できる緩衝材中の間隙サイズの評価を進めた。今後の課題としては、複数の溶存化学種が共存する系での試験データに基づく解析手法の検証、粗製ベントナイト中を透過できるコロイド粒径の明確化等、評価モデル開発に向けたより精緻な特性評価等の必要性が挙げられる。また、バリア界面現象を考慮した核種移行評価技術開発の令和5年度の成果として、緩衝材とオーバーパックの相互作用により放出される緩衝材間隙水中のFeやモンモリロナイト結晶構造中のFeによるモンモリロナイト結晶構造中のFeによるモンモリロナイト結晶構造中の変化を明らかにし、これらの変化に伴う緩衝材の核種収着能に及ぼす影響等について評価した。今後の課題としては、Fe共存の影響を受けた緩衝材への核種収着挙動の検討、緩衝材とセメント系材料との相互作用等により生成する鉱物による緩衝材間隙の閉塞が核種移行に及ぼす影響の評価等が挙げられる。

また、TRU廃棄物の地層処分安全評価への反映を念頭に、先行事業であるTRU事業等で得られ た成果と課題を踏まえ、TRU廃棄物に固有の課題を対象にした核種移行評価に関わる個別現象評 価技術の開発や廃棄体からの核種放出挙動評価技術の開発を行った。TRU廃棄物に固有の課題と して、廃棄物中に存在する有機物や硝酸塩の影響を対象にした核種移行評価技術開発に係る令和 5年度の成果としては、ウェス等のセルロースの分解生成物であるイソサッカリン酸(ISA)の有 無に関わらずパラジウム(Pd)の溶解度制限固相はPdOまたはPd(OH)2と推測され、核種移行評 価においては、溶解度が高いPd(OH)2を溶解度制限固相として評価することが適切であることを 示した。また、硝酸塩共存下でのセメントの代表的な水和物の一つであるC-S-Hへのヨウ素の収 着挙動を評価し、I が硝酸イオンの共存の有無によらずC-S-Hにはほとんど収着しないこと等を明 らかにした。今後の課題としては、C-S-H以外のセメント水和物へのヨウ素の収着挙動に及ぼす 硝酸イオンの影響の評価や、ISAのセメントへの収着メカニズムの評価等が抽出された。TRU廃 棄物の廃棄体からの核種放出挙動評価技術に係る令和5年度の成果としては、データが不足してい る照射済みPWR構造材の候補を選定し、ホットセル内での作業を想定したモックアップを開始す るとともに、未照射試料の腐食試験データを拡充し、新たに炭酸イオンの影響に着目した腐食試 験を開始した。ハル酸化膜の瞬時放出率の低減対策では、ハル酸化膜成分であるジルコニアの溶 解速度に関するデータを取得した。C-14化学形態については、極低濃度のC-14化学種の分析技術 の高度化を図るとともに、計算科学的アプローチによるC-14化学種の生成プロセス解明の見通し を得た廃棄体モデルの代表性については、これまでに発生した使用済燃料の燃焼度を調査し、本 事業で使用している照射材と比較検討した。今後の課題としては、照射済みPWR構造材および未 照射試料を用いた腐食試験から調和溶出モデルの高度化を図ること、瞬時放出率低減に資する知 見を拡充することが挙げられる。また、C-14化学種の分析技術を実サンプル分析に適用できるレ ベルに引き上げるとともに、C-14化学種の生成プロセスに関する簡略モデルを構築すること、廃 棄体モデルの代表性に関するデータ補完のための研究炉の活用等について調査することが課題と して抽出された。

上述した様な検討により、ニアフィールドシステムの環境変遷を考慮した核種移行評価を行う 上で必要となる個別現象理解のためのモデルや解析・評価技術の高度化を図るとともに、ニアフ ィールドで生じる多様な現象・プロセスを考慮した複合現象評価のための解析技術とその解析で 得られた環境変遷を踏まえた核種移行評価を行うための統合解析技術の高度化が必要になる。

このため、統合解析技術の中核となる地球化学・物質移行等を取り扱うニアフィールド複合現 象評価モデルを対象に、先行事業であるNF事業等で得られた成果と課題を踏まえつつ、近年の先 端分析・解析技術の成果を反映したモデルの高度化を図った。また、ニアフィールドの複合現象 評価を踏まえた核種移行評価を行うための統合解析技術を用いた解析的検討や5か年の目標とし て掲げた安全評価で用いられるシステム評価モデルへの反映を念頭したモデル・パラメータの簡

2 - 110

略化方策の検討に資するための情報整理等も行った。令和5年度の成果としては、地球化学・物質 移行モデルの高度化として、圧縮ベントナイトの微細間隙構造を踏まえた複数間隙の概念に基づ く間隙水化学のモデル化を行った。これにより、微細間隙構造の取扱いの違いによる緩衝材の長 期的な状態変遷への影響(例えば、cloggingのような間隙閉塞への影響)を解析により比較検討で きる可能性が示唆された。また、NF事業で開発されたプロトタイプシステムを用いた解析手法の 高度化、NF事業で開発された中間モデルによる状態変遷を踏まえた核種移行評価における不確実 性解析、精緻・中間・簡易モデルの比較によるモデルの簡略化方策に関わる試行、今後のモデル・ パラメータ等の簡略化方策の検討や統合評価技術の更なる高度化を図る上で重要となる解析コー ドを検討するための文献調査を実施した。これらにより、不確実性要因として影響の大きいパラ メータの抽出や精緻モデルを用いた解析手法の高度化を図る上での現状の問題点を抽出できた。 また、今後、プロトタイプシステムの活用と並行して利用すべき解析コードの候補を選定できた。 今後の課題としては、圧縮ベントナイト中の間隙の取扱いの違い(単一間隙と複数間隙)が複合 現象の評価結果に与える影響を解析的に検討することやモデルの簡略化方策に関わる更なる具体 的な検討の試行を継続していくことが必要である。また、統合評価技術の高度化を図る上では、 個別現象理解・モデル開発との連携が重要であり、本事業で得られた成果のみならず、他事業で ある「ニアフィールド長期環境変遷評価技術開発」で得られる成果も適宜踏まえつつ検討を進め ることが重要である。

参考文献

- Arcos, D., Bruno, J., Karnland, O., Geochemical model of the granite-bentonite-groundwater interaction at Aspö HRL (LOT experiment). Applied Clay Science, 23, 219–228, 2003, <u>https://doi:10.1016/S0169-1317(03)00106-6</u>
- Águila, J. F., Montoya, V., Samper, J., Montenegro, L., Kosakowski, G., Krejci, P., Pfingsten, W., Modeling cesium migration through Opalinus clay: a benchmark for single-and multispecies sorption-diffusion models. Computational Geosciences, 25(4), 1405-1436, 2021, https://doi.org/10.1007/s10596-021-10050-5
- Appelo, C.A.J., A review of porosity and diffusion in bentonite. Posiva Working Report 2013-29, Posiva Oy, Finland, 2013.
- Arima T., Idemitsu K., Inagaki Y., Kawamura K., Tachi Y., Yotsuji K., Diffusion and adsorption of uranyl ion in clays: Molecular dynamics study, Progress in Nuclear Energy, Vol.92, pp286-297, 2016.
- Berre, I., Doster, F., Keilegavlen, E., Flow in Fractured Porous Media: A Review of Conceptual Models and Discretization Approaches, Transport in Porous Media, vol. 130, pp. 215–236, 2019, doi: 10.1007/s11242-018-1171-6.
- Bethke, C. M., Geochemical and Biogeochemical Reaction Modeling, Cambridge University Press, New York, NY, 2008.
- Bildstein, O., Claret, F., Frugier, P., RTM for Waste Repositories, Rev. Mineral. Geochemistry, vol. 85, no. 1, pp. 419–457, 2019, doi: 10.2138/rmg.2019.85.14.
- Birgersson, M., Karnland, O., Ion equilibrium between montmorillonite interlayer space and an external solution – Consequences for diffusional transport. Geochimica et Cosmochimica Acta 73, 1908–1923, 2009, <u>https://doi.org/10.1016/j.gca.2008.11.027</u>
- Birgersson, M., Task Force on EBS C-session. Calculation of Benchmarks 1-5 SKB TR-19-16. Svensk Kärnbränslehantering AB, 2019.
- Bleier, A., Neeb, K.H., Kroebel, R., Wiese, H.W., Carbon-14 inventories and behaviour in LWR spent fuel rods during reprocessing. Proc. Int. Conf. on Nuclear Fuel Reprocessing and Waste Management Recod 87, Paris 1987, Vol. 3, pp. 1089–1094, 1987.
- Bradbury, M.H., Baeyens, B., A mechanistic description of Ni and Zn sorption on Namontmorillonite Part II: modelling. Journal of Contaminant Hydrology 27, 223–248, 1997.
- Bradbury, M.H., Baeyens, B., Porewater chemistry in compacted re-saturated MX-80 bentonite: Physico-chemical characterisation and geochemical modelling. Nagra Technical Report NTB 01-08, 2002, Switzerland.
- Cabrera, V., López-Vizcaíno, R., Navarro, V. et al., Database for validation of thermo-hydrochemo-mechanical behaviour in bentonites. Environ Earth Sci 82, 207, 2023, https://doi.org/10.1007/s12665-023-10902-6
- Chang, K. W., Nole, M., Stein, E. R., Reduced-order modeling of near-field THMC coupled processes for nuclear waste repositories in shale, Computers and Geotechnics, vol. 138, no: 104326, 2021, doi: 10.1016/j.compgeo.2021.104326.
- Chagneau, A., Tournassat, C., Steefel, C.I., Bourg, I.C., Gaboreau, S., Esteve, I., Kupcik, T., Claret, F., Schaefer, T., Complete restriction of 36Cl- diffusion by celestite precipitation in densely compacted illite. Environ. Sci. Technol. Lett., 2, 139–143, 2015, <u>https://doi.org/10.1021/acs.estlett.5b00080</u>

- Cvetkovic, B.Z., Salazar, G., Kunz, D., Szidat, S., Wieland, E., Analysis of 14C-bearing compounds released by the corrosion of irradiated steel using accelerator mass spectrometry, The Royal Society of Chemistry 143, pp. 3059–3067, 2018.
- 電気事業連合会,核燃料サイクル開発機構,TRU 廃棄物処分技術検討書-第2次TRU 廃棄物処 分研究開発取りまとめ-,JNC TY1400 2005-013, FEPC TRU-TR2-2005-02, 2005 年9月.
- De windt, L., Marsal, F., Tinseau, E., Pellegrini, D., Reactive transport modeling of geochemical interactions at a concrete/argillite interface, Tournemire site (France), Physics and Chemistry of the Earth, vol. 33, pp. S295-S305, 2008, doi: 10.1016/j.pce.2008.10.035.
- 遠藤 貴志, 舘 幸男, 石寺 孝充, 寺島 元基, デンドリマーを用いた圧縮ベントナイト中のコ ロイドの拡散・ろ過挙動の評価手法の構築, 日本原子力学会和文論文誌, Vol.20, pp9-22, 2021.
- Frantz, F. K., Taxonomy of model abstraction techniques, Proceedings of the 27th conference on Winter simulation, pp. 1413–1420, 1995, doi: 10.1145/224401.224834.
- Fukatsu Y., Yotsuji K., Ohkubo T., Tachi Y., Diffusion of tritiated water, 137Cs+, and 125Iin compacted Ca-montmorillonite: Experimental and modeling approaches, Applied Clay Science, Vo.211, 106176, 2021.
- Garibay-Rodriguez, J., Chen, C., Shao, H., Bilke, L., Kolditz, O., Montoya, V., Lu, R., Computational Framework for Radionuclide Migration Assessment in Clay Rocks. Frontiers in Nuclear Engineering, 1, 919541, 2022.
- 原子力環境整備促進・資金管理センター, 平成 20 年度 地層処分技術調査等委託費 TRU 廃棄物 処分技術 ヨウ素・炭素処理・処分技術高度化開発報告書(第3分冊)一放射化金属廃棄物中 の C-14 の放出挙動評価一, 平成 21 年 3 月, 2009.
- 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,日本原子力研究開発機構,平成30年度高レベル放射性 廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 TRU廃棄物処理・処分に関する技術開発報告書,平 成30年3月,2019.
- 原子力環境整備促進・資金管理センター,日本原子力研究開発機構,平成31年度高レベル放射性 廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 TRU廃棄物処理・処分に関する技術開発報告書,令 和2年3月,2020.
- 原子力環境整備促進・資金管理センター,日本原子力研究開発機構,令和2年度高レベル放射性廃 棄物等の地層処分に関する技術開発事業 TRU廃棄物処理・処分に関する技術開発報告書,令和 3年3月,2021.
- 原子力環境整備促進・資金管理センター,日本原子力研究開発機構,令和3年度高レベル放射性廃 棄物等の地層処分に関する技術開発事業 TRU廃棄物処理・処分に関する技術開発報告書,令和 4年3月,2022.
- 原子力環境整備促進・資金管理センター,日本原子力研究開発機構,令和4年度高レベル放射性廃 棄物等の地層処分に関する技術開発事業 TRU廃棄物処理・処分に関する技術開発報告書,令和 5年3月,2023.
- Gimmi, T., Alt-Epping, P., Simulating Donnan equilibria based on the Nernst-Planck equation.GeochimicaetCosmochimicaActa,232,1-13,2018,

https://doi.org/10.1016/j.gca.2018.04.003

- Govaerts, J., Jacques, D., Samper, J., Neeft, E. and Montaya, V., Model abstraction methods for upscaling and integration process knowledge in reactive transport models for geological disposal of radioactive waste, Final version as of 19.01.2022 of deliverable D2.18 of the HORIZON project EURAD. EC Grant agreement no: 847593, 2022.
- GoldSim., GoldSim Contaminant Transport Module User's Guide, GoldSim Technology Group, Version 4.20, 2007.
- Guérillot, D., Bruyelle, J., Geochemical equilibrium determination using an artificial neural network in compositional reservoir flow simulation, Comput. Geosci., 2020, doi: 10.1007/s10596-019-09861-4.
- Guillemot, T., Salazar, G., Rauber, M., Kunz, D., Szidat, S., Wieland, E., Carbon-14- release and speciation during corrosion of irradiated steel under radioactive waste disposal conditions, Science of the Total Environment 817, 152596, 2022.
- Guenther, R. J., Blahnik, D. E., Thomas, L. E., Baldwin D. L., and Mendel J. E., Proc. Spectrum 90 Conference, Sep. 30–Oct. 3, Knoxville, TN, 1990.
- Hanasoge, S., Agarwal, U., Tandon, K., and Koelman, J. M. V. A., Renormalization group theory outperforms other approaches in statistical comparison between upscaling techniques for porous media, Physical Review E, vol. 96, no. 3, 2017, doi: 10.1103/PhysRevE.96.033313.
- Hammond, G. E., Lichtner, P. C., Mills, R. T, Evaluating the performance of parallel subsurface simulators: An illustrative example with PFLOTRAN. Water Res. Res., 50(1), 208-228, 2014.
- Hirano, F., Sato, S., Kozaki, T., Inagaki, Y., Iwasaki, T., Ohe, T., Kato, K., Kitayama, K., Torikai, S., Niibori, Y., Nagasaki, S., Thermal impact on geological disposal of hull and end piece wastes resulting from high-burn-up operation of LWR and introduction of MOX fuels into LWR, Journal of Nuclear Science and Technology 46[5], pp. 443-452, 2009.
- Hornung, U., Homogenization and Porous Media, vol. 98, no. 3. 1991.
- Idiart, A., Coene, E., Bagaria, F., Román-Ross, G., Birgersson, M., Reactive transport modelling considering transport in interlayer water – new model, sensitivity analyses and results from the Integrated Sulfide Project inter-model comparison exercise. SKB TR-18-07, ISSN 1404-0344, Svensk Kärnbränslehantering AB, 2019.
- Idiart, A., Laviña, M., Kosakowski, G., Cochepin, B., Meeussen, J. C. L., Samper, J., Mon, A., Montoya, V., Munier, I., Poonoosamy, J., Montenegro, L., Deissmann, G., Rohmen, S., Damiani, L. H., Coene, E., Naves, A., Reactive transport modelling of a low-pH concrete / clay interface, Appl. Geochem., vol. 115, 2020, doi: 10.1016/j.apgeochem.2020.104562.
- Ito, H., Kuwahara, T., Kawaguchi, K., Higuchi, Y., Ozawa, N., Kubo, M., Tight-Binding Quantum Chemical Molecular Dynamics Simulations for the Elucidation of Chemical Reaction Dynamics in SiC Etching with SF6/O2 Plasma, Physical Chemistry Chemical Physics 18, pp. 7808–7819, 2016.
- 伊藤寿,博士論文紹介「Tight-Binding 量子分子動力学法に基づくエッチングプロセスシミュレータの開発と半導体プロセス設計への応用」,分子シミュレーション研究会会誌"アンサンブル" 20(3), pp. 195-200, 2018.
- Jacques, D., Perko, J., Seetharam, S., Mallants, D., Model abstraction addressing long-term

simulations of chemical degradation of large- scale concrete structures, 1 st Int. Symp. Cem. Mater. Nucl. Wastes, no. October, pp. 11–13, 2011.

- 核燃料サイクル開発機構,わが国における高レベル放射性廃棄物 地層処分の技術的信頼性 –地 層処分研究開発第2次取りまとめ-分冊3 地層処分システムの安全評価, JNC TN1400 99-023, 1999.
- 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-,2000.
- Kaneko, S., Tanabe, H., Sasoh, M., Takahashi, R., Shibano, T., Tateyama, S., A Study on the Chemical Forms and Migration Behavior of Carbon-14 Leached from Simulated Hull Waste in the Underground Condition, Mat. Res. Soc. Symp. Proc. 757, II3.8.1, 2003.
- Kani, Y., Noshita, K., Kawasaki, T., Nasu, Y., Nishimura, T., Sakuragi, T., Asano, H., Decomposition of 14C containing organic molecules released from radioactive waste by gamma-radiolysis under repository conditions, Radiation Physics and Chemistry 77, pp. 434–438, 2008.
- Kuroda, K., Nakabayashi, R., Tanaka, S., Sugiyama, D., Formic acid and oxalic acid degradation by gamma rays under high-alkalinity and low-oxygen-concentration conditions, Radiation Physics and Chemistry 213, 111226, 2023.
- 共同作業チーム 核燃料サイクル開発機構, 電気事業連合会, TRU 廃棄物処分概念検討書, 平成 12年3月, 2000.
- Laviña, M., Pelegrí, J., Idiart, A., Pasteau, A., Michau, N., Talandier, J., Cochepin, B., Longterm evolution of bentonite-based seals for closure of a radioactive waste repository in the Callovo-Oxfordian claystone: a hydro-chemo-mechanical modelling assessment. Transp. Porous Media., 2023, <u>https://doi.org/10.1007/s11242-023-01989-3</u>.
- Mibus, J., Diomidis, N., Wieland, E., and Swanton, S., Final synthesis report on results from WP2 (D2.18), CArbon-14 Source Term (CAST) Project Report, 2018.
- Michael O., Dirk M. and Lian W., Radionuclide and Metal Sorption on Cement and Concrete, Topics in Safety, Risk, Reliabolity and Quality, Vol. 29, 2016.
- Nakabayashi, R., Fujita, T., Identification of Chemical Form of Stable Carbon Released from Type 304L and 316L Stainless-steel Powders in Alkaline and Acidic Solutions under Lowoxygen Conditions, Radiocarbon 60(6), pp. 1691–1710, 2018.
- Necib, S., Ambard, A., Bucur, C., Caes, S., Cochin, F., Fulger, M., Gras, J. M., Herm, M., Kasprzak, L., Legand S., Metz, V., Perrin, S., Sakuragi, T., and Suzuki – Muresan, T., Final report on 14C behaviour in Zr fuel clad wastes under disposal conditions (D3.20), CArbon-14 Source Term (CAST) Project Report, 2018.
- Neeft, E.A.C., Final overview of CAST (D7.23), CArbon-14 Source Term (CAST) Project Report, 2018.
- 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.
- 日本原子力研究開発機構,原子力環境整備促進·資金管理センター,令和4年度 高レベル放射性 廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 ニアフィールドシステム評価確証技術開発報告 書,令和5年3月,2023.
- 日本原子力研究開発機構, 令和4年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発 5か年成果報告書 令和5年3月, 2023.
- Oda, C., Shibata, M., and Yui, M., Experimental Indications of Effects of Surface Deprotonation on Na-Bentonite Porewater Chemistry in a Geological Repository. MRS Online Proceedings Library 663, 637, 2000, <u>https://doi.org/10.1557/PROC-663-637</u>
- Ochs, M., Boonekamp, M., Wannner, H., Sato, H., Yui, M., A quantitative model for ion diffusion in compacted bentonite. Radiochim. Acta, 82, 437-443, 1998, <u>https://doi.org/10.1524/ract.1998.82.special-issue.437</u>
- Ohkubo T., Kikuchi H., Yamaguchi M., An approach of NMR relaxometry for understanding water in saturated compacted bentonite, Physics and Chemistry of the Earth, Parts A/B/C, Vol.33, ppS169-S176, 2008.
- Ohkubo T., Ibaraki M., Tachi Y., Iwadate Y., Pore distribution of water-saturated compacted clay using NMR relaxometry and freezing temperature depression; effects of density and salt concentration, Applied Clay Science, Vo.123, pp.148-155, 2016.
- Ohkubo T., Yamazaki A., Fukatsu Y., Tachi Y., Pore distribution of compacted Camontmorillonite using NMR relaxometry and cryoporometry: Comparison with Namontmorillonite, Microporous and Mesoporous Materials, Vo.313, 110841, 2021.
- Pachepsky, Y. A., Guber, A. K., van Genuchten, M. T., Nicholson, T. J., Cady, R. E., Simunek, J., Schaap, M. G., Model Abstraction Techniques for Soil-Water Flow and Transport, NUREG/CR-6884, 2006.
- Parkhurst, D.L., 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. USGS, book 6, chapter A43, 6-43A, 2013.
- Plantet, P.E., Xu, Y., Domain, C., Roques, J., Ambard, A., Simoni, E., Atomic modelling of carbon atom diffusion in monoclinic zirconia volume, subsurface and surface, Journal of Nuclear Materials 537, 152193, 2020.
- PNNL-12030, STOMP Subsurface Transport Over Multiple Phases Version 2.0 Theory Guide, Pacific Northwest National Laboratory, Richland, Washington, 2000.
- PNNL-15782, STOMP Subsurface Transport Over Multiple Phases Version 4.0 User's Guide, Pacific Northwest National Laboratory, Richland, Washington, 2006.
- Polotnyanko, N. A. and Khodakovskii, I. L., Thermodynamic Properties of Compounds in the PdO-H2O System at 25℃, Geochemistry International, Vol. 51, pp. 912-919, 2013.
- Posiva WR 2021-08. Buffer, Backfill and Closure evolution, 2021.
- Prasianakis, N. I., Gatschet, M., Abbasi, A., Churakov, S. V., Upscalingstrategies of porositypermeability correlations in reacting environments from pore-scale simulations, Geofluids, vol. 2018, pp. 1–9, 2018, doi: 10.1155/2018/9260603. doi:10.1029/2011WR011527.
- Quintessa Ltd., QPAC: Quintessa's General-Purpose Modelling Software, QRS-QPAC-11, 2013.
- Razavi, S., Tolson, B. A., Burn, D. H., Review of surrogate mideling in water resources, WATER RESOURCES RESEARCH, vol. 48, W07401, 2012.
- Ren, X. W., Santamarina, J. C., The hydraulic conductivity of sediments: A pore size perspective, Engineering Geology, vol. 233, pp. 48-54, 2018, <u>https://doi.org/10.1016/j.enggeo.2017.11.022</u>.
- 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, Geochim. Cosmocim. Acta, Vol. 71, pp.5089-5101, 2007.
- RPP-RPT-59958, Performance Assessment for the Integrated Disposal Facility, Hanford, Washington, Rev. 01A. Washington River Protection Solutions, LLC, Richland, Washington, Available online at <u>https://www.nrc.gov/docs/ML2205/ML22053A179.html</u>, Accession Number Link: ML22053A179), 2020.
- 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, vol. 14, pp. 984-993, 2022, <u>https://doi.org/10.1016/j.jrmge.2021.08.010</u>.
- Sakuragi, T., Tanabe, H., Hirose, E., Sakashita and A., Nishimura, T., Estimation of Carbon 14 Inventory in Hull and End-piece Wastes from Japanese Commercial Reprocessing Operation, Proceedings of the ASME 2013, 15th International Conference on Environmental Remediation and Radioactive Waste Management, ICEM2013, September 8–13, 2013, Brussels, Belgium, 2013.
- Sakuragi, T., Yamashita, Y., Akagi., M., and Takahashi., R., Carbon 14 distriribution in irradiated BWR cladding and released carbon 14 after aqueous immersion of 6.5 years, Procedia Chemistry 21, pp. 341–348, 2016 a.
- Sakuragi, T., Yoshida, S., Kato., O. and Tateishi., T., Study of stainless steel corrosion by hydrogen measurement under deoxygenated, low-temperature and basic repository conditions, Progress in Nuclear Energy 87, pp. 26–31, 2016 b.
- 桜木 智史, 浜田 涼, 朝野 英一, 川合 康太, 吉永 恭平, 近藤 直樹, 鬼木 俊郎, 内山 翠, 使用 済燃料の燃焼条件や冷却期間の予測に基づいた廃棄物特性に関する検討, 日本原子力学会 2022 春の年会予稿集 1H12, 2022.
- Sakuragi, T., Nakai, Y., Yamamoto, S., Kume, N., Sugita, T., Yamashita, Y., Ueda, H., Radionuclide distribution in irradiated BWR tie plate, MRS Advances 8, pp. 250–254, 2023.
- Salas, J., Sena, C., Arcos, D., Hydrogeochemical evolution of the bentonite buffer in a KBS-3 repository for radioactive waste. Reactive transport modelling of the LOT A2 experiment. Applied Clay Science, 101, 521–532,2014, http://dx.doi.org/10.1016/j.clay.2014.09.016
- Savage, D., Noy, D., Mihara, M., Modelling the interaction of bentonite with hyperalkaline fluids. Appl. Geochemistry 17/3, 207-223, 2002, <u>https://doi.org/10.1016/S0883-2927(01)00078-6</u>

- Steefel, C. I., Crunch Flow Software for Modeling Multicomponent Reactive Flow and Transport, 2009.
- Svensson, D., Dueck, A., Nilsson, U., Olsson, S., Sandén, T., Lydmark, S., Jägerwall, S., Pedersen, K., Hansen, S., Alternative buffer material. Status of the ongoing laboratory investigation of reference materials and test package 1. SKB TR-11-06, Svensk Kärnbränslehantering AB, 2011.
- 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.
- Tachi, Y., Ochs, M., Suyama, T., Integrated sorption and diffusion model for bentonite. Part 1: clay-water interaction and sorption modeling in dispersed systems. J. Nuclear Sci. Tech., 51:10, 1177-1190, 2014, <u>https://doi.org/10.1080/00223131.2014.914452</u>
- Tanaka, S., Tezuka, N., Taniuchi, T., Ueda, H., Sakuragi, T., Determination of Mo-93 inventory in irradiated BWR tie plate using triple quadrupole ICP-MS, MRS Advances (in press), 2024.
- Tournassat, C., Appelo, C.A.J., Modelling approaches for anion-exclusion in compacted Nabentonite. Geochimica et Cosmochimica Acta 75, 3698–3710, 2011. <u>https://doi.org/10.1016/j.gca.2011.04.001</u>
- Tournassat, C., Steefel, C. I., Ionic Transport in Nano-Porous Clays with Consideration of Electrostatic Effects. Reviews in Mineralogy and Geochemistry, 80(1), 287-329, 2015. <u>https://doi.org/10.2138/rmg.2015.80.09</u>
- Trinchero, P., Nardi, A., Silva, O., Bruch, P., Simulating electrochemical migration and anion exclusion in porous and fractured media using PFLOTRANNP. Computers & Geosciences, 166, 105166, 2022, <u>https://doi.org/10.1016/j.cageo.2022.105166</u>
- 植田浩義,ハル等廃棄体に含まれる炭素14等の放射性核種のインベントリと溶出挙動に関する 研究開発,原環センタートピックス 140,2021.
- Van Konynenburg, R.A., Behavior of carbon-14 in waste packages for spent fuel in a tuff repository. Waste Management 14, pp. 363–383, 1994.
- Wang, Y., Yamada, N., Xu, J., Zhang, J., Chen, Q., Ootani, Y., Higuchi, Y., Ozawa, N., Bouchet, M., Martin, J. Mori, S., Adachi, K., Kubo, M., Triboemission of hydrocarbon molecules from diamond-like carbon friction interface induces atomic-scale wear, SCIENCE ADOVANCES 5, eaax9301, 2019.
- Wersin, P., Van Loon, L.R., Soler, J.M., Yllera, A., Eikenberg, J., Gimmi, Th., Hernán, P., Boisson, J.-Y., Long-term diffusion experiment at Mont Terri: first results from field and laboratory data. Applied Clay Science, Clays in Natural and Engineered Barriers for Radioactive Waste Confinement 26, 123–135, 2004, <u>https://doi.org/10.1016/j.clay.2003.09.007</u>
- Wersin, P., Kiczka, M., Koskinen, K., Porewater chemistry in compacted bentonite: Application to the engineered buffer barrier at the Olkiluoto site. Applied Geochemistry, Vol. 74, pp. 165-175, 2016, https://doi.org/10.1016/j.apgeochem.2016.09.010

- Whitaker, S., Diffusion and dispersion in porous media, AIChE Journal, vol. 13, no. 3, pp. 420–427, 1967, doi: 10.1002/aic.690130308.
- Wieland, E., Chemical form of 14C released from ILW: Status of PSI research, TRU-6 workshop, 2013.
- Wood, B. D., Cherblanc, F., Quintard, M., and Whitaker, S., Volume averaging for determining the effective dispersion tensor: Closure using periodic unit cells and comparison with ensemble averaging, Water Resour. Research, vol. 39, no. 8, 2003, doi: 10.1029/2002WR001723.
- Xu, Y., Roques, J., Domain, C., Simoni, E., Carbon diffusion in bulk hcp zirconium: A multiscale approach, Journal of Nuclear Materials 473, pp. 61–67, 2016.
- Yamaguchi, T., Tanuma, S., Yasutomi, I., Nakayama, T., Tanabe, H., Katsurai, K., Kawamura, W., Maeda, K., Kitao, H. and Saigusa, M., A Study on Chemical forms and Migration Behavior of Radionuclides in HULL Waste. Proceedings of ICEM1999, September, Nagoya, Japan, 1999.
- Yamashita, Y., Tanabe, H., Sakuragi, T., Takahashi., R., and Sasoh, M., C-14 release behavior and chemical species from irradiated hull waste under geological disposal condition, Mater. Res. Soc. Symp. Proc. 1665, pp. 187–194, 2014.
- Zhu, C.-M., Ye, W.-M., Chen, Y.-G., Chen, B., Cui, Y.-J., Influence of salt solutions on the swelling pressure and hydraulic conductivity of compacted GMZ01 bentonite, Engineering Geology, 166, 74-80, 2013, https://doi.org/10.1016/j.enggeo.2013.09.001

3. 天然バリア(岩盤)における核種移行総合評価技術の開発

3.1 目的と5か年の計画

3.1.1 目的

高レベル放射性廃棄物の地層処分は、ガラス固化した廃棄体を深地層に埋設し、人工バリア と天然バリアからなる多重バリアシステムにより、地下深部に埋設した廃棄物が地上の生活環 境に影響を及ぼさないように隔離する方法が検討されている。人工バリアを構成するオーバー パックは、廃棄体を少なくとも1.000年以上物理的に閉じ込めるよう設計されるが、安全評価に おいては、長期的時間の経過とともに人工バリアの閉じ込め機能がオーバーパックの腐食によ って失われ、ガラス固化体から地下水に溶出した放射性核種が緩衝材や岩盤を移行したあと、 生活圏に到達するという想定のもとに評価を行っておくことが必要である。天然バリアでは、 核種が地下水を媒体として移行する現象について、 岩盤中の地下水流動や透水性、放射性核種 の濃度勾配による岩石中のマトリクス拡散、鉱物表面への収着現象などを考慮した評価が必要 である。処分場の建設予定地が決まっていない現状においては、わが国の多様な地質環境条件 への対応を念頭に置きつつ、実際のサイト条件が与えられた場合に、岩盤の不均一性や長期的 な環境変遷を現実的に評価することが可能な核種移行評価技術の構築が必要である。また、岩 盤中における核種の移行は、地下の酸化還元状態や鉱物・水質などの地球化学環境、緩衝材や セメントなどの人工バリア材料、岩盤や地下水中に存在するコロイド・有機物・微生物に大き く影響を受ける。そのため、処分場の建設によって生じる地球化学環境の変化と処分場閉鎖後 のベントナイト系材料やセメントなどの長期変遷に加え、これらの影響因子との相互作用が核 種移行に及ぼす影響について、ナチュラルアナログ的な手法も適用しつつ、実際の地質環境に おいて調査・評価する技術が不可欠となる。

本課題では、図 3.1.1・1に示すように、我が国の堆積岩や花崗岩を主な対象として、割れ目等 を考慮した核種移行解析モデルの高度化を図りつつ、原位置試験やナチュラルトレーサーデー タへの適用を通じたより現実的な核種移行解析モデルの妥当性確認を行うことを目的とする。 また、人工バリア材料と岩盤との相互作用、岩盤中の炭酸塩や鉄等の鉱物やコロイド・有機物・ 微生物の存在が核種移行に及ぼす影響に関して、先端的な分析技術や科学計算技術を活用した 現象理解と評価モデルを開発することを目指す。



図 3.1.1-1 天然バリア(岩盤)の核種移行評価に係る課題例

3.1.25か年の計画

上記の目的を達成するために、本課題では図 3.1.2-1に示す2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。また、表 3.1.2-1には、5か年の年度展開に ついても示した。なお、本サブプロジェクトで対象とする天然バリア中の核種移行は処分シス テムにおいて、人工バリアおよび生活圏をつなぐインターフェースとなる重要な構成要素の一 つであることから、将来的に実施される安全評価への反映を念頭に、 2章におけるニアフィー ルドにおける核種移行総合評価技術の開発(サブプロジェクト1)や4章における生活圏におけ る核種移行総合評価技術の開発(サブプロジェクト3)と連携させつつ進めていく。2つのサブ タスクの計画の概要を以下に示す。

(1) 岩盤中の核種移行評価技術開発

岩盤中の核種移行評価技術開発については、わが国の多様な地質環境条件を想定しつつ、今 後の実際のサイトの地質環境条件を対象に、より現実的な評価を可能とするための核種移行評 価技術の高度化や妥当性確認が必要となる。そのため、先行事業「ニアフィールドシステム評 価確証技術開発」(以下、「NF事業」と称す)(日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促 進・資金管理センター,2019;2020;2021;2022;2023)及び「岩盤中地下水流動評価技術高 度化開発」(日本原子力研究開発機構・電力中央研究所,2019;2020;2021;2022;2023)で 得られた成果と課題を踏まえ、わが国の堆積岩(泥岩)及び結晶質岩(花崗岩)を主たる対象 として、割れ目内における充填鉱物・変質層や岩石マトリクス部の間隙構造や鉱物分布などの 不均質性といった微細構造を反映した核種移行解析モデルの高度化を、割れ目やその連結部に おける現象を反映した核種移行解析モデルの高度化を行う。さらに、これらの核種移行解析モ デルを踏まえ、わが国の深部地質環境での原位置試験により取得された物質移行データや、ナ チュラルトレーサーの濃度や年代等のデータに基づき、実際の地質環境が有する不均質場や長 期変遷を考慮可能なより大きいスケールでの核種移行解析モデルの開発を進める。また、わが 国の深部地質環境に適用可能な物質移行特性の調査技術の高度化についても、上記の核種移行 解析モデルの開発と並行して進める。

(2) 岩盤中における地球化学・核種移行の個別現象評価技術開発

天然バリアである岩盤中の核種移行は、地下の酸化還元状態や鉱物・水質などの地球化学環 境、人工バリア材料とその場に存在するコロイド・有機物・微生物に大きく影響を受ける。こ れらの環境状態は、場が不均一であるたけでなく、処分場の建設から埋め戻し後において長期 的に変遷すると考えられるため、処分場建設により生じる地球化学環境の変化と埋戻し後の長 期変遷に加え、緩衝材やセメント等の人工バリア材料、岩盤中の鉱物やコロイド・有機物・微 生物と岩盤との相互作用を考慮に入れた核種移行影響について、実際の地質環境を想定した調 査・評価技術の開発が必要となる。これまで主に室内試験により現象理解について多くのデー タ取得がなされてきたが、地下環境を念頭に置いたより現実的な系での現象解明や影響評価技 術の構築の取り組みが必要である。このため、これらバリア材と岩盤境界領域における相互作 用、岩盤中の鉄・炭酸塩鉱物やコロイド・有機物・微生物を考慮した核種移行評価に関して、 先端的な分析技術や計算科学技術を活用した現象理解と評価モデル開発を実施する。本課題で は、地下研究施設の深部地下水や岩石などを活用した鉄鉱物、炭酸塩鉱物、セメントー岩石境 界における多様な元素の移行挙動について、先端分析や計算科学技術を適用して解明する。ま た、得られた成果に基づいて、深部地下環境での長期的な地球化学環境の変遷や核種移行への 影響評価モデルの妥当性を確認する。コロイド・有機物・微生物の影響評価については、核種 との収着、錯生成、細胞内取込等の影響に関する現象解明と核種移行影響評価モデルを構築し、 核種移行解析への反映方策を提示する。



	令和5年度	令和6年度	令和7年度	令和8年度	令和9年度
 1 1 岩盤中における核種移行評価技術開発 の開発 	室内試験によるデー	タ取得・モデル/解析	スケール間モデル比較	·妥当性確認 核種移	行モデルの高度化
(実施担当:JAEA)		核種移行モデル検討	(室内)		
		不均質性・長期変遷を	考慮したより広い空間ス	スケールを包含する核種	移行モデルの検討
ii) 原位置トレーサー試験等による	核種移行モデル検討(原位置)	スケール間モデル比較	・妥当性確認 核種移	行モデルの高度化
核種移行モデルの妥当性確認 (実施担当:CRIEPI/JAEA)	広域スケール核種移行 構築手法の調査	モデル 核種移行モデル更新	スケール間モデル比較 ・妥当性確認	核種移	行モデルの高度化
		(原位置) 核種移行モデル検討			
②岩盤中における地球化学・核種移行の用則現象評価は本間登	計画策定/知見整理				
i) 地球化学的な変遷を考慮した核種		た端分析等によるデータ	取得		•••••
移行評価技術の開発 (実施担当:JAEA)		条件でのテータ取得やっ	、 広事例分析によるモア	1ルの適用性評価 現象エミル 言度化	
ii) コロイド・有機物・微生物影響評価		│		現象モナル高度16	├
技術の開発 (実施担当:JAEA)	│ 計画策定/知見整理 │ ◀────→				
	▲ 室内試験・	先端分析等によるデータ	取得	H	••••••
	原位置	条件でのデータ取得やう	F然事例分析によるモ テ	ルの適用性評価	
		│		現象モデル高度化	ļ,

表 3.1.2-1 天然バリアにおける核種移行総合評価技術の開発の5か年の年度展開

3.2 岩盤中の核種移行評価技術開発

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、降起・侵食や海水準変動等による地質環境の長期変遷の影響など、 様々な影響要因やその核種移行への影響等について考慮する必要がある。そのため、概要調査 から精密調査段階で必要となる実際のサイトにおける地質環境調査等のデータを適切に反映さ せた評価モデルを構築する必要がある。また、構築した評価モデルを、今後の実際の地質環境 を対象とした性能評価あるいは安全評価へ展開すべく、評価技術を整備することは重要な課題 である。上記の背景を踏まえ、本サブタスクでは、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するとともに、幌延地域を事例に、性能評価あるいは 安全評価へ資する評価モデルの検討・適用性の検証を行うことを目的として、「岩盤中におけ る核種移行評価技術の開発」、「原位置トレーサー試験等による核種移行モデルの妥当性確 認」の二つの課題を設定し取り組むこととした。「岩盤中における核種移行評価技術の開発」 では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について、室 内試験や既存の原位置試験データを活用しつつこれらの取り扱いが考慮可能な核種移行評価技 術の開発を行う。「原位置トレーサー試験等による核種移行モデルの妥当性確認」では、先行 事業(日本原子力研究開発機構, 2013a; 2018; 2023)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なども活用し、幌延地域を事例とし た原位置トレーサー試験技術の開発や先の課題で開発した核種移行評価技術について、原位置 試験および天然事例評価等を通じてその適用性の検証を行う。また、今後の地層処分事業にお いて具体化される地質環境条件への適用可能性という観点から、これまでに核種移行に関する 知見が比較的多く報告されている堆積岩および結晶質岩を主体とした評価を継続しつつ、それ らの知見をわが国で想定される多様な岩種に適用させるために、核種移行に影響を及ぼす因子 (水みち構造・特性、間隙・鉱物特性など)との関連性についての知見の整理や適用性評価に 取り組むこととする。

なお、本課題では、堆積岩(泥岩)および結晶質岩(花崗岩)に主眼を置いて進めていくに あたり、前述した2つのサブタスクの「岩盤中における核種移行評価技術の開発」および「原位 置トレーサー試験等による核種移行モデルの妥当性確認」における検討アプローチは互いに密 接に関連することから、以降では、堆積岩および結晶質岩を対象とした実施内容およびその成 果を順に記載することとする。

3.2.1 堆積岩を対象とした核種移行評価技術の開発

これまで、堆積岩については、幌延深地層研究センターの地下施設(以下、「幌延URL」という)の泥岩試料(稚内層)を対象に、原位置試験や室内試験を組み合わせて、マトリクス部 および割れ目部の核種移行データの取得とモデルの構築を進めてきた。マトリクス部について は、これまでに把握してきた幌延の泥岩マトリクスの間隙構造を反映した拡散モデルを構築す るとともに、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、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。 これらの検討の結果、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てきた。また、割れ 目部については、幌延URLで実施した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行い、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り、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してきた。

上記に加えて、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た。モデル解析では、反応性トレーサーのうちCaやMg に対する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。ま た、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検討してき た。

先行事業(NF事業)においては、泥岩の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、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 いくための検討が課題であるとともに、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 ていく必要性が課題となった。また、より広いスケールへの対応あるいは長期変遷を考慮可能 な核種移行評価手法を検討する上では、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必要となる。上記の背景を踏まえ、本事業にお いては、堆積岩について後述する課題に対して取り組んでいく。

(1)移行特性や鉱物の不均一性を考慮した核種移行パラメータのデータ取得とモデル開発1)幌延堆積岩の声問層を事例とした核種移行モデルの検討

新第三紀堆積岩は、我が国の代表的な岩盤の一つである。北海道幌延町にある幌延 URL 周辺には、新第三紀堆積岩の稚内層(珪質泥岩)および声問層(珪藻質泥岩)が分布しており、このうち稚内層を対象とした核種の移行特性を把握するための調査・研究が重点的に行われてきた。先行事業(NF事業)においては、幌延 URLの深度 350mに分布する稚内層(珪質泥岩)中の割れ目部を対象とした原位置トレーサー試験をサポートする室内試験を取得し、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, 2023)。また、マトリクスを対象とした収着・拡散モデルでは、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)。一方、声問層については、一次元密度で10数本/m程度で存在するせん断割れ目が水みちのネットワークを形成していることが示されている(Ishii, 2017; 2018)。また、マトリクスの間隙率が40%程度と高いことから、割れ目とマトリクス間隙の双方が主要な水みちとなる可能性がある。しかしながら、これら水みち構造の核種移行特性やこれを適切に評価できるモデル化手法については、十分に検討がなされていない。

このような背景から、本事業においては、これまで稚内層を事例に構築してきたマトリクス、割れ目双方における核種移行の評価手法を踏襲し、声問層の割れ目・マトリクス中の核種移行の評価手法を整備する。具体的には、岩石特性分析や室内での収着・拡散データを取得しつつ、幌延 URL の深度 250m の坑道において別事業「幌延国際共同プロジェクト

(Horonobe International Project:HIP)」で実施を予定している原位置トレーサー試験結果 との比較検証を通じ、割れ目や割れ目周辺部における間隙構造や組成の不均質性を反映した核 種移行解析モデルの確証を目指す。令和5年度は、幌延 URL の深度 250m で採取した声問層 泥岩を対象に、間隙構造や組成の分析および割れ目の形状評価を実施した。さらに、割れ目を 対象としたトレーサー移行試験の準備、および先行事業(NF事業)で構築してきた不均質性 を考慮したモデルによる室内トレーサー移行試験の予察解析を実施した。また、次年度計画し ている、声問層の割れ目を対象とした原位置トレーサー試験の試験条件を検討するための予察 解析に着手した。

① 幌延堆積岩の声問層を対象とした岩石特性分析

幌延URLの250m調査坑道の大型試錐座(西)にて、HIPで原位置試験を予定している近傍の 坑道壁面からのボーリングにより、岩石コア(250-MG1-2、250-MG1-1)を採取した。採取し たコアには、せん断割れ目が確認された。採取したコアの孔壁からの深度と使用用途を図 3.2.1-1に示す。採取したコアから、せん断割れ目と考えられる割れ目から数cm程度離れた割れ 目を含まない健岩部を選定し、X線回折測定(XRD)および光学顕微鏡による薄片観察、陽イ オン交換容量測定、水銀圧入法による間隙率測定を実施した。比較のため、稚内層泥岩試料 (350m調査坑道の坑道壁面からボーリングにより採取)を対象に同様の分析を実施した。また、 割れ目を対象としたトレーサー移行試験用に、単一の割れ目を有するコアを選定し、X線CT測 定による割れ目構造分析、トレーサー移行試験の準備及び試験の予察解析を実施した。

坑道壁面から18m付近(250-MG1-2) 坑道壁面から13.5-14m付近(250-MG1-1)



図 3.2.1-1 幌延URLの250m調査坑道から採取した声問層の岩石コアと使用用途.

光学顕微鏡で観察した声問層泥岩および稚内層泥岩の薄片試料写真を図 3.2.1-2に示す。また、声問層泥岩及び稚内層泥岩から調製した粉末試料のXRD測定結果を図 3.2.1-3に示す。薄

片試料の観察および図 3.2.1-3に示すX線回折パターンから、声問層泥岩試料の主な構成鉱物は、 珪質生物遺骸(オパール:オパールAまたはオパールCT)、石英(Qtz)、(曹)長石(Al)、 黄鉄鉱(Py)、粘土鉱物(白雲母等:Mu)であることが示された。稚内層泥岩試料も、ほとん ど同様の構成鉱物が確認された。一方で、図 3.2.1-2の声問層と稚内層泥岩を比較すると、同倍 率において、声問層試料では珪藻の輪郭がはっきりと観察されているのに対して、稚内層試料 ではその輪郭がやや不明瞭であった。この観察結果は、稚内層が声問層より深部に位置するた め、続成作用による珪藻の分解が顕著であることを示唆する。また、図 3.2.1-3の稚内層試料の スペクトルでは、珪藻由来のオパールCTのピークが20-24^o付近にみられるが、声問層試料では その付近のピークがブロードになっている。これは、声問層の方が稚内層より非晶質のオパー ルAを多く含んでいることを示唆しており(石井ほか,2007)、薄片観察時にみられた稚内層 の方がより続成作用を受けているという考察と整合する。

図 3.2.1-4に、水銀圧入法により求めた声問層試料と稚内層試料の間隙率および細孔径分布 を示す。声問層および稚内層試料のどちらの細孔径分布においても、100μm付近にピークが見 られるが、これらの泥岩試料は緻密であり、内部に亀裂がほとんど存在しないと考えられるた め、これらのピークは分析試料作製時に生じたクラックである可能性が高い。したがって、こ れらのピークは今回の検討内容から除外した。図 3.2.1-4より、間隙率については稚内層試料の 方が声問層試料より7%程度低く、また、細孔径については声問層試料が0.1µmにピークがある のに対して、稚内層では10nm以下にピークが見られた。一方で、稚内層及び声問層試料の陽イ オン交換容量は15-20 meg 100 g-1程度であり、ほとんど違いが見られなかった。陽イオン交換 容量は、表面積およびイオン交換容量の大きい粘土鉱物の量に比例することから、今回対象と した稚内層及び声問層試料では粘土鉱物の含有率にほとんど差はなかったと考えられる。この ことを踏まえると、細孔径分布のピーク位置の違いは、異なる深度の坑道から採取した声問層 と稚内層試料の圧縮率の違い、または稚内層で見られる続成作用によるオパールCT形成時の沈 殿や間隙閉塞が要因と考えられる。間隙率は堆積岩中の核種の移行特性に影響を及ぼしうる重 要なパラメータであり、その間隙率が何に由来して決定されているかを把握することは、核種 移行評価上重要である。今後、稚内層泥岩と声問層泥岩の間隙特性の違いに着目して、核種移 行データの取得及びその解釈を行うことで、堆積岩における核種移行評価モデルの改良に寄与 する知見を拡充する。

(a) 声問層泥岩

(b) 稚内層泥岩



図 3.2.1-2 光学顕微鏡による(a)声問層泥岩および(b)稚内層泥岩の薄片観察結果.



図 3.2.1-1の坑道壁面から13.5-14 mの位置で採取した声問層泥岩コアを対象に、医療用X線 CT装置を用いて、割れ目開口部の構造を分析した。三次元のX線CT画像のスナップショットと、 コア試料の断面のスライス画像を図 3.2.1-5に示す。CT画像から、コア試料中に単一の割れ目 が観察された。その割れ目を対象に、岩石部分と割れ目部分(空気)のCT値の違いから割れ目

部分を抽出し、抽出した割れ目の間隔から割れ目の開口幅分布を評価した。評価した割れ目の 開口幅のヒストグラムと開口幅分布の二次元画像を図 3.2.1-6に示す。図 3.2.1-6の開口幅のヒ ストグラムから、対象とした割れ目の開口幅は1mm程度であることが分かった。しかしながら、 測定した泥岩コアは掘削の際の影響や地盤の応力から解放された状態のため、今回得られた開 ロ幅1mm程度は実際の地下環境で存在する場合より過大に評価されている可能性がある。実際 の地下環境下の割れ目を維持した状態で岩石コアを入手することは技術的に困難であるため、 開口幅のような、室内試験と原位置試験条件の違いに留意して、今後の物質移行評価を進める 必要があると考えられる。また、開口幅分布の二次元画像では、開口幅が比較的大きい箇所(開 ロ幅1mm以上の暖色)と小さい箇所(開口幅1mm未満の寒色)が交互になっている分布が見ら れた。この波状の開口幅の分布は、断層面に見られるSlickenstepと考えられ、割れ目形成時に せん断が画像左下側から右上にかけて起きたことが想定される。このような割れ目構造におい ては、開口幅の比較的大きな割れ目中の流れが卓越すると考えられ、開口幅の分布に沿った複 雑な流路が形成されると考えられる。



図 3.2.1-5 測定した試料(声問層泥岩コア 250-MG1-1)の写真(左上)、3次元のX線CT画 像のスナップショット(右上)、試料断面のX線CT画像(下部).断面画像は、スナップショ ット画像上に示す青面の位置で取得した画像.



図 3.2.1-6 X線CT画像の解析により求めた割れ目の開口幅のヒストグラム(左)と開口幅分 布(右).

X線CT画像の解析結果から、トレーサー移行試験に使用する声問層泥岩試料の割れ目は、開 ロ幅が均一ではなく、波状の凹凸構造が観察された。このような不均質な割れ目中においては、 複雑な流れ、例えば、流路のチャネリングが想定される。チャネリングの構造を単純化したモ デルとして、先行事業(NF事業)において、フロー・スタグナント領域を想定したモデル開発 を進めている(日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター,2023)。こ こでは、フロー・スタグナントモデルを用いて、声問層泥岩コアの単一のせん断割れ目対象と したトレーサー移行試験の予察解析を実施した。解析には物質移行解析が可能なソフトウェア GoldSim (ver. 14.0: GoldSim Technology Group, 2023)を用いた。Goldsim上で、流れのある フロー領域と流れのない拡散のみの平行平板割れ目を想定し、割れ目の上下には物質の拡散お よび収着が生じる岩石マトリクスが接しているモデルを構築した。割れ目では一次元の移流分 散方程式、マトリクスでは一次元の拡散方程式に基づいて、セシウム(Cs)およびヨウ素(I) を用いたトレーサー移行試験のシミュレーションを実施した。使用したパラメータ及びフロー・ スタグナントモデルを図 3.2.1-7に示す。

図 3.2.1-8に、フロー領域比をパラメータとし、シミュレーションにより算出した割れ目透過 後のCsとIの破過曲線を示す。図 3.2.1-8より、Csと比較し、非収着性であるIの破過曲線の立 ち上りが早い。これは、Csの場合、マトリクス部への拡散及び収着により、割れ目中の移行が 遅延されるためである。図 3.2.1-8(a)Cs破過曲線について、フロー領域割合の異なる結果を比 較すると、フロー領域比が小さいほど、破過曲線のCs濃度の立ち上がりが早く、濃度が高い。 これは、今回のシミュレーションでは流量一定を想定しており、フロー領域が狭くなるほど割 れ目内の流体の流速が速くなるため、および割れ目表面の表面積の減少によるマトリクス部へ の拡散および収着による遅延効果が低減するためである。Iについても、同様の傾向が得られた。 今後、このシミュレーション結果に基づき、試験の条件(流速や試験期間)を設定し、トレー サー移行試験を実施予定である。



図 3.2.1-7 フロー・スタグナント領域を含む平行平板の割れ目を想定したモデルとパラメー タ.



図 3.2.1-8 フロー・スタグナントモデルを用いた移行解析の結果 (a)Csと(b)Iの破過曲線.

② 原位置トレーサー試験の予察解析

幌延URLで計画されているトレーサー試験は、声問層に分布するせん断割れ目を対象とした 2孔間のダイポール試験であり、数m程度の孔間距離を予定している。トレーサー物質としては、 非収着性および収着性の物質を使う予定であり、岩盤への収着挙動を含む物質移行特性を評価 することを目的としている。前述したように、声問層の10m程度のスケール領域ではせん断割 れ目が主要な水みちとして機能するとともに、マトリクス間隙も大きいことから、解析モデル としては二重間隙モデルを仮定することとした。地下水流動・物質移行解析の解析コードは二 重間隙モデルを取り扱うことが可能な、Aquanty 社のHydroGeoSphere (HGS) (Aquanty, 2024a, 2024b)を使用した。

HGSは、割れ目をフラクチャーネットワークモデル(Discrete Fracture Network model)、 マトリクスを連続体モデルにより表現が可能な計算コードである。割れ目面からのマトリクス 拡散効果は有限要素で表現されたマトリクスを数値解析手法により解くことができる。HGSに よるマトリクス拡散効果の数学モデルの概念図を図 3.2.1-9に示す。 HGSにおける移流分散の基本方程式は次式で表される。

$$-\nabla \cdot w_m (\mathbf{q}C - \theta_s S_w \mathbf{D}\nabla C) + [w_m \theta_s S_w R\lambda C]_{par} + \sum \Omega_{ex} \pm Q_c = w_m \left[\frac{\partial (\theta_s S_w RC)}{\partial t} + \theta_s S_w R\lambda C \right]$$
(3.2.1-1)

ここで、 w_m は全間隙のうち二重連続体が占める間隙の体積分率、 \mathbf{q} [LT⁻¹] は流体フラックス、C [ML⁻³] は流体の溶質濃度、 θ_s [-] 含水率、 S_w [-] 飽和度、 \mathbf{D} [L²T⁻¹] は分散テンソル、R [-] は遅延係数、 λ [L⁻¹] は減衰定数、 Ω_{ex} [T⁻²] は異なる構成要素(フラクチャー、井戸、地表など)との溶質の交換速度、 Q_c [L³T⁻¹] は源泉項(シンク、ソース)、t [T] は時間である。また添字のparは連鎖崩壊時の親核種を示している。

また、式 (3.2.1-1) 中の溶質の拡散を含む分散項は次式で表される。

$$\theta_s S_w \boldsymbol{D} = (\alpha_l - \alpha_t) \frac{\boldsymbol{q} \boldsymbol{q}}{|\boldsymbol{q}|} + \alpha_t |\boldsymbol{q}| \boldsymbol{I} + \theta_s S_w \tau D_{free} \boldsymbol{I}$$
(3.2.1-2)

ここで、 α_l [L] は縦分散長、 α_t [L] は横分散長、 \mathbf{q} [LT⁻¹] はダルシー流速、 τ [-] はマトリ クスの屈曲率、 D_{free} [L²T⁻¹] は自由水中の溶質の分子拡散係数、I は恒等行列である。

本検討で適用するDFNモデルでは亀裂を面要素でモデル化する。面要素で表現した亀裂に対 する移流分散の基本方程式は次式で表される。

$$-\nabla \cdot w(w_f \boldsymbol{q}_f C_f - w_f S_{wf} \boldsymbol{D}_f \nabla C_f) + w_f [R_f \lambda_f C_f]_{par} -w_f \Omega_f = w_f \left[\frac{\partial (S_{wf} R_f C_f)}{\partial t} + S_{wf} R_f \lambda_f C_f \right]$$
(3.2.1-3)

ここで、 w_f [L] は亀裂の開口幅、 \mathbf{q}_f [LT⁻¹] は亀裂内の流体フラックス、 C_f [ML⁻³]は亀裂内 の流体の溶質濃度、 S_{wf} [-] は亀裂内の飽和度、 \mathbf{D}_f [L²T⁻¹] は亀裂内の分散テンソル、 R_f [-] は 割れ目内の遅延係数、 λ_f [-] は割れ目内の減衰定数、 Ω_f [T⁻²] は他の構成要素(母岩、井戸、 地表など)との溶質の交換速度である。なお、添え字 par は連鎖崩壊時の親種を指す。



図 3.2.1-9 HGSで取り扱う二重間隙モデル概念

図 3.2.1-10に解析モデルを示す。解析領域のサイズは水平30m×30m、高さ20mとした。解 析領域全体は多孔質媒体とし、同領域中に二本のボーリング孔を配置するとともに(図 3.2.1-10(a)の赤破線)、この二本のボーリング孔と交差するように領域中央に割れ目を配置し た(図 3.2.1-10(b))。本解析では、試験条件としてトレーサー注入孔に設定する注水流量、ト レーサー回収孔に設定する揚水流量、孔間距離を変動させて解析ケースを設定し、これらが破 過曲線に与える影響を評価した。また、声問層の割れ目およびマトリクスの水理・地質環境条 件の幅が破過曲線に与える影響を評価するため、割れ目の透水量係数、割れ目半径、マトリク ス間隙率を変動させた解析ケースを設定した。その他の固定パラメータとして、マトリクス部 の透水係数は、下茂ほか(2008)を参考に1.35×10⁻¹⁰ m/s)とした。割れ目中の分散長は数値 解析モデルのメッシュサイズを考慮し、縦方向分散長を0.25m、横方向分散長を縦方向分散長 の1/10(0.025 m) にそれぞれ設定した。また、前述したように、原位置トレーサー試験では、 非収着および収着性の両方のトレーサーを使用することが計画されていることから、HDO(非 収着性)およびCs(収着性)の2種類を用いることとした。HDOの実効拡散係数(De)は既往 の成果(Hasegawa et al., 2021)などを参考に、1.6×10⁻¹⁰ m²/sを設定した。Csについては実 効拡散係数、収着分配係数(Kd)ともに、これまでに取得されていない。声問層と稚内層は鉱 物組成が概ね一致していること、間隙率が稚内層と比べて若干大きいことを踏まえ、稚内層で 取得された値(De: 9.5×10⁻¹⁰ m²/s、Ka: 0.026 m³/kg)を設定した。変動パラメータとして、割 れ目の透水量係数は、Ishii (2017) が示した予測式を参考に、解析ケースに応じて1×10.9 (m²/s) もしくは1×10⁻⁸(m²/s)を設定するとともに、割れ目の開口幅は三乗則に従い、水理開口幅を 設定した。また、マトリクスの有効間隙率は下茂ほか(2008)における物理的な間隙率(0.6(-)) を設定するとともに、その感度が明確になるよう、0.001(・)を設定することとした。また、割 れ目半径については、幌延URLにおける立坑や水平坑道の壁面観察結果で得られた割れ目のト レース長(酒井・早野, 2021)と本解析の解析領域を勘案し、1、2もしくは5 mのいずれかを 設定することとした。







図は半径 5 m の割れ目を示す

図 3.2.1-10 声問層解析モデル

トレーサー試験の予察解析では、静水圧状態の岩盤に対し定量の注水と揚水により定常状態 の地下水流動場を導き、その後、一定濃度のトレーサーを所定の時間(10分)注入し、揚水区 間でのトレーサー濃度を観測することとした。本解析の境界条件は、坑道壁面にあたる Y=0 mの境界面のみを不透水境界面とし、ほかの5面は固定水頭境界面と設定した。試験区間長は 1m (Z=0m、Y=14.5~15.5m)とし、試験区間中の割れ目部分のみにトレーサーが注入もしく は揚水されるように設定した。上記を踏まえて設定した、解析ケースを表 3.2.1-1に示す。

ケース	孔間距離	注入流量	揚水流 量	割れ目 半径	透水量係 数	水理 開口幅	マトリク ス間隙 率
	[m]	[mL/min]	[mL/min]	[m]	[m²/s]	[m]	[-]
Case01	1.0	10.0	10.0	5.0	1.0×10 ⁻⁹	1.0×10⁻⁵	0.6
Case02	1.0	10.0	10.0	2.0	1.0×10 ⁻⁹	1.0×10 ⁻⁵	0.6
Case03	2.0	10.0	10.0	1.0	1.0×10 ⁻⁹	1.0×10 ⁻⁵	0.6
Case04	1.0	10.0	10.0	1.0	1.0×10 ⁻⁸	2.2×10⁻⁵	0.6
Case05	1.0	10.0	10.0	1.0	1.0×10 ⁻⁹	1.0×10 ⁻⁵	0.6
Case06	1.0	10.0	20.0	1.0	1.0×10 ⁻⁹	1.0×10 ⁻⁵	0.6
Case07	1.0	30.0	30.0	1.0	1.0×10 ⁻⁹	1.0×10 ⁻⁵	0.6
Case08	1.0	30.0	60.0	1.0	1.0×10 ⁻⁹	1.0×10 ⁻⁵	0.6
Case09	1.0	10.0	10.0	1.0	1.0×10 ⁻⁹	1.0×10 ⁻⁵	0.001

	試験・予察解析ケースー覧	1 声問層におけるトレーサー試験	表 3.2.1-
--	--------------	------------------	----------

試験条件を変動させた解析ケースの比較ついては、注水流量および揚水流量を変更したケースでは、注水流量(10mL/min)、揚水流量(10mL/min)のケースが最もピーク濃度の到達時間が遅く(9日程度)、注水流量(30mL/min)、揚水流量(60mL/min)のケースが最もピーク濃度の到達時間が早い(2.5日程度)(図 3.2.1-11 (a))。また、注水流量に応じてピーク濃度が異なるものの、全ケースともに、総揚水流量がおよそ130~220Lに達した時点で、ピーク濃度に達していた(図 3.2.1-11 (b))。これは、各解析ケースにおける定常状態の流速分布から、注水流量と揚水流量の比が同じであっても、注水流量30 mL/minに設定したケースの方が注水流量に応じた割れ目内の圧力伝搬が相対的に顕著になり、その結果注水区間から揚水区間への流れが強くなることがその要因として考えられる(図 3.2.1-12)。孔間距離を変更したケースについては、1.0 mと2.0 mで大きく異なり、2.0 mの孔間距離ではトレーサーの到達に数十日の日数が要する結果となった。(図 3.2.1-13)。

次に、岩盤の地質環境条件を変動させた解析ケースの比較については、割れ目の半径を変更 したケースでは、ピーク濃度の到達時間の差異はほとんどなかった。一方、割れ目半径が2.0 m および5.0 mのケースと1.0 mのケースでピーク濃度に約10倍程度の差異が確認された(

図 3.2.1-14) がこれは、割れ目半径が大きくなることで、注入されたトレーサーがより広範 囲に広がることによるものと考えられる(図 3.2.1-15)。割れ目の透水量係数を変更したケー スでは、1.0×10⁻⁸、1.0×10⁻⁹(m²/s)でピーク濃度の到達時間はそれぞれ、6日、および9日であ り、3日程度の差異が確認された(図 3.2.1-16)。マトリクス間隙率を変更したケースでは、マ トリクス間隙率が60%の場合と比べ、マトリクス間隙率を0.1%のケースでは、ピーク濃度の 到達時間、ピーク濃度ともに、大きく変化した(図 3.2.1-17)。本解析では、マトリクス間隙 率を60%に設定した場合を基本としたが、この間隙率は物理的な間隙率であるため有効間隙率 とは異なり、一般的には有効間隙率は物的な間隙率よりも小さいと考えられることから、実際 のマトリクス側へのトレーサーの移行はCase1~Case8で設定した有効間隙率60%の場合より も少ないことが想定される。

本解析結果から、試験条件(注水/揚水流量、孔間距離)や割れ目の透水量係数の持つ破過 曲線のトレーサー到達時間に対する感度が数日程度であるのに対し、マトリクス間隙率につい ては、よりトレーサーの到達時間や到達濃度に大きく影響を与える可能性が示唆された。今後 は、別事業で得られる水理・地質調査データや室内トレーサー試験結果も利用しつつ、先行事 業で構築した割れ目内の間隙構造の不均質性などを考慮したモデルなどを適用し、原位置トレ ーサー試験条件を検討していく。



図 3.2.1-11 流量条件(注水流量、揚水流量)の感度解析結果 (a)経過時間に対する比濃度、(b)累積揚水流量に対する比濃度。縦軸はトレーサー 注入濃度(C₀)に対するトレーサー回収孔での濃度(C)を示し、横軸は経過時間 (a)、累積揚水量(b)を示す。





図 3.2.1-13 孔間距離の感度解析結果。縦軸はトレーサー注入濃度(C₀)に対 するトレーサー回収孔での濃度(C)を示し、横軸は経過時間(a)を示す。



図 3.2.1-14 割れ目半径の感度解析結果。縦軸はトレーサー注入濃度(C₀)に対するトレー サー回収孔での濃度(C)を示し、横軸は経過時間(a)を示す。





図 3.2.1-16 割れ目の透水量係数の感度解析結果。縦軸はトレーサー注入濃度 (C₀)に対するトレーサー回収孔での濃度(C)を示し、横軸は経過時間 (a)を示す。



図 3.2.1-17 マトリクス間隙率の感度解析結果。縦軸はトレーサー注入濃度 (C₀)に対するトレーサー回収孔での濃度(C)を示し、横軸は経過時間 (a)を示す。

(2) 原位置単孔試験のための予備的検討と現場試験

古い堆積岩においては割れ目が発達し、この割れ目が地下水や放射性核種を含む溶質の移行 経路になる可能性が指摘されている(Ishii, 2015)。このため、処分場近辺の核種の移行挙動 を予測するためには、放射性核種の移行に関わる特性を把握する必要がある。対象となる場で 実割れ目に対して溶液を流し、溶質等の移行挙動から割れ目の特性の情報を得る「原位置トレ ーサー試験」は、この特性把握に有効な試験方法であると考えられている(例えばHaderman and Heer 1996)。

原位置トレーサー試験では、実際の割れ目を用いた試験を実施するため、地下水や核種移行 評価のための重要なパラメータである割れ目幅が評価できる、割れ目に付着している可能性の ある変質鉱物の影響を評価できるという利点がある(例えばTicknor et al., 1989)。一方、ト レーサー試験では有意な破過曲線を得るために試験条件の綿密な設計が必要であるが、堆積岩 で地下水や核種移行のパラメータ取得を目的として現地トレーサー試験が実施された例は少な く、どのように試験を設計していけば良いかという方法論は確立されていない。また、トレー サー試験では、破過曲線が得られないと、試験において全く情報が得られないことになるため、 トレーサーを回収することを重視した試験条件が設定されがちな傾向にある。さらに費用的な 面から、現実的な工期内で試験を終わらせるために、ある程度高い流速で試験が実施される。 このため、原位置トレーサー試験で得られた核種移行パラメータは実割れ目の情報を反映した ものであるが、流速などの条件が実際の処分場とは乖離している可能性があり、得られたパラ メータの妥当性を確認していく手法の確立も必要とされている。

以上のことから、本項では堆積岩を対象の中心として原位置トレーサー試験について、条件 を設定するための予備的な検討から、原位置試験、その後の解析までの一連の方法を確立・提 案していくことを目的として検討することを計画している。令和5年度は原位置試験として単 孔試験を実施した(野原ほか、2016a, b)。単孔試験は後述のように、孔間式の試験と比較し て試験条件が設定しやすい、幌延の岩石のように収着性のトレーサーが強く収着するような岩 石に対しても破過曲線が得られる可能性があるなど、幌延地域の岩石割れ目を対象として予備 的に実施するには適した特性を持ち、初年度の原位置試験として採用した。また、室内試験で は、単孔試験の条件設定やその解析に必要となる、試験実施地点付近の岩石や間隙水の特性を 把握した他、適切なトレーサー・濃度を決定するための収着/拡散/溶出試験等を実施した。以下 では、それぞれ1)予備試験(室内試験)、2)原位置試験について報告する。

1) 原位置試験のための予備的検討(室内試験)

令和5年度の室内試験においては、原位置試験の試験条件等の設定に有用な情報を得ること に加えて、現地試験では実施が非現実的な条件での試験を実施し、原位置試験での試験データ を補完する、あるいは試験データを得るための試験系を開発することを目的とした。具体的に は、①トレーサー選定のための試験や検討、②幌延岩石を用いた模擬トレーサー試験、③砂岩 等での試験を実施しており、得られた情報・知見を以下にまとめる。

① トレーサー選定のための試験や検討

トレーサー試験の結果から核種移行に関連するパラメータを抽出するためには、トレーサー の回収孔において対象とするトレーサー濃度と時間(あるいは揚水した液量など)との関係(破 過曲線)を得ることが必要である。回収孔までトレーサーが到達するかどうかは、注入・揚水 流量、孔間の距離、溶質におけるトレーサー濃度、割れ目への分配係数、拡散係数など複数の パラメータに依存しているため、トレーサー試験においては綿密な条件の設定が必要である。

原位置トレーサー試験における条件を設定するためのフローを図 3.2.1-18に示した。なお、 令和5年度は地下を利用できる期間やサンプルの入手時期等との関係から、フローの一部に着 手したという状態であるが、今フェーズにおいて最終的にはフロー図と各試験/検討の実施方 法・留意点等を成果としてまとめていくことを計画している。



図 3.2.1-18 トレーサー試験条件決定までのフロー図

(a) トレーサー候補の選定

原位置トレーサー試験に用いるトレーサーを選定するためには、試験の目的を明確にし、そ の目的に沿ったトレーサーを選定していく必要がある。本研究では処分場周辺の核種移行に係 わるパラメータを原位置割れ目で取得することが目的であるため、人工バリアから放出される 核種を、溶出が想定される濃度・化学的形状で試験に用いることがトレーサーおよび選定の一 つの考え方となる。しかし、放射性核種の利用可否や、現実的な工期内で試験を実施するなど の制約があり、現実的には「放射性核種の割れ目中での挙動を知るために代用できる」あるい は「放射性核種の挙動を予測するために必要なパラメータを取得するのに有用な情報を提供で きる」トレーサーを選定していくこととなる。

放射性核種の代用として、核種の挙動はイオンの価数ごとに異なるため、イオンの価数ごと にトレーサーを選定していくこととした。III価以上のイオンは溶解度が低かったり、価数の維 持のために雰囲気制御が必要とされたりするため、現時点で幌延において適用することが困難 であると考え、一旦候補から除外した。II価の陽イオンについては、Sr・Ba・Co・Niを、I価の 陽イオンについてはRb・Csを候補として、さらに試験のバックグランドとなる間隙水における 濃度の確認を進めた。

花崗岩における室内試験とその解析結果から(岡本ほか,2023)、岩石マトリクス部への拡 散が溶質の破過曲線に大きな影響を与えることが示された。また、地下割れ目における流速と 割れ目からマトリクス部への拡散の大きさの関係によっては、処分場周辺の割れ目の発達した 岩石における核種移行を「割れ目の流れとマトリクスを考慮する系での移行」から「岩石全体 を均質の媒体と見なすことができる系での移行」とより単純化して評価できる可能性がある。 このため、花崗岩よりマトリクス部への拡散係数の大きな幌延岩石においては、割れ目からマ トリクス部への拡散について情報を得ることが重要であると考えた。このため、本研究では拡 散係数の異なる複数の非収着性トレーサーをトレーサー溶液に加えて試験を実施し、それらの 挙動の差異からマトリクス部への拡散についての情報を得ることを計画した。拡散係数の小さ な非収着トレーサーとして蛍光染料を、拡散係数が大きいものとして重水を、拡散係数が蛍光 染料と重水の中間程度のものとして、種々の陰イオンをトレーサーの候補とした。陰イオンと しては、Br・Mo(MoO4²)・Re(ReO4)を候補として検討を進めた。

(b) 蛍光染料に関する検討

幌延の地下水と蛍光染料が接触した場合、蛍光染料が変色し濃度が低下する現象が確認され ており(中田ほか,2017;杉山ほか,2023)、その主たる原因は微生物が関与する反応であると 推察されている(参考文献)。本研究では改めて4種類の蛍光染料(ウラニン・エオシン・アミ ノG酸・ナフチオン酸ナトリウム)溶液と地下水・岩石との接触試験を実施し、トレーサー試験 に適した蛍光染料を選定した。ウラニンとナフチオン酸ナトリウムは微生物に対する耐性が低 く、微生物による影響で濃度が減じる可能性がある。また、エオシンについては岩石に対して 有意な収着が確認された。このため、幌延の地下水・岩石では微生物・収着に対して耐性があ るアミノG酸が最も適切な蛍光染料であると判断された。現場試験では、添加した場合目視で トレーサー溶液が流れていることが確認できること、インラインで分析するシステムがあるこ とから、微生物耐性に課題はあるが、ウラニンも併用することとした。

(c)分析方法および定量下限の確認

上記でトレーサーの候補として挙げたRb・Cs・Sr・Ba・Co・Ni・Br・Mo・Reについて、 溶液中濃度の定量方法および定量下限について検討した。上述のイオンの標準液を純水で希釈 した溶液では、誘導結合プラズマ質量分析機(ICP-MS: ICP-MS7800 アジレントテクノロジ ー)を用いて0.1 µg/Lまでの定量が可能であることが分かった。この際、最適なコリジョンガス (H₂またはHe)についても、それぞれのガスを用いて得られた分析結果から決定した。しかし、 対象となる幌延稚内層・声問層境界近辺の岩石に含まれる間隙水は、海水を起源として岩石と の相互作用や下層からの水の影響受けて変質したものであり、イオン濃度が高い(岩月ほか, 2009; Nakata et al., 2018; Miyakawa et al., 2023)。電中研のICP-MSでは、高いイオン濃度 の影響を避けるためバックグランドのイオン濃度を0.01mol/L以下まで希釈した上で分析に供 している。現場近辺で採取された地下水の塩化物イオン濃度が0.1mol/L程度であることから、 採取したサンプルでは10倍以上の希釈が必要であると考えた。このため、トレーサー試験で得 られた溶液において、上述のイオンの定量下限は1.0 µg/Lであると判断した。

ウラニンやアミノG酸といった蛍光染料は利用する分析装置での定量下限が1.0 μg/Lであり、 溶液中のイオン濃度が定量に影響を与えないことから、試験で得られた溶液における定量下限 も1.0 μg/Lであると考えられた。

(d) 間隙水における濃度の確認

後述のように、原位置トレーサー試験は幌延深地層研究センター250m坑道大型試錐座(西) において実施された。試験を実施する割れ目周辺の間隙水における主要イオン濃度組成および、 トレーサー候補である溶質の濃度を把握するため、試験現場付近でボーリングによって得られ たコアの外周を1cm程度トリミングしたあと、300 MPaで圧縮して間隙水を抽出した(Nakata et al., 2016)。得られた間隙水について、主要なイオンの濃度をイオンクロマトグラフィで、 上述のトレーサー候補の濃度についてはICP-MSで分析した。さらに重水をトレーサーとして 用いる可能性を考慮して、同位体比質量分析装置(IR-MS)を用いて、間隙水の水素・酸素同 位体比を測定した。また、間隙水に含まれる天然の有機物がトレーサーとして用いる蛍光染料 と同様の蛍光を発する可能性があるため、ウラニン・アミノG酸を分析するのと同様の条件で 間隙水を分析し、間隙水におけるウラニン・アミノG酸のみかけ濃度を評価した。

間隙水における主要イオン濃度・トレーサー候補のイオン濃度・見かけのウラニンおよびア ミノG酸イオン濃度の分析結果を表 3.2.1・2に示した。また、参考情報として取得した岩石固相 の特性についてはAppendix Iにまとめた。

		主要イオ	ン濃度	(IC分析)) :mg/	L							
サンプル名	採取深度	Na (mg/L)	K (mg/L)	Mg (mg/L)	Ca (mg/L)	F (mg/L)	Cl (mg/L)	Br (mg/L)	NO3 (mg/L)	SO4 (mg/L)			
250MIG1-3-5m	坑壁から5.6-6.0m	1716	64	19	28	2.0	1707	11	1.0	397			
250MIG1-3-10m	坑壁から10.76-11.00m	1798	68	21	32	2.3	1767	12	1.2	578			
250MIG1-3-13m	坑壁から13.38-13.77m	1845	65	24	36	1.9	1812	12	0.9	723			
250MIG1-3-20m	坑壁から20.45-21.00m	1864	64	22	33	2.1	1982	13	0.6	281			
試験用模擬地下水	くの組成	1993	68	25	33	-	3200	0.5	0.9	85			
HFB-1_298m	地表から298.34-74m	2787	81	38	53	2.3	3439	24	0.6	334			
HFB-1_317m	地表から317.45-85m	2801	73	40	46	2.4	3600	25	0.5	48			
	•	役	如量元素	(ICP-M	5)						同位体	s(IR-N (蛍光:	AS)および蛍光濃度 分光光度計)
サンプル名	採取深度	Br (mg/L)	Sr (mg/L)	Rb (μg/L)	Ba (µg/L)	Cs (µg/L)	Co (μg/L)	Ni (μg/L)	Μo (μg/L)	Re (µg/L)	δD (‰)	δ ¹⁸ 0 (‰)	アミノG酸 (mg/L) (見かけ濃度)
250MIG1-3-5m	坑壁から5.6-6.0m	11.9	0.48	38	574	<2	4.0	595	644	<2	11.9	0.48	0.34
250MIG1-3-10m	坑壁から10.76-11.00m	13	0.47	35	301	<2	2.6	292	566	<2	13	0.47	0.36
250MIG1-3-13m	坑壁から13.38-13.77m	12	0.48	34	224	<2	<2	281	410	<2	12	0.48	0.28
250MIG1-3-20m	坑壁から20.45-21.00m	14	0.58	34	941	<2	<2	423	409	<2	14	0.58	0.34
HFB-1_298m	地表から298.34-74m	26	0.96	46	989	<2	<2.5	475	234	<2.5	26	0.96	0.50
HFB-1_317m	地表から317.45-85m	26	1.09	41	9226	<2	8.23	520	224	<2.5	26	1.09	0.50

表 3.2.1-2 圧縮抽水で得られた間隙水中のイオン濃度・同位体比

(e) 岩石と模擬地下水の接触試験

幌延の現場試験を実施する場所の付近の岩石は透水性が低く、割れ目から実際にトレーサー 試験が実施できるような流量で地下水が連続的に湧出する可能性は極めて低い。このため、予 め試験を実施する割れ目に溶液(模擬地下水)を注入してトレーサー試験を実施可能な場を形 成し、その後トレーサー試験を実施することが必要である。模擬地下水の化学的な組成は、現 場の割れ目に充填されている水(地下水や間隙水)のものと近いことが望ましいと考えられる。 一方、幌延地域の地下水は地下水に溶存するメタンや重炭酸イオン濃度が高く(Miyakawa et al., 2017)、炭酸塩の溶解度が低いイオンはトレーサーとして機能しない可能性も考えられた。 そこで本研究では、重炭酸イオン濃度を含めて間隙水の主要な陽・陰イオンの組成を模擬した もの(模擬地下水・1)、重炭酸を除く主要な陽・陰イオンの組成をできる限り間隙水のものに 近づけたもの(模擬地下水・2)の2種類の模擬地下水に対して岩石を浸漬したあと、溶出する種々 のイオンの濃度を測定する「岩石と模擬地下水の接触試験」を実施した。接触試験の結果を基 にして、トレーサー候補となるイオンの岩石からの溶出量や溶出に与える重炭酸イオン濃度の 影響を検討した。検討結果から現場試験を実施するために適切な模擬地下水組成や、試験に適 用するトレーサーの種類・濃度を決定するための情報を得た。 試験には、サンプルの入手時期の関係から、トレーサー現場付近のMIG1号孔ではなく、2022 ~2023年度に取得されたHFB-1とよばれるボーリング孔のコアを利用した。HFB-1孔では幌延 深地層研究センターの近くにおいて、声問層から稚内層を貫くように400mの深度で掘削が実 施されたほか、透水性の良い数カ所では採水も実施された(日本原子力研究開発機構・電力中 央研究所, 2023)。HFB-1号孔ではコア観察等の結果から、深度約300m付近に声問層と稚内層 の境界があると考えられており、原位置トレーサー試験が実施される250m坑道の地質と状況 が近いと推察された。このため、HFB-1深度298m付近で得られたボーリングコアを、接触試験 に用いた。HFB-1深度298m付近のコアから間隙水を圧縮抽水し、イオン濃度等を分析した結果 をMIG1-3号孔の間隙水組成と併せて表 3.2.1-2に示した。令和5年度は表に示した間隙水の分 析結果を基にして、2種類の模擬地下水を調製し(表 3.2.1-3)、岩石との接触試験に使用した。 重炭酸イオン濃度の分析には、ある程度のサンプル量が必要であるため、HFB-1号孔から採取 された地下水(深度367m)の値を採用した。模擬地下水-1・2を用いた試験を相互比較することにより、炭酸塩の影響を評価可能である。

1cm角程度に粗粉砕した岩石コア1.0gに対して、模擬地下水10mLを添加し、pHを7.5に調整 しながら、1週間岩石と模擬地下水を接触させた。1週間後0.2µmのフィルタあるいは限外ろ過 フィルタ(分画分子量10,000)を用いて固液を分離し、トレーサーの候補であるイオン濃度や 主要なイオンの濃度をICP-MSやICを用いて分析した。また、上記とは別途模擬地下水に、Co (Co²⁺)・Ni(Ni²⁺)・Mo(MoO4²⁻)・Cs(Cs⁺)・Re(ReO4)がそれぞれ1mg/Lになるようにそれ ぞれの添加し、岩石との接触前後での濃度変化を調べた。さらにCo等を添加する試験では、岩 石を入らないブランク試験も実施した。岩石と模擬地下水の接触によるトレーサー候補となる イオン等の濃度変化について、表 3.2.1-4にまとめた。

溶液の種類	Na (mg/L)	K (mg/L)	Mg (mg/L)	Ca (mg/L)	F (mg/L)	Cl (mg/L)	Br (mg/L)	NO ₃ (mg/L)	SO ₄ (mg/L)	IC (mg/L)
HFB-1 298m間隙水	2787	81	38	53	2.3	3439	24	0.6	334	NM
模擬地下水-1組成	2935	142	60	31	ND	3359	0.3	1.2	235	441
模擬地下水-1岩石と接触後	2880	147	54	52	ND	3331	0.8	0.8	338	438
模擬地下水-2組成	2707	140	60	50	ND	4481	0.3	0.4	233	10
模擬地下水-2岩石と接触後	2705	138	56	58	ND	4381	0.8	1.9	337	11

表 3.2.1-3 模擬地下水における主要イオン濃度と岩石と接触後の主要イオン濃度の比較

表	3.2.1-4	岩石と接触前後の)模擬地下水中 ব	イオン	ν濃度の比較結果
---	---------	----------	-----------	-----	----------

		岩石と模:	擬地下水の	接触試験						
溶液の種類	ろ過方法	Rb (µg/L)	Cs (µg/L)	Sr (μg/L)	Ba (μg/L)	Со (µg/L)	Ni (µg/L)	Μο (μg/L)	Re (µg/L)	アミノC (μg/L)
山 テ し 持服地 テレビ 1 接触炎	0.2µmフィルタ	36	ND	45	10	12	50	254	ND	20.0
石石と俣擬地下水-1按照彼	限外ろ過(分画分子量10,000)	36	ND	44	9	12	49	254	ND	NM
山 て し 持服地 て し 1 接触炎	0.2µmフィルタ	37	ND	383	119	30	106	168	ND	11.0
石石と俣擬地下水-1按照俊	限外ろ過(分画分子量10,000)	37	ND	384	119	30	108	172	ND	NM
	 模擬地下水に対象イオン1	,000ppbを決	添加						•	
溶液の種類	ろ過方法	Сs (µg/L)	Ni (μg/L)	Со (µg/L)	Μο (μg/L)	Re (µg/L)				
	0.2μmフィルタ	983	840	965	1009	986				
僕筬地下小-1石石なし	限外ろ過(分画分子量10,000)	978	811	955	1008	1000				
描版地下水 1 半五	0.2µmフィルタ	80	146	146	1202	946				
候贼地下小-1+石石	限外ろ過(分画分子量10,000)	79	147	147	1194	961				
	0.2µmフィルタ	984	962	962	1024	1018				
僕筬地下小-2石石なし	限外ろ過(分画分子量10,000)	987	957	957	1009	995				
増料地下水 21 光天	0.2µmフィルタ	80	420	243	1033	969				
模擬地ト水-2+岩石	限外ろ過(分画分子量10,000)	81	433	247	1029	974.0				

(f) 令和5年度現場試験で利用するトレーサーと濃度の決定

(d)の間隙水のイオン組成、(e)の接触試験の結果から、令和5年度使用するトレーサーとその 濃度を決定した。

非収着性トレーサーになり得るものとして、重水・Br・Mo・Re・蛍光染料を想定した。Br については、表 3.2.1-2に示したとおり間隙水にもBr: 11-14 mg/Lと比較的高濃度で含まれ、 |岩石と模擬地下水の接触試験でも接触後の溶液で有意な濃度の上昇が見られた。また、蛍光染 料についてはアミノG酸を分析する場合と同様の励起-蛍光波長での分析により、間隙水で300 µg/L程度、岩石と接触した後の模擬地下水で20ppb程度の濃度が観測された。同様にウラニン を分析すると、検出下限以下となった。このため、幌延岩石の間隙水には、アミノG酸と似た蛍 光を発する有機物が存在していることが示唆された。以上のことから、BrやアミノG酸を非収 着性のトレーサーとして用いるためには、バックグランドが存在することを認識した濃度設定 が必要である。Moについては、間隙水における濃度も高く(400~600 µg/L)、岩石と接触後 の模擬地下水においても200~300 µg/Lの濃度が検出されたことから、トレーサーとして用い るにはかなり高い濃度での使用が必要である。また、Moについては溶液中の重炭酸イオン濃度 により、溶出が影響を受けており、トレーサーとして利用する場合には重炭酸イオン濃度にも 留意する必要がある。一方Reについては、間隙水および岩石と接触した模擬地下水から検出さ れず、間隙水に有意な量が溶存しておらず、岩石からの溶出もほぼ無視できることがわかった。 また、間隙水におけるδDの値は-58~-55‰程度であり、重水をトレーサーとして用いる場合に は、トレーサー中の ô Dがこれよりはるかに高い値になるように設定すれば良いと考えられた。 以上のことから、非収着性トレーサーとしての役割が期待される、重水・蛍光染料・Br・Moに ついてはバックグランド濃度に留意して濃度を設定すればトレーサーとして機能する可能性が 示された。Reについてはバックグランドにおける濃度が極めて低いことから、低いピークまで 検出できる有用なトレーサーとして機能する可能性がある。しかし、還元状態では挙動が大き く異なることや、実用例が少ないことから、今後現場試験や室内試験で適用のうえ使用におけ る留意点を抽出していく必要があると考えられる。

I価の陽イオンについては、Cs・Rbをトレーサーの候補とした。Rbは間隙水に30~40 µg/L程 度の濃度で含まれており、岩石と接触させた模擬地下水にも同程度の濃度で存在するため、岩 石から溶出している可能性がある。一方Csは間隙水・岩石と接触した模擬地下水の両方のケー スで液相から検出されなかった。このため、1価の陽イオンのトレーサーとしてはCsが最も有 効であると判断できる。さらに、1,000 µg/LのCsを添加した場合、固液比1g/10mLでCs濃度は 80 µg/Lまで低下した。幌延の岩石に対してはCsの収着性が高いことを示しており、トレーサー 試験において有意な破過曲線を得るには、ある程度高い濃度のCsを入れることが必要であるこ とが示された。

II価の陽イオンについては、間隙水中に、Sr: 500 µg/L、Ni: 300-600 µg/L、Ba: 200-600 µg/Lと有意な濃度で存在する。また、例えばSrについては、岩石と模擬地下水を接触させた場合、0.2µmのフィルタでのろ液において、模擬地下水-1では45 µg/L、模擬地下水-2では380 µg/L 程度の濃度で溶液中に存在していることが確認された。さらに、模擬地下水-1では限外ろ過フィルタを用いたろ液において、Sr濃度が38 µg/Lと顕著に低下した。このため、重炭酸イオン濃度が高い模擬地下水-1では炭酸塩に溶解度が制限されている一方で、模擬地下水-2では岩石からSrが溶出する可能性が示唆された。他の2価イオンについても同様の傾向が観察されている。このため、現場試験を計画している250m坑道付近の割れ目では、II価イオンの一部は炭酸塩として沈殿している可能性が高い。このような割れ目に模擬地下水を流した場合、炭酸塩の溶解・間隙からの重炭酸イオンの拡散あるいは溶存ガスとしての割れ目への移行・圧力解放によるガス化・再沈殿など、かなり複雑な現象が起きる可能性が想定される。このためII価イオンにつ

いては、模擬地下水を実割れ目に注水・揚水したときに起きる現象を、室内試験から詳細な情報を得たうえで現場試験に適用するのが良いと判断し、令和5年度の現場試験にはII価の陽イオンは加えないこととした。

上述の検討を基にして、令和5年度利用するトレーサーの組成・濃度を表 3.2.1-5のように決 定した。令和5年度は電中研において幌延地域でトレーサー試験を実施する最初の年となるた め、試験そのものを成立させるための条件(注入する模擬地下水の量・注入/揚水流量など)を 探ることが試験の主目的となる。このような試験でも、破過曲線を得て割れ目に関する情報を できるだけ抽出するため、(a)に記載したとおり拡散係数の異なる複数の非収着性をトレーサー として選定した。トレーサー濃度は間隙水の影響を考慮しても、入れたトレーサーの1%が判別 可能であることを基準として設定した。1%という数字には、現在のところ明確な理由はない。 室内試験の解析では入れた濃度の5%以下の箇所は遅延・拡散係数を得るのに直接利用していな いことを参考に設定しているが、必要とされる感度は最大ピーク高さとの関係やバックグラン ドとなる地下水の流動状況などに依存しており、上記の検討だけからは決定が難しい。また、 Csは1g/10mLの固比において、1.0 mg/Lの濃度で溶液に添加したCsが90%以上岩石に収着した ことから、回収できることを重視して高めの濃度に設定したが、これも実際に対象とする割れ 目幅(固液比)に依存するため、上述の試験結果だけからは設定が困難である。このため、図 3.2.1-18に示したように本来は、現場付近のコアを用いた模擬トレーサー試験、収着・拡散試験 の結果を受けて実施する予備的な解析を経て濃度が決定されることが望ましい。令和5年度は 室内試験開始と現場試験開始の時間的な関係から、模擬トレーサー試験や予備的な検討を十分 には実施できておらず、上記の情報からトレーサー濃度を決定した。

分類	トレーサー	選定理由(●)・要確認(✔)	溶液中濃度	濃度設定理由
带业沈羽	ウラニン	 ・非収着性、岩石マトリクスへの拡散係数 小さい ・現場でインラインで分析可能、視覚性が 良い ・ ・微生物により分解する可能性がある 	5ppm	トレーサー混合率1%が十分に定 量できる
蛍光染料	アミノG酸	 非収着性、岩石マトリクスへの拡散係数 小さい 幌延においては微生物耐性があり、岩 石への収着も少ない ✓ 幌延天然有機物が同じ蛍光を発する 	20ppm	トレーサー混合率1%が見分けら れる→バックグランド濃度が 0.2ppm以下程度になるため、そ の100倍
重水	D ₂ O	 ・非収着性、岩石マトリクスへの拡散係数 、大きい ✓ 岩石間隙水により希釈も大きい 	100ppm	トレーサー混合率1%が十分に定 量できる
	Br-	 非収着性、岩石マトリクスへの拡散係数 が蛍光と重水の中間 ✓ バックグランド濃度が高い 	500ppm	バックグランド濃度の50倍程度。 100倍にするとイオン濃度への影響が大きく、現場での調整が難 しくなる。
陰イオン	ReO ₄ -	 ・非収着性、岩石マトリクスへの拡散係数が蛍光と重水の中間 ・岩石からの溶出・間隙水濃度がほぼ無視できる ✓酸化還元状態に敏感 	1ppm	現場の地下水には含まれて折ら ず、10ppb程度は十分に定量可 能であるため。
価陽イオン	Cs+	 岩石からの溶出・間隙水濃度がほぼ無 視できる 	50mg/L	バッチ試験の結果を考慮し、破 過曲線が得られるように高めに 濃度を設定した。

表 3.2.1-5 選定したトレーサーとその濃度

さらに、岩石と模擬地下水が接触したときのアミノG酸の見かけ濃度が、模擬地下水-1・2で 異なることから、岩石からの有機物の溶出においても溶液中の重炭酸イオン濃度が影響を与え る可能性があることが示唆された。このように、溶液中の重炭酸イオン濃度は溶液中のイオン や有機物の挙動への影響が大きい。評価対象地点と同じ条件で沈殿の生成や炭酸錯体形成の影 響を含めてデータを得ることを重視するのか、複雑な現象が起きにくい条件で割れ目幅や拡散・ 分配係数などを確実に取得することを重視するのかなど、試験の目的によってどのような模擬 地下水を採用していくかを議論・決定していく必要がある。令和5年度の試験では、まず現場試 験で確実に解釈できるデータを得ることを重視し、重炭酸イオンを含まない模擬地下水・2で試 験を実施することとした。岩石を1週間模擬地下水・2と接触させたあとでも、溶液に濁りは観察 されなかったため、この模擬地下水と孔壁が接触することによりスレーキングを起こして壁が 崩れるという現象が起きる可能性が低いことが示された。岩石と接触前後で主要イオン濃度の 組成が大きく変化しないことと併せて、MIG1・3号孔の間隙水組成の情報を基にして模擬地下 水を調製・利用することにより、現場でのトレーサー試験が実施可能であると考えられた。た だし、岩石の接触後の模擬地下水では硫酸イオンの濃度が顕著に上昇しており、黄鉄鉱等が酸 化して溶解した可能性がある。現場でも起きうる現象なのか、将来的には確認していくことを 計画している。

(g) 核種移行に係わるパラメータの取得

核種移行に関連するパラメータである分配係数・拡散係数についてはそれぞれ、粉体を用い たバッチ試験、透過型拡散試験により取得した。バッチ試験ではMIG1-3号孔で取得したコアの 一部を粉砕して粒径を1~2mmとしたものを、MIG1-3号孔のコア間隙水のイオン組成を参考に して調製した模擬地下水(後述)に浸漬したあと(固液比:1g/10mL)、pHを7.5に調整した。 その後、(f)で設定したトレーサー種類・濃度になるように、各トレーサーのストック溶液を添 加した。トレーサー添加から1週間後に、0.45umのフィルタを用いて固液を分離し、液相のト レーサー濃度を分析した。別途同様の手順で岩石粉末を入れずに実施した「ブランク試験」か ら容器壁への収着量を、岩石粉末を入れトレーサーを添加しない「岩石ブランク試験」から岩 石から対象とするイオンの溶出量を評価し、上記の吸着試験の結果を補正して分配係数(Kd) を評価した。また、参考データとしてⅡ価イオンにおける収着試験も実施した。Ⅱ価イオンの分 配係数を評価するための試験では、II価イオンと硫酸イオンとの溶解度積が低いことから、硫 酸イオンを含まない模擬地下水を利用した。その他の溶質については、重炭酸イオン濃度以外 をできるだけ間隙水の化学組成に近づけた溶液を模擬地下水とした(表 3.2.1-2)。透過型拡散 試験では、MG1-3号孔で取得した98mm径の岩石コアから、直径50mm、厚さ10mmのディス ク状に岩石を切り出し、試験用の試料とした。拡散係数を調べた対象は、重水、アミノG酸、ウ ラニン、Br、ReO4、Cs、Srであり、陽イオンの組成のみを間隙水に近づけ、陰イオンは全て 塩化物イオンとしたものを模擬地下水として利用した。これは硫酸ストロンチウムの沈殿が生 じる可能性を避けるためである。

図 3.2.1-19には深度10.76mのコアを用いた拡散試験における低濃度側セルにおける評価対象濃度の経時変化を示したほか、拡散係数とバッチ法で評価された分配係数をまとめた。図中の縦軸は低濃度側セルでの濃度Cを、高濃度側セルの濃度Coで規格化した値(C/Co)を、横軸は拡散試験を開始してからの経過時間を表している。



図 3.2.1-19 250MIG1-3 10.76mコアでの拡散試験の結果とバッチ法で評価された分配係数の まとめ

(h) 新規トレーサーに関する検討

上記のトレーサーに加えて、新たに溶存HeとDNAトレーサーについてそれぞれ予備的な試 験や情報収集を実施した。

上述の通り、拡散係数の異なる非収着性のトレーサーを複数試験溶液に添加することで、ト レーサー試験におけるそれらの挙動の差異から、割れ目部からマトリクス部への拡散について 情報を得ることが可能である。溶存Heは、重水よりもさらに拡散係数が大きく(Nakata et al., 2023)、他の非収着性トレーサーと大きな差異を得ることができると期待される。一方、Heは 気体であるため大気からの汚染や大気への散逸が起きやすく、試験現場においてインラインで 測定する必要がある。そこで令和5年度の研究では、Heをインラインで分析する手法を検討し た。このため、令和5年度の検討ではインラインで溶存Heを分析可能なシステムを構築するこ とを目指して、室内試験による検討を実施した。令和5年度構築した試験系は、ICなどに用いら れる中空糸膜の脱ガスモジュールとガスクロマトグラフ(GC)を組み合わせて、溶液からHeを抽 出し濃度の分析を試みた。構築した試験系の概念図を図 3.2.1-20に示した。トレーサー試験で 得られた溶液の一部を脱ガスモジュールに一定時間保持することで、溶存He・中空糸膜中のガ ス相・サンプルループ内のガス内でそれぞれ平衡が達成される。平衡が達成されたところで、 サンプルループ内のガスをGCに送ることで、溶液中に含まれたHeの量を測定することが可能 となる。令和5年度は平衡が達成されるのに要する時間について検討するため、純Heを純水に バブリングした溶液を脱ガスモジュールに入れ、所定の時間経過後スイッチングバルブを切り 替えてサンプルループ内のガスをGCに送り、分析するという試験を実施した。試験結果を図 3.2.1-20に示した。図中グラフの横軸「待機時間」はHe溶液を中空糸膜モジュールに保持した 時間であり、グラフの縦軸は待機時間後GC分析したときのHeに対応するピークの面積である。



図 3.2.1-20 インラインHe濃度分析の試験系概念図(左)と待機時間とGC分析におけるHe ピーク強度の関係(右)

図から分かるように、GC分析におけるHe由来のエリア値は保持時間15分をピークとして緩 やかに減少する様子が観察された。保持時間が10分から15分にかけてはHe由来のエリア値は 増大しており、溶液中のHeと中空糸膜およびサンプルループ・配管内のガスが平衡になるのに 15分以上が必要であることが示された。一方、Heのエリア値が保持時間15分以降に減少するの は、プラスティック製の脱ガスモジュールや、ナイロンの配管からHeが拡散により散逸したた めと考えられた。令和5年度得られたHe飽和水での結果を基準として、同じ条件(保持時間15 分)でサンプルからHeを抽出・GCでの分析を行うことにより、飽和水に対するHe濃度が評価 可能であると考えられた。今後の検討においては、現場試験等の結果を参考にどの程度の頻度 でデータが得られれば良いかを決定した上で、より短い保持時間で平衡が達成できるよう、例 えば予め中空糸膜内を真空引きするなど試験条件の最適化を検討する。また、配管等を全て金 属に変更するなどHeが散逸しにくい試験系を構築し、室内試験そして現場試験へと適用してい くことを計画している。

DNAトレーサーについては、既往の研究について調査し、今回検討しているトレーサー試験 に適用できる可能性を検討した。DNAトレーサーとは特定のDNAをリポソーム等のカプセル に封入し、このカプセルをトレーサーとして用いる技術である(Liao et al., 2018; Mikutis et al., 2018; 赤松ほか, 2020)。DNAの種類を変更すれば同じ化学的性質・大きさを持ったトレ ーサーが複数種類準備できることから、複数種類の水が混合する際のトレーサーとして有用で ある。また、同じ性質をもつ異なる種類のトレーサーが調製できることは、例えばボーリング 掘削時・孔の洗浄時でトレーサーの種類を変える必要がある、概要調査におけるボーリング も有用であると考えられる。また、DNAトレーサーは最終的にカプセルを破壊し、中のDNAを 取り出してPCR等を用いて増幅した上で分析するため、わずかな量で高感度の検出が期待でき る。また、粒径を制御することにより、化学的性質は同じであるが、大きさの異なるトレーサ ーを準備することができるため、大きさの異なる複数のトレーサーを用いることで、割れ目の 大きさに関する情報を得ることができる可能性もある。以上のことから、DNAトレーサーや DNAトレーサーに利用されている「カプセルに検出が容易な物質を封入する」という技術はト レーサー試験をはじめ、概要調査等にも有用である可能性がある。今後の研究において、カプ セルに封入したトレーサーの調製・室内試験や現場試験への使用を実施していく計画である。

② 幌延岩石コアを用いた模擬トレーサー試験の実施

原位置トレーサー試験は、実際の現場の割れ目を使って試験ができるという利点がある一方 で、現実的な工期内で試験を実施するために、実施可能な試験条件は限られたものとなる。現 場試験で得られた知見の他条件・サイトへの適用性、多少の条件の変化(例えば人工バリア材 からの影響など)により得られた結果がどの程度影響を受けるかを調べるには、現場よりも試 験条件を制御しやすい室内試験において種々の条件で試験を実施し、現場試験の結果をフォロ ーしていくことが必要である。また、トレーサー試験においては、回収孔においてトレーサー が回収できなければ、全く情報を得られないことになるため、流速・ダイポール比・トレーサ ー濃度などの試験条件を適切に設定する必要があり、このためには予備的な試験の実施が望ま しい。上記のような「現場試験の結果の補完」あるいは「条件設定のための予備的試験」のた めに、概要調査や精密調査初期で得られるであろう岩石コアを用いて、模擬的な試験を実施す るための試験系を構築することが必要である。

幌延地域で取得される岩石コアは、岩石そのものが脆く50cmを超えるような岩石柱やコアを 整形することは現実的ではない。そこで本研究では、別途構築した、長さ10cm程度のコアを用 いて、模擬的な割れ目を作製し試験を実施するための試験系を用いて、模擬的なトレーサー試 験を実施した。利用した試験系の概念図を図 3.2.1・21に示した。新たに構築した試験系では、 円柱状の容器に円柱状のコアを入れ、Centering Screwを用いてコアを容器の中心に設置する ことで、容器内壁とコア外側の間に2mm程度の模擬的な割れ目を形成することが可能である。 幌延岩石コア(HFB-1号孔)を利用して得られた模擬トレーサー試験結果の一例を図 3.2.1・21 に示した。以下2)に示す現場試験の結果と合わせて、種々の条件で試験を実施し、来年度に向 けて試験条件を最適化していくとともに、得られたデータを用いて試験や解析結果の妥当性検 証、結果やモデルの適用性や拡張性の議論に利用していくことを計画している。





③ 砂岩を用いたトレーサー試験の実施

前述のように、花崗岩を用いた室内試験を解析した結果、一般的にマトリクス部分への拡散 が小さいと考えられる花崗岩であっても、マトリクス部への拡散が、トレーサー試験の結果で ある破過曲線に大きな影響を与えることが分かっている(岡本ほか,2023)。このため、令和5 年度はより拡散係数の大きな岩石を用いて、室内トレーサー試験を実施し、結果を解析へと提 供した。

試験に用いたのは来待砂岩と言われている岩石であり、これを直方体(10×10×120cm)の 形状に加工したものを石材店(川賀石材店)から購入し、試験に用いた。上記の直方体にアク リルの板をOリングとスペーサー(割れ目幅を制御するための治具)を介して押しつけ、模擬的 な割れ目を作製した。上記の割れ目を用いて模擬トレーサー試験を実施した(図 3.2.1-22)。 流速を0.025~1.0(mL/min)の範囲で変化させて得られた、重水の破過曲線を図に示した。破過 曲線を解析によってフィッティングし、その結果から得られた拡散係数と、同じ岩石の一部を ディスク状に成形して透過型拡散試験を実施した結果から得られた拡散係数を図 3.2.1-22で 比較した。図から分かるように、流速が10倍以上変化してもそれぞれの条件から得られた拡散 係数は同程度であり、透過型拡散試験から得られた値と近い値となった。



図 3.2.1-22 砂岩における模擬トレーサー試験:(a)試験系の概念図、(b)得られた破過曲線 (縦軸は初期濃度に対する破過側溶液中の濃度の比、横軸は拡散試験を開始してからの時間を 示す)、(c)推定された実効拡散係数(縦軸は実効拡散係数、横軸は流速を示す)

今回の試験では、岩石のマトリクス部を切り出してアクリルとの間に「模擬割れ目」を作製 し、試験を実施した。このため、トレーサー試験で得られた拡散係数と透過型拡散試験で得ら れた拡散係数がよく一致したことは、適用した解析の方法が妥当であることを示していると考 えられる。また、試験条件を大きく変えても、同程度のパラメータが得られたことも、今回適 用した解析方法と得られた拡散係数が妥当であることを示す結果であると考えられる。実在す る割れ目では、割れ目の界面に二次鉱物が存在するなど、割れ目の特性が岩石バルクのものと は異なる可能性がある。このような場合、岩石の特定の場所を切り出して透過型拡散試験を実 施すること自体が困難であることが予想されるうえ、その結果をもって「割れ目からマトリク ス部分への拡散係数」とするのはその代表性などさらなる検証が必要である。今回トレーサー 試験の結果から、割れ目からマトリクス部分への拡散を評価する手法が妥当であると確認でき たことから、この手法を適用することにより実在の割れ目におけるマトリクス部分への拡散係 数を得てその妥当性を確認するための準備が整った。今後は現場試験の結果にも、本手法を適 用し、実在の割れ目における特性についての情報を得ていく計画である。
2) 原位置試験

① 単孔トレーサー試験の概要

トレーサー試験の代表的な試験方法として、1本のボーリング孔でトレーサーの注入~トレ ーサーの回収までを同一のボーリング孔で行う単孔トレーサー試験と、トレーサーの注入とト レーサーの回収を別々のボーリング孔で行う孔間トレーサー試験(ダイポール試験)がある(田 中ほか;2008)。単孔トレーサー試験の概念図を図 3.2.1-23に示す。単孔トレーサー試験は、 まず始めに地下水を定流量で流入し、定常場の形成を行う(図 3.2.1-23 a)。次に、注入ライ ンを切り替え、トレーサーの注入を行う(図 3.2.1-23 b)。その後、注入ラインを再度切り替 えてチェイサーとして地下水を注入し、試験区間内のフラッシングを行う(図 3.2.1-23 c)。 最後に同じボーリング孔から揚水を行って、トレーサーの回収を行う(図 3.2.1-23 d)。次に、 単孔トレーサー試験と孔間トレーサー試験の特徴を表 3.2.1-6に整理する。



図 3.2.1-23 単孔トレーサー試験の概念図

	単孔トレーサー試験	孔間トレーサー試験
長所	 1本のボーリング孔で試験を実施できるため、コストを抑えることができる。 注入したトレーサーやチェイサーとほぼ同量を揚水すれば濃度がピークに達するため試験計画が立てやすい。 収着性が強いトレーサーほどボーリング孔周辺に留まるため、収着性トレーサーであっても現実的な試験時間内でトレーサーを回収できる可能性がある。 	 ボーリング孔間の水理的連結性を評価できる。 試験結果(破過曲線)の解釈が比較的容易。 物質移行評価に必要なほぼ全てのパラメータを評価できる。
短所	 水理的連結性を評価できない。 評価できるパラメータに制約がある (野原ほか; 2016a)。 	 ・ 少なくとも2本のボーリング孔を必要 とするため、コストが比較的高い試験 法である。 ・ 試験条件の設定が煩雑である。 ・ 孔間距離や、注入流量、揚水流量によ っては、注入孔から投入したトレーサ ーが回収孔に到達するまでに長時間 かかる可能性があり、分析に有意な濃 度で回収できない可能性がある。

表 3.2.1-6 単孔トレーサー試験と孔間トレーサー試験の比較

単孔トレーサー試験、孔間トレーサー試験のいずれにも長所や短所はあるが、単孔トレーサ

ー試験は、試験条件の設定や試験計画の立案が比較的容易であることが大きな特徴である。従って、原位置トレーサー試験を実施した経験が浅い環境下において、特に有効な試験法であると言える。また、単孔トレーサー試験で評価した物質移行パラメータを活用し検討を深めることで、効率的に孔間トレーサー試験を行える可能性がある。

今回トレーサー試験を行う幌延深地層研究センターの声問層は、透水性が低く湧水量は決し て多くはない。また、地下水に溶存するガスが圧力解放に伴って脱ガスすることが知られてい る(武田ほか;2018)。トレーサー試験を行う場合、トレーサー回収中は安定して揚水すること が必要不可欠であり、脱ガスの影響を抑えながらトレーサーが回収されることが望ましい。単 孔トレーサー試験は、注入した流体を同一孔で揚水する試験であり、前述したような環境であ っても、揚水するのと同量もしくはそれ以上の地下水を事前に試験区間に与えることで、安定 してトレーサー試験を行うことが期待される。以上の理由から、本研究では単孔トレーサー試 験を実施することとした。

② 試験サイトの概要

本研究では、日本原子力研究開発機構が北海道幌延町に建設した幌延深地層研究センターの 250m大型試錐座(西)において掘削した4本のボーリング孔(孔径 \$\phi 98mm)のうち、250-MIG1-4孔を使って単孔トレーサー試験を実施した。図 3.2.1-24に試験サイトの概要図を示す。4本の ボーリング孔は、鉛直下向きに俯角5~45度で掘削され(図 3.2.1-24 a)、掘削長は21m程度で ある。孔口では0.7~1.7m程度の孔間距離であるが(図 3.2.1-24 b)、深度21mabh付近におけ る孔間距離は17m程度である。



図 3.2.1-24 地下250m調査坑道の水平展開図と250m大型試錐座(西)の状況写真

4本のボーリング孔では、日本原子力研究開発機構によってボアホールカメラを使った孔壁 観察(以下、BTV検層)や定流量注入透水試験等の事前調査が行われている。図 3.2.1-25に250-MIG1-4孔を対象に行われた事前調査の結果の一部を示す。図 3.2.1-25(a)は、水理試験を行う 前に計測された初期状態の間隙水圧の計測結果である。孔奥に向かうに従って間隙水圧は高く なる傾向にあるが、最大値は0.34MPa程度であり、深度250mの静水圧に比べると明らかに低 い。図 3.2.1-25(b)は、試験区間長を0.7~6.7mとする定流量注入透水試験の結果であり、左側 の軸は透水量係数を、右側の軸は透水量係数を区間長で除して計算した透水係数を表している。 250-MIG1-4孔の透水量係数は10⁻¹⁰~10⁻⁸[m²/sec]オーダーであり、深度17.2mabh~孔底を区間 とする試験区間の透水性が最も高い。トレーサー試験は、水の注入や揚水を必要とする試験で あることから、透水性が低すぎると試験の実施が困難であることから、250-MIG1-4孔の深度 17.2mabh以深をトレーサー試験の候補区間とした。該当区間のBTV画像(図 3.2.1-25 (c)や、 深度20mabh以深は孔径がわずかに狭くなっていることを考慮し、本研究では深度18.6~ 19.0mab付近にある割れ目を対象に試験を行うこととし、トレーサー試験装置の設置を行った。



図 3.2.1-25 250-MIG1-4孔の水理試験結果及び深度18.0~19.0mabhのBTV画像

試験装置

本研究では、武田ほか(2018)で用いられた物質移行試験装置の一部を用いて試験を行った。 当該試験装置は、同研究施設の深度350m調査坑道においてシングルパッカー型式で孔間トレ ーサー試験を実施するために開発された試験装置であるが、2本の試験装置を組み合わせるこ とによってダブルパッカー型式で単孔トレーサー試験を行うことも可能な機構となっている。 本研究では、ダブルパッカー型式となるような装置構成とし、単孔トレーサー試験を実施した。 図 3.2.1-26に本研究で使用したトレーサー試験装置の概要図を示す。



図 3.2.1-26 本研究で使用したトレーサー試験装置

本研究で使用した試験装置は、3つの区間(P1~P3)が設けられており、各区間の設置深度は表 3.2.1-7に示す通りである。また、デッドボリューム体積を表 3.2.1-8に整理する。本試験装置の 孔内試験装置には、(一財)電力中央研究所が瑞浪超深地層研究所においてトレーサー試験を実 施するために開発された6方バルブ(トレーサー循環バルブ)を組み込んでおり(野原ほか; 2016b)、孔内の試験区間近くまでトレーサーが満たされた状態からトレーサーの注入を行う ことができる。このため、表 3.2.1-8に示すように、注入側と回収側でデッドボリューム体積が 異なっている。注入及び揚水は、2台のモーノポンプ(兵神装備株式会社製ヘイシンモーノポン プ;12NE04)を使って行う。モーノポンプの吐出し圧は最大1.8MPa、吐出し流量は5.8~ 100mL/minである。

表 3.2.1-7 試験装置の設置深度				
区間	深度			
P1区間	5.75~18.01mabh			
P2区間(試験区間)	18.51~19.00mabh			
P3区間	19.50mabh~孔底			

	注入側	回収側	
ボーリング孔(φ98mm)~試験装置(φ	221 mL		
95mm)			
チューブ長(孔内) ※内径 \$ 4mm	1.6 m	20.5 m	
チューブ長(地上) ※内径 φ 4mm	-	7.5 m	
チューブ体積(孔内+地上)	20 mL	352 mL	
モーノポンプ	-	90 mL	
合計	231 mL	663 mL	

表 3.2.1-8 デッドボリューム体積

④ 予備試験

単孔トレーサー試験を実施するにあたり、予備試験として、定流量注入透水試験、定流量揚 水試験、定流量注入揚水切り替え試験を実施した。以下に、予備試験の内容や結果を示す。

(a) 定流量注入透水試験及び定流量揚水試験

図 3.2.1-26に示すトレーサー試験装置を設置する前に行われた水理試験では、深度 17.2mabh~孔底を区間とした定流量注入透水試験は行われていたが、単孔トレーサー試験で 試験区間とした18.51~19.00mabhの透水性は評価されていない。このことから、まずは定流量 注入透水試験を2回実施した(Case1:注入流量10mL/min、Case2:注入流量30mL/min)。次に、 当該試験区間において揚水が実施可能かを判断するため、揚水試験を実施した(Case3:揚水流 量10mL/min)。図 3.2.1-27にCase1~Case3の結果を示す。

Case1において10mL/minで注入を行った結果、間隙水圧は0.18MPa程度増加した。また、 Case2において30mL/minで注水を行った結果、間隙水圧は0.54MPa程度増加した。両方の試験 結果において、流量と間隙水圧の増加量の関係には線形性が確認された。当該試験装置のパッ カー圧が1MPa程度であることを考慮すると、当該試験区間において安定的に注入可能な流量 は30mL/minが上限であると考えられる。また、水圧回復過程にて透水試験の解析を行った結 果、Case1の透水量係数は9.30×10⁻⁹m²/sec、比貯留係数は6.05×10⁻⁷m⁻¹であり、Case2の透水 量係数は1.37×10⁻⁸m²/sec、比貯留係数は1.29×10⁻⁹m⁻¹であった。一方、Case3として流量 10mL/minで定流量揚水試験を行った結果、間隙水圧は0.14MPa程度減少した。平衡時の間隙 水圧が0.3MPa程度であることから、当該試験区間において安定的に揚水可能な流量は 10mL/minであると言える。



図 3.2.1-27 定流量注入透水試験及び定流量揚水試験時におけるP2区間の水圧計測結果

(b) 定流量注入揚水切り替え試験

前述したように、今回の試験対象である幌延深地層研究センターの声問層は、湧水量が少な く、脱ガスの影響が懸念される。しかし、単孔トレーサー試験は、揚水するのと同量もしくは それ以上の地下水を事前に試験区間に与えることで、前述したような環境であっても安定して トレーサー試験を実施できる可能性がある。このことから、ここでは単孔トレーサー試験を行 う場合を想定し、定流量で一定量の地下水を注入した後にその後揚水に切り替える試験(以下、 定流量注入揚水切り替え試験と呼ぶ)を実施し、揚水時の流量安定性や脱ガスの影響を確認することとした。

定流量注入揚水切り替え試験では、まず始めに現地で入手しやすい地下水を溶媒とし、試薬 を使って現地地下水の水質組成に近い水(以下、単に地下水と呼ぶ)を作成した。Case4、Case5 のいずれも流量20mL/minで2時間の注入を行った後(注入量は2.4L)、Case4では10mL/min で、Case5では5mL/minで揚水を行った。Case4では、注入量と同量を揚水した時点で揚水を停 止し、Case5では翌朝まで揚水を継続した。本研究で使用する非収着性トレーサーのレニウム (ReO4)は、地下水の酸化還元電位の状態によってその存在形態が変わる可能性があることか ら、揚水される地下水の酸化還元電位(ORP)と溶存酸素濃度(DO)をフローセルを使って計測し た。図 3.2.1-28、図 3.2.1-29にCase4とCase5の結果として、試験区間(P2)の圧力、注入流量、 揚水流量、ORP、DOの計測結果を示す。

いずれの試験においても、注入した地下水と同量を揚水するまでは(揚水量2.4L)、流量計の計測結果は比較的安定しており採水が停止することはなかった。しかし、Case5において揚水量が2.8Lを超えた辺りから、揚水側の流量計が不安定になっている。これは、流量計のライン内をガスが通過した影響であると考えられる。また、揚水側のチューブを水で満たしたバケツに入れて目視で気泡発生の状態を確認したが、揚水量が2.4Lに達するまでは、散発的に気泡は発生しているが、常に連続して気泡が発生する様子は確認されなかった。以上の結果から、トレーサーを回収する間に揚水される地下水と同量もしくはそれ以上の地下水をトレーサー注入前に与えることで、トレーサー回収中の脱ガスの影響を抑えられる可能性がある。

次に、揚水された地下水のORPやDOを計測した結果によれば、いずれも注入する地下水の ORPは約130mV、DOは約4.7mg/Lであったが、10mL/minで揚水するCase4においては、揚水 量が約2Lに達した時点でORPが負もしくはDOが0となり、5mL/minで揚水するCase5において は、揚水量が約1.1Lに達した時点でORPが負もしくはDOが0となった。特に、Case5では、揚 水量が2.7Lを超えるとORPが極端に減少する様子も確認された。つまり、注入した地下水と同 量を揚水するまでは、ガスが連続的に発生するような影響は抑えられているものの、それより も前に注入した地下水に岩盤側から供給されるガスが溶け込むとともに、バックグラウンド地 下水との混合が進むことで地下水が酸化状態から還元状態に向かい、脱ガスが生じやすい条件 が進んでおり、その影響は揚水時間が長くなるほど顕著になっていると考えられる。



⑤ 単孔トレーサー試験

(a) 試験条件

予備試験の結果を踏まえて、単孔トレーサー試験の試験条件を決定し、試験を実施した。表 3.2.1-9に試験条件を整理する。今回の試験では、表 3.2.1-5に示したように、非収着性トレーサ ーとしてウラニン(5ppm)、アミノG酸(20ppm)、重水(D₂O;100ppm)、臭素(Br、500ppm)、 レニウム(ReO₄;1ppm)を、収着性トレーサーとしてセシウム(Cs+;50ppm)を使用する。 但し、本報告書に示す2023-S1、2023-S2においては、非収着性トレーサーのみを使用している。 過去に花崗岩の割れ目を対象に実施した試験では、注入したトレーサーとチェイサーの合計量 の5倍程度を揚水した時点でトレーサー濃度が概ね0まで減少する結果が得られていた(野原ほ か;2016b)。今回は堆積岩を対象としているため、花崗岩の割れ目を対象に行った過去の試験 よりもテールが長引く可能性を考慮し、揚水量は注入したトレーサーとチェイサーの合計量の 7倍程度を目安とした。また、トレーサー注入前には、揚水量と同じかそれ以上の地下水を注入 し、定常場を形成してからトレーサーの注入を行った。

試験 条件名	トレーサー	注入流量	揚水流量	トレーサー注入量 (時間)	チェイサー注入量 (時間)
2023-S1	非収着性ト			1000mL (50min)	1000mL (50min)
2023-S2	レーサーのみ	20 mL/min	10 mL/min	400mL (20min)	400mL (20min)

表 3.2.1-9 単孔トレーサー試験の試験条件

(b) 試験結果

試験結果を図 3.2.1-30、図 3.2.1-31に示す。いずれの図も、下横軸は揚水量に対するトレー サーとチェイサーの合計注入量の比であり、表 3.2.1-8に示した回収側デッドボリューム (663mL)を揚水した時点を0として表している。また、上横軸は揚水開始からの経過時間を表 す。図 3.2.1-30(a)および図 3.2.1-31(a)は破過曲線であり、トレーサー原液濃度に対する回収 濃度の比を表し、図 3.2.1-30(b)および図 3.2.1-31(b)は破過曲線から計算される回収率の経時 変化を表している。

いずれの試験条件も、トレーサー注入後にチェイサーとして地下水を注入し試験区間内のフ ラッシングを行っていることから、揚水開始直後の濃度は0となり、揚水量の増加とともに濃度 が増加してピークを迎え、その後濃度が減少するといった破過曲線になると考えていた。実際、 過去に行った試験ではそのような破過曲線が得られており、揚水量/注入量が1となる辺りで濃 度がピークを迎えていた。しかし、今回の試験では、回収側デッドボリューム(663mL)を揚 水するより前に濃度が増加を始め、想定よりも早く濃度がピークを迎えた。これは、チェイサ ー注入後もトレーサーの一部が試験区間内に残留した影響であると考えられる。一方、2023-S1 では、ボーリング孔~試験装置間のデッドボリューム体積221mLの約4.5倍のチェイサー注入 によってフラッシングを行っており、チェイサー量としては決して少なくない。つまり、今回 使用したトレーサー試験装置の構造等の影響によって試験区間内でトレーサーが均一に広がら ず、チェイサー注入終了後もトレーサーが局所的に残留したと考えられる。このことから、次 回の試験では、ボーリング孔~試験装置間のデッドボリュームをなるべく少なくするとともに、 試験区間内でトレーサーが均一に広がるような改良を施す必要がある。

トレーサーの種類ごとに破過曲線を比較すると、ウラニンだけが他のトレーサーとは異なる 挙動を示している。特に、2023-S1では揚水量/注入量が0から1の間に濃度が急減し、明らかに 他のトレーサーとは異なる結果となった。一方、本試験では地上部の回収側チューブにおいて 蛍光濃度センサーを使ってウラニン濃度を計測しており、分析で得られたような挙動は確認さ れていない。つまり、採水した試料を分析するために実験室へ輸送している間に微生物分解の 影響を受け、濃度が0付近まで減少したと考えられる。また、臭素は他のトレーサーに比べて濃 度が高かったが、これはバックグラウンド地下水における臭素の濃度が比較的高いことが影響 していると考えられる。

机上検討や室内試験の結果より、拡散係数は蛍光染料(ウラニン、アミノG酸)、陰イオン (臭素、レニウム)、重水の順に大きく、マトリクスへの拡散効果が充分に現れた場合、破過 曲線に有意な差が生じると期待される。しかし、図 3.2.1-30(a)、図 3.2.1-31(a)において、トレ ーサーの種類による大差は現れておらず、今回の試験結果にはマトリクス拡散の効果が充分に 表れていない可能性がある。次回の試験では、揚水流量を更に小さくする、もしくはトレーサ ーとチェイサーを注入した後に待機時間を設けるなどし、トレーサーと岩盤の接触時間をなる べく長くして拡散の効果が表れやすい条件で試験を実施する必要がある。

今回試験を行った区間の透水性は決して高くなかったが、トレーサーを全く回収できなかったというわけではなく、採水終了時点での回収率は(図 3.2.1-30(b)、図 3.2.1-31(b))、2023-S1が55~73%、2023-S2が82~111%であった(ウラニンを除く)。採水停止後も回収率は増加傾向にあることから、更に揚水を行っていればトレーサー全量を回収できた可能性もある。また、2023-S2の回収率が比較的高い傾向にあるが、これは2023-S2が2023-S1よりも注入トレーサー量が少ないためであると考えられる。一方、2023-S2のアミノG酸や臭素は回収率が100%を超える傾向にあり、2023-S1で回収しきれなかったトレーサーの影響が2023-S2に現れている可能性も考えられる。従って、次回の試験では揚水をなるべく長くする、もしくは試験間のインターバルにトレーサーを使用しない定流量注入揚水切り替え試験を行う等によって、前の試験のトレーサーの影響をなるべく小さくする必要があると考えられる。







(3) 地質環境の長期変遷や空間スケールを考慮に入れた核種移行解析モデルの開発1) 堆積岩への核種収着挙動評価

多数の鉱物から構成される岩石に対する収着の評価方法はgeneral composite (GC)法と component additivity (CA)法の二つに大別できる(Davis et al., 1998)。GC法は岩石全体におけ る一般化した収着サイトを仮定して収着を再現するトップダウン的なアプローチであり、収着 挙動を予測というよりむしろ試験結果を説明するための手法であるといえる(Marques Fernandes et al., 2015)。一方、CA法は岩石を構成する個々の鉱物の収着挙動に基づいて岩石 全体に対する収着を予測するボトムアップ的なアプローチである。多数の鉱物が存在する場合 でも、ある特定の鉱物が岩石全体に対する収着を大きく支配すると仮定できる場合、モデルを 簡略化することができる(Payne et al., 2013)。堆積岩の場合、2:1型の粘土鉱物であるイライト とモンモリロナイトが収着に大きく寄与すると考えられている(Bradbury and Baeyens, 2011; Tachi et al., 2011)。

モンモリロナイトとイライトに対する種々の元素の収着データはすでに多く報告されている (Sugiura et al., 2022)。これらの粘土鉱物に対する収着モデルはいくつか提案されているもの の、底面サイトにおけるイオン交換反応とエッジサイトにおける静電的相互作用を考慮しない 表面錯体反応を組み合わせた2サイト静電項無視表面錯体・イオン交換反応(2-Site Protolysis Non-Electrostatid Surface Complexation/Cation Exchange; 2SPNE SC/CE)モデル(Bradbury and Baeyens, 1997; 2005; 2009)が広く用いられている。したがって、堆積岩に対する収着はモ ンモリロナイトとイライトの収着モデルを用いたCA法により説明できる可能性がある。一方、 堆積岩ではpH等の溶液条件を変化させて系統的に収着分配係数Rdを取得してモデルによる評 価まで行った例は少ない。

令和5年度は、堆積岩として幌延の泥岩を対象としてU(VI)の収着試験を行いpHおよび炭酸 濃度を変化させてRdを取得した。収着データはモンモリロナイトとイライトによる収着を考慮 したCA法により再現を行った。また、収着したUの化学種を調べるため、収着試験後の固相の 極低温時間分解型レーザー蛍光分光(Low Temperature - Time-Resolved Laser Fluorescence Spectroscopy; LT-TRLFS)測定(Mei et al., 2022, 2024)を行った。TRLFS測定の結果はパラレ ルファクター(PARAlell FACtor; PARAFAC)解析を行った。

収着試験は大気下で行った。固相は幌延深地層研究センターの深度350 mから採取された泥 岩を用いた。泥岩を粉砕し、目開き63 μ mのふるいを通過させた。LT-TRLFS測定はUに対する 感度が非常に高いため、岩石中にもともと存在する微量のUを取り除くことを目的として、固 相をpH 10、溶存無機炭酸(Dissolved Inorganic Carbon; DIC)濃度250 mMの溶液であらかじめ 洗浄した(Mei et al., 2022, 2024)。試験条件は支持電解質溶液を0.1 M NaCl、DIC濃度を0.5– 10 mM、固液比を10 g/L、初期U(VI)濃度を10 μ Mとした。ポリプロピレン製の遠沈管中で懸濁 液を調製し、7日間振盪して反応させた。反応期間終了後、遠心分離および孔径0.2 μ mのメンブ レンフィルターを用いた濾過により液相を回収した。液相中のU(VI)濃度を誘導結合プラズマ 質量分析装置(Inductively Coupled Plasma - Mass Spectrometry; ICP-MS)により測定し、Rd を計算した。収着試験の結果はモンモリロナイトとイライトによる収着を考慮したCA法により 再現を行った。モンモリロナイトとイライトの収着モデルには2SPNE SC/CEモデル(Bradbury and Baeyens, 1997, 2005, 2009)を用いた。Uの収着反応の定数は既往の報告値(Marques Fernandes et al., 2012; Mei et al., 2022, 2024)を用いた。このとき、使用した泥岩中のモンモ リロナイトとイライトの割合はそれぞれ16wt%および10wt%と仮定した(Tachi et al., 2011)。

図 3.2.1-32に収着試験とモデルによる再現計算の結果を示す。DIC濃度の上昇にともなって Rdは低下していた。DIC濃度が一定のとき、RdはpH 9.5付近で極小となった。このpHおよび DIC濃度とRdの関係はモンモリロナイト(Marques Fernandes et al., 2012)やイライト(Mei et al., 2022, 2024)で確認されたものと同様であった。モデルによる再現計算はDIC濃度とRdの関係を表現できているものの、やや過小評価となった。この要因として、実際の泥岩中のモンモリロナイトとイライトの割合が異なっていることや、計算の計算に含まれていない表面化学種が存在すること考えられるが、より詳細な調査が必要である。



図 3.2.1-32 収着分配係数(シンボル)とモデルによる再現計算(曲線)の結果.

泥岩試料中におけるUの化学種を調べるため、収着試験後の固相の極低温TRLFS測定を行った。比較のため、Uを収着させていない泥岩の極低温TRLFS測定も行った。固相を凍結乾燥後、銅製のTRLFS測定用試料ホルダーに充填した。試料ホルダーを入射光に対して45°で固定し、真空クライオスタットとHeコンプレッサーユニットを用いて試料を極低温(~3.3 K)に冷却した。入射光は波長360 nmのレーザーとし、Nd:YAGレーザーシステムの第二高調波発生装置と光パラメトリック発振器ユニットにより発生させた。入射光に対して垂直に放出された蛍光を2つのレンズを備えた分光器の入射スリットに集光し、CCDカメラでTRLFSスペクトルを記録した。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、PARAFAC解析を行った。

PARAFAC解析の結果、取得したTRLFSデータは3つの成分により説明できると判断された。図 3.2.1-33にPARAFAC解析により得られた3つの成分の蛍光スペクトルと蛍光強度の減衰曲線および蛍光寿命を示す。成分1の蛍光スペクトルはUを収着させていない泥岩試料のものと似ており、泥岩中にもともと存在するUであると推定された。また、Uを収着させていない泥岩中の蛍光スペクトルは複数の化学種からなることがわかり、成分2も泥岩中にもともと存在するUであると推定された。また、Uを収着させていない泥岩中の蛍光スペクトルは複数の化学種からなることがわかり、成分2も泥岩中にもともと存在するUであると推定された。一方、Uを収着させた泥岩からは成分3が存在することが確認された。成分3の蛍光スペクトルは成分1および2と比べてピークが短波長側にシフトしている。また、成分3は蛍光寿命が3つの成分の中で最も長かった。既往の報告によると、Uの化学種は炭酸イオンを配位すると蛍光スペクトルのピークは短波長側にシフトし(Bernhard et al., 2001; Lee and Yun, 2013; Richter et al., 2016)、蛍光寿命は長くなる(Richter et al., 2016; Mei et al., 2024)。これらのことから、成分3は泥岩の表面に収着したUの化学種であり、炭酸イオンを配位していると推定された。



図 3.2.1-33 PARAFAC解析により得られた3つの成分の蛍光スペクトル(a)と蛍光強度の減衰曲 線および蛍光寿命(b). 比較として、Uを収着させていない試料の蛍光スペクトル(灰色)も示 す.

幌延の泥岩を用いてU(VI)の収着試験を行い、pHおよびDIC濃度の関数としてRdを取得した。RdのpHおよびDIC依存性はモンモリロナイトまたはイライト単体で得られたものと同様であり、この岩石におけるU(VI)の収着はこれらの粘土鉱物が大きく寄与している可能性が示唆された。CA法により試験結果の再現を行ったところ、pHおよびDIC濃度を再現できたものの、モデルは実測値をやや過小評価していた。これは実際の粘土鉱物の割合が計算とは異なっている可能性や他の粘土鉱物による収着を考慮する必要がある可能性を示唆しており、さらに詳しく要因分析を行う予定である。また、LT-TRLFS測定とその結果のPARAFAC解析を行うことにより、収着したUの化学種分析を行った。LT-TRLFS測定はUに対する感度が非常に高く、固相の事前処理にもかかわらず、幌延の泥岩中に微量に存在するUが検出された。しかしながら、Uを収着させた固相からは、もともと幌延の泥岩中に存在するUとは異なる蛍光スペクトルおよび蛍光寿命をもつ化学種が確認され、表面錯体として存在するUに相当すると推定された。今後、溶液条件をさらに変化させて収着試験およびLT-TRLFS測定を行い、両者の結果の比較を行う。

2)計算科学技術を活用した統合収着・拡散モデルの妥当性確認評価

堆積岩やベントナイトに含まれる粘土鉱物は核種移行において支配的な役割を果たしている ことが知られている。粘土鉱物と核種の相互作用について、室内試験等による実験データは豊 富に蓄積されており、核種の拡散挙動に対する粘土鉱物の影響のマクロスコピックな定量的理 解が進んでいる。一方で、環境中で核種はイオンとして存在するため、粘土鉱物と核種の相互 作用は本質的に原子スケールの現象であり、その物理的/科学的プロセスを室内試験等の実験結 果のみから理解することは容易ではない。粘土鉱物による核種の脱着反応について物理法則に 基づいて原子スケールから理解することを目的として、原子スケールシミュレーション研究が 実施されている。

粘土鉱物のシミュレーションには、古典物理学に基づく「古典分子動力学法」と量子力学に 基づく「第一原理分子動力学法」が主に使われている。古典分子動力学法は、本来は量子力学 で記述される原子を古典物理学に従う質点として近似するため、計算コストが低く、大量の原 子を含む系のシミュレーションが可能である。その一方で、原子間力を規定する「力場」と呼 ばれる経験的パラメーターを必要とし、計算の精度は力場に大きく依存する。一方、第一原理 分子動力学法は量子力学に基づいており、経験的パラメーターに依存しない。そのため、多く の物質に対して高い精度のシミュレーションを実施可能であるが、計算コストが高く、シミュ レーションが可能なのは、少量の原子を含む系に限られる。

粘土鉱物による核種の脱着現象は、粘土鉱物表面、水、核種イオンが互いに影響を及ぼしあ う複雑な現象であり、現象の理論的な解析のためには、非常に多くの原子を含む系の高い精度 のシミュレーションが求められる。古典分子動力学法は多くの原子を扱えるため有力な手法で あるが、粘土鉱物のエッジを構成する原子について、信頼できる力場が作られていないことが 問題である。一方、第一原理分子動力学法は、エッジを構成する原子間の相互作用は問題なく 記述されるが、脱着現象のシミュレーションに必要な大量の水分子を扱うことができないこと が問題である。

本事業では、これらの問題を後述する「機械学習」と「大規模並列計算」によって克服し、 堆積岩や緩衝材ベントナイト内に存在するモンモリロナイトの層間間隙や粒子間間隙の間隙特 性と核種移行の詳細を明らかにすることによって、原子スケールからマクロスケールまでつな ぐマルチスケールシミュレーションの基盤とし、将来の均質系-多重間隙系を含むマクロスケー ルの統合収着・拡散モデル(Tachi & Yotsuji, 2014; Tachi et al., 2014; Fukatsu et al., 2021) の妥当性確認を目標とする。

① 機械学習分子動力学法による粘土鉱物のシミュレーション

機械学習は、いわゆる人工知能の基盤技術として急激に発展している最中であり、分子シミ ュレーションにおいても、第一原理分子動力学法の計算結果を教師データとして人工ニューラ ルネットワークで学習し、第一原理計算並の高精度と古典分子動力学法に迫る低計算コストを 実現する「機械学習分子動力学法」が提案された(Behler & Parrinello, 2007)。機械学習分 子動力学法において原子力間力は機械学習ポテンシャルによって決定され、この機械学習ポテ ンシャルが上記人工ニューラルネットワークで構築される。この新しい手法は粘土鉱物にも適 用され、古典分子動力学法では再現できなかった観測量の再現に成功している(Kobayashi et al., 2022)。本研究では、機械学習分子動力学法を用いて、計算コストの高い第一原理計算で は不可能であった、水分子を大量に含む粘土鉱物のエッジー水界面のシミュレーションを目指 す。そして、この機械学習分子動力学法によるエッジー水界面シミュレーションが成功した場 合、そのシミュレーション結果を再現するように、古典分子動力学法のエッジ力場を作成し、 さらなる大規模系の高精度シミュレーションを実現する計画である。しかし、機械学習分子動 力学法は新しい手法であり、粘土鉱物に適用された例もまだ数例しかない。そこで、令和5年度 は、先ず粘土鉱物の中では比較的単純な構造を持つカオリナイトを対象とした機械学習分子動 力学法シミュレーションを実施し、古典分子動力学法との比較調査を行った。



図 3.2.1-34 カオリナイトの結晶構造

カオリナイトは、図 3.2.1-34に示されるように、シリカ四面体(SiO4)シートとアルミナ八 面体(AlO₆)シートが結合した1:1型構造が積層した層状物質である。粘土鉱物の中では比較 的単純な構造であるが、様々な多形やその含水形態であるハロイサイト、超水和カオリナイト などが存在する。また、高圧ではX線回折スペクトルに、構造相転移に伴う、新しいピークが出 現することが報告されている(Hwang et al., 2017)。今回は、常圧から高圧までの構造特性に 注目し、カオリナイトの機械学習ポテンシャルの性能評価を行った。

第一原理教師データの作成は、Vienna Ab initio Simulation Package(VASP)(Kresse, & Hafner, 1993; Kresse, & Hafner, 1994; Kresse, & Furthmüller, 1996; Kresse, & Furthmüller, 1996) を使用し、30から400原子程度を含む系に対して第一原理分子動力学を実行することにより行われた。第一原理分子動力学法は、温度300-1000K、圧力0-10GPaの範囲で実施され、交換相関汎関数にはSCANメタ交換相関汎関数(Sun et al., 2015)を用いた。この方法により生成された第一原理教師データは33,600構造である。機械学習ポテンシャルの作成にはN2P2

(Singraber et al., 2019) を利用し、33,600構造の教師データから90%を訓練データとして使用した。

	Energy [meV/atom]	Force [eV/Å]	
	Training (90%)	Test (10%)	Training (90%)	Test (10%)
RMSE	1.405	1.479	0.051	0.051

表 3.2.1-10 機械学習ポテンシャル予測の第一原理計算結果に対する平均2乗誤差 (RMSE)

機械学習ポテンシャルの第一原理計算に対する平均2乗誤差(RMSE)を表 3.2.1-10に示した。テストデータにおけるエネルギーの誤差は約1.5 [meV/atom]、力の誤差は約0.05 [eV/Å] であり、過学習の傾向は見られなかった。第一原理計算結果と機械学習ポテンシャルの予測値を示した散布図(図 3.2.1-35)からは、エネルギーと力の両方において、第一原理計算と機械学習ポテンシャルの予測値が良い線形関係にあることが確認できる。以上により、今回開発した機械学習ポテンシャルは、カオリナイトの第一原理計算を高精度に再現する能力を持っていると言える。



力。

作成した機械学習ポテンシャルを用いて機械学習分子動力学計算を実行し、比較のために ClayFF力場(Cygan et al., 2004)を用いた古典分子動力学計算も実施した。計算条件として、 温度300K、圧力0GPaから6GPaの範囲で定圧定温分子動力学計算を行い、原子数は544個、シ ミュレーション時間は400psとした。PythonスクリプトPymatgen (Ong et al., 2013)を使用 し、得られた軌跡からXRDスペクトルを計算した。結果を図 3.2.1-36に示す。0GPaにおいて、 機械学習分子動力学法(図 3.2.1-36(a))と古典分子動力学法(図 3.2.1-36(b))によるシミュ レーションは実験データ(Hwang et al., 2017)を良く再現することがわかった。これは、室 温・常圧下での構造特性に関して、機械学習分子動力学法と古典分子動力学法の両方が実験デ ータと比較可能な精度を持っていることを意味する。注目すべきは、高圧条件下での結果であ る。機械学習分子動力学法は4GPa以上の圧力で20=15°付近に新しいピークが出現し、これは 実験で観測された高圧下のXRDスペクトルの振る舞いを再現するものであり、構造相転移の記 述に成功していることを示している。一方で、古典分子動力学法ではこの高圧下での新しいピ ークの出現を再現できなかった。この結果から、機械学習分子動力学法を用いることで、従来 の古典分子動力学法では再現が難しい構造特性も再現可能であることが示された。今後の研究 では、粘土鉱物における層間水の振る舞い、表面へのイオン吸着など、より複雑な現象を計算 可能にする機械学習ポテンシャルを開発し、エッジの機械学習ポテンシャル開発につなげてい く予定である。



XRDスペクトル。

② 大規模古典分子動力学法による粘土鉱物のシミュレーション

本研究では、これらの先行研究と同様にGROMACSコード(Abraham et al., 2015)を用いて粘土鉱物粒子と水分子の系を設定し、大規模系における放射性核種の拡散様態の解明を目指す。

令和5年度は、まず、先行研究の再現を目標にし、先行研究(Underwood & Bourg, 2020; Zheng et al., 2023; Zheng & Bourg, 2023)で使用されているNa-モンモリロナイトの粘土鉱物粒子の再現に成功した。Na-モンモリロナイトの粘土鉱物粒子は葉蠟石 (pyrophyllite)の構造 (Wardle & Brindley, 1972)をもとにして、PythonパッケージであるAtomic Simulation Environment (ASE) (Larsen et al., 2017)を用いて切り出し、図 3.2.1-37のように作成した。また、六角

形に切り出す際に、葉蠟石の構造から考えることのできる二種類のエッジを再現した。



図 3.2.1-37 古典分子動力学法計算のために作成した Na-モンモリロナイト粒子とセシウム 元素(水色部分がセシウム、赤色が酸素、白色が水素、灰色がアルミニウム、青色がシリコ ン、橙色がマグネシウム、黄色がナトリウム)

エッジを構成する力場についても、先行研究[1,2,3]を参考に、下記のように構成した。特に、 エッジの酸素Oの電荷は以下の式

$$Z_o^{\text{Partial}} = -2.00 + \sum_i \frac{(Z_i - Z_i^{\text{Partial}})}{CN_i}$$

で与えられる。ここで、 Z_i は最近接原子のうちi番目の原子の原子価、 Z_i^{Partial} は最近接原子のうちi番目の原子の ClayFF で与えられる部分電荷、 CN_i は最近接原子のうちi番目の原子の配位数である。また、粘土鉱物粒子を電荷中性にするために以下のように ClayFF のパラメータの電荷を微調整した。

Mg (octahedral magnesium mgo in ClayFF): $1.3600q \rightarrow 1.3610q$ O (brindging oxygen with octahedral substitution obos in ClayFF:): $1.1808q \rightarrow 1.1810q$

このように導入された部分電荷は、本来であれば、第一原理分子動力学シミュレーションの 結果を再現するかどうかなどの検証が必要となるが、前述の通り、第一原理分子動力学法は計 算コストが高いため、多くの水分子を考慮に入れた計算ができない。したがって、本研究では、 機械学習分子動力学法を用いる事によってこの問題を克服し、ここで導入した部分電荷の検証 及び修正を進める計画であるが、まずは上記の手続きに従って導入した部分電荷を用いてシミ ュレーションを進める。

上記大規模シミュレーションは、主に日本原子力研究開発機構のスーパーコンピューター HPE SGI8600上でGROMACSによる大規模分子動力学シミュレーションを実行する計画であ る。令和5年度は、水分子のみを含む大規模系(262,197個の水分子を含む系)のシミュレーシ ョンを実施し、計算機の並列性能を確認した。特に、HPE SGI8600はGPUを含む計算ノード も利用可能であり、スーパーコンピューターにおけるCPUとGPUの性能について詳しく知るこ とが、効率的にシミュレーションを実施するために必要とされる。図 3.2.1-38に、性能評価の 結果を示す。図 3.2.1-38から、CPUを用いた計算において良いスケーリングを示した一方で、 GPUを用いた計算はCPUの160コア並列の結果とほぼ同じ計算速度を示した。これらの結果か ら、HPE SGI8600上のシミュレーションでは、CPUを用いるのが良いことが分かった。



図 3.2.1-38 日本原子力研究開発機構スパーコンピューターHPE SGI8600上でのMPI並列化 を用いた水分子のみの系の古典分子動力学法コードGROMACSによるシミュレーション時間 今後は、地層処分の緩衝材の充填密度を考慮したシミュレーション、すなわちモンモリロナ イトと水の重量比や系の温度を考慮した上でセシウムの拡散係数の評価を行う予定である。

さらに本研究では、モンモリロナイトの前駆体として重要な黒雲母についても着目した。黒 雲母は母岩中に普遍的に存在する、一次鉱物の層状ケイ酸である。比較的容易に風化され、バ ーミキュライトやモンモリロナイトといった、膨潤性のある粘土鉱物に変質することが知られ ている。そのため、核種移行の評価を行うには、モンモリロナイトだけでなく、その前駆体で ある黒雲母、さらには両者の中間体である風化黒雲母についても、核種の吸着挙動を理解する 必要がある。しかし、黒雲母の構造は、数ある雲母鉱物の中でも特に複雑である。具体的には、 層中のマグネシウムイオンを鉄イオンが置換し、鉄イオンの価数に2価と3価が存在する。その ため、黒雲母に関する計算科学の研究例はほとんどなく、モデルの構築から検討していく必要 がある。

黒雲母の風化反応とそれによる鉄イオンの酸化反応については、科研費 若手研究「XANES とシミュレーションによる風化黒雲母の吸着反応の原子スケールからの理解」の研究が進行中 である。鉄イオンの酸化反応(Fe²⁺→Fe³⁺)の様子を調べる手段として、X線吸収端近傍構造 (XANES)法が有効であるが、近年、より高分解能で測定する高エネルギー分解能蛍光検出 (HERFD)-XANES法や、第一原理計算によってXANESスペクトルを高精度に計算するソフ トウェアなどの開発が進んでいる。この科研費研究では、黒雲母を人工的に酸化させ、XANES 測定およびHERFD-XANES測定を実施した。さらに第一原理計算によるXANESスペクトル計 算を行い実験結果と比較することで、黒雲母のモデル構築およびその妥当性の検証を行ってい る(図 3.2.1-39)。



図 3.2.1-39 (a) 黒雲母の構造と(b)風化黒雲母の構造。風化黒雲母では鉄イオンが3価になるため、八面体層において空孔が存在する。

本研究では、上記の科研費研究で得られた構造を基に、黒雲母および風化黒雲母におけるセシウム吸着モデルを作成し、計算科学からその構造を明らかにすることを目指した。

図3に示した構造において、層間に存在するカリウムイオンをセシウムイオンに置換し、第一 原理計算パッケージVASP(Kresse, & Hafner, 1993; Kresse, & Hafner, 1994; Kresse, & Furthmüller, 1996; Kresse, & Furthmüller, 1996)を用いて構造最適化を行った。この計算に よって得られた安定構造の結晶構造データを表 3.2.1-11に示す。

表 3.2.1-11 黒雲母及び風化黒雲母におけるセシウム吸着反応による結晶構造の変化。

	a 軸(Å)	b 軸(Å)	c 軸(Å)	α(°)	β(°)	γ(°)
黒雲母 (Fe ²⁺)	5.31	9.23	10.32	90.00	79.66	90.00
黒雲母のセシウム吸着	5.36	9.31	10.78	90.00	80.10	90.00
風化黒雲母(Fe ³⁺)	5.28	9.16	10.22	90.05	78.86	90.04
風化黒雲母のセシウム吸着	5.33	9.24	10.73	90.05	79.68	89.94

黒雲母や風化黒雲母は層状構造を持つため、吸着反応や酸化反応によって層間距離が変化することが多い。そこで、層間距離を反映するc軸の値に特に着目する。

まず、黒雲母と風化黒雲母(層間イオンはいずれもカリウムイオン)のc軸の値を比較すると、 風化黒雲母の方が0.1Å小さい値になっている。これは、鉄の2価イオンよりも3価イオンの直径 が0.1~0.3Å程度小さいことと整合的である。

次に、セシウム吸着反応による変化に着目する。黒雲母の場合、セシウム吸着によってc軸は 0.47Å大きくなり、風化黒雲母の場合も0.51Å大きくなっている。セシウムイオンの直径はカ リウムイオンよりも0.5Åほど大きいことから、このようなc軸の変化が生まれたと考えられる。 わずかながら風化黒雲母の方が層間距離の変化が大きかったことは、黒雲母が風化されること によって層間距離が開きやすくなることを示唆している可能性がある。

今後は、今回得られた黒雲母と風化黒雲母のモデルを用いて大規模計算を行い、モンモリロ ナイトの結果とも比較する予定である。これにより、「黒雲母→風化黒雲母→モンモリロナイ ト」の鉱物変質が環境中の核種移行に与える影響を評価できると期待される。

【まとめと今後の課題】

令和5年度は、機械学習を用いる分子動力学法研究において、古典分子動力学法ではできなかった高圧下のカオリナイトの構造を正確に再現することに成功した。また、大規模古典分子動力 学法に用いるモンモリロナイト粒子のモデルを構築し、大型計算機における水分子系の分子動 力学シミュレーションの並列性能評価を実施し、適切な並列を決定した。さらに、モンモリロ ナイトの前駆体として重要な黒雲母は、自然界では風化しているが、その分子スケール構造は 明らかではない。本研究では、第一原理計算によるセシウム吸着シミュレーションを実施し、 風化によってセシウム吸着時の層間距離の増加が大きくなることがわかった。これらの知見は、 均質系-多重間隙系を含むマクロスケールの統合収着・拡散モデルの妥当性確認に向けた粘土鉱 物シミュレーションの高度化に用いられる。

3) 広域的な空間スケールにおける核種移行モデルの構築

高レベル放射性廃棄物の地層処分では、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、科学的な現象理解を深め、より現象に忠実なモデルを開発し、それらに基づい て処分システムの安全評価の妥当性を向上させていくことが重要となる。また、複数の候補母 岩や工学オプションから最適な組合せを選択しながら、実際のサイトの地質環境条件や処分シ ステムの長期変遷などを適切に考慮した評価を可能とする技術が求められている。この際、人 エバリアを中心とした処分場近傍領域(ニアフィールド)における安全性の評価を進展させる ことに加え、実際の処分サイトの地質環境から表層環境(生活圏)の特徴(多様性、不均質性、 長期変遷など)を反映可能な、実用的かつ体系的な安全性の評価手法を構築していくことが重 要となる。このような背景を踏まえ、本事業では、幌延地域の地質環境を事例として、原位置 試験や室内試験による取得されたデータなどに基づき、割れ目などの不均質性を適切に扱いな がら、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の考慮が可能な核種移行モデル 構築手法を開発することを目標とする。

令和5年度は、先進的な事例であるスウェーデン、フィンランド、スイスの地層処分事業において適用されている核種移行解析手法を調査するとともに、この結果に基づき、幌延地域の地 質環境を対象に性能評価解析を実施する場合の方法について概念的な検討を行った。

核種移行解析手法に関する諸外国の先進的事例の調査

スウェーデンでは、使用済燃料を地下約500 mの結晶質岩中に直接処分する計画であり、キ ャニスタ、緩衝材及び地層という多重バリアシステムにより廃棄物を隔離するKBS-3概念とい う処分方法が採用されている。スウェーデンでは、新規の原子力施設建設を伴う事業を行う場 合、環境法典に基づく事業許可と原子力活動法に基づく施設建設・運用の両方が必要であり、 実施主体であるSKB社はこれら法律に基づく最終処分事業計画の実施の許可申請を2011年3月 に行い、スウェーデン政府は2022年2月にこれを承認した。これにより、使用済燃料の処分場 は、エストハンマル自治体のフォルスマルクに建設される予定になっている(資源エネルギー 庁,2023)。フォルスマルクを含むスウェーデン南東部は、フェノスカンジア盾状地と呼ばれ る古い大陸性の地殻の上に位置し、19.5 ~ 17.5 億年前に形成された結晶質岩が分布する。ま た、氷期と間氷期を繰り返すことで起こる氷床の成長・後退により、岩盤にかかる荷重が変化 し、断層が動いて地震が発生することがある。氷期が終わった約1万年前から現在まで、沈降し た地殻が元に戻ろうとしてゆっくりとした隆起が続いている。このような地質環境に対して、 SKB社は、これまでのサイト選定プロセスや事業許可申請の過程で、いくつかの処分場の長期 安全性の評価を行い、その結果は安全報告書SRとしてまとめられている。フォルスマルクの使 用済み核燃料最終処分場に関する最新の予備安全評価の報告書(PSAR)やこれらをサポート する複数の報告書が2022年に公開されている。一方、フィンランドでは、スウェーデンと同じ KBS・3処分概念が採用され、エウラヨキ自治体のオルキルオトの地下400~450mの結晶質岩中 に使用済燃料が直接処分される計画である。オルキルオトは、スウェーデンのフォルスマルク と同様の地質環境である。実施主体であるPosiva社は既に2016年12月に処分場の建設を開始し ており、また、2021年12月には政府に処分場の操業許可申請をしている。サイト選定や事業許 可申請のプロセスにおいて、Posiva社は詳細サイト特性調査を行った4カ所に対し、使用済燃料 の処分を行った場合の長期安全性に関する報告書「ハーシュトホルメン、キヴェッティ、オル キルオト、ロムヴァーラにおける使用済燃料処分の安全評価(TILA-99)」をまとめ、その結 果に基づきオルキルオトを選定し、原子力法で定められた原則決定手続きに基づく申請を1999 年5月に行った(資源エネルギー庁, 2023)。このようにスウェーデンとフィンランドは、同じ 処分方法、同様の地質環境を対象としており、安全評価における性能評価解析手法でも共通す るモデル化・解析コードが適用されている。

PSARにおけるモデルチェーンと解析コードとして、さまざまなモデリング活動と評価が相 互にどのように関連しているか、またモデリング活動とデータがどこにレポートされるかを示 す評価モデルフローチャート(AMF)が整理されている(SKB, 2002b; SKB, 2022b)。評価対 象となる時期はそれぞれ「掘削/操業及び初期温暖期」と「周氷河期及び氷河期」に分かれてい るが、いずれの期間についてもニアフィールドモデルのうち高レベル放射性廃棄物用の解析コ ードとして、ニアフィールドの核種移行解析(Hökmark et al., 2010)にはCOMP23、ファー フィールドの核種移行解析(SKB, 2022c)にはFARF31及びMARFA、生物圏の核種移行解析 (Avila et al., 2010)にはEcolego、MIKE_SHE及びPandraが用いられている(SKB, 2022b)。

PSARで液相中の放射性核種輸送を処理するために使用されるファーフィールドの放射性核 種輸送モデルは、FARF31 (Norman and Kjellbert, 1990; Lindgreet et al., 2002; Elert et al., 2004) 及びMARFA(Painter and Mancillas, 2009)である。また、FARF31は従来のSKBで の安全評価、例えば、SR97 (Lindgren and Lindstrom, 1999) 及び SR-Can (SKB, 2006a) において既に採用されている。FARF31は、割れ目系岩盤中の溶質(核種)の輸送及び遅延挙 動を対象とした放射性核種移行計算に使用されるコードであり、流管の容積、割れ目、割れ目 内水量を規定した一次元の流管(ストリームチューブ)に沿った一次元移流分散方程式と流れ 管の重心に垂直方向の純粋な拡散方程式を組み合わせたモデルである (Lindgreet et al., 2002)。 複雑な三次元の流れを複数の流管モデルに分割することで、大幅な単純化(一次元化)を図り、 計算コストを低減している。具体的には、方程式がラプラス空間で解析的に解かれ、その後、 数値的に逆変換され破過曲線が得られる。方程式は、流路に沿った距離ではなく、累積移動時 間に関して表現される。この特徴により、スタンドアロンの地下水流モデルでの移動時間の計 算、及びその後の放射性核種輸送の計算が容易になる。FARF31は、元々、連続式を採用した 地下水流動モデルで使用するために開発された。SR-Siteと同様に、PSARでは、地下水の流れ は、主に個々の割れ目が明示的に表現される離散的割れ目ネットワーク(DFN)を通じてモデ ル化される。ここでの移行経路の概念は、連続体ベースの地下水流モデルとは若干異なる。岩 盤と流路の両方を包含する巨視的な流れ管ではなく、方程式は実際の開口間隙空間、つまり連 結された割れ目ネットワークを通る流路を記述する(RETROCK, 2005)。DFNベースの地下 水流動モデルで計算される、流路に沿った移流移動時間(tw)と流れに関連する輸送抵抗(F) を入力データとして直接使用する。核種移行解析に適用できるプロセスは、移流及び縦方向分 散、マトリクス拡散、マトリクスへの線形収着、減衰及び崩壊連鎖である。コロイドの促進輸 送の解析には対応しておらず、別バージョンであるFARF33(Hermansson and Rydh, 2012) で行う必要がある。ただし、FARF33はFARF31で適用できる減衰及び崩壊連鎖が使えない。地 質環境の長期変遷の考慮(海水準・気候変動、氷期)への対応については、一次元であるが、 流管に沿った移行時間の入力値の変更が可能である。コードはSKBによる開発であり、オープ ンソースではない。また、開発言語はFOTRAN77と古く、 PSARではコード単体ではなく、 MATLAB上で使用されている。

MARFAは、割れ目系岩盤中の溶質(核種)の輸送及び遅延挙動を対象とするコードであり、 ConnectFlowまたは同様のフローモデルから抽出した一次元フローパスを割れ目とマトリクス を考慮した平行平板及びチャンネルモデルで表現し、キャニスター(NF)から地表(生物圏) までの三次元の軌跡で輸送/遅延を表現する。解法は、粒子ベースのモンテカルロ法(Painter et al., 2008)である。任意の数のフローパスが使用でき、各フローパスは、異なるフローと輸 送特性を有する任意の数のセグメントに分割できる。セグメントごとに異なる遅延(retention) モデルを与えることもできる。さらにフローパス特性の時間的変動にも対応する。ただし、三 次元流路軌道自体は固定である。MARFAバージョン3.2.2は、ConnectFlowコード(Serco, 2008)

からのパスライン軌道をConnectFlow ptvファイルの形式で入力ファイルとして受け入れる (SKB, 2022a; Joyce et al., 2021)。パスライン軌跡は輸送経路を表し、MARFAは時間領域粒 子法を使用して、経路に沿った放射性核種輸送を解析する。粒子は、決定論的な空間変位と各 ステップのランダムな通過時間を使用して、経路に沿って前進する。コードは計算効率が高く、 非常に堅牢であることが実証されている。制限及び無制限のマトリックス拡散、平衡収着、長 手方向の分散、崩壊、及び生成が表される。MARFAは、すべての経路特性の完全な空間変動、 任意の長さの崩壊連鎖、及び放射性核種源強度の完全な時間変動をサポートする。このコード は、経路のエンドポイントでの放射性核種放出率(ブレイクスルー)を出力する。MARFAの最 新版であるver.5.0(Painter et al., 2022)では、その機能によりMARFA-SP(Static Path)と MARFA-NR (Node Routing) に分けられる。SKB及びPOSIVAの処分場ライセンス申請の安 全評価で使用されたコードの機能はMARFA-SPに相当する。MARFA-SPはDFN、ECPM、 DFN/CPMの水理モデルの解析結果となる三次元の軌跡(流跡線解析結果)を、MARFA-NRは DFN、ECPM、DFN/CPMの水理モデルの解析結果となる三次元の水理場(流速場)をそれぞ れ入力データとして扱うことができる。核種移行に適用する物理的プロセスは、移流/縦方向分 散、マトリクス拡散、マトリクスと割れ目表面への線形収着(Kd値の変動考慮)、減衰/崩壊連 鎖、コロイドによる輸送、滞留間隙水への拡散である。地質環境の長期変遷の考慮(海水準・ 気候変動、氷期)への対応については、それぞれ、MARFA-SPは三次元の移流経路に沿った地 下水流速の変更、MARFA-NRは三次元の地下水流速場の変化を扱えることから、より現実的な 対応が可能と考えられる。MARFAは両バージョンともオープンソースであり、AMPHOS21社 によりテスト駆動開発(TDD)を使用して開発及び保守されている。また、公式の最新のバー ジョン及び開発・変更履歴にアクセスが可能である。

スイスでは、多重バリアシステムにより長期間にわたって放射性廃棄物を人間環境らから隔 離するという通常の地層処分概念に、回収可能性の考え方を取り入れた処分概念である「監視 付き長期地層処分」が、2005年2月に施された原子力法及び原子力令で採用されている。実施主 体であるNagraは、高レベル放射性廃棄物用に地層処分場を、スイス北部の地下に分布するオ パリナス粘土を母岩として、深さ400~900mの場所に設置すること検討している。処分地選定 は、連邦政府が策定した特別計画「地層処分」で取り決められた3段階のプロセスで進められて おり、現在、第3段階であるが、Nagraは2022年9月に処分場サイトとして北部レゲレンを提案 した(資源エネルギー庁, 2023)。第2段階において実施された予備的安全評価における解析の モデル、コード及び一般モデリングアプローチはSmith et al. (2014)として公表されている。 この報告書を中心に情報を収集した。第2段階の予備的安全評価において採用した解析コード は、では、ニアフィールドモデルのうち高レベル放射性廃棄物にはSTMAN5.9、地圏モデルに はPICNIC-TD1.4、生物圏モデルにはSwiBAC1.2が採用されている。これらのコードはNagra の地層処分の安全評価用に英国Quintessa社が開発したものであり、オープンソースコードで はない。PICNIC-TDは多孔質媒体及び割れ目系岩盤中の溶質(核種)の輸送及び遅延挙動を対 象とするコードであり、多孔質媒体または割れ目とマトリクスを考慮した一次元の二重透水モ デルでこれを表現している。一次元の輸送に対して異なるモデル/特性を有するレッグのネット ワークを用いることで、比較的低い計算コストを実現している。核種移行解析に適用できるプ ロセスは、移流/縦方向分散、マトリクス拡散、マトリクスへの線形収着、減衰/崩壊連鎖である。 地質環境の長期変遷の考慮(海水準・気候変動、氷期)への対応については、一次元であるが、 レッグネットワークに沿った一次元の水圧差の変更が可能である。

以上に述べたスウェーデン、フィンランド、スイスの地層処分事業において適用されている 核種移行解析手法の特徴を表 3.2.1-12にまとめる。

表 3.2.1-12	スウェーデン、フィンランド、スイスの地層処分事業において適用されている
	核種移行解析手法の特徴のまとめ

モデル/ 解析コー ド名	FARF31	MARFA-SP	MARFA-NR	PICNIC-TD
比較項目				
適用実績	SKB'SC study (SR97) SKB'SC study (Forsmark Site)	POSIVA and SK (Onkalo and Fo	(B'SC study rsmark Site)	Nagra's SC
対象とす る物理挙 動	割れ目系岩盤中の溶 質(核種)の輸送/遅 延挙動	割れ目系岩盤中の の輸送/遅延挙動	の溶質(核種) I	多孔質媒体及び割れ 目系岩盤中の溶質 (核種)の輸送/遅延 挙動
輸送/遅 延の概念 モデル	流管の容積,割れ 目,割れ目内水量を 規定した流管(スト リームチューブ)モ デル	割れ目とマトリ: 平行平板/チャン	クスを考慮した ネルモデル	多孔質媒体または割 れ目とマトリクスを 考慮した二重透水モ デル
輸送経路 の次元	キャニスター(NF) から地表(生物圏) までの一次元の軌跡	キャニスター(『 (生物圏)までの	NF)から地表 の三次元の軌跡	キャニスター(NF) から地表(生物圏) までの一次元の軌跡
輸送経路 中の水理 的不均質 性の考慮	複雑な三次元の流れ を複数の流管モデル に分割(単純化)	DFN, ECPM, DFN/CPMの 水理モデルの 解析結果とな る三次元の軌 跡(流跡線解 析結果)	DFN, ECPM, DFN/CPMの 水理モデルの 解析結果とな る三次元の水 理場(流速 場)	ー次元の輸送に対し て異なるモデル/特性 を有するレッグのネ ットワーク
核種移行 に適用す る物理的 プロセス	 移流/縦方向分散 マトリクス拡散 マトリクスへの 線形収着 減衰/崩壊連鎖 コロイドによる 輸送(FARF33) 	 移流/縦方向分 マトリクス(割) マトリクス(割) 線形収着(Kd) 減気/崩壊連鎖 コロイドによる 滞留間隙水への 	散 牧 れ目表面への 値の変動考慮) 3輸送 D拡散	- 移流/縦方向分散 - マトリクス拡散 - マトリクスへの 線形収着 - 減衰/崩壊連鎖
地の で し で し で し で し 、 し 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、	流管に沿った移行時 間の入力値の変更	3Dの移流経路 に沿った地下 水流速の変更	3Dの地下水流 速場の変化	レッグネットワーク に沿った1Dの水圧差 の変更
コードの 利用性	SKBによる開発(開 発言語はFOTRAN77 でありPSARで MATLAB上で使用し ている)	オープンソース が開発及び保守行	(AMPHOS 21 管理)	Nagraによる開発 (英国Quintessa)

本事業では、ガラス固化体~人工バリア(~EDZ)を含むニアフィールド領域、ニアフィー ルド領域に続く天然バリア領域、そして生活圏領域において、幌延地域の地質環境を考慮した 「個別現象モデル・解析に基づく理解」を反映、相互に連携したうえで、実際的な安全性の評 価(核種移行解析)を可能とする技術の構築を目指している(図 3.2.1-40)。その際、ニアフ ィールド領域(HLWとTRU廃棄物)、天然バリア領域及び生活圏領域のそれぞれを対象に、先 端的な分析・計算科学技術、原位置試験やナチュラルアナログ事例などを活用した「個別現象 理解」と、それらの現象理解に基づく「現象解析モデル」を開発するとともに、実用化・体系 化の視点を含めて「安全評価へ反映」する方策を提示することが重要である。天然バリア領域 を対象とした核種移行解析では、実際のサイトの地質環境の特徴(割れ目+マトリクスの移流・ 遅延機能、三次元的な地表までの移流分散機能)や処分システムの長期的な変遷(地質環境の 長期変遷)を適切に反映できることが求められている。また、その際、科学的整合性を確保し ながら領域間のインターフェースを繋ぐことが重要である。



図 3.2.1-40 本事業における核種移行解析技術構築の概念

本事業において対象とする幌延地域には、新第三紀以降の堆積岩類から成る地層が分布し、 中期中新世の増幌層は、深海成→浅海成→半陸成~陸成の一連の堆積物である稚内層、声問層、 勇知層、更別層に不整合に覆われる(福沢,1985;岡・五十嵐,1997)。これらの地層は、新 第三紀以降に堆積を開始してから現在に至るまでの間に、以下の地質や気候の長期変動プロセ スを経ている。

- 主に珪藻遺骸(Opal-A)からなる珪藻質泥岩が埋没続成作用に伴うOpal-CTへの再結晶化 により生じる珪質泥岩の形成(例えば、福沢, 1985)
- 後期鮮新世以降に活動開始した日本海東縁部を含む北海道西半部での東西圧縮テクトニクス(平,2002)に伴う断層・褶曲活動、隆起・侵食活動
- 氷期-間氷期サイクルに伴う海水準変動

本地域の地下深部には、地下水のCl-36濃度に基づいて、少なくとも約1.5Ma以上の滞留時間を 持つ可能性が示唆されることから(電力中央研究所,2008)、化石海水起源の地下水が残留す る稚内層の深部は、隆起・侵食を経ても天水の涵養の影響を受けておらず、長期的に表層との 物質循環に乏しい滞留環境にあると推定されている(岩月ほか,2009a)。それ以浅の地下水に ついては約1.3~1.0Ma以降の隆起・侵食の間に長期にわたる地表からの天水の涵養を受け海水 が洗い出され、塩濃度が相対的に低い環境となっている(石井ほか,2007)。本地域の岩盤の物質移行特性としては、稚内層深部は将来にわたって拡散支配の場であると考えられる。一方、 稚内層浅部は、稚内層深部と比較して引張割れ目が多く割れ目の連結性が高い(Ishii et al., 2010)ことから、割れ目内は移流・分散でマトリクス部は拡散場であると考えられる。本地域 のうち幌延深地層研究センター周辺の地質環境では、岩石にかかる平均的な力をその岩石の引 張強度(引っ張る力に対する最大強度)で割った値(岩石にかかる力の度合いを表す指標,DI

(ductility index))の概念と透水試験・水圧観測・水質分析結果を組み合わせて、稚内層深部、 稚内層遷移領域、稚内層浅部、声問層に、水理地質構造を区分されている(中山(編),2021)。 このような領域が存在する本地域の地質環境を対象にすることにより、より汎用的なモデル化・ 解析手法の構築を目指す。よって、本地域の地質環境を事例に天然バリアの核種移行解析技術 を構築する場合、以下に示す事項を考慮することが重要である。

- 水理・物質移行特性が異なる領域(声問層、稚内層浅部、稚内層遷移領域、稚内層深部) を地下施設設置位置と仮定して、ニアフィールドから地表(生活圏)までの実際的な移行 経路における地層内の移流拡散、収着効果を考慮した核種移行挙動を評価できること
- ニアフィールド、生活圏といった異なる領域の核種移行評価技術と科学・工学的に実際的な連携が可能となること
- 設置場所(の水理特性)が異なる複数点の廃棄体設置位置から地表(生活圏)までの核種 移行挙動を三次元的に評価できること
- 原位置トレーサー試験などで構築・評価(確証)されたブロックスケールの個別現象モデルの水理・物質移行特性を核種移行解析に反映(例:アップ・ダウンスケール)できること
- 気候・海水準変動や隆起・侵食などの地質環境の長期的な変遷を、廃棄体設置位置から地表(生活圏)までの核種移行範囲において実際的に考慮可能であること

以上の事項を踏まえて、幌延地域の地質環境を事例に天然バリアの核種移行解析技術を構築 する場合において最適な核種移行解析手法(モデル/解析コード)を、事例調査において抽出し たモデル/解析コードに対して検討した。その結果を表 3.2.1-13に示す。幌延地域の地質環境を 対象とした統合的な核種移行解析への適用可能性が相対的に高いMARFA-SP及びMARFA-NR が、今後の天然バリア領域を対象とした核種移行解析技術の構築において、より適しているモ デル化/解析コードである。

モデル/解析コード 名	FARF31	MARFA-SP	MARFA-NR	PICNIC- TD
要件 (A) 3つの地質 区分を対象とした 移流拡散・収着効 果を考慮した解析	0	0	0	0
要件 (B) ニアフィ ールド領域, 生活 圏領域との実際的 な連携	0	0	0	0
要件 (C) 核種移行 挙動の三次元的な 評価	(1D)	(3D)	(3D)	(1D)
要件 (D) 個別現象 モデルの水理・物 質移行特性の反映	(1D)	(3D)	(3D)	(1D)
要件(E)地質環境 の長期変遷の反映	(1D)	(3D)	(3D)	(1D)
幌延URLの地質環 境を対象とした統 合的な核種移行解 析への適用可能性	の可能性あり	© 高い可能性 あり	● ● 高い可能性 あり	〇 可能性あり

表 3.2.1-13 幌延URLの地質環境を対象とする場合における核種移行解析手法(モデル化/解 析コード)の比較検討

幌延地域の地質環境を対象として核種移行解析技術を構築する際に、MARFAを採用すると 仮定して、その際のモデル・データの連携フローを検討した(図 3.2.1-41)。ここで、MARFA への入力情報としては、ブロックスケール精緻モデル及び広域スケール実際的モデルからの入 力が必要となる。ブロックスケール精緻モデルは、声問層、稚内層浅部、稚内層深部を対象と した三次元モデルが想定される。ブロックスケール(200 m立方)の地下水流動解析と粒子追 跡線解析(非吸着性トレーサーの物質移行解析)を実施し、割れ目とマトリクスの水理特性を 考慮した三次元的な移行経路と経路上の物質移行パラメータ(τ[移行時間]とF[移行抵抗]) を求め、それをMARFAに入力する。SKBのPSARの事例では、ConnectFlowを用いてこれらが 計算されるが、幌延の地質環境を考慮すると割れ目とマトリクスの二重空隙を考慮できるモデ ル化解析コード(例えば、HydroGeoSphere (HGS) (Aquanty, 2024a; Aquanty, 2024b)) により構築されるブロックスケール精緻モデルの水理・物質移行特性をMARFAに取り込み方 法を検討することが課題である。広域スケールのモデルは、地下施設設置領域、地下水の涵養 ~流出、海水準変動影響領域を考慮した三次元モデルである。地質環境の長期変遷(気候・海 水準変動、隆起/侵食など)を考慮した広域の地下水流動解析と、その水理場を用いた粒子追跡 線解析を実施し、地下施設設置位置(廃棄体設置位置)を仮定した地表(生活圏)までの溶質 の移行経路を出力し、MARFAに入力する。幌延地域の長期変遷に基づく変動シナリオを MARFAにおいて考慮する方法を検討することも課題として挙げられる。



図 3.2.1-41 幌延地域に適用する核種移行総合解析技術のモデル・データの連携フロー

4) ナチュラルトレーサーを指標とした広域スケールの核種移行モデルの検討

1 背景と目的

地下水中に含まれる自然由来の元素(ナチュラルトレーサー、以下「NT」)の分布は、対象 地域での広域的かつ長期的な地下水流動の変遷の結果として形成されてきたものである。NTの 分布の形成機構に関する理解を深め、その知見をもとに、室内試験や原位置試験のデータにも とづき構築されたミリメートル~メートルスケールでの核種移行モデルを数百メートル~数キ ロメートルのより広域的なスケールや数万年以上のより長期的な時間スケールに拡大すること は、地層処分の安全評価に資するうえで重要となる。

これまでに、幌延地域の堆積岩を一例とし、地下施設周辺の複数のボーリング孔で取得され てきたNTの分布の形成機構に関する検討が進められてきた(日本原子力研究開発機構,2018; 日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター、2023;日本原子力研究開 発機構・電力中央研究所, 2022; 2023)。非収着性のNT(Cl、δD、δ18O)を利用した検討で は、移流速度、隆起・侵食速度および時間が重要なパラメータとして抽出され、NTの分布の実 測値と比較的良い整合を示す解析結果が幾つかの条件の組み合わせで得られたが、条件の一義 的な絞り込みには至らなかった(日本原子力研究開発機構, 2018)。非収着性元素に加えて反 応性元素(Na、Ca、Mgなど)の濃度分布の解釈も併せて行ったが、主要な反応として抽出さ れた粘土鉱物のイオン交換反応や炭酸塩鉱物などの溶解・沈殿反応が元素の鉛直分布に対する 影響は小さく、条件の絞り込みを大きく改善させる結果には至らなかった(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,2023)。これらの解析では、各ボーリング孔 における鉛直方向での地下水および物質の流れしか考慮されておらず、三次元的な地下水流動 の影響や地質環境・地下水流動の長期的な変遷を考慮した評価の必要性が指摘されている。ま た、Cl濃度とその同位体比(δ37Cl)の鉛直分布にもとづく解析では、ボーリング孔ごとに時期 や深度は異なるが、約百万年前に現在の深度数百mまで化石海水が天水で洗い流され、その後 に深部からClが拡散で供給されて現在の分布が形成されたと推定されている(日本原子力研究 開発機構・電力中央研究所, 2022; 2023)。しかし、対象となる地層における数百m以上の侵 食厚さや高透水性割れ目の形成時期(数十万年前)(Mochizuki and Ishii, 2023)が考慮され ておらず、侵食厚さも考慮すると1 km近くにも及ぶ地層においてマトリクス間隙も含めて化石 海水が洗い流されるメカニズムやその時間スケールについては、さらなる検討を要する。

地下水中のNTの分布に関して、ボーリング孔内から揚水した亀裂内の地下水(亀裂水)とボ

ーリングコアを圧縮抽出して得たマトリクス間隙中の地下水(間隙水)とでの水質コントラス トが、地下水の流動状態を推定する指標となりうることが示唆される(Mochizuki and Ishii, 2022:2023)。 亀裂水とその周辺深度の間隙水に水質コントラストが認められ、 亀裂水の水質 が間隙水と比べてあるエンドメンバー(たとえば地表水)の値に近い場合には、そのエンドメ ンバーをもつ水が亀裂内を流動していると考えられる(図 3.2.1-42a)。一方、亀裂水と間隙水 とに水質コントラストが認められない場合には、亀裂内の流動が緩慢であり、亀裂水と周辺の 間隙水とで水質が均質化していると考えられる(図 3.2.1-42b)。この水質コントラストの考え と、亀裂水のδD・δ¹⁸Oの値や放射性炭素(¹⁴C)年代にもとづくと、幌延地域の最終氷期およ び後氷期の地下水流動について図 3.2.1-43の概念モデルが提示できる(Mochizuki and Ishii, 2023)。同地域には最終氷期に不連続永久凍土が発達していたと考えられており(Niizato et al., 2008) 、一般的に氷期は涵養量が少ないと考えられるため、最終氷期における天水の浸透 は、永久凍土が融解し始めた最終氷期末期(約2万~1.2万年前)に生じたと考えられる(図 3.2.1-43a)。同時期には、下刻作用にともない深さ最大50m程度の谷が形成されて地下水面が 低下したこと、ならびに海水準が低下したことにより、鉛直下向きの動水勾配が増加したと考 えられる。これに加えて、谷を流出域とする浅部の局所的な地下水循環によって広域的な地下 水流動がより深部に及んだこともあり、天水がより深部まで浸透・流動していたと考えられる (図 3.2.1-43a)。後氷期に入り、海水準が現在と同程度に戻るとともに、下刻作用で生じた谷 が礫で埋まると、後氷期の天水が浅部のみに浸透・流動し、深部に浸透した最終氷期の天水は 亀裂内で滞留していると考えられる(図 3.2.1-43b)。

以上の概念モデルをふまえて本サブタスクでは、

- 亀裂への天水の浸透と、亀裂水から間隙水へのNTの拡散により、マトリクス間隙中のNT が洗い流されるメカニズムや時間スケールの検討
- ・ 亀裂水と間隙水におけるNTの水質コントラストと亀裂内の地下水流動の関係に関する概 念モデル(図 3.2.1-42)の妥当性の確認、ならびに時間スケールや氷期間氷期サイクルの 影響の検討

を目的として、幌延地域の珪質泥岩中における亀裂水および間隙水のNTに着目した解析を実施 した。 亀裂とマトリクスの二重空隙を考慮できる水理解析ソフトである HydroGeoSphere (Aquanty, 2024a; Aquanty, 2024b)を用いて、幌延地域の珪質泥岩のマトリクスとそこに 存在する亀裂を想定した数値解析モデルを作成し、地下水流動解析および物質移行解析を実施 した。



(Mochizuki and Ishii, 2023をもとに作成)

(2) 実施内容

(a) 数値解析モデル

図 3.2.1-44に示すように、幌延地域に分布する稚内層浅部の珪質泥岩を想定して数値解析モデルを作成した。調査ボーリング孔HDB-5に分布する傾斜約60°、間隔15.7 m/本(頻度0.06本/m)の亀裂に沿うように数値解析モデルを切り出す形とし、X方向に1,000m(X=0~1,000)、 Z方向に300m(Z=-400~-100)、Y方向に150m(Y=-150~0)の大きさのモデルとし、亀裂はXZ平面と平行な平板を仮定した。

図 3.2.1-45に示すように、数値解析モデルの空間分割は、マトリクス部はX方向10 m間隔、 Y方向とZ方向を各5 m間隔とし、亀裂両側のマトリクス部は細分割し、亀裂とマトリクスでの 相互作用による水質の変化を詳細に判別できるようにした。



3-63





(b) 解析条件

解析に使用するNTとして非収着性のCl、 δ D、 δ ¹⁸Oを選択し、マトリクス間隙水および亀 裂内を流動させる天水の各成分値を表 3.2.1-14のように設定した。マトリクス間隙水のCl濃度 は幌延地域における化石海水の値(約4,000~16,000 mg/L;酒井ほか,2011)のおよそ中間の 値を、 δ Dおよび δ ¹⁸Oは化石海水の報告値(Ishii et al., 2006; Nakata et al., 2018)を採用し た。亀裂内の天水の δ Dおよび δ ¹⁸Oについて、氷期はボーリング孔内地下水の δ Dと δ ¹⁸Oの関 係から得られた推定値(Teramoto et al., 2010)を、間氷期は調査地域の井戸水の平均値(天 野ほか,2012)をそれぞれ採用した。Cl濃度は、氷期・間氷期ともに調査地域の井戸水の平均値 (天野ほか,2012)を用いた。

衣 3.2.1-14 ノナエブルドレーサーの設定値							
	Cl	δ	D	δ	18 O		
マトリクス間隙水	10,000 mg/L	-30.0‰		0‰			
(化石海水)							
亀裂内を流動させる	15 mg/L	氷期	間氷期	氷期	間氷期		
天水		-85.3%	-68.9‰	-13.2‰	-10.9‰		

表 3.2.1-14 ナチュラルトレーサーの設定値

移流および拡散に関するパラメータの基本設定値を表 3.2.1-15に示す。縦分散長は空間分割 サイズの1mとし、横分散長はその10分の1 (Gelhar et al., 1992)とした。

	- ·			
物性値	記号 (単位)	マトリクス部	割れ目部	文献
水理的開口 幅	<i>b</i> (m)	_	$5.86 imes 10^{-5}$	Ishii (2017)
透水係数	k (m/s)	$1.0 imes 10^{-11}$	_*1	Ozaki et al. (2022)
比貯留係数	<i>S_s</i> (1/m)	$1.0 imes 10^{-5}$	$2.58{ imes}10^{f \cdot 2}$ *2	Ishii (2017), Ozaki et al. (2022)
有効間隙率	<i>w_m</i> (-)	0.40	—	真田ほか (2009)
縦分散長	α_l (m)	1.0	1.0	_
横分散長	α_t (m)	0.1	0.1	Gelhar et al. (1992)
形状因子	FF (-)	0.035	—	₩3
マトリクス		$\text{Cl-}: 3.5 imes 10^{-11}$		Hasegawa et al.
実効拡散係	D (m ² /s)	HDO : 1.6×10^{-10}	—	(2021)
数		10		
自由水中の 溶質の分子 拡散係数	D _{free} (m²/s)	$ ext{Cl}^{\cdot}: 1.0 imes 10^{\cdot 9} \\ ext{HDO}: 4.6 imes 10^{\cdot 9} \\ ext{}$	$ ext{Cl}^{\cdot}: 1.0 imes 10^{\cdot 9} \\ ext{HDO}: 4.6 imes 10^{\cdot 9} imes$	※ 4

表 3.2.1-15 移流および拡散に関するパラメーター覧

※1: $T = kb = (\rho g/12 \mu) b^3$ の関係式より透水量係数T[L2T-1] が得られる。ここに、 ρ は流体の密度 [ML-3]、g は重力加速度 [L/T-2]、 μ は粘性係数 [ML-1T] である。

※2: ※1により求めた透水量係数*T*と、Ozaki et al. (2022) のデータより求めた水頭拡散率*C*を 用い、*Ss* = *TC*の関係から算出。

※3:移流q \Rightarrow 0の場合の関係式である $D = FF \cdot D_{free}$ において、Dが塩化物イオンのマトリクス実効拡散係数になる値とした。このときの自由水中の塩化物イオンの分子拡散係数は、一般的な溶質の分子拡散係数として、 $D_{free} = 1.0 \times 10^9 (\text{m}^2/\text{s})$ とした。

※4:※3で得られた形状因子を用いてHDOの自由水中の分子拡散係数を求めた。

水理および物質移行の境界条件を図 3.2.1-46に示す。亀裂・マトリクスともに化石海水と同 じ水質の水(表 3.2.1-14; Cl=10,000 mg/L、δD=-30‰、δ¹⁸O=0‰)で満たされている状 態を初期条件とし、鉛直または水平方向に一定の水頭差(動水勾配)を与えて天水に相当する 水質の水を亀裂に流動させた。動水勾配は、幌延地域の調査ボーリング孔の水圧測定値(吉野 ほか, 2015)と測定地点間の距離から求めた値(鉛直、水平ともに0.05)を基本とし、感度解析 的に値を変化させた。亀裂内の水の水質は表 3.2.1-14に示す設定値とした。これにより、初期 条件で設定したマトリクス間隙内の化石海水が亀裂内を流動する天水に洗い出されることを再 現した解析を行った。



(c) 解析結果

(i) 氷期条件

氷期における鉛直方向の天水の浸透を想定した解析結果を以下に示す。なお、以下ではすべて、X=0m地点でのYZ平面の解析結果を示す。また、図4.1-45に示すように、YZ平面から見て右側半分の亀裂分布はHDB-5孔の稚内層深部における亀裂間隔の平均値(15.7m/本)をふまえて15m/本としており、左側半分は感度解析的により狭い間隔(5m/本)に設定している。



(b) XY平面 図 3.2.1-47 解析モデルの亀裂分布図

表 3.2.1-15に示した設定値でCl、 δ D、 δ ¹⁸Oについて行った解析(基本ケース)の結果を、 それぞれ図 3.2.1-48、図 3.2.1-50に示す。Cl濃度(図 3.2.1-48)について、亀裂間隔が15 m/ 本の場合、10,000年後には領域の下端まで亀裂を通じて天水が浸透しており、領域の浅部では マトリクス内の濃度が低下し始めたが、20,000年経過してもマトリクス内の濃度低下は完全に は進んでおらず、亀裂とマトリクスとに濃度差が認められた。一方、亀裂間隔が5 m/本の場合、 マトリクス内の濃度低下がより速く進行した。 δ D(図 3.2.1-48)および δ ¹⁸O(図 3.2.1-50) の場合、Cl濃度(図 3.2.1-48)と比べて亀裂に沿った天水の浸透が深部まで進んでおらず、浅 部におけるマトリクス内の値の低下がより速く進行した。これは、Clに比べてHDOの実効拡散 係数が大きいこと(表 3.2.1-15)によるものと考えられる。数倍程度の値の違いによってNTの 浸透・拡散挙動が大きく異なることから、NTの分布に対する実効拡散係数の影響が大きいこと が示唆される。






次に、表 3.2.1-15に示した複数の水理パラメータに関する感度解析を実施した。天水浸透の 開始から5,000年経過後の結果を用いて比較する。

基本ケースに対して、マトリクスの透水係数を1桁上昇させた場合($k=1.0 \times 10^{-10}$ m/s)のCl 濃度の結果を図 3.2.1-51に示す。解析領域のもっとも浅い部分でのマトリクスの濃度は、透水 係数が1桁高い場合にわずかに低くなるが、全体的には濃度分布への影響は小さいと考えられ る。なお、図は示していないが、 δ Dおよび δ ¹⁸Oについても同様の結果であった。

マトリクスの比貯留係数を1桁上昇させた場合 ($S_S = 1.0 \times 10^{-4}$ 1/m) と2桁低下させた場合 ($S_S = 1.0 \times 10^{-7}$ 1/m) のCl濃度の結果を図 3.2.1-52に示す。マトリクスの比貯留係数の変化が

NTの分布に対する影響は小さかった。 δDおよび δ¹⁸Oも同様の結果であった。

マトリクスの実効拡散係数を1桁上昇させた場合の各NTの結果を図 3.2.1-53に示す。Cl濃度 は、基本ケースでは領域浅部のマトリクスの濃度低下が十分に進んでいなかったが、実効拡散 係数の上昇により同領域のマトリクスの濃度低下が進行した。また、δDおよびδ¹⁸Oは基本ケ ースで領域浅部のマトリクス内の値の低下が進行していたが、実効拡散係数の上昇によりその 領域がより深部まで拡大し、亀裂とマトリクスの水質コントラストは認められなくなった。

鉛直方向の動水勾配を1.0(基本ケースの20倍)とした場合の各NTの結果を図 4.1-52に示す。 Cl濃度は、基本ケースと比較してより深部まで亀裂内に天水が浸透したが、亀裂水と間隙水の 水質のコントラストは依然として認められた。一方、δDおよびδ¹⁸Oは亀裂内への天水の浸透 がより深部に及んだことに加えて、マトリクス内の値の低下領域もより深部まで拡大した。



















図 3.2.1-54 鉛直方向の動水勾配に関する感度解析結果(5,000年後)

氷期の基本ケースおよび感度解析の結果から、NTの分布に与える影響が大きいパラメータとして亀裂間隔、マトリクスの実効拡散係数および動水勾配が抽出される。動水勾配は天水の亀裂内での浸透深さに、マトリクスの実効拡散係数は亀裂内に天水が浸透した領域におけるマトリクス内のNTの減少度合いに、亀裂間隔はその両方に影響すると考えられる。特に、上述のように実効拡散係数の感度は高く、今回の解析条件ではおよそ10⁻¹⁰ m²/sよりも大きくなると、亀裂を通じて深部まで天水が浸透するよりも浅部マトリクス内のNTを洗い出す作用が強くなると考えられる。

幌延地域において、最終氷期には鉛直下向きの動水勾配が上昇し、天水がより深部まで亀裂を通じて浸透したと考えられる(図 3.2.1-43)。このような天水の浸透ならびに亀裂からマトリクスへのNTの拡散を再現した解析により、想定される最終氷期末期の天水浸透期間(最大で数千年)と同程度の期間で、マトリクス内のδDおよびδ¹⁸Oが低下することが確認された(図 3.2.1-48、図 3.2.1-50)。また、CI濃度は、亀裂内を天水が流動している期間において亀裂水と間隙水に水質のコントラストが認められた(図 3.2.1-48)。本解析モデルで設定した亀裂の分布や地下水流動状態は実際と比べて単純化されたものではあるが、以上の結果は幌延地域の地下水流動に関する概念モデル(図 3.2.1-42、図 3.2.1-43)と矛盾しない。一方、CI濃度は、最大で数千年間の天水浸透ではマトリクス内の濃度低下が十分には生じず、またδDおよびδ¹⁸O については、亀裂水と間隙水における水質の均質化が比較的速く進み、亀裂内を天水が流動している状態においても水質のコントラストは必ずしも明瞭でない(図 3.2.1-48、図 3.2.1-50)。これらの結果は概念モデルとは整合しないが、前者については最終氷期以前の複数回の氷期に生じたマトリクス内の洗い出し、後者については上述したように実効拡散係数の感度が大きいことによる影響などが考えられる。

(ii) 間氷期条件

間氷期における浅部での水平方向の地下水流動を想定し、図 3.2.1-46bに示す境界条件を設 定した。しかし、対象領域の天水流入面(YZ面)の上部10mのみを透水境界とし、水頭差によ り地下水を流動させるこの設定条件では、水頭差の影響が対象領域の深部にまで及び、結果と して間氷期の天水が対象領域の深部まで浸透した(図 3.2.1-55)。このような地下水流動やそ れにともなうNTの分布は実際の観測結果(対象領域の深部には氷期の天水のみが浸透;寺本ほ か,2006; Mochizuki and Ishii, 2022; 2023)とは異なっている。本解析において深部まで間 氷期の天水が浸透した理由として、幌延地域の稚内層深部において認められる静水圧を大きく 超える水圧(異常間隙水圧; Ishii, 2018)や、稚内層における亀裂の透水量係数の深度依存性 (浅部ほど透水量係数が大きい; Ishii, 2015)などの影響を考慮していないことが考えられる。 また、想定される間氷期天水の浅部のみへの浸透は、数+kmスケールの広域的な地下水流動状 態の結果として形成されたものと考えられ、本研究のようなより小さいスケールの解析モデル で再現することが困難である可能性もある。間氷期の地下水流動およびそれがNTの分布に与え る影響については、より広域的なモデルによる検討も含めて、今後の課題である。



(iii) 流動状態の変化による影響の評価

幌延地域の天水浸透領域において、深部には氷期の天水の端成分をもつ天水のみが浸透していることが水の安定同位体比の値からわかっており(寺本ほか, 2006; Mochizuki and Ishii,

2022;2023)、この領域における地下水の流動が現在は緩慢であることが水質コントラストから示唆される(Mochizuki and Ishii, 2022;2023)。地下水流動の概念図(図 3.2.1-43)で示したように、同領域では氷期に亀裂を通じて天水が浸透し、その後に動水勾配の低下によって地下水の流動が緩慢になったと考えられる。このような領域で生じるNTの分布の変化を検討するため、氷期条件で一定時間天水を浸透させた後に解析領域の動水勾配を0とし、拡散によって生じるNT分布の変化を確認した。なお、これらの解析では、図 3.2.1-46(a)に示した境界条件のうち下面亀裂部での濃度境界を固定濃度境界とし、表 3.2.1-14の化石海水の値に設定した。

天水の浸透期間を2,000年とした場合の各NTの結果を図 3.2.1-56、図 3.2.1-57、図 3.2.1-58 に示す。Cl濃度は天水浸透後5,000年から10,000年の間、δ Dおよびδ¹⁸Oは1,000年未満の間に、 亀裂水と間隙水での水質コントラストがおおむね消失した。このことは、水質コントラストが 認められない天水浸透領域の深部における天水中の放射性炭素年代が約11,000年よりも古いと 見積もられたこと(Mochizuki and Ishii, 2023)とも矛盾しない。また、最長でも10,000年程 度で水質コントラストが消失するという本解析の結果は、氷期の天水のみが浸透し水質コント ラストが認められない天水浸透領域の深部において、最終氷期の天水浸透のみでもその水質形 成を説明でき、必ずしもそれ以前の氷期の寄与を必要とするものではないことを意味する。一 方で、想定される最終氷期末期の天水浸透期間(最大で数千年)と同程度の期間では、マトリ クス内のNTの値が十分に低下してはいない(図 3.2.1-56、図 3.2.1-57、図 3.2.1-58)。この 理由として、最終氷期以前の氷期による繰り返しの洗い出しの影響、あるいは氷期において鉛 直方向の動水勾配が上昇したことにより、亀裂を通じてより深部まで天水が浸透した影響(図 3.2.1-53)が考えられる。これらの現象あるいはパラメータの影響については、今後の検討を要 する。









③ まとめと今後の課題

幌延地域におけるナチュラルトレーサー(NT)の分布形成機構、特に間隙水と亀裂水におけるNTの分布と地下水流動状態との関係や分布の変化の時間スケールについて、数値解析により 検討した。氷期に生じたと考えられる鉛直方向の動水勾配の上昇とそれにともなう天水の浸透 を再現した解析において、NTの分布に与える影響が大きいパラメータとして亀裂間隔、マトリ クスの実効拡散係数および動水勾配が抽出された。想定される最終氷期末期の天水浸透期間(最 大で数千年)と同程度の期間で、マトリクス内のNT濃度の低下および亀裂水と間隙水での水質 コントラストが確認された。さらに、天水浸透領域の深部で生じたと考えられる、氷期・間氷期 間での地下水流動の変化を再現した解析において、天水の浸透が停止し動水勾配が低下してか ら最大でも10,000年の間に亀裂水と間隙水での水質コントラストが消失することが確認された。 以上の結果は、幌延地域の地下水流動に関する概念モデル(図 3.2.1-42、図 3.2.1-43)と矛盾 せず、概念モデルの妥当性が示唆された。また、NT分布の形成に関する諸現象として、マトリ クス内のNTの洗い出しや水質コントラストの消失に要する時間スケールについても本解析結 果から推定された。

間氷期の地下水流動も含めた氷期・間氷期サイクルがNTの分布に与える影響を評価すること、 亀裂分布や地下水流動状態がより複雑である実際の地質環境に本解析結果を適用することなど が今後の課題である。今回の実施内容と同様に、比較的小さなスケールでの解析を継続してNT の分布形成機構に関する現象理解を深めるとともに、それらを広域的なモデルに展開可能とな るようなパラメータ設定方法の検討に着手していく予定である。

3.2.2 結晶質岩を対象とした核種移行評価技術の開発

これまでに、結晶質岩については、国内の標準岩石試料や旧瑞浪超深地層研究所(以下、「瑞 浪URL」という)の岩石試料、国外のスイスのグリムゼル原位置試験場の花崗閃緑岩、スウェ ーデンのエスポ岩盤研究所やフィンランドのオルキルオトの岩石試料を対象に、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、国内の標準岩石試料や瑞浪URL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。また、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、スウェーデンやフィンランドの海外地下研究施設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てきている。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。割れ目部については、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解析により定量的に評価したほか、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。また、上述した核種移行に関する現 象理解や評価モデルの検討に加え、結晶質岩を事例に、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行い、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てきた。

上記の先行事業の成果から、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 題としてあげられた。そのため、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。これらの背景目的を踏まえ、後述 する課題に取り組むこととした。

(1) 土岐花崗岩を対象とした岩石特性分析

1) 岩盤マトリクス部を対象とした核種移行評価

結晶質岩マトリクス中の核種の拡散および収着は、割れ目中の核種移行を遅延させる機能として期待される重要な現象である。先行事業(NF事業)においては、スイスのグリムゼルの原位置試験場から採取した花崗閃緑岩、瑞浪URLから採取した花崗岩、および国内の標準岩石を対象に、室内試験によって多様な核種の拡散および収着データの取得し、現象理解と核種移行モデル開発を進めてきた。その結果、グリムゼル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)。また、グリムゼル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。しかしながら、これらの不均質性による核種移行への影響の定量的な評価については課題が残った。

そこで本課題では、核種の収着対象となる岩石の構成鉱物や、核種の移行経路となると考え られる鉱物や粒界の形状などを把握する。それらは岩石中で不均質に存在しており、その不均 質性が核種移行に及ぼす影響を定量的に評価することを目指す。令和5年度は、土岐花崗岩を対 象に、拡散試験により核種の拡散挙動を評価するとともに、レーザーアブレーションICP-MS分 析 (LA-ICP-MS分析)分析により鉱物や粒界分布が観察できる解像度での不均質性を把握し、 その不均質性を考慮して拡散挙動を理解し、岩石試料全体の核種拡散挙動を評価する手法の構 築に着手した。 岩石試料中の核種の拡散挙動を評価するため、トレーサーを用いた拡散試験を実施した。拡 散試験には、透過拡散試験法を用いた。図 3.2.2-1に、拡散試験装置の概略図を示す。透過拡散 試験は、高濃度側溶液にトレーサーを添加し、低濃度側溶液に拡散させることで、岩石中のト レーサーの拡散挙動を評価する手法である。

岩石試料には、瑞浪URLの深度500mの研究坑道から採取された土岐花崗岩(岐阜県瑞浪市) コアを使用した。この土岐花崗岩の鉱物組成は、石英、長石類、一部緑泥石に変質した黒雲母 (含有率は数vol%程度)である。トレーサーは重水、非放射性元素のCs+とI-とし、各トレーサ ーの濃度はそれぞれ10%、1×10⁻⁵M、1×10⁻⁴Mとした。高濃度側溶液および低濃度側溶液と して使用する模擬地下水の組成は、NaCl: 1×10⁻²M, CaCl₂: 1×10⁻⁴MおよびKCl: 1×10⁻⁴ Mとした。

土岐花崗岩コアからディスク状(直径:20mm、厚さ:5mm)に加工した試料をアクリル製の試 料プレートにエポキシ樹脂で固定した。その試料プレートの両端に高濃度側容器および低濃度 側容器を接続し、両容器に模擬地下水115 mLを入れ、一か月以上,低圧下で含水させた。含水 後、トレーサーを含む模擬地下水と岩石試料を接触させ、透過拡散試験を開始した。試験開始 後、1週間に一回程度の頻度で、高濃度側溶液および低濃度側溶液を採取し、採取した溶液中の トレーサー濃度を測定した。トレーサー濃度の測定には、CsとIについては誘導結合プラズマ質 量分析(ICP-MS)を用い、重水についてはフーリエ変換赤外分光光度計(FT-IR)を用いた。

拡散試験終了後、岩石試料中のCs濃度の評価およびレーザーアブレーションICP-MS分析 (LA-ICP-MS)のため、岩石切断機を用いて、水を冷媒とした湿式条件で、岩石試料の断面に 対して垂直方向に試料を半分に切断した。切断した片方の試料をダイヤモンド研磨紙により数 百µm間隔で削り、粉末試料を硝酸に浸漬させた後、その上澄み液中のCs濃度をICP-MSで測 定した。LA-ICP-MS分析では、酸溶液への浸漬等の前処理なしに、岩石表面上のトレーサーを 含む元素分布を評価することが可能である。半分に切断した残りの試料片を対象に、その断面 をレーザーアブレーションICP-MS分析し、トレーサーの移行経路を評価した。測定条件は、レ ーザースポット径80µm四角形、スキャン速度100µm s⁻¹とし、鉱物を構成する元素およびトレ ーサー元素(Na, Mg, Al, Si, K, Ca, Ti, Mn, Fe, Cs)を対象とした。





図 3.2.2・2に、透過拡散試験の結果および一次元の拡散方程式を用いた数値計算により実測 値をフィッティングした結果を示す。図中(a)に示す減衰曲線は高濃度側溶液中のトレーサー濃 度の時間変化、(b)に示す破過曲線は低濃度側溶液中のトレーサー濃度の時間変化、(c)に示す濃 度プロファイルは岩石試料中のCs濃度分布である。濃度プロファイルの横軸は、高濃度側溶液 の接触面からの距離として示した。減衰曲線では、Cs+および重水の濃度は試験中ほぼ一定であ ったが、I-では試験開始直後に濃度の急激な減少が見られた。この要因は不明であるが、その 後I-の濃度は安定しており、試験には影響していないと考えられる。破過曲線では、時間経過 に伴い各トレーサーの濃度が増加する傾向を示した。各トレーサーの増加速度は、Cs+>重水> I-であることから、重水よりCs+の拡散速度が速いこと、また、重水よりI-の拡散速度が遅いこ とが分かった。また、フィッティング結果について、重水とI-の破過曲線は概ね実測値を再現 できた。一方で、Cs+については、およそ150日以降は再現できているが、150日未満では実測 値より高い濃度を示した。濃度プロファイルについても、フィッティング結果が実測値よりも 高くなった。この差の要因の一つとして、計算では岩石を均質と仮定した一次元の拡散を想定 したため、実際の岩石の不均質性を考慮していないことによる影響が考えられる。

図 3.2.2-3に、フィッティングにより算出した各トレーサーの実効拡散係数を示す。比較のた め、先行事業(NF事業)で取得した片麻状花崗閃緑岩(愛知県幡豆町)およびグリムゼル花崗 閃緑岩の値を示す(日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2023; Tachi et al., 2015)。グリムゼル花崗閃緑岩および片麻状花崗閃緑岩の重水の実効拡散係数は、 土岐花崗岩よりも大きい。この傾向は、Cs+およびI-の実効拡散係数でも確認された。一般的に、 岩石等の多孔質媒体中の実効拡散係数は、その媒体の間隙率に相関があることが知られている。 土岐花崗岩、グリムゼル花崗閃緑岩および片麻状花崗閃緑岩の間隙率はそれぞれ1.0%、1.2%、 2.0%であり、間隙率と実効拡散係数の傾向に相関があるとは言い難い。その他に考えられる要 因としては、グリムゼル花崗閃緑岩および片麻状花崗閃緑岩では、黒雲母が特定の方向に配向 していることから黒雲母中の間隙での拡散の促進、また、鉱物サイズの違いによる粒界中の拡 散長の違い等が考えられる。一方で、グリムゼル花崗閃緑岩や片麻状花崗閃緑岩で観測されて いる陽イオン加速や陰イオン排除効果は、土岐花崗岩でも確認された。これらの効果は、岩石 中に含まれる黒雲母等の粘土鉱物表面の静電相互作用によって説明されてきた。各岩石の黒雲 母含有率は、土岐花崗岩<グリムゼル花崗閃緑岩<片麻状花崗閃緑岩であるが、陽イオン加速 や陰イオン排除効果と黒雲母含有率の定量的な関係は、十分に説明できていない。これについ ては、陽イオン核種の拡散については静電相互作用だけではなく、黒雲母以外への収着や鉱物 への収着形態にも依存する表面拡散による影響等が考えられる。これらを評価するためには、 核種の収着対象となる鉱物に焦点を当てた移行挙動の理解が必要であると考えられる。



図 3.2.2-2 土岐花崗岩を対象とした拡散試験の結果: (a)減衰曲線, (b)破過曲線, (c)濃度プロ ファイルを示す.プロットは実測値, 実線は数値計算によるフィッティングの結果を示す.プロ ット及び実線の黒,赤,青は,それぞれ重水, Cs, Iの結果を示す.



図 3.2.2-3 グリムゼル花崗閃緑岩、片麻状花崗閃緑岩(国内岩石)、土岐花崗岩の重水(ま たはトリチウム水)、Cs、Iの実効拡散係数.

図 3.2.2-4に、LA-ICP-MSにより分析した試料断面の写真とその断面上の元素分布を示す。 比較のため、上記と同様の体系で実施した拡散試験終了後(試験期間:およそ300日)の片麻状 花崗閃緑岩の切断試料断面とLA-ICP-MS分析の結果を示す。先行事業(NF事業)において、 今回用いた土岐花崗岩試料は、石英、長石類(カリ長石、斜長石)および微量の黒雲母(一部、 緑泥石に変質)から構成されていることが確認されている(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,2023)。この情報およびLA-ICP-MSで測定したこれら鉱物 を構成する元素の分布から、おおよその鉱物種を推定した(図 3.2.2-4)。また、片麻状花崗閃 緑岩についても、先行事業(NF事業)の成果から主要な鉱物が既知のため、それらの鉱物を構 成する元素の分布に基づいて、鉱物種を推定した。

図 3.2.2-4 (a)に示す土岐花崗岩のCs分布では、長石類、特に斜長石中のCs濃度が比較的高く、 Ca濃度分布と相関がみられた。その他、石英中ではCsはほとんど検出されていないが、その内 部の粒界中ではわずかに検出された。斜長石上のFe及びK濃度が高い領域は、斜長石の一部が 緑泥石等の粘土鉱物等に変質している可能性が考えられる。土岐花崗岩の斜長石については、 肉眼ではほとんど観察されない熱水変質が確認されており、そこに移行経路となり得る間隙が 存在することが報告されている(石橋ほか、2016)。今回得られたLA-ICP-MS分析の結果から も、斜長石がCsの移行経路となった可能性が示唆される。また、石英中の粒界についても、ト レーサーが検出されたことから移行経路として寄与した可能性がある。斜長石上の斑なCs分布 から予想される複雑な間隙に比べて、石英中の粒界は直線的であり、他の間隙との連続性も制 限されると考えられる。

図 3.2.2-4 (b)に示す片麻状花崗閃緑岩のCs分布では、長石類へのCs濃度は相対的に低く、黒 雲母(一部、角閃石を含む)中のCs濃度が高い。これは、黒雲母および角閃石がCsに対して高 い収着能を持つためである。収着した核種が固相表面上を拡散する表面拡散現象を想定すると、 黒雲母がCsの拡散挙動に及ぼす影響は大きいと考えられる。一方、土岐花崗岩の分析では、黒 雲母がほとんど見られない面を測定したため、黒雲母への収着が確認できなかったものの、土 岐花崗岩にも黒雲母は含まれるため、その影響は十分に考えられる。

今回の分析では、花崗岩や花崗閃緑岩といった深成岩やそれらがもとになっている変成岩を 構成する鉱物において、Csの移行経路となる間隙の一部を特定した。今後、それぞれの間隙が 岩石全体の核種移行に及ぼす要因と影響の程度を、定量的に評価することが課題である。



(a)



図 3.2.2-4 拡散試験終了後の岩石試料断面における、岩石構成鉱物元素およびCs濃度分布: (a)は土岐花崗岩、(b)は片麻状花崗閃緑岩の結果を示す.カラーバーは、各元素の相対的な濃 度を示す.

2) 割れ目を対象とした核種移行評価

地震が多く割れ目が発達している日本の岩盤において、割れ目中の核種がどのように移行す るかを明らかにすることは、極めて重要な課題である。このため、先行事業(NF事業)におい ては、グリムゼル原位置試験場から採取した割れ目を有する花崗閃緑岩試料を対象として、X 線CTや電子プローブマイクロアナライザー(EPMA)を用いた割れ目の特性評価や割れ目を対 象にしたトレーサー移行試験の実施により、その現象理解や核種移行評価モデルの高度化を目 指した研究が進められてきた(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,2023)。これらの試験を通して、割れ目中の核種移行データを拡充するとともに、不均質な 割れ目特性を反映した核種移行評価モデルを構築する手法を提示した。また、構築したモデル により、上記の試験で得られた岩石の不均質性(割れ目からマトリクスにかけて層状構造、割 れ目内の充填物層の存在、割れ目の開口幅や開口部の連続性、割れ目内の選択的な移行経路) に関わるパラメータやパラメータの不確実性による核種移行への影響評価を行ったところ、割 れ目中の充填鉱物や割れ目表面近傍の変質層中の収着および拡散の重要性が示された。これら の不均質性や不確実性による影響については、室内試験だけではなく、原位置試験規模の大き なスケールの評価で確認していく必要がある。

上記の先行事業の成果を踏まえ、本課題では、先行事業(岩盤中地下水移行評価確証技術開発)で実施された原位置試験の解析を念頭に、室内試験から原位置試験規模のスケールを対象 に、割れ目の不均質性による核種移行への影響を評価する。令和5年度は、先行事業(NF事業) において室内トレーサー移行試験を実施したグリムゼル花崗閃緑岩や先行事業(岩盤中地下水 移行評価確証技術開発)において瑞浪URLで実施された原位置トレーサー移行試験近傍の土岐 花崗岩を対象に、割れ目中の核種移行の評価上、特に重要と考えられる割れ目表面近傍のトレ ーサー移行挙動の評価手法の検討や試験データの拡充を行った。

① 割れ目表面近傍の核種の移行挙動評価

先行事業においては、原位置試験トレーサー試験を実施しているグリムゼル原位置試験場の 割れ目帯の坑道壁面から、割れ目を含む20cmほどの直径と長さのコア試料を採取し、その割れ 目周辺の鉱物と間隙分布等を分析するとともに、室内トレーサー(Eu, Ni, Cs, Se, I)移行試験 を実施した。図 3.2.2-5(a)に、トレーサー試験の概略図を示す。トレーサー移行試験は、試料中 の割れ目を対象にトレーサー溶液を一定流量で通液させ、下流側溶液のトレーサー濃度を測定 することにより、割れ目中のトレーサー移行挙動を評価する手法である。図 3.2.2-5 (b)に示す トレーサー移行試験の結果から、トレーサーの収着特性に応じた遅延の程度(Eu > Ni > Cs > Se > I)が確認された。また、割れ目部周辺の不均質性のX線CT等の分析結果からは、割れ目か らマトリクスにかけての変質層、割れ目内の充填鉱物層の不均質な存在、割れ目の開口幅や開 口部の連続性などが重要な要素として抽出された。これらの結果を踏まえ、ここでは、トレー サー移行試験後のグリムゼル花崗閃緑岩の割れ目表面近傍を対象に、レーザーアブレーション ICP-MS(LA-ICP-MS)分析によるトレーサー分布を取得するとともに、同試料を走査型電子 顕微鏡-エネルギー分散型X線分光(SEM-EDX)測定することにより、割れ目表面近傍におけ る鉱物分布による不均質性と核種移行の関係性を評価した。



図 3.2.2-5 グリムゼル原位置試験場から採取した大型コアを用いたトレーサー試験結果:(a) はトレーサー移行試験装置の概略図、(b)はトレーサー移行試験で得られたトレーサーの破過 曲線を示す.

上記のトレーサー移行試験終了後のグリムゼル花崗閃緑岩試料を対象に、レーザーアブレー ションICP-MS(LA-ICP-MS)によるイメージング分析を行った。分析位置を示した試料写真 を図 3.2.2-6 (a)に示す。LA-ICP-MS測定は、レーザースポット径10µm、スキャン速度10µm s⁻¹とし、岩石の構成元素(Na, Si, Al, Fe)とトレーサーとして用いた微量元素(Eu Sr, Ni, Se, Cs)を測定対象とした。また、レーザーアブレーションICP-MSにて分析した箇所を対象に、 SEM-EDS測定による成分分析を行った。

図 3.2.2-6 (b)に、SEM-EDS測定により得られた反射電子像(BSE画像)および元素分布を示す。図中BSE画像上には、元素分布から推定された鉱物、およびLA-ICP-MSで分析した範囲を合わせて示す。BSE像で最も白く見える箇所は、Fe、Mgが多く黒雲母の分布である。岩石全体としては斜長石が主な鉱物として観察された。割れ目表面から数百µmの範囲に黒雲母が比較的多く見られ、割れ目方向に沿って脈のように分布している。また、測定範囲においては、一部、カリ長石と白雲母が同定された。

図 3.2.2-6 (c)に、LA-ICP-MS分析により得られた微量元素の分布を示す。また、同図には、 LA-ICP-MS分析した領域のBSE画像を合わせて示す。Euについては、割れ目表面ごく近傍の 濃度が高い。Sr、Ni、Seについては、黒雲母と長石の境界に検出され、割れ目部分に沿って分 布している。Csについては、割れ目表面のごく近傍よりも、黒雲母の分布上に多く存在するこ とが分かる。これらの結果から、Sr、Ni、Seのような弱収着性のトレーサーの移行は、鉱物間 の粒界や割れ目に沿った亀裂の寄与が大きいことが示唆される。一方で、Euの移行は比表面積 が大きい鉱物への収着、Csでは黒雲母への収着および拡散が寄与していると考えられる。これ らの割れ目表面近傍における割れ目に沿った移行の異方性や鉱物の形状による影響は、それ以 深のマトリクス拡散および収着にも影響すると考えられる。今後、これらの割れ目表面近傍に おける核種移行の定量的な評価には、鉱物の種類、それらの分布や形状、亀裂等の不均質性を 把握した核種移行解析が必要であることが示唆される。



(a)

1mm

' Mg Kα1_2

1mm

1mm

-Fe Kα1

(c)



(Bt:黒雲母, PI:長石, Qz:石英)

図 3.2.2-6 室内トレーサー移行試験後のグリムゼル試料を対象としたSEM-EDSおよびLA-ICP-MS分析の結果: (a) はSEM/EDXおよびLA-ICP-MS分析に用いた試料及び分析面の写真、 (b) はSEM-EDS分析で得られたBSE画像と元素分布、(c)はSEM-EDS分析で得られたBSE画像 および LA-ICP-MS分析で得られたトレーサー元素分布を示す.

② 原位置トレーサー移行試験後のオーバーコア土岐花崗岩試料の分析

先行事業(岩盤中地下水移行評価確証技術開発)では、瑞浪URLの上部割れ目帯に属する深 度300 mボーリング横坑において、ウラニン、アミノG酸、重水、I、Rb+、Ba²⁺をトレーサー とした単孔および孔間トレーサー移行試験が実施された(電力中央研究所,2017)。トレーサ ー移行試験後、割れ目可視化を目的とした原位置レジン注入試験が実施された。割れ目内のレ ジンの充填状況を確認するために、孔径116mm、コア径95mmのボーリング孔が3本取得され た。これらのコア試料には、トレーサーが移行した可能性のある割れ目が含まれている。ここ では、原位置試験結果の解釈やモデル開発をサポートするトレーサー移行に関する情報を拡充 するため、瑞浪URLから採取した孔間トレーサー移行試験近傍のオーバーコア試料を対象に、 トレーサーの移行が確認できる試料の選定や、その割れ目中のトレーサー移行箇所の特定を行 った。

上記の瑞浪URLで実施された原位置試験後のオーバーコア試料には、レジンが付着した割れ 目が観察された。レジンが含まれる割れ目は、原位置試験において、トレーサーの移行経路と して機能した可能性が高い。レジンには蛍光剤も含まれているため、紫外光によりその位置を 特定することができる。そこで、オーバーコア試料(17MI62)の割れ目(孔壁から22.71m付 近)を対象に、UVランプによりレジン付着箇所を特定するとともに、X線分析顕微鏡(X-GT) 観察による収着性元素のRbおよびBa分布を取得した。UV観察は、analytikjena製のUVP UVGL-58を用い、UV波長365nmで実施した。X-GT測定は、HORIBA製のGT-9000を用いて、 X線管電圧 50 kV、X線管電流 1000 μA、ピクセルタイム 10 msの条件で実施した。

図 3.2.2-7の(a)に、コア試料及びその割れ目部の写真と紫外光での写真、(b)にRbとBa分布を示す。図 3.2.2-7(a)の写真では、試料の割れ目面上に、レジンが付着した領域として蛍光が確認できる箇所がいくつか観察される。割れ目全体にレジンが付着していないことから、割れ目 全体に流れているわけではなく、割れ目中でも特定の箇所が移行経路として機能したことがわ かる。この原因については、割れ目の開口状態による影響と考えられ、特定の箇所でマトリクス拡散が寄与したことにより、トレーサー移行にも影響したことが考えられる。図 3.2.2-7 (b) のRbおよびBaの分布では、レジンが確認された領域で、これらのトレーサーの濃度は他の場所と同じ濃度であった。このことから、今回の測定ではこれらのトレーサーは検出されなかった。この要因としては、トレーサー濃度がX-GT分析の検出下限値より低かったためと考えられる。令和5年度の試験では、トレーサー移行経路の特定のみ実施したが、原位置試験後のオーバーコアにより採取された試料の分析データは、原位置試験結果を解釈するうえで、重要な情報であることから、今後も室内試験や分析方法について検討する予定である。

<image><text>

(b)

(a)



図 3.2.2-7 原位置試験近傍から採取したコア試料の分析結果:(a)は割れ目部の写真と紫外光 によるレジンを可視化した画像、(b)はX-CT測定により取得した割れ目上のRbとBa分布を示 す.(a)中の赤丸は、レジンが検出された箇所を示す.

(2) 土岐花崗岩を事例とした核種移行モデルの検討

1) 結晶質岩マトリクス中の不均質性を考慮した核種移行モデルの構築

結晶質岩のマトリクス部においては、岩石を構成する鉱物が様々なサイズで不均質に分布し、 それらの鉱物間の粒界が、核種が移行することが可能な間隙となると想定される。そのため、 粒界間隙や鉱物分布の不均質性が核種移行及ぼす影響を把握することが重要となる。先行事業

(NF事業)においては、黒雲母を模擬した平板状の間隙やその他の鉱物の粒界間隙を想定した 間隙モデルを構築し、ランダムウォーク法を用いた解析により、結晶質岩中の核種移行評価手 法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, 2023)。このモデルでは、グリムゼル花崗閃緑岩を対象とした拡散試験で確認された陽イオン 加速と陰イオン排除効果を、モデル上の黒雲母の配向角度や含有率により定性的に再現が可能 であった。しかしながら、拡散試験から得られる実効拡散係数などの実測データを定量的に再 現するまでには至らなかった。この要因としては、粒界の連続性やその不均質な分布、鉱物の サイズや形状の不均質性、およびそれら鉱物の核種に対する収着能の違いなど、実際の岩石の 間隙特性を精緻に表現できていなかったことが挙げられる。

そこで本課題では、まず、粒界の連続性や鉱物分布の不均質性を反映した間隙構造モデルの 開発、および実測データとの対応も踏まえた、これらの不均質性による核種移行への影響を定 量的に把握することを目的とする。令和5年度は、ランダムウォーク法に基づく粒子拡散解析に より、鉱物のサイズや粒界の連続性等の不均質性を想定した間隙構造モデルの構築に着手した。

取り扱うモデルでは、核種が移行可能な粒界間隙の不均質性を、粒子の移行が可能な粒界間 隙を表現したユニット(間隙ユニット)と、間隙がなく粒子が移行できないユニット(不拡散 ユニット)の二つのユニットの割合で表現している。図 3.2.2-8に、Partridgeコード上で構築 した不均質間隙モデルの概略を示す。本解析では、構築した不均質間隙モデル上で、初期粒子 配置面から評価断面まで粒子をランダムウォークさせることで、粒子の拡散挙動に影響を及ぼ す間隙の特徴を評価する。具体的には、モデルを構成するそれぞれのユニットは一辺15セル(1 セルの1辺の長さは3.3×10⁻⁵ m)の立方体とし、間隙ユニットついてはその周囲1セルを粒界セ ルとした。解析体系全体に一様に敷き詰めた間隙ユニットに対して、不拡散ユニットをランダ ムに間隙ユニットと置換することで、不均質な間隙構造分布を表現した(図 3.2.2-8 (c))。ま た、不拡散領域のセルは間隙率0%であり、粒界セルの間隙率は、花崗岩類の岩石の間隙率がお よそ1%程度であることから、解析体系全体が1%となるように調整した。解析条件については、 粒界ユニットを不拡散ユニットに置換した割合(不拡散ユニット割合)を0、50、66、70% とした場合、およびユニットのサイズを一辺5セル、15セル、45セルとした場合の計12ケース とした。上記した設定で作成した不均質間隙モデルの一覧を図 3.2.2-9に示す。

ランダムウォーク法を用いて核種移行では、図 3.2.2-9に示す解析モデルを対象に、粒子の拡 散と線形吸着のみを考慮した3次元の多孔質媒体中核種移行支配方程式を計算し、モデル上の 初期粒子配置面から移行率評価面までの粒子の移行率を評価した。ランダムウォークさせる粒 子は、電荷を持たない中性の粒子とし、1条件に対して1000粒子の移行計算を実施した。得られ た移行率については、無限遠で濃度が0となる1次元拡散方程式の理論解によるフィッティン グにより、粒子の実効拡散係数を算出した。また、粒子追跡解析結果における粒子軌跡データ をもとに、一部粒子の軌跡を描画するとともに、粒子が滞在する時間を算出して可視化した。 滞留時間の算出は、ユニットごとに各粒子の滞在時間を積算し、到達した粒子数及びユニット 中の粒界セル数で規格化し、単位粒界セルあたりの値とした。



図 3.2.2-8 Partridgeコード上で構築した不均質間隙モデル: (a)は間隙ユニット、(b)は不拡散ユニット、(c)は間隙ユニットおよび不拡散ユニットをランダムに配置することで作成した モデルの一例を示す.



図 3.2.2-9 Partridgeコード上で構築した各解析モデルの一覧.

図 3.2.2·10に、各解析モデルについて行った粒子追跡解析の移行率評価断面における粒子移 行率と、粒子移行率を一次元の拡散方程式の理論解によりフィッティングした結果、およびフ ィッティングにより得られた実効拡散係数を示す。図 3.2.2·10 (a) – (c)について、粒子追跡解 析から得られた移行率(プロット)とフィッティングの結果(実線)は概ね一致した。図3.2.2-9(d)について、今回の解析モデルから得られた実効拡散係数は、2.0×10⁻¹¹ – 3.9×10⁻¹² m² s⁻¹ の範囲であった。拡散試験で得られる花崗岩類中における重水やトリチウム水の実効拡散係数 が10⁻¹³から10⁻¹² m² s⁻¹程度であることを考えると、今回得られた範囲は一桁程度高い結果と なった。また、各解析モデルで比較すると、ユニットサイズが大きい条件、また、不拡散ユニ ット割合が高い条件で、より実効拡散係数が低くなる傾向を示した。これは、ユニットサイズ が大きい場合は、評価断面まで移行するのに通過する間隙が限られているのに対して、ユニッ トサイズが小さい場合は、間隙の連続性が高く、多数の経路から移行可能であるためと考えら れる。同様に、不拡散ユニット割合についても、その割合が高くなると移行経路の間隙が制限 されるため、実効拡散係数が低下すると考えられる。



図 3.2.2-10 各解析モデルについて行った粒子追跡解析の結果: (a) - (c)は各モデルの評価断 面における粒子移行率とフィッティング結果、(d)はフィッティングにより得られた実効拡散 係数を示す.

図 3.2.2-11に、不均質間隙モデルにおける間隙分布、粒子軌跡、および滞留時間分布の一例 を示す。粒子軌跡および滞在時間については、データ量が膨大なため、それぞれ15粒子および 100粒子のみをサンプリングして描画した。図 3.2.2-11より、不拡散ユニット割合が増加する と粒子軌跡の領域が限定的となり、比較的長い滞留時間のセルが増加している。ユニットサイ ズで比較すると、不拡散ユニット割合が70%について、ユニットサイズが小さい場合では局所 的な高滞留時間となる領域が複数確認されるのに対して、ユニットサイズが大きい場合では高 滞留時間となる領域も限定的であった。これらの結果から、ユニットサイズが小さい場合では、 複数の領域で分岐路や行き止まりなど、移行を制限する形状の間隙構造が多いことが予想され る。今後は、統計処理等による粒子軌跡データの詳細な分析を行い、移行に影響を及ぼす間隙 構造の特徴を整理するとともに、粒子サイズ分布と拡散係数の相関などの実験データとの比較 検討により、モデルの適用性や有効性を評価する予定である。



図 3.2.2-11 不均質間隙モデルにおける間隙分布、粒子軌跡、および滞留時間分布の一例.

2) 割れ目中の核種移行の不確実性解析

割れ目中の核種移行においては、先行事業(NF 事業)で実施されたグリムゼル花崗閃緑岩 を対象とした室内トレーサー移行試験から、割れ目の不均質性(割れ目部からマトリクス部に かけての鉱物の層状構造、割れ目内のガウジ層の不均質性、割れ目の開口幅分布や開口部の連 続性、割れ目の分岐、流れが卓越した領域(フロー領域)と停滞した領域(スタグナント領 域)の分布)の重要性が示されている(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、2023)。これらの不均質性に関わる各パラメータの変化が割れ目中の核種移行 へ及ぼす影響を明らかにすることは、室内や原位置トレーサー試験から得られた核種移行デー タを解釈する上で重要である。上記の先行事業においては、これらの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た平行平板モデルをベースに割れ目表 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 不均質の要素を組み込んだモデルを、解析コード GoldSim (ver. 14.0: GoldSim Technology Group, 2023)を用いて構築し、各パラメータの影響を感度解析的に分析することで、室内トレ ーサー試験で得られた試験結果の再現を試みてきた。しかしながら、核種移行に影響及ぼすパ ラメータは、核種の種類(例えば、非収着性および収着性)に依存することに加えて、その他 の様々な要因にも影響されると考えられる。そのため、これらのパラメータの変化が核種移行 に及ぼす影響を定量的に評価し、室内試験および原位置試験規模の様々なスケールにおけるモ デルの適用性について検討を行うことが課題となった。

そこで本課題では、室内試験や原位置試験で得られた核種移行データに基づき、これまで開 発を進めてきたモデルを改良するとともに、不均質性に関わるパラメータの核種移行に及ぼす 影響を定量的に評価することを目指す。令和5年度は、非収着性核種としてI、収着性核種と してCsを対象に、変質層や亀裂充填物への拡散と収着、フロー領域からスタグナント領域へ の移行率等のパラメータが核種移行に及ぼす影響を調査するため、これらの不確実性要素を対 象とした決定論的解析や確率論的解析を行った。それぞれの解析の内容は以下のとおりである。

- 確率論的解析:偏順位相関係数を用いて、GoldSimにより変動させた入力パラメータと、 割れ目出口の核種最大濃度比の相関を評価する
- 決定論的解析:不均質性のパラメータを感度解析的に変動させてその影響度合いを評価 する。

確率論的解析および決定論的解析では、破過濃度に対して各パラメータが影響を及ぼす程度 を評価することを目的とし、様々な不均質性に関わるパラメータを個別に取り扱う。また、こ れらの不確実性解析では、割れ目表面の凹凸による表面積の変化の影響度を評価するために、 割れ目と充填鉱物層間に対して表面積の変化を与える入力パラメータ(拡散寄与面積率)と、 フロー領域からスタグナント領域への移行量の影響度を評価するための入力パラメータ (TransferRate)の2つのパラメータを不均質性要素に追加した。

不確実性解析に用いた割れ目中の核種移行モデルの概念図を図 3.2.2-12に示す。確率論解析 および決定論的解析とも、対象核種を非収着性核種のヨウ素と収着性核種のCsの2ケースとし、 評価体系に関するパラメータや変動するパラメータについては表 3.2.2-1に示す。





パラメータ	核種	值	単位
マトリクス·実効拡散係数 (De)	収着性	$7.5 imes 10^{-11}$ - $7.5 imes 10^{-13}$	m²/s
	非収着性	$5.5 imes 10^{ ext{-}12}$ - $5.5 imes 10^{ ext{-}14}$	
マトリクス-収着分配係数(Kd)	収着性	0.01 - 0.0001	m³/kg
変質層,充填鉱物層 De	収着性	$9.0\! imes\!10^{\cdot 12}$ - $9.0\! imes\!10^{\cdot 14}$	2/-
	非収着性	$2.4\! imes\!10^{\cdot11}$ - $2.4\! imes\!10^{\cdot13}$	m²/s
変質層,充填鉱物層 Kd	収着性	0.2 - 0.002	m³/kg
拡散寄与面積率 (変質層)	収着性およ び非収着性	100.0 - 1.0	-
拡散寄与面積率 (充填鉱物層)	収着性およ び非収着性	100.0 - 1.0	-
フロー・スタグナント領域の移行率 収着性およ 10-0001		1.0 - 0.001	1/dav
(TransferRate)	び非収着性	1.0 0.001	iruay

表 3.2.2-1 確率論・決定論的解析における共通パラメーター覧

GoldSimでは、移流や拡散として適切に考慮できない現象を表現するため、ある経路から 別の経路へ質量を直接移動させることが可能である(Transfer Mass Flux Links 機能) (GoldSim, 2021)。この機能を利用することで、経路中の核種の質量にフロー・スタグナント 領域の移行率(Transfer Rate)を乗じたものとしてセル間の移行が計算され、流れに直行す る方向の割れ目領域(ここでは、スタグナント領域)に向かって、拡散とは異なる移行での質 量移動を表現することができる。令和5年度は、この機能を用いてスタグナント領域割合を設 定することで、割れ目出口の濃度比の変化を調査した。

さらに、GoldSimでは割れ目と充填鉱物層間の拡散移行の設定を「Diffusive Mass Flux Link (Ds)」と呼ばれるパラメータで行っている(GoldSim, 2021)。このパラメータを用いて割れ目 から充填鉱物層の接続を行うことで、濃度差に比例して高濃度側から低濃度側へと物質が移行 する。*D*₈については式(3.3.2-1)で表され、拡散寄与面積率[-]を拡散面積A[m²]に乗じることで、 割れ目と鉱物間の*D*₈を変動させることができる。

式(3.3.2-1)における各パラメータについて表 3.2.2-2にそれぞれ示す。

$$D_{s} = \frac{A}{\frac{L_{i}}{d_{ms}} + \frac{L_{j}}{d_{ms}t_{Pj}n_{Pj}}}$$
(3.2.2-1)

記号		パラメータ	単位
Α	:	拡散面積	m^2
Li	:	割れ目iの拡散長さ(セルの中心から拡散面までの距離)	m
L_j	:	鉱物jの拡散長さ	m
d_{ms}	:	割れ目iおよび鉱物 j における種sの液体m中での拡散係数	m ² /sec
t_{Pj}	:	鉱物jの屈曲度	-
n_{Pj}	:	鉱物j の間隙率	-

表 3.2.2-2 各式の記号とパラメータ

① 確率論的解析

図 3.2.2-12 に示す GoldSim 上で構築した割れ目中の移行評価モデルを対象に、地下水の流 速や核種のパラメータを変動させた確率論的解析を行った。本解析では、GoldSim の統計解析 機能を利用して変動させた入力パラメータと、割れ目出口の核種最大濃度比に対する偏順位相 関係数 (PRCC) の分析評価を行い、各パラメータの寄与度を評価した。偏順位相関係数は、2 つのパラメータの相関を示し、その正負が大きいほど正負の相関が強いことを示す。また、LHS コードを用いた複数の入力パラメータにランダムサンプリングを行い、各サンプリングパラメ ータに対する核種移行解析を実施し、パラメータ相関散布図を取得した。

図 3.2.2-13 に、割れ目の出口(移行距離 1m)における流出濃度のピーク値を対象とした確 |率論解析の結果を示す。非収着性核種を対象とした変動パラメータによる PRCC 値(図 3.2.2-13) や散布図の結果(図 3.2.2-14)では、マトリクスの De の PRCC 値が最も大きく、 これは流出濃度比のピーク値に対して強い負の相関を示している。この結果から、マトリクス の De の増加が、マトリクス層への拡散による移行の増加とともに割れ目内の濃度減少を引き 起こし、最終的には割れ目の出口から流出する濃度のピーク値も減少することが示唆される。 特に、マトリクス層は、評価体系内の不均質層の中で拡散に係る間隙領域が最も大きいため、 流出濃度比のピーク値に与える影響が大きい事が示唆される。また、マトリクス De の最大濃 度比を示した散布図(図 3.2.2-14(a))からも、マトリクスの De が増加するにつれて流出濃度 比のピーク値が徐々に減少していることがわかる。一方で、変質層および充填鉱物層の De の PRCC 値は、変質層が約-0.02、充填鉱物層が約-0.07 と比較的小さく、流出濃度比のピーク値 とほとんど相関が見られない。また、フロー領域からスタグナント領域への移行率のPRCC 値 は、全変動パラメータの中で2番目に大きく、これはフロー領域からスタグナント領域への移 行率の増加が、スタグナント領域に移行する核種が増加する一方でフロー領域の核種が減少し、 割れ目の出口から流出する濃度のピーク値も減少するためと考えられる。また、フローからス タグナント領域への移行率を示した散布図(図 3.2.2-14 (b))からは、移行率が 0.001 から 0.1[1/day]まで増加するにつれて流出濃度比のピーク値が徐々に減少していることが観察され る。一方で、移行率が 0.1[1/day]から 1.0[1/day]までの範囲では、流出濃度比のピーク値との間 に相関が見られない。

収着性核種を対象とした変動パラメータによるPRCCや散布図の結果について、マトリクス におけるDeのPRCC値は約-0.36、KdのPRCC値は約-0.56であり、両変動パラメータともに流 出濃度比のピーク値に対して中程度の相関を示している。また、変質層のDeやKdのPRCC値に ついても、マトリクス層と同等の相関を示している。

充填鉱物層におけるDeのPRCC値については、流出濃度比のピーク値に対して弱い正の相関 を示している。充填鉱物層におけるKdのPRCC値は、流出濃度比のピーク値に対して最も強い 負の相関を示している。変質層及び充填鉱物層の拡散寄与面積率のPRCC値はほかの要素と比 べ最も小さく、流出濃度比のピーク値に対してほとんど相関がない。フロー領域からスタグナント領域への移行率のPRCC値は、非収着性核種と同じ傾向で流出濃度比のピーク値に対して非常に強い相関を示している。また、移行率と流出濃度比のピーク値の散布図(図 3.2.2-14(c))では、非収着性核種を対象としたKdの結果とは異なり、移行率が0.1から1.0 1/dayまでの範囲でも流出濃度のピーク値が減少しているように見える。これは、収着性核種を対象とした収着性核種では、不均質層への収着によって核種の移行が遅くなるため、フロー領域からスタグナント領域への移行率の変動幅が広がったと考えられる。

確率論的解析の結果から、非収着性核種においてはマトリクス層のDe、収着性核種において は変質層や充填鉱物層のKd、そしてそれぞれ共通でフロー領域からスタグナント領域への移行 率のPRCC値の結果が、流出濃度比のピーク値に対して非常に強い相関を示していることが分 かった。②の決定論的解析では、確率論的解析で強い相関を示したこれらのパラメータが、核 種移行に対してどの程度の影響があるかをそれぞれ示す。



図 3.2.2-13 各変動パラメータの偏順位相関係数(PRCC値)



図 3.2.2-14 GoldSimによる不確実性解析結果のパラメータ相関の散布図: (a) 非収着性核種(ヨウ素)におけるマトリクスのDe(m²/s)(横軸)と流出濃度比のピー ク値(縦軸)、(b) 非収着性核種(ヨウ素)におけるフロー領域からスタグナント領域への 移行率(1/day)(横軸)と流出濃度比のピーク(縦軸)、(c)収着性核種(Cs)における フロー領域からスタグナント領域への移行率(1/day)(横軸)と流出濃度比のピーク値(縦 軸)との相関

2 決定論的解析

決定論的解析では、不均質性に係るパラメータを変化(変動)させた感度解析を行った。対象とした不均質性に係るパラメータは、①の確率論的解析の結果に基づき、非収着性核種ではマトリクス層のDe及びスタグナント領域割合、収着性核種では各層(変質層、充填鉱物層)の Kd及びスタグナント領域割合、とした。

図 3.2.2-12に示した割れ目中の移行評価モデルを用いた決定論的解析の結果を図 3.2.2-15 の①~③にそれぞれ示す。いずれの結果も、非収着性および収着性核種について、それぞれ対 象としたパラメータが最大濃度に対して大きな影響を与えていることが確認できた。

非収着性、収着性核種共通で核種移行解析に大きな影響を与えたスタグナント領域割合の設 定については、領域割合が大きくなることで流速が早くなり、最大濃度の出現時間が短縮した ことで破過濃度の最大値が上昇した結果であるといえる。更に、スタグナント領域割合の増加 に伴いフロー領域とマトリクス間の拡散面積が減少した事があげられる(図 3.2.2-15③)。

非収着性核種におけるマトリクス層のDeについて、鉱物層の厚さがそのまま拡散による遅延 に影響する。そのため変質層や充填鉱物層に比べ厚いマトリクス層への拡散が、核種移行に大 きな影響を与えることが示されている(図 3.2.2-15①)。

収着性核種における変質層、充填鉱物層のKdについて、割れ目から流れたトレーサーのほと んどが変質層や充填鉱物層に収着し、より深い層に存在するマトリクス層での収着の寄与が少 ないと推測され、今回の解析ではその遅延影響が顕著に確認することができた(図 3.2.2-15②)。 また、変質層と充填鉱物層は同じ厚さであることで、ほぼ同様の傾向で、最大濃度に対して大 きな影響を与えることが示された。

これらの不確実性解析の結果から、マトリクス層や割れ目表層変質層中の収着及び拡散の重 要性が明らかになった。また、フロー領域からスタグナント領域への移行率については、流出 濃度のピーク値と中程度の相関があることが示された。

今後、得られた不確実性解析の知見を用いてより詳細な把握によるモデルの精緻化を行い、 核種移行解析への反映を行う予定である。また、これらに加え、空間的なアップスケールの影 響に対応した不確実性解析を検討し、原位置試験データの妥当性を検討していく予定である。



図 3.2.2-15 多層構造を取り扱った解析モデルにおける決定論的解析の解析結果

(3) トレーサー試験からの核種移行パラメータの抽出方法の検討

孔間トレーサー試験は、トレーサー溶液を試験対象区間に注入し、揚水孔もしくは観測孔で トレーサー濃度の経時変化(以下、破過曲線)を得る試験である。この破過曲線を解析的に評 価することで、通過してきた割れ目および岩盤の地下水・物質移行に関係するパラメータ(た とえば、割れ目内の地下水流速や分散長、岩石マトリクスの拡散係数や遅延係数)を評価でき る。これまでに、トレーサー試験は様々なサイトや岩石コアを対象に実施され、そこで得られ た破過曲線と数値解析から物質移行に関わるパラメータの評価が行われてきた。さらに、流量 や孔間距離が異なる試験を実施し、それぞれの破過曲線から推定されたパラメータを比較する ことで、推定結果の妥当性が検討されている(Neretnieks et al., 1982; 井尻ほか, 2004; 畑ほ か, 2004)。しかしながら、異なる試験条件から推定された収着特性(収着分配係数)の妥当性 が示された事例(岡本ほか, 2023)は少なく、特に原位置トレーサー試験から評価される収着 特性の妥当性は明らかになっていない。さらに、この背景には、割れ目開口幅分布、連結性な どの割れ目性状が、割れ目内の流動場に影響を及ぼすことによって、収着特性の妥当性の評価 が困難になる問題点がある(Stoll et al., 2019; Voutilainen et al., 2019)。流量条件や孔間距 離が異なる試験条件から、非収着性トレーサーが移行した距離や複数の流路の存在は考察され ているものの、割れ目内でのトレーサーの拡がりや試験対象区間でのトレーサーの流動場や流 動範囲に関する検討は為されていない(Andersson et al, 2004; Cvetkovic et al, 2007; 井尻ほ か, 2004; 畑ほか, 2004)。これらのことから、本研究では、原位置トレーサー試験で得られた 異なる試験条件、異なる物質の破過曲線の解析的な評価および得られたパラメータの室内試験 結果との比較により、収着特性(収着分配係数)の妥当性や割れ目内でのトレーサーの流動範 囲についての情報を得ることを最終的な目的とする。令和5年度は、蛍光染料であるウラニンの 破過曲線を用いて、評価される割れ目開口幅と縦分散長の妥当性、ならびに割れ目内のトレー サーの流動範囲について考察した。

これらの検討に使用する原位置トレーサー試験の結果は、結晶質岩を対象に実施したものを 用いる。結晶質岩は堆積岩に比べて、一般的に、拡散係数は小さく、収着分配係数も小さい。 これに起因して、結晶質岩で実施されたトレーサー試験に対する解析結果の解釈は、堆積岩の それと比べて、容易となる。以上より、結晶質岩で実施された原位置トレーサー試験で、上述 の目的を達成し、ここで得られた知見を現在実施中の堆積岩を対象にしたトレーサー試験の試 験条件設定や結果の解釈へ応用することを目指す。

解析対象とするトレーサー試験は、平成28年度に日本原子力研究開発機構の瑞浪超深地層研 究所の深度500 m研究アクセス坑道125 m計測横坑で実施された孔間トレーサー試験の破過曲 線である(電力中央研究所,2017)。このトレーサー試験は単一割れ目を対象としており、同 一の割れ目を対象に、流量やダイポール比などを変えたトレーサー試験が複数回実施された。 瑞浪超深地層研究所の深度500m地点では、土岐花崗岩の下部割れ目低密度帯が分布している。 このため、本研究では、これのマトリクス部と付随する割れ目の物質移行特性を評価する。本 研究の目的を達成するためには、2孔間の割れ目内の地下水流動場は他のボーリング孔による 擾乱を受けていない方が望ましい。そこで、解析対象とするトレーサー試験は、15MI52号孔と 15MI53号孔(図 3.2.2-16)を使用した試験から選定した。これは、近傍に16MI59号孔がある ものの、15MI52号孔と15MI53号孔の間には位置しておらず、16MI59号孔による地下水流動場 の擾乱は小さいと考えられるためである。トレーサー試験で使用した試験深度は、15MI52号で は15.21~15.42 mabh (meter along borehole)、15MI53号孔では14.95~15.15 mabhであった。 また、トレーサー試験区間における15MI52号孔と15MI53号孔の孔間距離は1.44mであり、孔 径は両者とも86mm であった。ここでは、試験手順や試験装置などの詳細は割愛する。詳細は 平成28年度岩盤中地下水流動評価技術高度化開発の報告書を参照されたい(電力中央研究所, 2017)

15MI52号孔と15MI53号孔を使用した孔間トレーサー試験は、計10試験実施された。ここでは、この10試験の中から、3試験分(T9-11、T13-15、T16-18)の破過曲線を解析対象として選定した。解析対象とした孔間トレーサー試験の条件を表 3.2.2-3に示す。また、これらの試験で取得された破過曲線を図 3.2.2-17に示す。図 3.2.2-17に示す破過曲線は、デッドボリュームの影響を補正した試験開始からの経過時間で示した。デッドボリューム分の補正方法として、まず、注水側および揚水側のデッドボリュームについて、それぞれ注水流量ならびに揚水流量で除すことで、デッドボリューム部分を移行する時間を求めた。次に、各サンプルを採取したときの時間から、デッドボリューム部分を移行する時間を差し引くことで、デッドボリュームの影響を補正した経過時間を求めた。



図 3.2.2-16 H28年度にJAEA瑞浪超深地層研究所で実施されたトレーサー試験の試験場所. 電力中央研究所(2017)の図4.3.1-1に加筆.
		T9-11	T13-15	T16-18	
	注水孔	15MI53	15MI53	15MI53	
	揚水孔	T9-11 T13-15 7 水孔 15MI53 15MI53 1 水孔 15MI52 15MI52 1 注量 Qinj 2.89 1.94 1 量 Qpum 11.81 4.84 1 レ比 Qpum / 4.09 2.49 1 -注入時間 420 60 60 -一量 [L] 1.214 0.116 1 間 [min] 1800 1860 1 -一量 [L] 2.73 2.67 1 酸 [mg/L] 2.79 2.79 1 mg/L] 1.60 1.58 1 mg/L] 1.46 1.51 1 mg/L] 1.60 1.58 1 mg/L] 4.89 4.83 1	15MI52		
	注水流量 Qinj	2.80	1 0/	1 70	
	[mL/min]	2.09	2.89 1.94 1.79 11.81 4.84 5.21 4.09 2.49 2.91 420 60 1440		
	揚水流量 Q _{pum}	11.81 4.84 5.	5 21		
試驗条件	[mL/min]		5.21		
	ダイポール比 Q _{pum} /	4 09	2 49	2.91	
	Q_{inj}	4.07	2.47		
	トレーサー注入時間	420	60	1440	
	[min]				
	トレーサー量 [L]	1.214	0.116	2.578	
	揚水時間 [min]	1800	1860	2760	
	ウラニン [mg/L]	2.73	2.67	2.43	
百汯淟甶	アミノG酸 [mg/L]	2.79	2.79	2.85	
	Rb^{+} [mg/L]	1.46	1.51	1.53	
	Ba^{2+} [mg/L]	1.60	1.58	1.62	
バックグラウ	Rb+ [mg/L]	9.50	9.77	9.77	
ンド濃度	Ba ²⁺ [mg/L]	4.89	4.83	4.83	

表 3.2.2-3 解析対象とした孔間トレーサー試験の試験条件.電力中央研究所(2017)の表4.3.8-7、表4.3.8-8を一部引用



図 3.2.2-17 解析対象とした孔間トレーサー試験の破過曲線

これらの破過曲線を解析するにあたって、FEFLOW (Diersch, 2014)を用いて地下水流動・ 物質移行解析を実施した。構築した地下水流動・物質移行モデルを図 3.2.2-18に示す。構築し たモデルは、割れ目と岩石マトリクス部からなる。さらに、割れ目を平行平板と仮定し、これ を半裁したモデルとした。また、割れ目部は2次元要素とし、岩石マトリクス部は3次元要素と した。モデルの水平方向の大きさは10 m×10mであり、岩石マトリクス部の厚さは0.1 mであ る。水平方向の空間の離散化にはGmsh (Geuzaine and Remacle, 2009)を使用した。総節点 数は979,500であり、総要素数は914,340である。前述のとおり、揚水孔と注水孔の孔間距離は 1.44 m、孔径は86 mmである。揚水孔および注水孔の外周を構成する節点数は216であり、ボ ーリング孔内部の要素は計算領域から除外した (inactive設定とした)。割れ目部で半裁したモ デルを構築したことから、注水および揚水流量は表 3.2.2-3に記載する値の半分を設定した。

地下水流動解析は定常解析で実施し、物質移行解析は非定常解析で実施した。ウラニンの破 過曲線を解析する際に使用した物性値を表 3.2.2-4に示す。ここで、土岐花崗岩の透水係数は小 さく、土岐花崗岩に対するウラニンの拡散係数も小さいとし、ウラニンは割れ目内のみを移行 と仮定した。なお、岩石マトリクス部の間隙率は炉乾燥で取得された2%とした。ウラニンの破 過曲線と数値解析とのフィッティングによって、割れ目開ロ幅と割れ目部の縦分散長を推定し た。ここでは、半裁モデルを使用しているため、推定された割れ目開ロ幅を2倍することで、原 位置の割れ目開口幅を推定した。

ウラニンの破過曲線と数値解析のフィッティングは、逆解析ソフトウェアであるPEST

(Doherty, 2015)を使用した。PESTでは、重み付き残差二乗和を目的関数として定義しており、以下の数式で示される。

$$\Phi = \sum_{i=1}^{N} [w_i (C_{obs} - C_{sim})_i]^2$$
(3.2.2-2)

ここに、破過曲線を構成する濃度を*Cobs*、数値解析で得られた濃度を*Csim、*重みを*wi、N* は破過 曲線を構成する濃度の総数、Φは重み付き残差二乗和を示す。この重み付き残差二乗和が最小 となるように、Gauss-Marquardt-Levenberg (GML)法でパラメータを推定する。ここでは、重 みは全て1としてパラメータの推定を行った。パラメータを修正する際、パラメータを微小変化 させたときの解析値の微小変化量(ヤコビアン)を用いる。ここでは、ヤコビアンに特異値分 解を利用して推定感度が高いパラメータの推定を優先した。



	割れ目部	岩石マトリクス部
割れ目開口幅	推定対象(初期値:0.09 mm)	-
透水係数 [m/s]	1×10^{-3}	1×10^{-9}
間隙率 [-]	1	0.02
縦分散長 [m]	推定対象(初期値:30 mm)	0.1
横分散長 [m]	縦分散長の10分の1	0.01
分子拡散係数 [m ² /s]	$1.0 imes 10^{-9}$	$5.0 imes 10^{-11}$

表 3.2.2-4 割れ目部および岩石マトリクス部の物性値

図 3.2.2-19に破過曲線と数値解析によるカーブフィッティング結果を示す。いずれの試験条件においても破過曲線の立ち上がりは数値解析で再現できた。また、T9-11とT13-15のピーク高さにおいて、破過曲線と解析結果は整合した。一方、T16-18の破過曲線のピーク高さは、解析では表現できていない。T16-18の破過曲線と解析結果が乖離し始める経過時間は、約100分からである(図 3.2.2-19(d))。T13-15とT16-18のダイポール比はほぼ同等であり、トレーサーの注入時間が異なることを考慮すると、破過曲線のピーク高さと解析結果が整合しないことは、経過時間約100分以降のトレーサーの広がり方が起因すると考えられる。これは、割れ目部の水平方向は均質と仮定して解析を実施したが、原位置の割れ目部の水平方向は不均質な構造により、割れ目内部で流動が可能な範囲が制約されていることを示唆する。

表 3.2.2・5に破過曲線のカーブフィッティングから推定された割れ目開口幅と縦分散長を整 理する。割れ目部で半裁したモデルを使用したため、割れ目開口幅の推定値を2倍した値が原位 置の割れ目開口幅を推定した結果となる。縦分散長の推定値は、推定開始時の初期値30 mmか ら値がほとんど変わっていない。これは、縦分散長の推定感度が小さいためである。この理由 として、解析対象としたトレーサー試験では孔間距離が短く、トレーサーの移行は移流が支配 的であったこと、トレーサーは割れ目内部を2次元的に広がったことが起因すると推測される。 割れ目開口幅の推定値は、いずれの試験条件においても約0.07~0.09 mmと推定された。ただし、 T16・18のピーク高さが解析で表現できていないことを考えると、これらは暫定的な結果と言え る。ボアホールTVカメラによるトレーサー試験対象割れ目の開口幅は、15MI52号孔で0.19 mm、 15MI53号孔で0.4 mmであり(電力中央研究所, 2016; 2017)、表 3.2.2・5に示す推定結果よ り大きい。上述のように、割れ目内部で流動が可能な範囲を制約したモデルで割れ目開口幅を 推定すると、水平方向のトレーサーの拡がりが制約される代わりに、割れ目開口幅が大きく推 定されると予想される。これにより、トレーサー試験から推定される割れ目開口幅とボアホー ルTVカメラで観察された割れ目開口幅との整合性は改善できることが見込まれる。



衣 3.2.2-3 推足結果							
	T9-11	T13-15	T16-18				
ダイポール比 Q _{pum} / Q _{inj}	4.09	2.49	2.91				
トレーサー注入時間 [min]	420	60	1440				
割れ目開口幅 [mm]	0.046	0.036	0.035				
割れ目開口幅×2 [mm]	0.093	0.072	0.070				
縦分散長 [mm]	30	40	30				

2 2 2 5

3.3 岩盤中における地球化学・核種移行の個別現象評価技術開発 3.3.1 地球化学的な変遷を考慮した核種移行評価技術の開発 (1) セメント材料が岩盤の核種移行に及ぼす影響評価

1) 背景と目的

地層処分場においては、支保工や構造躯体、充填材として大量のセメント系材料が使用される。セメント系材料と反応した地下水はpHが12-13程度と高く、さらに高Ca濃度となることから、セメント系材料からの浸出液は、地下水組成の変化や、岩盤の構成鉱物の溶解や、二次鉱物の沈殿等を引き起こし、核種移行挙動への影響を及ぼす可能性が懸念される。

先行事業(日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター,2023)におい ては、幌延URLの140 m坑道から採取された泥岩(声問層)と普通ポルトランドセメント (Ordinary Portland Cement; OPC)および低アルカリ性セメント(Highly Fly ash Silica fume Cement; HFSC)の接触試料を対象として、岩石とセメントの接触界面での変質状態の分析を電 子線マイクロアナライザー(Electron Prove Micro Analyzer; EPMA)、走査電子顕微鏡 (Ccanning Electron Microscope; SEM)、X線回折法(X-ray diffraction; XRD)およびレーザーア ブレーション ICP 質量分析法 (Laser Ablation Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry; LA-ICP-MS)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・ 微量元素の分布の各種分析が実施されている。これら複数の分析手法を組み合わせることによ り、OPCとHFSCのセメントの種類に応じて、岩石-セメント境界面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、OPCではCa溶脱によるCa低濃度層の存在や、Siお よびAI濃度のわずかな上昇が確認され、HFSCでは、Caの溶脱領域はOPCよりも広く、Siおよ びAI濃度は界面に向かってわずかに低下していることが分かった。また、界面近傍にはカルサ イトが生成しており、その生成量はOPCの方がより多く、HFSCの場合にはイオン交換がより 顕著になり、結果的に広い範囲に広がっている状況が確認できた。さらに、岩石内部にCSHが 析出していること、界面近傍の微量元素の分析では、Sr、Ba、Znの2価金属元素が二次鉱物に 取り込まれている可能性がありOPCとの接触試料で顕著であることが確認された。また、OPC とHFSCの界面から少し離れた位置ではCASHと推測される鉱物が確認され、OPC試料で生成 するカルサイトにはSr、Ba、ZnおよびLiが共存し、CASHにはSr、Baが共存していることが確 認できた。HFSC試料のカルサイトやCASHには、SrおよびBaが共存していることが確認され た。

本タスクにおいては、岩石やセメントの種類、深度による差異と核種移行特性の変化につい て調査を進めるため、幌延URLの350 m坑道から採取された泥岩(稚内層)と低アルカリ性セ メント(HFSC)および250 m坑道から採取された泥岩(稚内層)と高炉スラグセメントB種(BB) の接触試料を対象として各種分析を実施する(図 3.3.1-1)。

令和5年度は、対象試料の予察的な分析として、X線CT、EPMAおよび間隙率の測定を実施した。X線CTでは試料の状態を確認し、EPMAおよび間隙率の測定については岩石部、接触部、セメント部に対して実施することで、セメントと岩石が接触している境界面とその近傍におけるセメントと岩石の双方の変質状態を確認した。



図 3.3.1-1 試料採取場所とセメントー岩石試料の分析対象エリア

2) 実施内容

① X線CT測定

はじめに、試料の岩石部、接触部、セメント部のX線CT画像を撮影し、それぞれの部分の状態を確認した。測定条件は表 3.3.1-1に示すとおりである。断面図の色の濃淡は存在する物質の密度を示しており、暗い灰色の部分は岩石部、明るい灰色の部分はコンクリートであることがわかる。また、いくつか存在する白い粒子は密度の高い骨材であることがわかる。HFSCとBBのどちらについても、岩石健全部は均質な状態となっており、接触部に見られるひび割れは、ほとんどがコア採取時に発生したと考えられる。図 3.3.1-2の接触部については、接触部から岩石部にかけて、亀裂に沿って白くなっている部分が見られ、二次鉱物が生成していると推測される。先行事業においても、岩石亀裂部が、セメントから溶出したCaにより生成したカルサイトで充填されていることが確認されている。

表	3.3.1-1	X線CTの測定条件
衣	3.3.1-1	入線01の測定余情

装置	島津製作所製,InspeXio SMX-225CTS
条件	加速電圧:225 kV プローブ電流:70 mA
	空間分解能:0.118 mm/Voxel



図 3.3.1-2 泥岩-HFSC(350 m)試料のX線CT画像



図 3.3.1-3 泥岩-BB(250m)試料のX線CT画像

② 間隙率の測定

間隙率の測定は、セメント健全部、接触部セメント側、岩石健全部、接触部岩石側について、 水銀圧入法と水飽和法により実施した。水銀圧入法による間隙率の測定は、試料を厚さ約5 mm 程度にダイヤモンドカッターで切断し、さらにニッパーなど工具を使用して5 mm角程度の大 きさに加工した。加工後1週間真空乾燥した試料を水銀圧入式ポロシメータ用の試料とした。水 銀圧入式ポロシメータによる測定条件を表 3.3.1-2に示す。水銀圧入法と同一の試料を用いて 水飽和法による間隙率を測定した。水和法による間隙率測定では, *N*=3で行い,平均値を算出 した。なお,間隙率*P*(%)は次式により算出した。

$$P = \frac{W_3 - W_1}{W_3 - W_2} \times 100$$

なお、W1、W2、W3はそれぞれ試料の乾燥、水中、湿潤飽和重量である。

装置	マイクロメリティクス社製,オートポアV9620
条件	測定範囲0.5~60,000 psia(0.03~300孔径μm相当), 水銀表面張力484 mN/m 接触角=130°

表 3.3.1-2 ポロシメータの測定条件

水銀圧入法と水飽和法による間隙率の比較を図 3.3.1-4に示す。また、水銀圧入法による間隙 径分布を図 3.3.1-5および図 3.3.1-6に示す。岩石側については全体的に均質な状態となってい るため、水銀圧入法と水飽和法の差は1.5%程度であるが、セメント部は骨材や空隙などの影響 により、岩盤部に比べ差が5%程度と大きい。岩石の健全部と接触部の間隙率を比較すると、セ メント種によらず、ほとんど差が見られない。一方で、セメント部の間隙径分布に着目すると、 HFSCではセメント健全部と接触部で差がほとんど見られないが、BBでは0.1-1 μm径の間隙率 が、健全部で27%であるのに対し、接触部で53%と健全部より大きくなっている。



図 3.3.1-4 岩石-セメント接触試料の水銀圧入法と水飽和法による間隙率



図 3.3.1-6 水銀圧入法による岩石-BB試料の間隙径分布

③ EPMA測定

EPMAは、セメント部、接触部および岩石部それぞれから、最大50mm角、厚さ10mm程度の大きさの試料を切り出し、樹脂包埋した後に分析面を鏡面研磨し、測定試料を作製した。分析面には導電性を付与するため炭素蒸着した。EPMAの測定条件を表 3.3.1-3に示す。

使用機器	日本電子社製 電子線マイクロアナライザー JXA-8100
加速電圧	15 kV
試料電流	50 nA
プローブ径	50 μm
ピクセルサイズ	100 μm
計数時間	40 msec/ピクセル
測定元素	Ca、Si、Al、Fe、Mg、S、Na、K
濃度換算方法	比例法

表 3.3.1-3 EPMAの測定条件

HFSCおよびBBの岩石-セメント接触部の元素分布および濃度プロファイルを図 3.3.1-7から図 3.3.1-10に示す。HFSCについては、接触部セメント側でCaが溶脱することによって濃度勾配が生じており、さらにCaが岩石側に移行しているように見える。MgおよびNaはセメント側に高濃度となっている領域が見られ、Caが溶脱している領域と重なっている。一方で、Naと同じアルカリ金属であるKについては、同様の傾向は見られなかった。先行事業においても岩石-HFSC(140 m)の境界部におけるEPMA分析を実施しているが、セメント側でMgが高濃度になっている部分は見られなかった。幌延URLの350 mにおける地下水中のMg濃度は、140 mに比べて最大で4倍程度高い(宮川、2022)ことから、そのような差異が生じていることが予測される。Sについては、Caが溶脱している領域において、濃度がほぼ0になっており、セメントからCaが溶脱することによって溶脱領域のpHが下がり、Sを含む鉱物であるエトリンガイトやモノサルフェートなどの鉱物が溶出してしまったことが原因であると考えられる。先行研究において、エトリンガイトはpH10.7以上で安定な鉱物であり、pH10.7から9.5の間で溶解すると報告している(Myneni et al., 1998)。

BBのCaの溶脱領域はHFSCと比較して非常に小さく、境界部に高濃度の領域が確認でき、さらに岩石側にも移行している様子が確認できる。また、Sは境界部のごく近傍で濃度が小さくなっていることが確認できる。

先行事業においても、HFSCはOPCより溶脱領域が大きいことや、接触部におけるカルサイトの量はOPCの方が多いことなどから、OPCやBBはCa含有量がHFSCよりも高いため、地下水とセメントが接触後、比較的早い段階でカルサイトが生成し、地下水のセメント内部への拡散が抑制されている可能性が考えられる。一方でHFSCにおいては、Caの含有量が低いことから、カルサイトなどの二次鉱物生成までの時間が長く、Caの溶出領域も大きくなっていると推定される。また、深度350mにおいては、地下水中のMg濃度が高いことから、Ca溶脱部にMgが置換しており、Caが溶脱していない高pHの領域においてはMgが沈殿し、それより内部には拡散していないと考えられる。

また、セメント部の健全部と接触部の間隙率は、BBにおいて接触部の方が健全部より大きく なっており、EPMAの濃度プロファイルからもCaの溶脱により、間隙径が大きくなっていると 考えられる。先行研究においても、セメント中の水酸化カルシウムやCSHからの溶脱により、 セメントペーストの空隙率が増加することを報告している(Jain et al., 2009)。一方で、HFSC についてもEPMAよりCaの溶脱が確認できるが、健全部と接触部で間隙率に大きな変化は見ら れなかった。

3) 今年度の成果と今後の課題

本事業においては、先行事業とは異なる深度で採取された岩石 - セメント試料のX線CT、間 隙率およびEPMAの測定を実施することで、深度やセメント種による岩石 - セメント接触部の 変質状態の差異を比較した。深度によって接触部のセメント部における元素分布が異なってお り、さらに、セメント種によって、接触部の変質する領域が異なっていることが分かった。今 後の課題としては、岩石 - セメント接触部のセメント成分が溶脱した部分へのMgやKの取り込 みのメカニズムや、セメント種によるカルサイトなどの二次鉱物の生成メカニズム、セメント 成分の溶脱による間隙径分布の変化を調査し、深度やセメント種による変質の差異が生じる原 因を解明することで、それらの岩石への影響および核種移行挙動に及ぼす影響を評価する必要 がある。



図 3.3.1-7 岩石-HFSC(No.15, 350 m)接触部の元素分布



図 3.3.1-8 岩石-HFSC(No.15, 350 m)接触部の濃度プロファイル



図 3.3.1-9 岩石-BB(Bos, 250 m)接触部の元素分布





(2) 地下環境下の鉱物と核種との相互作用

1) 鉄硫黄鉱物とセレンの相互作用

① 幌延の泥岩中の鉄鉱物とSeとの相互作用

先行事業の結果から硫化鉄鉱物によるSeの収着・共沈反応が地層処分環境におけるSeの移行 遅延反応として重要となる可能性が示されていた(日本原子力研究開発機構, 2023)。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く、 室内試験における反応期間も地層処分で想定される時間スケールに比べ短いため、実際の処分 環境で想定される移行遅延機構と異なる可能性がある。天然環境中における長期的な核種移行 挙動を理解する手法として、ナチュラルアナログ研究が有用である(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希土類元素パターン、マッピング分析による元素 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アナログ元素の収着に寄与する鉱物 の同定や核種移行における主要な移行経路の検討が行われてきた。しかし、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 験で得られた結果をもとに長期的な核種移行への影響を評価する上で重要なデータである。 先行事業において、幌延地域の深部地下環境を対象にSeの存在形態分析を実施しており、u-X 線分析や逐次抽出試験によるSeの収着鉱物および化学形態に関するデータを取得することで、 深部地下環境において黄鉄鉱によるSeの長期的な収着・保持メカニズムに関する検討を行った

(日本原子力研究開発機構, 2023)。今後、様々な地質変遷プロセスを考慮した長期時間スケールでのSe等核種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するうえで、酸化還元状態がSeの移行挙動に及ぼす影響を評価することは重要である。特にSeは酸化還元電位に依存して化学形態が変化し、酸化的環境では溶解度が高くなるため、黄鉄鉱が酸化した場合、保持されていたSeが溶出する可能性も考えられる。一方で、黄鉄鉱の酸化に伴い磁鉄鉱や針鉄

鉱、フェリハイドライトといった二次鉱物が生成した場合、これらの鉄鉱物にSeが再収着し、 Seの移行が遅延する可能性が室内試験の結果から示唆されている(Scheinost and Charlet, 2008; Francisco et al., 2018)。このような二次鉱物によるSeの収着挙動についても、室内試 験をもとにした詳細な収着メカニズムの解明は進められているが、天然環境を対象に黄鉄鉱の 酸化とそれに伴う二次鉱物へのSeの収着を体系的に評価した事例は少ない。本研究では、幌延 地域の比較的浅層から得られた泥岩試料を対象に、X線マイクロビーム分析(µ-XRF、µ-XAFS) を実施し、先行事業で得られた結果と比較することで、黄鉄鉱の酸化に伴うSeの溶脱/再収着挙 動に関する予察的な調査を実施した。

(a) 分析方法

(i) 分析試料の概要

本研究で対象とした試料は、日本原子力研究機構幌延深地層研究センター周辺で実施された ボーリング調査で得られたコア試料および幌延深地層研究センター地下施設の調査坑道から掘 削されたコア試料である。本研究では、酸化的環境におけるSe収着固相およびSeの化学形態を 明らかにするために、浅部のボーリングコア(BP-7)を対象に分析を実施した。分析試料の柱 状図を図 3.3.1-11に示す。ボーリングコアの掘削位置や主要元素、構成鉱物の深度プロファイ ルについては、平賀・石井(2007)を参考にされたい。令和5年度の分析では、BP-7のボーリン グ試料のうち、3つの深度を対象に分析を実施した(図 3.3.1-11)。以降、試料名は「6-7 m」 「7-8 m」「11-12 m」と記載する。岩石試料は、周囲2-3cmをトリミングした後、コアの内側 部分をハンマーおよびメノウ乳鉢で粉砕した後、(2)、(3)の分析に供した。



図 3.3.1-11 幌延地域浅部のボーリング孔(BP-7)の簡易柱状図

(ii) 岩石中のSe濃度分析

幌延地域の浅層領域におけるSe濃度の深度プロファイルを明らかにするために、(1)で粉末化

した岩石試料を対象に岩石の酸分解を実施した。酸分解では、混酸(硝酸/フッ酸/過塩素酸)を 用いた。分解後の試料は、1%vol硝酸溶液となるように調製し、ICP-MS(ICP-MS 7700x、 Agilent)にて濃度分析を実施した。

(iii) X線マイクロビーム分析

得られたは厚さ30µmになるように両面研磨した後、X線マイクロビーム分析に供した。X線 マイクロビーム分析は、高エネルギー加速器研究開発機構 Photon Factory (茨城県つくば市) のBL-4Aにて実施した。BL-4Aは、マイクロビームを用いた蛍光X線分析および透過・蛍光XAFS 分析が行えるビームラインである。BL-4Aでは元素マッピング(XRF分析)およびSeとFeの化 学形態の同定(XANES測定)を目的に分析を実施した。

分析項目および分析条件は下記の通りである。

分析項目

µ–XRF分析(対象元素):Se, Fe, S, As, Ca, Mn, Si, Sr, K, Cr, Al, Sc, Ti, V, Co, Ni, Cu, Zn, Ga, Ge, Br, Rb, Y, Zr, Mo

分析条件
 光源: 2.5GeV PFリング 偏向電磁石
 分光器: Si (111) 二結晶モノクロメータ
 ビームサイズ: 5 µm x 5 µm
 µ–XRF分析の入射エネルギー: 13 KeV
 µ–XAFS分析方法※1: 標準試料: 透過法, 分析試料: 蛍光法 (SDD検出器使用)

(b)分析結果

(i) 岩石中のFe、Se濃度分析

浅層試料4試料を対象にしたSe濃度分析結果を図 3.3.1・12に示す。併せて、先行研究(平賀・ 石井,2007)で報告されているFe濃度の深度プロファイルを示す。Fe濃度については、深度7m 付近で全Fe濃度(Tot Fe)が減少しており、同様の深度でSe濃度も減少していることが確認され た。FeのpH-Eh図(図 3.3.1・12)では、黄鉄鉱が溶解するEhと針鉄鉱が生成するEhの間に溶 存Fe²⁺が安定な領域が存在する。そのため、深度7m付近ではFe²⁺が溶存種として安定な領域で あり、Seが溶脱した可能性が考えられる。一方で、深度7m以外の深度では、深部試料と同様、 Seが1-2mg/kg含まれていることが確認された。深度12m付近ではFe²⁺が深部と同程度含まれ ているため、黄鉄鉱が酸化しておらず、深部と同様のメカニズムにてSeが保持されている可能 性が考えられる。一方で、深度4m付近ではFe²⁺濃度が減少しているにも関わらず、Se濃度は浅 部と同程度であった。この領域では、Fe³⁺濃度が上昇しているため、針鉄鉱等の二次鉱物に再 収着した可能性が考えられる。





(ii) µ-XRF分析

μ-XRF分析では、まず500~2,000 μm四方の領域(大視野)に対して、1ステップ10~20 μm、 1点あたりの測定時間を0.1秒に設定して概括的な元素マッピングを行った。大視野のマッピン グ結果からSeやFeの濃集している点を特定して、100~400 μm四方の領域(小視野)、1ステ ップ5~10 μm、1点あたりの測定時間を0.2~0.5秒に設定して、詳細なマッピングを実施した。 なお、本報告では、一部の元素(Se, Fe, S, Ca, As, Mn) について図示する(Se:対象元素; Fe, S: 鉄鉱物(パイライトやシデライトを想定); Ca(カルサイトを想定); As、 Mn (SeやFeと の相関の確認))。

6-7 mの大視野では、Seのカウントが高い領域を見つけることができなかった(図 3.3.1-13)。 Seは鉄鉱物へ収着されやすいため、Feのカウントが高い領域を対象に小視野の元素マッピング を実施した(図 3.3.1-14)。しかし、小視野のマッピングにおいてもSeの濃集部を同定するこ とができなかった。7-8 m、11-12 mの大視野では、6-7 mの大視野と同様にSeのカウントが 高い領域を見つけることができなかった。6-7 mと同様に、Feのカウントが高い領域を対象に 小視野の元素マッピング(図 3.3.1-15、図 3.3.1-16、図 3.3.1-17、図 3.3.1-18)を実施した 結果、7-8 m、11-12 m ともにSeのカウントが高い領域が存在した(図 3.3.1-15、図 3.3.1-17)。 そのため、上記のSe濃集部を対象に(2) μ -XAFS分析を実施した。









図 3.3.1-14 6-7 m_1の拡大視野① (6-7 m_1_1)





7–8 m_1_2



図 3.3.1-16 7-8 m_1の拡大視野②(7-8 m_1_2)



200 um



11-12 m_2_1



図 3.3.1-18 11-12 m_2の拡大視野(11-12 m_2_1)

(iii) µ-XAFS分析

μ-XAFS分析では、(1)で同定したSeが比較的濃集している点(図 3.3.1-15、図 3.3.1-17)に 対してSeのXANES分析を実施した。FeのXANES分析については、鉄の鉱物種とSe濃集の有無 の関連性を明らかにするために、Seの濃集部/非濃集部の両方を対象に分析を実施した。

SeのXANES分析では、測定範囲(12,680~12,800 eV)におけるSeの蛍光X線カウントは総じて低く、Seの吸収端を確認することができなかった。µ-XRF でSeのカウントがあったにも関わらずSeの化学形態を分析できなかった要因として、以下の二点があげられる。

①他元素のピークの干渉によりSeのピーク位置に設定したエネルギー領域のカウントが高くなり、見かけ上Se濃度が高いような結果が示された。

②深部の試料と異なり、Seが一部の鉱物の濃集しているのではなく、比較的均一に存在している可能性が考えられる。

FeのXANES測定結果を図 3.3.1-19に示す。Se濃集部(6-7 m_pt1、7-8 m_pt1、11-12 m_pt1)は、標準試料と異なるスペクトルであった。一方で、Se濃集を確認できなかった領域(7-8 m_pt2、11-12 m_pt2)では、MagnetiteやGoethiteと類似したスペクトルが得られた。得られたスペクトルに対して、標準試料を用いた線形結合フィッティングを実施した(表 3.3.1・4)。 7-8 m_pt2、11-12 m_pt2については、Magnetite、Goethite、pyriteのスペクトルでフィッティングすることができた。一方で、6-7 m_pt1、7-8 m_pt1、11-12 m_pt1に対して標準試料を用いて線形結合フィッティングを実施した結果、すべての測定結果で類似した残差スペクトルが確認され、今回標準試料として用いた鉄鉱物以外のスペクトルが寄与している可能性が示唆された。



図 3.3.1-19 Fe K吸収端のµ-XANES分析結果

	Goethite	Magnetite	FeSO ₄	pyrite
6–7 m_pt1		0.637		0.363
7–8 m_pt1		0.648		0.352
7–8 m_pt2		1		0
11–12 m_ pt1		0.557		0.443
11–12 m_ pt2	0.676		0.0048	0.276

表 3.3.1-4 FeのXANESに対する線形結合フィッティング結果

(c) まとめ

本研究では、深度7m付近のFe濃度が減少する領域において、Se濃度が減少することを確認 し、黄鉄鉱の酸化に伴うSeが溶出した可能性が考えられる。一方で、Fe²⁺が減少し、Fe³⁺濃度 が上昇する領域では、深部の試料と同様1 mg/kg程度のSeが含まれているため、有機物や鉄の 二次鉱物にSeが収着していることが予察的に示された。今後、逐次抽出試験によってSeの存在 形態に関するデータを取得することで、浅層領域におけるSeの移行遅延プロセスについて検討 を行う。

② 硫化鉄鉱物によるセレン取り込み作用

Se-79は高レベル放射性廃棄物の地層処分の安全評価上重要な核種の一つである。Seは陰イ オンの形態をとることから、粘土鉱物に収着しにくい。Seを固定することができる反応として、 マッキナワイトのような硫化鉄鉱物による取り込みが挙げられる。硫化鉄鉱物は地下深部の無 酸素環境で生成される。無酸素環境では、生物学的または非生物学的プロセスによって単硫化 物(HS⁻)から多硫化物(Sn²⁻)にわたる様々なスペシエーションのSが存在すると考えられる。硫 化鉄鉱物の一つであるマッキナワイトはFe(II)とSの反応により急速に生成され、その構造中に Seを取り込むことができる(Rickard and Luther, 2007)。マッキナワイトは準安定相であるに もかかわらず、無酸素条件が維持される限り存在し続けることができ、Seの安定したホスト相 として機能できることが報告されている(Benning et al., 2000)。しかしながら、ニアフィール ド環境が変遷により酸化的な状態になるとマッキナワイトが酸化され、その構造内に取り込ま れていたSeが放出される可能性がある。これまでのところ、マッキナワイトが酸化する過程に おけるSeの保持状態を調べた例はない。令和5年度は、マッキナワイトによるSe取り込み試験 を実施し、初期のSのスペシエーションおよび固相熟成時の酸素の有無がSeの形態に与える影 響を調べた。

試験はN₂ガスで満たした雰囲気制御グローブボックス内で行い、溶液調製には溶存酸素を除 去した超純水を用いた。Fe(II)ストック溶液、Se(-II)ストック溶液およびHS-ストック溶液は それぞれ(NH4)₂Fe(SO₄)₂ 6H₂O、Na₂SeおよびNaS 9H₂Oを超純水に溶解して調製した。Sn²-ス トック溶液はDekkers and Schoonen (1996)の手法を一部修正し、S(0)/S(-II) = 1:3のモル比と 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。表 3.3.1-5に試験条件を示す。 Se(-II)ストック溶液およびSストック溶液を超純水中で混合した後、Fe(II)ストック溶液を加え て共沈反応を誘発した。なお、Se(-II)ストック溶液とSストック溶液の混合時には目視できる 沈殿は生成しなかった。無酸素環境下での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。大気下での熟成は雰囲気制御グローブ外において室温で行った。熟成期間はともに 200日間とした。熟成の後、溶液の上澄みを孔径0.2 μmのメンブレンフィルターで濾過して溶 液分析用試料とした。溶液分析用試料は誘導結合プラズマ発行分析(Inductively Coupled Plasma · Atomic Emission Spectroscopy; ICP-AES)または誘導結合プラズマ質量分析 (Inductively Coupled Plasma · Mass Spectrometry; ICP-MS)によりFe、SおよびSe濃度を測定した。また、懸濁液を孔径0.2 µmのメンブレンフィルターで真空濾過して固相を回収し、雰囲気制御グローブボックス内において室温で一日以上乾燥させて固相分析用試料とした。固相はX線回折(X-Ray Diffraction; XRD)測定により生成した鉱物を同定した。また、X線吸収微細構造(X-ray Absorption Fine Structure; XAFS)測定により固相中のSeの価数と局所構造を調べた。XAFS測定はSPring-8のBL14B1またはBL22XUで行った。

試験条件	Sの化学種	S濃度(mM)	Se濃度(mM)	Fe濃度(mM)	熟成条件	初期pH	初期Eh(mV)
単硫化物・無酸素熟成	HS ⁻	60	1	60	無酸素	7.21	- 185
単硫化物・大気下熟成	HS ⁻	60	1	60	大気下	7.21	- 185
多硫化物・無酸素熟成	S _n ²⁻	60	1	60	無酸素	6.59	-138
多硫化物・大気下熟成	S _n ²⁻	60	1	60	大気下	6.59	-138

表 3.3.1-5 マッキナワイトによるSe取り込み試験の条件

溶液分析の結果、HS-としてSを添加した試験(単硫化物試験)では、共沈時に溶液中のSeのほ とんどが固相に取り込まれていることが確認された。生成した固相を無酸素環境下で熟成させ ると、Seの取り込み割合はわずかに増加した。また、固相を大気下で熟成させてもSeは溶液中 に放出されずに固相に取り込まれたままであった。S_n2-としてSを添加した試験(多硫化物試験) においても、熟成時の酸素の有無にかかわらずSeは固相に取り込まれたままであった。

図 3.3.1-20に固相のXRD測定の結果を示す。単硫化物試験では、初期の固相においてマッキ ナワイトに対応するブロードなピークが確認された。無酸素環境下で熟成させると、それらの ピークはわずかに鋭くなって強度が増加した。一方、大気下で熟成させると、ゲータイト、レ ピドクロサイトおよび斜方晶硫黄のピークが確認された。なお、マッキナワイトやSe含有相の ピークは確認されなかった。多硫化物試験でも、初期の固相においてはマッキナワイトに対応 するピークが確認されたが、単硫化物試験で確認されたものよりブロードであり、結晶性が低 いことが確認された。無酸素環境下で熟成させると、弱いながらも識別可能なパイライトのピ ークが確認された。大気下で熟成させると、弱いながらも識別可能なパイライトのピ ークが確認された。大気下で熟成させると、単硫化物試験で確認されたものとは割合が異なる ものの、ゲータイト、レピドクロサイトおよび斜方晶硫黄のピークが確認された。また、パイ ライトのピークも確認された。初期のSのスペシエーションにかかわらず大気下での熟成にお いて類似した結果が得られたのは、FeとSの両方が酸化され、それぞれ個別の酸化相を形成し たことを示している。なお、分離したSe含有相の存在を示すピークは確認されなかった。



図 3.3.1-20 マッキナワイトによるSe取り込み試験により生成した固相のXRD測定結果. 左:単硫化物試験,右:多硫化物試験.

図 3.3.1-21に生成した固相のX線吸収近傍構造(X-ray Absorption Near Edge Structure; XANES)スペクトルを示す。単硫化物試験で生成した固相は、初期の固相および無酸素環境下 で熟成した固相ともにFeSeと同様のピークをもち、Seが-II価として存在することを示してい る。しかしながら、それらのスペクトルのポストエッジの形状はFeSeのものとは一部異なっ ており、Seの局所構造は異なる可能性がある。大気下で熟成した固相は元素状Seと同様のピ ークをもち、Seが-II価から0価に酸化されていることを示しているが、そのスペクトルの形状 は元素状Seのものとは一部異なり、Seの局所構造は異なる可能性がある。一方、単硫化物試 験のものとは異なり、多硫化物試験で生成した初期の固相は元素状Seと同様のピークを示し た。また、無酸素環境下で熟成した試料のスペクトル形状はSe含有パイライトのものに類似 していた。大気下で熟成した固相のスペクトルは初期の固相のものと似ているが、ポストエッ ジ振動がみられた。



図 3.3.1-21 マッキナワイトによるSe取り込み試験により生成した固相のSeのK吸収端 XANESスペクトル.縦軸はX線の吸光度,横軸はX線のエネルギー(eV)を表す. 左:単硫化物試 験,右:多硫化物試験.

図 3.3.1-22に生成した固相の広域X線吸収微細構造(Extended X-ray Absorption Fine Structure; EXAFS)スペクトルを示す。単硫化物試験の初期の固相と無酸素環境下で熟成した 固相のスペクトルは互いに類似しており、動径分布関数はどちらも~2 Åに顕著なピークを示 した。このピークは4 Se-Feパス(2.37 Å)でフィッティングできた。大気下で熟成した固相のス ペクトルは低波数側にシフトした減衰した振幅を示し、動径分布関数は~1.1 Se-Sパス(~2.14 Å)と~0.7 Se-Seパス(~2.34 Å)でフィッティングできた。この結果は、大気下で熟成した固相 のSeの局所環境がS原子によって支配されており、Seが-II価から0価に酸化されたことを示唆 している。一方、多硫化物試験の初期の固相のスペクトルは元素状Seのものと似ていた。単硫 化物試験のものとは異なり、初期の固相の動径分布関数は~1.95 Åのやや短い距離に顕著なピ ークを示し、 ~ 1.7 Se-Seパス(~ 2.34 Å)と ~ 0.5 Se-Sパス(~ 2.15 Å)でフィッティングできた。 Seが元素状Seのような局所環境にあり、若干のS置換があることから、Se(-II)はFe(II)との初期 共沈中に酸化されたことを示唆している。無酸素環境下で熟成した固相のスペクトルはSe含有 パイライトのものと似ており、第一シェルは1 Se-Sパス(2.23 Å)と3 Se-Feパス(2.31 Å)でフィ ッティングできた。また、第二シェルは6 Se-Sパス(3.11 Å)、第三シェルは2.6 Se-Seパス(3.45 Å)と2.8 Se-Sパス(3.36 Å)でフィッティングできた。これらの結果は、天然パイライト中におけ るSeの存在形態に関する分析結果(日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理 センター、2023)と一致していた。大気下で熟成した固相の動径分布関数は~1.76Åに強いピー クを示し、~2.25 Åに明瞭なショルダーを示した。これらの特徴は、~1.5 Se-Seパス(~2.3 Å)と 0.8 Se-Sパス(~2.13 Å)でフィッティングできた。この結果は、Se-Sパスからの寄与が強かった 単硫化物試験の大気下で熟成した固相とは対照的であり、Seが不純物としてSを含んだ元素状 Seで存在していることを示している。



図 3.3.1-22 マッキナワイトによるSe取り込み試験により生成した固相のSeの # 重みづけK 吸収端EXAFSスペクトルおよびEXAFSスペクトルから得られた動径分布関数.上:単硫化物 試験,下:多硫化物試験.

マッキナワイトによるSe取り込み試験を行い、熟成時の酸素の有無がSeの形態に与える影響を調べた。熟成時の酸素の有無とSのスペシエーションにかかわらず、Seは固相中に取り込まれたままであった。HS-としてSを添加した場合、無酸素環境下の熟成ではFeSe、大気下の熟成では元素状のSeとして存在していると推定された。一方、Sn²⁻としてSを添加した場合、無酸素環境下の熟成ではSeはパイライトに取り込まれており、大気下での熟成では不純物としてSを含んだ元素状Seとして存在していると推定された。今回の試験では固相生成直後と200日間の熟成後の状態を調べたが、経時変化は調べられていない。固相の変遷中に一時的にSeが放出される可能性も考えられるため、今後、溶液および固相の時間による変化をより詳細に調べる予

定である。また、今回の試験では沈殿生成後も溶液中にFe²⁺が残留しており、光によるFe²⁺の酸化が生じた可能性もあるため、試験手法の改良を行う予定である。

③ 第一原理計算によるセレンを取り込んだ硫化鉄鉱物のシミュレーション

セレン(Se)-79は、高レベル放射性廃棄物の地層処分において重要な放射性核種である。鉄イ オンや(Fe²⁺)硫化物イオン(S²)が豊富に存在する地下深部においては、硫化鉄鉱物が沈殿する際 にSeも取り込まれる共沈反応によりSeの拡散が妨げられる可能性があるが、詳細は未解明であ る。そこで、先行事業において、嫌気条件下での共沈実験を実際に行い、地球表層でしばしば 着目されるpyrite(黄鉄鉱、化学組成:FeS₂)に加えて、知見の少ないmackinawite(マッキナ ワイト、化学組成:FeS)も重要であることを明らかにした。この知見に基づき、本研究では、 マッキナワイトにSeが吸着したモデルの第一原理計算を行い、マッキナワイト中のSeの様態を 明らかにすることを目指した。特に令和5年度は、Seがクラスター状にまとまって存在するの か、それとも均一に広がって存在するのかを明らかにすることを目指した。

ワッキナワイトのモデルには、先行研究(Lennie et al., 1995)により報告されている構造を 利用した(図 3.3.1-23)。計算ソフトには、第一原理計算パッケージのVienna Ab initio Simulation Package (VASP; Kresse, & Hafner, 1993; Kresse, & Hafner, 1994; Kresse, & Furthmüller, 1996; Kresse, & Furthmüller, 1996)を用いた。



図 3.3.1-23 マッキナワイトの構造。茶色は鉄原子を、黄色は硫黄原子を示す。

密度汎関数理論に基づくVASPプログラムでは、数多くの交換相関汎関数が利用可能である。 交換相関汎関数には様々なものが開発されており、物質によって最適な交換相関汎関数が異な る。そこで本研究では、マッキナワイトの計算にふさわしい交換相関汎関数の選定を行った。 まず、様々な交換相関汎関数を用いて、マッキナワイト構造の構造最適化を行い、最も安定な 結晶構造を取得した。そして、得られた結晶構造の格子パラメーターを先行研究にて報告され ている実験値と比較した。交換相関汎関数には、一般的に用いられる局所密度近似(Local Density Approximation, LDA)やBecke—Lee—Yang—Parr (BLYP) (Becke, 1988; Lee et al., 1988;)、Perdew—Burke—Ernzerhof (PBE) (Perdew et al., 1996) に加えて、BLYP、PBE、 RPBE (Hammer et al., 1999)、PBEsol (Perdew et al., 2009)、revPBE (Zhang & Yang, 1998) に分散力の補正 (Grimme et al., 2010) も取り入れたBLYP-D3、PBE-D3、RPBE-D3、PBEsol-D3、revPBE-D3近年開発されたSCAN (Sun et al., 2015) やr²SCAN (Furness et al., 2020) 等、 幅広く対象とした。結晶構造の格子パラメーターとして、a軸、b軸、及びc軸の長さと単位格子 の体積に着目した。先行研究 (Lennie et al., 1995) による実験値を100%とした時のそれぞれ の結果の割合を表 3.3.1-6及び図 3.3.1-24に示す。

	表 3.3	3.1-6 柞	兼々な汎	,関数に	よって	得られた	格子パラメ	ィーターの	数値結果	Į
汎関数	LD A	BLY P	BLY P -D3	PB E	PB E -D3	RPB E -D3	PBESO L -D3	revPB E -D3	SCA N	R2SCA N
a軸(Å)	3.52	3.67	3.65	3.59	3.59	3.59	3.54	3.59	3.55	3.57
b軸(Å)	3.52	3.67	3.65	3.59	3.59	3.59	3.54	3.59	3.55	3.57
c軸(Å)	4.90	6.48	5.05	5.70	5.03	4.98	4.86	4.96	5.21	5.23
体積 (Å ³)	60.8	87.0	67.2	73.7	64.7	64.3	61.0	64.0	65.7	66.6



計算の結果、a軸とb軸の長さには違いがなかった。c軸の長さについて、BLYPやPBEでは報告値との差が大きかった一方でBLYP-D3やPBE-D3では差が小さかったことから、分散力の効果が重要であることがわかった。これらの結果は、BLYP-D3が最適な汎関数であることを示し、以後の計算においてはBLYP-D3を利用することとした。

mackinawiteにSeが取り込まれる際、S原子をSe原子が置換すると考えられる。本研究では、Seがクラスター状に固まって存在するのか、均一に広がって存在するのかを調べるため、様々な置換パターンのモデルを網羅的に作成し、それぞれの構造の構造最適化を行ってエネルギーを比較した。まず、単位格子をa軸方向に4倍、b軸方向に4倍、c軸方向に2倍したスーパーセルを作成した。中間の層において、二つのS原子を選び、Se原子に置換した(図 3.3.1-25)。



図 3.3.1-25 (a) マッキナワイトのスーパーセルの構造と(b) Se置換を行った様子

中間の層において、S原子は32個存在する。そのうち一つのS原子をSe原子に置換した。この S原子を図 3.3.1-26において星マークで示す。残りの31個のS原子のうち一つをSeに置換した 構造を31パターン作成した。それぞれの構造について構造最適化を行い、得られたエネルギー を比較した(図 3.3.1-26)。この結果、★マークの近くにSe原子が存在する場合はエネルギー が高くなり、★マークからSe原子が離れるにつれてエネルギーが系統的に低くなる様子が見ら れた。★マークは一つ目のSe原子の位置を示していることから、二つのSe原子が固まって存在 する構造よりも離れて存在する方が安定であることがわかった。従って、マッキナワイト中に 存在するSeは、クラスター状に存在するよりも広がって均一に存在しやすいことが示された。 この結果は、先行研究の走査型透過電子顕微鏡を用いた分析結果と整合的であった。

今後は、Se原子の置換数が3個以上に増えた場合や、Seの置換が構造内部ではなく構造のエ ッジ部分で発生する場合、さらには熱的効果を考慮した場合等について計算を行っていく予定 である。



図 3.3.1-26 二つのS原子をSe原子に置換した構造の計算結果

2) 炭酸塩鉱物と核種との相互作用

カルサイトは岩石中で広くみられる炭酸塩鉱物であり、重元素や希土類元素、アクチニド元 素、オキソ酸陰イオンの形態をとる元素等の様々な元素をその結晶構造中に取り込むことでき ることが知られている(Rimstidt et al., 1998; Curti, 1999; Elzinga et al., 2002; Heberling et al., 2014; Zhang et al., 2020)。Uは高レベル放射性廃棄物の地層処分における核種移行評価に おいて重要な元素の一つである。Uは水相において炭酸イオンと溶存錯体を形成することで移 行しやすい形態となることが報告されている(Benhard et al., 2001; Lee and Yun, 2013)。一方、 固相の炭酸塩中におけるUの分布や化学形態に関する情報は乏しい。令和5年度は、カルサイト 中におけるUの分布や化学形態に関する情報を得るため、マイクロX線を用いた分光分析を行っ た。

幌延深地層研究センター周辺で実施されたボーリング調査および幌延深地層研究センター地 下施設の調査坑道で実施された掘削調査により得られた堆積岩コア試料中のカルサイト部分を 測定対象とした。ここでは、深度約320 m地点の稚内層の泥岩中に発達していたカルサイト脈 を選定し、Takahashi et al. (2007)の手法を用いてカルサイト部分を両面研磨して薄片試料を 作製した。薄片試料はSPring-8のBL37XUにおいて高エネルギー(17 keV以上)のマイクロX線 蛍光(micro X-Ray Fluorescence; μ-XRF)測定およびマイクロX線微細構造(micro X-ray Absorption Fine Structure; μ-XAFS)測定を行った。図 3.3.1-27に作製した薄片の測定部位を 示す。黒い部分は泥岩、白い部分はカルサイトである。



図 3.3.1-27 堆積岩中のカルサイト部分から作製した薄片のマイクロX線測定部位

天然試料中のUのXRF測定では様々な困難が存在する。Rbが存在すると、そのKa線(13.373 keV)がUのLa線(13.612 keV)に干渉する。このような場合、入射X線強度をUのLun吸収端 (17.162 keV)の前後の値に設定して測定を行い、UのLa線の強度を比較することでUの存在を確 認することができる。ただし、Uの存在量が少ない場合、長時間の測定を行わないと十分な信 号が得られない可能性がある。また、Feの含有量が多い試料では、FeのKa線(6.398 keV)とKg 線(7.057 keV)が同時に検出器に入ることで13.455 keVのサムピークが発生し、UのLa線に干渉 する。このような場合、検出器と試料の距離を離すことでサムピークが発生する確率を減らす か、検出器と試料の間にアルミフィルターを挿入して低エネルギー側の蛍光X線(すなわち、Fe のKa線およびKg線)の強度を下げる方法がある。ただし、アルミフィルターを挿入するとSiや P等の蛍光X線の強度も下がるため、Uのホスト相の同定ができなくなる。これらのことに留意 し、入射X線強度やアルミフィルターの挿入の有無の条件を変化させて測定を行った。

図 3.3.1-28に広域でµ-XRFマッピングを行った結果を示す。P1およびP2は泥岩との境界を 含むカルサイトのマトリクス部分、P3は泥岩のマトリクス部分であり、それぞれUが濃集して いるとみられる部分が確認された。カルサイトのマトリクス部分であるP1およびP2を拡大して µ-XRFマッピングを行った結果を図 3.3.1-29に示す。P1ではUが濃集しているとみられる2つ のスポットにおいてXRFスペクトルを取得した(図 3.3.1-30)。P1-1はカルサイトと泥岩の境 界に近いカルサイトのマトリクス部分、P1-2は泥岩のマトリクス部分である。P1-1のXRFスペ クトルからUおよびThとみられるピークが検出された。また、Pのピークが検出され、測定点に はリン酸塩が存在すると推定された。一方、P1-2ではUとみられるピークとともにZrのピーク が強く検出され、測定点にはジルコンが存在すると推定された。P2においてもUが濃集してい るとみられる2つのスポットにおいてXRFスペクトルを取得した。P2-1はカルサイトのマトリ クス部分であり、P1-1と同様にUおよびThとみられるピークとPが検出された(図 3.3.1-30)。 一方、P2-2は泥岩のマトリクス部分であり、Feのピークが強く検出された。この測定点ではFe のサムピークをUとしてカウントしたため、見かけ上Uが濃集しているようにみえたと考えられた。



図 3.3.1-28 µ-XRFによるUのマッピング結果.入射X線強度: 19.5 keV.



図 3.3.1-29 µ-XRFによる図3.3.1-28中のP1およびP5のUのマッピング結果.入射X線強度: 19.5 keV.



図 3.3.1-30 図3.3.1-29中のUの濃集スポットとみられる部分におけるXRFスペクトル.入射X 線強度: 19.5 keV.

カルサイトのマトリクス中でUが濃集していると推定されたP1-1およびP2-1を対象とし、さ らに詳細なµ-XRF測定とX線吸収近傍構造(X-ray Absorption Near Edge Structure; XANES) スペクトルの取得を行った。はじめに、P1-1を対象として入射X線強度を18.1 keVに設定して 測定を行った(図 3.3.1-31 ; 赤色)。Feのカウントが高かったため、Feのサムピークの影響を 低減するためにアルミフィルターを挿入し、さらにZrの有無を調べるために入射X線強度をZr のK吸収端(17.996 keV)よりも低い17.9 keVに設定して測定を行った(図 3.3.1-31; 青色)。こ の操作により、15.7 keV付近のピーク強度が低下してピークがやや高エネルギー側にシフトし たことから、測定点にはZr (Ka: 15.744 keV)およびSr (Ka: 15.830 keV)が存在すると考えられ た。また、入射X線強度をUのLm吸収端(17.162 keV)よりも低い17.1 keV (図 3.3.1-31; 黒色) と高い17.2 keV (図 3.3.1-31 ; 緑色) に設定して測定を行った。さらに、Uとの比較として希 土類元素のYの存在を調べるため、YのK吸収端(17.035 keV)よりも低い17.0 keV (図 3.3.1-31; ピンク色)に設定して測定を行った。黒色とピンク色を比較すると14.9 keV付近のピーク強度 が低下しており、測定点にYが存在することが確認された。一方、緑色と黒色を比較してもUの La線(13.612 keV)の寄与は不明瞭であった。これは近接するRbのKa線(13.373 keV)が干渉して いるためである。UのLm吸収端の前後で測定したスペクトルを規格化したものを図 3.3.1-32に 示す(スペクトルの色は図 3.3.1-31のものと異なることに注意)。これらのスペクトルの差をと ると、UのLa線(13.612 keV)の位置にカウントが存在することが確認できる。したがって、P1-1にUが存在することが確認できた。図 3.3.1-30の結果と合わせると、UやYはジルコンやリン 酸塩とともに存在している可能性がある。

P2-1では入射X線強度をZrのK吸収端よりも低い18.1 keV (図 3.3.1-33;赤色)と高い17.9 keV (図 3.3.1-33;青色)に設定して測定を行った。P1-1と同様に、測定点にはZrとSrが存在 することが確認された。この測定点でもRbのKa線がUのLa線に干渉していた。ここでは、 μ -XANES測定を行うことでUのLIII吸収端のエッジジャンプがみられるかどうかを調べた。比較

として、U(VI)のリン酸塩である燐灰ウラン鉱 (Miyajima et al., 2021)および泥岩のマトリク ス部分でUが濃集しているとみられた部分 (図 3.3.1-28; P3) を測定した。図 3.3.1-34に測定 結果を示す。その結果、P2-1では燐灰ウラン鉱と同様のエッジジャンプがみられ、Uが存在す ることが確認された。しかしながら、結合形態を解析するのに十分な質のスペクトルを得るこ とはできなかった。また、ピーク位置は燐灰ウラン鉱と類似しているようにみえるが、U(IV)と U(VI)のXANESスペクトルのピーク位置は非常に近接している(Satpathy et al., 2022)ため、価 数を判断することはできなかった。一方、P3はエッジジャンプがみられず、実際にはUがほと んど存在していないことが確認された。この理由として、P3ではFeのサムピークをUとしてカ ウントしたため、見かけ上Uが濃集しているようにみえたと考えられる。





図 3.3.1-32 図3.3.1-31のXRFスペクトルの差し引きにより検出されたUのピーク.





図 3.3.1-34 図3.3.1-29のP2-1におけるXANESスペクトル.比較として燐灰ウラン鉱および Feのサムピークにより見かけ上Uの濃集がみられたポイント(P3)のXANESスペクトルも示す.

稚内層の泥岩中に発達していたカルサイト脈中のUの分布および化学種をμ-XRF測定および μ-XAFS測定により調べた。μ-XRF測定によるマッピングの結果、カルサイト中でUが濃集して いる部分が確認された。Uの濃集部分のXRFスペクトルにおいてPが確認されたことから、Uが リン酸塩の形態で存在する可能性が示唆された。しかしながら、Uの濃集部分がカルサイト中 に埋まっている純粋なリン酸塩なのか、またはカルサイトの構造に何らかの形で取り込まれた リン酸塩なのかは判別できなかった。また、μ-XAFS測定によりUのXANESスペクトルを得る ことができたが、スペクトルの質が十分でなく、価数や結合状態に関する情報は得られなかっ た。

天然試料中のUを検出するには共存元素による干渉を考慮する必要があり、今回の測定では 入射X線の強度を変える手法やµ-XANES測定を行うことによってカルサイト中のUの存在を示 した。今回のµ-XRF測定およびµ-XAFS測定ではシリコンドリフト検出器(Silicon Drift Detector; SDD)を使用したが、よりエネルギー分解能が高い検出器を使用することで、より容 易にUを検出できる可能性がある。近年、超電導転移(Transition Edge Sensor; TES)検出器を XAFS測定に適用した方法が開発された(Yamada et al., 2021)。SDDのエネルギー分解能は約 130 eVであるが、TESのエネルギー分解能は6 keVで約5 eVと非常に高く、ほとんどの系にお いて相互の干渉なく目的の元素のX線を検出できる。今後、TESを用いたµ-XRF測定およびµ-XAFS測定を実施し、カルサイト中のUの分布および化学種をより詳細に調べる予定である。

3.3.2 コロイド・有機物・微生物影響評価技術の開発

(1) コロイドへの核種収着

1) 背景と目的

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)。地層処分システムにおける核種移行評価では、核種は地下水中にイオンとして溶解し、 移流・拡散により移行するものとして評価されているが、地下水中のコロイドへの核種の収着 挙動を把握し、核種移行への影響を評価する必要がある。地下水中のコロイドには、シリカ、 鉄等の鉱物や非晶質物質などの地下水と接触した岩石の成分に由来する無機コロイドと、動植 物等生体由来物質の分解・縮合や微生物活動に由来する有機コロイドが挙げられる。有機コロ イドのうち、微生物細胞自体については、有機コロイドと分けて議論されることが多く、有機 コロイドとしては主にフミン酸、フルボ酸等の腐植物質が核種との錯生成の観点から多く研究 されている(例えばTerashima et al., 2020)。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 熊が類似していることから、浮游状微生物(すなわちバイオコロイド)に核種が収着あるいは 濃集された場合には、核種移行が促進されることが懸念される。また、微生物代謝により細胞 内に核種が取り込まれて濃集した場合、核種の収着/脱着反応が不可逆的であると予測されるた め(Anderson et al., 2011; 大貫, 2002; Pedersen, 2005)、無機コロイド等と比較すると核種 移行の促進がより顕在化される可能性がある。コロイド影響を考慮した既存の核種移行解析結 果からは、コロイドが核種移行を顕在化する条件は、地下水中のコロイド密度、コロイドへの 元素の収着分配係数および収着の不可逆性に関係することが示されている(久野・笹本、2010; 日本原子力研究開発機構, 2014)。しかしながら、地下水中のコロイドの密度やコロイドへの 元素の収着分配係数に関する情報は、試料採取時の陸上由来物質の汚染や調査技術的な問題か ら、ほとんど知見がなく、核種移行解析に資するためのデータが不足していた。そこで、先行 事業にて、天然の地下水中のコロイドへの核種の収着挙動を評価するために、幌延地域の堆積 岩を事例として、地質学・地球化学・微生物学的な特性が異なる様々な深度の地下水中に存在 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)。しかしながら、 原位置試料を用いた取得データは、十分であるとはいいがたい。また、既存の収着・錯生成等 データは、天然の地下水を使用してはいるものの、主に室内試験により取得されており、その 試験条件は原位置環境を反映していない部分が多い。実際の地下環境はコロイド・有機物・微 生物・地下水が岩盤中に存在する複雑な状態であることから、これまでの取得データやそれに もとづいて構築されたモデルについて、実際の地下環境における妥当性確認を行う必要がある。

本課題では、幌延地域の地下環境を事例として、天然コロイド・有機物・微生物の特性デー タを取得し、コロイド・有機物・微生物と核種との収着・錯生成・細胞内取込等による核種移 行影響への評価技術を提示する。また核種移行影響への現象理解と評価モデルの構築を目指す。 令和5年度は、幌延地下環境における天然コロイドについて、地下水中のコロイドへの核種の収 着特性に関するデータを拡充するとともに、これまでに取得した現象モデルの妥当性確認に向 けて、原位置環境下における予察試験に着手した。
2) 地下水中のバイオコロイドへの希土類元素の分配挙動評価

先行事業にて、幌延URLのボーリング孔から採取された深度140m、 185m、 250m、 350 mの地下水を対象に、全コロイド(無機・有機・微生物コロイド)への希土類元素の分配係数 についてデータを取得した(図 3.3.2-1(a))。また、バイオコロイドについては、深度140m、 185 m、 250 mの地下水を対象に、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, 2023)。令和5年度は、これまでにデータを未取得であった 深度350 mの地下水を対象に、バイオコロイドへの核種の分配係数データを取得するための収 着試験を実施した。幌延URLの深度350 m坑道から掘削されたボーリング孔(13-350C01孔; 図 3.3.2-1 (a))から、硝酸洗浄・オートクレーブ滅菌済みかつArガス置換を施した1 Lデュラ ン瓶12本に地下水を採取し、数分間オーバーフローさせた後、大気が混入しないようにボトル を直ちに密閉し、採取瓶を脱酸素剤とともに真空パック保存した。地下水採取容器は、 y 線を 高線量照射した際に安定性が良く物性が変化しにくい材質であるガラス容器(JIS R3503「ほ うけい酸ガラス-1」に相当するDURAN®および黒キャップ(フェノール樹脂製、パッキンは EPDM) を使用した。その後、線量53.5 - 71.8 kGyのγ線滅菌処理をした地下水を、実験室に て、耐圧ステンレス容器に嫌気的に移し替えて地下水中のコロイドへの収着試験に供した。耐 圧ステンレス容器は、使用前にあらかじめ硝酸洗浄・オートクレーブ滅菌を施した後、99.999% アルゴンガスで容器内の空気を置換した後試験に用いた。試験には、アクチノイドと元素の挙 動が類似しており天然環境中でアクチノイドのアナログ元素とされている希土類元素を用い、 大気に触れないように希土類元素および亜セレン酸ナトリウムを初期濃度約10 ug L⁻¹になるよ うにγ線滅菌地下水中に添加し、希土類元素のコロイドへの収着挙動を評価した。希土類元素 の添加には、多元素混合標準液(R-I、 R-III、 R-III、 和光純薬製)を用いた。これらの他元 素混合標準液には硝酸が含まれているが、地下水試料が緩衝作用のある重炭酸イオンが非常に 高いため、標準液の添加によりpHの変化は確認されなかった。一定期間元素と反応させた溶液 中のコロイドを、微生物サイズとして孔径0.2 μmのメンブレンフィルターにてサイズ分画し、 固相を捕集したフィルターと液相のろ液および未ろ過液(原液)を採取した。溶液試料につい ては、Na、 K、 Ca、 Mg、 Cl、 HCO3、 TOC、 TIC、 Total Fe、 Fe²⁺、 S²等の一般水 質分析を行った。希土類元素およびセレンについては、ICP-MS(パーキンエルマー社製、 NexION300X型)を用いて測定した。

添加した各元素の溶液中の濃度分析結果から、すべての添加元素は溶液中に溶存状態である か、コロイドに収着したと仮定して、希土類元素および亜セレン酸ナトリウム添加直後から28 日後までの間、コロイドを含む未ろ過溶液と0.2 µmフィルターろ液中の希土類元素およびセレ ン濃度を分析し、地下水中の全コロイド、すなわち無機・有機・バイオコロイドへの希土類元 素の分配係数を算出した。分配係数の算出に用いた地下水中のコロイド濃度は、実際の地下環 境にて取得した実測値の平均値として、深度140 mの地下水については0.608 mg/L、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 3.3.2-2に示 す。収着試験過程の試験溶液中の希土類元素濃度を定期的に分析した結果、溶液中の希土類元 素濃度は初期濃度約8 – 9.5 µg L⁻¹で添加されており、無濾過の場合においても時間の経過とと もに減少する傾向を示した。投入時の予定濃度としていた10 µg L⁻¹から初期濃度が若干減少す る理由としては、採水容器の満水容量が11.8 Lであるが、対象とした地下水試料中に含まれて いるメタンおよび炭酸ガスの影響により、各採水容器で地下水としての採水量に誤差が生じた ことや、容器への瞬時収着等の影響が考えられる。ただし、収着挙動の評価上は、試料採取毎 に無濾過の溶液中の濃度と0.2 µmフィルターろ液の分析値を比較しているため、容器収着の影

響については考慮する必要がないと判断している。全コロイドおよび無機・有機コロイドのい ずれの試験においても、軽希土類元素は添加後速やかにコロイドとともに存在し、重希土類元 素は地下水溶液中に残存する傾向を示すことが明らかになった(図 3.3.2-2)。 バイオコロイド を含まない溶液中では、全コロイドを含む溶液と比較して、溶液に分配される希土類元素濃度 が高くなる傾向が認められたことから、バイオコロイドへの収着影響が寄与しているものと考 えられる。無濾過溶液中の希土類元素濃度を100%として、0.2 μmフィルターろ液中の希土類 元素の残存率を算出したところ(図 3.3.2-2)、全コロイド及び無機・有機コロイドともに、軽 希土類元素は添加直後で60%程度溶液中に残存したのに対し、HoからLuまでの重希土類元素 は85-90%程度と溶液への残存率が高く、その傾向は全コロイドと無機・有機コロイドで大き な差が生じていないことが示された。これまでに実施した他深度の地下水を用いた収着試験結 果からは、全コロイドを含む溶液については、軽希土類元素は数%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の残存率も10 – 40%程度であった。また、バイオコロイドを含 まない無機・有機コロイドを対象とした試験溶液においては、LaからEuまでの軽希土類では3 - 10%程度、重希土類については溶液中の残存率が約17 - 76%となり、バイオコロイドが存在 する場合と比較して高い値を示したことから、希土類元素の収着にはバイオコロイドが影響し ていることが推察され、軽希土類で収着影響がより顕著になることが明らかにされていた。し かしながら、深度350mの地下水を対象とした試験結果からは、本地下水中に存在するコロイド への希土類元素の収着影響が、他の深度における地下水と比較して高くなく、バイオコロイド の影響も大きくないことが明らかになった。希土類元素がコロイドとともに地下水中に残存し、 見かけ上溶解度が高くなる現象は、原位置に存在するコロイドの性質に大きく関係すると考え られる。希土類元素のコロイドへの収着挙動について、コロイドの化学組成や地下水組成等も 考慮した評価を進める必要がある。また、地下環境における希土類元素と相互作用する微生物 について、細胞表面への収着反応や代謝反応との関連性についても明らかにすることで、コロ イド熊として存在する微生物の核種移行挙動評価の信頼性を高めることができると考える。



図 3.3.2-1 幌延URLにおけるボーリング孔配置図 (a) および深度350 mのボーリング孔 (350-TR-A) における原位置コロイド収着試験 (b)



図 3.3.2-2 孔径0.2 μmフィルターろ液中の希土類元素濃度の残存率の経時変化。(a) 全コロ イド; 地下水中に存在する全コロイド(無機・有機・バイオコロイド)。(b) 無機・有機コロ イド; γ線滅菌処理を施して微生物を死活させた地下水中のコロイド(無機および生きたバイオ コロイドを除く有機コロイド)。バイオコロイド; 生きた微生物細胞。(c) 3 kDaサイズの限外 ろ過フィルターを用いて地下水中のコロイドを除去した試料を用いた場合。

3) 原位置環境下におけるコロイドへの希土類元素の分配挙動評価

地下水中のコロイドへの希土類元素の分配挙動評価、有機コロイドとEuの錯生成、有機コロ イドーEuー岩石の三元系における岩石への収着分配評価、微生物と希土類元素の相互作用反応 に関する評価については、先行事業からデータが蓄積されており、本事業でさらにデータの拡 充を進めている。一方で、これまでに実施してきたデータ取得や収着・錯生成反応に関わる評 価は、地下環境試料を用いているものの、室内試験にて取得されたものである。室内試験を実 施する際には、可能な限り原位置環境を模擬した条件下で試験設定が行われているが、原位置 のpH、酸化還元環境、水質、微生物組成、岩石条件等を再現することは極めて難しいのが現状 である。そこで、これまでに室内試験にて取得してきたデータの妥当性確認や原位置環境にお ける天然コロイドと核種の相互作用メカニズムの解明に向けて、幌延の堆積岩地下環境を事例 として、原位置環境を対象としたコロイド収着挙動評価の予察試験を実施した。幌延URLの深 度350 mの調査坑道において掘削されたボーリング孔350-TR-Aを利用して、掘削長3mのうち 孔底部250 mmを試験区間として、コロイドが存在する地下水-岩盤-希土類元素の反応試験 を実施した(図 3.3.2-1(b))。試験の全容量を約9Lと想定して初期濃度50 ppbになるように添 加した。その後、添加したトレーサー溶液を均一化するために、試験系内の循環(地上のみ) を行い、循環速度と全量を考慮してトレーサー溶液が混合されたと考えられる1時間後を初期 値と設定して、岩盤を経由した循環試験を開始した。一方で、トレーサー元素の容器や試験系 に使用されているチューブ内への収着や、地下水ー元素間のみで生じる経時変化を把握するこ とを目的として、岩盤を経由しない試験系についても「岩盤なし」のコントロール試料として

試験を行った。「岩盤あり」「岩盤なし」の各試験系におけるトレーサー濃度の経時変化を測 定するために、定期的に地下水試料を採取し、希土類元素の経時変化とサイズ分配を調査した。 その結果、「岩盤あり」及び「岩盤なし」のいずれの試験系においても、経時的に希土類元素 濃度が減少する傾向が認められたが、その濃度は「岩盤あり」の系でより減少することが確認 された(図 3.3.2·3)。「岩盤なし」の系では、添加した希土類元素の約60·70%は0.2 µm以上 のサイズのコロイドに収着して地下水中に残存したが、「岩盤あり」の場合では、コロイドに 収着して地下水に残存する割合は、添加濃度に対して10%程度であり、そのサイズ分配は10 kDa-0.2 µm分画で最も多くなることが確認された(図 3.3.2·3、図 3.3.2·4)。また、軽希土類 元素と重希土類元素を比較すると、「岩盤あり」の系では重希土類元素の方が10 kDa-0.2 µm サイズのコロイドとして地下水中に残存する割合が高くなることが示された。本地下水の化学 成分を用いた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ており、その傾向は重希土類元素の方が高くなることか ら、実際の原位置環境下でも炭酸塩錯体として溶存している可能性が示唆された。

本試験でおこなったような原位置環境下での反応試験は、これまで室内試験にて様々な条件 下で取得してきたデータが、実際の岩石-地下水-元素-コロイド(無機・有機・微生物)の 複雑な条件下において妥当性を有するかどうかを確認するために非常に重要な成果につながる と考える。令和5年度は、複合的な条件下における収着試験の成立性を確認する予察試験として 実施し、使用するトレーサー元素やその濃度など、試験の成立性を確認することができた。今 後は、添加後のトレーサーがどの程度の濃度で平衡状態に達するのか、また、その分配(岩盤、 コロイドとそのサイズ)等についても明らかにすることで、地層処分システムにおける地下水 中のコロイドの核種移行影響評価の信頼性を向上させることができると考える。



図 3.3.2-4 岩盤を経由した収着試験系における希土類元素の残存率

(2) 有機物と核種との錯生成

地下水に溶存する天然有機物(Natural Organic Matters、 NOM)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。

1) 深部地下環境に存在する有機物の分子的特徴と金属イオンとの反応性

深部地下環境に存在するNOMは、腐植物質や生体高分子、微生物由来の有機物の総体であり、 不定形の高分子の集合体として様々な構造と特性を有する。その物理的・化学的性質は表層環 境のNOMとは大きく異なる事が知られており、従来法で抽出された有機物画分と性質が異な る、分類出来ない有機物が存在することも明らかになっている(Han et al., 2022)。ここでは NOMのうち、地下水中で核種の動態に影響を与えうる溶存有機物(Dissolved Organic Matters, DOM) に着目して、それらを従来法によるNOMの分離をすることなく、有機物の全量を対象 として分類を行い、その分子的特徴や金属イオンとの結合性、さらにはそれらの関係性を明ら かにすることを目的とする。幌延深地層研究センター(幌延URL)にて採取した地下水につい て、DOMの蛍光を利用した三次元蛍光分析(Emission-Excitation Matrix, EEM)とフーリエ 変換イオンサイクロトロン共鳴質量分析計(FT-ICR-MS)による高分解能質量分析および並列 因子分析(Parallel Factor Analysis, PARAFAC)のような多変量解析手法を組み合わせるこ とによって有機物の特性や起源を分析し、さらに、Eu(III)の添加によるDOMの蛍光の消光 現象から、Eu(III)の結合の程度もあわせて評価した。

地下水試料は、幌延URLの深度140、250および350 mの実験ステージで採掘されたボーリン グ孔から採水した。深度140 mで4種類(07-V140-M01,07-V140-M03,E140G,08-E140-C01)、 深度250 mで4種類(09-V250-M02,10-E250-M01,11-V250-TR02,11-V250-TR03)および深 度350 mで5種類(12-P350-M02,13-350-C01,13-350-C06,13-350-LGE-M01,14-350-C04)の 合計13種、18試料を採水し、試験を行った。

EEM-PARAFAC分析では、蛍光強度は、装置感度を波長350 nmに対する水のラマン散乱強度を用いて規格化し、ラマンユニット(RU)に変換した。先行研究と(Saito et al., 2023)同様、4成分モデルでのPARAFAC解析を行い、4つの成分のピークが確認された。各成分のEEMスペクトルを図3.3.2-5に示す。4つの成分はそれぞれ、深部地下環境中の一部のメタン生成菌の活性度との相関が高い幌延地域の深部地下に特有の海洋性腐植様物質(成分1)、地表由来の腐植物質(成分2)、成分2が一部分解して生じた物質(成分3)、トリプトファンを含むアミノ酸由来の物質(成分4)であると考えられている(Saito et al., 2023)。



各地下水試料における全蛍光強度に対する成分1-4の蛍光強度の比率を図 3.3.2-6に示す。成 分1は採水深度の増加に従ってその寄与が大きくなったのに対し、成分2と成分3は浅い方で寄 与が大きくなっていた。また、地下水試料の蛍光強度を採水深度で整理すると、そのばらつき は深度の増加に伴い減少する傾向にあった。幌延の地下水は、化石海水と化石天水の混合によ り現在の状態が形成されている。これらの結果は、成分1は化石海水に、成分2および3は化石天 水に由来するとした先行研究(Saito et al., 2023)を支持していた。

NOMの蛍光は、金属イオンと錯形成をすることで蛍光強度が減少する(消光)ことがあり、 その消光の程度から、NOMと金属イオンの錯形成の程度を見積もることができる。蛍光強度比 の逆数 *L/I*に対し、消光剤濃度[Q](この場合金属イオン濃度)をプロットしたStern-Volmerプ ロットから、式(3.3.2-1)に基づき消光定数 *K*svを求めることによって、NOMの錯形成能を評価 できる。ここでは、地下水試料にEu³⁺を添加することで、地下水中のNOMとEu³⁺との錯形成に より生じる消光現象からその錯形成能を評価した。

$$I_o/I = 1 + K_{sv}[Q] \tag{3.3.2-1}$$



図 3.3.2-6 各地下水試料における、全蛍光強度に対する成分1-4の蛍光強度の比率





各地下水試料における成分1-4の*K*svを図 3.3.2-7に、各採水深度における成分1-4の*K*svの箱 ひげ図を図 3.3.2-8に示す。*K*svの値は、成分3が大きく、成分1が小さい傾向が見られた。

次に、FT-ICR-MSによるDOMの質量分析を行った。TRFuコードを用いることで、測定によ り得られた質量電荷比から含有元素の個数を決定し、分子式の割り当てを行った(Fu et al., 2020)。検出されたもののうち、1試料あたり25000±6000個(約96%)のピークに対して分子 式を割り当てることができた。そのうち、5789個の分子式が全ての試料に共通して含まれてい た。

特定の化学構造を示すことが難しいNOMの分類方法として、C, H, Oの元素組成にもとづく 分類が一般的である。H/C比を縦軸に、O/C比を横軸にしてプロットしたvan Krevelen図では、 有機物の分子的特徴に応じてプロットの位置が変化する。したがって、具体的な化学構造がわ からない場合でも、その元素組成を調べることで、van Krevelen図から有機物の分子的特徴を 推察することができる。ここでは、文献(Rivas-Ubach et al., 2018)に基づいて分類した。各 試料のvan Krevelen図を作成し、DOM分子の分子的特徴の存在割合の平均値を深度ごとに表 3.3.2-1にまとめ、例として、07-v140-m01、07-v140-m03、09-v250-m02、11-v250-tr02、12p350-m02および13-350-c01の6試料のvan Krevelen図を、有機分子の不飽和度を示す二重結合 当量(double bond equivalent, DBE)のカラーマップと重ねて図 3.3.2-9に示す。幌延の地下 水のDOMでは、分子的特徴として植物由来の有機物であるファイトケミカルと脂質がほとんど の割合を占めており、深度の増加に従って脂質の割合が増加し、ファイトケミカルの割合が減 少することがわかった。これは、深度の増加とともにDBEが小さくなり、飽和度が高くなって いることを示す図 3.3.2-9の結果と矛盾しない。NOMの分子的特徴として、海洋性の腐植物質 は脂肪族構造を多く持ち、H/C比が陸性の腐植物質よりも高くなることが知られている(石渡 良志ら、2004)。質量分析からも、深度の増加にしたがって化石海水に由来する成分1の寄与が 大きくなり、化石天水に由来する成分2および成分3の寄与が小さくなるというEEM-PARAFAC分析の結果と整合する結果が得られた。



図 3.3.2-9 各試料のvan Krevelen図(a) 07-v140-m01, (b)07-v140-m03, (c)09-v250-m02, (d)11-v250-tr02, (e)12-p350-m02, (f)13-350-c01

	脂質	炭水化物	アミノ糖	タンパク質	フィトケミカル
140m	43.2%	0.1%	1.1%	6.2%	46.9%
250m	46.1%	0.2%	1.3%	5.7%	44.3%
350m	48.3%	0.3%	1.8%	6.4%	39.8%

表 3.3.2-1 各深度におけるDOM分子の分子的特徴の存在割合の平均値

van Krevelen図を用いて成分1-4の有機物の分子的特徴の情報を得るためには、試料に含ま れた全てのDOMを含むマススペクトルから、成分1-4それぞれに対応するマススペクトルを抽 出する必要がある。そこで、EEM-PARAFAC分析で得られた4つの成分の成分それぞれの濃度 と、全ての試料に共通して含まれていたDOMのマススペクトルのピークの信号強度の2つにつ いて、スピアマンの順位相関係数を求めることで、成分1-4それぞれに対応するマススペクトル を推定した。相関係数に有意な値 ($p \le 0.05$)が見られたDOMに対して作成した成分1-4のvan Krevelen図を図 3.3.2-10に、van Krevelen図から求めた成分1-4の分子的特徴の存在割合を表 3.3.2-2に示す。また、成分1-4それぞれの分子の質量電荷比の分布を箱ひげ図で図 3.3.2-11に示 す。成分1・4の有機物の分子的特徴の存在割合の比較をすると、海洋性の有機物から成る成分1 では、脂質の割合が高く、ファイトケミカルの割合が低くなっている一方で、陸性の有機物か ら成る成分2,3では、ファイトケミカルの割合が高く、脂質の割合が低くなっていた。EEM-PARAFAC分析との相関から得られた成分1・4の質量分析の結果においても、一般的に知られて いるNOMの生成環境と分子的特徴との関係性の傾向と整合する結果が得られた。また、錯生成 能の指標となる消光定数と、有機物の分子的特徴との関係性に着目すると、4つの成分の中でフ ァイトケミカルの割合が最も高く、脂質の割合が最も低い成分3の錯生成能が高い傾向が見ら れる一方で、脂質の割合が最も高く、ファイトケミカルの割合が最も低い成分1の錯生成能は低 い傾向が見られた。質量電荷比に着目すると、成分3は比較的高く、成分1は低い傾向が見られ た。

核種移行挙動へのNOMの影響を地下環境から類推するための知見を得るため、今後、今回着 目していない多様な地下水パラメータとNOMの分子的特徴との相関や、それらと金属イオンと の結合性との関係を調べる予定である。



	脂質	炭水化物	アミノ糖	タンパク質	フィトケミカル	合計
comp1	60.4%	0.0%	0.0%	0.9%	38.7%	100.0%
comp2	46.5%	0.0%	0.0%	0.7%	52.7%	100.0%
comp3	40.1%	0.0%	0.0%	0.7%	59.3%	100.0%
comp4	51.6%	0.0%	0.0%	0.9%	47.4%	100.0%

表 3.3.2-2 成分1-4の分子的特徴の存在割合





図 3.3.2-11 成分1-4の質量電荷比の分布の箱ひげ図

2) 放射線場における有機物の特性評価

処分の基本シナリオでオーバーパックが破損すると仮定される1,000年後(核燃料サイクル開発機構,1999)においても、ガラス固化体の放射能は高い値を維持する。地下水中のNOMは廃棄体からの強い放射線に晒され、分解反応等により化学状態が変化すると考えられるが、その状況下において、核種との錯生成能に影響を及ぼす可能性についてはこれまで議論されてこなかった。そこで、NOMとして幌延URLの地下水から抽出されたフミン酸(HOU-HA)を用い、HAへの放射線照射線量がHAの酸解離反応に与える影響を評価した。

ガラス固化体表面における線量率は、1000年後に19 mSv/hであるという試算がある(原子力 発電環境整備機構, 2021)。したがって、オーバーパックの破損によって地下水がガラス固化 体に接触し、100年間滞留すると仮定すると、吸収線量は概算で15 kGyとなる。この試算を参 考に、本研究においては最大100 kGyの照射線量で実験を行うことにした。照射線量率は、19 mSv/h(おおよそ19 mGy/h)の場合、非常に弱いが、既往研究において、1 kGy/hおよび0.1 kGy/hの2つの線量率がHAの放射線分解に及ぼす影響は無視しうることが示されていることか ら、本研究では放射線照射施設(京都大学複合原子力科学研究所のコバルト60ガンマ線照射装 置)の仕様である0.6 kGy/hで行った。照射時間を制御することにより、10 kGy、50 kGy、100 kGyの照射線量で試料への照射を行った。線量率は0.6118 kGy/h(=4.60 kGy/h×減衰率DF 0.133)、照射環境(室温)は22±1℃であった。

HOU-HAの化学状態の分析は、全有機炭素(TOC)測定、紫外可視分光分析(UV-Vis)および酸解離滴定により行った。

ガンマ線照射前後の試料溶液の外観を図 3.3.2-12に示す。照射線量の増加とともに、容器の

ガラスの着色が進行しているが、溶液の色も同様に、淡茶色からより濃い色へと変化した。一般に、フミン物質(HS)のような有機化合物の暗褐色や褐色は、長くてランダムな共役二重結 合が分子の化学構造に含まれていることに由来する(和田信一郎,ホームページより参照)。共 役二重結合とは、単結合と二重結合が交互に連なった安定な結合状態を意味する。共役系が吸 収する光の波長は、共役系が大きくなるほど長くなる。HSには大きさや種類の異なる多くの共 役系が存在するため、可視光域で短波長から長波長にかけたなだらかな吸収スペクトルをもち、 そのために暗褐色や褐色に見える。HOU-HAにおいては、照射線量が高い方が暗褐色であり、 共役二重結合をもつ炭素鎖の長さや数が相対的に増加している可能性がある。しかし、他のHS においては、照射線量の増加とともに褐色が薄くなってから濃くなるという変化が見られる場 合もあり、メカニズムの詳細はまだ不明である。



図 3.3.2-12 ガンマ線照射前後のHOU-HA試料溶液の外観 (上:照射前、中:照射後、 下:照射後に無色PFA製容器への一部移し替え後。左から、0, 10, 50, 100 kGy)

各試料のpHを表 3.3.2-3に示す。pHは、照射線量とともに低下する傾向が確認された。また、 TOCの測定結果を図 3.3.2-13に示す。縦軸は総TOC濃度(mg_C/dm³)である。照射線量の増 加に伴い、TOCが最大2割程度減少した。これらの結果は、既往研究(Zhao et al., 2020)と一 致していた。溶液中のHOU-HAへのガンマ線照射によって、HOU-HAのカルボキシル基等から 炭酸ガスが生成して全有機炭素量が減少し、炭酸の溶解によりpHが低下した可能性が示唆され た。

表 3.3.2-3 HOU-HA試料のpHの照射線量依存性 照射線量(kGy) pН 0 (照射前) 6.10 10 6.01 50 5.74 100 5.47 100 総TOC濃度(mg/dm³) 90 80



図 3.3.2-13 TOCの照射線量依存性

図 3.3.2-14に各照射線量におけるHOU-HAのUV-Visスペクトルを示す。HAは不飽和結合や 芳香環といった共役系を多く有しており、この共役系がUV-Visスペクトルのピーク波長および 吸光度と相関がある。一般に、共役系が大きくなると吸収ピーク波長が長波長側にシフトし、 吸収ピークも大きくなることが知られている。スペクトルは204~205 nmに鋭いピークをもち、 長波長側に向けてなだらかに吸光度が低下した。照射線量が高いほどピーク値は減少する傾向 が見られたことから、HOU-HAの放射線分解が進行していることが示唆された。



図 3.3.2-14 各照射量のUV-Visスペクトル図(未補正)。縦軸は紫外可視光の吸光度、横軸 は光の波長を表す。

また、UV-Visスペクトルの特定の波長の吸光度やその比を比べることで、分子量や分子半径 など、HSの化学状態の相対比較ができることが知られている。表 3.3.2-4に、吸収スペクトルの 吸光度情報に基づくHSの化学状態の指標を示す。ここで、SUVAは、吸光度とTOC濃度の比であ り、下付き文字は用いた吸光度の波長(nm)を示す(Uyguner et al., 2005a)。

HT. T.L	北京市にたっては光小小台			
呼你	指標とされる化子 状態	义 厭		
SUVA ₂₈₀ ,	分子サイズ	Uyguner and Bekbolet,		
SUVA ₃₆₅	(値が低いほど小さくなる)	2005a		
UV ₂₈₀	π-π電子遷移、芳香族化合物量	Uyguner and Bekbolet,		
	(値が低いほど芳香族化合物が少ない)	2005a		
E250/E365	分子量	Enev et al., 2014		
	芳香族度	Valencia et al., 2013		
	(値が低いほど大きくなる)	Uyguner and Bekbolet,		
		2005b		
		Duarte et al., 2003		
E_{253}/E_{203}	芳香族性;ベンゼンに何がついているか	Korshin et al., 1997		
	(値が高いほどより多くの極性官能基をもつ)			
E465/E665	芳香族の緻密度	Enev et al., 2014		
	腐植化度(分子量、分子サイズ、酸素量と間接的な関係)	Valencia et al., 2013		
	(値が高いほど小さくなる)	Summers et al., 1987		
		Ghosh and Schnitzer,		
		1979		

表 3.3.2-4 吸収スペクトルの吸光度情報に基づくフミン物質の化学状態の指標

図 3.3.2-15に、SUVA280, SUVA365およびUV280の照射線量依存性を示す。SUVA280および SUVA365の値は、照射線量の増加に従って概ね一定か、やや減少する傾向にあり、分子サイズ の低下が顕著であるとは言い難い結果となった。UV280の値は、照射線量の増加に従ってやや減 少傾向するにあり、п-п電子遷移と関連する芳香族化合物の減少が進行している可能性が示唆 された。



次に、*E*250/*E*365、*E*253/*E*203および*E*465/*E*665を図 3.3.2-16に示す。これらの値は、光吸収が無視で きるほど小さい波長である900 nmにおける吸光度*E*900を0.0に合わせ、測定を行った際の最短波長で ある200 nmの吸光度*E*200を1.0とすることで、規格化して算出した。いずれの値も照射線量の増加に 従って値が増加していることから、それぞれ分子量の増大、芳香族環への官能基の付与および腐植 化度の増大が示唆された。しかし、上述のSUVA280、SUVA365およびUV280の値と、*E*250/*E*365、 *E*253/*E*203および*E*465/*E*665の値の傾向が示すHOU-HAの化学的特性の変化は必ずしも合致してい るとは言えず、これら5つの指標に合理的な解釈を与えるための更なる考察が必要である。



(左: 250 nm/365 nm、中: 253 nm/203 nm、右: 465 nm/665 nm)

表 3.3.2-4の指標に基づけば、HOU-HAの方が他のHAと比較して*E*₂₅₀/*E*₃₆₅値が高いことから、 分子量がより低いことが示唆された。また、*E*₄₆₅/*E*₆₆₅値は低く、芳香族の緻密度としての腐植 化度は大きいと考えられた。幌延深地層地下水には化石海水が含まれている。HOU-HAは他の HAよりも年代が古いと仮定すれば、腐植化度の進行を定性的に説明できるかもしれない。 次に、HOU-HAの酸解離特性を調べた。錯生成定数を定義する上で、有機酸をモル濃度 (mol/dm³:以下ではMと記述)で表すことが必要である。しかし、HSは組成不均質性をもつ 高分子電解質である。単純な有機配位子と異なり、ある程度の分子量分布をもち、HSの濃度を モル濃度で表せないため通常の錯生成定数の定義をそのままHSに適用できない。pH、金属イ オン濃度、HS濃度などの溶液条件により錯体安定性は異なる。この見かけの錯生成定数β_{app}は、 HS濃度をプロトンが解離した解離官能基濃度で表した以下の式で表される。

$$\beta_{app} = \frac{[ML]}{[M][R]}$$
(3.3.2-2)

この定義では、後述する電位差滴定により決定した解離官能基当量(eq/g)により、HSの重 量濃度(mg/dm³)から総官能基濃度(eq/dm³)および解離した官能基濃度[R](eq/dm³)を評 価する。HSの酸解離性官能基をプロトン化のしやすさによってカルボキシル基とフェノール基 の2つに分類、それぞれの官能基当量、平均の酸解離度、官能基不均質性などを考慮した式を用 いて、実験による解離官能基当量とパラメータフィッティングすることで、さまざまな溶液条 件における解離官能基濃度を予測する。電位差滴定法では非解離の官能基濃度を[HR](eq/dm³)、 見かけのプロトン化定数をK_{app.prot}とすると、

$$K_{\text{app,prot}} = \frac{[\text{HR}]}{[\text{H}^+][\text{R}]}$$
 (3.3.2-3)

と定義される。ここで、解離度a(・)は次式で表される。

$$\alpha = \frac{[R]}{[HR] + [R]} = \frac{1}{1 + \frac{[HR]}{[R]}} = \frac{1}{1 + K_{app,prot}[H^+]}$$
(3.3.2-4)

解離官能基当量(R) (meq/g) のHSが溶液V (dm³) 中にM (g) 溶解すると、[R]と(R)の関係 は、次式で表される。

$$[R] = \frac{(R)M}{10^3 V} \tag{3.3.2-5}$$

HSの2種類の官能基当量をそれぞれ C_1^W , C_2^W (meq/g)、解離度を α_1, α_2 とすると、前式より、

(R) =
$$C_1^W \alpha_1 + C_2^W \alpha_2$$
 (3.3.2-6)
= $\frac{C_1^W}{1 + K_{app,prot1}[H^+]} + \frac{C_2^W}{1 + K_{app,prot2}[H^+]}$ (3.3.2-7)

ここで経験則より、K_{app,prot}は次式で記述できるとする。

$$\log K_{\text{app,prot}} = \log K - m \log[\text{H}^+] - b \log[\text{Na}^+]$$

= log K + mpHc - b log[Na⁺] (3.3.2-8)

pHcが大きくなると解離度aは増加する。aが増加すると、HSは高分子であるため近接する解 離官能基どうしの電子的および静電的影響によりKapp,protは変化する。pHcが高い時はほとんど の官能基は解離しているが、pHcが低い、すなわち溶液中にプロトンが多く存在する場合は、 解離しやすい官能基だけが優先的に解離する。この影響を表わすのがパラメータmであり、HS の高分子電解質特性と不均質性を表わす指標である。また、溶液中の主な陽イオン(本研究で はイオン強度の調整にNaClを用いるためNa⁺)は負電荷の周りに集まり電荷を中和するため、 濃度が高くなればプロトン化は起こりにくくなる。bはこの影響度を表わすパラメータである。 但し簡単のため、Na⁺による電気的効果は両官能基に対して同様に起こると考え、bは両官能基 に対して共通とする。カルボキシル基とフェノール基の見かけのプロトン化定数をそれぞれ Kapp,prot1,Kapp,prot2とすると、

$$log K_{app,prot1} = log K_1 + m_1 pHc - b log[Na^+]$$
(3.3.2-9)
$$log K_{app,prot2} = log K_2 + m_2 pHc - b log[Na^+]$$
(3.3.2-10)

となる。これら2式より、式(5b)は次のように表せる。

(R)
$$= \frac{C_1^W}{1 + 10^{\wedge} \left[\left(\frac{\log K_1}{1 - m_1} - pHc \right) (1 - m_1) - b \log[Na^+] \right]} + \frac{C_2^W}{1 + 10^{\wedge} \left[\left(\frac{\log K_2}{1 - m_2} - pHc \right) (1 - m_2) - b \log[Na^+] \right]}$$
(3.3.2-11)

本実験ではイオン強度一定 (*I*=0.1) であり、Na濃度依存性は考慮しない (*b*=0)。式(3.2.2-2) におけるパラメータ $C_1^W, C_2^W, \frac{\log K_1}{1-m_1}, \frac{\log K_2}{1-m_2}, m_1, m_2$ を、電位差滴定法によって求める。電荷中和式は、

$$[H^+] + [Na^+] = [R] + [OH^-] + [Cl^-]$$
(3.3.2-12)

となる。ここで、本実験ではあらかじめ高純度窒素ガスを用いた脱気を行うなど処理をして おり、炭酸の影響は無視できるものとした。また水のイオン積*K*w=[H⁺][OH⁻]は、

$$\log K_{\rm w} = -13.78$$
 (I = 0.1, NaCl (Base et al., 1976)) (3.3.2-13)

である。滴定前の溶液の体積を V_0 (dm³)、滴下量 V_{add} (dm³)、Cl⁻、Na⁺の最初の濃度を C_a 、 C_b (M)、滴定液のCl⁻、Na⁺の濃度を C_a 、 C_b ⁻(M)とすると、

$$[Cl^{-}] = \frac{C_a V_0 + C_a \,' \, V_{add}}{V_0 + V_{add}} \tag{3.3.2-14}$$

$$[Na^+] = \frac{C_b V_0 + C_b \, V_{add}}{V_0 + V_{add}} \tag{3.3.2-15}$$

$$[R] = 10^{-pHc} + \frac{C_b V_0 + C_b ' V_{add}}{V_0 + V_{add}} - 10^{(pHc - K_w)} - \frac{C_a V_0 + C_a ' V_{add}}{V_0 + V_{add}}$$
(3.3.2-16)

式(3.3.2-16)からpHcとVaddより解離官能基濃度[R]を求めることができる。この[R]から式(3.3.2-5)によって解離官能基当量(R)を求め、式(8)の計算値(R)を最小二乗法によりパラメータフィッティングすることで各パラメータを求める。決定したパラメータから任意のpHcにおける解離官能基濃度の推算が可能になる。

HOU-HAの酸解離挙動を調べるために行った電位差滴定の滴定曲線の一例として、50 kGy の試料溶液を用いた滴定結果を図 3.3.2-17に示す。前述の通り、HOU-HAはカルボキシル基系 およびフェノール基系の官能基を有するため、滴定曲線は酸解離の当量点付近で緩やかにpHが 増加する形状をしていることが確認された。



図 3.3.2-17 HOU-HAの滴定曲線(50 kGy照射)

さらに、0 kGy(未照射)および10 kGy、50 kGy、100kGyのガンマ線を照射したHOU-HA について得られた解離官能基当量(R)(meq/g)を図 3.3.2-17に示す。照射線量に関わらず、 pHcの増加とともに(R)値が増加傾向にあることが分かった。滴定開始時の弱酸性域における (R)値は、10 kGyの照射で一旦増加し、更なる照射で減少した。一方、中性pH以降では線量の 増加とともに(R)値が減少する傾向が確認された。



pHcと滴下量のデータに基づいて、(R)値を算出し、最小二乗フィッティングによりパラメー タ値を決定した。(R)値のpHc依存性を図 3.3.2-19に示す。プロットは実験値であり、実線はフ ィッティング結果である。カルボキシル基系およびフェノール基系の(R)値の寄与をそれぞれ破 線および点線で示す。カルボキシル基系はpHc 6付近でほとんど全量が酸解離する一方、フェ ノール基系はpHc 5以下の領域では殆ど解離せず、pHc 8~10でおよそ半数が解離することが分 かった。図 3.3.2-18で示したように、解離官能基当量(R)は照射線量の増加とともに減少したが、 図 3.3.2-19ではフェノール基の(R)値には大きな変化が見られず、カルボキシル基の顕著な減 少が示唆された。

フィッティングにより決定したパラメータ $C_1^W, C_2^W, \frac{\log K_1}{1-m_1}, \frac{\log K_2}{1-m_2}, m_1, m_2$ をそれぞれ表 3.3.2-5に示す。 また比較のために既往研究で求められた値とともに示す。HOU-HAの酸解離平衡は、カルボキシル 基系の $\frac{\log K_1}{1-m_1}$ 値が3~4、フェノール基系の $\frac{\log K_2}{1-m_2}$ 値が9~10程度で大きな変動が見られなかった。他 のHSにおいても同様の数値が得られており、今回の電位差滴定によるフィッティング結果は妥当であ ると考えられる。カルボキシル基当量 C^{W_1} は照射線量の増加に伴って大きく減少した。但し、未照射で の値は、他のHSと比して低く、HOU-HAに含まれるカルボキシル基系の官能基が少ないことが特徴 である。また、フェノール基当量 C^{W_2} は、10 kGyで減少し、50 kGyで増加、更に100 kGyでまた減少と いう特異な変化傾向を示した。放射線分解反応によるものか、今回の滴定実験による影響かは現時点 で結論付けることは困難であり、更なる実験的検証が必要である。



	照射線量	C_1 W	C_{2}^{W}	$\log K_1$	$\log K_2$		
HOU-HA	[kGy]	[meq/g]	[meq/g]	$1 - m_1$	$1 - m_2$	m_1	m_2
I = 0.1, NaCl	0	4.98	3.38	4.58	9.60	0.07	0.65
	10	3.97	2.83	3.76	9.47	0.24	0.76
	50	2.33	4.42	5.24	9.62	0.01	0.67
	100	2.31	3.65	4.71	9.21	0.03	0.66
SHA (Zhao et a	1., 2020)						
<i>I</i> = 0.01, NaClO ₄	0	9.61	3.40	4.48	10.12	0.52	0.14
	10	8.85	3.85	4.76	9.51	0.50	0.08
	50	6.89	4.81	4.51	9.43	0.42	0.15
	100	4.51	4.47	3.46	9.76	0.32	0.07
ALHA (Zhao et al., 2020)							
I = 0.01, NaClO ₄	0	9.30	3.17	4.43	10.11	0.34	0.24
	10	8.87	3.57	4.46	9.68	0.31	0.21
	50	6.31	4.13	4.10	9.71	0.37	0.16
	100	4.41	4.24	3.21	9.87	0.42	0.16
SFA (Zhao et al	l., 2020)						
<i>I</i> = 0.01, NaClO ₄	0	12.23	4.01	3.63	9.47	0.41	0.22
	10	10.46	4.06	3.16	9.31	0.37	0.12
	50	6.45	4.57	3.33	9.23	0.32	0.09
	100	4.31	4.38	3.06	9.19	0.38	0.02

表 3.3.2-5 フィッティングで決定したパラメータ

3) 三元系モデル構築に向けた岩石-有機物-核種-炭酸イオンの相互作用評価

核種移行に対する天然有機物の影響を定量的に評価するために、天然有機物として腐植物質の一種であるフミン酸(HA)、核種としてアクチニドのアナログ元素となるEu(III)を用い、核種・ 有機物・岩石三元系収着モデルの検討を行っている(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,2023)。ここでは、EuとHAとの錯体が岩石に収着しなくなると仮定 し、Euの岩石への収着とEu・HA錯体の形成の2つの反応のみを考慮した単純な収着モデルを用 いてEuの岩石への分配係数Kaの計算を行ったところ、計算値と実験値に乖離があることがわか った。この原因としては、三元系収着モデルに考慮していない現象が収着挙動に影響している 可能性が考えられた。したがって、三元系収着モデルの構築に向けて、現象理解を深める必要 がある。これまで、核種と岩石間の反応や、他の配位子が共存しない純粋な系における核種と 有機物間の反応が調べられてきた一方で、有機物と岩石間や、地下水成分の共存下における核 種と有機物間の反応はあまり調べられておらず、核種・有機物・岩石三元系収着モデルにおいて、 それらの影響を考慮することができなかった。そこで、本事業においては、三元系収着挙動の モデル化に必要な現象を明らかにするために、HAの岩石への収着挙動および錯形成に影響し 得る地下水成分である炭酸イオンが及ぼすEu(III)とHAとの錯形成への影響を調べることにし

た。

天然有機物が豊富に存在する地下水中には、有機物の分解の過程で生じる炭酸イオンが共存 している。炭酸イオンは金属イオンと錯体を形成することから、炭酸イオンの存在は、Eu-HA 錯体の生成量や形態に影響する可能性がある。そこで、炭酸イオンがEuとHAとの錯形成に及 ぼす影響を明らかにするため、Eu錯体の状態をEuの蛍光から調べることができる時間分解レ ーザー誘起蛍光分光法(TRLFS)を利用して、HAおよび炭酸イオンの共存下におけるEuの錯体 の種類や量を調べる予察的な実験を行った。令和5年度の試験においては、Eu濃度などの溶液 条件を検討し、データ取得可能な条件を決定することができた。今後、データの取得を継続し、 炭酸共存下におけるEu-HA錯体の状態について明らかにする予定である。

核種・有機物・岩石三元系モデルの開発に向けて、三元系におけるEuの岩石への収着に及ぼす HAの岩石への収着の影響を明らかにするために、HAの岩石への収着挙動を調べる予察的な実 験を行った。

HAには、I-125で放射性標識された、国際腐植物質学会(IHSS)の標準HAであるLeonardite HA(LHA)を用いた。LHAへのI-125の付加は、タンパク質への放射性ヨウ素の付加に用いられ るヨードゲン法により行った(Fraker and Speck, 1978)。ヨードゲン法によるヨウ素化は、ヨ ードゲン(1,3,4,6-tetrachloro-3a,6a-diphenylglycouril)により酸化された¹²⁵IによるHAのフェ ノールのオルト位での求電子置換反応によって行われる。

収着試験は、表 3.3.2-6に示した条件に従いバッチ法により大気下で実施した。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NaHCO3を加えて調整し、NaOHを添加することでpH調整を行った。 また、核種の有無によりHAの収着に差があるかどうかを調べるために、Euの添加の有無によ るHAの収着挙動の違いも調べた。LHA以外の成分を含む溶液と固相とを混合する前平衡を7日 間実施し、サンプリングは、予察的にLHAを添加してから(試験開始)4日後に行った。HA濃 度はNaI(TI)シンチレーションスペクトロメータを用いて測定したI-125濃度から算出し、分配 係数(Ka)を計算した。Kaは、以下の式(3.3.2-17)から計算した。

$$K_{\rm d} = \frac{C_0 - C}{C} \cdot \frac{V}{m}$$
(3.3.2-17)

ここで、*C*₀は液相中のLHAの初期濃度、*C*はサンプリングした液相中のLHA濃度、*V*は試験 溶液の液量、*m*は固相の重量である。本試験においては、LHAの添加量から初期濃度を算出し、 孔径0.45 µmのメンブレンフィルターによるろ過後のろ液中のLHA濃度を液相の濃度として分 配係数を算出した。

 Eu初期濃度/ mol dm⁻³
 0, 1.0×10⁻⁶

 HA初期濃度/ mg dm⁻³
 10

 イオン強度/ mol dm⁻³
 2.0×10⁻²

 全炭酸濃度/ mol dm⁻³
 1.0×10⁻⁴ - 5.0×10⁻²

 pH
 8.7±0.2

 固液比/ g dm⁻³
 100

 遠沈管材質
 ポリプロピレン

表 3.3.2-6 収着試験の条件

岩石へのLHAのKaの炭酸濃度依存性を調べた結果を図 3.3.2-20に示す。pHは9近くと高い値

ではあるが、LHAは岩石に収着していることが確かめられた。Euの存在の有無によってLHA のKaの値にはそれほど差がなかった。もしもEuの岩石への収着など、この系で起こる反応が可 逆反応ではなかった場合、EuやHAの添加の順番によって結果が変わる可能性はあるが、今回 の条件においては、LHAの岩石への収着は、Euが関係する反応と競合していないと考えられた。 また、炭酸濃度が高くなるとLHAのKaの値が小さくなったことから、炭酸が岩石のLHAの収着 サイトや、LHA自体に影響する可能性が考えられた。



図 3.3.2-20 Euを添加した場合としていない場合の、 LHAの幌延堆積岩への分配係数の水相中の炭酸濃度依存性

HAの岩石への収着は、水相中のHA濃度に影響して錯体の生成量に多少影響すると考えられる。三元系収着モデルを構築するために、今後データの取得を継続して行う必要がある。

4) 計算科学的手法によるEu-フミン酸錯体の相互作用の評価に向けたEu水和構造の計算

地下水に溶存する天然有機物には、放射性核種を吸着する性質を持つものがある。幌延で は、地下深部有機物(フミン酸等)とユーロピウム(Eu)の錯形成及び収着データを多様な条件で 取得し、錯形成モデルや収着影響評価を試行中である。その一環として、本研究では、分子シ ミュレーションを用いて、有機物とEu等のランタノイド系元素イオンの相互作用を評価し、 吸着メカニズムの解明等を目指す。

令和5年度は、有機物とユーロピウム(Eu)イオン等ランタノイド系元素イオンの相互作用に おいて、重要で基本的な役割を果たす水和構造についてのシミュレーションを開始した。本研 究における最も重要な課題は、Euイオンの電子状態が強い電子相関効果を考慮可能な計算手法 を利用する必要がある点である。本研究において、種々のシミュレーション手法を検討した結 果、量子化学計算法と水分子との相互作用を計算するQM/MM法を構築し、Euイオンの水和構 造のダイナミクス計算により配位数等の特定を行う必要があるという結論に達した。本研究で は、上記計算手法の構築に取り組み、孤立系を扱うADFソフトウェアを利用して、対象とする 元素イオンはEu³⁺、Gd³⁺、Tb³⁺とし、溶媒の取り扱いと境界に関してはQM/MMおよび (SA)FIRES、力場はUFFと定めた。451個の水分子の中にあるGd³⁺イオンについてスーパーコ ンピュータ上でQM/MM計算を実施し、計算コストの見積もりを行った。この計算で得られる 計算を基に、今後のランタノイド系元素イオンの水和構造の動的ダイナミクスの計算科学研究 に向けた、モデル構築の手順を策定した。



図 3.3.2-21 Eu³⁺イオンの水和構造

【まとめと今後の課題】

令和5年度は、天然有機物と放射性核種の相互作用を考える上で基礎となる、放射性核種の水和 構造の評価に向けて、計算手法の検討とモデルの構築を行なった。その結果、十分に多くの水 分子数と電子送還効果を考慮する必要があることから、量子化学と古典力学を併用して水分子 との相互作用を計算するQM/MM法を用いることを決めた。そして、Gd³⁺イオンの水和構造の テスト計算を実施し、モデル構築から計算実施までの手順を策定した。

5) 粘土鉱物と有機物の相互作用の分子動力学計算による評価

地層処分施設における緩衝材や岩石中の核種移行を評価する上で、地下水中に含まれるフミン酸等の有機物が核種移行に及ぼす影響を把握する必要がある。このため、緩衝材や岩石中に含まれるモンモリロナイト、イライト等の粘土鉱物を対象に、フミン酸などの有機物との相互作用を分子動力学(molecular dynamics, MD)シミュレーションを用いて評価することを試みる。具体的には、粘土鉱物とフミン酸等の有機物が共存する系をMD計算によって評価する手法を、先行研究をレビューしつつ構築するとともに、粘土鉱物の種類、同形置換の量や位置、層間陽イオン種等を変化させた条件で計算を行い、粘土鉱物層間への有機物のアクセス性や吸着挙動を明らかにするものである。

これまでの研究において、地下水に存在する有機物の影響を核種移行評価に取り込むことが 試みられてきたが、腐植性有機物への放射性核種の吸着機構や錯体形成反応は、不明な点が多 い。また、不定形でかつ多様な化学形態である腐植性有機物を実験的に取り扱うことは困難で ある。このため、腐植性有機物が放射性核種の移行挙動に与える影響や、安全評価上での定量 化やモデル化を行った研究は、極めて限定されているのが現状である。MD計算では、計算コス トの問題から原子数に限界はあるが、分子量やカルボキシル基の分率など、定量的に腐植性有 機物構造をモデル化することが可能であり、実験が困難な条件でもシミュレーションによって 情報が得られる。しかしながら、腐植性有機物と粘土鉱物が共存する系にMDシミュレーショ ンが適用された研究は、今のところ少ない(Ji et al., 2016; Petrov et al., 2017; Loganathan et al., 2020; Guo et al., 2021; Galicia-Andrés et al., 2021) 。最近、フミン酸のモデルを構築する ためにVienna Soil Organic-Matter Modeler 2 (VSOMM2)が開発され (Escalona et al., 2021)、 特定の条件をインプットとして入力することで、MD計算のためのフミン酸構造をモデル化で きるようになった。

本節では、粘土鉱物、フミン酸、及び水が共存する系をモデル化し、MDシミュレーションを 用いて粘土層間でのフミン酸の存在形態を評価した。フミン酸モデルは、VSOMM2を用いて作 成した。対象とする鉱物は、パイロフィライト: Al₂Si₄O₁₀(OH)。(層電荷はもたない)及びモン モリロナイト: $E_{0.482/m}^{m+}$ ($Al_{1.554}$ Fe $_{0.102}^{3+}$ Mg $_{0.334}$)(Si_{3.852}Al $_{0.148}$)O₁₀(OH)₂ (層電荷=0.482 (e^{-1}) Si_4O_{10})とする。ここで E^{m+} は、m価の陽イオンであり、本解析では Na^+ あるいは Ca^{2+} とする。 また、フミン酸内に存在するカルボキシル基の分率(単体の炭素原子数に対するカルボキシル 基の炭素の個数、以下分画と呼ぶ)は、0.11, 0.13, 0.15, 0.17, 0.19のバリエーションで設定し た。プロトンが解離したカルボキシル基(≡ COO⁻、以下カルボン酸と呼ぶ)は負に帯電してお り、系を電気的に中性化させるため、対イオンとしてNa⁺あるいはCa²⁺を共存させる。したがっ て、層電荷をもつモンモリロナイトの系では、粘土鉱物に対する対イオンとともにフミン酸に 対する対イオンが存在する。ただし、対イオンの種類は粘土鉱物とフミン酸に対して同一種類 のものを設定する。したがって、分画が同一の系に対して、フミン酸の対イオンがNa⁺であるパ イロフィライトの系 (Na-pyroモデル)、フミン酸の対イオンがCa²⁺であるパイロフィライトの 系(Ca-pyroモデル)、フミン酸と粘土鉱物の対イオンがNa⁺であるモンモリロナイトの系(Namontモデル)、フミン酸と粘土鉱物の対イオンがCa²⁺であるモンモリロナイトの系(Ca-mont モデル)の4ケースが存在する。すべての系において、粘土層間に存在するフミン酸は20分子と し、フミン酸に係る原子数は合計1200個程度とする。粘土層間にはフミン酸分子の他に水分子 が存在し、層間幅を7 nmに設定して水の密度が1.0 g/cm³になるように、水分子数を調整した。 初期構造を10Kで平衡化し、300Kまで1K/psのペースで昇温した。系が300Kに達した後、90 ns間のシミュレーションで系を平衡化し、その後の10 ns間で状態をサンプリングして構造解 析を実施した。MD計算はすべて、300 K, 0.1 MPaのNPTアンサンブルとした。シミュレーシ ョン・コードはLAMMPS (Thompson et al., 2021)を用い、VSOMM2で生成されるフミン酸 にはGROMOS 54A7力場(Escalona et al., 2021)を、粘土鉱物にはClayFF力場(Cygan et al., 2004; 2021)を、また水分子にはSPCモデル(Teleman et al., 1987)適用した。

Carboxyl fraction = 0.11

60 ns	80 ns	100 ns		

Carboxyl fraction = 0.19



図 3.3.2-22 Na-pyroモデルの粘土層間におけるフミン酸の分布。時間経過に伴うスナップ ショットを示す。上の4枚は分画が0.11のケース。下の4枚は分画が0.19のケース。各原子の色 は、Si:青、O:赤、AI:銀、H:白、C:茶、N:灰、Na:黄、Ca:青、N:シアン

MDシミュレーションの結果を、以下に示す。図 3.3.2-22は、Na-pyroモデルの粘土層間にお けるフミン酸分子の分布が時間経過とともに変化していく様子を示すスナップショットである。 上の4枚のパネルは分画が0.11のケースであり、下の4枚のパネルは分画が0.19のケースである。 図のz軸はベーサル面に垂直な方向であり、各パネルの上下に図示された板状の構造物は粘土鉱 物の結晶層である。フミン酸分子と層間陽イオンをわかりやすくするため、層間の水分子は省 略している。フミン酸分子自体は負に帯電しているため、静電的には反発しあうと考えられる が、対イオンを介して結合し、凝集体クラスターを形成する場合があり得る。ここでは、力場 のポテンシャル関数を考慮して対イオンから0.3 nm以内にフミン酸分子の(プロトンが解離し た)カルボキシル基が存在するとき、フミン酸と対イオンは結合していると判断した。図 3.3.2-22を見ると、フミン酸分子や対イオンが凝集した初期構造から時間経過とともに、層間内 で分子や対イオンは互いに分散し、比較的均質に分布しているように見える。分画が変化する と、カルボン酸と対イオンの個数が変化するため、分画が0.11と0.19のケースで一見異なるよ うに見えるが、分散する傾向は同様である。分画の他のケース(0.13, 0.15, 0.17)も、その意 味で同様の傾向を示したため、ここでは省略した。カルボン酸と対イオンの層間内での密度分 布を評価すると、層電荷をもたないパイロフィライトの場合でもベーサル面近傍で両者ともピ ークをもつことが確認された。これは、ベーサル面の酸素原子が極性をもち、層間中央に比べ て水分子が少ないベーサル面近傍では誘電的な理由からイオンと表面極性との相互作用が強ま るためであると考えらえる。

Carboxyl fraction = 0.11



Carboxyl fraction = 0.19



図 3.3.2-23 Ca-pyroモデルの粘土層間におけるフミン酸の分布。時間経過に伴うスナップ ショットを示す。上の4枚は分画が0.11のケース。下の4枚は分画が0.19のケース。各原子の色 は、Si:青、O:赤、AI:銀、H:白、C:茶、N:灰、Na:黄、Ca:青、N:シアン

図 3.3.2・23は、Ca-pyroモデルの粘土層間におけるフミン酸分子の分布が時間経過とともに 変化していく様子を示すスナップショットである。上の4枚のパネルは分画が0.11のケースであ り、下の4枚のパネルは分画が0.19のケースである。フミン酸分子やその対イオンは、Na-pyro モデルの場合とは対照的に、時間が経過しても分散せず、凝集した初期構造の形状を保持した ままベーサル面に接近していくことがわかる。フミン酸・対イオン凝集体がベーサル面に接近 する理由は、Na-pyroモデルの場合と同様に、イオンと表面極性との静電相互作用によるもの と考えられる。負に帯電しているフミン酸分子同士が凝集した状態を保持できる理由は、フミ ン酸分子の結合を媒介するCa²⁺が2価イオンであり、Na-pyroモデルの場合に比べて強い結合力 を生み出すため、初期構造の段階ですでに凝集体クラスターを形成している可能性が考えられ る。しかしそれだけが理由ならば、Na-pyroモデルの場合でも、Ca-pyroモデルに比べて緩い結 合ではあるが、サイズの大きな凝集体クラスターとして形状を保持するものと思われる。とこ ろが図 3.3.2・22を見る限り、Naイオンはフミン酸分子を結合するものだけではなく、結合に関 わらずに分散しているものも存在している。

Carboxyl fraction = 0.11

0 ns	60 ns	80 ns	100 ns

Carboxyl fraction = 0.19



図 3.3.2-24 Na-montモデルの粘土層間におけるフミン酸の分布。時間経過に伴うスナップ ショットを示す。上の4枚は分画が0.11のケース。下の4枚は分画が0.19のケース。各原子の色 は、Si:青、O:赤、Al:銀、H:白、C:茶、N:灰、Na:黄、Ca:青、N:シアン

そこでここでは、フミン酸分子が分散/凝集するメカニズムを理解するため、フミン酸分子 を負に帯電したコロイド粒子と仮定して、最も単純なDLVO理論(Israelachvili, 2011)を適用 して考察する。例として分画が0.15の系を考えると、初期構造(フミン酸分子が20個分離いて いる状態)でのフミン酸1分子の表面電荷密度は、フミン酸1分子を半径0.7 nmの球体と仮定し て、約-0.1 C/m²となる。このフミン酸分子が対イオン雰囲気のなかに存在するとき、フミン酸 分子同士には多体系の静電相互作用により、電気二重層の重なりによる斥力が作用する。一方、 フミン酸分子間には、電荷の有無に関係なく、ファンデルワールス引力が作用している。フミ ン酸分子に対するHamaker定数が明らかではないが、粘土鉱物やアルカン系と同程度と考え、 5×10⁻²⁰J(Hunter, 2001)と仮定して計算する。その結果、初期構造においてフミン酸分子同 士の表面間が水分子1層分程度(約0.4 nm)の距離だけ離れていると仮定すると、対イオンが Na⁺の場合には電気二重層斥力が優勢になり、フミン酸分子は互いに反発しあうが、対イオン がCa²⁺の場合には逆にファンデルワールス引力の方が優勢になり、フミン酸は互いに引き合っ て凝集する。これは、ファンデルワールス引力は電荷に依存せず普遍的に作用するが、電気二 重層による斥力の方は対イオンの価数が高くなると価数の2乗程度で弱くなるためである。フ ァンデルワールス引力は、特に短距離で強く作用し、一方電気二重層による斥力は、長距離で 支配的な力となる。したがって、仮に初期構造においてフミン酸分子同士の表面間距離がもっ と狭い場合ではNa⁺型の系でも凝集した状態のまま推移し、逆に初期構造として十分な分子間 距離をとっていたならば、Ca²⁺型の系でも凝集することなく、時間経過とともに分散していた と思われる。しかしながら、この考察には種々の仮定が含まれるため、シミュレーションにお ける設定条件の妥当性も含め、更なる検討が必要である。

図 3.3.2・24は、Na-montモデルの粘土層間におけるフミン酸分子の分布が時間経過とともに 変化していく様子を示すスナップショットである。上の4枚のパネルは分画が0.11のケースであ り、下の4枚のパネルは分画が0.19のケースである。Na-montモデルでは粘土結晶層に層電荷を 有するため、図 3.3.2・22の場合とは異なり、たとえ分画の値が同じ場合でも層間に存在するNa イオンの個数は層電荷の分だけ多くなる。モンモリロナイトの層電荷を中性化するNaイオンは ベーサル面近傍に分布し、電気二重層を形成している様子が確認できる。初期構造から時間経 過とともにフミン酸分子が分散していく様子は、Na-pyroモデルの場合と基本的に同じであり、 上記の考察で見たように、初期状態においてファンデルワールス引力よりも電気二重層による 斥力の方が優勢であるためと考えられる。



Carboxyl fraction = 0.11

Carboxyl fraction = 0.19



図 3.3.2-25 Ca-montモデルの粘土層間におけるフミン酸の分布。時間経過に伴うスナップ ショットを示す。上の4枚は分画が0.11のケース。下の4枚は分画が0.19のケース。各原子の色 は、Si:青、O:赤、Al:銀、H:白、C:茶、N:灰、Na:黄、Ca:青、N:シアン

図 3.3.2-25は、Ca-montモデルの粘土層間におけるフミン酸分子の分布が時間経過とともに 変化していく様子を示すスナップショットである。上の4枚のパネルは分画が0.11のケースであ り、下の4枚のパネルは分画が0.19のケースである。Na-montモデルの場合と同様に、モンモリ ロナイトの層電荷に対するCaイオンが存在し、それらはベーサル面近傍で電気二重層を形成し ている。図 3.3.2-23のCa-pyroモデルの場合と同様に初期構造の凝集状態を保持しているが、 Caイオンを介してモンモリロナイトの層電荷とも相互作用するため、凝集体クラスターはベー サル面間で引き延ばされたような歪な構造をしていることが確認できる。

次に、フミン酸分子の分散/凝集に与える分画の影響を調べるため、各ケースにおける凝集

体の個数を評価した。図 3.3.2-26の左図は、各ケース・各分画の値における凝集体クラスター の個数をプロットしたものであり、横軸は分画の値を表す。また右図は、1クラスター当たりの 平均分子量を表している。対イオンがCaイオンの場合、Ca-pyroモデル及びCa-montモデルの いずれのケースでも分画の値に依存することなく、20個のフミン酸分子が1つのクラスターを 形成していることが確認できる。一方、対イオンがNaイオンの場合は、分画の上昇とともにク ラスターの個数も増加する傾向を示している。これは、分画が増えるとフミン酸分子内のカル ボン酸の数が増えるため、フミン酸分子の表面電荷密度が上昇し、電気二重層の重なりによる 斥力が増加するためであると考えられる。またNa-montモデルの方がNa-pyroモデルの場合に 比べてクラスターの個数が相対的に少ないのは、モンモリロナイト結晶が層電荷を有するため、 フミン酸分子はベーサル面近傍を避けて層間中央に分布する割合が高くなり、その結果、クラ スターを形成しやすくなっているものと思われる。



図 3.3.2-26 各ケース・各分画の値における凝集体クラスターの個数(左)、及び1クラスター 当たりの平均分子量(右)

本解析では、地下水中に含まれるフミン酸が核種移行に及ぼす影響を評価するため、粘土鉱物の層間間隙にフミン酸分子とその対イオンを配してモデル化し、MDシミュレーションを用いてフミン酸分子の挙動を解析した。その際、粘土鉱物の層電荷の有無、対イオンの種類、フミン酸分子に存在するカルボキシル基の分率(分画)を変化させて、その感度を評価した。その結果、対イオンがNa型の場合は、フミン酸分子は時間とともに分散するが、Ca型の場合は1つの凝集体としてクラスター構造を保持した。Na型の場合に分散する傾向は、分画が増加するに従って顕著になることがわかった。また、フミン酸分子のこれらの挙動は、粘土鉱物の層電荷が変化しても、同様の傾向を示すことがわかった。これらの結果は、フミン酸分子を負に帯電したコロイド粒子と仮定してDLVO理論を適用することで、おおむね理解できることが示された。

(3) 微生物代謝影響

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) (図 3.3.2-27) 、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。一方で、地層処分場の操業から閉鎖におけるフェーズでは、施工に関わる人的な活 動が伴うため、もともと地下に生息していた微生物だけでなく、処分場建設に使用される様々 な建設材料、緩衝材として用いられるベントナイトや埋戻しに使用される材料を通じて、地上 から様々な微生物が混入することが想定される。また、処分場閉鎖時にはベントナイトや掘削 ズリ等の埋戻し材料の使用が検討されているが、これらの埋戻し材料は処分場の大規模な領域 で使用が想定されることから、埋戻し領域における還元環境回復にはかなりの時間を必要とす る可能性がある。さらに、これらの埋戻し材料が微生物の増殖に影響を及ぼす可能性も十分に 考えられる。

そこで本課題では、処分場建設や処分場閉鎖後のフェーズにおける施設近傍の地球化学変遷 について、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、幌延堆積岩地下施 設周辺を事例とした調査研究を実施し、微生物分布特性と代謝活性変化に関する知見を拡充す る。また、処分場閉鎖後の環境を想定した埋戻し材の還元環境回復現象や埋戻し材が微生物の 代謝活性や酸化還元状態に及ぼす影響評価を行い、処分場閉鎖後の核種移行シナリオの構築に 必要な知見を拡充する。取得した知見をもとに、微生物細胞への収着・濃集・取込み反応等に 関する核種と微生物との相互作用現象に関する誓いを進めるとともに、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提示する。令和5年度は、堆積岩地 下環境における微生物の分布特性評価と環境変遷に伴う代謝活性変化に関する知見を拡充する ために、幌延堆積岩を事例として、地下水および岩石を対象とした評価を実施した。



図 3.3.2-27 核種移行における微生物影響の概念図

2) 地下施設近傍の微生物種の空間分布と代謝変化に関する評価

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。これまでに、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)(図 3.3.2-28) 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おり、令和5年度もモニタリングを継続し、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。

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

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、V4-5 regionのプライマーを用いた。 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 2100 BioAnalyzer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しており、特に 08E140C01孔の区間5(深度163m)、区間3(深度185m)および区間1(深度214m)、09V250M02 孔(深度250m)では、ボーリング孔設置後の観測当初から約9年間で著しく変化していること が示された(図 3.3.2-28 (a)(c))。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4~20 mの領域であったが(図 3.3.2-28 (b)、(c)、(d))、坑道壁面から比較 的離れた領域においてもSM1種の割合が経時的に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140mの調査坑道から掘削された掘削長100mのボーリング孔(08-E140-C01 孔) で確認され、調査坑道が整備された後ボーリング孔が掘削されてから7~11年後までは、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30m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、 ボーリング孔掘削後から約12年が経過すると、バイオフィルムの形成領域が坑道壁面から離れ た31-46m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 3.3.2-28(a))。一方で、深度140mおよび350mにおいては、その構成種の割合には 変化が認められるものの、構成種はほとんど変化していないことが示された(図 3.3.2-28)。 これらの試料は、坑道壁面から比較的近い領域であることから、ボーリング孔掘削直後に微生 物群集が速やかに変化している可能性が考えられた。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250m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CO2あるいは炭酸イ オンを利用する能力を有することがゲノム解析の予察的な結果から推定されており、SM1が優 占的にバイオフィルムを形成しているのは、幌延の地下環境に豊富に存在するCO₂を炭素源と して利用することができるためであると考えられる。したがって、SM1が広域に渡って検出さ れてきた要因として、坑道周辺の水圧低下に伴う脱ガスにより炭酸分圧が変化し、SM1の増殖 に適した炭酸ガス濃度の環境が広がっているものと考えられる。今後も地下施設建設・施設維 持の期間の長さに応じて、周辺水圧が低下し脱ガスが生じることで、バイオフィルム形成領域 が拡大すると予測される。既存の研究成果から、バイオフィルムは微生物細胞から細胞外高分 子物質(EPS)が生成され、微生物細胞とEPSで形成された膜であるバイオフィルムは、核種 を含む様々な元素に対して高い収着能力を有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; 日本原子力研究開発 機構・原子力環境整備促進・資金管理センター、2023)。したがって、地下施設近傍におけるバイ オフィルム形成領域の拡大現象は、地層処分システムの核種移行挙動において遅延効果をもた らすと推察される。一方で、長期にわたる地下施設建設過程で、処分場閉鎖後の岩盤中の核種 移行の場がどの程度変化するのか、あるいは閉鎖後速やかに元の地下環境の状態に回復するの かについては、長期的な視点も含めて今後評価をしていく必要がある。また、これまでに幌延 URLにて観測されている現象が、幌延地域に特有であるのか、あるいは一般化が可能な現象で あるのかについても評価を進めるべきと考える。そこで、地下施設建設に伴う脱ガス現象・溶 存ガス成分やベントナイト等の埋戻し材料がバイオフィルム形成領域や微生物代謝の変化に及 ぼす影響評価を行うために、原位置環境を模擬した条件下にて微生物培養試験系を立ち上げた。 処分場建設・操業~閉鎖のフェーズにおける微生物代謝に及ぼす影響を明らかにするために、 今後もデータを取得して評価を行う必要がある。



図 3.3.2-28 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
一方で、地下施設周辺の地下水中における微生物代謝機能の経時変化に関する解析を行うに あたり、これまでに様々な空間・時間スケールにおいて採取された微生物ゲノムデータについ て、生物ゲノムの類似性を比較した。その結果、構築された451ゲノムのうち、99の異なるゲノ ムクラスターが同定され、各クラスターはゲノムアラインメントの95%以上で99.5%以上の平 均ヌクレオチド同一性(Average nucleotide identity; ANI)を共有するゲノムで構成されてい ることが明らかになった。ANIはアセンブル後の配列を使って、全ゲノム比較を行い、アライ ンメントが取れた領域について類似度を計算する解析であり、比較する生物種がどの程度近縁 かを確認するのに有効である。99のクラスターのうち、17は異なる年にサンプリングされた同 じ場所の生物のみで構成されていた。例えば、08E140C01の163mから採取された、998、424 bpの完全ゲノムを手動でキュレーションしたPeregrinibacteriumは、同じサイトから1年後に 採取されたゲノム(993 kbpで100%のANI)とゲノム全体で99.997%のANIを共有しており、 この遺伝子型は過去4年間の解析すべてで検出された。残りの83%のクラスターは、幌延URL での異なる深度から採取されたメンバーを含み、再構築された全ゲノムの31%に相当すること が明らかになった。深度140mから採取された微生物群は、他の深度の生物とクラスター化する ことが最も少なかったが、一部は深度250mの微生物群とクラスター化されることが示された。 驚くべきことに、いくつかのクラスターには、平均ペアワイズANI値が99.997%を超える異な るサイトのゲノムが含まれていた。例えば、それぞれ4つの異なる深度から採取された Saccharibacterium, Clostridium, Syntrophobacterales, Gammaproteobacteria $\mathcal{O}\mathcal{F}/\mathcal{L}\mathcal{O}$ クラスターのペアワイズANI値はすべて99.98%以上であった。このように、非常に近縁な微生 物種が、岩石によって隔てられた深度の異なる領域に生息していることが明らかになった。以 上のことから、幌延の堆積岩地下環境においては、空間的に種の均一性が非常に高いことが示 唆された。Mochizuki & Ishii (2023)は、水理地球化学的な解析結果から、最終氷期までに割れ 目を通じて天水が侵入したものの、その後は海水準の回復などによる動水勾配の低下により、 地下施設周辺の少なくとも140m以深には後氷期の天水は浸透していないことが示されている。 また、各化学成分の移行は亀裂を通じた移流ではなく拡散に支配されていることが示唆されて いることからも、最終氷期以降は、これらの化学成分よりもサイズの大きい微生物については、 亀裂を通じた移行は生じていないと考えられる。したがって、幌延地下環境における微生物の 移動速度は、突然変異速度に比べて十分に大きく、実質的な種の分岐を制限している可能性が あり、その要因として地下水流動が非常に緩慢であることや増殖速度が小さいことが考えられ た。

このような堆積岩環境における微生物ゲノムの保存性に関する知見は、地下環境の安定性を 検証するための一つのナチュラルアナログ的な指標として有効である可能性がある。

3) 地下環境の堆積岩内部における微生物分布特性とその元素との相互作用に関する評価

水界環境に生息する多くの微生物は、固体表面に付着し、そこで増殖して細胞外高分子物質 (Extracellular polymeric substances: EPS)を生成する。これらの微生物集団とEPSによって形成される高次構造体をバイオフィルムといい(Flemming and Wingender, 2010; O'Toole et al., 2000)、地球上の9割以上の微生物が自然環境中にバイオフィルムの形態で存在するともいわれている(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、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5年度は、令和4年度までに資源エネルギー庁受託事業「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)」において取得された、掘削流体による汚染評価が可能な岩石コア試料を活用した。

掘削流体による岩石コア試料内部の汚染の有無を評価するために、掘削泥水に紫色の蛍光顔 料SW-147(シンロイヒ社)を、密度10⁹個/mlになるように添加し、掘削した岩石コア試料のう ち、HFB-1 C11(深度499.60-499.75 mbgl)を分析対象として用いた。岩石コア試料は、岩石 カッター、精密ダイヤモンドバンドソーを用いて薄片に加工した(図 3.3.2-29)。



図 3.3.2-29 稚内層のコア岩石試料HFB1-C11(深度499.60-499.75 mbgl, 左)からの薄片作 成。岩石カッターで5つに切断した後(中)、ダイヤモンドバンドソーを用いて、赤い枠で示す2 つの塊から、亀裂表面を分析できる薄片をそれぞれ作成した。

研磨した薄片中の微生物細胞を可視化するために、細胞中のDNAをSYBR Green I (TaKaRa-Bio, Inc.)で蛍光染色し、超純水で洗浄した後、蛍光顕微鏡(Olympus BX51、オリンパス社製) とCCD(Olympus DP71、オリンパス社製)を用いて、蛍光と可視光で観察および画像撮影した。 撮影した画像の取り込みには、LuminaVisionソフト(三谷商事社製)を用いた。領域を広く撮影 する場合は、蛍光実体顕微鏡(M205FA、ライカマイクロシステムズ社製)を用いた。画像は明視 野・蛍光観察用カラーカメラ(Leica DFC310 FX、ライカマイクロシステムズ社)で撮影し、画 像取り込みにはイメージングソフトウェアLAS V3.1(ライカマイクロシステムズ社)を用いた。 蛍光実体顕微鏡で蛍光顔料粒子と微生物細胞の存在する場所を薄片試料で確認した後、目的の ポイントを直径 1 mmのダイヤモンドドリルを用いて削り出し、ホルマリン固定した。ホルマ リン固定した粉状の試料の一部をポリカーボネートメンブレンフィルター (GTTP02500. Merck Millipore, Germany) で濾過し、作成したプレパラートを蛍光顕微鏡により観察した。 また、蛍光顕微鏡で観察した領域を電子顕微鏡観察するために、カーボン蒸着を行い、EDS付 属の電界放出型走査電子顕微鏡(FE-SEM: Field Emission Scanning Electron Microscope; Hitachi S-4500)を用いて、加速電圧15 kVで観察を行った。観察は二次電子像と反射電子像で 行い、EDSにより元素組成のデータ取得を行った。また、細胞観察領域について、赤外顕微鏡 (AIM-9000, SHIMADZU Corp., Kyoto, Japan) とフーリエ変換赤外分光光度計(IRTracer-100, SHIMADZU Corp., Kyoto, Japan) を組み合わせた顕微IRによる測定を行った。

その結果、岩石コア試料中に複数の亀裂を確認でき、亀裂全体に微生物細胞様の緑色粒子が 観察されたことから、微生物細胞は亀裂面全体に存在している可能性が推察された。一方で、 掘削水の汚染については、コア試料の外側から内側に向かって6 mm程度まで蛍光顔料粒子の 存在が確認されたことから、外側6 mm程度は掘削水の汚染影響が及んでいると考えられる。



図 3.3.2-30 稚内層の岩石コア試料(HFB1-C11)の観察結果。コア切断面を低倍率(12倍) の可視光で実体顕微鏡観察した像(A)と、亀裂部分を可視光と蛍光で実体顕微鏡観察した像 (B)。薄片を割って出した亀裂の面を、可視光と蛍光で実体顕微鏡観察した像(C-E)。C-Eのピンクの枠領域を高倍率の蛍光顕微鏡で観察した結果(F,G)。Cの緑枠の領域から削り出し た試料を高倍率の蛍光顕微鏡で観察した像(H)。



図 3.3.2-31 稚内層コア岩石試料HFB1-C11から作成した厚さ1 cmの薄片の観察結果。低倍率 の実体顕微鏡による可視光と蛍光(A,B)の観察像(12倍)。A,Bで示した亀裂Cで割った薄片 で亀裂面を可視光で観察した像(C)。Cの赤枠の亀裂面を上面にして作成した薄片の低倍率の 実体顕微鏡による可視光と蛍光(D, E, F)の観察像(12倍)。 Eの白枠を高倍率の顕微鏡で 観察した結果(G, H)。Gの矢印は、赤い粒子が確認された部分。

厚さ5μmのPET基材両面テープを用いて、微生物細胞が含まれていると推定される亀裂表面の付着物を回収し、顕微IRによる測定を行った。測定の際、培養された微生物細胞を標準試料として用いた。その結果、亀裂面から回収した試料で、微生物細胞のアミド基由来の1530 cm⁻¹と1640 cm⁻¹でピークを取得することができ、培養微生物細胞のスペクトルとも類似していることが確認できたことから、緑色の粒子は微生物細胞であることが示唆された。また、SEM-EDSの観察・分析結果から、亀裂表面にはAl、K、Fe等の元素が検出され、幌延の稚内層を対象とした既存の粘土鉱物の分析結果と類似していることから、亀裂表面には粘土鉱物が存在することも示唆された。粘土鉱物が存在するところに微生物が後から付着したのか、あるいは微生物が粘土鉱物を形成したのかについては、現時点では明らかではないが、微生物がスメクタイトを形成する現象が報告されていることから(Hama et al., 2001)、後者の可能性も考えられる。

以上の結果から、稚内層の亀裂表面に微生物様細胞が高密度で分布しており、これらの粒子 は顕微IR分析の結果から微生物であることが明らかになった。また微生物が存在する亀裂表面 には、粘土鉱物が存在する可能性も示唆された。今後は、亀裂表面の微生物分布について広範 囲に解析を進めることで取得データの妥当性や代表制を確認するとともに、微生物が存在する 領域における微量元素の分布について走査型軟X線分光顕微鏡等でデータ取得を行うことにより、岩盤中における微生物分布とそれらの元素との相互作用メカニズムや核種移行への影響を 明らかにしていく必要がある。



図 3.3.2-32 PET基材両面テープを用いた微生物細胞の回収と顕微IR解析。蛍光顕微鏡観察 で微生物細胞が確認された亀裂面にPET基材両面テープを貼り付けて、亀裂表面の微生物細胞 を回収した(A)。Bは微生物細胞が張り付いた両面テープを顕微IR装置の可視光の顕微鏡で観察 した像(上)と蛍光顕微鏡で観察した像(下)。Bの赤と水色の枠の領域、培養した微生物細胞(E. coli)から顕微IRにより得たスペクトル(C)。

3.4 成果と今後の課題

3.4.1 岩盤中の核種移行評価技術開発

(1) 堆積岩を対象とした核種移行評価技術の開発

1)移行特性や鉱物の不均一性を考慮した核種移行パラメータのデータ取得とモデル開発

声問層の岩石コアを対象に間隙構造や組成の分析、割れ目の形状評価を行うとともに、次年 度に計画されている原位置トレーサー試験の試験条件を検討するための予察解析に着手した。 その結果、声問層岩石の構成鉱物や間隙率等の特性を把握したほか、室内トレーサー試験に使 用する岩石コアの割れ目が、せん断割れ目に特有のSlickenstepを有することがわかった。今後 は、令和5年度取得した間隙や割れ目の構造等の情報を踏まえ、原位置トレーサー試験をサポー トする室内トレーサー移行試験を実施する。また、二重間隙モデルを仮定した予察解析結果か ら、流量条件や孔間距離といったパラメータに加え、割れ目やマトリクス内の間隙率が破過曲 線のピーク濃度やピーク位置などへの感度が大きいことが分かった。今後は、別事業で得られ る水理・地質調査データも利用しつつ、先行事業で構築した割れ目内の間隙構造の不均質性な どを考慮したモデルなども適用し、原位置トレーサー試験条件を検討していく。

2) 原位置単孔試験のための予備的検討と現場試験

原位置試験の条件を適切に設定し、現場ではできない試験条件をフォローするため、室内試 験を実施した。現場付近の岩石における間隙水や岩石の特性を実験的に把握したほか、トレー サー候補となる溶質の溶出・収着挙動などを把握し、試験に用いるトレーサーの種類・濃度を 決定した。また、今まで現場試験に使われてこなかった溶質について情報を収集し、トレーサ ーとして機能する可能性を検討した。

室内トレーサー試験については令和5年度試験系を確立したが、種々の試験条件でデータを 取得し、結果や手法の妥当性検討につなげていくことが課題である。このため、今後の研究で は現場試験で実施できなかったような条件にて試験を実施し、データを得ていくことを計画し ている。また、新規のトレーサーについて、2023年度は机上の検討が主であり、実際の環境(地 下水・岩石との共存)における挙動やトレーサー試験における挙動の把握が課題となる。この ため、今後の研究にて模擬トレーサー試験等を実施し、有用性についての情報を得ていく。室 内試験と並行して、幌延深地層研究センターの250m坑道において掘削されたボーリング孔の 一つを使って、単孔トレーサー試験とよばれる現場試験を試行した。試験実施までの現場での 実施フローについての情報を整理したほか、得られた試験結果から単孔試験の利点(試験条件 の設定しやすさ、収着性トレーサーの回収しやすさ)や課題(デッドボリューム体積の減少、 トレーサーが均一に広がる仕組み)を明らかにした。

今後は、令和5年度明らかになった課題を解決できるように試験装置の改良を更に進める。また、令和5年度取得した試験データに対し、評価解析を進めて物質移行パラメーターの同定を試みる。さらに、令和5年度に取得した結果では拡散や吸着といった効果が必ずしも現れていない可能性があることから、岩盤の遅延効果を検証可能な試験条件について検討を行う予定である。

3) 地質環境の長期変遷や空間スケールを考慮に入れた核種移行解析モデルの開発

本事業では、幌延地域の地質環境を事例として、原位置試験や室内試験による取得されたデ ータなどに基づき、割れ目などの不均質性を適切に取り扱いつつ、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することが可能な核種移行モデル構築手法を開発するため、 令和5年度は、諸外国の地層処分事業において適用されている核種移行解析手法を調査した。そ の結果、スウェーデンのSKBが適用しているモデル化/解析コードMARFAが、三次元モデルを 適用できる点で、他より適したモデル化/解析コードであることが分かった。今後、幌延地域の 地質環境の長期変遷に基づくシナリオを整理するとともに、それをMARFAに考慮する方法の 検討を進める。また、幌延地域におけるナチュラルトレーサー(NT)の分布形成機構、特に間 隙水と亀裂水におけるNTの分布と地下水流動状態との関係や分布の変化の時間スケールにつ いて、数値解析により検討した。NTの分布に与える影響が大きいパラメータとして亀裂間隔、 マトリクスの実効拡散係数および動水勾配が抽出された。想定される最終氷期末期の天水浸透 期間(最大で数千年)と同程度の期間で、マトリクス内のNT濃度の低下および亀裂水と間隙水 での水質コントラストが確認された。さらに、天水浸透領域の深部で生じたと考えられる、氷 期・間氷期間での地下水流動の変化を再現した解析において、天水の浸透が停止し動水勾配が低 下してから最大でも10,000年の間に亀裂水と間隙水での水質コントラストが消失することが確 認された。以上の結果は、幌延地域の地下水流動に関する概念モデルと矛盾せず、またマトリ クス内のNTの洗い出しや水質コントラストの消失に要する時間スケールについても本解析結 果から推定された。間氷期の地下水流動も含めた氷期・間氷期サイクルがNTの分布に与える影 響を評価すること、亀裂分布や地下水流動状態がより複雑である実際の地質環境に本解析結果 を適用することなどが今後の課題である。

(2) 結晶質岩を対象とした核種移行評価技術の開発

1) 土岐花崗岩の原位置試験評価を対象とした岩石特性分析

鉱物や粒界などの岩石の構成要素と核種移行の関係性を理解するため、瑞浪URLから採取した土岐花崗岩を例に、室内トレーサー拡散試験とレーザーアブレーションICP-MSを用いた岩石中の微量元素の移行挙動評価手法の構築に着手した。取得した拡散データと他の花崗岩類のデータと比較することで、黒雲母等の粘土鉱物の含有率と核種移行特性(陽イオン加速・陰イオン排除)との関係を把握した。また、岩石試料上の鉱物分布に対応したトレーサー分布を取得し、岩石中の移行挙動に寄与する経路や鉱物に関する知見を拡充した。一方で、鉱物や粒界の分布による不均質性が核種移行に及ぼす影響の定量評価には課題が残り、今後、これらの不均質性と核種移行パラメータ(実効拡散係数や分配係数)を関連付ける検討が必要である。

割れ目近傍における核種移行挙動を評価するため、先行事業で実施されたグリムゼル花崗閃 緑岩を対象とした室内トレーサー移行試験および瑞浪URLで実施された原位置トレーサー試 験後の試料を対象に、微量元素分析および鉱物分布分析を実施した。その結果、割れ目に沿っ た黒雲母の分布や鉱物間の粒界とその方向へのトレーサー移行が確認された。このような、表 層付近に特有の鉱物分布の不均質性は、それ以降のマトリクス中の拡散および収着挙動にも影 響を与えるため、割れ目中の核種移行への影響が大きいと考えられる。今後、マトリクスとは 異なる、表層付近の鉱物や間隙中の核種移行パラメータの評価が課題である。

2) 土岐花崗岩を事例とした核種移行モデルの検討

鉱物のサイズや粒界の連続性等の不均質性を想定した間隙構造モデルを構築し、ランダムウ オーク法に基づくPartridgeコードを用いた粒子拡散解析を実施した。その結果、鉱物サイズを 大きくする、粒界の連続性を制限すると、粒子の実効拡散係数が減少することが分かった。一 方で、実際の岩石の間隙構造と核種移行へのモデルの適用性や有効性については未検証であり、 今後、粒子サイズ分布と拡散係数の相関など、実験データとの比較検討を進める必要がある。 また、割れ目の不均質性(割れ目表面の変質層、割れ目内鉱物充填層、フロー・スタグナント 領域)に関わるパラメータの移行への影響評価を実施した。解析では、上記の不均質性を考慮 したモデルを用いて、破過曲線に影響の大きいパラメータ抽出するため、各パラメータの偏順 位相関係数を算出して比較した。その結果、フロー領域からスタグナント領域への移行率や充 填鉱物中および変質層中の収着および拡散の重要性を把握した。一方で、モデルやパラメータ の妥当性やスケールアップを含めた適用性については未検証であり、今後、実測データと対応 させた確証を進める必要がある。

3) トレーサー試験からの核種移行パラメータの抽出方法の検討

室内や現場で取得されたトレーサー試験の結果から、核種移行解析に用いるパラメータを抽 出するための解析手法を検討した。岐阜県瑞浪市の花崗岩帯で得られた既存の現場試験の結果 や、花崗岩より拡散係数の大きな砂岩で得られた室内試験の結果を解析の対象とした。電中研 で開発した解析手法を適用した結果、試験条件に依存せず同程度の割れ目開口幅や拡散係数が 得られたことから、解析手法の妥当性を確認することができた。

解析手法の妥当性を検証するために使用した試験結果の条件(トレーサーの種類や岩石の種類)は、まだ限定的である。適用範囲を拡大していくためには、より多くの試験条件で得られた結果を対象にした検証が今後の課題である。このため、既存の現場試験結果の解析では、令和5年度実施した非収着性のトレーサーに加えて、収着トレーサーの破過曲線を対象に解析する予定である。また、砂岩を用いた室内試験結果の解析では、さらに収着や拡散特性の異なる砂岩で得た破過曲線を対象に解析することを計画している。これらの検討から、核種移行解析に用いるパラメータを抽出するための解析手法の妥当性と適用範囲に関わる情報を拡充していく。

3.4.2 岩盤中における地球化学・核種移行の個別現象評価技術開発

(1) 地球化学的な変遷を考慮した核種移行評価技術の開発

天然バリアである岩盤中の核種移行は、地層処分場の建設から埋め戻し後において長期的に 変遷すると考えられるため、緩衝材やセメント等の人工バリア材料や岩盤中の鉱物と核種との 相互作用について、実際の地質環境や長期的変遷を考慮した調査・評価技術の開発が必要とな る。そこで、令和5年度は下記の課題について評価を行った。

1) セメント材料が岩盤の核種移行に及ぼす影響評価

先行事業においても、セメントと岩石の相互作用反応が核種移行に及ぼす影響について、現 象解明に取り組んできた。本事業においては、先行事業とは異なる深度やセメント材料におい て採取された岩石 - セメント試料のX線CT、間隙率およびEPMAの測定を実施することで、深 度やセメント種による岩石 - セメント接触部の変質状態の差異を比較した。その結果、深度に よって接触部のセメント部における元素分布が異なっており、さらに、セメント種によって、 接触部の変質する領域が異なっていることが分かった。今後の課題としては、岩石-セメント 接触部のセメント成分が溶脱した部分へのMgやKの取り込みのメカニズムや、セメント種によ るカルサイトなどの二次鉱物の生成メカニズム、セメント成分の溶脱による間隙径分布の変化 を調査し、深度やセメント種による変質の差異が生じる原因を解明することで、それらの岩石 への影響および核種移行挙動に及ぼす影響を評価する必要がある。

2) 地下環境下の鉱物と核種との相互作用

天然バリアにおいて、岩盤中の炭酸塩や鉄などの鉱物が核種の移行挙動及ぼす影響を評価す るためには、室内試験に基づく評価と並行して、地下環境を念頭に置いたより現実的な系での 現象解明や評価技術の構築に向けた取り組みが必要である。本課題では、地下研究施設周辺か ら採取した深部地下水などを活用した評価をおこなった。その結果、幌延を事例とした堆積岩 浅層部においては、鉄鉱物の酸化とともにSeが溶出した可能性があるとともに、Fe³⁺濃度が増 加する領域では、有機物や鉄の2次鉱物にSeが収着している可能性が示唆された。また、炭酸塩 鉱物は重元素や希土類元素、アクチニド元素等の様々な元素をその結晶構造中に取り込むこと が知られていることから、炭酸塩鉱物の一つであるカルサイト中のウランの分布や化学形態に 関する検討を行ったところ、カルサイト中にウランの濃集部が確認された。放射光分析による 詳細な分析結果から、それらのウランはリン酸塩の形態で存在する可能性が示唆された。

今後、逐次抽出試験等によってSeの存在形態に関するデータを取得することで、地形の隆起 等により酸化領域が形成された場合のSeの移行挙動について評価をおこなう。また、炭酸塩鉱 物中のウラン等の重元素の分布や化学形態について、より詳細な分析を行う必要がある。

(2) コロイド・有機物・微生物影響評価技術の開発

天然バリアである岩盤中の核種移行は、地下の酸化還元状態や鉱物・水質などの地球化学環 境だけでなく、その場に存在するコロイド・有機物・微生物に大きく影響を受けることから、 これらの影響を考慮に入れた核種移行影響について、実際の地下環境を想定した調査・評価技 術の開発が必要となる。そこで、令和5年度は下記の課題について評価を行った。

1) コロイドへの核種収着

幌延地域の地下環境を事例として、天然コロイド・有機物・微生物の特性データを取得する とともに、コロイド・有機物・微生物と核種との収着・錯生成・細胞内取り込み等による核種 移行への評価技術の開発に向けて、地下水中のコロイドへの核種の収着特性に関するデータを 拡充するとともに、これまでに取得した現象モデルの妥当性確認に向けて、元一環境下におけ る収着挙動の予察試験に着手した。その結果、深度350 mの地下水を対象とした試験結果から は、本地下水に存在するコロイドへの希土類元素の収着影響が、他の深度における地下水と比 較して高くなく、バイオコロイドの影響も大きくないことが明らかになった。また、予察的な 原位置試験の結果から、複合的な条件下における収着試験の成立する予察試験として、使用す るトレーサー元素や濃度などについて、試験の成立性を確認することができた。今後は、添加 後のトレーサーの平衡反応や分配等について詳細に明らかにすることで、地層処分システムに おける地下水中のコロイドの核種移行影響評価の信頼性を向上させることができると考える。

2) 有機物と核種の錯生成

核種移行に及ぼす天然有機物の影響を評価するために、多様な水質の地下水における各種と 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について、現象理解を深めるとと もに、その手法開発を行う必要がある。令和5年度は、幌延地下の堆積岩環境を事例として、腐 植物質だけでなく全ての溶存有機物の特性評価を網羅的な分析に着手した。また、放射線照射 が有機物の錯生成能に及ぼす影響や核種と錯生成した有機物の分配についても検討をおこなっ た。その結果、分子的特徴を有する有機物の存在割合に関する知見を拡充することができた。 また、放射線照射量の増加とともに、フミン酸の錯生成能力が低下することが明らかになり、 その要因としてカルボキシル基の減少が関与していることが示唆された。また、計算科学的手 法を用いた粘土鉱物と有機物の相互作用に関する検討にも着手し、Na型、Ca型それぞれにおけ る粘土相関中のフミン酸の分散・凝集挙動についても明らかにすることができた。今後は、多 様な環境条件下における有機物と核種の錯生成挙動について、より詳細な理解を深めるための データ拡充を進める必要がある。

3) 微生物代謝影響

地下に存在する微生物の核種移行への影響については、処分場建設から閉鎖後の長期に渡る 地球化学的変遷とともに評価を進める必要がある。令和5年度は、処分場建設時からの様々な フェーズを想定した環境下において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、幌延堆積岩の地下施設周辺を事例とした調査研究を実施した。その結果、地下水中の微 生物は、建設初期から経時変化しており、バイオフィルム形成領域が時間とともに拡大してい ることが確認された。また、閉鎖後の環境条件下における微生物分布を評価するために、岩石 中の微生物分布について分析評価を行ったところ、掘削時の汚染影響を排除した場合でも、微 生物は亀裂表面に密集して存在することが確認された。一方で、これらの微生物と重元素との 関係性については未解明な部分が多いことから、今後、微生物分布と元素の分布特性や地層処 分システムへの微生物代謝影響について知見を拡充する必要がある。

参考文献

- Abraham, M.J., Murtola, T., Schulz, R., Páll, S., Smith, J.C., Hess, B. and Lindahl, E., GROMACS: High performance molecular simulations through multi-level parallelism from laptops to supercomputers, Software X, vol. 1-2, pp.19-25, 2015.
- 赤松良久, 今村史子, 中尾遼平, 後藤益滋, 地下水動態を可視化するDNAトレーサーに関する 基礎的実験, 土木学会論文集B1(水工学), vol. 76, 1 1027-1 1032, 2020.
- 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-rockmicrobe interaction systems in subsurface environment, Geomicrobiology Journal, vol. 29, pp. 628-639, 2012.
- 天野由記,山本陽一,南條功,村上裕晃,横田秀晴,山崎雅則,國丸貴紀,大山隆弘,岩月輝希, 幌延深地層研究計画における地下水,河川水及び降水の水質データ;2001~2010年度, JAEA-Data/Code 2011-023, 312p, 2012.
- Anderson, C. and Pedersen, K., In situ growth of Gallionella biofilms and partitioning of lanthanides and actinides between biological material and ferric oxyhydroxides, Geobiology, vol. 1, pp. 169-178, 2003.
- Anderson, C., Johnsson, A, Moll, H. and Pedersen, K., Radionuclide geomicrobiology of the deep biosphere, Geomicrobiology Journal, vol. 28, pp. 540-561, 2011.
- Anderson, C., Pedersen, K. and Jakobsson, A.M., Autoradiographic comparisons of radionuclide adsorption between subsurface anaerobic biofilms and granitic host rocks, Geomicrobiology Journal, vol. 23, pp. 15-29, 2006.
- Andersson, P., Byegård, J., Tullborg, E.-L., Doe, T., Hermanson, J. and Winberg, A., In situ tracer tests to determine retention properties of a block scale fracture network in granitic rock at the Äspö Hard Rock Laboratory, Sweden, Journal of Contaminant Hydrology, vol. 70, pp. 271-297, 2004.
- Artinger, R., Buckau, G., Zeh, P., Geraedts, K., Vancluysen, J., Maes, A. and Kim, J.I., Humic colloid mediated transport of tetravalent actinides and technetium, Radiochimica Acta, vol. 91, pp. 743-750, 2003.
- Artinger, R., Kienzler, B., Schüßler, W. and Kim, J.I., Effects of humic substances on the ²⁴¹Am migration in a sandy aquifer: Column experiments with Gorleben groundwater/sediment systems, Journal of Contaminant Hydrology, vol. 35, pp. 261-275, 1998.
- Aquanty, HGS reference manual (version 2633), https://www.aquanty.com/hydrogeospheresw, Aquanty Inc., 2024a.
- Aquanty, HydroGeoSphere verification manual (version 2633), https://www.aquanty.com/hydrogeospheresw, Aquanty Inc., 2024b.
- Avila R., Ekström P.A. and Åstrand P.G., Landscape dose conversion factors used in the safety assessment SR-Site, SKB Technical Report, TR-10-06, 2010.
- Base, C.F. and Mesmer, R.E., The hydrolysis of cations, Oak Ridge National Laboratory, 1976.
- Becke, A.D., Correlation energy of an inhomogeneous electron gas: A coordinate space model, Journal of Chemical Physics, vol. 88, 1053, 1988.
- Behler, J. and Parrinello, M., Generalized neural-network representation of highdimensional potential-energy surfaces, Physical Review Lettetters, vol. 98, 146401, 2007.
- Benning, L.G., Wilkin, R.T. and Barnes, H.L., Reaction pathways in the Fe-S system below

100°C, Chemical Geology, vol. 167, pp. 25-51, 2000.

- Bernhard, G., Geipel, G., Reich, T., Brendler, V., Amayri, S. and Nitsche, H., Uranyl(VI) carbonate complex formation: Validation of the Ca₂UO₂(CO₃)₃(aq.) species, Radiochimica Acta, vol. 89, pp. 511-518, 2001.
- Bradbury, M.H. and Baeyens, B., A mechanistic description of Ni and Zn sorption on Namontmorillonite. Part II: Modelling, Journal of Contaminant Hydrology, vol. 27, pp. 223-248, 1997.
- Bradbury, M.H. and Baeyens, B., Modelling the sorption of Mn(II), Co(II), Ni(II), Zn(II), Cd(II), Eu(III), Am(III), Sn(IV), Th(IV), Np(V) and U(VI) on montmorillonite: Linear free energy relationships and estimates of surface binding constants for some selected heavy metals and actinides, Geochimica et Cosmochimica Acta, vol. 69(4), pp. 875-892, 2005.
- Bradbury, M.H. and Baeyens, B., Sorption modelling on illite. Part II: Actinide sorption and linear free energy relationships, Geochimica et Cosmochimica Acta, vol. 73, pp. 1004-1013, 2009.
- Bradbury, M.H. and Baeyens, B., Predictive sorption modelling of Ni(II), Co(II), Eu(III), Th(IV) and U(VI) on MX-80 bentonite and Opalinus Clay: A "bottom-up" approach, Applied Clay Science, vol. 52, pp. 27-33, 2011.
- 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.
- 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.
- Cvetkovic, V., Cheng, H., Widestrand, H., Byegård, J., Winberg, A. and Andersson, P., Sorbing tracer experiments in a crystalline rock fracture at Äspö (Sweden): 2. Transport model and effective parameter estimation, Water Resource Research, vol. 43, W11421, 2007.
- Cygan, R.T., Greathouse, J.A. and Kalinichev, A.G., Advances in clayff molecular simulation of layered and nanoporous materials and their aqueous interfaces, The Journal of Physical Chemistry C, vol. 125, pp. 17573-17589, 2021.
- 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.
- Davis, J.A., Coston, J.A., Kent, D.B. and Fuller, C.C., Application of the surface complexation concept to complex mineral assemblages, Environmental Science & Technology, vol. 32, pp. 2820-2828, 1998.
- Dekkers, M.J. and Schoonen, M.A.A., Magnetic properties of hydrothermally synthesized greigite (Fe₃S₄) I. Rock magnetic parameters at room temperature, Geophysical Journal International, vol. 126, pp. 360-368, 1996.
- 電力中央研究所,平成19年度地層処分技術調査など(岩盤中物質移行特性原位置評価技術高度 化調査)報告書,2008.
- Diersch, H.-J.G., FEFLOW Finite element modeling of flow, mass and heat transport in porous and fractured media, Springer, 2014.
- Doherty, J., Calibration and uncertainty analysis for complex environmental models, PEST: Complete theory and what it means for modelling the real world, Watermark Numerical Computing, ISBN: 978-0-9943786-0-6, 2015.

- Duarte, R.M.B.O, Santos, E.B.H. and Duarte, A.C., Spectroscopic characteristics of ultrafiltration fractions of fulvic and humic acids isolated from an eucalyptus bleached Kraft pulp mill effluent, Water Research, vol. 37, pp. 4073-4080, 2003.
- Ekendahl, S., Arlinger, J., Ståhl, F. and Pedersen, K., Characterization of attached bacterial populations in deep granitic groundwater from the Stripa research mine with 16S rRNA gene sequencing technique and scanning electron microscopy, Microbiology, vol. 140, pp. 1575-1583, 1994.
- Elert, M., Gylling, B., and Lindgren, M., Assessment model validity document FARF31, SKB Report R-04-51, 2004.
- 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.
- Enev, V., Pospíšilová, L., Klučáková, M., Liptaj, T. and Doskočil, L., Spectral characterization of selected humic substances, Soil and Water Research, vol. 9, pp. 9-17, 2014.
- Escalona, Y., Petrov, D. and Oostenbrink, C., Vienna soil organic matter modeler 2 (vsomm2), Journal of Molecular Graphics and Modelling, vol. 103, 107817, 2021.
- Flemming, H.C. and Wingender, J., The biofilm matrix, Nature Reviews Microbiology, vol. 8, pp. 623-633, 2010.
- Fraker, P.J. and Speck, J.C., Protein and cell membrane iodinations with a sparingly soluble chloramide, 1,3,4,6-tetrachloro-3a,6a-diphenylglycouril, Biochemical and Biophysical Research Communications, vol. 80, pp. 849-857, 1978.
- 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.
- Fu, Q.L., Fujii, M., Riedel, T., Development and comparison of formula assignment algorithms for ultrahigh-resolution mass spectra of natural organic matter, Analytica Chimica Acta, vol. 1125, pp. 247-257, 2020.
- Fukatsu, Y., Yotsuji, K., Ohkubo, T., Tachi, Y., Diffusion of tritiated water, ¹³⁷Cs⁺, and ¹²⁵I⁻ in compacted Ca-montmorillonite: Experimental and modeling approaches, Applied Clay Science, vol. 211, 106176, 2021.
- Furness, J.W., Kaplan, A.D., Ning, J., Perdew, J.P., Sun, J., Accurate and numerically efficient r2SCAN meta-generalized gradient approximation, Journal of Physical Chemistry Letters, vol. 11, pp. 8208-8215, 2020.
- 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 ー瑞浪層群・土岐花崗岩の地下水の地球化学特性デー タ集ー(2019年度), JAEA-Data/Code 2020-012, 2020.
- 福沢仁之, 北海道天北-羽幌地域の上部新第三系層序の再検討-特に"稚内"・"声問"層について-, 地質学雑誌, vol. 91, pp.833-849, 1985.
- 福沢仁之, 北海道北部 新第三紀後期の層状珪質岩の堆積場, 地質学雑誌, vol. 93, pp. 37-55, 1987.
- Galicia-Andrés, E., Escalona, Y., Oostenbrink, C., Tunega, D. and Gerzabek, M. H., Soil organic matter stabilization at molecular scale: The role of metal cations and hydrogen bonds, Geoderma, vol. 401, 115237, 2021.

- Gelhar, L.W., Welty, C. and Rehfeldt, K.W., A critical review of data on field-scale dispersion in aquifers, Water Resource Research, vol. 28, pp. 1955-1974, 1992.
- 原子力発電環境整備機構ホームページ,高レベル放射性廃棄物について考えよう, https://www.numo.or.jp/eess/ materials/pdf/numo_chugaku_2021.3.pdf
- Geuzaine, C. and Remacle, J.-F., Gmsh: A three-dimensional finite element mesh generator with built-in pre- and post-processing facilities, International Journal for Numerical Methods in Engineering, vol. 79(11), pp. 1309-1331, 2009.
- Ghosh, K. and Schnitzer, M., UV and Visible absorption spectroscopic investigations in relation to macromolecular characteristics of humic substances, Journal of Soil Science, vol. 30, pp.735-745, 1979.
- GoldSim Technology Group LLC, GoldSim contaminant transport module user's guide, 2021.
- GoldSim Technology Group LLC, Goldsim ver. 14.0, 2023.
- Grimme, S., Antony, J., Ehrlich, S. and Krieg, H., A consistent and accurate ab initio parametrization of density functional dispersion correction (DFT-D) for the 94 elements H-Pu, Journal of Chemical Physics, vol. 132, 154104, 2010.
- Guo, F., Zhou, M., Xu, J., Fein, J.B., Yu, Q., Wang, Y., Huang, Q. and Rong, X., Glyphosate adsorption onto kaolinite and kaolinite-humic acid composites: Experimental and molecular dynamics studies, Chemosphere, vol. 263, 127979, 2021.
- Hadermann, J. and Heer, W., The Grimsel (Switzerland) migration experiment: integrating field experiments, laboratory investigations and modelling, Journal of Contaminant Hydrology, vol. 21, pp. 87-100, 1996.
- Hama, K., Bateman, K., Coombs, P., Hards, V.L., Milodowski, A.E., West, J.M., Wetton, P.D., Yoshida, H. and Aoki, K., Influence of bacteria on rock-water interaction and clay mineral formation in subsurface granitic environments, Clay Minerals, vol. 36, pp. 599-613, 2001.
- Hammer, B., Hansen, L.B. and Nørskov, J.K., Improved adsorption energetics within density-functional theory using revised Perdew-Burke-Ernzerhof functionals, Physical Review B, vol. 59, 7413, 1999.
- Han, H., Feng, Y., Chen, J., Xie, Q., Chen, S., Sheng, M., Zhong, S., Wei, W., Su, S. and Fu, P., Acidification impacts on the molecular composition of dissolved organic matter revealed by FT-ICR MS, Science of the Total Environment, vol. 805, 150284, 2022.
- Hasegawa, T., Nakata, K. and Gwynne, R., Measurement on diffusion coefficients and isotope fractionation factors by a through-diffusion experiment, Minerals, vol. 11, 208, 2021.
- 畑明 仁, 井尻裕二, 細野賢一, 澤田 淳, 原位置トレーサー試験の逆解析による同定パラメー タ値の不確実性評価, 原子力バックエンド研究, Vo. 10(1-2), pp. 47-56, 2004.
- 林田一貴, 加藤利弘, 久保田 満, 村上裕晃, 天野由記, 岩月輝希, 坑道閉鎖試験に基づく坑道 掘削・閉鎖時の化学環境変化プロセスの考察, 地球化学, vol. 52, pp. 55-71, 2018.
- Heberling, F., Bosbach, D., Eckhardt, J.D., Fischer, U., Glowacky, J., Haist, M., Kramar, U., Loos, S., Müller, H.S., Neumann, T. and Stelling, J., Reactivity of the calcite-waterinterface, from molecular scale processes to geochemical engineering, Applied Geochemistry, vol. 45, pp. 158-190, 2014.
- Hermansson, H. and Rydh, J., FARF33 version1.1 user's guide, SKB Report R-12-01, 2012. 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.

Hökmark H., Lönnqvist M. and Fälth B., T-H-M issues in repository rock. Thermal, mechanical, thermo-mechanical and hydro-mechanical evolution of the rock at the For-

smark and Laxemar sites, SKB Technical Report, TR-10-23, 2010.

Hunter, R.J., Foundations of colloid science, 2nd, Oxford University Press, 2001.

- Hwang, H., Seoung, D., Lee, Y., Liu, Z., Liermann, H.-P., Cynn, H., Vogt, T., Kao, C.-C. and Mao, H.-K., A role for subducted super-hydrated kaolinite in Earth's deep water cycle, Nature Geoscience, vol. 10, pp.947-953, 2017.
- 井尻裕二, 畑明仁, 細野賢一, 澤田 淳, 原位置トレーサー試験により得られる核種移行パラメ ータ値の不確実性について, 土木学会論文集, No. 778/III-69, pp. 85-97, 2004.
- 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.
- 一般財団法人 電力中央研究所,平成27年度 地層処分技術調査等事業(岩盤中地下水移行評価確証技術開発)一岩盤中物質移行特性評価技術の確証—,2016.
- 一般財団法人 電力中央研究所, 平成28年度 地層処分技術調査等事業(岩盤中地下水移行評 価確証技術開発) — 岩盤中物質移行特性評価技術の確証—, 2017.
- Ishii, E., Predictions of the highest potential transmissivity of fractures in fault zones from rock rheology: Preliminary results. Journal of Geophysical Research: Solid Earth, vol. 120, pp. 2220-2241, 2015.
- Ishii, E., Estimation of the highest potential transmissivity of discrete shear fractures using the ductility index, Rock Mechanics and Mining Sciences, vol. 100, pp. 10-22, 2017.
- Ishii, E., Assessment of hydraulic connectivity of fractures in mudstones by single-borehole investigations, Water Resources Research, vol. 54, pp. 3335-3356, 2018.
- Ishii, E., Funaki, H., Tokiwa, T. and Ota, K., Relationship between fault growth mechanism and permeability variations with depth of siliceous mudstones in northern Hokkaido, Japan, Journal of Structural Geology, vol. 32, pp.1792-1805, 2010.
- Ishii, T., Haginuma, M., Suzuki, K., Hama, K., Kunimaru, T., Kobori, K., Shimoda, S., Ueda, A. and Sugiyama, K., Groundwater evolution processes in the sedimentary formation at the Horonobe, northern Hokkaido, Japan, Geochemica Cosmoshimica Acta, vol. 70, A280, 2006.
- Ishii, E., Preliminary assessment of the highest potential transmissivity of fractures in fault zones by core logging, Engineering Geology, vol. 221, pp. 124-132, 2017.
- 石井英一, 濱 克宏, 國丸貴紀, 佐藤治夫, 海成堆積物の地下浅部における天水の浸透に伴う地下水のpH 変化, 地質学雑誌, vol. 113, pp.41–52, 2007.
- 石渡良志,山本正伸,有機地球化学,培風館,2004.
- Israelachvili, J. N., Intermolecular and Surface Forces, 3rd, Academic Press, 2011.
- 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, 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.
- Jain, J. and Neithalath, N., Analysis of calcium leaching behavior of plain and modified cement pastes in pure water, Cement & Concrete Composites, vol. 31, pp. 176-185, 2009.

- Ji, H., Wu, G., Zi, M. and Chen, D., Microsecond molecular dynamics simulation of methane hydrate formation in humic-acid-amended sodium montmorillonite, Energy & Fuels, vol. 30, pp. 7206-7213, 2016.
- Joyce, S., Appleyard, P., Gai, G., Mather, F. and Williams, T., Ground water flow and transport modelling in support of the safty case for the operating licence application, POSIVA Working Report 2021-20, 2021.
- 核燃料サイクル開発機構,わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性 地層処分研究開発第2次取りまとめー, JNC TN1400 99-021, 1999.
- 経済産業省資源エネルギー庁,諸外国における高レベル放射性廃棄物処分の処分について, 2023年版, 2023.
- Kobayashi, K., Yamaguchi, A. and Okumura, M., Machine learning potentials of kaolinite based on the potential energy surfaces of GGA and meta-GGA density functional theory, Applied Clay Science, vol. 228, 106596, 2022.
- Korshin, G.V., Li, C.W. and Benjamin, M.M., Monitoring the properties of natural organic matter through UV spectroscopy: A Consistent Theory, Water Research, vol. 31, pp. 1787-1795, 1997.
- Kotelnikova, S. and Pedersen, K., The Microbe-REX project. Microbial O₂ consumption in the Äspö tunnel, SKB Technical Report TR-99-17, 1999.
- Kresse, G. and Furthmüller, J., Efficient iterative schemes for ab initio total-energy calculations using a plane-wave basis set, Physical Review B, vol. 54, 11169, 1996.
- Kresse, G. and Furthmüller, J., Efficiency of ab-initio total energy calculations for metals and semiconductors using a plane-wave basis set, Computational Materials Science, vol. 6, pp. 15-50, 1996.
- Kresse, G. and Hafner, J., Ab initio molecular dynamics for liquid metals, Physical Review B, vol. 47, 558, 1993.
- Kresse, G. and Hafner, J., Ab initio molecular-dynamics simulation of the liquid-metalamorphous-semiconductor transition in germanium, Physical Review B, vol. 49, 14251, 1994.
- Larsen, A.H., Mortensen, J.J., Blomqvist, J., Castelli, I.E., Christensen, R., Dułak, M., Friis, J., Groves, M.N., Hammer, B., Hargus, C., Hermes, E.D., Jennings, P.C., Jensen, P.B., Kermode, J., Kitchin, J.R., Kolsbjerg, E.L., Kubal, J., Kaasbjerg, K., Lysgaard, S., Maronsson, J.B., Maxson, T., Olsen, T., Pastewka, L., Peterson, A., Rostgaard, C., Schiøtz, J., Schütt, O., Strange, M., Thygesen, K.S., Vegge, T., Vilhelmsen, L., Walter, M., Zeng, Z. and Jacobsen, K.W., The atomic simulation environment—A Python library for working with atoms, Journal of Physics: Condensed Matter, vol. 29, 273002, 2017.
- Lee, J.Y. and Yun, J.I., Formation of ternary CaUO₂(CO₃)₃²⁻ and Ca₂UO₂(CO₃)₃(aq) complexes under neutral to weakly alkaline conditions, Dalton Transactions, vol. 42, 9862, 2013.
- Lee, C., Yang, W. and Parr, R.G., Development of the Colle-Salvetti correlation-energy formula into a functional of the electron density, Physical Review B, vol. 37, 785, 1988.
- 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, 677, 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.

Liao, R., Yang, P., Wu, W. and Luo, D., A DNA tracer system for hydrological environment

investigations, Environmental Science & Technology, vol. 52, pp. 1695-1703, 2018.

- Lindgren, M. and Lindström, F., SR 97 Radionuclide transport calculations, SKB Technical Report, TR-99-23, 1999.
- Lindgren, M., Gylling, B. and Elert, M., FARF31 version 1.2 user's guide, SKB Progress Report, TS-02-03, 2002.
- Loganathan, N., Ferguson, B.O., Arey, B., Argersinger, H.E. and Bowers, G.M., A mechanistic exploration of natural organic matter aggregation and surface complexation in smectite mesopores, The Journal of Physical Chemistry A, vol. 124, pp. 9832-9843, 2020.
- MacLean, L.C.W., Pray, T.J., Onstott, T.C., Brodie, E.L., Hazen T.C and Southam, G., Mineralogical, chemical and biological characterization of an anaerobic biofilm collected from a borehole in a deep gold mine in South Africa, Geomicrobiology Journal, vol. 24, pp. 491-504, 2007.
- Maes, N., Wang, L., Hicks, T., Bennett, D., Warwick, P., Hall, T., Walker, G. and Dierckx, A., The role of natural organic matter in the migration behavior of americium in the Boom Clay - Part I: Migration experiments, Physics and Chemistry of the Earth, vol. 31, pp. 541-547, 2006.
- Mahara, Y. and Kudo, A., Plutonium released by the Nagasaki A-bomb: Mobility in the environment, Applied Radiation and Isotopes, vol. 46, pp. 1191-1201, 1995.
- Matsunaga, T., Nagao, S., Ueno, T., Takeda, S., Amano, H. and Tkachenko, Y., Association of dissolved radionuclides released by the Chernobyl accident with colloidal materials in surface water, Applied Geochemistry, vol. 19, pp. 1581-1599, 2004.
- McCarthy, J.F., Czerwinski, K.R., Sanford, W.E., Jardine, P.M. and Marsh, J.D., Mobilization of transuranic radionuclides from disposal trenches by natural organic matter, Journal of Contaminant Hydrology, vol. 30, pp. 49-77, 1998a.
- McCarthy, J.F., Sanford, W.E. and Stafford, P.L., Lanthanide field tracers demonstrate enhanced transport of transuranic radionuclides by natural organic matter, Environmental Science & Technology, vol. 32, pp. 3901-3906, 1998b.
- 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., 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.
- 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 highlevel radioactive waste, Applied Clay Science, vol. 47, pp. 58-64, 2010.
- Mei, H., Aoyagi, N., Saito, T., Kozai, N., Sugiura, Y. and Tachi, Y., Uranium (VI) sorption on illite under varying carbonate concentrations: Batch experiments, modeling, and cryogenic time-resolved laser fluorescence spectroscopy study, Applied Geochemistry, vol. 136, 105178, 2022.
- Mei, H., Aoyagi, N., Saito, T., Tanaka, K., Sugiura, Y. and Tachi, Y., U(VI) sorption on illite in the presence of carbonate studied by cryogenic time-resolved laser fluorescence spectroscopy and parallel factor analysis, Applied Geochemistry, vol. 162, pp. 105926, 2024.
- Mikutis, G., Deuber, C.A., Schmid, L., Kittilä, A., Lobsiger, N., Puddu, M., Asgeirsson, D.A., Grass, R.N., Saar, M.O. and Stark, W.J., Silica-encapsulated DNA-based tracers for aquifer characterization, Environmental Science & Technology, vol. 52, pp. 12142-12152,

2018.

- Miyajima, Y., Saito, A., Kagi, H., Yokoyama, T., Takahashi, Y. and Hirata, T., Incorporation of U, Pb and rare earth elements in calcite through crystallysation from amorphous calcium carbonate: Simple preparation of reference materials for microanalysis, Geostandards and Geoanalytical Research, vol. 45, pp. 189-205, 2021.
- Miyakawa, K., Ishii, E., Hirota, A., Komatsu, D.D., Ikeya, K. and Tsunogai, U., The role of low-temperature organic matter diagenesis in carbonate precipitation within a marine deposit, Applied Geochemistry, vol. 76, pp. 218-231, 2017.
- Miyakawa, K., Kashiwaya, K., Komura, Y. and Nakata, K., Evolution of porewater in a Neogene sedimentary formation in the Horonobe area, Hokkaido, Japan: Modeling of burial diagenesis, Geochemical Jouornal, vol. 57, pp. 155-175, 2023.
- 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.
- 宮川和也, 幌延深地層研究計画で得られ地下水の水質データ(2021年度), JAEA-Data/Code 2021-021, 2022.
- 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, 120880, 2022.
- Mochizuki, A. and Ishii, E., Assessment of the level of activity of advective transport through fractures and faults in marine deposits by comparison between stable isotope compositions of fracture and pore waters, Hydrogelogy Journal, vol. 30, pp. 813-827, 2022.
- Mochizuki, A. and Ishii, E., Paleohydrogeology of the Horonobe area, Northern Hokkaido, Japan: Groundwater flow conditions during glacial and postglacial periods estimated from chemical and isotopic data for fracture and pore water, Applied Geochemistry, vol. 155, 105737, 2023.
- 望月陽人, 石井英一, 地下深部の岩盤における地下水の流れの有無を水の安定同位体比から判 別する, Isotope News, No. 784, pp. 23-27, 2022.
- 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.
- 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.
- Myneni, S.C.B., Traina, S.J. and Logan, T.J., Ettringite solubility and geochemistry of the Ca(OH)₂-Al₂(SO₄)₃-H₂O system at 1 atm pressure and 298 K, Chemical Geology, vol. 148, pp. 1-19, 1998.
- Nakata, K., Hasegawa, T., Higashihara, T. and Oyama, T., Chloride ion concentrations during the compression of rocks to extract pore water, Geofluids, vol. 16, pp. 78-88, 2016.
- Nakata, K., Hasegawa, T., Oyama, T., Ishii, E., Miyakawa, K. and Sasamoto, H., An evaluation of the long-term stagnancy of porewater in the Neogene sedimentary rocks in northern Japan, Geofluids, vol. 2018, 7823195, 2018.
- Nakata, K., Hasegawa, T. and Solomon, D.K., Measuring dissolved He diffusion coefficients and ³He and ⁴He fractionation during diffusion through sandstone, Chemical Geology, vol. 631, 121508, 2023.
- 中田弘太郎, 放射性廃棄物処分の現状と技術開発-第3回 地下水の長期安定性-, 電力土木, No. 429, pp. 66-69, 2024.
- 中田弘太郎,長谷川琢磨,柏谷公希,地下水トレーサーとしての蛍光染料の分析と試料溶液の

保管法の検討,地下水学会誌, vol. 59, pp. 205-227, 2017.

中山(編), 幌延深地層研究計画 令和3年度調査研究計画, JAEA-Review 2021-009, 54p, 2021.

- Neretnieks, I., Eriksen, T. and Tähtien, P., Tracer movement in a single fissure in granitic rock: Some experimental results and their interpretation, Water Resource Research, vol. 18(4), pp. 849-858, 1982.
- 日本原子力研究開発機構,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ニアフィールドシステム評価確証技術開発 平成30年度 ~令和4年度取りまとめ報告書,2023.
- 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. 2019.
- 日本原子力研究開発機構,電力中央研究所,平成31年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に 関する技術開発事業-岩盤中地下水流動評価技術高度化開発-報告書.2020.
- 日本原子力研究開発機構,電力中央研究所,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-岩盤中地下水流動評価技術高度化開発-報告書.2021.
- 日本原子力研究開発機構,電力中央研究所,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-岩盤中地下水流動評価技術高度化開発-報告書,2022.
- 日本原子力研究開発機構,電力中央研究所,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-岩盤中地下水流動評価技術高度化開発-報告書,2023.
- 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,高レベル放射性廃棄物等の 地層処分に関する技術開発報告書 ニアフィールドシステム評価確証技術開発 平成30年度 ~令和4年度取りまとめ報告書,令和5年3月,2023.
- 日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 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.
- 日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター,令和4年度 高レベル放射性 廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業ニアフィールドシステム評価確証技術開発報告 書,2023.

- Niizato, T., Yasue, K., Kurikami, H., Kawamura, M. and Ohi, T., Synthesising geoscientific data into a site model for performance assessment: a study on the long-term evolution of the geological environment in and around the Horonobe URL, Hokkaido, northern Japan, In: Proceedings of 3rd Workshop on Approaches and Challenges for the Use of Geological Information in the Safety Case for Deep Disposal of Radioactive Waste, OECD/NEA, Nancy, France, 15-17 April, 2008.
- 野原慎太郎,長谷川琢磨,田中靖治,バックグラウンド地下水流れを考慮した単孔トレーサー 試験の評価法に関する検討,土木学会論文集C(地圏工学),vol. 72, pp. 224-238, 2016a.
- 野原慎太郎,長谷川琢磨,田中靖治,矢田浩太郎,八木啓介,後藤和幸,花崗岩に存在する割れ 目を対象とした単孔トレーサー試験と評価解析,日本地下水学会2016年秋季講演会,2016b.
- Norman, S., and Kjellbert, N., FARF31- A far field radionuclide migration code for use with the PROPER package, SKB Technical Report, TR-90-01, 1990.
- O'Toole, G., Kaplan, H.B. and Kolter, R., Biofilm formation as microbial development, Annual Review of Microbiology, vol. 54, pp. 49-79, 2000.
- 岡 孝雄, 五十嵐八枝子, 北海道・天塩平野北部の上部新生界-特に勇知層・更別層の堆積相と 花粉化石層序について-, 加藤誠教授退官記念論文集, pp.341-365, 1997.
- 岡本駿一,中田弘太郎,長谷川琢磨,野原慎太郎,割れ目を対象にしたトレーサー試験から評価される収着特性の流速依存性と妥当性,土木学会論文集,vol. 79, No. 6, 22-00277, 2023.
- Ong, S.P., Richards, W.D., Jain, A., Hautier, G., Kocher, M., Cholia, S., Gunter, D., Chevrier, V., Persson, K.A. and Ceder, G., Python materials genomics (Pymatgen): A robust, opensource Python library for materials analysis, Computational Materials Science, vol. 68, pp.314-319, 2013.
- Ozaki, Y., Ishii, E. and Sugawara, K. Variation in fault hydraulic connectivity with depth in mudstone: An analysis of poroelastic hydraulic response to excavation in the Horonobe URL, Geomechanics for Energy and the Environment, vol. 31, 100311, 2022.
- Painter, S., Cvetkovic, V., Mancillas, J. and Pensado, O., Time domain particle tracking methods for simulating transport with retention and first-order transformation, Water Resources Research, vol. 44, 1, 2008.
- Painter, S. and Mancillas, J., MARFA version 3.2.2 user's manual: Migration analysis of radionuclides in the far field, SKB Report, R-09-56, 2009.
- Painter, S., Trinchero, P. and Sanglas, J., MARFA user's manual: Migration analysis of radionuclides in the Far Field version 5.0, Revision number 2, 2022.
- Payne, T.E., Brendler, V., Ochs, M., Baeyens, B., Brown, P.L., Davis, J.A., Ekberg, C., Kulik, D.A., Lutzenkirchen, J., Missana, T., Tachi, Y., Van Loon, L.R. and Altmann, S., Guidelines for thermodynamic sorption modelling in the context of radioactive waste disposal, Environmental Modelling & Software, vol. 42, pp. 143-156, 2013.
- 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.
- Pedersen, K., Subterranean microorganisms and radioactive waste disposal in Sweden, Engineering Geology, vol. 52, pp. 163-176, 1999.
- Perdew, J.P., Burke, K. and Ernzerhof, M., Generalized Gradient Approximation Made Simple, Physical Review Letters, vol. 77, 3865, 1996.
- Perdew, J.P., Ruzsinszky, A., Csonka, G.I., Vydrov, O.A., Scuseria, G.E., Constantin, L.A., Zhou, X., Burke, K., Restoring the density-gradient expansion for exchange in solids and surfaces, Physical Review Letters, vol. 100, 136406, 2009.

- Petrov, D., Tunega, D., Gerzabek, M.H. and Oostenbrink, C., Molecular dynamics simulations of the standard leonardite humic acid: Microscopic analysis of the structure and dynamics, Environmental Science and Technology, vol. 51, pp. 5414-5424, 2017.
- 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.
- RETROCK, RETROCK project: Treatment of radionuclide transport in geospere within safety assessments. Final report. Work performed as part of the European Atomic Energy Community (Euratom) Specific programme on Nuclear Energy (1998-2002), Key Action on Nuclear Fission Area: 'Safety of the fuel cycle waste and spent fuel management and disposal'. EUR 21230, 2005.
- 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, Geochimica et Cosmochimica Acta, vol. 189, pp. 143-157, 2016.
- Rickard, D. and Luther, G.W., Chemistry of iron sulfides, Chemical Reviews, vol. 107, pp. 514-562, 2007.
- 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.
- Rivas-Ubach, A., Liu, Y., Bianchi, T.S., Tolić, N., Jansson, C. and Paša-Tolić, L., Moving beyond the van Krevelen Diagram: A new stoichiometric approach for compound classification in organisms, Analytical Chemistry, vol. 90(10), pp. 6152-6160, 2018.
- Rotenberg, B., Marry, V., Vuilleumier, R., Malikova, N., Simon, C. and Turq, P., Water and ions in clays: Unraveling the interlayer/micropore exchange using molecular dynamics simulation, Geochimica et Cosmochimica Acta, vol. 71, pp. 5089-5101, 2007.
- Saito, T., Nishi, S., Amano, Y., Beppu, H. and Miyakawa, K., Origin of dissolved organic matter in deep groundwater of marine deposits and its implication for metal binding, ACS ES&T Water, vol. 3(12), pp. 4103-4112, 2023.
- 酒井隆太郎, 宗像雅広, 木村英雄, 大岡政雄, 瀬口真理子, 広域地下水流動モデル検証のための データ整備方法の検討; 幌延地域, 新潟堆積盆の例 (受託研究), JAEA-Research 2011-029, 24p, 2011.
- 酒井利啓, 早野明, 幌延深地層研究計画 深度380mまでの立坑および調査坑道における坑道壁 面の地質観察により取得したデータの統合・整理, JAEA-Data/Code 2021-010, 243p, 2021.
- 真田祐幸,丹生屋純夫,松井裕哉,藤井義明,堆積履歴が幌延地域に分布する珪質岩の力学的 特性や微視的構造変化に及ぼす影響, Journal of MMIJ, vol. 125, pp. 521-529, 2009.
- 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.
- Satpathy, A., Catalano, J.G. and Giammar, D.E., Reduction of U(VI) on chemically reduced montmorillonite and surface complexation modeling of adsorbed U(IV), Environmental Science and Technology, vol. 56, pp. 4111-4120, 2022.
- 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.
- Serco, ConnectFlow release 9.6 technical summary document, Serco Assurance, 2008.
- SKB, Long-term safety for KBS-3 repositories at Forsmark and Laxemar A first evaluation, main report of the SR-Can project, SKB Technical Report, TR-06-09, 2006.

- SKB, Post-closure safety for the final repository for spent nuclear fuel at Forsmark, Model summary report, PSAR version, SKB Technical Report, TR-21-05, 2022a.
- SKB, Post-closure safety for the final repository for spent nuclear fuel at Forsmark. Radionuclide transport report, PSAR version, SKB Technical Report, TR-21-07, 2022b.
- 下茂道人, 熊本 創, 唐崎健二, 澤田 淳, 前川恵輔, 佐藤 久, 亀裂を有する堆積岩の水理・物質 移行評価のためのデータ取得・解析, JAEA-Resaech 2008-029, 2008.
- Singraber, A., Behler, J. and Dellago, C., Library-based lammps implementation of highdimensional neural network potentials, Journal of Chemical Theory and Computation, vol. 15, pp. 1827-1840, 2019.
- Smith, P., Poller, A., Mayer, G. and Hayek, M., Provisional safety analyses for SGT stage 2: Models, codes and general modelling approach, Nagra Technical Report 14-09, 2014.
- Stoll, M., Huber, F.M., Trumm, M., Enzmann, F., Meinel, D., Wenka, A., Schill, E. and Schäfer, T., Experimental and numerical investigations on the effects of fracture geometry and fracture aperture distribution on flow and solute transport in natural fractures, Journal of Contaminant Hydrology, vol. 221, pp. 82-97, 2019.
- Stoodley, P., Sauer, K., Davies, D.G. and Costerton, J.W., Biofilms as complex differentiated communities, Annual Review of Microbiology, vol. 56, pp. 187-209, 2002.
- Stroes-Gascoyne, S., Microbial occurrence in bentonite-based buffer, backfill and sealing materials from large-scale experiments at AECL's Underground Research Laboratory, Applied Clay Science, vol. 47, pp. 36-42, 2010.
- Sueoka, Y., Yamashita, S., Kouduka, M. and Suzuki, Y., Deep microbial colonization in saponite-bearing fractures in aged basaltic crust: Implications for subsurface life on Mars, Frontiers in Microbiology, vol. 10, 2793, 2019.
- Sugiura, Y., Suyama, T. and Tachi, Y., Development of JAEA sorption database (JAEA-SDB): Update of sorption/QA in FY2021, JAEA-Data/Code, 2021-017, 2022.
- 杉山 歩,中田弘太郎,長谷川琢磨,蛍光染料の濃度低下メカニズムの解明と濃度低下に対する 対処方法の提案,地下水学会誌,vol. 65, pp. 201-230, 2023.
- Summers, R.S., Cornel, P.K. and Roberts, P.V., Molecular size distribution and spectroscopic characterization of humic substances, Science of the Total Environment, vol. 62, pp. 27-37, 1987.
- Sun, J., Ruzsinszky, A. and Perdew, J.P., Strongly constrained and appropriately normed semilocal density functional, Physical Review Letters, vol. 115, 036402, 2015.
- 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. 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, vol. 132, pp. 75-93, 2014.
- 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., Yotsuji, K., Seida, Y. and Yui, M., Diffusion and sorption of Cs⁺, I⁻ and HTO in samples of the argillaceous Wakkanai Formation from the Horonobe URL, Japan: Claybased modeling approach, Geochimica et Cosmochimica Acta, vol. 75, pp. 6742-6759, 2011.
- Tachi, Y., Yotsuji, K., Suyama, T. and Ochs, M., Integrated sorption and diffusion model for bentonite. Part 2: porewater chemistry, sorption and diffusion modeling in compacted systems, vol.51, pp1191-1204, 2014.
- 平朝彦,日本海東縁の変動と日本列島のテクトニクス,日本海東縁の活断層と地震テクトニクス(大竹政和,平朝彦,太田陽子編),東京大学出版会,pp.3-15,2002.
- 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., Manceau, A., Geoffroy, N., Marcus, M.A. and Usui, A., Chemical and structural control of the partitioning of Co, Ce, and Pb in marine ferromanganese oxides, Geochimica et Cosmochimica Acta, vol. 71, pp. 984-1008, 2007.
- 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,石井英一,大野宏和,川手訓,ガスが溶存した地下水を含む泥岩中の割れ目を対象 とした原位置トレーサー試験条件の設定に関する検討,原子力バックエンド研究,vol. 25, pp. 3-14. 2018.
- 玉村修司, 遠藤 亮, 清水 了, 岩月輝希, 天野由記, 大味 泰, 五十嵐敏文, 北海道幌延地区にお ける地下水中の有機酸のメタン生成微生物の基質としての可能性, Journal of MMIJ, vol. 128, pp. 570-575, 2012.
- 玉村修司,赤塚真依子,井川怜欧,越谷 賢,清水 了,上野晃生,大味 泰,金子勝比古,五十嵐 敏文,丸井敦尚,北海道北西部の声問層~沖積層に胚胎する溶存メタンの起源,地球化学, vol. 48, pp. 39-50, 2014.
- 田中靖治, 細谷真一, 岩盤を対象とした原位置トレーサ試験の現状, Journal of MMIJ, vol. 124, pp. 601-610, 2008.
- Teleman, O., Jönsson, B. and Engström, S., A molecular dynamics simulation of a water model with intramolecular degrees of freedom, Molecular Physics, vol. 60, pp. 193-203, 1987.
- Teramoto, M., Shimada, J. and Kunimaru, T., Understanding groundwater flow regimes in low permeability rocks using stable isotope paleo records in porewaters. In: Taniguchi, M. and Holman, I.P. (Eds.), Groundwater Response to Changing Climate, CRC Press, pp. 79-86, 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.
- 寺本雅子,嶋田純、國丸貴紀、コア間隙水中の安定同位体比をもとにした低透水性堆積岩盤に おける地下水挙動の兆候、応用地質、vol. 47, pp. 68-76, 2006.
- Thompson, A.P., Aktulga, H.M., Berger, R., Bolintineanu, D.S., Brown, W.M., Crozier, P.S., in't Veld, P.J., Kohlmeyer, A., Moore, S.G., Nguyen, T.D., Shan, R., Stevens, M.J., Tranchida, J., Trott, C. and Plimpton, S.J., LAMMPS - A flexible simulation tool for

particle-based materials modeling at the atomic, meso, and continuum scales, Computer Physics Communications, vol. 271, 108171, 2021.

Thurman, E.M., Organic geochemistry of natural waters, Springer, 1985.

- Underwood, T.R. and Bourg, I.C., Large-scale molecular dynamics simulation of the dehydration of a suspension of smectite clay nanoparticles, The Journal of Physical Chemistry C, vol. 124, pp. 3702–3714, 2020.
- Uyguner, C.S. and Bekbolet, M., Implementation of spectroscopic parameters for practical monitoring of natural organic matter, Desalination, vol. 176, pp. 47-55, 2005a.
- Uyguner, C.S. and Bekbolet M., Evaluation of humic acid photocatalytic degradation by UV-Vis and fluorescence spectroscopy, Catalysis Today, vol. 101, pp. 267-274, 2005b.
- Valencia, S., Marín, J.M., Restrepo, G. and Frimmel, F.H., Application of excitationemission fluorescence matrices and UV/Vis absorption to monitoring the photocatalytic degration of commercial humic acid, Science of The Total Environment, vol. 442, pp. 207-214, 2013.
- 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.
- Voutilainen, M., Kekäläinen, P., Poteri, A., Siitari-Kauppi, M., Helariutta, K., Andersson, P., Nilsson, K., Byegård, J., Skålberg, M., Yli-Kaila, M. and Koskinen, L., Comparison of water phase diffusion experiments in laboratory and in situ conditions, Journal of Hydrology, vol. 575, pp. 716-729, 2019.
- 和田信一郎, 土壤学, http://sky.geocities.jp/alloimo/SoilScience/SoilSciTop.html
- Wardle, R. and Brindley, G.W., The crystal structures of pyrophyllite, 1Te, and of its dehydroxylate, American Mineralogist, vol. 57, pp. 732-750, 1972.
- 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.
- Widestrand, H., Byegård, J., Cvetkovic, V., Tullborg, E.L., Winberg, A., Andersson, P. and Siitari-Kauppi, M., Sorbing tracer experiments in a crystalline rock fracture at Äspö (Sweden): 1. Experimental setup and microscale characterization of retention properties, Water Resources Research, vol. 43, W10413, 2007.
- Wrighton, K.C., Thomas, B.C., Sharon, I., Miller, C.S., Castelle, C.J., Ver Berkmoes, N.C., Wilkins, M.J., Hettich, R.L., Lipton, M.S., Williams, K.H., Long, P.E. and Banfield, J.E., Fermentation, hydrogen, and sulfur metabolism in multiple uncultivated bacterial phyla, Science, vol. 337, pp. 1661-1665, 2012.
- Yamada, S., Ichinohe, Y., Tatsuno, H., Hayakawa, R., Suda, H., Ohashi, T., Ishisaki, Y., Uruga, T., Sekizawa, O., Nitta, K., Takahashi, Y., Itai, T., Suga, H., Nagasawa, M., Tanaka, M., Kurisu, M., Hashimoto, T., Bennett, D., Denison, E., Doriese, W. B., Durkin, M., Fowler, J., O'Neil, G., Morgan, K., Schmidt, D., Swetz, D., Ullom, J., Vale, L., Okada, S., Okumura, T., Azuma, T., Tamagawa, T., Isobe, T., Kohjiro, S., Noda, H., Tanaka, K., Taguchi, A., Imai, Y., Sato, K., Hayashi, T., Kashiwabara, T. and Sakata, K., Broadband high-energy resolution hard X-ray spectroscopy using transition edge sensors at SPring-8, Review of Scientific Instruments, vol. 92, 013103, 2021.
- 吉野浩光,岸 敦康,横田秀晴,幌延深地層研究計画における深層ボーリング孔を利用した長期 水圧観測, JAEA-Data/Code 2015-014, 42p, 2015.
- 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.

- Zhang, Y. and Yang, W., Comment on "Generalized gradient approximation made simple", Physical Review Letters, vol. 80, 890, 1998.
- Zhao, Q., Goto, R., Saito, T., Kobayashi, T. and Sasaki, T., Effect of gamma-irradiation on complexation of humic substances with divalent calcium ion, Chemosphere, vol. 256, 127021, 2020.
- Zheng, X. and Bourg, I.C., Nanoscale prediction of the thermal, mechanical, and transport properties of hydrated clay on 106- and 1015-fold larger length and time scales, ACS Nano, vol. 17, pp. 19211-19223, 2023.
- Zheng, X., Underwood, T.R. and Bourg, I.C., Molecular dynamics simulation of thermal, hydraulic, and mechanical properties of bentonite clay at 298 to 373 K, Applied Clay Science, vol. 240, 106964, 2023.

4. 生活圏における核種移行総合評価技術の開発

4.1 目的と5か年の計画

4.1.1 目的

放射性廃棄物の地層処分の安全評価では、主として、放射性核種が地下深部の処分場から地下 水によって運ばれ、最終的に地表に到達するという地下水シナリオに基づき、人間が受ける被ば くの影響が評価されている。この評価において、人間の生活環境における核種移行と被ばくのプ ロセスをモデル化し、人間が受ける放射線影響を算出することが必要となる。これを「生活圏評 価」と呼ぶ。

地層処分の安全評価は数万年以上の極めて長い時間を対象とするため、将来の人間の生活環境 や生活様式の予測は困難であるとともに、仮に予測ができたとしても、その不確実性は、長期間 安定に存在する地下深部の地質環境や人工バリアの変化に関するそれと比べて大きいと考えられ る。そこで、生活圏評価に係る仮定を安全評価の目的に沿って整合的かつ合理的に設定し、生活 圏評価モデルを構築するための考え方(BIOMASS Methodology)が提唱され(IAEA, 2003a)、 そのもととなる考え方が地層処分研究開発第2次取りまとめ(核燃料サイクル開発機構, 1999、 以下、「第2次取りまとめ」という)で参照されるなど、サイトを特定しないジェネリックな生活 圏評価モデル構築に適用されてきた。

サイトを特定しないジェネリックな生活圏評価モデルでは、環境構成要素(以下、「構成要素」 という)や構成要素間のプロセスが一般的かつ簡略的に表現されていることが多い。そのため、 事業が進展し、サイトに関する情報が充実していく段階を見据えて、ジェネリックな生活圏評価 モデルが、サイトが特定されたスペシフィックな評価にどの程度適応可能かを検討するとともに、 サイトの特徴を適切に反映することが可能な評価手法を整備することが重要である。また、生活 圏への核種流入域である地質環境と生活圏とのインターフェイス(Geosphere-Biosphere Interface;以下、「GBI」という)の設定は、対象となる地表環境及び地質環境の特徴に大きく左 右される。したがって、GBI 設定に当たって重要となるそれら環境の特徴をあらかじめ理解して おくことが、サイトの特徴を反映した評価においては重要となる。

一方、処分場サイト選定の調査が進み、概要調査地区が特定され、地形や土地利用などの地表 環境条件の具体化が見込まれる生活圏評価においては、地表環境の特徴を考慮して核種移行及び 被ばくプロセスが適切に設定されるだけでなく、適切な核種移行パラメータ値が用いられること が重要である。そのために、わが国の様々な生活圏を想定した評価に対応できるパラメータデー タの拡充が必要であり、また収集したデータについてはデータ利用側(ユーザー)のニーズに合 わせて利用できるようにデータベースによる公開が望ましい。その内容については専門家による 最新の知見を得ることも重要である。なお、地表環境の変化を考慮し、様々な土壌の移行パラメ ータデータの収集に重点を置く必要がある。

そこで、地表環境の特徴に応じた生活圏評価を可能とする先端的な核種移行/被ばく評価モデ ルの構築・妥当性確認及び評価への適用条件、不確実性を踏まえた評価上の重要課題の提示、デ ータ利用側のニーズを踏まえつつ、様々な生活圏を想定した評価に係るデータの拡充を通じて、 わが国の地表環境の具体的な特徴を反映可能な生活圏評価手法を整備することを目的として、次 項以降に述べる「生活圏における核種移行及び被ばくプロセスモデルに関する検討」及び「生活 圏評価のための核種移行パラメータに関する検討」を実施した。

4.1.25か年の計画

モデルに関する検討及びパラメータに関する検討の5か年の計画は以下のとおりである。また、 年度展開を表 4.1-1 に示す。

(1) 生活圏における核種移行及び被ばくプロセスモデルに関する検討

具体的な地表環境やその変遷を考慮する際の生活圏での核種移行/被ばくプロセスの取扱いを 整理した上で、核種移行/被ばくのプロセスに係る数学モデルを最新の知見に基づき整備すると ともに、妥当性を確認する。

また、整備した個々の数学モデルについて、(2)で取りまとめた生活圏での核種移行パラメータ を参照した設定値等を用いた解析の試行に基づき、実サイトでの評価に対する数学モデルの適用 条件と不確実性を明確化し、評価上の重要課題を提示する。

(2) 生活圏評価のための核種移行パラメータに関する検討

元素固有パラメータに関しては、評価に適合するデータを適切に抽出し、パラメータ値を設定 する必要があることから、データ利用側(ユーザー)のニーズを踏まえたデータベースを公開す る。そのための最新知見を整備する。

また、重要移行パラメータに関するデータ拡充のため、土壌−土壌溶液分配係数(Kd)を例として最新データの蓄積とデータ取得の際の実験条件の影響に係る知見を取りまとめる。

	令和5年度	令和6年度	令和7年度	令和8年度	令和9年度
①生活圏における核種移行及び被ばく プロセスモデルに関する検討					
 1) 当21回じの後径移行ノ板はくノロゼ スの抽出と各プロセスの数学モデル 化に関する検討 (実施担当: JAEA) 	考慮すべき核種移行ブロセスの調査・抽出 考慮すべき被ばくブロセス の調査・抽出		核種移行/被ばくブロ 数学モデル化に関する	 セスの 数学モデ 検討 検討	レの妥当性・適用性の
 ii) 地質環境と生活圏とのインターフェ イス(GBI)での核種移行プロセスと その変遷に関する検討 (実施担当: JAEA) 	GBI近傍での核種移行: GBIの位置や希釈水量に影 環境の特徴の抽出及びそれ 水量に与える影響について	プロセスに関する調査 プロセスに関する調査 巻を与える表層/地質 いらがGBIの位置や希釈 の解析的検討	GB近傍での核種和	S行プロセスの概念の整理と	数学モデルの整備
②生活圏評価のための核種移行パラ メータに関する検討		パ	・ ラメータデータ検討委員会		
i) 被ばくプロセスモデルで扱う環境移 行パラメータの整理と最新の知見の	データベース設計		コンテンツ作成		データベース公開
集約 (実施担当:QST)	Cs	環境移行/ Sr	<u>、ラメータデータの収集</u> ヨウ素	その他元素の移行係数/	 Kd/水産物濃縮 等
ii) 重要移行パラメータに及ぼす実験 条件の影響:土壌-土壌溶液分配係	土壌試料調査と分析準備	非農耕地土壤中の重	重要核種関連元素のKd、ブル	ットニウム脱離Kdの収集によ I	るデータ拡充
数のデータ拡充 (実施担当:QST)	pHの効果、	微生物の効果	Kdlに対する溶媒の影響実験 共存塩の効果、	微生物の効果	まとめ

表 4.1-1 生活圏における核種移行総合評価技術の開発に係る実施計画の年度展開

JAEA:日本原子力研究開発機構、QST:量子科学技術研究開発機構

4.2 生活圏における核種移行及び被ばくプロセスモデルに関する検討

令和5年度は、国内外の生活圏評価や環境動態評価の最新の知見を踏まえた生活圏における核 種移行モデルの調査や、具体的な地表環境におけるモデル構築の試行に基づく留意点の整理を通 じて、わが国の地表環境の具体的な特徴を反映可能な生活圏評価手法を整備することを目指し、 検討を実施した。4.2.1 及び 4.2.2 にその成果を示す。

4.2.1 生活圏での核種移行/被ばくプロセスの抽出と各プロセスの数学モデル化に関する検討 (1) 背景と目的

これまでに、既存事業などにおいて、対象とすべき地表環境条件及びその変遷の状況が具体化 された場合の特徴を踏まえて生活圏評価モデル構築に反映するための評価手法の開発(生活圏評 価モデル構築フローの作成(加藤ほか,2011)、長期変動モデル構築手法の検討(日本原子力研究 開発機構,2018)など)を実施してきた。残された課題としては、実際の地表環境の特徴を踏ま えた生活圏評価を行う場合に、既往の評価で用いられてきた地表環境での核種移行モデルなどの 適用性について確認する必要があることが挙げられる。そこで、生活圏での核種移行プロセス(以 下、「移行プロセス」という)及び生活圏評価モデルにおける国内外の事例、環境動態評価の成果 などに関する文献調査に基づき、評価において考慮すべき重要な移行プロセスを調査・抽出し、 現状の評価における数学モデルの問題点などを整理するため、(2)及び(3)に示す移行プロセス設 定に関する試行及び文献調査を通じた数学モデルの設定状況の整理を行った。なお、令和5年度 は生活圏評価モデルの移行プロセスに着目した整理を行うこととし、被ばくプロセスの整理は今 後の課題とした。

ここで、本検討において行った試行及び調査と整理の進め方について記述する。

既存の地層処分における生活圏評価モデルでは、具体的な地表環境を特定せず、ジェネリック な環境を評価対象としている。このように特定の場所を評価対象としない生活圏評価モデルの移 行プロセスや数学モデルについて、具体的な地表環境への適用性を確認するためには、実際の地 表環境に対する移行プロセス設定の試行を通じて、問題点を整理することが合理的である。しか し、生活圏評価においては、地層処分に起因する被ばく影響を評価することをエンドポイントと していることから、その目的の範囲での移行プロセス設定の試行についても、社会的な影響を考 慮すると、実在する地表環境を参照することには慎重になる必要がある。一方、近年、山口ほか

(2024)は、長期的な隆起・侵食による地形や処分場深度の変遷を評価する手法を活用し、わが 国における一般的な土地利用を設定して、仮想的な地表環境を設定することを試みている。そこ で、(2)では、具体的な地表環境として、山口ほか(2024)が設定した仮想的な地表環境を活用し、 移行プロセスを設定する試行を行い、具体的な地表環境に対する移行プロセスの設定の適用にお ける問題点を整理した。また、(3)では、国内外の生活圏評価における移行プロセスや環境動態評 価の核種移行モデルを調査した結果から得られた数学モデルの設定状況も併せて、生活圏評価モ デルにおいて考慮すべき重要な移行プロセスについて、既存の数学モデルの具体的な地表環境へ の適用性確認に向けた問題点の整理を行った。

(2) 具体的な地表環境における移行プロセス設定に関する試行

具体的な地表環境における移行プロセスを設定するには、具体的な地表環境を模擬した仮想的 な地表環境及び評価対象領域に対して移行プロセスを設定する方法論が必要である。まずは、移 行プロセスの設定に関する方法論として、物質移行の形態を取りまとめた長尾ほか(2016)を参 考に、物質移行の始点または終点の場所となる構成要素の特性とその間で取り得る移行プロセス を整理した。一方、具体的な地表環境については、前述した山口ほか(2024)の仮想的な地形及 び地表の土地利用を対象領域として採用した。山口ほか(2024)の仮想的ではあるが具体的な地 表環境における任意の場所を用いて、長尾ほか(2016)の移行プロセスの設定方法を適用して、 具体的な土地利用間における移行プロセスの設定を試みた。

1)構成要素間における移行プロセスの整理

生活圏における移行プロセスを設定するにあたっては、その始点または終点となる構成要素を 特定するための候補地が必要となる。構成要素はそれぞれ複数の特徴を持つ。例えば、畑地であ れば、地理的には陸域上部(大気と接している地表部の意味)であり、土地利用区分としては農 地である。このような特徴を整理し、一般的な構成要素の候補地として考えられる陸域間または 水域間、もしくは陸域-水域間における移行プロセスが、長尾ほか(2016)にまとめられている。 また、長尾ほか(2016)では移行プロセスについて、地理的条件に依存する「天然」の移行プロ セスと人間活動に伴う行為により発生する「人為」の移行プロセスに分けて取り扱っている。本 検討では、具体的な地表環境において環境条件に依存して設定される移行プロセスの設定を試行 するため、天然の移行プロセスに着目した。

長尾ほか(2016)における移行プロセスを参考にして、具体的な地表環境における移行プロセスの設定の考え方を整理した。地表環境の地理的特徴から考えられる移行プロセスの一例として、 陸域と水域(水層)間で設定される移行プロセス及び陸域上部と隣接する陸域上部間に考えられ る移行プロセスを図 4.2-1 に示す。図中のセル左上から右下へ向けて構成要素を示す。構成要素 間の移行プロセスの表示は、例えば左上の陸域上部から右下の隣接陸域上部へは(A)に示し、一 方、右下の水域(水層)から左上の陸域上部へは(C)に移行プロセスを示す。なお、図 4.2-1 の ような、対角線要素(構成要素の名称を白抜き文字で表示)と非対角線要素(移行プロセスの名 称を黒色文字で表示)を用いて構成要素間の移行プロセスを表現する図のことを相互作用マトリ クスという。



図 4.2-1 陸域上部及び隣接陸域上部、水域(水層)間の一般的な構成要素とその間の移行プロ セスの例

2) 具体的な地表環境を模擬した仮想的な地表環境の設定

既存のジェネリックな評価手法(数学モデルなど)の具体的な地表環境への適用性を確認する ため、具体的な地表環境を模擬した仮想的な地表環境を設定した。仮想的な地表環境の設定には、 地形・処分場深度変遷解析ツール(山口ほか,2020)を用いて作成した地形、その地形データを 基に作成した土地被覆データ(水系・集水域、傾斜、土地利用、人口分布)及びそれらを用いて 計算した河川流量・土砂移動データからなる複数の地理情報(山口ほか,2024)を参照した。

山口ほか(2024)には、Type1から Type3の三つのモデル集水域が構築されている。本検討で は三つのモデル集水域の中から、Type2 は地形が北から南に向かって徐々に山地から平地に変化 し、また、土地利用の分布についても多様であるため、Type2 のモデル集水域を採用した。一方、 Type1 は地形の全体が山地、また、Type3 は地形の全体が平地である。採用した Type2 のモデル 集水域の特徴を以下に示す。また、モデル集水域の全体図を図 4.2・2 及び表 4.2・1 に示す。

- ・モデル集水域の大きさは南北方向約34km、東西方向約40km
- ・地形は領域の北側から南側にかけて起伏が減少し、北側には尾根部の標高 400 m-800 m 程

度の山地が分布する一方、南側には尾根部の標高 100 m - 200 m 程度の丘陵が分布し、谷沿 いには低地が分布する。

- ・モデル集水域内には六つの土地利用区分(市街地・水田・畑・草地・森林・河川)の分布が 示され、傾斜の緩い南側に市街地・水田・畑地が分布する。
- ・南側に流出する樹枝状の水系網を設定する。河口から河川の最上流部までの流路長の最大値は、43.1 km である。
- ・河川流量は、わが国の平均的な流出量と集水面積の積により、年間の総流量として簡易的に 設定されている。ここでは日本の水資源の利用状況(農業用地下水研究グループ編, 1986) に基づき、年間の平均的な流出量を1,200 mm/y とした。
- ・モデル集水域内の表層水の移動は、SACT (Soil And Cesium Transport) モデル(山口ほか, 2013; Yamaguchi et al., 2014)の土砂移動の計算方法を表層水の移動に応用して移動方向と 移動量を算出した。



図 4.2-2 モデル集水域の全体図と移行プロセスの設定を試行した領域(黒枠内)

指標	モデル集水 域の諸元	土地利用	モデル集水域の土 地利用割合[%]	位置	河川流量 [m ³ /y]
流域面積 [km ²]	730.35	畑	7.1	河口	8.75E+08
平均標高 [m]	235.8	森林	71.8		
最低点 [m]	0	河川	4.4		
最高点 [m]	1059	水田	12.7		
		市街地	2.1		
		草地	1.9		
		合計	100.0		

表 4.2-1 モデル集水域の概要

3) モデル集水域における移行プロセスの設定の試行

2)で設定した具体的な地表環境としてのモデル集水域に対して、1)で整理した一般的な移行プロセスの設定方法を適用して、モデル集水域における移行プロセスの設定を試行した。

モデル集水域における移行プロセスの設定においては、以下を検討の前提条件とした。

- ・モデル集水域上に2 km 四方のグリッドを適用し、グリッド番号 109 の直下に2 km 四方の 処分場が設置されていると仮定した。
- ・図 4.2-2 中グリッド番号 109 に仮定した処分場の下流域の河川を GBI とする。
- ・移行プロセスの設定を試行する対象領域をグリッド 171 と 190 にする(図 4.2-2 中の黒枠部分)。
- ・グリッド内(2km四方)に100m四方のセルを設定し、セルごとに土地利用を設定する。
- ・構成要素については、土地利用をもとに設定する。グリッド内の同じ土地利用のセルの面積 を合計して、グリッド内の土地利用別の構成要素の面積とする
- ・グリッド内で設定する構成要素間の移行プロセスは、グリッド外に出ないものとする。
- ・グリッド間の移行プロセスは、河川における水流(河川流)のみとする。
- ・モデル集水域内の表層水の移動方向はセルごとの地形の傾斜によって決定され、セルの属性 (表層水の移動の始点となるセルの土地利用及び終点となるセルの土地利用)が同じものご とに集計する。これにより、土地利用ごとの始点及び終点となる構成要素が整理される。
- 移行プロセスは、天然に発生するもののみを対象として設定する(灌漑は人為による移行プロセスであるため対象外)。

これら前提条件に基づき、まずは、グリッド番号 171 及び 190 内における移行プロセスの始点 及び終点となる構成要素に対して、前述の 1)で示した図 4.2-1 のような相互作用マトリクスを用 いて、当該構成要素間に該当する移行プロセスを特定した。グリッド 171 の結果を図 4.2-3、グ リッド 190 の結果を図 4.2-4 に示す。

河川					
侵食・蛇行 地表水の移動 (風雨侵食) 拡散	市街地				
侵食・蛇行 地表水の移動 拡散	土壌の移動 (風水の移動) 地表水の移 生物り・崩 地滑・落石	水田	土 (風水の移動 (風水の移動		
		土 生 壊 雨 水 む 物 り ・ 満 れ 、 む 物 り ・ 調 い む 表 物 の の 移 動 し ま 水 む 物 物 り ・ 前 都 物 り ・ あ れ か む 物 物 り ・ 朝 朝 の が か む 物 物 り ・ 前 新 の 都 む 物 り ・ 前 れ か む 物 り ・ 前 れ か む 物 り ・ 前 れ か む 物 り ・ 前 れ か む 物 り ・ 前 ま か む 物 り ・ 前 れ む 物 り ・ 前 ま む 物 り ・ 前 ま む 物 り ・ 前 む む 物 り ・ 崩 む む む い う 本 か む か む か む か む か む か む む ち む し ・ 前 む う む う い う む む む し ・ 前 う ・ 前 う い た か む む う い う む む し い う む い う い い う い う い う い い う い い う い い い い い い い い い い い い い	畑		
		土 (風水の移 動 (風水の侵 の の の の の の の の の の の の の	土 (風水の移 動 (風水の侵 の の の の の の の の の の の の の	森林	
			土 (風水の移 動 (風水雨 広 物 し で し で の 移 食 の の の の の の の の の の の の の	土 (風水の移 動 (風水の の の の の の の の の の の の の の	草地

図 4.2-3 グリッド番号 171 内の構成要素と移行プロセス

27111						
河川						
侵食・蛇行 地表水の移動 (風雨侵食) 拡散	市街地	土壌の移動 地表水の移動 拡散 生物擾乱 地滑り・崩 壊・落石				侵食・蛇行 地表水の移動 拡散
侵食・蛇行 地表水の移動 拡散	土壌の移動 (風雨の移動 拡散の移動 拡散 生物擾乱 地滑り・崩 壊・石	水田	土 壊 の 移 食) 地 表 水 む 散 長) 動 生 物 り ・ 崩 い 志 志 物 物 し ま む 志 物 動 ・ 本 む 散 妻 し 、 む 物 妻 い む 志 む 物 歌 し の 移 む む む む む む む む む む む む む			侵食・蛇行 地表水の移動 拡散
侵食・蛇行 地表水の移動 拡散	土壌の移動 (風雨の移動 拡散の移動 生物擾乱 地滑り・崩 壊・落石	土壌の移動 (風雨侵食) 地表水の移動 拡散 生物擾乱 地滑り・崩 壊・落石	畑	土壌の移動 (風水の長) 地表水の 拡物 を物 し 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、		侵食・蛇行 地表水の移動 拡散
		土壌の移動 (風水の侵食) 地表水の侵食) 拡散 生物擾乱 地滑り・崩 壊・落石	土 壊 雨 の 侵 後 食) 生 物 長) 動 (し 、 雨 水 雨 広 物 長) 、 本 雨 水 雨 広 物 長) し ま 、 雨 水 雨 赤 小 雨 広 物 長) し ま し 、 の の 合 し き し む ち い の し し む ち い の し し む ち い の し し む ち い う い で い で し い で い で し む む 物 う い ・ い う い い い い い い い い い い い い い	森林		
			土壌の移動 (風水の侵) 地表雨の侵) 拡散 生物り・崩 地滑り 落石		草地	
河川流 拡散 生物擾乱						合流してく る河川

図 4.2-4 グリッド番号 190 内の構成要素と移行プロセス

4) モデル集水域において設定した移行プロセスと第2次取りまとめ生活圏評価 FEP との確認

前項では、具体的な地表環境を想定したモデル集水域内の構成要素間の移行プロセスを設定した。本項では設定した移行プロセスが想定する構成要素間で発生するプロセスであるかどうかを確認するため、第2次取りまとめの生活圏評価モデルにおける FEP(以下、「H12-FEP」という)との比較を行った。H12-FEPと比較した結果を表 4.2-2 に示す。

始点	終点	設定した移行プロセス	H12-FEPの取り扱い
		土壌の移動	「土壌の移動は侵食に含まれる」とした
	地表水の移動	「土壌(地表水)の移動は侵食に含まれる」とした	
土壌	土壤	拡散	「拡散は移流と比べて重要度が低いので対象外」とした
市街地 水田 畑 森林 草地 河川 河川	生物擾乱	「動物から土壌または堆積層へのプロセス」とした(沿岸 水-沿岸堆積層間のプロセス)	
	地滑り・崩壊・落石	スクリーニングで対象外とした	
	地表水の移動	「土壌(地表水)の移動は侵食に含まれる」とした	
	侵食・蛇行	「侵食」とした	
	拡散	「拡散は移流と比べて重要度が低いので対象外」とした	
	河川	河川流	「河川流」とした
		拡散	「拡散は移流と比べて重要度が低いので対象外」とした
	生物擾乱	「動物から土壌または堆積層へのプロセス」とした(沿岸 水-沿岸堆積層間のプロセス)	

表 4.2-2 設定した移行プロセスに対する H12-FEP の取り扱い

5) モデル集水域における移行プロセス設定の試行のまとめ

具体的な地表環境を想定したモデル集水域において、構成要素間の移行プロセスの設定を試行 し、設定した移行プロセスを H12-FEP と比較した。比較の結果、移行プロセスの始点及び終点 となる構成要素とその間の移行プロセスは適切に設定されていると考えられる。なお、第2次取 りまとめの生活圏評価モデルでは、FEP を用いたスクリーニングによって移行プロセスが取捨選 択されている。モデル集水域に設定した移行プロセスに対しても、国際原子力機関(IAEA)の生 活圏評価におけるモデル構築手法(BIOMASS Methodology)(IAEA, 2003a)を適用し、第2次 取りまとめにおける FEP のスクリーニングのような考え方を取り入れることが必要である。

モデル集水域に設定した移行プロセスと第2次取りまとめの生活圏評価モデルの移行プロセス の設定状況から、土壌の移動(侵食)や生物擾乱、河川流などが第2次取りまとめと同様の移行 プロセスとして設定されていることが確認できた。一方、拡散はモデル集水域における移行プロ セスでは様々な土地利用間に設定された移行プロセスであるが、第2次取りまとめの FEP の設 定状況からはスクリーニングで設定対象外であった。生活圏における拡散のプロセスの重要性は 定量的に検討する必要があると考えられる。

本項でモデル集水域でも移行プロセスとして抽出された土壌の移動(侵食)や生物擾乱、河川 流などについては、(3)で整理する国内外の生活圏評価などにおける数学モデルの設定状況と照ら し合わせつつ、既存の数学モデルの具体的な地表環境への適用性を検討する。

(3) 国内外の生活圏評価における地表環境での移行プロセス及び環境動態評価における核種移行 モデルを調査した数学モデルの設定状況の整理

本項では、国内外の生活圏評価における移行プロセスの調査として、スウェーデン及び英国、 日本原燃株式会社の生活圏評価を対象にした文献調査(例えば、SKB, 2023; RWM, 2016; 日本 原燃株式会社, 2021)を行った。調査結果の整理に当たっては、原子力発電環境整備機構(以下、

「NUMO」という)の包括的技術報告書(原子力発電環境整備機構, 2021a;以下、「NUMO 包括的技術報告書」という)の生活圏評価で考慮しない構成要素(例えば、大気や生物相など)及びその構成要素を始点または終点にする移行プロセスは、整理の対象外とした。国外の生活圏評価における移行プロセスは、NUMO 包括的技術報告書の移行プロセスと直接的に比較できる移行プロセスを抽出し、その移行プロセスとの相違について確認した。また、環境動態評価におけ

る核種移行モデルの調査として、国内外の環境動態評価に関する学術論文などにおいて実際の地 表環境での移行プロセスを取り扱った文献を抽出し調査を行った。調査においては、生活圏評価 において考慮する移行プロセスとの関係性を考慮して、NUMO 包括的技術報告書に記載されて いる FEP リストのうち、FEP 番号 F5.3.1.3(表層の水による移行)と FEP 番号 F5.3.1.2(表層 の土壌や土かぶりによる移行)に関連する文献を対象とした。

1) 国内外の生活圏評価における移行プロセスの調査

調査対象とする文献は、国内外の生活圏評価の事例から、処分形態や事業段階などの違いを考 慮して選定した。処分形態としては、浅地中処分、地層処分、海底下処分を対象とし、事業段階 としてはサイト選定段階、サイトが決定し事業を実施段階のものを選定した。また、様々な特徴 に基づく差異を比較可能なように、安全評価書の詳細が公開されているものを選定した。調査対 象にした国内外の事業者と生活圏評価に関する特徴を表 4.2-3 に示す。

生活圏評価における移行プロセスや数学モデルが、処分形態、処分深度や事業段階の相違、サ イト条件などの特徴をどのように考慮して設定されているかに着目して、各生活圏評価事例に関 する文献調査から生活圏評価において考慮すべき重要な移行プロセスを抽出するとともに、評価 で用いられている数学モデルについて整理を行った。各生活圏評価事例に関する調査結果につい て以下に示す。

国	スウェーデン	英国	日本
事業者	SKB	RWM	JNFL
事業段階	処分地選定済(安全審査中)	概要調査(サイト選定中)	事業実施中
処分廃棄 物	短寿命低中レベル放射性廃棄物	ガラス固化体、中レベル放射性廃棄物、 低レベル放射性廃棄物	低レベル放射性廃棄物
処分形態	海底下	地層処分	浅地中処分(ピット処分)
処分深度	海底から約50~60 m以深	200m~1,000m	地表から20m程度
サイト条 件	低い地形的起伏、浅い沿岸湾、 歴史の浅い湖と湿地帯	想定している処分深度にある母岩となり 得る三つの岩種(硬岩、粘土、岩塩)に 対するジェネリックな条件	周辺には老部川と二又川, 尾駮 沼(汽水性)がある。緩く傾斜 する台地からなり、地下水は専 ら降水によってかん養されてい る。施設は地下水面下に設置。
生活圏評 価モデル の特徴	 ・核種移行および被ばくのための生活圏モデルBioTEx(コンパートメントモデル)を構築 ・水生生態系と陸上生態系の両方をモデルで表現しており時間変遷を考慮 ・土壌層は複数コンパートメントで表現 ・一次生産物を考慮したコンパートメントの設定 ・有機物中の放射性核種コンパートメントを設定 ・大気とのガス交換を考慮 ・水域・泥炭でリター生産考慮 	 ・気候変動による影響を考慮した長期変化を考慮 ・相互作用マトリクスを作成しモデルを構築 ・地表近傍の帯水層コンパートメントを設定 ・表面土壌コンパートメントからの蒸発散量を設定 ・水域は河口域・沿岸域・海洋域を考慮、「ベッドロード」の移行に関連した、河口、沿岸、及び海洋システム間での核種移行は表現されていないが、浮遊堆積物での移行は関連する沈降と再浮遊とともに含まれている。 ・潮汐交換による移行プロセスを考慮 	 ・敷地及びその周辺の社会環境 又はわが国で現在一般的とされる生活様式を前提 ・将来予測される地質環境や水 理環境については過去の記録 や現地調査等の最新の知見を 反映し合理的に設定 ・保守性の観点からワンウェイ モデルを採用 ・既往の知見や経験に基づいた 移行プロセス及び数学モデル を設定

表 4.2-3 国内外の生活圏評価事例の概要

● スウェーデン

スウェーデン核燃料・廃棄物管理会社(以下、「SKB」という)がSFR(短寿命放射性廃棄物 処分場)の拡張申請のために実施した生活圏評価について調査した。文献としては、SFRのため
の予備的安全解析レポートに寄与する処分場閉鎖後の安全評価のメインレポート(SKB, 2023; 以下、「PSAR」という)を基に調査を行った。PSARの生活圏評価の主な目的は、処分場が設置 されるフォルスマルク地域の生活圏システムの適切な記述と生活圏システムの不確実性に対する 適切な取扱いを反映したモデルを作成し、人間への線量とヒト以外の生物種への線量率を計算す ることによって、人間と環境への影響を評価できるようにすることである。また、PSARの生活 圏評価は閉鎖後の安全評価全体の一部として統合された物であり、適用された方法論は安全評価 全体の方法論に沿ったものである。加えて、IAEAのBIOMASS Methodology (IAEA, 2003a) にも適合している。

一方、PSAR の生活圏評価は、SFR 長期安全に関する評価のメインレポート(SKB, 2014;以下、「SR-PSU」という)の生活圏評価(主なアプローチ、モデル、データセット)を踏襲している。これに加え、本評価のために小さな更新を多く実施しており、モデル更新の多くは安全評価のための生物圏評価レポート(SKB, 2019;以下、「SE-SFL」という)で導入されたものである。

PSAR において生活圏評価で用いられた核種移行及び被ばくのための生活圏評価モデルは BioTEx モデル(<u>Biosphere Transport and Exposure model</u>)と呼ばれる。コンパートメントの 構造は、フォルスマルク地域の生態系、ランドスケープ形成として設計されている。また、陸域 生態系と水生生態系を連成させ、それらの時間的変遷、農業システム、線量計算を扱っている。

SR-PSUにおいて、SKB は水生生態系と陸上生態系の概念モデルを検討することにより、自然 生態系と農業生態系における放射性核種の輸送と蓄積に重要なプロセスを特定した。すべての生 態系において、放射性核種の流れは、水、固体物質、気体のマスフロー、または放射性核種の無 機と有機の変換(すなわち、有機物の一次生産と無機化)、放射性核種の固体・液体間の交換と関 連している。次に BioTEx モデルにおけるコンパートメント間の放射性核種の流れによって定量 的に重要であると考えられるものを評価し、SKB の FEP (SKB, 2013) と照合した後、移行プロ セスを特定した。BioTEx モデルから特定された移行プロセスについて、本検討では、NUMO 包 括的技術報告書の生活圏評価モデルにおける移行プロセスと同一と判断できる移行プロセスを抽 出し以下に示す。

- ・生物擾乱
- ・水平方向の移流
- ・鉛直方向の移流
- ・拡散(鉛直方向)
- ・堆積
- ・再浮遊
- ・沈殿

また、SR-PSUで使用されたモデルはフォルスマルクにおける使用済燃料処分場の長期安全評価レポート(以下、「SR-Site」という; SKB, 2010)で用いられたモデルに類似している。そこでSR-Siteの生活圏評価モデルにおける移行プロセスとその数学モデル(Avila et al., 2010)についても整理した。SR-Siteにおける移行プロセスにおいては、35の移行プロセスが設定されている。この中でNUMO包括的技術報告書にて考慮していない構成要素である大気及び一次生産者、リターに関連する移行プロセスを除いて整理したところ、下記の移行プロセスが抽出された。

- ・移流
- ・拡散
- ・侵食
- ・沈殿
- ·再浮遊

スウェーデンの生活圏評価モデルの移行プロセスは、SR-Site から現在の PSAR まで新しい報告書の公開とともに段階的にコンパートメントまたは移行プロセスが詳細に記述されているが、 NUMO 包括的技術報告書の生活圏評価モデルで取り扱わない大気などに係る構成要素及びそれに関連する移行プロセスを除くと、基本的には SR-Site の移行プロセスと同様である。

英国

英国の地層処分の実施主体である原子力廃止措置機関(NDA)の子会社である放射性廃棄物管 理会社(以下、「RWM」という)が2017年8月、一般的な条件における処分システム・セーフ ティケース(Generic Disposal System Safety Case;以下、「gDSSC」という)の2016年版(RWM, 2016)を公表した。本項では、gDSSCの生活圏評価に関する研究状況レポートを中心に、英国 における生活圏評価の移行プロセスについて整理した。英国ではサイト選定作業を進めている最 中であり、gDSSCは地層処分施設のサイトを選定していない段階でのセーフティケースである。 地層処分施設は地下200m・1,000mの間に建設される可能性が高いとされており、その深度に ある母岩となりうる三つの岩種(硬岩、粘土、岩塩)に対して安全評価が実施されている。RWM の長期性能検討における生活圏の表現方法は、国際的なガイダンス、特に IAEA プログラムの中 で開発された BIOMASS Methodology と一致したものとなっている。

英国の評価では、汚染物質の陸域/淡水系への放出の可能性に主眼が置かれている。過去の検 討から、一般に陸域及び淡水環境への放出の方が河口域及び沿岸域、海洋域への放出よりも、放 射性物質による潜在的な影響が大幅に大きいことが確認されている。一方、gDSSCでは、陸域及 び淡水環境の生活圏評価モデルと河口域・沿岸域・海洋域の生活圏評価モデルが検討されている。 ここでは陸域及び淡水環境の生活圏評価モデルと河口域の生活圏評価モデルの移行プロセス及び 数学モデルについて示す。

陸域及び淡水環境の生活圏評価モデルにおける構成要素と移行プロセスとして、gDSSC では 数学モデルで明示的な表現が必要な移行プロセスは下記のプロセスとしている。なお、大気、人 間活動に関連するプロセスは、比較から除外した。

- ・移流
- ·浸透/側方浸透流
- ・浸透
- ·生物擾乱

一方、河口域、沿岸域、海洋域の生活圏評価モデルでは、放射性核種は、地下水中または淡水 排出部中に直接流入する可能性があるとして、大規模な河川の場合、通常、河川は河口を通って 海に流入するが、陸上環境からの表層流出水と地下流出水が湧水として直接沿岸環境に流入する 場合も考えられるとしている。

河口域及び沿岸域、海洋域生活圏評価モデルには、別々の概念モデルが考慮され潜在的な汚染 物質放出経路を想定している。概念モデルにおいて構成要素はぞれぞれの水域モデルごとに設定 されているが、構成要素間の移行プロセスとしては同じ移行プロセスとして数学モデルを設定し ている(Walke et al., 2013)。そこで本項では、河口域の生活圏評価モデルの移行プロセスの抽 出結果を示す。河口域の生活圏評価モデルの数学モデルで、明示的な表現が必要なプロセスとさ れているのは下記のプロセスである。なお、被ばくプロセス及び大気、人間活動に関連するプロ セス、陸域では検討しない海洋域に関連するプロセスは比較から除外した。

- ・流出
- ・河川流
- ・堆積

- · 生物擾乱
- ・正味の沈殿
- ・侵食
- ·再浮遊

英国の生活圏評価モデルにおける移行プロセスは、陸域と河口域などに対してそれぞれサイト ジェネリックな生活圏評価モデルが構築されている。各モデルの構成要素間に特徴のある移行プ ロセスが設定されている。

日本

日本原燃株式会社(以下、「JNFL」という)の六ヶ所低レベル放射性廃棄物埋設施設の生活圏 評価では、地表水系に放射性物質が流入する経路及び生活圏に放射性物質がある場合についての 検討が行われている(日本原燃株式会社,2021)。廃棄物埋設施設の廃止措置の開始後の評価にお いては、ICRP Pub.81 (ICRP, 1998)に基づいて、自然過程を考慮する自然事象シナリオ及び人 間侵入を考慮する人為事象シナリオについて、当該施設に起因して発生すると想定される公衆の 受ける線量が評価されている。

線量を評価するための評価対象領域の特徴は下記の通りである。

- ・廃棄物埋設施設の敷地付近には、老部川と二又川があり、尾駮沼は太平洋につながっている 汽水性の沼である。
- ・地下水面は主に第四紀層内にあり、融雪及び降雨時に地下水面の変動がある。
- ・廃棄物埋設地を通過した水は中央沢を経て尾駮沼へ流入している。廃棄物埋設地及びその付 近は、緩く傾斜する台地からなり、地下水は専ら降水によって涵養されている。
- また、評価対象領域に想定されている移行プロセスは以下の通りである。
- ・廃棄物埋設地から漏出する放射性物質の廃棄物埋設地表面付近の土壌への移行
- ・基本的に地下水を介して生じる廃棄物埋設地の近傍土壌及び周辺岩盤への放射性物質の移 行
- ・廃棄物埋設施設から漏出した放射性物質の覆土または岩盤(鷹架層)とそれぞれの間隙水中での移行

なお、JNFLの生活圏評価では、構成要素中の核種濃度を位置と時間の関数として算出するモ デル(ワンウェイモデル)を採用している。諸外国や第2次取りまとめの生活圏評価モデルのコ ンパートメントモデルとは数学モデルに対する設定方法が異なるため、数学モデルの直接的な比 較はせず、数学モデルで取り扱うパラメータとその設定についてのみ整理した。モデルにおいて は、土壌の特性に関連するパラメータ及び地下水の流れに関連するパラメータが設定されており、 低レベル放射性廃棄物の浅地中処分の処分場は場所が特定されているため、パラメータはサイト スペシフィックな情報に基づき設定されている。それらパラメータを数学モデルに設定し、浅地 中処分の処分場周辺の地下水または沼などの水域、土壌中の核種濃度を求める。一方、評価時間 は地層処分の生活圏評価の時間スケールとは大きく異なる。時間スケールの違いはあるが、サイ トスペシフィックの評価に向けて、評価対象領域の考え方や、地下水または表層水による処分施 設から核種の移行とその方向の設定などについては、定性的な情報として利用できると考えられ る。

● 国内外の生活圏評価における移行プロセスの数学モデルの比較

本項では、スウェーデン及び英国の生活圏評価モデルにおける移行プロセスの数学モデルについて、NUMO 包括的技術報告書の生活圏評価モデルの数学モデルと比較した。数学モデルやパ

ラメータの設定、各国の事業状況なども考慮して比較し、具体的な地表環境における移行プロセスの設定の取り扱いや、既存の数学モデルの適用性について整理した。また、具体的な地表環境における移行プロセスとして、(2)で設定を試行した移行プロセスの結果についても、文献調査と合わせて比較の着目点とした。抽出したすべての移行プロセスを表 4.2・4 に示す。一方、NUMO 包括的技術報告書の生活圏評価モデルの移行プロセスも表中に記載したが、NUMOの移行プロ セスは、スウェーデンと英国の移行プロセスに対応したプロセスのみを記載した。また、表中で は、各国の移行プロセスが同じ意味と判断した行ごとに整列した。なお、JNFLの生活圏評価モ デルはワンウェイモデルであることから、SKB及び RWM、NUMO包括的技術報告書などの生 活圏評価モデルの数学モデルと直接的に比較することは適切ではないため省略した。

	蚥			
	(2)で設定を試行した 移行プロセス	NUMO (スウェーデンと英国 の移行プロセスに対応 する部分のみ提示)	スウェーデン	英国
1	土壌の移動(侵食)	侵食	侵食	侵食
2	河川流	河川流	水平方向の移流	河川流
3	生物擾乱	-	生物擾乱	生物擾乱
4	拡散	-	拡散	-
5	侵食、蛇行	浚渫/蛇行	-	-
6	地表水の移動	-	-	-
7	-	-	移流	移流
8	-	-	堆積	堆積
9	-	再浮遊	再浮遊	再浮遊
10	-	-	拡散(鉛直方向)	-
11	-	沈殿	沈殿	正味の沈殿
12	-	浸透	鉛直方向の移流	浸透/側方浸透流
13	地滑り	-	-	流出

表 4.2-4 (2)で設定を試行した移行プロセスと国内外の文献調査から抽出した移行プロセスの比 較

表 4.2-4 から、いずれの国の生活圏評価モデルにおいても設定されている移行プロセスがある 一方、異なる移行プロセスもあることがわかる。以下に、各生活圏評価モデルにおいて設定され ている移行プロセスについて、表 4.2-4 の 1 行目の土壌の移動(侵食)からその数学モデルにつ いて考察する。

土壌の移動(侵食)(表 4.2-4 1 行目)

土壌の移動(侵食)の数学モデルについての比較を表 4.2-5 に示す。日本とスウェーデンの数 学モデルは、パラメータ名称が異なるが、同じ数学モデルである。また、英国の数学モデルとも パラメータの与え方は異なるが、数学モデルはほぼ同じ設定である。侵食の数学モデルは、処分 場サイトが特定されているか否かに関わらず、同様の数学モデルの設定が適用できることが示唆 される。サイトスペシフィックであるスウェーデンの数学モデルのパラメータ値を参考にするこ とにより、具体的な場所における侵食の設定と設定範囲の考え方が参考になると考えられる。

日本	スウェーデン	英国
 ・土壌(水)の移動を 侵食ととらえる ・鉛直方向の侵食にも 同じ数学モデルを適 用 	 レゴリスの侵食である 鉛直方向の侵食 評価対象域は湖や湿地を 想定 	 ・河口域、沿岸域における侵食である ・河口水路の蛇行を反映するために生物擾乱と再浮遊の移行も侵食移行率に含まれる
移行率[1/y]= <u>侵食速度[m/y]</u> 土壌深さ[m]	移行率[1/y]= <u>湖底海底堆積物の蓄積率[m/y]</u> レゴリス深さ[m]	移行率[1/y]= <u>侵食率[kg/m²/y]×面積[m²]</u> 密度[kg/m³]×体積[m³]

表 4.2-5 "土壌の移動"(侵食)の数学モデルの比較

● 河川流 (表 4.2-4 2 行目)

河川流の数学モデルについての比較を表 4.2-6 に示す。日本と英国の数学モデルはまったく同 じ数学モデルである。一方、スウェーデンの数学モデルでも日本と英国の数学モデルと同じよう な数学モデルである。ただし、スウェーデンの数学モデルにおいてはパラメータの与え方が日本 と英国よりも詳細である。これはスウェーデンにおいて処分場が特定されているため、流域面積 などのパラメータが特定でき、具体的な下流への移流(河川流)の数学モデルが設定できるため と考えられる。

日本	スウェーデン	英国
移行率[1/y]= <u>Qrw</u> Qrw:河川水流量 [m ³ /y] Vrw:河川水コンパー トメントの体 積[m ³]	海域、湖沼、河川などの水域から下流 への"移流"の式 ・湖の隔離前の場合 移行率[1/y]= <u>1.0</u> <i>wat_ret</i> ・湖の隔離後の場合 移行率[1/y]= <i>area_wshed・runoff</i> <i>depth_aver・Aqu_area_obj</i> wat_ret:海盆内の平均水滞留時間[y] area_wshed:流域面積[m ²] runoff:年間の流出量[m/y] depth_aver:平均水深[m] Aqu_area_obj:湖流域面積[m ²]	移行率 $[1/y] = F_{ij}$ F_{ij} $F_{ij}: コンパートメントi からコンパートメントjへの体積流量[m^3/y]V_i: コンパートメントi の体積[m^3]$

表 4.2-6 河川流の数学モデルの比較

● 生物擾乱(表 4.2-4 3 行目)

生物擾乱の数学モデルについての比較を表 4.2-7 に示す。NUMO 包括的技術報告書では考慮し ていないため、表 4.2-7 に示すわが国の評価での数学モデルは、第 2 次取りまとめから引用した。 生物擾乱は、各生活圏評価モデルに設定されているが、それぞれ数学モデルが異なっている。(2) の試行においても移行プロセスとして抽出されており、考慮すべき移行プロセスであることが示 唆される。なお、同じサイトジェネリックな評価段階の日本と英国で、数学モデルが異なった。 一方、スウェーデンの数学モデルのパラメータには、生物擾乱に直接関連するパラメータは設定 されていない。サイトスペシフィックのスウェーデンの数学モデルには、再浮遊率、沈殿率を意 味するパラメータが設定されている。スウェーデンの数学モデルのパラメータから、生物が発生 元になる擾乱の動きを別パラメータ(再浮遊率や沈殿率など)としてとらえていることがわかる。 このことから、生物擾乱のプロセスの意味を正確に把握し、考慮すべき現象を整理することが必要である。

日本	スウェーデン	英国
沿岸海域堆積層から の再浮遊プロセスと しての生物擾乱	水生生態系における生物擾乱 移行率[Bq/y]= (res _{rate} – sed _{rate})area _{aq} dens _{aq} AC _{aq}	河口、沿岸、海洋域の生活 圏システムでの生物擾乱 移行率[1/y]= B _{ii} A _i
移行率 $[1/y]=$ $\frac{(Rd_{msed}-1)B_{sed}}{Rd_{msed}d_{msed}^2}$	res _{rate} :総面積比に対する体積再浮 遊率 [m ³ /(m ² y)] sed _{rate} :総面積比に対する体積沈殿 率 [m ³ /(m ² y)] area _{ag} :開放水面(海域、湖沼、河	- <u>ρ_{b,i}V</u> i B _{ij} : 堆積物コンパートメン トij間での生物擾乱率 [kg/(m ² y)]
B _{sed} : 生物擾乱によ る拡散係数 [m ² /y]	川)の面積 [m ²] dens _{aq} :水域上部堆積層の密度 [kg/m ³] AC :粘ナジッチャ中の放射能濃度	A _i :コンパートメントiの面 積[m ²] ρ _{b,i} :コンパートメントiの 乾燥が地々密度
u _{msed} ,堆值眉沫台 [m] Rd _{msed} :遅延係数[-]	RO _{aq} (福土ジッチャの単 [Bq/kg] (粘土ジッチャの単 位量[1/kg]と粘土中核種量 [Bq]に分けて考慮できるが AC _{aq} のまま表示する)	^{¥2,床, Viv 9 密度 [kg/m³] V_i:ドナーコンパートメン トiの体積 [m³]}

表 4.2-7 生物擾乱の数学モデルの比較

● 拡散(表 4.2-4 4 行目)

拡散の数学モデルについての比較を表 4.2-8 に示す。拡散は、ジェネリックな評価段階である 日本と英国では考慮されないが、サイトスペシフィックな評価段階であるスウェーデンでは考慮 された移行プロセスである。(2)の試行において設定した拡散は、一般的な物質の移行プロセスと して設定した。一般的な移行プロセスとしての拡散は、実際の場所でも起こっている現象である と考えられるが、その現象の影響の大きさは、第 2 次取りまとめ生活圏評価の FEP のスクリー ニングでは、重要度が低いとして評価対象外となった。拡散のプロセスについては、さらに設定 の考え方を整理する必要があることが示唆される。

表 4.2-8 拡散の数学モデルの比較

日本	スウェーデン	英国
拡散の設定なし	レゴリスを上部・中間・下部として考慮し、その間の拡散を考慮している(Avila et al., 2010)。中間から下部のレゴリスへの拡散を考慮した移行係数を以下に示す。最新の報告書(SKB, 2023)では拡散に関する記述はない。	拡散の設定なし
	移行率[1/y]= 2.0 · <u>拡散係数[m²/y]</u> [^{中間レゴリス}] ² ×遅延係数[-] 深さ[m]	

● 浚渫/蛇行(表 4.2-4 5 行目)

浚渫/蛇行については、スウェーデン及び英国の移行プロセスにはなかった。NUMO における 浚渫/蛇行の数学モデルは、浚渫/蛇行により堆積する量を河川堆積層コンパートメントの体積で 除することから移行率を算出する。スウェーデンや英国の移行プロセスでは、堆積を考慮してい ることから、浚渫/蛇行を堆積の移行プロセスとして取り扱うことが適切かもしれない。

地表水の移動(表 4.2-4 6、7 行目)

試行による移行プロセスの設定では、地表水の移動を取り入れた。NUMOの生活圏評価モデルでは設定がない。一方、スウェーデン及び英国の移行プロセスとしては移流が地表水の移動に 近いと考えられるが、数学モデルを確認すると堆積層中の水平の水の移動または鉛直方向の水の 移動であった。

● その他の移行プロセス(表 4.2-4 8 行目以降)

その他の移行プロセスは、鉛直方向の移行プロセスまたは FEP のスクリーニングによって移 行プロセスが採用されなかったものである。(2)の試行における移行プロセスの設定では、鉛直 方向の移行プロセスは検討外であった。今後は鉛直方向の移行プロセスの設定の考え方を整理し、 数学モデルの比較、整理を行いたい。

2) 環境動態評価における核種移行モデルの調査

調査対象にした環境動態評価は、NUMO 包括的技術報告書の FEP のプロセスとしても挙げら れていた移行プロセスに着目し、以下の対象について、文献調査に基づき、移行プロセスと数学 モデルを整理した。括弧内の番号は NUMO 包括的技術報告書の FEP 番号である。

● 河川に関連する移行プロセス(表層の水による移行(F5.3.1.3))

Xu et al. (2023) は、表流水が地下水域に流入して再び表流水に戻る Hyporheic exchange flow (以下、「HEF」という)と呼ばれる現象と、河川域における深層地下水の湧昇を考慮した放射性 核種輸送モデルを開発した。HEF は、一般に地下水の湧昇よりもはるかに速いものの河川の流速 と比較するとかなり遅いために、水中に含まれる溶質の滞留を引き起こす。表流水と地下水の交 換(hyporheic exchange)及び河床間隙水域(hyporheic zone)での滞留時間は、河川における 放射性核種の輸送を制御する重要なパラメータであるが、HEF による相互作用及びそのほかの 滞留過程を考慮した評価モデルに関する研究はほとんど行われていない。そこで、Jonsson and Elert (2005)による HEF を考慮したモデルに基づき、移流、HEF、第四紀層を介した地下水湧 出のみを考慮することで、簡略化した河川の評価モデルを開発した。検証の結果、HEF 速度が極 端に遅い場合を除いて、ほとんどのケースは堆積物中の平衡状態が数千年以内に到達していた。

これは、希釈モデルを用いて対象河川の流出流の放射能濃度を推定し、流出流の放射能濃度に 対応する収着分配係数の値(Kd)値を乗じることによって堆積物の放射能濃度を導出できること を示唆している。また、評価のタイムスケールが数百年程度よりも短い場合には、Xu et al.(2023) で示した河川の簡易評価モデルを使用することが可能であった。

● 土壌からの洗い出しに関連するプロセス(表層の土壌や土かぶりによる移行(F5.3.1.2))

Liu et al. (2019) では、土壌中の放射性セシウムの鉛直移動と長期固定を考慮した放射性セシ ウム流出(wash-off)の新しいプロセスを導入することにより、SACT(Soil and Cesium Transport; Yamaguchi et al., 2014)を改善することを目的としている。SACTは東京電力福島 第1原子力発電所の事故後の放射性セシウムの長期的な移動と分布をシミュレートするために開 発が行われてきた、汎用土壌流亡予測式(USLE)に基づく数値モデルである。深度プロファイ ル測定結果の統計分析、近年の収着実験結果に基づく概念モデルの開発、モデルの検証などの改 良をおこなった結果、新しいSACTモデルはパラメータのチューニングなしに測定結果との一致 を大幅に改善することができた。

このモデルは土壌侵食モデル、鉛直移動モデル、長期固定モデルの三つのサブモデルから構成 されている。基にした SACT の土壌侵食モデルに対して、放射性セシウムの下流のセルへの運搬 と再堆積した土壌からの脱離などを考慮し、固体からの流出(solid wash-off)と液体からの流出 (liquid wash-off)を追加したモデルである。SACTでは堆積物輸送のみを考慮していたが、全 放射性セシウムのフラックスは、異なる粒子に対する固体と液体の流出を組み合わせることによ って求めることができる。

ここで環境動態評価における移行プロセスの2件の調査から、それら移行プロセスの生活圏評価への適用性について考察する。Xu et al. (2023)のコンパートメントモデルでは、鉛直方向のコンパートメントを詳細に区分し、河床や堆積層と河川水との間の移行プロセスを詳細に考慮していた。HEF は地下水湧昇よりはるかに速いものの河川の流速よりもかなり遅い現象である。 HEF により表層水中の核種の河床への滞留による遅延効果が期待されるが、核種は河川水から河床の堆積層へ移行し再び河床の堆積層から河川水へ移行するプロセスであること、また、地層処分の評価の時間スケールなども勘案すると、HEF の移行プロセスを生活圏評価に取り入れることについて、さらに影響の程度を調査する必要があると考えられる。

一方、Liu et al. (2019) は、SACT モデルの改良により、侵食及び鉛直方向の移行、長期の固定を勘案しており、Csの移行挙動に着目した検討であることから、評価期間は数百年程度と想定される。SACT の改良により詳細な Csの移行プロセスを組み込んだ一方で、評価の時間スケールが地層処分の評価の時間スケールと大きく異なるため、本調査で明らかになった移行プロセス については、現在の生活圏評価モデルの移行プロセス及び数学モデルとの整合性をさらに確認することが必要である。環境動態評価においては、様々な現象や移行プロセスが検討されていることが分かった。これらの調査結果は移行プロセスの一つとして地層処分の移行プロセスとの整合性を確認しつつ整理を継続する。

(4) まとめ

本検討では、モデル集水域を用いて、仮想的ではあるが、具体的な地表環境における移行プロ セスを設定し、第2次取りまとめの生活圏評価における移行プロセスと同様の移行プロセスを設 定できることを確認した。また、処分場サイトの特徴を適切に反映した生活圏評価モデル構築の ための考え方を整理した。

さらに、国内外の生活圏評価の文献調査から、事業段階などが異なる生活圏評価モデルにおけ る移行プロセス及び数学モデルを比較した。その結果、一部の移行プロセスについては、サイト スペシフィックな生活圏評価モデルにも、ジェネリックな生活圏評価モデルで取り扱っている数 学モデルにも適用できることを確認した。一方、ジェネリックな生活圏評価モデルからサイトス ペシフィックな生活圏評価モデルへの事業の進展により、数学モデルは同様でも、数学モデル中 のパラメータにサイトスペシフィックなデータが利用されていることもあった。処分場サイトの 特徴を適切に反映するために必要な知見の整理ができた。

今後は、具体的な地表環境における移行プロセスの設定において、鉛直方向の移行プロセスの 設定について検討することが必要である。また、水平方向においても構成要素の広さ決定のため の考え方の整理も重要である。一方、環境動態評価における移行プロセスについては、生活圏評 価特有の時間スケールの考え方が適切に反映できるように、文献調査対象には十分な検討が必要 である。

本検討では取り扱わなかった被ばくプロセス及び数学モデルについて、人間への影響を評価する上で大変に感度が高いことが想定される。今後の検討では具体的な地表環境における被ばくプロセス設定の考え方の整理とその数学モデルやパラメータの整理を進めることが必要である。

4.2.2 地質環境と生活圏とのインターフェイス(GBI)での核種移行プロセスとその変遷に関する 検討

(1) 背景と目的

生活圏への核種流入域である GBI の設定は、対象となる地表環境及び地質環境(以下、「対象 環境」という)の特徴に大きく左右される。そのため、GBI の設定に当たって重要となる対象環 境の特徴をあらかじめ理解しておくことが重要となる。そこで、本項では、GBI の設定に影響を 与える対象環境の特徴について、諸外国の生活圏評価での GBI における核種移行プロセスの取扱 いについて調査し、GBI の位置や GBI 近傍での核種移行量を変動させる可能性がある対象環境 の特徴について整理した。加えて、対象環境の特徴の中から GBI の位置などに大きく影響すると 考えられるいくつかの特徴の影響の大きさについて整理した。

(2) GBIの設定に影響を与える対象環境の特徴

GBIの設定に影響を与える対象環境の特徴については、既往の研究事例から、放射性廃棄物処 分に関する生活圏評価に関する国際共同プロジェクトである BIOPROTA (Keys Issues in Biosphere Aspects of Assessment of the long-term Impact of Contaminant Releases Associated with Radioactive Waste Management) (BIOPROTA, 2014)と諸外国の地層処分の生活圏評価に おける GBI の設定事例を対象に調査を行った。

1) BIOPROTA

BIOPROTA(BIOPROTA, 2014)では、放射性廃棄物処分に関する様々な国々の評価事例での GBI表現方法についてレビューされている。レビューの結果、GBIは井戸に関連するものと地下 水湧出に関連するものの二つに大きく分類されている。

① 井戸 GBI

井戸には取水量が比較的少ない掘り井戸と浅い立坑の井戸、また取水量が比較的大きい深い立 坑の井戸がある。掘り井戸に分類される家庭用や小規模農家の取水量の少ない家庭用井戸などは 深度数 m~数 10 m まで掘り下げられるが、水が汲み上げられる帯水層の流れに対してはわずか な影響を与えるだけである。一方、取水量の多い深い立坑の井戸は深度 200 m 程度まで掘り下げ られる場合があり、井戸の近辺で著しく大きな水の流れを引き起こす可能性がある。帯水層から 井戸に向かって大量に流入する水の一部は、井戸の終端の深度よりも深いところから汲み上げら れるため、汚染物質のプルーム(塊)がより深い領域から汲み上げられ、井戸に取り込まれる可 能性がある。

また、こうした井戸の存在する帯水層を擁する可能性のある岩石の種類は多種多様である。流 れと移行が多孔質性の帯水層に存在する場合や、亀裂性媒体とみなせる帯水層に存在する場合が ある。様々なタイプの井戸の特徴を表 4.2-9 に示す。

井戸の種類	井戸の深さ [m]	帯水層の種類	区間	およその揚水量 [m ^³ /day]	用途
掘り井戸	1から10	・沖積層 ・砂 ・礫	ほとんどの深さは 約 1m 以下	5 以下	 ・家庭用 ・小規模農家 の灌漑
浅い立坑の 井戸	10から40	 ・風化砂岩 ・石灰岩 ・深い沖積層 ・亀裂性硬岩 	数 m 又は岩頭直下 から立坑の底まで	4 から 20 破砕系からの収量に 強く依存するが、 おおよそ 4 から 20	 ・家庭用 ・小規模農家 の灌漑 ・農作物又は 動物用
深い立坑の 井戸	40 から 200	・風化砂岩 ・石灰岩 ・深い沖積層	岩頭直下から立坑 の底まで	1×10 ⁴ まで	・商業農業又 は工業用

表 4.2-9 様々なタイプの井戸 (BIOPROTA, 2014)を基に作成

② 地下水湧出 GBI

地下水湧出の場合は一般的に、地形的に低地の場所が GBI の候補となる。このような低地は 様々な原因によって発生する可能性がある。地表付近の地下水流動パターンは、地下水の流出域 のタイプによって異なる場合がある。

切立った谷の場合、帯水層の地層は切立った部分と交差する。このため、丘陵斜面に沿って湧 水線や浸透線が形成されたり、丘陵斜面の基部にある河道や関連する水辺に流出したりする(例 として図 4.2-5)。



図 4.2-5 丘陵斜面における地下水湧出の模式図 (BIOPROTA, 2014)を基に作成

また、汚染物質は湖沼などの低地の底に流出する可能性がある。これは、海洋湾、湖沼、泥炭 地、農地など、様々な種類の生活圏の構成要素の下にあるレゴリスに及ぶ可能性がある。例とし て、湖沼でこのような流出が起こった場合の模式図を図 4.2-6 に示す。



図 4.2-6 湖底の地下水湧出の模式図 (BIOPROTA, 2014)を基に作成

このような傾向を踏まえ、GBI は以下の事項を検討した上で決定される。

- 生活圏の下にある地質環境を通る地下水の流路がある。それは連続した多孔質媒体として 扱える帯水層を通る流路、あるいは亀裂鉱物で覆われているかどうかにかかわらず、相互 に接続した複雑な亀裂を通る流路のいずれかである。
- 地質環境中の地下水は、土壌、湧水、あるいは河川や湖沼のような地表水域に直接流出する。
 地質環境から放出される放射性核種は、生活圏評価モデルで表現されている生活圏の構成要素に直接排出されるため、放射性核種が地表水域に直接流出するケースの評価上の重要性はかなり限定的である。しかしながら、土壌へ流出する場合には、地質環境中から湧昇した地下水が降雨による地下水の涵養水と混合する領域における水文地球化学的条件が時間的に大きく変化する可能性があるため、評価上の重要度が高くなる可能性がある。
- GBIは、地質環境からさまざまな表層的特徴の下にあるレゴリスまでの流出領域の上にある 可能性がある。
- 地下水の流出領域は、砂岩、石灰岩、白亜岩などの多孔質の帯水層岩石、または硬岩の亀裂帯とその上にある風化した岩石やレゴリスとの交差部を通る上向きの流れを含む可能性がある。深部レゴリスまたは風化岩には構造的特徴が含まれている可能性があり、実質的な深さでの地下水面位置はこの GBI に関連しないため、完全に地下水面の下にあるものとして示されている。
- 風化岩や深部レゴリス中の水の流れは、その下の地下水流出域から引き継がれた上向きの成分を持つ。しかしながら、浸透する天水との相互作用によって、鉛直方向の水中の化学的特性に勾配が生じ、地形に応じた水平方向の水の流れが誘発される。よって、深部レゴリス/風化岩盤と表層地形との界面における地下水流出面積と水の組成は、地質環境と風化岩盤または深部レゴリスとの界面における地下水流出面積と水の組成とは異なる。したがって、この地帯を通過する移行と希釈に関する研究の必要性が示唆されている。

以上の検討の結果、地下水湧出 GBI として表 4.2-10 に示すものが提示されている。

地圏の 種類	深部レゴリ スや風化岩 を経由した 放出	深部レゴリ スや風化岩 の性質	流出先の種 類	コメント
多孔質性 帯水層	無し	該当無し	 湧水線 表層水 (小川、 河湖沼) 浸透帯 	水の組成と放射性核種の含有量は地下深部から の地下水と同じであるため、GBI に重要度の高い 問題は生じない。 帯水層の水と小川、河川、湖沼の水の混合によ って水の組成と放射性核種の含有量が決定され る。放射性核種の含有量の決定には、希釈計算と 化学種分化のための単純な混合モデルを使用する ことができる。 GBI の設定は表層水域に放射性核種が直接流出 する場合よりも複雑である。水の組成は、浸透帯 の固相土壌の存在下で、帯水層の水と天水との相 互作用によって決定される。水は地下水、または 表層への流出水として斜面下へ移行し、地域の排 水網に到達する。地表水域に流入すると、さらに 希釈され水の組成は変化するが、浸透帯の土地利 用範囲は限定的である。 季節や気候に関連する事象(洪水など)によ り、土壌における流動と輸送に複雑な変化が発生
			土壤	する。水の組成は還元的条件から酸化的条件へ移 行する際に大きく変化する。速度論的効果が輸送 に大きな影響を及ぼす可能性がある。土壌におけ る水と汚染物質の斜面下への移行を検討する際に は、移行中の天水との相互作用を考慮する必要が ある。
断層帯	無し	該当無し	湧水線 表層水 (小川、 河川、 湖沼) 浸透帯 土壤	多孔質帯水層の場合と同様である。深いレゴリ スや風化岩がないことから、硬い岩石からなる断 層帯が地表に露出している場合、深い土壌層が存 在する可能性は低いと推測される。したがって、 土壌との界面については、多孔質性帯水層が汚染 物質の流出源である場合よりも重要度が低い。

表 4.2-10 地下水湧出 GBI の種類(1/2) (BIOPROTA,2014)を基に作成

表 4.2-10 地下水湧出 GBI の種類(2/2) (BIOPROTA, 2014)を基に作成

地圏の 種類	深部レゴリ スや風化岩 を経由した 放出	深部レゴリ スや風化岩 の性質	流出先の種類	コメント
多孔質 性帯水 層	有り	多孔質性	帯水層から深 部のレゴリス または風化岩 を通過して表 層に至る	水や核種の移行はすべて飽和帯で行われると仮 定しているため、検討に必要とされるアプローチ は比較的簡素になると考えられる。しかし、複雑 な岩相を持ち、かつ地下水の化学組成が変化する 帯域では、地下深部から湧昇する地下水と天水が 混合する可能性がある。この場合では季節や気候 に関連する事象の影響による各種条件の時間変化 は限られており、おそらく無視できる。
		亀裂性		堆積岩帯水層上の風化帯に亀裂のある硬岩があ る可能性は低い。
断層帯	有り	多孔質性	帯水層から深 部のレゴリス または風化岩	地圏のタイプが多孔質帯水層の場合と非常によ く似ていることを考慮する必要がある。主な違い
		亀裂性	を通過して表 層に至る	は、地圏への流田の空间的範囲と地下保部から湧 昇する地下水の化学組成にあると考えられる。
多 れ 質 性 帯 水 層 ま た は 断 層 帯 、 間 、 間 、 間 、 一 間 、 一 、 一 一 、 一 、 一 、	有り	多孔質性	 深部のレゴリ スや風化した 岩石から表層 を経て、湧水 線、地表水、 浸透帯、土壌 に至る 	多孔質帯水層から様々な地表環境へ直接放出す る場合に生じるものと同様であることを考慮する 必要がある。主な違いは、地下水の組成と汚染物 質の濃度が、深いレゴリスや風化岩を通過するこ とによって変化することである。
断層帯	有り	亀裂性	深部のレゴリス 岩石経 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、	亀裂ネットワークには複雑な流路が存在する可 能性が高く、地表に近いほど局所的な地形の影響 が大きくなるため、広域的な地下水流動パターン から局所的な地下水流動パターンへと変化する可 能性がある。地表付近の地層における割れ目の埋 没や酸素消費量の変化に加え、表層土壌における 微生物の影響により、水の組成に大きな勾配が存 在する可能性がある。土壌や他の表層付近の堆積 物(表層水域の下にある有機物層など)との相互 作用を考慮する必要がある。不飽和帯は季節や気 候に関連する事象による影響を、透水係数の高い 破砕帯を通じてかなりの深さまで伝搬させる可能 性があるため重要である。このタイプのGBI は、ここに列挙された様々な GBI の中で最も複 雑な設定になる可能性がある。

2)諸外国の生活圏評価における GBI の設定

表 4.2-11 に、様々な前提条件に基づき実施された諸外国の生活圏評価において、GBI がどの ように表現されたかを整理した(BIOPROTA, 2014)。調査対象は、様々なジェネリックな母岩 環境での地層処分に関して英国 RWMD が実施した評価(NDA, 2010)、ユッカマウンテンに関 して米国エネルギー省(DOE)が実施した評価(DOE, 2008; DOE, 2009)、使用済核燃料の KBS3型処分場案に関して SKB とフィンランド Posiva Oy が実施した評価(SKB, 2011; Posiva, 2012)、粘土地層処分に関してフランス放射性廃棄物管理機関(ANDRA)が実施した 評価(ANDRA, 2005)、低レベル廃棄物及び中レベル廃棄物の深層処分に関してカナダ核燃料 廃棄物管理機関(NWMO)が実施した評価(NWMO, 2011)、様々な種類の廃棄物の深地層処 分に関してスイス放射性廃棄物管理共同組合(NAGRA)が実施した評価(NAGRA, 2008)で ある。

機関/国	GBI の設定
DWMD /苗国	生活圏評価モデルでは、GBI として土壌帯に流出する地下水及び井戸
It W MID/ 夹国	水の取水経路を考慮している。
	ユッカマウンテンにおける評価での GBI は、関連する規制
	(10CFR63、40CFR197)による制約を受ける。40CFR197 では、合理
	的に最大被ばくを受ける個人(RMEI)を汚染プルーム内の放射性核種
	の最高濃度より高い、アクセス可能な環境に居住している仮想的な人物
DOE/米国	としている。また、10CFR63 では、RMEI の特徴として、ネバダ州アマ
	ルゴサバレーに現在居住する人々を代表する食生活及び生活様式を有
	することや、年間 3,000 エーカーフィートの水需要に基づき、平均的な
	放射性核種濃度の井戸水を使用すること、指定された場所の地下水に掘
	られた井戸から1日2リットルの水を飲むことなどが定められている。
	SKB では、異なる 3 つの気候パターンを想定している。気候の変化に
	より海岸線の位置が変遷し、ランドスケープの変遷に伴って放射性核種
	の流出場所も変化する。水文地質学モデルから、流出域は主に湖、湿地
SKB / 7 D デン	帯、海底の浅い部分など、標高の低い場所に位置すると予測されている。
SKD/ XYY / V	流出パターンは主に地域の地形と決定論的変形帯によって決定され、そ
	のパターンはモデルのリアライゼーションによって大きく異なること
	はない。表層付近では、放射性核種の流出場所への経路を決定する際に、
	より破砕された岩盤中を移行することを考慮する必要がある。
	オルキルオトにおける環境変化の検討は、閉鎖後の放射性物質安全評
	価が実施される際の規制 (YVL D.5) によって条件付けされており、GBI
	の表現が必要とされるのは、閉鎖後 10,000 年までである。また規制で
Posing / 7 / V/ F/ K	は、陸地に対する海水準の変化(すなわち、陸地の隆起を考慮する)に
10SIVa/ / / / / / / /	よる環境変化を考慮すべきであり、気候のタイプ及び人間の生活習慣は
	変化しないと仮定してよいとされている。地形・生態系開発モデリング
	と地表面・地表面近傍水文モデリングを用いて、地表環境の将来的な変
	遷を評価し、地表環境への放射性核種の流出点を決定している。

表 4.2-11 諸外国の生活圏評価における GBI の設定(1/2) (BIOPROTA, 2014)を基に作成

機関/国	GBI の設定
	処分場を設置することが提案されているカロヴォ・オックスフォード
	紀岩から地表に向かって放出される放射性核種は、石灰岩帯水層に到達
	し、帯水層中を水平・鉛直方向に拡散する。GBIは、これらの帯水層の
ANDRA/フランス	ひとつに井戸を設け、生活用水や農業用水として利用することを想定し
	ている。さらに、切り立った河川渓谷内の河岸地帯への流出も想定され
	ており、汚染された不圧密帯水層から植物の根域への上方輸送も想定さ
	れている。
	気候変動による環境変化を考慮しており、温帯、ツンドラ、氷河期、
	間河期の4つの状態を特定している。各条件での生活圏システムを考慮
	し、以下のタイプの GBI が想定されている。
	 浅い母岩地下水帯から湖への地下水流出
NWMO / ++ K	 浅い母岩地下水帯にある処分場近くの地下水井戸
	• 主に主立坑と換気立坑周辺を中心とした、処分場上部の大気中への
	気体放出
	 浅い母岩地下水帯を経由して小川/河川に流出する地下水流出
	 浅い母岩地下水帯を経由した湿地帯への地下水流出
	 浅い母岩地下水帯から湖岸への地下水流出
	間氷期での GBI について、井戸に関連するものと地下水湧出に関連す
	るものを考慮している。井戸の場合、環境の時間変遷を考慮する必要は
	ほとんどないが、地下水湧出の場合、景観変遷のタイムスケールは、放
	射性核種が GBI を移動するタイムスケールに匹敵する可能性があり、景
	観変遷の明示的な表現が必要となる場合がある。
	帯水層が存在する可能性のある岩石の種類は多種多様であり、井戸の
	種類・深さ・帯水層が存在する岩種・用途が整理されている(表 4.2-9)。
NACDA / 7 / 7	地下水が湧出している場合は一般に、地形上の低地が対象となる。しか
NAGRAZ ANA	しこのような地形的な低地は、様々な原因によって生じる可能性があ
	る。例えば切立った谷のような場合、帯水層の地層は切立った部分と交
	差する。このため、丘陵斜面に沿って湧水や浸透線が形成されたり、丘
	陵斜面の基部にある河道や関連する水辺に流出したりする。例えば脆性
	変形地帯であれば、汚染は低地の底に流出する可能性がある。これは、
	海洋湾、湖沼、泥炭地、農地など、さまざまな種類の生活圏構成要素の
	下にあるレゴリスに及ぶ可能性がある。地下水湧出 GBI の特徴は、岩盤
	の種類と共に整理されている。 (表 4.2-10)

表 4.2-11 諸外国の生活圏評価における GBI の設定 (2/2) (BIOPROTA, 2014)を基に作成

以上で得られた調査結果から、GBIの位置などに影響を与えうるものとして、表 4.2-12 に示す 特徴を抽出した。

影響を与える対象環境の特徴		影響を与える因子
環境変遷	•	GBI での核種移行プロセス
(気候変化)	•	GBI の位置(例えば、海岸線の位置の変化による)
(地形変化や海水準変動)	•	地下水の流動方向、地下水の流出点、地下水流速、
		流出水量
地形	•	地下水流出地点(地形的に低地に流出される)
岩種	•	帯水層の有無
	•	核種移行経路(連続多孔質媒体として扱える帯水
		層/相互に接続した複雑な亀裂)
	•	希釈量の変化
	•	井戸の種類(揚水量、用途)

表 4.2-12 GBI の位置や核種の希釈水量に影響を与える対象環境の特徴の整理

(3) GBIの設定に影響を与える対象環境の特徴についての感度解析の実施

前項(2)の文献調査では GBI の位置に影響を与えうる特徴について、井戸や地下水湧出で特徴 付けられた GBI のパターンや、GBI 設定の際の留意点について着目しつつ、定性的な分類と整 理・抽出を行った。一方、GBI の位置の変化は、抽出された特徴やその変遷の組合せにより、変 化に差異が生じる可能性がある。例えば、表 4.2-10 で示されるように、地下水が流出する帯水層 の特徴と、地下水がレゴリスや風化岩を通過するか否かによる GBI の設定への影響は、それらの 組合せによって異なる。このように、実際の場では対象環境の特徴が組合わさって変化すること が予想される。一方で、対象環境の特徴が複数個で同時に変化した場合の GBI の位置の変化か ら、対象環境の特徴が個別で GBI の位置の変化に与える影響の特徴を捉えることは難しい。この ような影響を評価するためには、まず初めに、対象環境の特徴が独立して変化した場合の GBI の 位置に与える影響を把握することが好ましいと考えられる。

そこで本項では、(2)の文献調査で抽出した GBI の位置に影響を与える対象環境の特徴のうち、 地形、岩種、環境変遷(気候)に加え、核種の処分場からの移行経路に大きく影響すると考えら れる、処分場領域の位置する地下水流動の傾向に着目して、いくつかのパターンを用いた感度解 析を実施した。具体的には、2)で用いた仮想的な地表環境に含まれる地形を用いて、地形の傾斜 と集水面積から河川流量を求め、場の地質構造を仮定し仮想的な地下水流動解析領域を作成した。 この地下水流動解析領域の地形、地質構造、表層水、処分場領域の位置についていくつかのケー スを設定し、それぞれの特徴の変化により GBI の位置がどのように変化するかについて、定量的 な検討と評価を行った。

1) 解析の着眼点

生活圏評価モデルにおいて、GBI は地下水が流出する河川や湖沼などの低地となる場合が多い。 河川や湖沼に核種が流出する場合、地下深部から表層に到達した核種は、河川を流れる水や湖沼 に存在する水によって希釈され、地表環境に放出されると想定されている。地下深部から移行し た核種を希釈する表層水量は生活圏へ移行する核種の濃度を直接的に変化させるため、最終的な 評価点である人間が受ける被ばく線量に影響を与える。この点を踏まえ、核種が地表に放出され る場所である GBI の位置の変化に伴い、核種の希釈水量も変化すると想定して、GBI の位置の 変化を定量的に表現するために表層水量に着目した。本解析では「GBI 直上の表層水量」を希釈 水量と定義し、GBI の位置の変化を評価するための指標として感度解析を行うこととした。GBI の位置と希釈水量に影響を与えうるその他の特徴について、地形については標高とその分布、岩 種については透水係数などの地質及び地層構造、環境変遷(気候)については表層水に供給され る降水量で表現した。また、処分場領域の位置する地下水流動の傾向については、処分場領域の 水平方向の位置を流出域と涵養域に置くことで表現した(表 4.2-13)。

表 4.2-13	感度解析におい	て着目した GI	BIの設定に影響を	与える対象環境	竟の特徴と解析で	の設
----------	---------	----------	-----------	---------	----------	----

定		
影響を与える対象 環境の特徴	解析での表現方法	解析での設定
地形	標高とその分布	山口ほか(2024)で作成された3パターンの地形
岩種	地質 地層構造	 ・透水係数(水平方向、鉛直方向) ・堆積岩類を想定した地質構造
環境変遷	流出量	表層水に寄与する流出量
処分場周辺の 地下水流動の傾向	処分場領域の水平方向 の位置	地下水の流出域と涵養域

2) 解析の概要

希釈水量を求める解析の概要図を図 4.2-7 に示す。仮想的な地形、処分場深度及び表層水量の 設定には、地形・処分場深度変遷解析ツール(山口ほか, 2020)を用いて作成した地形、及び地 形と表層水に寄与する流出量を用いて計算した河川流量(表層水量と同義)の地理情報(山口ほ か, 2024)を参照した。また、求められた河川流量を基に地下水流動解析で用いるための河川の 位置を決定し、河川の幅及び深さを求めた。これらを用いて地下水流動解析モデルを作成し、地 下水流動解析を行った。また、得られた地下水流動データと処分場深度を基に、地下の処分場領 域に一定間隔で配置した複数個の粒子に対する粒子追跡解析を行った。得られた粒子の流跡線の 中から最も地表に近い粒子の流出点を GBI として流出点のデータを抽出し、希釈水量を求めるこ とで、各解析ケースにおける希釈水量の値とその頻度分布を求めた。



図 4.2-7 希釈水量を求める解析の概要図

3) 解析の条件

全ての解析ケースにおいて共通する解析条件を以下に記す。地形・処分場深度変遷解析、河川 流量解析において用いた地形データの解像度は100m×100mとした。地下水流動解析では地表 面から標高-2,000mまでの領域について、水平方向には200m×200m、鉛直方向は最大100m までとした離散化要素で分割した有限差分モデルを用いた。

処分場領域の鉛直方向の位置の設定については、地形・処分場深度変遷解析ツール(山口ほか, 2020)を用いて処分場周辺の地表の平均標高から深度 500m 地点に設置した。なお、処分場領域 の広さは 2 km×2 km とし、領域内の水平方向 100 m 毎に粒子を計 400 個配置した。

各解析ケースの解析条件を以下に示す。処分場の水平方向の位置については地下水流動方向を 考慮し、地表面へ向かう地下水流動が支配的な流出域と、地下深部へ向かう地下水流動が支配的 な涵養域の2パターンを設定した。地形のパターンについては、山口ほか(2024)で作成された Type1 - Type3の3パターンとした。地形の標高と代表的な情報を以下に示す(図4.2-8)。



図 4.2-8 地形の標高と代表的な地理情報

地質及び地質構造については、一様な堆積岩(泥岩と仮定)を想定した場合と新第三紀堆積岩 類を想定した場合の2パターンについて設定した。なお、地質に関する各パラメータ値と地質構 造については、NUMO包括的技術報告書(原子力発電環境整備機構,2021b)で用いられている 広域スケールの新第三紀堆積岩類についての地下水流動解析モデルの作成の際に使用された値を 参考にした。以下に、地下水流動・粒子追跡解析モデル上での地層構造の幾何形状を鳥瞰図で示 す(図4.2-9)。



図 4.2-9 各地形の新第三紀堆積岩類を想定した地下水流動解析モデル

表層水に寄与する流出量については、わが国の水資源の利用状況(農業用地下水グループ,1986) より年間の平均的な流出量(降水量と蒸発量の差)を 1,200 mm/y とし、また、表層水に寄与する 流出量が少ない場合として 800 mm/y を加えた 2 パターンとした。図 4.2-10、図 4.2-11 に各地 形のパターンごとのそれぞれの河川流量図を示す。



図 4.2-10 各地形の河川流量値(河川水に寄与する流出量 800[mm/y]の場合)



図 4.2-11 各地形の河川流量値(河川水に寄与する流出量 1,200[mm/y]の場合)

なお、全ての地形のパターンにおいて、表層水の流れを考慮しない場合には、地下水流動解析 時の境界条件として、側面及び底面境界は不透水性、天面は地表と同じ固定水頭(地表面すなわ ち地下水面)とした。表層水の流れを考慮した場合には、側面・底面境界は不透水性、天面は自 由水頭とし、河川の位置するセルにのみ固定水頭を設定した。以上のパターンを用いた解析ケー スの設定条件について整理した表を表 4.2-14、表 4.2-15 に示す。

その他の特徴に 応じたケース	着目した特徴	地質構造	表層水	境界条件	備考
Uniform	無し	一様	無し	天面:地表面での固定水頭 境界 側面・底面:不透水境界	各ケースと の比較用
Stratum	岩種 (地質構造)	新第三紀 堆積岩類	無し	天面:地表面での固定水頭 境界 側面・底面:不透水境界	
Stream_800	環境変遷 (降水量)	一様	有り (表層水に寄与 する流出量: 800mm/y)	天面:自由水頭境界(河川の 位置するセルのみ 固定水頭境界) 側面・底面:不透水境界	降水量の 内、蒸発の とと で の 除 い た を が 表 層 水 し の の 、 素 発 の の 、 素 発 の の 、 素 や の の 、 素 や の の の 、 素 や で の の の の の の の の の の の の の の の の の の
Stream_1200	環境変遷 (降水量)	一様	有り (表層水に寄与 する流出量: 1,200mm/y)	天面:自由水頭境界(河川の 位置するセルのみ 固定水頭境界) 側面・底面:不透水境界	降水量の 内、蒸発 量を除いた すべての量 が表層水に 寄与すると 仮定

表 4.2-14 解析ケースの設定条件

処分場の位置	地形	ケース名
		Unifrom
	(T) 1	Stratum
	Type1	Stream_800
		Stream_1200
		Unifrom
法出标	The set of	Stratum
加山地	Type2	Stream_800
		Stream_1200
		Unifrom
	Type3	Stratum
		Stream_800
		Stream_1200
		Unifrom
	T 1	Stratum
	Typer	Stream_800
		Stream_1200
		Unifrom
涵姜博	Type2	Stratum
個食以		Stream_800
		Stream_1200
		Unifrom
	There a D	Stratum
	Type3	Stream_800
		Stream_1200

表 4.2-15 解析ケースの設定の概要

4) 結果

図 4.2-12 から図 4.2-14 に処分場が流出域に位置する場合の各ケースにおける粒子追跡解析結果(天面図)を示す。また、図 4.2-15 から図 4.2-17 に処分場が涵養域に位置する場合の各ケースにおける粒子追跡解析結果(天面図)を示す。全ての粒子追跡解析結果(天面図、正面図、側方図、鳥瞰図)については Appendix II に示す。



図 4.2-12 処分場位置が流出域の場合の各ケースにおける粒子追跡解析結果(Type1)



図 4.2-13 処分場位置が流出域の場合の各ケースにおける粒子追跡解析結果(Type2)



図 4.2-14 処分場位置が流出域の場合の各ケースにおける粒子追跡解析結果(Type3)



図 4.2-15 処分場位置が涵養域の場合の各ケースにおける粒子追跡解析結果(Type1)



図 4.2-16 処分場位置が涵養域の場合の各ケースにおける粒子追跡解析結果(Type2)



図 4.2-17 処分場位置が涵養域の場合の各ケースにおける粒子追跡解析結果(Type3)

希釈水量の頻度分布について、モデル集水域全体に対する1要素(100 m×100 m)当たりの 希釈水量の頻度分布を図 4.2-18 に示した。なお、河川流量の解析にあたっては、地形データの解 像度から Stream_800 の場合は河川流量の下限値が 8×10³ m³/y、Stream_1200 の場合は 1.2×



(Stream_800とStream_1200の場合)

また、解析結果から得られた各粒子 400 個すべてについて、それぞれの希釈水量の頻度分布を 以下の図 4.2-19、図 4.2-20 に示す。ただし、希釈水量を求める際には図 4.2-18 に示す元データ から希釈流量の値を内挿しているため、元データと内挿後のデータには若干の差異が生じている。 このため、希釈水量の解析値の下限値である 0.8×10³、1.2×10³ m³/y 以下の値が計算されてい ることに注意する必要がある。



図 4.2-19 処分場位置が流出域の場合の各ケースにおける希釈水量の頻度分布



図 4.2-20 処分場位置が涵養域の場合の各ケースにおける希釈水量の頻度分布

5) 考察

図 4.2-19 に示されるように、処分場領域が流出域にある場合には全ケースで希釈水量の分布に 遍在が見られ、10^{6.5} m³/y から 10^{7.5} m³/y 程度の GBI が多く見られる。この傾向は地質構造があ る場合 (Stratum) や表層水の流れを考慮した場合 (Stream_800、Stream_1200) も同様である。 これは、地下水の流向に伴い、粒子が処分場領域から地下深部を経由しない直線的かつ短い距離 の移行経路を通って谷地の地下水面に到達し、GBI となる河川に流出したためと考えられる(図 4.2-12 から図 4.2-14)。このことから、処分場位置が流出域に存在する場合には、移行経路のば らつきが少なく比較的短い距離で粒子が GBI へ移行することで、地形や地質などの特徴による影 響は受けにくくなったと考えられる。

一方、図 4.2-20 に示されるように、涵養域に処分場領域が存在する場合には、流出域に存在す る場合と比較して希釈水量の頻度に幅広な分布がみられる。この傾向は地質構造が一様(Uniform) の場合や地質構造がある場合(Stratum)ではおおむね共通しているが、表層水がある場合 (Stream_800、Stream_1200)では地形によって GBI の位置や希釈水量の分布が大きく異なる とともに、希釈水量の分布に偏在がみられる。これは、処分場が流出域に存在する場合と同様に、 それぞれの地形に応じた河川の位置に粒子が吸い寄せられ、表層水がない場合(Uniform, Stratum)と比較して、GBI の位置が河川に集中的に現れたためと考えられる。分布が偏在して いる河川流量はいずれも 10⁶ m³/y から 10⁸ m³/y 程度と大きな流量に集中している。これは、図 4.2-15 から図 4.2-17 に示されるように、より流量の大きな河川位置に地下水とともに粒子が吸 い寄せられる形で移行し、GBI へ流出したためと考えられる。ただし、涵養域は流出域と比較し て地下深部への地下水流動が発達しているため、処分場領域以深の地下深部を経由する粒子が多 く、粒子の移行距離が比較的長くなった。これにより、地形や地質構造の違いなどの影響による 地下水流動の変化で移行経路が大きく変化したと考えられる。よって、処分場が涵養域に存在す る場合には、地形などの対象環境の特徴により GBI の位置や希釈水量が変化する可能性は大きい と予想される。

以上の結果から、対象環境の特徴が GBI の位置や希釈水量に与える影響について、処分場領域 周辺の地下水流動の傾向で大別し、その特徴を表 4.2-16 に整理した。それぞれの特徴が GBI の 位置や希釈水量にどのような影響を及ぼすかについては、処分場領域周辺の地下水流動の傾向に よって異なるが、流出域の場合については GBI の位置、希釈水量の頻度分布ともに対象環境の特 徴を受けにくく変化は小さい傾向、涵養域の場合については対象環境の特徴を受けて大きく変化 する傾向になった。

3つの地形のパターンのうち、Type1 は流出域の場合、涵養域の場合ともに似た傾向を示した。 GBI の位置、希釈水量共に偏在し、表層水に寄与する流出量に対する感度が高い傾向となった。 Type2 は、涵養域の場合に対象環境の特徴に対する GBI の位置、希釈水量の感度が高くなり、流 出域の場合ではほとんど現れなかった地質構造の影響が顕在化した。Type3 は、流出域の場合、 涵養域の場合共に GBI の位置、希釈水量の頻度分布は分散する傾向にあった。

表 4.2-16	処分場領域周辺の地下水流動の傾向と地形のパターンで分類した GBI の位置と希釈
	水量の変化の特徴

処分場領域 周辺の地下水流 動の傾向	地形のパターン と特徴	GBIの位置の解析結果	希釈水量の解析結果
流出域	Type1(山地)	・処分場近辺の低地に偏在	・頻度分布は偏在 ・表層水に寄与する流出量に対する感 度は中等度
	Type2(山地と平 地)	・処分場近辺の低地に偏在	・頻度分布は偏在
	Type3(平地)	・処分場近辺の低地に分散 ・表層水に寄与する流出量に対する感 度は中等度	・頻度分布は分散
涵養域	Type1(山地)	・処分場近辺の低地に偏在	・頻度分布は偏在 ・表層水に寄与する流出量に対する感 度は極めて高い
	Type2(山地と平 地)	・処分場遠方の低地まで分散 ・地質構造による変化が明らか ・表層水に寄与する流出量に対する感 度は高い	・頻度分布は偏在 ・表層水に寄与する流出量に対する感 度は高い
	Type3(平地)	・処分場近辺の低地に分散 ・地質構造による変化が明らか ・表層水に寄与する流出量に対する感 度は高い	・頻度分布は分散

6) 感度解析のまとめ

以上の結果から、GBIの位置などに大きく影響すると考えられる特徴について、以下のように 整理した。

- 今回の解析条件では、地形は全ての解析ケースを通じて希釈水量の全体的な分布に影響することが、主要な特徴であった。特に、集水域全体の規模で傾斜がある Type2 の場合には、集水域全体の規模で傾斜が小さい Type1 や Type3 の場合と比較して、GBI の位置が処分場領域近辺からより遠方の河川下流側へ変化する傾向がみられた。
- 処分場領域周辺の地下水流動の傾向の相違に伴い、粒子の移行経路に変化が見られ、GBIの 位置や希釈水量が変化した。例えば、処分場領域周辺が流出域の場合には、処分場領域より 浅部の地下を通過し地表付近へ向かう地下水流動に伴い、比較的短い距離で粒子が地表付近 に到達した。これにより、処分場領域以深の地質・地質構造の影響などを受けにくくなり、 GBIの位置や希釈水量の変化は比較的小さくなったと考えられる。一方、涵養域の場合には、 地下へ向かう地下水流動の傾向により、処分場領域から移行する粒子は地下深部を経由して 地表付近の GBI へ向かうため、流出域と比較してより長い移行経路となった。これにより、 移行の間に地形や岩種(地質・地質構造)や表層水の有無によって生じる地下水流動の変化 の影響を受けやすくなり、結果として GBI の位置や希釈水量の変化が大きくなったと考え られる。
- ・ 岩種(地質・地質構造)については、粒子の移行経路が地質構造を跨ぐ場合においては移行
 距離や GBI の位置に大きく影響する一方で、地質構造を跨がない場合においてはほとんど
 変化を表さなかった。
- 表層水の有無について、表層水有りの場合は、GBIの位置、希釈水量の分布を偏在させるように働き、かつその希釈水量の分布は表層水無しの場合より大きな希釈水量になる傾向があった。また、表層水に寄与する流出量が少ない場合(800 mm/y)に対して、全流出量が寄与

すると仮定した場合(1,200 mm/y)では集水域全体の希釈水量が増加したほか、GBIが河川のより狭い領域に集中し、希釈水量のばらつきが小さくなる傾向にあった。

(4) まとめ

本項では、GBIの設定に影響を与える対象環境の特徴について、諸外国の生活圏評価でのGBI における核種移行プロセスの取扱に関した文献調査を行い、GBIの位置やGBI近傍での核種移 行量を変動させる可能性がある対象環境の特徴について整理した。加えて、整理された対象環境 の特徴の中から、GBIの位置などに大きく影響すると考えられるいくつかの特徴について感度解 析的検討を行い、その影響の大きさについて整理した。また、これらの特徴に対して仮想的な地 形を持つ集水域を用いて解析、分析を行った結果、これらの特徴による複数個の粒子追跡解析結 果から得たGBIの位置や希釈水量の分布の変化は、処分場領域周辺の地下水流動の傾向(処分場 の位置が流出域か涵養域か)によりその現れ方が大きく異なるが、解析において設定した条件の 中では地形に大きく影響される傾向であった。

なお、本項で実施した調査、解析のうち、解析については解析の収束のために簡略化した設定、 仮想的な場を設定している。わが国の地形や地質構造をより具体的に表現するためには、解析モ デルの具体化(わが国で広範にみられる特徴的な地形と、その特徴を踏まえた統計的な地質構造 を反映したモデル)などが必要である。また、解析により得られた河川流量の解析結果への精度 良い反映など、データ分析の方法にも改良が必要な点がある。今後は、より一般的な地質構造の モデル化やデータ分析手法の改良などに取り組みつつ、解析対象となる領域の複雑化にも対応し ていく予定である。

4.3 生活圏評価のための核種移行パラメータに関する検討

4.3.1 被ばくプロセスモデルで扱う環境移行パラメータの整理と最新の知見の集約

(1) 背景と目的

今後、サイト選定プロセスが進むと、安全評価においては地形や土地利用などの具体的な地表 環境が明らかとなってくる。生活圏評価においては、その地表環境を考慮した適切な核種移行パ ラメータ値を用いることが重要である。そのために、わが国のさまざまな生活圏を想定した評価 に係るデータが必要である。特に元素固有パラメータに関しては、評価に適合するデータを適切 に抽出し、パラメータ値を設定する必要がある。そこで現在までに取得されたわが国のパラメー タ値に関する知見・データを整理・蓄積し、ユーザーのニーズに対応するデータベースを5年で 作成・公開することを課題としている。令和5年度は、特にセシウムの環境移行パラメータに着 目することによりデータベースの基本設計を行いつつ、様々な元素についても適用可能な基本レ イアウトを作成することとした。

(2) 環境移行パラメータ・データベースの概要設計

本事業では、わが国において得られた環境移行パラメータに関するデータを多くのユーザーが 利用できるようにするため、環境移行パラメータデータベースシステム(以下、「本システム」と いう)の公開作業を進める。令和5年度は概要設計としてシステムの要件を明確にし、画面構成 の提案を行った。

1)機能要件の概要

本システムは、インターネット上における公開システムとする。なお、利用を推奨するブラウ ザは、Microsoft Edge、Google Chrome、及び Safari とし、一般に使われる OS 環境(Windows または Mac) でも使用可とする。

- ・本システムを利用できるユーザーは、事前のユーザー登録を必要とする。登録できるユーザー については、特に制限は設けない。
- ・本システムを利用するユーザーは、Web ブラウザによって本データベースシステムへアクセス後、ログイン手続きを必要とする。
- ・本システムのユーザーは、基本的にデータ閲覧・取得のみが可能な「利用者」、及びデータベースへのデータ登録が可能な「管理者」に分けられる。管理者は、利用者が有する権限を全て有するものとする。
- ・本システムにログインした利用者は、データベースに登録されているデータに関し、以下の機能を利用できるものとする。
 - 本データベースに準備した環境移行パラメータ、核種、及びデータ検索条件項目を用いた抽 出条件の設定。
 - 設定された条件に適合するデータの抽出、及び抽出されたデータに関する統計値計算の実行、
 閲覧。
 - 統計値計算結果、及び統計値計算に使用されたデーター覧表のブラウザ上での閲覧。
 - データ検索条件、条件毎の統計値計算結果、及び統計値計算に使用したデータセットの CSV 形式ファイルによるダウンロード。
- ・本システムの管理者は、以下の機能を利用できるものとする。
 - データベースに対するデータの登録。なお、データ登録方法は、データ登録用 Excel ファ イルをアップロードする方法とする。また、システム上でのデータ編集は、機能には含めな い。
 - 登録されているユーザーの管理(ユーザーの削除、パスワード初期化など)。
 - 本システムのアクセスログの閲覧。
- 2) データに関する要件

一般公開データベースシステムとして登録するデータに関する要件をまとめた。

- データベースに登録するデータは、測定値(生データ)から得られたパラメータ値のみとする。
 レビュー報告書などに示す統計値は、データの二重利用を避けるため、データベースには登録しない。
- ・環境移行パラメータの測定値を記載したデータファイル(Excel)の付帯項目は、環境移行パ ラメータの種類により異なっている。そのため、データベースのテーブル付帯項目は環境移行 パラメータの種類ごとに決定する。基本的には、量子科学技術研究開発機構(以下、「量研機 構」という)が収集したデータファイルの付帯項目は、全てデータベースに登録する。
- データベースのデータ登録は、上記の登録項目を全て含むデータベース登録用 Excel ファイル をアップロードする方法による。本システム上におけるデータ編集は、機能に含めない。また ユーザーがデータを登録することはできない。
- 管理者だけが、データベース登録用 Excel ファイルをダウンロードできるようにする。データを追加・編集する場合は、一旦データベースシステムから Excel ファイルをダウンロードし、そのファイルに対して変更を加え、再度アップロード(置換え)をする。
- ・管理者が複数存在する場合、データベース登録用 Excel ファイルを複数人が同時に編集しない ような周知機能をシステムに整備する。
- ・環境移行パラメータデータ集(Appendix Ⅲ参照)に記載されている既存統計データ、すなわち量研機構が収集したデータを用いた計算結果については、PDFファイル化する。この既存統計データの PDF ファイルは、本システムに保管場所を準備し、ユーザーがダウンロードできるようにする。

- 3) データベースのデータ検索・統計値計算
- ・データベースに登録したデータは、管理者が登録した検索項目(付帯項目から設定)を使って ユーザーが検索でき、検索されたデータのみを抽出して統計処理を行う事を想定する。データ 検索方法としては、以下を想定する。
- データ検索条件は、報告書に示された統計値に使用された分類条件、及び核種を基準とする。
- ・データ検索では、対象元素、及び環境移行パラメータを最初に選択し、パラメータの種類に応じたデータ検索条件が表示されるようにする。
- ・1件のデータ検索条件は、1件の検索項目、及び複数選択可能な検索値の組合せから成る。検索項目は、検索対象となるデータの付帯項目(データベース登録用 Excel ファイルの列名に相当)になり、検索値はその項目の値になる。例えば、陸域における分配係数において、「Soil type」は検索項目、「グライ低地土」は検索値である。なお現在収録されている検索項目名と検索値の組み合わせについては、今後変更される可能性がある。
- 1件の環境移行パラメータに対し、データ検索条件は複数設定できるものとする。例えば、陸域における分配係数では、データ検索条件における検索項目として、①Isotope、②Sorption type (実験方法の種類。adsorption と desorption)、③Soil sampling field、④Soil type が考えられる。他のパラメータも同様であるが、今後、付帯項目を追加する予定であり、その中から各パラメータに適した検索項目を表示する。
- ・ 検索値が複数ある場合、複数選択を可とする。例えば、「Soil type」において、「グライ低地土」、 「黄色土」、「灰色低地土」を検索値として選択する事が可能である。
- ・データ検索は、各条件の選択肢(複数選択可)に適合するデータの AND 検索とする。例えば、 陸域における分配係数において、①Isotope: Cs-137、②Sorption type : adsorption、③Soil sampling field: Paddy field、または Upland field(複数選択)、④Soil type: グライ低地土 をデータ検索条件とした場合は、検索条件①-④について、全てが適合したデータが選択され る。
- ・検索項目によりデータ数が限定的になる一方、検索項目に入力がないデータは抽出が漏れることになる。入力したデータ全てを抽出できる条件を必ず準備する。
- ・検索により抽出された測定値に対し、統計値計算を実行する。統計値計算では、データ数、最 小値、最大値、算術平均値、算術標準偏差、幾何平均値、幾何標準偏差を計算する。なお、統 計値は選択された全データにおける値(例:平均値であれば全データの平均値)が計算される ものとする。ただし、後述「(6)統計計算結果表示画面について」に示すように、正しい意味 での統計値が得られない可能性があることをユーザーに向けて注意する。
- 統計値計算における①データ検索条件、②統計値計算結果、及び③統計値計算に使用した測定値(生データ)の3種類の情報について、1個のファイルにして、ユーザーがダウンロードできるようにする。これらの情報①、②、③を個別のファイル(例えば、データ検索条件ファイル、統計値計算結果ファイル、測定値ファイル)にはしない。
- 4) 主な画面構成

データベースを構成する画面を表 4.3-1 に記載した。また、これらの画面の遷移については図 4.3-1 に示した。

No.	画面名	利用できる ユーザー	画面の機能
1	ログイン画面	全ユーザー	ユーザーがログインできる。また非ユーザーがユーザ 一新規登録申請画面へ遷移できる。
2	ユーザー新規登録申請画面	_	非ユーザーがユーザーの新規登録申請をできる。
3	検索条件設定画面 (メイン画面)	全ユーザー	検索条件の設定ができる。本システムのメイン画面に なり、この画面から画面 4-9 に遷移できる。
4	統計計算結果表示画面	全ユーザー	統計結果の表示、及びデータを保存したファイルのダ ウンロードができる。
5	既存データ集一覧画面	全ユーザー	環境移行パラメータ既存データ集(PDF)のダウンロー ドができる。
6	ユーザー設定画面	全ユーザー	ユーザーが自身のユーザー情報を編集できる。
7	データ管理画面	管理者のみ	データベース登録用ファイルのアップロードによるデ ータ登録、及びファイルのダウンロードができる。ま た、アップロードログが表示される。
8	アクセスログ管理画面	管理者のみ	ユーザーのアクセスログが表示される。
9	ユーザー管理画面	管理者のみ	ユーザー情報が一覧表示され、ユーザーの追加・削除が できる。

表 4.3-1 本システムにおける主な画面構成

5) 検索条件設定の方針

環境移行パラメータは、IAEA の Technical Report Series No. 422 (IAEA, 2004) (以下、「IAEA TRS 422」という)と No.472 (IAEA, 2010) (以下、「IAEA TRS 472」という)に準じることと した。その結果 12 項目に分類された。それぞれのパラメータにおいて独自の付帯項目がある。ユ ーザーの設定に応じた統計計算値が求められ、ユーザーはその値を解析などに用いる事ができる。 ユーザーが取得する統計計算値は事前に把握する事ができないため、統計計算値の信頼性を担保 するうえで好ましくない検索条件は、基本的にユーザーが設定できないようにする。統計値計算 においては、同じ元素の核種のみを対象とする。また、同じ元素であってもデータとなる核種の 分類は、核種移行パラメータにより異なる。そのため、元素を検索条件とし、元素、環境移行パ ラメータにより、統計値計算の対象とできる核種が決定するようにする。検索条件設定画面の機 能については、表 4.3-2 にまとめた。



No.	機能	説明
1	元素選択エリア	検索対象となる核種を選択する。
2	環境移行パラメータ	検索対象となる環境移行パラメータを選択する。
	選択エリア	
3	核種選択エリア	検索対象となる核種を選択する。選択可能な核種は、選択された元
		素、環境移行パラメータにより異なる。
4	詳細検索条件設定	・検索条件(検索項目、及び検索値)の内容、及び検索条件の数
	エリア	は、環境移行パラメータにより異なる。
		・検索項目ごとにその項目による検索の実行・非実行を選択する。
		・検索対象とする検索値を選択する。
5	検索実行ボタン	・設定された検索条件に適合する環境移行パラメータのデータ(測定
		値)をデータベースから検索する。
		・検索されたデータに対し、統計計算を行う。
		・統計計算終了後、統計計算結果表示画面に遷移する。
6	画面遷移メニュー	[画面 5]既存データ集一覧画面に遷移する。
7	画面遷移リンク	[画面 6]ユーザー設定画面、
		[画面 7]データ管理画面、[画面 8]アクセスログ管理画面、
		[画面 9]ユーザー管理画面に遷移する。
8	ログアウト	ログアウトする。

表 4.3-2 検索条件設定画面の機能

6) 統計計算結果表示画面について

本システムでは、測定値データを入力することとしているが、論文の中では測定値自体が統計 処理されているものもあり、それが入力される場合がある。例えば3反復試料の平均値や、複数 試料のデータの(算術または幾何)平均値または中央値に、最小値と最大値を伴うデータが報告 されているためである。前者の場合は平均値を1データとして扱うことは可能である。なお後者 のように複数の異なる試料のデータの平均値の入力であったとしても、重みづけをせずに1デー タとして扱うことを基本とするが、今後さらに検討をする必要がある。このようなデータと個別 データがデータベースには登録されることになるので、算術平均値や幾何平均値などが混在する ことになる。そのため、正しい意味での統計値を扱えず、算術平均値や幾何平均値が求められな くなる。対応については、引き続き検討が必要であるが、パラメータ値がどのような根拠に基づ いて導出されたのかを入力データの付帯項目に明記しておく必要がある。

7) データ利用に関するユーザーへの周知事項

本システムと同様のシステムは国内に存在しないが、日本原子力研究開発機構が運用する地層 処分システムの安全評価のための熱力学データベース、収着データベース及び拡散データベース (日本原子力研究開発機構,2024)等の既存 web サイトにおける利用規約などの事例調査を行っ た。今後も調査を行い、様々な事例を参考に適切な運用ができるようにしていく。なお、本シス テムでは、「データ提供者の権利」、及び「ユーザーへの制限・要請」については、全てを「利 用規約」としてまとめてユーザー登録時に表示し、ユーザーの同意確認をする方法を想定してい る。表示する項目については、今後、検討し選定する。また注意喚起が必要な場合、データダウ ンロード時など、例えば利用規約の一部(例:データの変更・複製・掲示・再配布などの禁止な ど)については、必要に応じ画面に表示する。
(3) 環境移行パラメータデータ集(セシウム)

令和5年度は、セシウムの環境移行パラメータデータを収集し、環境移行パラメータデータ集 を作成した。作成したデータ集を Appendix Ⅲとして本報告書に添付した。収録したパラメータ の一覧及び収録データ数と文献数を表 4.3-3に示す。比較のため、IAEA TRS 472 に登録された データ数も併記した。海域のパラメータ集である IAEA TRS 422 にはデータ数の記載はない。下 記にそれぞれのパラメータの要約を記す。文献リストは Appendix Ⅲを参照のこと。

No.	環境移行パラメータ分類 下段:単位	詳細分類	データ数	文献数	データ数 IAEA TRS
1	単位質量当たりの遮断係数 m ² kg ⁻¹ -FM ^{*1}	同左	19	1	18
2	ウェザリング半減期 d	同左	48	15	27
3	転流係数 dimensionless	同左	74	10	_*3
4	再浮遊係数 m⁻¹	同左	187	13	6
5	分配係数(陸域土壌) L kg ⁻¹ -DM ^{*2}	同左	657	15	469
6	分配係数(淡水域、堆積物) L kg ⁻¹ -DM ^{*2}	同左	914	1	907
7	分配係数(海域) L kg⁻¹-DM ^{*2}	同左	1777	3	_*3
8	土壌から作物への移行係数 dimensionless	同左	1414	36	1218
	畜産物への移行係数(及び濃	畜産物(肉)への移行係数	69	6	113
0	縮係数) 我行逐数,(到)d1-1	畜産物(乳)への移行係数	63	12	288
9	/梦1] 床釵.(北)u L, (肉)d kg⁻¹	畜産物(肉)への濃縮係数	57	5	21
	濃縮係数:dimensionless	畜産物(乳)への濃縮係数	12	5	119
	面積当たりの移行係数	キノコの移行係数	468	6	106
10	$m^{2} kg^{-1}-DM^{*2} tack m^{2} kg^{-1}-$	山菜の移行係数	118	3	_*3
	FM ^{*1}	狩猟動物の移行係数	4487	1	延べ 42 文献
11	水と水生生物間の濃縮係数 (淡水域) L kg ⁻¹ -FM ^{*1}	同左	252	3	171
12	水と水生生物間の濃縮係数 (海域) L kg ⁻¹ -FM ^{*1}	同左	10773	2	_*3

表 4.3-3 環境移行パラメータ分類とデータ数について

*1 Fresh Mass
*2 Dry Mass

*3 データ数記載なし、もしくは定義が異なるため比較できない

No.1 遮断係数:地下水シナリオにおいて放射性物質(放射性核種が様々な物理化学的形態を取りながら環境中を移行するので、その場合は放射性核種ではなく放射性物質を使用)の農作物への移行は、放射性物質を含む地下水を汲み上げて灌漑水とし、植物の上方から水を散布して利用する場合を想定することができる。そのためには湿性沈着した場合の植物による遮断係数

を用いる。またガス状になる元素の場合は乾性沈着もありうる。遮断係数は、土壌の面積当た りの葉面が植物の成長に従って増えることによって影響を受け、また散布のしかた(霧状から 雨滴相当)によっても値が異なると考えられる(Pröhl and Hoffman, 1996)。そのため、これ らの付帯情報が必要になる。

- No.2 ウェザリング半減期:植物体表面に付加された放射性物質が風雨によって除去される半減 期である。セシウムの場合は葉面に付着すると強く収着し、一部は植物体に吸収されてしまう こともあり、水では容易に除去できない(Tagami and Uchida, 2013)。そのため作物の成長 に伴って減少する効果もウェザリング半減期に含まれることがある(田上・内田, 2020)。
- No.3 転流係数:植物の汚染部位から非汚染部位(通常は可食部)への転流の程度を示す。汚染 部位の濃度に対する非汚染部位の濃度の比として報告したものを収録した。
- No.4 再浮遊係数:地表面に沈着した放射性物質が風等によって巻き上げられる程度である。わが国のデータと海外のデータを比較するために、海外データも収録した。
- No. 5 から 7 まではセシウムの固相と液相への分配比(*K*_d)である。わが国の陸域と海域でのデータの実測値を収録した。
- No.8 土壌・農作物移行係数:農作物のデータであるが果樹は含まれない。果樹については、東京 電力福島第一原子力発電所事故後に樹体自体が直接沈着による汚染をしたため、土壌からの移 行係数として示すことができなかった。果樹については事故以前のデータを含めて今後もデー タサーベイを引き続き行い、平衡状態におけるデータ収録を進める必要がある。
- No.9 畜産物への移行係数:畜産物への餌や飲料水からの移行については、東京電力福島第一原 子力発電所事故以前はわが国の家畜へのデータはほとんどない。事故後に得られたデータから 計算した値を収録した。
- No.10 面積あたりの移行係数:上記と同様に、東京電力福島第一原子力発電所事故以降のデー タを収録した。キノコと狩猟動物については IAEA TRS 472 と同程度であった。山菜につい ては食文化の違いもあり、欧米の調査結果では既存のデータがなかったが、データを収録する ことができた。一方、欧米のデータでは木や草の実(ベリー類)の報告がある。わが国ではベ リー類を野外で採取することはほとんどないため、データがなかった。
- No.11-12 は主にモニタリングデータを元に新たに計算により導出した結果である。上述したよう に海域のデータである IAEA TRS 422 に具体的にデータ数は記載されていないが、引用文献 数は多くない。したがって、本データ収集により、IAEA が取りまとめた結果に比べて多くの データが収録できたと言える。

(4) 関係機関との連携及び専門家による知見の集約

被ばくプロセスモデルにおいて扱う移行パラメータの整理を各機関との連携により進め、さら に外部専門家(5名)によるパラメータに係る最新の知見を集約するための「生活圏核種移行パ ラメータ」検討委員会を量研機構放射線医学研究所に設置した。検討委員会については、令和5 年度は2回開催し(第一回目:令和5年9月26日、第二回目:令和6年2月6日-7日)、デー タベース整備に向けて検討を行った。本事業では年度ごとに重点項目を設定してパラメータの整 備を行うこととしていることから、引き続き体制を維持し、知見集約を行うことが必要である。

(5) まとめ

ここでは、現在までに取得されたわが国のパラメータ値に関する知見・データを整理・蓄積し、 ユーザーのニーズに対応するデータベースを5年で作成・公開することを課題として調査・研究 を進めた。令和5年度は放射性 Cs を対象に環境移行パラメータデータ収集し、これを元に概要 設計を行った。このデータベースにユーザーのニーズを反映しつつ、外部専門家によるパラメー タに係る最新の知見を集約するため「生活圏核種移行パラメータ」検討委員会を2回開催した。 ユーザーや専門家の意見を来年度以降の詳細設計に反映させていくことは、最終的に利用しやす いデータベースを作成するために必要である。また収集した放射性 Cs のパラメータデータにつ いては代表的な数値として取りまとめてデータ集を作成した。引き続き他の核種についても順次 整備をしていくことが必要である。

4.3.2 重要移行パラメータに及ぼす実験条件の影響:土壌-土壌溶液分配係数のデータ拡充

(1) 背景と目的

長期の生活圏安全評価では、地表の状況が変化することが予測されることから、様々な土地利 用における土壌において環境移行パラメータを取得しておき、その影響を評価しておくことが望 ましい。これまでに我々は全国の農耕地土壌を対象としたデータの取得を行なってきたが、農耕 地以外の陸域土壌についてはデータがほとんどない。地下水や河川を通じて生活圏に移動してき た放射性核種は、灌漑水として農耕地(特に水田)に流入して農作物に移行、もしくは飲用水と して利用されることで人へ移行する。長期的には水田土壌や河川等を通じて堆積物に移行した放 射性核種は、地殻の変化に伴い別用途となった土地から移動する。

GBIから生活圏に流入した放射性核種が、最終的には沿岸域さらには外洋に移行する核種移行 プロセスにおける適切な移行量を評価するためにも、既存の土壌-土壌溶液分配係数(K_d)デー タが農耕地以外の土壌に対しても十分であるかどうかを明確にしておく必要がある。 K_d は、生活 圏における放射性核種の移行予測や安全評価などに利用されている重要な環境移行パラメータで ある。そのため、これまでに世界中で多くのデータが取得されており、そのデータの取りまとめ が行われている(例えば、IAEATRS 472)。土壌中と土壌溶液中の放射性核種が平衡状態にある ことを前提に、固相と溶液間の分配の程度を K_d (Lkg⁻¹)として次式で表している。

 $K_{d} = \frac{固相中の放射能濃度 (Bq kg^{-1})}{液相中の放射能濃度 (Bq L^{-1})}$

(2) 脱離法による土壌-土壌溶液分配係数(K_d)の取得実験

1) アーカイブ土壌試料の利用について

農耕地以外の土壌を対象として調査を進めるため、量研機構(旧放射線医学総合研究所)のア ーカイブ土壌(以下、「アーカイブ土壌」という)を一部用いることとした。これは全国の公立学 校の校庭土を中心として 1970 年代に収集されているものであるが、その地域の土壌を反映して いるかどうかについては情報に乏しい。したがって、本アーカイブ土壌を実験に用いる前に、土 壌中の天然放射性核種濃度(K-40、Th-232及びU-238)を測定し、土壌採取時に取得された空 間線量率(Abe et al., 1981)との関係を明らかにすることで、アーカイブ土壌の採取地点におけ る代表性について検討した。

令和5年度はアーカイブ土壌のうち秋田県、山形県、新潟県、富山県で採取された92試料を 対象に検討を進めた。まず、採取後風乾し、常温にて保管してあった土壌を直径2mmのフルイ を使って篩分した。風乾する過程で土壌自体が固まってしまうため、フルイの上に残った塊を含 む部分を厚手のポリ袋に入れ、ゴム製のハンマーを使って小石などを破砕しない程度の強さで叩 いて塊を粉砕し、再度篩分を行う作業を繰り返し、2mm以下の画分を回収した。フルイを通過 した試料はU-8容器と呼ばれる0.1L容器に100g以上になるように分取し、均等に詰め、高さ を整え、PTFEシールを用いて簡易密封した。天然放射性核種(Th-232及びU-238の壊変核種) が放射平衡に達する1か月以上放置した後、Ge 半導体検出装置(Seiko EG&G)により10万秒 計測を行った。Th-232 濃度の定量には系列核種のTl-208 (583.14 keV)、Bi-212 (609.31 keV) 及び Pb-212 (238.63 keV)を、U-238 濃度の定量には Bi-214 (609.31 keV)及び Pb-214 (351.99 keV)の定量結果の平均値からそれぞれ求めた。また、これら以外に K-40 と Cs-137 濃度も定量 した。本研究で用いた簡易密封による K-40、Cs-137、Th-232 及び U-238 の定量性の確からしさ については、産業技術総合研究所が作成した地球化学(岩石)標準物質 5 種類、アメリカ国立標 準技術研究所(NIST)が作成した河川及び湖沼堆積物各1 種類、IAEA が作成した土壌標準物質 IAEA-375 を使って確認した。

定量データの分布に関し、すべての核種で当てはまりが良かったのは対数正規分布であったこ とから、幾何平均値を求めた。K-40の幾何平均値は 549 Bq/kg-dry mass (DM)でその測定値の 範囲は 199-1209 Bq/kg-DM、U-238 の幾何平均値は 19 Bq/kg-DM でその測定値の範囲は 8.7-39 Bq/kg-DM、Th-232の幾何平均値は 29 Bq/kg-DM でその測定値の範囲は 10-61 Bq/kg-DM、Cs-137 の幾何平均値(令和 5 年 1 月 1 日に半減期補正)は 5.4 Bq/kg-DM でその測定値の範囲は D.L. (0.2)-48 Bq/kg-DM であった。得られた結果と Abe ら (1981)が現地で測定した空間線量率 との相関を図 4.3-2 に示す(現地測定の結果は µR/h。IAEA Tecdoc 1363 (IAEA, 2003b)に示され ている地上 1 m 位置におけるデータから µR/h から nGy/h への換算係数を 8.69 と導出し、nGy/h に変換した)。K-40、Th-232 及び U-238 については空間線量率と良い相関が得られた。しかしな がら、グローバルフォールアウト起源の Cs-137 には相関が見られていない。特に Cs-137 濃度が 低いものについては、1960 年代半ば以降、掘削や盛土が影響している可能性がある。



図 4.3-2 実測による空間線量率(Abe et al., 1981)と K-40, Th-232, U-238 及び Cs-137 濃度との関係

さらに、得られた濃度を使って IAEA Tecdoc 1363 により空間線量率を計算したところ図 4.3-3 に示すように高い相関が得られたことから、校庭の土壌は、その地域における代表性が高いと 考えられた。今後は抽出実験やトレーサー実験により、アーカイブ土壌を利用して様々な土壌の *K*_dデータを収集し、農耕地との相違を検討する予定である。



図 4.3-3 実測値と土壌中の K-40, Th-232 及び U-238 濃度からの理論計算による空間線量率の 比較

- 2) グローバルフォールアウト Pu と Np の脱離 Ka取得のための予備調査
- ① はじめに

Pu と Np-237 は a 線放出の長半減期核種であり、いったん環境中に放出されれば長期間環境 中に存在することになるため、放射性廃棄物の地層処分に係わる安全評価において重要核種であ る。Pu と Np の土壌の K_d データは、IAEA TRS 472 や日本原子力研究開発機構の「地層処分シ ステムの安全評価のための収着データベース」にも登録されている(陶山・舘, 2011)。実験室に おいて RI トレーサー実験により採取した土壌の収着 K_d データが報告されており、ある程度整備 されている。しかし、実際の核種移行を考えると、Pu と Np の収着 K_d データ値が高い、すなわ ちこれらの核種は土壌中を移動しにくいことから、生活圏の土壌中において蓄積していくことに なる。蓄積した核種が徐々に脱離プロセスによって溶出し、生活圏を移行していくことから、脱 離 K_d を求めておくことも、 K_d 値が高い核種にとっては有効であると考えられる。脱離 K_d はスウ ェーデンにおいても安定元素を対象として取得されている(Sheppard et al., 2009; 2011)。 Sheppard ら (2007) は、As、Cd、Ni、Mn、U など 54 の元素についての脱離及び収着 K_d に約 くなるかは元素によって異なるが、脱離 K_d 値は収着 K_d よりも平均で 5.6 倍高いと報告されてい る。我々はこれまでに、日本の農耕土壌中に既に存在しているグローバルフォールアウト起源の Pu と Np に着目し、畑土壌と水田土壌の脱離 K_d データを取得した(Zheng et al., 2022; 2023)。

農耕地土壌は適度に人が攪拌し、肥料を与えた半自然的な環境の土壌であるが、農耕地土壌以 外の土壌はほとんど人の手が入っておらず、農耕地土壌とは性質が異なっている。農耕地土壌以 外の土壌における *Ka* がどの程度であるのかについて把握することは、生活圏評価の信頼性確保 のために必要である。そのため、本調査では、量研機構が保有する農耕地以外の土壌(森林含む: 深度別の試料あり)や校庭で取得した土壌(日本全国)を使った Pu と Np の脱離 *Ka* の取得を 行い、農耕地土壌との比較検討を行うものである。グローバルフォールアウトに着目しているが、 土壌中に元々含まれる Pu や Np の濃度が低いと、土壌溶液中の濃度も低くなり検出下限未満に なると予想され、*K*d 値取得ができなくなってしまう。そこで令和 5 年度は非農耕地の土壌として、1970年代に全国の校庭で取得した土壌を用いた脱離法による *K*dを取得するにあたり、含まれる Pu や Np の量の調査を進めた。

② 材料及び方法

土壌試料:本実験には上述したアーカイブ土壌試料から、Cs-137 濃度が 10 Bq/kg を超えた 27 試料を用いた。試料は風乾の後、容器に密閉し室温・暗所で保管されていたものである。目的は Cs-137 濃度から Pu 濃度が比較的高い試料を推定できるか調査するためである。下記に述べる放 射化学分析の後、Thermo Fisher Scientific 製の高分解能 ICP-MS (SF-ICP-MS) を用いて Pu と Np-237 濃度を測定し、Pu と Np-237 の脱離 Kd取得に十分な試料の選定を行った。

試薬及び標準溶液類:用いた試薬類は以下の通りである。

- ・ Pu-242 標準溶液(回収率補正用)
- · U-233 内部標準溶液(感度補正用)
- ・ 標準物質 IAEA 385 又は NIST 4357
- AG® MP-1M 樹脂 100-200 mesh 分析用一般
- HNO₃ (60-68%) 特級
- HF (46-48%) 特級
- H₃BO₃ 生化学用
- TiCl₃(20%)分析用
- HNO₃ (68%) 超高純度硝酸
- ・ HBr 特級
- · HCl (35-37%) 特級
- ・ NaNO₂ 特級
- H₂O₂(30-35.5%)特級
- ・ Ca(NO₃)₂・4H₂O 特級
- ・ La(NO₃)₃・6H₂O 特級
- · 超純水
- 7.2M HNO₃ (1 試料あたり 85-95 mL。1 バッチ分析前に使用分調整)
- $Ca^{2+} + La^{3+}$ (100 mg/mL)
- 7.2M HNO₃+0.4M NaNO₂(1バッチ分析前に使用分調整)
- · 濃 HCl+濃 HNO₃(混合割合 20 mL: 0.3 mL。使用直前に混合しすぐに使用)
- 10M HCl 塩酸(1バッチ分析前に使用分調整)
- · 濃 HBr+0.1 M HF (混合割合 300 mL:1 mL。使用直前に混合しすぐに使用。)

土壌試料中 Pu 同位体と Np-237 の分離手順: Pu-242 トレーサを用いた同位体希釈法の原理に より土壌試料中の Np-237 と Pu 同位体を定量する方法であり、放射能測定法シリーズ No. 34 (原 子力規制庁, 2008) と共通している部分も多い。しかし、灰化温度や化学分離において、温度や カラムの選定、さらに試薬をこれまでの研究成果(Wang et al., 2015; Huang et al., 2019; Zhang et al., 2023; Qin et al., 2024) により変更し、SF-ICP-MS に最適な化学分離法を設定している。 これにより、測定における多原子干渉を防ぎ、検出下限を約 3 桁下げることができる。抽出-分離 法の詳細を図 4.3-4 に示す。



図 4.3-4 土壌試料中の Pu と Np-237 定量分析のための分析操作

- (a) サンプルの灰化: 1.5 2.0 gの風乾土壌または標準物質 (NIST 4357 また IAEA 385) をる つぼに量り取った。このるつぼをマッフル炉に入れ、450 ℃で4 時間加熱・灰化した。
- (b) HNO₃+HFによる抽出: 灰化試料を 120 mL のポリテトラフルオロエチレン (PTFE) の分解 容器に量り取った。分解容器に 0.57 pg の Pu-242 トレーサー(50 µL、11.4 ppt)を加え、さ らに 10 mL 濃 HNO₃ と 1 mL 濃 HF を加え、蓋を閉めて混合し、ホットプレート(200 ℃設 定)で4時間加熱した。この間、分解容器を 30 分ごとに優しく振り混ぜ、底部に沈んだ土壌 試料を酸と完全に接触させた。分解後、室温まで放置の後、蓋を外して分解溶液をろ紙を用い てろ過を行い、50 mL の遠沈管に回収した。分解溶液をできるだけ回収するため、容器を超 純水ですすぎ、またその洗浄液もろ過して合わせ入れた。遠沈管の溶液量が 35 mL に達する まで超純水でろ紙上の残渣を洗い入れた。
- (c) CaF2+LaF3による共沈: 遠心管に 2.0 mL の 20%TiCl3を加えて振とう後、約5分間静置した。その後1mLの100mg/mLCa²⁺+La³⁺を加え、十分に混合してから7mLのHF(46%)を加えた。容器に蓋を締めて混ぜると、遠沈管中には明らかな濁りが生じ、CaF2+LaF3が沈殿したのが確認できた。遠心管を15-20分間静置して沈殿を熟成した後、遠心機で 3000 rpmで15分間遠心分離を行い、上清を廃棄した。次に遠心管に 0.4gのH3BO3を、さらに 20mLの7.2M硝酸加え、沈殿物を溶解した。その後、価数調整のために 0.3gのNaNO2を遠沈管に加え、よく振って混合した。遠沈管を加熱分解装置(GL サイエンス, DigiPREP)に入れて40°Cで 30分間加熱して十分反応させた後、室温まで冷却した。
- (d) 陰イオン交換樹脂(AG[®] MP-1M)カラム分離: 2 mLの樹脂(BIO-RAD)をムロマック M サイズカラム(室町ケミカル)に充填したものを準備した。樹脂は 20 mLの 7.2 M HNO₃+0.2 M NaNO₂で前処理を行った。その後、価数調整をした試料溶液を遠沈管からカラムに流し入れた。次に 5 mLの 7.2 M HNO₃で遠沈管を洗浄し、その洗浄液もカラムに流し込んだ。樹脂を 20mL 濃 HCl+0.3mL 濃 HNO₃ですすぎ、さらに、60 mL の 7.2 M HNO₃で洗浄して U を除去した。次に樹脂に 10 mLの 10 M HCl を流し込むことで、残留 HNO₃と U をさらに 除去した。最終的には Np と Pu を 16 mL の HBr -0.1 M HF で AG MP-1M 樹脂から溶離さ せ、流出液を 50 mL ビーカーに集めた。溶離に関する改良を試み、図 4.3-5 のような結果を

得た。すなわち従来法は 16 mL の HBr を用いて、Np 及び Pu を AG MP-1M 樹脂から溶離さ せたが、図 4.3-5a に示したように Np 及び Pu の溶離挙動は一致していなかった(Huang et al., 2019)。今回、微量な HF を HBr 溶液に添加することにより、Np 及び Pu の溶離最適化条件 (16 mL HBr – 0.1 M HF)(図 4.3-5d)を達成した(Zhang et al., 2023)。



図 4.3-5 AG MP-1M 樹脂からの Np-237 と Pu-242 の溶離曲線と回収率 (a) HBr, (b) HBr+0.01M HF, (c) HBr+0.05M HF, (d) HBr+0.10M HF, (e) HBr+0.15M HF

(e) SF-ICP-MS 測定サンプルの調製: ホットプレート上(250 ℃)に溶離液を回収した 50 mLの PTFE ビーカーを置き、それをほぼ乾燥するまで加熱した。その後、1 mL 濃 HNO₃(超高純 度)を加え、ほぼ乾くまで 250℃で蒸発させた。溶液が乾固する直前にビーカーをトレーに移 して室温まで冷却した。この溶液に 0.7 mL の 4%HNO₃溶液(SF-ICP-MSの感度補正用の内 部標準として 0.004 ppb の U-233 を含む)を加えてよく混合した後、0.45 µm のフィルター を通して溶液を小型遠心管(2 mL)に入れた。測定装置は令和 5 年度検出器をアップグレー ドした SF-ICP-MS であり、その測定条件を表 4.3-4 にまとめたが、これにより以前の測定感 度で測定することができた。

機器設定条件	
RF パワー	1200 W
ネブライザー	Conical concentric 及び PFA Aspire ネブライザー
サンプリングコーン	Ni 製, オリフィス径 1.1 mm
スキマーコーン	Ni 製, オリフィス径 0.8 mm 又は X・コーン with Jet-interface
トーチ	ファッセル型トーチ
冷却ガス流量	16 L/min
補助ガス流量	0.85 L/min
試料ガス (ネブライザーガス) 流量	0.97-1.00 L/min (使用回毎に高感度 U-238+かつ低い酸化物生成比に調整)
データ取得条件	
分解能モード	低分解モード (m/Dm = 300)
走査モード	E・スキャン(ピークジャンンピングモード)
測定対象の同位体	U-238, Pu-239, Pu-240, Pu-241, Pu-242, Np-237
測定回数 (runs×passes)	20×4
質量ウインドウ	10%
ピークあたりのサンプル	100
サンプル時間	U-238=10 ms; Pu-239=30 ms; Np-237, Pu-239, Pu-240=100 ms
積分タイプ	平均值
合計測定時間	150 s
試料導入装置 APEX-Q 設定条件	
サンプル取り込み速度	0.2 mL/min (コニカルネブライザー)
スプレーチャンバー温度	140 °C
コンデンサー温度	2 °C
スイープガス (Ar)	3 L/min
追加ガス(Ar)流量	0.1 L/min
N ₂ ガス流量	ca. 10 mL/min

表 4.3-4 高分解能 ICP-MS (SF-ICP-MS)の測定条件

③ 土壌試料中 Pu 同位体と Np-237 の濃度測定法のバリデーション

土壌中の Pu と Np-237 濃度の確度の高い測定は、グローバルフォールアウトを使った Pu と Np-237 の土壌・土壌溶液分配係数(*Ka*)の研究において必須条件である。本研究では、用いた分 析法の妥当性を Pu-239、240 濃度について保証値がある堆積物標準物質(IAEA 385 と NIST 4357)で確認した。本研究で得られた Pu-240/Pu-239 原子数比はそれぞれ 0.167 ± 0.007 と 0.245 ± 0.007 であった。この値はこれまで報告されている値、IAEA 385 では 0.168 - 0.193、 NIST 4357 では 0.233 - 0.244 (Lindahl et al., 2010; Cizdziel et al., 2008; Pham et al., 2008) とよ く一致した。また、得られた Pu-239、240 放射能濃度はそれぞれ 3.17 ± 0.14 Bq/kg と 9.21 ± 0.54 Bq/kg であった。この値も文献値(IAEA 385 の保証値: 2.98 [Range: 2.81 - 3.13] Bq/kg-DM, NIST 4357 の保証値: 10.4 [Range: 9.3 - 13.2] Bq/kg-DM) (Pham et al., 2005; NIST, 1997) と一致しており、本分析法が土壌試料中の Pu 分析に十分な確度があることが分かった。

この測定で得られた IAEA 385 の Np-237 放射能濃度は (17.6±0.9)×10⁻³ Bq/kg であった。 この測定値は、文献に報告されている参考値 18.5×10⁻³ Bq/kg と一致した。また、NIST 4357 で は (9.4±0.5)×10⁻³ Bq/kg が得られ、文献値 7×10⁻³ [Range: (4 - 9)×10⁻³] Bq/kg (NIST, 1997) にも概ね適合していた。この結果は、本測定法が Np-237 の測定において正確で信頼性が高いこ とを示している。

これらの結果は、本分析法により土壌試料中の微量な Pu と Np-237 の確度の高い測定が可能 であることを示している。

④ アーカイブ土壌中 Pu 同位体と Np-237 放射能濃度

まず土壌試料中のグローバルフォールアウト Cs·137 濃度から Pu 濃度を推定することが可能 か検討を行った。グローバルフォールアウト核種の降下量が多いと言われている日本海側の秋田 県、山形県、新潟県及び富山県 4 県の校庭を中心とするアーカイブ土壌 92 種類から Cs·137 濃度 が 10 Bq/kg 以上であった 27 試料を選択し、上述する方法により Pu 同位体と Np·237 放射能濃 度測定を行った。得られた Pu 同位体及び Np·237 放射能濃度の結果を表 4.3·5 に、Pu·240/Pu· 239、Np·237/Pu·239 及び Np·237/Pu·239, 240 放射能比を表 4.3·6 に示す。表 4.3·5 には、グロ ーバルフォールアウト Cs·137 濃度も記載した。

Sampling Location		Organic	Pu	·239	Pu-	240	Pu-23	9,240	Np	·237	Cs-137	
Samplin	ig Location	content (%)	mBq/g	std	mBq/g	std	mBq/g	std	mBq/g	std	mBq/g	std
秋田県	湯沢市	1.49	0.324	0.016	0.199	0.018	0.524	0.024	0.00146	0.00010	13.7	0.7
秋田県	大曲市	1.33	0.452	0.011	0.304	0.012	0.756	0.016	0.00224	0.00013	18.5	0.7
秋田県	仙北市	1.73	0.393	0.011	0.251	0.015	0.644	0.019	0.00212	0.00012	16.3	0.7
山形県	米沢市	5.04	1.877	0.055	0.954	0.021	2.831	0.059	0.00688	0.00032	46.6	0.9
山形県	米沢市	4.21	0.242	0.010	0.157	0.009	0.399	0.013	0.00124	0.00006	10.4	0.8
山形県	鶴岡市	1.53	0.303	0.008	0.198	0.014	0.501	0.016	0.00169	0.00009	12.9	0.7
山形県	鶴岡市	1.49	0.643	0.015	0.427	0.021	1.069	0.026	0.00322	0.00018	26.0	0.8
山形県	新庄市	7.99	0.327	0.006	0.209	0.013	0.536	0.014	0.00169	0.00008	13.8	0.8
山形県	村山市	3.06	0.368	0.027	0.232	0.017	0.600	0.032	0.00183	0.00011	12.7	0.8
山形県	尾花沢市	3.38	0.221	0.006	0.136	0.007	0.356	0.009	0.00117	0.00005	13.0	0.6
新潟県	長岡市	2.97	0.306	0.008	0.187	0.013	0.493	0.015	0.00113	0.00007	12.4	0.8
新潟県	三条市	1.89	0.354	0.017	0.216	0.013	0.570	0.022	0.00163	0.00008	15.9	0.8
新潟県	加茂市	5.52	0.386	0.010	0.236	0.015	0.621	0.018	0.00132	0.00007	11.8	0.9
新潟県	燕市	2.63	0.479	0.019	0.279	0.017	0.759	0.026	0.00173	0.00010	20.4	0.9
新潟県	栃尾市	2.58	1.201	0.046	0.707	0.032	1.908	0.056	0.00336	0.00016	43.4	0.8
新潟県	両津市	5.31	0.240	0.011	0.162	0.015	0.401	0.019	0.00128	0.00010	12.5	0.8
新潟県	上越市	4.53	0.434	0.016	0.276	0.019	0.709	0.025	0.00156	0.00009	16.5	0.8
新潟県	上越市	7.74	0.445	0.013	0.280	0.017	0.725	0.022	0.00195	0.00016	18.4	0.9
新潟県	上越市	4.59	0.371	0.021	0.227	0.019	0.598	0.028	0.00160	0.00014	13.5	0.4
新潟県	塩沢町	3.51	0.289	0.047	0.196	0.038	0.485	0.060	0.00124	0.00021	12.3	0.4
新潟県	相川町	2.97	0.403	0.033	0.264	0.030	0.667	0.045	0.00123	0.00010	12.9	0.4
新潟県	佐和田町	3.40	0.606	0.019	0.335	0.012	0.941	0.022	0.00181	0.00009	14.7	0.4
新潟県	金井町	8.09	1.948	0.023	1.099	0.045	3.047	0.050	0.00925	0.00024	48.9	0.7
富山県	富山市	2.64	0.381	0.013	0.235	0.016	0.616	0.020	0.00145	0.00008	13.5	0.5
富山県	富山市	3.84	0.510	0.007	0.347	0.017	0.857	0.018	0.00165	0.00006	20.9	0.4
富山県	高岡市	6.28	0.515	0.008	0.298	0.010	0.813	0.013	0.00201	0.00013	16.6	0.4
富山県	新湊市	3.06	0.507	0.013	0.321	0.015	0.828	0.020	0.00267	0.00015	17.2	0.4
Max		8.09	1.95		1.099		3.047		0.00925		48.9	
Min		1.33	0.22		0.136		0.356		0.00113		10.4	
Arithme	etric mean	3.81	0.538		0.323		0.861		0.00224		18.7	
Standar	d deviation	1.99	0.438		0.231		0.668		0.00180		10.5	
Median		3.38	0.393		0.251		0.644		0.00169		14.7	
n		27	27		27		27		27		27	

表 4.3-5 アーカイブ土壌中の Pu 同位体、Np-237 及び Cs-137 濃度

		Pu-240/I	Pu-239	Np-237/I	Pu-239	Np-237/Pu	-239,240
Samplin	ig Location	atom ratio	std	atom ratio	std	act ratio	\mathbf{std}
秋田県	湯沢市	0.168	0.014	0.396	0.027	0.00278	0.00006
秋田県	大曲市	0.184	0.007	0.436	0.019	0.00296	0.00004
秋田県	仙北市	0.174	0.012	0.475	0.029	0.00330	0.00006
山形県	米沢市	0.139	0.004	0.323	0.012	0.00243	0.00013
山形県	米沢市	0.177	0.007	0.452	0.018	0.00312	0.00004
山形県	鶴岡市	0.178	0.016	0.491	0.028	0.00337	0.00005
山形県	鶴岡市	0.182	0.009	0.441	0.024	0.00301	0.00007
山形県	新庄市	0.175	0.011	0.456	0.018	0.00316	0.00004
山形県	村山市	0.172	0.012	0.438	0.033	0.00305	0.00009
山形県	尾花沢市	0.168	0.012	0.465	0.027	0.00327	0.00003
新潟県	長岡市	0.167	0.011	0.324	0.023	0.00228	0.00003
新潟県	三条市	0.167	0.012	0.407	0.024	0.00287	0.00006
新潟県	加茂市	0.167	0.010	0.302	0.018	0.00212	0.00003
新潟県	燕市	0.159	0.007	0.319	0.016	0.00229	0.00005
新潟県	栃尾市	0.161	0.006	0.248	0.010	0.00176	0.00009
新潟県	両津市	0.184	0.016	0.477	0.038	0.00318	0.00005
新潟県	上越市	0.174	0.012	0.322	0.020	0.00220	0.00005
新潟県	上越市	0.172	0.011	0.390	0.027	0.00269	0.00005
新潟県	上越市	0.167	0.015	0.387	0.035	0.00268	0.00007
新潟県	塩沢町	0.186	0.018	0.390	0.029	0.00256	0.00014
新潟県	相川町	0.179	0.012	0.277	0.031	0.00184	0.00008
新潟県	佐和田町	0.151	0.006	0.263	0.009	0.00192	0.00004
新潟県	金井町	0.154	0.006	0.418	0.013	0.00304	0.00014
富山県	富山市	0.168	0.008	0.335	0.016	0.00236	0.00004
富山県	富山市	0.186	0.009	0.285	0.011	0.00193	0.00003
富山県	高岡市	0.159	0.005	0.344	0.021	0.00247	0.00003
富山県	新湊市	0.173	0.007	0.464	0.029	0.00323	0.00006
Max		0.186		0.491		0.00337	
Min		0.139		0.248		0.00176	
Arithmetric	mean	0.170		0.382		0.0027	
Standard de	eviation	0.011		0.074		0.0005	
Median		0.172		0.390		0.00269	
n		27		27		27	

表 4.3-6 アーカイブ土壌中の Pu-240/Pu-239、Np-237/Pu-239 及び Np-237/Pu-239,240 の同位 体比

アーカイブ土壌試料 27 点の Pu-239,240 濃度範囲は 0.356 - 3.047 mBq/g であり、最大/最小 濃度比は 8.5 であった。算術平均値は、0.861 mBq/g であった。Np-237 濃度範囲は 0.00113 -0.00925 mBq/g であり、最大/最小濃度比は 8.2 であった。算術平均値は、0.00224 mBq/g であっ た。図 4.3-6 に Cs-137 放射能濃度と Pu-239、240 放射能濃度の相関を示す。図から分かるよう に、Cs-137 放射能濃度と Pu-239、240 放射能濃度と高い相関(R²=0.9321)があり、アーカイブ 土試料中の Cs-137 濃度から Pu-239、240 放射能濃度を推定できることが分かった。

本調査で用いたアーカイブ土試料中の有機物含有量の範囲は1.33-8.09%であった。図4.3-7 に示したとおり、アーカイブ土壌中 Np-237 と Pu-239 放射能濃度と有機物含有量には相関が認 められなかった。Np-237 や Pu が土壌に降下してから約 10-20 年間経過しているため、有機物 に収着した Np-237 や Pu は有機物分解により別の形態に変化したり、有機物と錯体を作って移 動しやすくなるが、降下総量に対する脱離量は少ないと考えられる。したがって、土壌中の有機 物量が Np-237 及び Pu 放射能濃度に影響する程度は小さく、土壌中 Np-237 と Pu-239 放射能濃 度と有機物含有量には相関が認められなかったと思われる。なおフォールアウト沈着量、地形や 土壌粘土含量等は土壌 Np-237 と Pu 放射能濃度に影響すると考えられるが、フォールアウト沈 着量が地域により異なるため、これらの要因がどのように Np-237 と Pu 放射能濃度に影響する かを評価する事は困難である。



図 4.3-6 アーカイブ土壌中の Cs-137 と Pu-239,240 濃度の関係



図 4.3-7 アーカイブ土壌中の有機物含量(%)と Pu-239, 240 及び Np-237 濃度の関係

これらのアーカイブ土壌を用いて Pu と Np-237 の脱離 Kdを求めることの可能性について検討 するために、以前に我々が求めた水田土壌と畑土壌の Pu と Np-237 濃度(Zheng et al., 2022; 2023)とアーカイブ土壌の Pu と Np-237 濃度を比較した。水田土壌と畑土壌の Pu-239、240 の 放射能濃度範囲はそれぞれ 0.106 - 0.674 mBq/g と 0.030 - 1.477 mBq/g であった。Np-237 放 射能濃度範囲はそれぞれ 0.00024 - 0.00206 mBq/g と 0.00006 - 0.00279 mBq/g であった。図 4.3-8 示したように、本研究で測定したアーカイブ土壌試料における Pu-239、240 及び Np-237 の放射能濃度範囲はそれぞれ 0.356-3.047 mBq/g と 0.00113 - 0.00925 mBq/g であった。測定し たアーカイブ土試料における Pu-239、240 及び Np-237 の放射能濃度範囲は水田土壌及び畑土 壌における Pu-239、240 及び Np-237 の放射能濃度以上であり、本研究で用いたアーカイブ土壌 試料により Pu と Np-237 の脱離 *K*dの取得が可能と考えられる。



図 4.3-8 アーカイブ土壌、水田土壌(Paddy soil)及び畑土壌(Uplandsoil)中の Np-237 及び Pu-239,240 濃度の比較

データ引用元: Paddy soil (Zheng et al., 2022), Upland soil (Zheng et al., 2023)

3) 脱離法による非農耕地土壌中の安定元素の分配係数取得

脱離法による K_d 取得について、令和5年度は安定元素については約20試料の土壌を用いて求 めることとしており、21試料の分析を行うことができた。報告するのは、一部の重金属元素と生 活圏評価における重要核種の関連元素であり、Cr、Co、Ni、Cu、Zn、Rb、Sr、Zr、Nb、Mo、 Cd、Sn、Cs、Ba、La、Ce、Pr、Nd、Sm、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb、Lu、Pb、 Th、Uである。土壌中の全濃度を測定するにあたり、下記に示す酸分解法を用いていることから Iを測定することはできなかった。また元素濃度が低い試料については、データを収集すること ができなかった。

① 土壌試料

本実験に用いた 21 試料の土壌の土壌分類、土地利用や採取深度について表 4.3-7 に示す。これ らはアーカイブ土壌ではなく、量研機構において別途 1990年代に収集した表層土壌試料であり、 全て農耕地以外の土壌であり、採取後実験室において風乾し 2 mm 以下に篩別後、常温にて保管 してあった。

2 全量分析法

風乾土壌試料 ($\varphi < 2 \text{ mm}$) を遊星型ボールミルにより粉砕した。この粉砕試料 0.1 g を精密天 秤で正確に計り取り、マイクロウェーブ分解装置専用 PTFE 容器に分取した。ここに硝酸を 7

mL、フッ酸を7mL加えて密閉し、分解容器をマイクロウェーブ分解装置にセットし、約10分の加熱・加圧を行った。放冷後、過塩素酸を1mL加え、ホットプレート上で加熱し乾固。さらに試料に硝酸1mLと過酸化水素水0.5mLを添加して残さを溶かした後、再度乾固した。この再乾固した試料に40%に調整した硝酸を2.5mL加え50mLポリプロピレン製容器に移し、超純

Sample code	土壤分類	土地利用	採取深度 (cm)	pН	Total C (%)
O-01	黒ボク土	草地	*	5.27	6.99
O-02	赤土	草地	*	5.54	1.52
O-03	鹿沼土	草地	*	5.45	0.54
O-04	黒ボク土	森林	*	4.34	18.1
O-05	鹿沼土(白)	-	*	5.74	0.46
O-06	鹿沼土(黒)	-	*	5.77	0.18
O-07	砂丘未熟土	-	0 - 10	5.56	0.84
O-08	砂丘未熟土	-	10 - 30	5.4	0.46
O-10	細粒赤色土	果樹	0 - 25	7.42	1.69
O-14	表層腐植質黒ボク土	森林	0 - 5	5.14	11.15
O-15	表層腐植質黒ボク土	森林	10 - 20	-	
O-16	表層腐植質黒ボク土	森林	20 - 30	-	
O-17	表層腐植質黒ボク土	森林	40 - 55	-	
O-28	全層腐植質黒ボク土	草地	0 - 20	5.7	3.26
O-34	全層腐植質黒ボク土	草地	0 - 20	6.16	5.04
O-42	表層腐植質黒ボク土	草地	0 - 15	5.65	9.94
O-58	表層腐植質黒ボク土	草地	0 - 15	5.7	3.52
O-80	表層腐植質黒ボク土	草地	0 - 20	5.14	1.14
O-94	表層多腐植質黒ボク土;非アロフェン質	草地	0 - 20	4.45	15.04
O-96	表層多腐植質黒ボク土;非アロフェン質	草地	0 - 20	4.91	12.63
O-100	表層多腐植質黒ボク土;非アロフェン質	草地	0 - 20	5.77	4.87

表 4.3-7 用いた土壌試料の種類、土地利用及び土壌特性

水を用いて全量を 50 mL に定容して母液とした。これを適宜希釈し、ICP-MS (Agilent, 7900) と誘導結合プラズマ発光分光分析装置 (ICP-OES, Horiba, Activa) により元素濃度の定量測定を した。

③ 土壤溶液抽出法

容量 50 mL のポリ容器に風乾土壌 3.0 g を分取し、超純水を 30 mL 添加し(固液比 10 mL/g)、 7 日間連続振とう(120 rpm、23 ℃)の後、3000 rpm、10 分の遠心分離後に 0.45 µm のフィル ターでろ過をした。平衡時間については、過去に行った実験条件検討の結果(量子科学技術研究 開発機構,原子力発電環境整備機構, 2020)を受けて 7 日間に設定した。採取したろ液中の元素 濃度またはイオン濃度を ICP-MS、ICP-OES 及びイオンクロマトグラフィー(Thermo Fisher Scientific, Integrion)を用いて測定した。

④ 脱離 Ka(L/kg)導出方法

各元素の定量結果から、脱離 Kd は次式で表される。

脱離 $K_d = \{(T_{init} \times S_{soil} - C_{contr} \times L_{water}) / S_{soil}\} / C_{contr}$

T_{init}:対象元素の風乾土壤中濃度(mg/kg) C_{contr}:振とう後の対象元素の土壌溶液中濃度(mg/L) S_{soil}:風乾土壌重(kg) L_{water}:土壌への超純水添加量(L)

ほとんどの元素では土壌中総量(T_{init}×W_{soil})に比べて溶出量(C_{contr}×W_{water})が無視できるほど小さいため、(T_{init}×W_{soil}・C_{contr}×W_{water})≒(T_{init}×W_{soil})とし、次式により導出した。

脱離 $K_d = T_{init} / C_{contr}$

*採取深度の記載がないが表層土壌(最大 30 cm)

5 結果と考察

得られた安定元素 31 種類の脱離 Kaの一覧を表 4.3・8 に示す。今回用いた試料のうち 14 試料 については 3 反復で分析を行なっている。測定により 3 反復でデータが得られた場合には幾何平 均値を、2 データが得られた場合には算術平均値を導出した。3 反復の分析で 1 データしか得ら れなかった場合には、確度が低いため、その後のデータ分析を行わなかった。今回の分析結果か ら、3 反復のデータからは概ね良い一致が得られたことから、繰り返しデータを得ることは必ず しも必要ではないと言える。そのため、7 試料については繰り返し分析を行わずにデータを取得 した。繰り返しデータ等の詳細は付属データに全て記載した。全 21 試料の分析の結果、得られた 脱離 Kaの幾何平均値を図 4.3・9 に示す。

さらに得られた幾何平均値を、過去に収集した農耕地土壌の脱離 K_dの幾何平均値(量子科学技術研究開発機構,原子力発電環境整備機構,2023)で除して比を求めた。結果を図4.3·10に示す。1を下回ったのはZn、Nb、Csの3元素であった。1桁程度上回ったのはMoとSnであり、 非農耕地土壌でよく保持されていた。これらの違いが土地利用に起因するのか否かについて明らかにするためには、統計的な分析を行う必要がある。なお、土壌中の元素濃度については農耕地 土壌237種類を分析した結果と、今回測定した結果を表4.3·9に示した。非農耕地土壌と農耕地 土壌の元素濃度の幾何平均値の比は0.5·1.3であり、大きな差はないことから、溶出特性の違い によるものと考えられる。土壌Kdのデータベースを整備する際には、土壌特性や脱離実験中に 土壌固相から溶出してくる共存イオン濃度についても情報を付随しておく必要があることを、「生 活圏核種移行パラメータ」検討委員会において指摘があった。そこでイオンクロマトグラフィー による測定結果についてもKaデータとリンクさせて、解析に利用できるようにしておくことが 望ましい。表4.3·10には陽イオン及び陰イオンの濃度データを記載した。

ただし、令和5年度の分析試料数は21種類であり、統計的な分析を行うためにはより多くの データが必要である。そのため、今後さらに脱離 Kaを収集する必要があることから、令和6年 度以降、前述したアーカイブ土壌の分析も含め、検討を進める予定である。加えて、元素分析に 関し、生活圏評価における重要核種の関連元素のうち濃度が低いため測定できなかった元素につ いて、分析法の改良によりデータ取得の可能性について調査を進める。

表 4.3-8 非	≤農耕地土壌中の安定元素によ	る脱離 Ka	値(L/	′kg)((1/3)
-----------	----------------	--------	------	-------	-------

Sample code	Value*	Cr	Co	Ni	Cu	Zn	Rb	Sr	Zr	Nb	Mo
O-01	GM	2.4E+6	3.0E+4	2.0E+5	1.1E+5	7.4E+4	3.2E+3	5.1E+3	5.8E+6	-	1.2E+5
O-02	SV	1.6E+6	2.3E+5	1.9E+5	7.8E+5	7.6E+4	3.2E+3	1.9E+3	-	-	6.0E+5
O-03	SV	1.1E+5	2.7E+5	3.8E+4	1.0E+5	1.5E+4	6.1E+3	2.4E+4	-	-	1.4E+5
O-04	GM	8.7E+4	6.1E+3	1.7E+4	1.6E+4	-	1.2E+3	1.6E+4	8.5E+4	7.5E+5	2.8E+4
O-05	SV	3.1E+5	-	2.9E+4	2.0E+5	3.4E+4	3.1E+4	5.3E+4	-	-	1.8E+4
O-06	SV	-	-	8.4E+4	2.1E+5	3.7E+4	1.5E+4	5.7E+4	-	-	3.0E+4
O-07	SV	2.6E+4	9.6E+3	9.6E+3	3.3E+3	1.2E+4	3.1E+4	1.1E+5	1.3E+4	3.3E+4	3.1E+3
O-08	SV	1.4E+4	3.8E+3	7.7E+3	6.4E+2	4.7E+3	3.4E+4	5.0E+4	6.2E+3	1.1E+4	1.2E+3
O-10	SV	1.7E+5	4.9E+3	1.0E+5	8.2E+3	2.5E+4	1.1E+4	7.9E+3	8.5E+5	3.7E+6	1.8E+5
O-14	GM	5.4E+4	6.3E+3	2.7E+4	5.2E+3	1.1E+4	2.3E+3	3.3E+3	1.8E+4	1.9E+5	1.2E+4
O-15	GM	5.0E+5	1.3E+4	1.0E+5	2.5E+4	3.5E+4	3.8E+3	5.7E+3	5.8E+5	-	9.0E+4
O-16	GM	8.1E+6	2.0E+4	8.0E+4	6.4E+4	4.0E+4	7.6E+3	4.5E+3	6.4E+6	-	1.0E+5
O-17	GM	-	2.7E+5	6.2E+5	3.5E+5	6.6E+4	2.7E+4	4.9E+3	-	-	2.0E+5
O-28	GM	1.2E+6	5.7E+4	1.5E+5	6.0E+4	3.7E+4	1.0E+4	6.1E+3	2.5E+6	-	5.6E+4
O-34	GM	1.1E+5	4.9E+4	5.0E+4	8.9E+3	2.6E+4	1.4E+3	7.7E+3	9.0E+4	9.2E+4	2.8E+3
O-42	GM	3.6E+4	1.1E+4	1.4E+4	4.7E+3	2.2E+4	2.4E+3	3.5E+3	2.0E+4	9.9E+4	1.7E+3
O-58	GM	5.7E+5	2.3E+5	1.5E+5	3.4E+4	9.5E+4	6.8E+3	4.0E+3	1.9E+5	6.9E+6	5.7E+4
O-80	GM	6.1E+4	1.9E+4	1.8E+4	9.3E+3	1.6E+4	5.3E+3	2.2E+4	4.3E+4	7.0E+4	3.6E+3
O-94	GM	1.5E+4	1.8E+3	6.2E+3	8.4E+3	6.8E+3	2.8E+3	6.0E+3	8.0E+3	3.5E+4	8.7E+3
O-96	GM	4.2E+4	6.1E+3	2.3E+4	6.3E+3	1.3E+4	1.8E+3	2.6E+3	2.4E+4	2.0E+5	1.5E+4
O-100	GM	1.7E+5	2.9E+4	1.4E+4	1.1E+4	8.6E+4	7.2E+3	1.2E+4	1.2E+5	1.0E+6	2.7E+4
Ν		19	19	21	21	20	21	21	16	12	21
GM		1.7E+5	2.2E+4	4.4E+4	2.4E+4	2.7E+4	6.1E+3	9.7E+3	1.2E+5	2.1E+5	2.6E+4
Min		1.4E+4	1.8E+3	6.2E+3	6.4E+2	4.7E+3	1.2E+3	1.9E+3	6.2E+3	1.1E+4	1.2E+3
Max		8.1E+6	2.7E+5	6.2E+5	7.8E+5	9.5E+4	3.4E+4	1.1E+5	6.4E+6	6.9E+6	6.0E+5

*GM: geometric mean or arithmetic mean from three replicates. SV: single value. - not detected.

表 4.3-8 非農耕地土壌中の安定元素による脱離 Kd 値 (L/kg) (2/3)

Sample code	Cd	Sn	Cs	Ba	La	Ce	Pr	Nd	Sm	Eu	Gd
O-01	5.5E+3	7.9E+5	2.9E+4	8.8E+3	1.3E+6	2.6E+6	1.0E+6	9.4E+5	7.7E+5	1.8E+5	9.0E+5
O-02	1.9E+4	1.3E+6	3.9E+4	2.4E+4	9.2E+6	1.0E+8	-	5.9E+6	-	8.3E+5	-
O-03	1.1E+4	2.4E+7	1.4E+4	2.5E+4	-	-	-	1.3E+7	-	9.7E+5	-
O-04	2.8E+3	4.6E+5	6.6E+3	2.6E+4	2.3E+4	2.8E+4	2.5E+4	2.3E+4	2.4E+4	2.4E+4	2.2E+4
O-05	1.2E+5	-	7.7E+4	8.2E+4	-	4.3E+7	-	4.8E+6	-	-	-
O-06	6.5E+4	-	2.9E+4	7.7E+4	-	1.3E+8	-	6.6E+6	-	-	-
O-07	2.0E+3	2.8E+4	3.3E+4	1.1E+5	1.4E+4	1.1E+4	9.8E+3	8.6E+3	6.8E+3	1.4E+4	6.8E+3
O-08	1.6E+3	6.2E+3	2.9E+4	9.2E+4	1.9E+4	1.6E+4	1.4E+4	1.2E+4	9.3E+3	1.8E+4	8.5E+3
O-10	1.5E+3	5.4E+4	1.0E+5	3.4E+3	1.2E+5	7.7E+4	5.6E+4	4.1E+4	3.2E+4	2.6E+4	2.8E+4
O-14	2.2E+3	9.0E+4	3.2E+4	1.0E+4	2.2E+4	4.0E+4	2.0E+4	1.7E+4	1.7E+4	1.7E+4	1.5E+4
O-15	1.9E+3	-	4.6E+4	1.1E+4	2.4E+5	5.1E+5	1.9E+5	1.6E+5	1.6E+5	1.2E+5	1.5E+5
O-16	2.2E+3	3.8E+5	5.4E+4	1.1E+4	1.2E+6	2.2E+6	8.6E+5	7.7E+5	7.2E+5	2.7E+5	7.4E+5
O-17	1.2E+4	-	1.6E+5	1.6E+5	-	3.4E+7	-	-	-	3.7E+7	-
O-28	4.9E+3	-	1.2E+5	4.1E+4	4.7E+5	1.2E+6	2.9E+5	2.6E+5	2.6E+5	2.6E+5	2.8E+5
O-34	1.3E+4	9.8E+4	5.6E+3	1.5E+4	7.0E+4	6.5E+4	6.4E+4	6.2E+4	6.0E+4	6.0E+4	6.1E+4
O-42	3.4E+3	2.9E+4	5.4E+3	7.2E+3	2.3E+4	4.3E+4	2.3E+4	2.1E+4	2.1E+4	2.0E+4	2.1E+4
O-58	1.1E+4	-	6.0E+4	9.4E+4	1.6E+5	4.3E+5	1.0E+5	8.5E+4	8.4E+4	8.9E+4	8.5E+4
O-80	8.4E+3	1.3E+5	3.3E+4	3.8E+4	2.9E+4	3.6E+4	2.5E+4	2.2E+4	2.1E+4	2.3E+4	2.1E+4
O-94	2.5E+3	4.1E+4	2.2E+4	5.8E+3	8.1E+3	1.1E+4	7.7E+3	7.2E+3	7.3E+3	7.9E+3	7.2E+3
O-96	2.6E+3	1.1E+5	1.8E+4	5.0E+3	1.0E+4	1.6E+4	1.0E+4	9.5E+3	9.6E+3	9.5E+3	9.4E+3
O-100	3.4E+4		1.1E+4	2.1E+4	1.4E+5	1.4E+5	1.1E+5	9.5E+4	9.5E+4	1.2E+5	9.3E+4
Ν	21	14	21	21	17	20	16	20	16	19	16
GM	6.3E+3	1.6E+5	3.0E+4	2.3E+4	9.1E+4	3.6E+5	5.4E+4	1.3E+5	4.5E+4	8.3E+4	4.4E+4
Min	1.5E+3	6.2E+3	5.4E+3	3.4E+3	8.1E+3	1.1E+4	7.7E+3	7.2E+3	6.8E+3	7.9E+3	6.8E+3
Max	1.2E+5	2.4E+7	1.6E+5	1.6E+5	9.2E+6	1.3E+8	1.0E+6	1.3E+7	7.7E+5	3.7E+7	9.0E+5

-: not detected.

Sample code	Tb	Dy	Но	Er	Tm	Yb	Lu	Pb	Th	U
O-01	-	1.1E+6	-	6.6E+5	5.7E+5	5.3E+5	1.2E+6	4.6E+6	8.8E+6	1.5E+6
O-02	-	-	-	-	-	1.7E+7	-	1.2E+6	7.9E+6	1.7E+6
O-03	-	-	-	-	-	-	-	5.0E+6	1.2E+7	1.3E+6
O-04	2.6E+4	2.3E+4	2.2E+4	1.8E+4	1.7E+4	1.5E+4	1.2E+4	8.8E+4	1.4E+5	3.9E+4
O-05	-	-	-	-	-	2.5E+7	-	2.2E+6	1.4E+7	1.2E+6
O-06	-	-	-	-	-	-	-	1.8E+6	1.2E+7	1.0E+6
O-07	5.9E+3	6.0E+3	6.3E+3	6.3E+3	6.9E+3	7.1E+3	6.9E+3	2.9E+4	8.0E+3	7.6E+3
O-08	7.6E+3	6.9E+3	7.1E+3	6.6E+3	7.7E+3	7.0E+3	6.8E+3	9.1E+3	9.5E+3	6.9E+3
O-10	3.1E+4	2.3E+4	2.0E+4	1.4E+4	1.5E+4	1.0E+4	9.5E+3	4.8E+5	7.2E+5	5.9E+4
O-14	1.9E+4	1.5E+4	1.5E+4	1.3E+4	1.5E+4	1.1E+4	1.1E+4	5.1E+4	4.8E+4	8.6E+3
O-15	2.3E+5	1.5E+5	1.5E+5	1.1E+5	1.1E+5	9.2E+4	8.4E+4	4.7E+5	2.1E+6	1.1E+5
O-16		8.4E+5	2.5E+6	5.3E+5	5.0E+5	4.2E+5	6.5E+5	5.8E+5	1.3E+7	3.1E+5
O-17				6.8E+6	5.0E+6	4.5E+6				
O-28	6.7E+5	3.3E+5	4.4E+5	2.3E+5	2.1E+5	2.0E+5	2.1E+5	1.8E+6	6.7E+6	2.9E+5
O-34	6.4E+4	6.3E+4	6.1E+4	5.5E+4	5.2E+4	5.5E+4	5.2E+4	4.4E+4	2.0E+5	2.0E+4
O-42	2.0E+4	2.1E+4	2.0E+4	1.9E+4	8.8E+3	1.9E+4	1.5E+4	6.3E+4	4.0E+4	6.2E+3
O-58	1.1E+5	9.5E+4	8.7E+4	7.5E+4	7.1E+4	6.8E+4	5.8E+4	1.4E+6	9.2E+5	1.1E+5
O-80	2.2E+4	2.1E+4	2.1E+4	2.0E+4	2.0E+4	1.9E+4	1.7E+4	2.8E+4	2.2E+5	1.5E+4
O-94	7.7E+3	7.6E+3	7.4E+3	7.0E+3	7.0E+3	6.7E+3	5.7E+3	2.5E+4	1.6E+4	6.4E+3
O-96	1.0E+4	9.8E+3	9.3E+3	8.3E+3	8.0E+3	7.5E+3	6.3E+3	5.2E+4	5.7E+4	9.1E+3
O-100	1.3E+5	1.0E+5	1.0E+5	8.1E+4	8.0E+4	7.7E+4	6.5E+4	-	5.1E+5	6.1E+4
Ν	14	16	15	17	17	19	16	19	20	20
GM	3.4E+4	4.5E+4	3.9E+4	4.9E+4	4.6E+4	8.4E+4	3.3E+4	2.5E+5	5.5E+5	7.5E+4
Min	5.9E+3	6.0E+3	6.3E+3	6.3E+3	6.9E+3	6.7E+3	5.7E+3	9.1E+3	8.0E+3	6.2E+3
Max	6.7E+5	1.1E+6	2.5E+6	6.8E+6	5.0E+6	2.5E+7	1.2E+6	5.0E+6	1.4E+7	1.7E+6

表 4.3-8 非農耕地土壌中の安定元素による脱離 Kd 値 (L/kg) (3/3)

-: not detected



図 4.3-9 21 種類の非農耕地土壌中の安定元素による脱離 K_d(幾何平均値)



図 4.3-10 非農耕地土壌と農耕地土壌の脱離 Ka(幾何平均値)の比較

	Agricultural field (A)*		Tl	nis study (B)	B/A
Element	Ν	mg/kg dry mass	N	mg/kg dry mass	
Cr	237	5.1E+1	21	2.7E+1	0.53
Co	237	1.2E+1	21	1.3E+1	1.06
Ni	237	2.0E+1	21	1.4E+1	0.70
Cu	237	3.1E+1	21	2.8E+1	0.91
Zn	237	1.1E+2	21	7.6E+1	0.70
Rb	237	3.0E+1	21	3.0E+1	0.99
\mathbf{Sr}	237	7.7E+1	21	1.0E+2	1.31
Zr	237	1.4E+2	21	9.4E+1	0.68
Nb	237	9.1E+0	21	5.8E+0	0.64
Mo	237	9.9E-1	21	1.1E+0	1.10
Cd	237	3.1E-1	21	1.5E-1	0.50
Sn	237	2.3E+0	21	1.9E+0	0.85
\mathbf{Sb}	236	7.1E-1	21	5.0E-1	0.71
\mathbf{Cs}	237	3.6E+0	21	2.4E+0	0.65
Ba	237	2.5E+2	21	2.0E+2	0.79
La	237	1.4E+1	21	1.3E+1	0.97
Ce	237	3.1E+1	21	3.0E+1	0.97
\Pr	237	3.4E+0	21	3.5E+0	1.03
Nd	237	1.4E+1	21	1.4E+1	1.00
\mathbf{Sm}	237	3.0E+0	21	3.0E+0	0.99
Eu	234	7.3E-1	21	9.4E-1	1.29
Gd	237	3.1E+0	21	3.1E+0	1.01
Tb	232	4.5E-1	21	4.6E-1	1.04
Dy	237	2.8E+0	21	2.7E+0	0.95
Ho	237	$5.6E^{-1}$	21	5.6E-1	1.01
\mathbf{Er}	237	1.8E+0	21	1.7E+0	0.94
Tm	232	2.5E-1	21	2.4E-1	0.98
Yb	237	1.8E+0	21	1.7E+0	0.96
Lu	232	2.6E-1	21	2.5E-1	0.98
Pb	237	2.3E+1	21	1.8E+1	0.82
Th	237	4.9E+0	21	4.7E+0	0.96
U	237	2.5E+0	21	1.4E+0	0.58

表 4.3-9 農耕地及び非農耕地土壌中の元素濃度の幾何平均値とその比較

*データ引用元:量子科学技術研究開発機構(2018);量子科学技術研究開発機構,原子力発電環境整備機構(2023);(一部未公開データ含む)

Sample code	Na ⁺	$\mathrm{NH}_{4^{+}}$	K+	Mg^{2^+}	Ca^{2+}	F^{-}	Cl	Br^-	NO_3^-	$\mathrm{SO}_{4^{2^-}}$
0-01	1.2	2.6	2.6	1.0	5.7	0.06	1.4	0.30	5.1	23.4
O-02	0.8	0.8	8.5	2.5	9.1	0.01	10.1	0.23	30	6.5
O-03	1.9	0.5	0.7	0.2	1.0	0.03	2.4	0.20	4.1	0.6
O-0 4	0.9	5.2	1.8	0.8	0.8	0.13	2.2	0.39	8.5	13.5
O-05	1.9	0.1	0.3	0.1	0.4	0.03	1.0	0.09	0.4	1.1
O-06	2.0	0.1	0.4	0.1	0.4	0.03	1.5	ND	1.9	0.9
O-07	1.2	0.2	0.5	0.1	0.3	0.06	0.5	ND	0.5	0.9
O-08	1.5	0.2	1.0	0.4	0.8	0.06	0.5	ND	0.4	1.1
O-10	1.3	1.4	5.2	0.6	3.4	0.10	1.2	0.15	1.5	16.3
O-14	1.2	4.0	6.1	2.0	5.7	0.12	3.1	0.44	6.9	10.9
0-15	1.2	3.1	2.4	1.1	3.1	0.06	2.8	0.70	4.1	14.1
O-16	1.2	2.4	1.4	1.1	3.0	0.06	1.8	0.69	3.7	14.5
O-17	1.9	0.6	0.2	0.6	2.4	0.06	1.5	0.48	1.6	7.7
O-28	4.6	0.4	2.0	1.7	2.8	0.06	5.1	0.73	0.7	12.7
O- 34	1.7	3.3	7.1	2.2	12.9	0.07	0.9	0.10	3.2	5.4
O-42	2.4	9.6	12.6	12.9	22.6	0.24	20.3	0.10	17.8	23.1
O-58	2.5	0.9	2.6	0.9	5.3	0.05	1.1	0.40	1.8	13.8
O-80	3.4	1.7	5.0	1.2	5.1	0.10	2.0	0.61	2.4	13.7
O-94	4.8	6.4	1.9	1.1	1.5	0.32	3.5	0.49	8.6	9.9
O-96	1.1	5.5	3.1	1.3	4.7	0.17	2.0	0.09	6.0	12.1
O-100	3.3	2.3	1.3	0.5	5.6	0.07	1.5	0.38	1.4	7.4
Ν	21	21	21	21	21	21	21	18	21	21
GM	1.8	1.2	1.9	0.8	2.6	0.07	2.0	0.29	2.8	6.4
Min	0.8	0.1	0.2	0.1	0.3	0.01	0.5	0.09	0.4	0.6
Max	4.8	9.6	12.6	12.9	22.6	0.32	20.3	0.73	29.9	23.4

表 4.3-10 溶液中のイオン濃度 (mg/L)

(3) RI トレーサー法による収着*K*_d

1) はじめに

地層処分における対象核種のうち Cs-135 は長半減期の純ベータ放射性核種であり、線量評価 上重要核種とされている。異なる種類の土壌での放射性セシウムの実環境中における移行を研究 することは非常に重要であり、すでにグローバルフォールアウトや原子力災害により大気放出さ れた Cs-135 より、比放射能の大きな Cs-137 の移行について多くの知見がある。2011 年 3 月 11 日に発生した東京電力福島第一原子力発電所事故後においても、十年以上経過した現在において も Cs-137 が未だに被ばく線源となっており、森林域や河川流域での長期挙動解明が行われてい る。このような知見を集め、集水域(Catchment)における放射性 Cs の挙動について研究者間 で一定の共通認識を持つことは、今後社会に向けて放射性核種の環境挙動を説明するにあたり、 非常に重要なステップである。また、まとめられたデータからシナリオが作られれば、線量評価 モデルのバリデーションテストに使える可能性があり、環境移行パラメータ値の蓄積にも役立つ。 そこで、我々は IAEA が主催する研究プログラム MEREIA (MEthods for Radiological and Environmental Impact Assessment) (IAEA, 2024)に参加し、特に環境移行パラメータに着目し て情報収集を開始した。

一方、環境移行プロセスを解明するためには、環境挙動を解明するだけでは十分に理解できな いこともある。特にこれまでは農耕地土壌における挙動解明を中心に検討を進めてきたが、地表 の長期変遷を考慮すると、農耕地以外の土壌中における Cs の K_d がどのような値になるのか検討 しておくことは重要である。農耕地土壌と非農耕地土壌の重要な違いは、作物が生育しやすいよ うに土地の人為的な攪拌と施肥の有無にある。東京電力福島第一原子力発電所事故により環境中 に放出された放射性核種が森林地帯や農地に降下・蓄積(Shao et al., 2018; Yoschenko et al., 2018; Sakai et al., 2021)しており、森林地帯で採取される山菜には、農産物に比べて放射性 Cs が移行しやすいことが知られている(田上・内田, 2022)。このように、異なる土壌における Cs-137 の移行をより精度良く評価するために、Cs-137 を用いたバッチ収着実験を実施して土壌・土 壌溶液分配係数(K_d を非農耕地で取得し、農耕地 K_d データと比較するのは意義がある。

 K_d は、土壌中の放射性核種の移行挙動を予測するための重要なパラメータであり、これまでに 欧米を中心に多くのデータが収集されてきた(IAEA TRS 472; Sheppard and Thibault, 1990)。 令和5年度は、日本の非農耕地から採取した土壌20試料を用いて RI トレーサー実験により Cs-137の収着 K_d を取得した。そして、得られた K_d 値と土壌溶液の pH や EC との関係について検 討を行った。また、本研究で得られた非農耕地土壌における Cs-137の K_d について、これまでに 量子科学技術研究開発機構が取得した農耕地土壌の K_d (量子科学技術研究開発機構, 2018)と比 較した。

2) 実験材料及び実験方法

実験に用いた非農耕地土壌を採取した都道府県を図 4.3-11 に示す。土壌は様々な層(地表より 0-50 cm)より採取した。採取した土壌を実験室に持ち帰り、風乾後 2 mm のふるいを通して RI トレーサー実験に使用した。土壌分類委員会による分類では採取した土壌はすべて黒ボク土に分 類され、国連食糧農業機構による土壌分類では Andosol に分類される。黒ボク土は肥沃な火山性 の土壌のタイプであり、日本の表層土に広く分布している土壌の一つである(Kanda et al., 2018)。



図 4.3-11 土壌採取地点を含む都道府県

土壌-土壌溶液分配係数(K_d)を、 Cs-137 をトレーサーとしたバッチ収着実験により測定した。 30mLのポリ瓶に風乾土壌 1.0 g と蒸留水 10.0 mL を加え、120 rpm、23 ℃の定温条件下で 24 時間予備振とうした。その後約 3 kBq の Cs-137 を塩化セシウム(CsCl)として添加し後、予備振 とうと同じ条件で振とうを継続した。収着平衡後、3000rpm で 10 分間遠心分離した後、上澄み 液を 0.45 µm のメンブランフィルタでろ過し、ろ液を 3.0 mL 分取してその Cs-137 の放射能を Nal シンチレーションカウンタ (アロカ, ARC-370) で測定した。 K_d (L/kg) は次式から求めた。

$$K_d = \frac{C_i - C_e}{C_e} \times \frac{W_l}{W_s}$$

ここで、 C_i は Cs-137 の初期濃度(Bq/L)、 C_e は収着平衡後のろ液中の Cs-137 濃度(Bq/L)、 W_l 、 W_s はそれぞれ溶液の容量(L)と風乾土壌質量(kg)である。

3)結果及び考察

収着平衡時間に関する考察

これまで農耕地土壌の Kaを取得した際には、平衡に達する時間として 7 日間であることを確認し、データを蓄積した。非農耕地土壌を対象とした今回も、まず Cs-137 が収着平衡に達するまでの時間検討するため、土壌 7 種類を用いて 15 日間の平衡試験を行った。予備振とうの後、Cs-137 トレーサー添加から、5 分、30 分、1 時間、3 時間、24 時間、72 時間、7 日間、15 日間経過した時に土壌溶液を連続的に採取し、時間の経過とともに Cs-137 の収着率(添加全量に対する固相の保持率)がどのように変化するのかを調べた。

各土壌試料による Cs-137 の収着率の経時変化を図 4.3-12 に示した。図の縦軸は、添加した総 Cs-137 量に対する土壌への収着率を、横軸は Cs-137 を添加してからの経過時間を示している。 非農耕地土壌における Cs-137 の収着は用いたすべての土壌試料で大体 72 時間以内に平衡に達 していることが分かった。したがって、7 日間の振とう期間を設定することで、土壌-土壌溶液系 は十分に収着平衡に達していると考えられる。



図 4.3-12 Cs-137 の収着率の経時変化

O-34 の下層土が O-35、O-42 の下層土が O-43、O-58 の下層土が O-59 である(表 4.3-13 参照)

② 土壌溶液/土壌比の検討

これまでの報告書や論文を調査すると、異なる土壌液相:土壌固相比(液/固比)での実験で K_d を得ているものがあった。そこで、三つの異なる液/固比、3.3、10及び 20を設定してバッチ実験を行い、この土壌溶液・土壌比の違いが K_d や液相の pH、電気伝導度(EC)にどの程度影響を及ぼすかを検討した。

その結果を表 4.3-11 に示す。この結果から、*K*_d と EC は液/固比に依存することが分かる。液/固比を 20 まで増やすと、*K*_d 値は最大で 2.5 倍まで大きくなり、EC 値の変化は逆に小さくなっ

た。液/固比が増加することによる *Ka* の上昇は土壌試料によって異なっており、また、EC についても、液/固比の増加率と EC 値は必ずしも一致していなかった。液/固比が小さくなることで、 土壌溶液中の共存イオン濃度が増加し、土壌固相の収着サイトに対して Cs と共存イオンが競合 することで *Ka* が下がったり、逆に液/固比が増加することで、Cs が収着サイトに保持されやす くなったりする可能性もあるが、どのイオンが最も影響していたのかは明確ではない。イオンク ロマトグラフィによる測定データにより、データを補足できる可能性がある。

一方、表には示していないが、pH の値は変化せず、どの比率でもほぼ同じ値であった。したがって、溶液の pH が *Ka* に影響したとは考えにくい。

液/固比		K_d , L/kg			EC, µS/cm				
番号	3.3	10	20	3.3	10	20			
O-80	1350	2460	3060	151	79	57			
O-81	2290	3440	5770	141	80	55			
O-94	549	1290	1340	240	114	103			
O-95	2000	3460	3900	54	25	19			

表 4.3-11 異なる液/固比における分配係数(Ka)値と土壌溶液の電気伝導度(EC)の比較

③ 非農耕地土壌の Ka と農耕地土壌の Ka の比較

非農耕地と農耕地の土壌試料の K_d値をまとめて表 4.3-12 に示す。液/固比は全て 10 である。 非農耕地土壌と比較するため、日本全国の農耕地から採取された土壌サンプルに関する以前のデ ータ(量子科学技術研究開発機構, 2018)から Andosol に分類される農耕土壌データだけを抽出 した結果も表 4.3-12 に示した。

非農耕地土壌 20 試料における K_d 値の範囲は 160-63900 L/kg であり、幾何平均値は 1380 L/kg であった。表 4.3-12 から明らかなように、農耕土壌の平均的な K_d 値は、同じ土壌タイプの非農耕地土壌のそれよりも 3.8 倍大きい。これは、農耕地土壌が非農耕地土壌よりも高い Cs の収着容量を持つことを示しており、これまでの研究結果(Shao et al., 2018)と一致している。

我中心中的。 我中心中的					
土地利用	Ν	GM	Min	Max	
非農耕地	20	1380	160	63900	
農耕地*	52	3190	338	35700	

表 4.3-12 非農耕地土壌と農耕地土壌の Andosol の Cs の Kd

*表 4.3-9 にまとめた全試料のうち、Andosoln に分類される土壌試料のデータのみ抜粋。

④ 土壌深度と Ka

収着実験では、同一地点の様々な深さから採取したサンプルを使用した(系列: O-14-O-17、 O-34-O-35、O-42-O-43、O-58-O-59、O-80-O-81、O-94-O-95、O-96-O-97)。各深度別 に得られた K_d と EC、pH を表 4.3-13 に示す。この結果から明らかなように K_d は土壌層の深さ に依存して、深度が深くなるに従い K_d は大きくなる傾向が認められた。一方、EC 値はほとんど のサンプルにおいて深度と共に小さくなる傾向を示した。EC の影響については、令和6年度に データ数を増やして解析を試みる予定である。 土壌表層には有機物が多く含まれ、下層ほど有機物が減少し、鉱物質が増加すると考えられる。 放射性 Cs は土壌有機物とも結合するが、一方、有機物が Cs の収着サイトをマスキングする効果 のため *Kd* が減少することも知られている(Ramírez-Guinart et al., 2020)。Andosol という同じ 土壌種と判定される場合でも、有機物含量が *Kd*に影響することが示唆された。

将来的には研究を拡大し、特に Cambisols と Fluvisols 等の他の種類の非農耕地土壌について もデータを取得する予定である。これらの土壌タイプは様々な地域に存在するため、一般的な土 壌種ということが言える。本課題を推進することで、非農耕地土壌における放射性核種の収着に ついて、より包括的な理解に貢献することが期待できる。

土壤 No.	Depth, cm	K_d , L/kg	EC, μS/cm	pН
O-14	0-5	798	104	5.73
O-15	10-20	1050	78	5.51
O-16	20-30	1250	67	5.54
O-17	40-55	7370	34	5.80
O-34	0-20	402	110	6.81
O-35	25-55	432	65	6.69
O-42	0-15	160	316	6.70
O-43	15-30	943	84	6.31
O-58	0-15	3640	57	5.98
O-59	25-40	63900	48	6.09
O-80	0-20	2450	79	5.88
O-81	30-50	3450	80	5.39
O-94	0-20	1290	114	5.55
O-95	20-40	3460	25	5.40
O-96	0-20	759	108	5.91
O-97	20-40	1660	37	5.42

表 4.3-13 土壌の採取深度と Ka 及び土壌溶液の EC と pH の値

(4) Kaに対する土壌溶液の効果について

1) はじめに

Cs-137 及び土壌・土壌溶液中で起こる収着反応は放射性核種や土壌の種類により異なるため、 Kd値はそれぞれの組み合わせにより異なる。また、収着反応は液相と固相が接触する界面で起こ る反応であるので、放射性核種や土壌の種類だけでなくその他多くの因子によっても影響される (原子力環境整備センター, 1990;福井, 1990;栃山ほか, 1998)。これまでの調査から溶液の pH (坂本ほか, 2001) や共存イオン (Yasuda, 1994) が Kd値に影響することはよく知られている。 近年では、Kd値に影響する物理的要因や化学的要因に加え、生物的要因も着目されており、特に 微生物は金属を溶存態から別の形態へと変化させる(Lloyd and Macaskie, 2000)ことから、Kd への影響が示唆される。非金属であるヨウ素に関しても、ヨウ化物イオンから分子状ヨウ素 (I2) への変化に微生物が関わっていることが報告されている(Seki et al., 2013)。土壌微生物の細胞 数や代謝活性は周囲の環境、例えば pH (Sánchez-Clemente et al., 2018; Yang et al., 2018) や イオン濃度(Li et al., 2021) に影響を受ける。土壌微生物の細胞数や代謝活性の変化は Kd値に 影響する可能性があるが、微生物を介した間接的な効果はほとんど知られていない。信頼性の高 い生活圏評価を行うためには Ka 値の不確実性を引き起こす要因とその機序を理解することが重要であり、放射性核種や土壌の種類のみならず、土壌を浸漬する溶液の影響についても注意する必要がある。

そこで、令和 5 年度はまず *Ka*値へ土壌溶液の pH が影響する機序について検討した。すなわ ち、生活圏評価において重要核種である放射性セシウム及び放射性ヨウ素を対象として、土壌溶 液の pH が *Ka*値に与える影響について農耕地土壌及び非農耕地土壌を用いて検討を行うととも に、これらの *Ka*値と細菌数の変化との関係についても報告する。

2) I-125の Ka値に対する土壌溶液 pH の効果

材料と方法

土壌試料は、量研機構が保管していた水田土壌及び原野土壌それぞれ1種類を用いた。これらの試料は共に平成4年に土壌表層(0 cm から20 cm)から採取し、風乾後2 mm メッシュのふるいにかけた後、ポリプロピレン容器に封入し、暗所で室温保存されていた試料である。用いた 土壌の採取地、土壌タイプ及び化学特性を表4.3-14に示す。分析方法及び測定方法については既 報を参照されたい(放射線医学総合研究所,1992)。

試料番号	O34	P38			
	平成4年6月24日	平成4年12月1日			
採取地	静岡県	福島県			
土壌タイプ	全層腐植質黒ボク土	細粒灰色低地土			
陰イオン交換容量 (meq/100 g-dry)	0.1	0.1			
陽イオン交換容量 (meq/100 g-dry)	24.8	15.4			
活性-Al (mg/100 g-dry)	3,720	284			
活性-Fe (mg/100 g-dry)	4,200	1,280			
Total C (dry %)	5.04	1.54			
Organic C (dry %)	5.00	1.42			
Total N (dry %)	0.46	0.15			
δ ¹³ C (‰)	-22.0	-24.5			
δ^{15} N (‰)	4.7	4.1			

表 4.3-14 土壌試料の土壌タイプと化学特性

接触させる溶液の調整: 土壌は粘土鉱物や鉄やアルミニウムなどの金属酸化物や水酸化物で構成 されており、それら鉱物表面の水酸基により pH 緩衝作用を獲得している(佐藤ほか,2018)。そ のため、土壌が持つこの緩衝能力は、 K_d 値に対する pH の効果を確認するためには問題となる。 そこで、土壌溶液の pH は緩衝剤を用いて準備することとした。酸性及びアルカリ性の緩衝剤と して、それぞれ 2-Morpholinoethanesulfonic acid, monohydrate (以下、「MES」という。pKa=6.15) 及び 2-[4-(2-Hydroxyethyl)-1-piperazinyl]ethanesulfonic acid (以下、「HEPES」という。 pKa=7.55)を用いた。両緩衝剤は生体膜の通過性が低く土壌微生物の細胞内への蓄積を避けるこ とができる。また、金属イオンと錯体を形成しないためにセシウムやヨウ素の K_d 値に直接作用 する可能性が低く、且つ化学的に安定であるために培養期間中に分解して緩衝能力を失う可能性 も低い。

土壌溶液は MES を用いて pH6.0±0.1 及び pH7.0±0.1 (以下、「pH6」及び「pH7」という) に、HEPES 用いて pH7.0±0.1 及び pH7.8±0.1 (以下「pH7」及び「pH8」という) に調整し た。pH7.0 の溶液については MES 及び HEPES の両緩衝剤を用いて準備したが、これは緩衝剤 自体の効果を確認するためである。各緩衝剤は水溶性であり有機溶剤にはほとんど溶けないため、 超純水に溶解して 0.1 mol/L の溶液を作成し、これに 0.1 mol/L の NaOH 溶液を添加することで pH を調整した。また、比較対象として超純水(pH 未調整)のみの溶液も準備した。以上、5種 類の土壌溶液を用いて試験を行った。

放射性核種と放射能測定: 放射性セシウムと放射性ヨウ素のトレーサーとして Cs-137 (Eckert & Ziegler Isotope Products)と I-125 (PerkinElmer, NEZ033A)を使用した。購入した Cs-137 は 超純水で、I-125 (NaI 形)は pH10 の水酸化ナトリウム溶液で希釈・調整したのち実験に使用し た。両トレーサーの放射能測定は NaI(Tl)ウェル形検出器 (アロカ, ARC-370M)を用いて行った。 ポリスチレン試験管 (栄研化学, 栄研チューブ 1 号) に一定量分取し、5 分間測定した。

pHの測定:実験開始時と終了時における土壌溶液のpHは簡易pH計(Horiba, LAQUAtwin B-712)で測定した。

培養の試料と手順: Cs-137 とI-125 を用いたバッチ培養では、それぞれ異なる培養容器を用いた。 放射性ヨウ素の場合、培養期間中に揮散する可能性があることから添加した系全体での変化を調 べる必要がある。単純に系を小さくして NaI で測定できるようにし、その実測値と物理学的半減 期との差から揮散率の評価を行うこととした。栄研チューブ1号に風乾土壌 0.2 g を分取し、土 壌溶液を 2 mL (固液比 1:10) 添加した (3 反復)。試料の土壌溶液量に対して 1%以下の容量の I-125 トレーサーを添加し、バイオシェーカー (タイテック, BR-13FP) 内で 23 ℃、120 rpm で 連続往復振とうした。I-125 が土壌-土壌溶液間で収着平衡に達するには約 1 か月を要すること が報告されているので (量子科学技術研究開発機構, 2020)、36 日間培養した。培養終了後、その まま NaI で測定し、引き続き遠心分離を行った (日立, Himac CT6EL; 3,000 rpm, 10 min.)。上 清を孔径 0.2 μm のセルロースアセテイトメンブランフィルター (Advantec) でろ過し、約 1.5 mL の土壌溶液試料を用いて I-125 放射能を測定した。

Cs-137 は 30 mL のポリプロピレン広口試薬瓶に風乾土壌 1.0 g を分取し、上記の方法で準備 した溶液を 10 mL (固液比 1:10) 添加した (3 反復)。土壌溶液で浸漬した土壌試料は、I-125 で 用いたバイオシェーカー内で 23 ℃、120 rpm で連続往復振とうした。1 日の振とうの後、土壌溶 液量に対して 1%以下の容量の Cs-137 トレーサーを添加した。さらに予備振とうと同じ条件で 7 日間培養した。その後遠心分離を 3,000 rpm で 10 min 行い、さらに孔径 0.2 µm のフィルタ ーでろ過し、このろ液を土壌溶液試料とした。約 3 mL を分取し NaI(TI)ウェル形検出器で測定 した。実験手順を図 4.3-13 に示した。



図 4.3-13 実験手順の概略図

放射性ヨウ素の揮散率の計算方法: I-125 の揮散率は、物理学的半減期から算出した放射能濃度 と実測した培養試料中の放射能濃度の差として求めた。

*K*_dの計算方法: Cs-137 は RI トレーサー法による収着 *K*_d (L/kg)で用いた計算方法と同様に求めた。I-125 は揮散する可能性が否定できない。溶液からのみ *K*_dを見積もると固相中の濃度が過大評価になることから、*K*_dが実際よりも高く導出される。揮散率から土壌中の I-125 濃度は次式から計算することができる。

 $q = ((C_i - C_e - C_i \times V) W_l) / W_s$

 $K_d = q \times 1/C_e$

ここで C_i は I-125 の初期濃度(Bq/L)、 C_e は収着平衡後のろ液中の濃度(Bq/L)、 W_l 、 W_s はそれぞれ溶液の容量(L)と風乾土壌質量(kg)であり、qは収着平衡に達した固相の放射性核種濃度(Bq/kg)、Vは揮散率(%)である。

2 結果と考察

緩衝剤の効果: 土壌溶液の pH は超純水のみの場合培養前後で変化したが、緩衝剤を用いた場合培養前後でほとんど変化しなかった。したがって、緩衝剤を含む溶液の場合、長期間培養を行っても土壌溶液の pH 変化は小さく、緩衝剤の働きが継続していたことが確認できた。

Cs-137の Ka値に対する土壌溶液 pH の効果:本試験で得られた Cs-137 の Ka値を図 4.3-14 に 示す。pH 処理に対する Ka値の増減関係は O34 と P38 で同じ傾向を示し、超純水で浸漬したと き最大となった。本試験では MES や HEPES 等、生活圏ではありえない緩衝剤で土壌溶液の pH を調整した結果であり、容易に比較できない。同じ緩衝剤で比較した場合、いずれの土壌におい ても pH が高くなるに伴い Ka値が低くなることが分かったが、MES や HEPES の pH を上昇さ せるために NaOH を添加しており、その影響は否定できないことから、必ずしも pH の影響とは 言えない。なお MES 及び HEPES で pH7 に調整した試料の Ka値で比較すると有意に異なるこ とが示された (ANOVA, p < 0.01)。つまり、MES や HEPES に含まれる溶質が K_d 値に影響することが分かった。



図 4.3-14 非農耕地(O34)及び農耕地(P38)土壌における Cs-137 の Ka値と土壌溶液 pH エラーバーは 3 検体で得られた値の標準偏差。項目の()内は、pH を表す。

I-125の揮散: I-125 がガス化し揮散する可能性について、物理学的半減期による減衰と培養試料中の放射能実測値を比較した結果を図 4.3-15 に示す。統計的にはわずかに揮散した結果が得られたものもあった(超純水で浸漬した O34 試料と MES で pH6.0 に調整した土壌溶液で浸漬した P38 試料)が、同じ土壌でも揮散が確認できなかったものもあり、今後の検討課題である。



図 4.3-15 I-125 放射能の減衰と培養試料中の放射能実測値の経時変化(超純水と MES pH6)

I-125の K_d 値に対する土壌溶液 pH の効果:本試験で得られた I-125 の K_d 値を図 4.3-16 に示 す。O34 試料は超純水で浸漬した試料を除き pH が高くなるに伴い K_d 値が低くなった。超純水 で浸漬した試料の培養終了時における pH は 7.5 であり K_d 値は 19 であった。一方、MES 及び HEPES で pH7 に調整した土壌溶液の場合、培養終了時の pH は pH6.9 (MES) 及び pH7.0 (HEPES)、そして K_d 値は 26 (MES) 及び 12 (HEPES)であった。もし I-125 の K_d 値が pH に依 存しているならば、超純水で浸漬した試料の K_d 値は 12 以下となるはずである。この結果から、 O34 試料に関して必ずしも I-125 の K_d 値が pH に依存して変化しているのではないことが分か った。分散分析の結果、P38 試料において p>0.05 (p=0.0509) であったため、 K_d 値に有意差は 認められなかったといえた。しかしながら、O34 土壌試料と同様に MES で pH6 に調整した土壌 溶液で浸漬した試料で最も K_d 値が高くなる傾向が認められた。この変動は Cs-137 とは異なる I-125 の収着挙動の特徴と考えられる。

森林や牧草地において I-125 の多くは有機態として存在することが報告されている(Takeda et al., 2019)。O34 と P38 試料の炭素量を比較すると、総炭素量も有機態炭素量ともに O34 が高く、この高い炭素含量が O34 における I-125 の Kd 値を引き上げている可能性がある。



図 4.3-16 非農耕地(O34)及び農耕地土壌(P38)土壌における I-125の Ka値と土壌溶液 pH エラーバーは3 検体で得られた値の標準偏差。項目の()内は、pH を表す。

3) Cs-137 及び I-125 の Ka値の変動要因について

実験方法

電気伝導度の測定:電気伝導度(EC)の測定はTwin Cond (B-173, Horiba)を用いて培養開始 時及び培養終了時に行った。

細菌量の測定:微生物の定量は細菌の tuf 遺伝子を対象としてリアルタイム PCR (CronoSTARTM 96 Real-Time PCR System, Clontech) で行った。従って、ここでいう微生物 とは細菌のことである。リアルタイム PCR は PCR の増幅の過程を蛍光物質によりリアルタイム ICモニタリングする方法であり、迅速性と定量性に優れた遺伝子検出である。生産された PCR 産物から蛍光を発する方法として、インターカレート法とプローブ法があるが、今回は多くの細菌 種を対象とするためにインターカレート法を採用することとした。この方法は PCR でアニーリングした 2 本鎖 DNA に対して蛍光色素がインターカレートすることにより発する蛍光をモニタリングする方法である。実験手順の概要を図 4.3-17 に示す。DNA は培養後に乾燥した土壌から 抽出した。比較対象として培養前の O34 と P38 からも DNA を抽出した。このようにして準備

した DNA を鋳型として Bacteria (tuf gene) Quantitative PCR Kit (Takara Bio Inc.) により細菌の定量を行った。



図 4.3-17 細菌数定量手順の概要

DNA 抽出: 土壌からの DNA 抽出には ISOSPIN Soil DNA kit (ニッポンジーン)を用いた。試料として土壌溶液で浸漬する前の風乾土壌と培養後に乾燥した土壌を用いた。なお DNA 抽出は コールドでの実験のため、上述のトレーサー実験とは異なる試料であるが同様の操作を行った。 風乾土壌はあらかじめ 0.3 g 程度を秤量し抽出に供した。抽出過程において土壌粉砕のためにビ ーズ粉砕する必要がある。この操作には FastPrep-24 (MP-Biomedicals)を用いて 5 m/s の速度 で 45 秒間の粉砕を 2 回繰り返した。その他は添付マニュアルに従い抽出を行った。抽出した DNA はリアルタイム PCR の鋳型 DNA として用いた。

リアルタイム PCR 反応及び融解曲線分析: リアルタイム PCR は Bacteria (tuf gene) Quantitative PCR Kit 条件に従って実施した。PCR 反応溶液及び PCR の反応条件については説 明書を参考されたい。多種多様な細菌の検出を目的とした試験では、16S rRNA 遺伝子を対象と することがある。しかしながら、この遺伝子は菌種間でコピー数が異なるため(Větrovský and Baldrian, 2013)絶対定量に用いるには問題がある。一方、タンパク質伸長因子 Tu (tuf)遺伝子 は菌種間での保存性が高く、染色体上に低コピーで存在するために 16S rRNA 遺伝子を対象とし て定量よりも精度高く全細菌数を見積もることが可能である (Tanaka et al., 2010)。そこで、本 調査では tuf 遺伝子を対象として全菌数を見積もることとした。

定量試料は二つのグループに分けた。すなわち、Cs-137の Ka取得と同じ培養条件(7日間培養群)、及び I-125の Ka取得と同じ培養条件(36日間培養群)である。各グループには O34 と P38の2種類の土壌で実施した試料が含まれる。PCR産物にキメラやプライマーダイマー等の 副産物による擬陽性反応を確認するため、PCR反応に引き続き融解曲線分析を行った。この分析 は PCR後に PCR反応液の温度を徐々に上げることで、インターカレーターの蛍光をモニタリン グする方法である。この分析は CronoSTARTM 96 Real-Time PCR System で推奨されている条件で実施した。最初、PCR増幅産物が二本鎖を形成しているために蛍光を発するが、ある一定温度に達すると一本鎖に解離し蛍光シグナルが急速に失われる。この融解温度をTmとし、スタン

ダードと試料の Tm を比較することで増幅産物固有の蛍光であるかを判断する。具体的には 95°C で 1 分、60°C で 15 秒、98°C で 5 秒の操作を行った。60°C から 98°C まで温度を上昇する過程において 0.5°C 温度上昇毎に蛍光強度の測定を行った。

2 結果と考察

*Ka*値と EC の関係:本研究で緩衝剤の pH を NaOH で調整したが、Na⁺は Cs⁺と収着競合反応を 示すことから(杉山, 2006)、本試験における培養条件は Cs⁻137 の *Ka*値を低くすると考えられ る(図 4.3⁻18)。I⁻125 については pH や EC が *Ka*の変動に対する支配的要因ではないと思われ る(図 4.3⁻19)。



図 4.3-18 Cs-137 添加バッチ培養における EC と Kaの関係 エラーバーは 3 検体で得られた値の標準偏差。項目の()内は、pH を表す。



図 4.3-19 I-125 添加バッチ培養における EC と Ka 値の関係 エラーバーは 3 検体で得られた値の標準偏差。項目の()内は、pH を表す。

Ka 値と土壌細菌の関係: インターカレート法は PCR の過程で二本鎖 DNA が合成されれば、た とえそれが目的とする DNA 断片でなくとも蛍光を発する。そのため指数関数的に二本鎖 DNA が合成されているか、逆に合成された二本鎖 DNA を熱変性することで、ある一定温度(融解温 度; Tm 値) で急速に蛍光を失うことを確認する必要がある。指数関数的増殖を確認するために、 リアルタイム PCR で得られた DNA の増殖曲線を図 4.3-20 に示す。いずれの DNA も指数関数 的に増殖していることが確認できた。次に PCR で合成された二本鎖 DNA の Tm 値を確認する ために、融解曲線とその曲線データを一次微分してプラスマイナスを逆転した曲線を図 4.3-21 に 示す。7 日間培養群及び 36 日間培養群のいずれにおいても融解温度のピークが二つ確認できた。



図 4.3-20 異なる pH の土壌溶液で浸漬した土壌から抽出した DNA の増殖曲線

一次導関数の図中左側のピークが tuf 遺伝子スタンダードによって得られた Tm であり、その 右側の高温側にシフトしたピークが試料によって得られた Tm である。プライマーダイマー等は 配列が短くより低温側で融解温度が得られる、つまりスタンダードの Tm よりも左側にピークが 表れる可能性がある。しかしながら試料の Tm は高温側でかつすべての試料で Tm 値が一致して いたことから、これは土壌細菌群の tuf 遺伝子のピークと判断した。PCR 増幅した tuf 遺伝子の 内部配列が異なるため、スタンダードと試料間で Tm に差が生じたものと考えられる。また、試 料の Tm が高温側にシフトした理由として、内部配列が GC リッチな配列であったためと考えら れる。ちなみに測定試料は 7 日間培群と 36 日間培養群でそれぞれ行ったリアルタイム PCR の増 幅効率は、107.5%と 88.4%であった。増幅効率は 80%から 120%が適正値であることから、本 調査で行った PCR の品質に問題ないことが確認できた。



図 4.3-21 融解曲線と一次導関数から得られた曲線

両培養群の細菌数を図 4.3-22 に示す。いずれの培養群の O34 土壌試料でも P38 土壌試料で も、土壌溶液で浸漬、培養することで細菌数の増加が確認できた。リアルタイム PCR による定量 は細菌の生死に関係なく標的遺伝子(本調査では tuf 遺伝子)が残存して入ればカウントされる。 従って、浸漬前の土壌でカウントされた細菌数は必ずしも生きている細菌の数とは限らず、細菌 数の増加は生きている細菌が存在したことを意味する。風乾後長期に渡って室温保存されていた 土壌試料であるが、生きている細菌は確認できた。乾燥状態で生残できる菌種は芽胞形成菌等限 られた菌種と考えられるために、採取時の細菌叢が反映されていない可能性については注意が必 要である。乾燥土壌だけでなく、採取直後の湿潤な土壌でも確認する必要がある。

培養前の試料では O34 土壌よりも P38 土壌で細菌数が多いことが分かった。一方、培養期間 中における細菌数の増加は P38 よりも O34 で顕著であった。O34 と P38 はそれぞれ土壌の利用 形態が異なるため細菌叢も異なることが予想されるが、それぞれ1 試料ずつの結果であり要因は 不明である。

培養7日目から培養36日目までに細菌数の増減の有無を確認するために、7日間培養群と36日間培養群の各土壌溶液処理間での菌数の違いについて検討した。その結果、超純水、MESでpH調整した試料、HEPESでpH調整した試料、いずれにおいてもt・検定での有意差は認められなかった。培養期間中の細菌代謝活性の変化や菌種の遷移等については不明であるが、O34及びP38土壌細菌は7日間培養する間に増殖し、その数はその後36日目までほとんど変化していないことが明らかになった。



図 4.3-22 7日間培養群及び 36日間培養群における細菌数

エラーバーは3検体で得られた値の標準偏差。エラーバー上のアルファベットは同じ文字間で有意差 (p < 0.05)があることを意味する。項目の()内は、pHを表す。

土壌溶液の種類における細菌数の違いの有無について検討するために、O34 土壌試料及び P38 土壌試料の7日間培養群及び36日間培養群で、それぞれ分散分析を行った。その結果、36日間 培養群のO34土壌を除いて土壌溶液処理間で菌数の有意な差は認められなかった。この結果から 有意差のあった試料を除いて、本調査でのpH 調整は細菌数に影響を与えない処理であったこと が確認できた。さらに Cs-137 バッチ培養試験における細菌数と Ka値の関係について図 4.3-23 に示したが、両土壌ともに細菌数と Kaの間で相関関係は認められなかった。細菌数は Cs-137の Ka値に影響する主要因ではないことが分かった。しかしながら、環境中には Cs-137 動態に影響 する細菌は存在する。例えば、Cs-137 を取り込む能力を有する細菌が存在することはよく知られ ており(Tomioka et al., 1992)、取り込み能力は種によって異なることも知られている(Li et al., 2022)。

36 日間培養群、つまり I-125 バッチ培養試験における細菌数と K_d 値の関係について図 4.3-24 に示す。MES で pH6 に調整した土壌溶液で浸漬した試料において、I-125 の最大 K_d 値が得られたが、細菌数に関しては最大でも最小でもなく特徴的ではなかった。また、Cs-137 と同様に、
O34 と P38 土壌いずれの試料においても細菌数と K_d の間で相関関係は認められなかった。これ らの結果は、I-125 の K_d 値の変動に対して細菌数は重要な要因ではないことを意味している。一 般に細菌の細胞表面は負に帯電しているために(森崎, 2008)、ヨウ化物イオンが化学的に付着す ることは少ないと考えられる。Seki ら (2013)は細菌が生産するラッカーゼが土壌へのヨウ素の 収着を促進することを報告している。従って、I-125 の場合、細菌数より微生物の活性が重要な 因子の可能性がある。



図 4.3-23 Cs-137 バッチ培養試験における細菌数と Ka値の関係



図 4.3-24 I-125 バッチ培養試験における細菌数と Ka 値の関係 MES(6)は MESを pH=6 に調整した場合の結果を表す。

以上、令和5年度は放射性セシウムと放射性ヨウ素の Ka値に対する土壌溶液の影響として pH の効果について調査した。この調査では農耕地土壌と非農耕地土壌の各1種類の土壌を使用した。 pH 調整のために緩衝剤を用いて、Kaに対する土壌溶液 pH の影響についてデータを取得した。 この実験においてヨウ素はガスとしての揮散はほとんど確認できなかった。なお同じ pH でも緩 衝剤の種類により Ka値が異なることが分かった。この結果は、Ka値の変動が pH だけでは説明 できないことを意味しており、緩衝剤に含まれる物質が要因と考えられる。

細菌の細胞表面は負に帯電していることから、セシウムに関しては収着サイトとしてとらえる ことができる。また、細菌は増殖することから収着サイトが増加するとの見方もできる。土壌細 菌数は土壌溶液で浸漬することにより増殖したことが確認できたが、*Ka*の変動とは相関関係が認 められなかった。I-125 に関しても同様に、細菌数と *Ka*の間には相関関係は認められなかった。 土壌細菌がセシウムやヨウ素の *Ka*に関与している可能性は、これまでにも報告されているので、 今後は菌数だけでなく菌種や活性等についても検討する必要がある。

今回、土壌溶液の pH は pH6 から pH8 の間で実施した。土壌はアルカリ性よりも酸性側に振 れる可能性があるため、より酸性側での試験も必要と思われる。また、既存の報告等と比較する ために、緩衝剤ではなく塩酸や水酸化ナトリウムなど一般的によく pH 調整で用いられる試薬を 用いた試験も必要である。

(5) まとめ

これまで農耕地土壌を中心に環境移行パラメータデータが収集されてきたが、地表の変遷に伴い土地利用が変化することから、データが不足している農耕地土壌以外の土壌についての *Ka* データ収集を開始した。この目的のために、1970 年代に採取されたアーカイブ土壌(主に校庭土壌) も用いることとし検討を開始した。Pu については Np-237 と併せて分析法を改良し、グローバルフォールアウト Cs-137 濃度が高いアーカイブ土壌試料を使って定量分析を行ったところ、Pu とCs-137 には良い相関が得られた。Pu 濃度が十分計測できる土壌を使って脱離 *Ka* を求める試験 を来年度以降から開始し、非農耕地土壌の脱離 *Ka* データを収集する必要がある。また脱離 *Ka* については、量研で保管の非農耕地土壌を用い、安定元素を使ったデータ収集を開始した。さらに 収着 *Ka* についても同じ非農耕地土壌に対し Cs-137 を使ってトレーサー実験によりデータを取 得した。どちらも 20 試料程度のデータを取得することができたが、農耕地土壌との比較を行う ためにはデータの蓄積が必要であることから、来年度も同じようにデータを収集する必要がある。

さらに *Ka*値に対する土壌溶液の影響として pH の効果について放射性セシウムと放射性ヨウ 素を対象に検討を行った。土壌細菌の影響を念頭に pH をコントロールするために緩衝剤を用い たところ、同じ pH でも緩衝剤の種類により *Ka*値が異なることが分かった。なお、この条件下で はヨウ素はガス化がほとんど認められなかった。今回、細菌数と *Ka*の間には相関関係は認めら れなかったが、セシウムやヨウ素の土壌中の挙動に土壌細菌が影響する報告もあることから、今 後は菌数だけでなく菌種や活性等についても検討する必要がある。

4.4 成果と今後の課題

4.4.1 生活圏における核種移行及び被ばくプロセスモデルに関する検討

(1) 生活圏での核種移行/被ばくプロセスの抽出と各プロセスの数学モデル化に関する検討

地形・処分場深度変遷解析ツールを用いて作成した地形、その地形データを基に作成した土壌 被覆データ(水系・集水域、傾斜、土地利用、人口分布)及びそれらを用いて計算した河川流量・ 土砂移動データからなる地理情報に基づく仮想的な地表環境における移行プロセスの設定を試行 し、第2次取りまとめの生活圏評価における移行プロセスと同様の移行プロセスを設定できるこ とが確認できた。また、事業段階が異なる国内外の生活圏評価に関する文献調査から、核種移行 プロセス及び数学モデルを比較したところ、一部の移行プロセスにおいては、事業段階に寄らず、 同じ数学モデルが用いられていた。ジェネリックな評価と同じ数学モデルを用いたとしても、サ イトスペシフィックな評価においては、処分場サイトにおいて取得したデータをパラメータ設定 に反映している例もあった。これらの試行の結果に基づき、処分場サイトの特徴を適切に反映し た生活圏評価モデル構築及びパラメータ設定のための考え方を整理した。

本年度の検討では、仮想的な地表環境を設定する場合に、深さ方向の情報整備が不十分であっ たため、鉛直方向の移行プロセスに関する検討ができなかった。侵食、浸透、再浮遊・沈殿とい った鉛直方向の移行は、生活圏評価における核種移行を検討する際に、重要なプロセスとなる場 合がある。特に、海域などでは、粒子の再浮遊・沈殿が固相の移行プロセスとしてモデル化され ている例もあることから、今後、移行プロセスを検討する際に設定する仮想的な地表環境につい て、深さ方向の情報をどのように与えるかについて検討したうえで、陸域だけでなく、海域にお ける移行プロセスについても検討していく予定である。

(2) 地質環境と生活圏とのインターフェイス (GBI) での核種移行プロセスとその変遷に関する検討

GBIの設定に影響を与える対象環境の特徴について、諸外国の生活圏評価でのGBIにおける 核種移行プロセスの取扱いについて文献調査を行い、GBIの位置やGBI近傍での核種移行量を 変動させる可能性がある対象環境の特徴について整理した。加えて、整理された対象環境の特徴 の中からGBIの位置等に大きく影響すると考えられるいくつかの特徴について感度解析的検討 を行い、その影響の大きさについて整理した。その結果、気候などの環境変遷、地形、岩種など の自然環境要因と、法規制の人為的要因があると整理された。また、これらの特徴に対して仮想 的な地形を持つ集水域を用いて解析、分析を行った結果、これらの特徴によるGBIの位置や希釈 水量の分布の変化は、処分場領域周辺の地下水流動の傾向(処分場の位置)によりその現れ方が 大きく異なるが、全体としては地形に大きく支配される傾向であった。

本項で実施した調査、解析のうち、解析については解析の収束のために簡略化した設定を用い ている。また地質・地層構造に関するデータ不足などにより仮定が多く、わが国で広範にみられ る地形・地質構造を表現するためには、解析モデルの具体化(わが国の統計的な地質・地層構造 を反映したモデル)等が必要である。また、得られた河川流量の解析結果への精度良い反映など、 データ分析の方法にも改良が必要な点がある。今後はより一般的な地質・地層構造のモデル化や データ分析手法の改良等に取り組みつつ、解析対象となる領域の複雑化にも対応していく予定で ある。

4.4.2 生活圏評価のための核種移行パラメータに関する検討

(1) 被ばくプロセスモデルで扱う環境移行パラメータの整理と最新の知見の集約

環境移行パラメータデータベースの公開に向けて、令和5年度から開始した。今年度は放射性

Csを対象にデータ収集し、これを元に概要設計を行った。このデータベースにユーザーのニーズ を反映しつつ、外部専門家によるパラメータに係る最新の知見を集約するため「生活圏核種移行 パラメータ」検討委員会を開催した。ユーザーや専門家の意見を来年度以降の詳細設計に反映さ せていくことは、最終的に利用しやすいデータベースを作成するために必要である。また収集し た放射性 Cs のパラメータデータについては代表的な数値として取りまとめてデータ集を作成し た(Appendix Ⅲ参照)。引き続き他の核種についても順次整備をしていくことが必要である。

(2) 重要移行パラメータに及ぼす実験条件の影響:土壌-土壌溶液分配係数のデータ拡充

地表の変遷に伴い土地利用が変化することから、データが不足している非農耕地土壌について の Kdデータ収集を開始した。Pu については Np-237 と併せて分析法を改良し、グローバルフォ ールアウト Cs-137 濃度が高いアーカイブ土壌試料(主に校庭土壌)を使って定量分析を行った ところ、Pu と Cs-137 には良い相関が得られた。Pu 濃度が十分計測できる土壌を使って脱離 Kd を求める試験を来年度以降から開始し、非農耕地土壌の脱離 Kd データを収集する必要がある。 また脱離 Kd については安定元素を使ったデータ収集も開始した。また、収着 Kd についても Cs を使ってデータを取得した。どちらも 20 試料程度のデータを取得することができたが、農耕地 土壌との比較を行うためにはデータの蓄積が必要であることから、来年度も同じようにデータを 収集する必要がある。さらに Kd 値に対する土壌溶液の影響として pH の効果について放射性セ シウムと放射性ヨウ素を対象に検討を行った。土壌細菌の影響を念頭に pH をコントロールする ために緩衝剤を用いたところ、同じ pH でも緩衝剤の種類により Kd 値が異なることが分かった。 なお、この条件下ではヨウ素はガス化がほとんど認められなかった。今回、細菌数と Kd の間には 相関関係は認められなかったが、セシウムやヨウ素の土壌中の挙動に土壌細菌が影響する報告も あることから、今後は菌数だけでなく菌種や活性等についても検討する必要がある。

令和5年度は陸域の非農耕地土壌を中心にデータを収集し、メカニズムについての検討を進め てきたが、まだデータ数が少ないことから、引き続き検討を行なっていく必要がある。併せて、 様々な地表環境に対応していくことができるように沿岸域についても環境移行パラメータデータ の取得状況を整備する必要があり、データの取得方法を含めた検討は来年度以降の課題である。

参考文献

- Abe, S., Fujitaka, K., Abe, M., Fujimoto, K., Extensive field survey of natural radiation in Japan. Journal of Nuclear Science and Technology, vol.18, pp.21-45, 1981.
- ANDRA, Safety Evaluation of a Geological Repository. Andra Report Dossier 2005 Argile, Andra Report 270 VA, 2005.
- Avila, R., Ekström, P-A., Åstrand, P-G., Landscape dose conversion factors used in the safety assessment SR-Site. SKB TR-10-06, 2010.
- BIOPROTA, An Exploration of Approaches to Representing the Geosphere Biosphere Interface in Assessment Models, December 14,2014.
- Cizdziel, J. V., Ketterer, M. E., Farmer, D., Faller, S. H., Hodge, V. F., ^{239, 240, 241}Pu fingerprinting of plutonium in western US soils using ICPMS: Solution and laser ablation measurements. Analytical anioanalytical Chemistry, vol.390, pp.521-530, 2008

DOE, Yucca Mountain Repository License Application, DOE/RW-0573, Rev. 0, 2009.

- DOE, Yucca Mountain Repository License Application, SAFETY ANALYSIS REPORT, DOE/RW-0573, Update No. 1, Docket No. 63.001, 2008.
- 原子力環境整備センター,土壌と土壌溶液間の放射性核種の分配係数.環境パラメータ・シリーズ, RWMC-90-P-13, 63 p, 1990.
- 原子力規制庁,環境試料中ネプツニウム 237 迅速分析法. 放射能測定法シリーズ No. 34., 2008.
- 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-,付属書 6-1 生活圏評価と線量への換算係数の設定,2021a.
- 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-付属書 3-21 新第三紀堆積岩類のモデル構築 (広域スケールモデルの構築),NUMO-SC20-SR3-21,2021b.
- 福井正美, 放射性廃棄物処分の環境影響評価における分配係数の変動要因, 日本原子力学会誌, Vol. 32, No. 2, pp. 142-148, 1990.

放射線医学総合研究所,平成3年度アルファ廃棄物処理処分対策技術に関する評価報告書,1992.

- Huang, Z., Ni, Y., Wang, H., Zheng, J., Yamazaki, S., Sakaguchi, A., Long, X., Uchida, S., Simultaneous determination of ultra-trace level ²³⁷Np and Pu isotopes in soil and sediment samples by sector-field ICP-MS with a single-column chromatographic separation. Microchemical Journal, vol.148, pp.597-604, 2019.
- IAEA, "Reference biospheres" for solid radioactive waste disposal: Report of BIOMASS theme 1 of the BIOsphere Modelling and ASSessment (BIOMASS Programme), IAEA BIOMASS 6, 2003a.
- IAEA, Guidelines for Radioelement Mapping using Gamma Ray Spectrometry Data, IAEA-TECDOC-1363, 173p, 2003b.
- IAEA, Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer in terrestrial and freshwater environments. Technical Reports Series No.472, 197p, 2010.
- IAEA, Sediment Distribution Coefficients and Concentration Factors for Biota in the Marine Environment. Technical Reports Series No.422, 95p, 2004.
- IAEA, Methods for Radiological Environmental Impact Assessment (MEREIA). https://gnssn.iaea.org/main/MEREIA/Pages/default.aspx, 2024 閲覧.
- ICRP, Radiation protection recommendations as applied to the disposal of long-lived solid

radioactive waste. ICRP Publication 81. Ann. ICRP 28 (4), 1998.

- Jonsson, K., Elert, M., Model for Radionuclide Transport in Running Water, SKB TR-05-03, 2005.
- 核燃料サイクル開発機構, 我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-総論レポート JNC TN1400 99-020, 1999.
- Kanda, T., Takata, Y., Kohyama, K., Ohkura, T., Maejima, Y., Wakabayashi, S., Obara, H., New soil maps of Japan based on the comprehensive soil classification system of Japan– first approximation and its application to the world reference base for soil resources 2006. Japan Agricultural Research Quarterly, vol.52, pp.285-292, 2018.
- 加藤智子, 板津 透, 鈴木祐二, 第2期中期計画(平成22年度~平成26年度)における地層処分 生物圏評価研究の進め方, JAEA-Review 2010-075, 42p., 2011.
- Li, F., Xiong, X. S., Yang, Y. Y., Wang, J. J. Wang, M. M., Tang, J. W. Liu, Q. H. Wang, L., Gu., B., Effects of NaCl concentrations on growth patterns, phenotypes associated with virulence, and energy metabolism in Escherichia coli BW25113, Front Microbiol, vol.12, 705326, 2021.
- Li, Jiefeng, Wang, Y., Li, W., Bhat, S. A., Wei, Y., Deng, Z., Hao, X., Li, F., Accumulation capability for cesium differs among bacterial species: A comprehensive study using bacteria isolated from freshwater and coastal sediment, Environmental Pollution, vol. 292, 118431, 2022.
- Lindahl, P., Keith-Roach, M., Worsfold, P., Choi, M. S., Shin, H. S., Lee, S. H., Ultra-trace determination of plutonium in marine samples using multi-collector inductively coupled plasma mass spectrometry. Analytica Chimica Acta, vol.671, pp.61-69, 2010.
- Liu, X., Machida, M., Kurikami, H., Kitamura, A., Long-term simulations of radiocesium discharge in watershed with improved radioesium wash-off model: Applying the model to Abukuma River basin of Fukushima, Journal of Environmental Radioactivity, Volume 203, 2019.
- Lloyd, J. R. and Macaskie., L. E., Bioremediation of radionuclide-containing wastewaters, In: Environmental Microbe-metal Interactions, pp. 277-327, 2000.
- 森崎久雄,環境微生物の細胞表面特性および界面との相互作用,オレオサイエンス, vol. 8, pp. 71-76, 2008.
- 長尾郁弥, 加藤智子, 鈴木祐二, 板津 透, 表層環境条件に応じた生活圏評価モデル構築手法の整備, JAEA-Research2016-003, 2016.
- NAGRA, Vorschlag geologischer Standortgebiete für das SMA- und das HAA-Lager: Technischer Darlegung der Anforderungen, des Vorgehens und der Ergebnisse (in German, with an English summary; Proposals for geological siting regions for the L/ILW and the HLW repository: echnical presentation of requirements, procedure and results), NTB 08-03, 2008.
- NDA, Geological Disposal: Biosphere Status Report, NDA Report NDA/RWMD/036, 2010.
- NIST, National Institute of Standards and Technology certificate: Standard Reference Material 4357, Ocean sediment environmental radioactivity standard. Gaithersburg, MD, 1997.
- 日本原燃株式会社,廃棄物埋設施設における許可基準規則への適合性について,2021 年 6 月 22 日提出,2021.

- 日本原子力研究開発機構,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 地質環境 長期安定性評価確証技術開発 5 か年報告書,2018
- 日本原子力研究開発機構, https://migrationdb.jaea.go.jp/, 2024 閲覧.
- 農業用地下水研究グループ編:日本の地下水,地球社,1043p,1986.
- NWMO, 2011b, Postclosure Safety Assessment: Analysis of the Normal Evolution Scenario, NWMO Report DGR-TR-2011-26, 2011.
- Pham, M. K., Sanchez-Cabeza, J. A., Povinec, P. P., et al., A new Certified Reference Material for radionuclides in Irish sea sediment (IAEA-385). Applied Radiation and Isotopes, vol. 66, pp.1711-1717, 2008.
- Pham, M. K., Sanchez-Cabeza, J. A., Povinec, P. P., Report on the Worldwide Intercomparison Exercise IAEA-385: Radionuclides in Irish Sea Sediment. IAEA/AL/151, IAEA, Monaco, 2005.
- Posiva, Safety Case for the Disposal of Spent Nuclear Fuel at Olkiluoto Synthesis 2012, In preparation. 2012.
- Pröhl, G., Hoffman F.O., Ch.2: Radionuclide interception and loss processes in vegetation. In: Modelling of Radionuclides Interception and Loss Processes in Vegetation and of Transfer in Semi-natural Ecosystems. IAEA-TECDOC-857, pp. 9-47, 1996.
- Qin, N., Zheng, J., Yang, G., Tagami, K., A comprehensive survey of reference materials for their use in quality assurance for the determination of Np-237 in environmental samples. Journal of Environmental Radioactivity, vol. 271, 107328, 2024.
- Ramírez-Guinart, O., Kaplan, D., Rigol, A., Vidal, M., Deriving probabilistic soil distribution coefficients (*K_d*). Part 2: Reducing caesium *K_d* uncertainty by accounting for experimental approach and soil properties. Journal of Environmental Radioactivity, vol.223, 106407, 2020.
- RWM, Geological Disposal Biosphere Status Report, NDA Report no. DSSC/454/01, December 2016.
- 量子科学技術研究開発機構,放射性核種生物圏移行評価高度化開発 5年間(平成25年度~平成 29年度)のまとめ,2018.
- 量子科学技術研究開発機構,原子力発電環境整備機構,2019 年度共同研究報告書 生活圏評価に 関わるパラメータ設定のためのデータ取得,2020.
- 量子科学技術研究開発機構,原子力発電環境整備機構,2022 年度共同研究報告書 生活圏評価に 関わるパラメータ設定のためのデータ取得,2023.
- 佐藤 努, 野澤笑子, 西田崇人,土壌の pH 緩衝作用とそのモデリング, 土壌の物理性, Vol. 138, pp. 21-26, 2018.
- 坂本義昭, 石井友章, 稲川 聡, 軍司康義, 武部慎一, 小川弘道, 佐々木朋三, 浅地中環境下におけ るウラン系列核種の分配係数測定(Ⅱ)・分配係数のpH依存性, 原子力バックエンド研究, vol. 8, Npp. 65-76, 2001.
- Sakai, M., Tsuji, H., Ishii, Y., Ozaki, H., Takechi, S., Jo, J., Tamaoki, M., Hayashi, S., Gomi, T., Untangling radiocesium dynamics of forest-stream ecosystems: A review of Fukushima studies in the decade after the accident. Environmental Pollution, vol.288, 117744, 2021.
- Sánchez-Clemente, R., Igeño, M. I., Población, A. G., Guijo, M. I., Faustino M., Rafael B., Study of pH changes in media during bacterial growth of several environmental strains, Proceedings, vol. 2, p.1297, 2018.

- Seki, M., Oikawa, J., Taguchi, T., Ohnuki, T., Muramatsu, Y., Sakamoto, K. and Amachi, S., Laccase-catalyzed oxidation of iodide and formation of organically bound iodine in soils, Environmental Science and Technology, vol. 47, pp. 390-397, 2013.
- Shao, H., Wei, Y., Li, F., Sorption capacity of cesium on different forest and agricultural soils. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, vol.317, pp.1429-1438, 2018.
- Sheppard, M.I., Thibault, D.H., Default soil solid/liquid partition coefficients, Kdsmallcap[~] S, for four major soil types: a compendium. Health Physics, vol.59, pp.471-82, 1990.
- Sheppard, M.I, Sheppard, S. Grant, C., Solid/liquid partition coefficients to model trace element critical loads for agricultural soil in Canada. Canadian Journal of Soil Science, vol. 87 (Special Issue), pp.189-201, 2007.
- Sheppard, S., Long, J., Sanipelli, B., Sohlenius, G., Solid/liquid partition coefficients (*K*_d) for selected soils and sediments at Forsmark and Laxemar-Simpevarp. Svensk kärnbränslehantering (SKB), pp.7-69, 2009.
- Sheppard, S., Sohlenius, G., Omberg, L. G., Borgiel, M., Grolander, S., Norden, S., Solid/liquid partition coefficients (*Kd*) and plant/soil concentration ratios (CR) for selected soils, tills and sediments at Forsmark, No. SKB-R--11-24, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co., 2011.
- SKB, Biosphere analysis for the safety assessment SR-Site syntesis and summary of results. Updated 2013-08, TR-10-09, 2010.
- SKB, Biosphere synthesis for the safety evaluation SE-SFL, TR-19-05, 2019.
- SKB, Biosphere synthesis report for the safety assessment SR-PSU, TR-14-06, 2014.
- SKB, Components, features, processes and interactions in biosphere, R-13-43, 2013.
- SKB, Long-term Safety for the Final Repository for Spent Nuclear Fuel at Forsmark: Main Report of the SR-Site project, Volumes I to III, TR-11-01, 2011.
- SKB, Post-closure safety for SFR, the final repository for short-lived radioactive waste at Forsmark Biosphere synthesis report, PSAR version TR-23-06, 2023.
- 杉山大輔,海水系地下水中におけるセシウム、ストロンチウムのカルシウムシリケート水和物への収着 ・吸着競合反応の観察とモデル解析・,中央電力研究所報告,L05003,14p,2006.
- 陶山忠宏, 舘 幸男, 収着データベース (JAEA-SDB) の開発: 土壌系及びセメント系を含む収着 データの拡充. JAEA-Data/Code 2011-022. http://jolissrch-inter.tokai-

sc.jaea.go.jp/pdfdata/JAEA-Data-Code-2011-022.pdf (Accessed on 19 Jan 2019)

- Tagami K., Uchida S., Comparison of food processing retention factors of ¹³⁷Cs and ⁴⁰K in vegetables. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry vol.295, pp.1627-1634, 2013.
- 田上恵子,内田滋夫,東京電力福島第一原子力発電所事故由来の I-131 および放射性セシウムの 葉菜類のウェザリング半減期の主要因に関する考察(2) チェルノブイリ原発事故後における 草本植物ウェザリング半減期との比較. Radioisotopes, vol. 69, pp.363-364, 2020.
- 田上恵子,内田滋夫,食品モニタリングデータを用いた放射性セシウム基準値超過食材の経時変 化に関する考察. Radioisotopes, vol.71, pp.9-22, 2022.
- Takeda, A, Unno, Y., Tsukada, H., Takaku, Y. Hisamatsu., S., Speciation of iodine in soil solution in forest and grassland soils in Rokkasho, Japan, Radiation Protection Dosimetry, vol. 184, pp. 368-371, 2019.
- Tanaka, Y., Takahashi, H., Simidu, U. Kimura., B., Design of a new universal Real-Time PCR system targeting the Tuf gene for the enumeration of bacterial counts in food. Journal of

Food Protection, vol. 73, pp. 670-679, 2010.

- 初山 修,高須亜紀,池田孝夫,木村英雄,佐藤正知,長崎晋也,中山真一,新堀雄一,古屋廣高, 三頭聰明,山口徹治,核種移行モデルにおける収着分配係数の概念とその適用性.原子カバ ックエンド研究, vol. 5, pp. 3-19, 1998.
- Tomioka, N., Uchiyama, H. Yagi., O., Isolation and characterization of cesium-accumulating bacteria. Applied and Environmental Microbiology, vol. 58, pp. 1019-1023, 1992.
- Větrovský, T, Baldrian. P., The variability of the 16S rRNA gene in bacterial genomes and its consequences for bacterial community analyses, PLoS ONE, vol. 8, e57923, 2013.
- Walke, R., Thorne, M., Smith, J., RWMD Biosphere Assessment Model: Marine Component, 18025/TR/001, QRS-1628A-1, 2013.
- Wang, Z., Yang, G., Zheng, J., Cao, L., Yu, H., Zhu, Y., Tagami, K., Uchida, S., Effect of ashing temperature on accurate determination of plutonium in soil samples. Analytical Chemistry, vol.87, pp.5511-5515, 2015
- Xu, S., Dverstorp, B., Guerfi, R., Wörman, A., Riml, J., Kłos, R., Development of a model for radionuclide transport in streams for biosphere assessment purpose, Journal of Environmental Radioactivity, Volume 264, 2023.
- 山口正秋,加藤智子,鈴木祐二,牧野仁史:地層処分における隆起・侵食影響評価のための地形・ 処分場深度変遷解析ツールの開発,原子力バックエンド研究,27-2,72-82,2020.
- Yamaguchi, M., Kitamura, A., Oda, Y., Onishi, Y.: Predicting the long-term 137Cs distribution in Fukushima after the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant accident: a parameter sensitivity analysis, Journal of Environmental Radioactivity, 135, 135-146 2014.
- 山口正秋,前川恵輔,竹内真司,北村哲浩,大西康夫,土砂移動に着目した福島第一原子力発電所 事故後の放射性物質分布に関する解析手法の開発,原子力バックエンド研究, Vol.20 No.2, 53-69 2013.
- 山口正秋, 鈴木祐二, 樺沢さつき, 加藤智子, 地層処分の生活圏評価手法検討のためのモデル集 水域の作成, JAEA-Data/Code 2024-001, 2024.
- Yang, E., Fan, L., Yan, J., Jiang, Y., Doucette, C., Fillmore, S. Walker., B., Influence of culture media, pH and temperature on growth and bacteriocin production of bacteriocinogenic lactic acidbacteria, AMB Express, vol. 8, pp.1-14, 2018.
- Yasuda, H., Use of electrical-conductivity to estimate effects of competing ions on radionuclide distribution coefficients. Water Air and Soil Pollution, vol. 75, pp. 421-427, 1994.
- Yoschenko, V., Takase, T., Hinton, T.G., Nanba, K., Onda, Y., Konoplev, A., Goto, A., Yokoyama, A., Keitoku., K., Radioactive and stable cesium isotope distributions and dynamics in Japanese cedar forests. Journal of Environmental Radioactivity, vol.186, pp.34-44, 2018.
- Zhang, S., Liu, Z., Yang, G., Zheng, J., Pan, S., Aono, T., Sakaguchi, A. (2023): Rapid method to determine ¹³⁷Cs, ²³⁷Np and Pu isotopes in seawater by SF-ICP-MS. Analytical Chemistry, 16892-16901. Doi: 10.1021/acs.analchem.3c02702, 2023.
- Zheng, J., Tagami, K., Uchida, S., Shibutani, S., Ishida, K., Hamamoto, T., Soil-soil solution distribution coefficients of global fallout ²³⁹Pu and ²³⁷Np in Japanese paddy soils. Chemosphere, vol.291, 132775, 2022.
- Zheng, J., Tagami, K., Uchida, S., Shibutani, S., Ishida, K., Hamamoto, T., Assessment of soilsoil solution distribution coefficients of global fallout ²³⁷Np and ²³⁹Pu in Japanese upland soils. Journal of Environmental Radioactivity, vol. 266-267, 107241, 2023.

5. 結言

5.1. 令和5年度成果のまとめ

本事業は、「地層処分研究開発に関する全体計画(令和5年度~令和9年度)」(地層処分研究 開発調整会議,2023)に基づき、地層処分システムの安全性の評価のうち、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を適切に反映することが可能な核種移行総合評価技術 の開発を5か年の計画で行うものである。

令和5年度は、5か年計画の1年目であり、高レベル放射性廃棄物(以下、「HLW」という) 及びTRU 廃棄物について、地層処分システムにおけるニアフィールド、岩盤、生活圏のそれぞ れを対象に、実際の処分環境条件とその長期変遷や、そこでの核種移行をより現実的に評価する うえで重要な現象について、先端分析・計算科学技術、地下研究施設での原位置試験やナチュラ ルアナログ事例等を活用して現象理解を進めた。また、ニアフィールドを対象に複数のバリア材 や処分施設構成材との相互作用に伴う環境変遷(状態変遷)の評価とそれを考慮した核種移行を 評価するためのモデルや解析・評価技術の開発も進めた。得られた成果を以下にまとめる。

第2章の「ニアフィールドにおける核種移行総合評価技術の開発」では、HLW 及び TRU 廃棄 物の地層処分システムにおけるニアフィールドの長期変遷を考慮した核種移行評価技術の開発す ることを目的に、以下の2つのサブタスクを実施した。

ニアフィールドにおける核種移行に係る個別現象解析モデルの開発

HLW の地層処分安全評価への反映を念頭に、バリア材等の境界領域におけるバリア間相互作 用を考慮可能な核種移行モデルを開発するため、先行事業である「ニアフィールドシステム評価 確証技術開発(NF事業)」等で得られた成果と課題を踏まえ、核種移行評価上の重要な現象を対 象とし、現象理解とモデル開発を行った。緩衝材の長期変遷を考慮した核種移行評価技術開発と して、炭酸錯体等の複数の溶存化学種が共存する系を想定した緩衝材中での核種の拡散移行評価 手法の構築に向けて、試験データの取得や解析手法の開発を進めるとともに、粗製ベントナイト 中でのコロイド移行挙動やモンモリロナイト層間間隙へのアクチニド炭酸錯体の移行挙動を評価 し、核種が移行できる緩衝材中の間隙サイズの評価を進めた。今後の課題としては、複数の溶存 化学種が共存する系での試験データに基づく解析手法の検証、粗製ベントナイト中を透過できる コロイド粒径の明確化等、評価モデル開発に向けたより精緻な特性評価等の必要性が挙げられる。 また、バリア界面現象を考慮した核種移行評価技術開発の成果として、緩衝材とオーバーパック の相互作用により放出される緩衝材間隙水中の Fe やモンモリロナイト結晶構造中の Fe による モンモリロナイト結晶構造中の Fe の酸化還元状態の変化やモンモリロナイトの酸解離定数の変 化を明らかにし、これらの変化に伴う緩衝材の核種収着能に及ぼす影響等について評価した。今 後の課題としては、Fe 共存の影響を受けた緩衝材への核種収着挙動の検討、緩衝材とセメント系 材料との相互作用等により生成する鉱物による緩衝材間隙の閉塞が核種移行に及ぼす影響の評価 等が挙げられる。

また、TRU 廃棄物の地層処分安全評価への反映を念頭に、先行事業である「TRU 廃棄物処理・ 処分技術高度化開発(TRU 事業)」等で得られた成果と課題を踏まえ、TRU 廃棄物に固有の課題 を対象にした核種移行評価に関わる個別現象評価技術の開発や廃棄体からの核種放出挙動評価技 術の開発を行った。TRU 廃棄物に固有の課題として、廃棄物中に存在する有機物や硝酸塩の影響 を対象にした核種移行評価技術開発に係る成果としては、ウェス等のセルロースの分解生成物で あるイソサッカリン酸(ISA)の有無に関わらずパラジウム(Pd)の溶解度制限固相は PdO また

5 - 1

は Pd(OH)2 と推測され、核種移行評価においては、溶解度が高い Pd(OH)2 を溶解度制限固相と して評価することが適切であることを示した。また、硝酸塩共存下でのセメントの代表的な水和 物の一つである C-S-H へのヨウ素の収着挙動を評価し、Iが硝酸イオンの共存の有無によらず C-S-Hにはほとんど収着しないこと等を明らかにした。今後の課題としては、C-S-H 以外のセメン ト水和物へのヨウ素の収着挙動に及ぼす硝酸イオンの影響の評価や、ISA のセメントへの収着メ カニズムの評価等が抽出された。TRU 廃棄物の廃棄体からの核種放出挙動評価技術に係る成果 としては、データが不足している照射済み PWR 構造材の候補を選定し、ホットセル内での作業 を想定したモックアップを開始するとともに、未照射試料の腐食試験データを拡充し、新たに炭 酸イオンの影響に着目した腐食試験を開始した。ハル酸化膜の瞬時放出率の低減対策では、ハル 酸化膜成分であるジルコニアの溶解速度に関するデータを取得した。C-14 の化学形態について は、極低濃度の C-14 の化学種の分析技術の高度化を図るとともに、計算科学的アプローチによ る C-14 の化学種の生成プロセス解明の見通しを得た。廃棄体モデルの代表性については、これ までに発生した使用済燃料の燃焼度を調査し、本事業で使用している照射材と比較検討した。今 後の課題としては、照射済み PWR 構造材および未照射試料を用いた腐食試験から調和溶出モデ ルの高度化を図ること、瞬時放出率低減に資する知見を拡充することが挙げられる。また、C-14 化学種の分析技術を実サンプル分析に適用できるレベルに引き上げるとともに、C-14の化学種の 生成プロセスに関する簡略モデルを構築すること、廃棄体モデルの代表性に関するデータ補完の ための研究炉の活用等について調査することが課題として抽出された。

上述した様な検討により、ニアフィールドシステムの環境変遷を考慮した核種移行評価を行う 上で必要となる個別現象理解のためのモデル開発や解析・評価技術の高度化を図った。

ニアフィールド複合現象・核種移行の総合評価技術の開発

前述した「ニアフィールドにおける核種移行に係る個別現象解析モデルの開発」を通じて得ら れた成果を踏まえ、ニアフィールドで生じる多様な現象・プロセスを考慮した複合現象評価のた めの解析技術とその解析で得られた環境変遷を踏まえた核種移行評価を行うための統合解析技術 の高度化が必要になる。このため、「ニアフィールド複合現象・核種移行の総合評価技術の開発」 では、HLW の地層処分安全評価への反映を念頭に統合解析技術の中核となる地球化学・物質移 行等を取り扱うニアフィールド複合現象評価モデルを対象とし、先行事業である NF 事業等で得 られた成果と課題を踏まえつつ、近年の先端分析・解析技術の成果を反映したモデルの高度化を 図った。また、ニアフィールドの複合現象評価を踏まえた核種移行評価を行うための統合解析技 術を用いた解析的検討や5か年の目標として掲げた安全評価で用いられるシステム評価モデルへ の反映を念頭としたモデル・パラメータの簡略化方策の検討に資するための情報整理等も行った。 地球化学・物質移行モデルの高度化の成果として、圧縮ベントナイトの微細間隙構造を踏まえた 複数間隙の概念に基づく間隙水化学のモデル化を行った。これにより、微細間隙構造の取扱いの 違いによる緩衝材の長期的な状態変遷への影響(例えば、clogging のような間隙閉塞への影響) を解析により比較検討できる可能性が示唆された。また、NF 事業で開発されたプロトタイプシ ステムを用いた解析手法の高度化、NF 事業で開発された中間モデルによる状態変遷を踏まえた 核種移行評価における不確実性解析、精緻・中間・簡易モデルの比較によるモデルの簡略化方策 に関わる試行、今後のモデル・パラメータ等の簡略化方策の検討や統合評価技術の更なる高度化 を図る上で重要となる解析コードを検討するための文献調査を実施した。これらにより、不確実 性要因として影響の大きいパラメータの抽出や精緻モデルを用いた解析手法の高度化を図る上で の現状の問題点を抽出できた。また、今後、プロトタイプシステムの活用と並行して利用すべき 解析コードの候補を選定できた。今後の課題としては、圧縮ベントナイト中の間隙の取扱いの違

い(単一間隙と複数間隙)が複合現象の評価結果に与える影響を解析的に検討することやモデル の簡略化方策に関わる更なる具体的な検討の試行を継続していくことが必要である。また、統合 評価技術の高度化を図る上では、個別現象理解・モデル開発との連携が重要であり、本事業で得 られた成果のみならず、他事業である「ニアフィールド長期環境変遷評価技術開発」で得られる 成果も適宜踏まえつつ検討を進めることが重要である。

第3章の「天然バリア(岩盤)における核種移行総合評価技術の開発」では、わが国の堆積岩 及び結晶質岩を対象に核種移行モデルの妥当性確認、バリア材と岩盤の相互作用や地下環境のコ ロイド・有機物微生物等の核種移行に及ぼす影響評価技術を開発することを目的に、以下の2つ のサブタスクを実施した。

岩盤中の核種移行評価技術開発

堆積岩を対象とした技術開発として、北海道幌延地域における声問層の岩石コアを対象に間隙 構造や組成の分析、割れ目の形状評価を行うとともに、令和6年度に計画されている原位置トレ ーサー試験の試験条件を検討するための予察解析に着手した。その結果、声問層岩石の構成鉱物 や間隙率等の特性を把握したほか、室内トレーサー試験に使用する岩石コアの割れ目が、せん断 割れ目に特有の Slickenstep を有することがわかった。今後は、令和5年度に取得した間隙や割 れ目の構造等の情報を踏まえ、原位置トレーサー試験をサポートする室内トレーサー移行試験を 実施する。声問層に対して、二重間隙モデルを仮定した予察解析結果から、流量条件や孔間距離 といったパラメータに加え、割れ目やマトリクス内の間隙率が破過曲線のピーク濃度やピーク位 置などへの感度が大きいことが分かった。今後は、別事業で得られる水理・地質調査データも利 用しつつ、先行事業で構築した割れ目内の間隙構造の不均質性などを考慮したモデルなども適用 し、原位置トレーサー試験条件を検討していく。原位置単孔試験のための予備的検討と現場試験 については、原位置試験の条件を適切に設定し、現場ではできない試験条件をフォローするため、 室内試験を実施した。現場付近の岩石における間隙水や岩石の特性を実験的に把握したほか、ト レーサーの候補となる溶質の溶出・収着挙動などを把握し、試験に用いるトレーサーの種類・濃 度を決定した。今まで現場試験に使われてこなかった溶質について情報を収集し、トレーサーと して機能する可能性を検討した。室内トレーサー試験については令和5年度試験系を確立したが、 種々の試験条件でデータを取得し、結果や手法の妥当性検討につなげていくことが課題である。 このため、今後の研究では現場試験で実施できなかったような条件にて試験を実施し、データを 得ていくことを計画している。新規のトレーサーについては、令和5年度は机上の検討が主であ り、実際の環境(地下水・岩石との共存)における挙動やトレーサー試験における挙動の把握が 課題となる。このため、今後の研究にて模擬トレーサー試験等を実施し、有用性についての情報 を得ていく。室内試験と並行して、幌延深地層研究センターの 250m 坑道において掘削されたボ ーリング孔の一つを使って、単孔トレーサー試験とよばれる現場試験を試行した。試験実施まで の現場での実施フローについての情報を整理したほか、得られた試験結果から単孔試験の利点(試 験条件の設定しやすさ、収着性トレーサーの回収しやすさ)や課題(デッドボリューム体積の減 少、トレーサーが均一に広がる仕組み)を明らかにした。今後は、令和5年度明らかになった課 題を解決できるように試験装置の改良を更に進める。令和5年度取得した試験データに対し、評 価解析を進めて物質移行パラメーターの同定を試みる。令和5年度に取得した結果では拡散や吸 着といった効果が必ずしも現れていない可能性があることから、岩盤の遅延効果を検証可能な試 験条件について検討を行う予定である。地質環境の長期変遷や空間スケールを考慮に入れた核種 移行解析モデルの開発においては、幌延地域の地質環境を事例として、原位置試験や室内試験に

よる取得されたデータなどに基づき、割れ目などの不均質性を適切に取り扱いつつ、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することが可能な核種移行モデル構築手法を 開発するため、令和5年度は、諸外国の地層処分事業において適用されている核種移行解析手法 を調査した。その結果、スウェーデンの SKB が適用しているモデル化/解析コード MARFA が、 三次元モデルを適用できる点で、他より適したモデル化/解析コードであることが分かった。今後、 幌延地域の地質環境の長期変遷に基づくシナリオを整理するとともに、それを MARFA に考慮す る方法の検討を進める。また、幌延地域におけるナチュラルトレーサー(NT)の分布形成機構、 特に間隙水と亀裂水における NT の分布と地下水流動状態との関係や分布の変化の時間スケール について、数値解析により検討した。NT の分布に与える影響が大きいパラメータとして亀裂間 隔、マトリクスの実効拡散係数および動水勾配が抽出された。想定される最終氷期末期の天水浸 透期間(最大で数千年)と同程度の期間で、マトリクス内のNT濃度の低下および亀裂水と間隙 水での水質コントラストが確認された。さらに、天水浸透領域の深部で生じたと考えられる、氷 期・間氷期間での地下水流動の変化を再現した解析において、天水の浸透が停止し動水勾配が低下 してから最大でも 10.000 年の間に亀裂水と間隙水での水質コントラストが消失することが確認 された。以上の結果は、幌延地域の地下水流動に関する概念モデルと矛盾せず、またマトリクス 内の NT の洗い出しや水質コントラストの消失に要する時間スケールについても本解析結果から 推定された。間氷期の地下水流動も含めた氷期・間氷期サイクルが NT の分布に与える影響を評価 すること、亀裂分布や地下水流動状態がより複雑である実際の地質環境に本解析結果を適用する ことなどが今後の課題である。

結晶質岩を対象とした技術開発として、鉱物や粒界などの岩石の構成要素と核種移行の関係性 を理解するため、瑞浪 URL から採取した土岐花崗岩を例に、室内トレーサー拡散試験とレーザ ーアブレーション ICP-MS を用いた岩石中の微量元素の移行挙動評価手法の構築に着手した。取 得した拡散データと他の花崗岩類のデータと比較することで、黒雲母等の粘土鉱物の含有率と核 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。また、岩石試料上の鉱物分布 に対応したトレーサー分布を取得し、岩石中の移行挙動に寄与する経路や鉱物に関する知見を拡 充した。一方で、鉱物や粒界の分布による不均質性が核種移行に及ぼす影響の定量評価には課題 が残り、今後、これらの不均質性と核種移行パラメータ(実効拡散係数や分配係数)を関連付け る検討が必要である。割れ目近傍における核種移行挙動を評価するため、先行事業で実施された グリムゼル花崗閃緑岩を対象とした室内トレーサー移行試験および瑞浪 URL で実施された原位 置トレーサー試験後の試料を対象に、微量元素分析および鉱物分布分析を実施した。その結果、 割れ目に沿った黒雲母の分布や鉱物間の粒界とその方向へのトレーサー移行が確認された。この ような、表層付近に特有の鉱物分布の不均質性は、それ以降のマトリクス中の拡散および収着挙 動にも影響を与えるため、割れ目中の核種移行への影響が大きいと考えられる。今後、マトリク スとは異なる、表層付近の鉱物や間隙中の核種移行パラメータの評価が課題である。土岐花崗岩 を事例とした核種移行モデルの検討として、鉱物のサイズや粒界の連続性等の不均質性を想定し た間隙構造モデルを構築し、ランダムウォーク法に基づく Partridge コードを用いた粒子拡散解 析を実施した。その結果、鉱物サイズを大きくする、粒界の連続性を制限すると、粒子の実効拡 散係数が減少することが分かった。一方で、実際の岩石の間隙構造と核種移行へのモデルの適用 性や有効性については未検証であり、今後、粒子サイズ分布と拡散係数の相関など、実験データ との比較検討を進める必要がある。また、割れ目の不均質性(割れ目表面の変質層、割れ目内鉱 物充填層、フロー・スタグナント領域)に関わるパラメータの移行への影響評価を実施した。解 析では、上記の不均質性を考慮したモデルを用いて、破過曲線に影響の大きいパラメータ抽出す るため、各パラメータの偏順位相関係数を算出して比較した。その結果、フロー領域からスタグ

ナント領域への移行率や充填鉱物中および変質層中の収着および拡散の重要性を把握した。一方 で、モデルやパラメータの妥当性やスケールアップを含めた適用性については未検証であり、今 後、実測データと対応させた確証を進める必要がある。トレーサー試験からの核種移行パラメー タの抽出方法の検討として、室内や現場で取得されたトレーサー試験の結果から、核種移行解析 に用いるパラメータを抽出するための解析手法を検討した。岐阜県瑞浪市の花崗岩帯で得られた 既存の現場試験の結果や、花崗岩より拡散係数の大きな砂岩で得られた室内試験の結果を解析の 対象とした。電力中央研究所で開発した解析手法を適用した結果、試験条件に依存せず同程度の 割れ目開口幅や拡散係数が得られたことから、解析手法の妥当性を確認することができた。解析 手法の妥当性を検証するために使用した試験結果の条件(トレーサーの種類や岩石の種類)は、 まだ限定的である。適用範囲を拡大していくためには、より多くの試験条件で得られた結果を対 象にした検証が今後の課題である。このため、既存の現場試験結果の解析では、令和5年度実施 した非収着性のトレーサーに加えて、収着トレーサーの破過曲線を対象に解析する予定である。 また、砂岩を用いた室内試験結果の解析では、さらに収着や拡散特性の異なる砂岩で得た破過曲 線を対象に解析することを計画している。これらの検討から、核種移行解析に用いるパラメータ を抽出するための解析手法の妥当性と適用範囲に関わる情報を拡充していく。

岩盤中における地球化学核種移行の個別現象評価技術開発

天然バリアである岩盤中の核種移行は、地層処分場の建設から埋め戻し後において長期的に変 遷すると考えられるため、緩衝材やセメント等の人工バリア材料や岩盤中の鉱物と核種との相互 作用について、実際の地質環境や長期的変遷を考慮した調査・評価技術と現象理解が重要となる。 また、コロイド・有機物・微生物影響評価技術の開発として、天然バリアである岩盤中の核種移 行は、地下の酸化還元状態や鉱物・水質などの地球化学環境だけでなく、その場に存在するコロ イド・有機物・微生物に大きく影響を受けることから、これらの影響を考慮に入れた核種移行影 響について、実際の地下環境を想定した調査・評価技術の開発が必要となる。

セメント材料が岩盤の核種移行に及ぼす影響評価として、先行事業においても、セメントと岩 石の相互作用反応が核種移行に及ぼす影響について、現象解明に取り組んできた。本事業におい ては、先行事業とは異なる深度やセメント材料において採取された岩石 - セメント試料の X 線 CT、間隙率および EPMA の測定を実施することで、深度やセメント種による岩石 - セメント接 触部の変質状態の差異を比較した。その結果、深度によって接触部のセメント部における元素分 布が異なっており、さらに、セメント種によって、接触部の変質する領域が異なっていることが 分かった。今後の課題としては、岩石-セメント接触部のセメント成分が溶脱した部分への Mg や K の取り込みのメカニズムや、セメント種によるカルサイトなどの二次鉱物の生成メカニズ ム、セメント成分の溶脱による間隙径分布の変化を調査し、深度やセメント種による変質の差異 が生じる原因を解明することで、それらの岩石への影響および核種移行挙動に及ぼす影響を評価 する必要がある。

地下環境下の鉱物と核種との相互作用として、天然バリアにおいて、岩盤中の炭酸塩や鉄など の鉱物が核種の移行挙動及ぼす影響を評価するためには、室内試験に基づく評価と並行して、地 下環境を念頭に置いたより現実的な系での現象解明や評価技術の構築に向けた取り組みが必要で ある。本課題では、地下研究施設周辺から採取した深部地下水などを活用した評価をおこなった。 その結果、幌延を事例とした堆積岩浅層部においては、鉄鉱物の酸化とともに Se が溶出した可 能性があるとともに、Fe³⁺濃度が増加する領域では、有機物や鉄の 2 次鉱物に Se が収着してい る可能性が示唆された。また、炭酸塩鉱物は重元素や希土類元素、アクチニド元素等の様々な元 素をその結晶構造中に取り込むことが知られていることから、炭酸塩鉱物の一つであるカルサイ ト中のウランの分布や化学形態に関する検討を行ったところ、カルサイト中にウランの濃集部が 確認された。放射光分析による詳細な分析結果から、それらのウランはリン酸塩の形態で存在す る可能性が示唆された。今後、逐次抽出試験等によって Se の存在形態に関するデータを取得す ることで、地形の隆起等により酸化領域が形成された場合の Se の移行挙動について評価をおこ なう。また、炭酸塩鉱物中のウラン等の重元素の分布や化学形態について、より詳細な分析を行 う必要がある。

コロイドへの核種収着に関しては、幌延地域の地下環境を事例として、天然コロイド・有機物・ 微生物の特性データを取得するとともに、コロイド・有機物・微生物と核種との収着・錯生成・ 細胞内取り込み等による核種移行への評価技術の開発に向けて、地下水中のコロイドへの核種の 収着特性に関するデータを拡充するとともに、これまでに取得した現象モデルの妥当性確認に向 けて、元一環境下における収着挙動の予察試験に着手した。その結果、深度 350 m の地下水を対 象とした試験結果からは、本地下水に存在するコロイドへの希土類元素の収着影響が、他の深度 における地下水と比較して高くなく、バイオコロイドの影響も大きくないことが明らかになった。 また、予察的な原位置試験の結果から、複合的な条件下における収着試験の成立する予察試験と して、使用するトレーサー元素や濃度などについて、試験の成立性を確認することができた。今 後は、添加後のトレーサーの平衡反応や分配等について詳細に明らかにすることができると考 える。

有機物と核種の錯生成に関しては、核種移行に及ぼす天然有機物の影響を評価するために、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に ついて、現象理解を深めるとともに、その手法開発を行う必要がある。令和5年度は、幌延地下 の堆積岩環境を事例として、腐植物質だけでなく全ての溶存有機物の特性評価を網羅的な分析に 着手した。また、放射線照射が有機物の錯生成能に及ぼす影響や核種と錯生成した有機物の分配 についても検討をおこなった。その結果、分子的特徴を有する有機物の存在割合に関する知見を 拡充することができた。また、放射線照射量の増加とともに、フミン酸の錯生成能力が低下する ことが明らかになり、その要因としてカルボキシル基の減少が関与していることが示唆された。 また、計算科学的手法を用いた粘土鉱物と有機物の相互作用に関する検討にも着手し、Na型、 Ca型それぞれにおける粘土相関中のフミン酸の分散・凝集挙動についても明らかにすることが できた。今後は、多様な環境条件下における有機物と核種の錯生成挙動について、より詳細な理 解を深めるためのデータ拡充を進める必要がある。

微生物代謝影響に関しては、地下に存在する微生物の核種移行への影響については、処分場建 設から閉鎖後の長期に渡る地球化学的変遷とともに評価を進める必要がある。令和5年度は、処 分場建設時からの様々なフェーズを想定した環境下において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、幌延堆積岩の地下施設周辺を事例とした調査研究を実施した。その 結果、地下水中の微生物は、建設初期から経時変化しており、バイオフィルム形成領域が時間と ともに拡大していることが確認された。また、閉鎖後の環境条件下における微生物分布を評価す るために、岩石中の微生物分布について分析評価を行ったところ、掘削時の汚染影響を排除した 場合でも、微生物は亀裂表面に密集して存在することが確認された。一方で、これらの微生物と 重元素との関係性については未解明な部分が多いことから、今後、微生物分布と元素の分布特性 や地層処分システムへの微生物代謝影響について知見を拡充する必要がある。

第4章の「生活圏における核種移行総合評価技術の開発」では、わが国の表層環境の具体的な 特徴を反映可能な生活圏評価手法を整備することを目的として、以下の2つのサブタスクを実施 した。

生活圏における核種移行及び被ばくプロセルモデルの検討

地形・処分場深度変遷解析ツールを用いて作成した地形、その地形データを基に作成した土壌 被覆データ及びそれらを用いて計算した河川流量・土砂移動データからなる地理情報に基づく仮 想的な地表環境における移行プロセスの設定を試行し、第2次取りまとめの生活圏評価における 移行プロセスと同様の移行プロセスを設定できることが確認できた。また、事業段階が異なる国 内外の生活圏評価に関する文献調査から、核種移行プロセス及び数学モデルを比較したところ、 一部の移行プロセスにおいては、事業段階に寄らず、同じ数学モデルが用いられていた。ジェネ リックな評価と同じ数学モデルを用いたとしても、サイトスペシフィックな評価においては、処 分場サイトにおいて取得したデータをパラメータ設定に反映している例もあった。これらの試行 の結果に基づき、処分場サイトの特徴を適切に反映した生活圏評価モデル構築及びパラメータ設 定のための考え方を整理した。令和5年度の検討では、仮想的な地表環境を設定する場合に、深 さ方向の情報整備が不十分であったため、鉛直方向の移行プロセスに関する検討ができなかった。 侵食、浸透、再浮遊・沈殿といった鉛直方向の移行は、生活圏評価における核種移行を検討する 際に、重要なプロセスとなる場合がある。特に、海域などでは、粒子の再浮遊・沈殿が固相の移 行プロセスとしてモデル化されている例もあることから、今後、移行プロセスを検討する際に設 定する仮想的な地表環境について、深さ方向の情報をどのように与えるかについて検討したうえ で、陸域だけでなく、海域における移行プロセスについても検討していく予定である。

また、地質環境と生活圏とのインターフェイス(GBI)での核種移行プロセスとその変遷に関 する検討では、GBI の設定に影響を与える対象環境の特徴について、諸外国の生活圏評価での GBI における核種移行プロセスの取扱いについて文献調査を行い、GBI の位置や GBI 近傍での 核種移行量を変動させる可能性がある対象環境の特徴について整理した。加えて、整理された対 象環境の特徴の中から GBI の位置等に大きく影響すると考えられるいくつかの特徴について感 度解析的検討を行い、その影響の大きさについて整理した。その結果、気候などの環境変遷、地 形、岩種などの自然環境要因と、法規制の人為的要因があると整理された。また、これらの特徴 に対して仮想的な地形を持つ集水域を用いて解析、分析を行った結果、これらの特徴による GBI の位置や希釈水量の分布の変化は、処分場領域周辺の地下水流動の傾向(処分場の位置)により その現れ方が大きく異なるが、全体としては地形に大きく支配される傾向であった。令和5年度 の調査、解析のうち、解析については解析結果の収束のために簡略化した設定を用いている。ま た地質・地層構造に関するデータ不足などにより仮定が多く、わが国で広範にみられる地形・地 質構造を表現するためには、解析モデルの具体化(わが国の統計的な地質・地層構造を反映した モデル)等が必要である。また、得られた河川流量の解析結果への精度良い反映など、データ分 析の方法にも改良が必要な点がある。今後はより一般的な地質・地層構造のモデル化やデータ分 析手法の改良等に取り組みつつ、解析対象となる領域の複雑化にも対応していく予定である。

生活評価のための核種移行パラメータに関する検討

被ばくプロセスモデルで扱う環境移行パラメータの整理と最新の知見の集約では、環境移行パ ラメータデータベースの公開に向けて、令和5年度から開始した。令和5年度は放射性 Csを対 象にデータ収集し、これを元に概要設計を行った。このデータベースにユーザーのニーズを反映 しつつ、外部専門家によるパラメータに係る最新の知見を集約するため「生活圏核種移行パラメ ータ」検討委員会を開催した。ユーザーや専門家の意見を来年度以降の詳細設計に反映させてい くことは、最終的に利用しやすいデータベースを作成するために必要である。また収集した放射 性 Cs のパラメータデータについては代表的な数値として取りまとめてデータ集を作成した。引き続き他の核種についても順次整備をしていくことが必要である。

重要移行パラメータに及ぼす実験条件の影響における土壌・土壌溶液分配係数のデータ拡充として、地表の変遷に伴い土地利用が変化することから、データが不足している非農耕地土壌についての分配係数(Kd)データ収集を開始した。Pu については Np-237 と併せて分析法を改良し、グローバルフォールアウト Cs-137 濃度が高いアーカイブ土壌試料(主に校庭土壌)を使って定量分析を行ったところ、Pu と Cs-137 には良い相関が得られた。Pu 濃度が十分計測できる土壌を使って脱離 Kd を求める試験を来年度以降から開始し、非農耕地土壌の脱離 Kd データを収集する必要がある。また脱離 Kd については安定元素を使ったデータ収集も開始した。また、収着 Kd についても Cs を使ってデータを取得した。どちらも 20 試料程度のデータを取得することができたが、農耕地土壌との比較を行うためにはデータの蓄積が必要であることから、令和 6 年度も同じようにデータを収集する必要がある。さらに Kd 値に対する土壌溶液の影響として pH の効果について Cs と I を対象に検討を行った。土壌細菌の影響を念頭に pH をコントロールするために緩衝剤を用いたところ、同じ pH でも緩衝剤の種類により Kd 値が異なることが分かった。なお、この条件下では I はガス化がほとんど認められなかった。今回、細菌数と Kd の間には相関関係は認められなかったが、Cs や I の土壌中の挙動に土壌細菌が影響する報告もあることから、今後は菌数だけでなく菌種や活性等についても検討する必要がある。

令和5年度は陸域の非農耕地土壌を中心にデータを収集し、メカニズムについての検討を進め てきたが、まだデータ数が少ないことから、引き続き検討を行なっていく必要がある。併せて、 様々な地表環境に対応していくことができるように沿岸域についても環境移行パラメータデータ の取得状況を整備する必要があり、データの取得方法を含めた検討は令和6年度以降の課題であ る。

5.2. おわりに

本報告書は、令和5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【地層処分 安全評価確証技術開発(核種移行総合評価技術開発)】として、資源エネルギー庁から国立研究開 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、一般財 団法人電力中央研究所及び国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構の4者が共同で受託し、 地層処分システムの安全性の評価のうち、実際のサイトの地質環境の特徴や処分システムの長期 的な変遷を適切に反映することが可能な核種移行総合評価技術を開発することを目的として実施 した技術開発の成果をまとめたものである。令和5年度は、地層処分システムのニアフィールド、 岩盤、生活圏のそれぞれの領域を対象に、核種移行に関わる個別現象モデル開発、パラメータの 整備、及び現象解析モデルの統合化の検討に着手し、知見の拡充を進めた。今後は各領域におけ る技術開発の領域間での連携を深めるとともに、資源エネルギー庁の事業として実施されている 「ニアフィールド長期環境変遷評価技術開発」とも連携し、地層処分システムの総合的な核種移 行価技術の開発に反映できるような取組を行う予定である。

参考文献

地層処分研究開発調整会議,地層処分研究開発に関する全体計画(令和5年度~令和9年度),令和5年3月,2023.

Appendix I

原位置試験周辺の岩石の固相分析結果

①岩石に含まれる主要な成分の分析

原位置試験を実施した周辺のボーリングコア(MIG1-3号孔)を用いて、岩石に含まれる主要 な成分を、波長分散型蛍光X線分析法(XRF-EDX)により分析した。分析結果を表A.3.2.2.(2)-1-1に示した。

风11.0.2								
250-MIG1-3号习	Al 2 O 3	BaO	CaO	Cr_2O_3	Fe 2 O 3	K_2O	MgO	
200 MIGI 0 / 16	(%)	(%)	(%)	(%)	(%)	(%)	(%)	
深度5.60-6.00m	9.68	0.04	0.60	0.01	3.99	1.68	1.22	
深度10.76-11.00m	9.48	0.03	0.59	0.01	5.00	1.65	1.18	
深度13.38-13.77m	9.27	0.03	0.56	0.01	5.53	1.59	1.20	
深度20.45-21.00m	8.95	0.03	0.62	0.05	9.82	1.52	1.17	

表A.3.2.2.(2)-1-1 MIG1-3号孔のコアにおける主要成分の分析結果

250-MIG1-3号孔	MnO (%)	Na 2 O (%)	P 2 O 5 (%)	SiO 2 (%)	SrO (%)	TiO 2 (%)	LOI (%)
深度5.60-6.00m	9.68	0.04	0.60	0.01	3.99	1.68	1.22
深度10.76-11.00m	9.48	0.03	0.59	0.01	5.00	1.65	1.18
深度13.38-13.77m	9.27	0.03	0.56	0.01	5.53	1.59	1.20
深度20.45-21.00m	8.95	0.03	0.62	0.05	9.82	1.52	1.17

②岩石に含まれる微量成分の分析

原位置試験を実施した周辺のボーリングコア(MIG1-3号孔)を、酸やアルカリを用いて加熱 処理して目的成分を溶解させ、ICP-MSを用いて溶液中の濃度を定量した。その結果から、岩石 における目的成分の濃度を計算した。結果を表A.3.2.2.(2)-1-2に示した。

950-MIC1-9早日	Ba	Се	Cr	Cs	Dy	Er	Eu	Ga
200-1011G1-0万化	(ppm)							
深度5.60-6.00m	303	31.4	81	4.77	2.21	1.39	0.63	11.4
深度10.76-11.00m	295	30.9	93	4.73	2.33	1.37	0.59	11.2
深度13.38-13.77m	285	30	82	4.37	2.08	1.32	0.56	10.4
深度20.45-21.00m	275	29.6	356	4.31	2.37	1.53	0.69	10.4

表A.3.2.2.(2)-1-2 MIG1-3号孔のコアにおける微量成分の分析結果

950-MIC1-9분기	Gd	Ge	Hf	Ho	La	Lu	Nb	Nd
200-1011G1-5万化	(ppm)							
深度5.60-6.00m	2.30	1.0	2.66	0.49	14.8	0.22	6.29	15.3
深度10.76-11.00m	2.30	0.9	2.65	0.52	14.4	0.22	6.53	14.3
深度13.38-13.77m	2.37	1.1	2.62	0.44	14.0	0.21	6.39	13.6
深度20.45-21.00m	2.48	0.7	2.54	0.52	13.7	0.22	7.19	13.7

950-MIC1-9트리	Pr	Rb	Sc	Sm	Sn	\mathbf{Sr}	Та	Tb
200-111161-5万孔	(ppm)	(ppm)	(ppm)	(ppm)	(ppm)	(ppm)	(ppm)	(ppm)
深度5.60-6.00m	3.51	69.2	11.1	2.88	1.0	94	0.6	0.37
深度10.76-11.00m	3.22	67.4	10.4	2.52	1.1	91.9	0.6	0.35
深度13.38-13.77m	3.55	65.1	9.8	2.69	1.3	87.8	0.6	0.36
深度20.45-21.00m	3.52	60.9	10.6	3.12	1.3	84.9	0.6	0.41
250-MIG1-3号孔	Tm	U	V	W	Y	Yb	Zr	
深度5.60-6.00m	0.21	3.00	75	0.6	13.3	1.44	109	
深度10.76-11.00m	0.22	2.85	71	1.0	12.9	1.5	106	
深度13.38-13.77m	0.21	2.86	72	0.6	12.8	1.34	103	
深度20.45-21.00m	0.22	2.83	77	5.1	14.0	1.55	100	
								-
950-MIC1-9분기	As	Bi	Hg	In	Re	Sb	Sc	Se
290-111161-3万孔	(ppm)	(ppm)	(ppm)	(ppm)	(ppm)	(ppm)	(ppm)	(ppm)
深度5.60-6.00m	6.6	0.18	0.038	0.027	0.012	0.24	4.6	1.7

950-MIC1-9早引	AS	D1	пg	In	ке	50	SC	Se
200-WIIG1-0-54L	(ppm)							
深度5.60-6.00m	6.6	0.18	0.038	0.027	0.012	0.24	4.6	1.7
深度10.76-11.00m	7.3	0.17	0.036	0.029	0.009	0.26	4.8	1.5
深度13.38-13.77m	7.3	0.17	0.038	0.026	0.009	0.28	5.3	1.5
深度20.45-21.00m	6.3	0.17	0.053	0.035	0.017	0.35	6.6	1.6

250-MIC1-3号习	Те	Tl
200 MIGI 571L	(ppm)	(ppm)
深度5.60-6.00m	0.01	0.06
深度10.76-11.00m	0.01	0.06
深度13.38-13.77m	0.01	0.07
深度20.45-21.00m	0.02	0.09

③XRD分析

原位置試験を実施した周辺のボーリングコア(MIG1-3号孔)の一部を粉砕し、X線回折分析 (XRD)に供した。結果を図A.3.2.2.(2)-1-1に示した。XRD分析の結果から、岩石はスメクタ イト、イライト、緑泥石、カオリナイト、長石、石英、パイライト、シデライトなどの鉱物を 含んでいることが分かった。



図A.3.2.2.(2)-1-1 MIG1-3号孔のコアにおけるXRD分析の結果

④真密度·含水比·含水率·間隙率

原位置試験を実施した周辺のボーリングコア(MIG1-3号孔)の一部を粉砕して乾燥した後、 ペンタピクノメーターを用いて真密度を分析した。また、1.0cm角程度に粗粉砕した岩石片を 水に浸漬して真空脱気して4日以上静置したあと重量を測定し、さらに110℃で72時間程度乾燥 した後の重量を測定することで、その結果から含水比、含水率や間隙率を算出した。結果を表 A.3.2.2.(2)-1-3にまとめた。

250-MIG1-3号孔	含水比 (%)	含水率 (%)	真密度 (g/mL)	間隙率 (無次元)
深度5.60-6.00m	43.9	30.5	2.41	0.51
深度10.76-11.00m	42.2	29.7	2.43	0.51
深度13.38-13.77m	45.3	31.2	2.42	0.52
深度20.45-21.00m	44.7	30.9	2.43	0.52

表A.3.2.2.(2)-1-3 MIG1-3号孔のコアにおける含水比・含水率・真密度・間隙率の分析結果

⑤平均細孔直径

原位置試験を実施した周辺のボーリングコア(MIG1-3号孔)の一部を粉砕して110℃で6時 間真空脱気したあと、窒素ガスの吸着等温線を作成し、そこから平均細孔直径を測定した。ま た、別途水銀圧入により、平均細孔直径を測定した。測定結果を表3.2.2.(2)-1-4にまとめた。

表A.3.2.2(2)-1-4 MIG1-3号孔のコアにおける含水比・含水率・真密度・間隙率の分析結果	
---	--

OFO MICL OF	平均細孔粒径(nm)				
200-10161-3万化	窒素吸着法	水銀圧入法			
深度5.60-6.00m	17.33	15.45			
深度10.76-11.00m	12.56	14.22			
深度13.38-13.77m	17.32	14.90			
深度20.45-21.00m	18.73	15.81			

Appendix II

粒子追跡解析結果図集

1 本図集の内容について

本図集は、「4.2.2 (3) GBI の設定に影響を与える対象環境の特徴についての感度解析の実施」 において解析した各ケースにおける粒子追跡解析結果を示すものである。以下の表1-1、1-2に解 析条件と解析ケースの一覧表を示す。

その他の特徴に 応じたケース	着目した 特徴	地質構造	表層水	境界条件	備考
Uniform	無し	一様	無し	天面:地表面での固定水頭境界 側面・底面:不透水境界	各ケースと の比較用
Stratum	岩種 (地質構造)	新第三紀 堆積岩類	無し	天面:地表面での固定水頭境界 側面・底面:不透水境界	
Stream_800	環境変遷 (降水量)	一様	有り (表層水に寄与 する流出量: 800mm/y)	天面:自由水頭境界(河川の位 置するセルのみ固定水 頭境界) 側面・底面:不透水境界	降内量の除表与定の散へをが寄ん
Stream_1200	環境変遷 (降水量)	一様	有り (表層水に寄与 する流出量: 1,200mm/y)	天面:自由水頭境界(河川の位 置するセルのみ固定水 頭境界) 側面・底面:不透水境界	降水量の 内、蒸発い 量発で で 表 い で 表 に る と 仮定

表1-1 解析ケースの設定条件

処分場の位置	地形	ケース名
		Uniform
	T	Stratum
	Type1	Stream_800
		Stream_1200
		Uniform
法山村	Trees a D	Stratum
加山坡	Type2	Stream_800
		Stream_1200
		Uniform
	True o D	Stratum
	Type3	Stream_800
		Stream_1200
		Uniform
	Tyme1	Stratum
	Typer	Stream_800
		Stream_1200
		Uniform
涵養怵	Τνηρ9	Stratum
回丧戏	1ype2	Stream_800
		Stream_1200
		Uniform
	Trme 9	Stratum
	турез	Stream_800
		Stream_1200

表 1-2 解析ケースの設定の概要

2. 処分場位置が流出域の場合の各パターンにおける粒子追跡解析結果

以下に処分場位置が流出域の場合の各パターンにおける粒子追跡解析結果を平面図、正面図、 側面図、鳥瞰図の順に示した。結果を示すにあたって、地下水流動解析、粒子追跡解析モデル上 における粒子追跡解析の出発点である処分場領域、粒子追跡線、粒子の流出点(GBI)を表示さ せた。なお、離散化領域の色は標高及び表層水を示している。

2.1 地質構造が一様、地下水流動解析において表層水が無しの場合(Uniform)

(1) Type1



図 2.1-1 粒子追跡解析結果(Type1 Uniform、平面図)



図 2.1-2 粒子追跡解析結果(Type1 Uniform、正面図)







図 2.1-4 粒子追跡解析結果(Type1 Uniform、鳥瞰図)

(2) Type2



図 2.1-5 粒子追跡解析結果(Type2 Uniform、平面図)



図 2.1-6 粒子追跡解析結果(Type2 Uniform、正面図)



図 2.1-7 粒子追跡解析結果 (Type2 Uniform、側面図)

Type2 Uniform (鳥瞰図) 標高 [m] W Ν 1000.0 S Е 900.0 800.0 700.0 600.0 500.0 400.0 300.0 200.0 100.0 0.0 紫色……奶分場領域 z K 黄線…粒子追跡線 橙丸…粒子の流出点(GBI)

図 2.1-8 粒子追跡解析結果 (Type2 Uniform、鳥瞰図)

(3) Type3



図 2.1-9 粒子追跡解析結果(Type3 Uniform、平面図)



図 2.1-10 粒子追跡解析結果(Type3 Uniform、正面図)



図 2.1-11 粒子追跡解析結果(Type3 Uniform、側面図)



図 2.1-12 粒子追跡解析結果(Type3 Uniform、鳥瞰図)

2.2 新第三紀堆積岩類の地質構造、地下水流動解析において表層水が無しの場合(Stratum)

```
(1) Type1
```



図 2.2-1 粒子追跡解析結果(Type1 Stratum、平面図)



図 2.2-2 粒子追跡解析結果(Type1 Stratum、正面図)



Z ↓_→×

図 2.2-3 粒子追跡解析結果(Type1 Stratum、正面図、地層構造表示)



図 2.2-4 粒子追跡解析結果(Type1 Stratum、側面図)







図 2.2-6 粒子追跡解析結果(Type1 Stratum、鳥瞰図)
(2) Type2



図 2.2-7 粒子追跡解析結果(Type2 Stratum、平面図)



図 2.2-8 粒子追跡解析結果(Type2 Stratum、正面図)









図 2.2-11 粒子追跡解析結果(Type2 Stratum、側面図、地層構造表示)



図 2.2-12 粒子追跡解析結果(Type2 Stratum、鳥瞰図)

(3) Type3







図 2.2-14 粒子追跡解析結果(Type3 Stratum、正面図)









Z k

図 2.2-17 粒子追跡解析結果(Type3 Stratum、側面図、地層構造表示)



図 2.2-18 粒子追跡解析結果 (Type3 Stratum、鳥瞰図)

- 2.3 地質構造が一様、地下水流動解析において表層水が有り(表層水に寄与する流出 量:800[mm/y])の場合(Stream_800)
 - (1) Type1



図 2.3-1 粒子追跡解析結果(Type1 Stream_800、平面図)



図 2.3-2 粒子追跡解析結果(Type1 Stream_800、正面図)

П-19







図 2.3-4 粒子追跡解析結果(Type1 Stream_800、鳥瞰図)



図 2.3-5 粒子追跡解析結果(Type1 Stream_800、平面図、表層水表示)



図 2.3-6 粒子追跡解析結果(Type1 Stream_800、鳥瞰図、表層水表示)



図 2.3-7 粒子追跡解析結果(Type2 Stream_800、平面図)



Type2 Stream_800 (正面図、W-E)



図 2.3-9 粒子追跡解析結果(Type2 Stream_800、側面図)



図 2.3-10 粒子追跡解析結果(Type2 Stream_800、鳥瞰図)



図 2.3-11 粒子追跡解析結果(Type2 Stream_800、平面図、表層水表示)



図 2.3-12 粒子追跡解析結果(Type2 Stream_800、鳥瞰図、表層水表示)

(3) Type3



図 2.3-13 粒子追跡解析結果(Type3 Stream_800、平面図)



図 2.3-14 粒子追跡解析結果(Type3 Stream_800、正面図)



図 2.3-15 粒子追跡解析結果 (Type3 Stream_800、側面図)



図 2.3-16 粒子追跡解析結果 (Type3 Stream_800、鳥瞰図)



図 2.3-17 粒子追跡解析結果(Type3 Stream_800、平面図、表層水表示)



図 2.3-18 粒子追跡解析結果 (Type3 Stream_800、鳥瞰図、表層水表示)

- 2.4 地質構造が一様、地下水流動解析において表層水が有り(表層水に寄与する流出 量:1,200[mm/y])の場合(Stream_1200)
 - (1) Type1



図 2.4-1 粒子追跡解析結果 (Type1 Stream_1200、平面図)



図 2.4-2 粒子追跡解析結果(Type1 Stream_1200、正面図)



図 2.4-3 粒子追跡解析結果(Type1 Stream_1200、側面図)



図 2.4-4 粒子追跡解析結果(Type1 Stream_1200、鳥瞰図)



図 2.4-5 粒子追跡解析結果(Type1 Stream_1200、平面図、表層水表示)



図 2.4-6 粒子追跡解析結果(Type1 Stream_1200、鳥瞰図、表層水表示)



図 2.4-7 粒子追跡解析結果(Type2 Stream_1200、平面図)



図 2.4-8 粒子追跡解析結果(Type2 Stream_1200、正面図)



図 2.4-9 粒子追跡解析結果(Type2 Stream_1200、側面図)



図 2.4-10 粒子追跡解析結果(Type2 Stream_1200、鳥瞰図)



図 2.4-11 粒子追跡解析結果(Type2 Stream_1200、平面図、表層水表示)



図 2.4-12 粒子追跡解析結果(Type2 Stream_1200、鳥瞰図、表層水表示)

(3) Type3



図 2.4-13 粒子追跡解析結果(Type3 Stream_1200、平面図)



図 2.4-14 粒子追跡解析結果(Type3 Stream_1200、正面図)



図 2.4-15 粒子追跡解析結果(Type3 Stream_1200、側面図)



図 2.4-16 粒子追跡解析結果(Type3 Stream_1200、鳥瞰図)



図 2.4-17 粒子追跡解析結果(Type3 Stream_1200、平面図、表層水表示)



図 2.4-18 粒子追跡解析結果(Type3 Stream_1200、鳥瞰図、表層水表示)

- 3. 処分場位置が涵養域の場合の各パターンにおける粒子追跡解析結果
- 3.1 地質構造が一様、地下水流動解析において表層水が無しの場合(Uniform)
 - (1) Type1



図 3.1-1 粒子追跡解析結果 (Type1 Uniform、平面図)



図 3.1-2 粒子追跡解析結果(Type1 Uniform、正面図)



図 3.1-3 粒子追跡解析結果(Type1 Uniform、側面図)



図 3.1-4 粒子追跡解析結果(Type1 Uniform、鳥瞰図)



図 3.1-5 粒子追跡解析結果(Type2 Uniform、平面図)



図 3.1-6 粒子追跡解析結果(Type2 Uniform、正面図)



図 3.1-7 粒子追跡解析結果(Type2 Uniform、側面図)



図 3.1-8 粒子追跡解析結果(Type2 Uniform、鳥瞰図)









図 3.1-10 粒子追跡解析結果(Type3 Uniform、正面図)



図 3.1-11 粒子追跡解析結果(Type3 Uniform、側面図)



図 3.1-12 粒子追跡解析結果(Type3 Uniform、鳥瞰図)

3.2 新第三紀堆積岩類の地質構造、地下水流動解析において表層水が無しの場合(Stratum)

```
(1) Type1
```



図 3.2-1 粒子追跡解析結果(Type1 Stratum、平面図)













図 3.2-5 粒子追跡解析結果(Type1 Stratum、側面図、地層構造表示)



図 3.2-6 粒子追跡解析結果(Type1 Stratum、鳥瞰図)



図 3.2-7 粒子追跡解析結果(Type2 Stratum、平面図)



図 3.2-8 粒子追跡解析結果(Type2 Stratum、正面図)



図 3.2-9 粒子追跡解析結果(Type2 Stratum、正面図、地層構造表示)





図 3.2-11 粒子追跡解析結果(Type2 Stratum、側面図、地層構造表示)



図 3.2-12 粒子追跡解析結果(Type2 Stratum、鳥瞰図)




図 3.2-13 粒子追跡解析結果(Type3 Stratum、平面図)



図 3.2-14 粒子追跡解析結果(Type3 Stratum、正面図)









図 3.2-17 粒子追跡解析結果(Type3 Stratum、側面図、地層構造表示)



図 3.2-18 粒子追跡解析結果 (Type3 Stratum、鳥瞰図)

- 3.3 地質構造が一様、地下水流動解析において表層水が有り(表層水に寄与する流出 量:800[mm/y])の場合(Stream_800)
 - (1) Type 1



図 3.3-1 粒子追跡解析結果(Type1 Stream_800、平面図)



図 3.3-2 粒子追跡解析結果(Type1 Stream_800、正面図)



図 3.3-3 粒子追跡解析結果(Type1 Stream_800、側面図)



図 3.3-4 粒子追跡解析結果(Type1 Stream_800、鳥瞰図)



図 3.3-5 粒子追跡解析結果(Type1 Stream_800、平面図、表層水表示)



図 3.3-6 粒子追跡解析結果(Type1 Stream 800、鳥瞰図、表層水表示)

(2) Type2



図 3.3-7 粒子追跡解析結果(Type2 Stream_800、平面図)



図 3.3-8 粒子追跡解析結果(Type2 Stream_800、正面図)



図 3.3-9 粒子追跡解析結果(Type2 Stream_800、側面図)



図 3.3-10 粒子追跡解析結果(Type2 Stream_800、鳥瞰図)



図 3.3-11 粒子追跡解析結果(Type2 Stream_800、平面図、表層水表示)



図 3.3-12 粒子追跡解析結果(Type2 Stream_800、鳥瞰図、表層水表示)

(3) Type3













図 3.3-16 粒子追跡解析結果 (Type3 Stream_800、鳥瞰図)



図 3.3-17 粒子追跡解析結果(Type3 Stream_800、平面図、表層水表示)



図 3.3-18 粒子追跡解析結果(Type3 Stream_800、鳥瞰図、表層水表示)

- 3.4 地質構造が一様、地下水流動解析において表層水が有り(表層水に寄与する流出 量:1,200[mm/y])の場合(Stream_1200)
 - (1) Type1



図 3.4-1 粒子追跡解析結果(Type1 Stream_1200、平面図)



図 3.4-2 粒子追跡解析結果(Type1 Stream_1200、正面図)



図 3.4-3 粒子追跡解析結果(Type1 Stream_1200、側面図)



図 3.4-4 粒子追跡解析結果 (Type1 Stream_1200、鳥瞰図)



図 3.4-5 粒子追跡解析結果(Type1 Stream_1200、平面図、表層水表示)



図 3.4-6 粒子追跡解析結果(Type1 Stream_1200、鳥瞰図、表層水表示)

(2) Type2



図 3.4-7 粒子追跡解析結果(Type2 Stream_1200、平面図)



図 3.4-8 粒子追跡解析結果(Type2 Stream_1200、正面図)



Z ↓ ↓







図 3.4-11 粒子追跡解析結果(Type2 Stream_1200、平面図、表層水表示)



図 3.4-12 粒子追跡解析結果(Type2 Stream_1200、鳥瞰図、表層水表示)

(3) Type3



図 3.4-13 粒子追跡解析結果(Type3 Stream_1200、平面図)





図 3.4-16 粒子追跡解析結果 (Type3 Stream_1200、鳥瞰図)



図 3.4-17 粒子追跡解析結果(Type3 Stream_1200、平面図、表層水表示)



図 3.4-18 粒子追跡解析結果(Type3 Stream_1200、鳥瞰図、表層水表示)

Appendix ${\rm I\!I}$

環境移行パラメータ

データ集(Cs 編)

1. はじめに

本データ集は、高レベル廃棄物地層処分の安全評価における生活圏における核種移行モデルや 被ばく評価モデルで用いられる環境移行パラメータについて、我が国のデータを中心にまとめた ものである。このような移行パラメータ・データ集は、国際原子力機関(IAEA)の Technical Report Series No.472 [IAEA, 2010] (以降、IAEA TRS 472 [1]という) や No. 422 (IAEA, 2004) [2]等い くつかある。例えば IAEA TRS-364 [3]; IAEA TECDOC-401 [4]; Smith, et. al., NRPB-M148, 1988 [5]; IAEA TRS-247 [6]; Ashton and Sumerling, UKDoE Report No. DoE/RW/88.083 [7]が 挙げられるが、それらはすべて欧米のデータを中心に収集したものであり、我が国のデータにつ いて過去には原子力環境整備センター(現 原子力環境整備促進・資金管理センター)が環境パ ラメータ・シリーズとして 1988 年から 1996 年までに刊行した国内外のデータを広く収集したデ ータ集 [8] [9] [10] [11] [12] [13] [14]、その後 30 年近く経過している。加えて測定技術の進歩に より新たに加わったデータもあるが、最新のデータを取りまとめたものはなかった。そこで令和 5 年度はセシウム(Cs)の環境移行データを収集した。

本データ集では様々な環境移行パラメータを取りまとめており、幾何平均値や、最大値、最小 値など、統計値も掲載している。

1.1 背景

高レベル廃棄物地層処分の安全評価では、地下深部の処分場から放射性核種が地下水により移動し、最終的に人間の生活環境を含む生活圏に到達する事が予想される。したがって、その生活圏における核種移行プロセスとこれによる被ばく経路についてモデル化を行い人間への影響を評価することが必要である。これまで、生活圏における核種移行モデルが提案・開発されてきた(電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構 [15]; NUMO包括的技術報告書 [16])。それらモデルにおいて使用される環境移行パラメータは、前述したように、欧米などで収集されたデータが用いられている(深谷・内田 [17])。しかし、生活圏においては、環境移行パラメータはその地域の環境や人間活動に大きく影響されるため、欧米で収集されたパラメータ値を我が国において用いることができるかどうかは検討する必要がある。特に、元素によって値が異なるパラメータ(元素依存パラメータ)は、環境条件によって大きく変動することが考えられる(高橋ら [18])。

令和5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【地層処分安全評価確 証技術開発(核種移行総合評価技術開発)】」の3つ目のサブプロジェクトである「生活圏にお ける核種移行総合評価技術の開発」の中では「被ばくプロセスモデルで扱う環境移行パラメータ の整理と最新の知見の集約」を課題とし、わが国の風土や農業活動などを反映した移行パラメー タを収集することにより、ユーザーのニーズに対応するデータベース構築を目指すこととしてい る。本課題を進めることにより得られる我が国の環境移行パラメータのデータベースを用いるこ とにより、放射性核種の環境挙動予測の精度が向上し、放射性廃棄物地層処分の安全評価がより 適切なものとなる。

1.2 目的

生活圏評価において、それぞれの核種について適切な環境移行パラメータ値が使われることが 重要である。そのために、我が国のさまざまな生活圏を想定した評価に係るデータの拡充が必要 である。特に元素固有パラメータに関しては、評価に適合するデータを適切に抽出し、パラメー タ値を設定する必要がある。本課題では、現在までに取得された我が国の環境移行パラメータ値 に関する知見・データを整理・蓄積し、ユーザーのニーズに対応するデータベースを作成するこ とを課題として調査・研究を進めている。特に「元素固有」という観点から、令和5年度はセシ ウムの環境移行パラメータに着目することによりデータベースの基本設計を行いつつ、様々な元素についても適用可能な基本レイアウトを作成する。本データ集はデータベース構築作業に並行して収集されたセシウムに関する環境移行パラメータ・データから、重要なパラメータについて 値をとりまとめることを目的としたものである。

1.3 範囲

本データ集では、陸域、淡水域および海域における放射性核種(セシウム)の被ばくプロセス モデルで扱う環境移行パラメータを対象としている。

1.4 構成

本データ集では、

- 各パラメータの定義
- パラメータ値を取りまとめる際のデータの取り扱い
- 各パラメータ値の取りまとめ表

により構成される。

2. パラメータの定義

ここでは、環境移行パラメータの定義についてとりまとめた。各パラメータの名称の和訳については今後変更される可能性がある。放射性核種を取り扱う場合には Bq kg⁻¹等の単位を使うが、環境における挙動が安定元素と平衡になった場合において、安定元素をアナログとして使用することを将来的に検討できるように、安定元素のデータも使用している。この場合には単位あたりの質量(例えば mg L⁻¹, g kg⁻¹)を用い、導出する際には、それぞれの質量単位を一致させて導出することとした。

2.1 単位質量あたりの遮断係数(Mass interception coefficient)

湿性沈着や乾性沈着により植物や土壌の表面へ放射性核種が付着することは、陸域環境や食物 連鎖における放射性核種の始点となりうる。放射性核種の降下時の遮蔽を定量化する方法はいく つかあり、最も単純なものは遮断係数*f(dimensionless)として、*式 2-1 で定義される(IAEA TRS 472[1]式7参照)。

A_i:植物中の初期放射性核種濃度(Bq m⁻²)

A_t:地表面(土壌+植物)の単位面積当たりの放射性核種濃度(総量)(Bq m⁻²)

遮断係数は植物の生長段階に依存することを考慮し、植物地上部 B(kg m⁻², dry mass)を用いて表すこともある。これは質量による遮断係数 f_B (m² kg⁻¹)として、式 2-2 で定義される (IAEA TRS 472 [1] 式 8 参照)。

すなわち、式 2-2 を変化させると式 2-3 となり、IAEA TRS 472 [1]の p. 5 Table 1 の a(Interception coefficient, m² kg⁻¹)と同じ定義になる。

しかし、interception coefficient の説明節(IAEA TRS 472 [1], section 3.1)において、以下のような説明が続く。

葉面は大気と植物の主な接触場となることから、遮断係数は葉面積指数(LAI:Leaf Area Index) で正規化されることがあり、土壌面積に対する葉面積片側の比率として定義されることもある。

Chamberlain と Chadwick [19]は、乾性沈着による遮断係数(式 2-1)を、植物地上部 B と 経験的に導き出された質量あたりの遮断係数に依存するという観点から、式 2-4 で定義している (IAEA TRS 472 [1] 式 9 参照)。

$$f = 1 - \exp(-\alpha B) \qquad \qquad \vec{x} \ 2-4$$

次に、遮断係数のバイオマス依存性を考慮した場合の、質量あたりの遮断係数は式 2-5 で定義 される(IAEA TRS 472 [1] 式 10 参照)。植生が少ない場合では f_B と α にほとんど差はない。

$$f_B = \frac{1 - \exp(-\alpha B)}{B}$$
 $\ddagger 2.5$

2.2 ウェザリング半減期(Weathering half-life)

ウェザリングとは、湿性または乾性沈着後に葉の表面から汚染物質が失われることである。放 射線生態学モデルでは、ウェザリングは通常、一次速度定数 λ_w または、ウェザリング半減期 T_w (day)で特徴づけられる一つの指数関数として、式 2-6 で定義される(IAEA TRS 472 [1] 式 12 参照)。

2.3 転流係数(Translocation factor)

転流とは、植物の地上部に沈着した汚染物質が、直接汚染されていない他の部分に再分配する プロセスのことである。転流係数は、著者によって異なる定義がなされている。ここでは、転流 係数 *f*_{tr}(%)は、地表面の単位面積当たりの作物の可食部の放射性核種濃度(Bq m⁻²)と沈着時の 作物の葉の放射性核種濃度(Bq m⁻²)の比として式 2-7 で定義され、百分率で表される(IAEA TRS 472 [1])。

$$f_{tr} = \frac{作物の可食部の放射性核種濃度(地上面積ベース) (Bq m-2)}{沈着時の作物の葉の放射性核種濃度(Bq m-2)} × 100 式 2-7$$

本データ集では、しかしながら、本定義によるデータが見つからなかった。そこで、転流割合 として次式を採用した。

$$R_{tr} = \frac{作物の可食部の放射性核種濃度 (Bq kg^{-1})}{汚染葉の放射性核種濃度 (Bq kg^{-1})}$$

2.4 再浮遊係数(Resuspension factor)

再浮遊とは、以前に放射性核種が沈着した土壌や植物表面等に沈着した放射性核種が風の作用 によって大気中に再放出されるプロセスである。再浮遊係数 $K(m^{-1})$ は、土壌/植物表面上の体積 空気中濃度($C_v(t)$, Bq m⁻³)の初期表面土壌濃度($C_{s,0}$, Bq m⁻²)に対する比率として、式 2-8 で 定義される(IAEA TRS 472 [1]式 13 参照)。

2.5 分配係数(Solid-liquid distribution coefficient)

2.5.1 土壌の分配係数(Soil-soil solution distribution coefficient)

固相への放射性核種の収着の程度は、分配係数 K_d を用いて定量化されることが多い。 K_d (Lkg^{-1}) は、土壌中の固相に収着した放射性核種の濃度と液相中の放射性核種濃度の比として、 式 2-9 で定義される(IAEA TRS 472 [1] 式 17 参照)。 K_d アプローチでは収着メカニズムを明 確にしたものではないが、固相上の放射性核種は液相中の放射性核種と平衡状態にあり、これら の相間の交換は可逆的であると仮定している。

$$K_{d} = \frac{\pm \ { \basel{stable}} \ { \baseles} \ { \basells} \ { \baselstable}} \ { \baseles} \ { \base$$

放射性核種によっては収着メカニズムに関与する重要な土壌特性が示されていることがあり、 それを用いてK_a値のグループ化に使用することができる。土質や有機物含有率などの基本的な特 性に基づいているとわかっている場合、これらに基づいて分類することで、パラメータ値のばら つきを低減することができる。

2.5.2 淡水域における分配係数(Particulate phase-water distribution coefficient)

淡水域における分配係数K_aは、浮遊物質もしくは堆積物中の放射性核種濃度と水中の放射性核 種の濃度の比として式 2-10 で定義される [20]。

$$K_d(L kg^{-1}) = \frac{浮遊物質もしくは堆積物中の放射性核種濃度(Bq kg^{-1})}{水中の放射性核種濃度(Bq L^{-1})}$$
式 2-10

・水中の放射性核種濃度は可溶性成分(通常 0.2 もしくは 0.45 µm フィルター通過成分)

2.5.3 海域における分配係数(Sediment-seawater distribution coefficient)

海域における分配係数 K_d (L kg⁻¹) は、堆積物中の放射性核種濃度 (Bq kg⁻¹) と水中の放射性 核種の濃度 (Bq L⁻¹) の比として式 2-11 で定義される (IAEA TRS-422(2004) [2]参照)。

$$K_{d} = \frac{ 堆積物中の放射性核種濃度 (Bq kg^{-1})}{ 水中の放射性核種濃度 (Bq L^{-1})}$$
式 2-11

・水中の放射性核種濃度は可溶性成分

一方、IAEA TRS-422(2004) [2]では、安定元素を用いて分配係数を算出する方法および分配係数値をまとめている。算出式を式 2-11'に示す。

$$K_{d} = \frac{ 堆積物中の安定元素濃度 (Bq kg^{-1})}{ 水中の安定元素濃度 (Bq L^{-1})}$$
式 2-11'

ここで、IAEA TRS-422(2004) [2]によると、堆積物中の総元素量の 10%(外洋: Open ocean *K_d*) または 20%(沿岸域: Ocean margin *K_d*)が交換態として存在していると仮定している。

2.6 土壌から植物への移行係数(Transfer factors)

土壌から植物や農作物への放射性核種の移行係数F_v は、植物中の放射性核種濃度(乾燥重また は湿重量あたりの濃度)と対応する土壌中の放射性核種濃度(乾燥重濃度)の比として、式 2-12 で定義される(IAEA TRS 472 [1] 参照)。農作物は収穫後水分が急激に減少するものがあり、し たがってより安定した値を使用するために、IAEA TRS-472 [1]でも乾燥重あたりでの報告になっ ている。しかしながら、緊急時や実用的には実際に調理する際に用いられる湿重量での値が好ま しく、そのためどちらのケースも報告がある。このパラメータは基本的に unit がない (dimensionless)が、乾湿によって値が1桁ほども違ってしまうこともあるため、植物の乾湿情 報が記載されていない場合にはデータ集への登録をしない。

$$F_{v} = \frac{植物中の放射性核種濃度 (Bq kg^{-1}, dry weight or wet weight)}{± 壌中の放射性核種濃度 (Bq kg^{-1}, dry weight)}$$
式 2-12

2.7 畜産物への移行係数(Transfer coefficient)

畜産物への移行係数は、乳または肉への放射性核種の移行を定量化するために、畜産物中の放射性核種濃度と、1日あたりの放射性核種の摂取量の比として定義される。乳への移行係数 F_m (d L⁻¹ or d kg⁻¹)は式 2-13 で、肉への移行係数 F_f (d kg⁻¹)は式 2-14 で定義される。

$$F_{m} = \frac{ 畜産物 (乳) 中の放射性核種濃度 (Bq L-1 or Bq kg-1)}{1 日あたりの放射性核種の摂取量 (Bq d-1)}$$
式 2-13
$$F_{f} = \frac{ 畜産物 (肉) 中の放射性核種濃度 (Bq kg-1)}{1 日あたりの放射性核種の摂取量 (Bq d-1)}$$
式 2-14

また、植物(牧草等)から畜産物への移行を定量化する別の方法として、濃縮係数(CR: Concentration ratio)がある。CR 値は移行係数(F_f または F_m)の値に 1 日の食餌摂取量(kg d⁻¹)を乗じて導出することができる(式 2-15)。このパラメータは unit がない(dimensionless)。

$$CR(-) = F_{f or m} (d kg^{-1}) \times 1 \square b b c b の 食餌摂取量 (kg d^{-1}) 式 2.15$$

2.8 面積当たりの移行係数(Aggregated transfer factor)

林産物または狩猟動物への単位面積あたりの移行係数Tagは、以下の式 2-16 で定義される。

$$T_{ag} = \frac{k 産物または狩猟動物の放射性核種濃度 (Bq kg-1, dry weight)}{面積当たりの放射性核種量 (Bq m-2)}$$
式 2-16

2.9 水と水生生物間の濃縮係数(Concentration ratio)

水と水生生物間の濃縮係数 *CR* (Lkg⁻¹, fresh weight) は、水生生物の部位の放射性核種濃度に 対する水中の放射性核種の濃度の比として式 2-17 で定義される。

$$CR = \frac{$$
水生生物の部位中の放射性核種濃度 (Bq kg⁻¹, fresh weight)} 水中の放射性核種濃度 (Bq L⁻¹) 式 2-17

・水中の放射性核種濃度は可溶性成分

3. 各パラメータの数表(統計値)

各パラメータの統計値を数表として本節にまとめた。なお、統計値に関する留意点を以下に箇 条書きで記す。

- ・ 統計値はパラメータ値を有効数字3桁(4桁目を四捨五入)に揃えたうえで算出した。数 表には3桁目を四捨五入した有効数字2桁で記載する。
- ・ 各パラメータの統計値は、IAEA TRS 472 [1]を参考として、幾何平均値、幾何標準偏差、 最小値、最大値を記載した。ただし幾何平均値については、分類後のデータ数 N が 1 の場 合はそのデータの値、N が 2 の場合は算術平均値、N が 3 以上の場合は幾何平均値を記載 した。ただし、以下に示すパラメータの統計値の記載は異なる。
- ウェザリング半減期の統計値は、IAEA TRS 472 [1] Table 6 を参考に、算術平均値と最小 値、最大値を表示する事とした。また、あわせて標準偏差を表示する。
- ・ 畜産物の濃縮係数の統計値は、IAEA TRS 472 [1] Table 29,36 を参考に、算術平均値と標準偏差、最小値、最大値を表示する。

3.1 単位質量あたりの遮断係数の数表

Cs の単位質量あたりの遮蔽係数 f_B の値を表 3·1 に示す。IAEA TRS 472 [1]に示されている Cs のデータ (wet deposition で 0.5·5.5 m² kg⁻¹) よりも幾何平均値は低かった。

表 3-1 CSの単位員重めたりの遮め係数 /B(IIF Kg)								
Crop Type	N	幾何 幾何		是小庙	县十位			
	IN	平均值	標準偏差	取小胆	取八胆			
Leaf	15	1.3×10 ⁻¹	2.7×10^{0}	2.0×10 ⁻²	7.2×10 ⁻¹			
Leaf 以外*	4	5.3×10 ⁻²	2.0×10^{0}	2.0×10 ⁻²	1.2×10 ⁻¹			

表 3-1 Csの単位質量あたりの遮断係数 f_B (m² kg⁻¹)

* Flowering head, Head, Leaf stalk, Shoot

3.2 ウェザリング半減期の数表

Csのウェザリング半減期 Twの値を表 3-2 に示す。福島第一原子力発電所の事故 (Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident, FDNPP と記す)の際に観察されたデータも示した。IAEA TRS 472 [1]に示されている Cs のデータ (10-35 d) よりも FDNPP の結果は短い傾向であった。

放出源	植物	Outdoor /Indoor	N	数值*	標準偏差	最小値	最大値
	Broccoli	Outdoor	1	11	-	-	-
Chernobyl nuclear	Mugwort	Outdoor	4	15	2.2	13	18
accident	Pasture grass	Outdoor	27	14	10	3.1	54
	Spinach	Outdoor	2	11	5.0	7.7	15
	Broccoli	Outdoor	1	7.8	-	-	-
	Crown daisy	Indoor	1	12	-	-	-
	Giant butterbur	Outdoor	1	8.6	-	-	-
	Kakina	Outdoor	1	11	-	-	-
FDNPP	Kukitachina	Outdoor	1	3.2	-	-	-
	Parsley	Indoor	3	15	6.2	10	22
	Shinobufuyuna	Outdoor	1	7.8	-	-	-
	Suring th	Indoor	1	2.1	-	-	-
	Spinach	Outdoor	4	8.4	1.7	6.5	11

表 3-2 Csのウェザリング半減期 T_w(d)

*N=1の場合はそのデータの値、Nが2以上の場合は算術平均値

3.3 転流割合の数表

植物内の汚染部位から非汚染部位へのCsの転流割合 Rtrの値を表 3-3に示す。

	表 3-3	Cs の転流	割合 R _{tr}		
English name	N	幾何 平均値	幾何 標準偏差	最小値	最大値
Giant butterbur	7	6.9×10 ⁻²	1.0×10 ¹	4.7×10 ⁻³	9.5×10 ⁻¹
Tea	58	1.1×10^{0}	1.8×10^{0}	9.0×10 ⁻²	2.6×10 ⁰
その他の木*	9	3.2×10 ⁻¹	1.8×10^{0}	9.4×10 ⁻²	8.1×10 ⁻¹

* Red robin, Fragrant orange-colored olive, Azalea, Camellia and Japanese aralia

3.4 再浮遊係数の数表

地表面に沈着した Cs の再浮遊係数 Kの値について、まとめを表 3-4 に、また各詳細データに ついては表 3-5 に示す。IAEA TRS 472 [1]には数表の報告はない。

	表 3-4	Cs の再浮遊係	系数 <i>K</i> (m⁻¹)		
放出源	N	幾何	幾何	县小庙	县十位
(放出開始日)	IN	平均值	標準偏差	取小胆	取八個
Chernobyl 1986/4/26	170	5.5×10 ⁻⁹	1.2×10 ¹	1.0×10 ⁻¹¹	2.1×10 ⁻⁶
FDNPP 2011/3/11	17	5.9×10 ⁻⁹	6.4×10 ⁰	5.7×10 ⁻¹¹	1.0×10 ⁻⁷

放出開始	国		N	数值*	幾何 標準偏差	最小値	最大値
		Chilton	8	2.7×10 ⁻⁸	2.2×10 ⁰	7.5×10 ⁻⁹	6.0×10 ⁻⁸
		Compton	6	2.2×10 ⁻⁸	3.4×10 ⁰	6.1×10 ⁻⁹	2.8×10-7
		Conlig	6	9.6×10 ⁻¹⁰	1.8×10^{0}	5.0×10 ⁻¹⁰	3.0×10-9
1		Eskdalemuir	6	2.3×10 ⁻⁹	2.4×10^{0}	1.0×10 ⁻⁹	1.2×10 ⁻⁸
	イギリス	Eskmeals	3	9.1×10 ⁻⁹	2.1×10^{0}	3.1×10-9	1.6×10 ⁻⁸
		Harwell	5	2.2×10 ⁻⁷	4.5×10^{0}	3.5×10 ⁻⁸	1.3×10 ⁻⁶
		Haven	4	5.0×10 ⁻⁸	1.3×10^{0}	4.0×10 ⁻⁸	8.0×10 ⁻⁸
		Lerwick	7	2.2×10 ⁻¹⁰	2.1×10^{0}	1.0×10 ⁻¹⁰	6.0×10 ⁻¹⁰
		Orfordness	7	2.3×10 ⁻⁸	2.8×10^{0}	5.5×10 ⁻⁹	9.4×10 ⁻⁸
1986/4/26		Tromso	1	1.5×10 ⁻⁸	-	-	-
	イタリア	Ispra	2	5.2×10 ⁻⁹	-	4.5×10-9	5.9×10 ⁻⁹
		Beach-Pripyat	1	2.2×10 ⁻¹⁰	-	-	-
		Chernobyl	29	3.0×10 ⁻⁹	8.7×10^{0}	8.0×10 ⁻¹¹	2.0×10-7
		Kiev	3	1.2×10-9	2.0×10^{0}	5.0×10 ⁻¹⁰	2.5×10-9
	ウクライオ	Kopachi	6	2.6×10-9	4.7×10 ¹	1.1×10 ⁻¹⁰	5.9×10 ⁻⁷
	9974)	Korogod	2	7.6×10 ⁻⁸	-	4.2×10 ⁻⁸	1.1×10 ⁻⁷
		Kovali	1	6.3×10 ⁻¹⁰	-	-	-
		Lelev	2	2.4×10-7	-	5.2×10 ⁻⁸	4.2×10-7
		Mikulichi	1	3.1×10 ⁻¹⁰	-	-	-

表 3-5 測定場所別 Csの再浮遊係数 K (m⁻¹)

放出開始	玉		N	数値*	幾何 標準偏差	最小値	最大値
		Opachichi	2	1.7×10 ⁻⁷	-	1.3×10 ⁻⁷	2.1×10 ⁻⁷
		Pripyat	2	4.3×10 ⁻⁸	-	9.0×10 ⁻⁹	7.7×10 ⁻⁸
		Pripyat-Beach	3	3.9×10 ⁻¹¹	2.7×10^{0}	1.0×10 ⁻¹¹	1.0×10 ⁻¹⁰
		Yampol	2	1.1×10 ⁻⁷	-	5.9×10 ⁻⁸	1.6×10 ⁻⁷
		Zalecie	2	1.2×10 ⁻⁷	-	6.8×10 ⁻⁸	1.7×10 ⁻⁷
		Zapolie	11	5.1×10-9	1.2×10 ¹	2.0×10 ⁻¹⁰	1.0×10 ⁻⁷
		Zapolye	1	4.4×10 ⁻¹⁰	-	-	-
		Zimovitshe	2	8.1×10 ⁻⁷	-	4.2×10 ⁻⁷	1.2×10 ⁻⁶
		Bregenz	1	5.3×10-9	-	-	-
	オーストリア	Klagenfurt	1	3.6×10-9	-	-	-
		Vienna	1	1.3×10 ⁻⁸	-	-	-
デンマーク	Bornholm	3	1.5×10 ⁻⁸	2.3×10^{0}	4.5×10 ⁻⁹	3.1×10 ⁻⁸	
	1 2 4 - 1	Riso	3	1.5×10 ⁻⁸	2.3×10 ⁰	4.5×10-9	3.1×10 ⁻⁸
	Berlin	3	2.0×10 ⁻⁸	1.8×10^{0}	8.5×10-9	3.5×10 ⁻⁸	
		Braunschweig	3	1.2×10 ⁻⁸	2.4×10^{0}	3.7×10-9	2.8×10 ⁻⁸
	ドイツ	Hannover	1	2.1×10 ⁻⁶	-	-	-
		Neuherberg	3	3.7×10-9	2.0×10^{0}	1.4×10-9	7.4×10 ⁻⁹
		Nürnberg	13	4.1×10 ⁻¹⁰	3.2×10^{0}	1.3×10 ⁻¹⁰	6.4×10 ⁻⁹
		Skibotn	3	2.7×10 ⁻⁸	1.4×10^{0}	1.7×10 ⁻⁸	3.5×10 ⁻⁸
	ノルリェー	Tromso	2	1.2×10 ⁻⁸	-	9.7×10-9	1.5×10 ⁻⁸
	フィンランド	Nurmijärvi	3	6.7×10 ⁻⁹	1.7×10^{0}	3.2×10 ⁻⁹	1.0×10 ⁻⁸
	ポーランド	Warsaw	3	9.3×10 ⁻⁹	1.7×10^{0}	4.5×10-9	1.5×10 ⁻⁸
	ロシア	Novozybkov	2	1.1×10-9	-	7.7×10 ⁻¹⁰	1.4×10-9
		つくば	4	6.5×10-9	2.8×10^{0}	1.5×10-9	1.8×10 ⁻⁸
2011/2/11		富岡	9	1.3×10 ⁻⁸	4.4×10^{0}	5.6×10 ⁻¹⁰	1.0×10-7
2011/3/11	日本	福島県郡山市	2	5.5×10-9	-	1.0×10-9	1.0×10 ⁻⁸
		浪江	2	4.6×10 ⁻¹⁰	-	5.7×10 ⁻¹¹	8.6×10 ⁻¹⁰

*N=1の場合はそのデータの値、N=2の場合は算術平均値、N>2の場合は幾何平均値

3.5 分配係数の数表

3.5.1 土壌の分配係数の数表

日本における Stable Cs および Cs-134、Cs-137 の分配係数 K_aの値をそれぞれ表 3-6 および 表 3-7 に示す。また表 3-7 の adsorption - Paddy field - 灰色低地土の統計値算出に用いたパラ メータ値 (N=31) のデータ分布図 (正規確率プロット)を図 3-1 に示す。左図が元のパラメータ 値の正規確率、右図が対数変換したパラメータ値の正規確率である。この結果から、データは対 数正規分布していることから、データを取りまとめるにあたっては算術平均値を用いるよりも幾 何平均値を用いる方が現実的であるといえる。そのため、表 3-6 および 3-7 では幾何平均値を掲 載している。他のパラメータ値についても、データの分布を考慮して取りまとめを行っている。

Sorption type	Soil sampling field	Soil type*	N	幾何 平均値	幾何 標準偏差	最小値	最大値
adsorption	その他	表示なし	31	2.5×10^{2}	2.5×10^{0}	6.3×10 ¹	2.0×10 ³
		グライ低地土	24	3.7×10 ⁴	2.0×10^{0}	9.1×10 ³	1.5×10 ⁵
		黄色土	4	2.3×10^{4}	1.3×10^{0}	1.4×10^{4}	3.1×10 ⁴
		灰色低地土	32	3.2×10^{4}	1.9×10^{0}	7.4×10 ³	1.1×10 ⁵
	Doddy field	褐色低地土	7	7.0×10^{4}	3.0×10^{0}	1.4×10^{4}	4.4×10 ⁵
	Paddy field	黒ボク土	6	1.4×10^{4}	1.5×10^{0}	7.7×10^{3}	2.4×10^{4}
		多湿黒ボク土	7	2.2×10^{4}	2.1×10^{0}	7.6×10 ³	6.3×10 ⁴
		低地水田土	10	2.9×10^{4}	1.9×10^{0}	1.0×10^{4}	8.7×10^{4}
		その他	8	3.5×10^{4}	1.7×10^{0}	1.5×10^{4}	7.8×10^{4}
desamption		グライ低地土	13	1.3×10 ⁵	4.0×10^{0}	1.6×10^{4}	1.1×10^{6}
desorption		黄色土	12	9.7×10^{4}	3.8×10^{0}	7.8×10^{3}	7.9×10 ⁵
		灰色低地土	19	8.4×10^{4}	2.5×10^{0}	1.7×10^{4}	5.8×10 ⁵
		褐色森林土	9	5.7×10^{4}	3.2×10^{0}	8.1×10 ³	6.6×10 ⁵
	Upland field	褐色低地土	9	1.4×10 ⁵	3.1×10^{0}	8.1×10 ³	3.7×10 ⁵
		黒ボク土	44	3.0×10^{4}	2.8×10^{0}	5.9×10 ³	3.3×10 ⁵
		多湿黒ボク土	12	4.1×10^{4}	3.1×10^{0}	9.3×10 ³	6.9×10 ⁵
		低地水田土	8	2.3×10 ⁵	3.1×10^{0}	3.3×10 ⁴	9.1×10 ⁵
		その他	13	1.4×10 ⁵	7.8×10^{0}	3.5×10 ³	1.5×10^{6}
	その他	表示なし	8	1.0×10 ³	3.0×10^{0}	7.5×10^{1}	2.4×10 ³

表 3-6 Stable Cs の土壌の分配係数 K_d (L kg⁻¹)

*表示なし:情報が掲載されていなかった試料

表 3-7 Cs-134, Cs-137の土壌の分配係数 K_d (L kg⁻¹)

Sorption type	Soil sampling field	Soil type*	N	幾何 平均値	幾何 標準偏差	最小値	最大値
adsorption	Paddy field	グライ低地土	22	2.8×10 ³	2.4×10^{0}	2.7×10 ²	9.4×10 ³
		黄色土	4	2.3×10 ³	1.3×10^{0}	1.5×10 ³	3.4×10 ³
		灰色低地土	31	3.8×10 ³	2.6×10 ⁰	7.7×10^{2}	2.9×10 ⁴

		褐色低地土	7	3.4×10 ³	2.7×10^{0}	6.8×10^{2}	1.7×10^{4}
		黒ボク土	5	1.3×10 ³	2.0×10^{0}	3.4×10 ²	2.8×10 ³
		多湿黒ボク土	6	1.2×10 ³	2.7×10^{0}	4.4×10 ²	7.1×10 ³
		低地水田土	10	3.3×10 ³	2.4×10 ⁰	7.7×10 ²	1.1×10^{4}
		その他	8	2.8×10 ³	3.5×10^{0}	5.7×10 ²	5.0×10 ⁴
		表示なし	18	7.6×10 ²	2.9×10 ⁰	1.3×10 ²	6.7×10 ³
		グライ低地土	13	6.3×10 ³	2.2×10^{0}	1.9×10 ³	2.2×10^{4}
	黄色土	12	6.8×10 ³	2.5×10^{0}	9.8×10 ²	3.2×10 ⁴	
	灰色低地土	19	8.3×10 ³	2.6×10 ⁰	7.3×10 ²	4.1×10 ⁴	
		褐色森林土	9	2.7×10 ³	2.1×10^{0}	1.2×10 ³	1.2×10^{4}
	Upland field	褐色低地土	9	5.4×10 ³	2.8×10^{0}	5.0×10 ²	1.4×10 ⁴
		黒ボク土	44	3.7×10 ³	2.4×10 ⁰	7.0×10 ²	3.6×10 ⁴
		多湿黒ボク土	12	4.3×10 ³	3.2×10 ⁰	7.5×10 ²	2.2×10 ⁴
		低地水田土	8	6.8×10 ³	3.0×10 ⁰	1.3×10 ³	3.0×10 ⁴
		その他	13	5.8×10 ³	4.3×10 ⁰	3.6×10 ²	2.4×10 ⁴
	その他	表示なし	47	1.6×10 ³	4.4×10^{0}	6.8×10 ¹	1.4×10^{4}
desorption -	Paddy field	表示なし	17	8.8×10 ³	4.7×10 ⁰	8.3×10 ²	7.6×10 ⁴
	その他	表示なし	67	6.8×10 ³	5.0×10 ⁰	2.7×10 ²	1.8×10 ⁵

*表示なし:情報が掲載されていなかった試料





3.5.2 淡水域における分配係数の数表

淡水域における堆積物に対する Cs の分配係数 K_d の値を表 3-8 に示す。FDNPP 事故以前に実 測の K_d 報告値はない。IAEA TRS 472 [1]では浮遊粒子状物質に対する K_d を報告しており、実環 境中の測定値(幾何平均値)として 2.9×10⁴ L kg⁻¹であった。

	X					
Field	River system or lake name	N	幾何 平均値	幾何 標準偏差	最小値	最大値
Lake	はやま湖 (真野ダム)	115	6.5×10 ⁴	2.4×10 ⁰	8.0×10 ³	3.6×10 ⁵
	秋元湖	92	4.9×10 ⁴	3.2×10^{0}	8.3×10 ²	6.1×10 ⁵
	猪苗代湖	79	1.5×10 ⁴	3.0×10^{0}	7.1×10^{2}	1.6×10 ⁵
	阿武隈川水系	189	1.1×10^{4}	3.1×10^{0}	2.1×10^{1}	1.8×10 ⁵
	宇多川	112	1.4×10^{4}	2.1×10^{0}	1.2×10^{3}	5.1×10^{4}
River	新田川	117	1.0×10^{4}	3.9×10^{0}	4.4×10^{2}	2.0×10^{5}
	真野川	119	1.2×10^{4}	2.1×10^{0}	1.1×10 ³	5.8×10^{4}
	太田川	91	9.1×10 ³	2.0×10^{0}	1.5×10 ³	7.1×10^{4}

表 3-8 Csの淡水域における分配係数 K_d (L kg⁻¹)

3.5.3 海域における分配係数の数表

海域における Cs-137 および Stable Cs の分配係数 K_d の値をそれぞれ表 3-9 および表 3-10 に示す。表 3-9 の結果は主に環境放射線モニタリングデータから導出された値である。

表 3-9 Cs-137 の海域における分配係数 K_d (L kg⁻¹)

都道府県	場所	Ν	数値*	幾何 標準偏差	最小値	最大値
	岩内沖	9	2.8×10^{2}	1.4×10^{0}	1.6×10^{2}	4.0×10^{2}
	神恵内沖	8	2.5×10^{2}	1.2×10^{0}	2.0×10^{2}	3.0×10^{2}
北海道	泊沖	17	2.4×10^{2}	1.6×10^{0}	1.1×10^{2}	8.7×10^{2}
	泊村沖	12	2.2×10^{2}	1.6×10^{0}	1.1×10^{2}	$7.5 imes 10^{2}$
	堀株村沖	3	2.6×10^{2}	1.6×10^{0}	1.3×10^{2}	3.7×10^{2}
	むつ市沖	5	9.5×10^{1}	1.3×10^{0}	7.1×10^{1}	1.5×10^{2}
	深浦沖	6	2.9×10^{2}	1.3×10^{0}	2.2×10^{2}	4.7×10^{2}
青森県	八戸沖	7	3.2×10^{2}	2.0×10^{0}	1.1×10^{2}	8.4×10^{2}
	陸奥湾	44	1.4×10^{3}	2.0×10^{0}	8.8×10^{1}	4.2×10^{3}
	六ヶ所沖	4	2.3×10^{2}	2.3×10^{0}	7.4×10^{1}	5.2×10^{2}
岩手県	九戸郡種市町沖	4	1.0×10^{2}	1.1×10^{0}	8.9×10^{1}	1.1×10^{2}
	塩竃湾	5	4.9×10^{2}	1.5×10^{0}	2.8×10^{2}	7.6×10^{2}
	気仙沼湾	3	1.7×10^{3}	1.4×10^{0}	1.1×10^{3}	2.3×10^{3}
宮城県	鮫ノ浦湾	50	5.7×10^{2}	1.5×10^{0}	2.2×10^{2}	1.1×10^{3}
	女川沖	22	2.4×10^{2}	1.3×10^{0}	1.4×10^{2}	3.8×10^{2}
	女川沖口	24	1.8×10^{2}	1.6×10^{0}	6.7×10^{1}	4.5×10^{2}

都道府県	場所	Ν	数值*	幾何 標準偏差	最小値	最大値
	女川湾	3	1.5×10^{2}	1.7×10^{0}	8.9×10 ¹	3.1×10 ²
	原釜沖	32	2.1×10^{2}	1.9×10^{0}	7.9×10^{1}	1.1×10^{3}
	請戸沖	3	8.8×10^{1}	2.0×10^{0}	5.2×10^{1}	2.4×10^{2}
	双葉・大熊沖	39	1.2×10^{2}	1.6×10^{0}	4.0×10^{1}	4.3×10^{2}
	長者原沖	4	1.2×10^{2}	1.6×10^{0}	5.9×10 ¹	2.1×10^{2}
福島県	夫沢・熊川沖	2	9.6×10 ¹	-	8.7×10^{1}	1.1×10^{2}
	富岡・楢葉沖	29	1.4×10^{2}	1.6×10^{0}	6.3×10^{1}	3.9×10^{2}
	福島第1海域	40	5.9×10^{2}	1.3×10^{0}	2.2×10^{2}	8.1×10^{2}
	福島第2海域	44	6.1×10^{2}	1.2×10^{0}	4.8×10^{2}	9.3×10^{2}
	浪江・小高沖	19	2.0×10^{2}	1.5×10^{0}	1.0×10^{2}	5.0×10^{2}
	阿字ヶ浦沖	5	1.3×10^{2}	1.6×10^{0}	6.3×10^{1}	2.1×10^{2}
	磯崎沖	14	1.9×10^{2}	1.6×10^{0}	1.0×10^{2}	7.7×10^{2}
	久慈沖	7	2.0×10^{2}	1.4×10^{0}	1.3×10^{2}	3.5×10^{2}
茨城県	大洗沖	27	1.8×10^{2}	1.3×10^{0}	1.0×10^{2}	3.8×10^{2}
	東海沖	98	1.6×10^{2}	1.6×10^{0}	6.7×10^{1}	4.9×10^{2}
	那珂湊沖	8	1.5×10^{2}	1.5×10^{0}	8.8×10^{1}	3.2×10^{2}
	平磯沖	2	2.0×10^{2}	-	1.4×10^{2}	2.7×10^{2}
イボロ	袖ヶ浦沖	3	1.9×10^{3}	1.1×10^{0}	1.7×10^{3}	2.1×10^{3}
十来県	東京湾	17	1.5×10^{3}	1.2×10^{0}	1.0×10^{3}	2.1×10^{3}
	横須賀港	44	1.2×10^{3}	1.2×10^{0}	8.1×10^{2}	1.8×10^{3}
	横須賀港10号バース	2	1.4×10^{3}	-	1.3×10^{3}	1.5×10^{3}
	横須賀港12号バース	17	1.3×10^{3}	1.2×10^{0}	8.4×10^{2}	1.7×10^{3}
神奈川県	横須賀港6号ドック	42	1.3×10^{3}	1.2×10^{0}	9.2×10^{2}	2.0×10^{3}
	横須賀港沖泊り	1	8.1×10^{2}	-	-	-
	横浜沖	25	8.7×10^{2}	1.4×10^{0}	4.0×10^{2}	1.3×10^{3}
	小田和湾	45	8.6×10^{2}	1.3×10^{0}	5.1×10^{2}	1.5×10^{3}
立L) 江日	新潟沖	13	3.6×10^{2}	2.6×10^{0}	9.2×10^{1}	2.4×10^{3}
新為県	日和山沖	10	2.2×10^{2}	2.1×10^{0}	8.4×10^{1}	1.3×10^{3}
石川県	富来沖	2	2.0×10^{2}	-	1.7×10^{2}	2.3×10^{2}
	浦底沖	2	7.8×10^{2}	-	5.0×10^{2}	1.1×10^{3}
	浦底湾	42	8.9×10^{2}	1.4×10^{0}	4.7×10^{2}	1.8×10^{3}
	高浜沖	7	3.8×10^{2}	1.4×10^{0}	2.0×10^{2}	5.4×10^{2}
福井県	丹生湾	3	3.8×10^{2}	1.4×10^{0}	2.7×10^{2}	5.7×10^{2}
-	敦賀沖	10	7.5×10^{2}	2.1×10^{0}	3.4×10^{2}	5.5×10^{3}
	敦賀湾	1	9.6×10 ²	-	-	-
	美浜沖	6	9.9×10 ¹	2.0×10^{0}	4.6×10 ¹	3.8×10 ²
	遠州灘	14	2.8×10^{2}	1.3×10^{0}	1.7×10^{2}	4.9×10^{2}
静尚県	御前崎沖	20	6.1×10 ²	1.2×10^{0}	4.6×10^{2}	8.3×10^{2}

表 3-9 Cs-137の海域における分配係数 K_d (L kg⁻¹)
都道府県	場所	N	数値*	幾何 標準偏差	最小値	最大値
	高松沖	4	3.1×10^{2}	1.3×10^{0}	2.4×10^{2}	4.2×10^{2}
	駿河湾	2	5.1×10^{2}	-	5.1×10^{2}	5.1×10^{2}
	沼津沖	2	2.2×10^{3}	-	2.2×10^{3}	2.2×10^{3}
	大東沖	4	3.0×10^{2}	1.3×10^{0}	2.4×10^{2}	3.9×10^{2}
	浜岡沖	10	1.7×10^{2}	1.4×10^{0}	9.6×10 ¹	2.8×10^{2}
	伊勢湾	12	1.1×10 ³	1.4×10^{0}	6.7×10^{2}	2.7×10^{3}
愛知県	三河湾	8	1.2×10^{3}	1.3×10^{0}	8.6×10^{2}	2.0×10^{3}
	小鈴谷沖	61	9.8×10^{2}	2.0×10^{0}	1.4×10^{2}	4.0×10^{3}
	伊根沖	3	8.3×10^{2}	1.2×10^{0}	7.4×10^{2}	1.0×10^{3}
	宮津湾	4	1.3×10^{3}	1.2×10^{0}	1.0×10^{3}	1.8×10^{3}
 	若狭湾	48	9.0×10^{2}	1.2×10^{0}	4.7×10^{2}	1.3×10^{3}
	無双鼻沖	4	1.4×10 ³	1.4×10^{0}	1.1×10 ³	2.4×10^{3}
大阪府	大阪湾	43	1.7×10^{3}	1.6×10^{0}	5.2×10^{2}	4.6×10^{3}
兵庫県	神戸沖	21	8.3×10^{2}	1.5×10^{0}	4.2×10^{2}	1.9×10^{3}
	鹿島町沖	15	1.2×10^{2}	1.7×10^{0}	5.2×10^{1}	4.4×10^{2}
島根県	手結沖	6	2.6×10^{2}	1.6×10^{0}	1.5×10^{2}	6.3×10^{2}
	輪谷沖	15	1.3×10^{2}	1.5×10^{0}	7.4×10^{1}	3.5×10^{2}
広島県	広島湾	10	1.1×10^{3}	1.6×10^{0}	5.9×10^{2}	2.6×10^{3}
	阿知須町沖	36	1.1×10 ³	1.4×10^{0}	2.0×10^{2}	2.5×10^{3}
山口県	秋穂町沖	5	2.0×10^{2}	1.5×10^{0}	1.1×10^{2}	3.4×10^{2}
愛媛県	平碆沖	188	3.9×10 ²	1.3×10^{0}	1.6×10^{2}	7.7×10^{2}
	博多湾	8	6.8×10^{2}	1.7×10^{0}	3.3×10^{2}	2.2×10^{3}
备闻乐	門司沖	43	8.5×10^{2}	1.5×10^{0}	3.6×10^{2}	2.5×10^{3}
	伊万里湾	5	1.6×10^{3}	1.4×10^{0}	9.6×10 ²	2.2×10^{3}
	外津浦	12	1.7×10^{2}	1.3×10^{0}	1.1×10^{2}	2.5×10^{2}
佐賀県	値賀崎沖	14	1.4×10^{2}	1.6×10^{0}	2.7×10^{1}	2.5×10^{2}
	八田浦	5	1.7×10^{2}	1.1×10^{0}	1.5×10^{2}	2.1×10^{2}
	有明海	5	1.2×10^{3}	1.2×10^{0}	8.8×10^{2}	1.5×10^{3}
	佐世保港	38	1.6×10^{3}	1.2×10^{0}	1.1×10^{3}	2.5×10^{3}
長崎県	佐世保港沖泊り	1	1.7×10^{3}	-	-	-
	長崎湾	20	6.9×10 ²	1.5×10^{0}	2.1×10^{2}	1.7×10^{3}
	加世田市沖	16	1.8×10^{2}	1.8×10^{0}	7.9×10^{1}	6.8×10^{2}
由旧白旧	久見崎沖	80	4.1×10^{2}	1.9×10^{0}	8.2×10^{1}	1.0×10^{3}
	川内市沖	1	1.1×10^{2}	-	-	-
	南さつま市万之瀬川沖	4	1.3×10^{2}	1.2×10^{0}	1.0×10^{2}	1.7×10^{2}
沖縄県	金武中城港	16	2.8×10^{2}	1.4×10^{0}	1.7×10^{2}	4.8×10^{2}
全域		1694	4.7×10^{2}	2.5×10^{0}	2.7×10 ¹	5.5×10 ³

表 3-9 Cs-137の海域における分配係数 K_d (L kg⁻¹)

都道府県	場所	N	数値*	幾何 標準偏差	最小値	最大値
北海洋	石狩川 河口域	3	3.7×10 ³	1.3×10^{0}	2.6×10 ³	5.1×10 ³
北御旭	湧別川 河口域	3	2.6×10 ³	1.3×10^{0}	2.1×10 ³	3.8×10 ³
青森県	馬淵川 河口域	3	1.3×10 ³	1.1×10^{0}	1.1×10 ³	1.5×10 ³
宮城県	北上川 河口域	3	1.9×10 ³	1.1×10^{0}	1.7×10 ³	2.3×10 ³
秋田県	米代川河口域からその沖合	4	1.8×10 ³	1.2×10^{0}	1.3×10 ³	2.2×10 ³
山形県	最上川 河口域	3	1.7×10^{3}	1.1×10^{0}	1.5×10 ³	1.9×10 ³
茨城県	那珂 河口域	10	1.4×10 ³	1.6×10^{0}	5.4×10 ²	2.9×10 ³
神奈川県	相模川 河口域	8	1.5×10 ³	1.1×10^{0}	1.2×10 ³	1.9×10 ³
新潟県	関川 河口域	3	1.6×10 ³	1.2×10^{0}	1.3×10 ³	1.8×10 ³
静岡県	大井川 河口域	3	5.8×10 ³	1.1×10^{0}	5.4×10 ³	6.1×10 ³
京都府	由良川 河口域	7	5.4×10 ³	1.3×10^{0}	3.0×10 ³	7.1×10 ³
兵庫県	加古川 河口域	3	3.0×10 ³	1.4×10^{0}	2.3×10 ³	4.6×10 ³
島根県	江の川 河口域	3	2.3×10 ³	1.3×10^{0}	1.8×10 ³	3.2×10 ³
広島県	太田川河口域からその沖合	7	5.6×10 ³	1.1×10^{0}	4.6×10 ³	7.2×10 ³
徳島県	吉野川 河口域	3	1.6×10 ⁴	3.7×10^{0}	6.3×10 ³	1.0×10 ⁵
愛媛県	肱川河口域からその沖合	2	1.5×10 ³	-	1.4×10 ³	1.6×10 ³
福岡県	遠賀川 河口域	9	5.1×10 ³	1.2×10^{0}	3.8×10 ³	5.9×10 ³
熊本県	球磨川 河口域	3	4.4×10 ³	1.2×10^{0}	3.3×10 ³	5.1×10 ³
宮崎県	大淀川 河口域	3	4.4×10 ³	1.0×10^{0}	4.2×10 ³	4.7×10 ³
全域		83	2.9×10 ³	2.1×10 ⁰	5.4×10 ²	1.0×10 ⁵

表 3-10 Stable Csの海域における分配係数 K_d (L kg⁻¹)

3.6 土壌から植物への移行係数の数表

土壌から植物への移行係数 F_vの値を表 3-11~表 3-13 に示す。表題の文字列はそれぞれ以下の意味を表す。

- ・ ¹³⁷Cs-FDNPP:東京電力福島第一原子力発電所の事故の影響を受けたと考えられる、2011年 以降に福島県で採取された試料のデータ(Cs-137の値を測定)
- ・ ¹³⁷Cs-GF : 上記の事故の影響がないと考えられる、福島県以外及び 2010 年以前の福島 県で採取された試料のデータ(Cs-137 の値を測定)
- ・ Stable Cs : Cs の安定同位体を測定したデータ

表 3-12 のうち、(Cereals - コメ - 白米) - 多湿黒ボク土の*F*_v統計値算出に用いたパラメータ 値(N=42)のデータ分布図(正規確率プロット)を図 3-2に示す。左図が元のパラメータ値の正 規確率、右図が対数変換したパラメータ値の正規確率である。土壌*K*_dと同様に農作物*F*_vも対数正 規分布の方が正規分布よりも当てはまりが良いことがわかる。

			-				
Crop type	作物名	部位名	N	数値*	幾何 標準偏 差	最小値	最大値
	イタリアン ライグラス	茎葉	1	3.3×10 ⁻²	-	-	-
	オーチャー ドグラス	茎葉	7	2.2×10 ⁻²	1.8×10^{0}	1.3×10 ⁻²	8.1×10 ⁻²
Fodder	スーダング ラス	茎葉	2	2.4×10 ⁻²	-	1.9×10 ⁻²	2.9×10 ⁻²
	トウモロコ シ	茎葉	3	1.1×10 ⁻²	1.1×10^{0}	1.1×10 ⁻²	1.2×10 ⁻²
	牧草	茎葉	82	9.7×10 ⁻²	4.1×10^{0}	2.0×10 ⁻³	3.5×10^{0}
	イチゴ	果実	1	2.9×10 ⁻³	-	-	-
	カボチャ	果実	2	1.8×10 ⁻³	-	1.4×10 ⁻³	2.3×10 ⁻³
	キュウリ	果実	24	6.4×10 ⁻³	3.0×10^{0}	1.1×10 ⁻³	1.9×10 ⁻¹
Emitrac	ズッキーニ	果実	1	3.4×10 ⁻³	-	-	-
Fruit veg.	トマト	果実	9	1.6×10 ⁻²	2.5×10^{0}	4.5×10^{-3}	8.2×10^{-2}
	ナス	果実	13	4.4×10 ⁻³	3.8×10^{0}	8.1×10^{-4}	$6.2 imes 10^{-2}$
	ピーマン	果実	14	4.2×10^{-3}	3.2×10^{0}	1.1×10 ⁻³	7.1×10 ⁻²
	ミニトマト	果実	1	1.6×10 ⁻³	-	-	-
	カラシナ	花蕾、葉	6	3.4×10 ⁻²	1.3×10^{0}	2.6×10 ⁻²	5.1×10 ⁻²
	キャベツ	葉	11	5.9×10 ⁻³	1.7×10^{0}	2.5×10 ⁻³	1.1×10 ⁻²
Leafy veg.	コマツナ	葉	15	3.0×10^{-2}	2.6×10^{0}	1.8×10^{-3}	8.5×10 ⁻²
	セリ	葉	14	4.0×10^{-2}	3.1×10^{0}	1.1×10 ⁻²	2.9×10^{-1}
	ニラ	葉	8	4.2×10^{-3}	2.2×10^{0}	1.6×10^{-3}	1.5×10^{-2}
	ネギ	葉	14	2.5×10 ⁻³	2.1×10^{0}	1.0×10 ⁻³	2.1×10 ⁻²

表 3-11 ¹³⁷Cs-FDNPP の土壌から植物への移行係数 F_n(-)

						•		
					幾何			
Crop type	作物名	部位名	Ν	数值*	標準偏	最小值	最大値	
					差			
	ハクサイ	葉	1	1.5×10 ⁻³	-	-	-	
	ホウレンソ	苷	20	1.2×10^{-2}	2.1×10^{0}	2.5×10^{-3}	4.5×10^{-2}	
	ウ	朱	39	1.2 ~ 10 -	$2.1 \times 10^{\circ}$	5.5 ~ 10 *	4.3 \[10 -	
	レタス	葉	2	5.0×10 ⁻³	-	4.9×10^{-3}	5.2×10^{-3}	
	インゲンマ	子実	2	6.5×10 ⁻⁴	-	$7.5 imes 10^{-5}$	1.2×10^{-3}	
	X	鞘	6	3.3×10 ⁻³	2.6×10^{0}	7.2×10^{-4}	1.4×10 ⁻²	
Leguminous	サヤエンド	#4	2	1.8×10^{-3}		4.7×10^{-3}	4.0×10^{-3}	
veg.	ウ	日平	Z	4.0 \(\lambda\) 10	-	4.7 ^ 10	4.9 \(\ 10)	
	ダイズ -	子実	71	8.1×10 ⁻³	4.3×10^{0}	3.6×10 ⁻⁴	2.8×10^{-1}	
	217	鞘、young	3	1.3×10^{-2}	1.2×10^{0}	1.0×10 ⁻²	1.6×10 ⁻²	
Non-edible	ソルガム	茎葉	2	5.8×10 ⁻³	-	5.1×10 ⁻³	6.5×10 ⁻³	
	アスパラガ	* #	0	5.4×10^{-3}	2.0×10^{0}	1.7×10^{-3}	5.5×10^{-2}	
Non loofu	ス	利才	0	3.4 \[10 \]	$2.9 \times 10^{\circ}$	1.7 ^ 10	5.5 ~ 10	
Non-leary	タラノメ	新芽	2	1.1×10 ⁻³	-	1.1×10 ⁻³	1.1×10 ⁻³	
veg.	ブロッコリ	龙亭	7	5.6×10^{-3}	2.2×10^{0}	0.7×10^{-4}	2.2×10^{-2}	
	<u> </u>	化曲	/	3.0 \ 10 -	$3.3 \times 10^{\circ}$	9.7 ~ 10	2.3 \ 10 -	
	ソバ	種子	11	9.6×10 ⁻³	1.9×10^{0}	3.8×10 ⁻³	2.3×10^{-2}	
Other gains	ソルガム	種実	1	2.4×10 ⁻³	-	-	-	
Ouler gains	トウモロコ	乙宝 young	1	1.0×10^{-3}				
	シ	J 关、young	1	1.9 \ 10	-	-	-	
	カブ	根	8	2.4×10^{-2}	2.9×10^{0}	2.0×10 ⁻³	6.3×10 ⁻²	
Doot arong	ゴボウ	根	1	3.0×10 ⁻³	-	-	-	
Koot crops	ダイコン	根	27	7.6×10 ⁻³	6.1×10^{0}	2.4×10^{-4}	1.1×10 ⁻¹	
	ニンジン	根	7	4.6×10 ⁻³	2.1×10^{0}	1.2×10^{-3}	1.6×10 ⁻²	
Seeds	ヒマワリ	子実	9	5.3×10 ⁻³	1.9×10^{0}	2.8×10^{-3}	1.8×10 ⁻²	
	コンニャク	塊茎	2	3.6×10 ⁻²	-	2.6×10 ⁻²	4.5×10 ⁻²	
- Tubers -	サツマイモ	根茎	4	7.8×10 ⁻³	2.0×10^{0}	2.6×10 ⁻³	1.6×10 ⁻²	
	サトイモ	塊茎	2	2.8×10^{-3}	-	1.4×10 ⁻³	4.3×10^{-3}	
	ジャガイモ	塊茎	7	1.1×10 ⁻²	2.3×10^{0}	3.1×10 ⁻³	2.9×10 ⁻²	
	ヤマイモ	根茎	1	1.6×10 ⁻²	-	-	-	

表 3-11 ¹³⁷Cs-FDNPP の土壌から植物への移行係数 F_v(-)

	1					W SX IV	/	
Crop type	作物 名	部 位 名	土壌の種類	Ν	数値*	幾何 標準偏 差	最小値	最大値
	オ オ ムギ	玄麦	低地水田土	1	6.9×10 ⁻³	-	-	-
			グライ低地土	2	1.4×10 ⁻³	-	3.9×10 ⁻⁴	2.3×10 ⁻³
			黒ボク土	23	3.1×10 ⁻³	2.5×10^{0}	4.0×10 ⁻⁴	2.3×10 ⁻²
			細粒グライ土	10	2.5×10 ⁻³	1.5×10^{0}	9.7×10 ⁻⁴	4.0×10 ⁻³
			細粒灰色低地 土	8	2.1×10 ⁻³	2.9×10^{0}	1.8×10 ⁻⁴	5.6×10 ⁻³
	コム	玄麦	細粒褐色低地 土	22	1.8×10 ⁻³	2.1×10^{0}	3.2×10 ⁻⁴	7.3×10 ⁻³
	,		細粒強グライ 土	12	1.2×10 ⁻³	1.7×10^{0}	3.9×10 ⁻⁴	2.9×10 ⁻³
			多湿黒ボク土	23	2.4×10^{-3}	2.0×10^{0}	5.7×10 ⁻⁴	1.4×10 ⁻²
			中粗粒灰色低 地土	6	1.0×10 ⁻³	3.8×10 ⁰	7.7×10 ⁻⁵	5.0×10 ⁻³
			低地水田土	2	7.4×10^{-4}	-	4.3×10 ⁻⁴	1.1×10 ⁻³
			グライ台地土	2	2.6×10 ⁻³	-	2.1×10 ⁻³	3.0×10 ⁻³
			グライ低地土	19	3.2×10^{-3}	2.8×10^{0}	7.7×10^{-4}	4.1×10^{-2}
			黄色土	2	$4.5 imes 10^{-3}$	-	$8.7 imes 10^{-4}$	8.1×10 ⁻³
Cereals			火山放出物未 熟土	1	9.2×10 ⁻⁴	-	-	-
			灰色台地土	1	3.9×10 ⁻³	-	-	-
			灰色低地土	35	2.8×10^{-3}	2.2×10^{0}	$7.8 imes 10^{-4}$	3.2×10 ⁻²
			褐色低地土	5	1.8×10^{-3}	2.1×10^{0}	4.3×10^{-4}	3.4×10 ⁻³
			黒ボクグライ 土	1	4.1×10 ⁻³	-	-	-
			黒ボク土	32	3.6×10 ⁻³	2.0×10^{0}	9.8×10 ⁻⁴	2.7×10^{-2}
	コメ	玄米	黒泥土	1	4.4×10^{-4}	-	-	-
			細粒グライ土	28	3.7×10 ⁻³	2.7×10^{0}	3.5×10^{-4}	1.2×10^{-2}
			細粒灰色台地 土	13	2.6×10 ⁻³	2.3×10^{0}	3.9×10 ⁻⁴	9.2×10 ⁻³
			細粒灰色低地 土	27	3.9×10 ⁻³	3.5×10^{0}	6.5×10 ⁻⁴	4.1×10 ⁻²
			細粒褐色低地 土	12	2.0×10 ⁻³	1.8×10^{0}	7.1×10 ⁻⁴	5.6×10 ⁻³
			細粒強グライ 土	14	3.0×10 ⁻³	2.0×10^{0}	5.0×10 ⁻⁴	7.1×10 ⁻³
			多湿黒ボク土	49	8.4×10 ⁻³	2.6×10^{0}	1.1×10 ⁻³	3.4×10 ⁻²
			中粗粒灰色低	23	5.1×10^{-3}	2.6×10^{0}	5.8×10^{-4}	2.7×10^{-2}

表 3-12¹³⁷Cs-GF の土壌から植物への移行係数 F_n(-)

						داند / - ر		
Crop type	作物 名	部 位 名	土壌の種類	N	数值*	幾何 標準偏 美	最小値	最大値
			++h +-			上		
			<u>- 地工</u> - <u>低地水田</u> 上	7	2.2×10^{-3}	2.2×10^{0}	4.4×10^{-4}	2.4×10^{-2}
				/	2.5×10^{-3}	$5.2 \times 10^{\circ}$	4.4 ^ 10	2.4 ^ 10 -
			北灰工	I	4.0×10 ⁻⁵	-	-	-
			非 ノロ ノェ ノ 質黒ボク土	1	2.2×10 ⁻³	-	-	-
			灰色低地土	10	7.5×10^{-4}	2.8×10^{0}	2.0×10^{-4}	1.0×10 ⁻²
			黒ボク土	28	1.2×10^{-3}	1.8×10^{0}	4.1×10 ⁻⁴	3.0×10 ⁻³
			細粒グライ土	25	2.0×10 ⁻³	2.3×10^{0}	1.9×10^{-4}	4.6×10 ⁻³
			細粒灰色台地 土	12	7.2×10 ⁻⁴	2.3×10^{0}	1.7×10 ⁻⁴	2.7×10 ⁻³
		白米	細粒灰色低地 土	26	1.4×10 ⁻³	4.6×10^{0}	5.2×10 ⁻⁵	1.7×10 ⁻²
			細粒褐色低地 土	13	5.0×10 ⁻⁴	2.2×10^{0}	6.9×10 ⁻⁵	1.4×10 ⁻³
			細粒強グライ土	14	1.3×10 ⁻³	1.9×10^{0}	3.6×10 ⁻⁴	3.1×10 ⁻³
			多湿黒ボク土	42	3.9×10 ⁻³	2.5×10^{0}	4.9×10 ⁻⁴	1.9×10 ⁻²
			中粗粒灰色低 地土	23	2.0×10 ⁻³	3.2×10^{0}	2.8×10 ⁻⁴	1.7×10 ⁻²
	+ -		グライ低地土	1	8.7×10 ⁻²	-	-	-
	モュ	果実	黄色土	1	5.3×10 ⁻²	-	-	-
	ワリ		黒ボク土	1	3.4×10 ⁻²	-	-	-
			黄色土	1	2.4×10 ⁻²	-	-	-
	トマ		褐色低地土	1	2.8×10 ⁻²	-	-	-
	F	朱夫	黒ボク土	1	5.4×10 ⁻³	-	-	-
Fruit veg.			多湿黒ボク土	2	6.4×10 ⁻²	-	4.0×10 ⁻²	8.9×10 ⁻²
	1	H 🕂	灰色低地土	1	9.2×10 ⁻³	-	-	-
	テス	朱夫	褐色低地土	1	5.6×10 ⁻²	-	-	-
			多湿黒ボク土	1	9.9×10 ⁻³	-	-	-
	モーマン	果実	非アロフェン 質黒ボク土	1	9.5×10 ⁻²	-	-	-
			グライ低地土	1	5.5×10 ⁻²	-	-	-
Leafy veg.	キャ		黄色土	1	7.6×10 ⁻³	-	-	-
	ベツ	枼	灰色低地土	1	1.7×10 ⁻¹	_	-	-
			黒ボク土	1	4.8×10 ⁻²	-	-	-
	ダ イ コ ン 葉	葉	黒ボク土	1	4.1×10 ⁻²	-	-	-

表 3-12¹³⁷Cs-GF の土壌から植物への移行係数 F_v(-)

	表	3-12	¹³⁷ Cs-GF の土壌から植物への移行係数 F_{v} (-)							
	1/1- 11/m	如 (告				幾何				
Crop type	作物	 即 1 <u>1</u> 夕	土壌の種類	Ν	数值*	標準偏	最小值	最大値		
	口	1				差				
	ネギ	芚	多湿黒ボク土	3	1.9×10 ⁻²	1.7×10^{0}	8.8×10^{-3}	2.7×10^{-2}		
	(白)	×	未熟低地土	1	1.7×10^{-2}	-	-	-		
	ハク	苹	褐色低地土	1	5.5×10 ⁻²	-	-	-		
	サイ	朱	黒ボク土	1	7.8×10^{-2}	-	-	-		
	ホウ									
	レン	葉	黒ボク土	2	7.1×10^{-2}	-	5.7×10 ⁻²	$8.6 imes 10^{-2}$		
	ソウ									
	レタ	蓙	里ボク十	1	5.4×10^{-2}	_	_	_		
	ス	禾		1	5.17.10					
			グライ低地土	2	1.6×10^{-2}	-	1.5×10^{-2}	1.7×10^{-2}		
	ダイ		灰色低地土	1	1.9×10^{-2}	-	-	-		
Leguminou s veg.	ズ	子実	褐色森林土	1	2.9×10^{-2}	-	-	-		
			黒ボク土	1	9.1×10 ⁻³	-	-	-		
			低地水田土	1	4.1×10 ⁻³	-	-	-		
	ラッ									
	カセ	子実	グライ低地土	1	7.2×10^{-3}	-	-	-		
	イ									
Non-leafy	タマ	球艾	低地水田十	1	1.1×10^{-2}	_	_	_		
veg.	ネギ	小王	B 2017 H L	1	1.1 / 10					
	サッ		黒ボク土	2	7.7×10^{-2}	-	7.3×10^{-3}	1.5×10^{-1}		
	マイ	根茎	砂丘未孰十	1	7.6×10^{-2}	_	_	_		
	モ			1	/10 * 10					
Root crops	ダイ		褐色森林土	1	6.7×10^{-3}	-	-	-		
ite er er ep e	コン	根	黒ボク土	1	1.6×10^{-1}	-	-	-		
			多湿黒ボク土	1	1.4×10^{-2}	-	-	-		
	ニン	根	黒ボク十	1	3.5×10^{-2}	_	-	-		
	ジン									
	サト	塊茎	灰色低地十	1	1.7×10^{-2}	_	-	-		
	イモ			-						
Tubers	ジャ		グライ低地土	1	1.8×10^{-3}	-	-	-		
	ガイ	塊茎	黄色土	1	1.1×10 ⁻¹	-	-	-		
	ガイニ	/ 114	褐色森林土	1	3.8×10 ⁻²	-	-	-		
	-		黒ボク土	1	1.8×10^{-2}	-	-	-		

							幾何			
Crop type	作	物	部位	土壌の種類	N	数值*	標準偏	最小値	最大値	
	名		名			<i>7</i> , (12)	差			
	オ	オ		灰色低地土	1	6.9×10 ⁻⁴	-	-	-	
	ムヨ	F	玄麦	低地水田土	1	2.0×10 ⁻³	-	-	-	
				グライ低地土	2	3.7×10 ⁻⁴	-	7.9×10 ⁻⁵	6.6×10 ⁻⁴	
	コ	Д	L. L.	黒ボク土	2	5.4×10 ⁻³	-	2.0×10 ⁻³	8.8×10 ⁻³	
	ギ		玄麦	多湿黒ボク土	1	7.7×10 ⁻⁴	-	-	-	
				低地水田土	2	2.9×10 ⁻⁴	-	2.4×10 ⁻⁴	3.4×10 ⁻⁴	
				グライ台地土	2	1.5×10 ⁻³	-	9.0×10 ⁻⁴	2.2×10 ⁻³	
				グライ低地土	24	1.1×10 ⁻³	2.6×10^{0}	2.9×10 ⁻⁴	1.6×10 ⁻²	
				黄色土	4	1.1×10 ⁻³	3.0×10^{0}	2.4×10 ⁻⁴	5.3×10 ⁻³	
				火山放出物未熟						
				土	1	3.4×10^{-4}	-	-	-	
				灰色台地土	1	4.2×10 ⁻³	-	-	-	
				灰色低地土	32	$7.8 imes 10^{-4}$	2.8×10^{0}	9.0×10 ⁻⁵	8.0×10 ⁻³	
			大业	褐色低地土	7	5.5×10 ⁻⁴	2.1×10^{0}	$1.8 imes 10^{-4}$	1.6×10^{-3}	
			凶 不	黒ボクグライ土	1	3.5×10 ⁻³	-	-	-	
				黒ボク土	6	2.1×10 ⁻³	2.1×10^{0}	$6.3 imes 10^{-4}$	7.4×10^{-3}	
				黒泥土	1	5.9×10 ⁻⁴	-	-	-	
					多湿黒ボク土	7	2.3×10 ⁻³	2.2×10^{0}	7.2×10^{-4}	9.2×10 ⁻³
Cereals							低地水田土	10	5.6×10 ⁻⁴	3.5×10^{0}
				泥炭土	1	3.1×10 ⁻³	-	-	-	
					非アロフェン質	1	1.3×10^{-3}	_	_	_
	コフ	X		黒ボク土	1	1.5 × 10	_	_	_	
				グライ台地土	2	1.3×10^{-3}	-	3.8×10^{-4}	2.2×10^{-3}	
				グライ低地土	23	$7.0 imes 10^{-4}$	2.7×10^{0}	$1.5 imes 10^{-4}$	6.4×10^{-3}	
				黄色土	3	8.6×10^{-4}	2.5×10^{0}	2.4×10^{-4}	2.1×10^{-3}	
				火山放出物未熟	1	3.4×10^{-4}	_	_	_	
				<u>±</u>	1	5.11.10				
				灰色台地土	1	1.4×10^{-3}	-	-	-	
				灰色低地土	31	4.5×10^{-4}	3.3×10^{0}	4.3×10^{-5}	4.7×10^{-3}	
			白米	褐色低地土	7	3.1×10^{-4}	2.2×10^{0}	7.1×10^{-5}	8.7×10^{-4}	
				黒ボクグライ土	1	9.9×10 ⁻⁴	-	-	-	
				黒ボク土	6	1.1×10^{-3}	2.3×10^{0}	2.6×10^{-4}	3.0×10^{-3}	
				黒泥土	1	4.0×10^{-4}	-	-	-	
				多湿黒ボク土	7	1.3×10^{-3}	2.5×10^{0}	3.2×10^{-4}	9.2×10 ⁻³	
				低地水田土	8	3.3×10 ⁻⁴	3.3×10^{0}	9.6×10 ⁻⁵	5.0×10^{-3}	
				泥炭土	1	3.1×10 ⁻³	-	-	-	
				非アロフェン質	1	5.1×10^{-4}	-	-	-	

表 3-13 Stable Cs の土壌から植物への移行係数 F_v(-)

Crop type	作物	±77 /±+				幾何		
Crop type	作物	部位	土壌の種類	Ν	数值*	標準偏	最小値	最大値
	名	名				差		
			黒ボク土					
			グライ低地土	1	4.2×10 ⁻²	-	-	-
	キュ	田中	黄色土	1	3.4×10 ⁻²	-	-	-
	ウリ	禾夫	褐色森林土	1	1.2×10 ⁻²	-	-	-
			黒ボク土	1	5.4×10 ⁻³	-	-	-
			黄色土	1	5.3×10 ⁻³	-	-	-
			褐色森林土	1	2.7×10 ⁻³	-	-	-
		果実	褐色低地土	1	1.3×10 ⁻²	-	-	-
г '	Г		黒ボク土	1	3.3×10 ⁻³	-	-	-
Fruit veg.			多湿黒ボク土	2	4.0×10 ⁻²	-	2.6×10 ⁻²	5.5×10 ⁻²
	1.7	田 🕁	灰色低地土	3	1.1×10 ⁻³	3.0×10^{0}	3.3×10 ⁻⁴	4.8×10^{-3}
	テス	朱夫	褐色低地土	2	4.0×10 ⁻³	-	1.7×10 ⁻³	6.3×10 ⁻³
	ニガ	田中	正在与地上	1	2.0×10^{-4}			
	ウリ	未夫	灰色百地工	1	3.9 × 10	-	-	-
	۲°		多湿黒ボク土	1	3.1×10 ⁻³	-	-	-
		果実	非アロフェン質	1	2.5×10^{-2}			
	× 🗸		黒ボク土	1	5.5×10	-	-	-
			グライ低地土	3	1.6×10^{-3}	2.5×10^{0}	6.9×10 ⁻⁴	5.5×10^{-3}
	+ +		暗赤色土	1	4.9×10^{-3}	-	-	-
	イイ	葉	黄色土	1	3.3×10 ⁻⁴	-	-	-
			灰色低地土	3	1.6×10 ⁻²	4.3×10^{0}	2.3×10^{-3}	7.7×10^{-2}
	_		黒ボク土	4	3.5×10 ⁻²	2.4×10^{0}	$1.8 imes 10^{-2}$	1.5×10^{-1}
	ダイ							
	コン	葉	黒ボク土	1	9.3×10 ⁻³	-	-	-
	葉							
	タカ	卋	苦 4	1	5.2×10^{-3}	_	_	_
	ナ	木	A C L	1	5.2 × 10	_	_	
Leafy veg.	チン							
	ゲン	葉	暗赤色土	1	7.9×10^{-3}	-	-	-
	サイ							
	ニン							
	ジン	葉	褐色低地土	1	3.2×10^{-2}	-	-	-
-	葉							
	ネギ							
	(主	葉	灰色低地土	1	8.9×10^{-3}	-	-	-
	に緑)							
	ネギ	葉	黒ボク土	2	2.3×10^{-2}	-	1.3×10^{-2}	3.4×10^{-2}
	(白)	218	多湿黒ボク土	3	8.3×10^{-3}	1.3×10^{0}	5.5×10^{-3}	1.0×10^{-2}

表 3-13	Stable Cs の土壌から植物への移行係数	<i>F</i> ,,	(-)
1		- v	• •

							幾何		
Crop type	作	物	部位	十壌の種類	Ν	数值*	標準偏	最小値	最大値
	名		名				差		
				未孰任地十	1	1.3×10^{-2}	-		
	ネ	ギ		· 床 然 战 地 上 · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	1	5.5×10^{-3}			
	-下 (生	子) 2/	葉	<u>・ 電 示 し 上 ま 示 た し</u>	6	5.3×10^{-3}	$-$ 2 4 \times 100	-	$-$ 5 1 \times 10-2
	(示	水) 		衣小なし	0	5.8 ~ 10 *	5.4 × 10°	1.8 ~ 10 *	5.1 ~ 10 -
	ノワラ	サ	葉	褐色森林土	1	6.6×10 ⁻³	-	-	-
				灰色低地土	1	8.4×10 ⁻³	-	-	-
	ハ	ク	萑	褐色低地土	1	1.7×10^{-3}	-	-	-
	サイ	ſ	木	黒ボク土	5	1.3×10^{-2}	2.4×10^{0}	2.5×10^{-3}	2.5×10^{-2}
				多湿黒ボク土	1	5.1×10 ⁻²	-	-	-
	ホ	ウ		暗赤色土	1	1.3×10 ⁻²	-	-	-
	\mathcal{V}	ン	葉	灰色低地土	1	4.7×10 ⁻³	-	-	-
	ソウ	Ⴢ		黒ボク土	4	2.9×10 ⁻²	1.5×10^{0}	1.9×10 ⁻²	4.7×10 ⁻²
	\mathcal{V}	タ		黒ボク土	2	2.3×10 ⁻²	-	4.5×10 ⁻³	4.1×10 ⁻²
	ス		枼	低地水田土	1	2.6×10 ⁻³	-	-	-
				グライ低地土	2	6.4×10 ⁻³	-	3.9×10 ⁻⁴	1.3×10 ⁻²
				灰色低地土	1	4.9×10 ⁻³	-	-	-
	ダ	イ	子実	褐色森林士	1	1.4×10^{-2}	_	-	-
Leguminou	ズ		• • •	 黒ボクナ	1	4.0×10 ⁻³	_	_	_
s veg.				低地水田十	1	3.2×10^{-3}			
8	ラ	N/			-	5.2**10			
	, カ	ッ セ	子宝	ガライ低地十	1	2.2×10^{-3}	_	_	_
	1		1 人		1	2.2 / 10			
	1			苦	1	3.4×10^{-4}			
Non-leafy	タ	$\overline{\mathbf{A}}$	球女		1	1.6×10^{-4}	_	_	_
veg.	ネコ	ギ	小王	<u></u>	2	1.0×10 1.8 × 10-4	_	- 0.0 × 10 ⁻⁵	$-$ 2.5 \times 10-4
	과	<u></u>		国ビカ上	2	1.0×10^{-2}	-	5.3×10^{-3}	2.3×10
	9) 1	拍夺	<u> 赤</u> かり工	Z	4.0 ^ 10 -	-	5.5 ~ 10 *	/.4 ^ 10 -
	、 モ	1	似全	砂丘未熟土	1	9.3×10 ⁻³	-	-	-
				グライ台地土	1	2.1×10^{-3}	-	-	-
				褐色森林土	1	2.9×10 ⁻³	-	-	-
	ダ	イ	-L-11	褐色低地土	1	9.8×10 ⁻⁴	-	-	-
Root crops	コン	/	侬	黒ボク土	2	1.3×10 ⁻²	-	1.3×10 ⁻²	1.3×10 ⁻²
-				多湿黒ボク土	1	2.3×10 ⁻³	-	-	-
				表示なし	1	2.7×10 ⁻³	-	_	-
	·			黒ボク土	1	2.3×10 ⁻²	-	-	-
	11	ン		非アロフェン質					
· · ·	ジン	ニ ン ジン	根	黒ボク土	1	4.0×10 ⁻³	-	-	-
				表示なし	1	5.4×10^{-3}	-	-	-

表 3-13 Stable Cs の土壌から植物への移行係数 F_v(-)

Crop type	作 名	物	部 位 名	土壌の種類	N	数値*	幾何 標準偏 差	最小値	最大値
	サ	\mathbb{P}	抽⇒	グライ低地土	1	8.1×10^{-4}	-	-	-
	イニ	E	炮全	灰色低地土	1	6.1×10 ⁻³	-	-	-
				グライ低地土	3	3.1×10 ⁻³	2.6×10^{0}	$8.3 imes 10^{-4}$	7.9×10^{-3}
				黄色土	7	5.9×10 ⁻³	5.7×10^{0}	9.6×10 ⁻⁴	5.7×10 ⁻²
				灰色低地土	7	3.1×10 ⁻³	1.8×10^{0}	1.8×10^{0} 1.1×10^{-3} 6.5×10^{-3}	6.5×10 ⁻³
Tubers	ジ	ヤ		褐色森林土	4	9.7×10 ⁻³	1.3×10^{0}	$7.5 imes 10^{-3}$	1.3×10 ⁻²
	ガ	イ	塊茎	褐色低地土	3	2.1×10 ⁻³	2.1×10^{0}	1.2×10^{-3}	6.0×10 ⁻³
	モ			黒ボク土	16	5.3×10 ⁻³	4.5×10^{0}	$7.8 imes 10^{-4}$	1.9×10^{-1}
				赤色土	2	5.5×10 ⁻²	-	2.3×10^{-2}	8.7×10^{-2}
				多湿黒ボク土	3	6.8×10 ⁻³	1.3×10^{0}	4.7×10^{-3}	8.4×10 ⁻³
				泥炭土	1	3.1×10 ⁻³	-	-	-

表 3-13 Stable Cs の土壌から植物への移行係数 F_v (-)



図 3-2 土壌から植物への移行係数の正規確率プロット

3.7 畜産物への移行係数及び濃縮係数の数表

畜産物への移行係数 F_m 、 F_f 及び濃縮係数 CR の値を表 3·14~表 3·17 に示す。IAEA TRS 472 [1]には牛乳への F_m として 4.6×10^{·3} d L^{·1}を、また牛肉への F_f を 2.2×10^{·2} d kg^{·1}と報告してお り、本データ集の値と同程度であった。

	~	• • • •			12 13 17 24	<i>m</i> (= =)		
Radionuclide	Country	Animal	Source	N	数値*	幾何 標準偏 差	最小値	最大値
Cs-134	Japan	Cow	Fukushima	1	3.8×10 ⁻⁴	-	-	-
	India	Cow	GF+Chernobyl	27	9.9×10 ⁻³	1.8×10^{0}	2.8×10-3	3.3×10 ⁻²
		Cow	Chernobyl	10	3.1×10 ⁻³	1.2×10^{0}	2.2×10 ⁻³	4.3×10 ⁻³
Cs-137	Japan		Fukushima	3	2.8×10 ⁻³	4.8×10^{0}	3.7×10 ⁻⁴	1.7×10 ⁻²
			GF+Chernobyl	2	5.0×10 ⁻³	-	3.7×10-3	6.3×10 ⁻³
	Syria	Camel	RI Tracer	1	7.8×10 ⁻⁴	-	-	-
Total Cs	Japan	Cow	Fukushima	5	1.9×10 ⁻³	1.6×10^{0}	9.6×10 ⁻⁴	3.5×10 ⁻³
	A			A				

表 3-14 Csの畜産物(乳)への移行係数 F_m (d L⁻¹)

表 3-15 Csの畜産物(乳)の濃縮係数 CR(-)

Radionuclide	Country	Animal	Source	N	算術 平均値	標準 偏差	最小値	最大値
Cs-134	Japan	Cow	Fukushima	2	9.6×10 ⁻³	2.4×10-4	9.4×10 ⁻³	9.8×10 ⁻³
Cs-137	Japan	Cow	Fukushima	2	9.6×10 ⁻³	2.3×10 ⁻⁴	9.5×10 ⁻³	9.8×10 ⁻³
			GF+Chernobyl	2	1.2×10 ⁻²	2.8×10 ⁻³	1.0×10 ⁻²	1.4×10 ⁻²
Total Cs	Japan	Cow	Fukushima	5	3.2×10 ⁻²	2.5×10 ⁻²	9.6×10 ⁻³	7.3×10 ⁻²

表 3-16 Csの畜産物(肉)への移行係数 F_f(d kg⁻¹)

Radionuclide	Country	Animal	Source	N	幾何 平均値	幾何 標準偏 差	最小値	最大値
Cs-134	Japan	Pork	Fukushima	3	3.4×10 ⁻¹	1.1×10^{0}	3.0×10 ⁻¹	3.8×10 ⁻¹
0 127	Japan	Pork	Fukushima	3	3.4×10 ⁻¹	1.1×10^{0}	2.9×10 ⁻¹	4.0×10 ⁻¹
CS-157	Turkey	Sheep	GF+Chernobyl	6	6.3×10 ⁻¹	1.2×10^{0}	4.8×10 ⁻¹	9.7×10 ⁻¹
		Cattle	Fukushima	23	2.1×10 ⁻²	1.9×10^{0}	4.9×10 ⁻³	7.2×10 ⁻²
Total Cs	Japan	Chicken	Fukushima	22	2.9×10 ⁻¹	1.2×10^{1}	9.2×10 ⁻³	1.5×10^{1}
		Horse	Fukushima	6	2.3×10 ⁻²	1.3×10^{0}	1.6×10 ⁻²	3.2×10 ⁻²

	-	K O H	0000日庄仍		//这中日 /// 3人			
Radionuclide	Country	Animal	Source	N	算術 平均値	標準偏 差	最小値	最大値
Cs-134	Japan	Pork	Fukushima	3	7.8×10 ⁻¹	1.0×10 ⁻¹	6.9×10 ⁻¹	8.9×10 ⁻¹
Cs-137	Japan	Pork	Fukushima	3	7.9×10 ⁻¹	1.2×10 ⁻¹	6.9×10 ⁻¹	9.3×10 ⁻¹
		Cattle	Fukushima	23	1.2×10 ⁻¹	5.5×10 ⁻²	2.5×10 ⁻²	2.5×10 ⁻¹
Total Cs	Japan	Chicken	Fukushima	22	1.7×10 ⁻¹	1.8×10 ⁻¹	2.1×10 ⁻³	5.2×10 ⁻¹
		Horse	Fukushima	6	2.4×10 ⁻¹	6.1×10 ⁻²	1.6×10 ⁻¹	3.2×10 ⁻¹

表 3-17 Csの畜産物(肉)の濃縮係数 CR(-)

3.8 面積当たりの移行係数の数表

キノコへの面積あたりの移行係数 T_{ag} の値を表 3-18、山菜への面積あたりの移行係数 T_{ag} の値 を表 3-19 及び狩猟動物への面積あたりの移行係数 T_{ag} の値を表 3-20 に示す。IAEA TRS 472 [1] には山菜のデータを収録していない。

表 3-18 Csのキノコへの面積あたりの移行係数 T_{ag} (m² kg⁻¹, fresh)

Type of mushrooms	N	幾何 平均値	幾何 標準偏差	最小値	最大値
菌根菌	277	1.3×10 ⁻²	3.0×10^{0}	3.5×10 ⁻⁴	3.8×10 ⁻¹
腐生菌	189	6.6×10 ⁻³	2.5×10^{0}	2.9×10 ⁻⁴	6.8×10 ⁻²

表 3-19 Csの山菜への面積あたりの移行係数 T_{ag} (m² kg-FM⁻¹)

品目	Ν	数值*1	幾何 標準偏差	最小值	最大値
ウド	1	1.1×10 ⁻⁴	-	-	-
ウワバミソウ	1	3.6×10 ⁻⁴	-	-	-
コゴミ	1	2.0×10 ⁻⁴	-	-	-
コシアブラ*2	19	7.3×10 ⁻³	1.9×10^{0}	1.3×10 ⁻³	3.2×10 ⁻²
ゼンマイ	1	4.2×10 ⁻⁴	-	-	-
タケノコ*2	79	4.8×10 ⁻⁴	2.3×10^{0}	7.1×10 ⁻⁵	5.9×10 ⁻³
タラノメ*2	10	9.9×10 ⁻⁴	2.8×10^{0}	2.2×10 ⁻⁴	6.5×10 ⁻³
フキ*2	3	1.4×10 ⁻⁴	2.1×10^{0}	6.1×10 ⁻⁵	3.6×10 ⁻⁴
フキノトウ	1	1.7×10-4	-	-	-
モミジガサ	1	2.5×10-4	-	-	-
ワラビ	1	1.9×10 ⁻⁴	-	-	-

*1 N=1の場合はそのデータの値、N>2の場合は幾何平均値

*² Takada et al., 2022 [21]と Hayashi et al., 2023 [22]から引用したデータは、N=1 として統計処理を行った。

衣 3-20 し	Sの狩猟	7 所 佩 割 初 へ の 面 惧 の に り の 移 1 丁 徐 致				I_{ag} (III ² kg ⁻¹ , Iresh)			
Animal	年	N	幾何 平均値	幾何 標準偏差	最小值	最大値			
	2011	167	7.0×10 ⁻³	2.6×10^{0}	7.6×10 ⁻⁴	5.4×10 ⁻¹			
	2012	456	4.8×10 ⁻³	2.6×10^{0}	2.1×10 ⁻⁴	1.2×10^{0}			
イノシシン内	2013	496	5.0×10 ⁻³	3.3×10^{0}	3.0×10 ⁻⁴	1.5×10 ⁻¹			
1722网	2014	533	3.2×10 ⁻³	2.7×10^{0}	5.0×10 ⁻⁵	8.7×10 ⁻²			
	2015	586	3.9×10 ⁻³	2.9×10^{0}	9.6×10 ⁻⁵	3.2×10 ⁻¹			
	2016	576	3.6×10 ⁻³	3.0×10^{0}	7.2×10 ⁻⁵	2.4×10 ⁻¹			
	2011	27	5.4×10 ⁻³	2.3×10^{0}	1.6×10 ⁻³	4.7×10 ⁻²			
	2012	176	4.2×10 ⁻³	2.6×10 ⁰	3.2×10 ⁻⁴	6.7×10 ⁻²			
	2013	83	5.2×10 ⁻³	2.4×10^{0}	9.4×10 ⁻⁴	4.3×10 ⁻²			
クマ肉	2014	205	3.2×10 ⁻³	2.6×10 ⁰	3.6×10 ⁻⁴	8.4×10 ⁻²			
	2015	66	4.8×10 ⁻³	2.2×10^{0}	6.4×10 ⁻⁴	2.0×10 ⁻²			
	2016	135	4.9×10 ⁻³	2.9×10^{0}	2.1×10 ⁻⁴	1.2×10 ⁻¹			
	2011	48	1.0×10 ⁻²	3.2×10 ⁰	1.1×10-3	2.3×10 ⁻¹			
	2012	134	6.4×10 ⁻³	2.9×10 ⁰	3.7×10 ⁻⁴	1.7×10 ⁻¹			
	2013	150	6.4×10 ⁻³	2.8×10^{0}	9.7×10 ⁻⁴	1.0×10^{0}			
シカ肉	2014	133	6.8×10 ⁻³	3.2×10^{0}	4.9×10 ⁻⁴	1.2×10 ⁻¹			
	2015	112	5.6×10 ⁻³	3.2×10 ⁰	6.0×10 ⁻⁴	5.1×10 ⁻¹			
	2016	90	5.0×10 ⁻³	3.3×10 ⁰	6.6×10 ⁻⁴	1.6×10 ⁻¹			
	2011	17	9.0×10 ⁻⁴	2.0×10^{0}	1.9×10 ⁻⁴	2.9×10 ⁻³			
	2012	53	7.1×10 ⁻⁴	2.9×10^{0}	8.0×10 ⁻⁵	2.3×10 ⁻²			
もて内	2013	18	5.6×10 ⁻⁴	2.5×10^{0}	9.2×10 ⁻⁵	2.3×10 ⁻³			
力七肉	2014	15	2.6×10-4	2.1×10^{0}	7.4×10 ⁻⁵	9.2×10 ⁻⁴			
	2015	10	2.3×10-4	2.2×10^{0}	5.1×10 ⁻⁵	7.5×10 ⁻⁴			
	2016	4	5.7×10-4	2.7×10^{0}	1.1×10 ⁻⁴	1.6×10 ⁻³			
	2011	27	9.2×10 ⁻⁴	2.3×10 ⁰	2.6×10 ⁻⁴	7.7×10 ⁻³			
	2012	43	8.3×10 ⁻⁴	2.4×10^{0}	6.0×10 ⁻⁵	3.8×10 ⁻³			
ナジ内	2013	12	3.6×10 ⁻⁴	3.1×10 ⁰	3.4×10 ⁻⁵	1.8×10 ⁻³			
イン内	2014	6	3.5×10 ⁻⁴	2.2×10^{0}	1.2×10 ⁻⁴	9.1×10 ⁻⁴			
	2015	4	1.1×10 ⁻⁴	2.3×10^{0}	5.9×10 ⁻⁵	4.5×10 ⁻⁴			
	2016	3	1.9×10 ⁻⁴	1.9×10 ⁰	7.7×10 ⁻⁵	2.9×10 ⁻⁴			
	2011	11	2.8×10 ⁻³	2.3×10^{0}	7.3×10 ⁻⁴	1.0×10 ⁻²			
	2012	27	1.9×10 ⁻³	3.1×10^{0}	2.5×10 ⁻⁴	2.2×10 ⁻²			
オードニケ	2013	10	5.1×10 ⁻³	2.6×10^{0}	8.3×10 ⁻⁴	3.4×10 ⁻²			
マメトリ肉	2014	20	4.2×10 ⁻³	3.0×10^{0}	6.1×10 ⁻⁴	2.9×10 ⁻²			
	2015	16	3.9×10 ⁻³	2.1×10^{0}	1.3×10 ⁻³	1.2×10 ⁻²			
	2016	18	3.8×10-3	2.6×10^{0}	7.8×10 ⁻⁴	1.6×10 ⁻²			

素 3-20 Ce の狩猟動物への両積なたりの移行係物 T (m² kg⁻¹ freeh)

3.9 水と水生生物間の濃縮係数の数表

3.9.1 淡水生態系における水-生物濃縮係数

河川および湖の水と水生生物間の濃縮係数 *CR* の値を表 3-21 に示す。生物中では部位ごとに分 布が多少異なるものの、全体としてはほぼ一様に分布といえる。

門	Class	Order	部位名	N	数値*	幾何 標準偏 差	最小値	最大値
			Bones	8	1.0×10 ³	1.6×10 ⁰	4.8×10 ²	1.9×10 ³
			Internal organ	4	1.0×10 ³	1.5×10 ⁰	5.8×10 ²	1.8×10 ³
脊椎動物	Actinopterygii	Cumuiniformos	Muscle	95	5.9×10 ²	2.1×10^{0}	3.0×10 ¹	3.8×10 ³
		Cyprimiormes	Muscle, estimated	4	5.6×10 ²	1.9×10 ⁰	2.9×10 ²	1.1×10 ³
			Whole body	72	2.6×10 ²	1.7×10^{0}	8.0×10 ¹	9.1×10 ²
		Osmeriformes	Whole body	24	3.2×10 ²	2.4×10 ⁰	1.6×10 ¹	1.7×10 ³
			Bones	9	1.8×10 ³	1.6×10^{0}	9.6×10 ²	4.3×10 ³
		Perciformes	Internal organ	3	1.9×10 ³	1.1×10 ⁰	1.6×10 ³	2.2×10 ³
			Muscle	14	1.6×10 ³	5.8×10^{0}	1.6×10^{1}	6.9×10 ³
		Siluriformes	Muscle	14	1.8×10 ³	1.2×10^{0}	1.2×10 ³	2.6×10 ³
軟		Mytilida	Muscle	1	1.7×10^{2}	-	-	-
体	Divolvio							
動	Divalvia	Venerida	Muscle	2	8.5×10^{0}	-	4.0×10^{0}	1.3×10^{1}
物								
脊								
椎	Actinontervaii	Salmoniformes	Musele	2	2.0×10^{2}		2.8×10^{2}	3.0×10^{2}
動 物	Actilopterygli	Samonionies	wiuseie	2	2 2.9×10 ²	<u> </u>	2.8×10 ²	5.0^10
	門 脊椎動物 軟体動物脊椎動物	門Class취Actinopterygii軟Bivalvia本Actinopterygii	門ClassOrderArrinopterygiiCypriniformes추 4 (Dismeriformes)	門ClassOrder部位名BonesInternalorganMuscleMuscle,estimatedWholebody000Bones000BonesPerciformesInternalPerciformesInternal000MuscleSiluriformesMuscleSiluriformesMuscleSiluriformesMuscleMytilidaMuscleNuscleMuscleNuscleMuscleNuscleMuscleActinoptergeiSalmoniformesMuscleMuscle	門ClassOrder部位名NSlassOrder部位名N </td <td>門ClassOrder部位名N数値*Bones81.0×10³Internal organ41.0×10³Muscle955.9×10²Muscle955.9×10²Muscle45.6×10²estimated45.6×10²Whole body722.6×10²Bones91.8×10³Muscle243.2×10²body243.2×10²body243.2×10²body243.2×10²body11.7×10²Muscle141.6×10³Muscle141.8×10³muscle141.8×10³muscle11.7×10²Muscle11.7×10²Muscle11.7×10²Muscle28.5×10⁰Muscle28.5×10⁰Muscle32.9×10²Muscle22.9×10²</td> <td>門 Class Order 部位名 N 数値* 標準偏 差 Bones 8 1.0×10^3 1.6×10^9 Internal mission 4 1.0×10^3 1.6×10^9 Internal mission 4 1.0×10^3 1.5×10^9 Cypriniformes Muscle 95 5.9×10^2 2.1×10^9 Muscle, estimated 4 5.6×10^2 1.9×10^9 Muscle, estimated 4 5.6×10^2 1.9×10^9 Muscle, estimated 4 5.6×10^2 1.9×10^9 Muscle 72 2.6×10^2 1.7×10^9 Someriformes Mole body 24 3.2×10^2 2.4×10^9 Perciformes Internal organ 1.9×10^3 1.5×10^9 1.1×10^9 Muscle 14 1.6×10^3 5.8×10^9 1.1×10^9 Siluriformes Muscle 14 1.6×10^3 1.2×10^9 Masol Venerida Muscle 1 1.7×10^2 -1</td> <td>門 Class Order 部位名 N 数値* 標準偏 最小値 \overline{x} Bones 8 1.0×10³ 1.6×10⁰ 4.8×10² Internal organ 1.0×10³ 1.6×10⁰ 4.8×10² Muscle 95 5.9×10² 2.1×10⁰ 3.0×10¹ Muscle 4 5.6×10² 1.9×10⁰ 2.9×10² Whole 72 2.6×10² 1.7×10⁰ 8.0×10¹ body 72 2.6×10² 1.7×10⁰ 1.6×10¹ ferminormes Mole 74 3.2×10² 2.4×10⁰ 1.6×10¹ ferminormes Muscle 14 1.6×10³ 1.6×10¹ 1.6×10¹ filternal 70 <</td>	門ClassOrder部位名N数値*Bones81.0×10 ³ Internal organ41.0×10 ³ Muscle955.9×10 ² Muscle955.9×10 ² Muscle45.6×10 ² estimated45.6×10 ² Whole body722.6×10 ² Bones91.8×10 ³ Muscle243.2×10 ² body243.2×10 ² body243.2×10 ² body243.2×10 ² body11.7×10 ² Muscle141.6×10 ³ Muscle141.8×10 ³ muscle141.8×10 ³ muscle11.7×10 ² Muscle11.7×10 ² Muscle11.7×10 ² Muscle28.5×10 ⁰ Muscle28.5×10 ⁰ Muscle32.9×10 ² Muscle22.9×10 ²	門 Class Order 部位名 N 数値* 標準偏 差 Bones 8 1.0×10^3 1.6×10^9 Internal mission 4 1.0×10^3 1.6×10^9 Internal mission 4 1.0×10^3 1.5×10^9 Cypriniformes Muscle 95 5.9×10^2 2.1×10^9 Muscle, estimated 4 5.6×10^2 1.9×10^9 Muscle, estimated 4 5.6×10^2 1.9×10^9 Muscle, estimated 4 5.6×10^2 1.9×10^9 Muscle 72 2.6×10^2 1.7×10^9 Someriformes Mole body 24 3.2×10^2 2.4×10^9 Perciformes Internal organ 1.9×10^3 1.5×10^9 1.1×10^9 Muscle 14 1.6×10^3 5.8×10^9 1.1×10^9 Siluriformes Muscle 14 1.6×10^3 1.2×10^9 Masol Venerida Muscle 1 1.7×10^2 -1	門 Class Order 部位名 N 数値* 標準偏 最小値 \overline{x} Bones 8 1.0×10 ³ 1.6×10 ⁰ 4.8×10 ² Internal organ 1.0×10 ³ 1.6×10 ⁰ 4.8×10 ² Muscle 95 5.9×10 ² 2.1×10 ⁰ 3.0×10 ¹ Muscle 4 5.6×10 ² 1.9×10 ⁰ 2.9×10 ² Whole 72 2.6×10 ² 1.7×10 ⁰ 8.0×10 ¹ body 72 2.6×10 ² 1.7×10 ⁰ 1.6×10 ¹ ferminormes Mole 74 3.2×10 ² 2.4×10 ⁰ 1.6×10 ¹ ferminormes Muscle 14 1.6×10 ³ 1.6×10 ¹ 1.6×10 ¹ filternal 70 <

表 3-21 Csの淡水域における水と水生生物間の濃縮係数 CR(L kg⁻¹, fresh weight)

*Nが1の場合はそのデータの値、Nが2の場合は算術平均値

3.9.2 海水生態系における水-生物濃縮係数

海域における水と水生生物間の濃縮係数 CRの値を表 3-22 に示す。

表 3-22 の脊椎動物 - Actinopterygii - Pleuronectiformes - Muscle の統計値算出に用いたパラ メータ値 (N=787) のデータ分布図 (正規確率プロット) を図 3-3 に示す。左図が元のパラメー タ値の正規確率、右図が対数変換したパラメータ値の正規確率である。土壌*K_dや*農作物*F_vと同様 に本パラメータも対数正規分布の方が正規分布よりも当てはまりが良いことがわかる。*

幾何 門 Class Order 部位名 Ν 数値* 最小値 最大値 標準偏差 Muscle. 3 4.6×101 1.4×10^{0} 3.3×10¹ 7.0×10^{1} Anguilliformes estimated Whole body 2 3.2×10¹ 2.9×101 3.5×10^{1} Muscle, 9.9×10¹ 34 5.9×10^{1} 1.4×10^{0} 1.9×10^{1} estimated Aulopiformes 97 Whole body 5.7×10^{1} 1.3×10^{0} 3.3×10^{1} 1.2×10^{2} 1.3×10^{2} Muscle 13 6.8×10^{1} 1.4×10^{0} 3.6×10¹ Muscle, Beloniformes 2 3.6×10¹ 4.5×10^{1} 2.8×10^{1} estimated Whole body 30 5.2×10¹ 1.5×10^{0} 1.8×10^{1} 1.4×10^{2} Muscle 4.4×10^{1} 1.5×10^{0} 3.0×10¹ 9.3×10¹ 6 Muscle, Clupeiformes 40 3.2×10¹ 1.3×10^{0} 1.7×10^{1} 7.8×10¹ estimated Whole body 351 3.2×10¹ 1.5×10^{0} 8.3×10^{0} 1.5×10^{2} 脊 7.9×10¹ 1.2×10^{0} 1.8×10^{2} Muscle 62 4.6×10¹ 椎 Actinopterygii Gadiformes Muscle, 動 111 8.2×10¹ 1.2×10^{0} 5.0×10¹ 1.5×10^{2} estimated 物 Muscle 3.1×10¹ 8.6×10^{0} 1.4×10^{2} 51 1.6×10^{0} Muscle, Mugiliformes 12 4.1×10^{1} 1.6×10^{0} 1.9×10^{1} 1.1×10^{2} estimated 4.0×10^{1} 3.0×10^{1} 8.1×10^{1} Whole body 5 1.4×10^{0} Osmeriformes 7.4×10^{1} 1.2×10^{0} 1.9×10^{1} 1.0×10^{2} Whole body 105 7.7×10^{1} 3.9×10¹ 1.6×10^{0} Bones 3 2.8×10^{1} Head, Bones. 35 3.7×10^{1} 1.5×10^{0} 1.1×10^{1} 7.4×10^{1} Fins 1.2×10^{0} 4.6×101 3.7×10^{1} 6.0×10¹ Internal organ 4 Perciformes 2.3×10^{2} Muscle 1010 6.3×10¹ 1.7×10^{0} 1.4×10^{1} Muscle, 613 5.1×10¹ 1.4×10^{0} 1.7×10^{1} 1.4×10^{2} estimated 5.3×10¹ Muscle+Bones 2 5.2×10^{1} 5.1×10¹

表 3-22 Cs の海域における水と水生生物間の濃縮係数 CR(L kg⁻¹, fresh weight)

Muscles+internal

5.4×10¹

-

-

-

1

	X • ==			- 1721-1-1-1			,		
門	Class	Order	部位名		Ν	数値*	幾何 標準偏差	最小値	最大値
			organ						
			Whole b	ody	1194	4.8×10 ¹	1.4×10^{0}	1.2×10 ¹	1.6×10 ²
			Whole	bodv					
			(excl.	internal	11	7.0×10^{1}	1.3×10^{0}	3.7×10^{1}	9.2×10 ¹
			organ)						
			Head.	Bones.					
			Fins	,	1	5.2×10^{1}	-	-	-
			Muscle		787	4.5×10 ¹	1.5×10^{0}	1.3×10 ¹	1.6×10 ²
		Pleuronectiformes	Muscle,		202	5.0.101	1.2.100	2 0 101	1 1 1 0 2
			estimated	d	293	5.3×10^{1}	1.3×10 ⁶	2.0×10^{1}	1.1×10 ²
			Muscle+	Bones	4	3.8×10 ¹	1.5×10^{0}	1.9×10^{1}	5.3×10 ¹
			Whole b	ody	126	4.4×10^{1}	1.4×10^{0}	1.7×10^{1}	1.2×10 ²
			Muscle		62	4.7×10^{1}	1.4×10^{0}	2.0×10^{1}	1.7×10^{2}
		Salmoniformes	Muscle, estimated	d	25	4.3×10 ¹	1.2×10 ⁰	3.4×10 ¹	7.6×10 ¹
			Head, Fins	Bones,	124	3.7×10 ¹	1.3×10 ⁰	1.7×10 ¹	8.8×10 ¹
			Muscle		907	6.5×10 ¹	1.3×10 ⁰	8.7×10 ⁰	1.9×10 ²
		Scorpaeniformes	Muscle,			< = 101		• • • • • •	
		-	estimated	d	351	6.5×10^{1}	1.4×10^{0}	2.0×10^{1}	1.3×10 ²
			Muscle+	Bones	5	6.2×10 ¹	1.2×10^{0}	4.8×10 ¹	8.4×10 ¹
			Whole b	ody	150	4.9×10 ¹	1.4×10^{0}	1.9×10 ¹	1.1×10 ²
			Bones		1	1.4×10^{1}	-	-	-
			Head,	Bones,	27	2.0×10^{1}	1.2×10^{0}	1 3 ×10 ¹	3.1×10^{1}
			Fins		21	2.0~10	1.2~10	1.5~10	5.1~10
		Tetraodontiformes	Muscle		67	3.4×10^{1}	1.3×10^{0}	1.5×10^{1}	6.7×10 ¹
			Muscle, estimated	d	8	2.8×10 ¹	1.3×10 ⁰	1.9×10 ¹	3.9×10 ¹
			Whole b	ody	146	2.7×10^{1}	1.4×10^{0}	1.3×10^{1}	6.7×10 ¹
			Head, Fins	Bones,	1	4.0×10 ¹	-	-	-
		Zeiformes	Muscle		2	1.3×10^{2}	-	6.5×10 ¹	2.0×10^{2}
			Whole b	odv	2	2.9×10^{1}		1.8×10^{1}	4.1×10^{1}
-		Carcharhiniformes	Muscle,	d	2	1.4×10 ²	-	5.0×10 ¹	2.3×10 ²
	Elasmobranchii	Myliobatiformes	Muscle		2	9 8×10 ¹		8 3×10 ¹	1.1×10^{2}
			Muscle.		2	2.0.10		0.5.10	1.1.10
		Rajiformes	estimated	d	1	6.6×10 ¹	-	-	-
5	Malacostraca	Decapoda	Muscle		101	2.9×10 ¹	1.3×10^{0}	1.5×10^{1}	6.0×10 ¹

表 3-22 Csの海域における水と水生生物間の濃縮係数 CR(Lkg⁻¹, fresh weight)

門	Class	Order	部位名	N	数值*	標準偏差	最小值	最大値
足			Whole body	10	3.3×10^{1}	1.3×10^{0}	2.0×10^{1}	4.8×10 ¹
動		Euphausiacea	Whole body	2	1.9×10 ¹	-	1.6×10^{1}	2.1×10 ¹
物		Mysida	Whole body	2	2.8×10^{1}	-	2.5×10^{1}	3.0×10^{1}
	Bangiophyceae	Bangiales	Whole body	2	1.6×10^{1}	-	1.6×10^{1}	1.7×10^{1}
	Floridoonby	Ceramiales	Whole body	2	5.1×10^{1}	-	3.4×10^{1}	6.8×10 ¹
	Florideophyceae	Gelidiales	Whole body	23	3.5×10 ¹	1.6×10^{0}	2.0×10^{1}	1.9×10 ²
		Dictyotales	Whole body	8	3.3×10^{1}	1.4×10^{0}	1.8×10^{1}	4.9×10 ¹
藻		Ectocarpales	Whole body	1	2.0×10^{1}	-	-	-
類	Phaeophyceae	Fucales	Whole body	1365	3.7×10 ¹	2.0×10 ⁰	9.7×10 ⁻	7.0×10 ²
		Ishigeales	Whole body	1	3.6×10 ¹	-	-	-
		Laminariales	Whole body	862	2.1×10 ¹	2.2×10^{0}	1.6×10 ⁰	8.4×10 ²
	Ulvophyceae	Ulvales	Whole body	33	2.1×10 ¹	2.2×10^{0}	4.7×10^{0}	1.9×10 ²
			Muscle	185	1.2×10^{1}	1.5×10^{0}	3.1×10 ⁰	4.3×10 ¹
		Mytilida	Muscle, estimated	49	1.1×10 ¹	1.8×10^{0}	4.8×10 ⁰	4.2×10 ¹
		Ostreida	Muscle	71	1.2×10^{1}	1.3×10^{0}	4.2×10 ⁰	2.6×10 ¹
	Bivalvia	Pectinida	Muscle	37	1.2×10^{1}	1.3×10^{0}	7.1×10^{0}	2.4×10 ¹
			Muscle, estimated	27	1.3×10 ¹	1.4×10^{0}	5.6×10 ⁰	2.2×10 ¹
		Venerida	Internal organ	4	3.0×10 ¹	1.2×10^{0}	2.6×10 ¹	3.8×10 ¹
			Muscle	81	1.8×10 ¹	1.5×10^{0}	6.2×10 ⁰	5.8×10 ¹
		Decapodiformes	Muscle	3	1.8×10 ¹	1.3×10^{0}	1.3×10 ¹	2.4×10 ¹
			Whole body	159	1.5×10 ¹	1.3×10 ⁰	6.9×10 ⁰	2.8×10 ¹
軟			Muscle	34	2.4×10 ¹	1.3×10^{0}	1.5×10 ¹	4.0×10 ¹
体		Myopsida	Whole body	20	1.8×10 ¹	1.3×10^{0}	1.2×10 ¹	2.7×10 ¹
虭			Muscle	16	1.5×10 ¹	1.3×10^{0}	9.9×10 ⁰	2.3×10 ¹
纲		Octopoda	Muscle, estimated	52	1.4×10 ¹	1.3×10^{0}	9.1×10 ⁰	2.9×10 ¹
	Cephalopoda		Whole body	25	1.4×10 ¹	1.4×10^{0}	7.5×10^{0}	2.6×10 ¹
			Muscle	3	1.3×10 ¹	1.2×10^{0}	1.1×10^{1}	1.6×10 ¹
		Oegopsida	Whole body	9	2.3×10 ¹	1.4×10^{0}	1.5×10 ¹	4.3×10 ¹
			Muscle	10	1.9×10 ¹	1.4×10^{0}	1.3×10 ¹	3.3×10 ¹
		Sepiida	Muscle, estimated	15	2.4×10 ¹	1.2×10^{0}	1.7×10 ¹	3.3×10 ¹
			Whole body	6	1.4×10 ¹	1.1×10^{0}	1.3×10 ¹	1.8×10 ¹
		T . 11 ¹ 1	Internal organ	8	1.5×10 ¹	1.4×10^{0}	1.0×10 ¹	2.4×10 ¹
	Gastropoda	Lepetellida	Muscle	92	1.3×10 ¹	1.6×10 ⁰	4.8×10 ⁰	3.7×10 ¹

表 3-22 Csの海域における水と水生生物間の濃縮係数 CR	(L kg ⁻¹ , fresh weight)
---------------------------------	-------------------------------------

	X 0 22	00 00 00 00 00 00 00			20 ON (E	ng , noon ,	noigint/	
門	Class	Order	部位名	Ν	数值*	幾何 標準偏差	最小値	最大値
			Muscle	10	1.6×10^{1}	1.4×10^{0}	7.1×10^{0}	2.1×10^{1}
		Neogastropoda	Muscle,	3	1.6×10 ¹	1.4×10^{0}	1.2×10^{1}	2.5×10^{1}
			estimated	estimated	1.0~10	1.4^10	1.2*10	2.3~10
			Internal organ	23	2.9×10^{1}	1.6×10^{0}	1.5×10^{1}	8.8×10^{1}
		Trachida	Muscle	193	1.8×10^{1}	1.6×10^{0}	6.8×10^{0}	2.1×10^{2}
		Trochida	Muscle,	211	1.1×10^{1}	1.8×10^{0}	2.0×10^{0}	7.2×101
			estimated	211	1.1~10	1.8~10	2.9~10	/.2~10
尾								
索	Ascidiacea	Stolidobranchia	Muscle	35	1.1×10^{1}	1.4×10^{0}	4.1×10 ⁰	2.0×10^{1}
動	Alsolutioed		Widsele	50	1.1*10			2.0/10
物								
	Asteroidea	表示なし	Whole body	2	1.2×10^{2}	-	1.1×10^{2}	1.3×10 ²
##	Echinoidea	Spatangoida	Gonad	15	2.2×10^{1}	1.3×10^{0}	1.3×10^{1}	3.5×10 ¹
郴		Holothuroiida	Muscle	2	2.0×10^{1}	-	1.9×10^{1}	2.2×10^{1}
及動			Muscle	4	1.8×10^{1}	1.6×10^{0}	9.9×10 ⁰	3.4×10^{1}
動	Holothuroidea	ま=た1	Muscle,	11	1.7×10]	1.9×100	6.7×100	5 0×101
物		表示なし	estimated	11	1.7×10^{1}	1.8×10^{0}	6.7×10^{0}	5.0~10
			Whole body	55	1.6×10 ¹	2.0×10^{0}	4.7×10^{0}	5.9×10 ¹

表 3-22 Csの海域における水と水生生物間の濃縮係数 CR(Lkg⁻¹, fresh weight)



図 3-3 水と水生生物間の濃縮係数(海域)の正規確率プロット

4. まとめ

我が国の環境移行パラメータ値に関するデータベースを作成するため、様々なパラメータ値の 収集を行なってきた。本データ集では、データが豊富な放射性 Cs について、現在までに取得さ れた知見・データを整理・蓄積した結果を取りまとめたパラメータ値を報告した。ただし移行係 数や濃縮係数等については平衡状態における値の取り込みが必要であり、したがって福島第一原 発事故後の値をどの程度採用できるかどうかについては十分な検討が必要である。そのため事故 後のデータは一部しか含まれていない。あくまでも本データ集の数値は、現在までの情報をまと めたものであり、今後データベースとして公開されるまでにさらにデータが見直される可能性が ある。なお、データベースでは今回とりまとめたデータの元となる個別データも見ることができ るようになる予定であり、ユーザーのニーズに沿ったデータの活用が期待される。

本データ集は、経済産業省資源エネルギー庁委託事業「令和5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) 【地層処分安全評価確証技術開発(核種移行総合 評価技術開発)】」の成果を利用した。

5. 参照文献

- IAEA, Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments, Technical Report Series No. 472, IAEA, Vienna (2010).
- [2] IAEA, Sediment Distribution Coefficients and Concentration Factors for Biota in the Marine Environment, Technical Report Series No. 422, IAEA, Vienna (2004).
- [3] International Atomic Energy Agency/International Union of Radioecology (IAEA/IUR), Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Temperate Environments, Technical Reports Series No. 364, Vienna (1994).
- [4] International Atomic Energy Agency (IAEA), Exemption of Radiation Sources and Practices from Regulatory Control - INTERIM REPORT, IAEA-TECDOC-401, Vienna (1987).
- [5] Smith, G. M., Fearn, H. S., Smith, K. R., Davis, J. P. and Klos, R., Assessment of the Radiological Impact of Disposal of Solid Radioactive Waste at Drigg, National Radiological Protection Board, NRPB-M148, Londong (1988).
- [6] International Atomic Energy Agency (IAEA), Sediment Kds and Concentration Factors for Radionuclides in the Marine Environment, IAEA Tech. Rep. Series No. 247, Vienna (1985).
- [7] Ashton, J. and Sumerling, T. J., Biosphere Database for Assessments of Radioactive Waste Disposals, UKDoE Report No. DoE/RW/88.083, London (1988).
- [8] 原子力環境整備センター,環境パラメータ・シリーズ1 「土壌から農作物への放射性物質の 移行係数」,内田滋夫 他,原子力環境整備センター (1988).
- [9] 原子力環境整備センター,環境パラメータ・シリーズ2「土壌と土壌溶液間の放射性核種の 分配係数」,内田滋夫 他,原子力環境整備センター (1990).
- [10] 原子力環境整備センター,環境パラメータ・シリーズ3 「淡水から生物への放射性物質の移動」,清水 誠 他、原子力環境整備センター (1992).
- [11] 原子力環境整備センター,環境パラメータ・シリーズ4 「食品の調理・加工による放射性核 種の除去率」,大桃洋一郎 他、原子力環境整備センター (1994).
- [12] 原子力環境整備センター,環境パラメータ・シリーズ5 「飼料から畜産物への放射性核種の 移行係数」,佐伯誠道 他、原子力環境整備センター (1995).
- [13] 原子力環境整備センター,環境パラメータ・シリーズ6「海洋生物への放射性物質の移行」, 佐伯誠道 他、原子力環境整備センター(1996).
- [14] 原子力環境整備センター,環境パラメータ・シリーズ7「海洋における放射性核種の移行パ ラメータ」,佐伯誠道 他、原子力環境整備センター (1996).
- [15] 電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構, TRU 廃棄物処分技術検討書一第2次TRU 廃 棄物処分研究開発取りまとめー, JNC TY1400 2005-013, FEPC TRU-TR2-2005-02, 556p.
 (2005).
- [16] 原子力発電環境整備機構(NUMO),包括的技術報告:わが国における安全な地層処分の実現, https://www.numo.or.jp/technology/technical_report/tr180203.html (accessed 12)

January 2024).

- [17] 深谷友紀子,内田滋夫,日本の放射性廃棄物処分に係わる生活圏被ばく線量評価に用いられ たパラメータ,令和2年度「放射性廃棄物処分に係わる生活圏被ばく線量評価パラメータ」, 京都大学,pp. 6-18 (2021).
- [18] 髙橋 知之、深谷 友紀子、飯本 武志、宇仁 康雄、加藤 智子、孫 思 依、 武田 聖司、中居 邦浩、中 林 亮、内田 滋夫、田上 恵子、平 山 誠,「放射性廃棄物処分に係わる生活圏被ば く評価に用いられる パラメータ調査専門研究会」活動報告,保健物理誌 56,288-305.2021.
- [19] Chamberlain, A. C., Chadwick, R. C. Deposition of spores and other particles on vegetation and soil. Annals of Applied Biology, 71, 141-158 (1972).
- [20] 田上恵子、環境移行データによる放射性核種の環境動態と将来予測、Radioisotopes 68, 805-814 (2019).
- [21] Takada, M., Yasutaka, T., Hayashi, S., Takagi, M. and Tagami, K., Aggregated transfer factor of 137Cs in edible wild plants and its time dependence after the Fukushima Daiichi nuclear accident. Scientific Reports, 12, 5171 (2022).
- [22] Hayashi, S., Watanabe, M., Koshikawa, Masami K, Takada, M. Takechi, S., Takagi, M., Sakai M. and Masanori T., Explaining the variation in 137Cs aggregated transfer factor for wild edible plants as a case study on Koshiabura (Eleutherococcus sciadophylloides) buds, Scientific Reports, 13, 14162 (2023).

6. パラメータ値の引用文献

3章の統計値に使用したパラメータ値の引用文献をリストとして以下に示す。

- Aii, T., Kume, S. I., Takahashi, S., Kurihara, M., Mitsuhashi, T. (1990). The effect of the radionuclides from Chernobyl on iodine-131 and cesium-137 contents in milk and pastures in Southwestern Japan. Journal of Zootechnical Science, 61, 47-53.
- Al-Masri, M. S., Al-Hamwi, A., Amin, Y., Safieh, M. B., Zarkawi, M., Soukouti, A., Dayyoub, R., Voigt, G., Fesenko, S. (2014). Radionuclide transfer from feed to camel milk. Journal of Environmental Radioactivity, 132, 8-14.
- Aung, H. P., Djedidi, S., Oo, A. Z., Aye, Y. S., Yokoyama, T., Suzuki, S., Sekimoto, H. Bellingrath-Kimura, S. D. (2015). Growth and ¹³⁷Cs uptake of four Brassica species influenced by inoculation with a plant growth-promoting rhizobacterium *Bacillus pumilus* in three contaminated farmlands in Fukushima prefecture, Japan. Science of the Total Environment, 521, 261-269.
- Başkaya, H., Doğru, M., Küçükönder, A. (2014). Determination of the ¹³⁷Cs and ⁹⁰Sr radioisotope activity concentrations found in digestive organs of sheep fed with different feeds. Journal of Environmental Radioactivity, 134, 61-65.
- Centers for Disease Control and Prevention (2017). Scenario R: Atmospheric Resuspension of Radionuclides. https://www.cdc.gov/nceh/radiation/brochure/pdf/Resuspension.pdf
- Chaif, H., Coppin, F., Bahi, A., Garcia-Sanchez, L. (2021). Influence of non-equilibrium sorption on the vertical migration of ¹³⁷Cs in forest mineral soils of Fukushima Prefecture. Journal of Environmental Radioactivity, 232, 106567.
- Clooth, G., Aumann, D. C. (1990). Environmental transfer parameters and radiological impact of the Chernobyl fallout in and around Bonn (FRG). Journal of Environmental Radioactivity, 12, 97-119.
- De Meijer, R. J., Aldenkamp, F. J., Brummellluis, M. J. A. M., Jansen, J. F. W., Put, L. W. (1990). Radionuclide concentrations in the northern part of The Netherlands after the Chernobyl reactor accident. Health Physics, 58, 441-452.
- Endo, R., Kadokura, H., Tanaka, K., Ubukata, S., Tsubura, H., Ozaki, Y. (2013). Analysis of factors involved in absorption of radioactive caesium for processing tomatoes. Radioisotopes (Tokyo), 62(5), 275-280.
- Fukushima prefecture (2014). Guidelines for decontamination and technical measures for radioactive cesium in crops, No.3 (https://www.pref.fukushima.lg.jp/uploaded/attachment/61508.pdf)
- Gang, S. J. (2014). Interpreting Radioactive Cesium Migration in Forest Soil after Fukushima Nuclear Accident: Monitoring and Modeling Approach. Kyoto University Doctoral Thesis. pp. 142. https://repository.kulib.kyoto-u.ac.jp/dspace/bitstream/2433/192178/5/dkogk03939.pdf
- Garger, E. K. (1994). Air concentrations of radionuclides in the vicinity of Chernobyl and the effects of resuspension. Journal of Aerosol Science, 25, 745-753.
- Garger, E. K., Anspaugh, L. R., Shinn, J. H., Hoffman, F. O. (1995). A test of resuspension factor models against Chernobyl data. In Proc. of an Int. Symp. Environ. Impact of Radioactive Releases, (IAEA), 8-12 May 1995, UCRL-JC-123712.
- Garger, E., Gordeev, S., Hollaender, W., Kashparov, V., Kashpur, V., Martinez-Serrano, J., Mironov, V., Peres, J., Tschiersch, J., Vintersved, I., Watterson, J. (1996). Resuspension and Deposition of

Radionuclides Under Various Conditions. Proc. 1st Int. Conf. 'The radiological consequences of the Chernobyl accident', 18-22 Mar, (1996).

- Garland, J. A., Pomeroy, I. R. (1994). Resuspension of fall-out material following the Chernobyl accident. Journal of Aerosol Science, 25, 793-806.
- Hashimoto, K., Tanoi, K., Sakurai, K. (2011). The radioactivity measurement of milk from the cow supplied with the meadow grass grown in Ibaraki-prefecture, after the nuclear power plant accident. Radioisotopes (Tokyo), 60(8), 335-338.
- Hayashi, S., Watanabe, M., Kanao Koshikawa, M., Takada, M., Takechi, S., Takagi, M., Sakai, M., Tamaoki, M. (2023). Explaining the variation in ¹³⁷Cs aggregated transfer factor for wild edible plants as a case study on Koshiabura (Eleutherococcus sciadophylloides) buds. Scientific Reports, 13, 14162.
- Hirono, Y., Nonaka, K. (2016). Time series changes in radiocaesium distribution in tea plants (Camellia sinensis (L.)) after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. Journal of Environmental Radioactivity, 152, 119-126.
- Holländer, W. (1994). Resuspension factors of ¹³⁷Cs in Hannover after the Chernobyl accident. Journal of Aerosol Science, 25, 789-792.
- Ikka, T., Nishina, Y., Kamoshita, M., Oya, Y., Okuno, K., Morita, A. (2018). Radiocesium uptake through leaf surfaces of tea plants (Camellia sinensis L.). Journal of Environmental Radioactivity, 182, 70-73.
- Iwata, H., Shiotsu, H., Kaneko, M., Utsunomiya, S. (2012). Nuclear accidents in Fukushima, Japan, and exploration of effective decontaminant for the ¹³⁷Cs-contaminated soils. Advances in Nuclear Fuel, 123-142.
- Joshi, R. M., James, J. P., Dileep, B. N., Mulla, R. M., Reji, T. K., Ravi, P. M., Hegde, A.G., Sarkar, P. K. (2012). Transfer coefficient of ¹³⁷Cs from feed to cow milk in tropical region Kaiga, India. Radiation Protection Dosimetry, 149, 333-339.
- Kaneyasu, N., Ohashi, H., Suzuki, F., Okuda, T., Ikemori, F., Akata, N., Kogure, T. (2017). Weak size dependence of resuspended radiocesium adsorbed on soil particles collected after the Fukushima nuclear accident. Journal of Environmental Radioactivity, 172, 122-129.
- Kasar, S., Mishra, S., Sahoo, S. K., Kavasi, N., Omori, Y., Arae, H., Sorimachi, A., Aono, T. (2021). Sorption-desorption coefficients of uranium in contaminated soils collected around Fukushima Daiichi Nuclear Power Station. Journal of Environmental Radioactivity, 233, 106617.
- Kumar, D., Kumar, A., Sharma, A. K., Singh, B., Ravi, P. M., Sarkar, P. K. (2013). Study of the transfer of ¹³⁷Cs from fodder to cow milk in the region around narora atomic power station npp site, India. Radiation Protection Dosimetry, 156, 223-230.
- Manabe, N., Takahashi, T., Endo, M., Piao, C., Li, J., Kokado, H., Ohta, M., Tanoi, K., Nakanishi, T. M. (2016). Effects of "clean feeding" management on livestock products contaminated with radioactive Cesium due to the Fukushima Daiichi nuclear power plant accident. In Agricultural Implications of the Fukushima Nuclear Accident. Springer, Tokyo, 77-90.
- Martin, C. J., Heaton, B., Robb, J. D. (1988). Studies of 131I, ¹³⁷Cs and ¹⁰³Ru in milk, meat and vegetables in North East Scotland following the Chernobyl accident. Journal of Environmental Radioactivity, 6, 247-259.

Matsunaga, T., Koarashi, J., Atarashi-Andoh, M., Nagao, S., Sato, T., Nagai, H. (2013). Comparison of the

vertical distributions of Fukushima nuclear accident radiocesium in soil before and after the first rainy season, with physicochemical and mineralogical interpretations. Science of the Total Environment, 447, 301-314.

- Mishra, S., Sahoo, S. K., Arae, H., Watanabe, Y., Mietelski, J. W. (2014). Activity ratio of caesium, strontium and uranium with site specific distribution coefficients in contaminated soil near vicinity of Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. Journal of Chromatography and Separation Techniques, 5(250), 2.
- Monte, L. (1991). Analysis of radiocontamination data, collected in Italy following the Chernobyl accident, for the evaluation of transfer parameters of radionuclides in the deposition-vegetation-cowmilk pathway. Journal of Environmental Radioactivity, 14, 317-329.
- Mück, K., Gerzabek, M. H. (1995a). Trends in caesium activity concentrations in milk from agricultural and semi-natural environments after nuclear fallout (No. OEFZS--4766). Oesterreichisches Forschungszentrum Seibersdorf GmbH (Austria).
- Nair, S., Iijima, T. (1988). GRECA review of chernobyl data on transfer to animal products. In: Proceedings of the Joint OECD (NEA)/CEC Workshop on Recent Advances in Reactor Accident Consequence Assessment Vol.1, CSNI Report 145, pp. 169-199.
- Nicholson, K. W. (1989). The deposition, resuspension and weathering of Chernobyl derived material in the UK. Journal of Radiological Protection, 9, 113.
- Ochiai, S., Hasegawa, H., Kakiuchi, H., Akata, N., Ueda, S., Tokonami, S., Hisamatsu, S. (2016).
 Temporal variation of post-accident atmospheric ¹³⁷Cs in an evacuated area of Fukushima Prefecture: Size-dependent behaviors of ¹³⁷Cs-bearing particles. Journal of Environmental Radioactivity, 165, 131-139.
- Ohmori, H., Sasaki, Y., Tajima, K., Katsumata, M. (2014). Radioactive caesium concentrations in pigs fed brown rice contaminated by the Tokyo Electric Power Company Fukushima Daiichi nuclear power plant. Livestock Science, 159, 156-160.
- Pratama, H. A., Yoneda, M., Shimada, Y., Satoshi, F., Ikegami, M. (2019, April). Correlation between Different Type of Caesium Carrier in The Radiocaesium Interception Potential Measurement for Forest Soils. In Journal of Physics: Conference Series (Vol. 1198, No. 2, p. 022026). IOP Publishing.
- Pröhl, G., Hoffman, F. O. (1996). Radionuclide interception and loss processes in vegetation (No. IAEA-TECDOC-857), pp. 9-47.
- Rosner, G., Winkler, R. (2001). Long-term variation (1986–1998) of post-Chernobyl ⁹⁰Sr, ¹³⁷Cs, ²³⁸Pu and ^{239,240}Pu concentrations in air, depositions to ground, resuspension factors and resuspension rates in south Germany. Science of the Total Environment, 273, 11-25.
- Sakaguchi, A., Chiga, H., Tanaka, K., Tsuruta, H., Takahashi, Y. (2018). Estimation of desorption ratios of radio/stable caesium from environmental samples (aerosols and soils) leached with seawater, diluted seawater and ultrapure water. Geochemical Journal, 52, 187-199.
- Sasaki, T., Matoba, D., Dohi, T., Fujiwara, K., Kobayashi, T., Iijima, K. (2020). Vertical distribution of ⁹⁰Sr and ¹³⁷Cs in soils near the Fukushima Daiichi nuclear power station. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 326, 303-314.
- Sato, H. (2015). Derivation of Apparent Diffusion coefficient (Da) and Distribution Coefficient (Kd) from
 Evolution of Depth Distribution of Radiocaesium in Soil Contaminated by the Fukushima
 NPP accident. In: Proceedings of International Symposium on Radiological Issues for

Fukushima's Revitalized Future. Kyoto University Research Reactor Institute, p.85.

- Seppo, V. (1988). Review of evaluations concerning radionuclide transfer to foodstuffs via plants in view of the data available after the Chernobyl accident. In: Proceedings of the Joint OECD (NEA)/CEC Work-shop on Recent Advances in Reactor Accident Consequence Assessment Vol.1, CSNI Report 145, pp. 158-168. OECD NEA, Paris
- Spezzano, P., Giacomelli, R. (1991). Transport of 131I and 137Cs from air to cows' milk produced in North-Western Italian farms following the Chernobyl accident. Journal of environmental radioactivity, 13, 235-250.
- Tagami, K. (personal communication)
- Tagami, K., Uchida, S., Ishii, N., Kagiya, S. (2012). Translocation of radiocesium from stems and leaves of plants and the effect on radiocesium concentrations in newly emerged plant tissues. Journal of Environmental Radioactivity, 111, 65-69.
- Tagami, K., Howard, B. J., Uchida, S. (2016). The time-dependent transfer factor of radiocesium from soil to game animals in Japan after the Fukushima Dai-ichi nuclear accident. Environmental Science and Technology, 50, 9424-9431.
- Tagami, K., Yasutaka, T., Takada, M., Uchida, S. (2021a). Aggregated transfer factor of ¹³⁷Cs in wild edible mushrooms collected in 2016–2020 for long-term internal dose assessment use. Journal of Environmental Radioactivity, 237, 106664.
- Tagami, K., Uchida, S. (2021b). Mass interception fractions and weathering half-lives of iodine-131 and radiocesium in leafy vegetables observed after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident. Journal of Radiation Protection and Research, 46(4), 178-183.
- Taira, Y., Matsuo, M., Orita, M., Matsunaga, H., Kashiwazaki, Y., Xiao, X., Hirao, S. Takamura, N.
 (2023). Regional Case Studies: Environmental Radioactivity Levels and Estimated Radiation
 Exposure Doses of Residents and Workers in Areas Affected by the Fukushima Daiichi
 Nuclear Power Plant Accident. Radiation Environment and Medicine, 12, 37-52.
- Takada, M., Yasutaka, T., Hayashi, S., Takagi, M., Tagami, K. (2022). Aggregated transfer factor of ¹³⁷Cs in edible wild plants and its time dependence after the Fukushima Dai-ichi nuclear accident. Scientific Reports, 12, 5171.
- Takahashi, T., Emoto, Y., Endo, M. (2012). Changes in radionuclide levels in milk from the cow supplied with pasture grown in Ibaraki Prefecture, after the accident in Fukushima Daiichi nuclear power plant. Radioisotopes (Tokyo), 61, 551-554.
- Takata, H., Aono, T., Tagami, K., Uchida, S. (2016). A new approach to evaluate factors controlling elemental sediment–seawater distribution coefficients (Kd) in coastal regions, Japan. Science of the Total Environment, 543, 315-325.
- Takeda, A., Tsukada, H., Unno, Y., Takaku, Y., Hisamatsu, S. (2020). Effects of organic amendments on the natural attenuation of radiocesium transferability in grassland soils with high potassium fertility. Journal of Environmental Radioactivity, 217, 106207.
- Takizawa, Y., Abe, T., Hisamatsu, S. (1988). Effects of the Chernobyl reactor accident in the USSR on Akita, Northern Japan. Acta Medica et Biologica, 35, 109-118.
- Tateda, Y. (1996). Concentration factors for ¹³⁷Cs in Japanese coastal fish. Journal of Radiation Research, 37(2), 71-79
- Tsukada, H., Shibata, H., Sugiyama, H. (1998). Transfer of radiocaesium and stable caesium from substrata to mushrooms in a pine forest in Rokkasho-mura, Aomori, Japan. Journal of Environmental

Radioactivity, 39, 149-160.

- Uchida, S., Tagami, K. (2017). Comparison of coastal area sediment-seawater distribution coefficients (Kd) of stable and radioactive Sr and Cs. Applied Geochemistry, 85, 148-153.
- Uematsu, S. (2017). Radiocaesium transfer to crops in the Fukushima affected environments: a soil chemical and plant physiological approach. Doctoral Thesis KU Leuven, Science, Engineering and Technology, No.1395.
- Wagenpfeil, F., Paretzke, H. G., Peres, J. M., Tschiersch, J. (1999). Resuspension of coarse particles in the region of Chernobyl. Atmospheric Environment, 33(20), 3313-3323.
- Yoshida, S., Muramatsu, Y. (1994). Concentrations of radiocesium and potassium in Japanese mushrooms. Environmental Science, 7, 63-70.
- 赤田尚史, 柿内秀樹, 他. (2012). 福島県郡山市における放射性セシウムの粒径別大気中濃度と再 浮遊率. 原子力学会秋の大会予稿集, O2.
- 赤山喜一郎,原田浩司,廣野祐平,谷口克彦,久保田祥子,山本幸洋,真行寺孝. (2016). 千葉県の
 茶樹及び茶園土壤における放射性セシウム濃度及び存在量の経年変化とその要因.千
 葉県農林総合研究センター研究報告 = Annual research bulletin of the Chiba Prefectural
 Agriculture and Forestry Research Center, 8, 69-79.
- 荒井義光, 竹内恵, 遠藤あかり, 齋藤隆. (2011). 大豆子実の放射性セシウム濃度と交換性カリの関係. 福島県農業総合センター研究成果.

https://www.pref.fukushima.lg.jp/uploaded/attachment/453446.pdf

- 石川雄治, 矢内伸佳, 渡邊鋼一, 古閑文哉, 内田守譜, 佐藤亮一. (2014). 福島県農業総合センター 研究成果. ゼオライトは牛生体から放射性セシウムの排出を促進できない. https://www.pref.fukushima.lg.jp/uploaded/attachment/307502.pdf
- 伊藤伸彦, 椚山巌, 木口伸二, 久保盛恵, 亀田昌典, 古川義宣. (1994). 青森県における牛乳への ¹³⁷Cs 移行係数. Radioisotopes, 43, 695-699.
- 入澤歩. (2016). 放射性 Cs のキノコへの取り込み機構と環境中での動態の研究. 東北大学博士号 学位論文. 甲第 16748 号
- 生沼英之, 齋藤美緒, 小田康典, 遠藤孝悦. (2013). 泌乳牛におけるゼオライトによる放射性セシウ ム移行抑制効果. 日本畜産学会報, 84, 333-339.
- 小野勇治,大竹祐一. (2013). アスパラガスの放射性セシウム濃度の経年変化. 福島県農業総合センター研究成果. https://www.pref.fukushima.lg.jp/uploaded/attachment/453916.pdf
- Calculated based on 環境省. (2023). 水生生物放射性物質モニタリング調査結果(まとめ).

https://www.env.go.jp/jishin/monitoring/results_r-pw.html

慶徳庄司,根本和俊,竹内恵,平山孝,遠藤あかり,長澤梓. (2012). 大豆における牛糞堆肥施用に よる放射性セシウムの吸収抑制. 福島県農業総合センター研究成果.

https://www.pref.fukushima.lg.jp/uploaded/attachment/453806.pdf

- Calculated based on 原子力規制庁. (2023). 環境放射線データベース. https://www.kankyo-hoshano.go.jp/data/database/
- 齊藤誠一,小林智之,斎藤幸平. (2013). 野菜の放射性セシウム濃度の経年変化. 福島県農業総合センター研究成果. https://www.pref.fukushima.lg.jp/uploaded/attachment/453923.pdf
- 齊藤誠一. (2013). 新植するタラノキほ場にカリ施用を行った場合の放射性セシウムの吸収抑制効果. 福島県農業総合センター研究成果.

https://www.pref.fukushima.lg.jp/uploaded/attachment/454026.pdf

齋藤隆, 佐藤睦人. (2011). 現地ほ場で栽培した各種野菜における放射性物質の吸収. 福島県農業

総合センター研究成果. https://www.pref.fukushima.lg.jp/uploaded/attachment/453427.pdf

齋藤隆, 高橋和平. (2012). 現地ほ場で栽培したイモ類および根菜類野菜の放射性物質吸収. 福島 県農業総合センター研究成果.

https://www.pref.fukushima.lg.jp/uploaded/attachment/453787.pdf

- 齋藤正明. (2011). 土壌の違いにより放射性セシウムの移行係数(TF)は異なる. 福島県農業総合 センター研究成果. https://www.pref.fukushima.lg.jp/uploaded/attachment/453424.pdf
- 鈴木幸雄. (2014a). 高線量農地における資源作物としてソルガム栽培の実証(富岡町). 福島県農 業総合センター研究成果.

https://www.pref.fukushima.lg.jp/uploaded/attachment/454892.pdf

鈴木幸雄. (2014b). 「表土剥ぎ+客土」除染した草地における単年生牧草栽培の実証(葛尾村). 福島県農業総合センター研究成果.

https://www.pref.fukushima.lg.jp/uploaded/attachment/454893.pdf

- 白木与志也, 武田甲, 岡本保, 北宜裕. (2013a). 神奈川県の茶樹における放射性セシウム濃度の経時変化について. 茶業研究報告, 115, 1-9.
- 白木与志也, 武田甲, 岡本保, 北宜裕. (2013b). 放射性セシウムの茶苗木における転流, および成 木茶園の枝, 幹における分布について. 茶業研究報告, 115, 11-19.
- 白木与志也, 武田甲, 岡本保, 北宜裕. (2013c). 神奈川県の茶における 2012 年産新芽と古葉及び 2011 年産新芽の放射性セシウム濃度との関係について. Radioisotopes, 62, 183-190.
- 古賀妙子,森嶋彌重,河合廣,西脇安,近藤宗平. (2008). チェルノブイリ原子力発電所事故による 琵琶湖生態圏における放射性核種の挙動と分布. 近畿大学原子力研究所年報,44,7-20.
- 小林智之,加藤義明,二階堂英行,齊藤誠一,名倉明夫,齋藤裕史,三好博子,雨宮潤子,村松康 行,大野剛. (2014).野菜類における放射性セシウムの移行係数 (放射性物質対策特集 号).福島県農業総合センター研究報告= Bulletin of the Fukushima Agricultural Technology Centre, (特集号), 46-49.
- 小林美穂,鈴木一好,宮本進,西村宏一,小松正憲,栂村恭子,的場和弘,木方展治.(2012).東京電 力福島第一原子力発電所事故に伴う放射性物質の飛散を受けて実施した放牧試験牛 の乳中放射能緊急調査報告.日本畜産学会報,83,57-64.
- 駒村美佐子,津村昭人,山口紀子,木方展治,小平潔. (2005).わが国の米,小麦および土壌における ⁹⁰Sr と ¹³⁷Cs 濃度の 1959 年から 2000 年にわたるモニタリング調査.
- 田上恵子,内田滋夫. (2020a).東京電力福島第一原子力発電所事故由来の I-131 及び放射性セシウムの葉菜類のウェザリング半減期の主要因に関する考察 (1) 実測値によるウェザリング半減期. Radioisotopes, 69, 341-352.
- 田上恵子,内田滋夫. (2020b).東京電力福島第一原子力発電所事故由来の I-131 及び放射性セシウムの葉菜類のウェザリング半減期の主要因に関する考察 (2) チェルノブイリ原発事故後における草本植物ウェザリング半減期との比較. Radioisotopes, 69, 353-364.
- 田上恵子,高田モモ,保高徹生,内田滋夫. (2020). 山菜中の放射性セシウム濃度の経年変化:近年 は減少しているのか? KEK Proceedings 2020-4, 98-103.
- 田上恵子,内田滋夫. (2023). 福島第一原発事故後に収集された放射性セシウムの土壌-土壌溶液間 分配係数に関する考察. 放射化学, 47, 1-10.
- 武石稔,川村将,中島尚子. (1993). ひ沼におけるフォールアウト核種の移行挙動に関する研究 (I). 保健物理, 28(3), 283-289.
- 竹内恵. (2013a). 大豆におけるカリ施用による放射性セシウムの吸収抑制. 福島県農業総合センタ

一研究成果. https://www.pref.fukushima.lg.jp/uploaded/attachment/453942.pdf

竹内恵. (2013b). 大豆における塩化カリの施用許容量. 福島県農業総合センター研究成果.

https://www.pref.fukushima.lg.jp/uploaded/attachment/453943.pdf

- 根本知明. (2014). 未除染農地での資源用トウモロコシ栽培の実証(南相馬市). 福島県農業総合 センター研究成果. https://www.pref.fukushima.lg.jp/uploaded/attachment/454896.pdf
- 根本知明. (2015). 除染後農地(深耕) におけるバレイショ栽培の実証(富岡町). 福島県農業総合 センター研究成果. https://www.pref.fukushima.lg.jp/uploaded/attachment/456177.pdf

農林水産省農林水産技術会議事務局技術政策課. (2014). 農林水産省関係放射能調査研究年報 平成 24 年度. https://www.library-archive.maff.go.jp/index/200440857 0001?p=1

農林水産省農林水産技術会議事務局技術政策課. (2015). 農林水産省関係放射能調査研究年報 平成 25 年度. https://www.library-archive.maff.go.jp/index/200440865 0001?p=1

農林水産省農林水産技術会議事務局技術政策課. (2016). 農林水産省関係放射能調査研究年報 平成 26 年度. https://www.library-archive.maff.go.jp/index/200486777 0001?p=1

農林水産省農林水産技術会議事務局技術政策課. (2017). 農林水産省関係放射能調査研究年報 平成 27 年度. https://www.library-archive.maff.go.jp/index/200506780 0001?p=1

- 農林水産省農林水産技術会議事務局技術政策課. (2018). 農林水産省関係放射能調査研究年報 平成 28 年度. https://www.library-archive.maff.go.jp/index/200512796 0001?p=1
- 農林水産省農林水産技術会議事務局技術政策課. (2019). 農林水産省関係放射能調査研究年報 平成 29 年度. https://www.library-archive.maff.go.jp/index/200518652 0001?p=1
- 農林水産省農林水産技術会議事務局技術政策課. (2020). 農林水産省関係放射能調査研究年報 平成 30 年度. https://www.library-archive.maff.go.jp/index/200523314 0001?p=1
- 農林水産省農林水産技術会議事務局技術政策課. (2021). 農林水産省関係放射能調査研究年報 令 和元年度. https://www.library-archive.maff.go.jp/index/200537298 0001?p=1

農林水産省農林水産技術会議事務局技術政策課. (2022). 農林水産省関係放射能調査研究年報 令和2年度. https://www.library-archive.maff.go.jp/index/200544369 0001?p=1

野中邦彦, 廣野祐平. (2011). 二番茶生育期間中の茶樹におけるセシウムの吸収・移行について. 茶業研究報告, 112, 55-59.

平山孝. (2011). コンニャクイモの球茎・精粉は放射性セシウムをほとんど含まない. 福島県農業 総合センター研究成果. https://www.pref.fukushima.lg.jp/uploaded/attachment/453449.pdf

平山孝, 荒井義光, 佐藤睦人. (2011). ヒマワリ栽培によるファイトレメディエーション効果の検 証. 福島県農業総合センター研究成果.

https://www.pref.fukushima.lg.jp/uploaded/attachment/453447.pdf

- 福田一義,奥井登代,小林 智.(1986). チェルノブイリ原発事故に由来する¹³¹I及び¹³⁷Csの放牧時における牧草から原乳への移行について. 第28回環境放射能調査研究成果論文抄録集,pp.356-358,科学技術庁,東京
- 放射線医学総合研究所. (2004-2008). 放射性核種生物圏移行パラメータ調査. 資源エネルギー庁委 託事業報告
- 放射線医学総合研究所. (2013-2017). 放射性核種生物圏移行評価高度化開発. 資源エネルギー庁委託事業報告.

https://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/library06.html

本多勇介, 宮崎保博. (2016). 埼玉県の茶樹と茶園土壌の放射性セシウム動態及び放射性セシウム 低減対策. 埼玉県農林総合研究センター研究報告 = Bulletin of the Saitama Prefectural Agriculture and Forestry Research Center, 15, 25-32. 松木伸浩,柳田和弘. (2015). 除染後農地における牧草栽培の実証(楢葉町・葛尾村). 福島県農 業総合センター研究成果.

https://www.pref.fukushima.lg.jp/uploaded/attachment/456173.pdf

- 三橋俊彦, 古川良平. (1987). 牛乳の放射性核種に関する調査研究 -ソ連原発事故の牛乳への影響-, Bulletin of the National Institute of Animal Industry, 46, 7-16.
- 三橋俊彦. (1996). 国産牛乳におけるセシウム-137 の移行係数に関する研究. 畜産試験場研究報告 No. 56, 1-6.
- 宮野英喜, 佐藤茂次. (2014). 地鶏が放射性セシウムを摂取した時の体内蓄積 (放射性物質対策特 集号). 福島県農業総合センター研究報告, 110-112.
- 村松康行,吉田聡. (1997). キノコと放射性セシウム. Radioisotopes, 46, 450-463.
- 柳田和弘. (2015a). 放射性セシウム吸収抑制のための草地更新技術の実証(田村市). 福島県農業 総合センター研究成果. https://www.pref.fukushima.lg.jp/uploaded/attachment/456174.pdf
- 柳田和弘. (2015b). 除染後農地における飼料用トウモロコシ栽培の実証(浪江町). 福島県農業総合センター研究成果. https://www.pref.fukushima.lg.jp/uploaded/attachment/456176.pdf
- 山田利博,村川功雄,齋藤俊浩,大村和也,高徳佳絵,才木道雄,井口和信,井上淳,齋藤暖生,辻 和明,田野井慶太朗,中西友子. (2013). 福島第一原子力発電所事故に起因する放射性 物質低汚染地域におけるキノコ類への放射性セシウムの蓄積―東京大学演習林にお ける事例―. Radioisotopes, 62, 141-147.
- 米内美晴, 堀野理恵子, 今成麻衣, 柴伸弥, 渡邊彰. (2014). 東京電力福島第一原子力発電所事故後
 に東北農業研究センター内で放牧・肥育し生産した牛肉の放射性物質濃度.東北農業
 研究センター研究報告 = Bulletin of the National Agricultural Research Center for Tohoku
 Region, 116, 83-87.
- 量研機構,原子力発電環境整備機構.(2018-2022). 生活圏評価に係るパラメータ設定のためのデー タ取得 共同研究報告書